

論文 (Original article)

スギ内装材を施工した実験室での揮発性有機化合物濃度の経時変化

松原 恵理^{1)*}

要旨

木材及び木質建材から放散する揮発性の高い化合物はテルペン類であり、木質環境の快適性との関係性も示唆されている。また、テルペン類は、総揮発性有機化合物の室内濃度に影響を与えることが推察されている。これまでの研究報告では、内装木質化直後から長期間にわたって、テルペン類の推移を追跡した研究は見当たらない。そこで、本研究では実験室の床と壁に内装材を施工して、施工翌日から約二年間にわたり室内の揮発性化合物を分析した。定量対象物質は、炭化水素類、アルコール類、カルボニル化合物等の計 51 種として、併せて、ヘキサンからヘキサデカンまでの未知成分の半定量値を算出した。さらに、換気回数及び温度と相対湿度を測定した。室内空気中の化合物分析の結果、内装木質化により実験室内のテルペン類濃度が大幅に増加し、全実験期間を通してテルペン類の放散量が最も多かった。テルペン類の気中濃度は、施工直後と夏期の気温が高い時期には高い値を示すが、施工から約 2 年経過後には、施工翌日に比べて 0.15 % の濃度にまで減衰した。ホルムアルデヒド等の室内濃度指針値が定められている 8 物質については、実験期間中はいずれも指針値以下であった。本実験室の換気回数は 1.1 回/h であり、実験室内は、年間を通して温度は 6 ~ 32 °C、相対湿度は 47 ~ 63 % の範囲内であった。

キーワード：木質内装材、スギ、揮発性有機化合物、テルペン類

1. はじめに

日本には豊富な木材資源があり、木材活用に対する消費者ニーズが高い教育施設や医療・福祉施設等の建築物における木造率の増加傾向が報告されている（内閣府 2011, 林野庁 2018）。また、木造化・内装木質化が人の快適性に及ぼす影響に関する研究として、節の面積率は低いほど見た目の好ましさが増える（松本ら 2016）ことや、事務所の内装に用いることで人に好ましい印象をもたらす（末吉・森川 2016）こと等が報告されている。さらに、内装材の香りと見た目が主観的な疲労感の軽減へと繋がる可能性も示唆されており（Bamba and Azuma 2017）、公共建築物や住居での木材活用が人の身心の健康に及ぼす効果は大きいと考えられる。

建材から放散する「木の香り」は、主に、モノテルペン類（炭素数 10）とセスキテルペン類（炭素数 15）で構成され、木材の化学成分の中では比較的揮発性が高い成分の混合物である。一方で、室内に存在する揮発性有機化合物（Volatile Organic Compound: VOC）に関しては、現在、13 種の物質の指針値と TVOC（総揮発性有機化合物）の暫定目標値が設定されている（厚生労働省 2001）。TVOC 値とは、ヘキサンからヘキサデカンまで（炭素数 6 から 16 まで）に含まれる成分の総和であり、木材由来のテルペン類もその一部に含まれる。そのため、これまでも、木造化や内装木質化が TVOC 値に与える影響について検討されてきた。それらの報告では、無垢材を多用

することにより TVOC 値が増加することが示されており（吉田ら 2004, 樋田ら 2007b, 溝口・堀 2008）、また、テルペン類の放散量に季節変動性があること、木質建材に用いられる樹種が室内の成分組成に影響を与えることが示されている（清水ら 2017, 山下ら 2017）。しかし先行研究はいずれも、内装木質化から時間が経過した後に計測を開始したものであり、施工直後から長期にわたり、テルペン類濃度の経時変化を明らかにし、TVOC 値への影響を追跡した研究は見当たらない。

日本工業規格 JIS A 1965:2015「室内及び試験チャンバー内空气中揮発性有機化合物の TenaxTA® 吸着剤を用いたポンプサンプリング、加熱脱離及び MS 又は MS-FID を用いたガスクロマトグラフィーによる定量」では、VOC 成分の濃度算出において、標準物質が入手可能な場合は、個別の物質で検量線を作成して定量するが、その他の場合は、トルエンの検量線の傾きを用いて定量することと定められている。また、当該規格では、個々の化合物の感度がトルエンとは大幅に異なることがあり、トルエン換算値で表された TVOC は半定量的であるとも注記されている。一般的に α -, β -ピネン、リモネンはテルペン類として個別の標準物質を用いて定量され、その他の成分については個々の成分は同定せず、未知成分群としてトルエン換算により濃度を算出することが多い。また、より化学構造の近い物質を用いた濃度算出方法も報告されている（清水ら 2017, 佐伯ら 2018）。しかし、これまでに

原稿受付：平成 30 年 11 月 8 日 原稿受理：平成 30 年 12 月 21 日

¹⁾ 森林総合研究所 複合材料研究領域

* 森林総合研究所 複合材料研究領域 〒305-8687 茨城県つくば市松の里 1

異なる標準物質を用いて室内濃度を比較した研究は報告されていない。

そこで本研究では、研究所（つくば市）の実験棟の一室に内装材を施工して、テルペン類を含む VOCs、アルデヒド類の室内濃度を施工直後から二年間にわたり調査するとともに、換気回数及び温度と相対湿度を測定した。

2. 方法

2.1 実験室の概要

研究所（つくば市）の木質耐震・快適性工学実験棟（築 20 年超、鉄筋コンクリート（RC）造、2 階建）の 2 階にある 1 室をモデル実験室として用いた。本実験室内には窓と扉が一つずつある。窓は日除けのブラインドを下しており、揮発性成分捕集日の午前中に 30 分間換気する以外は、常時閉じたままとした。扉は、捕集と年に数回行われる点検のために開閉する程度で、基本的には閉じたままとした。実験室の平面図は Fig.1 に示す通りであり、のべ床面積 11.7 m²、天井高 2550 mm、室容積 29.9 m³ の実験室である。稼働していないドラフトチャンバーが 1 台と流し台が 1 台、壁面に接した形で置かれていたため、これらの場所には、後述する木製フローリング材を施工しなかった。また、天井や床、壁の仕上げ及び下地材は、Table 1 に示す通りである。

