

森林総合研究所
交付金プロジェクト研究 成果集 5

木質建材から放散される
揮発性有機化合物の評価
と快適性増進効果の解明

独立行政法人 森林総合研究所
2005. 9

序 文

近年、木材の良さ見直しが国民の間で進んでいることを感ずることが出来ます。2005 年 2 月の京都議定書の発効は、二酸化炭素削減のための方策の一つとして木材利用の重要性を国民に訴えています。更に、2006 年からの第 3 期科学技術基本計画では、環境と経済を両立させることで持続可能な発展を実現し、国力の源泉とすることを三大理念の一つとしています。持続的に利用することが可能な木材は、この理念を実現するための重要な資源であると言えます。

農林水産省においても、2003 年に策定された木材利用拡大行動計画を 2005 年 7 月に改定し、木材利用を強力に推し進めている所です。木材の良さの見直し・木材への回帰は、建築・土木材料、景観資材、福祉材料など様々な分野で進んでいます。これは、同時に、木材に対して、安全性、工業的な諸性能の安定性、心地よさ、健康増進機能、美観・景観など、多様な性能を要求していることも受け取ることが出来ます。

木材を上手に使うて行くためには、以下に示すように、安全・安心というキーワードを満たすことが必要となります。すなわち、環境基本計画（平成 12 年 12 月）では、化学物質の環境リスクを適切に評価して管理すること、快適な環境の確保のため良好な大気に係わる環境の状態のあり方の検討が謳われています。更に、内閣府総合科学技術会議による第二期科学技術基本計画（平成 13 年～17 年）においては、経済発展とともに国民が安心して安全な生活を送るために必要な重点 4 分野が設定され、その一つは、人の健康の維持や生活環境の保全、人類の生存基盤の維持のために必要な環境分野となっています。

本研究「木質建材から放散される揮発性有機化合物の評価と快適性増進効果の解明」は、木質建材を安心・安全に使用し、加えて居住者の快適性を増進するために必要なデータを整備するために、平成 14 年から 16 年までの 3 ヶ年にわたって森林総合研究所が実施したものです。ここでは、木質建材からの天然の揮発性有機化合物（VOC）であるテルペン類の放散実態や放散後の変化、それらが人に対して快適性を増進する効果を明らかにしました。これらの成果は、住宅の空気質に影響を与える壁材、天井材や間柱等への木材利用の推進や、学校等の公共建築への木材利用の推進に繋げることが期待できます。更に、得られたデータは、建築基準法や日本農林規格（JAS）・日本工業規格（JIS）の規格制定時の基礎資料となることが期待されます。

この研究成果集 5 は、木質建材からのテルペン類の放散とその快適性増進効果についての情報を提供するものであり、ここに本書を刊行し、広く関係者の参考に供する次第です。最後になりましたが、本研究の推進においては、東京大学大学院農学生命科学研究科教授の小野擴邦氏に、外部評価委員として適切なアドバイスを頂いたことに感謝致します。

平成 17 年 9 月

独立行政法人 森林総合研究所理事長

大熊 幹章

研究課題：木質建材から放散される揮発性有機化合物の評価と快適性増進効果の解明

目 次

研究の要約	-----	1
第 1 章	木質建材からのVOC放散動態調査及び気中濃度予測モデルの 開発-----	9
第 2 章	テルペン類の快適性及びダニ防除作用の解明-----	28

研 究 の 要 約

I 研究年次及び予算区分

研究年次：平成 14 年～平成 16 年（3 カ年）

予算区分：運営交付金（交付金プロジェクト）

II 主任研究者

主 査：研究管理官 海老原徹（平成 14 年 4 月 1 日～平成 16 年 3 月 31 日）

：研究管理官 山本幸一（平成 16 年 4 月 1 日～平成 17 年 3 月 31 日）

副主査：積層接着研究室長 井上明生（平成 14 年 4 月 1 日～平成 17 年 3 月 31 日）

取りまとめ責任者： 井上明生

III 研究場所

森林総合研究所・本所

IV 研究目的

社会問題化している「シックハウス症候群」は、ホルムアルデヒドや VOC（揮発性有機化合物）に起因すると考えられている。従来、木質建材の JAS 規格においてホルムアルデヒド放散量基準が定められてきたが、平成 12 年 12 月に「シックハウス問題に関する検討会」（旧厚生省）において、TVOC（総揮発性有機化合物）の室内濃度の暫定目標値が提示された。

しかし、VOC には毒性の明らかなものと木材の天然成分のように人に対して有用なものがあり、さらには、種々の木質建材から発生する VOC の放散実態や人への健康増進効果は定量的にはわかっていない状況である。

そこで、木材からの天然の VOC（テルペン類等）の放散実態や放散後の変化（動態）と、それが人に対して快適性を増進する効果を明らかにし、木材による快適な住空間を創出するための基礎的なデータを整備する。これらのデータは建築基準法や JAS・JIS 規格制定時の参考資料となることが期待される。これにより、住空間の空気質に影響を与える部位（壁材、天井材や間柱等）への木材の利用が増加し、居住者の快適性を増進することが期待できる。

V 研究方法

第 1 章 木質建材からの VOC 放散動態調査及び気中濃度予測モデルの開発

1 無垢木材からの VOC 類、アルデヒド類の測定

建築用材として用いられる主要な 13 樹種の VOC 類及びアルデヒド類を、JIS 小形チャンバー法により測定した。

2 内装木質化居室内の VOC 類の放散実態の測定

スギ、ヒノキの無垢材で主に内装木質化が施されている教室（埼玉県玉川村玉川小中学校（改修後 3-4 年）、同県都幾川村萩ヶ丘小学校（改修後 4 ヶ月））において、2004 年 8 月に ISO の方法に準じて、空気のサンプリングを行った。サンプリング時間：4 時間、流速：100mL/min、捕集量：

24L。なお、吸着剤（アルデヒド類用、VOC 類用）及び分析方法は前項と同様に JIS 小形チャンバー法に準じた。

3 スギ乾燥材からの VOC 類、アルデヒド類の測定

スギの乾燥材からの化学物質放散量を JIS 小形チャンバー法により測定した。特に気乾日数と放散量の関係を検討した。

4 アセトアルデヒド簡易測定法の開発

デシケーター法を利用したアセトアルデヒドの簡易測定法を検討した。また集成材を作製してアセトアルデヒド放散原因の特定を行った。

5 気中濃度予測モデルの開発

小形チャンバー法でホルムアルデヒド放散速度に及ぼす換気量の影響を調べ、材料ごとの吸収係数を求め、これをもとに気中濃度の予測を行った。

第 2 章 テルペン類などの人への快適性およびダニ防除作用の解明

1 テルペン類などの人への生体影響の解明

本研究所で開発した生理面（中枢神経活動と自律神経活動の毎秒測定）と心理面の測定から人の快適性を評価する計測システムを用いた。中枢神経活動は、近赤外線分光法による前頭前野の脳血液動態の測定によって評価し、自律神経活動は指式の血圧（収縮期血圧と拡張期血圧）・脈拍数測定から評価した。嗅覚刺激は、30 L のにおい袋中に、 α -ピネンは 10 μ L、100 μ L ならびに 500 μ L、リモネンは 10 μ L を入れ、3 L/min の流量で、被験者の鼻下 15 cm から流すことによって行った。被験者は、男子大学生 15～17 名とし、人工気候室内（24℃、相対湿度 50%、防音機能）において、閉眼・座位にて実施した。

2 テルペン類などのダニ防除作用の解明

実験にはヤケヒョウヒダニ (*Dermatophagoides pteronyssinus*) のメスを使用した。ヤケヒョウヒダニを通気可能な曝露チャンバー内に約 10 匹封じ込め、それらを後述の各畳にあげた穴の中に 1 体ずつ計 6 体設置し、温度 25℃、相対湿度 70～80 % に調整したデシケータ内に置いた。実体顕微鏡下で 1 日毎に 5 日間、動かないダニを計数した。この 5 日間の曝露試験を 8～12 ヶ月間経時的に行った。畳は、①ヒバならびにヒノキ単板（厚さ 2 mm）を挟み込んだ畳（幅 450×厚さ 95×奥行き 450 mm）、②ヒノキ材スライス片を圧縮成型、縫製して作製した畳（飛騨フォレスト製、幅 400×厚さ 60×奥行き 400 mm）の 2 種類を用いた。①に関しては、単板を挟み込まない畳を用いて対照実験を行った。②に関しては、対照としてエタノールに浸せきして抽出成分を除去したヒノキ材スライス片畳を用いた。さらに畳なしの条件でも対照実験を実施した。

ヒノキ材スライス片畳中のテルペン濃度の測定は、ステンレスチューブをチャンバーの空隙まで通し SPME ファイバーを 2 時間露出させて揮発成分の捕集することによって行った。捕集成分の分析には GC-MS および GC を用い、 α -ピネン換算で各成分量を算出した。

VI 研究成果

研 究 計 画 表

課 題 名	担 当	期 間
・木質建材からの VOC 放散動態調査及び気中濃度予測モデルの開発	積層接着研 樹木抽出成分研 木材乾燥研	14～16
・テルペン類などの人への快適性およびダニ防除作用の解明	生理活性チーム長 積層接着研 樹木抽出成分研	14～16

第 1 章 木質建材からの VOC 放散動態調査及び気中濃度予測モデルの開発

1 無垢木材からの VOC 類，アルデヒド類の測定

針葉樹から放散するアルデヒド類は，ホルムアルデヒド，アセトアルデヒドがほとんどであり，それらの放散量は樹種により大きく異なった。ホルムアルデヒドの放散量が多い樹種は，ヒノキ，トドマツ等であった。放散量は全試料共通して経過時間とともに減少したが，樹種により減少率には相違があった。アセトアルデヒドの放散量が多い樹種は，トウヒ，ヒノキ等であった。放散量は全試料共通して経過時間とともに減少したが，ホルムアルデヒドと同様に樹種により減少率には相違があった。スギ辺材，心材別の放散量はホルムアルデヒド，アセトアルデヒドとともに心材の方が多かった。

VOC類として検出された物質は，テルペン類が主体であり，それらの種類はモノテルペンとセスキテルペンがほとんどであった。また， α -ピネン等のモノテルペンが多い樹種と δ -カジネン等のセスキテルペンが多い樹種に大別された。TVOC値（実験開始後 168 時間経過）は樹種により相違があり，値の大小により A（ $100\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h}$ 未満），B（100 以上 $1000\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h}$ 未満），C（1000 以上 $5000\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h}$ 未満）の 3 グループに分類できた。スギについて辺材と心材を比較すると，TVOC放散量は心材の方が多かった。

2 内装木質化居室内の VOC 類の放散実態の測定

無垢のスギ，ヒノキ材で内装を改修後 4 年経過した教室において検出された物質は，それらの 85%が木材由来と考えられるテルペン類であった。非テルペン系物質であるトルエン，ウンデカン，キシレン等も検出されたが，その割合は微量であった。検出されたテルペン類は δ -カジネン， γ -カジネン，カラメネン， γ -ムウロレン等のセスキテルペンが中心であり， α -ピネン等のモノテルペン類も一部検出された。これらの物質はいずれもスギやヒノキの特徴的な香り成分の一種である。一方，改修後 4 ヶ月しか経過していない教室において検出された物質は 97%が木材由来のテルペン類であった。検出されたテルペン類は α -ピネン等モノテルペン類が 30%前後を占め，その他 δ -カジネン等セスキテルペン類で構成されていた。以上のことより改修後 4 年間，日常的に使用された教室であっても，室内空気中には木材由来のテルペン類が数多く検出されることが明らかになり，このことは木材の香りの機能性と持続性を考慮する上で興味深い点であった。また，日常的に使用されている居室内でのテルペン類の二次的変成物質については， α -ピネンの変性物であるイオン化質量数 M^+ が 98，126，140 の物質が検出された。

