

X線位相イメージング法による漆器中の繊維状物質の検出

岡本 博之, 内藤 愛莉奈¹⁾, 水野 薫²⁾

KEY WORDS

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

はじめに

日本国では古代から漆器が使用され、伝統的産業も発展している¹⁾。しかし近年、廉価品の普及により、伝統的漆器を使用する機会は減少している。一方で、その美術的価値から、重要な行事や宗教施設では、現在でも使用される機会が多く、技術の伝承が重視されている。そのため、廉価品との差別化が必要となるが、塗りが施された後での判別は困難である。そこで我々は、X線位相イメージング法により輪島塗特有の構造が検出できることを確認し報告した^{2, 3)}。その際に使用した手法では、等方的な微細構造を仮定し位相像を得る。そのため、繊維質のような異方的物性を持つ物質については、方位について平均化された情報が得られ、繊維質を含む部位であるかどうかを、物理量の違いとして確認出来ない。一方で、例えば漆器の原型となる木材部は繊維質である。また、輪島塗の代表的技法である布着せ部分にも、異方的な布繊維が存在する。そのため先の研究では、漆器特有の特徴を持つ幾つかの部位について、その存在を物理量の違いとして示すことは出来なかった。そこで本研究では、異方的物質からの散乱が評価できるように改良した拡張型DEI法(Multiple-Image Radiography)を使用し、輪島塗中に存在する繊維状物質の検出、同定を試みた⁴⁾。

位相イメージング法には複数の手法が存在し、それぞれの特徴を生かし、産業や医療分野への応用が検討されている⁴⁻¹²⁾。今回使用した拡張型DEI法は、シンクロトロン光源を使用して高感度に位相情報を検出可能であり、漆器のような減弱が小さい物体の観察に向いている⁴⁾。

方法

散乱の異方性評価には、タルボ干渉計を利用した方法が多く使用される¹³⁾。しかしながら、本研究ではこれまでの成果と比較するため、拡張型DEI法を使用した^{3, 4)}。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。鉛直上方から観察した実験装置の配置を図1に示す。DEI法は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、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。BL-14Bでは、このエネルギー領域でビーム強度と安定性が良い。次に、回折面を(220)とするSi製コリメータによる非対称回折で指向性を高めつつビームの幅を広げ、回転ステージに設置された試料に照射した。その後、試料と相互作用をした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。アナライザー角度は $0.49 \mu\text{rad}$ ずつ変化させ、計200枚

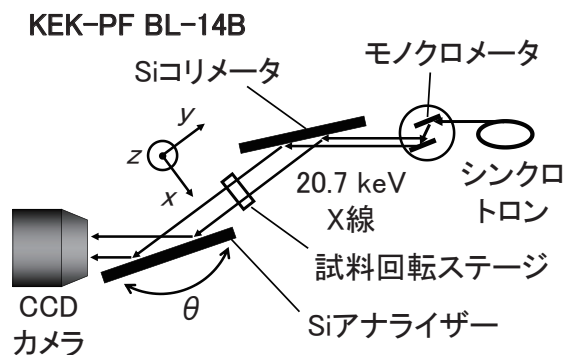


図1. 実験に使用した装置の配置

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

の撮影を行い、散乱像を得た。露出時間は 2.0 sec/ 枚とした。

以下に、拡張型 DEI 法により像を得る原理を示す。まず、図 1 の試料が無い状態でアナライザー設置角度 θ を変化させると、ブラッグの条件を満たす角度で回折 X 線の強度が最大となり、外れると小さくなる¹⁴⁾。このとき CCD カメラの各画素では、図 2(d) ~ (f) に実線で示す、ロッキングカーブと呼ばれる回折 X 線の強度曲線が得られる。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。このとき図 2(a) のような減弱が生じると、図 2(d) 破線のように積分強度が減少する。外形変化により図 2(b) のような屈折が生じると、図 2(e) 破線のように中心（期待値）が移動する。微細構造により図 2(c) のような散乱が生じると、図 2(f) 破線のように広がり（標準偏差）

