

7.5 学位論文要旨（別紙様式博 5、例 1）

学位論文要旨

学位授与申請者

氏名 堀山 彰亮

題目：Structure-Property Relationships at Microstructural and Mesostructural Scales in Wood

（木材のミクロおよびメソスケールでの構造と物性の相関）

本研究は、木材の物性発現機構解明に向けて、動的粘弾性測定と小角 X 線散乱測定を組み合わせることで、ミクロスケールとメソスケールにおける木材の構造と物性の相関を研究・考察したものである。

Preface（序論）

近年、カーボンニュートラルやサーキュラーエコノミーの実現に向けて木質系材料の利用が渴望されている。木質系材料の利用に向けた木材研究の重要性について述べた。

Chapter 1: Importance of physical properties and structural correlations in wood

（第 1 章：木材における構造と物性の相関の重要性）

木材・竹・ヤシはさまざまなスケールにおいて複雑な構造を有する天然材料である。本章では、マルチスケールで複雑な構造を有する木材の構造と物性についての既往の研究と、申請者が行ってきた木質化する草本植物のオイルパームの研究についてまとめた。オイルパームの幹は、維管束と柔組織から構成されている。申請者らは維管束と柔組織を分離する技術を開発した。分離した維管束の組織観察をはじめとした分析により、長繊維を活かした配向ボードを作製することが有用である可能性が見出された。分離した維管束を用いて作製したボードは約 70 MPa の曲げ強度を示した。オイルパームの幹は 5–20 MPa と報告されていることから、作製したボードは維管束のポテンシャルを引き出せた結果である。これらの結果は、構造をより理解することが、木質系材料の利活用において重要であることを示した。それらを総括して木材における構造と物性相関の重要性と課題について述べた。

Chapter 2: Relationship between microstructural changes within an annual ring and physical properties

（第 2 章：一年輪内におけるミクロ構造の変化と物性の関係）

温帯や冷温帯の樹木から得られる木材は年輪（成長輪）を有している。年輪は主に低密度な早材と高密度な晩材から形成される。古くから年輪は木材の材質を把握する際の指標になっており、年輪幅や晩材率などと木材の力学的性質には相関関係が認められている。しかし、早材と晩材の違いについては、主に細胞の形態学的な特徴から説明されてきた。一方で、生物学的には早材と晩材の形成に用いられる光合成産物は異なり、化学組成（特にリグニン構造）が異なる可能性が示されている。そこで、本章では様々な樹種の早材と晩材を切り分けて、リグニンに由来する物性測定が可能な動的粘弾性測定を行うことで、ミクロ構造スケールにおいて化学組成と物性がどのように変遷しているのかについて調べた。動的粘弾性測定で得られたリグニンのミクロブラウン運動に由来する $\tan\delta$ のピーク温度は針葉樹においては、

晩材の方が早材よりも低いことを明らかにした。これまで、ピーク温度が高い樹種はより架橋点が多いリグニンであることが推察されてきた。このことから、針葉樹においては、一年輪においては、初期に内腔径の大きな早材を形成することで水の通水機能を向上させる代わりにリグニンで細胞壁を剛直化させている可能性が見出された。一方で、広葉樹においては、年輪内における組織の配列が異なる樹種においても早材と晩材で $\tan\delta$ のピーク温度はほとんど同じ値を示した。広葉樹は針葉樹に比べて組織が非常に多様であることは知られているが、ミクロ構造が大きく異なっても同一の物性を示す可能性を示した。また、これまでの研究では、早材と晩材の影響は平均化されている、あるいは晩材の影響が大きいと考えられてきた。本研究では、早材と晩材の両方を含む半径方向の結果と比較することで、早材の影響も大きく、温度によっても早材と晩材の寄与率が異なることを示唆した。

Chapter 3: Relationship between mesostructural changes in the cell wall and physical properties

(第3章：細胞壁内のメソ構造の変化と物性の関係)

第2章で熱軟化を含めた構造変化が細胞壁内のどの領域で生じているのかを把握する必要があることが分かった。本章では、小角 X 線散乱 (SAXS) 測定を用いることで細胞壁内での構造変化についての情報を得ることが可能であり、構造と物性の相関について考察を行った。測定は SPring-8 BL40B2 にて放射光を用いて測定を行った。得られた散乱像のうち細胞壁2次壁由来の散乱のみを抽出し解析に用いた。25°C、60°C、90°Cと昇温に伴い散乱強度が上昇した。特に 10 nm 付近からの散乱強度が増加し、熱軟化に伴い 10 nm 付近の構造変化が生じていることが分かった。膨潤状態が異なると熱軟化特性も異なることが知られている。そこで、水とエタノールおよびそれらの混合液を用いて膨潤させた木材の動的粘弾性測定と SAXS 測定を行った。その結果、水系サンプルは熱軟化挙動を示し、昇温に伴い散乱強度の上昇も生じた。しかし、エタノールで膨潤させたサンプルは熱軟化挙動を示したが、散乱強度の上昇は確認されなかった。既往の研究で、エタノールは水と吸着点異なることが推察されている。これらの結果から物性測定だけでは分からなかった細胞壁内の変化を、SAXS 測定を用いることでより詳細に理解できることを明らかとした。また、既往の研究で乾燥履歴を経験した木材は水中浸漬時間や熱処理温度によって物性が変化することが報告されてきた。物性の变化より構造変化が推察されてきたが、直接構造の変化を観測した例はなかった。水中浸漬後の時間経過と熱処理温度によってメソスケールでの構造がどのように変化するかについても検討した。その結果、水中浸漬後に数 10 nm 付近からの散乱強度は上昇し続けた。一方で、熱処理温度については、木材が変性しない温度範囲においては、数 nm 以上の構造からの散乱強度は大きくは変わらなかった。

Conclusions (結論)

第1章でヤシ材を通じて木質系材料のポテンシャルを引き出すためには構造と物性の関係を理解することが重要であると述べた。第2章で一年輪内でのミクロ構造の変化と物性の関係について調べた。結果として、ミクロ構造ごとに物性の発現は異なり、それは針葉樹と広葉樹で大きく異なることを明らかとした。第3章で SAXS 測定を用いることで、物性発現時の細胞壁内でのメソ構造の変化について整理した。熱軟化に伴い数 10 nm 付近での構造変化が顕著であることや、それらは膨潤状態によって熱軟化が生じる領域が異なることを明らかとした。本研究を通じて、木材の物性発現には、ミクロ構造スケールとメソ構造スケールの両方の観点から検討することが重要であり、どの部位を測定しているかを意識することの重要性を示した。