

厚生労働科学研究費補助金（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対策の推進に資する総合的研究

分担課題名

室内空气中化学物質の新規試験法の開発

研究分担者 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

研究要旨

「室内空气中化学物質の測定マニュアル（統合版）」は、化学物質濃度を室内空気濃度指針値と比較して評価するための標準的な測定手法を定めたものである。測定マニュアルに規定される室内空氣の試料採取方法の一つである「平常実態把握法」は、実際の生活環境における化学物質の存在量把握を目的に策定され、日常生活を営みながら室内空氣を 24 時間採取することが求められている。しかしながら、化学物質の放散特性によっては適切な採取時間が異なる可能性がある。本研究は、「平常実態把握法」としてより適切な試料採取時間について検討するため、24 時間捕集する「標準試験法（＝平常実態把握法）」と連続サンプラーを用いて 4 時間捕集を 6 回繰り返す「分割捕集法」を 3 軒の一般居住住宅において比較した。その結果、TVOC の測定では、標準試験法の測定値と分割捕集法の合算値が概ね同等であったことから、標準試験法として規定される 24 時間採取が妥当であることが示された。個別 VOC の測定では、化学物質の放散特性として定常型、瞬時型及びその混合型に大別され、定常型に関しては空氣採取時間 4 時間でも一定の評価は可能と考えられるが、瞬時型や混合型に関しては VOC の放散量が生活の営みに大きく起因するため、標準試験法による評価が必須であると考えられた。

A. 研究目的

厚生労働省は、室内空気汚染による健康被害を防止するため、ホルムアルデヒドを含む 13 物質の室内空氣濃度指針値（以下、指針値）と総揮発性有機化合物（Total Volatile Organic Compounds; TVOC）の暫定目標値を定めている¹⁻²⁾。指針値は、現時点における最新の科学的知見に基づくものであり、その後集積される新たな知見や、それらに基づく国際的な評価作業の進捗に伴い、必要があれば追加変更され得るものである。

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は、室内濃度指針値が定められた化学物質及び総揮発性有機化合物（TVOC）の標準的測定方法を示してきたが、厚生労働科学研究の成果および検討会での議論を踏まえて標準的測定方法の改訂を行い「室内空气中化学物質の測定マニュアル（統合版）」として新たに提示した³⁾。指針値との比較に用いる室内濃度の実測値は、同マニュアルに基づいた標準試験法により測定される必要がある。室内空氣の試料採取方法については、従前の測定マニュアルに規定された「新築住宅」、「居住住宅」の区分をそれぞれ「最大濃度推定法」、「平常実態把握法」として再定義している。このうち「平常実態把握法」は、実際の生活環境における化学物質の存在量把握を目的としており、日常生活を営みながら室内空氣を 24 時間採取することが求められている。しかしな

がら、化学物質の放散特性によっては適切な採取時間が異なる可能性がある。

室内空气中化学物質の放散特性は、物質が放散源から空气中へ移行する際の挙動を時間的側面から捉えたものであり、室内空气中の化学物質を正確に測定するには、これらの放散特性を考慮した上で適切な採取時間を設定する必要がある。本稿では、建材や家具などから化学物質が比較的一定の速度で長期間にわたり放散される製品を定常型放散源、清掃時の溶剤使用やスプレー製品の噴射などにより、短時間に大量の化学物質が放散される製品を瞬時型放散源として分類し、平常実態把握法としてより適切な試料採取時間について検討する目的で、24 時間捕集する標準試験法と 4 時間捕集を 6 回繰り返す分割捕集法を比較した。

B. 研究方法

サンプリング方法

捕集剤には、Tenax TA 単層充填捕集管（Markes International 社製 SafeLok™ 仕様ステンレス製）を使用した。標準試験法は、シックハウス（室内空気汚染）問題に関する検討会が示す「室内空气中化学物質の測定マニュアル（統合版）」に準じて、サンプリン

グポンプSP208-20 Dual II (ジーエルサイエンス社製)を用いて、日常生活を営みながら室内(居間)の空気を流速2 mL/minで24時間(2.88 L)捕集した。分割捕集法は、同ポンプをSTS-25型自動連続サンプラー(Perkin Elmer社製)に連結し、標準試験法と同時に流速2 mL/minで4時間ずつ計6回(2.88 L)、同量の体積を捕集した。(Fig 1) 空気採取時期は2024年夏季(7~9月)とし、その開始時間帯は規定しなかった。

