

X線位相イメージング法による漆器の観察

岡本 博之, 内藤 愛莉奈¹⁾, 水野 薫²⁾

KEY WORDS

Phase contrast imaging, Scatter image, lacquerware, synchrotron radiation, X-ray DEI method

はじめに

X線イメージングの分野ではこれまで、主に減弱差、つまりX線を波としてとらえた際の振幅変化を利用してきた。一方で、物質を透過する際に生じる位相変化を捉え、画像化する研究も進められている¹⁻⁴⁾。位相変化による現象としては、外形の変化による屈折や、内部の分解能以下の微細構造による小角散乱などがある。しかし、通常の物体による屈折角、散乱角は数十 μrad よりも小さいため、直接検出することは困難である。そこで、特殊な光学素子を使い、それらの情報を検出している。その代表的手法として、拡張型 DEI 法 (Multiple-Image Radiography)、タルボ干渉計を利用する方法、スリットを利用する方法などがある²⁻⁵⁾。利用する光学素子の違いにより、位相情報の検出感度 (分解能) も異なるため、それぞれの特徴を生かし、産業や医療分野への応用が進められている⁶⁻⁸⁾。これらの手法の中でも拡張型 DEI 法は、高感度に位相情報を検出することができる。ただしこの手法は、シンクロトロン光源が必要であるため、医療分野への応用は重視されていない。しかし、非破壊で減弱の少ない物質の情報を得ることができるため、産業用に研究が行われている。我々は、この手法の元となった単純 DEI (Diffraction-Enhanced Imaging) 法を用いて水素吸蔵金属における水素の拡散過程や、輪島塗の漆層の剥離についての評価を行ってきた^{9,10)}。しかし単純 DEI 法は、撮影時間が短いという利点の一方、位相像の一つである散乱像が得られないという欠点がある。そのため、輪島塗のような、木材、漆、鈹物微粒子など、様々な物質を含む層の区別や詳細な評価は困難であった。そこで我々は、散乱像も得ることができる拡張型 DEI 法を用いて、漆器のような層状構造をもつ物体において、それぞれの特徴を検出できるか、観察を行った。輪島

塗は製造工程が詳細に判明しており、実験で得られた情報との比較が容易であるため試料とした^{11,12)}。

方法

実験は、高エネルギー加速器研究機構放射光科学研究施設 (KEK-PF) の BL-14B で行った。図 1 に鉛直上方から観察した実験配置図を示す。拡張型 DEI 法では Si 単結晶による回折現象を利用するため、単色 X 線が必要である。そこでまず、シンクロトロンから放射される白色 X 線を、モノクロメータにより 20.7 keV に単色化した。ビームラインの特性上、このエネルギー領域は強度、安定性とも良好である。次に、回折面を (220) とする Si 単結晶製コリメータにより、指向性を高めるとともにビームの幅を広げ、試料に照射した。その後、試料により減弱、屈折、散乱が生じた X 線を Si(220) のアナライザーで回折させ、CCD カメラで検出した。CCD カメラの画素サイズは $6.4 \times 6.4 \mu\text{m}^2$ である。なお本実験では、アナライザー角度を $0.49 \mu\text{rad}$ ずつ変化させ、合計 200 枚の撮影を行った。1 枚あたりの撮影時間は 2.0 sec とした。

