

論文審査の結果の要旨および担当者

報告番号	※	第	号
------	---	---	---

氏 名 LEE Changgoo

論文題目

木材の強度発現機構に関する

微細構造学的研究

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	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

近年、建築分野における環境負荷の低減に対する社会的要請は強く、その指標である LCA (Life-cycle assessment) の観点から、建築物や構成材料の長寿命化とこれに対する科学的評価の確立は急務である。材料の力学的耐久性を明らかにするためには、強度発現機構を解明し、使用環境がこれに及ぼす影響を明らかにする必要がある。木材は、コンクリートや鉄と並ぶ主要建築材料の一つである。しかし、ほかの2材料と比べて強度発現機構の解明は遅れている。その一因は、木材が生物材料であることに起因する寸法効果の影響にある。現在、実際に建築物で利用される木材(実大材)の力学性能に関する研究は、まだその性能を把握するための試験方法の確立とバラツキの評価にとどまっている。一方で、木材を構成する化学成分や木部の微細形態としての細胞壁の研究は知見が蓄積されているが、実際に建築材料として利用される寸法での力学挙動との関係性は明らかにされていない。したがって、構造材として使用される実大材の力学的耐久性を評価するためには、まず年輪を有する寸法での木材 Bulk と微細構造の力学挙動の関係を調べ、木材の強度発現機構をセミマイクロオーダーで解明する必要がある。これについて、木材の力学的負担は主に仮道管細胞壁2次壁のS₂層のセルロース鎖が担っていると考えられ、これに関する XRD (X-ray diffraction measurement) 研究が行われている。しかし、先行研究ではセルロース鎖の力学挙動を明らかにすることが第一義となっており、むしろ年輪構造の影響を排除するために研究対象には薄片が用いられている。また、測定対象はセルロース鎖の量の多い仮道管細胞壁2次壁のS₂層にとどまっている。したがって、年輪構造の拘束下におけるセルロース鎖の力学挙動や、細胞壁2次壁の層間での力学挙動の違いは明らかにされておらず、実大材の強度発現機構の解明には不十分である。

以上の背景の下、本博士論文では木材の力学性能に大きな影響を及ぼす年輪構造を有する構造レベルに着目し、微細構造と木材 Bulk の力学挙動の関係を明らかにするとともに、これに及ぼす経年使用の影響を実験的に把握することを目的としている。ここで、複数の年輪構造を有した試験片を対象に内部の力学挙動を測定したり、セルロース鎖の量の少ないS₁層およびS₃層の力学挙動を測定するためにはより強力な光源を用いた XRD 研究が必要である。この課題に対して、本博士論文ではシンクロトロン光を用いた XRD 測定を行うことで、複数の年輪構造を有する木材試験片を対象としたセルロース鎖の力学試験を実現した。また、2種類の XRD 回折法(In-plane 法(透過法)と Out-of-plane 法(反射法))を用いることで仮道管細胞壁2次壁各層のセルロース鎖の力学挙動を測定している。

論文は5章構成となっており、第1章では本研究の背景と目的、XRD法を用いた既往の木材研究や他材料を対象に近年提案された XRD 測定法をまとめ、さらに経年使用された木材の力学研究を概説し、本博士論文で解決すべき問題点を整理している。続く第2章から第4章は中核となる部分であり、複数年輪を含む厚さ5mmの試験片

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と、これに及ぼす経年使用の影響を検討している。第 5 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 2 章から第 4 章までの知見をまとめる。