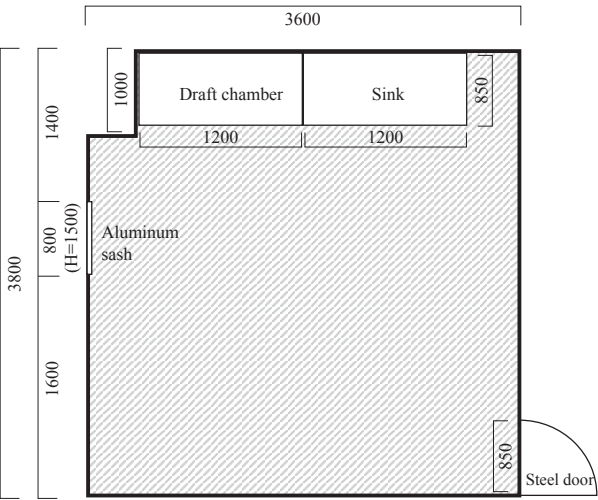


Fig. 1. 実験室の平面図
フローリング材の貼付位置を斜線で示した。

Table 1. 実験室の仕様

	Original finish materials	Added materials
Ceiling	Rock wall acoustic material	
Floor	Vinyl flooring	Sugi flooring
Wall	Underlayment: Polyurethane, Plaster board Finish: Synthetic resin emulsion	Sugi interior panel/ pedestal
Window	Aluminum sash	

実験材料として三重県産スギ材を用いた。製材し、積み上げて含水率 20 % 以下まで乾燥後、以下に示す内装材を作製した：フローリング材（120 × 15 × 3600 mm）、実験用に設えた内装木製パネル（800 × 35 × 800 mm）、パネル台座（130 × 35 × 75 mm、凹部：35 × 20 mm）、縁材（15 × 15 × 3600 mm）。これらの工程は三重県内の業者に委託して行った。施工時は、実験室の床に 30 cm 間隔で置いた根太の上に、約 30 枚のフローリング材を敷き、木ねじ（φ 3.3 × 30 mm）で留め付けた。内装木製パネルは、板材の周辺に枠を取り付ける形とした。台座と併せて腰壁ほどの高さになるように設計し、合計 10 枚のパネルを作製して 4 面の壁際に設置した。使用した木材量は、全てを合わせて 17.2 m² であった。施工後の各内装材と成分捕集用機器の写真を Fig. 2 に示す。なお、施工は 2016 年 2 月 27 日に実施した。

2.2 揮発性成分分析

2.2.1. 捕集

内装材施工前の室内の成分組成を把握するために、内装施工日以前の 2016 年 2 月 17 日に一度捕集し分析を行った。また、内装施工翌日以降について、20 日後までは 2 ～ 4 日に 1 度のペースで捕集し、その後は各季節（春・夏・秋・冬）の中で 1、2 度、1 ～ 2 ヶ月半程度の間隔を空けて実施した。Table 2 に全ての捕集日に加えて、施工からの経過日数、捕集時の温度と湿度を示した。

捕集は、測定マニュアル（厚生労働省 2001）に準じて行った。まず、捕集開始 5 時間前（午前 8 時半）に実験室の窓と扉を開けて 30 分間換気をした後、窓と扉を閉め、実験室を締め切った状態で保ち、その後、午後 2 時から捕集を行う作業工程とした。この工程は、全実験日にお

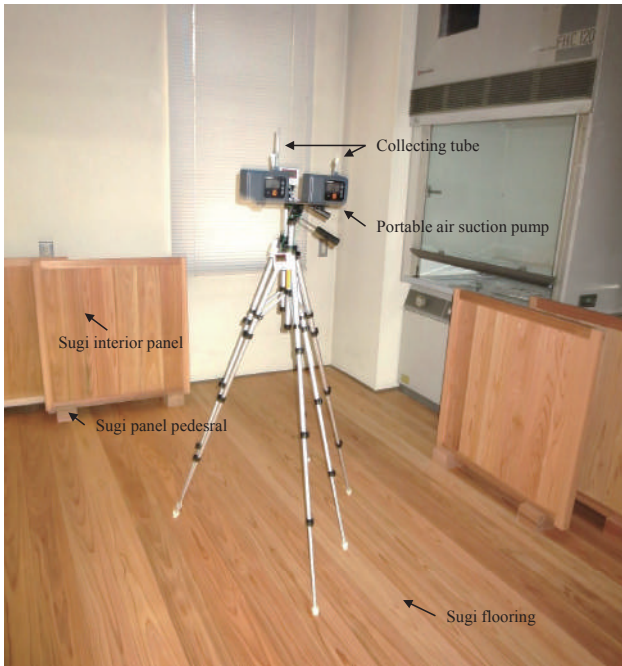


Fig. 2. 内装材と成分捕集用機器

Table 2. 成分捕集日程および捕集時の温度と相対湿度

Year	2016																2017								2018
Month/Day	2/17	2/28	2/29	3/2	3/4	3/6	3/8	3/11	3/14	3/18	4/27	5/24	8/4	9/2	11/14	1/27	3/1	6/26	7/24	9/15	10/31	12/2	2/19		
Elapsed days (day)	Pre	1	2	4	6	8	10	13	16	20	60	87	159	188	261	335	368	485	513	566	612	664	723		
Temperature (°C)	15.5	14.9	13.8	13.1	14.9	15.7	18.8	12.1	9.2	15.4	23.5	27.3	32.2	31.1	17.1	7.5	11.2	28.4	31.5	27.5	20	9.1	9.1		
Humidity (%)	41	43	55.5	35.5	45.5	54	63	52	61	53	54	35	61	52.4	68.3	50.5	48.5	58	59	59	46.5	53	40		

いて統一した。また、実験室内の中央に携帯型空気吸引ポンプ（MP-Σ 30N ないし 300N、いずれも柴田科学（株）社製）と捕集管を取り付けた三脚を設置して、アクティブサンプリング法にて捕集を行った。捕集管の採取口の高さは床から 1.3 m とし、捕集管の種類は二種類である。一つは、Tenax TA 捕集管（揮発性有機化合物捕集用、Perkin Elmer 社製）であり、流速 0.1 L/分にて 30 分間通気（総通気量 3 L）して、成分を捕集した。もう一つは、InertSep mini AERO DNPH カートリッジ（ホルムアルデヒド及びアセトアルデヒド用、GL Sciences 社製）であり、流速 1 L/分にて 30 分間通気（総通気量 30 L）して捕集した。

2.2.2 機器分析

実際の分析については大気化学分析の専門会社に委託して行った。分析委託に先立ち、分析項目及びテルペン類濃度の算出方法について検討した。

本研究での定量対象物質については、Table 3 に示す。族別にみると、脂肪族炭化水素類 11 種、芳香族炭化水素類 12 種、テルペン類 10 種、ハロゲン類 8 種、エステル類 2 種、アルデヒド類・ケトン類 4 種、アルコール類 2 種、ホルムアルデヒド及びアセトアルデヒドとした。

