

## スプレー粒子の粒径分布及び粒子中成分の測定

齋藤 育江<sup>a</sup>, 大貫 文<sup>a</sup>, 前野 智和<sup>b</sup>, 保坂 三継<sup>a</sup>, 中江 大<sup>c</sup>

スプレーは使用時に多量の粒子を発生するが、それらの粒径分布や粒子中の成分については情報が少ない。そこで、金属成分を含有する4種のスプレー（トイレ消臭スプレー、化粧水スプレー、制汗スプレー及び日焼止めスプレー）について、噴射時に発生する粒子の粒径分布及び粒子中の金属量を調査した。グローブボックス内にスプレーを噴射し、Electrical Low Pressure Impactorにより、粒径0.007 µm～10 µmの粒子について個数濃度を測定したところ、個数濃度が最大を示したのは日焼止めスプレーであった。また、化粧水スプレー以外の3製品については、噴射後30分経過しても、スプレー粒子の浮遊が確認された。粒径分布では、いずれのスプレーについても粒径1 µm以下の粒子が91%以上を占めており、粒径分布の中央値は0.04 µm～0.12 µmであった。粒子中の金属成分はICP-MSにより測定し、アルミニウム及び亜鉛が、トイレ消臭スプレー、制汗スプレー及び日焼止めスプレーの3製品から検出された。その他には、トイレ消臭スプレー及び制汗スプレーから銀、日焼止めスプレーからチタンが検出され、これらの金属成分は粒径1 µm以上の粒子に98%以上が分布していた。化粧水スプレーの粒子からは金属が検出されなかった。なお、粒子数の多かった粒径1 µm以下の粒子については水、液化石油ガス、アルコール、シリコンオイル等が主な成分と考えられた。

**キーワード：**スプレー製品、粒径分布、個数濃度、銀、アルミニウム、チタン、亜鉛

### はじめに

近年、清潔志向の高まりから、室内の不快感な臭気の除去を目的とした消臭剤が数多く市販されている。活性炭などを用いて、臭気物質を吸着する従来の据置きタイプに加え、近年は、人が好む香りを拡散させるスプレータイプの製品が普及してきている。また、室内で使用するスプレーには、消臭剤以外にも、化粧品、ヘアケア製品、殺虫剤など多様な製品があり、いずれも使用時には多くの粒子が発生する。しかし、発生した粒子の粒径分布や粒子の含有成分についてはほとんど情報が示されていない。そこで本研究では、4種のスプレー製品について、スプレー使用時に発生する粒子の粒径分布を測定すると同時に、粒子を採取し、金属成分について粒径別の含有量を調査した。また、フィルター上に捕集された粒子について、電子顕微鏡による観察とX線分析装置による元素分析を行ったので、得られた結果を報告する。

### 実験方法

#### 1. 調査対象製品

市販品の中から金属を含有するスプレー製品を選択し、トイレ消臭スプレー、化粧水スプレー、制汗スプレー及び日焼止めスプレーの計4種を調査対象とした。各製品の成分表示に記されていた主な成分をTable 1に示す。容器の成分表示から含有が確認された金属成分は、トイレ消臭スプレー：銀 (Ag)、化粧水スプレー：白金 (Pt)、制汗スプ

レー：Ag、亜鉛 (Zn)、アルミニウム (Al)、カルシウム (Ca)、日焼止めスプレー：Zn、チタン (Ti)、Alであった。なお、トイレ消臭スプレーと制汗スプレーは、Agによる消臭効果を標榜する製品であった。

#### 2. 粒径分布の測定及び粒子の粒径別採取

粒子の個数濃度測定及び採取にはElectrical Low Pressure Impactor (Dekati製、以下ELPIと略す)を用いた。ELPIは空気を吸引し、インパクトにより空気中の粒子を粒径別に12段に区分してフィルター上に捕集する装置である。また、ELPIは空気吸入口付近で粒子に荷電を与える機能を有しており、粒子がフィルターに到達した際に生じる電流を感知して粒子の個数を計測することが可能である。

スプレーから噴射された粒子の測定及び採取にはグローブボックス (体積370 L)を用い、実験開始前には、ヘパフィルターを通した無塵空気を20分間通気してグローブボックス内を清浄化した。その後、グローブボックス内にスプレーを10秒間噴射し、噴射直前から噴射30分後まで、ボックス内空気をELPIにより吸引し (流速10 L/min)、10秒毎にスプレー粒子の個数濃度を測定し、粒子を採取した (換気回数1.6回/h相当)。なお、ELPIによる吸引で陰圧となったグローブボックス内へは、外との圧力差に従って、ヘパフィルターを通過した無塵空気が供給された。10秒間のスプレー噴射では、噴射前後のスプレー缶の重量を測定し、噴出物の重量を記録した。ELPIにより測定及び採取

