

令和 5 年 9 月 28 日現在

機関番号：13901

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2019～2022

課題番号：19H03016

研究課題名(和文) 針葉樹圧縮あて材細胞壁におけるS2層形成の物理的意味を問う

研究課題名(英文) Physical implication of formation of S2L layer in cell wall of gymnosperm compression wood

研究代表者

山本 浩之 (Yamamoto, Hiroyuki)

名古屋大学・生命農学研究科・教授

研究者番号：50210555

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,330,000円

研究成果の概要(和文)： 生材状態の圧縮あて材(CW)は、水中加熱処理で繊維方向に大きく伸びる。さらに乾燥処理によって大きく収縮する。一方、成熟した正常材(NW)はそのような挙動を示さない。"60年来の定説"では、CWのS2層のマイクロフィブリル傾角(MFA)が40～50°にも達することが原因だとされている。なお未成熟材(JW)でも、MFAがCWのように大きくなることもある。"定説"が正しければ、JWでもCWのような特異な挙動が観測されるはずである。本研究では、このことを実証的に検討した。結果は否定的だった。CWに固有の挙動は、CWのS2層外縁部に形成されるS2L層によって引き起こされるということが強く示唆された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

木質部材中に圧縮あて材(CW)が含まれると不規則な寸法変化を生じるため、建材工業ではCWは厳密に避けられる。しかしながら木材工業の原材料は、天然林資源(優良な大径個体)から植林資源(小径丸太)へと急激にシフトしつつある。そのために、CWに起因する加工・利用障害が懸念される。

CWと未成熟材(JW)は、ともに大きなMFAを有するという特徴があり、そのため、物性面でも(いまだに)混同されるきらいがある。本研究では、実証データに基づいて相違点を確認し、その仕組みを細胞壁構造の違いによって明らかにした。驚くべきことに60年来の仮説である"補強マトリックス理論"の見直しが迫られることになった。

研究成果の概要(英文)： When a green compression wood specimen (CW) is heated in water, it elongates significantly along the fiber direction, while it contracts significantly when dried. A normal wood specimen (NW), on the other hand, shows almost no dimensional change. There is a "60-year-old theory", explaining that behaviors peculiar to the CW are due to a significant increase in the microfibril angle (MFA) of the S2 layer up to 40-50°.

Furthermore, in juvenile wood (JW), the MFA can be as large as CW. If "established theory" is correct, then behavior similar to CW should be observed also in JW. In the present study, this was empirically verified, and results were negative, strongly suggesting that the CW-specific behaviors are controlled not by a high MFA of the S2 layer but by formation of the S2L layer that is located on the outer edge of the CW S2 layer.

研究分野：木質科学

キーワード：圧縮あて材 針葉樹 仮道管 細胞壁 成長応力 二次細胞壁 リグニン ミクロフィブリル傾角

1. 研究開始当初の背景

針葉樹は、傾斜して生育する樹幹の下側に沿って、圧縮あて材と呼ばれる二次木部(木材)を形成する(図1)。圧縮あて材の繊維(仮道管)は長軸方向に圧縮の成長応力を発生し、これによって傾斜樹幹を下側から押し上げるといふ、いわば生物学的アクチュエータとしての機能を担っている(図1参照)。一方、圧縮あて材を切り出して人工乾燥処理を施すと、高温処理の段階(まだ水分は豊富に残っている)で繊維方向に膨張し、続く中低温処理(水分が激しく抜けていく)では収縮するなど、特異な力学挙動を示す。一方正常材はほとんど寸法変化を示さない。したがって、木材製品にあて材が含まれると、温湿度の変化に連動して不規則かつ大規模に変形したり、場合によっては割裂や接合の分離が引き起こされるなど、利用上の不都合が生じる。このことが、基礎・応用両側面にわたって研究者や技術者の関心を集めている。

