

石英繊維フィルターの粒子捕集効率とフタル酸エステル類の粒径分布

齋藤 育江^a, 大貫 文^a, 香川(田中) 聡子^b, 千葉 真弘^c, 上村 仁^d,
神野 透人^e, 酒井 信夫^f, 小西 浩之^a, 守安 貴子^a

室内空气中フタル酸エステル類の測定に、粒子捕集効率の異なる3種の石英繊維フィルターを用い、捕集状況を比較した。各石英繊維フィルターを前段に、オクタデシルシリル化シリカゲルフィルターを後段にセットしたサンプラーを用いて室内で同時測定を行ったところ、フタル酸ジエチル (DEP)、フタル酸ジイソブチル (DiBP)、フタル酸ジ-n-ブチル (DnBP)、フタル酸ブチルベンジル (BBP) 及びフタル酸ジ-2-エチルヘキシル (DEHP) が検出され、いずれのサンプラーにおいても各物質の測定値は同等であった。この測定結果について、前段の石英繊維フィルターによるフタル酸エステル類の捕集割合を算出したところ、DEHP及びBBPはいずれも約100%で、フィルターによる差は見られなかったが、DEP、DiBP及びDnBPは13%~100%で、粒子捕集効率の大きいフィルターの方が捕集割合が高かった。次に、3種の石英繊維フィルターに室内空気を通過させ、フィルター通過前後の粒子個数濃度を電子式低圧インパクター (ELPI) により測定し、粒径別に粒子捕集効率を算出した。その結果、用いた石英繊維フィルターは、平均粒径0.039 µm の粒子を88%以上捕集可能であった。また、ELPIにより室内空气中フタル酸エステル類の粒径分布を測定した結果、DEHP及びBBPの粒径分布が明らかになり、これら2物質は平均粒径0.039 µm以上に大部分が分布することが判明した。

キーワード: 室内空気, フタル酸エステル類, フタル酸ジエチル, フタル酸ジイソブチル, フタル酸ジ-n-ブチル, フタル酸ブチルベンジル, フタル酸ジ-2-エチルヘキシル, 石英繊維フィルター, 粒径分布, 電子式低圧インパクター

はじめに

フタル酸エステル類はプラスチックの可塑剤として多用されており、平成29年の年間生産量は22万8千tである¹⁾。また、フタル酸エステル類は内分泌かく乱作用を有することから²⁾、フタル酸ジ-n-ブチル (Di-n-butyl Phthalate, 以下 DnBP と略す) 及びフタル酸ジ-2-エチルヘキシル (Di-2-ethylhexyl Phthalate, 以下 DEHP と略す) については、ラット経口ばく露における生殖器の異常を指標として、それぞれ室内濃度の指針値が示されている (DnBP: 220 µg/m³, DEHP: 120 µg/m³)³⁾。平成30年12月27日開催の「第23回シックハウス (室内空気汚染) 問題に関する検討会」では、これら2物質について、最新の知見を考慮した指針値の改定案が示されており、DnBPは17 µg/m³、DEHPは100 µg/m³に、それぞれ引き下げが予定されている⁴⁾。

筆者らは、これまでに室内空气中のフタル酸エステル類の濃度を測定し、その実態を明らかにしてきた⁵⁻⁷⁾。空気採取用のサンプラーとしては、石英繊維フィルター及びオクタデシルシリル化シリカゲル (Octadecylsilyl silica gel, 以下 ODS と略す) フィルターを組み合わせたろ紙サンプラーを用い、前段の石英繊維フィルターで主に粒子状のフタル酸エステル類を、後段の ODS フィルターで主にガス状のフタル酸エステル類を捕集する方法を採用してきた

^{4,5)}。フタル酸エステル類は沸点が高く揮発しにくいことから、分子量の大きい DEHP (分子量 390.6) については、大部分が粒子状で存在することが知られている⁸⁾。粒径分布では DEHP は 2.5 µm 以下の粒径に分布しているとの報告があるが⁹⁾、詳細な分布状況についてはデータが少ない。また、その他のフタル酸エステル類の空气中での存在形態については報告がほとんど無い。本研究では、石英繊維フィルターに、粒子捕集効率の異なる3種の製品を用い、粒子捕集効率の違いによるフタル酸エステル類の捕集状況の違いを調査するとともに、フタル酸エステル類の粒径分布について知見を得たので報告する。