<sup>a</sup> 東京都健康安全研究センター薬事環境科学部環境衛生研究科  
169-0073 東京都新宿区百人町 3-24-1

<sup>b</sup> 東京都健康安全研究センター薬事環境科学部生体影響研究科

<sup>c</sup> 東京都健康安全研究センター薬事環境科学部

Table 1 The Main Components which listed in Ingredient Labeling of Tested Spray Products

Toilet deodorant spray
Deodorant agent ; Green tea extract and plant extract, Antibacterial agent ; Grape seeds extract, Inorganic antibacterial agent ; Ag <sup>+</sup> compound, Ethanol, LPG*
Lotion Spray
Sodium platinum polyacrylate (Platinum nano colloid), Water, Nitrogen gas
Antiperspirant Spray
Silver/Zinc/Aluminum-supported zeolite, Zinc oxide, Aluminum chlorohydrate, Hexadecyl-2-ethylhexanoate, Methylphenyl polysiloxane, Corn starch, Calcium alginate, Decamethylcyclotetrasiloxane, LPG*
UV Sunscreen Spray
LPG*, Cyclopentasiloxane, Water, Ethylhexyl palmitate, Zinc oxide, Ethylhexyl methoxy- Cinnamate, Titanium Oxide, Polymethylsilsesquioxane, t-Butyl methoxydibenzoylmethane, Aluminium Hydroxide, etc.

\*LPG : Liquefied petroleum gas

した粒子の粒径範囲は0.007  $\mu\text{m}$ ~10  $\mu\text{m}$ であり、粒径別12段（バックアップフィルター及びステージ1~ステージ11）の粒径範囲及び平均粒径は、小さい方から順に、バックアップフィルター：0.007~0.028  $\mu\text{m}$ （平均0.021  $\mu\text{m}$ ）、ステージ1：0.028~0.055  $\mu\text{m}$ （平均0.039  $\mu\text{m}$ ）、ステージ2：0.055~0.094  $\mu\text{m}$ （平均0.072  $\mu\text{m}$ ）、ステージ3：0.094~0.16  $\mu\text{m}$ （平均0.121  $\mu\text{m}$ ）、ステージ4：0.16~0.26  $\mu\text{m}$ （平均0.203  $\mu\text{m}$ ）、ステージ5：0.26~0.38  $\mu\text{m}$ （平均0.317  $\mu\text{m}$ ）、ステージ6：0.38~0.61  $\mu\text{m}$ （平均0.485  $\mu\text{m}$ ）、ステージ7：0.61~0.95  $\mu\text{m}$ （平均0.765  $\mu\text{m}$ ）、ステージ8：0.95~1.6  $\mu\text{m}$ （平均1.23  $\mu\text{m}$ ）、ステージ9：1.6~2.4  $\mu\text{m}$ （平均1.96  $\mu\text{m}$ ）、ステージ10：2.4~4.0  $\mu\text{m}$ （平均3.10  $\mu\text{m}$ ）、ステージ11：4.0~10  $\mu\text{m}$ （平均6.31  $\mu\text{m}$ ）であった。なお、粒子の個数濃度測定に用いたフィルターは、バックアップフィルターはテフロンフィルター（Teflo, 直径47 mm, PALL製）、ステージ1~ステージ11はグリース付アルミフィルター（CFG-225, 直径25 mm, DEKATI製）であった。一方、金属分析用の試料を採取する際には、測定対象にAlが含まれていたため、ステージ1~ステージ11をテフロンフィルター（Zeflour直径25 mm, 東京ダイレック製）に替えて採取を行った。

### 3. 粒子中及びスプレー液中の金属分析

測定対象金属はマグネシウム (Mg), カリウム (K), Ca, Ti, バナジウム (V), Al, マンガン (Mn), 鉄 (Fe), ニッケル (Ni), 銅 (Cu), Zn, Ag, モリブデン (Mo), カドミウム (Cd), アンチモン (Sb), Pt及び鉛 (Pb) の17成分とした。粒子を捕集したテフロンフィルターは、マイクロウェーブ分解装置 (MARS5, CEM Corporation製) 用の圧力容器に入れ、フッ化水素酸3 mL, 硝酸5 mLを加えて加熱・加圧処理し、冷後、溶液とフィルターをテフロン製のビーカーに移して加熱乾固した。Ptを含む化粧水スプレー試料については、乾固後のビーカーに、更に塩酸3 mL, 硝酸1 mLを加えて0.2 mLまで加熱濃縮した。次に、ビーカーに10%硝酸3 mLを入れて振とうし、液体をポリプロピレン製試験管に移した。その後、ビーカーをさらに

