

ノ ー ト



低エネルギー X 線による版木の表面殺菌と X 線撮影 —ベトナムへの技術移転—

片岡憲昭^{1,†}, Nguyen Thi Thuy Linh², 内田海路¹, 古田雅一³, 久米民和²¹東京都立産業技術研究センター, ²ダラット大学, ³大阪公立大学

†kataoka.noriaki@iri-tokyo.jp

2024 年 8 月 23 日 受付

2024 年 11 月 11 日 受理

ベトナムダラット市で保管されている版木の表面にはカビ汚染があり、内部は虫に食われ穴が開いている。そこで、版木の表面に付着する菌を殺菌するために150kVのX線でフィルターを使用せずに照射することで、従来の6倍の速さで殺菌することができた。版木の虫食いは、外観検査と単純X線撮影のみでワレや物理的な破壊と区別して判別ができた。これらの技術をマニュアル化してベトナムで指導を行い、技術移転をした。その際に、旅行経路の手荷物検査内で照射されたX線0.5mGyや宇宙放射線9 μ Svはフィルム線量計とX線フィルムに対して影響を及ぼさなかった。

Key Words: protection of cultural properties, surface sterilization, X-ray imaging, radiosensitivity, X-ray baggage inspection

1. はじめに

ベトナムでは1802年から1945年までのグエン王朝時代に、歴史、地理、社会政治、軍事、法律、教育、文学などを広めるため、王宮は様々な歴史書や文学作品を編纂するように国民へ命じた。この編纂により、版木が作成された。木版画は一般的だった印刷方法として、木の板に古典中国語やチュノム（ベトナムの古い文字）の文字を逆に彫ることで作られた¹⁾。版木の素材は主に、染料を使っても水を吸いにくく膨張しにくい性質をもつ柿の木が使用されていた。これらの版木は、2009年7月31日にユネスコ世界文化遺産に約34,000枚が登録され²⁾、ラムドン省のダラット市にある国立アーカイブセンター No.4 に保管されている³⁾。

保管されている版木は Fig. 1 のように大きいもので60cm×30cm程度、小さいもので30cm×20cmであり、厚みは2~3cm程度である。ベトナムは高温多湿のため、版木の表層はカビで汚染されているものが多い。また、内部はシロアリやキクイムシに喰われ、物理的な破壊（ワレ、キズ、破損）も多数存在する。

版木の保存法においては、カビによる劣化対策のため、定期的な版木の清掃が行われ、保管室は温湿度のコントロールでカビの成長を阻止している。著者の一人は先駆けて低エネルギーX線による版木の殺菌の研究を行った⁴⁾。また、本研究グループはJSPS科研費国際共同研究加速基金（国際共同研究強化B）の課題にて、可搬型X線発生装置を使用して版木の表層カビを高効率で殺菌する手法を日本で開発した⁵⁾。この手法は、可搬型にもできる低エネルギーX線で表面層に高線量（1500Gy）を照射し、深部にはシロアリの駆逐する程度の低線量（200Gy）を同時照射する方法を開発した。具



Fig. 1 Woodblock has been preserved and displayed at the National Archive Center IV (Dalat, Vietnam) since 2009 (Color online).

体的には、X線発生装置に付随するフィルターを取り外し、Beウィンドウのみとし、タンダステンターゲット由来の L_{α} 線と L_{β} 線(10keV付近)を使用することで、表面の線量率を6倍まで引き上げるといった方法である。このタンダステンターゲット由来のX線は100kVの照射管電圧で15mmの浸透深さで線量率が表面線量率の20%に減少するため、内部ではなく、表面層への殺菌法としての使用が妥当である。さらに、従来のPMMA線量計では厚みが10mmのため、表層 $10\mu\text{m}$ 部分の線量を測定することができない⁶⁾。そこで、感光層が $8\mu\text{m}$ のガフクロミックフィルム(HD-V2)を使用することで、表面線量を測定・評価することが可能である。

一方、物理的な版木の破損修復は、主に樹脂で補強されているが高度な技術が必要である⁷⁾。また、版木内部ではシロアリやキクイムシの幼虫に喰われ、外観からではどこまで喰われているか不明である。しかし、幼虫に喰われた穴はX線透過撮影で分別ができる。

