

住宅の構造と室内有害物質濃度の関係

松本光弘*、皆川直人**、溝口次夫***

*奈良県衛生研究所 大気課
〒630-8131奈良市大森町57-6

**グリーンブルー株式会社 環境調査事業部
〒144-0033東京都大田区東糀谷5-4-11

***佛教大学社会学部
〒603-8301京都市北区紫野北花ノ坊町96

概要

本研究では小型、軽量で電源もいらず、また音もしないパッシブサンプラーを用いて、国内6地域(22地点)において古い木造住宅から最新のマンションまで構造の異なる住宅内および外気中の大気汚染物質濃度調査を2年間にわたり冬季と夏季に行い、季節別、屋内外別、暖房別、冷房別の比較を行った。

キーワード

パッシブサンプラー、屋内大気汚染、二酸化硫黄、二酸化窒素、アルデヒド類、アンモニアガス、硝酸ガス

1. はじめに

室内空気の汚染源は従来、ストーブ等の直接暖房および厨房からのNO_x、SO₂、CO等が主なものであったが、最近の新しい住宅はエアコンディショナー(以下、エアコンと略)を装備しているので、化石燃料を用いるストーブが原因となる室内汚染は減少している。しかし、最近では新しい建築材料、家具、じゅうたんなどから発生するアルデヒド類等の揮発性有機化合物(VOCs)が注目されている。特に気密性の高いマンション内において、これら物質の中には変異原性、発ガン性を有するため、健康の面から重要視されている。

本研究では小型、軽量で電源もいらず、また音もしないパッシブサンプラー¹⁻³⁾を用いて、国内6地域(22地点)において古い木造住宅から最新のマンションまで構造の異なる住宅内および外気中の大気汚染物質濃度調査を2年間にわたり冬季と夏季に行い比較した。

2. 実験方法

2.1 測定項目と測定原理

今回測定を行った測定項目はSO₂、NO₂、HNO₃、NH₃、HCHO、CH₃CHOの6項目であり、4種類のサンプラーを用いた。測定原理は演者らが新しく開発した細孔がある拡散板により風速の影響をなくし、大気汚染ガスがサンプラー内で分子拡散される小型の分子拡散型サンプラー⁴⁻⁵⁾(Molecular diffusion sampler:グリーンブルー社製、Handy SONOX)を用い、各種ガスを捕集する含浸ろ紙の前に金属ネットを置いて大気中のガスだけを捕集しイオンクロマトグラフと液体クロマトグラフで高感度でかつ多成分同時分析する方法である。

サンプラーは図-1に示したように拡散板、金属ネット、テフロンリング、捕集ろ紙、ケースよりなり、重量は20gである。拡散板はアクリル樹脂製の円盤に直径2mmφの均一な細孔が45個ある。大気汚染物質はこの細

孔で拡散され、粒子状物質は拡散板と金属ネットで除去され、粒子以外の大気汚染物質が捕集ろ紙に捕集される。捕集ろ紙はセルロース製ろ紙(Advantec社製、No. 51A、47mmφ)に捕集剤(表-1)を含浸している。

2. 2 サンプルング方法と分析方法

サンプルング方法はサンプラーを1週間(アルデヒドは3日間)大気中に放置した後回収して行った。回収したサンプラーの捕集ろ紙を栓付きの試験管に入れ、抽出液(表-1)を加え、電動式の振蕩器または超音波洗浄機で約20分間振蕩または洗浄したのを試料溶液とした。この試料溶液をイオンクロマトグラフ(Dionex社製、MODEL L4500i)および液体クロマトグラフ(島津製作所製、MODEL LC-5A)を用いて定量を行った(表-1)。

2. 3 ガス濃度の算出

ガス濃度の算出法としてSO₂、NO₂、NH₃については理論捕集係数により算出した。また、HNO₃、HCHO、CH₃CHOについては分子量より拡散速度を推定し、理論捕集係数より算出した。つまり、大気中のガス濃度(C:ppb)と捕集量(W:μg)と暴露時間(t:min)は $W/t = \alpha_T \cdot C$ の関係があり、W、t、 α_T の値を用いてCを算出した。ここで α_T は理論捕集係数(μg・ppb⁻¹・min⁻¹・T²C)で、各ガスの α_T を表-2に示した。