10%硝酸2 mLですすいで洗液を試験管に合わせ、試験管の目盛りで5 mLとし、これを分析用試料とした。分析には、誘導結合プラズマ質量分析装置 (HP4500 アジレント製, 以下ICP-MSと略す) を用いた。定量は絶対検量線法により行い、求めた粒子中金属量 ( $\mu\text{g}$ ) を吸引空気量 (0.3  $\text{m}^3$ ) で除して、グローブボックス内の金属濃度 (30分間平均値,  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) を算出した。また、未使用フィルターを用いたブランク値の3倍及び吸引空気量 (0.3  $\text{m}^3$ ) より定量下限値 ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) を算出した。ICP-MSにおける各金属の測定質量数及び定量下限値をTable 2に示す。

スプレー液の分析では、ビニル袋中に噴射したスプレー液0.1 g~0.5 gを試料とし、フィルターと同様の方法で処理して、金属濃度 (mg/g) を測定した。各金属の定量下限値は0.001 mg/gとした。また、スプレー液の1 mL~2 mLをあらかじめ重量を測定したビーカーに採取し、40°Cの乾燥機で1週間乾燥して、固形分の割合(%)を求めた。

Table 2. ICP-MS Parameters and Limit of Quantification for Metal Analysis in Sprayed Particles

Element	Monitor ion ( <i>m/z</i> )	Limit of quantification ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )
Mg	24	3.0
K	39	15.0
Ca	43	2.0
Ti	47	2.0
V	51	0.20
Al	27	10.0
Mn	55	0.50
Fe	56	25.0
Ni	60	3.0
Cu	63	2.0
Zn	66	2.0
Ag	107	0.05
Mo	95	0.10
Cd	111	0.02
Sb	121	0.03
Pt	195	0.02
Pb	208	0.30

なお、ICP-MSによる金属分析の際に、酸を含む試料溶液に接触する器具はテフロン製またはポリプロピレン製とし、10%硝酸に一晩浸漬後、超純水ですすぎ、風乾したものを使用した。

4. 電子顕微鏡による粒子の観察

ELPIにより粒径別にアルミフィルター上に採取した粒子を、走査型電子顕微鏡QUANTA FEG 250（日本FEI社製）で観察し、エネルギー分散型X線分析装置EDAX Genesis APEX4（アメテック社製）により元素分析を行った。なお、試料は金蒸着処理などの前処理は行わなかった。

結 果

1. 粒径分布の測定結果

10秒間のスプレー噴射により噴出した内容物の重量 (n=3) は、トイレ消臭スプレー6.6±0.81 g, 化粧水スプレー5.8±0.59 g, 制汗スプレー4.6±0.16 g及び日焼け止めスプレー4.7±0.73 gであった。スプレー噴射後30分間の粒径別個数濃度の経時変化をFig. 1に示す。4種のスプレーともに噴射終了直後の個数濃度が最も大きく、時間の経過とともに減少していた。個数濃度の最大値が最も大きかったのは、日焼け止めスプレー（全粒径合計：204万個/cm<sup>3</sup>）で、次いで制汗スプレー（全粒径合計：188万個/cm<sup>3</sup>）、トイレ消臭スプレー（全粒径合計：9万個/cm<sup>3</sup>）、化粧水スプレー（全粒径合計：2万個/cm<sup>3</sup>）の順であった。粒径別にみると、噴射直後にはいずれのスプレーにおいてもバックアップフィルター（平均粒径0.021 μm）の最も小さな粒子の個数濃度が高く、トイレ消臭スプレーでは30分後においても同様の傾向が見られた。しかし、制汗スプレー及び日焼け

めスプレーでは、噴射5分後以降に個数濃度が高かったのはステージ2～ステージ4（平均粒径0.072 μm～0.203 μm）の粒子であった。また、化粧水スプレーは他のスプレーと比較して粒子個数濃度の減少が早く、スプレー噴射後約1分経過時には、噴射前の濃度まで低下していた。噴射後30分の時点で、空气中に浮遊している粒子の量を把握するために、30分後の個数濃度を個数濃度最大値で除して、浮遊率（%）を算出したところ、トイレ消臭スプレーが10.0%（9,400個/cm<sup>3</sup>）、制汗スプレーが4.0%（77,000個/cm<sup>3</sup>）、日焼け止めスプレーが4.0%（81,000個/cm<sup>3</sup>）、化粧水スプレーが0.2%未満（40個/cm<sup>3</sup>未満）であった。

