

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 6 日現在

機関番号：17102

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2012～2015

課題番号：24688019

研究課題名(和文) オリジナル可視化技術による木材乾燥割れ発生メカニズムの解明

研究課題名(英文) Visualization of growing microcracks on the wood surface during drying under controlled environment

研究代表者

阪上 宏樹(sakagami, hiroki)

九州大学・(連合)農学研究科(研究院)・助教

研究者番号：40604822

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 21,100,000円

研究成果の概要(和文)：木材乾燥割れの発生メカニズムを解明するため、乾燥に伴う木材表面の細胞を経時観察可能なその場観察装置を開発し、温度50℃、相対湿度5%以下の環境で割れ発生形態の一部始終を観察した。コナラ心材および辺材の板目面を観察した結果、木材中に十分な含水率差が生じず、板目面には割れが発生しなかった。心材、移行材、辺材を含むスギの木口面を観察したところ、乾燥初期に心材にマイクロクラックが発生し、乾燥時間の経過とともに発生部位は移行材、辺材へと移動し、出現する時間に差が生じることが分かった。また、イオン液体を使用すると10%程度の低濃度でも割れや収縮を抑制できることがわかった。

研究成果の概要(英文)：Microcracks on the wood surface during drying were visualized with a confocal laser scanning microscope equipped with a controlled environment chamber where temperature and relative humidity were kept at 50 °C and below 5% with time. No microcracks appeared on the tangential surface of *Quercus serrata* because the difference of moisture content between surface and interior was low in this experiment. I could succeed to visualize the emergence of microcracks of *Cryptomeria japonica* at different drying time using samples including heartwood, intermediate wood and sapwood. The first microcracks appeared in heartwood just after drying. Then, they appeared at intermediate wood. The time microcracks appeared in sapwood was seriously delayed. Macrocracks were found after microcracks adjacent annual rings at the same ray parenchyma connected each other. Ionic liquid whose vapor pressure is negligible restrained the shrinkage or microcracks occurring even if it was diluted around 10%.

研究分野：木質科学

キーワード：農林水産 可視化 環境材料 木材 乾燥 組織構造

1. 研究開始当初の背景

再生産可能かつ炭素貯蔵機能に優れた木材利用促進は急務な課題である。しかし生物材料がゆえ、寸法安定性が劣り、材質が不均質となるため性能評価が難しく、他の工業材料と比較すると利用がなかなか進まない。木材を大量消費するためには、安定的に供給でき、予測可能な性能を有したできる限り均質な材料、しかも工業材料よりも安価な材料でなくてはならない。

樹木は生物がゆえ、多量の水分を含む。木は乾燥に伴って異方的に収縮するため、木材として利用するには十分に乾燥しなくてはならない。乾燥には多大なエネルギーコストがかかるため、安価な木材を量産するには乾燥時間を短縮しなくてはならない。しかし、急速に木材を乾燥させると狂いや割れが発生し、品質の低下、歩留まりの悪化を引き起こしてしまう。

乾燥割れの発生を低減させるため、適切な乾燥方法や乾燥スケジュールが数多く研究されているが、樹種や個体でばらつきが大きく、同じ条件で乾燥させても仕上がりがうまくいかないケースも多く、根本的な解決法は見つかっていない。近年、日本ではスギの乾燥法として高温セット法が注目されており、材表面に発生する割れの抑制に効果があるとして期待されている。しかし、一方で表面に現れない内部割れの発生が問題となっている。

乾燥割れの問題が解決できない理由の一つは、割れの発生メカニズムが十分に解明されていない点である。どの教科書にも割れの原因は、収縮異方性および表面と内部の含水率差に起因する乾燥応力であると書かれ、既に原因は解明されていると思われる。しかし、割れ発生形態の一部始終を観察した報告は無い。これまでの研究では、割れが発見される以前に、既に無数のマイクロクラックが発生していることが明らかになった。しかし、このマイクロクラックがマクロクラックに伸長・拡大する様子は観察できず、その多くが閉塞したため、このマイクロクラックの影響は依然として不明のままである。

