

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

空気汚染化学物質の標準試験法の開発・規格化および
国際規制状況に関する研究

令和3年度～令和5年度 総合研究報告書

(21KD2002)

研究代表者 酒井 信夫

令和6（2024）年 3月

目次

I. 総合研究報告

空気汚染化学物質の標準試験法の開発・規格化および国際規制状況に関する研究 -----	1
酒井 信夫 (国立医薬品食品衛生研究所)	

1. 室内濃度指針値代替化学物質の標準試験法の開発 -----	48
酒井 信夫 (国立医薬品食品衛生研究所)	

2. 総揮発性有機化合物 (TVOC) の在り方に関する研究 -----	62
神野 透人 (名城大学)	

3. 空气中揮発性有機化合物 (VOC)・準揮発性有機化合物 (SVOC) の標準試験法の評価 -----	84
田原 麻衣子 (国立医薬品食品衛生研究所)	

4. 室内空気環境汚染化学物質の標準試験法の国内規格化 -----	91
香川 (田中) 聡子 (横浜薬科大学)	

5. 室内空気環境汚染化学物質の標準試験法の国際規格化 -----	112
田辺 新一 (早稲田大学)	

6. 室内空気環境汚染化学物質のオンサイト試験法の評価 -----	117
金 炫兌 (久留米工業大学)	

7. 室内空気環境汚染化学物質の曝露濃度予測 -----	130
伊藤 一秀 (九州大学)	

8. ハザード情報収集・評価および国際的な規制動向の調査 -----	145
東 賢一 (関西福祉科学大学)	

II. 研究成果の刊行に関する一覧表 -----	169
--------------------------	-----

空気汚染化学物質の標準試験法の開発・規格化および国際規制状況に関する研究

研究代表者 酒井 信夫 国立医薬品食品衛生研究所 生活衛生化学部 室長

室内濃度指針値既設13物質の代替化学物質による室内空気環境汚染が数多く報告されるようになり、厚生労働省 医薬局 医薬品審査管理課 化学物質安全対策室を事務局とするシックハウス（室内空気汚染）問題に関する検討会（以下、シックハウス検討会）では、室内濃度指針値指針値の採用を新たに検討すべき化学物質が提案されている。

室内濃度指針値を策定する際には、対象化学物質の詳細な曝露評価を行うために、妥当性の評価・確認された標準試験法を通知（提示）する必要がある。現在、シックハウス検討会が示す室内空気中化学物質の採取方法と測定方法（室内空気中化学物質の測定マニュアル）は、2001年に通知（医薬発第828号 平成13年7月25日付 厚生労働省医薬局長通知）された方法であり、サンプリング・分析機器等の技術進展に応じた測定方法のリバイスが急務である。また、シックハウス検討会では、室内空気環境汚染実態調査等の結果に基づいて、室内濃度指針値の採用を新たに検討すべき化学物質が継続的に示されることになっており、これら化学物質の標準試験法についても行政対応していく必要がある。

本指定研究課題では、

- ① 汎用性の高い室内濃度指針値既設・代替化学物質の標準試験法を開発し、多機関バリデーション試験によりそれらの妥当性を検証する。
- ② ①で開発した標準試験法について、国内規格化および国際規格化を推進する。
- ③ 室内環境汚染化学物質の曝露濃度評価の為の*in silico*予測モデルを開発した上で、標準試験法に基づいた化学物質濃度測定結果と*in silico*予測モデルを併用して経気道曝露濃度ならびに経皮曝露濃度を定量的に予測する技術を確立する。

合計8課題の分担研究の成果の詳細については、分担研究報告書において報告する。

研究分担者

酒井 信夫	国立医薬品食品衛生研究所	田辺 新一	早稲田大学 創造理工学部
神野 透人	名城大学 薬学部	金 炫兌	久留米工業大学 建築・設備工学科
田原 麻衣子	国立医薬品食品衛生研究所	伊藤 一秀	九州大学 総合理工学研究院
香川（田中） 聡子	横浜薬科大学 薬学部	東 賢一	関西福祉科学大学 福祉栄養学科

研究協力者（研究分担者を除く）

大嶋 直浩	国立医薬品食品衛生研究所
高木 規峰野	国立医薬品食品衛生研究所
高橋 夏子	国立医薬品食品衛生研究所
千葉 真弘	北海道立衛生研究所
大泉 詩織	北海道衛生研究所
兼俊 明夫	北海道立衛生研究所
大貫 文	東京都健康安全研究センター
角田 徳子	東京都健康安全研究センター
斎藤 育江	東京都健康安全研究センター
吉富 太一	神奈川県衛生研究所
西 以和貴	神奈川県衛生研究所
田中 礼子	横浜市衛生研究所
村木 沙織	横浜市衛生研究所
山之内 孝	横浜市衛生研究所
大野 浩之	名古屋市衛生研究所
若山 貴成	名古屋市衛生研究所
岡本 誉士典	名城大学 薬学部
青木 明	名城大学 薬学部
森 葉子	名城大学 薬学部
亀谷 春香	名城大学 薬学部
湯浅 竜斗	名城大学 薬学部
水田 佑香	名城大学 薬学部
青木 望実	名城大学 薬学部
東 珠希	名城大学 薬学部
井上 凌子	名城大学 薬学部
尾嶋 朱莉	名城大学 薬学部
金山 理恵	名城大学 薬学部
埴岡 伸光	横浜薬科大学 薬学部
大河原 晋	横浜薬科大学 薬学部
磯部 隆史	横浜薬科大学 薬学部
河村 伊久雄	横浜薬科大学 薬学部
宮崎 悠里奈	横浜薬科大学 薬学部
沖野 優衣	横浜薬科大学 薬学部
高橋 美優	横浜薬科大学 薬学部
小池 加那子	横浜薬科大学 薬学部
高橋 直也	横浜薬科大学 薬学部
中嶋 康一郎	横浜薬科大学 薬学部
堤 亜里紗	横浜薬科大学 薬学部

小林 叶奈	横浜薬科大学 薬学部
浦島 桃香	横浜薬科大学 薬学部
中向井 璃奈	横浜薬科大学 薬学部
遠藤 治	麻布大学生命・環境科学部
鈴木 浩	柴田科学株式会社
鳥羽 陽	長崎大学医歯薬学総合研究科
中島 大介	国立環境研究所
藤森 英治	環境調査研究所

令和3年度

A. 研究目的

A1: 室内濃度指針値代替化学物質の標準試験法の開発

我々はこれまでに、室内空气中揮発性有機化合物（VOC）を測定するためのガスクロマトグラフィー/質量分析法（GC/MS）を用いた標準試験法を開発し、国内・国際規格化を推進してきた。GC/MSを用いた測定の標準キャリアガスにはヘリウムが汎用されているが、わが国ではヘリウムを産出することが出来ないため、その全量を輸入に依存している。ヘリウムの産出国は限定されており、原産国の備蓄制限や生産量が不安定であること、半導体デバイス製造や医療機器分野におけるヘリウム需要拡大等が世界的な供給不足（輸入価格の高騰）に拍車をかけている。上述の背景に鑑みて、将来的に安定的なヘリウム供給が期待できないことから、代替キャリアガスを用いた試験法の開発が急務となっている。本研究では、ヘリウム代替キャリアガスとして、水素及び窒素を用いた室内空気汚染化学物質の試験法を開発し、その定量性（分離、感度、検量線の直線性等）について確認した。

A2: 総揮発性有機化合物(TVOC)の在り方に関する研究

我が国では、室内空気室の総体的な指標として、総揮発性有機化合物（TVOC）に暫定目標値 400

μg/m³が設定されている。この暫定目標値は、実態調査において個別に定量されたVOCsの総和を基に、2000年12月に設けられた目標値であり、20年以上が経過した今、TVOCを構成するVOCの特徴付けと共に、暫定目標値の妥当性を検証する必要があると考えられる。そこで、TVOCの定義ならびにその暫定目標値の妥当性について検証を行うことを目的として、本研究を実施した。

A3: 室内空气中揮発性有機化合物(VOC)・準揮発性有機化合物(SVOC)の標準試験法の評価

現在、「シックハウス(室内空気汚染)問題に関する検討会(以下、シックハウス検討会)」が示す室内空气中化学物質の採取方法と測定方法は、2001年に通知(医薬発第828号 平成13年7月25日付厚生労働省医薬局長通知)された方法であり、サンプリング・分析機器等の技術進展に応じた測定方法のリバイスが必要である。このような背景から、本分担研究では、地方自治体において試験検査実務を担当する地方衛生研究所の研究者とともに室内濃度指針値の策定物質および候補物質における標準試験法のリバイス箇所を討議し、その改良方法を開発し、多機関での妥当性評価を行って標準試験法を確立することを目的としている。

今年度は、①VOCの標準試験法である固相吸着-溶媒抽出-GC/MS法(SE-GC/MS、以下、SE法)および固相吸着-加熱脱離-GC/MS法(以下、TD法)における高湿度条件下でのVOC回収率の評価および除湿管の有用性、②SVOCであるフタル酸エステル2種および殺虫剤3種のSE法における同時分析法の構築、③フタル酸エステル類におけるSE法およびTD法の2法同時捕集による定量値の比較と、①～③の3項目について検討した。

A4: 室内空気環境汚染化学物質の標準試験法の国内規格化

居住環境の室内空気が室内濃度指針値あるいは暫定目標値を満たしているか否かを評価するためには、標準化された室内空気の測定法、すなわち採

取方法ならびにその分析方法によって得られた結果に基づいて判断することが必要である。本研究では、最新の分析技術を基に開発された汎用性の高い標準試験法の国内規格化を目的とした。

A5: 室内空気環境汚染化学物質の標準試験法の国際規格化

厚生労働省のシックハウス(室内空気汚染)問題に関する検討会が継続的に開催され、指針値の見直しや新たな規制汚染物質が検討されている。また、フタル酸エステル類については、改正指針値に対応して精度の高い標準試験法が開発された。これは、日本薬学会編 衛生試験法・注解2015:追補2019にて公表され、国内の規準となっている。この精度の高い国内規格を国際規格化とするためにISO会議に新規案を提案した。本分担研究では、この国内のフタル酸エステル類の測定・分析方法をISO/TC146(大気の質)/SC6(室内空気)、ISO 16000-33:2017“Determination of phthalates with gas chromatography/mass spectrometry (GC/MS)”の進捗情報について報告する。

また、新型コロナウイルス感染症対策として広く用いられているアルコール塗布が室内の知覚空気質およびスギ材自体の化学物質の構成変化に与える影響(以下、アルコール塗布実験)を把握することや、木材からのテルペン類酸化過程で生成されるアルデヒド類の放散メカニズムの検証を目的に溶剤を気中で化学反応をさせる実験(以下、溶剤実験)を実施した。

A6: 室内空気環境汚染化学物質のオンサイト試験法の評価

室内の有害化学物質としては、高揮発性有機化合物(Very Volatile Organic Compounds:VVOC)やVOCといった比較的揮発しやすい化学物質がある。しかし、SVOCは揮発性が低いため、気中よりハウスダストや室内の表面に付着する性質を持ち、呼吸・経口摂取・経皮吸収等の経路によって体内に吸収されることが報告されている。

マイクロチャンバー法 (JIS A 1904) は建材からのSVOC放散速度の測定が可能であるが、実空間における仕上げ材からの放散速度測定が困難である。そのため、マイクロチャンバーを用いたオンサイト測定方法を開発した。先行研究では、バックグラウンド実験などの基礎実験や、マイクロチャンバー法とオンサイト測定方法との整合性実験を行い、実空間における床材からのSVOC放散速度実験を行った。その一方、床面からのSVOC放散速度の測定は可能であるものの、壁面からのSVOC放散速度測定は困難であった。そこで、今年度は壁面からのSVOC放散速度を測定するため、壁面にマイクロチャンバーを固定する装置を開発し、実空間における床材・壁材からのSVOC放散速度を測定した。

A7: 室内空気環境汚染化学物質の曝露濃度予測

室内環境汚染化学物質の曝露濃度評価のための *in silico* 予測モデルを開発した上で、標準試験法に基づいた化学物質濃度測定結果と *in silico* 予測モデルを併用して経気道曝露濃度ならびに経皮曝露濃度を定量的に予測する技術を確立する。

今年度は、計算流体力学による室内濃度分布解析に統合可能な *in silico* 人体モデルのプロトタイプモデルを作成し、特に代表的なSVOCであるフタル酸ビス2-エチルヘキシル (DEHP) を対象とした室内濃度分布解析手法ならびに人体モデルとの連成解析手法を確立する。

A8: 室内空気環境汚染化学物質の国際規制状況調査・ハザード情報の収集

本研究においては、第一に、室内空気汚染問題に対する国際機関や諸外国における室内濃度指針値作成や規制動向等の情報を収集し、日本における取り組みの参考情報とする。また第二に、室内空気汚染化学物質に関して、有害性情報を網羅的に収集し、今後のリスク評価や既存の指針値の見直しにおいて鍵となる重要なハザード情報をとりまとめることを目的としている。

B. 研究方法

B1: 室内濃度指針値代替化学物質の標準試験法の開発

1) 測定対象物質

本研究における検討対象物質は、室内濃度指針値が設定されているトルエン、キシレン、エチルベンゼン、スチレン、パラジクロロベンゼン、テトラデカンの6物質とした。

標準試薬は、東京化成工業社、富士フイルム和光純薬社、関東化学社製のVOC分析用標準品を用いた。内部標準物質には富士フイルム和光純薬社製のトルエン-*d*₈標準品を用いた。メタノールは富士フイルム和光純薬社製または関東化学社製（残留農薬・PCB測定用5,000倍濃縮検定品）を用いた。

2) 装置

GC-MS: Agilent 5977B GC/MSDシステム (アジレント・テクノロジー社製)、多機能オートサンプラ: PAL3 RSI (アジレント・テクノロジー社製)、高純度水素ガス発生装置: NM-Plus 160 (エアテック社製)

3) GC/MS分析条件の検討

ヘリウムをキャリアガスとした測定では無極性カラムRtx®-1 (0.32 mm i.d. x 60 m, 膜厚1 μm, Restek社製) を、窒素及び水素をキャリアガスとした測定では無極性カラムRxi®-1ms (0.25 mm i.d. x 60 m, 膜厚1 μm, Restek社製) を用いて分析した。キシレンには3つの異性体があり、複数ピークとして検出される。その一部 (*m*, *p*-キシレン) は保持時間が重なり、共通のイオンを有するため、分離定量が難しいことが知られていることから、*m*-キシレン及び*p*-キシレンの定量は、定量イオンピークの出始めから出終わりまでの面積を合算した。

B2: 総揮発性有機化合物(TVOC)の在り方に関する研究

26軒の居住住宅を対象に、2.88 Lの室内空気を

Tenax TA吸着管に通し、VOCsを捕集した。吸着管に捕集されたVOCsを加熱脱離-GC/MS (Shimadzu TD-30 – Shimadzu GC/MS/MS TQ8030) を用いてScanモードで測定し、*n*-Hexaneから*n*-Hexadecaneの保持時間の間に溶出するピークの総和をToluene換算値として算出し、TVOC濃度を求めた。TVOCクロマト그램のDeconvolution解析には、AnalyzerPro ver. 6.0.0.246 (Spectral Works)を用いた。

B3: 室内空气中揮発性有機化合物(VOC)・準揮発性有機化合物(SVOC)の標準試験法の評価

① 高湿度条件下における除湿管の有用性および定量値への影響

クリーンルーム内にあるクリーンベンチに加湿器をセットし、クリーンベンチ内外の温度と湿度を24時間モニターした。この結果より、この中で加湿条件の実験が可能か否かについて検討した。

対象化合物を室内濃度指針値策定VOC 6化合物および策定候補3化合物の計9化合物12成分とし、Tenax TAおよびTenax GRの捕集管を用いたTD法、もしくは、カーボンビーズアクティブの捕集管を用いたSE法に対し、加湿条件下における除湿管5種の使用有無での添加回収率を比較した。

② SVOC同時分析法の開発

室内濃度指針値が策定されている殺虫剤3化合物およびフタル酸エステル2化合物にフタル酸エステル類6化合物を加えた計11化合物を測定対象とし、殺虫剤の改良試験法に用いられているカラムおよび分離条件をベースに、フタル酸エステル類との分離を検討した。また、殺虫剤とフタル酸エステル類の混合標準液を捕集カートリッジに添加し、溶媒抽出による回収率と定量下限値の算出を行った。

③ フタル酸エステル類におけるSE法およびTD法の2法同時捕集

フタル酸エステル類のSE法およびTD法の2法

における同時捕集の定量値に差異について、捕集流量および捕集時間を変えた11種の条件による空気中のフタル酸ジエチル(DEP)、フタル酸ジ-*n*-ブチル(DnBP)およびDEHPの濃度を比較した。

B4: 室内空気環境汚染化学物質の標準試験法の国内規格化

室内濃度指針値策定物質であるToluene, *o*-, *m*-, *p*-Xylene, Ethylbenzene, Styrene, *p*-DichlorobenzeneおよびTetradecaneを対象として策定された標準試験法を日本薬学会編 衛生試験法・注解2020 追補2022にて公表すべく標準試験法とその注解を編集した。

B5: 室内空気環境汚染化学物質の標準試験法の国際規格化

[1] ISO-16000-33改訂

研究グループによってシックハウス検討会の改正指針値に対応可能な精度の高いフタル酸エステル類の標準試験法が開発された。この試験法は日本薬学会編 衛生試験法・注解2015：追補2019にて公表された。この規格を国際標準化するために、フタル酸エステル類の測定・分析方法をISO/TC146 (大気) /SC6 (室内空気), ISO 16000-33 : 2017 Determination of phthalates with gas chromatography/mass spectrometry (GC/MS)に新規提案した。そのため、2021年度のISO/TC146/SC6の国際会議に参加し、国際規格化に関する審議及びその結果を確認した。

[2] 知覚空気質の測定方法

1) 実験概要

実験は計測実施している。チャンバー内物理環境は両実験ともに空気温度は26°C、相対湿度は60%、換気回数は0.35回/hを設定値とした。換気回数はJIS A1901の小型チャンバー法を参照した。

2) アルコール塗布実験

① 供試材条件

国内の製材生産量が最も多いスギ材を供試材として選定した。木材は同樹木から製材された素地材を1 m²ずつ計3セット用意した。なお、うち1セットのサンプルに関しては実験の2か月前に130 mL/m²のアルコールを塗布し乾燥させたサンプルである。試料負荷率は1.0 m²/m³とし、JISA1901で定められる壁面想定を試料負荷率の換気回数に対する比 (n/L値) となるように設定した。

② 実験条件

実験条件は、スギ材表面に手を加えないノーマル条件と表面にアルコールを塗布するアルコール塗布条件の2種類を実施した。アルコール塗布条件では、濃度70%のアルコールを使用した。厚生労働省らがモノに付着したウイルス対策手法として推奨するエタノールによる消毒液の最小濃度とした。また、塗布量は既報を参考に15 mL/m²と設定した。

③ 実験手順

チャンバー実験は全7日間で構成され、実験初日の初めの3時間でそれぞれの木材初期化学物質放散量の測定を行った。その後29時間チャンバー内にて供試材を設置し表面条件の違いによる知覚空気質の測定およびにおい袋法を用いた知覚空気質評価を行った。設置から32時間後に供試材をチャンバーから取り出し、試料保管室にて5日間供試材を静置した後5日目に再度供試材の化学物質放散量の測定を行った。

④ 測定項目

チャンバー内空気はTenax-TA管、DNPH管、チャコール管にサンプリングし分析した。チャンバー内空気捕集時刻はアルコール塗布条件を基準に設定し、ノーマル条件においても同様の時刻に捕集を行った。アルコール塗布直後の知覚空気質評価を目的にアルコール塗布後15分後に1回、アルコール塗布後の定常に近くなった状態の知覚空気質評価を目的にアルコール塗布後3時間後に1回捕集を行い、本工程を1つの供試材につき計3回繰

り返した。また、最初のアルコール塗布から約21時間30分後にも1回測定を行い、各条件計7点の化学物質分析用の空気捕集を行った。

3) チャンバー内臭気評価

チャンバー内空気の知覚空気質評価を目的に、臭気評価被験者によるにおい袋法を用いた臭気評価を実施した。臭気評価被験者は、20代の学生9名とし、化学物質分析用空気捕集終了時刻にチャンバー内空気を、10 Lのにおい袋に捕集した。

4) 溶剤実験

① 溶剤条件

本実験ではテルペン類の酸化過程で放散されるアルデヒド類の放散速度を調査するために、木材の代表的なテルペン類αピネンの原液を選定した。

② 実験手順

直径100 mmのシャーレに溶剤を10 μLずつ垂らしチャンバー内に静置することで溶剤から揮発した成分を攪拌させ気中での分解や化学反応を観察する。70%濃度アルコールとαピネン原液のそれぞれの分解反応に加えて、両溶剤を混合させた際の気中化学物質濃度を測定した。

③ 測定項目

物理環境測定および化学物質の測定手法、化学物質測定項目はアルコール塗布実験と同様の項目を実施した。測定時間は設置から3時間後に各1回ずつ化学物質濃度分析用の空気捕集を行った。

B6: 室内空気環境汚染化学物質のオンサイト試験法の評価

1) マイクロチャンバー法 (JIS A 1904)

マイクロチャンバーの容積は630 mL (±5%) であり、入口直前にベントラインを設けることにより蓋と建材の隙間から外気がチャンバーの中に入らないようにコンタミ対策が設けられている。

マイクロチャンバーの測定手順及び試験片につ

いて詳述する。測定開始前にマイクロチャンバーを解体し、水で洗浄した。その後、マイクロチャンバー内に残存している測定対象化学物質を揮発させるために加熱装置を用いて、1時間 220°Cで加熱処理を行った。加熱処理後、マイクロチャンバーを常温まで冷却させる。試験片は端部及び裏面をアルミ箔でシールをし、蓋と試験片が直接に接触しないようにした。試験片をチャンバーの蓋と容器の間に挟んで、建材表面からのSVOC物質放散の測定を行った。マイクロチャンバー内に試験片を設置した時点で放散試験を開始する。放散試験は28°Cの恒温槽で24時間行った。

放散試験後には加熱脱着試験を行った。放散試験に使用した試験片をチャンバーから取り外した後、加熱脱着装置にマイクロチャンバーを設置し、チャンバー内表面に付着しているSVOCを加熱脱着した。加熱脱着は220°Cで、1時間行った。加熱脱着されたSVOC物質はTenax TA捕集管を用いて回収した。

2) オンサイト測定方法

測定条件はマイクロチャンバー測定方法と同様であるが、室内の温度と相対湿度は測定場所によって異なる。オンサイト測定機には2つのポンプが設置されており、1つは30 mL/minの空気を供給、もう1つのポンプは15 mL/minを吸引するように調整している。また、供給側の前にはベントライン 15 mL/minを設けることで、マイクロチャンバー法と同様にマイクロチャンバーと仕上げ材の隙間からコンタミが生じない様になっている。

測定開始前にマイクロチャンバー内に付着しているSVOC物質脱着するため、加熱装置を用いて1時間 220°Cで加熱処理を行った。加熱処理後、ステンレス材で制作した運搬専用箱にマイクロチャンバーを入れ、測定現場まで運搬した。測定場所に到着後には測定場所を選定し、汚染されている床面をエタノールで拭き取った後、測定表面を乾燥させる。その後、直径82 mmの正円形を切り取ったアルミホイルを敷き、その上にマイクロチャンバーを設置し

た。マイクロチャンバーを設置してから24時間床面からの放散実験を行う。その後、マイクロチャンバーを床面から取り外し、ステンレス製ボックスに入れて実験室に持ち帰る。放散実験が終了したマイクロチャンバーは加熱脱着装置にて加熱脱着試験を行い、チャンバー内表面に付着しているSVOCを回収した。

3) 壁面のマイクロチャンバー固定装置

壁材からのSVOC放散速度測定にあたり、マイクロチャンバーを壁面に固定するための装置を新たに開発した。約12 kgのステンレス板のベースに、長さ30 cmのアルミ丸棒をナットで取り付け、アルミ丸棒とマイクロチャンバーの間にばねを用いてマイクロチャンバーを壁面に固定する。マイクロチャンバーを固定する高さは5~30 cmの間で自由に換えられる。マイクロチャンバーを壁面に固定する際には2 kg以上の荷重をかけ、室内の空気がマイクロチャンバー内に流れないようにする必要がある。基礎実験によると、マイクロチャンバーを固定するために使用したばねを106 mmから95 mmまで11 mm以上縮めることで、2 kg以上の荷重がかけられることが確認できた。マイクロチャンバーの前処理、現場までの運搬などは床材からのSVOC放散速度と同様である。

4) 分析対象物質

分析対象物質は、D6(シロキササン6量体)、BHT(ブチル化ヒドロキシトルエン)、DEP、TBP(リン酸トリブチル)、TCEP(リン酸トリス)、DBA(アジピン酸ジブチル)、DnBP、TPP(リン酸トリフェニル)、DOA(アジピン酸ジオクチル)、DEHP、BBP(フタル酸ブチルベンジル)、TBEP(リン酸トリス)、DNOP(フタル酸ジ-n-オクチル)、DINP(フタル酸ジイソノニル)、DIDP(フタル酸ジイソデシル)である。

5) 測定対象住宅

オンサイト測定方法により住宅の床面と壁面に

使用されている建材からのSVOC放散速度を測定した。今年度の測定対象住宅は9軒である。

B7: 室内空気環境汚染化学物質の曝露濃度予測

化学物質による室内環境空気汚染は深刻な健康影響の懸念される社会問題であり、その対策・技術開発のためには、居住者の個人曝露量予測・評価が基本になる。一般的には、室内空気中の化学物質濃度を現場で測定する実測調査を行い、間接的に個人曝露量評価を行う。しかし、実測調査には限界があるため、実測調査のみに基づかない個人曝露量評価手法の構築の必要性がある。そこで、広域スケールで汚染の実態把握を行うために有効なマクロな統計データを使用するマテリアルフロー分析に着目し、社会的なストックデータから室内での空気汚染レベルと個人曝露量予測を予測する手法の構築を行う。特に、室内環境中で可塑剤として使用されるDEHPを評価対象物質として、マテリアルフロー分析とCFD（計算流体力学）とCSP（人体モデル）を統合させることで、マクロなデータから個人曝露量予測までを一連のフレームワークとしてシームレスに解析する新たな数値解析手法を提案する。

DEHP含有製品の動的なマテリアルフロー分析は、産総研DEHP詳細リスク評価書に準拠し11製品を対象とする。システム全体の流入量のDEHPデータは、可塑剤工業統計データや可塑剤へのヒアリング結果から取得する。マテリアルフロー分析の使用過程におけるDEHPストック量 $S(t)$ 推計は、システム全体の流入量をDEHP出荷量とし、耐久消費財の寿命関数 $F(x)$ として用いられるワイブル分布を用いて、各製品の寿命を考慮し、以下の式で推計を行う。

$$S(t) = \int_{t'}^t \{I(t') \cdot (1 - F(t - t'))\} dt' \dots\dots(1)$$

$$F(x) = \left(\frac{u}{v}\right)^x x^{u-1} \exp\left[-\left(\frac{u}{v}\right)^u\right] \dots\dots(2)$$

ここで、 t' は t 年を基準とした出荷年である。つま

り、 $F(t-t')$ は、 t' 年に出荷された製品の t 年での廃棄率を示す。ワイブル分布の各パラメータは、産総研DEHP詳細リスク評価書で用いているパラメータに準拠する。

また、DEHP含有製品毎のDEHP放散量データを取得するためにマイクロチャンバー法（JIS A1904）で測定も実施する。一般的に流通しているDEHP含有製品を7サンプル購入し、DEHP放散速度を測定した。

マテリアルフロー分析とマイクロチャンバー放散実験結果を用い、日本建築学会が示す標準住宅モデルを参考に、一般住宅内におけるDEHP個人曝露量予測のケーススタディを行う。個人曝露量予測では、数値人体・気道モデルを用いて、経気道・経皮曝露予測を定量的に行う。

B8: 室内空気環境汚染化学物質の国際規制状況調査・ハザード情報の収集

1) ハザード情報

室内空気汚染化学物質に関して、刺激性や感作性、一般毒性、神経毒性、免疫毒性、生殖発生毒性、発がん性等に関する有害性情報およびこれらの有害性に関する量反応関係に関する科学的知見が記載された国際機関や諸外国の評価文書等を網羅的に収集するとともに、PubmedやTOXLINE等のデータベース検索を行い、各物質の有害性情報をとりまとめた。特に、各物質の評価値の導出に必要なエンドポイント及びNOEALやLOAEL等の情報収集を行った。

2) 国際的な規制動向の調査

国際機関や国内外の室内空気質規制に関する報告書、関連学会の資料、関連論文をインターネットおよび文献データベースで調査した。近年、主だった活動が見受けられた世界保健機関欧州地域事務局（WHO欧州）、ドイツ、フランス、カナダを主な調査対象国とした。また、諸外国の研究者と関連情報の情報交換を行った。

倫理面への配慮

本研究は、公表されている既存資料を中心とした情報収集を行った後、それらの整理を客観的に行うものであり、特定の個人のプライバシーに係わるような情報を取り扱うものではない。資料の収集・整理にあたっては、公平な立場をとり、事実のみに基づいて行う。本研究は、動物実験および個人情報を扱うものではなく、研究倫理委員会などに諮る必要のある案件ではないと判断している。

C. 研究結果および考察

C1: 室内濃度指針値代替化学物質の標準試験法の開発

1) クロマトグラムの比較

いずれのキャリアーガスにおいても定性・定量分析に問題ない良好な分離能を有することが明らかになった。

2) シグナル強度及びシグナルノイズ比の比較

水素をキャリアーガスに用いた際のシグナル強度は、ヘリウムと比較して1.7~2.6倍と高く、窒素をキャリアーガスに用いた際のシグナル強度は、ヘリウムと比較して1.1~1.7倍と高かった。

他方、シグナルノイズ比については、水素はヘリウムと比較して6.8~40.1%低く、窒素はヘリウムと比較して2.1~8.9%と顕著に低かった。水素、窒素がヘリウムよりもシグナル強度が高かったにも関わらず、S/Nが大幅に低かった原因として、高いノイズ強度が影響したと考えられる。また、窒素で極端に感度が低下した原因として、窒素がイオン源において選択的に除去されず、分析部に導入されたことが考えられた。

3) 検量線の直線性の比較

いずれのキャリアーガスを用いた測定においても決定係数 (R^2) 0.9853~1.000となり、概ね良好な直線性を示した。

4) 検出限界及び定量限界の比較

本研究では、検出限界付近の濃度 (注入量 0.1 ng) の5回繰り返し測定の標準偏差 (\cdot) の3倍 ($3\cdot$) を検出限界、10倍 ($10\cdot$) を定量限界とした。

いずれのキャリアーガスにおいてもヘリウムと遜色なく測定できることが明らかとなった。公益社団法人日本薬学会環境・衛生部会が示す衛生試験法に基づいて100 mL/minの流速で24時間室内空気をサンプリングした際 ($144\text{ L} = 0.144\text{ m}^3$) に、いずれのキャリアーガスを用いた場合においても室内濃度指針値の1/100程度まで定量分析することが可能であった。

C2: 総揮発性有機化合物(TVOC)の在り方に関する研究

26軒の居住住宅で室内空気を採取し、加熱脱離-GC/MSによりTVOC濃度を測定した結果、平均値は585 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、中央値は443 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。一方、Deconvolution解析を行った結果、脂肪族炭化水素類の他に、芳香族炭化水素類、環状シロキサン、香料 (テルペン類) などが主要なTVOC構成成分であることが明らかとなった。

C3: 室内空气中揮発性有機化合物(VOC)・準揮発性有機化合物(SVOC)の標準試験法の評価

① 高湿度条件下における除湿管の有用性および定量値への影響

クリーンベンチをチャンバーに見立てて加湿することで、チャンバー内は平均で70%前後と、概ね湿度の高い条件を作ることが出来た。よって、本チャンバーを用いて、以降の加湿条件の実験を行った。TD法およびSE法ともに、除湿管を使用した際に回収率の低下がみられ、除湿剤である過塩素酸マグネシウムへの吸着が疑われた。本加湿条件では、除湿管がなくてもVOCは概ね良好な回収率とピーク形状が得られたため、除湿管無しでも十分測定可能であった。

② SVOCの同時分析法の構築

計 1 1 化合物の最適な分離条件を検討した結果、完全分離を達成した。さらに、添加回収試験は 85-105%の良好な回収率が得られ、定量下限値は室内濃度指針値の 1/50~1/100 程度まで定量することが出来た。

③ フタル酸エステル類における SE 法および TD 法の 2 法同時捕集

検討した 3 化合物のうち、DEP および DnBP はどの捕集条件でも概ね良好な結果が得られたが、DEHP は特にばらつきが大きかった。その原因を精査した結果、TD 法は操作ブランクの影響を受けやすく、十分な捕集量を確保することで、SE 法と TD 法の濃度差を小さくすることができると推察された。

C4: 室内空気環境汚染化学物質の標準試験法の国内規格化

室内濃度指針値策定物質である Toluene, *o*-, *m*-, *p*-Xylene, Ethylbenzene, Styrene, *p*-Dichlorobenzene および Tetradecane を対象として策定された標準試験法を日本薬学会編 衛生試験法・注解2020 追補2022に収載した。

C5: 室内空気環境汚染化学物質の標準試験法の国際規格化

[1] ISO-16000-33改訂

ISO/TC146/SC6 WG 20オンライン会議は2021年9月20日に開催された。参加者は7カ国から14名が参加した。日本の代表団は田辺 新一、酒井 信夫、伊藤 一秀、金 炫兌が参加した。WG 20では、ISO16000-33の改正案について議論された。

2020年度は、本研究のグループから「ODS固相ディスクまたはSDB共重合体カートリッジによるサンプリング方法と溶媒抽出・分析方法」をISO-16000-33の本文の第4章に含めることを提案したが、日本から提案したフタル酸エステル類の測定・分析方法は付属書として含めることとなった。付属書への参照は本文第4章の概要に記載した。2020

年12月末までNWIP投票が行われ、全会一致で可決された。また、2021年度も前年度と同様にオンライン会議が行われた。日本から提案された作業原案 (WD) について審議され、ISO-16000-33のAnnex Bに技術的な情報などを追記することで合意した。また、WG20は来年の春に会議を開催し、委員会原案 (CD) を登録することとした。委員会原案投票はスキップして、2022年9月にフランス サンドニで行われる国際会議で照会原案 (ISO/DIS) を審議することになった。

[2] 知覚空気質の測定方法

① 化学物質分析結果

アルコール噴霧実験前後の化学物質濃度は全条件で概ね実験前の方が多かった。一方でCase B, CではAcetaldehydeにおいて実験後の方が気中濃度は大幅に上昇した。Case Cのアルコール噴霧実験前の測定では130 ml/m²のアルコール塗布から82日が経過していたがAcetaldehyde気中濃度は1,680 μg/m³と高く、室内濃度指針値を大幅に超過した。Case B, Cにおいてはアルコール噴霧から5日後においてもAcetaldehyde気中濃度は実験前と比較して実験後の方が高かった。

② 臭気評価結果

空気許容度はアルコール噴霧の有無に関わらず全臭気評価時刻で受け入れられる側の申告であったが、Case Aの方がCase B, Cよりも全評価時刻で空気許容度の平均値は高かった。快不快申告の平均値はCase Cの31時間時を除いて全評価時刻で、アルコール噴霧の有無に関わらず快適側の申告となった。一方で、Case Aの方がアルコールを噴霧したCase B, Cよりも、より臭気を快適に感じていた。

④ 溶剤実験結果

α-Pinene および Ethanol の酸化過程では Formaldehyde, Acetaldehyde, Acetone が生成することが明らかになった。木材から主に放散される α-Pinene と Alcohol の気中化学反応は生じないこ

とか明らかになった。

C6: 室内空気環境汚染化学物質のオンサイト試験法の評価

1) 化学物質の検出頻度

床材からの検出頻度が50%以上であった物質は2E1H, DEP, TMPD-DIB, DnBP, DEHP, D6であり, DnBP, DEP, TMPD-DIBがDEHPより高い検出頻度を示した。また, TBP, TCEP, DBA, DEHT, DOAは検出しなかった。

壁材からの検出頻度が50%以上であった物質は2E1H, TMPD-MIB, DEP, TMPD-DIB, DnBP, DEHP, DNOPであり, BHT, TBP, TCEP, DBA, TPP, DOAなどは検出限界以下であった。

2) 床材からのSVOC放散速度

2E1Hの放散速度は0.19~6.16 $\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$ (平均値1.17 $\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$) であった。DEPの検出頻度は80.0%で, 放散速度は0.05~0.09 $\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$ (平均値0.07 $\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$) であった。TMPD-DIBの検出頻度は66.7%であり, 放散速度は0.05~0.58 $\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$ (平均値0.23 $\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$) であった。DnBPの検出頻度は86.7%で, 放散速度は0.07~1.10 $\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$ (平均値0.39 $\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$) であった。DEHPは0.59~11.05 $\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$ (平均値3.50 $\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$) であった。DEHPは他の物質より建材の面積当たり放散量が多く測定されている。D6の検出頻度は100%で, 放散速度は0.04~0.20 $\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$ (平均値0.10 $\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$) であった。

3) 壁材からのSVOC放散速度

2E1Hは6個の建材全てから検出され, 放散速度は0.37~2.45 $\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$ (平均値1.28 $\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$) であった。TMPD-MIBの検出頻度は83.3%であり, 放散速度は0.09~0.95 $\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$ (平均値1.28 $\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$) であった。DEPは6個の建材中5個の建材から検出され, 放散速度は0.06~0.26 $\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$ (平均値0.13 $\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$) であった。TMPD-DIBは0.12~0.32 $\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$ (平均値0.20 $\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$) であった。DnBP

の検出頻度は100%であり, 放散速度は0.25~1.14 $\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$ (平均値0.52 $\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$) であった。DEHPは0.04~5.76 $\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$ (平均値1.39 $\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$) であった。建材の種類によってDEHPの放散速度が大きく異なることが分かった。DNOPは0.04~0.35 $\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$ (平均値は0.10 $\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$) であった。

4) 気中SVOC濃度

2E1Hは0.13~2.78 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (平均値1.46 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) であった。DEPは0.14~0.19 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。TMPD-DIBの検出頻度は53.3%で, 気中濃度は0.16~1.88 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (平均値0.45 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) であった。DnBPの検出頻度は60.0%で, 気中濃度は0.12~1.30 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (平均値0.48 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) であった。DEHPの検出頻度は33.3%と低く, 気中濃度は0.14~12.73 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (平均値3.06 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) であった。D6の検出頻度は77.8%で, 気中濃度が0.14~0.52 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (平均値0.33 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) であった。その他の化学物質については, C16が0.14 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, DNOPが0.14~0.88 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。TMPD-MIBが0.51~1.41 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ で, 住宅によって濃度差が見られた。BHTは0.16~0.21 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, DOAは0.20~0.53 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, TPPは0.15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, DINPは0.53 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。

C7: 室内空気環境汚染化学物質の曝露濃度予測

質量ベースのDEHP蓄積量の推計結果を基に換算係数を適用して面積ベースに換算し, 室内用途比率を考慮することで, 室内におけるDEHP蓄積量を推計した。2019年に着目すると, 一般フィルム用途が全体の46%, 壁紙用途が39%, 床材用途が6%を占める結果となった。これら3製品が主に, 室内環境中で使用されると仮定し, 1住宅あたりの蓄積量を推計したところ, 2018年において, 一般フィルムが32.14 m^2 , 壁紙が48.27 m^2 , 床材が9.44 m^2 という推計結果となった。

マイクロチャンバー放散実験により得られた汎用的なDEHP含有製品による放散速度を求めたところ, 壁紙Bが最大の19.85 $\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$ となった。壁紙Aでは6.75 $\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$ となり, ほとんど同様の塩ビ

系壁紙製品でも、DEHP放散速度の違いが確認された。また、一般フィルムを想定した遮光シートと電線被覆材からは、DEHP放散は確認できなかった。

現実的なDEHP含有建材の使用面積(壁面4面を放散面と想定)を想定して室内DEHP濃度分布を解析したところ、室内平均濃度は $0.982 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、吸入平均濃度は $0.791 \mu\text{g}/\text{m}^3$ となった。

また、裸体を仮定した場合の人体皮膚表面におけるDEHP吸着フラックス分布ならびに気道内でのDEHP吸着フラックス分布について解析した結果、数値人体表面吸着フラックスは $0.00143 \mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{s}$ 、経気道内吸着フラックスは $0.00207 \mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{s}$ となった。

MFAより室内でのDEHP含有建材の使用量を推定した上で、小形チャンバー法を併用してDEHP放散速度の境界条件を設定し、室内CFDを連続して実施する数値解析手法を検討した。壁面4面にDEHP放散面を設置した解析では、既往研究における実測値(最大値 $2.38 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 程度)と同等レベルの室内濃度予測結果となった。また、CFD-CSPの統合解析を行うことで、経気道曝露ならびに経皮曝露の予測が可能となることも確認した。

C8: 室内空気環境汚染化学物質の国際規制状況調査・ハザード情報の収集

1) ハザード情報

本分担研究では、厚生労働省シックハウス検討会で初期曝露評価を実施したVOCについて健康リスク評価値および有害性等の情報を収集してとりまとめる。2021年度は、Octamethyl cyclotetrasiloxan (D4)、Decamethyl Cyclopentasiloxan (D5)、プロピレングリコール、1,3-ブタンジオール、炭素数8~16の脂肪族飽和炭化水素類(オクタン、ノナン、デカン、ドデカン、トリデカン、ヘキサデカン)、トリメチルベンゼン(1,2,4-, 1,3,5-, 1,2,3-の3異性体)、ベンゼン、ナフタレン、エチルトルエンを調査対象としている。情報収集作業は計画通りに進捗しており、2021年度の研究報告書にとりまとめる予定で

ある。

2) 国際的な規制動向の調査

① 諸外国の室内空気質ガイドライン

世界保健機関(WHO)の空気質ガイドライン、ドイツ連邦環境庁の室内空気質ガイドライン、フランス環境労働衛生安全庁(ANSES)の室内空気指針値、カナダ保健省の室内空気指針値に関する情報を収集した。

令和3年度以降に公表された室内空気質ガイドラインでは、WHOが空気質ガイドラインをアップデートしたことが大きな動きであった。粒子状物質($\text{PM}_{2.5}$, PM_{10})、オゾン、二酸化窒素、二酸化硫黄、一酸化炭素の空気質ガイドラインが最新の科学的知見に基づき改正された。

諸外国では、ドイツ連邦環境庁がメタクリル酸メチル、ベンゾ-a-ピレン、アセトン、2-プロパノール、一酸化炭素、塩化ビニルの室内空気質ガイドラインを公表した。一酸化炭素は、WHOの空気質ガイドラインを踏まえて改正したものである。カナダ保健省では、アクロレインと二酸化炭素の室内空気質ガイドラインを公表した。ANSESについては、2021年度に新たに公表された室内空気質ガイドラインはなかった。

② 室内空気汚染物質に関連する発がん性分類のアップデート

WHOの国際がん研究機関(IARC)による発がん性分類のアップデートのうち、2021年度以降における室内環境汚染関連物質のアップデートをレビューした。1,1,1-トリクロロエタンが発がん性分類3(ヒトに対する発がん性を分類できない)から2A(ヒトに対しておそらく発がん性がある)に格上げとなっている。また、今年度以降のワーキンググループでは、室内ダストに含まれる可能性のある物質の検討が予定されている。分担研究者の東は、そのワーキンググループに専門委員として参加しており、現在、発がん性評価文書作成の作業中である。

D. まとめ

D1: 室内濃度指針値代替化学物質の標準試験法の開発

- 1) VOCの測定感度(シグナル強度及びシグナルノイズ比)をキャリアガス毎に比較した結果、感度はヘリウムで最も高く、水素、窒素と続いた。
- 2) いずれのキャリアガスにおいても0.1-100 µg/mLの濃度範囲で良好な直線性を示した。
- 3) 室内濃度指針値の1/100程度まで定量が可能であった。
- 4) 窒素を用いた分析では測定に時間を要するものの、検出限界及び定量限界共にヘリウムと遜色ない数値を示した。

これらの結果より、室内空气中VOCのGC/MS分析に、ヘリウム代替キャリアガスとして水素もしくは窒素を適用できることが示唆された。

D2: 総揮発性有機化合物(TVOC)の在り方に関する研究

本研究の結果、TVOC濃度の中央値 443 µg/m³, TVOC 暫定目標値の超過率 58%という値が得られた。これらの値は、厚生労働省/国立医薬品食品衛生研究所による従前からの全国実態調査で報告されているTVOC濃度、超過率と概ね一致していた。

今回の調査では、各住宅のTVOC濃度とPeak数の間に有意な正の相関が認められたことから、室内空間のVOCsの種類が増加するような状況(生活様式)、例えばVOCs放散源となり得る家庭用品等の使用数の増加がTVOC濃度増大の要因となっているものと考えられる。一方で、1種類のVOCがTVOCの25%以上を占める住宅が35%存在したことは、TVOC測定によるVOCsの同定がTVOCの効率的な低減、言い換えれば、室内空気質の向上に有効であることを示している。

D3: 室内空气中揮発性有機化合物(VOC)・準揮

発性有機化合物(SVOC)の標準試験法の評価

室内濃度指針値策定物質の標準試験法におけるサンプリング・分析機器等の技術進展に応じたリバイスとして、今年度は3つの項目について検討した。その結果、①今回の実験条件における除湿管の使用では、VOCは除湿剤に吸着され、回収率が低下する可能性が示唆された。②SE法におけるSVOC 11種同時分析法を検討した結果、完全分離を達成し、良好な回収率および定量下限値が得られた。③フタル酸エステル類のSE法およびTD法の2法における同時捕集の定量値に差異について検討した結果、TD法で十分な捕集量を確保することで解決できると推察された。引き続き、室内空气中化学物質の採取方法と測定方法の拡充に努める。

D4: 室内空気環境汚染化学物質の標準試験法の国内規格化

室内濃度指針値策定物質であるToluene, *o*-, *m*-, *p*-Xylene, Ethylbenzene, Styrene, *p*-DichlorobenzeneおよびTetradecaneを対象として策定された標準試験法を日本薬学会編 衛生試験法・注解2020 追補2022に収載した。

D5: 室内空気環境汚染化学物質の標準試験法の国際規格化

[1] ISO-16000-33 (新規格案)

研究グループが提案した精度の高いフタル酸エステル類の測定・分析方法を国際規格化するためにISOのオンライン国際会議に参加した。フタル酸エステル類の測定・分析方法をISO 16000-33:2017 Determination of phthalates with gas chromatography/mass spectrometry (GC/MS)に新規提案し、現在、Annex Bとして委員会原案(CD)に提案することになった。その後、委員会投票はスキップして、2022年9月に開催されるWG 20で照会原案(ISO/DIS)として審議する予定である。

[2] 知覚空気質の測定方法

- ・化学物質分析

木材に 130 mL/m² のアルコールを塗布した場合は、アルコール塗布から 82 日が経過しても Acetaldehyde 気中濃度が 1,680 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ と高かった。また、Case B, C はアルコール噴霧から実験後化学物質測定 of Acetaldehyde 気中濃度は、実験前化学物質測定と比較して非常に高かった。自然乾燥処理が施された無塗装の素材にアルコールが接触した場合には長期間 Acetaldehyde が室内濃度指針値を上回る濃度で放散し続けることが明らかになった。

・臭気評価

木材へアルコールを噴霧した場合にはアルコールを噴霧しない場合と比較して臭気評価はわずかに低下するが、許容できる側の快適側内の変動であった。一方で、木材へアルコールを噴霧した場合にはチャンバー内の Acetaldehyde 気中濃度は室内濃度指針値を大幅に超過していることから、室内空気質の悪化を人間が知覚していないことが示された。要因として、木材から揮発するテルペン類の作用が考えられる。 α -Pinene はフィトンチッドの主成分とされ、悪臭を中和する作用がある。木材から放散するテルペン類が Acetaldehyde と混合することで生じた複合臭気のレベルが元の悪臭臭気よりも低下した可能性がある。

D6: 室内空気環境汚染化学物質のオンサイト試験法の評価

マイクロチャンバーを用いたオンサイト測定方法の開発により、実空間における仕上げ材からの SVOC 放散速度の測定が可能になることから、マイクロチャンバーの測定機能の拡大が期待できる。

D7: 室内空気環境汚染化学物質の曝露濃度予測

本年度は、DEHP 個人曝露量予測のために人体幾何形状と気道形状を再現した *in silico* 人体モデルのプロトタイプモデルを作成し、マテリアルフロー分析による DEHP の社会ストックデータから室内での空気汚染レベルと個人曝露量予測を連続して

シームレスに解析する新たな数値解析手法を確立した。

D8: 室内空気環境汚染化学物質の国際規制状況調査・ハザード情報の収集

諸外国における取り組みは、室内空気質ガイドラインの作成に重点が置かれている。目標となる気中濃度を設定し、それを目指した発生源対策等を行うアプローチである。とりわけドイツ連邦環境庁は、継続的に室内空気質ガイドラインを設定している。フランスとカナダも、ドイツほど頻度は高くないが、継続的に室内空気質ガイドラインを新設している。WHO は、各国の取り組みの基礎データとして、空気質ガイドラインを公表してきたが、2021 年度、粒子状物質 (PM_{2.5}, PM₁₀)、オゾン、二酸化窒素、二酸化硫黄、一酸化炭素の空気質ガイドラインが最新の科学的知見に基づき改正された。本分担研究では、室内濃度指針値の新規策定や既存策定物質の改定に資する有害性情報を収集しており、室内空気汚染物質の室内濃度指針値策定における科学的エビデンスとなる。

令和 4 年度

A. 研究目的

A1: 室内濃度指針値代替化学物質の標準試験法の開発

新型コロナウイルス感染症対策として手指消毒用アルコールの使用が励行されており、感染症蔓延以前と比較して室内空気中のエタノール濃度が増加している。本研究は、室内濃度指針値代替化学物質の測定において、室内におけるエタノール濃度が影響を及ぼすかどうか詳細な検討を行った。

A2: 総揮発性有機化合物 (TVOC) の在り方に関する研究

我が国では、室内空気質の総合的な指標として、TVOC に 400 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の暫定目標値が設けられている。この暫定目標値は、室内の VOC 実態調査の結果か

ら、合理的に達成可能な限り低い範囲で決定した値として2000年に設定されたものであり、20年以上が経過した現在、室内環境で使用される化学物質の変遷を踏まえて目標値の妥当性をあらためて検証する必要がある。また、個別に指針値が設定されている化学物質以外のVOCsによる室内空気汚染に対しても柔軟かつ包括的に対応できる優れた一面がある一方で、測定値の毒性学的な意義については当初より議論が成されてきた。本分担研究では、国立医薬品食品衛生研究所が実施した全国実態調査のデータを基に、デコンポリューション解析による未同定VOCsの探索を行い、いわゆる「必須VOCリスト」の候補化合物を選定した。

A3: 室内空气中揮発性有機化合物 (VOC) ・準揮発性有機化合物 (SVOC) の標準試験法の評価

シックハウス検討会が示す室内空气中化学物質の採取方法と測定方法(室内空气中化学物質の測定マニュアル)は、2001年に通知された方法であり、サンプリング・分析機器等の技術進展に応じた測定方法のリバイスが急務である。本分担研究では、室内濃度指針値が設定された化学物質の標準試験法を改良し、標準試験法として確立することを目的としている。

今年度は、フタル酸エステル類について① 固相吸着-加熱脱離GC/MS法の測定マニュアルの改訂、② 固相吸着-溶媒抽出GC/MS法におけるカーボン系捕集管の適用、③ LC/MS法について検討した。

A4: 室内空気環境汚染化学物質の標準試験法の国内規格化

一般居住環境の室内空気が室内濃度指針値あるいは暫定目標値を満たしているか否かを評価するためには、標準化された室内空気の測定法、すなわち採取方法ならびにその分析方法によって得られた結果に基づいて判断することが必要である。本研究では、最新の分析技術を基に開発された汎用性の高い標準試験法の国内規格化を目的としている。

A5: 室内空気環境汚染化学物質の標準試験法の国際規格化

本研究課題において開発した室内空气中フタル酸エステル類の標準試験法は、日本薬学会編 衛生試験法・注解2015: 追補2019に公表され、国内規格化されている。本分担研究では、本標準試験法を国際規格化するために、ISO/TC 146 (大気(の質))/SC 6 (室内空気) 国際会議においてISO 16000-33: Determination of phthalates with gas chromatography/mass spectrometry (GC/MS)の定期見直し(システマテックレビュー)を行っており、その進捗情報について報告する。

A6: 室内空気環境汚染化学物質のオンサイト試験法の評価

室内におけるSVOCは揮発性が低いため、気中よりハウスダストや室内の表面に付着し、呼吸・経口摂取・経皮吸収等の経路によって体内に吸収されることが報告されている。

JIS A 1904で標準化されたマイクロチャンバー法は建材から放散するSVOCの測定が可能であるが、実空間における仕上げ材等からの放散速度測定が困難であるため、我々はオンサイト測定方法を開発した。今年度は、一般居住住宅における床材と壁材の温度変化がSVOC放散速度に及ぼす影響を明らかにするため、夏期・冬期における床材・壁材からのSVOC放散速度を測定した。

A7: 室内空気環境汚染化学物質の曝露濃度予測

室内環境汚染化学物質の曝露評価の為に *in silico* 予測モデルを開発した上で、標準試験法に基づいた化学物質濃度測定結果と *in silico* 予測モデルを併用して経気道曝露濃度ならびに経皮曝露濃度を定量的に予測する技術を確立する。今年度は、室内に形成される不均一濃度分布と経気道曝露濃度までを定量的に評価する計算流体力学と統合した *in silico* 人体モデルを開発した。

A8: 室内空気環境汚染化学物質の国際規制状況

調査・ハザード情報の収集

本分担研究では、室内空気汚染問題に対する国際機関や諸外国における指針値作成や規制動向等の情報を収集し、日本における取り組みの参考情報とする。また、室内空気汚染化学物質に関して有害性情報を網羅的に収集し、シックハウス検討会におけるリスク評価や既存の室内濃度指針値見直しにおいて鍵となる重要なハザード情報をとりまとめることを目的としている。

B. 研究方法

B1: 室内濃度指針値代替化学物質の標準試験法の開発

Tenax®TA捕集管を用いた加熱脱離法および単層型カーボンビーズアクティブ捕集管を用いた溶媒抽出法により、室内濃度指針値代替物質等の添加回収試験を冬季と夏季に2回実施した。測定室内の机上に消毒用エタノールを複数回噴霧して室内濃度指針値代替物質等の室内濃度を比較した。

B2: 総揮発性有機化合物 (TVOC) の在り方に関する研究

国立医薬品食品衛生研究所より提供された2015年度(100軒)、2016年度(112軒)および2020年度(90軒)の室内空気環境汚染化学物質調査(全国実態調査)データについて、AnalyzerPro ver. 6.0.0.246 (SpectralWorks社)を用いてデコンボリューション解析を行った。

B3: 室内空气中揮発性有機化合物 (VOC) ・準揮発性有機化合物 (SVOC) の標準試験法の評価

1) 測定対象物質

室内濃度指針値が設定されているDnBPおよびDEHPに、DEP、フタル酸ジ-n-プロピル (DPrP)、フタル酸ジイソブチル (DiBP)、フタル酸-n-ブチルベンジル (BBP)、フタル酸ジペンチル (DPP)、フタル酸ジシクロヘキシル (DCHP) およびフタル酸ジ-n-ヘキシル (DnHP) を加えた9物質とした。

2) LC/MS分析条件の検討

LC/MS は ACQUITY UPLC H-Class/SQ Detector (Waters社製) を用い、長さ50 mmまたは100 mmのACQUITY UPLC BEH C18カラム (内径: 2.1 mm, 粒子径: 1.7 μm) を用い、MeOHまたはMeCN/10 mMギ酸アンモニウム溶液の移動相により、エレクトロスプレーイオン化で条件検討した。

3) 検量線

検量線溶液は9種混合標準液および混合内部標準液から、各測定対象物質濃度が0.02, 0.05, 0.1, 0.2, 0.5, 1, 2, 5 μg/mL、各内部標準物質濃度が各0.2 μg/mLとなるようMeCNで調製し、検量線の濃度範囲および補正に用いる内部標準物質を検討した。絶対検量線および内部標準物質との強度比で補正した検量線(内部標準検量線)を作成し、妥当性評価ガイドラインに従いキャリーオーバー、検量線の真度および精度を確認した。

4) 検出下限値および定量下限値

ブランク試料および定量下限値付近に調製した検量線溶液を5回測定し、検出下限値は標準偏差の3倍、定量下限値は10倍として算出した。

B4: 室内空気環境汚染化学物質の標準試験法の国内規格化

室内濃度指針値策定物質DnBPおよびDEHPについて2019年に改定された指針値に対応した固相吸着-加熱脱離GC/MS法による標準試験法を日本薬学会編 衛生試験法・注解2020 追補2024にて公表すべく準備を進めた。

B5: 室内空気環境汚染化学物質の標準試験法の国際規格化

本研究課題において開発された固相吸着-溶媒抽出GC/MS法によるフタル酸エステル類の標準試験法は日本薬学会編 衛生試験法・注解2020に公表されている。この規格を国際標準化するために、我々は、ISO/TC146/SC6国際会議に参加し、ISO

16000-33: Determination of phthalates with gas chromatography/mass spectrometry のシステム テックレビューを行っている。今年度は2022年9月に開催された国際会議に参加し、国際規格化に関する審議を行った。

B6: 室内空気環境汚染化学物質のオンサイト試験法の評価

1) マイクロチャンバー法(JIS A 1904)

測定前にマイクロチャンバー（容積630 mL）を解体・洗浄した後、チャンバー内に残存している化学物質を揮発させるために、1時間 220°Cで加熱処理を行った。加熱処理後、チャンバーを常温まで冷却させ、試験片端部および裏面をアルミ箔でシールをし、蓋と試験片が直接接触しないようにした。試験片をチャンバーに挿入し、建材表面から放散するSVOCの測定を行った。放散試験は28°Cの恒温槽で24時間行い、試験に供した試料を取り外した後、チャンバーを加熱脱着装置に設置し、チャンバー内表面に付着したSVOCを220°C 1時間で加熱脱着させ、Tenax® TA捕集管に回収した。

2) オンサイト測定方法

オンサイト測定機には2つのポンプが設置されており、1つは30 mL/minの空気を供給、もう1つのポンプは15 mL/minを吸引するように調整した。測定前にチャンバー内に付着しているSVOCを脱着するため、加熱装置を用いて1時間 220°Cで加熱処理を行った。加熱処理後、ステンレス製の専用箱にチャンバーを入れて測定現場まで運搬した。測定場所を選定し、測定面をエタノールで拭取後、測定表面を乾燥させ、直径82 mmの正円形に切り取ったアルミホイルを敷設した上にチャンバーを設置した。床面からの放散試験を24時間行った後、チャンバーを測定面から取り外し、ステンレス製専用箱に格納して実験室に持ち帰り、加熱脱着装置でチャンバー内表面に付着したSVOC物質を回収した。

3) 壁面のマイクロチャンバー固定装置

壁材から放散するSVOCの測定にあたり、マイクロチャンバーを壁面に固定するための装置を新たに開発した。約12 kgのステンレス板のベースに長さ30 cmのアルミ丸棒をナットで取り付け、アルミ丸棒とチャンバーの間にばねを用いて壁面に固定した。チャンバー内に室内空気の流入を防止するため、固定に使用したばねを106 mmから95 mmまで縮めることで、2 kg以上の荷重をかけられることを確認した。

4) 測定対象物質

測定対象SVOCは、2E1H, 2-エチルヘキシルアクリレート, BHT, DEP, TBP, リン酸トリス, DBA, DnBP, TPP, DOA, DEHP, TMPD-MIB, TMPD-DIB, DNOP, DINP, DIDP, テレフタル酸ジオクチル, ノニルフェノール, UV-320, UV-326, UV-327, UV-328の22物質とした。

5) 測定対象住宅

オンサイト測定方法により一般居住住宅の床面と壁面に使用されている建材からのSVOC放散速度を測定した。今年度の測定対象住宅は4軒である。

B7: 室内空気環境汚染化学物質の曝露濃度予測

室内空気中の有害物質の曝露濃度基準は、本来、動物試験における経気道曝露時の無毒性量であるにも係わらず、実際には環境空気中の有害物質濃度の基準（閾値）として採用される場合が多い。空気環境設計上、室の代表濃度をこれらの閾値で代表することは第一次近似として一定の妥当性があると思われるが、室内環境中での実質的な経気道曝露を考慮すれば、室の平均濃度と呼吸濃度には大きな乖離が存在する可能性がある。この経気道曝露濃度の正確な予測評価に向けて、非定常呼吸を再現した数値人体モデルと数値気道モデル、室内濃度場解析を統合解析することで、曝露経路と曝露濃度の正確な予測を行い、その上で健康リスク評価を行う一連の数値解析手法を開発する。室内空間から人体呼吸域、さらに鼻腔、口腔を介して気道内まで連続した解析

領域を再現することで、室内汚染物質濃度分布と呼吸によって形成される気道内汚染物質濃度分布までを高精度に予測することが可能となる。加えて、気道内壁面境界条件として生理的薬物動態 (Physiologically Based Pharmacokinetic; PBPK) モデルを統合することで、気道粘膜上皮組織に沈着後の汚染物質の体内動態と人体影響を定量的に評価することも可能となる。

本研究で作成した気道統合型数値人体モデル (*in silico*人体モデル) は、標準人体の幾何形状を数値流体力学 (Computational Fluid Dynamics; CFD) 解析への適用を前提としてグリッドデータ化 (表面積 1.7 m^2 , 身長 1.736 m) したものである。再現性や精度について十分な事前検討を実施している。数値気道モデルは、非喫煙の日本人男性のCTデータをもとに形状作成したもので、鼻腔・口腔から咽頭、喉頭、気管を経て気管支の第四分岐部までの上気道の実形状を正確に再現している。鼻孔を介して室内空間から気道内部への流れと汚染物質濃度場を連続して予測するために、数値人体モデルと数値気道モデルをなめらかに統合し、室内環境から気道内までを一連の解析空間として再現している。

本研究では気道粘膜上皮界面での汚染物質吸収と体内動態を予測するため、*in silico*人体モデルの気道内壁面境界条件としてPBPK-CFDモデルを適用した。経気道暴露予測においては、ガス状汚染物質の気道粘膜上皮表面への沈着、拡散輸送、代謝クリアランス、血流による上皮組織外への輸送を数理的に再現するため、3層からなる生理的薬物動態PBPKモデルを導入している。

本年度は、この*in silico*人体モデルを実大居室スケール実験室内に設置した条件で、アンモニアを対象とした室内拡散と経気道曝露予測に適用した。本解析では、開発した*in silico*人体モデルと室内環境解析の統合解析の検証を主たる目的とすることから、化学物質発生に関しては簡易的な境界条件と想定し、液体アンモニアが漏洩した条件を設定した。

B8: 室内空気環境汚染化学物質の国際規制状況

調査・ハザード情報の収集

1) ハザード情報

室内空気汚染化学物質に関して、刺激性や感受性、一般毒性、神経毒性、免疫毒性、生殖発生毒性、発がん性等に関する有害性情報およびこれらの有害性に関する量反応関係に関する科学的知見が記載された国際機関や諸外国の評価文書等を網羅的に収集するとともに、PubmedやTOXLINE等のデータベース検索を行い、各物質の有害性情報をとりまとめている。特に、各物質の評価値の導出に必要なエンドポイントおよびNOELやLOAEL等の情報収集を行った。

2) 国際的な規制動向の調査

国際機関や国内外の室内空気質規制に関する報告書、関連学会の資料、関連論文をインターネットおよび文献データベースで調査した。近年、主だった活動が見受けられたWHO本部、WHO欧州地域事務局、ドイツ、フランス、カナダを主な調査対象国としている。また、諸外国の研究者と関連情報の情報交換を行った。

(倫理面への配慮)

本研究は、公表されている既存資料を中心とした情報収集を行った後、それらの整理を客観的に行うものであり、特定の個人のプライバシーに係わるような情報を取り扱うものではない。資料の収集・整理にあたっては、公平な立場をとり、事実のみに基づいて行う。本研究は、動物実験および個人情報を取り扱うものではなく、研究倫理委員会などに諮る必要のある案件ではないと判断している。

C. 研究結果および考察

C1: 室内濃度指針値代替化学物質の標準試験法の開発

加熱脱離法および溶媒抽出法を用い、添加回収試験を冬季と夏季に2回実施した。加熱脱離法では室内空気中のエタノール濃度の違いによる回収率の差異は認められず、これらの測定に室内におけるエ

タノール濃度が及ぼす影響は小さいと考えられた。溶媒抽出法ではエタノール高濃度条件下、夏季における2E1HとTPMIの回収率が高くなり、これらの測定に室内におけるエタノール濃度が影響を及ぼす可能性が考えられた。他方、溶媒抽出法に使用されるカーボンビーズアクティブ捕集管は、高湿度下におけるアルコール類の回収率が低下すること報告されており、室内におけるエタノール濃度以外にも湿度が測定に影響を及ぼす可能性が考えられた。

C2: 総揮発性有機化合物 (TVOC) の在り方に関する研究

デコンポリューション解析により暫定的に同定された一群のVOCsについて、それぞれの住居のTVOCの50%を占める最小数のVOCsをリスト化した。本研究では、2020年度に国立医薬品食品衛生研究所生活衛生化学部第一室が90軒の住居を対象に実施した全国実態調査の測定結果をデコンポリューション解析し、近年の室内空気中で検出されるVOCsの特徴付けを行った。TVOCの中央値は229 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ で、暫定目標値400 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超過した割合は25.3%であった。また、比較的高頻度、高濃度で検出される特徴的な化合物群として、室内濃度指針値策定化合物の他に、脂肪族炭化水素類(27.4%)、テルペン類(16.9%)、環状シロキサン類(15.0%)が特定された。

C3: 室内空気中揮発性有機化合物 (VOC) ・準揮発性有機化合物 (SVOC) の標準試験法の評価

1) 分析条件の検討

分析条件 1 (50 mmカラム, MeOH系移動相)

9種混合標準液の m/z 149 におけるクロマトグラムでは、5つのピークが分離し、4つのピークが分離しなかった。MeOH 比率を下げることで分離する可能性はあるが、分析時間が長くなることが想定されるため、質量電荷比を用いた分離を検討することとした。その結果、9種のフタル酸エステル類および4種内部標準物質は良好に分離した。

分析条件 2 (50 mmカラム, MeCN系移動相)

BBPとDnBPは分離度1.87 (m/z 205)で分離したが、新たにDiBPとDnBPのピークが重なった。DnBPは質量電荷比でもDiBPと分離できないためLC条件を検討する必要があるが、カラムを変えずグラジエントを緩やかにすることで分離の改善を図ると、既報の分析時間以上になる可能性がある。よって、長さ100 mmカラムを用いた分析条件の検討を優先した。

分析条件 3 (100 mmカラム, MeCN系移動相)

分析条件 1と同様、質量電荷比での分離を検討し、9種のフタル酸エステル類および4種内部標準物質は良好に分離した。以後の実験は、分析条件 1と分析条件 3を用いて比較した。

2) 検量線

検量線溶液の濃度が高くなるに従って面積値が小さくなる内部標準物質もあり、室内空気を測定した際、マトリックスの影響により挙動に差がでる可能性があるため、補正に用いる内部標準検量線を作成することとした。0.02-1 $\mu\text{g}/\text{mL}$ の濃度範囲において、直線回帰モデルを用い、濃度の逆数で重みづけを行って検量線を作成した結果、キャリーオーバーは全ての検量線において検量線の濃度範囲の下限值である0.02 $\mu\text{g}/\text{mL}$ を下回った。全ての測定対象物質の検量点0.02-1 $\mu\text{g}/\text{mL}$ において、ガイドラインの示す真度および精度の目標値に適合した。ただし、分析条件 1は分析条件 3に比べ測定対象物質の面積値が物質により1.5~3倍大きかったことから、イオン化の飽和が生じやすいと考えられた。

3) 検出下限値および定量下限値

試験溶液5 mL、積算捕集量4,320 L (流量3 L/minで24時間)の条件において、検量線の濃度範囲の下限值 (0.02 $\mu\text{g}/\text{mL}$) 相当量は0.023 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ である。分析条件 1において、絶対検量線を用いた場合の検出下限値は0.0047 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、定量下限値は0.023 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、内部標準検量線を用いた場合の検出下限値は

0.0077 µg/m³, 定量下限値は0.026 µg/m³であった。分析条件3において、絶対検量線を用いた場合の検出下限値は0.0076 µg/m³, 定量下限値は0.025 µg/m³, 内部標準検量線を用いた場合の検出下限値は0.0050 µg/m³, 定量下限値は0.023 µg/m³であった。今回設定したサンプリング条件において、分析条件1および分析条件3はともに室内濃度指針値の1/100以下まで測定できると考えられた。

C4: 室内空気環境汚染化学物質の標準試験法の国内規格化

2019年に改定されたDnBPおよびDEHPの室内濃度指針値に対応した固相吸着-加熱脱離GC/MS法による標準試験法を策定し、日本薬学会編 衛生試験法・注解2020 追補2024にて国内規格化する予定である。室内濃度指針値策定物質を対象とする標準試験法が策定されることにより、曝露評価を円滑に実施することが可能になる。

C5: 室内空気環境汚染化学物質の標準試験法の国際規格化

ISO/TC146/SC6 WG 20がWeb開催され、日本代表団は田辺新一（早稲田大学）、酒井信夫（国立医薬品食品衛生研究所）、伊藤一秀（九州大学）、金炫兌（山口大学）が参加した（2022年9月6日、日本時間18:00~20:00）。WG 20では、ISO16000-33のシステムテックレビューについて議論が行われ、わが国が提案した「ODS固相ディスクまたはSDB共重合体カートリッジによるサンプリング方法と溶媒抽出・分析方法」がISO-16000-33のAnnex Bに追加されることが承認され、2022年末までにDIS原案を提出することになった。

国際会議後に作成されたISO/TC 146/SC 6/WG 20 N 59 Recommendationsを列記する。

Recommendation 38

ISO/TC 146/SC 6/WG 20 adopts the agenda (Doc. N 55) and the minutes of the last meeting (Doc. N 53).

Recommendation 39

ISO/TC 146/SC 6/WG 20 appoints Elisabeth Hösen as member of the recommendations' drafting committee.

Recommendation 40

ISO/TC 146/SC 6/WG 20 finalizes the draft of ISO 16000-33 and agrees to submit the document for DIS Ballot by end of 2022.

Recommendation 41

ISO/TC 146/SC 6/WG 20 will meet again in September 2023 and considers to have an intermediate meeting, if necessary.

C6: 室内空気環境汚染化学物質のオンサイト試験法の評価

オンサイト測定の結果、仕上げ材からのSVOCの放散は夏期に比べ、冬期に減少する傾向が見られ、仕上げ材表面温度によるSVOC放散速度の違いが確認出来た。仕上げ材の表面温度が低下すると、建材に含有している可塑剤の内部拡散が遅くなることと、建材の表面に可塑剤が染み出てもガス状にならず建材表面に凝縮する可能性が考えられた。また、家電製品表面からのSVOCの放散が確認された。

C7: 室内空気環境汚染化学物質の曝露濃度予測

流れ場解析にはSST k- ω モデルを適用し、CFDによる定常流れ場解析後にアンモニア液面位置に飽和気相濃度を与えて、非定常濃度場解析を行った。実大スケール実験室モデルの給気口からの流入空気のアンモニア濃度は0とした。液体アンモニアの蒸発に伴う液面の温度変化（蒸発潜熱）は無視し、一定温度を仮定して解析を実施した。アンモニア液面から人体周囲へ向かう輸送経路中に、室に流入した清浄空気によってアンモニア濃度は十分に希釈され、室内に不均一な濃度分布が形成されていることを確認した。アンモニア水溶液の蒸発開始から30

秒後に鼻孔開口部における濃度の増加を確認した。本解析ではアンモニア水溶液の蒸発開始後、30秒後に完全に蒸発する条件とした。また、鼻孔開口部におけるアンモニア濃度は、室全体の平均濃度と比べて時間経過と共に大きく変動する様子を確認した。これは室内濃度分布の不均一性と呼吸活動および発生ガスの非定常性に因るものであり、高濃度短期暴露の場合には、室内の不均一濃度分布を考慮した人体の経気道暴露濃度を予測することが重要となることを示している。

時間経過に伴い呼吸によって気道内に取り込まれるガス濃度上昇に応じて、気道内表面における汚染物質濃度も上昇する様子を確認した。アンモニアの場合、粘膜上皮・上皮組織での代謝クリアランスが無視できるほど小さく、これらの組織内をほぼ拡散移動する。アンモニア水溶液が漏洩してから蒸発して消失するという一連の解析において、経気道曝露（鼻孔開口部）濃度は漏洩開始から30秒後に変化が確認され、57秒後に179 ppmまで上昇した。これは、室の平均濃度と比べて10倍以上大きい値であり、室の平均濃度と呼吸濃度には大きな乖離が存在することが*in silico*解析によって明らかとなった。

3人の被験者データが作成した3種類の数値気道モデルを対象とした既往研究では、特に上気道曝露量予測において最大20%程度の個体差があることを報告している。また、RMITのTaoらの研究グループは人体形状やサイズが異なる場合の個体差について小型のマネキンを用いた風洞実験結果を報告しており、体型や姿勢が人体周辺微気象形成に一定程度影響を与えることを報告している。

本年度の*in silico*人体モデルを用いた解析では、室の代表濃度とは異なる経気道曝露濃度を予測することが可能となることを例証的に示す事には成功したと云えるが、室内環境から人体、さらには気道内の曝露予測を一連の解析として実施した場合の全体的な予測精度に関しては、定量的な検証が出来ていない。人体幾何形状から気道幾何形状を含めた個体差の影響に関する検討は今後の課題である。

C8: 室内空気環境汚染化学物質の国際規制状況調査・ハザード情報の収集

1) ハザード情報

2022年度は、メチルシクロヘキサン、プロピルシクロヘキサン、1-ブタノール、ヘキサナール、デカナール、トリクロロエチレン、テトラクロロエチレン、1,2-ジクロロエタン、アクロレインについて、健康リスク評価値および有害性等の情報を収集してとりまとめた。

2) 国際的な規制動向の調査

① 諸外国の室内空気質ガイドライン

WHO、ドイツ連邦環境庁、フランス環境労働衛生安全庁、カナダ保健省の室内空気質ガイドライン等に関する情報を収集した。WHOからは、新たな室内空気質ガイドラインの公表はなかったが、健康と環境に関するWHOおよびその他の国連機関からこれまで公表されてきたガイダンスを体系的にまとめた *compendium* を公表した（2022年4月アップデート）。

令和4年度以降に公表された室内空気質ガイドラインとしては、ドイツ連邦環境庁がメタノール、アセトフェノン、1-プロパノールの室内空気質ガイドラインを公表した。フランス環境労働衛生安全庁ではアンモニア、カナダ保健省ではキシレンの室内空気質ガイドラインが公表された。

② 室内空気汚染物質に関連する発がん性分類のアップデート

WHOの国際がん研究機関による発がん性分類のアップデートのうち、令和4年度以降における室内環境汚染関連物質のアップデートをレビューした。室内ダスト中で検出されるコバルト金属が2Bから2Aに格上げとなっている。なお、可溶性と不溶性のコバルト二価化合物では発がん性が異なっており、可溶性のコバルト二価化合物で2Aとなっているが、不溶性の二酸化コバルトは2Bで、その他のコバルト化合物は3となっている。PET樹脂の触媒などに使用され、室内ダスト中からも検出さ

れる三酸化アンチモンが 2B から 2A に格上げとなっている。また、次年度以降のワーキンググループでは、室内ダストに含まれる可能性のある物質（PFOA や PFOS）の検討が予定されている。

D. 結論

D1: 室内濃度指針値代替化学物質の標準試験法の開発

Tenax® TA捕集管を用いた加熱脱離法は、室内におけるエタノール濃度が室内濃度指針値代替化学物質の測定に及ぼす影響が小さかった。他方、単層型カーボンビーズアクティブ捕集管を用いた溶媒抽出法では、エタノール高濃度条件下、夏季における2E1HとTPMIの回収率が高くなり、これらの測定に室内におけるエタノール濃度が影響を及ぼす可能性が考えられた。

D2: 総揮発性有機化合物 (TVOC) の在り方に関する研究

全国実態調査結果のデコンボリューション解析に基づいて必須 TVOC リストを作成した。研究課題最終年度に向け、本リスト化合物を標準物質とした TVOC 標準試験法を作成することにより、暫定目標値設定項目としての TVOC の精度や再現性を向上させることが可能になると考えられる。

D3: 室内空气中揮発性有機化合物 (VOC) ・準揮発性有機化合物 (SVOC) の標準試験法の評価

LC/MS を用いたフタル酸エステル類の分析法を検討した結果、2つの分析条件で十分な分離が得られた。検量線は 0.02-1 µg/mL の濃度範囲で良好な妥当性が確認され、DnBP および DEHP について、室内濃度指針値の 1/100 以下の定量下限値が確認された。これらの結果から、LC/MS を用いた室内空气中フタル酸エステル類の試験法について基礎的な分析条件を確立することができた。本法は、昨今のヘリウムガス供給不足に対応する有用な測定方法になりうる。

D4: 室内空気環境汚染化学物質の標準試験法の国内規格化

2019年に改定されたDnBPおよびDEHPの室内濃度指針値に対応した固相吸着-加熱脱離GC/MSを用いたフタル酸エステル類の標準試験法について国内規格化を推進した。

D5: 室内空気環境汚染化学物質の標準試験法の国際規格化

本研究課題で開発したGC/MSを用いたフタル酸エステル類の測定法を国際規格化するために、ISO国際会議に参加した。ISO 16000-33: Determination of phthalates with gas chromatography/mass spectrometryのシステムテックレビューにおいて、本法をAnnex Bに追加記載することが合意された。今後の予定として、ISO DIS原案を提出することになっている。

D6: 室内空気環境汚染化学物質のオンサイト試験法の評価

オンサイト測定方法の確立により、実空間における仕上げ材等からのSVOC放散速度の測定が可能になることから、室内空気質の管理が期待できる。

D7: 室内空気環境汚染化学物質の曝露濃度予測

室内に形成される不均一濃度分布と経気道曝露濃度までを定量的に評価する計算流体力学と統合した *in silico* 人体モデルを開発した。特に、気道モデルに流体解析と連成解析可能な生理的薬物動態モデル (PBPK-CFD モデル) を適用することで、室内の濃度分布情報に加えて不均一濃度分布を考慮した経気道曝露濃度の評価が可能となることをガス状アンモニアの室内拡散を想定した例証的な解析事例として示すことができた。

D8: 室内空気環境汚染化学物質の国際規制状況調査・ハザード情報の収集

諸外国における取り組みは、室内空気質ガイドラインの作成に重点が置かれている。目標となる気中

濃度を設定し、それを目指した発生源対策等を行うアプローチである。とりわけドイツ連邦環境庁は、継続的に室内濃度指針値を設定しており、今年度は、メタノール、アセトフェノン、1-プロパノールの指針値が新たに設定された。また、フランスの ANSES ではアンモニア、カナダ保健省ではキシレンに対する室内空気質ガイドラインが新たに設定された。発がん性に関して IARC は、コバルト、アンチモン、兵器用タングステンの発がん性分類を公表した。また、本分担研究では、室内濃度指針値の新規策定や既存策定物質の改定に資する有害性情報を収集しており、計画どおり進捗している。これらの調査結果は、最終的にとりまとめる室内空気汚染物質の室内濃度指針値策定における科学的エビデンスとして反映させる。

令和5年度

A. 研究目的

A1: 室内濃度指針値代替化学物質の標準試験法の開発

シックハウス（室内空気汚染）問題に関する検討会（以下、シックハウス検討会）において初期リスク評価が終了した室内濃度指針値代替化学物質である2-エチル-1-ヘキサノール（以下、2E1H）、2,2,4-トリメチル-1,3-ペンタジオールモノイソブチレート（以下、TMPD-MIB）、2,2,4-トリメチル-1,3-ペンタジオールジイソブチレート（以下、TMPD-DIB）を含むVOC類 53物質について、Carbotrap™-217捕集管を用いた加熱脱離-GC/MS法による検量線を作成し、水道水質検査方法の妥当性評価ガイドラインに基づき検証した。

A2: 総揮発性有機化合物 (TVOC) の在り方に関する研究

わが国では、室内空気質の総合的な指標として、総揮発性有機化合物(TVOC: Total Volatile Organic Compounds)に400 µg/m³の暫定目標値が設けられている。この暫定目標値は、室内のVOC実態調査の

結果から、合理的に達成可能な範囲の下限値として2000年に設定されたものであり、20年以上が経過した現在、室内環境で使用される化学物質の変遷を踏まえ、目標値の妥当性をあらためて検証する必要がある。また、個別に指針値が設定されている化学物質以外のVOCsによる室内空気汚染に対しても柔軟かつ包括的に対応できる優れた一面がある一方で、測定値の毒性学的な意義については当初より議論が成されてきた。本分担研究では、TVOCの在り方に関する提言を作成することを目的とした。

A3: 室内空气中揮発性有機化合物 (VOC) ・準揮発性有機化合物 (SVOC) の標準試験法の評価

シックハウス検討会が示す室内空气中化学物質の採取方法と測定方法（室内空气中化学物質の測定マニュアル）は、2001年に通知された方法であり、サンプリング・分析機器等の技術進展に応じた測定方法のリバイスが必要である。本分担研究では、室内濃度指針値が設定された化学物質の測定方法を改良し、標準試験法として確立することを目的としている。今年度は、VOCについては、① 固相吸着-加熱脱離法における活性炭系（Tenax GR）捕集管の適用性を検討した。SVOCについては、② 新規測定法として前年度構築したフタル酸エステル類の固相吸着-溶媒抽出-液体クロマトグラフィー/質量分析法（SE-LC/MS）への殺虫剤の適用、③ SVOCの一斉分析法である固相吸着-溶媒抽出-GC/MS法を用いた一般住宅の実態調査の3項目を検討した。さらに、シックハウス検討会が定める「室内空气中化学物質の測定マニュアル」の改訂文案について全体の整合、修正、最終化を行った。

A4: 室内空気環境汚染化学物質の標準試験法の国内規格化

一般居住環境の室内空気が室内濃度指針値あるいは暫定目標値を満たしているか否かを評価するためには、規格化・標準化された室内空気の測定法、すなわち標準試験法（採取方法ならびに分析方法）によって得られた結果に基づいて判断することが

肝要である。本研究では、最新の分析技術を基に開発された汎用性の高い標準試験法の国内規格化を目的とした。

A5: 室内空気環境汚染化学物質の標準試験法の国際規格化

シックハウス検討会が継続的に開催され、指針値の見直しや新たな規制汚染物質が検討されている。また、フタル酸エステル類については、改正指針値に対応して精度の高い標準試験法が開発された。これは、日本薬学会編 衛生試験法・注解2015：追補2019にて公表され、国内の規準となっている。この精度の高い国内規格を国際規格化とするためにISO会議に新規案として提案した。

A6: 室内空気環境汚染化学物質のオンサイト試験法の評価

室内空気中化学物質には、高揮発性有機化合物 (Very Volatile Organic Compounds: VVOC) や VOC といった比較的揮発しやすい物質がある。他方、SVOCは揮発性が低いため、室内空気よりハウスダストや室内の表面に付着する性質があり、呼吸・経口・経皮の経路によって体内に吸収されることが報告されている。マイクロチャンバー法 (JISA 1904) は建材等から放散する化学物質の放散速度を測定することが可能であるが、実空間における仕上げ材等からの直接的な測定が困難である。そのため、マイクロチャンバーを用いたオンサイト測定方法を開発し、実空間におけるSVOC放散速度を測定した。更に、家具・家電製品の表面から放散するSVOCを測定することで、オンサイト測定法の適用範囲を拡張している。今年度は、PVC床材の表面温度がSVOC放散量及び表面ブリードアウト量に与える影響について検討した。

A7: 室内空気環境汚染化学物質の曝露濃度予測

室内環境汚染化学物質の曝露濃度評価の為に *in silico* 予測モデルを開発した上で、標準試験法に基づいた化学物質濃度測定結果と *in silico* 予測モデル

を併用して経気道曝露濃度ならびに経皮曝露濃度を定量的に予測する技術を確立する。研究3年目である令和5年度は、改良型 *in silico* 数値人体モデルを実大スケール居室モデル内での経気道曝露評価に適用し、気道内粘膜上皮細胞内の曝露濃度時間変化予測を実施する。

A8: 室内空気環境汚染化学物質の国際規制状況調査・ハザード情報の収集

室内空気汚染問題に関する国際機関や諸外国における指針値作成や規制動向等の情報を収集し、日本における取り組みの参考情報とする。また、室内空気汚染化学物質に関して有害性情報を網羅的に収集し、シックハウス検討会におけるリスク評価や既存の室内濃度指針値見直しにおいて鍵となる重要なハザード情報をとりまとめることを目的とした。

B. 研究方法

B1: 室内濃度指針値代替化学物質の標準試験法の開発

室内濃度指針値代替化学物質である2E1H, TMPD-MIB, TMPD-DIBを含むVOC 53物質について、定量範囲2-50 ngもしくは5-50 ngの4点ないし5点検量線 (重み付けの有無) を加熱脱離-GC/MS法で3回ずつ作成し、水道水質検査方法の妥当性評価ガイドラインのクライテリアに基づき、検量線の真度、精度およびキャリーオーバーを評価した。

B2: 総揮発性有機化合物 (TVOC) の在り方に関する研究

2000年12月に、わが国で室内空気中のTVOCに暫定目標値が策定されてから四半世紀近くが経過した。この間、一義的な試験法の策定や同定すべき化合物 (必須VOC) の選定などの課題が依然として残されており、その意義も含めてTVOCの在り方を再確認する機運が高まっている。本分担研究では、TVOCの在り方について、健康リスク指標としての

有効性と室内空気中の未評価化学物質スクリーニング法としての有用性の2つの観点から検討を行った。

B3: 室内空気中揮発性有機化合物 (VOC) ・準揮発性有機化合物 (SVOC) の標準試験法の評価

1) 測定対象物質

室内濃度指針値が設定されているクロルピリホス、ダイアジノン、フェノブカルブ、DnBPおよびDEHPの5化合物にフタル酸エステル類7化合物を加えた12化合物とした。

2) LC/MS分析条件の検討

長さ50 mm または100 mm のACQUITY UPLC BEH C18 (内径: 2.1 mm, 粒子径: 1.7 μm) を用い、メタノールまたはアセトニトリル/10 mM ぎ酸アンモニウム溶液移動相によりLC/MS (イオン化法: ESI) で分析する条件を検討した。

3) 検量線

検量線は、殺虫剤が0.001–0.1 $\mu\text{g/mL}$ 、フタル酸エステル類が0.01–1 $\mu\text{g/mL}$ となるよう調製した。内部標準物質とのピーク強度比で補正した検量線を作成し、水道水質検査方法の妥当性評価ガイドラインに従いキャリーオーバーならびに検量線の真度および精度を評価した。また、それらの結果から、検出下限値および定量下限値を算出した。

4) 添加回収試験

捕集剤への添加量は、試験溶液5 mL、積算捕集量4,320 L (3 L/minで24 時間) の条件で、殺虫剤はクロルピリホスの室内濃度指針値である0.1 $\mu\text{g/m}^3$ の1/10 以下となるよう、フタル酸エステル類はDnBPの室内濃度指針値である17 $\mu\text{g/m}^3$ の1/100以下となるよう設定した。捕集剤用ホルダーに逆向きに取り付けた捕集剤のフィルター部に混合標準液を添加後、ホルダーの吸引部から窒素ガスまたは室内空気を通気し、添加回収試験を行った。

B4: 室内空気環境汚染化学物質の標準試験法の国内規格化

室内濃度指針値設定物質DnBPおよびDEHPについて改定指針値に対応した固相吸着–加熱脱離法による標準試験法を策定する。また、室内濃度暫定目標値が設定されているTVOCについて固相吸着–加熱脱離法による標準試験法を策定する。二つの試験法は、日本薬学会 環境・衛生部会 空気試験法専門委員会において原案を作成し、衛生試験法編集委員会に提出して国内規格化する。

B5: 室内空気環境汚染化学物質の標準試験法の国際規格化

本研究課題に参画するメンバーによって、シックハウス検討会の改正指針値に対応可能な精度の高いフタル酸エステル類の標準試験法が開発された。この試験法は日本薬学会編 衛生試験法・注解2015:追補2019にて公表された。この規格を国際標準化するために、フタル酸エステル類の測定・分析方法をISO/TC 146/SC 6, ISO 16000-33:2017, Determination of phthalates with gas chromatography/mass spectrometry (GC/MS)への収載を新規提案した。2023年度のISO/TC 146/SC 6の国際会議はイタリアのローマで開かれた。開催期間は2023年9月18日~22日で、国際規格化に関する審議内容及びその結果について確認した。

B6: 室内空気環境汚染化学物質のオンサイト試験法の評価

1) 測定概要

PVC床材を用いてSVOCの放散試験と表面ブリードアウト試験を行った。測定方法には、JIS A 1904のマイクロチャンバー法を用いた。表面ブリードアウト濃度はマイクロチャンバーを用いた放散試験の終了後、試験材の表面を拭き取った。測定条件として恒温槽の温度を18, 22, 28°Cに設定して測定した。

2) 放散速度測定

マイクロチャンバーの容積は630 mL (±5%) であり、吸気口直前にベントラインを設けることにより蓋と建材の隙間から外気がチャンバーの中に入らないように気密性を確保した。測定開始前にマイクロチャンバーを解体して洗浄後、チャンバー内に残存する化学物質を揮発させるために、1時間220°Cで加熱した。洗浄後、マイクロチャンバーを常温まで放冷し、チャンバー蓋と容器の間に設置した試験片表面からのSVOC放散速度を測定した。放散試験終了後、チャンバー内表面に付着したSVOCを220°Cで加熱脱着し、Tenax TA捕集管に回収した。建材からのSVOC放散速度は放散捕集と加熱脱着捕集の結果を合算した。

3) 表面ブリードアウト濃度

表面ブリードアウト濃度は放散試験終了後、試験材の表面を拭き取り、試験材表面のSVOC濃度を測定した。表面ブリードアウト測定で使用するサンプラーには、石英ウール (50 mg) を用いた。測定前に石英ウールをエタノールで3回洗浄し、分析対象化学のコンタミネーションのないサンプラーを製作した。拭き取ったサンプラーはマイクロチャンバーに導入し、加熱脱着することでTenax TA捕集管に回収した。

4) 測定対象物質

測定対象SVOCは、2E1H, 2-エチルヘキシルアクリレート, BHT, DEP, TBP, リン酸トリス, DBA, DnBP, TPP, DOA, DEHP, TMPD-MIB, TMPD-DIB, DNOP, DINP, DIDP, テレフタル酸ジオクチル, ノニルフェノール, UV-320, UV-326, UV-327, UV-328の22物質とした。

B7: 室内空気環境汚染化学物質の曝露濃度予測

本年度は、昨年度までに開発した数値気道モデル(鼻腔・口腔から気管支第4分岐まで)を対象とした曝露濃度予測精度を更に向上させる目的で、CTデータを用いて細気管支部分を拡張すると共に、口腔内の歯列までを詳細に再現することで、改良型の

数値気道モデルを作成した。気道内の上皮細胞表面の粘液層を再現した上で、化学物質クリアランスを予測するための粘液輸送モデルを開発・統合した。更に昨年度に開発統合した気道内粘膜上皮細胞における界面境界条件設定のための生理的薬物動態モデル(PBPK)を室内濃度指針値既設化学物質ならびに室内環境中に存在するその他の多様な化学物質の経気道曝露濃度予測に展開するため、文献調査データを基にしてホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、トルエン等の室内濃度指針値が設定された化学物質を対象としてモデルパラメータの同定を行った。最終的にこの数値気道モデルを数値人体モデルに統合することで改良型*in silico* 数値人体モデルを作成した。

B8: 室内空気環境汚染化学物質の国際規制状況調査・ハザード情報の収集

1) ハザード情報

室内空気汚染化学物質に関して、刺激性や感作性、一般毒性、神経毒性、免疫毒性、生殖発生毒性、発がん性等に関する有害性情報およびこれらの有害性に関する量反応関係に関する科学的知見が記載された国際機関や諸外国の評価文書等を網羅的に収集するとともに、PubmedやTOXLINE等のデータベース検索を行い、各物質の有害性情報をとりまとめた。特に、各物質の評価値の導出に必要なエンドポイントおよびNOELやLOAEL等の情報収集を行った。

2) 国際的な規制動向の調査

国際機関や国内外の室内空気質規制に関する報告書、関連学会の資料、関連論文をインターネットおよび文献データベースで調査した。近年、主だった活動が見受けられたWHO本部、WHO欧州地域事務局、ドイツ、フランス、カナダを主な調査対象国としている。また、諸外国の研究者と関連情報の情報交換を行った。

(倫理面への配慮)

本研究は、公表されている既存資料を中心とした情報収集を行った後、それらの整理を客観的に行うものであり、特定の個人のプライバシーに係わるような情報を取り扱うものではない。資料の収集・整理にあたっては、公平な立場をとり、事実のみに基づいて行う。本研究は、動物実験および個人情報を扱うものではなく、研究倫理委員会などに諮る必要のある案件ではないと判断している。

C. 研究結果および考察

C1: 室内濃度指針値代替化学物質の標準試験法の開発

測定対象とするVOC 53物質のうち揮発性の高いAcetoneとMethylene chlorideは、いずれの検量線においても評価不能であったが、その他の物質については、定量範囲 5–50 ngの検量線（重み付け有）で全てのクライテリアを満たした（真度：80～120%、精度 RSD 20%以下）。その他の検量線については、検量線の評価が不能であった物質以外にも真度あるいは精度の目標値を逸脱した物質が散見された。また、1,2-Dichloroethaneは、5 ngを定量下限値とする検量線で、Benzeneは、2 ngを定量下限値とする検量線でキャリアオーバーが認められた。

C2: 総揮発性有機化合物 (TVOC) の在り方に関する研究

PubMed を Keyword: Total Volatile Organic Compounds/TVOC(s)/Total VOC(s) で検索した結果、951件の論文が該当した。年次推移では、2017年の36件から2023年には124件へと大幅に増加しており、学術的にTVOCに対する関心が高まっていることが伺える。しかしながら、個々のTVOC構成成分の健康影響を考察した論文や疫学的な調査でTVOC濃度とある種の健康リスクに関連が認められたとする論文はいくつか存在したものの、総体としてのTVOCによる直接的な健康影響を検討した論文を見出すことはできなかった。従って、20年前と同様に、現状においてもTVOCを健康影響に関連付けることは困難であると考えられる。

環境省が取り纏めた「化学物質の環境リスク評価」において、沸点が50–260°Cの範囲で吸入曝露の「無毒性量等」が導出されている106化合物を選定し、「無毒性量等」の分布を検討したところ、0.0002 mg/m³から870 mg/m³まで、実に4×10⁶倍もの差異が認められ、「無毒性量等」が1–10 mg/m³のVOCが最も多く34化合物、次いで0.1–1 mg/m³が28化合物であった。このように、毒性の強さが大きく異なる一群の化合物による健康リスクを質量分析計のイオン強度の和で表現することは、将来にわたっても実質的に困難であると考えられる。

暫定目標値 400 µg/m³の妥当性について、国立医薬品食品衛生研究所が実施した2012、2013、2016および2020年度全国実態調査の結果では、TVOCの中央値は229–260 µg/m³の範囲であり、暫定目標値を超過した家屋の割合は20ないし40%と報告されている。現行のTVOC暫定目標値は、SIM法で個別定量したVOC 41物質の中央値の総和 153 µg/m³を基に、いくつかの仮定を適用して得られた推定値 306 µg/m³から設定されたものである。Scan法によるTVOC分析法で得られた目標値ではないことから、「暫定」とされたものと推察される。

一方、上記の全国実態調査のTVOC中央値は、日本薬学会 環境・衛生部会で衛生試験法として公定法化が進められている標準試験法で採取・測定されたものであり、わが国の室内空気中のTVOCの現状を正確に反映していると言える。各年度のTVOC中央値(229～260 µg/m³)は、暫定目標値設定時のTVOC推定値(306 µg/m³)の75%程度であり、20–40%程度の家屋が暫定目標値を超過していた。国立医薬品食品衛生研究所の精力的なTVOC標準試験法に則った全国実態調査により、暫定目標値が設定された時点と現在で室内のTVOCの状況に大きな変化はなく、400 µg/m³の目標値を変更する必要はないものと考えられる。

未評価化学物質スクリーニングとしてのTVOCについては、上述した無毒性量等が1 mg/m³を超える56化合物については、室内空気中濃度が概ね10 µg/m³であれば、100以上のMOE (Margin of

Exposure) が確保されていることとなり、「現時点では詳細な評価あるいは情報収集を実施する必要はない」と判定される。

衛生試験法・注解に収載されたTVOC標準試験法は、各構成成分について1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 程度の濃度から定量的な評価が可能であり、室内空气中の化学物質にかかる情報収集や詳細な評価の必要性を判定するのに十分な検出感度を備えている。すなわち、TVOC測定と同時に未評価化学物質のスクリーニングを実施できる点が、総合的な室内空気質指標としてのTVOCの付加価値であると言えよう。

C3: 室内空气中揮発性有機化合物 (VOC) ・準揮発性有機化合物 (SVOC) の標準試験法の評価

1) 分析条件の検討

前年度に確立したフタル酸エステル類の分析条件に殺虫剤3物質を適用した結果、フェノブカルブのピークにリーディングがみられ、クロルピリホスの感度が低かった。フェノブカルブのピーク形状を改善するため注入量を減らし、それに伴う感度低下をカラム長さおよびモニターイオンの変更で改善することができた。

2) 検量線

全ての測定対象物質について、妥当性評価ガイドラインの示す真度および精度の目標値に適合し、キャリアオーバーは検量線の濃度範囲の下限値を下回った。また、殺虫剤の定量下限値は0.0066 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、フタル酸エステル類の定量下限値は0.069 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ と、殺虫剤は室内濃度指針値の1/10以下まで、フタル酸エステル類は1/100以下まで測定できた。

3) 添加回収試験結果

標準品添加後に通気をせず、ただちに抽出した試料の回収率は、アセトン抽出条件では80–104%、アセトニトリル抽出条件では80–93%であり、両抽出条件とも妥当性評価ガイドラインに示された真度の目標値を満たした。24時間通気後の試料でフタル酸エステル類の回収率は81–101%、フェノブカ

ルブの回収率は88%であった。ダイアジノンおよびクロルピリホスの回収率は、通気なしでは93%および90%であったが、通気なし24時間放置の試料では76%および68%、24時間通気では39%および59%と大きく低下した。この低下の改善策を殺虫剤のみの添加および通気なしで検討した結果、標準液の添加方法および抽出時の器具の変更により、真度の目標値を満たすことができた。しかし、SVOCとして同一捕集剤に同時添加すると、ダイアジノンおよびクロルピリホスの回収率が低下することから、更なる改善が必要であると考えられた。

C4: 室内空気環境汚染化学物質の標準試験法の国内規格化

室内濃度指針値設定物質DnBPおよびDEHPについて改定指針値に対応した固相吸着—加熱脱離法による標準試験法策定した。また、室内濃度暫定目標値が設定されているTVOCについて固相吸着—加熱脱離法による標準試験法を策定した。日本薬学会編 衛生試験法・注解2020 追補2024にて公表した。室内濃度指針値策定物質を対象とする標準試験法が策定されることにより、曝露評価を円滑に実施することが可能になる。

C5: 室内空気環境汚染化学物質の標準試験法の国際規格化

ISO/TC146/SC6 国際会議がローマで開催され、ISO 16000-33に関する会議 (WG20) は2023年9月21日に行われた。日本の代表団は酒井信夫 (国立医薬品食品衛生研究所)、伊藤一秀 (九州大学) が参加した。WG 20では、ISO 16000-33の改正案について議論が行われた。わが国が提案した「ODS固相ディスクまたはSDB共重合体カートリッジによるサンプリング方法と溶媒抽出・分析方法」がISO 16000-33のAnnex Bに追加され、DIS投票で賛成された。2023年12月4日にFDISに登録された。

WG20での国際会議後、ISO/TC 146/SC 6/WG 20 N66; Recommendations, N68; Draft Minutesが作成された。主な内容は以下に示す。

Recommendation 44

ISO/TC 146/SC 6/WG 20 decides to submit the revised draft of ISO 16000-33 to FDIS ballot.

