

Table 4(1) Concentration of TVOC in Indoor Air at SENDAI AREA

Unit: $\mu\text{g}/\text{m}^3$

Site No.	Sampling point	KA		KU		SY		TA		Average	Ratio(%)
		Indoor	Indoor	Indoor	Indoor	Indoor	Indoor	Indoor	Indoor		
1.	Aromatic Hydrocarbons	43.6	56.3	44.4	63.6	52	24				
2.	Aliphatic Hydrocarbons	39.4	30.1	26.6	60.0	39	18				
3.	Cycloalkanes	1.8	1.2	2.5	3.0	2	1				
4.	Terpenes	13.6	16.4	90.8	30.3	38	18				
5.	Alcohols	5.0	7.5	35.8	6.9	14	6				
6.	Glycols/Glycolethers	2.9	6.7	9.2	5.3	6	3				
7.	Ketones	14.6	5.3	38.2	22.8	20	9				
8.	Halocarbons	10.2	8.9	25.1	44.3	22	10				
9.	Esters	20.3	8.2	19.5	21.1	17	8				
10.	Phthalates	0.0	0.0	3.7	3.9	2	1				
11.	Other	1.7	1.7	2.4	1.7	2	1				
12.	Other(non-ISO)	652.5	1000.4	2920.4	202.9	1194					
ISO Compounds Total : $\mu\text{g}/\text{m}^3$		153	142	298	263	214					
All Compounds Total : $\mu\text{g}/\text{m}^3$		806	1143	3219	466	1408					

Table 4(2) Concentration of TVOC in Indoor Air at NIIGATA AREA

Unit: $\mu\text{g}/\text{m}^3$

Site No. Sampling point	KOMORI		UEKI		AIZAWA		AKAMUR		Average Ratio(%)
	Indoor	Indoor	Indoor	Indoor	Indoor	Indoor	Indoor		
1. Aromatic Hydrocarbons	99.1	51.3	50.8	138.9	85	17			
2. Aliphatic Hydrocarbons	153.7	23.7	26.7	258.1	116	23			
3. Cycloalkanes	7.3	0.6	2.0	11.8	5	1			
4. Terpenes	112.8	336.9	72.8	256.6	195	39			
5. Alcohols	15.1	12.5	11.3	1.5	10	2			
6. Glycols/Glycoethers	6.3	15.4	14.3	1.5	9	2			
7. Ketones	30.7	90.5	62.0	6.8	48	9			
8. Halocarbons	30.9	12.4	9.7	27.0	20	4			
9. Esters	6.8	12.3	11.9	30.6	15	3			
10. Phthalates	4.4	0.0	0.0	0.0	1	0			
11. Other	2.9	1.8	1.7	0.0	2	0			
12. Other(non-ISO)	1050.0	2051.6	395.3	322.9	955				
ISO Compounds Total : $\mu\text{g}/\text{m}^3$	470	557	263	733	506				
All Compounds Total : $\mu\text{g}/\text{m}^3$	1520	2609	659	1056	1461				

Table 4(3) Concentration of TVOC in Indoor Air at ISHIKAWA AREA

Unit: $\mu\text{g}/\text{m}^3$

Site No. Sampling point	HATSUSE/AMAGISHI/AMAHARA		Average	Ratio(%)
	Indoor	Indoor		
1. Aromatic Hydrocarbons	45.1	2.2	2.8	17
2. Aliphatic Hydrocarbons	63.6	8.8	12.1	29
3. Cycloalkanes	1.2	0.0	1.1	1
4. Terpenes	7.8	0.0	0.0	3
5. Alcohols	9.3	1.7	1.6	4
6. Glycols/Glycolethers	6.1	0.0	0.0	2
7. Ketones	11.2	4.7	13.1	10
8. Halocarbons	4.2	0.8	1.1	2
9. Esters	83.0	0.0	0.0	29
10. Phthalates	0.0	0.0	4.3	1
11. Other	1.8	0.0	0.0	1
12. Other(non-ISO)	159.4	905.5	444.8	503
ISO Compounds Total : $\mu\text{g}/\text{m}^3$	233	18	36	96
All Compounds Total : $\mu\text{g}/\text{m}^3$	393	924	481	599

Table 4(4) Concentration of TVOC in Indoor Air at SAITAMA AREA

Unit: $\mu\text{g}/\text{m}^3$

Site No.	Sampling point	DVAKII		IVAKII		KVAKII		MVAKII		SVAKII		TVAKOI		UVAKII		Average	Ratio(%)
		Indoor		Indoor		Indoor		Indoor		Indoor		Indoor		Indoor			
1.	Aromatic Hydrocarbons	61.1		173.0		76.7		202.1		234.0		102.3		85.3		133	11
2.	Aliphatic Hydrocarbons	23.3		120.5		24.7		136.4		299.8		50.6		153.1		115	9
3.	Cycloalkanes	0.6		14.4		1.8		7.4		11.9		8.7		4.3		7	1
4.	Terpenes	10.9		20.4		14.7		5568.7		139.2		22.2		10.0		827	67
5.	Alcohols	3.6		21.9		8.2		57.1		12.6		21.4		16.7		20	2
6.	Glycols/Glycolethers	1.4		100.0		0.9		3.4		12.7		8.0		1.8		18	1
7.	Ketones	8.6		29.9		11.2		100.1		11.7		15.5		10.0		27	2
8.	Halocarbons	4.8		158.9		32.5		75.7		9.4		38.9		88.5		58	5
9.	Esters	4.9		41.6		10.2		88.9		11.4		29.2		10.4		28	2
10.	Phthalates	4.5		0.0		3.8		4.1		0.0		0.0		0.0		2	0
11.	Other	0.2		2.3		0.3		4.6		3.0		2.6		1.9		2	0
12.	Other(non-ISO)	59.6		2333.5		315.9		497.1		3517.8		1610.3		52.4		1198	
ISO Compounds Total : $\mu\text{g}/\text{m}^3$		124		683		185		6248		746		299		382		1238	
All Compounds Total : $\mu\text{g}/\text{m}^3$		183		3016		501		6746		4264		1910		434		2436	

