



2021/11/1

パッシブサンプラー「エアみる」の室内濃度指針値対象物質の定量性能に関する検討

1. はじめに

近年の住宅の高断熱高気密化や建材・生活用品に使用される化学物質の多様化により、室内空气中の揮発性有機化合物(VOC)によるシックハウス症候群の発生が懸念されている。特に室内濃度指針値対象 VOC(以下、指針値 VOC)以外の代替物質が原因のシックハウスが報告されており、この問題は未だに解決には至っていないのが現状である。現在、2-エチル-1-ヘキサノール(以下 2E1H)、2,2,4-トリメチル-1,3-ペンタンジオールモノイソブチレート(以下 TMPD-MIB、代表的な商品名テキサノール)、2,2,4-トリメチル-1,3-ペンタンジオールジイソブチレート(以下、TMPD-DIB、代表的な商品名 TXIB)(以下、これら 3 物質を指針値候補 VOC とする)の室内濃度指針値への追加が検討されている^{2),3)}。今後もこれら指針値候補 VOC のように室内での検出頻度が高く、健康リスクの高い物質は指針値への追加が検討されることになっており、室内空气中の化学物質の汚染状況の把握は重要である。三浦工業と愛媛大学は、これら新規指針値候補 VOC の測定及び空気の汚れ具合と汚染物質調査(簡易的な TVOC 測定)用の室内空气中 VOC 測定用パッシブサンプラー「エアみる」を開発した。本研究では、現行のシックハウス検査等で主な測定対象物質となっている室内濃度指針値 VOC の定量性能をアクティブ法と比較し評価したので報告する。

2. 実験方法

2.1 エアみるの特徴

「エアみる」の特徴は従来のサンプラーと比較し、高いサンプリングレート(SR)を有していることである。曝露試験によって求めたトルエンのSRは128 mL/minと高く、アクティブサンプリングと同等の吸引速度を持ち高感度である。また「エアみる」の吸着剤は吸着力が強く、様々な物性のVOCに対して高い脱着効率を有している⁴⁾。これらの特徴より、現在の指針値VOCである、トルエン、エチルベンゼン、(*o*-, *m*-, *p*-)キシレン、スチレン、*p*-ジクロロベンゼン、テトラデカンに加え、新規指針値候補VOCへの適用が可能であり⁵⁾、また簡易的なTVOC測定への適用も可能である⁶⁾。「エアみる」の設置の様子をFig. 1に示した。



Fig. 1 「エアみる」の設置の様子

2.2 溶媒抽出用アクティブ法

アクティブサンプラーは日本工業規格(JIS) A 1968に従い作成した⁷⁾。使用した吸着剤は「エアみる」と同じもので、この吸着剤の各VOCの回収率は80%以上と良好であった(Fig. 2)。この吸着剤を内径4.4 mmのガラス管に、吸着部として100 mg、破過部として50 mgの2層を形成するように充填したものをアクティブサンプラーとした(Fig. 3)。サンプリング後、破過部の漏出は認められず、吸着部に全てのVOCが回収されたことから問題なくサンプリングが行われたと判断した。なお、アクティブサンプラーを自作した理由は、市販のアクティブサンプラーを用いた溶媒抽出法ではスチレンの回収率が80%以下となることがある為である^{8,9)}。サンプリングポンプは柴田科学(株)製のMP-Σ30N IIを用い、捕集速度は通常のアクティブサンプリングの流量と同じ100 mL/minとした。

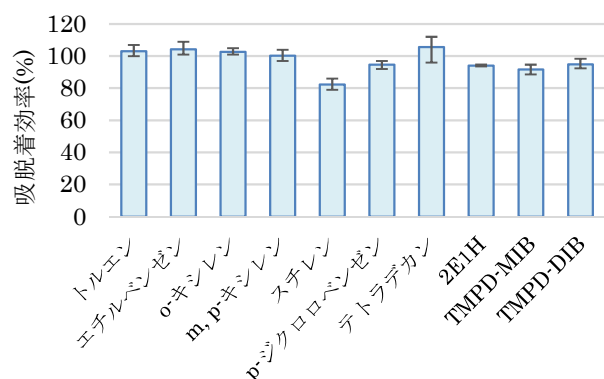


Fig.2 各VOCの吸脱着効率 (n=3)

