

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 3 年 6 月 4 日現在

機関番号：84601

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2017～2020

課題番号：17H02021

研究課題名（和文）出土木製品マイクロ波加熱凍結乾燥処理法の実用化研究

研究課題名（英文）Study to Practical Use on Conservation of Waterlogged Wood Using Freeze-drying Method with Microwave Heating

研究代表者

川本 耕三（KAWAMOTO, Kozo）

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：10241267

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,700,000円

研究成果の概要（和文）：出土木製品は長期間土中で劣化し、そのまま乾燥させると収縮・変形して文化財としての価値が損なわれる。凍結乾燥法は凍結した出土木製品の水分を真空中で昇華させるため、形状を保ったままできる保存処理方法であるが、特に厚みのある出土木製品では表面に過乾燥による微細な亀裂が生じたり、深層部の水分を取り除くのが困難な場合があった。

そこで、研究代表者らは深層部の水分除去を促進するため適切な時機を選んで凍結乾燥中の試料にマイクロ波を照射できるよう、各種センサーを装備したマイクロ波加熱凍結乾燥装置を作製した。本研究では試料重量測定やX線CT撮影などの手法を用い、マイクロ波加熱凍結乾燥法を実用化した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究ではさまざまな条件で処理実験を行った。深層部に水が残ったまま凍結乾燥処理を終えた試料には、処理後保管中に深層部が乾燥・収縮して空洞が生じたものがあった。また、劣化した試料を必要以上に長時間凍結乾燥処理し、表面が傷ついた試料もあった。

今後このような出土木製品がマイクロ波加熱凍結乾燥によって処理されれば、保存処理によって生じた不具合が減少し、出土木製品をより良い状態で後世に伝えることができる。

研究成果の概要（英文）：Waterlogged wood deteriorate in the soil for a long period of time, and if they are dried as they are, they shrink and deform, and their value as cultural properties is impaired. The freeze-drying method is a preservation treatment method that can maintain the shape because the water content of the frozen waterlogged wood is sublimated in a vacuum. However, particularly waterlogged thick wood may have fine cracks on the surface due to over drying, or it may be difficult to remove water in the deep layer.

Therefore, the principal investigators created a microwave heating freeze-drying device equipped with various sensors so that the sample being freeze-dried can be irradiated with microwaves at an appropriate time to promote the removal of water in the deep layer. In this study, we used methods such as sample weight measurement and X-ray CT imaging to put it into practical use so that actual waterlogged wood could be processed.

研究分野：保存科学

キーワード：出土木材 凍結乾燥 マイクロ波 保存処理 X線CT

1. 研究開始当初の背景

水浸出土木製品は長期間土中で劣化しセルロースなどの成分が分解・流出して水分と置き換わっているため、そのまま乾燥させると収縮・変形して文化財としての価値が損なわれる。

凍結乾燥法は出土木材を常温のポリエチレングリコール (以下、PEG) 水溶液 40% 程度の濃度にまで含浸し、凍結させ真空中で水分を除去する保存処理法である。凍結乾燥法は PEG 含浸法に比べて含浸処理期間が短く、劣化が進んだ広葉樹を処理しても形が崩れにくく、凍結させた水分を昇華させるため出土木材の形状をほぼ保ったまま乾燥させることができる。

一方、乾燥は出土木材表層から深層へ進行することから、表層部と深層部では含水率に差が生じる。特に厚みのある出土木材について、その表面に過乾燥による微細なクラックが生じているにもかかわらず、内部に残った水分(氷)が処理終了後に溶け出し出てくる異状を何度か経験した。

そこで、研究代表者らは平成 23-26 年度基盤研究(B)課題番号 2330329 によりマイクロ波加熱凍結乾燥法による処理装置を作製した。これは凍結乾燥装置の試料室上部にマグネトロンを設置し、凍結乾燥処理中の出土木材にマイクロ波を照射できるようにした装置だった。この装置で厚みのある出土木材を凍結乾燥処理したところ、表層部の水分が比較的速く減少するのに対し、深層部の水分が減少するには時間を要して乾燥がほとんど進行しなくなる場合もあった。引き続き断続的にマイクロ波を照射しながら処理を続けたところ、深層部の水分は減少して表層部の含水率に近づいた。

