

令和元年6月11日現在

機関番号：13901

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K07805

研究課題名(和文) 時間・空間分解分光法による吸収・散乱・蛍光特性の把握と木材評価への応用

研究課題名(英文) Investigation of light absorption, light scattering and fluorescence characteristics in wood by time-resolved and spatially-resolved NIR spectroscopy

研究代表者

稲垣 哲也 (INAGAKI, Tetsuya)

名古屋大学・生命農学研究科・講師

研究者番号：70612878

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：近赤外光による木材の品質評価手法に関する研究を行った。これまで木材中での光の散乱については不明な点が多かったが、時間分解分光法・空間分解分光法やシミュレーションを用いることで、木材内部(細胞壁レベル)での光の散乱特性を把握した。また密度や含水率が光の散乱に及ぼす影響を詳細に調べた。これらの情報をもとに、安価・小型な密度計測装置を試作し、十分な精度で密度予測が可能であることを示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

これまで近赤外分光法では、複雑な統計処理に依存してブラックボックス的に木材の品質を推定してきたため、得られた結果の分光学的・物理学的解釈が曖昧となりこれが普及・一般化の律速となってきた。本研究成果により、「分光学的・物理学的に曖昧さのない」・安価・小型の木材材質評価装置の開発が可能となった。さらなる研究により、現場での使用が可能な装置開発が可能となる。

研究成果の概要(英文)：Research on evaluation of wood by near infrared light was conducted. Until now, there were many unknown points about the light scattering in wood, but by using time-resolved spectroscopy, spatially-resolved spectroscopy and simulation, the light scattering characteristics inside the wood (cell wall level) were realized. The effects of density and moisture content on light scattering were investigated in detail. Based on this information, we made an inexpensive and compact density measurement device and showed that it is possible to predict the density with sufficient accuracy.

研究分野：木質科学

キーワード：木材 光散乱 空間分解分光法 時間分解分光法 TFRS

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

## 1. 研究開始当初の背景

試料の分子振動情報を非破壊で計測できる近赤外分光法(NIRS: Near Infrared Spectroscopy)を用いることで、木質素材の各種品質(化学成分比率・含水率・密度・繊維長や強度)の非破壊評価が可能であることが多くの研究者によって報告されている(Tsuchikawa and Kobori 2015, J. wood Science 61: 213-220)。試料を非破壊で測定するため、近赤外スペクトル中には(通常の分光法では試料の前処理によって均一化されるような)物性値、例えば試料の細胞構造・表面粗さなどの影響が含まれている。試料の細胞構造や表面粗さなどの物性は、光の散乱様式に強く影響を与えスペクトルを変化させる。そのため、試料中での光の散乱が大きい場合(通常の分光法の解析に用いられる) Lambert-Beer 則を適用することができなくなる。特に木材の散乱係数は、吸収係数よりも  $10^3 \sim 10^4$  倍大きいので、散乱の影響が非常に大きい。さらに近赤外領域では、分子振動の倍音や結合音が重畳して存在するため、各吸収バンドの帰属が曖昧となる。ケモメトリクス(計量化学)の利用はこのような複雑な近赤外スペクトルの解析に力を発揮してきた。しかし、一方で「複雑な統計処理に依存してブラックボックス的に目的とする品質を推定するため、得られた結果の分光学的・物理学的解釈が曖昧となる」という点が問題となっていた。この曖昧さが同法の普及・一般化の律速となっており、木材工業の分野でも本法がオンライン検査ツールとして十分に利用されるまでには至っていない。応募者らは近年、飛行時間近赤外分光法(TOF-NIRS: Time-of-Flight Near Infrared Spectroscopy、試料に短時間パルスレーザを照射し、透過あるいは反射光の時間変化から試料内部における光伝播の様子を詳細に把握する手法)によって、様々な樹種や含水率状態の木材の吸収係数および等価散乱係数を推定する研究を精力的に行ってきた(Kurata et al. 2013 J Am. Soc. Hortic. Sci. 138: 225-228)。その結果、特に木材の含水率や細胞構造(細胞の種類・形や配列様式)が等価散乱係数に大きく影響することがわかってきた。これらの結果をふまえて応募者は、これまでスペクトル解析の障害因子とされてきた光散乱を貴重な情報因子と捉えこれを有効的に利用することを考えた。様々な樹種・含水率・密度の木材の散乱係数を適正に把握することで、これまでの分光法では予測機構が曖昧であった、細胞構造や密度・異方性のロバストな定性・定量が可能となる。また、通常の分光法ではスペクトル情報に含まれる蛍光の影響が考慮されない場合が多い。蛍光強度や蛍光寿命は、試料中の化学成分分析に有用であることはよく知られているとおりである。