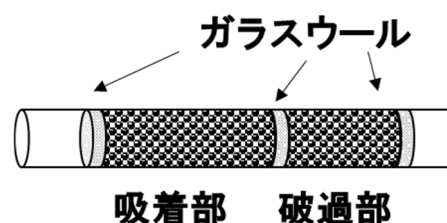


Fig.3 作成したアクティブサンプラー

2.3 抽出・測定方法

「エアみる」に捕集された VOC の分析手順を Fig. 4 に示す。サンプラー内の吸着剤が充填された不織布ごと試験管に移し、二硫化炭素に容量比 20 % のアセトンを含む溶媒（以下、20%アセトン/二硫化炭素）2 mL と内標準物質のトルエン- d_8 10 μ g を添加し、超音波洗浄機（UT-205HS:SHARP 製）を用いて 20 分間超音波抽出した。次に、抽出液中に分散する微小な活性炭粉を除去するために、ピペットチップの先端にガラスウールを詰めたもので抽出液をろ過し、バイアルに移し、ガスクロマトグラフ-質量分析装置（GC-MS）にて測定を行った。なお、吸着剤を充填した不織布ごと抽出したが不織布自体に夾雑物質が無いことは事前に確認済みである。

アクティブサンプラーに捕集した吸着剤は、吸着剤のみ試験管に移し、上記と同じ方法で抽出及び測定を行った。

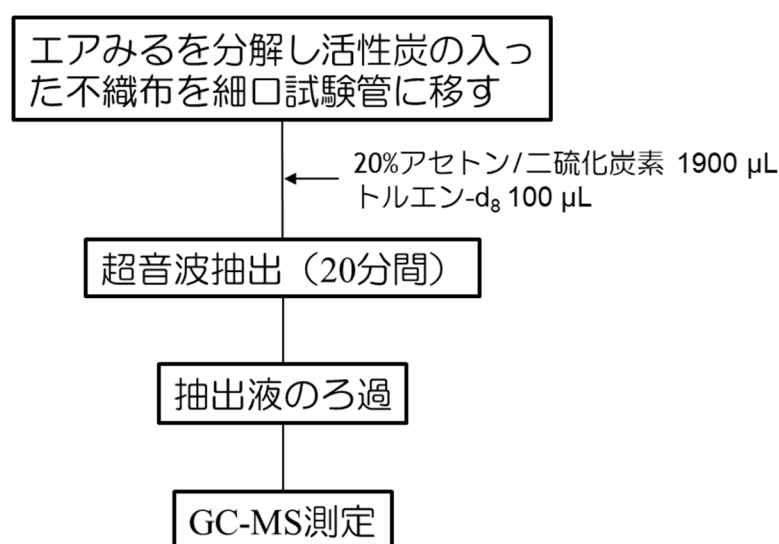


Fig. 4 「エアみる」の分析手順

2.4 濃度算出方法

パッシブサンプラーを用いた VOC の室内濃度算出式は $C = M / (t \times SR)$ と表すことができる。ここで C は分析対象物質の濃度 (μ g/L)、 M はパッシブサンプラーに捕集された分析対象物質の吸着量 (μ g)、 t はサンプリング時間 (min)、 SR はサンプリングレート (L/min) を表す。 SR は小型曝露チャンバーを用いた曝露試験によって求めており、それぞれの SR は Table 1 に示す通りである。

Table 1 指針値 VOC の SR (試験条件 25℃ 湿度 50% 風速 0.05 m/sec)

化合物名	SR (L/min)
トルエン	0.128
エチルベンゼン	0.118
<i>o</i> -キシレン	0.122
<i>m,p</i> -キシレン	0.122
<i>p</i> -ジクロロベンゼン	0.112
スチレン	0.123
テトラデカン	0.088
2-エチル-1-ヘキサノール	0.101
2,2,4-トリメチル-1,3-ペンタンジオールモノイソブチレート	0.083
2,2,4-トリメチル-1,3-ペンタンジオールジイソブチレート	0.068

