

機関番号：17401

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2011～2013

課題番号：23560696

研究課題名(和文) 壁装材料の室内空気質に対する影響とその対策に関する研究

研究課題名(英文) The effects of interior wall materials on indoor air quality

研究代表者

長谷川 麻子 (Hasegawa, Asako)

熊本大学・自然科学研究科・准教授

研究者番号：80347004

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,000,000円、(間接経費) 1,200,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、硫化水素およびホルムアルデヒドを汚染ガスとして、阿蘇周辺で採取できる鉱物資源「リモナイト」および6種類の壁装材料を対象に、独自に開発した装置による化学物質濃度の低減性能試験を実験的に検討した。その結果、(1) 壁装材料の化学物質低減性能について、初期性能のみ有する物理吸着の材料と定常的に性能を発揮する化学吸着・分解タイプの材料とが判別でき、(2) 定常的な低減性能を有する材料については、除去率-流量特性が把握できた。つまり、単体ガス成分であれば、本試験装置によって壁装材料の濃度低減性能を短時間で安価に判断できることがわかった。

研究成果の概要(英文)：A newly developed mini-scale testing system for obtaining the gaseous chemical removal performance of interior finishing materials is proposed in this report. The system was designed to perform dynamic analysis and it consists of a small gas flow channel device, where the test material is placed, and an analysis element, for detecting gaseous pollutants. Six interior wall materials and "limonite", which is a natural soil mined in Mt.Aso, were set in the channel device. Hydrogen sulfide or formaldehyde gas was introduced, passed through the surface of the material inside the cavity of the middle plate, and the concentration at the outlet of the channel was measured by the fluorescence monitor. The results indicated that the seven materials could be classified into 3 types according to the removal mechanism: ineffective, physical and chemical adsorption. The relationship between removal efficiency and flow rate can be obtained easily by this small testing device and simple method.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：建築学・建築環境・設備

キーワード：空気環境

1. 研究開始当初の背景

日本では、住宅の壁装仕上げ材料としてビニルクロスが一般的だが、室内空気汚染とその健康影響が問題となった頃から室内濃度を低減する「パッシブ建材」が登場し、その性能試験方法は2007~2008年にかけて日本工業規格(JIS)として定められたが、この性能試験方法を実施できる機関が九州にはない。また、室内空気中の化学物質濃度を低減する建材については日本建築センター(BCJ)の認定基準があり、この認定を受けた建築材料が広範に活用されるものと考えられていたが、濃度低減効果が明確な内装材料が3社ほど認められているものの、1申請300万円と高額なため建材メーカーの負担が非常に大きく、ひいては消費者にも価格面で負担がかかることから、現状では確実に濃度低減効果を有するパッシブ建材が広く利用されることに困難がある。

一方、シックハウス症候群が社会的問題となって以来、一般市民の間にも室内空気環境とその健康影響に対する関心が高まり、さらに近年は、地球環境に対する負荷が少ないライフスタイルの追求が広まってきており、これらの要素が「生活の質(QOL)」の向上につながると考えられる。特に住宅については、地球環境問題を意識して輸送距離が少なくて済む地域の木材を活用したり、健康影響を意識して厚生労働省が指針値を提示した13物質を放散しない漆喰や和紙などの自然素材を内装仕上げ材料として利用することが、素朴で美しい外観も相まって好意的に受け止められている。

2. 研究の目的

熊本県産い草和紙やドイツ製漆喰といった「エコロジーで健康」「安全、安心」といわれる壁装仕上げ材料などを対象に、コンパクトな試験装置を設計・作成して、化学物質に対する吸着性能を実験的に求め、吸着された化学物質の再放散の可能性や特徴を観察することにより、短期間で安価に評価できる試験装置の開発を目的としている。