Table 3 に示す脂肪族炭化水素類からアルコール類までの VOCs（モノテルペン類、セスキテルペン類、ジテルペン類を除く）は、加熱脱着装置付きのガスクロマトグラフ質量分析計（TD-GC/MS）にて分析して、個々の標準物質で作成した検量線により気中濃度を算出した。また、ヘキサンからヘキサデカンまでの未知 VOCs のうち、テルペン類以外はトルエン換算にて濃度を算出した。未知 VOCs のうちのテルペン類については、予め、水蒸気蒸留装置を用いて、実験材料と同県産のスギ材からテルペン類を抽出し、その抽出液（精油）を GC/MS で分析することで、個々のテルペン類の化合物情報を収集した。その上で、未知 VOCs の中から上記情報と一致するテルペン類成分を選別して、モノ、セスキ、ジテルペン類のいずれかに分類した。さらに、分類したテルペン類について、二種類の標準物質を用いて検量線を作成して、気中濃度を算出した。一方は、トルエンを用いた検量線で濃度を算出した。他方はテルペン類である α -ピネンと

Table 4. 加熱脱着装置付きガスクロマトグラフ質量分析計（TD-GC/MS）の分析条件

Thermal desorption apparatus	Turbo Matrix ATD (Perkin Elmer Co.)
Sorbent tube	Tenax TA 60/80
Desorption condition	260 °C (10 min)
Analytical sorbent trap	Packed trap tube TENAX
Desorption condition	5 °C –(40 °C /s) –280 °C (45 min)
GC/MS apparatus	6890GC/5973 N MSD (Agilent Technologies, Inc.)
Column	HP-VOC (0.32 mm ϕ × 60 mm, f.t 1.8 mm)
Oven temperature	35 °C (2 min) –(15 °C /m) –95 °C – (2.5 °C /m) –105 °C –(5 °C /m) –250 °C (5 min)
Measured mass range	SCAN 35-550

Table 5. 高速液体クロマトグラフィー（HPLC）の分析条件

Apparatus	Agilent 1260 Infinity LC System
Column	InterSustain C18 (4.6 mm ϕ × 250 mm)
Mobile phase	Acetonitrile: Water (52:48) , Gradient
Flow rate	1.2 mL/min
Detection	UV 360 nm

β -オイデスマールを用いた検量線であり、モノテルペン類に分類された成分は α -ピネン、セスキテルペンとジテルペン類に分類された成分は β -オイデスマール換算値とした。定量対象物質の濃度とヘキサンからヘキサデカンまでに含まれる成分（未知テルペン類のトルエン換算値を含む）の濃度を合計したものを TVOC 値とした。本研究で用いた分析条件を Table 4 に示した。

ホルムアルデヒドとアセトアルデヒドは、DNPH (2,4-ジニトロフェニルヒドラジン) カートリッジに捕集して誘導体化し、アセトニトリルで抽出した後に 5ml に定容した。この試料溶液をクロマトグラフィーにて分析した。標準物質としてアルデヒド・ケトン -DNPH 標準混合試料（GL Sciences 社製）を用いて検量線を作製し、空气中濃度を算出した。本研究で用いた分析条件を Table 5 に示した。

Table 3. 定量対象物質の分類

Family	VOCs
Aliphatic hydrocarbons	n-Hexane
	Heptane
	Octane
	Nonane
	Decane
	Undecane
	Dodecane
	Tridecane
	Tetradecane
	Pentadecane
	Hexadecane
Aromatic hydrocarbons	Benzene
	Toluene
	Ethylbenzene
	Xylene
	Styrene
	m-Etyltoluene
	p-Etyltoluene
	1,3,5-Trimethylbenzene
	o-Etyltoluene
	1,2,4-Trimethylbenzene
Terpenes	1,2,3-Trimethylbenzene
	1,2,4,5-Tetramethylbenzene
	α -Pinene
	β -Pinene
	D-Limonene
	Camphene
	Myrcene
	Camphor
	Borneol
	α -Terpineol
	Cedrol
	β -Eudesmol
	Monoterpenes
	Sesquiterpenes
Halogens	Diterpenes
	Chloroform
	1,2-Dichloroethane
	Trichloroethylene
	1,2-Dichloropropane
	Bromodichloromethane
	Dibromodichloromethane
	Tetrachloroethylene
	p-Dichlobenzene
Esters	Ethyl acetate
	Butyl acetate
Aldehydes/Ketones	Ethyl methyl Ketone
	Methyl isobutyl ketone
	Nonanal
	Decanol
Alcohols	1-Propanol
	1-Butanol
Aldehydes (HPLC)	Formaldehyde
	Acetaldehyde
TVOC	

一部、半定量物質を含む。

2.3 換気回数測定

実験室の換気回数測定は、トレーサーガス発生器を用いた PFT (Perfluorocarbon Tracergas Technique) 法 (金ら 2009) を用いた。トレーサーガスにはヘキサフルオロベンゼンを用い実験室内でトレーサーガスを発生させ、締め切った状態で 24 時間保持した後、空気中のトレーサーガスを捕集して TD-GC/MS に供した。サンプリングには、アクティブサンプリング法を用いた。換気回数測定は、2017 年 9 月と 2018 年 2 月に各 1 回ずつ行った。空間容積等の要素を考慮した以下の式より、換気回数を算出した。

$$N = Sp/V \times C_t$$

N: 換気回数 (回/h)

Sp: トレーサーガス放散速度 ($\mu\text{g/h}$)

V: 部屋の容積 (m^3)

C_t : トレーサーガス供給開始から t 時間後の濃度 ($\mu\text{g/m}^3$)

2.4 温度と相対湿度計測

実験室内の温度と相対湿度は、実験室及び実験室の隣室 (内装材無施工)、廊下の 3 か所で連続して計測した。各々の場所に三脚を立てて三脚の雲台に温湿度計 (T&D (株) 製、TR-72Ui) を常置して、実験期間を通じて記録した。

2.5 統計処理

温度と相対湿度については、平均値±標準誤差で示した。テルペン類の半定量値の比較、テルペン類及びアルデヒド類濃度と温度、相対湿度との関係については、Pearson の積率相関係数を求めた。有意水準は 5 % とした。統計解析ソフトには SPSS Statistics version 25 (IBM 社製) を用いた

