

**CLT 等新たな製品・技術の開発・普及事業
(住宅等における新たな製品・技術開発)
成果報告書**

平成 28 年 3 月

公益社団法人日本木材保存協会

はじめに

公益社団法人日本木材保存協会は、平成 27 年度林野庁委託事業「CLT 等新製品・新技術利用促進」のうち「保存処理された CLT 等木質材料の検査技術の高度化事業」を受託し、実施してまいりました。

高い耐久性を付与することを目的として保存処理された CLT 等木質材料の防腐・防蟻性能は、処理された材料の断面に対し、どの程度の範囲に有効成分が浸透しているかを表す浸潤度と、そこに含まれる有効成分量（吸収量）に依存します。そのため、製材の日本農林規格（製材の JAS）や優良木質建材等認証制度（AQ 認証）における保存処理に関する規定では、浸潤度と吸収量について基準が定められています。しかし、製材の JAS 等で規定された方法では、保存処理の対象となる樹種や薬剤の多様化に起因する分析精度の低下に対応することが困難な状況にあります。さらに、現在規定されている方法は実験操作が煩雑であるため、効率的かつ高精度な分析を実施できない場合が少なくありません。そのため、保存処理された製品の品質の確保や向上を担保しきれない状況にあります。

公益社団法人日本木材保存協会では、平成 26 年度林野庁補正予算委託事業「CLT 等新製品・新技術利用促進」において、現在保存処理に用いられている主要な薬剤の有効成分を対象に、分析の効率化、高精度かに取り組みました。本年度の事業では、先の委託事業において対象としていなかった薬剤を対象とし、効率的かつ高精度な分析方法を確立することで、保存処理された CLT 等木質材料の検査技術の向上を目指すことにしました。

本事業の実施にあたっては、ご協力を賜りました委員各位をはじめ、（公財）日本合板検査会、（公財）日本住宅・木材技術センター、（独）農林水産消費安全技術センター、日本木材防腐工業組合、日本木材保存剤工業会に対しまして厚く御礼申し上げます。この成果を踏まえて保存処理工場の品質管理の精度を向上させ、また、JAS の検査機関における分析の迅速化・高精度化を図り、以て広く木材、木質材料の需要拡大と性能や品質に対する信頼性の向上に繋がることを期待しています。

平成 28 年 2 月末日

公益社団法人日本木材保存協会
会 長 今村 祐嗣

目次

はじめに

第1章 平成27年度林野庁委託事業CLT等新たな製品・技術の開発・普及事業 (住宅等における新たな製品・技術開発)の概要	1
第2章 木材保存剤分析方法高度化研究会委員会等の設置・開催	2
第3章 事業の必要性和実施内容	3
第4章 エトフェンプロックスの分析の高精度化・効率化について	3
4.1 抽出工程における抽出・ろ過方法の選定	4
4.1.1 実験方法	4
4.1.2 結果と考察	5
4.2 選定した試料調製方法の妥当性の検証	5
4.2.1 実験方法	6
4.2.2 結果と考察	6
4.3 高速液体クロマトグラフを用いた分析方法の検討	9
4.3.1 実験方法	9
4.3.2 結果と考察	10
第5章 ビフェントリンの分析の高精度化・効率化	13
5.1 抽出工程における抽出・ろ過方法の選定	14
5.1.1 実験方法	14
5.1.2 結果と考察	14
5.2 選定した試料調製方法の妥当性の検証と高速液体クロマトグラフ分析の効率化	14
5.2.1 実験方法	15

5.2.2 結果と考察.....	15
第6章 シラフルオフエンの分析の高精度化・効率化について.....	19
6.1 抽出溶媒および抽出方法の選定.....	19
6.1.1 実験方法.....	19
6.1.2 結果と考察.....	19
6.2 複数の樹種に対する分析条件の確立と試料前処理方法の妥当性の評価.....	20
6.2.1 実験方法.....	20
6.2.2 結果と考察.....	20
第7章 ガスクロマトグラフ-質量分析計を用いた分析方法の検討.....	23
7.1 実験方法.....	23
7.2 結果と考察.....	24
第8章 分析方法のマニュアル化と複数機関での実施.....	31
8.1 提案する定量分析方法.....	31
8.2 共通試料を用いた複数の機関による分析の実施.....	32
8.2.1 道総研林産試験場.....	32
8.2.2 大日本木材防腐株式会社.....	36
8.2.3 株式会社ザイエンス.....	40
8.2.4 兼松日産農林株式会社.....	44
8.2.5 (公社) 日本住宅・木材技術センター.....	49
8.3 分析結果の比較.....	53
第9章 事業の総括と残された課題.....	55
謝辞.....	55
執筆者一覧.....	56

第1章 平成27年度林野庁委託事業CLT等新たな製品・技術の開発・普及事業 (住宅等における新たな製品・技術開発)の概要

保存処理木材・木質材料の性能は処理材中の有効成分量(吸収量)に依存する。したがって、保存処理木材・木質材料の性能を担保するためには、認証機関による検査や製造者による品質管理において、吸収量が正確に分析される必要がある。しかし、製材の日本農林規格(製材のJAS)で規定されている分析方法では、木材成分による影響を受け、吸収量の測定値が過大となるなど十分な精度が得られない場合が少なくない。また、実験操作の煩雑さに起因するヒューマンエラーによる精度低下の危険性もあり、保存処理木材・木質剤用の性能を十分に担保できない状況にある。

そこで、公益社団法人 日本木材保存協会が中心となり実施した「平成25年度林野庁補正予算委託事業」において、現在用いられている、木材保存剤のうち、主要な有効成分を対象とし、高精度化・迅速化された分析方法を確立した。本事業では、当協会が中心となり、これまで分析精度や迅速化についてほとんど検討されていなかった、非エステルピレスロイド、ピレスロイド化合物を対象に、効率的であり高い精度を保った分析方法の開発を行った。

第2章 木材保存剤分析方法高度化研究会委員会等の設置・開催

本事業の実施においては、公益社団法人日本木材保存協会に木材保存剤の定量分析技術の高度化研究会を組織し、事業を推進した。

委員の構成は下記の通りとした。

	区 分	氏 名	所 属
1	委員長	今村祐嗣	京都大学名誉教授
2	委員	宮内輝久	(地独) 北海道立総合研究機構林産試験場
3	委員	石川敦子	(研) 森林総合研究所 木材改質研究領域
4	委員	松原恵理	(研) 森林総合研究所 複合材料研究領域
5	委員	大澤朋子	(公財) 日本住宅・木材技術センター
6	委員	赤堀裕一	日本木材防腐工業組合・大日本木材防腐(株)
7	委員	池田 学	日本木材保存剤工業会・(株) ザイエンス
8	委員	中井大二郎	日本木材防腐工業組合・兼松日産農林(株)
9	オブザーバー	大倉弘二	林野庁 木材産業課
10	オブザーバー	北代新也	林野庁 木材産業課
11	オブザーバー	中熊 靖	農林水産省 消費・安全局
12	オブザーバー	横田俊峰	(独) 農林水産消費安全技術センター
13	オブザーバー	山本幸一	(研) 森林総合研究所 企画部
14	オブザーバー	須貝与志明	日本木材保存剤工業会・(株) ザイエンス
15	オブザーバー	馬場庸介	日本木材保存剤工業会・住化エンバイロメンタルサイエンス(株)
16	オブザーバー	榮澤純二	(公財) 日本合板検査会
17	事務局	鈴木 昭	(公社) 日本木材保存協会

この委員の構成のもと、下記のスケジュールにて事業を執り行った。

平成27年9月15日	第1回委員会開催 ((公社) 日本木材保存協会 会議室)
9月～12月	各実験項目の実施 ((研) 森林総研・(地独) 林産試)
12月～ 平成28年1月	妥当性の評価に関する室間再現制度確認実験の実施 (森林総研・林産試・その他試験実施機関)
2月	成果報告書の作成
2月24日	第2回委員会開催 (最終・とりまとめ) ,
3月 3日	成果報告会開催

第3章 事業の必要性と実施内容

保存処理された木材の性能は、処理材中に含まれる有効成分の浸潤状態（浸潤度）と量（吸収量）に依存する。そのため、製材の日本農林規格（以下「製材のJAS」）や優良木質建材認証制度（以下「AQ認証」）では、有効成分の浸潤度と吸収量が規定されている。浸潤度は処理材中央部断面を切り出し、呈色試薬を用い浸潤部を発色させることで評価されるため、比較的容易に分析することが可能である。一方、吸収量は、同じく処理木材中央断面から、所定の採取方法で切り出した試験片に含まれる有効成分を定量分析することで評価される。有効成分を定量するためには、処理木材から有効成分を回収（抽出）し、機器分析を実施する必要がある。

現在、JIS K1570²⁾やAQ認証において規定されている木材保存剤は、ほぼ100%が有機化合物系の有効成分を用いたものとなっているため、有効成分の回収は有機溶媒を用いた溶媒抽出により実施されている。しかし、製材のJAS等で規定されている抽出方法は、必要以上に複雑であること、適切な溶媒や抽出方法が提示されていないこと、木材成分による影響を受けることなどにより高精度かつ迅速な分析を実施することができない場合が少なくない。また、機器分析法についても、より効率的で高精度な分析を実施できるものになっていない。

当協会では、平成25年度林野庁補正予算委託事業「CLT等新製品・新技術利用促進」を実施し、主要な国産材であるスギ、ヒノキ、カラマツ、トドマツの4樹種を対象に、第四級アンモニウム化合物、ネオニコチノイド化合物について、より効率的かつ高精度な分析方法を確立している。本事業では、同じく主要な国産材4樹種を対象に、これまで分析方法についての検討例が少ない非エステルピレスロイド、ピレスロイド化合物（表3-1）について、効率的かつ高精度な分析方法の確立を目的とした検討を実施した。

表3-1 非エステルピレスロイド/ピレスロイド化合物を有効成分とする木材保存剤

有効成分	種類	記号	
エトフェンプロックス	アゾール・第四級アンモニウム・非エステルピレスロイド化合物系	AZAAC	JISK1570/AQ 認証
	アゾール・非エステルピレスロイド化合物系	AZE	AQ 認証
ビフェントリン	アゾール・ピレスロイド化合物系	AZBI	AQ 認証
シラフルオフエン	第四級アンモニウム・非エステルピレスロイド化合物系	SAAC	JISK1570/製材のJAS/AQ 認証

第4章 エトフェンプロックスの分析の高精度化・効率化について

エトフェンプロックスはJISK1570に記載されている木材保存剤のうち、アゾール・第四級アンモニウム・非エステルピレスロイド化合物系木材保存剤（AZAAC）の有効成分に用いられている。しかし、現行の製材のJASではAZAACについての規定は存在しない。AZAACを用いた木製品については、（公財）日本住宅・木材技術センターの優良木質建材等認証制度（AQ認証）において規定されている。AQ認証では、エトフェンプロックスを有効成分と

する薬剤として、AZAAC の他、アゾール・非エステルピレスロイド化合物系の薬剤 (AZE) で処理された製品について規定されている (表 3-1)。これらの規定においては、製材の JAS と同様に浸潤度と吸収量の基準が設けられている。

現在、AZAAC と AZE で処理した材料の認証がないことから、本事業ではエトフェンプロックスを用いた薬剤として AZE を対象とすることとした。エトフェンプロックスの抽出工程では、アセトニトリル、メタノールまたはこれらにギ酸を加えたものなどが抽出溶媒に用いられており、加熱処理により実施することとされている。また、木粉と抽出溶液を分離するため、抽出操作終了後、吸引ろ過により木粉を除去し、残渣木粉を抽出溶媒で洗浄した後、ろ液と洗液を合わせ定容することとされている。これらの方法では木粉のろ別方法が煩雑であり、特に多量の試験体を処理する方法としては不向きである。そこで、本事業では超音波を用いた抽出 (超音波抽出) と簡便なるろ過方法による試料調製について検討した。なお、これまで実施した検討において、ベイツガ心材は、有効成分の回収率が低い傾向にあったことから、ベイツガ心材を用いた検討から適切と考えられる方法を選定し、これを本事業で対象とする樹種であるスギ、カラマツ、トドマツ、ヒノキに適用することとした。また、機器分析方法としてはより効率的な分析が可能な超高速液体クロマトグラフ (UHPLC) を用いてある程度検討を進めた後、汎用的な装置である高速液体クロマトグラフ (HPLC) に置き換え、HPLC を用いた場合の効率的かつ高精度な機器分析方法を確立することとした。

4.1 抽出工程における抽出・ろ過方法の選定

超音波を用いた抽出方法に適切な溶媒を選定するため、ベイツガ心材から調製した木粉を用いた添加回収試験を実施した。

4.1.1 実験方法

4.1.1.1 処理木粉の調製

ベイツガ心材をカッターミル (IKA 社製) で粉碎し、目開き 2 mm のメッシュを通過した木粉を調製した。AZE として (株) ザイエンスのサンプルゼー OP-C を用いた。1 g の木粉に 1 mL 添加することで、AQ2 種レベルの処理木粉が得られる濃度に調製したものを作業液とした。ベイツガ心材木粉 1g を 30 mL 容のサンプル瓶に入れ、1 mL の作業液を木粉全体に行き渡るように添加し、スクリーキャップをした後、室温下で養生した。養生後、キャップを外し室温で 2 日間、60°C のオーブンで 10 日間乾燥したものを処理木粉とした。作業液中のエトフェンプロックスを定量するため、木粉を含まないサンプル瓶に 1 mL の作業液を入れたものも同様に調製した。

4.1.1.2 溶媒抽出

抽出溶媒として、アセトニトリル、メタノール、およびこれらにギ酸を (ギ酸 : 各溶媒 = 3 : 100, v/v) 加えたものの 4 種類を用いた。抽出は超音波抽出により実施し、照射時間は 60 分とした。また、水温は 40°C を超えないよう管理し、20 分ごとに各サンプル瓶を激しく振り混ぜた。抽出後の溶媒から木粉を除去する方法として、ガラス濾紙を充填したプラスチックシリンジを用いたろ過を行い、ろ液を抽出溶液とした。また、ベイツガ心材由来の成分が分析に及ぼす影響を評価するため、薬剤を添加しない木粉についても同様の抽

出を行い、抽出溶液を調製した。作業液のみを添加したサンプル瓶にはアセトニトリル 20mL を加え、これを試料溶液とした。各抽出溶液および試料溶液のうち 1mL を減圧濃縮乾固し、超高速液体クロマトグラフ (UHPLC) に用いる移動相に再溶解し、シリンジフィルター (孔径 0.20 μ m, ϕ 13 mm, ADVANTEC 社製) でろ過したものを UHPLC 分析に供した。

4.1.1.3 超高速液体クロマトグラフによる分析

UHPLC には AQUITY UPLC H-class システム (Waters 社製) を用いた。カラムは Inertsil ODS-3 (粒子径 : 2.0 μ m, 内径 2.1 mm \times 100 mm, GL サイエンス社製) を使用した。移動相はアセトニトリル : 蒸留水 (80 : 20, v/v) とし、流速は 0.75 とした。カラムオープンの温度は 40 $^{\circ}$ C に設定した。検出波長は 224nm を用いた。

4.1.1.4 分析結果の解析

各抽出溶液と試料溶液中に含まれるエトフェンプロックス量から下記の式により回収率を求めた。回収率は抽出溶媒毎に、繰り返し 3 回の平均値として求めた。

$$\text{回収率(\%)} = \frac{\text{抽出溶液中の全エトフェンプロックス量}}{\text{試料溶液中の全エトフェンプロックス量}} \times 100$$

4.1.2 結果と考察

無処理のベイツガ心材から調製した抽出溶液と標準品のエトフェンプロックスを UHPLC 分析に供し、ベイツガ心材由来の成分がエトフェンプロックスの分析に影響するかどうかを確認した。その結果、エトフェンプロックスのピーク付近に木材由来のピークは確認されず、メタノールで抽出されるベイツガ心材の成分はエトフェンプロックスの分析に影響しないことが確認された。

次に、各溶媒を用いた場合の回収率を表 4-1 に示す。今回用いた溶媒すべてについて高い回収率が得られることが確認された。そこで、溶媒調製の簡便さや価格、また、他の有効成分でも使用されている事例が多いことなどを考慮し、メタノールを抽出溶媒として選定することとした。

表 4-1 各溶媒を用いたエトフェンプロックスの回収率

抽出溶媒	回収率*
メタノール	98 (0.6)
アセトニトリル	99 (0.2)
ギ酸-メタノール	99 (0.8)
ギ酸-アセトニトリル	99 (0.4)

*n=3 の平均値, () 内は相対標準偏差

4.2 選定した試料調製方法の妥当性の検証

ベイツガ心材を用いた検討で選定された抽出・ろ過方法の妥当性を評価するため、スギ、カラマツ、トドマツ、ヒノキを用い、選定した方法による添加回収試験を実施した。特に、心材成分が有効成分の定量分析に影響を与える場合が多いことが確認されていることから、

添加回収試験に先立ち、各樹種の心材成分による影響を確認し、分析条件の変更等を行った。

4.2.1 実験方法

4.2.1.1 試料の調製

スギ、カラマツ、トドマツ、ヒノキの辺材および心材をカッターミル（IKA 社製）で粉碎し、目開き 2 mm のメッシュを通過した木粉を調製した。を用いた。1g の木粉に 1mL 添加することで、AQ2 種または 3 種レベルの処理木粉が得られる濃度に調製したサンプルザー OP-C を作業液とした。各木粉 1g を 30mL 容のサンプル瓶に入れ、1mL の作業液を木粉全体に行き渡るように添加し、スクリュウキャップをした後、室温下で養生した。養生後、キャップを外し室温で 2 日間、60℃ のオーブンで 10 日間乾燥したものを処理木粉とした。なお、各条件について繰返し数は 3 とした。作業液中のエトフェンプロックスを定量するため、木粉を含まないサンプル瓶に 1mL の作業液を入れたものも同様に調製した。

4.2.1.2 溶媒抽出

処理木粉の入ったサンプル瓶にメタノール 20mL を正確に加え、密栓したサンプル瓶を超音波洗浄器に入れ、超音波を照射した。照射時間は 60 分とし、20 分ごとに各サンプル瓶を激しく振り混ぜた。次に、ガラス濾紙を充填したプラスチックシリンジを用いたろ過を行い、ろ液を抽出溶液とした。また、各樹種の心材由来の成分が分析に及ぼす影響を評価するため、薬剤を添加しない木粉についても同様の方法で抽出溶液を調製した。作業液のみを添加したサンプル瓶にはメタノール 20 mL を加え、これを試料溶液とした。各抽出試料および試料溶液のうち 1mL を減圧濃縮乾固し、UHPLC に用いる移動相に再溶解し、シリンジフィルター（孔径 0.20 μ m, ϕ 13 mm, ADVANTEC 社製）でろ過したものを UHPLC 分析に供した。

4.2.1.3 超高速液体クロマトグラフによる分析

UHPLC には AQUITY UPLC H-class システム (Waters 社製) を用いた。カラムは Inertsil ODS-3 (粒子径 : 2.0 μ m, 内径 2.1 mm \times 100 mm, GL サイエンス) を使用した。移動相はアセトニトリル : 蒸留水 (80 : 20 または 70 : 30, v/v) とし、流速は 0.75 とした。カラムオープンの温度は 40℃ に設定した。検出波長は 224 nm を用いた。定量分析はピーク面積を用いた絶対検量線法により行った。