## 2. 研究の目的

上記を踏まえて本研究では、ストリークカメラおよびパルスレーザに分光器と光ファイバを導入したシステムを考案した。ストリークカメラ内には二次元ディテクターが搭載されており、一方の軸(右上図の縦軸)で時間方向(時間分解能 10.8ps)、もう一方の軸(右上図の横軸)で位置方向の光情報を検出することができる。ストリークカメラの前にモノクロメータを置くことでパルスの時間プロフィールと、分光情報を同時に取得することが可能となる。例えば、400nm のパルスレーザを試料に照射することで、400nm の反射光時間プロフィールと蛍光波長の反射光時間プロフィールを同時に取得できる。反射光時間プロフィールに光拡散方程式をフィッティングすることで、この波長の吸収係数と等価散乱係数を決定し、蛍光波長の反射光時間プロフィールから蛍光強度と蛍光寿命を決定することができる。これによって「吸収特性と蛍光情報から試料の化学成分比率」、「光散乱情報から(これまでの分光法では測定することのできなかった)細胞構造」を分光学的、物理学的に曖昧さ

のない形で測定することが可能となる。そこで本研究ではピコ秒オーダの透過パルス光の時間変化および反射光の空間分布を解析することにより、様々な樹種・密度・含水率を持つ木材の吸収係数、等価散乱係数および蛍光強度と蛍光寿命を厳密に求め、これらパラメータから試料の化学成分値および細胞構造を統計解析に頼らずに決定することを目的とした。これにより近赤外分光解析のブラックボックス的な側面を払拭したロバストな分光手法を確立することができる。

### 3. 研究の方法

平成 28 年度は、光ファイバとモノクロメータを導入した時間分解分光光学系の設計・開発および樹種・含水率・密度による吸収・散乱・蛍光特性の把握を行った。研究室所有のパルスレーザおよびストリークカメラに光ファイバとモノクロメータを組み込み、試料を反射・透過方式で測定する光学系を設計・構築した。パルスレーザから照射ファイバを用いて木材表面にパルス波を照射し、照射ファイバから数ミリ離れた箇所に設置した受光ファイバによって光をモノクロメータに導入した。モノクロメータによって分光した光をストリークカメラに導入することで、照射した波長光と蛍光の両方の時間プロフィールを獲得することができた。その後密度や組織構造の異なる 13 種類の木材 ( $R80 \times T2 \times L150\text{mm}^3$ ) を試料に供し、構築した光学系を用いて試料を透過した光子量を測定した。透過光子は、分光器に接続されている直径  $300 \mu\text{m}$  の光ファイバーによって受光した。パルス光は試料まさ目面に照射し、各試料 3 回ずつ測定を行った。また、木材重量と体積から気乾密度を算出した。透過パルス波形測定後の試料をそれぞれ照射スポットが含まれるように 3 つに切り分け、合計 39 個 (各樹種 3 個) の木材試料を作成した。マイクロームにより切片を作成し、サフランニン溶液で染色し顕微鏡写真を撮影した。その後、画像解析によって細胞数、細胞壁割合、最大細胞直径、細胞面積の平均値および中央値を算出した。

平成 29 年度はロバストな検量線の作成を試みた。上記で得られた散乱係数から細胞配列、吸収係数と蛍光情報から含水率および化学成分比率、散乱係数と吸収係数の組み合わせから密度に関する推定回帰直線を作成した。