次に各スプレーの粒径分布を把握するために、噴射後30分間の粒子個数濃度を平均し、粒径別の割合（%）を算出した（Fig. 2）。トイレ消臭スプレー及び化粧水スプレーでは、バックアップフィルター（平均粒径0.021 μm）の粒子が最も多く、合計の約40%を占めていた。また、化粧水スプレーでは、ステージ7（平均粒径0.765 μm）に約13%の粒子が分布していた。これに対して、制汗スプレー及び日焼け止めスプレーではステージ2（平均粒径0.072 μm）～ステージ3（平均粒径0.121 μm）の粒子が多く、この2つの粒径の合計が全合計の約40%を占めていた。各スプレーの粒径分布中央値については、トイレ消臭スプレー0.04 μm、化粧水スプレー0.07 μm、制汗スプレー0.12 μm及び日焼け止めスプレー0.07 μmであった。以上の結果より、スプレーから発生する粒子は、粒径が1 μm以下のものが大部分を占めていることが明らかとなり、その割合はトイレ消臭スプレー98.7%、化粧水スプレー91.0%、制汗スプレー98.6%及び日焼け止めスプレー98.9%であった。

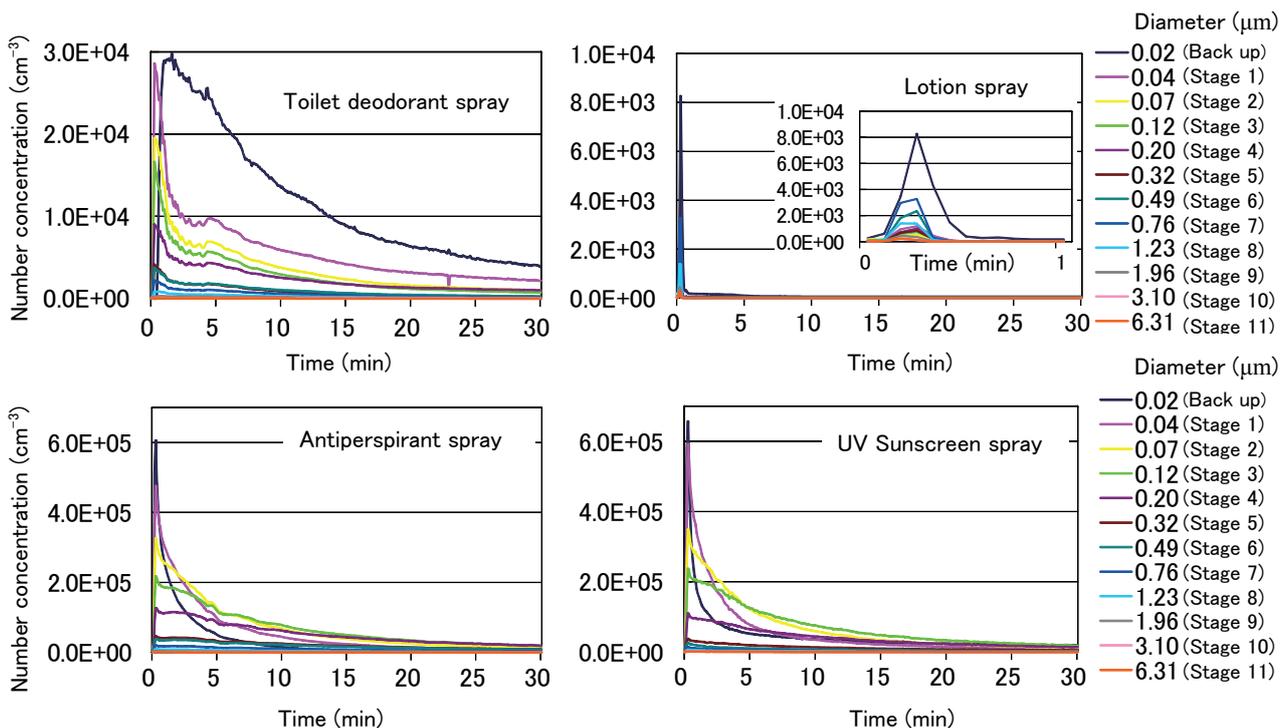


Fig.1 Number Concentration of Sprayed Particles in Glove Box (370 L)

Table 3. Metal Concentration in Sprayed Fluids (mg/g)

Spray products	Mg	Al	K	Ca	Ti	Fe	Zn	Ag	Pt (μg/g)	Total
Toilet deodorant spray	<0.001	0.14	<0.001	0.006	<0.001	<0.001	0.064	0.012	—	0.22
Lotion spray	0.002	<0.001	0.002	0.012	<0.001	<0.001	<0.001	<0.001	0.01	0.016
Antiperspirant spray	0.023	37.0	0.009	0.21	<0.001	0.045	33.5	0.15	—	70.9
UV sunscreen spray	0.12	2.1	0.020	0.039	33.8	0.002	52.6	<0.001	—	88.7