Draft Minutes 5

WG 20 discusses the comments received on ISO/DIS 16000-33 and thanks the Japanese delegation, especially Shinobu Sakai, for preparing most of the answers (Doc. N 64).

Draft Minutes 6

WG 20 decides to submit the revised document to FDIS after checking for editorial and linguistic issues.

C6: 室内空気環境汚染化学物質のオンサイト試験法の評価

PVC床材の表面温度変化がSVOC放散量及び表面ブリードアウト量に与える影響について実験を行った結果、室内で施工している建築材料のみではなく、家庭内で使用している生活用品もSVOC物質の放散源であることを確認した。各SVOC物質の放散量は少ないものの、家具・家電製品の面積は少ないため、引き続き室内のSVOC汚染影響を研究する必要があると考えられた。

温度変化によるPVC建材からのSVOC物質の放散速度と表面ブリードアウト量との相関性を測定した結果、2E1Hを含む9物質が検出された。2E1Hは揮発性が高いVOC物質であるため、建材の表面ブリードアウト量より空気中に放散する量が多かった。

C7: 室内空気環境汚染化学物質の曝露濃度予測

鼻腔・口腔から気管支第16分岐までを再現した上で口腔内の歯列を正確に再現した改良型数値気道モデルを検討した。また、非定常の呼吸サイクル(呼出・吸入)を再現した条件で、室内環境中のガス状化学物質による経気道曝露の非定常解析を行い、鼻

腔の嗅覚領域における粘膜上皮細胞に対する化学物質吸着フラックスの時間変化ならびに界面濃度の時間変化を明らかにした。昨年度(令和4年度)までの境界条件に加えて、室内空気中の温度・湿度条件が気道内化学物質輸送に与える影響を定量的に解析するために、気道内の粘膜上皮細胞界面での熱水分輸送解析も連成解析する手法を開発した。

室内空気環境に関連する国際標準化を担うISO/TC 146/SC 6では、WHOならびに厚生労働省が定める室内濃度指針値既設化学物質の他、室内空気中の真菌、エアロゾル等の標準化もターゲットとしており、現時点で規制対象となっていない新規の室内汚染物質に関する議論も進められている。本研究で開発した *in silico* 人体モデルの利点は、倫理的な制約を受けることなく、無限のパラメトリックスタディを可能とする点にある。新規対象化学物質の経気道曝露予測を行うために必要となるモデルパラメータの同定方法を整備することで、これらの将来課題に対して迅速な対応が可能となる。

C8: 室内空気環境汚染化学物質の国際規制状況調査・ハザード情報の収集

1) ハザード情報

本分担研究では、シックハウス検討会で初期曝露評価を実施したVOCについて、健康リスク評価値および有害性等の情報を収集してとりまとめる。2023年度は、ベンジルアルコール、ベンズアルデヒド、2-フルアルデヒド、フェノール、フタル酸ベンジルブチル、フタル酸ジ-イソノニル、フタル酸ジ-イソデシル、Di(isononyl) cyclohexane-1,2-dicarboxylate (DINCH)、Di(ethylhexyl) adipate (DEHA)を調査対象とした。情報収集作業は計画通りに進捗しており、2023年度の研究報告書にとりまとめる予定である。

2) 国際的な規制動向の調査

WHO、ドイツ連邦環境庁、ANSES、カナダ保健省の室内空気質ガイドライン等に関する情報を収集した。

WHO 欧州地域事務局が 2023 年 9 月 20 日に First WHO/Europe Indoor Air Conference をスイスのベルンで開催したため、オンラインで参加した。室内空気質と健康障害に関する最新情報が紹介され、今後の課題について議論が行われた。室内空気質に対する取り組みは、WHO においても優先事項であることを改めて確認した。

令和 5 年度以降に公表された室内空気質ガイドラインでは、ドイツ連邦環境庁がギ酸、酢酸、プロピオン酸の室内空気質ガイドラインを公表した。フランスの ANSES では新たに公表された室内空気質ガイドラインはなかった。カナダ保健省でも新たに公表された室内空気質ガイドラインはなかった。

WHO の国際がん研究機関(IARC)による発がん性分類のアップデートのうち、2023 年度以降における室内環境汚染関連物質のアップデートをレビューした。アントラセンと亜リン酸ジメチルが 3 (ヒトに対する発がん性を分類できない) から 2B (ヒトに対して発がん性があるかもしれない) に格上げとなった。2-ブロモプロパンが 2A (ヒトに対しておそらく発がん性がある)、メタクリル酸ブチルが 2B に新たに分類された。アステルパームとイソオイゲノールが 2B に新たに分類された。メチルオイゲノールは 2B から 2A に格上げとなった。室内ダスト中でも検出されるペルフルオロオクタン酸 (PFOA) が 2B から 1 (ヒトに対して発がん性がある) に格上げとなり、ペルフルオロオクタンスルホン酸 (PFOS) は 2B に新たに分類された。なお、次年度以降のワーキンググループでは、タルクとアクリルニトリルの検討が予定されている。

D. 結論

D1: 室内濃度指針値代替化学物質の標準試験法の開発

測定対象とした 53 化学物質について各検量線の妥当性を検証したところ、すべて重み付けを行ったものの方が良好な評価結果が得られた。評価結果が最も良好だった検量線は、定量範囲 5–50 ng の重み付け有のものであり、Acetone, Methylene

chloride, 1,2-Dichloroethane 以外の 50 物質にて良好な結果が得られた。定量範囲 2–50 ng の重み付け無の検量線は妥当性評価の目標値を逸脱した数が最も多かった。室内濃度指針値代替化学物質 3 物質 (2E1H, TMPD-MIB, TMPD-DIB) については、重み付け有の検量線全てにおいて良好な結果が得られた。

D2: 総揮発性有機化合物 (TVOC) の在り方に関する研究

文献調査では、種々の VOC 混合物である TVOC による直接的かつ定量的な健康影響を検討した論文を見出すことはできず、現状では TVOC を健康リスクに関連付けることは困難であると考えられる。その一方で、TVOC の測定で得られる未評価化学物質に関する情報は、当該物質の既存の有害性情報から推定 MOE を導出することも可能であり、室内空気の質をスクリーニングするために極めて有用である。この 20 年で一義的な TVOC 試験法による全国調査が得られていることも踏まえると、400 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の目標値を変更する必要はないものと考えられる。

D3: 室内空气中揮発性有機化合物 (VOC) ・準揮発性有機化合物 (SVOC) の標準試験法の評価

本分担研究では、SE-GC/MS における SVOC 同時分析法の開発を目的とした。その結果、SVOC を一斉分析する分離・分析条件を確立し、十分な定量下限値が得られた。また、通気なしの添加回収試験では真度の目標値を満たした。しかし、室内空気を通気した添加回収試験では殺虫剤の回収率が低下したため課題が残った。

D4: 室内空気環境汚染化学物質の標準試験法の国内規格化

室内濃度指針値設定物質である DnBP および DEHP、ならびに室内濃度暫定目標値が設定されている TVOC について固相吸着—加熱脱離法による標準試験法を策定し、日本薬学会編 衛生試験法・注

解2020 追補2024に収載した。

D5: 室内空気環境汚染化学物質の標準試験法の国際規格化

フタル酸エステル類の測定・分析方法をISO 16000-33 : 2017, Determination of phthalates with gas chromatography/mass spectrometry (GC/MS) に新規提案した。2023年8月25日にDIS投票においてPメンバー14か国が賛成し(反対国なし), FDISに登録されている(2024年1月19日現在 ステージコード50.00 Final text received or FDIS registered for formal approval)。

D6: 室内空気環境汚染化学物質のオンサイト試験法の評価

オンサイト測定方法の確立・応用により, 実空間における仕上げ材等からのSVOC放散速度の測定が可能になることから, 室内空気質の管理が期待できる。

D7: 室内空気環境汚染化学物質の曝露濃度予測

本年度(令和5年度)は, 昨年度までに開発した数値気道モデルならびに数値人体モデルを改良し, 室内環境から気管支第16分岐までの細気管支までの化学物質輸送を連続して解析可能な *in silico* 人体モデルを作成した。また, 気道モデル界面に適用する生理的薬物動態モデル(PBPK-CFD モデル)のモデルパラメータを同定・拡張することで, 室内濃度指針値既設化学物質を含む多様な化学物質を対象とした経気道曝露濃度予測に適用可能なモデルとして整備した。

D8: 室内空気環境汚染化学物質の国際規制状況調査・ハザード情報の収集

諸外国における取り組みは, 室内空気質ガイドラインの作成に重点が置かれている。目標となる気中濃度を設定し, それを目指した発生源対策等を行うアプローチである。とりわけドイツ連邦環境庁は, 継続的に室内濃度指針値を設定しており, 今年度は,

ギ酸, 酢酸, プロピオン酸の3つの有機酸に対して指針値が新たに設定された。フランスのANSESとカナダ保健省では今年度新たに設定された室内空気質ガイドラインはなかった。なお, 発がん性に関してIARCは, 今年度において, アントラセン, 亜リン酸ジメチル, 2-ブロモプロパン, メタクリル酸ブチル, アステルパーム, イソオイゲノール, メチルオイゲノール, PFOA, PFOSの発がん性分類を公表した。また, 本分担研究では, 室内濃度指針値の新規策定や既存策定物質の改定に資する有害性情報を収集した。これらの調査結果は, 室内空気汚染物質の室内濃度指針値策定における科学的エビデンスとなる。

E. 健康危険情報

国民の生命, 健康に重大な影響を及ぼす情報として厚生労働省に報告すべきものはない。

F. 研究発表

1. 論文発表

- 1) 大嶋 直浩, 高橋 夏子, 高木 規峰野, 田原 麻衣子, 酒井 信夫, 五十嵐 良明: 国立医薬品食品衛生研究所 殿町新庁舎における室内空気質について(第2報), 国立医薬品食品衛生研究所報告, 139, 59-63 (2021).
- 2) Oshima N, Tahara M, Sakai S, Ikarashi Y: Analysis of volatile organic compounds emitted from bedding products, *BPB Reports*, 4, 182-192 (2021).
- 3) 森 葉子, 植田 康次, 櫻井 有紀, 青木 明, 岡本 誉士典, 神野 透人: 小型インピンジャーを用いる通気法による食品中シアン化合物の分析, 食品衛生学雑誌, 62, 162-165 (2021).
- 4) Fujinami K, Dan K, Tanaka-Kagawa T, Kawamura I: Anti-aging effects of polyoxometalates on skin, *Applied Sciences*, 11, 11948 (2021).
- 5) Hanioka N, Saito K, Isobe T, Ohkawara S, Jinno H, Tanaka-Kagawa T: Favipiravir

- biotransformation in liver cytosol: Species and sex differences in humans, monkeys, rats, and mice, *Biopharmaceutics & Drug Disposition*, **42**, 218-225 (2021).
- 6) Kim H, Kim T, Tanabe S: The contamination of DEHP on the surfaces of PVC sheet and risk of infants, *Journal of Asian Architecture and Building Engineering*, **22**, 317-326 (2023).
 - 7) Sakamoto M, Kuga K, Ito K, Beko G, Li M, Williams J, Wargocki P: CO₂ emission rates from sedentary subjects under controlled laboratory conditions, *Building and Environment*, **211**, 108735 (2022).
 - 8) Yanagi U, Kato S, Nagano H, Ito K, Yamanaka T, Momoi Y, Kobayashi H, Hayama H: Dispersion characteristics of oral microbial communities in a built environment, *Japan Architectural Review*, **5**, 225-232 (2022).
 - 9) Salati H, Khamooshi M, Dong J, Ito K, Fletcher D, Vahaji S, Inthavong K: Exhaled Aerosol and Jet Flow Characterization During Nasal Sneezing, *Aerosol and Air Quality Research*, **22**, 210338 (2022).
 - 10) Fan X, Sakamoto M, Shao H, Kuga K, Lan L, Ito K, Wargocki P: Emission rate of carbon dioxide while sleeping, *Indoor Air*, **31**, 2142-2157 (2021).
 - 11) Muttakin M, Pal A, Rupa MJ, Ito K, Saha BB: A critical overview of adsorption kinetics for cooling and refrigeration systems, *Advances in Colloid and Interface Science*, **294**, 102468 (2021).
 - 12) Khoa ND, Phuong NL, Tani K, Inthavong K, Ito K: Computational fluid dynamics comparison of impaired breathing function in French bulldogs with nostril stenosis and an examination of the efficacy of rhinoplasty, *Computers in Biology and Medicine*, **134**, 104395 (2021).
 - 13) Kuga K, Ito K, Wargocki P: The effects of warmth and CO₂ concentration, with and without bioeffluents, on the emission of CO₂ by occupants and physiological responses, *Indoor Air*, **31**, 2176-2187 (2021).
 - 14) Kuga K, Ito K, Chen W, Wang P, Fowles J, Kumagai K: Secondary indoor air pollution and passive smoking associated with cannabis smoking using electric cigarette device – Demonstrative *in silico* study, *PLOS Computational Biology*, **17**, e1009004 (2021).
 - 15) Lim E, Sandberg M, Ito K: Returning Frequency of Pollutants for Local Domain in the presence of Returning and Recirculating Air Flow in Indoor Environment, *Indoor Air*, **31**, 1267-1280 (2021).
 - 16) Wang Y, Murga A, Long Z, Yoo SJ, Ito K: Experimental study of oil mist characteristics generated from minimum quantity lubrication and flood cooling, *Energy and Built Environment*, **2**, 45-55 (2021).
 - 17) Sotokawa H, Chung J, Yoo SJ, Ito K: Sensitivity numerical analyses for identifying rate-limiting factors influencing total energy exchange efficiency in energy recovery ventilator, *Indoor and Built Environment*, **30**, 245-263 (2021).
 - 18) Xu C, Khoa ND, Yoo SJ, Zheng X, Shen S, Ito K: Inhalation Airflow and Ventilation Efficiency in Subject-Specific Human Upper Airways, *Respiratory Physiology & Neurobiology*, **285**, 103587 (2021).
 - 19) Wolkoff P, Azuma K, Carrer P. Health, work performance, and risk of infection in office-like environments: the role of indoor temperature, air humidity, and ventilation. *International Journal of Hygiene and Environmental Health*, **233**, 113709 (2021).
 - 20) Glorennec P, Shendell DG, Rasmussen PE, Waerber R, Egeghy P, Azuma K, Pelfrène A, Le

- Bot B, Esteve W, Perouel G, Pernelet Joly V, Noack Y, Delannoy M, Keirsbulck M, Mandin C. Towards setting public health guidelines for chemicals in indoor settled dust? *Indoor Air*, **31**, 112–115 (2021).
- 21) Araki A, Azuma K, *et al.* Occupational exposure limits for acetaldehyde, 2-bromopropane, glyphosate, manganese and inorganic manganese compounds, and zinc oxide nanoparticle, and biological exposure indices for cadmium and cadmium compounds and ethylbenzene, and carcinogenicity and reproductive toxicant classifications. *J Occup Health*, **63**, e12294 (2021).
- 22) 東 賢一：職域におけるオフィスの室内環境に関連する症状とそのリスク要因：いわゆるシックビルディング症候群，産業医学レビュー，**33**，263–278 (2021).
- 23) 酒井 信夫：用語解説 ベンゼン，室内環境，**25**，324 (2022).
- 24) 酒井 信夫：用語解説 ナフタレン，室内環境，**25**，324 (2022).
- 25) 酒井 信夫：解説 ISO 16000-33: GC/MS を用いたフタル酸エステル類の定量の改訂，クリーンテクノロジー，**32**，60-63 (2022).
- 26) Tahara M, Kawakami T, Sakai S, Ikarashi Y: Survey of phthalates, glycols, and several volatile organic compounds in domestic hand-pump spray products and evaluation of their effect on indoor air quality, *Journal of Environmental Chemistry*, **32**, 84-94 (2022).
- 27) Oshima N, Tahara M, Sakai S, Ikarashi Y: Nationwide survey of the candidate substances in guideline values for indoor air concentrations, *Bulletin of National Institute of Health Sciences*, **140**, 40-47 (2022).
- 28) Oshima N, Tahara M, Sakai S, Ikarashi Y: A nationwide survey on indoor air concentrations of benzene and naphthalene in general residential housings, *Indoor Environment*, **25**, 177-184 (2022).
- 29) Sakai S, Tahara M, Kubota R, Kawakami T, Inoue K, Ikarashi Y: Characterization of synthetic turf rubber granule infill in Japan: Volatile organic compounds, *Science of the Total Environment*, **838**, 156400 (2022).
- 30) Oshima N, Takagi M, Sakai S, Ikarashi Y: Comparison of the helium-alternative carrier gases for the gas chromatography/mass spectrometry of standard test methods for indoor air quality guidelines in Japan, *BPB Reports*, **5**, 84-87 (2022).
- 31) Mori Y, Tanaka-Kagawa T, Tahara M, Kawakami T, Aoki A, Okamoto Y, Isobe T, Ohkawara S, Hanioka N, Azuma K, Sakai S, Jinno H: Species differences in activation of TRPA1 by resin additive-related chemicals relevant to indoor air quality, *Journal of Toxicological Sciences*, **48**, 37-45 (2023).
- 32) Mori Y, Aoki A, Okamoto Y, Isobe T, Ohkawara S, Hanioka N, Tanaka-Kagawa T, Jinno H: Species-specific activation of transient receptor potential ankyrin 1 by phthalic acid monoesters, *Biological and Pharmaceutical Bulletin*, **45**, 1839-1846 (2022).
- 33) Hanioka N, Tanaka-Kagawa T, Mori Y, Ikushiro S, Jinno H, Ohkawara S, Isobe T: Regioselective glucuronidation of flavones at C5, C7, and C4' positions in human liver and intestinal microsomes: Comparison among apigenin, acacetin, and genkwanin, *Biological and Pharmaceutical Bulletin*, **45**, 1116-1123 (2022).
- 34) Hanioka N, Isobe T, Tanaka-Kagawa T, Jinno H, Ohkawara S: In vitro glucuronidation of bisphenol A in liver and intestinal microsomes: interspecies differences in humans and laboratory animals, *Drug and Chemical*

- Toxicology*, **45**, 1565-1569 (2022).
- 35) 杉田 隆, 香川 (田中) 聡子: 環境・衛生部会 衛生試験法シンポジウム: 微生物検査による食品・環境衛生管理の新展開, *薬学雑誌*, **142**, 9-10 (2022).
- 36) 稲坂 まりな, 赤松 奈美, 菅野 颯馬, 池内 宏維, 高橋 秀介, 田崎 未空, 金 炫兌, 田辺 新一: 異なる木材表面へのアルコール塗布が VOC 放散量および知覚空気質に与える影響, *日本建築学会環境系論文集*, **87**, 846-854 (2022).
- 37) 赤松 奈美, 池内 宏維, 稲坂 まりな, 小野田 亮介, 松尾 和弥, 田崎 美空, 菅野 颯馬, 金 炫兌, 田辺 新一: 木材表面へのアルコール清拭が VOC 放散量および知覚空気質に与える影響 第一報: 実験概要と化学物質分析の測定結果, *日本建築学会大会学術講演梗概集*, **2022**, 1595-1596 (2022).
- 38) 池内 宏維, 赤松 奈美, 稲坂 まりな, 小野田 亮介, 松尾 和弥, 田崎 美空, 菅野 颯馬, 金 炫兌, 田辺 新一: 木材表面へのアルコール清拭が VOC 放散量および知覚空気質に与える影響 第二報: 被験者実験による臭気評価結果, *日本建築学会大会学術講演梗概集*, **2022**, 1597-1598 (2022).
- 39) 赤松 奈美, 池内 宏維, 稲坂 まりな, 菅野 颯馬, 金 炫兌, 田辺 新一: 木材表面へのアルコールの塗布・噴霧が VOC 放散量および知覚空気質に与える影響 (第 1 報) アルコールの 1 回塗布によるチャンバー実験結果, *空気調和・衛生工学会大会 学術講演論文集*, **46**, 9-12 (2022).
- 40) 池内 宏維, 赤松 奈美, 稲坂 まりな, 菅野 颯馬, 金 炫兌, 田辺 新一: 木材表面へのアルコールの塗布・噴霧が VOC 放散量および知覚空気質に与える影響 (第 2 報) アルコールの繰り返し噴霧によるチャンバー実験結果, *空気調和・衛生工学会大会 学術講演論文集*, **2022**, 13-16 (2022).
- 41) 田崎 健悟, 金 炫兌, 小金井 真, 益崎 慶人, 田辺 新一: 一般住宅における床材・壁材からの SVOC 放散量の測定, *日本建築学会大会学術講演梗概集*, **2022**, 1589-1590 (2022).
- 42) 益崎 慶人, 金 炫兌, 小金井 真, 田辺 新一: 実空間モデルにおける可塑剤からの SVOC 放散挙動に関する実験, *空気調和・衛生工学会大会 学術講演論文集*, **2022**, 129-132 (2022).
- 43) 田崎 健悟, 金 炫兌, 小金井 真, 田邊 慶宗, 益崎 慶人, 田辺 新一: 現場測定方法を用いた準揮発性有機化合物(SVOC)の放散速度測定-家電製品表面からの SVOC 放散速度測定, *日本建築学会中国支部研究報告集*, **46**, 407-410 (2023).
- 44) 田邊 慶宗, 金 炫兌, 小金井 真, 田崎 健悟, 益崎 慶人, 田辺 新一: 現場測定方法を用いた準揮発性有機化合物(SVOC)の放散速度測定 夏期・冬期における床材・壁材からの SVOC 放散量の測定, *日本建築学会中国支部研究報告集*, **46**, 403-406 (2023).
- 45) 益崎 慶人, 金 炫兌, 小金井 真, 田崎 健悟, 田辺 新一: 建材からの SVOC 放散速度と気中濃度との相関性に関する研究, *日本建築学会中国支部研究報告集*, **46**, 399-402 (2023).
- 46) 細田 実里, 金 炫兌, 小金井 真, 益崎 慶人, 田崎 健悟: 住宅及び大学施設における空気中の準揮発性有機化合物(SVOC)濃度の測定, *日本建築学会中国支部研究報告集*, **46**, 395-398 (2023).
- 47) Fernandez KB, Ikegaya N, Ito K, Chen Q: Age of air, purging flow rate, and net escape velocity in a cross-ventilation model sheltered by urban-like blocks using LES, *Building and Environment*, **226**, 109759 (2022).
- 48) Khoa ND, Phuong NL, Tani K, Inthavong K, Ito K: *In silico* decongested trial effects on the impaired breathing function of a bulldog suffering from severe brachycephalic obstructive airway syndrome, *Computer Methods and Programs in Biomedicine*, **228**,

- 107243 (2023).
- 49) Harashima H, Sumiyoshi E, Ito K: Internal diffusion and re-emission of leaked liquid ethyl acetate from mortar materials, *Japan Architectural Review*, **5**, 672–681 (2022).
 - 50) Lim E, Tanaka H, Ni Y, Bai Y, Ito K: Microplastics/microfibers in settled indoor house dust- Exploratory case study for 10 residential houses in the Kanto area of Japan, *Japan Architectural Review*, **5**, 682–690 (2022).
 - 51) Yamasawa H, Hirayama T, Kuga K, Muta R, Kobayashi T, Ito K: Influence of inlet turbulent condition on the formation mechanism of local scalar concentrations, *Japan Architectural Review*, **5**, 691–701 (2022).
 - 52) Muta R, Ito K: Impact of heat generation and use of experimental instruments in a fume hood on pollutant capture efficiency, *Japan Architectural Review*, **5**, 702–713 (2022).
 - 53) Yoo SJ, Ito K: Validation, verification, and quality control of computational fluid dynamics analysis for indoor environments using a computer-simulated person with respiratory tract, *Japan Architectural Review*, **5**, 714–727 (2022).
 - 54) Salati H, Fletcher DF, Khamooshi M, Dong J, Ito K, Vahaji S, Inthavong K: Exhaled aerosol and jet flow characterization during nasal sneezing, *Aerosol and Air Quality Research*, **22**, 210338 (2022).
 - 55) Li H, Kuga K, Ito K: SARS-CoV-2 dynamics in the mucus layer of the human upper respiratory tract based on host-cell dynamics, *Sustainability*, **14**, 3896 (2022).
 - 56) Muta R, Yoo SJ, Kim H, Matsumoto T, Ito K: Multiscale analysis of material flow and computational fluid dynamics for predicting individual DEHP exposure concentration in indoors, *Indoor and Built Environment*, **31**, 2291-2311 (2022).
 - 57) Ikegaya N, Ito K, Sandberg M: Rigorous mathematical formulation of net escape velocity and net escape probability determining a macroscopic concentration, *Indoor Air*, **32**, e13072 (2022).
 - 58) Kuga K, Sakamoto M, Wargocki P, Ito K: Prediction of exhaled carbon dioxide concentration using a computer-simulated person that included alveolar gas exchange, *Indoor Air*, **32**, e13079 (2022).
 - 59) Harashima H, Sumiyoshi E, Ito K: Numerical models for seamlessly predicting internal diffusion and re-emission of leaked liquid toluene from indoor mortar materials, *Journal of Building Engineering*, **57**, 104976 (2022).
 - 60) Khoa ND, Phuong NL, Takahashi K, Ito K: Transport and deposition of inhaled man-made vitreous and asbestos fibers in realistic human respiratory tract models: An *in-silico* study, *Japan Architectural Review*, **5**, 592–608 (2022).
 - 61) Wang Y, Shen X, Yoo SJ, Long Z, Ito K: Error analysis of human inhalation exposure simulation in industrial workshop, *Building and Environment*, **224**, 109573 (2022).
 - 62) Muta R, Chung J, Li C, Yoo SJ, Ito K: Pollutant capture efficiencies in and around the opening-surface of a fume hood under realistic conditions, *Indoor and Built Environment*, **31**, 1636-1653 (2022).
 - 63) Kuga K, Wargocki P, Ito K: Breathing zone and exhaled air re-inhalation rate under transient conditions assessed with a computer-simulated person, *Indoor Air*, **32**, e13003 (2022).
 - 64) Fan X, Shao H, Sakamoto M, Kuga K, Lan L, Wyon DP, Ito K, Bivolarova MP, Liao C, Wargocki P: The effects of ventilation and temperature on sleep quality and next-day work performance: pilot measurements in a climate

- chamber, *Building and Environment*, **209**, 108666 (2022).
- 65) Karagas, MR, Wang A, Dorman DC, Hall AL, Pi J, Sergi CM, Symanski E, Ward EM, Arrandale VH, Azuma K, Brambila E, Calaf GM, Fritz JM, Fukushima S, Gaitens JM, Grimsrud TK, Guo L, Lynge E, Marinho-Reis AP, McDiarmid MA, Middleton DRS, Ong TP, Polya DA, Quintanilla-Vega B, Roberts GK, Santonen T, Sauni R, Silva MJ, Wild P, Zhang CW, Zhang Q, Grosse Y, Benbrahim-Tallaa L, de Conti A, DeBono NL, Ghissassi FE, Madia F, Reisfeld B, Stayner LT, Suonio E, Viegas S, Wedekind R, Ahmadi S, Mattock H, Gwinn WM, Schubauer-Berigan MK: Carcinogenicity of cobalt, antimony compounds, and weapons-grade tungsten alloy, *THE LANCET Oncology*, **23**, 577–578 (2022).
- 66) 東 賢一：燃焼で排出される室内空気汚染物質の健康影響，室内環境，**25**，307–315 (2022).
- 67) Yoshitomi T, Nishi I, Onuki A, Tsunoda T, Chiba M, Oizumi S, Tanaka R, Muraki S, Oshima N, Uemura H, Tahara M, Sakai S: Development of a standard test method for insecticides in indoor air by GC-MS with solid-phase adsorption/solvent extraction, *BPB Reports*, **6**, 76-80 (2023).
- 68) Mori Y, Tanaka-Kagawa T, Tahara M, Kawakami T, Aoki A, Okamoto Y, Isobe T, Ohkawara S, Hanioka N, Azuma K, Sakai S, Jinno H: Species differences in activation of TRPA1 by resin additive-related chemicals relevant to indoor air quality, *Journal of Toxicological Sciences*, **48**, 37-45 (2023).
- 69) Chiba M, Oizumi S, Onuki A, Saito I, Tanaka R, Yamanouchi T, Yokoyama Y, Wakayama T, Ohno H, Tahara M, Sakai S: Validation study for establishing a standard test method for volatile organic compounds in indoor air in Japan using solvent extraction. *BPB Reports*, **7**, 39-43 (2024).
- 70) 千葉真弘, 兼俊明夫, 大泉詩織, 田原麻衣子, 酒井信夫: 室内空气中の揮発性有機化合物分析における除湿管の影響, 室内環境 (in press).
- 71) Yoshitomi T, Nishi I, Uemura H, Tahara M, Sakai S: Simultaneous analysis of insecticides and phthalates in residential buildings based on Japan's indoor air quality guidelines, *BPB Reports* (in press).
- 72) Hanioka N, Isobe T, Saito K, Nagaoka K, Mori Y, Jinno H, Ohkawara S, Tanaka-Kagawa T: Hepatic glucuronidation of tetrabromobisphenol A and tetrachlorobisphenol A: interspecies differences in humans and laboratory animals and responsible UDP-glucuronosyltransferase isoforms in humans, *Archives of Toxicology*, in press (2024).
- 73) Aoki A, Adachi H, Mori Y, Ito M, Sato K, Kinoshita M, Kuriki M, Okuda K, Sakakibara T, Okamoto Y, Jinno H: A modified high-resolution melting-based assay (HRM) to identify the SARS-CoV-2 N501Y variant, *Journal of Virological Methods*, **314**, 114678 (2023).
- 74) Isobe T, Ohkawara S, Mori Y, Jinno H, Tanaka-Kagawa T, Hanioka N: Hydrolysis of dibutyl phthalate and di(2-ethylhexyl) phthalate in human liver, small intestine, kidney, and lung: An in vitro analysis using organ subcellular fractions and recombinant carboxylesterases, *Chemico-Biological Interactions*, **372**, 110353 (2023).
- 75) Aoki A, Jinno H, Ogawa K, Nakagawa T, Inagaki T, Wajima T, Okamoto Y, Uchiya KI. A Rapid Screening Assay for Clarithromycin-Resistant Mycobacterium avium Complex Using Melting Curve Analysis with Nonfluorescent Labeled Probes, *Microbiology*

- Spectrum*, **11**, e0432622 (2023).
- 76) 池内 宏維, 富田 奈歩, 赤松 奈美, 新納 稔樹, 田崎 未空, 深和 佑太, 金 炫兌, 田辺新一: 木材への天然系塗料の塗布が揮発性有機化合物放散量および知覚空気質に与える影響, 日本建築学会環境系論文集, Vol.88, No.811. 716-725, 202309 (2023).
- 77) Khoa ND, Phuong NL, Tani K, Inthavong K, Ito K: *In silico* decongested trial effects on the impaired breathing function of a bulldog suffering from severe brachycephalic obstructive airway syndrome, *Computer Methods and Programs in Biomedicine*, **228**, 107243 (2023).
- 78) Li C, Yoo SJ, Ito K: Impact of Indoor Ventilation Efficiency on Acetone Inhalation Exposure Concentration in Respiratory Tract, *Building Simulation*, **16**, 427-441 (2023).
- 79) Yoo SJ, Kurokawa A, Matsunaga K, Ito K: Spatial distributions of airborne transmission risk on commuter buses: Numerical case study using computational fluid and particle dynamics with computer-simulated persons, *Experimental and Computational Multiphase Flow*, 1-15 (2023).
- 80) Murga A, Bale R, Li CG, Ito K, Tsubokura M: Large eddy simulation of droplet transport and deposition in the human respiratory tract to evaluate inhalation risk, *PLOS Computational Biology*, **19**, e1010972 (2023).
- 81) Kuga K, Kizuka R, Khoa ND, Ito K: Effect of transient breathing cycle on micro and nanoparticles depositions on respiratory walls, *Computer Methods and Programs in Biomedicine*, **236**, 107501 (2023).
- 82) Khoa ND, Li S, Phuong NL, Kuga K, Yabuuchi H, Kan-o K, Matsumoto K, Ito K: Computational Fluid-Particle Dynamics modeling of ultrafine to coarse particles deposition in the human respiratory system, down to the terminal bronchiole, *Computer Methods and Programs in Biomedicine*, **237**, 107589 (2023).
- 83) Li H, Kuga K, Ito K: Visual prediction and parameter optimization of viral dynamics in mucus milieu of upper airway based on CFPD-HCD analysis, *Computer Methods and Programs in Biomedicine*, **238**, 107622 (2023).
- 84) Abouelhamd I, Kuga K, Yoo SJ, Ito K: Identification of Probabilistic Size of Breathing Zone during Single Inhalation Phase in Semi-Outdoor Environmental Scenarios, *Building and Environment*, **243**, 110672 (2023).
- 85) Nishihara T, Li H, Kuga K, Ito K: Seamless numerical analysis of transient infectious droplets dispersion and inhalation exposure - *in silico* study, *Building and Environment*, **244**, 110748 (2023).
- 86) Yoo SJ, Yamauchi S, Park HG, Ito K: Computational Fluid and Particle Dynamics Analyses for Prediction of Airborne Infection/Spread Risks in Highway Buses: A Parametric Study, *Fluids*, **8** (9), 253 (2023).
- 87) Wang Y, Sun J, Zhao M, Murga A, Yoo SJ, Ito K, Long Z: Numerical study of indoor oil-mist particle concentration distribution in industrial factory using the Eulerian-Eulerian and Eulerian-Lagrangian methods, *Fluids*, **8** (10), 264 (2023).
- 88) Kuga K, Hoshiyama S, Wargocki P, Ito K: A pilot numerical study of odourant transport from an indoor environment to the olfactory region during sensory evaluations following ISO 16000-28, *Building and Environment*, **245**, 110868 (2023).
- 89) Khoa ND, Kuga K, Inthavong K, Ito K: Coupled Eulerian Wall Film-Discrete Phase model for predicting the respiratory droplets generation

- during the coughing event, *Physics of Fluids*, **35**, 112103 (2023).
- 90) Mizukoshi A, Okumura J, Azuma K: A COVID-19 cluster analysis in an office: Assessing the long-range aerosol and fomite transmissions with infection control measures. *Risk Analysis*, 1–17 (2023).
- 91) Mizukoshi A, Hojo S, Azuma K, Mizuki M, Miyata M, Ogura H, Sakabe K, Tsurikisawa N, Oshikata C, Okumura J: Comparison of environmental intolerances and symptoms between patients with multiple chemical sensitivity, subjects with self-reported electromagnetic hypersensitivity, patients with bronchial asthma, and the general population. *Environmental Sciences Europe*, **35**, 32 (2023).
- 92) Inaida S, Mizukoshi A, Azuma K, Okumura J: Reduced norovirus epidemic follows increased sales of hand hygiene products in Japan, 2020–2021. *Environmental Health and Preventive Medicine*, **28**, 18 (2023).
- ## 2. 書籍
- 1) 香川 聡子, 遠藤 治, 斎藤 育江, 酒井 信夫, 神野 透人, 鳥羽 陽, 中島 大介, 藤森 英治: 有機物質 / 揮発性有機化合物 / 固相吸着-加熱脱離-ガスクロマトグラフィー / 質量分析法による定量 (新規), 公益社団法人日本薬学会環境・衛生部会, 衛生試験法・注解 2020 追補 2022, 仙台共同印刷 (2022).
- 2) Azuma K, Jinno H: Toxicity of semivolatile organic compounds, *Advances in the Toxicity of Construction and Building Materials*, Elsevier, (2022).
- 3) 東賢一: 生活環境と健康, 新版生活健康科学第 2 版, 三共出版 (2022).
- 4) Tham KW, Wargocki P, Tanabe S. (2022). Postulated pathways between environmental exposures and cognitive performance. Zhang Y, Hopke PK, Mandin C. (eds) *Handbook of Indoor Air Quality*. Springer, Singapore.
- 5) 東 賢一: 今日の治療指針 2023 年版 私はこう治療している: シックハウス症候群 / 化学物質過敏症, 医学書院, 東京 (2023).
- 6) 酒井 信夫: 用語解説 ベンゼン, 室内環境, **25**, 324 (2022).
- 7) 酒井 信夫: 用語解説 ナфтаレン, 室内環境, **25**, 324 (2022).
- 8) 酒井 信夫: 解説 ISO 16000-33: GC/MS を用いたフタル酸エステル類の定量の改訂, クリーンテクノロジー, **32**, 60-63 (2022).
- 9) 香川 (田中) 聡子, 遠藤 治, 斎藤 育江, 酒井 信夫, 神野 透人, 鳥羽 陽, 中島 大介, 藤森 英治: 空気試験法: 揮発性有機化合物・捕集剤による乾式採取 (アクティブ法) -加熱脱着-ガスクロマトグラフィー-質量分析法による定量 (新規), 衛生試験法・注解 2020 追補 2022, 公益社団法人日本薬学会 環境衛生部会 (2022).
- 10) Tham KW, Wargocki P, Tanabe S: Postulated Pathways Between Environmental Exposures and Cognitive Performance, *Handbook of Indoor Air Quality*, 1397-1405 (2022).
- 11) Azuma K, Jinno H: Toxicity of SVOCs, *Advances in the toxicity of construction and building materials*. Elsevier (2022).
- 12) 東 賢一: 新版生活健康科学: 第 7 章生活環境と健康, 三共出版, 東京 (2022).
- 13) 東 賢一: 今日の治療指針 2022 年版-私はこう治療している: 住宅の温熱環境による障害, 医学書院, 東京 (2022).
- ## 3. 学会発表
- 1) 吉富 太一, 西 以和貴, 田原 麻衣子, 大嶋 直浩, 上村 仁, 酒井 信夫: N-メチルカルバメート系農薬の GC/MS 分析時の分解挙動について, 第 58 回全国衛生化学技術協議会年会 (2021.11).

- 2) 酒井 信夫:室内濃度指針値の改定について 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)の概要説明と地方衛生研究所の参画の意義, 第 58 回全国衛生化学技術協議会年会 (2021.11).
- 3) 酒井 信夫:標準試験法の国内・国際規格化と GC/MS のヘリウム代替キャリアガスの検討, 第 58 回全国衛生化学技術協議会年会 (2021.11).
- 4) 酒井 信夫, 田辺 新一, 金 炫兌, 伊藤 一秀, 田原 麻衣子, 大嶋 直浩, 斎藤 育江, 香川 (田中) 聡子, 神野 透人, 五十嵐 良明:ISO 16000-33: GC/MS を用いたフタル酸エステル類の定量の改訂について, 2021 年室内環境学会学術大会 (2021.12).
- 5) 吉富 太一, 西 以和貴, 上村 仁, 田原 麻衣子, 大嶋 直浩, 酒井 信夫:室内空気における準揮発性有機化合物標準試験法の開発 フタル酸エステル類と殺虫剤の一斉分析法について, 日本薬学会第 142 年会 (2022.3).
- 6) 大嶋 直浩, 高木 規峰野, 酒井 信夫, 五十嵐 良明:室内空气中揮発性有機化合物の GC/MS 分析に用いるキャリアガスの比較, 日本薬学会第 142 年会 (2022.3).
- 7) 酒井 信夫, 田原 麻衣子, 大嶋 直浩, 大貫 文, 斎藤 育江, 千葉 真弘, 大泉 詩織, 田中 礼子, 山之内 孝, 遠藤 治, 鳥羽 陽, 中島 大介, 藤森 英治, 神野 透人, 香川 (田中) 聡子:衛生試験法・注解 2020 追補 2022 空気試験法・空気試験法:揮発性有機化合物・捕集剤による乾式採取(アクティブ法)ー加熱脱着ーガスクロマトグラフィー/質量分析法による定量(新規), 日本薬学会第 142 年会 (2022.3).
- 8) 高橋 直也, 中嶋 康一郎, 大河原 晋, 河村 伊久雄, 三浦 伸彦, 森 葉子, 磯部 隆史, 埴岡 伸光, 神野 透人, 香川 (田中) 聡子:Matrix metalloproteinases のヒト気管および肺組織における発現個体差, 第 48 回日本毒性学会学術年会 (2021.7).
- 9) 中嶋 康一郎, 高橋 直也, 河村 伊久雄, 三浦 伸彦, 森 葉子, 楠木 麻菜美, 加藤 水基, 磯部 隆史, 大河原 晋, 埴岡 伸光, 神野 透人, 香川 (田中) 聡子:ヒト気管および肺組織における Glucagon-like peptide-1 受容体の発現とその個体差, フォーラム 2021 衛生薬学・環境トキシコロジー (2021.9).
- 10) 高橋 直也, 中嶋 康一郎, 河村 伊久雄, 三浦 伸彦, 森 葉子, 磯部 隆史, 大河原 晋, 埴岡 伸光, 神野 透人, 香川 (田中) 聡子:気道リモデリングに関与する生体内因子の遺伝子発現レベルとその個体差, フォーラム 2021 衛生薬学・環境トキシコロジー (2021.9).
- 11) 藤波 克之, 団 克昭, 香川 (田中) 聡子, 河村 伊久雄:真菌・抗ウイルス活性を発揮するポリ酸化合物 (PM) の実用化に向けた機能性評価, フォーラム 2021 衛生薬学・環境トキシコロジー (2021.9).
- 12) 森 葉子, 楠木 麻菜美, 加藤 水基, 青木 明, 岡本 誉士典, 磯部 隆史, 大河原 晋, 埴岡 伸光, 香川 (田中) 聡子, 神野 透人:花生姜抽出物による TRPA1 を介したマウス腸管内分泌細胞株 STC-1 の GLP-1 分泌促進, フォーラム 2021 衛生薬学・環境トキシコロジー (2021.9).
- 13) 森 葉子, 青木 明, 岡本 誉士典, 磯部 隆史, 大河原 晋, 埴岡 伸光, 香川 (田中) 聡子, 神野 透人:フタル酸エステル類による TRPA1 活性化の種差, 日本薬学会第 142 年会 (2022.3).
- 14) 小池 加那子, 河村 伊久雄, 三浦 伸彦, 森 葉子, 磯部 隆史, 大河原 晋, 埴岡 伸光, 神野 透人, 香川 (田中) 聡子:ヒト組織における Vitamin D 受容体の発現とその個体差, 日本薬学会第 142 年会 (2022.3).
- 15) 中嶋 康一郎, 高橋 直也, 河村 伊久雄, 三浦 伸彦, 森 葉子, 磯部 隆史, 大河原 晋, 埴岡 伸光, 神野 透人, 香川 (田中) 聡子:ヒト組織における Glucagon-like peptide-1 受容体の発現とその個体差, 日本薬学会第 142 年会

- (2022.3).
- 16) 古田 貴大, 上野 朱璃, 金井 智久, 川端 雄資, 宇津木 貴子, 白畑 辰弥, 中森 俊輔, 小西 成樹, 香川 (田中) 聡子, 神野 透人, 小林 義典: TRPV1 構造活性相関解明に向けた 7 位 - Evodiamine 誘導体の不斉合成研究とその水溶性, 日本薬学会第 142 年会 (2022.3).
- 17) 金井 智久, 中森 俊輔, 平岡 恵美, 白畑 辰弥, 小西 成樹, 香川 (田中) 聡子, 神野 透人, 小林 義典: 二量体 Nuphar alkaloids (16 種類) の TRPV1 活性化能に関する構造活性相関の解明, 日本薬学会第 142 年会 (2022.3).
- 18) 益崎 慶人, 金 炫兌, 小金井 真, 田辺 新一: TXIB 及び TEXANOL の放散挙動に関する研究, 日本建築学会大会 (2021.9).
- 19) 益崎 慶人, 金 炫兌, 小金井 真, 田辺 新一: 仕上げ材からの SVOC 放散速度測定, 空気調和・衛生工学会大会 (2021.9)
- 20) Masuzaki Y, Kim H, Koganei M, Tanabe S: A Study on Emission Behavior of SVOC Material in Real Space Model, Healthy Buildings 2021, (2022.1).
- 21) 田崎 健悟, 金 炫兌, 小金井 真, 田辺 新一: 現場測定方法を用いた準揮発性有機化合物 (SVOC) の放散速度測定—一般住宅における床材・壁材からの SVOC 放散量の測定—, 日本建築学会中国支部研究発表会 (2022.3).
- 22) Kuga K, Sakamoto M, Wargocki P, Ito K: Numerical Investigation of Human CO₂ Emission in a Personalized Work Environment, Healthy Buildings 2021 (2021.6).
- 23) Muta R, Yoo SJ, Kim H, Matsumoto T, Ito K: Downscaling from material flow analysis to indoor CFD for health risk assessment associated with DEHP exposure, Healthy Buildings 2021 (2021.6).
- 24) Fan X, Sakamoto M, Shao H, Kuga K, Lan L, Ito K, Wargocki P: Human CO₂ emission rates during sleeping, Healthy Buildings 2021 (2021.6).
- 25) Khoa ND, Phuong NL, Takahashi K, Ito K: Computational Fluid Dynamics Application to Investigate Man-Made Vitreous Fibers Transporation and deposition in Realistic Human Respiratory System, Healthy Buildings America 2021 (2022.1).
- 26) Kizuka R, Khoa ND, Kuga K, Ito K: Particle Dispersion Analysis in a Numerical Airway Model Under Transient Breathing, Healthy Buildings America 2021 (2022.1).
- 27) Li H, Kuga K, Khoa ND, Ito K: Regional Deposition of Airborne SARS-CoV-2 Laden Droplets in the Upper Airway and Its Effects Using Host-Cell Dynamics, Healthy Buildings America 2021 (2022.1).
- 28) Sakamoto M, Kuga K, Ito K, Wargocki P: Numerical investigation of alveolus gas exchange for human CO₂ emission in the chamber experiment, Healthy Buildings America 2021 (2022.1).
- 29) Murota K, Hyodo S, Kang Y, Yoo SJ, Takenouchi K, Tanabe S, Ito K: Realistic Three-Dimensional Modeling of Clothing and Heat and Mass Transfer Analysis using Computational Fluid Dynamics Part 2: Clothing-Centered Hygrothermal-Chemical Transfer Analysis, Healthy Buildings America 2021 (2022.1).
- 30) Hyodo S, Murota K, Kang Y, Yoo SJ, Takenouchi K, Tanabe S, Ito K: Realistic Three-Dimensional Modeling of Clothing and Heat and Mass Transfer Analysis using Computational Fluid Dynamics Part 1: Development of Detailed 3D Clothing Model and Air Flow Analysis, Healthy Buildings America 2021 (2022.1).
- 31) Ma M, Yoo SJ, Ito K: Thermal comfort analysis coupled with computational fluid dynamics

- using computer simulated person, Healthy Buildings America 2021 (2022.1).
- 32) Kurokawa A, Yamauchi S, Yoo SJ, Ito K: Computational Fluid Dynamics analysis of flow and airborne particle dispersion in a transit bus cabin, Healthy Buildings America 2021 (2022.1).
- 33) Ito K: *In Silico* Modeling for Airborne Transmission of Inhaled Virus-Laden Droplets and Host Cell Dynamics in the Respiratory System, Keynote Speech, TSIEQ 2021 (2021.6).
- 34) Ito K, Integrated CFD and *In Silico* Modeling for Airborne Transmission Analysis in Indoor Environment, Keynote Speech, ISHVAC 2021 (2021.11).
- 35) Li H, Kuga K, Khoa ND, Ito K: Effects of Initial Conditions and Parameters on the Prediction of SARS-CoV-2 Viral Load in the Upper Respiratory Tract Based on Host-Cell Dynamics, 7th International Exchange and Innovation Conference on Engineering & Sciences (IEICES 2021) (2021.10).
- 36) Ito K: *In Silico* Human Model based Indoor Design for Healthy Environment, 2021 International Conference of Green Building and Low Carbon Technology (2021.10).
- 37) Ito K: Computer simulated person for predicting inhalation exposure and airborne infection, SCONNA 2022 (2022.1).
- 38) Ito K: *In Silico* Modeling for Airborne Transmission Analysis in Indoor Environment, IAQVEC Webiner (2022.3).
- 39) Azuma K: Indoor air quality and health effects in Japanese modern office buildings. the 33rd International Congress on Occupational Health 2022, Special Session: Indoor air quality in modern office buildings, Global digital congress (2022.2).
- 40) 大嶋 直浩, 高木 規峰野, 酒井 信夫, 五十嵐 良明: マイクロチャンバー及び加熱脱離 GC/MS による穀物由来揮発性有機化合物のメタボローム解析, 日本食品化学学会第 28 回学術大会 (2022.5).
- 41) 酒井 信夫: 質量分析法を用いた標準試験法の必要条件: レギュラトリーサイエンス研究に基づく信頼性と汎用性とサステナビリティ, 第 70 回質量分析総合討論会 (2022.6).
- 42) 森 葉子, 井上 凌子, 青木 明, 岡本 誉士典, 大嶋 直浩, 田原 麻衣子, 酒井 信夫, 香川 (田中) 聡子, 神野 透人: TVOC のデコンポリューション解析による室内空気汚染化学物質の探索, 第 68 回日本薬学会東海支部総会・大会 (2022.7).
- 43) 大嶋 直浩, 河上 強志, 高橋 夏子, 高木 規峰野, 小濱 とも子, 田原 麻衣子, 酒井 信夫, 五十嵐 良明: マスクの規格改定を指向した揮発性有機化合物の実態調査, 第 8 回次世代を担う若手のためのレギュラトリーサイエンスフォーラム (2022.8).
- 44) 大嶋 直浩, 高橋 夏子, 高木 規峰野, 小濱 とも子, 河上 強志, 酒井 信夫, 五十嵐 良明: 家庭用マスクから放散される揮発性有機化合物, フォーラム 2022 衛生薬学・環境トキシコロジー (2022.8).
- 45) 香川 (田中) 聡子, 酒井 信夫, 神野 透人: 室内空気中総揮発性有機化合物 (TVOC) に関する最新の動向, 第 63 回大気環境学会年会 (2022.9).
- 46) Azuma K, Jinno H, Tanaka-Kagawa T, Sakai S: Hazard and risk assessment for indoor air pollutants: dimethylsiloxanes, glycols, butanediol, hydrocarbons, trimethylbenzenes, benzene, naphthalene, and ethyltoluene, 34th Annual Conference of the International Society for Environmental Epidemiology (2022.9).
- 47) 大嶋 直浩, 高木 規峰野, 高橋 夏子, 酒井 信夫, 五十嵐 良明, 千葉 真弘, 柴田 学, 岩館 樹里, 後藤 吉乃, 佐藤 智子, 田中 智子, 大

- 竹 正芳, 角田 徳子, 上村 仁, 田中 礼子, 高居 久義, 中村 雄介, 堀井 裕子, 望月 映希, 伊藤 彰, 山本 優子, 大野 浩之, 藤本 恭史, 吉田 俊明, 古市 裕子, 八木 正博, 伊達 英代, 谷脇 妙, 松本 弘子, 吉村 裕紀, 前田 美奈子: 令和3年度 室内空気環境汚染に関する全国実態調査, 第59回全国衛生化学技術協議会年会 (2022.10).
- 48) 酒井信夫:ヘリウムガス供給不足に対する国立衛研の対応, 第59回全国衛生化学技術協議会年会 (2022.10).
- 49) 千葉 真弘, 兼俊 明夫, 大泉 詩織, 田原 麻衣子, 大嶋 直浩, 酒井 信夫:室内空気中の揮発性有機化合物 (VOCs) 分析における除湿管の影響, 2022年室内環境学会学術大会 (2022.12).
- 50) 大嶋 直浩, 田原 麻衣子, 酒井 信夫, 五十嵐 良明:一般居住住宅における室内空気質に関する全国実態調査, 2022年室内環境学会学術大会 (2022.12).
- 51) 森 葉子, 香川 (田中) 聡子, 田原 麻衣子, 河上 強志, 青木 明, 岡本 誉士典, 磯部 隆史, 大河原 晋, 埴岡 伸光, 東 賢一, 酒井 信夫, 神野 透人:2-Ethyl-1-hexanol, Texanol および TXIB による侵害刺激の種差に関する研究, 2022年室内環境学会学術大会 (2022.12).
- 52) 高木 規峰野, 大嶋 直浩, 田原 麻衣子, 酒井 信夫, 五十嵐 良明:GC-MS/MSを用いた室内空気中殺虫剤の分析, 日本薬学会第143年会 (2023.3).
- 53) 大嶋 直浩, 高木 規峰野, 酒井 信夫, 五十嵐 良明:機能性繊維製品から放散する揮発性有機化合物の GC/MS 分析に用いるキャリアガスの比較, 日本薬学会第143年会 (2023.3).
- 54) 森 葉子, 青木 明, 岡本 誉士典, 磯部 隆史, 大河原 晋, 埴岡 伸光, 香川 (田中) 聡子, 神野 透人:フタル酸エステル類の動物種特異的な生体影響に関する研究:TRPA1 活性化の種差を生じるタンパク質構造の解明, フォーラム 2022:衛生薬学・環境トキシコロジー (2022.9).
- 55) 吉富 太一, 西 以和貴, 田原 麻衣子, 仲野 富美:室内空気におけるフェノール系内分泌かく乱物質の一斉分析法について, 日本薬学会第143年会 (2023.3).
- 56) 小池 加那子, 中嶋 康一郎, 河村 伊久雄, 三浦 伸彦, 森 葉子, 磯部 隆史, 大河原 晋, 埴岡 伸光, 神野 透人, 香川 (田中) 聡子:Vitamin D 代謝酵素のヒト組織における発現とその個体差, 第49回日本毒性学会学術年会 (2022.6).
- 57) 堤 亜里紗, 小林 叶奈, 河村 伊久雄, 三浦 伸彦, 森 葉子, 磯部 隆史, 大河原 晋, 埴岡 伸光, 神野 透人, 香川 (田中) 聡子:SARS-CoV-2 感染に関する生体内因子のヒト気道組織中での発現とその個体差, フォーラム 2022 衛生薬学・環境トキシコロジー (2022.9).
- 58) 高橋 直也, 中嶋 康一郎, 河村 伊久雄, 三浦 伸彦, 森 葉子, 磯部 隆史, 大河原 晋, 埴岡 伸光, 神野 透人, 香川 (田中) 聡子:気道過敏性に関する生体内因子のヒト気道組織中での発現と個体差, 第66回日本薬学会関東支部大会 (2022.9).
- 59) 中嶋 康一郎, 高橋 直也, 河村 伊久雄, 三浦 伸彦, 森 葉子, 磯部 隆史, 大河原 晋, 埴岡 伸光, 神野 透人, 香川 (田中) 聡子:GLP-1 受容体のヒト組織における発現とその個体差, 第66回日本薬学会関東支部大会 (2022.9).
- 60) 小池 加那子, 中嶋 康一郎, 河村 伊久雄, 三浦 伸彦, 森 葉子, 磯部 隆史, 大河原 晋, 埴岡 伸光, 神野 透人, 香川 (田中) 聡子:ヒト組織における Vitamin D 代謝酵素及びVDR の発現と個体差, 第66回日本薬学会関東支部大会 (2022.9).
- 61) 小林 叶奈, 堤 亜里紗, 河村 伊久雄, 三浦 伸彦, 森 葉子, 磯部 隆史, 大河原 晋, 埴岡 伸光, 神野 透人, 香川 (田中) 聡子:SARS-CoV-2 感染に関する生体内因子のヒト組織中での発現とその個体差, 第66回日本薬学会関東

- 支部大会 (2022.9).
- 62) 中向井 璃奈, 浦島 桃香, 森 葉子, 礒部 隆史, 大河原 晋, 河村 伊久雄, 三浦 伸彦, 北川 康行, 埴岡 伸光, 神野 透人, 香川(田中) 聡子: Isothiazolinone 系抗菌薬によるヒト TRPA1 活性化の *in silico* 分子機構解析, 日本薬学会第 143 年会 (2023.3).
- 63) 赤松 奈美, 池内 宏維, 稲坂 まりな, 小野田 亮介, 松尾 和弥, 田崎 未空, 菅野 颯馬, 金 炫兌, 田辺新一: 木材表面へのアルコール清拭が VOC 放散量および知覚空気質に与える影響 第一報 実験概要と化学物質分析の測定結果, 2022 年度日本建築学会大会学術講演会 (2022.9).
- 64) 池内 宏維, 赤松 奈美, 稲坂 まりな, 小野田 亮介, 松尾 和弥, 田崎 未空, 菅野 颯馬, 金 炫兌, 田辺新一: 木材表面へのアルコール清拭が VOC 放散量および知覚空気質に与える影響 第二報 被験者実験による臭気評価, 2022 年度日本建築学会大会学術講演会 (2022.9).
- 65) 田崎 健悟, 金 炫兌, 小金井 真, 益崎 慶人, 田辺 新一: 一般住宅における床材・壁材からの SVOC 放散量の測定, 2022 年度日本建築学会大会学術講演会 (2022.9).
- 66) 益崎 慶人, 田辺 新一, 小金井 真, 金 炫兌: 実空間モデル内における可塑剤からの SVOC 放散挙動に関する実験, 令和 4 年度空気調和・衛生工学会大会 (2022.9).
- 67) Kizuka R, Kuga K, Ito K: Regional deposition of inhaled nano-to-microscale particle in realistic upper respiratory tract under steady and transient breathing conditions, 5th International Conference on Building Energy and Environment (2022.7).
- 68) Li H, Kuga K, Ito K: SARS-CoV-2 infection dynamics integrated with mucociliary transport in human upper airway, 5th International Conference on Building Energy and Environment (2022.7).
- 69) Khoa ND, Ito K: Regional deposition characteristics of fibrous particles compared to spherical particles in human upper airway – *in silico* case study, 5th International Conference on Building Energy and Environment (2022.7).
- 70) Kuga K, Ito K: Integrated Modeling of CO₂ Transport from Indoor to Alveolar Region for Elucidating Human CO₂ Emission Mechanism, 5th International Conference on Building Energy and Environment (2022.7).
- 71) Nishihara T, Kuga K, Ito K: Numerical investigation of cough droplets dispersion dynamics in indoor environment: Effect of oral cavity shape, 5th International Conference on Building Energy and Environment (2022.7).
- 72) Hoshiyama S, Kuga K, Ito K: Formation of Acetone concentration distribution around breathing zone and transport efficiency to olfactory epithelium cells, 5th International Conference on Building Energy and Environment (2022.7).
- 73) Muta R, Ito K: Numerical investigation of pollutant capture and ventilation efficiencies in laboratory fume hood, Indoor Air 2022 (2022.6).
- 74) Kuga K, Wargocki P, Ito K: Impact of room temperature on human carbon dioxide emission rates at different physical activity levels, Indoor Air 2022 (2022.6).
- 75) Wargocki P, Sakamoto M, Fan X, Kuga K, Ito K, Williams J, Beko G, CO₂ emission rates from humans when sleeping and awake. Impact of environmental factors and age, Indoor Air 2022 (2022.6).
- 76) Lim E, Tanaka H, Ito K: Preliminary Investigation of Indoor Microplastic Concentrations in house dust in Japanese Residential Houses, Indoor Air 2022 (2022.6).
- 77) Li H, Kuga K, Ito K: Infection dynamics of

- SARS-CoV-2 in musus later of the human nasal cavity-nasopharynx, Roomvent 2022 (2022.9).
- 78) Hyodo S, Murota K, Yoo SJ, Ito K: Development of three-dimensional clothing model for computer simulated person integrated with thermoregulation model, Roomvent 2022 (2022.9).
- 79) Khoa ND, Ito K: Computational analysis of ultrafine and fine particle deposition mechanisms in human lower airway, The 13th Asian Computational Fluid Dynamics Conference (2022.10).
- 80) Fernandez KB, Ikegaya N, Ito K: Large Eddy Simulation of Flow and Concentration Distributions in an Indoor Space Surrounded by Urban-like Block Arrays, The 13th Asian Computational Fluid Dynamics Conference (2022.10).
- 81) Muraga A, Ito K, Tsubokura M: Using CFD to develop a virtual human manikin for infection risk assessment, The 13th Asian Computational Fluid Dynamics Conference (2022.10).
- 82) Park HG, Yoo SJ, Sumiyoshi E, Harashima H, Ito K: Indoor Thermal Comfort Assessment Using CFD-CSP Hybrid Analysis, The 13th Asian Computational Fluid Dynamics Conference (2022.10).
- 83) Hyodo S, Yoo SJ, Ito K: Three-Dimensional Modeling and Computational Fluid Dynamics Analysis for Ventilation in Clothing, The 13th Asian Computational Fluid Dynamics Conference (2022.10).
- 84) Khoa ND, Phuong NL, Ito K: Numerical Investigation of Fine particle Transportation and Deposition in the Human Lower Airway: Impact of airflow and particle size on deposition efficiency, The 8th International Exchange and Innovation Conference on Engineering & Sciences (2022.10).
- 85) Azuma K: Indoor air quality and health effects in modern office buildings, 16th international conference on indoor air quality and climate (2022.6).
- 86) 東 賢一：室内空気環境対策総論－室内環境における健康リスク要因とその対策について－，第 32 回日本産業衛生学会全国協議会シンポジウム：新型コロナウイルス感染症と室内空気環境対策 (2022.9).
- 87) 大嶋 直浩, 高木 規峰野, 酒井 信夫, 五十嵐 良明: シリコン含有製品から放散するシロキサン類の GC-MS/MS 分析, 第 31 回環境化学討論会 (2023.5) .
- 88) 吉富 太一, 西 以和貴, 田原 麻衣子, 大嶋 直浩, 仲野 富美, 上村 仁, 酒井 信夫: GC-MS/MS を利用した室内空気におけるフェノール系内分泌かく乱物質の一斉分析法について, 第 31 回環境化学討論会 (2023.5) .
- 89) Kenichi AZUMA, Hideto JINNO, Toshiko TANAKA-KAGAWA, Shinobu SAKAI: Hazard and risk assessment for indoor air pollutants: alicyclic compound, 1-butanol, long-chain aldehydes, chlorinated organic compounds, and acrolein, 35th Annual Conference of the International Society for Environmental Epidemiology (2023.9).
- 90) 大嶋 直浩, 高木 規峰野, 酒井 信夫, 五十嵐 良明, 大泉 詩織, 岩館 樹里, 今野 鈴子, 大槻 良子, 草原 紀子, 大竹 正芳, 角田 徳子, 上村 仁, 田中 礼子, 高居 久義, 渡邊 好介, 堀井 裕子, 望月 映希, 羽田 好孝, 山本 優子, 若山 貴成, 小寺 明, 吉田 俊明, 古市 裕子, 八木 正博, 伊達 英代, 高木 春佳, 島田 友梨松, 松永 尚子, 田崎 盛也: 令和 4 年度 室内空気環境汚染に関する全国実態調査第 60 回全国衛生化学技術協議会年会 (2023.11) .
- 91) 吉富 太一, 西 以和貴, 田原 麻衣子, 仲野 富美, 上村 仁, 酒井 信夫: 室内空気におけるアルキルフェノール類, ビスフェノール類の実態

- 調査, 第 60 回全国衛生化学技術協議会年会 (2023.11) .
- 92) 酒井 信夫: 室内空气中化学物質の規制に関する最新情報, 第 60 回全国衛生化学技術協議会年会 (2023.11) .
- 93) 田原 麻衣子, 大貫 文, 角田 徳子, 大泉 詩織, 千葉 真弘, 酒井 信夫, 五十嵐 良明: VOC およびフタル酸エステル類の分析におけるカーボン系捕集管の適用の検討, 2023 年室内環境学会学術大会 (2023.11) .
- 94) 大嶋 直浩, 高木 規峰野, 酒井 信夫, 五十嵐 良明: 一般居住住宅における室内空气中ホルムアルデヒド及びアセトアルデヒドの全国実態調査, 2023 年室内環境学会学術大会 (2023.11) .
- 95) 吉富 太一, 西 以和貴, 田原 麻衣子, 上村 仁, 酒井 信夫: 室内濃度指針値が設定された準揮発性有機化合物の一斉分析法について, 地方衛生研究所全国協議会関東・甲・信・静地区理化学研究部会 (2024.2) .
- 96) 大貫 文, 田原 麻衣子, 酒井 信夫, 高木 規峰野, 田中 礼子, 村木 沙織, 斎藤 育江, 千葉 真弘, 大泉 詩織, 大野 浩之, 若山 貴成, 鈴木 浩, 鳥羽 陽, 中島 大介, 藤森 英治, 香川 (田中) 聡子, 神野 透人: 空気試験法: フタル酸ジ-n-ブチルおよびフタル酸ジ-2-エチルヘキシル 固相吸着-加熱脱離-ガスクロマトグラフィー/質量分析法による定量 (新規), 日本薬学会第 144 年会 (2024.3) .
- 97) 香川 (田中) 聡子, 森 葉子, 田原 麻衣子, 大河原 晋, 磯部 隆史, 大貫 文, 鈴木 浩, 鳥羽 陽, 中島 大介, 藤森 英治, 埴岡 伸光, 酒井 信夫, 神野 透人: 空気試験法: 総揮発性有機化合物 (新規), 日本薬学会第 144 年会 (2024.3) .
- 98) 吉富 太一, 西 以和貴, 田原 麻衣子, 仲野 富美, 上村 仁, 酒井 信夫: 室内環境中のハウスダストにおけるアルキルフェノール類とビスフェノール類の抽出及び精製法の検討と住宅における実態調査, 日本薬学会第 144 年会 (2024.3) .
- 99) 宮崎 悠里奈, 大河原 晋, 河村 伊久雄, 三浦 伸彦, 森 葉子, 磯部 隆史, 埴岡 伸光, 神野 透人, 香川 (田中) 聡子: *in vitro* 及び *in silico* 手法を用いる isothiazolinone 系抗菌薬による TRPV1 活性化評価, 第 50 回日本毒性学会学術年会 (2023.6) .
- 100) 浦島 桃香, 中向井 璃奈, 宮崎 悠里奈, 大河原 晋, 森 葉子, 河村 伊久雄, 三浦 伸彦, 磯部 隆史, 埴岡 伸光, 神野 透人, 香川 (田中) 聡子: SARS-CoV-2 感染に関する生体内因子のヒト気道組織中での発現とその個体差, フォーラム 2023 衛生薬学・環境トキシコロジー (2023.9) .
- 101) 古田 貴大, 林 暁翔, 白畑 辰弥, 上野 朱璃, 中森 俊輔, 金井 智久, 川端 雄資, 宇津木 貴子, 香川(田中) 聡子, 神野 透人, 小林 義典: TRPV1 構造活性相関解明に向けた 7 位,10 位 - Evodiamine 誘導体の不斉合成研究, 日本薬学会第 144 年会 (2024.3) .
- 102) 宮崎 悠里奈, 大河原 晋, 森 葉子, 磯部 隆史, 北川 康行, 埴岡 伸光, 神野 透人, 香川 (田中) 聡子: イソチアゾリノン系抗菌剤によるヒト TRPV1 活性化の *in vitro* 及び *in silico* 評価, 日本薬学会第 144 年会 (2024.3) .
- 103) 沖野 優衣, 高橋 美優, 森 葉子, 大河原 晋, 北川 康行, 波多江 典之, 磯部 隆史, 埴岡 伸光, 神野 透人, 香川 (田中) 聡子: 香料アレルゲンによるヒト TRPA1 活性化 - *in vitro* 及び *in silico* 評価 -, 日本薬学会第 144 年会 (2024.3) .
- 104) 高橋 美優, 沖野 優衣, 森 葉子, 大河原 晋, 北川 康行, 波多江 典之, 磯部 隆史, 埴岡 伸光, 神野 透人, 香川 (田中) 聡子: EU 化粧品規制における新規義務表示香料成分による TRPA1 活性化の *in silico* 評価, 日本薬学会第 144 年会 (2024.3) .
- 105) Akamatsu N, Inasaka M, Ikeuchi K, Sugano S, Kim H, Tanabe S: Effect of Applying Alcohol

- to Wooden Surfaces on VOC Emissions and Perceived Air Quality. 18th Healthy Buildings Europe Conference (2023.6).
- 106) 富田 奈歩, 赤松 奈美, 池内 宏維, 深和 佑太, 金 炫兌, 田辺 新一: 含有物質の異なる天然系塗料の木材への塗布が室内空気質に与える影響, 令和5年度空気調和・衛生工学会大会 (2023.9) .
- 107) 赤松 奈美, 富田 奈歩, 池内 宏維, 深和 佑太, 金 炫兌, 田辺 新一: 木材へのアルコールの塗布・噴霧が VOC 放散量および知覚空気質に与える影響 (第3報) 塗装木材へのアルコール塗布によるチャンバー実験結果, 令和5年度空気調和・衛生工学会大会 (2023.9) .
- 108) 富田 奈歩, 赤松 奈美, 池内 宏維, 新納 稔樹, 田崎 未空, 深和 佑太, 金 炫兌, 田辺 新一: 天然系塗料の木材表面への塗布が VOC 放散量および知覚空気質に与える影響 (第1報) 実験概要と化学物質分析の測定結果, 2023年度日本建築学会大会 (2023.9) .
- 109) 赤松 奈美, 富田 奈歩, 池内 宏維, 新納 稔樹, 田崎 未空, 深和 佑太, 金 炫兌, 田辺 新一: 天然系塗料の木材表面への塗布が VOC 放散量および知覚空気質に与える影響 (第2報) 被験者実験による臭気評価結果, 2023年度日本建築学会大会 (2023.9) .
- 110) 金 炫兌: 家電製品表面からの SVOC 放散速度測定, 2023年室内環境学会学術大会 (2023.11) .
- 111) 熊谷 功誠, 富久 歩真, 金 炫兌: PVC床材における SVOC 物質の放散量と表面ブリードアウト量に関する研究, 日本建築学会九州支部研究会 (2024.3) .
- 112) 山口 千尋, 金 炫兌: 家具・家電製品における SVOC 放散速度測定, 日本建築学会九州支部研究会 (2024.3) .
- 113) Khoa ND, Phuong NL, Ito K. Investigation of ultrafine particle deposition in human airway to the 9th generation of bronchial tubes using computational fluid and particle dynamics, IAQVEC 2023 (2023.5).
- 114) Li H, Kuga K, Ito K: Parameter Optimization of a Viral Dynamics Model in the Mucus Layer of the Human Nasal Cavity-Nasopharynx Based on Computational Fluid-Particle and Host-Cell Dynamics, IAQVEC 2023 (2023.5).
- 115) Nishihara T, Kuga K, Ito K: Computational fluid and particle dynamics simulation of airborne transmission in indoor environment – Effect of physical distance from infected person, IAQVEC 2023 (2023.5).
- 116) Park HG, Yoo SJ, Sumiyoshi E, Harashima H, Ito K; Numerical Thermal Comfort Analysis Using Combined Computer-Simulated Person with Clothing and Multi-Node Thermoregulation Model, IAQVEC 2023 (2023.5).
- 117) Khoa ND, Phuong NL, Ito K: Large Eddy Simulation of Airflow Patterns in the Human Upper and Lower Airway Up To the 16th Generation: A Comparison Study, Healthy Building 2023 Asia and Pacific Rim (2023.7).
- 118) Li H, Kuga K, Ito K: Host Cell Dynamics model development and specific parameterization for 3D upper respiratory tract model coupled with CFPD analysis, Healthy Building 2023 Asia and Pacific Rim (2023.7).
- 119) Hirayama T, Yamasawa H, Kuga K, Ito K: Effect of turbulent inlet boundary conditions on pollutant emissions and dispersion in an indoor environment, Healthy Building 2023 Asia and Pacific Rim (2023.7).
- 120) Kuga K, Ito K: Aspiration probability and resulting airway deposition of indoor particles during steady and transient breathings, Healthy Building 2023 Asia and Pacific Rim (2023.7).
- 121) Murga A, Ito K, Tsubokura M: Rethinking

different ventilation strategies in a post-pandemic era: a CFD assessment, 43rd AIVC conference (2023.10).

- 122) Khoa ND, Kuga K, Ito K: Numerical Prediction of Respiratory Droplet Generation from Coughing Using Discrete phase-coupled Eulerian Wall Film Model, ICNAA 2023 (2023.6).
- 123) Abouelhamd I, Yoo SJ, Kuga K, Ito K. Numerical prediction of particle breathing zone in a semi-outdoor environment, ICNAA 2023 (2023.6).
- 124) Ito K: Ventilation Efficiency and Infection Control – *in silico* Human Modelling Study, International Symposium on Urban Sustainability (2023.11).
- 125) 東 賢一:室内環境における健康影響問題の経緯と近年の動向, 大気環境総合センター令和5年度特別セミナー (2023.11)
- 126) 東 賢一: 空気成分の指針動向, 2023 年室内環境学会学術大会車室内環境分科会セミナー (2023.11) .

G. 知的財産権の取得状況

1. 特許取得

なし

2. 実用新案登録

なし

3. その他

なし

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）
総合研究報告書

室内空気環境汚染化学物質の標準試験法の策定およびリスク低減化に関する研究

室内濃度指針値代替化学物質の標準試験法の開発

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	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	主任研究官
研究協力者	田中 礼子	横浜市衛生研究所	理化学検査研究課	医務職員
研究協力者	村木 沙織	横浜市衛生研究所	理化学検査研究課	技術職員
研究協力者	大嶋 直浩	国立医薬品食品衛生研究所	生活衛生化学部	主任研究官
研究協力者	高木規峰野	国立医薬品食品衛生研究所	生活衛生化学部	研究助手
研究協力者	高橋 夏子	国立医薬品食品衛生研究所	生活衛生化学部	研究補助員
研究協力者	高橋 文子	国立医薬品食品衛生研究所	生活衛生化学部	研究補助員

【1年目：令和3(2021)年度】

ガスクロマトグラフィー質量分析法 (GC/MS) のキャリアーガスにはヘリウムが汎用されているが、昨今の世界的な供給不足により、ヘリウム代替ガスを用いた標準試験法の開発が求められている。本研究では、室内空气中揮発性有機化合物(VOC)の標準試験法に水素及び窒素が適用できるかどうか検討した。キャリアーガス毎の検出限界・定量限界を検証するために標準品のピーク面積及びシグナルノイズ比を比較した結果、ヘリウムの感度が最も高く、水素、窒素と続いた。いずれのキャリアーガスを用いた測定においても 0.1–100 µg/mL の濃度範囲で概ね良好な直線性を示し、室内濃度指針値の 1/100 程度まで定量分析することが可能であったことから、GC/MS を用いた室内空气中 VOC の標準試験法に水素もしくは窒素が適用できることが示された。

【2年目：令和4(2022)年度】

新型コロナウイルス感染症対策として手指消毒用アルコールの使用が励行され、室内空气中のエタノール濃度が増加している。本研究は、2-Ethyl-1-hexanol (2E1H), 2,2,4-Trimethyl-1,3-pentanediol monoisobutyrate (TMPD-MIB), 2,2,4-Trimethyl-1,3-pentanediol diisobutyrate (TMPD-DIB) の測定において、室内におけるエタノール濃度が影響を及ぼすかどうか検証した。加熱脱離 (TD) 法ではエタノール濃度の違いによる回収率の差異は認められなかった。一方、溶媒抽出 (SE) 法ではエタノール高濃度条件下、2E1H と TMPD-MIB の回収率が高くなり、これらの測定に室内におけるエタノール濃度が影響を及ぼす可能性が考えられた。SE 法に使用されるカーボンビーズアクティブ捕集管は、高湿度下におけるアルコール類の回収率が低下することから、室内におけるエタノール濃度以外にも湿度が測定に影響を及ぼす可能性が考えられた。

【3年目：令和5(2023)年度】

「室内空气中化学物質の測定マニュアル」に掲載されるトルエン、*o*-, *p*-, *m*-キシレン及び *p*-ジクロロベンゼン等揮発性有機化合物の測定方法 第2報 固相吸着-加熱脱離-ガスクロマトグラフィー/質量分析法には、測定対象となる VOC を捕集するための捕集管がいくつか例示されている。本研究では、Carbotrap™-217 捕集管を用いて、室内濃度指針値策定物質および室内濃度指針値代替化学物質を含む 53 物質の測定に関し、検量線の妥当性評価を実施した。作成した検量線のうち、妥当性評価の結果が最も良好であったものは「5-50 ng の 4 点検量線 (定量範囲 5-50 ng), 重み付け有」であり、2E1H, TMPD-MIB, TMPD-DIB の測定に適用可能であることが明らかになった。

A. 目的

我々はこれまでに、室内空气中揮発性有機化合物(VOC)を測定するためのガスクロマトグラフィー質量分析法(GC/MS)を用いた標準試験法を開発し、国内・国際規格化を推進してきた。GC/MSを用いた測定のキャリアガスにはヘリウムが汎用されている。わが国ではヘリウムを産出することが出来ないため、その全量を輸入に依存している。ヘリウムの産出国は限定されており、原産国の備蓄制限や生産量が不安定であること、半導体デバイス製造や医療機器分野における需要拡大等が世界的な供給不足に拍車をかけている。上述の背景に加え、将来的に安定的なヘリウム供給が期待できないことから、代替キャリアガスを用いた試験法の開発が急務となっている。本研究では、ヘリウム代替キャリアガスとして、水素及び窒素を用いた試験法を開発し、その定量性について確認した。

新型コロナウイルス感染症の蔓延以来、感染防止対策として手指や什器などのアルコール消毒が励行されるようになった。これに伴い、室内空气中のエタノール濃度は新型コロナウイルス感染症蔓延以前よりも増加していることは想像に難くない。本研究は、Toluene, Xylene, Ethylbenzene,

Styrene, 1,4-Dichlorobenzene, *n*-Tetradecane の室内濃度指針値策定物質および 2-Ethyl-1-hexanol (2E1H), 2,2,4-Trimethyl-1,3-pentanediol monoisobutyrate (TMPD-MIB), 2,2,4-Trimethyl-1,3-pentanediol diisobutyrate (TMPD-DIB)の測定に室内におけるエタノール濃度が影響を及ぼすかどうか検証するために添加回収試験を行った。

「室内空气中化学物質の測定マニュアル(室内空气中化学物質の採取方法と測定方法)」に掲載されるトルエン、*o*-, *p*-, *m*-キシレン及び *p*-ジクロロベンゼン等揮発性有機化合物の測定方法 第2報 固相吸着-加熱脱離-ガスクロマトグラフィー/質量分析法には、測定対象となる VOC 類を捕集するための捕集管がいくつか例示されている。本研究では、Carbotrap™-217 捕集管 (Or217 捕集管)を用いて、Toluene, Xylene, Ethylbenzene, Styrene, 1,4-Dichlorobenzene, *n*-Tetradecane の室内濃度指針値策定物質、および 2E1H, TMPD-MIB, TMPD-DIB を含む VOC 類 53 物質の測定に関し、真度・併行精度・キャリアオーバーに関する検量線の妥当性評価を実施した。

B. 方法

GC/MS 測定におけるヘリウム代替キャリアガ

スの検討

1. 測定対象物質

本研究における検討対象物質は、室内濃度指針値が設定されている Toluene, Xylene, Ethylbenzene, Styrene, 1,4-Dichlorobenzene, *n*-Tetradecane の 6 物質とした。内部標準物質には Toluene-*d*₈ 標準品を用いた。

2. 装置

GC-MS: Agilent 5977B GC/MSD システム

多機能オートサンブラ: PAL3 RSI

高純度水素ガス発生装置: NM-Plus 160

3. GC/MS 分析条件の検討

ヘリウムをキャリアガスとした測定では Rtx[®]-1 (0.32 mm i.d. x 60 m, 膜厚 1 μm) を、窒素及び水素をキャリアガスとした測定では Rxi[®]-1ms (0.25 mm i.d. x 60 m, 膜厚 1 μm) を用いて分析した。

室内におけるエタノール濃度が室内空气中揮発性有機化合物の測定に及ぼす影響について

1. 室内空气中のエタノールの分析

室内空气中のエタノールは Or217 捕集管を用いた加熱脱離 (TD) 法で測定し、水道水質検査方法の妥当性評価ガイドラインに基づく検量線の評価を行い、定量下限値と検出限界値を算出した。

2. 加熱脱離 (TD) 法および溶媒抽出 (SE) 法を用いた VOC 類の検量線の評価

室内空气中の VOC 類は、TenaxTA 捕集管を用いた TD 法およびカーボンビーズアクティブ捕集管を用いた SE 法で測定し、水道水質検査方法の妥当性評価ガイドラインに基づく検量線の評価を行い、定量下限値と検出限界値を算出した。

3. 室内空气中のエタノール濃度の違いによる VOC 類の回収率の比較

冬季と夏季の 2 回にわたり、それぞれ連続した

2 日間に VOC 類の添加回収試験を実施した。添加回収試験は TD 法および SE 法を同時併行で行い、横浜市内の会議室において室内空気を捕集した。冬季・夏季とも 1 日目は通常状態における VOC 類の回収率を測定した。2 日目は会議室内の机上に 80% (v/v) エタノール水溶液を数回噴霧することにより室内空气中にエタノールが揮散した状態を作り出した上で、1 日目と同様に VOC 類の回収率を測定した。添加回収試験の際には室内空气中のエタノール濃度を測定し、その結果と VOC 類の回収率とを比較することで、室内におけるエタノール濃度が VOC 類の測定に及ぼす影響を検証した。

CarbotrapTM-217 捕集管を用いた TD 法による VOC 類検量線の検証

1. 試薬および試料

VOC 類は Indoor Air Standard (VOC 50 mix : 各 100 μg/mL メタノール溶液), 2E1H, TMPD-MIB, TMPD-DIB 標準品を用いた。内部標準物質は内部標準ガス (C₇H₈-*d*₈・C₆H₅F・C₆H₅Cl-*d*₅ 各 1 ppm / N₂), 希釈溶媒はメタノール (残留農薬・PCB 測定用 5000 倍濃縮検定品) を用いた。

2. 検量線の作成

VOC 50 mix 検量線

氷冷下 VOC 50 mix をメタノールで段階的に希釈し、2–50 μg/mL の 50 mix 標準系列を調製した。続いて、窒素通気下にて予めクリーンアップした Or217 捕集管に 50 mix 標準系列を 1 μL 添加し、1 分 20 秒間窒素を通気後、DiffLokTM Cap にて密栓した。各検量線用試料に添加される VOC 50 mix の物質量は 2, 5, 10, 20, 50 ng となる。TD-GC/MS を用いて VOC 50 mix 検量線用試料を測定し、得られた測定対象物質のピーク面積値と内部標準物質 Toluene-*d*₈ のピーク面積値を求め、これらの面積比と検量線用試料に含まれる測定対象物質の重量から VOC 50 mix 検量線を作成した。

VOC 3 mix 検量線

メスフラスコに 2E1H を 1.0 g 量り取り、メタノールを加えて 100 mL に定容し、10 mg/mL の 2E1H 標準原液を調製した。同様に TMPD-MIB および TMPD-DIB についても標準原液を調製した。さらに、これら 3 種の標準原液を一定量分取し、混合してメタノールで希釈し、2E1H, TMPD-MIB, TMPD-DIB を各 100 µg/mL 含有する混合標準液 (3 mix 混合標準液) を調製した。氷冷下 3 mix 混合標準液をメタノールで段階的に希釈し、2, 5, 10, 20, 50 µg/mL の 3 mix 標準系列を調製した。続いて、窒素通気下にて予めクリーンアップした Or217 捕集管に 3 mix 標準系列を 1 µL 添加し、1 分 20 秒間窒素を通気後、DiffLok™ Cap にて密栓した。各検量線用試料に添加される VOC 3 mix の物質量は 2, 5, 10, 20, 50 ng となる。TD-GC/MS を用いて VOC 3 mix 検量線用試料を測定し、得られた測定対象物質のピーク面積値と内部標準物質 Toluene-*d*₈ のピーク面積値を求め、これらの面積比と検量線用試料に含まれる測定対象物質の重量から VOC 3 mix 検量線を作成した。なお、TMPD-MIB については各異性体のピーク面積を合算した後、同様に検量線を作成した。

3. ブランク試料の分析

予めクリーンアップした Or217 捕集管をブランク試料として、TD-GC/MS にて測定を行った。得られた測定対象物質のピーク面積値と内部標準物質 Toluene-*d*₈ のピーク面積値を求め、これらの面積比と VOC 50 mix 検量線あるいは VOC 3 mix 検量線からブランク試料に含まれる測定対象物質の重量を算出した。

4. 分析装置および条件

TD 条件 (Or217 捕集管の分析条件)

- ・ TD 装置 : TD100-xr
- ・ 捕集管加熱温度 : 340°C
- ・ 捕集管パージ時間 : 10 分
- ・ 捕集管パージ流量 : 50 mL/分

- ・ キャリヤーガス : He
- ・ トラップ管 : General Purpose Carbon Cold Trap
- ・ トラップ冷却温度 : -20°C
- ・ トラップ加熱温度 : 320°C
- ・ ライン温度 : 250°C
- ・ TD スプリット比 : 10

GC/MS 条件

- ・ GC/MS 装置 : JMS-Q1500GC
- ・ カラム : VF-1MS 60 m × 0.25 mm × 1.0 µm
- ・ 昇温条件 : 35°C (6 分) → 3°C/分 → 100°C (0 分) → 8°C/分 → 250°C (3 分) → 20°C/分 → 300°C (0 分)
- ・ 注入モード : 全量注入
- ・ カラムコントロール : Constant Flow
- ・ 注入量 : 2 mL/分
- ・ イオン源温度 : 250°C
- ・ インターフェイス温度 : 250°C
- ・ 測定モード : Scan 測定

C. 結果および考察

GC/MS 測定におけるヘリウム代替キャリアガスの検討

1. クロマトグラムの比較

いずれのキャリアガスにおいても定性・定量分析に問題ない良好な分離能を有することが明らかになった。

2. シグナル強度及びシグナルノイズ比の比較

水素を用いた際のシグナル強度は、ヘリウムと比較して 1.7~2.6 倍と高く、窒素を用いた際のシグナル強度は、ヘリウムと比較して 1.1~1.7 倍と高かった。他方、シグナルノイズ比 (S/N 比) については、水素はヘリウムと比較して 6.8~40.1% 低く、窒素はヘリウムと比較して 2.1~8.9% と顕著に低かった。水素、窒素がヘリウムよりもシグナル強度が高かったにも関わらず、S/N 比が大幅に低かった原因として、高いノイズ強度が影響したと考えられる。また、窒素で極端に感度が低下

した原因として、窒素がイオン源において選択的に除去されず、分析部に導入されたことが考えられた。

3. 検量線の直線性の比較

ヘリウム及び水素において、0.1–100 µg/mL の濃度範囲で決定係数 (R^2) 0.9976–1.000 を与え、良好な直線性を示した。他方、最も感度が低い窒素では、ほとんどが良好な直線性 ($R^2 > 0.99$) を示したが、テトラデカンの決定係数が 0.99 を下回ったため、濃度範囲を 0.1–20 µg/mL に設定し、決定係数は 0.9948 を与えた。

4. 検出限界及び定量限界の比較

本研究では、検出限界付近の濃度（注入量 0.1 ng）の 5 回繰り返し測定標準偏差 (σ) の 3 倍 (3σ) を検出限界、10 倍 (10σ) を定量限界とした。いずれのキャリアガスにおいてもヘリウムと遜色なく測定できることが明らかとなった。日本薬学会環境・衛生部会が示す衛生試験法に基づいて 100 mL/min の流速で 24 時間室内空気をサンプリングした際 ($144 \text{ L} = 0.144 \text{ m}^3$) に、いずれのキャリアガスを用いた場合においても室内濃度指針値の 1/100 程度まで定量することが可能であった。

5. 分析機種の違いによる影響

分析機種の違いによる影響を確認するため、島津製作所製 (GC-2010Plus/ GCMS-QP2020) を用いて同様の条件で分析した。ヘリウム及び窒素のキャリアガスにおいて、いずれの化合物も 0.1–100 µg/mL の濃度範囲で決定係数 (R^2) が 0.99 以上であり、定量限界値 (LOQ = Toluene: 1.6 µg/m³, Ethylbenzene: 2.5 µg/m³, *m,p*-Xylene: 1.8 µg/m³, *o*-Xylene: 2.0 µg/m³, Styrene: 6.3 µg/m³, 1,4-Dichlorobenzene: 5.7 µg/m³, Tetradecane: 3.6 µg/m³) であり、指針値の 1/100 程度まで定量が可能であったことから、分析機種の違いによる影響に顕著な差は認められなかった。

室内におけるエタノール濃度が室内空气中揮発性有機化合物の測定に及ぼす影響について

1. 室内空気中のエタノールの分析

1.1 エタノールの検量線の妥当性評価

Or217 捕集管を用いた TD 法によるエタノールの検量線には、低濃度域 (5–50 ng) および高濃度域 (50–1,500 ng) の 2 種類を作成し、それぞれ検量線の重み付けの有無に関し、検量線の真度、精度、キャリアオーバーを評価した。

1.1.1 真度および精度

検量線用試料の測定を行い、1.1 に示した各検量線を 3 回ずつ作成し、真度および精度を評価した。水道水質検査方法の妥当性評価の目標値は、各検量点の真度が調製濃度の 80–120% 以内であること、精度が相対標準偏差 20% 以内であることとされている。いずれの検量線の真度、精度はこれらを満たしたが、重み付け有の方がより良好な評価結果であった。

1.1.2 キャリーオーバー

キャリアオーバーの確認は、各検量線の最大濃度以上の標準品試料の測定直後にブランク試料の測定を行い、これを 3 回実施した後、ピーク面積値を用いて評価した。水道水質検査方法の妥当性評価では、キャリアオーバーの目標として検量線濃度範囲の下限値を下回る (下限値の 100% 未満) こととされている。低濃度域 (5–50 ng) および高濃度域 (50–1,500 ng) のいずれの検量線においてもキャリアオーバーは目標値を満たした。

1.2 定量下限値と検出限界値

1.1 で妥当性評価を行った低濃度域検量線のうち、より良好な評価結果が得られた「重み付け有」の検量線を用い、検量線最下点である 5 ng の標準試料の測定を 5 併行で行った。この結果から算出された定量下限値は 7.0 µg/m³、検出限界値は 1.7 µg/m³ であった。

2. TD法およびSE法を用いたVOC類の検量線の検証

2.1 TD法によるVOC類の検量線の妥当性評価

TenaxTA捕集管を用いたTD法によるVOC類の検量線として、5–50ngの4点検量線（定量範囲5–50ng）、2–50ngの5点検量線（定量範囲2–50ng）、2–50ngの5点検量線（定量範囲5–50ng）の3種類について、それぞれ検量線の重み付けの有無に関し、検量線の真度と精度、キャリーオーバーを評価した。

2.1.1 真度および精度

2.1に示した各検量線を3回ずつ作成し、真度および精度を評価した。測定に用いたTenaxTAは沸点100–400°C、n-C₆~n-C₂₆を使用推奨範囲とされている捕集剤である。Hexaneよりも沸点が低い物質についてはEthanol、Acetone、Methylene chlorideなど、真度もしくは精度の目標値を満たさない物質がいずれの検量線においても散見された。なかでもMethylene chlorideは今回検討したいずれの検量線においても精度が20%を超過したことから、TenaxTAを用いたTD法によるこの濃度域での測定は困難と考えられた。

一方、Hexaneよりも沸点が高い物質に関して、真度あるいは精度の目標値を満たさない物質があった検量線は、定量範囲を2–50ngとした「重み付け無」の5点検量線のみであった。その他の検量線の真度および精度はいずれの物質も目標値を満たす良好な評価結果であった。特に、定量範囲を5–50ngとした「重み付け有」の4点検量線は、Hexaneよりも沸点が高い物質の真度90~110%以内かつ精度10%以内と、最も良好な値を示した。

2.1.2 キャリーオーバー

2.1に示した各検量線の定量範囲の最大値である50ngの検量線用試料の測定直後にブランク試料の測定を行った。ブランク試料のピーク面積値を、それぞれの検量線における定量範囲の下限として設定した2ngおよび5ngの検量線用試料の

ピーク面積値と比較したところ、EthanolおよびAcetoneについてはどちらもキャリーオーバーの目標値を満たさなかったが、その他の物質は目標値を満たした。EthanolおよびAcetoneについてはTenaxTAを用いたTD法によるこの濃度域での測定は困難と考えられた。

2.1.3 TD法によるVOC類の定量下限値と検出限界値

妥当性を評価した検量線のうち、Hexaneより沸点が高い物質において最も良好な結果が得られた定量範囲5–50ngの4点検量線「重み付け有」を用い、定量範囲の下限である5ngの標準試料の測定を5併行で行った。今回検討したVOC類には室内濃度指針値策定物質や室内濃度指針値策定候補化合物が含まれるが、算出された定量下限値はいずれもこれらの室内濃度指針値等の1/10を十分に下回った。

2.2 SE法によるVOC類の検量線の妥当性評価

SE法によるVOC類の検量線として、0.2–5μg/mLの検量線「重み付け有」に関し、検量線の真度と精度、キャリーオーバーを評価した。

2.2.1 真度および精度

2.2に示した検量線を3回作成し、真度および精度を評価した結果、ほとんどの物質は妥当性評価の目標値を満たしたが、NonanalとDecanalは目標値を満たさなかった。この2物質の検量線は相関係数が0.9を下回ったケースもあり、検量点の真度が全て設定値の80~120%を超過した。

2.2.2 キャリーオーバー

検量線の最大濃度である5μg/mLの標準系列の測定直後にブランク試料の測定を行い、これを3回実施してキャリーオーバーを評価した結果、全ての物質に関して目標値を満たした。

2.2.3 SE法によるVOC類の定量下限値

積算捕集量の設定値を 72 L (200 mL/分×6 時間) とし、2.2 で妥当性を評価した検量線の定量範囲の最下点濃度である 0.2 µg/mL から、SE 法の定量下限値を 5.6 µg/m³ と算出した。

3. 室内空気中のエタノール濃度の違いによる VOC 類の回収率の比較

3.1 添加回収試験時の温度、相対湿度とエタノール濃度

添加回収試験時の相対湿度については、冬季は 1 日目が 37%、2 日目が 24% と低湿度であったのに対し、夏季は 1 日目が 70%、2 日目が 51% と高～中湿度であった。また、室内空気中のエタノールの濃度は、冬季および夏季ともに 1 日目、すなわちエタノールの噴霧を行わなかった日は 13 µg/m³ および 14 µg/m³ であったが、エタノールの噴霧を行った 2 日目は冬季が 840 µg/m³、夏季が 13,000 µg/m³ であった。

3.2 Or217 捕集管におけるエタノールの破過

冬季と夏季の 2 回、それぞれ連続した 2 日間の添加回収試験の各日において捕集体積が最も多い約 6 時間のサンプリングを行った試料については、Or217 捕集管を 2 連結してエタノールを捕集した。エタノールの平均室内濃度が最も高かった夏季 2 日目の試料はエタノールの捕集量も最大だったが、このケースであっても後段への破過率は 2.4% 程度にとどまり、その他の 3 試料については後段にエタノールが検出されなかったことから、Or217 捕集管を用いた TD 法によるエタノールの測定における破過は認められなかった。

3.3 VOC 類の回収率

3.3.1 通常状態 (エタノール噴霧なし) における添加回収試験

3.3.1.1 TenaxTA 捕集管を用いた TD 法の試験

水道水質検査方法の妥当性評価ガイドラインでは、添加試料の目標値として回収率 (真度) は添加濃度の 70～130% 以内、併行精度は相対標準偏差

(RSD%) 20% 以内とされている。冬季および夏季ともに添加回収試験の目標値に満たなかった物質は 2-Propanol, 1-Propanol, 2,4-Dimethylpentane, Iso-octane, Decanal の 5 物質で、いずれも回収率が 70% 未満であった。また、冬季にはこれらに加えて Chloroform, Nonanal の回収率が 70% 未満であった。他方、冬季の n-Nonane は回収率が 130% を超過した。目標値を満たさなかった物質は回収率が低いものがほとんどであったが、これらは前後段を合算しても目標値の 70% に満たないか、破過率が 20% を超過しているかのどちらか、あるいはその両方に該当した。添加試料の評価で目標値を満たさなかった物質であっても検量線の妥当性については問題がなかったことから、通気の影響で回収率が低下した可能性が考えられた。

3.3.1.2 CBA 捕集管を用いた SE 法の試験

冬季および夏季とも添加試料の評価が目標値を満たさなかった物質は Acetone, Methylene chloride, n-Butanol, Styrene の 4 物質であった。冬季は 4 物質とも回収率 (真度) は 70% 未満であったが、夏季は Acetone および n-Butanol は回収率 (真度) が 130% 超過し、Methylene chloride および Styrene は 70% 未満であった。加えて、Methylene chloride の併行精度は目標値である 20% 以内を超過した。これらの 4 物質の回収率は、前後段を合算しても目標値を満たさないか、破過率が 20% を超えているかのどちらかあるいはその両方に該当した。添加試料の評価で目標値を満たさなかった物質であっても検量線の妥当性評価については問題がなかったことから、通気の影響で回収率が下がった可能性が考えられた。また、Styrene は重合による回収率の低下を補正するために重水素体にて補正を行う方法が知られているが、今回はその補正を行っていないことも回収率低下の一因と考えられた。

3.3.2 エタノール存在下における添加回収試験

3.3.2.1 TenaxTA 捕集管を用いた TD 法の試験

冬季および夏季ともに添加試料の評価が目標値を満たさなかった物質は、2-Propanol, 1-Propanol, 2,4-Dimethylpentane, Iso-octane, Decanal の 5 物質で、いずれも回収率（真度）が 70%未満であった。また、冬季にはこれらに加えて Chloroform, Nonanal の 2 物質も回収率（真度）が 70%未満であった。物質ごとの傾向は 3.3.1.1 に示した通常状態の添加回収試験の結果と類似しており、通常状態と同様に、前後段を合算しても目標値の 70%に満たないか、破過率が 20%を超えているかのどちらかあるいはその両方に該当した。添加試料の評価で目標値を満たさなかった物質であっても検量線の妥当性評価には問題がなかったことから、これらの 7 物質については通気の影響で回収率が下がった可能性が考えられた。

3.3.2.2 室内空気中エタノールの影響（TenaxTA 捕集管を用いた TD 法）

冬季・夏季とも、1 日目の通常状態と 2 日目のエタノール噴霧時における回収率の差が 20%以上となった物質は認められなかったことから、TenaxTA 捕集管を用いた TD 法において、室内空気中のエタノール濃度が VOC 類の測定に及ぼす影響は小さいと考えられた。