Table 4(5) Concentration of TVOC in Indoor Air at CHIBA AREA

Unit: $\mu\text{g}/\text{m}^3$

Site No. Sampling point	1		2		3		4		Average	Ratio(%)
	Indoor	Indoor	Indoor	Indoor	Indoor	Indoor	Indoor	Indoor		
1. Aromatic Hydrocarbons	136.6	837.0	109.7	76.9	290	60				
2. Aliphatic Hydrocarbons	87.2	38.9	120.8	90.1	84	17				
3. Cycloalkanes	6.1	5.3	6.0	30.3	12	2				
4. Terpenes	6.8	26.3	35.6	20.8	22	5				
5. Alcohols	11.7	4.4	7.1	18.8	10	2				
6. Glycols/Glycolethers	0.0	3.2	1.5	0.0	1	0				
7. Ketones	18.4	23.7	27.3	27.1	24	5				
8. Halocarbons	35.2	14.2	12.5	53.0	29	6				
9. Esters	9.3	10.7	12.1	12.2	11	2				
10. Phthalates	0.0	0.0	0.0	0.0	0	0				
11. Other	0.0	2.0	1.7	0.9	1	0				
12. Other(non-ISO)	166.3	33.8	120.2	805.1	281					
ISO Compounds Total : $\mu\text{g}/\text{m}^3$	311	966	334	330	485					
All Compounds Total : $\mu\text{g}/\text{m}^3$	477	1000	454	1135	767					

Table 4(6) Concentration of TVOC in Indoor Air at HYOGO AREA

Unit: $\mu\text{g}/\text{m}^3$

Site No.	Sampling point	HY		JS		KK		MI		YI		Average	Ratio(%)
		Indoor	Indoor	Indoor	Indoor	Indoor	Indoor	Indoor	Indoor	Indoor	Indoor		
1.	Aromatic Hydrocarbons	161.6	225.4	46.1	126.5	44.1	121	26					
2.	Aliphatic Hydrocarbons	134.6	422.2	26.5	170.6	40.3	159	34					
3.	Cycloalkanes	12.4	19.9	1.3	7.7	3.3	9	2					
4.	Terpenes	42.0	91.8	10.2	15.9	6.3	33	7					
5.	Alcohols	25.1	198.5	10.3	13.7	7.6	51	11					
6.	Glycols/Glycolethers	8.1	37.9	10.2	9.6	1.2	13	3					
7.	Ketones	29.5	43.4	9.1	14.0	11.8	22	5					
8.	Halocarbons	82.8	6.2	4.8	7.6	48.9	30	6					
9.	Esters	17.4	12.1	4.7	97.8	5.6	28	6					
10.	Phthalates	6.2	0.0	0.0	3.9	0.0	2	0					
11.	Other	2.9	3.4	1.7	0.0	0.0	2	0					
12.	Other(non-ISO)	1801.0	7133.0	167.3	2433.8	880.8	2483						
ISO Compounds Total : $\mu\text{g}/\text{m}^3$		523	1061	125	467	169	469						
All Compounds Total : $\mu\text{g}/\text{m}^3$		2324	8194	292	2901	1050	2952						

Table 4(7) Concentration of TVOC in Indoor Air at KOBE AREA

Unit: $\mu\text{g}/\text{m}^3$

Site No.	YAGI		NISHIOCHI		OCHI		SUZUMORI		OSHNAG		KOHNO		YOKOTA		KUMATA		Average	Ratio(%)
	Indoor		Indoor		Indoor		Indoor		Indoor		Indoor		Indoor		Indoor			
1. Aromatic Hydrocarbons	2.1		33.2		37.7		984.2		93.2		594.1		306.4		74.4		266	32
2. Aliphatic Hydrocarbons	4.6		17.5		25.0		250.9		33.5		359.8		511.3		79.8		160	19
3. Cycloalkanes	0.3		0.5		1.8		15.0		3.0		48.8		0.9		13.6		10	1
4. Terpenes	1.5		3.7		4.3		144.3		901.3		129.9		16.0		50.4		156	19
5. Alcohols	0.9		6.5		6.2		173.3		32.1		64.2		61.4		24.5		46	6
6. Glycols/Glycolethers	0.0		2.0		0.0		257.5		10.2		24.0		14.4		11.0		40	5
7. Ketones	4.1		16.6		7.5		131.1		80.8		105.0		37.5		31.9		52	6
8. Halocarbons	39.8		3.1		7.4		104.5		13.9		329.9		6.1		60.9		71	8
9. Esters	0.0		1.5		2.4		80.9		37.6		102.5		12.6		19.6		32	4
10. Phthalates	0.0		0.0		0.0		7.1		1.8		4.4		4.4		0.0		2	0
11. Other	0.0		0.4		0.0		4.7		3.3		5.1		5.0		9.8		4	0
12. Other(non-ISO)	27.8		9.2		48.1		995.9		884.4		8643.1		112.9		4306.4		1878	
ISO Compounds Total : $\mu\text{g}/\text{m}^3$	15		85		92		2153		1211		1768		976		376		834	
All Compounds Total : $\mu\text{g}/\text{m}^3$	42		94		140		3149		2095		10411		1089		4682		2713	

