

針葉樹材中における水の拡散係数の 理論式による計算

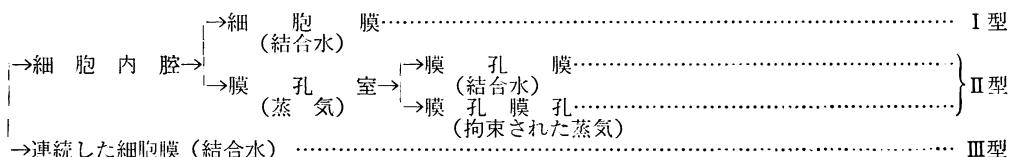
横 田 徳 郎⁽¹⁾

1. は し が き

木材中における水の拡散機構をよりよく理解するための一つの手段は、実測された拡散係数と、木材の組織構造にもとづいて計算された拡散係数とを比較することである。このような試みは1946年に STAMM²⁾によって、構造の比較的簡単な針葉樹材について始められた。同氏は纖維飽和点以下の木材中における水の移動を、細胞膜中の結合水の拡散と、内腔ならびに膜孔中の気相の拡散とに区別した。そしてこれを木材中の毛細管のモデル化された配列（第1図）と組み合わせ、さらに拡散を電流の抵抗と同様に直列、並列の扱いをすることによって、拡散係数をあらわす一つの理論式にまとめ上げた。STAMMはこの理論式を用いて、拡散係数に対する温度、含水率、方向、比重などの影響を計算した。しかし、当時においては細胞膜中の水の拡散係数が含水率によって著しく変化することが知られていなかったので、その計算値はなお満足すべきものではなかったが、鈴木および青山¹¹⁾は STAMM の理論式を用いた計算によって、拡散係数に対する仮道管長、膜孔の開き方の影響を論じた。

その後 STAMM は細胞膜中の水の拡散係数の実測値³⁾⁴⁾を理論式に入れて、含水率 20%における Sitka spruce の拡散係数を計算して実測値と比較したが、さらに 1961 年に第 1 図のような拡散通路のモデルのもとに、新しく拡散係数の理論式を設定して⁶⁾、pine 材の乾燥拡散係数を計算した。同氏はこれによって、比重 0.2~0.8 の針葉樹材の断面方向における拡散係数を、25~120°C の温度範囲にわたってもとめ、計算値と実測値が比較的よく一致すること、ならびに係数の対数と比重の間には直線的関係のあることを知った。

STAMM の理論式はしかしながら、材の比重の扱い方その他に不合理な点があり、また実測値と計算値の比較のための換算のし方にも問題があるので、あらたに理論式を導びき、これに著者が測定した細胞膜中の水の拡散係数を適用して、吸湿および脱湿両過程における水の拡散係数を、いろいろの温度、平衡含水率、比重について計算し、実測値との比較を行なった。



第1図 針葉樹材中における拡散の通路を示す図 (STAMM⁶⁾)

Fig. 1 Diffusion paths in coniferous woods (STAMM).

(1) 林産化学部林産化学第一科長

2. 拡散係数の理論式

木材中における拡散通路のモデルは第 1 図にもとづいている。このモデルは木材中における水の拡散通路を、細胞内腔と細胞膜を交互に繰り返して通る I 型、細胞内腔と膜孔を交互に通る II 型、連続的に細胞膜のみを通る III 型に区別している。そして拡散を電流と同様に考えると、I + II と III 型はそれぞれ並列の関係にあり、また細胞膜と膜孔、膜孔膜と膜孔膜小孔とはそれぞれ並列の関係にある。他方、内腔と細胞膜（膜孔を含む）、膜孔室と膜孔膜または膜孔膜小孔とはいずれも直列の関係にある。これから (1) 式を導くにあたって、上記の組織的要素はすべて比率で表わされる。

$$D_{t, r} = \frac{1 - q_{v\theta}}{\frac{l_{ce}}{D_{v1}} + \frac{1 - l_{ce}}{D_b(1 - q_{pa}) + \frac{q_{pa}}{\frac{l_{pc}}{D_{v1}} + \frac{1 - l_{pc}}{D_b(1 - q_t) + D_{v2} \cdot q_t}}}} + D_b \cdot q_{v\theta} \dots\dots(1)$$

