

令和 2 年 6 月 10 日現在

機関番号：84601

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2017～2019

課題番号：17K01206

研究課題名（和文）疑似出土木材の調製

研究課題名（英文）Preparation of waterlogged wood by artificial degradation.

研究代表者

山口 繁生（Yamaguchi, Shigeo）

公益財団法人元興寺文化財研究所・研究部・研究員

研究者番号：00752370

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,400,000円

研究成果の概要（和文）：出土木製品にとって最適な保存処理を行うには、その物性を詳しく知る必要がある。しかし、出土木製品のモデルとなる出土木材の数は限られている。本研究ではセルロース分解酵素とフェントン試薬を用い、人工的に出土木材を調製する方法の開発を行った。調製した疑似出土木材を用いた保存処理実験を行い、実際の出土木材を用いた保存処理結果と比較を行った。すべての条件ではなかったが、多くの実験条件において実際の出土木材の保存処理と同様の結果が得られた。今後保存処理方法の研究をしていくうえで、疑似出土木材は有用な試料になると考えられた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

発掘調査等によって土中から掘り出された考古資料は、埋蔵文化財と呼ばれる。埋蔵文化財は掘り出されたことによる環境変化のため、急激に劣化し、その形状を失ってしまう場合がある。そのような劣化を防ぎ、埋蔵文化財を次の世代に伝えるために行われるのが保存処理である。埋蔵文化財の保存処理法の研究には、埋蔵文化財の物性を再現した適当な試料の入手が困難であるという問題がある。本研究ではこの問題を解決するため、埋蔵文化財の物性を再現した試料を調製する方法の開発を行った。

研究成果の概要（英文）：In order to understand the properties of waterlogged wood, it is essential to prepare model of degraded woods. Thus, the author developed a preparation method of artificial waterlogged wood using cellulase and Fenton's reagent. The several conservation methods were tested with artificial waterlogged wood. In many cases, similar results were obtained from artificial waterlogged wood and real waterlogged wood. In conclusion, the present study has suggested that artificial waterlogged woods are useful samples in studying the conservation method of excavated wooden artifacts.

研究分野：保存科学

キーワード：文化財 保存科学 出土木製品 出土木材

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

これまでに、様々な出土木製品の保存処理方法が開発されてきた。現在日本では、Polyethylene Glycol 4000 含浸法 (PEG 含浸法) 真空凍結乾燥法、アルコール・酢酸ブチル・樹脂法、Methyl 12-hydroxystearate 含浸法 (脂肪酸エステル含浸法)、トレハロース含浸法、高級アルコール含浸法の6つの処理法が行われている。これらのうちのどの処理法を用いるかは、保存される出土木製品の樹種、含水率、木取りなど、限られた情報をもとに最適と考えられる処理法が選択される。この選択は数多くの保存処理結果を踏まえたものではあるが、出土木製品の劣化状態は個々で異なるため、必ずしも最適の選択が行えるとは限らない。さらには、保存処理における各工程の諸条件も、保存対象毎の最適化は行われていない。

各出土木製品に対して最適な保存処理を実施するには、対象木製品と同一樹種であり、木取りが似通い、劣化も同程度進行している木材を用いて、保存処理方法の比較実験を行う必要がある。また保存処理工程においても、処理を行う際に用いられる溶液の液温や、濃度変更していく際の濃度勾配などについて、幅広い条件で対照実験を行う必要がある。これらの実験を行うには、発掘等において出土した自然木、出土木材、を使用する必要がある。しかし、出土木材の種類や数は限られており、任意の条件で実験を行うことはできない。このため、保存処理の最適化は行えないのが現状である。

2. 研究の目的

埋蔵文化財の保存科学研究、及び保存処理の課題の一つは、埋蔵文化財の物性を再現した試料の入手が困難なことである。このため、標準試料を用いた対照実験による研究や、保存処理前の予備実験による処理方法の検討などを行うことができない。この課題を解決するため、一般的な材料に人工的な劣化を加えることで、擬似的な出土材を調製する研究が行われてきた。しかし、任意の遺物モデルを調製できるには至っていない。本研究では木質分解酵素とフェントン試薬を用いて現生材を人工的に劣化させ、出土木製品の物性を再現した擬似出土木材を調製することを目的としている。

