化学物質に起因する室内空気汚染の対策技術に関する研究

—空気清浄機による室内ホルムアルデヒドの除去—

STUDY ON CONTROL STRATEGIES OVER INDOOR AIR POLLUTION
OF HARMFUL CHEMICAL SUBSTANCES

—Removal techniques of gaseous formaldehyde by air cleaners—

小座野 貴弘*, 関根 嘉香**, 末永義明***, 小峯裕己****

Takahiro OZANO, Yoshika SEKINE, Yoshiaki SUENAGA
and Hiromi KOMINE

The purpose of this study is to evaluate effects of air cleaners on indoor air concentrations of formaldehyde (HCHO) in air-tight houses. We developed air-cleaning devices with honeycomb type filters made of transition metal oxides, which can decompose HCHO into carbon dioxide even at ordinary room temperature. In many cases, observed concentrations of HCHO exceeded 0.1mg/m³ (WHO guideline) in newly-constructed houses.

The device effectively reduced the initial HCHO concentration in a closed room and suppressed an increase of the concentration after temporal air exchange by opening windows.

Keywords: indoor air pollution, formaldehyde, mitigation, removal, air cleaner

室内空気汚染, ホルムアルデヒド, 低減対策, 分解除去, 空気清浄機

1. はじめに

近年、ホルムアルデヒドや揮発性有機化合物に代表される化学物質による室内の空気汚染が大きな社会問題になっている。しかし、これら化学物質は、以前より製品の製造・加工過程で使用されているものであり、新しく出現したものでもない。住宅の様式・構造の変化や生活スタイルの変化などが相まって、健康に対する居住者の意識の高まりとともに顕在化したと考えられる。

特に、現在生活環境において最も問題視されている室内空気汚染物質であるホルムアルデヒドは、人の目や気道に対して刺激性を有する無色のガスで、人への発ガン性が疑われている有害な物質である¹⁾。主な発生源は、合板類、壁紙用接着剤などの建築材料、家具類、及び、石油ストーブなどの開放型燃焼器具といわれている²⁾。

建材から放散するホルムアルデヒドに対しては、日本工業規格(JIS)、及び、日本農林規格(JAS)で材料規格が定められているが、建材の使用量、材齢、温度、湿度等の要因によって放散量が異なるため、新築、リフォーム直後、あるいは夏季の高温多湿の住宅室内で高濃度のホルムアルデヒドが検出されることがある。ホルムアルデヒドの臭気閾値は、おおよそ0.05ppm～0.06ppmとされており¹⁾、室内汚染の状況は臭気としても知覚できる。

一般の住宅においてこのような有害なホルムアルデヒドが頻繁に

検知されることから、国をあげての緊急課題として各方面で研究がなされ始めており、住宅産業界においてもその対策に乗り出し始めたのが現状である。

ところで、住宅におけるホルムアルデヒドによる汚染を防止するには、例えば、(a)発生源を除去する、(b)換気量を増やす、(c)空気清浄機や除去材を利用するなどの方法が考えられる。(a)に関してはホルムアルデヒドの放散量が少ない建材が開発されつつあるが、性能・コスト面で課題が多い。また、居住者の努力だけでは解決が困難である。(b)は冷暖房効率との関係、風雨の影響により充分に換気量が得られない場合がある。また、大気汚染の深刻な大都市圏の沿道では、換気によって別の汚染物質が侵入してくる可能性がある⁴⁾。

一方、室内をある期間加熱して汚染物質を強制的に蒸発させてしまうベーク・アウトと呼ばれる手法は、溶剤系の成分には一定の効果が認められるが、接着剤に由来するホルムアルデヒドに対しては効果が少ないといわれる⁵⁾。

したがって、現状では、これら対策技術の欠点を補う手段として(c)の空気清浄機や分解除去材の利用が効果的と考えられる。

そこで、本研究では、ホルムアルデヒドの除去が可能なフィルターとそのフィルターを組み込んだ空気清浄機を試作し、その効果について検証した。なお、ホルムアルデヒドのように、厚生省から

* 五洋建設技術研究所 工修

** 東海大学理学部化学科 理博

*** 五洋建設建築設計部 工修

**** 千葉工業大学工学部建築学科 教授・工博

Penta-Ocean Construction Institute of Technology, M. Eng.
Dept. of Chemistry, Faculty of Science, Tokai University, Ph. D.
Penta-Ocean Construction Architectural Design Dept., M. Eng.
Prof., Dept. of Architecture, Faculty of Engineering, Chiba Institute of Technology,
Dr. Eng.

