セメントペーストの表面明度に及ぼす水分環境変化の影響

THE EFFECT OF MOISTURE ENVIRONMENT ON BRIGHTNESS OF CEMENT PASTE SURFACE

劉 靈 芝*, 管 野 拓**, 塚 越 雅 幸*, 田 中 享 二***

*Lingzhi LIU, Taku KANNO, Masayuki TSUKAGOSHI
and Kyoji TANAKA*

Concrete surface are expected to change in color according to change of moisture of environment, because there are many pores of them. The effect of moisture on color, particularly brightness of cement paste surface and the mechanism of the change were studied. First, brightness of cement paste of various water cement ratios, which were kept at various moisture environments for more 3 months, were measured. It was found out that they have hysteresis loops in brightness as well as in weight. Pore structures of them were furthermore studied through measurement by the mercury intrusion technique and observation by the AFM. The mechanism of the hysteresis in brightness was explained using a model composed of pores of cone shapes and ink-bottled ones.

Keywords: Cement paste, Moisture environment, Hysteresis in brightness change, Pore structure, Ink-bottle effect

セメントペースト, 水分環境, 明度変化のヒステリシス, 細孔構造, インクボトル

1. はじめに

自然環境に曝されたコンクリート造建物では、その表面が濡れ、濃い灰色に見えることはよく経験することである。これはコンクリートが多孔材料であるため、その細孔内に水分が入り込み、光の反射状態が変わるためである。

ところでコンクリートのような多孔材料は多くの空隙があるため、環境湿度に連動して、表面から水分を吸着する。従ってその色彩は、完全に水に濡れた状態は当然のこととして、湿度の高い状態でも変化の生じている可能性がある。特にコンクリートは無彩色であるため、明度にその影響を与えると考えられる。そのため、実際のコンクリート造の建物でも、湿度が増加するに従ってその時の湿度に応じて明るい色調から暗い色調に雰囲気が変わると思われる。現在屋外気象の変化を考慮し、建物の外観視覚評価が行われている訳ではないが、日本のように季節により水分環境が大幅に変化する風土では、コンクリート表面がどのような明度の変化を起こしているかを知っておくことは、建築外観設計の基本的情報として有用な知見となると思われる。

さらに、コンクリートは広範な細孔構造から構成されており、細孔への水分付着は環境湿度と密接に関係するため、それに連動して、明度変化がどのような様になるかを明らかにしておくことも意義があると

思われる。この事は他の多孔質建築材料においても、水分環境により明度が変わることの理解に役立つと考えられるからである。

本研究はこのような観点から、まずコンクリートの低湿から高湿そして湿潤に至るまでの明度変化を明らかにすること、さらに細孔構造との関係で明度変化のメカニズムを明らかにすることを目的とする。

2. 既往の研究

コンクリートが濡れると色彩の変化する事は、よく知られたところであり、比較的多く研究がなされている。岡島等¹⁾はコンクリートが濡れによって視覚的に変化することを明らかにし、表面の仕上げ状態によってその影響が異なることを明らかにしている。さらにコンクリート以外の材料も含めた、多くの建築材料に対する濡れによる色調変化を研究し、乾いた状態と濡れた状態で大きく変わる材料とそれほど変化しない材料のあることを見出し、概ね水の接触角で評価できることを示している²⁾。市坪等³⁾はモルタルについて色調変化に対する濡れの影響を調べ、濡れた状態での明度変化はモルタルの水セメントと関連することを明らかにしている。地濃⁴⁾は実際のコンクリート構造物の色調変化を降雨時と晴天日に測定し、その差を明らかにするとともに、汚れへの影響についても言及してい

* 東京工業大学建築物理研究センター 研究員・博士(工学)

** 俣乃村工藝社 修士(工学)

(前 東京工業大学 大学院生)

*** 東京工業大学建築物理研究センター 教授・工博

Postdoctoral Fellow, Structural Engineering Research Center, Tokyo Institute of Technology, Ph. D.

NOMURA Co., Ltd., M. Eng.

(Former Graduate Student, Tokyo Institute of Technology)

Prof., Structural Engineering Research Center, Tokyo Institute of Technology, Dr. Eng.

