

# 乗用車内空気中のカルボニル化合物の濃度

中山 和好, 日野 隆信

Concentration of Carbonyl Compounds in Inside Air of Private Cars

Kazuyoshi NAKAYAMA, Takanobu HINO

## I はじめに

気密性の高い室内空間において、使用されている建築素材、生活用品中の化学物質による空気の汚染が原因で、居住者に対する健康被害が「シックハウス」、「シックスクール」などと呼ばれ、問題視されている。厚生労働省は13物質の揮発性有機化合物(VOCs)について室内濃度指針値<sup>1)</sup>を定め、換気の励行などをうながしている。家屋に限らず、乗用車のように気密性が高い空間においても、素材、内装品等から化学物質の揮散が考えられる。吉田らは乗用車内における揮発性有機化合物濃度の推移を報告し<sup>2)</sup>、新車納入時翌日の車内空気中から113種のVOCsが同定され、その総濃度は10000 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えた事が示されている。今回我々は、吉田らが測定していない物質を含む13種のカルボニル化合物について、3台の車を対象に調査する機会があったので報告する。

## II 調査方法

### 1. 空気の採取とカルボニル化合物の測定

3台の乗用車を対象に、車内空気中の13種のカルボニル化合物を厚生労働省通知<sup>1)</sup>に準じて測定した。空気の採取はポンプ法とパッシブサンプラー法を車の所有状況に応じて用いた。ポンプ法では、ガステック社製携帯型ガス採取装置GSP-250FT型と捕集管にウォーターズ製のXPoSureアルデヒドサンプラーを、パッシブサンプラー法では、スベルコ製のDSD-DNPHを捕集管に用いた。採取は、屋外に駐車した車の車内中央部で窓を閉じた状態でを行い、同時に、最高・最低温度、湿度及び気圧を測定した。また、2台の車については車外の空気も測定した。外気のポンプ法における採取には捕集管と併にウォーターズ製のOzone Scrubberを用いた。測定はDNPH誘導体化固相吸着/溶媒抽出-HPLC法で行った<sup>3)</sup>。

### 2. 調査対象車

A車：ワゴン型（新車、国産、ガソリン車、排気量3000cc）。納車当日から約1年半にわたり月1回程度、室内空気を24時間ポンプ法（100ml/min、約14L）とパッシブサンプラー法で同時に採取し測定した。ポンプ法にて外気も採取し測定した。

B車：ワゴン型（新車、国産、ガソリン車、排気量660cc）。パッシブサンプラー法にて納入時から約1年間にわたり月1回程度24時間採取し測定した。パッシブサンプラーは2本用い、二重測定を行った。

C車：バン型（購入時から12年、国産、ガソリン車、排気量2000cc、測定時の走行距離は約54000km）。4月～10月の間、夏季を中心に昼間、約7時間ポンプ法（200ml/min、約84L）で採取し測定した。外気も同時に採取し測定した。

## III 結果と考察

A車の測定結果を表1に示した。第1回目の車内空気の採取は3月、納車当日であり、車内には有機溶剤のような化学物質臭が強く感じられた。しかし、表1に示したように測定したカルボニル化合物は高い濃度を示さなかった。図1に比較的高い濃度を示した、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、アセトン、プロピオンアルデヒド及び車内温度の推移を示した。図1から分かるように、外気温が高くなり車内温度の上昇する夏季に濃度が高くなる傾向が見られた。車内温度との相関係数を求めた結果、アセトアルデヒド0.938、ホルムアルデヒド0.900、プロピオンアルデヒド0.833、アセトン0.786であった。筆者らが以前行った事務所ビルの調査<sup>4)</sup>においても外気温とホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、アセトンの濃度は、0.880、0.725、0.641の相関係数で相関を示し、建物全体が暖められる事により、使用された建築材料等からの揮散の増加が考えられたが、今回の調査においても同様な事が考えられた。夏季に濃度が高くなる傾向は、測定された他のカルボニル化合物についても同様であった。気温の低下する冬季の車内濃度は、外気の濃度と差が見られなかった。外気の濃度は、ホルムアルデヒド1.4～5.4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ （平均値3.4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）、アセトアルデヒド1.9～3.4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ （平均値2.8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）、アセトン2.3～4.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ （平均値3.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）の3物質の濃度が高く、他の物質はメチルエチルケトンが検出されるだけであった。なお、A車の駐車スペースは、交通量の比較的多い市道に面しており、外気の採取は車から約1m、道路から4mほどの距離の所で行った。