指針値が示されているようなものに対しては、その除去能力を把握しておく必要がある。そのため、その目安となる実住宅の室内ホルムアルデヒド濃度を調査した。

本報では、実住宅におけるホルムアルデヒドによる汚染の実態調査と、ホルムアルデヒド除去を目的に開発した空気清浄機の概要とその効果について報告する。

2. ホルムアルデヒド汚染実態調査

2.1 汚染実態の把握

空気清浄機を用いて室内ホルムアルデヒド濃度を低減するにあたり、除去能力を設定するために居室の濃度レベルを把握しておく必要がある。そこで、実住宅を対象とした居室内のホルムアルデヒド濃度について調査した。

札幌とその近郊、関東、関西、信州地域を中心に戸建て住宅 92、集合住宅 150 合わせて 242 ケースについて室内のホルムアルデヒド濃度を測定した。

測定には、島津製作所製の S I L S E T、光明理化学工業製の検知管 710 型、及び、DNPH 含浸カートリッジー高速液体クロマトグラフィー法⁶⁾を用いた。各測定法による濃度値を別途クロスチェックした結果、有意差は認められなかった。

表 1 に調査対象とした住宅の概略を示す。対象住宅は、住宅の規模や築年数、使用建材、測定時期等がさまざまである。また、対象住宅によって、測定を複数回行ったものもある。測定場所は居間とした。住宅訪問約 30 分後に開口部等を閉鎖した状態で室内濃度測定を行った。ただし、居住者のいる住宅では、測定前の窓の開放等の有無については把握できていないものもあったが、概ね閉鎖時の濃度を測定できたと考える。

図 1、2 に調査結果を示す。室内のホルムアルデヒド濃度は、使用される建材の種類・量、住宅の容積、換気量、温度・湿度などの気象条件の影響を受けると考えられるが、横軸に室内温度を縦軸に濃度をとってグラフをかくと、正の相関がみられた。調査対象のうち、ホルムアルデヒド対策建材を使用して建てられた戸建て住宅で竣工後 1 年程度経過した住宅における測定結果に着目したところ、3 月の測定では 0.08 mg/m^3 (室温 18.3°C)、7 月の測定では 0.18 mg/m^3 (室温 29.3°C) であった。なお、両測定時の室内外温度差の差は $6\sim 7^\circ\text{C}$ 程度であった。また、図 1 において室内濃度が 0.4 mg/m^3 に近い住宅は、冬季の測定時では $0.06\sim 0.15 \text{ mg/m}^3$ 程度であった。居

図 1 室内のホルムアルデヒド濃度（戸建て住宅）

図 2 室内のホルムアルデヒド濃度（集合住宅）

住状態では、室内外温度差が冬季の方が大きく、また、一般的に外部風も冬季の方が強いので、冬季における漏気を含む換気量は夏季の漏気を含む換気量より多いと考えられる。しかし、既往の研究⁷⁾によれば、換気量が 2 倍以上増加することは考えにくいので、夏季

表 1 調査対象住宅の概要

戸建て住宅		測定戸数	築年数	床面積	換気システム設置	対策建材使用
測定地域	測定時期					
北海道	1997.11~1998.1	29戸	1ヶ月~30年 (築2年以上8件)	94~289m ²	18戸	6戸
北海道	1998.7~1998.9	9戸	1ヶ月~8年 (築1年以上1件)	91~198m ²	8戸	3戸
信州	1998.3~1998.11	10戸	1ヶ月~2年	114~239m ²	8戸	2戸
集合住宅						
北海道	1997.11~1998.1	11戸	1ヶ月~1年6ヶ月	67~91m ²	11戸	0戸
北海道	1998.7~1998.9	3戸	9ヶ月~1年1ヶ月	85~91m ²	3戸	0戸
東京	1997.8~1998.11	32戸	0ヶ月~6ヶ月	63~106m ²	0戸	11戸
千葉	1997.1	4戸	0ヶ月	84~85m ²	0戸	0戸
栃木	1998.2~9	4戸	1ヶ月~6ヶ月 (改装した独身寮舎)	15~59m ²	0戸	3戸
埼玉	1998.7	3戸	0ヶ月	78m ²	0戸	3戸
神奈川	1998.8	5戸	1ヶ月~1年	80~85m ²	0戸	0戸
大阪	1998.2	7戸	1ヶ月	79m ²	0戸	7戸

