

厚生労働行政推進調査事業費補助金（化学物質リスク研究事業）
分担研究報告書

室内濃度指針値見直しスキーム・曝露情報の収集に資する
室内空气中化学物質測定方法の開発

室内空气中揮発性有機化合物及び準揮発性有機化合物試験法の開発
グリコールエーテル類および環状シロキサン類の測定について

研究分担者 酒井信夫 国立医薬品食品衛生研究所 生活衛生化学部 第一室長
研究協力者 田原麻衣子 国立医薬品食品衛生研究所 生活衛生化学部 研究助手
千葉真弘 北海道立衛生研究所・生活科学部生活衛生グループ・主査
武内伸治 北海道立衛生研究所・生活科学部薬品安全グループ・主査
大泉詩織 北海道立衛生研究所・生活科学部生活衛生グループ

シックハウス（室内空気汚染）問題に関する検討会において室内濃度指針値設定が議論されているグリコールエーテル類および環状シロキサン類について、加熱脱離-GC/MS法（加熱脱着法）および溶媒抽出-GC/MS法（溶媒抽出法）による測定法の検討を行った。

加熱脱着法では、テナックス TA を充填剤とした単層捕集管を用い、1/20 量を GC/MS に導入する条件において 1 ng から 500 ng において概ね良好な検量線が得られた。テナックス TA/カルボキセン 1000 の 2 層式捕集管を用いて分析を行った場合にも、テナックス TA 単層と同等の結果が得られ、分析対象に応じた捕集管の選択が可能であることが明らかになった。また、加熱脱離させた物質のうち、分析に供さなかった約 95% を再捕集して測定を試みたところ、内部標準物質に対する強度比は 1 回目と 2 回目の測定でほぼ同等であった。

溶媒抽出法では、抽出溶媒に二硫化炭素またはジクロロメタンを用い、1/20 量を GC/MS に導入する条件において 0.5 ng から 100 ng で概ね良好な検量線が得られた。抽出溶媒を比較したところ、ジクロロメタンでは、内部標準物質が吸着剤に分配される傾向が認められたことから、二硫化炭素の方が抽出溶媒として優れていると考えられた。他方、添加回収試験においては一部のグリコールエーテルの回収率が低く、2 層目への破過について認められなかったことから、吸着剤に強く吸着されている可能性が示唆され、他の溶媒についても検討を加える必要があると考えられた。環状シロキサン類については、オルボ 91 で破過が認められたことから、ヤシガラ活性炭が吸着剤として適していると考えられた。

A. 研究目的

居住住宅等の建築物には、接着剤、塗料、ワックス等が使用されており、多種多様の化学物質が居住空間である室内空气中に放出されている。これらの化学物質により健康被害が引き起こされるシックハウス症候群や化学物質過敏症が、1980年代後半頃から大きな問題となり、厚生労働省は、1996年から2002年にかけて、13化学物質に対して室内空气中濃度の指針値を策定した。それに伴い、指針値が定められた化学物質の室内空气中濃度は低下したが、指針値のない「未規制」の代替物質が建築現場で使用されるようになり¹⁾、未規制物質によるシックハウス症候群発生事例が見受けられる^{2,3)}。そのため、現状に合った指針値改訂の必要性等を議論されており、2012年にはシックハウス検討会が再開された。また当所においても、全国調査への協力や準揮発性有機化合物である可塑剤や難燃剤の室内空气中濃度に関する研究を通して、全国の居住住宅の室内空气中化学物質に関する汚染実態の解明に取り組んできた⁴⁾。

昨年度は、ベンゼン、ナフタレン、並びに実態調査において高濃度/高頻度検出事例のある2-エチルヘキサノール、テキサノールおよびTXIBの計5化合物を対象とし、加熱脱離-GC/MS法（加熱脱着法）および溶媒抽出-GC/MS法（溶媒抽出法）による測定法の検討を行った。今年度は、シックハウス検討会等において指針値設定に向けた議論がなされているグリコールエーテル類(10種)および環状シロキサン類(4種)に、文献⁵⁾にて測定例を報告されたグリコールエーテル類(10種)を加え

た24化合物を対象とし、加熱脱離-GC/MS法（加熱脱着法）および溶媒抽出-GC/MS法（溶媒抽出法）による測定法の検討を行った。

B. 研究方法

1. 試薬類

(1) グリコールエーテル類

エチレングリコールモノフェニルエーテル、プロピレングリコール、プロピレングリコールモノメチルエーテルは和光純薬製特級、プロピレングリコールモノブチルエーテル、プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート、ジプロピレングリコールモノブチルエーテルは和光純薬製一級を、プロピレングリコールモノエチルエーテルアセテートは和光純薬製化学用を用いた。ジプロピレングリコールモノメチルエーテルは東京化成製EPグレードを、プロピレングリコールモノエチルエーテルは東京化成製を、その他のグリコールエーテル類は東京化成製GRグレードを用いた。

(2) 環状シロキサン類

ヘキサメチルシクロトリシロキサン(D3)は東京化成製、オクタメチルシクロテトラシロキサン(D4)は和光純薬製化学用、デカメチルシクロペンタシロキサン(D5)和光純薬製、ドデカメチルシクロヘキサシロキサン(D6)は東京化成製GRグレードを用いた。

(3) その他の試薬

ジクロロメタン、メタノールは和光純薬製残留農薬・PCB試験用(300倍濃縮検定品)を用いた。二硫化炭素は和光純薬製作業環境測定用を用いた。トルエン-d₈

(1000 µg/mL メタノール溶液)は関東化学製を用いた。

(4) 混合標準溶液

20種のグリコールエーテル類は、それぞれ500 mg取り、メタノールで10 mLとし、各50000 µg/mL標準原液とした。この標準原液を2 mLずつ取り、混合し、全量を50 mLとしてグリコールエーテル類混合標準原液(2000 µg/mL)を作製した。

4種の環状シロキサン類は、それぞれ100 mg取り、メタノールで10 mLとし、各10000 µg/mL標準原液とした。この標準原液を2 mLずつ取り、混合し、全量を10 mLとして環状シロキサン類混合標準原液(2000 µg/mL)を作製した。

このグリコールエーテル類混合標準原液と環状シロキサン類混合標準原液を1:1の割合で混合し、混合標準溶液(1000 µg/mL)として分析に供した。

2. 装置および分析条件

四重極型質量分析装置付きガスクロマトグラフ (GC/MS) は、加熱脱着法では島津製 GCMS-2010 Plus、溶媒抽出法では島津製 GCMS-2010 Ultra を用いた。測定条件を以下に示す。

キャピラリーカラム: レステック社製 Rtx-1 (60 m x 0.32 mm i.d. x 1.0 µm)

昇温条件: 40 - 5 /min → 280 (4 min)

内部標準物質: トルエン-d₈ (加熱脱着法: 100 ng、溶媒抽出法: 10 ng)

イオン源温度: 200

インターフェース源温度: 250

イオン化法: EI

測定モード: SCAN/SIM 同時測定

測定対象物質の定量イオンは Table.1 に示

す。

(1) 加熱脱着法

加熱脱着装置: パーキンエルマー社製 ATD-650

バルブ温度: 250

トランスファー温度: 250

チューブ温度: 300

ページ時間: 3 min

1次脱着時間: 10 min

1次脱着流量: 50 mL/min

2次トラップ低温: -20

2次トラップ高温: 280

トラップ昇温速度: 40 /min

2次脱着時間: 5 min

カラム流量: 1 mL/min

スプリット(再捕集)流量: 20 mL/min

(2) 溶媒抽出法

注入口温度: 250

キャリアガス: 2.46 mL/min

フローモード: 線速度一定 (40 cm/sec)

注入量: 1 µL (スプリット)

スプリット比: 1:20 (検量線と定量下限の検討)、1:5 (捕集管の検討)

3. 加熱脱着法用捕集管

加熱脱着用捕集管は、テナックス TA(60/80 メッシュ)およびテナックス TA/カルボキセン 1000の2層系捕集管を用いた(図1)。テナックス TA(60/80 メッシュ)捕集管はスペルコ社製を、テナックス TA/カルボキセン 1000の2層系捕集管はパーキンエルマー社製のガラスのフリット無し空チューブに、スペルコ社製テナックス TA(60/80 メッシュ) 100 mg、カルボキセン 1000 (60/80 メッシュ) 80 mg を詰めた物を使用した。加熱脱着用捕集管に、

メタノールで任意の濃度に希釈した測定対象物質を 1 μL および、内部標準物質であるトルエン-d8 の 100 $\mu\text{g}/\text{mL}$ のメタノール溶液を 1 μL 添加した。メタノールは 100 mL/min の流速で高純度窒素を、30 分間通気し、除去した。なお、加熱脱着用捕集管は、使用前に高純度窒素を通気した状態で 310 まで昇温してコンディショニングを行い、1 か月以内に使用した。

4. 溶媒抽出用捕集管

溶媒抽出用捕集管は同じ吸着剤が 2 層に充填されているものを用いた。ヤシガラ活性炭を充填したシバタ製ヤシガラ活性炭およびスペルコ社製オルボ 32 Small、カーボン系ビーズを充填したスペルコ社製オルボ 91 を用いた(図 2)。捕集管をチューブカッターで切断し、中の吸着剤を GC/MS 測定用のバイアルに移し、抽出溶媒を 1 mL 加え、抽出液とした。内部標準物質として 1000 $\mu\text{g}/\text{mL}$ トルエン-d8 溶液を 10 μL 抽出液に添加した。

捕集管への通気の際は、使用前の捕集管は密閉状態にあるため両端をチューブカッターで切断し、ポンプ(ジーエルサイエンス製 GSP-2LFP)に捕集管を接続してポンプを 30 分間作動させた。流速は 1 L/min とした。

5. 加熱脱着法の検討

(1) 検量線と下限値の検討

メタノールで、1、2、4、20、100 および 500 $\mu\text{g}/\text{mL}$ に希釈した混合標準溶液をテナックス TA(60/80 メッシュ)捕集管に、B.研究方法、3. 加熱脱着法用捕集管で示した方法で負荷し、GC/MS で分析した。

測定はスプリット、解析は SIM で行った。混合標準溶液およびトルエン-d8 を負荷していない捕集管を同時に測定し、ブランク値として差し引いた。

(2) 捕集管の検討

メタノールで 100 $\mu\text{g}/\text{mL}$ に希釈した混合標準溶液をテナックス TA(60/80 メッシュ)捕集管およびテナックス TA/カルボキセン 1000 の 2 層系捕集管に、B.研究方法、3. 加熱脱着法用捕集管で示した方法で負荷し、GC/MS で分析した。測定はスプリット、解析は SIM で行った。それぞれのチューブに関して、混合標準溶液およびトルエン-d8 を負荷していない捕集管を同時に測定し、ブランク値として差し引いた。