3 スギ乾燥材からの VOC 類, アルデヒド類の測定

過熱蒸気乾燥材および気乾材からの放散物質のうち, トルエン, キシレン, p-ジクロロベンゼン, エチルベンゼン, スチレンおよびテトラデカンの気中濃度は厚生労働省室内指針値を下回っていた。過熱蒸気乾燥材のTVOC気中濃度は, 気乾材よりも著しく低かった。これは, 過熱蒸気乾燥によってスギが本来持っている精油成分等が取り除かれたためであると考えられる。また, ホルムアルデヒドの放散速度は, 過熱蒸気乾燥材, 気乾材とも建築基準法の規制対象外となる数値 ($5\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h}$) 以下であった。

4 アセトアルデヒド簡易測定法の開発

デシケーター法によって採取された水と 2, 4-DNPH 溶液とを反応させてアルデヒド類を誘導体化し, 高速液体クロマトグラフィー (HPLC) によってホルムアルデヒド以外のアルデヒド類を定量する方法を開発した。

5 気中濃度予測モデルの開発

各種材料について, 小形チャンバー法の条件とテドラーバッグによる換気量のない条件での放散量を比較した。Q/S (換気量/面積) と 1/C (気中濃度の逆数) との関係から, ホルムアルデヒド吸収係数を算出した。この吸収係数を用いることにより, Q/S が変化した場合の放散速度を予測することが可能であることを明らかにした。

第2章 テルペン類などの人への快適性およびダニ防除作用の解明

1 テルペン類などの人への生体影響の解明

快適性増進効果に関しては, α -ピネン, リモネンの吸入が主観評価において, それぞれ「やや快適」, 「快適」であると感じられ, 生理的にも「リラックス状態」を作りだすことが, 本研究所で開発した中枢神経活動測定 (近赤外線分光法による前頭前野の脳血液動態) と自律神経活動測定 (指式の血圧・脈拍数測定) により解明された。

2 テルペン類などのダニ防除作用の解明

ヒバ単板, ヒノキ単板から揮発する成分に関しては, ヒバ材では約 12 ヶ月, ヒノキ材では約 3 ヶ月間, ヒノキ材スライス片を圧縮成形した量に関しては 8 ヶ月間以上, 有意にダニ行動抑制効果が持続し, 揮発性の精油成分がダニの行動に対し特異的に効果を示すことが明らかとなった。

VII 今後の問題点

第1章 木質建材からの VOC 放散動態調査及び気中濃度予測モデルの開発

1 無垢木材からの VOC 類, アルデヒド類の測定

主要な国産材 (スギ, ヒノキ) については, 産地別の材の VOC 類の放散特性等の解明が必要である。

2 内装木質化居室内の VOC 類の放散実態の測定

木材の二次代謝成分の放散実態の解明が必要である。

3 スギ乾燥材からの VOC 類, アルデヒド類の測定

木材の乾燥過程で発生する VOC 類の放散特性の解明が必要である。

4 アセトアルデヒド簡易測定法の開発

木材からのアセトアルデヒド発生機構の解明が必要である。

5 気中濃度予測モデルの開発

ホルムアルデヒド気中濃度に及ぼす換気量及び材料表面積の影響を明らかにすることができたが、温度・湿度の長期的な影響を明らかにする必要がある。

第2章 テルペン類などの人への快適性およびダニ防除作用の解明

1 テルペン類などの人への生体影響の解明

人の生体影響に関する残された問題点としては、 α -ピネン、リモネン以外のテルペン類に関して、データを蓄積することが望まれるという点である。

2 テルペン類などのダニ防除作用の解明

ダニに関する残された問題点としては、スギ等の他の樹種で作製した畳を用いて実験を行い、データを蓄積することが望ましいという点である。

新しい木質建材からの VOC 放散については新規交付金プロ（構造用新材料）のなかで、木材からのアセトアルデヒド放散機構については科研費（アルデヒド放散）の中で、テルペン類の人への快適性増進効果の解明に関しては、農林水産研究高度化事業（森林系環境要素がもたらす人への生理的効果の解明）のなかで継続する予定である。

VIII 研究発表

第1章

- 1) 大平辰朗（2003.2）針葉樹由来の揮発性有機化合物，AROMA RESEARCH，13
- 2) 大平辰朗，松井直之，谷田貝光克（2003.3）木材から放散される揮発性有機化合物（1），第 53 回日本木材学会大会発表要旨集，669
- 3) 大平辰朗（2003.10）木材の効用，木材工業，58（11），537-541
- 4) 大平辰朗，松井直之，谷田貝光克（2004.8）木材から放散される揮発性有機化合物（2）各種針葉樹材から放散する VOC 類・アルデヒド類について，第 54 回日本木材学会大会発表要旨集，666
- 5) 大平辰朗（2004.11）無垢の木材，シックハウスと木質建材-資料集-，森林総合研究所編，林業科学技術振興所，57-73
- 6) 塔村真一郎，井上明生，宮本康太，千葉保人（2002.10）デシケーター法によって採取された木質製品からの放散アセトアルデヒドの測定，日本木材加工技術協会第20回年次大会研究発表要旨集，pp22-23
- 7) 塔村真一郎，井上明生，宮本康太，千葉保人，龍玲（2003.5）デシケーター法を利用した木質建材からの放散アセトアルデヒドの定量法，日本接着学会誌，39（5）190-193
- 8) 塔村真一郎，井上明生，宮本康太（2003.9）デシケーター法を利用した木質建材からの放散アセトアルデヒドの簡易測定法，ブレインテクノニュース，98，13-16
- 9) 塔村真一郎（2004.4）木材自身が放散する VOC，2004 年度春期日本木材学会生物劣化研究会講演要旨集，pp14-17
- 10) 塔村真一郎，井上明生，宮本康太（2004.8）デシケーター法を利用した建材からのアセトアルデヒド放散量の簡易測定法，森林総合研究所平成 15 年度研究成果選集，pp44-45

- 11) 塔村真一郎, 宮本康太, 井上明生, 千葉保人 (投稿中) 集成材ラミナおよび長期間保管された木材素材から放散される揮発性有機化合物 (VOC) の測定, 森林総合研究所研究報告
- 12) Shin-ichiro Tohmura, Kohta Miyamoto, Akio Inoue (投稿中) Acetaldehyde emission from glued-laminated timber using phenol-resorcinol-formaldehyde resin adhesives with addition of ethanol, J Wood Science
- 13) 石川 (本田) 敦子, 井上明生, 塔村真一郎, 宮本康太 (2003.3) スギ乾燥材からの揮発性有機化合物 (VOC) 及びアルデヒド類の放散量, 第 53 回日本木材学会大会研究発表要旨集, p603
- 14) Atsuko Ishikawa (Honda), Akio Inoue, Shin-ichiro Tohmura, Kohta Miyamoto, Tatsuro Ohira, Isao Kobayashi (2004.11) VOCs Emissions from High-temperature Dried Sugi (Cryptomeria Japonica D.Don) Lumber, 3rd International Symposium on Surfacing and Finishing of Wood Kyoto, pp308-312
- 15) 宮本康太, 塔村真一郎, 井上明生 (2003.11) 小形チャンバー法による各種木質材料からの化学物質放散量の測定, 第 21 回日本木材加工技術協会年次大会要旨, 86-87
- 16) 宮本康太, 塔村真一郎, 井上明生, 千葉保人 (2004.8) 各種木質材料の VOC 放散挙動および放散量に及ぼす換気量の影響, 第 54 回日本木材学会大会研究発表要旨集, p170
- 17) Kohta Miyamoto, Shin-ichiro Tohmura, Akio Inoue (2004.9) Measurement of VOCs emissions from various wood-based materials by using JIS small chamber method, 4th European Wood Based Panel Symposium, pp24 1-10
- 18) 宮本康太, 塔村真一郎, 井上明生 (2004.11) 木質建材等の放散特性データ, 湿度と換気量の影響, シックハウスと木質建材-資料集-, 森林総合研究所編, 林業科学技術振興所, pp146-156
- 19) 井上明生 (2004.11) 木質建材からの VOC 放散特性の把握と室内濃度予測, シックハウスと木質建材-資料集-, 森林総合研究所編, 林業科学技術振興所, pp39-56

第 2 章

- 1) T Mori, Y Miyazaki (2002.4) Effect of softwood thin veneers in tatami on the activity of the house dust mite Dermatophagoides pteronyssinus. J Wood Sci, 48, 163-164
- 2) 宮崎良文 (分担) (2002.6) 森林浴と快適性, 社会医学事典 (高野健人他編 朝倉書店), 348-349
- 3) 宮崎良文 (2002.5) 自然由来の香りと快適性 (特集) 臭気の研究, 33 (5), 277-281
- 4) 恒次祐子他 (2002.5) パーソナリティと生理応答 (1) -嗅覚刺激を例として-, 日本生理人類学会誌, 7 (1) 特別号 第 47 回大会要旨集, 56-57
- 5) Y. Tsunetsugu et al. (2002.8) Relationship between personality and physiological responses to odorous stimuli., 6th International Congress of Physiological Anthropology, Abstracts 21
- 6) Y. Miyazaki et al. (2002.8) Nature and comfort., 6th International Congress of Physiological Anthropology, Abstracts 20
- 7) 宮崎良文 (編著) (2002.8) 快適さのおはなし (日本規格協会), 145
- 8) 宮崎良文 (2002.11) 自然と人の関係, 日本生気象学会雑誌, 39 (3), S72
- 9) 宮崎良文 (分担) (2003.2) 木材の快適性を科学する 檜, 日本の原点シリーズ 木の文化 2 (新建新聞社), 2-5
- 10) 宮崎良文 (2003.4) 自然と快適性, 日本生気象学会雑誌, 40 (1), 55-59

- 11) 宮崎良文 (2003.5) 近赤外線分光法を用いた自然由来の快適性の評価 計測と制御, 42 (5), 430-434
- 12) 宮崎良文 (分担) (2003.5) 日常生活における快適性 快適ライフを科学する (薩本弥生編 丸善), 97-128,
- 13) 恒次祐子, 森川岳, 宮崎良文, 上脇達也 (2003.5) パーソナリティと生理応答 II, 日本生理人類学会誌, 8 (1) 特別号 第49回大会要旨集, 50-51
- 14) 恒次祐子, 森川岳, 宮崎良文, 上脇達也 (2003.5) パーソナリティと生理応答 III, 日本生理人類学会誌, 8 (1) 特別号 第49回大会要旨集, 52-53
- 15) 宮崎良文, 恒次祐子 (2003.7) 生理的多型性の考え方に関する試案, 日本生理人類学会誌, 8 (3), 35-38
- 16) 宮崎良文 (2003.8) 森林浴はなぜ体にいいか (文春新書), 180
- 17) 宮崎良文 (分担) (2003.8) 森のここちよさー森林浴はなぜ快適かー 森をはかる (日本林学会「森林科学」編集委員会), 196-199
- 18) 宮崎良文 (2003.9) 快適環境とは?, JAPAN Aromatherapy, 2-3
- 19) 宮崎良文 (分担) (2003.10) 日本人の嗅覚, 日本人の事典 (佐藤方彦編 朝倉書店), 47-52
- 20) 宮崎良文 (2003.10) 木と健康・快適性, 公共建築, 28-31
- 21) 宮崎良文, 恒次祐子 (2003.10) 生理的多型性の考え方とアプローチ法シンポジウム「生理人類学と考えるー5つのキーワードを巡って」, 日本生理人類学会誌, 8 (2) 特別号第50回大会要旨集, 14-15
- 22) 宮崎良文 (2003.11) 木材と感性, 木材工業, 58 (11), 534-536
- 23) 宮崎良文 (2003.12) 生理人類学入門 人と五感と建築と 建築と嗅覚ー芳香と悪臭の生理的評価, Argous-eye, 12, 32-35
- 24) 恒次祐子他 (2004.4) 時間分解分光法を用いた前頭前野 Hb 濃度絶対値計測の試み, 日本生理人類学会誌, 9 特別号 (1) 第51回大会要旨集, 48-49
- 25) Y Hiramatsu, Y Miyazaki (2004.6) Effective period of volatiles from softwood veneers embedded in tatami mats on the activity of house dust mites, J Wood Sci, 50, 217-222
- 26) M Hiraide, Y Miyazaki, and Y Shibata (2004.8) The smell and odorous components of dried shiitake mushroom, Lentinula edodes I: Relationship between sensory evaluations and amounts of odorous components, J Wood Science, 50, 358-364
- 27) 宮崎良文, 恒次祐子 (2004.9) 木材がもたらす生理的效果とダニ防除作用, 建築と積算, 415, 22-25
- 28) 大平辰朗 (2004.11) 無垢の木材, シックハウスと木質建材-資料集-, 森林総合研究所編, 林業科学技術振興所, 57-73
- 29) 森川岳, 恒次祐子, 宮崎良文 (2005.3) 濃度の異なる α -ピネンの吸入が生体に及ぼす影響ー主観評価, 自律神経活動ならびに脳活動を指標としてー, 第55回日本木材学会大会研究発表要旨集, 82
- 30) 森川岳, 恒次祐子, 宮崎良文 (2005.3) リモネンの吸入が主観評価, 自律神経活動ならびに脳活動に及ぼす影響, 第55回日本木材学会大会研究発表要旨集, 192
- 31) 平松靖, 松井直之, 大平辰朗, 宮崎良文, 今井康德 (飛騨フォレスト) (2005.3) ヒノキ材ス