る。また筆者等⁵⁾もカラー打放しコンクリートの色彩に関する研究の中で、湿潤状態と乾燥状態では、光沢度、明度が大きく異なることを明らかにしている。しかしこれら既往の研究すべては、乾燥状態と完全に濡れた状態との両極端での状態下での色調変化についてなされたものである。現実には、水に完全に濡れる以前にも湿度は変化しており、色調は影響を受けていると思われる。このような観点からの、乾燥から湿潤に至るまでの、全域にわたる環境湿度変化の中での色彩変化についてなされた研究は非常に少ないものと思われる。

さらに、一般に高湿になるに従い、セメントペーストの細孔に水分が吸着し、これが原因で色調変化を起こすと推定されるが、このような現象を、セメントペーストの細孔構造との関係で検討した研究は、筆者等の知る範囲ではほとんどない。

3. 環境湿度が変化した時のセメントペーストの質量と明度

3.1 試料

試料としては水セメント比の異なるセメントペーストを用意した。すなわち普通ポルトランドセメントに、水セメント比 22%、30%、40%になるように水を加えてセメントペーストを作り、直径 50mm、高さ 100mm の鋼製型枠に充填した。これを 1 日養生後に型枠から取り出し、その後 3 ヶ月間水中で養生した。

養生後コンクリートカッターで約 5mm 厚に切断した。この直径 50mm、厚さ 5mm の円盤状のものを試験片とした。

3.2 試料の水分状態の調整

吸湿過程では、まず試験片を 105℃ の乾燥器にて、24 時間乾燥させ、絶乾状態とした。ついでこれら試験片を、20℃±2℃ の恒温室内に設置した。表 1 に示す各種調湿材により一定の相対湿度に保たれているデシケータ内に、試験片の重量が安定するまで静置した。

放湿過程では、まず試験片を水中に 48 時間浸漬し充分吸水させ、表面を乾いた布で拭った。この後再度、前述の一定湿度に保たれているデシケータ内に、同様に試験片の重量が安定するまで静置した。写真 1 に試験片の調湿中の状態を示す。(試験の途中で定期的に重量変化を測定し、重量を平衡状態となることを確認した。なお今回の試験における、相対湿度ごとの静置期間はおよそ 3 ヶ月間であった。)

3.3 重量測定と明度測定

(1) 重量測定

デシケータ内に静置した試験片は、電子天秤により重量を測定した。なお測定は、測定時の環境湿度の影響をできるだけ少なくするため、電子天秤をデシケータのすぐ側に設置し、作業を手早く行った。

また水中浸漬させた時の重量測定は、試験片を水から取り出し滴る水滴がなくなった状態と、その表面を布で拭き取った時の 2 状態で測定した。

(2) 明度測定

吸湿過程および放湿過程とも、各相対湿度でも重量平衡後に試験片の明度を測定した。表色系としては目視と照合しやすい形で数値化し、均等知覚空間と言われている $L^*a^*b^*$ 表色系の明度 L^* を用いた。これは物体表面への入射光に対する、反射光の鏡面反射を除去した拡散反射分を、反射率として計測するもので、JIS Z 8729 (CIE1976 明度) に示されている (1) 式を用いて計算された。なお、

ここでの測定には多色 LED 型光源の分光式差計 (日本電色工業 NF333) を使用した。本装置の測定受光範囲は 8mm φ であり、各試験片の 5 点ずつ測定した。

$$L^* = 116(Y/Y_n)^{1/3} - 16 \quad (1)$$

ここで、 L^* : 試料の $L^*a^*b^*$ 表色系における明度

Y : 試料の XYZ 表色系における刺激値

Y_n : XYZ 表色系における完全拡散反射面の刺激値

3.4 測定結果

(1) 重量変化

各相対湿度に静置した試験片の平衡含水率は (2) 式により求めた。

$$\text{平衡含水率(\%)} = \frac{W - W_{\text{dry}}}{W_{\text{dry}}} \times 100 \quad (2)$$

ここで、 W : 各相対湿度における試験片の平衡重量 (g)

W_{dry} : 試験片の絶乾重量 (g)

図 1 に相対湿度と重量変化の関係を平衡含水率で示す。この中で相対湿度については、105℃ で 24 時間乾燥させた状態を相対湿度

表1 吸放湿過程に用いた調湿方法

相対湿度	調湿方法
0%	105℃, 24時間
8%	SiO ₂ ・nH ₂ O (乾燥剤)
33%	MgCl ₂ ・6H ₂ O 飽和水溶液
53%	Mg(NO ₃) ₂ ・6H ₂ O 飽和水溶液
75%	NaCl 飽和水溶液
85%	KCl 飽和水溶液
93%	KNO ₃ 飽和水溶液
98%	K ₂ SO ₄ 飽和水溶液
100%	48時間吸水後、表面水除去

