

ヒノキ板材の中温乾燥処理における揮発性テルペン類の残存割合について

松田 洋樹

Remaining ratio of volatile terpenes on drying process
of Japanese Cypress Board at medium temperature

Hiroki MATSUDA

要 旨

松田洋樹：ヒノキ板材の中温乾燥処理における揮発性テルペン類の残存割合について 岡山県農林水産総合センター森林研究所報38：1-6（2023）ヒノキの乾燥材は、乾燥処理において香りが変質することが指摘されており、ヒノキの香りの特徴づけている揮発性テルペン類が乾燥時に揮発減少することが、その要因の一つと考えられる。そこで、揮発性テルペン類の残存割合を、部位や乾燥条件ごとに求め、揮発性テルペン類が残存しやすい条件について検討した。ヒノキ心材部から採取した試験板を異なる条件で乾燥し、その乾燥前後におけるヘキササン抽出物量をGC/MSにより測定することで、主要な揮発性テルペン類の残存割合を、部位ごとに求めた。その結果、木口端部や材面表層部でモノテルペン類の残存割合が低いことや、特にモノテルペン類においては低温低湿条件が残存割合を高める可能性があること、モノテルペンアルコール類は乾燥条件によらず残存率が低いこと、セスキテルペン類はいずれの条件でも残存しやすいこと、などが明らかとなった。

キーワード：ヒノキ、香り、木材乾燥、テルペン類

I はじめに

岡山県は、令和3年度のヒノキ素材生産量が278千 m^3 で全国1位の生産量であり（農林水産省 2022）、国内でも有数のヒノキ生産県として知られている。ヒノキ材は、その心材の耐久性の高さから、製材のJASにおける心材耐久性区分はD1樹種に区分され、薬剤による保存処理なしに土台などに使用することができる。また、ヒノキは構造材として有用なだけでなく、他の材にはない、美しい材色や心地よい芳香を有している。特に、過去に行ったアンケート調査（野上 2014）によると、多くの県民がヒノキの良さを香りに見出していることが明らかとなり、香りを付加価値とした製品づくりが出来れば、県の林業・木材産業の活性化に寄与できると考えられる。

一般的に、ヒノキを含む針葉樹材の香り成分は、数十種類のテルペン類からなっており、樹種により特徴的な組成を持ち、その材の香りの特徴づけている（谷田貝

1997）。テルペン類は、イソプレン単位の骨格を持ち、その付加量によってモノテルペン類、セスキテルペン類、ジテルペン類とそれぞれ分類される。この中でも分子量が比較的小さく揮発性の高い成分が材の香りに寄与するため、香りの主体はモノテルペン類やセスキテルペン類が形成していると考えられる（谷田貝 2008）。これらの香り成分は、その揮発性の高さから、乾燥工程において失われやすく、乾燥処理においてテルペン類が揮発減少することや（奥田ら 2017）、熱により消失、変質す

ることなどが指摘されている（Ohira *et al.* 2009）。そのため、香りによりヒノキ材の付加価値を上げるためには、乾燥工程においてこれらの香り成分の損失を抑制することが重要であると考えられる。しかし、どのような乾燥条件が、揮発性テルペン類を残し、香りを残す上で有効であるかを具体的に検討した例は少ない。

そこで、本研究では、乾燥時の温湿度条件を変えた5条件で、ヒノキ板材を乾燥し、乾燥前後における主要な7種の揮発性テルペン類の残存割合を部位ごとに求め、揮発性テルペン類の残存割合が高くなる条件や、部位ごと、成分ごとの残存割合の違いを明らかにすることを目的とした。

II 材料と方法

(1) 材料

材料は、岡山県北部で伐採されたヒノキ（*Chamaecyparis obtusa*）の板材（200mm[W]×30mm[T]×4000mm[L]）を使用した。ヒノキの板材は異なる個体から得たもので、心材部分のみとし、県内の製材所から製材直後の生材の状態5枚購入した。板材は、いずれも図-1のように分割し、合計25枚の試験板を得た。各試験板から初期含水率測定用試験片を採取し、全乾法で初期含水率を求めた。