したがって、マイクロ波加熱凍結乾燥法は凍結乾燥法で取り除きにくい出土木材深層部に残る水分を取り除くのに有効で、処理によって生じる出土木材内の水分濃度勾配を緩和した。

2. 研究の目的

通常の凍結乾燥法は平均分子量約 3000 の PEG の 20%・40% 水溶液に順に浸漬した出土木材を、予備凍結後真空中で水分を昇華・除去する保存処理法である。それに対して、マイクロ波加熱凍結乾燥法では初め通常の凍結乾燥処理で出土木材表層部の水分を昇華・除去したうえで、凍結乾燥処理を行いながら出土木材にマイクロ波を照射して深層部の水分を除去する (図 1)。

出土木材表層部に水分が多く残ったままマイクロ波を照射すると深層部の水分が効率よく除去されない。マイクロ波照射を必要以上に続けると試料表面に損傷を与える可能性がある。など、マイクロ波加熱凍結乾燥法を行うには、装置や出土木材がどのような状態にあるのかを知らなくてはならない。

そこでマイクロ波を照射する時機、止める時期、処理を終了する時期などを適切に判断するため、装置各部の温度・圧力・出力、試料各部の温度などを監視・記録できるように、センサーを装備したマイクロ波加熱凍結乾燥装置を作製し、厚みのある出土木材の処理実験を行うことによって、マイクロ波加熱凍結乾燥法を実用化することを目的とした。

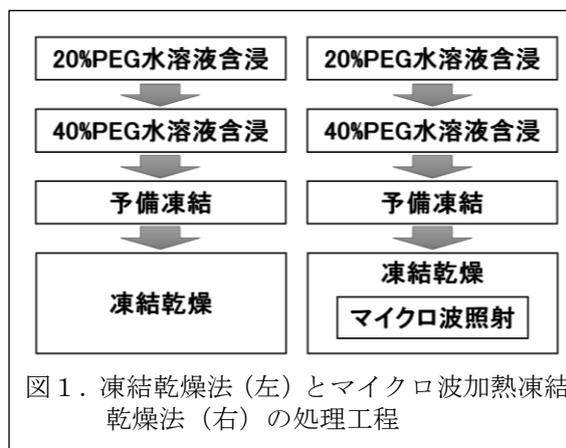


図 1. 凍結乾燥法 (左) とマイクロ波加熱凍結乾燥法 (右) の処理工程

3. 研究の方法

(1) 測定機器を装備したマイクロ波加熱凍結乾燥装置の作製

既存の凍結乾燥装置の試料室の上部にマグネトロンを設置してマイクロ波を試料室内に照射する装置を作製し、各部に測定機器を装備する。さらに複数の熱電対を設置する。

(2) 処理中の試料温度の測定

厚みのある出土木材 (丸太状流木) を実験試料とする。熱電対を試料の表層部・深層部などに複数挿し込み、凍結乾燥工程、マイクロ波照射工程における試料内部温度の変化を測定する。

(3) 処理中の試料重量、および処理によって除かれた水分量の測定

処理装置に天秤を組み込めなかったため、装置を一時止めて試料を取り出し重量を測定する。また、トラップに氷結した水の重量を測定する。これらの重量変化から試料の乾燥状態を知る。

(4) 処理中の試料の水分分布

熱電対で測定した試料内部温度の変化から、試料内部の水分分布を知ることができる。さらに、装置を一時止めて試料を取り出し X 線 CT 撮影を行うことで、非破壊かつ詳細な三次元的情報を得る。

(5) 出土木製品を想定した処理方法

出土木製品の処理では、多くの場合熱電対を挿し込むことができない。各工程における処理工程と試料内部温度、試料重量やトラップ氷結水量、X線CT撮影像との関係を考察し、出土木製品を実際に処理する方法を実用化する。

4. 研究成果

(1) 測定機器を装備したマイクロ波加熱凍結乾燥装置の作製 (図2)

試料室は箱型、容量約30L、棚冷却(一段、冷却温度-30℃)、到達圧力10Pa以下、マイクロ波出力2kW(2450±50MHz、無段階調整)、トラップは除湿量約3L(円筒縦型、冷却温度-80℃以下)であるマイクロ波加熱凍結乾燥装置を作製した。