3.3.2.3 CBA 捕集管を用いた SE 法の試験

冬季および夏季とも添加試料の評価が目標値を満たさなかった物質は Methylene chloride, Styrene の 2 物質で、いずれも回収率（真度）が 70%未満だった。また、夏季にはこれらに加えて Acetone の回収率（真度）が 70%未満であった。これらは前後段を合算しても添加試料の評価の目標値の 70%に満たないか、破過率が 20%を超えているかのどちらかあるいはその両方に該当した。添加試料の評価の目標値を満たさなかった物質であっても検量線の妥当性評価に問題がなかったことから、通気の影響で回収率が下がった可能性が考えられるが、Styrene については 3.3.1.2 同様に重合による回収率低下も一因となった可能性が考

えられた。

3.3.2.4 室内空気中エタノールの影響（CBA 捕集管を用いた SE 法）

1 日目の通常状態と 2 日目のエタノール噴霧時における回収率の差が 20%以上となった物質は、n-Butanol（冬季および夏季）、2E1H（夏季）、TMPD-MIB（夏季）の 3 物質であった。特に、夏季の n-Butanol および 2E1H については回収率の差が 30%以上であった。n-Butanol については、冬季は 2 日目の回収率の方が低かったが、夏季は逆に 2 日目の回収率の方が高かった。また、夏季の 2E1H および TMPD-MIB についてはいずれも 2 日目の回収率の方が高かった。これら 3 物質はいずれもアルコール類であり、CBA 捕集管は高湿度下における回収率が低下するとの報告がある。夏季については 1 日目の湿度は 70%と高湿度であったが、2 日目は 51%と中湿度であった。これら 3 物質の 2 日目の回収率が 1 日目よりも高くなった要因としては 2 日目に湿度が下がった影響である可能性が考えられた。また、冬季については 1 日目の湿度は 37%、2 日目は 24%であり、どちらの日も低湿度であったが、夏季同様に 1 日目よりも 2 日目の方が低湿度であった。これにもかかわらず冬季の n-Butanol 回収率は 2 日目の方が低かった要因としては、2 日目に噴霧した室内空気中のエタノール濃度の影響が関係している可能性が考えられた。

Carbotrap™-217 捕集管を用いた TD 法による VOC 類検量線の検証

1. 検証に用いた VOC 類検量線

測定対象とした VOC 類 53 物質に関し、Or217 捕集管を用いて 6 種類の検量線を作成し、真度と併行精度、キャリーオーバーを評価した。

検量点	検量線の範囲 (ng)	定量範囲 (ng)	重み付け

①	4	5-50	5-50	有
②	4	5-50	5-50	無
③	5	2-50	2-50	有
④	5	2-50	2-50	無
⑤	5	2-50	5-50	有
⑥	5	2-50	5-50	無

全ての検量線において、沸点の低い Acetone は検量線に定量性が認められず、Methylene chloride は 2, 5, 10 ng の検量点のピークが検出されなかったため、検量線の妥当性評価が実施不能であった。また、Chloroform および 1,2-Dichloroethane に関し、検量線の最下点である 2 ng の検量点のピークが検出されないものもあり、これらの妥当性評価が不能であった。

2. 検量線の真度および併行精度

水道水質検査方法の妥当性評価ガイドラインにおいて検量線の目標値は、各検量点の真度が調製濃度の 80~120%以内であること、併行精度が相対標準偏差 20%以内であることとされている。① 5-50 ng の 4 点検量線（定量範囲 5-50 ng, 重み付け有）については、Acetone, Methylene chloride の 2 物質が評価不能であったが、その他の測定対象物質の真度・併行精度は全て目標値以内であった。② 5-50 ng の 4 点検量線（定量範囲 5-50 ng, 重み付け無）については、評価不能であった Acetone, Methylene chloride の 2 物質以外にも 4 物質で真度あるいは併行精度が目標値を満たさなかった。③~⑥の検量線については、Acetone, Methylene chloride, Chloroform, 1,2-Dichloroethane の 4 物質が評価不能であった他に、真度あるいは併行精度が目標値を満たさなかった物質があった。2E1H, TMPD-MIB, TMPD-DIB については、重み付け有の検量線の全て、および重み付け無の検量線では 3 物質とも良好な評価結果が得られたが、重み付け無の検量線の 3 物質のうちの一部で真度あるいは併行精度が目標値を満たさなかった。

3. キャリーオーバー

各検量線の測定の際、定量範囲の最大値である 50 ng の検量線用試料の測定直後にブランク試料の測定を行った。これを 3 回実施し、ブランク試料の測定結果（面積値）を用いて評価した。水道水質検査方法の妥当性評価ガイドラインでは、キャリーオーバーの目標として検量線濃度範囲の下限值を下回ること（定量下限値の 100%未満）とされている。①および②の検量線では評価不能だった 2 物質の他、1,2-Dichloroethane のキャリーオーバーが認められた。1,2-Dichloroethane については③~⑥の検量線では妥当性評価が実施不能であり、これにキャリーオーバーの結果を併せると全ての検量線で妥当性評価結果が目標値を満たさない結果となったことから、Or217 捕集管を用いた場合、今回の分析条件や濃度域での 1,2-Dichloroethane の測定は困難であった。③および④の検量線では評価不能だった 4 物質の他、Benzene のキャリーオーバーが認められた。⑤および⑥の検量線では、評価不能だった 4 物質以外にキャリーオーバーは認められなかった。

4. Or217 捕集管と TenaxTA 捕集管の妥当性評価結果比較

①~⑥の検量線毎の妥当性評価の項目を比較すると、検量線①が最適と考えられる。各検量線の重み付けの有無で比較を行ったところ、概ね、重み付け有の方が適用可能な VOC 数が多かった。捕集管を比較すると、TenaxTA の方が Or217 よりもやや良好であったが、①の検量線での集計値はどちらの表でも同じ数値（50 物質）であったことから最適な検量線を用いばいずれの捕集管を用いてもほぼ同等な妥当性評価結果が得られると考えられる。

今回実施した Or217 捕集管を用いた妥当性評価と既報の TenaxTA 捕集管を用いた妥当性評価に関しては、捕集管の種類および TD 条件並びに妥当性評価の実施時期については異なっているが、

検量線の作成方法や分析条件等についてはほぼ同じ条件で実施しているため、両者の差はそれぞれの捕集管からの加熱脱離に起因すると推測される。各検量線の最大濃度である 50 ng の検量線用試料の TIC クロマトを比較すると、捕集管によりピークの大きさに差が見られた物質があった。例えば Ethanol のピークは Or217 捕集管の方が TenaxTA 捕集管よりも大きかったが、TMPD-DIB のピークは逆に Or217 捕集管の方が小さかった。同様に、Methylene chloride や Chloroform などの低沸点の塩素化炭化水素や TMPD-MIB に関しても Or217 捕集管のピークは TenaxTA 捕集管と比べて小さかった。なお、ここで述べた物質は捕集管毎の妥当性評価結果の比較において両捕集管での集計値に差が生じた物質であり、ピークの大きさの差は妥当性評価結果の差の一因となっていることが推察される。

D. まとめ

GC/MS 測定におけるヘリウム代替キャリアガスの検討

- 1) VOC の測定感度をキャリアガス毎に比較した結果、感度はヘリウムで最も高く、水素、窒素と続いた。
- 2) いずれのキャリアガスにおいても良好な直線性を示した。
- 3) 室内濃度指針値の 1/100 程度まで定量が可能であった。
- 4) 窒素を用いた分析では測定に時間を要するものの、検出限界及び定量限界共にヘリウムと遜色ない数値を示した。
- 5) 分析機種の違いによる試験法への影響は認められなかった

これらの結果より、室内空气中揮発性有機化合物の GC/MS 分析に、ヘリウム代替ガスとして水素もしくは窒素を適用できることが示唆された。

室内におけるエタノール濃度が室内空气中揮発性

有機化合物の測定に及ぼす影響について

Or217 捕集管を用いた TD 法による室内空气中のエタノールの分析について、定量範囲の異なる 2 種類の検量線の妥当性を評価した結果、いずれの検量線についても良好な結果であったが、重み付け有の方がより良好であり、エタノールの定量下限値は $7.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、検出限界値は $1.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ と算出された。

TenaxTA 捕集管を用いた TD 法による VOC 類の分析について、定量範囲が異なる 3 種類の検量線の重み付け有無について検量線の妥当性を評価した。Methylene chloride はいずれの検量線において精度の目標値を満たさなかったことから TenaxTA を用いた TD 法によるこの濃度域における測定は困難であった。一方、Hexane よりも沸点の高い物質の真度・精度に関しては概ね良好な結果が得られた。特に、定量範囲を 5–50 ng とした「重み付け有」の 4 点検量線は真度・精度が最も良好な値を示した。ほとんどの物質のキャリアオーバーは目標値を満たしていたが、Ethanol および Acetone については目標値を満たさなかったことから TenaxTA を用いた TD 法によるこの濃度域での測定は困難であった。今回検討した VOC 類には室内濃度指針値策定物質や室内濃度指針値策定候補化合物が含まれるが、定量下限値等の算出を行ったところ室内濃度指針値等の 1/10 を十分に下回った。SE 法による VOC 類の分析について、検量線の妥当性を評価したところ、ほとんどの物質の真度・精度は良好であったが、Nonanal と Decanal については目標値を満たさなかった。キャリアオーバーについては全て目標値を満たす良好な結果が得られた。

冬季と夏季の 2 回にわたり、それぞれ連続した 2 日間の VOC 類の添加回収試験を実施した。添加回収試験は上述で検討した検量線による TD 法および SE 法を同時併行で実施し、会議室内の空気を捕集する条件下で実施した。通常状態における TD 法による添加回収試験で、冬季および夏季ともに添加試料の評価の目標値を満たさなかった物

質は、2-Propanol、1-Propanol、2,4-Dimethylpentane、Iso-octane、Decanalの5物質、冬季のみ満たなかった物質はChloroform、Nonanalおよびn-Nonaneであった。また、SE法による添加回収試験で、冬季および夏季とも添加試料の評価の目標値を満たさなかった物質はAcetone、Methylene chloride、n-Butanol、Styreneの4物質であった。回収率の低下は通気の影響によるものと考えられるが、SE法のStyreneについては重合による回収率低下の可能性があり、今回、重水素体による補正を行っていないことが一因と考えられた。

会議室内の机上に80% (v/v) エタノール水溶液を噴霧することにより室内空气中にエタノールが揮散した状態を作り出した上で、VOC類の添加回収試験を実施した。TD法による添加回収試験で、冬季および夏季ともに添加試料の評価の目標値を満たさなかった物質は、2-Propanol、1-Propanol、2,4-Dimethylpentane、Iso-octane、Decanalの5物質、冬季のみ添加試料の評価の目標値を満たさなかった物質はChloroform、Nonanalの2物質であった。これらの傾向は冬季のn-Nonaneを除き通常状態における結果と類似していた。室内空气中のエタノール濃度の影響について検討した結果、TD法ではエタノールの有無で回収率の差が20%以上となった物質はなく、室内空气中のエタノール濃度がVOC類の測定に及ぼす影響は小さいと考えられた。

SE法では、冬季および夏季とも添加試料の評価の目標値を満たさなかった物質はMethylene chloride、Styreneの2物質、夏季のみ添加試料の評価の目標値を満たさなかった物質はAcetoneであった。回収率の低下は通気の影響によるものと考えられるが、SE法のStyreneについては前述のとおり重合による回収率の低下が考えられた。室内空气中のエタノール濃度の影響について検討した結果、SE法はエタノールの有無で回収率の差が20%以上となった物質は、n-Butanol (冬季および夏季)、2E1H (夏季)、TMPD-MIB (夏季) の3物

質であった。特に、夏季のn-Butanolおよび2E1Hについては回収率の差が30%以上であった。夏季においてこれら3物質の2日目の回収率は1日目よりも高くなったが、これは2日目に湿度が下がった影響である可能性が考えられた。また、2日間ともに低湿度であった冬季においてn-Butanol回収率は2日目の方が低かった結果については、室内に噴霧したエタノールの影響が関係している可能性が考えられた。

Carbotrap™-217 捕集管を用いた TD 法による VOC 類検量線の検証

Or217 捕集管を用いた VOC 類 53 物質の測定について、6 種類の検量線を作成し真度・併行精度・キャリーオーバーに関する検量線の妥当性評価を実施した。

Acetone、Methylene chloride、および 1,2-Dichloroethane の 3 物質については妥当性評価結果が目標値を満たした検量線がなかったことから、Or217 捕集管を用いた場合、今回の分析条件や濃度域での測定は難しいものと考えられる。6 種類の検量線のうち、妥当性評価の結果が最も良好だったものは「5-50 ng の 4 点検量線 (定量範囲 5-50 ng)、重み付け有」であり、Acetone、Methylene chloride、1,2-Dichloroethane 以外の 50 物質について良好な評価結果が得られた。最も良好ではなかったものは「2-50 ng の 5 点検量線 (定量範囲 2-50 ng)、重み付け無」であり、良好な評価結果が得られたのは測定対象 53 物質のうち 28 物質だった。各検量線について重み付けの有無で比較を行ったところ、概ね、重み付け有の方が評価結果が良かった。参考として既報の TenaxTA 捕集管を用いた妥当性評価結果を集計し、同様に比較をおこなったところ、妥当性評価結果が最も良好だった検量線と最も良好ではなかった検量線および重み付けの有無での評価結果の傾向が、Or217 捕集管での傾向と類似していた。また、Or217 捕集管、TenaxTA 捕集管とも、最適検量線においては評価結果が良好であった物質数がどちらも 50 物質で

あり，最適検量線を用いれば Or217 捕集管と TenaxTA 捕集管のどちらを用いてもほぼ同等の評価結果が得られると考えられる。ただし，その内訳は一部異なっており，評価結果が良好であった 50 物質に該当するのは Or217 捕集管では Acetone, Methylene chloride, 1,2-Dichloroethane の 3 物質以外，TenaxTA 捕集管では Ethanol, Acetone, Methylene chloride の 3 物質以外であった。例えば Ethanol を測定する必要がある場合などのような，主目的とする測定対象物質がある場合にはそれぞれの特性などを踏まえて捕集管を選択する必要があると考えられる。

E. 健康危機情報

なし

F. 研究発表

1. 論文発表

- 1) 大嶋直浩，高橋夏子，高木規峰野，田原麻衣子，酒井信夫，五十嵐良明：国立医薬品食品衛生研究所 殿町新庁舎における室内空気質について（第 2 報），国立医薬品食品衛生研究所報告，**139**，59-63（2021）。
- 2) Oshima N, Tahara M, Sakai S, Ikarashi Y: Analysis of volatile organic compounds emitted from bedding products, *BPB Reports*, **4**, 182-192 (2021).
- 3) 酒井 信夫：用語解説 ベンゼン，室内環境，**25**，324（2022）。
- 4) 酒井 信夫：用語解説 ナフタレン，室内環境，**25**，324（2022）。
- 5) 酒井 信夫：解説 ISO 16000-33: GC/MS を用いたフタル酸エステル類の定量の改訂，クリーンテクノロジー，**32**，60-63（2022）。
- 6) Tahara M, Kawakami T, Sakai S, Ikarashi Y: Survey of phthalates, glycols, and several volatile organic compounds in domestic hand-pump spray products and evaluation of their effect on indoor air quality, *Journal of Environmental Chemistry*, **32**, 84-94 (2022).
- 7) Oshima N, Tahara M, Sakai S, Ikarashi Y: Nationwide survey of the candidate substances in guideline values for indoor air concentrations, *Bulletin of National Institute of Health Sciences*, **140**, 40-47 (2022).
- 8) Oshima N, Tahara M, Sakai S, Ikarashi Y: A nationwide survey on indoor air concentrations of benzene and naphthalene in general residential housings, *Indoor Environment*, **25**, 177-184 (2022).
- 9) Sakai S, Tahara M, Kubota R, Kawakami T, Inoue K, Ikarashi Y: Characterization of synthetic turf rubber granule infill in Japan: Volatile organic compounds, *Science of the Total Environment*, **838**, 156400 (2022).
- 10) Oshima N, Takagi M, Sakai S, Ikarashi Y: Comparison of the helium-alternative carrier gases for the gas chromatography/mass spectrometry of standard test methods for indoor air quality guidelines in Japan, *BPB Reports*, **5**, 84-87 (2022).
- 11) Mori Y, Tanaka-Kagawa T, Tahara M, Kawakami T, Aoki A, Okamoto Y, Isobe T, Ohkawara S, Hanioka N, Azuma K, Sakai S, Jinno H: Species differences in activation of TRPA1 by resin additive-related chemicals relevant to indoor air quality, *Journal of Toxicological Sciences*, **48**, 37-45 (2023).
- 12) Yoshitomi T, Nishi I, Onuki A, Tsunoda T, Chiba M, Oizumi S, Tanaka R, Muraki S, Oshima N, Uemura H, Tahara M, Sakai S: Development of a standard test method for insecticides in indoor air by GC-MS with solid-phase adsorption/solvent extraction, *BPB Reports*, **6**, 76-80 (2023).

2. 学会発表

- 1) 大嶋直浩，高木規峰野，酒井信夫，五十嵐良明：

- 室内空气中揮発性有機化合物の GC/MS 分析に用いるキャリアガスの比較, 日本薬学会第 142 年会, 2022 年 3 月
- 2) 大嶋直浩, 高木規峰野, 酒井信夫, 五十嵐良明: マイクロチャンバー及び加熱脱離 GC/MS による穀物由来揮発性有機化合物のメタボローム解析, 日本食品化学学会第 28 回学術大会, 東京, 2022 年 5 月
 - 3) 酒井信夫: 質量分析法を用いた標準試験法の必要条件: レギュラトリーサイエンス研究に基づく信頼性と汎用性とサステナビリティ, 第 70 回質量分析総合討論会, 福岡, 2022 年 6 月
 - 4) 森葉子, 井上凌子, 青木明, 岡本誉士典, 大嶋直浩, 田原麻衣子, 酒井信夫, 香川 (田中) 聡子, 神野透人: TVOC のデコンボリューション解析による室内空気汚染化学物質の探索, 第 68 回日本薬学会東海支部総会・大会, 名古屋, 2022 年 7 月
 - 5) 大嶋直浩, 河上強志, 高橋夏子, 高木規峰野, 小濱とも子, 田原麻衣子, 酒井信夫, 五十嵐良明: マスクの規格改定を指向した揮発性有機化合物の実態調査, 第 8 回次世代を担う若手のためのレギュラトリーサイエンスフォーラム, 東京, 2022 年 8 月
 - 6) 大嶋直浩, 高橋夏子, 高木規峰野, 小濱とも子, 河上強志, 酒井信夫, 五十嵐良明: 家庭用マスクから放散される揮発性有機化合物, フォーラム 2022 衛生薬学・環境トキシコロジー, 熊本, 2022 年 8 月
 - 7) 香川 (田中) 聡子, 酒井信夫, 神野透人: 室内空气中総揮発性有機化合物 (TVOC) に関する最新の動向, 第 63 回大気環境学会年会, 大阪, 2022 年 9 月
 - 8) Kenichi AZUMA, Hideto JINNO, Toshiko TANAKA-KAGAWA, Shinobu SAKAI: Hazard and risk assessment for indoor air pollutants: dimethylsiloxanes, glycols, butanediol, hydrocarbons, trimethylbenzenes, benzene, naphthalene, and ethyltoluene, 34th Annual Conference of the International Society for Environmental Epidemiology (ISEE 2022), Athens, September 18-21 (2022)
 - 9) 大嶋直浩, 高木規峰野, 高橋夏子, 酒井信夫, 五十嵐良明, 千葉真弘, 柴田学, 岩館樹里, 後藤吉乃, 佐藤智子, 田中智子, 大竹正芳, 角田徳子, 上村仁, 田中礼子, 高居久義, 中村雄介, 堀井裕子, 望月映希, 伊藤彰, 山本優子, 大野浩之, 藤本恭史, 吉田俊明, 古市裕子, 八木正博, 伊達英代, 谷脇妙, 松本弘子, 吉村裕紀, 前田美奈子: 令和 3 年度 室内空気環境汚染に関する全国実態調査, 第 59 回全国衛生化学技術協議会年会, 川崎, 2022 年 10 月
 - 10) 酒井信夫: ヘリウムガス供給不足に対する国立衛研の対応, 第 59 回全国衛生化学技術協議会年会, 川崎, 2022 年 10 月
 - 11) 千葉真弘, 兼俊明夫, 大泉詩織, 田原麻衣子, 大嶋直浩, 酒井信夫: 室内空气中の揮発性有機化合物 (VOCs) 分析における除湿管の影響, 2022 年室内環境学会学術大会, 東京, 2022 年 12 月
 - 12) 大嶋直浩, 田原麻衣子, 酒井信夫, 五十嵐良明: 一般居住住宅における室内空気質に関する全国実態調査, 2022 年室内環境学会学術大会, 東京, 2022 年 12 月
 - 13) 森葉子, 香川 (田中) 聡子, 田原麻衣子, 河上強志, 青木明, 岡本誉士典, 磯部隆史, 大河原晋, 埴岡伸光, 東賢一, 酒井信夫, 神野透人: 2-Ethyl-1-hexanol, Texanol および TXIB による侵害刺激の種差に関する研究, 2022 年室内環境学会学術大会, 東京, 2022 年 12 月
 - 14) 高木規峰野, 大嶋直浩, 田原麻衣子, 酒井信夫, 五十嵐良明: GC-MS/MS を用いた室内空气中殺虫剤の分析, 日本薬学会第 143 年会, 札幌, 2023 年 3 月
 - 15) 大嶋直浩, 高木規峰野, 酒井信夫, 五十嵐良明: 機能性繊維製品から放散する揮発性有機化合物の GC/MS 分析に用いるキャリアガ

- スの比較, 日本薬学会第 143 年会, 札幌, 2023 年 3 月
- 16) 大嶋直浩, 高木規峰野, 酒井信夫, 五十嵐良明: シリコン含有製品から放散するシロキサン類の GC-MS/MS 分析, 第 31 回環境化学討論会, 徳島, 2023 年 5 月
- 17) 吉富太一, 西以和貴, 田原麻衣子, 大嶋直浩, 仲野富美, 上村仁, 酒井信夫: GC-MS/MS を利用した室内空気におけるフェノール系内分泌かく乱物質の一斉分析法について, 第 31 回環境化学討論会, 徳島, 2023 年 5 月
- 18) 大嶋直浩, 高木規峰野, 酒井信夫, 五十嵐良明, 大泉詩織, 岩館樹里, 今野鈴子, 大槻良子, 草原紀子, 大竹正芳, 角田徳子, 上村仁, 田中礼子, 高居久義, 渡邊好介, 堀井裕子, 望月映希, 羽田好孝, 山本優子, 若山貴成, 小寺明, 吉田俊明, 古市裕子, 八木正博, 伊達英代, 高木春佳, 島田友梨, 松永尚子, 田崎盛也: 令和 4 年度 室内空気環境汚染に関する全国実態調査, 第 60 回全国衛生化学技術協議会年会, 福島, 2023 年 11 月
- 19) 吉富太一, 西以和貴, 田原麻衣子, 仲野富美, 上村仁, 酒井信夫: 室内空気におけるアルキルフェノール類, ビスフェノール類の実態調査, 第 60 回全国衛生化学技術協議会年会, 福島, 2023 年 11 月
- 20) 酒井信夫: 室内空気中化学物質の規制に関する最新情報, 第 60 回全国衛生化学技術協議会年会, 福島, 2023 年 11 月
- 21) 田原麻衣子, 大貫文, 角田徳子, 大泉詩織, 千葉真弘, 酒井信夫, 五十嵐良明: VOC およびフタル酸エステル類の分析におけるカーボン系捕集管の適用の検討, 2023 年室内環境学会学術大会, 沖縄, 2023 年 11 月
- 22) 大嶋直浩, 高木規峰野, 酒井信夫, 五十嵐良明: 一般居住住宅における室内空気中ホルムアルデヒド及びアセトアルデヒドの全国実態調査, 2023 年室内環境学会学術大会, 沖縄, 2023 年 11 月
- 23) 吉富太一, 西以和貴, 田原麻衣子, 上村仁, 酒井信夫: 室内濃度指針値が設定された準揮発性有機化合物の一斉分析法について, 令和 5 年度地方衛生研究所全国協議会関東甲信静支部 第 36 回理化学研究部会, 浜松, 2024 年 2 月
- 24) 大貫文, 田原麻衣子, 酒井信夫, 高木規峰野, 田中礼子, 村木沙織, 斎藤育江, 千葉真弘, 大泉詩織, 大野浩之, 若山貴成, 鈴木浩, 鳥羽陽, 中島大介, 藤森英治, 香川(田中)聡子, 神野透人: 空気試験法: フタル酸ジ-n-ブチルおよびフタル酸ジ-2-エチルヘキシル 固相吸着-加熱脱離-ガスクロマトグラフィー/質量分析法による定量(新規), 日本薬学会第 144 年会, 横浜, 2024 年 3 月
- 25) 香川(田中)聡子, 森葉子, 田原麻衣子, 大河原晋, 磯部隆史, 大貫文, 鈴木浩, 鳥羽陽, 中島大介, 藤森英治, 埴岡伸光, 酒井信夫, 神野透人: 空気試験法: 総揮発性有機化合物(新規): 日本薬学会第 144 年会, 横浜, 2024 年 3 月
- 26) 吉富太一, 西以和貴, 田原麻衣子, 仲野富美, 上村仁, 酒井信夫: 室内環境中のハウスダストにおけるアルキルフェノール類とビスフェノール類の抽出及び精製法の検討と住宅における実態調査, 日本薬学会第 144 年会, 横浜, 2024 年 3 月

G. 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

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)
総合研究報告書

室内空気汚染化学物質の標準試験法の開発・規格化および国際規制状況に関する研究

総揮発性有機化合物 (TVOC) の在り方に関する研究

研究分担者 神野 透人 名城大学薬学部 教授

要旨：【令和 3 年度】26 軒の居住住宅で室内空気を採取し、間欠サンプリング法による TVOC 実態調査を実施した。その結果、TVOC 濃度の中央値 $443 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、TVOC 暫定目標値の超過率 58%という値が得られた。これらの値は、厚生労働省／国立医薬品食品衛生研究所による従前からの全国実態調査で報告されている TVOC 濃度、超過率と概ね一致していた。各住宅の TVOC 濃度と Peak 数の間に有意な正の相関が認められたことから、室内空間の VOCs の種類が増加するような状況（生活様式）が TVOC 濃度増大の要因となっている可能性が示唆された。一方で、1 種類の VOC が TVOC の 25%以上を占める住宅が 35%存在しており、TVOC 測定による VOCs の同定は TVOC の効率的な低減、言い換えれば、室内空気質の向上に有効であると考えられる。

【令和 4 年度】本研究では、2020 年度に国立医薬品食品衛生研究所 生活衛生化学部第一室が 90 軒の住居を対象に実施した全国実態調査の測定結果をデコンポリューション解析し、近年の室内空気中で検出される VOCs (Volatile Organic Compounds) の特徴付けを行った。TVOC (Total VOC) の中央値は $229 \mu\text{g}/\text{m}^3$ で、暫定目標値 $400 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超過した割合は 25.3%であった。また、比較的高頻度、高濃度で検出される特徴的な化合物群として、指針値策定（候補）化合物の他に、脂肪族炭化水素類 (27.4%)、テルペン類 (16.9%)、環状シロキサン類 (15.0%) が特定された。本研究では、デコンポリューション解析結果を基に、TVOC を測定する際に定量の対象とする VOCs のリスト、いわゆる必須 VOC リストの提案も併せて行った。

【令和 5 年度】本研究では、TVOC (総揮発性有機化合物, Total Volatile Organic Compounds) の在り方について、健康リスク評価指標としての有効性と、室内空気中の未評価化学物質スクリーニング法としての有用性の 2 つの観点から検討を行った。

文献調査では、種々の VOC 混合物である TVOC による直接的かつ定量的な健康影響を検討した論文を見出すことはできなかった。また、吸入曝露による無毒性量等（環境省「化学物質の環境リスク評価」）の比較において、 4×10^6 倍もの差異が認められることから推察されるように、組成の異なる混合物による生体影響を物質量の総和のみで比較することは難しく、現状においても、TVOC を健康リスクに関連付けることは困難であると考えられる。その一方で、TVOC 試験法で得られる室内濃度指針値未策定 VOC に関する情報は、推定 MOE (Margin of Exposure) の導出も含め、スクリーニングとして極めて有用である。この 20 年間で得られた一義的な TVOC 試験法による全国調査結果を踏まえると、 $400 \mu\text{g}/\text{m}^3$ の目標値を変更する必要はないものと考えられる。

研究協力者：香川 聡子（横浜薬科大学）、酒井信夫（国立医薬品食品衛生研究所）、田原麻衣子（国立医薬品食品衛生研究所）、岡本誉士典（名城大学薬学部）、青木 明（名城大学薬学部）、森 葉子（国立研究開発法人 国立環境研究所）、亀谷 春香（名城大学薬学部）、井上 凌子（名城大学薬学部）、尾嶋 朱莉（名城大学薬学部）、金山 理恵（名城大学薬学部）、湯浅 竜斗（名城大学薬学部）、水田 佑香（名城大学薬学部）、青木 望実（名城大学薬学部）、東 珠希（名城大学薬学部）、大嶋 直浩（国立医薬品食品衛生研究所）、高木 規峰野（国立医薬品食品衛生研究所）、埴岡 伸光（横浜薬科大学）、大河原 晋（横浜薬科大学）、磯部 隆史（横浜薬科大学）

A. 目的

現在、室内空気中の 13 物質について健康影響に基づく室内濃度指針値が定められており、その他に、室内空気質の総体的な指標として、総揮発性有機化合物（TVOC, Total Volatile Organic Compounds）に暫定目標値が設けられている。TVOC という室内空気質にかかる総体的指標を直ちに健康影響と結びつけることは困難であるが、設定から 20 年が経過した現時点での意義を、暫定目標値 $400 \mu\text{g}/\text{m}^3$ の妥当性も含めて、改めて検証する必要がある。

TVOC は、沸点が 50 ないし 100°C から 240 ないし 260°C の範囲にある揮発性有機化合物（Volatile Organic Compounds, VOCs）の総和であり、空気質の総体的な指標である。TVOC は、日本産業規格（JIS A 1965:2015）では「Tenax TA でサンプリングした場合の、水素炎イオン化検出器または質量分析計を用いて無極性のキャピラリーカラムで *n*-Hexane と *n*-Hexadecane の範囲で溶出・検出

される、クロマトグラムピーク面積の合計をトルエン相当量に換算した値」と定義されているが、測定値がサンプリング方法や分析方法に依存するため、指針値あるいは（暫定）目標値を設定する際には、標準作業手順書（SOP, Standard Operating Procedures）としての試験法策定が必要不可欠である。我が国では室内空気中の TVOC の暫定目標値として $400 \mu\text{g}/\text{m}^3$ が設けられており、「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 4 回及び第 5 回のまとめ」の中で分析方法の概要が示されている。しかしながら、現在に至るまで、厳密には SOP/試験法は定められておらず、個別に定量すべき VOCs、すなわち「(いわゆる) 必須 VOCs リスト」の策定と併せて長年にわたる懸案事項となっている。

令和 3 年度の研究では、先行研究（H30-化学-指定 002: 室内空気環境汚染化学物質の標準試験法の策定およびリスク低減化に関する研究）において開発した「間欠サンプリング法」を用いて、居住住宅の居間を対象に室内空気中の TVOC の調査を実施し、TVOC を構成する揮発性有機化合物（VOC）の解析を実施し、TVOC の室内空気質指標としての有用性について考察を行った。

令和 4 年度の研究では、国立医薬品食品衛生研究所 生活衛生化学部第一室の酒井信夫室長らが 2020 年度に実施した全国実態調査で得られた TVOC クロマトグラムについてデコンポリューション解析を適用し、最近の VOCs 検出状況について特徴付けを行った。

令和 5 年度の研究では、TVOC の在り方について、健康リスク指標としての有効性と、室内空気中の未評価化学物質スクリーニング法としての有用性の 2 つの観点から検討を行った。

B. 実験方法

【令和3年度】

B-1 試薬

Methanol は、残留農薬・PCB 試験用 Methanol 5000 (富士フィルム和光純薬) を使用した。Indoor Air Standard (50 Components, 100 µg/mL) は Merck から、Toluene-d8 は富士フィルム和光純薬から購入した。

B-2 室内空気の採取

名城大学薬学部 の在学生の自宅を対象に、26軒の居住住宅で室内空気を採取した。室内空気中の揮発性有機化合物のサンプリングには、Tenax TA を充填した不活性処理ステンレス吸着管 (Camsco) を用いた。Tenax TA 吸着管をパーソナルミニポンプ PMP-001 型 (柴田科学) に接続し、「10 mL/min の流速で6分間作動-24分間休止」のサイクルを48回繰り返す間欠サンプリング法で2880 mL の室内空気を吸引した。24時間にわたるサンプリング中は、吸着管の吸気側に PEEK 細管を接続し、揮発性有機化合物の拡散による汚染を防止した。

B-3 TD-GC/MS による TVOC 測定

TD 装置は Shimadzu TD-30、GC/MS は Shimadzu GCMS-TQ8030 を使用し、下記の条件で分析を行った。

<TD>

加熱脱離温度：280°C

加熱脱離時間：8 min

ガス流量：50 mL/min, He

Trap 冷却温度：-20°C

Trap 加熱温度：280°C

Trap 加熱時間：5 min

バルブ温度：250°C

トランスファーライン温度：250°C

スプリット比：10

<GC>

キャリアガス：He, 40 cm/sec (線速度一定)

カラム：RESTEK Rtx-1ms (60 m x 0.32 mm, 1 µm)

オープン昇温：40°C-5°C/min-280°C (7 min)

インターフェイス温度：250°C

<MS>

イオン源温度：200°C

測定モード：Q3 Scan

Scan Range：m/z 40 – 500, 10 Hz

B-3 Deconvolution 解析

GC/MS クロマトグラムの Deconvolution 解析には、AnalyzerPro ver. 6.0.0.246 (SpectralWorks) を使用した。

【令和4年度】

国立医薬品食品衛生研究所から提供された Shimadzu 形式の GC/MS データについて、Analyzer Pro ver. 6.0.0.246 (SpectralWorks) を用いてデコンボリューション解析を行った。主な解析パラメーターは以下の通り設定した。

Minimum Ions: 8

Area Threshold: 1000

Height Threshold: 0%

Width Threshold: 0.05

Resolution: Very Low

Fronting: 0%

Tailing: 0%

Signal to Noise: 10

Gaussian Smooth: 7

化合物の推定には、マススペクトルライブラリーとして NIST/EPA/NIH Mass Spectral Library (NIST 17) を用いた。

【令和5年度】

TVOC の在り方について、健康リスク評価指標としての有効性と、室内空気中の未評価化学物質スクリーニング法としての有用性の2つの観点から、以下4項目について検討を行った。

1. TVOC 分析法
2. 健康リスク指標としてのTVOCについて
3. 暫定目標値 400 µg/m³の妥当性について
4. 未評価化学物質スクリーニングとしてのTVOC

C. 結果と考察

【令和3年度】

冬期にサンプリングした居住住宅 26 軒の居間空気中の TVOC を定量した結果、中央値は 443 µg/m³ (最小値 43 µg/m³ – 最大値 1951 µg/m³)、平均値は 585 µg/m³ であり、15 軒 (58%) が TVOC 暫定目標値 400 µg/m³ を超過していた。図 1 に TVOC の濃度分布をバイオリンプロットとして示した。

表 1 は各試料の GC-MS クロマトグラムについて、*n*-Hexane から *n*-Hexadecane の保持時間の間に溶出する Peak の数、ならびに各 Peak の Toluene 換算濃度が TVOC 値の 80% 相当に達する最少 Peak 数をまとめたものである。図 2 に示したように、各試料の Peak 数と TVOC 濃度の間には有意な相関 ($p < 0.01$, $r = 0.9156$) が認められ、回帰直線 ($Y = 9.1X - 142.5$) の傾き 9.1 µg/m³ は、1 成分 (Component) あたりの TVOC への寄与を示していると考えられる。

一方、各試料について、最も高い Toluene 換算濃度で検出された Component が TVOC 濃度に占める割合を算出すると、表 1 にまとめたように、5% から 51% まで、10 倍もの差異が認められた。最高濃度の 1 つの Component が TVOC に占める割合が >25% の試料は、No.1、4、7、10、13、15、19、22 および 25 の 9 試料であった。これらのうち、Decamethylcyclpentasiloxane が 5 試料 (No.10、13、19、22 および 25)、D-Limonene が 2 試料 (No.4 および 7) であり、これらの成分を含有する家庭用品、もしくは香粧品が主要な VOCs の発生源/放散源となっている可能性が示唆された。また、最高濃度の 1 つの Component が TVOC に占める割合が

<10% の試料は、No.5、8、9、12、14、16、23、24 および 26 の 9 試料であった。これらのうち、Nonane あるいは Decan などの脂肪族炭化水素が最高濃度の Component であったものが 6 試料 (No.5、8、12、14、23 および 24) があった。これらの試料の GC/MS クロマトグラムの特徴として、多数の脂肪族炭化水素類がクラスターを形成しており、灯油等の化石燃料の燃焼が主たる原因であることが示唆される結果が得られた。

室内空気中の TVOC など、多種多様な Component で構成される試料を分析する場合、分離能の高いキャピラリーカラムであっても不分離 Peak を生じるおそれがある。そこで、VOC 同定精度の向上を目的として、擬似的な Peak 分離手法である Deconvolution 解析を行った。その結果、表 2 に示したように、脂肪族炭化水素類の他に、芳香族炭化水素類、環状シロキサン、香料 (テルペン類) などが主要な TVOC 構成成分であることが明らかとなった。

【令和4年度】

本研究でデコンボリューション解析を行った 2020 年度全国調査 (調査住居数 90) では、TVOC の中央値は 229 µg/m³、平均値は 321 µg/m³、最大値は 1960 µg/m³ であり、暫定目標値 400 µg/m³ を超過した住居は 19 件 (超過率 25.3%) であった。ほぼ同等の結果が 112 の住居を対象に実施した 2016 年の全国調査でも得られており、そこでは中央値は 229 µg/m³、平均値は 331 µg/m³、最大値 4270 µg/m³ であり、TVOC 暫定目標値の超過率は 23.6% であった (data not shown)。一方、第 18 回シックハウス検討会で提示された 2012 年および 2013 年度夏季実態調査では、居間の TVOC 濃度の中央値はそれぞれ 260 µg/m³ および 240 µg/m³、暫定目標値超過率はそれぞれ 30%、37% と報告されている。これらの結果は、10 年近くを経たのちも、TVOC として評価した室内空気質に顕

著な変化はみられないことを示している。

次に、デコンポリューション解析によって同定された一群の VOCs について、特徴付けを行った。まず、各住居の TVOC 構成成分を濃度の高いものから順に積算し、各住居の TVOC 値の 50% を占める主要な VOCs を一覧表として示した (表 1)。化合物群としては、図 3 の円グラフに示したように、脂肪族炭化水素類が 28.2% を占め、次いで脂肪族アルデヒド類が 12.2%、指針値策定 (候補) 化合物が 11.8%、テルペン類が 11.3%、環状シロキサン類が 10.2% の順であった。一方、各住居において TVOC 暫定目標値 (400 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) の 10% 以上、すなわち 40 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上の濃度で検出された VOCs をまとめたものが表 2 である。化合物群としては、図 4 に示したように、脂肪族炭化水素類が 27.4% を占め、次いでテルペン類 (16.9%)、環状シロキサン類 (15.0%)、指針値策定 (候補) 化合物 (9.0%) が比較的高い濃度で検出される VOCs として特定された。

2013 年度の夏季に国立医薬品食品衛生研究所 生活衛生化学部第一室が実施した全国調査では、検出頻度の高い TVOC 構成成分 (検出濃度 5 μg Toluene/ m^3 以上) として、脂肪族アルデヒド類 (Nonanal, 61%、Hexanal, 33%)、2-Ethyl-1-hexanol (48%、今回は指針値策定 (候補) 化合物として分類)、環状シロキサン類 (Decamethyl Cyclopentasiloxane, 37%) およびグリコール類 (Propylene Glycol, 13%、1,3-Butanediol, 10%) が同定されている。(https://www.mhlw.go.jp/file/05-Shingikai-11121000-Iyakushokuhinkyoku-Soumuka/0000040622.pdf および https://www.mhlw.go.jp/file/05-Shingikai-11121000-Iyakushokuhinkyoku-Soumuka/0000141173.pdf)

2020 年度の全国実態調査結果にもとづいて、比較的高頻度で検出され、かつ検出濃度も比較的高い、以下の 36 化合物を”必須

VOC”として定性/定量の対象とすることを提案する。

Target VOCs (11) : Toluene, *o*-Xylene, *m*-Xylene, *p*-Xylene, Ethylbenzene, Styrene, 1,4-Dichlorobenzene, Tridecane, 2-Ethyl-1-hexanol, 2,2,4-Trimethyl-1,3-pentanediol
Monoisobutyrate, 2,2,4-Trimethyl-1,3-pentanediol Diisobutyrate

***n*-Alkanes (11)** : *n*-Hexane, *n*-Heptane, *n*-Octane, *n*-Nonane, *n*-Decane, *n*-Undecane, *n*-Dodecane, *n*-Tridecane, *n*-Tetradecane, *n*-Pentadecane, *n*-Hexadecane

Aliphatic Aldehydes (2) : Heptanal, Decanal

Glycols and Glycol Ethers (4): 1,3-Butanediol, Propylene Glycol 1-Monomethyl Ether, Dipropylene Glycol, Dipropylene Glycol Monomethyl Ether

Terpenes (3) : α -Pinene, Menthol, D-Limonene

Cyclic Siloxanes (2) : Octamethylcyclotetrasiloxane, Decamethylcyclopentasiloxane

Aromatic Hydrocarbons (2) : 1,2,4-Trimethylbenzene, 1-Ethyl-3-methylbenzene

Others (1) : Ethyl Acetate

【令和 5 年度】

1. TVOC 分析法

TVOC に対応する国内の公的な分析法として、JIS A 1965:2015「室内及び試験チャンバー内空气中揮発性有機化合物の Tenax TA®吸着剤を用いたポンプサンプリング、加熱脱離及び MS 又は MS-FID を用いたガスクロマトグラフィーによる定量」がある。この分析法は、室内空气中の VOC を Tenax TA 吸着管に捕集し、加熱脱離-ガスクロマトグラフ-質量分析計で測定する方法である。JIS A 1965:2015 は、厚生労働省が定める TVOC の室内濃度暫定目標値の試験法としても準用可能な分析法ではあるが、居住住宅への適用に際して、解決すべき重大な問題が存在する。

JIS A 1965:2015 では、適切なサンプリング流量の範囲は 50 mL/min～200 mL/min とされている。一方、厚生労働省の VOC 試験法では、居住住宅の場合日常生活を営みながら室内空気を 24 時間採取することが求められおり、JIS A 1965:2015 で推奨される流速で採取した場合、採取量は 72 L～288 L になる。TVOC の分析においては、その定義上、*n*-Hexane から *n*-Hexadecane までの VOC を定量的に捕集する必要がある。しかし、JIS A 1965:2015 に例示されているように、Tenax TA®吸着剤 200 mg を充てんした一般的な吸着管で、破過を生じることなく *n*-Hexane を捕集できる保持容量は 6.4 L、安全試料採取量 (Safe Sampling Volume) は 3.2 L であり、24 時間採取することを想定した場合には、流速を 2 mL/min 程度までさげる必要がある。このような超低流速で作動する市販のポンプが限られていること、超低流速で採取する際に問題となる拡散現象による吸着管の汚染を防止する必要があること、などの問題があり、室内空気中 TVOC 試験法を策定する上での障害となっていた。今般、厚生労働行政推進調査事業 (化学物質リスク研究事業)「室内空気汚染化学物質の標準試験法の開発・規格化および国際規制状況に関する研究」(研究代表者 酒井信夫) の成果として、研究分担者 香川聡子らによって、室内空気中の TVOC 試験法が日本薬学会衛生試験法・注解 2020 追補 2024 に掲載されたことから、今後は、分析化学的な妥当性が保証された TVOC データの蓄積が期待される。

2. 健康リスク指標としての TVOC について

PubMed を Keyword Total Volatile Organic Compounds/TVOC(s)/Total VOC(s) で検索した結果、951 件の論文が該当した。年次推移では、2017 年の 36 件から 2023 年には 124 件へと大幅に増加しており、学術的に TVOC に対する関心が高まっていることが

伺える (図 1)。

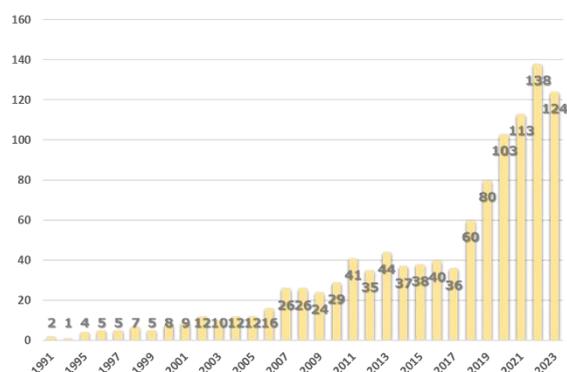


図 1 TVOC に対する学術的な関心度の推移

しかしながら、個々の TVOC 構成成分の健康影響を考察した論文や、疫学的な調査で TVOC 濃度とある種の健康リスクに関連が認められたとする論文はいくつか存在したものの、総体としての TVOC による直接的な健康影響を検討した論文を見出すことはできなかった。したがって、20 年前と同様に、現状においても TVOC を健康影響に関連付けることは困難であると考えられる。以下に、文献等の検討結果の概要を記した。

[文献調査結果の概要]

Salthammer (2022) は TVOC に関する最近の総説の中で、「TVOC は毒性に基づくパラメータではないことから、限られたスクリーニング目的にしか適さないことが早くから認識されていた。そのため、TVOC を健康や臭気に関連する問題に適用することはできない」と記している。我が国でも 2000 年代に同様の指摘がなされており、田辺 (2005) は厚生労働科学研究 (H17-特別-031) 統括報告書において、TVOC と健康影響の関連について考察し、「TVOC は空気の汚れの指標として一定の役割はあるが、健康影響とは切り離して考えるべきである」と述べている。

ここでは、Salthammer (2022) の総説で言及されている論文を中心に、健康リスク指標としての TVOC について考察を行った。

Andersson et al. (1997) は、VOC/TVOC と健康に関する 120 報の論文の中から、曝露と健康影響の両方のデータを含む 67 報の論文を Review し、VOC による室内空気汚染は一般の居住環境における健康影響や快適性を損なう原因である可能性が高いと結論づけた。しかし、一方で、「建築物における健康影響や快適性のリスク指標としての TVOC に関しては、学術論文で結論は得られておらず、現在のところ、TVOC の限界値やガイドラインを設定するための科学的根拠は不十分である」と結論づけている。

Mølhave et al. (1986) は、62 人の健康な被験者に、チャンバー内で、異なる濃度の 22 種類の VOC 混合物を 2.75 時間曝露した。VOC 混合物 (Mølhave-mixture) の組成は、芳香族炭化水素類約 36%、エステル類が 36%、脂肪および環状炭化水素類 14%、その他ケトン類、アルコール類、ジクロロエタンおよび α -ピネンであった。目、鼻および喉の刺激性の評価では、 5 mg/m^3 と 25 mg/m^3 (濃度はいずれもトルエン換算値) で曝露量と急性影響との間に有意な相関が認められた。

Otto et al. (1990)、Otto et al. (1992) および Hudnell et al. (1992) は、66 人の若い男性を対象にして、VOC 混合物濃度 0 mg/m^3 および 25 mg/m^3 で Mølhave et al. (1986) の追試を行った。被験者は、 25 mg/m^3 で強い不快な臭い、頭痛、全身的な不快感を訴えたが、神経行動学的な試験では影響は認められなかった。しかし、Hudnell et al. (1992) は、刺激やその他の症状は臭気強度と単純な関係にはないと結論づけ、混合物中の VOC が相加的に作用して三叉神経を刺激する可能性を指摘した。

Kjærsgaard ら (1991) は Mølhave et al. (1986) の研究を拡張し、21 人の健康な被験

者と健 14 人のシックハウス症候群患者の反応を比較した。どちらのグループでも反応がみられたものの、シックハウス症候群患者でより顕著な傾向が認められた。

Mølhave (1991) は、自らの研究を基に、VOC への曝露について以下のような用量反応関係を導いた： $<0.20 \text{ mg/m}^3$ 未満 (快適性の範囲)、 $0.2\sim 3.0 \text{ mg/m}^3$ (多因子曝露の範囲)、 $3.0\sim 25 \text{ mg/m}^3$ (不快性の範囲)、 25 mg/m^3 超 (有害曝露の範囲)。

Gminski et al. (2011a, 2011b) は、 48m^3 のチャンバー内で、24 人の健康な被験者に TVOC 濃度が約 0.1 mg/m^3 、 5 mg/m^3 、 7 mg/m^3 または 9 mg/m^3 の空気を 2 時間曝露させたが、感覚過敏や肺への影響はみられなかった。

Junge et al. (2021) は、動物実験モデルと前向きコホート研究で、木材から放散するテルペン類やアルデヒド類の喘息への影響を調査した。マウスを TVOC 濃度 3 mg/m^3 から 18 mg/m^3 の空気に曝露しても、気道炎症に有意な影響は認められなかった。また、疫学的な調査結果を基に、木材関連 VOC の混合物は、10 歳までの小児の早期喘鳴/喘息発症に影響は与えないことを示した。

我が国で実施された最近の研究として、Tamura et al. (2023) は、実験室ハウス (LH) 60 分間過ごした被験者 149 人が LH 内の室内空気質 (IAQ) を評価した。建築物関連症状 (BRS) のリスクと暫定目標値レベル ($400 \mu\text{g/m}^3$) の TVOC との間に有意な関係が認められた (オッズ比: 2.94、95%信頼区間: 1.18-7.35)。さらに、TVOC レベルが $400 \mu\text{g/m}^3$ 未満の空間では、臭気強度と BRS のリスクとの間に有意な関係がみられた (オッズ比: 6.06、95%信頼区間: 1.21-30.44)。これらの結果から、著者らは、TVOC レベルが低く、臭気強度が低い空間では BRS のリスクは有意に低く、空気中の化学物質の濃度と臭気強度を下げることで IAQ を改善し、BRS を予防できる可能性がある」と結論

づけている。

これらの論文は、同一組成の VOC 混合物については、濃度依存的な健康影響が認められる場合があるものの、依然として、組成が異なる TVOC を毒性と直接関連付けることは困難であることを示している。興味深い最近の報告として、Takaguchi et al. (2024) は、我が国の 154 軒の室内空気中の VOCs を調査し、VOC 組成を基にクラスター解析を行った。階層的クラスタリング分析で得られた 6 つの特徴的なクラスターのうち、p-ジクロロベンゼンが VOC 合計量の 42~72% を占めるクラスターと咳症状との間に有意な関連があることを見出している。

References

- K. Andersson, J. V. Bakke, O. Bjørseth, C.-G. Bornehag, G. Clausen, J. K. Honglo, M. Kjellman, S. Kjærgaard, F. Levy, L. Møhlhave, S. Skerfving, J. Sundell (1997) TVOC and health in non-industrial indoor environments: report from a nordic scientific consensus meeting at längholmen in Stockholm. *Indoor Air*, **7**: 78-91
- R. Gminski, R. Marutzky, S. Kevekordes, F. Fuhrmann, W. Bürger, D. Hauschke, W. Ebner, V. Mersch-Sundermann (2011a) Chemosensory irritations and pulmonary effects of acute exposure to emissions from oriented strand boards. *Human and Experimental Toxicology*, **30**: 1204-1221
- R. Gminski, R. Marutzky, S. Kevekordes, F. Fuhrmann, W. Bürger, D. Hauschke, W. Ebner, V. Mersch-Sundermann (2011b) Sensory irritations and pulmonary effects in human volunteers following short-term exposure to pinewood emissions. *Journal of Wood Science*, **57**: 436-445
- H.K. Hudnell, D.A. Otto, D.E. House, L. Møhlhave (1992) Exposure of humans to a volatile organic mixture II. Sensory. *Archives of Environmental Health*, **47**: 31-38
- K.M. Junge, L. Buchenauer, E. Elter, K. Butter, T. Kohajda, G. Herberth, S. Röder, M. Borte, W. Kiess, M. von Bergen, J.C. Simon, U.E. Rolle-Kampczyk, I. Lehmann, R. Gminski, M. Ohlmeyer, T. Polte (2021) Wood emissions and asthma development: Results from an experimental mouse model and a prospective cohort study. *Environment International*, **151**: 106449
- S.K. Kjærgaard, L. Møhlhave, O.F. Pedersen (1991) Human reactions to a mixture of indoor air volatile organic compounds. *Atmospheric Environment Part A General Topics*, **25**: 1417-1426
- L. Møhlhave, B. Bach, O.F. Pedersen (1986) Human reactions to low concentrations of volatile organic compounds. *Environment International*, **12**: 167-175
- L. Møhlhave (1991) Volatile organic compounds, indoor air quality and health. *Indoor Air*, **1**: 357-376
- D. Otto, L. Møhlhave, G. Rose, H.K. Hudnell, D. House (1990) Neurobehavioral and sensory irritant effects of controlled exposure to a complex mixture of volatile organic compounds. *Neurotoxicology and Teratology*, **12**: 649-652
- D.A. Otto, H.K. Hudnell, D.E. House, L. Møhlhave, W. Counts (1992) Exposure of Humans to a Volatile Organic Mixture I. Behavioral Assessment. *Archives of Environmental Health*, **47**: 23-30
- T. Salthammer (2022) TVOC - Revisited. *Environment International*, **167**: 107440
- K. Takaguchi, H. Nakaoka, K. Tsumura, A. Eguchi, K. Shimatani, Y. Nakayama, T. Matsushita, T. Ishizaka, A. Kawashima, C. Mori a, N. Suzuki (2024) The association between clustering based on composition of volatile organic compound in indoor air and building-related symptoms. *Science of The Total Environment*, **917**: 170197
- 田辺 新一 (2005) 総揮発性有機化合物 (TVOC) に関する研究, 平成 17 年度厚生労働科学研究補助金 (厚生労働科学特別研究事業) 総括報告書
- K. Tsumura, H. Nakaoka, N. Suzuki, K. Takaguchi, Y. Nakayama, K. Shimatani, C. Mori (2023) Is indoor environment a risk factor of building-related symptoms? *PLoS ONE* **18**: e0279757

環境省が取り纏めた「化学物質の環境リスク評価」(<https://www.env.go.jp/chemi/risk/index.html>)において、沸点が 50-260°C の範囲で、吸入曝露の「無毒性量等」が導出されている 106 化合物を選定し、「無毒性量等」の分布を検討した結果では、0.0002 mg/m³ から 870 mg/m³ まで、実に 4×10⁶ 倍もの差異が認められ、「無毒性量等」が 1 以上 10 mg/m³ の VOC が最も多く 34 化合物、次いで 0.1 以上 1 mg/m³ 未満が 28 化合物であった (図 2)。このように、毒性の強さが大きく異なる一群の化合物による健康リスクを、質量分析計のイオン強度の和で表現することは、将来にわたっても実質的に困難であると考えられる。

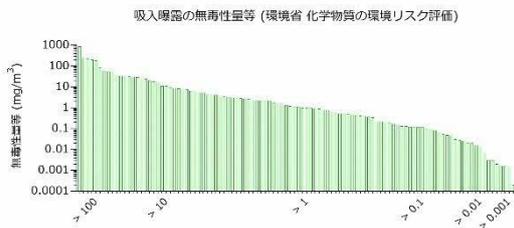


図2 吸入曝露の無毒性量等の分布

3. 暫定目標値 400 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の妥当性について

国立医薬品食品衛生研究所が実施した2012、2013、2016 および 2020 年度全国調査の結果では、TVOC の中央値は 229~260 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲であり、暫定目標値を超過した家屋の割合は 20 ないし 40%と報告されている。

- 2012 年： 居間 中央値 260 $\mu\text{g}/\text{m}^3$
暫定目標値超過率 30%
- 2013 年： 居間 中央値 240 $\mu\text{g}/\text{m}^3$
暫定目標値超過率 37%
- (2013 年無作為： 居間 中央値 260 $\mu\text{g}/\text{m}^3$
暫定目標値超過率 31%)
- 2016 年度：居間 中央値 229 $\mu\text{g}/\text{m}^3$
暫定目標値超過率 24%
- 2020 年度：居間 中央値 229 $\mu\text{g}/\text{m}^3$
暫定目標値超過率 25%

現行の TVOC 暫定目標値は、SIM 法で個別定量した揮発性有機化合物 (VOC) 41 物質の中央値の総和 153 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を基に、いくつかの仮定を適用して得られた推定値 306 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ から設定されたものである。Scan 法による TVOC 分析法で得られた目標値ではないことから、「暫定」とされたものと推察される。

一方、上記の全国調査の TVOC 中央値は、

日本薬学会環境・衛生部会で衛生試験法として公定法化された標準法で採取・測定されたものであり、わが国の室内空気中の TVOC の現状を正確に反映していると言える。各年度の TVOC 中央値(229~260 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) は、暫定目標値設定時の TVOC 推定値 (306 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) の 75%程度であり、20-40%程度の家屋が暫定目標値を超過していた。国立医薬品食品衛生研究所の精力的な TVOC 試験法に則った全国調査により、暫定目標値が設定された時点と現在で室内の TVOC の状況には大きな変化はなく、400 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の目標値を変更する必要はないものと考えられる。

4. 未評価化学物質スクリーニングとしての TVOC

上述した「無毒性量等」が 1 mg/m^3 を超える 56 化合物については、室内空気中濃度が概ね 10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ であれば、100 以上の MOE (Margin of Exposure) が確保されていることとなり、「現時点では詳細な評価あるいは情報収集を実施する必要はない」と判定される。

参考：環境省 健康リスク評価

有害性に閾値があると考えられる場合には、無毒性量等を予測最大曝露量(又は予測最大曝露濃度)で除した値 (MOE) を求めて判定する。

MOE (判定)

- 10 未満 (詳細な評価を行う候補と考えられる)
- 10 以上 100 未満 (情報収集に努める必要があると考えられる)
- 100 以上 (現時点では作業は必要ないと考えられる)

衛生試験法・注解に収載された TVOC 試験法では、各構成成分について 1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 程度の濃度から定量的な評価が可能であり、室

室内空气中の化学物質にかかる情報収集や詳細な評価の必要性を判定するのに十分な検出感度を備えている。すなわち、TVOC 測定と同時に未評価化学物質のスクリーニングを実施できる点が、総合的な室内空気質指標としての TVOC の付加価値であると言える。

D. 結論

【令和 3 年度】

本研究では、26 軒の居住住宅で室内空気を採取し、TVOC にかかる実態調査を実施した。その結果、TVOC 濃度の中央値 443 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、TVOC 暫定目標値の超過率 58%という値が得られた。これらの値は、厚生労働省／国立医薬品食品衛生研究所による従前からの全国実態調査で報告されている TVOC 濃度、超過率と概ね一致していた。

今回の調査では、各住宅の TVOC 濃度と Peak 数の間に有意な正の相関が認められたことから、室内空間の VOCs の種類が増加するような状況（生活様式）、例えば VOCs 放散源となり得る家庭用品等の使用数の増加が TVOC 濃度増大の要因となっているものと考えられる。一方で、1 種類の VOC が TVOC の 25%以上を占める住宅が 35%存在したことは、TVOC 測定による VOCs の同定が TVOC の効率的な低減、言い換えれば、室内空気質の向上に有効であることを示している。

【令和 4 年度】

本研究では、2020 年度に国立医薬品食品衛生研究所 生活衛生化学部第一室が実施した全国実態調査の測定結果をデコンボリューション解析し、近年の室内空气中で検出される VOCs の特徴付けを行った。

TVOC の中央値は 229 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、平均値は 321 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、最大値は 1960 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ で、暫定目標値 400 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の超過率は 25.3%であった。2012 年および 2013 年の度夏季実態調査の

結果（居間の TVOC 濃度の中央値：それぞれ 260 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、240 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、暫定目標値超過率：それぞれ 30%、37%）と比較すると、10 年近くを経たのちも、TVOC として評価した室内空気質に顕著な変化はみられない、という結果となった。

また、比較的高頻度、高濃度で検出される特徴的な化合物群として、指針値策定（候補）化合物の他に、脂肪族炭化水素類（27.4%）、テルペン類（16.9%）、環状シロキサン類（15.0%）が特定された。これらの化合物群については 2013 年度夏季の調査と比較して顕著な差異は認められないが、Glycol Ether 類の検出事例が若干増加傾向にある。

本研究では、これらの解析結果を基に、TVOC を測定する際に定量の対象とする VOCs のリスト、いわゆる必須 VOC リストの提案も併せて行った。主要な 36 VOCs の定量を行うことで、TVOC の測定精度がより一層向上することが期待される。

【令和 5 年度】

本研究では、TVOC の在り方について、健康リスク評価指標としての有効性と、室内空气中の未評価化学物質スクリーニング法としての有用性の 2 つの観点から検討を行った。その結果、文献調査では、種々の VOC 混合物である TVOC による直接的かつ定量的な健康影響を検討した論文を見出すことはできず、現状では TVOC を健康リスクに関連付けることは困難であると考えられる。その一方で、TVOC の測定で得られる未評価化学物質に関する情報は、当該物質の既存の有害性情報から MOE 推定値を導出することも可能であり、室内空気質をスクリーニングするために極めて有用である。この 20 年間で一義的な TVOC 試験法による全国調査結果が得られていることも踏まえると、400 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の目標値を変更する必要はないものと考えられる。

E. 健康危険情報

なし

F. 研究発表

1. 論文発表

- 1) 森 葉子, 植田康次, 櫻井有紀, 青木 明, 岡本誉士典, 神野透人: 小型インピンジャーを用いる通気法による食品中シアン化合物の分析, 食品衛生学雑誌, 62, 162-165 (2021)
- 2) Mori Y, Tanaka-Kagawa T, Tahara M, Kawakami T, Aoki A, Okamoto Y, Isobe T, Ohkawara S, Hanioka N, Azuma K, Sakai S, Jinno H., Species differences in activation of TRPA1 by resin additive-related chemicals relevant to indoor air quality. *J Toxicol Sci.* 2023;48(1):37-45. doi: 10.2131/jts.48.37.
- 3) Mori Y, Aoki A, Okamoto Y, Isobe T, Ohkawara S, Hanioka N, Tanaka-Kagawa T, Jinno H. Species-Specific Activation of Transient Receptor Potential Ankyrin 1 by Phthalic Acid Monoesters. *Biol Pharm Bull.* 2022, 45: 1839-1846.

2. 学会発表

- 1) 高橋 直也, 中嶋 康一郎, 大河原 晋, 河村 伊久雄, 三浦 伸彦, 森 葉子, 磯部 隆史, 埴岡 伸光, 神野 透人, 香川 (田中) 聡子: Matrix metalloproteinases のヒト気管および肺組織における発現 個体差, 第 48 回日本毒性学会学術年会, 神戸, 2021 年 7 月
- 2) 森 葉子, 楠木 麻菜美, 加藤 水基, 青木 明, 岡本 誉士典, 磯部 隆史, 大河原 晋, 埴岡 伸光, 香川 (田中) 聡子, 神野 透人: 花生姜抽出物による TRPA1 を介したマウス腸管内分泌細胞株 STC-1 の GLP-1 分泌促進, フォーラム 2021 衛生薬学・環境トキシコロ

ジー, 船橋, 2021 年 9 月

- 3) 森 葉子, 青木 明, 岡本 誉士典, 磯部 隆史, 大河原 晋, 埴岡 伸光, 香川 (田中) 聡子, 神野 透人: フタル酸エステル類による TRPA1 活性化の種差, 日本薬学会第 142 年会, 名古屋, 2022 年
- 4) 酒井 信夫, 田原 麻衣子, 大島 直浩, 大貫 文, 斎藤 育江, 千葉 真弘, 大泉 詩織, 田中 礼子, 山之内 孝, 遠藤 治, 鳥羽 陽, 中島 大介, 藤森 英治, 神野 透人, 香川(田中) 聡子: 衛生試験法・注解 2020 追補 2022 空気試験法・空気試験法: 揮発性有機化合物・捕集剤による乾式採取(アクティブ法) - 加熱脱着 - ガスクロマトグラフィー/質量分析法による定量(新規), 日本薬学会第 142 年会, 名古屋, 2022 年 3 月
- 5) 小池 加那子, 中嶋 康一郎, 河村 伊久雄, 三浦 伸彦, 森 葉子, 磯部 隆史, 大河原 晋, 埴岡 伸光, 神野 透人, 香川 (田中) 聡子: Vitamin D 代謝酵素のヒト組織における発現とその個体差, 第 49 回日本毒性学会学術年会, 札幌, 2022 年 6 月
- 6) 森 葉子, 青木 明, 岡本 誉士典, 磯部 隆史, 大河原 晋, 埴岡 伸光, 香川 (田中) 聡子, 神野 透人: フタル酸エステル類の動物種特異的な生体影響に関する研究: TRPA1 活性化の種差を生じるタンパク質構造の解明, フォーラム 2022 衛生薬学・環境トキシコロジー, 熊本, 2022 年 9 月
- 7) 堤 亜里紗, 小林 叶奈, 河村 伊久雄, 三浦 伸彦, 森 葉子, 磯部 隆史, 大河原 晋, 埴岡 伸光, 神野 透人, 香川 (田中) 聡子: SARS-CoV-2 感染に関与する生体内因子のヒト気道組織中での発現とその個体差, フォーラム 2022 衛生薬学・環境トキシコロジー, 熊本, 2022 年 9 月
- 8) 香川 (田中) 聡子, 酒井信夫, 神野 透

- 人：室内空气中総揮発性有機化合物 (TVOC) に関する最新の動向, 第 63 回大気環境学会年会, 室内環境分科会, 大阪, 2022 年 9 月
- 9) 高橋 直也, 中嶋 康一郎, 河村 伊久雄, 三浦 伸彦, 森 葉子, 磯部 隆史, 大河原 晋, 埴岡 伸光, 神野 透人, 香川 (田中) 聡子: 気道過敏性に関与する生体内因子のヒト気道組織中での発現と個体差, 第 66 回日本薬学会関東支部大会, 横浜, 2022 年 9 月
- 10) 中嶋 康一郎, 高橋 直也, 河村 伊久雄, 三浦 伸彦, 森 葉子, 磯部 隆史, 大河原 晋, 埴岡 伸光, 神野 透人, 香川 (田中) 聡子: GLP-1 受容体のヒト組織における発現とその個体差, 第 66 回日本薬学会関東支部大会, 横浜, 2022 年 9 月
- 11) 小池 加那子, 中嶋 康一郎, 河村 伊久雄, 三浦 伸彦, 森 葉子, 磯部 隆史, 大河原 晋, 埴岡 伸光, 神野 透人, 香川 (田中) 聡子: ヒト組織における Vitamin D 代謝酵素及び VDR の発現と個体差, 第 66 回日本薬学会関東支部大会, 横浜, 2022 年 9 月
- 12) 小林 叶奈, 堤 亜里紗, 河村 伊久雄, 三浦 伸彦, 森 葉子, 磯部 隆史, 大河原 晋, 埴岡 伸光, 神野 透人, 香川 (田中) 聡子: SARS-CoV-2 感染に関与する生体内因子のヒト組織中での発現とその個体差, 第 66 回日本薬学会関東支部大会, 横浜, 2022 年 9 月
- 13) 森 葉子, 香川 (田中) 聡子, 田原 麻衣子, 河上 強志, 青木 明, 岡本 誉士典, 磯部 隆史, 大河原 晋, 埴岡 伸光, 東 賢一, 酒井 信夫, 神野 透人: 2-Ethyl-1-hexanol、Texanol および TXIB による侵害刺激の種差に関する研究、2022 年室内環境学会学術大会, 東京, 2022 年 12 月
- 14) 中向井 璃奈, 浦島 桃香, 森 葉子, 磯部 隆史, 大河原 晋, 河村 伊久雄, 三浦 伸彦, 北川 康行, 埴岡 伸光, 神野 透人, 香川 (田中) 聡子: Isothiazolinone 系抗菌薬によるヒト TRPA1 活性化の *in silico* 分子機構解析, 日本薬学会第 143 年会, 札幌, 2023 年 3 月
- 15) 大貫 文, 田原 麻衣子, 酒井 信夫, 高木 規峰野, 田中 礼子, 村木 沙織, 斎藤 育江, 千葉 真弘, 大泉 詩織, 大野 浩之, 若山 貴成, 鈴木 浩, 鳥羽 陽, 中島 大介, 藤森 英治, 香川 (田中) 聡子, 神野 透人: 空気試験法: フタル酸ジ-*n*-ブチルおよびフタル酸ジ-2-エチルヘキシル: 固相吸着-加熱脱離-ガスクロマトグラフィー/質量分析法による定量 (新規), 日本薬学会第 144 年会, 横浜, 2024 年 3 月
- 16) 香川 (田中) 聡子, 森 葉子, 田原 麻衣子, 大河原 晋, 磯部 隆史, 大貫 文, 鈴木 浩, 鳥羽 陽, 中島 大介, 藤森 英治, 埴岡 伸光, 酒井 信夫, 神野 透人: 空気試験法: 総揮発性有機化合物 (新規), 日本薬学会第 144 年会, 横浜, 2024 年 3 月

3. 著書

- 1) 香川 聡子, 遠藤 治, 斎藤 育江, 酒井 信夫, 神野 透人, 鳥羽 陽, 中島 大介, 藤森 英治: 有機物質 / 揮発性有機化合物 / 固相吸着-加熱脱離-ガスクロマトグラフィー/質量分析法による定量 (新規), 公益社団法人日本薬学会環境・衛生部会, 衛生試験法・注解 2020 追補 2022, 公益社団法人日本薬学会環境衛生部会発行, 東京, p.13-17, 2022.
- 2) 神野 透人, 大貫 文, 香川 聡子, 酒井 信夫, 鈴木 浩, 鳥羽 陽, 中島 大介, 藤森 英治: 空気試験法 / 有機化

合物 / 揮発性有機化合物 / 総揮発性有機化合物 (新規), 公益社団法人日本薬学会環境衛生部会・試験法出版委員会編, 日本薬学会編衛生試験法・注解 2020・追補 2024, 公益社団法人日本薬学会環境衛生部会発行, 東京, p.8-12, 2024.

- 3) 神野 透人, 大貫 文, 香川 聡子, 酒井 信夫, 鈴木 浩, 鳥羽 陽, 中島 大介, 藤森 英治: 空気試験法 / 有機化合物 / フタル酸ジ-n-ブチルおよびフタル酸ジ-2-エチルヘキシル・固相吸着-加熱脱離-ガスクロマトグラフィー・質量分析法による定量 (新規), 公益社団法人日本薬学会環境衛生部会・試験法出版委員会編, 日本薬学会編衛生試験法・注解 2020・追補 2024, 公益社団法人日本薬学会環境衛生部会発行, 東京, p.13-17, 2024.

2. 知的財産権の出願・登録状況 (予定を含む)

特許取得

なし

実用新案登録

なし

【令和3年度】結果図表

居住住宅26軒(居間)のTVOC濃度分布

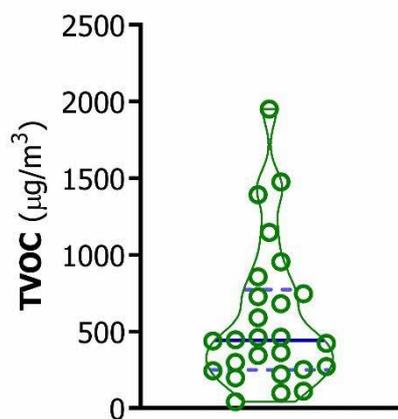


図1 居住住宅のTVOC濃度分布

Peak数とTVOC濃度の相関

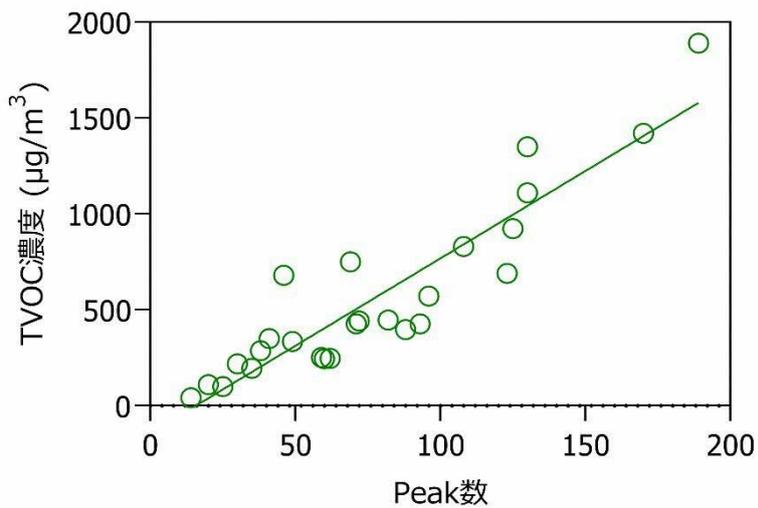


図2 TVOC構成成分数(Peak数)とTVOC濃度の相関

表1 室内空気中のTVOC濃度とその構成成分数、および主要VOC成分

Sample	TVOC (μg/m ³)	TVOCを構成するPeak数	TVOCの80%を占める最少のPeak数	TVOCに占める割合が最も高いComponent	TVOCに占める割合 (%)
No.1	427	71	31	2,2,4,6-Pentamethylheptane	31
No.2	195	35	17	D-Limonene	11
No.3	252	59	30	D-Limonene	15
No.4	1350	130	36	D-Limonene	44
No.5	247	62	34	Decane	7
No.6	924	125	44	Decamethylcyclopentasiloxane	20
No.7	750	69	17	D-Limonene	38
No.8	1110	130	49	Nonane	9
No.9	1890	189	79	Decamethylcyclopentasiloxane	5
No.10	219	30	11	Decamethylcyclopentasiloxane	51
No.11	43	14	9	Decanal	21
No.12	573	96	43	Nonane	6
No.13	351	41	13	Decamethylcyclopentasiloxane	41
No.14	245	60	34	Decane	9
No.15	335	49	18	α-Pinene	26
No.16	428	93	59	3-Methoxy-3-methylbutanol	8
No.17	448	82	35	1,8-Cineol	20
No.18	100	25	14	D-Limonene	17
No.19	111	20	8	Decamethylcyclopentasiloxane	41
No.20	442	72	29	2,2,6-Trimethyl-Octane	19
No.21	830	108	42	Decamethylcyclopentasiloxane	15
No.22	288	38	13	Decamethylcyclopentasiloxane	48
No.23	690	123	53	Nonane	6
No.24	1420	170	65	Nonane	7
No.25	680	46	9	Decamethylcyclopentasiloxane	36
No.26	398	88	45	Dichlorobenzene	9

表2 デコンボリューション解析で同定された主なTVOC構成成分

Sample	RT	Area	Library Match	CAS #	Classification
No. 1	15.850	7300330	Heptane, 4-ethyl-2,2,6,6-tetramethyl-	62108-31-0	脂肪族炭化水素
	8.755	2308817	Toluene-D8	2037-26-5	
	12.917	1491513	Nonane	111-84-2	脂肪族炭化水素
	21.210	825341	Tridecane	629-50-5	脂肪族炭化水素
	18.597	775852	Undecane	1120-21-4	脂肪族炭化水素
No. 2	8.757	2878985	Toluene-D8	2037-26-5	
	16.688	1526129	D-Limonene	5989-27-5	香料
	20.432	1191562	Dihydroterpineol	21129-27-1	香料
No. 3	8.757	2799557	Toluene-D8	2037-26-5	
	16.687	2445600	D-Limonene	5989-27-5	香料
No. 4	16.700	23314456	D-Limonene	5989-27-5	香料
	16.705	4252758	(Unknown)		
	8.752	2925658	Toluene-D8	2037-26-5	
	15.817	2728517	Decane	124-18-5	脂肪族炭化水素
	12.913	2663248	Nonane	111-84-2	脂肪族炭化水素
	9.993	1592301	Octane	111-65-9	脂肪族炭化水素
	21.205	1499497	Dodecane	112-40-3	脂肪族炭化水素
	18.592	1404526	Undecane	1120-21-4	脂肪族炭化水素
16.690	1152777	(Unknown)		脂肪族炭化水素	
No. 5	8.747	3146196	Toluene-D8	2037-26-5	
No. 6	20.048	8690982	Cyclopentasiloxane, decamethyl-	541-02-6	環状シロキサン
	16.682	4660561	D-Limonene	5989-27-5	香料
	8.750	3122193	Toluene-D8	2037-26-5	
	15.817	2607164	Decane	124-18-5	脂肪族炭化水素
	12.912	2247940	Nonane	111-84-2	脂肪族炭化水素
	20.062	1714700	(Unknown)		
	18.592	1595349	Undecane	1120-21-4	脂肪族炭化水素
	15.902	1301163	Benzene, 1,3-dichloro-	541-73-1	防虫剤
	21.203	1131056	Dodecane	112-40-3	脂肪族炭化水素
No. 7	16.688	17975697	D-Limonene	5989-27-5	香料
	20.053	8012851	Cyclopentasiloxane, decamethyl-	541-02-6	環状シロキサン
	8.755	3206087	Toluene-D8	2037-26-5	
	9.843	1575911	Acetic acid, butyl ester	123-86-4	エステル類
No. 8	12.917	5957926	Nonane	111-84-2	脂肪族炭化水素
	15.822	3934080	Decane	124-18-5	脂肪族炭化水素
	9.997	2649363	Octane	111-65-9	脂肪族炭化水素
	8.755	2376603	Toluene-D8	2037-26-5	
	18.593	2095397	Undecane	1120-21-4	脂肪族炭化水素
	11.818	1880394	Benzene, 1,3-dimethyl-	108-38-3	芳香族炭化水素
	8.865	1744606	Toluene	108-88-3	芳香族炭化水素
	14.107	1408285	(1R)-(+)- α -Pinene	7785-70-8	香料
	15.513	1401047	Mesitylene	108-67-8	芳香族炭化水素
	7.317	1348622	Heptane	142-82-5	脂肪族炭化水素
	21.208	1306612	Dodecane	112-40-3	脂肪族炭化水素
	12.122	1268874	Octane, 3-methyl-	2216-33-3	脂肪族炭化水素
	11.900	1243392	Octane, 3,4,5,6-tetramethyl-	62185-21-1	脂肪族炭化水素

	16.683	1170742	D-Limonene	5989-27-5	香料
	7.987	1054029	Cyclohexane, methyl-	108-87-2	脂肪族炭化水素
	12.528	961558	p-Xylene	106-42-3	芳香族炭化水素
	14.533	890713	Benzene, 1-ethyl-2-methyl-	611-14-3	芳香族炭化水素
	14.755	842290			
No. 9	15.823	5485952	Decane	124-18-5	脂肪族炭化水素
	12.918	5246650	Nonane	111-84-2	脂肪族炭化水素
	20.057	4174679	Cyclopentasiloxane, decamethyl-	541-02-6	脂肪族炭化水素
	8.757	2946092	Toluene-D8	2037-26-5	
	18.597	2841895	Undecane	1120-21-4	脂肪族炭化水素
	7.315	2825222	Heptane	142-82-5	脂肪族炭化水素
	11.920	2662016	(Unknown)		
	16.687	2434712	D-Limonene	5989-27-5	香料
	23.507	2114473	Cyclohexanol, 2=(1,1-dimethylethyl)-, ac	20298-70-8	香料
	8.867	2009639	Toluene	108-88-3	芳香族炭化水素
	21.212	1931836	Dodecane	112-40-3	脂肪族炭化水素
	15.518	1781781	Mesitylene	108-67-8	芳香族炭化水素
	9.998	1776624	Octane	111-65-9	脂肪族炭化水素
	5.148	1760165	Ethyl Acetate	141-78-6	エステル類
	11.823	1529425	o-Xylene	95-47-6	芳香族炭化水素
	10.840	1267264	1,3-Butanediol	107-88-0	その他溶剤
	25.967	1108049	Tridecane	629-50-5	脂肪族炭化水素
	14.538	1049959	Benzene, 1-ethyl-2-methyl-	611-14-3	芳香族炭化水素
	12.125	1015249	Octane, 3-methyl-	2216-33-3	脂肪族炭化水素
No. 10	20.057	6632449	Cyclopentasiloxane, decamethyl-	541-02-6	環状シロキサン
	8.758	2935808	Toluene-D8	2037-26-5	
No. 11	8.758	2648188	Toluene-D8	2037-26-5	
No. 12	8.758	2619944	Toluene-D8	2037-26-5	
	12.920	2159490	Nonane	111-84-2	脂肪族炭化水素
	10.842	1483080	1,3-Butanediol	107-88-0	その他溶剤
	15.825	1266685	Undecane	1120-21-4	脂肪族炭化水素
	20.058	1179907	Cyclopentasiloxane, decamethyl-	541-02-6	環状シロキサン
	10.000	1057671	Octane	111-65-9	脂肪族炭化水素
	21.212	973905	Dodecane	112-40-3	脂肪族炭化水素
	5.217	972048	n-Hexane	110-54-3	脂肪族炭化水素
	14.037	883923	Benzaldehyde	100-52-7	アルデヒド類
No. 13	20.058	8402150	Cyclopentasiloxane, decamethyl-	541-02-6	環状シロキサン
	8.758	2873667	Toluene-D8	2037-26-5	
	16.687	2366003	D-Limonene	5989-27-5	香料
No. 14	8.750	2868999	Toluene-D8	2037-26-5	
	15.817	1115686	Decane	124-18-5	脂肪族炭化水素
No. 15	14.098	5403609	(1R)-(+)- α -Pinene	7785-70-8	香料
	8.748	2995292	Toluene-D8	2037-26-5	
	20.047	2376379	Cyclopentasiloxane, decamethyl-	541-02-6	環状シロキサン
	16.233	1678825	3-Carene	13466-78-9	香料
No. 16	8.747	2621488	Toluene-D8	2037-26-5	
	12.797	2160414	3-Methoxy-3-methylbutanol	56539-66-3	その他溶剤
	17.152	1025747	Octane, 3,5-dimethyl-	15869-93-9	脂肪族炭化水素

	20.417	952631	Cyclohexanol, 1-methyl-4-(1-methylethy	21129-27-1	脂肪族炭化水素
	17.488	920687	Octane, 2,2,6-trimethyl-	62016-28-8	脂肪族炭化水素
No. 17	16.710	4553818	1,8-Cineole	470-82-6	香料
	15.895	3175940	Benzene, 1,3-dichloro-	541-73-1	防虫剤
	8.748	2629427	Toluene-D8	2037-26-5	
No. 18	8.747	2980516	Toluene-D8	2037-26-5	
No. 19	20.048	2557878	Cyclopentasiloxane, decamethyl-	541-02-6	環状シロキサン
	8.745	1545152	Toluene-D8	2037-26-5	
	5.208	521793	n-Hexane	110-54-3	脂肪族炭化水素
No. 20	14.852	5226796	Octane, 2,2,6-trimethyl-	62016-28-8	脂肪族炭化水素
	8.743	2378894	Toluene-D8	2037-26-5	
	15.242	1009784	Hexane, 2,2,3-trimethyl-	16747-25-4	脂肪族炭化水素
	16.630	978700	Decane, 2,2-dimethyl-	17302-37-3	脂肪族炭化水素
	16.675	972130	D-Limonene	5989-27-5	香料
No. 21	20.052	6968964	Cyclopentasiloxane, decamethyl-	541-02-6	環状シロキサン
	12.912	3547376	Nonane	111-84-2	脂肪族炭化水素
	8.750	2286360	Toluene-D8	2037-26-5	
	9.992	2029222	Octane	111-65-9	脂肪族炭化水素
	8.860	1673385	Toluene	108-88-3	芳香族炭化水素
	15.817	1581022	Decane	124-18-5	脂肪族炭化水素
	11.815	1345696	p-Xylene	106-42-3	芳香族炭化水素
	7.308	1190448	Heptane	142-82-5	脂肪族炭化水素
	7.987	976578	Cyclohexane, methyl-	108-87-2	脂肪族炭化水素
	12.117	829164	Octane, 3-methyl-	2216-33-3	脂肪族炭化水素
No. 22	20.052	8090524	Cyclopentasiloxane, decamethyl-	541-02-6	環状シロキサン
	8.752	2707647	Toluene-D8	2037-26-5	
	17.697	909703	Tetrasiloxane, decamethyl-	141-62-8	環状シロキサン
No. 23	12.912	2721093	Nonane	111-84-2	脂肪族炭化水素
	8.752	2567610	Toluene-D8	2037-26-5	
	15.817	1804878	Undecane	1120-21-4	脂肪族炭化水素
	20.052	1595037	Cyclopentasiloxane, decamethyl-	541-02-6	環状シロキサン
	18.592	1341661	Undecane	1120-21-4	脂肪族炭化水素
	9.992	1282717	Octane	111-65-9	脂肪族炭化水素
	21.205	1182768	Dodecane	112-40-3	脂肪族炭化水素
	8.862	924967	Toluene	108-88-3	芳香族炭化水素
No. 24	12.913	6229338	Nonane	111-84-2	脂肪族炭化水素
	15.817	4711071	Decane	124-18-5	脂肪族炭化水素
	18.590	2806587	Undecane	1120-21-4	脂肪族炭化水素
	8.750	2426212	Toluene-D8	2037-26-5	
	9.990	2227454	Octane	111-65-9	脂肪族炭化水素
	11.817	2176317	p-Xylene	106-42-3	芳香族炭化水素
	21.203	2089332	Dodecane	112-40-3	脂肪族炭化水素
	16.680	1677488	D-Limonene	5989-27-5	香料
	15.512	1500376	Mesitylene	108-67-8	芳香族炭化水素
	14.528	1290009	Benzene, 1-ethyl-3-methyl-	620-14-4	芳香族炭化水素
	12.117	1225216	Octane, 3-methyl-	2216-33-3	脂肪族炭化水素
	8.858	1141473	Toluene	108-88-3	芳香族炭化水素
	20.048	1075090	Cyclopentasiloxane, decamethyl-	541-02-6	環状シロキサン

	11.893	1016248	Heptane, 2,3-dimethyl-	3074-71-3	脂肪族炭化水素
	14.752	984803	(Unkown)		
	12.523	966245	p-Xylene	106-42-3	芳香族炭化水素
	15.082	853650	Benzene, 1-ethyl-2-methyl-	611-14-3	芳香族炭化水素
	13.965	840668	Octane, 2,6-dimethyl-	2051-30-1	脂肪族炭化水素
	23.655	819008	Tridecane	629-50-5	脂肪族炭化水素
No. 25	14.098	11287057	(1R)-(+)- α -Pinene	7785-70-8	香料
	20.055	7261732	Cyclopentasiloxane, decamethyl-	541-02-6	環状シロキサン
	20.040	2781069	(Unkown)		
	8.747	2424585	Toluene-D8	2037-26-5	
	16.678	1411584	D-Limonene	5989-27-5	香料
No. 26	8.745	2143595	Toluene-D8	2037-26-5	
	15.893	1897309	Benzene, 1,3-dichloro-	541-73-1	防虫剤
	15.810	1506600	Decane	124-18-5	脂肪族炭化水素
	12.905	1432174	Nonane	111-84-2	脂肪族炭化水素
	21.197	976466	Dodecane	112-40-3	脂肪族炭化水素
	18.582	920693	Undecane	1120-21-4	脂肪族炭化水素

【令和4年度】結果図表

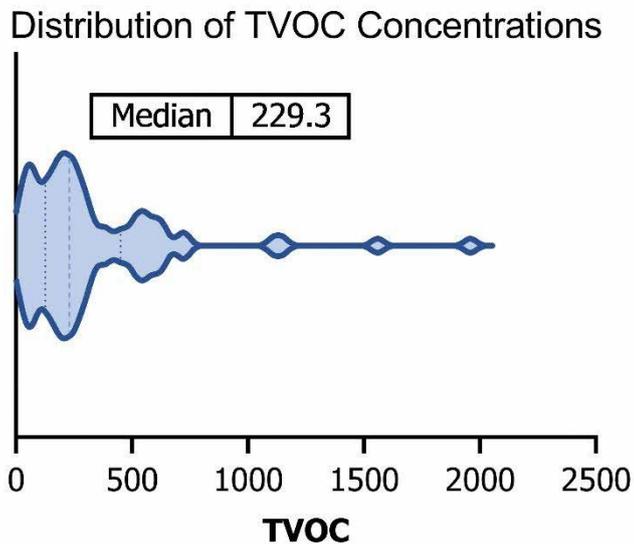


図1 居住住宅のTVOC濃度分布（2020年度全国調査）

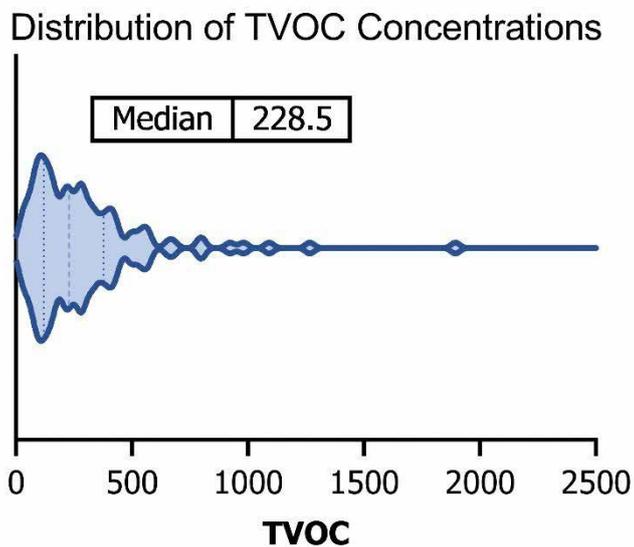


図2 居住住宅のTVOC濃度分布（2016年度全国調査）

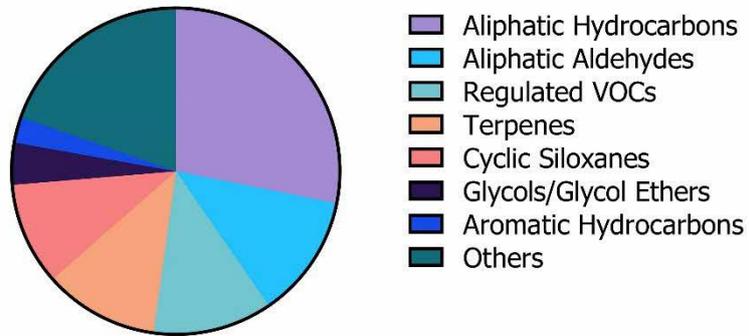


図3 TVOC 構成成分の割合
(各住居の TVOC 値の 50%を占める主要な VOCs)

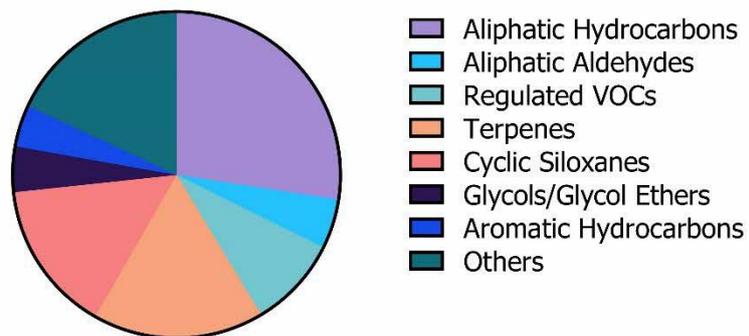


図4 TVOC 構成成分の割合
(40 µg/m³ 以上の濃度で検出された VOCs)

【令和5年度】結果図表

本文中に示す。

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）
令和3年度～令和5年度 総合研究報告書

室内空気汚染化学物質の標準試験法の開発・規格化および国際規制状況に関する研究

室内空気中揮発性有機化合物（VOC）・準揮発性有機化合物（SVOC）の
標準試験法の評価

研究分担者 田原 麻衣子（国立医薬品食品衛生研究所 生活衛生化学部 主任研究官）

研究要旨

現在、「シックハウス（室内空気汚染）問題に関する検討会」が示す室内空気中化学物質の採取方法と測定方法は平成13年（2001年）に通知された方法であり、サンプリング・分析機器等の技術進展に応じたリバイスが必要である。このことから、本分担研究では室内濃度指針値策定物質の標準試験法において、3年間で揮発性有機化合物の2項目、準揮発性有機化合物の6項目について詳細に検討した。さらに、それらの検討を踏まえ、厚生労働省が示している「室内空気中化学物質の測定マニュアル」について、改訂の最終化を行った。本統合版は令和6年（2024年）に開催のシックハウス検討会に諮る予定である。

研究協力者
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
兼俊 明夫 北海道立衛生研究所 生活科学部生活衛生グループ臨時研究職員
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研究職員
大貫 文 東京都健康安全研究センター 薬事環境科学部主任研究員
角田 徳子 東京都健康安全研究センター 薬事環境科学部主任
吉富 太一 神奈川県衛生研究所 理化学部主任研究員
西 以和貴 神奈川県衛生研究所 理化学部主任研究員
田中 礼子 横浜市衛生研究所 理化学検査研究課医務職員

村木 沙織 横浜市衛生研究所 理化学検査研究課技術職員
大嶋 直浩 国立医薬品食品衛生研究所 生活衛生化学部主任研究官

A. 研究目的

現在、「シックハウス（室内空気汚染）問題に関する検討会（以下、シックハウス検討会）」が示す室内空気中化学物質の標準試験法である「室内空気中化学物質の測定マニュアル（以下、測定マニュアル）」は、平成13年（2001年）に通知（医薬発第828号 平成13年7月25日付 厚生労働省医薬局長通知）された方法であり、サンプリング・分析機器等の技術進展に応じた測定方法のリバイスが必要である。また、平成13年（2001年）以降に設定された指針値物質がそれらの方法に適用しているかどうかは確認されていない。このような背景から、本分担研究では、実務を担

当されている地方衛生研究所の先生方とともに室内濃度指針値の策定物質および候補物質における標準試験法のリバイス箇所を討議し、その改良方法を確立すること、それら確立した試験法は測定マニュアルに反映していくことを目的としている。

本分担研究の3年間で、揮発性有機化合物(VOC)については2項目、準揮発性有機化合物(SVOC)については6項目を検討した。さらに、それらの検討を踏まえ、厚生労働省が示している「室内空气中化学物質の測定マニュアル」について、改訂の最終化を行った。

VOC

検討した①および②の2項目の概要を示す。各検討の詳細については、①は令和3年度、②は令和5年度の分担研究報告書をご参照いただきたい。

① 除湿管使用によるVOC分析を想定した添加回収試験

VOCの標準試験法には固相吸着-溶媒抽出-ガスクロマトグラフィー/質量分析法(SE-GC/MS、SE法)および固相吸着-加熱脱離-ガスクロマトグラフィー/質量分析法(TD-GC/MS、TD法)が採用されているが、どちらの試料採取においても、「湿度が高い場合は除湿管を使用してもよい。」と記載されている。しかしながら、除湿管を接続することによる効果や影響についての詳細な検討例は、あまり報告されていない。そこで、室内濃度指針値策定物質6物質および候補物質3物質の計9物質について高湿度条件下での添加回収試験を行い、除湿管接続によるVOCの定量値への影響について検討を行った。まず、高湿度条件の実験を行うことができるチャンバーを構築した。それを用いて、高湿度条件下における除湿剤を用いたVOCの添加回収試験を行った結果、VOCの標準試験法であるSE法およびTD法の両法において、テトラデカンおよ

び指針値候補物質3物質の4物質は除湿管への物理的な吸着が疑われ、回収率が低下する可能性が示唆された。

② VOCのTD-GC/MSにおけるカーボン系捕集管の適用の検討

VOCの標準試験法であるTD-GC/MSにおいて、捕集剤にはTenax TAまたはカーボン系吸着剤が提案されている。一方で、近年VOCはTenax TAを用いた捕集が主流であり、カーボン系吸着剤については使用事例が少ない。そこで、グラファイトカーボンが使用されているTenax GRを用い、TD-GC/MSにおける指針値策定物質6物質および候補物質3物質に適用できるかについて検討した。その結果、添加回収試験では、良好な回収率および相対標準偏差が得られ、空気捕集後、7日以内に分析を完了すれば安定性は保証されていることを確認した。これらのことから、Tenax GRが有用であることが明らかになった。

SVOC

検討した③～⑧の6項目の概要を示す。各検討の詳細については、④および⑥は令和3年度、③および⑦は令和4年度、⑤および⑧は令和5年度の分担研究報告書をご参照いただきたい。

③ フタル酸エステル類のSE-GC/MSにおけるカーボン系捕集管の適用の検討

フタル酸エステル類のSE-GC/MSにおける標準試験法に提案されている捕集剤については、カーボン系吸着剤、オクタデシルシリル化シリカゲル(ODS)またはスチレンジビニルベンゼン共重合体(SDB)を用いられるとされている。一方で、近年はODSやSDBの捕集剤が主流であり、カーボン系吸着剤については、使用事例が少ない。カーボン系吸着剤を用いた捕集管について、フタル酸エステル類専用の製品が少ないことが要因の一つ

と考えられるが、揮発性有機化合物 (VOC) を測定対象とした有機ガス用の製品は市販されており、これらで代替できるのではないかと推察された。そこで、本報告では、VOC 測定用として市販されているカーボン系捕集管を用い、フタル酸エステル類 9 物質の測定に適用できるかについて検討した。その結果、2 L/min で 24 時間捕集し、二硫化炭素 2 mL で抽出する方法が適用できることが明らかとなった。この方法を用い SDB サンプラーとの並行測定を実施したところ、2 法による結果は概ね一致し、VOC 用捕集管でもフタル酸エステル類測定が可能であることが分かった。

VOC用捕集管をフタル酸エステル類測定に使用する注意すべき点は、フタル酸エステル類測定用ではないことや抽出方法が挙げられる。今回用いた捕集管のブランク値は測定に影響を与えるレベルではなかったが、VOC を測定対象とする捕集管では捕集管由来のフタル酸エステル類量が把握されていない可能性が考えられるため、測定前には適用可能か確認する必要がある。また、フタル酸エステル類が石英ウールに吸着することが確認されたが、捕集管の取扱説明書には石英ウールの抽出について記載されていないため、注意が必要である。一方、利点としては、検出感度の向上や専用ホルダーなどの機材を必要としない点が考えられる。これらのことから、カーボン系捕集管はフタル酸エステル類の捕集に有用である。

④ SVOCの同時分析法の開発

SVOCの標準試験法は殺虫剤3種およびフタル酸エステル2種について別々の方法が示されている。室内空気の捕集で24時間、一定の体積をポンプで吸引し、捕集カートリッジに対象化学物質を捕捉するアクティブ法は、感度面で優れているが、器材の運搬やサンプリング時間の長さなどから、実態調査を行う

試験者は一定の労力が必要となる。SVOCは沸点や蒸気圧などの物性が比較的類似していることから、SVOCを同時に分析できる可能性があり、効率的な調査が可能になる。このような背景から、SE-GC/MSにおけるSVOCの室内濃度指針値策定物質5物質およびその他のフタル酸エステル類6物質を含めた計11物質の同時分析法を構築した。その結果、指針値策定物質を含むSVOC 11物質の完全分離を達成した。さらに、添加回収試験は良好な回収率が得られ、定量下限値は室内濃度指針値の1/10~1/500を下回る濃度まで定量することが出来た。一方で、フェノブカルブは使用経年が長いカラムを使用すると分解物である2-sec-ブチルフェノールが生成して定量値に影響を及ぼすため、殺虫剤の試験を行う際は、生成状況を注視する必要があることが明らかになった。

⑤ SVOCの同時分析法を用いた一般居住住宅の実態調査

④において構築した方法を用い、室内濃度指針値が設定されているSVOC 5物質を含む11物質について、同時分析の検討を行った。さらに、一般居住住宅における実態調査を行い、本法の実用性を検証した。その結果、11成分は完全分離し、回収率、RSD、検出下限値、定量下限値ともに十分な性能を有していた。また、本法を用いた実態調査を行ったところ、殺虫剤は全て定量下限値未満であった。フタル酸エステル類については、DEP、DnBP、DEHPが検出され、濃度分布は0.1~0.9 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲に集中する傾向にあったが、指針値濃度を超えるSVOCは確認されなかった。指針値が設定されたDnBPとDEHPの濃度分布を $< 0.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、 $0.1\sim 0.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、 $0.3\sim 0.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、 $0.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$ <ごとに分類すると、2000年代の結果に比べ、低濃度側に移行する傾向が見られた。

⑥ フタル酸エステル類におけるSE法およびTD法の2法の定量値の比較

先行研究において、フタル酸エステル類のSE法およびTD法の2法同時捕集を行った際、定量値のばらつきが大きくなるケースが確認された。そこで、フタル酸エステル類9物質について2法同時捕集の実験を再度実施し、ばらつきが大きくなる要因について検討した。その結果、特に濃度差が大きい測定回が複数見られたフタル酸ビス2-エチルヘキシル (DEHP) については、TD法における操作ブランクの影響が大きく、捕集量が少ないとSE法とのばらつきが大きくなる可能性が考えられた。フタル酸エステル類はVOC等のガス状物質に比べ粒子態の割合が高く、検出されたフタル酸エステル類のなかでも特にDEHPは粒子態の割合が高くなる。粒子状物質はガス状物質よりも空間内分布の不均一が起りやすい可能性も考えられるが、フタル酸エステル類はTD法で十分な捕集量を確保することにより、定量値の差異を解決できると推察された。

⑦ フタル酸エステル類の液体クロマトグラフィ-/エレクトロスプレーイオン化質量分析法 (LC/MS) を用いた分析法の構築

室内空气中フタル酸エステル類を測定するための標準試験法として、GC/MSを用いた2法が示されている。GC/MSを用いた測定の標準キャリアガスにはヘリウムが汎用されているが、昨今の世界的なヘリウムガス供給不足により、ヘリウムガスを使用しない代替試験法の開発が求められている。このような背景から、分析機関の状況に応じて分析方法の選択肢が増やせるよう、フタル酸エステル類のLC/MSによる分析方法を確立することを目的とし、分離、検量線の妥当性、検出下限値および定量下限値等の定量性等について検討した。その結果、2つの分析条件で十分な分離が得られた。検量線は0.02~1 µg/mLの濃度範囲で良好な妥当性が確認され、フタル酸ジ

-*n*-ブチル (DnBP) およびDEHPについて、室内濃度指針値の1/100以下の定量下限値が確認された。これらの結果から、室内空气中フタル酸エステル類のLC/MSを用いた試験法について基礎的な分析条件を確立することができた。

⑧ フタル酸エステル類で構築したSE-LC/MSへの殺虫剤の適用

⑦では、フタル酸エステル類9物質を用いてSE-LC/MSによる基礎的な分析方法を検討した。引き続き、本法が殺虫剤3物質に適用できるか検討した。その結果、SVOC 12物質を同時分析する分離・分析条件が確立でき、十分な定量下限値が得られた。また、通気なしの添加回収試験では真度の目標値を満たした。しかし、室内空気を通気した添加回収試験では殺虫剤の回収率が低下したため、殺虫剤3物質について通気をしない条件下での添加回収試験を行い、回収率が低下する要因を検討した。その結果、抽出に用いる遠沈管の形状がクロロピリホスの回収率に影響を与えることが示された。本要因による回収率の低下が疑われる場合には、抽出時間を延長すれば回収率が向上すると期待された。次に、殺虫剤3物質について通気条件下で、前述の試験で回収率への影響が小さかった遠沈管を用いて添加回収試験を行ったところ、良好な結果が得られた。一方で、同遠沈管を用い、通気条件下での殺虫剤およびフタル酸エステル類同時添加回収試験を行ったところ、殺虫剤の回収率は改善しなかった。これらの結果から、室内空気を通気した添加回収試験において殺虫剤の分析に課題が残った。

測定マニュアルの改訂

現行の測定マニュアルは平成13年（2001年）に示されたものであり、その後策定された指針値物質の測定方法は追補的に示されているため、シックハウス検討会における複数

の配布資料や局長通知等を突合しないと、各指針値物質の測定方法を参照できない。この点に在している測定方法を統合するため、前身の研究班（課題番号：H30-化学-一般-002）の平成30年度分担研究報告書において、本マニュアルの改訂に着手すべく、再構成案を提案した（Table 1）。また、平成13年（2001年）以降に設定された指針値物質がそれらの方法に適用しているかどうかは確認されていない。さらに、「クロルピリホスの測定方法」および「フタル酸ジ-*n*-ブチルの測定方法」については20年以上経った今も未だ暫定案である。このような背景から、現行の室内濃度指針値策定物質13物質および候補物質3物質において、最新の分析技術を基に汎用性の高い改訂標準試験法を構築すること、構築した測定方法は多機関バリデーションを行って、標準試験法に確立すること、それら確立した試験法を測定マニュアルに反映していくことを、前身の研究班から6年かけて実施してきた。総揮発性有機化合物の測定方法を除く最終化した統合版の文案を添付資料1に示す。作成した文案は、シックハウス検討会における配布資料や局長通知等に点に在している測定方法を統合しただけでなく、各標準試験法を確立する際に得られた知見を盛り込んで改訂した。本統合版は令和6年（2024年）に開催のシックハウス検討会に諮る予定である。

E. 結論

本分担研究の3年間で、揮発性有機化合物（VOC）については2項目、準揮発性有機化合物（SVOC）については6項目を検討することでリバイスを推進し、室内空気中化学物質の標準試験法としての採取方法および測定方法について拡充に努めた。さらに、それらの検討を踏まえ、厚生労働省が示している「室内空気中化学物質の測定マニュアル」について、改訂の最終化を行った。

F. 研究発表

1. 論文発表

- 1) Tahara M, Kawakami T, Sakai S, Ikarashi Y: Survey of phthalates, glycols, and other volatile organic compounds in domestic hand-pump spray products and evaluation of their effect on indoor air quality. *Journal of Environmental Chemistry*, 32, 84-94, 2022.
- 2) Taichi Yoshitomi, Iwaki Nishi, Aya Onuki, Tokuko Tsunoda, Masahiro Chiba, Shiori Oizumi, Reiko Tanaka, Saori Muraki, Naohiro Oshima, Hitoshi Uemura, Maiko Tahara, Shinobu Sakai: Development of a standard test method for insecticides in indoor air by GC-MS with solid-phase adsorption/solvent extraction. *BPB reports*, 6(3), 76-80 (2023).
- 3) Masahiro Chiba, Shiori Oizumi, Aya Onuki, Ikue Saito, Reiko Tanaka, Takashi Yamanouchi, Yuko Yokoyama, Takanari Wakayama, Hiroyuki Ohno, Maiko Tahara, Shinobu Sakai: Validation Study for Establishing a Standard Test Method for Volatile Organic Compounds in Indoor Air in Japan using Solvent Extraction. *BPB Reports*, 7(2), 39-43 (2024).
- 4) 千葉真弘, 兼俊明夫, 大泉詩織, 田原麻衣子, 酒井信夫: 室内空気中の揮発性有機化合物分析における除湿管の影響. 室内環境 (Submitted).
- 5) Taichi Yoshitomi, Iwaki Nishi, Hitoshi Uemura, Maiko Tahara, Shinobu Sakai: Simultaneous analysis of insecticides and phthalates in residential buildings based on Japan's indoor air quality guidelines. *BPB Reports* (Submitted).

