

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 20 日現在

機関番号：82620

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2015

課題番号：26560148

研究課題名(和文)文化財の材質調査のための2次元イメージング検出器の開発

研究課題名(英文)Development of a two-dimensional imaging detector for investigation of materials composing cultural properties

研究代表者

犬塚 将英 (Inuzuka, Masahide)

独立行政法人国立文化財機構東京文化財研究所・その他部局等・研究員

研究者番号：00392548

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,300,000円

研究成果の概要(和文)：X線回折のための可搬型分析装置が十分に実用化されれば文化財の材料分析からはさらに多くの情報が得られると考えられる。そして、2次元イメージングが可能なX線検出器の開発を行うことが本研究の目的である。

本研究ではガス電子増幅フォイルを用いた検出器に信号を効率良く処理するストリップ読み出し法を適用した。そして、この方法を用いることにより、粉末試料からのデバイ・シェラー環の一部を2次元的に捕えることに成功した。検出精度のさらなる向上や文化財調査に向けた安全性の向上が今後の課題である。

研究成果の概要(英文)：If portable apparatuses for X-ray diffraction analysis are applied more practically in the field of conservation science, the information about the material used in cultural properties will be obtained further. The aim of this research is to develop a 2-dimensional imaging detector for X-ray diffraction and to evaluate its performance.

An X-ray detector was constructed using gas electron multiplier foils. For data acquisition, a new method which processes signals efficiently was adopted. By using this system, the Debye-Scherrer ring from powder sample was successfully detected as a 2-dimensional image. The next step is to improve the resolution of images and safety for investigation of cultural properties.

研究分野：保存科学

キーワード：文化財の材質調査 X線回折 2次元イメージング X線検出器

1. 研究開始当初の背景

(1) 文化財保存科学の研究分野では、文化財を構成している材料と製作技法を科学的に解明することが重要な研究課題の一つであると言える。しかし文化財の調査では、試料採取が許されず、非破壊・非接触を大前提とした手法を要求されることが多いことから、X線を用いた調査手法は保存科学の歴史の中で重要な役割を担ってきた。X線を用いた材料分析として蛍光X線分析は代表的な手法であり、これまでに文化財の材料分析に関する多くの研究実績や成果が残されている²⁾。蛍光X線分析では材料を構成している元素の種類同定と定量を行うことができるが、さらにX線回折を調査項目に加えれば、その材料の結晶構造まで調べることが可能となるので、文化財の材料に関して得られる情報が格段に増加する。

(2) しかし文化財の調査現場では、蛍光X線分析と比較すると、X線回折を用いた分析は活用される頻度が低い。その主な理由は、可搬型の分析装置が十分に実用化されていないことである。X線回折ではX線源と検出器の両方を駆動させながら分析を行うのだが、このように装置の駆動部分が多いと、安全という観点から、文化財に対して非接触な調査が困難なものとなる。つまり、このことが文化財調査のための可搬型分析装置の開発を困難なものにしている主な要因となっている。しかし、X線を2次元的に捕えるようなX線検出器を開発しX線回折に適用すれば、装置内の駆動部分を減らすことが可能となり、さらに材料同定のための情報量を増やすことができることに注目した。

(3) 一方で、研究開始当時までに研究代表者らはガス電子増幅フォイル³⁾を用いX線検出器の開発を行っていた。

2. 研究の目的

(1) 上述の研究代表者らが開発を行ってきたガス電子増幅フォイル³⁾を用いることにより、簡便かつ安価なX線の2次元イメージングが可能な検出器の開発を行うことが本研究の目的である。

X線回折を行う分析装置は、X線源、X線検出器、これらの位置関係を制御するゴニオメータから構成される。本研究では、装置内の駆動部分を減らすこと、分析から得られる上秤量の増加の2点を目指すために、X線の2次元イメージングを行うための検出器の開発、及びその性能評価をすることまでを目標とする。具体的には、X線による信号の取り出し方、従来用いられてきたCMOS技術に代わる新しい信号処理の開発等を行う。また標準試料を制作し、その試料を用いて、構築した分析システムの性能評価を行う。