2.5 プレハブ住居での実測試験

指針値 VOC のうち、トルエン、エチルベンゼン、スチレン、(*o*-, *m*-, *p*-)キシレン、*p*-ジクロロベンゼン、テトラデカンの定量性能について評価するために、プレハブ住居を模擬室内空間として「エアみる」とアクティブ法の並行測定を行った (Fig.5)。使用したプレハブ住居の大きさは横幅 4.35 m、奥行き 2.05 m、高さ 2.25 m、容積約 20 m³ の広さで、部屋には各 VOC の入ったバイアルやシャーレを置きサーキュレータによってプレハブ内の空気を攪拌することで室内空気中の VOC 濃度が均一になるようにした。なお、VOC の入ったバイアルやシャーレの大きさによって VOC の揮発量を制御し、室内濃度を指針値濃度の約 50~200%となるように調整した。各濃度条件においてアクティブ法は $n=2$ 、「エアみる」は $n=3$ とした。アクティブ法の結果は測定値の平均値と各濃度の差が 15%以内であることを確認し平均値を採用した。

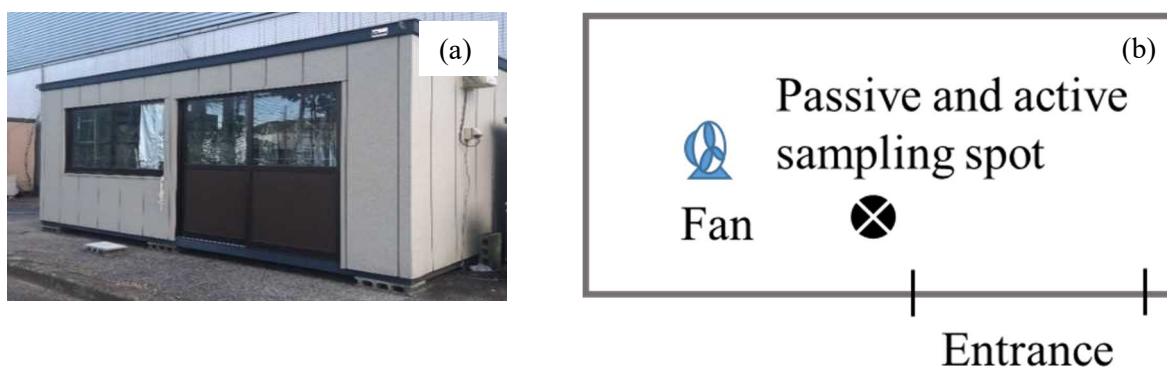
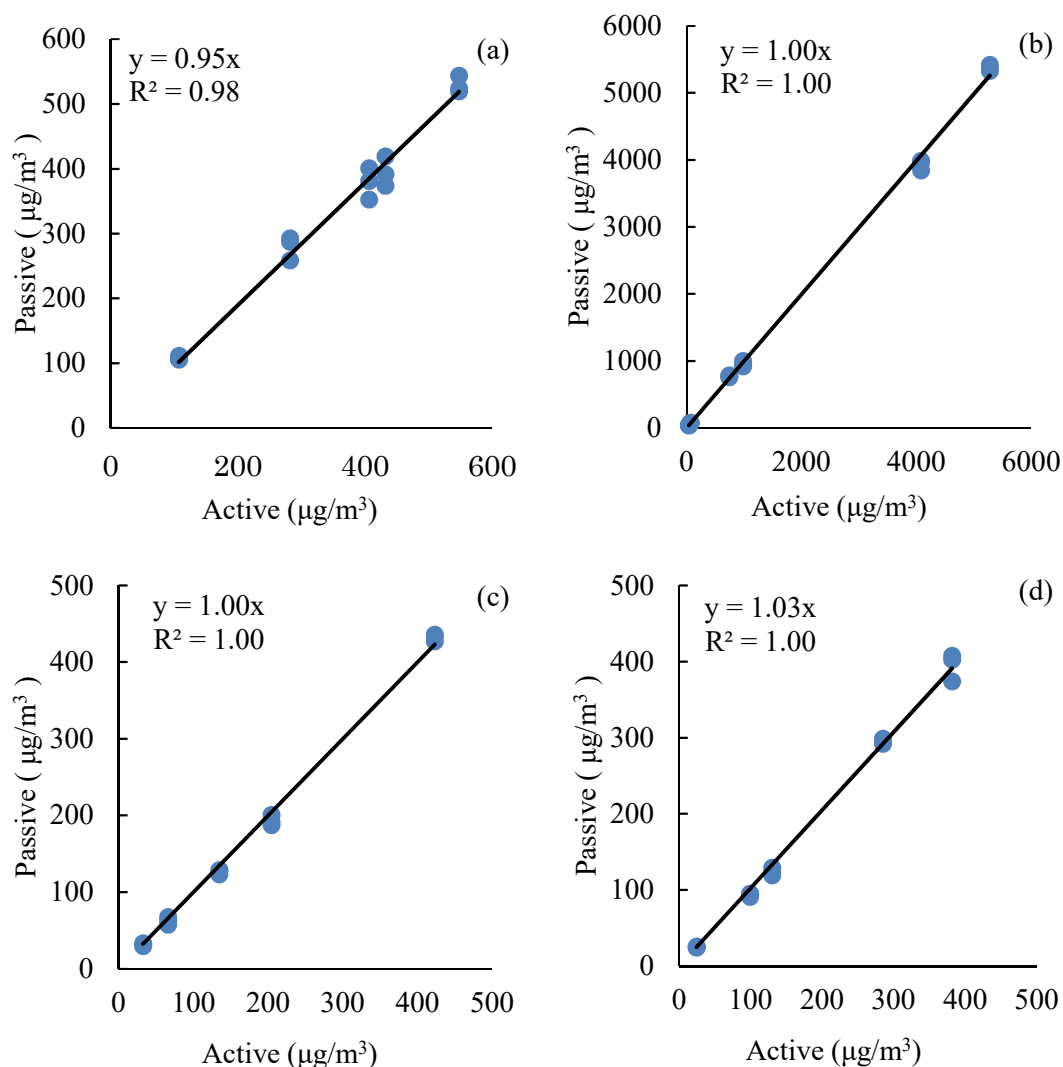


