針葉樹材単一仮道管の引張破壊形

古川郁夫・佐伯　浩・原田　浩

Tensile Fracture Modes of Single Coniferous Tracheids

Ikuo FURUKAWA, Hiroshi SAIKI and Hiroshi HARADA

目　次

要　旨…… 170
1. はじめに…… 170
2. 材料と方法…… 171
3. 結果と考察…… 171
3.1. 仮道管各壁層の破壊形…… 171
3.2. 構成化学成分と破壊形…… 173
引用文献…… 174
Résumé …… 174

要　旨

本研究では，種々の解繊方法によって得られた夏材単一仮道管の引張破壊部をSEMで観察し，細胞壁各壁層の破壊形の特徴ならびに破壊形に及ぼす脱リグニン，脱ヘミセルロース処理の影響について調べた。

試料としては，スギ，アカマツ夏材部から切り出したチップを，水煮沸軟化法，sodium chlorite脱リグニン法，chlorite処理後17.5% NaOH水溶液で脱ヘミセルロースする方法によって単離された3種の仮道管を用いた。これらの仮道管を乾燥雰囲気中で引張破壊し，その破壊部をSEMで調べた結果，以下のことが分った。

1) フィブリルが横巻き構造をした部分（P—S_1層）ではほつれ出したような破壊形がみられ，フィブリルが急ならせん構造をしたS_2層では，平滑な破断面とトゲ状に引き抜けた破壊形とが認められた。

2) 脱リグニンしたアカマツ夏材仮道管のS_2破断面に限って，多数の同心円状の裂け目とそれに沿って薄いシート状に引き抜けた破壊形が観察された。

3) 脱リグニンと脱ヘミセルロース処理をした仮道管は全体が円筒パイプ状を呈し，その破断面（主としてS_2層）は平滑で，しかも細胞軸方向に対してある角度で傾斜して切断されているのが観察された。

4) 煮沸軟化処理仮道管の破壊には鋭くて長いトゲ状の破壊形が多く観察された。

1. はじめに

著者らは木材の組織構造と材質，とくに強度的性質との関連性を追究する研究の一環として，木材単繊維の縦引張破壊形を電子顕微鏡レベルで調べてきた。これによって細胞壁の破壊機構を解明するための一つの手掛りを得ると同時に，破壊された細胞壁の独特のパターンから細胞壁の微細構造に関する知見を得ることも期待される。

最近，走査型電子顕微鏡（SEM）が各種材料の破断面の観察に用いられるようになってフラクトグラフィー的な研究は急速に進歩しつつある。木材の破壊形観察にもSEMが導入され，従来の方法では観察が困難であった細胞壁の破断面についてもかなり詳しく調べることができるようになった。佐伯ら[1]は，主として針葉樹材のブロックもしくは切片試料を縦引張破壊して，その破壊部をSEMで調べた結果，細胞壁破壊部には二次壁中層（S_2層）が裂けてトゲ状を呈する場合と，細胞軸にほぼ直角に切断する場合とがあり，さらに後者の破断面には平滑な部分とヒダ状の部分とがあることを報告している。ところが，ブロック状や切片状の試料を引張破壊する場合，個々の細胞は細胞間層を通じて互いに拘束し合うであろうから，細胞壁内には必ずしも引張応力のみが作用するわけでなく，実際にはかなり複雑な力によって細胞壁は破壊されると考えられ，破壊形の解釈にも注意を要する。

そこで，本研究ではこのような複雑な木材破断面解釈の一つの糸口を摑む方法として，比較的単純な応力状態のもとで細胞壁が破壊した場合の破壊形の特徴を把握しようとして，一本の仮道管を引張破壊し，その破壊部をSEMで観察することを試みた。この際，とくにS_2層の破壊形に着目して観察を行なった。さらに，単繊維の調製方法を変えることで細胞壁を構成する化学成分の組成の変化が破壊形に及ぼす影響についても若干検討したので，合わせて報告する。