ライス片畳の揮発成分が屋内塵性ダニの行動に及ぼす長期的影響，第 55 回日本木材学会大会研究発表要旨集，81

- 32) 松井直之，平松靖，大平辰朗，宮崎良文，今井康德（飛騨フォレスト）他（2005.3）ヒノキ材スライス片畳の揮発成分の長期的変動，第 55 回日本木材学会大会研究発表要旨集，81

IX 研究担当者

第 1 章

井上明生，塔村真一郎，宮本康太，大平辰朗，松井直之，本田（石川）敦子

第 2 章

宮崎良文，平松靖，松井直之，大平辰朗

第1章 木質建材からの VOC 放散動態調査及び

気中濃度予測モデルの開発

ア 研究目的

厚生労働省は総揮発性有機化合物（TVOC）の室内濃度の暫定目標値として $400\mu\text{g}/\text{m}^3$ を提案しているが、TVOCには木材の天然成分が含まれているので、これらが規制対象となる可能性がある。しかし、素材からのVOC放散の実態は、定量的にはほとんど明らかにされていない¹⁾。そこで、本研究では、無垢材そのものからのVOC類、アルデヒド類の放散実態を明らかにすることを目的として、小形チャンバー法（JIS A1901）による測定を行った（1）。また、木質内装化居室内のVOC類の放散の実態、二次変成物質の実態を解明するため、木質内装の教室での実測を行った（2）。

主要国産材であるスギについては乾燥材の需要が増加するとともに、蒸気加熱式の人工乾燥施設の導入が進んでいる。そこで、スギ材からの VOC 放散量に及ぼす乾燥処理の影響を明らかにすることを目的として、スギ柱材を高温で人工乾燥処理したものと天然乾燥したものからの化学物質の放散量を JIS 小形チャンバー法によって測定した（3）。また、デシケーター法を利用した木質材料からのアセトアルデヒドの簡易測定法の開発（4）および換気条件をパラメータとした気中濃度の予測モデルの開発（5）を行った。

イ 研究方法

1 無垢木材からの VOC 類、アルデヒド類の測定

1-1 材料

建築用材等として用いられることが多い針葉樹材 13 種類（スギ、ヒノキ、ヒノキアスナロ、ネズコ、サワラ、ツガ、トウヒ、モミ、クロマツ、アカマツ、エゾマツ、トドマツ、カラマツ）を実験に用いた。樹齢は 50-70 年生、供試部位は心材部である。スギについては、心材、辺材別にそれぞれ測定を行った。試験体はいずれも建築用材を目的とした人工乾燥材である。試験に用いる試験体は 1 週間以上、 25°C 、相対湿度 50%の条件にて養生し、実験開始直前に、暴露面を 1mm 程度削り、新鮮な面を露出させて実験に供した。試験開始直前の試験体の含水率は 10-15%の範囲内であった。

1-2 捕集方法

VOC類・アルデヒド類の捕集法は、JIS A 1901（小形チャンバー法）に準じたADPACシステム（アドテック製）を用いて行った。ADPACシステム測定条件 チャンバー容量：20L，試料設置率： $2.2\text{m}^2/\text{m}^3$ ，温度： 28°C ，湿度：50%RH，換気回数：0.5 回/h，空気流量：0.167L/min。吸引量：アルデヒド類（10L），VOC類（3.2L）。VOC類・アルデヒド類の捕集は、チャンバーに試料を設置後 1，24，72，192，336，672 時間経過後にそれぞれ行った。

1-3 吸着剤

アルデヒド・ケトン類の捕集には、DNPH アクティブサンプラー（LpDNPH-S10，SUPELCO 製），VOC 類の捕集には PEJ-02（carbotrap B+carboxen 1000，SUPELCO 製）をそれぞれ使用した。

1-4 アルデヒド類分析方法

捕集した物質の定性定量分析には HPLCを用いた。HPLC条件 カラム：Discovery Amide C16 (25cm×4.6mm, SUPELCO製), 移動相A：CH₃CN/H₂O = 60/40 (v/v), B：CH₃CN/H₂O = 40/60 (v/v), A100% を 5 分間, その後直線グラジエントで 20 分かけてA100% からB100% へ, その後 15 分間保持。カラム温度：40°C, 流速：1.2mL/min, 検出：UV at 360nm。

1-5 VOC 類分析法

捕集した VOC 類は, 加熱脱着-濃縮装置 (ATD400, Perkin Elmer 製) 付 GC/MS (HP6980/5973MSD, Agilent 製) を用いて分析した。ATD 条件 一次脱着温度：240°C, コールドトラップ：エアモニタリングトラップ, トラップ温度：-5°C, 二次脱着温度：300°C, スプリット比：1/20, トラスファーライン温度：220°C, GC/MS 分析条件 GC カラム (HP-5MS), カラム昇温温度：40°C (10min 保持), 40-280°C (4°C /min), 280°C (15min 保持), MS 検出モード：SCAN, MS イオン化モード：EI。

検出された物質の同定は, ライブラリー (NIST, Mass Finder), 既単離物質の保持時間, 文献値等を参考にして行った。また, TVOC 値は, n-ヘキサンから n-ヘキサデカンまでの範囲で検出された物質を対象にトルエン換算値として計算した。

2 内装木質化居室内の VOC 類の放散実態の測定

スギ, ヒノキの無垢材で主に内装木質化が施されている教室 (埼玉県玉川村玉川小中学校 (改修後 4 年), 同県都幾川村萩ヶ丘小学校 (改修後 4 ヶ月)) にて ISO の方法に準じて, 空気のサンプリングを 2004 年 8 月に行った。サンプリング時間:4 時間, 流速：100mL/min, 捕集量：24L。なお, 吸着剤 (アルデヒド類用, VOC 類用) 及び分析方法は前項 1 と同じ条件で行った。

3 スギ乾燥材からの VOC 類, アルデヒド類の測定

3-1 供試材

栃木県産スギ心持ち柱材 (10.8cm×10.8cm×130cm (L)), 初期含水率 57-83%を実験に用いた。

3-2 乾燥方法

①過熱蒸気乾燥材の調製：過熱蒸気乾燥機 (タカハシキカン製) により行った。

②気乾材の調製：恒温恒湿室 (20°C, 相対湿度 45%および 75%) に 70 日間または 1 年間放置した。仕上がり含水率は 22%であった。なお実験開始直前には, 暴露面を 1mm 程度削り, 新鮮な面を露出させて実験に供した。

3-3 捕集方法

VOC類・アルデヒド類の捕集法は, JIS A 1901 (小形チャンバー法) に準じたADPACシステム (アドテック製) を用いて行った。ADPACシステム測定条件 チャンバー容量：20L, 試料設置率：2.2m²/m³, 温度：28°C, 湿度：50%RH, 換気回数：0.5 回/h, 空気流量：0.167L/min。VOC類・アルデヒド類の捕集は, チャンバーに試料を設置後 1, 3, 7, 21 日経過後にそれぞれ行った。吸着剤にはアルデヒド類用にDNPHカートリッジ (Waters製), VOC類用にTenax-TA (SUPELCO製) を用い, 空気採取量はアルデヒド類は 5.0L, VOC類は 3.2Lとした。

3-4 分析方法

アルデヒド類は高速液体クロマトグラフ LC-10Avp システム (島津製作所) を用い, UV 検出波長 360nm, STR-ODSII カラム (信和化工) 15cm を 2 本連結, カラム温度 40°C, アセトニトリル／

水のグラジエント系（60/40（5分）、30分かけて0/100へ、5分後直ちに60/40に戻す）、流速1mL/min、注入量20μLで分析を行った。標準物質にはTO11/IP6A Carbonyl-DNPH Mix（SUPELCO製）を用いた。またVOC類は、加熱脱着-濃縮装置（ATD400, Perkin Elmer製）付GC/MS（HP6980/5973MSD, Agilent製）を用いて1－5と同様の条件で分析した。

4 アセトアルデヒド簡易測定法の開発

4－1 DNPH溶液の調製と誘導体化

約1gの2,4-DNPH（WAKO特級試薬）をアセトニトリルに溶かし、過塩素酸（60%）を1mL加えて溶液を酸性にし、アセトニトリルで200mLまで希釈したものをDNPH溶液とした。デシケーター法（JIS A 1460）によって採取された水1mLとDNPH溶液0.5mLを混合し、アセトニトリルで5mLに希釈した溶液を室温で30分以上放置後HPLC測定に供した。

4－2 アセトアルデヒドの分析

アセトアルデヒドはHPLC装置（島津LC-VP）を用い、3－4項と同様の条件で分析した。

4－3 塩酸ヒドロキシルアミン滴定法

塩酸ヒドロキシルアミン滴定法はホルムアルデヒド系樹脂中の遊離ホルムアルデヒドの定量に用いられるが^{2,3)}、ここではアセトアルデヒドの定量に応用した。アセトアルデヒドを所定量含む水溶液25mLを希塩酸溶液でpH4に調整し、これに0.5M/L塩酸ヒドロキシルアミン水溶液30mLを加え、30分間室温で放置した。この溶液を0.1M/Lの水酸化ナトリウム溶液でpH4付近まで滴定した。ブランク値との差からアセトアルデヒド量を算出した。

4－4 非ホルムアルデヒド系接着剤を用いた合板の製造

市販の酢酸ビニルエマルジョン樹脂系接着剤をラワン単板（300×300×1.6mm含水率約10%）の片面当たり16g塗布し、30℃で24時間、10kgf/cm²の圧力でプレスして3層の合板を製造した。1日常温室内で放置後、ラワン単板と合板をそれぞれデシケーター法の測定に供した。

5 気中濃度予測モデルの開発

5－1 供試材料

供試した各種市販木質材料を表1-1および表1-2に示す。

5－2 試験方法

各材料とも小形チャンバー法により放散量の測定を行った。試験条件はチャンバー容積20L、温度28℃、相対湿度50%、換気回数0.5回/h（換気量Q=0.01m³/h）、試料負荷率2.2m²/m³とした。試験期間は21日間とし、試験開始から1, 3, 7, 14, 21日目の気中濃度を経時的に測定した。捕集および分析は3－3項と同様である。チャンバー法による放散試験終了後、直ちに試験片はチャンバーから20L気体採取用バッグ（テドラーバッグ（フッ化ビニル製））内に移された（換気量Q=0）。試験片を入れたテドラーバッグを28℃、50%RHの清浄空気で満たして密閉し、28℃の恒温槽内に静置した（図1-1）。1日経過後にテドラーバッグ内の試料空気を採取し、気中濃度を求めた。