分析方法

加熱脱離(TD: Thermal Desorption)・ガスクロマトグラフィー/質量分析計(GC-MS)による揮発性有機化合物(VOC)の測定にはTD-30R及びGCMS-QP2020 NX(島津製作所社製)を使用した。測定対象化合物はScanおよびSIMモードを高速にスイッチするFASST(Fast Automated Scan/SIM Type)で測定し、Toluene-*d*₈を用いた内部標準法によって定量した。検量線の濃度範囲は0.5~100 ngであり、検量線の下限は0.17 µg/m³とした。指針値設定物質7種を含む50種のVOCを測定対象とした(Table 1)。TVOCに関してはScanモードで測定し、HexaneからHexadecaneまでの範囲で検出されたピーク面積の総和をToluene換算値として求めた。2法の測定値の一致率(%)は、標準試験法の測定値に対する分割捕集法の合算値の百分率として示した。変動係数(Coefficient of Variation: CV, %)は測定値の標準偏差を平均値で除して百分率として表した。

TD-GC/MSの分析条件は下記の通りである。

TD

空気試料の加熱脱離は、280℃で8分間、50 mL/minの流速で行った。冷却トラップは-20℃に設定し、トラップからの脱着は280℃で5分間実施した。ラインおよびバルブの温度は250℃とした。

GC

Rtx®-1カラム(60 m × 0.32 mm, 1 µm; Restek社製)を使用し、キャリアガスにはヘリウムを用い、流速は40 cm/sec(線速度モード)に設定した。スプリット比は20:1とし、オープン温度は40℃から開始し、5℃/分の昇温速度で250℃まで上昇させた後、3分間保持した。

MS

インターフェース温度は250℃、イオン源温度は200℃に設定した。スキャン範囲は*m/z* 35~450とした。定量イオン及び確認イオンはTable 1の通りである。

C. 研究結果および考察

調査対象とした一般居住住宅のうち、住宅Aは集合住宅・建築基準法改正以前(2003年6月以前)、住宅B・Cは戸建住宅・建築基準法改正後(2003年

7月以後)であった。(Table 2)

総揮発性有機化合物(TVOC)

一般居住住宅3軒の居間における室内空気を標準試験法及び分割捕集法で同時に採取した。標準試験法を用いた3軒(A-C)のTVOC濃度はそれぞれ231 µg/m³, 518 µg/m³, および982 µg/m³であった。分割捕集法で4時間ごとに6回採取・測定した濃度の合算値は、それぞれ195 µg/m³, 414 µg/m³, および836 µg/m³であった。2法におけるTVOC濃度の一致率(CM/OM)はそれぞれ84%, 80%および85%であり、標準試験法の測定値と分割捕集法の合算値が3軒とも概ね同等であったことから、標準試験法に規定される採取時間が妥当であることが示された(Table 3)。

分割捕集法における各時間帯の変動係数(CV)は住宅Aで50%であり、特に午前中のセグメント(Seg. 4)で高い値を示し、瞬時型放散源の使用による影響が考えられた(Fig 2)。他方、住宅Bや住宅CのCVはそれぞれ26%, 22%であり、顕著に変動の大きいセグメントは認められず、定常的に高い濃度を示したことから、定常型放散源の寄与が大きいものと考えられた(Table 3)。

個別VOC

測定対象とした50種のVOCのうち、比較的高濃度に検出されたVOCは、Nonanal, Decanal, Tetradecane, Decamethylcyclopentasiloxane(D5), Limonene, 及びα-Pineneの6物質であった(Table 3)。また、標準試験法の測定値と分割捕集法の合算値を比較した結果、2法の測定値は概ね同等であった(Fig 3及びTable 3)。

これら6物質の放散特性を視覚化するため、各セグメントの放散濃度を住宅ごとに円グラフで示した(Fig 4)。その結果、Nonanal, Decanal, 及びTetradecaneではいずれの住宅も均等に6分割され、セグメント間のCVは23%以下であった。NonanalやDecanalは建材等の塗料⁴⁾や木質製品⁵⁾に使用され、Tetradecaneはビニル床シート等⁵⁾に使用されており、これらに由来するものと考えられた。

