色彩測定によるトレファクション木材チップの 半炭化の程度の推定^{*1}

久保島吉貴^{*2}, 柳田高志^{*2}, 吉田貴紘^{*2}, 木口 実^{*2}

Simple Estimation Method for Determining Weight Reduction in Torrefied Wood Chips by Color Data^{*1}

Yoshitaka KUBOJIMA^{*2}, Takashi YANAGIDA^{*2},
Takahiro YOSHIDA^{*2} and Makoto KIGUCHI^{*2}

In this study, we investigated the relationship between weight reduction and color change in torrefied wood chips. We heated Japanese cedar (*Cryptomeria japonica* D. Don) heartwood and sapwood specimens with dimensions of 29 mm × 29 mm × 5 mm at 200 °C, 230 °C, and 250 °C for 0 - 360 min and then obtained color data. We found correlations between L^* and the oven-dry weight ratio after/before heating (W/W_0), L^*+a^* and W/W_0 , and L^*+b^* and W/W_0 . The values of L^* , L^*+a^* , and L^*+b^* after torrefaction were suitable for accurately and simply estimating the weight reduction of the torrefied chips. Both heartwood and sapwood samples can be used for these estimations without the need to separate them because we found the relationships between the color data and W/W_0 for the heartwood to be very similar to those for the sapwood. However, it is necessary to separate the LR-, LT-, and RT-planes because their corresponding color data and W/W_0 were not similar. Although the torrefied chips become darkened, their grains remain visually distinguishable.

Keywords : color, torrefaction, weight reduction, wood chip.

トレファクションチップの炭化の程度を正確かつ簡便に得る方法を開発する目的で、半炭化処理された木材の重量減少と色彩の関係を検討した。29 mm×29 mm×5 mm の全乾状態の試験体を温度 200, 230 および 250 °C、保持時間 0-360 分の条件で加熱した。加熱前後で色彩測定を行い測色値 L^* , a^* および b^* を得た。その結果、加熱後は、まさ目面、板目面および木口面において心材と辺材の結果は重量比（加熱後全乾重量／加熱前全乾重量）に対して同一の曲線上に存在すると見なすことができた。炭化の程度を示す指標としては L^* , L^*+a^* および L^*+b^* が適当であった。トレファクションチップの半炭化の程度を色彩測定から推定する際に、試験体として心材と辺材を区別することなく両方を使用できることが分かった。しかしながら木取り面によって早晚材のパターンが異なることから色彩試験に用いるチップの木取りを決めておく必要がある。

^{*1} Received December 21, 2016; accepted February 17, 2017.

^{*2} 国立研究開発法人森林総合研究所 Forestry and Forest Products Research Institute
Corresponding author: Y. Kubojima (kubojima@ffpri.affrc.go.jp)

1. 緒 言

木質ペレットは木材粉碎物を直径6～8 mm, 長さ10～30 mm の円柱状に圧縮成型した固形燃料であり, その長所としては, 取扱いしやすいこと, 低含水率であること, 燃焼装置の自動化・小型化が可能であること, および減容化により輸送効率が向上することなどが挙げられる。一方, 発熱量が化石資源より低いこと, 製品価格が薪やチップに比べて高いこと, および水に弱いことなどの欠点がある。耐水性に関しては, 木質ペレットを浸水すると数十秒でばらけて元の木紛に戻ってしまう。特に多雪地方ではサイロに保管時に内壁が結露し, 結露水がペレットの膨潤・崩壊を引き起こすことで, 供給系のトラブルが生じることがある¹⁾。

耐水性に関する欠点を克服する方法としてトレファクション(半炭化処理)が期待される。トレファクションとは, 元来コーヒー豆などの焙煎を意味し, 従来の炭化温度(800～1000℃)よりも低い温度領域(250～300℃)で酸素を遮断した条件での熱処理である。ペレットの原料の木材チップをトレファクションすることにより, ペレットの発熱量を1～3割程度向上させるとともに, 耐水性を向上させることが可能となっている^{2, 3)}。ペレットの成型にはチップを粉碎した粉体原料が用いられるが, トレファクションによりチップが脆くなる結果, チップの粉碎エネルギーを最大9割低減可能であることも明かとなっている²⁾。

