

Acetamiprid: <http://toxnet.nlm.nih.gov/cgi-bin/sis/search2/f?./temp/~mMR3TL:1> (2015.7.27)

Thiacloprid: <http://toxnet.nlm.nih.gov/cgi-bin/sis/search2/f?./temp/~F6VhQI:1> (2015.7.27)

14) 総務省統計局 統計学習指導のために (先生向け) 補助教材 基本用語集 <http://www.stat.go.jp/teacher/c2dic.htm> (2015.7.27)

15) バイエルエンバイロサイエンス事業本部 シロアリ

製品 土壌処理剤 ハチクサン® FL、[http://www.es.bayer.jp/product\\_white/termite/hachikusanFL.html](http://www.es.bayer.jp/product_white/termite/hachikusanFL.html) (2015.7.27)

16) 日本エンバイロケミカルズ シロアリ駆除剤 タケロック

<http://www.shiroari-kujyo.jp/products/takelock/index.html> (2015.7.27)

線香等から放出される揮発性有機化合物類、  
アルデヒド類及び有機酸の調査

大貫文\*, 菱木麻佑, 斎藤育江, 保坂三継, 中江大

東京都健康安全研究センター 薬事環境科学部  
〒169-0073 東京都新宿区百人町3-24-1Investigation on volatile organic compounds, aldehydes and organic  
acids emitted from incenses

Aya ONUKI, Mayu HISHIKI, Ikue SAITO, Mitsugu HOSAKA and Dai NAKAE

Department of Pharmaceutical and Environmental Sciences,  
Tokyo Metropolitan Institute of Public Health, 3-24-1, Hyakunin-cho, Shinjuku-ku, Tokyo 169-0073, Japan

## 要 旨

室内で燃焼させて使用する線香類について、燃焼時に放出される化学物質を分析し、線香類を使用した際に推定される室内空気中化学物質濃度を算出した。方法は、市販の線香類12試料を燃焼させ、その煙を空気採取用バッグに採取し、バッグ内の揮発性有機化合物類、アルデヒド類及び有機酸類の濃度を測定した。その結果から、試料重量当たり及び燃焼時間当たりの物質放出量を求め、室内空気中の有害物質等濃度を推定した。検出されたのは48物質で、アセトアルデヒド、イソプレン、酢酸、アクロレイン及びベンゼン等の放出量が多かった。48物質合計値の6割以上を有機酸類が占めた試料も見られた。同じ銘柄で煙の量が異なる製品の放出量( $\mu\text{g/h}$ )を比較した結果、煙が「ほとんどない」と標榜していた試料における48物質の合計放出量は「ふつう」の試料の約25%で、なかでも、酢酸及びホルムアルデヒドの放出量が少なかった。また、主に室内で使用する9試料を1時間燃焼させた後の空気中有害物質濃度を推定した(室内容積 $20\text{ m}^3$ 、換気回数0.5回/時)。主な物質の濃度範囲は、ベンゼンが $11\sim 77\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、1,3-ブタジエンが $4.8\sim 14\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、アセトアルデヒドが $22\sim 160\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ で、アセトアルデヒドについては、6試料が厚生労働省による室内空気中濃度の指針値を超過すると推定された。

## Abstract

The objective of this study was to analyse chemical substances in the smoke emitted by burning incense, and to estimate their concentrations in air when the incense was burned indoors. The smoke generated when 12 different types of incense were burned was collected into air sampling bags, and the chemical substances in each bag were analysed. The emission rates for the different chemical substances ( $\mu\text{g/g}\cdot\text{incense}$  and  $\mu\text{g}/\text{min}$ ) were calculated, and the concentrations of the chemicals in indoor air were estimated on the basis of the data. The forty-eight chemical substances containing acetaldehyde, isoprene, acetic acid, acrolein and benzene were mainly detected, and there was a sample in which the emission rate of organic acid accounts for 67 percent of all chemicals.

In addition, the emission rates ( $\mu\text{g}/\text{min}$ ) of the chemical substance emitted from the incense sticks in which the quantity of smoke differs was compared.

This analysis indicated that the emission rates of acetic acid and formaldehyde from incense that emitted a less quantity of smoke were low, and a emission rate of the total of 48 chemicals was 25% compared with the incense stick with a regular quantity of smoke. Finally, the concentration of chemical substances in indoor air after burning 9 types of incense for 1 hour each was estimated. The concentrations of benzene, 1,3-butadiene and acetaldehyde were in the range of  $11\sim 77\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ ,  $4.8\sim 14\ \mu\text{g}/\text{m}^3$  and  $22\sim 160\ \mu\text{g}/\text{m}^3$ , respectively. Furthermore, the acetaldehyde emission from 6 incense samples exceeded the guideline value for indoor air established by the Ministry of Health, Labour and Welfare of Japan.

**Key words:** 線香(Incense), 蚊取線香(Mosquito coil), 燃焼生成物(Product of combustion),  
酢酸(Acetic acid), ギ酸(Formic acid), ベンゼン(Benzene), 1,3-ブタジエン(1,3-  
Butadiene), アセトアルデヒド(Acetaldehyde)

\*Corresponding author (責任著者) Email: Aya\_Oonuki@member.metro.tokyo.jp, Tel: 03-3363-3231

受付: 2014年11月21日 (Received: 21 November 2014)

受理: 2015年2月4日 (Accepted: 4 February 2015)

## 1. はじめに

住宅室内の空气中化学物質が原因で体調不良を引き起こすシックハウス症候群が社会問題になってから既に十数年が経った。この間、厚生労働省による室内空气中化学物質濃度の指針値及び総揮発性有機化合物濃度(total VOC)の暫定目標値の設定<sup>1)</sup>や国土交通省による建築基準法等の一部改正<sup>2,3)</sup>等のシックハウス対策が取られてきた。

一方、建材以外にも、居住者が自ら持ち込む家具類や、室内で使用する日用品等が、化学物質の発生源になる可能性が指摘されており、チャンバー実験等により、ソファ及び机等の大型家具、カーペット等のインテリア用品、消臭・芳香剤類、文具・玩具類など、多種の用品から化学物質が発生することが報告されている<sup>4)</sup>。また、電気蚊取を使用した際に、その溶剤成分の室内空气中濃度が増加することも報告されている<sup>5)</sup>。

