

原 著

植物油添加漆喰から揮発するアルデヒド類による シックハウス症候群誘発の可能性

小 高 陽 子¹⁾ 戸 高 恵美子^{1,2)} 瀬 戸 博^{2,3)}
齋 藤 育 江⁴⁾ 中 岡 宏 子^{1,2)} 花 里 真 道^{2,5)}
森 千 里^{1,2)}

1) 千葉大学大学院医学研究院環境生命医学

2) 千葉大学予防医学センター

3) 財団法人東京顕微鏡院

4) 東京都健康安全研究センター

5) 千葉大学大学院工学研究科

The induction of sick building syndrome by aldehydes emitted from plaster with vegetable oil

Yoko Odaka¹⁾ Emiko Todaka^{1,2)} Hiroshi Seto^{2,3)} Ikue Saito⁴⁾
Hiroko Nakaoka^{1,2)} Masamichi Hanazato^{2,5)} Chisato Mori^{1,2)}

1) Department of Bioenvironmental Medicine, Graduate School of Medicine, Chiba University

2) Center for Preventive Medical Science, Chiba University

3) Tokyo Kenbikyo-in Foundation

4) Tokyo Metropolitan Institute of Public Health

5) Department of Architecture, Graduate School of Engineering, Chiba University

要約

シックハウス症候群の主な原因は室内空気中の様々な揮発性の化学物質であるが、アルデヒド類については発生源や症状への寄与など不明な点が多い。近年、天然志向の高まりで、漆喰が内装材として用いられるケースが増えている。しかし、漆喰には、施工性を高めるため植物油が混ぜられている場合が多い。そこで、小型チャンバーを用いた放散試験を行ったところ、漆喰は単独ではアルデヒド類を揮発しないが、植物油を混合することによって二次的にアルデヒド類を生成することが明らかになった。また、室内に塗布された場合の室内空気中濃度予測を行ったところ、過去の論文でシックハウス症候群が発生したとされる濃度を超えることが予想された。アルデヒド類のにおいの閾値は低く、低濃度でも不快に感じられる。本実験で検出したアルデヒド類の中には、悪臭防止法で特定悪臭物質に指定されているアルデヒド類もあ

受付：平成24年9月20日 採用：平成24年9月27日

別刷請求宛先：森 千里

〒260-8670 千葉市中央区亥鼻1-8-1 千葉大学大学院医学研究院環境生命医学

Received: September 20, 2012 Accepted: September 27, 2012

Reprint Requests to Chisato Mori, Department of Bioenvironmental Medicine, Graduate School of Medicine, Chiba University, 1-8-1 Inohana, Chuo-ku, Chiba 260-8670, Japan

り、臭気の面でも問題となる物質である。同症候群を起こさないためには、漆喰に植物油を混ぜることは避ける必要がある。
(臨床環境21:192~200, 2012)

《キーワード》 シックハウス症候群、アルデヒド類、植物油、漆喰、チャンバー試験

Abstract

Major causes of sick-building syndrome (SBS) are suspected to be volatile organic compounds in indoor air. However, the effects and the origin of aldehydes are not clear. Since there is an increasing interest of "natural material", the use of natural plaster is increasing recently. However, in the plaster, vegetable oil is mixed to make the plaster work easier. Therefore, we conducted a chamber test to examine if the plaster itself contained volatile aldehydes or if its mixture with vegetable oil was the cause of the volatile aldehydes. As a result, it became clear that only when vegetable oil was mixed into the plaster, the aldehydes were volatilized. Also, the indoor concentration level was estimated from the results of the chamber test. It was found that the levels reached a point high enough to induce SBS symptoms. The odor threshold of aldehydes are low, so even if the concentration levels are low, people still smell the odor and some people may have SBS symptoms. It became clear that to prevent SBS, the use of oil in plaster should be avoided.

(Jpn. J. Clin. Ecol. 21: 192~200, 2012)

《Key words》 Sick building syndrome, aldehydes, vegetable oil, plaster, chamber test

I. 緒言

シックハウス症候群は、新築あるいはリフォームした室内において建物の構造材、内装材などから揮発してくる揮発性有機化合物 (Volatile Organic Compounds=VOC) によって引き起こされる、目やのどの痛み、鼻水、頭痛など様々な症状の総称である¹⁻⁸⁾。この疾患は、特に化学物質に敏感な集団が罹患すると考えられる^{1, 4, 9-14)}。