と冬季における室内濃度が2倍程度異なる主たる理由として、漏気を含む換気量以外の要因と考えるべきであろう。

図2において夏季の室内濃度が 0.7 mg/m^3 を超えている住戸は、室内の仕上げ工事が終了してから1年経過した非入居の住戸である。内装は壁装にノンホルムのものを用いているが、床のフローリングなどにはホルムアルデヒド対策建材を使用していない。また、壁装、及び、床材等にホルムアルデヒド対策建材が用いられている場合でも、夏季の測定では 0.3 mg/m^3 を超える住宅が見られた。

以上の結果から、室内濃度は、温度に依存性が高く、ホルムアルデヒド対策建材を用いていても、WHOの濃度指針値 0.1 mg/m^3 を上回ることがある。建材の仕様により室内濃度の上限は一意的に定まるものではないと考えられ、現状では、建材のみでは対策は十分ではないと考えられる。

2.2 室内のホルムアルデヒドの濃度変化

一般に、窓を開けて換気を行うことは室内濃度の低減に有効と考えられる。しかし、空調などのために常時窓を開けていることは困難であり、間欠的に窓を開けることが妥当な対策と考えられる。そこで、窓開けによる換気を行った場合の室内の濃度変化をみた。

まず、図3は、埼玉県内の竣工間近い新築集合住宅（11階建て、計39戸）の同じ住戸タイプ2住戸（901号室、1001号室）の居間において、前日より開口部を閉め切った状態で室内濃度（初期濃度と称する）を測定した後に、約30分間換気を行い、室内を再度閉め切りとした状態でのホルムアルデヒド濃度の経時変化である。測定時期は1998年7月である。各住戸の床はF1仕様のフローリングの直貼り、壁・天井の壁紙、及び、貼付用の糊はノンホルム仕様のものを使用している。

901号室の測定中の温度は約 26°C 、湿度約63%で、1001号室の温度は約 24°C 、湿度約66%であった。室内のホルムアルデヒド濃度は、時間経過とともに上昇するものの、閉鎖2時間後には濃度上昇の変化は小さくなり、徐々に初期濃度に近づいている。1001号室も901号室同様の動きを示した。5時間目に濃度の上昇がみられるが、測定対象の集合住宅は、竣工直前で作業等者の出入りや補修工事など、室内濃度に影響を及ぼす人的要因があったと考えられる。

次に、図4は、神奈川県内の竣工間近い新築集合住宅（3階建て14棟、計180戸）の同じ住戸タイプ（213号室、214号室）の居間において、埼玉での調査と同様の方法でホルムアルデヒド濃度を測定した結果である。測定時期は1998年8月である。各住戸の床はF2仕様のフローリングの直貼り、壁・天井の壁紙及び貼付用の糊はノンホルム仕様のものを使用している。

213号室の測定中の温度は約 30°C 、湿度約85%、214号室の温度は約 30°C 、湿度約75%であった。埼玉での結果同様、開口部閉鎖2時間後には濃度上昇の変化は小さくなり、徐々に初期濃度に近づいた。214号室も213号室同様、時間経過とともに上昇し、4時間目以降も濃度上昇が認められた。この測定対象の集合住宅も、埼玉での測定同様、竣工直前であったため、同様の人的要因があったと考えられる。

上述の結果から判断すると、窓開けによる自然換気により一時的には室内は低濃度になるが、再び室内を閉鎖すると、5時間程度でもとの濃度になる。窓開けを間欠的に行う換気では、一時的な効果しかないことがわかった。やはり、空気清浄機による積極的な除去

図3 密閉時の室内の濃度変化

図4 密閉時の室内の濃度変化

表2 ホルムアルデヒド除去フィルターの例

	フィルター サイズ (mm)	構 造	除去材成分
開発した フィルター	300×300×25	ハニカム	金属酸化物
A	300×320×16	シート	キトサン
B	310×450×25	ハニカム	活性炭に化学物質を添着
C	300×100×10	光触媒	ゼオライトに酸化チタンを コーティング
D	300×300×26	シート	過マンガン酸カリウムと 活性炭の混合
E	441×600×145 (4段～12段)	ボックス	活性アルミナに過マンガン酸 カリウムを添着

対策が必要になると考える。

3. 空気清浄機の検討

表2に市販のホルムアルデヒド除去フィルターの例を示す。A～Cは市販空気清浄機用、Dは住宅用ホルムアルデヒド除去装置、Eは病院等に用いられる空調設備用フィルターである。

