

短 報

遺跡出土木材への PEG 含浸速度に及ぼす木目の影響

河越幹男・石垣 昭

1. 緒 言

ポリエチレングリコール (PEG) 含浸法は、経済的で、かつ実施例も多く信頼性が高いため、遺跡出土木製品の保存法として広く用いられている (沢田:1977, 増澤:1983)。著者らは前報 (河越・石垣:1990, 及び1991) で、遺跡出土木材への PEG 含浸過程を拡散理論に基づいて解析し、PEG 含浸中の出土木材の重量変化が拡散理論による計算値とよく一致すること、ならびにこの重量変化曲線から求めた有効拡散係数を用いて処理時間の推算が可能なることを示した。さらに、有効拡散係数に及ぼす温度、PEG 濃度、樹種の影響を調べた。

これまでの研究においては、簡単化のため、PEG の拡散に対して等方性を仮定していたが、実際の木材は複雑な組織構造を持っており、PEG 含浸速度はこれら木材組織の影響を受けるため、厳密には等方性の仮定は成立しない。PEG 含浸処理をよりの確に行うためには、木材内の非等方性を考慮して、木材構造の PEG 含浸速度および濃度分布に及ぼす影響を知る必要がある。この観点から、本研究では、木材構造の中でも PEG の拡散速度に最も大きな影響を及ぼすと考えられる木目の影響について検討した。

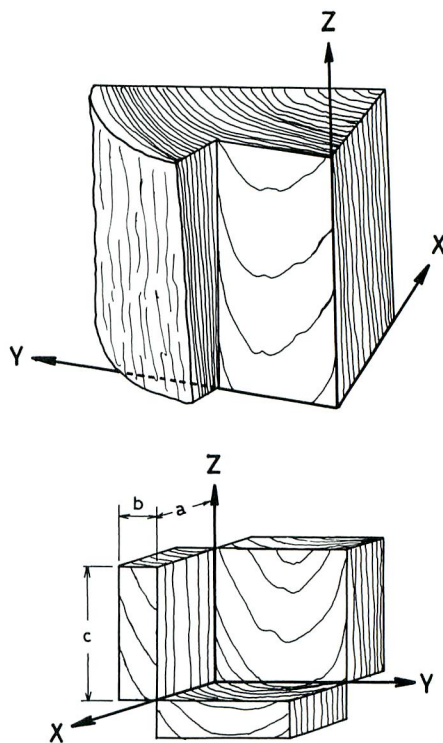


図1 試料の作成部位、及び形状

Fig.1 Direction and shape of specimen

2. 解析法

図1に示すように、放射方向をX軸、接線方向をY軸、軸方向をZ軸とし、各辺の長さが(a, b, c)の直方体を考える。PEGの含浸過程が拡散理論に従うとすれば、直方体内のPEG平均飽和度 $\bar{\Psi}$ は次式で与えられる (河越・石垣:1990)。

$$\bar{\Psi}(a, b, c, t) = 1 - \{1 - \bar{\Psi}_P(a, t)\} \{1 - \bar{\Psi}_P(b, t)\} \{1 - \bar{\Psi}_P(c, t)\} \quad (1)$$

ここで、 $\bar{\Psi}_P$ は次式で表され、平板の平均飽和度に相当する。

$$\bar{\Psi}_P(u, t) = 1 - \sum_{n=0}^{\infty} \frac{8}{(2n+1)^2 \pi^2} \exp \left\{ - (2n+1)^2 \pi^2 \frac{D_A t}{u^2} \right\} \quad (2)$$

拡散時間 t が十分大きい場合、級数項は第 1 項のみで近似でき、(1)式は次のように簡単化される。

$$\ln(1 - \bar{\Psi}) = 3 \ln \left[\frac{8}{\pi^2} \right] - \pi^2 \left[\frac{D_{AX}}{a^2} + \frac{D_{AY}}{b^2} + \frac{D_{AZ}}{c^2} \right] t \quad (3)$$