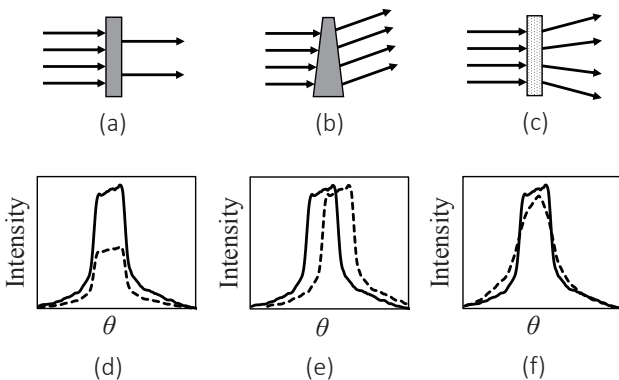


図 2. 試料と X 線の相互作用でロッキングカーブに生じる変化
(a) は減弱, (b) は外形変化による屈折, (c) は微細構造による散乱を示す。(d) ~ (f) の横軸はアナライザー角度, 縦軸は回折 X 線強度である。横軸の中心をブラッグ条件としている。実線は試料がない時, 破線は試料により (d) 減弱, (e) 屈折, (f) 散乱が生じた際のカーブである。

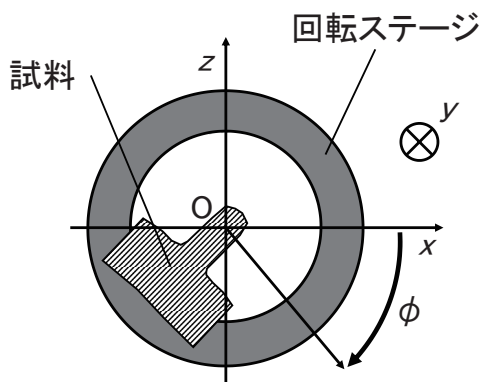


図 3. 回転ステージに設置した試料と座標軸の定義
試料回転ステージと座標軸の定義の関係を示す。図の x, y, z 軸は、図 1 の中に示した座標軸と対応している。回転ステージの回転軸は y 軸と平行である。x 軸を方位角 $\phi = 0^\circ$ の基準とし、y 軸の上流側に向かって時計回りに回転した。試料の撮影したい領域を回転ステージの中央に設置した。

が変化する。そこで、各画素で観測されたロッキングカーブについて統計処理を行い、各像を作成する³⁾。本研究では、試料の有無による標準偏差の変化、すなわち図 2(f) に示した実線と破線の標準偏差の差を散乱角とし、これを画素値として散乱像を作成した。なお、本装置のアナライザー回転軸は鉛直であるため、水平 (x 軸) 方向の散乱のみ検出可能である。仮に、繊維状の物質が存在すると、繊維に平行方向の散乱は小さく、垂直方向では大きくなる。つまり、散乱の異方性を評価することにより、繊維状物質を検出可能である。そこで、図 3 に示すような回転ステージに試料を設置し、方位角 ϕ を 10° ごとに変化させながら 360° の範囲で撮影を行い、計 36 枚の散乱像を得て変化を観察した。なお、図 3 の x, y, z 軸は、図 1 中の座標軸と対応している。また、方位角 ϕ で得られた散乱角を S_ϕ とする。

試料は、先の研究でも使用した 1990 年製造の輪島塗碗である³⁾。外形を図 4(a) に示す。伝統的漆器は多くの製造工程から成り、産地ごとに異なる^{15,16)}。一般的な輪島塗は図 5 の工程で製造され、①と③では繊維質の材料が使用される。試料の碗にも高台部に布着せが施されている。そこで、図 4(b) のように高台部を、表面に対し垂直に 1 mm 厚に加工し観察した。