D5やLimoneneはセグメントによって変動が認められ、CV値はいずれも37%以上であった(Table 3)。D5は防水性、柔軟性、速乾性、高い生体適合性等の特性から、家庭用品やパーソナルケア製品など多様な製品に含有される⁶⁾。Limoneneは、家庭用掃除用品、化粧品、清涼剤などに使用される⁷⁾。これら製品の使用によってD5やLimoneneは瞬時型の放散特性を示した可能性がある。特に住宅AではTVOC濃度の高い時間帯(Fig 2(A), Seg. 4)がD5の放散量と連動したことから(Fig 3(A)), D5を含有するパーソナルケア製品の使用がTVOC濃度に影響を与えたことが示唆された。

α-PineneのCV値はそれぞれ104%(住宅A),

116% (住宅 B), 8% (住宅 C)であり, 住宅ごとに異なる変動パターンであった (Table 3)。α-Pinene は, 化粧品, パーソナルケア製品, およびスプレー製剤など香氣成分として瞬時的に使用されている一方で⁸⁾, 木材系の建築材料や木質製品など定常型放散源としても使用される⁹⁾。実際に, 住宅 C では木質性の家具が多いことから, α-Pinene は瞬時型と定常型との混合型の放散特性を示したものと推察された。

Decanal について, 本調査で定常型の放散特性を示したが, 香粧品用調合香料やアロマオイル等にも用いられているため¹⁰⁾, 今後の調査により混合型に分類される可能性もある。引き続き住宅数を増やして調査する必要がある。

D. 結論

TVOC の測定に関しては, 標準試験法の測定値と分割捕集法の合算値が概ね同等であったことから, 標準試験法に規定される採取時間が妥当であることが示された。個別 VOC の測定に関しては, 定常型, 瞬時型及びその混合型に大別され, 定常型に関しては空気採取時間 4 時間でも一定の評価は可能と考えられるが, 瞬時型や混合型に関しては VOC の放散量が生活の営みに大きく起因するため, 現行の 24 時間採取が規定されている標準試験法による評価が必須であると判断された。

E. 研究発表

1. 論文発表

なし

2. 学会発表

1. **大嶋直浩**, 高木規峰野, 酒井信夫, 内山奈穂子. 「室内空气中化学物質測定マニュアル」における試料採取時間の検証. 2024年度室内環境学会学術大会, 2024年11月
2. **大嶋直浩**, 酒井信夫, 内山奈穂子. 「室内空气中化学物質の瞬時型放散源の特定に関する研究. 日本薬学会第145年会, 2025年3月

F. 知的所有権の取得状況

1. 特許取得

なし

2. 実用新案登録

なし

3. その他

なし

G. 引用文献

- 1) 厚生労働省: 室内空气中化学物質の室内濃度指針値及び標準的測定方法について (平成12年), 厚生省生活衛生局長通知, 生衛発第一〇九三号.
- 2) 厚生労働省: 室内空气中化学物質の室内濃度指針値について (平成31年), 厚生労働省医薬・生活衛生局長通知, 薬生発0117第1号.
- 3) 厚生労働省: 室内空气中化学物質の測定マニュアル (統合版) について (令和7年), 医薬局医薬品審査管理課長通知, 医薬薬審発0117第4号.
- 4) Hu Y., Cheng X., Wang S., Chen J., Zhao T. and Dai E.: Time series forecasting for urban building energy consumption based on graph convolutional network, *Applied Energy*, 307, 118231 (2022).
- 5) Hodgson A. T., Rudd A. F., Beal D. and Chandra S.: Volatile organic compound concentrations and emission rates in new manufactured and site-built houses, *Indoor Air*, 10(3), 178–192 (2000).
- 6) 日本化粧品成分辞典: デカメチルシクロペントシロキサン.
- 7) Thevenet F. and de Jonge L.: Indoor air quality and ventilation strategies in low-energy houses, *Building and Environment*, 107433 (2021).
- 8) Cal K. and Sznitowska M.: Application of artificial membranes in topical drug delivery studies, *International Journal of Cosmetic Science*, 28(2), 85–90 (2006).
- 9) An Y., Shaw C. Y. and Magee R. J.: Airflow measurements in a large building, Internal Report No. IRC-IR-750, National Research Council of Canada (1997).
- 10) 大貫文, 斎藤育江, 瀬戸博, 上原眞一: DNPH誘導体化-HPLC法を用いた室内空气中ノナナール及びデカナール分析法の確立と実態調査, 室内環境, 8(1), 1–8 (2005)