Table 4(8) Concentration of TVOC in Indoor Air at YAMAGUCHI AREA

Unit: $\mu\text{g}/\text{m}^3$

Site No.	1	2	3	4	5	6	7	7	8	8	9	10		Average Ratio(%)
												Indoor	Indoor	
Sampling point	Indoor	Indoor	Indoor	Indoor	Indoor	Indoor	Indoor	Indoor	Indoor	Indoor	Indoor	Indoor	Indoor	
1. Aromatic Hydrocarbons	88.9	34.9	399.0	64.4	133.6	48.9	95.2	96.7	114.9	135.4	85.9	67.2	137	23
2. Aliphatic Hydrocarbons	116.8	45.5	48.3	31.1	70.2	60.3	55.2	57.9	96.3	104.2	33.5	44.4	76	13
3. Cycloalkanes	1.8	3.7	1.3	2.1	2.0	5.5	4.9	5.9	2.2	3.8	2.2	2.5	4	1
4. Terpenes	5.5	14.1	555.6	14.1	221.3	113.1	71.1	63.4	16.7	18.9	170.9	347.9	161	27
5. Alcohols	4.0	41.3	22.0	22.4	5.1	10.0	34.8	33.8	21.5	28.2	22.3	13.5	26	4
6. Glycols/Glycolethers	0.0	5.0	5.9	10.4	4.0	0.0	13.1	12.5	21.4	28.6	6.8	2.6	11	2
7. Ketones	3.0	23.6	28.3	18.3	15.3	22.2	73.2	78.9	27.1	32.0	24.6	17.6	36	6
8. Halocarbons	5.0	3.9	18.6	7.8	1030.4	4.3	42.0	51.1	10.4	20.6	38.8	5.9	124	21
9. Esters	4.2	3.2	15.7	16.4	11.8	3.6	43.5	46.9	29.0	37.4	6.4	11.2	23	4
10. Phthalates	5.3	0.0	0.0	0.0	4.4	0.0	0.0	2.8	0.0	2.2	0.0	0.0	1	0
11. Other	0.1	0.0	3.5	1.7	1.8	0.0	4.3	3.9	4.0	4.4	3.0	1.9	3	0
12. Other(non-ISO)	191.2	865.8	2812.7	1452.2	138.4	379.9	2494.2	2781.7	2154.4	3514.2	289.6	101.8	1718	
ISO Compounds Total : $\mu\text{g}/\text{m}^3$	234	175	1098	189	1500	268	437	454	344	416	394	515	602	
All Compounds Total : $\mu\text{g}/\text{m}^3$	426	1041	3911	1641	1638	648	2932	3235	2498	3930	684	616	2320	

Table 4(9) Concentration of TVOC in Indoor Air at KOCHI AREA

Unit : $\mu\text{g}/\text{m}^3$

Site No.	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	Average	Ratio(%)
Sampling point	Indoor	Indoor	Indoor	Indoor	Indoor	Indoor	Indoor	Indoor	Indoor	Indoor		
1. Aromatic Hydrocarbons	84.2	250.0	53.0	76.3	118.1	58.0	260.2	111.2	187.2	70.7	127	10
2. Aliphatic Hydrocarbons	273.8	252.8	69.8	142.5	112.2	116.5	77.8	65.0	51.4	91.1	125	10
3. Cycloalkanes	8.9	11.7	1.1	9.2	6.2	9.8	1.7	6.3	4.0	1.2	6	0
4. Terpenes	1582.5	900.4	223.4	1318.2	50.2	1100.8	39.6	1472.9	118.5	1018.7	783	63
5. Alcohols	50.8	30.1	29.9	30.8	5.7	52.0	20.9	28.3	35.2	7.0	29	2
6. Glycols/Glycolethers	2.2	4.6	1.0	4.4	17.7	12.3	22.9	7.1	6.5	4.3	8	1
7. Ketones	50.8	17.0	75.8	56.5	33.8	28.6	128.1	62.2	39.3	24.7	52	4
8. Halocarbons	178.7	55.1	238.3	6.4	12.6	48.9	17.4	185.1	121.0	8.3	87	7
9. Esters	30.2	29.2	10.4	12.7	20.2	28.4	21.6	15.8	42.0	4.5	21	2
10. Phthalates	8.7	0.0	0.0	4.0	3.8	4.2	3.9	0.0	3.8	3.9	3	0
11. Other	3.3	2.2	1.8	3.1	2.1	3.4	2.6	3.2	4.8	1.9	3	0
12. Other(non-ISO)	5339.7	30373.9	824.6	280.9	352.6	657.3	115.3	4256.8	3455.0	31.1	4569	
ISO Compounds Total : $\mu\text{g}/\text{m}^3$	2274	1553	705	1664	383	1463	597	1957	614	1236	1244	
All Compounds Total : $\mu\text{g}/\text{m}^3$	7614	31927	1529	1945	735	2120	712	6214	4069	1267	5813	

