

資料

大阪府内の住宅における実生活環境下での化学物質
(HCHO, NO₂, VOC, SVOC) による室内空気汚染吉田俊明¹・松永一朗¹・織田 肇¹・三宅吉博²佐々木敏³・大矢幸弘⁴・宮本正一⁵・廣田良夫⁵

[受付 2006.5.10] [受理 2006.10.6]

Residential Air Pollution by Chemicals(HCHO, NO₂, VOC and SVOC) under Normal Living Conditions in Osaka PrefectureToshiaki YOSHIDA¹, Ichiro MATSUNAGA¹, Hajime ODA¹, Yoshihiro MIYAKE²,
Satoshi SASAKI³, Yukihiro OHYA⁴, Shoichi MIYAMOTO⁵ and Yoshio HIROTA⁵

[Received May 10, 2006] [Accepted October 6, 2006]

要 旨

大阪府内に立地し建築（改築，改装を含む）後半年以上経過した105軒の住宅を対象として化学物質による室内空気汚染の実態を調査した。調査期間は2003年6月～2004年1月であり，各住宅における化学物質の捕集は，普段の生活環境下において24時間行った。捕集された二酸化窒素及びホルムアルデヒドは比色法，揮発性有機化合物（VOC）38種及び準揮発性有機化合物（SVOC）39種はGC/MSにより定量した。二酸化窒素（中央値：35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ），ホルムアルデヒド（31 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ），トルエン（22 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ），酢酸エチル（12 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）の濃度レベルが比較的高く，高濃度の α -ピネン（最高値：1800 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ），*p*-ジクロロベンゼン（1770 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）が検出された住宅もあった。室内濃度が厚生省指針値を超過した物質は*p*-ジクロロベンゼン（10%）のみであった。ホルムアルデヒド及び二酸化窒素濃度は冬季に高かった。SVOCのなかではフタル酸ジ-*n*-ブチル及びフタル酸ジ（2-エチルヘキシル）等の室内濃度レベルが高く，多くのフタル酸及びリン酸エステル類の室内濃度は冬季よりも夏季において高かった。共力剤S-421の室内空気中からの検出頻度は高く，9割の住宅より検出された。これまでに室内空気汚染物質として報告例のないメトキサジアゾンを含む13種の殺菌剤・殺虫剤が室内空気中より検出された。

Abstract

Indoor air pollution by chemicals was examined in 105 residences, for which final construction (including renovations) had been completed at least half a year earlier, in Osaka from June 2003 to January 2004. The airborne compounds were collected for 24 hours under normal living conditions. Collected nitrogen dioxide and formaldehyde were measured using the colorimetric method while 38 volatile organic compounds (VOC) and 39 semivolatile organic compounds (SVOC) were analyzed using gas chromatography/mass spectrometry. The median concentrations of nitrogen dioxide (35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$), formaldehyde (31 $\mu\text{g}/\text{m}^3$), toluene (22 $\mu\text{g}/\text{m}^3$), and ethylacetate (12 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) were relatively high among the compounds studied, and high concentrations of α -pinene (maximum: 1800 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) and *p*-dichlorobenzene (1770 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) were found in several residences. The concentrations of *p*-dichlorobenzene alone exceeded the indoor guideline values of Japan in 10% of the examined residences. The indoor concentrations of formaldehyde and nitrogen dioxide were significantly higher in winter than in summer. The indoor concentrations of di-*n*-butylphthalate and di(2-ethylhexyl)phthalate were high among SVOCs, and the concentrations of many phthalates and phosphates were significantly higher in summer than in winter. S-421, a synergist, was found in indoor air of a high 90% of the residences. Thirteen

- 1 大阪府立公衆衛生研究所 〒537-0025 大阪市東成区中道1-3-69
Osaka Prefectural Institute of Public Health, 1-3-69 Nakamichi, Higashinari-ku, Osaka 537-0025, Japan
- 2 福岡大学医学部 〒814-0180 福岡市城南区七隈7-45-1
Fukuoka University School of Medicine, 7-45-1 Nanakuma, Jonan-ku, Fukuoka 814-0180, Japan
- 3 国立健康・栄養研究所 〒162-8636 東京都新宿区戸山1-23-1
National Institute of Health and Nutrition, 1-23-1 Toyama, Shinjuku-ku, Tokyo 162-8636, Japan
- 4 国立成育医療センター 〒157-8535 東京都世田谷区大蔵2-10-1
National Center for Child Health and Development, 2-10-1 Okura, Setagaya-ku, Tokyo 157-8535, Japan
- 5 大阪市立大学大学院医学研究科 〒545-8585 大阪市阿倍野区旭町1-4-3
Osaka City University Faculty of Medicine, 1-4-3 Asahi-machi, Abeno-ku, Osaka 545-8585, Japan

fungicides and insecticides containing metoxadiazone, which was not known as an indoor air pollutant, were found in the residential air samples.

Key words: formaldehyde, nitrogen dioxide, VOC, SVOC, indoor air pollution, residence.

1. 緒言

室内空気中には多種類の化学物質が存在し、それらへの曝露が「シックハウス症候群」や「化学物質過敏症」を引き起こすことが知られている^{1,2)}。したがって、室内空気中の有害化学物質濃度の低減化は、生活衛生上非常に重要な課題である。世界保健機関 (WHO)³⁾ は、室内空気中の有機化合物をその沸点の違いにより、高揮発性有機化合物 (VVOC, 沸点 50-100℃ 以下)、揮発性有機化合物 (VOC, 沸点 50-100℃ ~ 240-260℃)、準揮発性有機化合物 (SVOC, 沸点 240-260℃ ~ 380-400℃) および粒子状有機物 (POM, 沸点 380℃ 以上) に分類している。近年、厚生労働省では、室内において生活衛生上問題となる化学物質を選定し、その濃度指針値及び測定方法の策定を進めてきた。現在、既存の毒性学的知見に基づく 13 物質の室内濃度指針値と室内空気質汚染の目安としての総揮発性有機化合物 (TVOC) 濃度の暫定目標値が設定されている⁴⁻⁷⁾。

住宅は、ヒトが最も長時間過ごす環境の一つであり、その室内空気質はヒトの健康に大きな影響を及ぼす。本国における二酸化窒素、ホルムアルデヒド及び VOC による住宅室内空気汚染に関する調査はこれまでに多くの研究者により行われている。一方、多種類の SVOC を対象とした汚染実態調査は東京都⁸⁻¹⁰⁾ における報告以外には殆ど見当たらず、その住宅内汚染実態は十分把握されていない。SVOC の中には殺虫剤や内分泌攪乱作用を有するフタル酸エステル類も含まれ、VOC よりも強毒性の物質も数多く存在する。したがって、SVOC の汚染実態の早期解明は、生活衛生上重要であると考えられる。

建材からの VOC 放散がほぼ落ち着いた築後 6 ヶ月¹¹⁾ 以上経過した住宅における実生活環境下での化学物質による室内空気汚染の実態を把握することを本研究の目的とし、大阪府内に立地する住宅を対象として 79 種の化学物質の室内空気中濃度を調査したところ、若干の知見が得られたので報告する。本研究は、大阪母子保健コホート研究¹²⁻¹⁴⁾ の一環として行われた調査である。

2. 調査方法

2.1 試薬

ホルムアルデヒド定量のための標準には和光純薬工業製特級ホルムアルデヒド液 (36~38%) を用い、ヨウ素滴定法により標定後使用した。二酸化窒素の定量には和光純薬製特級亜硝酸ナトリウム (純度: 98.5% 以上) を標準物質に使用した。関東化学製 VOCs 混合標準原液を VOC 定量用標準に用いた。SVOC 分析用標準物質は、和光純薬、関東化学、東京化成工業、Aldrich (アメリカ)、Pfaltz & Bauer (アメリカ)、Dr. Ehrenstorfer GmbH (ドイツ) 及び Riedel-de Haen (ドイツ) 製を使用した。メトキサジアゾン はアース製薬より、トリプロピルイソシアヌレート は栄光化成より寄贈された。これらの標準物質の純度はすべて 96% 以上であり、大部分は 99% 以上であった。N-(1-ナフチル)エチレンジアミン二塩酸塩は窒素酸化物測定用、4-アミノ-3-ヒドラジノ-5-メルカプト-1,2,4-トリアゾール (AHMT) はアルデヒド測定用、二硫化炭素は作業環境測定用、アセトン はアセトン 5,000 (残留農薬・PCB 試験用) を用いた (いずれも和光純薬製)。内部標準物質フルオランテン- d_{10} は和光純薬、トルエン- d_8 は Aldrich より供した。他の試薬は全て和光純薬製特級を使用した。