ホルムアルデヒドを対象とした市販の清浄装置用フィルターには、活性炭に薬剤を添着したもの、酸化チタンの光触媒効果によるものがある。活性炭はベンゼンやトルエンなどの疎水性物質について高い物理吸着能を示すが、極性物質であるホルムアルデヒドに対して吸着力が弱い。そこで、活性炭などの担体上にホルムアルデヒドと反応する薬剤を含浸して、ホルムアルデヒドを反応させて固定

する化学吸着タイプのフィルターが開発されている。また、化学物質の分解除去では、分解された後の物質が重要であり、仮にホルムアルデヒドを分解できたとしても、発生した物質により二次汚染を引き起こす可能性がある。

フィルターの構造としては、ボックスタイプ、シート状、ハニカム構造がある。ボックスタイプは、顆粒状の吸着材を通気性のある箱に入れる構造で圧力損失が大きい。ハニカム構造は、吸着材を基材に添着したもので除去能力、圧力損失の両方に対し優れているといえる。除去フィルターの製作に当たっては、これらを加味する必要がある。

3.1 除去材の除去原理

本研究では、ホルムアルデヒドを選択的に分解する金属酸化物粒子を主成分とするハニカム状除去フィルターを用いた。図5に金属酸化物粒子がホルムアルデヒドを分解し、二酸化炭素を生成する様子を示す。金属酸化物粒子10gを弗化ビニール樹脂製バッグ（テドラー®バッグ、容積100ℓ）に入れて分散させ、520ppmのホルムアルデヒドガス94ℓを供給して密封し、21℃で静置した。バッグ内のホルムアルデヒド濃度、及び、二酸化炭素濃度を経時的に測定した結果、ホルムアルデヒド濃度の低下とともに二酸化炭素濃度が上昇した。24時間後に、次式で定義する二酸化炭素の収率を求めた結果、ほぼ100%であった。

$$\text{収率 (\%)} = \frac{\text{生成したCO}_2\text{量 (モル)}}{\text{除去されたHCHO量 (モル)}} \times 100$$

この結果から、金属酸化物粒子は室温でホルムアルデヒドと反応し、二酸化炭素にまで分解していることがわかった。

反応機構としては次のように一連の反応が想定される。式中Mは金属を表す。

この反応はホルムアルデヒドに対する酸化反応と考えられるが、気相中に中間体であるギ酸（HCOOH）の生成は認められなかった。

3.2 空気清浄機の仕様

試験機として2種類製作した。

(1) 試験機A型

装置は実際の建物に持ち込み、ホルムアルデヒドの除去能力を把握することを目的とし、移動可能な構造とした。装置は前面から室内空気を吸い込み、フィルターによりホルムアルデヒドを除去した後に、上方向に吹き出す構造になっている。表3、図6に装置の概要を示す。除去能力を制御するために運転風量はインバータにより、150～358m³/h（50Hz）の範囲で連続的に調節可能である。なお、後述の実験室実験において200m³/hの風量で最も大きな除去能力を示した。装置全体はアクリル板で作られており、機器内部のトラブルを目視で確認できる構造となっている。

装置に設置したフィルターは、プレフィルター（ポリエステル製不織布、サイズ：300×300×5mm）、ホルムアルデヒド分解除去フィルター（サイズ：300×300×25mm）、HEPA（High Efficiency Particulate Air）フィルター（サイズ：300×300×50mm）

図5 金属酸化物によるホルムアルデヒドの分解除去

表3 試験機の概要

	試験機A型	試験機B型
除去方式	フィルター方式	フィルター方式
粒子除去フィルター	HEPAフィルター	不織布フィルター
ホルムアルデヒド除去フィルター	金属酸化物によるハニカム構造フィルター	金属酸化物によるハニカム構造フィルター
風量	150m³/h～358m³/h (50Hz)	60・90・120m³/h (50Hz)
寸法	H452×W391×D320	H376×W425×D139
重量	18.9kg	4.6kg

図6 試験機（A型）外観

の3枚構成とした。プレフィルターは室内空気の吸い込み側に設置し、空気中の粗じんを除去する。ホルムアルデヒドは分解除去フィルターで除去される。また、HEPAフィルターは0.3ミクロンの

写真1 試験機 (B型) 外観

微粒子に対し99.97%の除去効果を持ち、微粒子に付着した化学物質ルターで除去される。また、HEPAフィルターは0.3ミクロンの微粒子に対し99.97%の除去効果を持ち、微粒子に付着した化学物質の除去を対象とした。ホルムアルデヒド除去フィルターは金属酸化物の微粒子をハニカム状担体に保持させたものである。フィルターは触媒の担持量、圧力損失の面を検討してハニカム構造とした。