ウ 結果

1 無垢木材からのVOC類、アルデヒド類の測定

針葉樹から放散するアルデヒド類は、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒドがほとんどであり、

それらの放散量は樹種により大きく異なった。ホルムアルデヒドの放散量が多い樹種は、ヒノキ、トドマツ等であった（図 1-2, 1-3）。放散量は全試料共通して経過時間とともに減少したが、樹種により減少率には相違があった。アセトアルデヒドの放散量が多い樹種は、トウヒ、ヒノキ等であった（図 1-4, 1-5）。放散量は全試料共通して経過時間とともに減少したが、ホルムアルデヒドと同様に樹種により減少率には相違があった。スギ辺材、心材別の放散量はホルムアルデヒド、アセトアルデヒドとともに心材の方が多かった。

代表的な針葉樹から検出された物質のうち、主要な物質を表 1-3～1-8 に示す。VOC類として検出された物質は、テルペン類が主体であり、それらの種類はモノテルペンとセスキテルペンがほとんどであった。また、 α -ピネン等のモノテルペンが多い樹種と δ -カジネン等のセスキテルペンが多い樹種に大別された（図 1-6）。TVOC値（実験開始後 168 時間経過）は樹種により相違があり、値の大小により A ($100\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h}$ 未満)、B (100 以上 $1000\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h}$ 未満)、C (1000 以上 $5000\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h}$ 未満) の 3 グループに分類できた（図 1-7）。スギ辺材、心材別の放散量（TVOC量）は心材の方が多かった。

2 内装木質化居室内の VOC 類の放散実態の測定

無垢のスギ、ヒノキ材で改修後 4 年経過した教室内において検出された物質は、それらの 85%が木材由来と考えられるテルペン類であった。非テルペン系物質であるトルエン、ウンデカン、キシレン等も検出されたが、その割合は微量であった。検出されたテルペン類は δ -カジネン、 γ -カジネン、カラメネン、 γ -ムウロレン等のセスキテルペンが中心であり、 α -ピネン等のモノテルペン類も一部検出された。これらの物質はいずれもスギやヒノキの特徴的な香り成分の一種である。

一方、改修後 4 ヶ月しか経過していない教室内において検出された物質の 97%が木材由来のテルペン類であった。検出されたテルペン類は α -ピネン等モノテルペン類が 30%前後を占め、その他 δ -カジネン等セスキテルペン類で構成されていた。

また、日常的に使用されている居室でのテルペン類の二次的変成物質として、 α -ピネンの変性物であるイオン化質量数 M^+ （分子量+1）が 98, 126, 140 の物質が検出された。

3 スギ乾燥材からの VOC 類、アルデヒド類の測定

過熱蒸気乾燥材および気乾材からの放散物質のうち、トルエン、キシレン、p-ジクロロベンゼン、エチルベンゼン、スチレンおよびテトラデカンの気中濃度は厚生労働省室内指針値を下回っていた。過熱蒸気乾燥材からの TVOC 気中濃度は、気乾材のそれよりも著しく低かった。これは、過熱蒸気乾燥によってスギが本来持っている精油成分等が取り除かれたためであると考えられる。

また、ホルムアルデヒドの放散速度は、過熱蒸気乾燥材と気乾材の間に大きな差異は見られず、どちらも建築基準法の規制対象外となる数値 ($5\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h}$) をクリアする値であった（図 1-8）。過熱蒸気乾燥材からのアセトアルデヒド放散は気乾材のそれより多い傾向にあったが、1 ヶ月後には同じ程度の低いレベルになった（図 1-9）。

4 アセトアルデヒドの簡易測定法の開発

所定濃度に調製したアセトアルデヒド水溶液について塩酸ヒドロキシルアミン法を用いて定量し、DNPH- HPLC 法での定量値との比較を行った。その結果、図 1-10 に示すように、両者のアセトア

ルデヒド値は極めて良く一致した。ホルムアルデヒド系接着剤で接着された市販の各種木質建材をデシケータ法測定に供し、得られたサンプル水に対して DNP-HPLC 法を適用した例を図 1-11 に示す。

同一試料におけるホルムアルデヒドの値について、従来のアセチルアセトン法と比較したものを図 1-11 に示す。MDF においてややばらつきが見られるものの、両者は概ねよく一致した。

非ホルムアルデヒド系接着剤である酢酸ビニルエマルジョン系接着剤 (PVAc) を用いた合板からは、微量ではあるもののアセトアルデヒドが検出され、接着剤から放散していることが明らかになった (図 1-12)。

5 気中濃度予測モデルの開発

各種材料について、小形チャンバー法の条件とテドラーバッグによる換気量のない条件での放散量を比較した。図 1-13 に合板のホルムアルデヒド放散に関する Q/S と $1/C$ の関係を示す。なお、小形チャンバー法および密閉容器の Q/S はそれぞれ、0.23, 0 となる。いずれの材料についても図中に示すように正の傾きを持つ直線関係となった。

次に各材料について Q/S と $1/C$ の関係を求め、 $Q/S=0.05$ (建築基準法で面積制限のないときの条件) での放散速度 $E_{0.05}$ とホルムアルデヒド吸収係数 α を算出した結果を表 1-9 に示す。F☆☆☆☆のものはいずれも $5\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h}$ とほぼ同じかそれを下回る結果となった。吸収係数は合板、ボード類が 0.5-1.5 の範囲であったのに対し、表面化粧の施してある特殊合板ではいずれも 0.3 以下と小さい値になった。

エ 考察

1 無垢木材からの VOC 類、アルデヒド類の測定

抽出成分は心材の方が多いことは知られているが、VOC 放散量も同様の傾向が見られた。

2 内装木質化居室内の VOC 類の放散実態の測定

改修後 4 年間、日常的に使用された教室内であっても、室内空気中には木材由来のテルペン類が数多検出されることが明らかになり、このことは木材の香りの機能性と持続性を考慮する上で興味深い点であった。

3 スギ乾燥材からの VOC 類、アルデヒド類の測定

過熱蒸気乾燥という条件下でアセトアルデヒドが生成していることが示唆された。過熱蒸気乾燥材からの TVOC 放散量は気乾材より少なかった。その一因として高温加熱による乾燥過程での VOC 類の揮発が考えられる。

4 アセトアルデヒドの簡易測定法の開発

デシケーターサンプル中には、多様なカルボニル化合物が存在するため、アセトアルデヒドだけの値を正確に求めることは困難であるが、図 1, 2 の結果から本法によってアセトアルデヒドはほぼ正確に定量できると考えられる。本法はアセトアルデヒドの発生源となる可能性がある非ホルムアルデヒド系接着剤にも適用できる。

エ 気中濃度予測モデルの開発

換気量の異なる条件での気中濃度を比較することによって、木質材料のホルムアルデヒド吸収係数の算出、および換気量による気中濃度予測ができると考えられる。また、材料表面性状の放散特性への影響が定量的に評価でき、放散速度の予測が可能であることを明らかにした。

オ 今後の問題点

1 無垢木材からの VOC 類、アルデヒド類の測定

主要な国産材（スギ、ヒノキ）については、産地別の材の VOC 類の放散特性の解明が必要である。

2 内装木質化居室内の VOC 類の放散実態の測定

木材の二次代謝成分の放散実態の解明が必要である。

3 スギ乾燥材からの VOC 類、アルデヒド類の測定

木材の乾燥過程で発生する VOC 類の放散特性の解明が必要である。

4 アセトアルデヒドの簡易測定法の開発

木材からのアセトアルデヒド発生機構の解明が必要である。

エ 気中濃度予測モデルの開発

ホルムアルデヒド気中濃度に及ぼす換気量及び材料表面積の影響を明らかにすることができたが、温度・湿度の長期的な影響を明らかにする必要がある。

カ 要約

無垢の木材の VOC 類及びアルデヒド類のデータについては、厚生労働省が室内濃度指針値として策定している 13 物質のうち、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド以外はどの試料からも検出されなかった。また針葉樹の無垢材から放散される VOC のほとんどはテルペン類であり、その種類と量は樹種によって異なることがわかった。また TVOC の放散量によって樹種をグループ分けすることができた。心材の方が辺材よりもアルデヒド類および VOC 放散量が多かった。これらの結果は建材、建築関連の業界等や行政サイドにおいて材料の選定や今後の VOC 対応策を考慮する上で参考になる。また、木質内装化された居室内の VOC 類はテルペン類が主体であり、改修後 4 年経っても放散が低濃度で持続していることがわかった。また乾燥方法の違いに依らず、スギ材からの放散 VOC は 13 物質のうち、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド以外は検出されなかった。デシケータ法を利用したアセトアルデヒドの測定法が開発され、簡便法として利用できる。また気中濃度予測モデルを利用することにより材料のホルムアルデヒド吸収係数の算出や換気量から気中濃度を予測することが可能となった。

キ 引用文献

- 1) 井上明生：日本接着学会誌, **38** (6), 201-206 (2002)
- 2) S.Tohmura, M.Higuchi, Y.Hattori, and I.Sakata : Mokuzai Gakkaishi, **40** (4), 390-398 (1994)
- 3) M.A.R.Santana, M.G.D.Baumann, and A.H.Conner,: Wood Chemistry and Technology, 16 (1), 1-19 (1996)

(塔村真一郎, 宮本康太, 大平辰郎, 松井直之, 石川 (本田) 敦子, 井上明生)

表 1-1. 供試材料（合板・ボード類）

	種類	ホルムアルデヒド 等級	密度 (g/cm ³)
合板	スギ	F☆☆☆☆	0.42
	ラージ	F☆☆☆☆	0.58
	国産カラマツ	F☆☆☆☆	0.57
	ラジアータパイン	F☆☆☆☆	0.49
	パーティクルボード	E1	0.71
	MDF	E0	0.66

表 1-2. 供試材料（特殊合板）

	記号	表面の種類	厚さ (mm)
特殊加工化粧合板	S1	ポリウレタン(塗布)	2.5
	S2	不飽和ポリエステル(塗布)	2.5
	S3	不飽和ポリエステル(塗布)	2.5
	S4	不飽和ポリエステル(塗布)	3.0
	S5	不飽和ポリエステル(塗布)	2.5
	S6	塩化ビニル(シート張り)	2.5
	S7	不飽和ポリエステル(塗布)	2.5
	S8	オレフィン(シート張り)	4.0
天然化粧合板	N1	ウレタン樹脂(塗装)	4.0
	N2	ポリエステルアクリレート樹脂(塗装)	5.7
	N3	アクリルウレタン樹脂(塗装)	5.0
	N4	アクリル系樹脂(塗装)	4.0



図1-1. テドラーバッグを用いた放散試験（換気量Q=0の条件）

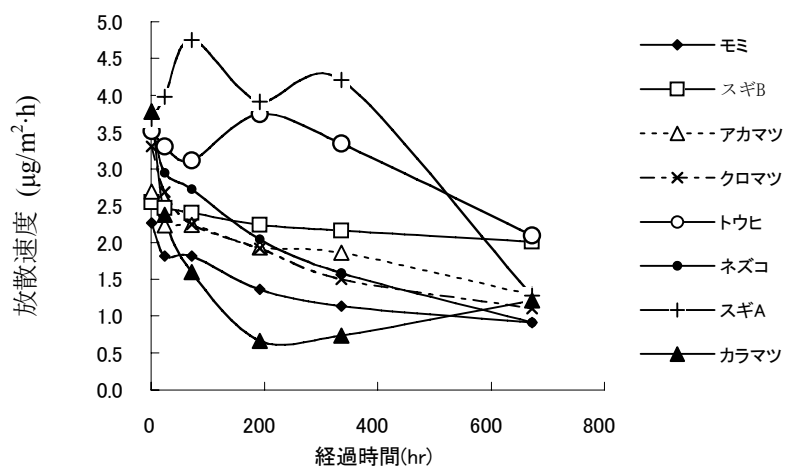


図 1-2. 針葉樹材から放散するホルムアルデヒド経時変化 (1)

