

天然素材による室内空気汚染の改善

佐賀栄一郎¹ 加藤宏² 吉本国春³

¹学生会員 東洋大学大学院博士前期課程 (〒350-8585 埼玉県川越市鶴井2100)

²非会員 東洋大学工学部環境建設学科 (〒350-8585 埼玉県川越市鶴井2100)

³正会員 工博 東洋大学教授 工学部環境建設学科(〒350-8585 埼玉県川越市鶴井2100)

新築、改築後の住宅などで発生しているシックハウス症候群は、建築材料や内装材からの化学物質の放散によるものであり、人体への影響が大きな社会問題となっている。ホルムアルデヒドやトルエン・キシレンを吸着・低減するためのボードやシートが建材メーカーなどで販売されているが、それらの製品にも少なからず化学薬品が使用されている。我々は室内の空気汚染の改善を目指して、そば殻などの天然素材を用いシックハウス症候群の原因となる物質を吸着する研究を行った。本研究の化学薬品としてはホルムアルデヒドを選定して実験を行った。その結果、実験を行った天然素材のなかで、そば殻の吸着能が大変良好であることが分かった。

Key Words: sick building syndrome, formaldehyde, toluene, VOC, adsorption material

1. はじめに

近年、シックハウス症候群が問題になっている。シックハウス症候群とは、住宅において、建材や接着剤に含まれるホルムアルデヒドやトルエン・キシレンなどのVOC(揮発性有機化合物等)が原因となり、眼や喉の痛み、頭痛、吐き気などの症状が出るものである^{1), 2)}。

こうした化学物質の中でも厚生労働省が優先的取り組みの対象とした物質がホルムアルデヒドである。ホルムアルデヒドは、無色で鼻にツンとする刺激臭のある気体であり、ごく微量でも感知される。高濃度では人体に様々な急性の障害を引き起こすが、低濃度では人によってシックハウス症候群を引き起こす。また2003年に実施された室内化学物質の実態調査においても、厚生労働省の指針値を超えた住宅の割合を調査したところ、キシレンが0.13%、トルエンが12.3%であったのに対し、ホルムアルデヒドは27.3%と極めて高い値を示している。したがって我々は研究対象物質をホルムアルデヒドに絞ることにした。

なお、ホルムアルデヒドは安価なこともあり、フェノール樹脂、メラミン樹脂、ユリア樹脂などの樹脂、接着剤、塗料、さらにはホルマリン漬標本などに代表される防腐・殺菌剤など広範囲に使用されている。

本報告ではホルムアルデヒドを吸着する素材として様々な天然素材を用い、吸着能の把握を目的として基礎的な研究を行ったものである。気相中の対象物質の分析

は、簡単かつスピーディーで比較的正確な測定ができる検知管を用いて行った。その結果、いくつかの知見が得られたことから、ここに報告するものである。

2. 実験法

(1) 実験容器^{3), 4)}

実験条件を一定に保つことのできる実験容器として、容器内のホルムアルデヒドの漏れを防止でき、かつホルムアルデヒドを出来るだけ吸着しない材質が望ましい。このために図-1に示す100容のポリエチレン製タンクを用いた。この容器の蓋に、ポリエチレン製の2本のパイプを通した。

ここで、容器内のホルムアルデヒド濃度を測定する検知管吸引用のパイプを実験容器の上部に設置したのは、これまでの実験の結果⁵⁾から吸引位置はどこでもあまり差異が認められなかったからである。ホルムアルデヒドの分子量(30)と空気の仮想分子量(29)がほとんど同じなのが、その理由と考えられる。

- ・容器内のホルムアルデヒド濃度を測定する検知管の吸引用のパイプ(吸引側にゴム管を接続)
- ・圧力調整パイプ
(容器内のパイプの先端に容量20程度の高密度ポリエチレン袋を1個接続)