ダラット大学のトレーニングセンターではX線照射装置(トーレック社製、最大管電圧150kV)を所有しており、X線による殺菌とX線透過撮影の実施体制は十分である。しかし、ダラット大学所属の著者のグループは微生物試験を専門としているため放射線プロセス技

術については詳しくない。そのため、本研究の目的は、文化財保護を目的とした放射線プロセス技術を我が国からダラット大学に移転することである。具体的には、下記の2点である。

1. 低エネルギーX線の表面線量評価法
2. 木版画のX線透過撮影

また、本研究は国際原子力機関(IAEA)の国際連携共同プログラム(CRP)の文化財保護のプロジェクトF22082: Development and Implementation of Cultural Heritage Preservation using Ionizing Radiation Technology(電離放射線技術を用いた文化遺産保存技術の開発と実施)の成果物の一部である⁸⁾。

2. 低エネルギーX線の表面線量評価法

2.1 ガフクロミックフィルムへのX線照射

使用するガフクロミックフィルムHD-V2は $8\mu\text{m}$ の感光層と、 $97\mu\text{m}$ 保護層で形成され、線量範囲は10–1000Gyである⁹⁾。販売メーカーの取扱説明書では対応エネルギーが1–18MeVと高エネルギー側であるが¹⁰⁾、トレーサビリティが担保できれば低エネルギーX線で校正されていても問題はないとIAEAのマニュアルに記載されている¹¹⁾。そこで、HD-V2の線量校正は2.5mmのアルミフィルターを付加したX線照射装置(COMET社製MG-165)を使用し、管電圧は150kV、線量校正点は6点

(50Gy, 100Gy, 150Gy, 200Gy, 300Gy, 500Gy) で実施した。線量のトレーサビリティは JQA 校正要項に満たされた東洋メディック株式会社製の RAMTEC-Solo の電離箱線量計 (A4 プローブ) で行った。HD-V2 の吸光度を読み取る分光光度計は、日本では日本分光株式会社製 V-670 を使用し、ベトナムでは株式会社日立ハイテク社製 UH 5300 を使用した。いずれの分光光度計も読み取り波長は 400–800nm で測定し、低線量においても、高線量においても安定して吸光度が上昇した 585–599nm の積算値から線量校正を作成し、線量値を計算した。

これらの評価方法をベトナムに移転するために、著者の一人が 2022 年 12 月 30 日と 31 日にベトナムで UH 5300 の全セットアップと取扱説明、HD-V2 の線量評価マニュアルを作成し、指導を行った。定期的に照射済みの HD-V2 の試料を測定するように指示し、測定法と評価法を確認した。2023 年 10 月 2 日にベトナムで、HD-V2 の吸光度測定に立ち会い、著者の一人がマニュアル通りに測定されていることを確認した。

2023 年 9 月 27 日に日本で 150kV の X 線を HD-V2 線量計に照射した。線量は 50Gy, 100Gy, 150Gy, 200Gy, 300Gy, 450Gy であり日本用とベ

トナム用で 2 種類ずつ同時に照射し、ジッパー付きポリバックに入れ暗所で保存した。照射後、1 日目と 3 日目の吸光度測定は日本で計測した。その後、ベトナム用の照射済み HD-V2 をダラット大学に持ち込み、照射から 5 日目、8 日目、14 日目の吸光度は日本とベトナムで計測した。日本で計測した結果を Fig. 2 に、ベトナムで計測した結果を Fig. 3 に示す。

これらの結果から、照射後は線量が増加する傾向にあった。一般的に、HD-V2 は照射直後から 10 時間までは急速に吸光度が変化し、10 時間以降は緩やかに吸光度が増加するため線量が増える¹²⁾。また、今回の旅行経路では、HD-V2 線量計は空港の手荷物検査で 2 回 X 線を照射されたが、長瀬ランダウア社製の nanoDot 線量計で手荷物検査時の線量を測定した結果、いずれも 0.5mGy, 0.6mGy であった。また、日本–ベトナムでのフライト間の線量は ALOKA 社製のポケット線量計 PDM-122B-SHC で測定した結果 9 μ Sv であったため、旅行経路による HD-V2 線量計への影響は無視できた。Fig. 2 と Fig. 3 で日本とベトナムでの線量値が差がないため、ベトナムにおける高温多湿の環境下での影響は受けにくく、安定して測定することができた。