平成 30 年度は安価で小型な木材材質装置の試作を行った。本研究では波長領域  $700\text{-}1060\text{nm}$  を用いて一連の研究を行った。この波長領域は、可視光と比較して散乱係数が小さい、また近赤外光と比較して吸収係数が小さい (透過性能が高い) という測定上のメリットがあるほか、光源に LED を使用可能で、検出器が比較的安価であるという装置製作面でのメリットもある。上記 III の結果から、各種物性値の予測に適当な複数の波長を選別しその情報を元に LED を選定した。光ファイバなどを用いて試料に LED 光を照射し、照射点から数 mm 離れた二点において光強度を検出できるような光学系を設定した。各ファイバで検出された反射光強度から相対反射率、さらに、測定した 3 つの波長の相対反射率を用いて相対吸光度比を算出し、これらの値から各種物性値の予測を行った。

### 4. 研究成果

#### 平成 28 年度研究成果

構築した測定システムを用いて、様々な細胞配列を持つ樹種を測定した。また時間分解分光法によっていくつかの波長における吸収係数と散乱係数を厳密に決定し、細胞配列が吸収係数・等価散乱係数に及ぼす影響について観察した (Fig.1)。本実験によって、散乱係数と木材の密度が正の相関関係になること、また 2 樹種 (アユース、ゴムノキ) にお

いて散乱係数が密度との回帰線から外れることを見出した。これら 2 樹種の散乱係数が回帰線から外れた要因を調べるため、木材の木口面切片の顕微鏡写真を撮影し、木材の組織構造が散乱に及ぼす影響を解析した。画像解析により木材の組織構造に由来するパラメータ因子を算出することで、細胞壁割合と最大細胞直径が散乱係数を決定づける重要な因子であることがわかった。また、樹種による散乱係数の分散が上記 2 つの因子を用いて相関係数 0.92 の精度で説明できることが分かった。

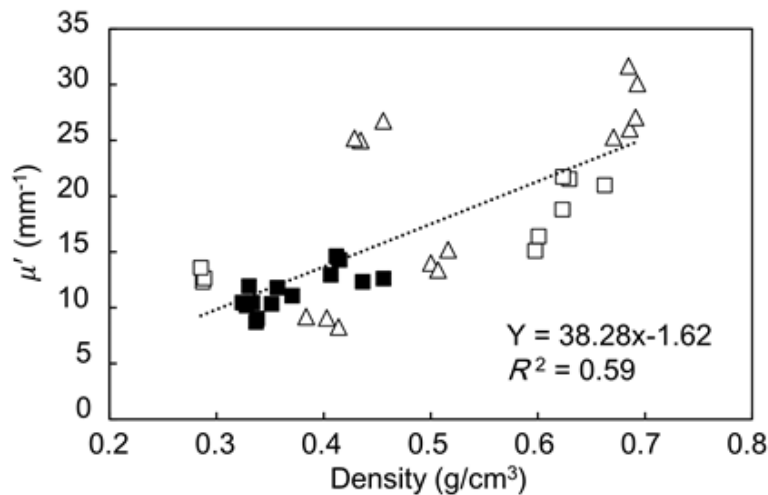


Fig. 1 木材の気乾密度と 846nm 等価散乱係数の関係（黒四角：針葉樹、白四角：広葉樹-環孔材、白三角：広葉樹-散孔材）

#### 平成 29 年度研究成果

様々な条件の試料で得られた吸収係数と散乱係数を用いて、より厳密な解析を行った。これにより、木材の細胞壁構造が近赤外光の等価散乱係数に及ぼす影響を解明した。さらに、モンテカルロ法によって木材中細胞壁中の光伝播をシミュレーションしたところ (Fig.2) 光は細胞壁中を伝播していくことが分かった。また、846nm における等価散乱係数と吸収係数から木材の密度を推定したところ、十分な精度での予測が可能であった。また、研究過程で、木材の細胞壁配列方向によって等価散乱係数が大きく異なることが分かったため、これをハイパースペクトラルイメージング法によって解析し論文としてまとめた。