2. 学会発表

- 1) 吉富太一, 西以和貴, 田原麻衣子, 大嶋直浩, 上村仁, 酒井信夫: N-メチルカルバメート系農薬のGC/MS分析時の分解挙動について. 第58回全国衛生化学技術協議会年会 (2021.11)
- 2) 酒井信夫, 田辺新一, 金炫兌, 伊藤一秀, 田原麻衣子, 大嶋直浩, 斎藤育江, 香川(田中) 聡子, 神野透人, 五十嵐良明: ISO 16000-33: GC/MSを用いたフタル酸エステル類の定量の改訂について. 2021年度室内環境学会学術大会 (2021.12)
- 3) 吉富太一, 西以和貴, 田原麻衣子, 大嶋直浩, 上村仁, 酒井信夫: 室内空気における準揮発性有機化合物標準試験法の開発 フタル酸エステル類と殺虫剤の一斉分析法について. 日本薬学会第142年会 (2022.3)
- 4) 千葉真弘, 兼俊明夫, 大泉詩織, 田原麻衣子, 大嶋直浩, 酒井信夫: 室内空気中の揮発性有機化合物(VOCs)分析における除湿管の影響. 2022年度室内環境学会学術大会 (2022.12)
- 5) 吉富太一, 西以和貴, 田原麻衣子, 仲野富美, 室内空気におけるフェノール系内分泌かく乱物質の一斉分析法について. 日本薬学会第143年会 (2023.3)
- 6) 吉富太一, 西以和貴, 田原麻衣子, 大嶋直浩, 仲野富美, 上村仁, 酒井信夫: GC-MS/MSを利用した室内空気におけるフェノール系内分泌かく乱物質の一斉分析法について. 第31回環境化学討論会(第2回環境化学物質3学会合同大会) (2023.5)
- 7) 吉富太一, 西以和貴, 田原麻衣子, 仲野富美, 上村仁, 酒井信夫: 室内空気におけるアルキルフェノール類, ビスフェノール類の実態調査. 第60回全国衛生化学技術協議会年会 (2023.11)
- 8) 田原麻衣子, 大貫文, 角田徳子, 大泉詩織, 千葉真弘, 酒井信夫, 五十嵐良明: VOCおよびフタル酸エステル類の分析におけるカ

ーボン系捕集管の適用の検討. 2023年室内環境学会学術大会 (2023.11)

- 9) 吉富太一, 西以和貴, 田原麻衣子, 上村仁, 酒井信夫: 室内濃度指針値が設定された準揮発性有機化合物の一斉分析法について. 令和5年度地方衛生研究所全国協議会関東甲信静支部第36回理化学研究部会総会・研究会 (2024.2)
- 10) 大貫文, 田原麻衣子, 酒井信夫, 高木規峰野, 田中礼子, 村木沙織, 斎藤育江, 千葉真弘, 大泉詩織, 大野浩之, 若山貴成, 鈴木浩, 鳥羽陽, 中島大介, 藤森英治, 香川(田中) 聡子, 神野透人: 空気試験法: フタル酸ジ-n-ブチルおよびフタル酸ジ-2-エチルヘキシル 固相吸着-加熱脱離-ガスクロマトグラフィー/質量分析法による定量(新規). 日本薬学会第144年会 (2024.3)
- 11) 吉富太一, 西以和貴, 田原麻衣子, 仲野富美, 上村仁, 酒井信夫: 室内環境中のハウスダストにおけるアルキルフェノール類とビスフェノール類の一斉分析法について. 日本薬学会第144年会 (2024.3)

G. 知的所有権の出願・登録状況

1. 特許取得

なし

2. 実用新案登録

なし

3. その他

なし

Table 1 測定マニュアルの再構成案（H30-化学-一般-002 平成30年度分担研究報告書P54 Table 17から一部改変）

測定方法の項目	現行	再構成案
	別添3 「室内空气中化学物質の測定マニュアル」 ^{*1}	「室内空气中化学物質の測定マニュアル」
	別添3-1. 室内空气中化学物質の採取方法と測定方法 (Ver. 2) ^{*1}	室内空气中化学物質の採取方法と測定方法
	1. 試料採取方法	1. 試料採取方法
ホルムアルデヒド測定法	2. ホルムアルデヒドの測定方法	2. アルデヒド類の測定方法
VOC（標準的）測定法	3. トルエン、 <i>o</i> -, <i>p</i> -, <i>m</i> -キシレン、 <i>p</i> -ジクロロベンゼン等揮発性有機化合物の測定方法	3. 揮発性有機化合物の測定方法
	3.1 第1法 固相吸着-溶媒抽出- ガスクロマトグラフ/質量分析法	3.1 第1法 固相吸着-溶媒抽出- ガスクロマトグラフ/質量分析法
	3.2 第2法 固相吸着-加熱脱着- ガスクロマトグラフ/質量分析法	3.2 第2法 固相吸着-加熱脱離- ガスクロマトグラフ/質量分析法
	3.3 第3法 容器採取-ガスクロマトグラフ/質量分析法	(削除)
	別添3-2. 室内空气中化学物質測定に関する機器等目録について	(削除)
クロルピリホス測定法	別添3-3. 「クロルピリホスの測定方法（暫定案）」 ^{*1}	4. 準揮発性有機化合物の測定方法
フタル酸ジ- <i>n</i> -ブチル測定法	別添3-4. フタル酸ジ- <i>n</i> -ブチル測定法の測定方法（暫定案） ^{*1}	4.1 第1法 固相吸着-溶媒抽出- ガスクロマトグラフ/質量分析法
		4.2 第2法 固相吸着-加熱脱離- ガスクロマトグラフ/質量分析法
総揮発性有機化合物	別添3 総揮発性有機化合物 (TVOC) の空気質指針 策定の考え方について ^{*2}	5. 総揮発性有機化合物 (TVOC) の測定方法
	資料3 総揮発性有機化合物 (TVOC) 試験法 (案) ^{*3}	

主な参照先 *1: 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6回及び第7回のまとめの別添

*2: 中間報告書－第4回及び第5回のまとめの別添

*3: 第21回シックハウス（室内空気汚染）問題に関する検討会 配付資料

**室内空气中化学物質の測定マニュアル
(TVOCを除いた統合版)**

令和 6年 3月

目次

〈これまで指針値等を策定した物質と測定方法対応表〉	2
1. 試料採取方法	3
1. 1 目的および適用範囲	3
1. 2 測定時間	4
1. 3 試料採取場所	5
1. 4 試料の採取	6
1. 5 ブランク試験	7
1. 6 記録事項	8
A. 測定記録シート(建造物情報)	10
B. 測定記録シート(採取状況情報)	12
C. 測定記録シート(利用者情報)	17
1. 7 分析	18
1. 8 結果の記載	21
D. 測定記録シート(個別分析情報:アルデヒド類)	22
1. 9 結果の返却	27
測定結果シート	28
2. アルデヒド類の測定方法	29
3. 揮発性有機化合物の測定方法	36
3.1 第1法 固相吸着-溶媒抽出-ガスクロマトグラフィー/質量分析法	36
3.2 第2法 固相吸着-加熱脱離-ガスクロマトグラフィー/質量分析法	44
4. 準揮発性有機化合物の測定方法	52
4.1 第1法 固相吸着-溶媒抽出-ガスクロマトグラフィー/質量分析法	52
4.2 第2法 固相吸着-加熱脱離-ガスクロマトグラフィー/質量分析法	58
5. 総揮発性有機化合物の測定方法	

〈これまでに指針値等を策定した物質と測定方法対応表〉

揮発性有機化合物	室内濃度指針値	指針値の 設定日および 改定日	試料採取方法および測定方法 (マニュアルの参照ページ)
ホルムアルデヒド	100 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (0.08 ppm)	設定日： 1997.6.13	試料採取方法(p3～22、27、28参照) アルデヒド類の測定方法(p29～35)
アセトアルデヒド	48 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (0.03 ppm)	設定日： 2002.1.22	試料採取方法(p3～22、27、28参照) アルデヒド類の測定方法(p29～35)
トルエン	260 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (0.07 ppm)	設定日： 2000.6.26	試料採取方法(p3～21、23～28参照) 揮発性有機化合物の測定方法(p36～51)
キシレン	200 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (0.05 ppm)	設定日： 2000.6.26 改定日： 2019.1.17	試料採取方法(p3～21、23～28参照) 揮発性有機化合物の測定方法(p36～51)
エチルベンゼン	3800 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (0.88 ppm)	設定日： 2000.12.15	試料採取方法(p3～21、23～28参照) 揮発性有機化合物の測定方法(p36～51)
スチレン	220 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (0.05 ppm)	設定日： 2000.12.15	試料採取方法(p3～21、23～28参照) 揮発性有機化合物の測定方法(p36～51)
パラジクロロベンゼン	240 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (0.04 ppm)	設定日： 2000.6.26	試料採取方法(p3～21、23～28参照) 揮発性有機化合物の測定方法(p36～51)
テトラデカン	330 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (0.04 ppm)	設定日： 2001.7.5	試料採取方法(p3～21、23～28参照) 揮発性有機化合物の測定方法(p36～51)
クロルピリホス	1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (0.07 ppb) 但し小児の場合 は0.1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (0.007 ppb)	設定日： 2000.12.15	試料採取方法(p3～21、23、24、27、28) 準揮発性有機化合物の測定方法(p52～57)
フェノブカルブ	33 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (3.8 ppb)	設定日： 2002.1.22	試料採取方法(p3～21、23、24、27、28) 準揮発性有機化合物の測定方法(p52～57)
ダイアジノン	0.29 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (0.02 ppb)	設定日： 2001.7.5	試料採取方法(p3～21、23、24、27、28) 準揮発性有機化合物の測定方法(p52～57)
フタル酸ジ-n-ブチル	17 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (1.5 ppb)	設定日： 2000.12.15 改定日： 2019.1.17	試料採取方法(p3～21、23～28参照) 準揮発性有機化合物の測定方法(p52～65)
フタル酸ジ-2-エチルヘキシル	100 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (6.3 ppb)	設定日： 2001.7.5 改定日： 2019.1.17	試料採取方法(p3～21、23～28参照) 準揮発性有機化合物の測定方法(p52～65)
総揮発性有機化合物量(TVOC)	暫定目標値 400 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	設定日： 2000.12.15	総揮発性有機化合物(TVOC)の測定方法 (p66～参照)

1. 試料採取方法

1. 1 目的および適用範囲

本標準試験法は各化学物質の室内空気濃度指針値が満たされているかどうかを厳密に判定する為の標準的測定法を定めたものである。

対象となる化学物質は、アルデヒド類、揮発性有機化合物 (VOC)、準揮発性有機化合物 (SVOC) 等である。

空気の採取方法は最大濃度推定法と平常実態把握法を使用する。前者は新築住宅等、室内空気中の化学物質の最大濃度を推定する為のものである。後者は居住住宅等、居住、平常時における揮発性有機化合物の存在量や曝露量を推定するためのものである。

<解説>

測定を求める人が求める内容によっては、必ずしも標準試験法として示している厳密な測定をする必要がない場合がある。相手の望む測定レベルによって、測定機関が有しているいくつかの方法を使い分ける事はもちろん可能である。この際重要なのは、使用する測定方法の性格、長所、短所について十分説明し、理解を得ることである。

但し、以下の場合には標準試験法を用いることが望ましい。

- ・室内空気中化学物質濃度の最大値を求めることを希望している場合。
- ・室内空気中化学物質濃度の厳密な測定を望んでいる場合。
- ・室内濃度指針値を超えていないかの判定を望んでいる場合。

標準試験法では、最大濃度推定法と平常実態把握法の2つの方法を示している。

最大濃度推定法は、原則として生活行為はない状態を対象としている。純粹に建造物から発散される化学物質濃度が、最大でどの程度のレベルまで達する可能性があるのかを推定する、言い換えれば建造物(や乗り物)そのものを評価することを、その目的として策定されている。従って、適用範囲としては新築建造物(や新車両)等、本来主に入居前の、什器等の持ち込みもなく、生活行為のない建造物を想定している。また、かつて入居されていても、改築や修築のため、現状として完全に空き建物となっている場合も適用対象となる。

しかしながら、現在入居しており、什器等が存在する建造物にもこの方法を用いたいという希望はあるものと思われる。この場合は測定作業中生活行為を行うことは出来ない。また、現状における化学物質濃度の到達可能レベルの推定に、その目的が変わることに留意しなくてはならない。言い換えれば、この場合は建造物の評価ではなく、現生活空間の評価がその目的となる。建造物そのもの由来の化学物質量を厳密に調査するためには、対象物質を放散しないことが明らかである場合を除き、原則持ち込まれた家具等は測定作業中撤去しておく必要がある。

一方、平常実態把握法は、実際の生活環境においてどの程度化学物質が存在しているのか、言い換えれば平常時の現状実態の把握を目的として策定されている。

測定に際しては、希望者にその目的と結果の意味について明確に認識してもらう必要がある。

1. 2 測定時間

最大濃度推定法は、30分換気後に対象室内を5時間以上密閉し、その後概ね30分間空気を採取する。採取の時刻は午後2～3時頃に設定することが望ましい。換気は窓、扉、建具、備用品の扉等の全てを開いて行い、密閉中は外気に面した開口部は閉鎖する。全ての操作中常時換気システムを有している場合は稼働させてよい。このシステムに必要な開口部は閉鎖の必要はない。

平常実態把握法は、日常生活を営みながら空気を24時間採取する。

<解説>

最大濃度推定法は、30分換気後に5時間以上の密閉期間を置き、その後概ね30分間採取することとしている。最初の30分間換気と最後の30分間の空気採取はどちらも多少変更しても問題はない。但しどちらもその時間は明記する必要がある。最初の換気は、室内空気を外気と同様のレベルにしようとするものであり、室内から発生する揮発性有機化合物量を測定するという目的には欠かせないものである。よってこの目的が達成されると推定されるのであれば、時間の長短は気にする必要はないが、測定条件を後に振り返って判断する際の材料として記載しなくてはならない。また、採取時間は最終的に30分間平均値を出すためには欠かせないものであるが、捕集管や感度の関係で採取時刻を変えてもよい。但しこの場合も測定条件を後に判断するために実測時間を明記することは必須である。

密閉時間は、室内空気の濃度が平衡になる(放散量と換気又は漏出量が等しくなる)まで行うべきものであるが、換気回数が0.5回以上あると見込まれる建造物ではこれで充分である。換気設備を有する建造物ではこの値は充分達成されていると考えられる。換気回数がこれよりも低い場合はほぼ平衡に達するには約12時間かかることとされ、完全に密閉された部屋では平衡を待つのは事実上不可能である。しかしながら、温度変化による換気回数の変動や放散量の変動を考慮した場合、閉鎖時間による濃度の変動幅よりも、日温変化による変動幅が大きくなると推定され、日本の現状を考えると最低限5時間の密閉と、気温の日変動が最大となる午後2時～3時に空気を採取するやり方が、測定作業効率も良く、目的を達成する上では必要かつ充分であると考えられる。もちろん、閉鎖時間を延長することは差し支えない。上記理由から、閉鎖時間、採取時刻の記録は必須である。同時に換気回数が測定できれば最良ではある。

備用品の開放を要求しているが、これらは移動不可能なものを前提としている。建造物と一体であり、建造物の一部として認められるという考えから、安全面を考慮して要求しているものである。よって後から持ち込まれた什器等は該当しない。また、閉鎖中に常時換気システムの稼働を認めているが、これは常時使用されることが前提となって設計・設置されているものについては、建造物の一部として当然認められるべきであるとの考えからである。これらにはトイレ換気扇、浴室換気扇、レンジフード等で、必要に応じて間欠的に使用され、連続換気を原則としない局所換気システムは含まない。逆にこれらの形式を取っていても、常時使用を前提とするシステムとなっている場合は稼働させてよい。この場合後掲の「測定記録シート」等にその旨が適切に説明されている必要がある。また、小窓等のパッシブ型の換気システムは原則的には閉めて試料採取する。パッシブ型の常時換気システムは自然条件の影響を受けることが多いので、本件で使用を認める換気システムは、強制換気システムと同等の性能を有する場合例外的に設定できることとする。

平常実態把握法は、試料採取開始時刻を任意に設定した上で、通常的生活状態で24時間行うことになる。

1. 3 試料採取場所

試料採取は室内で滞在時間が長いと想定される場所 2 か所および室外（外気）の計 3 ヶ所で行う。室内にあっては部屋の中央付近の少なくとも壁から 1 m 以上離れた呼吸域の高さを設定する。室外にあっては外壁および空調給排気口から 2～5 m 離れた、室内の測定高さと同等の高さの所を設定する。

<解説>

室内採取位置は最も滞在時間が長いと想定される場所であるため、居住住宅においては居間および寝室の 2 か所を設定する。集合住宅の場合、サンプル検査を行うこともあると思われるが、どの部分の測定を行うかは、それぞれ依頼者が判断する必要がある。またこの結果を持って、全ての住戸に当てはめた表現はできない。サンプル検査をもって個々の住戸の性質に言及する場合は、サンプル検査をした箇所、対象との間取り、部材、施工方法等について明確な説明を加える必要がある。

採取の高さは日常生活を営む呼吸域の高さを考慮して 0.75～1.5 m に設定される¹⁾。壁から 1 m 以上離すこととしたのは、壁からの放散の影響を排除するためである。よって、この条件を満たしていてもそばに戸棚や机があるのでは同様に望ましくない。設定はこれらの影響がいずれもないところを選んで行われるべきである。条件の記載については高さや位置はもちろん、周囲の状況について図を利用する等して記載したほうがよい。可能であれば写真として残しておくことが望ましい。

室内に直射日光が差し込む場合は、これにより揮発性化合物の放散量が影響を受ける恐れがあるので、カーテンが取り付けられている場合は使用した方がよい。雨戸については換気量に影響を与える可能性があるため締め切らないことが望ましい。直射日光の差込具合については記録したほうがよい。

室外については、測定位置以外の条件を室内と同様にし、並行して採取する。外気の測定位置については標記の通りであるが、高層建造物や気象条件によって当該位置への採取口の設置が困難な場合は位置を変更してもよい。但し、その場合には設定位置を明確に記しておくことが必要である。また、風向きによっては外壁に施された、防水・撥水・防カビ等の加工剤や塗料の影響が出る場合があるので、風向きを記しておくことも重要である。

室外の値は、室外の汚染の有無を確認するものであって、室内濃度の算出時に外気の数値を減算に用いたりしない。室内で汚染が確認されたとき、それが室外由来である可能性の判断を行うために使用する。

《参考文献》

1) JIS A 1960:2015 室内空気のサンプリング方法通則, 8 サンプリング場所

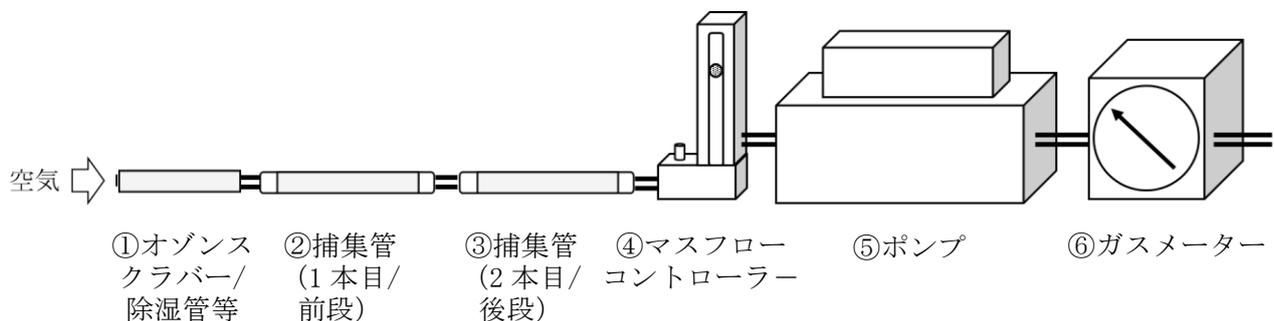
1. 4 試料の採取

試料の採取は、各標準試験法の試料採取の頁に従って、室内2ヶ所、外気1ヶ所について2回ずつ採取する。同時にトラベルブランクも同様に持ち運ぶ。採取の際、室内空気の1時間あたりのサンプリング量は、換気量の10%以下となるように設定する。換気量が不明な場合は、室内空気の1時間あたりのサンプリング量は、部屋容積の10%以下となるように設定することが望ましい。また、試料採取時には気温および相対湿度の測定を併せて行うこと。

<解説>

試料採取装置の基本的な構成例としては、①オゾンスクラバー/除湿管、②捕集管（1本目/前段）、③捕集管（2本目/後段）、④マスフローコントローラー、⑤ポンプ、⑥ガスメーターの順に接続する。各機器間の接続はテフロンチューブ等を用いる。なお、④～⑥の代わりに、これらの機能が一体型になっているサンプリングポンプを使用することも多い。

⑤のポンプにて①の側から空気を吸引するが、その際に、①において捕集管の捕集効率に影響を与える可能性があるものを除去し、②および③で捕集対象の化学物質をトラップする。④で流速をコントロールし、⑥で流量を計測する。①は装着してもよいが、通常は必要ではない。②と③で捕集管を2つ含むのは、24時間という長時間の採取を行うため、破過を考慮してのことである。破過がないことが予想される場合は③の捕集管は必要ない。



採取装置は測定対象物質と分析の際に採用する方法によって異なる。具体的な採取方法はそれぞれの標準試験法に示したとおりである。

標準試験法では、試料採取中の配管の外れ、その他のミスを考慮し、同一試料を2回ずつ採取することとし、同時に2重測定 ($n=2$) の意味を持たせている。原則、採取は併行して行うが、例外として最大濃度推定法にて30分間の空気採取を行う場合は30分ずつ2回連続して採取し、同じ操作を行ったとして解釈してもよい。また、採取についてはこのように各箇所2回ずつ行うが、分析について2重に行うのは全体の10%の頻度にすることもできる。ただし、指針値近傍の値が得られた場合等は、全て分析する必要がある。なお、2重測定の測定値平均とそれぞれの測定値との間に $\pm 20\%$ 以上の開きがある場合には、原則として欠測扱いとし、再度試料採取を行う。

1. 5 ブランク試験

トラベルブランク試験としては、試料の採取に際し、試料採取操作を除いて試料採取管と同様に、密栓した捕集管を持ち運び取り扱う。

操作ブランク試験としては、未使用の捕集管について一連の分析操作を行って値を求める。

<解説>

標準試験法ではブランク試験として、1) トラベルブランク試験および2) 操作ブランク試験の2つを設定している。

1) トラベルブランク試験

トラベルブランク試験は採取操作から分析操作までの一連の過程（準備－機器の運搬－試料採取－持ち帰り－前処理－測定）において、捕集管が外部から汚染を受けていないかを確認するための試験であるので、本試験の捕集管と同様に持ち運び、保管する。異なるのは試料採取操作を行うか否かのみである。通常、1 建造物につき 1 試験行えばよいが、測定箇所を増やしたりした場合は総数の約 10%の頻度で行う。測定対象物質のトラベルブランク値が操作ブランク値と同等（等しいか小さい）と見なせる場合には、移送中の汚染は無視できるものとする。トラベルブランク値が操作ブランク値を大きく超える場合には、基本的に採取をやり直すことになってしまうので運搬中の汚染には細心の注意を払うべきである。

移送中の汚染がある場合には、3 試料以上のトラベルブランク値を測定した時の標準偏差 (s) から求めた定量下限値 (10s : 大気濃度への換算値) 目標定量下限値 (指針値の 1/10) 、測定値と比較して下記の条件を満たせば使用することもできる。

- ・トラベルブランク値から計算した定量下限値が目標定量下限値以下の場合。
- ・目標定量下限値以上であっても、試料の測定値より小さい場合。

これらに当てはまらない場合は原則として欠測扱いとし、採取をやり直さねばならない。またこれらの条件を表向き満たしていたとしても、トラベルブランク値が大きく、試料の採取に影響を与える可能性が認められる場合は、汚染の原因を取り除いた後、再度試料採取から行う。

2) 操作ブランク

分析環境から試験操作過程で汚染されることがあるので、試料測定に先立って、操作ブランクを一連の試験操作の中で少なくとも 1 回以上実施する。操作ブランク試験が目標定量下限値 (指針値の 1/10) 以上であった場合は、試薬、器具、機器を調製・整備し直し、ブランクの低減を確認してから実試料を分析する。

これらのブランク値は、最終的な試料濃度の計算の際に反映される。基本的に試料の測定値から操作ブランク試験値を差し引いて濃度を計算する。トラベルブランク値が操作ブランク値より大きい場合はこれを差し引く。このときトラベルブランク値が試料の測定値を上回った場合(トラベルブランク試験から計算した定量下限値が目標定量下限値以下であったが、試料の測定値は上回ってしまった場合)にはその物質については欠測扱いとする。

1. 6 記録事項

建築物に関わる項目、試料採取時の天候や生活状況に関わる項目、分析条件等を記録する。

<解説>

測定値に客観性と信頼性を持たせるためには、いつ、どこで、どのような条件で、空気が採取され、分析されたのかが正確に記録されていなければならない。

これらをもれなく記録するために、測定記録シートを添付したので参考にされたい。記入の簡便さを考え、測定記録シートは以下の4つの様式を添付した。

- A. 建築物情報（最大濃度推定法・平常実態把握法共用）
- B. 採取状況情報（一部最大濃度推定法・平常実態把握法別）
- C. 利用者情報（平常実態把握法用）
- D. 個別分析情報（最大濃度推定法・平常実態把握法共用）

A. には測定対象の建築物に関する情報を記載する。これらの内容の多くは測定前後でも記入可能である。測定の依頼を受けた場合には、依頼者に事前に当該情報を入手するよう要求したほうがよい。

B. には空気の採取時刻、場所、気温、周囲の状況等を記録する。これらの内容は現場で記入することになる。基本的に測定現場でのみ記録が可能であるので、漏れのないよう記入することが必要である。

C. は基本的に平常実態把握法の際のみ必要な記録であり、利用者に記入してもらうことを前提としている。

D. は分析を行う実験室で記入する情報であるので、現場で記入する必要はない。本記録シートについては、1. 8 結果の記載に示す。

それぞれについては、記入上の注意を参照しつつ記入していただきたい。

後述の様式は例として示したものであるので、適宜変更して使用してかまわない。

A. 測定記録シート(建造物情報)記入上の注意

シートの記入に当たっては下記を参考とすること。

- (1) , (2) 該当のものに○。
- (3) 集合住宅の場合、位置については採取状況情報のシートに記載する。
- (6) 改修時期と工事の内容を記載する。
- (7) 常時機械換気システムについては該当に○。
換気回数は測定できれば記載する。出来ない場合は未測定と記入する。
換気方式についても該当のものに○。
 - 第1種換気：吸気・排気とも機械力による
 - 第2種換気：吸気は機械力、排気は自然排気による
 - 第3種換気：吸気は自然吸気、排気は機械力による
 - 第4種換気：吸気・排気とも自然に任せる
- (8) 該当のものに○。
- (9) 最大濃度推定法の場合開放した建具等を記入する。
- (10) 購入して搬入されている什器等がある場合、種別、材質、サイズ等を記入。
- (11) 気密性能について評価されている文書があれば記入。
不明の場合は不明と記入。
- (12) 防蟻処理について、防蟻剤の散布の時期、使用薬剤、施工業者名を記入。
不明の場合は不明と記入。
- (13) 建材情報が入手可能な場合記入。必ずしも記入の必要はない。
- (14) その他、室内空気中の化学物質濃度に影響を与えると思われる事項があった場合は、屋外屋内に関わらず概要を記入する。

A. 測定記録シート(建造物情報)

記録者名
同行者名

年 月 日(記入日)

整理番号		所在地		
(1)建物種別	1. 戸建 2. 集合 3. その他			
(2)構造	1. 木造在来 2. 2×4 3. 木質 ^{パワ} 4. 鉄骨 ^{パワ} 5. RC 6. その他 ()			
(3)階数	戸建 (平屋 , 階建)		集合 (階建の 階) 位置については略図を記載	
(4)規模	1階面積	m ³	2階面積	m ³
				3階面積 m ³ 延べ面積 m ³
(5)築年数	竣工年月日	引渡し年月日	入居年月日	
(6)改修状況	有 ・ 無 (有の場合時期および内容)			
(7)換気方式	常時機械換気システム 有 ・ 無		換気回数	/h
(8)居住状況	1. 第1種換気 2. 第2種換気 3. 第3種換気 4. 第4種換気 5. 不明他 ()			
(8)居住状況	1. 未入居 2. 以前居住 3. 居住中 (2,3の場合その期間)			
(9)建具	開放したものを記載			
(10)什器等 購入状況	1. 3ヶ月以内に購入した 2. 3ヶ月以内には購入しない (購入の場合時期および内容)			
(11)気密性能	建造物の仕様書、性能評価書等から記入 (不明の場合はその旨記入)			
(12)防蟻処理	有 ・ 無 (有の場合時期、薬剤、施工業者名等、内容をわかる範囲で記載)			
(13)建材情報	居 間	寝 室	キッチン	その他特記すべき部屋
床 材	床面積			
	表面材			
	接着剤			
	下地材			
壁 材	壁面積			
	表面材			
	接着剤			
	下地材			
天 井 材	天井面積			
	表面材			
	接着剤			
	下地材			
巾木・廻り縁				
キッチン面材				
(14)その他				

B. 測定記録シート(採取状況情報・最大濃度推定法)記入上の注意

シートの記入に当たっては下記を参考とすること。

- (1) 該当のものに○。VOCやその他の場合は測定対象物質名も記入。
捕集管の欄には使用した捕集管の種類や名称を記入。ロットがわかればなおよい。
- (2) 建造物の平面図を記入する。
複数階にわたる場合はそれぞれ記入のこと。
おおよそのサイズについても記入が望ましい。
集合建造物の場合は該当階の概要と、測定対象各室の位置を記入のこと。
建造物の平面図には窓の有無、方位、建具も記入する。望ましくは現場の状況につき、写真を撮影し共に保存する。窓にカーテン等ある場合は状況を記載。
居間、寝室、外気それぞれのサンプリング位置は●で示し、壁からの距離や高さについてわかるように記すこと。
- (3) 天候の変化や換気状況、閉鎖時間、採取時間等をタイムコースとして記入する。
やむを得ず入室したり、日照が急変したり、トラブルがあった場合等は下段に記入する。

記入例

時刻	6:00	7:00	8:00	9:00	10:00	11:00	12:00	13:00	14:00	15:00	16:00	17:00
天候	← 晴			→ ←		曇		→ ←	雨			→
換気				■								
閉鎖				■	■	■	■	■	■	■		
採取									■			
						入室						

- (4) 測定対象各室の具体的な時刻等を記入する。オプションで測定した部屋がある場合は空欄を利用する。
時刻や温湿度はそれぞれの操作の開始時と終了時のものを記入する。平均室温と湿度は空気の採取時間中の平均を記入する。吸引量には最終の積算流量を記入する。
2回目の採取を1回目の採取に続けて行った場合も一つの欄に記入する。
- (5) 空気環境に影響を与える可能性のある周囲の状況等、気付いた点を記入する。
また、(3)に記入した突発事項の詳細や、記入しきれなかった事項についても記入する。生活環境について何かアドバイスをを行った場合は、その内容を簡単に記入しておく。

B. 測定記録シート(採取状況情報)

記録者名
同行者名

年 月 日(記入日)

整理番号		所在地	
(1)採取対象	アルデヒド類		捕集管
	VOC		
	その他		
(2)平面図 サンプルング位置は ● で記入し、位置・高さも記すこと。			
方位			

B. 測定記録シート(採取状況情報・最大濃度推定法用)

記録者名
同行者名

年 月 日(記入日)

整理番号							所在地					
(3)タイムコース												
時刻	6:00	7:00	8:00	9:00	10:00	11:00	12:00	13:00	14:00	15:00	16:00	17:00
天候												
換気												
閉鎖												
採取												
(4)測定時条件												
測定室名	居 間			寝 室			外 気					
換気時間	～			～			～					
そのときの温度	～ °C			～ °C			～ °C					
そのときの湿度	～ %			～ %			～ %					
閉鎖時間	～			～			～					
そのときの温度	～ °C			～ °C			～ °C					
そのときの湿度	～ %			～ %			～ %					
採取時間	～			～			～					
そのときの温度	～ °C			～ °C			～ °C					
そのときの湿度	～ %			～ %			～ %					
平均温度	°C			°C			°C					
平均湿度	%			%			%					
吸引量	L			L			L					
(5)備考												

B. 測定記録シート(採取状況情報・平常実態把握法用) 記入上の注意

シートの記入に当たっては下記を参考とすること。

- ・ (1), (2) 最大濃度推定法用と同様に記入する。
- ・ (3) 採取開始時と終了時を記録する。天候については利用者情報を参考にわかる範囲で記入する。

記入例

時刻	6:00	7:00	8:00	9:00	10:00	11:00	12:00	13:00	14:00	15:00	16:00	17:00
天候	曇		→ ←	晴								
採取	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■
時刻	18:00	19:00	20:00	21:00	22:00	23:00	0:00	1:00	2:00	3:00	4:00	5:00
天候												→
採取	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■

- ・ (4) 自動機録可能な温湿度計を使用して記入することが望ましい。メモリー機能があるもので有れば後に記入することも可能である。吸引量は総吸引量を記す。
- ・ (5) ①～⑤については利用者情報を基に機器の回収時等に記入する。それぞれ、総使用時間を記入する。使用した部屋がわかっているならばそれも記入すること。⑥, ⑦は測定開始前に聞き取っておくことが望ましい。

B. 測定記録シート(採取状況情報・平常実態把握法用)

記録者名
同行者名

年 月 日(記入日)

整理番号							所在地					
(3)タイムコース												
時刻	6:00	7:00	8:00	9:00	10:00	11:00	12:00	13:00	14:00	15:00	16:00	17:00
天候												
採取												
時刻	18:00	19:00	20:00	21:00	22:00	23:00	0:00	1:00	2:00	3:00	4:00	5:00
天候												
採取												
(4)測定時条件												
測定室名	居 間			寢 室			外 気					
平均温度	℃			℃			℃					
平均湿度	%			%			%					
吸引量	L			L			L					
(5)生活環境												
①窓の総開放時間	時間											
②換気扇等の設置状況 それらの総使用時間	調理場 ・ 風呂 ・ トイレ ・ その他 ・ ・ ・											
③暖房器具の種別 それらの総使用時間	石油ストーブ			石油ファンヒーター			FF型石油ストーブ					
	ガスストーブ			ガスファンヒーター			FF型ガスストーブ					
	電気ストーブ			床 暖 房			そ の 他					
④冷房器具の種別 それらの総使用時間	エアコン			その他								
⑤利用者の喫煙習慣	有り(室内で計 本ぐらい吸う) ・ 無し											
⑥芳香剤の使用状況 (使用個数,位置もわかる範囲で記載)	居 間			寢 室			台 所					
	浴 室			トイレ			玄 関					
	その他											
⑦防虫剤の使用状況	居 間			寢 室			台 所					
	玄 関			その他								
備考												

C. 測定記録シート(利用者情報)記入上の注意

測定結果を評価する上で重要な情報となるので、利用者に記入のご協力をお願いします。
測定開始から終了までの24時間について記入する。測定開始前に特段に揮発性有機化合物が発生すると思われる状況があれば(下記参考)備考欄に記入する。

シートの記入に当たっては下記を参考とすること。

- 天候 : 天候の変化があれば記入する。
- 在室 : 在室期間(可能であればどの部屋に在室したか)を記入する。特に測定を行っている部屋に在室された場合は必ず記入する。
- 換気 : 窓開放、換気扇使用等、換気を行った時間を記入する。
- 空調使用 : 暖房、冷房を使用した時間を記入する。可能であれば使用した機具の種別、使用した部屋を記入する。
- 喫煙 : 喫煙された場合マークして本数を記入する。
- スプレー使用 : 殺虫剤、ヘアスプレー、消臭スプレー等、エアゾール製品を使用した場合はマークする。
- 調理 : 調理を行った時間を記入する。
- 食事 : 食事をした場合はマークする。
- 家具の開閉 : タンス、クローゼット等、特に防虫剤を使用している家具等を開閉した場合はマークする。
- アイロンがけ : アイロンがけ等をした場合はマークする。
- 洗濯 : 洗濯をした場合はマークする。
- 掃除 : 掃除をした場合はマークする。掃除機を使用した場合はその旨記入する。
- 化粧品 : 化粧品を使用した場合はマークする。除光液やヘアトニック等を使用した場合はその旨記入する。
- その他 : アルコール除菌剤の使用や飲酒をした場合等、化学物質が発生すると思われる状況があった場合に適宜記入する。

<記入例>

時刻	6:00	7:00	8:00	9:00	10:00	11:00	12:00	13:00	14:00	15:00	16:00	17:00
天候				← 晴						→ ← 曇		
在室	寝	室 →	← キ	ク →				← 居	間	→		
換気			← 換	扇 →				← 居	間 窓	→		
空調使用												1
喫煙												
スプレー使用					●							
調理			●									
食事			●				●					
家具の開閉					タ							
アイロンがけ												
洗濯				●								
掃除						掃	除 機					
化粧品使用		●										
その他												

C. 測定記録シート (利用者情報)

年 月 日 (測定日)

整理番号						所在地						
生活状況の記録												
時刻	6:00	7:00	8:00	9:00	10:00	11:00	12:00	13:00	14:00	15:00	16:00	17:00
天候												
在室												
換気												
空調使用												
喫煙												
スプレー使用												
調理												
食事												
家具の開閉												
アイロンがけ												
洗濯												
掃除												
化粧品使用												
その他												
時刻	18:00	19:00	20:00	21:00	22:00	23:00	0:00	1:00	2:00	3:00	4:00	5:00
天候												
在室												
換気												
空調使用												
喫煙												
スプレー使用												
調理												
食事												
家具の開閉												
アイロンがけ												
洗濯												
掃除												
化粧品使用												
その他												
1週間の平均在室時間												
備考												

1. 7 分析

分析操作は標準試験法の記載に従ってそれぞれ行う。

<解説>

実験室における分析操作については、標準試験法として示された各分析法の記載に従う。以下共通する何点かについて解説する。

(1) 標準物質

標準原液の調製で、標準物質の採取量とメスフラスコの全量は、秤取る比が同じであれば変更してかまわない。市販の標準溶液やガスを用いる場合は精度保証されているものが望ましい。

(2) 内標準物質

標準試験法にはそれぞれ内標準物質を記載しているが、各分析機関で通常使用し、精度確認が出来ているものが有れば使用しても差し支えない。

(3) 捕集管

標準試験法では各捕集管や捕集装置を検査機関で調製するやり方を示しているが、適宜測定対象物質に対して十分な捕集能力を有する市販品を使用してよい。

(4) 2重測定

本試験法では、試料採取中の配管の外れ、その他のミスを考慮し、同一試料を2回ずつ採取することとし、同時に2重測定 ($n=2$) の意味を持たせている。原則、採取は併行して行うが、最大濃度推定法にて30分間の空気採取を行う場合は30分ずつ2回連続して採取し、同じ操作を行ったとして解釈してもよい。採取については、このように各箇所2回ずつ行うが、分析について2重に行うのは全体の10%の頻度でよい。ただし、指針値近傍の値が得られた場合等は、全て分析する必要がある。なお、2重測定の測定値平均とそれぞれの測定値との間に $\pm 20\%$ 以上の開きがある場合には、原則として欠測扱いとし、再度試料採取を行う。

(5) 条件設定

スクリーニングの目的で簡易な方法を用いる場合には、当該条件により化学物質濃度の過小評価が行われないよう配慮すると共に、室内濃度指針値に適合しているか否かの最終的判断は、標準試験法に設定された標準的な条件により行うよう留意すべきである。また、同等以上の信頼性が確保できる条件であれば、設定した標準的な条件に代えて用いても差し支えない。

(6) 試料空气中化学物質濃度の算出

試料空气中化学物質濃度は下記の濃度算出式により求める。キシレンには *o*-、*m*-、*p*-キシレンの3種の異性体があり、通常の実験条件では *m*-、*p*-キシレンは分離しないので、合わせて取り扱ってよい。最終的にキシレンの測定値を算出するに当たってはこれら3種の合計値をキシレンの値として取り扱う。

濃度算出式

$$C = \frac{(A_s - A_t) \times E \times 1000}{v \times V \times 298 / (273 + t) \times P / 1013}$$

- C : 25°Cにおける空気中の各測定対象物質の濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)
A_s : 分析機器に注入した試料中の各測定対象物質の重量 (ng)
A_t : 各測定対象物質のトラベルブランク値 (ng)
操作ブランク値と同等と見なせる場合は操作ブランク値を用いる。
E : 試験液量 (mL)
v : 分析機器への注入液量 (μL)
V : ガスメータで測定した捕集量 (L)
t : 試料採取時の平均の気温 (°C)。湿式型積算流量計を使用しているときには、積算流量計の平均水温 (°C)
P : 試料採取時の平均大気圧 (hPa)。湿式型積算流量計の場合には(P-P_w)を用いる。
ここで、P_w は試料採取時の平均気温 t での飽和水蒸気圧 (hPa)

濃度の計算式は分解すると以下のようなになる。

$$((A_s - A_t) \times (E / v) / (V \times (298 / (273 + t)) \times p / 1013)) \times 1000$$

● $(A_s - A_t) \times (E / v)$

測定装置に注入した液中に含まれる化学物質の重量に注入液量で全液量を割ったものをかけることにより、全液中の化学物質重量即ち採取した空気中に含まれる化学物質質量(μg)を求める。加熱脱離法の場合、採取した物質は全て装置に注入されるため、溶液についての補正 (E / v) は不要である。

● $V \times (298 / (273 + t)) \times p / 1013$

採取した空気の体積を 25°C、1 気圧に補正。(L)
質量流量センサーを内蔵し、25°Cの温度換算機能を有するポンプで空気を捕集する場合は、平均温度で補正する必要はない。

● $\times 1000$

1000 倍することで単位補正 ($\text{L} \rightarrow \text{m}^3$)。

結局、重量を体積で割ることになり濃度を求めることが出来る。

(7) 単位の換算

重量濃度で表示された市販の標準原ガスの場合における容積の換算は、

$$v (\text{mL}) = 100 \times 22.4 (273 + t) / 273M$$

(M は分子量、t は気温、測定対象物質 100 mg に相当する採取容積) である。

重量濃度で表示された市販の標準原液の場合における液体容量の換算は、

$v (\mu\text{L}) = 100 / \rho$ (ρ は比重又は密度、測定対象物質 100 mg に相当する採取容積) である。

市販の標準ガス濃度 ppm ($\mu\text{L}/\text{L}$) の重量/体積濃度 ($\mu\text{g}/\text{L}$) への換算には、

$273M / \{22.4 (273 + t)\}$ (Mは分子量、tは気温) を乗じる。
それぞれの物質の mg/m^3 から ppm への換算は

$\text{ppm} \doteq \text{mg/m}^3 \times 24.45 / \text{分子量} \quad (25^\circ\text{C})$
である。

ppm 単位では空気中に存在する当該物質の分子の数を比較できる。

(8) 検出下限値、定量下限値の算出

検量線作成時の最低濃度（定量下限値付近）の標準濃度系列について、測定値 (A :ng) を求め、濃度算出式の (As-At) に A を代入して、空気濃度を算出する。5 試料以上を測定して求めた標準偏差 (s) から次式により、各測定対象物質の検出下限値および定量下限値を算出する。ただし、操作ブランク値のある物質では操作ブランク値を測定し、標準濃度系列と操作ブランク値のうち、大きい方の標準偏差を用いて計算する。

$$\begin{aligned}\text{検出下限値} &= 3s \text{ (}\mu\text{g/m}^3\text{)} \\ \text{定量下限値} &= 10s \text{ (}\mu\text{g/m}^3\text{)}\end{aligned}$$

検出下限値および定量下限値を求めるために濃度を求める場合は、 $t=25^\circ\text{C}$ 、 $p=1013$ を使用する。また、V については標準試験法の各測定方法に示された数値を使用する。

目標定量下限値は室内濃度指針値の 1/10 である。測定対象物質のいずれかの定量下限値が目標定量下限値より大きい場合には、試薬、器具、機器の汚染等を確認して、目標定量下限値以下となるようにする。

1. 8 結果の記載

分析結果は測定記録シート(個別分析情報)に記録する。

<解説>

分析結果についても必要事項を記録しておく必要がある。必要事項は分析方法によって異なるが、添付の分析結果記録シートを参考に適宜様式を作成し、記入する。

HPLC や GC のクロマトグラム、積分値等の分析記録はこれらのシートと共に保存する。

D. 測定記録シート(個別分析情報)記入上の注意

シートの記入にあたっては下記を参考にすること。

- 個別分析情報は測定方法毎に異なっているので、該当するものを使用する。
- 個別分析情報は各物質毎に記入する。
- 条件が合致するものについては□にチェックを入れる。無い場合はその他にチェックし内容を記入する。
- 捕集管を2本とも分析した場合は、それぞれにつき①, ②に結果を記す。
- 分析結果には計算後の測定値とその算出に用いた計算式を合わせて記入する。また、操作ブランク値、トラベルブランク値は検出下限以下であった場合には N.D.に○をす。これらの内の大きい方を捕集管の測定値から差し引くこと。それぞれの測定値は有効数字3桁で表しておく。
- 二本の捕集管の平均値を求める場合は計算後有効数字2桁に丸めて示す。
- 検出下限値や定量下限値計算のための試験や、それぞれの分析の面積値等はシートには記さないが、それぞれのクロマトグラムは添付すること。
- 上記を含め、値の算出に用いたクロマトグラム等は全て当シートに添付すること。

D. 測定記録シート（個別分析情報：アルデヒド類）

分析者名 _____

年 月 日～ 日(分析日)

整理番号		所在地		
採 取 時 条 件	採取箇所	<input type="checkbox"/> 居間 <input type="checkbox"/> 寝室 <input type="checkbox"/> その他()		
	空気採取量 (L)	①	② 外気	
	平均気温 (°C)	①	② 外気	
	平均湿度 (%)	①	② 外気	
	平均大気圧(hPa)	①	② 外気	
分 析 条 件	試験液量	<input type="checkbox"/> 5 mL(5000 μL) <input type="checkbox"/> その他 ()		
	希釈係数	<input type="checkbox"/> 5 倍() <input type="checkbox"/> 25 倍() <input type="checkbox"/> その他 ()		
	注入液量	<input type="checkbox"/> 20 μL <input type="checkbox"/> その他 ()		
	移動相	<input type="checkbox"/> アセトニトリル：水 (6:4) <input type="checkbox"/> その他 ()		
	流速	<input type="checkbox"/> 1.0 mL/min <input type="checkbox"/> その他 (mL/min)		
	カラム	名称： 内径： mm 長さ： cm		
	オーブン	<input type="checkbox"/> 恒温 °C <input type="checkbox"/> その他 ()		
	検出器	<input type="checkbox"/> UV 360 nm <input type="checkbox"/> その他 ()		
検 量 線	標準系列	ピーク面積	計算式	
	μg		$\frac{(As-A) \times D \times E \times 1000}{v \times V \times (298/273+t) \times p/1013}$	
	μg			
分 析 結 果	①測定値 1 -④or⑤	(計算式)		
	②測定値 2 -④or⑤	(計算式)		
	③外気 -④or⑤	(計算式)		
④操作ブランク値 N.D.・()		⑤トラベルブランク値 N.D.・()		
①,②平均値	μg/m ³	検出下限値	μg/m ³ 定量下限値 μg/m ³	
(備考)				

D. 測定記録シート(個別分析情報：溶媒抽出法)

分析者名 _____

年 月 日～ 日(分析日)

整理番号	所在地	
採取 時 条件	採取箇所 <input type="checkbox"/> 居間 <input type="checkbox"/> 寝室 <input type="checkbox"/> その他()	
	空気採取量 (L) 1 2 外気	
	平均気温 (°C) 1 2 外気	
	平均湿度 (%) 1 2 外気	
	平均大気圧 (hPa) 1 2 外気	
分析 条件	試験液量 <input type="checkbox"/> 1 mL <input type="checkbox"/> その他 ()	
	希釈係数 <input type="checkbox"/> なし <input type="checkbox"/> その他 ()	
	注入液量 <input type="checkbox"/> 1 μL <input type="checkbox"/> その他 ()	
	キャリヤーガス <input type="checkbox"/> ヘリウム <input type="checkbox"/> その他 ()	
	流速 <input type="checkbox"/> 1.0 mL/min <input type="checkbox"/> その他 (mL/min)	
	カラム 液層： 膜厚： μm 内径： μm 長さ： m	
	オープン ()	
	検出器 <input type="checkbox"/> MS <input type="checkbox"/> その他 ()	

物質名：		測定質量数	
検 量 線	標準系列	ピーク面積	計算式 $\frac{(A_s - A_t) \times E \times 1000}{v \times V \times (298/273 + t) \times p/1013}$
	μg		
分析 結果	①測定値 1 -④or⑤	(計算式)	
	②測定値 2 -④or⑤	(計算式)	
	③外気 -④or⑤	(計算式)	
④操作ブランク値 N.D.・()		⑤トラベルブランク値 N.D.・()	
①,②平均値	μg/m ³	検出下限値	μg/m ³ 定量下限値 μg/m ³
(備考)			

<溶媒抽出法>

物質名：		測定質量数				
検 量 線	標準系列	ピーク面積	計算式 $\frac{(A_s - A_t) \times E \times 1000}{v \times V \times (298/273 + t) \times p/1013}$			
	μg					
	μg					
	μg					
	μg					
	μg					
分析 結果	①測定値 1 - ④or⑤	(計算式)				
	②測定値 2 - ④or⑤	(計算式)				
	③外気 - ④or⑤	(計算式)				
④操作ブランク値 N.D.・()		⑤トラベルブランク値 N.D.・()				
①,②	①,②	③	④			
①,②		μg/m ³	検出下限値	μg/m ³	定量下限値	μg/m ³
(備考)						

物質名：		測定質量数				
検 量 線	標準系列	ピーク面積	計算式 $\frac{(A_s - A_t) \times E \times 1000}{v \times V \times (298/273 + t) \times p/1013}$			
	μg					
	μg					
	μg					
	μg					
	μg					
分析 結果	①測定値 1 - ④or⑤	(計算式)				
	②測定値 2 - ④or⑤	(計算式)				
	③外気 - ④or⑤	(計算式)				
④操作ブランク値 N.D.・()		⑤トラベルブランク値 N.D.・()				
①,②	①,②	③	④			
①,②		μg/m ³	検出下限値	μg/m ³	定量下限値	μg/m ³
(備考)						

D. 測定記録シート(個別分析情報：加熱脱離法)

分析者名 _____

年 月 日～ 日(分析日)

整理番号	所在地	
採取 時 条件	採取箇所 <input type="checkbox"/> 居間 <input type="checkbox"/> 寝室 <input type="checkbox"/> その他()	
	空気採取量 (L) 1 2 外気	
	平均気温 (°C) 1 2 外気	
	平均湿度 (%) 1 2 外気	
分析 条件	平均大気圧 (hPa) 1 2 外気	
	キャリアーガス <input type="checkbox"/> ヘリウム <input type="checkbox"/> その他 ()	
	流速 <input type="checkbox"/> 1.0 mL/min <input type="checkbox"/> その他 (mL/min)	
	カラム 液層： 膜厚： μm 内径： μm 長さ： m	
	オープン ()	
	検出器 <input type="checkbox"/> MS <input type="checkbox"/> その他 ()	

物質名：		測定質量数	
検 量 線	標準系列	ピーク面積	計算式 $\frac{(As-At) \times 1000}{V \times (298/273+t) \times p/1013}$
	μg		
分析 結果	①測定値 1 -④or⑤	(計算式)	
	②測定値 2 -④or⑤	(計算式)	
	③外気 -④or⑤	(計算式)	
④操作ブランク N.D.・() ⑤トラベルブランク値 N.D.・()			
①,②平均値	μg/m ³	検出下限値	μg/m ³ 定量下限値 μg/m ³
(備考)			

<加熱脱離法>

物質名：		測定質量数				
検 量 線	標準系列	ピーク面積	計算式 $\frac{(As-At) \times 1000}{V \times (298/273+t) \times p/1013}$			
	μg					
	μg					
	μg					
	μg					
	μg					
分析 結果	①測定値 1 -④or⑤	(計算式)				
	②測定値 2 -④or⑤	(計算式)				
	③外気 -④or⑤	(計算式)				
④操作ブランク値 N.D.・()		⑤トラベルブランク値 N.D.・()				
①,②	①,②平均値	μg/m ³	検出下限値	μg/m ³	定量下限値	μg/m ³
(備考)						

物質名：		測定質量数				
検 量 線	標準系列	ピーク面積	計算式 $\frac{(As-At) \times 1000}{V \times (295/273+t) \times p/101.3}$			
	μg					
	μg					
	μg					
	μg					
	μg					
分析 結果	①測定値 1 -④or⑤	(計算式)				
	②測定値 2 -④or⑤	(計算式)				
	③外気 -④or⑤	(計算式)				
④操作ブランク値 N.D.・()		⑤トラベルブランク値 N.D.・()				
①,②	①,②平均値	μg/m ³	検出下限値	μg/m ³	定量下限値	μg/m ³
(備考)						

1. 9 結果の返却

測定結果は結果が簡便に分かるよう別途測定結果シートを作成し、記入の上、それぞれの測定記録シートを添付して返却する。

<解説>

各測定記録シートは結果の評価に必要な情報を記したものであるため、あわせて返却する必要があります。しかしながら記載内容が細かく、わかりにくい面があると思われるので、結果を簡潔に記した測定結果シートを作成し、これを添付して返却することが望ましい。

測定結果シート記入上の注意

シートの記入にあたっては下記を参考にすること。

- ・測定方法の名称、測定種別は該当するものに○。記載以外のものを使用した場合は、備考欄に概要を記載する。
- ・各測定結果は部屋毎に記載する。
- ・測定していない欄には－を記入する。
- ・個別の捕集管の値は有効数字3桁、平均値は有効数字2桁で記入する。1本の捕集管のみを分析した場合は平均値の欄には、個別の捕集管の値の3桁目を切り捨てた値を記入する。
- ・アルデヒド類で温湿度補正を行った場合は補正前、補正後の双方の値をそれぞれ記載する。
- ・コメント等は備考欄に記入する。

測定結果シート

年 月 日 (採取日)
年 月 日～ 日(分析日)

整理番号		所在地					
測定方法名：アルデヒド類		溶媒抽出		加熱脱離		その他	
測定種別：最大濃度推定法		平常実態把握法					
測定結果							
物質名	測定箇所	居 間		寢 室		外 気	
ホルムアルデヒド	1	平均	1	平均	1	平均	
	2		2		2		
ホルムアルデヒド (補正)	1	平均	1	平均	1	平均	
	2		2		2		
アセトアルデヒド	1	平均	1	平均	1	平均	
	2		2		2		
アセトアルデヒド (補正)	1	平均	1	平均	1	平均	
	2		2		2		
トルエン	1	平均	1	平均	1	平均	
	2		2		2		
キシレン	1	平均	1	平均	1	平均	
	2		2		2		
エチルベンゼン	1	平均	1	平均	1	平均	
	2		2		2		
スチレン	1	平均	1	平均	1	平均	
	2		2		2		
パラジクロロベンゼン	1	平均	1	平均	1	平均	
	2		2		2		
テトラデカン	1	平均	1	平均	1	平均	
	2		2		2		
	1	平均	1	平均	1	平均	
	2		2		2		
	1	平均	1	平均	1	平均	
	2		2		2		
	1	平均	1	平均	1	平均	
	2		2		2		
(備考)							

2. アルデヒド類の測定方法

ここに掲げる測定方法は、室内空気中のホルムアルデヒドおよびアセトアルデヒドを対象とする。試料の採取および測定方法は、固相吸着－誘導体化－溶媒抽出－高速液体クロマトグラフィー (HPLC) によって行う。

2. 1 測定方法の概要

2,4-ジニトロフェニルヒドラジン (DNPH) を担持した捕集剤を充てんした捕集管に室内空気および外気を一定流速で吸引して、空気中のホルムアルデヒドおよびアセトアルデヒド (以下アルデヒド) を捕集すると共に誘導体化させる。これをアセトニトリルで溶出させ、高速液体クロマトグラフ (HPLC) により分離、定量することを基本とする。また、空気の採取と同時に気温・湿度を測定し、冬季等気温が低い場合等、必要が認められる場合には温度・湿度による濃度の補正を行うこととする。

(注1)

2. 2 試薬

(1) アセトニトリル

測定対象であるアルデヒドを含まないもの。たとえば、アルデヒド分析用、高速液体クロマトグラフ用等を用いる。

(2) 水

測定対象であるアルデヒドを含まないもの。(注2)

(3) 標準物質

ホルムアルデヒド-2,4-ジニトロフェニルヒドラゾンおよびアセトアルデヒド-2,4-ジニトロフェニルヒドラゾンは純度 98%以上、またはこれと同等以上のもの。

(4) ホルムアルデヒド-2,4-ジニトロフェニルヒドラゾン標準原液 (100 µg/mL ホルムアルデヒド)

メスフラスコ (100 mL) にホルムアルデヒド-2,4-ジニトロフェニルヒドラゾン 70.0 mg を精秤し、アセトニトリルを加えて 100 mL とする。この溶液 1 mL はホルムアルデヒド 100 µg 相当を含む。(注3)

(5) アセトアルデヒド-2,4-ジニトロフェニルヒドラゾン標準原液 (100 µg/mL アセトアルデヒド)

メスフラスコ (100 mL) にアセトアルデヒド-2,4-ジニトロフェニルヒドラゾン 50.9 mg を精秤し、アセトニトリルを加えて 100 mL とする。この溶液 1 mL はアセトアルデヒド 100 µg 相当を含む。(注3)

(6) 混合標準溶液 (10 µg/mL アルデヒド)

各標準原液のそれぞれの一定量 (1 mL) をメスフラスコ (10 mL) に入れ、アセトニトリルを用いて 10 倍に希釈する。この溶液 1 mL はホルムアルデヒドおよびアセトアルデヒド 10 µg 相当を含む。(注3)

2. 3 器具および装置

(1) 抽出容器

メスフラスコまたは目盛り付き遠沈管。

(2) 注射筒

捕集管に接続が可能なもの。

(3) 液体シリンジ

容量 100 μL のもの。

(4) マイクロシリンジ

容量 10~100 μL が計りとれるもの。

(5) 保存用バイアル

容量 2 mL で、共栓付きのもの。

(6) 試料採取装置

試料採取装置は、捕集管、マスフローコントローラー、ポンプおよびガスメータを連結したもののから成る。

試料採取装置に使用する器具類は十分に洗浄して汚染に注意する。試料採取に当たって装置を組み立てた後、漏れのないことを確認する。(図1)

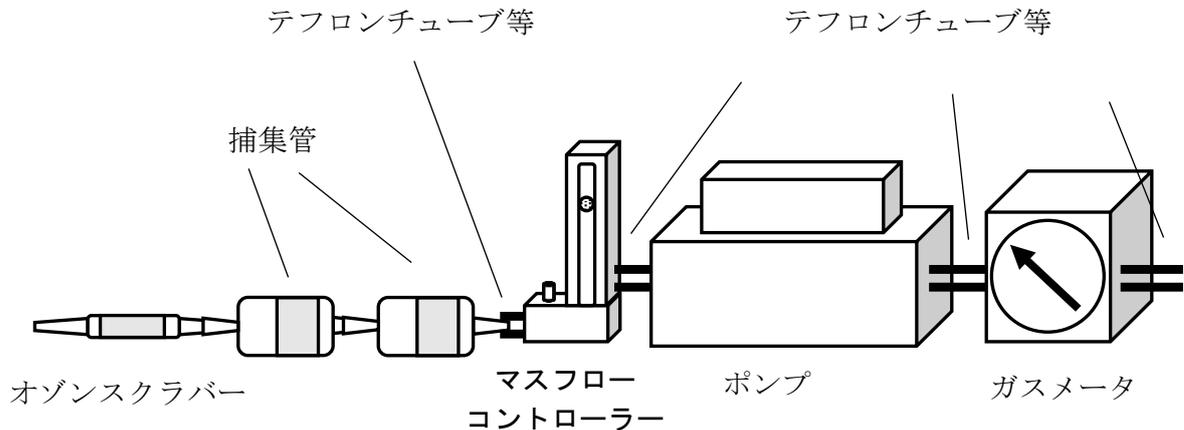


図1 試料採取装置の接続例

- 1) 捕集管：2,4-ジニトロフェニルヒドラジン (DNPH) を担持した捕集剤 (シリカゲル等) を充てんしてあるもの。市販品が販売されている。(注4)
 - 2) オゾンスクラバー：室内外にオゾンの発生やその存在が懸念される場合は、捕集管の前段に装着することが可能で、ホルムアルデヒドおよびアセトアルデヒドの分析に影響しないもの。市販品が販売されている。(注5)
 - 3) マスフローコントローラー：流量を 20~1000 mL/min の範囲で制御でき、設定流量に対して $\pm 10\%$ 以内の制御精度を有するもの。または、これと同等以上の性能を有するもの。(注6)
 - 4) ポンプ：ダイヤフラム型等の密閉式のポンプで、捕集管をつけた状態で 20~1000 mL/min の捕集流量が 24 時間確保可能なもの。または、これと同等以上の性能を有するもの。(注6)
 - 5) ガスメータ：空気量の積算測定が可能であり、マスフローコントローラーの流量制御範囲で精度よく作動する性能を有するもの。(注6)
- (7) 温湿度連続測定器
試料採取時間中、連続して測定や記録が可能なもの。

(8) HPLC (注7)

1) HPLC 装置

- a) **送液ポンプ**：有機溶媒と水を任意の割合で混合可能であるもの。また定流量で必要な圧力が確保され、かつ脈流の少ないものであり流量調節が可能なもの。
- b) **試料導入装置**：試験液の一定量をカラムに導入可能な構造であること。
- c) **カラム**：内径 3~5 mm、長さ 15~25 cm のステンレス管にオクタデシルシリル基 (ODS) を化学結合させたシリカゲル (粒径 3.5~10 μm) を充てんしたもの。または、これと同等の分離性能を有するもの。
- d) **カラムオーブン**：分析に使用するステンレス管のカラムを装着可能で、一定温度に保つことが可能なもの。
- e) **検出器**：紫外可視吸光度検出器またはダイオードアレイ検出器で、波長 360 nm における吸光度の測定および記録が可能なもの。

2) HPLC の分析条件

HPLC の分析条件の一例を以下に示す。

カラム : 内径 4.6 mm、長さ 15 cm のステンレス管にオクタデシルシリル基 (ODS) を化学結合させたシリカゲル (粒径 5 μm) を充てんしたもの。

カラム温度 : 40°C

移動相 : A: 水、B: アセトニトリル

60% B (0-14 min), 60-80% B (14-27 min), 100% B (27-30 min)

流量 : 1.0 mL/min

試料導入量 : 20 μL

測定波長 : 360 nm

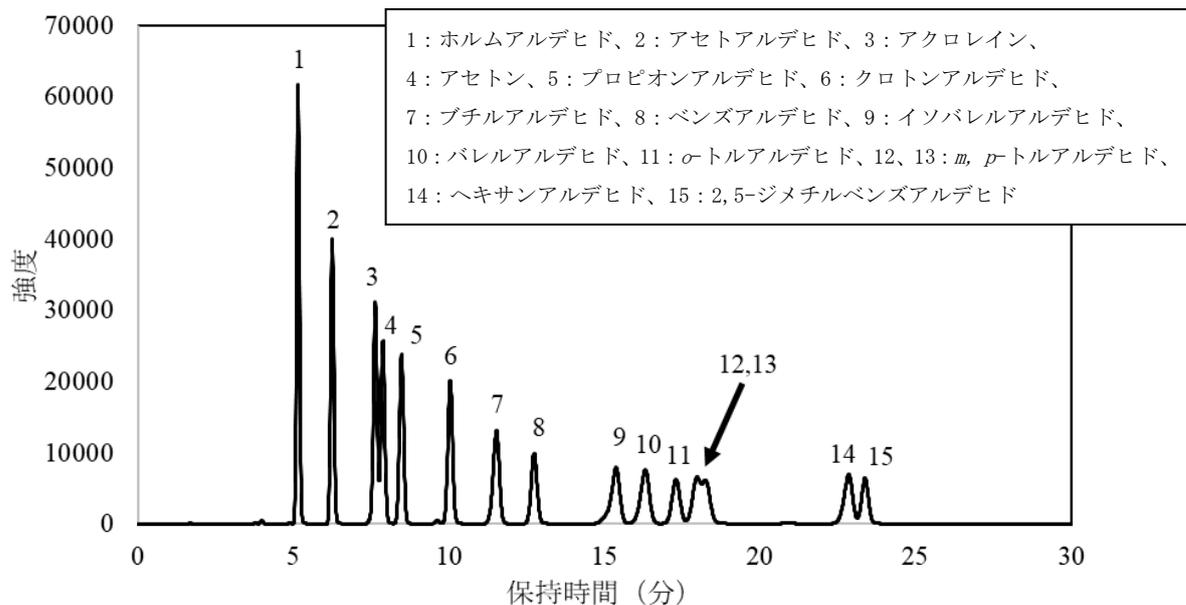


図2 クロマトグラムの一例

2. 4 試料採取および試験溶液の調製

(1) 試料採取

空気試料は室内の2カ所および室外1カ所(外気)についてそれぞれ2回ずつ採取する。また、トラベルブランク試験用として、室内空気の試料採取用の捕集管と同様に持ち運び、取り扱う。(注8)(注9)(注10)(注11)

- a) **最大濃度推定法における試料の採取**：試料採取装置を用い、1 L/min 程度の流量で概ね 30 分間採取する。試料採取後、捕集管は両端を密栓しアルミ箔等で遮光した後、活性炭入り保存

容器に入れて分析時まで保存する。採取した捕集管は、なるべく速やかに抽出操作を行う。

- b) 平常実態把握法における試料の採取：試料採取装置を用い、100 mL/min 程度の流量で概ね 24 時間採取する。試料採取後、捕集管は両端を密栓しアルミ箔等で遮光した後、活性炭入り保存容器に入れて分析時まで保存する。採取した捕集管は、なるべく速やかに抽出操作を行う。（注 12）

(2) 検量線用混合標準濃度系列の調製

混合標準溶液を 2. 4 (3) 試験溶液の調製で用いる溶媒で希釈し、検量線用混合標準濃度系列を調製する。この溶液を検量線溶液とする。たとえば、2. 2 (6) の混合標準溶液をアセトニトリルで適宜希釈し、HPLC の感度に合わせて混合標準濃度系列を調製する。（注 14）

(3) 試験溶液の調製

1) 試料空気試験溶液の調製

試料採取を終えた捕集管に注射筒を装着し、この注射筒に任意の抽出溶媒を加え、毎分 1 mL 程度の流速で溶出する。たとえば、注射筒にアセトニトリル 5 mL を入れ、全量フラスコ又は目盛り付き試験管に溶出する。溶出後、アセトニトリルで全量を 5 mL とし、これを分析用試料溶液とする。分析用試料溶液の濃度が検量線溶液の濃度範囲を超える場合、アセトニトリルで適切な濃度に希釈する。（注 15）

- 2) 操作ブランク試験溶液の調製：試料空気用の捕集管と同一の未使用の捕集管について、2. 4 (3) 1) と同様の操作を一連の操作の中で 1 回以上行い、操作ブランク試験溶液を調製する。

- 3) トラベルブランク試験溶液の調製：トラベルブランク試験用の捕集管について 2. 4 (3) 1) と同様の操作を行い、トラベルブランク試験溶液を調製する。

2. 5 試料の測定および試験溶液中濃度の定量

(1) 検量線用混合標準濃度系列の測定と定量（注 17）

- 1) 測定：2. 4 (2) で調製した混合標準濃度系列の一定量を HPLC に注入し、波長 360 nm におけるクロマトグラムを記録する。注入量は試験溶液と同量にする。
- 2) 標準物質保持時間の確認：2. 4 (2) で調製した混合標準濃度系列の中から、各アルデヒドの中間程度の濃度におけるクロマトグラムをもとに、保持時間を確認する。
- 3) 検量線の作成：各アルデヒドの保持時間におけるピーク面積またはピーク高さを求め、そのピーク面積またはピーク高さと同濃度の標準溶液のピーク面積またはピーク高さとの比を求め、検量線を作成する。

(2) 試料空気試験溶液の測定と定量

- 1) 測定：2. 4 (3) 1) で調製した試験溶液の一定量を HPLC に注入し、波長 360 nm におけるクロマトグラムを記録する。注入量は検量線用混合標準濃度系列と同量にする。平常実態把握法における第 2 管の捕集管から得た試験液は、捕集管の破過の有無を確認するために使用する。
- 2) 対象化学物質の確認：2. 5 (1) 2) で決定した保持時間における、ピークの有無を確認する。
- 3) 定量：2. 5 (1) 2) で決定した保持時間におけるピーク面積またはピーク高さを求め、2. 5 (1) 3) により作成した検量線から、注入した試料空気の試験溶液中における各アルデヒドの濃度 (As: $\mu\text{g/mL}$) を求める。（注 16）

(3) 操作ブランク試験溶液の測定と定量

2. 4 (3) 2) で調製した操作ブランク試験溶液について 2. 5 (2) の操作を行い、各アルデヒドの操作ブランク値を求める。

(4) トラベルブランク試験溶液の測定と定量

2. 4 (3) 3) で調製したトラベルブランク試験溶液について 2. 5 (2) の操作を行い、

トラベルブランク試料溶液中における各アルデヒドの濃度を求める。本試験では1試料以上を測定し、その平均値をトラベルブランクの濃度 (At: µg/mL) とする。

2. 6 空气中濃度の算出

2. 5で得られた結果から、次式を用いて空气中の各アルデヒドの濃度を算出する。

$$C = \frac{(As - At) \times D \times E \times 1000}{V \times 298 / (273 + t) \times P / 1013}$$

- C : 25°Cにおける空气中の各アルデヒドの濃度 (µg/m³)
As : 検量線より求めた試験溶液中の各アルデヒドの濃度 (µg/mL)
At : 各アルデヒドのトラベルブランク濃度 (µg/mL)
操作ブランク値と同等と見なせる場合は操作ブランク値を用いる。
D : 希釈係数 (測定時の希釈倍率)
E : 溶出に用いた溶液量 (mL)
V : ガスメータで測定した空气の捕集量 (L)
t : 試料採取時の平均気温 (°C)。湿式型積算流量計を使用しているときには、積算流量計の平均水温 (°C)。
P : 試料採取時の平均大気圧 (hPa)。湿式型積算流量計の場合には (P-Pw) を用いる。
ここで、Pw は試料採取時の平均気温 t での飽和水蒸気圧 (hPa)。

室温が 25°C に満たない場合には、以下の式により濃度を補正することが望ましい^{2,3)}。

$$C' = C \times 1.09^{(25-t)} \times 100 / (50 + rh)$$

- C' : 補正を行った、25°Cにおける空气中の各アルデヒドの濃度 (µg/m³)
C : 前述の式より算出した空气中の各アルデヒドの濃度 (µg/m³)
t : 試料採取時の平均気温 (°C)。湿式型の積算流量計を使用している時には積算流量計の平均水温 (°C)。
rh : 試料採取時の平均湿度 (%)

木質建材からのアルデヒド類の放散量は、温度と湿度の影響を受けることが知られており (温度、湿度とも上昇と共に放散量が増加する)、これまでの研究から上記式がモデルとして適用できることがわかっている。

温湿度の条件により過少評価とならないよう、安全面を考慮して室温 25°C、湿度 50% を基準として温湿度補正を推奨している⁴⁾。

- 注 1 : サンプル中の気温が 20°C に満たない場合は、2. 6 に示した式で濃度を補正することが望ましい。
注 2 : 測定対象であるアルデヒドを含まなければ、市販品や、蒸留水を超純水製造装置により精製したものを使用しても良い。一般的に、蒸留水等からもホルムアルデヒドのブランクが観測されるものが多いので注意する。
注 3 : 市販の標準液または混合標準液を使用しても良い。ただし、表示されている濃度に注意すること (2,4-ジニトロフェニルヒドラゾン誘導体ではなく、各アルデヒドとしての濃度となっているものが良い)。なお、ヒドラゾン誘導体は紫外線により分解するため、遮光して保存する。

- 注4 : 市販品として柴田科学の DNPH アクティブガスチューブ、ジーエルサイエンスの InertSep mini AERO DNPH、シグマーアルドリッチの LpDNPH S10L 等がある。
- 注5 : オゾンスクラバーとしては、主にヨウ化カリウムや *trans*-1,2-ビス (2-ピリジル) エチレン (BPE) が用いられる。なお、DNPH 捕集管との一体型を用いても良い。市販品は、柴田科学、GL サイエンス、シグマーアルドリッチ等から販売されている。ヨウ化カリウムは空気中の水分により潮解することがあるので湿度に注意する。また、スクラバー部分を室温よりやや高めに保温し水分の凝縮を防ぐ。
- 注6 : 質量流量センサーを内蔵したポンプも市販されている (図3)。間欠サンプリング機能を有するポンプを用いてもよい。

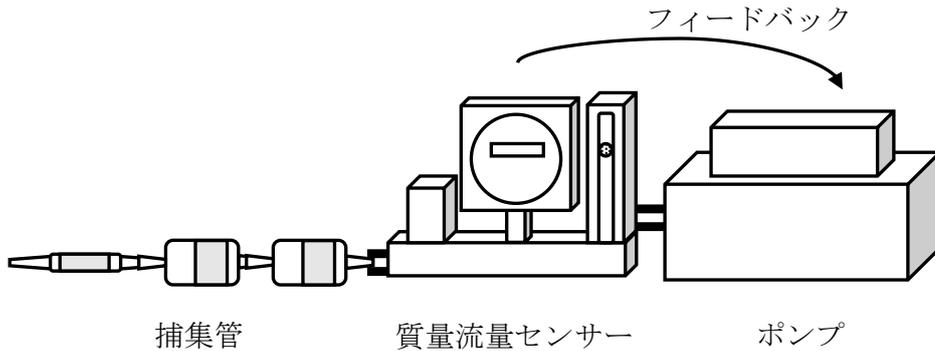


図3 試料採取装置の一例

- 注7 : 対象成分が十分に分離出来れば、カラムの種類および温度条件等は任意に設定して良い。あらかじめ設定した条件において、各アルデヒドのピークが分離し、定量が可能であることを確認する。分析条件によっては、アセトアルデヒドのピークが2つに分かれる。
- 注8 : 室内より室外での化学物質濃度が高いと考えられる場合は、室内の他に室外におけるトラベルブランクも併せて採取することが望ましい。試料採取の詳細については1.1～1.5を参照する。
- 注9 : 試料採取時の気温が10°C以下の場合は、捕集管部分を10°C以上に保温する。
- 注10 : 試料採取に際し捕集管の破過が懸念される場合は、十分な量が捕集できる範囲で流速を遅くしても良い。
- 注11 : 直ちに抽出操作が出来ない場合、捕集管は冷暗所 (4°C以下) に保管することで、1週間程度の保存が可能である。また、抽出液で保存する場合は概ね3週間程度は保存が可能である。
- 注12 : 平常実態把握法の場合、拡散型 (パッシブサンプラー) の捕集管を使用してもよい。ただし、使用するサンプラーは第三者機関等で測定精度が保証されたもの、あるいは標準測定方法との換算が可能なものを使用すること。市販品は、柴田科学、シグマーアルドリッチ等から販売されている。
- 注13 : 2,4-ジニトロフェニルヒドラゾン誘導体ではなく、各アルデヒドとしての濃度に対しての検量線を作成すると定量が容易である。
- 注14 : 各アルデヒドの溶出率が良好 (添加回収試験における回収率が70～130%) であれば、溶出溶媒の種類は任意で良いが、溶離液に使用する有機溶媒と同一のものが望ましい。また、溶出溶媒量は任意で良いが、定量の際にはその希釈割合等に注意すること。なお、試料採取における第2管は、破過を確認するためのものである。
- 注15 : 各アルデヒド標準溶液を用いて確認する。
- 注16 : 室内空気中の測定対象物質の濃度は、その範囲が広いことが予想されるため、定量上限を明確に把握しておくことが必要である。試料空気の測定値が作成した検量線の範囲を超える場合は、分析の諸条件を検討した上で検量線を再度作成し、定量する。

《参考文献》

- 2) 井上明生: ホルムアルデヒド気中濃度のガイドライン対策. 木材工業, **52**(1), 9-14 (1997)
- 3) 井上明生ら: デシケータ法によるホルムアルデヒド放散量と気中濃度との相関. 木材工業, **45-7**, 313-319 (1990)
- 4) JIS Z 8703 試験場所の標準状態

3. 揮発性有機化合物の測定方法

ここに掲げる測定方法は、室内空気中のトルエン、*o*-、*m*-、*p*-キシレン、エチルベンゼン、スチレン、パラジクロロベンゼンおよびテトラデカンを対象とする。試料の採取および調製方法には、固相吸着－溶媒抽出法および固相吸着－加熱脱離法の2種の方法があり、測定にはガスクロマトグラフィー／質量分析法を用いる。

3.1 第1法 固相吸着－溶媒抽出－ガスクロマトグラフィー／質量分析法

3.1.1 測定方法の概要

吸着剤を充填した捕集管に室内空気および外気を一定流量で吸引し、測定対象物質を捕集する。捕集管から測定対象物質を溶媒で溶出させ、これをキャピラリーカラムに導入してガスクロマトグラフィー質量分析計 (GC-MS) により分離、定量することを基本とする。(注1)

3.1.2 試薬

(1) メタノールおよび二硫化炭素

測定対象物質、内標準物質およびサロゲート物質のクロマトグラムに妨害を生じないもの。

(2) 標準物質

トルエン、*o*-、*m*-、*p*-キシレン、エチルベンゼン、スチレン、パラジクロロベンゼンおよびテトラデカンは純度 98% 以上の JIS 規格試薬特級、またはこれと同等以上のもの。

(3) 標準原液 (1000 µg/mL)

各メスフラスコ (100 mL) に標準物質 100 mg を精秤し、メタノールを加えて 100 mL とする。この溶液 1 mL は各々の標準物質 1000 µg を含む。(注2)

(4) 混合標準溶液 (100 µg/mL)

各標準原液のそれぞれの一定量 (1 mL) をメスフラスコ (10 mL) にとり、メタノールを用いて 10 倍に希釈する。この溶液 1 mL は各々の標準物質 100 µg を含む。(注2) (注3)

(5) 内標準物質 (トルエン-*d*₈)

トルエン-*d*₈ は純度 98% 以上の JIS 規格試薬特級、またはこれと同等以上のもの。

(6) 内標準溶液 (1000 µg/mL)

メスフラスコ (100 mL) に内標準物質 100 mg を精秤し、メタノールを加えて 100 mL とする。この溶液 1 mL は内標準物質 1000 µg を含む。(注2) (注3) (注4)

(7) サロゲート物質 (スチレン-*d*₈)

スチレン-*d*₈ は純度 98% 以上、またはこれと同等以上のもの。

(8) サロゲート標準溶液 (1000 µg/mL)

メスフラスコ (100 mL) にサロゲート物質 100 mg を精秤し、メタノールを加えて 100 mL とする。この溶液 1 mL はサロゲート物質 1000 µg を含む。(注2) (注3)

(9) 高純度窒素ガス

測定対象物質、内標準物質およびサロゲート物質のクロマトグラムに妨害を生じないもの。(注5)

3. 1. 3 器具および装置

(1) 抽出容器

スクリーキャップまたは共栓付き遠沈管 (容量 5~10 mL 程度)

(2) マイクロシリンジ

容量 1~10 μL または 10~100 μL が量りとれるもの。

(3) 試料採取装置

試料採取装置は、捕集管、マスフローコントローラー、ポンプおよびガスメーターを連結したものからなる。接続例を図1に示す。なお、試料採取環境の湿度が高い場合、捕集管の前段に除湿管を使用してもよい。試料採取装置に使用する器具類は十分に洗浄して汚染に注意する。また、試料採取にあたって装置を組み立てた後、漏れのないことを確認する。(注6)

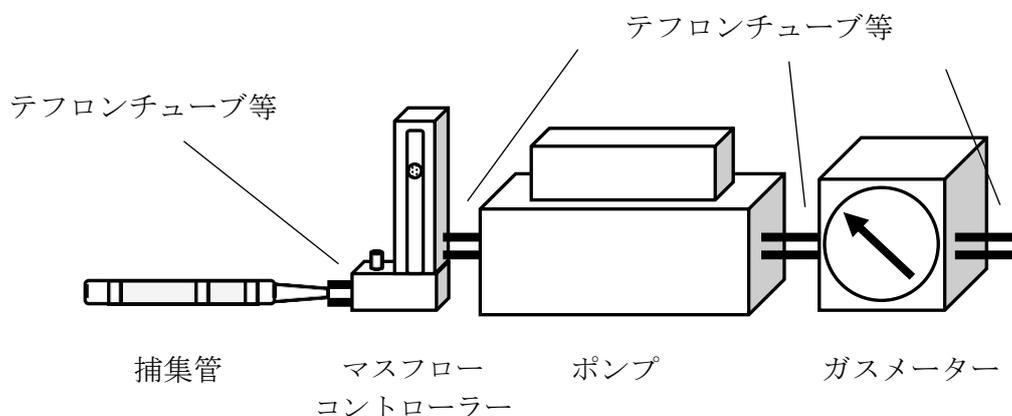


図1 試料採取装置の接続例

- 1) 捕集管：内径 3~4 mm 程度のガラス管にカーボン系吸着剤 150 mg 以上充てんしたもの。または測定対象物質に対して十分な捕集能力を有するもの。一例を図2に示す。(注7)



図2 捕集管

- 2) マスフローコントローラー：流量を 100~1000 mL/min の範囲で制御でき、設定流量に対して $\pm 10\%$ 以内の制御精度を有するもの。または、これと同等以上の性能を有するもの。(注8)
- 3) ポンプ：ダイヤフラム型等の密閉式のポンプで、捕集管をつけた状態で 100~1000 mL/min の捕集流量が確保できるもの。または、これと同等以上の性能を有するもの。(注8)
- 4) ガスメーター：湿式型またはこれと同等以上の性能を有するもので、積算測定が可能であり、流量調節装置の流量制御範囲で精度よく作動する性能を有するもの。(注8)

(4) GC-MS (注9)

1) GC-MS 装置

- a) 試料注入口：スプリットまたはスプリットレス注入が可能なもの。
- b) カラム恒温槽：恒温槽の温度を 35～300℃の範囲で制御できるもの。また、測定対象物質を最適に分離できる昇温プログラムが作成可能なもの。
- c) カラム：内径 0.2～0.32 mm、長さ 25～60 m の熔融シリカ製のものであって、内面にジメチルポリシロキサンまたは 5%フェニル-ジメチルポリシロキサンを 0.25～1.5 μm の膜厚で被覆したキャピラリーカラム、またはこれと同等の分離性能を有するもの。
- d) インターフェース部：温度を 200～300℃程度に保つことができるもの。
- e) イオン源：温度を 160～300℃に保つことができるもの。
- f) 検出器 (MS)：電子 (衝撃) イオン化法 (EI 法) が可能で、選択イオン検出 (SIM) もしくは全イオン検出 (Scan) モードが可能なもの。
- g) キャリヤーガス：ヘリウム等 (純度 99.999 vol% 以上、注 10)。1 mL/min 程度。
- h) 測定質量数：各測定対象物質の測定用質量数の一例は表 1 の通り。

表 1 各測定対象物質の測定質量数 (一例)

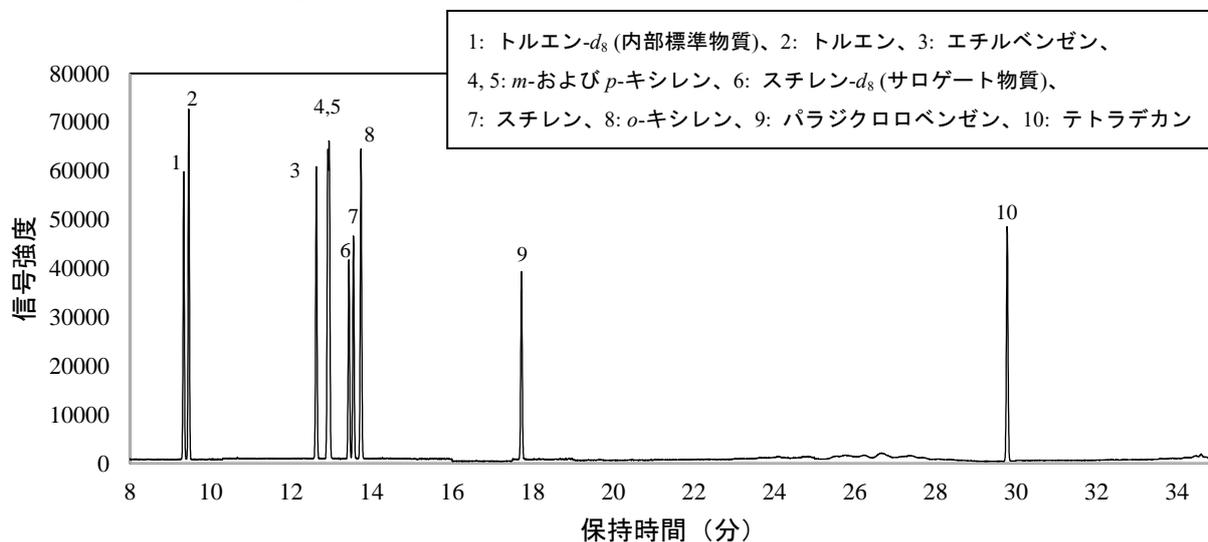
測定対象物質	質量数 (m/z)
トルエン	65, 91, 92
<i>o</i> -, <i>m</i> -, <i>p</i> -キシレン	91, 105, 106
エチルベンゼン	65, 91, 106
スチレン	51, 78, 104
パラジクロロベンゼン	111, 146, 148
テトラデカン	43, 57, 71
トルエン- d_8	70, 98, 100
スチレン- d_8	54, 84, 112

2) GC-MS の分析条件の設定と機器の調整

GC-MS の分析条件およびクロマトグラムの一例を以下に示す。(図 3)

- カラム温度 : 40℃ - (5℃/min) → 280℃ (4 分間保持)
- 注入口温度 : 250℃
- 試料注入法 : スプリット (スプリット比 1 : 5～1 : 100)
- インターフェース温度 : 250℃
- イオン源温度 : 200℃

*MS に質量校正用標準物質 (パーフルオロトリブチルアミン (PFTBA) またはパーフルオロケロセン (PFK)) を導入し、マスパターンおよび分解能 (質量数 (m/z) = 18～300 程度の範囲で 1 質量単位 (amu) 以上) 等を測定目的に応じて所定の値に校正する。質量校正結果は測定結果と共に保存する。(注 11)



3. 1. 4 試料採取および試験溶液の調製

(1) 試料採取

空気試料の採取は、室内 2 カ所ならびに室外 1 カ所の計 3 カ所について、それぞれ 2 回ずつ採取する。試料採取後、捕集管は両端を密栓した後、アルミ箔等で遮光し、活性炭入り保存容器に入れて分析時まで保存する。(注 12) (注 13) (注 14) (注 15)

- a) 最大濃度推定法における試料の採取：試料採取装置を用いて 1 L/min 程度の流量で概ね 30 分間採取する。採取にあたっては、事前に 30 分間対象室内の換気を行った後、5 時間以上密閉しておく。採取の時刻は午後 2 時から 3 時頃に設定することが望ましい。
- b) 平常実態把握法における試料の採取：試料採取装置を用いて捕集管に 100 mL/min 程度の流量で 24 時間採取する。採取は日常生活を営みながら行う。

(2) 検量線用混合標準濃度系列の調製

- 1) 希釈による混合標準濃度系列の調製：混合標準溶液を試験溶液の調製に用いる二硫化炭素等の溶媒で希釈する。この溶液 1 mL に内標準溶液 (1000 $\mu\text{g/mL}$) を 1 μL 加える。サロゲート物質を使用する場合、さらにサロゲート標準溶液 (1000 $\mu\text{g/mL}$) を 1 μL 加える。この溶液を検量線用混合標準濃度系列とする。(注 3) (注 16) (注 17)
- 2) 捕集管への混合標準溶液添加による混合標準濃度系列の調製：図 4 の例に示すように、捕集管を T 字管に連結し、希釈した混合標準溶液 1 μL を、高純度窒素ガスを通気しながらマイクロシリンジで添加、または添加した後に通気する。通気は、高純度窒素ガスを 50~100 mL/min の流速で 3~5 分間行う。5 段階程度の混合標準濃度系列を調製し、3. 1. 4 (3) 1) に示す抽出操作を行って、検量線用混合標準濃度系列を調製する。(注 17) (注 18)

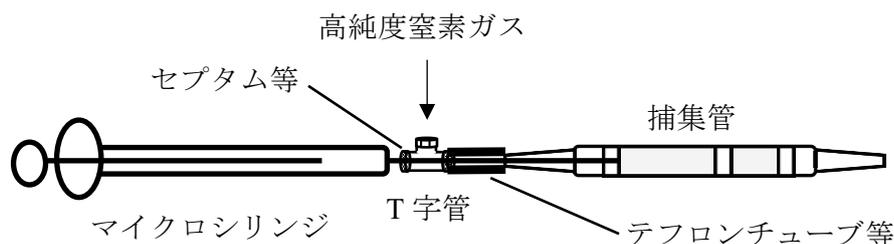


図 4 検量線作成用 T 字管の接続例 (注 18)

(3) 試験溶液の調製

- 1) 空気試料用試験溶液の調製：捕集管から吸着剤を抽出容器に取り出し、抽出溶媒を加え、測定対象物質を溶出する。例えば、二硫化炭素 2 mL を加えて 1 時間以上振とう抽出した後、溶液 1 mL を分取し、内標準溶液 (1000 $\mu\text{g/mL}$) 1 μL を加えたものを試験溶液とする。サロゲート物質を使用する場合、捕集管から取り出した吸着剤にサロゲート標準溶液 (1000 $\mu\text{g/mL}$) 2 μL を加えた後、抽出操作を行う。(注 19) (注 20)
- 2) 操作ブランク用試験溶液の調製：空気試料用の捕集管と同一ロットの未使用の捕集管について 3. 1. 4 (3) 1) と同様の操作を一連の操作の中で 1 回以上行い、操作ブランク試験溶液を調製する。
- 3) トラベルブランク用試験溶液の調製：3. 2. 4 (1) 2) のトラベルブランク試験用捕集管について 3. 1. 4 (3) 1) と同様の操作を行い、トラベルブランク試験溶液を調製する。
- 4) 2 重測定用試験溶液の調製：3. 2. 4 (1) 3) の 2 重測定用の捕集管について 3. 1. 4 (3) 1) と同様の操作を行い、2 重測定用試験溶液を調製する。

3. 1. 5 試験溶液の測定および定量

(1) 検量線用混合標準濃度系列の測定

- 1) 測定：3. 1. 4 (2) で調製した検量線用混合標準濃度系列の 1 μL 程度を GC-MS に注入

し、3. 1. 3 (4) 1) h) で設定した各測定対象物質の質量数におけるクロマトグラムを記録する。

- 2) 測定対象物質の保持時間の確認：3. 1. 4 (2) で調製した混合標準濃度系列の中から、測定対象物質の中間程度における濃度のクロマトグラムをもとに測定対象物質それぞれの保持時間を確認する。
- 3) 測定対象物質の質量数の決定：3. 1. 3 (4) 1) h) で設定した各測定対象物質の質量数から検量線作成に用いる定量用質量数と確認用質量数を決定する。
- 4) 検量線の作成：各測定対象物質の定量用質量数と内標準物質の定量用質量数のピーク面積またはピーク高さの強度比を求め、そのピーク面積またはピーク高さの比と各測定対象物質の濃度とにより検量線を作成する。(注 21)
- 5) 定量用質量数と確認用質量数の比の決定：各測定対象物質の定量用質量数と確認用質量数のピーク面積またはピーク高さの強度比を算出する。