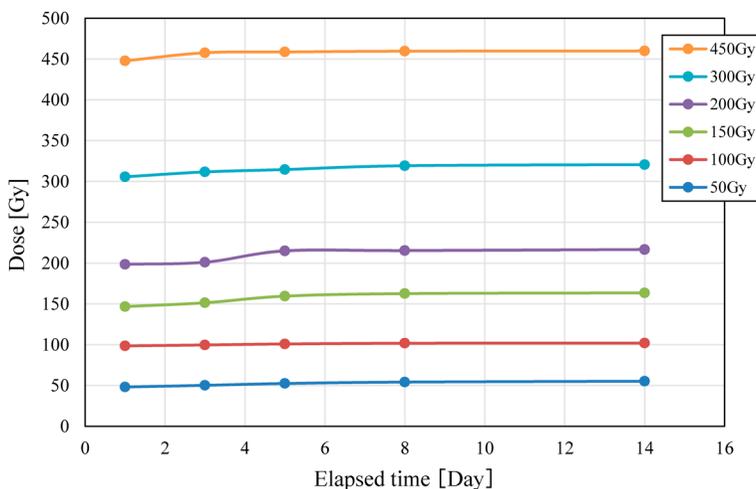


Fig. 2 Temporal changes in the dose of HD-V2 measured by V-670 in Japan after irradiation. HD-V2 films were irradiated with X-rays at 150kV without an additional filter (Color online).

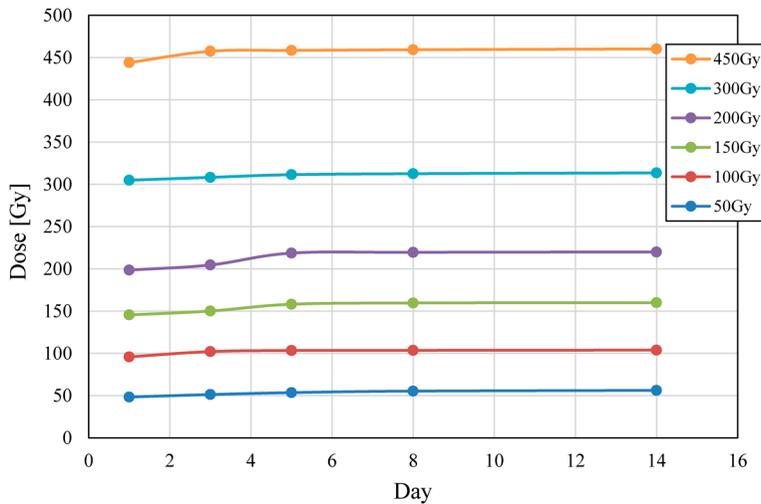


Fig. 3 Temporal changes in the dose of HD-V2 measured by UH5300 in Vietnam after irradiation. HD-V2 films were irradiated with X-rays at 150kV without an additional filter (Color online).

2・2 *Aspergillus niger* の放射線感受性

次に、木材で発生する可能性の高い黒カビの一種である *Aspergillus niger* (*A. niger*) を用いて低エネルギー X 線による殺菌を実施した。以前の研究では *A. niger* の放射線感受性は光子のエネルギーに依存せず、線量に依存する⁵⁾。本研究では、X 線照射における生存曲線の安定性を確認するため、繰り返し培養と X 線照射を行い、*A. niger* の生存曲線を作成した。以下の *A. niger* の培養法、X 線照射法、計測法は以前の論文に掲載されているため、表現を変えて引用する⁵⁾。

