

木材乾燥における芳香蒸留水の有用成分利用（第1報）

芳香蒸留水の精油量について

伊藤国億^{*1}, 瀨瀬正憲^{*2}

Effective Use of Aromatic Distilled Water by Drying Wood (I) Essential Oil Amount of Aromatic Distilled Water

ITO Kuniyasu^{*1}, KOUKETSU Masanori^{*2}

木材乾燥時に回収される芳香蒸留水に含まれる精油成分を調査するため、ラボ乾燥試験では75℃乾燥スケジュールの背割り材乾燥と90℃乾燥スケジュールの板材乾燥を、実大乾燥試験では高温セット乾燥とラボ乾燥スケジュールと同じ背割り材乾燥を行った。

芳香蒸留水中の主要な精油成分は水蒸気蒸留で得られる芳香蒸留水の精油成分と変らなかったが、精油含有量は背割り材乾燥において乾燥が進むにつれて減少し、板材乾燥においては僅かに増加した。実大乾燥試験の背割り材乾燥ではラボ乾燥試験と異なってシトロネロールや α -ムウロロールが、高温セット乾燥では α -テルピネオールが主要であった。

1. 緒言

スギ、ヒノキなどの住宅用材は材内の含水量を減らすため乾燥処理されて市場に供給されているが、その乾燥過程で材内の水分が排出蒸気となって多量に生じている。この排出蒸気には木材由来の精油等が含まれているが、排出蒸気を回収して精油を利用することはほとんどない。我々は、未利用資源かつ副生産物である排出蒸気中の精油を回収するため、木材乾燥をラボスケールから実大スケールまでを行い、その成分や収量を検証¹⁾した。こうしたなか、精油回収の際に精油量よりも多く回収される芳香蒸留水の活用に着目した。芳香蒸留水は僅かながら精油成分を含んでいると言われているが、木材乾燥における芳香蒸留水の精油量を調査した事例は殆どない。そこで今回、芳香蒸留水量やその精油量を調査することにした。

2. 実験方法

2.1 ラボ乾燥試験

ヒノキ (*Chamaecyparis obtuse*) は飛騨産心持ち材 (135×135×4100mm) 3本をそれぞれ長さ400mmにカットし、交互に板材乾燥及び柱材 (背割り材) 乾燥に用いた。1本ごとにカットした内の

4個は4枚に等分割 (約32×135×400mm) して計16枚 (材積; 約0.028m³) として板材用に、残りの6個 (材積; 約0.044m³) は背割り材として柱材用に木取りし、乾燥試験をそれぞれ3回ずつ行った。試験は当所の木材乾燥装置を用い、板材乾燥は先の研究¹⁾と同じ乾燥スケジュールで行い、背割り材乾燥は最大75℃、144時間の乾燥スケジュールで行った。各乾燥スケジュールの時間を等間隔に3回に分けて芳香蒸留水と精油を回収した。また、端から50mmを切り落とした残材から10×20mm、厚さ3-5mm程度にしたチップ材を調製した。チップ材約150gをガラス器具の水蒸気蒸留装置に入れて、蒸留温度90±2℃、冷却温度5℃、20時間で水蒸気蒸留し、芳香蒸留水と煮沸水を得た。

2.2 実大乾燥試験

先の研究²⁾と同様に精油回収装置を設置した木材乾燥機 (エノ産業(株)社製、材積max.16.5m³) を用い、ヒノキ無背割り材の高温セット乾燥とラボ乾燥試験と同じ乾燥条件の背割り材乾燥 (以後、背割り材乾燥 (実大) とする) を行い、芳香蒸留水を回収した。また、芳香蒸留水量を測るため、装置の精油貯留槽の排出口に流量計を設置した。

2.3 芳香蒸留水の精油分析

固相抽出カートリッジ (GLサイエンス社製, InertSep RP-1) を用いて芳香蒸留水中の精油の

*1 試験研究部 *2 交告製材(株)

抽出を行った。コンディショニングしたカートリッジに芳香蒸留水100ml又は200mlを流し、蒸留水で洗浄後、窒素雰囲気下で脱水した。これにメタノール（純正化学社製）を流して溶出した抽出液をエバポレーターで濃縮し、窒素雰囲気下でメタノールを除去した。