(2) 試験機B型

表3、写真1に装置の概要を示す。この装置は、市販の空気清浄機と同程度の仕様にし軽量化をはかったもので、本体は、市販のものを用いて、それに適合するような除去フィルター（サイズ：300×240×25mm）を組み込んだものである。

4. 除去能力に関する実験室実験

4.1 除去フィルター

ホルムアルデヒド除去フィルターの能力を活性炭フィルターと比較するために流通式ワンパス試験を行った。

実験条件はガス発生装置を用いて、入口濃度を27ppm、通気流量を5ℓ/minとした。なお、入口濃度が高いのは、触媒フィルターでは起こり得ない、比較対象とする活性炭フィルターの破過を確認するための促進実験を行うためである。

図7に試験結果を示す。触媒フィルターでは、初期活性後に触媒による定常活性の状態が起こり、約50%の除去率が継続した。同じ条件で行った活性炭フィルターでは、ホルムアルデヒドの破過が起こり、時間経過とともに除去率の低下がみられた。

4.2 試験機

次に、住環境を想定した濃度での試験を行った。図8に示すように、実験室（気積20m³）に、ホルムアルデヒドの定量発生装置を置き、除去フィルターを組み込んだ試験機（A型）による除去効果を把握した。実験室は長さ4.49m、幅2.1m、高さ2.14mのステンレス張りの内装で試験時の自然換気回数で0.2回/hの気密性能を有する。ホルムアルデヒドガスの発生方法は文献⁸⁾にならい、発生量6mg/h一定、室温23℃の条件で、試験機運転時、及び、空試験（試験機を運転せず）の室内濃度の経時変化を測定した。

図9に試験結果を示す。空試験では実験開始4時間後に室内のホルムアルデヒド濃度は0.8mg/m³を超え、さらに、上昇傾向にあった。一方、試験機を運転した場合は、0.05mg/m³程度を維持した。

図7 流通式ワンパス試験の結果

図8 実大実験室における試験方法

図9 実大実験室における試験結果

室内の濃度 C は(1)式で表される。

$$C = \frac{M}{(N + N')V} \{1 - \exp(-(N + N')t)\} \quad (1)$$

C : 室内の HCHO 濃度 (mg/m³)、 M : HCHO 発生量 (mg/h)、
 N : 自然換気回数 (回/h)、 N' : 相当換気回数 (回/h)、
 V : 容積 (m³)、 t : 経過時間 (h)

空気清浄機による濃度の経時減衰効果を JIS A1406「屋内換気量測定方法（炭酸ガス法）」⁹⁾に則って処理して求めた値は、空気清浄機の清浄能力を換気による清浄能力に換算したものと考えられるので、ここでは、相当換気回数と呼ぶ。なお、漏気によっても濃度の自然減衰が認められるので、空気清浄機を運転したときの値 N_2 から停止時の値 N_1 を引いた値、つまり、 $N' = N_2 - N_1$ を空気清浄機の相当換気回数と定義する。図中の○は、発生量 $M = 6 \text{ mg/h}$ とした時の空試験 ($N' = 0$) における実測値であり、(1)式から計算される理論曲線（点線で示す）とよい一致を示した。このことから、発生量 M 、及び、室内濃度 C を測定すれば、(1)式より空気清浄機の相当換気回数 N' を求めることが可能である。そこで、試験機 A 型運転時の濃度変化（図中の○）に合うように、(1)式の N' に数値を代入して、試験機 A 型の相当換気回数 N' を求めた。その結果、 $N' = 5.4(\text{回/h})$ の相当換気回数を有することがわかった。同様に、試験機 B 型について試験した結果、 $N' = 3.0(\text{回/h})$ であった。また、相当換気回数は(2)式で表すことができ、ここから各機の単位時間あたりの相当換気量（＝除去効率×試験機の運転風量）を求めると、A 型で $108 \text{ m}^3/\text{h}$ 、B 型で $60 \text{ m}^3/\text{h}$ であった。

$$N' = \frac{\eta Q}{V} \quad (2) \quad \begin{array}{l} \eta: \text{除去効率}, Q: \text{運転風量}(\text{m}^3/\text{h}), \\ V: \text{容積}(\text{m}^3), N': \text{相当換気回数}(\text{回/h}) \end{array}$$