Aspergillus niger (NBRC 105049) をポテトデキストロース寒天培地 (PDA) に植菌し、25°C で7日間培養して分生子を産生させた。表面の分生子を滅菌綿棒で集め、0.05% Tween 80 溶液 30mL を入れたファルコンチューブ (50mL) に懸濁した。この溶液を 0.05% Tween 80 溶液 40mL で3回遠心分離し、沈殿物を1瓶に集めて再度遠心分離し、上清を捨てた。沈殿を 15mL の滅菌2%ポリビニルアルコール (PVA) に加え、均一にボルテックスした。約 100 μ L の分生子懸濁液を集めて希釈し、分生子を計数器で数えた。分生子懸濁液約 50 μ L を厚さ

0.75mm のポリエチレン (PE) ディスク上に滴下した (PVA ディスク)。PVA ディスクは安全キャビネット上で乾燥させ、冷蔵庫で保管し、約 2.0×10^7 個/ディスクの *A. niger* ディスクを作成した。作成した *A. niger* に 150kV, 20mA の X 線 (付加フィルター無し) を 15cm の距離で照射した。HD-V2 で線量を確認した結果、付加フィルターがないため 150Gy/min と、従来法に比べて線量率が6倍も高く *A. niger* ディスクに照射できた。照射線量は 300Gy, 600Gy, 900Gy, 1200Gy, 1500Gy であり、1線量あたり3個の PVA ディスクに照射した。線量測定は HD-V2 を使用し、150kV, 20mA で 300Gy 照射する試験を 30 回繰り返して線量の不確かさを算出した。照射後、PVA ディスクを 0.05% Tween 80 水溶液 1mL で溶解し、小型試験管中でボルテックスにより断続的に攪拌し、初期分生子数を測定した。分生子数測定用サンプルの約 0.1mL を 0.05% Tween 80 溶液で希釈し、3枚の PDA プレートに置き、コンラージバーで散布した。その後、25°C で2日間培養して計数し (1回目)、5日目に再度計数した (2回目)。1線量の菌数は3個のディスクの平均値から求め、菌数誤差も求めた。

この試験を3回繰り返し、対照試料 (*A. niger* 入り未照射 PVA ディスク) は、非照射時の *A. niger* の生存数 $N(d_0)$ を算出するために用いた。ある放射線量における *A. niger* の生存率は、その放射線量における *A. niger* の生存胞子数を、放射線を照射しなかった場合の *A. niger* の生存胞子数 $N(d)/N(d_0)$ で正規化したものである。生存曲線は、生存率 $[N(d)/N(d_0)]$ の対数を線量 D に対してプロットすることにより生存曲線を作成した。回帰直線で生存曲線を作成した結果を Fig. 4 に示す。

得られた3つの回帰直線は、不確かさの範囲内にあるため再現性が高い。 D_{10} 値は、*A. niger* が1/10に減少するための線量であることを示し、Fig. 4の線形回帰の勾配 k から計算され、勾配の負の逆数である ($D_{10} = -1/k$)。この生存曲線の回帰直線の傾きから D_{10} 値を計算すると約320 Gy となった。我々の実験では、測定方法や *A. niger* のマトリックスが異なるため、厳密には適切ではない。しかし、他の研究者の様々な知見を考慮すると妥当といえる。例えば Uldo ら¹³⁾ は一般的に *A. niger* の D_{10} 値を200–900 Gy と報告されており妥当であると考えられる。*A. niger* は100–1500 Gy の範囲で高い

放射線感受性を示すため、線量範囲が1–25 kGy の薄いアラニン線量計 (BioMax) は使用できない。一方、HD-V2 は10–1000 Gy に線量範囲を持っており、本手法が妥当だといえる。これらを考慮すると EN 1137-2 (2015) の滅菌線量評価がガンマ線領域だけであったのに対し、今後は低エネルギー X 線にも適用できることを示す。

3. 木版画の X 線透過撮影

3.1 X 線透過撮影

Fig. 5 にシロアリやキクイムシに侵食された版木を示す。この版木を COMET 社製 MG-165 の X 線照射装置と富士フィルム社製のイメージングプレート UR-1 型で単純 X 線撮影した。露光条件は、管電圧 50 kV、管電流 2.0 mA、線源—フィルム間距離 70 cm、照射時間 30 秒で照射した。現像は富士フィルム社製の AC-7 を使用した。撮影された X 線写真を Fig. 6 に示す。X 線が通りやすいほうが黒く写り、通りにくいと白く写る。Fig. 6 の矢印の箇所を見ると、同じ幅で黒い影が横に通っている。この跡こそが、虫の食べた痕跡を示すものであり、どこまで食べられているかを判断できる。また、穴の直径を計測すると約 1.5 mm であった。虫食い

