

室内化学物質 空気汚染の事前評価と健康影響防止技術の開発

－ ヘルシーなハウス、オフィスの開発 －

研究代表者 加藤信介(東京大学生産技術研究所)

研究分担者 近藤靖史(武蔵工業大学)、伊藤一秀(東京工芸大学)

1. 研究開発の概要と目的

本研究は、建物室内のホルムアルデヒド、VOCやSVOCなどの室内化学物質空気汚染の事前評価手法の確立を最終目的とする。研究はそのためのボトルネック技術を検討し、最終目標とする事前評価システムのプロトタイプを開発する。本研究では特に汚染質の室内空間への放散、気中での化学変化、吸着・脱着現象、換気による

濃度低減効果、等の室内化学物質空気汚染に関わる各種要因を解明し、これらを統合する。研究のフロー図を図1に示す。ただし、化学物質の人体影響調査に関しては、本研究の範囲には含まれない。この研究成果を本研究に組み込んで、研究目的とするヘルシーなハウス、オフィスの開発を行うものである。

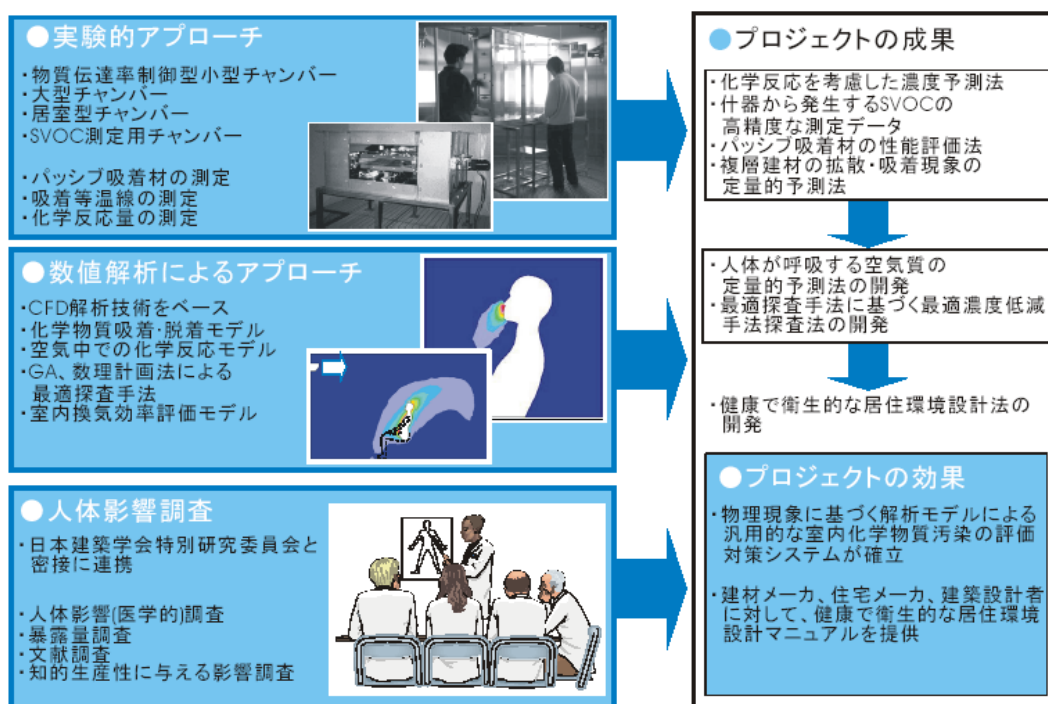


図1 ヘルシーなハウス、オフィスの開発研究のフロー

2. 具体的研究課題の概要

本研究は、以下に示すサブ課題を設定して具体的に研究を行っている。

(1) 建材からの化学物質放散速度を律速する物理要素の測定：

化学物質の建材内及び室内空気中の輸送現象を考える場合に、材料中の化学物質の拡散係数が極めて小さい(輸送抵抗が大きい)場合、材料中から気中への放散

速度はほぼ材料中の化学物質放散速度で決まる。その化学物質放散速度を支配するのが有効拡散係数である。各種建材を対象として有効拡散係数の測定を行い、データベース化することで、建材ラベリングに必要な基礎データを提供する。これらの基礎データは、温度条件や建材の材齢など種々の要因が変化した場合の放散特性を科学的に予測する基礎データとなるものである。これらの基礎データの整備は、本研究を除くと日本で