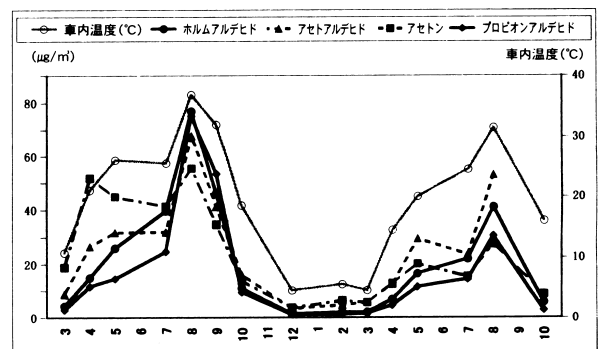


図1 A車における車内温度とホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、アセトン、プロピオンアルデヒドの推移

千葉県衛生研究所

(2004年1月16日受理)

表1 A車における測定結果(μg/m)

月	(平成14年) 3	4	5	7	8	9	10	12
車内温度(℃)	10.8	21.0	26.0	25.5	36.9	32.0	18.5	4.5
ホルムアルデヒド	4.3	14.9	25.9	39.6	76.9	46.2	10.9	1.3
アセトアルデヒド	8.7	26.6	31.8	31.9	67.7	41.2	16.1	3.5
アセトン	18.8	51.8	44.9	41.2	55.5	34.6	13.7	3.7
プロピオンアルデヒド	2.9	11.6	14.5	24.6	75.2	53.4	9.4	1.0
クロトンアルデヒド	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
メタクロレイン	<0.1	1.3	1.7	5.7	17.3	12.9	3.2	<0.1
メチルエチルケトン	5.7	11.2	7.6	6.7	13.1	6.2	5.6	2.3
n-ブチルアルデヒド	1.6	4.4	4.4	4.5	10.3	6.5	1.9	<0.1
ベンズアルデヒド	<0.2	1.9	1.3	1.6	2.6	1.7	<0.2	<0.2
バレルアルデヒド	<0.2	3.1	1.9	1.8	4.1	2.3	0.6	<0.2
シクロヘキサノン	21.8	38.4	12.8	8.8	13.3	6.8	1.1	0.6
p-トルアルデヒド	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘキサアルデヒド	1.7	5.4	4.4	4.2	8.7	5.1	1.4	<0.2

月	(平成15年) 2	3	4	5	7	8	10
車内温度(℃)	5.5	4.5	14.5	20.0	24.5	31.5	16.0
ホルムアルデヒド	1.9	2.0	6.8	16.4	21.9	41.0	5.8
アセトアルデヒド	4.7	5.8	12.4	29.5	23.7	53.1	欠測
アセトン	6.4	5.7	12.8	20.1	15.4	27.5	8.7
プロピオンアルデヒド	1.2	1.5	4.6	11.4	14.3	30.5	2.8
クロトンアルデヒド	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
メタクロレイン	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	4.7	6.0	<0.1
メチルエチルケトン	3.7	4.7	3.9	7.8	3.8	7.3	3.2
n-ブチルアルデヒド	0.7	<0.1	1.8	2.7	2.9	5.7	0.9
ベンズアルデヒド	<0.2	<0.2	0.5	0.9	1.2	1.8	0.4
バレルアルデヒド	<0.2	<0.2	0.6	1.1	1.2	2.3	<0.2
シクロヘキサノン	<0.2	<0.2	<0.2	1.5	2.2	3.4	<0.2
p-トルアルデヒド	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
ヘキサアルデヒド	<0.2	<0.2	1.3	2.4	1.9	4.0	0.7

A車の車内空気採取においてはポンプ法と同時に、ポンプのわりにパッシブサンプラーを設置し、パッシブサンプラー法との比較検討を行った。測定出来た物質についてポンプ法で求めた濃度と、パッシブサンプラーにおける捕集量の関係を図2に示した。相関係数0.9以上で直線性を示し、この関係より求めた各物質のサンプリングレートを表2に示した。表中の計算値はGrahamの法則<sup>9)</sup>(気体の拡散速度は分子量の平方根に反比例する)より、ホルムアルデヒドのサンプリングレートを基準にして求めたものである。筆者らは先に、1年半にわたる新築集合住宅のダイニングキッチンにおける室内空気中のカルボニル化合物の測定において、同

様にポンプ法とパッシブサンプラー法との比較検討を行った<sup>9)</sup>。その結果を参考に表3に示した。いずれの物質においてもサンプリングレートのCV%は10%を越え、季節的な気象条件の変化、窓の開閉の頻度など測定条件に変化があったためと推定された。A車の測定から求めたサンプリングレートと比較すると、CV%は今回の方が小さかった。空気の採取において、窓の開閉がなく気流の影響などが少なかったためと思われる。サンプリングレートは多少の違いが見られたが、ホルムアルデヒドのみ、室内空間の広さ、窓の開閉の有無など、採取環境が大きく違うのにもかかわらず一致した。