2. 4 調査期間と調査地点

調査地点は表-2に示したように、京都府(6地点)、滋賀県(1地点)、兵庫県(1地点)、東京都(3地点)、神奈川県(2地点)、奈良県(9地点)の22地点で1996年と1997年の冬季(1月から3月)と夏季(7月から8月)に行った。サンプラーの設置場所は1地点について屋外と屋内に設置し、屋外はベランダあるいは軒下に、屋内は居間、台所等に設置した。

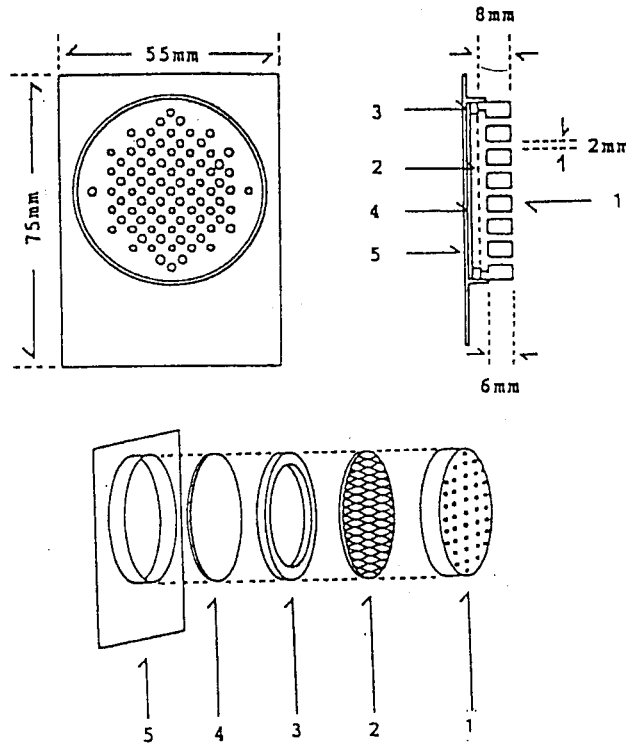


図-1 サンプラーの概略図

- 1 : 拡散板 2 : 金属ネット 3 : テフロンリング 4 : 捕集ろ紙 5 : ケース

表-1 サンプラーの含浸液、抽出液および測定法

捕集ガス	含浸液	抽出液	測定法
SO ₂ , NO ₂	30%TEA+10%グリセリン溶液/水	0.3%H ₂ O ₂ 溶液 10ml	IC
HNO ₃	1%NaCl+5%グリセリン溶液/水	水 10ml	IC
NH ₃	5%ホウ酸+1%グリセリン溶液/メタノール	水 10ml	IC
アルデヒド	0.2%DNPH+1%リン酸溶液/アセトニトリル	アセトニトリル 5ml	HPLC

TEA: トリエタノールアミン DNPH: 2,4-ジニトロフェニルヒドラジン
 IC: イオンクロマトグラフ法 HPLC: 液体クロマトグラフ法

表-2 各種ガスの拡散係数と本サンプラーの理論捕集係数

ガス	拡散係数 (D) (cm ² /sec. latm)	理論捕集係数 (α _T) (μg/ppb. min × 10 ⁶)
SO ₂	0.120+0.000856 × T	116.8+0.351 × T
NO ₂	0.145+0.00103 × T	101.4+0.304 × T
HNO ₃	0.113+0.000804 × T	107.9+0.324 × T
NH ₃	0.203+0.00145 × T	52.6+0.158 × T
HCHO	0.183+0.00130 × T	83.2+0.250 × T
CH ₃ CHO	0.153+0.00109 × T	102.3+0.307 × T

T: 温度 (°C)