そこで本研究では発生から残留するまでの一部始終を可視化することを目的に、割れ発生メカニズム解明を目指す。

2. 研究の目的

木材乾燥割れの発生機構を明らかにすることは、割れの無い高品質な乾燥材を生産する上で重要な知見となる。これまで割れの起源を解明するため、独自の経時観察装置を用いて木材表面を観察したところ木口面にマイクロクラックが存在する事が明らかとなった。そこで本研究では更なる知見を得るため、利用面で最も問題となる板目面にも同様にマイクロクラックが発生するのかを共焦点レーザー顕微鏡を用いたその場観察装置で明らかにする。次にマイクロクラックがマ

クロクラックへと進展する様子を総合的に捉えるため、水分量や乾燥特性の異なる心材・移行材・辺材を含む比較的大きな試験片を使用し、木口面をその場観察し、乾燥割れの発生メカニズムを解明する。更には乾燥割れを抑制する方法の一つとして、常温で揮発しないイオン液体の利用可能性を検討するため、低濃度のイオン液体を木材に注入処理し、乾燥による寸法変化、細胞の収縮挙動、およびマイクロクラックの発生挙動を検討した。

3. 研究の方法

3.1 板目面のその場観察

供試材は九州大学農学部附属演習林で採取したコナラの生材の円板を使用した。生材状態の含水率は心材で 63.9%、辺材で 76.4% だった。この円板の辺材から 2cm(R)×2cm(T)×4cm(L) の観察用試験片および含水率測定用試験片を切り出し、3セット準備した。観察面の板目面はマイクロトームにて平滑処理を行った。心材部からは 3cm(R)×3cm(T)×4cm(L) の試料を 1セット準備した。これら 1セットの試料の両木口面をエポキシ樹脂でシールした後、温度 50°C、相対湿度 5%以下に保った 3.4 で記載するその場観察装置に設置した。乾燥開始前の板目面の CLSM およびデジタルマイクロスコープの画像取得と含水率測定用試験片の重量測定を行った後、乾燥させながら 1時間毎に試料表面の CLSM 画像およびデジタルマイクロスコープの画像を取得し、含水率測定用試験片の重量を測定した。乾燥が終了した後、全乾重量を測定して含水率を算出した。

3.2 マクロクラックへ至るマイクロクラックの観察

九州大学農学部附属演習林福岡演習林(福岡県糟屋郡)から伐採した長さ 40 cm のスギ丸太を供試木とした。このスギ丸太の移行材付近から心材と辺材の両部位を含む一辺 3 cm の横断面を有する長さ 40 cm の棒状試験片を切り出し、凍結させた。この凍結試験片から繊維方向に 1 cm 程度の木片を連続して 4 個切り出し、純水中で解凍した後、7 mm (T)×25 mm (R)×10 mm (L) の 4 個のエンドマッチ試験体を作製した。4 個の試験体の 6 面はマイクロトームで平滑にした。4 個の試験片のうち、1 個は経時観察用に、他の 3 個は含水率測定用に供し、これらを 1セットとした。繊維方向に隣接する部位から切り出した試験片の解凍後のそれぞれの部位の含水率は辺材で 168.8%、移行材で 65.4%、心材で 58.7% だった。これら 1セットの試料を 3.4 で記載するその場観察装置に設置し、乾燥開始前の画像取得と含水率測定用試験片の重量測定を行った後、2 分間隔で試料表面の CLSM 画像取得を、1 分間隔でデジタルマイクロスコープの画像を取得した。含水率測定用試験片の重量は 15 分毎に測定し、乾燥後に全乾法にて含水率を算出した。他の 2 つの試