そこで今回、我々は、室内における化学物質の発生源として、室内で燃焼させて使用する線香類に着目し、線香の煙に含まれる化学物質の調査を行った。線香類の煙中物質については、インド、香港、台湾等の製品についての報告<sup>6,7)</sup>が複数見られ、測定項目については、微小粒子(PM)、無機ガス、多環芳香族、VOC類及びアルデヒド類がほとんどであった。一方、アルデヒド類の酸化物であり、刺激臭を持つ酢酸等の報告例はほとんど見られなかった<sup>4,5)</sup>。そこで、本報では国産の仏壇用線香を含む線香類を対象に、VOC類及びアルデヒド類に加え、有機酸

類の煙中濃度を測定した。また、その結果に基づき、室内で線香類を使用した際に推定される空气中化学物質濃度を算出した。

## 2. 実験方法

### 2.1 調査対象試料

調査対象試料は、市販の線香8製品(No.1~8)、お香2製品(No.9, No.10)及び蚊取線香2製品(No.11, No.12)の計12製品で、その詳細をTable 1に示した。線香は、No.1~5が仏壇用で、No.6~8はお墓参り等での使用を想定した屋外用であった。各試料の形状は、棒状、コーン型及び渦巻き型で、主な原料は、線香は桧、タブ及び杉、お香は蓮及び木粉、蚊取線香は殺虫成分(ピレスロイド)及び植物性粉であった。煙の量の表示は、No.1が「微煙」、No.2が「ほとんどない」、No.3が「少ない」、No.4, No.5及びNo.7, No.8が「ふつう」及び「一般的」で、No.1~No.3はLess smokeと、No.4, No.5及びNo.7, No.8はRegular smokeと示した(Table 1)。No.6及びNo.9~No.12については記載されていなかった。No.2とNo.4及びNo.3とNo.5は煙の量の表示が異なる同じ銘柄の製品であった。製造元は、No.9及びNo.10がインド、その他は全て国内の企業で、No.2~5は同じ企業の製品であった。試料1本または1個当たりの重量は、No.1~8は0.29~0.46 g, No.9及びNo.10は1.6~1.7 g, No.11及びNo.12は12~13 gであった。なお、試料重量は、No.1, No.11及びNo.12は1試料、他は試料3本(個)の平均値を算出した。

Table 1 Characteristics of test incenses

Sample No.	Purpose of use	Forms	Materials	Quantity of smoke	Place of production	Weight of one unit (g)
No. 1	Buddhist altar	Stick	Hinoki	Less smoke	Japan	0.39
No. 2	Buddhist altar	Stick	Machilus, Charcoal	Less smoke	Japan	0.46
No. 3	Buddhist altar	Stick	Machilus, Charcoal	Less smoke	Japan	0.44
No. 4	Buddhist altar	Stick	Machilus	Regular smoke	Japan	0.41
No. 5	Buddhist altar	Stick	Machilus	Regular smoke	Japan	0.36
No. 6	Visiting of grave	Stick	Japanese cedar	Unknown	Japan	0.32
No. 7	Visiting of grave	Stick	Japanese cedar	Regular smoke	Japan	0.29
No. 8	Visiting of grave	Stick	Japanese cedar	Regular smoke	Japan	0.34
No. 9	Aromatic	Corn	Lotus	Unknown	India	1.7
No. 10	Aromatic	Corn	Wood powder	Unknown	India	1.6
No. 11	Mosquito control	Coil	Pesticide, Plant powder	Unknown	Japan	13
No. 12	Mosquito control	Coil	Pesticide, Plant powder	Unknown	Japan	12

## 2.2 測定対象物質

グリオキサール, 1,3-ブタジエン, エタノール, メチルグリオキサール, プロパノール, イソプレン, ジクロロメタン, 2-ブタノン, 2-メチルフラン, ヘキサン, 酢酸エチル, クロロホルム, 1,2-ジクロロエタン, 2,4-ジメチルペンタン, ブタノール, ベンゼン, 1,2-ジクロロプロパン, ブロモジクロロメタン, トリクロロエチレン, 2,2,4-トリメチルペンタン, ヘプタン, 4-メチル-2-ペンタノン, トルエン, ジブロモクロロメタン, 酢酸ブチル, オクタン, テトラクロロエチレン, エチルベンゼン, キシレン, スチレン, ノナン,  $\alpha$ -ピネン, エチルトルエン, トリメチルベンゼン,  $\beta$ -ピネン, デカン, *p*-ジクロロベンゼン, リモネン, ノナナール, ウンデカン, 1,2,4,5-テトラメチルベンゼン, イソボルネオール, ボルネオール, デカナール, ドデカン, トリデカン, テトラデカン, ペンタデカン, ヘキサデカン, ホルムアルデヒド(FA), アセトアルデヒド(AA), アセトン, アクロレイン, プロピオンアルデヒド, クロトンアルデヒド, ブチルアルデヒド, ベンズアルデヒド, イソバレールアルデヒド, バレールアルデヒド, ジメチルベンズアルデヒド, トルアルデヒド, ヘキサアルデヒド, 酢酸及びギ酸の合計64物質を測定対象とした。

## 2.3 煙中化学物質の採取法

No.1~8は約5 cm, No.9及びNo.10は先端側を約1 cm, No.11及びNo.12は約3 cmを切断して使用し, 点火前に重量を計測した。線香煙の採取は, Yangら<sup>9)</sup>の方法を参考に行った。その方法は, 点火した試料を直ちに線香立てに設置し, 上下に開口部のあるナス型フラスコ(クデルナ・ダニッシュ用, 柴田科学製)を被せた。Fig.1に示したように, フラスコの下から, ポンプにより室内空気を流速0.2 L/minで送り, フラスコの上方に設置した空気採取用バッグに煙を採取した。試料が燃え尽きるか火が消えるまでの時間を計測し, その後, 3分間以上通気した。途中で火が消えた試料については残った試料重量を計測し, 燃焼灰重量は計測しなかった。計測した燃焼時間及び燃焼重量より, 時間あたりに燃焼する試料の重量(試料燃焼重量)を算出した。なお, バッグ内には燃焼中の煙及び燃焼後の空気が導入されたが, バッグ中から検出された物質は全て煙中化学物質とみなし, 分析結果より試料重量当たり及び