(1) 式中の文字の意味は次のとおりである。

$D_{t, r}$: 木材の基本容積¹²⁾中における水の拡散係数 (cm^2/sec)、 t, r はそれぞれ接線、半径方向を示す。

D_b : 木材質の基本容積中における水の拡散係数 (cm^2/sec)

D_v : 40°C における水蒸気の拡散係数¹⁾、 $0.28\text{cm}^2/\text{sec}$

D_{v1} : 40°C における水蒸気の拡散値

$$D_{v1} = \frac{\text{飽和水蒸気の空気中における濃度 (g/cc), } 40^\circ\text{C}}{\frac{\text{木材の纖維飽和点 (g/g)} \times \text{木材質の密度 } g_0 (\text{g/cc})}{\text{木材の比重 S.G.}}} \times D_v$$

$$= \frac{0.28 \times 0.51 \times 10^{-4}}{0.3 \times 1.46} \times \text{S.G.} = 0.326 \times 10^{-4} \times \text{S.G.} (\text{cm}^2/\text{sec})$$

D_{v2} : 膜孔膜小孔中における水蒸気の拡散値、 40°C

$$D_{v2} = D_{v1} \times \frac{1}{40} = 0.326 \times 10^{-4} \times \frac{1}{40} \text{ S.G.} = 0.815 \times 10^{-6} \times \text{S.G.} (\text{cm}^2/\text{sec})$$

g_0 : 木材質の密度、 1.46 g/cc^2

l_{ce} : 接線または半径方向において細胞内腔の占める長さの比率

$$l_{ce} = 1 - q_{v\theta} = \sqrt{1 - \frac{\text{S.G.}}{1.46}}$$

l_{pc} : 膜孔の全長（細胞膜に対して垂直の方向）に対して膜孔室の占める長さの比率、STAMM²⁾ にしたがってこの値は 0.855 とする。

$q_{v\theta}$: 木材の横断面において、拡散方向に直角な細胞膜の占める面積の比率、 $1 - l_{ce}$

q_{pa} : 細胞内腔の膜面上において孔口の占める面積率。顕微鏡写真のデータから計算する。半径方向の q_{pa} は接線方向のそれの $1/2$ とする²⁾。

q_t : 膜孔膜上において小孔の占める面積率。STAMM²⁾ の測定値 0.015（接線方向）を用いる。半径方向はこの $1/2$ の値とする。

以上の各項のうち、木材の組織的データに関する l_{ce} は材の比重（絶乾重量—絶乾容積基準）から計算で求められ、 $q_{v\theta}$ は $1 - l_{ce}$ であり、 l_{pc} 、 q_t はそれぞれ一定の値 0.855 および 0.015 である。 q_{pa} の値は顕微鏡写真¹⁰⁾を用いて計算した。その値はスギでは接線方向で 0.033、トドマツでは 0.0094 であった。 l_{ce} 、 $q_{v\theta}$ の値も初めは顕微鏡写真を用いて細胞膜の厚さを測り、計算でもとめたが、上記の式から計算した値

と大差のないことが知られたので、もっぱら比重からの計算によることとした。

(1)式を導くにあたっての基本的な考え方は STAMM が行なったのと同じである。すなわち、拡散に対する抵抗は電流の抵抗と同じく、拡散する長さに比例し、拡散断面に反比例するものとして、前記の直列、並列の関係を式数化してある。

拡散係数は本来（長さ）²（時間）⁻¹のディメンションをもって表わされるので、木材中のいろいろの拡散についてもこのディメンションが用いられることが多い。とくに木材の場合には長さの尺度をきめるにあたって基本容積基準にしたがうと便利である¹²⁾。こうすることによって CRANK らの拡散方程式の適用が可能となり、試料の厚さには木材の絶乾時の厚さをそのまま用いることができる。しかし一方、(1)式のなかの D_{v1} は水蒸気の拡散係数をそのまま用いることはできなくなり、前記のような換算が必要となる。基本容積基準の拡散係数は前報¹²⁾で測定されたように、吸湿または脱湿による重量変化から容易に算定することができるが、こうしてえられた拡散係数はある特定の比重の材に固有の値と考えるべきものである。したがって、著者は拡散係数を算出するにあたり、いろいろの比重について別個に計算を行ない、異なる比重への換算は一切行なわなかった。