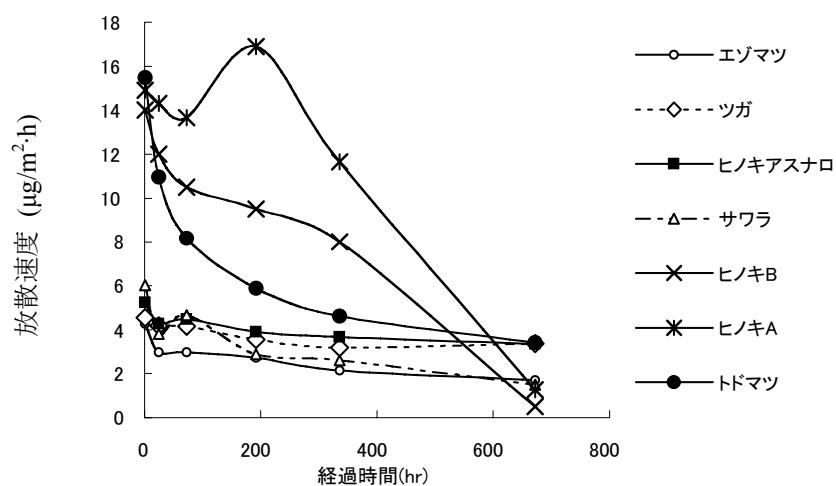


図 1-3. 針葉樹材から放散するホルムアルデヒド経時変化 (2)

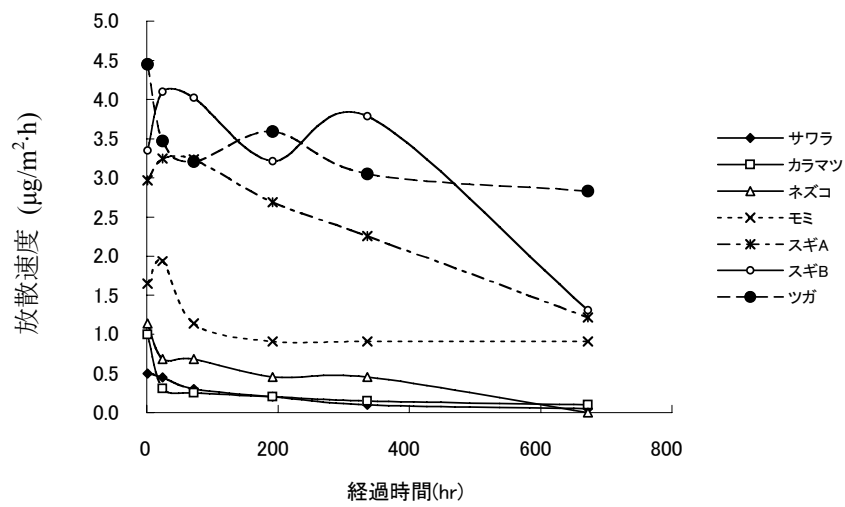


図 1-4. 針葉樹材から放散するアセトアルデヒド経時変化 (1)

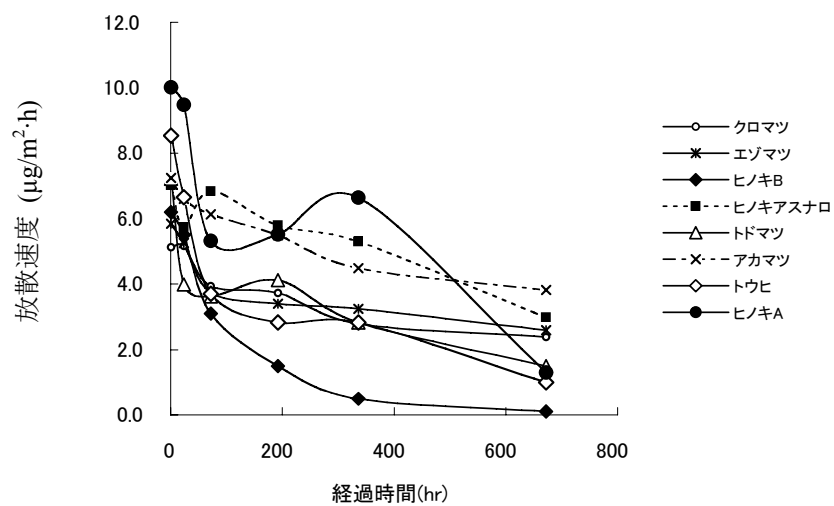


図 1-5. 針葉樹材から放散するアセトアルデヒド経時変化 (2)

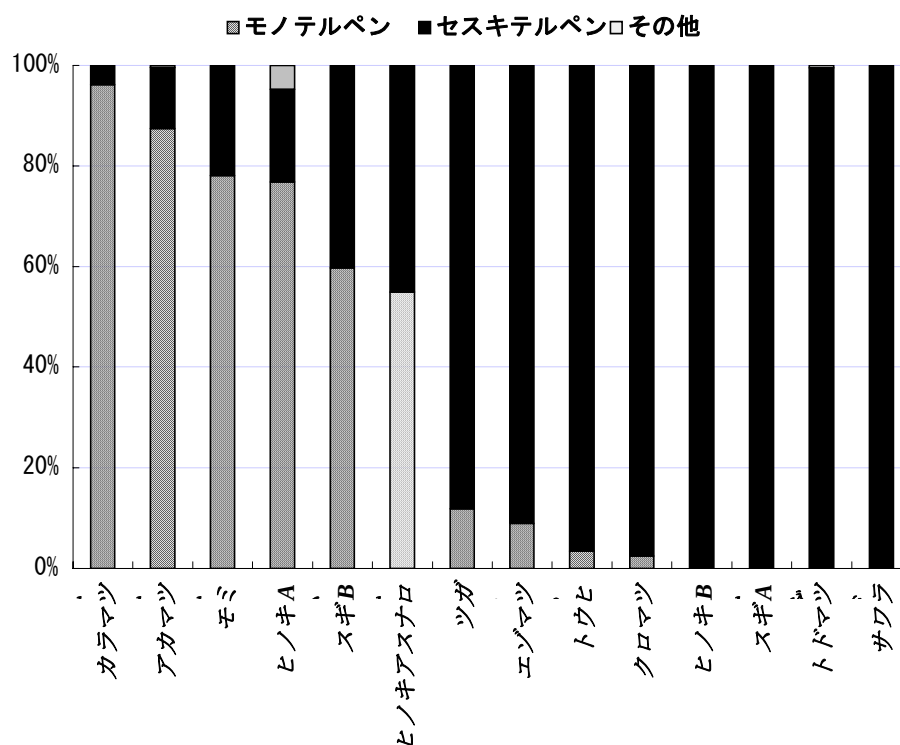


図 1-6. 針葉樹材から放散する VOC 類の組成

表 1-3. スギ材から放散する VOC 類

主な化合物	相対割合 (%)
Copaene	1.2
β -Elemene	0.2
β -Caryophyllene	1.4
1(5)11-Guaiadiene	0.3
1,5,7,(11)-Elematriene	0.7
α -Caryophyllene	2.2
γ -Murolene	0.3
Aromadendrene	0.9
1,6,7-Cadina-4,9-diene	18.2
γ -Cainene	0.7
δ -Cadinene	67.4
1,2,3,4,6,8-hexahydro-1-isopropyl-4,7-dimethyl-naphthalene	2.5
1,2,-dihydro-1,1,6-trimethyl-naphthalene	3.1
α -Cubebene	0.5
Cadalene	0.5

表 1-4. ヒノキ材から放散する VOC 類

主な化合物	相対割合(%)
δ-3-Carene	0.1
α-Pinene	8.1
Camphene	0.4
β-Pinene	0.1
β-Myrcene	0.1
o-Cymene	0.5
Limonene	1.4
Terpinolene	0.3
1,3,6-Elementrene	0.2
hexamethyl-1,3,5-Cyclononatriene	0.2
Isolongifolene	0.3
Copaene	1.9
β-Elementrene	5.0
decahydro-1H-cycloprop-Azulene	0.4
β-Caryophyllene	0.3
Germacrene B	0.8
α-Caryophyllene	1.5
1(10)-Aristolene	1.3
γ-Muurolene	11.3
1,6,7-Cadina-4,9-diene	23.0
γ-Cadinene	42.3
Cadalene	0.3

表 1-5. ヒノキアスナロ材から放散する VOC 類

主な化合物	相対割合(%)
Isolongifolene	0.4
3-Longipinene	7.5
α-Cedrene	2.6
Thujopsene	35.0
γ-Curcumene	0.4
β-Himachalene	1.0
α-Longipinene	8.7
2,7(14)-Chamigradiene	8.6
β-Selinene	0.4
2,6-Himachaladiene	24.3
Cuparene	7.3
γ-Cuprenene	3.7

表 1-6. アカマツ材から放散する VOC 類

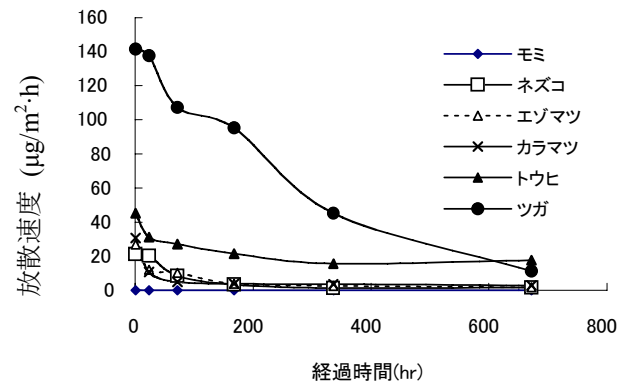
主な化合物	相対割合(%)
α -Pinene	69.3
Camphene	2.8
β -Pinene	2.5
β -Myrcene	0.7
α -Phellandrene	0.4
α -Terpinene	0.3
p-Cymene	0.4
Limonene	4.7
Terpinolene	0.7
3-Longipinene	0.4
Valencene	0.2
Longicyclene	1.4
Isolongifolene	0.6
7(12)-Sativene	0.3
Longifolene	15.4

表 1-7. カラマツ材から放散する VOC 類

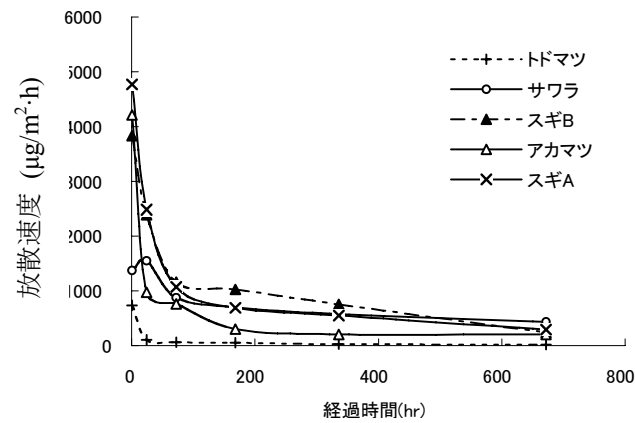
主な化合物	相対割合(%)
Acetic acid	4.5
α -Pinene	77.5
Camphene	4.9
β -Pinene	2.9
p-Cymene	1.6
Limonene	5.1
p-Mentha-1,3,5,8-tetraene	1.9
1(10)4-Cadinadiene	1.7