乾燥前の抽出成分量を測定するために各試験板から乾

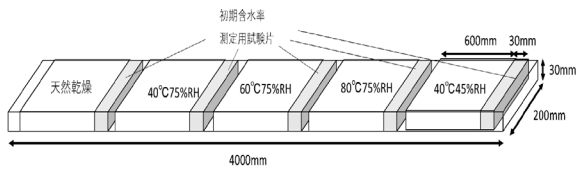


図-1 各種乾燥試験に供する試験板の採取方法

乾燥前の抽出成分測定用試験片を図-2（左）のように採取した。その後、個体が異なる試験板5枚を1セットとし、それぞれ所定の条件で乾燥し、乾燥後の抽出成分測定用試験片を、図-2（左）のように2か所（木口端部、中央部）から採取した。

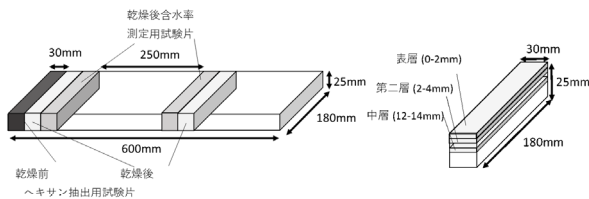


図-2 各試験板からの乾燥前後における抽出成分測定用試験片の採取方法

(2) 乾燥処理

乾燥は、天然乾燥と恒温恒湿機ARL-1100(エスペック)による乾燥を行った。天然乾燥は、屋根のある風通しの良い屋外に積み、2022年4月6日から2022年4月22日までの16日間乾燥した。恒温恒湿機による乾燥は、温湿度条件を変えて4条件で行った。いずれの乾燥条件も、重量測定から求めた推定の含水率が15%を下回った時点で乾燥終了としたが、40°C75%乾燥では、乾燥開始から2週間経過時点において重量変化がほとんどなくなったため、2週間で乾燥終了とした。各乾燥条件と乾燥結果を表-1に、乾燥経過を図-3に示す。

表-1 乾燥試験結果

drying	乾燥時間 (h)	初期含水率 (%)	乾燥後推定含水率 (%)	乾燥後全含水率 (%)
Air drying	368	34.2	15.6	15.8
40°C75%RH	320	35.5	17.4	17.5
60°C75%RH	72	33.9	15.1	14.6
80°C75%RH	28	33.6	13.8	12.9
40°C45%RH	71	33.2	14.0	13.7

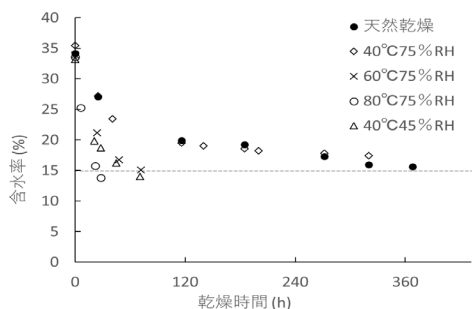


図-3 各試験板の乾燥経過

乾燥結果と乾燥経過の含水率には、個体ごとに大きなばらつきがなかったため、5個体の平均値のみ示した。乾燥終了後は、直ちに溶媒抽出の操作を行ったが、サンプル数が多いため最長で2日程度保管期間が生じた。保管中は、成分の揮発を防ぐため、試験板をラップにて密封し、室温5°C以下の木材保管庫で保管した。

(3) 溶媒抽出

各抽出成分測定用試験片は、試験板の深度による違いを求めるため、図-2（右）のように、木表面から深度別に3層に鉋で分離し、スライス片を採取した。このスライス片はそのままでは抽出できないため、さらに剪定鋏で3mm幅に切り分け、多数のマッチ棒状の試料を作製した。この試料の中から、乾燥前は1.5±0.01 g、乾燥後は1.3±0.01gの重量となるように12本を選定し、各層の抽出成分測定用の試料とした。