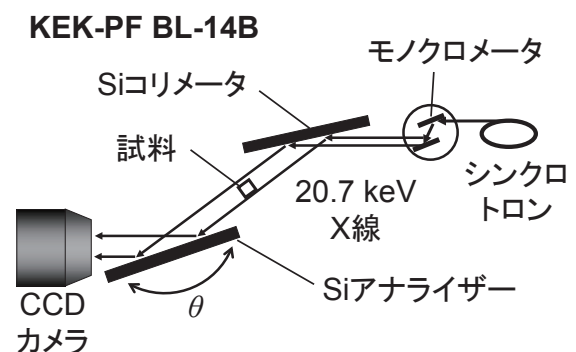


図 1. 実験に使用した装置の配置

金沢大学医薬保健研究域保健学系

1) 金沢大学大学院医薬保健学総合研究科

2) 島根大学教育学部

以下に、拡張型 DEI 法により像を得る原理を示す。まず、試料が無い状態において水平面内でアナライザー設置角度 θ を変化させる。すると、ブラッグの条件を満たす角度で回折 X 線の強度が大きくなり、外れると小さくなる¹³⁾。このとき、図 2 中に実線で示すようなロッキングカーブと呼ばれる回折 X 線の強度曲線が、CCD カメラの各画素で得られる。次に試料を置くと、試料と相互作用をした X 線がアナライザーに入射する。このとき減弱が生じると、CCD カメラに入射する X 線の強度が小さくなるため、図 2(a) 破線のようにロッキングカーブの積分面積が減少する。屈折が生じると、アナライザーへの X 線入射角が変化するため、図 2(b) 破線のようにカーブの重心（期待値）が変化する。また散乱は、空間分解能以下の微細な構造による様々な方向への屈折であるため、図 2(c) 破線のようにカーブの広がり（標準偏差）が変化する。そこで、各画素について統計処理を行い、それぞれの情報を検出した。計算に用いた式 (1) ~ (3) を以下に示す。なお、アナライザー角度 θ_i としたとき、CCD カメラの各画素で検出される強度 I_i とする。 n は、ロッキングカーブ測定点の総数である。

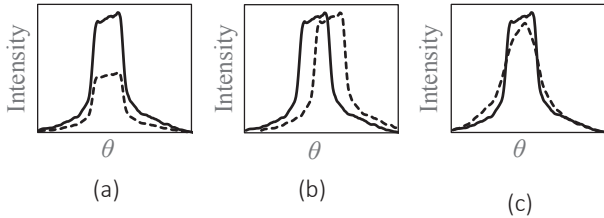


図 2. 試料との相互作用によりロッキングカーブに生じる変化。アナライザー角度を横軸、回折 X 線強度を縦軸としている。ブラッグ条件を横軸の中心としている。実線は試料がない時、破線は試料が存在するときの曲線である。

$$I_{int} = \sum_{i=1}^n I_i \quad (1)$$

$$\theta_{ex} = \sum_{i=1}^n \frac{I_i}{I_{int}} \theta_i \quad (2)$$

$$S = \sqrt{\sum_{i=1}^n \frac{I_i}{I_{int}} (\theta_{ex} - \theta_i)^2} \quad (3)$$

これらの統計量を用いて、減弱像、屈折像、散乱像を構築した。ただし、試料が存在するときの I_{int} を試料が存在しないときの I_{int0} で除した I_{int}/I_{int0} を減弱率、試料が存在するときの期待値 θ_{ex} から試料が存在しないときの期待値 θ_{ex0} を引いた $\theta_{ex} - \theta_{ex0}$ を屈折角、試料が存在するときの標準偏差 S から試料が存在しないときの標

準偏差 S_0 を引いた $S - S_0$ を散乱角とした。それぞれ得られた値を画素値として割り当てて画像を作成した。

次に、本研究において観察した試料は、図 3(a)に示す 1990 年製造の輪島塗の椀である。この漆器の高台部分を図 3(b)のように、表面に対し垂直に、厚さ 1 mm の薄片に加工し観察した。伝統的漆器は多くの製造工程から成り立っており、産地ごとに異なる^{11,12)}。その中でも、輪島塗は特に複雑な工程を得て製造され