はほとんどなされていない。化学物質空気汚染の対策研究の最も基礎となるデータでありながら、建材からの汚染ガスの放散速度計測など、表面的な測定しか行われていない現状は憂えるべき現実である。本研究では、莫大な建材と空気中に放散される化学物質の一部しか測定していない。今後の地道な研究が望まれる。

(2) 建材・什器からの SVOC 発生量の予測：

SVOC は、沸点温度の高い揮発性の有機化合物を指す。沸点温度が高いすなわち揮発性が低いため空気中への放散はその分、小さくなるが、健康への影響が懸念される物質も多い。SVOC は、揮発性が低い分、一旦、空気中に放散されても、再び固体表面に吸着されやすい。このため、通常のチャンバー法による放散速度計測では、試験片を入れたチャンバー内壁に SVOC が付着してしまい、正しい放散速度計測を行うことができない。本研究では、このチャンバーに付着した SVOC を改めて熱脱着させて検出し、正確に SVOC 放散量を計測する方法を、本研究実施前に考案開発（特許申請中）している。しかしながら、この計測法を実用に供するためには、チャンバー内に滴下した標準試料の回収率を検討するなど、多くの検討が必要である。本研究ではこれら、SVOC の建材からの放散量計測法をリファインし、精度の高い放散量計測の開発を行い、合わせて主要な建材からの放散量計測を行う。

なお、建物の汚染発生は、ホルムアルデヒド、VOC などの揮発性の高い化学物質の放散量抑制対策が進み、殺虫剤（農薬）、日用製品、家具、什器からの SVOC 放散に移行してきている。住宅などでは、必要以上の衛生観念から多量の殺虫剤、消毒薬使用されることも多く、これも室内化学物質空気汚染の大きな原因となっている。また家具やパソコン OA 機器なども VOC や SVOC による化学物質汚染源として懸念されながら、その実態はほとんど明らかにされていない。本研究では、ケースは限られるが、これら各汚染源からの発生物質、発生量、発生機構を各要素別に検討し、その性状を明らかにする。

本研究では、家具など大型の什器からの VOC 放散量計測の可能な大型チャンバーを用い、従来の、建材に片寄っていた放散量計測データの不足を改善する。また

前述のように従来、放散速度計測が困難であった SVOC に着目し、その高精度な分析方法の開発に基づき、家具やパソコン OA 機器からの化学物質放散速度のデータを取得する。これは、ケースは限られるものの室内空気環境の汚染防止設計のための基礎データとなる。

(3) 空気中での化学反応メカニズムの解明：

住宅等における化学物質濃度の実測においては、測定された化学物質濃度と、予想される室内濃度（たとえば、室内各部位からの化学物質放散フラックスと換気量から換算される完全混合濃度）が必ずしも一致せず、「Lost TVOC」と呼ばれる現象が確認されている。この原因の一つとして、気中での化学反応による化学物質生成・分解の存在が指摘されている。しかし、化学反応によって生じる室内化学物質汚染は未解明の部分が多いため、これを検討解明を試みるものである。室内空気中で生じる化学変化は、一般に空気中で自然に生じる酸化などの分解過程によることが多い。そのため、本研究においても室内空気中のオゾンによる分解などに着目し、オゾン濃度に着目した検討を行う。オゾンは、気中に存在する有機化合物および無機化合物との反応により活発に各種の Free Radical を生成することが確認されている。本研究では、ケミカルフリーチャンバーを用いてオゾンを対象とした化学反応量の測定を行う。