トレファクション原料を用いたペレット(トレファクションペレット)の製造において, 原料チップのトレファクションの程度はペレットの出来具合に対して大きな影響を及ぼす。すなわち, 半炭化の程度が不十分な場合は上記のトレファクションペレットとしての性能が十分に付与されない。また炭化が進み過ぎるとペレット成型に際して原料がペレットの形状にしっかりと固まらなくなる。半炭化の程度としてチップのトレファクション前後の全乾重量比が用いられており, 下限値すなわち原料がペレットの形状に固まらなくなる値は経験上0.7程度である⁴⁾。

トレファクション燃料のプラント実証は世界各地で行われているが¹⁾, わが国でも小規模であるが行われている。例えば神奈川県伊勢原市に設置された実証プラント⁵⁾では, フレコンバッグ(容量1 m³)に入った生材状態のチップ(重さ約250 kg)がトレファクション用のロータリーキルン(内径0.55 m, 長さ5.6 m)に投入され, キルンの中でチップの乾

燥(全乾状態になると考えられる)とトレファクションが行われる。製造されたトレファクションチップは容量200 リットルのドラム缶に回収される。半炭化の程度は, チップのキルンへ投入前の含水率を推定し, それを基にフレコンバッグ内のチップの全乾重量を算出し, トレファクション後に回収されたチップの重量と比較することによって推定している⁵⁾。

この方法の場合, 投入前のチップの含水率が推定値となるため得られる半炭化の程度の精度が必ずしも高くはなく, また大量のチップの重量測定にも手間を要する。従って, チップの半炭化の程度を正確かつ簡便に得る手法が求められている。手法としては, チップの含水率がトレファクション前後で著しく異なること, また測定回数が少ない方がよいことなどから, トレファクション直後のみの測定だけで済むものが適当である。このことに当てはまるものの一つとしてチップの色彩が挙げられる。

木材の熱処理による材色の変化については数多くの研究があり⁶⁻¹⁸⁾, 明度 L^* と色度 a^* の和とホロセルロース含有率に相関関係が存在すること⁸⁾, 色相角により炭化燃料の高位発熱量を予測できること¹⁶⁾, および明度 L^* と色度 b^* の和と重量減少および L^* , a^* , b^* と重量減少に相関関係が存在すること^{7, 10)}, また L^* と a^* を用いて質量収率を推定するための実験式¹⁷⁾などが報告されている。

そこで, 本研究では, 半炭化処理された木材の色彩と重量減少の関係を利用することによってトレファクションチップの半炭化の程度を正確かつ簡便に得る方法を開発することを目的とした。

2. 実 験

2.1 試験体

スギ材(*Cryptomeria japonica* D. Don)を用いた。切削チップを想定し, 29 mm(L)×29 mm(R)×5 mm(T)(まさ目面試験体), 29 mm(L)×29 mm(T)×5 mm(R)(板目面試験体)および29 mm(R)×29 mm(T)×5 mm(L)(木口面試験体)をそれぞれ心材(赤心)と辺材について作製した。試験体は1つの加熱条件につき4体用いた。

2.2 加熱処理

試験体4枚を, 互いの29 mm×5 mmの面どうしが接するようにして耐熱容器(耐圧硝子工業株式会社製ポータブルリアクター TVS-N2-100, 内部は直径30 mm, 長さ170 mmの円筒状, 実容積117 cm³)に入れ, 耐熱容器を加熱炉(株式会社いすゞ製作所製自然対流式恒温器こすもす SSN-115)内に設置し

た。耐熱容器には熱電対を挿入するための直径2 mmの温度計保護管が取り付けられていて、耐熱容器の内部に挿入される (Fig. 1)。

Fig. 1. Portable reactor used for heating.