3. 結果

3.1 揮発性有機化合物濃度の経時変化

3.1.1 化合物種毎の濃度推移

内装材施工前、及び施工直後から約二年にわたり、実験室内の揮発性有機化合物を捕集して分析した。Table 3 の族別ごとの濃度を Fig. 3 に示した。計測期間を通して最も濃度が高いのはテルペン類であり、特に施工直後は $6,000 \mu\text{g/m}^3$ 以上で、約 2 週間後でも $1,000 \mu\text{g/m}^3$ 以上の高値を示した。施工後約 3 週間が経過する頃には $450 \mu\text{g/m}^3$ 以下となった。施工後半の夏期では、気中濃度が再度増加することを確認した。その他の VOCs について、芳香族化合物類は捕集時期によってはやや高い値を示すことがあったが、アルデヒド類・ケトン類やアルコール類は時期を問わず、ほぼ一定量検出された。脂肪族炭化水素類やエステル類、ハロゲン類は計測期間を通じて全く検出されないか、検出されても極僅かであった。また、ホルムアルデヒドとアセトアルデヒドは夏期に濃度が増加し、冬期に低下する傾向がみられた。さらに、室内濃度指針値が定められている物質 (厚生労働省 2000)

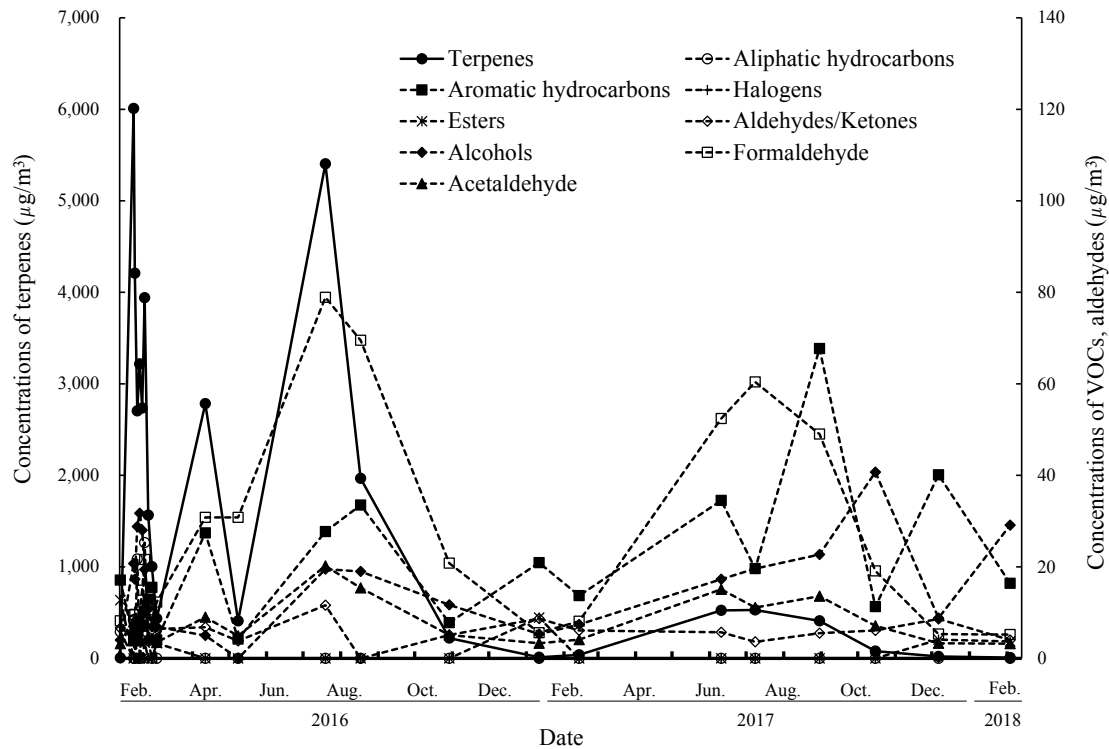


Fig. 3. 揮発性有機化合物（VOCs）とアルデヒド類の気中濃度の経時変化

族別の総濃度を捕集日ごとに示した。

縦軸（左）：テルペン類濃度

縦軸（右）：VOCs 及びアルデヒド類の濃度

横軸：内装施工後の時間経過

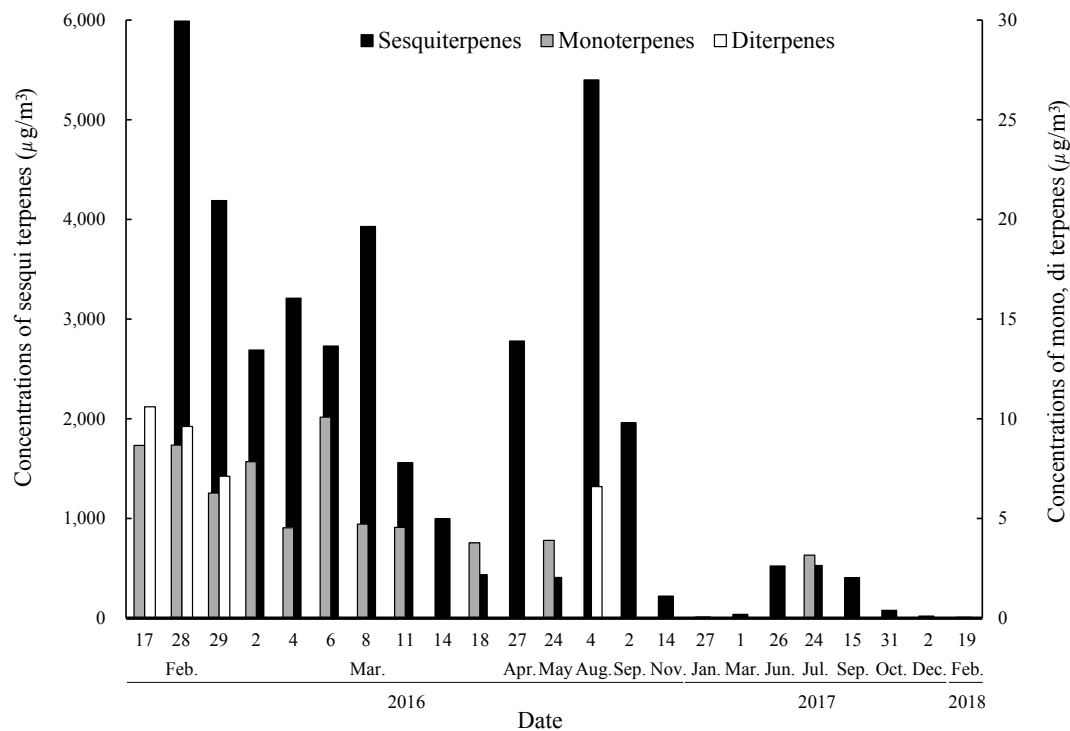


Fig. 4. テルペン類別の気中濃度の経時変化

テルペン類別に算出した濃度を捕集日ごとに示した。

縦軸（左）：セスキテルペン類濃度

縦軸（右）：モノテルペン類とジテルペン類の総和

横軸：捕集日

のうち8物質（テトラデカン、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、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド）を分析したが、いずれも計測期間を通じて指針値以下であった。

