

室内空気汚染物質の固相比色認識材料の開発

OBSKM004 小島 翔平

指導教員 関根 嘉香

1. 緒言

近年、アセトアルデヒドはシックハウス症候群との関連が注目されている。アセトアルデヒドの発生源や発生機構は明確でなく、新築住宅における室内空気中アセトアルデヒド濃度は厚生労働省の定めた室内濃度指針値 ($48 \mu\text{g}/\text{m}^3$) を超過する傾向にあり¹⁾、室内空気中アセトアルデヒドに対する検知・測定の需要は高まると予想される。そこで、本研究では専門的な技能を必要とせず、一般の居住者でも簡単かつ迅速に室内空気中アセトアルデヒドを検出できる方法として、比色認識材料の開発を着想した。

2. *p*-アセトフェネチジン

p-アセトフェネチジンは分子量:179.22、融点:136°Cの白色結晶性粉末であり、Carlettiらが1928年に発表した短報²⁾において、濃硫酸中の*p*-アセトフェネチジンがアセトアルデヒドに対して選択的に反応することが示唆されていた。そこで、*p*-アセトフェネチジンと濃硫酸の混合溶液 (PA-S) のアセトアルデヒドに対する反応性および選択性について追試したところ、PA-Sはアセトアルデヒドに対し高い反応性と高い発色選択性 (Fig.2) を有していることがわかった³⁾。このことから*p*-アセトフェネチジンは比色認識材料として応用可能であり、G階調値を用いることで選択的な比色分析も可能であると考えられる。

3. 無機系担体による固相化の検討

液体状の検出試薬は使用時に危険が伴うことから無機系担体を用いて PA-S の固相化を試みた。無機系担体は溶融アルミナ 100 メッシュ、溶融アルミナ 60 メッシュ、珪砂 70~100 メッシュ、珪砂 30~50 メッシュおよびシリカゲルの計 5 種を使用し、ガラス製小型シャーレ上で無機系担体 1 g に PA-S 1 mL を加え、24 時間静置させ試験体とした。試験体は大気圧下で 24 時間静置した Sample A と減圧下で 24 時間静置した Sample B の 2 種類を作成した。アセトアルデヒドガスの曝露には Fig.3 に示す実験装置を用いた。透明アクリル製デシケーター内に試験体を配置した後、アセトアルデヒ

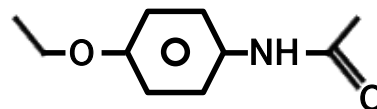


Fig.1 A structural formula of *p*-acetophenetidine. [CAS No.62-44-2]

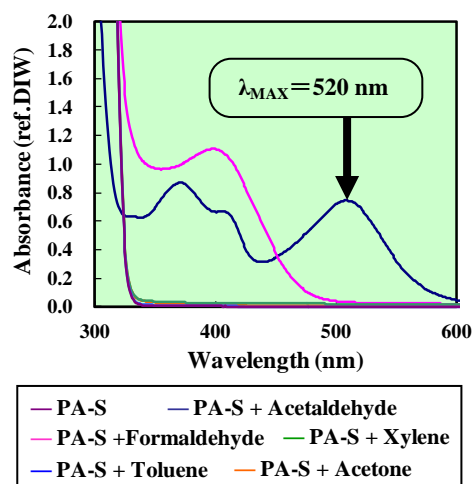


Fig.2 Absorption spectrum of *p*-acetophenetidine/ H_2SO_4 mixed with VOCs solution.

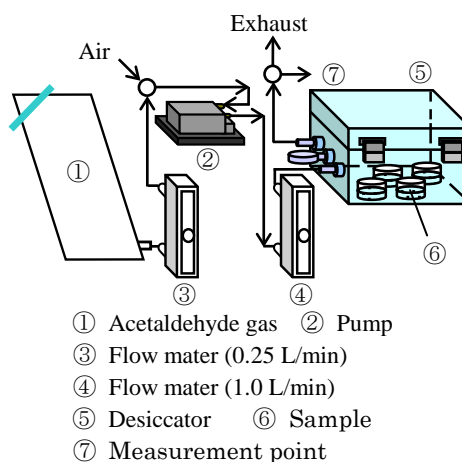


Fig.3 Schematic view of the acetaldehyde gas exposure test system.