料は乾燥途中で心材、移行材、辺材に分割し、その際の含水率を全乾法にて算出した。

3. 3 イオン液体を含浸させた木材細胞の経時観察

イオン液体を含浸させた木材の収縮挙動を検討するため、寸法測定用試験片と細胞観察用試験片を準備した。本実験では 1-butyl-3methylimidazolium tetrafluoroborate [C₄mim][BF₄] を使用した。寸法測定用試験片は気乾状態のスギ丸太から木口面の一边が 3cm の棒状試験片を切り出し、繊維方向に連続して厚さ 5mm の試験片を連続して切り出した。これらの試験片に純水を減圧注入した飽水状態、103℃で乾燥した全乾状態、10%、20%、30% でエタノール希釈した [C₄mim][BF₄] 溶液を減圧注入した際の状態、その後、真空乾燥および 103℃で乾燥させた状態の四状態における接線方向および放射方向に設定した基準線長を測定し、寸法変化を検討した。

細胞の収縮挙動の観察用試験片は、一辺 5mm のスギ生材の立方体から、CLSM 観察用と重量測定用の 2 つのサンプルを作製した。この生材状態の試料の観察面をマイクロームにて平滑にした後、シリカゲルを入れたデシケータ内で気乾状態まで乾燥させた。その後乾燥器にて温度 103℃で一晩乾燥させて、全乾重量を測定した。無処理の試験片の収縮挙動とイオン液体を含浸させた試験片の収縮挙動を比較するため、気泡が無くなるまで純水を減圧注入して飽水状態にし、温度 50℃、相対湿度 5%以下の環境内でサンプルを 2 時間から 3 時間乾燥させて収縮挙動を CLSM で観察した。実験終了後 10%に純水希釈した [C₄mim][BF₄] 溶液を純水と同様に減圧注入し、約 1 週間浸漬した状態を保った。その後、温度 50℃、相対湿度 5%以下の同一の環境内でイオン液体を含浸させたサンプルを 2 時間から 3 時間乾燥させて収縮挙動を CLSM で観察した。CLSM の画像は 1 分間隔で取得し、含水率測定用試験片の重量は 15 分毎に測定した。

3. 4 CLSM を使用したその場観察装置

本研究では共焦点レーザー顕微鏡 (CLSM、Leica TCS SP8) と精密湿度供給装置および



図 1 本研究で使用したその場観察装置

温度センサー、サーモファンを使用した環境制御装置を組み合わせその場観察装置を開発し、使用した。その場観察装置の写真を図 1 に示す。倒立型 CLSM のステージ上に環境制御ボックスを設置し、相対湿度 5%以下の空気を精密湿度供給装置から供給し、ボックス内の温度をサーモファンと温度センサーで 50℃に制御した。CLSM 観察用試験片は顕微鏡ステージ上に設置して下面の極小視野を観察し、上表面はデジタルマイクロスコープ (3R WM401WIFI) にて巨視的視野で乾燥に伴う形態変化を観察した。また、含水率測定用試験片は観察試験片に隣接した部位に設置した。

4. 研究成果

4. 1 板目面のその場観察

図 2 にコナラ辺材および心材試験片の乾燥過程における含水率の変化と CLSM 画像から求めた接線方向の収縮率の関係の一例を示す。辺材の試験片では乾燥初期に急激に含水率が減少した後に徐々に緩やかとなったが、接線方向の収縮率は緩やかに増加した。一方、心材の試験片では、含水率の低下は辺材と比べると緩やかだったが、接線方向の収縮率は乾燥初期に急激に増加した。しかし、両試験片において、板目面の CLSM 観察視野にマイクロクラックは発生せず、試験終了時に残留する割れは確認できなかった。割れ発生の主な原因は収縮異方性および表面と内部の含水率差に起因する収縮率の違いと一般に考えられているが、本実験で使用したサンプルは髄を含まない試料だったこと、辺材では緩やかに収縮率が増加したため、表面と内部の