2.4 精油分析

GCMS（島津製作所社製,GCMS-QP2020NX）を用いて、メタノールで5mlにメスアップした抽出液を表1に示す分析条件で測定した。なお、n-アルカン（林純薬工業社製 C7-C33）を同様に測定してリテンションインデックス（RI）を作成し、精油のマスマスペクトル・データベースのGCリテンションインデックスおよびNISTライブラリより精油成分を定性した。

表1 GCMS分析条件

GC/MS	Shimadzu GCMS-QP2020NX
測定モード	SCAN
キャリアガス	He、140kPa
スプリット比	10:1
オープン	50°C-(3°C/min)-300°C
カラム	DB-5 (30m×0.25mm i. d. ×0.25 μm)
MS 温度	300°C
検出器	0.7kV

3. 結果及び考察

3.1 芳香蒸留水の測定

ラボ乾燥試験で回収した各乾燥の時間帯における芳香蒸留水量の平均値を図1に示す。板材乾燥は乾燥が進むにつれて芳香蒸留水量は減少し、ロット間の回収量のばらつきは乾燥前期が最も大きかった。背割り材乾燥は後期のばらつきが大きかったが、これは試験1回目（後期）において回収装置の貯留タンクとして用いた分液ロートからの漏水によるものと考えられた。これを考慮すれば、乾燥が進むほど回収量が増加すると推察され、乾燥条件によって芳香蒸留水の回収量は大きく異なる。乾燥スケジュールの乾湿球差によるものと考えられ、板材乾燥では乾湿球差を5°C差から10°C差まで設けたが、背割り材乾燥では乾湿球差を最大20°C差まで大きく設けたため、乾燥が進むほど排出される蒸気量が多くなり、回収量が増加したと考えられる。

実大乾燥試験では、高温セット乾燥のセット時における芳香蒸留水量は1,717L (104L/m³) とラボ乾燥試験よりも多かった。ラボ乾燥試験に比べて

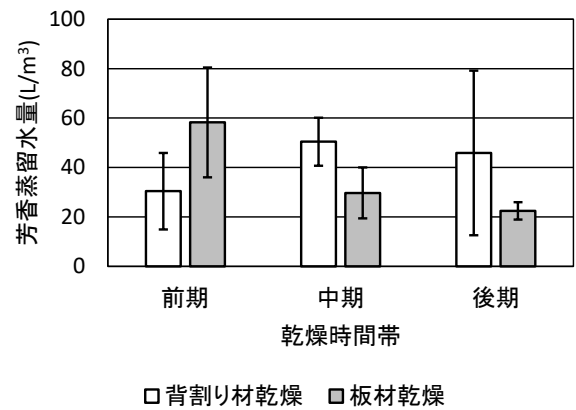


図1 各乾燥における芳香蒸留水量

高温セット乾燥のセット時は温度が高く、材含水率が急激に低下することから、この間の水分蒸発量は多くなる。また、蒸気の供給元は、ラボ用の木材乾燥装置では木材以外に湿球用のウィックパン内の僅かな水だけであるが、木材乾燥機は機内の湿球温度が過度に低下すると、スプレーが適宜入って蒸気量が増加する。これらのことから、実大乾燥試験の芳香蒸留水量が多くなったと推察された。

なお、実大乾燥試験では高温セット開始から3時間を超えても常時、精油回収装置の貯留槽排出口から芳香蒸留水が流れた。流量計の口径が小さく、排出速度が遅くなったことが原因であったが、今回は貯留槽のオーバーフローまでは至らなかった。また、冷却槽から貯留槽に流入する芳香蒸留水により、貯留槽に溜まった上層部の精油は常に攪拌し、貯留槽排出口から流出する懸念があった。従って、流量計による芳香蒸留水量の計測はこれ以降取り止めた。

3.2 芳香蒸留水中の精油成分

板材乾燥（前期）により回収した芳香蒸留水の抽出液と水蒸気蒸留により回収した芳香蒸留水及び蒸留時の煮沸水から抽出した溶液をGCMS分析に供して得られたクロマトグラムを図2に示す。図2の保持時間38分までのピークは板材乾燥の抽出液（図2上）と水蒸気蒸留の抽出液（図2中）と殆ど同じであったが、保持時間38分以降のピークは各抽出液で異なり、板材乾燥では多数のピークが検出された。また、蒸留装置に残留した煮沸水の抽出液（図2下）は板材乾燥や水蒸気蒸留とは異なる保持時間（位置）にピークが検出された。このことから、保持時間38分までのピークは木材由来であり、板材乾燥の保持時間38分以降のピークは木材由来でない可能性が推察された。