表2 A車測定から求められた各カルボニル化合物のサンプリングレート

	平均値 (ml/min)	範囲 (ml/min)	SD	CV (%)	計算値 (ml/min)
ホルムアルデヒド	64.6 (n=12)	47.2~79.5	10.2	15.8	
アセトアルデヒド	54.0 (n=11)	45.1~62.3	6.1	11.3	53.4
アセトン	41.0 (n=12)	36.0~46.9	3.9	9.4	46.4
プロピオンアルデヒド	43.8 (n=12)	37.9~48.7	3.4	7.7	46.4
メチルエチルケトン	37.7 (n=12)	30.9~46.3	4.6	12.1	41.7
n-ブチルアルデヒド	38.5 (n=7)	34.5~44.3	3.6	9.4	41.7
シクロヘキサノン	36.3 (n=6)	32.6~41.2	3.2	8.7	35.7

注) 計算値はGrahamの法則より求めた値

表3 集合住宅測定から求めた各カルボニル化合物のサンプリングレート

	平均値 (ml/min)	範囲 (ml/min)	SD	CV (%)	濃度範囲 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )
ホルムアルデヒド	64.6 (n=20)	39.1~88.5	13.7	21.2	3.6~112
アセトアルデヒド	60.8 (n=9)	42.6~81.1	10.8	17.8	3.6~15.9
アセトン	44.1 (n=19)	26.5~57.2	8.5	19.2	2.7~54.3
プロピオンアルデヒド	47.5 (n=11)	40.2~67.6	7.8	16.4	1.1~4.9
メチルエチルケトン	43.0 (n=16)	23.1~63.5	10.4	24.2	1.6~8.3
ベンズアルデヒド	38.3 (n=10)	29.9~46.8	5.3	13.8	1.2~10.2
バレールアルデヒド	35.7 (n=8)	27.5~42.5	4.9	13.8	1.2~5.7
ヘキサアルデヒド	29.2 (n=10)	18.9~36.8	6.9	23.5	3.2~24.6