(2) ここでは、本研究で開発を行おうとし

ている測定システム全体に関する新規性・チャレンジ性について、具体的に説明する。可搬型の分析装置を用いた文化財の現場調査の事例は幾つかあるが⁴⁾、蛍光X線分析と比較すると、十分に実用化されているとは言えないのが現状である。従来の分析方法では、ゴニオメータを用いて図1にあるように、X線源とX線検出器が試料に対して同じ角度になるように動かさなければならない($\theta - 2\theta$ スキャン)。文化財への安全性を考慮すると、このように駆動部分が多いことは装置の設置や使用を不安なものにしてしまう。このことが、X線回折のための可搬型分析装置の普及が遅れている要因の一つであると考えられる。一方、図2に示したように分析したい角度領域をカバーするように、X線を2次元的に捕えるような検出器を固定すれば、装置全体の駆動部分を減らすことができる³⁾。これが本研究の提案する新しいアイデアである。さらに、2次元検出器を用いることにより、従来よりも材料同定のための情報量を増やすことができるという効果も期待できる。以上の可能性を実現するために、簡便かつ安価なX線の2次元イメージングが可能な検出器の開発を行うところに本研究のチャレンジ性がある。

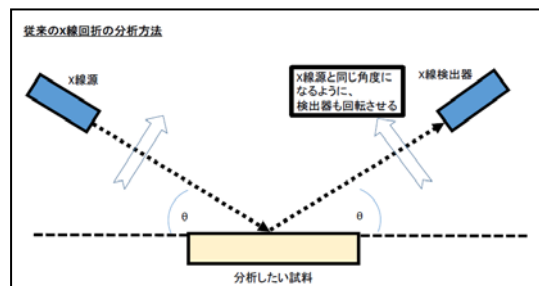


図1 従来の分析方法

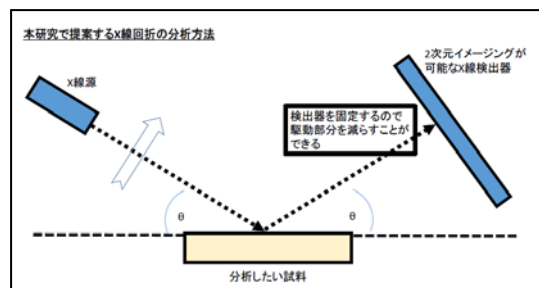


図2 本研究が提案する分析方法

(3) ここでは、本研究で開発を行おうとしている検出器部分に関して、具体的に説明する。一般的に、半導体等を用いたピクセル型の2次元検出器は高額であり、取扱いが難しい場合もある。一方、研究代表者らが開発を行ってきたガス電子増幅フォイル³⁾を用いれば、半導体検出器とは異なった原理でX線を検出するので、簡便かつ安価な分析装置の実現の可能性を秘めている。そしてガス電子増幅フォイルを用いた2次元検出器が実現すれば、結晶構造を特定するために必要な反射X線の位置情報と結晶を構成している元素

の種類を決定するために必要な反射X線のエネルギー情報の両方を得ることができると考えられる。以上のような考え方にに基づき、X線回折のための2次元検出器の開発に関する基礎研究を行うことが本研究の目的である。

3. 研究の方法

(1) 実験の概要は以下の通りである。図2の概念図で示した本研究が提案する分析方法を評価するために、図3に示すようなセットアップを組み、佐賀大学にて開発を行った2次元検出器と信号読み出し法の評価を行った。本実験は分析対象の試料、X線源、2次元イメージングが可能なX線検出器から構成される。