燃焼時間当たりの化学物質放出量を算出した。また, 対照試料はバッグに室内空気のみを導入したものをを用い, これをブランク値として試料の分析結果より減算した。

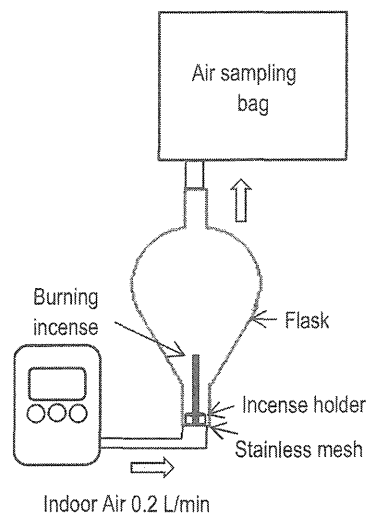


Fig.1 Schematic illustration of an experimental system to collect smoke from burning incense

## 2.4 標準物質

VOC混合標準液及びアルデヒド/ケトン-DNPH MIXはSupelco製, グリオキサール(40%), イソプレン(一級), 2-メチルフラン(特級), 酢酸アンモニウム(特級)及びギ酸アンモニウム(特級)は和光純薬製, ボルネオール(97%)及びイソボルネオール(95%)はSigma-Aldrich製, メチルグリオキサール(40%)はMP Biomedicals製, 1,3-ブタジエンはAccu Standard製を使用した。

## 2.5 分析方法

VOC類については, 捕集管にCarboxen1016(Supelco製)を用い, バッグ内空気を50 mL採取後, 加熱脱着装置(Turbo Matrix 650, Perkin-Elmer製)-ガスクロマトグラフ/質量分析計(GC/MS, GC17A/QP5050A, 島津製作所製)で分析した。分析条件は, 加熱脱着装置が, 一次脱着250°C(10 min), 脱着流量30 mL/min, 二次トラップTenaxTA, 4°C -250°C(5 min), トランスフェライン温度250°C, バルブ温度250°Cであった。GC/MSは, カラムDB-1(30 m×0.25 mm, 1 µm film, Agilent Technologies製), オープン温度40°C(3 min) -12°C/min-220°C(2 min)

-20°C /min-300°C (1 min), キャリアーガスHe(50 kPa), 検出器温度250°C, SCANモード( $m/z$  43-350)であった。定量下限値は操作ブランクの平均値( $n=4$ )の3倍とし, エタノールのみ120  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ で, 他は50  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ とした。

アルデヒド類については, 捕集管にXpoSure (Waters製)を用い, バッグ内空気を0.3 L/minで1分間採取後, アセトニトリル5 mLで抽出し, 溶出液を高速液体クロマトグラフ(LC-10Aシリーズ, 島津製作所製)で分析した。アクロレイン及びクロトンアルデヒドについては, 溶出液1 mLに42.5%リン酸水溶液を0.1 mL添加し, 65°Cで15時間加熱したものを分析した<sup>16)</sup>。分析条件は, カラムZORBAX Bonus RP(250 mm×4.6 mm, 5  $\mu\text{m}$ , Agilent Technologies製), カラム温度40°C, 移動相Aアセトニトリル50:水50:テトラヒドロフラン0.1, 移動相Bアセトニトリル80:水20:テトラヒドロフラン0.1, グラジエント(%B) 25%(14 min) -25%/min-100%(9 min), 流速1.0 mL/min, 検出波長360 nmで, 定量下限値は操作ブランクの平均値( $n=4$ )の3倍とし, アセトンのみ3,000  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ で, 他は300  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ とした。

酢酸及びギ酸については, フィルター付きミュゼットインピンジャーを1本用い, 1 mM水酸化ナトリウム水溶液10 mLにバッグ内空気を1 L/minで1分間採取後, イオンクロマトグラフ(ICS-1000, Dionex製)で分析した。分析条件は, カラムIonPac AS11-HC (250 mm×4 mm, Dionex製), カラム温度35°C, 移動相2.5 mM水酸化カリウム水溶液, 流速1.0 mL/min, サプレッサー電圧124 mAとした。定量下限値は操作ブランクの標準偏差( $n=5$ )の10倍とし, いずれも300  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ とした。なお, 予備実験として実施した本法の添加回収実験における捕集率は99.9%以上であった(酢酸30 ppm, ギ酸60 ppm)。

## 2.6 室内濃度推定方法

対象試料を室内で使用した時の室内濃度について, 環境大気中の基準値及び指針値, 室内空気中の指針値が設定されている有害物質<sup>1,17,18)</sup>を中心に推定した。算出式は下記を用いた<sup>19)</sup>。

$$C = C_0 + (C_s - C_0)e^{-Q/V} + M/Q(1 - e^{-Q/V})$$

$C$ : 推定室内濃度( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ),  $C_0$ : 外気濃度( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ),  $C_s$ : 初期室内濃度( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ),  $Q$ : 時間当

りの換気量( $\text{m}^3/\text{h}$ ),  $t$ : 時間(h),  $V$ : 室内容積( $\text{m}^3$ ),  $M$ : 時間当たりの物質放出量( $\mu\text{g}/\text{h}$ )。

なお, 想定した条件は, 室内容積が20  $\text{m}^3$ , 換気量が10  $\text{m}^3/\text{h}$ , 燃焼時間が1時間, 初期室内濃度は外気濃度と同じ濃度で, 線香から放出された物質は室内で完全に混合されたと仮定した。