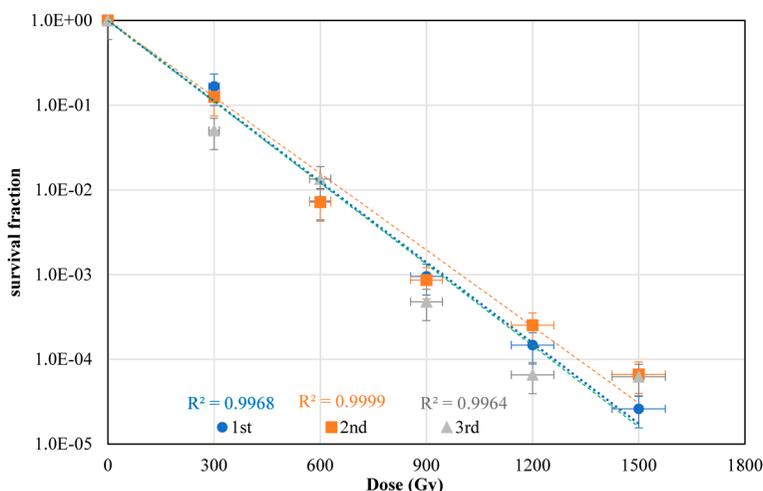


Fig. 4 Survival curves of the *A. niger* disc irradiated X-ray at 150 kV. The error bars represent uncertainties at $k=2$. The vertical error bars indicate the uncertainty of the three microbiological testing. The horizontal error bars indicate the uncertainty of dose measured by the HD-V2 dosimeter (Color online).

穴の X 線画像は、ワレや破損の箇所とは異なり、一定の幅で直線的に食べられるため、区別が容易である。破損した版木は樹脂で補強するため、物理的な破壊と細長い虫食い穴の修復作業が異なり、虫食い穴の位置と長さを X 線非破壊検査で観察することが重要となる。

次に、虫食い穴の識別最小寸径を調査する。



Fig. 5 The woodblock was eaten by insects. Although physically destroyed, the round holes are evidence of larval feeding (Color online)

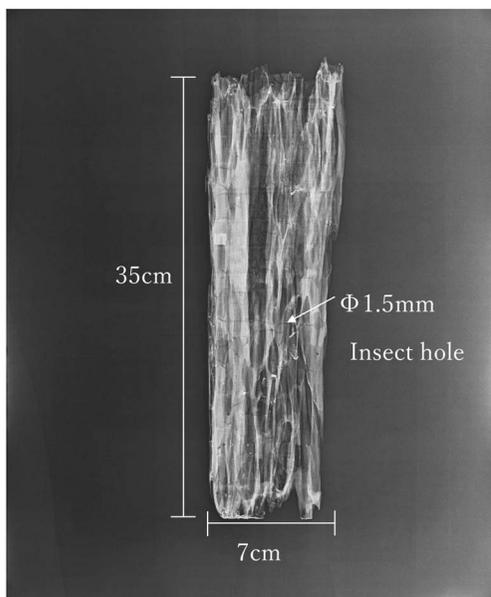


Fig. 6 X-ray imaging of woodblock that has been destroyed a lot. The arrows indicate the $\Phi 1.5$ mm mark where the insects have eaten. In this x-ray image, the insects appear to have been eating sideways (Color online).

