アルデヒド類及びVOCによる室内空気汚染に関する研究 Study on Indoor Air Pollution caused by Aldehydes and VOCs

浅井 靖史* 野 Yasufumi Asai T

野本 岳志* Takeshi Nomoto

吉川 聡雄* Fusao Yoshikawa 萩谷 宏三* Kozo Hagiya

要 約

夏季および冬季に竣工した新築集合住宅を対象として、通常仕様と低ホルムアルデヒド仕様の同一平面戸の空気質(アルデヒド類およびVOC)を各々実測した。夏季実測において、ホルムアルデヒド濃度は、クロス接着剤をゼロホルムタイプにした住戸でも、一部WHO基準値の0.08ppm超えており、両仕様間と顕著な差は認められなかった。冬季実測においてフローリングおよび押入合板を低アルデヒド仕様とした住戸では、ホルムアルデヒドの低減効果が認められた。しかし、逆にアセトアルデヒド等の発生量が増加する例も見られた。TVOC濃度は夏季および冬季とも高濃度を示した。また、冬季においては各建築部位からの放散量の測定も行った。測定にはFLEC-SYSTEMを使用して建築部位別放散速度を求め、これらの値を用いて気中濃度を計算し、気中濃度の実測値と比較した。

目 次

§ 1. はじめに

§ 2. 測定概要

§ 3. 夏季実測結果

§ 4. 冬季実測結果

§ 5. おわりに

§ 1. はじめに

近年,住宅の高気密・高断熱化が進むにつれて,自然 換気回数が減少し,建材から放散される化学物質による 室内空気質汚染が大きな社会問題となっている.現在で はこの問題に関して,各方面で多くの調査・研究が行わ れている.

このような室内空気質汚染に対し、竣工後に取り得る 対策としては、換気の励行、ベークアウト等が考えられ るが、より効果的なのは、設計・施工段階でホルムアルデヒド等の化学物質放散量の少ない建材を積極的に採用することである。しかし既往の研究をみると、集合住宅の気中濃度測定は多く行われているが、低ホルムアルデヒドに対応した建材・施工材を使用して竣工された集合住宅の気中濃度を測定した事例はほとんど報告されていない。また、建材からの化学物質放散量測定についても、実験室内でチャンバーなどを使用して行われている例は多くあるが、実住宅の実際の建築部位からの放散量を測定し、部位別放散速度(mg/m²·h)を求めている報告はほとんどない。

そこで、今回、竣工直後の集合住宅を対象として夏季および冬季に気中濃度測定を行い、実際に低ホルムアルデヒド建材を採用した内装仕様の住戸と、従来通りの内装仕様の住戸を比較し、低ホルムアルデヒド建材が室内空気質に及ぼす影響および効果の検証を行った。また、冬季においては、気中濃度測定に加えて床、壁及び押入合板の各建築部位からのアルデヒド類およびVOCの放

^{*}技術研究所研究部先端技術研究課

散量をFLEC (Field and Laboratory Emission Cell) - SYSTEMを用いて測定し,建築部位別放散速度を求めた.また,これらの値と内装表面積から気中濃度を計算し,気中濃度の実測値との比較を試み,気中濃度予測に関しても検討した.

§ 2. 測定概要

2-1 測定対象住戸概要

平成9年7月および平成10年1月に竣工した集合住宅を対象に測定を実施した。測定対象住戸の概要を表一1,表一2に、平面図を図一1、図一2に示す。夏季物件に関してはA住戸にゼロホルムアルデヒドクロス接着剤を使用した。冬季物件に関してはD住戸の床および押し入れ合板に低ホルムアルデヒド建材(F_1 合板, F_1 フローリングおよび E_0 パーティクルボード)を使用している。ただし、クロス接着剤に関してはC、D両住戸にゼロホルムアルデヒド仕様のものを使用している。

2-2 測定方法

(1)温熱環境及び換気量測定

温湿度測定には熱線風速温度計(日本カノマックス製クリモマスター6511)を使用し、壁面温度測定には表面温度測定用熱電対を使用した。 換気量測定は,「JIS A 1406屋内換気量測定方法(炭酸ガス法)の検知管法」で行った.