## 3. 結果

### 3.1 試料重量当たりの化学物質放出量

測定対象とした64物質のうち48物質がいずれかの試料から検出され, 各試料における検出物質数は37~45物質であった。なお予備実験において, 同一線香を用いた繰り返し実験( $n=3$ )及び空気採取用バッグ内面への対象物質の吸着量を測定した。その結果, 再現性については, 物質濃度合計値の変動係数が低く(5.0%), 本実験では1回測定の結果を用いることとした。吸着については, VOC類及びアルデヒド類の吸着はほとんど見られず, 有機酸類の吸着が確認されたが, 本実験では吸着による濃度補正を行わないこととした。

試料ごとに試料重量当たりの物質放出量が多かった上位10物質を示した(Fig.2)。

上位10物質には18種の化学物質が含まれ, この中で全試料から共通して検出された物質はAA, イソプレン, 酢酸, アクロレイン及びベンゼンの5物質で, 次いで, アセトン(10試料), 1,3-ブタジエン(9試料), ギ酸(8試料)であった。

放出量が1位の物質は, AAが6試料で最も多く, 次いでイソプレン(3試料), 酢酸(2試料), ギ酸(1試料)であった。

試料の用途及び原料別で比較すると, 仏壇用の線香5試料(No.1~5)については, 最も放出量が多かった物質がAAの試料(No.1~3)と酢酸の試料(No.4, No.5)があった。No.4(11位)及びNo.5から検出されたボルネオール(350  $\mu\text{g}/\text{g}$ 及び370  $\mu\text{g}/\text{g}$ )は, No.1では19  $\mu\text{g}/\text{g}$ , No.2及びNo.3では定量下限値未満であった。放出された物質や放出量から, No.1~3及びNo.4, No.5がそれぞれ似た傾向を示すことが分かった。特にNo.1とNo.2については, 順位は異なるが上位10物質が全て共通し, 上位2物質のAA及びベンゼンの放出量がほぼ同程度であるなど, 非常に類似していた。

杉を原料とした屋外用線香3試料(No.6~8)については, いずれもイソプレンが放出量1位で, 杉粉100

%から製造されたNo.7の放出量が最も多かった。3試料とも放出量2~4位にAA及びギ酸が含まれており、また10物質中8物質が共通していたことから、上位の放出物質の組成が類似していることが分かった。

お香2試料(No.9及びNo.10)については、両試料ともAAの放出量が最も多く、エタノール、酢酸及びギ酸の放出量も共通して上位であった。特にエタノールについては、No.9の放出量が1,600  $\mu\text{g/g}$ 、No.10が960  $\mu\text{g/g}$ で、他の10試料(4.5~22  $\mu\text{g/g}$ )と比べて40倍以上多く、お香に特徴的な放出物質であった。

蚊取線香2試料(No.11及びNo.12)については、有機酸類の放出量及び割合が試料により大きく異なることが分かった。No.11からは酢酸及びギ酸が多く検出され、この2物質の合計放出量は48物質の合計値の67.2%を占めた。一方、No.12については、酢酸の放出量はNo.11の約12分の1、ギ酸は上位10物質に含まれておらず、48物質の合計放出量に占める有機酸類濃度は9.6%であった。

### 3.2 燃焼時間当たりの化学物質放出量

燃焼時間当たりの物質放出量を算出するにあたり、時間あたりの試料燃焼重量を測定した。2回測定した平均値は、No.1が11.8 mg/min, No.2が11.4 mg/min, No.3が12.5 mg/min, No.4が10.6 mg/min, No.5が9.2 mg/min, No.6が11.2 mg/min, No.7が9.1 mg/min, No.8が10.9 mg/min, No.9が27.1 mg/min, No.10が26.4 mg/min, No.11が24.8 mg/min, No.12が29.2 mg/minで、棒状よりもコーン型及び渦巻き型の方が多かった。

Fig.2に示した18物質のうち有害物質<sup>(17)(18)</sup>として空气中の指針値等が設定されている5物質(ベンゼン, 1,3-ブタジエン, トルエン, FA及びAA), 試料重量当たりの放出量が多かった4物質(イソプレン, アクロレイン, ギ酸及び酢酸)及び全48物質の合計値について、1時間当たりの物質放出量を算出しFig.3に示した。なお、48物質の合計値を算出する際には、定量下限値未満の物質濃度を0  $\mu\text{g/h}$ とした。

物質ごとに見るとベンゼン, AA及びアクロレインは、No.1~8よりもNo.9~12の放出量の方が多く、試料燃焼重量の多い方が放出量は増加する傾向が見られた。一方、試料燃焼重量が少なかったNo.1~8で放出量が多かった物質もいくつか見られた。例えば、1,3-ブタジエン及びイソプレンはNo.6~8の放

出量が多く、これらはいずれも杉を原料とした線香であった。FAはNo.5の放出量が最も多く、次いでNo.11, No.4, No.3の順で、No.3~5はタブを原料とした線香であった。

48物質の合計値についてはNo.9~11が多く、最大値を示したNo.11(29,000  $\mu\text{g/h}$ )は、最小のNo.2(2,200  $\mu\text{g/h}$ )の約13倍多かった。No.11と同じ蚊取線香のNo.12はNo.4~8の線香類と同程度で、No.11と比べ約1/3の放出量であった。

試料間の濃度差について、最も大きかったギ酸は最大で約900倍あり、No.11が極めて高濃度(13,000  $\mu\text{g/h}$ )であった。次いでFA及び酢酸の差が大きく、最大で90倍以上の差が見られた一方、差が小さかったのはベンゼン及び1,3-ブタジエンの約7.7倍であった。

### 3.3 煙の量と化学物質放出量の関係

No.2とNo.4及びNo.3とNo.5は同じ銘柄の試料であるが、煙の量の表示が異なっていた。これらについて、時間当たりの化学物質放出量を比較した(Fig.4)。図中のその他(Other)は、全48物質の合計値からFA, AA及び酢酸の放出量を除いた値である。

48物質の合計について見ると、煙の量が「ほとんどない」No.2の方が「ふつう」のNo.4よりも、煙の量が「少ない」No.3の方が「ふつう」のNo.5よりもそれぞれ少なく、その濃度差は、それぞれ3.6倍及び1.7倍であった。さらには、No.2の方がNo.3よりも低濃度で、No.2の放出量を1とした場合、No.3は2.2倍の放出量であった。