実験方法

1. 試薬

フタル酸ジエチル (Diethyl Phthalate, 以下 DEP と略す) 98%以上、フタル酸ジイソブチル (Diisobutyl Phthalate, 以下 DiPB と略す) 97%以上、DnBP フタル酸エステル試験用、フタル酸ブチルベンジル (Benzyl Butyl Phthalate, 以下 BBP と略す) 95%以上、DEHP フタル酸エステル試験用、アセトン 残留農薬・PCB試験用、フタル酸ジ-n-ブチル-d₄ (以下 DnBP-d₄ と略す) 標準品 環境分析用、以上すべて和光純薬工業製。

^a 東京都健康安全研究センター薬事環境科学部 169-0073 東京都新宿区百人町3-24-1
^b 横浜薬科大学薬学部 245-0066 神奈川県横浜市戸塚区俣野町601
^c 北海道立衛生研究所生活科学部 060-0819 北海道札幌市北区北19条西12丁目
^d 神奈川県衛生研究所理化学部 253-0087 神奈川県茅ヶ崎市下町屋1-3-1
^e 名城大学薬学部 468-8503 愛知県名古屋市中区八事山150
^f 国立医薬品食品衛生研究所生活衛生化学部 210-9501 神奈川県川崎市川崎区殿町3-25-26

2. 空気捕集用フィルター

石英繊維フィルター：2500QAT-UP（以下QATと略す）東京ダイレック製，QM-A（以下QMAと略す）ワットマン製，QR-100（以下QRと略す）ADVANTEC製，ODSフィルター：Empore™ disk C₁₈ Fast Flow 3M製，アルミフィルター：CFG-225 DEKATI製。

3. 装置

ろ紙ホルダー：EMO-47 GLサイエンス製，空気採取ポンプ：AIR PUMP SIP-32L 柴田科学製，ガスメーター：DRY TEST GAS Meter DC-2A シナガワ製，電子式低圧インパクト Electrical Low Pressure Impactor（以下ELPIと略す）Dekati製，超音波抽出装置 US-5 井内盛栄堂製，遠心分離機 H-103NN 国産製，ガスクロマトグラフ-質量分析計：GC2010-GCMS QP2010 島津製作所製。

4. ろ紙サンプラーの調製

ろ紙サンプラーは，石英繊維フィルターを前段に，ODSフィルターを後段にして，ろ紙ホルダーにセットした。フィルターの直径はいずれも47 mmであった。石英繊維フィルターは，粒子捕集効率の異なる3種の製品（QAT，QMA及びQR）を用い，それぞれをODSフィルターと組み合わせることで3種のろ紙サンプラーを調製した。使用した石英繊維フィルターの粒子捕集効率は，QAT：99.9%，QMA：99.95%以上及びQR：99.99%であった。なお，粒子捕集効率はメーカーの公称値で，米国材料試験協会（American Society for Testing and Materials, ASTM）のD2986-95Aに準拠した方法で試験されている。具体的には，粒径0.3 μmのフタル酸ジオクチル（Diocetyl Phthalate, DOP）粒子を線速度 5 cm/sで通過させた時の捕集効率を表す。

ろ紙サンプラーの調製にあたっては，各フィルターに

DnBP及びDEHPのブランクがあったため，前処理として，石英繊維フィルターは400°Cで3時間加熱，ODSフィルターはアセトンにより浸漬洗浄を行った。前処理を行った各フィルターは，あらかじめアセトンで超音波洗浄後，風乾したろ紙ホルダーにセットした。

5. 3種のろ紙サンプラーを用いた室内空气中フタル酸エステル類の同時測定

室内における同時測定は，前項の3種のろ紙サンプラーを用い（各n=3），空気採取ポンプにより，実験室内の空気を流速10 L/minで24時間採取した（空気量14.4 m³）。空気採取後は，各フィルターを別々にガラス製遠心管に入れ，アセトン5 mLを加えて10分間超音波抽出後，2,500 rpmで10分間遠心分離した。その後，上清4 mLを濃縮管に分取し，内部標準物質（DnBP-d₄）を100 ng加えて窒素気流下で0.5 mLまで濃縮し，GC-MSの分析用試料とした。GC-MSの分析条件をTable 1に示す。