虫食い穴を模擬する板を作成するため、厚さ 30 mm の木の板に 0.5 mm, 1.0 mm, 1.5 mm, 2.0 mm, 2.5 mm, 3.0 mm のドリルで穴をあけた (Fig. 7)。X 線撮影方法を現地で教えるために、この模擬木片をベトナムへ持ち込み X 線フィルム (FUJIFILM: IX-80) で撮影をした。露光条件は、管電圧 70 kV, 管電流 5.0 mA, 線源—フィルム間距離 70 cm, 照射時間 6 秒で照射した。当日は、フィルムを現像・乾燥する時間がなかったため、照射したフィルムを日本に持ち帰った。旅行経路において、空港の手荷物検査場用の X 線検査場で X 線撮影フィルムであることを説明したが、ハノイ—成田間のみ、免除されずに X 線を照射された。その線量は 0.5 mGy であった。模擬木片の照射から現像までのフェーディング期間は 2 日であった。日本に帰国後、X 線フィルムは 5 分間現像した。Fig. 8 に撮影画像を示す。フィルム濃度 $D=2.1$ の良好な写真が得られた。ドリルで空けた縦穴と横穴は、いずれも 1.0 mm までは簡単に確認でき、2 日のフェーディング期間、手荷物検査での X 線照射の影響を考慮しても、きれいな

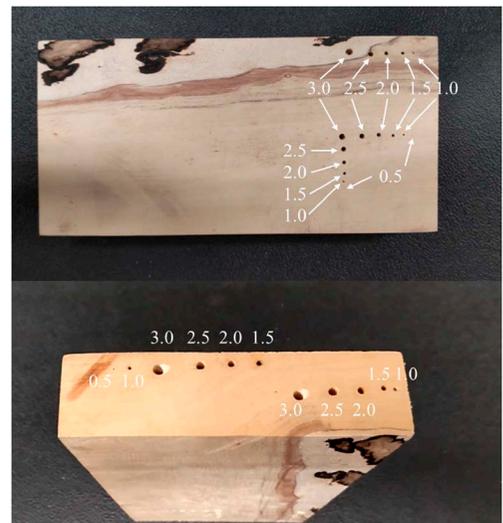


Fig. 7 Wooden board which is the same thickness of woodblocks was drilled. Hole diameters are 0.5 mm, 1.0 mm, 1.5 mm, 2.0 mm, 2.5 mm and 3.0 mm, respectively (Color online).

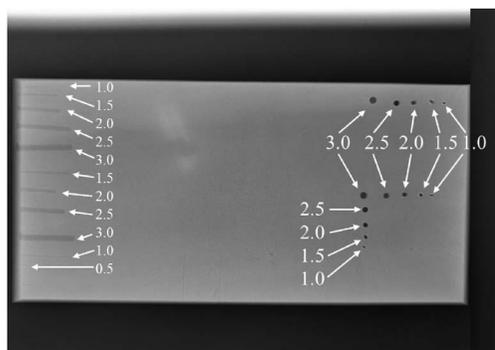


Fig. 8 X-ray image of wood board with drilled holes. Density of film (D) was 2.0. The detected holes were 0.5 mm, 1.0 mm, 1.5 mm, 2.0 mm, 2.5 mm and 3.0 mm (Color online).

画像が得られた。

帰国後、ダラット大学では同様の単純 X 線撮影を実施し、きれいな画像が得られているため、X 線透過撮影の技術移転にも成功した。

4. 結 語

本研究では、日本で確立した低エネルギー X 線を用いて版木の表面殺菌を線量で担保するための表面線量評価法と、版木の内部を虫に食われた穴を単純 X 線撮影で判別する技術をベトナムへ移転した。