3.1.2 テルペン類の種類別の濃度推移

α -ピネン等10成分の定量値とモノ、セスキ、ジテルペン類のいずれかに属する成分の半定量値（トルエン換算）の総和を算出して、Fig. 4に示した。類別にみると、セスキテルペン類の気中濃度が最も多く、比率は、モノテルペンとジテルペン類の濃度を合わせても、全期間を通じてセスキテルペン類の1%以下であった。

3.1.3 TVOC値に対するテルペン類の占有割合

TVOC値に対して、モノ、セスキ、ジテルペン類濃度（トルエン換算）の総和が占める割合をTable 6に示した。多少の変動はみられるが、内装材施工後約2ヶ月経過した時点で97.2%、半年で93.5%、1年で49.1%、1年半で72.1%、2年で12.6%となり、時間経過とともにテルペン類の占有割合が減少した。

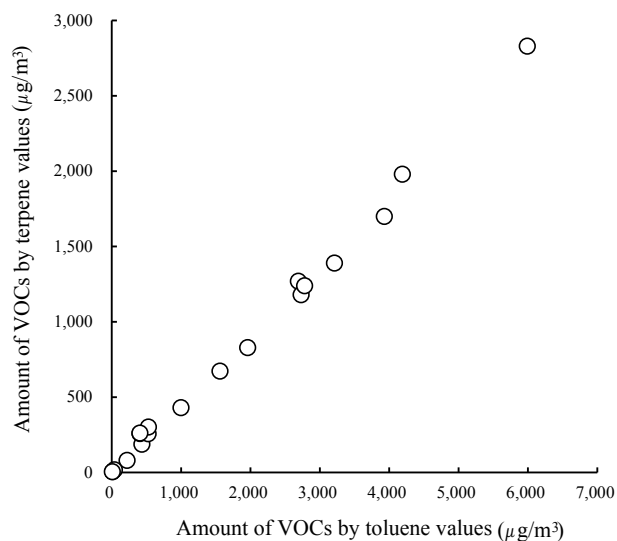


Fig. 5. トルエン換算値とテルペン換算値の関係

3.1.4 トルエン換算値とテルペン換算値の比較

未知テルペン類は、二種類の標準物質を用いて検量線を作成して濃度を算出した。トルエン検量線を用いて換算した濃度と α -ピネンまたは β -オイデスモール検量線を用いて換算した濃度について比較したところ、両者には $r=0.997$ ($p<0.01$) の高い相関関係が認められ (Fig. 5)、トルエン換算値とテルペン換算値の比は 2.1 ± 0.3 であった。

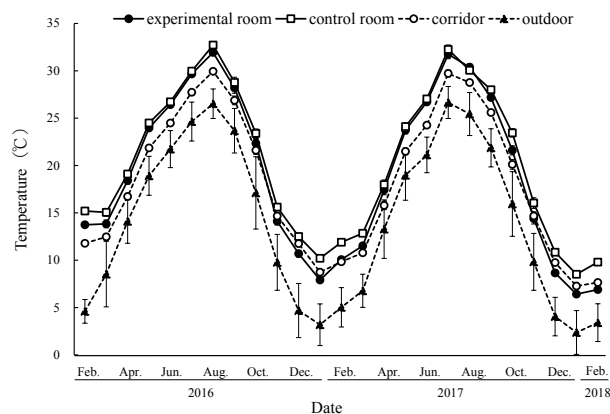


Fig. 6. 温度の経時変化

測定月毎の平均を平均値±標準誤差で示した。
縦軸は温度、横軸：内装施工後の時間経過

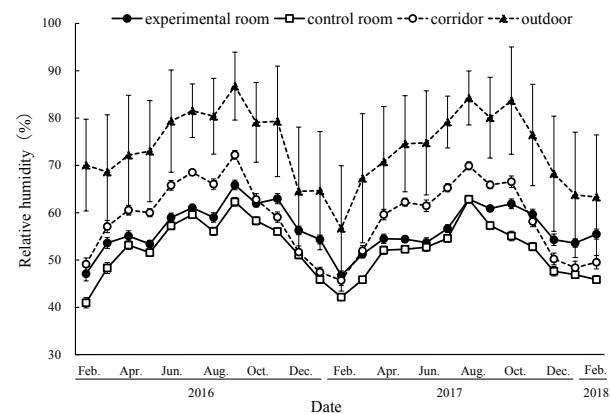


Fig. 7. 相対湿度の経時変化

測定月毎の平均を平均値±標準誤差で示した。
縦軸：相対湿度、横軸：内装施工後の時間経過

Table 6. テルペン濃度が総揮発性有機化合物 (TVOC) 値に占める割合

Year	2016														2017								2018
Month/Day	2/28	2/29	3/2	3/4	3/6	3/8	3/11	3/14	3/18	4/27	5/24	8/4	9/2	11/14	1/27	3/1	6/26	7/24	9/15	10/31	12/2	2/19	
Elapsed days (day)	1	2	4	6	8	10	13	16	20	60	87	159	188	261	335	368	485	513	566	612	664	723	
Total terpenes (μg/m ³)	6009	4208	2703	3218	2735	3940	1565	1003	435	2784	408	5404	1967	221	12	38	524	529	410	78	21	9	
Total terpenes /TVOC × 100 (%)	99	99	97	98	97	97	97	96	92	97	90	97	93	81	19	49	81	82	72	48	23	13	

3.2 換気回数測定

実験室内の換気回数を測定するために、ヘキサフルオロベンゼンをトレーサーガスとして用いて測定した。第一回目の実験は、2017年9月21日の12時20分～翌22日の14時20分までとし、第二回目は2018年2月1日の15時45分～翌2日の16時45分までの間で行なった。2回の測定結果は、1.2回/h(9月)、0.9回/h(2月)であった。また、測定時の室内平均温度は、 28.1 ± 0.5 (°C) (9月) および、 5.7 ± 0.3 (°C) (2月) であり、室外平均温度は 23.0 ± 2.7 (°C) (9月) および、 2.0 ± 1.5 (°C) (2月) であった。