圧縮あて材の特異な力学挙動は、1970年代に、ニュージーランドを中心に発展した細胞壁力学によって説明されてきた[1, 2]。その後当該分野の研究者たちは、図2に示すような、木材繊維細胞の標準模型を数学的にモデル化し、これを用いて、木材が示す種々の力学挙動を理論的に説明する作業を進めた[3, 4, 5]。大きな成果としては、厚い二次壁中層(S2層)が木材繊維細胞(および細胞壁)の力学物性をほぼ主体的に支配するが、それはマイクロフィブリル傾角(MFA)(図2参照)によってコントロールされる、という理論を確立したことである。これによれば、圧縮あて材仮道管の特異な力学挙動の発現は、MFAが正常材よりも有意に大きくなるためであると結論される[5]。以来、この結論は“50年来の定説”となってきた。

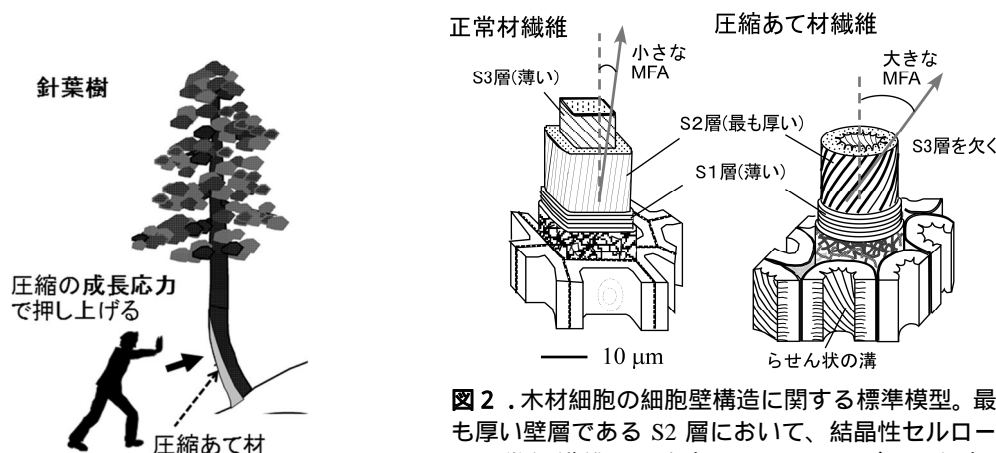


図1. 生物学的アクチュエータとしての圧縮あて材

図2. 木材細胞の細胞壁構造に関する標準模型。最も厚い壁層であるS2層において、結晶性セルロースの微細繊維の配向角(マイクロフィブリル傾角、MFAと略記)は、圧縮あて材繊維(右)では極めて大きくなる(細胞軸に対して大きく傾く)。

しかしながら最近、本研究課題代表者らは“定説では説明できない例外が出現する”ことにも気付いていた(以下の事例1~3)。そのような“例外”では、MFAが圧縮あて材並みに大きいにも拘わらず、成長応力、乾燥による寸法変化(収縮率という)、水中加熱による寸法変化(湿熱ひずみという)のいずれについても、あて材試験片よりもはるかに小さい。すなわち、MFA(だけ)では、説明できない観測例が存在する。

- 事例1. あて材細胞のX線繊維回折図(200面反射強度分布)では、S1層(図2参照)として知られる壁層以外で、セルロースの配向が横巻となる壁層の存在が示唆されること
- 事例2. 定説では説明できない“例外データ”では、X線繊維回折図(200面反射強度分布)に上述の壁層の存在を窺わせるような特徴が示されないこと
- 事例3. S2L領域の発達程度が、あて材に特有の力学挙動に相関する様子が窺えること

2. 研究の目的

以上を背景として、本研究代表者は、研究課題の核心をなす上での学術的問いを、

“正常材よりもはるかに大きなMFAが主たる制御因子でないとするれば、何が、圧縮あて材繊維の特異な力学挙動を制御しているのだろうか?”