(2) 空気試料試験溶液の測定と定量

- 1) 測定：3. 1. 4 (3) 1) で調製した試験溶液の 1 μL 程度を GC-MS に注入する。
- 2) 測定対象物質の確認：3. 1. 5 (1) 3) で決定した各測定対象物質の定量用質量数と確認用質量数によるクロマトグラムを記録し、ピーク面積またはピーク高さの強度比を算出する。(注 22)
- 3) 定量：検出された各測定対象物質の定量用質量数と内標準物質の定量用質量数のピーク面積またはピーク高さの強度比を求め、3. 1. 5 (1) 4) により作成した検量線を用いて、注入した空気試料の試験溶液中における各測定対象物質の濃度 (As: μg/mL) を求める。(注 23)

(3) 操作ブランク試験溶液の測定と定量

3. 1. 4 (3) 2) で調製した操作ブランク試験溶液について 3. 1. 5 (2) の操作を行い、各測定対象物質の操作ブランク値を求める。

(4) トラベルブランク試験溶液の測定と定量

3. 1. 4 (3) 3) で調製したトラベルブランク試験溶液について 3. 1. 5 (2) の操作を行い、トラベルブランク試料溶液中における各測定対象物質の濃度を求める。本試験は 1 試料以上を測定し、平均値をトラベルブランク値 (At: μg/mL) とする。

(5) 2重測定用試験溶液の測定と定量

3. 1. 4 (3) 4) で調製した 2重測定用試験溶液について 3. 1. 5 (2) の操作を行って、各測定対象物質の濃度を求める。

(6) GC-MS 装置の感度試験

混合標準濃度系列の中から中間程度の濃度のものを選び、3. 1. 5 (1) 1) の操作を行って感度の変動を確認する。この確認は 1 日に 1 回以上行う。(注 24)

3. 1. 6 空気中濃度の算出

3. 1. 5 で得られた結果から、次式を用いて空気中の各測定対象物質の濃度を算出する。

$$C = \frac{(As - At) \times E \times 1000}{V \times 298 / (273 + t) \times P / 1013}$$

C : 25°Cにおける空気中の各測定対象物質の濃度 (μg/m³)

As : GC-MS に注入した試験溶液中の各測定対象物質の濃度 (μg/mL)

At : 各測定対象物質のトラベルブランク濃度 (μg/mL)

操作ブランク値と同等と見なせる場合は操作ブランク値を用いる。

- E : 抽出に用いた溶液量 (mL)
V : 空気試料量 (L)
t : 試料採取時の平均の気温 (°C)。湿式型ガスメーターを使用した場合は、ガスメーターの平均水温 (°C)
P : 試料採取時の平均大気圧 (hPa)。湿式型ガスメーターの場合は (P-Pw) を用いる。
ここで、Pw は試料採取時の平均気温 t (°C) での飽和水蒸気圧 (hPa)

結果には個々の測定値をそれぞれ記載する。

- 注 1 : 本法は、捕集管に濃縮した測定対象物質を抽出溶媒で希釈するため試料の捕集量を大きくする必要があり、捕集能力を考慮して保持容量の大きい吸着剤を用いる方がよい。捕集管のブランク値は小さいが、抽出溶媒のブランク値が定量下限値に影響することもある。測定対象物質により捕集管の捕集効率や溶媒による溶出率が異なることから、あらかじめ添加回収試験を行い、その回収率について検討しておく必要がある。なお、抽出した試験溶液は繰り返し測定が可能である。平常実態把握法では、ここで述べられた方法と同様の信頼性が確保できる場合、拡散法（パッシブ法）によって空気試料を採取してもよい。ただし、最大濃度推定には、拡散法（パッシブ法）を用いた試料採取による測定は困難である。
- 注 2 : 溶媒に二硫化炭素を用いてもよい。また、試料採取量、濃縮操作および GC-MS の条件等によって測定感度は異なるので、ここに示した濃度を目安に適宜変えてもよい。さらに、市販の標準原液（混合標準原液）を用いてもよい。ただし、精度を保証されているものが望ましい。
- 注 3 : 二硫化炭素は揮散しやすく濃度が容易に変化するため、氷冷下での用時調製が望ましい。標準原液と異なる溶媒で希釈する場合、それぞれの溶媒における相互溶解度に注意すること。
- 注 4 : 溶液ではなく、内標準ガスを使用してもよい。たとえば、高純度窒素ガスで置換して大気圧に戻した真空瓶 (1L) の注入口から内標準溶液 (1000 µg/mL) の一定量 (100 µL) を注入して混合し、内標準ガスを調製する。(このガス 1 mL は各標準物質 0.1 µg を含む。)
- 注 5 : 精製空気を使用してもよい。測定対象の有機化合物を含有しないことが重要であり、測定対象以外の物質については全炭化水素で 0.01 ppm 以下、一酸化炭素 0.05 ppm 以下、二酸化炭素 0.3 ppm 以下、水分濃度 2 ppm 以下（露点-70°C以下）で純度 99.999%以上のものが望ましい。
- 注 6 : 除湿管は捕集管と接続できるようなガラス管に過塩素酸マグネシウム約 15 g を充てんし、両端を石英ウール等で押さえたもの。両端を密栓し、使用時まで活性炭入りの密閉容器に保存する。過塩素酸マグネシウムは有機元素分析用（粒径 300~700 µm）を用いる。市販品のジーエルサイエンス株式会社製の水分除去フィルター等を用いてもよい。ただし、測定対象物質の除湿管や石英ウール等への吸着の有無をあらかじめ確認すること。
- 注 7 : 市販品として柴田科学株式会社製のチャコールチューブ、カーボンビーズアクティブ、株式会社ガステック製の活性炭チューブ（ヤシガラ活性炭）、活性炭チューブ（球状活性炭）、Merck 製の ORBO-32 Small（ヤシガラ活性炭）および ORBO-101 (Carbotrap) 等がある。
- 注 8 : 質量流量センサーを内蔵したポンプが市販されている。間欠サンプリング機能を有するポンプを用いてもよい。
- 注 9 : 対象成分が十分に分離出来れば、カラムの種類および温度条件等は任意に設定してよい。ただし、設定した条件において、測定対象物質のピークが分離し、定量が可能であることをあらかじめ確認する。なお、キシレンは *m*-および *p*-キシレンのピークが分離しない場合、*m*-および *p*-キシレンの合算値として定量する。

- 注 10 : 純度については 99.999%以上のものが望ましいが 99.999%未満のものを使用する場合は妨害がないことをあらかじめ確認すること。市販のガス精製管を使用してもよい。
- 注 11 : 機器に付属の質量校正用プログラムやチューニングメソッドを使用することが望ましい。
- 注 12 : 試料の採取において、測定に必要な量が得られない（装置の定量下限値を下回る）と考えられる場合は、採取時間をある程度長くする、あるいは採取流量を増加してもよい。ただし、いずれの場合も測定対象物質の破過に注意すること。また、測定対象物質が光により分解すると考えられる場合は、採取時の捕集管をアルミ箔等で遮光すること。
- 注 13 : 捕集管は吸引ポンプに接続する側および空気を取り入れる側を明確にしておく。
- 注 14 : 試料採取時に湿度が高い場合、3. 1. 3 (3) および注 6 で示した除湿管を使用してもよい。
- 注 15 : 室内より室外での化学物質濃度が高いと考えられる場合は、室内の他に室外におけるトラベルブランクも併せて採取することが望ましい。試料採取の詳細については 1.1 ~ 1.5 を参照する。
- 注 16 : この方法で混合標準濃度系列を作成する場合、使用する捕集管と溶媒の組み合わせにおいて添加回収試験を行い、測定対象物質の回収率が 70~130%であることを確認する。回収率がこの範囲を超える場合、検量線は 3. 1. 4 (2) 2) の捕集管への混合標準溶液添加による混合標準濃度系列の調製に示す方法で作成する。ただし、回収率がこの範囲内にあっても 3. 1. 4 (2) 2) の方法で検量線を作成してもよい。
- 注 17 : 試験溶液にサロゲート物質を添加した場合は、必ず検量線溶液にも試験溶液への添加量と同一量のサロゲート物質を添加する。
- 注 18 : 溶媒にメタノールを用いてもよい。また、試料を添加する場合は、シリンジの針先を捕集管内の吸着剤付近まで差し込むことが望ましい。市販の検量線作成ツール用装置を用いてもよい。
- 注 19 : 分析環境によりスチレンの回収率が低くなる（70%未満となる）場合がある。そのような場合は、サロゲートを使用する用いて抽出率補正を行うことにより、分析精度を向上させることができる。
- 注 20 : 測定対象物質の溶出率が良好（添加回収試験における回収率が 70~130%）であれば、抽出溶媒の種類は任意でよい。また、抽出溶媒量、内標準溶液およびサロゲート標準溶液の添加量は任意でよいが、定量の際はその希釈割合等に注意すること。なお、あらかじめ抽出溶媒に内標準溶液およびサロゲート標準溶液を一定量添加した溶液を作製し、抽出溶液としてもよい。その場合、内標準物質が吸着剤に吸着しないことを確認すること。測定対象物質が石英ウールに吸着する可能性がある場合は、石英ウールも（除湿管を使用した場合は除湿管の石英ウールも含めて）一緒に抽出する。
- 注 21 : キシレンは *m*-および *p*-キシレンのピークが分離しない場合、*m*-および *p*-キシレンの合算値として定量するが、検量線における設定濃度（添加量）に留意すること。
- 注 22 : 測定対象物質のピークに対する他の物質からの影響を判断するために行う操作である。測定した空気試料における定量用質量数と確認用質量数の強度比が検量線作成時と大きくかけはなれている場合は、再度標準試料を測定して定量用質量数と確認用質量数の強度比を算出する。再度測定した標準試料の強度比が検量線作成時の 90~110%の範囲内だった場合（標準物質に問題がない場合）、空気試料における測定対象物質のピークが何らかの影響を受けている可能性があることから、クロマトグラムのベースライン分離条件等の再検討や、他の分析カラムによる定量を検討する。
- 注 23 : 室内空気中の測定対象物質の濃度は、その範囲が広いことが予想されるため、定量上限を明確に把握しておくことが必要である。空気試料の測定値が作成した検量線の範囲を超える場合は、諸条件を検討した上で検量線を再度作成し、定量する。
- 注 24 : 内標準物質の感度が検量線作成時の感度と大きく異なることを確認する。また、内標準物質との相対感度が検量線作成時の相対感度に対して±20%以内の変動であることを確認し、これを越えて感度の変動する場合は、その原因を取り除き、それ以前の試料を再測

定する。さらに、保持時間については、比較的短い間に変動（通常、1日に保持時間が±5%以上、内標準物質との相対保持比が±2%以上）する場合は、その原因を取り除き、それ以前の試料の再測定を行う。

《参考文献》

- Chiba M. *et al.*: Validation study for establishing a standard test method for volatile organic compounds in indoor air in Japan using solvent extraction. *BPB Reports*, 7(2), 39-43 (2024).
- 千葉真弘ら: 室内空気中の揮発性有機化合物分析における除湿管の影響. *室内環境* (in press)

3.2 第2法 固相吸着－加熱脱離－ガスクロマトグラフィー／質量分析法

3.2.1 測定方法の概要

吸着剤を充填した捕集管に室内空気および外気を一定流量で吸引し、測定対象物質を捕集する。捕集管を加熱脱離装置に装着し、加熱脱離する測定対象物質をキャピラリーカラムに導入してガスクロマトグラフ-質量分析計 (GC-MS) により分離、定量することを基本とする。(注1) (注2) (注3)

3.2.2 試薬

(1) メタノール

測定対象物質および内標準物質のクロマトグラムに妨害を生じないもの。

(2) 標準物質

トルエン、*o*-、*m*-、*p*-キシレン、エチルベンゼン、スチレン、パラジクロロベンゼンおよびテトラデカンは純度 98%以上の JIS 規格試薬特級、またはこれと同等以上のもの。

(3) 標準原液 (1000 µg/mL)

各メスフラスコ (100 mL) に標準物質 100 mg を精秤し、メタノールを加えて 100 mL とする。この溶液 1 mL は各々の標準物質 1000 µg を含む。(注4)

(4) 混合標準溶液 (100 µg/mL)

各標準原液のそれぞれの一定量 (1 mL) をメスフラスコ (10 mL) にとり、メタノールを用いて 10 倍に希釈する。この溶液 1 mL は各々の標準物質 100 µg を含む。(注4)

(5) 内標準物質 (トルエン-*d*₈)

トルエン-*d*₈は純度 98%以上の JIS 規格試薬特級、またはこれと同等以上のもの。(注5)

(6) 内標準原液 (1000 µg/mL)

メスフラスコ (100 mL) に内標準物質 100 mg を精秤し、メタノールを加えて 100 mL とする。この溶液 1mL は内標準物質 1000 µg を含む。(注4) (注5)

(7) 内標準溶液 (100 µg/mL)

内標準原液の一定量 (1 mL) をメスフラスコ (10 mL) にとり、メタノールを用いて 10 倍に希釈する。この溶液 1 mL は内標準物質 100 µg を含む。(注4) (注5)

(8) 高純度窒素ガス

測定対象物質および内標準物質のクロマトグラムに妨害を生じないもの。(注6)

3.2.3 器具および装置

(1) マイクロシリンジ

容量 1~10 µL または 10~100 µL が計りとれるもの。

(2) 試料採取装置

試料採取装置は、捕集管、マスフローコントローラー、ポンプおよびガスメーターを連結したものからなる。接続例を図1に示す。なお、試料採取環境の湿度が高い場合、捕集管の前段に除湿管を使用してもよい。試料採取装置に使用する器具類は十分に洗浄して汚染に注意する。また、試料採取にあたって装置を組み立てた後、漏れのないことを確認する。(注7)

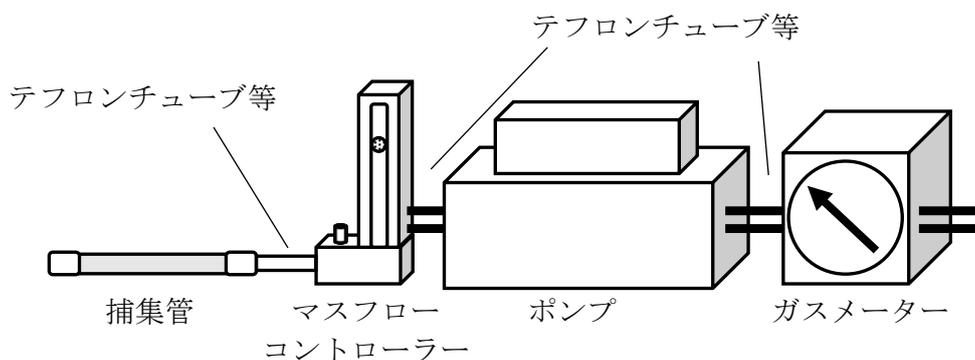


図1 試料採取装置の接続例

1) 捕集管

- a) 捕集管：内径 3~4 mm 程度のガラス管やステンレス管に測定対象物質を吸着・保持し、且つ加熱による脱離が十分に行うことができる粒径 60~80 メッシュの吸着剤を充てんし、両端を石英ウール等で押さえたもの、または測定対象物質に対して十分な捕集能力を有するもの。（注8）
- b) 調製：加熱炉に捕集管を装着し、高純度窒素ガス等を 50~100 mL/min 程度に流して捕集管内の空気を十分置換した後、高純度窒素ガス等を流したまま 300°C程度で2時間程度空焼き洗浄し冷却後、両端を密栓する。調製した捕集管は活性炭入りの密閉できるガラスまたは金属製容器等に保存する。なるべく使用直前に調製する。両端を溶封したものは、長期間の保存が可能である。（注9）

- 2) マスフローコントローラー：流量を 2~500 mL/min の範囲で制御でき、設定流量に対して±10% 以内の制御精度を有するもの。または、これと同等以上の性能を有するもの。（注10）
- 3) ポンプ：ダイヤフラム型等の密閉式のポンプで、捕集管をつけた状態で 2~500 mL/min の捕集流量が確保できるもの。または、これと同等以上の性能を有するもの。（注10）
- 4) ガスマーター：湿式型またはこれと同等以上の性能を有するもので、積算測定が可能であり、流量調節装置の流量制御範囲で精度よく作動する性能を有するもの。（注10）

(3) 試料導入装置

捕集管の加熱部と、トラップ管およびクライオフォーカスの再捕集部の冷却・加熱部、またはそのどちらかが組み込まれたもので、その例は図2のようである。（注11）

捕集管が試料導入装置に装着されると流路と接続され、捕集管を加熱して、脱離する測定対象物質を再捕集部に濃縮した後、再捕集部を加熱して濃縮した対象物質を GC-MS に直結して導入できる装置であり、再捕集部を液体窒素等で-10°C以下に温度制御でき、かつ 80°C以上に急速加熱できるもの、または、これと同等以上の性能を有するもの。さらに、捕集管および、または再捕集部の後にスプリットができる装置を備えたもの。（注12）

- 1) **トラップ部**：トラップ管とその加熱部からなるもの。
 - a) **トラップ管**：捕集管と連結され、捕集管から脱離してきた測定対象物質をトラップ（一次捕集）するもので、常温から-10~-50°C程度に冷却できるもの。（注13）
 - b) **加熱部**：80°C/min 程度で加熱でき、かつ脱離流速が 30~50 mL/min 確保できるもの。
- 2) **クライオフォーカス部**：クライオフォーカスとその加熱部からなるもの。
 - a) **クライオフォーカス装置**：キャピラリーカラムの直前で冷却して測定対象物質をクライオフォーカスできるもの。
 - b) **加熱部**：250°C/min で加熱でき、スプリットが可能な流速を確保できること。
- 3) **キャリアーガス**：ヘリウム等（純度 99.999 vol%以上、注14）。流量 1 mL/min 程度。

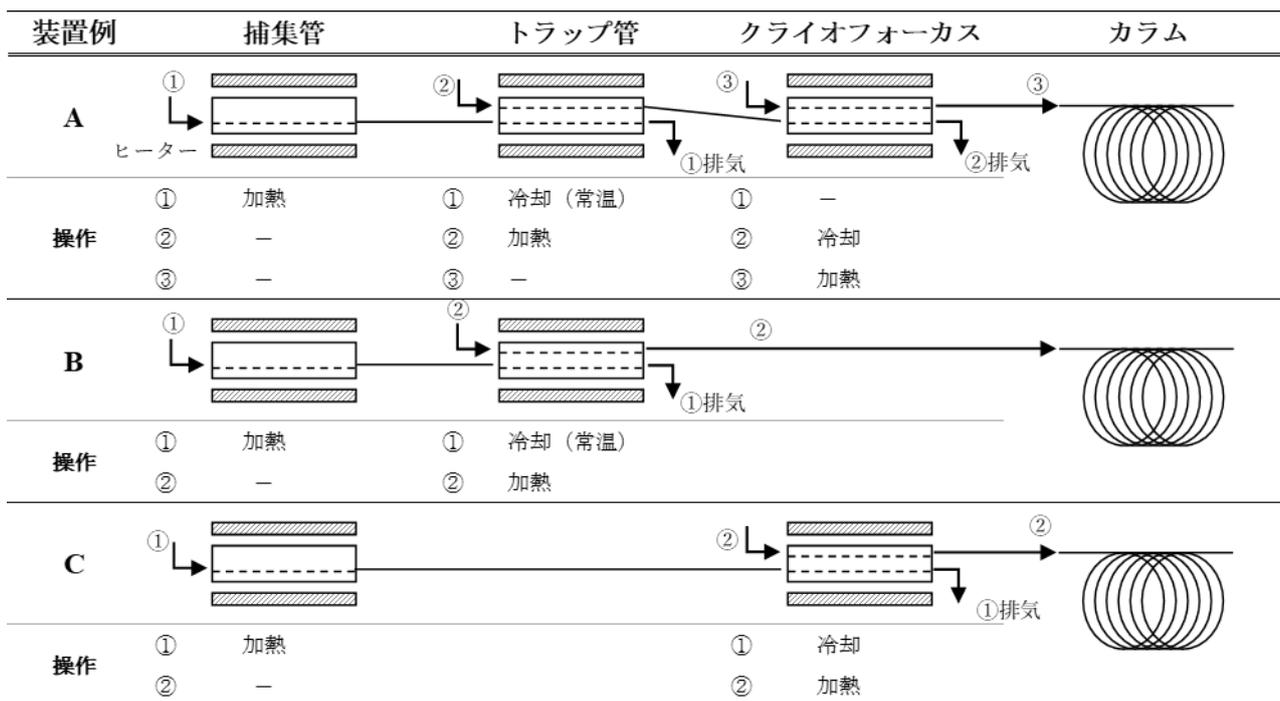


図2 試料導入装置の例

4) 試料導入装置の分析条件の設定

試料導入装置の分析条件の一例を以下に示す。

捕集管加熱温度	: 280°C
パージ流量	: 50 mL/min, 8 min
キャリアーガス	: ヘリウム
トラップ温度	: -20°C
トラップ加熱温度	: 280°C, 5 min
ライン温度	: 250°C
バルブ温度	: 250°C

(4) GC-MS (注 15)

1) GC-MS 装置

- 試料注入口：試料導入装置と接続ができるもの。
- カラム恒温槽：恒温槽の温度を 35~300°C の範囲で制御できるもの。また、測定対象物質を最適に分離出来る昇温プログラムが作成可能なもの。
- カラム：内径 0.2~0.32 mm、長さ 25~60 m の熔融シリカ製の物であって、内面にジメチルポリシロキサンまたは 5%フェニル-ジメチルポリシロキサンを 0.25~1.5 μm の膜厚で被覆したキャピラリーカラム、またはこれと同等の分離性能を有するもの。
- インターフェース部：温度を 200~300°C 程度に保つことができるもの。
- イオン源：温度を 160~300°C に保つことができるもの。
- 検出器 (MS)：電子 (衝撃) イオン化法 (EI 法) が可能で、選択イオン検出 (SIM) もしくは全イオン検出 (Scan) モードが可能なもの。
- キャリアーガス：ヘリウム等 (純度 99.999 vol% 以上、注 14)。1 mL/min 程度。
- 測定質量数：各測定対象物質の測定用質量数の一例は表 1 の通り。

表1 各測定対象物質の測定質量数（一例）

測定対象物質	質量数 (m/z)
トルエン	65, 91, 92
<i>o</i> -, <i>m</i> -, <i>p</i> -キシレン	91, 105, 106
エチルベンゼン	65, 91, 106
スチレン	51, 78, 104
パラジクロロベンゼン	111, 146, 148
テトラデカン	43, 57, 71
トルエン- d_8	70, 98, 100

2) GC-MS の分析条件の設定と機器の調整

GC-MS の分析条件およびクロマトグラムを以下に示す。（図3）

カラム温度 : 40°C \rightarrow (5°C/min) \rightarrow 250°C (3分間保持)

注入口温度 : 250°C

試料注入法 : スプリット (スプリット比 1 : 5~1 : 100)

インターフェース温度 : 250°C

イオン源温度 : 200°C

*MS に質量校正用標準物質（パーフルオロトリブチルアミン (PFTBA) またはパーフルオロケロセン (PFK)）を導入し、マスパターンおよび分解能（質量数 (m/z) = 18~300 程度の範囲で 1 質量単位 (amu) 以上）等を測定目的に応じて所定の値に校正する。質量校正結果は測定結果と共に保存する。（注 16）

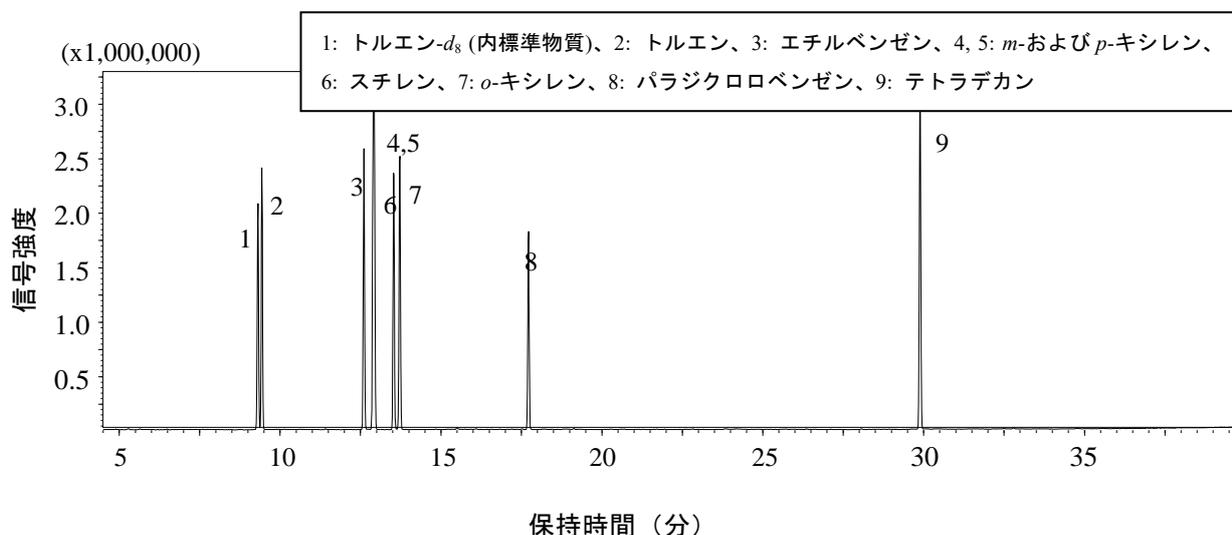


図3 クロマトグラムの一例

3. 2. 4 試料採取および試験溶液の調製

(1) 試料採取

空気試料の採取は、室内では居間および寝室の 2 カ所ならびに室外 1 カ所の計 3 カ所について、それぞれ 2 回ずつ（2 併行で）採取する。試料採取後、捕集管は両端を密栓した後、アルミ箔等で遮光し、活性炭入り保存容器に入れて分析時まで保存する。トラベルブランク試験用として、室内空気の試料採取用の捕集管と同様に持ち運び、取り扱う。（注 17）（注 18）

- a) 最大濃度推定法における試料の採取：試料採取装置を用い、概ね 30 分間の採取量が 1~5 L になるように流量を設定して採取する。

- b) 平常実態把握法における試料の採取：試料採取装置を用い、24時間の採取量が5~20Lになるように流量を設定して採取する。

(2) 検量線用混合標準濃度系列の調製

3. 2. 2 (3) または (4) の標準溶液を用い、図4の例に示すように、検量線作成用 T 字管に高純度窒素ガスおよび捕集管を連結し、高純度窒素ガスを 50~100 mL/min の流速で流しながら標準溶液および内標準溶液の 1~10 μL を採り、捕集管にマイクロシリンジを用いて注入し、さらに数分間通気して捕集管を調製する。同様の操作を数本について行い、混合標準濃度系列を調製する。(注 20)

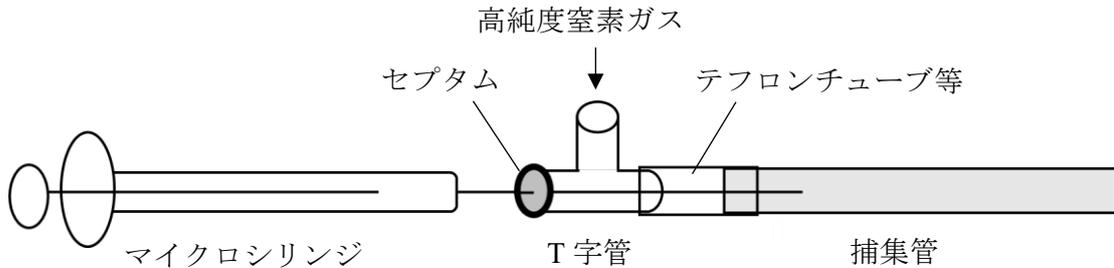


図4 検量線作成用 T 字管の接続例 (注 20)

(3) 試験用捕集管の調製

- 1) 空気試料用捕集管の調製：図4の例に示すように、検量線作成用 T 字管に高純度窒素ガスおよび3. 2. 4 (1) 1) にて空気試料を採取した捕集管を連結し、50~100 mL/min 程度の高純度窒素ガス等を流しながら、内標準溶液をマイクロシリンジで注入して捕集管に吸着させる。
- 2) 操作ブランク試験用捕集管の調製：空気試料用の捕集管と同一の未使用の捕集管について3. 2. 4 (3) 1) と同様の操作を一連の操作の中で1回以上行い、操作ブランク試験捕集管を調製する。
- 3) トラベルブランク試験用捕集管の調製：3. 2. 4 (1) 2) のトラベルブランク試験用捕集管については3. 2. 4 (3) 1) と同様の操作を行い、トラベルブランク試験捕集管を調製する。
- 4) 2重測定用捕集管の調製：3. 2. 4 (1) 3) の2重測定用の捕集管について3. 2. 4 (3) 1) と同様の操作を行い、2重測定用捕集管を調製する。

3. 2. 5 試験操作

(1) 検量線用混合標準捕集管系列の試験

- 1) 測定：3. 2. 4 (2) で調製した検量線用捕集管を試料導入装置に装着し、GC-MSによる測定を行う。3. 2. 3 (4) 1) h) で設定した各測定対象物質の測定用質量数毎のクロマトグラムを記録する。
- 2) 測定対象物質の保持時間の確認：3. 2. 4 (3) 1) で調製した検量線用混合標準捕集管系列の中から、各測定対象物質の中間程度における濃度のクロマトグラムをもとに測定対象物質の保持時間を確認する。
- 3) 測定対象物質の質量数の決定：3. 2. 3 (4) 1) h) で設定した各測定対象物質の質量数から検量線作成に用いる定量用質量数と確認用質量数を決定する。
- 4) 検量線の作成：各測定対象物質の定量用質量数と内標準物質の定量用質量数のピーク面積またはピーク高さの強度比を求め、そのピーク面積またはピーク高さの比と各測定対象物質の濃度とにより検量線を作成する。(注 21)
- 5) 定量用質量数と確認用質量数の比の決定：各測定対象物質の定量用質量数と確認用質量数のピーク面積またはピーク高さの強度比を算出する。

(2) 空気試料試験の測定と定量

- 1) 測定：3. 2. 4 (3) 1) で調製した空気試料捕集管を試料導入装置に装着し、GC-MS による測定を行う。
- 2) 測定対象物質の確認：3. 2. 3 (4) 1) h) で設定した各測定対象物質の定量用質量数および確認用質量数によるクロマトグラムを記録し、ピーク面積またはピーク高さの強度比を算出する (注 22)
- 3) 定量：検出された各測定対象物質の定量用質量数と内標準物質の定量用質量数のピーク面積またはピーク高さの強度比を求め、3. 2. 5 (1) 4) により作成した検量線を用いて、注入した空気試料の試験溶液中における各測定対象物質の重量 (As: ng) を求める。 (注 23)

(3) 操作ブランク試験の測定と定量

3. 2. 4 (3) 2) で調製した操作ブランク試験捕集管を試料導入装置に装着し、3. 2. 5 (2) の操作を行って各測定対象物質の操作ブランク値を求める。

(4) トラベルブランク試験の測定と定量

3. 2. 4 (3) 3) で調製したトラベルブランク試験捕集管について3. 2. 5 (2) の操作を行い、注入した試験液中の各測定対象物質の重量を測定する。本試験は1試料以上を測定し、平均値をトラベルブランク値 (At: ng) とする。

(5) 2重測定用試験の測定と定量

3. 2. 4 (3) 4) で調製した2重測定用試験捕集管について3. 2. 5 (2) の操作を行って、各測定対象物質の重量を測定する。

(6) GC-MS 装置の感度試験

- 混合標準捕集管系列の中から中間程度の濃度のものを選び、3. 2. 5 (1) 5) の操作を行って感度の変動を確認する。この確認は1日に1回以上行う。 (注 24)

3. 2. 6 濃度の算出

3. 2. 5 で得られた結果から、次式を用いて空気中の各測定対象物質の濃度を算出する。

$$C = \frac{(As - At)}{V \times 298 / (273 + t) \times P / 1013}$$

C : 25°Cにおける空気中の各測定対象物質の濃度 (µg/m³)

As : GC-MS に注入した試料中の各測定対象物質の重量 (ng)

At : 各測定対象物質のトラベルブランク値 (ng)

操作ブランク値と同等と見なせる場合は操作ブランク値を用いる。

V : 空気試料量 (L)

t : 試料採取時の平均の気温 (°C)。湿式型ガスマーターを使用しているときには、ガスマーターの平均水温 (°C)

P : 試料採取時の平均大気圧 (hPa)。湿式型ガスマーターの場合には (P-Pw) を用いる。

ここで、Pw は試料採取時の平均気温 t (°C) での飽和水蒸気圧 (hPa)

結果には個々の値をそれぞれ記載する。

注 1 : 本法は ISO16017 に対応する。

- 注 2 : 平常実態把握法では、ここで述べられた方法と同様の信頼性が確保できる場合、拡散法（パッシブ法）によって空気試料を採取しても良い。ただし、最大濃度推定には、拡散法（パッシブ法）を用いた試料採取による測定は困難である。
- 注 3 : 捕集された揮発性有機化合物のほとんどが測定可能である。室内空気中の揮発性有機化合物は濃度範囲が広いので、濃度が高い物質では測定に際して内径の小さいカラムでは過負荷になり、検量線の範囲をはずれる恐れもあるので注意する。
- 注 4 : 試料採取量、濃縮操作および GC-MS の条件等によって測定感度は異なるので、ここに示した濃度を目安に適宜変えてもよい。また、市販の標準原液（混合標準原液）を用いても良い。ただし、精度保証されているものが望ましい。
- 注 5 : 市販の標準ガスを用いても良い。ただし精度が保証されているものが望ましい。なお、加熱脱離装置の種類によっては内部標準ガスが自動添加される機能を有するものがあるが、この機能を利用して内部標準物質を添加してもよい。
- 注 6 : 精製空気を使用してもよい。有機化合物を含有しないことが重要であり、測定対象以外の物質については全炭化水素で 0.01 ppm 以下、一酸化炭素 0.05 ppm 以下、二酸化炭素 0.3 ppm 以下、水分濃度 2 ppm 以下（露点 -70°C 以下）で純度 99.999% 以上のものが望ましい。
- 注 7 : 除湿管は捕集管と接続できるようなガラス管に過塩素酸マグネシウム約 15 g を充てんし、両端を石英ウール等で押さえたもの。両端を密栓し、使用時まで活性炭入りの密閉容器に保存する。過塩素酸マグネシウムは有機元素分析用（粒径 300~700 μm）を用いる。市販品のジーエルサイエンス株式会社製の水分除去フィルター等を用いてもよい。ただし、測定対象物質の除湿管や石英ウール等への吸着の有無をあらかじめ確認すること。
- 注 8 : 市販品には以下のような吸着剤を充填されているものがある。
Tenax TA、Tenax GR、Carbopack B+Carboxen 1000 or Carboxive SIII、
Tenax GR+Carbopack B、Carbopack C+Carbopack B or Carboxen 1000
- 注 9 : 新しく調製または購入した捕集管は充填された捕集剤の耐用温度にて十分空焼きした後、同一の洗浄ロットから少なくとも 10% 以上の割合でブランク値の測定を行い、目的定量下限値よりも十分低い値であることを確認する。なお、300°C を超える温度で長時間空焼きすると炭素の酸化が進み、カーボンモレキュラシーブの性能が変化することがあるので注意する。空焼きの温度と時間は捕集剤の種類によって異なるため、製造メーカーの推奨値を使用する。
- 注 10 : 質量流量センサーを内蔵したポンプが市販されている。間欠サンプリング機能を有するポンプを用いてもよい。
- 注 11 : 試料導入装置には複数のタイプがあり、それぞれに最適条件を設定する。第 1 は、捕集管が試料導入装置に装着されると流路が確保され、加熱脱離してトラップ管にいったん再捕集後、さらにトラップ管を加熱してクライオフォーカスに捕集し、さらに加熱してキャピラリーカラムに導入する方式である（図 2 A）。第 2 には、捕集管が試料導入装置に装着されると流路が確保され、加熱して脱離してトラップ管またはクライオフォーカスに再捕集した後、いずれかを加熱してキャピラリーカラムに導入する方式である（図 2 B および C）。
- 注 12 : ガラス製または熔融シリカ製の中空管または吸着剤を充填したトラップ管では冷却を要しない装置もある。また、トラップ管の冷却、加熱条件等は導入装置毎に決定する必要がある。市販の装置ではこれらの条件は提示されている場合が多い。
- 注 13 : トラップ管には石英等の不活性物質を詰めることもあるが、吸着剤を充てんする場合もある。その充てん剤は温度（-20°C 程度の低温）でも破過を起こすことがあるので注意する必要がある。
- 注 14 : 水素や窒素を用いても良い。また、純度については 99.999% 以上のものが望ましいが 99.999% 未満のものを使用する場合は妨害がないことを予め確認すること。市販のガス精製管を使用してもよい。
- 注 15 : 対象成分が十分に分離出来れば、カラムの種類および温度条件等は任意に設定して良い。ただし、設定した条件において、測定対象物質のピークが分離し、定量が可能であることをあらかじめ確認する。なお、キシレンは *m*-および *p*-キシレンのピークが分離しない場合、

m-および *p*-キシレンの合算値として定量する。

- 注 16 : 機器に付属の質量校正用プログラムやチューニングメソッドを使用することが望ましい。
- 注 17 : 吸引側および空気取り入れ側を明確にしておく。
- 注 18 : 試料採取時に湿度が高い場合、3. 2. 3 (2) で示した除湿管を使用しても良い。
- 注 19 : 室内より室外での化学物質濃度が高いと考えられる場合は、室内の他に室外におけるトラベルブランクも併せて採取することが望ましい。試料採取の詳細については1.1～1.5を参照する。
- 注 20 : 混合標準溶液等を添加する場合は、シリンジの針先を捕集管内の吸着剤付近まで差し込むことが望ましい。市販の検量線作成ツール用装置を用いてもよい。
- 注 21 : キシレンは *m*-および *p*-キシレンのピークが分離しない場合、*m*-および *p*-キシレンの合算値として定量するが、検量線における設定濃度（添加量）に留意すること。
- 注 22 : 測定対象物質のピークに対する他の物質からの影響を判断するために行う操作である。測定した空気試料における定量用質量数と確認用質量数の強度比が検量線作成時と大きくかけはなれている場合は、再度標準試料を測定して定量用質量数と確認用質量数の強度比を算出する。再度測定した標準試料の強度比が検量線作成時の90～110%の範囲内だった場合（標準物質に問題がない場合）、空気試料における測定対象物質のピークが何らかの影響を受けている可能性があることから、クロマトグラムのベースライン分離条件等の再検討や、他の分析カラムによる定量を検討する。
- 注 23 : 室内空気中の測定対象物質の濃度は、その範囲が広いことが予想されるため、定量上限を明確に把握しておくことが必要である。空気試料の測定値が作成した検量線の範囲を超える場合は、諸条件を検討した上で検量線を再度作成し、定量する。
- 注 24 : 内標準物質の感度が検量線作成時の感度と大きく異なることを確認する。また、内標準物質との相対感度が検量線作成時の相対感度に対して±20%以内の変動であることを確認し、これを越えて感度の変動する場合には、その原因を取り除き、それ以前の試料を再測定する。さらに、保持時間については、比較的短い間に変動（通常、1日に保持時間が±5%以上、内標準物質との相対保持比が±2%以上）する場合には、その原因を取り除き、それ以前の試料の再測定を行う。

《参考文献》

- Tahara M. *et al.*, Validation study for establishing a standard test method for volatile organic compounds in indoor air in Japan using thermal desorption. *BPB Reports* (投稿準備中)

4. 準揮発性有機化合物の測定方法

ここに掲げる測定方法は、室内空気中のフタル酸ジ-*n*-ブチルおよびフタル酸ジ-2-エチルヘキシルのフタル酸エステル2種、クロルピリホス、フェノブカルブおよびダイアジノンの3種を対象とする。試料の採取および調製方法は、固相吸着-溶媒抽出法および固相吸着-加熱脱離法の2種を示すが、固相吸着-加熱脱離法はフタル酸エステル2種にのみ適用する。測定にはガスクロマトグラフィー/質量分析法を用いる。

4.1 第1法 固相吸着-溶媒抽出-ガスクロマトグラフィー/質量分析法

4.1.1 測定方法の概要

吸着剤を装着した捕集部に室内空気および外気を一定流量で吸引して、測定対象物質を捕集する。吸着剤から測定対象物質を溶媒で溶出させ、これをキャピラリーカラムに導入してガスクロマトグラフ-質量分析計 (GC-MS) により分離、定量することを基本とする。(注1)

4.1.2 試薬

(1) アセトン

残留農薬測定用、フタル酸エステル試験用等の高純度のもの。GC-MS に注入したとき、測定対象物質および内標準物質のクロマトグラムに妨害を生じないもの。

(2) 標準物質

クロルピリホス、ダイアジノン、フェノブカルブは残留農薬測定用等の高純度のもの。フタル酸ジ-*n*-ブチル、フタル酸ジ-2-エチルヘキシルは、フタル酸エステル分析用等の高純度のもの、または同等以上の純度を持つもの。

(3) 標準原液 (1000 µg/mL)

各標準物質 100 mg を精秤し、アセトンに溶解して 100 mL とする。この溶液 1 mL は各々の標準物質 1000 µg を含む。(注2)

(4) 混合標準溶液 (100 µg/mL)

各標準原液のそれぞれの一定量 (1 mL) をメスフラスコ (10 mL) に入れ、アセトンを用いて 10 mL とする。この溶液 1 mL は各々の標準物質 100 µg を含む。(注2)

(5) 内標準物質

内標準物質 (クロルピリホス-*d*₁₀、フタル酸ジ-*n*-ブチル-*d*₄、フタル酸ジ-2-エチルヘキシル-*d*₄) は、純度 98% 以上の JIS 規格試薬特級、または、これと同等以上のもの。

(6) 内標準原液 (1000 µg/mL)

各内標準物質 100 mg を精秤し、アセトンに溶解して 100 mL とする。この溶液 1 mL は内標準物質 1000 µg を含む。なお、溶液状態で販売している内標準物質を原液として用いてもよい。(注2)

(7) 混合内標準溶液 (100 µg/mL)

各内標準原液のそれぞれの一定量 (1 mL) をメスフラスコ (10 mL) に入れ、アセトンを用いて 10 mL とする。この溶液 1 mL は各々の内標準物質 100 µg を含む。(注2)

(8) 高純度窒素ガス

測定対象物質のクロマトグラムに妨害を生じないもの。

4. 1. 3 器具および装置

(1) マイクロシリンジ

容量 1~10 μL または 10~100 μL が計りとれるもの。

(2) 試料採取装置

試料採取装置は、捕集部、マスフローコントローラー、ポンプ、ガスメーターを連結したもので成る。その例を図 1 に示す。なお、試料採取装置に使用する器具類は十分に洗浄して汚染に注意する。試料採取に当たって装置を組み立てた後、漏れのないことを確認する。(注 3)

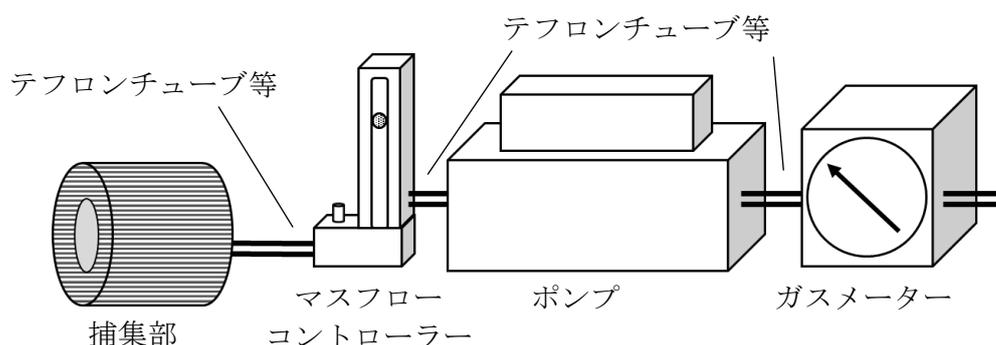


図 1 試料採取装置の接続例

- 1) **捕集部**：吸着剤として、オクタデシルシリル化シリカゲル、またはスチレンジビニルベンゼン共重合体を用いる。その他、測定対象物質に対して、十分な捕集能力を有するもの。(注 4)
- 2) **マスフローコントローラー**：流量を 1~10 L/min の範囲で制御でき、設定流量に対して $\pm 10\%$ 以内の制御精度を有するもの。または、これと同等以上の性能を有するもの。
- 3) **ポンプ**：ダイヤフラム型等の密閉式のポンプで捕集部をつけた状態で 1~10 L/min の捕集流量が確保できるもの。または、これと同等以上の性能を有するもの。
- 4) **ガスメーター**：湿式型のもの、またはこれと同等の能力のあるもので、積算測定が可能であり、マスフローコントローラーの流量制御範囲で精度よく作動する性能を有するもの。

(3) GC-MS

1) GC-MS 装置

- a) **試料注入口**：スプリット/スプリットレス注入が可能なもの。
- b) **カラム恒温槽**：恒温槽の温度制御範囲が 300°C 以上であり、測定対象物質の最適分離条件に温度制御できる昇温プログラムが可能なもの。
- c) **カラム**：内径 0.2~0.32 mm、長さ 25~60 m の熔融シリカ製のものであって、内面にジメチルポリシロキサンまたは 5% フェニル-メチルポリシロキサンを 0.2~1.5 μm の膜厚で被覆したキャピラリーカラム、または同等以上の分離性能を有するもの。
- d) **インターフェース部**：温度を 200~300°C 程度に設定できるもの。
- e) **イオン源**：温度を 160~300°C に設定できるもの。
- f) **検出器 (MS)**：電子 (衝撃) イオン化法 (EI 法) が可能で、選択イオン検出 (SIM) もしくはスキャン検出 (Scan) モードが可能なもの。
- g) **キャリアガス**：ヘリウム等 (純度 99.999 vol% 以上)。流量 1 mL/min 程度。
- h) **測定質量数**：各測定対象物質の測定用質量数は表 1 を参照。

表 1 各測定対象物質の測定用質量数

測定対象物質	測定質量数 (m/z)
フタル酸ジ- <i>n</i> -ブチル	149, 205, 223
フタル酸ジ- <i>n</i> -ブチル- d_4	153, 209, 227
フタル酸ジ-2-エチルヘキシル	149, 167, 279
フタル酸ジ-2-エチルヘキシル- d_4	153, 171, 283
フェノブカルブ	121, 150, 91
ダイアジノン	179, 137, 152
クロルピリホス	314, 197, 97
クロルピリホス- d_{10}	324, 200, 99

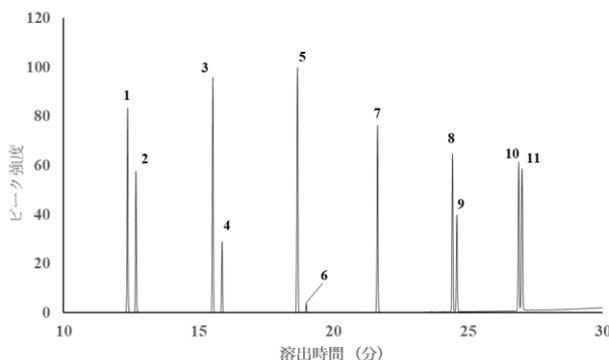
2) GC-MS の分析条件の設定と機器の調整

GC-MS 分析条件 (表 2) とクロマトグラム (図 2) の一例を以下に示す。これを参考にして適宜設定する。分離および感度が十分であればこの限りではない。なお、以下の条件を用いた場合、殺虫剤 3 成分とフタル酸エステルの類縁体 8 成分を同時に分離することができる。

表 2 GC-MS 分析条件の一例

カラム温度	80°C (1 分保持) -20°C/分-120°C-6°C/分-290°C-30°C/分-320°C (3 分保持)
キャリアーガス	ヘリウム (カラム流量 1 mL/分、コンスタントフロー)
注入口温度	280°C
試料注入法	スプリットレス (1 分)
インターフェース温度	280°C
イオン源温度	280°C

*MS に質量校正用標準物質 (パーフルオロトリブチルアミン (PFTBA) またはパーフルオロケロセン (PFK)) を導入し、マスパターンおよび分解能 (質量数 (m/z) = 18~300 程度の範囲で 1 質量単位 (amu) 以上) 等を測定目的に応じて所定の値に校正する。質量校正結果は測定結果と共に保存する。(注 5)



- 1: フタル酸ジエチル, 10: フタル酸ジシクロヘキシル
- 2: フェノブカルブ, 11: フタル酸ジ-2-エチルヘキシル
- 3: フタル酸ジ-*n*-プロピル,
- 4: ダイアジノン
- 5: フタル酸ジ-*n*-ブチル,
- 6: クロルピリホス
- 7: フタル酸ジ-*n*-ペンチル,
- 8: フタル酸ジ-*n*-ヘキシル,
- 9: フタル酸-*n*-ブチルベンジル,

図 2 クロマトグラムの一例

4. 1. 4 試料採取および試験液の調製

(1) 試料採取

空気試料の採取は、室内では居間と寝室の2カ所、ならびに外気1カ所について、それぞれ2回ずつ採取する。試料採取に際しては、吸着剤とトラベルブランクをそれぞれ別の密閉容器に入れ持ち運ぶ。吸着剤は空気採取後、アルミ箔で覆い、密閉容器（金属製のもが望ましい）に入れて分析時まで保存する。トラベルブランクは密閉容器のままポンプ周辺に置き、空気採取終了後、分析時まで密閉したまま保存する。（注6）

- a) 最大濃度推定法における試料の採取：試料採取装置を用いて5～10 L/min程度の流量で概ね30分間採取する。
- b) 平常実態把握法における試料の採取：試料採取装置を用いて1～10 L/min程度の流量で24時間採取する。
いずれも測定時の気温、気圧を調べて記録する。

(2) 検量線用標準液の調製

4. 1. 2 (4)の混合標準溶液をアセトンで希釈し、5段階濃度程度の混合標準濃度系列の検量線用標準液を調製する。また、4. 1. 2 (7)の混合内標準溶液を各検量線用標準液に一定量ずつ加え、検量線用標準液とする。

(3) 試験液の調製

- 1) 空気試料の調製：吸着剤からアセトン5 mLを用いて、超音波抽出装置等を用いて抽出する。抽出液は遠心分離機にかけ、浮遊粒子等の夾雑物を取り除く。得られた上清1 mLを正確にとり、混合内標準溶液(10 µg/mL)を100 µL加えたものを試験液とする。
濃縮が必要な場合は、遠心分離後の上清2 mLを目盛り付き試験管にとり、窒素ガスを穏やかに吹き付けて0.5 mL以下まで濃縮する。アセトンで0.5 mLに定容し、混合内標準溶液(10 µg/mL)を50 µL加えたものを試験液とする。（注7）
- 2) 操作ブランク試験液の調製：試料空気用の吸着剤と同一の洗浄済み吸着剤について1)と同様の操作を一連の操作の中で1回以上行い、操作ブランク試験液を調製する。
- 3) トラベルブランク試験液の調製：トラベルブランク試験用の吸着剤について1)と同様の操作を行い、トラベルブランク試験液を調製する。
- 4) 2重測定用試験液の調製：2重測定用の吸着剤について1)の操作を行い、2重測定用試験液を調製する。

4. 1. 5 試験操作

(1) 検量線用標準液の測定

- a) 測定：4. 1. 4 (2)で調製した混合標準濃度系列の検量線用標準液を2 µL程度GC-MSに注入する。（注8）
- b) 測定対象物質の保持時間の確認：4. 1. 4 (2)で調製した混合標準濃度系列の検量線用標準液の中から、各測定対象物質の中間程度における濃度のクロマトグラムに基づき、測定対象物質の保持時間を確認する。
- c) 測定対象物質の質量数の決定：4. 1. 3 (3) h)で設定した各測定対象物質の測定質量数から検量線作成に用いる定量用質量数と確認用質量数を決定する。
- d) 検量線作成：各測定対象物質および内標準物質の定量用質量数について、ピーク面積またはピーク高さの強度比を求め、その強度比と各測定対象物質の濃度による検量線を作成する。（注9）
- e) 定量用質量数と確認用質量数の比の決定：各測定対象物質の定量用質量数と確認用質量数のピーク面積またはピーク高さの強度比を算出する。（注10）

(2) 空気試料の測定と定量

- a) 測定：4. 1. 4 (3) 1) で調製した空気試料を 2 μL 程度を GC-MS に注入する。(注 11)
- b) 測定対象物質の確認：4. 1. 5 (1) c) で決定した定量用質量数および確認用質量数によるクロマトグラムのピーク面積比またはピーク高さ比から測定対象物質であることを確認する。
- c) 定量：検出された各測定対象物質の定量用質量数と内標準物質の定量用質量数のピーク面積またはピーク高さの強度比を求め、4. 1. 5 (1) d) により作成した検量線を用いて、測定した空気試料における各測定対象物質の重量 (As: ng) を求める。

(3) 操作ブランク試験液の測定と定量

4. 1. 4 (3) 2) で調製した操作ブランク試験液について、4. 1. 5 (2) の操作を行って各測定対象物質の操作ブランク値を求める。

(4) トラベルブランク試料液の測定と定量

4. 1. 4 (3) 3) で調製したトラベルブランク試験液について、4. 1. 5 (2) の操作を行って各測定対象物質のトラベルブランク値を求める。本試験は 1 試料以上を測定し、平均値をトラベルブランク値 (At: ng) とする。

(5) 2重測定試験液の測定と定量

4. 1. 4 (3) 4) で調製した 2重測定試験液について、4. 1. 5 (2) の操作を行って、各測定対象物質の重量を測定する。

(6) GC-MS の感度試験

混合標準濃度系列の中から中間程度の濃度のものを選び、4. 1. 5 (1) の操作を行って感度の変動を確認する。この確認は 1 日に 1 回以上行い、内標準物質との相対感度が検量線作成時の相対感度に対して ±20% 以内の変動であることを確認する。(注 11)

4. 1. 6 濃度の算出

4. 1. 5 で得られた結果から次式を用いて空気中の各測定対象物質の濃度を算出する。

$$C = \frac{(As - At)}{V \times 298 / (273 + t) \times P / 1013}$$

C : 25°Cにおける空気中の各測定対象物質の濃度 (μg/m³)

As : 吸着剤中の各測定対象物質の重量 (ng)

At : 各測定対象物質のトラベルブランク値 (ng)

操作ブランク値と同等と見なせる場合は操作ブランク値を用いる。

V : 空気捕集量 (L)

t : 試料採取時の平均の気温 (°C)。湿式型ガスマーターを使用しているときには、ガスマーターの平均水温 (°C)

P : 試料採取時の平均大気圧 (hPa)。湿式型ガスマーターの場合には (P-Pw) を用いる。

ここで、Pw は試料採取時の平均気温 t (°C) での飽和水蒸気圧 (hPa)

結果には個々の測定値と各場所における平均値の両方を記載する。

注 1 : フタル酸エステル類の測定精度は、試料の採取、前処理、測定操作におけるブランクをいかに低くするかにかかっており、全操作に細心の注意が必要である。全操作を通じてビニール手袋等は使用せず、作業前には十分に石鹼等で手洗いをする。また、使用する器具はガラス

製、テフロン製、金属製のものを用い、器具の洗浄、溶媒や装置の汚染等には十分に配慮する必要がある。

- 注2： 試料採取量、濃縮操作および GC-MS の条件等によって測定感度は異なるので、ここに示した濃度を目安に適宜変えてもよい。また、市販の標準原液（混合標準溶液）を用いても良い。ただし、アセトンと混和するものを用い、精度保証されているものが望ましい。
- 注3： 各装置の接続には、なるべくシールテープは使用せず、テフロンコネクタ等を使用する。なお、質量流量センサーを内蔵したポンプが市販されている。間欠サンプリング機能を有するポンプを用いてもよい。
- 注4： 洗浄可能な吸着剤や器具は使用前にアセトンで洗浄し、十分乾かしてから用いる。乾燥が不十分であると室内を二次汚染する可能性がある。吸着剤がフィルター状の場合、通気漏れないよう吸引部に固定できるフィルターホルダーを用いる。吸着剤の例として、AERO LE Cartridge SDB400HF（ジーエルサイエンス）、Empore DISK C18 47 mm (CDS Analytical)、石英フィルター等がある。
- 注5： 機器に付属の質量校正プログラムやチューニングメソッドを使用することが望ましい。
- 注6： 測定に十分な量が得られないと考えられる場合は、採取時間をある程度長くしてもよい。ブランクの影響を少なくするためには、ある程度大量に採取したほうがよい。試料採取の詳細については1.1～1.5を参照する。
- 注7： 高濃度が予想される場合、もしくは装置の感度が十分な場合は、抽出液を窒素ガスで濃縮しなくてもよい。濃縮後の定容は目盛り付きの試験管を用いる。
- 注8： 感度を上げる場合は、高圧注入で数 μL 、GC-MS に注入してもよい。
- 注9： 室内空気中の各対象化合物の濃度は範囲が広いことが予想されるため、定量上限を明確に把握しておくことが必要である。出来るだけ広い濃度範囲の標準溶液を測定し、検量点が直線から外れる場合は低濃度側と高濃度側でそれぞれ検量線を作成するような対策を取る。
- 注10： 定量用質量数のピークに対する他イオンからの影響を判断するために行う操作であり、強度比が検量線作成時と大きくかけはなれている場合は、まず、装置の性能を確認するために再度標準試料を測定して強度比を算出する。その強度比の変動が $\pm 20\%$ の範囲内であれば、測定済み試料のクロマトグラムのベースライン等を再検討し、かけ離れた原因をチェックして再分析を行う。
- 注11： 内標準物質の感度が検量線作成時の感度と大きく異ならないことを確認する。また、内標準物質との相対感度が検量線作成時の相対感度に対して $\pm 20\%$ 以内の変動であることを確認し、これを越えて感度の変動する場合には、その原因を取り除き、それ以前の試料を再測定する。さらに、保持時間については、比較的短い間に変動（通常、1日に保持時間が $\pm 5\%$ 以上、内標準物質との相対保持比が $\pm 2\%$ 以上）する場合には、その原因を取り除き、それ以前の試料の再測定を行う。

《参考文献》

- Tanaka-Kagawa T., *et al.*: Method validation for the determination of phthalates in indoor air by GC-MS with solid-phase adsorption/solvent extraction using octadecyl silica filter and styrene-divinylbenzene copolymer cartridge. *BPB Reports*, **2**(5), 86-90 (2019).
- Yoshitomi T., *et al.*: Development of a standard test method for insecticides in indoor air by GC-MS with solid-phase adsorption/solvent extraction. *BPB Reports*, **6**(3), 76-80 (2023).

4.2 第2法 固相吸着－加熱脱離－ガスクロマトグラフィー／質量分析法

4.2.1 測定方法の概要

吸着剤を充填した捕集管に室内空気および外気を一定流量で吸引し、測定対象物質を捕集する。捕集管を試料導入装置に装着し、加熱により脱離した測定対象物質をキャピラリーカラムに導入してガスクロマトグラフィー質量分析計 (GC-MS) により分離、定量することを基本とする。(注1) (注2)

4.2.2 試薬

(1) アセトン

残留農薬測定用、フタル酸エステル試験用等の高純度のもの。GC-MS に導入しても、測定対象物質および内標準物質のクロマトグラムに妨害を生じないもの。コンタミネーションを防ぐため、フタル酸エステル類測定専用を用意することが望ましい。

(2) 標準物質

フタル酸エステル試験用として市販されているもの、または同等以上の純度を持つもの。

(3) 標準原液 (1000 µg/mL)

各メスフラスコ 100 mL に標準物質 100 mg を精秤し、アセトンを加えて 100 mL とする。この溶液 1 mL は各々の標準物質 1000 µg を含む。(注3)

(4) 混合標準溶液 (100 µg/mL)

各標準原液のそれぞれの一定量 (1 mL) をメスフラスコ (10 mL) にとり、アセトンを用いて 10 倍に希釈する。この溶液 1 mL は各々の標準物質 100 µg を含む。(注3)

(5) 内標準物質 (フタル酸ジ-*n*-ブチル-*d*₄、フタル酸ジ-2-エチルヘキシル-*d*₄)

内標準物質は純度 98% 以上の JIS 規格試薬特級、またはこれと同等以上のもの。

測定対象物質と同じ物質の重水素化体を用いることで、検量線の直線性および決定係数が改善することがある。

(6) 内標準原液 (1000 µg/mL)

各メスフラスコ (100 mL) に内標準物質 100 mg を精秤し、アセトンを加えて 100 mL とする。この溶液 1 mL は各々の内標準物質 1000 µg を含む。(注3)

(7) 混合内標準溶液 (100 µg/mL)

各内標準原液のそれぞれの一定量 (1 mL) をメスフラスコ (10 mL) にとり、アセトンを用いて 10 倍に希釈する。この溶液 1 mL は各々の内標準物質 100 µg を含む。(注3)

(8) 高純度窒素ガス

測定対象物質および内標準物質のクロマトグラムに妨害を生じないもの。捕集管の加熱洗浄および調製に使用する。精製空気を使用してもよい。

4.2.3 器具および装置

(1) マイクロシリンジ

容量 1~10 µL が計りとれるもの。

(2) 試料採取装置

試料採取装置は、捕集管、流量調節装置、ポンプおよびガスメーターを連結したものである。接続例を図1に示す。試料採取にあたり装置を組み立てた後、漏れのないことを確認する。(注4)

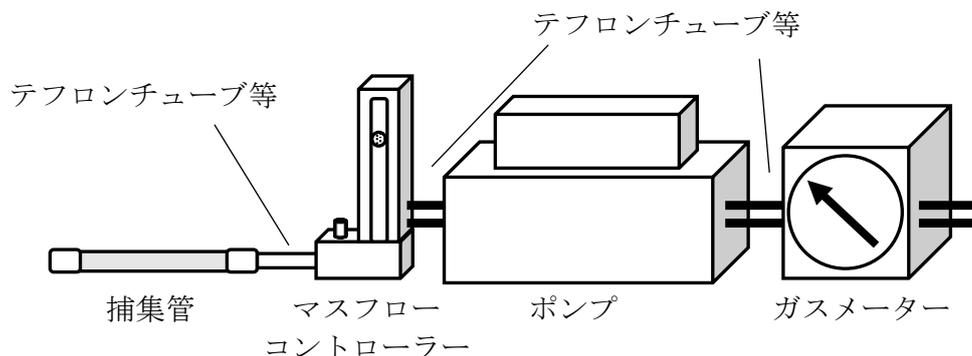


図1 試料採取装置の接続例

1) 捕集管

a) 捕集管：内径 3~4 mm 程度のガラス管やステンレス管に測定対象物質を吸着・保持し、且つ加熱による脱離を十分に行うことができる吸着剤を充填し、両端を石英ウール等で押さえたもの、または測定対象物質に対して十分な捕集能力を有するもの。吸着剤としては Tenax TA や Tenax GR 等が利用できる。

b) 調製：加熱炉に捕集管を装着し、高純度窒素ガス等を 50~100 mL/min 程度に流して捕集管内の空気を十分置換した後、高純度窒素ガス等を流したまま 300°C程度で2時間程度加熱洗浄し冷却後、両端を密栓する。なるべく使用直前に加熱洗浄し、密閉できるガラスまたは金属製容器等に保存する。(注5)

2) マスフローコントローラー：流量を 10~200 mL/min の範囲で制御でき、設定流量に対して±10% 以内の制御精度を有するもの。または、これと同等以上の性能を有するもの。

3) ポンプ：ダイヤフラム型等の密閉式のポンプで、捕集管をつけた状態で 10~200 mL/min の捕集流量が確保できるもの。または、これと同等以上の性能を有するもの。

4) ガスメーター：湿式型またはこれと同等以上の性能を有するもので、積算測定が可能であり、流量調節装置の流量制御範囲で精度よく作動する性能を有するもの。

(3) 試料導入装置

捕集管の加熱部と、トラップ管およびクライオフォーカスの再捕集部の冷却・加熱部、またはそのどちらかが組み込まれたもので、その例は図2のようである。(注6)

捕集管が試料導入装置に装着されると流路と接続され、捕集管を加熱して、脱離する測定対象物質を再捕集部に濃縮した後、再捕集部を加熱して濃縮した対象物質を GC-MS に直結して導入できる装置である。再捕集部を液体窒素等で-10°C以下に温度制御でき、かつ 80°C以上に急速加熱できるもの、または、これと同等以上の性能を有するもの。さらに、捕集管および、または再捕集部の後にスプリットができる装置を備えたもの。(注7)

1) トラップ部：トラップ管とその加熱部からなるもの。

a) トラップ管：捕集管と連結され、捕集管から脱離してきた測定対象物質をトラップ（一次捕集）するもので、常温から-10~-50°C程度に冷却できるもの。(注8)

b) 加熱部：80°C/min 程度で加熱でき、かつ脱離流速が 30~50 mL/min 確保できるもの。

2) クライオフォーカス部：クライオフォーカスとその加熱部からなるもの。

a) クライオフォーカス装置：キャピラリーカラムの直前で冷却して測定対象物質をクライオフォーカスできるもの。

- b) 加熱部：250°C/min 程度で加熱でき、スプリットが可能な流速を確保できること。
 3) キャリヤーガス：ヘリウム等（純度 99.999 vol% 以上、注 9）。流量 1 mL/min 程度。
 4) 試料導入装置の分析条件の設定
 試料導入装置の分析条件の一例を以下に示す。

捕集管加熱温度	: 280°C
パージ流量（時間）	: 30 mL/min（20 分）
キャリヤーガス	: 窒素
トラップ温度	: 5°C
トラップ加熱温度（時間）	: 280°C（10 分）
ライン温度	: 290°C
バルブ温度	: 250°C
導入率	: 5.8%

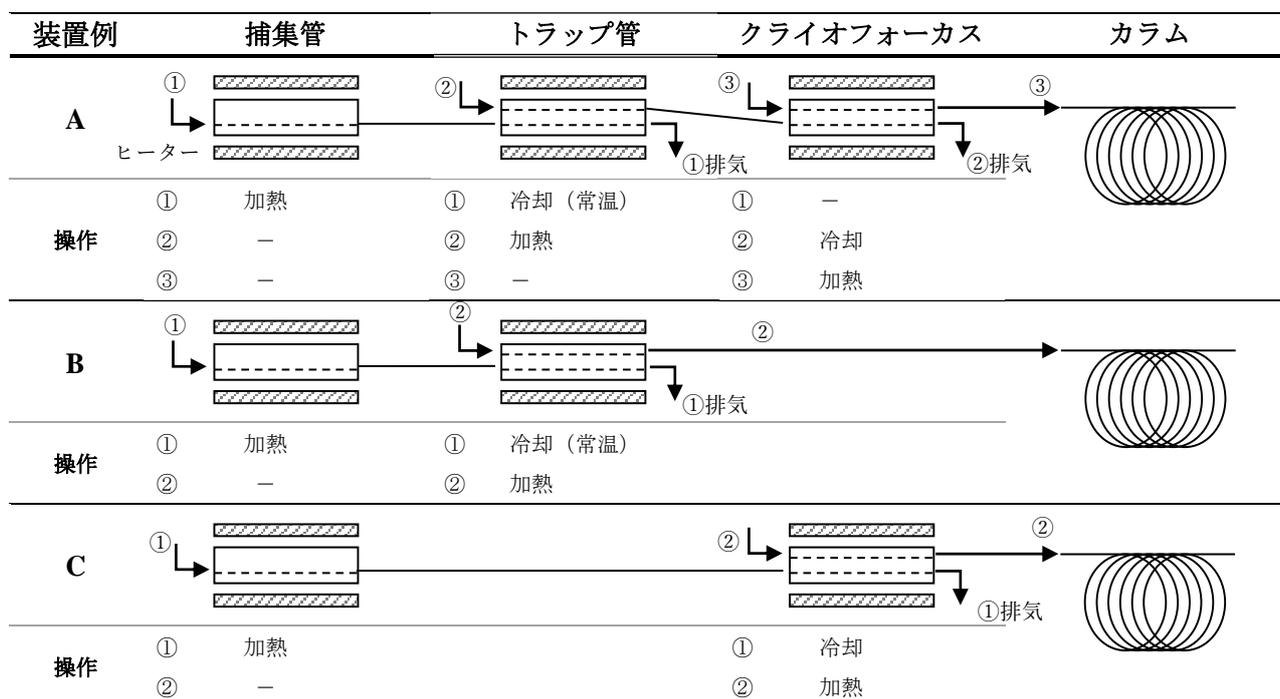


図 2 試料導入装置の例

(4) GC-MS（注 10）

1) GC-MS 装置

- 試料注入口：試料導入装置と接続ができるもの。
- カラム恒温槽：恒温槽の温度を 35～300°C の範囲で制御できるもの。また、測定対象物質を最適に分離出来る昇温プログラムが作成可能なもの。
- カラム：内径 0.2～0.32 mm、長さ 15～60 m の熔融シリカ製のものであって、内面にジメチルポリシロキサンまたは 5% フェニル-ジメチルポリシロキサンを 0.1～1.5 μm の膜厚で被覆したキャピラリーカラム、またはこれと同等の分離性能を有するもの。
- インターフェース部：温度を 200～300°C 程度に保つことができるもの。
- イオン源：温度を 160～300°C に保つことができるもの。
- 検出器 (MS)：電子（衝撃）イオン化法 (EI 法) が可能で、選択イオン検出 (SIM) もしくは全イオン検出 (Scan) モードが可能なもの。
- キャリヤーガス：ヘリウム等（純度 99.999 vol% 以上、注 9）。流量 1 mL/min 程度。
- 測定質量数：各測定対象物質の測定質量数の一例は表 1 の通り。

表1 各測定対象物質の測定質量数（一例）

測定対象物質	質量数 (m/z)
フタル酸ジ- <i>n</i> -ブチル	149, 205, 223
フタル酸ジ-2-エチルヘキシル	149, 167, 279
フタル酸ジ- <i>n</i> -ブチル- d_4	153, 209, 227
フタル酸ジ-2-エチルヘキシル- d_4	153, 171, 283

2) GC-MS の分析条件の設定と機器の調整

GC-MS の分析条件およびクロマトグラムの一例を以下に示す。（図3）

キャリヤーガス : 窒素
 カラム : 5%フェニル-メチルポリシロキサン
 (長さ 20 m、内径 0.18 mm、膜厚 0.40 μm)
 カラム温度 : 80°C (2分保持) -25°C/分-300°C (5分保持)
 インターフェース温度 : 250°C
 イオン源温度 : 250°C

*MS に質量校正用標準物質（パーフルオロトリブチルアミン (PFTBA) またはパーフルオロケロセン (PFK)）を導入し、マスパターンおよび分解能（質量数 (m/z) = 18~300 程度の範囲で 1 質量単位 (amu) 以上) 等を測定目的に応じて所定の値に校正する。質量校正結果は測定結果と共に保存する。（注11）

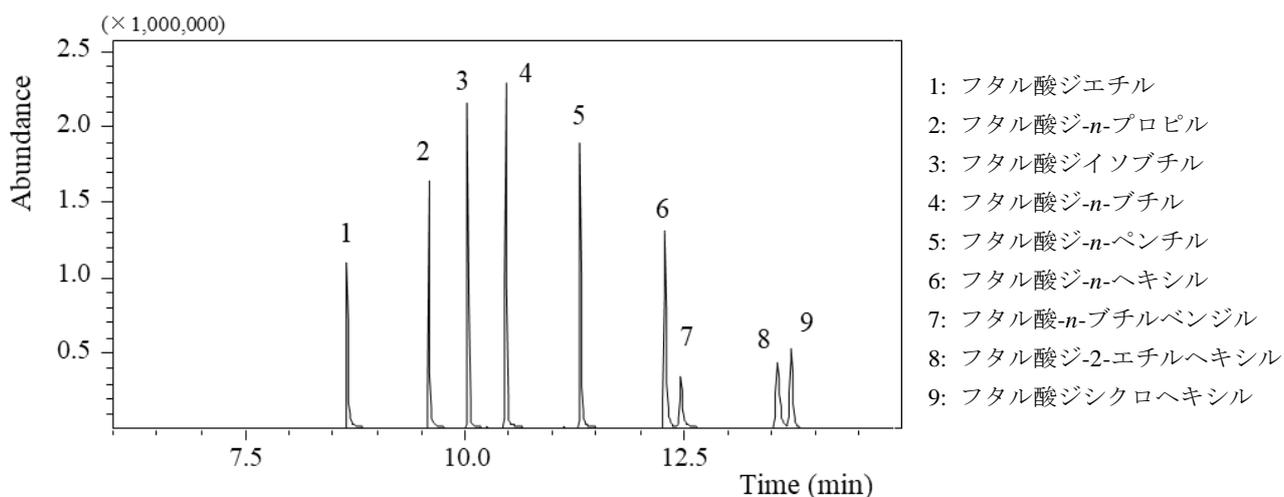


図3 m/z 149 におけるクロマトグラムの一例

4. 2. 4 試料採取および試験用捕集管の調製

(1) 試料採取

空気試料の採取は、室内では居間および寝室の2カ所ならびに室外1カ所の計3カ所について、それぞれ2回ずつ採取する。試料採取に際しては、トラベルブランクとして捕集管を密閉容器（金属製のものが望ましい）に入れ試料採取と同様に持ち運ぶ。捕集管はアルミ箔等で遮光し、試料採取後、捕集管の両端を密栓し、密閉できる容器に入れて分析時まで保存する。また、捕集管のポンプ吸引側および空気取り入れ側は明確にしておく。（注12）

a) 最大濃度推定法における試料の採取：試料採取装置を用いて、概ね30分間、100~200 mL/min 程度の流量で採取する。

b) 平常実態把握法等における試料の採取：試料採取装置を用いて、24時間、10~100 mL/min 程度の流量で採取する。

(2) 検量線用捕集管の調製

4. 2. 2 (4) の混合標準溶液および4. 2. 2 (7) の混合内標準溶液を用い、図4の例に示すように、検量線作成用 T 字管に高純度窒素ガスおよび捕集管を連結し、高純度窒素ガスを10~100 mL/min の流速で流しながら、標準溶液および内標準溶液をマイクロシリンジで注入して捕集管に吸着させる。同様の操作を複数本について行い、混合標準濃度系列の検量線用捕集管を調製する。(注13)

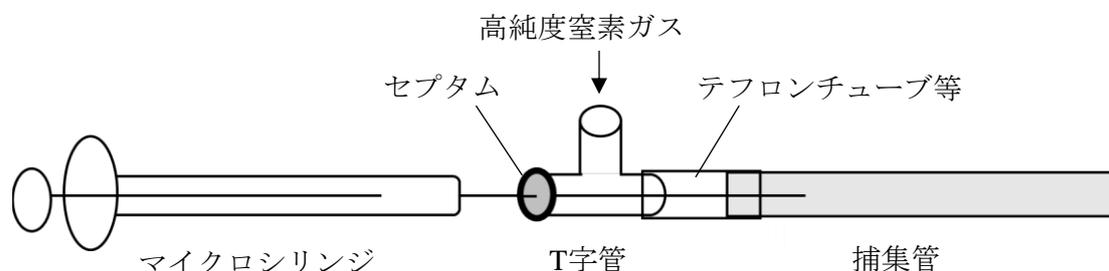


図4 検量線作成用 T 字管の接続例 (注13)

(3) 試験用捕集管の調製

- 1) 空気試料用捕集管の調製：4. 2. 2 (7) の混合内標準溶液を用い、図4の例に示すように、検量線作成用 T 字管に高純度窒素ガスおよび4. 2. 4 (1) 1) にて空気試料を採取した捕集管を連結し、高純度窒素ガスを10~100 mL/min の流速で流しながら、内標準溶液をマイクロシリンジで注入して捕集管に吸着させ、空気試料用捕集管を調製する。
- 2) 操作ブランク試験用捕集管の調製：空気試料用捕集管と同じ仕様の未使用捕集管について4. 2. 4 (3) 1) と同様の操作を一連の操作の中で1回以上行い、操作ブランク試験用捕集管を調製する。
- 3) トラベルブランク試験用捕集管の調製：4. 2. 4 (1) 2) のトラベルブランク試験用捕集管について4. 2. 4 (3) 1) と同様の操作を行い、トラベルブランク試験用捕集管を調製する。(注14)
- 4) 2重測定用捕集管の調製：3. 2. 4 (1) 3) の2重測定用の捕集管について3. 2. 4 (3) 1) と同様の操作を行い、2重測定用捕集管を調製する。

4. 2. 5 試験操作

(1) 検量線用捕集管の試験

- 1) 測定：4. 2. 4 (2) で調製した検量線用捕集管を試料導入装置に装着し、GC-MS による測定を行う。4. 2. 3 (4) 1) h) で設定した各測定対象物質の測定質量数毎のクロマトグラムを記録する。
- 2) 測定対象物質の保持時間の確認：4. 2. 4 (2) で調製した検量線用捕集管の中から、各測定対象物質の中間程度における濃度のクロマトグラムをもとに測定対象物質の保持時間を確認する。
- 3) 測定対象物質の質量数の決定：4. 2. 3 (4) 1) h) で設定した各測定対象物質の測定質量数から検量線作成に用いる定量用質量数と確認用質量数を決定する。
- 4) 検量線の作成：各測定対象物質および内標準物質の定量用質量数について、ピーク面積またはピーク高さの強度比を求め、その強度比と各測定対象物質の濃度とによる検量線を作成する。
- 5) 定量用質量数と確認用質量数の比の決定：各測定対象物質の定量用質量数と確認用質量数のピーク面積またはピーク高さの強度比を算出する。

(2) 空気試料試験の測定と定量

- 1) 測定：4. 2. 4 (3) 1) で調製した空気試料用捕集管を試料導入装置に装着し、GC-MS に

よる測定を行う。

- 2) **測定対象物質の確認**：4. 2. 5 (1) 3) で決定した定量用質量数および確認用質量数によるクロマトグラムからピーク面積またはピーク高さの強度比を算出し、3. 2. 5 (1) 5) で算出した強度比と大きくかけはなれていないことを確認する。(注14)
- 3) **定量**：検出された各測定対象物質の定量用質量数と内標準物質の定量用質量数のピーク面積またはピーク高さの強度比を求め、4. 2. 5 (1) 4) により作成した検量線を用いて、測定した空気試料用捕集管における各測定対象物質の重量 (As : ng) を求める。(注15)

(3) 操作ブランク試験の測定と定量

4. 2. 4 (3) 2) で調製した操作ブランク試験用捕集管について、4. 2. 5 (2) の操作を行って各測定対象物質の操作ブランク値を求める。

(4) トラベルブランク試験の測定と定量

4. 2. 4 (3) 3) で調製したトラベルブランク試験用捕集管について、4. 2. 5 (2) の操作を行って各測定対象物質のトラベルブランク値を求める。本試験は1試料以上を測定し、平均値をトラベルブランク値 (At : ng) とする。

測定対象物質のトラベルブランク値が操作ブランク値と同等(等しいか小さい)とみなせる場合には、移送中の汚染は無視できるものとして試料の測定値から操作ブランク値を差し引いて濃度を計算する。

(5) 2重測定試験の測定と定量

4. 2. 4 (3) 4) で調製した2重測定用捕集管について、4. 2. 5 (2) の操作を行って、各測定対象物質の重量を測定する。定量下限値以上の濃度の測定対象物質について、測定値平均とそれぞれの測定値の間に±20%以上の開きがある場合は、原則欠測扱いとして、その原因をチェックし、再度試料採取を行う。

(6) GC-MS 装置の感度試験

混合標準捕集管系列の中から中間程度の濃度のものを選び、4. 2. 5 (1) 5) の操作を行って感度の変動を確認する。この確認は1日に1回以上行い、内標準物質との相対感度が検量線作成時の相対感度に対して±20%以内の変動であることを確認する。(注16)

4. 2. 6 濃度の算出

4. 2. 5 で得られた結果から、次式を用いて空気中の各測定対象物質の濃度を算出し、結果には個々の値をそれぞれ記載する。

$$C = \frac{(As - At)}{V \times 298 / (273 + t) \times P / 1013}$$

C : 25°Cにおける空気中の各測定対象物質の濃度 (μg/m³)

As : 捕集管中の各測定対象物質の重量 (ng)

At : 各測定対象物質のトラベルブランク値 (ng)

操作ブランク値と同等と見なせる場合は操作ブランク値を用いる。

V : 空気捕集量 (L) (注20)

t : 試料採取時の平均の気温 (°C)。湿式型ガスメーターを使用しているときには、ガスメーターの平均水温 (°C)

P : 試料採取時の平均大気圧 (hPa)。湿式型ガスメーターの場合には (P-Pw) を用いる。ここで、Pw は試料採取時の平均気温 t (°C) での飽和水蒸気圧 (hPa)

- 注 1 : 本法は採取試料の前処理に溶媒を用いないため、前処理操作における溶媒や雰囲気等からの汚染を受けにくいという利点がある。一方、測定対象のフタル酸エステル類は高沸点で吸着を起こしやすい性質を持つため、試料導入装置内への吸着やクロスコンタミネーションに留意する必要がある。装置内吸着については、分析での待機時間が長くなると空气中フタル酸エステル類の吸着が増加するため、試料の測定前には空の捕集管を複数本測定しブランクを低減させるとよい。クロスコンタミネーション防止のためには、高濃度の標準物質および試料を測定した後は、空の捕集管を測定するとよい。
- 注 2 : 器具類は、残留農薬分析用のアセトン等で超音波洗浄し、金属製のかごやアルミホイル等の上で乾燥させる、もしくは高温で加熱し清浄にする。使用直前までアルミホイルで覆う等して、雰囲気からの汚染を防ぐ。清浄後は、試験溶液が触れる部分には手を触れず、ピンセット等を用いる。
- 注 3 : 試料採取量、濃縮操作および GC-MS の条件等によって測定感度は異なるので、ここに示した濃度を目安に適宜変えてもよい。また、市販の標準溶液（混合標準溶液）を用いてもよい。ただし、精度保証されているものが望ましい。
- 注 4 : 質量流量センサーを内蔵したポンプが市販されている。間欠サンプリング機能を有するポンプを用いてもよい。
- 注 5 : 新しく充填または購入した捕集管は、充填された吸着剤の耐用温度にて十分に加熱洗浄した後、同一の洗浄ロットから少なくとも 10%以上の割合でブランク値の測定を行い、目的定量下限値よりも十分低い値であることを確認する。なお、300°Cを超える温度で長時間空焼きすると炭素の酸化が進み、カーボンモレキュラシーブの性能が変化することがあるので注意する。空焼きの温度と時間は捕集剤の種類によって異なるため、製造メーカーの推奨値を使用する。
- 注 6 : 試料導入装置には複数のタイプがあり、それぞれに最適条件を設定する。第 1 は、捕集管が試料導入装置に装着されると流路が確保され、加熱脱離してトラップ管にいったん再捕集後、さらにトラップ管を加熱してクライオフォーカスに捕集し、さらに加熱してキャピラリーカラムに導入する方式である（図 2A）。第 2 には、捕集管が試料導入装置に装着されると流路が確保され、加熱・脱離してトラップ管またはクライオフォーカスに再捕集した後、いずれかを加熱してキャピラリーカラムに導入する方式である（図 2B および C）。
- 注 7 : ガラス製または溶融シリカ製の中空管または吸着剤を充填したトラップ管では冷却を要しない装置もある。また、トラップ管の冷却、加熱条件等は導入装置毎に決定する必要がある。市販の装置ではこれらの条件は提示されている場合が多い。
- 注 8 : トラップ管には石英等の不活性物質を詰めることもあるが、吸着剤を充填する場合もある。充填剤により、低温（-20°C程度）まで冷却を行っても破過を起こすことがあるので注意する必要がある。
- 注 9 : 水素や窒素を用いてもよい。純度については 99.999%以上のものが望ましいが 99.999%未満のものを使用する場合は妨害がないことを予め確認する。市販のガス精製管を使用してもよい。
- 注 10 : 対象成分が十分に分離出来れば、カラムの種類および温度条件等は任意に設定してよい。ただし、設定した条件において、測定対象物質のピークが分離し、定量が可能であることをあらかじめ確認する。特に、同時に採取されるフタル酸エステル類の多くは $m/z=149$ のベースピークを持つため条件確定時には十分留意する。
- 注 11 : 機器に付属の質量校正プログラムやチューニングメソッドを使用することが望ましい。
- 注 12 : 室内より室外での測定対象物質濃度が高いと考えられる場合は、室内の他に室外におけるトラベルブランクも併せて採取することが望ましい。試料採取の詳細については 1.1～1.5 を参照する。
- 注 13 : 混合標準溶液等を添加する場合は、シリンジの針先を捕集管内の吸着剤付近まで差し込むことが望ましい。市販の検量線作成ツール用装置を用いてもよい。

- 注 14 : 測定対象物質のピークに対する他の物質からの影響を判断するために行う操作である。測定した空気試料における定量用質量数と確認用質量数の強度比が、3. 2. 5 (1) 5) で算出した強度比と大きくかけはなれている場合は、再度、標準物質用捕集管を調製、測定し、定量用質量数と確認用質量数の強度比を算出する。再度測定した標準物質用捕集管の強度比が検量線作成時の 90~110% の範囲内だった場合 (標準物質に問題がない場合)、空気試料における測定対象物質のピークが何らかの影響を受けている可能性があることから、クロマトグラムのベースライン分離条件等の再検討や、他の分析カラムによる定量を検討する。
- 注 15 : 室内空気中の測定対象物質の濃度は、その範囲が広いことが予想されるため、定量上限を明確に把握しておくことが必要である。空気試料の測定値が作成した検量線の範囲を超える場合は、諸条件を検討した上で検量線を再度作成し、定量する。
- 注 16 : $\pm 20\%$ を越えて感度の変動する場合には、その原因を取り除き、それ以前の試料を再測定する。さらに、保持時間については、比較的短い間に変動 (通常、1 日に保持時間が $\pm 5\%$ 以上、内標準物質との相対保持比が $\pm 2\%$ 以上) する場合には、その原因を取り除き、それ以前の試料の再測定を行う。

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）
総合研究報告書

室内空気汚染化学物質の標準試験法の開発・規格化および国際規制状況に関する研究

室内空気環境汚染化学物質の標準試験法の国内規格化

研究分担者 香川(田中) 聡子 横浜薬科大学薬学部 教授
研究協力者 神野 透人 名城大学薬学部 教授

研究要旨：シックハウス対策として1997年よりホルムアルデヒドやトルエンなど13物質に室内濃度指針値が、総揮発性有機化合物に暫定目標値が定められ、2019年1月にはキシレン、フタル酸ジ-*n*-ブチルおよびフタル酸ジ-2-エチルヘキシルについて指針値が改定された。本研究では、標準試験法の国内規格化を目的として、室内濃度指針値設定物質であるトルエン、*o*-、*m*-、*p*-キシレン、エチルベンゼン、スチレン、*p*-ジクロロベンゼンおよびテトラデカンを対象とする標準試験法として固相吸着-加熱脱離-ガスクロマトグラフィー/質量分析法、暫定目標値が設定されている総揮発性有機化合物を対象とする標準試験法として固相吸着-加熱脱離-ガスクロマトグラフィー/質量分析法、準揮発性有機化合物で室内濃度指針値が設定されているフタル酸ジ-*n*-ブチルおよびフタル酸ジ-2-エチルヘキシルを対象とする標準試験法として固相吸着-加熱脱離-ガスクロマトグラフィー/質量分析法を策定し、日本薬学会編 衛生試験法・注解 2020 追補 2022、2024 に記載した。

研究協力者：

酒井信夫（国立医薬品食品衛生研究所）、田原麻衣子（国立医薬品食品衛生研究所）、大嶋直浩（国立医薬品食品衛生研究所）、高木規峰野（国立医薬品食品衛生研究所）、斎藤育江（東京都健康安全研究センター）、遠藤治（麻布大学生命・環境科学部）、大貫文（東京都健康安全研究センター）、鈴木浩（柴田科学株式会社）、鳥羽陽（長崎大学・医歯薬学総合研究科（薬学系））、中島大介（国立環境研究所）、藤森英治（環境調査研究所）、森葉子（名城大学、国立環境研究所）、埴岡伸光（横浜薬科大学）、大河原晋（横浜薬科大学）、磯部隆史（横浜薬科大学）、河村伊久雄（横浜薬科大学）、小池加那子（横浜薬科大学）、高橋直也（横浜薬科大学）、中嶋康一郎

（横浜薬科大学）、小林叶奈（横浜薬科大学）、堤亜里紗（横浜薬科大学）、浦島桃香（横浜薬科大学）、中向井璃奈（横浜薬科大学）、宮崎悠里奈（横浜薬科大学）、沖野優衣（横浜薬科大学）、高橋美優（横浜薬科大学）、千葉真弘（北海道衛生研究所）、大泉詩織（北海道衛生研究所）、田中礼子（横浜市衛生研究所）、山之内 孝（横浜市衛生研究所）、村木沙織（横浜市衛生研究所）、大野浩之（名古屋市衛生研究所）、若山貴成（名古屋市衛生研究所）

A. 研究目的

ヒトが一日の大部分を過ごす「室内」の空気は化学物質への曝露の観点から極めて重要な曝露媒体である。室内空気中の化学物質はシックハウス症候群や喘息な

どの疾病の病因あるいは増悪因子となることから室内空気質に強い関心が寄せられている。また、室内環境における慢性的な化学物質曝露という点からも、室内空気質に対する注目が高まっている。1997年より室内空気汚染対策として、ホルムアルデヒドやトルエン等13物質に室内濃度指針値が、総揮発性有機化合物に暫定目標値が定められており、2019年1月にはキシレン、フタル酸ジ-*n*-ブチルおよびフタル酸ジ-2-エチルヘキシルの指針値が改定された¹⁾。居住環境の室内空気がこれら化学物質の指針値あるいは暫定目標値を満たしているか否かを評価するためには、標準化された室内空気の採取方法ならびにその分析方法によって得られた結果に基づいて判断することが必要である。本研究では、室内濃度指針値、ならびに暫定目標値が設定されている揮発性有機化合物および準揮発性有機化合物を対象として、最新の分析技術を基に汎用性の高い標準試験法の策定と、その国内規格化を目的とする。

B. 研究方法

令和3年度：厚生労働省の室内空気中化学物質の測定マニュアル²⁾を基に、室内濃度指針値設定物質であるトルエン、*o*-、*m*-、*p*-キシレン、エチルベンゼン、スチレン、*p*-ジクロロベンゼンおよびテトラデカンを対象とする標準試験法として、固相吸着-加熱脱離-ガスクロマトグラフィー/質量分析法を策定し、日本薬学会編 衛生試験法・注解 2020 追補 2022 に収載する。

令和4-5年度：室内濃度暫定目標値が設定されている総揮発性有機化合物を対象とする標準試験法として、固相吸着-加熱脱離-ガスクロマトグラフィー/質量分析法を策定し、日本薬学会編 衛生試験法・注解 2020 追補 2024 に収載する。ま

た、準揮発性有機化合物フタル酸ジ-*n*-ブチルおよびフタル酸ジ-2-エチルヘキシルを対象とする標準試験法として、改定指針値に対応する固相吸着-加熱脱離-ガスクロマトグラフィー/質量分析法を策定し、日本薬学会編 衛生試験法・注解 2020 追補 2024 に収載する。

C. 研究結果

令和3年度：室内濃度指針値設定物質であるトルエン、*o*-、*m*-、*p*-キシレン、エチルベンゼン、スチレン、*p*-ジクロロベンゼンおよびテトラデカンを対象とする標準試験法として固相吸着-加熱脱離-ガスクロマトグラフィー/質量分析法を策定し、日本薬学会編 衛生試験法・注解 2020 追補 2022 に収載した。

令和4-5年度：室内濃度暫定目標値が設定されている総揮発性有機化合物を対象とする標準試験法として、固相吸着-加熱脱離-ガスクロマトグラフィー/質量分析法を策定し、日本薬学会編 衛生試験法・注解 2020 追補 2024 に収載した。また、フタル酸ジ-*n*-ブチルおよびフタル酸ジ-2-エチルヘキシルを対象とする標準試験法として、改定指針値に対応する固相吸着-加熱脱離-ガスクロマトグラフィー/質量分析法を策定し、日本薬学会編 衛生試験法・注解 2020 追補 2024 に収載した。なお、その内容を別添に示す。

D. 結論

室内濃度指針値が設定されている揮発性有機化合物トルエン、*o*-、*m*-、*p*-キシレン、エチルベンゼン、スチレン、*p*-ジクロロベンゼンおよびテトラデカンを対象とする標準試験法、暫定目標値が設定されている総揮発性有機化合物を対象とする標準試験法、準揮発性有機化合物で室内濃度指針値が設定されているフタル酸ジ-*n*-ブチルおよびフタル酸ジ-2-エチルヘ

キシルを対象とする標準試験法を策定し、日本薬学会編 衛生試験法・注解 2020 追補 2022、2024 に収載した。

E. 考察

本研究で、室内濃度指針値策定物質を対象とする標準試験法が策定され、公定法として公表されることにより、詳細曝露評価を円滑に実施することが可能になる。

F. 参考文献

1. 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, 平成 31 年 1 月 17 日 <https://www.mhlw.go.jp/content/000470188.pdf>
2. 「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 6 回～第 7 回のまとめについて」 <http://www.mhlw.go.jp/houdou/0107/h0724-1.html>

G. 健康危険情報

なし

H. 研究発表

1. 著書

- 1) 香川聡子, 遠藤治, 斎藤育江, 酒井信夫, 神野透人, 鳥羽陽, 中島大介, 藤森英治: 有機物質 / 揮発性有機化合物 / 固相吸着-加熱脱離-ガスクロマトグラフィー/質量分析法による定量 (新規), 公益社団法人日本薬学会環境・衛生部会, 衛生試験法・注解 2020 追補 2022, 公益社団法人日本薬学会環境衛生部会発行, 東京, p.13-17, 2022.
- 2) 神野透人, 大貫文, 香川聡子, 酒井信夫, 鈴木浩, 鳥羽陽, 中島大介, 藤森英治: 空気試験法 / 有機化合物 / 揮

発性有機化合物 / 総揮発性有機化合物 (新規), 公益社団法人日本薬学会環境衛生部会・試験法出版委員会編, 日本薬学会編衛生試験法・注解 2020・追補 2024, 公益社団法人日本薬学会環境衛生部会発行, 東京, p.8-12, 2024.

- 3) 神野透人, 大貫文, 香川聡子, 酒井信夫, 鈴木浩, 鳥羽陽, 中島大介, 藤森英治: 空気試験法 / 有機化合物 / フタル酸ジ-*n*-ブチルおよびフタル酸ジ-2-エチルヘキシル・固相吸着-加熱脱離-ガスクロマトグラフィー・質量分析法による定量 (新規), 公益社団法人日本薬学会環境衛生部会・試験法出版委員会編, 日本薬学会編衛生試験法・注解 2020・追補 2024, 公益社団法人日本薬学会環境衛生部会発行, 東京, p.13-17, 2024.

2. 論文発表

- 1) Fujinami K, Dan K, Tanaka-Kagawa T, Kawamura I. Anti-aging effects of polyoxometalates on skin. *Applied Sciences*, <https://doi.org/10.3390/app112411948> (2021).
- 2) Hanioka N, Saito K, Isobe T, Ohkawara S, Jinno H, Tanaka-Kagawa T. Favipiravir biotransformation in liver cytosol: Species and sex differences in humans, monkeys, rats, and mice. *BiopharmDrug Dispos*, 42(5), 218-225 (2021).
- 3) Hanioka N, Tanaka-Kagawa T, Mori Y, Ikushiro S, Jinno H, Ohkawara S, Isobe T. Regioselective glucuronidation of flavones at C5, C7, and C4' positions in human liver and intestinal microsomes: Comparison among Apigenin, Acacetin, and Genkwanin. *Biol Pharm Bull*. 2022;45(8):1116-1123.