3. 研究の方法

(1) 対象材料

表1に、実験対象とした材料の一覧を示す。試験に供した壁装材料は、乾式工法として、DIY ショップで市販されている一般的なビニルクロス(F☆☆☆☆)のほか、メーカーが臭気成分などの化学物質を低減し続けると広告し施工実績も多い光触媒加工壁紙、熊本県産い草を原料とした和紙クロスである。湿式工法としては、HCHO に対する低減性能が(財)日本建築センターで認定されている珪藻土入り石膏プラスター(以降、認定材と標記)と、仕上げ材として人気の高い漆喰および珪藻土、さらに建材ではないが一部の化学物質を明らかに低減できる「リモナイト」を採用した。リモナイトとは、熊本県阿蘇周辺では

表1 対象材料一覧

工法	材料
乾式	一般ビニルクロス
	光触媒加工壁紙
	い草和紙クロス
湿式	認定材 (珪藻土入り石膏プラスター)
	漆喰
	珪藻土
	リモナイト

ば無限に採取できる酸化鉄を主成分とする多孔質の天然資源で、硫化水素(H₂S)など有害物質と結合する性質をもつ。既に、製品化されたものが下水処理場の排気塔や家畜施設などの脱臭に利用されており、除去効果を発揮している実績がある。

(2) 試験装置

図1に対象材料を設置するチャンネルの外観、図2に試験装置の概略図を示す。

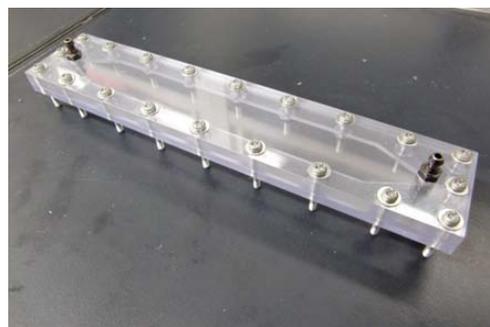
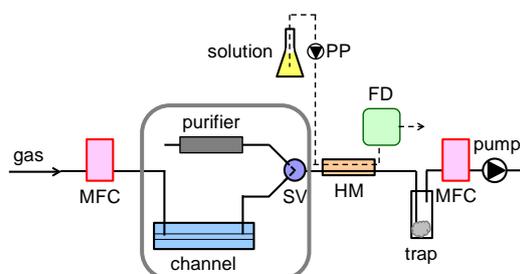


図1 チャンネル外観



MFC: mass flow controller, SV: solenoid valve, PP: peristaltic pump, HM: honeycomb membrane, FD: fluorescence detector

図2 試験装置概略図

チャンネルはPVC製で、上板、中板、下板の3種の板(上・下板:200×40×50mm、中板:200×40×2mm)で構成され、中板には空洞部(W=20mm)を設けている。乾式工法の場合は材料で中板を挟み込み、湿式工法の場合は下板の上に中板をのせて空洞部に施工して中板をのせ、上下板とあわせて固定し、材料表面をガスが通過するようにした。

試験装置は、試験経路はすべてSUSおよびPTFEのチューブで接続しており、各種汚染ガスを一定流量(200 ml/min)でチャンネルに供給、チャンネル通過後の出口側の濃度を検出

器で定量するようになっている。定性・定量分析の精度管理上、チャンネルはクールインキュベーター内に設置し、JISと同様の温度条件である $28 \pm 1^\circ\text{C}$ で維持管理した。

(3) 汚染ガスの供給方法および計測方法

チャンネル内に供給する汚染ガスは、下水・排水等から発生する悪臭成分の H_2S と、シックハウス症候群の原因となる室内空気汚染物質の筆頭であるホルムアルデヒド(HCHO)とした。

H_2S は、100ppm の標準ガスをボンベから圧送し、清浄空気により 20ppb まで希釈、一定流量(200 ml/min)でチャンネル内に供給した。チャンネル通過後の H_2S 濃度は、戸田らが開発したハニカム状多孔質膜部分で、溶媒とチャンネル出口側の空気を接触させることによりサンプリングし、LED 光源の検出器により検出する方法で計測した。具体的には、ハニカム内の空気流路に、活性炭およびソーダ石灰のフィルタを通過させた濃度ゼロの清浄空気と、未知濃度のチャンネル出口の空気を交互にサンプリングすることにより、これらの電圧出力値から定量することができる。サンプリング間隔は、清浄空気 3 分間、チャンネル出口側の空気を 2 分間で行い、5 分ごとのサイクルで濃度を連続測定する仕組みとなっている。 H_2S の場合はフルオレッセイン酢酸水銀(FMA)水溶液を試薬溶液として、ハニカム状膜を介してチャンネル出口のガスと接触させて捕集し、蛍光検出器により定量した。