(2) 実験法

実験法は次の通りである。

- ①実験容器内のホルムアルデヒド濃度が設定値となるよう、ホルムアルデヒド試薬瓶から必要量をマイクロシリングで分取し、シャーレに垂らす。

なお、ホルムアルデヒドの気相中濃度は次の式で表される。

$$PM = (\mu\text{g}/\text{m}^3) \times 22.4/M \times (273+T) / T \times 1013/P \times 1/1000$$

ここで、M：ホルムアルデヒドの分子量（=30.0）

T：測定時の絶対温度（K）

P：測定箇所の気圧（hPa）

- ②シャーレを実験容器に素早く入れる。

- ③同様にシャーレに入れた試験片（吸着材）を実験容器に素早く入れて蓋をする。

- ④実験容器を20℃の恒温室に入る。

- ⑤設定時間ごとに検知管でホルムアルデヒド濃度を測定する。

（3）分析法

実験容器内のホルムアルデヒド濃度の分析は、株ガステックの検知管⁶⁾を用いて行った。使用した検知管は次の3種類である。

・No. 91 : 2~20ppm

1回の測定につき 200mlの気体を吸引

・No. 91L : 0.1~5.0ppm

1回の測定につき 500mlの気体を吸引

・No. 91LL : 0.05~1.0ppm

1回の測定につき 500mlの気体を吸引

3. 実験

（1）実験容器の確認およびホルムアルデヒドの設定濃度と吸着材

a) 実験容器の確認

実験容器とその蓋のパッキン、圧力調整用の高密度ポリエチレン袋、さらには測定用ゴム管がホルムアルデヒドを吸着しないかどうかの確認を行った。その結果、ホルムアルデヒドを吸着するなどの大きな問題点が認められないことから、実験容器として使用できることを確認した。

b) ホルムアルデヒドの設定濃度

実験容器内のホルムアルデヒド濃度を厚生労働省の指針値の0.08ppm、10倍の0.8ppm程度の低濃度の下で実験を行うと、吸着材のホルムアルデヒドの吸着能のばらつき、また吸着の優劣や特徴などを比較検討することが困難であることから、本実験においてはホルムアルデヒドの初期設定濃度として18ppmとした。この濃度は実験条件の設定が容易なことと、No. 91 検知管の上限の測定値が20ppmであることが理由としてあげられる。

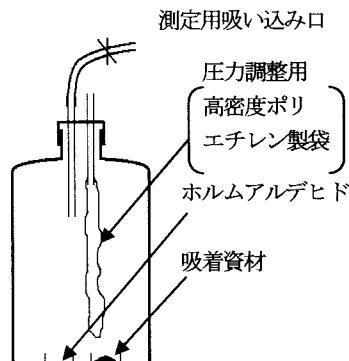


図-1 実験容器の概要

c) 吸着材の選定

ここで使用した天然素材の特徴などの概要は次の通りである。

・そば殻

猪苗代産のそば殻で2004年秋に収穫したものを使用した。そば殻は、一般的に消臭、除湿、抗酸化作用があり、枕などの詰め物として利用されている。

・桧(鋸屑を適用)

桧は、アンモニア臭や腐敗臭、タバコの臭いなどの不快な臭いに対し、防臭やマスキングで威力を発揮する。桧の香りはストレスによって表れる精神的発汗を抑える効果があり、ダニ等の繁殖を抑え、「ヒノキチオール」という成分が、黄色ブドウ球菌・大腸菌・肺炎桿菌等に対して抗菌効果を発揮する。また、カビ類に対しても強い抗菌性を発揮する。（アンモニア・二酸化硫黄等の臭いに対しても桧の精油が消臭効果を示す。）

・杉(鋸屑を適用)

ミネラル分（カリウム、カルシウム、鉄分など）を多く含有する杉は、アンモニア、アセトアルデヒトなどの悪臭の消臭力に優れており、除菌・消臭効果を発揮して室内環境を清浄に保つ。

・腐植土

大学構内の樹木の根本の腐植土を実験に適用した。なお、腐植土とは朽木や落ち葉などがバクテリアなどの微生物により分解され土状になったものである。腐葉土（ふようど）ともいう。長い月日をかけて自然が作り出す天然の肥料で、植物の栽培や昆虫の飼育などに適した土である。