ドガス (600 ppm) を定期的に流通し、試験体を 6 時間アセトアルデヒドガスに曝露させ、各試験体の発色応答を調べた。

全ての試験体が赤褐色に発色したが、溶融

アルミナ・珪砂を用いた試験体の発色は不均一であり、粒径の小さい担体 (珪砂 70~100 メッシュと溶融アルミナ 100 メッシュ) を用いた試験体ほど不均一性が高い傾向を示した。また、未含浸の PA-S が原因である流動性が見られた。一方、シリカゲルを用いた試験体は発色が均一であり、PA-S がゲル内に保持されるため Sample A, Sample B ともに流動性は見られなかった。

4. 固相比色認識材料の発色応答

透明アクリル製デシケーター内のアセトアルデヒド濃度を変化させることで比色認識材料の発色応答が変化するか調べた。ガラス製小型シャーレ上でシリカゲル 0.58 g に PA-S 1 mL を加え、24 時間静置させ比色認識材料とし、アセトアルデヒドガスに 6 時間曝露させた。なお、デシケーター内のアセトアルデヒド濃度は 50、100、200、300、400、500 および 650 ppm とした。また、曝露前後の比色認識材料をデジタルカメラで撮影し、発色部の G 階調値を測定、G 階調値から式①で定義する発色度 P を求めた。

$$P = 255 - G \text{ 階調値} \dots \text{①}$$

* 255 は G 階調値の最大値

各濃度のアセトアルデヒドガスに曝露した比色認識材料はいずれも時間経過とともに無色から赤褐色に変化し、アセトアルデヒド濃度 400 ppm までは濃度に対し量-応答的な反応を示した (Fig.4)。なお、比色認識材料の変色は 6 時間後も継続するが、各濃度において十分な色変化を確認できたため本実験では曝露 6 時間後における発色度を用いて ΔP を算出した。また、検出下限値(LOD) は 10 ppm、定量下限値(LOQ) は 30 ppm であった。

5. まとめ

PA-S を完全に保持でき流動性が発現しないことから、PA-S の固相化にはシリカゲルが最も適している。また、PA-S を用いた比色認識材料は発色度から空气中アセトアルデヒド濃度を求めることができるが、居室中のアセトアルデヒドを検知・測定することは現状では難しい。今後は室内濃度指針値レベル (0.04 ppm) の検知を目標に比色認識材料の更なる高感度化を目指していく。

【参考文献】 1) 日本建築学会, アセトアルデヒドによる室内空気汚染防止に関する濃度等基準・同解説, AIJES-A004-2010,11-15 (2010) 2) Carletti, *Giornale di Chimica Industrial ed Applicata*, 10,66 (1928) 3) 小島, 関根, 室内環境学術大会講演要旨集, 122-123 (2010)

【謝辞】 本研究で用いた無機系担体は株式会社ガステック、日立化成テクノサービス社よりご提供いただきました。記して感謝いたします。

Table 1 Responses to acetaldehyde gas 600 ppm of solid sorbents impregnated with 1 mL of *p*-acetophenetidine/H₂SO₄.

Support	Sample [A]					Sample [B]				
	Silica Sand		Alumina		Silica Gel	Silica Sand		Alumina		Silica Gel
	mesh	30~50	70~100	60		100	30~50	70~100	60	
$t=0$ h										
$t=6$ h										
Status	Fluid gel				Solid	Fluid gel				Solid

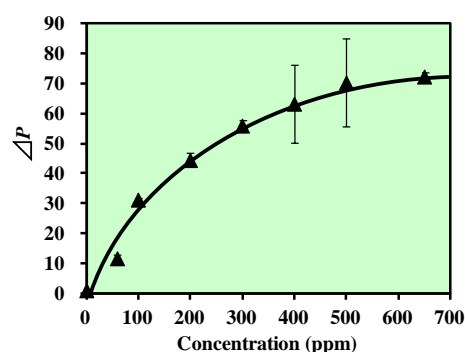


Fig.4 Response of the solid phase colorimetric detector to acetaldehyde in difference concentration levels (t=6h,27°C).