この装置には各種センサーを接続(日時、試料室圧力、庫壁温度、棚冷却温度、マイクロ波出力値、導波管温度、トラップ温度、シース型熱電対10個(試料内部温度測定用))、5秒毎に測定データを更新表示して記録・蓄積するデータロガーを装備した。

なお、装置製作は東京理化器械(株)と(株)廣電に依頼した。

(2) 凍結乾燥法における試料温度と試料重量(水分量)との関係

図3はPEG40%水溶液を含浸した試料(流木丸太、二葉松、含水率約620%)に熱電対を挿し込み、-30℃で予備凍結して凍結乾燥処理したときの、時間経過とともに変化する重量と試料温度のグラフである。

試料温度は当初予備凍結温度(棚温)である-30℃程度だったが、2日間程度の恒率乾燥期間、7日間程度の減率乾燥期間を経て少しずつ上昇し、9日目には0℃を超えた。試料温度が上昇したのは、試料が乾燥(試料重量が減少)するにつれて水分の昇華速度が低下し昇華熱が減少したためと考えられた。また、温度変化の違いから表層部・深層部の順に乾燥が進んだことが確認された。

さらに図4に示すように、処理2・7・10日目にX線CT撮影(東芝ITコントロールシステム(株)製TOSCANER32300μFDGCR)を行った。2日目に試料周辺部を除き高濃度に残留していた水分(氷)が7日目には中心部だけになり、10日目にはほぼ観察されなくなったことから乾燥の様態が確認できた。

なお、試料重量測定時のグラフの乱れ(図3)は、装置の停止・起動と、熱電対を挿し直した際の測定箇所のずれにより生じた。

(3) マイクロ波照射工程における試料温度の変化と水分量の関係

熱電対を試料の表層部と内層部に挿し込み、予備凍結と凍結乾燥の工程を経た後、凍結乾燥をしながらマイクロ波を断続的に照射したときの温度変化の一例を図5に示した。

試料棚上の試料の温度はマイクロ波照射をはじめると急激に上昇し、止めるとすぐに降下した。これを5回繰り返すと各降下温度は元の温度よりも高かった。マイクロ波照射により試料の水分が減少していったためと考えられた。

なお、この装置では熱電対での測定温度が50℃以上になると安全装置が働き、マイクロ波照射は自動停止する。

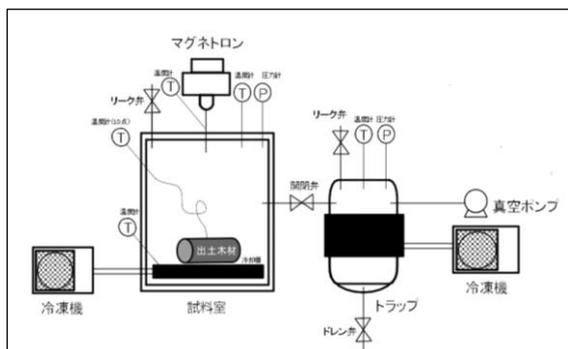


図2. マイクロ波加熱凍結乾燥装置模式図

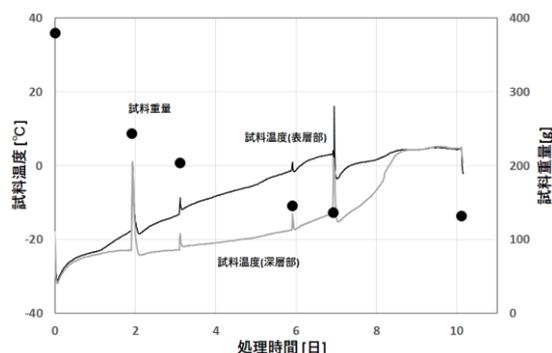


図3. 凍結乾燥工程における試料の重量と温度の変化

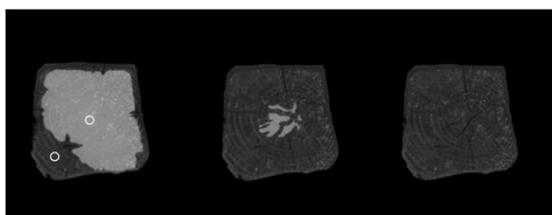


図4. 木口切断面のX線CT像(○は熱電対挿入箇所、左から2・7・10日目)