という形で提示したいと考えた。“学術的問い”への解答として、以下の作業仮説を用意した。

“S2L領域があて材に特異的にみられる力学挙動の発現を引き起こす。MFAはあて材の各種特性とは疑似相関を示すか、あるいは副次的に関わるに過ぎない。”

この仮説を、実証的に検討することが本研究の目的である。

3. 研究の方法

(1) 植物試料選定と試験片作成

本研究報告では、24年生ヒノキ(*Chamaecyparis obtusa*、胸高直径10 cm) 1個体、および23年生スギ(*Cryptomeria japonica*、胸高直径11 cm) 1個体について得られた結果を示す。両個体とも名古屋大学附属演習林(愛知県豊田市稲武地区)の傾斜地に生育し、どちらも地際から地上高2 mま

で大きく湾曲する樹幹を有していた。地上高2 m以上では、樹幹は鉛直であった。

湾曲部分の幾つかの位置で、木部表面成長応力解放ひずみを測定した後、樹幹を伐採した。その後、湾曲部分下側に沿う辺材からは圧縮あて材を、上側に沿う辺材からはオボジツ材を、樹幹鉛直部分の辺材からは正常材を、さらに髓付近からは未成熟材を(ただし圧縮あて材が形成されていないことを確認の上)採取した(いずれもブロック形状)。乾燥させないように注意を払いながら、昇降盤を用いて、それぞれの試験体ブロックから、繊維、接線、半径の各方向の寸法が、それぞれ15 mm、15 mm、5 mmとなるような直方体形状の試験片を、複数個作成した。

(2) 湿熱処理および乾燥処理による寸法変化測定

作製した直方体形状試験片の生材寸法を測定した後、試験片を湿熱処理(120℃、20~40 min 水中煮沸)し、その後室温にまで冷却し寸法を測定した。生材からの繊維方向寸法の変化率を湿熱回復ひずみ(ϵ^{HTR})とした。その後乾燥処理(室内で気乾後、恒温器を用いて60℃で18~20時間乾燥、その後105℃で4~6時間乾燥)を行い、室温にまで冷却し寸法を測定した。湿熱処理後の飽水状態からの繊維方向寸法の変化率を乾燥収縮ひずみ(ϵ^{DS})とした。寸法測定は、Tanakaらの方法を用いて、読み取り精度0.001 mmで行った[5]。

(3) エックス線回折法(XRD)によるセルロースマイクロフィブリル(CMF)の配向状態の測定

寸法測定後、X線回折装置Ultima IV(リガク製)(CuK α 線、強度40 mA×40 KV)を用いて、セルロース200面回折弧に沿う回折強度分布(β -プロファイル)を記録した。得られた β -プロファイルから、Tanakaらによる改良Cave法を用いて、試験片におけるS2層の平均MFA(以後単にMFAと記す)を算出した[5]。

(4) 光学顕微鏡観察

エックス線回折測定終了後、スライディングマイクロトームを用いて、試料から厚さ12~15 μ mの横断切片を採取した。サフランin(1%水溶液)により、120分間染色を施したのち、エタノール水溶液を用いて段階的に脱水した。なお99%エタノール脱水時に、ファストグリーン(0.5%・99%エタノール水溶液)により60秒間染色を施した。その後100%エタノールにて洗浄後、つづいてキシレン・エタノール混合溶液で洗浄、最終的にキシレン中に保存した。その後、切片をスライドガラス上に置き、エンテランニューを用いてカバーガラスで封入した。その後、デジタルカメラDP22を内蔵する光学顕微鏡BX53(オリンパス製)を用いて明視野像を観察・撮像した。

4. 研究成果

(1) 表面成長応力解放ひずみの測定による圧縮あて材の発達程度の事前チェック

樹幹表面におけるあて材組織の発達程度は、繊維方向成長応力(あるいはその解放ひずみ)によって判定することができる[4]。伐採前に、ひずみゲージ法を用いて、木部表面における繊維方向成長応力解放ひずみの測定を行った。樹幹の湾曲部分の下側に沿う多くの測定点で、大きな伸びの解放ひずみ(0.2~0.4%、最大0.5%)が得られた。このことでもって、樹幹の湾曲部分には発達程度の高い圧縮あて材が形成されていることが確認された。