（2）実験の種類

選定した天然素材について、次の3種類の実験を行った。

a) 吸着実験

実験開始2時間後の実験容器内のホルムアルデヒド濃度の測定値を基準値として、24時間、48時間、72時間後の濃度を測定した。

なお、吸着実験では、ホルムアルデヒド(シャーレに垂らした $6\mu\text{l}$ のホルムアルデヒド)が実験容器内で完全に気化するまでの時間を出発時間(基準値)とした。このためにホルムアルデヒド溶液を着色し、完全に気化するまでの時間を測定して、2時間あれば十分なことを確認した。

次に検知管によるホルムアルデヒド濃度の測定に際して、容器内の気体を1回につき 200ml もしくは 500ml 吸引する必要がある。したがって容器内のホルムアルデヒド濃度を経時的に測定する場合は、容器の有効体積が減少していくことになるので(容器内の圧力調整用高密度ポリエチレン袋が測定毎に膨張)、得られる測定値はその分だけ小さな値を示すことになるが、最大でも10%未満であることから、有効体積の減少分に係る補正是行わないことにした。

b) 繰り返し実験

初期設定条件が同一のホルムアルデヒド濃度下で、ホルムアルデヒドの吸着・分解が認められなくなるまで何回繰り返して使用できるかの実験を行った。

具体的には、24時間の吸着実験が終了すると、同じ条件の実験容器に試験片の入ったシャーレごと直ちに移す。そして24時間後のホルムアルデヒド濃度を測定する。以上の操作を必要回数(日数)繰り返して行う。

c) 再放散実験

一度吸着したホルムアルデヒドが放散されないかどうかの実験を行った。実験法としては、24時間の吸着実験が終了すると、ホルムアルデヒド濃度がゼロの別の実験容器に吸着材の入ったシャーレごと直ちに移す。そして24時間後と48時間後の2回、ホルムアルデヒド濃度を測定し、再放散の有無を把握した。

(3) 実験結果と考察

a) 吸着実験

実験対象の天然素材 2 g を対象にして吸着実験を行った結果を図-2に示す。図-2によると、桧と杉の鋸屑は、似たような吸着傾向を示した。24時間後には 1 ppm を下回ったが、48時間、72時間後の濃度低下は緩やかであった。

そば殻は、24時間後に 0.1 ppm 、48時間後に 0.05 ppm 、さらに72時間後ではほとんどゼロの値(定量下限値の 0.05 ppm 以下)を示した。