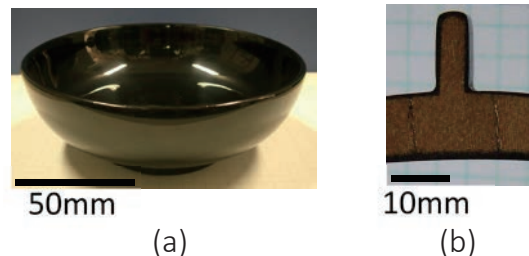


図 4. 実験に使用した輪島塗碗と試料
(a) は 1990 年製造の輪島塗碗である。(b) は碗の高台部分を 1 mm 厚に加工した試料である。

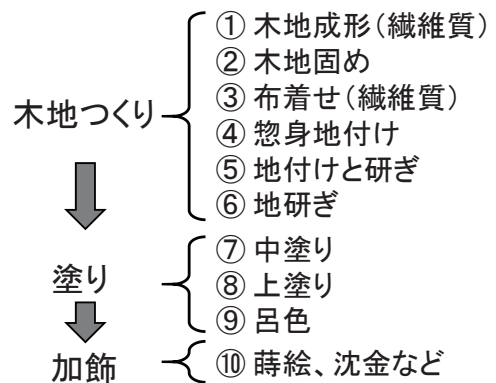


図 5. 一般的な輪島塗の製造工程
①~⑩の工程に沿って製作される。①と③の工程では繊維質の材料が使用されている。

結果

方位角を $\phi = 0^\circ, 30^\circ, 60^\circ, 90^\circ$ とした散乱像を図6(a)～(d)に示す。部位による違いを調べるため、図6(a)の①木地、③布着せ、⑤地付け、⑦中塗り、に関心領域をとり、36枚の散乱像から得た ϕ と S_ϕ の関係を図7に示す。繊維質である①、③はひょうたん型を示し、 S_ϕ に異方性が存在した。一方、鉱物粒子を含む⑤、水酸化鉄コロイドを含む⑦では円に近い型を示し等方的であった。さらに、①、③に比べ⑤、⑦では全体的に S_ϕ が大きくなった。このような情報を画像化するため、次の方法を用いた。

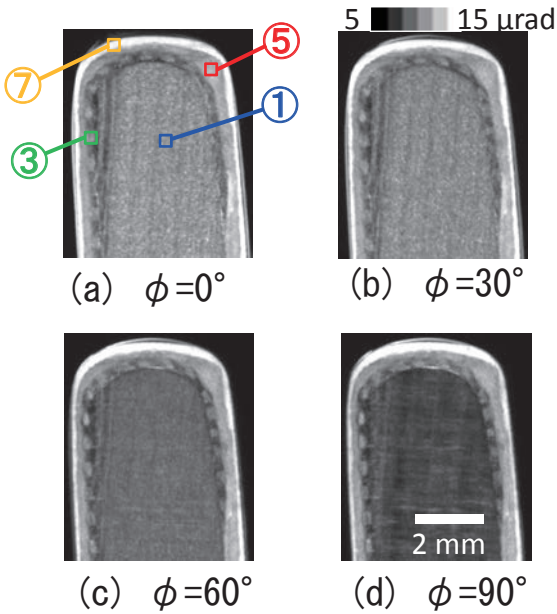


図6. 方位角を変化させたときの散乱像の変化
(a) 方位角 $\phi = 0^\circ$, (b) 30° , (c) 60° , (d) 90° で得た散乱像。各像とも散乱角の大きさ $5 \mu\text{rad}$ を黒、 $15 \mu\text{rad}$ を白に割りあてている。