—: not analyzed

## 2. スプレー内容物の成分分析

スプレー液を乾燥し固形分の割合を算出したところ、トイレ消臭スプレー0.3%、化粧水スプレー0.1%、制汗スプレー4.5%及び日焼止めスプレー8.8%と求められ、前者2製品に比べて、後者2製品は固形分の割合が多かった。スプレー液の状態についても見た目に差があり、前者2製品は粘度の低い水溶液状の液体であったのに対し、後者2製品はクリーム状であった。スプレー液中の金属濃度をTable 3に示す。4種のスプレーの中で金属濃度が最も高かったのは日焼止めスプレー（金属合計：88.7 mg/g）で、Zn (52.6 mg/g)、Ti (33.8 mg/g) 及びAl (2.1 mg/g) が主な金属成分であった。次いで金属濃度が高かったのは制汗スプレー（金属合計：70.9 mg/g）で、Al (37.0 mg/g) 及びZn (33.5 mg/g) が多く、消臭効果を標榜しているAgの含有量は0.15 mg/gであった。トイレ消臭スプレーについては、金属濃度は比較的低く（金属合計：0.22 mg/g）、容器に表示のあったAgの含有量は0.012 mg/gであった。また、化粧水スプレーには金属がほとんど含まれておらず（金属合計：0.016 mg/g）、Pt濃度は0.01 μg/gであった。

## 3. 粒径別の金属濃度

スプレー噴射後30分の間に採取した粒子について金属量を測定し、グローブボックス内の金属濃度（μg/m<sup>3</sup>、30分間平均値）を算出した（Fig. 3）。なお、化粧水スプレーは、すべての粒径について金属濃度が定量下限値未満であったため、図には示さなかった。粒子中から検出された主な金属は、トイレ消臭スプレー及び制汗スプレーがAl、Zn及びAg、日焼止めスプレーがAl、Zn及びTiであった。粒径別に比較すると、トイレ消臭スプレーではステージ9（平均粒径1.96 μm）～ステージ10（平均粒径3.10 μm）の粒子に、制汗スプレー及び日焼止めスプレーではステージ11（平均粒径6.31 μm）の粒子に最も金属が多かった。いずれの金属についても、1 μm以上の粒子に98%～100%の金属が分布していた。また、製品ごとと比較すると、グローブボックス内の金属濃度が最も高かったのは日焼止めスプレー（全粒径・全金属合計：5,660 μg/m<sup>3</sup>）で、次いで制汗スプレー（全粒径・全金属合計：1,500 μg/m<sup>3</sup>）、トイレ消臭スプレー（全粒径・全金属合計：267 μg/m<sup>3</sup>）の順であり、スプレー液中の金属濃度の順と一致していた。