4.2.1.4 分析結果の解析

各抽出溶液と試料溶液中に含まれるエトフェンプロックスの量から下記の式に従い回収率を求めた。回収率は各樹種毎 (辺心材毎) , 各抽出方法, 繰返し 3 回の平均値として求めた。

$$\text{回収率(\%)} = \frac{\text{抽出溶液中の全エトフェンプロックス量}}{\text{試料溶液中の全エトフェンプロックス量}} \times 100$$

4.2.2 結果と考察

木材成分による分析への影響を確認するため、薬剤を添加していない木粉から調製した抽出溶液の UHPLC 分析を実施した。その結果、移動相にアセトニトリル : 蒸留水 (80 : 20, v/v) を用いた場合、エトフェンプロックスのピーク付近に分析に影響する可能性のあるカラマツ心材成分のピークは確認されなかった (図 4-1) 。トドマツ、ヒノキ心材の場合、エトフェンプロックスのピーク付近に微小な木材成分のピークが確認されたが、分析に及ぼす

影響はほとんどないと考えられた。一方、スギ心材の場合、エトフェンプロックスのピークと同じ位置及びその近傍に分析に影響すると考えられる複数の心材成分のピークが確認された。

次に、この移動相を用いた分析による回収率を求めたところ、エトフェンプロックスの濃度が2種相当の場合、スギ心材の回収率が若干高いものの、その回収率は101~110%の範囲にあり、良好な結果であると考えられた(表4-2)。一方、濃度が3種相当の場合、スギ心材では20%を超える高い値が得られ、木材成分の影響が無視できないことが確認された。

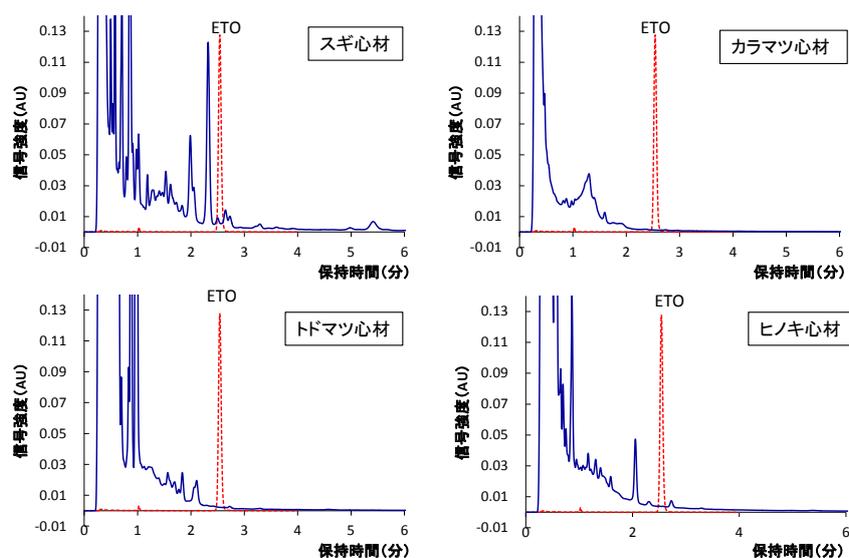


図 4-1 エトフェンプロックス (ETO, 破線) と木材成分のUHPLCクロマトグラム
(移動相 アセトニトリル : 水=80 : 20 (v/v))

そこで、移動相の組成をアセトニトリル : 水 (70 : 30, v/v) とし、木材成分とエトフェンプロックスとの分離の改善を試みた。薬剤を添加していない木粉から調製した抽出溶液のUHPLC分析を実施した結果を図4-2に示す。移動相を変更することで、分析に影響する可能性のある木材成分とエトフェンプロックスのピークを分離することが可能であった。この条件を用いて回収率を求めたところ、スギ心材を含め良好な結果が得られることが確認された(表4-3)。

以上の結果、UHPLCの分析条件を変更する必要があるが、選定された試料調製方法が妥当であることが確認された。

表 4-2 エトフェンプロックスの回収率
(移動相=アセトニトリル:水 (80:20, v/v))

濃度	樹種	部位	回収率 (%)*	
2 種相当	スギ	辺材	102	(1.4)
		心材	110	(0.2)
	カラマツ	辺材	104	(1.2)
		心材	101	(0.6)
	トドマツ	辺材	102	(0.4)
		心材	103	(1.4)
	ヒノキ	辺材	104	(1.1)
		心材	105	(0.5)
3 種	スギ	辺材	104	(0.3)
		心材	124	(1.6)
	カラマツ	辺材	103	(0.1)
		心材	102	(1.7)
	トドマツ	辺材	103	(0.4)
		心材	103	(2.1)
	ヒノキ	辺材	102	(0.7)
		心材	106	(1.0)

*n=3 の平均値, () 内は相対標準偏差

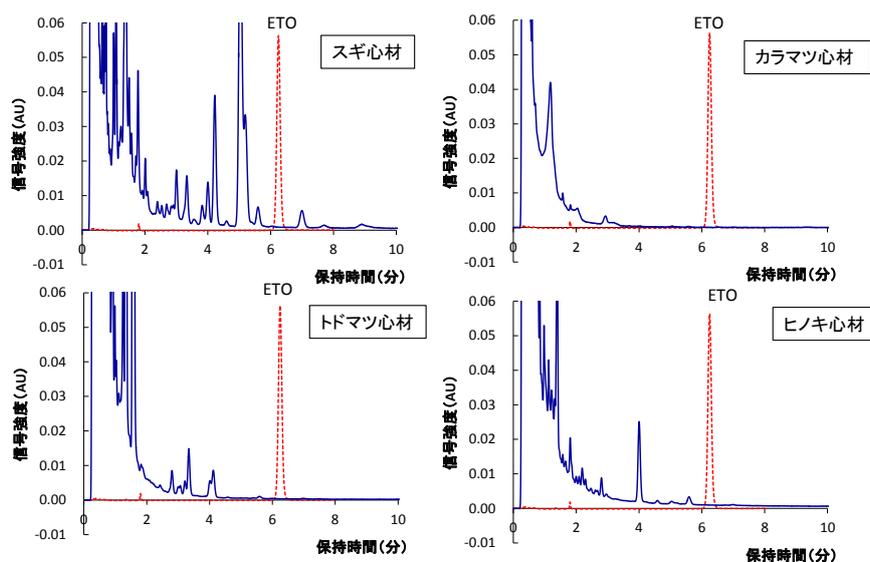


図 4-2 エトフェンプロックス (破線) と各木材成分の UHPLC クロマトグラム

表 4-3 エトフェンプロックスの回収率
(移動相=アセトニトリル:水 (70:30, v/v))

濃度	樹種	部位	回収率 (%)*	
2 種	スギ	辺材	101	(1.4)
		心材	103	(0.6)
	カラマツ	辺材	103	(0.9)
		心材	101	(0.6)
	トドマツ	辺材	102	(0.3)
		心材	104	(0.6)
	ヒノキ	辺材	104	(1.0)
		心材	104	(0.6)
3 種	スギ	辺材	101	(0.3)
		心材	102	(1.8)
	カラマツ	辺材	102	(0.4)
		心材	101	(2.1)
	トドマツ	辺材	102	(0.3)
		心材	103	(1.4)
	ヒノキ	辺材	102	(0.2)
		心材	103	(1.4)

*n=3 の平均値, () 内は相対標準偏差

4.3 高速液体クロマトグラフを用いた分析方法の検討

抽出・ろ過方法に関する検討で用いた UHPLC と汎用的な装置である HPLC は同じ原理による分析方法であるが、前者は装置の耐圧性能が高く、より粒子系の小さい充填剤を用いたカラムを比較的高い移動相流速で用いることが可能であり、より短時間で分析を実施することが出来る。超高速液体クロマトグラフで実施した分析は、使用するカラムの充填剤の粒子径や長さ等を変更することで、汎用機である HPLC でも実施可能である。そこで、エトフェンプロックスの機器分析を汎用的な機器である高速液体クロマトグラフで実施する場合の分析条件を確立するための検討を行い、その妥当性を評価した。

4.3.1 実験方法

4.3.1.1 試料調製

4.2.1.1 で調製した抽出溶液および試料溶液をのうち 1mL を減圧濃縮乾固し、UHPLC に用いる移動相に再溶解し、シリンジフィルター（孔径 0.20 μ m, ϕ 13 mm, ADVANTEC 社製）でろ過したものをまたは各抽出溶液および試料溶液 1mL をシリンジフィルター（孔径 0.20 μ m, ϕ 13 mm, ADVANTEC 社製）でろ過したものを HPLC 分析に供した。

4.3.1.2 高速液体クロマトグラフによる分析

HPLCにはAQUITY UPLC H-class システム(Waters 社製)を用いた。カラムは Inertsil ODS-3 (粒子径: 3.0 μm , 内径 3 mm \times 150 mm, GL サイエンス) または Kinetex C18 (粒子径: 5 μm , 内径 4.6 mm \times 150 mm, または, 粒子径 2.6 μm , 内径 3 mm \times 75 mm, Phenomenex 社)を用いた。移動相はアセトニトリル: 蒸留水: (70:30) とし, 流速は Inertsil ODS-3 の場合 0.6, Kinetex C18 (粒子径 5 μm) の場合 1.8, と Kinetex C18 (粒子径 2.6 μm) の場合 0.75 mL/min とした。カラムオープンの温度は 40 $^{\circ}\text{C}$ に設定し。検出波長は 224 nm とした。定量分析はピーク面積を用いた絶対検量線法により行った。

4.3.2 結果と考察

4.1, 4.2 の検討ではUHPLC 分析に粒子径 2.0 μm で長さ 100 mm のカラムを用いた。HPLC 分析では運転時の圧力を抑えるため, 粒子径の大きい 3.0 μm のカラムを使用した。粒子径 3.0 μm のカラムを用いて, 2.0 μm のカラムと同じ分離性能を得るためには, 理論上 1.5 倍の長さのカラムが必要なため, 長さ 150 mm のカラムを用いた。粒子径 3.0 μm , 内径 3.0 \times 長さ 150 mm の ODS-3 を用いて確認したところ, 運転時の圧力を 20MPa 程度に抑えるためには, 流速を 0.6mL/min 以下に設定する必要があった。この条件で分析した場合のエトフェンプロックスの保持時間は 25 分以上となり一試料の分析に長時間を要することが確認され, 特に多数の試料を分析する場合, 迅速に結果を得ることが出来ないと考えられた。

通常のカラムで用いられているシリカゲル母体は, 粒状物全体が多孔質であるため, 移動相流路が多く, ピークの拡散が生じるため分離性能が低くなる。これに対し, コアシェルカラムは非多孔質シリカゲル粒子の表面に多孔質のシリカゲルを層状に重ねて製造されるため, 表面のみが多孔質となる。そのため, ピークの拡散の原因となる過剰な移動相流路が少ないため, 分離性能が向上する。一般にカラムの分離性能は充填剤の粒子径が小さくなるほど高くなるが, コアシェル型の粒子径 5 μm であっても, 全多孔質シリカゲル型の 3 μm などと同等の分離性能を有するとされている。また, 運転時の圧力は粒子径が小さくなれば高くなることから, コアシェル型の粒子径 5 μm を用いれば, 全多孔質シリカ型の粒子径 3.0 μm と同等の分離性能をより低い運転圧力で得ることが出来る。そこで, コアシェルタイプのシリカゲル母体とする充填剤を用いたカラム(コアシェルカラム)として Kinetex C18 (粒子径 5 μm) を用いた分析を試みた。

Kinetex C18 を用いた場合, 20MPa 以下の圧力でエトフェンプロックスの保持時間を約 8 分まで短縮でき, ODS-3 を用いた場合のおよそ 1/2 の時間で一試料を分析することが可能となった。次に, エトフェンプロックスをメタノール溶液としてUHPLC に導入することが可能かどうかを確認した。その結果, 移動相に再溶解した場合とメタノール溶液として添加した場合の分析結果にほとんど差が認められなかった。そこで, 移動相への再溶解は行わず, メタノール溶液としてUHPLC 分析に供することとした。

カラムメーカーや同一メーカーであってもカラムブランドが異なると, 同じ ODS (C18) カラムであっても分離性能が異なる場合がある。そこで, ODS-3 から Kinetex C18 に変更した場合に木材成分による影響が生じるかどうかを確認するため, 無処理の心材木粉から調製した抽出溶液の分析を行った。その結果, いずれの樹種においてもエトフェンプロックスの分析に影響を与えるピークは認められなかった(図 4-3)。

次に、薬剤を添加した木粉から調製した抽出溶液の定量分析を実施し、4.2 で分析した結果と比較した。その結果、Kinetex C18 を用いた HPLC 分析で得られた結果は ODS-3 を用いた UHPLC 得られた結果とおおむね一致していることが確認され（表 4-4），分析方法は妥当であると考えられた。

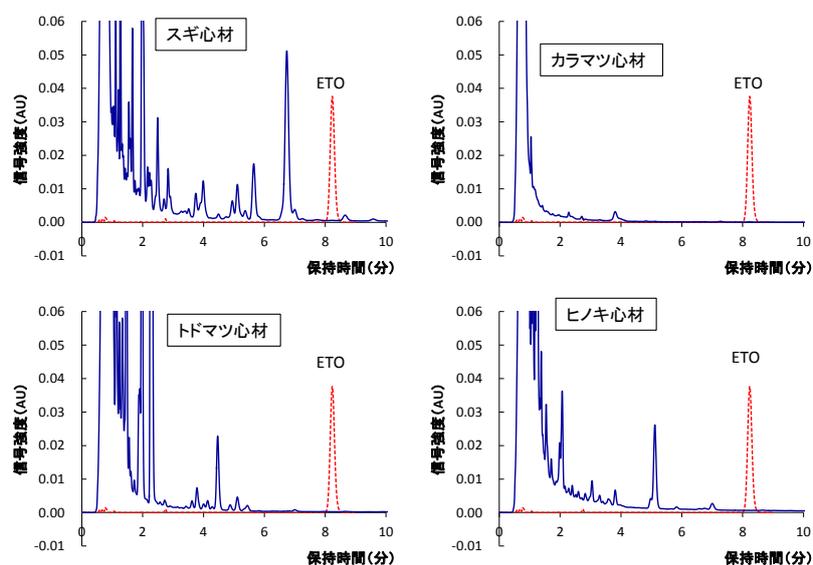


図 4-3 エトフェンプロックス（ETO，破線）と木材成分の HPLC クロマトグラム

表 4-4 エトフェンプロックスの分析結果の比較（心材の場合）

濃度	樹種	定量値 (μg/mL) *				定量値の比 Kinetex C18/ODS-3
		Kinetex C18(5 μm)		ODS-3 (2 μm)		
2 種相当	スギ	17.77	(0.6)	17.95	(0.6)	0.99
	カラマツ	17.50	(0.5)	17.72	(0.6)	0.99
	トドマツ	17.79	(1.3)	18.00	(1.2)	0.99
	ヒノキ	17.81	(0.5)	18.10	(0.6)	0.98
3 種相当	スギ	5.86	(1.2)	5.92	(1.8)	0.99
	カラマツ	5.82	(2.0)	5.85	(2.1)	0.99
	トドマツ	5.90	(2.2)	5.91	(1.6)	1.00
	ヒノキ	5.90	(1.2)	5.92	(1.4)	1.00

* n=3 の平均値，（）内は相対標準偏差

HPLC を用いた分析方法をより効率的なものにするため、粒子径 2.6μm の充填剤を用いた Kinetex C18 カラムを用いた検討を行った。一般に、カラムの充填剤の粒子径が小さくなると運転時の圧力が高くなり、HPLC の耐圧限界を超える可能性が考えられる。前述のように、粒子径の異なるカラムを用いて分析する場合、同等の分離性能を得るためには粒子径に応じてカラム長さを変更する必要がある。粒子径 5μm のカラムから 2.6μm のカラムへ変更す

る場合、必要なカラムの長さを約 1/2 とすることができる。カラムの長さを短くすることができれば分析時間を短縮できる。また、粒子径が小さくなることで上昇する圧力を緩和し、HPLC でも使用可能な圧力にすることができると考えられた。一方、カラム内径の変更は同等な分離性能を得るのに必要なカラム長さに影響せず、小さくすることで使用する移動相量を減じることが出来る。そこで、分析時間の短縮と必要な移動相量の低減を目的とし、粒子径 2.6 μ m、内径 3.0 mm、長さ 75 mm のカラムを用いた検討を行った。

上記のカラムを用いた場合、運転時の圧力が 20MPa 程度で分析可能なことが確認され、汎用的な HPLC でも使用可能であることが確認された。無処理の心材とエトフェンプロックスの標品を分析し得られたクロマトグラムを比較したところ（図 4-4）、木材成分による分析への影響は生じないと判断された。また、エトフェンプロックスの保持時間は 5 μ m のカラムを持った場合の約 1/2 であり、分析時間を短縮できることが確認された。

粒子径 2.6 μ m のカラムを用い、各抽出溶液の定量分析を実施し、4.2 で分析した結果と比較した。その結果、各樹種・部位において得られた結果は ODS-3 を用いた UHPLC で得られた結果とおおむね一致していることが確認され（表 4-5）、2.6 μ m の粒子径の Kinetex C18 を用いることで HPLC 分析を効率化できることが確認された。

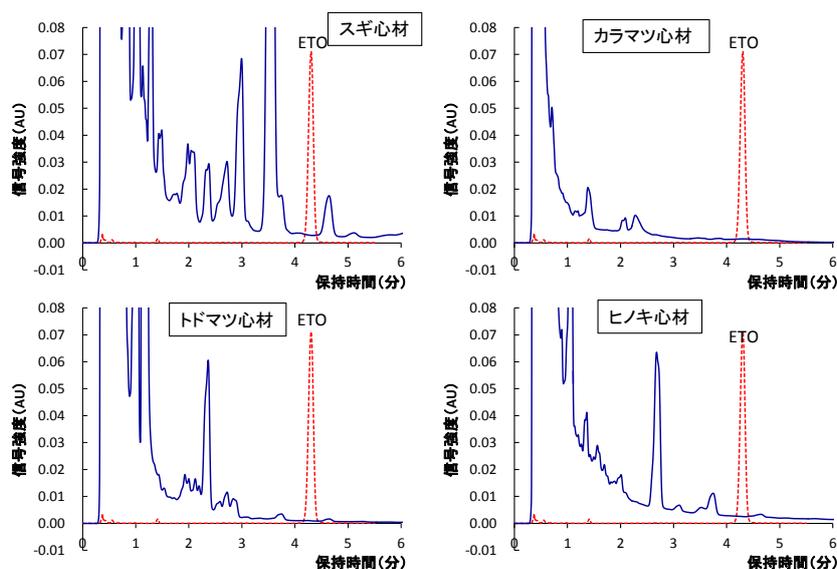


図 4-4 粒子径 2.6 μ m のコアシェルカラムを用いた場合のエトフェンプロックス (ETO, 破線) と木材成分(実線)のクロマトグラム

表 4-5 エトフェンプロックスの分析結果の比較

濃度	樹種	部位	定量値 (µg/mL)*				定量値の比 Kinetex C18/ODS-3
			Kinetex C18(2.6µm)		ODS-3(2µm)		
2 種	スギ	辺材	17.38	(1.0)	17.70	(1.4)	0.98
		心材	17.81	(0.7)	17.95	(0.6)	0.99
	カラマツ	辺材	17.59	(1.0)	17.99	(0.9)	0.98
		心材	17.57	(0.6)	17.72	(0.6)	0.99
	トドマツ	辺材	17.35	(0.1)	17.76	(0.3)	0.98
		心材	17.85	(1.5)	18.00	(1.2)	0.99
	ヒノキ	辺材	17.60	(0.7)	18.15	(1.0)	0.97
		心材	18.04	(0.5)	18.10	(0.6)	1.00
3 種	スギ	辺材	5.79	(0.3)	5.85	(0.3)	0.99
		心材	5.82	(1.5)	5.92	(1.8)	0.98
	カラマツ	辺材	5.81	(0.4)	5.88	(0.4)	0.99
		心材	5.83	(1.5)	5.85	(2.1)	1.00
	トドマツ	辺材	5.78	(0.1)	5.89	(0.3)	0.98
		心材	5.92	(1.2)	5.91	(1.6)	1.00
	ヒノキ	辺材	5.73	(0.5)	5.89	(0.2)	0.97
		心材	5.95	(0.6)	5.92	(1.4)	1.00