なお、A 型と B 型の性能の差はフィルターにあたる面風速や触媒重量当たりのホルムアルデヒドの負荷量などが異なるからである。

5. 実住宅での除去効果に関する実験

試作した空気清浄機を用いて新築の集合住宅を対象に、室内のホルムアルデヒドの除去効果を検証した。

5.1 5 時間密閉時からの濃度変化

(1) 実験対象住戸及び測定条件

表 4 に実験対象建物の概要を示す。住宅は千葉県内の竣工間近い新築集合住宅で、実験中も内外で外構工事、補修工事が行われていた。測定時期は 1997 年 10 月である。実験対象室は居間とした。測定点は室中央付近 1 点とし、高さは呼吸域となるような床上 110 cm とした。なお、室の初期濃度を測定する前の条件として、窓やドア等の開口部を 15 分間一斉開放した後、5 時間閉め切ってから測定を開始した。実験時の換気回数は 0.6 回/h であり、気密性能はさほど高くないと考えられた。

(2) 実験方法

実験は、隣り合った 2 住戸の片方の住戸の居間に試験機（A 型）を設置し、装置の運転に伴う、両住戸の濃度の経時変化をみる一対比較の方法をとった。なお、装置の運転風量は $200 \text{ m}^3/\text{h}$ とした。ホルムアルデヒド濃度の測定には島津製作所製の S I L S E T を用いた。

(3) 実験結果

表 5 に実験中の室内の温湿度の結果を示す。実験中の室内の温湿度に、大きな変動はみられなかった。

図 1 0、1 1 に住戸タイプ A、B でのそれぞれの濃度変化を示す。住戸タイプ A での装置運転開始前の両住戸の濃度は、A-1 住戸では 0.10 mg/m^3 、A-2 住戸 0.12 mg/m^3 で、A-1 住戸の濃度が少し高めであるもののほぼ同程度のレベルであった。装置の運転を開始して 1 時間後、A-2 住戸では、初期濃度に比べ約 0.06 mg/m^3 低下した。一方、

表 4 実験対象住戸の概要

所在地	千葉県市原市			
構造	鉄筋コンクリート造 5 階建て			
	住戸タイプ A		住戸タイプ B	
住戸名	A-1 住戸	A-2 住戸	B-1 住戸	B-2 住戸
階数	2 階	2 階	1 階	1 階
床面積	84 m^2	84 m^2	85 m^2	85 m^2
住戸容積	187 m^3	187 m^3	193 m^3	192 m^3
居間の容積	42 m^3	42 m^3	47 m^3	47 m^3
内装	床	カーペット	カーペット	カーペット
	壁	ビニルクロス	ビニルクロス	ビニルクロス
	天井	ビニルクロス	ビニルクロス	ビニルクロス

表 5 室内の温湿度

			経過時間 (時間)			
			0	1	2	3
住戸タイプ A	A-1 住戸	温度 (°C)	23	23	22.5	22.5
		湿度 (%)	57	58	60	61
	A-2 住戸	温度 (°C)	22.5	22.5	22.5	22.5
		湿度 (%)	59	59	60	60
住戸タイプ B	B-1 住戸	温度 (°C)	21.5	21.5	21	21
		湿度 (%)	66	67	69	70
	B-2 住戸	温度 (°C)	21	21	21	21
		湿度 (%)	66	67	69	70

図 1 0 住戸タイプ A での室内の濃度変化

図 1 1 住戸タイプ B での室内の濃度変化

装置を設置していなかったA-1住戸では濃度の低下はみられなかった。その後、装置を運転していたA-2住戸では徐々に濃度は下がっていった。一方、装置を設置していなかったA-1住戸でも濃度の低下がみられた。これは、実験中に外の風が徐々に強まっていったので換気量が増加したことが考えられる。ただし、両住戸の濃度を比較すると、装置を運転していた住戸では、設置していない住戸の濃度の半分以下になっていた。

住戸タイプBでの装置運転開始前の両住戸の濃度は、B-1住戸で0.16 mg/m³、B-2住戸0.14 mg/m³で、B-1住戸の濃度が少し高めであるもののほぼ同程度のレベルであった。装置の運転を開始して、1時間後、B-1住戸では、0.1 mg/m³であった。一方、装置を設置していなかったB-2住戸では濃度の低下はみられなかった。その後、装置を運転していたB-1住戸では濃度は低下していったが、運転開始3時間目の測定では、濃度が上昇した。装置を設置していなかったB-2住戸でも同様に濃度が上昇していることから、これは、住戸ベランダにて塗装の補修工事が行われていた影響と考えられる。両室の濃度を比較すると、運転していた住戸の濃度は、設置していなかった住戸の濃度の半分程度になり、住戸タイプBにおいても住戸タイプA同様、装置運転により濃度低減の効果がみられた。