なお，本研究の概要は第23回木材学会大会（1973年4月，京都）において発表した。

2. 材料と方法

材料としてはスギ（*Cryptomeria japonica* D. Don）とアカマツ（*Pinus densiflora* Sieb. et Zucc.）辺材中の同一年輪内からカミソリで切り出した夏材チップを用いた。

チップはエタノール：ベンゼン（1：1）混液で約30時間抽出し，樹脂分を除去した後，解繊を行う。解繊に際し，細胞壁を構成する化学成分の組成の異る単一仮道管を得るために次のような処理を行なった。まず，リグニンのみを除去するために sodium chlorite 法[2]によってチップを処理した。この処理だけでは仮道管同志がくっついたままなので，ピンセットを用いて注意深く個々の仮道管に単離した。つぎに，リグニンとヘミセルロース類を除くために，脱リグニンしたチップをさらに17.5% NaOH 水溶液で処理[3]した。チップはアルカリ溶液中に浸して軽く振とうするだけで容易に個々の仮道管に単離される。さらに，これらの化学的な処理によって得られた仮道管とは別に，できるだけ天然状態に近い単一仮道管を得るために，樹脂分を抽出したチップを水だけで約30分間煮沸軟化した後，ピンセットでチップから直接仮道管を引き抜く方法[4]で単一仮道管を採取した。以上の3種類の方法で調製した飽水状態の仮道管は凍結乾燥[5]後，試料 tab にマウント[5]してから試験に供した。

引張破壊は，五酸化リンで乾燥された雰囲気中で，著者らが試作した手動式引張装置によって行った。破壊後，試料の破壊部に常法どおりカーボンと金を蒸着して，SEM（JSM-U3）で観察した。

3. 結果と考察

3. 1. 仮道管各壁層の破壊形

SEMでは解像度の点から，細胞壁各壁層を正確に区別して観察することは困難である。しかし，仮道管壁を構成する特徴的な壁層である，比較的薄い層でフィブリルが横巻き構造をした部分（P～S_1, S_3層）と，かなり厚い層でフィブリルが急ならせん構造をした部分（S_2層）との区

別は，それらの部分の破壊形状からも明瞭に識別できたので，以下これらの二つの部分の引張破壊形の特徴を述べる。

横巻き構造をした壁層の典型的な破壊形の SEM 写真を photo 1 に示す。これは脱リグニン処理アカマツ夏材仮道管において観察されたもので，写真に示されているように横巻き構造がほつれ出したような特徴的な破壊形を示す。スギ仮道管においても同様な破壊形が観察された。このようにフィブリルが横巻き構造をした部分の外力に対する挙動は，単繊維状の試料ではブロック状試料と異なり，破壊に際して二次的な意味しかもたないであろう。すなわち，横巻き構造部分は S_2 層の切断，裂けに付随して破壊するものと考えられる。

つぎに，S_2 層の破壊形状について述べる。引張応力下にある単一仮道管において外力を負担するのはほとんど S_2 層であり，その破壊形状は破壊過程や S_2 層内部の微細構造とも関連して注目に価する。本実験で観察された S_2 層の特徴的な破壊形は，大別して，(a)平滑な破壊断面を呈する破壊形，(b)引き抜け，引き裂け状を呈する破壊形，(c)ラメラ状を呈する破壊形，の3種類が認められた。もっとも，実際の破壊部にはこれらのパターンのうちのいくつかが組み合わされた形として観察される場合が多かった。また，本実験に使用した樹種の夏材単一仮道管の S_2 フィブリル傾角は，いづれも 3~5°（偏光顕微鏡による測定）で，ほぼ軸方向に平行であった。

