

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 30 日現在

機関番号：82505

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2013～2015

課題番号：25750106

研究課題名(和文) 中赤外分光写真撮影装置の開発

研究課題名(英文) Development of a middle infrared spectroscopic camera.

研究代表者

菅原 滋 (SUGAWARA, SHIGERU)

科学警察研究所・法科学第四部・主任研究官

研究者番号：60356160

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：ボロメータカメラを検出器として用いた広視野中赤外分光イメージング装置の研究開発を行った。フーリエ分光法として結像型干渉計を採用した。また、投影レンズによって測定領域の大きさを自由に調整することができた。40 μ m厚のポリスチレンフィルムの透過分光イメージングや、10cm四方のアルミ板上の筆記具インクの反射分光イメージングを、正確に測定することができた。測定時間は測定面積に依らず一定であり、5 cm^{-1} の波長分解能の240 \times 320=76800点のスペクトルを約2分で得ることができた。本装置はとてもコンパクトで携帯性に優れているので、試料のその場観察が可能になると考えられる。

研究成果の概要(英文)： A wide-field infrared spectroscopic imaging apparatus that uses a bolometer camera has been studied. The apparatus utilizes, for Fourier spectroscopy, an imaging type interferometer. By changing the projection magnification, the size of the area to be examined could be easily modified. The spectroscopic imaging of a 40- μ m-thick polystyrene film and writing pen inks on a 10 cm \times 10 cm aluminum plate could be obtained. The measurement time was constant regardless of the size of the area. The developed apparatus could record spectra of 240 \times 320 = 76,800 points with a wavelength resolution of approximately 5 cm^{-1} in ca. 2 min. As the developed apparatus is very compact and portable, in situ observation of crime material will be possible.

研究分野：法科学、光工学、応用物理、分析化学

キーワード：広視野中赤外分光 ボロメータ 文化財科学 法科学 色材 紙 赤外スペクトル 有機物分析

1. 研究開始当初の背景

経年変化や焼失等により不可視な状態になった絵画・文書等文化財の可視化法として、波長約 0.4 μm から 1 μm の可視・近赤外光を用いた分光写真法、紫外領域から可視領域の励起光を用いた蛍光写真法、蛍光 X 線分析装置による特定の元素のマッピング法、テラヘルツ光を用いたイメージング法等が挙げられる。しかし用いられている色材の種類によっては、これら既存の手法では可視化できないケースも多い。そこで本研究では新たな可視化手法として波長約 2.5 μm から 15 μm の中赤外光を用いた分光写真法を開発する。これら中赤外光は、色素や溶剤に含まれる成分の分子振動を励起して吸収される性質を持つので、従来から有機物の同定に頻繁に利用されている。したがって可視光に対して透明であっても、中赤外光に対しては吸収する性質を持つ物質が多いことは明らかである。中赤外光を用いて試料上のある 1 点で分光測定を行う手法は、FTIR という名で広く世の中で用いられている。また 1 点測定をスキミングして試料上の化学成分をマッピングする装置もケミカルイメージング装置という名で市販されている。研究代表者は過去にこれらケミカルイメージング装置を用いて小さな塗りつぶされた文字を可視化した。しかしいずれの市販装置も、小さな物体を測定するために設計されているので、文化財のような大きなものを測定するには時間がかかりすぎるなど、問題点が多い。また、試料を小さなステージ上に載せる必要があり、なおかつ測定する試料の表面は平らでなければならないなど、試料の形状・大きさなどにも制約がある。そこで本研究では、試料の形状や大きさに制約がなく、なおかつ広範囲の面積を短時間で撮影可能な中赤外分光写真撮影システムを開発する。このようなシステムの構築は過去に例がない。また、従来法では可視化できず、なおかつ中赤外分光写真撮影システムでは可視化可能な試料の特徴を探っていく。

2. 研究の目的

上記で述べたように、ケミカルイメージング装置は画像の取得に時間がかかる。その理由は、検出器として MCT アレイを使用しているからである。MCT は多画素の 2 次元アレイの製造が難しく、最も高性能の装置でも高々 64 \times 64 画素のアレイを使用しているに過ぎない。そのため測定の際には、試料を XY 方向に移動させて多数の画像を取得し、それらをつなぎ合わせて 1 枚の画像を作るため、画像の取得に時間を要する。赤外線検出器には、MCT アレイの他に、ポロメータアレイがある。ポロメータは MCT に比べて検出感度が低いため、サーモグラフィや暗視カメラなどには用いられてきたが、赤外分光スペクトルの測定には用いられてこなかった。しかし、近年の研究・開発の