シックハウス症候群を引き起こす恐れのある化学物質に関する安全対策としては、厚生労働省によって、2002年までに13種類の化学物質について個別に指針値が定められたほか、総揮発性有機化合物 (TVOC) は $400\mu\text{g}/\text{m}^3$ という暫定目標値が定められた^{2, 7, 11, 15)}。13物質には、ホルムアルデヒド ($100\mu\text{g}/\text{m}^3$) と、アセトアルデヒド ($48\mu\text{g}/\text{m}^3$) の2種類のアルデヒド類が含まれる^{11, 15)}。アルデヒド類の健康影響については、建築後1~2年の家の調査において、アルデヒド類と脂肪族炭化水素の濃度が高い場合には、居住者にシックハウス症候群の症状が現れたこと、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、バレルアルデヒド、ヘキサアルデヒドの濃度が増加すると、小児喘息とアトピー性皮膚炎が多くなること、喘息患者の家では

非喘息患者の家に比べ、アセトアルデヒド、ヘキサアルデヒドの濃度が高かったことなどの報告がある¹⁶⁻¹⁹⁾。

また、環境省では、事業活動に伴って発生する悪臭を規制しており、生活環境を損なう恐れのある物質として特定悪臭物質22物質を定めているが、これには、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、バレルアルデヒドなどのアルデヒド類が含まれている^{20, 21)}。臭気による健康影響については、臭気閾値の低い物質が室内空气中に存在することによって、皮膚刺激を起こすこと、不快な臭気を含む環境では、鼻、目に刺激の症状を起こすことなどの報告がある²²⁾。アルデヒド類は、シックハウス症候群対策の面においても、臭気の面においても問題となる物質である。

我々のグループは、シックハウス症候群を予防できる街づくりを目指して、大学キャンパスの中に戸建て住宅3棟、鉄筋コンクリート2階建ての建物1棟、プレハブの実験棟3棟からなる「ケミレスタウン」を建設し、2007年から実験棟内のVOCの測定、特定のVOCの発生源調査、シックハウス症候群への必要度を調べる問診票の開発な

どを行ってきた^{12, 14, 23-30)}。また、このプロジェクトの中では、シックハウス症候群を引き起こす可能性のある化学物質の発生メカニズムも研究してきた。

漆喰には、施工性を良くするために植物油が添加されることが多く、この植物油がアルデヒド類の発生源となっていることが強く疑われる。そもそも漆喰は、その主成分が世界中から豊富に産出される天然の鉱物である消石灰であり、古くから世界の各地において用いられてきた建築の材料である³¹⁾。近年、天然志向が強まり、国内で住宅の建材として採用される例が増えている。

そこで、小型チャンバーを用いて再現実験をしたところ、漆喰単独ではアルデヒド類は発生しないが、植物油と混ぜることによって発生することが明らかになった。また、植物油の種類によってもアルデヒド類の揮発する濃度が異なることがわかった。

本論文は、小型チャンバーを用いた試験片による室内空間における濃度予測を行って、漆喰と植物油を混ぜることでアルデヒド類が揮発しシックハウス症候群を引き起こす可能性を示す初めての論文である。

II. 材料および方法

1) 試験片の調製

日本で市販されている漆喰の平均的な配合割合は、漆喰 4 kg を用いた時の塗布面積が 3 m²で、厚さ 1 mm である。それに従って、消石灰（水酸化カルシウム：漆喰の主成分）50g、塗布面積 18cm×18cm (0.0324m²)、厚さ 1 mm の試験片を調製した。

試験片の種類は、植物油を添加しない試験片（以下、「コントロール試験片」と記す）、菜種油を添加した試験片（以下、「菜種油添加試験片」と記す）、大豆油を添加した試験片（以下、「大豆油添加試験片」と記す）、サラダ油を添加した試験片（以下、「サラダ油添加試験片」と記す）、合計 4 種類とした。試験片の調製方法は、「コントロール試験片」は消石灰 50g と超純水 45ml をビーカー内で混合した後、洗浄及び乾燥済みのガラス

板に塗布した。植物油を添加した試験片は、消石灰 50g と超純水 45ml に各々の植物油 0.5ml を加え、ビーカー内で混合した後、洗浄及び乾燥済みのガラス板に塗布した。

2) 20 l 小型チャンバー法による放散試験

試験片から放散するアルデヒド類を、JIS A 1901 小型チャンバー法に従って捕集した³²⁾。チャンバーは 20 l の容量のステンレス製の密閉容器とし、チャンバー内には 1 時間に 0.5±0.05 回の換気回数となるよう、流量 167ml/min で純空気を供給した。チャンバー内は、温度を 28±1℃、湿度を 50±5% に保った。チャンバーは、それ自身に汚染物質を含まないようにするため、和光純薬工業株式会社製、残留農薬・PCB 試験用メタノール 5000 で洗浄した後、乾燥してから用いた。