(a) 平滑な破断面

単一仮道管が軸方向にほぼ直角に引張破壊された場合，その破壊部分（とくに S_2 層）はカミソリで切った面のように平滑な破壊形状を呈することが多い。その代表的な例を photo 2, 3 に示す。平滑な破断面をさらに詳細に観察すると，そこにはフィブリルの切断先端を示すと思われる粒状構造（photo 4）やトゲ状構造（photo 5）が観察された。もっともこれらの試料は SEM 観察のため金の蒸着膜で覆われているので個々のフィブリルの真の切断形状を見ることはできず，さらに詳細な観察が必要であろう。

また，平滑な破断面でも，単繊維の調製法，試験の雰囲気によって，フィブリルの疎密状態にはかなりの差異が認められた。これは細胞壁の構成化学成分の分布状態や膨潤状態などによる個々のフィブリルの挙動の差異に基づくものと考えられる。

このような，平滑な破断面は，細胞壁内の個々のフィブリルがそのフィブリル方向に作用する力だけで同時にしかも瞬間的に切断された結果生じたものと考えられ，細胞壁破壊の初期において生じたものであろうと著者らは考えてきた。そこで，この点について，単一仮道管の破壊過程を動的に観察し，破壊開始部を確認したうえで，その部分の細胞壁の破断形状を調べた結果，このような平滑な壁破断部分は，多くの場合破壊開始域と見なせることが判明した[6]。

さらに，これらの平滑な破断面には膜孔が含まれることが多く，破壊開始点と膜孔との関係についてさらに詳細な検討が必要である。

(b) 引き抜け，引き裂け状破壊形

単一仮道管の引張破壊部には，細胞壁の一部が裂けもしくは引き抜けたと思われる鋭くて長いトゲ状の破壊形がよく見受けられる。これらのトゲの形状には角錐状のもの（photo. 6），舌状のもの（photo. 7），円柱状，パイプ状のもの等種々の形が観察された。このような種々の形状の引き抜け状破壊形は一体何を意味するものであろうか。この点についても，やはり単一仮道管の引張破壊過程の動的観察によって明らかにされたことであるが，このようなトゲ状の破壊形を呈する破壊はすべて破壊過程の最終段階において認められた[6]。このように，単一仮道管の破壊後期においては，細胞壁はたんにフィブリルの切断だけでなくフィブリル間の大きな裂けをともなって破壊が進行するものと考えられる。すなわち，引き抜け状，引き裂け状の複雑な破壊形状は，破壊過程後期の複雑な応力状態を反映しているものであろう。

(c) ラメラ状破壊形

脱リグニン処理をしたアカマツ夏材仮道管を乾燥状態で引張破壊したとき，その壁破壊面上(とくに S_2 層）に多数の同心円状のパターン（photo. 8）や同心円状の裂け目（photo. 9）が観察された。さらに薄いシート状でかつ同心円状に引き抜けた壁層の一部（本研究ではこれをラメラと称す，photo 10）も観察された。ところが同じアカマツ夏材仮道管でも，煮沸軟化処理により得られたもの，脱ヘミセルロース処理まで施したものの S_2 破断面には，著者らの観察した限り，このようなラメラ状破壊形は認められなかった。さらに試料調製から試験観察まで，アカマツの場合とほぼ同じ条件下で行なわれたスギ夏材仮道管の S_2 破断面上にもラメラは認められなかった。

このように今回観察された S_2 層のラメラ状構造は，限定された場合においてのみ観察されたものであるが，このようなラメレーションの原因としては，(1)アカマツ仮道管壁の S_2 層には本来ラメラ構造が存在し，これらの各ラメラ間が脱リグニン処理によって緩み，そこへ外力が作用することによって今回観察されたようなラメラ状破壊形として本来の構造が発現されたものなのか，(2)それとも，そのようなラメラ構造は天然状態では全く存在せず，その後の化学的な処理，機械的な作用により全く二次的に生じたものであるのか，については現在なお不明であり，今後の研究の課題である。