写真1 試験片の調湿状況

図1 平衡含水率曲線

0%R.H.とした。また相対湿度 100%R.H.は厳密に作り出すことは難しいが、本研究では水中浸漬後、布で表面を拭き取った状態を、便宜的に相対湿度 100%R.H.とした。

相対湿度が高くなるに従い各試験片の平衡含水率は上昇するが、過去の多くの研究結果^{6)~9)}が示しているように、ここでの試験片でも吸湿過程と放湿過程とは同じ軌跡をとらず、ヒステリシス現象が見られている。すなわち吸湿過程に比べ、放湿過程は全体的に平衡含水率が高い状態で推移した。

(2) 明度変化

図2に相対湿度と重量衡量時の各セメントペースト試験片の明度 L^* を示す。実際の建物外観では降雨時、表面に水の付着していることがあり、そのような状態も想定して、試験片の浸漬後水滴のみを除去した状態での明度も測定して、これを「濡れ状態」(水中浸漬後の試験片の表面を布で拭いた状態)として表わし、図中に加えてある。

明度の変化に対しても、環境湿度の影響が見られ、高湿になるに従って明度は低下する傾向が見られる。しかし、前節で示したように平衡含水率の変化は全湿度範囲で観測されたのに対し、明度の変化は比較的高湿度領域に限られており、低湿度領域ではほとんど変化は見られない。また高湿度領域での急激な明度変化の見えるのは 100%R.H. (水中浸漬後の試験片の表面を布で拭いた状態) までで、これを越えての過度の水が付着した濡れ状態での変化はわずかである。

さらに、明度の変化に対しても、吸湿過程と放湿過程で同じ軌跡をとらず、ヒステリシス現象が見られる。ただし、吸湿過程では相対湿度が 85~100%R.H. のせまい領域で明度の変化が顕著であるのに対し、放湿過程では 55~100%R.H. のやや広域な範囲で明度が変化している。

図3にこれを各試験片の平衡含水率との関係で表わした。当然のことながら、これは相対湿度による明度変化と類似している。試験片の明度変化は最大含水率の約半分以下の領域ではほとんど変化はなく、最大平衡含水率の約半分位から見られていることがわかる。

4. セメントペーストの細孔構造

4.1 表面構造

セメントペースト試験片の微細な表面形状を調べるために、原子間力顕微鏡 (AFM) による観察を行った。AFM 測定には直径 40nm ϕ の探針をもつナノスケールハイブリッド N8000 (キーエンス) を用いた。観察面積は 200 μm $\times$ 200 μm の限られた領域であるので、試験片の数箇所を測定した。

観測結果の一例を写真2に示す。また写真中の破線位置の断面形状も合わせて写真の下側に示す。測定が深針の付いたカンチレバーで試験片表面を走査するため、ややブロードの画像となっているが、水和物が粒状塊となって分布しており、ところどころに数 μm 程度の空隙が見られている。これらは文献¹⁰⁾で説明されているセメント水和物形状の「Type III C-S-H」の形態に非常に類似している。ただ試験片はコンクリートカッターでの切断面であり、研磨等の処理を

図2 相対湿度による明度 L^* の変化

図3 平衡含水率による明度 L^* の変化

写真2 AFM 測定によるセメントペーストの表面形状

施さなかったことから、表面はあまり平滑ではなく数 μm 程度の凹凸のある部分も観察される。

4.2 内部構造

セメントペースト試験片の内部の細孔構造分布は水銀圧入法により調べた。試料は、前述の試験片（水セメント比 22%、30%、40%）から数ミリ角の大きさのものを切り出した。これを 105℃の乾燥器で 24 時間乾燥させ、水銀圧入式ポロシメータ（オートポア IV 9500、測定細孔領域 5nm～500 μm）を用いて測定した。測定は、加圧による水銀圧入過程（228MPa まで加圧後）と、減圧による水銀排出過程について行った。