(3) 再捕集の検討

メタノールで 100 $\mu\text{g}/\text{mL}$ に希釈した混合標準溶液をテナックス TA(60/80 メッシュ)捕集管に、B.研究方法、3. 加熱脱着法用捕集管で示した方法で負荷し、GC/MS で分析した。測定はスプリットおよび再捕集メソッド、解析は SIM で行った。混合標準溶液およびトルエン-d8 を負荷していない捕集管を同時に測定し、ブランク値として差し引いた。

6. 溶媒抽出法の検討

(1) 検量線と下限値の検討

混合標準溶液(1000 $\mu\text{g}/\text{mL}$)を二硫化炭素またはジクロロメタンで、0.5、1、2、4、10、20 および 100 $\mu\text{g}/\text{mL}$ に希釈した。その 100 μL を取り、1000 $\mu\text{g}/\text{mL}$ トルエン-d8 溶液 1 μL を加え、この溶液を、GC/MS で分析した。測定はスプリット(1:20)、解析は SIM で行った。測定を行う際、希釈

に用いた溶媒を同時に測定し、ブランク値として差し引いた。

(2) 添加回収試験

添加回収試験では、捕集管に混合標準溶液(1000 µg/mL)を4 µL (4 µg)添加した後、1000 mL/minの流速で30分間通気し、溶媒のメタノールを除去した。その後、抽出の後、内部標準物質の添加を行いGC/MSで分析を行った。標準物質の添加を行わずに通気を行った捕集管を、同様に測定し、ブランク値として差し引いた。これを、4 µg/mLの二硫化炭素またはジクロロメタン溶液の測定結果と比較し、回収率を算出した。

7. 倫理面への配慮

該当事項なし

C. 結果と考察

1. 加熱脱着法の検討

テナックス TA(60/80 メッシュ)捕集管に、500 µg/mLの混合標準溶液を1 µL(500 ng)と内部標準物質を添加し、分析を行った。スキャンモードで測定した際のトータルイオンクロマトグラム(TIC)および同じメソッドでVOC52種を測定した際のTICを図3に示す。今回測定対象としたグリコールエーテル類20種および環状シロキサン類4種のピークは、すべてTVOCの暫定指針値として規定されている、ヘキサンからヘキサデカンの保持時間の間に観測された。

はじめに、一部の測定対象物質の保持時間が近接していたため、分離が可能か検討した。プロピレングリコールモノブチルエーテルアセテート(保持時間:

17.825分)とジエチレングリコールモノメチルエーテル(保持時間: 17.866分)は、感度の高い質量数(m/z)である43および45をお互いに有するため、解析には不適と判断し、重複の見られない質量数である86と90をそれぞれ解析に用いることにした(図4)。ジエチレングリコールモノエチルエーテル(保持時間: 20.242分)とジブピレングリコールモノメチルエーテル(保持時間: 20.311分)は、感度の高い質量数(m/z)である45および59をお互いに有するが、クロマトグラムに変曲点が見られることから、質量数の変更は行わず、ピークの変曲点を利用し、分離して定量した(図5)。ジエチレングリコールモノブチルエーテルアセテート(保持時間: 31.199分)とドデカメチルシクロヘキサシロキサン(保持時間: 31.221分)は感度の高い質量数(m/z)である57および73がそれぞれ独立しており、重複が見られなかったことから、そのまま解析を行った(図6)。

(1) 検量線と下限値の検討

B.研究方法、5. 加熱脱着法の検討、(1) 検量線と下限値の検討で示したとおり、測定対象物質の負荷量を変えた捕集管を用い、分析を行った。それぞれの濃度のクロマトグラムを確認し、シグナル/ノイズ比(S/N)が5以上となる濃度を定量下限値とした。十分なピーク強度(面積値)があるにも関わらず、目的ピークの近傍に別なピークが存在することで、S/N値が小さかった物質については、目視でS/N比を確認し、定量下限値を決定した。それぞれの物質について、定量下限値濃度から500 ngまでの範囲で作製した検量線を図7に示す。また、定量下限値と検量線の決

定係数を表 2 に示す。多くの物質に関して、概ね 1 から 500 ng の範囲で良好な検量線が得られたが、一部物質については、定量下限値が 4 または 20 ng となった。一般的に、グリコールエーテル類は極性が高いことから、ピークが広がりやすい傾向がある。そのため、低濃度領域では、ピークがつぶれてしまい、十分な感度が得られなかった可能性がある。また、ジエチレングリコールモノメチルエーテルは、強度の強い質量数がプロピレングリコールモノブチルエーテルアセテートと重複するため、質量数を変更した影響もあると考えられる。今回の実験では、すべての物質が、500 ng まで飽和せずに測定出来ることを条件として測定したため、このような結果であったが、測定対象物質の上限濃度を下げることによって、検出器の感度を上げることが可能となり、より低濃度まで測定出来るものと考えられる。

(2) 捕集管の検討

テナックス TA/カルボキセン 1000 の 2 層系捕集管およびテナックス TA(60/80 メッシュ) 捕集管に B. 研究方法、5. 加熱脱着法の検討、(2) 捕集管の検討で示した方法で、測定対象物質を 100 ng 負荷し、3 併行ずつ分析を行った。解析は SIM で行った。測定対象物質のピーク強度(面積値)とトルエン-d8 のピーク強度(面積値)との強度比をそれぞれ算出し、その平均値を比較した。その結果を表 3 に示す。

どちらの捕集管に関しても、併行測定を行った際の変動係数が 20 % 以内となっており、精度良く測定出来ることがわかった。また、どちらの捕集管を用いた場合でも、測定対象物質の強度比は、ほぼ

一致した。テナックス TA(60/80 メッシュ) 捕集管は、特に保持時間の早い物質について破過等が懸念されているが、3 L 程度の通気量では、グリコールエーテル類および環状シロキサン類ともに、破過の影響を受けないことが示唆され、どちらの捕集管でも同様の測定が可能であることがわかった。

(3) 再捕集の検討

加熱脱着分析では、脱着後、試料導入量を 1:20 の比で調整し、約 5 % を GC/MS へと導入している。通常の実験では、残りの約 95 % を破棄しているが、これを再捕集した場合について検討を行った。テナックス TA(60/80 メッシュ) 捕集管に B. 研究方法、5. 加熱脱着法の検討、(3) 再捕集の検討で示した方法で、測定対象物質を 100 ng 負荷し、3 併行で分析を行った。また、一度再捕集した捕集管について、再度 3 併行で分析を行い、1 回目の結果と比較した。解析は SIM で行った。測定対象物質のピーク強度(面積値)とトルエン-d8 のピーク強度(面積値)との強度比をそれぞれ算出し、その平均値を比較した。結果を表 4 に示す。

1 回目も 2 回目も併行測定した際の変動係数が 20 % 以内となっており、精度良く測定出来ることがわかった。また、測定対象物質の強度比は、ほぼ一致したことから、再捕集を行った場合でも、問題なく測定出来ることがわかった。

2. 溶媒抽出法の検討

捕集管からの測定対象物質の脱離に用いる溶媒候補として、GC/MS での保持時間が測定対象物質よりも短いことなどを

考慮し、二硫化炭素、ジクロロメタンを選択し検討を行った。

はじめに、クロマトグラムの確認を行った。混合標準溶液(1000 µg/mL)を二硫化炭素またはジクロロメタンで 100 µg/mL に希釈し、内部標準物質を添加の後、分析を行った。スキャンモードで測定した際のトータルイオンクロマトグラム(TIC)および同じメソッドで VOC52 種を測定した際の TIC を図 8 および図 9 に示す。

どちらの溶媒を用いた場合も、溶媒のピークが測定対象物質のピークを妨害することはなかった。また、加熱脱着法の際と同様に、今回測定対象としたグリコールエーテル類 20 種および環状シロキサン類 4 種のピークは、すべて TVOC の暫定指針値として規定されている、ヘキサンからヘキサデカンの保持時間の間に観測された。

(1) 検量線と下限値の検討

B.研究方法、6. 溶媒抽出法の検討、(1) 検量線と下限値の検討で示したとおり、混合標準溶液(1000 µg/mL)を二硫化炭素またはジクロロメタンで、0.5、1、2、4、10、20 および 100 µg/mL に希釈し、分析を行った。解析は SIM で行い、カラム、昇温条件、解析の際の質量数および定量下限値の決定は加熱脱着法と同様に行った。それぞれの物質について、定量下限値濃度から 100 ng までの範囲で作製した検量線を図 10(二硫化炭素)および図 11(ジクロロメタン)に示す。また、定量下限値と検量線の決定係数を表 5 に示す。多くの物質に関して、概ね 0.5 から 100 ng の範囲で良好な検量線が得られたが、一部物質については、定量下限値が 1~4 ng

となった。また、ジエチレングリコールモノブチルエーテルとジプロピレングリコールモノブチルエーテルの決定係数がどちらの溶媒でもあまり良くなかった。極性の高いグリコールエーテル類のピーク形状は広がりやすく、特に低濃度領域における面積値が小さめになることも見られる。また、溶媒抽出法の場合、気化室において対象物質を気化させて、カラムへ導入するが、インサートへの吸着や気化室での効率等の問題が、ピーク形状に影響を与えることもある。これらのことから、実際の測定を行う際には、測定に応じた適正な範囲で検量線を作製し、それに応じて検出器の感度を上げるなど対応をする必要があると考えられる。また、加熱脱着法の検討と同様に、今回の実験は、すべての物質が 100 ng まで飽和せずに測定出来ることを条件として測定したため、このような結果であったが、測定対象物質の上限濃度を下げること、検出器の感度を上げることが可能となり、より低濃度まで測定が出来るものと考えられる。

しかしながら、これらの点に注意をすることで、二硫化炭素、ジクロロメタンともに測定溶媒として有用であると考えられる。

(2) 添加回収試験

B.研究方法、6. 溶媒抽出法の検討、(2) 添加回収試験で示したとおり、ヤシガラ活性炭(シバタ製およびオルボ 32Small)およびオルボ 91 の捕集管について、それぞれに混合標準溶液(1000 µg/mL)を 4 µL 添加し、分析を行った。解析は SIM で行った。測定対象物質のピーク強度(面積値)