Table 4(10) Concentration of TVOC in Indoor Air at KUMAMOTO AREA

Unit: $\mu\text{g}/\text{m}^3$

Site No.	Sampling point	A		B		C		D		E		F		G		Average	Ratio(%)
		Indoor		Indoor		Indoor		Indoor		Indoor		Indoor		Indoor			
1.	Aromatic Hydrocarbons	60.3		189.7		240.4		70.9		77.8		105.1		223.1		138	21
2.	Aliphatic Hydrocarbons	35.6		243.1		393.1		115.1		69.0		98.8		459.0		202	30
3.	Cycloalkanes	3.3		11.7		59.1		9.7		0.0		6.6		10.1		14	2
4.	Terpenes	70.7		447.6		8.3		7.7		7.2		7.8		20.7		81	12
5.	Alcohols	31.6		21.9		1.7		10.6		0.0		3.6		896.9		138	21
6.	Glycols/Glycolethers	4.2		4.3		0.0		0.0		0.0		4.3		11.4		3	1
7.	Ketones	10.9		32.2		20.9		2.8		5.7		11.2		137.3		32	5
8.	Halocarbons	8.6		5.8		4.1		2.7		4.2		8.0		187.4		32	5
9.	Esters	22.9		16.4		10.0		128.8		0.0		5.5		11.6		28	4
10.	Phthalates	0.0		4.0		0.0		0.0		0.0		0.0		0.0		1	0
11.	Other	2.9		1.9		0.0		1.8		0.0		0.8		0.0		1	0
12.	Other(non-ISO)	6519.6		3490.1		951.6		757.2		40.2		99.4		1560.0		1917	
ISO Compounds Total : $\mu\text{g}/\text{m}^3$		251		979		738		350		164		252		1957		670	
All Compounds Total : $\mu\text{g}/\text{m}^3$		6771		4469		1689		1107		204		351		3517		2587	

Table -5 Comparison of VOCs concentration in Indoor Air and Guideline value

Unit : μ g/m³

Substance	Guideline value	Over site number
1. Toluene	260	4
2. Ethylbenzene	3,800	0
3. (o, m, p-) xylene	870	0
4. Styrene	220	0
5. 1,4-dichlorobenzene	240	1
6. nonanal	41	0
7. Tetradecane	330	0
8. Di-n-butyl Phthalate	220	0
9. Di-(2-ethylhexyl) Phthalate	120	0

Table 6 Average concentration of TVOCs in Indoor air

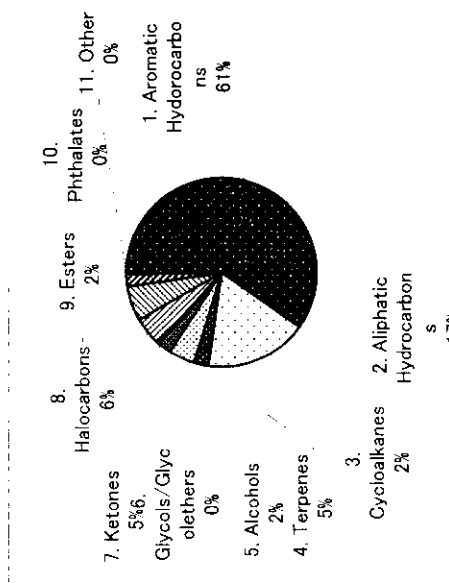
Unit : μ g/m³

Sampling Area	Sampling point	Ave. conc. (only-ISO)*	Ave. conc.**
1. SENDAI	4	214	1,408
2. NIIGATA	4	506	1,461
3. ISHIKAWA	3	96	599
4. SAITAMA	7	1,238	2,436
5. CHIBA	5	485	767
6. HYOGO	5	469	2,952
7. KOBE	8	834	2,713
8. YAMAGUCHI	10	602	2,320
9. KOCHI	10	1,244	5,813
10. KUMAMOTO	7	670	2,587
Average		636	2,306

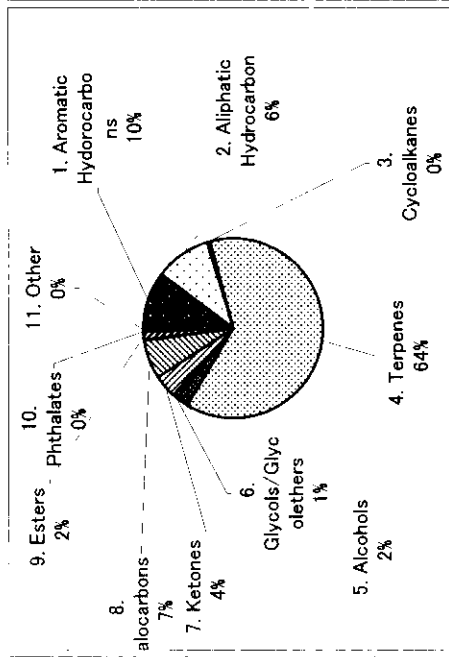
Note * : 13th classification of ISO

** : Ave. conc. is add up ISO and Japan's Original 5 matters

Main (Aromatic hydrocarbons)



Main (Terpenes)



