

小角散乱によるサガンスギのマイクロフィブリル配向評価 Microfibril Angle Orientations of “SAGAN-SUGI” (Japanese Cedar) characterized by SAXS

廣沢 一郎^a, 鈴木 直幸^b 江島 淳^b,
Ichiro Hirosawa^a, Naoyuki Suzuki^b, Atsushi Ejima^b

^a(公財)佐賀県産業振興機構九州シンクロトン光研究センター, ^b 佐賀県林業試験場

^aSAGA Light Source, ^b Saga Prefectural Forest Experimental Station

佐賀県林業試験場が開発した従来品種よりも成長が早く高強度を有する新品種のスギ（サガンスギ）が高強度であることの理由を明らかにすることを目的として、木材の主要な構成成分であるセルロース繊維(cellulose microfibril: CMF)の仮道管に対する配向角度(microfibril angle: MFA)を小角 X 線散乱により測定した。測定したどの試料においても MFA は樹木の成長に伴って低下し、ある時期を境に一定の値になり、その時期以降に成熟材が形成されていると考えられた。また、高強度な品種の方が MFA が小さく、サガンスギでは CMF が仮道管に対して小さい角度で形成されていることにより高強度が得られていることを示唆する結果となった。更に、品種により成熟材を形成し始める時期が異なる可能性も示された。

キーワード： 小角散乱、マイクロフィブリル、スギ

背景と研究目的：

佐賀県林業試験場が開発した新品種のスギ（サガンスギ）は成長が早い上に従来品種よりも高い強度を有する有望な品種である[1,2]。通常、曲げヤング率等で評価される木材強度は年輪間隔に応じて単調に低下する。一方、成長が早いサガンスギは年輪間隔が広いにもかかわらず従来品種よりも高いヤング率を有しているが、その理由は明らかになっていない。本課題はサガンスギが高い機械的強度を有する理由を明らかにするため、マイクロフィブリル(microfibril)と呼ばれる木材の細胞壁の基本骨格を構成するセルロース繊維束(CMF)の配向状態に注目し、小角散乱を用いた配向状態の定量的な比較を試みた。

従来より、細胞壁内のセルロースの基本骨格は S1 層（外層）、S2 層（中層）、S3 層（内層）から成る 3 層構造を有し、最も体積が多く仮道管方向に配向した S2 層のマイクロフィブリルが木材強度に大きく影響すると考えられている[3]。仮道管方向に対する S2 層マイクロフィブリルの配向方位角は microfibril angle (MFA) と呼ばれ、小角散乱等により導出した MFA とヤング率との間に明瞭な負の相関があることが多数報告されている[4]。そこで、サガンスギが高い機械的強度を有する理由を明らかにするため、MFA に注目して複数の品種について小角散乱測定を行った。

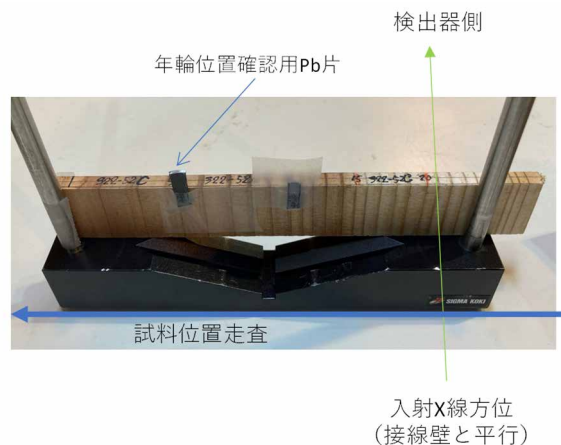
更に、年輪間隔が広い樹木の中心部（未成熟材部）と外側の年輪間隔が狭い部分（成熟材部）では MFA に違いがあることが報告されていることも考慮し[5]、成長速度、及び成熟までに要する期間の違いについても検討した。

実験：

先行研究では波数域 0.01 \AA^{-1} から 0.4 \AA^{-1} の小角 X 線散乱もしくは小角中性子散乱のプロファイルより MFA を導出しているため[6]、BL19B2 の第 3 ハッチに設置された小角散乱装置で、検出器の感度特性も考慮して X 線エネルギー 18 keV 、カメラ長 3046 mm （ベヘン酸銀による較正值）で測定した。この条件で 0.007 \AA^{-1} から 0.34 \AA^{-1} の範囲の散乱プロファイルを得ることができた。