HCHO は、ホルマリン溶液を希釈して得られた $8.2 \times 10^{-5} \text{ M}$ の水溶液をガラスインピンジャーに入れ、恒温水槽内で溶液温度を 20°C に保ちながら、清浄空気をマスフローコントローラーによって一定流量供給し、ガラスボールフィルタを介してバブリング、20ppb のガスを一定流量でチャンネル内に供給した。チャンネル通過後の HCHO 濃度は、 H_2S の場合と同様の定性・定量方法で、試薬溶液にはアセチルアセトンを用いた。

(4) 試験手順

試験は、以下の手順で行った。1 種の材料について 2 回以上の試験を行って再現性を確認しており、次章では偏差の少ない複数回分の平均の値を結果として示すこととする。ただし、4)および 5)については、 H_2S ガスの場合についてのみ行った。

- 1) チャンネルを接続していない状態で、試験装置の経路内に発生させた所定濃度の汚染ガスを供給し、検出器の出力が安定していることを確認する。
- 2) 材料を設置していない空のチャンネルを接続し、清浄空気および汚染ガスを供給した場合の出口濃度が供給濃度と同等で、チャンネル内面への吸脱着による影響がないことを確認する。
- 3) 各材料を設置したチャンネルを流路に接続、チャンネル出口濃度の経時変化をモニター

ングし、汚染ガスに対する低減性能を把握する。

- 4) チャンネル出口濃度がいったん低下したのち供給濃度と同等になった材料については、引き続き汚染ガスを停止して清浄空気を供給し、チャンネル出口濃度がゼロになるまで計測、再放散の有無を確認する。
- 5) チャンネル出口濃度が供給濃度よりも定常的に低い値を示している材料については、チャンネルへの供給ガス流量を 50 ml/min ずつ段階的に下げ、チャンネル出口濃度を計測、流速と除去率との関係を求める。

4. 研究成果

はじめに、試験手順 2)のブランク試験を行った結果、いずれの汚染ガスを供給した場合も、供給濃度とチャンネル出口濃度は同値であり、チャンネル内部の吸脱着による試験結果への影響は無視できると判断した。

(1) 乾式工法の場合

図 3 および 4 に、2 種の汚染ガスを供給した場合の、乾式工法 3 種の材料を施工したチャンネル出口濃度について、材料を設置していないブランク実験の結果とともに示す。横軸は経過時間を表しており、チャンネルを試験装置に接続した時間を 0 としている。