図 4 に水銀加圧による細孔半径分布を示す。各試料の細孔分布では、細孔半径 20～30nm のものが卓越しており、5nm～30nm までのものが全細孔容積の約 70%以上を占めている。これらは文献¹¹⁾に示されている通常のセメント硬化体の細孔半径の傾向と同様である。

図 5 に水銀加圧および減圧において細孔半径による累積有効細孔容積を示す。加圧過程では、加圧力の上昇とともにセメントペースト内に水銀は圧入され、仮定されている円筒型の細孔に大きい細孔径から小さい細孔径まで順次充填される。しかし、減圧過程では、減圧とともに水銀は排出されるが、加圧と同じ軌跡をたどらず、かなり上方に位置している。そして排出されなかった水銀容積は約全細孔容積の 50%程度である。このことは減圧しても水銀の出にくい細孔の存在を想像させるものである。これは一般的にインクボトル型の細孔^{12)～19)}と呼ばれるもので、ここでの試料についてもその存在が推定される。

5. 考察

5.1 空隙への水分の吸着

環境湿度により平衡含水率が変化する現象は、セメントペースト細孔への水分の吸着状態の変化によると思われる。そのためさらに水蒸気吸着測定装置（BELSORP-18、日本ベル（株）、298K、相対圧 0～0.99）を用いて、容量法による水蒸気吸着域の測定を行った。測定に際しては、各試験片（水セメント比 22%、30%、40%）をすり鉢にて粉体にし、105℃で減圧下、24 時間加熱処理の前処理を行った。なお測定は 25℃で行った。

図 6 に水蒸気吸着等温線を示す。この結果は図 1 に示した相対湿度と平衡含水率の関係と類似している。ここでの測定は粉体に対して行われたものであり、吸放湿過程の水蒸気吸脱着がセメントペーストの比較的小さな細孔に対してなされていることを示唆するものである。

さらに吸放湿過程においてヒステリシスをもつのは、セメントペーストの細孔の一部にはインクボトル型の細孔が存在しているためと推定される。すなわち、湿度の高い状態でインクボトル型の細孔に入り込んだ水分は、細孔の中にトラップされた状態で残るためと考えられる。このことは、多くの研究者^{20)～24)}により平衡含水率にヒステリシスの生じる理由として指摘されている通りである。

5.2 明度におよぼす水分の影響

一般的に物質の表面は、ミクロ的には完全に平滑ではなく、凹凸があり、そのため入射光は表面で拡散反射し、白っぽい、明度の高い色として認識される²⁵⁾。しかし物質の表面に水が付着し水膜が形成されると、入射光の一部は水膜の中に入り込み、反射光が減衰する。また小さな凹凸に水が充填されるため拡散反射の割合が少なくなり、加えて水自身の反射率が低いため、濃い色として認識され

図 4 各試料の細孔径分布

図 5 各試料の累積有効細孔容積

図 6 水蒸気吸着等温線

ている。

セメントペーストの場合も同様であり、水分が表面に付着することにより明度が低下したと考えられる。すなわち環境湿度が高くなると次第に多くの細孔内が水で充填され、拡散反射面積が減少したと推定される。

5.3 明度のヒステリシス

明度に関しても吸湿過程と放湿過程との間に明らかにヒステリシスが見られている。これは細孔への水分吸着の状態が反映されたものと考えられ、明度のヒステリシス現象理解にも、インクボトルモデルの適用が可能と考えられる。

一般に、多孔材料であるセメント硬化体の細孔は、入り口が大きく奥に入るに従って小さくなる円錐形の形状のものと、逆に入り口が狭く奥に広がる逆円錐形の形状のものが存在すると言われている。ここでは前者をさらに図7の右(a)に示すような、いろいろな径と容積をもつ円柱形の細孔の集合とみなし、後者を右(b)に示すようないろいろな入り口径と容積をもつインクボトル形の細孔の集合とみなし、セメント硬化体の細孔をこれら多数の組み合わせの集合体と考えた。(ただし図7では簡略化し、各々3個ずつしか示していない。)