Table 1. 測定対象物質の保持時間 (RT)、ターゲットイオン(*m/z*)、確認イオン(*m/z*)

Chemicals	RT (min)	Target ion	Confirm ion	Chemicals	RT (min)	Target ion	Confirm ion
Dichloromethane	4.20	84	49	3-Ethyltoluene	16.4	105	120, 91
2-Butanone	5.02	43	72	4-Ethyltoluene	16.5	105	120, 91
Ethyl Acetate	5.41	70	61	1,3,5-Trimethylbenzene	16.7	105	120, 77
Hexane	5.47	57	41, 56	2-Ethyltoluene	17.1	105	91, 120
Chloroform	5.53	83	85, 47	β -Pinene	17.4	93	69, 41
1,2-Dichloroethane	6.07	62	98	1,2,4-Trimethylbenzene	17.6	105	77, 120
2,4-Dimethylpentane	5.90	43	57, 85	D4	17.8	281	265, 249
1-Butanol	6.49	56	41	Decane	18.0	43	57, 71
Benzene	6.67	78	77, 51	1,4-Dichlorobenzene	18.0	146	111
1,2-Dichloropropane	7.39	63	41, 76	1,2,3-Trimethylbenzene	18.6	105	120, 77
Bromodichloromethane	7.56	83	47	Limonene	19.0	68	93, 67
Trichloroethylene	7.60	95	97, 130	L4	20.3	207	295
2,2,4-Trimethylpentane	7.65	57	41	Nonanal	20.9	57	41, 98
Heptane	7.88	43	57, 71	Undecane	21.3	43	57, 71
Methyl Isobutyl Ketone	8.50	43	58, 100	1,2,4,5-Tetramethylbenzene	21.8	119	134, 91
Toluene-<i>d</i>₈ (IS)	9.54	98	100, 70	D5	23.1	267	355, 73
Toluene	9.68	91	92, 65	Decanal	24.1	43	41, 57
Dibromochloromethane	10.2	129	127, 131	Dodecane	24.5	43	57, 71
Octane	11.0	43	41, 85	L5	25.8	281	147, 369, 73
Tetrachloroethylene	11.2	166	129, 164	Tridecane	27.4	57	71, 43
Ethylbenzene	12.9	91	106, 51	D6	28.4	341	429
<i>m,p</i> -Xylene	13.2	91	106, 105	Tetradecane	30.2	57	71, 43
Styrene	13.8	104	103, 78	L6	30.6	221	281, 147
<i>o</i> -Xylene	14.0	91	106, 105	Pentadecane	32.8	57	71, 43
Nonane	14.5	43	41, 57	Hexadecane	35.3	57	71, 85
α -Pinene	15.9	93	92, 91				

IS: Internal Standard

D4: Octamethylcyclotetrasiloxane

L4: Tetramethyltetrasiloxane

D5: Decamethylcyclopentasiloxane

L5: Pentamethylpentasiloxane

D6: Dodecamethylcyclohexasiloxane

L6: Hexamethylhexasiloxane

Table 2. 測定対象住宅の内訳

Residence	Start Date	Building Type	Completion Date
A	June 19, 2024	Apartment (Collective Housing)	Before Building Standards Act Revision (Before June 2003)
B	July 20, 2024	Detached House	After Building Standards Act Revision (After July 2003)
C	September 15, 2024	Detached House	After Building Standards Act Revision (After July 2003)

Table 3. 住宅A-Cにおいて比較的高濃度に検出されたTVOC・化学物質の標準試験法の測定値と分割捕集法の各セグメントの測定値及び合算値、ならびに2法の比較による一致率および変動係数