(2)気中濃度の測定

①測定対象物質

測定対象物質には、アルデヒド類としてホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、VOCとしてトルエン、キシレン等を選んだ。その他にTVOCも測定した。吸着剤はアルデヒド類にDNPH-Silica、VOCにはTenax TAを使用した。

②サンプリング条件

測定前日に住戸の開口部および室内建具の扉をすべて解放して5時間自然換気を行い,一晩閉鎖放置(夏季測定では13時間,冬季測定では16時間)した後,室内は部屋中央部床上1.2mで,外気は外壁より3.2m離れた場所で吸引捕集(アルデヒド類は1×10³m³/min(1L/min)で60分,VOCは1×10⁴m³/min(100mL/min)で16分間吸引)した.

③分析条件

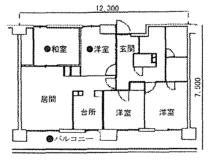
夏季測定の分析では、アルデヒド類にGC-NPD (島津製作所製Auto SystemXL)、VOCにTCT (Perkin Elmer社製ATD400) 付きGC-MS (Hewlett Packard社製HP6890/HP5973MSD) およびGC-AED (Hewlett Packard社製HP5921A)を使用した、冬季測定の分析では、アルデヒド類にHPLC (島津製作所製LC10A)を使用した、VOC

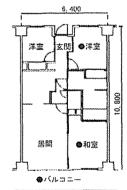
表-1 夏季測定対象住戸概要

測定外集合自		東京都内地上8階RC造新築集合住宅						
Milada fekranet		A住戸 (3階) 低ホルム仕様		B住戸	(4階)			
測定額	部打	和室	洋室	和室	洋宝			
床面積(m²)		9. 73	8. 01	9. 73	8. 01			
内装表面積(m²)		48.5	44. 6	48. 5	44.6			
気積(m³)	20.4	17. 9	20. 4	17. 9			
	床	建材畳	カーバット	建材畳	カーベット			
内装	壁	石膏ボート。 下地ピニルクロス	石膏ボード 下地ピニルクロス	石膏は、一ト、 下地は、ニルクロス	石膏ボード 下地ビニルクロス			
仕 様	天井	杉柾化粧 石膏ポード	石膏ボート。 下地ビニルクロス	杉柾化粧 石膏ボード	石膏ボード下 地ピニルクロス			
	70.7接着剤	ゼロホルムアルデヒド仕様		従来	:仕様			

表-2 冬季測定対象住戸概要

	対象 住宅	神奈川県内地上6階RC造新築集合住宅						
2 Dide**	-ArAr cars	C住戸	(4階)	D 住戸 (5 階)	D 住戸 (5 階) 低ホルム仕様			
測走	箇所	和室	洋室	和室	洋室			
床面積 (m)		11.6	9. 44	11.6	9, 44			
内装表面積(m²)		52. 1	47. 2	52, 1	46, 6			
気積	(m³)	27.8	24. 1	27.8	23. 6			
	床	建材畳	E1 パーティクルボート 下地 F2 フローリング	建材型	E0 バーティクルボート' 下地 F1 フローリング			
内装	壁	石膏ボート* 下地ビニルクロス	石膏ボード 下地ビニルクロス	石膏ボード 下地ビニルクロス	石膏ボード 下地ビニルクロス			
仕様	天井	杉柾化粧 石膏ボード	石膏ボード 下地ビニルクロス	杉柾化粧 石膏ボード	石膏ボード 下地ビニルクロス			
	押入合板	F2 合板		F1 合板	_			
1	クロス接着剤	ゼロホルムア		ルデヒド仕様				





●は測定箇所を示す

図-1 夏季測定対象平面図 図-2 冬季測定対象平面図

については夏季測定と同様である.

各分析機器の操作条件を以下に述べる.

a)GC-NPD:カラム[Ultral(長さ:25m 内径:0.32mm 膜厚:0.52 μ m)];昇温プログラム[昇温速度20 \mathbb{C} /minで50 \mathbb{C} (2min)→190 \mathbb{C} ,昇温速度3 \mathbb{C} /minで→220 \mathbb{C} (2min),昇温速度30 \mathbb{C} /minで→250 \mathbb{C} (3min)];キャリアガス流