表-3 サンプラーの設置場所

No	場所	設置場所		冬季	夏季
		屋外	屋内	暖房の種類 ¹⁾	冷房の種類
1	京都市北区	軒下(庭)	居間	石油	
2	京都市北区	ベランダ	居間・台所・食堂	エアコン	エアコン
3	京都市右京区	ベランダ	居間・台所・食堂	エアコン	エアコン
4	京都市北区		大学(新図書館)		
5	京都市北区		大学(廊下)		
6	京都市北区		大学(新研究室)		
7	滋賀県草津市	台所外	台所	石油	使用せず
8	神戸市須磨区	ベランダ	居間	エアコン	
9	東京都練馬区	軒下	居間	エアコン	
10	東京都北区	ベランダ	居間	エアコン・石油	
11	東京都稲城市	ベランダ	台所・食堂	ガス	使用せず
12	神奈川県川崎市	ベランダ	居間		
13	神奈川県川崎市	バルコニー	居間・台所	エアコン・石油	エアコン
14	奈良県天理市	軒下	居間・食堂	ガス	使用せず
15	奈良県天理市	軒下	応接間		エアコン
16	奈良県天理市	ベランダ	居間	石油	
17	奈良県郡山市	ベランダ	居間	エアコン	エアコン
18	奈良県高取町	軒下	居間	なし	
19	奈良県奈良市	軒下	子供部屋		エアコン
20	奈良市	通路	居間	床暖房	エアコン
21	奈良市	図書館横	大学(図書館)		
22	奈良市	ベランダ	居間	エアコン・石油フ	エアコン

1) 石油: 石油ストーブ ガス: ガスストーブ 石油フ: 石油ファンヒータ

3. 結果と考察

サンプラーによる冬季および夏季における屋外と屋内における大気汚染物質濃度の測定結果を表-3に示した。この結果、屋外大気濃度の平均値 (単位ppb) は、 SO_2 :3.8、2.0 (冬季、夏季)、 NO_2 :33.7、18.7、 HNO_3 :0.54、2.3、 NH_3 :3.9、6.3、 HCHO :2.3、5.5、 CH_3CHO :1.0、2.3であった。一方、屋内大気濃度の平均値は、 SO_2 :1.6、1.2 (冬季、夏季)、 NO_2 :66.7、14.2、 HNO_3 :0.26、1.0、 NH_3 :21.8、20.6、 HCHO :9.0、13.1、 CH_3CHO :2.9、2.9であった。ここで、屋内/屋外の比をとれば、 SO_2 :0.4、0.6 (冬季、夏季)、 NO_2 :2.0、0.8、 HNO_3 :0.5、0.4、 NH_3 :5.6、3.3、 HCHO :3.9、2.4、 CH_3CHO :2.9、1.3であり、 SO_2 、 HNO_3 は屋内より屋外の方が高く、 NO_2 (冬季)、 NH_3 、 HCHO 、 CH_3CHO は屋内の方が屋外よりも高かった。図-2に冬季および夏季における屋外、屋内の大気汚染濃度の比較を行った。冬季においては屋内大気の NO_2 濃度は大気環境基準以上であり、密閉家屋内で多量の NO_2 発生があり、屋内での暖房器の使用による NO_2 発生と窓の開閉が少ないためによるものと推定される。また、屋内大気の HCHO 、 CH_3CHO 濃度も屋外大気濃度に比べて高く、このことは使用されている建築材料等からの発生が推定される。また、建築年数と共に減少する傾向がみられる (地点2および7)。 NH_3 濃度は屋内の方が屋外に比べて高く、密閉家屋内での生活活動の発生が考えられる。特に、動物等を飼っている場合は特に高かった (地点13)。また、図-3に屋内大気の冬季における暖房別 (エアコンとストーブ)、夏季における冷房別 (エアコン使用の有無) の大気汚染濃度を示した。この結果、冬季においてはエアコン使用の場合は NO_2 濃度は低く、屋外濃度と同等かそれ以下であった。一方、石油ストーブ使用の場合は NO_2 濃度は非常に高く、健康影響が懸念される濃度であった。 HCHO 、 CH_3CHO 濃度はエアコン使用の方が石油ストーブ使用よりも濃度が高く、このことはこれらの汚染物質が石油ストーブから発生してなく、エアコンを設備した新しいマンションに HCHO 、 CH_3CHO を含む建築材料を沢山使っているためと考えられる。また、夏季においてはエアコン使用の場合は NH_3 、 HCHO 濃度が高く、 NH_3 は生活活動の発生、 HCHO は建築材料等からの発生と住宅の気密性によるものと考えられる。