(2) 圧縮あて材、未成熟材、正常材で β -プロファイルにどのような違いがあるのか

図3に、スギ、ヒノキそれぞれから採取した圧縮あて材、未成熟材、正常材試験片についての代表的な β -プロファイルを示す。圧縮あて材、未成熟材、および一部のオボジツ材では、 β -プロファイルは潰れた山型形状となり、それゆえ大きなMFAを持つことが確認された。一方、正常材では相対的に鋭いピークとなり、このことから低いMFAを有することが確認された。

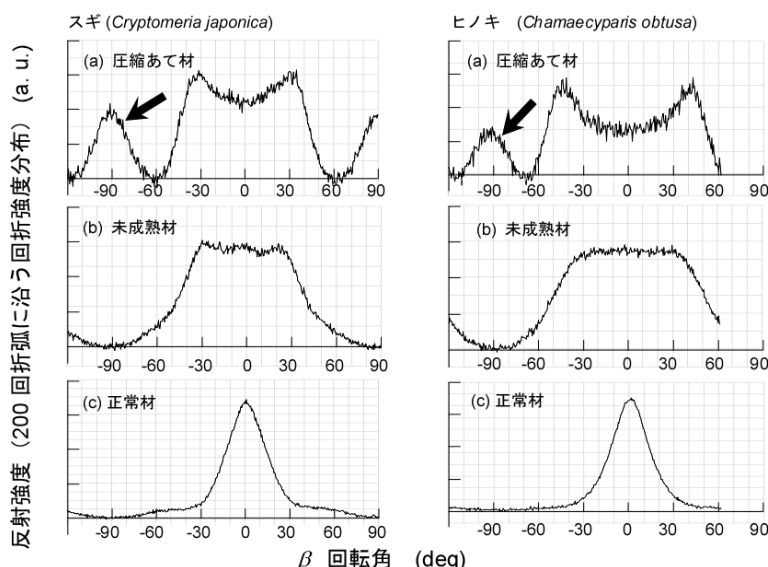


図3. セルロース200回折弧に沿うエックス線 β -プロファイルの実測例。(a) 高度に発達した圧縮あて材、(b) 典型的な未成熟材、(c) 典型的な正常材。矢印(➡)はラテラルピークを示す。

圧縮あて材では、横軸の β 回転角が $\pm 90^\circ$ を示す辺りに大きなピークが確認された(図3(a)の矢印)。以後これを“ラテラルピーク”と呼ぶことにする。なお、未成熟材やオボジット材、さらには正常材ではラテラルピークは全く観察されなかった。ラテラルピークは、仮道管軸とほぼ直角に配向しているCMFの存在を示唆する。これまで多くの研究者は、ラテラルピークはS1層のCMFに由来し、圧縮あて材仮道管ではとくにS1層が厚くなるために(注：このことは必ずしも支持されていない)、このピークが目立って現れると考えてきた(たとえば [6])。しかしながら正常材や未成熟材の仮道管でもS1層は形成される。もしラテラルピークがS1層のセルロース由来ならば、これらにおいても、少なくとも痕跡程度にはラテラルピークが検出されるはずである。しかし、そのような事実が確認されないことから、ラテラルピークはS1層によるものではなく、圧縮あて材仮道管に特有の構造に由来するものと考えられる。

Kim et al.は、分化途上のスギ圧縮あて材仮道管内こう面を、FE-SEMを用いて詳細に観察した[7, 8]。彼らは、リグニンの高濃度集積域であるS2L層(oS2層)で、CMFが繊維軸に対して $70 \sim 80^\circ$ の傾斜角度で配向していること(その外側のS1層では 90° で配向していること)を報告している。このことから、ラテラルピークは(多少はS1層に由来するかもしれないが、その大部分は)厚いS2L層に由来すると考えるのは自然だろう。