量:1.2×10⁻⁶m³/min(1.2mL/min)(He);注入口温度:250℃;検出器温度:250℃

- b) TCT:吸着剤(コールドトラップ): Carbosieve S-Ⅲ (100mg)+Tenax TA(100mg); 昇温プログラム[1次デソープション:250℃(15min), 2次デソープション: 昇温速度40℃/secで27℃→250℃(10min);]; 入口スプリットOFF; 出口スプリット8;1:脱着流量:2.5×10-5m³/min (25mL/min)
- c) GC-MS:カラム[Quadrex MS(長さ:50m 内径: 0.32mm 膜厚:0.2 \mu m)]昇温プログラム[昇温速度5℃/minで40℃(5min)→250℃(3min)];キャリアガス流量:50kPa(He);インターフェース温度:250℃
- d) GC-AED:カラム[Quadrex MS(長さ:50m 内径: 0.32mm 膜厚:0.2μm)];昇温プログラム[昇温速度5℃/minで40℃(5min)→250℃(3min)];キャリアガス流量:180kPa(He);インターフェース温度:250℃;キャビティー温度:250℃;測定元素(波長):炭素(193nm)
- e) HPLC:カラム[L-Column ODS(長さ:25cm 内径:4.6mm)];カラム温度:40℃;溶離液:アセトニトリル/精製水=6/4;流量:1×10°m³/min(1.0mL/min);測定波長:360nm
- (3)FLEC-SYSTEMによる建築部位からの放散量測定

冬季実測では、気中濃度の測定だけでなく、FLEC-SYSTEM^{1),2)}を用いてC、D両住戸の各建築部位(洋室床、壁及び和室押入合板)から放散される各物質をサンプリングして、その捕集濃度を測定した.

①FLEC-SYSTEMの概要

FLEC-SYSTEMは建材から放散される化学物質をサンプリングするための装置である。FLEC-SYSTEMはFLEC Cell(図ー3)およびFLEC AIR CONTROL(図ー4)から構成される。FLEC Cellは,建材表面上に置くと材料自身がチャンバーの底となる。FLEC AIR CONTROLはFLEC Cellに流量と湿度を調整した清浄な空気を供給するための装置である。サンプリングは,FLEC Cellに取り付けられた吸着管を通してガスを吸引することによって行う。FLEC-SYSTEMによるサンプリング風景を図ー5に示す。

②測定対象物質

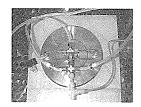
「(2)気中濃度の測定①測定対象物質」に同じ.

③サンプリング条件

アルデヒド類は, 3×10⁴m³/min(300mL/min)で33分間, VOC類は1×10⁴m³/min(100mL/min)で16分間吸引した. FLEC AIR CONTROLの設定条件は流量を4×10⁴m³/min (400mL/min), 設定湿度を50%(RH)とした.

④分析条件

「(2)気中濃度の測定③分析条件の冬季測定」に同じ.





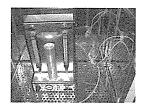


図-4 FLEC AIR CONTROL



図-5 FLEC-SYSTEMによるサンプリング風景

§ 3. 夏季実測結果

3-1 温熱環境及び換気回数測定結果

温熱環境測定結果を表-3 および表-4 に示す.また, 換気回数はA住戸和室,洋室がそれぞれ0.76回/h,0.90回/h,B住戸和室,洋室がそれぞれ0.66回/h,0.93回/hと一般的な集合住宅の換気回数と比較するとやや高い値を示した.

3-2 アルデヒド類及びVOC気中濃度測定結果

アルデヒド類(ホルムアルデヒドおよびアセトアルデヒド)の測定結果を図-6に、トルエン、キシレンおよびTVOCの測定結果を図-7に、VOC成分の定性・定量分析結果を表-5に示す。

ホルムアルデヒド濃度は、A住戸洋室以外はWHO基準値の0.08ppm(これは厚生省指針値30分平均0.1mg/m³に相当する)を越えていた。従来仕様のB住戸に比べると、ゼロホルムアルデヒド仕様のクロス接着剤を使用したA住戸の方が、やや低い値であるものの顕著な差は認められなかった。これとは逆に、アセトアルデヒド濃度は、A住戸の方がやや高い値を示した。

TVOC濃度は、A、B両住戸とも非常に高く、WHO基準値の0.3mg/m³の10倍以上であった.ただし、外気においても基準値を超える高濃度となっている。トルエン、キシレンのみでもB住戸和室のキシレン濃度を除いて、この基準値を上回っていた。TVOC濃度が高いのは、測定時期が夏季で、温湿度が高かったためと考えられる。また、アセトアルデヒドと同様に、低ホルムアルデヒド仕様のA住戸の方が高いTVOC濃度を示していた。この

表一3 温熱環境測定結果(1)

天候	小雨
外気温湿度	27. 2°C 71% (RH)
外気風速	0.31m/s
	東

表-4 温熱環境測定結果(2)