2.2 調査対象住宅及び測定対象化学物質

2003 年 6 月 ~ 2004 年 1 月において、大阪府寝屋川市内に立地する建築後 (改築、改装した場合はその後) 半年以上経過した一般住宅 105 軒を調査対象とした。

二酸化窒素、ホルムアルデヒド、VOC 38 種および SVOC 39 種を測定対象とした (Table 1)。本研究では、下記の Sampler-II 及び Sampler-III により捕集後分析された化合物をそれぞれ VOC、SVOC とし、定量された VOC と SVOC の合計濃度を TVOC 濃度とした。

2.3 室内空气中化学物質の捕集

窓の開閉、換気扇及び冷暖房機等の使用は特に制限せず、日常の生活環境において室内空气中化学物質を24時間捕集した。捕集は、下記の3種のサンプラーを使用し、主に居間または寝室の中央付近にて行った。ホルムアルデヒド及び二酸化窒素は、トリエタノールアミン含浸シリカゲルを充填したPTFE (polytetrafluoroethylene) 製チューブ (柴田科学器械工業製Passive Gas Tube, HCHO・NO₂用) により捕集した [Sampler-I]。VOCは活性炭管チューブ (柴田科学製チャコールチューブJUMBO型) 及び小型吸引ポンプ (柴田科学製MP-Σ100H型ミニポンプ) を用いて流速0.5L/分で捕集した [Sampler-II]。SVOCの捕集は、東京ダイレック製石英濾紙 (2500QAT-UP型, 径47mm, 厚さ約0.64mm) 及び3M製Emporeディスク (C18FF型, 径47mm, 厚さ0.50mm) を捕集材としてそれぞれ前層および後層の2段にセットしたジーエルサイエンス製濾紙ホルダーEMO-47及び小型吸引ポンプ (柴田科学製MP-Σ500型ミニポンプ) を用いて流速2.0L/分により行った [Sampler-III]。石英濾紙は予め400℃で4時間加熱したもの、Emporeディスクは予めアセトン10mlによる10分間の超音波洗浄を5回繰り返したものを使用した。捕集後石英濾紙及びEmporeディスクを取出し、一緒に10ml用共栓付遠沈管に移した。得られた3種の試料は全て分析までの期間冷蔵庫にて遮光下保存した。

空気捕集時の室内温湿度は、温湿度連続測定器 (佐藤計量器製作所製記憶計SK-L200TH) により30分間隔で自動測定し、24時間の平均値を算出した。

家屋の建築・改築・改装後経過年数、家屋の構造及び室内での喫煙の有無に関する情報を、居住者への質問により得た。

2.4 試料の調製及び分析

2.4.1 Sampler-I

ホルムアルデヒド及び二酸化窒素は、使用した捕集材の取扱い説明書に記載された比色法^{15, 16)}により定量した。捕集材から取出したシリカゲルに水15mlを加え、10分間加温 (60℃) し、冷却後振とうしてホルムアルデヒド及び二酸化窒素を抽出した。抽出液を遠心分離 (3000回転×5分) し、その上澄み液をそれぞれの定量に使用した。

ホルムアルデヒド：上澄み液2mlに5N-水酸化

ナトリウム溶液2ml及びAHMTの塩酸溶液 (AHMT 0.5gを0.2N-塩酸100mlに溶解) 2mlを加えて20分間放置後、過ヨウ素酸カリウム溶液 (過ヨウ素酸カリウム0.75gを0.2N-水酸化ナトリウム溶液100mlに溶解) 2mlを加え、さらに10分間放置した後、分光光度計 (日立製作所製U-3300型) により550nmにおける吸光度を測定した。ホルムアルデヒド液を2%トリエタノールアミン溶液で希釈したものを標準溶液とした。

二酸化窒素：上澄み液1mlに水4ml及びスルファニルアミド溶液 (スルファニルアミド1gを20%塩酸100mlに溶解) 0.5mlを加えて15分間放置後、ナフチルエチレンジアミン溶液 (N-(1-ナフチル)エチレンジアミン二塩酸塩0.1gを水100mlに溶解) 0.5mlを加え、さらに30分間放置した後、同分光光度計により537nmにおける吸光度を測定した。正確に秤量した亜硝酸ナトリウム0.7509gを水500mlに溶解した液から1mlを分取し、2%トリエタノールアミン溶液を加えて50mlとしたものを標準溶液とした。

2.4.2 Sampler-II

捕集されたVOCは、内部標準物質トルエン-*d*₈を含む二硫化炭素 (0.0943μg/ml) 2mlを加えて30分間攪拌して活性炭から脱着した後、既報¹⁷⁾に従いガスクロマトグラフィー/質量分析 (GC/MS) により定量した。

2.4.3 Sampler-III

捕集されたSVOCは、既法¹⁸⁾に従いGC/MSにより分析した。石英濾紙及びEmporeディスクの入った遠沈管にアセトン8mlを加えて15分間超音波抽出を行い、さらに10分間振とう後、遠心分離 (2000回転×10分) し、上澄み液5mlを褐色濃縮管に分取した。内部標準溶液 (0.1mg/mlフルオランテン-*d*₁₀のアセトン溶液) 3.0μlを加えた後、ジーエルサイエンス製多検体高速濃縮装置ソルドライSD905 (窒素流量150ml/分/本, 30℃) を用いて0.3mlに濃縮した溶液をGC/MSにより分析した。

キシレンは*m/p*-キシレン及び*o*-キシレンを別々に分析し、その合計を定量値とした。リン酸トリクレジル及びペルメトリンについては、それぞれ異性体中最大ピークを示す成分のピーク面積値より定量した。室内における各化学物質濃度は、空気捕集中

24時間の平均値として算出した。

2.5 統計学的解析

調査結果の統計学的解析にはStatSoft 製STATISTICA ver.5.1J を内蔵したソニー製VAIO PCV-J12M 型パーソナルコンピュータを使用した。各化学物質濃度の度数分布は正規型よりも対数正規型に近似できたため、各化学物質濃度の対数変換値を解析に使用した。定量下限値未満のデータについては、定量下限値の1/2の値を代入して解析を行った。

室内空气中化学物質濃度におよぼす季節、家屋建築後年数、家屋構造及び室内喫煙の影響について解析した。測定季節は、6～9月を夏季、10～11月を秋季、12月～1月を冬季とした。新築後改築または改装が行われた家屋では、改築・改装後の経過年数を建築後年数（小数点以下四捨五入）とした。家屋構造に関しては、建材により木造と鉄骨（鉄筋も含む）に二分した。室内喫煙に関しては、家族の誰かが室内で日常より喫煙する家屋を「喫煙あり」とした。「室内温度」、「室内湿度」及び「建築後年数」は統計分析において連続変数として得られた。79種の各化学物質およびTVOC（80種）について、それぞれ別々に解析した。まず、各物質についての共分散分析において共変量とする因子（室内温度、室内湿度、建築後年数）の有意性を重回帰分析により解析した。これら3因子を独立変数、室内空气中化学物質濃度（ $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、対数変換値）を従属変数として、両者の関連性を各物質ごとに解析した（ $n=105$ ）。つぎに、この重回帰分析において関連性の認められた（ $p<0.05$ ）因子を共変量（連続変数）とし、「季節（夏季・秋季・冬季）」、「建築後年数（1-2年・3-4年・5年以上）」、「家屋構造（木造・鉄骨）」、「室内喫煙（なし・あり）」をそれぞれ別々に独立変数（カテゴリカル変数）として、各水準における各物質濃度（従属変数）の差異を共分散分析（多重比較：Spjotvoll&Stoline 検定¹⁹⁾（補正テューキー法）により各物質ごとに解析した。ただし、「建築後年数（カテゴリカル変数）」の各物質濃度に及ぼす影響を解析する際には、「建築後年数（連続変数）」を共変量より除いた。各水準内の濃度分布の正規性をカイ二乗検定により、水準間の分散の同質性を単変量検定によりそれぞれ検定し、行った共分散分析の正当性を評価した。