* n=3 の平均値, () 内は相対標準偏差

第 5 章 ビフェントリンの分析の高精度化・効率化

表 3-1 に示すように、ビフェントリンは JIS K1571 に記載されている木材保存剤には使用されていないが、これを使用した薬剤は(公社)日本木材保存協会の認定薬剤になっており、処理された製品が AQ 認証の対象となっている。AQ 認証におけるビフェントリンの抽出は、ジメチルスルホキシドとエタノールを混合したものを溶媒とした超音波抽出により行われている。また、木粉のろ別方法には、前述のエトフェンプロックスと同様の吸引ろ過と残渣木粉を洗浄する煩雑な方法が用いられている。

エトフェンプロックスで有効性が確認された抽出工程がビフェントリンにも適用可能であれば、同じグループに属する有効成分の分析方法を可能な限り統一することが出来る。そこで、エトフェンプロックスの場合と同様に、ベイツガ心材を用いた検討を行い、引き続き、本事業が対象とする国産 4 樹種に適用し抽出工程の妥当性の評価と機器分析の効率化について検討することとした。

5.1 抽出工程における抽出・ろ過方法の選定

超音波を用いた抽出方法に適切な溶媒を選定するため、ベイツガ心材を用い、4.1と同様の方法による添加回収試験を実施した。

5.1.1 実験方法

5.1.1.1 処理木粉の調製

1gの木粉に1mL添加することで、AQ2種レベルの処理木粉が得られる濃度に調製したニッサンクリーンAZBIを作業液とし、4.1.1.1と同様の方法で処理木粉等を調製した。

5.1.1.2 溶媒抽出

4.1.1.2と同様の方法で実施した。

5.1.1.3 超高速液体クロマトグラフによる分析

4.1.1.3と同様の方法で実施した。

5.1.1.4 分析結果の解析

4.1.1.4と同様の方法で実施した。なお、回収率を求める式は4.1.1.4で用いた式のエトフェンプロックスをビフェントリンと読み替えたものを使用した。

5.1.2 結果と考察

無処理のベイツガ心材から調製した抽出溶液と標準品のビフェントリンをUHPLC分析に供し、ベイツガ心材由来の成分が分析に影響するかどうかを確認した結果、ビフェントリンのピークと同じ位置にベイツガ心材成分由来のピークの存在は確認されなかった。よって、エトフェンプロックスの場合と同様に試料精製の必要はないと判断した。

次に、各溶媒を用いた場合の回収率を表5-1に示す。今回用いた溶媒については、いずれを用いても同等の高い回収率が得られることが確認されたことから、エトフェンプロックスの場合と同様に、メタノールを抽出溶媒として選定することとした。

表5-1 ビフェントリンの回収率

抽出溶媒	回収率*
メタノール	102 (0.2)
アセトニトリル	101 (0.2)
ギ酸-メタノール	101 (1.5)
ギ酸-アセトニトリル	102 (0.2)

*n=3の平均値, ()内は相対標準偏差

5.2 選定した試料調製方法の妥当性の検証と高速液体クロマトグラフ分析の効率化

ベイツガ心材を用いた検討で選定された抽出・ろ過方法の妥当性を評価するため、スギ、カラマツ、トドマツ、ヒノキを用い選定した方法による添加回収試験を実施した。特に、心材成分が有効成分の定量分析に影響を与える場合が多いことが確認されていることから、添加回収試験に先立ち、各心材成分による影響を確認し、分析条件の変更等を行った。以上の検討は4.2で用いたものと同様の方法で実施し、機器分析については、エトフェンプロックスについての検討で、有効性が確認されたコアシェルカラムを用いたHPLCにより検討した。

5.2.1 実験方法

5.2.1.1 試料の調製

作業液として、1gの木粉に1mL添加することで、AQ2種または3種レベルの処理木粉が得られる濃度に調製したニッサンクリーン AZBI を用い、4.2.1.1と同じ方法で試料を調製した。ただし、60℃のオーブンでの乾燥時間は2日間とした。

5.2.1.2 溶媒抽出

5.2.1.1で調製した試料を用い、4.2.1.2と同様の方法で実施した。

5.2.1.3 高速液体クロマトグラフによる分析

HPLCにはAQUITY UPLC H-class システム (Waters 社製) を用いた。カラムはKinetex C18 (粒子径: 5 μm , 内径 4.6 mm \times 150 mm, または, 粒子径 2.6 μm , 内径 3 mm \times 75 mm, Phenomenex 社) を用いた。移動相はアセトニトリル: 蒸留水: (80:20, 75:25 または 70:30, いずれも v/v) とし, 流速は, 粒子径 5 μm の場合 1.2 mL/min, 2.6 μm の場合 0.6 mL/min とした。カラムオープンの温度は 40℃ に設定し。検出波長は 224nm の他幾つかの波長を用いた。定量分析はピーク面積を用いた絶対検量線法により行った。

5.2.1.4 分析結果の解析

4.2.1.4と同様の方法で実施した。なお、回収率を求める式は4.2.1.4で用いた式のエトフェンプロックスをビフェントリンと読み替えたものを使用した。

5.2.2 結果と考察

木材成分による分析への影響を確認するため、無処理木粉から調製した抽出溶液の HPLC 分析 (粒子径 5 μm のカラムを使用) を実施した。その結果、移動相をアセトニトリル: 蒸留水 (80:20 または 70:30, v/v) とした場合、スギ心材の場合、ビフェントリンのピーク付近に影響となる木材成分のピークが確認された。アセトニトリル: 水 (75:25, v/v) を移動相に用いた場合、図 5-1 に示すように、ビフェントリンの分析に影響するピークはほとんど存在しないと考えられた。しかし、AZBI の吸収量の基準を考慮すると、処理木材中のビフェントリンの吸収量はエトフェンプロックスよりも低いため、微小なピークでも影響する可能性が考えられた。

そこで、縦軸 (信号強度) のスケールを変更したもので確認したところ、ビフェントリンと同じ位置にあるスギ心材成分の微小なピークが分析に影響する可能性が考えられた (図 5-2)。そこで、使用する移動相や流速の変更等を行ったが、スギ心材成分由来の微小なピークとビフェントリンのピークを完全に分離することが出来なかった。さらに、固相抽出等の前処理についても検討を行ったが、これらのピークを除去することが出来なかった。しかし、移動相としてアセトニトリル: 水 (75:25, v/v) を用いた場合、スギ心材成分とビフェントリンのピークを完全に分離することはできないが、波形処理によりその影響を除去できると考えられた (図 5-3)。

アセトニトリル: 水 (75:25, v/v) を用い、調製した抽出溶液中に含まれる BIF の定量分析を行ったところ、スギ心材の場合を除き、おおむね良好な値が得られた (表 5-2)。スギ心材の場合、10%を超える過剰値が得られることが確認された。妨害ピークと定量成分のピークは十分に分離されていることが理想であるが、さらなる移動相の変更や固相抽出法

等の前処理を行ってもこのピークを除去することが出来なかった。妨害となるピークはテール部分が緩やかに長く、その上にビフェントリンのピークが重なることになる。そこで、ベースラインがドリフトしているとみなし、ベースライン補正を実施したところ、3種レベルでは若干低い値となるが、ある程度改善された結果が得られた。以上の結果、スギ心材の場合、改善の余地が残されているが、選定した抽出方法および分析方法は妥当であると考えられた。

粒子径 2.6 μm のカラムを用い、無処理木粉から調製した抽出溶液の HPLC 分析を実施した。その結果、5 μm と同等の結果を約 1/2 の時間で得られることが確認された (図 5-4)。次に、2.6 μm のカラムを用いて得られた各抽出溶液の定量結果を 5 μm の結果と比較したところ、各樹種・部位においておおむね一致していることが確認された (表 5-3)。

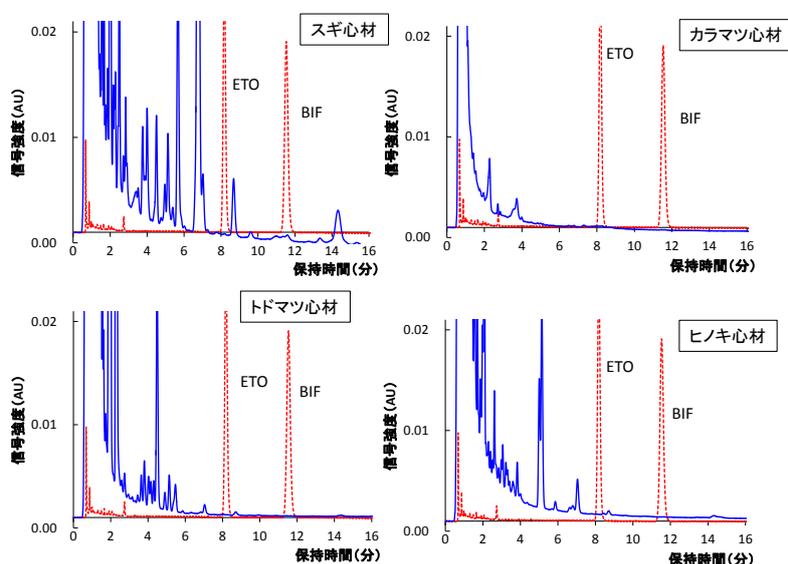


図 5-1 移動相 (アセトニトリル : 水 (80:20, v/v)) を用いた場合のビフェントリン (BIF, 破線), エトフェンプロックス (ETO, 破線) と木材成分 (実線) のクロマトグラム

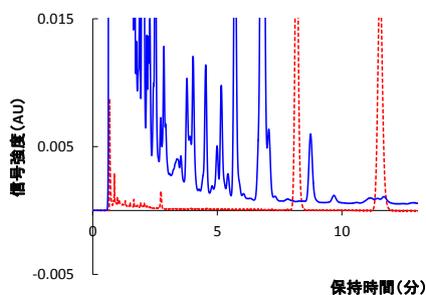


図 5-2 図 5-1 のスギ心材のクロマトグラムの縦軸を拡大したもの

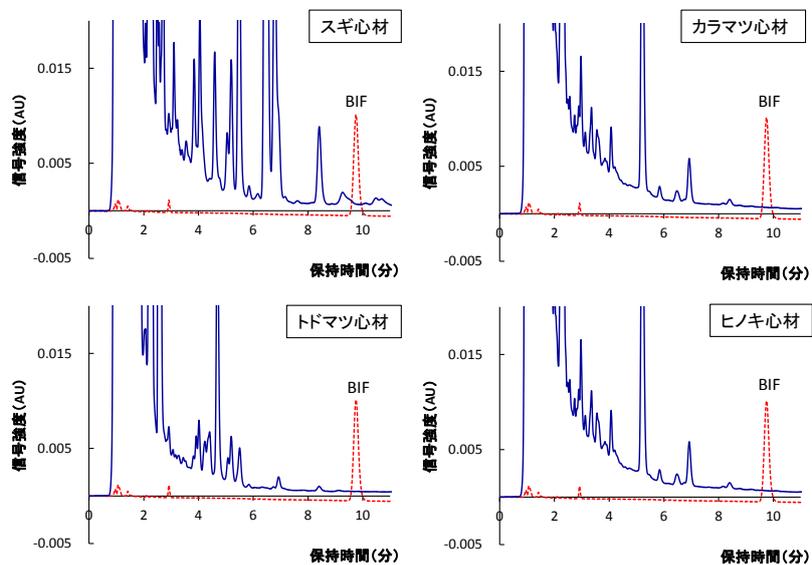


図 5-3 移動相（アセトニトリル：水(75:25, v/v)）を用いた場合のビフェントリン(BIF, 破線)と木材成分(実線)のクロマトグラム

表 5-2 添加木粉からのビフェントリンの回収率

濃度	樹種	部位	回収率 (%) *	
2 種	スギ	辺材	105	(1.1)
		心材	97	(1.4)
		心材**	113	(1.5)
	カラマツ	辺材	106	(0.6)
		心材	105	(0.3)
	トドマツ	辺材	105	(0.4)
		心材	107	(0.3)
	ヒノキ	辺材	104	(0.6)
		心材	106	(0.1)
	3 種	スギ	辺材	103
心材			97	(1.4)
心材**			129	(0.4)
カラマツ		辺材	102	(1.4)
		心材	104	(0.7)
トドマツ		辺材	106	(0.3)
		心材	103	(0.8)
ヒノキ		辺材	104	(1.1)
		心材	103	(1.5)

*n=3 の平均値, () 内は相対標準偏差

**ベースライン補正を行っていない場合

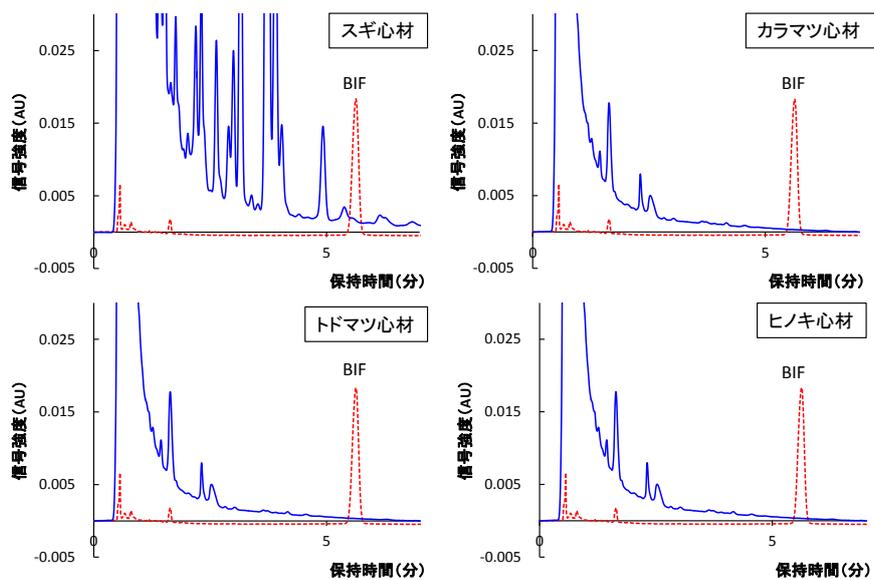


図 5-4 粒子径 2.6 μ m のコアシェルカラムを用いた場合のエピフェントリン (BIF, 破線) と木材成分(実線)のクロマトグラム

表 5-3 ビフェントリンの定量分析結果の比較

濃度	樹種	部位	定量値 (μ g/mL) *		定量値の比 5 μ m/2.6 μ m
			Kinetex C18 (5 μ m)	Kinetex C18 (2.6 μ m)	
2 種	スギ	辺材	3.16 (1.1)	3.14 (1.1)	1.01
		心材	3.38 (1.5)	3.32 (1.4)	1.02
		心材**	2.92 (1.4)	2.92 (0.8)	1.00
	カラマツ	辺材	3.20 (0.6)	3.19 (0.1)	1.00
		心材	3.16 (0.3)	3.14 (0.3)	1.00
	トドマツ	辺材	3.17 (0.4)	3.16 (0.2)	1.00
		心材	3.22 (0.3)	3.23 (0.3)	1.00
	ヒノキ	辺材	3.11 (0.6)	3.10 (0.6)	1.01
心材		3.19 (0.1)	3.15 (0.1)	1.01	
3 種	スギ	辺材	0.85 (0.4)	0.85 (0.7)	1.00
		心材	1.07 (0.4)	0.93 (0.2)	1.15
		心材**	0.74 (0.4)	0.72 (0.2)	1.03
	カラマツ	辺材	0.86 (1.4)	0.85 (0.8)	1.01
		心材	0.84 (0.7)	0.84 (1.3)	1.01
	トドマツ	辺材	0.85 (0.3)	0.84 (0.9)	1.02
		心材	0.87 (0.8)	0.90 (0.8)	0.97
	ヒノキ	辺材	0.85 (1.1)	0.86 (0.7)	0.99
心材		0.86 (1.5)	0.84 (1.7)	1.02	

*n=3 の平均値, () 内は相対標準偏差

**ベースライン補正を行っていない場合

第6章 シラフルオフエンの分析の高精度化・効率化について

表 3-1 に示すように、シラフルオフエンは JISK1570 に記載されている木材保存剤のうち、第四級アンモニウム・非エステルピレスロイド化合物系木材保存剤（SAAC）の有効成分に用いられている。製材の JAS によれば、SAAC で処理された木材中に含まれるシラフルオフエンはギ酸とアセトニトリルを用いて抽出され、その抽出方法は振とうによるとされている。また抽出後、吸引ろ過により木粉を除去し、残渣木粉を使用したアセトニトリルで洗浄した後、ろ液と洗液を合わせ定容することとされている。しかし、振とうに関する規定がなく安定した結果を得ることができるかは不明である。また、木粉のろ別方法が煩雑であり、特に多量の試験体を処理する方法としては不向きである。

エトフェンプロックスとビフェントリンで有効性が確認された抽出工程がシラフルオフエンにも適用可能であれば、同じグループに属する有効成分の分析方法を可能な限り統一することが出来る。そこで、エトフェンプロックスの場合と同様に、引き続き、本事業が対象とする国産 4 樹種に適用し抽出工程の妥当性の評価と機器分析の効率化について検討することとした。

6.1 抽出溶媒および抽出方法の選定

超音波を用いた抽出方法に適切な溶媒を選定するため、ベイツガ心材を用い、4.1 と同様の方法による添加回収試験を実施した。

6.1.1 実験方法

6.1.1.1 処理木粉の調製

1g の木粉に 1mL 添加することで、K4 レベルの処理木粉が得られる濃度に調製したレザック DPS を作業液とし、4.1.1.1 と同様の方法で処理木粉等を調製した。

6.1.1.2 溶媒抽出

4.1.1.2 と同様の方法で実施した。

6.1.1.3 超高速液体クロマトグラフによる分析

4.1.1.3 と同様の方法で実施した。

6.1.1.4 分析結果の解析

4.1.1.4 と同様の方法で実施した。なお、回収率は 4.1.1.4 で用いた式のエトフェンプロックスをシラフルオフエンに置き換え算出した。

6.1.2 結果と考察

無処理のベイツガ心材から調製した抽出溶液と標準品のシラフルオフエンを UHPLC 分析に供し、ベイツガ心材由来の成分が分析に影響するかどうかを確認した結果、ビフェントリンのピークと同じ位置にベイツガ心材成分由来のピークの存在は確認されなかった。よって、エトフェンプロックスの場合と同様に試料精製の必要はないと判断した。