D_{η_2} は D_{η_1} の 1/40 として計算された。これは TARKOW and STAMM の報告に基づくものである。 D_b が含水率によって変化することから考えると、(1)式の $D_{t,r}$ は平均拡散係数 $\bar{D}_{t,r}$ を表わし、本報でも拡散係数はすべて平均拡散係数の値で示されている。 D_b の値はしたがって、それぞれの含水率範囲についての平均値で実際の計算に際しては著者の測定値⁸⁾⁹⁾ を用いたが、これは基本容積基準で測定されてあるので換算を要しない。

3. 拡散係数の計算値と実測値の比較

前項で述べた各値を(1)式に入れて40°Cにおける平均拡散係数 \bar{D} を計算し、すでに報告した実測値¹²⁾と比較した。実測に供されたスギの比重は0.237～0.299、トドマツのそれは0.387～0.415、含水率はおよそ4.5, 10, 15, 22%だったので、これに相当する値が計算でもとめられた(第1表)。計算値と実測値との比の値を表でみると、吸湿では2, 3の極端な例を除けばおおむね0.4～1.5の間にあり、脱湿では0.8～1.8の間にある。期待値1,000からの標準偏差は吸湿が0.267、脱湿が0.595で、(1)式の適合性は吸湿の方が良好である。STAMM⁶⁾の結果では実測と計算の比は0.45～0.82で前者の分がつねに小さな値となつた。このデータは温度50～120°C、初期含水率約29%、比重約0.38～0.45のLoblolly pineの脱湿拡散係数である。

4. 拡散係数の計算値と含水率、比重、温度との関係

(1)式による計算値は正しく実測値を与えるものということはできないが、前項で述べた一致の範囲において、拡散係数と含水率、比重、温度との関係を計算によって知ることができる。

異なる温度における平均拡散係数 \bar{D} を(1)式によって計算するためには、各温度における水蒸気の拡散係数 D_v および細胞膜中の水の拡散係数 D_b を知る必要がある。

D_v は次式によって温度変化を生ずる¹⁾。

第1表 木材中における水の拡散係数の計算値と実測値

Table 1. Calculated and observed value of diffusion coefficient of moisture in bulk wood.

樹種 Species	比重 Specific gravity	拡散方向 Direction of diffusion	平衡または初期含水率 E. M. C. ** or I. M. C. ** %	$\bar{D}_{1/2} \times 10^6 \text{ cm}^2/\text{sec}$		比 Ratio
				計算値 Calcd.	実測値 Obsvd.	
スギ Sugi	0.237	R*	4.5	0.565	1.395	0.405
	0.237	"	9.2	1.17	3.05	0.384
	0.240	"	15.0	3.117	4.54	0.686
	0.287	"	22.5	3.73	2.265	1.645
	0.299	T*	4.5	0.1963	0.604	0.292
	0.287	"	9.2	0.571	1.087	0.525
	0.291	"	15.0	1.03	1.94	0.531
	0.294	"	22.5	1.603	1.574	1.018
トドマツ Todomatsu	0.398	R	4.5	0.247	0.291	0.848
	0.415	"	9.5	0.579	0.731	0.793
	0.401	"	15.5	1.927	1.256	1.535
	0.387	"	22.5	2.35	1.173	2.05
	0.391	T	4.5	0.079	0.110	0.718
	0.390	"	9.5	0.243	0.386	0.630
	0.392	"	15.5	0.613	0.972	0.631
	0.390	"	22.5	0.737	0.847	0.870
スギ Sugi	0.237	R	5.17	0.819	1.095	0.748
	0.237	"	11.39	1.99	2.52	0.790
	0.240	"	15.34	3.067	3.105	0.987
	0.287	"	21.79	4.32	4.53	0.953
	0.299	T	5.21	0.300	0.414	0.724
	0.289	"	12.21	0.980	1.22	0.802
	0.291	"	16.0	1.763	0.963	1.83
	0.294	"	23.72	3.43	2.83	1.211
トドマツ Todomatsu	0.398	R	4.4	0.402	0.291	1.378
	0.415	"	11.55	1.177	0.789	1.492
	0.401	"	14.92	1.99	1.00	1.99
	0.387	"	22.90	4.12	2.345	1.76
	0.391	T	4.97	0.2034	0.1089	1.865
	0.390	"	12.16	0.622	0.578	1.075
	0.392	"	15.03	1.042	0.576	1.81
	0.390	"	24.26	2.74	1.376	2.00