腐植土も高い吸着能を有しており、桧と杉の鋸屑よりも良好な吸着能を示したが、そば殻よりは良くない結果であった。

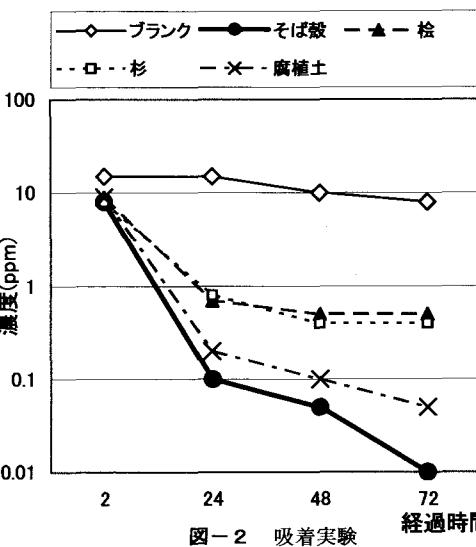


図-2 吸着実験

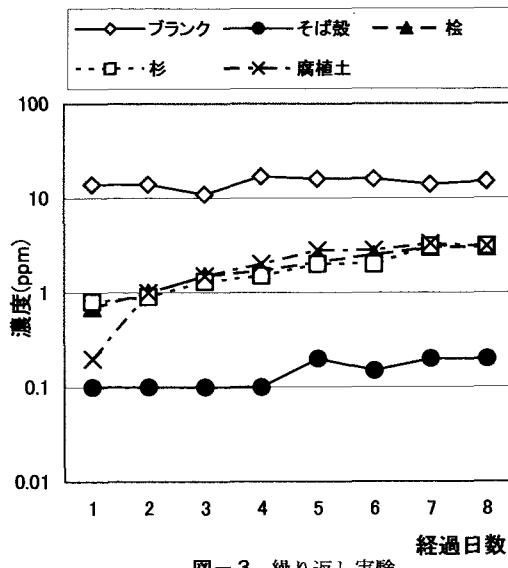


図-3 繰り返し実験

以上の実験結果から、吸着実験においては、そば殻の吸着能の良好なことが分かった。

b) 繰り返し実験

繰り返し実験の結果を図-3に示す。図-3によると、そば殻の良好な吸着能が認められる。また1日目こそ腐植土は桧や杉の鋸屑と比較して良好な吸着能を示している。しかし、2日目以降となると、これら3資材の吸着能はほとんど同じである。8日目(8回)になると、いずれも 2 ppm を超えたことから、繰り返し実験を終了した。

8日間(8回)の実験結果によると、8日目までの吸着効果は、そば殻、桧(鋸屑)、杉(鋸屑)、腐植土、それ

ぞれ99%, 80%, 79%, 79%であった。したがって、実験を行った資材の中では、そば殻の吸着能の良好なことが分かった。

そば殻は、4日目まで0.1 ppm、その後もわずかに増加して8日目には0.2 ppmに達した。実験結果が良好なことから、実験を継続した。9日目以降の結果を図-4に示す。図-4によると、ホルムアルデヒド濃度は9日目の0.2 ppmから緩やかに増加し、19日目になって0.5 ppm、22日目には0.7 ppmという値を示していた。この実験において、8回目までのプランクの平均値13 ppmという値を採用し吸着率を算出した。結果を同じく図-4に示す。吸着率は22日目で94.6%という良好な結果であった。

以上の実験結果から、繰り返し実験においても、そば殻の優れていることが分かった。

c) 再放散実験

再放散実験の結果を図-5に示す。図-5から分かるように、24時間と48時間後において、そば殻のホルムアルデヒド濃度は定量下限以下(0.05 ppm)であり、ホルムアルデヒドの吐き出しが認められなかった。桧の鋸屑と腐植土からはホルムアルデヒドの吐き出しが確認され、腐植土では24時間後に0.15 ppm、48時間後でも同じ濃度の0.15 ppmであった。桧の鋸屑からは、24時間後で0.5 ppm、48時間後の濃度変化は認められなかった。

以上の実験結果から、再放散実験においてもそば殻が優れており、桧の鋸屑は再放散量が比較的多いことが認められた。

4. まとめと今後の課題

(1) まとめ

比較的簡単な実験装置と、ホルムアルデヒドの濃度測定に検知管を用いることによって、天然素材の吸着能の把握と素材間の比較検討を比較的短時間で行うことができ、次のことが分かった。

- ①吸着実験においては、実験を行ったそば殻、桧の鋸屑、杉の鋸屑、腐植土のすべてに効果が認められたが、吸着効果が最も良好であったのはそば殻である。桧の鋸屑と杉の鋸屑は同じような吸着傾向を示し、吸着能はそれほど高くはない。腐植土は一定期間を経過すると吸着能の低下が認められた。
- ②繰り返し実験においてそば殻は、桧の鋸屑、杉の鋸屑、腐植土と比較して高い吸着能を持ち、さらには吸着能の持続性も良好であることが分かった。杉の鋸屑と桧の鋸屑は同じような吸着傾向を示し、吸着能はそれほど高くはない。
- ③再放散実験では、そば殻のみについて再放散が認められなかった。なお、桧の鋸屑の再放散量の大きいことが分かった。