(4) GC/MSの分析条件

GC/MSの分析条件は以下のとおりである。

GC/MS機種：GCMS-QP2020NX(島津製作所)
 カラム：SH-Rtx-5ms (30m×0.25mm, 膜厚0.25μm, 島津製作所)
 キャリアーガス：超高純度He
 注入方法：スプリット(スプリット比30)
 昇温条件：40°Cで3分保持, 10°C/minで250°Cまで昇温, 250°Cで3分保持
 検出器温度：200°C、イオン化方法：EI、イオン化電圧：70eV
 測定モード：SCAN

(5) 成分の同定と定量

得られたピークの同定および推定は、標品が入手できるものは標品とのマススペクトルと保持時間の比較を行い同定した。標品が入手できなかったものは、マススペクトルライブラリの一致率による比較を行い推定した。

定量の対象とした成分は、ヒノキの抽出成分として既報の文献で報告があり(山田ら 2017, 原田ら 2017, 山下ら 2017, 渋谷 2008)、かつ標品が入手できたものとし、モノテルペン類の4種はα-Pinene, β-Pinene, D-Limonene, γ-Terpineneとし、モノテルペンアルコール類の2種はTerpinene-4-ol, L.alpha.-Terpineolとし、セスキテルペン類はδ-Cadinene (いずれも東京化成)の合計7種類とした。定量は絶対検量線法により4点検量で検量線を作成し行った。

(6) 残存割合の計算方法

成分の残存割合は、乾燥後の定量値を、対応する個所の生材時の定量値で除すことにより求めた。例えば、α-Pineneの中央部中層における残存割合は、乾燥後の中央部中層におけるα-Pineneの定量値を乾燥前の試験片の中層における定量値で除すことで求めた。

III 結果と考察

(1) 代表的なクロマトグラムと各成分の定性

代表的なクロマトグラムとして、ある個体の80℃75%RH乾燥試験板の生材時の中層と乾燥後の中央部中層のクロマトグラムを図-4に示す。

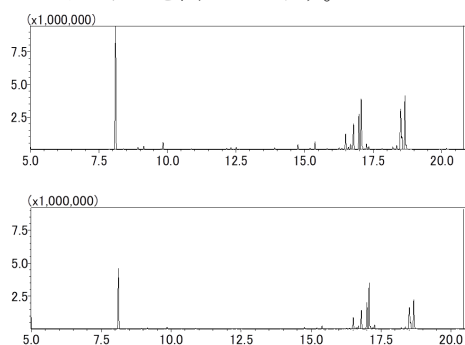


図-4 クロマトグラムの一例
(上段：80℃75%RH乾燥前中層、
下段：80℃75%RH乾燥後中央部中層)

また、図-4（上段）のピークのうち、ピーク面積の大きかった20成分について表-2に示す。太字で示したものは、標品と比較することで同定を行ったものであり、今回定量の対象とした成分である。その他の成分については、マススペクトライブラリとの一致率が高く、かつ既報の文献でも報告されている化合物であり、推定成分とした。一致率の高いものが複数あり、既報の文献を参照しても判別し難いものは不明とした。

表-2 80℃75%RH乾燥試験板の乾燥前中層の分析で得られた主な成分

Component	RT	Area	MW
α-Pinene	8.108	4001813	136
β-Pinene	8.927	49095	136
β-Myrcene	9.139	71569	136
D-Limonene	9.844	64220	136
γ-Terpinene	10.361	10154	136
Terpinen-4-ol	12.32	41882	154
L-α-Terpineol	12.511	32660	154
Bornyl acetate	13.913	19523	196
α-Terpinyl acetate	14.758	65293	196
β-Elementene	15.382	26305	204
unidentified	16.499	249058	204
unidentified	16.597	36771	204
unidentified	16.985	574081	204
δ-Cadinene	17.067	889859	204
Cubenene	17.2	35970	204
unidentified	17.261	96731	204
Di-epi-1,10-cubenol	18.363	52961	222
unidentified	18.495	661406	222
unidentified	18.551	160728	222
α-Cadinol	18.663	504982	222