(4) 建材への吸着メカニズムの解明と濃度低減効果：

室内には、化学物質を吸着しその後の脱着により再汚染させる物質が数多くある。また化学物質濃度低減建材と称しているパッシブ型の化学物質吸着建材が広く流通するようになっている。このパッシブ型の吸着建材においては、その定量的な吸着性能の把握が明確でなく、性能評価法がまだ確立されていない状況である。本研究では、境界層型テストチャンバーを用いて建材表面における物質伝達性状を一定とした状態で吸着量測定を行い、その定量的な性能試験法を開発する。また自動計測システムを用いて吸着等温線の測定を行い、温度条件材齢など種々の要因の変化があった場合にもその吸着性能の予測が可能となる吸着性能の予測モデルを開発する。

室内でのパッシブ吸着建材の性能は、その設置方法な

どによって大きな影響を受ける。大面積の吸着性建材の設置は必ずしもその設置面積に比例した性能を提供するものとはならない。本研究では、吸着性建材を室内に設置した場合の、室内化学物質濃度の低減効果を明らかにしている。

(5)換気効率を考慮した換気による濃度低減効果：
室内の化学物質汚染濃度は、基本的にはその室内放散量、換気量で決まるものと考えられるが、この2つの因子から定まる室内濃度と実際は大きく異なることも多く、室内吸着・脱着材や未知の汚染発生源など、様々な因子が関連するものと考えられる。特に室内では不均一な化学物質濃度場が形成されることが一般的であり、この汚染質の不均一濃度場、すなわち換気効率を積極的に利用して居住環境制御を行うことが省エネルギーの観点からも重要な課題となっている。そのため、換気効率指標を考慮し、これら室内化学物質濃度分布形成に関わる各種要因をリンクさせた総合的かつ正確な室内濃度予測手法を開発する。

(6)CFD による呼吸空気質解析手法および最適設計手法の開発：

室内濃度予測手法をベースに、環境設計に対するフィードバックを考慮し、効率的な室内化学物質濃度の低減された室内環境設計法を開発する。さらに、化学物質汚染の対策法を確立する。具体的には、数値シミュレーション手法を用いて、呼吸空気質を評価対象として、汚染源コントロール、パッシブ吸着建材配置、室内換気効率分布制御などの最適化を行う技術を開発する。これらの汎用性の高い技術をブラックボックス化して、ハウス、オフィスでの生活者自身が、室内空気質汚染の評価、対策の効果を実感、評価できるシステムの原型を開発する。

なお本研究で得られた基礎研究成果は、報告書として電子媒体の情報データベース化する。

3. 研究組織

研究代表者：加藤信介 東京大学生産技術研究所
<kato@iis.u-tokyo.ac.jp>

共同研究者：近藤靖史 武蔵工業大学工学部教授
<ykondo@eng.musashi-tech.ac.jp>

共同研究者：伊藤一秀 東京工芸大学工学部
<ito@arch.t-kougei.ac.jp>

4. 本研究の報告書

本研究の成果本報告書は以下のように構成されている。序章では、本研究の概要・目的を述べる。第1章では、建材からの化学物質放散速度を律速する基礎的な物理因子である有効拡散係数を、各種建材を対象として測定し、基礎データを提示している。有効拡散係数は、カップ法ならびに Chamber 法の他、水銀玉入法を用いて測定し、測定データの信頼性の検討を行うと共に、温度依存性に関する検討も併せて行っている。第2章では、各種建材・吸着剤等に対する吸着性能(吸着等温線)の評価を行っている。本章では、磁気浮遊天秤を利用した吸着性能測定装置ならびに、石英スパイラル天秤を利用した吸着性能測定装置を用いて、各種建材に対する吸着性能(吸着等温線)の評価を行った結果を示している。第3章では、パッシブ吸着材として、壁・天井等の下地材として使用される石膏ボードにホルムアルデヒド(HCHO)吸収分解性能を持たせた製品に着目し、境界層型小型 Test Chamber を用いて、パッシブ吸着建材に対する HCHO 濃度、温湿度、対流熱伝達率(物質伝達率)の各条件を変えた場合の HCHO 濃度低減性能に関する実験及び CFD 解析結果について報告している。第4章では、ステンレス製の大型 Chamber を用いて、建材や什器(とくに電化製品)から放散される化学物質の測定を行っている。第5章では、有機化合物の吸着・分解の少ないパイレックス等のマイクロチャンバーを用いた準揮発性化合物(Semi-Volatile Organic Compounds: SVOCs)測定法を開発を行っている。SVOC は沸点が 260 から 400°C程度の範囲の物質で、内分泌攪乱作用、発ガン性或いは神経毒性を示す物質もあり、沸点が高いにも関わらずガス状物質として室内空气中に存在することが指摘されており、今後の室内環境の実態把握が強く要望されている物質である。第6章では、2次元居室模型を用い、気中での化学反応による化学物質濃度低下、ならびに室内化学物質濃度分布の測定を行うとともに、化学反応現象を Rate Constant を用いてモデリングし、実験と同条件で数値

