保存処理建材から発生する室内空気汚染物質（第1報） 接着剤混入保存処理合板からの VOC およびアルデヒド類の放散量

大 村 和香子*, 桃 原 郁 夫*

Indoor air contaminants from preservative-treated timber (I)
Emission of VOCs and aldehydes from glue-line treated plywood

Wakako OHMURA*, Ikuo MOMOHARA*

Information on the VOC emission from various types of timber is useful for devising counter-measures for the Sick Building Syndrome. In this study, we measured the isostatic aerial concentration of thirteen volatile organic compounds (VOCs), formaldehyde, acetaldehydes and total VOCs (TVOC) by a small chamber method (Japan Industrial Standard (JIS) A 1901) using 3 types of glue-line treated plywood. Without curing, the concentrations of all measured compounds were quite low in the 2 types of tropical hardwood plywood registered by the Japanese Agricultural Standard (JAS), while high concentrations of acetaldehyde and TVOC were observed in Russian larch plywood registered by the Approved Quality (AQ). The origin of acetaldehyde was considered to be the larch plywood, because both the untreated larch plywood and the AQ plywood emitted almost same amount of acetaldehyde. However, since less TVOC was detected from the untreated larch plywood than the AQ plywood, the high concentration of TVOC in the AQ plywood was due to the solvents of preservatives. After 21 day-curing, the concentration of each chemical had greatly decreased, suggesting that the curing was effective in reducing the indoor air contaminants. It was concluded that the emission of VOCs and aldehydes from treated plywood depended on the wood species of veneer, glue type and/or the solvent of preservatives, and that the necessity of the curing before use was recommended.

シックハウス対策の一環として、様々な建材からの室内空気汚染物質の放散に関する情報の蓄積が求められている。そこで本研究では、日本農林規格（JAS）および優良木質建材等認証（AQ）で認定されている計3種類の接着剤混入保存処理合板から放散される揮発性有機化合物（VOC）およびアルデヒド類の小形チャンバー法における平衡気中濃度を測定した。製造直後の測定値は、南洋材合板のJAS防虫合板2種類ともVOCおよびアルデヒド類は特段

* 独立行政法人森林総合研究所 Forestry and Forest Products Research Institute, Matsunosato 1, Tsukuba, Ibaraki 305-8687 Japan

高い値は検出されず、さらにトータル VOC (TVOC) も低い値であった。一方、針葉樹 (ロシアカラマツ) 合板の AQ 防腐・防虫合板ではアセトアルデヒドおよび TVOC 値が高い値を示した。無処理のロシアカラマツ合板ではアセトアルデヒドが AQ 防腐・防虫合板と同等の値を示したことから、アセトアルデヒドの発生源は合板由来であることが明らかとなった。しかし、TVOC 値は AQ 防腐・防虫合板と比較して無処理合板では極めて低かったことから、使用薬剤の溶剤の影響であると考えられた。また、21日間の養生後は各化学物質の気中濃度が低下し、明瞭な養生効果が認められた。以上の結果から、接着剤混入保存処理合板からの VOC およびアルデヒド類の放散には、単板の樹種および接着剤といった合板の種類および/または使用薬剤の溶剤が影響することが明らかとなり、当該合板を一定の養生期間を設けた後に使用する必要性が示された。

1. 緒 言

建材等から発生する化学物質による室内空気質汚染問題が取りただされるなか、各省庁により様々なシックハウス対策がなされてきている¹⁾。例えば2003年7月の建築基準法の改正により、ホルムアルデヒドの使用制限およびクロルピリホスの事実上使用禁止となるにいたった²⁾。このような対策強化のなか、様々な建材からの室内空気汚染物質の放散については関心が集まるところであり、多くの報告がなされはじめている³⁻⁵⁾。

合板を建物内、特に内装・壁材用途に使用する

際には、ヒラタキクイムシなどの乾材害虫やカビ、腐朽菌などの劣化生物からの保護を目的に、接着剤に木材保存剤を混入して単板を熱圧・接着し製造される接着剤混入保存処理合板が使用される場合がある。シックハウス対策においては接着剤および単板起源³⁾のみならず、使用される木材保存剤の溶剤起源の揮発性有機化合物 (VOC) 発生が懸念される。そこで本研究では接着剤混入保存処理合板から放散される VOC およびアルデヒド類の平衡気中濃度を小形チャンバー法⁶⁾により測定した。