加熱炉内温度と耐熱容器の温度をシース型 K タイプ熱電対 (安立計器株式会社製 B1.0-K-J1-M1-L10-TC2-WT3) により測定し、記録計 (株式会社東京測器研究所製ポータブルデータロガー TDS-303) により 1 分間隔で記録した。加熱条件は、温度 200 °C, 210 分 (設定温度での保持時間), 230 °C, 0 分, 250 °C, 0, 30, 120, 240, 360 分の 7 条件であった。本研究の加熱条件においては、主に熱減成と熱分解が生じ¹⁹⁾、木炭化が始まっている可能性もある。上述の実証プラントにおいて原料チップの投入の際にロータリーキルン内に空気が入ることを考慮して耐熱容器内の気体の置換は行わなかった。また、予備実験において加熱前の試験体の含水率が気乾状態の場合、加熱処理によって試験体が非常に脆くなり容器から試験体を取り出したときに既に割れているという現象が頻繁に生じたため、加熱処理前の試験体含水率は全乾に近くなるように (後述のように約 2%) した。設定温度で所定の時間保持した後、加熱炉のヒータを切り、容器を室温まで自然冷却した。保持時間 0 分の処理は、耐圧容器が設定温度に達した直後から自然冷却を開始するというものであり、重量比 0.9 を達成する目的で行なった。

2.3 色彩測定

コニカミノルタ株式会社製色彩色差計 CR-400 のセンサヘッドを試験体の 29 mm × 29 mm の面の表裏の各中央部合計 2 箇所に当て、測色値 L^* , a^* および b^* を得た。観察光源には標準イルミナント D65 を用いた。これは紫外域を含む昼光で照らされている物体色の測定用光源で、CIE および ISO で規定された標準光である²⁰⁾。また、視野角は 2 度、測定孔径は 8 mm であった。色彩の測定は加熱前後の 2 回行った。すなわち、気乾状態

→105 °C で全乾→重量測定→色彩測定→加熱処理→105 °C で全乾→重量測定→色彩測定という手順で行った。なお、1 回目の色彩測定から加熱処理の間に試験体の含水率は約 2 % まで上昇した。

3. 結果と考察

Table 1 に加熱前気乾状態の試験体密度を示す。

Table 1 Air-dry density before heating [kg/m³].

LR-plane, heartwood	338 (6)
LR-plane, sapwood	346 (5)
LT-plane, heartwood	338 (35)
LT-plane, sapwood	315 (19)
RT-plane, heartwood	331 (2)
RT-plane, sapwood	367 (3)

Notes: Average (standard deviation).

Fig. 2 に加熱過程における加熱炉と耐熱容器内の温度変化の一例 (設定温度 250 °C, 保持時間 360 分) を示す。昇温に 210 分、室温までの冷却に 600 分を要した。

Fig. 2. An example of temporal changes in temperature during heating (250 °C, 360 min).

Fig. 3 および Fig. 4 に色測値と重量比 (加熱後全乾重量/加熱前全乾重量) の関係を示す。重量比 1 は加熱前の値であることを示す。実験結果の重複による見にくさを低減する目的で辺材の加熱前の色彩測定の結果は横軸が 1.02 の箇所に示した。加熱前に心材と辺材の間において測色値のばらつきが大きかったことから、加熱前の結果は除去し、加熱後

Fig. 3. Relationship between color data (L^* , a^* , b^*) and oven dried weight ratio.

Fig. 4. Relationship between color data (L^*+a^* , L^*+b^*) and oven dried weight ratio.

Table 2. Constants for approximation of relationships between color parameters and oven-dry weight ratio (W/W_0) using an exponential function of $\exp\{a(W/W_0)-b\}+c$.

	Color parameter	a	b	c	r
LR-plane	L^*	3.21	-0.31	20.80	0.947
	a^*	2.58	0.11	-0.039	0.979
	b^*	4.28	1.03	1.20	0.989
	L^*+a^*	3.31	-0.47	22.78	0.963
	L^*+b^*	3.48	-0.62	20.57	0.974
LT-plane	L^*	3.31	-0.20	16.66	0.953
	a^*	2.85	0.21	-1.60	0.970
	b^*	6.45	3.18	2.09	0.977
	L^*+a^*	3.45	-0.38	17.01	0.969
	L^*+b^*	3.64	-0.47	14.57	0.970
RT-plane	L^*	3.07	-0.29	7.72	0.959
	a^*	2.69	0.099	-2.84	0.992
	b^*	3.29	-0.0079	-4.79	0.992
	L^*+a^*	3.18	-0.53	6.42	0.978
	L^*+b^*	3.46	-0.54	5.06	0.983

Note: r is coefficient of correlation.