進展により、ポロメータの検出感度が大幅に上昇している。ポロメータは、多画素の 2 次元アレイの製造が容易であり、実際に 640 \times 480 画素のアレイが市販されており、価格も MCT アレイより 1 桁以上低いものとなっている。したがって、ポロメータアレイを用いることで、XY 方向にスキミングする必要がないために高速に画像を取得でき、なおかつ安価で汎用性のある、赤外分光イメージング装置の実現が期待される。しかし同時にポロメータは MCT に比べて感度が低いのも事実である。それゆえ、ポロメータを用いて赤外分光イメージング装置を実現可能か否かは未知数のところがあり、そのところを本研究では明らかにしていく。また、小さな物体を感度良く測定する場合には MCT、大きな物体を高速に測定する場合にはポロメータの使用が有利となるだろうが、ポロメータの利用が有利となる詳細な条件も本研究で明らかにしていく。現状の市販の赤外分光イメージング装置は小さな物体を高精細に計測する用途には適している。しかし、世の中には文化財の保存修復や警察機関における鑑識業務またはロボットの眼のように、大きな物体の有機物分布を観察する用途もある。本研究では、光学系の中に使用するレンズと光源の種類を工夫することで、大きな物体の有機物分布を観察する装置を作る。また実際に色材と紙を用いて作成した模擬試料を本装置で測定し、その有効性を検証する。様々な色材について本装置で測定し、従来法では可視化できず、本装置で可視化可能な試料の条件を見つける。

3. 研究の方法

本研究の目的は、ポロメータアレイを用いて、試料の大きさや形状に制約が無く高速に測定可能な中赤外分光写真撮影装置を開発することである。また、実際に色材や紙を用いて模擬試料を作成し、本装置の有効性を検証することである。

実験は、難易度の低いものから高いものへと、次のように行う。「小さい試料の透過測定 小さい試料の反射測定 大きい試料の透過測定 大きい試料の反射測定」

1) 透過測定用装置の組み立てとプログラムの作成

- 光学定盤上に透過測定用の光学系を組み立てる。
- 移動鏡を動かしながらカメラ撮影を行う Labview プログラムを作る。
- 得られた画像群から干渉信号を取り出し、フーリエ変換をして赤外スペクトルを計算する透過測定用の Matlab プログラムを作る。

2) 透過測定用サンプルの測定

- 本装置で透過測定用サンプルを測定し、科警研にある赤外分光装置で測定したスペクトルと比較する。
- 透過測定の赤外分光画像を作る。

3) 反射測定用装置の組み立てとプログラ

ムの作成

- 光学定盤上に反射測定用の光学系を組み立てる。
- 移動鏡を動かしながらカメラ撮影を行う Labview プログラムは、透過測定用と同じものを使う。
- 得られた画像群から干渉信号を取り出し、フーリエ変換をして赤外スペクトルを計算する反射測定用の Matlab プログラムを作る。

4. 研究成果

1 年目...研究は、インク等の色材のスペクトルデータの測定と、フーリエ変換型広視野赤外分光イメージング装置の開発の2つを、同時並行で行った。300 種類以上の色材についてスペクトルデータを測定し、また既存の赤外分光イメージング装置による測定も行った。そして小さなサンプルならば、赤外分光イメージングによって、従来の可視・近赤外分光写真法では顕在化できない塗抹文字を顕在化できることを実証し、国際光工学会で発表した。

フーリエ変換型広視野赤外分光イメージング装置の開発については、先行研究を行っていた香川大学石丸研究室を訪問して、先方の研究者とディスカッションをした結果、研究の目的を十二分に達成するために共同して研究を行うこととした。香川大学は、フーリエ変換型広視野赤外分光イメージング装置について長い間研究しており、実験室レベルの装置をすでに完成させていた。そこで、様々な色材を科警研から香川大の実験室に持ち込み、その実験室レベルの装置が色材の赤外分光イメージングをどの程度正確に測定可能であるかを評価した。その結果、アルミ板のような反射率の高い基材の上に、吸光度の小さい色材を乗せた場合には、色材のスペクトルを正確に測定できることが明らかとなり、文化財保存修復学会で発表した。さらに装置や解析法の改良を続けて、紙の上の色材や吸光度の高い色材についても、スペクトルを正確に測定できるようにしたい。

2 年目...最初に 5mm 四方の小さな試料について、従来の可視・近赤外分光写真法では検出できない塗抹文字の一部が、市販の FTIR イメージング装置では検出可能になることを実証した。このことは、中赤外分光イメージング法が法科学や文化財科学において有用であることを示唆している。

次に市販の FTIR イメージング装置では難しい、大きな試料を測定可能な中赤外分光イメージング装置の構築を試みた。しかし香川大学工学部石丸研究室において、すでに実験室レベルの試作機を構築していたので、効率的に研究を進めるため石丸研究室の協力を得て実験を行った。具体的には、ポロメータカメラと干渉計によって構成された広視野赤外分光イメージング装置を用いて、各種試料の中赤外分光イメージングが測定可能か否