解析を行った結果を報告している。本報告書ではOzoneの化学反応に着目した実験ならびに数値解析を示している。第7章では、室内の化学物質濃度を決定する最重要要素である室の換気量算定法に関して検討を行った結果を示している。空気寿命などの空間分布から有効に換気がなされている容積を定義し、CFDによる算出法について検討した結果を報告している。第8章では、実際の室内濃度としては比較的高濃度であると考えられる濃度を想定し、完全混合を仮定した解析と室内の気流性状を考慮したCFDによる解析を行い、室内汚染質の化学反応に対する換気の効果、及び空气中で同じ反応物質を共有する複数の化学反応が考えられる場合に関する検討を行った結果を報告している。第9章では、建材にデシケータ値による放散等級がつけられている場合を想定して、単純な3次元の解析対象空間をターゲットに建材から放散されるホルムアルデヒドにより形成される濃度分布ならびに室濃度の経時変化をCFDにより解析する。特に等級区分1と等級区分2の2種類の建材を用いた場合の濃度分布ならびに室濃度の経時変化を解析することで、等級区分の相違が室内濃度レベルにもたらす影響を明確にしている。第10章では、全体のまとめを行っており、本研究の成果と今後の課題が総括されている。報告書は、研究代表者所属機関のホームページにてダウンロード可能とする予定である。
<http://http:venus.iis.u-tokyo.ac.jp>

5. 研究成果の概要

ここでは、限られた紙面のため本報告書の中から主要な結果の一部をスライドとして以下に示す。

テストチャンバー内のパッシブ吸着建材の汚染濃度低減効果(吸着速度)測定

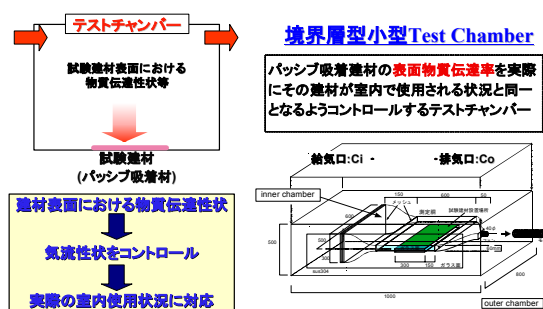


図2 パッシブ吸着建材の性能測定法の概要

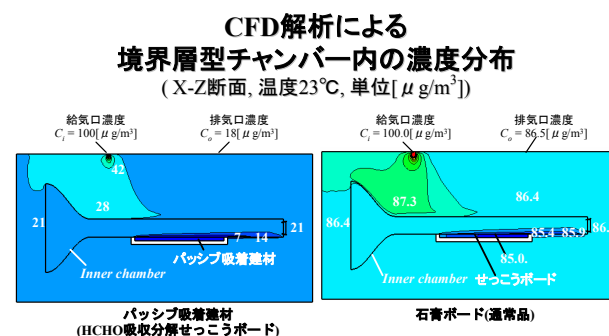


図3 パッシブ吸着建材試験チャンバー内濃度分布

居室モデル内における汚染濃度予測(放散と吸着)