RT：Retention Time，MW：Molecular Weight

(2) 乾燥条件と成分の残存率の関係

モノテルペン類である、α-Pinene、β-Pinene、D-Limonene、γ-Terpineneの残存割合の平均値を図-5に示す。デ

ィスタンスバーは、5個体の中の最大値、最小値を表している。モノテルペン類4成分は、いずれも同様の傾向にあった。

木口端部では、乾燥条件に関係なく、すべての層で残存割合がおおむね2割程度と低い値であった。

中央部における層ごとの違いは、天然乾燥を除くすべての乾燥条件で、表層部の残存割合が最も低くなり、表層から成分の揮発が進む様子が推察された。天然乾燥では表層の残存割合が高くなったため、抽出操作の不備の可能性も考えられたが、明確な理由は分からなかった。次に、乾燥条件ごとの違いについて、内層の残存割合をみると、いずれの成分も60℃や80℃乾燥では残存割合が4割を下回り、40℃乾燥や天然乾燥よりも残存割合が小さくなっており、低温での乾燥の方がモノテルペン類の残存割合が高くなる傾向がみられた。また40℃45%RH乾燥は、40℃75%RH乾燥より残存割合が高くなった。

モノテルペンアルコール類であるTerpinene-4-ol、L-α-Terpineolの残存割合の平均値を図-6に示す。ディスタンスバーは、5個体の最大値、最小値を表している。モノテルペンアルコール類2成分は、いずれも同様の傾向にあった。

木口端部は、いずれの乾燥条件でも、成分の残存割合は低く、2割以下であった。

中央部も、いずれの乾燥条件でも成分の残存割合は低く、おおむね3割以下であった。モノテルペンアルコール類は、部位や乾燥条件によらず、均一に減少する傾向があった。

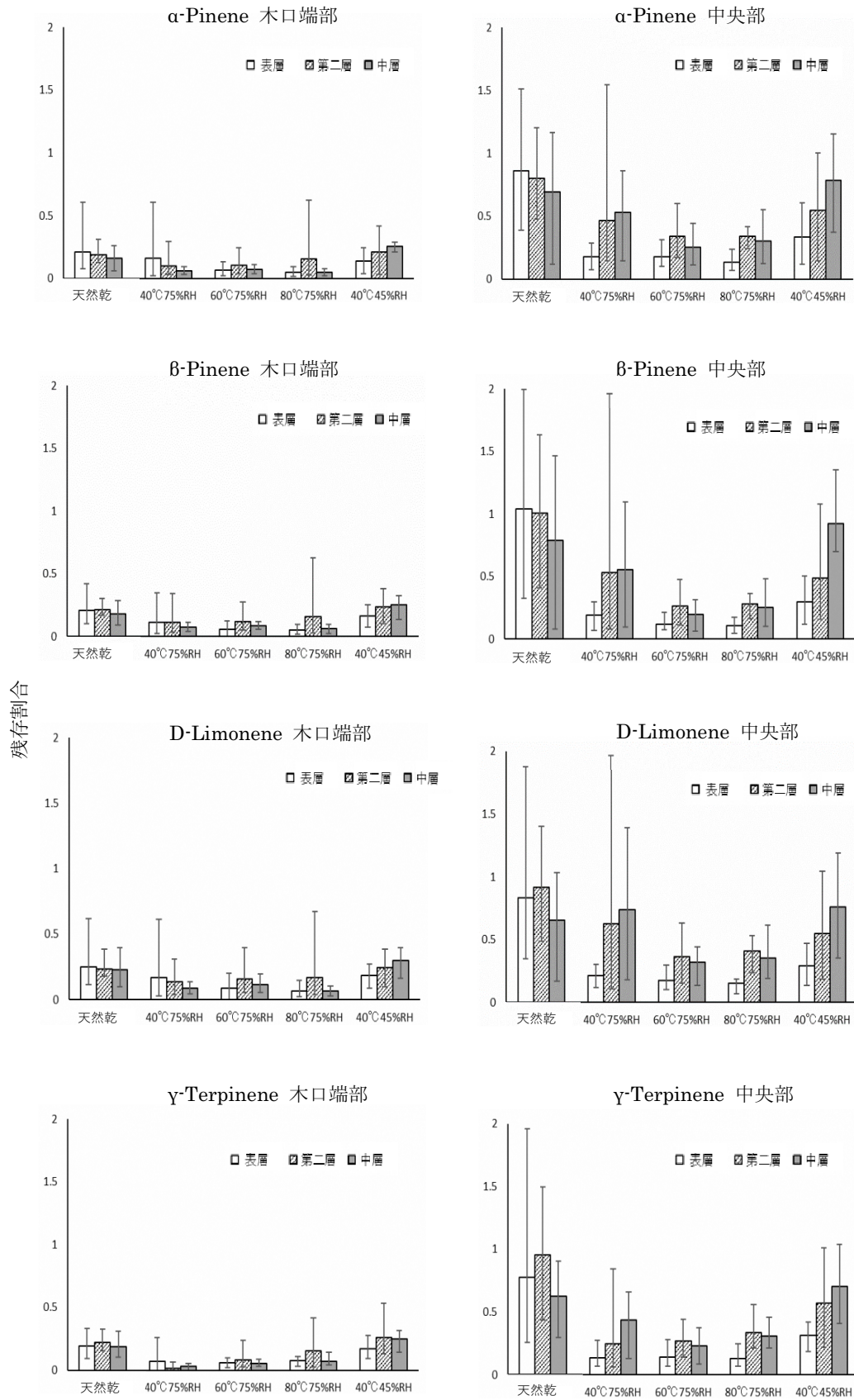
セスキテルペン類であるδ-Cadineneの残存割合の平均値を図-7に示す。ディスタンスバーは、5個体の最大値、最小値を表している。