空气中フタル酸エステル類の調査において，精度の良い測定を行うためには，周辺環境からの汚染を排除することが不可欠である。そこで，ブランク低減対策として，試験に用いる器具及び機材はガラス製あるいは金属製とし，使用前にアセトン中で10分間超音波洗浄した。また，フタル酸エステル類は，プラスチック製品に含まれる可塑剤であることから，プラスチック製品との接触により，手指に付着しやすい。そこで，手指を経由する汚染の低減を図るため，試験中は石鹸による手洗いを頻繁に行った。

6. 石英繊維フィルターの粒子捕集効率測定

3種の石英繊維フィルター1枚をそれぞれろ紙ホルダーにセットし，室内空気を流速10 L/minで30分間通気して，フィルター通過前後の空气中的粒子個数濃度を1秒毎

Table 1. Operation Condition for GC-MS

Gas Chromatograph	GC-2010		
Mass spectral detector	GCMS-QP2010		
Column	DB-1 15 m × 0.25 mm i.d. × 0.1 μm		
Oven temperature	50°C (3 min)-15°C/min-110°C-8°C/min-230°C-15°C/min-250°C (5 min)		
Carrier gas	Helium, 50 kPa (constant pressure mode)		
Inlet temperature	280°C		
Injection volume	1 μL, splitless mode (purge on time 3 min)		
Detector temperature	260°C		
Acquisition mode	SIM		
Compounds	Quantification ion	Confirmation ion	
DEP	149	177	
DiBP	149	223	
DnBP	149	223	
BBP	149	206	
DEHP	149	167	
DnBP-d ₄	153	—	

に測定した。この時の線速度は9.6 cm/sであった。粒子個数濃度の測定にはELPIを用い、粒径0.028 μm ~10 μm の粒子を11ステージに区分して測定した。各ステージの粒径は、小さい方から順に、ステージ1: 0.028~0.055 μm (平均0.039 μm)、ステージ2: 0.055~0.094 μm (平均0.072 μm)、ステージ3: 0.094~0.16 μm (平均0.121 μm)、ステージ4: 0.16~0.26 μm (平均0.203 μm)、ステージ5: 0.26~0.38 μm (平均0.317 μm)、ステージ6: 0.38~0.61 μm (平均0.485 μm)、ステージ7: 0.61~0.95 μm (平均0.765 μm)、ステージ8: 0.95~1.6 μm (平均1.23 μm)、ステージ9: 1.6~2.4 μm (平均1.96 μm)、ステージ10: 2.4~4.0 μm (平均3.10 μm)、ステージ11: 4.0~10 μm (平均6.31 μm)であった。ELPIのフィルターにはアルミフィルターを用いた。粒子捕集効率(%)は各ステージ毎に30分間の粒子個数濃度平均値を算出し、石英繊維フィルター通過後の粒子個数濃度を石英繊維フィルター通過前の粒子個数濃度で除して求めた。

7. 室内空气中フタル酸エステル類の粒径分布測定

ろ紙サンプラーによる空気測定を行った部屋で、ELPIにより、室内空気を10 L/minで5日間採取した(空気量72 m³)。ELPIのフィルターには、直径25 mmのQATを用い、空気採取後のフィルターは、ガラス製遠沈管に入れ、アセトン5 mLを加えて10分間超音波抽出した。その後、2,500 rpmで10分間遠心分離し、上清4 mLを濃縮管に分取して内部標準物質(DnBP-d₄)を50 ng加え、窒素気流下で0.25 mLまで濃縮して、GC-MSの分析用試料とした。

結 果

1. 3種のろ紙サンプラーを用いた室内空气中フタル酸エステル類の同時測定

室内空気の同時測定は2016年7月6日~7日に実施した。空気採取中の温湿度平均値は、25.5°C、46.0%であった。結果をTable 2に示す。室内空气中からは、DEP、DiBP、