5.2 15分換気・密閉後の濃度変化

(1) 実験対象住戸及び測定条件

表6に実験対象建物の概要を示す。住宅は神奈川県内の竣工間近い新築集合住宅で、実験中も補修工事が行われていた。測定時期は1998年8月である。実験対象室は居間とした。測定点は、室中央付近1点とし、高さは呼吸域となるような床上110 cmとした。なお、測定対象室は前日より開口部は閉め切りであった。実験時の換気回数は0.1～0.2回/日であり、気密性能は高いと考えられた。

(2) 実験方法

実験は、隣接した同タイプの住戸を使用し、片方の住戸に試験機(B型)を設置し、5.1節の実験同様、装置の運転に伴う、両住戸の濃度の経時変化をみる一対比較による方法をとった。ホルムアルデヒド濃度の測定は、島津製作所製のSILSETを使用した。なお、この実験では、装置を2台運転した。

(3) 実験結果

表7に実験中の室内の温湿度の結果を示す。また、図12に実験1日目の両住戸の濃度の経時変化を示す。開口部閉鎖1時間後では、214号室で0.15 mg/m³、213号室で0.13 mg/m³で濃度に大きな差はみられなかった。その後、装置を設置していなかった214号室では、時間の経過とともに上昇がみられた。一方、装置を運転していた213号室では、濃度上昇がみられなかった。5時間後の濃度は設置していなかった214号室の半分程度になった。

図13に実験2日目の両住戸の濃度の経時変化を示す。なお、1日目の終了後、窓開け換気を行い、その後部屋を閉め切った状態で1日あいたをおいている。装置を設置していなかった213号室では、閉鎖後、時間の経過とともに濃度は上昇していった。しかし、その上昇率は時間経過とともに小さくなり、4時間後には平衡になった。一方、装置を運転していた214号室では、閉鎖後1時間目の濃度は0.17 mg/m³であったが、その後の濃度はあまり上昇がみられず、平衡状態を保ち、5時間目の計測では0.19 mg/m³で、装置を設置していなかった213号室の室内濃度の約65%であった。

表6 実験対象住戸の概要

所在地	神奈川県鎌倉市	
構造	鉄筋コンクリート造3階建て	
部屋名	213室	214室
階数	2階	
床面積	80m ²	
住戸容積	197m ³	
居間の容積	41m ³	
内 床	フローリング	
壁	ビニルクロス	
装 天井	ビニルクロス	

表7 室内の温湿度

			経過時間(時間)						
			0	1	2	3	4	5	
1日目	213号室	温度(℃)	28	30	30.5	30	31	30	
		湿度(%)	74	74	75	68	77	83	
	214号室	温度(℃)	28	30.5	30.5	30.5	30	30	
		湿度(%)	74	71	75	75	78	78	
2日目	213号室	温度(℃)	30	30	30	30	30	30	
		湿度(%)	74	84	84	84	86	84	
	214号室	温度(℃)	30.5	30	30	30	30	30.5	
		湿度(%)	81	84	84	84	84	86	

図12 実験1日目の両室内の濃度変化

図13 実験2日目の両室内の濃度変化

5.3 考察

上述の実験結果から、試作した空気清浄機は室内のホルムアルデヒド濃度の低減に効果があることがわかった。ただし、5時間密閉時からの運転実験と、換気・閉鎖直後からの運転実験、両実験での空気清浄機の設置効果の表れ方に違いがみられた。前者の実験では、初期濃度に対して、運転後の濃度は50%程度になっているが、後者の実験では、65%程度になった。この原因としては、両者では建材からの発生量に違いがあると考えられる。

千葉県における実験対象住戸のように、気密性能がさほど高くない住戸では、漏気を含む比較的多量の自然換気により室内に放散したホルムアルデヒドは速やかに除去されて比較的短時間で平衡濃度（それも低濃度）に達しており、それに伴って放散量もほぼ一定値を保っていると考えられる。このような状況で空気清浄機を運転した場合には、室内濃度が短時間で低減すると考えられる。

一方、神奈川県における実験対象住戸のように、気密性能が高い住戸の場合、漏気を含む自然換気量が少ないので、相対的に長時間を要して高い平衡濃度に達している。建材表面近傍の濃度が高濃度であるため、室内濃度との濃度勾配が小さくなり、建材からのガス放散が抑制され見かけ上、発生が止まったように見える。このような状況で空気清浄機を運転すると、室内濃度が低減するとともに、建材表面近傍の濃度勾配が出現するので、再び建材からの放散が促進されることになる。このため、空気清浄機を運転しても発生量が増加するため、室内濃度の低減が小さかったと考えられる。