3. 2. 構成化学成分と破壊形

これまではすべて脱リグニン処理により得た仮道管の破壊部を観察してきたが，ここでは主として水煮沸軟化法により得た試料と脱ヘミセルロース処理まで施した試料の破壊形（とくに S_2 層）について，脱リグニン試料とも比較しながらその特徴を述べる。

煮沸軟化試料は単一仮道管の採取が困難で試験本数も少ないため，詳しいことは今後の研究に待たねばならないが，破壊形の特徴としては，鋭く尖がったかなり長い引き抜け状の破壊形(photo 11）が多く観察され，一部に平滑な破断面も認められた。また，細胞壁の軸方向に裂けた面（photo 12）を観察すると，フィブリルの走行状態が化学処理を施した試料に見られる(photo 13）程明瞭でなく，フィブリルが充填物質に包埋されているように見える。

次に，脱リグニン—脱ヘミセルロース処理を施したアカマツ夏材仮道管の破壊部の代表的なSEM 写真を photo 14 に示す。写真に示されているように，仮道管の断面形状がかなり丸みをおび，ほとんど円筒パイプのような形を示すのが特徴的である。もっともスギはアカマツ程丸くならないようである。このように元来長方形断面をしていたものが円形断面に変わるのは，充填物質（リグニン，ヘミセルロース類）の極度に除去されることによりフィブリルの再配列や体積減少が生ずることによるものであろう。

また，ヘミセルロースまで除去した仮道管の引張破壊部には，引き抜け状の破壊形がほとんど見られず，多くの場合細胞壁全体にわたって平滑で，しかも細胞軸に対してある角度で傾斜して切断されているのがよく観察された（photo 14)。さらに，平滑な破断面を拡大して観察すると，そこにはフィブリルの切断先端と思われる細かいトゲ状の破壊形（photo 15）が認められた。このように，単一仮道管の調製段階で細胞壁内の化学組成を変えることにより，引張破壊形状にかなり特徴的な変化が認められた。

そこで，以上の研究を総括すると，細胞壁の内部構造と破壊形との関連性を追究するのに単一仮道管を用いることは非常に有効であると思う。また，今後は，天然状態に近い単一仮道管について破壊形観察例をさらにふやす一方，正確な化学分析をもとにリグニンやヘミセルロース類を段階的に除去して調製された単一仮道管の破壊形を比較観察することなどにより，細胞壁内にお

けるリグニンやヘミセルロース類の分布状態と破壊形との関係を明確にするとともに，破壊面の形態から細胞壁の内部微細構造（例えばラメラ構造など）について新たな知見を求めて行く努力が必要と思われる。

引 用 文 献

1) 佐伯　浩，古川郁夫，原田　浩：木材の縦引張破断面の走査電子顕微鏡による観察，京大農演習林報告 **43**, 309-319 (1972)
2) JAYNE,, B. A.: Mechanical Properties of Wood Fibers, Tappi, **42**(6), 461-467 (1959)
3) 林産化学実験書，p. 99 東大農林産化学教室編，産業図書 (1956)
4) 古川郁夫：走査電子顕微鏡による単一仮道管の引張破壊形ならびに破壊過程の観察，京都大学修士論文 (1973)
5) FURUKAWA, I., SAIKI, H. and HARADA, H.: Continuous Observation of Tensile Fracture Process of Single Tarcheid by Scanning Electron Microscope, Mokuzai Gakkaishi, **19** (8), 399-402 (1973)
6) FURUKAWA, I., SAIKI, H. and HARADA, H.: J. Electron Microscopy **23** (2), 89-97 (1974)

Résumé

In this study, the tensile fracture modes of single coniferous latewood tracheids obtained by various defibrating methods were investigated using a scanning electron microscope. The results obtained are as follows:

1) The P and S_1 layers whose fibrils wound flat-helically were split along the fibril orientation, showing loosened fibrillar structure (photo 1), and the fracture surface of S_2 layer whose fibrils were oriented almost parallel to the fiber axis was smooth and / or splintery (photos 2, 3, 4, 5, 6 and 7).