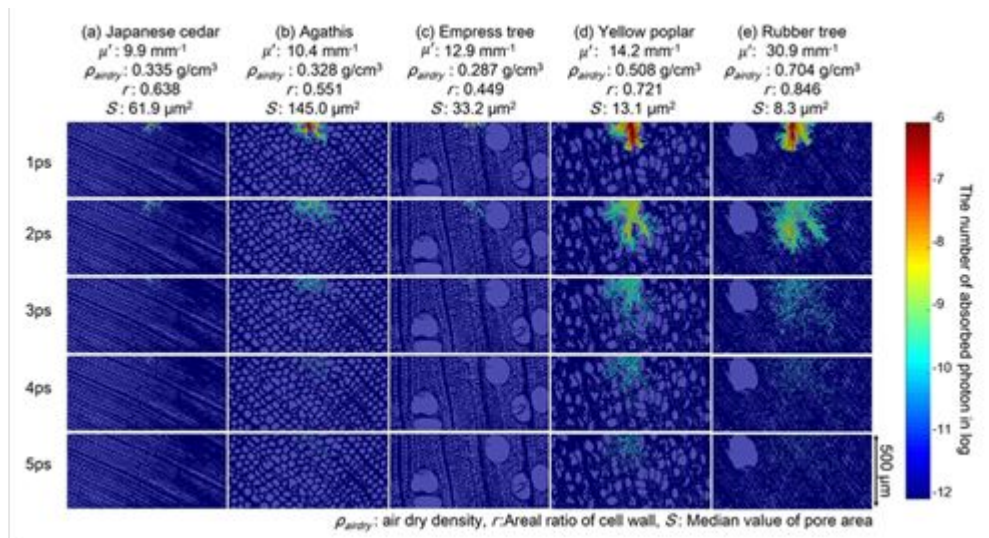


Fig.2 モンテカルロ法による木材細胞中の光伝播シミュレーション

さらに、本システムによる試料蛍光情報の取得を試みた。まず蛍光強度が大きいクスノキの葉 (*Cinnamomum Camphora*) を試料とし、これらの蛍光特性を本システムによって測定

した。励起光として 50ps,403nm のレーザーを照射し、その反射光を時間分解システムによって測定した。葉はその乾燥ストレスによって蛍光強度が大きくなるとともに蛍光寿命は長くなることを見出した ( Fig.3 )。