とトルエン-d8 のピーク強度(面積値)との強度比をそれぞれ算出し、これを、4 µg/mL の二硫化炭素またはジクロロメタン溶液の測定結果と比較し、回収率を算出した。その結果を表 6 に示す。二硫化炭素を用いた際の回収率と比較し、ジクロロメタンを用いた際の回収率が、かなり大きな値となる傾向が見られた。そこで、トルエン-d8 のピーク強度(面積値)を確認したところ、ジクロロメタンで溶出した際のピーク強度(面積値)が、4 µg/mL のジクロロメタン溶液と比べ大きく低下する傾向が見られた(表 7)。そこで、4 µg/mL のジクロロメタン溶液に吸着剤を加え、測定した際のトルエン-d8 のピーク強度(面積値)を確認したところ、同様の傾向を示した(表 8)。このことから、ジクロロメタンを溶媒とした際には、担体にトルエン-d8 が吸着されている可能性があることが示唆された。一方、二硫化炭素ではこのような傾向は見られなかった。従って、ジクロロメタンを溶媒とする場合は、吸着剤から溶出の後、上清を分取し、内部標準物質を添加する等の操作が必要であると考えられる。

そこで、ピーク強度(面積値)を用いて、溶媒および吸着剤による回収率について解析を行うこととした。その結果を表 9 に示す。

すべての吸着剤で、プロピレングリコールとエチレングリコールモノフェニルエーテルの回収率が低かった。どちらの物質も 2 層目からの検出が見られないことから、破過の影響ではなく、吸着剤からの対象物質の抽出効率が悪いことが原因と考えられる。特に、プロピレングリ

コールは、オルボ 91 を吸着剤とし、ジクロロメタンで溶出した際には 70 %程度の回収率が得られているが、ヤシガラ活性炭を吸着剤とし、二硫化炭素で溶出したものでは、10~20 %程度の回収率しか得られなかった。プロピレングリコールの抽出溶媒としては、ジクロロメタンの方が、二硫化炭素に比べ優れてはいたものの、いずれも低い回収率であった。

一方、エチレングリコールモノフェニルエーテルはシバタ製ヤシガラ活性炭を吸着剤とし、二硫化炭素で溶出した際には 60 %程度の回収率が得られているものの、その他の組み合わせでは、30~50 %程度の回収率しか得られなかった。全体的にエチレングリコールモノフェニルエーテルの抽出溶媒としては、二硫化炭素の方が、ジクロロメタンに比べ優れてはいたものの、いずれも低い回収率であった。

一方、環状シロキサン類のうちヘキサメチルシクロトリシロキサン(D3)、オクタメチルシクロテトラシロキサン(D4)、デカメチルシクロペンタシロキサン(D5)は、オルボ 91 を吸着剤として用いた際の回収率が低く、また 2 層目への破過が見られた(通気量:約 25 L)。溶媒による回収率の差は見られなかった。この結果から、オルボ 91 を吸着剤とした場合、環状シロキサン類の破過に注意する必要がある。

これらの結果から、溶媒抽出法の吸着剤としてはヤシガラ活性炭の方が適していると考えられた。ただし、プロピレングリコール等の回収率が低いことから、アセトン等の異なる抽出溶媒についても検討を行う必要があると考えられる。

D. 結論

シックハウス検討会において指針値設定に向けた議論がなされているグリコールエーテル類(10 種)および環状シロキサン類(4 種)に、文献にて測定例を報告されたグリコールエーテル類(10 種)を加えた 24 化合物を対象とし、加熱脱離-GC/MS 法(加熱脱着法)および溶媒抽出-GC/MS 法(溶媒抽出法)による測定法の検討を行った。

加熱脱着法では、テナックス TA(60/80 メッシュ)を充填剤とした捕集管を用い、1/20 量を GC/MS に導入する条件で、1 ng (一部の化合物は 4 または 20 ng) から 500 ng で良好な検量線が得られた。テナックス TA(60/80 メッシュ)に代わり、テナックス TA/カルボキセン 1000 の 2 層式捕集管を用い、試料 100 ng について分析を行った場合にも、テナックス TA(60/80 メッシュ)を捕集管とした際と同様の結果が得られ、他の VOC 等の分析条件に応じて捕集管の選択が可能であることがわかった。また、テナックス TA(60/80 メッシュ)を用い、試料 100 ng について、分析の際に加熱脱離させた物質のうち、分析に供さなかった約 95% を再捕集し、測定したところ、内部標準物質であるトルエン-d8 に対する強度比は 1 回目と 2 回目の測定でほぼ同じであった。

溶媒抽出法の検討では、溶媒として二硫化炭素またはジクロロメタンを用い、1/20 量を GC/MS に導入する条件で、ジエチレングリコールモノブチルエーテルとジプロピレングリコールモノブチルエーテルを除き、0.5 ng (一部の化合物は 1 から 4 ng) から 100 ng で良好な検量線が得

られた。抽出溶媒として、二硫化炭素とジクロロメタンを比較したところ、ジクロロメタンでは、トルエン-d8 が吸着剤へと分配してしまう傾向が見られたことから、二硫化炭素の方が抽出溶媒として優れているものと思われた。しかしながら、添加回収試験ではプロピレングリコールおよびエチレングリコールモノフェニルエーテルの回収率が低く、2 層目への破過も認められなかったことから、吸着剤に強く吸着されている可能性が示唆され、他の溶媒についても検討を行う必要があると考えられた。オルボ 91 は環状シロキサン類に関して破過が見られたことから、ヤシガラ活性炭の方が吸着剤として適していると考えられた。

文献

- 1) 斎藤育江、大貫文、瀬戸博、上原眞一、上村尚、室内環境学会誌、8(1): 15-26 (2005)
- 2) 小林智、武内伸治、小島弘幸、高橋哲夫、神和夫、秋津裕志、伊佐治信一、室内環境、13(1): 39-54 (2010)
- 3) 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、日本リスク研究学会誌、21(2): 91-100 (2011)
- 4) Takeuchi S., Kojima H., Saito I., Jin K., Kobayashi S., Tanaka-Kagawa T., Jinno H., Sci. Total Environ., 491-492: 28-33 (2014)
- 5) 溝内重和、市場正良、宮島徹、兒玉宏樹、高椋利幸、染谷孝、上野大介、室内環境、17(2): 69-79 (2014)

E. 研究発表

1. 論文発表

- 1) Takeuchi S., Tanaka-Kagawa T., Saito I., Kojima H., Jin K., Satoh M., Kobayashi S., Jinno H.: Differential determination of plasticizers and organophosphorus flame retardants in residential indoor air in Japan. *Environ Sci. Pollut. Res. in press*

2. 学会発表

- 1) Shinji Takeuchi, Toshiko Tanaka-Kagawa, Masayuki Sato, Satoshi Kobayashi, Hiroyuki Kojima, Ikue Saito, Hitoshi Uemura, Hideto Jinno: Comparison of existence forms of plasticizers and organophosphorus flame retardants in residential indoor air in different seasons, ISEE-ISES AC2016 (Conference of International Society for Environmental Epidemiology and International Society of Exposure Science - Asia Chapter 2016), June 2016, Sapporo

- 2) 武内伸治：居住住宅における室内空気中の可塑剤および有機リン系難燃剤の粒度別測定，日本分析化学会第 65 年会(2016. 9, 札幌)
- 3) 千葉真弘、武内伸治：室内空気中揮発性有機化合物試験法の開発について，第 53 回全国衛生化学技術協議会年会(2016. 11, 青森)

F. 知的所有権の取得状況

1. 特許取得 なし
2. 実用新案登録 なし
3. その他 なし

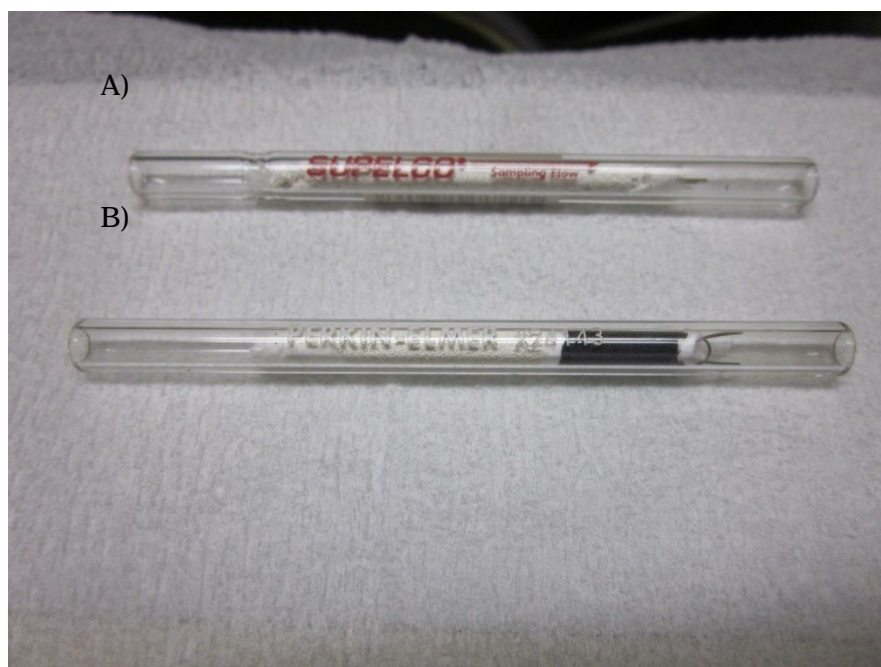


図1 加熱脱着法で使用した捕集管
 (A: テナックス TA (60/80 メッシュ)、B: テナックス TA/ カルボキセン 1000)

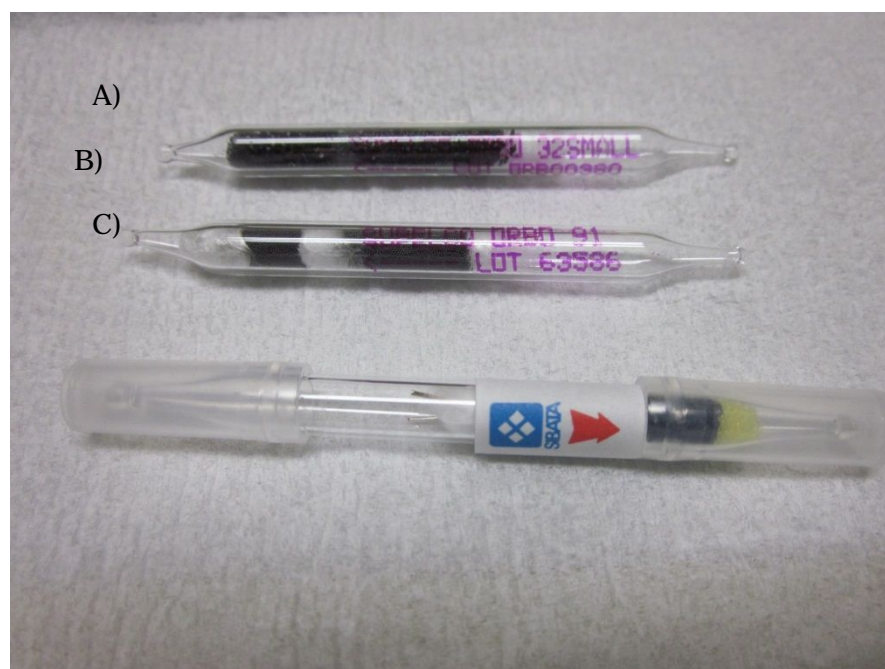


図2 溶媒抽出法で使用した捕集管
 (A: オルボ 32 Small、B: オルボ 91、C: シバタ製ヤシガラ活性炭)