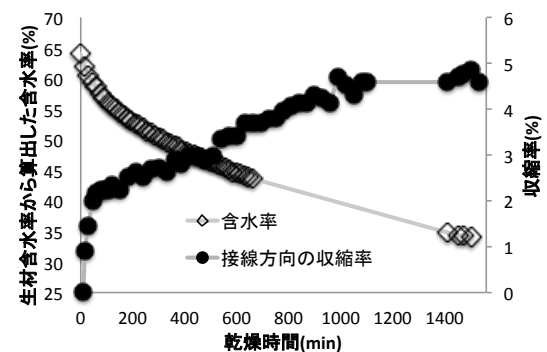
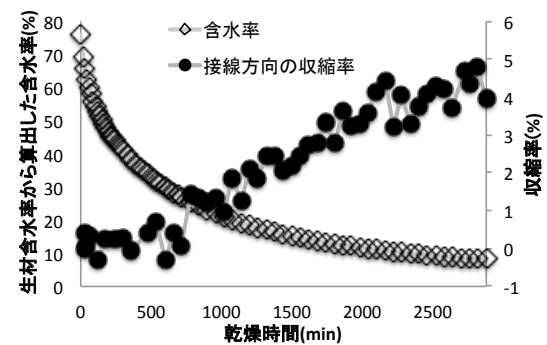


図 2 乾燥過程における含水率および収縮率の変化 (上図: 辺材、下図: 心材)

収縮率の差があまり生じなかったこと、心材では初期に収縮率が増加したが 2%程度に留まったためそれ程大きな差が生じなかったことが原因と考えられる。

4. 2 マクロクラックへ至るマイクロクラックの観察

スギの心材と辺材では含水率差が大きく、また水の透過性も大きく異なるため、乾燥特性の違いが割れの発生形態に大きく影響する可能性が考えられる。図 3 に温度 50°C、相対湿度 5%以下で乾燥させた際の試験片の含水率変化および 49 分後、75 分後の心材・移行材・辺材の含水率の結果の一例を示す。また、図 4、図 5 には同一試験片において発生したマイクロクラックの形態変化を撮影したデジタルマイクロスコープおよび CLSM の画像を示す。乾燥開始前の心材、辺材を含んだ試料全体の含水率は約 120%だったが、乾燥を開始すると急激に含水率が減少し、乾燥時間が 45 分から 60 分程度経過した後に繊維飽和点に達した。その後は緩やかに乾燥し、乾燥試験がほぼ終了した 180 分後には含水率は 5%以下となった。この試験片下側表面を CLSM で観察したところ、乾燥開始 10 分後には心材部にマイクロクラックが発生していた。心材の上面を観察したデジタルカメラで

も 12 分後には同様にマイクロクラックの発生を確認できた。この際、移行材および辺材にはマイクロクラックは確認できなかった。その後、31 分後には移行材付近にもマイクロクラックが出現し、辺材部の視野最外年輪界にマイクロクラックが出現したのは大幅に時間が経過した 57 分後だった。それぞれの部位に発生したマイクロクラックの形態はこれまでの研究と同様に、年輪界の晩材部で出現し、伸長・拡大した後、閉じ始め、実験が終了した際には CLSM で観察出来ないほど閉じたものも存在した。更には、マイクロクラックがマクロクラックへと進展する様子