著者情報

著者貢献内容

片岡憲昭：X 線表面測定法の立案と測定，X 線 CT 撮影，単純 X 線撮影，データの取得と解析と論文の作成

Nguyen Thi Thuy Linh：生存曲線データの取得と解析

内田海路：X 線表面線量のデータ取得

古田雅一：研究の統括

久米民和：研究内容の構成

ORCID 番号

片岡憲昭：0000-0002-5862-0267

Nguyen Thi Thuy Linh：なし

内田海路：なし

古田雅一：なし

久米民和：なし

利益相反の開示

本論文に関連し、著者全員について開示すべき利益相反 (conflict of interest; COI) 関係にある企業等はない。

謝 辞

本研究は JSPS 科研費 JP 21KK0011 の助成を受けたものです。

文 献

- 1) Le, T. H. and Vu, H. V., Method of printing carved on wood under the Nguyen Dynasty of Vietnam: Study of woodblocks recognized by UNESCO as a world documentary heritage, *Int. J. Psychosoc. Rehabil.*, **24**, 6 (2020)
- 2) UNESCO Memory of the world, Woodblocks of Nguyen Dynasty, <https://www.unesco.org/en/memory-world/woodblocks-nguyen-dynasty> (accessed August 1, 2024)
- 3) Royal Woodblocks of Nguyen Dynasty World Documentary Heritage, Keep Memory Awaken Future, <https://mocban.vn/en/home/> (accessed August 1, 2024)
- 4) Linh, N. T. T., Son, N. A., Masakazu, F. and Tamikazu, K., Disinfection of woodblocks of the Nguyen Dynasty of Vietnam by low-energy X-rays, *Radioisotopes*, **70**, 55–62 (2021)
- 5) Noriaki, K., Linh, N. T. T., Yuko, K., Ryoko, A., et al., Radiation sensitivity of *Aspergillus niger* of low-energy X-rays and Caesium-137 gamma rays, *Radiat. Phys. Chem.*, **218**, 111586 (2024)
- 6) Whittaker, B. and Watts, M. F., The influence of dose rate, ambient temperature and time on the radiation response of Harwell PMMA dosimeters, *Radiat. Phys. Chem.*, **60**, 101–110 (2001)
- 7) Loan, T. T. and Mai, T. N. N., The process of handling materials before digitizing the heritage of woodblocks of Vinh Nghiem Pagoda, *Atlanti*, **27**, 253–258 (2017)
- 8) International Atomic Energy Agency, Development and Implementation of Cultural Heritage Preservation using Ionizing Radiation Technology, <https://www.iaea.org/projects/crp/f22082> (accessed August 1, 2024)

- 9) Yamada, H. and Parker, A., Gafchromic™ MD-V3 and HD-V2 film response depends little on temperature at time of exposure, *Radiat. Phys. Chem.*, **196**, 110101 (2022)
- 10) Ashland, PHA21-008_Gafchromic HD-V2 Protocol, https://www.ashland.com/file_source/Ashland/Documents/PHA21-008_Gafchromic%20HD-V2%20Protocol.pdf (accessed August 1, 2024)
- 11) FAO/IAEA, Dosimetry for SIT: Standard Operating Procedures for Gafchromic™ Film Dosimetry System for Low energy X Radiation, 2022, <https://www.iaea.org/resources/manual/dosimetry-for-sit-standard-operating-procedures-for-gafchromictm-film-dosimetry-system-for-low-energy-x-radiation-v10> (accessed August 1, 2024)
- 12) 石坂知久, 百合庸介, 上松 敬, 湯山貴裕, 他, ガフクロミックフィルム HD-V2 の γ 線応答曲線を用いたイオンビームの相対強度分布測定法, *RADIOISOTOPES*, **66**, 251–258 (2017)
- 13) Jakob, H. G., Miller, A., Andersen, C. E., Cloetta, D., et al., Comparison of the microbicidal effectiveness of 150 kV X-rays and cobalt-60 gamma rays, *Radiat. Phys. Chem.*, **198**, 110239 (2022)

Abstract

Surface Sterilization and X-ray Radiography of Woodblocks by Low-energy X-rays —Technology Transfer to Vietnam—

Noriaki KATAOKA^{1,†}, Nguyen Thi Thuy LINH², Kaiji UCHIDA¹, Masakazu FURUTA³ and Tamikazu KUME²: ¹ Tokyo Metropolitan Industrial Technology Research Institute, ² Faculty of Biology, Dalat University, ³ Osaka Metropolitan University, [†] kataoka.noriaki@iri-tokyo.jp

To sterilize the bacteria on the surface of the woodblocks, low energy X-rays of 150 kV were used to irradiate them without using filters, which was six times faster than general X-ray irradiation methods. Insect damage to the woodblocks could be distinguished from cracks and physical destruction only by visual inspection and simple X-ray radiography. These techniques were manualized and transferred to Vietnam. At that time, 0.5 mGy of X-rays irradiated within the baggage inspection and 9 μ Sv of cosmic radiation of travel routes had no effect on the film dosimeter and X-ray film.

(Received August 23, 2024)

(Accepted November 11, 2024)