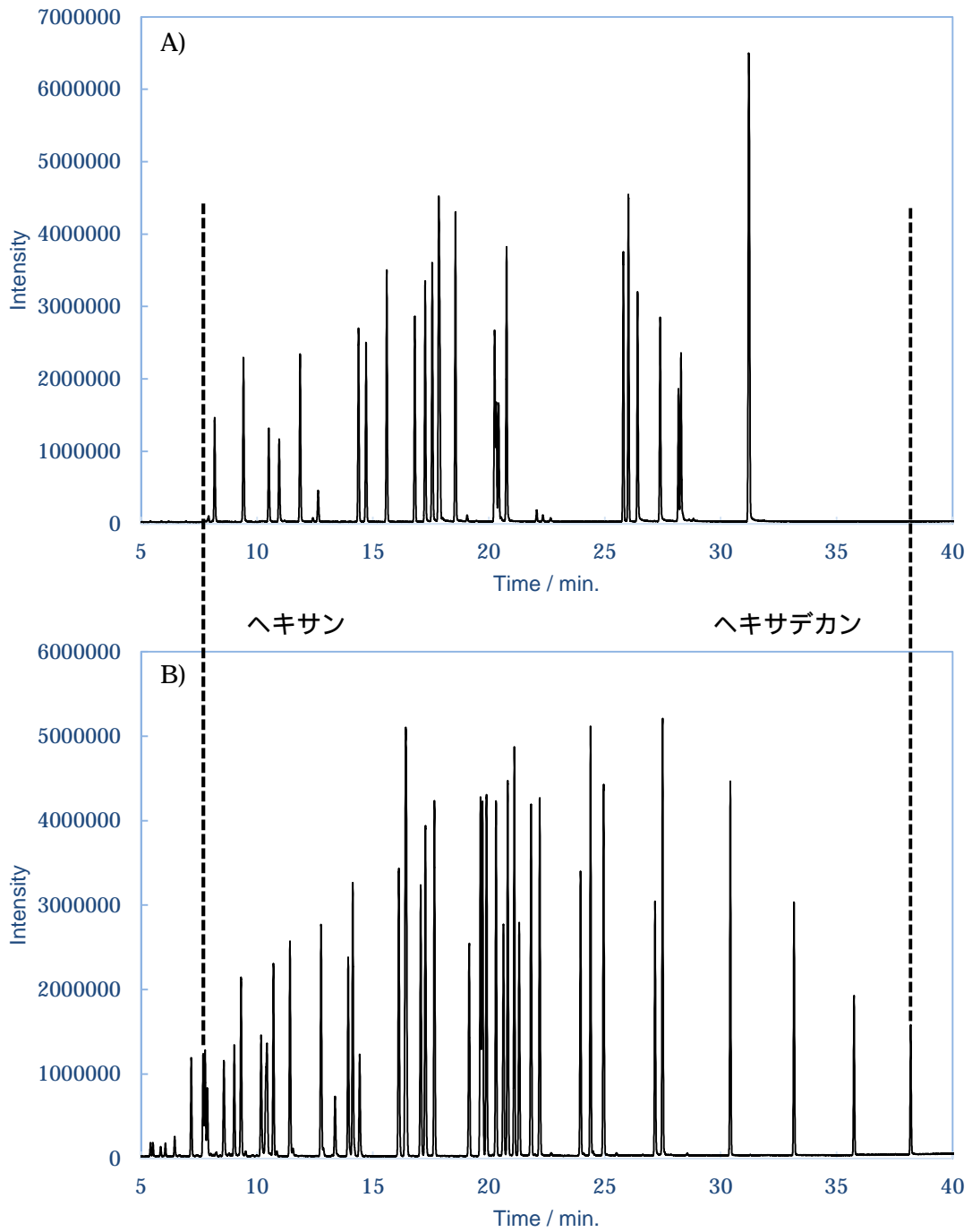


図3 加熱脱着法で測定した際のクロマトグラム
 (A: グリコールエーテル類 20 種および環状シロキサン類 4 種、B: VOC52 種)

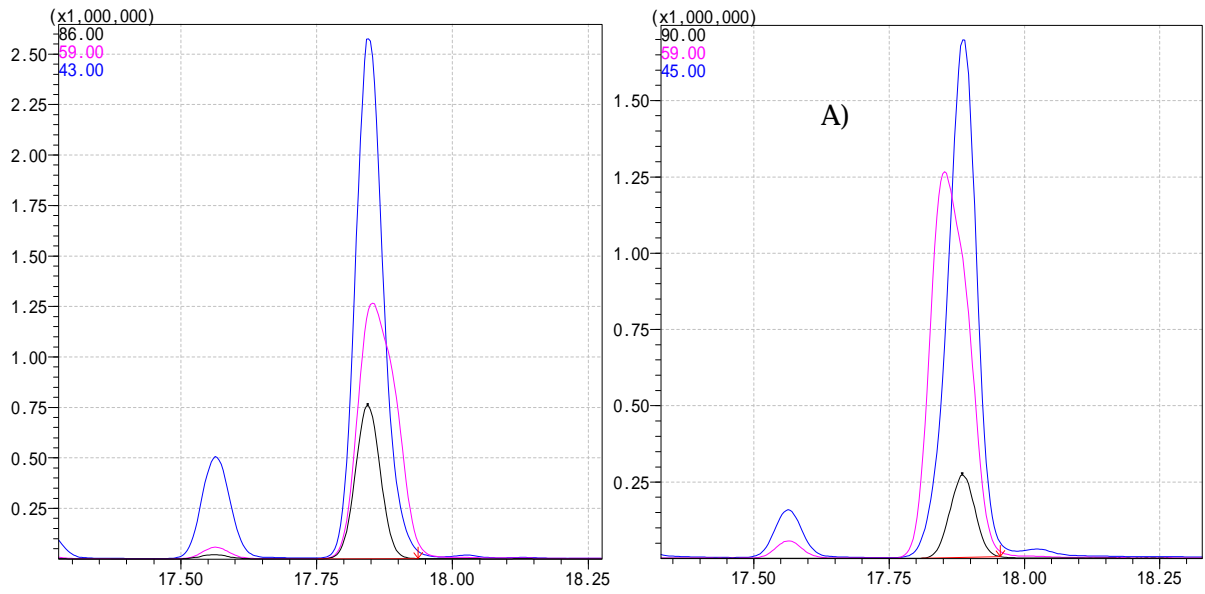


図4 加熱脱着法で測定した際のクロマトグラム
(A: プロピレングリコールモノブチルエーテルアセテート、B: ジエチレングリコールモノメチルエーテル)

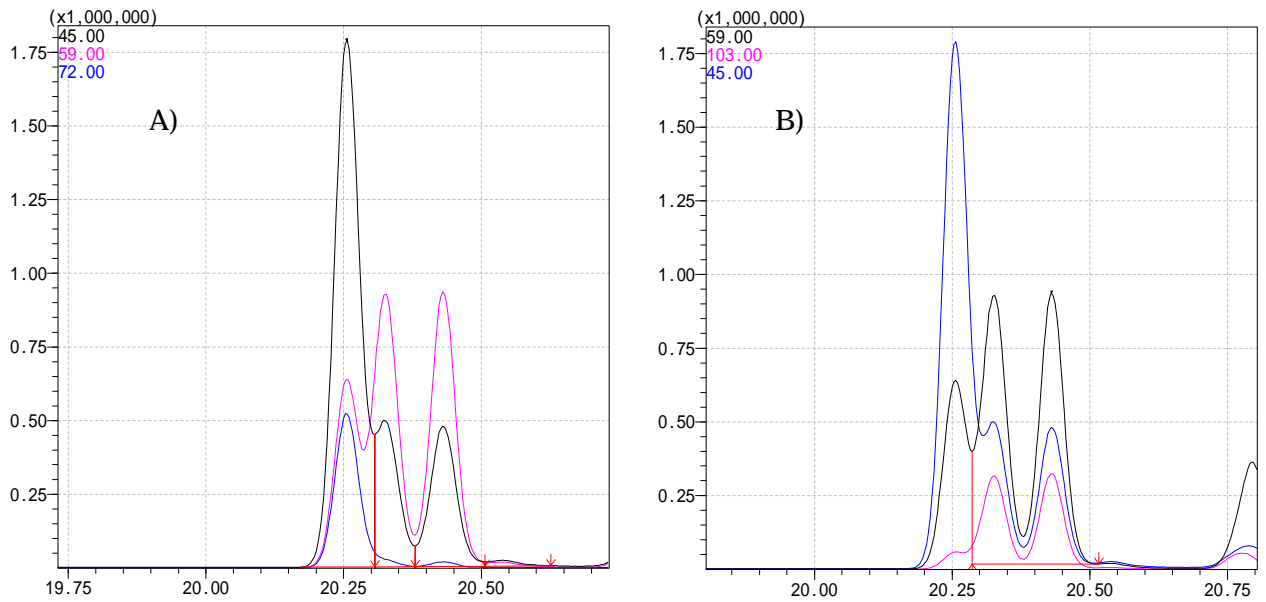


図5 加熱脱着法で測定した際のクロマトグラム
(A: ジエチレングリコールモノエチルエーテル、B: ジプロピレングリコールモノメチルエーテル)