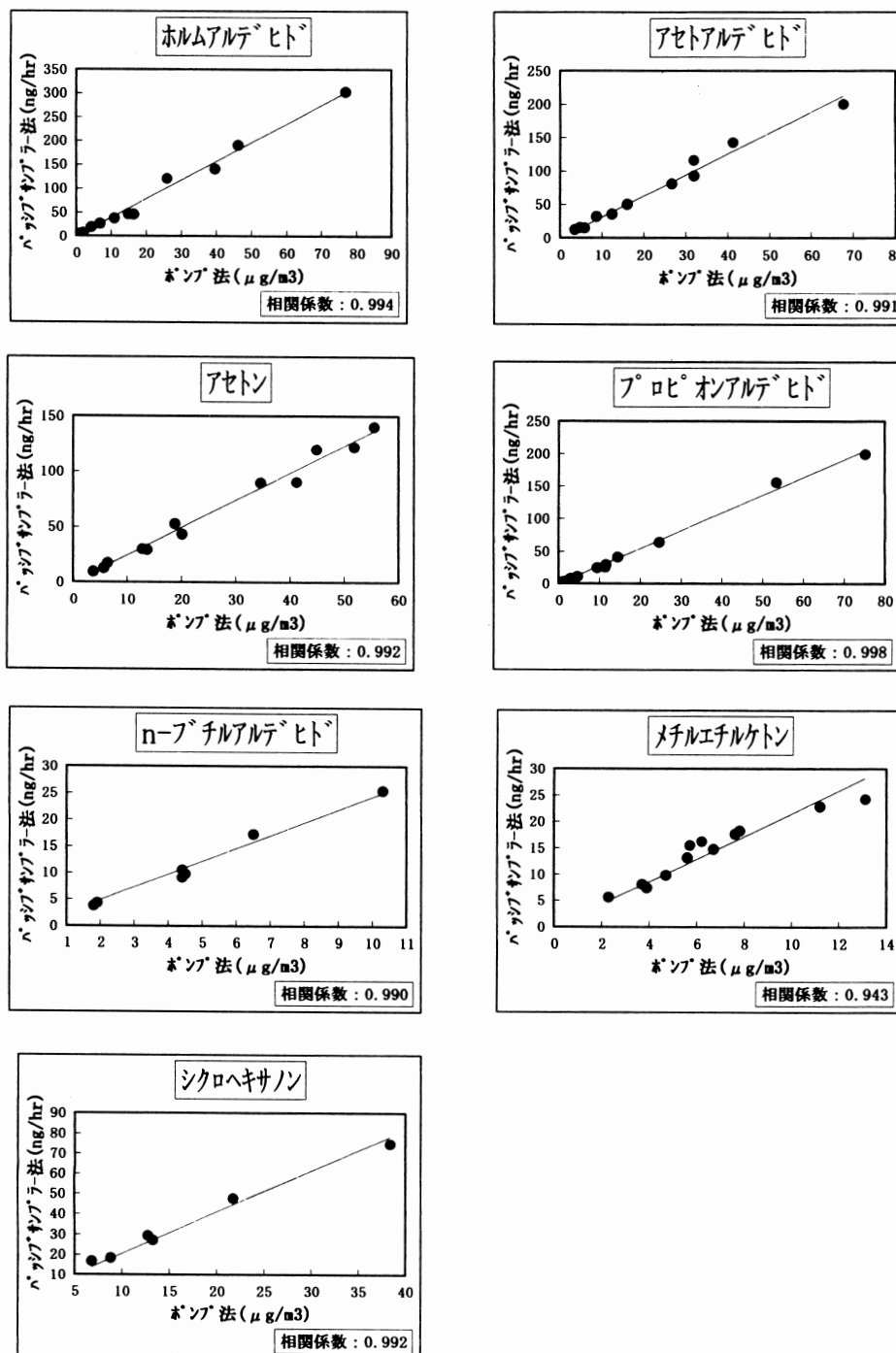


図2 各カルボニル化合物のポンプ法とパッシブサンプラー法における測定値の関係

B車車内空気中のカルボニル化合物の濃度を、A車から求めたサンプリングレートを用い計算した結果を表4、図3に示した。化合物の中ではホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、アセトン、プロピオンアルデヒド、シクロヘキサノンの濃度が高かった。アセトン、シクロヘキサノンは測定開始初期の方が高く、この傾向はA車についても同様に見られ、また、車内温度が上昇する夏季に濃度が高くなる傾向も同様であった。B車においては、パッシブサンプラーを2本使用し平行測定を行ったが、2本の測定値の平均値と各測定値間の差異の全平均は±2.8%~±5.1%の範囲であった。

C車における測定結果を表5に示した。A車、B車と空気の採取時間など違う点があるが、測定した期間、車内温度の上昇とともに濃度が高くなる傾向はA車、B車と同じであり、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、アセトンの3物質の濃度が高いのも同様であった。A車、B車で比較的高い濃度であったプロピオンアルデヒド、シクロヘキサノンはC車では低い濃度であった。A車、B車との違いは、使用期間が購入時より12年間経過している

事である。なお、外気の採取は車から約2mほどの所で行った。回りの環境は道路から離れた木々の多い庭であり、ホルムアルデヒド1.9~6.1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$  (平均値3.2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )、アセトアルデヒド1.4~3.7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$  (平均値2.2 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )、アセトン3.0~7.3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$  (平均値4.7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )であった。

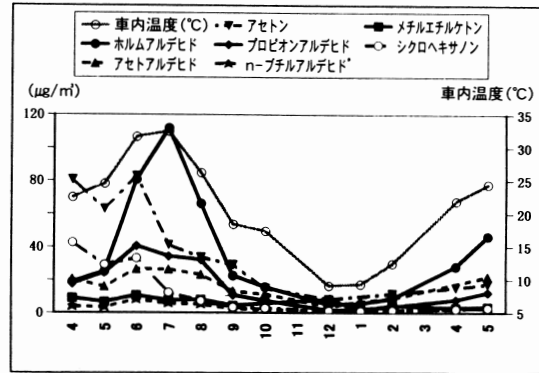


図3 B車におけるカルボニル化合物の推移

表4 B車における測定結果 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )

月	(平成13年) 4	5	6	7	8	9
車内温度(°C)	22.5	24.5	31.7	32.5	26.2	18.4
ホルムアルデヒド	18.6	24.8	80.6	112.0	66.2	22.4
アセトアルデヒド	20.3	15.9	26.5	26.2	23.2	13.3
アセトン	80.5	62.9	82.8	41.3	33.6	29.2
プロピオンアルデヒド	17.6	24.3	40.5	34.2	32.1	10.7
n-ブチルアルデヒド	4.1	3.6	8.2	5.8	5.4	2.7
メチルエチルケトン	9.0	6.5	10.5	7.5	8.0	4.4
シクロヘキサノン	42.6	29.1	33.1	12.3	7.3	3.6