第 2 章 2 種類の X 線回折法を用いた木材細胞壁セルロースのシンクロトロン光測定

複数年輪を含む新材および構造材として 250 年間使用された木材(本博士論文では、これを古材とした)の厚さ 5mm 試験片を対象に、シンクロトロン光を用いた XRD 測定を行った。その際、透過法と反射法の 2 種類の回折法を用いて仮道管細胞壁 2 次壁各層のセルロース鎖を測定した。その結果、XRD 測定より得られた 2D 回折図形は回折法の違いにより大きく異なるパターンを示し、この回折図形を基に解析した方位角分布曲線および 2θ 回折強度曲線も回折法により異なるスペクトルとなることを示した。方位角分布曲線からセルロース鎖の主配向方向 (MFA) を求めた結果、透過法により求めた MFA は約 9° で、仮道管細胞壁 2 次壁の S_2 層のセルロースマイクロフィブリルの配向角 ($5\sim 30^\circ$) と合致した。これに対して、反射法では約 75° で、仮道管細胞壁 2 次壁の S_1 層や S_3 層のセルロースマイクロフィブリルの配向角 (S_1 層: $60\sim 80^\circ$ 、 S_3 層: $60\sim 90^\circ$) と合致した。 2θ 回折強度曲線から半値幅 FWHM (Full-width at half maximum) と 2θ 累積強度を求めた結果、反射法の FWHM は透過法の約 3.5 倍となり、セルロース (004 面) の間隔 d_{004} のバラツキが大きいことを示した。一方、透過法の 2θ 累積強度は反射法の約 13 倍となり、回折方法によって測定されたセルロース鎖の量に大きな差異が認められた。さらに、仮道管細胞壁 2 次壁各層内のセルロース鎖の結晶部の量を推定したところ、透過法の推定量は反射法の約 7 倍となった。このようなセルロース結晶部の比率は、仮道管細胞壁 2 次壁内のセルロース分布を反映していると考えられた。以上の結果に関して、新材と古材の違いは認められないことを示した。

第 3 章 軸力負荷 (荷重下) における木材細胞壁セルロース鎖の力学挙動に関するシンクロトロン光測定

第 2 章で確立した厚さ 5mm の試験片に対する XRD 測定法を用いて、第 3 章では仮道管細胞壁 2 次壁各層に存在するセルロース鎖の力学挙動を調べた。すなわち、複数年輪を含む新材試験片に単軸荷重 (引張、圧縮) を与えながら、XRD 測定した。その結果、まず、試験片 (以降、木材 Bulk とする) の力学挙動と仮道管細胞壁 2 次壁内のセルロース鎖のそれとは必ずしも一致せず、伸縮の動きにズレを生じることを示した。荷重-ひずみ曲線を詳細に解析し、剛性が発現する荷重レベルについて、木材 Bulk は負荷当初から剛性を発現するが、負荷モード (引張・圧縮) や仮道管細胞壁 2 次壁の層によってはセルロース鎖の力学挙動は遅れを生じる場合があることを明らかにした。また、仮道管細胞壁 2 次壁の S_2 層のセルロース鎖の剛性と S_1 および S_3 層のセルロース鎖の剛性を比較し、 S_2 層と比べて S_1 および S_3 層の方が引張と圧縮のいずれにおいても剛性が小さいこと、ただし、セルロース鎖の量を考慮すると大差がないこと

を明らかにした。さらに、セルロース鎖の配向性や面間隔 d_{004} のばらつきに及ぼす単軸荷重の影響を調べた。その結果、圧縮荷重は影響しないことを明らかにした。一方、引張荷重では圧縮荷重と比べて明確な影響がみられたが、その影響は、たとえば、引張荷重により配向性が整うというような単純なものではなかった。このことより、力学挙動の主な担い手は仮道管細胞壁 2 次壁の S_2 層のセルロース鎖と考えられるものの、その挙動にはセルロース鎖を取り巻くマトリクスやマトリクスとセルロース鎖の結合関係、さらにこれらに及ぼす力学荷重の影響が関与していることが示唆された。