Fig. 5 平衡測定が行われたプレハブ住居の外観 (a) と サンプラーの設置状況 (b)

3. 結果

プレハブ住居内での「エアみる」とアクティブ法の並行サンプリングの結果を Fig. 6 に示した。横軸および縦軸には「エアみる」と溶媒抽出アクティブ法の VOC の定量結果を示しており、両測定結果の差は 10%以内と同等であった。得られた近似直線の傾きは 0.91~1.07、決定係数は 0.98~1.00 であり、「エアみる」によって求めた各 VOC 濃度とアクティブ法で得られた結果とに高い相関が得られた。また、プレハブ内の濃度は指針値の 50~200%程度の濃度範囲であったことから、この濃度範囲において「エアみる」はアクティブ法と同等の定量性能を有していることが明らかであった。各濃度条件 $n = 3$ で実施した「エアみる」の測定結果の変動係数は最も高いもので 11%、ほとんどの結果で数%以内であり、高い再現性が得られた。



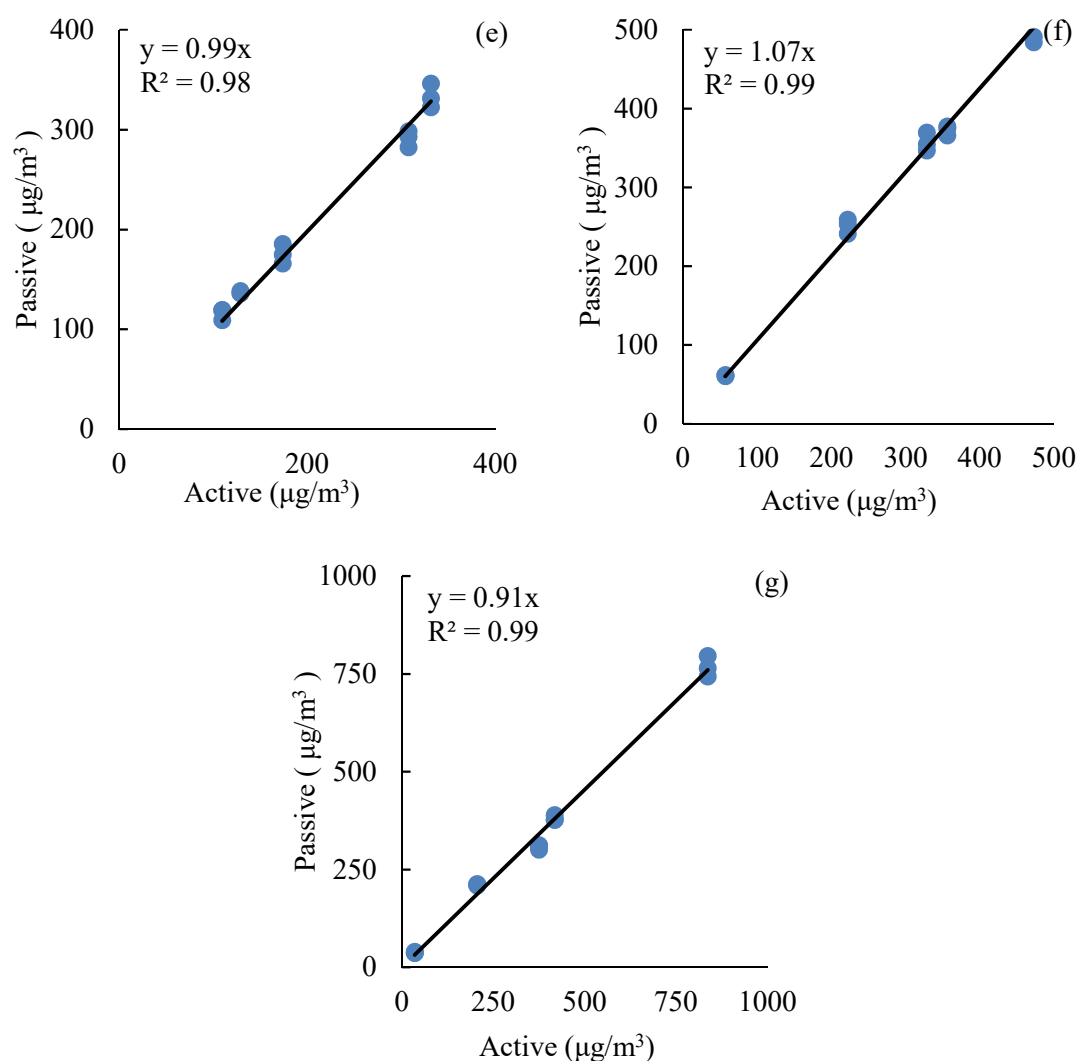


Fig. 6 プレハブ住居内における「エアみる」およびアクティブ法による並行測定結果

(a) Toluene, (b) Ethylbenzene, (c) *p*-Xylene, (d) *o*-Xylene, (e) Styrene, (f) *p*-Dichlorobenzene, (g) Tetradecane

※各濃度条件 $n = 3$ 、全プロット数は 15

4. 【補足】新規指針値候補 VOC の定量性能について

本研究と同様の方法で求めた 2E1H、TMPD-MIB、TMPD-DIB に対するエアみるの定量性能を既報⁹⁾より引用して以下に示した。両測定結果の差は 10%以内と同等であり、得られた近似直線の傾きは 0.92~1.02、決定係数は 0.93~0.98 であり、「エアみる」とアクティブ法で得られた結果に高い相関が得られた。