	室内温湿度		表面温度(℃)				
	(°C)	(RH%)	壁	天井	床	窓	
A 住戸和室	28.6	74	27. 5	27.6	27.6	26. 4	
A 住戸洋室	28. 6	75	27.4	27. 3	26. 4	26. 4	
B 住戸和室	28. 4	75	27.6	27.8	28. 2	26. 6	
B 住戸洋室	27. 9	76	27. 5	27. 6	27.6	26. 5	

表-5 VOC成分の定性・定量分析結果(夏季)

検出成分名 ¹	検出量 ^{2.3} (mg/m³)							
快山风万名	A 和室	A 洋室	B 和室	B 洋室	外気			
Propane	-	0. 037	_	-	_			
Acetonitorile	0. 10	0. 12	0. 24	0. 15				
Acetone	0. 18	0, 10	0.12	0.074				
Unknown	0.36	0.14	0.13	0.12				
Methylethyl ketone	1.2	0.51	0.79	0, 31				
Ethyl acetate	0. 28	0.34	0. 12	0, 21	_			
n-Butanol	0.067	0. 16	_	0, 058	***			
n-Pentanal	0.083	_	_	_				
Methyl isobutyl ketone	_	0. 13	2000	0. 089	-			
Toluene	1.0	1.6	0.61	1.4	0. 18			
Unknown	_	0.063	_	0, 055				
Butanone oxym	0. 19	0. 32	0. 13	0. 28				
n-Hexanal	0. 33	0.092	0.10	0. 073				
Ethylbenzene	0. 32	0. 59	0.16	0. 52	0.13			
m,p-Xylene	0.40	0, 50	0. 20	0. 51	0. 13			
Cyclohexane	0.11	0. 11	0. 055	0.064	_			
Styrene	0.088	0.043	0.060					
o-Xyrene	0.17	0. 17	0, 080	0. 17	0. 042			
a-Pinene	1.9	0, 80	1.3	0.66				
m-Ethyl toluene	0.076	0.054	0.052	0.072	_			
C _s Benzene	0. 13	0. 18	0. 11	0. 23				
β-Pinene	0.063	_	0.068		_			
δ-3-Caren	0.35	0. 15	0.48	0. 21	-			
Limonene	0. 21	0.070	0.10	0.064				
a-Terpinolene			0.072	_				
TVOC**	6. 9	5. 6	4.4	4, 8	0, 47			

- 注 1) 検出成分名は保持指標とマススペクトルより推定した.
 - 2) 検出量は GC/AED 分析による n-Hexane を基準に炭素濃度から求めた換 算値
 - 3) 定性ができなかった成分はUnknown とし、検出量はToluene として算出した
 - 4) TVOC 量は全検出成分を Toluene として算出した

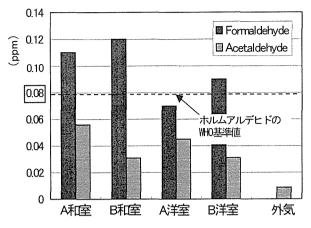
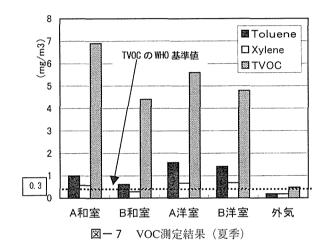


図-6 アルデヒド類測定結果(夏季)



§ 4. 冬季実測結果

4-1 温熱環境及び換気回数測定結果

温熱環境測定結果を表-6 および表-7に示す.また換気回数はそれぞれC住戸和室,洋室がそれぞれ0.69回/h,1.19回/h,D住戸和室,洋室がそれぞれ0.21回/h,0.39回/hで,C住戸の方が高い値を示した.

4-2 アルデヒド類及びVOC気中濃度測定結果

アルデヒド類の測定結果を図-8に、トルエン、キシレンおよびTVOCの測定結果を図-9に、VOC成分の定性・定量分析結果を表-8に示す.