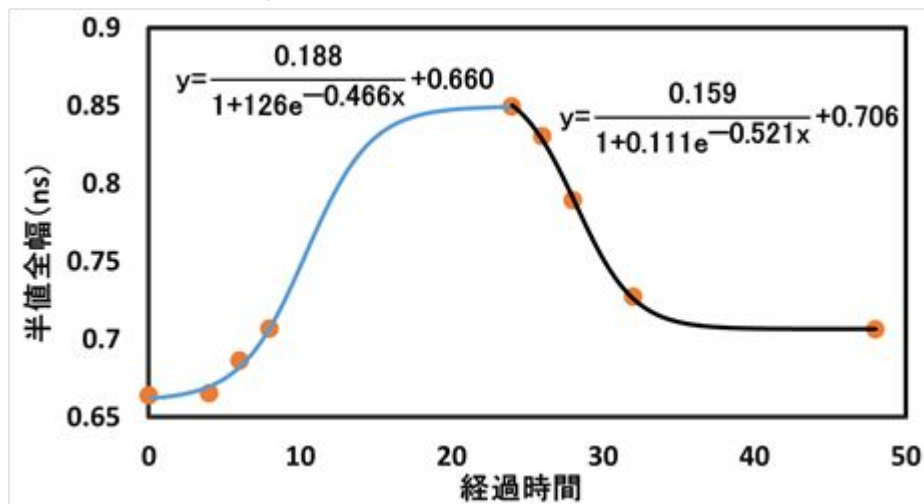


Fig. 3 塩ストレス経過時間と蛍光の時間プロフィール (半値全幅) との関係

#### 平成 30 年度研究成果

木材の光散乱特性について、空間分解分光法および時間分解分光法の両手法によって測定し、モデル化を行った。また、1台の光源と2台の分光器で構成したTFDRS(Three fiber diffuse reflectance spectroscopy)分光器を最適化し、散乱光の空間分布を測定した。その後これまでの知見を元に、安価で小型な木材材質装置の試作を行った。特に試料中での光の散乱特性を補正できる空間分解分光法に着目し、これを安価なLEDや光検出器で実現した。密度や含水率が異なる複数の木材を本手法によって測定し、これにより得られる信号が含水率および木材密度によって変化することを見出した。さらに、近赤外領域の3波長の吸光度情報と高周波容量計を組み合わせることで、密度が異なる木材の含水率を高い精度で推定する手法を考案し特許出願・論文発表を行った。

#### 5 . 主な発表論文等

[雑誌論文](計5件)

V. T. H. Tham, T. Inagaki, S. Tsuchikawa, “A new approach based on a combination of capacitance and near infrared spectroscopy for estimating the moisture content of timber”, *J. Wood Sci Technol*, 53 579-599, 2019 査読有

T. Ma, T. Inagaki, S. Tsuchikawa, “Three-dimensional grain angle measurement of softwood (Hinoki cypress) using near infrared spatially and spectrally resolved imaging (NIR-SSRI)”, *Holzforchung* 10.1515/hf-2018-0273, 2019 査読有

V. T. H. Tham, T. Inagaki, S. Tsuchikawa, “A novel combined application of capacitive method and near-infrared spectroscopy for predicting the density and moisture content of solid wood”, *J. Wood Sci Technol*, 52 115-129, 2018 査読有

M. Ban, T. Inagaki, T Ma, S. Tsuchikawa, ” Effect of cellular structure on the optical properties of wood” *Journal of Near Infrared Spectroscopy* 26 53-60, 2018 査読有

T. Ma, G. Schajer, T. Inagaki, Z. Pirouz, S. Tsuchikawa, “Optical characteristics of Douglas fir at various densities, grain directions and thicknesses investigated by near-infrared spatially resolved spectroscopy (NIR-SRS)” *Holzforchung*, 72, 789-796, 2018 査読有

〔学会発表〕(計6件)

稲垣哲也、伴麻由香、馬特、土川覚、“木材組織構造が近赤外領域等価散乱係数に及ぼす影響”、第68回日本木材学会大会(京都) 2018

花丸健志朗、稲垣哲也、土川覚、時間分解分光法による生物素材の光学特性評価 平成30年度 日本分光学会年次講演会 2018

Te Ma, Gary Schajer, Zarin Pirouz, Tetsuya Inagaki, Satoru Tsuchikawa, Optical characteristics of Douglas fir at various densities, grain directions, and thicknesses investigated by Near-Infrared Spatially Resolved Spectroscopy, Sixth Asian NIR Symposium 2018

土川覚、北村竜之介、小長谷圭司、稲垣哲也 “Time-of-Flight NIR Spectroscopy to Cellulosic Materials”, SciX 2018 2018 oct

Te Ma, Gary Schajer, Zarin Pirouz, Tetsuya Inagaki, Satoru Tsuchikawa, Optical characteristics of Douglas fir at various densities, grain directions, and thicknesses investigated by Near-Infrared Spatially Resolved Spectroscopy, 2018 SWST/JWRS International Convention 2018

馬特、稲垣哲也、伴麻由香、土川覚、近赤外空間分解分光法を用いた非破壊樹種判別、第69回日本木材学会大会(函館) 2019

〔図書〕(計 件)

〔産業財産権〕

○出願状況(計1件)

名称：近赤外分光法と高周波容量式法の組み合わせによる木材密度補正型含水率推定法  
推定装置および推定方法

発明者：稲垣哲也、土川覚、Vu, T. T.

権利者：

種類：G 0 1 N 2 7 / 2 2

番号：2017-111843

出願年：2017

国内外の別：国内

## 6. 研究組織

(1)研究分担者

研究分担者氏名：土川 覚

ローマ字氏名：Tsuchikawa Satoru

所属研究機関名：名古屋大学

部局名：生命農学研究科

職名：教授

研究者番号(8桁)：30227417

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。