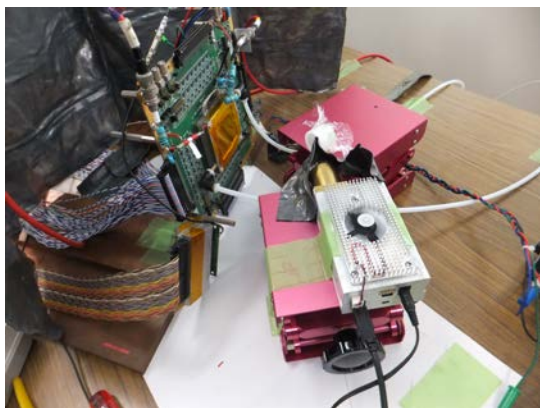


図3 実験セットアップ

(2) 本研究では、MOXTEK社製のX線発生装置(Moxtek MagPro)を選定し、X線源として用いた(図3中の手前に設置された装置)。装置の寸法と重量はそれぞれ148mm×46mm×34mm、700gであり、小型化・軽量化された装置であると言える。使用時は装置に取り付けられたファンを用いて空冷を行うタイプの装置である。X線管中のターゲットとしては銅が用いられており、管電圧は4~60kV、管電流は10~100 μ Aの範囲で設定が可能である。ただし、出力の最大値は12Wである。本装置はパソコンとUSBケーブルで接続されており、パソコン上で管電圧、管電流等の設定を行う。今回の実験では、管電圧と管電流をそれぞれ30kV、300 μ Aに設定して、X線を照射した。また、X線発生装置の前面には、厚さ1mmの鉛の板に ϕ 1mmの孔を空けて作成したコリメータを設置して、X線の照射径を調整した。

(3) 今回の分析対象の試料として、粉末状のNaClを用いて実験を行った。回折角 θ が小さい場合、X線を検出する際に入射X線からの寄与が大きくなってしまいうため、今回の実験では、 $2\theta \sim 66^\circ$ でのデバイ-シェラー環によるX線回折像を検出することを目的とした。上述のX線発生装置は、NaClの粉末試料の面に対して $\theta \sim 33^\circ$ でX線が照射されるように設置した。また、以下に示すX線

検出器もNaClの粉末試料に対して $\theta \sim 33^\circ$ 、試料からの距離を15cmとなるように設置した。

(4) 次項で説明するガス電子増幅フォイルで構成される検出器を用いた実験を実施する前に、本実験のセットアップでX線回折像を見ることができていることを事前に確認するために、イメージングプレートを用いて予備試験を実施した。イメージングプレートとは輝尽性蛍光体がプラスチックフィルムに塗布された構造をしており、X線が照射された部分にレーザー光を照射すると発光する性質を有する。専用の現像機を用いて、この発光を検出し記録することにより、X線透過画像を得ることができる。本研究では、次項で説明する検出器の評価実験を行う前に、イメージングプレートを用いて $2\theta \sim 66^\circ$ におけるX線回折像を捕えられることを事前に確認した。

(5) これまでに研究代表者らはCMOSセンサーモジュールを用いた読み出し基板をガス電子増幅フォイルを用いた検出器に適用することにより、簡単な2次元イメージングに成功している⁶⁾。しかし、CMOSセンサーのような読み出しのための素子を2次元状に配置した検出器よりも単純化をした信号検出の方法として、1次元のストリップ状のパッド(またはピクセルの連なり)を読み出し基板に配置して信号読み出しを行う方法も考えられる。X線透過撮影と比べると、X線回折を目的とした2次元イメージング検出器の信号読み出しではこのような単純化した方法の方が望ましいと考えられる。

本研究では、高エネルギー物理実験において粒子の飛跡検出器として使われているタイムプロジェクトンチェンバー等のために開発が行われている信号読み出し集積回路(STRIPIX)⁷⁾を用いたX線検出器を用いて、X線回折像を捕える実験を行った。

STRIPIXはピクセル型の電極を2次元的に配置した集積回路である。今回の実験ではひとつのチップあたり8mm×8mmの領域に相当する16×16個の電極からの信号を用いた。そして、同じ行・列にあるピクセルからの信号をまとめて読み出すストリップ読み出しを行うので、出力される信号数の合計は16+16=32チャンネルとなる。STRIPIXは基板に実装されており(図3中の左側にある装置)、専用のADCボードを接続することにより、アナログ信号はデジタル信号に変換されてデータが記録されていく。

基板に実装されたSTRIPIXの上側には3層のガス電子増幅フォイルが設置されている。この部分にアルゴンの混合ガスを流入させると、X線が通過した時に発生する電子がガス電子増幅フォイルによって増幅され、STRIPIXに到達して信号が検出される。