チャンバー内に試験片を設置し 24 時間後より放散ガスを捕集した。捕集管は Sigma Aldrich 社製、LpDNPH SI0L を用いた。流量 167ml/min で 30 分間捕集し、5 l の放散ガスを捕集した。

JIS A 1901 による捕集日は原則として 4 週間経過後までとあるため、捕集日を試験片調製から 1 日、2 週間、4 週間経過後までとした。

3) 高速液体クロマトグラフィーによるアルデヒド類の定量

捕集管内のカルボニル化合物 DNPH 誘導体を和光純薬工業株式会社製、HPLC 用アセトニトリル 5 ml を用いて溶出させ、試験溶液とした。これを、HPLC により定量した³²⁾。装置は、株式会社島津製作所製、島津ネクセラ HPLC を用いた。分析条件は、検出波長：UV360nm、移動相：アセトニトリル：水 (60：40)、流速：1.0ml/min、カラム：アジレント・テクノロジー株式会社製、ZORBAX Bonus-RP 4.6×250mm 5 μm である。

定量するアルデヒド類の標準品試薬は、Sigma Aldrich 社製、TO11/IP-6A Aldehyde/Ketone-DNPH Mix を用いた。

4) 室内空間濃度への解析

a. 放散速度

HPLC で定量した結果をもとに、各試験片について、1 m² の面積から 1 時間あたりに放散する放散速度 (μg/(m²・h)) を算出した³²⁾。放散速度の

算出方法は次式のとおり。

単位面積当たりの放散速度 E_{Fa} ($\mu\text{g}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$)

$$E_{Fa} = C_t \times \frac{n}{L}$$

C_t : 経過時間 t における小型チャンバー内のアルデヒド類の濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)、 L : 試料負荷率 (m^2/m^3)、 n : 換気回数 (回/h)

b. 気中濃度増分子測値

a で得られた放散速度をもとに、JIS A 6921の室内空間モデルにおける気中濃度増分子測値 ΔC ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) を算出した³⁰⁾。この室内空間モデルのサイズは、デンマーク規格により、壁面積 24m^2 、天井面積 7m^2 、体積 17.4m^3 である。

この室内空間モデルの壁と天井に漆喰を塗った場合の、気中濃度増分子測値の算出方法は次式のとおり。

表面積 A_R の建築材料を用いたときの気中濃

度増分子測値 ΔC ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)

$$\Delta C = \frac{E_{Fa} \times A_R}{n_R \times V_R}$$

E_{Fa} : 単位面積当たりの放散速度 ($\mu\text{g}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$)、 A_R : 壁と天井の表面積 ($24 + 7\text{m}^2$)、 n_R : 室内空間モデル内の換気回数 (0.5回/h)、 V_R : 室内空間モデルの体積 (17.4m^3)

III. 結果

1) 試験片の放散速度

試験片から求めた単位面積当たりの放散速度を表1に示す。植物油を添加しない「コントロール試験片」は、すべての期間において、いずれのアルデヒド類も検出されなかった。植物油を添加した試験片では、すべての試験片から塗布1日後にホルムアルデヒド以外のすべてのアルデヒド類が検出された。「大豆油添加試験片」は、他の試験

表1 試験片から求めた単位面積当たりの放散速度

試験片の種類	物質名	放散速度 E_{Fa} $\mu\text{g}/(\text{m}^2 \cdot \text{h})$			不飽和脂肪酸 の主な組成
		1日後	2週間後	4週間後	
1 コントロール*	ホルムアルデヒド	ND	ND	ND	
	アセトアルデヒド	ND	ND	ND	
	プロピオンアルデヒド	ND	ND	ND	
	ブチルアルデヒド	ND	ND	ND	
	バレルアルデヒド	ND	ND	ND	
	ヘキサアルデヒド	ND	ND	ND	
2 菜種油添加	ホルムアルデヒド	ND	ND	ND	オレイン酸 (C18:1) 55~62%
	アセトアルデヒド	105	25.9	9.9	
	プロピオンアルデヒド	262	29.0	13.6	
	ブチルアルデヒド	10.9	ND	ND	
	バレルアルデヒド	18.0	ND	ND	
	ヘキサアルデヒド	156	13.9	12.0	
3 大豆油添加	ホルムアルデヒド	ND	ND	ND	リノール酸 (C18:2) 50~57%
	アセトアルデヒド	233	23.1	13.6	
	プロピオンアルデヒド	561	23.1	12.0	
	ブチルアルデヒド	30.8	ND	ND	
	バレルアルデヒド	233	9.2	7.1	
	ヘキサアルデヒド	2080	57.9	49.9	
4 サラダ油添加	ホルムアルデヒド	ND	ND	ND	菜種油と大豆油 の混合
	アセトアルデヒド	185	26.9	12.9	
	プロピオンアルデヒド	454	31.5	16.0	
	ブチルアルデヒド	18.8	ND	ND	
	バレルアルデヒド	76.5	ND	ND	
	ヘキサアルデヒド	621	38.9	35.1	