Chemicals	Residence	OM ^{#1} ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	CM ^{#2} ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)							CM/OM (%)	CV (%) ^{#3}
			Seg. 1	Seg. 2	Seg. 3	Seg. 4	Seg. 5	Seg. 6	Total (Segs. 1–6)		
TVOC	A	2.31×10^2	3.44×10^1	2.57×10^1	1.91×10^1	6.10×10^1	3.74×10^1	1.70×10^1	1.95×10^2	84.3	49.7
	B	5.18×10^2	6.14×10^1	9.42×10^1	6.13×10^1	4.90×10^1	6.04×10^1	8.75×10^1	4.14×10^2	79.8	25.7
	C	9.82×10^2	1.91×10^2	1.57×10^2	1.41×10^2	1.25×10^2	1.15×10^2	1.07×10^2	8.36×10^2	85.1	22.3
Nonanal	A	2.24×10^1	3.34×10^0	4.34×10^0	3.28×10^0	3.22×10^0	2.78×10^0	2.24×10^0	1.92×10^1	85.8	21.8
	B	2.32×10^1	4.28×10^0	5.44×10^0	4.16×10^0	3.33×10^0	3.25×10^0	5.07×10^0	2.55×10^1	110	20.8
	C	2.58×10^1	4.01×10^0	3.91×10^0	3.04×10^0	2.96×10^0	2.87×10^0	2.77×10^0	1.96×10^1	75.9	16.8
Decanal	A	1.66×10^1	2.10×10^0	2.82×10^0	1.98×10^0	1.92×10^0	1.75×10^0	1.48×10^0	1.21×10^1	72.6	22.5
	B	1.82×10^1	2.05×10^0	3.17×10^0	2.13×10^0	2.99×10^0	1.94×10^0	2.86×10^0	1.51×10^1	83.1	21.6
	C	7.09×10^0	8.34×10^{-1}	7.73×10^{-1}	6.05×10^{-1}	5.77×10^{-1}	6.05×10^{-1}	5.87×10^{-1}	3.98×10^0	56.2	16.7
Tetradecane	A	2.19×10^0	2.45×10^{-1}	2.86×10^{-1}	2.53×10^{-1}	2.87×10^{-1}	2.91×10^{-1}	2.14×10^{-1}	1.58×10^0	72.0	11.7
	B	9.72×10^{-1}	N.D. ^{#4}	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	—	—	—
	C	3.04×10^1	3.59×10^0	3.77×10^0	3.76×10^0	3.32×10^0	2.89×10^0	2.86×10^0	2.02×10^1	66.4	12.3
D5	A	4.31×10^1	1.31×10^0	1.59×10^0	1.32×10^0	2.22×10^1	8.54×10^0	1.42×10^0	3.64×10^1	84.5	139
	B	1.43×10^1	5.49×10^{-1}	2.42×10^0	1.22×10^0	7.07×10^0	7.34×10^{-1}	7.93×10^{-1}	1.28×10^1	89.2	118
	C	8.01×10^1	2.11×10^1	1.22×10^1	9.61×10^0	8.44×10^0	5.87×10^0	4.48×10^0	6.17×10^1	77.0	58.1
Limonene	A	2.16×10^0	5.57×10^{-1}	3.14×10^{-1}	2.24×10^{-1}	5.84×10^{-1}	5.84×10^{-1}	1.69×10^{-1}	2.43×10^0	113	47.3
	B	7.75×10^0	1.27×10^0	2.30×10^0	1.95×10^0	1.06×10^0	1.12×10^0	3.24×10^0	1.09×10^1	141	46.8
	C	4.78×10^1	1.02×10^1	6.30×10^0	5.13×10^0	4.68×10^0	3.93×10^0	5.84×10^0	3.61×10^1	75.5	37.0
α -Pinene	A	2.41×10^1	1.05×10^1	2.53×10^0	1.22×10^0	5.82×10^0	1.53×10^0	4.76×10^{-1}	2.21×10^1	91.3	104
	B	3.15×10^0	N.D.	5.25×10^{-1}	5.12×10^{-1}	N.D.	N.D.	8.42×10^{-1}	1.88×10^0	59.8	116
	C	2.61×10^1	3.35×10^0	3.79×10^0	3.41×10^0	3.40×10^0	3.58×10^0	2.95×10^0	2.05×10^1	78.5	8.21

^{#1} OM: Official method^{#2} CM: Cumulative split sampling method^{#3} CV: Coefficient of Variation=Standard deviation/Average $\times 100$ ^{#4} N.D.: Not detected

Cumulative split sampling method (CM)

(4 hours × 6 segments = 1 day)

- SP208-20Dual II, Line 1
- Flow rate: 2 mL/min for 4 hours (0.48 L per sample)
- STS-25 Continuous Sampler

Official method (OM)