物質ごとでも、No.2とNo.4のFA及び酢酸の濃度差は約28倍、AA及びその他は約2.5倍、No.3とNo.5のFAの濃度差は2.3倍、酢酸は3.8倍、AA及びその他は約1.4倍で、煙の量が「ほとんどない」あるいは「少ない」製品は、「ふつう」の製品に比べて、FA及び酢酸の放出量が少ないことが分かった。

### 3.4 室内濃度推定値

No.1~5及びNo.9~12について、試料1本(個)ずつを1時間継続して燃焼させた後の室内濃度について推定した。その結果と外気濃度<sup>(20-22)</sup>をTable 2に示した。なお、No.6~8は主に墓参り用の製品であるため、室内濃度は推定しなかった。

ベンゼンについては、環境省による環境基準値<sup>(19)</sup>が設定されている。ベンゼン濃度の推定値はNo.9及

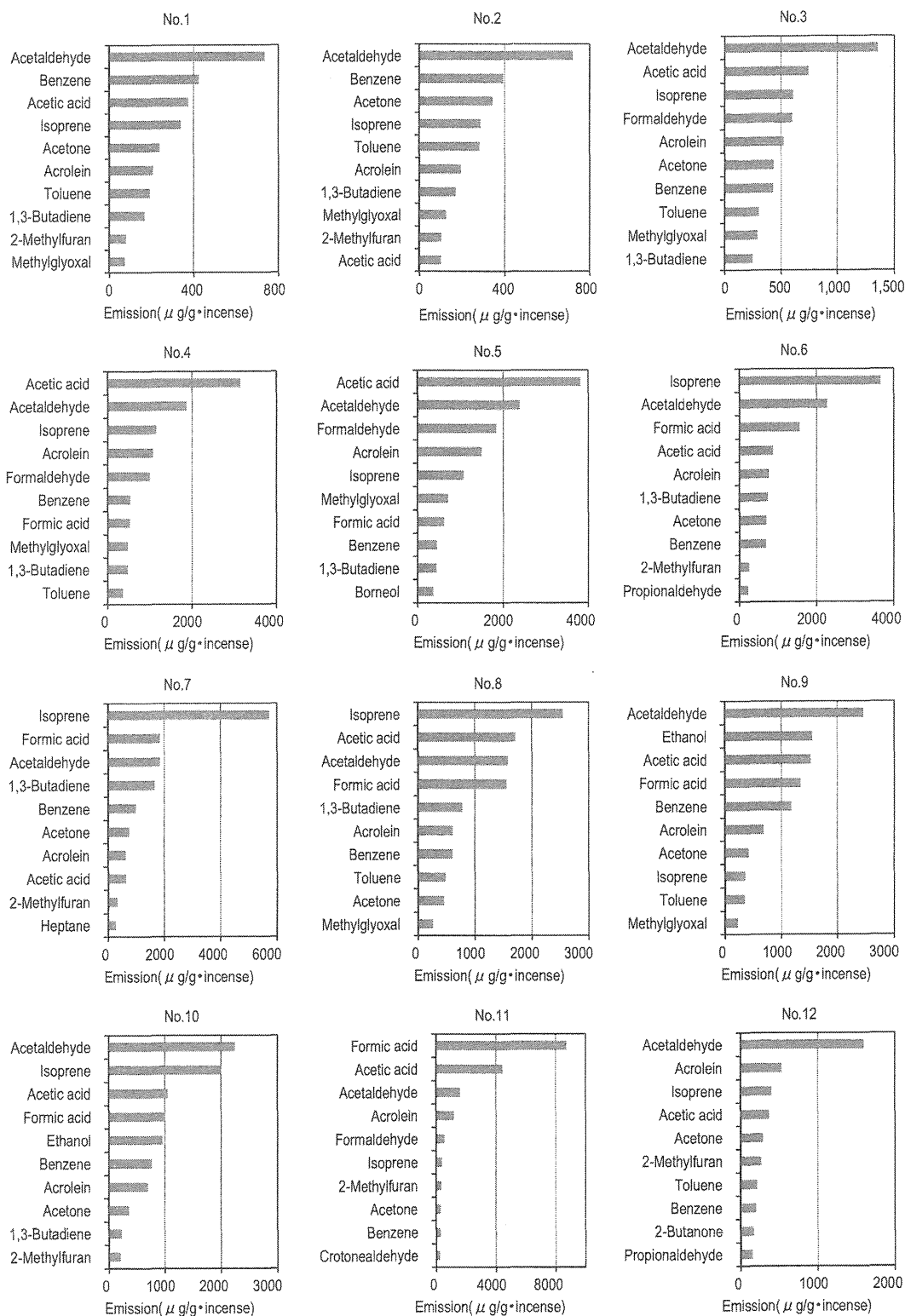


Fig.2 Weights of top 10 chemicals emitted from burning incenses

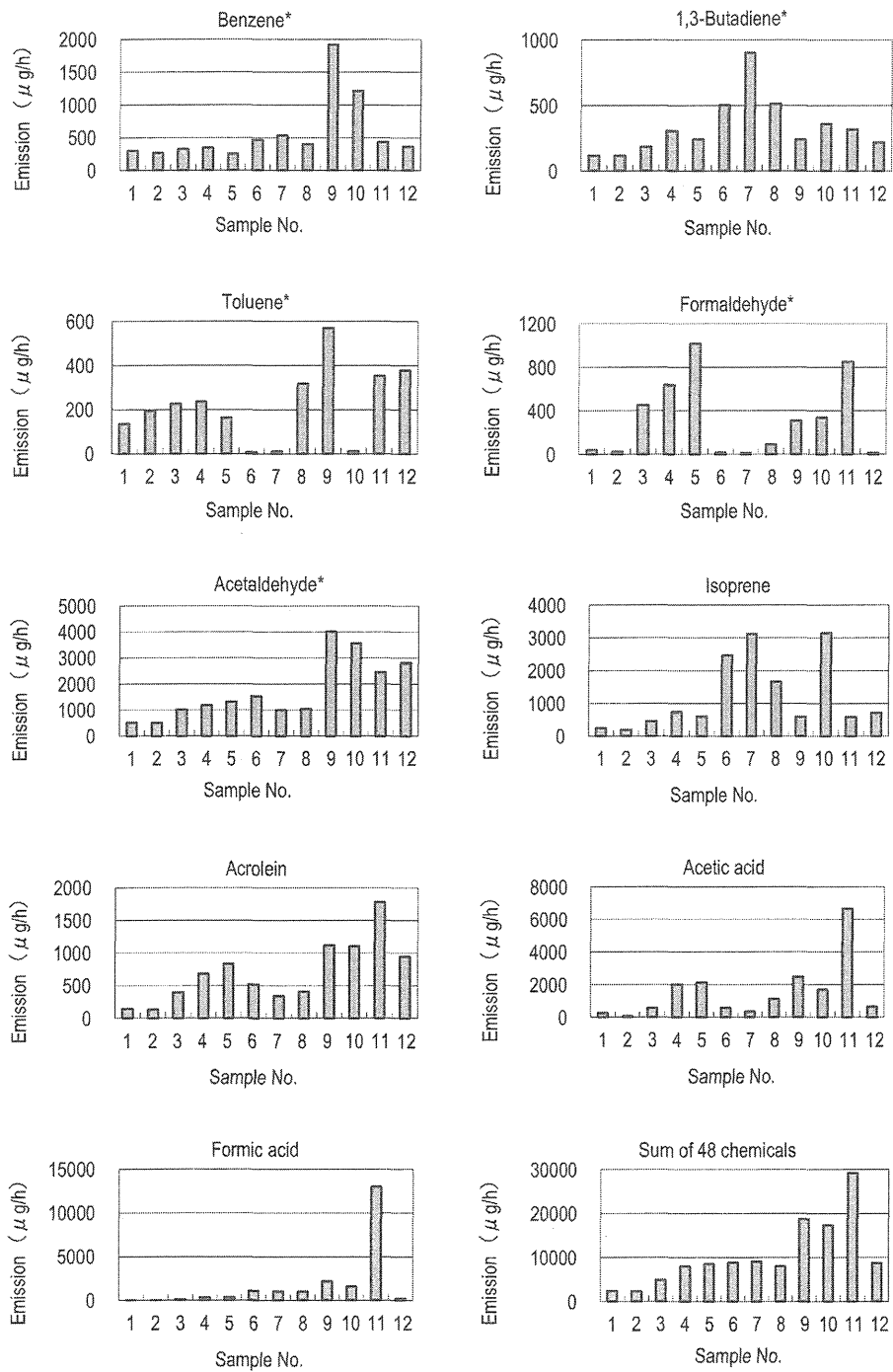


Fig.3 Weights of chemicals emitted from burning incenses for an hour  
 \*Chemical substance to which the environmental quality standards or the guideline values in air were established<sup>1,17,18)</sup>



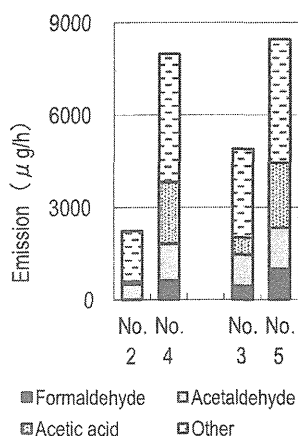


Fig.4 Weights of chemicals emitted from burning incenses different in the quantities of smoke

Other : Sum of values for concentration of 45 chemicals.

びNo.10のお香で比較的高濃度になり、No.1~5、No.11及びNo.12は、これらよりも低濃度でほぼ同程度であった。しかし、基準値(3.0  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )と比較した結果では、全試料で基準値を超過し、最も高濃度

になったNo.9(77  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )は基準の約25倍高かった。

1,3-ブタジエンは、全試料の濃度範囲が4.8~14  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ で、環境省による環境指針値<sup>18)</sup>(2.5  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )と比較すると、全ての試料で指針値を超過し、最大で5.6倍(No.10)高かった。

イソプレンはNo.10で最も高く(120  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )、他の試料よりも4~15倍高濃度であった。