* 植物油を添加しない試験片 ND (Not detected): $<5.0\mu\text{g}/\text{m}^3$

片と比較して、特にヘキサアルデヒドとバレルアルデヒドが高かった。また、プロピオンアルデヒドが菜種油の試験片の2倍程度、サラダ油の試験片よりやや高い程度の濃度で検出された。アセトアルデヒドについても同様の傾向が見られた。「大豆油添加試験片」のみ、4週間後でもアセトアルデヒド、プロピオンアルデヒド、バレルアルデヒド及びヘキサアルデヒドの4種類のアルデヒド類が検出された。「サラダ油添加試験片」は、ヘキサアルデヒドが、「大豆油添加試験片」の次に高く、4週間経過後もアセトアルデヒド、プロピオンアルデヒド及びヘキサアルデヒドの3種類のアルデヒド類が検出された。

アルデヒド類は、植物油を添加しなければ検出されず、植物油を添加することによって検出された。植物油の添加により様々なアルデヒド類が検出され、その種類は植物油によって異なった。また、放散速度も、植物油によって異なった。

2) 室内空間モデルにおける気中濃度増分予測値
試験片を実際の室内の壁に用いたと仮定し、試験片の放散速度をもとに室内におけるアルデヒド類の濃度を予測した。これを、室内空間モデルにおける気中濃度増分値として表2に示す。

気中濃度は、試験片の放散速度をもとに予測した室内空間における濃度である。アセトアルデヒドの室内濃度指針値 $48\mu\text{g}/\text{m}^3$ と比較すると、「大

表2 放散速度をもとに算出した室内空間モデルにおける気中濃度増分値

漆喰の種類	物質名	気中濃度増分予測値 ΔC $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (ppm)					
		1日後		2週間後		4週間後	
1 コントロール*	ホルムアルデヒド	ND	(ND)	ND	(ND)	ND	(ND)
	アセトアルデヒド	ND	(ND)	ND	(ND)	ND	(ND)
	プロピオンアルデヒド	ND	(ND)	ND	(ND)	ND	(ND)
	ブチルアルデヒド	ND	(ND)	ND	(ND)	ND	(ND)
	バレルアルデヒド	ND	(ND)	ND	(ND)	ND	(ND)
	ヘキサアルデヒド	ND	(ND)	ND	(ND)	ND	(ND)
	合計	ND		ND		ND	
2 菜種油添加	ホルムアルデヒド	ND	(ND)	ND	(ND)	ND	(ND)
	アセトアルデヒド	376	(0.209)	92.2	(0.051)	35.1	(0.019)
	プロピオンアルデヒド	932	(0.392)	103	(0.043)	48.3	(0.020)
	ブチルアルデヒド	39.0	(0.013)	ND	(ND)	ND	(ND)
	バレルアルデヒド	64.2	(0.018)	ND	(ND)	ND	(ND)
	ヘキサアルデヒド	554	(0.135)	49.4	(0.012)	42.8	(0.010)
	合計	1970		245		126	
3 大豆油添加	ホルムアルデヒド	ND	(ND)	ND	(ND)	ND	(ND)
	アセトアルデヒド	829	(0.460)	82.3	(0.046)	48.3	(0.027)
	プロピオンアルデヒド	2000	(0.841)	82.3	(0.035)	42.8	(0.018)
	ブチルアルデヒド	110	(0.037)	ND	(ND)	ND	(ND)
	バレルアルデヒド	831	(0.236)	32.9	(0.009)	25.2	(0.007)
	ヘキサアルデヒド	7400	(1.806)	206	(0.050)	178	(0.043)
	合計	11200		404		294	
4 サラダ油添加	ホルムアルデヒド	ND	(ND)	ND	(ND)	ND	(ND)
	アセトアルデヒド	657	(0.365)	95.7	(0.053)	46.1	(0.026)
	プロピオンアルデヒド	1620	(0.682)	112	(0.047)	57.1	(0.024)
	ブチルアルデヒド	67.0	(0.023)	ND	(ND)	ND	(ND)
	バレルアルデヒド	273	(0.077)	ND	(ND)	ND	(ND)
	ヘキサアルデヒド	2210	(0.540)	139	(0.034)	125	(0.031)
	合計	4830		347		228	