3. 結果

3.1 調査対象住宅の仕様および環境

本調査において対象とした105軒の住宅の内訳は以下の通りであった。調査季節別では夏季56軒、秋季24軒、冬季25軒、建築後経過年数別では1～2年22軒、3～4年24軒、5年以上59軒、家屋構造別では木造47軒、鉄骨58軒、室内喫煙の有無では無し45軒、有り60軒。家屋平均建築後年数は8.9年（範囲：1～46年、中央値：5年）であり、調査季節別では夏季9.7年、秋季7.0年、冬季8.8年、建築後経過年数別では1～2年が1.7年、3～4年が3.4年、5年以上が13.8年、家屋構造別では木造8.7年、鉄骨9.1年、室内喫煙の有無では無し8.0年、有り9.6年であった。調査季節、家屋構造および室内喫煙の各カテゴリー間に有意な建築後年数の差はなかった。調査時の住宅室内平均温湿度は $24.6^{\circ}\text{C} \cdot 48\%$ （範囲： $13.6 \sim 32.7^{\circ}\text{C} \cdot 31 \sim 71\%$ ）であり、調査季節別では夏季 $28.7^{\circ}\text{C} \cdot 51\%$ 、秋季 $21.7^{\circ}\text{C} \cdot 48\%$ 、冬季 $18.1^{\circ}\text{C} \cdot 43\%$ （温度：各季節間に有意差あり、湿度：夏冬間に有意差あり）、建築後経過年数別では1～2年 $24.5^{\circ}\text{C} \cdot 47\%$ 、3～4年 $24.2^{\circ}\text{C} \cdot 49\%$ 、5年以上 $24.7^{\circ}\text{C} \cdot 48\%$ （ともに有意差なし）、家屋構造別では木造 $23.9^{\circ}\text{C} \cdot 48\%$ 、鉄骨 $25.2^{\circ}\text{C} \cdot 48\%$ （ともに有意差なし）、喫煙の有無では無し $24.8^{\circ}\text{C} \cdot 48\%$ 、有り $24.4^{\circ}\text{C} \cdot 49\%$ （ともに有意差なし）であった。また、調査季節および建築後経過年数の各カテゴリー間において、いずれも木造/鉄骨の割合、喫煙/非喫煙の割合に有意差は検出されず、家屋構造と喫煙の有無の間にも関連性は認められなかった（カイ二乗検定）。

3.2 室内空气中化学物質濃度

建築後半年以上経過する105軒の住宅を対象として、通常の生活環境において79種の室内空气中化学物質を分析した結果を化合物類別にしてTable 1に示した。二酸化窒素、ホルムアルデヒド、VOC、アジピン酸エステルおよび共力剤2, 3, 3, 3, 2', 3', 3', 3'-オクタクロロジプロピルエーテル（S-421）の検出頻度は高く（88%以上）、大部分の住宅から検出された。一方、フタル酸及びリン酸エステル類では、フタル酸ジメチル、フタル酸ジエチル、フタル酸ジイソブチル、フタル酸ジ-*n*-ブチル、フタル酸ベンジルブチル、フタル酸ジ(2-エチルヘキシル)、リン酸トリエチル、リン酸トリブチルおよびリン酸ト

リフェニル以外の物質の検出頻度は低かった (60%以下)。また、殺虫剤および殺菌剤の検出頻度はいずれも低く (30%以下)、トリプロピルイソシアヌレート、クロルピリホスメチル、テトラクロルビンホス、フェノキシカルブ、エトフェンプロックスおよびシラフルオフェンはいずれの住宅からも検出されなかった。

二酸化窒素 (中央値: $35\mu\text{g}/\text{m}^3$)、ホルムアルデヒド ($31\mu\text{g}/\text{m}^3$)、トルエン ($22\mu\text{g}/\text{m}^3$)、酢酸エチル ($12\mu\text{g}/\text{m}^3$) などの室内濃度中央値が高く、また、高濃度の二酸化窒素 (最高値: $561\mu\text{g}/\text{m}^3$)、トリデカン ($611\mu\text{g}/\text{m}^3$)、 α -ピネン ($1800\mu\text{g}/\text{m}^3$)、*p*-ジクロロベンゼン ($1770\mu\text{g}/\text{m}^3$) が検出された住宅もあった。フタル酸エステル類ではフタル酸ジメチル (中央値: $51\text{ng}/\text{m}^3$)、フタル酸ジエチル ($65\text{ng}/\text{m}^3$)、フタル酸ジイソブチル ($60\text{ng}/\text{m}^3$)、フタル酸ジ-*n*-ブチル ($561\text{ng}/\text{m}^3$)、フタル酸ジ(2-エチルヘキシル) ($283\text{ng}/\text{m}^3$)、リン酸エステル類ではリン酸トリエチル ($11\text{ng}/\text{m}^3$) の濃度が比較的高かった。殺虫剤の中では、ジクロルボス、フェノブカルブ、メトキサジアゾン、カルバリル、クロルピリホス、ペルメトリンの検出頻度が比較的高く (8~29%)、それらの最高濃度は数 ng/m^3 ~数百 ng/m^3 のレベルであった。TVOC 濃度の中央値は $179\mu\text{g}/\text{m}^3$ (範囲: $49\mu\text{g}/\text{m}^3$ ~ $2310\mu\text{g}/\text{m}^3$) であり、その化合物類別の合計濃度 (中央値) は以下の通りであった。脂肪族炭化水素: $25\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、芳香族炭化水素: $46\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、テルペン: $19\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、ハロゲン化物: $12\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、エステル: $15\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、カルボニル化合物: $13\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、その他: $4\mu\text{g}/\text{m}^3$ 。

3.3 統計学的解析

各化学物質79種およびTVOCの住宅室内濃度に及ぼす季節、家屋建築後年数、家屋構造及び室内喫煙の影響を共分散分析により解析し、各因子の各水準間において有意な ($p < 0.05$) 濃度差が検出された化合物のうち、各水準内の濃度分布の正規性および水準間の分散の同質性を検定して同分析の正当性が認められたものをTable 2に示した。

季節: ホルムアルデヒド、二酸化窒素、脂肪族炭化水素類 (C6~C7)、芳香族炭化水素類 (ベンゼン、スチレン)、リモネン及びハロゲン化物 (クロロホルム、四塩化炭素、クロロジプロモメタン) の冬季における室内濃度は夏季における濃度よりも高かつ

た。また、これらの中には、秋季と冬季 (秋季<冬季)、夏季と秋季 (夏季<秋季) においても濃度差が認められるものもあった。一方、複数のフタル酸エステル類およびリン酸エステル類、アジピン酸 (2-エチルヘキシル)、S-421の室内濃度は冬季よりも夏季において高く、秋季と冬季 (秋季>冬季)、夏季と秋季 (夏季>秋季) にも濃度差が認められるものがあった。

建築後年数: 建築 (改築・改装を含む) 後1~2年の住宅では、建築後3年以上経過した住宅に比較して α -ピネンの室内濃度が高かった。また、建築後1~2年の住宅における酢酸ブチルの室内濃度は、建築後5年以上の住宅よりも高かった。一方、建築後年数の短い住宅に比較して建築後年数の長い住宅において、室内濃度が高い物質は検出されなかった。家屋構造: 複数の直鎖脂肪族炭化水素類 (C9~C12) 及び芳香族炭化水素類 (トリメチルベンゼン類、1,2,4,5-テトラメチルベンゼン (C9~C10))、 α -ピネン及びTVOCの室内濃度が、鉄骨住宅よりも木造住宅において高かった。一方、フタル酸ジ(2-エチルヘキシル) 濃度は鉄骨住宅で高かった。

室内喫煙: オクタン、ウンデカン、ベンゼン、スチレン及びリモネンの濃度が、室内での喫煙のある住宅において高かった。室内喫煙のない住宅の方が高濃度となる化学物質は認められなかった。

