

論文の内容の要旨

論文題目 建材からの空気質汚染物質の二次放散原因と知覚空気質への影響物質解明に関する研究

氏名 千野 聡子

本研究では、塩化ビニルの可塑剤として使用されるフタル酸ジ-2-エチルヘキシル(DEHP)が加水分解し、2-エチル-1-ヘキサノール(2E1H)が生成、床面から高濃度で 2E1H が放散する事例に着目した。2E1H は室内空気汚染物質として世界保健機関(WHO)により報告されている物質であり、知覚空気質へも影響を与えるとされる。

1980 年代の欧米では、シックビルディング症候群と言われる建物の室内環境が原因となり生じる様々な健康被害が問題となった。日本においても 1996 年頃よりシックハウス症候群としてこの問題は大きく扱われた。シックハウスの原因は、住宅の高気密・高断熱化に伴う換気量の低下や不足、新材と呼ばれるプラスチック材料などからの化学物質の放散とされている。国内では建材などからの揮発性有機化合物(VOC)による室内空気質汚染に対する研究、対策が行われ、その結果ホルムアルデヒド、トルエンなど厚生労働省により室内濃度指針値が示された物質に関しては、新築住宅において濃度が低減した。しかし、居住者が持ち込んだ家具からの汚染物質の放散、代替物質による汚染などの問題は尽きない。また、建材など製品には直接使用されていない物質の放散(二次放散)による問題も生じている。

本研究で着目した 2E1H の放散は、この二次放散にあたる。DEHP は沸点 385°C であり、準揮発性有機化合物(SVOC)に分類されるが、高い沸点を持つため材料から放散しても壁面などに吸着しやすく、気中濃度は VOC と比較してそれほど高くない。一方、DEHP の加水分解物質である 2E1H は沸点 184.7°C であり、VOC に分類される物質である。DEHP からより揮発しやすい 2E1H が生成、放散することにより、室内空気質は悪化する方向に傾く。建物内では、アルカリ性であるセメントを含むコンクリートやセルフレベリング材といった床下地に直接 DEHP を含む塩化ビニル製の床仕上材を貼り付け、内装仕上げとすることが多い。乾燥していない床下地に床仕上材を張り付けた場合や台風、水漏れといった浸水事故後、カビが生えていないにもかかわらず、悪臭が問題となるケースでは DEHP の加水分解により生成した 2E1H が原因物質とされており、知覚空気質に影響を与える。さらに、2E1H が原因と考えられるシックハウスの症例が報告されている。しかしながら、既往研究の多くが加水分解、すなわち床下地の水分と 2E1H の放散の関係性に着目しており、それ以外のファクターについて研究されているものは少ない。また、2E1H 放散による知覚空気質への影響まで調査している研究はない。

本研究では良質な室内空気質を確保することを目的として、DEHP を含む塩化ビニル製の床仕上材を施工した床面からの 2E1H の放散性状の把握と放散するにおい物質の特性を評価した。放散性状を把握することにより、放散を抑制する方法や対策を検討することが可能となる。においの特性評価により、2E1H 以外におい物質の確認を行い、知覚空気質への放散物質の影響を考察

した。本研究では既往の研究と同じく、床下地の水分が 2E1H の放散性状に与える影響を調査し、使用されている建材が 2E1H の放散性状に与える影響を確認した。最後ににおい嗅ぎガスクロマトグラフィー(GC-O)により、床面から放散する化学物質のにおいを評価し、建材からのにおいの特性の評価を試みた。

本論文の構成及び各章のまとめを以下に示す。

第 1 章 序論

本研究の対象となる DEHP の加水分解による 2E1H 放散のメカニズムと空気質汚染の問題について触れ、本研究の目的を述べた。

第 2 章 室内汚染化学物質と放散量測定方法

室内汚染化学物質による問題と国内外での取り組みをまとめた。次に、化学物質の放散のモデル式を概説し、さらに建材からの化学物質放散量測定方法に関して紹介した。さらに 2E1H 放散に関する既往研究をまとめ、本研究の既往研究との違いを示した。

第 3 章 室内のにおいと評価方法

においを感じるメカニズム、においの特性、評価尺度、においの評価方法など、においに関する基礎的事項をまとめた。においに関する既往研究を紹介し、GC-O による建材臭の評価に関する既往研究をまとめた。

第 4 章 床面からの化学物質放散量に建材中の水分が与える影響

塩化ビニル床材単体からの放散量とセルフベリング材に塩化ビニル床材を施工した複合建材からの 2E1H 及び VOC 放散量を測定した。続いて、2E1H が DEHP の加水分解により放散すると考えられることから、セルフベリング材の含水率と 2E1H 放散量の関係を求めた。さらに、磁気浮遊天秤を使用してセルフベリング材の水蒸気吸着等温線を測定することにより、含水率と水分の存在状態の関係を調べ、2E1H 放散量との関係性を考察した。