DnBP、BBP及びDEHPが検出され、3種のろ紙サンプラーで得られた各物質の濃度はいずれも同等であった。検出された5種のフタル酸エステル類について濃度を比較すると、DEHPが最も高く、次いでDEPが高濃度であった。各サンプラーのフタル酸エステル類濃度の平均値は、高かった順に、DEHP 239 ng/m³、DEP 156 ng/m³、DnBP 96.8 ng/m³、DiBP 19.6 ng/m³、BBP 16.5 ng/m³であった。

2. 石英繊維フィルターによるフタル酸エステル類の捕集割合

3種のろ紙サンプラーを用いた室内空気の同時測定では、石英繊維フィルター及びODSフィルターを別々に分析し、両者を合計して室内濃度を算出した。そこで、石英繊維フィルターによるフタル酸エステル類の捕集状況を比較するため、各サンプラーで捕集されたフタル酸エステル類のうち、石英繊維フィルターに捕集された割合を算出した。結果をTable 3に示す。BBP及びDEHPについては、99.9%以上が石英繊維フィルターに捕集されており、フィルターによる差は見られなかった。これに対し、DEP、DiBP及びDnBPについては、石英繊維フィルターにより捕集割合に違いが見られ、いずれもQRが最も捕集割合が高く、次いでQMA、QATの順であった。また、DEPは他の4物質に比べて、石英繊維フィルターによる捕集割合が低く、他の4物質が94.4%~100%であったのに対し、DEPでは12.7%~26.2%であった。

3. 石英繊維フィルターの粒子捕集効率測定

3種の石英繊維フィルターに室内空気を通過させ、フィルター通過前後の空气中粒子個数濃度をELPIで測定して、ステージ毎に粒子捕集効率を算出した。結果をTable 4に示す。平均粒径が1 μm 以上の各ステージ(ステージ8~ステージ11)では、3種のフィルターともに粒子捕集効率は99.5%以上で差が無かったが、1 μm 未満ではフィルターによって捕集効率に若干の差が見られ、いずれもQRが最も

Table 2. Concentration of Phthalates in Indoor Air simultaneously sampled by Three Types of Samplers which consist of Different Type of Quartz Fiber Filter and a ODS Filter unit: ng/m³

Type of sampler	DEP	DiBP	DnBP	BBP	DEHP
QAT & ODS	154 ± 14.6	18.9 ± 1.6	96.7 ± 4.1	15.8 ± 1.9	228 ± 16.8
QMA & ODS	157 ± 20.1	20.6 ± 1.7	99.1 ± 3.0	18.0 ± 2.5	252 ± 21.3
QR & ODS	158 ± 14.3	19.2 ± 1.5	94.5 ± 2.9	15.6 ± 2.8	235 ± 26.7
Average	156 ± 23.7	19.6 ± 1.8	96.8 ± 4.5	16.5 ± 2.9	239 ± 27.0

QAT: Quartz fiber filter 2500 QAT-UP, TOKYO DYLEC CORP., QMA: Quartz fiber filter QM-A, Whatman
QR: Quartz fiber filter QR-100, ADVANTEC Co.,LTD., ODS: Empore™ discs C₁₈, 3M

Table 3. Ratio of Indoor Air Phthalates caught by Quartz Fiber Filters unit: %

Type of filter	DEP	DiBP	DnBP	BBP	DEHP
QAT	12.7 ± 1.8	94.4 ± 2.0	97.7 ± 0.52	100	99.9 ± 0.02
QMA	18.0 ± 2.5	97.7 ± 1.2	100 ± 0.04	100	99.9 ± 0.07
QR	26.2 ± 4.5	98.5 ± 1.0	100	100	100

捕集効率が高く、次いでQMA, QATの順であった。メーカー公称の粒子捕集効率の試験では粒径 $0.3\ \mu\text{m}$ の粒子を用いていたことから、これに最も近い平均粒径 $0.317\ \mu\text{m}$ (ステージ5)における捕集効率を見ると、QAT: 96.9%, QMA: 97.9%, QR: 98.8%であり、メーカー公称値 (QAT: 99.9%, QMA: 99.95%以上, QR: 99.99%) よりも低かった。また、粒径が最も小さい平均粒径 $0.039\ \mu\text{m}$ (ステージ1)における粒子捕集効率は、QAT: 88.2%, QMA: 90.0%, QR: 92.8%であり、いずれの石英繊維フィルターを使用しても、 $0.039\ \mu\text{m}$ の粒子を88%以上捕集可能であることがわかった。