の測色値と重量比について指数関数で近似した。パラメータおよび相関係数を Table 2 に示す。

Fig. 3 に測色値 L^* , a^* および b^* と重量比の関係を示す。 L^* および a^* は、加熱前は心材と辺材の間における相違が大きく、また特に L^* は、板目面では辺材の中においてもばらつきが大きかった。一方、加熱後は L^* , a^* および b^* 共にまさ目面、板目面および木口面において心材と辺材の結果は同一の曲線上に存在すると言えた。また、 L^* , a^* および b^* 共に木口面の値はまさ目面や板目面の値よりも小さかった。

木材の材色は主として心材色のことを指している、材色の基になる物質はほとんどが抽出成分であるため²¹⁾、抽出成分の少ない辺材に関して L^* と重量比、 a^* と重量比および b^* と重量比の関係が各々一本の曲線で表されたことは妥当であると考えられる。辺材の場合、加熱前に L^* のばらつきが大きかったのは試験体表面に現れている早晚材の割合の相違によるものと考えられる。このことは、Table 1 において板目面試験体の密度のばらつきがまさ目面試験体と木口面試験体よりも大きかったことから裏付けられる。さらに、 L^* , a^* および b^* と重量比の関係は心材と辺材で同一の曲線状になった。これは温度 210~230 °C、120~360 分の条件で窒素ガス中で加熱されたアカシアハイブリッド材の気乾材（重量比は 0.87 から 1）¹⁰⁾ と同様の傾向である。190 °C および 200 °C で熱処理されたパイン (*Pinus pinaster*

Ait.) の心材と辺材は目視ではほとんど判別できなかったという報告例も存在する¹⁵⁾。

木口面の L^* , a^* および b^* がまさ目面や板目面の値よりも小さかったのは、使用した色彩色差計が試験体の反射光を測定するタイプであることが影響していると考えられる。すなわち、木口面に存在する孔のために光の反射の量がまさ目面や板目面よりも少なかったことによると考えられる。

以上の結果を基に、既報^{7,8)} で検討されている測色値の和 L^*+a^* および L^*+b^* について重量比との関係を検討する。

Fig. 4 に L^*+a^* および L^*+b^* と重量比の関係を示す。 L^*+a^* および L^*+b^* は共に加熱前は心材と辺材の間における相違が大きく、特に板目面では辺材の中においてもばらつきが大きかったが、加熱後は、まさ目面、板目面および木口面において心材と辺材の結果は重量比に対して同一の曲線上に存在すると言えた。既報⁷⁾ では重量比が約 0.9 から 1 の範囲で L^*+b^* と重量比の間に正の相関関係があるとされている。本研究ではそれよりも広い範囲に渡ってまさ目面、板目面および木口面において L^*+b^* と重量比の間に相関関係が存在した。また、木口面の L^*+a^* および L^*+b^* はまさ目面や板目面の値よりも小さかった。以上の傾向は上述の L^* と重量比の関係と同様であった。さらに、重量比の減少と共に L^*+a^* と L^*+b^* の値が近くなった。

これらの傾向が得られた理由としてまず挙げられ

るのは、Fig. 3に示すように、木材の場合 L^* は一般的に a^* および b^* と比較して明らかに大きい値であるということである。また、重量比の減少に伴い a^* および b^* が近くなったため、重量比が小さくなると L^*+a^* と L^*+b^* の値が近くなったと考えられる。