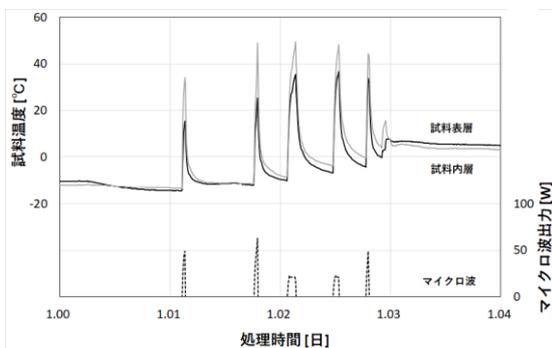


図5. マイクロ波照射工程における試料温度の変化

(4) 出土木製品を想定した処理方法

出土木製品の保存処理を行うためには、その時処理がどの段階にあるかをさまざまな観測値・測定値から知る必要がある。特にマイクロ波加熱凍結乾燥法ではマイクロ波を照射する時機、止める時期、処理を終了する時期を的確に判断しなければならない。

本研究では試料の内部温度を測定するため複数の熱電対を装備し処理を行うことで(2)、(3)のような実験結果を得、各処理工程における処理の進行と試料内部温度、試料重量やトラップ氷結水量、X線CT撮影像との関係を知ることができた。

したがって熱電対を挿し込むことができない出土木製品をマイクロ波加熱凍結乾燥法によって処理する場合には以下のような方法が可能であると考えられた。ただし、マイクロ波照射時には試料温度を表面または亀裂部分で測定することとした。

① 凍結乾燥工程(恒率乾燥期間から減率乾燥期間、減率乾燥期間の終盤まで)

出土木製品の重量やトラップした水の重量測定により処理の進行を知ることができる。

② マイクロ波照射工程(開始時期)

マイクロ波照射の開始時期は、出土木製品の乾燥速度が非常に遅くなっていて、かつ深層部に水分が局在している時期であるから、X線CT撮影で局在水分の量や位置を確認する。

③ マイクロ波照射工程

出土木製品の温度を監視し、過熱したら照射中断、冷えると照射開始を繰り返す。

④ マイクロ波照射工程(終了時期)

出土木製品の温度が常温に近い温度から下がらなくなり、かつ水分の局在が見られなくなったらマイクロ波照射を終了する。

⑤ 処理終了の時期

マイクロ波照射によって出土木製品内に拡散した可能性のある水分が凍結乾燥により十分に取り除かれたことを確認して、処理を終了する。

上記①～⑤を整理し、マイクロ波加熱凍結乾燥法による処理工程の進行にともない測定が必要な項目を表1にまとめた。

次に、試料(丸太状流木、樹種マツ属マツ科、直径約16cm、長さ約25cm、含浸前重量約4.5kg、含水率約440%)を出土木製品と想定して、20%PEG水溶液に約1箇月、40%PEG水溶液に約15箇月含浸後、-30℃で予備凍結し、マイクロ波加熱凍結乾燥法により86日間処理を行った。マイクロ波は8回計194分間照射した。厚みのある試料であったが中心部まで水分を除くことができた。