(3) 横断面切片S2L層の発達状況の光学顕微鏡観察

横断面における光学顕微鏡観察像を図4に示す。圧縮あて材では、特有の円形輪郭を持つから構成されており、その細胞壁S2層の外縁領域はサフラニンによって強く(赤く)呈色されていた。この領域がS2L層だと考えられる。その外側ではS1層の形成が観察された。一方、未成熟材や正常材(さらにはオボジット材)では、仮道管の輪郭は四角形あるいは六角形であり、圧縮あて材仮道管に見られるような、サフラニンによって強く(赤く)呈色される部分は見られなかった。それゆえ、S2層とS1層を明確に区別することは困難だと考えられる。ここではスギについての結果のみを示すが、ヒノキにおいても全く同様な観察結果が得られた。

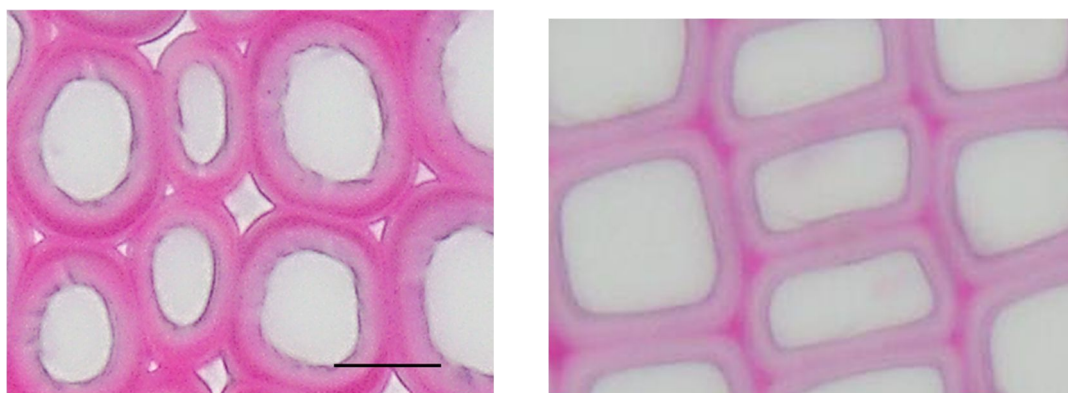


図4. 横断面光学顕微鏡観察結果(明視野像)。左が圧縮あて材、右が未成熟材(ともにスギ)である。両者ともMFAは $45 \sim 48^\circ$ であった。下段のスケールバーは $10\mu\text{m}$ を示す。圧縮あて材仮道管では、二次壁外縁領域がサフラニンによって強く染色されている。この領域がS2L層である。その外側に薄いS1層が観察される。正常材仮道管ではS2Lに相当する領域は観察されない。

(4) MFAは湿熱回復ひずみ(ϵ^{HTR})および乾燥収縮ひずみ(ϵ^{DS})にどのように関わるのか

図5に、 ϵ^{HTR} および ϵ^{DS} のMFA依存性を示す。黒いプロット(●)はすべて β -プロファイルにラテラルピークが確認された試験片であり、圧縮あて材から採取した試験片(一部、圧縮あて材を形成していた未成熟材を含む)である。一般にMFAが大きくなるにつれラテラルピークも相対的に大きくなる傾向が認められた。そのために圧縮あて材試験片(黒いプロット●)では、MFAが大きくなるほど、 ϵ^{HTR} も ϵ^{DS} も、その絶対値が増加する傾向が認められた。

一方、ラテラルピークが認められなかった試験片(黄色プロット○)では、 ϵ^{HTR} も ϵ^{DS} の値は、圧縮あて材試験片に比べてはるかに絶対値が小さかった。これらはすべて、未成熟材やオボジット材、さらには正常材である。