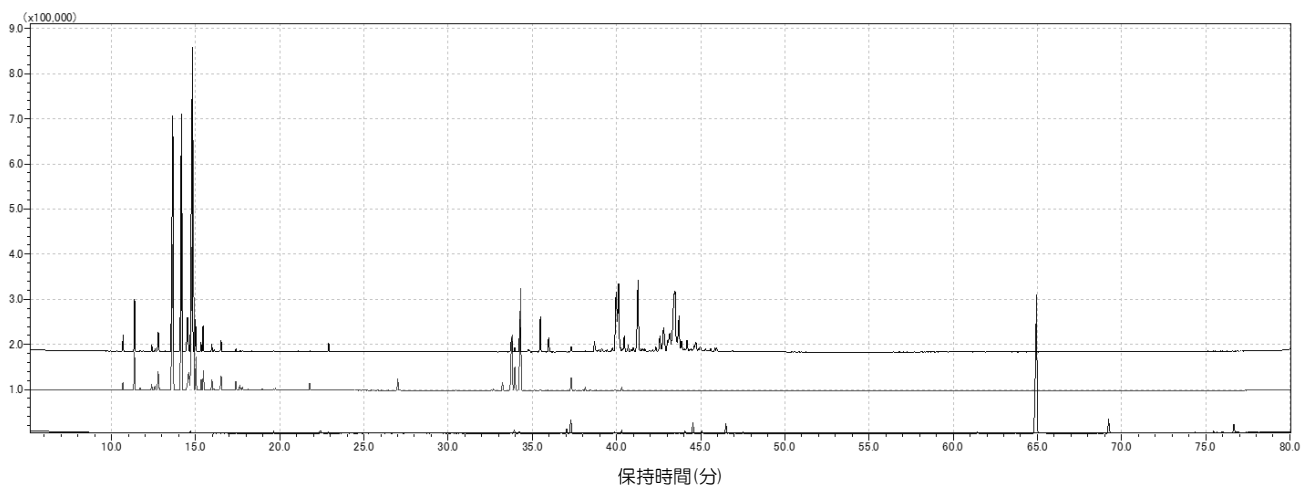


図2 芳香蒸留水等の抽出液のクロマトグラム(上:板材乾燥前期、中:水蒸気蒸留、下:煮沸水)

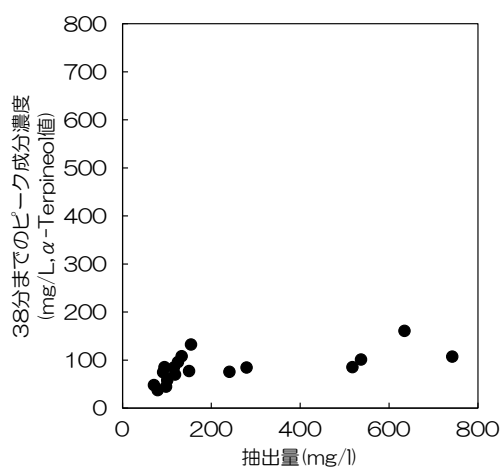


図3 抽出量とGCMSによる保持時間38分までのピーク成分総量

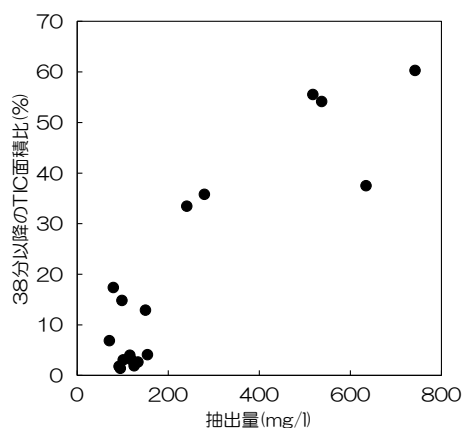


図4 抽出量とGCMSによる保持時間38分以降のピーク面積比

表2 水蒸気蒸留で回収した芳香蒸留水の精油成分

成分名	※ 成分量 (mg/L)	RI		類似度
		サン プル	ライ ブラ リ	
Fenchol<endo->	2.5	1142	1145	92
Camphene hydrate	1.7	1162	1165	93
Borneol	15.5	1174	1174	92
Terpinen-4-ol	17.7	1184	1179	90
Cymen-8-ol<para->	2.5	1190	1186	94
Terpineol<alpha->	36.0	1194	1194	95
Myrtenol	2.2	1204	1204	90
Citronellol	1.6	1227	1223	86
Verbenone	1.4	1622	1627	87
Murrolol<epi-alpha->	6.9	1637	1640	93
Muurolol<alpha->	2.1	1641	1644	92
Cadinol<alpha->	10.0	1650	1652	93