* 植物油を添加しない漆喰 ND (Not detected) : $<17.8\mu\text{g}/\text{m}^3$ (ホルムアルデヒド : $<0.015\text{ppm}$ 、アセトアルデヒド : $<0.010\text{ppm}$ 、プロピオンアルデヒド : $<0.008\text{ppm}$ 、ブチルアルデヒド : $<0.006\text{ppm}$ 、バレルアルデヒド : $<0.005\text{ppm}$ 、ヘキサアルデヒド : $<0.004\text{ppm}$)

豆油添加漆喰」は4週間経過後も指針値を超過していた。「サラダ油添加漆喰」は2週間経過後も指針値を超過していたが、4週間経過後でも指針値に近い値 ($46.1\mu\text{g}/\text{m}^3$) を示すことが予測された。「菜種油添加漆喰」は2週間後まで指針値を超過した。また、アルデヒド類の合計値は、「大豆油添加漆喰」、「サラダ油添加漆喰」、「菜種油添加漆喰」の順で高濃度が予測された。アルデヒド類の合計値を厚生労働省による総揮発性有機化合物 (TVOC) の暫定目標値 $400\mu\text{g}/\text{m}^3$ と比較すると、「大豆油添加漆喰」では2週間経過時点でアルデヒド類だけで TVOC 暫定目標値 $400\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超過し、4週間後でも暫定目標値の半分の $200\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超過すると予測された。「サラダ油添加漆喰」では、2週間後あるいは4週間後でも暫定目標値の半分の $200\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超過すると予測された。「大豆油添加漆喰」及び「サラダ油添加漆喰」は共通してヘキサアルデヒドが高濃度で検出すると予想された。「菜種油添加漆喰」はアルデヒド類の合計値が2週間後で TVOC 暫定目標値の半分の $200\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超過すると予測された。

IV. 考察

本研究の小型チャンバーを利用した再現実験の結果、漆喰のみでは発生しないアルデヒド類が、植物油を混ぜることにより発生することが明らかになった。

また、検出されるアルデヒド類の種類や濃度は、大豆油、サラダ油、菜種油など、植物油の種類によって様々であった。比較的高濃度で検出されたのは、大豆油を添加した漆喰であり、これらの中で濃度が低かったのは菜種油を添加した漆喰であった。

アセトアルデヒドについて論ずると、室内空間の濃度に換算した場合、大豆油を添加した漆喰を用いた室内では、塗布後4週間経過した後も厚生労働省の指針値を超過することが予想された。一方、サラダ油を添加した漆喰及び菜種油を添加した漆喰を用いた室内では、2週間後まで超過し、その後下がることを予想された。

植物油の種類によって発生するアルデヒド類の

種類や濃度が異なった理由の一つとして、植物油に含まれる不飽和脂肪酸の組成の違いが考えられた。表1に示すとおり、主な不飽和脂肪酸は、菜種油は二重結合が1つのオレイン酸、大豆油は二重結合が2つのリノール酸、サラダ油は菜種油と大豆油の混合品であるため、リノール酸を含む。不飽和脂肪酸は、二重結合の数が多いほど酸素と結びつきやすく化学的に不安定である。このため、菜種油は、大豆油やサラダ油よりも酸化されにくく、アルデヒド類の生成が少なかったものと思われた。また、大豆はリノール酸の酸化によって、大豆の青臭さの原因となるヘキサアルデヒドを生成することが知られており、大豆油を添加した漆喰から高濃度のヘキサアルデヒドが検出されたものと推測された^{34, 35)}。建材として用いる素材には、原材料由来の化学物質にも注意を払う必要がある。

Takeda らが行った、日本における新築の一般住宅104軒の調査では、居住者の目、鼻、喉、呼吸器、皮膚などにシックハウス症候群の症状が認められた住宅の室内濃度は、ヘキサアルデヒド中央値 $19.9\mu\text{g}/\text{m}^3$ (最小値 6.2 - 最大値 127.3)、アセトアルデヒド中央値 $35.9\mu\text{g}/\text{m}^3$ (最小値 4.6 - 最大値 129.5)、プロピオンアルデヒド中央値 $11.4\mu\text{g}/\text{m}^3$ (最小値 3.8 - 最大値 22.3) であった³⁶⁾。