木口端部では、天然乾燥が、いずれの層でも残存割合が高く10割程度であった。他の乾燥条件では、乾燥温度が低いほど残存割合が高くなる傾向があり、40℃乾燥では中層で5割以上残存していた。

中央部では、天然乾燥材が、表層、第2層で残存割合が10割を超えており、中層よりも高くなった。その他の乾燥条件では、40℃45%RH乾燥を除きいずれも第2層の残存割合が高くなる傾向であった。特に、40℃75%RH乾燥で最も高くなり、第2層で10割以上残存していた。その他の乾燥条件でもほかの成分に比べると残存割合が高く、80℃75%RH乾燥でも第2層は10割近く残存した。

(3) 考察

部位ごとの違いをみると、いずれの成分、乾燥条件でも、木口端部は中央部に比べ残存割合が低くなる傾向があり、テルペン類も水分同様、乾燥に伴い仮道管を通じ木口面から揮発減少しやすいことが示唆された。また、中央部では、層ごとの残存割合に違いがあり、多くの成分で表層の残存割合が低くなる傾向がみられた。表層も、



図ー5 モノテルペン類の各種乾燥条件で乾燥したときの各部位における残存割合

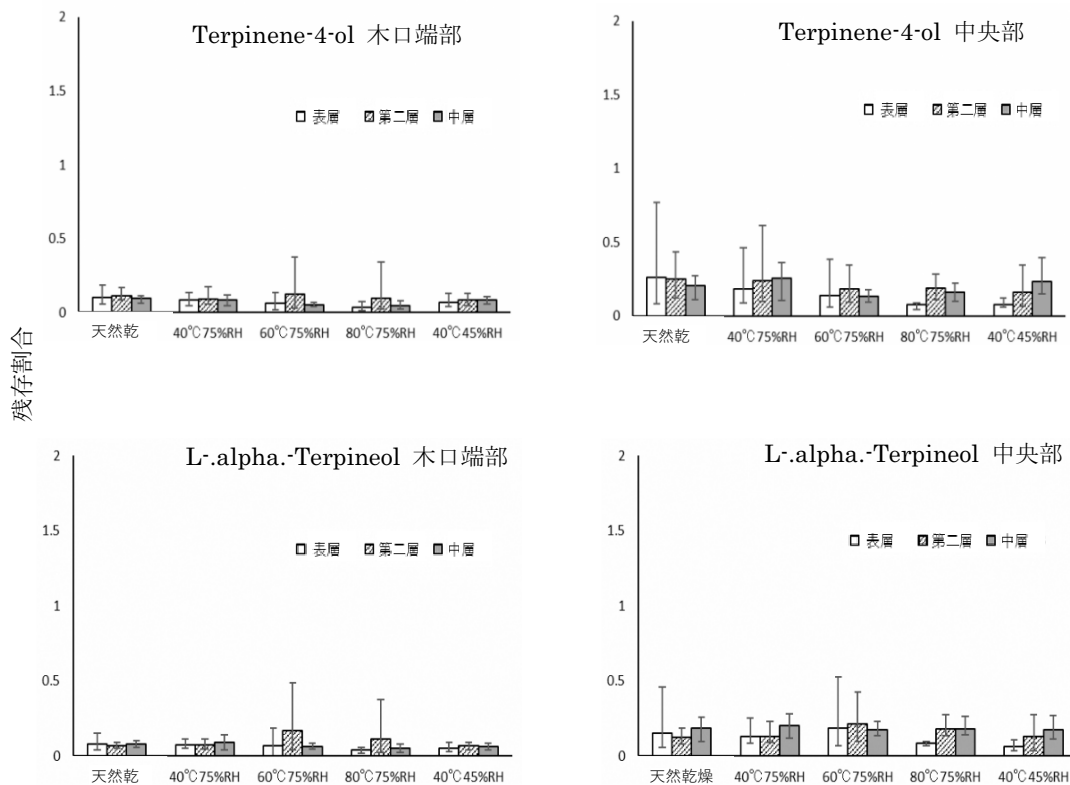


図-6 モノテルペンアルコール類の各種乾燥条件で乾燥したときの各部位における残存割合