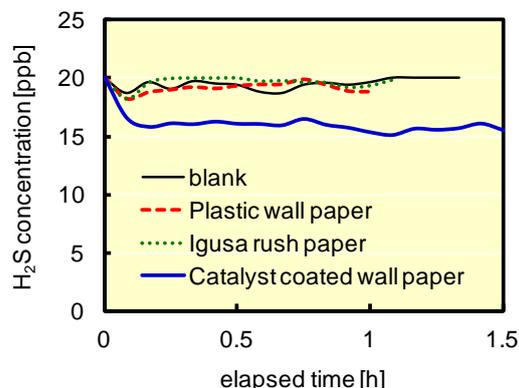


図 3 チャンネル出口の H_2S 濃度
〈乾式工法〉

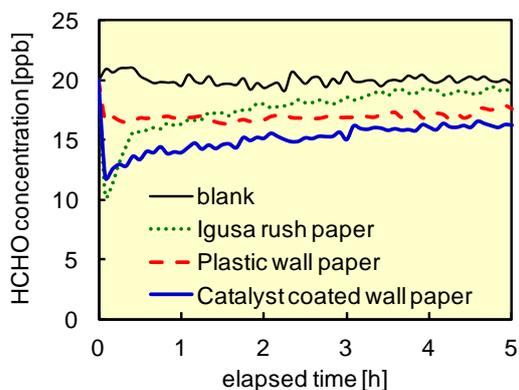


図 4 チャンネル出口の HCHO 濃度
〈乾式工法〉

一般ビニルクロスとい草和紙の場合は、 H_2S ガスに対する低減性能が認められなかったが、 $HCHO$ は物理的に吸着しやすい性質であるため若干濃度が低下しているように見える。一方で、光触媒加工壁紙の場合は、いずれの汚染ガスに対して、微量ながら一定の低減性能を有しているようである。

(2) 湿式工法の場合

図 5 および 6 に、2 種の汚染ガスを供給した場合の、リモナイトおよび湿式工法の材料を施工したチャンネル出口濃度について、材料を設置していないブランク実験の結果とともに示す。ただし、認定材については H_2S ガスを用いた試験を行っていない。また、表 2 には漆喰と珪藻土について、図 5 に示す結果から算出した H_2S に対する低減量と再放散量を示す。

図 5 について、試験開始後 2 時間の点線は、 H_2S の圧送を停止し清浄ガスの供給に切り替えたことを意味しており、点線までが低減性能、点線のあとが再放散の様子を示している。この結果から、漆喰と珪藻土は化学的な分解機能がなく、物理的な吸着によるのみ H_2S 濃度を低減して飽和状態になり、清浄空気を供給すると再放散していることが分かる。

漆喰と珪藻土の「低減量」および「再放散量」について、チャンネル出口濃度の計測結果を用いて時間で積分した面積を重量に換算、チャンネルに施工した材料の単位重量および単位面積あたりで算出すると非常に小さく、表 2 に示す結果となった。たとえば、一般的に脱臭剤として利用されている活性炭は、単位重量当たりの比表面積が非常に大きいため、自重の 20~40%にあたる化学物質を吸着することができるが、それに比して、漆喰と珪藻土の低減性能は 1/20000 程度とごくわずかである。また、漆喰と珪藻土の再放散量は、低減量に対してそれぞれ 30%、11%ほどであることがわかった。ただし、本実験装置および方法の場合、チャンネル内の線速度は約 0.08 m/s であるが、換気回数にすると 2000 回/h に相当し、材料表面の吸着性能を評価するには実空間における条件より過酷であると考えられ、これら 2 種の湿式材料については、気流速度や温湿度など条件を変化させた場合の再放散性状についても検討の余地がある。

図 6 から、認定材を施工した場合のチャンネル出口濃度は、チャンネル設置直後から実験時間中ほぼ 0ppb であり、優れた低減性能を確認することができた。漆喰およびリモナイトはチャンネル設置直後に $HCHO$ を 7~10ppb 程低減している様子が見られたが、時間が経過するとともに濃度は上昇傾向にあり、定常的に濃度を低減することは難しいようである。珪藻土はチャンネル設置直後から、チャンネル出口濃度が供給濃度である 20ppb よりも高くなるという結果となり、 $HCHO$ に対する