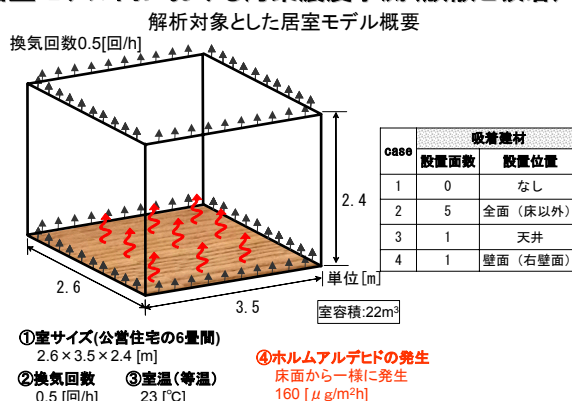


図4 放散と吸着のある室内の汚染濃度予測システム

ホルムアルデヒドの濃度分布

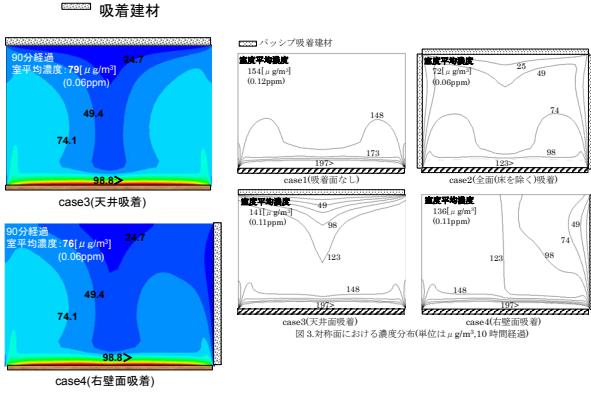


図5 吸着建材のある室内の汚染濃度解析例

細孔分布測定結果

試料名	平均細孔径 (μm)	空隙率 (%)	屈曲度 Factor
せっこうボード	0.18	68	1.46
合板	0.051	62	1.53
MDF	0.050	47	1.70
EPS	0.12	96	9.5
壁紙1	0.062	62	1.53
壁紙2	0.089	63	1.52
壁紙用接着剤	-	-	-
粒状活性炭	0.021	36	1.83
備長炭	0.028	35	1.84
竹炭	0.026	46	1.71

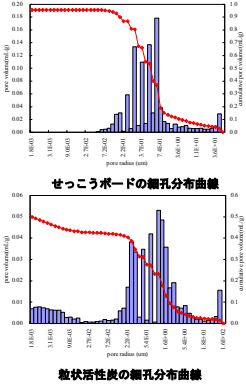


図8 水銀圧入法による建材の細孔分布測定例

Chamber法による有効拡散係数測定

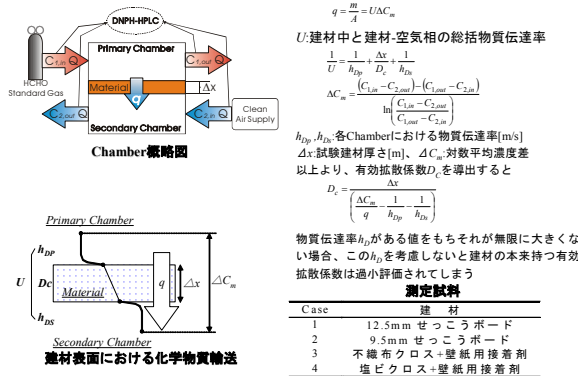


図6 チャンバー法による建材内の化学物質拡散係数測定の概要

水銀圧入法によるDc算出結果 [×10⁻⁷ m²/s]

	HCHO	Toluene	n-Octane	Ethyl Acetate	n-Dodecane	Methane
せっこうボード	55.6	30.8	24.6	31.7	19.8	43.2
合板	31.3	17.5	14.5	18.0	11.8	28.7
壁紙1	34.2	19.1	15.8	19.6	12.8	30.4
壁紙2	40.5	22.5	18.4	23.2	14.8	34.2
MDF	21.1	11.8	9.8	12.1	8.0	19.4
EPS	10.9	6.0	4.9	6.2	3.9	8.8
粒状活性炭	8.9	5.0	4.3	5.2	3.5	9.5
備長炭	10.5	5.9	5.0	6.0	4.1	10.6
竹炭	14.0	7.9	6.7	8.1	5.5	14.4