3.4 厚生労働省室内濃度指針値等との比較

現在厚生労働省において以下の通り13種の化学物質の室内濃度指針値及びTVOCの目標値が設定されている⁴⁻⁷⁾。ホルムアルデヒド $100\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、アセトアルデヒド $48\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、トルエン $260\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、キシレン $870\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、エチルベンゼン $3800\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、スチレン $220\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、*p*-ジクロロベンゼン $240\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、テトラデカン $330\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、クロルピリホス $1\mu\text{g}/\text{m}^3$ (小児: $0.1\mu\text{g}/\text{m}^3$)、ダイアジノン $0.29\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、フェノブカルブ $33\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、フタル酸ジ-*n*-ブチル $220\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、フタル酸ジ(2-エチルヘキシル) $120\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、TVOC $400\mu\text{g}/\text{m}^3$ (暫定値)。105軒の住宅における調査結果をこれらと比較したところ、10軒 (10%) における*p*-ジクロロベンゼン室内濃度が指針値を上回った。他の11物質 (アセトアルデヒドは未測定) の濃度はいずれも、全ての住宅において指針値以下であった。TVOC濃度が目標値を超過した住宅は20軒 (19%) であり、これらの住宅においてTVOC

Table 1 Indoor concentrations of chemicals in residential air (n = 105)

Chemicals	Concentration ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)						Frequency of detection (%)
	Median	Range					
Nitrogen dioxide	35	(	15	-	561	)	100
Formaldehyde	31	(	5	-	91	)	100
VOCs & SVOCs							
Aliphatic hydrocarbons							
Hexane	2.53	(	0.79	-	77.4	)	100
2,4-Dimethylpentane	0.31	(	0.11	-	9.42	)	100
2,2,4-Trimethylpentane	0.47	(	0.16	-	31.4	)	100
Heptane	2.20	(	0.49	-	194	)	100
Octane	1.14	(	0.21	-	185	)	100
Nonane	1.93	(	0.04	-	336	)	100
Decane	2.78	(	0.36	-	217	)	100
Undecane	1.90	(	0.57	-	131	)	100
Dodecane	1.65	(	0.07	-	175	)	100
Tridecane	1.80	(	0.11	-	611	)	100
Tetradecane	2.69	(	< 0.01	-	260	)	99
Total	25.1	(	6.74	-	1230	)	100
Aromatic Hydrocarbons							
Benzene	1.70	(	0.61	-	28.8	)	100
Toluene	22.3	(	7.02	-	145	)	100
Ethylbenzene	4.68	(	1.12	-	49.7	)	100
Xylene	7.71	(	2.36	-	166	)	100
Styrene	0.11	(	< 0.01	-	21.9	)	88
1,3,5-Trimethylbenzene	1.05	(	0.18	-	25.0	)	100
1,2,4-Trimethylbenzene	2.53	(	0.83	-	69.1	)	100
1,2,3-Trimethylbenzene	0.53	(	0.08	-	22.5	)	100
1,2,4,5-Tetramethylbenzene	0.21	(	0.03	-	3.16	)	100
Total	45.9	(	13.0	-	510	)	100
Terpenes							
α -pinene	4.38	(	0.29	-	1800	)	100
Limonene	9.24	(	0.23	-	189	)	100
Total	19.1	(	0.68	-	1880	)	100
Halocarbons							
Chloroform	0.35	(	0.11	-	2.47	)	100
1,2-Dichloroethane	0.08	(	0.03	-	1.31	)	100
1,1,1-Trichloroethane	0.20	(	0.11	-	0.98	)	100
Carbon Tetrachloride	0.69	(	0.49	-	0.96	)	100
1,2-Dichloropropane	0.04	(	< 0.02	-	0.34	)	95
Trichloroethylene	0.99	(	0.10	-	9.36	)	100
Chlorodibromomethane	0.16	(	< 0.04	-	0.69	)	89
Tetrachloroethylene	0.79	(	0.15	-	25.0	)	100
p-Dichlorobenzene	7.42	(	0.67	-	1770	)	100
Total	11.8	(	3.74	-	1770	)	100
Esters ^{a)}							
Ethylacetate	11.7	(	1.86	-	113	)	100
Butylacetate	2.69	(	0.46	-	24.4	)	100
Total	14.7	(	2.66	-	130	)	100
Carbonyl compounds							
Methylethylketone	3.65	(	0.76	-	12.8	)	100
Methylisobutylketone	0.70	(	0.17	-	10.2	)	100
1-Nonanal	5.94	(	< 0.02	-	117	)	99
1-Decanal	1.79	(	< 0.02	-	20.5	)	90
Total	12.7	(	1.83	-	125	)	100

Table 1 Indoor concentrations of chemicals in residential air (cont.)

Chemicals	Concentration (μg/m ³)				Frequency of detection (%)
	Median	Range			
Other					
Alcohols					
1-Butanol	2.37	(	0.39	- 81.2)	100
Adipates ^{b)}					
Di(2-ethylhexyl) adipate	0.008	(	< 0.001	- 0.100)	98
Phthalates ^{b)}					
Dimethylphthalate	0.051	(	0.003	- 1.12)	100
Diethylphthalate	0.065	(	< 0.002	- 0.781)	99
Di-n-propylphthalate	< 0.001	(	< 0.001	- 0.112)	18
Diisobutylphthalate	0.060	(	< 0.001	- 0.768)	99
Di-n-butylphthalate	0.561	(	0.011	- 4.92)	100
Di-n-pentylphthalate	< 0.001	(	< 0.001	- 0.002)	1
Benzylbutylphthalate	0.002	(	< 0.001	- 0.043)	81
Di-n-hexylphthalate	< 0.001	(	< 0.001	- 0.003)	4
Dicyclohexylphthalate	< 0.001	(	< 0.001	- 0.002)	4
Di-n-heptylphthalate	< 0.001	(	< 0.001	- 0.005)	14
Di(2-ethylhexyl) phthalate	0.283	(	< 0.003	- 1.29)	99
Phosphates ^{b)}					
Triethylphosphate	0.011	(	< 0.002	- 0.200)	89
Tripropylphosphate	< 0.001	(	< 0.001	- 0.021)	5
Tributylphosphate	0.0060	(	< 0.0003	- 0.104)	99
Tris(2-chloroethyl) phosphate	0.001	(	< 0.001	- 0.273)	56
Tris(1,3-dichloro-2-propyl) phosphate	< 0.001	(	< 0.001	- 0.008)	16
Triphenylphosphate	0.002	(	< 0.001	- 0.011)	73
Tricresylphosphate	< 0.0003	(	< 0.0003	- 0.004)	25
Fungicides ^{b)}					
Chlorothalonil	< 0.001	(	< 0.001	- 0.024)	3
Synergists ^{b)}					
2,3,3,3,2',3',3',3'-Octachlorodipropylether	0.002	(	< 0.001	- 0.069)	90
Insecticides ^{b)}					
Dichlorvos	< 0.001	(	< 0.001	- 0.027)	12
Fenobucarb	< 0.001	(	< 0.001	- 0.010)	29
Propoxur	< 0.001	(	< 0.001	- 0.007)	2
Tripropylisocyanurate	< 0.001	(	< 0.001	- < 0.001)	0
Metoxadiazone	< 0.002	(	< 0.002	- 0.274)	19
Diazinon	< 0.001	(	< 0.001	- 0.014)	3
Dichlofenthion	< 0.001	(	< 0.001	- 0.004)	2
Chlorpyrifosmethyl	< 0.001	(	< 0.001	- < 0.001)	0
Carbaryl	< 0.001	(	< 0.001	- 0.012)	16
Malathion	< 0.001	(	< 0.001	- 0.003)	3
Chlorpyrifos	< 0.001	(	< 0.001	- 0.010)	8
Tetrachlorvinphos	< 0.001	(	< 0.001	- < 0.001)	0
Fenoxycarb	< 0.0003	(	< 0.0003	- < 0.0003)	0
Bifenthrin	< 0.001	(	< 0.001	- 0.001)	1
Pyriproxyfen	< 0.001	(	< 0.001	- 0.001)	1
Permethrin	< 0.001	(	< 0.001	- 0.005)	26
Ethofenprox	< 0.001	(	< 0.001	- < 0.001)	0
Silafluofen	< 0.001	(	< 0.001	- < 0.001)	0
Total	3.72	(	1.02	- 84.8)	100
TVOC	179	(	49.4	- 2310)	100

^{a)} : Esters except for adipates, phthalates and phosphates.^{b)} : These are SVOCs

