



木材の年輪構造を考慮した早材部・晩材部セルロース結晶の 応力負荷 XRD 測定

山崎真理子¹⁾，住岡雅将²⁾，小島瑛里奈¹⁾，今枝紘樹¹⁾，佐々木康寿¹⁾，杉本貴紀³⁾

1)名古屋大学大学院生命農学研究科，2)中村建築研究所，3)あいち産業科学技術総合センター

キーワード：木材，In-plane 法，細胞壁層構造，早晩材部構造

1. 測定実施日

2019年 8月 22日	BL8S1	(2 シフト)
2019年 9月 12日	BL8S1	(2 シフト)
2019年 10月 23日	BL8S1	(1 シフト)
2019年 10月 25日	BL8S1	(1 シフト)
2019年 11月 22日	BL8S1	(2 シフト)

2. 背景と研究目的

木材は階層構造を有する材料である。Fig. 1 に階層構造に関する図表を示す。木材（マクロ）は成長輪（温帯地域の場合は年輪）構造を構成する早材層と晩材層があり（セミマクロ），その下位構造として細胞壁の層構造がある（セミミクロ）。そして，細胞壁は繊維要素であるセルロースとマトリクス要素のリグニンおよび結合要素であるヘミセルロースから成る（ミクロ）。これらの階層構造とそれぞれの力学特性が組み合わさり，建材としての木材の力学特性が発現されている。本研究グループでは，これまでに細胞壁（S2 と S1/S3）のそれぞれに存在するセルロース結晶を区別して測定する手法を実現し¹⁾，この測定方法と負荷治具を組み合わせ，セルロース結晶の力学挙動と木材全体の力学挙動の関連や，熱処理の影響を検討してきた²⁾。一方，細胞壁と木材全体をつなぐ年輪構造（早材，晩材）の力学挙動と，早晩材に存在するそれぞれのセルロース結晶の力学挙動との関連については，ほとんど明らかになっていない。

近年，環境優位性の観点から木造建築が世界的に再評価され，木造建築が多く建設されている。構造用材料として針葉樹材が多用される針葉樹材は主に温帯や冷帯などの季節変動のある地域から産出されるものが多く，明瞭な年輪が確認される。年輪は色の濃淡が同心円状に形成されることで見られ，春から夏にかけて成長する色の薄い早材と，夏から夏の終わりにかけて成長する色の濃い晩材により構成される。また，細胞の形態が大きく異なり，早材は晩材と比べて細胞断面の径が大きく細胞壁厚は小さい。このように，早材と晩材では密度や細胞壁の厚さ等が異なることが知られており，それに伴い力学特性も変化すると考えられる。

本研究の目的は，木材の階層構造を考慮した早晩材層構造の力学特性を明らかにすることである。このため，基本的な知見となる早材，晩材それぞれの結晶構造を把握し，早晩材層構造内の引張力学挙動を解析した。

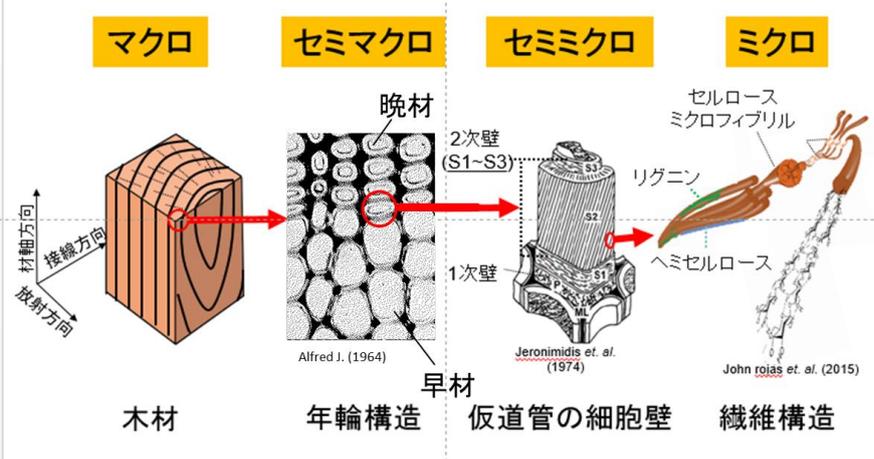


Fig. 1 Schematic diagram from macro level to micro level of wood.