図9 水銀圧入法による拡散係測定例

Chamber法 実験及びCFD解析

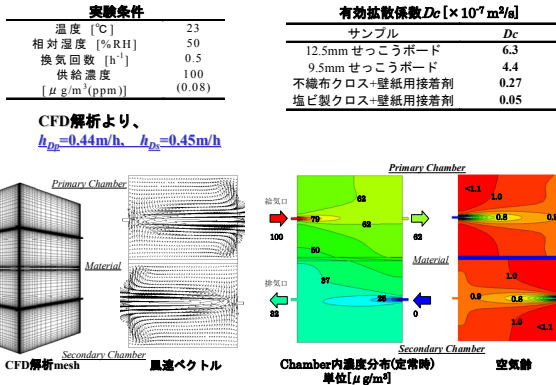


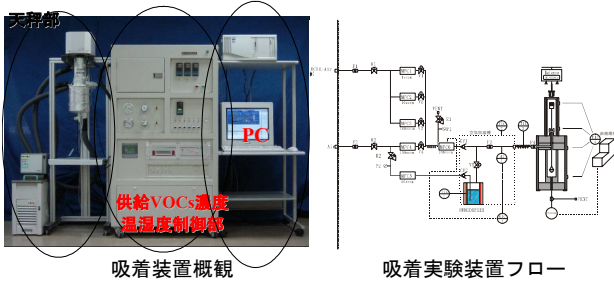
図7 チャンバー内の気流、拡散性状の解析

他の有効拡散係数Dc測定法との比較

- 石膏ボード
 - MIP法はChamber法に対し、HCHOで約10倍、VOCsで2-3倍程度大
- Cup法に対してはVOCsで3-6倍程度大
- 壁紙(トルエン)
 - Cup法でDcに対し、MIP法は23-37倍程度大
- MIP法よりDcを求めた場合、他の測定法よりDc値が大きくなる理由
 - VOCsと試験材料間で生じる相互作用や湿度の影響を考慮せず
 - 試験材料の物理性状のみからDc値を算出するため、MIP法のDc値が大きくなる
- MIP法からの有効拡散係数の算出は、空隙率、屈曲度ファクター、Da値が明らかであれば、各温度に対するVOCs毎のDc値が求まるので、非常に簡便で有効な手段

図10 各測定法による拡散係数測定値の比較

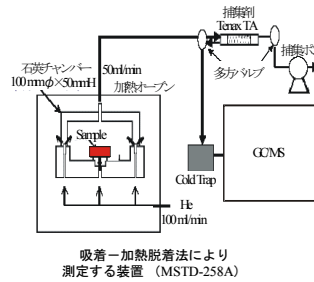
吸着等温線の測定装置



吸着装置概観

吸着実験装置フロー

新たな実温度条件下における 準揮発性有機化合物 (SVOC) 測定法



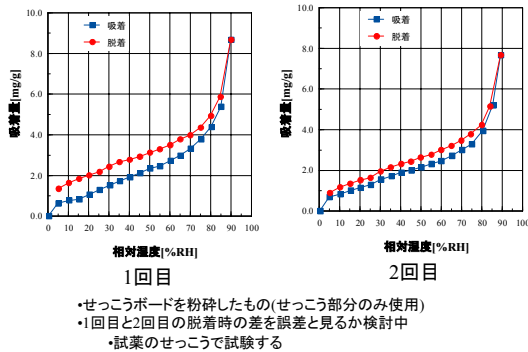
吸着-加熱脱着法により
測定する装置 (MSTD-258A)

発生ガス測定条件	
石英チャンバー 内部寸法	φ100×1150mm
オープン温度	放射時: 40°C チャンバー加熱脱着時: 30~250°C Rate 20°C/min
捕集剤	Tenax TA
捕集時間	30min
プレバージ 時間	3.0min
捕集流量	50ml/min
捕集剤脱着温度	270°C
バージガス流量	100ml/min
GC/MS の分析条件	
GC	HP6890
コールド トラップ温度	-130°C(1.5min) →-50°C/sec →-250°C(4min)
カラム	TC-1 (60m×0.25mm×0.25 μ m)
オープン温度	40°C(5min) →10°C/min →270°C(21min)
検出器 (MS)	HP5973MSD