Others

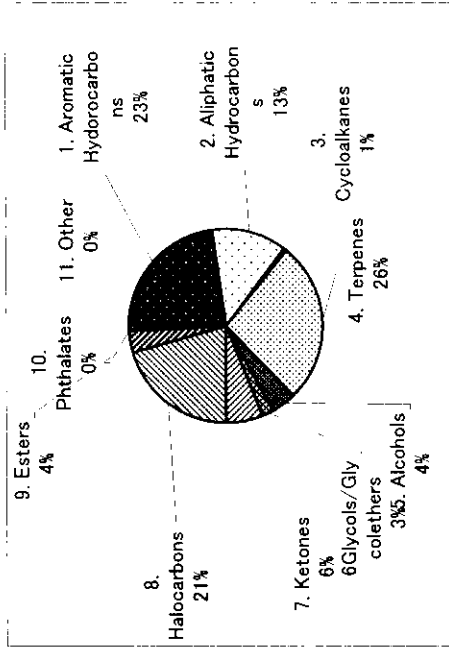


Fig. 1 Main VOCs component in Indoor Air at Sampling Site

厚生科学研究費補助金（生活安全総合研究事業）
分担研究報告書

V. 溶媒抽出法および加熱脱離法による室内空气中化学物質の実態に関する研究

分担研究者：安藤 正典 国立医薬品食品衛生研究所
研究協力者：菅野 猛 仙台市衛生研究所
小川 政彦 埼玉県衛生研究所
中山 和好 千葉県衛生研究所
酒井 洋 新潟県保健環境科学研究所
澤田 道和 石川県保健環境センター
荒木 万嘉 兵庫県立衛生研究所
八木 正博 神戸市環境保健研究所
立野 幸治 山口県環境保健研究センター
川田 常人 高知県衛生研究所
菅本 康博 熊本市環境総合研究所
委託研究者：皆川 直人 グリーンブルー株式会社
長宗 寧
牧原 大

研究要旨

室内空气中の化学物質を溶媒抽出法と加熱脱離法とについて 124 種の化学物質に対して同一室内空気を全国的に調査することによって、我が国における居住空間に存在する化学物質の状況を把握すると共に溶媒抽出法と加熱脱離法の測定方法の差異を検討した。溶媒抽出法では、不検出とされた化学物質は 4 物質であった。1 割以下の家屋しか検出されなかった化学物質は、21 物質、2 割以下の化学物質は 11 物質であった。また、5 割以上の家屋で検出された化学物質は、42 化学物質であった。一方、加熱脱離法においては、不検出あるいは検出率が低い化学物質は、11 化学物質が不検出、14 化学物質が 1 家屋のみ、4 化学物質が 2 家屋のみ、2 化学物質が 3 家屋、2 化学物質が 4 家屋、Menthol が 6 家屋で、33 化学物質が測定家屋の 1 割以下でしか検出されなかった。また、対象家屋のうち 2 割以下の家屋でしか検出されなかった化学物質は、12 物質であった。全家屋のうち 5 割で検出された化学物質は、60 化学物質に及んだ。124 化学物質は、統計的に評価した結果、対数変換した値の統計処理では正規性、分散および差の検定で同等性が認められた。このことは、このような環境化学物質の濃度の検討では、定量下限値に近い濃度を算出しているため、低濃度領域に偏りが生じているためと考えられた。溶媒抽出法と加熱脱離法におけるそれぞれの化学物質の回帰直線は、 $Y = X$ に近似した回帰直線が得られた。

A. はじめに

本分担研究では、室内空気中に存在する可能性のある化学物質160以上のうち、アルデヒド類、有機酸類、その他を除く124化学物質について、全国の居住環境における化学物質の実態を調査すると共に、TVOCの定義を確定するための基礎資料を得るために溶媒抽出法と加熱脱離法との比較検討を行うこととした。

B. 実験方法

1. 溶媒抽出法

分担研究報告“Ⅲ.室内空気中の測定対象化学物質の選定に関する研究“の項と同様の試薬、器具、装置および操作を行った。

2. 加熱脱離法

分担研究報告“Ⅲ.室内空気中の測定対象化学物質の選定に関する研究“の項と同様の試薬、器具、装置および操作を行った。

C. 全国調査実施要領

試料の採取方法は、分担研究報告“Ⅲ.室内空気中の測定対象化学物質の選定に関する研究“の項と同様の試薬、器具、装置および操作を行った。

1. 全国におけるサンプリング

1) サンプリング機関およびサンプル件数

全国における居住環境及びその周辺大気のサンプリング地点は、表1に示すように2001年度には10衛生研究所の協力によって、各衛生研究所の所在都市におけるボランティア家屋を中心として試料採取した。居住環境およびその外気のサンプリング数は、溶媒抽出法、加熱脱離法による採取は、共に63カ所、室外空気63

カ所を採取した。

2. 測定機関

ボランティアに対して全国衛生研究所が実施した室内空気試料は、以下の2機関で測定した。VOCの固相吸着/溶媒抽出法による捕集管試料は、各衛生研究所で測定した。加熱脱着法による捕集管試料はグリーンブルー(株)に委託した。

3. 統計処理

個々の化学物質のデータは、各衛生研究所による分析条件、定量下限、データ算出上の問題から、不検出あるいは異常値を算出する例がみられた。このような場合は、各衛生研究所に対して異常値の確認、再計算あるいは棄却等によって修正した。

個々の化学物質の濃度の評価には、正規分布は得られなかったことから、低濃度領域に偏る非正規性の実数によるヒストグラムではなく、対数変換による正規性の検討を行った。ただし、各化学物質には定量下限値あるいは検出下限値以下および“0”の測定値が多くあることから、数値として表すことができない値については“0”すなわち不検出とした。また、これら“0”の測定値は対数変換できず、統計解析を実施した場合、解析から削除されることになるので、全てに任意の数字を加算した値として対数に変換し、これらをヒストグラムとして求めて不検出と評価した。