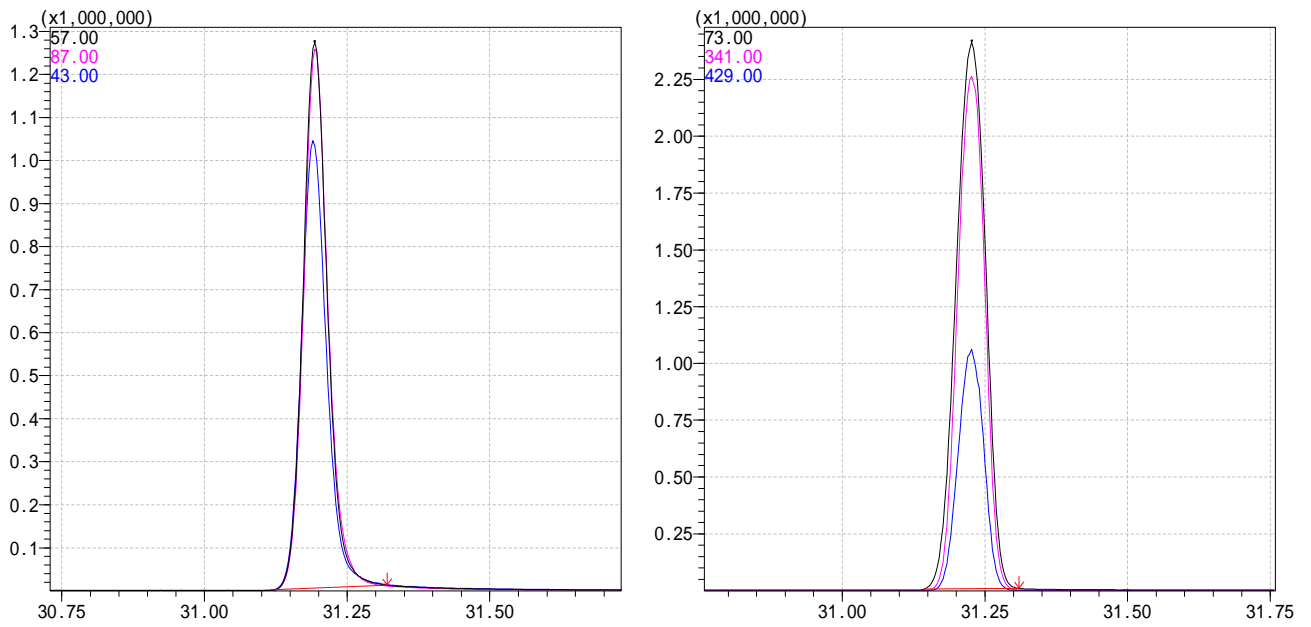


図6 加熱脱着法で測定した際のクロマトグラム
 (A: ジエチレングリコールモノブチルエーテルアセテート、B: ドデカメチルシクロヘキサシロキサン)

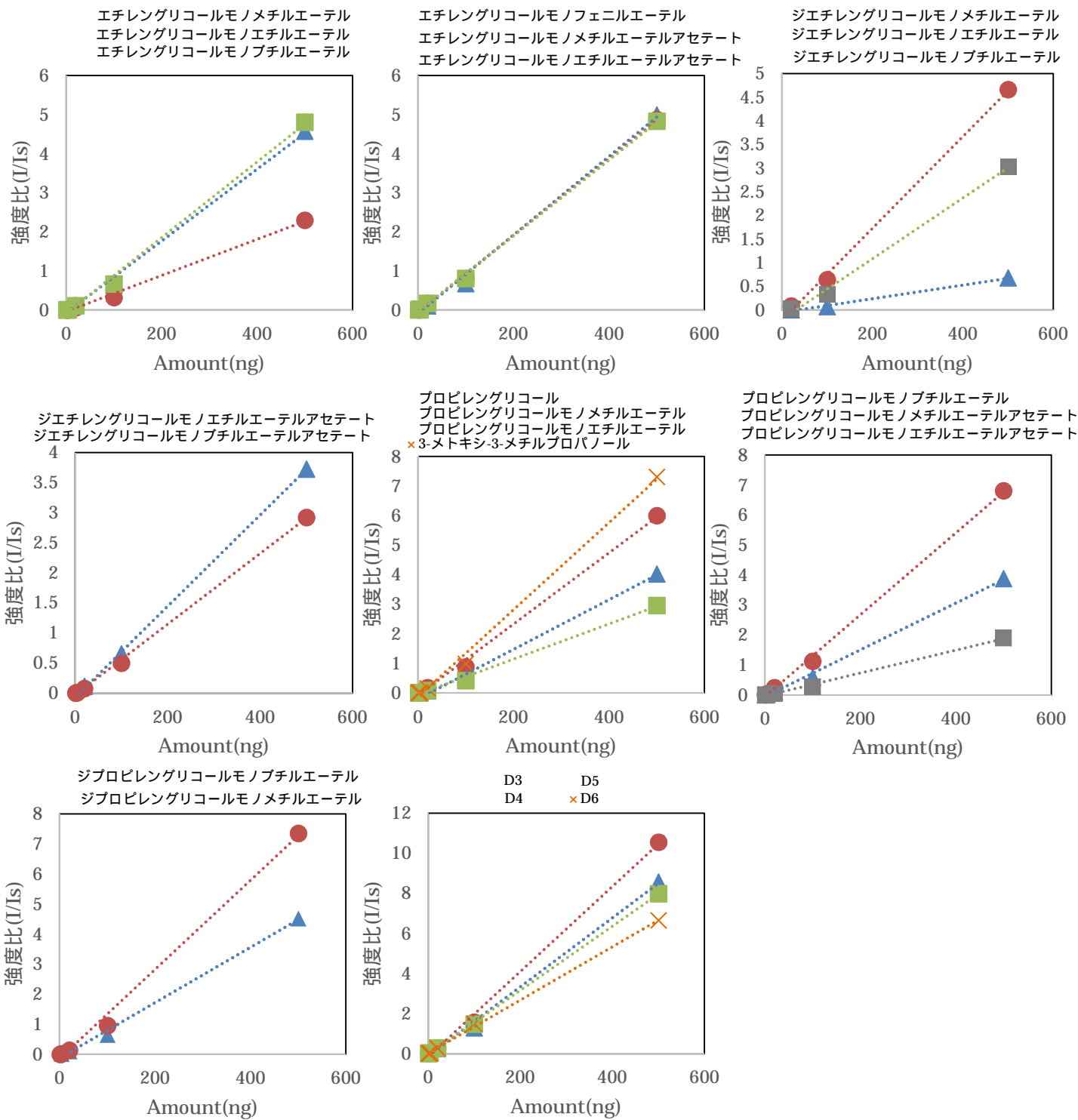


図7 加熱脱着法で測定した際の検量線(テナックスTA(60/80メッシュ)捕集管)

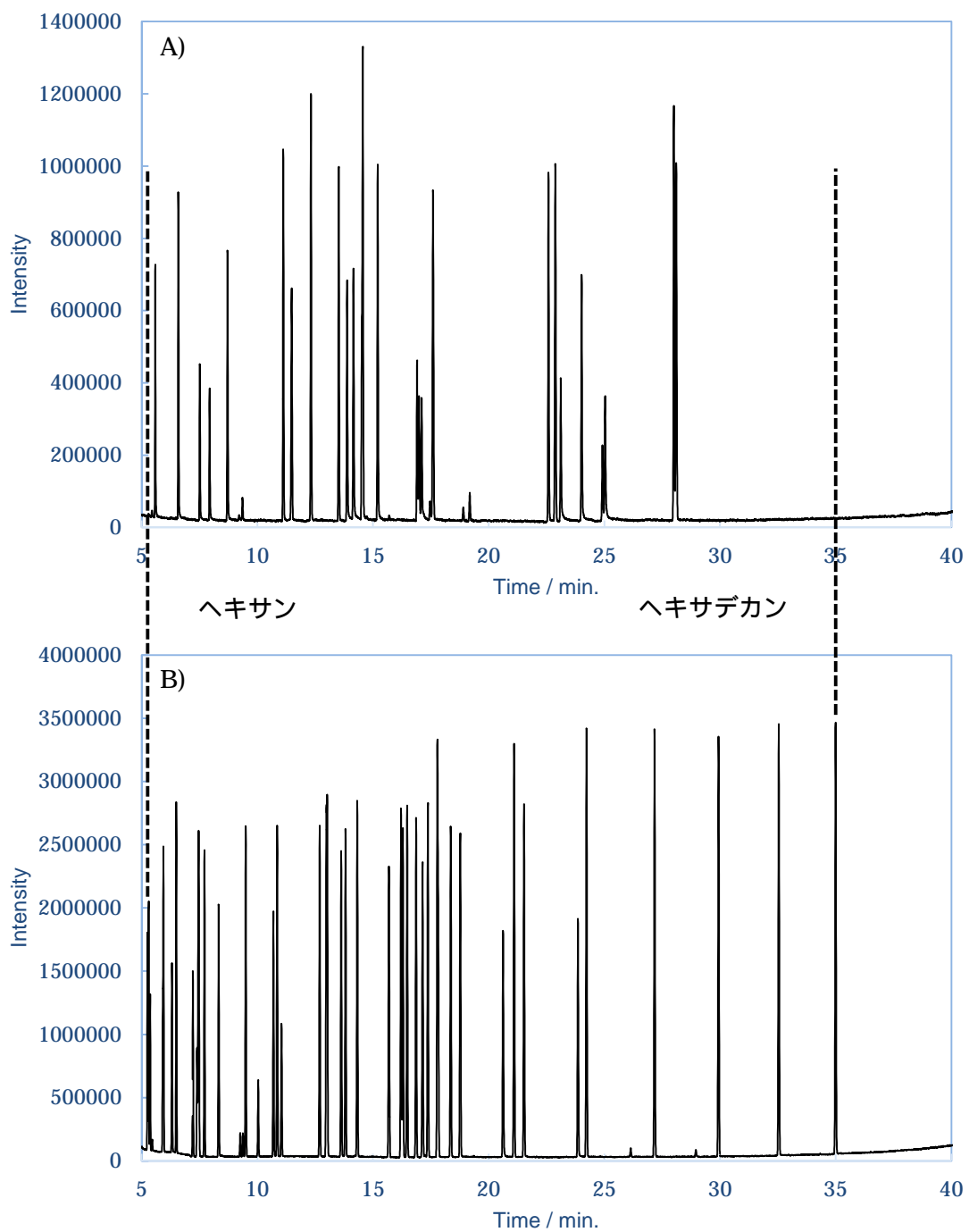


図8 二硫化炭素を溶媒とし、測定した際のクロマトグラム
 (A: グリコールエーテル類 20 種および環状シロキサン類 4 種、B: VOC52 種)