Table 2 Influence of season, years lapsed after completion of the residences, building style, and smoking on indoor concentrations of chemicals

Season	Concentration (geometric mean, $\mu\text{g}/\text{m}^3$)			Significant difference ^{a)}
	Summer (I) (n = 56)	Autumn (II) (n = 24)	Winter (III) (n = 25)	
Room temperature ($^{\circ}\text{C}$)	28.7	21.7	18.1	I > II***, I > III***, II > III***
Years lapsed after completion of the residences	9.7	7.0	8.8	No significant difference
Rates of smoking (%)	55	67	52	No significant difference
Rates of wooden houses (%)	41	50	48	No significant difference
Formaldehyde	24	34	37	I < III *
Nitrogen dioxide	32	41	117	I < III***, II < III***
Hexane	2.38	2.72	4.13	I < III *
2,4-Dimethylpentane	0.27	0.34	0.46	I < III *
Heptane	2.35	3.95	6.07	I < III *
Benzene	1.38	1.79	2.77	I < III***, II < III**
Styrene	0.06	0.19	0.46	I < III**
Limonene	5.14	13.6	16.2	I < II*, I < III**
Chloroform	0.31	0.48	0.51	I < III *
Carbon tetrachloride	0.64	0.71	0.73	I < II**, I < III***
Chlorodibromomethane	0.09	0.23	0.22	I < II***, I < III**
Di(2-ethylhexyl) adipate	0.012	0.008	0.004	I > III***, II > III**
Dimethylphthalate	0.075	0.037	0.030	I > II*, I > III**
Diethylphthalate	0.089	0.054	0.028	I > III***, II > III*
Diisobutylphthalate	0.087	0.042	0.029	I > II*, I > III***
Di-n-butylphthalate	0.987	0.464	0.248	I > II**, I > III***, II > III*
Benzylbutylphthalate	0.003	0.002	0.001	I > III***, II > III*
Di(2-ethylhexyl) phthalate	0.310	0.271	0.151	I > III *
Tributylphosphate	0.009	0.007	0.003	I > III***, II > III*
Triphenylphosphate	0.003	0.001	0.001	I > II*, I > III***
2,3,3,3,2',3',3',3'-Octachlorodipropylether	0.003	0.002	0.001	I > III**
Years lapsed after completion	1 - 2 y (I) (n = 22)	3 - 4 y (II) (n = 24)	5 y < (III) (n = 59)	
Room temperature ($^{\circ}\text{C}$)	24.5	24.2	24.7	No significant difference
Years lapsed after completion of the residences	1.7	3.4	13.8	I < II***, I < III***, II < III***
Rates of smoking (%)	41	67	59	No significant difference
Rates of wooden houses (%)	64	37	41	No significant difference
α -Pinene	31.0	5.64	2.64	I > II***, I > III***
Butylacetate	4.61	2.96	2.13	I > III**
Building style	Wooden (I) (n = 47)	Steel (II) (n = 58)		
Room temperature ($^{\circ}\text{C}$)	23.9	25.2		No significant difference
Years lapsed after completion of the residences	8.7	9.1		No significant difference
Rates of smoking (%)	51	62		No significant difference
Nonane	3.23	1.80		I > II*
Decane	4.87	2.43		I > II**
Undecane	3.71	1.95		I > II**
Dodecane	2.83	1.54		I > II**
1,3,5-Trimethylbenzene	1.50	1.01		I > II**
1,2,4-Trimethylbenzene	3.82	2.39		I > II**
1,2,3-Trimethylbenzene	0.89	0.52		I > II**
1,2,4,5-Tetramethylbenzene	0.27	0.16		I > II**
α -Pinene	11.6	2.76		I > II***
Di (2-ethylhexyl) phthalate	0.179	0.336		I < II***
TVOC	267	181		I > II*
Smoking	No (I) (n = 45)	Yes (II) (n = 60)		
Room temperature ($^{\circ}\text{C}$)	24.8	24.4		No significant difference
Years lapsed after completion of the residences	8.0	9.6		No significant difference
Rates of wooden houses (%)	51	40		No significant difference
Octane	1.11	2.21		I < II*
Undecane	2.00	3.16		I < II*
Benzene	1.51	1.91		I < II*
Styrene	0.08	0.19		I < II*
Limonene	5.83	11.1		I < II*

a) : *, $p < 0.05$; **, $p < 0.01$; ***, $p < 0.001$

The ratios of neither wooden houses (building style) nor smoking were significantly different among each category of season and years lapsed after completion using the chi-square test. Similarly, no significant relation was detected between building style and smoking.

濃度に占める濃度の割合が高い物質 ($100\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上) は p -ジクロロベンゼン (11軒), α -ピネン (5), リモネン (1), 酢酸エチル (2), 1-ノナール (1), ヘプタン (1), オクタン (1), ノナン (1), デカン (2), ウンデカン (2), ドデカン (1), トリデカン (1), テトラデカン (2), トルエン (1), キシレン (1)であった。二酸化窒素濃度については室内濃度指針値が存在しないため, その環境基準 (0.06ppm : 約 $115\mu\text{g}/\text{m}^3$)²⁰⁾と比較したところ, 13軒の室内濃度が基準を超えた。

4. 考察

建材や家具のほかに喫煙^{21, 22)}や暖房器具²³⁾が室内におけるホルムアルデヒドの発生源として知られている。建材からのホルムアルデヒド放散量は室温の上昇とともに増加²⁴⁾するため, 冬季よりも夏季においてその放散は著しい。大貫らは平成12年度²⁵⁾及び13年度²⁶⁾において東京都内の住宅を対象として室内空気中化学物質を調査し, ホルムアルデヒド濃度は冬季よりも夏季において高い (有意差なし) という結果を得ている。しかし, 今回の調査結果では, 通常暖房器具を使用して換気量が一般に少ない冬季²⁷⁾において室内ホルムアルデヒド濃度が高かった。大貫らの調査には竣工後間もない住宅も含まれており対象住宅の平均建築後年数が短いこと, また, 12年度の調査では対象住宅の平均建築後年数に夏季 (2.5年) と冬季 (5.9年) で差があることなどが, 本調査結果との相違の一要因であると考えられる。2002年7月に建築基準法が改正 (2003年7月施行) され, ホルムアルデヒドの建材への使用が制限されることとなった。今回の対象住宅はすべて同法施行前に建築された家屋であり, 法改正による効果の検証が今後必要であると考えられる。

二酸化窒素の室内濃度も夏季より冬季において高かった。室内濃度がその環境基準²⁰⁾を超えた13軒の住宅のうち11軒は冬季に調査した家屋であった。また, 冬季に調査した住宅の44%における二酸化窒素室内濃度が環境基準を超えていた。石油ストーブやガスコンロ等の燃焼器具が室内二酸化窒素の主要な発生源であり^{28, 29)}, 暖房器具を一般に使用する機会が多い冬季において室内濃度が高くなったものと推察される。二酸化窒素は呼吸器性疾患との関連性が報告されている物質であり^{30, 31)}, 室内においてもガイドラインの策定が必要な室内空気汚染物質の

一つであると考えられる。

VOCを化合物類別に比較した際, TVOC濃度に占める芳香族および脂肪族炭化水素類濃度の割合が高く, 一般的にこれらの化合物類が室内空気質に大きく関与していると考えられる。直鎖脂肪族炭化水素類 (C9~C12) 及び芳香族炭化水素類 (C9~C10) の室内濃度は鉄骨住宅よりも木造住宅において高く, TVOC濃度も木造住宅において高かった。石油ストーブはこれら炭化水素類の発生源となることが知られている^{32, 33)}。しかし, 本調査結果では, 石油ストーブ等暖房器具が一般に使用される冬季とそれ以外の季節との間においてこれら化合物濃度の差異は認められなかった。さらに, 木造住宅と鉄骨住宅におけるこれらの室内濃度差は, 冬季ではなく夏季に調査した住宅において認められた。したがって, 室内には石油ストーブ以外の住宅構造に関連するこれらの発生源が存在する可能性が高く, その要因についてさらに検討の必要がある。