3. 実験内容

供試材は早晚材部移行部が明確であるアカマツ (*Pinus densiflora* Sieb. & Zucc) である。試験体の寸法は長さ 60 mm (繊維方向), 幅 10 mm (接線方向), 厚さ 5 mm (放射方向) で, 中央部が 5 mm となるようにテーパを施した。試験体数は 4 体である。試験体の晩材部率は $22.7 \pm 0.8\%$ で密度は $416 \pm 24 \text{ kg/m}^3$ である。BL8S1 のビームライン内のゴニオメーターに試作した負荷治具を設置した。試験体は負荷治具に固定し, 段階的に負荷を作用させながら, XRD 測定を行った。試験体の巨視的な力学挙動を確認するため, 試験体中央部にゲージ長 2 mm のひずみゲージを貼付した。照射したシンクロトロン光の波長 9.16 keV (1.35 \AA) で, 測定した Bragg 角はセルロース (004) 面 (約 $d = 2.59 \text{ \AA}$) に対応する $26.5^\circ \sim 35^\circ$ である。透過法による測定で, 1 回の照射時間は 120 秒である。照射 X 線は Fig. 2 に示すように, まずビームサイズは $0.5 \times 0.5 \text{ mm}$ とし同一試験体の早材部と晩材部を分けてそれぞれ測定した。その後ビームサイズは $2.0 \times 0.5 \text{ mm}$ とし早材部と晩材部の両者を含んだ領域 (以降, 早晚材部と称す) を測定した (Fig. 2)。回折光は半導体検出器 (Semi conductor detector PILATUS 100K) を介して, 2D 回折図として得た。

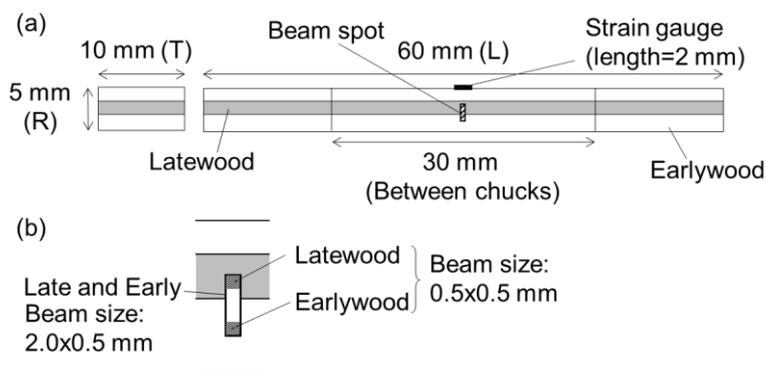


Fig. 2 Schema of specimen and synchrotron radiation. (a) Shape of specimens. (b) Area of radiated X ray.

4. 結果および考察

まず, XRD 測定により得られた無負荷時のセルロース (004) 面の 2D 回折図の典型例を Fig. 3 に示す。(a) は早材部, (b) は晩材部, (c) は早晚材部の結果である。早材部では方位角方向に広く一様であり, 2θ 方向の回折強度が幅広く存在する。これに対して, 晩材部では方位角方向では中央部での回折量が多い。さらに 2θ 方向の幅は, 早材部と比較するとやや狭い。このように同じ測定条件であっても, 早材部と晩材部で全く異なる特徴を持つ 2D 回折図が得られた。また, 早晚材部では, 2θ 方向の幅は晩材部よりもやや広く, 方位角方向では中央部に輝度の高い部分がみられるが, 晩材部と比べてその広がり大きい。すなわち, 早晚材部は早材部と晩材部の重ね合わせによるものであった。

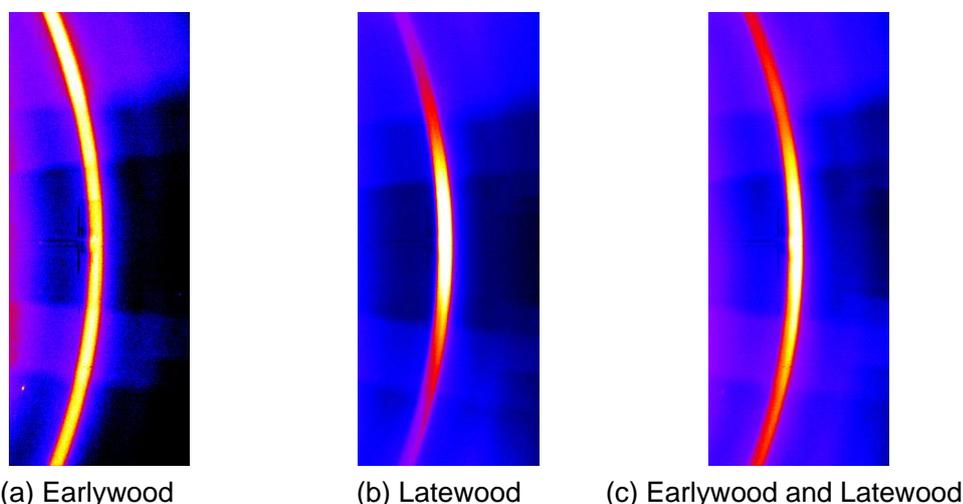


Fig. 3 2D diffraction patterns of cellulose (004) plane.