2) On the fracture surface of the delignified latewood tracheid of *Pinus densiflora*, many concentric streaks, cracks and thin layers were found (photos 8, 9 and 10).

3) A single tracheid prepared by removing lignin and hemicellulose looked like a cyindrical tube. The fracture surface of this tracheid wall was very smooth, and the plane of the fracture surface was oblique to the fiber axis (photos 14 and 15).

4) At the broken end of the tracheid prepared by using the water-softening method, long splinters were observed (photo 11).

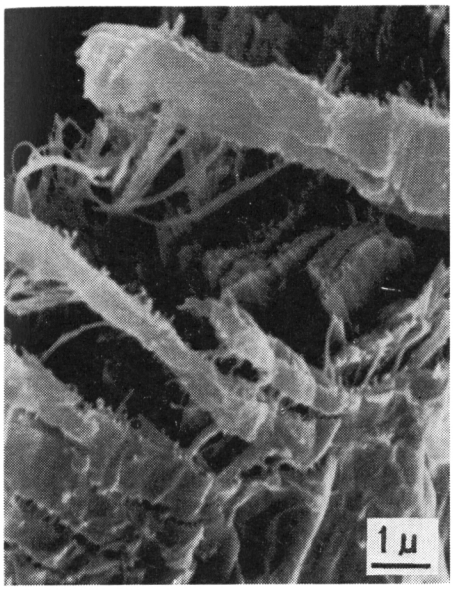

Photo. 1 Scanning electron micrograph of the typical fracture mode in the P-S_1 layers of *Pinus densiflora*, showing the layers split along the fibril orientation.

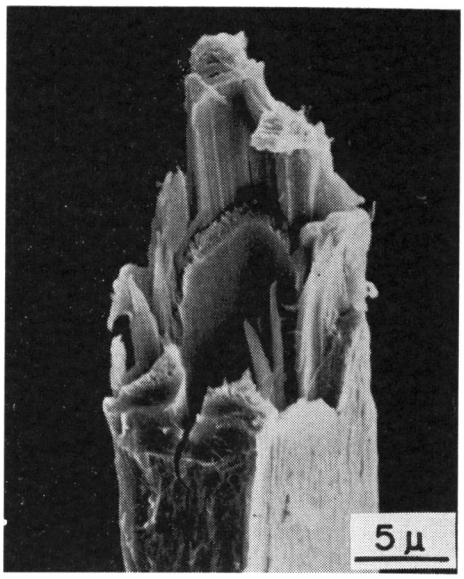

Photo 2. Scanning elertron microgaph of the typical broken end of the delignified single tracheid of *Cryptomeria japonica*, showing both smooth-and splintery-fractured modes

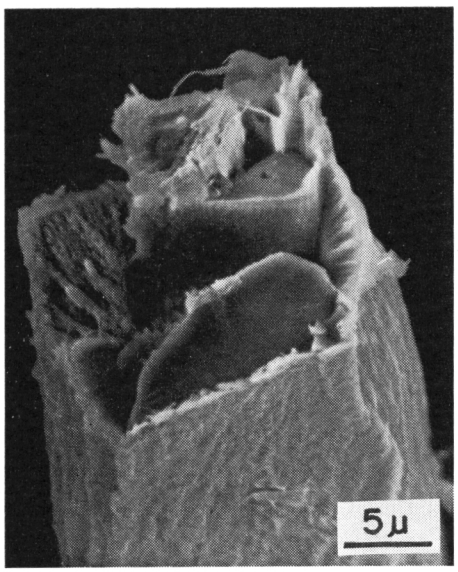

Photo 3. Scanning electron micrograph of the typical broken end of the delignified single tracheid of *Pinus densiflora*.