* R, T はそれぞれ半径、接線方向を表わす。

** E. M. C. と I. M. C. はそれぞれ平衡含水率、初期含水率を表わす。

* R and T are radial and tangential respectively.

** E. M. C. and I. M. C. are equilibrium moisture content and initial moisture content respectively.

(2)式中の D_0 は T_0 すなわち 273°K における D の値で $0.220 \text{ cm}^2/\text{sec}$ である。 D_{r1} の計算に用いられた D_0 の値、飽和水蒸気の濃度および纖維飽和点は第2表に示してある。

他方、いろいろの温度における D_b の値は、20~60°C の吸湿過程で実測された拡散の活性化エネルギーの値¹³⁾ 14 Kcal が、100°C まで適用できるものとして計算された。脱湿過程の D_b は 40°C の実測値があるので、活性化エネルギーも知られていないので、本項の計算はすべて吸湿過程のみに限られている。

第2図には含水率 0% のスギ材が 20°C および 60°C において半径方向に吸湿する場合の、平均拡散係数に対する比重および平衡含水率の影響が示されている。温度および比重のいかんにかかわらず、平均拡散係数の対数は平衡含水率(E.M.C.) 約 16% までは直線的に増加する。このことはスギについての実測値

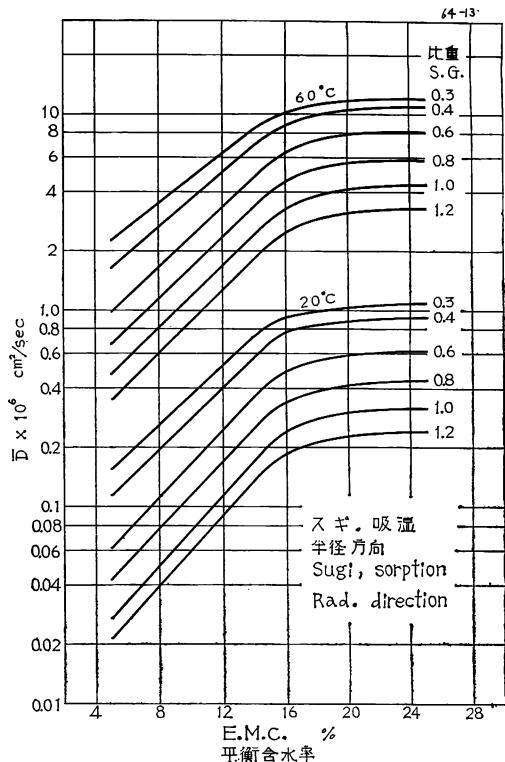
第2表 いろいろの湿度における水蒸気の拡散係数および木材中における拡散値
Table 2. Diffusion coefficient and diffusion value of water at different temperatures.

温 度 Temp. °C	T °K	D_v cm ² /sec	飽和水蒸気の濃度 Conc. of satd. water vapor g/cc	織 織 鮑 和 点 Fiber saturation point	D_{n_1} cm ² /sec
20	293	0.249	0.173×10^{-4}	0.31	$0.095 \times 10^{-4} \times S.G.*$
30	303	0.264	0.304 "	0.30	0.183 " "
40	313	0.280	0.510 "	0.29	0.326 " "
50	323	0.295	0.831 "	0.28	0.597 " "
60	333	0.312	1.302 "	0.27	0.817 " "
70	343	0.328	1.982 "	0.26	1.713 " "
80	353	0.345	2.935 "	0.25	2.770 " "
90	363	0.362	4.235 "	0.24	4.380 " "
100	373	0.380	—	0.23	—

* S.G. は比重。 S.G. represents specific gravity of wood.