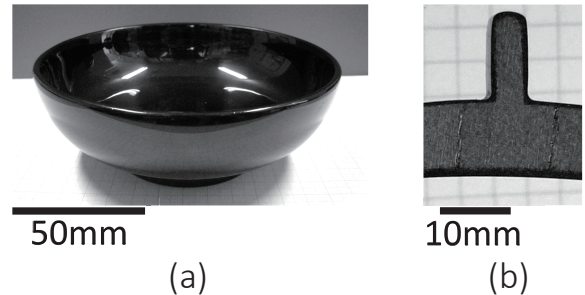


図 3. 本実験に使用した輪島塗試料 (a) は 1990 年製造の輪島塗椀である。(b) は椀の高台部分を厚さ 1 mm の薄片に加工した試料である。

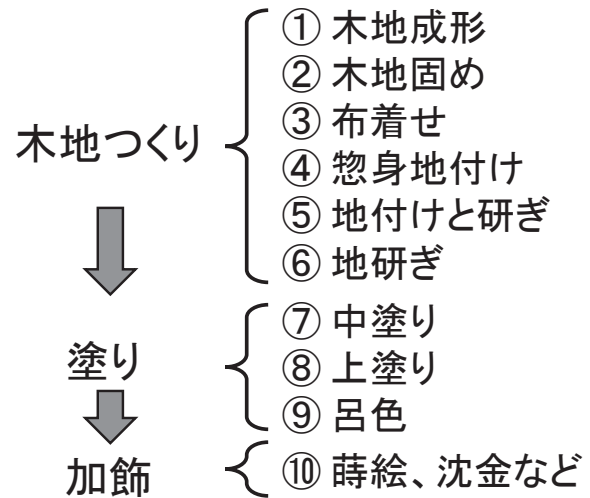


図 4. 一般的な輪島塗の製造工程

表 1. 輪島塗の製造工程で行われる作業内容

工程	行われる作業内容
①	原材料の木材をろくろにより成形し、器の形をつくる
②	刻苧(木粉)と生漆で木地を補強する
③	壊れやすい部分に漆で布を貼り付ける
④	炭化した木粉と生漆、米糊を混ぜたものを塗る
⑤	粒子径の異なる鉱物微粒子(主に珪藻土)と生漆、米糊を混ぜたものを3回塗っては空研ぎする
⑥	砥石で水研ぎをする
⑦	水酸化鉄などを混ぜた中塗り漆を塗り乾燥させ、炭での研ぎを数回繰り返す
⑧	上質漆を塗る
⑨	炭研ぎと、生漆をすり込み磨く工程を繰り返し、つやを出す
⑩	塗りが終了後、蒔絵、沈金等、様々な技法で表面に飾りをつける

るため、代表的高级漆器と言われる。一般的な輪島塗は、図4に示す工程で製造される。それぞれの工程では、表1に示すような作業が行われる。得られる情報には、各工程の特徴が反映されると考えられる。なお、本実験に使用した漆器には、⑩の加飾は施されていない。

結果

得られた200枚の画像を使い、画素ごとに式(1)~(3)の計算を行った。算出した統計量により得られた像を図5に示す。図5(a)に減弱像、(b)に屈折像、(c)に散乱像を示す。(a)については、減弱率0.5を黒、ノイズの影響も含め1.1を白に、(b)については、屈折角 $-1\ \mu\text{rad}$ を黒、 $+1\ \mu\text{rad}$ を白に、(c)については、散乱角 $5\ \mu\text{rad}$ を黒、 $15\ \mu\text{rad}$ を白に割りあてた。以下に製造工程と、像との対応を示す。それぞれの工程に対応すると思われる部分を、図5の一部を拡大し、図6に示す。

- ①屈折像、散乱像において木目が観察された。減弱像においては観察されなかった。
- ②屈折像において木地を取り囲むように線状に観察さ

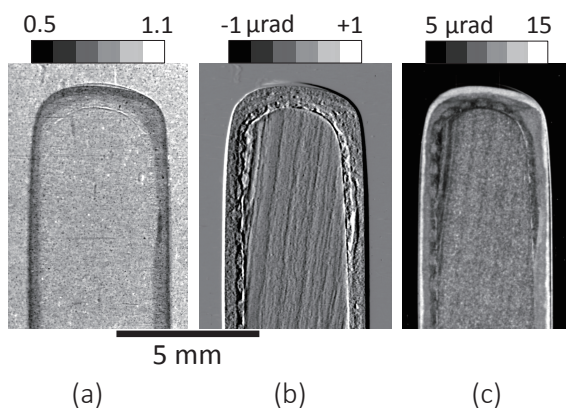


図5. 実験により得られた像
(a)は減弱像、(b)は屈折像、(c)は散乱像である。

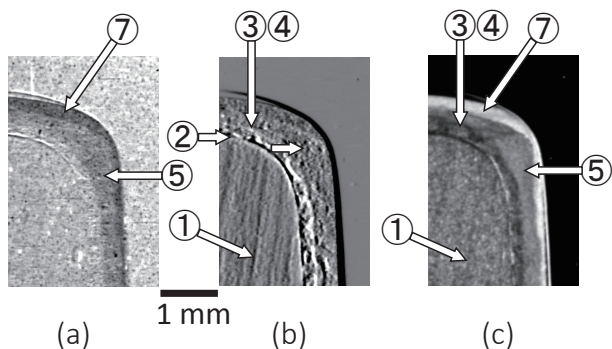


図6. 実験により得られた像の拡大図
(a)は減弱像、(b)は屈折像、(c)は散乱像である。各工程との対応を通し番号で示す。

れた。

- ③④布繊維と炭化木材の、境界部分が屈折像において観察された。散乱像においては布繊維と炭化木材の違いも観察された。減弱像においては観察されなかった。
- ⑤減弱像と散乱像において観察された。散乱像においては、散乱強度の変化も観察された。屈折像では観察されなかった。
- ⑦減弱像と散乱像において観察された。屈折像では観察されなかった。
- ⑧いずれの像においても、明瞭には観察されなかった。ただし、図5(b)の屈折像においては、左右端で白黒の線が観察された。