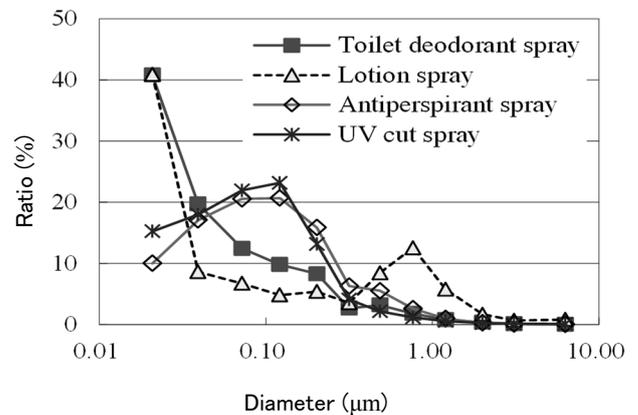


Fig.2 Particle Size Distribution of Sprayed Particles

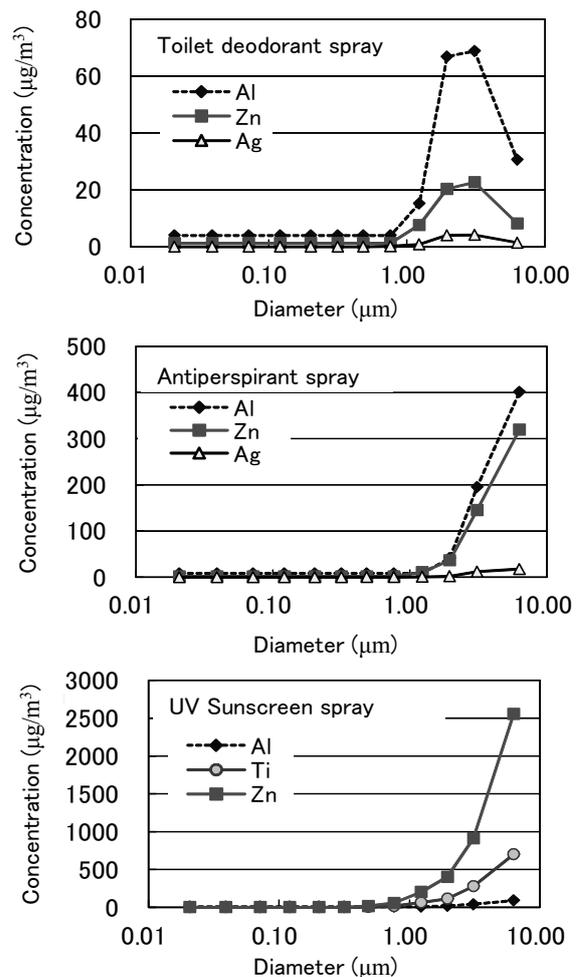


Fig.3 Metal Concentration of Sprayed Particles Classified by Particle Size

Figure of lotion spray was not presented because of undetectable concentration of metals in all particle sizes.

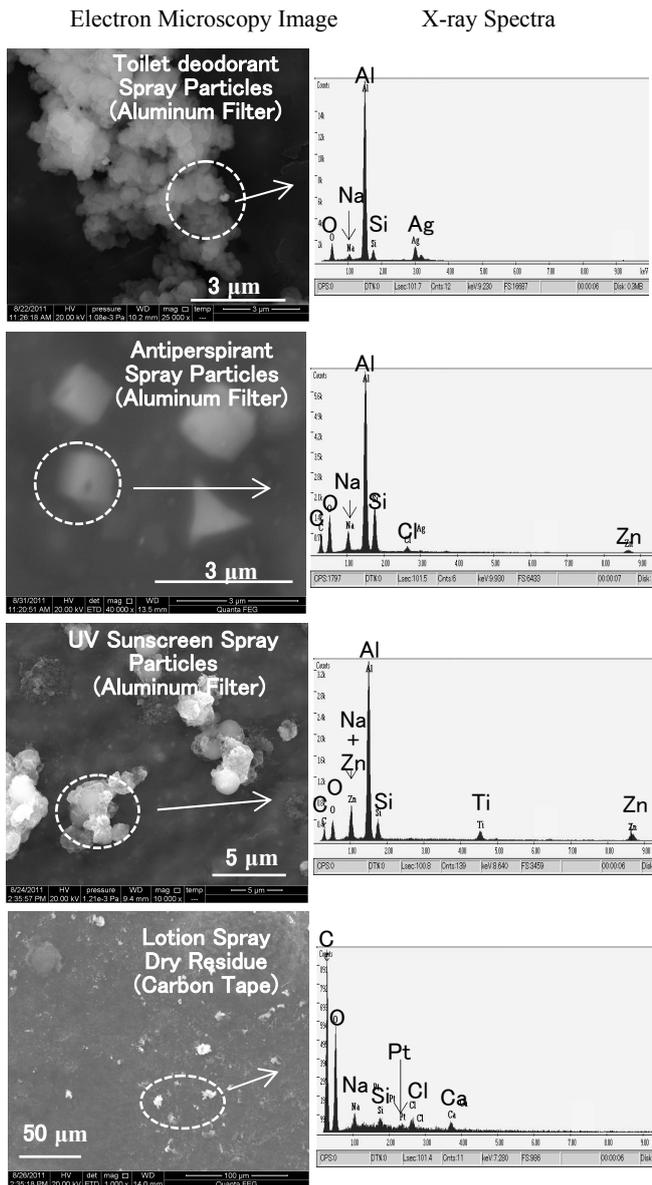


Fig.4 Scanning Electron Microscopy Images and X-ray Spectras of Sprayed Particles

#### 4. 電子顕微鏡による粒子の観察

粒径別に捕集した粒子のうち、金属を多く含むステージ10 (平均粒径 $3.10 \mu\text{m}$ ) について、走査型電子顕微鏡による観察及びX線回折装置による元素分析を行った結果をFig. 4に示す。なお、化粧水スプレーについては、粒子がほとんど観察されなかったため、スプレー液を乾固させた後の固形分をカーボンテープに貼り付けて観察した。トイレ消臭スプレーでは、長径が約 $0.5 \mu\text{m}$ の直方体状粒子が凝集している様子が観察され、元素分析では Al, Agの他に、酸素 (O)、ナトリウム (Na) 及びケイ素 (Si) が検出された。制汗スプレーでは、直径が約 $2 \mu\text{m}$ の立方体粒子が観察され、元素分析の結果、Al, Znの他に、炭素 (C), O, Na, Si及び塩素 (Cl) が検出された。日焼止めスプレーでは、直径約 $2 \mu\text{m}$ の球状粒子に不定形の物質が付着している様子が観察され、Al, Ti, Znの他に、C, O, Na及