次に、これらの2D回折図から解析した方位角回折強度曲線の一部を Fig. 4 (a) に、 2θ 回折強度曲線を Fig. 4 (b) に示す。図中の各曲線は赤色が早材部、青色が晩材部、紫色が早晩材部を示す。Fig. 4 (a) の方位角回折強度曲線では早材部と晩材部で全く異なる結果が得られた。まず、早材部は測定範囲において明確なピークが確認されず、回折強度も晩材部に対して低い。一方、晩材部では 360° 付近でピークが認められ、早材部より高い回折強度を持った。ここで、木材細胞壁2次壁に含まれるセルロース鎖は細胞長径方向に対してらせん状に存在し、方位角強度曲線は材軸に対するセルロース鎖の配向角やそのばらつきを示す。早材部では測定範囲内において明確なピークが認められないことから、材軸方向に対して小さい角度でセルロース鎖は配向していない、あるいは、大きな角度をもって配向していることが示唆される。一方、晩材部では 360° 付近を中心とした分布を示しており、晩材部のセルロース鎖は材軸方向に対してある程度小さな角度をもって配向している。また、早晩材部は晩材部の特徴が大きく出た2D回折図であった。続いて、Fig. 4 (b) の方位角回折強度曲線を見ると、測定部位に寄らず回折曲線の幅は約 $30^\circ \sim 32^\circ$ であった。ピークトップの回折強度は晩材部よりも早材部のほうが大きい。この違いは、晩材部のほうが早材部に比べて壁厚が厚く、照射領域内における細胞の空隙率が異なることによると考えられる。 2θ 回折強度曲線からセルロース(004)面の特性値として、結晶間隔(d_{004})、FWHM、ピーク高さ(Peak height)、累積回折強度(Integrated intensity)を測定部位ごとに Table 1 にまとめた。Table 1 に示すように、結晶間隔 d_{004} と FWHM は早材部のほうが有意に大きい。すなわち、早材部に含まれるセルロース鎖の方が、セルロース(004)面の面間隔や面間隔のばらつきが大きい

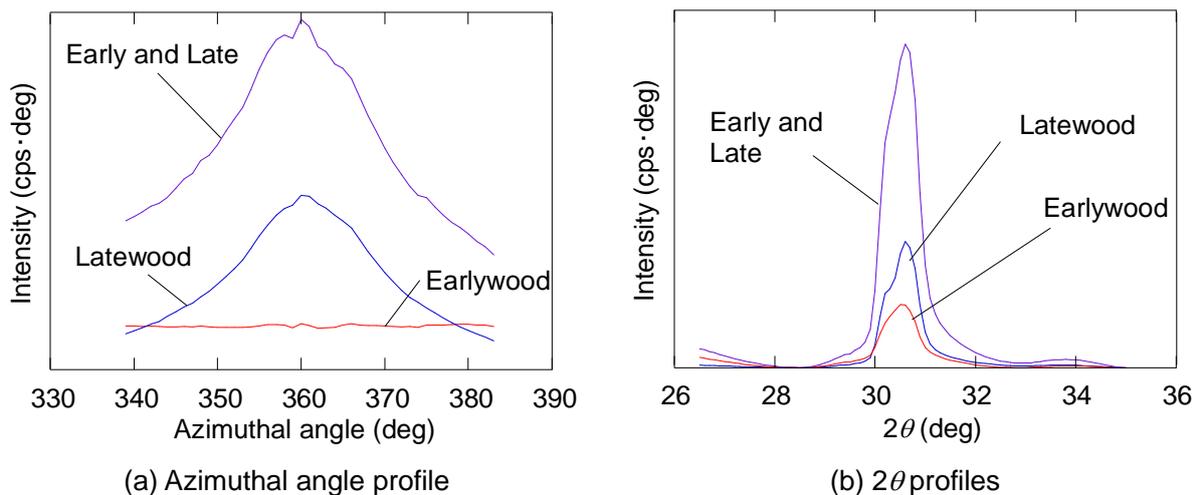


Fig. 4 Diffraction profiles of cellulose (004) plane.

Table 1 Profiles of cellulose (004) plane at un-loaded.

X-ray irradiation area	d_{004} (Å)	FWHM (deg)	Peak height (cps·deg)	Integrated intensity (cps·deg)
Earlywood	2.573* (0.004)	1.011* (0.011)	2869* (400)	3259* (368)
Latewood	2.563* (0.006)	0.923* (0.040)	5001* (898)	4740* (807)
Early and Late	2.566 (0.006)	1.002 (0.036)	13684 (4238)	14235 (3378)

In parentheses is standard deviation. *Corresponds to statistical significant difference between Earlywood and Latewood (*: $p < .01$).