コンクリートのような多孔材料において、吸湿過程では、毛細管凝縮理論(固体表面での気体の吸着はその相対圧 P/P_0 の増加とともに単分子層さらに多分子層を形成し、細孔があれば吸着層以外に毛細管凝縮が生ずる)¹²⁾に基づき、相対圧の増加につれ、水分が径の小さい細孔から径の大きい細孔まで徐々に充填するとされ、その関係はケルビン式(3)を用いて計算される。図8にケルビン式より計算される各相対湿度に対する凝縮半径を示す。

$$r_k = -\frac{2\gamma V_m}{\ln \frac{P}{P_0} RT} \quad (3)$$

ここで、 r_k : ケルビン半径 (m)
 γ : 液の表面張力 (N/m)
 V_m : 液のモル体積 (m^3/mol)
 P : 蒸気圧
 P_0 : 飽和蒸気圧
 R : 気体定数 ($\text{J}/\text{mol} \cdot \text{K}$)
 T : 絶対温度 (K)

しかし、放湿過程では、細孔の入り口の径の大きいものから水分が排出される。この細孔モデルを用いて、湿度変化に伴う明度変化の過程を、水セメント比30%の試験体を例として模式的に示したものが図9である。

まず吸湿過程である。低湿度領域(a)ではほぼすべての空隙は空である。85-90%R.H. (b) 過ぎるあたりまでは、極めて微細な空隙にしか水分は充填されておらず、しかもその容積は僅かである。それを過ぎると(c), 大きめの細孔にも水分は凝縮し始める。ちなみに図8に示している凝縮細孔径によると、90%R.H.を越えると細孔半径10nm以上の細孔で水分は凝縮し始める。セメントペースト試験片の細孔量は図5に示すように、細孔半径20nmあたりからその量が急激に増加し始めるため、この湿度近傍から拡散反射をしている空の空隙が減少し、明度は急速に低下する。

相対湿度100%R.H. (d)の時、特に大きな径のものを除いて、その他の細孔はすべて水で充填される。その時、明度は最低値となる。

図7 細孔形状の模式図

図8 毛細管凝縮理論による相対湿度とケルビン半径 (20°C)

図9 各明度時の細孔内での水分状態の模式的説明

さらに余剰水が、相対湿度100%R.H.でも凝縮しきれないような、かなり大きな空隙にも水が入っている状態(例えば大雨の時のように表面にも余剰の水分が付着しているような状態)では、もちろんさらに明度は低下する。ただその変化はわずかである。

これが放湿過程になると、入り口の径の大きな細孔から水分を脱着し始める(e)。ただインクボトル型の細孔に入り込んだ水分はなかなか放出されない。そのために放湿過程の明度の回復は遅れる。さらに湿度が下がり続け、約40-50%R.H.の中湿度領域(f)あたりで明度は安定化しはじめ、僅かな水分は残留しているが、その後の明度の変化はごくわずかである。そして、さらに強制的に絶乾状態にすると、すべての細孔から水分が排除され(a)の状態に戻る。

6. 結論

環境湿度が変化する時のセメントペーストの明度変化について研究した、本論文の結論は以下のとおりである。

- (1) セメントペーストの明度は環境湿度により変化し、高湿になるに従って明度は低下する。
- (2) セメントペーストの明度は吸湿過程と放湿過程では同じにはならずヒステリシスをもつ。
- (3) その時の明度変化は、吸湿過程では 85-90%R.H.を過ぎた比較的狭い領域内で大きく変化し、放湿過程では高湿度から 40-50% R.H.の中湿度領域までのやや広い領域内で変化する。
- (4) インクボトル型の細孔を含む細孔モデルを提案し、これら現象を定性的に説明した。

謝辞

本研究を進めるにあたり、東京工業大学・応用セラミックス研究所・赤津隆博士、山梨大学大学院・宮嶋尚哉博士、日本大学生産工学部・湯浅昇博士には、細孔構造とそれに対する水分の吸脱着に関して貴重な意見を賜りました。心よりお礼を申し上げます。