次に、各溶媒を用いた場合の回収率を表 6-1 に示す。今回用いた溶媒については、アセトニトリルの場合の回収率が若干低く、その他については高い回収率が得られることが確認されたが、エトフェンプロックスとビフェントリンの場合と同様に、メタノールを抽出溶媒として選定することとした。

表 6-1 添加木粉からのシラフルオフエンの回収率

抽出溶媒	回収率*	
メタノール	101	(0.4)
アセトニトリル	94	(0.5)
ギ酸-メタノール	100	(0.8)
ギ酸-アセトニトリル	98	(0.8)

*n=3 の平均値, ()内は相対標準偏差

6.2 複数の樹種に対する分析条件の確立と試料前処理方法の妥当性の評価

ベイツガ心材を用いた検討で選定された抽出・ろ過方法の妥当性を評価するため、スギ、カラマツ、トドマツ、ヒノキを用い選定した方法による添加回収試験を実施した。また、添加回収試験に先立ち、各心材成分による影響を確認した。以上の検討は 4.2, 5.2 で用いたものと同様の方法で実施し、機器分析については、前章のエトフェンプロックスおよびピフェントリンの検討で、有効性が確認されたコアシェルカラムを用いた HPLC により検討した。

6.2.1 実験方法

6.2.1.1 試料の調製

作業液として、1g の木粉に 1mL 添加することで、製材の JAS に規定されている K4 または K2 レベルの処理木粉が得られる濃度に調製したレザック DPS を用い、5.2.1.1 と同じ方法で試料を調製した。

6.2.1.2 溶媒抽出

6.2.1.1 で調製した試料を用い、4.2.1.2 と同様の方法で実施した。

6.2.1.3 高速液体クロマトグラフによる分析

HPLC には AQUITY UPLC H-class システム (Waters 社製) を用いた。カラムは Kinetex C18 (粒子径: 5 μ m, 内径 4.6 mm \times 150 mm, または, 粒子径 2.6 μ m, 内径 3 mm \times 75 mm, Phenomenex 社) を用いた。移動相はアセトニトリル: 蒸留水: (80:20, 75:25 または 70:30, いずれも v/v) とし、流速は、粒子径 5 μ m の場合 1.8 mL/min, 2.6 μ m の場合 0.75 mL/min とした。カラムオープンの温度は 40 $^{\circ}$ C に設定し。検出波長は 230 nm を用いた。定量分析はピーク面積を用いた絶対検量線法により行った。

6.2.1.4 分析結果の解析

4.2.1.4 と同様の方法で実施した。なお、回収率を求める式は 4.2.1.4 で用いた式のエトフェンプロックスをシラフルオフエンと読み替え算出した。

6.2.2 結果と考察

木材成分による分析への影響を確認するため、無処理木粉から調製した抽出溶液の HPLC 分析を実施した。その結果、移動相をアセトニトリル: 蒸留水を 80:20 (v/v) や 75:25 (v/v) とした場合、微小ではあるがスギ心材成分のピークと重なることが確認された。そこで、移動相をアセトニトリル: 水 (70:30, v/v) に変更したところ、スギ心材成分由来のごく

微小なピークは存在するが、その影響はほとんどないと考えられた(図 6-1)。また、他の樹種では、分析に影響するピークは認められなかったことから、この移動相を用いることとした。

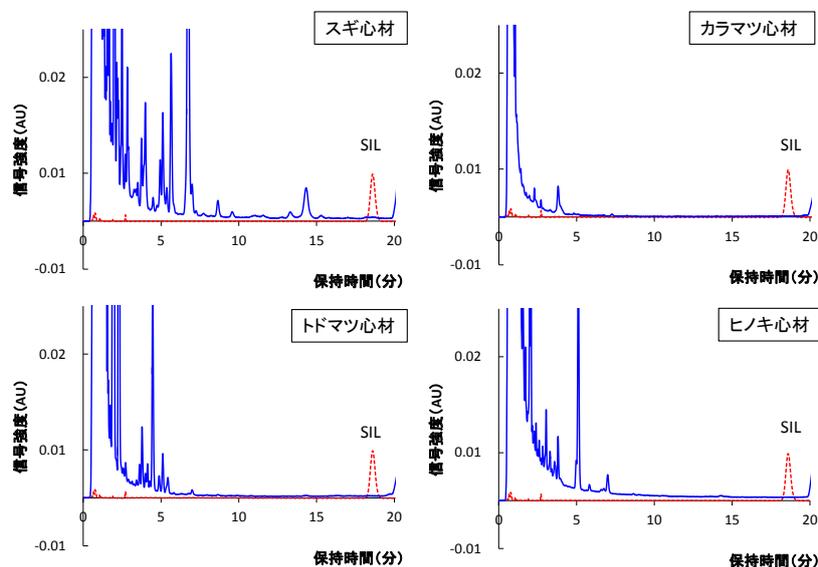


図 6-1 移動相 (アセトニトリル:水(70:30, v/v)) を用いた場合のシラフルオフエン(SIL, 破線)と木材成分(実線)のクロマトグラム

次に、各心材について調製した抽出溶液中を用いて回収率を評価したところ、K4 レベルではスギ心材が若干高い値を示すものの、おおむね良好な値が得られた。一方、K2 レベルではスギ心材の回収率が明らかに高く、40%を超える過剰値が得られた。そこで、ベースライの補正を行ったところ、他の樹種と比較して若干低いものの、良好な回収率が得られることが確認された。

次に、エトフェンプロックス等と同様に粒子径 2.6 μm のカラムを用いた定量分析を行い、粒子径 5 μm の場合と比較した (5 μm については心材のみ)。その結果、粒子径による差はほとんどなく、良好な結果が得られることが確認された。

表 6-2 添加木粉からのシラフルオフエンの回収率

濃度	樹種	部位	回収率(%)*	
K4	スギ	心材	109	(1.0)
	カラマツ	心材	102	(1.2)
	トドマツ	心材	102	(0.5)
	ヒノキ	心材	103	(0.3)
K2	スギ	心材**	146	(1.0)
		心材	92	(3.4)
	カラマツ	心材	98	(1.0)
	トドマツ	心材	101	(3.1)
	ヒノキ	心材	98	(1.1)

*n=3 の平均値, ()内は相対標準偏差

**ベースライン補正を行っていない場合

表 6-3 シラフルオフエンの定量分析結果の比較

濃度	樹種	部位	定量値(μg/mL) *				定量値の比 5μm/2.6μm
			Kinetex C18 (5μm)		Kinetex C18 2.6μm)		
K4	スギ	辺材	—	—	3.43	(0.6)	0.00
		心材	3.82	(1.0)	3.84	(0.4)	0.99
	カラマツ	辺材	—	—	3.44	(0.4)	0.00
		心材	3.56	(1.2)	3.52	(4.5)	1.01
	トドマツ	辺材	—	—	3.47	(0.1)	0.00
		心材	3.56	(0.5)	3.55	(0.7)	1.00
	ヒノキ	辺材	—	—	3.47	(0.8)	0.00
		心材	3.58	(0.3)	3.55	(0.9)	1.01
K3	スギ	辺材	—	—	0.61	(1.0)	0.00
		心材**	0.94	(1.0)	0.99	(1.0)	1.00
		心材	0.59	(3.4)	0.59	(1.9)	0.95
	カラマツ	辺材	—	—	0.62	(1.1)	0.00
		心材	0.63	(1.0)	0.63	(1.4)	0.99
	トドマツ	辺材	—	—	0.61	(2.5)	0.00
		心材	0.65	(3.1)	0.64	(1.3)	1.02
	ヒノキ	辺材	—	—	0.60	(1.5)	0.00
心材		0.63	(1.1)	0.64	(1.4)	0.99	

*n=3 の平均値, ()内は相対標準偏差

**ベースライン補正を行っていない場合

第7章 ガスクロマトグラフ-質量分析計を用いた分析方法の検討

7.1 実験方法

7.1.1 試料調製

(1) 心材由来成分等が GC-MS の分析に及ぼす影響の検討

北海道立総合研究機構林産試験場において調製したスギ、カラマツ、トドマツ、ヒノキの心材木粉を用い、木粉 1g の入った 30mL 容のサンプル瓶に 20mL のメタノールを加えた。これらのサンプル瓶を密栓し、超音波抽出に供した。超音波の照射時間は 1 時間とし、30 分経過時にサンプル瓶を激しく撹拌した。超音波抽出後、ガラス繊維ろ紙 (GA-200, ϕ 26 mm, ADVANTEC) を充填したプラスチックシリンジ (SS-30ESZ, スリップチップ, 30mL, テルモ) を用いたろ過を行った。その後、ろ液を 1mL ずつ試験管に入れ、遠心エバポレーター (EYELA CVE-3100, UT-2000) で減圧濃縮乾固してメタノールを揮発させた。減圧濃縮乾固した試料にアセトンを 1mL ずつ加えて再溶解した。

得られた各木粉メタノール抽出物のアセトン溶液ならびに、それらにエトフェンプロックス、ビフェントリンおよびシラフルオフエンの標準物質を添加した試料を GC-MS 分析に供した。なお各試料は孔径 0.2 μ m のディスポーザブルフィルター (13HP020AN, ADVANTEC) でろ過したものを GC-MS 分析に供した。

(2) 薬剤処理した木粉に含まれる有効成分量の分析

【試料 1】 スギ、カラマツ、トドマツ、ヒノキの心材木粉 (北海道立総合研究機構林産試験場で調製したものを) を 1g ずつサンプル瓶に入れ、ボルテックスミキサーによって振動を加えながら、サンプルザー OP-C を 1mL ずつ添加し、薬剤が全体に馴染むようにした。コントロールとして木粉のっていないサンプル瓶にも同様に薬剤を加えた。薬剤添加後、サンプル瓶の蓋を閉めて 2 日間、蓋を開けて 2 日間室温で養生し、蓋を開けたまま 60°C に設定した恒温器に入れ、10 日間乾燥した。乾燥終了後、各瓶に 20mL のメタノールを加えて密栓し、上記と同様に超音波抽出およびろ過を行った。このろ液を 1mL ずつ試験管に入れ、遠心エバポレーターで減圧濃縮乾固した。

【試料 2】 北海道立総合研究機構林産試験場においてスギ、カラマツ、トドマツ、ヒノキの心材木粉各 1g にレザック DPS を 1mL ずつ添加後、養生・乾燥・抽出・減圧濃縮乾固したものをを用いた。

【試料 3】 7 章において使用した試料 (ニッサンクリーン AZBI を加圧注入したスギ材の心材部から北海道立総合研究機構林産試験場において木粉を調製し、日本住宅・木材技術センターで超音波抽出・減圧濃縮乾固したものを) をを用いた。

上記 3 種類の減圧濃縮乾固した試料にアセトンを 1mL ずつ加えて再溶解した後、孔径 0.2 μ m のディスポーザブルフィルターでろ過し、GC-MS 分析に供した。添加した薬剤の濃度は OP-C と AZBI が AQ2 種相当、DPS が K4 相当であった。

(3) 検量線の作成

エトフェンプロックス、ビフェントリンおよびシラフルオフエンの濃度が 0.005, 0.01,

0.02, 0.04 mg/mL となるようにアセトンに溶解し、孔径 0.2 μm のフィルターでろ過し GC-MS 分析に供した。

なお、試験の繰り返し数は各条件につき 3 回とした。

7.1.2 ガスクロマトグラフ-質量分析計による分析

各サンプルは以下の機器並びに条件で分析した。

- ・機器名 1 : HP 6890 GC and HP 5973N MSD, Agilent Technology
- ・機器名 2 : GCMS-QP2010Plus, SHIMADZU

【分析条件 1】

- ・カラム : DB-5 (内径 0.25 mm×長さ 30 m, 膜厚 0.25 μm, AgilentJ & W)
- ・昇温条件 : 60°C (1min) - 20°C/min - 140°C - 10°C/min - 280°C (5min)

ポストラン 310°C (3min)

- ・イオン化電圧 (EI) 70 eV
- ・イオン源温度 230°C
- ・MS インターフェース 250°C

【分析条件 2】

- ・カラム : InertCap (内径 0.25 mm×長さ 30 m, 膜厚 0.25 μm, GL サイエンス)
- ・昇温条件 : 100°C (1min) - 30°C/min - 265°C (3min) - 15°C/min - 280°C (5min) - 20°C/min - 300°C (3min) ポストラン 310°C (3min)
- ・イオン化電圧 (EI) 70 eV
- ・イオン源温度 250°C
- ・MS インターフェース 250°C

抽出成分によるイオン源への過剰な負荷を抑えるため、添加回収試験では MS の検出時間を 8.5~13min に限定して分析した。

なお定量分析はピーク面積を用いた絶対検量線法により行った。

7.1.3 分析結果の解析

木粉に薬剤を添加して調整した試料溶液に含まれる有効成分 (エトフェンプロックス, ビフェントリンおよびシラフルオフェン) の量から下記の式に従い回収率を求めた。回収率は各樹種, 繰り返し 3 回の平均値として求めた。

$$\text{回収率 (\%)} = [\text{試料溶液中の有効成分濃度}] / [\text{薬剤溶液中の有効成分濃度}] \times 100$$

7.2 結果と考察

7.2.1 分析条件の検討

HP 6890 GC and HP 5973N MSD (Agilent Technology) で測定したところ, 測定途中にオートサンプラーの不調が生じ, 一定量のサンプルのインジェクションがなされない症状が発生したため, 急遽 GCMS-QP2010Plus (SHIMADZU) で分析することとした。

また分析条件に関しても、分析条件1では、特に最も遅く検出されるシラフルオフェンの定量性に問題があると考えられたため、昇温条件も検討しなおし、最終的に分析条件2で分析することとした。

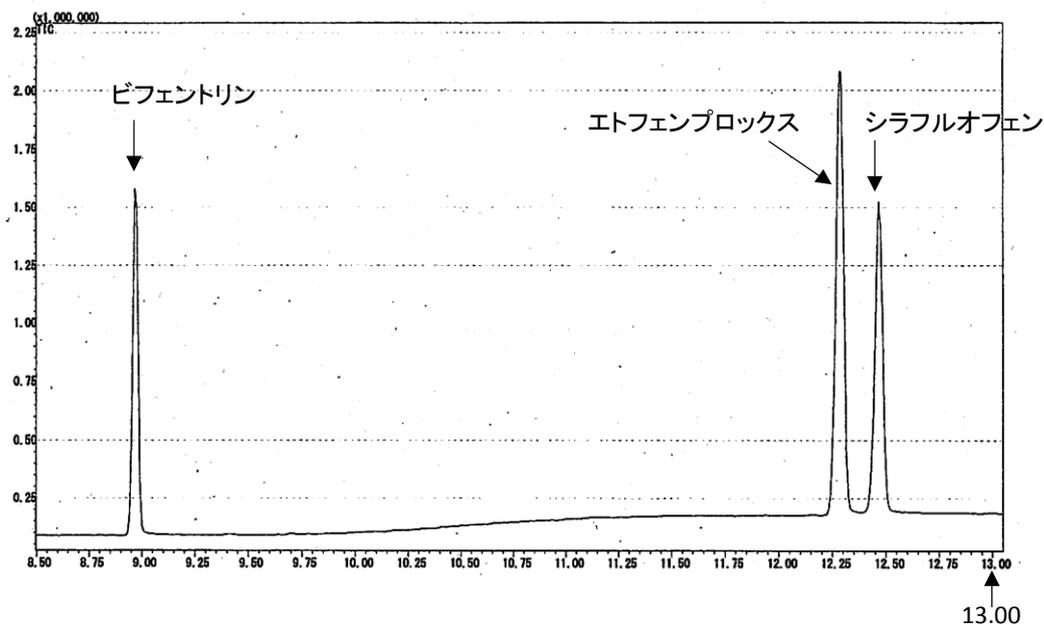


図 7-1 昇温条件を変更して（分析条件 2）有効成分を分析した場合の GC-MS 分析結果

7.2.2 プラスチック系製品由来成分が分析に及ぼす影響

試料調製の際、全くプラスチック類を使わない系で調製したスギ、カラマツ、トドマツ、ヒノキの心材抽出成分は、今回の GC-MS 分析においてはエトフェンプロックス、ビフェントリンおよびシラフルオフェンのピークと重なる部分が無く、影響はないと考えられた。分析結果の代表例として、図 2 にスギ心材の抽出液に上記 3 種類の有効成分を添加したものの GC-MS 分析結果を示した。

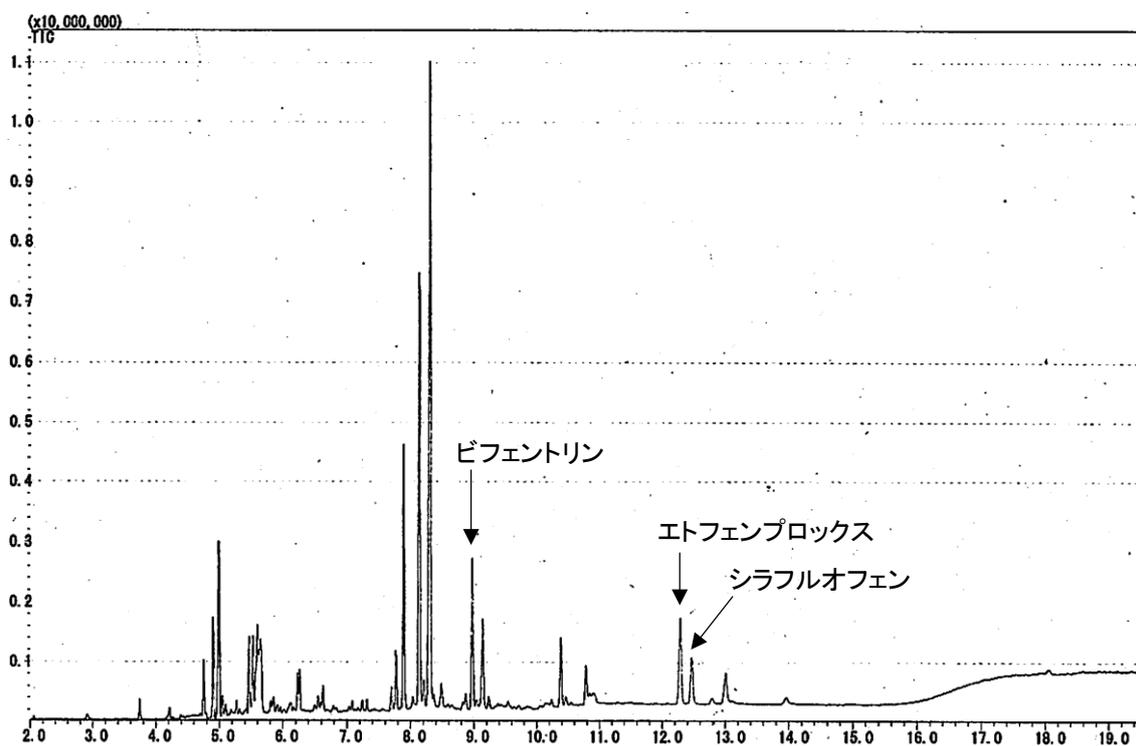


図 7-2 プラスチック類を使用せず調製したスギ心材抽出成分に、有効成分 3 種類を添加した溶液の GC-MS 分析結果

一方、ろ過や定容時にプラスチック系シリンジやピペットチップを用いて調製した試料の分析結果を検討したところ、シラフルオフエンのピークとかぶる妨害ピークが認められた（図 3）。質量分析の結果からこの妨害ピークは試料調製時に用いたプラスチック類の可塑剤（図 3(c)）と考えられた。