図 1.1 吸着等温線の測定装置

図 1.4 建材からのSVOC放散量測定の概要

せっこう粉末の水蒸気吸着等温線 23°C- ~90%RH



- せっこうボードを粉砕したもの(せっこう部分のみ使用)
- 1回目と2回目の脱着時の差を誤差と見るか検討中
- 試薬のせっこうで試験する

図 1.2 石膏の水蒸気給直等温線の測定例

放散ガス及びチャンバー内の 吸着有機成分TIC応答

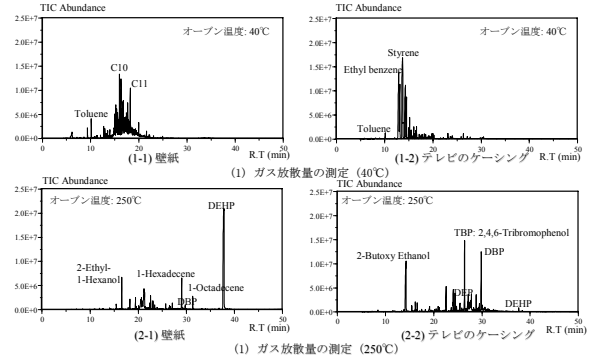
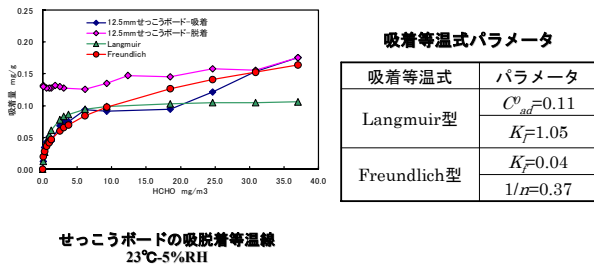


図 1.5 壁紙と家庭用テレビのケーシングからの
SVOC測定例

せっこうボードの吸着等温線



せっこうボードの吸着等温線
23°C-5%RH

吸着等温式パラメータ

吸着等温式	パラメータ
Langmuir型	$C_{sat} = 0.11$
	$K_F = 1.05$
Freundlich型	$K_F = 0.04$
	$1/n = 0.37$

図 1.3 石膏のホルムアルデヒド吸着等温線測定例

チャンバー内吸着-加熱脱着法による ノートパソコンからのSVOCs測定 (2)

(室温25°C, 相対湿度50%)

1hr後 1L 捕集	放散ガス濃度 [μg/m³]		放散速度 (ug/uit·h)	
	無移動時	移動時	無移動時	移動時
Acetone	21.4	63.6	0.076	0.171
Methylcarbonate	193.3	409.3	0.726	1.278
1-Butanol	21.8	57.2	0.076	0.156
Toluene	13.2	43.4	0.041	0.148
Ethylcarbonate	101.3	275.9	0.365	0.781
Cyclohexanone	20.5	73	0.074	0.210
2-Butoxyethanol	178.5	730.5	0.822	2.143
Isooctanol	15.5	59.4	0.061	0.158
2-Ethyl-1-hexanol	19.8	184	0.141	0.517
Phenyl isopropanol	9.2	69.6	0.043	0.200
Dimethylcyclohexanone	12.3	97.5	0.129	0.342
Cyclohexylbenzene	39.3	304.3	0.163	0.813
Acetophenone			0.049	0.109
DBP			0.106	0.630
Total	645.9	2387.7	2.871	7.676

図 1.6 ノートパソコンからのSVOC放散量計測結果

6. 結語

本研究は、吸着性建材を室内に施工した場合の濃度低減効果も考慮した室内の化学物質からの空気汚染濃度の詳細な予測解析法のプロトタイプを示した。本研究は、室内の温度や換気性状の変化さらには建材の材齢の違いによる放散特性や吸着特性の違いを考慮した予測法を可能とするための基礎的なデータの取得法を開発し、限られた建材種類であるがそのデータを取得した。また、準揮発性化学物質 (SVOC) として今後、その人体影響が懸念される物質の建材などからの精度の高い放散量計測法を開発し、限られた建材種類、家庭用電化製品種であるが、そのデータを取得した。