4. 室内空气中フタル酸エステル類の粒径分布測定

フタル酸エステル類の粒径分布測定は、2016年7月15日～20日、8月10日～15日及び9月16日～21日に行った。空気採取中の温湿度平均値は、7月: 25.5°C 45.3%, 8月: 26.1°C 43.0%, 9月: 24.9°C 44.8%であった。結果をFig.1に示す。室内空気からは、DEP, DiBP, DnBP, BBP及び

DEHPが検出された。DEHPについては、平均粒径 $0.485\ \mu\text{m}$ (ステージ6)または平均粒径 $0.765\ \mu\text{m}$ (ステージ7)を最頻粒子径とする粒径分布が見られた。BBPについては、平均粒径 $6.31\ \mu\text{m}$ (ステージ11)に最頻粒子径を有する粒径分布が見られた。粒径分布曲線から推察すると、これら2物質は、大部分がELPIで捕集可能な平均粒径 $0.039\ \mu\text{m}$ 以上の粒径に分布すると考えられた。これに対し、DEP, DiBP及びDnBPは、平均粒径 $6.31\ \mu\text{m}$ (ステージ11)及び平均粒径 $0.485\ \mu\text{m}$ (ステージ6)に、他の粒径よりも多く分布する傾向が見られたが、粒径が小さくとも濃度がゼロに収束する明らかな傾向が見られず、粒径 $0.039\ \mu\text{m}$ 以下にも分布する可能性が考えられた。また、各物質について、7月、8月及び9月の測定値を比較すると、いずれも8月が最も高かった。

考 察

本研究により、DEHP及びBBPの粒径分布が明らかになり、それぞれの最頻粒子径はDEHPが $0.485\ \mu\text{m}$ ～ $0.765\ \mu\text{m}$ 、

Table 4. Particle Collection Ratio of Quartz Fiber Filters classified by Particle Diameter unit: %

Type of filter	ELPI stage no. and average diameter (μm)										
	St. 1 0.039	St.2 0.072	St.3 0.121	St.4 0.203	St.5 0.317	St.6 0.485	St.7 0.765	St.8 1.23	St.9 1.96	St.10 3.10	St.11 6.31
QAT	88.2	89.3	91.5	94.3	96.9	97.8	98.5	99.6	99.8	99.9	100
QMA	90.0	93.1	94.6	96.4	97.9	98.4	98.9	99.6	99.7	99.8	100
QR	92.8	95.7	96.1	97.9	98.8	99.0	99.3	99.5	99.7	99.9	100