※ α -テルピネオール換算値

また、芳香蒸留水からの抽出量とGCMSによる保持時間38分までのピークを合算した成分量 (α -テルピネオール換算値) を図3に、抽出量と38分以降のTICピーク面積比 (%) を図4に示す。図3に示すように抽出量の多かったサンプルにおいても保持時間38分までの成分量は200mg/L未満であり、図4に示すように保持時間38分以降のピークが大

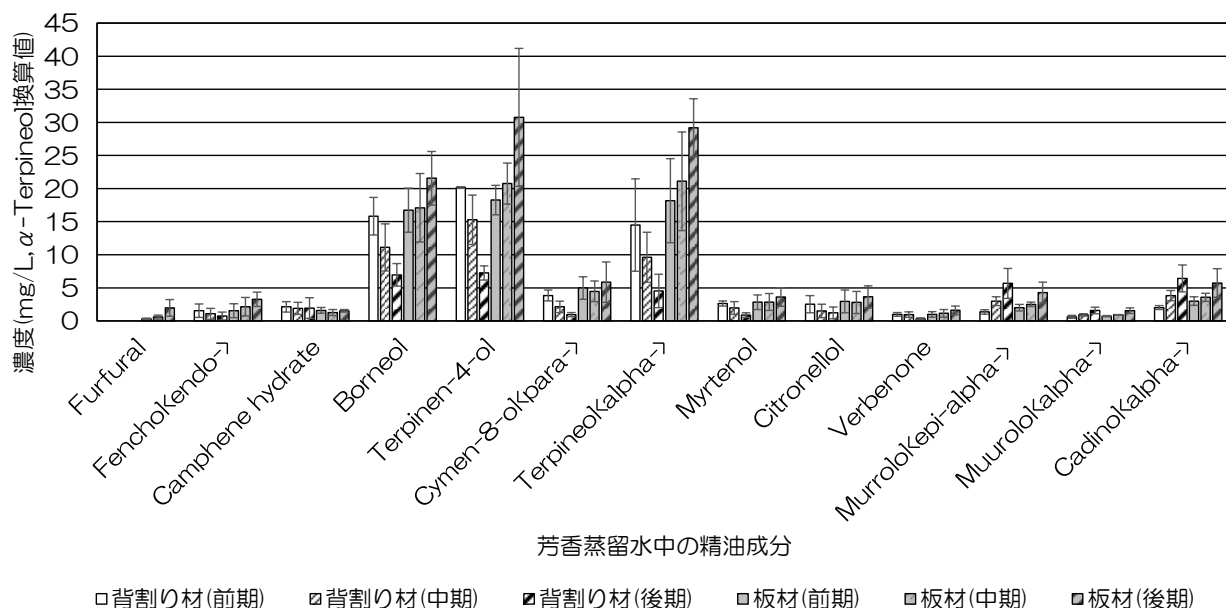


図5 芳香蒸留水抽出液の主な精油成分量

表3 実大乾燥試験による芳香蒸留水中の精油量 (α-テルピネオール換算値, mg/L)

成分名	背割り材乾燥(実大)	高温セット乾燥 1回目		高温セット乾燥 2回目
		乾燥後	セット後	乾燥後
Furfural	0.4	2.6	1.5	1.2
Fenchol<endo->	1.9	2.5	2.8	5.0
Camphene hydrate	N.D.	0.3	N.D.	0.5
Borneol	2.3	9.7	6.2	18.3
Terpinen-4-ol	1.2	10.4	5.8	16.6
Cymen-8-ol<para->	3.0	2.3	3.5	0.0
Terpineol<alpha->	0.5	39.2	29.2	72.6
Myrtenol	1.4	1.9	1.2	2.6
Citronellol	8.6	2.3	1.5	3.5
Verbenone	N.D.	0.6	N.D.	1.3
Murrolol<epi-alpha->	3.1	4.5	5.1	5.9
Muurolool<alpha->	13.5	1.7	2.0	1.8
Cadinol<alpha->	3.1	7.3	8.0	7.7