(24 hours × 1 segment = 1 day)

- SP208-20Dual II, Line 2
- Flow rate: 2 mL/min for 24 hours (2.88 L per sample)

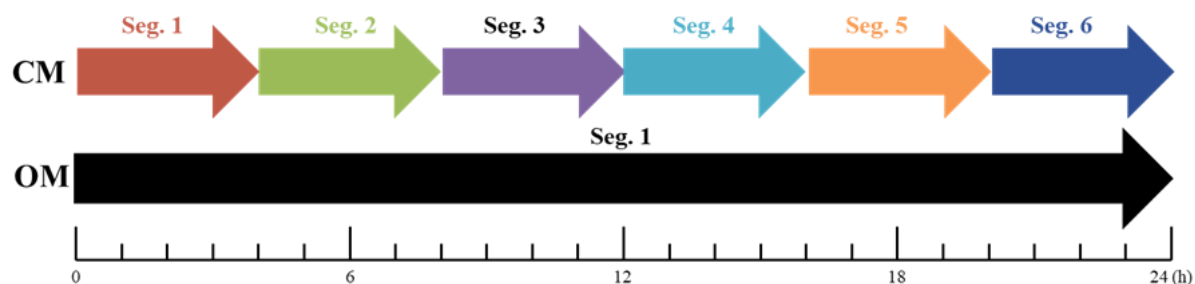


Fig. 1 Flow chart of the official method (OM) and the cumulative split sampling method (CM). Seg.: Segment

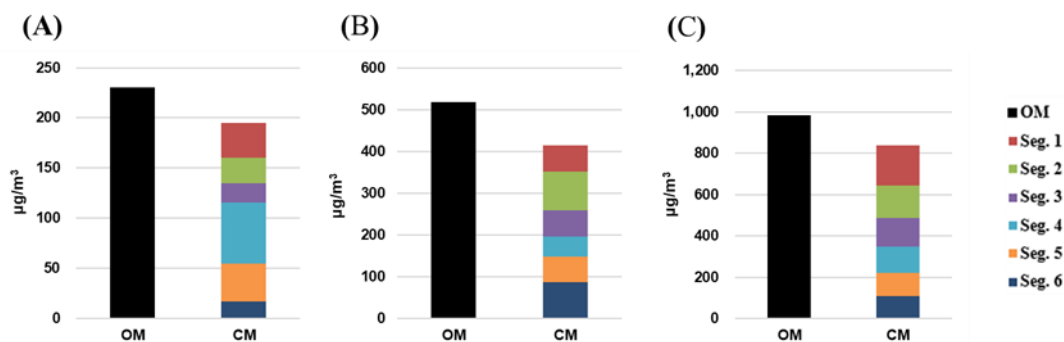


Fig. 2 Comparison of measured TVOC values per segment between the official method (OM) and the cumulative split sampling method (CM) in the three residential houses.