- 4) Hanioka N, Isobe T, Tanaka-Kagawa T, Jinno H, Ohkawara S. *In vitro* glucuronidation of bisphenol A in liver and intestinal microsomes: interspecies differences in humans and laboratory animals. *Drug Chem Toxicol.* 2022 Jul;45(4):1565-1569.
- 5) Mori Y, Aoki A, Okamoto Y, Isobe T, Ohkawara S, Hanioka N, Tanaka-Kagawa T, Jinno H. Species-specific activation of transient receptor potential ankyrin 1 by phthalic acid monoesters. *Biol Pharm Bull.* 2022 Dec 1;45(12):1839-1846.
- 6) Sugita T, Tanaka-Kagawa T. Management of food and environmental hygiene by microbial examination. *Yakugaku Zasshi.* 2022;142(1):9-10. doi: 10.1248/yakushi.21-00161-F.
- 7) Isobe T, Ohkawara S, Mori Y, Jinno H, Tanaka-Kagawa T, Hanioka N., Hydrolysis of dibutyl phthalate and di(2-ethylhexyl) phthalate in human liver, small intestine, kidney, and lung: An *in vitro* analysis using organ subcellular fractions and recombinant carboxylesterases. *Chem Biol Interact.* 2023 Feb 25;372:110353. doi: 10.1016/j.cbi.2023.110353. Epub 2023 Jan 16.
- 8) Mori Y, Tanaka-Kagawa T, Tahara M, Kawakami T, Aoki A, Okamoto Y, Isobe T, Ohkawara S, Hanioka N, Azuma K, Sakai S, Jinno H., Species differences in activation of TRPA1 by resin additive-related chemicals relevant to indoor air quality. *J Toxicol Sci.* 2023;48(1):37-45. doi: 10.2131/jts.48.37.
- 9) Hanioka N, Isobe T, Saito K, Nagaoka K, Mori Y, Jinno H, Ohkawara S, Tanaka-Kagawa T., Hepatic glucuronidation of tetrabromobisphenol A and tetrachlorobisphenol A: interspecies differences in humans and laboratory animals and responsible UDP-glucuronosyltransferase isoforms in humans. *Arch Toxicol.* 2024, 98(3), 837-848.
3. 学会発表
- 1) 高橋直也, 中嶋康一郎, 大河原晋, 河村伊久雄, 三浦伸彦, 森葉子, 磯部隆史, 埴岡伸光, 神野透人, 香川(田中)聡子: Matrix metalloproteinases のヒト気管および肺組織における発現個体差第 48 回日本毒性学会学術年会, 神戸, 2021 年 7 月
- 2) 中嶋康一郎, 高橋直也, 河村伊久雄, 三浦伸彦, 森葉子, 楠木麻菜美, 加藤水基, 磯部隆史, 大河原晋, 埴岡伸光, 神野透人, 香川(田中)聡子: ヒト気管および肺組織における Glucagon-like peptide-1 受容体の発現とその個体差, フォーラム 2021 衛生薬学・環境トキシコロジー, 船橋, 2021 年 9 月
- 3) 高橋直也, 中嶋康一郎, 河村伊久雄, 三浦伸彦, 森葉子, 磯部隆史, 大河原晋, 埴岡伸光, 神野透人, 香川(田中)聡子: 気道リモデリングに關与する生体内因子の遺伝子発現レベルとその個体差, フォーラム 2021 衛生薬学・環境トキシコロジー, 船橋, 2021 年 9 月
- 4) 藤波克之, 団克昭, 香川(田中)聡子, 河村伊久雄: 真菌・抗ウイルス活性を発揮するポリ酸化合物 (PM) の実用化に向けた機能性評価, フォーラム 2021 衛生薬学・環境トキシコロジー, 船橋, 2021 年 9 月
- 5) 酒井信夫, 田辺新一, 金炫兌, 伊藤一秀, 田原麻衣子, 大嶋直浩, 斎藤育江,

- 香川（田中）聡子，神野透人，五十嵐良明：ISO 16000-33: GC/MS を用いたフタル酸エステル類の定量の改訂について，2021 年室内環境学会学術大会，京都，2021 年 12 月
- 6) 小池加那子，河村伊久雄，三浦伸彦，森葉子，磯部隆史，大河原晋，埴岡伸光，神野透人，香川（田中）聡子：ヒト組織における Vitamin D 受容体の発現とその個体差，日本薬学会第 142 年会，名古屋，2022 年 3 月
 - 7) 中嶋康一郎，高橋直也，河村伊久雄，三浦伸彦，森葉子，磯部隆史，大河原晋，埴岡伸光，神野透人，香川（田中）聡子：ヒト組織における Glucagon-like peptide-1 受容体の発現とその個体差，日本薬学会第 142 年会，名古屋，2022 年 3 月
 - 8) 森葉子，青木明，岡本誉士典，磯部隆史，大河原晋，埴岡伸光，香川（田中）聡子，神野透人：フタル酸エステル類による TRPA1 活性化の種差，日本薬学会第 142 年会，名古屋，2022 年 3 月
 - 9) 酒井信夫，田原麻衣子，大嶋直浩，大貫文，斎藤育江，千葉真弘，大泉詩織，田中礼子，山之内孝，遠藤治，鳥羽陽，中島大介，藤森英治，神野透人，香川（田中）聡子，空気試験法：揮発性有機化合物・捕集剤による乾式採取（アクティブ法）-加熱脱離-ガスクロマトグラフィー/質量分析法による定量（新規），日本薬学会第 142 年会，名古屋，2022 年 3 月
 - 10) 古田貴大，上野朱璃，金井智久，川端雄資，宇津木貴子，白畑辰弥，中森俊輔，小西成樹，香川（田中）聡子，神野透人，小林義典：TRPV1 構造活性相関解明に向けた 7 位 - Evodiamine 誘導体の不斉合成研究とその水溶性，日本薬学会第 142 年会，名古屋，2022 年 3 月
 - 11) 金井智久，中森俊輔，平岡恵美，白畑辰弥，小西成樹，香川（田中）聡子，神野透人，小林義典：二量体 Nuphar alkaloids（16 種類）の TRPV1 活性化能に関する構造活性相関の解明，日本薬学会第 142 年会，名古屋，2022 年 3 月
 - 12) 小池加那子，中嶋康一郎，河村伊久雄，三浦伸彦，森葉子，磯部隆史，大河原晋，埴岡伸光，神野透人，香川（田中）聡子：Vitamin D 代謝酵素のヒト組織における発現とその個体差，第 49 回日本毒性学会学術年会，札幌，2022 年 6 月
 - 13) 堤亜里紗，小林叶奈，河村伊久雄，三浦伸彦，森葉子，磯部隆史，大河原晋，埴岡伸光，神野透人，香川（田中）聡子：SARS-CoV-2 感染に関する生体内因子のヒト気道組織中での発現とその個体差，フォーラム 2022 衛生薬学・環境トキシコロジー，熊本，2022 年 9 月
 - 14) 香川（田中）聡子，酒井信夫，神野透人，：室内空气中総揮発性有機化合物（TVOC）に関する最新の動向，第 63 回大気環境学会年会，室内環境分科会，大阪，2022 年 9 月
 - 15) 高橋直也，中嶋康一郎，河村伊久雄，三浦伸彦，森葉子，磯部隆史，大河原晋，埴岡伸光，神野透人，香川（田中）聡子：気道過敏性に関する生体内因子のヒト気道組織中での発現と個体差，第 66 回日本薬学会関東支部大会，横浜，2022 年 9 月
 - 16) 中嶋康一郎，高橋直也，河村伊久雄，三浦伸彦，森葉子，磯部隆史，大河原晋，埴岡伸光，神野透人，香川（田中）聡子：GLP-1 受容体のヒト組織における発現とその個体差，第 66 回日本薬学会関東支部大会，横浜，2022 年 9 月
 - 17) 小池加那子，中嶋康一郎，河村伊久雄，

- 三浦伸彦, 森葉子, 磯部隆史, 大河原晋, 埴岡伸光, 神野透人, 香川 (田中) 聡子: ヒト組織における Vitamin D 代謝酵素及び VDR の発現と個体差, 第 66 回日本薬学会関東支部大会, 横浜, 2022 年 9 月
- 18) 小林叶奈, 堤亜里紗, 河村伊久雄, 三浦伸彦, 森葉子, 磯部隆史, 大河原晋, 埴岡伸光, 神野透人, 香川 (田中) 聡子: SARS-CoV-2 感染に関与する生体内因子のヒト組織中での発現とその個体差, 第 66 回日本薬学会関東支部大会, 横浜, 2022 年 9 月
- 19) 森葉子, 香川 (田中) 聡子, 田原麻衣子, 河上強志, 青木明, 岡本誉士典, 磯部隆史, 大河原晋, 埴岡伸光, 東賢一, 酒井信夫, 神野透人: 2-Ethyl-1-hexanol, Texanol および TXIB による侵害刺激の種差に関する研究, 2022 年室内環境学会学術大会, 東京, 2022 年 12 月
- 20) 中向井璃奈, 浦島桃香, 森葉子, 磯部隆史, 大河原晋, 河村伊久雄, 三浦伸彦, 北川康行, 埴岡伸光, 神野透人, 神野透人, 香川 (田中) 聡子: Isothiazolinone 系抗菌薬によるヒト TRPA1 活性化の *in silico* 分子機構解析, 日本薬学会第 143 年会, 札幌, 2023 年 3 月
- 21) 宮崎悠里奈, 大河原晋, 河村伊久雄, 三浦伸彦, 森葉子, 磯部隆史, 埴岡伸光, 神野透人, 香川 (田中) 聡子: *in vitro* 及び *in silico* 手法を用いる isothiazolinone 系抗菌薬による TRPV1 活性化評価, 第 50 回日本毒性学会学術年会, 横浜, 2023 年 6 月
- 22) 森葉子, 青木明, 岡本誉士典, 磯部隆史, 大河原晋, 埴岡伸光, 香川 (田中) 聡子, 神野透人: フタル酸エステル類の動物種特異的な生体影響に関する研究: TRPA1 活性化の種差を生じるタンパク質構造の解明, 第 50 回日本毒性学会学術年会, 横浜, 2023 年 6 月
- 23) 浦島桃香, 中向井璃奈, 宮崎悠里奈, 大河原晋, 森葉子, 河村伊久雄, 三浦伸彦, 磯部隆史, 埴岡伸光, 神野透人, 香川 (田中) 聡子: Isothiazolinone 系抗菌剤による TRP イオンチャネル活性化の *in vitro* 及び *in silico* 評価, フォーラム 2023 衛生薬学・環境トキシコロジー, 広島, 2023 年 9 月
- 24) 香川 (田中) 聡子, 森葉子, 田原麻衣子, 大河原晋, 磯部隆史, 大貫文, 鈴木浩, 鳥羽陽, 中島大介, 藤森英治, 埴岡伸光, 酒井信夫, 神野透人: 空気試験法 / 有機化合物 / 揮発性有機化合物 / 総揮発性有機化合物 (新規), 日本薬学会第 144 年会, 横浜, 2024 年 3 月
- 25) 大貫文, 田原麻衣子, 酒井信夫, 高木規峰野, 田中礼子, 村木沙織, 斎藤育江, 千葉真弘, 大泉詩織, 大野浩之, 若山貴成, 鈴木浩, 鳥羽陽, 中島大介, 藤森英治, 香川 (田中) 聡子, 神野透人: 空気試験法 / 有機化合物 / フタル酸ジ-*n*-ブチルおよびフタル酸ジ-2-エチルヘキシル・固相吸着-加熱脱離-ガスクロマトグラフィー・質量分析法による定量 (新規), 日本薬学会第 144 年会, 横浜, 2024 年 3 月
- 26) 古田貴大, 林暁翔, 白畑辰弥, 上野朱璃, 中森俊輔, 金井智久, 川端雄資, 宇津木 貴子, 香川 (田中) 聡子, 神野透人, 小林義典: TRPV1 構造活性相関解明に向けた 7 位, 10 位 - Evodiamine 誘導体の不斉合成研究, 日本薬学会第 144 年会, 横浜, 2024 年 3 月

- | | |
|---|--|
| <p>27) 中森俊輔, 大塚有梨須, 石塚日菜, 森本彩香, 金井智久, 白畑辰弥, 香川(田中)聡子, 神野透人, 小林義典生薬: 「ダイオウ」の TRPV1 活性成分の探索と生薬「オウレン」含有ベルベリンアルカロイドの相互作用, 日本薬学会第 144 年会, 横浜, 2024 年 3 月</p> <p>28) 湯浅竜斗, 森葉子, 東珠希, 青木明, 岡本誉士典, 磯部隆史, 大河原晋, 埴岡伸光, 香川(田中)聡子, 神野透人: フタル酸エステル類の代替可塑剤による TRPA1 活性化の種差に関する研究, 日本薬学会第 144 年会, 横浜, 2024 年 3 月</p> <p>29) 宮崎悠里奈, 大河原晋, 森葉子, 磯部隆史, 北川康行, 埴岡伸光, 神野透人, 香川(田中)聡子: イソチアゾリノン系抗菌剤によるヒト TRPV1 活性化の <i>in vitro</i> 及び <i>in silico</i> 評価, 日本薬学会第 144 年会, 横浜, 2024 年 3 月</p> <p>30) 沖野優衣, 高橋美優, 森葉子, 大河原晋, 北川康行, 波多江典之, 磯部隆史, 埴岡伸光, 神野透人, 香川(田中)聡子: 香料アレルゲンによるヒト TRPA1 活性化 – <i>in vitro</i> 及び <i>in silico</i> 評価 – , 日本薬学会第 144 年会, 横浜, 2024 年 3 月</p> <p>31) 高橋美優, 沖野優衣, 森葉子, 大河原晋, 北川康行, 波多江典之, 磯部隆史, 埴岡伸光, 神野透人, 香川(田中)聡子: EU 化粧品規制における新規義務表示香料成分による TRPA1 活性化の <i>in silico</i> 評価, 日本薬学会第 144 年会, 横浜, 2024 年 3 月</p> | <p>含む)</p> <p>特許取得
なし</p> <p>実用新案登録
なし</p> |
|---|--|

I. 知的財産権の出願・登録状況 (予定を

(別添)

4.4.5 有機物質

13) 揮発性有機化合物

(3) 捕集剤による乾式採取法(アクティブ法)ーガス クロマトグラフィー/質量分析法による定量

(3)-2 固相吸着-加熱脱離ーガスクロマトグラフィー /質量分析法による定量¹⁾(新規)

トルエン, *o*-, *m*-, *p*-キシレン, エチルベンゼン, スチレン, パラジクロロベンゼンおよびテトラデカンによる室内空気の汚染を把握するための測定に適した方法である。吸着剤を充てんした捕集管に室内空気または外気を一定流量で吸引し, 測定対象物質を捕集する。捕集管を試料導入装置(加熱脱離装置)に装着し, 加熱により気化した測定対象物質をキャピラリーカラムに導入してGC-MSにより分離, 定量する²⁾³⁾。

【試薬】① メタノール: 測定対象物質および内標準物質のクロマトグラムに妨害を生じないもの

② 標準物質: トルエン, *o*-, *m*-, *p*-キシレン, エチルベンゼン, スチレン, パラジクロロベンゼンおよびテトラデカンは純度 98%以上の JIS 規格試薬特級, またはこれと同等以上のもの

③ 混合標準溶液: 揮発性の低い物質から順に 100 mg を精秤し 100 mL のメスフラスコに入れ, メタノールで 100 mL とし混合標準原液とする (1000 µg/mL)⁴⁾。この混合標準原液をさらにメタノールで希釈し, 100 および 10 µg/mL 溶液を調製する。

④ 内標準物質 (トルエン-*d*₈): 純度 98%以上の JIS 規格試薬特級, またはこれと同等以上のもの

⑤ 内標準溶液: 内標準物質 100 mg を精秤し, メタノールを加えて 100 mL とし内標準原液とする (1000 µg/mL)⁴⁾⁵⁾。この内標準原液をさらにメタノールで希釈し, 100 µg/mL 溶液を調製する。

⑥ 高純度 N₂ ガス: 測定対象物質および内標準物質クロマトグラムに妨害を生じないもの⁶⁾

【装置および器具】① マイクロシリンジ: 容量 1~10 µL または 10~100 µL が量りとれるもの

② 試料採取装置: 試料採取装置は, 捕集管, 流量調節装置, ポンプおよびガスメーターを連結したものからなる。なお, 試料採取環境の湿度が高い場合, 捕集管の前段に除湿管を使用してもよい。試料採取装置に使用する器具類は十分に洗浄して汚染に注意する。また, 試料採取にあたって装置を組み立てたのち, 漏れのないことを確認する。

i) 捕集管: 内径 3~5 mm 程度のガラス製またはステンレス鋼製の管に測定対象物質を吸着・保持し, かつ加熱による脱離を十分に行うことができる粒径 60~80 メッシュ (0.2~0.3 mm) の吸着剤を充てんし, 両端を石英ウールまたはステンレス鋼製金網で押さえたもの, または測定対象物質に対して十分な捕集能力を有するもの⁷⁾。捕集管を清浄にするための前処理として, 加熱炉に捕集

管を装着し, 高純度 N₂ ガスなどを毎分 50 mL 程度で流して捕集管内の空気を十分置換したのち, 高純度 N₂ ガスなどを流したまま 300°C 程度で 2 時間以上加熱洗浄し, 冷

却後, 両端を密栓する。前処理後の捕集管は活性炭入りの密閉できるガラス製または金属製の容器などに保存する。なるべく使用直前に前処理を行う。両端を溶封したものは, 長期間の保存が可能である⁸⁾。

ii) 除湿管: 捕集管と接続できるようなガラス管に過塩素酸マグネシウム約 15 g を充てんし, 両端を石英ウールなどで押さえたもの。両端を密栓し, 使用時まで活性炭入りの密閉容器に保存する⁹⁾。

iii) 流量調節装置: 流量を 2~200 mL/min の範囲で制御でき, 設定流量に対して±10%以内の制御精度を有するもの。または, これと同等以上の性能を有するもの¹⁰⁾

iv) ポンプ: ダイアフラム型などの密閉式のポンプで, 捕集管を付けた状態で 2~200 mL/min の捕集流量が確保できるもの。または, これと同等以上の性能を有するもの¹⁰⁾

v) ガスメーター: 湿式型またはこれと同等以上の性能を有するもので, 積算測定が可能であり, 流量調節装置の流量制御範囲で精度よく作動する性能を有するもの¹⁰⁾

③ 試料導入装置: 試料導入装置の例を図 4.4.5-7 に示す。捕集管の加熱部と, 再捕集部(トラップ部およびクライオフォーカス部, またはそのいずれか)が組み込まれたもの¹¹⁾

試料導入装置の加熱部に装着した捕集管を加熱し, 脱離した測定対象物質を再捕集部で濃縮したのち, 再捕集部を急速に加熱して気化した測定対象物質を GC-MS に直結して導入できる装置であり, キャピラリーカラムの前段に内径 0.5 mm 程度の中空細管, または適当な吸着剤などを充てんした内径 2 mm 以下の細管を取り付け, これらの再捕集部をベルチェ式冷却装置または液体窒素などで-10°C以下に温度制御でき, かつ 80°C/min 程度の昇温速度で急速加熱できるもの, または, これと同等以上の性能を有するもの。さらに, 捕集管の加熱部および, または再捕集部の後段でスプリットができる装置を備えたもの¹²⁾

i) トラップ部: トラップ管とその加熱部からなるもの

a) トラップ管: 加熱した捕集管から脱離してきた測定対象物質を再捕集するもので, 常温あたりから-10~-50°C程度に冷却できるもの¹³⁾, かつ 30~50 mL/min の流量の脱離ガスが確保できるもの

b) 加熱部: 80°C/min 程度の昇温速度で加熱できるもの

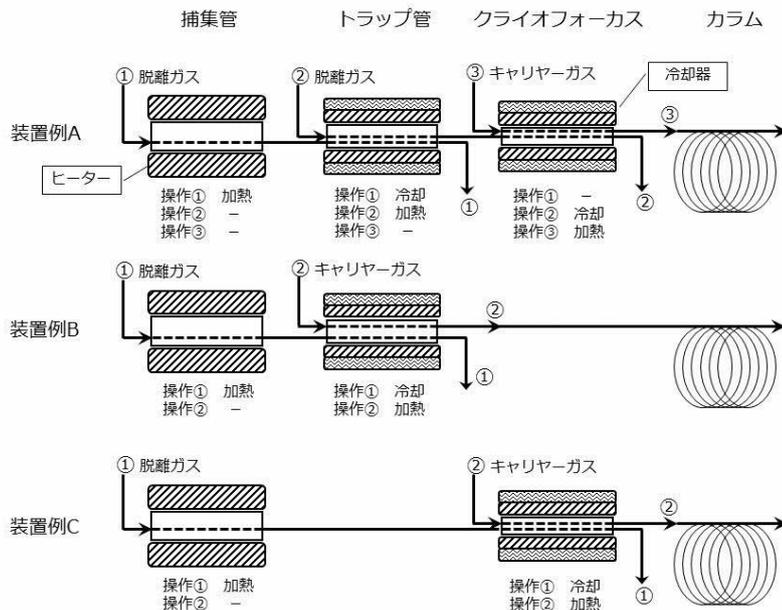


図 4.4.5-7 試料導入装置の例

ii) クライオフォーカス部：クライオフォーカス装置とその加熱部からなるもの

a) クライオフォーカス装置：キャピラリーカラムの前段で中空細管を液体窒素などで冷却して、測定対象物質をクライオフォーカスできるもの

b) 加熱部：250°C/min 程度の昇温速度で急速に加熱できるもの

iii) 試料導入装置の分析条件の設定

試料導入装置の分析条件の一例を以下に示す

脱離温度	: 280°C
脱離時間	: 8 min
脱離ガス	: He
脱離ガス流量	: 50 mL/min
トラップ冷却温度	: -20°C
トラップ加熱温度	: 280°C
トラップ加熱時間	: 5 min
ライン温度	: 250°C
バルブ温度	: 250°C

④ ガスクロマトグラフ/質量分析計¹⁴⁾：☞ 4.4.5 13) (1) [装置および器具] ③ に同じ

【試料の採取】 空気試料の採取は、室内では居間および寝室 2 カ所ならびに室外 1 カ所の計 3 カ所について、それぞれ 2 回ずつ採取する。試料採取後、捕集管はアルミ箔などで遮光したのち、両端を密栓し、活性炭入り保存容器に入れて分析時まで保存する¹⁵⁾¹⁶⁾。

① 室内空気の採取 i) 新築住宅における試料の採取 (おおむね 30 分間採取)：試料採取装置を用い、おおむね 30 分間の採取量が 1~5 L になるように流量を設定して採取する¹⁵⁾¹⁶⁾。 ii) 居住住宅における試料の採取 (24 時間採取)：試料採取装置を用い、24 時間の採取量が 5~20 L になるように流量を設定して採取する¹⁵⁾¹⁶⁾。

② トラベルブランク：トラベルブランク試験用として、加熱洗浄し密栓した捕集管を用い、試料採取操作を除いて、室内空気試料採取用の捕集管と同様に持ち運び、取り扱う。この操作は、1 住宅の室内試料採取において 1 試料以上または一連の試料採取において試料数の 10% 程度の頻度で実施する¹⁷⁾。

③ 2 重測定用捕集管：試料は、室内の 2 カ所および室外 1 カ所ですべてそれぞれ 2 回ずつ (2 併行で) 採取し、2 重測定 (n=2) の意味を持たせる。2 重測定のための試料採取は、1 住宅の室内試料採取において 1 試料または一連の試料採取において試料数の 10% 程度の頻度で行う。

【検量線用混合標準濃度系列捕集管の調製】 ① 混合標準原液 (1000 µg/mL) または混合標準溶液 (100 µg/mL または 10 µg/mL) の適量を 20 mL のメスフラスコに段階的にとり、それぞれに内標準原液 (1000 µg/mL) 2 mL を添加したのちにメタノールを加えて定容とし、検量線用混合標準濃度系列を調製する。

② 検量線用混合標準濃度系列の添加による検量線用捕集管の調製：捕集管を検量線作成用 T 字管に連結し、高純度 N₂ ガスを通気しながら、① で調製した混合標準濃度系列 1~2 µL をマイクロシリンジを用いて注入、または、捕集管に充てんした吸着剤に直接添加したのちに通気する¹⁸⁾。通気は高純度 N₂ ガスを毎分 30~100 mL の流速で 3~5 分間行う。5 段階程度の検量線用混合標準濃度系列捕集管を調製する。

【試験用捕集管の調製】 ① 空気試料試験用捕集管の調製：空気試料を採取した捕集管を検量線作成用 T 字管に連結し、毎分 10~30 mL 程度の高純度 N₂ ガスを流しながら、内標準溶液 (100 µg/mL) 1 µL をマイクロシリンジで注入して捕集管に吸着させる。

② 操作ブランク試験用捕集管の調製：空気試料用の捕

集管と同一の未使用の捕集管について①と同様の操作を一連の操作の中で1回以上行い、操作ブランク試験用捕集管を調製する¹⁹⁾。

③ トラベルブランク試験用および2重測定用捕集管の調製：トラベルブランク試験用および2重測定用の捕集管について①と同様の操作を行い、それぞれトラベルブランク試験用捕集管²⁰⁾および2重測定用捕集管を調製する。

【試験操作】

ガスクロマトグラフィー/質量分析の条件

カラム：キャピラリーカラム，液相 100% dimethylpolysiloxane または，5% phenyl-dimethylpolysiloxane (0.2~0.32 mm i.d. × 25~60 m, 膜厚 0.25~1.5 μm)

カラム温度：40~280℃ (5℃/min, 昇温), 280℃ (4 min)

キャリアーガス²¹⁾ および流量：He, 全流量 1 mL/min

インターフェース温度：250℃

イオン源温度：200℃

イオン化電圧：70 eV

検出器：SIM またはマスクロマトグラフィーができるもの

モニターイオン：

測定対象物質	定量イオン (<i>m/z</i>)	確認イオン (<i>m/z</i>)
トルエン	91	65, 92
<i>o</i> -, <i>m</i> -, <i>p</i> -キシレン	91	105, 106
エチルベンゼン	91	65, 106
スチレン	104	51, 78
パラジクロロベンゼン	146	111, 148
テトラデカン	57	43, 71
トルエン- <i>d</i> ₈	98	70, 100

定 量：試験用捕集管を試料導入装置に装着して前処理を行い，再捕集部の加熱により気化した測定対象物質をGC-MSに導入する。Scan法またはSIM法で各測定対象物質のモニターイオンを測定し，それぞれのイオンのクロマトグラムを記録する。得られたピークの保持時間と各測定対象標準物質の保持時間を比較し，保持時間が一致するピークの面積またはピーク高さを求め，内標準物質のピーク面積またはピーク高さとの比から，あらかじめ作成した検量線より各測定対象物質の重量 (ng) を求める²²⁾。

検量線の作成：各測定対象物質の定量イオンと内標準物質の定量イオンのピーク面積またはピーク高さの強度比を求め，そのピーク面積またはピーク高さの比と各測定対象物質の重量とにより検量線を作成する²³⁾²⁴⁾。

計 算：25℃における空気中の各物質の濃度 (μg/m³) は，次式から求められる²⁵⁾。

$$C \text{ (}\mu\text{g/m}^3\text{)} = \frac{A_s - A_t}{V \times \frac{273 + 25}{273 + t} \times \frac{P}{101.3}}$$

C：25℃における空気中の各測定対象物質の濃度 (μg/m³)

A_s：試料中の各測定対象物質の重量 (ng)²⁶⁾

A_t：各測定対象物質のトラベルブランク値 (ng) 操作ブランク値と同等と見なせる場合は操作ブランク値を用いる²⁷⁾²⁸⁾。

V：空気捕集量 (L)

t：試料採取時の平均の気温 (℃)。湿式型ガスマーターを使用しているときには，ガスマーターの平均水温 (℃)

P：試料採取時の平均大気圧 (kPa)。湿式型ガスマーターの場合には (*P*-*P_w*) を用いる。ここで，*P_w* は試料採取時の平均気温 *t* (℃) での飽和水蒸気圧 (kPa)

【注解】

- 1) 本法はISO16017に対応する (文献1)。
- 2) 居住住宅では，本法と同様の信頼性が確保できる場合，拡散吸着法によって空気試料を採取してもよい。ただし，新築住宅では，試料採取時間が短いため，拡散吸着法を用いた試料採取による測定は困難である。
- 3) 捕集された揮発性有機化合物のほとんどが測定可能である。室内空気中の揮発性有機化合物は濃度範囲が広いので，濃度が高い物質では測定に際して内径の小さいカラムでは過負荷になり，検量線の範囲をはずれるおそれもあるので注意する。
- 4) 試料採取量，濃縮操作およびGC-MSの条件などによって測定感度は異なるので，ここに示した濃度を目安に適宜変えてもよい。また，市販の標準原液 (混合標準原液) を用いてもよい。ただし，精度が保証されているものが望ましい。
- 5) 市販の標準ガスを用いてもよい。ただし精度が保証されているものが望ましい。
- 6) 精製空気を使用してもよい。有機化合物を含有しないことが重要であり，測定対象以外の物質については全炭化水素で0.01 ppm以下，一酸化炭素0.05 ppm以下，二酸化炭素0.3 ppm以下，水分濃度2 ppm以下 (露点-70℃以下) で純度99.999%以上のものが望ましい。
- 7) 市販品には以下のような吸着剤の組み合わせで充てんされているものがある。
Tenax GR + Carbopack B
Carbopack B + Carbosive SIII or Carboxen 1000
Carbopack C + Carbopack B or Carboxen 1000
Tenax TA
- 8) 新しく調製または購入した捕集管は充てんされた吸着剤の耐用温度にて十分前処理したのち，同一の洗浄ロットから少なくとも10%以上の割合でブランク値の測定を行い，目的定量下限値よりも十分低い値であることを確認する。なお，300℃を超える温度で長時間前処理すると炭素の酸化が進み，カーボンモレキュラシーブの性能が変化することがあるので注意する。
- 9) 過塩素酸マグネシウムは元素分析用 (粒径300~700 μm) を用いる。市販の水分除去フィルター (ジーエルサ

イェンス)などを用いてもよい。ただし、測定対象物質の除湿管や石英ウールへの吸着の有無をあらかじめ確認すること

10) 質量流量センサーを内蔵したポンプが市販されている。

11) 試料導入装置には複数のタイプがあり、それぞれに最適条件を設定する。第一は、捕集管が試料導入装置に装着されると流路が確保され、加熱脱離することによりトラップ管にいったん再捕集後、さらにトラップ管を加熱してクライオフォーカスに捕集し、さらに加熱してキャピラリーカラムに導入する方式である。第二には、捕集管が試料導入装置に装着されると流路が確保され、加熱脱離することによりトラップ管またはクライオフォーカスに再捕集したのち、いずれかを加熱してキャピラリーカラムに導入する方式である。

12) ガラス製または熔融シリカ製の中空管または吸着剤を充てんしたトラップ管では冷却を要しない装置もある。また、トラップ管の冷却、加熱条件などは導入装置毎に決定する必要がある。市販の装置ではこれらの条件は提示されている場合が多い。

13) トラップ管には石英などの不活性物質を詰めることもあるが、吸着剤を充てんする場合もある。充てん剤によっては -20°C 程度の低温でも測定対象物質が破過を起こすことがあるので注意する必要がある。

14) 測定対象物質が十分に分離出来れば、カラムの種類および温度条件などは任意に設定してよい。ただし、設定した条件において、測定対象物質のピークが分離し、定量が可能であることをあらかじめ確認する。なお、キシレンは合算値として定量するため *m*-および *p*-キシレンのピークが分離しなくてもよい。

15) ポンプ側および空気取り入れ側を明確にしておく。

16) 試料採取時に湿度が高い場合、〔装置および器具〕②で示した除湿管を使用してもよい。

17) 室外で塗装工事などが行われており、室内より室外での化学物質濃度が高いと考えられる場合は、室内の他に室外におけるトラベルブランクも併せて採取することが望ましい。

18) 試料を添加する場合は、シリンジの針先を捕集管内の吸着剤付近まで差し込むことが望ましい。市販の検量線作成ツール用装置を用いてもよい。

19) 分析環境から試験操作過程で汚染されることがあるので、操作ブランクを一連の測定操作の中で少なくとも1回以上実施する。

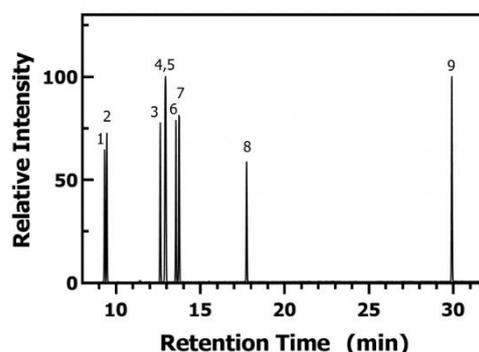
20) 空気試料の測定における一連の過程（準備—装置および器具の運搬—試料採取—持ち帰り—試験用捕集管の調製—測定）において、捕集管が化学物質で汚染された空気に曝露される可能性があるため、試料採取時の記録を参考にして試験の頻度を考慮する。

21) H_2 や N_2 を用いてもよい。また、純度については99.999%以上のものが望ましいが99.999%未満のものを使用する場合は妨害がないことをあらかじめ確認すること

22) 測定した空気試料における定量イオンと確認イオンの強度比が検量線作成時と大きくかけはなれている場

合は、再度標準試料を測定して定量イオンと確認イオンの強度比を算出する。再度測定した標準試料の強度比が検量線作成時の90~110%の範囲内だった場合、空気試料における測定対象物質のピークが何らかの影響を受けている可能性があることから、クロマトグラムのベースライン分離条件などの再検討や、他の分析カラムによる定量を検討する。

23) 図IIにTICクロマトグラムの例を示す。*m*-および *p*-キシレンのピークが分離しない場合、1つのピークとみなして定量してもよいが、検量線における設定濃度（添加量）に留意すること



図II 揮発性有機化合物のTICクロマトグラムの例

1: トルエン-*d*₈, 2: トルエン, 3: エチルベンゼン,
4,5: *m*, *p*-キシレン, 6: スチレン, 7: *o*-キシレン,
8: パラジクロロベンゼン, 9: テトラデカン

24) 室内空気中の測定対象物質の濃度は、その範囲が広いことが予想されるため、定量上限を明確に把握しておくことが必要である。空気試料の測定値が作成した検量線の範囲を超える場合は、諸条件を検討した上で検量線を再度作成し、定量する。

25) 質量流量センサーを内蔵し、 25°C の温度換算機能を有するポンプで空気を捕集する場合は、平均温度で補正する必要はない。

26) 2重測定試験の結果、定量下限値以上の濃度の測定対象物質に対して、測定値平均とそれぞれの測定値の間に $\pm 15\%$ 以上の開きがある場合は、原則欠測扱いとして、その原因をチェックし再度試料採取を行う。

27) 操作ブランク測定は試料測定に先立って行い、操作ブランク値を気中濃度に換算した値が目標定量下限値を超える場合には、再洗浄や機器の調整を行ったのち、再度測定し、操作ブランク値を十分低減してから試料を測定する。

28) 測定対象物質のトラベルブランク値が操作ブランク値と同等（等しいか小さい）とみなせる場合には、移送中の汚染は無視できるものとして試料の測定値から操作ブランク値を差し引いて濃度を計算する。移送中の汚染がある場合には、3試料以上のトラベルブランク値を測定

した時の標準偏差 (s) から求めた定量下限値 (10s: 気中濃度への換算値) が目標定量下限値以下の場合、およびトラベルブランク値による定量下限値が目標定量下限値より大きくても、試料の測定値がトラベルブランク値による定量下限値以上の場合には、試料の測定値からトラベルブランク値を差し引いて濃度を計算する。

移送中の汚染が疑われ、トラベルブランク値による定量下限値が目標定量下限値より大きく、さらに試料の測定値がトラベルブランク値による定量下限値より小さい場合は、原則として欠測扱いとする。この場合、汚染の原因を取り除いたのち、再度試料採取から行う。

文 献

- 1) 厚生労働行政推進調査事業費補助金令和元年度総括・分担研究報告書「室内空気環境汚染化学物質の標準試験法の策定およびリスク低減化に関する研究 (研究代表者: 酒井信夫)」(2020)

4.4.5 有機物質

13) 揮発性有機化合物

(4) 総揮発性有機化合物¹⁾ (新規)

総揮発性有機化合物 (TVOC)²⁾は、捕集管で採取した揮発性有機化合物を無極性のキャピラリーカラムを用いてガスクロマトグラフ/質量分析計で測定した時に、*n*-ヘキサンと *n*-ヘキサデカンの保持時間の範囲内に溶出するピーク面積の合計をトルエン相当量として表した値である。本法は、室内空気中の TVOC の測定に適している³⁾。

【試薬】① メタノール：測定対象物質および内標準物質/サロゲート物質のクロマトグラムに妨害を生じないもの

② 標準物質：i) 定量用標準物質 トルエン

ii) 定性用標準物質⁴⁾ *n*-アルカン類 (*n*-ヘキサン、*n*-ヘプタン、*n*-オクタン、*n*-ノナン、*n*-デカン、*n*-ウンデカン、*n*-ドデカン、*n*-トリデカン、*n*-テトラデカン、*n*-ペンタデカン、*n*-ヘキサデカン)、*o*-キシレン、*m*-キシレン、*p*-キシレン、エチルベンゼン、スチレン、1, 4-ジクロロベンゼン、2-エチル-1-ヘキサノール、2, 2, 4-トリメチル-1, 3-ペンタンジオールモノイソプロピレート、2, 2, 4-トリメチル-1, 3-ペンタンジオールジイソプロピレート

③ 定量用標準溶液：100 mL の全量フラスコにメタノール 50 mL を入れ、トルエン 1 g を正確に量り取り、メタノールで全量を 100 mL として 10 mg/mL 定量用標準原液を調製する⁵⁾。

100 mL の全量フラスコにメタノール 50 mL を入れ、定量用標準原液 10 mL を加え、メタノールで全量を 100 mL として 1000 µg/mL 定量用標準溶液を調製する。この 1000 µg/mL 定量用標準溶液を順次メタノールで希釈して、100 µg/mL、10 µg/mL および 1 µg/mL 定量用標準溶液を調製する。

④ 定性用混合標準溶液：100 mL の全量フラスコにメタノール 50 mL を入れ、定性用標準物質 1 g を正確に量り取り、メタノールで全量を 100 mL として 10 mg/mL 定性用標準原液を調製する。

100 mL の全量フラスコにメタノール 50 mL を入れ、各定性用標準原液 1 mL を加え、メタノールで全量を 100 mL として 100 µg/mL 定性用標準溶液を調製する。

⑤ 内標準物質/サロゲート物質：トルエン-*d*₈

⑥ 内標準/サロゲート溶液：100 mL の全量フラスコにメタノール 50 mL を入れ、トルエン-*d*₈ 1 g を正確に量り取り、メタノールで全量を 100 mL として 10 mg/mL 内標準/サロゲート原液を調製する。100 mL の全量フラスコにメタノール 50 mL を入れ、内標準/サロゲート原液 10 mL を加え、メタノールで全量を 100 mL として 1000 µg/mL 内標準/サロゲート溶液を調製する。この 1000 µg/mL 内標準/サロゲート溶液をメタノールで希釈して、100 µg/mL 内標準/サロゲート溶液を調製する。

⑦ 高純度 N₂ ガス：測定対象物質、内標準物質およびサロゲート物質のクロマトグラムに妨害を生じないもの

【装置および器具】① マイクロシリンジ：容量 1~5

µL、1~10 µL または 10~100 µL が量りとれるもの

② 試料採取装置：捕集管、流量調節装置、ポンプおよ

びガスメーターを連結したもの⁶⁾。試料採取装置の例を図 4.4.5-8 に示す。

i) 捕集管：外径 6.4 mm、長さ 89 mm のガラス管またはステンレス管に、粒径 0.18~0.25 mm (60~80 メッシュ) の多孔質ポリマー (ポリ (2, 6-ジフェニル-1, 4-フェニレンオキシド) 200 mg を充てんし、不活性処理したガラスウールまたはステンレスステンレス鋼製金網で両端を固定したもの⁷⁾

ii) 流量調節装置：流量を 2~10 mL/min の範囲で制御でき、設定流量に対して±10%以内の制御精度を有する精密ニードルバルブ付流量計またはマスフローコントローラー。または、これらと同等以上の性能を有するもの⁸⁾

iii) ポンプ：ダイヤフラム型等の密閉式のポンプで、流量調節装置の制御範囲の流量を確保でき、かつ低流量でも安定して作動する性能を有するもの⁹⁾

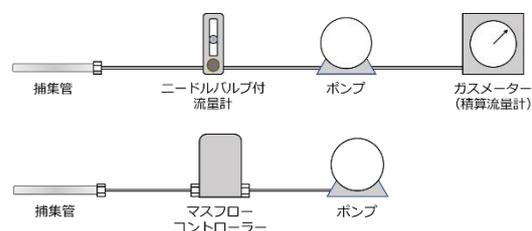


図 4.4.5-8 試料採取装置の例

iv) ガスメーター：積算流量の測定が可能な湿式ガスメーターで、流量調節装置の流量制御範囲で精度よく作動する性能を有するもの。または、これと同等以上の性能を有するもの

③ 試料導入装置：捕集管加熱部、再捕集部 (冷却トラップ・加熱部またはクライオフォーカス・加熱部、もしくはその両方) およびスプリット装置を備えたもの¹⁰⁾

i) 捕集管加熱部 試料導入装置に装着された捕集管に不活性ガス (He) を流しながら加熱し、脱離した揮発性有機化合物を不活性ガス (He) とともに再捕集部に導入する。

ii) 再捕集部 (冷却トラップ・加熱部) 吸着剤 (Tenax® TA) 等を充てんした内径 2 mm 以下のトラップ管を -10°C 以下に冷却し、揮発性有機化合物を再捕集する。ついで、トラップ管を 80°C/min 以上の昇温速度で急速に加熱して、気化した揮発性有機化合物をスプリット装置に通し、一部をガスクロマトグラフ/質量分析計に導入する。

iii) 再捕集部 (クライオフォーカス・加熱部) 内径 0.5 mm 程度の中空細管を液体窒素等で -100°C 以下に冷却し、揮発性有機化合物をクライオフォーカスする。中空細管を 250°C/min 以上の昇温速度で急速に加熱して、気化した揮発性有機化合物をスプリット装置に通し、一部をガスクロマトグラフ/質量分析計に導入する。

④ ガスクロマトグラフ/質量分析計¹¹⁾¹²⁾：☞ 4.4.5 13)

(1) 【装置および器具】③ に同じ

【試料の採取】① 捕集管の前処理：試料採取に使用する前に、捕集管を清浄にするための前処理を行う。捕集管に 50 mL/min 程度の流速で高純度 N₂ ガスを流しながら、100°C で 30 分間、ついで 300°C で 2 時間以上加熱処

理し、捕集管に残存する可能性のある揮発性有機化合物を除去する。100°C以下に冷却したのちに、捕集管の両端をポリテトラフルオロエチレン (PTFE) フェルール付き金属スクリューキャップで密栓し、粒状活性炭を入れたステンレス製容器で保管する。

前処理済捕集管の一部について TVOC の測定を行い、前処理が適切に行われていることを確認する。

② 試料採取：i) 室内空気の採取^{13)~15)}

居住居における空気試料の採取は、居間および寝室で 24 時間採取する。捕集管を部屋の中央付近、高さ 1.2~1.5m の位置に設置し、試料採取装置を用いて、24 時間の採取量が 3 L 以下になるように流速を設定して採取する。空気試料を採取した捕集管は、両端を密栓し、加熱脱離ガスクロマトグラフィー/質量分析を行うまで粒状活性炭を入れたステンレス製容器で保存する。

ii) 2 重測定用の試料採取

室内空気の採取時に、常時、2 本以上の捕集管を用いて同時採取を行い、並行測定および 2 重測定用捕集管として使用する。2 重測定用の試料採取は、1 居住居の室内試料採取において 1 試料、または一連の試料採取において、試料数の 10% 程度の頻度で行う。

iii) トラベルブランク¹⁶⁾

密栓した前処理済捕集管を、試料採取操作を行わないこと以外は空気試料採取用の捕集管と同様に持ち運び、トラベルブランク試験用捕集管とする。この操作は、居住居ごとに 1 試料以上、または一連の試料採取において、試料数の 10% 程度の頻度で実施する。

【試験操作】① 検量線用捕集管の調製：

検量線作成用捕集管を検量線作成用 T 字管に接続し、30~50 mL/min の流速で高純度 N₂ ガスを流しながら、マイクロシリンジを用いて 1 μg/mL, 10 μg/mL, 40 μg/mL, 100 μg/mL, 400 μg/mL, または 1000 μg/mL 定量用標準溶液 1 μL を注入する¹⁷⁾。高純度 N₂ ガスを 3~5 分間通気したのちに、捕集管を取り外し、密栓する¹⁸⁾。

② 内標準物質の添加：試料を採取した捕集管、トラベルブランク試験用捕集管、または検量線作成用捕集管を検量線作成用 T 字管に接続し、30~50 mL/min の流速で高純度 N₂ ガスを流しながら、マイクロシリンジを用いて 100 μg/mL 内標準溶液 1 μL を注入する。高純度 N₂ ガスを 3~5 分間通気したのちに、捕集管を取り外し、密栓する¹⁹⁾。

③ 操作ブランク試験用捕集管の調製：空気試料用の捕集管と同一の未使用の捕集管について②と同様の操作を一連の操作の中で 1 回以上行い、操作ブランク試験用捕集管を調製する²⁰⁾。

④ 加熱脱離ガスクロマトグラフィー/質量分析測定²¹⁾：内標準物質を負荷した捕集管を試料導入装置に装着し、キャリアーガスを流しながら捕集管を加熱する。加熱脱離した揮発性有機化合物をあらかじめ冷却したトラップで再捕集したのちに、トラップを急速に加熱し、気化した揮発性有機化合物をスプリットしてガスクロマトグラフに導入する。

試料導入装置の分析条件の一例を以下に示す。

捕集管加熱温度 : 280°C

パージ流量 : 50 mL/min, 8 min

キャリアーガス : He

トラップ温度 : -20°C

トラップ加熱温度 : 280°C, 5 min

ライン温度 : 250°C

バルブ温度 : 250°C

ガスクロマトグラフィー/質量分析の分析条件の一例を以下に示す。

カラム：キャピラリーカラム (0.2~0.32 mm i.d. × 25~60 m, 膜厚 0.25~1.5 μm)

液相：ジメチルポリシロキサンまたは 5% フェニル-ジメチルポリシロキサン

カラム温度：40°C - (5°C/min, 昇温) - 280°C (4 min)

スプリット比：1 : 5 ~ 1 : 20

キャリアーガスおよび流量：He, 40 cm/sec (線速度一定) または、1 mL/min (流量一定)

インターフェース温度：250°C

イオン源温度：200°C

スキャン範囲：35~400 m/z, 2~10 Scans/sec

定 量²²⁾²³⁾：Scan 法で測定した質量分析のトータルイオンクロマトグラムの波形処理して、*n*-ヘキサンから *n*-ヘキサデカンとの間の保持時間に溶出するピークの面積を積算する。

トルエンのピーク面積で作成した検量線をもとに、各ピーク的面積をトルエン換算値として表す。

検量線の作成：トルエンと内標準物質 (トルエン-*d*₈) のピーク面積比を求め、トルエンの負荷量とピーク面積比をもとに検量線を作成する。

計 算：25°C における室内空気中の TVOC 濃度 (μg トルエン相当量/m³) は、次式から求められる。

$$C = \frac{A_s - A_t}{V \times \frac{273 + 25}{273 + t} \times \frac{P}{101.3}}$$

C：25°C における室内空気中の TVOC 濃度 (μg トルエン相当量/m³)

A_s：試料採取捕集管中の TVOC 量 (ng トルエン相当量)

A_t：トラベルブランク又は操作ブランク捕集管中の TVOC 量 (ng トルエン相当量)²⁴⁾²⁵⁾

V：試料採取量 (L)

t：試料採取時の平均の気温 (°C)。湿式型ガスメーターを使用しているときには、ガスメーターの平均水温 (°C)

P：試料採取時の平均大気圧 (kPa)。湿式型ガスメーターの場合には (*P* - *P_w*) を用いる。*P_w* は試料採取時の平均気温 *t* (°C) における飽和水蒸気圧 (kPa)

定 性²⁶⁾²⁷⁾：定性用標準物質の保持時間とマスペクトルから、試料の主要なピークについて定性を行う。

【注解】

1) 本法は ISO 16000-6:2021 に対応する。

2) WHO の定義では、揮発性有機化合物 (VOC; Volatile

Organic Compound)は沸点が50°Cないし100°Cから240°Cないし260°Cの範囲の化合物である。一方、TVOCは、ガスクロマトグラフィー/質量分析において*n*-ヘキサン(沸点69°C)から*n*-ヘキサデカン(沸点287°C)の間に溶出するVOCの総和であり、わが国では室内空気質の総合的な指標として400 µg/m³の暫定目標値が定められている。

3) 捕集された揮発性有機化合物のほとんどが測定可能である。室内空気中の揮発性有機化合物は濃度範囲が広いので、濃度が高い物質では測定に際して内径の小さいカラムでは過負荷になり、検量線の範囲をはずれるおそれもあるので注意する。

4) TVOCを構成する化合物のうち、1/2程度の化合物を同定できるように、定性用標準物質を適宜追加すると良い。

日本の室内空気中で高頻度に検出されるTVOC構成成分として、次のVOCが報告されている(文献1)。

n-アルカン類(11物質): *n*-ヘキサン, *n*-ヘプタン, *n*-オクタン, *n*-ノナン, *n*-デカン, *n*-ウンデカン, *n*-ドデカン, *n*-トリデカン, *n*-テトラデカン, *n*-ペンタデカン, *n*-ヘキサデカン

芳香族炭化水素類(5物質): *o*-キシレン, *m*-キシレン, *p*-キシレン, エチルベンゼン, スチレン

塩素化炭化水素類(4物質): 1, 4-ジクロロベンゼン, トリクロロエチレン, テトラクロロエチレン, クロロホルム

アルコール類・エステル類(4物質): 2-エチル-1-ヘキサノール, 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, 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, 酢酸エチル

グリコール類・グリコールエーテル類(4物質): 1, 3-ブタンジオール, プロピレングリコール 1-モノメチルエーテル, ジプロピレングリコール, ジプロピレングリコールモノメチルエーテル

環状シロキサン類(2物質): オクタメチルシクロテトラシロキサン, デカメチルシクロペンタシロキサン

テルペン類(4物質): *d*-リモネン, メントール, α -ピネン, β -ピネン

5) 試料採取量、濃縮操作およびガスクロマトグラフィー/質量分析の条件などによって測定感度は異なるので、ここに示した濃度を目安に適宜変えてもよい。また、市販の標準原液(混合標準原液)を用いてもよい。ただし、精度が保証されているものが望ましい。

6) 基本的な構成では、捕集管の後段に体積流量を調節するニードルバルブ付流量計、ポンプおよびガスメーターを、ポリテトラフルオロエチレン(PTFE)チューブなどを用いて接続する。湿式ガスメーターを用いる場合には、採取時の平均気温および気圧を記録する必要がある。一方、流量調節装置として流量積算機能を備えたマスフローコントローラーを用いる場合には、ガスメーターは不要である。

7) 新しく調製または購入した捕集管は充てんされた吸着剤の耐用温度にて十分前処理したのち、同一の洗浄ロットから少なくとも10%以上の割合でブランク値の測定を行い、目的定量下限値よりも十分低い値であることを

確認する。

8) マスフローコントローラーの流量単位は、SSCM(Standard Square Centimeter per Minute)あるいはSLM(Standard Litter per Minute)と標記され、単位時間に流れる0°C, 1 atmの標準空気の体積を表している。ただし、装置によって標準とされる空気の温度が異なる場合があるため、あらかじめ確認する必要がある。

9) 質量流量2 mL/minを正確、かつ精密に制御できるもの。あるいは、質量流量10 mL/minを精密に制御でき、かつ一定間隔で作動・停止を繰り返すようプログラムができるもの。いずれも、流量を積算する機能を有するものが望ましい。利用できるポンプとしてSP209-20 Dual II(ジーエルサイエンス)が市販されている。

10) 試料導入装置には複数のタイプがあり、それぞれに最適条件を設定する。第一は、捕集管が試料導入装置に装着されると流路が確保され、加熱脱離することによりトラップ管にいったん再捕集後、さらにトラップ管を加熱してクライオフォーカスに捕集し、さらに加熱してキャピラリーカラムに導入する方式である。第二には、捕集管が試料導入装置に装着されると流路が確保され、加熱脱離することによりトラップ管またはクライオフォーカスに再捕集したのち、いずれかを加熱してキャピラリーカラムに導入する方式である。

11) 測定対象物質が十分に分離出来れば、カラムの種類および温度条件などは任意に設定してよい。

12) キャリヤーガスはHe(純度99.999%(v/v)以上)を用いるのが望ましいが、H₂やN₂を用いてもよい。0.5 ngのトルエンを検出できる純度であることが望ましい。

13) Tenax® TA 200 mgを充填した捕集管での*n*-ヘキサンの安全試料採取量(SSV; Safe Sampling Volume)は約3 Lである。したがって、居住住居において日常生活を営みながら24時間試料を採取する場合、2 mL/min程度の極めて低い流速で採取する必要がある。一方、短時間(30分)で試料を採取する場合は、制御範囲100~200 mL/minの流量調節装置を用いて試料を採取することもできる。

14) 試料採取時の流速が極端に低い場合、分子拡散によって捕集されるVOCの影響が無視できない。このような場合、捕集管の吸気側にポリ・エーテル・エーテル・ケトン(PEEK)製の細管(外径0.8 mm, 長さ約30 cm)を接続することによって、分子拡散による汚染を抑制することができる。また、両端にインサートを挿入し、捕集管の末端から充填した吸着剤までの拡散距離を大きくしたSafeLok™捕集管(Markes International社)も利用できる。

15) 低流速での連続採取のほか、10 mL/min程度の流速で間欠的にポンプを作動させてもよい。一例として、10 mL/minで6分間ポンプを作動させたのちに、24分間停止させるサイクルを48回繰り返すことで2.88 Lの試料を採取する。利用できるポンプとしてパーソナルミニポンプPMP-001(柴田科学)が市販されている。

16) トラベルブランク値の測定は一連の測定において少なくとも3試料行うこととしているが、この3試料の測定結果に大きなばらつきが認められ、そのまま差し引くことによって測定結果に対して大きな誤差を与えることが示唆される場合には、統計的に妥当と考えられ得る

24) 操作ブランク測定は試料測定に先立って行い、操作ブランク値を気中濃度に換算した値が目標定量下限値を超える場合には、再洗浄や機器の調整を行ったのち、再度測定し、操作ブランク値を十分低減してから試料を測定する。

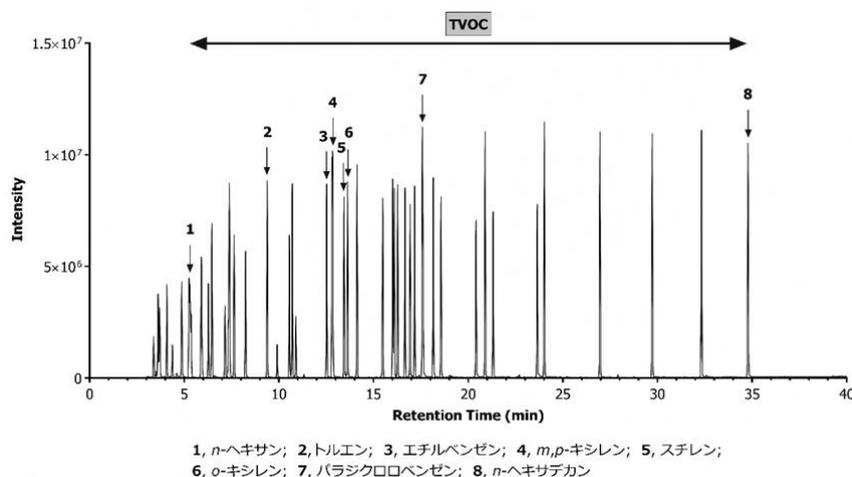


図 I 揮発性有機化合物のトータルイオンクロマトグラムの例

必要な数のトラベルブランク試験を行うことが望ましい。また、室外で塗装工事などが行われており、室内より室外での化学物質濃度が高いと考えられる場合は、室内の他に室外におけるトラベルブランクも併せて採取することが望ましい。

17) 試料を添加する場合は、シリンジの針先を捕集管内の吸着剤付近まで差し込むことが望ましい。市販の検量線作成装置を用いてもよい。

18) 既知濃度のトルエンを含む標準空気を捕集管に通して検量線用捕集管を調整してもよい。

19) 分析装置による内部標準液の自動添加機能を用いてもよい。

20) 分析環境から試験操作過程で汚染されることがあるので、操作ブランクを一連の測定操作の中で少なくとも1回以上実施する。

21) 質量分析計の種類によって、同一の化合物でもマスパターン、すなわちフラグメントイオンの強度比が異なるため、TVOCの測定を行う場合は、磁場型質量分析計のマスパターンに一致させるよう装置を校正する必要がある。この校正方法には、機器のメーカーによって、「マスパターン調整」あるいは「標準スペクトルチューニング」などの名称がある。

22) 揮発性有機化合物のトータルイオンクロマトグラムの一例を図 I 示す。

23) トータルイオンクロマトグラムの主要な10本のピーク、または $2 \mu\text{g}$ トルエン相当量/ m^3 以上の濃度のピークについて同定を行う。

25) トラベルブランク値が操作ブランク値と同等（等しいか小さい）とみなせる場合には、移送中の汚染は無視できるものとして試料の測定値から操作ブランク値を差し引いて濃度を計算する。移送中の汚染がある場合には、3試料以上のトラベルブランク値を測定した時の標準偏差 (σ) から求めた定量下限値 (10σ : 気中濃度への換算値) が目標定量下限値以下の場合、およびトラベルブランク値による定量下限値が目標定量下限値より大きくても、試料の測定値がトラベルブランク値による定量下限値以上の場合には、試料の測定値からトラベルブランク値を差し引いて濃度を計算する。

移送中の汚染が疑われ、トラベルブランク値による定量下限値が目標定量下限値より大きく、さらに試料の測定値がトラベルブランク値による定量下限値より小さい場合は、原則として欠測扱いとする。この場合、汚染の原因を取り除いたのち、再度試料採取から行う。

26) 定性には、NIST/EPA/NIH マススペクトルライブラリー、Wiley Registry などのスペクトルライブラリーを用いることもできる。また、各ピークの保持時間をもとに Kovats の保持指標 (RI; Retention Index) を算出し、ライブラリーの RI 値と比較することによって定性の精度を向上させることができる。

27) 不分離ピークの定性の精度を向上させる方法として、デコンボリューション解析がある。NIST (National Institute of Standards and Technology) 製 AMDIS や SpectralWorks 社製 AnalyzerPro XD などのソフトウェアがある。

文 献

- 1) 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）（H30－化学－指定－002）「室内空気環境汚染化学物質の標準試験法の策定およびリスク低減化に関する研究（研究代表者：酒井信夫）」平成30年度～令和2年度総合研究報告書

22) フタル酸ジ-*n*-ブチルおよびフタル酸ジ-2-エチルヘキシル

(1) ガスクロマトグラフィー/質量分析法による定量 項目名を下記に改訂

(1) 固相吸着-溶媒抽出-ガスクロマトグラフィー/質量分析法による定量

(2) 固相吸着-加熱脱離-ガスクロマトグラフィー/質量分析法による定量¹⁾ (新規)

フタル酸ジ-*n*-ブチル (DBP) およびフタル酸ジ-2-エチルヘキシル (DEHP) による室内空気汚染を把握するための測定に適した方法である。吸着剤を充てんした捕集管に室内空気または外気を一定流量で吸引し、測定対象物質を捕集する。捕集管を試料導入装置(加熱脱離装置)に装着し、加熱により気化した測定対象物質をキャピラリーカラムに導入してガスクロマトグラフ/質量分析計により分離、定量する²⁾。

【試 薬】 ① アセトン: 残留農薬試験用³⁾。測定対象物質および内標準物質のクロマトグラムに妨害を生じないもの

② 標準品: DBP: フタル酸エステル試験用, DEHP: フタル酸エステル試験用

③ 標準溶液: 100 mL 全量フラスコにフタル酸エステル標準品 100 mg を精秤し、アセトンを加えて 100 mL とし、個々の標準原液を調製する(最終濃度 1000 µg/mL)。次に各標準原液のそれぞれの一定量 (2 mL) を全量フラスコ (20 mL) にとり、アセトンを用いて 10 倍に希釈する(最終濃度 100 µg/mL)^{4) 5)}。

④ 内標準物質 (DBP-*d*₄, DEHP-*d*₄): 純度 98%以上の JIS 規格試薬特級、またはこれと同等以上のもの

⑤ 内標準溶液: 100 mL 全量フラスコに内標準物質 100 mg を精秤し、アセトンを加えて 100 mL とし内標準原液とする。各内標準原液のそれぞれの一定量 (1 mL) を全量フラスコ (10 mL) にとり、アセトンを用いて 10 倍に希釈する(最終濃度 100 µg/mL)⁴⁾。

⑥ 高純度 N₂ ガス: 測定対象物質および内標準物質クロマトグラムに妨害を生じないもの⁶⁾

【装置および器具】 ① マイクロシリンジ: 容量 1~10 µL が量りとれるもの⁴⁾

② 試料採取装置: 試料採取装置は、捕集管、流量調節装置、ポンプおよびガスメーターを連結したものである。試料採取装置に使用する器具類は十分に洗浄して汚染に注意する。また、試料採取にあたって装置を組み立てたのち、漏れのないことを確認する。

i) 捕集管: 内径 3~5 mm 程度のガラス製またはステンレス鋼製の管に測定対象物質を吸着・保持し、かつ加熱による脱離を十分にすることができる粒径 60~80 メッシュ (0.2~0.3 mm) の吸着剤を充てんし、両端を石英ウールまたはステンレス鋼製金網で押さえたもの、または測定対象物質に対して十分な捕集能力を有するもの⁷⁾。捕集管を清浄にするための前処理として、加熱炉に捕集管を装着し、高純度 N₂ ガスなどを 50~100 mL/min の流速で 10 分間程度流して捕集管内の空気を十分置換したのち、高純度 N₂ ガスなどを流したまま 300°C 程度で 2 時間以上加熱洗浄し、冷却後、両端を密栓する。前処理後の

捕集管は活性炭入りの密閉できるガラス製または金属製の容器などに保存する。なるべく使用直前に前処理を行う。両端を溶封したものは、長期間の保存が可能である⁸⁾。

ii) 流量調節装置: 流量を 2~200 mL/min の範囲で制御でき、設定流量に対して±10%以内の制御精度を有するもの。または、これと同等以上の性能を有するもの⁹⁾

iii) ポンプ: ダイアフラム型などの密閉式のポンプで、捕集管を付けた状態で 2~200 mL/min の捕集流量が確保できるもの。または、これと同等以上の性能を有するもの⁹⁾

iv) ガスメーター: 湿式型またはこれと同等以上の性能を有するもので、積算測定が可能であり、流量調節装置の流量制御範囲で精度よく作動する性能を有するもの⁹⁾

③ 試料導入装置: 試料導入装置の例を図 4.4.5-10 に示す。捕集管の加熱部と、再捕集部 (トラップ部およびクライオフォーカス部、またはそのいずれか) が組み込まれたもの¹⁰⁾

試料導入装置の加熱部に装着した捕集管を加熱し、脱離した測定対象物質を再捕集部で濃縮したのち、再捕集部を急速に加熱して気化した測定対象物質をガスクロマトグラフ/質量分析計に直結して導入できる装置であり、キャピラリーカラムの前段に内径 0.5 mm 程度の中空細管、または適当な吸着剤などを充てんした内径 2 mm 以下の細管を取り付け、これらの再捕集部をペルチェ式冷却装置または液体窒素などで-10°C以下に温度制御でき、かつ 80°C/min 程度の昇温速度で急速加熱できるもの、または、これと同等以上の性能を有するもの。さらに、捕集管の加熱部および、または再捕集部の後段でスプリットができる装置を備えたもの¹¹⁾

i) トラップ部: トラップ管とその加熱部からなるもの

a) トラップ管: 加熱した捕集管から脱離してきた測定対象物質を再捕集するもので、常温あたりから-10~-50°C程度に冷却できるもの¹²⁾、かつ 30~50 mL/min の流量の脱離ガスが確保できるもの

b) 加熱部: 80°C/min 程度の昇温速度で加熱できるもの

ii) クライオフォーカス部: クライオフォーカス装置とその加熱部からなるもの

a) クライオフォーカス装置: キャピラリーカラムの前段で中空細管を液体窒素などで冷却して、測定対象物質をクライオフォーカスできるもの

b) 加熱部: 250°C/min 程度の昇温速度で急速に加熱できるもの

iii) 試料導入装置の分析条件の設定

試料導入装置の分析条件の一例を以下に示す

脱離温度	: 280°C
脱離時間	: 10 min
脱離ガス	: He
脱離ガス流量	: 30 mL/min
トラップ冷却温度	: 5°C
トラップ加熱温度	: 280°C
トラップ加熱時間	: 20 min
ライン温度	: 290°C
バルブ温度	: 280°C

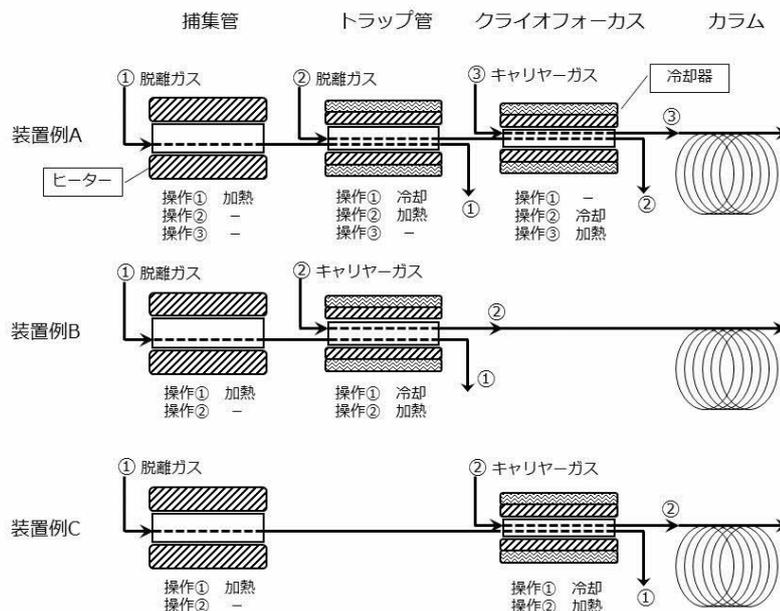


図 4.4.5-10 試料導入装置の例

④ ガスクロマトグラフ/質量分析計¹³⁾：☞ 4.4.5 13) (1) [装置および器具] ③ に同じ

【試料の採取】 空気試料の採取は、室内では居間および寝室 2 カ所ならびに室外 1 カ所の計 3 カ所について、それぞれ 2 回ずつ採取する。試料採取後、捕集管はアルミ箔などで遮光したのち、両端を密栓し、活性炭入り保存容器に入れて分析時まで保存する^{14) 15)}。

① 室内空気の採取 i) 新築住宅における試料の採取 (おおむね 30 分間採取)：試料採取装置を用い、おおむね 30 分間の採取量が 3~6 L になるように流量を 100~200 mL/min 程度に設定して採取する。ii) 居住住宅における試料の採取 (24 時間採取)：試料採取装置を用い、24 時間の採取量が 14~144 L になるように流量を 10~100 mL/min 程度に設定して採取する。

② トラベルブランク：トラベルブランク試験用として、加熱洗浄し密栓した捕集管を用い、試料採取操作を除いて、室内空気試料採取用の捕集管と同様に持ち運び、取り扱う。この操作は、1 住宅の室内試料採取において 1 試料以上または一連の試料採取において試料数の 10% 程度の頻度で実施する。

③ 2 重測定用捕集管：試料は、室内の 2 カ所および室外 1 カ所でそれぞれ 2 回ずつ (2 併行で) 採取し、2 重測定 (n=2) の意味を持たせる。2 重測定のための試料採取は、1 住宅の室内試料採取において 1 試料または一連の試料採取において試料数の 10% 程度の頻度で行う。

【検量線用混合標準濃度系列捕集管の調製】 ① 混合標準原液 (1000 μg/mL) または混合標準液 (100 μg/mL または 10 μg/mL) の適量を 20 mL 全量フラスコに段階的にとり、それぞれに内標準原溶液 (1000 μg/mL) 2 mL を添

加したのちにアセトンを加えて定容とし、検量線用混合標準濃度系列を調製する。

② 検量線用混合標準濃度系列の添加による検量線用捕集管の調製：捕集管を検量線作成用 T 字管に連結し、高純度 N₂ ガスを通気しながら、① で調製した混合標準濃度系列 1 μL をマイクロシリンジを用いて注入、または、捕集管に充てんした吸着剤に直接添加したのちに通気する¹⁶⁾。通気は高純度 N₂ ガスを毎分 30~100 mL の流速で 3~5 分間行う。5 段階程度の検量線用混合標準濃度系列捕集管を調製する。

【試験用捕集管の調製】 ① 空気試料試験用捕集管の調製：空気試料を採取した捕集管を検量線作成用 T 字管に連結し、毎分 10~30 mL 程度の高純度 N₂ ガスを流しながら、内標準溶液 (100 μg/mL) 1 μL をマイクロシリンジで注入して捕集管に吸着させる。

② 操作ブランク試験用捕集管の調製：空気試料用の捕集管と同一の未使用の捕集管について①と同様の操作を一連の操作の中で 1 回以上行い、操作ブランク試験用捕集管を調製する¹⁷⁾。

③ トラベルブランク試験用および 2 重測定用捕集管の調製：トラベルブランク試験用および 2 重測定用の捕集管について①と同様の操作を行い、それぞれトラベルブランク試験用捕集管¹⁸⁾および 2 重測定用捕集管を調製する。

【試験操作】

ガスクロマトグラフィー/質量分析条件の一例

カラム : キャピラリーカラム, 5% diphenylpolysiloxane + 95% dimethylpolysiloxane (0.18 mm i.d. × 20 m, 膜厚 0.4 μm)

カラム温度: 70°C (1 min), 70~300°C (20°C/min, 昇温), 300°C (8 min)

キャリアーガス¹⁹⁾および流量: He, 全流量 1 mL/min

インターフェース温度: 280°C

イオン源温度: 250°C

イオン化電圧: 70 eV

検出器: 選択イオン検出 (SIM) またはマスクロマトグラフィが可能なもの

モニターイオンの一例:

測定対象物質	定量イオン (m/z)	確認イオン (m/z)
DBP	149	205, 223
DEHP	149	167, 279
DBP- <i>d</i> ₄	153	208, 227
DEHP- <i>d</i> ₄	153	171, 283

定 量: 試験用捕集管を試料導入装置に装着して前処理を行い、再捕集部の加熱により気化した測定対象物質をガスクロマトグラフ/質量分析計に導入する。全イオン検出法または SIM 法で各測定対象物質のモニターイオンを測定し、それぞれのイオンのクロマトグラムを記録する。得られたピークの保持時間と各測定対象標準物質の保持時間を比較し、保持時間が一致するピークの面積またはピーク高さを求め、内標準物質のピーク面積またはピーク高さとの比から、あらかじめ作成した検量線より各測定対象物質の重量 (ng) を求める²⁰⁾。

検量線の作成: 各測定対象物質の定量用質量数と内標準物質の定量用質量数のピーク面積またはピーク高さの強度比を求め、そのピーク面積またはピーク高さの比と各測定対象物質の濃度とにより検量線を作成する²¹⁾。

計 算: 25°Cにおける空気中の各物質の濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) は、次式から求められる²²⁾。

$$C (\mu\text{g}/\text{m}^3) = \frac{A_s - A_t}{V \times \frac{273 + 25}{273 + t} \times \frac{P}{101.3}}$$

C : 25°Cにおける空気中の各測定対象物質の濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)

A_s : 試料中の各測定対象物質の重量 (ng)²³⁾

A_t : 各測定対象物質のトラベルブランク値 (ng)。操作ブランク値と同等と見なせる場合は操作ブランク値を用いる^{24) 25)}。

V : 空気捕集量 (L)

t : 試料採取時の平均の気温 (°C)。湿式型ガスメーターを使用しているときには、ガスメーターの平均水温 (°C)

P : 試料採取時の平均大気圧 (kPa)。湿式型ガスメーターの場合には (P-P_w) を用いる。ここで、P_w は試料採取時の平均気温 t (°C) での飽和水蒸気圧 (kPa)

【注解】 _____

1) 本法は ISO 16000-6:2021 に対応する。

2) 本法は採取試料の前処理に溶媒を用いないため、前処理操作における溶媒や雰囲気等からの汚染を受けにく

いという利点がある。一方、測定対象のフタル酸エステル類は高沸点で吸着を起こしやすい性質を持つため、試料導入装置内への吸着やクロスコンタミネーションに留意する必要がある。装置内吸着については、分析での待機時間が長くなると空気中フタル酸エステル類の吸着が増加するため、試料の測定前には加熱洗浄した清浄な捕集管を複数本測定しブランクを低減させるとよい。クロスコンタミネーション防止のためには、高濃度の標準物質および試料を測定した後は、加熱洗浄した清浄な捕集管を測定するとよい。

3) 試験に使用するアセトンは容量 1 L 以下のものを用いる。開封後は、時間経過に伴ってフタル酸エステル類のブランクが増加するため、開封後の使用期間はおおむね 2 週間とする。洗浄用のアセトンは、容量 3 L のものを用いる。洗浄に使用したアセトンは回収して、繰り返し使用できる。使用開始から、おおむね約 1 か月間は使用可能である。

4) DBP および DEHP は、多様なプラスチック製品に含まれているため、試験に使用する器具はガラス製、金属製または四フッ化エチレン樹脂 (テフロン) 製とする。周囲からの汚染を防ぐ対策として、器具類は残留農薬分析用のアセトン等で超音波洗浄し、金属製のかごやアルミホイル等の上で乾燥させるか、もしくは高温で加熱し清浄にする。使用直前までアルミホイルで覆うなどして、雰囲気からの汚染を防ぐ。清浄後は、試験溶液が触れる部分には手を触れず、ピンセット等を用いる。

5) 市販のフタル酸エステル類混合標準液 (100 $\mu\text{g}/\text{mL}$) を希釈して調製しても良い (たとえば、富士フィルム和光純薬 8 種フタル酸エステル混合標準液、関東化学 フタル酸エステル類混合標準液 (9 種))。

6) 捕集管の加熱洗浄および調製に使用する。有機化合物を含有しないことが重要であり、測定対象以外の物質については全炭化水素で 0.01 ppm 以下、一酸化炭素 0.05 ppm 以下、二酸化炭素 0.3 ppm 以下、水分濃度 2 ppm 以下 (露点 -70°C 以下) で純度 99.999% 以上のものが望ましい。

7) 市販品には以下のような吸着剤の組み合わせで充てんされているものがある。

Tenax[®] GR + Carboxen[™] B

Carboxen[™] B + Carboxen[®] S-III or Carboxen[®] 1000

Carboxen[™] C + Carboxen[™] B or Carboxen[®] 1000

Tenax[®] TA

8) 新しく調製または購入した捕集管は充てんされた吸着剤の耐用温度にて十分前処理したのち、同一の洗浄ロットから少なくとも 10% 以上の割合でブランク値の測定を行い、目的定量下限値よりも十分低い値であることを確認する。なお、300°C を超える温度で長時間空焼きすると炭素の酸化が進み、カーボンモレキュラシーブの性能が変化することがあるので注意する。

9) 質量流量センサーを内蔵し、流量積算機能を備えたポンプを使用してもよい。

10) 試料導入装置には複数のタイプがあり、それぞれに最適条件を設定する。第一は、捕集管が試料導入装置

に装着されると流路が確保され、加熱して脱離することによりトラップ管にいったん再捕集後、さらにトラップ管を加熱してクライオフォーカスに捕集し、さらに加熱してキャピラリーカラムに導入する方式である。第二には、捕集管が試料導入装置に装着されると流路が確保され、加熱脱離することによりトラップ管またはクライオフォーカスに再捕集したのち、いずれかを加熱してキャピラリーカラムに導入する方式である。

11) ガラス製または熔融シリカ製の中空管または吸着剤を充てんしたトラップ管では冷却を要しない装置もある。また、トラップ管の冷却、加熱条件などは導入装置毎に決定する必要がある。市販の装置ではこれらの条件は提示されている場合が多い。

12) トラップ管には石英などの不活性物質を詰めることもあるが、吸着剤を充てんする場合もある。充てん剤によっては -20°C 程度の低温でも破過を起こすことがあるので注意する必要がある。

13) 対象成分が十分に分離出来れば、カラムの種類および温度条件などは任意に設定してよい。ただし、設定した条件において、測定対象物質のピークが分離し、定量が可能であることをあらかじめ確認する。

14) ポンプ側および空気取り入れ側を明確にしておく。

15) 室外で塗装工事などが行われており、室内より室外での化学物質濃度が高いと考えられる場合は、室内の他に室外におけるトラベルブランクも併せて採取することが望ましい。

16) 試料を添加する場合は、シリンジの針先を捕集管内の吸着剤付近まで差し込むことが望ましい。市販の検量線作成装置を用いてもよい。

17) 分析環境から試験操作過程で汚染されることがあるので、操作ブランクを一連の測定操作の中で少なくとも1回以上実施する。

18) 空気試料の測定における一連の過程（準備－機器の運搬－試料採取－持ち帰り－前処理－測定）において、捕集管が化学物質で汚染された空気に曝露される可能性があるため、試料採取時の記録を参考にして試験の頻度を考慮する。

19) H_2 や N_2 を用いてもよい。また、純度については99.999%以上のものが望ましいが99.999%未満のものを使用する場合は妨害がないことをあらかじめ確認すること

20) 測定した空気試料における定量用質量数と確認用質量数の強度比が検量線作成時と大きくかけはなれている場合は、再度標準試料を測定して定量用質量数と確認用質量数の強度比を算出する。再度測定した標準試料の強度比が検量線作成時の90～110%の範囲内だった場合、空気試料における測定対象物質のピークが何らかの影響を受けている可能性があることから、クロマトグラムのベースライン分離条件などの再検討や、他の分析カラムによる定量を検討する。

21) 室内空気中の測定対象物質の濃度は、その範囲が広いことが予想されるため、定量上限を明確に把握しておくことが必要である。空気試料の測定値が作成した検量線の範囲を超える場合は、諸条件を検討した上で検

線を再度作成し、定量する。

22) 質量流量センサーを内蔵し、 25°C の温度換算機能を有するポンプで空気を捕集する場合は、平均温度で補正する必要はない。

23) 2重測定試験の結果、定量下限値以上の濃度の測定対象物質に対して、測定値平均とそれぞれの測定値の間に $\pm 15\%$ 以上の開きがある場合は、原則欠測扱いとして、その原因をチェックし再度試料採取を行う。

24) 操作ブランク測定は試料測定に先立って行い、操作ブランク値を気中濃度に換算した値が目標定量下限値を超える場合には、再洗浄や機器の調整を行ったのち、再度測定し、操作ブランク値を十分低減してから試料を測定する。

25) 測定対象物質のトラベルブランク値が操作ブランク値と同等（等しいか小さい）とみなせる場合には、移送中の汚染は無視できるものとして試料の測定値から操作ブランク値を差し引いて濃度を計算する。移送中の汚染がある場合には、3試料以上のトラベルブランク値を測定した時の標準偏差（ σ ）から求めた定量下限値（ 10σ ：気中濃度への換算値）が目標定量下限値以下の場合、およびトラベルブランク値による定量下限値が目標定量下限値より大きくても、試料の測定値がトラベルブランク値による定量下限値以上の場合には、試料の測定値からトラベルブランク値を差し引いて濃度を計算する。

移送中の汚染が疑われ、トラベルブランク値による定量下限値が目標定量下限値より大きく、さらに試料の測定値がトラベルブランク値による定量下限値より小さい場合は、原則として欠測扱いとする。この場合、汚染の原因を取り除いたのち、再度試料採取から行う。

厚生労働科学研究費補助金（化学物質リスク研究事業）
総合研究報告書

室内空気汚染化学物質の標準試験法の開発・規格化および
国際規制状況に関する研究

室内空気環境汚染化学物質の標準試験法の国際規格化

研究分担者 田辺 新一 早稲田大学 建築学科 教授

研究要旨 厚生労働省のシックハウス（室内空気汚染）問題に関する検討会により、指針値の見直しや、新たな規制汚染物質の検討が継続的に行われている。本研究では、わが国で提案した精度の高いフタル酸エステル類の測定・分析方法の国際規格化の活動を行っている。日本が提案した方法に関しての審議は ISO-16000-33・WG20 において 2021 年度から現在まで行われている。最新の審議結果として、日本が提案した測定分析方法が ISO 16000-33 の Annex B として追加されることとなり、2023 年 12 月 4 日に FDIS 投票が進行中である。また、VOC による汚染が指摘されているスプレー剤を使用する建築製図室における室内空気質に関して、適切な換気手法・換気設備の提案を目的に測定を行った。加えて、建築室内において木材が使用された場合に、消毒に使用されるアルコールや Do It Yourself（以下、DIY）による植物油を主原料とした天然系塗料との接触により二次生成物質が生じる可能性がある。木材へのアルコールの噴霧や天然系塗料の塗布が室内空気質に与える影響を明らかにすることを目的として、チャンバー試験および臭気評価実験を行った。室内空気質の評価を行うためには、建材由来の VOC に加えてヒト由来の生体発散物質による空気質の悪化に関する必要がある。ヒト由来の生体発散物質除去効果及び知覚空気質へ与える影響を明らかにすることを目的として、チャンバー実験および臭気評価実験を行った。

A. 研究目的

A-1 ISO-16000-33（新規格案）

厚生労働省のシックハウス（室内空気汚染）問題に関する検討会が継続的に開催され、指針値の見直しや新たな規制汚染物質が検討されている。また、フタル酸エステル類について改正指針値に対応して精度の高い標準試験法が開発された。これは、日本薬学会編 衛生試験法・注解 2015：追補 2019 にて公表され、国内の規準となっている。この精度の高い国内規格を国際規格化とするために ISO 会議に新規案を提案した。本分担研究では、この国内のフタル酸エステル類の測定・分析方法を ISO/TC146(大気の質)/SC6(室内空気)、ISO 16000-33：2017「Determination of phthalates with gas chromatography/mass spectrometry (GC/MS)」に新規提案を行っているため、その進捗情報を報告する。

A-2 スプレー剤使用環境調査

VOCによる汚染が指摘されているスプレー式接着剤およびカラースプレーを使用する建築製図室における室内空気質に関して、適切な換気手法・換気設備の提案を目的に測定および化学物質分析を行った。

A-3 木材へのアルコールの噴霧実験

感染症対策として広く用いられているアルコール塗布が室内の知覚空気質およびスギ材自体の化学物質の構成変化に与える影響を把握することを目的にチャンバー実験および臭気評価実験を行った。

A-4 木材への天然系塗料塗布実験

市販天然系塗料の構成成分に関する実態調査を行い、一般消費者による塗装状況を考慮した場合に天然系塗料が室内空気質に与える影響を明らかにすることを目的に小型チャンバー実験を行い、化学物質分析と臭気

評価実験を実施した。

A-5 生体発散物質除去効果の評価

生体発散物質除去効果及び知覚空気質へ与える影響を明らかにすることを目的として、チャンバー実験および臭気評価実験を行った。

B. 研究方法

B-1 ISO-16000-33（新規格案）

研究グループによってシックハウス検討会の改正指針値に対応可能な精度の高いフタル酸エステル類の標準試験法が開発された。この試験法は日本薬学会編 衛生試験法・注解2015：追補2019にて公表された。この規格を国際標準化するために、フタル酸エステル類の測定・分析方法をISO/TC146(大気(の質)/SC6(室内空気)、ISO 16000-33：2017 Determination of phthalates with gas chromatography/mass spectrometry (GC/MS)」に新規提案した。そのため、2021年度から現在までISO/TC146/SC6の国際会議に参加し、国際規格化に関する審議及びその結果を確認した。

B-2 スプレー剤使用環境調査

スプレー剤を不特定多数が、定期的かつ頻繁に使用する作業環境に関してアンケート調査及び実測調査を行なった。アンケート調査は早稲田大学建築学生を対象とし、実測調査ではアンケート回答者が普段使用する作業場所において化学物質放散濃度を測定した。

B-3 木材へのアルコールの噴霧実験

JIS A1901の小型チャンバー法を参照し、スギ材にアルコールを噴霧し、接触歴の有無の違いによる化学物質濃度の測定を行った。また、チャンバー内空気の知覚空気質評価を目的に、臭気評価被験者によるにおい袋法を用いた臭気評価を実施した。実験は早稲田大学倫理委員会の承認を得て行った。

B-4 木材への天然系塗料塗布実験

石油由来の有機合成成分を含んだ天然系塗料を「自然系塗料」、天然成分のみで構成された天然系塗料を「自然塗料」と定義し、構成成分の異なる自然系塗料および自然塗料を2種類ずつチャンバー試験用を選定した。室内における木材への天然系塗料の塗装が化学物質の放散特性に与える影響を把握することを目的に、JIS A 1901 に則り、チャンバー実験を行った。また、

チャンバー内空気の知覚空気質評価を目的に、臭気評価被験者によるにおい袋法を用いた臭気評価を実施した。実験は早稲田大学倫理委員会の承認を得て行った。

B-5 生体発散物質除去効果の評価

ISOの手法を参照し、チャンバー内に被験者を座位安静状態で在室させた。空気清浄機の運転前後におけるチャンバー内空気に対し、生体発散物質を主とする化学物質気中濃度、知覚空気質に与える影響を把握することを目的に実施した。実験は早稲田大学倫理委員会の承認を得て行った。

C. 研究結果

C-1 ISO-16000-33（新規格案）

2021年度から2023年度までISOの国際会議を行った結果として、2021年度はISO-16000-33のAnnex Bに技術的な情報などを追記することで合意し、委員会原案(CD)を登録することになった。

2022年度のISO/TC146/SC6 WG 20がオンライン会議で開催された。日本の代表団は田辺新一(早稲田大学)、酒井信夫(国立医薬品食品衛生研究所)、伊藤一秀(九州大学)、金炫兌(山口大学)以上4名が参加した。WG 20では、ISO16000-33の改正案について議論が行われ、わが国が提案した「ODS固相ディスクまたはSDB共重合体カートリッジによるサンプリング方法と溶媒抽出・分析方法」がISO-16000-33のAnnex Bに追加されることになった。そのため、2022年末までDISの最終版を提出することになった。

2023年度はISO/TC146/SC6 WG 20が現地会議で開催され、ISO16000-33の改正案について議論が行われた。わが国が提案した分析方法がDISとして賛成される結果となった。2023年12月4日にFDISとして投票が進行中である。

C-2 スプレー剤使用環境調査

化学物質の実測において、日本国内の指針値は超過しなかったが、エーテル類について一部の測定箇所ドイツの指針値を超過した。また、実測対象となった一部の研究室においてはCO₂濃度が1000 ppmを下回った。一方で、VOC濃度は室外に設置されたスプレーブース近傍だけでなく室内でも一部濃度が高かった。

C-3 木材へのアルコールの噴霧実験

アルコール噴霧によりAcetaldehydeの気中濃度は大幅に上昇した。アルコール接触歴のあるスギ材は以前のアルコール塗布から82日が経過していたがAcetaldehyde気中濃度は1680 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ と高く、室内濃度指針値を大幅に超過した。アルコール噴霧をしたスギ材は5日後においてもAcetaldehyde気中濃度は実験前と比較して実験後の方が高かった。空気許容度はアルコール噴霧の有無に関わらず全臭気評価時刻で受け入れられる側の申告であった。快不快申告の平均値は概ね全ての条件の全評価時刻で、アルコール噴霧の有無に関わらず快適側の申告となった。

C-4 木材への天然系塗料塗布実験

Acetaldehydeは木材の全経過時刻において塗料種別に関わらず一部の塗料で室内濃度指針値を超過した。自然塗料の一種では24時間時におけるAcetaldehydeの放散量は、木材とアルミ板では放散挙動が異なった。実際に木材へ塗装した場合、JISによるアルミ板試験では放散されない二次生成物が放散することが明らかになった。臭気評価においては、自然塗料と比較して自然系塗料の方が知覚空気質は悪い傾向があった。

C-5 生体発散物質除去効果の評価

チャンバー内に被験者を座位安静状態で在室させ空気質の評価を行った結果、活性炭を使用した空気清浄機の運転によりAmmoniaやNonanalなど生体発散物質である化学物質濃度が低下した。また、知覚空気質のうち臭気強度が低下した。

D. 考察

D-1 ISO-16000-33 (新規格案)

我が国が提案した分析方法を国際規格化するため、ISO/TC 146/SC 6/WG 20に「ODS固相ディスクまたはSDB共重合体カートリッジによるサンプリング方法と溶媒抽出・分析方法」を新規案(NWIP)を提案した。その後作業原案(WD)の審議を行い、委員会原案(CD)に登録される。また、委員会原案は委員会で賛成された後、P-メンバーによるDIS投票とコメントを受け、審査結果に従った修正版の提出が必要である。DISの投票結果が賛成の場合、提案した規格がFDISの投票に進められる。我が国で提案した分析方法は以上の過程を経て今現在FDIS投票が進行中である。以下、2023年度WG20

での国際会議後、ISO/TC 146/SC 6/WG 20 N66「Recommendations」が作成された。内容は以下に示す。

・ Recommendation 44

ISO/TC 146/SC 6/WG 20 decides to submit the revised draft of ISO 16000-33 to FDIS ballot.

D-2 スプレー剤使用環境調査

化学物質の実測結果ではエーテル類がドイツの指針値を超過したことから、人体への有害性を考慮し、我が国でも濃度低減対策を図る必要があると考えられる。同研究室においてはCO₂濃度が1000 ppmを下回り必要換気量は確保されていたが、VOC濃度は室外スプレーブース近傍だけでなく室内でも一部濃度が高かった。要因として、スプレー由来の化学物質の換気による濃度の減衰挙動がCO₂濃度とは異なり、より多くの換気量を必要とする可能性が考えられる。

D-3 木材へのアルコールの噴霧実験

自然乾燥処理が施された無塗装のスギ材にアルコールが接触した場合には長期間Acetaldehydeが室内濃度指針値を上回る濃度で放散し続けることが明らかになった。一方で、高濃度のAcetaldehyde気中濃度である場合においても、室内空気質の悪化を人間が知覚していないことが示された。木材から放散するテルペン類がAcetaldehydeと混合することで生じた複合臭気のレベルが元の悪臭臭気よりも低下した可能性がある。

D-4 木材への天然系塗料塗布実験

木材に塗料を塗布した場合、塗料中の亜麻仁油の酸化反応や、塗料に含まれるEthanolが木材に接触した際にAlcohol Dehydrogenase (以下、ADH)による酸化促進によって、Acetaldehydeの気中濃度が指針値を超過したと考えられる。また、臭気評価においては自然塗料ではアルデヒド等の臭気寄与物質やTVOC放散量が少なかったことやテルペン類のマスキング効果により、Acetaldehydeの刺激臭が緩和され、非容認率が低くなったと考えられる。

D-5 生体発散物質除去効果の評価

空気清浄機の生体発散物質除去効果により化学物質が活性炭に吸着されることで濃度が低下したと考えられる。臭気源となる化学物質濃度の低下により、臭気強度も低下したと考えられる。

E. 結論

E-1 ISO-16000-33 (新規格案)

フタル酸エステル類の測定・分析方法をISO 16000-33 : 2017「Determination of phthalates with gas chromatography/mass spectrometry (GC/MS)」に新規提案した。現在、DISとして賛成され、FDISの投票が進行されている。

E-2 スプレー剤使用環境調査

換気量が確保されている室内においてもスプレー剤による空気質悪化が見られた。スプレー剤など入室者の行動により特定のVOCの放散量が多くなると見込まれる場合には局所換気など換気設備を追加し、作業者近傍に加え室全体での良好な室内空気質の確保を目指す必要があると考えられる。

E-3 木材へのアルコールの噴霧実験

アルコール塗布履歴があるスギ材からは半年後でもAcetaldehydeが室内濃度指針値を上回る濃度での放散が持続し、木材表面にアルコールを繰り返し噴霧した場合には繰り返し同程度のAcetaldehydeが生成され続けることが明らかになった。一方で、Acetaldehyde気中濃度が室内濃度指針値を大幅に超過する場合でも木材の中和効果が作用した場合には、空気質の悪化を人間が知覚出来ない状況があることが示された。

E-4 木材への天然系塗料塗布実験

木材に塗料を塗布した場合、塗料種別に関わらず一部の塗料で全経過時刻においてAcetaldehydeが室内濃度指針値を超過した。乾燥過程における植物油の酸化反応および塗料中のEthanolと木材中のADHの反応による放散促進が要因として考えられる。また、臭気評価実験の結果、自然塗料と比較して自然系塗料の方が知覚空気質は悪い傾向があった。要因として、自然系塗料においては多く放散されていたNonanalやAcetaldehyde、2E1Hの刺激臭が知覚空気質悪化に寄与したと考えられる。

E-5 生体発散物質除去効果の評価

生体発散物質除去効果及び知覚空気質へ与える影響を明らかにすることを目的として、チャンバー実験および臭気評価を行った。空気清浄機の運転により生体発散物質除去効果が見られ、臭気に関しても知覚空気質改善効果が見られた。

F. 研究発表

1. 論文発表

- 1) 稲坂まりな, 赤松奈美, 菅野颯馬, 池内宏維, 高橋秀介, 田崎未空, 金炫兌, 田辺新一, 異なる木材表面へのアルコール塗布がVOC放散量および知覚空気質に与える影響, 日本建築学会環境系論文集, Vol. 87, No. 802, 2022. 12
- 2) 池内 宏維, 富田 奈歩, 赤松 奈美, 新納 稔樹, 田崎 未空, 深和 佑太, 金 炫兌, 田辺 新一. 木材への天然系塗料の塗布が揮発性有機化合物放散量および知覚空気質に与える影響. 日本建築学会環境系論文集, 2023年, 88巻, 811号, pp. 716-725.
- 3) Nami Akamatsu, Soma Sugano, Kanta Amada, Naho Tomita, Hidetaka Iwaizumi, Yuki Takeda, Pawel Wargocki, Bjarne W. Olesen, Shin-ichi Tanabe, Effects of Gas-phase Air Cleaner on Removing Human Bioeffluents and Improving Perceived Air Quality, Building and Environment. 審査中

2. 学会発表

- 1) 益崎慶人, 金炫兌, 小金井真, 田辺新一, TXIB及びTEXANOLの放散挙動に関する研究, 日本建築学会大会学術講演梗概集(東海), pp.1533-1534, 2021.9
- 2) 益崎慶人, 金炫兌, 小金井真, 田辺新一 仕上げ材からのSVOC放散速度測定, 空気調和・衛生工学会大会学術講演論文集, pp.85-88, 2021.9
- 3) Yoshihito Masuzaki, Hyuntae Kim, Makoto Koganei, Shin-ichi Tanabe, A Study on Emission Behavior of SVOC Material in Real Space Model, Healthy Buildings 2021, Honolulu HI, USA, 2022.1
- 4) 赤松奈美, 池内宏維, 稲坂まりな, 小野田亮介, 松尾和弥, 田崎美空, 菅野颯馬, 金炫兌, 田辺 新一, 木材表面へのアルコール清拭がVOC放散量および知覚空気質に与える影響 第1報: 実験概要と化学物質分析の測定結果, 日本建築学会学術講演梗概集, Vol.2022, pp.1595-1596, 2022.9
- 5) 池内宏維, 赤松奈美, 稲坂まりな, 小野田亮介, 松尾和弥, 田崎美空, 菅野颯馬, 金炫兌, 田辺 新一, 木材表面へのアルコール清拭がVOC放散量および知覚空気質に与える影響 第2報: 実験概要と化学

物質分析の測定結果, 日本建築学会学術講演梗概集, Vol.2022, pp.1597-1598, 2022.9

- 6) 赤松奈美, 池内宏維, 稲坂まりな, 菅野颯馬, 金炫兌, 田辺新一, 木材表面へのアルコールの塗布・噴霧がVOC放散量および知覚空気質に与える影響 (第1報) アルコールの1回塗布によるチャンバー実験結果, 空気調和・衛生工学会大会学術講演論文集 (神戸) 、 pp.9-12, 2022.9
- 7) 池内宏維, 赤松奈美, 稲坂まりな, 菅野颯馬, 金炫兌, 田辺新一, 木材表面へのアルコールの塗布・噴霧がVOC放散量および知覚空気質に与える影響 (第2報) アルコールの繰り返し噴霧によるチャンバー実験結果, 空気調和・衛生工学会大会学術講演論文集 (神戸) 、 pp.13-16. 2022.9
- 8) Kosuke Ikeuchi, Nami Akamatsu, Marina Inasaka, Soma Sugano, Hyuntae Kim, Shin-ichi Tanabe, Effects of Applying Alcohol to Wood on Acetaldehyde Emissions, Indoor Air 2022, Kuopio, Finland, 2022.6
- 9) N. Akamatsu, M. Inasaka, K. Ikeuchi, S. Sugano, H. Kim, S. Tanabe. Effect of Applying Alcohol to Wooden Surfaces on VOC Emissions and Perceived Air Quality. 18th Healthy Buildings Europe Conference, 11th – 14th June 2023, Aachen, Germany
- 10) 富田 奈歩, 赤松 奈美, 池内 宏維, 深和 佑太, 金炫兌, 田辺 新一. 含有物質の異なる天然系塗料の

木材への塗布が室内空気質に与える影響. 令和五年度空気調和・衛生工学会大会[福井].

- 11) 赤松 奈美, 富田 奈歩, 池内 宏維, 深和 佑太, 金炫兌, 田辺 新一. 木材へのアルコールの塗布・噴霧がVOC放散量および知覚空気質に与える影響 (第3報) 塗装木材へのアルコール塗布によるチャンバー実験結果. 令和五年度空気調和・衛生工学会大会[福井].
- 12) 富田 奈歩, 赤松 奈美, 池内 宏維, 新納 稔樹, 田崎 未空, 深和 佑太, 金 炫兌, 田辺 新一. 天然系塗料の木材表面への塗布がVOC放散量および知覚空気質に与える影響 (第1報) 実験概要と化学物質分析の測定結果. 2023年度日本建築学会大会.
- 13) 赤松 奈美, 富田 奈歩, 池内 宏維, 新納 稔樹, 田崎 未空, 深和 佑太, 金 炫兌, 田辺 新一. 天然系塗料の木材表面への塗布がVOC放散量および知覚空気質に与える影響 (第2報) 被験者実験による臭気評価結果. 2023年度日本建築学会大会.