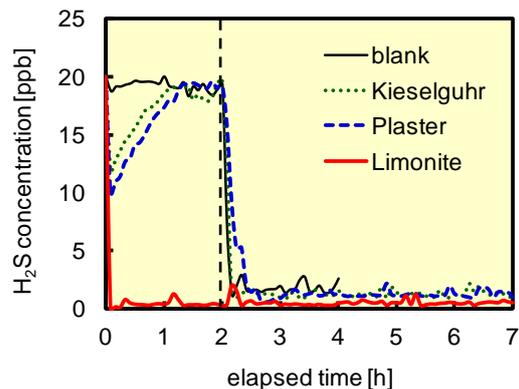


図 5 チャンネル出口の H_2S 濃度
＜湿式工法＞

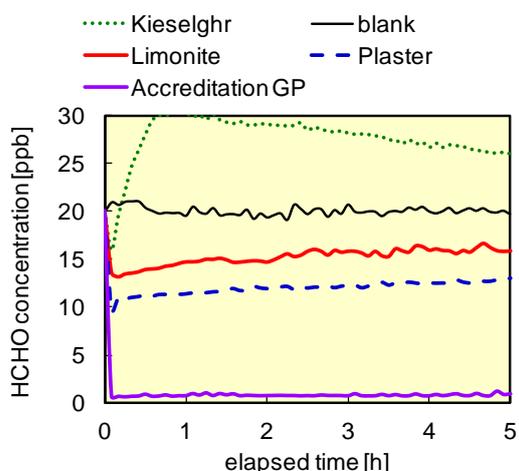


図 6 チャンネル出口の $HCHO$ 濃度
＜湿式工法＞

表 2 低減量と再放散量

	removal rate	re-emission rate
Plaster	13 $\mu\text{g/g}$ 29 mg/m^2	4 $\mu\text{g/g}$ 9 mg/m^2
Kieselguhr	11 $\mu\text{g/g}$ 19 mg/m^2	1 $\mu\text{g/g}$ 2 mg/m^2

低減性能よりも発生源となる可能性が示唆されたが、文献調査によれば従来このような事象の指摘はなく、 $HCHO$ 発生のメカニズムについては現時点で詳細不明である。

(3) チャンネル内流量を変化させた場合

図 7 に、流量を段階的に変化させた試験の結果として、光触媒加工壁紙とリモナイトを設置した場合のチャンネル出口濃度の時間変化を示す。この結果から、チャンネル内の流速が下がると除去率は増加していくことが分かる。

図 8 に、光触媒加工壁紙とリモナイトについて、流量を段階的に変化させた試験結果から算出した除去率をまとめて示す。これは、既往の研究と同様に除去率-流量特性を表

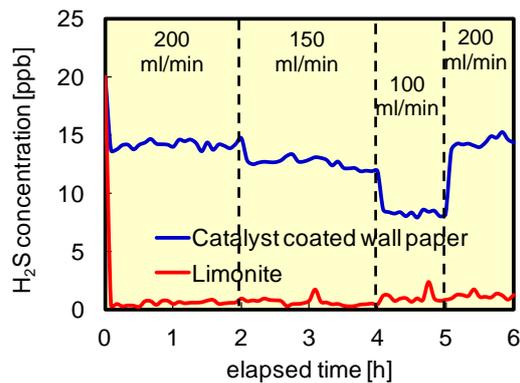


図7 チャネル出口のH₂S濃度
＜流量を変化させた場合＞

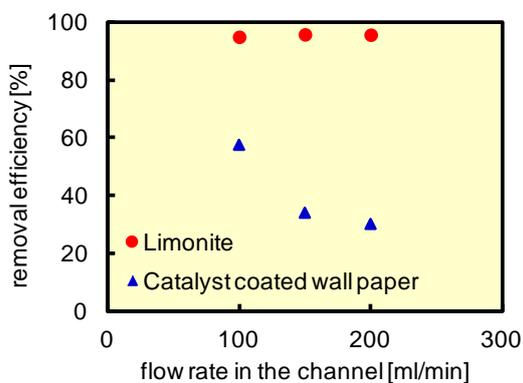


図8 チャネル内流量とH₂S除去率との関係

しており、線速度との関係に換算すると排気塔のような流路内での低減性能が判明する。しかしながら、リモナイトと異なり壁装材料の場合は、JISのように単位面積あたりの低減性能が実用的であると考えられるので、低減性能が既知の材料を用いるなど、JISとの整合性が得られるような実験を行い、実空間への適用を目指す必要がある。

(4) 異なる汚染ガスに対する除去率について

図9に、HCHOまたはH₂Sを化学的に低減する材料3種の汚染ガス2種に対する除去率の比較を示す。低減性能認定材に関してはH₂Sに対する試験を行っていないため、HCHOに対する除去率のみを示す。