きいほど抽出量が多かった。つまり、木材由来とされる抽出成分量は200mg/L未満であったが、抽出量が増加したサンプルには木材由来でない

推察される夾雑物が多く含まれたと考えられ、夾雑物の原因が木材乾燥装置または精油回収装置由来と推察された。

水蒸気蒸留の芳香蒸留水抽出液のGCMS分析によりピーク面積比が1%以上あった成分を同定した(表2)。また、各乾燥における回収した芳香蒸留水中の精油成分量との比較を図5に示す。芳香蒸留水中の精油成分量は乾燥条件により僅かに異なった。背割り材乾燥では主要なボルネオールやテルピネン-4-オール、α-テルピネオールは乾燥が進むにつれて含有量が減少した。一方、板材乾燥ではボルネオールやテルピネン-4-オール、α-テルピネオールなど殆どの成分においてその含有量は僅かな増加傾向がみられた。また、フルフラールが検出され、乾燥が進むにつれて含有量が高まった。乾燥時の熱劣化によりごく一部のヘミセルロースが分解されたことによると考えられる。

背割り材乾燥(実大)および高温セット乾燥における芳香蒸留水中の精油量を表3に示す。背割り材乾燥(実大)の精油は同条件のラボ乾燥試験では未検出であったフルフラールが検出された。実大乾燥試験では高温セット乾燥もしていること、十分な洗浄や換気が困難であることから、乾燥機や装置などの残留成分の可能性が考えられる。また、背割り材乾燥(実大)ではシトロネロールやα-ムウロロールが多く、これら成分が多い原因は不明である。高温セット乾燥ではセット後および乾燥後に回収した芳香蒸留水の精油成

分に差は余りなかった。高温セット乾燥ではセット時のみ冷却しているため、セット以降に蓄積される芳香蒸留水は20L未満と僅かであった。芳香蒸留水は精油回収装置の冷却槽に約30L程度貯留される設計であることから、セット前後の芳香蒸留水が合わさって成分比に差が出なかったと考えられる。また、他の乾燥試験と比べて α -テルピネオール成分割合が高かった。

4. まとめ

木材乾燥時に回収される芳香蒸留水量やこれに含まれる精油成分量を調査するため、ラボ乾燥試験では75℃乾燥スケジュールの背割り材乾燥と90℃乾燥スケジュールの板材乾燥を、実大乾燥試験では高温セット乾燥とラボ乾燥スケジュールと同じ背割り材乾燥を行った。

回収される芳香蒸留水量は乾燥スケジュールによって異なり、板材乾燥では乾燥初期ほど芳香蒸留水量が多かったが、背割り材乾燥では反対に乾燥後期ほど増加する傾向がみられ、乾燥スケジュールによる乾湿球温度差が影響したものと考えられた。また、実大乾燥試験ではラボ乾燥試験よりも芳香蒸留水量が多く、セット時の材中の水分蒸発量や乾燥機のスプレーによる影響と推察された。

芳香蒸留水中からの精油抽出では木材由来と考えられる抽出物量は200mg/L未満であったが、一部に抽出量の多いサンプルがみられた。これは

木材乾燥装置または精油回収装置由来の夾雑物に伴う増加と考えられた。抽出物中の精油を分析した結果、精油成分は殆ど変わらなかったが、乾燥温度や時間帯により精油の成分比は異なった。乾燥温度が高く、熱履歴が長いほどフルフラール量が増加した。また、背割り材乾燥では乾燥が進むにつれてテルピネン-4-オールなどのモノテルペンアルコール含有量が減少し、板材乾燥ではこれらの成分に僅かな増加傾向がみられた。背割り材乾燥（実大）では同じ乾燥条件のラボ乾燥試験と異なってシトロネロールや α -ムウロロールが、高温セット乾燥では α -テルピネオールが主要であった。実大乾燥試験は試験数が少ないことから、追試験を今後行う予定である。

参考文献

- 1) 伊藤国億ほか：香りでやすらぐ木工製品の開発 木材乾燥における排出蒸気中の精油成分について、岐阜県生活技術研究所研究報告、No.18, pp.5-9, 2016.
- 2) 伊藤国億ほか：香りでやすらぐ木工製品の開発（第3報）木材乾燥における排出蒸気中の精油回収について、岐阜県生活技術研究所研究報告、No.20, pp.6-9, 2018.
- 3) 伊藤国億ほか：香りでやすらぐ木工製品の開発（第5報）木材乾燥による精油回収実証試験について、岐阜県生活技術研究所研究報告、No.22, pp.1-4, 2020.