その他、可塑剤由来のほか、シリコン系潤滑剤由来と考えられるピークが存在したことから（図 4）、指定された質量のみの測定を行うことができる SIM モードにより目的の有効成分の解析・定量することとした。SIM モードの定量イオンとしては、シラフルオフエン 179、エトフェンプロックス 163、ビフェントリン 181 を用いた（文献 1）。

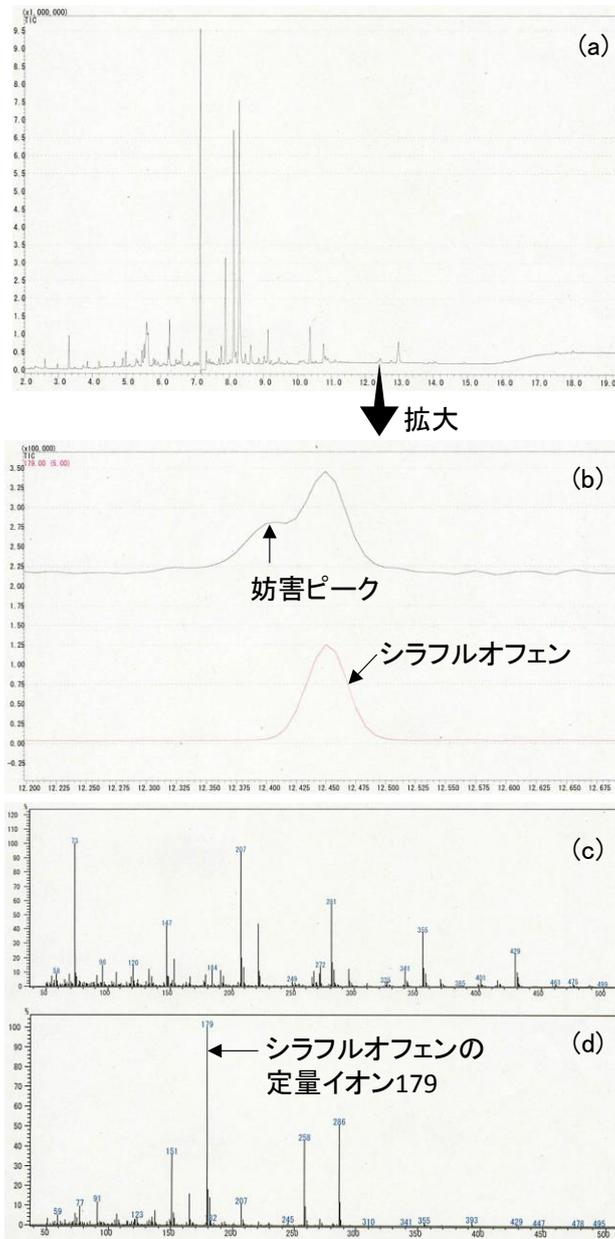


図 7-3 妨害ピークの例 1 (スギ心材にレザック DPS を添加した溶液の GC-MS 分析結果)
 TIC, (b)上 TIC拡大;下 シラフルオフェン定量イオン 179 の SIM モード解析結果, (c)
 妨害ピークの MS スペクトル, (d)シラフルオフェンの MS スペクトル

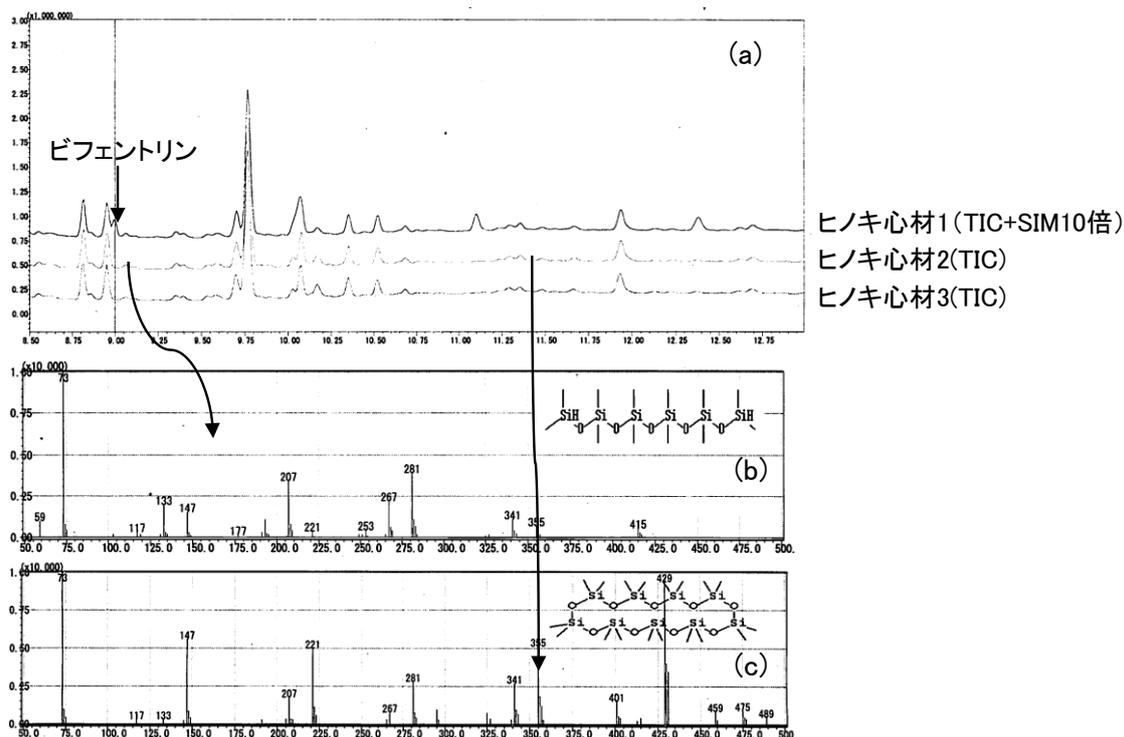


図 7-4 妨害ピークの例 2 (ヒノキ心材にニッサンクリーン AZBI を添加した溶液の GC-MS 分析結果) (a) TIC および SIM (10 倍), (b) (c) 妨害ピークの MS スペクトル

7.2.3 薬剤処理した木粉に含まれる有効成分量の分析

図 7-5 に、薬剤処理した木粉から調製した溶液の GC-MS 分析結果の一例を示した。各試料の分析結果から、薬剤の添加回収率を算出した結果を表 1 に示した。回収率は概ね 100% に近い値であった。また表 2 には、共通試料 (ニッサンクリーン AZBI を加圧注入したスギ材の心材部から調製した溶液) を日本住宅・木材技術センターにおいて液体クロマトグラフィー (LC) で分析した結果と、森林総研で GC-MS 分析した結果の比較を示した。GC-MS の定量値は LC の定量値と近く、試料調製方法、分析条件等を工夫することで、GC-MS によっても薬剤の定量分析が可能であると考えられた。

参考までに、現行の製材の JAS に記載されているペルメトリンの分析条件を以下に示す。現行 JAS ではガラスカラムの条件が記載されているが、現在ではほとんどの GC はキャピラリーカラムを使用していると考えられ、本章で検討したキャピラリーカラムを使用した分析条件を JAS の改正等に利用できれば、より多くの GC 利用者にとって有益な分析方法を示すことが可能となると考えられる。

【ペルメトリン分析条件】

カラム：ガラスカラム (I.D:3.0mm, L:1,000mm)

固定相液体：DEGS (ジエチレングリコール サクシネート) 2%

固定相担体：(参考) Chromosorb W (HP) (149~177メッシュ)

カラム温度 : 215° C
インジェクション温度 : 250° C
水素ガス圧力 : 88.3KPa
空気圧力 : 49.0KPa
窒素ガス流量 : 50mL/min
検出器 : FID
注入量 : 2 μ L

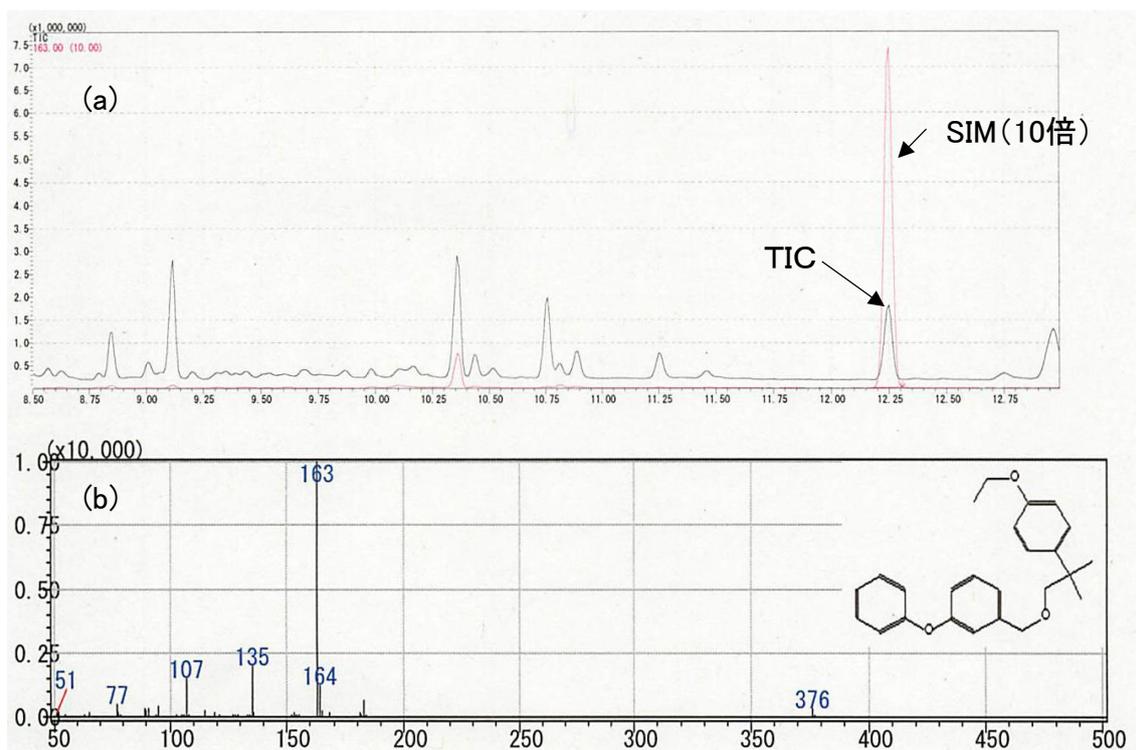


図 7-5 スギ心材にサンプレーザ-OP-C を添加して調製した溶液の GC-MS 分析結果
(a) TIC および SIM (10 倍) , (b) エトフェンプロックスの MS スペクトル

表 7-1 薬剤の添加回収率

有効成分(薬剤名)	濃度	樹種	部位	回収率 (%)
エトフェンプロックス (サンプルザーOP-C)	高濃度 2 種	スギ	心材	105.3
		カラマツ	心材	103.4
		トドマツ	心材	107.9
		ヒノキ	心材	102.3
ビフェントリン (ニッサンクリーン AZBI)	高濃度 2 種	スギ	心材	109.8
		カラマツ	心材	105.0
		トドマツ	心材	110.7
		ヒノキ	心材	105.5
シラフルオフェン (レザック DPS)	高濃度 K4	スギ	心材	100.3
		カラマツ	心材	97.7
		トドマツ	心材	102.7
		ヒノキ	心材	103.4

1)n=3 の平均値

表 7-2 共通試料¹⁾に含まれるビフェントリンの定量値($\mu\text{g/mL}$)

試料	LC定量値 (メタノール溶媒)	GC定量値	
		メタノール溶媒	アセトン溶媒
スギ心材 1+AZBI	3.47	3.99	3.20
スギ心材 2+AZBI	3.29	3.70	3.63
スギ心材 3+AZBI	3.17	3.53	3.49
平均	3.31	3.74	3.44
母標準偏差	0.12	0.19	0.18

1)ニッサンクリーン AZBI を加圧注入したスギ材の心材部から調製した溶液

2)日本住宅・木材技術センターで定量

3)森林総合研究所で定量

文献

7-1) 独立行政法人農林水産消費安全技術センター 飼料分析基準 第6章 第3節 多成分同時分析法 1 農薬のガスクロマトグラフ質量分析計による一斉分析法, 255-274
(<http://www.famic.go.jp/ffis/feed/bunseki/bunsekikijun.html>)

第 8 章 分析方法のマニュアル化と複数機関での実施

前項までの検討結果から、各有効成分について高精度化・迅速化された分析方法として以下の方法を提案し、加圧注入材から調製した共通の試料について複数の機関で分析を実施することとした。

8.1 提案する定量分析方法

①抽出工程

①-1 溶媒抽出

- ・処理材から調製した木粉 1g をスクリーキャップにより密栓できる 30mL 容のサンプル瓶に入れ、20mL のメタノールを正確に加える。
- ・スクリーキャップキャップをしっかり締めた後、超音波洗浄器内に入れ、1 時間超音波照射することで抽出を行う。この際、水温が 40 度を超えないように管理する(例えば、20 分ごとに槽内の水を入れ替えるなど)。また、抽出中何度かサンプル瓶を激しく振り混ぜる。
- ・ろ過に使用する木粉量は変更可能とし、変更した場合は木粉 1g に対し 20mL となるよう抽出に使用する溶媒量も変更することとする。

①-2 ろ過

- ・サンプル瓶を激しく振り、5 分間静置する。
- ・上澄みを簡易なフィルターでろ過したものを抽出溶液とする。

①-3

- ・抽出溶液の一部を孔径 0.45 または 0.2 μm のフィルターでろ過したものを HPLC 分析に供する。

②機器分析（高速液体クロマトグラフによる定量分析）

②-1 高速液体クロマトグラフの分析条件

各有効成分の分析条件は下表のとおりとする。

表 8-1 エトフェンプロックスとシラフルオフエンの HPLC 分析条件

項目	条件
カラム	コアシェルタイプの ODS 系カラム（例：Phenomenex 社製，Kinetex C18） 粒子径 5 μm 内径：4.6 または 3mm，長さ：150mm 粒子径 2.6 μm 内径：3mm，長さ：75mm
移動相	A:アセトニトリル：蒸留水=70：30（V/V） B:アセトニトリル *有効成分の溶出時間までは A を 100%で送液し，必要に応じて B とのグラジエントを行う
移動相流速	0.75～1.8mL/min
カラム温度	40°C
測定波長	224nm（エトフェンプロックス），230nm（シラフルオフエン）
注入量	1～10 μL

表 8-1 ビフェントリンの HPLC 分析条件

項目	条 件
カラム	コアシェルタイプの ODS 系カラム (例: Phenomenex 社製, Kinetex C18) 粒子径 5 μ m 内径: 4.6 または 3mm, 長さ: 150mm 粒子径 2.6 μ m 内径: 3mm, 長さ: 75mm
移動相	A: アセトニトリル: 蒸留水=75:25 (V/V) B: アセトニトリル * 有効成分の溶出時間までは A を 100% で送液し, 必要に応じて B とのグラジエントを行う
移動相流速	0.6~1.5mL/min
カラム温度	40°C
測定波長	224nm
注入量	1~10 μ L

8.2 共通試料を用いた複数の機関による分析の実施

加圧注入処理木材より調製した試料について, 8.1 に示した分析方法に準じ, 認証機関や保存処理メーカーなどを含めた複数機関で試験を実施した。以下, 各機関で行った分析と結果について記載する。

8.2.1 道総研林産試験場

[エトフェンプロックスについて]

①抽出工程

AZE 処理材 (スギ, ヒノキ) から調製した木粉試料のうち約 1 g を, 30mL 容のスクリーキャップ付きガラスサンプル瓶に入れ, メタノール 20mL を加えた後, 超音波洗浄器 (ブランソン社製) を用いて 1 時間抽出した。超音波照射中は水温が 40°C を超えないようにした。ガラスサンプル瓶は抽出中数回振り混ぜた。抽出後, 取り出したサンプル瓶を激しく攪拌し, 5 分間静置した。次にガラス繊維ろ紙 (ϕ 26 mm) を用いたろ過により木粉をろ別し, ろ液を抽出溶液として分析に用いた。なお, 繰返し数は各樹種につき 3 とし, 同様の方法で 3 つの抽出溶液を調製した。

②試験溶液の分析

抽出溶液のうち 1 mL をシリンジフィルター (孔径 0.2 μ m, フィルター径 13 mm) を用いてろ過したものを分析試料とした。分析試料中のエトフェンプロックスは, 高速液体クロマトグラフ (HPLC) を用いて定量した。HPLC は ACQUITY UPLC H-class (Waters 社製) を用い, 分析条件は表 8-1 とした。

③検量線の作成

エトフェンプロックスの標準品 (和光純薬社製, 純度 99.5%) をメタノール溶解したものをを用い, メタノールで希釈することでエトフェンプロックス濃度 0.05~0.005mg/ml の標準液を作製し, シリンジフィルター (孔径 0.2 μ m, フィルター径 13mm) を用いてろ過したものを標準試料とした。標準試料は分析試料と同条件で HPLC 分析し, エトフェンプロックスの濃度とピーク面積を用いて検量線を作成した。

④試験溶液中および AZE 処理材中の有効成分量の算出

分析試料の定量結果を基に試験溶液中のエトフェンプロックス量を算出した。また, 前

述の試料木粉を用いて別途含水率（水分量/気乾重量）を求め、気乾木粉 1g 当たりおよび絶乾木粉 1g あたりの有効成分量についても算出した。

表 8-1 エトフェンプロックスの HPLC 分析条件

項目	条件
カラム	ODS 系カラム (Phenomenex 社製, Kinetex C18) I. D. : 2.6mm, L : 75mm, 粒子径 2.6 μ m (コアシェル)
移動相	A:アセトニトリル : 蒸留水=70 : 30 (V/V) B:アセトニトリル グラジエント 0~8.5分 A : 100%, 8.5~8.7分 A:100→0%;B : 0→100% 8.7~15.5分 B : 100%, 15.5~15.8分 A : 0→100%; B:100→0% 15.8~20分 A : 100%
移動相流速	1.8mL/min
カラム温度	40°C
測定波長	224nm
注入量	10 μ L

(分析結果)

結果を表 8-2 に示す。

表 8-2 エトフェンプロックスの分析結果

	スギ			ヒノキ		
	エトフェンプロックス (mg/g)		含水率 (%)	エトフェンプロックス (mg)		含水率 (%)
	気乾木粉	絶乾木粉		気乾木粉	絶乾木粉	
AZE-1	0.498	0.539		0.399	0.432	
AZE-2	0.499	0.541	7.6	0.400	0.434	7.8
AZE-3	0.495	0.536		0.405	0.439	
平均	0.497	0.539		0.401	0.435	
変動係数	0.5	0.5		0.8	0.8	

[ビフェントリンについて]

(実験方法)

