

## 論文審査の結果の要旨および担当者

報告番号	※	第	号
------	---	---	---

氏 名 小 島 瑛 里 奈

論 文 題 目

木 質 細 胞 壁 の

階 層 構 造 に お け る 力 学 挙 動 解 析

### 論 文 審 査 担 当 者

主 査	名古屋大学准教授	山 崎	真 理 子
委 員	名古屋大学教授	土 川	覚
委 員	名古屋大学教授	福 島	和 彦
委 員	名古屋大学教授	山 本	浩 之
委 員	名古屋大学助教	安 藤	幸 世

## 論文審査の結果の要旨

木造建築物の社会的意義の一つとして長期に亘り使用できる優良ストックの形成が挙げられる。優良ストックとなる木造建築物を増やすためには、木造建築物の長寿命化や構造用部材としての木材の再利用に関する科学的評価を確立する必要がある。建築物の構造部材として木材を利用するためには力学性能の担保が重要となり、そのために建築解体材などから得られた古材の無欠点小試験体や実大材を用いた研究がある。なお、構造用部材として長期間使用された木材を本博士論文ではこれを古材と称しており、本要旨においても以降はこれに倣う。これらの既往研究の結果、長期間経年使用された木材では、たとえ良好な環境下で使用されたとしてもその力学特性は変化することが知られている。しかし、既往研究で示された木材の力学性能は現存耐力の評価に留まっており、今後その性能がどのように変化をするのか、すなわち古材化は木材の力学性能発現機構にどのような影響を与えるのかについては全く解明されていない。

本命題に対して、そもそも木材の力学性能発現機構の解明自体が未だ研究途上にある。木材は、細胞壁レベル、年輪構造レベル、無欠点小試験片レベル、欠点を含む実大材レベルのように微細構造から巨視構造まで多段階の階層構造を有する材料である。したがって、その力学性能発現機構を解明するためには、各レベルの力学挙動を理解するとともに、レベル間の相互関係も理解する必要がある。特に、レベル間の相互関係に関する研究は、各レベルの力学研究と比べて極めて少なく、重要な課題となっている。本博士論文の焦点はまさにこの点にあり、研究対象のオーダーは細胞壁レベル～無欠点小試験片レベルである。

ここで、無欠点小試験片レベルの力学挙動は古くからの研究知見が充実しており、研究手法として標準試験法が確立されている。一方、木材の細胞壁レベルの力学研究は、X-ray diffraction (XRD) 測定を用いてセルロース鎖の力学挙動を検討したものに限定される。さらに測定対象は薄片試料内の細胞壁2次壁のS2層内セルロース鎖に限定される。細胞壁レベル～無欠点小試験片レベルの間の相互関係を明らかにするためには、①細胞壁内部の相互関係 (S1層やS3層とS2層の力学挙動の違いやその相互関係、さらには細胞間層の挙動)、②年輪構造の影響を検討する必要がある。しかし、これらの課題について、S1層やS3層はセルロース量が少なく、また年輪構造の影響を検討するためには早材と晩材を含む比較的厚い試料を用いる必要があり、さらに木材は粘弾性を有するために弾性挙動の測定は瞬時に行う必要があるなど、実験室レベルのXRD測定では研究の遂行が困難であった。これについて、LEEらはシンクロトロン光を用いることで、年輪構造を含む試験片を対象にS1層およびS3層セルロース鎖の力学挙動を測定する手法を確立した。さらに、LEEらは、この手法を用いて250年間構造利用された古材を対象に、S2層とS1層およびS3層のセルロース鎖の力学挙動を測定し、新材と比較

検討を行うことで、セルロース鎖と試験片の力学挙動に古材化が与える影響を報告した。これによれば、古材のセルロース鎖は負荷に対する力学的な反応が鈍くなっており、セルロース鎖を取り巻くマトリクス、あるいはマトリクスとセルロース鎖の結合状態の関与が示唆されている。