びSi が検出された。なお、これらの粒子はアルミフィルターに付着した状態で観察しているため、X線回折スペクトルで、Alが最も大きなピークとして現れているのは、粒子中のAlに加えて、アルミフィルターの影響を受けたためと考えられる。化粧水スプレーの固形分については、一定の形状を持った粒子は見られず、成分としては、Na, Si, Pt, Cl及びCaが検出された。なお、このX線回折スペクトルには、C及びOが大きなピークとして現れているが、これは観察に使用したカーボンテープの影響を受けていると考えられた。

#### 考 察

スプレー製品による重大事故としては、1994年に防水スプレーによる死亡事故が報告されているが<sup>1)</sup>、これを受け、厚生労働省は、「防水スプレー安全確保マニュアル作成の手引き」<sup>2)</sup>を作成した。このマニュアルには、噴霧粒子が吸入されにくい処方として、粒径 $10 \mu\text{m}$ 以下の微粒子の存在率をできるだけ小さくすること、そのためには、噴射剤量を減らす、噴射ガス圧を下げるなどが示されている。しかし、今回調査した4製品では $10 \mu\text{m}$ 以下の粒子が多く発生し、そのうち3製品では、噴射30分後でも、一部の粒子が浮遊し続けている状況が確認された。

調査を行った製品のうち、化粧水スプレーは、噴射後の粒子個数濃度が他に比べて低く、噴射1分後には、浮遊する粒子がほとんど残っていなかった。化粧水スプレーの噴射剤は窒素ガスであり、噴射剤に液化石油ガス (Liquefied petroleum gas, 以下LPGと略す) を用いていた他の3製品に比べると、噴出の勢いが弱く、ノズルから噴射される霧状粒子には、目に見える粒子が多く含まれていた。肉眼で観察可能な最小のサイズは $50 \mu\text{m}$ 程度と言われており<sup>3)</sup>、当該製品は化粧水として顔にも使用することから、吸入曝露量を減らすため、 $50 \mu\text{m}$ 以上の粒子も多く含まれていたものと推察された。なお、 $50 \mu\text{m}$ 以上の粒子は、ELPIでの測定範囲外であることから、今回の調査では計測を行っていない。

今回測定した各スプレー粒子の粒径分布は、粒径 $1 \mu\text{m}$ 以下のものが91%以上を占めていたが、粒子に含まれる金属成分は、その98%以上が粒径 $1 \mu\text{m}$ 以上の粒子に含まれていた。したがって、粒径 $1 \mu\text{m}$ 以下の粒子の成分については、スプレー容器の表示より、水、LPG、アルコール、シリコンオイル (デカメチルシクロペンタシロキサン、メチルフェニルポリシロキサン等) 及び液状エステル (2-エチルヘキサン酸セチル、パルミチン酸エチルヘキシル、メトキシケイヒ酸エチルヘキシル等) など、スプレー缶中で液状で、かつ、金属を含まない成分であることが推察された。

電子顕微鏡による粒子の観察では、制汗スプレーで、直径約 $2 \mu\text{m}$ の立方体粒子が観察されたが、この形状と含有成分 (Si, O, Al及びNa) より、ゼオライト粒子であると考えられた。日焼止めスプレーで観察された直径約 $2 \mu\text{m}$ の球状粒子については、ポリメチルシロキサンと

考えられた。ポリメチルシルセスキオキサンは、別名シリコンパウダーとも呼ばれる白色球状粉体で、Si, O及びCから成り、感触改良剤として化粧品等に用いられている。また、トイレ消臭スプレーでは、長径が約0.5  $\mu\text{m}$ の立方体状粒子が観察され、含有成分(Si, O, Al及びNa)より、ゼオライトであることが推察されたが、「無機系抗菌剤」との表示しか無いことから、詳細は不明であった。