①試料の抽出

AZBI 処理材（スギ，ヒノキ）から調製した木粉試料のうち約 1g を，30mL 容のスクリーキャップ付きガラスサンプル瓶に入れ，メタノール 20mL を加えた後，超音波洗浄器（プランソン社製）を用いて 1 時間抽出した。超音波照射中は水温が 40°C を超えないようにした。ガラスサンプル瓶は抽出中数回振り混ぜた。所定の抽出時間経過後，サンプル瓶を取り出し，激しく攪拌した後 5 分間静置した。30mL 容プラスチック製シリンジ外筒（バレル）内側底部にガラス繊維ろ紙（ ϕ 26 mm）を敷き，シリンジカートリッジバレルの上から抽出液の一部を静かに注入し，プランジャーを押し出すことでろ過し，このろ液を試験溶液として分析に用いた。なお，繰返し数は各樹種につき 3 とし，同様の方法で 3 つの試験溶液を調製した。

②試験溶液の分析

抽出溶液のうち 1mL をシリンジフィルター（孔径 0.2 μ m, フィルター径 13mm）を用いてろ過したものを分析試料とした。分析試料中のエトフェンプロックスは、高速液体クロマトグラフ（HPLC）を用いて定量した。HPLC は ACQUITY UPLC H-class（Waters 社製）を用い、分析条件は表 8-3 とした。

表 8-3 ビフェントリンの HPLC 分析条件

項目	条件
カラム	ODS 系カラム（Phenomenex 社製, Kinetex C18） I. D. : 4.6mm, L : 150mm, 粒子径 5 μ m（コアシェル）
移動相	A:アセトニトリル：蒸留水=75：25（V/V） B:アセトニトリル グラジエント 0～10分 A：100%, 10～10.2分 A:100→0%;B：0→100% 10.2～15.2分 B：100%, 15.2～15.5分 A：0→100%; B:100→0% 15.5～20.5分 A：100%
移動相流速	1.3mL/min
カラム温度	40°C
測定波長	220 or 224nm
注入量	10 μ L

③検量線の作成

ビフェントリンの標準品（和光純薬製，純度 99%）をメタノール溶解したのを用い、メタノールで希釈することでビフェントリン濃度 0.02～0.001mg/ml の標準液を作製し、シリンジフィルター（孔径 0.2 μ m, フィルター径 13mm）を用いてろ過したものを標準試料とした。標準試料は分析試料と同条件で HPLC 分析し、ビフェントリンの濃度とピーク面積を用いて検量線を作成した。

④AZBI 処理材中の有効成分量の算出

分析試料の定量結果を基に試験溶液中のビフェントリン量を算出した。また、前述の試料木粉を用いて別途含水率（水分量/気乾重量）を求め、気乾木粉 1g 当たりおよび絶乾木粉 1g あたりの有効成分量についても算出した。

（分析結果）

結果を表 8-4 に示す。

表 8-4 ビフェントリンの分析結果

	スギ			ヒノキ		
	ビフェントリン (mg/g)		含水率 (%)	ビフェントリン (mg/g)		含水率 (%)
	気乾木粉	絶乾木粉		気乾木粉	絶乾木粉	
AZBI-1	0.061	0.065		0.058	0.063	
AZBI-2	0.060	0.064	7.0	0.053	0.056	6.7
AZBI-3	0.061	0.065		0.057	0.061	
平均	0.060	0.065		0.056	0.060	
変動係数	0.7	0.7		5.4	5.4	

[シラフルオフエンについて]

(実験方法)

①試料の抽出

SAAC 処理材（スギ，ヒノキ）から調製した木粉試料のうち約 1g を，30mL 容のスクリーキャップ付きガラスサンプル瓶に入れ，メタノール 20mL を加えた後，超音波洗浄器（プランソン社製）を用いて 1 時間抽出した。超音波照射中は水温が 40℃を超えないようにした。ガラスサンプル瓶は抽出中数回振り混ぜた。所定の抽出時間経過後，サンプル瓶を取り出し，激しく攪拌した後 5 分間静置した。30mL 容プラスチック製シリンジ外筒（バレル）内側底部にガラス繊維ろ紙（φ26 mm）を敷き，シリンジカートリッジバレルの上から抽出液の一部を静かに注入し，プランジャーを押し出すことでろ過し，このろ液を試験溶液として分析に用いた。なお，繰返し数は各樹種につき 3 とし，同様の方法で 3 つの試験溶液を調製した。

②試験溶液の分析

抽出溶液のうち 1mL をシリンジフィルター（孔径 0.2 μm，フィルター径 13mm）を用いてろ過したものを分析試料とした。分析試料中のシラフルオフエンは，高速液体クロマトグラフ（HPLC）を用いて定量した。HPLC は ACQUITY UPLC H-class（Waters 社製）を用い，分析条件は表 8-5 とした。

表 8-5 シラフルオフエンの HPLC 分析条件

項目	条件
カラム	ODS 系カラム（Phenomenex 社製，Kinetex C18） I. D. : 4.6mm, L : 150mm, 粒子径 5 μm（コアシェル）
移動相	A: アセトニトリル : 蒸留水 = 70 : 30 (V/V) B: アセトニトリル グラジエント 0~19 分 A : 100%, 19~19.5 分 A : 100→0%; B : 0→100% 19.5~25 分 B : 100%, 25~25.3 分 A : 0→100%; B : 100→0% 25.3~30 分 A : 100%
移動相流速	1.8mL/min
カラム温度	40℃
測定波長	230nm
注入量	10 μL

③検量線の作成

シラフルオフエンの標準品（和光純薬製，純度 99%）をメタノール溶解したものを，メタノールで希釈することでシラフルオフエン濃度 0.02~0.001mg/ml の標準液を作製し，シリンジフィルター（孔径 0.2 μm，フィルター径 13mm）を用いてろ過したものを標準試料とした。標準試料は分析試料と同条件で HPLC 分析し，シラフルオフエンの濃度とピーク面積を用いて検量線を作成した。

④SAAC 処理材中の有効成分量の算出

分析試料の定量結果を基に試験溶液中のシラフルオフエン量を算出した。また、前述の試料木粉を用いて別途含水率（水分量/気乾重量）を求め、気乾木粉 1g 当たりおよび絶乾木粉 1g あたりの有効成分量についても算出した。

（分析結果）

結果を表 8-6 に示す。

表 8-6 シラフルオフエンの分析結果

	スギ			ヒノキ		
	シラフルオフエン (mg/g)		含水率 (%)	シラフルオフエン (mg/g)		含水率 (%)
	気乾木粉	絶乾木粉		気乾木粉	絶乾木粉	
SAAC-1	0.132	0.139		0.061	0.064	
SAAC-2	0.129	0.137	5.6	0.061	0.064	5.3
SAAC-3	0.129	0.137		0.062	0.065	
平均	0.130	0.138		0.061	0.065	
変動係数	1.1	1.1		0.9	0.9	

8.2.2 大日本木材防腐株式会社

[エトフェンプロックスについて]

（実験方法）

①試料の抽出

AZE 処理材（スギ、ヒノキ）から調製した木粉試料のうち約 2 g を、50mL 容のスクリーキャップ付きガラスサンプル瓶に入れ、メタノール 40mL を加えた後、超音波洗浄器（島津理化製、SUS-103）を用いて 1 時間抽出した。超音波照射は 20 分ごとに水を入れ替え、水温が 40°C を超えないようにした。ガラスサンプル瓶は抽出中数回振り混ぜた。所定の抽出時間経過後、サンプル瓶を取り出し、激しく攪拌した後 5 分間静置した。30mL 容プラスチック製シリンジ外筒（バレル）内側底部にガラス繊維ろ紙（φ26 mm）を敷き、シリンジカートリッジバレルの上から抽出液の一部を静かに注入し、プランジャーを押し出すことでろ過し、このろ液を試験溶液として分析に用いた。なお、繰返し数は各樹種につき 3 とし、同様の方法で 3 つの試験溶液を調製した。

②試験溶液の分析

試験溶液のうち 3mL をシリンジフィルター（孔径 0.45 μm, フィルター径 13mm）を用いてろ過したものを分析試料とした。分析試料中のエトフェンプロックスは、高速液体クロマトグラフ（HPLC）を用いて定量した。HPLC は日本分光の Gulliver を用い、分析条件は表 8-7 とした。

③検量線の作成

エトフェンプロックスの標準品（和光純薬製、純度 99.2%）をメタノール溶解したものを用い、メタノールで希釈することでエトフェンプロックス濃度 0.05~0.005 mg/ml の標準液を作製し、シリンジフィルター（孔径 0.45 μm, フィルター径 13mm）を用いてろ過

したものを標準試料とした。標準試料は分析試料と同条件で HPLC 分析し、エトフェンプロックスの濃度とピーク面積を用いて検量線を作成した。

表 8-7 エトフェンプロックスの HPLC 分析条件

項目	条件
カラム	ODS 系カラム (Phenomenex 社製, Kinetex C18) I. D. : 4.6 mm, L : 150 mm, 粒子径 5 μ m (コアシェル)
移動相	A:アセトニトリル : 蒸留水=70 : 30 (V/V) B:アセトニトリル グラジエント 0~9.5分 A : 100%, 9.5~9.7分 A:100→0%;B : 0→100% 9.7~14.7分 B : 100%, 14.7~15分 A : 0→100%; B:100→0% 15~20分 A : 100%
移動相流速	1.8 mL/min
カラム温度	40°C
測定波長	224 nm
注入量	10 μ L

③検量線の作成

エトフェンプロックスの標準品 (和光純薬製, 純度 99.2%) をメタノール溶解したものを、メタノールで希釈することでエトフェンプロックス濃度 0.05~0.005 mg/ml の標準液を作製し、シリンジフィルター (孔径 0.45 μ m, フィルター径 13mm) を用いてろ過したものを標準試料とした。標準試料は分析試料と同条件で HPLC 分析し、エトフェンプロックスの濃度とピーク面積を用いて検量線を作成した。

④AZE 処理材中の有効成分量の算出

分析試料の定量結果を基に試験溶液中のエトフェンプロックス量を算出した。また、前述の試料木粉を用いて別途含水率 (水分量/気乾重量) を求め、気乾木粉 1g 当たりおよび絶乾木粉 1g あたりの有効成分量についても算出した。

(分析結果)

結果を表 8-8 に示す。

表 8-8 エトフェンプロックスの分析結果

	スギ			ヒノキ		
	エトフェンプロックス (mg/g)		含水率 (%)	エトフェンプロックス (mg/g)		含水率 (%)
	気乾木粉	絶乾木粉		気乾木粉	絶乾木粉	
AZE-1	0.485	0.519		0.382	0.409	
AZE-2	0.481	0.513	6.8	0.381	0.407	6.9
AZE-3	0.472	0.504		0.381	0.407	
平均	0.479	0.512		0.382	0.408	
変動係数	1.4	1.5		0.2	0.3	

[ビフェントリンについて]

(実験方法)

①試料の抽出

AZBI 処理材（スギ、ヒノキ）から調製した木粉試料のうち約 2 g を、50mL 容のスクリーキャップ付きガラスサンプル瓶に入れ、メタノール 40mL を加えた後、超音波洗浄器（島津理化製，SUS-103）を用いて 1 時間抽出した。超音波照射は 20 分ごとに水を入れ替え、水温が 40℃を超えないようにした。ガラスサンプル瓶は抽出中数回振り混ぜた。所定の抽出時間経過後、サンプル瓶を取り出し、激しく攪拌した後 5 分間静置した。30 mL 容プラスチック製シリンジ外筒（バレル）内側底部にガラス繊維ろ紙（φ26mm）を敷き、シリンジカートリッジバレルの上から抽出液の一部を静かに注入し、プランジャーを押し出すことでろ過し、このろ液を試験溶液として分析に用いた。なお、繰返し数は各樹種につき 3 とし、同様の方法で 3 つの試験溶液を調製した。

②試験溶液の分析

抽出溶液のうち 3 mL をシリンジフィルター（孔径 0.45 μm，フィルター径 13mm）を用いてろ過したものを分析試料とした。分析試料中のビフェントリンは、高速液体クロマトグラフ（HPLC）を用いて定量した。HPLC は日本分光製の Gulliver を使い、分析条件は表 4 とした。

表 8-9 ビフェントリンの HPLC 分析条件

項目	条件
カラム	ODS 系カラム（Phenomenex 社製，Kinetex C18） I. D. : 4.6 mm, L : 150 mm, 粒子径 5 μm（コアシェル）
移動相	A: アセトニトリル : 蒸留水 = 75 : 25 (V/V) B: アセトニトリル グラジエント 0~10.2 分 A : 100%, 10.2~10.5 分 A : 100→0% ; B : 0→100% 10.5~15.5 分 B : 100%, 15.5~15.8 分 A : 0→100% ; B : 100→0% 15.8~20.8 分 A : 100%
移動相流速	1.8 mL/min
カラム温度	40℃
測定波長	220 nm
注入量	10 μL

③検量線の作成

ビフェントリンの標準品（和光純薬製，純度 99.5%）をメタノール溶解したものを、メタノールで希釈することでビフェントリン濃度 0.02~0.001mg/ml の標準液を作製し、シリンジフィルター（孔径 0.45 μm，フィルター径 13mm）を用いてろ過したものを標準試料とした。標準試料は分析試料と同条件で HPLC 分析し、ビフェントリンの濃度とピーク面積を用いて検量線を作成した。

④AZBI 処理材中の有効成分量の算出

分析試料の定量結果を基に試験溶液中のビフェントリン量を算出した。また、前述の試料木粉を用いて別途含水率（水分量/気乾重量）を求め、気乾木粉 1g 当たりおよび絶乾木粉 1g あたりの有効成分量についても算出した。

（分析結果）

測定結果を表 8-10 に示す。

表 8-10 ビフェントリンの分析結果

	スギ			ヒノキ		
	ビフェントリン (mg/g)		含水率 (%)	ビフェントリン (mg/g)		含水率 (%)
	気乾木粉	絶乾木粉		気乾木粉	絶乾木粉	
AZBI-1	0.060	0.064		0.056	0.059	
AZBI-2	0.064	0.068	6.4	0.054	0.057	5.9
AZBI-3	0.063	0.067		0.053	0.056	
平均	0.062	0.066		0.054	0.057	
変動係数	3.4	3.2		2.8	2.7	

[シラフルオフエンについて]

(実験方法)

①試料の抽出

SAAC 処理材（スギ，ヒノキ）から調製した木粉試料のうち約 1 g を，30mL 容のスクリーキャップ付きガラスサンプル瓶に入れ，メタノール 20mL を加えた後，超音波洗浄器（島津理化製，SUS-103）を用いて 1 時間抽出した。超音波照射は 20 分ごとに水を入れ替え，水温が 40℃を超えないようにした。ガラスサンプル瓶は抽出中数回振り混ぜた。所定の抽出時間経過後，サンプル瓶を取り出し，激しく攪拌した後 5 分間静置した。30mL 容プラスチック製シリンジ外筒（バレル）内側底部にガラス繊維ろ紙（φ26mm）を敷き，シリンジカートリッジバレルの上から抽出液の一部を静かに注入し，プランジヤーを押し出すことでろ過し，このろ液を試験溶液として分析に用いた。なお，繰返し数は各樹種につき 3 とし，同様の方法で 3 つの試験溶液を調製した。

②試験溶液の分析

抽出溶液のうち 3 mL をシリンジフィルター（孔径 0.45 μm，フィルター径 13mm）を用いてろ過したものを分析試料とした。分析試料中のシラフルオフエンは，高速液体クロマトグラフ（HPLC）を用いて定量した。HPLC は日本分光製の Gulliver を用い，分析条件は表 8-11 とした。

表 8-11 シラフルオフエンの HPLC 分析条件

項目	条件
カラム	ODS 系カラム（Phenomenex 社製，Kinetex C18） I.D. : 4.6 mm, L : 150 mm, 粒子径 5 μm（コアシェル）
移動相	A: アセトニトリル : 蒸留水 = 70 : 30 (V/V) B: アセトニトリル グラジエント 0~21 分 A : 100%, 21~21.5 分 A:100→0%; B : 0→100% 21.5~26.5 分 B : 100%, 26.5~26.8 分 A : 0→100%; B:100→0% 26.5~31 分 A : 100%
移動相流速	1.8 mL/min
カラム温度	40℃
測定波長	235 nm
注入量	10 μL

③検量線の作成

シラフルオフエンの標準品（和光純薬製，純度 99.7%）をメタノール溶解したものをを用い，メタノールで希釈することでシラフルオフエン濃度 0.02~0.001 mg/ml の標準液を作製し，シリンジフィルター（孔径 0.45 μ m，フィルター径 13mm）を用いてろ過したものを標準試料とした。標準試料は分析試料と同条件で HPLC 分析し，シラフルオフエンの濃度とピーク面積を用いて検量線を作成した。

④試験溶液中および SAAC 処理材中の有効成分量の算出

分析試料の定量結果を基に試験溶液中のシラフルオフエン量を算出した。また，前述の試料木粉を用いて別途含水率（水分量/気乾重量）を求め，気乾木粉 1g 当たりおよび絶乾木粉 1g あたりの有効成分量についても算出した。

（分析結果）

結果を表 8-12 に示す。

表 8-12 シラフルオフエンの分析結果

	スギ			ヒノキ		
	シラフルオフエン (mg/g)		含水率 (%)	シラフルオフエン (mg/g)		含水率 (%)
	気乾木粉	絶乾木粉		気乾木粉	絶乾木粉	
SAAC-1	0.132	0.139		0.061	0.064	
SAAC-2	0.129	0.137	5.6	0.061	0.064	5.3
SAAC-3	0.129	0.137		0.062	0.065	
平均	0.130	0.138		0.061	0.065	
変動係数	1.1	1.1		0.9	0.9	

8.2.3 株式会社ザイエンス

[エトフェンプロックスについて]

（実験方法）

①試料の抽出

AZE 処理材（スギ，ヒノキ）から調製した木粉試料のうち約 2g を，50mL 容のスクリュウキャップ付きガラスサンプル瓶に入れ，メタノール 50mL を加えた後，超音波洗浄器（アズワン株式会社製，ASU-10D）を用いて 1 時間抽出した。超音波照射時は，水温が 40℃を超えないようにした。ガラスサンプル瓶は抽出中数回振り混ぜた。所定の抽出時間経過後，サンプル瓶を取り出し，激しく攪拌した後 5 分間静置した。30mL 容プラスチック製シリンジ外筒（バレル）内側底部にガラス繊維ろ紙（ ϕ 26 mm）を敷き，シリンジカートリッジバレルの上から抽出液の一部を静かに注入し，プランジャーを押し出すことでろ過し，このろ液を試験溶液として分析に用いた。なお，繰返し数は各樹種につき 3 とし，同様の方法で 3 つの試験溶液を調製した。

②試験溶液の分析

試験溶液のうち 1mL をシリンジフィルター（孔径 0.45 μ m，フィルター径 13mm）を用いてろ過したものを分析試料とした。分析試料中のエトフェンプロックスは，高速液体クロ

マトグラフ (HPLC) を用いて定量した。HPLC は株式会社島津製作所の Prominence を用い、分析条件は表 1 とした。

表 8-13 エトフェンプロックスの HPLC 分析条件

項目	条件
カラム	ODS 系カラム (Phenomenex 社製, Kinetex C18) I. D. : 4.6mm, L : 150mm, 粒子径 5 μ m (コアシェル)
移動相	A : アセトニトリル : 蒸留水 = 70 : 30 (V/V) B : アセトニトリル グラジエント 0~6.4 分 A : 100% 6.4~6.5 分 A : 100 \rightarrow 0% ; B : 0 \rightarrow 100% 6.5~7.9 分 B : 100% 8.0~9.4 分 B : 100%, 流速 2.0mL/min 9.4~9.5 分 A : 0 \rightarrow 100% ; B : 100 \rightarrow 0%, 流速 2.0mL/min 9.5~11.6 分 A : 100%, 流速 2.0mL/min 11.7~13.0 分 A : 100%, 流速 1.8 mL/min
移動相流速	1.8mL/min
カラム温度	40 $^{\circ}$ C
測定波長	224nm
注入量	10 μ L