オクタン, ウンデカン, ベンゼン, スチレン及びリモネンの室内濃度は喫煙のある住宅において高かった。アメリカの住宅を対象とした調査でも, 喫煙のある住宅室内では喫煙の無い室内に比較してベンゼン, オクタン, スチレン, キシレン, エチルベンゼン等の濃度が高いことが報告されている^{34, 35)}。また, リモネン及びこれら炭化水素類はいずれもタバコ煙中に含まれていることが知られている^{36, 37)}。これらの報告はいずれも今回の調査結果を支持するものであり, 喫煙がこれら化合物による室内空気汚染の一要因として寄与している可能性が高いと考えられる。

測定値と室内濃度指針値との比較において10%の住宅室内濃度が指針値を超過した p -ジクロロベンゼンは, 室内空気汚染に関与する化学物質としてこれまでもよく知られており³⁸⁻⁴⁰⁾, その主要な発生源はトイレ用防臭剤および衣料用防虫剤である。 p -ジクロロベンゼンはマウス及び雄ラットに対して発ガン性を有し⁴¹⁾, 国際ガン研究機関 (IARC) においてグループ2B (ヒトに対する発ガンの可能性あり) に分類されている⁴²⁾。また, ヒトへの曝露影響としてアレルギー性紫斑病が報告されている⁴³⁾。 p -ジクロロベンゼン及びその代謝物は, 職業的曝露のない一般人の血液^{44, 45)}, 脂肪組織^{44, 46)}, 母乳⁴⁶⁾, 尿⁴⁷⁾等からも検出されており, p -ジクロロベンゼンの遍在的な体内汚染が窺われる。本調査において

最も高濃度の*p*-ジクロロベンゼンが検出された住宅における汚染濃度レベル ($1770\mu\text{g}/\text{m}^3$) は指針値の7倍以上であり、以前我々が行ったヒトへの*p*-ジクロロベンゼン曝露実験結果⁴⁸⁾より概算すると、この住宅居住者(24時間室内で過ごすとして)は毎日約80mgの*p*-ジクロロベンゼンを経気道的に吸収していると推定される。ドイツにおいては以前より*p*-ジクロロベンゼンのトイレ用防臭剤としての使用が禁止されている。今回の調査において*p*-ジクロロベンゼン濃度のみ厚生労働省の定めた指針値を超過しており、超過する住宅は1割に達した。したがって、我国においても*p*-ジクロロベンゼンの室内での取扱いに際し、何らかの規制が必要であると考えられる。

TVOC室内濃度が厚生労働省目標値を超過した住宅20軒において、その室内空気汚染への寄与が大きい物質として α -ピネンが*p*-ジクロロベンゼンについて多く、20軒中5軒の住宅における α -ピネン濃度が $100\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上であった。この5軒のうち4軒はいずれも建築後1年の木造住宅であった。 α -ピネン室内濃度は建築後3年以上の住宅よりも建築後2年以下の住宅において高く、また、鉄骨住宅よりも木造住宅において高かった。したがって、 α -ピネンはラッカー、ペイント、ワニス等の溶剤として使用されるテレピン油の主成分でもある⁴⁹⁾が、建築木材が住宅室内におけるその発生源として寄与している割合が高いと考えられる。動物実験により α -ピネンは上気道に持続性の感覚刺激作用を有することが知られている⁵⁰⁾。 α -ピネンは天然成分であることもあり現在指針値対象物質になっていないが、室内空気汚染に関わる主要因となる場合もあり、特に化学物質過敏症患者等に対しては注意を要する物質であると考えられる。

SVOCに属するエステル類(以下SVOCエステル類: アジピン酸, フタル酸及びリン酸エステル)の検出頻度および室内濃度レベルを、斎藤らの東京都内住宅における調査結果⁸⁻¹⁰⁾と比較すると、フタル酸ジシクロヘキシルは東京、リン酸トリクレジルは我々の調査においてそれぞれ検出頻度が高く、フタル酸ジイソブチルは我々の調査において室内濃度レベルが若干高かったが、全体的には概ね一致する結果であった。本調査において、検出頻度が高い(70%以上)SVOCエステル類(リン酸トリエチルを除く)の室内濃度はすべて夏季において高かった。これら

の物質はいずれも可塑剤として使用される^{49,51)}ため、樹脂やプラスチックがその発生源の一つとして推定される。斎藤らの調査においても同様に、これらエステル類の室内濃度は冬季よりも夏季に高く、複数のフタル酸エステル類室内濃度の間に相関性があることが報告されている。テレビやパソコンのプラスチック表面より、複数のこれらエステル類が検出されており⁵²⁾、今回の調査においても家庭電化製品がこれらエステル類の共通発生源の一つであると推測される。

S-421は、有機リン系やピレスロイド系殺虫剤の効力を増強させる目的で基剤に混合して使用される有機塩素系の共力剤であり、住宅内では主にシロアリ防除剤、電気掃除機ゴミパックフィルター、カーペットなどに使用されており、これらが主要な発生源となる可能性が高い。調査した住宅の9割の室内空気中よりS-421が検出され、その検出頻度は高かった。S-421の室内濃度は夏季において高く、シロアリ防除処理を行った家屋の室内空気中S-421を測定したYoshidaら⁵³⁾、桂ら⁵⁴⁾と同様の結果が得られた。S-421は魚介類⁵⁵⁾、水質、底質、雨水⁵⁶⁾、屋外空気⁵⁷⁾中からも検出されており、その汚染は高範囲に広がっている。S-421は、母乳等から検出される⁵⁸⁾ことから体内蓄積性が高く、変異原性を有することが知られている⁵⁹⁾。S-421は、その毒性、蓄積性および汚染の遍在性等から室内空気汚染物質として着目すべき物質の一つであると考えられる。

住宅室内より13種の殺虫剤・殺菌剤が検出され、ジクロロボス、フェノブカルブ、メトキサジアゾン、カルバリル、クロルピリホス、ペルメトリンの検出頻度が比較的高かった。フェノブカルブ、カルバリル、クロルピリホス、ペルメトリンは一般的な殺虫剤としての使用の他シロアリ防除剤としての使用も多い。クロルピリホスは建築基準法の改正(2002年)により建材への使用が禁止されたため、今後室内空気中からの検出頻度は低減するものと予想される。ジクロロボスはハエ、カ及びゴキブリ駆除用のエアゾール剤や燻煙剤のほかペットのノミ取り用首輪にも使用される⁶⁰⁾。斎藤ら^{8,9)}は、平成12年~13年度に行った東京都に立地する合計87軒の住宅の調査において、ジクロロボス、ダイアジノン、クロルピリホス、フェノブカルブ、ペルメトリン等を複数の住宅室内より検出している。これらのうち、ジクロロボスを除く4物質の検出頻度および濃度レベルは

我々の調査結果とほぼ同様である。しかし、ジクロロボスについては、我々よりも検出率が高い(65%)。斎藤らはその分析に高感度の炎光光度検出器(FPD)を使用しており、検出下限濃度の違いがその要因の一つであると考えられる。殺虫剤・殺菌剤の中で最高濃度(274ng/m³)が検出されたメトキサジアゾンは、アセチルコリンエステラーゼ阻害作用を有するオキサジアゾール系殺虫剤であり、主にゴキブリ駆除を目的として使用される⁶⁰⁾。その室内空気汚染実態は全く知られておらず、その毒性に関する研究も非常に限られている⁶¹⁻⁶³⁾。約2割の住宅よりメトキサジアゾンが検出されており、殺虫剤の中では検出頻度が高い。メトキサジアゾンは室内汚染に寄与する殺虫剤成分として今後着目すべき化学物質の一つと考えられる。

5. まとめ

大阪府内に立地し建築後半年以上経過した105軒の住宅を対象として通常の生活環境下において79種の化学物質(二酸化窒素, ホルムアルデヒド, VOC, SVOC)による室内空気汚染の実態を調査し、以下の結論を得た。