トルエン、FA及びAAについては、厚生労働省による室内濃度の指針値が設定されている<sup>1)</sup>。AAについては、No.4、No.5及びNo.9~12の6試料で指針値(48  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )を超えると推定された。なかでもNo.9及びNo.10のお香は指針値の約3倍、No.11及びNo.12の蚊取線香は約2倍高濃度であった。トルエン及びFAについては、指針値を超えると推定された試料はなかった。

アクロレインはNo.11が最も高く(70  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )、煙の少ないNo.1~3の線香では低濃度であった(5.4~16  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )。

酢酸は、他の物質よりも高濃度になると推定された試料が多く、9試料中5試料(No.1~5)で酢酸が最も高濃度であった。酢酸濃度が最も高かったのは

Table 2 Estimated concentrations of chemical substances in the indoor air ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )

Compounds	No. 1	No. 2	No. 3	No. 4	No. 5
Benzene	13	12	14	15	11
1,3-Butadiene	4.8	4.8	7.4	12	9.7
Isoprene	9.6	8.0	18	29	24
Toluene	8.9	11	12	13	10
Formaldehyde	4.3	3.6	20	28	43
Acetaldehyde	23	22	43	49	55
Acrolein	5.9	5.4	16	27	33
Acetic acid	45	38	57	110	120
Formic acid	14	13	16	25	26
Compounds	No. 9	No. 10	No. 11	No. 12	Outdoor
Benzene	77	49	18	16	1.2 <sup>20)</sup>
1,3-Butadiene	10	14	13	8.8	0.14 <sup>20)</sup>
Isoprene	23	120	23	28	0.17 <sup>21)</sup>
Toluene	26	4.0	18	19	3.6 <sup>22)</sup>
Formaldehyde	15	16	36	3.3	2.7 <sup>22)</sup>
Acetaldehyde	160	140	99	110	2.7 <sup>22)</sup>
Acrolein	44	44	70	37	0.15 <sup>22)</sup>
Acetic acid	130	100	300	60	35.0 <sup>22)</sup>
Formic acid	98	74	520	19	12.0 <sup>22)</sup>

Volume of a room: 20  $\text{m}^3$ , air change rate: 10  $\text{m}^3/\text{hour}$ , burning time: 1 hour.