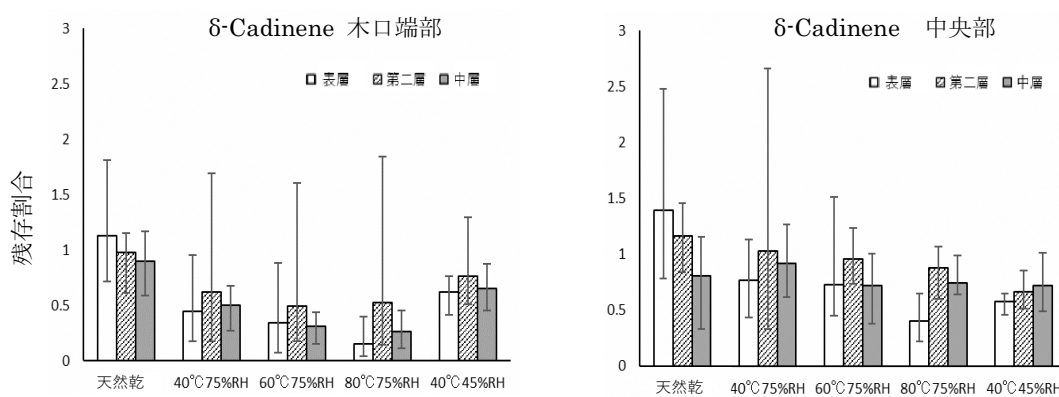


図-7 セスキテルペン類の各種乾燥条件で乾燥したときの各部位における残存割合

木口端部と同様に、成分の揮発減少が進みやすいと考えられる。これらの結果から、香りを活かした製品を加工する際には、乾燥後に表面を2mm程度切削すると香り成分を多く有した面を露出することができる可能性が示唆された。

成分ごとに乾燥条件の違いをみると、モノテルペン類については、天然乾燥が、他の乾燥条件に比べ残存割合が高くなった。また、40℃乾燥では2層以降の残存割合が5割を超えており、40℃までの乾燥であれば、モノテルペン類の揮発を抑制できる可能性が示唆された。また40℃乾燥でも低湿度の乾燥条件の方が、残存割合は高くなったが、これは低湿度の乾燥の方が乾燥に要する時間が短かったことなどが原因と考えられた。低温低湿度の乾燥条件が、香りを残す乾燥方法として有効であると思われた。

モノテルペンアルコール類は、乾燥温度、部位によらず一律に残存割合が小さくなり、他の成分と明らかに異なる傾向を示した。水酸基を有しているこれらの成分は、他の成分に比べ水に溶けやすいと考えられるため、乾燥過程における水分の移動や蒸発に付随する形で材内部からも多く減少したのではないかと推察された。