(5) まとめ

a. S2L層とラテラルピーク

S2L層は、既に知られているように、圧縮あて材仮道管に特有な構造であるが、それはセルロース200回折弧(β -プロファイル)におけるLateral peakとして検出される。

b. 圧縮あて材の特異的な力学的挙動におけるS2L層の寄与

圧縮あて材が特異的に示す繊維方向寸法変化(圧縮の成長応力、伸びの湿熱回復、収縮率)には、S2L層が深く関わっている。

c. 仮道管の繊維方向寸法変化にMFAは寄与するのか、それとも寄与しないのか

MFAの増加は、圧縮あて材の特異的に大きな繊維方向寸法変化の発生にとって、十分条件ではないことは確かである。しかしながら、S2L層を形成しない未成熟材では、MFAを極端に大きく

することで、繊維方向に“それなりに大きな寸法変化”を生じる(その大きさは圧縮あて材のそれに比べれば小さい)。こと極端に大きな寸法変化を示す圧縮あて材では、MFAの増大の影響は、副次的には効いていると言えるかもしれない(ただし寄与の割合はS2L層のそれに比べればかなり小さい)。

以上により、本報告書の冒頭の背景に挙げた「50年来の定説」は、修正を迫られるべきだと結論する。

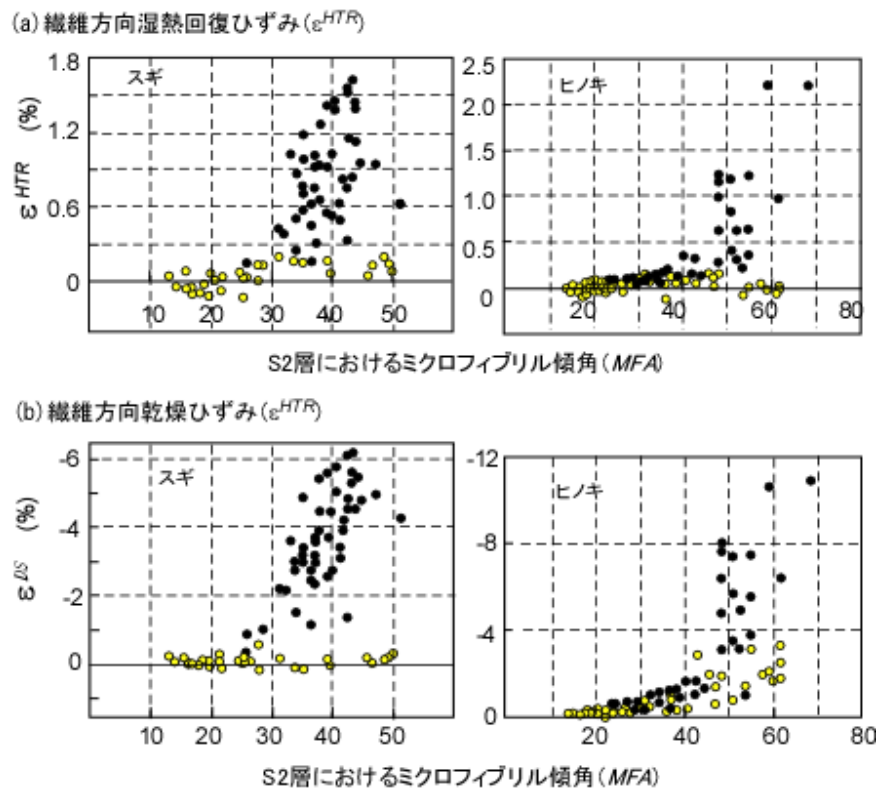


図5. 試験片の繊維方向に沿う湿熱回復ひずみ(a)と、乾燥収縮ひずみ(b)のマイクロフィブリル傾角(MFA)依存性。黒丸(●)は圧縮あて材試験片(一部、圧縮あて材を形成していた未成熟材を含む)であり、すべてラテラルピークが検出された(横断面を光学顕微鏡観察した限りではS2L層の形成が認められた)。黄色の丸(○)は正常材、未成熟材およびオボジット材試験片であり、ラテラルピークが検出されなかったもの(光学顕微鏡観察した限りではS2L層の形成が認められなかった)である。