したがって、高气密住宅では、空気清浄機の効果を予測する際に前述の(1)式のような建材からのホルムアルデヒド発生量を一定とする濃度予測式の適用は困難であると考えられる。今回の実験結果をもとに高气密住宅における効果予測式を検討し、WHOの濃度指針値である 0.1 mg/m^3 をクリアするのに必要な空気清浄機の除去能力を設計したい。一方、清浄機を運転することにより建材からの発生量を高めることになるため、建材からのホルムアルデヒドの排出を早める効果が期待できると考える。今後、さらに検討を進めたい。

6. まとめ

本研究では、住宅室内におけるホルムアルデヒドによる空気汚染対策のため、調査・実験を行い、以下の知見を得た。

- 1) 住宅室内のホルムアルデヒド濃度の計測調査を実施した結果、調査対象の多くで、WHOの濃度指針値である 0.1 mg/m^3 を上回っていた。ホルムアルデヒドの放散量の少ない仕様の建材を使用している住宅においてもこの値を上回るものもあり、建材の仕様により濃度の上限値が定まるとはいえない。

- 2) ホルムアルデヒドを吸着・分解により除去が可能なフィルターと、それを組み込んだ空気清浄機を試作し、その除去効果について実験室、及び、実際の新築集合住宅において効果を検証した。その結果、室内のホルムアルデヒド濃度を低減できることを確認した。

今後は、空調・換気システムへの適用に向けた性能検証、室内汚染レベルに応じた除去能力の算定等をはかっていきたい。

注

本論文は、参考文献10)～12)を加筆・修正しまとめたものである。

謝辞

本研究は、平成9、10年度通商産業省「室内環境汚染対策調査」の一環として行ったものである。調査・研究にご協力頂いた関係者の方々に心より感謝の意を表します。

参考文献

- 1) 松村年郎，安藤正典：有害化学物質による室内空気汚染とヒトへの曝露影響，資源環境対策 Vol.31, pp.15-22, 1995
- 2) U.S. EPA, Office of Air and Radiation: Introduction to Indoor Air Quality, A Reference Manual, EPA/400/3-91/003, Section 7, U.S. Government Printing Office, Washington D.C., 1991
- 3) WHO: IARC monographs on the evaluation of carcinogenic risks to humans, list of IARC evaluations, Lyon, 1995
- 4) 松木秀明：化学物質による室内汚染，大気環境学会誌，Vol.33, pp.19, 1998
- 5) 呂俊民，石黒武，半澤久，長谷川完，森長一郎：住宅内の空気質に関する研究—モデルルームを用いた実測結果，第16回空気清浄とコンタミネーションコントロール研究大会予稿集 C-7, pp.153-156, 1998
- 6) Tejada, S.B.: Evaluation of silica gel cartridges coated in situ with acidified 2,4-dinitrophenylhydrazine for sampling aldehydes and ketones in air, Intern. J. Environ. Chem., 26, pp.167-185, 1986
- 7) 石田建一，鍛田元康他：建物の気密性を用いた換気量の簡易計算法，日本建築学会計画系論文報告集，第438号，pp.23～31, 1992.8
- 8) 関根嘉香，藤江真也，宮寺康夫：低濃度ホルムアルデヒドガスの定常的発生方法に関する検討，第16回空気清浄とコンタミネーションコントロール研究大会予稿集 C-6, pp.149, 1998
- 9) JIS A 1406 「屋内換気量測定方法（炭酸ガス法）」，新日本法規出版株式会社 建築関係 JIS 要覧 1-A, p.147-150, 1994
- 10) 末永義明，関根嘉香，吉川淳一郎，小座野貴弘：吸着換気システムの開発 その1 試験装置の製作，日本建築学会大会学術講演梗概集 D-2 環境工学Ⅱ, pp.807-808, 1998
- 11) 小座野貴弘，末永義明，吉川淳一郎：吸着換気システムの開発 その2 室内におけるホルムアルデヒドの除去効果，日本建築学会大会学術講演梗概集 D-2 環境工学Ⅱ, pp.809-810, 1998
- 12) 末永義明，関根嘉香，小座野貴弘：室内空気汚染対策技術の開発 その1 室内のホルムアルデヒド濃度，日本建築学会大会学術講演梗概集 D-2 環境工学Ⅱ, pp.791-792, 1999

(1999年12月17日原稿受理，2000年5月11日採用決定)