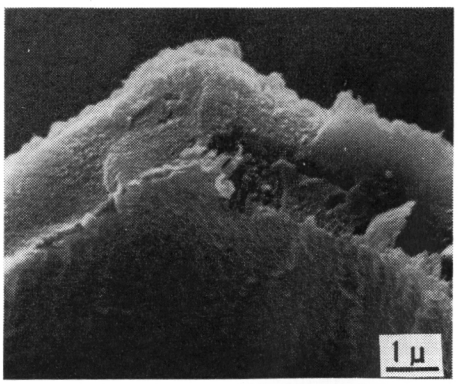

Photo 4. Enlarged view of the smooth-fractured surface of *Cryptomeria japonica*, showing the granullar structure.

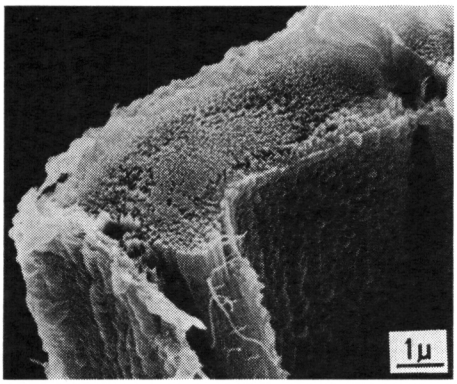

Photo 5. Micrograph of the same surface as shown in Photo 4, showing the minute splintery structure

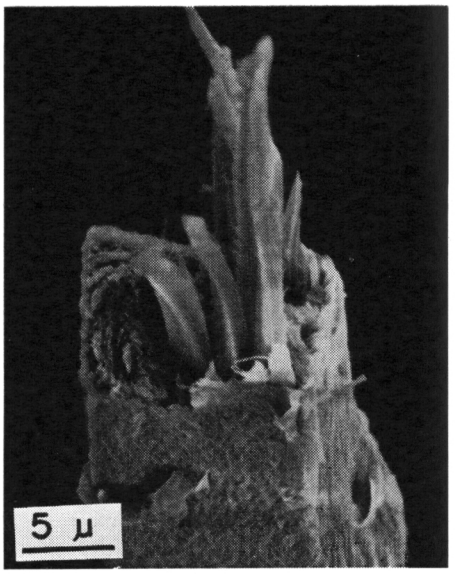

Photo 6. The splintery-fractured mode of the delignified single tracheid of *Cryptomeria japonica*, showing the "fork-like" splinters

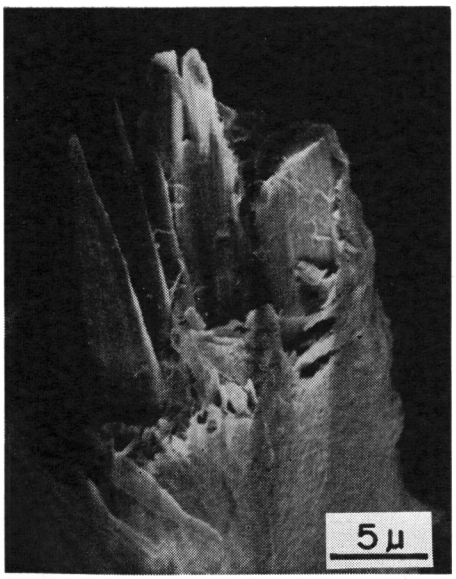

Photo 7. Micrograph of similar portion to that shown in photo 6, showing the "tongue-like" splinters.