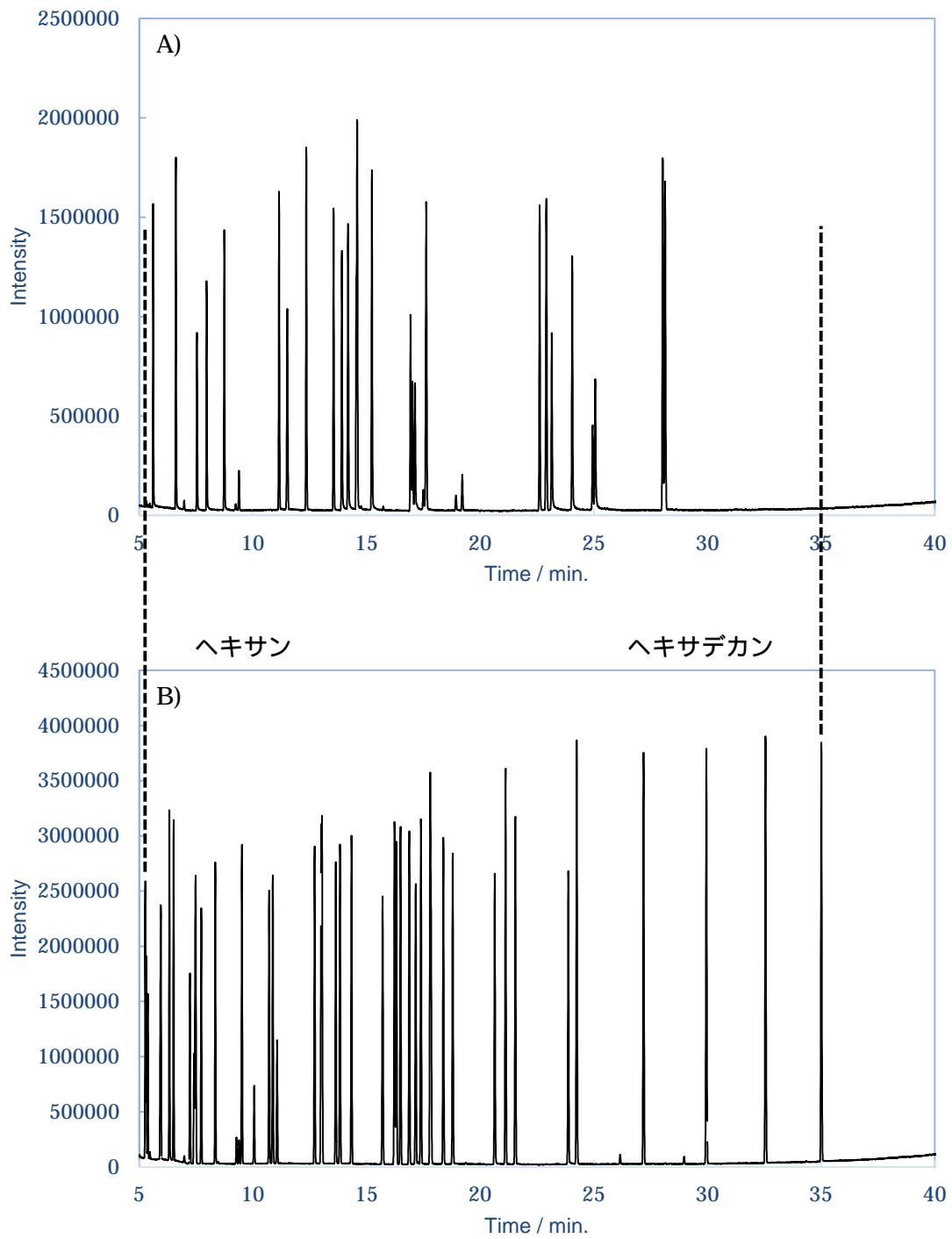


図9 ジクロロメタンを溶媒とし、測定した際のクロマトグラム
 (A: グリコールエーテル類 20 種および環状シロキサン類 4 種、B: VOC52 種)

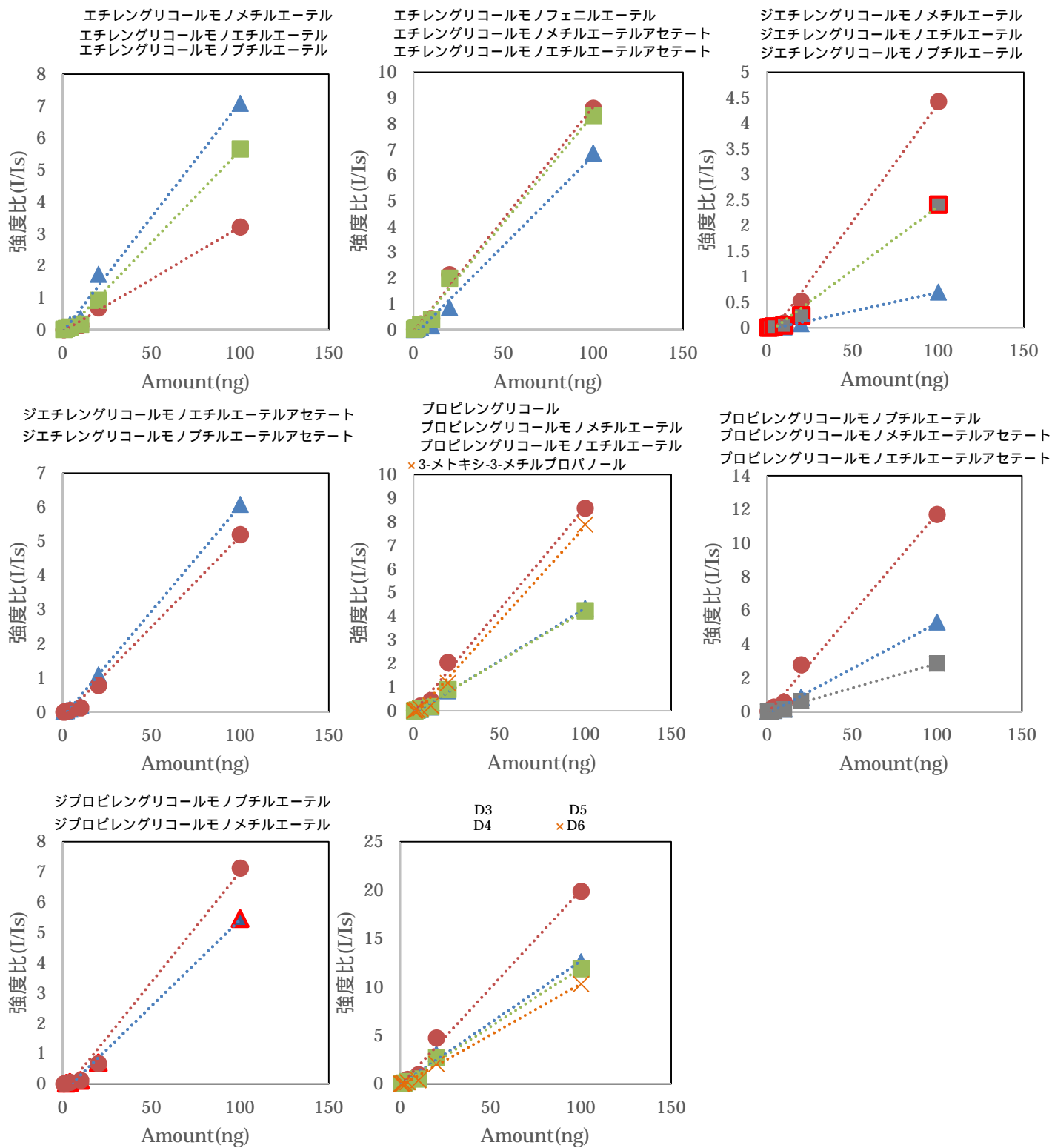


図 10 溶媒抽出法で測定した際の検量線(溶媒：二硫化炭素)
 (赤く縁取りしてあるマーカー： 決定係数が良くなかった測定対象物質)

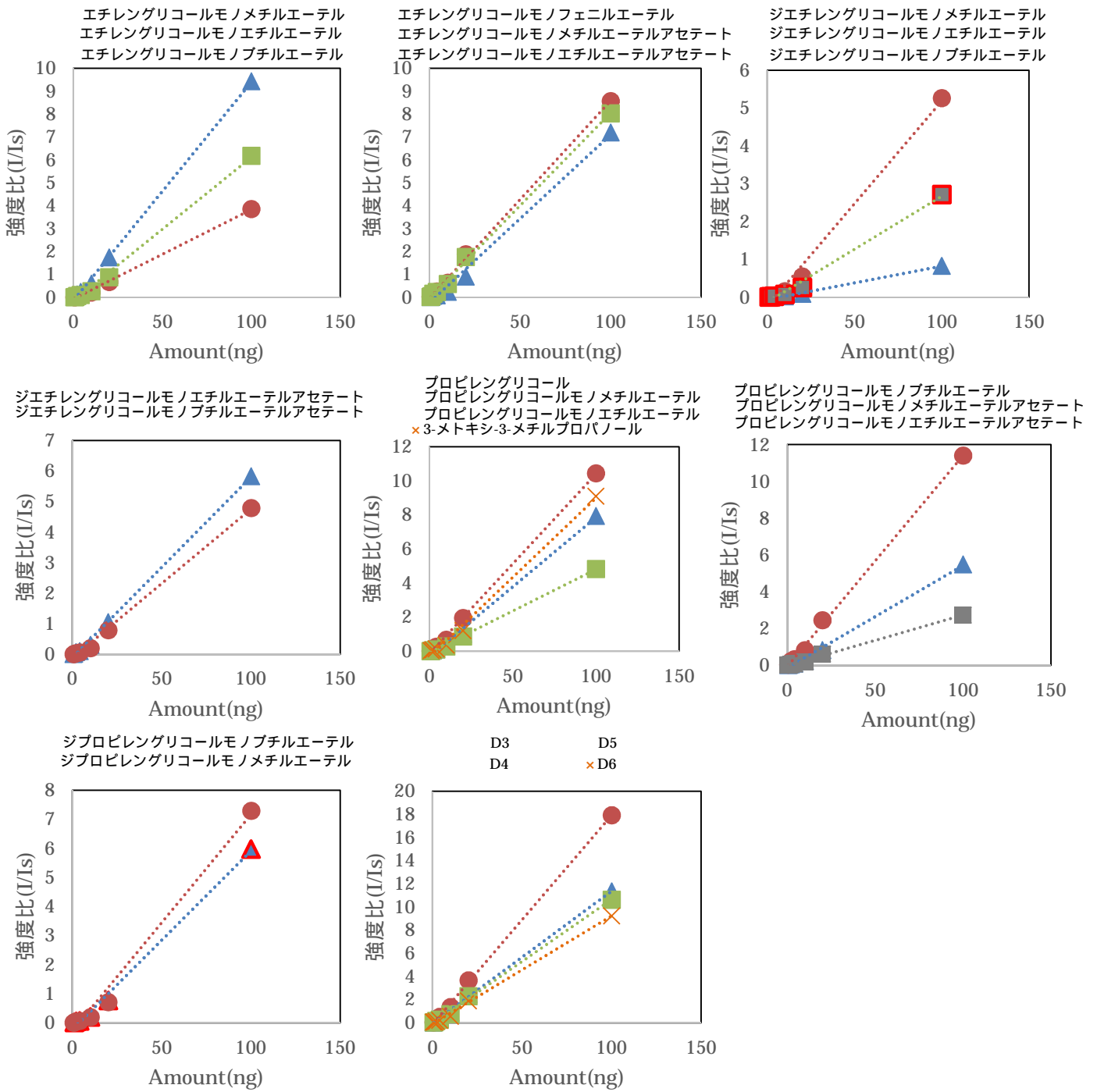


図 11 溶媒抽出法で測定した際の検量線(溶媒：ジクロロメタン)
 (赤く縁取りしてあるマーカー： 決定係数が良くなかった測定対象物質)