D. 結果および考察

1. 加熱脱離法と溶媒抽出法による化学物質の測定法

1. 1. 加熱脱離法と溶媒抽出法による室内化学物質の測定値の比較

加熱脱離法と溶媒抽出法で用いるそれぞれの吸着剤で63家屋の同一室内空気を採取し、溶媒抽出法で採取した吸着剤は各府県衛生研究所で、加熱脱離用吸着剤はグリーンブルーで測定した。採取したそれぞれの吸着剤は、加熱脱離法においては無極性カラムを使用して測定し、溶媒抽出法では、各衛生研究所が所有する無極性カラム、極性カラムまたはその他のキャピラリーカラムで測定した。その結果、分担研究報告“Ⅲ.室内空気中の測定対象化学物質の選定に関する研究”の項にも記したように、溶媒抽出法と加熱脱離法の測定方法および選択したカラムの違いによって、ピークの重なりや溶媒などの影響のため、測定対象の化学物質は多少異なることを示した。

溶媒抽出法では、溶媒による化学物質との重なり、無極性カラムを用いた場合、加熱脱離法では溶媒の影響がみられなかった。これに対して、溶媒抽出法では、使用する二硫化炭素溶媒が直接的に影響することがみられ、脂肪族炭化水素類である 2-Methylpentane, 3-Methylpentane, 2,4-Dimethylpentane, 2,2,4-trimethylpentane などがカラムの劣化などによるテーリングによって測定が困難な状況が発生した。また、極性カラムである WAX 系のカラムでは m-Methylstyrene、p-Methylstyrene、Methylstyrene、n-Hexane、2-Methylhexane、3-Methylhexane、n-Pentane、n-Hexadecane、2-Methylpentane、2,4-Dimethylpentane、2,2,4-Trimethylpentane、Methylcyclopentane、Cyclohexane、Longifolene が溶媒、他の化学物質などとの重

なりやモニタリングイオンが重複して測定できなかった。その他に、n-Hexane、2-Methylhexane、3-Methylhexane 等も影響することが認められた。

加熱脱離法での無極性カラムである DB-1 系カラムでは 1-Propanol、2-Propanol、2-Methyl-2-propanol、Methyl-t-butylether、Ethanol、Propylene glycol、Dimethoxymethane、2-Methylethanone、Acetone、Cyclopentene、2-Methylcyclopentanone、Cyclohexanone、Dichloromethane、Methylacetate、Vinylacetate などが溶媒ピークと重なったり、モニタリングイオンが重複したり、感度が不足したなどによって測定できなかった。

したがって、これらの化学物質については、加熱脱離法と溶媒抽出法との比較を行うことは極力避けることとした。なお、溶媒抽出法は加熱脱離法に比べて、ガスクロマトグラフへの注入量が少ないことから 1/10~1/200 の感度であった。

1. 2. 検出頻度が少ない化学物質

加熱脱離法と溶媒抽出法による室内化学物質の測定値の比較を行った。

溶媒抽出法では、定量下限値が理論上、加熱脱離法に比較して 1/200 程度であることから、測定された化学物質は加熱脱離法に比べて少ない結果であった。不検出とされた化学物質は表 2 のように 2-Propanol、2-Methyl-2-Propanol、Propylene glycol、Dimethoxymethane、Dimethoxyethane、Ethanol であった。1割以下の家屋しか検出されなかった化学物質は、1-Propenylbenzene、1,3-Diisopropylbenzen、

1,4-Diisopropylbenzene, o-Methyl styrene, m-Methyl styrene, p-Methyl styrene, α -Methyl styrene, Caryophyllene, 2-Methyl-2-propanol, 1-Hexanol, Phenol, 2,6-Di-t-butyl-4-methylphenol, Methyl-t-butyl-ether, Dimethoxymethane, 2-Methoxyethanol, 1,2-Dichloropropane, 2-Methoxyethylacetate, 2-Ethoxyethylacetate, Linaloolacetate, Methacrylic acid ester, 1,4-Dioxane、2割以下の化学物質は 4-Phenylcyclohexene, 1-Decene, cis&trans-1-Methyl-4-methylethylcyclohexane, 2-Propanol, Cyclohexanol, Isobutylacetate, Isobutylacetate, Isopropylacetate, 2-Ethylhexylcetate, Dimethyl phthalate, n-Methyl-2-pyrrolidone であった。また、5割以上の家屋で検出された化学物質は、42化学物質であった。

一方、加熱脱離法においては、不検出あるいは検出率が低い化学物質は、表3に示すように、Ethynylbenzene, o-Methylstyrene, p-Methylstyrene, Cyclohexanol, 1-Octanol, Dimethoxyethane, 2-Methoxyethanol, Butylformate, 2-Methoxyethylacetate, Linaloolacetate, m-Methyl-2-purrolidone の11化学物質が不検出、1-Propenylbenzene, m-Methylstyrene, 4-Phenylcyclohexene, 1-Octene, cis-1-Methyl-4-methylethylcyclohexane, trans-1-Methyl-4-methylethylcyclohexane, Caryophyllene, Propylene glycol, 2-Butoxyethanol, 1,2-Dichloropropane, Dimethyl phthalate, 1,4-Dioxane, Caprolactan, Indene の14化学物質が1家屋