③検量線の作成

エトフェンプロックスの標準品 (三井化学アグロ株式会社製, 純度 99.95%) をメタノール溶解したものをを用い, メタノールで希釈することでエトフェンプロックス濃度 0.05~0.005mg/ml の標準液を作製し, シリンジフィルター (孔径 0.45 μ m, フィルター径 13mm) を用いてろ過したものを標準試料とした。標準試料は分析試料と同条件で HPLC 分析し, エトフェンプロックスの濃度とピーク面積を用いて検量線を作成した。

④試験溶液中および AZE 処理材中の有効成分量の算出

分析試料の定量結果を基に試験溶液中のエトフェンプロックス量を算出した。また, 前述の試料木粉を用いて別途含水率 (水分量/気乾重量) を求め, 気乾木粉 1g 当たりおよび絶乾木粉 1g あたりの有効成分量についても算出した。

(分析結果)

測定結果を表 8-14 に示す。

表 8-14 エトフェンプロックスの分析結果

	スギ			ヒノキ		
	エトフェンプロックス (mg/g)		含水率 (%)	エトフェンプロックス (mg/g)		含水率 (%)
	気乾木粉	絶乾木粉		気乾木粉	絶乾木粉	
AZE-1	0.48	0.525		0.382	0.414	
AZE-2	0.468	0.511	7.8	0.379	0.413	8.6
AZE-3	0.498	0.514		0.381	0.414	
平均	0.482	0.517		0.381	0.414	
変動係数	3.1	1.4		0.4	0.1	

[ビフェントリンについて]

(実験方法)

①試料の抽出

AZBI 処理材（スギ，ヒノキ）から調製した木粉試料のうち約 2g を，50mL 容のスクリーキャップ付きガラスサンプル瓶に入れ，メタノール 50mL を加えた後，超音波洗浄器（アズワン株式会社製，ASU-10D）を用いて 1 時間抽出した。超音波照射時は，水温が 40℃を超えないようにした。ガラスサンプル瓶は抽出中数回振り混ぜた。所定の抽出時間経過後，サンプル瓶を取り出し，激しく攪拌した後 5 分間静置した。30mL 容プラスチック製シリンジ外筒（バレル）内側底部にガラス繊維ろ紙（φ26 mm）を敷き，シリンジカートリッジバレルの上から抽出液の一部を静かに注入し，プランジャーを押し出すことでろ過し，このろ液を試験溶液として分析に用いた。なお，繰返し数は各樹種につき 3 とし，同様の方法で 3 つの試験溶液を調製した。

②試験溶液の分析

抽出溶液のうち 1mL をシリンジフィルター（孔径 0.45 μm，フィルター径 13mm）を用いてろ過したものを分析試料とした。分析試料中のエトフェンプロックスは，高速液体クロマトグラフ（HPLC）を用いて定量した。HPLC は株式会社島津製作所の Prominence を用い，分析条件は表 8-15 とした。

表 8-15 ビフェントリンの HPLC 分析条件

項目	条件
カラム	ODS 系カラム（Phenomenex 社製，Kinetex C18） I. D. : 4.6mm, L : 150mm, 粒子径 5 μm（コアシェル）
移動相	A: アセトニトリル：蒸留水 = 75 : 25 (V/V) B: アセトニトリル グラジエント 0~7.9 分 A : 100% 7.9~8.0 分 A : 100→0% ; B : 0→100% 8.0~9.7 分 B : 100% 9.8~11.9 分 B : 100%, 流速 2.0mL/min 11.9~12.0 分 A : 0→100% ; B : 100→0%, 流速 2.0mL/min 12.0~14.0 分 A : 100%, 流速 2.0mL/min 14.1~16.0 分 A : 100%, 流速 1.3 mL/min
移動相流速	1.3mL/min
カラム温度	40℃
測定波長	220nm
注入量	10 μL

③検量線の作成

ビフェントリンの標準品（和光純薬工業株式会社製，純度 99.5%）をメタノール溶解したものをを用い，メタノールで希釈することでビフェントリン濃度 0.02~0.001mg/ml の標準液を作製し，シリンジフィルター（孔径 0.45 μm，フィルター径 13mm）を用いてろ過したものを標準試料とした。標準試料は分析試料と同条件で HPLC 分析し，ビフェントリンの濃度とピーク面積を用いて検量線を作成した。

④試験溶液中および AZBI 処理材中の有効成分量の算出

分析試料の定量結果を基に試験溶液中のビフェントリン量を算出した。また、前述の試料木粉を用いて別途含水率（水分量/気乾重量）を求め、気乾木粉 1g 当たりおよび絶乾木粉 1g あたりの有効成分量についても算出した。

（分析結果）

結果を表 8-16 に示す。

表 8-16 ビフェントリンの分析結果

	スギ			ヒノキ		
	ビフェントリン (mg/g)		含水率 (%)	ビフェントリン (mg/g)		含水率 (%)
	気乾木粉	絶乾木粉		気乾木粉	絶乾木粉	
AZBI-1	0.061	0.066		0.054	0.058	
AZBI-2	0.060	0.065	7.6	0.054	0.058	
AZBI-3	0.060	0.065		0.053	0.057	
平均	0.060	0.065		0.054	0.058	
変動係数	0.9	0.9		1.1	1.1	

[シラフルオフエンについて]

（実験方法）

①試料の抽出

SAAC 処理材（スギ、ヒノキ）から調製した木粉試料のうち約 2g を、50mL 容のスクリーキャップ付きガラスサンプル瓶に入れ、メタノール 50mL を加えた後、超音波洗浄器（アズワン株式会社製、ASU-10D）を用いて 1 時間抽出した。超音波照射時は、水温が 40℃を超えないようにした。ガラスサンプル瓶は抽出中数回振り混ぜた。所定の抽出時間経過後、サンプル瓶を取り出し、激しく攪拌した後 5 分間静置した。30mL 容プラスチック製シリンジ外筒（バレル）内側底部にガラス繊維ろ紙（φ 26 mm）を敷き、シリンジカートリッジバレルの上から抽出液の一部を静かに注入し、プランジャーを押し出すことでろ過し、このろ液を試験溶液として分析に用いた。なお、繰返し数は各樹種につき 3 とし、同様の方法で 3 つの試験溶液を調製した。

②試験溶液の分析

抽出溶液のうち 1mL をシリンジフィルター（孔径 0.45 μm, フィルター径 13mm）を用いてろ過したものを分析試料とした。分析試料中のシラフルオフエンは、高速液体クロマトグラフ（HPLC）を用いて定量した。HPLC は株式会社島津製作所の Prominence を用い、分析条件は表 8-17 とした。

③検量線の作成

シラフルオフエンの標準品（和光純薬工業株式会社製、純度 99.7%）をメタノール溶解したものを、メタノールで希釈することでシラフルオフエン濃度 0.02~0.001mg/ml の標準液を作製し、シリンジフィルター（孔径 0.45 μm, フィルター径 13mm）を用いてろ過したものを標準試料とした。標準試料は分析試料と同条件で HPLC 分析し、シラフルオフエンの濃度とピーク面積を用いて検量線を作成した。

表 8-17 シラフルオフエンの HPLC 分析条件

項目	条件
カラム	ODS 系カラム (Phenomenex 社製, Kinetex C18) I. D. : 4.6mm, L : 150mm, 粒子径 5 μ m (コアシェル)
移動相	A : アセトニトリル : 蒸留水 = 70 : 30 (V/V) B : アセトニトリル グラジエント 0~19分 A : 100% 19~19.5分 A : 100 \rightarrow 0% ; B : 0 \rightarrow 100% 19.5~25分 B : 100% 25~25.3分 A : 0 \rightarrow 100% ; B : 100 \rightarrow 0% 25.3~30分 A : 100%
移動相流速	1.8mL/min
カラム温度	40 $^{\circ}$ C
測定波長	235nm
注入量	10 μ L

④ 試験溶液中および AZBI 処理材中の有効成分量の算出

分析試料の定量結果を基に試験溶液中のシラフルオフエン量を算出した。また、前述の試料木粉を用いて別途含水率（水分量/気乾重量）を求め、気乾木粉 1g 当たりおよび絶乾木粉 1g あたりの有効成分量についても算出した。

（分析結果）

結果を表 8-18 に示す。

表 8-18 シラフルオフエンの分析結果

	スギ			ヒノキ		
	シラフルオフエン (mg/g)		含水率 (%)	シラフルオフエン (mg/g)		含水率 (%)
	気乾木粉	絶乾木粉		気乾木粉	絶乾木粉	
SAAC-1	0.131	0.140		0.061	0.065	
SAAC-2	0.130	0.139	6.3	0.061	0.065	5.9
SAAC 3	0.130	0.139		0.061	0.065	
平均	0.130	0.139		0.061	0.065	
標準偏差	0.4	0.4		0.5	0.4	

8.2.4 兼松日産農林株式会社

[エトフェンプロックスについて]

（実験方法）

① 試料の抽出

AZE 処理材（スギ、ヒノキ）から調製した木粉試料のうち約 1g を、50mL 容のスクリーユキャップ付きガラスサンプル瓶に入れ、メタノール 20mL を加えた後、超音波洗浄器（ヤマト科学社製、8510J-MTH）を用いて 1 時間抽出した。超音波照射は 20 分ごとに水を入れ替え、水温が 40 $^{\circ}$ C を超えないようにした。ガラスサンプル瓶は抽出中数回振り混ぜた。所定

の抽出時間経過後、サンプル瓶を取り出し、激しく攪拌した後5分間静置した。30mL 容プラスチック製シリンジ外筒（バレル）内側底部にガラス繊維ろ紙（φ26mm）を敷き、シリンジカートリッジバレルの上から抽出液の一部を静かに注入し、プランジャーを押し出すことでろ過し、このろ液を試験溶液として分析に用いた。なお、繰返し数は各樹種につき3とし、同様の方法で3つの試験溶液を調製した。

②試験溶液の分析

試験溶液のうち2mLをシリンジフィルター（孔径0.45μm、フィルター径13mm）を用いてろ過したものを分析試料とした。分析試料中のエトフェンプロックスは、高速液体クロマトグラフ（HPLC）を用いて定量した。HPLCは日立ハイテクサイエンス社製のChromasterを用い、分析条件は表8-19とした。

表8-19 エトフェンプロックスのHPLC分析条件

項目	条件
カラム	ODS系カラム（Phenomenex社製，Kinetex C18） I. D. : 4.6mm, L : 150mm, 粒子径 5μm（コアシェル）
移動相	A:アセトニトリル：蒸留水=70：30（V/V） B:アセトニトリル グラジエント 0～8.5分 A：100%，8.5～8.7分 A:100→0%；B：0→100% 8.7～15.5分 B：100%，15.5～15.8分 A：0→100%； B:100→0% 15.8～20分 A：100%
移動相流速	1.8mL/min
カラム温度	40°C
測定波長	224nm
注入量	10μL

③検量線の作成

エトフェンプロックスの標準品（三共化学社製，純度99.0%）をメタノール溶解したものをを用い，メタノールで希釈することでエトフェンプロックス濃度0.05～0.005mg/mlの標準液を作製し，シリンジフィルター（孔径0.45μm，フィルター径13mm）を用いてろ過したものを標準試料とした。標準試料は分析試料と同条件でHPLC分析し，エトフェンプロックスの濃度とピーク面積を用いて検量線を作成した。

④試験溶液中およびAZE処理材中の有効成分量の算出

分析試料の定量結果を基に試験溶液中のエトフェンプロックス量を算出した。また，前述の試料木粉を用いて別途含水率（水分量/気乾重量）を求め，気乾木粉1gあたりおよび絶乾木粉1gあたりの有効成分量についても算出した。

（分析結果）

測定結果を表8-20に示す。

表 8-20 エトフェンプロックスの分析結果

	スギ			ヒノキ		
	エトフェンプロックス (mg/g)		含水率 (%)	エトフェンプロックス (mg/g)		含水率 (%)
	気乾木粉	絶乾木粉		気乾木粉	絶乾木粉	
AZE-1	0.484	0.5195		0.389	0.419	
AZE-2	0.485	0.5198	7.3	0.383	0.412	7.8
AZE-3	0.476	0.5102		0.380	0.409	
平均	0.482	0.5165		0.384	0.414	
変動係数	1.0	1.1		1.2	1.2	

[ビフェントリンについて]

(実験方法)

①試料の抽出

AZBI 処理材（スギ，ヒノキ）から調製した木粉試料のうち約 1g を，50mL 容のスクリーキャップ付きガラスサンプル瓶に入れ，メタノール 20mL を加えた後，超音波洗浄器（ヤマト科学社製，8510J-MTH）を用いて 1 時間抽出した。超音波照射は 20 分ごとに水を入れ替え，水温が 40℃を超えないようにした。ガラスサンプル瓶は抽出中数回振り混ぜた。所定の抽出時間経過後，サンプル瓶を取り出し，激しく攪拌した後 5 分間静置した。30mL 容プラスチック製シリンジ外筒（バレル）内側底部にガラス繊維ろ紙（φ26 mm）を敷き，シリンジカートリッジバレルの上から抽出液の一部を静かに注入し，プランジャーを押し出すことでろ過し，このろ液を試験溶液として分析に用いた。なお，繰返し数は各樹種につき 3 とし，同様の方法で 3 つの試験溶液を調製した。

②試験溶液の分析

抽出溶液のうち 2mL をシリンジフィルター（孔径 0.45 μm，フィルター径 13mm）を用いてろ過したものを分析試料とした。分析試料中のビフェントリンは，高速液体クロマトグラフ（HPLC）を用いて定量した。HPLC は日立ハイテックサイエンス社製の Chromaster を用い，分析条件は表 8-21 とした。

表 8-21 ビフェントリンの HPLC 分析条件

項目	条件
カラム	ODS 系カラム（Phenomenex 社製，Kinetex C18） I. D. : 4.6mm, L : 150mm, 粒子径 5 μm（コアシェル）
移動相	A: アセトニトリル : 蒸留水 = 75 : 25 (V/V) B: アセトニトリル グラジエント 0~10 分 A : 100%, 10~10.2 分 A:100→0%; B : 0→100% 10.2~15.2 分 B : 100%, 15.2~15.5 分 A : 0→100%; B:100→0% 15.5~20.5 分 A : 100%
移動相流速	1.3mL/min
カラム温度	40℃
測定波長	220 or 224 nm
注入量	10 μL

③検量線の作成

ビフェントリンの標準品（FMC社製，純度96.1%）をメタノール溶解したものをを用い，メタノールで希釈することでビフェントリン濃度0.02～0.001mg/mlの標準液を作製し，シリンジフィルター（孔径0.45 μ m，フィルター径13mm）を用いてろ過したものを標準試料とした。標準試料は分析試料と同条件でHPLC分析し，ビフェントリンの濃度とピーク面積を用いて検量線を作成した。

④試験溶液中およびAZBI処理材中の有効成分量の算出

分析試料の定量結果を基に試験溶液中のビフェントリン量を算出した。また，前述の試料木粉を用いて別途含水率（水分量/気乾重量）を求め，気乾木粉1gあたりおよび絶乾木粉1gあたりの有効成分量についても算出した。

（分析結果）

測定結果を表8-22に示す。

表8-22 ビフェントリンの分析結果

	スギ			ヒノキ		
	ビフェントリン (mg/g)		含水率 (%)	ビフェントリン (mg/g)		含水率 (%)
	気乾木粉	絶乾木粉		気乾木粉	絶乾木粉	
AZBI-1	0.060	0.064		0.055	0.059	
AZBI-2	0.062	0.066	6.8	0.054	0.058	7.1
AZBI-3	0.062	0.067		0.053	0.057	
平均	0.062	0.066		0.054	0.058	
変動係数	2.3	2.3		1.8	1.7	

[シラフルオフエンについて]

（実験方法）

①試料の抽出

SAAC処理材（スギ，ヒノキ）から調製した木粉試料のうち約1gを，50mL容のスクリーキャップ付きガラスサンプル瓶に入れ，メタノール20mLを加えた後，超音波洗浄器（ヤマト科学社製，8510J-MTH）を用いて1時間抽出した。超音波照射は20分ごとに水を入れ替え，水温が40℃を超えないようにした。ガラスサンプル瓶は抽出中数回振り混ぜた。所定の抽出時間経過後，サンプル瓶を取り出し，激しく攪拌した後5分間静置した。30mL容プラスチック製シリンジ外筒（バレル）内側底部にガラス繊維ろ紙（ ϕ 26mm）を敷き，シリンジカートリッジバレルの上から抽出液の一部を静かに注入し，プランジャーを押し出すことでろ過し，このろ液を試験溶液として分析に用いた。なお，繰返し数は各樹種につき3とし，同様の方法で3つの試験溶液を調製した。

②試験溶液の分析

抽出溶液のうち2mLをシリンジフィルター（孔径0.45 μ m，フィルター径13mm）を用いてろ過したものを分析試料とした。分析試料中のシラフルオフエンは，高速液体クロマト

グラフ (HPLC) を用いて定量した。HPLC は日立ハイテクサイエンス社製の Chromaster を用い、分析条件は表 1 とした。

表 8-23 シラフルオフエンの HPLC 分析条件

項目	条件
カラム	ODS 系カラム (Phenomenex 社製, Kinetex C18) I. D. : 4.6mm, L : 150mm, 粒子径 5 μ m (コアシェル)
移動相	A:アセトニトリル : 蒸留水=70 : 30 (V/V) B:アセトニトリル グラジエント 0~19分 A : 100%, 19~19.5分 A:100→0%;B : 0→100% 19.5~25分 B : 100%, 25~25.3分 A : 0→100%; B:100→0% 25.3~30分 A : 100%
移動相流速	1.8mL/min
カラム温度	40°C
測定波長	230nm
注入量	10 μ L

③検量線の作成

シラフルオフエンの標準品 (大日本除虫菊社製, 純度 95.4%) をメタノール溶解したものをを用い、メタノールで希釈することでシラフルオフエン濃度 0.02~0.001mg/ml の標準液を作製し、シリンジフィルター (孔径 0.45 μ m, フィルター径 13mm) を用いてろ過したものを標準試料とした。標準試料は分析試料と同条件で HPLC 分析し、シラフルオフエンの濃度とピーク面積を用いて検量線を作成した。

④試験溶液中および SAAC 処理材中の有効成分量の算出

分析試料の定量結果を基に試験溶液中のシラフルオフエン量を算出した。また、前述の試料木粉を用いて別途含水率 (水分量/気乾重量) を求め、気乾木粉 1g 当たりおよび絶乾木粉 1g あたりの有効成分量についても算出した。

(分析結果)

測定結果を表 8-24 に示す。

表 8-24 シラフルオフエンの分析結果

	スギ			ヒノキ		
	シラフルオフエン (mg/g)		含水率 (%)	シラフルオフエン (mg/g)		含水率 (%)
	気乾木粉	絶乾木粉		気乾木粉	絶乾木粉	
SAAC-1	0.136	0.144		0.063	0.066	
SAAC-2	0.136	0.144	5.8	0.063	0.066	5.2
SAAC-3	0.135	0.143		0.061	0.065	
平均	0.136	0.144		0.062	0.065	
標準偏差	0.3	0.3		1.2	1.1	