以上より、炭化の程度を示す指標としては、比較的变化が大きいという点で L^* 、 L^*+a^* および L^*+b^* が適当である。また、Fig. 3および4において前述のベレットが成型できなくなる重量比0.7以下の範囲において回帰曲線がややフラットになり予測が不正確になる可能性がある。しかし、トレファクションは、熱暴走しないように注意しながら行われるので、半炭化が進み過ぎるよりは不十分になる可能性の方が大きい。実証プラントでは重量比0.75程度を目標として運転しているため、それ以上の範囲の重量比が推定できればよい。従って、 L^* 、 L^*+a^* および L^*+b^* と重量比の関係を半炭化の程度の推定に利用することは有効であると考えられる。半炭化の程度を色彩試験から推定する際に、試験体として心材と辺材を区別することなく両方を使用できると考えられる。ただし、 L^* -重量比、 L^*+a^* -重量比および L^*+b^* -重量比の曲線はまさ目面、板目面および木口面で互いに重複しないので、試験に用いるチップの木取りを決めておく必要がある。トレファクション木材チップの木目は、経験上目視により判断することができるので、それぞれの現場で用いる試験体の木取りを決めることが可能である。

Table 3に、本研究で得られたトレファクションによる重量比0.75に対応するおおよその L^* 、 L^*+a^* および L^*+b^* を示す。これらの値は試験体の樹種や使用する測定器により異なると考えられる。試験体の樹種や使用する測定器が異なる場合は本研究と同様にそれぞれの場合に対する L^* 、 L^*+a^* および L^*+b^* と重量比の関係をj得ることで色彩測定から簡便に重量比を推定できる可能性がある。

Table 3. Color parameters for oven-dry weight ratio = 0.75 (Wood species: Japanese cedar, Instrument: Konika Minolta CR-400).

	LR-plane	LT-plane	RT-plane
L^*	36	31	21
L^*+a^*	42	36	25
L^*+b^*	46	39	28

4. 結 論

トレファクションチップの炭化の程度を正確かつ簡便に得る方法を開発する目的で、半炭化処理された木材の重量減少と色彩の関係を検討し、以下の結果を得た。

1. L^* 、 L^*+a^* および L^*+b^* は、加熱前は心材と辺材の間における相違が大きく、また板目面では辺材の中においてもばらつきが大きかった。しかし、加熱後はまさ目面、板目面および木口面において心材と辺材の結果は、重量比（加熱後全乾重量／加熱前全乾重量）に対して同一の曲線上に存在すると見なすことができた。
2. 半炭化の程度を示す指標としては L^* 、 L^*+a^* および L^*+b^* が適当である。
3. トレファクションチップの半炭化の程度を色彩測定から推定する際に、試験体として心材と辺材を区別することなく両方を使用することができる。
4. L^* -重量比、 L^*+a^* -重量比および L^*+b^* -重量比の曲線はまさ目面、板目面および木口面で同一ではないので、色彩試験に用いるチップの木取りを決めておく必要がある。トレファクションチップの木目は目視により判断することができる。
5. 試験体の樹種や使用する測定器が異なる場合は、本研究と同様に測定を行いそれぞれの L^* 、 L^*+a^* および L^*+b^* と重量比の関係をj得ることで、色彩測定から簡便に重量比を推定できる可能性がある。

謝 辞

本研究は、平成25～28年度林野庁木質バイオマス加工・利用システム開発事業によって行われた。

文 献

- 1) 吉田貴紘, 佐野哲也, 大原誠資: トレファクションによる高性能木質ベレット「ハイパー木質ベレット」の技術開発. 木材工業 67(12), 560-565 (2012).
- 2) 吉田貴紘, 柳田高志, 久保島吉貴, 黒田克史, 上川大輔, 金子真司, 三浦 寛, 古澤仁美, 佐野哲也, 垂水亜紀, 井上真理子, 木口 実, 大原誠資, 野村 崇, 和多田弘樹, 田中孝二郎, 増井 芽, 大藪吉郁, 五十嵐大徳, 小林明夫: 次世代炭焼き技術「トレファクション」による高性能木質固形燃料の開発. 国立研究開発法人森林総合研究所第3期中期計画成果集 36-37 (2016).
- 3) Kubojima, Y., Yoshida, T.: Testing method