### ま と め

金属成分を含有する4種のスプレーについて、粒子の粒径分布及び粒子中の金属量を測定した。スプレーは、トイレ消臭スプレー、化粧水スプレー、制汗スプレー及び日焼止めスプレーの4種とした。粒子の個数濃度測定及び採取にはELPIを用い、粒径0.007  $\mu\text{m}$ ~10  $\mu\text{m}$ の粒子を12段に分けて測定し、同時に粒子をフィルター上に採取した。スプレーはグローブボックス(体積370 L)中に10秒間噴射し、噴射30分後まで測定及び採取を行った。全粒径を合計した個数濃度の最大値が最も高かったのは日焼止めスプレー(全粒径合計: 204万個/ $\text{cm}^3$ )で、次いで制汗スプレー(全粒径合計: 188万個/ $\text{cm}^3$ )の個数濃度が高かった。化粧水スプレー以外の3製品では、噴射後30分経過時にも噴射直後の4~10%の粒子が浮遊していた。化粧水スプレーでは、噴射約1分後には浮遊する粒子が0.2%未満に減少していた。スプレー粒子の粒径分布では、トイレ消臭スプレー及び化粧水スプレーでは粒径0.021  $\mu\text{m}$ の粒子が約40%と最も多く、制汗スプレー及び日焼止めスプレーでは粒径0.072  $\mu\text{m}$ ~0.121  $\mu\text{m}$ の粒子が約40%を占めていた。粒径分布の中央値は0.04  $\mu\text{m}$ ~0.12  $\mu\text{m}$ であり、粒径が1  $\mu\text{m}$ 以下の粒子の割合は91%以上であった。

粒子中金属の分析では、ELPIにより採取した粒子に、

フッ化水素酸及び硝酸等を加えてマイクロウェーブ分解し、ICP-MSにより17種の金属を定量した。粒子中から検出された主な金属は、トイレ消臭スプレー及び制汗スプレーがAl, Zn及びAg, 日焼止めスプレーがAl, Zn及びTiであった。化粧水スプレーは、すべての粒径について金属濃度が定量下限値未満であった。検出された金属はいずれも、粒径1  $\mu\text{m}$ 以上の粒子に98%~100%が分布しており、金属の合計濃度が最も高かったのは日焼止めスプレーであった。なお、粒子数の多かった粒径1  $\mu\text{m}$ 以下の粒子については、水, LPG, アルコール, シリコンオイル及び液状エステル等、液状で金属を含有しない成分と推察された。

ELPIによりフィルター上に採取した粒子について、走査型電子顕微鏡による観察を行い、エネルギー分散型X線分析装置による元素分析を行った。その結果、制汗スプレーでは直径約2  $\mu\text{m}$ の立方体粒子、日焼止めスプレーでは直径約2  $\mu\text{m}$ の球状粒子が観察され、前者はゼオライト、後者はポリメチルシルセスキオキサンの粒子と考えられた。

付 記 本研究の概要は平成23年度室内環境学会学術大会2011年12月で発表した。

### 文 献

- 1) 石沢淳子, 辻川晃子, 黒木由美子, 他: 日本医事新報, 3680, 49~52, 1994.
- 2) 厚生労働省医薬品局審査管理課化学物質安全対策室: 防水スプレー安全確保マニュアル作成の手引き, 平成10年4月20日.
- 3) 社団法人日本機械工業連合会, 社団法人オプトメカトロニクス協会: 平成18年度先端的外観検査技術に関する調査報告書, 54~72, 平成19年3月.

## Measurement of the Size Distribution and Metal Content of Particles Generated from Spray Products

Ikue SAITO<sup>a</sup>, Aya ONUKI<sup>a</sup>, Tomokazu MAENO<sup>a</sup>, Mitsugu HOSAKA<sup>a</sup> and Dai NAKAE<sup>a</sup>

Personal and household products in spray form emit a large number of particles. There is limited information on the size distribution and components of these particles. Four kinds of products — toilet deodorant spray, lotion spray, antiperspirant spray, and UV sunscreen spray— were tested for the size distribution and components of the sprayed particles. The products were sprayed into a glove box, and the particles with a diameter between 7-nm and 10- $\mu$ m were measured using an Electrical Low Pressure Impactor (ELPI) during 30 min. The highest number concentration detected was for the UV sunscreen. With the exception of the lotion product, the sprayed particles remained in suspension 30 min after spraying. More than 91% of the sprayed particles had diameters smaller than 1- $\mu$ m (the median diameter was between 0.04 and 0.12  $\mu$ m). The metal components in the particles were analyzed using an Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometer after a microwave digestion process. Aluminum and zinc were commonly detected in the toilet deodorant, antiperspirant, and UV sunscreen; the other metals detected were silver from the toilet deodorant and antiperspirant, and titanium from the UV sunscreen. More than 98% of the metals were contained in particles with diameters larger than 1- $\mu$ m. No metals were detected in the lotion spray particles. The main components of particles with diameters smaller than 1- $\mu$ m were considered to be water, liquefied petroleum gas, alcohol, and silicon oil.

**Keywords:** spray product, particle size distribution, number concentration, silver, titanium, zinc

---

<sup>a</sup> Tokyo Metropolitan Institute of Public Health,  
3-24-1, Hyakunin-cho, Shinjuku-ku, Tokyo 169-0073, Japan