表 1 供試合板の性状
Table 1 Tested plywood

試験体略号 Abbreviation	JAS-A	JAS-B	JAS-C	AQ	AQ-C
規格 Standard	JAS	JAS	—	AQ	—
単板の種類 Veneer type	南洋材 Tropical wood	南洋材 Tropical wood	南洋材 Tropical wood	ロシアカラマツ Russian larch	ロシアカラマツ Russian larch
単板構成 Veneer formation	3 ply 4 mm (0.7+2.85+0.7 mm)	3 ply 4 mm (0.7+2.85+0.7 mm)	3 ply 4 mm (0.7+2.85+0.7 mm)	5 ply 12mm (2.1+3.1+2.1+3.1+2.1mm)	5 ply 12mm (2.1+3.1+2.1+3.1+2.1mm)
接着剤 Adhesives	メラミン・ユリア系 Melamine/Urea	メラミン・ユリア系 Melamine/Urea	メラミン・ユリア系 Melamine/Urea	フェノール系 Phenols	フェノール系 Phenols
ホルムアルデヒド 放散量による分類 Classification by formaldehyde emission	F☆☆☆☆	F☆☆☆☆	F☆☆☆☆	F☆☆☆☆	F☆☆☆☆
使用薬剤 Preservatives	フェニトロチオン Fenitrothion	シフェノトリン Cyphenotrin	—	イミダクロプリド他 Imidacloprid, IPBC, OPP	—

2. 実 験

2.1 供試合板

供試合板の種類を表1に示した。JAS および AQ で認定されている接着剤混入保存処理合板のうち、JAS 防虫合板2種類、AQ 防腐・防蟻合板1種類を試験した。なお、JAS 防虫合板は南洋材、AQ 防腐・防蟻合板はロシアカラマツ材をそれぞれ単板としているので、対照として無処理の各合板も試験に供した。また、混入している保存処理薬剤は、前者が各々フェニトロチオン、シフェノトリン、後者がイミダクロプリド、3ヨード-2プロピニルブチルカーバメイト (IPBC)、オルトフェニルフェノール (OPP) の計3種類の混合薬剤であった。これらの合板類は JAS のホルムアルデヒド放散量による区分 F☆☆☆☆ の基準を満たす製品であった。

2.2 測定方法

2.2.1 VOC およびアルデヒド類採取方法

合板作成後、ビニールで密封して保管した試験体を測定直前に開封し測定に供した。換気回数0.5回/時に設定したチャンバー内で1日平衡化した後、小形チャンバー法に従い、放散する VOC およびアルデヒド類を測定し、得られた測定値を製造直後の測定値とした。なお、チャンバーは各測定時ごとに2セット用い、試験体は各チャンバー内に2枚ずつ設置した。その後、各試験体をチャンバーから取りだし28℃、50%RH の室内で21日間養生した。これら養生後の試験体についても同様にチャンバー法で各種化学物質を測定し、21日間養生後の測定値とした。

小形チャンバー法条件：チャンバー容積；20ℓ，材料面積；432cm²，温度；28℃，湿度；50%RH，換気；0.5回/時間，吸着管：VOC；Tenax 吸着管，アルデヒド類；DNPH 吸着管，採取空気量：VOC；3.2ℓ，アルデヒド類；5.0ℓ。

2.2.2 VOC およびアルデヒド類分析方法

測定対象としたのは厚生労働省が室内濃度指針値を定めている13物質のうち9物質（トルエン，エチルベンゼン，キシレン，スチレン，*p*-ジクロロベンゼン，テトラデカン，ノナナール，ホルムアルデヒド，アセトアルデヒド）および暫定目標値が示されている TVOC，さらにテルペン類の代