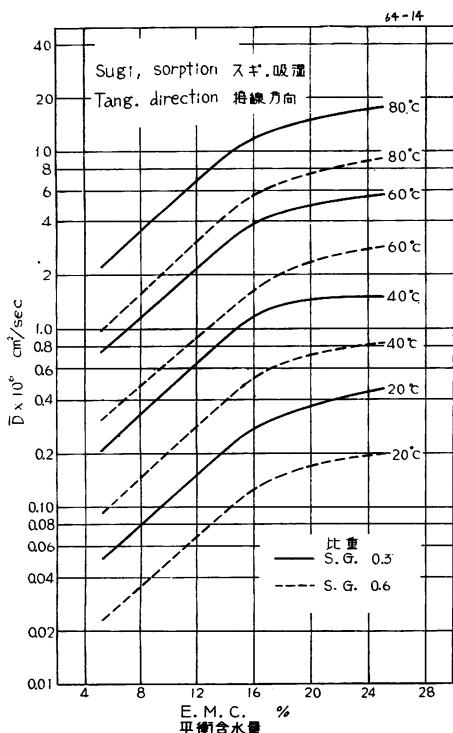
においてすでに認められている¹²⁾。平均拡散係数の計算値は比重の小さいほど、温度の高いほど大きくなる。材の比重が大となるにしたがって細胞膜中の拡散の占める割合が大となり、これが拡散係数減少の原因となる。スギ材は実際には 0.6 以上の比重をもつものは存在しないであろうから、第2図の曲線の大部分は実験的に確かめることのできないものであるが、これらの曲線は理論的考察には役立つのである。このことは以下に述べる各図についても同じである。

第3図は同じくスギ材の接線方向における平均拡散係数が、比重、温度でどのように変わらるかを示している。各曲線はほぼ平行であるから、平均拡散係数の対数 $\log \bar{D}$ は比重に逆比例して、また温度に正比例して増加するものようである。そこで次に、いろいろの比重と平衡含水率をもつ材について平均拡散係数を計算し、その対数と温度との関係をグラフに描いてみた。その結果が第4図で、互いに平行な一群の曲線がえられた。多数の曲線を描いてみた結果、E.M.C. /S.G. (= ϕ



第2図 平均拡散係数 \bar{D} に対する材の比重の影響
Fig. 2 Effect of specific gravity on the average diffusion coefficient \bar{D} .

とする)の値が同じであれば、曲線は同一のものとなる傾向がみとめられ、さらに、ある温度における $\log \bar{D}$ と $\log \phi$ との間には比例関係が存在している。第4図はスギの接線方向の吸湿拡散係数であるが、上記の関係をスギの半径方向の吸湿について、計算でもとめた結果が第5図である。この図を用いれば、任意の比重と平衡含水率をもつ材の、ある温度における平均拡散係数を図上でもとめることができる。

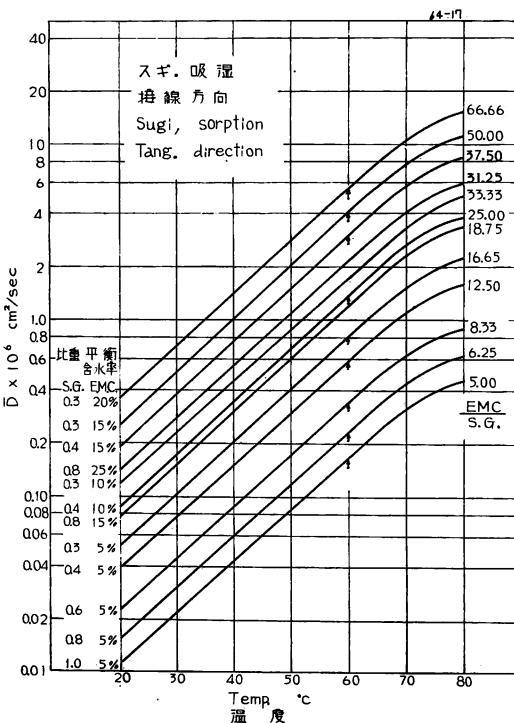


第3図 平均拡散係数 \bar{D} に対する温度の影響
 Fig. 3 Effect of the temperature on the average diffusion coefficient \bar{D} .