測定試料は成長速度が異なる 2 品種（成長が早く高ヤング率な品種 A、品種 A との比較で成長が遅く低ヤング率の品種 B）について、それぞれ異なる 2 つの部位から採取した計 4 試料である。木材の CMF を対象とした小角散乱測定においては、注目する部位から切り出した薄片を測定することが一般的であり[7]、成熟時期の検討には多数の部位（例えば、年輪ごとに早材部と晩材部）の測定が必要となり試料調製と試料交換に長時間を費やすこととなる。今回は試料調製と試料交

換の時間を短縮するため、図 1 に示すように中心(芯)を含んだ厚さ 5 mm 柾目板を試料とし、X 線が試料面に対して垂直に入射する状態で試料位置走査測定を行った。測定位置間隔は 0.25 mm、各測定点での露光時間は 10 秒とした。なお、試料ステージの座標と年輪位置との対応関係を明らかにするため、試料を透過する X 線強度の走査測定により試料に 5 年間隔で貼り付けた鉛片の座標位置決定を小角散乱測定に先立って行った。



結果および考察：

データ処理手順

図 2(a) は検出器の不感域処理を施した小角散乱パターン(品種 A)の測定例(品種 A)である。(検出器の不感域処理済み)。S2 層接線壁(年輪に平行な細胞壁)と放射壁(年輪と垂直で樹木の成長方向に平行な細胞壁)に由来する散乱が明瞭に観測され、S2 接線壁とほぼ垂直な方向に S1 層由来の弱い散乱も観測されている。なお、接線壁の CMF の傾斜方向は散乱ベクトルに対してほぼ垂直なため小角散乱プロファイルからは MFA に関する知見を得られないが、その両側に観測される接線壁 CMF 由来の散乱の方位角に MFA が反映される。図 2(b) は波数が 0.12 \AA^{-1} となる散乱強度の方位角依存のプロファイルである。この図において中央の最も強いピークが接線壁由来の散乱、その両側のピークが放射壁由来の散乱である。これら 3 つのピークと接線壁と垂直な S1 由来の 2 つのピークを 3 種 5 個のガウス関数(2 個の接線壁に対応するピークの積分強度とピーク幅は共通とする。S1 も同様)と等方的なバックグラウンドの和で測定されたプロファイルの近似が可能である。ここで、放射壁由来の散乱の方位角の差 2α とすると MFA は $\text{arc tan}(\alpha)$ となる。以上のように、全測定データを対象に波数 0.12 \AA^{-1} での散乱強度の方位角分布を 3 種 5 個のガウス関数と等方的な散乱強度の和で fitting し、各測定位置での MFA を求めた。

図 1. 測定試料例。写真左側が木材の中心(芯)。鉛片は左端が年輪に接するように貼り付けている。

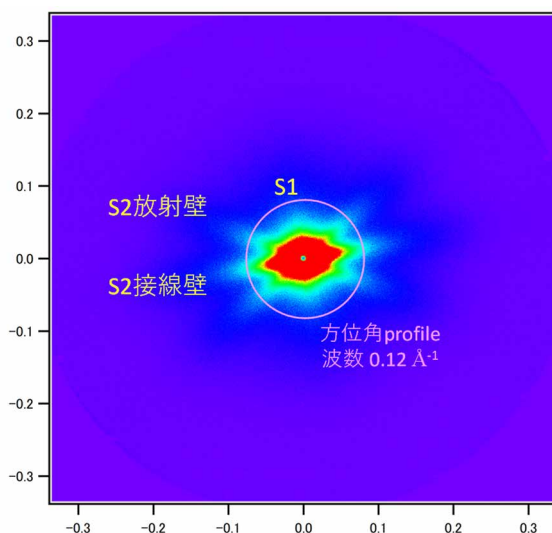


図 2(a). 測定された小角散乱パターンの例。反転対称位置の測定値と動径方向の内挿による不感域処理を施すとともに、縦軸、横軸を散乱ベクトルの波数(\AA^{-1})に変換している。