ホルムアルデヒド濃度は全体的に低く、C、D両住戸ともWHO基準値の0.08ppmを下回っていた。これは測定時期が冬季で温湿度が低かったためと考えられる。低ホルムアルデヒド仕様のD住戸の方がC住戸に比べて、ホルムアルデヒド濃度がやや低かった。これとは逆に、アセトアルデヒド濃度はC住戸の方がやや低いが、顕著な差は認められなかった。TVOC濃度は、温湿度が低く、

表-6 温熱環境測定結果(1)

天候	晴れのち雪
外気温湿度	9. 4℃ 52RH%
外気風速	0.60m/s
外気風向	北東

表一7 温熱環境測定結果(2)

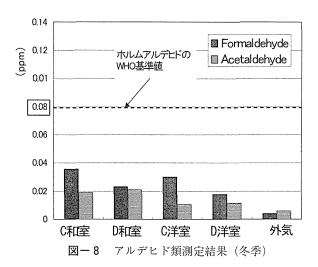
	室内温湿度		表面温度(°C)			
	(°C)	(RH%)	壁	天井	床	窓
C 住戸和室	10. 2	56	9.3	10. 1	9.9	8. 3
C 住戸洋室	9. 7	57	8. 3	8.7	8. 2	6. 3
D 住戸和室	9. 3	67	8, 8	9.1	8.8	8.0
D 住戸洋室	8. 6	65	7.8	7. 5	8. 7	6.0

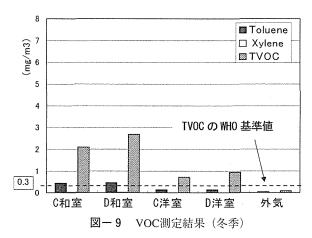
表-8 VOC成分の定性・定量分析結果(冬季)

+Sturt-(\A)		桢	注出量(mg/m³):	.31	
検出成分名 1	C 和室	C 洋室	D 和室	D 洋室	外気
Propane	0. 041		0, 089		
Isobutane	0. 21	0.085	0, 31	0. 12	0, 015
Butane	0.49	0. 029	0. 77		*****
Unknown	0.031	0. 021	0. 025	0.018	
Ethyl alcohol	0. 20	0. 33	0.18	0. 62	_
Acetonitorile	0.092	0.062	0. 083	0, 076	
Acetone	0.098	_	0. 19	0.042	******
Pentane	0. 17		0.18	*****	
Unknown	0.014		-		****
Methyl acetate	0. 044	******	_		
Unknown	0.020	0.013	0. 029	0.016	****
Methylethyl Ketone	0. 18	0. 070	0. 16	0. 056	
Ethyl acetate	0.043	0. 030	0, 043	*****	_
2-Butanol	0. 039	_	0, 035		
Methyl isobutyl ketone	0. 030		0. 039		
Toluene	0.44	0. 14	0. 47	0.14	0.047
Ethyl benzene	0. 021		0.022	_	
m, p-Xylene	0. 025		0, 025	_	_
Styrene	0. 17	0, 11	0, 20	0. 13	
C _z - Benzene (含 算)	0. 054	0. 024	0, 070	0. 025	
m-Diethyl benzene	0. 013	Management	0, 065		_
Decamethyl Cyclo Penta Siloxane	0. 058	0, 059	0. 069	0. 079	0.063
TVOC ⁴	2, 1	0. 72	2. 7	0. 94	0, 083

- 注 1) 検出成分名は保持指標とマススペクトルより推定した.
- 2) 検出量はGC/AED 分析によるn-Hexane を基準に炭素濃度から求めた換算値.
- 3) 定性不能成分はUnknown とし、検出量はToluene として算出した.
- 4) TVOC 量は全検出成分を Toluene として算出した.

VOCが揮発しにくい冬季の測定であったにもかかわらず、全体的にかなり高い濃度であった。C住戸、D住戸ともWHO基準値の0.3mg/m³を超えており、和室は特に高い、また、アセトアルデヒドと同様に低ホルムアルヒド仕様のD住戸の方が高い濃度を示していた。これは夏季の測定において認められた傾向と同様である。





トルエン, キシレン以外のその他の成分としては, 和室ではイソブタン, ブタン, ペンタン等のアルカン系物質, 洋室ではエチルアルコールが多く検出された.

4-3 各建築部位からのアルデヒド類及び各種VOC放 散量の測定結果

FLEC-SYSTEMを用いてサンプリングした, C, D両住戸の各建築部位からの捕集ガス中の各物質の濃度(捕集濃度)に基づいて, 各建築部位からの放散速度を(1)式より求めた.

$$EF = \frac{(C - C_0) \times Q}{A} = \frac{(C - C_0) \times N}{L}$$
 (1)

 EF: 放散速度(mg/m²·h)
 A:建材表面積(m²)

 L:試料負荷(m²/m³)
 L=A/V C:捕集濃度(mg/m³)

N: 換気回数(1/h) N=Q/V(V: 室容積(m³))

Q: 換気量 (m^3/h) C_0 : 供給空気中濃度 (mg/m^3)