Takeda らの調査の結果³⁶⁾ とアセトアルデヒドの濃度を比較すると、大豆油やサラダ油を添加した漆喰では4週間経過後も健康に影響を及ぼす濃度が揮発する可能性が考えられた。

漆喰に混ぜる植物油の種類や量は、施工の現場で調整することが想像され、実際に揮発するアルデヒド類の濃度は住居や季節によって異なると思われる。

一方、環境省では、事業活動に伴って発生する悪臭を規制しており、生活環境を損なう恐れのある物質として特定悪臭物質22物質を定めているが、これには、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、バレルアルデヒドなどのアルデヒド類が含まれている^{20, 21)}。臭気強度は6段階臭気強度法で表し、0：無臭、1：やっと感知できるにおい、2：何のにおいである

かがわかる弱いにおい、3：らくに感知できるにおい、4：強いにおい、5：強烈なにおい、に区分している。特定悪臭物質22物質については、事業所の境界において臭気強度が2.5～3.5を超えないことが要求される^{20,21)}。臭気による健康影響については、臭気閾値の低い物質が室内空气中に存在することによって、皮膚刺激を起こすこと、不快な臭気を含む環境では、鼻、手、目に刺激の症状を起こすことなどの報告がある²²⁾。

臭気の面から考察するため、特定悪臭物質で用いられる単位、ppmに換算した値を表2の各アルデヒドの室内空气中濃度予想値の横に()内に示した^{20,21)}。特定悪臭物質の規制値は臭気強度2.5～3.5であるが、これは悪臭を放出する事業所の境界線での規制値である。一般家庭で求められる臭気強度はこれより低いと考えられる。臭気強度1の濃度、アセトアルデヒド0.002ppm (3.7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)、プロピオンアルデヒド0.002ppm (4.8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)、ブチルアルデヒド0.0003ppm (0.9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)、パレルアルデヒド0.0007ppm (2.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)、または、臭気強度2の濃度、アセトアルデヒド0.01ppm (18.3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)、プロピオンアルデヒド0.02ppm (48.3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)、ブチルアルデヒド0.003ppm (9.0 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)、パレルアルデヒド0.004ppm (14.3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$)が一般家庭で求められる濃度とする。これらの数値と、アルデヒド類の検出濃度が最も低かった菜種油を添加した漆喰から揮発するアルデヒド類の濃度を比較した。4週間後でもアセトアルデヒドは臭気強度2を超過し、プロピオンアルデヒドは臭気強度2の濃度であった。臭気強度1は、1つの物質ではやっと感知できるにおいであっても、複数の物質ではそれ以上のにおいを感じる可能性がある。また、他の植物油では菜種油よりもアルデヒド類の濃度が高いため、臭気による不快感を生じることが考えられた。シックハウス症候群の症状がある居住者の住宅では、存在する化学物質の濃度は通常の住宅のように低くても、臭気の面での不満がある例もあり、臭気が目の不快感を引き起こす可能性もある²³⁾。特定悪臭物質であるアセトアルデヒド、プロピオンアルデヒド、ブチルアルデヒド、パレルアルデヒドが検出された場合には、臭気による

健康影響を疑う必要がある。また、ヘキサアルデヒドは、現在特定悪臭物質として規制されていないが、臭気閾値が低く(においを感じやすい)、においに刺激性があるため、低い濃度で検出された場合であってもヒトへの影響を疑う必要がある³⁸⁾。

V. 結論

シックハウス症候群の原因は室内空气中のさまざまな揮発性の化学物質であるが、アルデヒド類については発生源や症状への寄与など不明な点が多い。そのため、小型チャンバーを用いた放散試験を行ったところ、漆喰は単独ではアルデヒド類を揮発しないが、植物油を混合することによって二次的にアルデヒド類を生成することが明らかになった。

また、室内に塗布された場合の室内空气中濃度予測を行ったところ、過去の論文でシックハウス症候群が発生したとされる濃度を越えることが予想された。アルデヒド類のにおいの閾値は低く、低濃度でも不快に感じられる。本実験で検出されたアルデヒド類の中には、環境省による特定悪臭物質に指定されているアルデヒド類もあり、同症候群を引き起こす可能性が示唆された。