ことや結晶サイズが大きいことがわかる。一方、ピーク高さや累積回折強度については、晩材部のほうが高い。これは晩材部が早材部に比べて空隙率が小さく、壁厚がより厚いためであると考えられる。続いて、セルロース鎖と木材バルクの荷重-ひずみ曲線の例を Fig. 5 に示す。図中の△プロットが早材部を、▽プロットが晩材部を、◇プロットが早晩材部を、●プロットが木材バルク（試験体の巨視的な挙動）を示す。木材バルクの荷重とひずみは、XRD 測定期間中に作用していた荷重と生じたひずみの平均値とした。まず Fig. 5 (a) をみると、木材バルクは作用した負荷に対して線形的にひずみを進展した。セルロース鎖はいずれの測定箇所においても負荷に対して引張ひずみを生じ、その大きさは測定箇所に寄らず同程度であった。また、それは木材バルクと比べると小さい。これに対して、Fig. 5 (b) では、木材バルクは Fig. 5 (a) と同様に線形的にひずみを生じたが、セルロース鎖のひずみの挙動は測定箇所によって異なった。具体的には、早材部では木材バルクに対して小さなひずみであり、最大ひずみは木材バルクに対して 0.36 であった。一方、晩材部のひずみの進展は早材部に比べて大きく、木材バルクと同調した挙動を示した。上述の通り、早材部と晩材部では細胞壁に含まれるセルロース鎖の存在様式が異なる。しかし、早材部と晩材部の力学挙動を分離測定した結果から、明確な傾向は見られなかった。

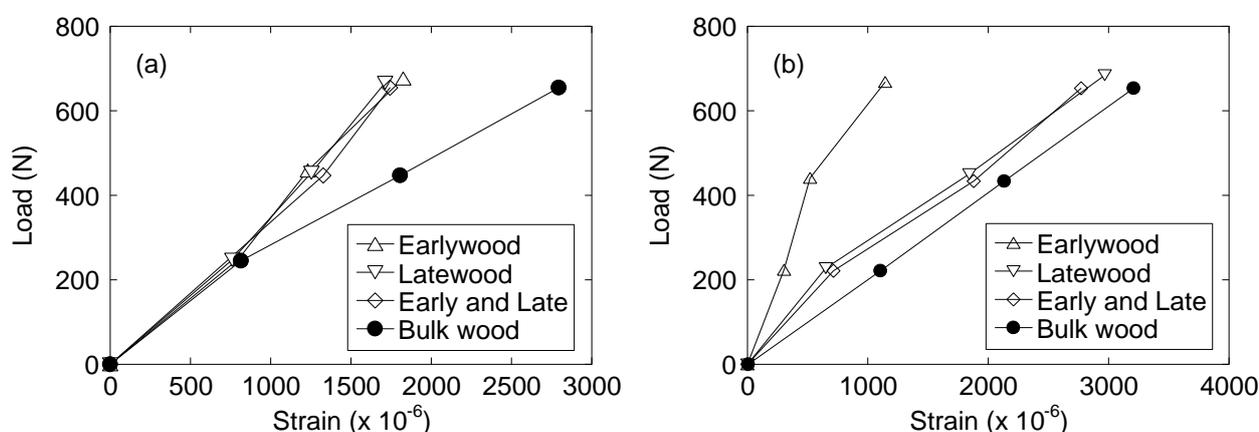


Fig. 5 Examples of load-strain curve.

5. 今後の課題

本研究で、早材部と晩材部の細胞壁二次壁の S2 層内のセルロース結晶が異なる形態をもって存在していることが示唆された。早材と晩材の力学挙動を比較するとひずみの進展に一定の傾向が認められなかった。これについて、細胞壁の厚さや密度を反映した荷重分担を検討できていない。早材部と晩材部の測定結果や断面の情報から、各層の応力分担を反映した推定応力-ひずみ曲線を作成し、力学挙動の把握とそれによる検討を目指したい。

謝辞

本研究遂行において多大なご助言を賜りました、あいちシンクロトロン光センターの東博純様、ビームライン BL8S1 のスタッフの皆様にご心から感謝申し上げます。

参考文献

- 1) C. Lee, M. Yamasaki, T. Sugimoto, Y. Sasaki, *Holzforchung*, 73(7) (2019) 613-619.
- 2) E. Kojima, M. Yamasaki, K. Imaeda, C. Lee, T. Sugimoto, Y. Sasaki, *J. Mater. Sci.* 55(12) (2020) 5038-5047.