表 1-8. トドマツ材から放散する VOC 類

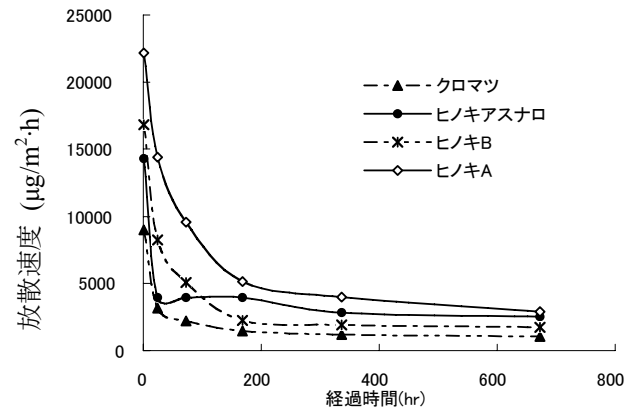
化合物名	相対割合(%)
3-Longipinene	0.4
Clovene	0.3
Cyclosativene	0.4
Copaene	9.4
7(12)-Sativene	0.3
β -Elemene	0.4
1,5,7(11)-Elematriene	0.4
α -Cubebene	3.6
β -Caryophyllene	1.4
1(10)-Aristolene	0.6
β -Cubebene	0.3
γ -Muurolene	1.0
α -Caryophyllene	0.6
γ -Cadinene	4.2
1(10)4-Cadinadiene	1.1
(+)-Cadinene	0.9
α -Gurjunene	0.7
1,6,7-Cadina-4,9-diene	17.4
δ -Cadinene	40.7
1,2,3,4,6,8-hexahydro-1-isopropyl-4,7-dimethyl-Naphthalene	2.0
α -Muurolene	2.3
4-isopropyl-1,6-dimethyl-Naphthalene	0.7
M+204	10.8



A



B



C

図 1-6. 針葉樹材の TVOC (放散速度, トルエン換算) 経時変化
(実験開始後 168 時間経過後 A : $100\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h}$ 未満, B : 100 以上 $1000\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h}$ 未満,
C : 1000 以上 $5000\mu\text{g}/\text{m}^2\cdot\text{h}$ 未満)

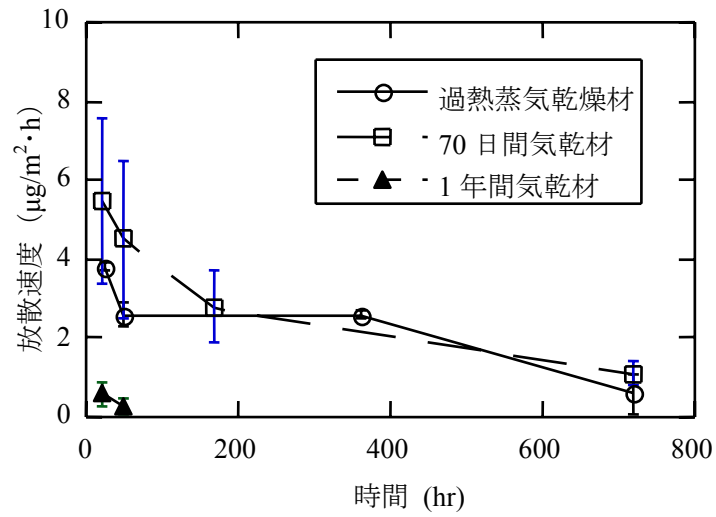


図 1-7. 気乾材および過熱蒸気乾燥材から放散するホルムアルデヒドの放散速度

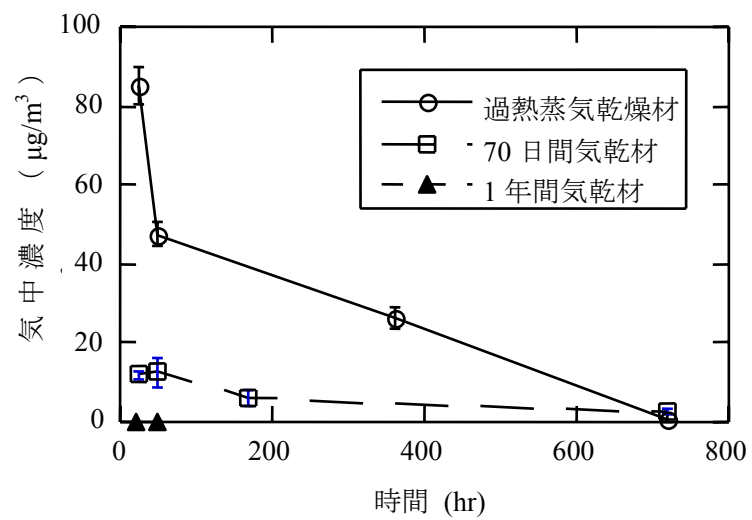


図 1-8. 気乾材および過熱蒸気乾燥材から放散するアセトアルデヒドの気中濃度

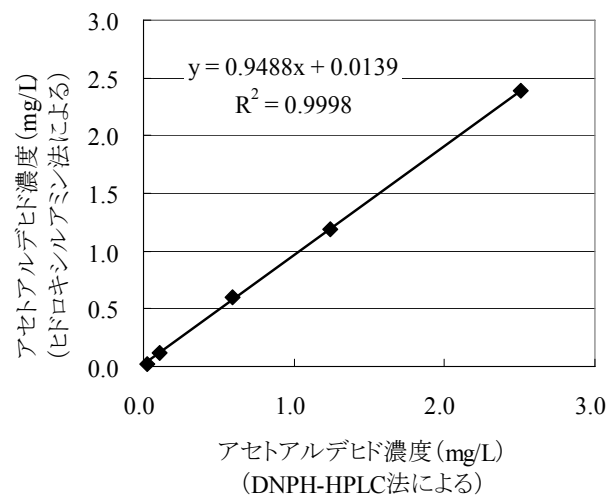


図 1-9. アセトアルデヒド定量におけるヒドロキシルアミン法と DNPH-HPLC 法の相関

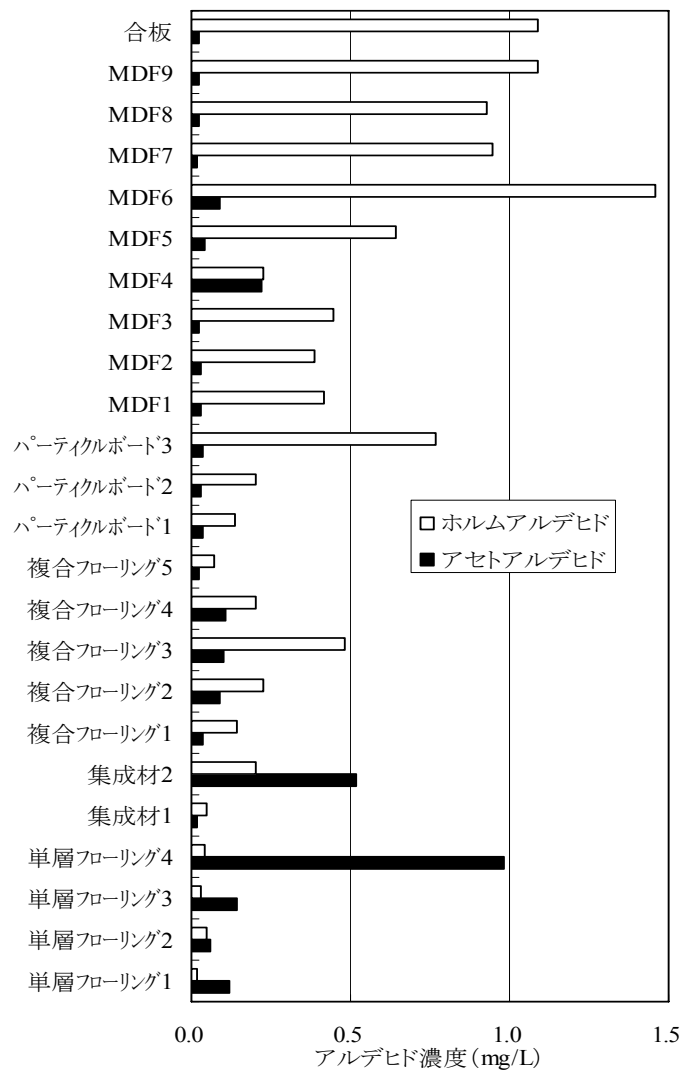


図 1-10. DNPH-HPLC 法によるアセトアルデヒド定量の各種木質建材への適用例

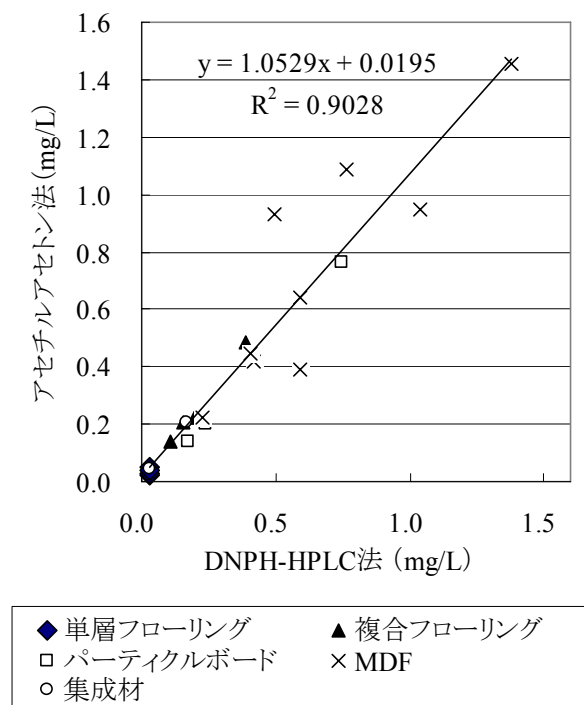


図1-11. ホルムアルデヒド定量におけるアセチルアセトン法とDNPH-HPLC法の相関

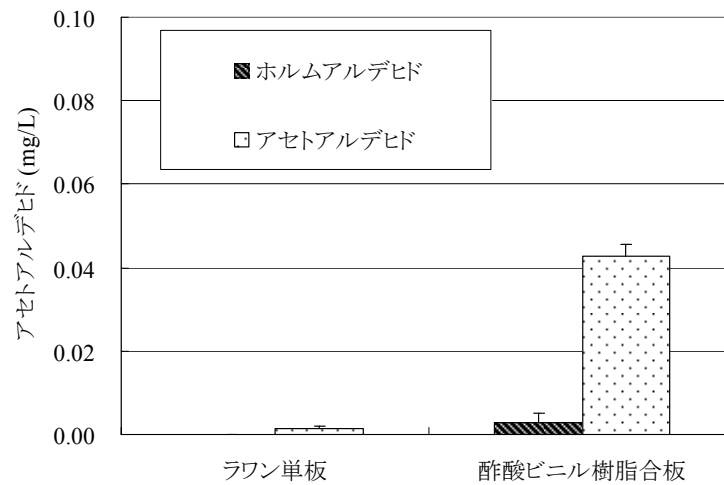


図1-12. 非ホルムアルデヒド系接着剤を用いた合板からのアセトアルデヒド放散量

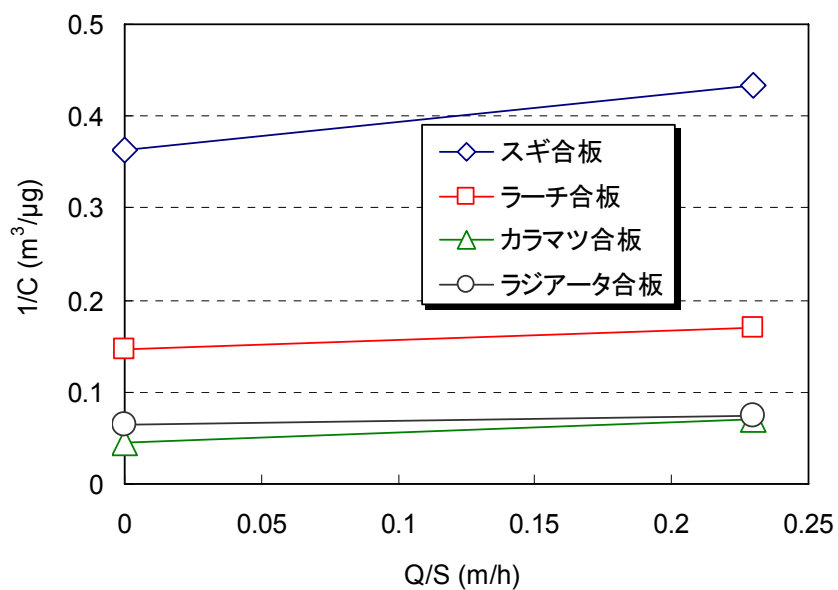


図 1-13. 合板のホルムアルデヒド放散について（換気量/面積（ Q/S ）と $1/C$ の関係）
（チャンバー法 21 日後（ $Q/S=0.23$ ）とテドラーバッグ内 1 日後（ $Q/S=0$ ））