その結果、塩化ビニル床仕上材単体からの DEHP の酸化等によると思われる 2E1H の放散を確認した。床面からの加水分解による 2E1H の放散量は、ある程度時間が経過した後に増加し、塩化ビニル床仕上材単体よりも放散速度が高く、建材内部で生成した 2E1H が放散していると考えられる。本研究で使用したセルフベリング材は含水率が 4%程度を境に、それ以上の含水率を有している場合は液水が支配的であり、それ以下では水蒸気が支配的であると考えられ、床面からの 2E1H 放散量は、床下地材の水分の状態が液水が支配的である場合に増加し、水蒸気が支配的である場合は増加しない。床面からの 2E1H 放散への対策として、床下地となるセルフベリング材やコンクリートの水分管理は非常に有効な手段と考えられる。

第 5 章 床面からの化学物質放散量に建材が与える影響

2E1H の放散に使用する建材が与える影響、特に使用する床仕上材の 2E1H の拡散性状や接着剤の成分に着目した。各種床仕上材を使用した場合の 2E1H 放散傾向を把握するため、床仕上材の 2E1H の有効拡散係数を測定した。次に床仕上材単体とセルフベリング材に床仕上材を貼り付けた複合建材からの 2E1H 放散量を測定した。また、床仕上材用の接着剤が床面からの 2E1H 放散に与えている影響を検討するため、接着剤の種類と 2E1H 放散速度の関係を求め、さらに化学分析により接着剤成分の分析を行うことで接着剤由来の 2E1H の放散を考察した。結果から得られた知見は以下のとおりである。

1. 塩化ビニル床仕上材の有効拡散係数の測定

推定有効拡散係数推定値はクッションフロアが最も大きく、ビニルタイルがクッションフロア

のおよそ 7%程度の値となり、最も小さな値となった。床仕上材を構成している材料の特性が、床仕上材内での 2E1H の拡散性状に大きく影響を与える。

2. 接着剤の分析および放散量測定

一部のアクリルエマルジョン系接着剤には 2E1H を基とするエステル化合物が使われており、2E1H そのものが存在する。さらに接着剤中のモノマー、ポリマーが加水分解し、2E1H が生成する。そのため、一部の接着剤より 2E1H の一次放散が認められた。また、接着剤単体の放散試験でも 2EHA や酢酸 2-エチルヘキシルといった 2-エチル-1-ヘキシル基を持つ化合物の放散が認められ、成分分析の結果と一致した。

3. 異なる種類の床仕上材、接着剤を用いた複合建材からの放散量測定

接着剤に含まれる 2E1H の量や樹脂の量によって、床面からの 2E1H の放散速度は変化する。床下地が乾燥していても、接着剤の一次放散によって、床面からの 2E1H の放散はある程度の期間続く場合がある。使用する接着剤の種類によっては、高含水の床下地に塩化ビニル床材を施工しても 2E1H 放散量は増加しないことがあり、原因として、接着剤に含まれる成分がアルカリ水と DEHP の接触を阻害している可能性がある。長期にわたる複合建材からの 2E1H の放散は、接着剤由来よりも床材に含まれる DEHP の加水分解による影響が大きいと推測される。タイルカーペットを高含水の床下地に貼り付けた場合、他の床仕上材よりも 2E1H が放散しやすい傾向があった。

第 6 章 におい嗅ぎガスクロマトグラフィーを用いた建材由来のにおい物質の評価

GC-O により塩化ビニル床仕上材、接着剤、セルフレベリング材を組み合わせた複合建材からのにおいの特性の評価を行った。におい物質の中には同定が不可能な物質もあったが、GC-O により様々なにおい物質が確認され、建材臭を評価することが可能であった。養生期間や建材の含水率の違いによって、GC-O で検出されるにおい物質のにおいの印象は異なった。化学物質の放散速度と検出頻度に関係性は見られなかったが、物質の臭気閾値、パネルのにおいに対する順応などが影響していると考えられる。さらに、低濃度の物質や検出器で検出されないような物質であっても、パネルがにおいを申告することが確認された。GC-O では濃縮された状態の化学物質がパネルに提示されるため、実際のにおいにどの程度寄与する物質であるか判断は難しいが、臭気閾値の低い物質の放散が実験結果より示唆された。また、放散速度が高い物質であっても、パネルによってはにおいを感じない場合が認められた。パネルのにおいに対する感度の差も結果に影響していると考えられる。今後の実験では、各パネルのにおいに対する感度を何らかの方法で確認するべきと思われる。

第 7 章 結論

本論文のまとめと課題について述べた。床仕上材の DEHP 含有量と 2E1H 放散量の関係、複合臭と分離臭の関係を明らかにすることが今後の課題である。