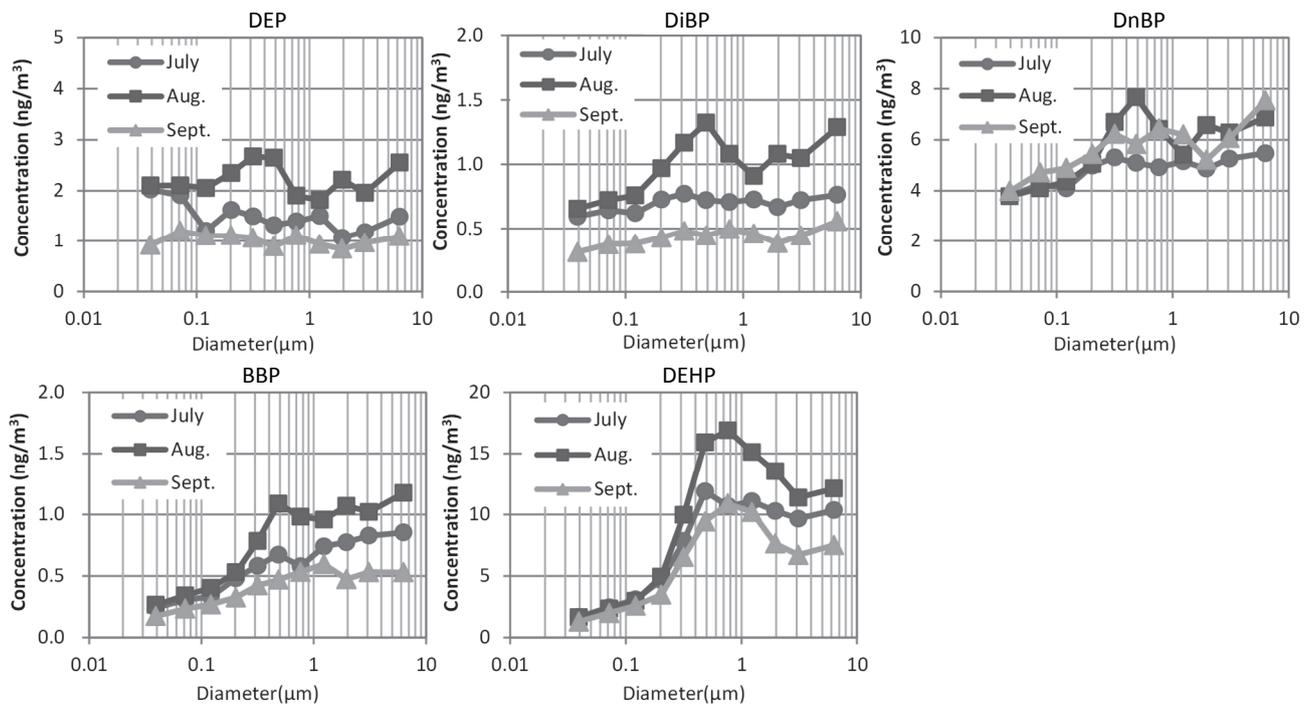


Fig. 1. The Particle Size Distribution of Phthalates in Indoor Air

July: July 15 to 20, 2018, Aug.: August 10 to 15, 2018, Sept.: September 16 to 21, 2018

Indoor air particles were sampled using an electrical low pressure impactor for 5 days with flow rate of 10 L/min

BBPが6.31 μm で、2物質ともに平均粒径0.039 μm 以上に大部分が分布することが判明した。空气中フタル酸エステル類の捕集に石英繊維フィルター及びODSフィルターを組み合わせたろ紙サンプラーを使用した場合、DEHP及びBBPは前段の石英繊維フィルターに、ほぼ100%が捕集されていた。その理由としては、今回使用した石英繊維フィルターが、DEHP及びBBPが分布する平均粒径0.039 μm 以上の粒子を88%以上捕集可能であったことが考えられる。

一方、DEP、DiBP及びDnBPについては、今回測定した粒径範囲では分布が明確ではなく、平均粒径0.039 μm 未満にも一部が分布する可能性が考えられた。また、これらの3物質は、石英繊維フィルターによって捕集割合に差が見られ、粒子捕集効率の高いフィルターの方が、捕集割合が高かった。石英繊維フィルターは、粒子捕集効率が高い方が、より小さな粒子を捕集できると推察され、今回の測定可能範囲よりも小さな粒径に一部が分布する上記3物質については、フィルターの粒子捕集効率により、捕集割合に差が生じたと考えられる。

メーカー公称の粒子捕集効率（粒径0.3 μm の粒子で試験）と粒子捕集効率実測値（粒径0.317 μm の粒子で試験）を比較すると、メーカー公称値の方が捕集効率が高かった。この理由としては、両者で試験時の線速度が異なっており、メーカーの試験では5 cm/sであるのに対し、実測では9.6 cm/sであった。線速度が大きい方が粒子の捕集効率は低下するため¹⁰⁾、この線速度の違いが、粒子捕集効率に差を生じた主な要因と考えられる。

フタル酸エステル類は沸点が高く、準揮発性有機化合物 (Semi-volatile organic compounds, 以下SVOCと略す) に分類される¹¹⁾。石英繊維フィルターでSVOCを捕集する場合、空気を捕集するための通気により一部が気化することが知られており、平均線速度が168 cm/sで24時間空気採取した場合は、41%~59%が気化すると報告がある¹²⁾。したがって、本研究における石英繊維フィルターでのフタル酸エステル類の捕集割合については、気化による減少分を含めた値と考えられるが、線速度が9.6 cm/sであったことを勘案すると、気化による減少はそれほど大きくはなかったものと推察される。