表として α -ピネン，トルエン，キシレンの代用溶剤として使用される可能性の高い酢酸エチル，アセトン，エタノールである。Tenax に吸着させた VOC 類は加熱脱着装置で脱着後，GC-MS に直接導入して分析した。VOC 類分析条件：Column：HP VOC (60m×0.32mm ϕ ，膜厚1.8 μ m)，35℃ (2 min, hold)，35 to 95℃ (15℃/min)，95 to 105℃ (2.5℃/min)，105 to 250℃ (5℃/min)，250℃ (3 min, hold)。アルデヒド類分析条件：DNPH に吸着させたアルデヒド類はアセトニトリルで各々ヒドラゾンとして溶出させ分析した。Column：CAPCELLPAK C18，(25cm×4.6mm ϕ)，Solvent：CH₃CN/H₂O=40/60，Flow rate：1.2ml/min，Detector：UV (360nm)。分析は VOC およびアルデヒド類とも(株)ダイヤ分析センターに依頼した。

チャンバー別に得られた各化学物質の放散量からそれらの平衡気中濃度を計算し、チャンバー2セット分の平均値を算出した。この平均値と厚生労働省の策定した室内濃度指針値と比較検討した。

3. 結果と考察

測定対象とした化学物質のうちホルムアルデヒド (図1)，アセトアルデヒド (図2)，TVOC (図3) の平衡気中濃度を製造直後および21日間養生後に分けて図示し、その他の化学物質の気中濃度については表2に示した。

図1 接着剤混入保存処理合板から放散されるホルムアルデヒドの平衡気中濃度

Fig. 1 Isostatic aerial concentration of formaldehyde emitted from glue-line treated plywood

注 試験体略号については表1参照

Notes Abbreviations in plywood type are shown in Table 1

図2 接着剤混入保存処理合板から放散されるアセトアルデヒドの平衡気中濃度

Fig. 2 Isostatic aerial concentration of acetaldehyde emitted from glue-line treated plywood

注 試験体略号については表1 参照

Notes Abbreviations in plywood type are shown in Table 1

図3 接着剤混入保存処理合板から放散されるTVOCの平衡気中濃度

Fig. 3 Isostatic aerial concentration of TVOC emitted from glue-line treated plywood

注 試験体略号については表1 参照

Notes Abbreviations in plywood type are shown in Table 1

表2 接着剤混入処理合板から放散される各化学物質の平衡気中濃度 (μg/m³)

Table 2 Isostatic aerial concentration of VOCs emitted from glue line treated plywood (μg/m³)

化学物質名 Chemicals	JAS-A		JAC-B		JAS-C		AQ		AQ-C	
	製造直後 without curing	養生21日後 21 day-curing	製造直後 without curing	養生21日後 21 day-curing	製造直後 without curing	養生21日後 21 day-curing	製造直後 without curing	養生21日後 21 day-curing	製造直後 without curing	養生21日後 21 day-curing
トルエン Toluene	2.1	1.0	1.6	2.0	3.1	1.4	3.5	2.7	2.6	1.3
キシレン Xylene	3.4	—	1.2	0.8	1.2	0.5	0.2	—	0.4	0.1
エチルベンゼン Ethylbenzene	0.5	—	—	0.1	0.3	—	—	—	0.1	0.1
スチレン Styrene	1.3	0.4	0.6	0.5	0.6	0.4	0.6	0.4	0.4	0.4
p-ジクロロベンゼン p-Dichlorobenzene	0.6	0.2	0.3	0.4	0.5	0.3	—	0.1	0.1	—
テトラデカン Tetradecane	0.6	0.3	0.3	0.6	0.3	0.2	1.0	0.4	0.4	0.2
ノナナル Nonanal	5.6	3.5	3.3	4.8	4.9	7.0	17	13	26	10
α-ピネン α-Pinene	0.9	—	23	—	0.4	—	260	84	27	6.8
酢酸エチル Ethyl acetate	4.7	0.3	5.2	0.8	1.2	0.4	0.6	0.5	0.6	0.2
アセトン Acetone	4.1	0.9	4.9	2.3	5.0	0.8	89	8.9	63	6.9
エタノール Ethanol	29	10	200	1.6	9.4	4.2	69	1.3	3.1	0.1

注1) 表中の値は各試料2検体の平均値
Values are averages of two specimens

2) —: 検出限界以下
below detection limit

3.1 製造直後の各合板からの VOC 放散特性

南洋材単板を使用した JAS 合板については、フェニトロチオン、シフェノトリン各混入処理防虫合板および無処理合板において、ホルムアルデヒ

ド気中濃度が約40μg/m³であり(図1),厚生労働省の指針値の100μg/m³を大きく下回った。トルエン、キシレン、アセトアルデヒド、他 VOC 類も特段高い値は検出されず(図2,表2),TVOCも暫