本研究では、以上のような原理で動作する

2次元 X線検出器を用いて、X線回折像を捕えることができるかの評価を行った。

4. 研究成果

(1) 今回の実験では、読み出し基板に実装されている STRIPIX チップのうち、横方向に並んでいる2個のチップに専用のADCボードを接続し、信号を読み出して、X線の2次元画像を構築した。

図4では、図3で示した実験セットアップで2個の STRIPIX チップから得られた信号から構築した2次元 X線画像の例を示す。このイメージ図で明るく示されている箇所は、検出した X線の強度が高いことを意味する。右側に配置されたチップ内で上下方向に帯状で X線の強度が高い箇所が、デバイ - シェラー環の一部を捕えていると考えられる。

デバイ - シェラー環の一部を捕えている、ということを確認するために、NaCl の粉末試料を X線発生装置側に数 mm 程度動かして、同様の実験を行った。このようにした場合、2次元 X線画像上では、デバイ - シェラー環の位置は左側に移動することが予測されたが、その予測通り、X線の強度が高い帯状の部分は図5に示すように左側のチップの領域へ移動した。

以上の結果から、ガス電子増幅フォイルを用いた検出器に1次元ストリップ読み出しを適用することにより、X線回折像を捕えることに成功した。

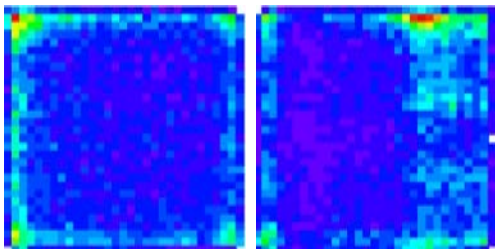


図4 2次元 X線画像の例

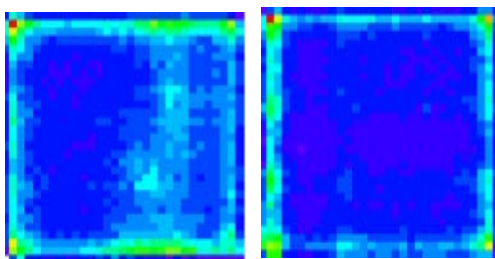


図5 2次元 X線画像の例

(2) 以上のように、従来と比較すると簡便な方法で2次元 X線画像を得ることに成功したのが、検出精度のさらなる向上や実際の文化財調査を想定した上での安全性の向上が今後の課題である。

<参考文献>

①三浦定俊：『古美術を科学する』、廣濟堂出

版、(2001)

②早川泰弘、et al. : ハンドヘルド蛍光 X線分析装置によるウズベキスタン国立歴史博物館所蔵資料の材料調査、保存科学、52、59-69、(2013) など多数

③犬塚将英 : ガス電子フォイルを用いた文化財調査用 X線検出器の開発、保存科学、45、121-132、(2006)

④阿部善也、K.タンタラカーン、中井泉、前尾修司、宇高忠、谷口一雄、X線分析の進歩、39、209、(2008) など

⑤ M.Inuzuka, et al.: Gas electron multiplier produced with the plasma etching method, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 525, 529-534, (2004)

⑥犬塚将英 : ガス電子増幅フォイルを用いた文化財の X線透過撮影のための検出器の開発 II、保存科学、47、173-178、(2008)

⑦openit.kek.jp/project/STRIPIX

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 0 件)

[学会発表] (計 1 件)

① (予定) 中北慎太郎、池野正弘、犬塚将英、内田智久、杉山晃、千代浩司、田中真伸、長谷川琢哉、房安貴弘、身内賢太郎 : STRIPIX チップを用いたガス検出器によるイメージング測定評価、日本物理学会 2016 年秋季大会、2016 年 9 月 21~24 日、宮崎大学木花キャンパス

[図書] (計 0 件)

[その他]

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

犬塚将英 (INUZUKA, Masahide)
東京文化財研究所・保存修復科学センター・主任研究員
研究者番号 : 00392548

(3) 連携研究者

早川泰弘 (HAYAKAWA, Yasuhiro)
東京文化財研究所・保存修復科学センター・室長
研究者番号 : 20290869

房安貴弘 (FUSAYASU, Takahiro)
佐賀大学・理工学部・准教授
研究者番号 : 70399210