のみ、1,3-Diisopropylbenzene, 1,4-Diisopropylbenzene, 2-(2-Ethoxyethoxy)ethanol, Carbon tetrachloride の4化学物質が2家屋のみ、Isopropylacetate, 2-Ethylhexylacetate の2化学物質が3家屋、Texanol, Chloro-dibromomethane の2化学物質が4家屋、Menthol が6家屋で、33化学物質が測定家屋の1割以下でしか検出されなかった。また、対象家屋のうち2割以下の家屋でしか検出されなかった化学物質は、n-Butylbenzene, 2,2,4-Trimethylpentane、Longifolene、2-Methyl-2-propanol、1-Hexanol、2-Ethyl-1-hexanol、Phenol、2,6-Di-t-butyl-4-methylphenol、Methyl-t-butylether、3-Methyl-2-butanone、Propylacetate、Methacrylic acid methyl ester であった。全家屋のうち5割で検出された化学物質は、60化学物質に及んだ。

2. 溶媒抽出法及び加熱脱離法における各化学物質の測定結果

各化学物質についてそれぞれの測定方法における両測定方法の50%タイル、平均値、中央値、幾何平均値、最小最大値、10および90%タイル値は表4のようであった。溶媒抽出法並びに加熱脱離法における平均値、中央値および幾何平均値について比較すると平均値が相対的に高い値を示した。平成9年度および10年度に行った試験でもこの傾向は明確にみられたが、今回の調査でも同様な傾向がみられた。

溶媒抽出法と加熱脱離法との比較を行ったところ、表5のように、それぞれの値のうちで約2倍以上の違いについてみると、いくつかの特徴的な違いがみられた。n-Pentadecane,

2-Methylpentane, 1-Octene, 2,2,4-Trimethylpentane, Dimethoxyetane, 2-Methoxy-ethanol, Carbon tetrachloride, Vinylacetate, n-Methyl-2-oxirrilidone, Caprolactam, Indene などでは平均値、幾何平均値の加熱脱離法に対する溶媒抽出法の値の比が極端に高い値でしかも、加熱脱離法における 90%タイル値並びに最大値が不検出であった。その他にも、1-Propenylbenzene, Ethynylbenzene, o-Methylstyrene, p-Methylstyrene, Cyclohezanol, Texanol, 2-Methoxyethylacetate, Lonaloloacetate, cis&trans-4-Methylethylcyclohexane, Chloroform, Isopropylacetate でも溶媒抽出法が加熱脱離法に比較して 2~5 倍程度高い値であった。これら化学物質の結果は、抽出法が極端に高く、溶媒抽出法/加熱脱離法の比が 4 以上であり、かつ最大値および 90%タイル値のいずれにおいても加熱脱離法の値が 0 に近いことから、ピークの定性確認の誤りまたはトラベルブランクあるいは測定操作からの汚染に由来した異常値であった可能性が高いことが見られた。

一方、3-Carene, α -Pinene, Camphene, β -Pinene, Longifolene, Camphor など Caryophyllene, Limonene を除くテルペン類では、表 6 に示すように、平均値、中央値、幾何平均値、90%タイル値および最大値において、加熱脱離法に比べて溶媒抽出法が 1/2~1/10 倍以下の低い値を示す特徴的結果であった。また、アルコール類でも加熱脱離法が溶媒抽出法に比べて 2 倍以上の値を示す化学物質が多く存在していた。これらの事実は溶媒抽出用の捕集剤の吸着能の差異が明確に現れたものと

考えられた。このように、溶媒抽出法と加熱脱離法とでは、個々の化学物質について比較すると差異が認められ、溶媒抽出法では使用する二硫化炭素溶媒に影響される保持時間付近の化学物質が高い傾向が認められた。

3. 溶媒抽出法及び加熱脱離法における各化学物質の測定値の比較

3. 1. 溶媒抽出法及び加熱脱離法における各化学物質の測定値の比較の妥当性

溶媒抽出法及び加熱脱離法における 124 化学物質のそれぞれの測定データに差異が有るか否かは、両方法が TVOC 測定方法として採用できるか否かに重要な問題である。そこで、124 化学物質のそれぞれについて、ヒストグラムを描かせ正規分布か否かについて評価した結果、低濃度領域に偏りが生じたヒストグラムがみられ、正規分布を示さなかった。

3. 2. 溶媒抽出法及び加熱脱離法における各化学物質の測定値の差異

上記のように、両測定方法による測定値の分布は、正規分布は得られなかったことから、低濃度領域に偏る非正規性の実数によるヒストグラムではなく、対数変換による正規性の検討を行った。その結果、表 7 のように室内での検出率が比較的高い化学物質において正規性の信頼性が高いことがみられた。

また、化学物質において溶媒抽出法と加熱脱離法との測定値の分散性について確認するため F 検定を行ったところ、正規性がみられた化学物質のほとんどでは有意な分散性が確認された。また、その他でも有意性がみられた。

溶媒抽出及び加熱脱離の両法における各化学物質の測定値の違いについて t 検定を行っ

た。その結果、室内空気中での存在量あるいは検出率が高い約 50 化学物質においては、正規性や分散および差の検定で溶媒抽出法と加熱脱離法との測定値に差がないことが認められた。

一方、検出率の極端に低かった化学物質においては、正規性や分散が認められず、t 検定でも溶媒抽出法と加熱脱離法での測定値に明らかな差がみられた。また、平均値や中央値等で両方法との間に差がみられた化学物質群でも、溶媒と重なる n-Hexane 等の化学物質群、テルペン類およびアルコール類で正規性や分散性は認められるものの、溶媒抽出法と加熱脱離法との差の検定では明確な差が統計的に観察された。