表 1 定量イオン(保持時間順)

化合物名	保持時間(分)	m/z
エチレンジリコールモノメチルエーテル	7.796	45
プロピレンジリコールモノメチルエーテル	9.123	45
エチレンジリコールモノエチルエーテル	10.288	59
プロピレンジリコール	10.757	45
プロピレンジリコールモノエチルエーテル	11.710	59
トルエン-d8	12.509	98
エチレンジリコールモノメチルエーテルアセテート	14.320	43
ヘキサメチルシクロトリシロキサン(D3)	14.656	207
プロピレンジリコールモノメチルエーテルアセテート	15.561	43
エチレンジリコールモノエチルエーテルアセテート	16.784	43
エチレンジリコールモノブチルエーテル	17.229	57
3-メトキシ-3-メチルブタノール	17.540	73
プロピレンジリコールモノエチルエーテルアセテート	17.825	86
ジエチレンジリコールモノメチルエーテル	17.866	90
プロピレンジリコールモノブチルエーテル	18.545	45
ジエチレンジリコールモノエチルエーテル	20.242	45
ジプロピレンジリコールモノメチルエーテル	20.311	59
オクタメチルシクロテトラシロキサン(D4)	20.760	281
ジエチレンジリコールモノエチルエーテルアセテート	25.795	43
デカメチルシクロペンタシロキサン(D5)	26.013	73
ジエチレンジリコールモノブチルエーテル	26.409	57
エチレンジリコールモノフェニルエーテル	27.378	94
ジプロピレンジリコールモノブチルエーテル	28.280	59
ジエチレンジリコールモノブチルエーテルアセテート	31.199	57
ドデカメチルシクロヘキサシロキサン(D6)	31.221	73

表2 加熱脱着法で測定した際の定量下限と決定係数

化合物名	定量下限(ng)	決定係数
エチレンジクロールモノメチルエーテル	1	0.997
エチレンジクロールモノエチルエーテル	1	0.997
エチレンジクロールモノブチルエーテル	1	0.997
エチレンジクロールモノフェニルエーテル	1	0.996
エチレンジクロールモノメチルエーテルアセテート	1	0.999
エチレンジクロールモノエチルエーテルアセテート	1	0.999
ジエチレンジクロールモノメチルエーテル	20	0.995
ジエチレンジクロールモノエチルエーテル	20	0.998
ジエチレンジクロールモノブチルエーテル	20	0.995
ジエチレンジクロールモノエチルエーテルアセテート	20	1.000
ジエチレンジクロールモノブチルエーテルアセテート	1	0.999
プロピレンジクロール	20	0.997
プロピレンジクロールモノメチルエーテル	1	0.997
プロピレンジクロールモノエチルエーテル	1	0.997
プロピレンジクロールモノブチルエーテル	1	0.998
プロピレンジクロールモノメチルエーテルアセテート	1	0.999
プロピレンジクロールモノエチルエーテルアセテート	1	0.997
3-メトキシ-3-メチルブタノール	1	0.996
ジプロピレンジクロールモノメチルエーテル	4	0.997
ジプロピレンジクロールモノブチルエーテル	1	0.995
ヘキサメチルシクロトリシロキサン(D3)	1	0.998
オクタメチルシクロテトラシロキサン(D4)	1	0.998
デカメチルシクロペンタシロキサン(D5)	1	1.000
ドデカメチルシクロヘキサシロキサン(D6)	1	0.999

表3 100 ng 添加した捕集管を測定した際の面積比(vs トルエン-d8)

化合物名	テナックスTA/カルボキセン1000		テナックスTA(60/80)		面積比の比較 (A/B x 100, %)
	面積比(平均) (A)	C.V.	面積比(平均) (B)	C.V.	
エチレンジクロールモノメチルエーテル	0.539177	11.8	0.585038	2.7	92.2
エチレンジクロールモノエチルエーテル	0.295122	11.1	0.297244	3.9	99.3
エチレンジクロールモノプロピルエーテル	0.551222	8.6	0.568226	7.9	97.0
エチレンジクロールモノフェニルエーテル	0.495160	11.4	0.528832	13.3	93.6
エチレンジクロールモノメチルエーテルアセテート	0.761898	9.8	0.737975	6.2	103.2
エチレンジクロールモノエチルエーテルアセテート	0.752159	9.7	0.729284	7.9	103.1
ジエチレンジクロールモノメチルエーテル	0.044244	6.4	0.055755	8.5	79.4
ジエチレンジクロールモノエチルエーテル	0.365382	3.7	0.443258	8.9	82.4
ジエチレンジクロールモノプロピルエーテル	0.175719	8.8	0.228882	13.1	76.8
ジエチレンジクロールモノエチルエーテルアセテート	0.555191	8.3	0.544123	11.7	102.0
ジエチレンジクロールモノプロピルエーテルアセテート	0.403425	11.9	0.404447	15.0	99.7
プロピレンジクロール	0.311988	7.7	0.386949	3.1	80.6
プロピレンジクロールモノメチルエーテル	0.793533	12.4	0.806746	2.9	98.4
プロピレンジクロールモノエチルエーテル	0.400554	10.6	0.397483	5.1	100.8
プロピレンジクロールモノプロピルエーテル	0.480791	9.5	0.477779	6.9	100.6
プロピレンジクロールモノメチルエーテルアセテート	1.058318	10.7	1.022798	6.6	103.5
プロピレンジクロールモノエチルエーテルアセテート	0.258828	9.8	0.250257	7.6	103.4
3-メトキシ-3-メチルブタノール	0.789068	9.4	0.791673	7.5	99.7
ジプロピレンジクロールモノメチルエーテル	0.497311	6.5	0.541202	8.8	91.9
ジプロピレンジクロールモノプロピルエーテル	0.712819	7.6	0.761609	13.0	93.6
ヘキサメチルシクロトリシロキサン(D3)	0.929397	11.1	1.023107	9.7	90.8
オクタメチルシクロテトラシロキサン(D4)	1.556303	8.5	1.563668	9.1	99.5
デカメチルシクロペンタシロキサン(D5)	1.287687	7.2	1.220767	9.6	105.5
ドデカメチルシクロヘキサシロキサン(D6)	1.217936	6.4	1.161293	11.2	104.9

表4 再捕集した際の面積比 (vs トルエン-d8)

化合物名	1回目		2回目		面積比の比較 (A/B x 100, %)
	面積比(平均) (A)	C.V.	面積比(平均) (B)	C.V.	
エチレンジクロールモノメチルエーテル	0.468069	4.5	0.455168	3.1	102.8
エチレンジクロールモノエチルエーテル	0.244448	2.6	0.242800	2.4	100.7
エチレンジクロールモノプロピルエーテル	0.502252	2.4	0.509007	4.1	98.7
エチレンジクロールモノフェニルエーテル	0.275877	6.5	0.269926	8.5	102.2
エチレンジクロールモノメチルエーテルアセテート	0.667509	2.2	0.698521	3.9	95.6
エチレンジクロールモノエチルエーテルアセテート	0.681337	2.6	0.711557	4.9	95.8
ジエチレンジクロールモノメチルエーテル	0.046364	8.4	0.047153	1.2	98.3
ジエチレンジクロールモノエチルエーテル	0.349427	5.4	0.340004	3.9	102.8
ジエチレンジクロールモノプロピルエーテル	0.130831	5.8	0.135026	10.4	96.9
ジエチレンジクロールモノエチルエーテルアセテート	0.480663	2.4	0.515764	4.3	93.2
ジエチレンジクロールモノプロピルエーテルアセテート	0.262981	2.8	0.273843	2.3	96.0
プロピレンジクロール	0.301498	3.7	0.288482	2.5	104.5
プロピレンジクロールモノメチルエーテル	0.696572	3.1	0.691016	2.8	100.8
プロピレンジクロールモノエチルエーテル	0.345407	2.6	0.345267	2.4	100.0
プロピレンジクロールモノプロピルエーテル	0.438531	2.1	0.447997	5.1	97.9
プロピレンジクロールモノメチルエーテルアセテート	0.962267	2.7	1.002777	4.8	96.0
プロピレンジクロールモノエチルエーテルアセテート	0.235656	2.9	0.240723	5.1	97.9
3-メトキシ-3-メチルブタノール	0.703929	2.8	0.672379	4.4	104.7
ジプロピレンジクロールモノメチルエーテル	0.547199	1.3	0.558511	4.6	98.0
ジプロピレンジクロールモノプロピルエーテル	0.576696	4.4	0.582121	4.2	99.1
ヘキサメチルシクロトリシロキサン(D3)	0.823934	7.0	0.786176	1.8	104.8
オクタメチルシクロテトラシロキサン(D4)	1.384075	3.3	1.345064	3.1	102.9
デカメチルシクロペンタシロキサン(D5)	1.117208	1.9	1.095139	4.0	102.0
ドデカメチルシクロヘキサシロキサン(D6)	0.964887	3.0	0.960579	5.2	100.4