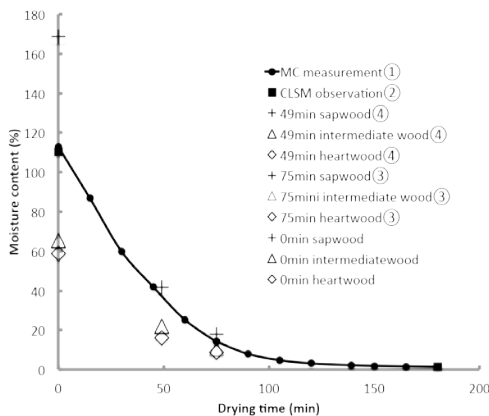


図 3 乾燥に伴う含水率変化

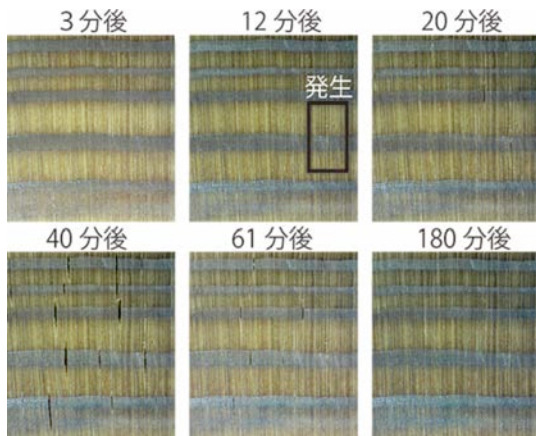


図 4 デジタルマイクロスコープによる心材のマイクロクラックの観察

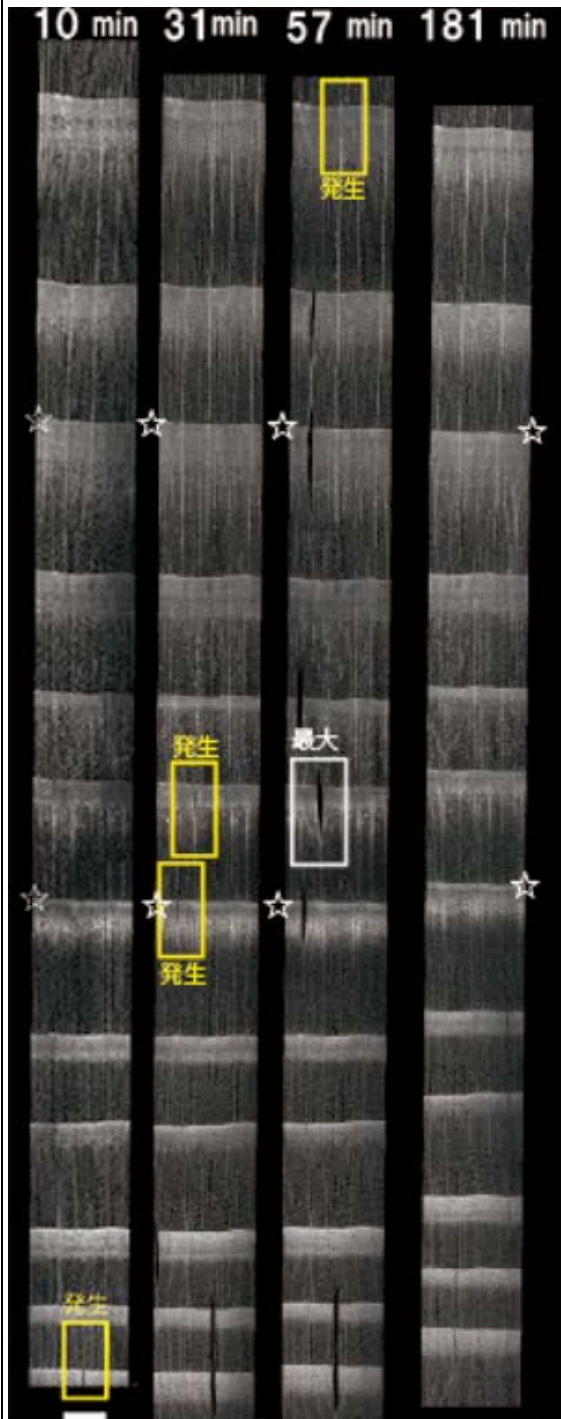


図 5 CLSM によるマイクロクラックの観察 (Bar=500μm、☆印間は移行材を示す。)