かを検証した。その結果、ポロメータは市販の FTIR に用いられている MCT 検出器に比べて光の検出感度が弱いことから、紙の上のインクの中赤外分光イメージングは検出できなかった。しかし 40 ミクロン厚のポリスチレンフィルムの透過測定や、アルミ板上の比較的吸光度の小さいインクなどについては、中赤外分光イメージングが測定できた。投影レンズを用いて試料の小さな像を作成し、その像の分光イメージングを測定していたので、試料サイズに依らず一定時間(約1分)で測定でき、実際に 10cm 四方の試料でも問題なく測定できた。

以上のように、光の透過量あるいは反射量が比較的大きい、明るいサンプルであるならば、ポロメータを用いた中赤外分光イメージング装置でも、測定が可能であることが明らかとなった。また、投影レンズを用いることによって、試料のサイズが大きくなって、まったく問題なく測定が可能であることが明らかとなった。

3 年目...結像型干渉計とポロメータカメラを組み合わせ作成した広視野赤外分光イメージング装置を用いて、中赤外分光イメージングの測定実験を行った。本装置は投影レンズを備えており、またフーリエ分光法として、耐震動性の高い結像型干渉計を使用している。FTIR を進化させた従来の赤外分光イメージングシステムと比較して、大きな試料でも短時間で計測できる、コストが安い、そして将来的には可搬性の点で有利であるという、いくつかの利点を持っている。また、測定波長領域は 8~14 μm であった。本装置の文化財科学や法科学における有用性を検証するために、ポリスチレンフィルムや、アルミ板上の各種インクなどをテスト測定した。40 μm の厚さのポリスチレンフィルムを透過測定したとき、とても明確なスペクトルが得られた。また、10cm x 10cm のアルミ板上の各種筆記具インクを反射測定したときも、明確なスペクトルが得られた。本装置では 240 x 320 = 76800 点のスペクトルを、5cm-1 の分解能で、約 1 分で測定できた。インターフェログラムを解析する時間を含めても、およそ 2 分で測定データが得られた。また、投影レンズの倍率を変えることによって、測定面積を自由にすることもできた。測定時間は測定面積に依らず一定であった。本装置はとてもコンパクトで可搬性を持っているので、文化財資料や鑑識試料の現場観察が可能になると考えられる。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計3件)

(1) Shigeru Sugawara, Application of a Fourier-transform infrared imaging

system to deciphering obliterated writings for forensic purposes, Proc.SPIE, 査読有 9073, 2014年, 90730D1-6. DOI 10.1117/12.2049894.

(2) Shigeru Sugawara et al., The development of a wide-field infrared spectroscopic imaging apparatus using a bolometer camera and feasibility test for forensic examination, Infrared Physics and Technology, 査読有, 71 2015年, 389-395, 2015年

(3) Shigeru Sugawara, Tests of various colorants for application of a Fourier transform infrared imaging system to deciphering obliterated writings, Proc.SPIE, 査読有, 9652, 2015, 965205.

〔学会発表〕(計7件)

(1) 菅原滋、中赤外分光イメージング装置を用いた新しい塗抹文字検出法、日本法科学技術学会、2013年11月14日～2013年11月15日、東京都港区

(2) Shigeru Sugawara, Application of a Fourier-transform infrared imaging system to deciphering obliterated writings for forensic purposes, SPIE Defense+Security, 2014年5月5日～2014年5月9日、米国ボルチモア

(3) 菅原滋、藤原大、鈴木陽、石丸伊知郎、広視野中赤外分光イメージング装置による色材等の観察、文化財保存修復学会、2014年6月7日～2014年6月8日、東京都千代田区

(4) Shigeru Sugawara et al., Development of infrared spectroscopic imaging apparatus suitable for document examination, IAFS2014, 2014年10月15日、ソウル、韓国

(5) 菅原滋ら、文書鑑定のための広視野中赤外分光イメージング装置の開発、日本法科学技術学会、2015年11月14日、東京

(6) 菅原滋、赤外線法の法科学への活用について、赤外アレイセンサフォーラム(招待講演)、2015年7月31日、滋賀県草津市

(7) Shigeru Sugawara, Tests of various colorants for application of a Fourier transform infrared imaging system to deciphering obliterated writings, SPIE Defense+Security, 2015年9月21日、Toulouse France.

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計0件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

取得状況(計0件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕
ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

菅原 滋 (Shigeru Sugawara)
科学警察研究所法科学第四部情報科学第二研究室主任研究官
研究者番号：60356160

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：