1. 二酸化窒素, ホルムアルデヒド, トルエン, 酢酸エチルの室内濃度中央値が比較的高く、また、高濃度の α -ピネン, *p*-ジクロロベンゼンが検出される住宅もあった。
2. 10%の住宅における*p*-ジクロロベンゼン室内濃度が厚生労働省指針値を超過し、19%の住宅におけるTVOC濃度が同目標値を上回った。
3. ホルムアルデヒド及び二酸化窒素の濃度は夏季よりも冬季において高かった。
4. 複数の脂肪族及び芳香族炭化水素類の濃度は鉄骨住宅よりも木造住宅において高く、家屋の構造に関連するこれら化合物の共通発生源の存在が推察された。
5. 室内での喫煙のある住宅では、喫煙の無い住宅に比較して、オクタン, ウンデカン, ベンゼン, スチレン, リモネンの濃度が高かった。
6. α -ピネン室内濃度は、鉄骨住宅よりも木造住宅、建築後3年以上の住宅よりも2年未満の住宅において高かった。建築木材が α -ピネンの主要な発生源であることが示唆された。
7. SVOC エステル類のなかではフタル酸ジ-*n*-ブチル及びフタル酸ジ(2-エチルヘキシル)等の室内濃度レベルが高く、多くのSVOC エステル類の室内濃度は冬季よりも夏季において高かった。
8. 共力剤S421の室内空気中からの検出頻度は高く、9割の住宅より検出された。
9. 13種の殺菌剤・殺虫剤が室内空気中より検出された。最高濃度はメトキサジアゾンが最も高く、その検出頻度も高かった。メトキサジアゾンの室内空気汚染実態は全く知られておらず、今後着目すべきSVOCの一つであると考えられた。

謝 辞

本研究は、平成13~15年度厚生労働科学研究費補助金(がん予防等健康科学総合研究事業)を受けた「住居内空気汚染等とアレルギー疾患との関連に関する疫学的研究」の一環として行った。ここに記して謝意を表します。本調査の遂行にあたりご支援頂きました寝屋川市、寝屋川市医師会、大阪母子保健コホート研究グループの関係方々に深謝いたします。

文 献

- 1) W.J.Meggs, C.H.Cleveland Jr: Rhinolaryngoscopic examination of patients with the multiple chemical sensitivity syndrome. *Arch. Environ. Health*, 48, 14-18 (1993).
- 2) D.Norback, E.Bjornsson, C.Janson, J.Widstrom, G.Boman: Asthmatic symptoms and volatile organic compounds, formaldehyde, and carbon dioxide in dwellings. *Occup. Environ. Med.*, 52, 388-395 (1995).
- 3) World Health Organization (WHO): Indoor Air Quality, Organic Pollutants. Report on a WHO Meeting, EURO Reports and Studies, vol. 111, WHO regional Office for Europe, Copenhagen, Denmark (1989).
- 4) 厚生省生活衛生局長: 室内空気中化学物質の室内濃度指針値及び標準的測定方法について(通知), 生衛発1093号(2000).
- 5) 厚生省生活衛生局長: 室内空気中化学物質の室内濃度指針値及び総揮発性有機化合物の室内濃度暫定目標値等について(通知), 生衛発1852号(2000).
- 6) 厚生労働省医薬局長: 室内空気中化学物質の室内濃度指針値及び標準的測定方法等について(通知), 医薬発828号(2001).
- 7) 厚生労働省医薬局長: 室内空気中化学物質の室内濃度指針値及び標準的測定方法等について(通知), 医薬発0207002号(2002).
- 8) 斎藤育江, 大貫文, 瀬戸博, 上原眞一, 加納いつ: 室内空気中化学物質の実態調査(可塑剤, 殺虫剤及びビスフェノールA等) -平成13年度-, 東京健安研

- 七年報, 54, 253-261 (2003).
- 9) 斎藤育江, 大貫文, 瀬戸博, 上原眞一, 鈴木孝人: 室内空气中化学物質の実態調査 (フタル酸エステル類及びリン酸エステル類等) -平成12年度-, 東京衛研年報, 53, 191-198 (2002).
- 10) 斎藤育江, 大貫文, 瀬戸博: 室内空气中フタル酸エステル類の測定, 室内環境学会誌, 5, 13-22 (2002).
- 11) 斎藤育江, 瀬戸博, 多田宇宏, 長嶋親治, 竹内正博, 土屋悦輝: 住宅の室内ホルムアルデヒド及び揮発性有機化合物濃度の経時変化, 東京衛研年報, 50, 235-239 (1999).
- 12) Y.Miyake, S.Miyamoto, Y.Ohya, S.Sasaki, I.Matsunaga, T.Yoshida, Y.Hirota, H.Oda, The Osaka Maternal and Child Health Study Group: Relationship between active and passive smoking and total serum IgE levels in Japanese women. Baseline data from the Osaka maternal and child health study. *Int. Arch. Allergy Immunol.*, 135, 221-228 (2004).
- 13) Y.Miyake, S.Sasaki, Y.Ohya, S.Miyamoto, I.Matsunaga, T.Yoshida, Y.Hirota, H.Oda, The Osaka Maternal and Child Health Study Group: Soy, isoflavones, and prevalence of allergic rhinitis in Japanese women. The Osaka maternal and child health study. *J. Allergy Clin. Immunol.*, 115, 1176-1183 (2005).
- 14) Y.Miyake, S.Miyamoto, Y.Ohya, S.Sasaki, I.Matsunaga, T.Yoshida, Y.Hirota, H.Oda, The Osaka Maternal and Child Health Study Group: Association of active and passive smoking with allergic disorders in pregnant Japanese women. Baseline data from the Osaka maternal and child health study. *Ann. Allergy Asthma Immunol.*, 94, 644-651 (2005).
- 15) 松村年郎, 亀谷勝昭, 武田浩昭, 村松学, 武田明治, 長沢千尋, 中植忠義: 空气中的二酸化窒素およびホルムアルデヒドの簡易同時測定法の開発 -二酸化窒素の個人曝露濃度の測定結果を中心に-, 日本公衛誌, 33, 754-760 (1986).
- 16) 松村年郎, 亀谷勝昭, 村松学, 義平邦利, 古田栄敬, 山田久志: 室内空気汚染に関する研究 (第4報) -ホルムアルデヒドの個人曝露濃度について-, 同上, 32, 287-295 (1985).
- 17) 吉田俊明: 室内空气中揮発性有機化合物の分析法の検討, 大阪府立公衛研所報, 40, 141-151 (2002).
- 18) T.Yoshida, I.Matsunaga, H.Oda: Simultaneous determination of semivolatile organic compounds in indoor air by gas chromatography-mass spectrometry after solid-phase extraction. *J. Chromatogr. A*, 1023, 255-269 (2004).
- 19) E.Spjotvoll, M.R.Stoline: An extension of the T-method of multiple comparison to include the cases with unequal sample sizes. *J. Am. Stat. Assoc.*, 68, 976-978 (1973).
- 20) 環境庁: 二酸化窒素に係る環境基準について (告示), 第38号 (1978).
- 21) American Conference of Governmental Industrial Hygienists (ACGIH): Documentation of the TLVs and BEIs with Other Worldwide Occupational Exposure Values, ACGIH, Cincinnati, Ohio, USA (CD-ROM) (2003).
- 22) World Health Organization (WHO): Air Quality Guidelines for Europe, Second edition, European Series no. 91, WHO Regional Office for Europe, WHO Regional Publications, Copenhagen, Denmark (2000).
- 23) 酒井潔, 三谷一憲, 土屋博信, 杉浦宣詔, 児玉泰範, 堀江善一, 玉田晶子: 美容所における暖房器具の種類と室内空气中ホルムアルデヒドおよび二酸化窒素濃度の関連, 名古屋市衛研報, 44, 39-44 (1998).
- 24) 松本庸夫: 住環境下における合板から放散するホルムアルデヒドの気中濃度について, 木材工業, 29, 18-24 (1974).
- 25) 大貫文, 斎藤育江, 瀬戸博, 上原眞一, 鈴木孝人: 室内空气中化学物質の実態調査 (ホルムアルデヒド及び揮発性有機化合物) -平成12年度-, 東京衛研年報, 53, 199-205 (2002).
- 26) 大貫文, 斎藤育江, 瀬戸博, 上原眞一, 加納いつ: 室内空气中化学物質の実態調査 (ホルムアルデヒド及び揮発性有機化合物) -平成13年度-, 東京健安研七年報, 54, 262-268 (2003).
- 27) 酒井潔, 三谷一憲: 名古屋市内の住宅の室内空気環境実態調査 (第1報) 住宅の属性と冷暖房状況, 名古屋市衛研報, 48, 27-32 (2002).
- 28) 松村年郎, 長田英二, 安藤正典: 二酸化窒素とホルムアルデヒドの個人曝露濃度の測定結果について, 室内環境学会誌, 1, 19-26 (1998).
- 29) 奥平純子, 田中恒雄: 居住環境における二酸化窒素の挙動, 同上, 8, 27-34 (2005).
- 30) C.Infante-Rivard: Childhood asthma and indoor environmental risk factors. *Am. J. Epidemiol.*, 137, 834-844 (1993).
- 31) M.Shima, Y.Nitta, M.Ando, M.Adachi: Effects of air pollution on the prevalence and incidence of asthma in children. *Arch. Environ. Health*, 57, 529-535 (2002).
- 32) 山下晃子, 薩摩林光, 込山茂久, 山浦由郎: 一般住宅における石油ファンヒーター使用時の換気による揮発性有機化合物 (VOC) 濃度の減少効果, 長野県環境保全研究所研究報告, 1, 39-45 (2005).
- 33) 吉田俊明, 安藤剛, 松永一朗: 住居内空气中ホルムアルデヒドおよび揮発性有機化合物濃度の季節変動, 大阪府立公衛研所報, 39, 31-48 (2001).
- 34) L.Wallace, E.Pellizzari, T.D.Hartwell, R.Perritt, R.Ziegenfus: Exposures to benzene and other volatile compounds from active and passive smoking. *Arch. Environ. Health*, 42, 272-279 (1987).
- 35) D.L.Heavner, W.T.Morgan, M.W.Ogden: Determination of volatile organic compounds and ETS apportionment in 49 homes. *Environ. Int.*, 21, 3-21 (1995).
- 36) R.L.Stedman: The chemical composition of tobacco and tobacco smoke. *Chem. Rev.*, 68, 153-207 (1968).
- 37) M.Rothberg, A.Heloma, J.Svinhufvud, E.Kahkonen,