- for determining water resistance of wood pellets. *Eur. J. Wood Prod.* **73**(2), 193-198 (2015).
- 4) Yoshida, T., Sano, T., Nomura, T., Gensai, H., Watada, S. Ohara, S.: Fundamental study on the production of "Hyper Wood Pellet"—Effect of torrefaction condition on grinding and pelletizing properties. *J. Energy Power Eng.* **7**(4), 705-710 (2013).
- 5) 吉田貴紘: トレファクションによる木質バイオマス燃料の高性能化〜トレファクション処理実証プラントの建設へ〜. *生物資源* **10**(1), 2-14 (2016).
- 6) Mitsui, K., Takada, H., Sugiyama, M., Hasegawa, R.: Changes in the properties of light-irradiated wood with heat treatment. Part 1. Effect of treatment conditions on the change in color. *Holzforschung* **55**(6), 601-605 (2001).
- 7) Brischke, C., Welzbacher, C.R., Brandt, K., Rapp, A.O.: Quality control of thermally modified timber: Interrelationship between heat treatment intensities and CIE $L^*a^*b^*$ color data on homogenized wood samples. *Holzforschung* **61**(1), 19-22 (2007).
- 8) 森田珠生, 莊保伸一, 山口秋生: 熱処理木材の指標値としてのホロセルロース含有率と材色. 第23回日本木材保存協会年次大会研究発表論文集, 東京, 2007, pp. 32-36.
- 9) Esteves, B.M., Pereira, H.M.: Wood modification by heat treatment: A review. *BioResources* **4**(1), 370-404 (2009).
- 10) Tuong, V.M., Li, J.: Effect of heat treatment on the change in color and dimensional stability of acacia hybrid wood. *BioResources* **5**(2), 1257-1267 (2010).
- 11) 黄 榮鳳, 呂 建雄, 趙 有科: 熱処理による ロッジボール・パイン青変材の色値変化と物性の関係. 木材学会誌 **57**(5), 276-282 (2011).
- 12) Matsuo, M., Umemura, K., Kawai, S.: Kinetic analysis of color changes in cellulose during heat treatment. *J. Wood Sci.* **58**(2), 113-119 (2012).
- 13) 上田茉由, 仲村匡司, 北守顕久, 小松幸平: 乾燥条件の異なるスギ正角材表面の精密測色 (第1報) 辺心材ならびに早晚材を区別した精密測色. 木材学会誌 **59**(6), 339-345 (2013).
- 14) 仲村匡司, 上田茉由: 乾燥条件の異なるスギ正角材表面の精密測色 (第2報) 色の三属性に基づいた材色変化の比較. 木材学会誌 **59**(6), 346-352 (2013).
- 15) Esteves, B., Nunes, L., Domingos, I., Pereira, H.: Comparison between heat treated sapwood and heartwood from *Pinus pinaster*. *Eur. J. Wood Prod.* **72**(1), 53-60 (2014).
- 16) 多喜真之, 庄司哲也, 櫻木 潔, 大高 円: 色差計を用いた炭化燃料の性状予測手法. 第10回バイオマス科学会議発表論文集, つくば, 2015, pp. 11-12.
- 17) 澤井 徹, 片山一郎, 梶本武志, 佐野 寛, 本庄孝子: 半炭化バイオ固体燃料のエネルギー特性と測色値による評価. 第24回日本エネルギー学会大会講演要旨集, 札幌, 2015, pp. 100-101.
- 18) 松尾美幸, 山本浩之, 梅村研二, 川井秀一: 木材の経年および熱処理による色変化. 木材学会誌 **62**(6), 266-274 (2016).
- 19) 石原茂久: 木質系炭素材料素材開発の新しい展開. 木材学会誌 **42**(8), 717-723 (1996).
- 20) 片岡 厚: 木材の色の測り方と色の違いの表し方. 2014年度木材と水研究会講演要旨集, 東京, 2015, pp. 1-16.
- 21) 城代 進, 鯨島一彦編: 木材の調色. "木材科学講座 4 化学", 海青社, 天津, 1993, pp.95-99.