ここで、PEG の平均飽和度 $\bar{\Psi}$ は次式から求められる： $\bar{\Psi} = (M - M_0) / (M_F - M_0) : M$ 、 M_0 及び M_F は、それぞれ任意の時間、含浸開始時、及び含浸終了時における試料重量である。また、 D_{AX} 、 D_{AY} 、 D_{AZ} は X、Y、Z 方向の有効拡散係数である。(3)式は、未飽和度 $(1 - \bar{\Psi})$ の対数を含浸時間 t に対してプロットすれば、このプロットは含浸時間が十分大きい領域では直線となることを示している。3 方向の寸法がそれぞれ (a_1, b_1, c_1) 、 (a_2, b_2, c_2) 、 (a_3, b_3, c_3) の 3 個の試料片に対する直線の勾配を $(-p_1, -p_2, -p_3)$ とすると、それぞれ次式が得られる。

$$\pi^2 \left[\frac{D_{AX}}{a_1^2} + \frac{D_{AY}}{b_1^2} + \frac{D_{AZ}}{c_1^2} \right] = p_1 \quad (4a)$$

$$\pi^2 \left[\frac{D_{AX}}{a_2^2} + \frac{D_{AY}}{b_2^2} + \frac{D_{AZ}}{c_2^2} \right] = p_2 \quad (4b)$$

$$\pi^2 \left[\frac{D_{AX}}{a_3^2} + \frac{D_{AY}}{b_3^2} + \frac{D_{AZ}}{c_3^2} \right] = p_3 \quad (4c)$$

従って、各試料片に対する $\ln(1 - \bar{\Psi})$ 対 t の直線の勾配を測定すれば、上の連立方程式を解くことにより各方向の有効拡散係数 D_{AX} 、 D_{AY} 、 D_{AZ} が求められる。

3. 実 験

実験方法は前報（河越・石垣：1990, 1991）と同じである。感度 1mg の電子天秤を用い、試料重量の経時変化を液中に懸垂した状態で測定した。PEG 濃度は 20%、40%、60%、80% と段階的に変化させ、順次飽和させた。PEG 濃度 100% の場合は、重量変化が小さいため測定誤差が大きく、各方向の有効拡散係数の算出が不可能になる場合もあったので、ここでは省略した。含浸温度は 60℃ である。

試料は、奈良国立文化財研究所から提供された広葉樹（トチノキ）と針葉樹（スギ）の出土材から切り出した。軸方向、接線方向、放射方向の拡散速度を測定するため、各々の樹種について各方向の寸法が異なる 3 個の試料片を作成した。広葉樹の試料片は約 5cm × 5cm × 1cm、針葉樹のそれは約 2.5cm × 2.5cm × 1cm である。針葉樹の原材が小さいため、針葉樹の試料片は広葉樹のそれよりも小さくなった。試料の詳細は表 1 に示した。表 1 に示した試料体積は、空気中と水中での試料重量を測定して浮力法で求めた値である。

また、同時に、試料片を採取した近辺から 5～6g（広葉樹）または 2～3g（針葉樹）の小片を 5 個（広

表1 初期状態における試料の重量, 辺長, 含水率, 空隙率, 及び真密度
Table.1 Weight, dimension and moisture content at initial condition,
void fraction and density of wood substance

樹種	試料番号	重量 [g]		体積 [cm ³]	辺 長 [cm]			含水率 [%]	空隙率 [-]	真密度 [g/cm ³]
		空气中	水中*)		放射方向	接線方向	軸方向			
広葉樹	B 1	32.382	1.432	31.06	1.34	4.73	4.90	638	0.9078	1.54
	B 2	30.884	1.440	29.42	5.13	5.31	1.08			
	B 3	31.130	1.627	29.55	5.33	1.16	4.78			
針葉樹	N 1	7.035	0.504	6.55	2.48	1.19	2.22	444	0.8768	1.60
	N 2	8.428	0.561	7.89	2.53	2.31	1.35			
	N 3	9.757	0.676	9.14	1.25	2.64	2.77			