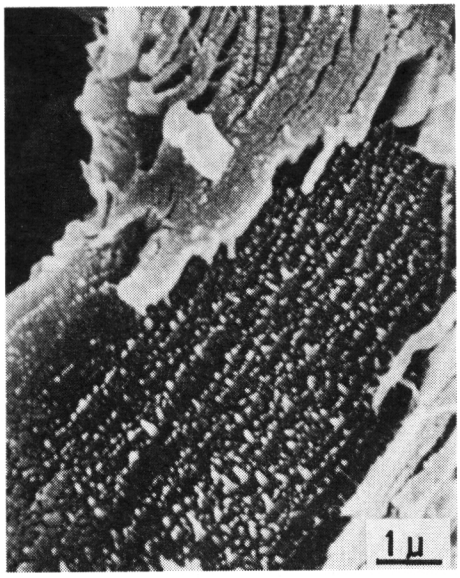

Photo 8. Enlarged view of the fracure surface of the delignified sigle tracheid of *Pinus densiflora*, showing many concentric streaks.

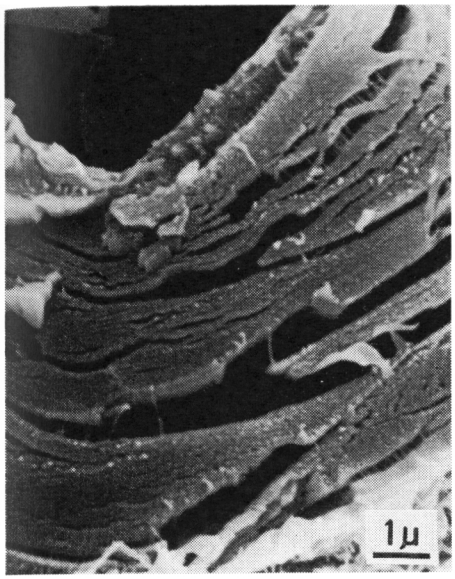

Photo 9. Micrograph of the same surface as shown in Photo 8, showing the concentric cracks.

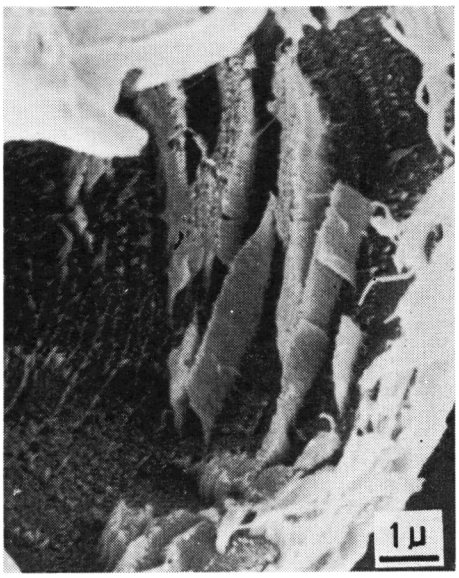

Photo 10. Micrograph of the same surface as shown in Photo 8, showing the concentric thin layers which may be called lamellae.

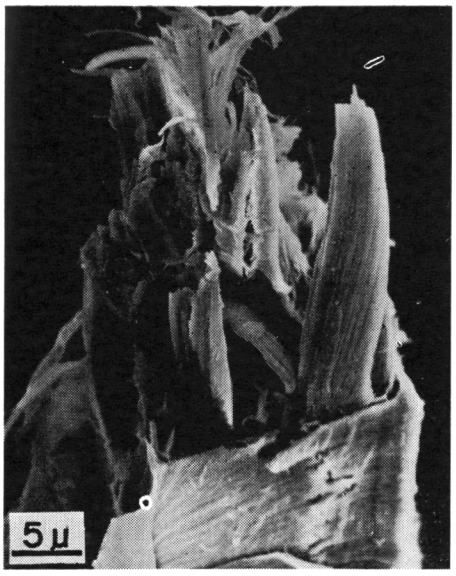

Photo 11. Scanning electron micrograph of the broken end of the single tracheid prepared by using the water-softening method of *Pinus densiflora*. Note the long splinters.