なお、今後、住居内 (例えば、居間、寝室、キッチン、浴室、トイレ等) での濃度差、生活形態 (独身、既婚、共稼ぎ、専業主婦、学生、男性、女性等) による濃度差等について調査を行って行く予定である。

昨年 (1997年9月) 中国重慶市において住宅内外の SO_2 、 NO_2 濃度測定を行ったので併せて紹介する。

文献

- 1) 松本光弘、溝口次夫：トリエタノールアミン円筒ろ紙法による大気中の二酸化硫黄および二酸化窒素の簡易同時測定法、大気汚染学会誌、23、85-91 (1988)
- 2) 溝口次夫、松本光弘、池浦太荘：大気汚染物質の簡易測定法とその評価、大気汚染学会誌、26、191-203 (1991)
- 3) 松本光弘、溝口次夫：多孔性ポリテトラフルオロエチレン (PTFE) 管を用いた分子拡散型サンプラーによる大気中の二酸化窒素の簡易測定法、日本化学会誌、1991、404-409 (1991)
- 4) Matsumoto M., Mizoguchi T.: A Simple and Simultaneous Measurement Method of Sulfur Dioxide and Nitrogen Dioxide in Atmosphere using Molecular Diffusion Sampler, The International Seminar on the Simple Measuring and Evaluation Method on Air Pollution, Thailand, pp. 87-103 (1995)
- 5) 溝口次夫、松本光弘、皆川直人：大気中の酸性ガス (SO_2 、 NO_2 、 HCl) 同時測定用の分子拡散型パッシブサンプラーの開発と東アジア地域への適用、投稿中

表-3 サンプラーによる大気汚染物質濃度の測定結果

1) 屋外大気 (単位: ppb)

No	SO ₂		NO ₂		HNO ₃		NH ₃		HCHO		CH ₃ CHO	
	冬季	夏季	冬季	夏季	冬季	夏季	冬季	夏季	冬季	夏季	冬季	夏季
1	1.7	1.6	17.1	11.1	0.66	1.7	1.4	3.5	1.7	4.5	1.4	2.5
2	1.7	1.2	23.8	17.5	0.58	0.65	2.8	2.2	2.0	5.1	1.1	3.4
2	1.4	1.8	24.6	14.2	0.41	n. d.	1.7	n. d.	0.9	6.1	0.3	2.2
3	1.7	2.2	40.7	17.9	0.08	1.3	2.8	-	3.3	4.8	1.3	2.9
4	-	1.6	-	14.5	-	1.5	-	2.0	-	6.7	-	2.6
5	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
6	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
7	5.4	1.0	44.7	15.9	0.44	1.9	4.7	6.4	2.7	4.8	0.7	2.3
7	-	1.9	-	12.0	-	4.2	-	6.4	-	4.9	-	1.3
8	6.0	2.4	38.7	16.5	0.35	1.5	2.7	3.8	2.4	5.4	0.8	3.2
9	8.6	-	86.7	-	0.72	-	4.1	-	5.8	-	2.1	-
10	5.4	-	60.6	-	0.65	-	3.8	-	4.7	-	1.6	-
11	4.7	2.6	23.5	26.4	0.69	3.3	3.3	4.3	2.8	7.0	1.3	2.3
12	6.7	2.4	36.5	29.0	0.94	1.8	4.3	9.4	2.0	7.5	0.8	2.1
13	12.5	6.1	57.7	42.4	1.08	5.3	18.1	17.6	3.6	6.6	1.1	2.5
14	1.3	2.2	23.4	11.3	0.18	1.8	2.6	12.2	1.9	4.6	1.4	2.8
15	-	1.2	-	15.4	-	n. d.	-	7.2	-	1.3	-	1.0
16	1.4	0.9	27.0	17.7	0.52	0.81	3.1	7.3	1.0	5.0	1.2	2.3
17	1.6	1.9	22.1	19.0	0.62	3.3	3.6	12.4	0.9	8.1	0.4	2.6
18	1.1	-	17.6	-	0.14	-	1.6	-	0.6	-	0.3	-
19	-	2.5	-	16.3	-	1.6	-	2.3	-	4.9	-	2.9
20	2.0	1.0	19.8	15.2	0.65	2.1	3.4	2.3	1.1	4.6	0.2	1.4
21	3.2	0.8	20.0	18.7	0.92	3.1	3.8	2.3	1.6	8.0	0.8	2.4
22	2.0	1.9	22.4	19.4	0.16	6.3	3.0	7.6	2.0	6.1	0.5	2.0
平均	3.8	2.0	33.7	18.4	0.54	2.2	3.9	6.1	2.3	5.6	1.0	2.4
最大	12.5	6.1	86.7	42.4	1.08	6.3	18.1	17.6	5.8	8.1	2.1	3.4
最小	1.1	0.8	17.1	11.1	0.08	n. d.	1.4	n. d.	0.6	1.3	0.2	1.0