表5 溶媒抽出法で測定した際の定量下限と決定係数

化合物名	二硫化炭素		ジクロロメタン	
	定量下限(ng)	決定係数	定量下限(ng)	決定係数
1-ヒンゲリコールモノメチルエーテル	1	0.994	0.5	0.999
1-ヒンゲリコールモノエチルエーテル	0.5	0.997	0.5	0.998
1-ヒンゲリコールモノプロピルエーテル	0.5	0.996	0.5	0.996
1-ヒンゲリコールモノフェニルエーテル	0.5	0.992	0.5	0.994
1-ヒンゲリコールモノメチルエーテルアセテート	0.5	0.994	0.5	0.999
1-ヒンゲリコールモノエチルエーテルアセテート	0.5	0.995	0.5	0.999
2-ヒンゲリコールモノメチルエーテル	2	0.994	4	0.997
2-ヒンゲリコールモノエチルエーテル	2	0.994	1	0.992
2-ヒンゲリコールモノプロピルエーテル	1	0.990	1	0.990
2-ヒンゲリコールモノエチルエーテルアセテート	0.5	0.996	0.5	0.998
2-ヒンゲリコールモノプロピルエーテルアセテート	0.5	0.995	0.5	0.997
プロピルヒンゲリコール	1	0.997	1	0.995
プロピルヒンゲリコールモノメチルエーテル	0.5	0.995	0.5	0.999
プロピルヒンゲリコールモノエチルエーテル	0.5	0.997	0.5	0.999
プロピルヒンゲリコールモノプロピルエーテル	0.5	0.996	0.5	0.996
プロピルヒンゲリコールモノメチルエーテルアセテート	0.5	0.995	0.5	0.999
プロピルヒンゲリコールモノエチルエーテルアセテート	0.5	0.996	0.5	0.998
3-メトキシ-3-メチルブタノール	0.5	0.995	1	0.995
ジプロピルヒンゲリコールモノメチルエーテル	2	0.995	1	0.995
ジプロピルヒンゲリコールモノプロピルエーテル	0.5	0.988	0.5	0.989
ヘキサメチルシクロトランジロキサン(D3)	0.5	0.994	0.5	0.999
オクタメチルシクロトランジロキサン(D4)	0.5	0.995	0.5	0.999
デカメチルシクロヘンタジロキサン(D5)	0.5	0.996	0.5	0.999
ドデカメチルシクロヘキサジロキサン(D6)	0.5	0.997	0.5	0.998

表6 溶媒抽出法による回収率(%、トルエン-d8 に対する面積比で計算)

化合物名	シバタ製ヤシガラ活性炭				オルボ32Small				オルボ91			
	二硫化炭素		ジクロロメタン		二硫化炭素		ジクロロメタン		二硫化炭素		ジクロロメタン	
	1段目	2段目	1段目	2段目	1段目	2段目	1段目	2段目	1段目	2段目	1段目	2段目
1-ヒンゲリコールモノメチルエーテル	75.4	0	152.1	0	54.1	0	123.2	0	76.5	0	156.2	0
1-ヒンゲリコールモノエチルエーテル	79.4	0	160.9	0	62.5	0	121.8	1.0	76.7	0	155.3	0
1-ヒンゲリコールモノプロピルエーテル	84.7	0	159.5	0	66.5	0	120.1	0.8	75.7	0	152.8	0
1-ヒンゲリコールモノフェニルエーテル	56.9	0	79.4	0	34.7	0	44.3	0	50.5	0	70.1	0
1-ヒンゲリコールモノメチルエーテルアセテート	83.4	0	162.7	0	78.7	0	124.1	1.3	78.8	0	161.8	0
1-ヒンゲリコールモノエチルエーテルアセテート	84.3	0	162.0	0	78.9	0	124.8	1.2	78.1	0	161.9	0
2-ヒンゲリコールモノメチルエーテル	65.6	0	131.2	0	14.6	0	80.6	0	59.3	0	134.2	0
2-ヒンゲリコールモノエチルエーテル	74.7	0	152.5	0	25.6	0	96.3	0	64.8	0	145.5	0
2-ヒンゲリコールモノプロピルエーテル	76.8	0	152.7	0	34.7	0	98.8	0	68.4	0	150.0	0
2-ヒンゲリコールモノエチルエーテルアセテート	84.9	0	171.0	0	64.4	0	122.7	0.5	70.4	0	156.9	0
2-ヒンゲリコールモノプロピルエーテルアセテート	69.9	0	150.0	0	67.2	0	110.7	0	68.3	0	149.2	0
プロピルヒンゲリコール	18.3	0	66.8	0	11.6	0	75.6	0	44.6	0	130.9	0
プロピルヒンゲリコールモノメチルエーテル	80.9	0	158.6	0	68.2	0	122.9	0.8	79.7	0	156.4	0
プロピルヒンゲリコールモノエチルエーテル	79.6	0	158.7	0	68.4	0	122.1	1.0	77.6	0	154.6	0
プロピルヒンゲリコールモノプロピルエーテル	81.3	0	160.3	0	67.1	0	119.5	0.7	73.0	0	151.4	0
プロピルヒンゲリコールモノメチルエーテルアセテート	85.0	0	163.1	0	80.8	0	126.2	1.4	80.6	0	160.7	0
プロピルヒンゲリコールモノエチルエーテルアセテート	84.8	0	155.0	0	77.6	0	121.3	1.0	83.7	0	156.7	0
3-メトキシ-3-メチルブタノール	81.6	0	163.9	0	69.4	0	122.8	0.7	70.1	0.6	133.9	3.1
ジプロピルヒンゲリコールモノメチルエーテル	75.4	0	145.3	0	38.7	0	106.3	0	65.1	0	139.9	0
ジプロピルヒンゲリコールモノプロピルエーテル	78.7	0	155.4	0	57.9	0	109.2	0.6	70.4	0	149.5	0
ヘキサメチルシクロトランジロキサン(D3)	78.6	0	138.2	0	81.0	0	112.7	2.2	20.6	7.1	37.2	13.6
オクタメチルシクロトランジロキサン(D4)	77.8	0	146.0	0	80.5	0	122.1	2.1	10.4	12.9	23.4	16.1
デカメチルシクロヘンタジロキサン(D5)	71.4	0	147.7	0	76.9	0	120.1	0.8	36.8	14.7	64.5	24.3
ドデカメチルシクロヘキサジロキサン(D6)	66.2	0	134.5	0	73.0	0	107.2	0	71.0	1.3	130.5	5.3

表7 測定時のトルエン-d8 のピーク強度(面積値)

化合物名	二硫化炭素				ジクロロメタン			
	吸着剤なし	シバタ	オルボ32	オルボ91	吸着剤なし	シバタ	オルボ32	オルボ91
トルエン-d8	3246604	3475102	3355740	3316523	3564450	1669578	2439555	1884566
(捕集剤なしに対する割合、%)	-	107.0	103.4	102.2	-	46.8	68.4	52.9

表8 標準溶液に吸着剤を添加した際のトルエン-d8 のピーク強度(面積値)の変化

化合物名	二硫化炭素				ジクロロメタン			
	吸着剤なし	シバタ	オルボ32	オルボ91	吸着剤なし	シバタ	オルボ32	オルボ91
トルエン-d8	3246604	3368430	2857022	2834733	3564450	2052739	1825154	2548947
(捕集剤なしに対する割合、%)	-	103.8	88.0	87.3	-	57.6	51.2	71.5

表9 溶媒抽出法による回収率(%、面積値で計算)

化合物名	シバタ製ヤシガラ活性炭				オルボ32Small				オルボ91			
	二硫化炭素		ジクロロメタン		二硫化炭素		ジクロロメタン		二硫化炭素		ジクロロメタン	
	1段目	2段目	1段目	2段目	1段目	2段目	1段目	2段目	1段目	2段目	1段目	2段目
エチレンジクロロモノメチルエーテル	80.7	0	71.2	0	55.9	0	84.3	0	78.1	0	82.6	0
エチレンジクロロモノエチルエーテル	85.0	0	75.4	0	64.6	0	83.4	0.8	78.4	0	82.1	0
エチレンジクロロモノプロピルエーテル	90.7	0	74.7	0	68.8	0	82.2	0.6	77.4	0	80.8	0
エチレンジクロロモノフェニルエーテル	60.9	0	37.2	0	35.9	0	30.3	0	51.6	0	37.0	0
エチレンジクロロモノメチルエーテルアセテート	89.2	0	76.2	0	81.4	0	84.9	1.0	80.4	0	85.5	0
エチレンジクロロモノエチルエーテルアセテート	90.2	0	75.9	0	81.6	0	85.4	0.9	79.8	0	85.6	0
ジエチレンジクロロモノメチルエーテル	70.2	0	61.5	0	15.1	0	55.2	0	60.5	0	70.9	0
ジエチレンジクロロモノエチルエーテル	80.0	0	71.4	0	26.4	0	65.9	0	66.2	0	76.9	0
ジエチレンジクロロモノプロピルエーテル	82.2	0	71.5	0	35.9	0	67.6	0	69.9	0	79.3	0
ジエチレンジクロロモノエチルエーテルアセテート	90.9	0	80.1	0	66.6	0	84.0	0	71.9	0	83.0	0
ジエチレンジクロロモノプロピルエーテルアセテート	74.8	0	70.3	0	69.5	0	75.7	0	69.8	0	78.9	0
プロピレンジクロロ	19.6	0	31.3	0	12.0	0	51.8	0	45.6	0	69.2	0
プロピレンジクロロモノメチルエーテル	86.6	0	74.3	0	70.5	0	84.1	0.6	81.4	0	82.7	0
プロピレンジクロロモノエチルエーテル	85.2	0	74.3	0	70.7	0	83.5	0.8	79.3	0	81.7	0
プロピレンジクロロモノプロピルエーテル	87.1	0	75.1	0	69.3	0	81.8	0.5	74.6	0	80.1	0
プロピレンジクロロモノメチルエーテルアセテート	91.0	0	76.4	0	83.5	0	86.4	1.1	82.3	0	85.0	0
プロピレンジクロロモノエチルエーテルアセテート	90.7	0	72.6	0	80.2	0	83.0	0.8	85.5	0	82.9	0
3-メトキシ-3-メチルブタノール	87.4	0	76.8	0	71.8	0	84.0	0.5	71.6	0.7	70.8	2.2
ジプロピレンジクロロモノメチルエーテル	80.7	0	68.1	0	40.0	0	72.7	0	66.5	0	74.0	0
ジプロピレンジクロロモノプロピルエーテル	84.2	0	72.8	0	59.9	0	74.7	0.5	71.9	0	79.1	0
ヘキサメチルシクロトリシロキサン(D3)	84.1	0	64.8	0	83.7	0	77.1	1.7	21.0	7.7	19.7	9.7
オクタメチルシクロテトラシロキサン(D4)	83.3	0	68.4	0	83.2	0	83.6	1.6	10.6	13.9	12.4	11.5
デカメチルシクロペンタシロキサン(D5)	76.4	0	69.2	0	79.5	0	82.2	0.6	37.6	15.9	34.1	17.3
ドデカメチルシクロヘキサシロキサン(D6)	70.9	0	63.0	0	75.4	0	73.3	0	72.5	1	69.0	3.8