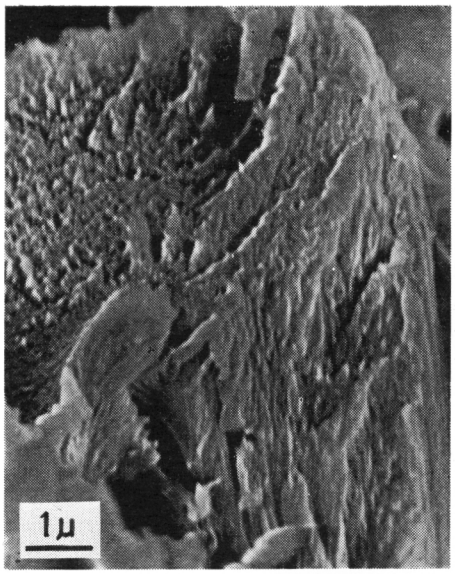

Photo 12. Enlarged view of the split surface of the water-softened cell wall of *Pinus densiflora*.

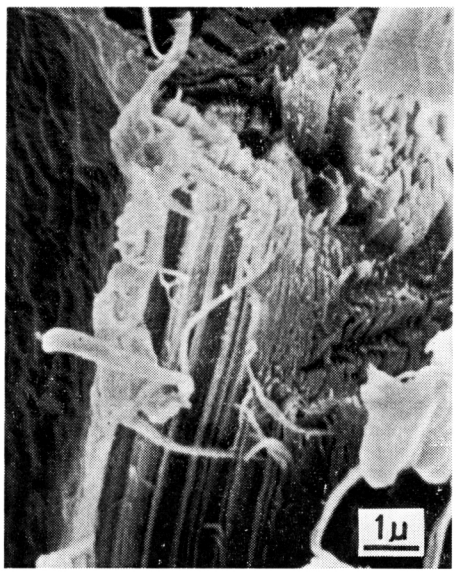

Photo 13. Micrograph of a similav surface as shown in photo 12, showing the split surface of the delignified cell wall of *Pinus densiflora*

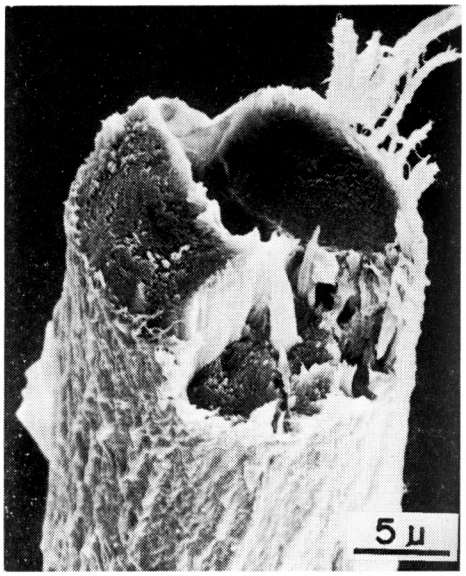

Photo 14. Scanning electron micrograph of the typical fracture mode of the single tracheid prepared by removing both lignin and hemicellulose. The cross sectional shape is nearly round, and the fracture surface is smooth.

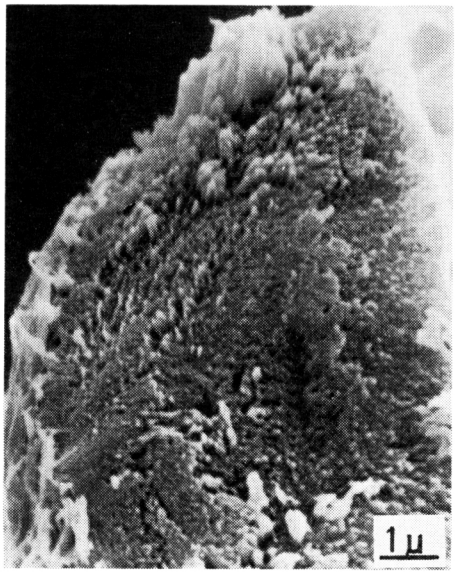

Photo 15. Enlarged view of the same surface as shown in Photo 14.