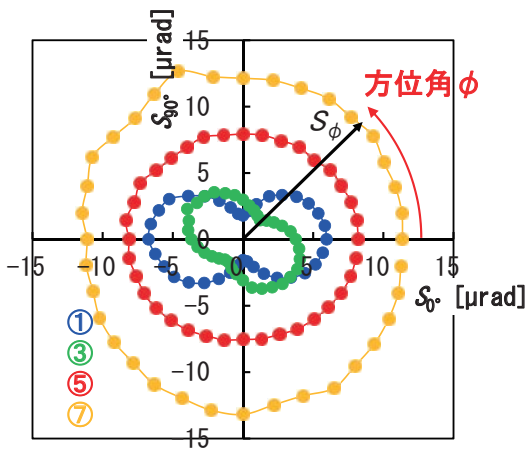


図7. 方位角と散乱角の関係
方位角 ϕ を変化させたときの、図6(a)①木地(青)、③布着せ(緑)、⑤地付け(赤)、⑦中塗り(橙)に四角で示した関心領域における散乱角 S_ϕ の変化。

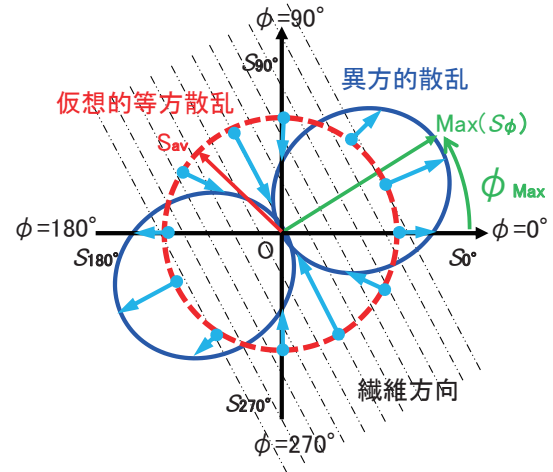


図8. 繊維物質からの異方的散乱の模式図
繊維状の物体からは、青線のような異方的散乱が生じる。二点鎖線は繊維の方向を示す。

図7から得られた異方的な S_ϕ を、模式的に図8に青実線で示す。散乱が大きい程曲線は原点Oから離れる。そこで、当該部分の平均的な散乱の大きさを表現するため、式(1)に従って画素ごとに S_ϕ の平均値 S_{av} を求め画像を作成した。ここで、 $n=36$ である。

$$S_{av} = \frac{1}{n} \sum_{\phi} S_{\phi} \quad \cdots (1)$$

これは、異方的な散乱を図8の半径 S_{av} 赤破線円の仮想的等方散乱と考えた際の画像である。これを「方位角散乱平均像」とする。

次に、散乱の異方性の大きさを、仮想的等方散乱からのずれと考え、図8の水色矢印で示す。その評価指標として、 S_{av} を中心とした標準偏差 S_{SD} を、式(2)に従って求めた。等方的散乱では $S_{SD}=0$ である。

$$S_{SD} = \sqrt{\frac{1}{n} \sum_{\phi} (S_{av} - S_{\phi})^2} \quad \cdots (2)$$

ただし、一般に標準偏差は平均値に連動して変化する¹⁷⁾。これは、例えば異方性が同等でも、 S_{av} が増加すると連動して S_{SD} が増加することを意味する。そのため、 S_{SD} は異方性のみを評価する指標として適切でない。そこで、 S_{av} の影響を除き異方性のみの情報を表す指標として、式(3)に従い変動係数 S_{CV} を求めた。

$$S_{CV} = \frac{S_{SD}}{S_{av}} \quad \cdots (3)$$

S_{CV} を画素値とした画像を「方位角散乱変動係数像」とする。加えて、異方的散乱を生じる物質の繊維方向

は、 S_ϕ が最大値 $Max(S_\phi)$ をとる方位角 ϕ_{Max} と垂直方向である。そこで、その方向をカラー表示の画素値とした画像を「繊維方位像」とする。これらの原理に基づいて作成した画像を図 9 に示す。図 9(a) 方位角散乱平均像, (b) 方位角散乱変動係数像, (c) 繊維方位像である。