本博士論文では、細胞壁レベル～無欠点小試験片レベルのレベル間の力学的な相互関係に焦点を当て、疑似古材モデルを用いた実験により、古材化が力学性能発現機構に及ぼす影響を詳細に検討した研究である。疑似古材化処理には、段階的な熱処理を採用している。熱処理温度は、主にヘミセルロースが熱分解する 150 °C と、セルロース鎖も緩やかに分解する 180 °C である。それぞれの温度について全乾重量からの重量減少率 (ML) により 3 段階、計 6 条件の熱処理条件が設定された。年輪構造を有する厚さ 5 mm の試験片に熱処理を施し、シンクロトロン光による XRD 測定を引張負荷作用下で行うことで、試験片 (以降、木材バルクと称す) とセルロース鎖の引張挙動を同時測定した。また、先行研究と同様に 2 種類の XRD 回折法を用いることで、細胞壁 2 次壁の S2 層、S1 層および S3 層のセルロース鎖の力学挙動をそれぞれ測定した。

論文は 6 章構成となっており、**第 1 章**では本研究の背景と目的について詳述している。**第 2 章**では木材の力学耐久性に関する研究の中でも古材と熱処理木材の力学研究について記すとともに、木材細胞壁中のセルロース鎖に関する力学研究について記した。続く**第 3 章**から**第 5 章**は中核となる部分であり、複数年輪を含む厚さ 5 mm の熱処理試験片を対象とした XRD 測定により、仮道管細胞壁 2 次壁各層のセルロース鎖の力学挙動に及ぼす熱処理の影響を検討している。**第 6 章**では、本研究で得られた知見を整理、総括している。以下に第 3 章から第 5 章までの知見をまとめる。

### **第 3 章 木材細胞壁の力学挙動に及ぼす熱処理の影響－S2 層内セルロース鎖の引張挙動解析－**

熱処理を施した木材試験片を対象に、材軸方向における引張負荷作用下でシンクロトロン光による XRD 測定を行った。透過法により負荷方向とほぼ平行に配向している細胞壁 2 次壁の S2 層セルロース鎖と木材バルクの力学挙動を測定し、力学性能 (最大ひずみ、最大荷重、平均剛性、ひずみエネルギー) を解析し、これに及ぼす熱処理の影響を検討した。その結果、熱処理によりそれぞれの力学性能は概ね減少傾向を示したが、その減少の程度は S2 層セルロース鎖と木材バルクで異なった。セルロース鎖の最大ひずみとひずみエネルギーは木材バルクと比べて熱処理による低下の程度が小さく、最大荷重と剛性は木材バルクと同等あるいはそれ以上に低下した。次に、S2 層セルロース鎖と木材バルクの変化の程度を比較するために、それぞれの力学性能について「セルロース鎖/木材バルク」の比率

(C/B) を解析した。その結果、比率は熱処理温度と重量減少率（熱処理時間）の影響を受けた。すなわち最大ひずみとひずみエネルギーに関する比率（C/B）は重量減少率の増加に伴って変化するが、150 °C では増加、180 °C では減少という逆の傾向を示した。これに対して最大荷重および剛性に関する比率（C/B）では、重量減少率の増加に伴う変化は熱処理温度で同様の減少傾向を示したが、変化の程度は温度によって異なった。重量減少率が同じ場合、セルロース鎖を直接熱分解していると考えられる 180 °C の方が比率（C/B）に大きな影響を与えると予想できるが、結果は予想とは反した。すなわち 150 °C の比率（C/B）は 180 °C の場合より大きく減少した。これは、同じ重量減少率では 150 °C の方が 180 °C よりも熱処理時間が長いことが原因と考えられる（例えば ML 4% では 150 °C で 169 時間、180 °C で 6 時間）。

#### 第 4 章 木材細胞壁の力学挙動に及ぼす熱処理の影響－S1 および S3 層内セルロース鎖の引張挙動解析－

第 3 章と同様の熱処理を施した熱処理試験片を対象に、反射法によるシンクロトロン光を用いた XRD 測定より、荷重方向にほぼ垂直に配向している細胞壁 2 次壁中の S1 および S3 層セルロース鎖の力学挙動を測定した。第 3 章と同様にセルロース鎖と木材バルクの力学性能（最大ひずみ、最大荷重、剛性、ひずみエネルギー）に熱処理が及ぼす影響を解析した。まず、無処理の S1 および S3 層セルロース鎖の荷重－ひずみ曲線は概ね線形挙動を示したのに対し、熱処理を施すと線形挙動を示さなくなり、連続的に引張ひずみが増加しない場合があった。また、それぞれの力学性能に関して、最大ひずみを除き、S1 および S3 層セルロース鎖は木材バルクおよび S2 層セルロース鎖と比較して熱処理の影響を大きく受け、特に 180 °C で顕著であった。また、最大ひずみと最大荷重について「セルロース鎖／木材バルク」の比率（C/B）を求め、これに及ぼす熱処理の影響の細胞壁層間の違いを検討した。その結果、最大ひずみと最大荷重の比率は、両温度条件において細胞壁層間で明らかに異なる傾向を示した。セルロース鎖の配向角（MFA）や湾曲性が S2 層と S1 および S3 層で異なっており、これらの違いがセルロース鎖の力学挙動に関与している可能性を示唆した。