本研究による公表論文

[1] 加藤信介、伊藤一秀、朱清宇、村上周三：各種吸着等温式を用いた吸着モデルによる室内化学物質濃度分布予測 CFD解析による室内の化学物質空気汚染の解明第2 報日本建築学会計画系論文集、第563 号、33-38、2003 年1 月

[2] 加藤信介、伊藤一秀、朱清宇、村上周三：居室模型を用いた化学吸着効果・室内濃度分布の測定と数値解析 日本建築学会計画系論文集、第564 号、41-47、2003 年2 月

[3] 横田知、博安宅勇二、加藤信介、村上周三、朱清宇：吸着性建材による室内化学物質濃度の低減に関する実験と数値解析、日本建築学会関東支部研究報告集、2003. 3

[4] 水野優伊藤一秀、加藤信介、朱清宇、安宅勇二：カップ法による各種建材中の有効拡散係数の測定(その1) Toluene, Decane, EthylBenzene を対象としたDc測定、日本建築学会年次大会、2003 年9 月

[5] 三田名津季、伊藤一秀、加藤信介、朱清宇、安宅勇二：カップ法による各種建材中の有効拡散係数の測定(その2) 有効拡散係数の温度依存性とArrhenius 式の推定、日本建築学会年次大会、2003 年9 月

[6] 朱清宇、加藤信介、安宅勇二、安福勝：大型テストチャンバーにおける建材や家電製品等からの化学物質放散量の測定に関する研究(その1) Medium Density Fiberboard (MDF) からのホルムアルデヒド放

散速度の測定、日本建築学会年次大会、2003 年9 月
[7] 星野邦広、今中努志、加藤信介、朱清宇、安宅勇二：実温度条件下における材料から放散される半揮発性有機化合物 (SVOC) 測定に関する研究(その4) チャンバー内吸着-加熱脱着法によるノートパソコンから放散されるSVOC の測定、日本建築学会年次大会、2003 年9 月

[8] 細谷聡、伊藤一秀、加藤信介、安福勝：揮発性有機化合物の化学反応等のモデリングとその数値予測に関する研究(その4) 居室模型を用いた気中でのOzone 反応量の測定、日本建築学会年次大会、2003 年9 月

[9] 安福勝、伊藤一秀、加藤信介：揮発性有機化合物の化学反応等のモデリングとその数値予測に関する研究(その5) 気中でのOzone 反応速度定数の推定と数値予測、日本建築学会年次大会、2003 年9 月

[10] 安宅勇二、加藤信介、村上周三、朱清宇、伊藤一秀、横田知博：揮発性有機化合物の放散・吸脱着等のモデリングとその数値予測に関する研究(その36)

化学反応型パッシブ吸着建材の濃度低減効果に関する実験とCFD 解析、日本建築学会年次大会、2003 年9 月

[11] 横田知博、加藤信介、村上周三、安宅勇二、朱清宇：揮発性有機化合物の放散・吸脱着等のモデリングとその数値予測に関する研究(その37) パッシブ吸着建材による室内化学物質濃度の低に関する数値解析、日本建築学会年次大会、2003 年9 月

[12] 三浦靖弘、山口一、朱清宇、加藤信介：揮発性有機化合物の放散性状計測用大型チャンバー内の気流・拡散性状のCFD 解析(その1) チャンバー吹出し形状が汚染物質放散速度に与える影響の検討、日本建築学会年次大会、2003 年9 月

[13] 近藤靖史、阿部有希子、長澤康弘：CFDに基づく有効換気容積の算定法、日本建築学会年次大会、2003 年9 月

[14] 阿部有希子、近藤靖史、長澤康弘：CFDに基づく有効換気容積の算定法および適用例、空気調和衛生工学会年次大会、2003年