表-9 各建築部位からの放散速度

部位	表面温度		各部位からの	放散速度(mg	g/m˙·h)	
	(,C)	Form- aldehyde	Acet- aldehyde	Toluene	Xylene	TVOC
C 洋室床	8, 2	0.0028	_	0.0285	_	3, 25
D 洋室床	8.7	0.0019	0.0008	0. 0298		1.63
C洋室壁	8. 3	0.0037	-	0.0569		0. 231
D 洋室壁	7.8	0.0024	0.0031	0. 0597	_	0. 271
C 和室押入	9. 1	0.0127	0.0028	0. 0393	_	0. 352
D 和室押入	8. 3	0.0020	-	0, 0231	_	1.63

表-10 CおよびD住戸洋室における気中濃度

		気中濃度(mg/m³)					
化学物質名	C 住戸 (計算値)	C 住戸 (測定値)	D 住戸 (計算値)	D 住戸 (測定値)			
Formaldehyde	0, 011	0.039	0.017	0, 023			
Acetaldehyde	_	0.020	0, 025	0.022			
Toluene	0. 13	0.14	0, 33	0.14			
TVOC	1. 51	0.72	2. 93	0.94			

FLECの場合、A=0.0177 m^2 ,N=6861/h[流量4×10 4 m^3 /min (0.4L/min)の時]、V=0.000035 m^3 であるので、最終的にEF=1.3559C $mg/<math>m^2$ ·h m^3 /が得られる。求められた放散速度を表-9に示す。次に、この放散速度に基づいて(2)の計算式を用いて気中濃度を計算した.計算にあたっては、各建築部位を床、壁及び天井に限定し、天井は壁と同じビニルクロスであるため同一と見なした。

$$C = C_0 + \frac{\sum E_i A_i}{nV} \tag{2}$$

Co: 外気濃度(mg/m³)

E:: 各建築部位からの放散速度(mg/m²·h)

n:室の換気回数(1/h)

A:: 各建築部位の表面積(m²)

V:室の気積(m³)

なお、各建築部位の表面積 A_i は A_{k} =9.4 \mathbf{m}^2 , $A_{\mathbf{x}+\mathbf{x}+\mathbf{x}}$ =37.1 \mathbf{m}^2 である.

表-10に計算値と実際の測定値を示す. TVOCと一部の成分について,計算値と実測値が2~3倍程度異なるものがある. 原因としては,各建築部位の代表位置でしか測定を行っていないこと,測定していない発生源がある

可能性と、FLEC-Cellとフラットでない測定部位との間(特にビニルクロス表面)のシール性の問題が考えられる.また、計算結果に影響を及ぼす各部屋の換気量測定自体の誤差も含まれている.その換気量測定では、隣の部屋からの気流の影響も受けるため、正確な値がつかみにくく、今後はこの点に関しても検討する必要がある.

しかし、全体的には比較的実測値に近い値が得られており、これはFLECによって部位別放散速度を求めれば、ある程度簡易的に気中濃度を予測することが可能であることを示している。

§ 5. おわりに

今回,夏季および冬季に竣工した新築住宅を対象に実態調査を実施した。さらに,冬季竣工物件についてはFLEC-SYSTEMを用いて各建築部位別の放散速度を求め,放散速度と内装表面積から気中濃度を計算し,実際の測定値との比較を試みた。今後は,今回実施した実態調査から得られた結果および課題を反映して,今回の実態調査と内装の異なる仕様(フローリング仕様)で,夏季および秋季に実態調査を行う。FLEC-SYSTEMによる建築部位別放散量測定を,部位を追加して行い,さらに実態調査で実際に使用された建材についても放散量測定を行うことで詳細な調査を実施する予定である。またFLEC-SYSTEMは換気回数が他のチャンバー法と大きく違うため,他のチャンバー法との比較を行う必要がある。

なお、本研究は通商産業省平成9年度エネルギー使用合理化技術開発補助事業「室内空気質向上技術の研究開発」の成果の一部である。また、本研究を行うにあたってご指導・ご協力賜りました早稲田大学理工学部田辺新一助教授、元お茶の水女子大学大学院由岐中聡美様、お茶の水女子大学大学院小西章予様に感謝いたします。

参考文献

- 1) P. Wolkoff et al., "Field and Laboratory Emission Cell: FLEC", IAQ 91 HealthyBuildings,pp.160-165, 1991.
- 2) 小西他, 空気調和・衛生工学会学術講演会講演論文集,「FLECを用いた建材からのアルデヒド類発生量の測定」, pp.597-600, 1998.