本研究により、天然素材であっても、各々の組成を理解しそれらが混合された時の反応機序を確認して使用しなければ、ヒトへの健康に影響を及ぼす可能性があることが明らかになった。シックハウス症候群に対する環境予防医学的対応としては、植物油添加漆喰は避けることが望まれる。

文献

- 1) 石川哲、坂部貢：シックハウス症候群、化学物質過敏症最近の知見. 空気清浄 44:222-229, 2006
- 2) 森千里、戸高恵美子：へその緒が語る体内汚染——未来世代を守るために——, 技術評論社, 2008, pp 1-207
- 3) Mori C, Todaka E: Establishment of sustainable health science for future generations: from a hundred years ago to a hundred years in the future. Environ. Health Prev. Med., 14: 1-6, 2009
- 4) 戸高恵美子、森千里：シックハウス症候群はなぜ減

- らないか—解決の道筋をつけるために. 科学 79: 989-991, 2009
- 5) 大貫文、齋藤育江、多田宇宏、福田雅夫、栗田雅行、小縣昭夫、戸高恵美子、中岡宏子、森千里: 新築住宅における高濃度化学物質の傾向. 東京都健康安全研究センター研究年報 60: 245-251, 2009
 - 6) 齋藤育江、大貫文、戸高恵美子、中岡宏子、森千里、保坂三継、小縣昭夫、近年の室内空気汚染問題について: 未規制物質による健康リスク 日本リスク研究学会誌 21: 91-100, 2011
 - 7) 吉野博、石川哲: シックハウス症候群を防ぐには—長期に亘る実態調査をふまえて. 東北大学出版会、2011、pp1-246
 - 8) Mori C, Todaka E: Environmental Contaminants and Children's Health. Maruzen Planet Co., Ltd., 2011, pp 99-115. <http://cpms.chiba-u.jp/>, Website of the Center for Preventive Medical Science, Chiba University (2012.5.28)
 - 9) Miller C.S, Prihoda T.J.: The Environmental Exposure and Sensitivity Inventory (EESI): a standardized approach for measuring chemical intolerance for research and clinical applications. *Toxicol Ind Health* 15: 370-385, 1999
 - 10) Mori C: High-risk group and high-risk life stage: Key issues in adverse effects of environmental agents on human health. *Reproductive Medicine and Biology* 3: 51-58, 2004
 - 11) 厚生労働科学研究費補助金健康科学総合研究事業「環境中微量化学物質に対する感受性の動物種差、個人差の解明」研究班: 室内環境中微量化学物質に対する相談回答マニュアル. 2005、pp1-87
 - 12) 森千里、戸高恵美子: 環境改善型予防医学による化学物質問題対策—ケミレスタウン*とケミレス*必要度テストを用いて—. *アレルギー* 57: 828-834, 2008
 - 13) Hojo S, Sakabe K, Ihikawa S, Miyata M, Kumano H.: Evaluation of subjective symptoms of Japanese patients with multiple chemical sensitivity using QEESI[®]. *Environ Health Prev Med* 14: 267-275, 2009
 - 14) 森千里、中岡宏子、花里真道、戸高恵美子: シックハウス症候群予防のための化学物質感受性セルフチェック「ケミレス必要度テスト」の開発: 環境改善型予防医学による化学物質問題対策の実践例 臨床環境 21: 1-8, 2012
 - 15) 厚生労働省: 室内空気中化学物質の室内濃度指針値について. <http://www.mhlw.go.jp/houdou/2002/02/h0208-3.html> (2012.9.18)
 - 16) Takigawa T, Saijo Y, Morimoto K, Nakayama K, Shibata E, Tanaka M, Yoshimura T, Chikara H, Kishi R.: A longitudinal study of aldehydes and volatile organic compounds associated with subjective symptoms related to sick building syndrome in new dwellings in Japan. *Science of the Total Environment* 417-418: 61-67, 2012
 - 17) Takigawa T, Wang B-L, Saijo Y, Morimoto K, Nakayama K, Tanaka M, Shibata E, Yoshimura T, Chikara H, Ogino K, Kishi R.: Relationship between indoor chemical concentrations and subjective symptoms associated with sick building syndrome in newly built houses in Japan. *Int Arch Occup Environ Health* 83: 225-235, 2010
 - 18) Clarisse B, Laurent A.M, Seta N, Le Moullec Y, El Hasnaoui A, Momas I.: Indoor aldehydes: measurement of contamination levels and identification of their determinations in Paris dwellings. *Environmental Research* 92: 245-253, 2003
 - 19) Marchand C, Le Calve S, Mirabel Ph, Glasser N, Casset A, Schneider N, de Blay F.: Concentrations and determinations of gaseous aldehydes in 162 homes in Strasbourg (France). *Atmospheric Environment* 42: 505-516, 2008
 - 20) 環境省: 「廃棄物処理施設生活環境影響調査指針」資料5. 「悪臭関連」
http://www.env.go.jp/recycle/misc/facility_assess/mat05.pdf (2012.9.7)
 - 21) 環境省: 「悪臭防止法施行状況調査」「臭気指数規制ガイドライン」
http://www.env.go.jp/air/akushu/guide_ind/full.pdf (2012.9.7)
 - 22) Hellgren U-M, Reijula K.: Indoor-air-related complaints and symptoms among hospital workers. *SJWEH Suppl* 2: 47-49, 20
 - 23) Nakaoka H, Todaka E, Watanabe K, Mori C.: Chemi-less town project to prevent sick building syndrome: from the view of the environmental preventive medicine using sustainable health town by decreasing the use of chemicals. *Proceedings I of The 6th International Conference on Indoor Air Quality, Ventilation & Energy Conservation in Buildings*, 541-547, 2007
 - 24) 戸高恵美子、森千里: “ケミレス”環境医学—化学物質を削減した社会づくり・環境改善型予防医学の実践—ケミレスタウン・プロジェクト. *医学のあゆみ* 228: 749-753, 2009
 - 25) 戸高恵美子、森千里: 未来世代のためのまちづくり ケミレスタウン・プロジェクト. *日本予防医学会雑誌* 5: 42-45, 2010
 - 26) Mori C, Todaka E, Nakaoka H, Hanazato M.: Chemiless town and town of public health (TOP) project based on