考察

以下に、製造工程ごとの考察を示す。

- ①木材は減弱率が小さいため、減弱像では観察されなかったと考えられる。しかし、木目による密度(屈折率)の変化、木質繊維による微細構造をもつため、屈折像、散乱像により観察されたと考えられる。
- ②木地と刻苧を混入した生漆では密度が異なるため、屈折像において境界部分が線状に観察されたと考えられる。
- ③④布繊維は微細構造を持つため散乱像で観察されたと考えられる。また、布繊維と炭化木材では密度が異なるため、屈折像でその境界部分が観察されたと考えられる。しかし、両者とも有機物であるため減弱率が小さく、減弱像では観察されなかったと考えられる。
- ⑤地付けで混入した鋳物粒子により減弱が生じるため、減弱像で観察されたと考えられる。また、3回の塗りに使用するための鋳物粒子は粒子径が異なるため、散乱像において、散乱強度の変化が観察されたと考える¹¹⁾。一方で、粒子径は使用した装置の空間分解能以下(数 μm)であり、外形も均一の厚さに加工しているので、屈折像では観察されなかったと考えられる。
- ⑦中塗り漆には水酸化鉄が含まれるため、鉄により減弱が生じ、減弱像で観察されたと考えられる。また、水酸化鉄はコロイド状態になることが知られており、これが乾燥後に微細構造を形成することで、散乱像において強い散乱が観察されたと考えられる。しかし、均一の厚さであるので、屈折像では観察されなかったと考えられる。
- ⑧上塗り層は薄いため、本手法では観察されなかったと考えられる。加えて、図5(b)屈折像左右端で大き

な屈折が生じたことから、試料とした剥片は漆器の表面に対して正確に垂直な断面が得られておらず、表面層の観察を妨げたと考えられる。大きな屈折の影響を除くためには、試料の加工精度を上げる、屈折率が同等の溶液中で撮影する等の対策が必要と考える。

以上より、拡張型 DEI 法は、漆器のように様々な微細構造を含む層を区別し、評価できることが分かった。本手法は、複合的構造を持つ物体の分析手法として、今後有効なツールになると考えられる。

文献

- 1) K. M. Podurets, V. A. Somenkov, and S. Sh. Shilstein (1989): Refraction-contrast radiography, *Sov. Phys. Tech. Phys.*, 34, 654-657.
- 2) M. N. Wernick, O. Wirjadi, D. Chapman, et al. (2004): Multiple-image radiography, *Phys. Med. Biol.* 48, 3875-3895.
- 3) A. Momose, W. Yashiro, S. Harasse, et al. (2010): Four-dimensional x-ray phase tomography with Talbot interferometer and white synchrotron light. *SPIE proceedings* 7804, 780405.
- 4) A. Bravin, P. Coan and P. Suortti (2013): X-ray phase-contrast imaging: from pre-clinical applications towards clinics, *Phys. Med. Biol.* 58(1), R1-35.
- 5) F. A. Vittoria, Gibril K. N. Kallon, Dario Basta, et al. (2015): Beam tracking approach for single-shot retrieval of absorption, refraction, and dark-field signals with laboratory x-ray sources, *Appl. Phys. Lett.* 106, 224102-1-5.
- 6) 森浩一, 関根紀夫, 佐藤斉, 他 (2002): 放射光 X 線を用いた屈折コントラストによる骨画像, *医学物理*, 22(1), 13-20.
- 7) K. Mizuno, A. Fujimori, H. Okamoto, et al. (2017): Determination of minimum detectable refraction angle in X-ray diffraction-enhanced imaging via standard test piece, *Jpn. J. Appl. Phys.* 56, 066601-1-4.
- 8) 岡本博之, 藤森茜, 水野薫, 他 (2019): X 線位相イメージング法により得られる散乱像の分解能評価, *Journal of wellness and health care*, 43(1), 101-104.
- 9) K. Mizuno, H. Okamoto, K. Kajiwara, et al. (2006): Visualization of Hydride in Titanium and Titanium-Aluminide by Refraction-Enhanced X-ray Imaging Technique, *Materials transactions* 47(5), 1299-1302.
- 10) 岡本博之, 水野薫 (2013): X 線屈折コントラスト法による輪島塗の観察, *金沢大学つるま保健学会誌*, 37(2), 51-56.
- 11) 中里寿克 (2000): 産地別 すぐわかる うるし塗りの見わけ方, 10-21, 東京美術.
- 12) 松田権六 (2001): うるしの話, 179-217, 岩波文庫.
- 13) 菊田星志 (2011): X 線散乱と放射光科学 基礎編, 50-60, 東京大学出版会.

謝辞

本研究を行うにあたり、貴重な輪島塗を提供して下さった、輪島塗作家の箱瀬淳一氏に謹んで感謝の意を表します。また、技術的支援をいただいた高エネルギー加速器研究機構の平野馨一氏に謹んで感謝の意を表します。

本研究は、Photon Factory Program Advisory Committee の承認を得て実施されました (課題番号: 2016G189, 2018G055)。また、本研究は JSPS 科研費 JP18K12027 の助成を受けたものです。