- K.Reijula: Measurement and analysis of nicotine and other VOCs in indoor air as an indicator of passive smoking. *Ann. Occup. Hyg.*, 42, 129-134 (1998).
- 38) 吉田俊明, 安藤剛, 福原守雄: 住居環境における揮発性有機塩素系化合物への曝露実態とその体内吸収量の推定, 大気環境学会誌, 33, 371-383 (1998).
 - 39) L.A.Wallace, E.D.Pellizzari, T.D.Hartwell, R.Whitmore, H.Zelon, R.Perritt, L.Sheldon: The California TEAM study; Breath concentrations and personal exposures to 26 volatile compounds in air and drinking water of 188 residents of Los Angeles, Antioch, and Pittsburg, CA. *Atmos. Environ.*, 22, 2141-2163 (1988).
 - 40) R.Kostiainen: Volatile organic compounds in the indoor air of normal and sick houses. *ibid.*, 29, 693-702 (1995).
 - 41) National Toxicology Program (NTP): Toxicology and carcinogenesis studies of 1,4-dichlorobenzene (CAS No.106-46-7) in F344/N rats and B6C3F₁ mice (gavage studies). Technical Report No. 319, NIH Publ. No.87-2575, NTP, Research Triangle Park, NC (1987).
 - 42) International Agency for Research on Cancer (IARC): Some Chemicals That Cause Tumours of the Kidney or Urinary Bladder in Rodents, and Some Other Substances, IARC Monographs on the Evaluation of the Carcinogenic Risks to Humans, vol. 73, IARC, Lyon, France (1999).
 - 43) R.M.Nalbandian, J.F.Pearce: Allergic purpura induced by exposure to *p*-dichlorobenzene. *J. Am. Med. Assoc.*, 194, 828-829 (1965).
 - 44) M.Morita, G.Ohi: para-Dichlorobenzene in human tissue and atmosphere in Tokyo metropolitan area. *Environ. Pollut.*, 8, 269-274 (1975).
 - 45) R.H.Hill, D.L.Ashley, S.L.Head, L.L.Needham, J.L.Pirkle: *p*-Dichlorobenzene exposure among 1000 adults in the United States. *Arch. Environ. Health*, 50, 277-280 (1995).
 - 46) J.Jan: Chlorobenzene residues in human fat and milk. *Bull. Environ. Contam. Toxicol.*, 30, 595-599 (1983).
 - 47) T.Yoshida, K.Andoh, M.Fukuhara: Urinary 2,5-dichlorophenol as biological index for *p*-dichlorobenzene exposure in the general population. *Arch. Environ. Contam. Toxicol.*, 43, 481-485 (2002).
 - 48) T.Yoshida, K.Andoh, H.Kosaka, S.Kumagai, I.Matsunaga, S.Akasaka, S.Nakamura, H.Oda, M.Fukuhara: Inhalation toxicokinetics of *p*-dichlorobenzene and daily absorption and internal accumulation in chronic low-level exposure to humans. *Arch. Toxicol.*, 76, 306-315 (2002).
 - 49) 化学工業日報社: 14102の化学商品, 東京 (2002).
 - 50) G.D.Nielsen, S.T.Larsen, K.S.Hougaard, M.Hammer, P.Wolkoff, P.A.Clausen, C.K.Wilkins, Y.Alarie: Mechanisms of acute inhalation effects of (+) and (-)- α -pinene in BALB/c mice. *Basic Clin. Pharmacol. Toxicol.*, 96, 420-428 (2005).
 - 51) 越後谷悦郎: 実用化学辞典, 朝倉書店, 東京 (1986).
 - 52) 斎藤育江, 大貫文, 上原眞一, 瀬戸博, 上村尚: 家庭電化製品・OA機器から発生するフタル酸エステル類及びリン酸エステル類, 東京健安研セ年報, 55, 247-252 (2004).
 - 53) S.Yoshida, S.Taguchi, S.Fukushima: Residual status of chlorpyrifos and octachlorodipropylether in ambient air and polished rice stock in houses five years after application for termite control. *J. Health Sci.*, 46, 104-109 (2000).
 - 54) 桂英二, 小川広, 小島弘幸, 福島明: シロアリ駆除剤クロルピリホス及びS-421による室内空気汚染, 衛生化学, 42, 354-359 (1996).
 - 55) S.Yoshida, S.Taguchi, M.Kitagawa: Isolation of a new organochlorine pollutant 2, 3, 3, 3, 2', 3', 3', 3'-octachlorodipropyl ether from fish. *Bull. Environ. Contam. Toxicol.*, 67, 568-573 (2001).
 - 56) 吉田精作, 北川幹也, 田口修三, 福島成彦: 水質, 底質及び雨水中のオクタクロロジプロピルエーテルとヘキサクロロシクロヘキサン濃度, 衛生化学, 42, 529-533 (1996).
 - 57) 吉田俊明, 松永一郎: 準揮発性有機化合物による住宅内空気汚染－有機リン系化合物を中心に－, 大阪府立公衛生研所報, 39, 49-55 (2001).
 - 58) T.Miyazaki: Residues of the synergist S-421 in human milk collected from the Tokyo metropolitan area. *Bull. Environ. Contam. Toxicol.*, 29, 566-569 (1982).
 - 59) 森康明, 長谷川一夫, 宇都宮暁子, 節田節子, 後藤純雄, 小野寺祐夫, 松下秀鶴: ピレスロイド系殺虫剤およびその共力剤 (1,1'-オキシビス [2, 3, 3, 3'-テトラクロロプロパン]) のAmes変異原性, 環境変異原研究, 20, 29-33 (1998).
 - 60) 日本家屋害虫学会: 家屋害虫事典, 井上書院, 東京 (1995).
 - 61) N.M.Bakry, S.M.Sherby, A.T.Eldefrawi, M.E.Eldefrawi: Oxadiazolidinones; Irreversible inhibition of cholinesterases and effects on acetylcholine receptors. *Neurotoxicology*, 7, 1-10 (1986).
 - 62) 斎藤実, 熊谷泰憲, 奈良間功: Metoxadiazone (S-21074) の皮下投与時のラットにおける器官形成期投与試験, 応用薬理, 34, 147-162 (1987).
 - 63) 斎藤実, 鈴木登志郎, 奈良間功: Metoxadiazone (S-21074) の皮下投与時のウサギにおける器官形成期投与試験, 同上, 34, 163-168 (1987).