No.11の蚊取線香で、他の8試料の2～5倍高くなると推定された。

ギ酸については、酢酸と同じくNo.11が最も高濃度で、その値はTable 2に示した全ての物質の中で最も高かった(520  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )。

#### 4. 考察

48物質の放出量合計に占める有機酸類の割合は3.8～67.2%(平均22.4%)で、12試料全ての上位10物質に酢酸が含まれており、また、8試料の上位10物質にギ酸が含まれていた。酢酸及びギ酸は刺激臭を持ち、それぞれ許容濃度が設定されている<sup>20)</sup>ことから、線香類から放出される化学物質の実態調査の際には、VOC類及びアルデヒド類だけでなく、酢酸及びギ酸の測定が必要であると考えられた。

酢酸及びギ酸の線香重量当たりの放出量について、2種の線香についてPM中の濃度を測定したTsaiら<sup>14)</sup>の結果(酢酸: 58.17及び95.14  $\mu\text{g}/\text{g}$ , ギ酸: 43.63及び153.1  $\mu\text{g}/\text{g}$ )と比較したところ、我々の結果の方が高い場合が多かった。酢酸及びギ酸の線香中におけるガス/粒子の分配については不明だが、酢酸及びギ酸に分子量が近いアルデヒド類については、AAが5.4, FAが10.4との報告があり<sup>15)</sup>、有機酸類についてもガス状で存在する割合が高いことが予想された。Tsaiらの測定値はPM中の結果であったことから、本結果よりも低くなったと考えられた。

酢酸及びギ酸の推定室内濃度は、それぞれ38～300  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 及び13～520  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ で、住宅室内の濃度中央値<sup>21)</sup>(90.5  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 及び22.5  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )よりも高くなるケースが見られた。

酢酸及びギ酸が線香類から放出される原因としては、試料に含有されている木粉等の燃焼が考えられ、木材燃焼による有機酸類の放出量は、燃えている状態(flaming)よりも燻っている状態(smoldering)の方が多いたことが報告されている<sup>24)</sup>。線香類の燃焼は燻っている状態に近いと考えられ、それだけ有機酸類の放出量が多くなると考えられた。放出量については、白木質(wood)、針葉樹(needles)、樹皮(bark)のいずれにおいても、酢酸の放出量がギ酸より多いことが報告されている<sup>24)</sup>。今回の結果でも、ほとんどの試料において酢酸がギ酸より多く放出されたが、No.6及びNo.7の杉線香、No.11の蚊取線香においては両物質の放出量が逆で、ギ酸が酢酸より1.8～2.9倍多かった。特にNo.11はギ酸の放出量が多く、その原

因の一つとして試料中にもともと含まれていたギ酸が放出した可能性が考えられた。そこで、No.11と、試料重量当たりのギ酸放出量( $\mu\text{g}/\text{g}$ )がNo.11の80分の1と少ないNo.12の2試料について、粉碎した試料から水で抽出したギ酸濃度を測定した。その結果、No.11から抽出されたギ酸の濃度はNo.12の約2倍で、放出量ほどの差は見られなかった。また、このNo.11及びNo.12はいずれも蚊取線香だが、製造元が異なる。2試料の含有成分は、Table 1に示した殺虫成分及び植物性粉のほか、両試料ともにデヒドロ酢酸ナトリウム、香料、着色料等が記載されていた。酢酸の発生源として、デヒドロ酢酸ナトリウムが考えられたため、デヒドロ酢酸ナトリウムを含有した線香を作成し、酢酸の放出量を測定した。その結果、デヒドロ酢酸ナトリウムを加えた場合と加えない場合とで、煙中の酢酸濃度に差が見られなかった(データは示していない)。したがって、含有されたデヒドロ酢酸ナトリウムの燃焼が酢酸の発生源にはならないと考えられた。以上のことから、この2試料は製造元が異なるため、使用されている植物性粉や粘結剤等が異なり、それがギ酸や酢酸等の放出量の違いに影響した可能性が考えられた。

VOC類及びアルデヒド類については、人への発がん性を有する3物質<sup>25)</sup>を含む46物質が検出された。ベンゼン及び1,3-ブタジエンについては、室内から検出される主な原因として、排ガスの流入やたばこ煙が考えられているが<sup>26-28)</sup>、線香類の煙も発生源になり、試料間における放出量の差は小さいことが分かった。空気中ベンゼン濃度については、オフィスにおける喫煙室濃度が6.2～58.5  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ( $n=26$ )<sup>29)</sup>、喫煙可能なディスコ及びクラブにおいては11.7～49.5  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ( $n=10$ )<sup>29)</sup>で、線香類使用時の推定濃度はこれらと同程度または高くなる可能性が示唆された。1,3-ブタジエン濃度については、ディスコ及びクラブにおける濃度が0.3～2.7  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ( $n=10$ )<sup>29)</sup>、線香類使用時の推定濃度は4.8～14  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ で、線香類が室内空気に与える影響はたばこ煙より大きくなる可能性が考えられた。その他の物質については、AAの推定濃度が9試料中6試料で室内濃度指針値を超過し、特にNo.9～No.12の濃度が高かった。また、AAの放出量( $\mu\text{g}/\text{h}$ )と試料燃焼重量( $\text{mg}/\text{min}$ )の間には有意な相関が見られたことから( $r=0.900$ ,  $p<0.01$ )、No.1～No.5に比べて試料燃焼重量が多かったNo.9～No.12のAA濃度が高くなったと考えられた。