8.2.5 (公社) 日本住宅・木材技術センター

[エトフェンプロックスについて]

(実験方法)

①試料の抽出

AZE 処理材（スギ，ヒノキ）から調製した木粉試料のうち約 1 g を，30mL 容のスクリーキャップ付きガラスサンプル瓶に入れ，ホールピペットを用いてメタノール 20mL を加えた後，超音波洗浄器（(株) エスエヌディ製，US-109）を用いて 1 時間抽出した。超音波照射は水温が 40℃ を超えないように留意した。ガラスサンプル瓶は抽出中数回振り混ぜた。所定の抽出時間経過後，サンプル瓶を取り出し，激しく攪拌した後 5 分程度静置した。30 mL 容プラスチック製シリンジ外筒（バレル）内側底部にガラス繊維ろ紙（φ 26 mm）を敷き，シリンジカートリッジバレルの上から抽出液の一部を静かに注入し，プランジャーを押し出すことでろ過し，このろ液を試験溶液として分析に用いた。なお，繰返し数は各樹種につき 3 とし，同様の方法で 3 つの試験溶液を調製した。

②試験溶液の分析

試験溶液のうち 1～2 mL をシリンジフィルター（孔径 0.45 μm，フィルター径 13mm）を用いてろ過したものを分析試料とした。分析試料中のエトフェンプロックスは，高速液体クロマトグラフ（HPLC）を用いて定量した。HPLC は（株）島津製作所製 Prominence を用い，分析条件は表 8-25 とした。

表 8-25 エトフェンプロックスの HPLC 分析条件

項目	条件
カラム	ODS 系カラム（Phenomenex 社製，Kinetex C18） I. D. : 4.6 mm, L : 150 mm, 粒子径 5 μm（コアシェル）
移動相	0～9 分 アセトニトリル：蒸留水＝70：30（V/V） 9～15 分 アセトニトリル＝100 15～20 分 アセトニトリル：蒸留水＝70：30（V/V） グラジエント分析
移動相流速	1.8 mL/min
カラム温度	40℃
測定波長	224 nm
注入量	10 μL

③検量線の作成

エトフェンプロックスの標準品（和光純薬製，純度 99.5%）から 1 mg/ml 程度の標準原液を作製し，これをメタノールで希釈することでエトフェンプロックス濃度 0.05～0.005 mg/ml の標準液を得た。各濃度の標準液はシリンジフィルター（孔径 0.45 μm，フィルター径 13 mm）を用いてろ過し，標準試料とした。標準試料は分析試料と同条件で HPLC 分析し，エトフェンプロックスの濃度とピーク面積を用いて検量線を作成した。

④試験溶液中およびAZE処理材中の有効成分量の算出

分析試料の定量結果を基に試験溶液中のエトフェンブロックス量を算出した。また、前述の試料木粉を用いて別途含水率（水分量/気乾重量）を求め、気乾木粉1gあたりおよび絶乾木粉1gあたりの有効成分量についても算出した。

（結果）

測定結果を表8-26に示す。

表8-26 エトフェンブロックスの分析結果

	スギ			ヒノキ		
	エトフェンブロックス (mg/g)		含水率 (%)	エトフェンブロックス (mg/g)		含水率 (%)
	気乾木粉	絶乾木粉		気乾木粉	絶乾木粉	
AZE-1	0.462	0.497		0.388	0.415	
AZE-2	0.465	0.500	6.9	0.383	0.410	6.7
AZE-3	0.473	0.508		0.387	0.414	
平均	0.467	0.502		0.386	0.413	
変動係数	1.2	1.2		0.6	0.6	

[ビフェントリンについて]

（実験方法）

①試料の抽出

AZBI処理材（スギ、ヒノキ）から調製した木粉試料のうち約1gを、30mL容のスクリーキャップ付きガラスサンプル瓶に入れ、ホールピペットを用いてメタノール20mLを加えた後、超音波洗浄器（（株）エスエヌディ製、US-109）を用いて1時間抽出した。超音波照射は水温が40℃を超えないように留意した。ガラスサンプル瓶は抽出中数回振り混ぜた。所定の抽出時間経過後、サンプル瓶を取り出し、激しく攪拌した後5分程度静置した。30mL容プラスチック製シリンジ外筒（バレル）内側底部にガラス繊維ろ紙（φ26mm）を敷き、シリンジカートリッジバレルの上から抽出液の一部を静かに注入し、プランジャーを押し出すことでろ過し、このろ液を試験溶液として分析に用いた。なお、繰返し数は各樹種につき3とし、同様の方法で3つの試験溶液を調製した。

②試験溶液の分析

抽出溶液のうち1~2mLをシリンジフィルター（孔径0.45μm、フィルター径13mm）を用いてろ過したものを分析試料とした。分析試料中のビフェントリンは、高速液体クロマトグラフ（HPLC）を用いて定量した。HPLCは（株）島津製作所製Prominenceを用い、分析条件は表8-27とした。

③検量線の作成

ビフェントリンの標準品（和光純薬製、純度98.0%）から1mg/ml程度の標準原液を調製し、これをメタノールで希釈することでビフェントリン濃度0.01~0.001mg/mlの標準液を得た。各濃度の標準液はシリンジフィルター（孔径0.45μm、フィルター径13mm）を用いてろ過し、標準試料とした。標準試料は分析試料と同条件でHPLC分析し、ビフェントリンの濃度とピーク面積を用いて検量線を作成した。

表 8-27 ビフェントリンの HPLC 分析条件

項目	条件
カラム	ODS 系カラム (Phenomenex 社製, Kinetex C18) I. D. : 4.6 mm, L : 150 mm, 粒子径 5 μm (コアシェル)
移動相	0~11 分 アセトニトリル : 蒸留水 = 75 : 25 (V/V) 11~16 分 アセトニトリル = 100 16~21 分 アセトニトリル : 蒸留水 = 75 : 25 (V/V) グラジエント分析
移動相流速	1.3 mL/min
カラム温度	40°C
測定波長	220 nm
注入量	10 μL

④試験溶液中および AZBI 処理材中の有効成分量の算出

分析試料の定量結果を基に試験溶液中のビフェントリン量を算出した。また、前述の試料木粉を用いて別途含水率（水分量/気乾重量）を求め、気乾木粉 1g 当たりおよび絶乾木粉 1g あたりの有効成分量についても算出した。

（分析結果）

結果を表 8-28 に示す。

表 8-28 ビフェントリンの分析結果

	スギ			ヒノキ		
	ビフェントリン (mg/g)		含水率 (%)	ビフェントリン (mg/g)		含水率 (%)
	気乾木粉	絶乾木粉		気乾木粉	絶乾木粉	
AZBI-1	0.065	0.069		0.053	0.057	
AZBI-2	0.062	0.066	6.3	0.053	0.056	5.7
AZBI-3	0.062	0.066		0.054	0.057	
平均	0.063	0.067		0.053	0.057	
変動係数	2.8	2.8		0.6	0.6	

[シラフルオフエンについて]

（実験方法）

①試料の抽出

SAAC 処理材（スギ、ヒノキ）から調製した木粉試料のうち約 1 g を、30mL 容のスクリーキャップ付きガラスサンプル瓶に入れ、ホールピペットを用いてメタノール 20mL を加えた後、超音波洗浄器（(株) エスエヌディ製, US-109）を用いて 1 時間抽出した。超音波照射は水温が 40°C を超えないように留意した。ガラスサンプル瓶は抽出中数回振り混ぜた。所定の抽出時間経過後、サンプル瓶を取り出し、激しく攪拌した後 5 分程度静置した。30mL 容プラスチック製シリンジ外筒（バレル）内側底部にガラス繊維ろ紙（φ26mm）を敷き、シリンジカートリッジバレルの上から抽出液の一部を静かに注入し、プランジャーを押し出すことでろ過し、このろ液を試験溶液として分析に用いた。なお、繰返し数は各樹種につき 3 とし、同様の方法で 3 つの試験溶液を調製した。

②試験溶液の分析

抽出溶液のうち1~2mLをシリンジフィルター（孔径0.45 μ m, フィルター径13mm）を用いてろ過したものを分析試料とした。分析試料中のシラフルオフエンは、高速液体クロマトグラフ（HPLC）を用いて定量した。HPLCは（株）島津製作所製Prominenceを用い、分析条件は表8-29とした。

表8-29 シラフルオフエンのHPLC分析条件

項目	条件
カラム	ODS系カラム（Phenomenex社製, Kinetex C18） I.D. : 4.6 mm, L : 150 mm, 粒子径5 μ m（コアシェル）
移動相	0~20分 アセトニトリル：蒸留水=70：30（V/V） 20~25分 アセトニトリル=100 25~30分 アセトニトリル：蒸留水=70：30（V/V） グラジエント分析
移動相流速	1.8 mL/min
カラム温度	40 $^{\circ}$ C
測定波長	235 nm
注入量	10 μ L

③検量線の作成

シラフルオフエンの標準品（（株）コシイプレザービング提供品, 純度94.6%）から1mg/ml程度の標準原液を作製し、これをメタノールで希釈することで、シラフルオフエン濃度0.02~0.001mg/mlの標準液を得た。各濃度の標準液はシリンジフィルター（孔径0.45 μ m, フィルター径13mm）を用いてろ過し、標準試料とした。標準試料は分析試料と同条件でHPLC分析し、シラフルオフエンの濃度とピーク面積を用いて検量線を作成した。

④試験溶液中およびSAAC処理材中の有効成分量の算出

分析試料の定量結果を基に試験溶液中のシラフルオフエン量を算出した。また、前述の試料木粉を用いて別途含水率（水分量/気乾重量）を求め、気乾木粉1gあたりおよび絶乾木粉1gあたりの有効成分量についても算出した。

（分析結果）

結果を表8-30に示す。

表8-30 シラフルオフエンの分析結果

	スギ			ヒノキ		
	シラフルオフエン (mg/g)		含水率 (%)	シラフルオフエン (mg/g)		含水率 (%)
	気乾木粉	絶乾木粉		気乾木粉	絶乾木粉	
SAAC-1	0.128	0.135		0.060	0.063	
SAAC-2	0.125	0.132	4.8	0.059	0.061	4.5
SAAC-3	0.127	0.133		0.059	0.062	
平均	0.127	0.133		0.059	0.062	
変動係数	1.1	1.1		1.4	1.4	

8.3 分析結果の比較

8.2において各機関で得られた結果をまとめたものを図8-1に示す。各機関で得られた結果はバラつきが少なく、いずれの有効成分も、各機関で同じレベルの結果が得られていることが確認された。以上の結果から、本事業で確立した分析方法は妥当であると考えられた。

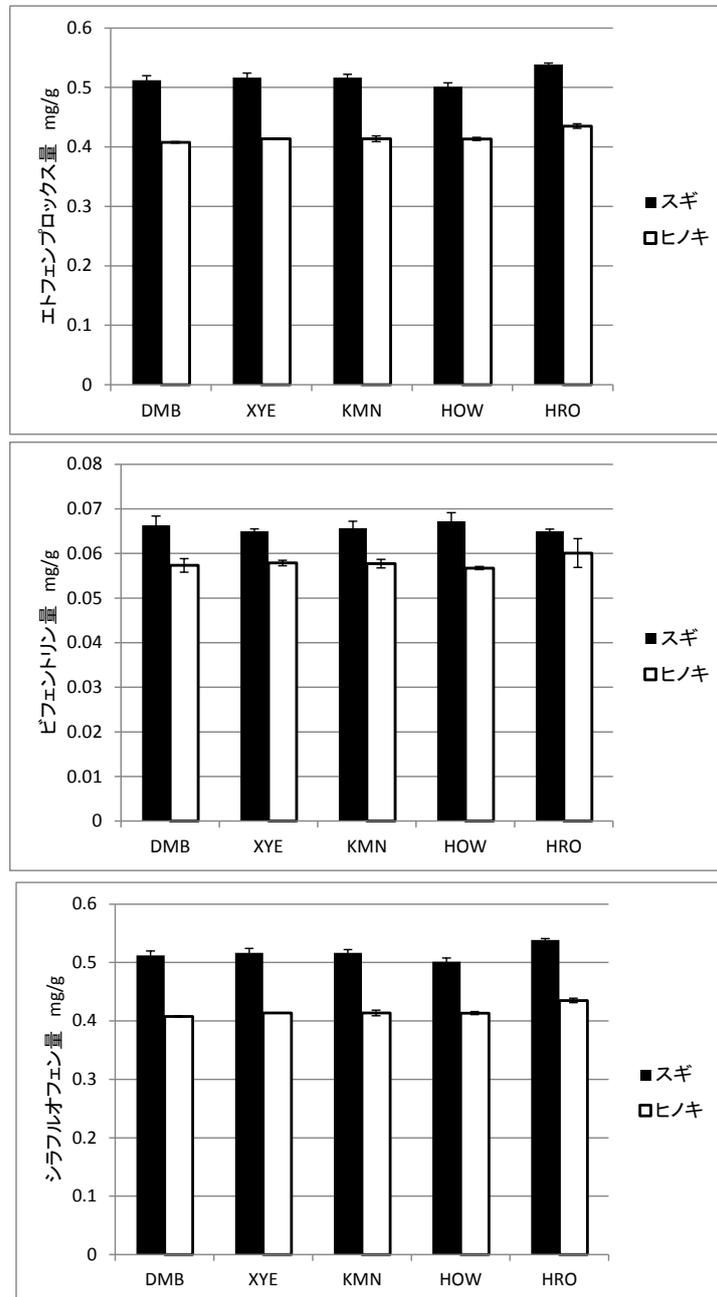


図 8-1 共通試料の分析結果の比較

DMB:大日本木材防腐(株); XYE:(株)ザイエンス, KMN;兼松日産農林(株);
HOW:(公財)日本住宅・木材技術センター; HRO:(地独)北海道立総合研究機構
林産試験場, エラーバーは標準偏差を示す

また、各機関の分析実施者に提案した方法を使用した感想を下記に示す。提案した方法の評価は高く、これまでの方法と比較して抽出方法の効率化、分析時間の短縮の効果が十分認識されているものと考えられた。

試験溶液の調製

試験溶液の調製までのプロセスは、製材の日本農林規格に記載されているような試験方法と比べ、振とう器やエバポレーターといった大掛かりな設備や多くのガラス器具を必要とせず、熟練度も要することなく非常に簡便化されていると考えられる。また、抽出溶媒も蟻酸等の添加を要することなく、メタノールに統一されている。

HPLC 分析

本分析で使用している分析カラムは、一般的な全多孔性シリカゲルではなく、コアシェルカラムで統一されており、各成分の分析時間が短く感じられた。各分析値についても値が一定している。

全体を通して

分析全体の負担が非常に軽く感じられた。本分析方法は、簡便化の効果が高い分、分析値のバラつきが生じにくいことが考えられる。従って、保存処理材に含まれる有効成分量を精度よく算出できると考えられる。HPLC 分析における移動相の使用量は多いものの、分析カラムのサイズや粒子径の変更によって大幅に削減することも可能であると考えられる。

- ・エトフェンプロックス、ビフェントリン、シラフルオフェン共に問題なく分析できた。
- ・今回使用したコアシェルカラムは移動相を変更した場合の安定が5分程度と早く、従来使用していた一般的なODSカラムでは安定までに20分程度かかっていたことと比べると、時間短縮が見込まれる。特にグラジエント分析では有効ではないか。
- ・ビフェントリン、シラフルオフェンのスギにおいて、ピークが綺麗に分離できない場合が見られた。ビフェントリンではピークのテール部分に、シラフルオフェンではピークのリード部分に夾雑物の影響が見られた。ビフェントリンではピーク検出のスロープ値の設定を10000uV/minにすることで分離が可能であった。一方、シラフルオフェンではスロープ値設定変更では分離できず、測定波長を230nmから235nmに変更することで分離が可能であった。ただし、有効成分量が元々微量であるため、木粉1gあたりの有効成分含有量で比較すると大きな変化は見られなかった。

第9章 事業の総括と残された課題

本事業では、CLT等の木質材料に使用される可能性のある国産材であるスギ、ヒノキ、カラマツ、トドマツの4樹種を対象に、ピレスロイド化合物であるエトフェンプロックス、ビフェントリン、非エステルピレスロイド化合物であるシラフルオフエンの定量分析について、効率化・高精度化することを目的とした検討を行った。

有効成分の定量分析における抽出工程について、抽出溶媒の見直し、簡易なる過方法の使用について検討したところ、対象とした有効成分すべてに共通で、従来の方法よりも効率的かつ高精度な抽出方法を確立した。

有効成分の定量分析における機器分析について、高速液体クロマトグラフを用いた分析において、適切な移動相組成の選択による木材成分の影響の除去、使用するカラムの粒子径等の変更による分析時間や試薬量の大幅な縮減により効率的かつ高精度な分析方法を確立した。また、確立した抽出工程で調製された抽出溶液は、溶媒置換等を経ることでGC-MS分析可能であることが確認された。ただし、GC-MSに供する場合は、プラスチック由来の可塑剤の影響を排除するため、ガラス製品の使用が望ましいことが確認された。

さらに、複数機関において、共通の試料について確立した手法を用いた分析を実施したところ、いずれの機関においてもほぼ同じ分析結果が得られたことから、分析方法の妥当性が確認された。しかし、スギ心材の成分の影響を完全に除去できていない部分もあり、より信頼性の高い分析方法を確立するためには、さらなる検討が必要であると考えられる。また、現在、集成材、単板積層材、合板のJAS規格に保存処理規定を設けるための取り組みが行われているが、これらのうち特にLVLや合板においては分析試料に接着剤が混入することが予想される。そのため、これらの木質材料について、効率化、高精度化を図るためには、接着剤に起因する分析への影響を精査し、必要な対応を図るための検討を実施する必要がある。

謝辞

本事業の遂行にご協力いただきました国立研究開発法人森林総合研究所の大村和香子氏、神原広平氏、所 雅彦氏、桃原郁夫氏に深謝するとともに厚く御礼申し上げます。

執筆者一覧

はじめに	(財) 建築研究協会	今村祐嗣		
第1章	(公社) 日本木材保存協会			
第2章	(公社) 日本木材保存協会			
第3章	(地独) 北海道立総合研究機構	林産試験場	宮内輝久	
第4章	(地独) 北海道立総合研究機構	林産試験場	宮内輝久	
第5章	(地独) 北海道立総合研究機構	林産試験場	宮内輝久	
第6章	(地独) 北海道立総合研究機構	林産試験場	宮内輝久	
第7章	(研) 森林総合研究所	石川敦子		
第8章 8.1	(地独) 北海道立総合研究機構	林産試験場	宮内輝久	
8.2	(地独) 北海道立総合研究機構	林産試験場	宮内輝久	
8.2.1	(地独) 北海道立総合研究機構	林産試験場	宮内輝久	
8.2.2	大日本木材防腐(株)	赤堀裕一		
8.2.3	(株) ザイエンス	池田学		
8.2.4	兼松日産農林(株)	中井大二郎		
8.2.5	(公財) 日本住宅・木材技術センター	大澤朋子		
8.3	(地独) 北海道立総合研究機構	林産試験場	宮内輝久	
第9章	(地独) 北海道立総合研究機構	林産試験場	宮内輝久	