2) 屋内大気 (単位: ppb)

No	SO ₂		NO ₂		HNO ₃		NH ₃		HCHO		CH ₃ CHO	
	冬季	夏季	冬季	夏季	冬季	夏季	冬季	夏季	冬季	夏季	冬季	夏季
1	8.5	2.5	374.6	11.2	0.55	0.95	20.4	2.7	1.6	3.1	0.4	2.2
2	1.2	1.0	14.0	4.5	n. d.	n. d.	14.1	41.4	14.2	27.3	13.1	3.1
2	1.2	0.7	6.2	1.5	0.45	1.1	4.6	16.2	7.7	12.2	2.9	2.1
3	1.5	1.1	86.3	28.9	n. d.	1.5	10.8	14.5	13.7	18.0	2.8	2.6
4	1.4	1.2	4.8	4.7	0.07	1.2	9.1	8.7	7.8	10.2	n. d.	2.3
5	1.7	-	8.7	-	0.14	-	1.8	-	4.0	-	0.7	-
6	1.3	-	1.8	-	0.26	-	6.2	-	8.1	-	0.3	-
7	1.3	1.5	175.3	19.1	0.44	0.95	8.4	11.2	8.3	10.8	1.9	4.1
7	1.6	1.3	122.5	17.4	0.28	1.2	1.2	6.6	4.0	7.2	1.3	1.8
8	0.8	0.9	41.6	20.8	0.68	1.2	15.1	7.0	13.6	10.4	2.5	5.1
9	1.1	-	23.8	-	n. d.	-	18.7	-	12.9	-	3.4	-
10	1.7	-	38.2	-	n. d.	-	20.0	-	19.4	-	3.5	-
11	1.9	1.4	95.9	15.9	0.69	1.0	22.5	6.4	7.7	7.3	6.4	1.5
12	1.4	1.1	13.0	11.0	0.21	1.0	4.1	10.4	8.3	12.8	5.2	2.6
13	1.4	1.4	70.1	17.3	0.15	2.1	240.7	70.6	16.5	22.4	3.2	3.2
14	0.7	1.4	121.9	24.5	0.51	0.39	13.8	29.1	2.1	6.0	0.9	3.4
15	-	0.7	-	4.3	-	1.0	-	10.1	-	31.5	-	4.1
16	1.1	0.5	106.2	17.0	0.36	n. d.	9.9	28.6	8.9	12.3	2.8	3.3
17	1.0	2.7	20.8	41.2	0.28	1.4	29.1	50.6	10.7	6.5	3.4	4.2
18	0.8	-	8.6	-	n. d.	-	16.4	-	1.7	-	1.1	-
19	-	1.1	-	10.0	-	n. d.	-	5.8	-	16.3	-	3.3
20	1.5	0.7	7.3	4.1	0.50	1.0	3.0	11.8	11.2	10.3	7.3	2.2
21	1.3	1.0	2.0	2.5	n. d.	0.8	3.9	54.4	5.5	16.4	0.5	2.1
22	1.2	0.8	124.0	13.5	0.21	1.3	5.6	5.5	10.7	7.9	0.8	1.5
平均	1.6	1.2	66.7	14.2	0.26	1.0	21.8	20.6	9.0	13.1	2.9	2.9
最大	8.5	2.7	374.6	41.2	0.69	2.1	240.7	70.6	19.4	31.5	13.1	5.1
最小	0.7	0.5	1.8	1.5	n. d.	n. d.	1.2	2.7	1.6	3.1	n. d.	1.5