月	10	12	(平成14年) 1	2	4	5
車内温度(°C)	17.4	9.1	9.3	12.4	21.9	24.4
ホルムアルデヒド	15.6	4.9	5.5	8.5	27.9	46.2
アセトアルデヒド	11.2	4.1	6.6	8.9	欠測	21.8
アセトン	14.8	8.3	<1.3	11.7	15.2	17.5
プロピオンアルデヒド	7.3	1.6	2.0	3.6	7.8	12.2
n-ブチルアルデヒド	<0.2	<0.2	0.7	1.4	2.7	2.9
メチルエチルケトン	5.6	8.1	1.5	4.3	2.9	3.6
シクロヘキサノン	2.9	1.4	1.2	1.6	2.4	2.9

表5 C車における測定結果 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )

月	(平成15年) 4	5	6	8	10
車内温度(°C)	26.5	34.5	33.0	36.5	25.0
ホルムアルデヒド	16.6	42.6	54.9	47.3	11.2
アセトアルデヒド	26.4	53.7	95.8	36.6	欠測
アセトン	13.6	20.3	28.2	15.6	8.3
プロピオンアルデヒド	4.3	7.0	10.3	5.4	1.7
クロトンアルデヒド	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2	<0.2
メタクロレイン	<0.2	<0.2	<0.2	2.2	<0.2
メチルエチルケトン	6.3	3.6	7.3	<0.2	1.9
n-ブチルアルデヒド	3.3	5.8	7.8	4.4	<0.2
ベンズアルデヒド	<0.4	4.1	5.3	5.8	2.4
バレアルデヒド	1.8	3.2	3.9	2.5	0.9
シクロヘキサノン	4.5	7.6	8.8	7.0	<0.4
p-トルアルデヒド	<0.4	<0.4	<0.4	<0.4	<0.4
ヘキサアルデヒド	2.1	4.4	5.7	3.4	1.1

測定した物質のうち、ホルムアルデヒドとアセトアルデヒドが厚生労働省の室内濃度指針値項目であり、それぞれ100 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ と48 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の濃度が定められている<sup>1)</sup>。3車の測定結果を見ると、A車の場合アセトアルデヒドが8月の測定で、B車の場合ホルムアルデヒドが7月の測定で、C車の場合アセトアルデヒドが5月、6月の測定で指針値を越えた。気温の上昇する夏季においては、換気等に考慮する必要がある。筆者らは、これまで一般住宅<sup>2)</sup>、事務所ビル<sup>3)</sup>、集合住宅における室内空気中のカルボニル化合物を測定<sup>4)</sup>してきた。測定対象としたカルボニル化合物中でホルムアルデヒド、アセトアルデヒドおよびアセトンの3物質の濃度が高かったのは、今までの測定結果と同じであった。しかし、今回の測定でプロピオンアルデヒド、シクロヘキサノンの濃度が高い事は、いままでの住居家屋等の測定では見られない事であり、測定した車内空気の特徴であった。また、住宅家屋等においては冬季においても、外気に比べ高い濃度で室内空気中にホルムアルデヒドなどが含まれるが、先にも述べたが、今回の調査においては気温の低下する冬季においては、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒドおよびアセトンの濃度が外気の濃度とほとんど変わらなかったのも特徴的であった。住宅におけるホルムアルデヒドの発生原因は、建築素材に使用されている合板、家具類などに用いられている接着剤など明らかになっているものも多いが、今回測定されたカルボニル化合物の発生源の検討は今後の課題である。

#### IV 文 献

- 1) 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について」、医薬発第0207002号、平成14年2月7日。
- 2) 吉田俊明、松永一朗：乗用車内における空気中揮発性有機化合物濃度の推移(その2)、平成14年度室内環境学会総会講演集 56-57。
- 3) 中山和好、成富武治、福嶋得忍、日野隆信(1998)：2、4-DNPH固相カートリッジ/高速液体クロマトグラフィーによる室内空気中のカルボニル化合物の測定、千葉衛研報告、22、10-14。
- 4) 中山和好、日野隆信、今関久和、中橋ひろみ：事務所ビルにおけるVOCs濃度の経時変化について、第38回全国衛生化学技術協議会年会講演集(平成13年度)、104-105。
- 5) 栗山一郎他：基礎物理無機化学、31、横書店、東京、1969。
- 6) 中山和好、日野隆信(2002)：室内空気中のカルボニル化合物の測定に用いたパッシブサンプラーのポンプ法との比較検討、千葉衛研報告、26、15-18。
- 7) 中山和好、日野隆信：集合住宅(新築マンション)におけるVOCs濃度の経時変化の一事例、第39回全国衛生化学技術協議会年会講演集(平成14年度)、106-107。