#### 第 5 章 セルロース鎖の引張変形過程の把握

セルロース鎖の荷重－ひずみ関係は細胞壁の層やそれぞれの熱処理条件において線形挙動を示さず、負荷に対して引張ひずみが減少する場合や、負荷の途中で荷重－ひずみ関係が変化する場合が認められた。これについて第 5 章では、セルロース鎖の荷重－ひずみ関係の中で引張ひずみを生じた荷重域に着目し、熱処理の影響を層間比較した。その結果、引張ひずみを生じた荷重域は熱処理温度および層間で異なり、S2 層セルロース鎖は 150 °C 熱処理を施すと引張ひずみを生じる

荷重域が増加したが、180 °C 熱処理を施すと、引張ひずみを生じる荷重域が減少した。S1 および S3 層セルロース鎖では、荷重前半にほとんどの熱処理条件で引張ひずみを生じる荷重域は減少した。次に、それぞれの引張ひずみを生じた荷重域について剛性を解析し、引張負荷作用下での剛性の経時変化を解析した。その結果、剛性の変化の傾向は細胞壁層間や熱処理温度で異なることが示された。また、熱処理を施すとセルロース鎖の引張剛性が増加する場合があった。これは 150 °C 熱処理ではセルロース鎖とマトリックスの結合関係が変化することで、180 °C 熱処理ではマトリックスとの結合関係に加えセルロース鎖も熱分解することで、負荷に対するセルロース鎖の力学応答が小さくなったためと考察した。最後に、引張ひずみを生じた荷重域を考慮した剛性の加重平均を引張挙動全体における剛性として求め、熱処理に要したエネルギーとの関係を検討した。その結果、熱処理エネルギーと剛性の関係を指数関数で表現し、その係数から熱処理エネルギーによる剛性の変化の度合いを定量評価することができた。また、係数の値は概ね負の値を示し、すなわち熱処理エネルギーにより剛性は減少傾向を示したが、その程度は細胞壁層間および熱処理温度でそれぞれに異なった。このような熱処理エネルギーによる剛性の変化は、木材バルクの比ヤング率では認められなかった。

本博士論文により、セルロース鎖の力学特性は熱処理を施すことで変化し、特に引張ひずみを生じた荷重域における加重平均剛性は細胞壁 2 次壁の層間で異なり、さらに熱処理温度の影響も受けることが明らかになった。細胞壁 2 次壁の層間において熱処理材の力学挙動が異なる原因として、セルロース鎖の主配向方向 (MFA) や S1 および S3 層における湾曲性が考えられた。また、特にセルロース鎖の剛性を検討した結果、熱処理による力学挙動の変化はセルロース鎖だけではなく、セルロース鎖とマトリックスの結合関係も関与していることが示唆された。このような熱処理による剛性の変化は、木材バルクの比ヤング率では認められなかったことから、巨視的な試験では把握できない影響を細胞壁レベルでは受けていることが明らかになった。無欠点小試験片レベルの力学研究において、古材には何らかの微小損傷が生じており力学挙動に影響を与えているとする報告がある。本研究の知見は、この微小損傷やその存在に伴う力学性能発現機構の変化を究明する上で一助となるであろう。

これらの研究成果について、報文として国際学術誌に 1 報が既に発表され、ほか 1 報が受理済み、1 報が査読中である。

以上のことから、本博士論文は、実験及び解析のいずれにおいても新規性と独自性が認められるとともに、高度の学術的価値を有していると判断された。

よって、本審査委員会は本論文の内容が博士 (農学) の学位を授与するに十分な価値を有するものと認め、合格と判定した。