G. 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

厚生労働科学研究費補助金（化学物質リスク研究事業）
総合研究報告書

室内空気汚染化学物質の標準試験法の開発・規格化および
国際規制状況に関する研究

室内空気環境汚染化学物質のオンサイト試験法の評価

研究分担者 金 炫兌 久留米工業大学建築・設備工学科 准教授

研究要旨 マイクロチャンバー法(JIS A 1904)は建材からの SVOC 放散速度の測定が出来る。しかし、実空間における仕上げ材からの SVOC 放散速度測定法はまだ定められていない。本研究グループはマイクロチャンバーを用いた現場測定方法を開発しており、現場測定方法の評価を実施した。3 年間の研究として、実空間における仕上げ材からの SVOC 放散速度の測定を行った。また、開発した現場測定方法の測定範囲を拡張するため、家具・家電製品からの SVOC 放散量を測定した。さらに、PVC 床材の表面温度変化が SVOC 放散量及び表面ブリードアウト量に与える影響について実験室実験を行った。2021 年度の研究成果は床のみではなく、壁面の SVOC 放散速度を測定するため、マイクロチャンバーを固定する装置を開発し、壁面からの放散速度も測定出来るようになった。また、2022 年度と 2023 年度の研究により、建築材料のみではなく、家庭内で使用している生活用品も SVOC 物質の放散源であることが確認出来た。家具・家電製品からの SVOC 物質の放散量は少ないが、家具・家電製品の放散面積が大きいため、室内の SVOC 汚染影響を調査・研究する必要がある。温度変化による PVC 建材からの SVOC 物質の放散速度と表面ブリードアウト量との相関性を測定した結果、2E1H は揮発性が高い物質であるため、建材の表面ブリードアウト量より空気中に放散する量が多かった。TEXANOL、TXIB は SVOC 物質であるが、表面ブリードアウト量より空気中に放散される量が多く測定された。2E1H、TEXANOL、TXIB は温度の変化によって放散速度が増加した。季節によって仕上げ材からの放散量が異なることが示唆された。DEHP、DEHT は沸点の高い物質であり、空気中に放散されず建材の表面にブリードアウトされ、非常に高濃度であることが確認された。

A. 研究目的

室内の有害化学物質としては、高揮発性有機化合物 (Very Volatile Organic Compounds: VVOC) や揮発性有機化合物 (Volatile Organic Compounds: VOC) といった比較的揮発しやすい物質がある。しかし、準揮発性有機化合物 (Semi-Volatile Organic Compounds: SVOC) は揮発性が低いため、気中よりハウスダストや室内の表面に付着する性質を持ち、呼吸・経口摂取・経皮吸収等三つの経路によって体内に吸収されることが報告されている。

マイクロチャンバー法 (JIS A 1904) は建材からの SVOC 放散速度の測定が可能であるが、実空間における仕上げ材からの放散速度測定が困難である。そのため、マイクロチャンバーを用いて現場測定方法を開発し、現場測定方法の評価を実施した。

B. 研究方法

B-1 実態調査

表 1 に測定対象住宅の概要を示す。現場測定法により住宅の床面と壁面に使用されている建材か

らの SVOC 放散速度を測定した。

1) 現場測定方法

図 1 に現場測定法の装置構成図を示す。測定条件はマイクロチャンバー測定方法と同様であるが、室内の温度と相対湿度は測定場所によって異なる。現場測定機には 2 つのポンプが設置されており、1 つは 30(mL/min) の空気を供給、もう 1 つのポンプは 15(mL/min) を吸引するように調整している。また、供給側の前にはベントライン(15mL/min) を設けることで、マイクロチャンバー法と同様にマイクロチャンバーと仕上げ材の隙間からコンタミが生じない様にしている。図 2 に現場測定法の測定手順を示す。測定開始前に、マイクロチャンバー加熱処理する。運搬専用箱にマイクロチャンバーを入れ、測定現場まで運搬した。測定場所を選択し、床面をエタノールで拭き取る。その後、直径 82mm の正円形を切り取ったアルミホイルを敷き、その上にマイクロチャンバーを設置した。放散実験は 24 時間行う。その後、マイクロチャンバーを回収し、研究室で加熱脱着実験を行う。図 3 に現場測定の様子を示す。

B-2 家具・家電製品からの放散速度

表2に家具・家電製品の概要を示す。今年度の測定では、2022年度に測定した古い家具・家電製品と新品の家具・家電製品からのSVOC放散量を比較するため、2022、2023年度に製造された家具・家電製品を購入し、SVOC放散実験を行った。測定対象の家具・家電製品は机、椅子、冷蔵庫、電子レンジ、パソコンモニタ（前面、裏面）である。測定方法としては、現場測定方法を用いた。図1に家具・家電製品からの放散速度の様子を示す。

B-3 温度変化による放散量と表面ブリードアウト

表 3 に測定条件を示す。PVC 床材を用いて SVOC 物質の放散実験と表面ブリードアウト実験をおこなった。測定方法としては、JIS A 1904 のマイクロチャンバーを用いた。表面ブリードアウト濃度はマイクロチャンバーを用いて放散実験の終了後、試験材の表面を拭き取った。測定条件として恒温槽の温度を 18°C、22°C、28°C、に設定して測定を行った。各条件の測定は 3 回ずつ行

った。放散速度測定はマイクロチャンバー法を用いた。図4にマイクロチャンバー法の測定イメージ図を示す。表 4 に放散試験の条件を、表 5 に加熱脱着試験の条件を示す。表面ブリードアウト濃度はマイクロチャンバーを用いて建材からの SVOC 放散速度が終わった後、試験材の表面を拭き取り、試験材表面の SVOC 濃度を測定した。表面ブリードアウトの測定で使用するサンプラーは石英ウール 50mg を用いた。測定する前に石英ウールをエタノールで 3 回洗浄し、分析対象化学の子民の少ないサンプラーを製作した。測定する際には、石英ウールをエタノールに漬け込んだ後、水滴がないように絞って使用した。最後に、拭き取ったサンプラーはマイクロチャンバーに導入し、加熱脱着することでサンプラーに付着している SVOC を回収した。化学物質の回収は Tenax TA 管を使用した。図 5 に表面ブリードアウト濃度測定様子と加熱脱着様子を示す。

分析対象物質は、2E1H(2-エチル-1-ヘキサノール)、2EHA(2-エチルヘキシルアクリレート)、TEXANOL(テキサノール)、BHT(ブチル化ヒドロキシトルエン)、DEP(フタル酸ジエチル)、TXIB(2,2,4-トリメチル-1,3-ペンタンジオール ジイソブチラート)、TBP(リン酸トリブチル)、TCEP(リン酸トリス)、DBA(アジピン酸ジブチル)、DBP(フタル酸ジ-n-ブチル)、TPP(リン酸トリフェニル)、DOA(アジピン酸ジオクチル)、DEHP(フタル酸ジ-2-エチルヘキシル)、DNOP(フタル酸ジ-n-オクチル)、DEHT(ジオクチルテレフタレート)、DINP(フタル酸ジイソノニル)、DIDP(フタル酸ジイソデシル)である。表 6 に Tenax TA 捕集管の加熱脱着条件、表 7 に GC/MS の分析条件を示す。

C. 研究結果

C-1 床・壁面からの放散速度

図 10 に床材からの SVOC 放散速度のグラフを示す。2E1H の放散速度の範囲は 0.19~6.16($\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$)、DEP の放散速度は 0.05~0.09($\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$)の範囲で測定された。TXIB は 15 か所の床面から 10 か所の床材から検出され、放散速度は 0.05~0.58($\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$)であった。DBP は 0.07~1.10($\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$)で、平均放散速度は 0.39($\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$)であった。DEHP は 0.59~11.05($\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$)、平均放散速度は 3.50($\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$)であった。DEHP は他の物質より建材

の面積当たり放散量が多く測定されている。

図 11 に壁材からの SVOC 放散速度を示す。2E1H の放散速度は $0.37\sim 2.45(\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h})$ 、平均放散速度は $1.28(\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h})$ であった。TEXANOL の検出頻度は 83.3% であり、放散速度は $0.09\sim 0.95(\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h})$ で、平均放散速度は $1.28(\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h})$ であった。TXIB の放散速度の範囲は $0.12\sim 0.32(\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h})$ で、DBP は $0.25\sim 1.14(\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h})$ であった。DEHP の放散速度は $0.04\sim 5.76(\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h})$ で、平均放散速度は $1.39(\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h})$ であった。建材の種類によって DEHP の放散速度が大きく異なることが分かった。

C-2 家具・家電製品からの放散速度

図 8～16 に各分析対象物質の放散速度を示す。2E1H は全ての家具・家電製品から検出された。放散速度は $0.55\sim 2.59(\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h})$ で、合成皮革で仕上げられた椅子が高く測定された。2EHA は 2022 と 2023 年度に生産された全ての家具・家電製品から検出された。TEXANOL は、2022 年度に測定した中古品の放散速度平均値は $0.09(\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h})$ で、新品の放散速度は $0.02(\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h})$ であった。冷蔵庫と椅子などは室内の放散源であることが確認出来た。

TXIB は新品の家具・家電製品から検出されており、放散速度は $0.02\sim 0.14(\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h})$ であった。TXIB は可塑剤の代替物質として使用量が増加しており、建材のみではなく、家具・家電製品にも使用され、使用用途が幅広くなっていることが示唆された。

DBP の場合は、机、冷蔵庫、電子レンジ、モニタ(表)の 4 製品から検出された。放散速度は $0.01\sim 0.02(\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h})$ であり最大値の $0.02(\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h})$ は冷蔵庫で検出され、机、電子レンジ、モニタ(表)での最小値 $0.01(\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h})$ の 2 倍であった。DOA は電子レンジ、モニタ(裏)の 2 製品から検出された。放散速度はどちらも $0.01(\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h})$ であった。

DEHP の場合は、2023 年度測定では全ての製品から検出され、放散速度は $0.05\sim 0.43(\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h})$ であった。最大値の $0.43(\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h})$ は椅子で検出され、冷蔵庫から検出された最小値 $0.05(\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h})$ の 8.6 倍であった。

DEHT は、机、椅子、電子レンジ、モニタ(表)、モニタ(裏)の 5 製品から検出された。いずれも放散速度は

$0.01(\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h})$ であった。この物質は放散速度が低いが、最近可塑剤の代替物質として使用量が増加していることが示唆された。

C-2 温度変化による放散量と表面ブリードアウト

図 17 に各 SVOC の放散速度の測定結果を示す。2E1H は測定条件が 18°C の場合、放散速度は $35.5(\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h})$ であり、 22°C 、 28°C の測定条件ではそれぞれ 47.8 、 $50.5(\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h})$ であった。2E1H は温度が上がるにつれ放散速度も増加している。また、条件 18°C より 22°C の方が 26%増加しており、 28°C の方は、30%増加している。しかし、 22°C と 28°C の放散速度を比較すると、ほぼ同じ放散速度であった。

TEXANOL の場合、測定条件が 18°C の場合、放散速度は $0.60(\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h})$ であり、 22°C 、 28°C の測定条件ではそれぞれ 0.87 、 $0.95(\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h})$ であった。条件 18°C より 22°C の方が 31%増加しており、 28°C の方は、36%増加している。この結果より 2E1H、TEXANOL は、温度が上がるにつれ放散速度も上昇ことが示唆された。しかし、 22°C と 28°C の放散速度は大きな変化が見られなかった。

TXIB は、測定条件が 18°C の場合、放散速度は $3.04(\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h})$ であり、 22°C 、 28°C の測定条件ではそれぞれ 4.18 、 $2.96(\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h})$ であった。TXIB は温度変化によって若干の増減はあったものの、測定値にはあまり変化は見られなかった。

DBP の場合、測定条件が 18°C の時、放散速度は $0.09(\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h})$ であり、 22°C 、 28°C の測定条件ではそれぞれ 0.09 、 $0.12(\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h})$ であった。DBP の場合、 18°C と 22°C の条件で放散速度の変化は見られなかった。しかし、 28°C は 18°C に比べ、25%増加している。この結果より TXIB、DBP は温度変化による放散速度の変化が少ないことが分かった。

DEHP は測定条件が 18°C の時、放散速度は検出されず、 22°C 、 28°C の測定条件でそれぞれ 0.06 、 $0.10(\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h})$ であった。DEHP は温度が上がるにつれ放散速度も増加している。また、条件 22°C より 28°C の方が、40%上昇していることが確認出来た。

DEHT は測定条件が 18°C の場合、放散速度は $0.13(\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h})$ であり、 22°C 、 28°C の測定条件ではそれぞ

れ 1.66、3.79($\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$)であった。また、条件 18°Cより 22°Cの方が 13 倍増加しており、28°Cの方は、30 倍増加している。DEHT は温度の変化によって不参速度が大きく変化している。

図 18 に各 SVOC の表面ブリードアウト速度の測定結果を示す。2E1H は測定条件が 18 度の時、表面ブリードアウト速度は 6.31($\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$)であり、22、28°C の測定条件ではそれぞれ 9.47、19.73($\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$)であった。また、条件 18°Cより 22、28°Cの方が 1.5、3.1 倍増加しており、温度上昇につれ表面ブリードアウト量も増加している。

TEXANOL の場合、18°C条件の表面ブリードアウト速度が 0.10($\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$)であり、22、28°Cの測定条件ではそれぞれ 0.15、0.58($\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$)であった。TEXANOL は温度が上がるにつれ表面ブリードアウト速度も増加している。また、条件 18°Cより 22、28°Cの方が 1.5、5.7 倍増加しており、2E1H と同様に温度上昇につれ表面ブリードアウト濃度も増加している。

TXIB は測定条件が 18°Cの場合、表面ブリードアウト速度は 0.58($\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$)であり、22、28°Cの測定条件ではそれぞれ 0.87、2.37($\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$)であった。また、条件 18°Cより 22°Cの方が 1.5 倍、28°Cの方は 4.1 倍増加している。TEXANOL、TXIB、は、温度が上昇することによって、表面ブリードアウト濃度の増加倍率が大きかった。

DBP は、18°Cの条件で、表面ブリードアウト速度は 0.06($\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$)であり、22、28°Cの測定条件ではそれぞれ 0.12、0.16($\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$)であった。また、条件 18°Cより 22°Cの方が 1.9 倍、28°Cは、2.5 倍増加している。

DEHP は、18°Cの条件で、表面ブリードアウト速度は 3.36($\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$)であり、22、28 度の測定条件ではそれぞれ 10.26、22.89($\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$)であった。また、条件 18°Cより 22°Cの方が 2.8 倍増加しており、28°Cの方は、6.3 倍増加している。

DEHT は測定条件が 18 度の場合、表面ブリードアウト速度は 24.47($\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$)であり、22、28 度の測定条件ではそれぞれ 36.70、41.04($\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$)であった。また、条件 18°Cより 22°Cの方が 1.5 倍、28°Cの方は、1.7 倍増加している。温度の上昇につれ表面ブリードアウト濃度も増える傾向であった。

D. 考察

D-1 床・壁面からの放散速度測定

床材からのSVOC放散速度に関しては、塩化ビニルシートだけでなく、フローリング材からもSVOC物質の検出が確認された。また、80%以上の高い頻度で検出されたDEPやD6に比べて、2E1HやDEHPは約60%の検出頻度であった。この理由としては、床材の種類が異なるためであると考えられる。国内の住宅で幅広く使用されている床材はPVC系建材、フローリング、畳などがあげられる。PCV系の建材にはフタル酸エステル類の可塑剤が含有されており、代表的な可塑剤がDEHP、DBPであることが確認された。また、最近ではDEHP、DBPの代替物質として、TEXANOL、TXIB、DNOP、DIDP、DINPなどが使用されており、今回の測定でも放散が確認された。

壁材からについても、PVCクロスの壁紙だけでなく、紙クロスやタイルを使用した壁材からもSVOC物質が検出された。この原因は、仕上げ材表面に処理されたコーティング剤にSVOC物質が含まれていた可能性があると考えられる。また、2E1H、TXIB、DBP、DEHP、DNOPの検出頻度は100%であり、TEXANOLとDEPの検出頻度は83.3%であった。

D-2 家具・家電製品からの放散速度

測定した家具・家電製品から、2E1H、2EHA、TEXANOL、BHT、TXIB、DBP、DOA、DEHP、DEHT、DINPが検出された。2E1H、2EHA、TXIB、DEHPの検出頻度が100%であり、DBP、DEHTが83%であった。

2E1Hは合成皮革で仕上げられた椅子から放散量が高く測定された。2EHAの場合、2018年以前に生産された家具・家電製品からは放散されなかったが、2022年以後に生産された新品からは放散されていることが確認出来た。

TEXANOLとTXIBは冷蔵庫など塗料の仕上げ製品から放散が多いが、2018年以前に生産された製品より2022年以後に生産された製品からの放散量が少なくなっている。2019年度厚労省のシックハウス検討会で規制を検討中であるため、使用量が減少している可能性がある。

DBP、DEHP の場合は、机、冷蔵庫、電子レンジ、モニタ(表)などから検出されている。この二つの物質は可塑剤の代表的な物であるが、空気質ガイドラインに定められて以来、徐々に使用量が減少していることが予測された。一方で、DEHT は 2022 年以後に生産された全ての製品から放散を確認した。これからこの物質は代替物質として使用量が増加する可能性が示唆された。

D-3 温度変化による放散量と表面ブリードアウト

測定条件 28℃の放散速度と表面ブリードアウト速度を用いて、空気中に放散される量と表面に残留する量を比較した。2E1H は、表面ブリードアウト濃度に対して 2.6 倍空气中に放散されていることが確認出来た。この物質は VOC 物質であるため、ガス化しやすかったと考えられる。TEXANOL と TXIB は、表面ブリードアウト濃度に対して空気中にそれぞれ 1.6 倍、1.3 倍放散されている。また、DBP は 0.8 倍空气中に放散されている。この結果から、TEXANOL、TXIB、DBP は表面より空气中に多めに放散されていることが予測される。

一方で、DEHP は、空气中に放散される量に対して表面ブリードアウト濃度が 223 倍であった。また、DEHT は、空气中に放散する量より、表面に残留する量が 11 倍高く測定された。この結果から見ると、DEHP、DEHT は空気中より表面ブリードアウト量が多いことが分かった。以上の結果から、2E1H のような VOC 物質、SVOC 物質に分類される物質の中でも TEXANOL、TXIB のような比較的沸点が低い物質は表面ブリードアウトより空气中に放散されることが予測された。また、DBP は気中と表面、両方とも存在する傾向がみられる。DEHP、DEHT は沸点が高い物質であるため、空气中に放散されることなく、表面ブリードアウト濃度が非常に高く測定された。

E. 結論

E-1 家具・家電製品からの放散速度

現場における仕上げ材からの SVOC 放散速度試験法を開発し、床材及び壁材からの SVOC 放散速度の測定を行った。マイクロチャンバーを壁面に固定する装置を開発し、壁材からの SVOC 放散速度の測定も可能になった。また、現場測定法は可塑剤として多く使用さ

れている DEHP、DBP のみではなく、代替物質として使用が増加している TEXANOL、TXIB、DNOP、DIDP、DINP などの SVOC 物質も測定可能であることが確認された。この結果は、沸点の低い TEXANOL (254℃) から沸点の高い DEHP (385℃)まで測定が可能であり、精度高い現場測定法が開発されたと評価できる。

E-2 家具・家電製品からの放散速度

家具・家電製品からの SVOC 放散速度を測定し、現場測定方法の測定範囲を拡張した。室内で施工している建築材料のみではなく、家庭内で使用している生活用品も SVOC 物質の放散源であることが確認出来た。各 SVOC 物質の放散量は少ないが、家具・家電製品の面積は少なくないので引き続き室内の SVOC 汚染影響を研究する必要がある。

E-3 温度変化による放散量と表面ブリードアウト

温度変化による PVC 建材からの SVOC 物質の放散速度と表面ブリードアウト量との相関性を測定し、SVOC 物質の放散メカニズムを検討した。今回の測定では 2E1H、2EHA、TEXANOL、TXIB、DBP、DOA、DEHP、DEHT 及び DINP の 9 物質が検出された。2E1H は揮発性が高い VOC 物質であるため、建材の表面ブリードアウト量より空气中に放散する量が多かった。TEXANOL、TXIB は SVOC 物質であるが、表面ブリードアウト量より空气中に放散される量が多く測定された。2E1H、TEXANOL、TXIB は温度の変化によって放散速度の差がみられ、季節によって仕上げ材からの放散量が異なることが示唆された。DEHP、DEHT は沸点の高い物質であり、空气中に放散されず建材の表面にブリードアウトされ、非常に高濃度であることが確認された。

F. 研究発表

1. 論文発表

「現場測定方法の開発」について、日本建築学会の査読論文として投稿し、査読中である。

2. 学会発表

- 1) Hyuntae Kim, Taewoo Kim, Shin-ichi Tanabe, The contamination of DEHP on the surfaces of PVC sheet and risk of infants, *Journal of Asian Architecture and Building Engineering(JAABE)*, 2022. 2. DOI: 10.1080/13467581.2022.2032083
- 2) Yoshihito Masuzaki, Hyuntae Kim, Makoto Koganei, Shin-ichi Tanabe, A Study on Emission Behavior of SVOC Material in Real Space Model, *Healthy Buildings 2021*, Honolulu HI, USA, 2022.1
- 3) 益崎慶人, 金炫兌, 小金井真, 田辺新一 仕上げ材からの SVOC 放散速度測定, 空気調和・衛生工学会大会学術講演論文集, pp.85-88, 2021.9
- 4) 田崎健悟, 金炫兌, 小金井真, 田辺新一, 現場測定方法を用いた準揮発性有機化合物(SVOC)の放散速度測定 —一般住宅における床材・壁材からのSVOC放散量の測定—, 日本建築学会中国支部研究発表会, Vol.45, pp. 391-394, 2022.3
- 5) 益崎慶人, 金炫兌, 小金井真, 田辺新一, 実空間モデルにおける可塑剤からのSVOC放散挙動に関する実験, 空気調和・衛生工学会大会学術講演論文集(神戸), pp.129-132, 2022.9
- 6) 田崎健悟, 金炫兌, 小金井真, 益崎慶人, 田辺新一, 一般住宅における床材・壁材からのSVOC放散量の測定, 日本建築学会大会学術講演梗概集(北海道), pp.1589-1590, 2022.9
- 7) 田崎健悟, 金炫兌, 小金井真, 田邊慶宗, 益崎慶人, 田辺新一, 現場測定方法を用いた準揮発性有機化合物(SVOC)の放散速度測定-家電製品表面からのSVOC放散速度測定, 日本建築学会中国支部研究報告集, 第46巻, pp.407-410, 2023.3
- 8) 田邊慶宗, 金炫兌, 小金井真, 田崎健悟, 益崎慶人, 田辺新一, 現場測定方法を用いた準揮発性有機化合物(SVOC)の放散速度測定 -夏期・冬期における床材・壁材からの SVOC 放散量の測定, 日本建築学会中国支部研究報告集, 第46巻, pp.403-406, 2023.3
- 9) 益崎慶人, 金炫兌, 小金井真, 田崎健悟, 田辺新一, 建材からの SVOC 放散速度と気中濃度との相関性に関する研究, 日本建築学会中国支部研究報告集, 第46巻, pp.399-402, 2023.3
- 10) 細田実里, 金炫兌, 小金井真, 益崎慶人, 田崎健悟, 住宅及び大学施設における空気中の準揮発性有機化合物(SVOC)濃度の測定, 日本建築学会中国支部研究報告集, 第46巻, pp.395-398, 2023.3
- 11) 金炫兌, 家電製品表面からの SVOC 放散速度測定 室内環境学会大会(沖縄), pp.88-89, 2023.11
- 12) 熊谷功誠, 富久歩真, 金炫兌, PVC床材における SVOC 物質の放散量と表面ブリードアウト量に関する研究, 日本建築学会九州支部研究会, 2024.03(発表予定)
- 13) 山口千尋, 金炫兌, 家具・家電製品における SVOC 放散速度測定, 日本建築学会九州支部研究会, 2024.03(発表予定)

G. 知的所有権の取得状況

1. 特許取得

無し

2. 実用新案登録

無し

3. その他

無し

表 1 測定対象住宅の概要

年度	対象住宅	床材	壁材	天井材	延床面積
2020	A	フローリング	壁紙	石膏ボード	14.6 m ²
	B	塩化ビニルシート	塗料	石膏ボード	10.9 m ²
	C	フローリング	壁紙	壁紙	18.2 m ²
	D	フローリング	壁紙	壁紙	27.5 m ²
	E	フローリング	壁紙	壁紙	23.0 m ²
	F	塩化ビニルシート	壁紙	壁紙	27.5 m ²
	G	塩化ビニルシート	壁紙	壁紙	26.5 m ²
	H	塩化ビニルシート	吹付塗料	石膏ボード	66.9 m ²
	I	塩化ビニルシート	壁紙	壁紙	38.0 m ²
2021	A	フローリング	壁紙(PVC クロス)	壁紙(PVC クロス)	22.6 m ²
	B	フローリング	壁紙(紙クロス)	壁紙(紙クロス)	143.7 m ²
	C	塩化ビニルシート	タイル	石膏ボード	23.1 m ²
	D	塩化ビニルシート	壁紙(PVC クロス)	壁紙(PVC クロス)	29.1 m ²
	E	フローリング	壁紙(PVC クロス)	壁紙(PVC クロス)	24.3 m ²
	F	フローリング	壁紙(PVC クロス)	壁紙(紙クロス)	24.3 m ²

表 2 家具・家電製品の概要

測定年度	家具・家電製品	表面処理	製造年
2023 年	机	Pvc 貼り	2022 年
	椅子	合成皮革	2022 年
	冷蔵庫	塗装	2023 年
	電子レンジ	塗装(ペイント)	2023 年
	モニタ(表)	合成樹脂	2022 年
	モニタ(裏)	塗装	2022 年
2022 年	冷蔵庫	塗装(ペイント)	2018 年
	洗濯機	塗装	2017 年
	電子レンジ	塗装(ペイント)	2007 年
	テレビ	塗装	2010 年
	モニタ(表)	合成樹脂	2012 年
	モニタ(裏)	塗装	2012 年

表 3 測定条件

測定項目	温度条件とサンプラー名		
	18 °C	22 °C	28 °C
放散速度	18-E	22-E	28-E
表面ブリードアウト	18-B	22-B	28-B

表 4 放散試験の測定条件

チャンバー容積	630 mL
サンプリング時間	24 h
吸引流量	30 mL/min × 24 h = 43.2 L
ベント流量	15 mL/min
MC 供給流量	15 mL/min
捕集管	Tenax TA(60/80 mesh) 充填

表 5 加熱脱着試験の測定条件(MSTD-258M)

加熱脱着温度	30 °C (5 min)-(20 °C/min) -220 °C (40 min)
サンプリング時間	60 min
吸引流量	60 mL/min
供給ガス流量(He)	90 mL/min
捕集管	Tenax TA(60/80mesh) 充填

表 6 TA 捕集管の加熱脱着条件(GERSTEL TDS A)

加熱脱着条件	280 °C (10 min)
トラップ温度	-60 °C
注入温度	325 °C (5 min)

表 7 GC/MS の分析条件

使用機器(GC/MS)	Agilent 6890N / 5973inert
カラム	Inert Cap 1MS 30 m × 0.25 mm × 0.25 μm
GC オープン温度	50°C(2min)→10°C/min→320°C(5min)
スプリット比	低濃度 : splitless、高濃度 : 50 : 1
測定モード	SCAN
SCAN パラメータ	m/z 29(Low)~550(High)
検出器温度	230 °C

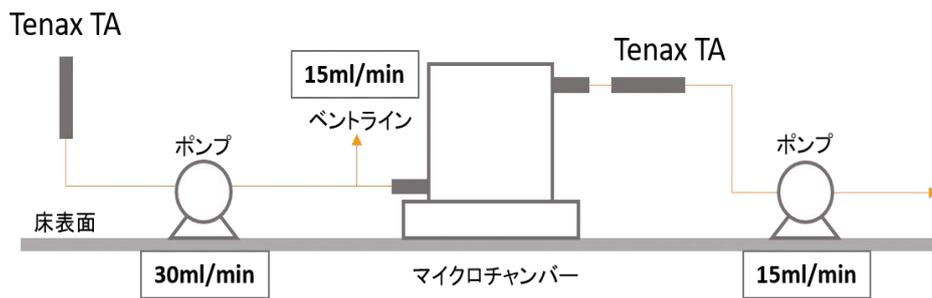
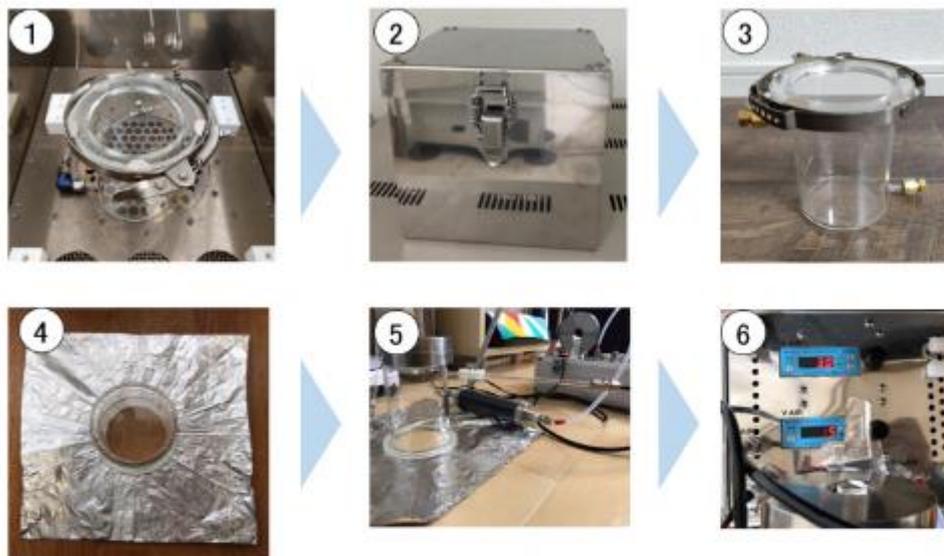
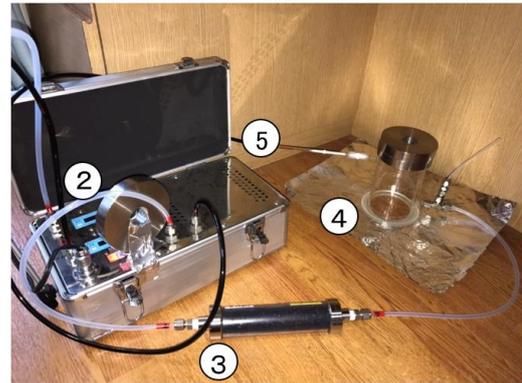


図 1 現場測定法の装置構成図



- ①マイクロチャンバーに残存する化学物質を加熱処理で取り除く。
- ②加熱処理終了後、マイクロチャンバーをステンレス製運搬ボックスに入れ、測定現場に運搬する。
- ③マイクロチャンバーをステンレス製運搬ボックスから取り出し、測定準備を行う。
- ④測定を行う床面をエタノールで拭き取り、アルミホイルを敷いた上にマイクロチャンバーを設置する。
- ⑤マイクロチャンバーに空気捕集ポンプ、Tenax TA捕集管、活性炭入りフィルターを接続する。
- ⑥空気捕集ポンプの電源を入れ、供給流量を30ml/min、吸引流量を15ml/minに調整し、24時間測定を行う。

図 2 オンサイト試験法の測定手順



- ① Tenax-TA管(気中濃度測定用)
- ② 空気捕集ポンプ
- ③ 活性炭フィルター
- ④ マイクロチャンバー
- ⑤ Tenax-TA管(放散速度測定用)

図3 現場測定法の様子

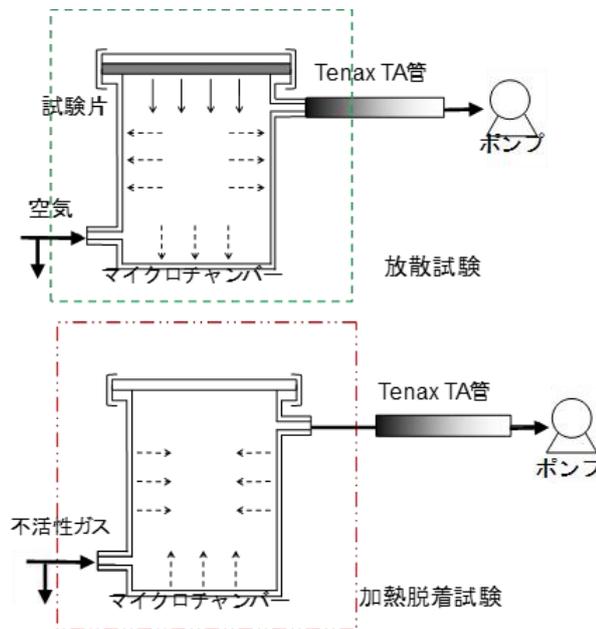


図4 マイクロチャンバー法の測定イメージ図



図5 表面ブリードアウト濃度の測定様子と加熱脱着様子

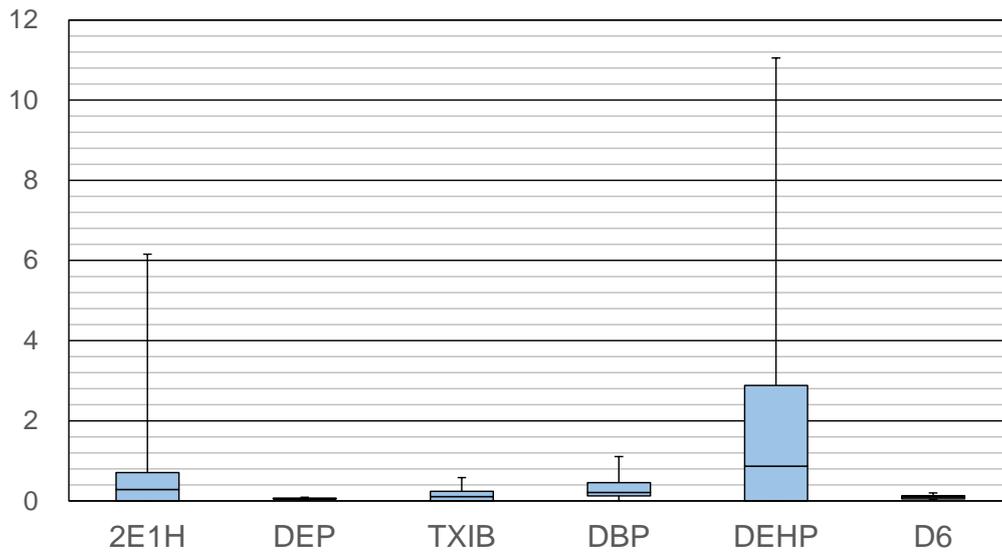


図6 床材からのSVOC放散速度

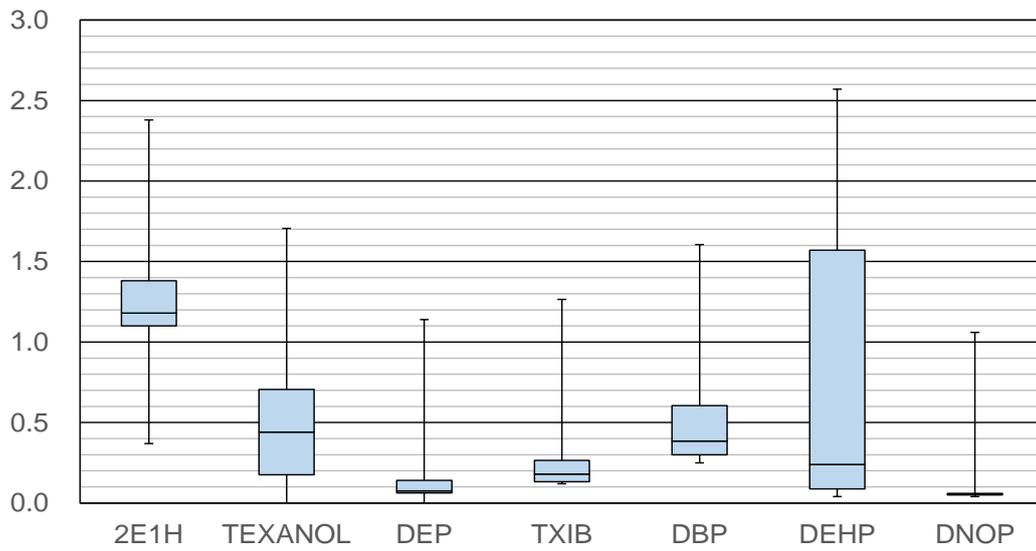


図7 壁材からのSVOC放散速度

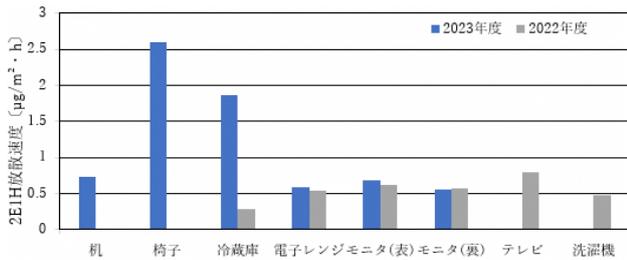


図 8 2E1H 放散速度

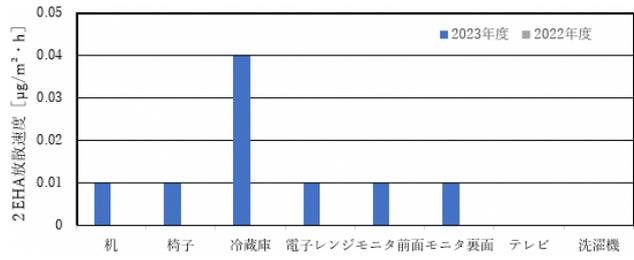


図 9 2EHA 放散速度



図 10 BHT 放散速度

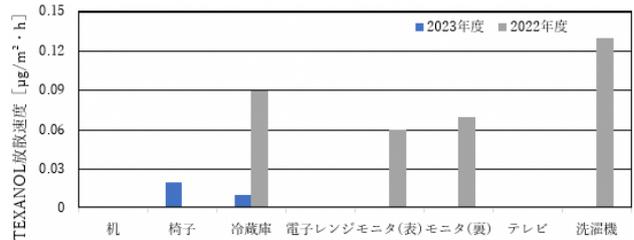


図 11 TEXANOL 放散速度

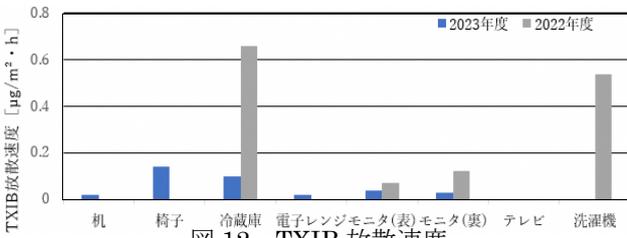


図 12 TXIB 放散速度

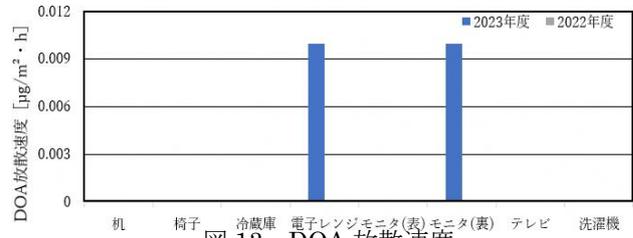


図 13 DOA 放散速度

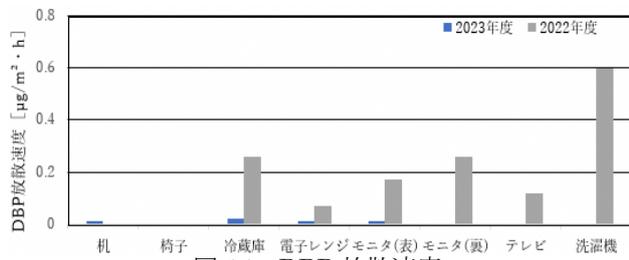


図 14 DBP 放散速度

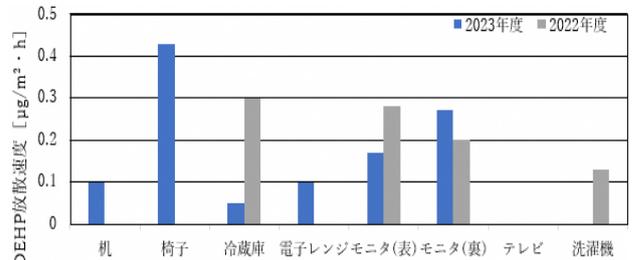


図 15 DEHP 放散速度

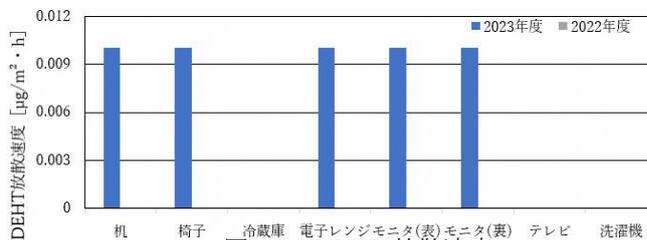


図 16 DEHT 放散速度

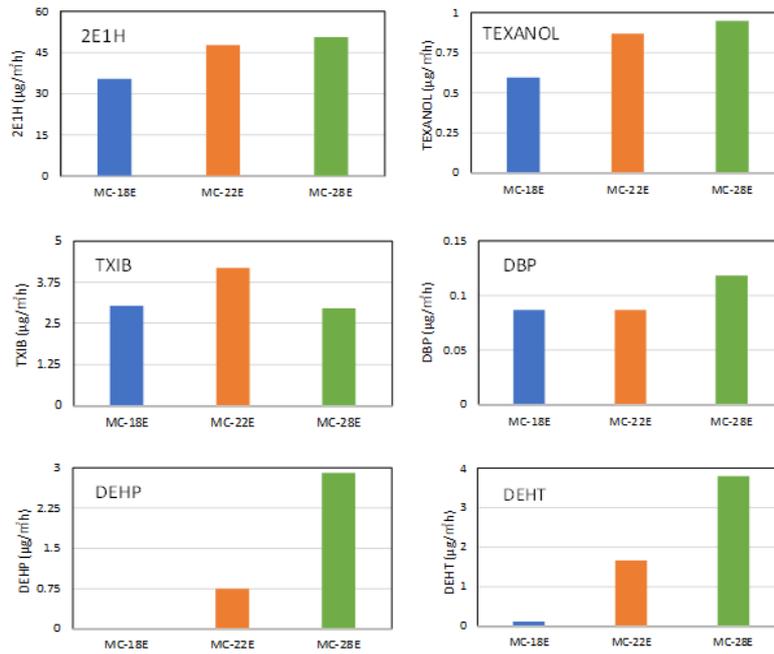


図 17 各 SVOC の放散速度の測定結果

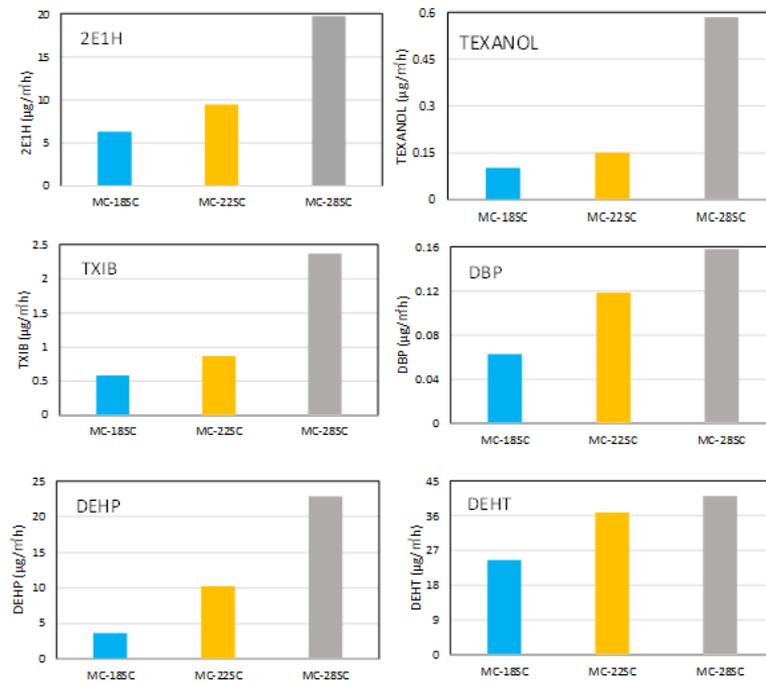


図 18 各 SVOC の表面ブリードアウトの測定結果

室内空気汚染化学物質の標準試験法の開発・規格化および国際規制状況に関する研究

研究分担者 伊藤一秀 九州大学総合理工学研究院 教授

研究要旨：

本申請課題(分担)では、分担課題③として、室内環境汚染化学物質の曝露濃度評価の為に *in silico* 予測モデルを開発した上で、標準試験法に基づいた化学物質濃度測定結果と *in silico* 予測モデルを併用して経気道曝露濃度ならびに経皮曝露濃度を定量的に予測する技術を確認する。特に室内環境中に形成される室内環境汚染化学物質の不均一濃度場形成を定量的に評価する計算流体力学 CFD 技術と、呼吸空気質・経気道曝露濃度さらには気道粘膜上皮を介した体内薬物(環境汚染化学物質)動態メカニズムを精緻に予測評価する数値人体モデルの技術を統合した新しい *in silico* 予測モデルを提案する。最終的に、室内濃度指針値既設化学物質測定方法のリバイス版を適用した室内濃度測定結果から、居住者の経気道曝露濃度を予測する一連の数値解析技術を確認する。

A. 研究目的

室内環境汚染化学物質の曝露濃度評価の為に *in silico* 予測モデルを開発した上で、標準試験法に基づいた化学物質濃度測定結果と *in silico* 予測モデルを併用して経気道曝露濃度ならびに経皮曝露濃度を定量的に予測する技術を確認する。

研究初年度である令和 3 年度は、計算流体力学による室内濃度分布解析に統合可能な *in silico* 人体モデルのプロトタイプモデルを作成し、特に代表的な SVOC である DEHP を対象とした室内濃度分布解析手法ならびに人体モデルとの連成解析手法の確認を目的とした。

研究二年目である令和 4 年度は、室内に形成される不均一濃度分布と経気道曝露濃度までを定量的に評価する計算流体力学と統合した *in silico* 人体モデルの開発を目的とした。

研究三年目である令和 5 年度は、改良型 *in silico* 数値人体モデルを実大スケール居室モデル内での経気道曝露評価に適用し、気道内粘膜上皮細胞内の曝露濃度時間変化の数値予測を目的とした。

B. 研究方法

化学物質による室内環境空気汚染は深刻な健康影響の懸念される社会問題であり、その対策・技術開発のためには、居住者の個人曝露量予測・評価が基本になる。一般的には、室内空気中の化学物質濃度を現場で測定する実測調査を行い、間接的に個人曝露量評価を行う。しかし、実測調査には限界があることから、実測調査のみに基づかない個人曝露量評価手法の構築の必要性がある。そこで、研究初年度である令和 3 年度は、広域スケールで汚染の実態把握を行うために有効なマクロな統計データを使用するマテリアルフロー分析に着目し、社会的なストックデータから室内での空気汚染レベルと個人曝露量予測を予測する手法の構築を行った。特に、室内環境中で可塑剤として使用されるフタル酸ジ(2-エチルヘキシル)(DEHP)を評価対象物質として、マテリアルフロー分析と CFD (計算流体力学) と CSP (ここでは *in silico*

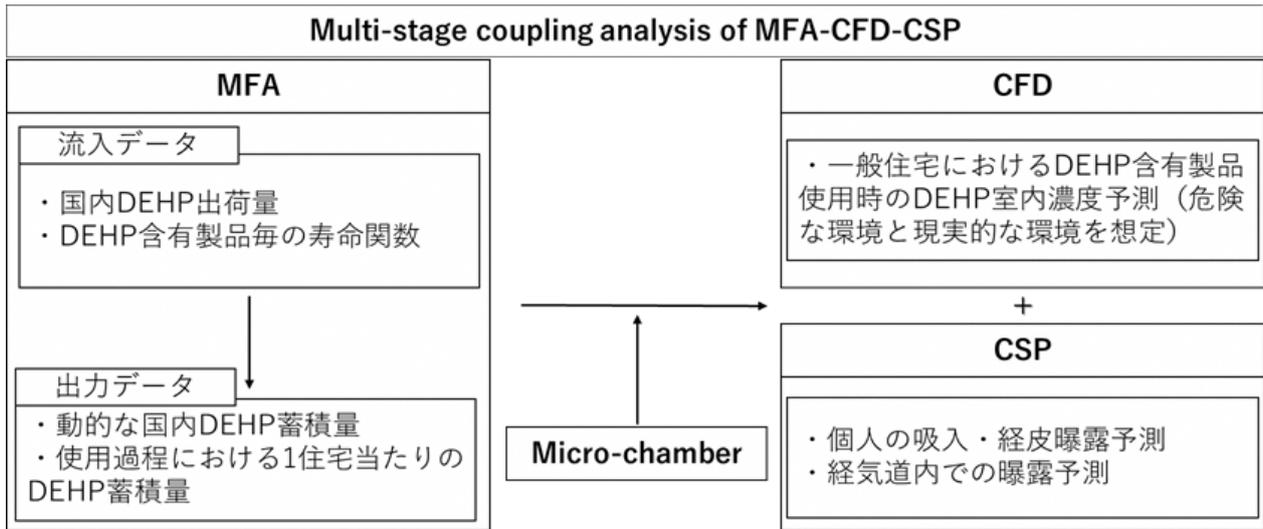


図1 MFA—CFD—CSP 統合解析のフローチャート

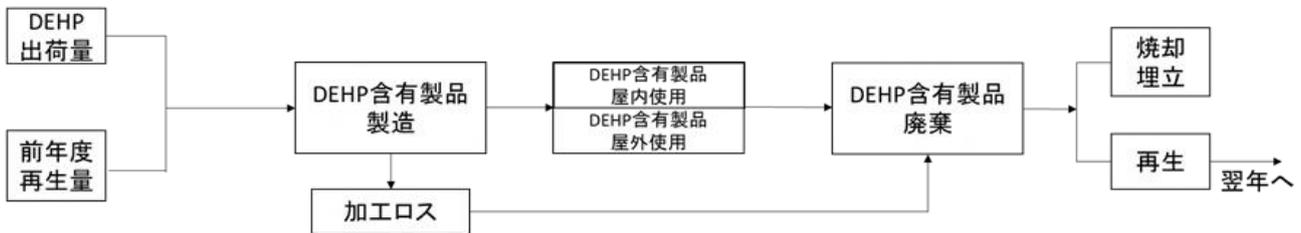


図2 DEHP 含有製品ライフサイクルフロー

人体モデルを Computer Simulate Person の略として CSP と略して記す) を統合させることで、マクロなデータから個人曝露量予測までを一連のフレームワークとしてシームレスに解析する新たな数値解析手法を提案した。

DEHP 含有製品の動的なマテリアルフロー分析は、産総研 DEHP 詳細リスク評価書に準拠し 11 製品を対象とする。システム全体の流入量の DEHP データは、可塑剤工業統計データや可塑剤へのヒアリング結果から取得する。マテリアルフロー分析の使用過程における DEHP スtock量 $S(t)$ 推計は、システム全体の流入量を DEHP 出荷量とし、耐久消費財の寿命関数 $F(x)$ として用いられるワイブル分布を用いて、各製品の寿命を考慮し、以下の式で推計を行う。

$$S(t) = \int_{t'}^t \{I(t') \cdot (1 - F(t - t'))\} dt' \quad \dots\dots(1)$$

$$F(x) = \left(\frac{u}{v}\right)^x x^{u-1} \exp\left[-\left(\frac{u}{v}\right)^x\right] \quad \dots\dots(2)$$

ここで、 t' は t 年を基準とした出荷年である。つまり、 $F(t-t')$ は、 t' 年に出荷された製品の t 年での廃棄率を示す。ワイブル分布の各パラメータは、産総研 DEHP 詳細リスク評価書で用いているパラメータに準拠する。

また、DEHP 含有製品毎の DEHP 放散量データを取得するためにマイクロチャンバー法 (JIS A1904) で測定も実施する。一般的に流通している DEHP 含有製品を 7 サンプル購入し、DEHP 放散速度を測定した。

マテリアルフロー分析とマイクロチャンバー放散実験結果を用い、日本建築学会が示す標準住宅モデルを参考に、一般住宅内における DEHP 個人曝露量予測のケーススタディを行った。

室内空気中の有害物質の曝露濃度基準は、本来、動物試験における経気道曝露時の無毒性量であるにも係わらず、実際には環境空気中の有害物質濃度の基準(閾値)として採用される場合が多い。空

気環境設計上、室の代表濃度をこれらの閾値で代表することは第一次近似として一定の妥当性があると思われるが、室内環境中での実質的な経気道曝露を考慮すれば、室の平均濃度と呼吸濃度には大きな乖離が存在する可能性がある。

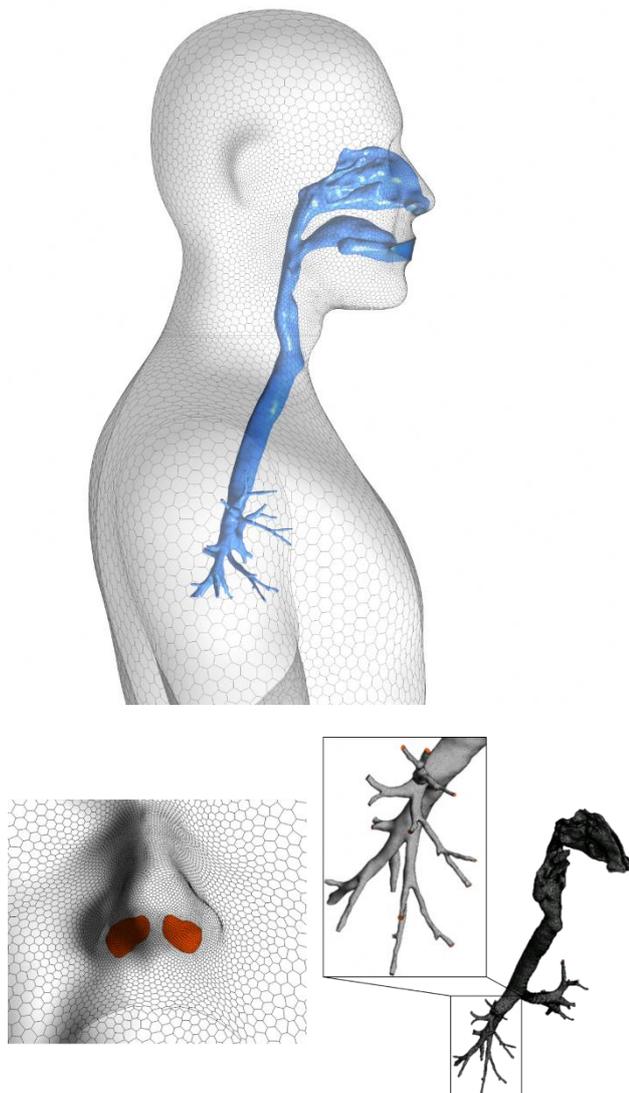


Fig.1 Grid design of *in silico* human model with numerical respiratory tract model

この経気道曝露濃度の正確な予測評価に向けて、研究二年目である令和4年度は、非定常呼吸を再現した数値人体モデル CSP (Computer Simulated Person) と数値気道モデル、室内濃度場解析を統合解析することで、曝露経路と曝露濃度の正確な予測を行い、その上で健康リスク評価を行う一連の

数値解析手法を開発した。室内空間から人体呼吸域、更に鼻腔、口腔を介して気道内まで連続した解析領域を再現することで、室内汚染物質濃度分布と呼吸によって形成される気道内汚染物質濃度分布までを高精度に予測することが可能となる。加えて、気道内壁面境界条件として生理的薬物動態 PBPK (Physiologically Based Pharmacokinetic) モデルを統合することで、気道粘膜上皮組織に沈着後の汚染物質の体内動態と人体影響を定量的に議論することも可能となる。

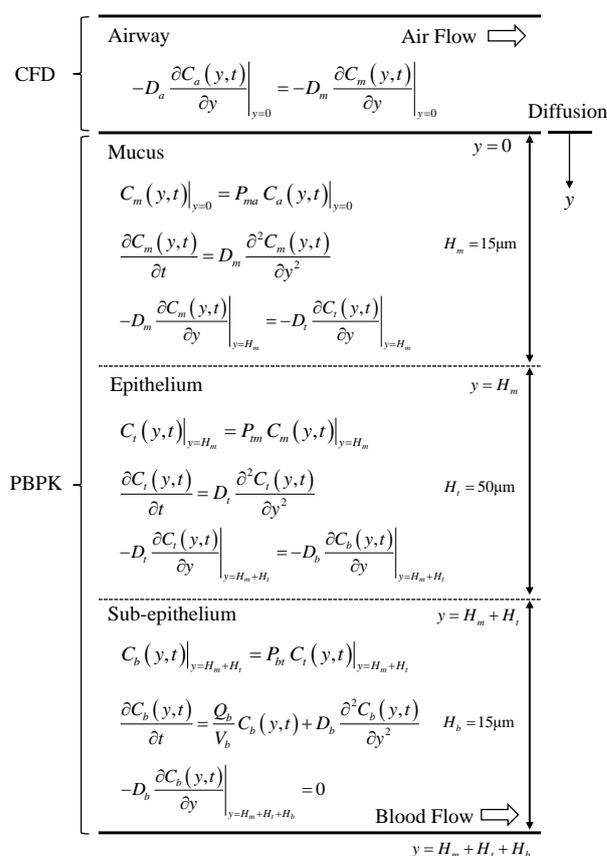


Fig.2 PBPK-CFD model for inhalation exposure analysis

開発した気道統合型数値人体モデル(*in silico* 人体モデル)を Fig. 1 に示す。標準人体の幾何形状を数値流体力学(CFD)解析への適用を前提としてグリッドデータ化したもので、表面積 1.7m²、身長 1.736m である。再現性や精度について十分な事前検討を実施している。数値気道モデルは、非喫煙

の日本人男性(平均的な体型)の CT データをもとに形状作成したもので、鼻腔・口腔から咽頭、喉頭、気管を経て気管支の第四分岐部までの上気道の実形状を正確に再現している。鼻孔を介して室内空間から気道内部への流れと汚染物質濃度場を連続して予測するために、数値人体モデルと数値気道モデルをなめらかに統合し、室内環境から気道内までを一連の解析空間として再現している。経気道曝露予測へ適用するためには、気道粘膜上皮界面での汚染物質吸収と体内動態を予測する必要がある。そのため、*in silico* 人体モデルの気道内壁面境界条件として PBPK-CFD モデルを適用する。その概要を Fig.2 に示す。経気道曝露予測では、ガス状汚染物質の気道粘膜上皮表面への沈着(吸着)、拡散輸送、代謝クリアランス、血流による上皮組織外への輸送を数理的に再現するため、3層からなる生理的薬物動態 PBPK モデルを導入している。各層の構成は、粘膜(Mucus)、上皮(Epithelium)、上皮組織(Sub-Epithelium)であり、それぞれ $H_m = 15 \mu\text{m}$, $H_t = 50 \mu\text{m}$, $H_b = 15 \mu\text{m}$ の厚さとする。また、組織内輸送は、Tian と Longest によって提案されたコンパートメントモデルの概念に基づいて一次元反応拡散と見做してモデル化している。

Fig.2 中に示す呼吸器組織内の汚染物質の非定常反応拡散輸送を記述する支配方程式において、 C_m , C_i , C_b はそれぞれ粘膜、上皮、上皮組織中の汚染物質濃度 [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]、 D_m , D_i , D_b はそれぞれ粘膜、上皮、上皮組織中の拡散係数 [m^2/s] である。また、 Q_b は上皮組織中の血流速度 [ml/s]、 V_b は上皮組織中の体積 [ml]、 y は空気と粘膜の界面からの呼吸器組織内の距離 [m] を示す。呼吸器系組織内の対象汚染物質の初期濃度はゼロとし、空気-粘膜界面、粘膜-上皮界面、上皮-上皮組織界面での局所平衡を仮定する。分配係数(線形吸着等温式のヘンリー定数)を適用することで気相-粘膜層の濃度変換を行い、また、界面ではフラックス保存を課す。 P_{ma} , P_{tm} , P_{bt} は粘膜-空気、組織細胞-粘

膜、血流-組織細胞の界面での分配係数 [m^3/m^3] を示す。

この *in silico* 人体モデルを実大居室スケール実験室内に設置した条件で、アンモニアを対象とした室内拡散と経気道曝露予測に適用した。解析対象空間を Fig.3 に示す。本解析では、開発した *in silico* 人体モデルと室内環境解析の統合解析の検証を主たる目的とすることから、化学物質発生に関しては簡易的な境界条件と想定し、Fig.3 中の Source 位置に液体アンモニアが漏洩した条件を設定した。

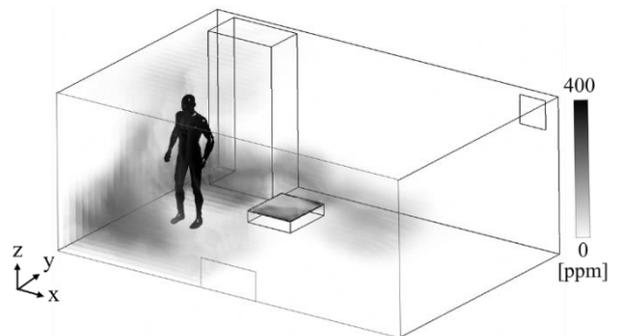


Fig.3 Room model analyzed and three-dimensional ammonia concentration distribution (a minute later)

最終年度(令和 5 年度)は、これまでに開発した数値気道モデル(鼻腔・口腔から気管支第4分岐まで)を対象とした曝露濃度予測精度を更に向上させる目的で、CT データを用いて細気管支部分を拡張すると共に、口腔内の歯列までを詳細に再現することで、改良型の数値気道モデルを作成した。気道内の上皮細胞表面の粘液層を再現した上で、化学物質クリアランスを予測するための粘液輸送モデルを開発・統合した。更に昨年度に開発統合した気道内粘膜上皮細胞における界面境界条件設定のための生理的薬物動態モデル(PBPK)を室内濃度指針値既設化学物質ならびに室内環境中に存在するその他の多様な化学物質の経気道曝露濃度予測に展開するため、文献調査データを基にしてホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、トルエン等の化学物質を対象としてモデルパラメータの同定を行

った。最終的にこの数値気道モデルを数値人体モデルに統合することで改良型 *in silico* 数値人体モデルを作成した。

C. 研究成果

本研究で新たに開発した経気道曝露評価のための *in silico* 人体モデル(CSP)の概要を Fig.1 に示すと共に、気管支第 16 分岐まで拡張した改良型気道モデルの概要を Fig.4 に示す。ボランティア被験者の上半身 CT データを利用して鼻腔・口腔から気管支第 4 分岐までを含む気道幾何形状を抽出した上で、計算流体力学 CFD 解析に適用するための表面メッシュ作成ならびに空間メッシュ作成を行い、数値気道モデルを作成している。気道内の粘膜上皮層には粘液輸送を再現するために $50\mu\text{m}$ 厚の液相解析用レイヤーを確保した。この数値気道モデルを環境解析用の数値人体モデルに統合することで、経気道曝露解析用の *in silico* 人体モデル(CSP)を作成している。

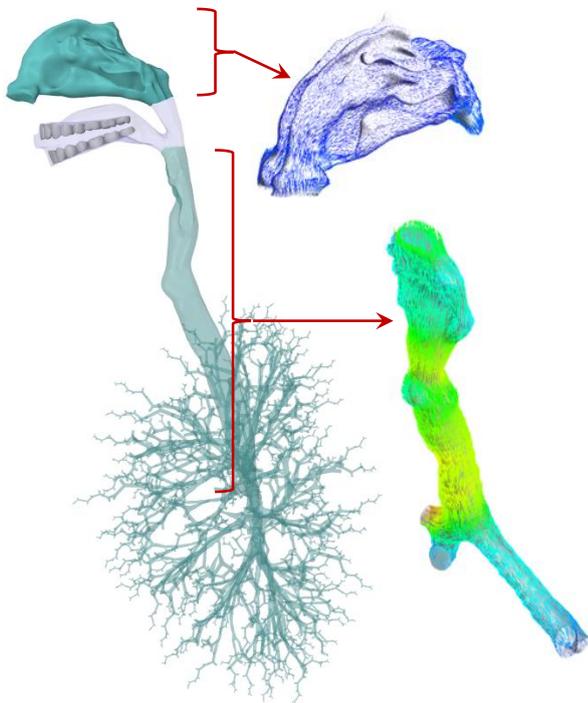


Fig. 4 *in silico* airway model and mucus flow distributions at upper and lower airway

Fig. 2 に示した DEHP 含有製品ライフサイクルフ

ローに従って、質量ベースの DEHP 蓄積量の推計結果を基に換算係数を適用して面積ベースに換算し、室内用途比率を考慮することで、室内における DEHP 蓄積量を推計した。その結果を Fig.5 に示す。2019 年に着目すると、一般フィルム用途が全体の 46%、壁紙用途が 39%、床材用途が 6%を占める結果となった。これら 3 製品が主に、室内環境中で使用されると仮定し、1 住宅あたりの蓄積量を推計したところ、2018 年において、一般フィルムが 32.14m^2 、壁紙が 48.27m^2 、床材が 9.44m^2 という推計結果となった。

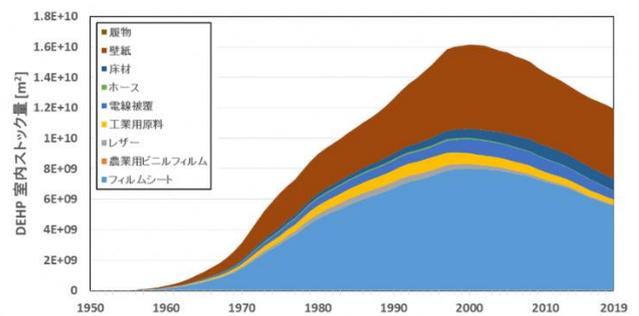


Fig.5 Floor area-based DEHP stock in Indoors

ここでは、建築資材ならびに室内仕上げとして使用頻度の高い汎用的な DEHP 含有製品を 7 種類選定し、ISO ならびに JIS で基準化されている SVOC 放散測定法に従って DEHP 放散量の測定も実施した。

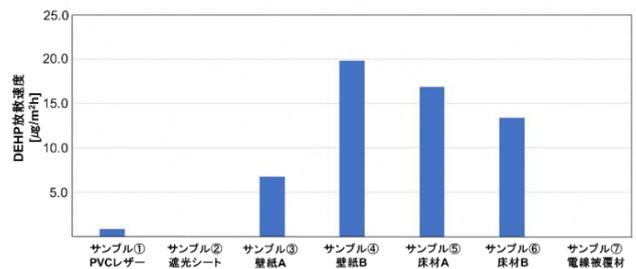


Fig.6 DEHP Emission rate (Micro-chamber method)

マイクロチャンバー放散実験により得られた汎用的な DEHP 含有製品による放散速度を Fig.6 に示す。壁紙 B が最大の $19.85\mu\text{g}/\text{m}^2\text{h}$ となった。壁紙 A では $6.75\mu\text{g}/\text{m}^2\text{h}$ となり、ほとんど同様の塩

ビ系壁紙製品でも、DEHP 放散速度の違いが確認された。また、一般フィルムを想定した遮光シートと、電線被覆材からは、DEHP 放散は確認できなかった。

続いて、標準住宅モデル内の単純室内モデルを対象として、MFA の分析結果を境界条件としてダウンスケーリングした連続解析を実施した。ここでは、現実的な DEHP 含有建材の使用面積(壁面 4 面を放散面と想定)を想定して、室内流れ場、室内 DEHP 濃度分布を解析した上で、CSP の経皮曝露濃度分布、経気道曝露濃度分布を定常状態を想定して解析した。

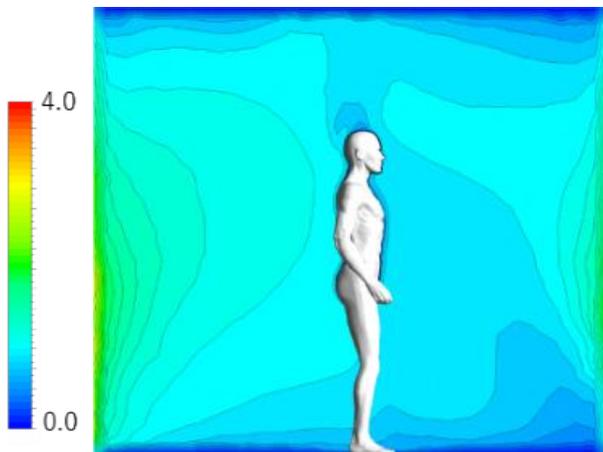


Fig.7 DEHP concentration distribution around CSP in indoor environment [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]

室内 DEHP 濃度分布解析結果の一例を Fig.7 に示す。本解析条件では、室内平均濃度は $0.982 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、吸入平均濃度は $0.791 \mu\text{g}/\text{m}^3$ となった。

また、裸体を仮定した場合の人体皮膚表面における DEHP 吸着フラックス分布ならびに気道内の DEHP 吸着フラックス分布の解析結果を Fig.8 に示す。数値人体表面吸着フラックスは $0.00143 \mu\text{g}/\text{m}^2\text{s}$ 、経気道内吸着フラックスは $0.00207 \mu\text{g}/\text{m}^2\text{s}$ となった。経気道曝露に着目すると、鼻呼吸を想定した場合には、鼻腔内での DEHP 吸着が支配的であり、吸入 DEHP 総量に対して下気道まで輸送される成分量は非常に少ないことが明らかとなった。



Fig.8 DEHP adsorption flux distributions on skin surface of CSP and on epithelium tissue surface of respiratory tract [$\mu\text{g}/\text{m}^2\text{s}$]

続いて、*in silico* 人体モデルを実大居室スケール実験室内に設置した条件で、アンモニアを対象とした室内拡散と経気道曝露予測に適用した。

流れ場解析には SST k- ω Model を適用し、CFD による定常流れ場解析の後に、アンモニア液面位置に飽和気相濃度を与え、非定常濃度場解析を行った。実大スケール実験室モデルの給気口からの流入空気のアンモニア濃度は 0 とした。液体アンモニアの蒸発に伴う液面の温度変化(蒸発潜熱)は無視し、一定温度を仮定して解析を実施した。

Fig.3 に室内モデルの概要に加え、アンモニア水溶液の漏洩から 60 秒後の室内のアンモニア濃度分布を併せて示している。アンモニア液面から人体周囲へ向かう輸送経路中に、室に流入した清浄空気によってアンモニア濃度は十分に希釈され、室内に不均一な濃度分布が形成されていることが確認できる。

Fig.9 には室全体の体積平均アンモニア濃度および鼻孔開口部(鼻腔界面)でのアンモニア濃度の時間履歴を示す。アンモニア水溶液の蒸発開始から 30 秒後に鼻孔開口部における濃度の増加が確認

できる。本解析ではアンモニア水溶液の蒸発開始後、30秒後に完全に蒸発する条件とした。また、鼻孔開口部におけるアンモニア濃度は、室全体の平均濃度と比べて時間経過と共に大きく変動する様子が確認できる。これは室内濃度分布の不均一性と呼吸活動および発生ガスの非定常性に因るものであり、高濃度短期暴露の場合には、室内の不均一濃度分布を考慮した人体の経気道暴露濃度を予測することが重要となることを示している。

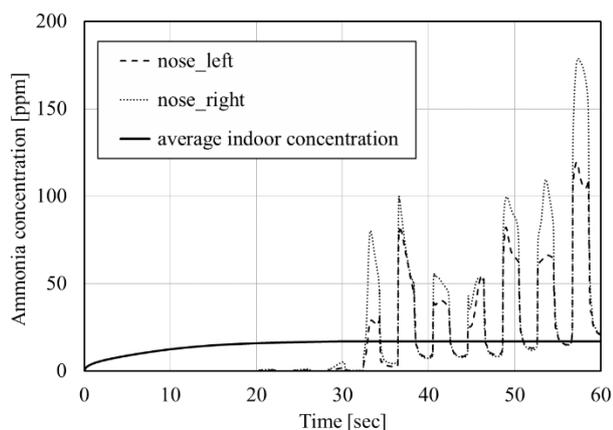
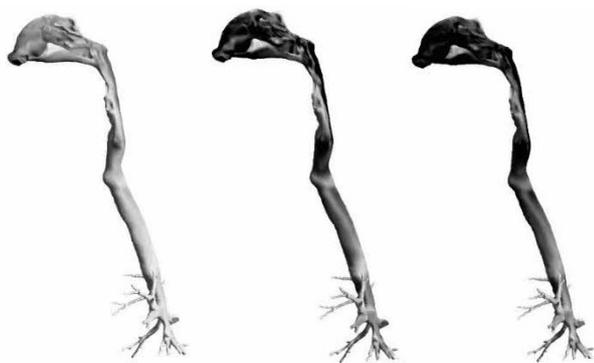


Fig.9 Change over time in ammonia concentration



(1) $t=40s$ (2) $t=50s$ (3) $t=60s$
Fig.10 Time series of ammonia concentration distribution in the respiratory tract model

Fig.10 は気道モデル内のアンモニア表面濃度分布を示す。時間経過に伴い呼吸によって気道内に取り込まれるアンモニアガスの濃度上昇に応じて、気道内表面における汚染物質濃度も上昇する様子が確認できる。Fig.11 には気道粘膜上皮から体内側の細胞組織中へ向かうアンモニアの濃度分布を

示す。アンモニアの場合、粘膜上皮・上皮組織での代謝クリアランスが無視できるほど小さく、これらの組織内をほぼ拡散移動する。アンモニア水溶液が漏洩してから蒸発して消失するという一連の解析において、経気道曝露(鼻孔開口部)濃度は漏洩開始から30秒後に変化が確認され、57秒後に179[ppm]まで上昇した。これは、室の平均濃度と比べて10倍以上大きい値であり、室の平均濃度と呼吸濃度には大きな乖離が存在することが *in silico* 解析によって明らかとなった。

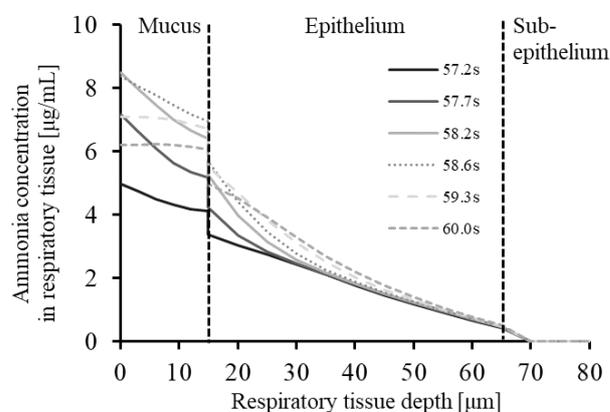
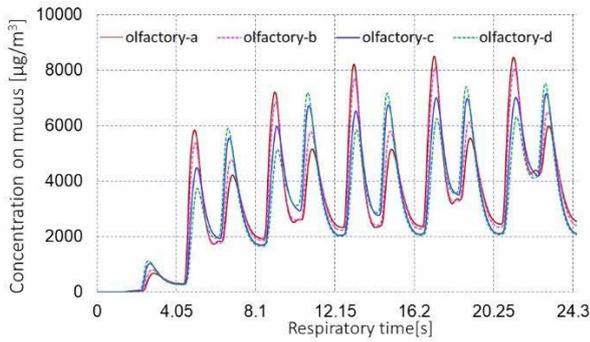


Fig.11 Ammonia contaminant concentration profile inside the respiratory tissue (a minute later)

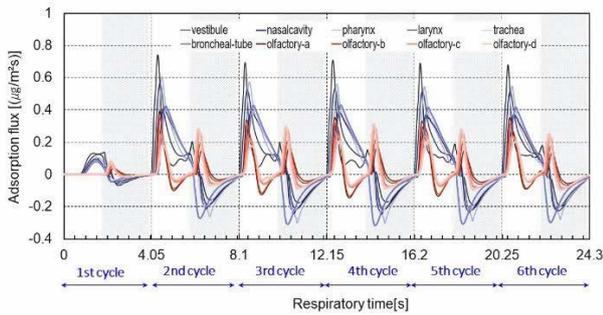
研究の最終年度では、鼻腔・口腔から気管支第16分岐までを再現した上で口腔内の歯列を正確に再現した改良型数値気道モデルを開発すると共に (Fig.4)、この改良型モデルを用いて数値解析を実施した。

非定常の呼吸サイクル(呼出・吸入)を再現した条件で、室内環境中のガス状化学物質(ここではアセトンの例)による経気道曝露の非定常解析結果の一例を Fig.12 に示す。ここでは、特に鼻腔の嗅覚領域における粘膜上皮細胞に対する化学物質吸着フラックスの時間変化ならびに界面濃度の時間変化を示す。更に、室内空気中の温度・湿度条件が気道内化学物質輸送に与える影響を定量的に解析するために、気道内の粘膜上皮細胞界面での熱水分輸送解析も連成解析する手法を開発した。気道内

の熱水分移動解析結果を Fig.13 に示す.



(1) Equilibrium concentration at mucus-lumen interface (Six breathing cycles)



(2) Time series of adsorption flux onto mucus surface for six breathing cycles

Fig.12 Example of VOC adsorption onto epithelial tissue surface (olfactory region) of airway model

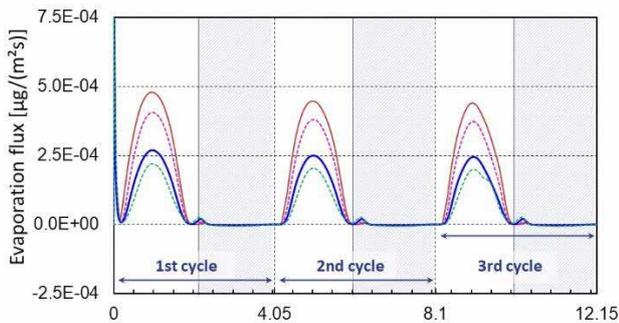
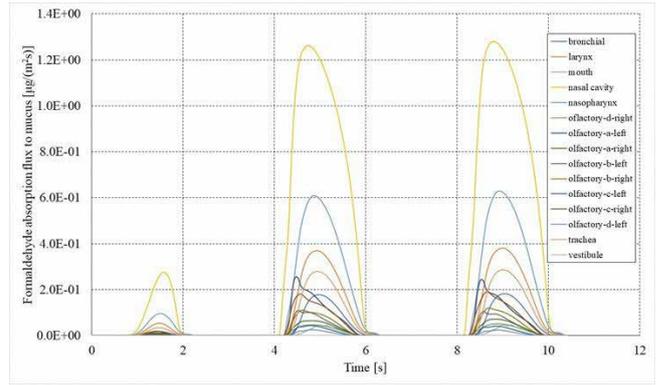
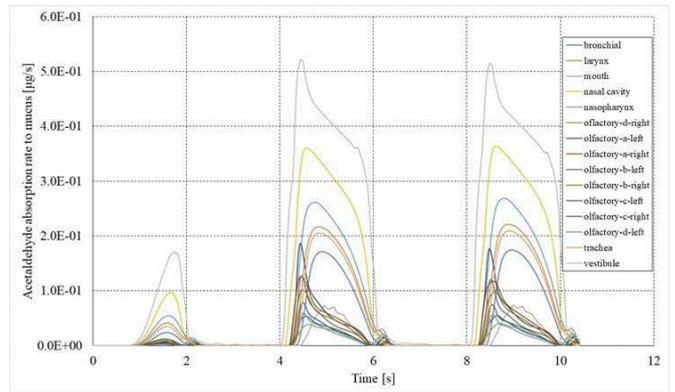


Fig.13 Moisture transfer in respiratory tract

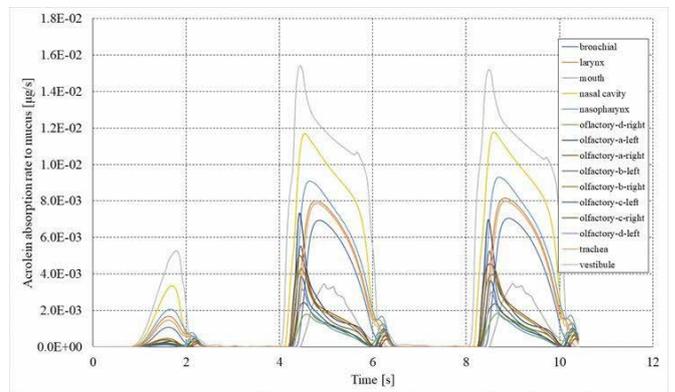
更に、室内環境基準が定められている化学物質を対象として、経気道曝露解析を行った結果を Fig. 14 に示す。代表的な化学物質として、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、アクロレインの3物質を対象とした場合の3呼吸サイクル分の解析結果を示している。



(1) Formaldehyde



(2) Acetaldehyde



(3) Acrolein

Fig.14 Example of representative aldehyde adsorption onto epithelial tissue surface (olfactory region) of airway model

アルデヒド系化学物質は気道粘液ならびに粘膜上皮細胞に対する吸収率が高いことから、吸入時に気道内に輸送された化学物質は気道界面に吸着し、Michaelis-Menten 式で記述される代謝クリアランスが寄与することで、粘膜上皮細胞・上皮下組

織で効率的に濃度低下する。結果として、気道内腔に残存する化学物質濃度が低下することから、吸出時には気道界面沈着はほぼゼロとなり、室内側への呼出時には空气中濃度がほぼゼロとなることが確認されている。

D. 考察

研究初年度には、マテリアルフロー分析(MFA)より室内での DEHP 含有建材の使用量を推定した上で、小形チャンバー法を併用して DEHP 放散速度の境界条件を設定し、室内 CFD を連続して実施する数値解析手法を検討したが、壁面 4 面に DEHP 放散面を設置した解析では、既往研究における実測値(最大値 $2.38 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 程度)と同等レベルの室内濃度予測結果となり、実用上は十分な予測精度が担保されていることを確認した。また、CFD-CSP の統合解析を行うことで、経気道曝露ならびに経皮曝露の予測が可能となることも確認した。社会的なストックデータから MFA を行うことで、合理的な CFD 解析の壁面境界条件を設定できる可能性を示した。

本研究では鼻腔・口腔から気管支第 16 分岐までを精緻に再現した *in silico* 気道モデルを作成したが、これは限定されたボランティア CT データを使用して作成したものである。複数の気道モデルを対象とした比較研究では、特に上気道曝露量予測において最大 20%程度の個体差があるとの報告例もある。また、RMIT の Tao らの研究グループは人体形状やサイズが異なる場合の個体差について小型のマネキンを用いた風洞実験結果を報告しており、体型や姿勢が人体周辺微気象形成に一定程度影響を与えることを報告している。本研究で開発した *in silico* 人体モデルを用いた解析では、室の代表濃度とは異なる経気道曝露濃度を予測することが可能となることを例証的に示す事には成功したと云えるが、室内環境から人体、更には気道内の曝露予測を一連の解析として実施した場合の全体的な予測精度に関しては、定量的な検証が出来

ていない。人体幾何形状から気道幾何形状を含めた個体差の影響も含め、これらについての検討は今後の課題である。

室内空気環境に関連する国際標準化を担う ISO TC146 SC6 では、WHO ならびに厚生労働省が定める室内濃度指針値既設化学物質の他、室内空气中の真菌、エアロゾル等の標準化もターゲットとしており、現時点で規制対象となっていない新規の室内汚染物質に関する議論も進められている。本研究で開発した *in silico* 人体モデルの利点は、倫理的な制約を受けることなく、無限のパラメトリックスタディを可能とする点にある。新規対象化学物質の経気道曝露予測を行うために必要となるモデルパラメータの同定方法を整備することで、これらの将来課題に対して迅速な対応が可能となる。

E. 結論

研究初年度は、DEHP 個人曝露量予測のために人体幾何形状と気道形状を再現した *in silico* 人体モデルのプロトタイプモデルを作成し、マテリアルフロー分析による DEHP の社会ストックデータから室内での空気汚染レベルと個人曝露量予測を連続してシームレスに解析する新たな数値解析手法を確立した。

研究二年目には、室内に形成される不均一濃度分布と経気道曝露濃度までを定量的に評価する計算流体力学と統合した *in silico* 人体モデルを開発した。特に、気道モデルに流体解析と連成解析可能な生理的薬物動態モデル(PBPK-CFD モデル)を適用することで、室内の濃度分布情報に加えて不均一濃度分布を考慮した経気道曝露濃度の評価が可能となることをアンモニア水溶液からのガス状アンモニアの室内拡散を想定した例証的な解析事例として示した。

最終年では、数値気道モデルならびに数値人体モデルの改良に取り組み、室内環境から気管支第 16 分岐までの細気管支までの化学物質輸送を連続し

て解析可能な *in silico* 人体モデルを作成した。また、気道モデル界面に適用する生理的薬物動態モデル(PBPK-CFD モデル)のモデルパラメータを同定・拡張することで、室内濃度指針値既設化学物質を含む多様な化学物質を対象とした経気道曝露濃度予測に適用可能なモデルとして整備した。

F. 健康危険情報

(総括研究報告書に纏めて記入)

G 研究発表

1. 論文発表

- [1] Mitsuharu Sakamoto, Kazuki Kuga, Kazuhide Ito, Gabriel Beko, Mengze Li, Jonathan Williams and Pawel Wargocki, CO2 Emission rates from sedentary subjects under controlled laboratory conditions, *Building and Environment*, 2022, In Press
(doi.org/10.1016/j.buildenv.2021.108735)
- [2] U Yanagi, Shinsuke Kato, Hideaki Nagano, Kazuhide Ito, Toshio Yamanaka, Yoshihisa Momoi, Hikaru Kobayashi, Hirofumi Hayama. Dispersion characteristics of oral microbial communities in a built environment, *Japan Architectural Review*, 2022, In Press
(doi.org/10.1002/2475-8876.12261)
- [3] Hana Salati, Mehrdad Khamooshi, Jingliang Dong, Kazuhide Ito, David Fletcher, Sara Vahaji, Kiao Inthavong. Exhaled Aerosol and Jet Flow Characterization During Nasal Sneezing, *Aerosol and Air Quality Research*, 22 (4),2022, 210338
(doi.org/10.4209/aaqr.210338)
- [4] Xiaojun Fan, Mitsuharu Sakamoto, Huiqi Shao, Kazuki Kuga, Li Lan, Kazuhide Ito, Pawel Wargocki. Emission rate of carbon dioxide while sleeping, *Indoor Air*, 2021; 31: 2142-2157
(doi.org/10.1111/ina.12911)
- [5] Mahbulul Muttakin, Animesh Pal, Mahua Jahan Rupa, Kzuhide Ito, Bidyut Baran Saha. A critical overview of adsorption kinetics for cooling and refrigeration systems, *Advances in Colloid and Interface Science*, 294 (2021) 102468
(doi.org/10.1016/j.cis.2021.102468)
- [6] Nguyen Dang Khoa, Nguyen Lu Phuong, Kenji Tani, Kiao Inthavong, Kazuhide Ito, Computational fluid dynamics comparison of impaired breathing function in French bulldogs with nostril stenosis and an examination of the efficacy of rhinoplasty, *Computers in Biology and Medicine*, 134 (2021) 104395
(doi.org/10.1016/j.combiomed.2021.104398)
- [7] Kazuki Kuga, Kazuhide Ito, Pawel Wargocki. The effects of warmth and CO2 concentration, with and without bioeffluents, on the emission of CO2 by occupants and physiological responses, *Indoor Air*, 2021;31:2176-2187
(doi.org/10.1111/ina.12852)
- [8] Kazuki Kuga, Kazuhide Ito, Wenhao Chen, Ping Wang, Jeff Fowles, Kazukiyo Kumagai. Secondary indoor air pollution and passive smoking associated with cannabis smoking using electric cigarette devise – Demonstrative in silico study, *PLOS Computational Biology*, 17(5), e1009004
(doi.org/10.1371/journal.pcbi.1009004)
- [9] Eunsu Lim, Mats Sandberg and Kazuhide Ito, Returning Frequency of Pollutants for Local Domain in the presence of Returning and Recirculating Air Flow in Indoor Environment, *Indoor Air*, 2021;31:1267–1280
(doi.org/10.1111/ina.12803)
- [10] Yiwen Wang, Alicia Murga, Zhengwei Long, Sung-Jun Yoo, and Kazuhide Ito. Experimental study of oil mist characteristics generated from minimum quantity lubrication and flood cooling, *Energy and Built Environment*, 2 (2021) 45-55
(doi.org/10.1016/j.enbenv.2020.05.005)
- [11] Yujin Kang, Sung-Jun Yoo, Kazuhide Ito, Correlation between formaldehyde emission characteristics in enclosed desiccators with five different geometries: *Indoor and Built Environment*, 2021, 30(4), 565-577
(doi.org/10.1177/1420326X20908918)
- [12] Hajime Sotokawa, Juyeon Chung, Sung-jung Yoo, and Kazuhide Ito. Sensitivity numerical analyses for identifying rate-limiting factors influencing total energy exchange efficiency in energy recovery ventilator, *Indoor and Built Environment*, 2021, 30(2) 245-263
(doi.org/10.1177/1420326X19890376)
- [13] Chang Xu, Nguyen Dang Khoa, Sung-Jun Yoo, Xin Zheng, Shifei Shen, and Kazuhide Ito. Inhalation Airflow and Ventilation Efficiency in Subject-Specific Human Upper Airways, *Respiratory Physiology & Neurobiology*, 285, 2021, 103587
(doi.org/10.1016/j.resp.2020.103587)
- [14] Ken Bryan Fernandez, Naoki Ikegaya, Qingyan Chen, and Kazuhide Ito. Determination of age of air, purging flow rate, and net escape velocity within a cross ventilation model sheltered by

- urban-like block arrays using large-eddy simulations, *Building and Environment*, 226 (2022), 109759 (doi.org/10.1016/j.buildenv.2022.109759)
- [15] Nguyen Dang Khoa, Nguyen Lu Phuong, Kenji Tani, Kiao Inthavong, Kazuhide Ito. *In silico* decongested trial effects on the impaired breathing function of a bulldog suffering from severe brachycephalic obstructive airway syndrome, *Computer Methods and Programs in Biomedicine*, 228 (2023) 107243 (doi.org/10.1016/j.cmpb.2022.107243)
- [16] Hiroshi Harashima, Eisaku Sumiyoshi, and Kazuhide Ito. Internal diffusion and re-emission of leaked liquid ethyl acetate from mortar materials, *Japan Architectural Review*, 2022, Vol.5, no.4, pp 672–681 (doi.org/10.1002/2475-8876.12297)
- [17] Eunsu Lim, Hirofumi Tanaka, Gen Ni, Yuen Bai, Kazuhide Ito. Microplastics / Microfibers in settled indoor house dust- Exploratory case study for 10 residential houses in the Kanto area of Japan, *Japan Architectural Review*, 2022, Vol.5, no.4, pp 682–690 (doi.org/10.1002/2475-8876.12298)
- [18] Haruna Yamasawa, Teruaki Hirayama, Ryota Muta, Kazuki Kuga, Tomohiro Kobayashi, and Kazuhide Ito. Influence of inlet turbulent condition on the formation mechanism of local scalar concentrations, *Japan Architectural Review*, 2022, Vol.5, no.4, pp 691–701 (doi.org/10.1002/2475-8876.12299)
- [19] Ryota Muta and Kazuhide Ito. Impact of heat generation and use of experimental instruments in a fume hood on pollutant capture efficiency, *Japan Architectural Review*, 2022, Vol.5, no.4, pp 702–713 (doi.org/10.1002/2475-8876.12300)
- [20] Sung-Jun Yoo, and Kazuhide Ito. Validation, verification, and quality control of computational fluid dynamics analysis for indoor environments using a computer-simulated person with respiratory tract, *Japan Architectural Review*, 2022, Vol.5, no.4, pp 714–727 (doi.org/10.1002/2475-8876.12301)
- [21] Hana Salati, Mehrdad Khamooshi, Jingliang Dong, Kazuhide Ito, David Fletcher, Sara Vahaji, Kiao Inthavong. Exhaled Aerosol and Jet Flow Characterization During Nasal Sneezing, *Aerosol and Air Quality Research*, 22 (4),2022, 210338 (doi.org/10.4209/aaqr.210338)
- [22] Hanyu Li, Kazuki Kuga, Kazuhide Ito. SARS-CoV-2 Dynamics in the Mucus Layer of the Human Upper Respiratory Tract Based on Host-Cell Dynamics, *Sustainability*, 2022, 14 (7), 3896 (doi.org/10.3390/su14073896)
- [23] Ryota Muta, Sung-Jun Yoo, Hyuntae Kim, Toru Matsumoto, Kazuhide Ito. Multiscale analysis of material flow and computational fluid dynamics for predicting individual DEHP exposure concentration in indoors, *Indoor and Built Environment*, Volume 31, Issue 9, November 2022, Pages 2291-2311 (doi.org/10.1177/1420326X221092613)
- [24] Naoki Ikegaya, Mats Sandberg and Kazuhide Ito. Rigorous mathematical formulation of net escape velocity and net escape probability determining a macroscopic concentration, *Indoor Air*. 2022;32 (7): e13072 (doi.org/10.1111/ina.13072)
- [25] Kazuki Kuga, Mitsuharu Sakamoto, Pawel Wargocki, Kazuhide Ito. Prediction of exhaled carbon dioxide concentration using a computer-simulated person that included alveolar gas exchange, *Indoor Air*, 2022;32 (8) e13079 (doi.org/10.1111/ina.13079)
- [26] Hiroshi Harashima, Eisaku Sumiyoshi, Kazuhide Ito. Numerical models for seamlessly predicting internal diffusion and re-emission of leaked liquid toluene from indoor mortar materials, *Journal of Building Engineering*, 57 (2022) 104976 (doi.org/10.1016/j.jobbe.2022.104976)
- [27] Nguyen Dang Khoa, Nguyen Lu Phuong, Ken Takahashi and Kazuhide Ito. Transport and deposition of inhaled man-made vitreous and asbestos fibers in realistic human respiratory tract models: An *in-silico* study, *Japan Architectural Review* 2022, Vol.5, no.4, pp 592–608 (doi.org/10.1002/2475-8876.12277)
- [28] Yukun Wang, Xiong Shen, Sung-Jun Yoo, Zhengwei Long, Kazuhide Ito. Error analysis of human inhalation exposure simulation in industrial workshop, *Building and Environment*, 224 (2022) 109573 (doi.org/10.1016/j.buildenv.2022.109573)
- [29] Ryota Muta, Juyeon Chung, Cong Li, Sung-Jun Yoo, Kazuhide Ito. Pollutant capture efficiencies in and around the opening-surface of a fume hood under realistic conditions, *Indoor and Built Environment*, Volume 31, Issue 6, July 2022, Pages 1636-1653 (doi.org/10.1177/1420326X211066538)
- [30] Kazuki Kuga, Pawel Wargocki, Kazuhide Ito. Breathing zone and exhaled air re-inhalation rate

- under transient conditions assessed with a computer-simulated person, *Indoor Air*, 2022, 32, e13003
(doi.org/10.1111/ina.13003)
- [31] Xiaojun Fan, Huiqi Shao, Mitsuharu Sakamoto, Kazuki Kuga, Li Lan, David P. Wyon, Kazuhide Ito, Mariya P. Bivolarova, Chenxi Liao, and Pawel Wargocki. The effects of ventilation and temperature on sleep quality and next-day work performance: pilot measurements in a climate chamber, *Building and Environment*, 209 (2022) 108666
(doi.org/10.1016/j.buildenv.2021.108666)
- [32] Cong Li, Sung-Jun Yoo, and Kazuhide Ito, Impact of Indoor Ventilation Efficiency on Acetone Inhalation Exposure Concentration in Respiratory Tract, *Building Simulation*, 16, 427–441 (2023)
(doi.org/10.1007/s12273-022-0954-4)
- [33] Sung-Jun Yoo, Akira Kurokawa, Kazuhiko Matsunaga, and Kazuhide Ito. Spatial distributions of airborne transmission risk on commuter buses: Numerical case study using computational fluid and particle dynamics with computer-simulated persons, *Experimental and Computational Multiphase Flow*, 2023, 1-15
(doi.org/10.1007/s42757-022-0146-6)
- [34] Alicia Murga, Rahul Bale, Chung-Gang Li, Kazuhide Ito, Makoto Tsubokura. Large eddy simulation of droplet transport and deposition in the human respiratory tract to evaluate inhalation risk, *PLOS Computational Biology*, 19(3): e1010972
(doi.org/10.1371/journal.pcbi.1010972)
- [35] Kazuki Kuga, Ryusei Kizuka, Nguyen Dang Khoa, Kazuhide Ito, Effect of transient breathing cycle on micro and nanoparticles depositions on respiratory walls, *Computer Methods and Programs in Biomedicine*, 236 (2023) 107501
(doi.org/10.1016/j.cmpb.2023.107501)
- [36] Nguyen Dang Khoa, Sixiao Li, Nguyen Lu Phuong, Kazuki Kuga, Hidetake Yabuuchi, Keiko Kan-o, Koichiro Matsumoto, Kazuhide Ito. Computational Fluid-Particle Dynamics modeling of ultrafine to coarse particles deposition in the human respiratory system, down to the terminal bronchiole, *Computer Methods and Programs in Biomedicine*, 237 (2023) 107589
(doi.org/10.1016/j.cmpb.2023.107589)
- [37] Hanyu Li, Kazuki Kuga, Kazuhide Ito. Visual prediction and parameter optimization of viral dynamics in mucus milieu of upper airway based on CFPD-HCD analysis, *Computer Methods and Programs in Biomedicine*, 238 (2023) 107622
(doi.org/10.1016/j.cmpb.2023.107622)
- [38] Islam Abouelhamd, Kazuki Kuga, Sung-jun Yoo, Kazuhide Ito. Identification of Probabilistic Size of Breathing Zone during Single Inhalation Phase in Semi-Outdoor Environmental Scenarios, *Building and Environment*, 243 (2023) 110672
(doi.org/10.1016/j.buildenv.2023.110672)
- [39] Takumi Nishihara, Hanyu Li, Kazuki Kuga, and Kazuhide Ito. Seamless numerical analysis of transient infectious droplets dispersion and inhalation exposure - in silico study, *Building and Environment*, 244 (2023) 110748
(doi.org/10.1016/j.buildenv.2023.110748)
- [40] Sung-jun Yoo, Shori Yamauchi, Hyun-Gyu Park, Kazuhide Ito. Computational Fluid and Particle Dynamics Analyses for Prediction of Airborne Infection/Spread Risks in Highway Buses: A Parametric Study, *Fluids* 2023, 8(9), 253
(doi.org/10.3390/fluids8090253)
- [41] Yukun Wang, Jingnan Sun, Meng Zhao, Alicia Murga, Sung-Jun Yoo, Kazuhide Ito, Zhengwei Long. Numerical study of indoor oil-mist particle concentration distribution in industrial factory using the Eulerian-Eulerian and Eulerian-Lagrangian methods, *Fluids* 2023, 8(10), 264
(doi.org/10.3390/fluids8100264)
- [42] Kazuki Kuga, Sara Hoshiyama, Pawel Wargocki, and Kazuhide Ito. A pilot numerical study of odourant transport from an indoor environment to the olfactory region during sensory evaluations following ISO 16000-28, *Building and Environment*, 245 (2023) 110868
(doi.org/10.1016/j.buildenv.2023.110868)
- [43] Nguyen Dang Khoa, Kazuki Kuga, Kiao, Inthavong, Kazuhide Ito. Coupled Eulerian Wall Film-Discrete Phase model for predicting the respiratory droplets generation during the coughing event, *Physics of Fluids*, 35, 112103 (2023)
(doi.org/10.1063/5.0174014)
- [44] Hyun-Gyu Park, Sung-Jun Yoo, Janghoo Seo, Eisaku Sumiyoshi, Hiroshi Harashima, Kazuki Kuga, Kazuhide Ito. Integration of computer-simulated persons with multi-node thermoregulation model that considers the effect of clothing for skin surface temperature distribution analysis, *Building and Environment*, 248 (2024) 111105
(doi.org/10.1016/j.buildenv.2023.111105)
- [45] Kazuki Kuga, Ryusei Kizuka, Islam Abouelhamd, Kazuhide Ito. Aspiration efficiency and respiratory

tract deposition of indoor suspended micro-particles during steady and transient breathings, *Building and Environment*, 249 (2024) 111114 (doi.org/10.1016/j.buildenv.2023.111114)

- [46] Hanyu Li, Nguyen Dang Khoa, Kazuki Kuga, Kazuhide Ito. In silico identification of virus loads in cough-generated droplets - Seamless integrated analysis of CFPD-HCD-EWF, *Computer Methods and Programs in Biomedicine*, 246 (2024) 108073 (doi.org/10.1016/j.cmpb.2024.108073)
- [47] Islam Abouelhamd, Kazuki Kuga, Sung-Jun Yoo, Kazuhide Ito. Effect of Crowd Density, Wind Direction, and Air Temperature on the Formation of Individual Human Breathing Zones in a Semi-outdoor Environment, *Sustainable Cities and Society*, 103 (2024) 105274 (doi.org/10.1016/j.scs.2024.105274)

2. 学会発表

- [1] Kazuki Kuga, Mitsuharu Sakamoto, Pawel Wargocki, Kazuhide Ito. Numerical Investigation of Human CO₂ Emission in a Personalized Work Environment, Healthy Building Europe, 2021, Norway
- [2] Ryota Muta, Sung-Jun Yoo, Hyuntae Kim, Toru Matsumoto, Kazuhide Ito. Downscaling from material flow analysis to indoor CFD for health risk assessment associated with DEHP exposure, Healthy Building Europe, 2021, Norway
- [3] Xiaojun Fan, Mitsuharu Sakamoto, Huiqi Shao, Kazuki Kuga, Li Lan, Kazuhide Ito, Pawel Wargocki. Human CO₂ emission rates during sleeping, Healthy Building Europe, 2021, Norway
- [4] Nguyen Dang Khoa, Nguyen Lu Phuong, Ken Takahashi, Kazuhide Ito. Computational Fluid Dynamics Application to Investigate Man-Made Vitreous Fibers Transportation and deposition in Realistic Human Respiratory System, Healthy Building America, 2021, Hawaii, USA
- [5] Ryusei Kizuka, Nguyen Dang Khoa, Kazuki Kuga, Kazuhide Ito. Particle Dispersion Analysis in a Numerical Airway Model Under Transient Breathing, Healthy Building America, 2021, Hawaii, USA
- [6] Hanyu Li, Kazuki Kuga, Nguyen Dang Khoa, Kazuhide Ito. Regional Deposition of Airborne SARS-CoV-2 Laden Droplets in the Upper Airway and Its Effects Using Host-Cell Dynamics, Healthy Building America, 2021, Hawaii, USA
- [7] Mitsuharu Sakamoto, Kazuki Kuga, Kazuhide Ito, Pawel Wargocki, Numerical investigation of alveolus gas exchange for human CO₂ emission in the chamber experiment, Healthy Building America, 2021, Hawaii, USA
- [8] Kei Murota, Sena Hyodo, Yujin Kang, Sung-Jun Yoo, Kazuki Takenouchi, Shin-ichi Tanabe and Kazuhide Ito. Realistic Three-Dimensional Modeling of Clothing and Heat and Mass Transfer Analysis using Computational Fluid Dynamics Part 2: Clothing-Centered Hygrothermal-Chemical Transfer Analysis, Healthy Building America, 2021, Hawaii, USA
- [9] Sena Hyodo, Kei Murota, Yujin Kang, Sung-Jun Yoo, Kazuki Takenouchi, Shin-ichi Tanabe and Kazuhide Ito. Realistic Three-Dimensional Modeling of Clothing and Heat and Mass Transfer Analysis using Computational Fluid Dynamics Part 1: Development of Detailed 3D Clothing Model and Air Flow Analysis, Healthy Building America, 2021, Hawaii, USA
- [10] Mengchen Ma, Sung-Jun Yoo, Kazuhide Ito. Thermal comfort analysis coupled with computational fluid dynamics using computer simulated person, Healthy Building America, 2021, Hawaii, USA
- [11] Akira Kurokawa, Shori Yamauchi, Sung-Jun Yoo, Kazuhide Ito. Computational Fluid Dynamics analysis of flow and airborne particle dispersion in a transit bus cabin, Healthy Building America, 2021, Hawaii, USA
- [12] Kazuhide Ito. In Silico Modeling for Airborne Transmission of Inhaled Virus-Laden Droplets and Host Cell Dynamics in the Respiratory System, Keynote Speech, TSIEQ 2021, June 3-4, 2021, Tainan, Taiwan
- [13] Kazuhide Ito. Integrated CFD and In Silico Modeling for Airborne Transmission Analysis in Indoor Environment, Keynote Speech, ISHVAC 2021, November 24-26, Seoul, South Korea
- [14] Hanyu Li, Kazuki Kuga, Nguyen Dang Khoa, Kazuhide Ito. Effects of Initial Conditions and Parameters on the Prediction of SARS-CoV-2 Viral Load in the Upper Respiratory Tract Based on Host-Cell Dynamics, IEICES 2021, IGSES, Kyushu University,
- [15] Kazuhide Ito. In Silico Human Model based Indoor Design for Healthy Environment, 2021 International Conference of Green Building and Low Carbon Technology, China, 2021, Xi'an University of Architecture and Technology
- [16] Kazuhide Ito. Computer simulated person for predicting inhalation exposure and airborne infection, SCONNA 2022, Oklahoma, USA, 2022