セスキテルペン類は、モノテルペン類や、モノテルペンアルコール類に比べるといずれの乾燥条件でも残存割合が高くなる傾向を示した。これは分子量の大きいセスキテルペン類の沸点がモノテルペン類等に比べ高いことによると考えられた。特に中央部の第2層以深においては、80℃の乾燥でも7割以上残存しており、通常の中温乾燥によるセスキテルペン類の揮発減少はわずかであると思われる。また、天然乾燥と40℃45%RH乾燥を除くいずれの乾燥条件でも、第2層の残存割合が最も高くなった。その理由として、材内部にあった成分が乾燥中に移動して表層付近に集積している可能性が考えられたが、詳細は不明である。

残存割合のばらつきについては、残存割合が最大で生材の3倍程度となる個体がみられた。これらのばらつきの原因は、抽出操作における不備の可能性もあるが、個体内での成分のばらつきが影響を与えた可能性もある。抽出成分が香りや耐朽性に与える影響を研究する上では、ヒノキの個体内における抽出成分のばらつきについての知見を集積することも、今後の課題の一つである。

IV まとめ

本研究では、ヒノキ材の乾燥時における香りの変質の要因としてテルペン類の残存割合に着目し、乾燥条件を変えて部位ごとに各成分の残存割合を求め、以下の結果を得た。

- (1) 木口端部および表層で、香り成分の揮発減少が大きい。表層では、乾燥後2mm程度の切削が香り成

分を多く含んだ面の露出に有効であると考えられる。

- (2) モノテルペンアルコール類は、他の成分と異なり、乾燥条件、部位によらず残存割合が低く、いずれの乾燥条件でも失われやすい。
- (3) 乾燥温度が高くなると乾燥時間は短くなるが、特にモノテルペン類の残存割合が低下する傾向にある。40℃以下の低温で乾燥することで、香り成分の残存割合が高められる可能性がある。
- (4) 40℃乾燥でも、低湿度条件の場合には、モノテルペン類の残存割合が高かった。これは乾燥に要した時間が短かったためと思われた。
- (5) なるべく早く乾燥したいという経済的合理性からも、低温低湿度での乾燥は、香りを残す最も有効な乾燥方法である可能性が示唆された。

今後これらの結果を踏まえて、香り成分をなるべく減少しない乾燥方法について、より具体的に検討していきたい。

引用文献

- 原田千聡・鍵直樹・西岡実実・東賢一・柳宇・大澤元毅・金勲・長谷川兼一・萬羽郁子(2017) 木材から発生するVOCの特徴と住宅における実測調査. 空気調和・衛生工学会大会学術講演論文集第7巻: 77-80.
- 野上英孝(2014) 日本木材学会中国・四国支部第26回研究発表要旨集. 20-21.
- 農林水産省(2022) 令和3年木材統計. 21pp.
- Ohira, T., Park, B. J., Kurosumi, Y. and Miyazaki, Y. (2009) Evaluation of dried-wood odors: comparison between analytical and sensory data on odors from dried sugi wood. *J wood Sci* 55: 144-148.
- 奥田拓・中川敏法・村野朋哉・三好悠・亀井裕人・佐々木隆雄・三枝康弘・和田善行・湊俊司・阪井彰一・千里泰三・藤本登留・清水邦義(2017) 乾燥処理がスギ板材の抽出成分に与える影響中温乾燥によるテルペン類の量的変化. *木材学会誌* Vol.63, No.5: 204-213.
- 澁谷栄(2008) 抽出成分による木材の生物劣化抵抗性. *木材保存* 34(2): 48-54.
- 山田建太・武田圭斗・佐藤真・高田勝己・村上篤司(2017) ヒノキ間伐材抽出成分の組成分析. *常葉大学社会環境学部紀要* 4: 31-42.
- 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* Vol. 63, No. 2: 86-97.
- 谷田貝光克(1997) 木材と感性4. におい感覚と木材. *J.Soc.Mat.Sci., Japan* 46: 1222-1227.
- 谷田貝光克(2008) 森の香り・木の香り その正体と働き. におい・かおり環境学会誌38巻6号: 428-434.