3.3 実験室内温度及び相対湿度の推移

実験室と実験室の隣室、廊下の3か所に温湿度計を設置して、温度と相対湿度を連続して記録した。研究所内苗畑に設置された気象観測装置で測定したデータ(実験室外)を加えて、一ヶ月毎の平均値をFig. 6とFig. 7に示した。室外と廊下に比べて、実験室と隣室の温度や相対湿度は変動が小さいことが分かった。また、計測場所毎の温度(°C)の最大値と最小値は、各々、実験室 31.9 ± 0.7 、 6.4 ± 0.7 、対照室 32.7 ± 0.3 、 8.5 ± 0.2 、廊下 29.9 ± 0.2 、 7.3 ± 0.2 、室外 26.7 ± 1.7 、 2.4 ± 2.3 であり、相対湿度(%)は、実験室 63.0 ± 2.4 、 47.1 ± 2.1 、対照室 62.9 ± 0.6 、 41.0 ± 1.1 、廊下 72.2 ± 0.9 、 45.7 ± 1.1 、室外 84.3 ± 5.7 、 56.7 ± 13.2 であった。

3.4 テルペン類とアルデヒド類の気中濃度と温度・相対湿度との関係

テルペン類とホルムアルデヒド、アセトアルデヒドの気中濃度について、実験室内の温度と相対湿度との相関性を検討した。温度とホルムアルデヒド及びアセトアルデヒドに関しては高い相関関係がみられた($r=0.94$: $p<0.01$ 、 $r=0.81$: $p<0.01$)。テルペン類については温度、湿度ともに相関関係は認められなかった。

4. 考察

本研究では、木質内装材施工直後からVOCs及びアルデヒド類、温湿度を測定、約二年にわたり経時的な変化を調査した。また、室内の換気回数を測定した。空気中の成分濃度を分析した結果、ほぼ全実験期間を通じてテルペン類の放散量が最も多く、ホルムアルデヒド等の室内濃度指針値が定められている8物質については、いずれも指針値以下であった。本実験室の換気回数は平均1.1回/hであり、実験室内の温湿度は、年間を通して6～32°C、47～63%の範囲内で推移した。

揮発性有機化合物濃度の経時変化について、多くの先行研究(吉田ら2004、樋田ら2007b、溝口・堀2008、清水ら2017、山下ら2017)で報告されている通り、内装木質化により実験室内のTVOC値が増加し、特に、テルペン類濃度が大幅に増加することが分かった(Fig. 3)。また、

施工直後は最も室内濃度が高く、その後は時間経過に伴い減衰し、施工後半年の夏期には施工直後の濃度に達するまでに再増加するが、一年半が経過した後には増加の程度が小さかった。ホルムアルデヒドとアセトアルデヒドについては、いずれも室内濃度の指針値以下ではあったが、夏期に濃度が増加して冬期に低下し、気温上昇と低下に伴う季節変動性が推察された。清水ら(2017)の研究で、テルペン類放散量が季節の影響を受けることが報告されており、吉田ら(2004)や山田ら(2005)によると、ホルムアルデヒドは室内の温度変化に依存して低減あるいは上昇し、時間経過による低減効果が小さいことが指摘されている。本研究結果と比較すると、テルペン類の放散は先行研究と同様に温度の影響を受けたと言える一方で、施工から一年以上が経過すると室内濃度の増加が抑えられており、温度上昇以外の影響も示唆された。また、アルデヒド類についても施工半年と施工後一年半ではやや濃度の減衰が見られたが、テルペン類に比べると、本実験期間においては温度による影響の大きさが推察された。吉田ら(2004)は、アセトアルデヒドは時間経過による低減効果が大きいと指摘しており、樋田ら(2007a)は、無垢材や珪藻土等の天然由来材料を多用した住宅の方がアセトアルデヒドの気中濃度が低いことを示唆している。また、Tohmura et al. (2012)は木材にエタノールが添加されることによりアセトアルデヒドの生成が起こることを報告しているが、本実験環境での溶媒使用の実績はなく、内装仕様のいずれかがアセトアルデヒドの放散に影響したものと考えられた。

本実験室の換気回数については、建築基準法で定められている住宅等の換気回数(0.5回/h)の約2倍以上であったことが分かった。機械による強制換気等を使用せず自然換気のみという換気設定としたが、本実験室にはドラフトが室内に設置されており、換気口が開放されたままであったため、実際には通常と比べても換気回数が多かったものと考えられた。そのため、先行研究(清水ら2017、山下ら2017)と比較しても、テルペン類の室内濃度の減衰については比較的早く生じた可能性があり、テルペン類の放散に関しては、季節の変動に加えて、部屋の換気回数も強く影響することが推察された。

テルペン類を組成毎にまとめると、セスキテルペン類が主であり、モノテルペン類とジテルペン類の占める割合はごく僅かであり、全期間を通じてセスキテルペン類の1%以下であることが分かった(Fig. 4)。これまでの多くの先行研究(Ohira et al 2009, Matsubara and Kawai 2014, 清水ら2017, 山下ら2017)で、スギ材から放散する成分として δ -カジネンや α -ムウロレン等のセスキテルペン類が報告されており、本研究結果ともよく一致すると考えられた。また、TVOC値に対するテルペン類の占有割合を算出し、Table 6に示した。本研究では、施工後6ヶ月まではテルペン類の占める割合が90%以上であり、その後は、施工後1年で49.1%、2年経つと12.6%となり、