第 4 章 軸力荷重における経年木材細胞壁セルロース鎖の力学挙動に関するシンクロトロン光測定

第 4 章では、古材を対象として第 3 章と同様の実験および解析を行い、経年使用が仮道管細胞壁 2 次壁各層に存在するセルロース鎖の力学挙動に及ぼす影響を調べた。その結果、古材においても、木材 Bulk の力学挙動と仮道管細胞壁 2 次壁内のセルロース鎖のそれとは同調せず、伸縮の動きにズレを生じることを明らかにした。荷重-ひずみ曲線の詳細な解析から、セルロース鎖の剛性が発現する荷重レベルは、引張荷重に対しては古材の方が新材と比べて高く、荷重に対する力学的反応が鈍いこと、一方、圧縮荷重に対しては古材の方が荷重レベルが低く、荷重に対する剛性発現の反応が早いことを示した。また、古材の S_1 層および S_3 層のセルロース鎖では、圧縮剛性が消失する荷重レベルが他と比べて小さく、特徴的な力学挙動を示すことを明らかにした。セルロース鎖の剛性をセルロース鎖の量で基準化した剛性 SK_C を調べたところ、圧縮荷重下の S_2 層では古材の方が新材より大きかった。木材 Bulk の比ヤング率 K_B もこれを裏付ける結果であることを示し、セルロース鎖の基準化剛性 SK_C は、木材 Bulk の剛性と密接な関係を持つパラメータである可能性を示唆した。さらに、古材セルロース鎖の配向性や面間隔 d_{004} のばらつきに及ぼす単軸荷重の影響を調べた。その結果、 S_2 層で荷重の影響が見られ、引張荷重下では、荷重の増大とともにこれらのばらつきが小さくなり、配向性や面間隔 d_{004} が整う傾向を示すことを明らかにした。これに対し、圧縮荷重下では配向性のばらつきが大きくなる傾向を示した。 S_1 層および S_3 層のセルロース鎖では荷重の影響は認められない。

本博士論文より、圧縮荷重下における古材 S_2 層セルロース鎖の挙動は特異的であり、圧縮荷重の増大とともにセルロース鎖の配向のばらつきが大きくなるか、あるいは配向の蛇行性がより強くなることが示唆された。このように圧縮荷重下において古材セルロース鎖に特徴的な挙動が見られたのは、古材化によりセルロース鎖の動きを制御・拘束している何らかの因子が緩くなり、これにより座屈に似た蛇行現象が現れたのではないかと考えられる。木材の力学挙動を主に担うのは S_2 層のセルロース鎖であると考えられるが、本博士論文の結果によれば、その挙動にはセルロース鎖を取り巻くマトリクスやマトリクスとセルロース鎖の結合が関与していると考えられ、古材

化の過程においてこの結合関係が変質している可能性が示唆された。

以上のように、本博士論文は、年輪構造の拘束下で木材 Bulk と微細構造の力学挙動の関係を明らかにすること、またこれに及ぼす経年使用の影響を実験的に把握することを目的したものである。本研究により得られた成果は次のように集約される。

1. 複数年輪厚さ 5 mm の試験片に対して、シンクロトロン光を用いた XRD 測定により、木材 Bulk とセルロース鎖の力学挙動の同時測定を可能にした。また、2 種類の XRD 回折法を用いることで、仮道管細胞壁 2 次壁の S_2 層と S_1 層および S_3 層のセルロース鎖をそれぞれ測定できることを示した。

2. 仮道管細胞壁 2 次壁内のセルロース鎖の力学挙動は木材 Bulk の力学挙動と必ずしも一致せず、伸縮の動きにズレを生じることを示した。

3. セルロース鎖の力学性能について、引張と圧縮のいずれに対しても、仮道管細胞壁 2 次壁 S_1 層および S_3 層のセルロース鎖の方が S_2 層のものより剛性は小さいが、セルロース鎖の量を考慮すると両者に大差はないことを明らかにした。

4. 経年使用の影響について、セルロース鎖の負荷に対する力学的反応が鈍くなること、また S_1 層および S_3 層セルロース鎖では圧縮剛性が早い段階で消失することを明らかにした。

5. さらに、 S_2 層セルロース鎖において、圧縮荷重による配向性のばらつきの変動に経年使用の影響を見出した。古材では、圧縮負荷の増大とともにセルロース鎖の配向のばらつきが大きくなるか、あるいは配向の蛇行性がより強くなることが示唆された。

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 報が審査中、1 報が投稿準備中である。

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。