3. 研究の方法

(1) 実験試料として、イチイガシ (*Quercus gilva*)、クヌギ (*Quercus acutissima*)、クリ (*Castanea crenata*)、ケヤキ (*Zelkova serrata*)、スギ (*Cryptomeria japonica*)、ツブラジイ (*Castanopsis cuspidata*)、トチノキ (*Aesculus turbinata*)、ヒノキ (*Chamaecyparis obtusa*)、ホオノキ (*Magnolia obovata*)、ヤナギ (*Salix babylonica*)、計10種類の樹種を用いた。気乾状態の心材より立方体を切り出し、試験片とした。試験片は軸方向に連続して切り出し、それらを対照試料群とした(図1)。

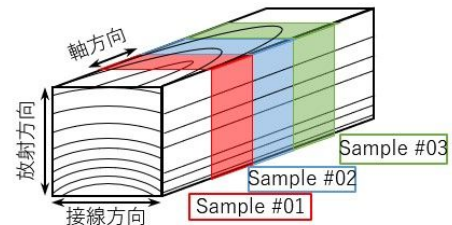


図1. 試料の切出し

劣化処理中は試料を減圧含浸により飽水状態にし、次式を用いて含水率のモニタリングを行った。なお、 W_w は水中重量、 W_a は空中重量、 a は木材の実質密度である。

$$\text{含水率(\%)} = \{ (a - 1) / a \times (W_a / W_w) - 1 \} \times 100$$

(2) 出土木材が出土前に経験した劣化には、水による劣化や生物による劣化など、様々な劣化の可能性が考えられ、その劣化過程は多岐にわたり複雑である。しかし、これまでの出土木材を用いた成分分析の報告から、化学組成に共通点が見出されている。現生材の化学組成はセルロース、ヘミセルロース、リグニンが大半を占め、この中でも特にセルロースの含有量が大きい。しかし、出土木材の化学組成はセルロース・ヘミセルロースの量が現生材に比して大きく減少しているのに対し、リグニンの減少量は少ない。このため、結果としてリグニンの含有率が高い値を示す。これらの知見より、形状を保持したまま出土する木材の劣化過程はある程度似通っていると考えられる。出土木材が受けた劣化の大部分は埋没前、あるいは完全に埋没しきらない好気的な環境下における木材腐朽菌による腐朽であり、それに加えて埋没後の嫌気性微生物による緩慢な腐朽を経験しているものと考えられる。よって、出土木材が共通して示すリグニンに比して他の成分の含有量が著しく低下するという劣化を再現することで、疑似出土木材を調製することが可能になると考えられた。木材細胞壁中の特定の成分を選択的に減少させる方法として、木材腐朽菌が産生する分解酵素を用いる方法が考えられた。ただし、健全な木材細胞壁における微小孔は酵素の大きさより小さく、分解酵素は侵入できない。このため、フェントン試薬を用いて非特異的に細胞壁を劣化させる処理と、セルロース分解酵素による劣化処理を交互に行った。さらに、より短期間で、より大型の現生材の劣化を可能にするため、加熱処理、水蒸気処理による前処理を検討した。加熱処理には恒温器を、水蒸気処理にはマイクロリアクターを用い、160、180、200 で処理を行った。

(3) 調製した疑似出土木材が実際の出土木材を再現できているかを調べるため、疑似出土木材の保存処理実験を行い、実際の出土木材で行われた保存処理結果と比較を行った。保存処理にはPEG含浸法、トレハロース含浸法、脂肪酸エステル含浸法を用いた。PEG含浸法、及び脂肪酸エ

ステル含浸法においては、木材中の水分をそれぞれ Polyethylene Glycol 4000、Methyl 12-Hydroxystearate の 100%溶液に置換後、冷却固化させた。トレハロース含浸法においては水分を 72%トレハロース水溶液に置換後、冷却固化させた。

保存処理により疑似出土木材に生じる寸法変化、及び資料内部で生じる亀裂等を調べるため、Computed Tomography scan (CT 撮影) を行った。CT 撮影には TOSCANER-32300 μ FD-GCR (東芝 IT コントロールシステム株式会社) を用いた。撮影条件を表 1 に示す。解析には VGStudio MAX (ポリウムグラフィックス株式会社) を用いた。

表1 撮影条件

管電圧 (kV)	90
管電流 (μ A)	1000
撮影枚数 (/360°)	1200
積算	1
露光時間 (msec)	266
再構成z軸ピッチ (mm)	0.09