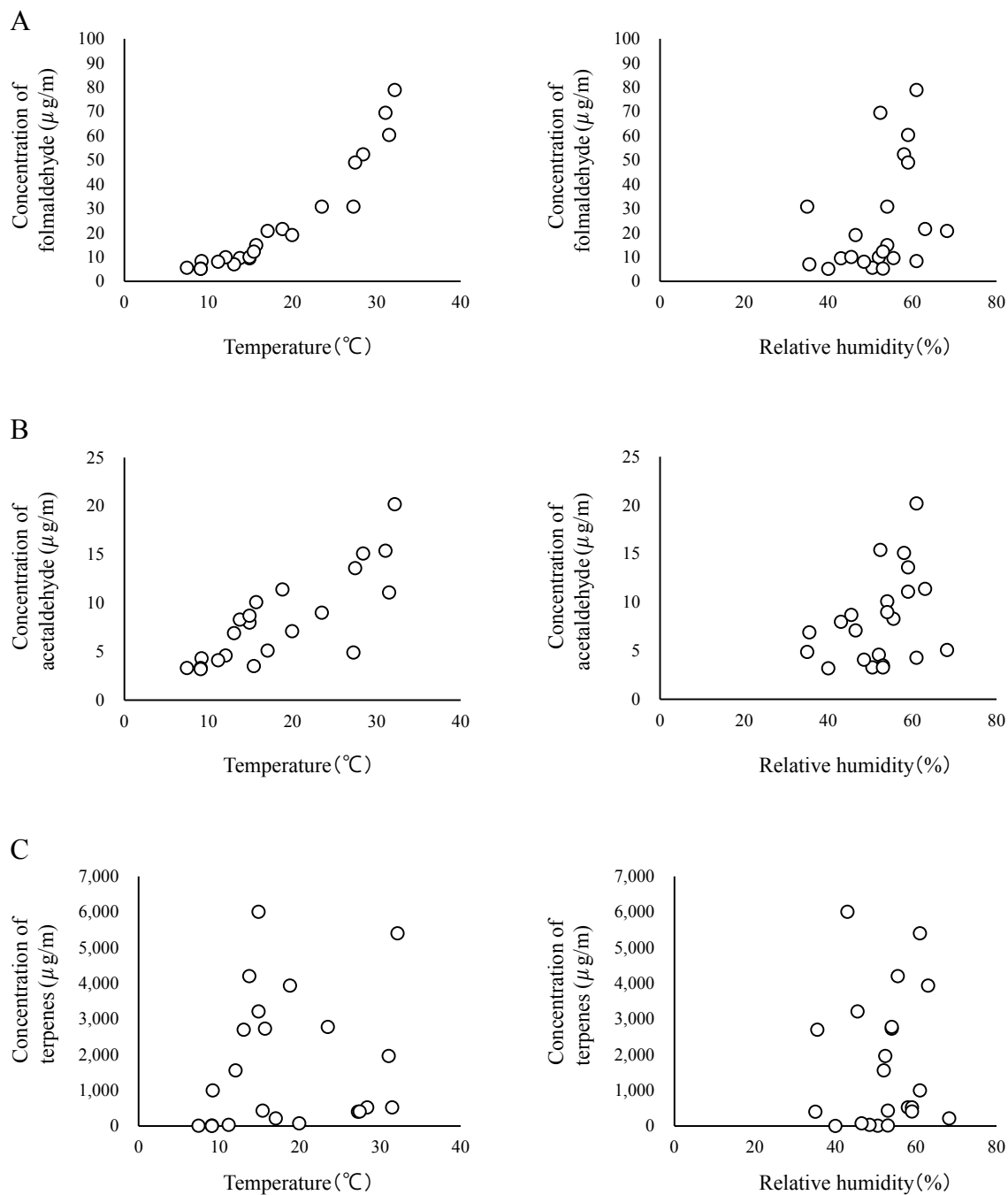


Fig. 8. アルデヒド類とテルペン類の気中濃度と温湿度の関係

A；縦軸：ホルムアルデヒド濃度、横軸：温度ないし相対湿度

B；縦軸：アセトアルデヒド濃度、横軸：温度ないし相対湿度

C；縦軸：テルペン類濃度、横軸：温度ないし相対湿度

TVOC 値に対するテルペン類の割合が徐々に減少することが明らかとなった。山下ら (2017) の研究では、スギやヒノキを構造材として用いた施設において、施工から半年で 94.5 %、1 年後で 84.6 % となり、施工後 1 年が経過しても、主にテルペン類によって TVOC が形成されていると述べられており、本研究結果も少なくとも施工後半年までは、ほぼ同様であったと言える。さらに、未知

テルペン類についてトルエン換算とテルペン類換算で濃度を算出したところ、両者には高い相関関係が認められ (Fig. 5)、濃度比は約 2.1 倍であった。実際の運用上では、簡便性の高いトルエン換算が使われるほうが多いが、個々の化合物の感度がトルエンと異なり、トルエン換算値で表された TVOC 値に対する慎重な意見も報告されている (堀 2010)。本研究で用いた標準物質の妥当性については

検討の余地が残るため、木質環境の的確な把握に向け、未知テルペン類の定量方法については、今後検討していく必要があると考えられた。

実験室及び隣室、廊下で温度と相対湿度を記録し、研究所内の気象観測装置で測定したデータを加えた、一ヶ月毎の平均値を Fig. 6 及び Fig. 7 に示した。特に、相対湿度は、実験室の最大値と最小値との差が最も小さく、内装木質化により室内の湿度環境に影響を及ぼしたことが示唆された。木材の調湿作用についてはよく知られるところであり（則元ら 1997）、本研究で使用した材料も吸放湿性能の高い材料であったことが推察された。また、ホルムアルデヒドとアセトアルデヒド、テルペン類については、室内の温度と相対湿度との関係を統計的に検証したところ、ホルムアルデヒドとアセトアルデヒドはともに、室内の温度との高い相関関係が認められたが、テルペン類では同様の相関関係が認められなかった（Fig. 8）。Fig. 3 に示す通り、両アルデヒドともに夏期で放散増加がみられ、テルペン類については施工直後の放散量が最も多く、その後は徐々に減衰することが明らかであり、これらの放散特性が相関性に影響したものと考えられた。

5. おわりに

本研究では、内装木質化が室内の揮発性有機化合物等を与える影響について、約二年間にわたり継続的に検証した。テルペン類の放散量は施工直後が最も多く、時間経過に伴う減衰が大きいたことが分かった。「木の香り」は新築やリフォームの直後が最も強く、年月が経つとあまり感じなくなることが多い。本研究では、これらの現象を一部、数値化することができたと考えられる。また、化合物により放散特性が異なる可能性が示唆されることから、施工後しばらくの間と数年以内の夏期には、十分な換気を行う必要がある。建材の種類や施工方法等によって、室内の揮発性有機化合物の組成は大きく変わると考えられるため、今後はより実際の居住空間に近い環境での検証データを蓄積し、木質環境の良さの解明に役立てていきたい。

謝 辞

本研究実施にあたり、材料調達及び加工、内装施工に関して、三浦林商、三浦妃己郎氏、静水舎一級建築士事務所、芝静代氏、NPO 法人もりずむ、藤崎昇氏に多大なご尽力を頂きました。また、揮発性成分の捕集、分析及び換気量測定に関して、(株) MC エバテック、田中浩史氏ならびに分析事業部にご協力を頂きました。実験室仕様や内装材料に関して、複合材料研究領域、宮武敦チーム長に貴重なご助言を頂きました。本研究は、(国研) 森林研究・整備機構森林総合研究所交付金プロジェクト（課題番号 201418）の支援を受けて遂行いたしました。ここに深く感謝いたします。