試料の重量測定は19回、X線CT撮影は12回行った。補助的に試料のほぼ中心部に熱電対を挿し込んだ。

図6～8は得られたグラフ、図9は処理の各段階における試料のX線CT像である。

なお、脱水量を測定するには試料の重量と

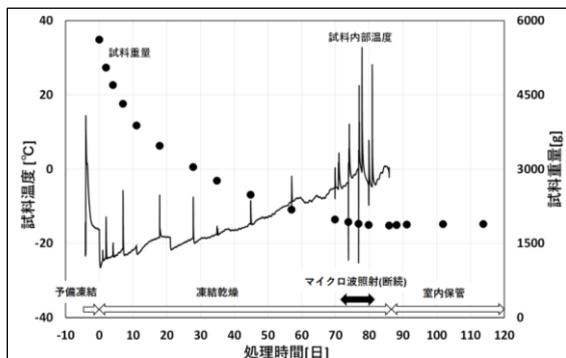


図6. マイクロ波加熱凍結乾燥法による出土木材試料の温度と重量の変化

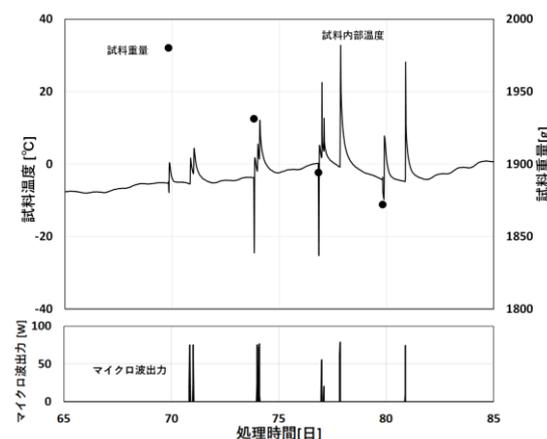


図7. マイクロ波照射工程における試料の重量と温度の変化

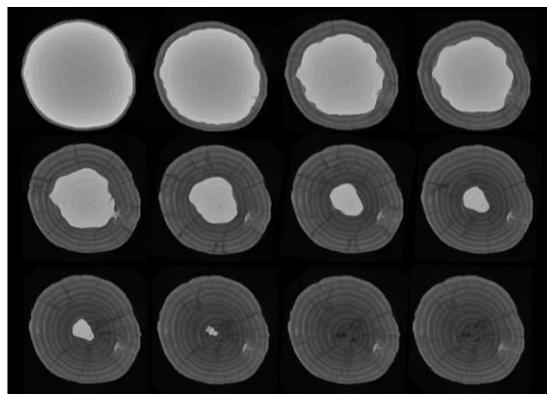


図8. 出土木材試料のX線CT像(左上から、2・7・18・28・45・57・70・74・77・80・86・114日目)

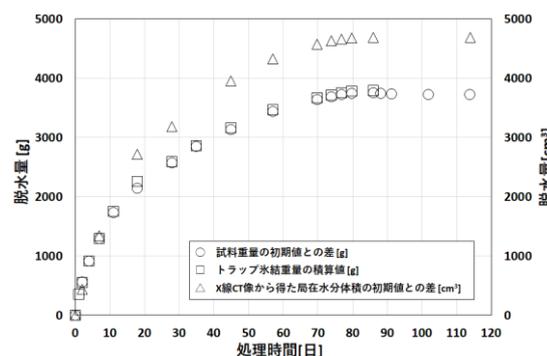


図9. 3通りの方法で算出した脱水量

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 0件）

1. 発表者名 川本耕三, 大橋有佳, 山田哲也, 大国万希子, 山口繁生
2. 発表標題 出土木材のマイクロ波加熱凍結乾燥法による保存処理の研究7
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 川本耕三, 山田哲也, 大国万希子, 山口繁生
2. 発表標題 出土木材のマイクロ波加熱凍結乾燥法による保存処理の研究 6
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 川本耕三, 山田哲也, 大国万希子, 山口繁生
2. 発表標題 出土木材のマイクロ波加熱凍結乾燥法による保存処理の研究 5
3. 学会等名 日本文化財科学会 第35回大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 川本耕三, 大橋有佳
2. 発表標題 出土木材のマイクロ波加熱凍結乾燥法による保存処理の研究 8
3. 学会等名 日本文化財科学会 第38回大会
4. 発表年 2021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
研究分担者	山口 繁生 (YAMAGUCHI Shigeo) (00752370)	公益財団法人元興寺文化財研究所・研究部・研究員 (84601)	
研究分担者	大国 万希子 (OKUNI Makiko) (40250352)	公益財団法人元興寺文化財研究所・研究部・その他 (84601)	
研究分担者	山田 哲也 (YAMADA Tetsuya) (80261212)	公益財団法人元興寺文化財研究所・研究部・研究員 (84601)	
研究分担者	大橋 有佳 (OHASHI Yuka) (10804388)	公益財団法人元興寺文化財研究所・研究部・研究員 (84601)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------