表 1-9. 各種木質材料のホルムアルデヒド放散速度と吸収係数

合板，ボード類	特殊合板						
	E _{0.23}	E _{0.05}	a		E _{0.23}	E _{0.05}	a
スギ合板	0.5	0.1	1.17	S1	0.7	0.2	0.34
ラーチ合板	1.4	0.3	1.50	S2	0.3	0.2	0.05
カラマツ合板	3.3	1.0	0.43	S3	5.7	4.0	0.03
ラジアータ合板	3.1	0.7	1.51	S4	8.6	5.3	0.05
パーティクルボード [®] （E1）	102.6	23.6	2.81	S5	5.9	3.8	0.04
MDF（E0）	30.0	6.5	74.42	S6	5.6	3.6	0.04
				S7	15.9	6.5	0.15
				S8	1.1	0.6	0.06
				N1	1.9	1.0	0.09
				N2	5.0	2.0	0.16
				N3	0.7	0.4	0.07
			N4	3.2	1.2	0.19	

$E_{0.23}$: $Q/S=0.23$ の条件での放散速度 ($\mu\text{g}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$)
(小形チャンバー法 21 日目実験値)

$E_{0.05}$: 建築基準法の条件 ($Q/S=0.05$) に換算した放散速度 (計算値)

a : ホルムアルデヒド吸収係数 (m/h) (計算値)

第2章 テルペン類の快適性及びダニ防除作用の解明

ア 研究目的

厚生労働省は室内の総揮発性有機化合物（TVOC）暫定目標値を $400 \mu\text{g}/\text{m}^3$ としているが、その中には木材由来のテルペン類も含まれている。しかし、各種テルペン類は、人をリラックスさせる効果、ダニの行動を抑制する効果等、人の快適性や健康に対して増進効果をもつことが経験的に知られている。

しかし、テルペン類の快適性増進効果については、これまでその評価手法が未熟であったために科学的実証が十分に行われてこなかったのが現状である。ところが、ここ数年の快適性評価手法の急速な発達にともない、データの蓄積が可能となってきた。

ダニについても、喘息やアトピー等のアレルギー性疾患の最重要原因物質として認識されているにもかかわらず、テルペン類とのかかわりについての研究は極めて少なく、それらのもつダニの行動抑制効果に関するデータの蓄積が望まれている。

そこで本課題では、（１）経験的に知られている α -ピネン、リモネン等のテルペン類の快適性増進効果を脳活動、自律神経活動（血圧、脈拍等）ならびに傍証としての主観評価から明らかにすること、さらに（２）テルペン類がもつダニの行動抑制効果を明らかにすることを目的として研究を行った。これらのデータの蓄積によって、テルペン類が人の快適性や健康に対して増進効果をもつことが明らかにされる。

イ 研究方法

1 テルペン類などの人への生体影響の解明

本研究所で開発した生理面（中枢神経活動と自律神経活動の毎秒測定）と心理面の測定から人の快適性を評価する計測システムを用いた。中枢神経活動は、近赤外線分光法による前頭前野の脳血液動態の測定によって評価し、自律神経活動は指式の血圧（収縮期血圧と拡張期血圧）・脈拍数測定から評価した。嗅覚刺激は、30 L のにおい袋中に、 α -ピネンは $10 \mu\text{L}$ 、 $100 \mu\text{L}$ ならびに $500 \mu\text{L}$ 、リモネンは $10 \mu\text{L}$ を入れ、3 L/min の流量で、被験者の鼻下 15cm から流すことによって行った。被験者は、男子大学生 15～17 名とし、人工気候室内（ 24°C 、相対湿度 50%、防音機能）において、閉眼・座位にて実施した。（図 2-1）

2 テルペン類などのダニ防除作用の解明

実験にはヤケヒョウヒダニ（*Dermatophagoides pteronyssinus*）のメスを使用した。ヤケヒョウヒダニを通気可能な曝露チャンバー内に約 10 匹封じ込め、それらを後述の各畳にかけた穴の中に 1 体ずつ計 6 体設置し、温度 25°C 、相対湿度 70～80%に調整したデシケーター内に置いた（図 2-2）。実体顕微鏡下で 1 日毎に 5 日間、動かないダニを計数した。この 5 日間の曝露試験を 8～12 ヶ月間経時的に行った。畳は、①ヒバならびにヒノキ単板（厚さ 2mm）を挟み込んだ畳（幅 $450 \times$ 厚さ $95 \times$ 奥行き 450mm ）（図 2-2）、②ヒノキ材スライス片を圧縮成型、縫製して作製した畳（飛騨フォレスト製、幅 $400 \times$ 厚さ $60 \times$ 奥行き 400mm ）（図 2-3）の 2 種類を用いた。①に関しては、単板を挟み込まない畳を用いて対照実験を行った。②に関しては、対照としてエ

タノールに浸せきして抽出成分を除去したヒノキ材スライス片量を用いた。さらに量なしの条件でも対照実験を実施した。

ヒノキ材スライス片量中のテルペン濃度の測定は、ステンレスチューブをチャンバーの空隙まで通し SPME ファイバーを 2 時間露出させて揮発成分の捕集することによって行った（図 2-4, 図 2-5）。捕集成分の分析には GC-MS および GC を用い、 α -ピネン換算で各成分量を算出した。

ウ 結果

1 テルペン類などの人への生体影響の解明

α -ピネンは、10 $\mu\text{L}/30\text{L}$ と 100 $\mu\text{L}/30\text{L}$ の濃度において「(においの感覚強度で) 弱いにおい」と評価され、主観評価においていずれも「やや快適」であると感じられていた。また、収縮期血圧が有意に低下しており、生体が交感神経活動の抑制されたリラックス状態になることが示された（図 2-6, 図 2-7）。一方、500 $\mu\text{L}/30\text{L}$ の濃度では、「(においの感覚強度で) 楽に感じられるにおい」で、「やや不快」であると感じられており、さらに、脈拍数が有意に上昇し、交感神経活動優位なストレス状態になっていることが示された。

リモネンは、10 $\mu\text{L}/30\text{L}$ の濃度において、「弱いにおい」と評価され、主観評価においては「快適」であると感じられていた。収縮期血圧に関しては、吸入開始後 24.5 秒目から低下を始め、33.5 秒目から 44.5 秒目の間では有意差を示し、その後も低く推移した（図 2-8）。10 $\mu\text{L}/30\text{L}$ のリモネンの吸入によって、交感神経活動が抑制されたリラックス状態になることが示された。左右前頭前野とも脳血流量には変化がなかった。

2 テルペン類などのダニ防除作用の解明

ヒバ単板、ヒノキ単板から揮発する成分は、それぞれ約 12 ヶ月、ヒノキ材では約 3 ヶ月間、有意にダニ行動抑制効果を持続し、揮発性の精油成分がダニの行動に対し特異的に効果を示すことが明らかとなった（図 2-9, 図 2-10）。

ヒノキ材スライス片量の揮発成分は第 1 週の試験では曝露 2 日間で 69%のダニに対して行動抑制効果を示し、対照に対して有意差が認められた。曝露 5 日間ではすべてのダニが動かなくなり、対照に対して有意差が認められた。ヒノキ材スライス片量の揮発成分は第 1 週、第 6 週の試験では曝露 5 日後にはすべてのダニに対して行動抑制効果を示した。また第 17 週の試験においては曝露 5 日後には 68%のダニに対して、第 33 週の試験においては曝露 5 日後には 69%のダニに対して行動抑制効果を示した。ヒノキ材スライス片量から揮発する成分のダニに対する行動抑制効果は現在、約 8 ヶ月間の持続を観察している。（図 2-11）

ヒノキ材スライス片量から検出された主要な揮発成分はヒノキ材に特徴的に見られるテルペン類であった。 α -ピネンは日数の経過とともに著しく減少し、第 17 週の時点ではほとんど検出されなくなった。それに対してカジノール類は長期間経過後も減少幅が比較的小さく、17 週経過後における主要な成分となった。（図 2-12）

エ 考察

1 テルペン類などの人への生体影響の解明

人の生体影響に関する実験においては、 α -ピネン、リモネンともに主観的に「弱いにおい」と

感じられる濃度で交感神経活動が抑制されたリラックス状態を作りだすことが分かった。日常生活における快適性増進効果への利用が可能となった。

2 テルペン類などのダニ防除作用の解明

ダニに関しては、ヒバ単板を挟んだ畳ならびにヒノキ材スライス片を圧縮成型した畳にダニを置くことによって、ダニの行動抑制効果が観察され、その効果は、それぞれ 12 ヶ月、8 ヶ月以上持続することが分かった。現在、社会問題となっている喘息やアトピー等のアレルギー性疾患の代表的なアレルゲンであるダニの密度を木材の揮発成分を用いて低減できることが示され、日常生活におけるアレルゲンの低減に活用できることが明らかとなった。

オ 今後の問題点

1 テルペン類などの人への生体影響の解明

人の生体影響に関する残された問題点としては、 α -ピネン、リモネン以外のテルペン類に関して、データを蓄積することが望まれるという点である。

2 テルペン類などのダニ防除作用の解明

ダニに関する残された問題点としては、スギ等の他の樹種で作製した畳を用いて実験を行い、データを蓄積することが望ましいという点である。

カ 要約

木材由来のテルペン類は快適性や健康増進効果を知られているが、これらの効果を科学的実験データから検証することが望まれている。そこで本課題では、1) 経験的に知られている木材由来のテルペン類の快適性増進効果を生理面と心理面から明らかにすること、さらに2) テルペン類のダニ（喘息やアトピー等のアレルギー性疾患の原因となる）に対する行動抑制効果を明らかにすることを目的として研究を行った。その結果、1) 人の生体影響に関する実験においては、 α -ピネン、リモネンともに主観的に「弱いにおい」と感じられる濃度で交感神経活動が抑制されたリラックス状態を作りだすことがわかり、2) ダニに関しては、ヒバ単板を挟んだ畳ならびにヒノキ材スライス片を圧縮成型した畳は、それぞれ 12 ヶ月、8 ヶ月以上ダニ行動抑制効果を持続することがわかった。日常生活において、テルペン類を、人の快適性増進やダニアレルゲンの低減に活用できることが明らかとなった。