定目標値である $400\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えなかった(図3)。

ロシアカラマツ単板を使用したAQ合板では無処理のロシアカラマツ合板とともにホルムアルデヒドに関しては約 $60\mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、各JAS合板より高いものの厚生労働省の指針値を下回った(図1)。しかし、アセトアルデヒドがAQ合板で $180\mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、厚生労働省指針値の $48\mu\text{g}/\text{m}^3$ を大幅に上回る高い値を示した(図2)。無処理のロシアカラマツ合板からも $220\mu\text{g}/\text{m}^3$ とAQ合板と同程度の値が得られたことから、アセトアルデヒドの発生源は合板由来であることが明らかとなった。しかし、ロシアカラマツ単板由来か、使用接着剤であるフェノール樹脂由来かは今回の実験では明らかにできなかった。一方TVOC値はAQ合板で $2700\mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、無処理ロシアカラマツ合板の $360\mu\text{g}/\text{m}^3$ と比較して極めて高かった(図3)ことから、その放散は使用薬剤の溶剤の影響であると考えられた。

3.2 養生効果の検討

21日間の養生により各合板からの化学物質放散量の低下がみられ、特にアセトアルデヒドが高い値を示したAQ合板でも $43\mu\text{g}/\text{m}^3$ に、無処理ロシアカラマツ合板で $32\mu\text{g}/\text{m}^3$ にまで低下、またTVOCに関してもAQ合板で $410\mu\text{g}/\text{m}^3$ にまで低下し、明瞭な養生効果が認められた。

接着剤混入保存処理では合板製造時に熱圧を行うことから使用溶媒が揮散しやすく、また単板積層数が少ないほど養生効果が得られやすいと考えられる。今後は他の建材について検討するとともに、樹種の異なる無垢材(単板)からの各種化学物質の放散量を測定・把握する必要がある。

4. 結 論

南洋材を単板に使用した合板では保存処理の有無に関わらずトルエン・キシレンおよびホルムアルデヒド・アセトアルデヒドで特段高い値は検出されず、さらにTVOCも低い値であった。

ロシアカラマツを単板に使用した合板では、保存処理合板でアセトアルデヒドが高い気中濃度を示した。無処理のロシアカラマツ合板からも同等の値であったことから、アセトアルデヒドの発生源は合板由来であることが明らかとなった。しか

し、ロシアカラマツ単板由来か使用接着剤であるフェノール樹脂由来かは今後検討すべき課題である。さらにTVOCに関しては無処理合板と比較して保存処理合板で極めて高い気中濃度を示したことから、接着剤混入処理に使用した薬剤の溶剤の影響と考えられた。

接着剤混入保存処理合板からの各種化学物質の放散量を低減させるためには、十分な養生期間を設けた後に使用することが望ましい。さらに使用する単板の樹種選定を行うとともに、各種化学物質の発生源またはその前駆物質となる可能性のある保存処理剤用溶剤の使用を避けるべきである。

謝 辞

本研究は農林水産省「先端技術を活用した農林水産研究高度化事業」で行われたものである。また各種接着剤混入保存処理合板はケミホルツ(株)より提供いただいた。ここに厚く御礼申し上げます。

文献

- 1) 石坂 聡：シックハウス対策について，2004年度春期日本木材学会生物劣化研究会講演要旨集，1-13 (2004)。
- 2) 国土交通省ホームページ http://www/mlit.go.jp/kisha/kisha02/07/070729/070729_2.pdf
- 3) 井上明生ほか：小型チャンバ法による単板及び合板からの揮発性有機化合物(VOC)放散量の測定，第20回年次大会研究発表要旨集，(社)日本木材加工技術協会，24-25 (2002)。
- 4) 松田俊一ほか：各種木質材料からのアルデヒド類，VOC放散量，木材工業，59 (2)，67-72 (2004)。
- 5) 大越誠，井上明生：小形チャンバー法による複合フローリングからのアルデヒド類，VOC放散測定，木材工業，59 (9)，405-409 (2004)。
- 6) JIS A 1901：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方法—小形チャンバー法 (2003)。

(2004. 9. 28受付)

(2005. 2. 14受理)