も今回の実験で観察出来た。すなわち、隣り合う年輪の同一の放射組織に隣接する晩材部で発生したマイクロラック同士が連結して拡大する様子が観察出来た。以上の結果から、スギ木口面に発生する割れの一部始終を観察することが出来た。発生形態を以下に要約する。まず、乾燥開始直後に含水率が低く、水の透過性が低い心材部の細胞間の結合が弱い放射組織に隣接した密度が高く収縮率の大きい晩材部でマイクロラックが発生し、その後発生は順次樹皮側の晩材部に移動する。この際、同一の放射組織で発生したマイクロラック同士が連結しマクロ割れへと進展・成長することもある。心材に発生したマイクロラックは移行材、更には辺材へと発生場所が樹皮側へ移動する。辺材でマイクロラックが発生した頃には心材の含水率は大幅に低下しており、発生したマイクロラックは閉じ始め、乾燥末期は心材・辺材問わずマイクロラックは閉じる。

以上の発生形態を考慮すると、マイクロラックの発生が順次心材から辺材へと移動するため、仮に同一もしくは隣接した部位でマイクロラックが発生するとそのまま樹皮側へ伸長し、円板ではV字割れ、柱材等では表面割れへと成長する可能性がある。従って最適な乾燥方法を検討する際は心材と辺材で割れの発生時間が大きく異なる事を考慮する必要があることが本研究から明らかとなった。

4. 3 イオン液体を含浸させた木材細胞の経時観察

蒸気圧が極めてゼロに近いイオン液体は真空下でも、100°C程度の温度でも揮発しないため木材乾燥中における寸法変化を抑制し、割れの少ない木材を生産できる可能性がある。一般に水素結合能を有しない有機溶媒は木材細胞壁に浸透しないことが知られているため、イオン液体が木材細胞壁中に浸透出来なければ細胞壁の収縮を抑制することができない。図6に木材に10%、20%、30%でエタノール希釈した[C₄mim][BF₄]を注入した際の接線方向への寸法変化の結果を示す。未処理の木材の全収縮率が6.6%だったのに対して、10%で希釈した[C₄mim][BF₄]の全収縮率は半分程度、30%希釈した[C₄mim][BF₄]ではほぼ収縮しなかった。従って、

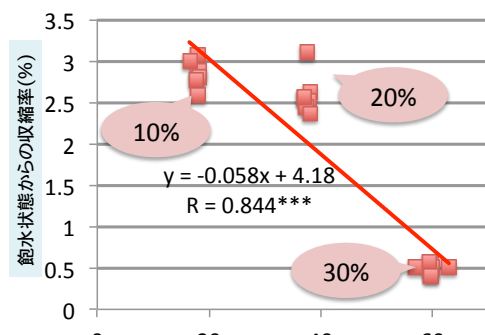


図6 各濃度でエタノール希釈した[C₄mim][BF₄]を注入した材の全収縮率

[C₄mim][BF₄]が細胞壁に浸透し、寸法を抑制していることが分かった。電子顕微鏡観察からも膨潤した細胞壁を観察出来たため[C₄mim][BF₄]は細胞壁に浸透できると考えられる。次に、10%で希釈した[C₄mim][BF₄]がどの程度割れの発生に影響しているかを調べるため、CLSMで乾燥に伴う細胞の形状変化を観察した。その結果の一例を図7に、画像解析から得られた接線方向および放射方向の収縮率の結果の平均値を図8に示す。未処理の試験片では接線方向で約7%、放射方向で約5%程度収縮しており、乾燥に伴ってマイクロラックが発生していた。しかし、10%で希釈した[C₄mim][BF₄]を木材に注入して同様に乾燥させると、乾燥を開始した時は未処理の飽水状態と余り違いはなかったが、未処理試験片と比較すると収縮が抑制されており、接線方向で約3%、放射方向で約1%しか収縮しなかった。マイクロラックは出