4. 研究成果

(1) 加熱処理、及び水蒸気処理が含水率に及ぼす影響を調べるため、加熱処理試料、水蒸気処理試料、未処理試料を用いて疑似出土木材の調製を行い比較した。ヒノキとイチイガシの含水率の推移を図 2 に示す。グラフは前処理後、飽水状態にした際の含水率から始まり、フェントン試薬処理、セルロース分解酵素処理を交互に行った際の含水率の変化を示している。加熱処理試料、水蒸気処理試料ともに未処理試料より高い含水率を示した。また、前処理による含水率増加量に対する影響を、フェントン試薬処理とセルロース分解酵素処理で比較したところ、セルロース分解酵素処理により強く影響していることが示唆された。

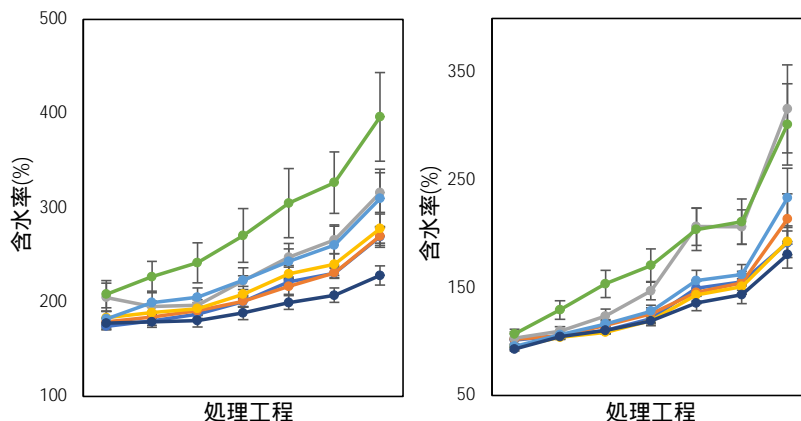


図 2. 含水率の推移 (紺: 未処理、青・橙・灰: 加熱処理 160・180・200、黄・水・緑: 水蒸気処理 160・180・200、)

(2) 保存処理実験用に調製した疑似出土木材の含水率、及び、保存処理実験で試料中に充填された樹脂の木材実質重量に対する割合を表 2 に示す。調製された疑似出土木材の含水率のばらつきは少なく、相対標準偏差は最大で 4% (n=9) であった。また、保存処理実験で試料に含浸された樹脂の量にもばらつきは少なく、相対標準偏差は最大で 6% (n=3) であった。これらの結果より、本研究で行った疑似出土木材調製方法により、均一な対照試料群の調製が可能であることが示された。

表2. 疑似出土木材の含水率、及び樹脂含浸率 % (w/w)

	ホオノキ	イチイガシ	クスギ	クリ	トチノキ	ツブラジイ	ヤナギ
含水率	328 ± 10	137 ± 2	99 ± 2	285 ± 20	241 ± 7	256 ± 11	265 ± 10
PEG4000	349 ± 13	145 ± 3	83 ± 2	313 ± 25	265 ± 8	275 ± 6	283 ± 16
トレハロース	311 ± 13	141 ± 9	90 ± 2	275 ± 26	231 ± 6	241 ± 17	260 ± 9
脂肪酸エステル	246 ± 9	98 ± 2	69 ± 2	221 ± 17	175 ± 3	194 ± 3	196 ± 8

(3) 保存処理実験の前で生じた寸法変化を調べるため、処理前と処理後で CT 撮影を行った。CT 撮影で得られた実験前後の 3 次元モデルの比較の結果、どの樹種においても脂肪酸エステル含浸法が寸法安定性において優れていることが示された。図 3 にクリの疑似出土木材を PEG 含浸法、脂肪酸エステル含浸法それぞれで保存処理した結果を比較して示す。図中紫色で示した箇所が処理前後で収縮した箇所であり、PEG 含浸法に比べ脂肪酸エステル含浸法で生じている寸法変化が少ないことが明らかである。実際の出土木材を用いた保存処理実験より、PEG 含浸法は一部の樹種において寸法変化が生じ、脂肪酸エステル含浸法は樹種によらず優れた寸法安定性を示すことが知られている。今回の結果は、本研究で調製した疑似出土木材を用いた保存処理においても、その特性が再現されることを示した。

一方、トレハロース含浸法で処理した疑似出土木材の多くで膨潤による寸法変化が観察された。図 4 にツブラジイの疑似出土木材で生じた寸法変化を示す。図左は実験前後の 3 次元モデルの比較であり、赤色の箇所が膨潤した箇所である。また、図右は木口面の断面図を実験前後で比較している。3 次元モデルからは試料表面及び早材部において膨潤が顕著であること、断面図からは処理により内部に大きな亀裂が生じていることが観察された。しかし、これまでに行われてきた出土木材を用いたトレハロース含浸法において、このような顕著な膨潤は確認されておらず、本研究で調製した疑似出土木材が、トレハロース含浸法に対するモデルとして適さないことが明らかになった。