3. 3. 各化学物質における溶媒抽出法と加熱脱離法の相関性

各化学物質における溶媒抽出法と加熱脱離法との関係を把握する目的で、検定された両者の対数変換値を用いて、散布図を作成し、比較的検出率が高いあるいは室内空気の問題となる化学物質 42 種を図 1 に示した。また、これらの散布図における常数に変換した単回帰直線、回帰式、相関性および信頼性は表 8 に示すようである。これらから分かるように、正規性や分散および t 検定で差を認めなかった化学物質では、極めて高い相関性を示すことが認められた。また、溶媒抽出法と加熱脱離法におけるそれぞれの化学物質の回帰直線は、 $Y = X$ に近い回帰直線が得られ、両方法との差がないことを証明された。

3. 5. 相関式に問題がある化学物質

溶媒抽出法及び加熱脱離法による各化学物

質の測定値に関する同等性の検討の結果、表 9 に示すように、Y 接辺、 R^2 、相関係数、P 値等において明確に同等性が認められない化学物質の存在が観察された。溶媒抽出法に使用する捕集剤に対してテルペン類の捕集効率が低い場合あるいは加熱脱離法における捕集剤で捕集効率が低い場合など、化学物質の特性に反映された結果が認められた。特に α -Pinene では溶媒抽出法では加熱脱離法に比べて 1/5~1/10 程度の値であったが、Limonene では溶媒抽出法での捕集効率が高いことが示された。また、溶媒抽出法と加熱脱離法における相関式および係数が極端に低い化学物質も観察された。

さらに、溶媒抽出法では二硫化炭素を用いることから、溶媒ピークに重なる化学物質は測定できず、

2-Methylpentan,
3-Methylpentane, 1-Octene, 1-Decene,
2,4-Dimethylpentan,
2,2,4-Trimethylpentane,
Methylcyclopentane, Cyclohexane,
Dichloromethane はほとんど不検出とした。

アルコール類では、エタノールを除いてその存在量は少ないものの、捕集剤の影響が明らかに認められ、同族体であるグリコール類でも同様であった。

D. 考察

1. 室内空気中化学物質の測定方法

室内空気中化学物質の測定方法として既に提案されている方法には、現在大きくは 3 つの方法が示されている。第 1 の方法としては、室内空気中化学物質を効率的に測定するために開発され、多くはヨーロッパで広く利用されている加熱脱離法が挙げられる。しかしながら、

室内空気に関心がもたれてきたのは最近のことであり、加熱脱離法は一部の分野での利用に限られ、しかもその操作には極めて専門性が求められる。一方、我が国では、水道水、環境水あるいは食品の分野で広く用いられている溶媒抽出方法の利用が国および地方公共団体では広く用いられている。また、環境省では、有害大気汚染化学物質のモニタリングにキャニスター法も広く利用されている。このような状況にも関わらず、これら3種の方法についての特性については、国内はもちろんのこと国際的にも評価が行われていない。また、室内空気中で対象とする化学物質の範囲についても対象とするべき化合物は示されているものの、その測定方法が明確でなく、個別測定あるいはグループ毎の測定は可能であっても、より現実的な一斉分析法についての検討はなされていない。これらのことから、室内空気中の化学物質を一度の空気採取でより広い化学物質の測定の可能性のある方法の開発とそれらの手法の整合性についての検討として、溶媒抽出法と加熱脱離法とについて126種の化学物質について同一室内空気を全国的に調査することによって、我が国における居住空間に存在する化学物質の状況を把握すると共に溶媒抽出法と加熱脱離法の測定方法の差異を検討した。

2. 加熱脱離法と溶媒抽出法における測定の検討

加熱脱離法と溶媒抽出法で用いるそれぞれの吸着剤で63家屋の同一室内空気を採取した。採取したそれぞれの吸着剤は、加熱脱離法においては無極性カラムを使用して測定し、溶媒抽出法では、各衛生研究所が所有する無極性カラム、極性カラムまたはその他のキャピラリーカ

ラムで測定した。その結果、ピークの重なりや溶媒などの影響のために測定不可能な化学物質がそれぞれのカラムで存在し、測定不可能な化学物質はカラムによって異なることがみられた。

また、溶媒抽出法と加熱脱離法とでは、定量下限値が大きく異なることがみられたが、これは溶媒抽出法が加熱脱離法に比べて、ガスクロマトグラフへの注入量が採取空気量に換算すると1/200と極端に少ないことに起因していると考えられた。

3. 居住環境に存在する化学物質の実態

加熱脱離法と溶媒抽出法による室内化学物質の測定値の比較を行った。溶媒抽出法では、不検出とされた化学物質は4物質であった。1割以下の家屋しか検出されなかった化学物質は、21物質、2割以下の化学物質は11物質であった。また、5割以上の家屋で検出された化学物質は、42化学物質であった。

一方、加熱脱離法においては、不検出あるいは検出率が低い化学物質は、11化学物質が不検出、14化学物質が1家屋のみ、4化学物質が2家屋のみ、2化学物質が3家屋、2化学物質が4家屋、Mentholが6家屋で、33化学物質が測定家屋の1割以下でしか検出されなかった。また、対象家屋のうち2割以下の家屋でしか検出されなかった化学物質は、12物質であった。全家屋のうち5割で検出された化学物質は、60化学物質に及んだ。

これらに事実は、溶媒抽出法では、定量下限値が加熱脱離法に比較して高い値であることから、測定された化学物質は加熱脱離法に比べて少ない結果であったと考えられた。

各化学物質について溶媒抽出法並びに加熱