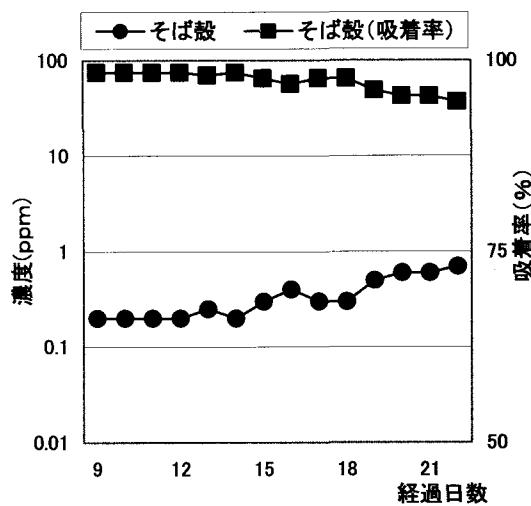


図-4 そば殻 繰り返し実験

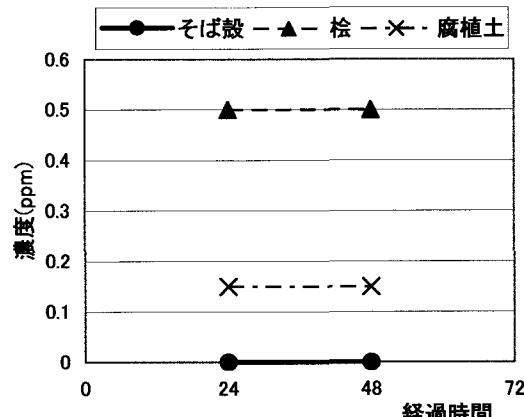


図-5 再放散実験

(2) 今後の課題

- ①ホルムアルデヒド濃度を18 ppmに設定した実験を行い、そのときのプランク値は10~17 ppm程度の値であった。今後は、この差を出来る限り少なくした実験を追求する必要がある。
- ②ホルムアルデヒドの室内濃度指針値が0.08 ppmであることから、この値に近い濃度で実験を実施する必要がある。
- ③実験対象資材の粒度や形状によっては吸着能に大きな差違が認められることから、今後は資材を細分化するなどの実験が必要である。

最後に、本研究は文部科学省・私立大学学術研究高度化推進事業「東洋大学地域産業共生研究センター」(平成

16年度～平成20年度)の一部として行われたものである。

参考文献

- ①日本建築学会編：シックハウス対策のバイブル，彰国社（2003.）
- ②多田治：労働科学叢書25，有害物管理のための測定法第2部，労働科学研究所（1968.7）
- ③JIS使い方シリーズ：シックハウス対策に役立つ小型チャンバー－法（解説）（JIS A1901），日本規格協会（2003.4）
- ④JIS A1901 : 2003 : 建築材料の揮発性有機化合物（VOC），ホルムアルデヒド及び他のカルボニル化合物放散測定法－小型チャンバー法
- ⑤山口健二，粕谷宜央，赤津麻衣，吉本国春：ホルムアルデヒド吸着資材の性能評価に関する基礎的研究，第32回環境システム研究論文発表会講演集，土木学会，p. 419～p. 423 (2004.)
- ⑥ガステック Handbook Vol. 4, (株) ガステック (2002)

BASIC RESEARCH ON PERFORMANCE IMPROVEMENT OF INDOOR AIR POLLUTION BY USING NATURAL MATERIALS

Eiichiro SAGA and Kuniharu YOSHIMOTO

The sick building syndrome, which occurs in newly built or renovated houses, is caused by the radiation of chemical materials from an architectural material or an interior material. Due to its influence on health, it comes to be a great public concern. Although construction manufacturers are selling seats to adsorb and to decrease VOC such as formaldehyde, toluene and xylene, certain amount of chemical medicine is also used for those products. The research was conducted using natural materials such as buckwheat chaffs with an aim to adsorb chemical materials. Formaldehyde was selected as an object chemical material of the research. As a result of the experiment, it has been admitted that the adsorption performance of buckwheat chaffs is excellent.