木材中における水の拡散のうちで、膜孔がどの程度の役割を演じているかを知ることは非常に興味のある問題であるが、(1)式を用いる計算によってこれを推定することができる。すなわち、(1)式中の膜孔に関する項、(2)式

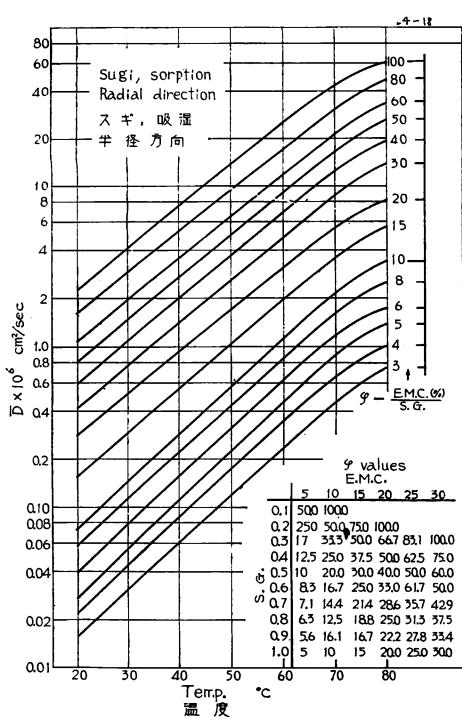
を0として \bar{D} を計算し、その値を (\bar{D}) とすれば、 $1 - (\bar{D})/\bar{D}$ が膜孔の役割（第1図のII型）を表わす。第6図の上段はスギの吸湿過程（接線方向、40°C）における $1 - (\bar{D})/\bar{D}$ と平衡含水率との関係を示しているが、この図によればその値は各比重ともに平衡含水率の増加とともに減少し、比重が大きいほど大である。膜孔中の拡散は気相の拡散がその大部分を占めているので含水率によって変動が少なく、他方残余のI、III型の方は含水率によって拡散係数の増加する細胞膜中の拡散が大部分を占めるので、 $1 - (\bar{D})/\bar{D}$ は全体として含水率の増加によって減少する。

第6図の下段は $(\bar{D})/\bar{D}$ と平衡含水率の関係を示している。比の値は各温度とも平衡含水率とともに増大するが、20°Cの場合 0.76~0.83 の間にあって、その変化は大きいとはいえない。温度の影響もそれほど大きくない。 $(\bar{D})/\bar{D}$ の比は第1図の拡散通路のうちのI型とIII型の和が全体の拡散に対して占める役割を比率で表わしているものであって、I型とIII型が主として細胞膜中の拡散よりなることを考えると、比の



第4図 いろいろの比重、平衡含水率をもつスキ
材の平均拡散係数 \bar{D} と温度との関係

Fig.4 Relation between temperature and average diffusion coefficient \bar{D} of Sugi-wood having different equilibrium moisture contents and specific gravities.



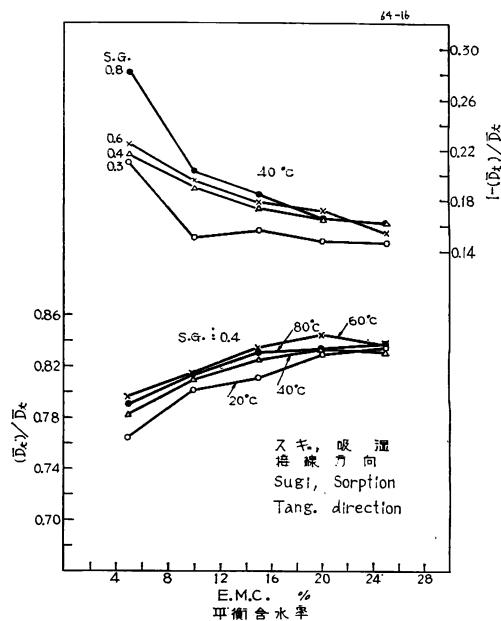
第5図 スギ材の半径方向における吸湿平均拡散係数 \bar{D} と温度、比重 (S.G.)、平衡含水率 (E.M.C.) の関係