参考文献

- 1) 岡島達雄, 河辺伸二, 水谷泰三, 植杉直子: 濡れに伴うコンクリート素地仕上げの視覚心理学的評価の変容, コンクリート工学論文集 第 7 巻 第 1 号, pp123-131, 1996.1
- 2) 岡島達雄, 河辺伸二, 武藤正樹: 水の濡れによる建築材料の色調変化に関する研究, 日本建築学会構造系論文集 第 480 号, pp21-26, 1996.2
- 3) 市坪誠, 竹村和夫, 河合研至: モルタルの色調変化に及ぼす材料の影響, セメント・コンクリート論文集 No.49, pp838-843, 1995
- 4) 地濃茂雄: 降水濡れによるコンクリート表面の色調変化, コンクリート工学年次論文報告集 第 17 巻 第 1 号, pp285-288, 1995
- 5) 劉 靈芝, 梶田佳寛, 小西敏正: 着色細骨材および顔料を用いた打放しコンクリートの色彩に対する感性評価に関する研究, 日本建築学会構造系論文集 NO.630, pp.12337-12338, 2008.8
- 6) Powers, T.C. and Brownyard, T.L.: Studies of the physical properties of hardened cement paste, J.ACI, Vol.18, No2, pp.101-132, 249-336, 469-504, 1946, pp.549-602, 669-712, 845-880, 933-992, 1947
- 7) 原田 有, 仕入豊和, 椎名国雄: 含湿に伴うコンクリートの容積変化 (予備実験), 日本建築学会論文報告集, NO.76, p.33, 1962

- 8) 空気調和・衛生工学会: 空気調和・衛生工学便覧 I, 11 版, オーム社, pp. I -193-202, 1987
- 9) 秋田 宏, 藤原忠司, 尾坂芳夫: モルタルの乾燥・吸湿・吸水過程における水分移動, 日本土木学会論文集, 第 420 号/V-13, pp.61-69, 1990.8
- 10) C&C エンサイクロペディア: セメント・コンクリート化学の基礎解説, (社) セメント協会, pp.22-26, pp.171-172, 1996.7
- 11) 桂 修, 漆崎 要, 吉野利幸, 鎌田英治: 水銀圧入法によるセメント硬化体の細孔径分布と水の脱着平衡, コンクリート工学論文集, 第 10 巻 第 1 号, pp.65-77, 1999
- 12) 近藤連一: 多孔材料, 技報堂出版, p.55, 1973
- 13) S. LOWELL and JOAN E. SHIELDS: Hysteresis, Entrapment, and Wetting Angle in Mercury Porosimetry, Journal of Colloid and Interface Science, Volume 83, Issue 1, September 1981, pp.273-278, 1981
- 14) Koichi MAEKAWA, Rajesh CHAUBE and Toshiharu KISHI: E&FN SPON Press, 1999.
- 15) 坂井悦郎, 春日貴行, 浅賀喜与志, 大門正機: 分散剤を添加したセメントの水和と硬化体の微細組織, コンクリート工学年次論文集, Vol.25, No.1, pp.197-202, 2003.
- 16) F. Moro1 and H. B'ohni: Ink-Bottle Effect in Mercury Intrusion Porosimetry of Cement-Based Materials, Journal of Colloid and Interface Science, Volume 246, Issue 1, 1 February 2002, pp.135-149
- 17) 吉田 行, 名和豊春, 田口史雄, 渡辺 広: 高炉スラグ微粉末を用いたビーライトセメントコンクリートの中性化に及ぼす細孔組織の影響, 土木学会論文集, Vol64, No1, pp.1-15, 2008.1
- 18) 岸 利治, 吉田 亮: 硬化セメントペーストが内包する複数のインクボトル幾何構造に関する研究, 東京大学生産技術研究所生産研究 Vol. 60 (2008), No. 5, pp.512-515, 2008.10.22
- 19) 吉田 亮, 岸 利治: 水銀の漸次繰返し圧入による空隙の連続性抽出と有効圧力範囲に関する研究, 東京大学生産技術研究所生産研究 Vol. 60 (2008), No. 5, pp.516-519, 2008.10.22
- 20) 慶伊富長: 吸着, 共立出版, 1965
- 21) 柳井弘: 吸着工学要論, 共立出版, 1977
- 22) Y. Mualem: A Conceptual Model of Hysteresis, Water Resources Research, Vol.10, No.3, pp.514-520, 1974
- 23) 大蔵 博: 不飽和土の土中水分ヒステリシスの計算アルゴリズム, 国立防災科学技術センター研究報告, 第 25 号, pp.127-136, 1981.3
- 24) 石田哲也, Rajesh P. CHAUBE, 岸 利治, 前川宏一: 任意の乾湿繰返しを受けるコンクリートの含水状態予測モデル, 土木学会論文集, No.564/V-35, PP.199-209, 1997.5
- 25) 日本色彩学会編: 新編色彩科学ハンドブック, 東京大学出版会, 1980.2

(2010年4月5日原稿受理, 2010年5月24日採用決定)