[引用文献]

- 1) Barber NF, Meylan BA (1964) The anisotropic shrinkage of wood. A theoretical model. *Holzforschung* 18:146-156
- 2) Cave ID (1978) Modelling moisture-related mechanical-properties of wood. 2. Computation of properties of a model of wood and comparison with experimental-data. *Wood Sci Technol* 12: 127-139
- 3) Yamamoto H, Alm eras T (2007) Mathematical verification of the reinforced-matrix hypothesis by Mori-Tanaka theory. *Journal of Wood Science* 53: 505-509
- 4) Gril J, Jullien D, Bardet S, Yamamoto H (2017) Tree growth stress and related problems. *J Wood Sci* 63:411-432
- 5) Tanaka M, Yamamoto H, Kojima M, Yoshida M, Matsuo M, Lahjie A M, Hongo I, Arizono T (2014) The interrelation between microfibril angle (MFA) and hygrothermal recovery (HTR) in compression wood and normal wood of *Sugi* and *Agathis*. *Holzforschung* 68: 823-830
- 6) Boyd JD (1977) Interpretation of X-ray diffractograms of wood for assessments of microfibril angle in fiber cell-walls. *Wood Sc Technol* 11: 93-114
- 7) Kim J S, Awano T, Yoshinaga A, Takabe K (2012) Ultrastructure of the innermost surface of differentiating normal and compression woos tracheids as revealed by field emission scanning electron microscopy. *Planta* 235: 1209-1219
- 8) Kim J S, Awano T, Yoshinaga A, Takabe K (2010) Immunolocalization of β -1-4 galactan and its relationship with lignin distribution in developing compression wood of *Cryptomeria japonica*. *Planta* 232: 109-119

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 山本浩之
2. 発表標題 針葉樹圧縮あて材仮道管におけるS2L層の物理的意義
3. 学会等名 2021年度リグニン学会年次大会（札幌）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 山本浩之ほか7名
2. 発表標題 圧縮あて材仮道管に形成されるS2L層とその力学的振る舞い
3. 学会等名 第72回日本木材学会年次大会（名古屋・岐阜）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 深谷剛、山本浩之、吉田正人、松尾美幸、陳碩也、山崎雄大、安藤幸世、園田里見、花島宏奈
2. 発表標題 圧縮あて材の特異な寸法変化挙動とその発現メカニズム
3. 学会等名 第70回日本木材学会年次大会（鳥取）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Yamamoto H
2. 発表標題 Which compression wood behaviors depends on high MFA or thick S2L?
3. 学会等名 The 10th Plant Biomechanics Conference (Lyon) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Jing Qiyu、山本浩之、吉田正人
2. 発表標題 遅延解放による杉の寸法変化挙動のメカニズムー有機溶媒処理の効果
3. 学会等名 第73回日本木材学会大会（福岡）
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Jing Qiyu、山本浩之、吉田正人
2. 発表標題 圧縮あて材、オボジット材、未成熟材の相違点と類似点
3. 学会等名 日本木材学会2022年度中部支部大会（塩尻）
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	安藤 幸世 (Ando Kosei)	名古屋大学・生命農学研究科・助教 (13901)	
研究協力者	高部 直紀 (Takabe Naoki)	名古屋大学・附属フィールド科学教育センター・技術職員 (13901)	
研究協力者	園田 里美 (Sonoda Satomi)	職業能力開発総合大学校・木工・塗装・デザインユニット・教授 (82727)	

6. 研究組織（つづき）

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	吉田 正人 (Yoshida Masato)	名古屋大学・生命農学研究科・准教授 (13901)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関