引用文献

- Bamba, I. and Azuma, K. (2015) Psychological and physiological effects of Japanese cedar indoors after calculation task performance, *J. Hum-Environ.Syst.*, 18 (2), 33-41.
- 樋田 淳平・高塚 早紀・山田 雅章・滝 欽二・吉田 弥明・山田 誠 (2007a) 改正建築基準法に対応した新築住宅における室内空気質の実態調査（第1報）カルボニル化合物気中濃度の実態. *木材学会誌*, 53 (1), 34-39.
- 樋田 淳平・高塚 早紀・山田 雅章・滝 欽二・吉田 弥明・山田 誠 (2007b) 改正建築基準法に対応した新築住宅における室内空気質の実態調査（第2報）VOC 気中濃度の実態. *木材学会誌*, 53 (1), 40-45.
- 堀 雅宏 (2010) 室内環境指標としての総揮発性有機化合物 (TVOC). *Indoor Air*, 13 (1), 9-19.
- 金 勲・田辺 新一・田島 昌樹・村江 行忠 (2009) PET 法を用いた換気量測定と SF₆ 連続供給法 CO₂ 一定濃度法、差圧測定法との比較実験. *日本建築学会環境系論文集*, 74 (635), 47-54.
- 厚生労働省 (2000) “シックハウス（室内空気汚染）問題に関する検討会中間報告書 - 第4回～第5回のまとめについて” https://www.mhlw.go.jp/www1/houdou/1212/h1222-1_13.html
- 厚生労働省 (2001) “シックハウス（室内空気汚染）問題に関する検討会中間報告書 - 第6回～第7回のまとめについて、別添3：室内空気中化学物質の測定マニュアル” <https://www.mhlw.go.jp/houdou/0107/h0724-1c.html>
- Matsubara, E. and Kawai, S. (2014) VOCs emitted from Japanese cedar (*Cryptomeria japonica*) interior walls induce physiological relaxation. *Build. Environ.*, 72, 125-130.
- 松本 久美子・川等 恒治・斎藤 直人・佐々木 三公子・川端 康弘 (2016) 認知心理学に基づいた木質内装材の好ましさの評価（第1報）. *木材学会誌*, 62 (2), 42-48.
- 溝口 忠・堀 雅宏 (2008) 集合住宅における空気環境改善のためのホルムアルデヒド・VOC・SVOC 測定に関する考察. *Indoor Environment*, 11 (2), 83-92.
- 則元 京・鈴木 正治・佐藤 健・高橋 徹 (1997) 4.1.2 木質住宅と湿度. 今村 祐嗣・川井 秀一・則元 京・平井 卓郎編 “建築に役立つ木材・木質材料学”. (株) 東洋書店, 280-288.
- 内閣府 (2011) “森林と生活に関する世論調査”, <https://survey.gov-online.go.jp/h23/h23-sinrin/index.html>
- Ohira, T., Park, Bum-Jin., Kurosumi, Y. and Miyazaki, Y. (2009) Evaluation of dried-wood odors: comparison between analytical and sensory data on odors from dried sugi (*Cryptomeria japonica*) wood. *J. Wood Sci.*, 55, 144-148.
- 林野庁 (2018) “平成28年度の公共建築物の木造率について”, <http://www.rinya.maff.go.jp/j/press/riyou/180329.html>
- 佐伯 健太郎・山崎 大・溝口 竣介・梶原 英貴・大平 慎一・戸田 敬 (2018) 花粉飛散マーカーの探索を目

- 的とした加熱脱着装-GC/MSによる花粉由来揮発性有機化合物の同定. *Bunseki Kagaku*, 67 (6), 323-331.
- 清水 邦義・吉村 友里・中川 敏法・松本 清・鷺岡 ゆき・羽賀 栄理子・本傳 晃義・中島 大輔・西城 裕美・藤田 弘毅・渡邊 雄一郎・岡本 元一・井上 伸史・安成 信次・永野 純・山田 祐樹・岡本 剛・大貫 宏一郎・石川 洋哉・藤本 登留 (2017) スギ材を内装材として使用した室内空間における揮発性成分の分析およびその季節変動. *木材学会誌*, 63 (3), 126-130.
- 末吉 修三・森川 岳 (2016) 事務所の内装に使われた木材によってもたらされる視覚的影響聞き取り調査の多次元尺度構成法による解析. *木材学会誌*, 62 (6), 311-316.
- Tohmura, S., Ishikawa, A., Miyamoto, K. and Inoue, A. (2012) Acetaldehyde emission from wood induced by the addition of ethanol. *J. Wood Sci.*, 58, 57-63.
- 山下 里恵・櫻川 智史・斎藤 幸恵・渡邊 拓・安村 基 (2017) 国産材を使用した木造施設における室内空気質の形成. *木材学会誌*, 63 (2), 86-97.
- 山田 裕巳・田辺 新一・林 基哉 (2005) 実験住宅を用いた異なる換気量下におけるホルムアルデヒド長期間放散に関する研究. *J. Environ. Eng., AIJ*, 589, 23-29.
- 吉田 弥明・木村 愛・羽島 友康・山田 誠・滝 欽二・山田 雅章 (2004) スギムク材内装モデル居室における揮発性有機化合物(VOCs)の放散挙動. *木材学会誌*, 50 (3), 168-175.

Temporal changes in volatile compounds in the indoor air of a laboratory finished with Sugi (*Cryptomeria japonica*) interior materials

Eri MATSUBARA ^{1)*}

Abstract

Terpenes are volatile compounds emitted from wood, and they have been suggested to be related to the comfort in a woody environment. Terpenes emission influences the concentration of total volatile organic compounds in the indoor air. Studies on the long-term emission of volatile compounds, including terpenes, from wooden interior finishing installed in buildings are few; therefore, in this study, wooden materials were finished on the floor and wall of a laboratory, and the volatile compounds in the room were analyzed for about two years from the day after finishing. 51 compounds such as hydrocarbons, alcohols and carbonyl compounds were quantified and unidentified compounds between hexane and hexadecane were semiquantitated. In addition, the air change rate in the room, temperature, and relative humidity were measured. Compared with all compounds measured in this study, the volume of emitted terpenes was the largest during almost the complete experimental period. And the concentration of terpenes in the air was higher at immediately after finishing and during summer. After two years, the concentration declined to 0.15 % as compared to the day after finishing. In addition, the eight substances with regard to which the guideline of the indoor air concentration values were defined were below the indoor concentration guideline values. The air change rate per hour in the room was 1.1 times/h. The temperature ranged from 6 °C to 32 °C, and the relative humidity ranged from 47 % to 63 %.

Key words : wood interior materials, *Cryptomeria japonica*, volatile organic compounds, terpenes

Received 8 November 2018, Accepted 21 December 2018

1) Department of Wood-based Materials, Forestry and Forest Products Research Institute (FFPRI)

* Department of Wood-based Materials, FFPRI, 1 Matsunosato, Tsukuba, Ibaraki, 305-8687 JAPAN; e-mail: meri@ffpri.affrc.go.jp