リモナイトは既往の研究の通り、H₂Sに対してはほぼ100%の除去性能を維持しているが、HCHOに対する除去性能は約40%から徐々に小さくなり、汚染ガスの種類によって除去性能に差異が見られた。光触媒加工壁紙については、H₂SだけでなくHCHOに対しても約20%の除去率を有しており、触媒反応による二次生成物の懸念さえなければ、さらに他の汚染ガスに対する低減性能が期待される。

(5) 総括

以上、独自に開発した試験装置および方法

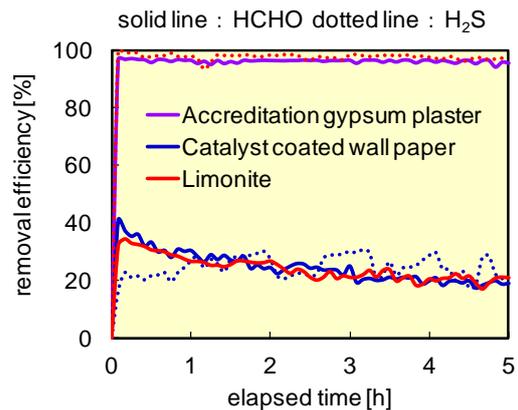


図9 汚染ガス2種に対する除去率

により、壁装材料の化学物質に対する濃度低減性能について実験的に検討した結果、以下のことが分かった。

- 1) 壁装材料の化学物質低減性能について、初期性能のみ有する物理吸着の材料と、定常的に性能を発揮する化学吸着・分解タイプの材料とが判別できた。
- 2) 定常的な低減性能を有する材料については、除去率-流量特性が把握できた。
- 3) 総合的には、単体ガス成分であれば、本試験装置によって壁装材料の濃度低減性能を短時間で安価に判断できる。

将来的には、JISに則った小型チャンバー法による低減性能試験の結果と比較・検討することにより相関係数が得られれば、本試験方法が短時間で安価に実施可能な性能試験であるだけでなく、実空間への適用が可能になるであろう。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 0件)

〔学会発表〕(計 6件)

- (1) 室積拓実、田中清也、長谷川麻子：壁装材料の化学物質低減性能に関する簡易試験方法の開発—その3—、日本建築学会九州支部研究発表会(佐賀大学)、環境系、pp.349-352、2014.3.2
- (2) 田中清也、長谷川麻子：壁装材料の化学物質低減性能に関する簡易試験装置の開発—その2—、日本建築学会学術講演梗概集(北海道大学)、環境工学 D-2、pp.867-868、2013.9.1
- (3) 長谷川麻子、田中清也、戸田敬：内装材料の化学物質低減性能に関する実験的研究、第30回空気清浄とコンタミネーションコントロール研究発表会予稿集(早稲田大学)、pp.196-198、2013.4.24
- (4) 田中清也、長谷川麻子：壁装材料の化学物質低減性能に関する簡易試験方法の開発

－その 2－、日本建築学会九州支部研究発表
会(大分大学)、環境系-497、pp.385-388、
2013.3.3

(5) 光山哲平、林徹夫、佃亮太、長谷川麻子：
壁装材料の化学物質低減性能に関する簡易
試験装置の開発－その 1－、日本建築学会学
術講演梗概集(名古屋大学)、環境工学 D-2、
pp.851-852、2012.9.14

(6) 光山哲平、佃亮太、長谷川麻子：壁装材
料の化学物質低減性能に関する簡易試験方
法の開発－その 1－、日本建築学会九州支部
研究発表会(西日本工業大学)、環境系-427、
pp.105-108、2012.3.4

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

○出願状況(計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

○取得状況(計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1)研究代表者

長谷川 麻子 (HASEGAWA, Asako)

熊本大学・大学院自然科学研究科・准教授
研究者番号：80347004

(2)研究分担者

戸田 敬 (TODA, Kei)

熊本大学・大学院自然科学研究科・教授
研究者番号：90264275

(3)連携研究者

()

研究者番号：