(4) 本研究によりセルロース含有率が低く、含水率の高い擬似出土木材を調製することが可能になった。また、擬似出土木材を用いた保存処理実験からは、実際の出土木材の保存処理で観察される各処理方法の長所や短所が同様に観察され、それらの処理方法の改良法を研究する上で有用な試料になると考えられた。しかし、一部の処理方法においては出土木材では観察されない現象が生じていることから、完全に出土木材を再現できているとは言えず、さらなる調製方法の改良が必要であると考えられる。

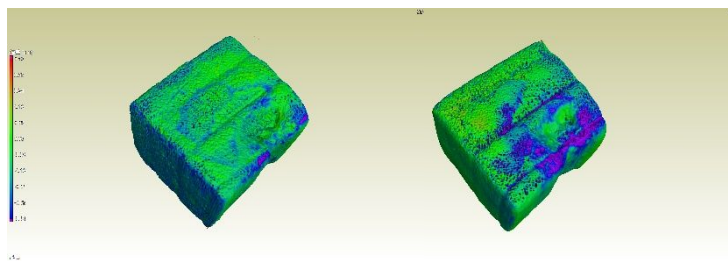


図3. クリ擬似出土木材のPEG含浸法と脂肪酸エステル含浸処理法で生じた寸法変化
(左：脂肪酸エステル含浸法、右：PEG含浸法)

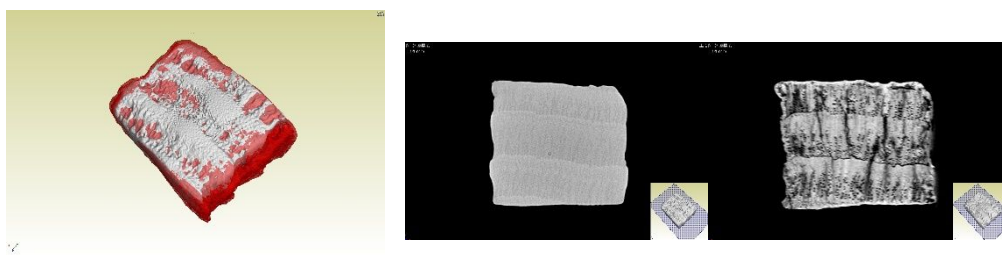


図4. ツブラジイ擬似出土木材のトレハロース含浸法で生じた寸法変化
(左：3次元モデル、右：処理前後の木口面の比較)

<引用文献>

- 川本 耕三、埋蔵文化財の保存技術 4、科学と工業、77、2003、256-263
伊藤 幸司、保存処理の動向と展望 - 木質遺物 -、考古学と自然科学、71、2016、31-47
植田 直見、木質文化財の保存と修理(2)、木材保存、40、2014、162-169
高妻洋成、人工劣化木材の調製とそれを用いた出土木製品の保存処理の適正化、博士論文(京都大学)、(2010)
増澤文武、鉄器の保存処理の研究 錆びた鉄粉圧縮体へのアクリル樹脂の減圧含浸、元興寺仏教民俗資料研究所保存科学研究室紀要、2、1972、15-31
酒井温子、出土木材の劣化過程、木材学会誌、37、1991、363-369
Arantes V., Jellison J., Goodell B, Peculiarities of brown-rot fungi and biochemical Fenton reaction with regard to their potential as a model for bioprocessing biomass, Appl. Microbiol. Biotechnol., 94, 2012, 323-338
井上美知子、出土木製遺物の保存 - 脂肪酸エステル法を中心に -、元興寺文化財研究所 創立三十周年記念誌、1997、113-118

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 山口繁生
2. 発表標題 擬似出土木材の保存処理（2）
3. 学会等名 日本文化財科学会 第37回大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Shigeo Yamaguchi
2. 発表標題 Preparation of waterlogged wood by artificial degradation.
3. 学会等名 2019 Daejeon International Symposium on Conservation of Cultural Heritage in East Asia (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 山口繁生
2. 発表標題 擬似出土木材の保存処理
3. 学会等名 日本文化財科学会 第36回大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 山口繁生
2. 発表標題 人工劣化による擬似出土木材の調製（3）
3. 学会等名 日本文化財科学会 第35回大会
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----