既報⁶⁾では、QAT及びODSフィルターを組み合わせたサンプラーを使用して住宅の室内調査 (n=92) を行っており、QATによるフタル酸エステル類の捕集割合と室温との関連を報告している。既報⁶⁾によると、本研究で室内空気から検出された5種のフタル酸エステル類は、DEHPを除き、室温の上昇に伴って、石英繊維フィルターによる捕集割合が低下していた。したがって、今回得られたDEP、DiBP、DnBP及びBBPの石英繊維フィルターによる捕集割合及び粒径分布は、約25°Cにおける結果であり、室温により変化する可能性が考えられる。

また、既報⁵⁻⁷⁾では、前段の石英繊維フィルターで捕集されたものを粒子状、後段のODSフィルターで捕集されたものをガス状として形態を分類していたが、前段で捕集

されるフタル酸エステル類の割合は、石英繊維フィルターの粒子捕集効率に依存することが判明した。したがって、石英繊維フィルターで捕集されるのは、粒子状で存在するフタル酸エステル類のすべてではなく、使用した石英繊維フィルターで捕集可能な粒径の粒子であることを考慮する必要がある。

ま と め

室内空気中のフタル酸エステル類測定用のサンプラーに、粒子捕集効率の異なる3種の石英繊維フィルター (QAT, QMA及びQR) を用い、フタル酸エステル類の捕集状況を比較した。各フィルターの粒子捕集効率公称値 (0.3 μm DOP使用) は、QAT : 99.9%, QMA : 99.95%以上, QR : 99.99%であった。それぞれの石英繊維フィルターを前段に、ODSフィルターを後段にセットしたろ紙サンプラーを用いて室内空気的同时測定を行った結果、DEP, DiBP, DnBP, BBP及びDEHPが検出され、いずれのサンプラーにおいても各物質の測定値は同等であった。各サンプラーで得られたフタル酸エステル類の濃度平均値は、高かった順に、DEHP 239 ng/m³, DEP 156 ng/m³, DnBP 96.8 ng/m³, DiBP 19.6 ng/m³, BBP 16.5 ng/m³であった。同時測定の結果より、前段の石英繊維フィルターに捕集されたフタル酸エステル類の割合を算出したところ、DEHP及びBBPはいずれも約100%でフィルターによる差は見られなかったが、DEP, DiBP及びDnBPは、粒子捕集効率の大きいフィルターの方が捕集割合が高かった。また、DEPは他の4物質に比べて、石英繊維フィルターによる捕集割合が低く、他の4物質が94.4%~100%であったのに対し、DEPでは12.7%~26.2%であった。次に、3種の石英繊維フィルターに室内空気を通過させ、フィルター通過前後の空气中粒子個数濃度をELPIにより測定し、粒径別に粒子捕集効率を算出した。その結果、用いた3種の石英繊維フィルターは、平均粒径0.039 μm の粒子を88%以上捕集可能であることがわかった。また、ELPIを用いて室内空気中フタル酸エステル類の粒径分布を測定した結果、DEHP及びBBPの粒径分布が明らかになり、最頻粒子径はDEHPが0.5 μm ~0.8 μm 、BBPが6.31 μm で、2物質とも平均粒径0.039 μm 以上に大部分が分布することが判明した。DEHP及びBBPが前段の石英繊維フィルターにほぼ100%捕集されていた理由として、これら2物質が石英繊維フィルターで捕集可能な粒径範囲に分布していることが考えられた。

(本研究の概要は平成28年室内環境学会学術大会、2016年12月、において発表した。)

文 献

- 1) 可塑剤工業会：可塑剤生産実績
<http://www.kasozai.gr.jp/wordpress/wp-content/uploads/2018/05/2018年5月可塑剤生産実績（HP用）.pdf>
(2018年7月15日現在。なお本URLは変更または抹消の