Fig. 5 Correlation between average diffusion coefficient \bar{D} of Sugi-wood in the radial direction and temperature, specific gravity and equilibrium moisture content.

値が含水率によって増加するのは当然である。

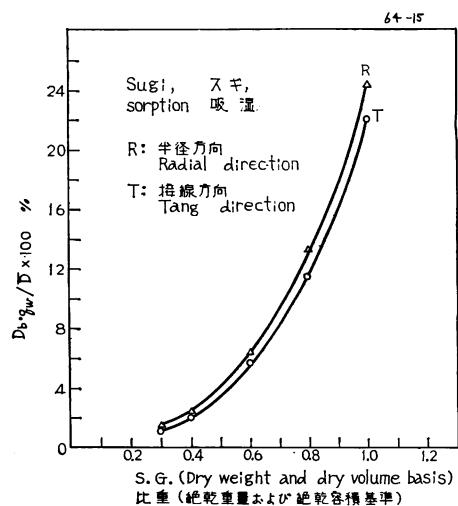
第6図によれば、膜孔中の拡散が全体に対して演ずる役割は、温度、平衡含水率、比重によって異なるが、おおむね15~20%と考えられる。

さらに(1)式によって、連続的細胞膜中の拡散が全体の拡散に対して演ずる役割 $D_b \cdot q_{\text{eq}}/D$ を算定することができる。第7図はスギの吸湿の場合の計算例で、接線方向では、比重0.3のときに1%，1.0のときに22%で、比重による $D_b \cdot q_{\text{eq}}/D$ の変化は著しい。材の比重が大きくなれば当然内腔の容積は小となり、気相の通路の役割は小さくなる反面、細胞膜の通路の演ずる役割は大となるわけである。しかし第7図にみられるように、比重1.0における $D_b \cdot q_{\text{eq}}/D$ の値は約24%で、これは実際上はありえない高い値である。第7図の曲線は温度20~80°C、平衡含水率5~25%の範囲では温度にはほとんど影響されないが、平衡含水率が大きくなると比率も大きくなる傾向がある。比重0.3のス



第6図 スギ材中の接線方向の拡散において膜孔およびそれ以外の部分の占める役割

Fig. 6 The role which pit plays in the diffusion of moisture through Sugi-wood in the tangential direction: $1-(D_t)/D_t$.



第7図 連続的細胞膜がスギ材中における水の拡散のうちで占める役割

Fig. 7 The role which the continuous cell wall plays in the diffusion of moisture through Sugi-wood.

ギ材の 40°C における接線方向の比率の値は、平衡含水率 5% と 25% とを比べると、後者が約 20% 大である。STAMM⁽¹⁾ が Loblolly pine について計算した値は、50°C おいて比重 0.4 のときに 3.9%，0.8 のときに 28.8% であった。

5. 総 括

STAMM の考察した針葉樹材中における拡散通路のモデルに基づいて、断面方向における水の拡散係数の理論式を導いた。この理論式にスギ、トドマツの解剖学的データ、著者の測定した細胞膜中の水の拡散係数、水蒸気の拡散係数の値を代入して算出した拡散係数と、実測によってえた拡散係数とを比較した。

平衡含水率、比重を異にする材のいろいろな温度における拡散係数を計算によってもとめ、拡散係数、平衡含水率、比重、温度の 4 者を比較的簡単な 1 つのグラフにまとめた。