- [17] Kazuhide Ito, In Silico Modeling for Airborne Transmission Analysis in Indoor Environment, IAQVEC Webiner, 2022.03
- [18] Ryusei Kizuka, Kazuki Kuga, Kazuhide Ito. Regional deposition of inhaled nano-to-microscale particle in realistic upper respiratory tract under steady and transient breathing conditions, COBEE 2022, Montiol, Canada, 2022
- [19] Hanyu Li, Kazuki Kuga, Kazuhide Ito. SARS-CoV-2 infection dynamics integrated with mucociliary transport in human upper airway, COBEE 2022, Montiol, Canada, 2022
- [20] Nguyen Dang Khoa, Kazuhide Ito. Regional deposition characteristics of fibrous particles compared to spherical particles in human upper airway – in silico case study, COBEE 2022, Montiol, Canada, 2022
- [21] Kazuki Kuga, Kazuhide Ito. Integrated Modeling of CO₂ Transport from Indoor to Alveolar Region for Elucidating Human CO₂ Emission Mechanism, COBEE 2022, Montiol, Canada, 2022
- [22] Takumi Nishihara, Kazuki Kuga, Kazuhide Ito. Numerical investigation of cough droplets dispersion dynamics in indoor environment: Effect of oral cavity shape, COBEE 2022, Montiol, Canada, 2022
- [23] Sara Hoshiyama, Kazuki Kuga, Kazuhide Ito. Formation of Acetone concentration distribution around breathing zone and transport efficiency to olfactory epithelium cells, COBEE 2022, Montiol, Canada, 2022
- [24] Ryota Muta, Kazuhide Ito. Numerical investigation of pollutant capture and ventilation efficiencies in laboratory fume hood, Indoor Air 2022, Kuopio, Finland, June 2022
- [25] Kazuki Kuga, Pawel Wargocki, Kazuhide Ito. Impact of room temperature on human carbon dioxide emission rates at different physical activity levels, Indoor Air 2022, Kuopio, Finland, June 2022
- [26] Pawel Wargocki, Mitsuharu Sakamoto, Xiaojun Fan, Kazuki Kuga, Kazuhide Ito, Jonathan Williams, Gabriel Beko, CO₂ emission rates from humans when sleeping and awake. Impact of environmental factors and age, Indoor Air 2022, Kuopio, Finland, June 2022
- [27] Eunsu Lim, Hirofumi Tanaka, and Kazuhide Ito. Preliminary Investigation of Indoor Microplastic Concentrations in house dust in Japanese Residential Houses, Indoor Air 2022, Kuopio, Finland, June 2022
- [28] Hanyu Li, Kazuki Kuga, Kazuhide Ito. Infection dynamics of SARS-CoV-2 in musus later of the human nasal cavity-nasopharynx, Roomvent 2022, Xian, China, September 2022
- [29] Sena Hyodo, Kei Murota, Sung-Jun Yoo and Kazuhide Ito. Development of three-dimensional clothing model for computer simulated person integrated with thermoregulation model, Roomvent 2022, Xian, China, September 2022
- [30] Nguyen Dang Khoa, Kazuhide Ito. Computational analysis of ultrafine and fine particle deposition mechanisms in human lower airway, ACFD 2022, South Korea, October 16-19
- [31] K. B. Fernandez, Naoki Ikegaya, Kazuhide Ito. Large Eddy Simulation of Flow and Concentration Distributions in an Indoor Space Surrounded by Urban-like Block Arrays, ACFD 2022, South Korea, October 16-19
- [32] Alicia Muraga, Kazuhide Ito, Makoto Tsubokura. Using CFD to develop a virtual human manikin for infection risk assessment, ACFD 2022, South Korea, October 16-19
- [33] Hyun-Gyu Park, Sung-Jun Yoo, Eisaku Sumiyoshi, Hiroshi Harashima and Kazuhide Ito. Indoor Thermal Comfort Assessment Using CFD-CSP Hybrid Analysis, ACFD 2022, South Korea, October 16-19
- [34] Sena Hyodo, Sung-Jun Yoo and Kazuhide Ito. Three-Dimensional Modeling and Computational Fluid Dynamics Analysis for Ventilation in Clothing, ACFD 2022, South Korea, October 16-19
- [35] Nguyen Dang Khoa, Nguyen Lu Phuong, Kazuhide Ito. Numerical Investigation of Fine particle Transportation and Deposition in the Human Lower Airway: Impact of airflow and particle size on deposition efficiency, IEICES 2022, IGSES, Kyushu University
- [36] Nguyen Dang Khoa, Nguyen Lu Phuong, Kazuhide Ito. Investigation of ultrafine particle deposition in human airway to the 9th generation of bronchial tubes using computational fluid and particle dynamics, IAQVEC 2023, Tokyo
- [37] Hanyu Li, Kazuki Kuga, Kazuhide Ito. Parameter Optimization of a Viral Dynamics Model in the Mucus Layer of the Human Nasal Cavity-Nasopharynx Based on Computational Fluid-Particle and Host-Cell Dynamics, IAQVEC 2023, Tokyo
- [38] Takumi Nishihara, Kazuki Kuga, Kazuhide Ito. Computational fluid and particle dynamics simulation of airborne transmission in indoor

environment – Effect of physical distance from infected person, IAQVEC 2023, Tokyo

- [39] Park Hyun-Gyu, Yoo Sung-Jun, Sumiyoshi Eisaku, Harashima Hiroshi, Ito Kazuhide. Numerical Thermal Comfort Analysis Using Combined Computer-Simulated Person with Clothing and Multi-Node Thermoregulation Model, IAQVEC 2023, Tokyo
- [40] Nguyen Dang Khoa, Nguyen Lu Phuong, Kazuhide Ito. Large Eddy Simulation of Airflow Patterns in the Human Upper and Lower Airway Up To the 16th Generation: A Comparison Study, Healthy Building 2023 Asia Pacific, China
- [41] Hanyu Li, Kazuki Kuga, Kazuhide Ito. Host Cell Dynamics model development and specific parameterization for 3D upper respiratory tract model coupled with CFPD analysis, Healthy Building 2023 Asia Pacific, China
- [42] Teruaki Hirayama, Haruna Yamasawa, Kazuki Kuga, Kazuhide Ito. Effect of turbulent inlet boundary conditions on pollutant emissions and dispersion in an indoor environment, Healthy Building 2023 Asia Pacific, China
- [43] Kazuki Kuga and Kazuhide Ito. Aspiration probability and resulting airway deposition of indoor particles during steady and transient breathings, Healthy Building 2023 Asia Pacific, China
- [44] Alicia Murga, Kazuhide Ito and Makoto Tsubokura. Rethinking different ventilation strategies in a post-pandemic era: a CFD assessment, AIVC 2023, Copenhagen, Denmark
- [45] Nguyen Dang Khoa, Kazuki Kuga, Kazuhide Ito. Numerical Prediction of Respiratory Droplet Generation from Coughing Using Discrete phase-coupled Eulerian Wall Film Model, ICNAA 2023, Brisbane, Australia
- [46] Islam Abouelhamd, Sung-jun Yoo, Kazuki Kuga, and Kazuhide Ito. Numerical prediction of particle breathing zone in a semi-outdoor environment, ICNAA 2023, Brisbane, Australia
- [47] Kazuhide Ito. Ventilation Efficiency and Infection Control – in silico Human Modelling Study, International Symposium on Urban Sustainability (ISUS), University of Gävle, Sweden

H. 知的財産権の出願・登録状況

特に無し

総合：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

室内空気汚染化学物質の標準試験法の開発・規格化および国際規制状況に関する研究

ハザード情報収集・評価および国際的な規制動向の調査

分担研究者 東 賢一 関西福祉科学大学健康福祉学部 教授

研究要旨

2000年前後に13の室内空気汚染物質に対して室内濃度指針値が策定されて以降、新たな室内空気汚染の問題が懸念されてきたことなどから、室内濃度指針値の見直し等の検討が進められている。本研究では、第一に、諸外国における室内空気質の規制動向等の情報を収集し、日本における取り組みの参考情報とすることを目的とした。第二に、厚生労働省シックハウス検討会で初期曝露評価を実施した揮発性有機化合物及び代替物質を含むその関連物質について、健康リスク評価値および有害性等の情報を網羅的に収集し、今後のリスク評価や既存の指針値の見直し等において鍵となる重要なハザード情報をとりまとめた。ハザード情報としては、短時間曝露による急性影響と長期間曝露による慢性影響（非発がん影響、発がん影響）の2項目を調査した。

A. 研究目的

1997年から2002年にかけて、13の室内空気汚染物質に対して室内濃度指針値が策定された。その後、建材等に使用される化学物質の代替や準揮発性有機化合物（SVOC）と呼ばれる揮発性の低い物質による室内空気汚染が懸念されてきたことなどから、2012年にシックハウス（室内空気汚染）問題に関する検討会（シックハウス検討会）が再開され、室内濃度指針値の見直しあるいは対象物質の追加に関する審議が進められている。このような状況を踏まえ、シックハウス検討会における審議に必要な情報を収集することにより、厚生労働行政施策の円滑な進行に貢献することを主たる目的として、本研究課題が進められている。

本研究においては、第一に、室内空気汚染問題に対する国際機関や諸外国における室内濃度指針値作成や規制動向等の情報を収集し、日本における取り組みの参考情報とする。ま

た第二に、厚生労働省シックハウス検討会で初期曝露評価を実施した揮発性有機化合物及び代替物質を含むその関連物質について、健康リスク評価値および有害性等の情報を収集し、今後のリスク評価や指針値の設定等において鍵となる重要なハザード情報をとりまとめることを目的としている。ハザード情報の収集においては、短時間曝露による急性影響と長期間曝露による慢性影響の2項目を調査する。

B. 研究方法

B.1 国際的な規制動向の調査

国際機関や国内外の室内空気質規制に関する報告書、関連学会の資料、関連論文をインターネットおよび文献データベースで調査した。近年、主だった活動が見受けられた世界保健機関本部（WHO本部）、世界保健機関欧州地域事務局（WHO欧州）、ドイツ、フランス、カナダを主な調査対象国とした。また、

諸外国の研究者と関連情報の情報交換を行った。

B.2 ハザード情報

室内環境化学物質に関して、刺激性や感作性、一般毒性、神経毒性、免疫毒性、生殖発生毒性、発がん性等に関する有害性情報およびこれらの有害性に関する量反応関係に関する科学的知見が記載された国際機関や諸外国の評価文書等を網羅的に収集するとともに、PubmedやTOXLINE等のデータベース検索を行い、各物質の有害性情報をとりまとめた。特に、各物質の評価値の導出に必要なエンドポイント及びNOELやLOEL等の情報収集を行った。

令和3年度から令和5年度の3年間において有害性データを収集した物質は、以下の通りであった。

令和3年度（9物質または物質群）

- ・オクタメチルシクロテトラシロキサン（環状シロキサンD4）（CAS 556-67-2）
- ・デカメチルシクロペンタシロキサン（環状シロキサンD5）（CAS 541-02-6）
- ・プロピレングリコール（CAS 57-55-6）
- ・1,3-ブタンジオール（CAS 107-88-0）
- ・炭素数 8～16 の脂肪族飽和炭化水素類（オクタン、ノナン、デカン、ドデカン、トリデカン、ヘキサデカン）
- ・トリメチルベンゼン（1,2,4-、1,3,5-、1,2,3-の3異性体）（CAS 25551-13-7）
- ・ベンゼン（CAS 71-43-2）
- ・ナフタレン（CAS 91-20-3）
- ・エチルトルエン（CAS 611-14-3）

令和4年度（9物質）

- ・メチルシクロヘキサン（CAS 108-87-2）
- ・プロピルシクロヘキサン（CAS 1678-92-8）
- ・1-ブタノール（CAS 71-36-3）
- ・ヘキサナール（CAS 66-25-1）
- ・デカナール（CAS 112-31-2）
- ・トリクロロエチレン（CAS 79-01-6）
- ・テトラクロロエチレン（CAS 127-18-4）
- ・1,2-ジクロロエタン（CAS 107-06-2）

- ・アクロレイン（CAS 107-02-8）

令和5年度（9物質）

- ・ベンジルアルコール（CAS 100-51-6）
- ・ベンズアルデヒド（CAS 100-52-7）
- ・2-フルアルデヒド（CAS 98-01-1）
- ・フェノール（CAS 108-95-2）
- ・フタル酸ベンジルブチル（BBP）（CAS 85-68-7）
- ・フタル酸ジ-イソノニル（DINP）（CAS 28553-12-0）
- ・フタル酸ジ-イソデシル（DIDP）（CAS 26761-40-0）
- ・Di(isononyl)cyclohexane-1,2-dicarboxylate（DINCH）（CAS 166412-78-8）
- ・Di(ethylhexyl) adipate（DEHA）（CAS 103-23-1）

得られた有害性情報から有害性評価を行い、急性影響の健康リスク評価値（AcRfC: Acute Reference Concentration）と慢性影響の健康リスク評価値（ChRfC: Chronic Reference Concentration）を導出した。これらのRfCは、Critical effect levelの影響濃度（NOELやLOEL）に対して、不確実係数の適用（種差や個体差）や、慢性影響では反復曝露から連続曝露への補正係数の適用を行って導出した。不確実係数としては、初期リスク評価で用いることを想定し、LOELを用いた場合は10、曝露期間については動物種と平均寿命から算出した値^{1),2),3)}、種差については10、個体差10とした。これらの数値は、初期リスク評価として、リスクの取りこぼしがないように安全側の不確実係数を用いている。

なお今後、詳細リスク評価や指針値の検討を行う際には、LOELに対する不確実係数、種差、個体差に対する不確実係数について、感受性、作用機序、体内動態等を詳細に評価し、必要に応じて改めて検討を行い、室内濃度指針値を設定することができる。本研究で導出したAcRfC及びChRfCは、曝露評価で得られた室内濃度の知見に対して、迅速に健康リスクの初期評価を実施するために用いる

ことができる。

(倫理面での配慮)

本研究は、公表されている既存資料を中心とした情報収集を行った後、それらの整理を客観的におこなうものであり、特定の個人のプライバシーに係わるような情報を取り扱うものではない。資料の収集・整理にあたっては、公平な立場をとり、事実のみにもとづいて行う。本研究は、動物実験および個人情報を取り扱うものではなく、研究倫理委員会などに諮る必要のある案件ではないと判断している。

C. 研究結果および考察

C.1 国際的な規制動向の調査

世界保健機関 (WHO) の空気質ガイドライン、ドイツ連邦環境庁の室内空気質ガイドライン、フランス環境労働衛生安全庁 (ANSES) の室内空気指針値、カナダ保健省等の室内空気指針値に関する情報を収集した。各機関のガイドラインを付属資料 1 に表などでとりまとめた。

WHO は、2021 年 9 月 22 日に空気質ガイドラインをアップデートした。粒子状物質 (PM_{2.5}、PM₁₀)、オゾン、二酸化窒素、二酸化硫黄、一酸化炭素の空気質ガイドラインが最新の科学的知見に基づき改正された。

ドイツ連邦環境庁は、2021 年度以降も引き続き室内濃度指針値を定めており、メタクリル酸メチル、アセトン、2-プロパノール、ベンゾ・a-ピレン、塩化ビニル、一酸化炭素、メタノール、アセトフェノン、1-プロパノール、ギ酸、酢酸、プロピオン酸の室内濃度指針値を定めていた。

フランスでも引き続き室内空気指針値を新設しており、アンモニアに対する室内空気指針値が設定された。カナダでも引き続き室内空気質ガイドラインを新設しており、アクロレイン、二酸化炭素、キシレンに対する室内空気質ガイドラインが設定された。

国際がん研究機関 (IARC) による発がん性分類のアップデート情報も収集した。1,1,1-トリクロロエタン (グループ 2A)、1,2-ジフェニルヒドラジン (同 2B)、ジフェニル

アミン (同 2B)、N-メチロールアクリルアミド (同 2B)、イソホロン (同 2B)、コバルトとその二価物 (タングステンカーバイドを含まない) (金属 Co : 2A、可溶性二価物 : 2A、二酸化 Co : 2B、二三酸化 Co : 3、二硫化 Co : 3、他の 2 価物 : 3)、三価および五価アンチモン (三酸化 Sb : 2A、五酸化 Sb : 3)、兵器級タングステン (同 2B)、アントラセン (同 2B)、2-ブロモプロパン (同 2A)、メタクリル酸ブチル (同 2B)、亜リン酸ジメチル (同 2B)、アステルパーム (同 2B)、メチルオイゲノール (同 2A)、イソオイゲノール (同 2B)、ペルフルオロオクタン酸 (PFOA) (同 1)、ペルフルオロオクタンスルホン酸 (PFOS) (同 2B) の物質に対して発がん性分類が新設またはアップデート。

その他、WHO は、健康と環境に関する WHO およびその他の国連機関からこれまで公表されてきたガイダンスを体系的にとりまとめ、「環境要因に起因する疾病低減のガイダンス : compendium」を公表した。また、WHO 欧州地域事務局が 2023 年 9 月 20 日に「First WHO/Europe Indoor Air Conference」をスイスのベルンで開催し、分担研究者の東がオンラインで参加した。本会合では、室内空気質と健康障害に関する最新情報が紹介され、室内空気質に対する取り組みは、WHO においても優先事項であることを改めて確認した。

C.2 ハザード情報

網羅的に収集した有害性情報をもとに、各物質について急性影響と慢性影響のキー研究を選定した。それぞれのキー研究をもとに曝露時間の補正 (断続曝露から連続曝露) 不確実係数等の評価係数を適用して AcRfC と ChRfC を導出した (表 2-1 ~ 表 2-8)。

(令和 3 年度)

網羅的に収集した有害性情報をもとに、オクタメチルシクロテトラシロキサン (環状シロキサン D4) (CAS 556-67-2)、デカメチルシクロペンタシロキサン (環状シロキサン D5) (CAS 541-02-6)、プロピレングリコール (CAS 57-55-6)、1,3-ブタンジオール (CAS 107-88-0)、炭素数 8~16 の脂肪族飽和炭化

水素類（オクタン、ノナン、デカン、ドデカン、トリデカン、ヘキサデカン）、トリメチルベンゼン（1,2,4-、1,3,5-、1,2,3-の3異性体）（CAS 25551-13-7）、ベンゼン（CAS 71-43-2）、ナフタレン（CAS 91-20-3）、エチルトルエン（CAS 611-14-3）に関する急性影響と慢性影響のキー研究を選定した。但し、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）、プロピレングリコール、1,3-ブタンジオール、炭素数8～16の脂肪族飽和炭化水素類、エチルトルエンについては、急性影響を評価可能なキー研究が見つからなかった。それぞれのキー研究をもとに曝露時間の補正（断続曝露から連続曝露）不確実係数等の評価係数を適用してAcRfCおよびChRfCを導出した（表2-1、表2-2）。また、各評価機関が導出したユニットリスクをレビューし、ベンゼンについては10万分の1の過剰発がんリスクにおけるCarRfCを導出した（表2-3）。

（令和4年度）

メチルシクロヘキサン（CAS 108-87-2）、プロピルシクロヘキサン（CAS 1678-92-8）、1-ブタノール（CAS 71-36-3）、ヘキサナール（CAS 66-25-1）、デカナール（CAS 112-31-2）、トリクロロエチレン（CAS 79-01-6）、テトラクロロエチレン（CAS 127-18-4）、1,2-ジクロロエタン（CAS 107-06-2）、アクロレイン（CAS 107-02-8）に関する急性影響と慢性影響のキー研究を選定した。但し、メチルシクロヘキサン、プロピルシクロヘキサン、1-ブタノール、デカナールについては、急性影響を評価可能なキー研究が見つからなかった。プロピルシクロヘキサンについては、慢性影響でも評価可能なキー研究が見つからなかった。その他の物質については、それぞれのキー研究をもとに曝露時間の補正（断続曝露から連続曝露）不確実係数等の評価係数を適用してAcRfCおよびChRfCを導出した（表2-4、表2-5）。また、各評価機関が導出したユニットリスクをレビューしトリクロロエチレン、テトラクロロエチレン、1,2-ジクロロエタンについては、10万分の1の過剰発がんリスクにおけるCarRfCを導出した（表2-6）。

（令和5年度）

ベンジルアルコール（CAS 100-51-6）、ベンズアルデヒド（CAS 100-52-7）、2-フルアルデヒド（CAS 98-01-1）、フェノール（CAS 108-95-2）、フタル酸ベンジルブチル（BBP）（CAS 85-68-7）、フタル酸ジ-イソノニル（DINP）（CAS 28553-12-0）、フタル酸ジ-イソデシル（DIDP）（CAS 26761-40-0）、Di(isononyl) cyclohexane-1,2-dicarboxylate（DINCH）（CAS 166412-78-8）、Di(ethylhexyl) adipate（DEHA）（CAS 103-23-1）に関する急性影響と慢性影響のキー研究を選定した。その結果、ベンジルアルコール、ベンズアルデヒド、BBP、DINP、DIDP、DINCH、DEHAについては、急性影響を評価可能なキー研究が見つからなかった。DEHAについては、慢性影響でも評価可能なキー研究が見つからなかった。その他の物質については、それぞれのキー研究をもとに曝露時間の補正（断続曝露から連続曝露）不確実係数等の評価係数を適用してAcRfCおよびChRfCを導出した（表2-7、表2-8）。また、2-フルアルデヒド、BBP、DEHAについては米国環境保護庁がユニットリスクを算出していたが、国際がん研究機関の発がん性分類において、いずれの物質もグループ3（ヒトに対する発がん性を分類できない）であることから、CarRfCを導出しなかった。

D. 総括

諸外国における取り組みは、室内濃度指針値の作成に重点が置かれている。目標となる気中濃度を設定し、それを目指した発生源対策等を行うアプローチである。とりわけドイツ連邦環境庁は、継続的に室内濃度指針値を設定していた。フランスとカナダも同様であった。またWHOは、健康と環境に関するWHOおよびその他の国連機関からこれまで公表されてきたガイダンスを体系的にとりまとめ、「環境要因に起因する疾病低減のガイダンス:compendium」を公表した。また、WHO欧州地域事務局は、2023年9月20日に「First WHO/Europe Indoor Air Conference」をスイスのベルンで開催し、室内空気質に対する

取り組みは、WHO においても優先事項であることを改めて確認した。

ハザード情報については、厚生労働省シックハウス検討会で初期曝露評価を実施した揮発性有機化合物及び代替物質を含むその関連物質について、健康リスク評価値および有害性等の情報を網羅的に収集し、今後のリスク評価や既存の指針値の見直し等において鍵となる重要なハザード情報をとりまとめた。ハザード情報としては、短時間曝露による急性影響と長期間曝露による慢性影響（非発がん影響、発がん影響）の2項目を調査し、3年間で27物質または物質群の有害性情報を取りまとめた。

参考文献

- 1) Azuma K, Uchiyama I, Ikeda K. The risk screening for indoor air pollution chemicals in Japan. *Risk Anal* 27(6): 1623–1638, 2007.
- 2) Azuma K, Uchiyama I, Uchiyama S, et al. Assessment of inhalation exposure to indoor air pollutants: Screening for health risks of multiple pollutants in Japanese dwellings. *Environ Res* 145: 39–49, 2016.
- 3) ECHA. 2012. Guidance on information requirements and chemical safety assessment. Chapter R8: Characterisation of dose[concentration]-response for human health, Version: 2.1, 2012. Available at: <https://echa.europa.eu/guidance-documents/guidance-on-information-requirements-and-chemical-safety-assessment>. Access at 10 February 2017.

E. 研究発表

論文発表

- 1) Wolkoff P, Azuma K, Carrer P. Health, work performance, and risk of infection in office-like environments: the role of indoor temperature, air humidity, and ventilation.

International Journal of Hygiene and Environmental Health 233: 113709. <https://doi.org/10.1016/j.ijheh.2021.113709>, 2021.

- 2) Glorennec P, Shendell DG, Rasmussen PE, Waeber R, Egeghy P, Azuma K, Pelfrène A, Le Bot B, Esteve W, Perouel G, Pernelet Joly V, Noack Y, Delannoy M, Keirsbulck M, Mandin C. Towards setting public health guidelines for chemicals in indoor settled dust? *Indoor Air* 31:112–115, 2021.
- 3) Araki A, Azuma K, et al. Occupational exposure limits for acetaldehyde, 2-bromopropane, glyphosate, manganese and inorganic manganese compounds, and zinc oxide nanoparticle, and biological exposure indices for cadmium and cadmium compounds and ethylbenzene, and carcinogenicity and reproductive toxicant classifications. *J Occup Health*; 63: e12294. <https://doi.org/10.1002/1348-9585.12294>, 2021.
- 4) 東 賢一. 職域におけるオフィスの室内環境に関連する症状とそのリスク要因：いわゆるシックビルディング症候群. *産業医学レビュー*; 33(3), 263–278, 2021.
- 5) Karagas, MR, Wang A, Dorman DC, Hall AL, Pi J, Sergi CM, Symanski E, Ward EM, Arrandale VH, Azuma K, Brambila E, Calaf GM, Fritz JM, Fukushima S, Gaitens JM, Grimsrud TK, Guo L, Lyng E, Marinho-Reis AP, McDiarmid MA, Middleton DRS, Ong TP, Polya DA, Quintanilla-Vega B, Roberts GK, Santonen T, Sauni R, Silva MJ, Wild P, Zhang CW, Zhang Q, Grosse Y, Benbrahim-Tallaa L, de Conti A, DeBono NL, Ghissassi FE, Madia F, Reisfeld B, Stayner LT, Suonio E, Viegas S, Wedekind R, Ahmadi S, Mattock H, Gwinn WM, Schubauer-Berigan MK. Carcinogenicity of cobalt, antimony compounds, and weapons-grade tungsten alloy. *THE LANCET Oncology* 23(5):577-578, 2022.
- 6) 東 賢一. 燃焼で排出される室内空気汚

染物質の健康影響. 室内環境; 25(3), 307-315, 2022.

書籍

- 1) Azuma K, Jinno H. Toxicity of SVOCs, Advances in the toxicity of construction and building materials. Elsevier, Duxford, UK, 348 pages, 2022.
- 2) 東 賢一. 新版生活健康科学第2版: 第7章生活環境と健康. 三共出版, 東京, 2022.
- 3) 東 賢一. 今日の治療指針 2022 年版—私はこう治療している: 住宅の温熱環境による障害. 医学書院, 東京, 2022.
- 4) 東 賢一. 今日の治療指針 2023 年版—私はこう治療している: シックハウス症候群/化学物質過敏症. 医学書院, 東京, 2023.
- 5) Azuma K, Jinno H. Toxicity of SVOCs, Advances in the toxicity of construction and building materials. Elsevier, 2022.
- 6) 東 賢一, 他. 住まいのアレルギー対策—室内環境からのアプローチ. 技報堂出版, 東京, 2023.
- 7) 東 賢一, 他. 室内環境の事典. 朝倉書店, 東京, 2023.
- 8) 東 賢一, 他. テキスト健康科学改訂第3版: 第6章住宅と健康. 南江堂, 東京, 2024 (印刷中).

学会発表

- 1) Azuma K. Indoor air quality and health effects in Japanese modern office buildings. the 33rd International Congress on Occupational Health 2022, Special Session: Indoor air quality in modern office buildings, Global digital congress, Melbourne-Rome, February 6-10, 2022.
- 2) Azuma K. Indoor air quality and health effects in modern office buildings. 16th international conference on indoor air quality and climate, Workshop. Kuopio, Finland. June 12-16, 2022.
- 3) Azuma K, Jinno H, Tanaka-Kagawa T, Sakai S. Hazard and risk assessment for indoor air

pollutants: dimethylsiloxanes, glycols, butanediol, hydrocarbons, trimethylbenzenes, benzene, naphthalene, and ethyltoluene. 34th Annual International Society for Environmental Epidemiology Conference, Athens, Greece. September 18-21, 2022.

- 4) 東 賢一. 室内空気環境対策総論—室内環境における健康リスク要因とその対策について—. 第32回日本産業衛生学会全国協議会シンポジウム: 新型コロナウイルス感染症と室内空気環境対策. 札幌コンベンションセンター (於 札幌), 2022年9月30日.
- 5) Azuma K, Tanaka-Kagawa T, Jinno H, Sakai S. Hazard and risk assessment for indoor air pollutants: alicyclic compound, 1-butanol, long-chain aldehydes, chlorinated organic compounds, and acrolein. 35th Annual International Society for Environmental Epidemiology Conference, Kaohsiung, Taiwan. September 17-21, 2023.
- 6) 東 賢一. 室内環境における健康影響問題の経緯と近年の動向. 大気環境総合センター令和5年度特別セミナー. 大気環境総合センター (於 東京), 2023年11月17日.
- 7) 東 賢一. 空気成分の指針動向. 2023年室内環境学会学術大会車室内環境分科会セミナー. 沖縄県市町村自治会館 (於 那覇), 2023年11月30日.

F. 知的財産権の出願・登録状況 (予定含む)
予定なし

付属資料 1 : 世界保健機関 (WHO)、ドイツ、フランス、カナダの室内空気質ガイドライン

1. 世界保健機関のガイドライン

WHO は、空気質ガイドラインを今後アップデートするにあたり、近年のエビデンスのレビューを 2015 年に実施し、10 月にボンで開催された専門家会合での評価結果を公表していた。そして、その後に公表された WHO のガイドラインに関する資料の中で、PM₁₀、PM_{2.5}、二酸化窒素、二酸化硫黄、一酸化炭素に関する短時間曝露と長時間曝露のガイドラインのアップデートを実施すると報告していた。そして WHO は、2021 年 9 月 22 日に空気質ガイドラインの改正を公表した。

粒子状物質 (PM_{2.5}、PM₁₀)、オゾン、二酸化窒素、二酸化硫黄、一酸化炭素の空気質ガイドラインが最新の科学的知見に基づき改正された。表 1 - 1 に改正された空気質ガイドラインとその設定根拠を示す。

表 1 - 1 WHO の新しい空気質ガイドライン

物質	アセスメントの概要	空気質ガイドライン	キー研究
PM _{2.5}	全死亡（不慮の事故を除く）について、最も低濃度で影響が観察された 5 つの研究の 5 パーセント値が 3.0 µg/m ³ (Pinault et al., 2016), 3.2 µg/m ³ (Cakmak et al., 2018), 3.5 µg/m ³ (Pinault et al., 2017), 4.8 µg/m ³ (Villeneuve et al., 2015) and 6.7 µg/m ³ (Weichenthal et al., 2014) であり、これらの平均値が 4.2 µg/m ³ となった。PM _{2.5} の影響がみられなかった Villeneuve et al., 2015 と Weichenthal et al., 2014 を除くと平均値が 4.9 µg/m ³ となった。これらの結果から出発点を 4.2-4.9 µg/m ³ PM _{2.5} とし、年平均値を 5 µg/m ³ としている。	5 µg/m ³ (年平均値)	Pinault et al., 2016, Cakmak et al., 2018, Pinault et al., 2017, Villeneuve et al., 2015, Weichenthal et al., 2014
	1 日の全死亡（不慮の事故を除く）を指標とし、年平均値のガイドライン 5 µg/m ³ に合致する日平均濃度の 99 パーセント値を推算し、Liu et al., 2019 のデータから年平均値の 3 倍の値を導出した。	15 µg/m ³ (24 時間平均値)	Liu et al., 2019
PM ₁₀	全死亡（不慮の事故を除く）について、最も低濃度で影響が観察された 5 つの研究の 5 パーセント値が 13.7 µg/m ³ (Beelen et al., 2014), 15.0 µg/m ³ (Bentayeb et al., 2015), 15.1 µg/m ³ (Puett et al., 2008), 15.9 µg/m ³ (Carey et al., 2013) and 16.0 µg/m ³ (Hart et al., 2011) であり、これらの平均値が 15.1 µg/m ³ となった。そこで年平均値を 15 µg/m ³ としている。	15 µg/m ³ (年平均値)	Beelen et al., 2014, Bentayeb et al., 2015, Puett et al., 2008, Carey et al., 2013, Hart et al., 2011

	1日の全死亡（不慮の事故を除く）を指標とし、年平均値のガイドライン 15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ に合致する日平均濃度の 99 パーセンタイル値を推算し、Liu et al., 2019 のデータから年平均値の 3 倍の値を導出した。	45 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (24 時間平均値)	Liu et al., 2019
オゾン	全死亡（不慮の事故を除く）について、最も低濃度で影響が観察された 3 つの研究のピーク季節の 5 パーセンタイル値が 55 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (Weichenthal, Pinault & Burnett, 2017), 56 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (Cakmak et al., 2018) and 68 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (Di et al., 2017a) であり、これらの平均値が 60、または 64 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ となった。そこでピーク季節の 8 時間平均値を 60 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ としている。	60 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (8 時間平均値、ピーク季節[平均値が高濃度の 6 ヶ月間])	Weichenthal, Pinault & Burnett, 2017、Cakmak et al., 2018、Di et al., 2017
	全死亡（不慮の事故を除く）を指標とし、6 ヶ月のピーク値ガイドライン 60 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ が年平均値 48.7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ に相当すると計算し、日平均値の 99 パーセンタイルと 8 時間日最大値への換算を行い、8 時間日最大値を 100 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ としている。	100 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (8 時間の日最大値)	Vicedo-Cabrera et al. 2020、Turner et al., 2016、de Hoogh et al., 2018
二酸化窒素	全死亡（不慮の事故を除く）について、最も低濃度で影響が観察された 5 つの研究の 5 パーセンタイル値が 7.3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (Tonne & Wilkinson, 2013), 8.3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ in two separate studies (Hart et al., 2011, 2013), 9.6 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (Turner et al., 2016) and 10.3 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (Carey et al., 2013) であり、これらの平均値が 8.8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ となった。そこで年平均値を 10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ としている。	10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (年平均値)	Tonne & Wilkinson, 2013、Hart et al., 2011, 2013、Turner et al., 2016、Carey et al., 2013
	1日の全死亡（不慮の事故を除く）を指標とし、年平均値のガイドライン 10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ に合致する日平均濃度の 99 パーセンタイル値を推算し、Liu et al., 2019 のデータから年平均値の 2.5 倍の値を導出した。	25 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (24 時間平均値)	Liu et al., 2019
		200 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (1 時間平均値) *	改正なし
二酸化硫黄	1日の喘息による入院や救急搬送、全死亡（不慮の事故を除く）、呼吸器疾患死亡を指標とし、30 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の日平均濃度の増加分を算出し、10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ の年平均濃度に加算して 24 時間平均値 40 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、また	40 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (24 時間平均値)	Liu et al., 2019、Zheng et al. 2021、Orellano, Reynoso & Quaranta 2021

	は99パーセンタイル値と年平均値との差を4倍と推算して24時間平均値40 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ としている。		
		500 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (10分平均値) *	改正なし
一酸化炭素	入院と心筋梗塞による死亡を指標とし、中央値1.15 mg/m^3 を観察された最も低濃度とし、相対リスク1.019を用いて心筋梗塞が5.4%増となる日平均濃度として4 mg/m^3 を導出している。	4 mg/m^3 (24時間平均値)	Lee et al. 2020
		10 mg/m^3 (8時間平均値) * 35 mg/m^3 (1時間平均値) * 100 mg/m^3 (15分平均値) *	改正なし

* 改正されず現状維持とされたガイドライン

2. ドイツ、フランス、カナダの室内空気質ガイドライン (令和2年度報告書以降)

表1-2 ドイツ連邦環境庁の室内空気質ガイドライン

物質	アセスメントの概要	指針値	キー研究
メタクリル酸メチル (CAS no. 80-62-6)	ラットの吸入による慢性毒性試験における嗅上皮の変性からBMD ₁₀ として232 mg/m^3 とし、時間補正係数5.6、種差1、個体差10、小児の係数2の合計112を適用し、指針値IIを導出。指針値Iは120 mg/m^3 のBMDL ₅ に112の係数を適用して導出。	<ul style="list-style-type: none"> 指針値II (BMD₁₀から導出) 2.1mg/m^3 指針値I (BMDL₅から導出) 1.1mg/m^3 	Hazleton (1979), Lomax et al. (1992, 1997) from Ref. IRK 2020a
アセトン (CAS no. 67-64-1)	マウスの吸入による発達毒性試験における胎児の骨化の減少からLOAELとして15900 mg/m^3 、NOAELとして5300 mg/m^3 とし、時間補正係数4、種差2.5、個体差10の合計100を適用し、LOAELから指針値II、NOAELから指針値Iを導出。	<ul style="list-style-type: none"> 指針値II (LOAELから導出) 160mg/m^3 指針値I (NOAELから導出) 53mg/m^3 	Mast et al., 1988; NTP, 1988 from Ref. IRK 2020b
2-プロパノール (CAS	ラットの吸入による慢性毒性試験における腎臓傷害から	<ul style="list-style-type: none"> 指針値II (LOAELから導出) 45mg/m^3 	Burleigh-Flayer et al. 1997 from Ref.

no. 67-63-0)	LOAEL として 12500 mg/m ³ 、NOAELとして 6250 mg/m ³ とし、時間補正係数 5.6、種差 2.5、個体差 10、小児 2 の合計 280 を適用し、LOAEL から指針値 II、NOAEL から指針値 I を導出。	・指針値 I (NOAEL から導出) 22 mg/m ³	IRK 2020c
ベンゾ ^g -a-ピレン	複数の職業性曝露の疫学調査より、0.0076 µg/m ³ ・年の濃度で 1×10 ⁻⁶ の肺がんの過剰発がんリスクであることから、職業性曝露を一般環境曝露に換算するため 5.7 の係数を適用 (20 m ³ d ⁻¹ /10 m ³ d ⁻¹ × 7d/5d × 52w/48w × 75a/40a)	100 万分の 1 の過剰発がんリスクに対応する濃度として約 0.033 ng/m ³ 10 万分の 1 の過剰発がんリスクに対応する濃度では約 0.33 ng/m ³ 指針値としては、ドイツの実態調査 (von Neumann et al., 2020 from IRK 2021d) から、居間で 0.79 ng/m ³ が 95 パーセントイル値であったことから、0.8 ng/m ³ を暫定的に勧告	Armstrong et al. (2003, 2004) from IRK 2021d
塩化ビニル	2 つの職業性曝露の疫学調査より、ドイツの MAK が肝臓の血管肉腫を指標として 4×10 ⁻³ /10 ⁻⁴ /10 ⁻⁵ で 100、10、1 mg/m ³ のリスク値を導出しており、職業性曝露を一般環境曝露に換算するため 5.7 の係数を適用 (20 m ³ d ⁻¹ /10 m ³ d ⁻¹ × 7d/5d × 52w/48w × 75a/40a)	100 万分の 1 の過剰発がんリスクに対応する濃度として 2.3 µg/m ³ 10 万分の 1 の過剰発がんリスクに対応する濃度では 23 µg/m ³	DFG (2019) from Ref. IRK 2020e
一酸化炭素	WHO の空位質ガイドラインに準じる	4 mg/m ³ (24 時間平均値) 10 mg/m ³ (8 時間平均値) 35 mg/m ³ (1 時間平均値) 100 mg/m ³ (15 分平均値)	WHO (2021)
メタノール (CAS no. 67-56-1)	ヒトのボランティアの急性吸入試験から、数時間暴露後の NOAEL を 266 mg/m ³ としている。指針値 II を導出するにあたっては、NOAEL から LOAEL への換算を係数 3 で乗じており、その値に個体差 10、小児の係数 2 の合計 20	・指針値 II (NOAEL から導出) 40 mg/m ³ (60 分平均値) ・指針値 I (NOAEL から導出) 13 mg/m ³ (60 分平均値)	Cook et al. (1991), Chuwers et al. (1995), Mann et al. (2002), Muttray et al. (2001)

	の係数を割り算して 40 mg/m ³ の指針値 II を導出。指針値 I では、NOAEL の 266 mg/m ³ を個体差 10、小児の係数 2 の合計 20 の係数で割り算して 13 mg/m ³ の指針値 I を導出。		
アセトフェノン (CAS no. 98-86-2)	ラットの経口曝露による生殖発生毒性試験から胎児死亡率を指標として 75 mg/kg/day の LOAEL が判断され、ラットからヒトへの相対係数 4、体重 70kg のヒトの呼吸量 20 m ³ 、経口吸収率 50%から、75 mg/kg/day × 0.5/4/(20 m ³ /70 kg) = 32.8 mg/m ³ の吸入での LOAEL を導出。試験期間 2、種差 2.5、個体差 10 を適用し、評価値 II では影響の深刻さから係数 3 を追加して 220 µg/m ³ 、評価値 I では NOAEL への係数 10 を適用して 66 µg/m ³ を導出。	<ul style="list-style-type: none"> 指針値 II (LOAEL から導出) 220 µg/m³ 指針値 I (LOAEL から導出) 66 µg/m³ 	ECHA Registration Dossier, 14.09.2021
1-プロパノール (CAS no. 71-23-8)	ラットの 13 週間吸入曝露における精巣重量の減少より、LOAEL として 13000 mg/m ³ 、NOAEL として 4000 mg/m ³ を導出。週 5 日、1 日 6 時間を連続曝露に換算し、それぞれ 2321 mg/m ³ 、714mg/m ³ を導出。試験期間 2、種差 2.5、個体差 10 を適用し、評価値 II として 46 mg/m ³ 、評価値 I として 14 mg/m ³ を導出。	<ul style="list-style-type: none"> 指針値 II (LOAEL から導出) 46 mg/m³ 指針値 I (NOAEL から導出) 14 mg/m³ 	Kim et al. (2021)
ギ酸 (CAS no. 64-18-6)	ラットの 13 週間吸入曝露における気道上皮の損傷より、LOAEL として 122 mg/m ³ 、NOAEL として 61 mg/m ³ を導出。週 5 日、1 日 6 時間曝露ではあるが曝露時間による換算は行わず、試験期間 2 (亜慢性)、種差 3、個体差 10、小	<ul style="list-style-type: none"> 指針値 II (LOAEL から導出) 1000 µg/m³ 指針値 I (NOAEL から導出) 510 µg/m³ 	NTP (1992)

	児の係数 2 (合計 120) を適用し、評価値 II として 1 mg/m ³ 、評価値 I として 0.51 mg/m ³ を導出。		
酢酸 (CAS no. 64-19-7)	ヒトボランティアの短時間吸入曝露実験における感覚刺激より、LOAEL として 74 mg/m ³ 、NOAEL として 25 mg/m ³ を導出。個体差 10、小児の係数 2 (合計 20) を適用し、評価値 II として 3.7 mg/m ³ 、評価値 I として 1.25 mg/m ³ を導出。数値を丸めて指針値としている。	<ul style="list-style-type: none"> ・指針値 II (LOAEL から導出) 3700 µg/m³ ・指針値 I (NOAEL から導出) 1300 µg/m³ 	Dalton et al. (2006), Ernstgard et al. (2006), Blaszkewicz et al. (2007), van Thriel et al. (2008)
プロピオン酸 (CAS no. 79-09-4)	ヒトボランティアの短時間吸入曝露実験における感覚刺激より、LOAEL として 31 mg/m ³ 、NOAEL として 15.5 mg/m ³ を導出。個体差 10、小児の係数 2 (合計 20) を適用し、評価値 II として 1.55 mg/m ³ 、評価値 I として 0.775 mg/m ³ を導出。数値を丸めて指針値としている。	<ul style="list-style-type: none"> ・指針値 II (LOAEL から導出) 1600 mg/m³ ・指針値 I (NOAEL から導出) 780 mg/m³ 	Blaszkewicz et al. (2007), van Thriel et al. (2008)

※指針値 II (RW II) は、既知の毒性および疫学的な科学的知見に基づき定められた値であり、不確実性が考慮されている。RW II を越えていたならば、特に、長時間在住する感受性の高い居住者の健康に有害となる濃度として、即座に濃度低減のための行動を起こすべきと定義されている。指針値 I (RW I) は、長期間曝露したとしても健康影響を引き起こす十分な科学的根拠がない値である。従って、RW I を越えていると、健康上望ましくない平均的な曝露濃度よりも高くなるため、予防のために、RW I と RW II の間の濃度である場合には行動する必要があると定義されている。RW I は、RW II に不確実係数 10 を除した値、つまり RW II の 10 分の 1 の値が定められている。不確実係数 10 は慣例値を使用している。RW I は、改善の必要性を示す値としての役割を果たすことができる。可能であれば、RW I の達成を目指すのではなく、それ以下の濃度に維持することを目指すべきであるとされている。

表 1-3 フランスにおける室内空気指針値のまとめ

物質	キー研究	指針値	Ref.
アンモニア (2021)	ヒトの 3 時間曝露での呼吸器への刺激 NOAEL 17.7 mg/m ³ 不確実係数 3 (個体差 3)	VGAI (24 時間) 5.9 mg/m ³ (8.3 ppm)	Sundblad et al. (2004)
	ヒトの肺機能の低下と呼吸器症状の増加 (咳、喘鳴、その他の喘息関連症状) (平均曝露年数 12.2 年) NOAEL 13.6 mg/m ³	VGAI (1 年以上曝露) 0.5 mg/m ³ (0.71 ppm)	USEPA (2016) easimated from Holness et al. (1989)

	8 時間での呼吸量 10 m ³ 24 時間での呼吸量 20 m ³ 8 時間 5 日間労働を連続曝露へ $13.6 \times 10 / 20 \times 5 / 7 = 4.9 \text{ mg/m}^3$ 不確実係数 10 (個体差 10)		
--	--	--	--

表 1-4 カナダ保健省の室内空気質ガイドライン

物質	キー研究	ガイドライン	Ref.
アクロレイン	ヒトの眼の刺激 NOAEL 115 $\mu\text{g/m}^3$ 不確実係数 3 (個体差 3)	短時間 (1 時間) 38 $\mu\text{g/m}^3$	Dwivedi et al. (2015)
	ラットの鼻腔の嗅上皮の変性 NOAEL 460 $\mu\text{g/m}^3$ →時間補正 $460/5.6=82 \mu\text{g/m}^3$ →ヒトとラットでの regional gas dose ratio (RGDR)(USEPA, 1994; 2003)で 0.13 を乗じて 11 $\mu\text{g/m}^3$ を導出 不確実係数 25 (種差 2.5、個体差 10) (Ritter et al. (2007))を適用	長時間 (24 時間) 0.44 $\mu\text{g/m}^3$	Dorman et al. (2008)
二酸化炭素	近年の疫学研究や実験研究によって、二酸化炭素濃度の増加と、粘膜や呼吸器系 (目の刺激、喉の痛み、喉の渇き、鼻づまりや鼻水、くしゃみ、咳、鼻炎など) への影響や生産性 (意思決定、課題の成果、試験成績など) の低下、神経生理学的症状 (頭痛、疲労、倦怠感、めまい、集中困難など) に関するリスクの増加に関する報告がある。これらの因果関係に関する証拠は十分ではないが、1000ppm 以上でこれらの影響の大半が報告されている。従って、室内空気質に対する改善度合いを認識する、あるいは健康に対する有益性を鑑みると、1000 ppm は曝露限界値として適切であると判断した。	長時間 (24 時間) 1000 ppm (1800 mg/m^3)	Health Canada (2021c)
キシレン	ヒトの 2 時間曝露での神経学的症状 (頭痛、疲労)、目、鼻、喉の刺激; 呼吸への影響 LOAEL 217 mg/m^3 (50 ppm) 不確実係数 30 (LOAEL 3、個体差 10)	短時間 (1 時間) 7200 $\mu\text{g/m}^3$ (1700 ppb)	Ernstgård et al (2002)
	ラットの 3 か月間吸入曝露試験における運動協調障害	長時間 (24 時間) 150 $\mu\text{g/m}^3$ (36 ppb)	Korsak et al. (1994)

	NOAEL 217 mg/m ³ (50 ppm) 時間補正 217*6*5/24/7=39 mg/m ³ 不確実係数 250 (試験期間 10、種差 2.5、 個体差 10)		
--	---	--	--

3. 世界保健機関のその他の動向

1) 環境要因に起因する疾病低減のガイダンス : compendium

世界保健機関 (WHO) は、WHO および国連機関による環境要因に起因する疾病低減のガイダンス : compendium (2022年4月1日アップデート版) を公表した。

これは、健康と環境に関する WHO およびその他の国連機関からこれまで公表されてきたガイダンスを体系的にまとめた compendium (大綱) であり、政策と行動、意識向上、能力開発のための介入に関するガイダンスとなっている。また、都市、住宅、職場、医療施設などの行動に関する優先付けに関するガイダンスも含まれている。その他、利用可能な情報がある場合には、健康と環境の全ての分野について、主な情報源、曝露評価、既存のガイドライン値に関する情報が含まれている。これらのガイダンスは、新たなガイダンスが公表されると追記され、compendium が更新されるように計画されている。

WHO は、環境汚染やその他の環境リスクが全死亡の 24% (例えば、心疾患、脳卒中、中毒、交通事故など) を引き起こしており、これらの死亡は、国、地域およびセクターのレベルにおいて、しっかりとした予防措置 (preventive action) を講じることで、大幅に削減可能と述べている。

2) First WHO/Europe Indoor Air Conferenc

WHO 欧州地域事務局が 2023 年 9 月 20 日に「First WHO/Europe Indoor Air Conference」をスイスのベルンで開催したため、オンラインで参加した。室内空気質と健康障害に関する最新情報が紹介され、今後の課題について議論が行われた (表 1 - 5)。室内空気質に対する取り組みは、WHO においても優先事項であることを改めて確認した。



20 SEPTEMBER 2023
BERN, SWITZERLAND

表 1 - 5 First WHO/Europe Indoor Air Conference における講演者と演題

講演者	演題
Presentations - Scientific session	
David Vernez	The indoor environment as a determinant for health
Pawel Wargocki	What do we need to achieve in buildings? What is realistic vs what is ideal?
Corinne Mandin	What do we know about the current state of IAQ in buildings
Hossein Gorji	Infection risk and IAQ in Swiss schools
Andreas Prenner	Pandemic management through indoor pathogen transmission suppression - EU innovation funding
Presentations - From science to policy	
Catherine Noakes OBE	Challenge and opportunity for Indoor Air - Learning from the pandemic
Roger Waeber	Improving ventilation in Swiss buildings - IAQ as part of sustainability
Jelle Laverge	Compliance through information sharing in Belgium
Claude-Alain Roulet	Priorities for improving indoor air in Switzerland

5. WHO の国際がん研究機関 (IARC) による発がん性分類のアップデート

室内空気汚染物質に関連する IARC による発がん性分類のアップデートを表 1 - 6 に示す。

表 1 - 6 室内空気汚染物質に関連する発がん性分類のアップデート (令和 2 年度報告書以降)

物質	改正前	改正または新設	発表時期	Monographs
1,1,1-トリクロロエタン	3 (1999 年)	2A	2021 年 10 月	Vol. 130
1,2-ジフェニルヒドラジン	—	2B	2021 年 10 月	Vol. 130
ジフェニルアミン	—	2B	2021 年 10 月	Vol. 130
N-メチロールアクリルアミド	—	2B	2021 年 10 月	Vol. 130
イソホロン	—	2B	2021 年 10 月	Vol. 130
コバルトとその二価物 (タングステンカーバイドを含まない)	2B (1991 年、2006 年)	金属 Co : 2A 可溶性二価物 : 2A 二酸化 Co : 2B 二三酸化 Co : 3 二硫化 Co : 3 他の 2 価物 : 3	2022 年 4 月	Vol. 131
三価および五価アンチモン	三酸化アンチモン 2B (1989)	三酸化 Sb : 2A 五酸化 Sb : 3	2022 年 4 月	Vol. 131

	年)、三硫化アンチモン 3 (1989年)			
兵器級タングステン	—	2B	2022年4月	Vol. 131
アントラセン (CAS 120-12-7)	3 (2010年)	2B	2023年5月	Vol. 133
2-ブロモプロパン (CAS 75-26-3)	—	2A	2023年5月	Vol. 133
メタクリル酸ブチル (CAS 97-88-1)	—	2B	2023年5月	Vol. 133
亜リン酸ジメチル (CAS 868-85-9)	3 (1999年)	2B	2023年5月	Vol. 133
アステルパーム (CAS 22839-47-0)	—	2B	2023年8月	Vol. 134
メチルオイゲノール (CAS 93-15-2)	2B (2013年)	2A	2023年8月	Vol. 134
イソオイゲノール (CAS 97-54-1)	—	2B	2023年8月	Vol. 134
ペルフルオロオクタ ン酸 (PFOA) (CAS 335-67-1)	2B (2017年)	1	2023年11月	Vol. 135
ペルフルオロオクタ ンスルホン酸 (PFOS) (CAS 1763-23-1)	—	2B	2023年11月	Vol. 135
タルク (石綿含まず) (CAS 14807-96-6)	3 (2006年)	検討予定	2024年8月	Vol. 136
タルク (会陰部用の粉 体) (CAS 14807-96-6)	2B (2006年)	検討予定	2024年8月	Vol. 136
アクリルニトリル (CAS 107-13-1)	2B (1998年)	検討予定	2024年8月	Vol. 136

グループ 1 : ヒトに対して発がん性がある

グループ 2A : ヒトに対しておそらく発がん性がある

グループ 2B : ヒトに対して発がん性があるかもしれない

グループ 3 : ヒトに対する発がん性を分類できない

グループ 4 : ヒトに対しておそらく発がん性がない

付属資料2：ハザード情報収集結果

1. RfCの導出

個々の物質の有害性評価結果に基づいて、健康リスク評価値（Reference Concentration: RfC）を導出した。有害性評価の方法は、拙著の方法を用いた（Azuma et al., 2007; Azuma et al., 2016）。影響量に対して、反復曝露から連続曝露への補正、不確実係数の適用を行って RfC を導出した。不確実係数としては、初期リスク評価であるため、近年欧州化学品庁（ECHA）が公表している不確実係数を用いた（表2-9、表2-10）（ECHA, 2012）。なお、ヒトボランティアによる短時間の曝露データを用いた場合は、試験期間の調整係数を 10 とした。また、LOAEL を用いた場合は 10 とし、初期評価として、リスクの取りこぼしがないように安全側の不確実係数を用いた。詳細リスク評価や指針値の導出を行う際には、LOAEL に対する不確実係数、種差、個体差に対する不確実係数等について、感受性、作用機序、体内動態などに基づいて見直す必要がある。

2. ハザード情報収集結果に基づく各物質のキー研究と RfC の導出

1) 令和3年度

表2-1 室内環境汚染物質の AcRfC 一覧（急性影響）

	指標	曝露経路	影響量*	種	エンドポイント	不確実係数(UF)**				AcRfC (mg/m ³)	キー研究
						1	2	3	4		
オクタ メチル シクロ テトラ シロキ サン (D4)	評価可能な知見が得られなかった										
デカメ チルシ クロペ ンタシ ロキサ ン(D5)	評価可能な知見が得られなかった										
プロピ レング リコー ル	評価可能な知見が得られなかった										
1,3-ブ タンジ オール	評価可能な知見が得られなかった										
炭素数 8~16 の脂肪 族飽和 炭化水 素類	評価可能な知見が得られなかった										

トリメチルベンゼン	NOAEL	吸入	148.6	ヒト	影響なし	1	1	1	10	14.9	Järnberg (1996)	ら
ベンゼン	NOAEL	吸入	357	ヒト	影響なし	1	1	1	10	35.7	Srbova et al (1950)	
	NOAEL	吸入	12992	ラット	自発運動の低下	1	1	10	1	129.9	Molnar et al (1986)	
ナフタレン	NOAEL	吸入	204	ラット	気道の細胞の腫脹と脱落	1	1	2.5	10	8.2	Buckpitt (1982)	
エチルトルエン	評価可能な知見が得られなかった											

* 吸入 (mg/m³). 経口 (mg/kg/day). 経口換算では体重 50kg 及び呼吸量 15 m³/day を用いた

** UF1: LOAEL to NOAEL extrapolation. UF2: Extrapolation across durations. UF3: Interspecies extrapolation UF4: Intraspecies extrapolation.

表 2-2 室内環境汚染物質の ChRfC 一覧 (非発がんの慢性影響)

	指標	曝露経路	影響量*	種	エンドポイント	不確実係数(UF)**				ChRfC (µg/m ³)	キー研究	
						1	2	3	4			
オクタメチルシクロテトラシロキサン (D4)	NOAEL	吸入	420	ラット	肝臓への影響と肺の間質性炎症の悪化	1	2	10	10	375	Burns-Naas et al (2002)	
シクロテトラシロキサン (D4)	NOAEL	吸入	1820	ラット	肝臓重量の増加、小葉中心性の肝細胞の肥大	1	1	10	10	3250	Jean ら(2017)	
デカメチルシクロペンタシロキサン (D5)	NOAEL	吸入	150	ラット	鼻腔上皮の炎症性病変	1	1	2.5	10	1071	Jean et al (2016)	
デカメチルシクロペンタシロキサン (D5)	NOAEL	吸入	2420	ラット	肝臓重量の増加や肝細胞肥大、鼻腔上皮の炎症	1	1	10	10	4321	Young et al (2016)	
プロピレングリコール	NOAEL	吸入	160	ラット	気道粘膜の杯細胞の増加	1	2	2.5	10	571	Suber et al (1989)	
プロピレングリコール	NOAEL	吸入	1000	ラット	体重増加の抑制	1	2	10	10	893	Suber et al (1989)	
1,3-ブタンジオール	NOAEL	経口	750	イヌ	毒性所見なし	1	1	10	10	25000	Scala et al (1967)	
1,3-ブタンジオール	NOAEL	経口	2500	ラット	仔の胸骨分節の骨化遅延	1	1	10	10	83333	Hess et al (1981)	
炭素数 8~16 の脂肪酸飽和炭化水	NOAEL	吸入	138	ラット	副腎髄質過形成	1	1	10	10	246	NTP (2004)	
	LOAEL	吸入	4680	ラット	仔の学習・記憶障害	10	1	10	10	1170	Hass et al (2001)	
	LOAEL	吸入	4680	ラット	運動活性の低下	10	2	10	10	585	Hass et al (2001)	

素類											
トリメチルベンゼン	NOAEL	吸入	123	ヒト	神経行動学的影響、気管支周囲の変性	10	1	1	10	610	Korsak et al (1996, 2000)
ベンゼン	LOAEL	吸入	1.85	ヒト	血液毒性（総白血球数、顆粒球数等の減少）	10	1	1	10	4	Lan et al (2004)
	NOAEL	吸入	2.24	ヒト	遺伝毒性	1	1	1	10	53	Schnatter et al (2020)
	LOAEL	吸入	7.57	ヒト	遺伝毒性	10	1	1	10	18	Schnatter et al (2020)
ナフタレン	LOAEL	吸入	53	ラット	嗅上皮の過形成、萎縮、慢性炎症	10	1	2.5	10	37.9	NTP (2000)
	NOAEL	吸入	5	ラット	鼻の呼吸上皮の病変	1	2	2.5	10	17.9	Dodd et al (2012)
エチルトルエン	LOAEL	吸入	750	ラット、マウス	嗅上皮と嗅神経の萎縮	1	6	2.5	10	1250	Huang et al (2021)

* 吸入 (mg/m³). 経口 (mg/kg/day). 経口換算では体重 50kg 及び呼吸量 15 m³/day を用いた

** UF1: LOAEL to NOAEL extrapolation. UF2: Extrapolation across durations. UF3: Interspecies extrapolation UF4: Intraspecies extrapolation.

表 2-3 室内環境汚染物質の CarRfC（発がんリスク評価値）一覧

	ユニットリスク	種	エンドポイント	CarRfC (µg/m ³ /10 万分の 1 過剰発がんリスク)	キー研究
ベンゼン	6×10 ⁻⁶ /(µg/m ³)	ヒト	骨髄性白血病	1.7	WHO Europe (2010)
	1×10 ⁻⁵ /(µg/m ³)	ヒト	骨髄性白血病	1.0	AGS (2012) and 独・室内空気 (2020)

2) 令和 4 年度

表 2-4 室内環境汚染物質の AcRfC 一覧（急性影響）

	指標	曝露経路	影響量*	種	エンドポイント	不確実係数(UF)**				AcRfC (mg/m ³)	キー研究
						1	2	3	4		
メチルシクロヘキサン	評価可能な知見が得られなかった										
プロピルシクロヘキサン	評価可能な知見が得られなかった										
1-ブタ	評価可能な知見が得られなかった										

ノール											
ヘキサノール	LOAEL	吸入	549.4	ヒト	粘膜刺激	10	1	1	10	5.5	Sim ら(1957)
デカノール	評価可能な知見が得られなかった										
トリクロロエチレン	LOAEL	吸入	546	ヒト	中枢神経症状	10	1	1	10	5.5	Boyes ら(2000)
テトラクロロエチレン	LOAEL	吸入	718.9	ヒト	眼の刺激	10	1	1	10	7.2	Rowe ら(1952)
	LOAEL	吸入	700	ヒト	眼や粘膜への刺激、 中枢神経系への影響	10	1	1	10	7.0	Stewart ら(1970)
1,2-ジクロロエタン	NOAEL	吸入	200	ラット	嗅上皮の変性や壊死	1	1	2.5	10	8.0	Hotchkiss ら (2010)
アクロレイン	LOAEL	吸入	0.21	ヒト	眼の刺激	10	1	1	10	0.0021	Weber-Tschopp ら(1977)
	NOAEL	吸入	0.115	ヒト	眼の刺激	1	1	1	10	0.0115	Dwivedi ら(2015)

* 吸入 (mg/m³). 経口 (mg/kg/day). 経口換算では体重 50kg 及び呼吸量 15 m³/day を用いた

** UF1: LOAEL to NOAEL extrapolation. UF2: Extrapolation across durations. UF3: Interspecies extrapolation UF4: Intraspecies extrapolation.

表 2-5 室内環境汚染物質の ChRfC 一覧 (非発がんの慢性影響)

	指標	曝露経路	影響量*	種	エンドポイント	不確実係数(UF)**				ChRfC (µg/m ³)	キー研究
						1	2	3	4		
メチルシクロヘキサン	NOAEL	吸入	1,636	ラット	腎臓の髄質の石灰化 と腎乳頭の過形成	1	1	10	10	2,921	AMRL (1984)、 Kinkead et al (1985)
プロピルシクロヘキサン	評価可能な知見が得られなかった										
1-ブタノール	NOAEL	吸入	154	ラット	運動協調性障害	1	2	10	10	138	Korsak ら(1994)
ヘキサノール	LOAEL	吸入	363	イヌ	鼻腔の扁平上皮化生	10	2	2.5	10	130	UCC (1979)
デカノール	LOAEL	吸入	363	イヌ	鼻腔の扁平上皮化生	10	2	2.5	10	130	UCC (1979)
トリクロロエチレン	LOAEL	経口	0.35	マウス	胸腺重量の減少	10	1	10	10	1.2	Keil ら(2009)
	BMDL ₁₀	経口	0.0207	ラット	胎仔の心臓の奇形	1	1	10	10	0.7	Johnson ら (2003)
	LOAEL	吸入	200	ヒト	神経への影響	10	1	1	10	476.2	Ahlmark ら (1951)、Liu ら

											(1988)、ACGIH、WHO(Europe, Global)
テトラクロロエチレン	LOAEL	吸入	105	ヒト	腎層への影響	10	1	1	10	242.9	Cavalleri ら (1994)
	LOAEL	吸入	50	ヒト	色覚の低下	10	1	1	10	119.1	Mutti ら(1992)
1,2-ジクロロエタン	NOAEL	吸入	40	ラット	肝臓への影響 (血清ALT、LDH・AST低下など)	1	1	10	10	83	Spreafico ら (1980)
	LOAEL	吸入	61	ヒト	神経行動学的な影響	10	1	1	10	145	Kozik (1957)
アクロレイン	NOAEL	吸入	0.23	マウス	気道上皮の炎症と過形成	1	1	2.5	10	2.3	Matsumoto ら (2021)

* 吸入 (mg/m³). 経口 (mg/kg/day). 経口換算では体重 50kg 及び呼吸量 15 m³/day を用いた

** UF1: LOAEL to NOAEL extrapolation. UF2: Extrapolation across durations. UF3: Interspecies extrapolation UF4: Intraspecies extrapolation.

表 2-6 室内環境汚染物質の CarRfC (発がんリスク評価値) 一覧

	ユニットリスク	種	エンドポイント	CarRfC (µg/m ³ /10 万分の 1 過剰発がんリスク)	キー研究
トリクロロエチレン	4.3×10 ⁻⁷ /(µg/m ³)	ラット	精巢のライディッチ細胞腫	23.26	WHO Europe (2000)、WHO Global (2000)、WHO Europe (2010)
	4.1×10 ⁻⁶ /(µg/m ³)	ヒト	腎細胞がん	2.44	USEPA (2011)
	6.4×10 ⁻⁸ /(µg/m ³)	ヒト	腎臓がん	156.25	独 UBA (2015)
テトラクロロエチレン	5.2×10 ⁻⁶ /(µg/m ³)	マウス	肝細胞等への発がん影響	1.92	CICAD (2006)
	2.6×10 ⁻⁷ /(µg/m ³)	マウス	肝細胞等への発がん影響	38.46	USEPA (2012)
	6.1×10 ⁻⁶ /(µg/m ³)	マウス	肝細胞等への発がん影響	1.64	CalEPA(2016)
1, 2-ジクロロエタン	6.4×10 ⁻⁶ /(µg/m ³)	ラット	乳腺腫瘍	1.56	化審法 (2022)
	6.3×10 ⁻⁶ /(µg/m ³)	ラット	乳腺腫瘍	1.59	環境省 (2006)
	3.4×10 ⁻⁶ /(µg/m ³)	ラット	乳腺腫瘍	2.94	仏 ANSES (2009) と欧州化学品庁 (ECHA) とテキサス州 (2016)

3) 令和5年度

表2-7 室内環境汚染物質のAcRfC一覧(急性影響)

	指標	曝露経路	影響量*	種	エンドポイント	不確実係数(UF)**				AcRfC (mg/m ³)	キー研究
						1	2	3	4		
ベンジ ルアル コール	評価可能な知見が得られなかった										
ベンズ アルデ ヒド	同上										
2-フル アルデ ヒド	LOAEL	吸入	20.4	ヒト	眼や鼻の刺激症状	10	1	1	10	0.2	Apolら(1975)
フェノ ール	NOAEL	吸入	25	ヒト	影響なし	1	1	1	10	2.5	Piotrowskiら (1971)
BBP	評価可能な知見が得られなかった										
DINP	同上										
DIDP	同上										
DINC H	同上										
DEHA	同上										

* 吸入 (mg/m³). 経口 (mg/kg/day). 経口換算では体重 50kg 及び呼吸量 15 m³/day を用いた

** UF1: LOAEL to NOAEL extrapolation. UF2: Extrapolation across durations. UF3: Interspecies extrapolation UF4: Intraspecies extrapolation.

表2-8 室内環境汚染物質のChRfC一覧(非発がんの慢性影響)

	指標	曝露経路	影響量*	種	エンドポイント	不確実係数(UF)**				ChRfC (µg/m ³)	キー研究
						1	2	3	4		
ベンジ ルアル コール	NOAEL	吸入	290	ラット	肺の病変(単核細胞浸潤など)	1	10	10	10	52	Roper(2010)
ベンズ アルデ ヒド	LOAEL	吸入	2,170	ラット	鼻腔組織の傷害、肝重量の増加	10	10	10	10	54	Lahamら(1991)
	LOAEL	吸入	5	ヒト	刺激(呼吸器、眼や皮膚)	10	1	1	10	11.9	BIBRA(1989) 職業曝露であるため、8時間/日、5日間/週で計算したが、正確な曝露時間は不明。
2-フル アルデ ヒド	LOAEL	吸入	20	ラット	鼻腔の移行上皮の扁平上皮化生や異型過形成	10	10	2.5	10	1.4	Artsら(2004)
	LOAEL	吸入	6.3	ヒト	頭痛、上気道や眼の	10	1	1	10	15	Morimotoら

					刺激						(2007)
フェノール	LOAEL	吸入	20.7	ヒト	肝酵素活性の上昇、血液凝固時間延長	10	1	1	10	49	Shamy ら (1994)
BBP	NOAEL	吸入	218	ラット	肝臓及び腎臓の相対重量の増加、血糖値の低下	1	2	10	10	195	Rolof (1982)
DINP	NOAEL	経口	15	ラット	肝臓と腎臓の相対重量の増加、肝細胞の海綿状変性	1	1	10	10	500	Lington ら(1997)
DIDP	NOAEL	経口	15	イヌ	肝細胞の腫脹及び空胞化	1	2	10	10	250	Hazleton Laboratories (1968)
DINCH	NOAEL	経口	40	ラット	肝臓と腎臓の相対重量の増加	1	1	10	10	1333	BASF (2005,2006)
DEHA	評価可能な知見が得られなかった										

* 吸入 (mg/m³). 経口 (mg/kg/day). 経口換算では体重 50kg 及び呼吸量 15 m³/day を用いた

** UF1: LOAEL to NOAEL extrapolation. UF2: Extrapolation across durations. UF3: Interspecies extrapolation UF4: Intraspecies extrapolation.

※補正係数について

表 2-9 欧州化学品庁によるアセスメント係数のデフォルト値 (ECHA 2012)

種間差	体重あたりの代謝の差 残りの種間差	アセスメント係数	
		全身影響	局所影響
		AS ^{a,b} 2.5	1 ^f 2.5 ^g
種内差	労働者	5	5
	一般人	10 ^c	10 ^c
曝露期間の差	亜急性から亜慢性への外挿	3	3 ^h
	亜慢性から慢性への外挿	2	2 ^h
	亜急性から慢性への外挿	6	6 ^h
曝露経路の差			
量反応関係への懸念、影響の重大性	量反応関係データの信頼性 (NOAEL が得られていないなど)、重大な影響への懸念 (発がん影響など)	1 ^d	1 ^d
データベースの質	不完全なデータ	1 ^d	1 ^d
	選ぶべきデータの信頼性	1 ^e	1 ^e

a: ラットでは 4 (表 2-11 参照)。 f,g: 局所影響 (local effect) では AS による補正は不要であり、皮膚、眼、消化管に対する単純な粘膜障害作用については種間差を認めず UF を 1 とする。但し曝露を受ける局所における代謝の結果として皮膚、眼、消化管への影響が現れる場合および呼吸器 (respiratory tract) に対する影響が現れる場合には 2.5 の UF を採用。 d: NOAEL が得られず LOAEL を用いる場合は、実験における曝露量の設定の公比 (dose spacing) (最近の試験では通常 2~4 倍) の大きさ、量反応関係の形や傾き、LOAEL で観察された毒性影響の程度などを勘案して UF を決定するが、ECHA は 3 (通常) ~10 (例外的) の UF を示唆。 f: 皮膚、眼、消化管における膜組織だけの破壊による影響。 g: 局所的な代謝を通じた皮膚、眼、消化管への影響、気道への影響。 h: 気道への影響

表 2-10 ヒトへの外挿に用いる allometric scaling (AS) factor

種	体重 (kg)	AS factor
ラット	0.250	4
マウス	0.03	7
ハムスター	0.11	5
モルモット	0.8	3
ウサギ	2	2.4
サル	4	2
イヌ	18	1.4

(参考文献)

Azuma K, Uchiyama I, Ikeda K. 2007. The risk screening for indoor air pollution chemicals in Japan. *Risk Anal*, 27(6), 1623–1638.

Azuma K, Uchiyama I, Uchiyama S, et al., 2016. Assessment of inhalation exposure to indoor air pollutants: Screening for health risks of multiple pollutants in Japanese dwellings. *Environ Res*, 145, 39–49.

ECHA. 2012. Guidance on information requirements and chemical safety assessment. Chapter R8: Characterisation of dose[concentration]-response for human health, Version: 2.1, 2012. Available at: <https://echa.europa.eu/guidance-documents/guidance-on-information-requirements-and-chemical-safety-assessment>. Access at 10 February 2017.

研究成果の刊行に関する一覧表

書籍

著者氏名	論文タイトル名	書籍全体の編集者名	書籍名	出版社名	出版地	出版年	ページ
香川 聡子, 遠藤 治, 斎藤 育江, 酒井 信夫, 神野 透人, 鳥羽 陽, 中島 大介, 藤森 英治	空気試験法／有機物質 ／揮発性有機化合物／ 固相吸着-加熱脱離－ ガスクロマトグラフィ ー/質量分析法による 定量（新規）	公益社団法人 日本薬学 会 環境・衛 生部会・試 験法出版委 員会	日本薬学会 編 衛生試験 法・注解 2020・追補 2022	公益社 団法人 日本薬 学会 環 境・衛 生部会	東京	2022	13-17
Azuma K, Jinno H.	Toxicity of semivolatile organic compounds	Torgal FP, Falkinham JO, Gałaj JA	Advances in the Toxicity of Construction and Building Materials	Elsevier	Duxford, UK	2022	348 pages
東 賢一 (分担執筆)	生活環境と健康	小田切陽一	新版 生活健 康科学 (第2版)	三共 出版	東京	2022	103- 136
Tham KW, Wargocki P, Tanabe S.	Postulated pathways between environmental exposures and cognitive performance	Zhang Y, Hopke PK, Mandin C	Handbook of Indoor Air Quality	Springer Nature	Singapore	2022	1397- 1405
東 賢一	シックハウス症候群／ 化学物質過敏症	福井 次矢, 高木 誠, 小室 一成	今日の治療 指針 2023年版 私はこう治 療している	医学 書院	東京	2023	2119

神野 透人, 大貫 文, 香川 聡子, 酒井 信夫, 鈴木 浩, 鳥羽 陽, 中島 大介, 藤森 英治	空気試験法／有機物質 ／揮発性有機化合物／ 総揮発性有機化合物 (新規)	公益社団法人 日本薬学 会 環境・衛 生部会・試 験法出版委 員会	日本薬学会 編 衛生試験 法・注解 2020・追補 2024	公益社 団法人 日本薬 学会 環 境・衛 生部会	東京	2024	8-12
神野 透人, 大貫 文, 香川 聡子, 酒井 信夫, 鈴木 浩, 鳥羽 陽, 中島 大介, 藤森 英治	空気試験法／有機物質 ／フタル酸ジ-n-ブチ ルおよびフタル酸ジ- 2-エチルヘキシル・固 相吸着-加熱脱離ーガ スクロマトグラフィー /質量分析法による定 量 (新規)	公益社団法人 日本薬学 会 環境・衛 生部会・試 験法出版委 員会	日本薬学会 編 衛生試験 法・注解 2020・追補 2024	公益社 団法人 日本薬 学会 環 境・衛 生部会	東京	2024	13-17
東 賢一 (分担執筆)	喘息と環境因子	日本臨床環 境医学会 環境アレルギー分科会	住まいの アレルギー 対策 室内環境か らのアプ ローチ	技報堂 出版	東京	2023	232
東 賢一 (分担執筆)	二酸化炭素, リスク評 価法, 化学物質過敏症 , 予防原則, 室内空気 質ガイドライン, 建築 物環境衛生管理基準	室内環境 学会	室内環境の 事典	朝倉出 版	東京	2023	464
東 賢一 (分担執筆)	第6章 住宅と健康		テキスト 健康科学 改訂第3版	南江堂	東京	2024	印刷 中

雑誌

発表者氏名	論文タイトル名	発表誌名	巻号	ページ	出版年
大嶋 直浩, 高橋 夏子, 高木 規峰野, 田原 麻衣子, 酒井 信夫, 五十嵐 良明	国立医薬品食品衛生研究所 殿町新庁舎における室内空 気質について (第2報)	国立医薬品食品 衛生研究所報告	139	59-63	2021
Oshima N, Tahara M, Sakai S, Ikarashi Y.	Analysis of volatile organic compounds emitted from bedding products	BPB Reports	4	182-192	2021
森 葉子, 植田 康次, 櫻井 有紀, 青木 明, 岡本 誉士典, 神野 透人	小型インピンジャーを用い る通気法による食品中 シアン化合物の分析	食品衛生学雑誌	62	162-165	2021
Fujinami K, Dan K, Tanaka-Kagawa T, Kawamura I.	Anti-aging effects of polyoxometalates on skin	Applied Sciences	11	11948	2021
Hanioka N, Saito K, Isobe T, Ohkawara S, Jinno H, Tanaka- Kagawa T.	Favipiravir biotransformation in liver cytosol: Species and sex differences in humans, monkeys, rats, and mice	Biopharmaceutics & Drug Disposition	42	218-225	2021

Kim H, Kim T, Tanabe S.	The contamination of DEHP on the surfaces of PVC sheet and risk of infants	Journal of Asian Architecture and Building Engineering	21	317-326	2022
Sakamoto M, Kuga K, Ito K, Beko G, Li M, Williams J, Wargocki P.	CO ₂ emission rates from sedentary subjects under controlled laboratory conditions	Building and Environment	211	108735	2022
Yanagi U, Kato S, Nagano H, Ito K, Yamanaka T, Momoi Y, Kobayashi H, Hayama H.	Dispersion characteristics of oral microbial communities in a built environment	Japan Architectural Review	5	225-232	2022
Salati H, Khamooshi M, Dong J, Ito K, Fletcher D, Vahaji S, Inthavong K.	Exhaled aerosol and jet flow characterization during nasal sneezing	Aerosol and Air Quality Research	22	210338	2022
Fan X, Sakamoto M, Shao H, Kuga K, Lan L, Ito K, Wargocki P.	Emission rate of carbon dioxide while sleeping	Indoor Air	31	2142-2157	2021
Muttakin M, Pal A, Rupa MJ, Ito K, Saha BB.	A critical overview of adsorption kinetics for cooling and refrigeration systems,	Advances in Colloid and Interface Science	294	102468	2021

Khoa ND, Phuong NL, Tani K, Inthavong K, Ito K.	Computational fluid dynamics comparison of impaired breathing function in French bulldogs with nostril stenosis and an examination of the efficacy of rhinoplasty	Computers in Biology and Medicine	134	104395	2021
Kuga K, Ito K, Wargocki P.	The effects of warmth and CO ₂ concentration, with and without bioeffluents, on the emission of CO ₂ by occupants and physiological responses	Indoor Air	31	2176-2187	2021
Kuga K, Ito K, Chen W, Wang P, Fowles J, Kumagai K.	Secondary indoor air pollution and passive smoking associated with cannabis smoking using electric cigarette devise – Demonstrative <i>in silico</i> study	PLOS Computational Biology	17	e1009004	2021
Lim E, Sandberg M, Ito K.	Returning frequency of pollutants for local domain in the presence of returning and recirculating air flow in indoor environment	Indoor Air	31	1267-1280	2021
Wang Y, Murga A, Long Z, Yoo SJ, Ito K.	Experimental study of oil mist characteristics generated from minimum quantity lubrication and flood cooling	Energy and Built Environment	2	45-55	2021
Sotokawa H, Chung J, Yoo SJ, Ito K.	Sensitivity numerical analyses for identifying rate-limiting factors influencing total energy exchange efficiency in energy recovery ventilator	Indoor and Built Environment	30	245-263	2021

Xu C, Khoa ND, Yoo SJ, Zheng X, Shen S, Ito K.	Inhalation airflow and ventilation efficiency in subject-specific human upper airways	Respiratory Physiology & Neurobiology	285	103587	2021
Wolkoff P, Azuma K, Carrer P.	Health, work performance, and risk of infection in office-like environments: the role of indoor temperature, air humidity, and ventilation	International Journal of Hygiene and Environmental Health	223	113709	2021
Glorennec P, Shendell DG, Rasmussen PE, Waeber R, Egeghy P, Azuma K, Pelfrène A, Le Bot B, Esteve W, Perouel G, Pernelet Joly V, Noack Y, Delannoy M, Keirsbulck M, Mandin C.	Towards setting public health guidelines for chemicals in indoor settled dust?	Indoor Air	31	112–115	2021
Araki A, Azuma K. <i>et al.</i> The Committee for Recommendation of Occupational Exposure Limits, Japan Society for Occupational Health	Occupational exposure limits for acetaldehyde, 2-bromopropane, glyphosate, manganese and inorganic manganese compounds, and zinc oxide nanoparticle, and the biological exposure indices for cadmium and cadmium compounds and ethylbenzene, and carcinogenicity, occupational sensitizer, and reproductive toxicant classifications	Journal of Occupational Health	63	e12294	2021

東 賢一	職域におけるオフィスビルの室内環境に関連する症状とそのリスク要因：いわゆるシックビルディング症候群	産業医学 レビュー	33	263-278	2021
酒井 信夫	用語解説 ベンゼン	室内環境	25	324	2022
酒井 信夫	用語解説 ナフタレン	室内環境	25	324	2022
酒井 信夫	解説 ISO 16000-33: GC/MSを用いたフタル酸 エステル類の定量の改訂	クリーン テクノロジー	32	60-63	2022
Tahara M, Kawakami T, Sakai S, Ikarashi Y Tanaka-Kagawa T.	Survey of phthalates, glycols, and several volatile organic compounds in domestic hand-pump spray products and evaluation of their effect on indoor air quality	Journal of Environmental Chemistry	32	84-94	2022
Oshima N, Tahara M, Sakai S, Ikarashi Y.	Nationwide survey of the candidate substances in guideline values for indoor air concentrations	Bulletin of National Institute of Health Sciences	140	40-47	2022

Oshima N, Tahara M, Sakai S, Ikarashi Y.	A nationwide survey on indoor air concentrations of benzene and naphthalene in general residential housings	Indoor Environment	25	177-184	2022
Sakai S, Tahara M, Kubota R, Kawakami T, Inoue K, Ikarashi Y.	Characterization of synthetic turf rubber granule infill in Japan: Volatile organic compounds	Science of the Total Environment	838	156400	2022
Oshima N, Takagi M, Sakai S, Ikarashi Y.	Comparison of the helium-alternative carrier gases for the gas chromatography /mass spectrometry of standard test methods for indoor air quality guidelines in Japan	BPB Reports	5	84-87	2022
Mori Y, Aoki A, Okamoto Y, Isobe T, Ohkawara S, Hanioka N, Tanaka-Kagawa T, Jinno H.	Species-specific activation of transient receptor potential ankyrin 1 by phthalic acid monoesters	Biological and Pharmaceutical Bulletin	45	1839-1846	2022
Hanioka N, Tanaka-Kagawa T, Mori Y, Ikushiro S, Jinno H, Ohkawara S, Isobe T.	Regioselective glucuronidation of flavones at C5, C7, and C4' positions in human liver and intestinal microsomes: Comparison among apigenin, acacetin, and genkwanin	Biological and Pharmaceutical Bulletin	45	1116-1123	2022
Hanioka N, Isobe T, Tanaka-Kagawa T, Jinno H, Ohkawara S.	<i>In vitro</i> glucuronidation of bisphenol A in liver and intestinal microsomes: interspecies differences in humans and laboratory animals	Drug and Chemical Toxicology	45	1565-1569	2022

杉田 隆, 香川 (田中) 聡子	環境・衛生部会 衛生試験法 シンポジウム 微生物検査に よる食品・環境衛生管理の 新展開	薬学雑誌	142	9-10	2022
稲坂まりな, 赤松奈美, 菅野 颯馬, 池内 宏維, 高橋 秀介, 田崎 未空, 金 炫兌, 田辺 新一	異なる木材表面へのアル コール塗布がVOC放散量お よび知覚空気質に与える影 響	日本建築学会環 境系論文集	87	846-854	2022
赤松 奈美, 池内 宏維, 稲坂 まりな, 小野田 亮介, 松尾 和弥, 田崎 美空, 菅野 颯馬, 金 炫兌, 田辺 新一	木材表面へのアルコール清 拭がVOC放散量および知覚 空気質に与える影響 第一報：実験概要と 化学物質分析の測定結果	日本建築学会 大会学術講演 梗概集	2022	1595- 1596	2022
池内 宏維, 赤松 奈美, 稲坂 まりな, 小野田 亮介, 松尾 和弥, 田崎 美空, 菅野 颯馬, 金 炫兌, 田辺 新一	木材表面へのアルコール清 拭がVOC放散量および 知覚空気質に与える影響 第二報：被験者実験による 臭気評価結果	日本建築学会 大会学術講演 梗概集	2022	1597- 1598	2022
赤松 奈美, 池内 宏維, 稲坂 まりな, 菅野 颯馬, 金 炫兌, 田辺 新一	木材表面へのアルコールの 塗布・噴霧がVOC放散量お よび知覚空気質に与える影 響 (第1報) アルコールの 1 回塗布によるチャンバー実 験結果	空気調和・衛生 工学会大会 学術講演論文集	2022	9-12	2022

池内 宏維, 赤松 奈美, 稲坂 まりな, 菅野 颯馬, 金 炫兌, 田辺 新一	木材表面へのアルコールの 塗布・噴霧がVOC放散量お よび知覚空気質に与える影 響(第2報) アルコールの繰 り返し噴霧によるチャン バー実験結果	空気調和・衛生 工学会大会 学術講演論文集	2022	13-16	2022
田崎 健悟, 金 炫兌, 小金井 真, 益崎 慶人, 田辺 新一	一般住宅における床材・壁 材からのSVOC放散量の測 定	日本建築学会大 会学術講演梗概 集	2022	1589- 1590	2022
益崎 慶人, 金 炫兌, 小金井 真, 田辺 新一	実空間モデルにおける可塑 剤からのSVOC放散挙動に 関する実験	空気調和・衛生 工学会大会 学術講演論文集	2022	129-132	2022
田崎 健悟, 金 炫兌, 小金井 真, 田邊 慶宗, 益崎 慶人, 田辺 新一	現場測定方法を用いた準揮 発性有機化合物(SVOC)の 放散速度測定-家電製品表面 からのSVOC放散速度測定	日本建築学会 中国支部研究 報告集	46	407-410	2023
田邊 慶宗, 金 炫兌, 小金井 真, 田崎 健悟, 益崎 慶人, 田辺 新一	現場測定方法を用いた準揮 発性有機化合物(SVOC)の 放散速度測定 夏期・冬期に おける床材・壁材からの SVOC放散量の測定	日本建築学会 中国支部研究 報告集	46	403-406	2023
益崎 慶人, 金 炫兌, 小金井 真, 田崎 健悟, 田辺 新一	建材からのSVOC放散速度 と気中濃度との相関性に 関する研究	日本建築学会 中国支部研究 報告集	46	399-402	2023

細田 実里, 金 炫兌, 小金井 真, 益崎 慶人, 田崎 健悟	住宅及び大学施設における 空気中の準揮発性有機 化合物(SVOC)濃度の測定	日本建築学会 中国支部研究 報告集	46	395-398	2023
Fernandez KB, Ikegaya N, Ito K, Chen Q.	Age of air, purging flow rate, and net escape velocity in a cross-ventilation model sheltered by urban-like blocks using LES	Building and Environment	226	109759	2022
Khoa ND, Phuong NL, Tani K, Inthavong K, Ito K.	<i>In silico</i> decongested trial effects on the impaired breathing function of a bulldog suffering from severe brachycephalic obstructive airway syndrome	Computer Methods and Programs in Biomedicine	228	107243	2023
Harashima H, Sumiyoshi E, Ito K.	Internal diffusion and re- emission of leaked liquid ethyl acetate from mortar materials	Japan Architectural Review	5	672-681	2022
Lim E, Tanaka H, Ni Y, Bai Y, Ito K.	Microplastics/microfibers in settled indoor house dust- Exploratory case study for 10 residential houses in the Kanto area of Japan	Japan Architectural Review	5	682-690	2022
Yamasawa H, Hirayama T, Kuga K, Muta R, Kobayashi T, Ito K.	Influence of inlet turbulent condition on the formation mechanism of local scalar concentrations	Japan Architectural Review	5	691-701	2022

Muta R, Ito K.	Impact of heat generation and use of experimental instruments in a fume hood on pollutant capture efficiency	Japan Architectural Review	5	702-713	2022
Yoo SJ, Ito K.	Validation, verification, and quality control of computational fluid dynamics analysis for indoor environments using a computer-simulated person with respiratory tract	Japan Architectural Review	5	714-727	2022
Salati H, Fletcher DF, Khamooshi M, Dong J, Ito K, Vahaji S, Inthavong K.	Exhaled aerosol and jet flow characterization during nasal sneezing	Aerosol and Air Quality Research	22	210338	2022
Li H, Kuga K, Ito K.	SARS-CoV-2 dynamics in the mucus layer of the human upper respiratory tract based on host-cell dynamics	Sustainability	14	3896	2022
Muta R, Yoo SJ, Kim H, Matsumoto T, Ito K.	Multiscale analysis of material flow and computational fluid dynamics for predicting individual DEHP exposure concentration in indoors	Indoor and Built Environment	31	2291-2311	2022
Ikegaya N, Ito K, Sandberg M.	Rigorous mathematical formulation of net escape velocity and net escape probability determining a macroscopic concentration	Indoor Air	32	e13072	2022

Kuga K, Sakamoto M, Wargocki P, Ito K.	Prediction of exhaled carbon dioxide concentration using a computer-simulated person that included alveolar gas exchange	Indoor Air	32	e13079	2022
Harashima H, Sumiyoshi E, Ito K.	Numerical models for seamlessly predicting internal diffusion and re-emission of leaked liquid toluene from indoor mortar materials	Journal of Building Engineering	57	104976	2022
Khoa ND, Phuong NL, Takahashi K, Ito K.	Transport and deposition of inhaled man-made vitreous and asbestos fibers in realistic human respiratory tract models: <i>An in-silico study</i>	Japan Architectural Review	5	592-608	2022
Wang Y, Shen X, Yoo SJ, Long Z, Ito K.	Error analysis of human inhalation exposure simulation in industrial workshop	Building and Environment	224	109573	2022
Muta R, Chung J, Li C, Yoo SJ, Ito K.	Pollutant capture efficiencies in and around the opening-surface of a fume hood under realistic conditions	Indoor and Built Environment	31	1636-1653	2022
Kuga K, Wargocki P, Ito K.	Breathing zone and exhaled air re-inhalation rate under transient conditions assessed with a computer-simulated person	Indoor Air	32	e13003	2022

<p>Fan X, Shao H, Sakamoto M, Kuga K, Lan L, Wyon DP, Ito K, Bivolarova MP, Liao C, Wargocki P.</p>	<p>The effects of ventilation and temperature on sleep quality and next-day work performance: pilot measurements in a climate chamber</p>	<p>Building and Environment</p>	<p>209</p>	<p>108666</p>	<p>2022</p>
<p>Karagas, MR, Wang A, Dorman DC, Hall AL, Pi J, Sergi CM, Symanski E, Ward EM, Arrandale VH, Azuma K, Brambila E, Calaf GM, Fritz JM, Fukushima S, Gaitens JM, Grimsrud TK, Guo L, Lynge E, Marinho-Reis AP, McDiarmid MA, Middleton DRS, Ong TP, Polya DA, Quintanilla-Vega B, Roberts GK, Santonen T, Sauni R, Silva MJ, Wild P, Zhang CW, Zhang Q, Grosse Y, Benbrahim-Tallaa L, de Conti A, DeBono NL, Ghissassi FE, Madia F, Reifeld B, Stayner LT, Suonio E, Viegas S, Wedekind R, Ahmadi S, Mattock H, Gwinn WM, Schubauer-Berigan MK.</p>	<p>Carcinogenicity of cobalt, antimony compounds, and weapons-grade tungsten alloy</p>	<p>THE LANCET Oncology</p>	<p>23</p>	<p>577-578</p>	<p>2022</p>

東 賢一	燃焼で排出される室内空気 汚染物質の健康影響	室内環境	25	307-315	2022
Yoshitomi T, Nishi I, Onuki A, Tsunoda T, Chiba M, Oizumi S, Tanaka R, Muraki S, Oshima N, Uemura H, Tahara M, Sakai S.	Development of a standard test method for insecticides in indoor air by GC-MS with solid-phase adsorption/solvent extraction	BPB Reports	6	76-80	2023
Mori Y, Tanaka- Kagawa T, Tahara M, Kawakami T, Aoki A, Okamoto Y, Isobe T, Ohkawara S, Hanioka N, Azuma K, Sakai S, Jinno H.	Species differences in activation of TRPA1 by resin additive-related chemicals relevant to indoor air quality	Journal of Toxicological Sciences	48	37-45	2023
Chiba M, Oizumi S, Onuki A, Saito I, Tanaka R, Yamanouchi T, Yokoyama Y, Wakayama T, Ohno H, Tahara M, Sakai S.	Validation study for establishing a standard test method for volatile organic compounds in indoor air in Japan using solvent extraction	BPB Reports	7	39-43	2024
Yoshitomi T, Nishi I, Uemura H, Tahara M, Sakai S.	Simultaneous analysis of insecticides and phthalates in residential buildings based on Japan's indoor air quality guidelines	BPB Reports		in press	2024
千葉 真弘, 兼俊 明夫, 大泉 詩織, 田原 麻衣子, 酒井 信夫	除湿管を使用した室内空気 中揮発性有機化合物分析を 想定した添加回収試験	室内環境		in press	2024

Isobe T, Ohkawara S. Mori Y, Jinno H, Tanaka-Kagawa T, Hanioka N.	Hydrolysis of dibutyl phthalate and di(2-ethylhexyl) phthalate in human liver, small intestine, kidney, and lung: An <i>in vitro</i> analysis using organ subcellular fractions and recombinant carboxylesterases	Chemico-Biological Interactions	372	110353	2023
Hanioka N, Isobe T, Saito K, Nagaoka K, Mori Y, Jinno H, Ohkawara S, Tanaka-Kagawa T.	Hepatic glucuronidation of tetrabromobisphenol A and tetrachlorobisphenol A: interspecies differences in humans and laboratory animals and responsible UDP-glucuronosyltransferase isoforms in humans	Archives of Toxicology	98	837-848	2024
池内 宏維, 富田 奈歩, 赤松 奈美, 新納 稔樹, 田崎 未空, 深和 佑太, 金 炫兌, 田辺 新一	木材への天然系塗料の塗布が揮発性有機化合物放散量および知覚空気質に与える影響	日本建築学会環境系論文集	88	716-725	2023
Akamatsu N, Sugano S, Amada K, Tomita N, Iwaizumi H, Takeda Y, Wargocki P, Olesen BW, Tanabe S.	Effects of gas-phase air cleaner on removing human bioeffluents and improving perceived air quality	Building and Environment		in press	2024
金 炫兌	家電製品表面からのSVOC放散速度測定	室内環境学会大会		88-89	2023

熊谷 功誠, 富久 歩真, 金 炫兌	PVC床材におけるSVOC物質の放散量と表面ブリードアウト量に関する研究	日本建築学会 九州支部研究会	47		2024
山口 千尋, 金 炫兌	家具・家電製品におけるSVOC放散速度測定	日本建築学会 九州支部研究会	47		2024
Li C, Yoo SJ, Ito K.	Impact of indoor ventilation efficiency on acetone inhalation exposure concentration in respiratory tract	Building Simulation	16	427-441	2023
Yoo SJ, Kurokawa A, Matsunaga K, Ito K.	Spatial distributions of airborne transmission risk on commuter buses: Numerical case study using computational fluid and particle dynamics with computer-simulated persons	Experimental and Computational Multiphase Flow	5	304-318	2023
Murga A, Bale R, Li CG, Ito K, Tsubokura M.	Large eddy simulation of droplet transport and deposition in the human respiratory tract to evaluate inhalation risk	PLOS Computational Biology	19	e1010972	2023
Kuga K, Kizuka R, Khoa ND, Ito K.	Effect of transient breathing cycle on micro and nanoparticles depositions on respiratory walls,	Computer Methods and Programs in Biomedicine	236	107501	2023

Khoa ND, Li S, Phuong NL, Kuga K, Yabuuchi H, Kan-o K, Matsumoto K, Ito K.	Computational Fluid- Particle Dynamics modeling of ultrafine to coarse particles deposition in the human respiratory system, down to the terminal bronchiole,	Computer Methods and Programs in Biomedicine	237	107589	2023
Li H, Kuga K, Ito K.	Visual prediction and parameter optimization of viral dynamics in mucus milieu of upper airway based on CFPD-HCD analysis	Computer Methods and Programs in Biomedicine	238	107622	2023
Abouelhamd I, Kuga K, Yoo SJ, Ito K.	Identification of probabilistic size of breathing zone during single inhalation phase in semi- outdoor environmental scenarios	Building and Environment	243	110672	2023
Nishihara T, Li H, Kuga K, Ito K.	Seamless numerical analysis of transient infectious droplets dispersion and inhalation exposure - <i>in silico</i> study	Building and Environment	244	110748	2023
Yoo SJ, Yamauchi S, Park HG, Ito K.	Computational Fluid and Particle Dynamics analyses for prediction of airborne infection/spread risks in highway buses: A parametric study	Fluids	8	253	2023

Wang Y, Sun J, Zhao M, Murga A, Yoo SJ, Ito K, Long Z.	Numerical study of indoor oil-mist particle concentration distribution in industrial factory using the Eulerian-Eulerian and Eulerian-Lagrangian methods	Fluids	8	264	2023
Kuga K, Hoshiyama S, Wargocki P, Ito K.	A pilot numerical study of odourant transport from an indoor environment to the olfactory region during sensory evaluations following ISO 16000-28	Building and Environment	245	110868	2023
Khoa ND, Kuga K, Inthavong K, Ito K.	Coupled Eulerian Wall Film-Discrete Phase model for predicting the respiratory droplets generation during the coughing event	Physics of Fluids	35	112103	2023
Park HG, Yoo SJ, Seo J, Sumiyoshi E, Harashima H, Kuga K, Ito K.	Integration of computer-simulated persons with multi-node thermoregulation model that considers the effect of clothing for skin surface temperature distribution analysis	Building and Environment	248	111105	2024
Kuga K, Kizuka R, Abouelhamd I, Ito K.	Aspiration efficiency and respiratory tract deposition of indoor suspended micro-particles during steady and transient breathings	Building and Environment	249	111114	2024

Li H, Khoa ND, Kuga K, Ito K.	<i>In silico</i> identification of virus loads in cough-generated droplets - Seamless integrated analysis of CFPD-HCD-EWF	Computer Methods and Programs in Biomedicine	246	108073	2024
Abouelhamd I, Kuga K, Yoo SJ, Ito K.	Effect of crowd density, wind direction, and air temperature on the formation of individual human breathing zones in a semi-outdoor environment	Sustainable Cities and Society	103	105274	2024