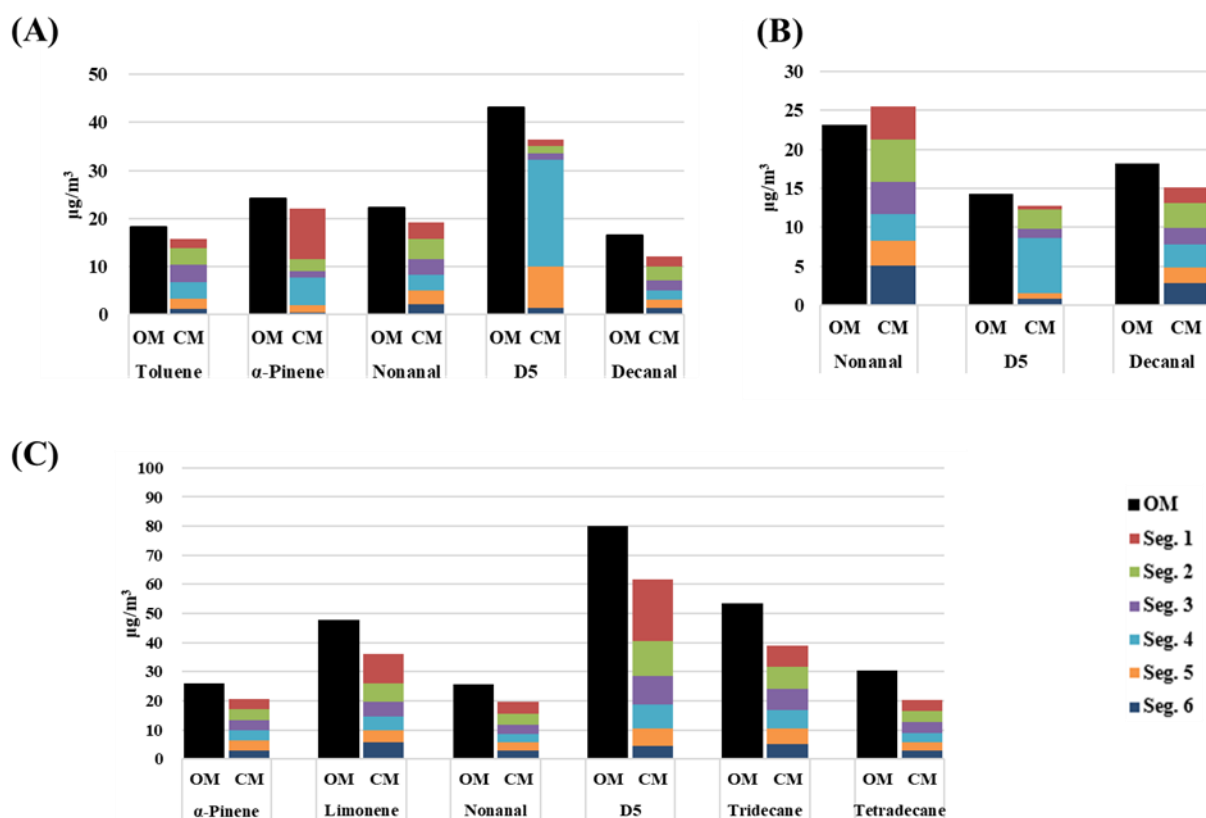


Fig. 3 Comparison of measured VOC values per segment detected above 10 µg/mL between the official method (OM) and the cumulative split sampling method (CM) in the three residential houses.

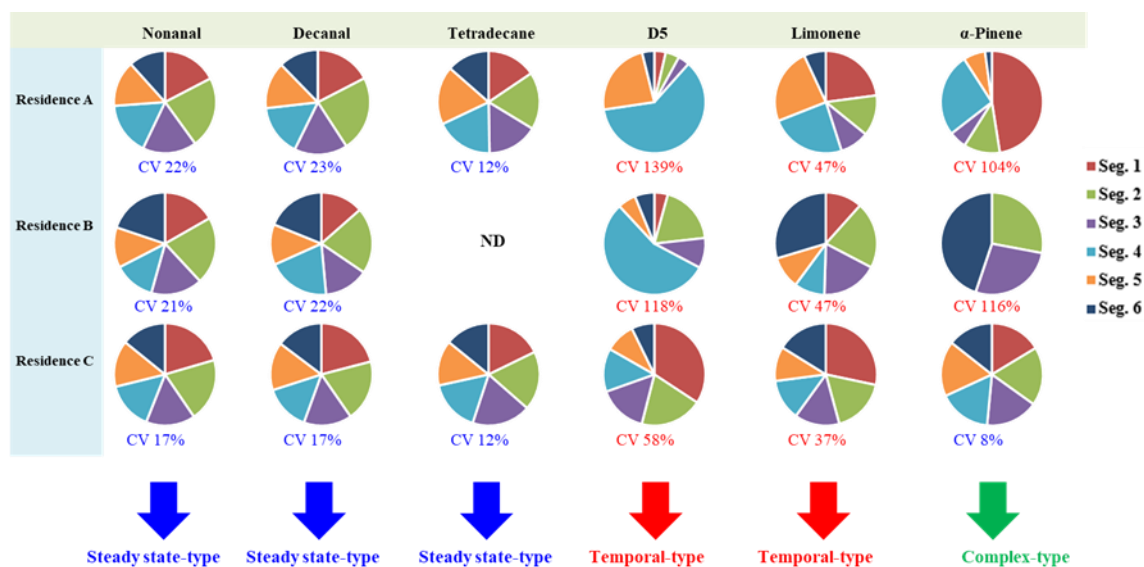


Fig. 4 Comparison of individual VOC measurements by time of day. ND: Not detected.