- sustainable health science. *Jpn J Clin Eco.* 20 : 90-99, 2011
- 27) 森千里：第20回日本臨床環境医学会学術集会を終えて— 研究を社会に生かすための「室内空気中の総揮発性有機化合物 (TVOC) のケミレス基準」の提言へ—。臨床環境 20 : 87-89, 2011
- 28) 花里真道、戸高恵美子、中岡宏子、瀬戸博、ケミレスタウンプロジェクト・コンソーシアム、森千里：室内化学物質を低減した居室ユニットの設計・開発 臨床環境 20 : 100-107, 2011
- 29) 花里真道、戸高恵美子、中岡宏子、瀬戸博、ケミレスタウンプロジェクト・コンソーシアム、森千里：室内化学物質を低減したオフィスの改装設計と濃度測定 臨床環境 20 : 108-114, 2011
- 30) Nakaoka H, Todaka E, Hanazato M, Saito I, Seto H, Chemiless Town Project Consortium and Mori C: Total odor threshold ratio can be a new method to evaluate indoor air quality. *Jpn. J. Clin. Ecol.* 20: 115-122, 2011
- 31) Yang F, Zhang B, Ma Q.: Study of sticky rice - lime mortar technology for the restoration of historical masonry construction. *Accounts of chemical research* 43: 936-944, 2010
- 32) JIS A 1901 建築材料の揮発性有機化合物 (VOC)、ホルムアルデヒド及び他のカルボニル化合物放散測定方法—小型チャンバー法
- 33) JIS A 6921 壁紙 附属書 2 (参考) 室内空間モデルにおける気中濃度増分値の算出
- 34) 鈴木秀之、富山大輔：大豆の青臭さの原因である n-ヘキサナールを分解できるアルデヒドデヒドロゲナーゼのスクリーニング。大豆たん白質研究 11 : 67-70, 2008
- 35) Lee K-W, Hong Z, Piao F, Kim Y-W, Chung K-W: Bond reactivity and antioxidant effect on the autoxidation of soybean oil. *Journal of Industrial and Engineering Chemistry* 16: 419-424, 2010
- 36) Takeda M, Saijo Y, Yuasa M, Kanazawa A, Arai A, Kishi R.: Relationship between sick building syndrome and indoor environmental factors in newly built Japanese dwellings. *Int Arch Occup Environ Health* 82: 583-593, 2009
- 37) Wolkoff P: Ocular discomfort by environmental and personal risk factors altering the precorneal tear film. *Toxicology Letters* 199: 203-212, 2010
- 38) Ernstgard L, Iregren A, Sjogren B, Svedberg U, Johansson G.: Acute effects of exposure to hexanal vapors in humans. *JOEM* 48: 573-580, 2006 S