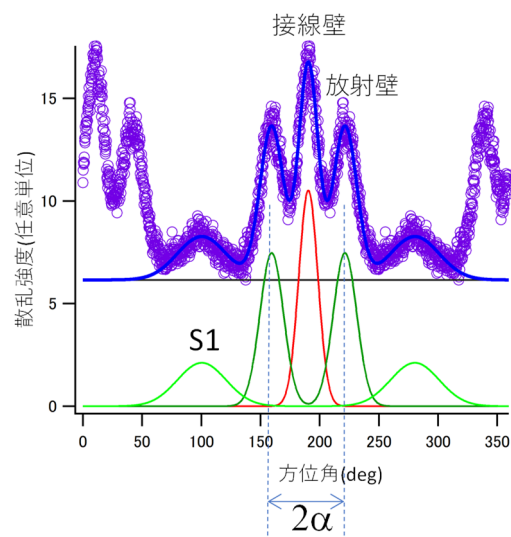


図 2(b). 波数 0.12 \AA^{-1} での散乱強度の方位角分布の例。○が測定値、青曲線が fitting 結果。Fitting で推定した接線壁、放射壁、S1 由来の成分を赤、深緑、淡緑の曲線で示す。

CMF の形状を半径 R の円筒で近似した場合、波数 q での小角散乱強度は $\{J_1(Rq)/q\}^2$ に比例する。図 2(c) は Bessel 関数 $J_1(Rq)$ が漸近的に $q^{-1/2}$ に比例することを考慮して、測定値に q^3 を乗じた小角散乱強度の方位角 (横軸)・波数 (縦軸) 分布の例 (品種 B) である。図 2(c) に示すように波数 q^3 の重みづけにより低角域での強い散乱が抑制され CMF からの散乱を強調することができる。図 2(d) は接線壁 CMF からの散乱が観測される方位角 141° (図 2(c) 黄色破線) での q^3 重みつき散乱強度プロファイルである。波数 0.17 \AA^{-1} 付近に極大が観測されているが、 $x J_1(x)^2$ は $x=2.18$ 付近が極大となることから、CMF の半径 R は約 13 \AA と見積もられた。

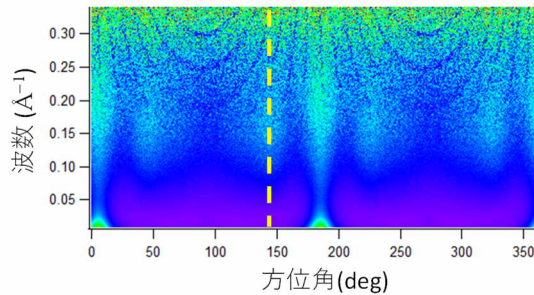


図 2(c). 波数 q^3 重みつき小角散乱強度の方位角 (横軸) 波数 (縦軸) 分布の例。図 2(a) に見られる低波数域での強い散乱が抑制され CMF からの散乱が強調されている。

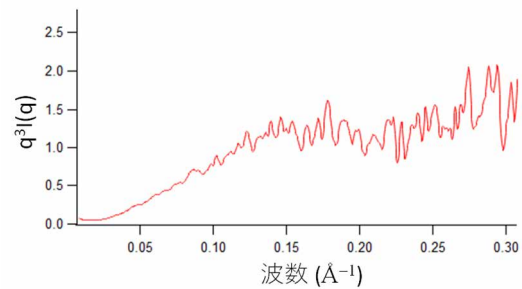


図 2(d). 方位角 141° (図 2(c) 黄色破線) での q^3 重みつき散乱強度プロファイル。横軸は波数である。

密度分布

図 3 に小角散乱測定位置で観測された X 線透過率より計算した試料の X 線吸収 (平均値で規格化した相対値) を示す。この値は測定部位での入射 X 線方向の平均密度に相当するため図 3 は相対的な密度分布を示している。品種 A、B とともに年輪と同期した周期的な密度分布を示し、低密度な部分が春夏に成長する早材、高密度な部分は秋冬に成長する晩材で観測されている。品種による成長速度の違いを反映して品種 A の方が密度振動の周期が長くなっている。更に両品種とも中心から距離 50 mm 付近を境界に、その内側よりも外側の周期 (年輪間隔) が短くなっている。これは林内で樹木間の競合が始まった時期と考えられ、この時期以降の密度周期が安定し、図 4 で示す MFA の角度も安定したため、未成熟材から成熟材への移行時期と考えられる。この視点に立てば、成長が早い品種 A では 7 年目、品種 B では 10 年目以降に成熟材が形成されはじめたこととなる。この結果は成長が早い品種 A の方が早い時期に成熟材を形成し始めることを示唆している。また、品種 A の方が密度振動の振幅が大きく、早材と晩材の密度差が品種 B よりも大きいと言える。