- 可能性がある)
- 2) Chen, X., Xu, S., Tan, T., *et al.*: *Int. J. Environ. Res. Public Health*, **11**, 3156-68, 2014.
 - 3) 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：厚生労働省医薬局，平成13年7月25日。
 - 4) 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：厚生労働省医薬・生活衛生局，平成29年4月19日。
<https://www.mhlw.go.jp/stf/shingi2/0000164092.html>
（2018年7月15日現在。なお本URLは変更または抹消の可能性がある）
 - 5) 斎藤育江，大貫 文，瀬戸 博，他：東京衛研年報，**52**，210-207，2001.
 - 6) 斎藤育江，大貫 文，瀬戸 博：室内環境学会誌，**5**，13-22，2002.
 - 7) 斎藤育江，大貫 文，矢口久美子，他：東京健安研七
年報，**59**，27-38，2008.
 - 8) Liu, C., Zhao, B., and Zhang, Y.: *Atmos. Environ.* **44**, 1952-1959, 2010.
 - 9) Takeuchi, S., Tanaka-Kagawa, T., Saito, I., *et al.*: *Environ. Sci. & Pollut. Res.* **25**, 7113-7120, 2018.
 - 10) 江見 準：粉体工学会誌，**19**，135-144，1982.
 - 11) World Health Organization: Indoor air quality: organic pollutants: Report on a WHO Meeting, Berlin, 23-27 August 1987. EURO Reports and Studies 111. , 1989, Copenhagen, World Health Organization Regional Office for Europe.
 - 12) Warner, K.S. and Eatough, D. J.: *J. Air Waste Manage. Assoc.*, **51**, 1302-1308, 2001.

Relationship between Particle Collection Efficiency of Quartz Fiber Filter and Particle Size Distribution of Phthalates

Ikue SAITO^a, Aya ONUKI^a, Toshiko TANAKA-KAGAWA^b, Masahiro CHIBA^c, Hitoshi UEMURA^d,
Hideto JINNO^e, Shinobu SAKAI^f, Hiroyuki KONISHI^a, and Takako MORIYASU^a

This study compared the sampling efficiency of three types of quartz fiber filters, used for indoor air phthalate sampling, with different particle collection efficiencies. Simultaneous air sampling was conducted using samplers that consist of each quartz fiber filter for the first stage and a solid phase extraction disk for the second stage. Diethyl phthalate (DEP), diisobutyl phthalate (DiBP), di-n-butyl phthalate (DnBP), benzyl butyl phthalate (BBP), and di-2-ethylhexyl phthalate (DEHP) were detected in the indoor air with substantially similar levels for every sampler. The proportions of the phthalates caught by all three quartz fiber filters were close to 100% for DEHP and BBP, but the proportions of DEP, DiBP, and DnBP were in the range from 13%–100% with higher proportions associated with increased particle collection efficiency. Indoor air was passed through the three quartz fiber filters and the particle concentrations before and after filter passage was measured using an electrical low pressure impactor (ELPI), evaluating the particle collection efficiency at every stage of ELPI. The results showed that the quartz fiber filters caught at least 88% of particles with an average diameter of 0.039 μm . The particle size distributions for DEHP and BBP in indoor air were evaluated by sampling using the ELPI; most of these two compounds were distributed in particles over more than an average diameter of 0.039 μm .

Keywords: indoor air, phthalates, diethyl phthalate, diisobutyl phthalate, di-n-butyl phthalate, benzyl butyl phthalate, di-2-ethylhexyl phthalate, quartz fiber filter, particle size distribution, electrical low pressure impactor

-
- ^a Tokyo Metropolitan Institute of Public Health,
3-24-1, Hyakunin-cho, Shinjuku-ku, Tokyo 169-0073, Japan
- ^b Yokohama University of Pharmacy,
601, Matano-cho, Totsuka-ku, Yokohama, Kanagawa 245-0066, Japan
- ^c Hokkaido Institute of Public Health,
Nishi 12-chome, Kita 19-jo, Kika-ku, Sapporo, Hokkaido 060-0819, Japan
- ^d Kanagawa Prefectural Institute of Public Health,
1-3-1, Shimomachiya, Chigasaki-shi, Kanagawa 253-0087, Japan
- ^e Meijo University,
150, Yagotoyama, Tempaku-ku, Nagoya, Aichi 468-8503, Japan
- ^f National Institute of Health Sciences
3-25-26, Tonomachi, Kawasaki-ku, Kawasaki, Kanagawa 210-9501, Japan