さらに理論式を用いて、木材中の拡散に対して膜孔ならびに連続的細胞膜の演ずる役割を計算した。

文 献

- 1) International Critical Tables, 5, p. 56, (1929)
- 2) STAMM, A. J. : U. S. D. A. Techn. Bull. 929, (1946)
- 3) STAMM, A. J. : For. Prod. Jour., 9, pp. 27~32, (1959)
- 4) STAMM, A. J. : Ibid., 10, pp. 524~528, (1960)
- 5) STAMM, A. J. : Ibid., pp. 644~648, (1960)
- 6) STAMM, A. J. and R. M. NELSON, JR. : Ibid., 11, pp. 536~543, (1961)
- 7) TARKOW, H. and A. J. STAMM : Ibid., 10, pp. 247~250, (1960)
- 8) YOKOTA, T. : Jour. Jap. Wood Res. Soc., 5, pp. 143~149, (1959)
- 9) YOKOTA, T. : Ibid., 8, pp. 192~197, (1962)
- 10) 木材工業 : 9, 9, 10, (1954)
- 11) 鈴木 寧・青山経雄 : 東大演報, 46, pp. 211~223, (1954)
- 12) 横田徳郎・後藤君子 : 林試研報, 158, pp. 45~70, (1963)
- 13) 横田徳郎 : 未発表

Calculation of Diffusion Coefficient of Moisture Through Coniferous Woods.

Tokuo YOKOTA

(Résumé)

Based on STAMM's diffusion paths-diagram (Fig. 1), the author obtained theoretical equation (1) for the diffusion of moisture through coniferous woods in radial or tangential direction. In the equation (1),

$D_{t,r}$: Diffusion coefficient of water in the basic volume of bulk wood (cm^2/sec),

D_b : Diffusion coefficient of water in the basic volume of wood substance (cm^2/sec),

D_v : Diffusion coefficient of water vapor at 40°C , $0.28\text{cm}^2/\text{sec}$,

D_{v1} : Diffusion value of water vapor in the cell cavity and pit chamber at 40°C .

$$D_{v1} = \frac{\text{Concentration of saturated water vapor in the air } (40^\circ\text{C})}{\text{Fiber saturation point } (\text{g/g}) \times g_o \text{ (g/cc)} \times S.G.} \times D_v$$

$$= \frac{0.28 \times 0.51 \times 10^{-4}}{0.3 \times 1.46} \times S.G. = 0.326 \times 10^{-4} \times S.G. (\text{cm}^2/\text{sec}),$$

D_{v2} : Diffusion value of water vapor through the pit membrane pore

$$D_{v2} = D_{v1} \times \frac{1}{40} = 0.326 \times 10^{-4} \times \frac{1}{40} \times S.G. = 0.815 \times 10^{-6} \times S.G.,$$

S.G.: Specific gravity of wood, dry weight-dry volume basis,

g_o : Specific gravity of wood substance, 1.46,

l_{cc} : Fractional length of cell cavity in tangential or radial direction, $1-q_w$,

$$l_{cc} = \sqrt{1 - \frac{S.G.}{1.46}}$$

l_{pc} : Fractional length of pit chamber to the whole pit, $6/7$ of the thickness of pit, 0.855 (STAMM),

q_w : Fractional area of cell wall in the section of bulk wood, perpendicular to the direction of diffusion, $1-l_{cc}$,

q_{pa} : Fractional area of pit aperture on the cell cavity's wall. Calculated from anatomical data. Radial q_{pa} is a half of tangential q_{pa} ,

q_t : Fractional area of pit membrane pore on the pit membrane, q_t being 0.015 calculated from STAMM's data. q_t in radial direction is a half of q_t in tangential direction.

Radial and tangential diffusion coefficients were calculated for Sugi and Todomatsu-wood using the equation (1), author's data of diffusion coefficients of moisture through the cell wall and anatomical data. Comparisons of calculated and experimental data are shown in Table 1.

Correlations between average diffusion coefficients \bar{D} and equilibrium moisture content (E.M.C.), specific gravity and temperature were obtained from the calculations of the equation (1) (Figs. 2~5).

The roles which pit and continuous cell wall play in the whole diffusion of moisture through the bulk wood were calculated from the theoretical equation (Figs. 6 and 7).