*) 測定水温は20℃である。

葉樹) または6個(針葉樹)切り取り, 含水率を測定した。平均含水率は, 広葉樹で638%, 針葉樹で444%であった。また, 空隙率と真密度を前報(河越・石垣:1991)と同じ方法で求めた。この結果もまとめて表1に示した。空隙率, 真密度のいずれも, 前報で用いた試料の値とほぼ一致した。

4. 実験結果及び検討

(1)重量の経時変化 図2に, 広葉樹の3個の試料(B1, B2, B3)の重量変化曲線の一例を示した。表1から分かるように, 3個の試料は, 体積に関してはいずれも約30 cm³で, ±3%以内で一致しており, かつ辺長もほぼ等しい直方体であるにもかかわらず, 重量変化曲線は試料によって異なっている。

直方体の場合, 最短辺長方向の拡散抵抗が最も小さくなるため, PEG 含浸速度はその方向の拡散速度によって支配される。軸方向の辺長が最も小さい試料 B2は, 他の試料に比べ著しく重量変化速度が速くなっており, このことは軸方向の PEG 拡散速度が他の方向に比べ速いことを示している。また, 軸方向の厚さがほぼ同じで, 接線方向あるいは放射方向の辺長が最短となる試料 B1と B3の重量変化曲線はほぼ一致しており, PEG の接線方向と放射方向の拡散速度には大差がないことが分かる。針葉樹の場合および他の PEG 濃度の場合にも同様の傾向が認められた。

(2)各方向の有効拡散係数 図3に未飽和率(1-Ψ)対時間 t の片対数プロットを示した。このプロットは, 時間が大きくなると直線に近づき, (3)式が成立することが分かる。この直線の勾配を求め, 3方向

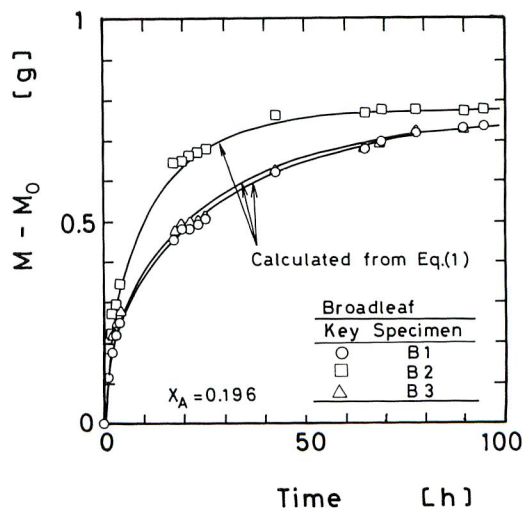


図2 試料木材の重量変化曲線

Fig.2 Variation in weight of specimens with time

の有効拡散係数を算出した。この結果を表2にまとめて示した。表2にはこれら3方向の有効拡散係数の算術平均値 D_{av} も併せて示してある。この平均有効拡散係数 D_{av} は、立方体の試料を用いた前報の結果（河越・石垣：1991）とほぼ一致した。図2及び図3中の実線は、これら各方向の有効拡散係数を用いた厳密解(1)式からの計算値である。計算値と実測値はよく一致している。

図4に各方向の有効拡散係数とPEGの重量分率 X_A の関係を示した。この図から、広葉樹、針葉樹のいずれも、軸方向の有効拡散係数 D_{AZ} が最も大きく、かつ、どの方向の有効拡散係数も、PEGの重量分率 X_A が0.6近傍で最大になっていることが分かる。測定精度を考慮すれば、軸方向の有効拡散係数に関し