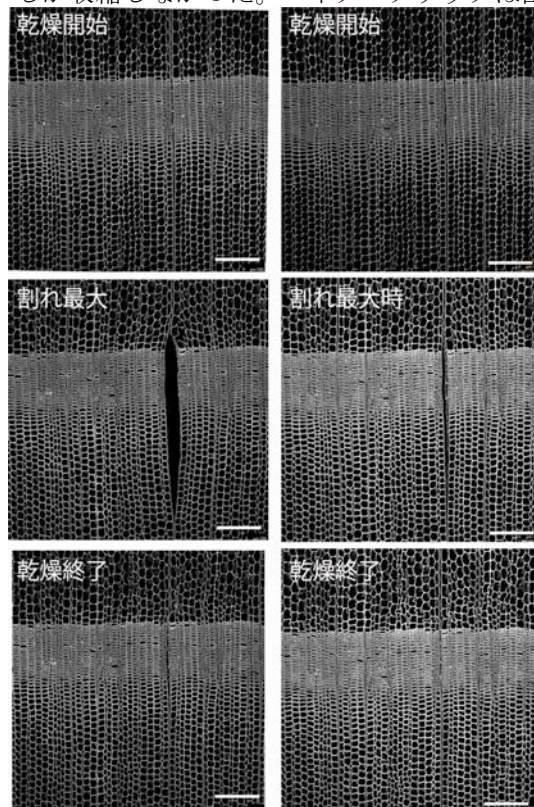


図7 未処理試験片および10% [C₄mim][BF₄]で処理した試験片の収縮挙動

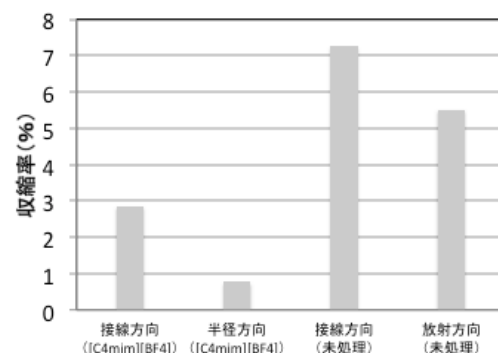


図8 CLSM画像解析から求めた収縮率

現したが、未処理の試験片と比較すると極めて小さいことがわかった。なお、10%で希釈した[C₄mim][BF₄]で処理した試験片は未処理の試験を行った際に既にマイクロクラックが発生していたため容易に出現したと考えられる。従って、割れないサンプルを使用するとマイクロクラックの発生を抑制できる可能性がある。以上の結果から10%程度の濃度でのイオン液体でも木材の収縮を大幅に抑制することが可能であり、イオン液体を使用することで乾燥による変形や割れを抑制できる可能性があることが示唆された。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 1 件)

①阪上宏樹、松村順司、津田哲哉、桑畑進
イオン液体を使用した電子顕微鏡観察による木材細胞の可視化、医学生物学電子顕微鏡技術学会誌、査読有、Vol. 29、No. 1、pp. 14-19

[学会発表] (計 4 件)

①阪上宏樹、松村順司、心材、辺材を含んだスギ横断面におけるマイクロクラックの発生挙動、日本木材学会、2016年3月28日、愛知県名古屋市

②阪上宏樹、松村順司、津田哲哉、桑畑進、イオン液体による木材組織のSEM観察、医学生物学電子顕微鏡技術学会、2014年5月25日、大阪市

③阪上宏樹、松村順司、津田哲哉、桑畑進、イオン液体法によるSEM観察の検討、日本木材学会、2014年3月14日、愛媛県松山市

④H. Sakagami、F. Hatae、H. Yamamoto J. Matsumura、Microcrack occurring during drying in heartwoods with high and low moisture contents、12th International IUFRO Wood Drying Conference、2012年7月31日、Belem、(Brazil)

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

名称：

発明者：

権利者：

種類：

番号：

出願年月日：

国内外の別：

○取得状況 (計 0 件)

名称：

発明者：

権利者：

種類：

番号：

取得年月日：

国内外の別：

[その他]

ホームページ等

なし

6. 研究組織

(1) 研究代表者

阪上 宏樹 (SAKAGAMI、 Hiroki)

九州大学 大学院農学研究院・助教

研究者番号：40604822