最後に、今回の調査結果より、線香からの化学物質の放出量は煙の量に関連することが分かった。中でも有機酸類は顕著で、煙の量が「ほとんどない」と表示された線香の酢酸の放出量は、「ふつう」の線香の約28分の1で、ギ酸についても同様であった。その他の物質についても、1,3-ブタジエン、FA、AAは煙の量が少ない方が放出量は少なかった。ベンゼン及びトルエンのように、煙の量に関連しない物質も見られたが、48物質の合計放出量は、煙の量が少ない線香で少なかった。したがって、線香の煙による空気中化学物質の濃度増加を抑制する方法の一つとして、煙の少ない線香を選ぶことが効果的であると考えられた。

#### 謝辞

本研究を遂行するに当たりご協力いただいた、東京都健康安全研究センター薬事環境科学部の三戸良子氏(当時)に深謝申し上げます。

#### 引用文献

- 厚生労働省：医薬発第0207002号，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，2002.
- 国土交通省：建築基準法.
- 国土交通省：政令第393号，建築基準法施工令，平成14年12月26日.
- 香川(田中)聡子，神野透人，小濱とも子，宮川真琴，古川淳，小松一裕，徳永裕司：スモールチャンバー試験法による家庭用品から放散する揮発性有機化合物の評価，国立衛研報，125，79-85(2007).
- 香川(田中)聡子，神野透人，古川容子，西村哲治：家具及び家電製品からの揮発性有機化合物の放散に関する研究，国立衛研報，128，71-77(2010).
- 香川(田中)聡子，神野透人，小濱とも子，西村哲治，徳永裕司：ハンドスプレー式家庭用品から放散する揮発性有機化合物に関する研究，国立衛研報，126，88-92(2008).
- 神野透人，香川(田中)聡子，小濱とも子，宮川真琴，古川淳，小松一裕，徳永裕司：室内空気中の総揮発性有機化合物(TVOC)に対する芳香剤・消臭剤の影響に関する研究，国立衛研報，125，72-78(2007).
- 斎藤育江，大貫文，多田宇宏，福田雅夫，矢口久美子，上原眞一：住宅室内のテトラデカン発生源調査，室内環境学会講演要旨集，156-157(2007).
- T. T. Yang, T. S. Lin, M. Chang : Characteristics of Emissions of Volatile Organic Compounds from Smoldering Incense, *Bull. Environ. Contam. Toxicol.*, 78, 308-313 (2007).
- Danish Environmental Protection Agency : Survey and emission of chemical substances from incense, Survey of chemical substances in consumer products no.39 (2004).
- S. C. Lee, B. Wang : Characteristics of emission of air pollutants from burning of incense in a large environmental chamber, *Atmospheric Environment*, 38, 941-951 (2004).
- W. Liu, J. Zhang, J. H. Hashim, J. Jalaudin, Z. Hashim, B. D. Goldstein : Mosquito Coil Emissions and Health Implications, *Environ. Health Perspect.*, 111, 1454-1460 (2003).
- EPA : Candles and incense as potential sources of indoor air pollution : Market analysis and literature review, 2001.
- Y. I. Tsai, P. L. Wu, Y. T. Hsu, C. R. Yang : Anhydrosugar and sugar alcohol organic markers associated with carboxylic acids in particulate matter from incense burning, *Atmospheric Environment*, 44, 3708-3718 (2010).
- H. C. Chuang, T. Jones, Y. Chen, J. Bell, J. Wenger, K. Bérubé : Characterisation of airborne particles and associated organic components produced from incense burning, *Anal. Bioanal. Chem.*, 401, 3095-3102 (2011).
- 大貫文，斎藤育江，保坂三継，中江大：DNPH誘導体化/HPLC法を用いた空気中アクロレイン定量方法の改良，東京健安研年報，63，247-253(2012).
- 環境省：環境基本法第16条，平成5年11月19日法律第91号.
- 環境省水・大気環境局：今後の有害大気汚染物質対策のあり方について(第八次答申)，平成18年11月.
- 内海康雄：換気の基礎理論，空気調和・衛生工学，79，143-149(2005).

- 20) 環境省：有害大気汚染物質モニタリング調査結果，平成26年3月28日．[http://www.env.go.jp/air/osen/monitoring/mon\\_h24/index.html](http://www.env.go.jp/air/osen/monitoring/mon_h24/index.html)
- 21) 環境省：化学物質の環境リスク評価第1巻，83-92，平成14年3月．<https://www.env.go.jp/chemi/report/h14-05/chap01/03/05.pdf>
- 22) 厚生労働科学研究費補助金 健康安全・危機管理対策総合研究事業「シックハウス症候群の発生予防・症状軽減のための室内環境の実態調査と改善対策に関する研究」平成23年度～平成25年度 総合研究報告書，p.26-40(2014)．
- 23) 日本産業衛生学会：許容濃度等の勧告(2013年度)，産業衛生学雑誌，55，182-187(2013)．
- 24) L. M. Mckenzie, W. M. Hao, G. N. Richards, D. E. Ward : Measurement and modeling of air toxins from smoldering combustion of biomass, *Environ. Sci. Technol.*, 29, 2047-2054 (1995)．
- 25) IARC : <http://monographs.iarc.fr/ENG/Classification/ClassificationsAlphaOrder.pdf>
- 26) IARC : Chemical Agents and Related Occupations, IARC Monographs on the Evaluation of Carcinogenic Risks to Humans, 100F, p.249-294, p.309-338 (2012)．
- 27) 大貫文，斎藤育江，多田宇宏，保坂三継，中江大：喫煙室及び非喫煙室における室内空气中たばこ煙由来化学物質濃度の実態調査，室内環境，14(1)，43-50(2011)．
- 28) 厚生労働省：平成11-12年度 たばこ煙の成分分析について(概要)，<http://www.mhlw.go.jp/topics/tobacco/houkoku/seibun.html>
- 29) G. Bolte, D. Heinmann, M. Kiranoglu, R. Schierl, J. Diemer, W. Koerner, H. Fromme : Exposure to environmental tobacco smoke in German restaurants, pubs and discotheques, *J. Expo. Sci. Environ. Epidemiol.*, 18, 262-271 (2008)．