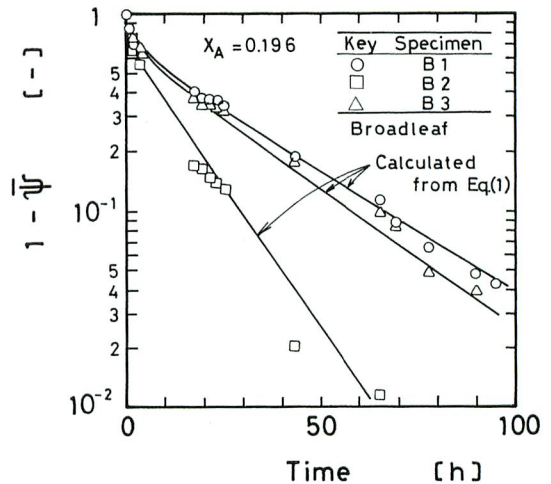


図3 未飽和度 $(1-\bar{\Psi})$ 対時間の片対数プロット
Fig. 3 Plots of $\ln(1-\bar{\Psi})$ versus time

表2 各方向の有効拡散係数
Table. 2 Effective diffusion coefficients in each direction

樹 種	PEGの重量分率 X_A [-]	各方向の有効拡散係数			平均値 D_{av} [cm ² /day]	拡散係数の比 $D_{AZ}/D_{AXY}^*)$ [-]
		D_{AX} [cm ² /day]	D_{AY} [cm ² /day]	D_{AZ} [cm ² /day]		
広 葉 樹	0.196	0.0951	0.0857	0.173	0.118	1.91
	0.385	0.159	0.133	0.235	0.176	1.61
	0.562	0.219	0.173	0.296	0.229	1.51
	0.739	0.192	0.154	0.262	0.203	1.51
針 葉 樹	0.196	0.0643	0.0302	0.206	0.100	4.36
	0.385	0.0933	0.112	0.271	0.159	2.64
	0.562	0.140	0.115	0.282	0.179	2.21
	0.739	0.139	0.106	0.238	0.161	1.94

*) $D_{AXY} = (D_{AX} + D_{AY})/2$

ては針葉樹と広葉樹の間には殆ど差異はない。一方、接線方向、及び放射方向の有効拡散係数 D_{AX} 、及び D_{AY} は、何れのPEG濃度においても、広葉樹の方が大きい。

樹木の構造は非常に複雑であるが、単純化すれば、水分通導のための道管あるいは仮道管と、その間を埋める木繊維組織、放射組織、あるいは柔細胞からなっていると考えることができる。道管あるいは仮道管は大きな直径を持った軸方向に長い組織で、中は空洞になっている。一方、木繊維組織、放射組織、柔細胞は樹脂様物質などが充填された密な構造を持っている。

従って、PEGは、まず道管または仮道管を通して軸方向に拡散し、次いで仮道管壁または道管壁を通して密な構造をもつ組織の中へ拡散していくものと考えられる。本実験で用いた試料材の顕微鏡写

真によって測定した道管（トチノキ）及び仮道管（スギ）の直径は、いずれも $50\sim60\mu\text{m}$ で、拡散成分である PEG 分子に比べはるかに大きい。針葉樹と広葉樹の軸方向の有効拡散係数にほとんど差異が認められないのはこのためと考えられる。一方、木繊維組織、放射組織、柔細胞などは樹種によってその構造が大きく異なるため、接線方向と放射方向の有効拡散係数にはその影響が現れたものと推察される。接線方向と放射方向の有効拡散係数の間にも差異はあると考えられるが、その差はそれほど大きくはなく、本実験の測定精度の範囲内ではほぼ等しいと見なせる。

表 2 には、接線方向と放射方向の有効拡散係数の平均 $D_{AXY} = (D_{AX} + D_{AY})/2$ と軸方向の D_{AZ} の比も示してある。PEG 濃度が低い場合、木質構造の影響を受け易い分子量の大きい PEG が拡散分子になるため、 D_{AZ} 対 D_{AXY} の比は PEG 濃度が低いほど大きく、木目の影響が強く現れている。また、この比の値は PEG の全濃度範囲で針葉樹の方が広葉樹よりも大きくなっており、木目の影響は針葉樹の方が大きいことを示している。