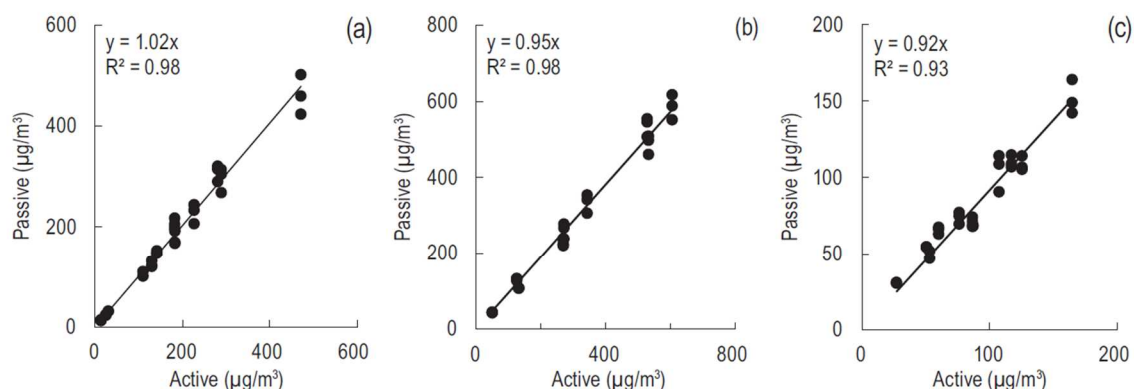


Fig. 8 Comparison of the volatile organic compound concentrations obtained using the passive sampling method and active sampling method in prefab house for 24 hours. (a) 2-Ethyl-1-hexanol ($N=68$), (b) 2,2,4-Trimethyl-1,3-pentenediol monoisobutyrate (Texanol) ($N=58$), (c) 2,2,4-trimethyl-1,3-pentenediol diisobutyrate (TXIB) ($N=68$).

Fig. 7 既報より引用した新規指針値候補 VOC のプレハブ住居内における「エアみる」およびアクティブ法による並行測定結果⁵⁾

5. まとめ

室内空气中揮発性有機化合物測定用パッシブサンプラー「エアみる」の定量性能の評価を行った。現行のシックハウス検査等で主な測定対象物質となっているトルエン、エチルベンゼン、(*o*-, *m*-, *p*-)キシレン、スチレン、*p*-ジクロロベンゼン、テトラデカンおよび指針値候補 VOC の 2E1H、TMPD-MIB、TMPD-DIB のアクティブ法との並行測定を行い、いずれの VOC においても同等の定量結果が得られ、高い相関が得られた。以上から、「エアみる」はアクティブ法と同等の定量性能を有することが明らかとなった。

6. 参考文献

- 1) 斎藤育江, 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) .
- 2) 厚生労働省医薬食品局「第 21 回シックハウス (室内空気汚染) 問題に関する検討会」(2017 年 4 月 19 日) .
- 3) 厚生労働省医薬食品局「シックハウス (室内空気汚染) 問題に関する検討会 中間報告書 第 23 回までのまとめ」(2019 年 1 月 17 日) .
- 4) 石坂閣啓, 川嶋文人: 溶媒抽出法による総揮発性有機化合物 (TVOC) 測定に適した吸着材の特性と脱着方法の検討, 環境化学, 27, 111-119 (2017) .
- 5) 石坂 閣啓, 川嶋 文人, 森 彩乃, 濱田 典明: パッシブサンプリングによる室内空気中の 2-エチル-1-ヘキサノール, テキサノールおよび TXIB の測定方法, 室内環境, 22, 167-176 (2019) .
- 6) 石坂閣啓, 川嶋文人, 濱田 典明: 室内空気中総揮発性有機化合物 (TVOC) 測定用 パッシブサンプラーの開発研究, 環境化学, 28, 9-17 (2018) .
- 7) JIS A 1968, 室内空気中の揮発性有機化合物 (VOC) の吸着捕集・溶媒抽出・キャピラリーガスクロマトグラフィーによるサンプリング及び分析ーポンプサンプリング
- 8) 斎藤翔, 松村年郎, 吉川賢治, 森田孝節, 櫻川昭雄: 活性炭捕集・二硫化炭素抽出/GC-MS を用いた室内空気中のスチレンの定量法, 平成 24 年室内環境学会学術大会講演要旨集, 100-101 (2012) .
- 9) 青柳玲児, 松延邦明, 松村年郎: パーミエーションチューブ法による低濃度スチレン校正蒸気連続発生方法の確立, 室内環境, 12 (2), 97-102 (2009) .



グリーンテクノロジーを創成する
三浦環境科学研究所

愛媛県松山市北条辻864番地1 〒799-2430
TEL 089-960-2350 FAX 089-960-2351

三浦工業株式会社
<http://www.miuraz.co.jp>