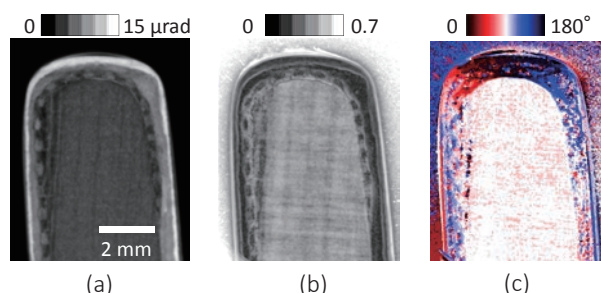


図 9. 散乱に関して得られた像
(a) 方位角散乱平均像, (b) 方位角散乱変動係数像, (c) 繊維方位像である。

考察

まず図 9(a) より、中塗り層についての S_{av} は約 $12 \mu\text{rad}$ と相対的に大きかった。中塗り層には、コロイド状の水酸化鉄が存在する。鉄は X 線を屈折しやすいため、微細構造により様々な方向への屈折が生じ、散乱が大きくなったと考えられる。次に、地付け層についても約 $8 \mu\text{rad}$ の散乱が生じている。この部分には珪藻土粉末が含まれており、その主成分は二酸化ケイ素である。ケイ素も比較的 X 線を屈折しやすいため、散乱が大きくなったと考えられる。一方でこれらの部分では、

図 9(b) から S_{cv} は 0.15 以下であり、異方性は小さい。これらの部分に含まれる粒子は、3 次的にランダムに含まれていることに対応していると考えられる。

本底や布着せでは、図 9(a) から S_{av} が $5 \mu\text{rad}$ 以下であり、中塗り層、地付け層に比べ小さかった。この部分は、主に X 線を屈折しにくい有機物から構成されるためだと考えられる。一方で、図 9(b) から S_{cv} は約 0.5 であり、大きな異方性を確認できる。つまり、繊維質が含まれることが確認できた。また、図 9(c) から本底について、繊維の方向は $\phi = 90^\circ$ 、つまり画像の上下方向であることが分かった。このことは、図 4(b) の光学写真の観察結果、および、図 7 ①の結果と対応している。対して、布着せ層の繊維方向は図 9(c) から色々な方向を向くことが分かる。布繊維は織られているため、様々な方向を向くと考えられる。

以上より、得られた画像と輪島塗の構造を比較することで、矛盾のない画像が得られていることが分かった。すなわち、本手法により物体中に存在する微細構造が繊維質であるかどうかを評価可能である。

謝辞

本研究のため貴重な輪島塗を提供してくださった輪島塗作家の箱瀬淳一氏、実験に関し技術的支援を頂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 の承認を得て実施しました（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。

文献

- 1) 四柳嘉章 (2009): 漆の文化史, 2-8, 岩波新書.
- 2) 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.
- 3) 岡本博之, 内藤愛莉奈, 水野薫 (2019): X線位相イメージング法による漆器の観察, Journal of Wellness and Health Care, 43(2), 85-88.
- 4) M. N. Wernick, O. Wirjadi, D. Chapman, et al. (2004): Multiple-image radiography, Phys. Med. Biol. 48, 3875-3895.
- 5) K. M. Podurets, V. A. Somenkov, and S. Sh. Shilstein (1989): Refraction-contrast radiography, Sov. Phys. Tech. Phys., 34, 654-657.
- 6) 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.
- 7) 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.
- 8) 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.
- 9) 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.
- 10) 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.
- 11) 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.
- 12) 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.
- 13) V. Revol, B. Plank, C. Kottler¹, et al. (2014): Laminate Fibre Structure Characterisation by Orientation-selective X-ray Grating Interferometry, 5th Conference on Industrial Computed Tomography (iCT2014), 25-28.
- 14) 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.
- 15) 松田権六 (2001): うるしの話, 179-217, 岩波文庫.
- 16) 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.
- 17) 井上克己, 岡本博之, 城戸照彦 (2008): 医療統計学の基礎, 15-17, 医学出版.