5. 結 言

出土木材内での放射、接線、及び軸方向の有効拡散係数を測定した。軸方向の有効拡散係数は樹種には影響されないが、放射、接線方向のそれは樹種の影響を受け、広葉樹の場合の方が針葉樹の場合に比べて大きくなった。軸方向と接線及び放射方向の有効拡散係数を比較すると、軸方向の有効拡散係数の方がその他の方向のそれに比べ、約 1.5～4 倍大きいことが分かった。接線方向と放射方向の間には大きな差異は認められなかった。

以上のことから、樹種による含浸速度の差は、主に接線及び放射方向の拡散速度が樹種による木質構造の影響を受けるためであることが分かる。

本研究で得られた結果は、本実験で用いた試料と類似の劣化度、含水率、樹種の出土木材に対してのみ適用できる。本研究結果を実際の保存処理に適用するためには、様々な劣化度、含水率をもつ試料についてさらに調べる必要がある。

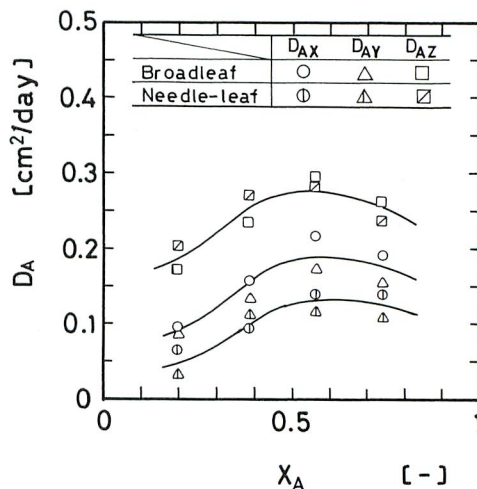


図 4 各方向の有効拡散係数対 PEG 濃度の関係

Fig. 4 Effective diffusion coefficients in radial, tangential and longitudinal directions as a function of PEG concentration

謝 辞

本研究に用いた出土木材は、奈良国立文化財研究所・沢田正昭氏から提供されたものであり、同時に氏からは貴重な御助言も戴きました。また、元興寺文化財研究所・増澤文武氏・植田直見氏・井上美知子氏からも出土木材に関する貴重な御助言を戴きました。ここに記し、深謝いたします。なお、本研究は平成2年度文部省科学研究費補助金試験研究B(2)の助成によるものである。ここに付記し感謝します。

参 考 文 献

- 河越幹男・石垣 昭(1990) 遺跡出土木材への PEG 含浸処理に関する理論的考察 考古学と自然科学 第22号：95-102.
- 河越幹男・石垣 昭(1991) 遺跡出土木材への PEG 含浸処理に及ぼす樹種，PEG 濃度，及び温度の影響 考古学と自然科学 第23号：1-11.
- 沢田正昭(1977) 化学からみた「保存科学」の現状 化学の領域 第31巻：1082-1090.
- 増澤文武(1983) 出土木質遺物保存の実施作業 日本文化財科学会会報 第2号：24-29.

Influences of Wood Grain on Impregnation Rate of Waterlogged Wood with PEG

Mikio KAWAGOE and Akira ISHIGAKI

Department of Chemical Engineering, Nara National College of Technology,
22 Yata-machi, Yamato-Koriyama, Nara 639-11, Japan

To investigate the influence of wood grain on the impregnation with polyethylene glycol (PEG), the impregnation rate was measured using two species of wood, broadleaf and needle-leaf trees. Three specimens which have different dimensions in tangential, radial and longitudinal directions were used for each wood species. Based on the diffusion model, we were able to estimate the effective diffusion coefficients in each direction employing the impregnation rates obtained for the three specimens.

It was found that the effective diffusion coefficients in longitudinal direction were larger than those in radial and tangential directions. No appreciable differences in the effective diffusion coefficient between radial and tangential directions were found. Further, no noticeable influences of wood species on the longitudinal effective diffusion coefficients were found, while the coefficients in tangential and radial directions were affected appreciably by wood species. The effective diffusion coefficients in tangential and/or radial directions were larger for the broadleaf trees than for the needle-leaf trees.