キ 引用文献

なし

（宮崎良文，平松靖，松井直之，大平辰朗）



図 2-1. 人工気候室内でのテルペン類の吸入実験風景



図 2-2. 単板を挟んだ畳でのダニ暴露チャンバーの設置状況

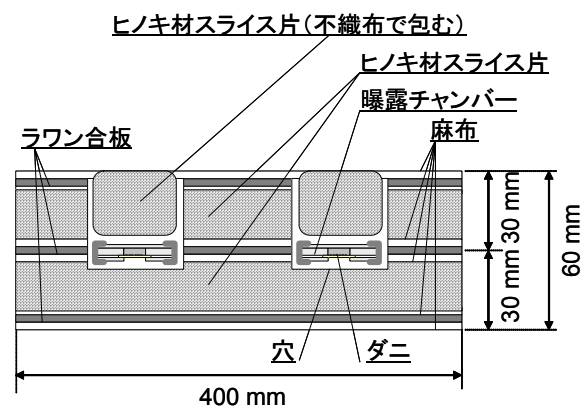


図 2-3. ヒノキ材スライス片畳でのダニ暴露チャンバーの設置状況

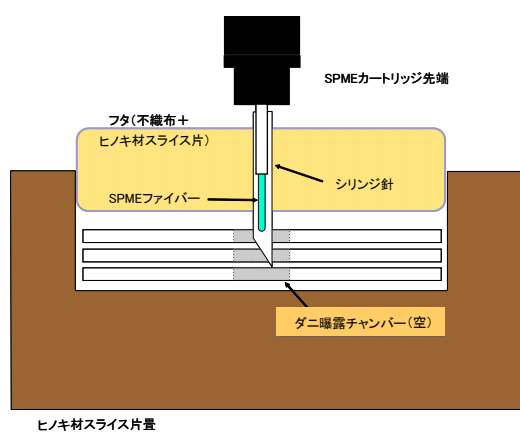


図 2-4. ヒノキ材スライス片量中の揮発成分の捕集方法



図 2-5. ヒノキ材スライス片量中の揮発成分捕集用カートリッジの設置状況

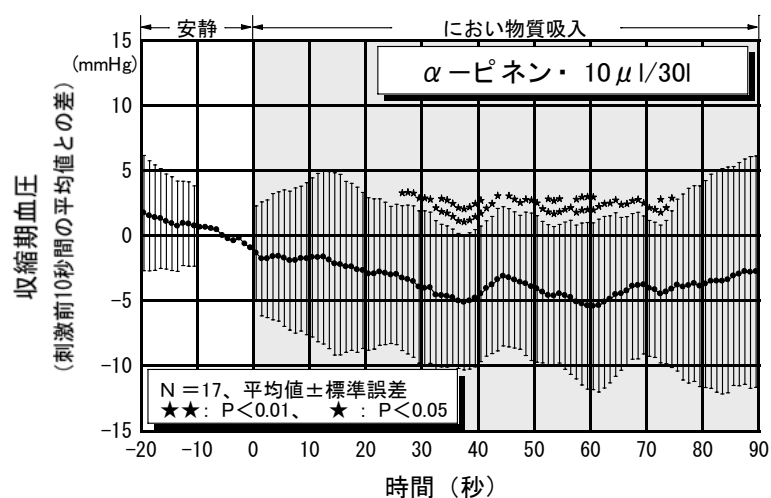


図 2-6. α -ピネン ($10\mu\text{L}/30\text{L}$) 吸入時の収縮期血圧の変化

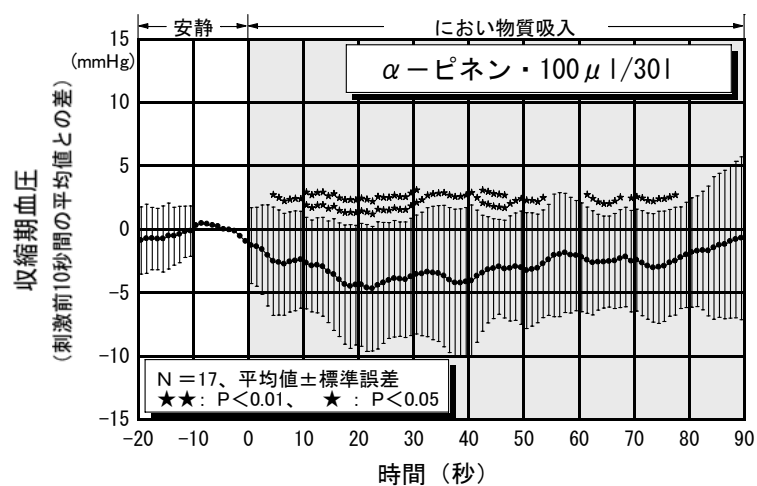


図 2-7. α -ピネン ($100\mu\text{L}/30\text{L}$) 吸入時の収縮期血圧の変化

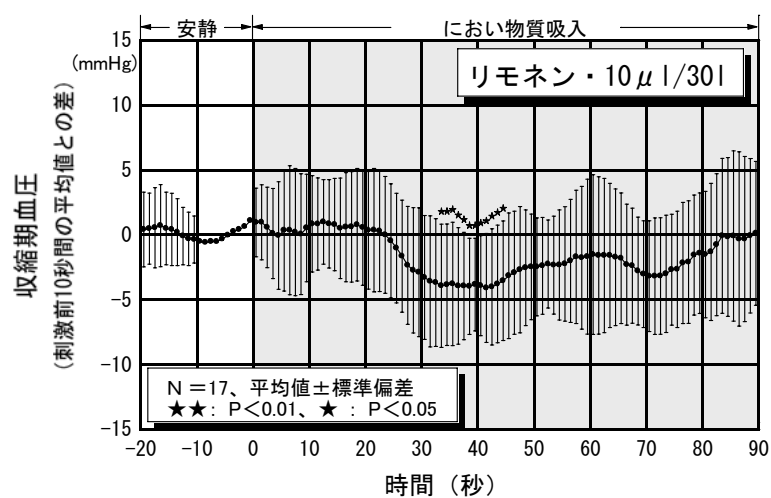


図 2-8. リモネン ($10\mu\text{L}/30\text{L}$) 吸入時の収縮期血圧の変化

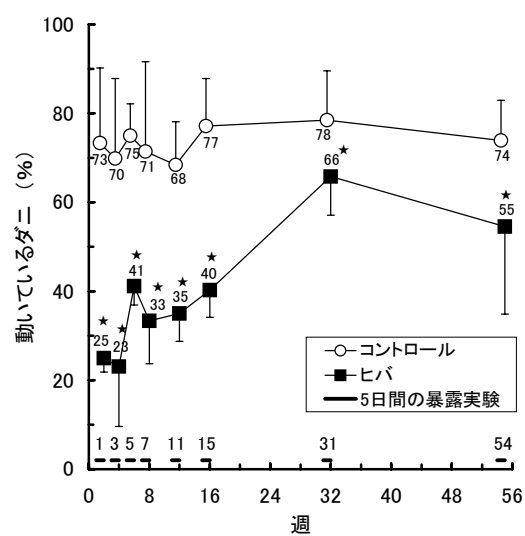


図 2-9. 各週の暴露実験においてヒバ単板を挟み込んだ畳からの揮発成分が屋内塵性ダニの行動に及ぼす効果（暴露 5 日後）（★：P<0.05，プロットからの縦線：標準偏差）

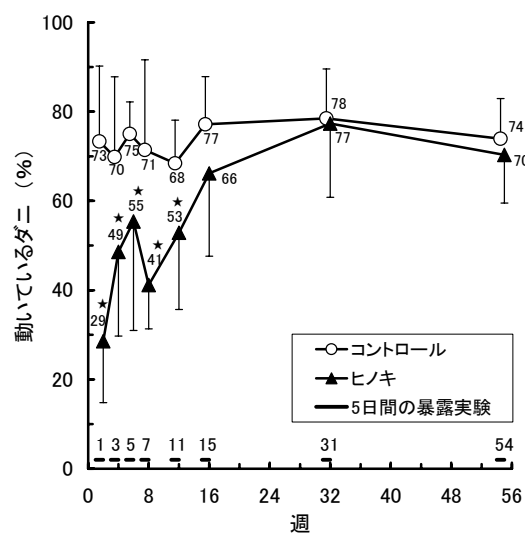


図 2-10. 各週の暴露実験においてヒノキ単板を挟み込んだ畳からの揮発成分が屋内塵性ダニの行動に及ぼす効果（暴露 5 日後）（★：P<0.05，プロットからの縦線：標準偏差）

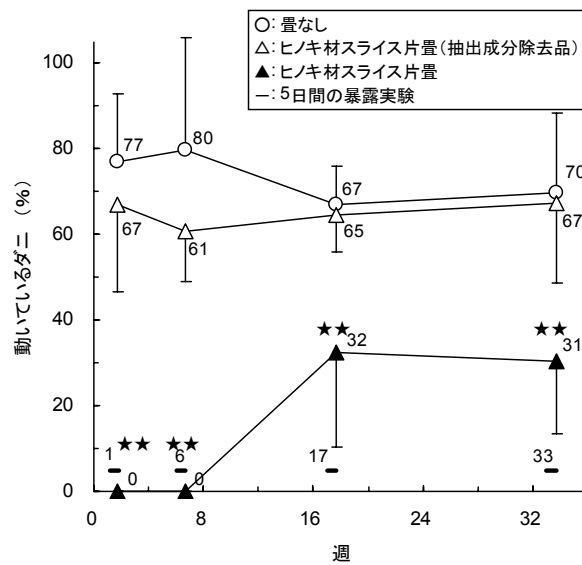


図 2-11. 各週の暴露実験においてヒノキ材スライス片量からの揮発成分が屋内塵性ダニの行動に及ぼす効果（暴露 5 日後）
 (★ : $P < 0.05$, ★★ : $P < 0.01$, プロットからの縦線 : 標準偏差)

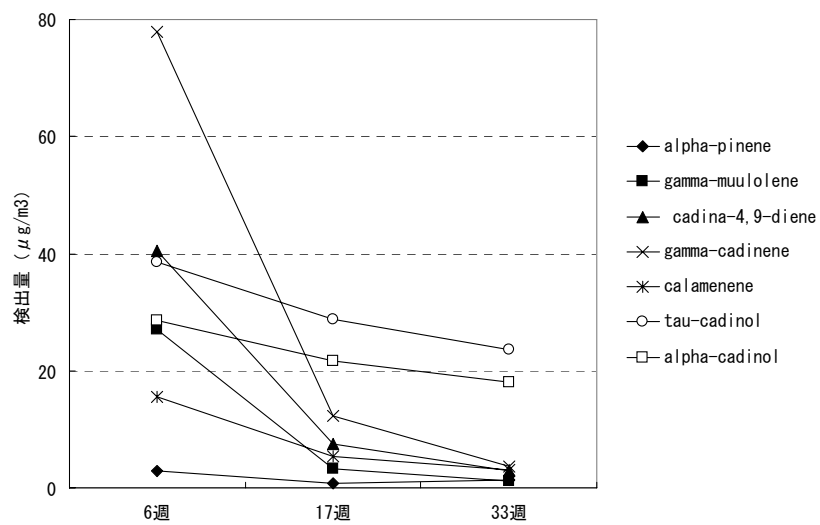


図 2-12. ヒノキ材スライス片量から検出された主要揮発成分の濃度変化

「交付金プロジェクト」は、平成13年度に森林総合研究所が独立行政法人となるにあたり、これまで推進してきた農林水産技術会議によるプロジェクト研究（特別研究など）の一部、および森林総合研究所の経費による特別研究調査費（特定研究）を統合し、研究所の運営費交付金により運営する新たな行政ニーズへの対応、中期計画の推進、所の研究基盤高揚のためのプロジェクト研究として設立・運営するものである。

この冊子は、交付金プロジェクト研究の終了課題について、研究の成果を研究開発や、行政等の関係者に総合的且つ体系的に報告することにより、今後の研究と行政の連携協力に基づいた効率的施策推進等に資することを目的に、「森林総合研究所交付金プロジェクト研究成果集」として刊行するものである。

ISSN 1349-0605

森林総合研究所交付金プロジェクト研究 成果集 5

「木質建材から放散される揮発性有機化合物の評価と快適性増進
効果の解明」

発 行 日 平成17年 9月 1日

編 集・発 行 独立行政法人 森林総合研究所

〒305-8687 茨城県つくば市松の里1番地

電話. 029-873-3211 (代表)

印 刷 所 株式会社イセブ