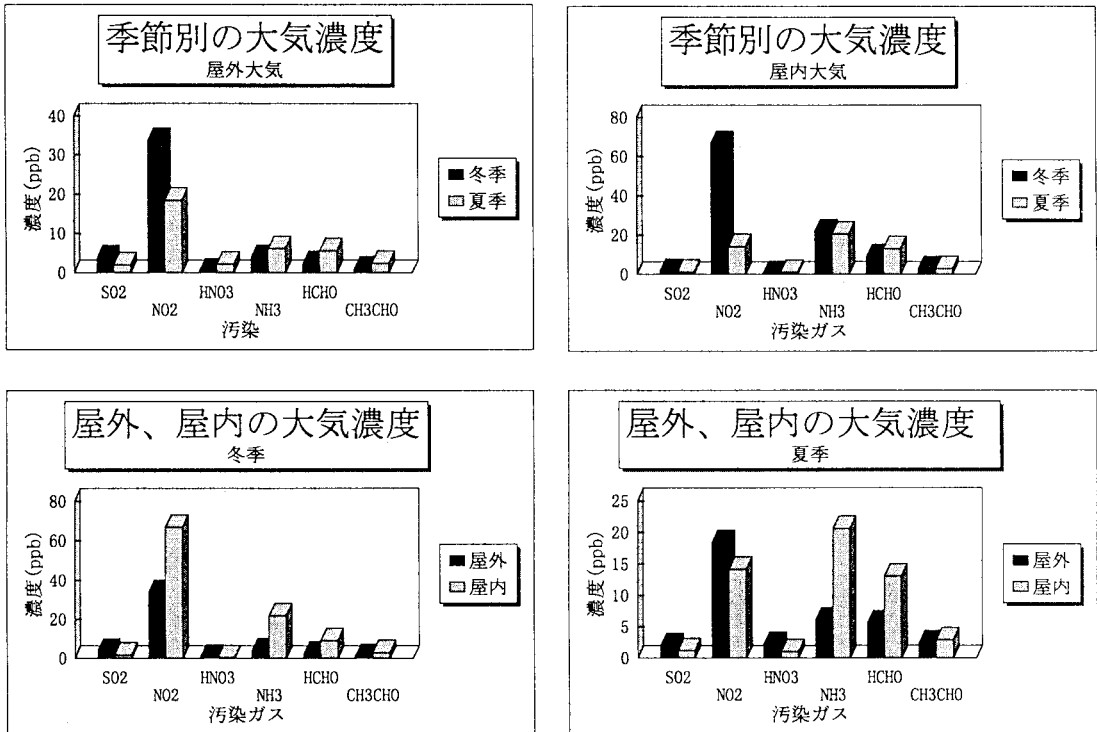


図-2 夏季および冬季における屋外、屋内の大気汚染濃度

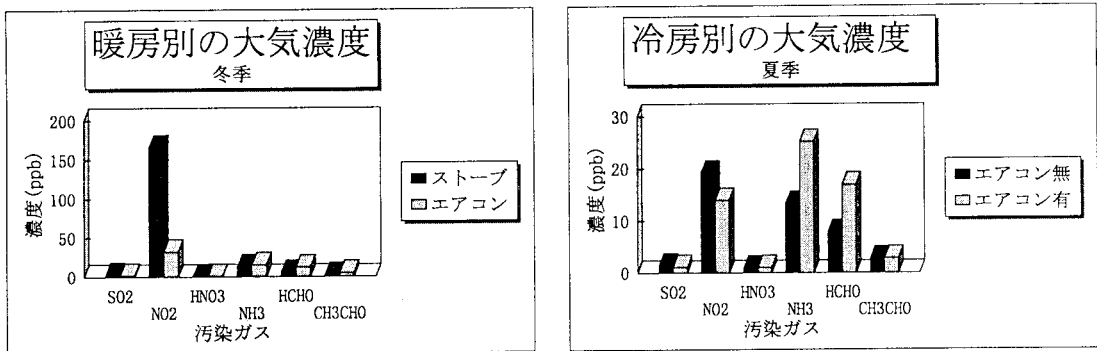


図-3 屋内の暖房別 (冬季) と冷房別 (夏季) の大気汚染濃度