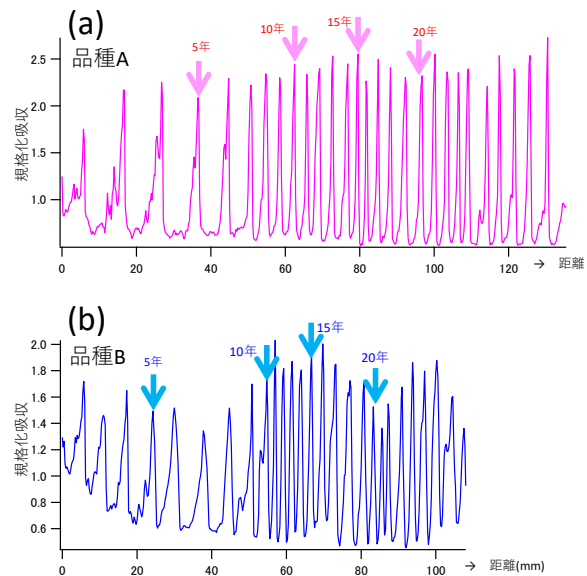


図 3. 小角散乱測定位置における X 線吸収。(a) が品種 A、(b) が品種 B の測定結果で、測定位置 (横軸) は中心 (芯) からの距離 (mm) である。図中の矢印は中心を 1 年とした 5 年間の年輪位置を示している。

MFA

図4に小角散乱パターンより導出した品種Aと品種BのMFAを示す。どちらの品種も早材よりも晩材のMFAが小さく、年輪間隔が狭い成熟材部のMFAは早材、晩材ともにほぼ一定となっている。特に、品種Aでは早材、晩材ともに成熟材部のMFAが未成熟材部よりも小さいが、その一方で、品種Bでは早材のMFAに成熟前後での変化が認められない。なお、早材・晩材、成熟材・未成熟材のいずれの部位においても品種Aの方が品種BよりもMFAが小さい。以上のように、MFAが小さく、より多くのCMFが仮道管の方向に揃っていることが品種Aが高強度であることの理由と考えられる。

今後の課題：

放射壁のMFAが小さいことがサガンスギの強度を高めていることを強く示唆する結果となったが、木材の機械的強度は生育環境にも影響されると考えられるため、確証を得るため系統的な測定が必要と考えている。

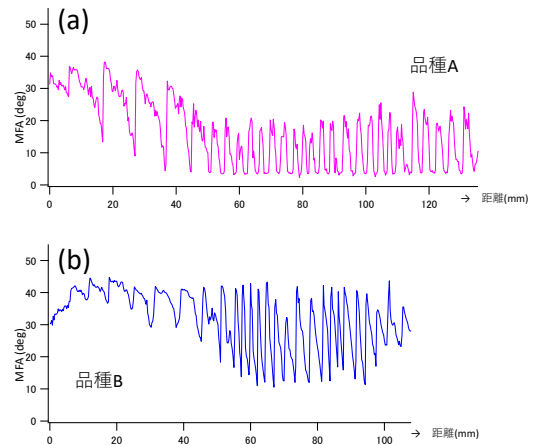


図4. 小角散乱より導出された接線壁のMFA。(a)が品種A、(b)が品種Bで縦軸がMFA(deg)、横軸が中心(芯)からの距離(mm)である。

参考文献：

- [1] 江島、林崎 佐賀県林業試験場業務報告書 令和元年 pp. 5–22.
https://www.pref.saga.lg.jp/kiji00367239/3_67239_189232_up_tlayr0qj.pdf
https://www.pref.saga.lg.jp/kiji00367239/3_67239_226424_up_2sujy87o.pdf
- [2] 江島、多良 佐賀県林業試験場業務報告書 令和2年 pp. 5–30.
https://www.pref.saga.lg.jp/kiji00367239/3_67239_226424_up_2sujy87o.pdf
- [3] L. Donaldson, *IWA Journal* **29**, 345 (2008).
- [4] J.-P. Lasserre et al. *Forest Ecology and Management* **258**, 1924 (2009).
- [5] Y. Yin et al., *IWA Journal* **32**, 77 (2011).
- [6] P. A. Penttia et al., *J. Appl. Cryst.* **52**, 369 (2019).
- [7] H. Horiyama et al., *J. Wood Sci.* **68**, 52 (2022).