

令和元年6月19日現在

機関番号：82505

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2018

課題番号：15K01138

研究課題名(和文) 広視野中赤外分光イメージング装置の開発と文化財科学への応用

研究課題名(英文) Development of a wide-field mid-infrared hyperspectral imaging system and its application to science of cultural heritage

研究代表者

菅原 滋 (Shigeru, Sugawara)

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) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：1、ボロメータカメラを用いた中赤外ハイパースペクトルイメージング：アルミ板のような高反射率鏡面上に、接着剤やニスなどの有機物がうっすらと乗っている場合、スペクトルがきちんと測定でき、試料の同定や分布の可視化も可能であった。また、光沢紙のような高反射率の紙のスペクトルも、測定できる場合があった。2、MCTを用いた広視野中赤外ハイパースペクトルイメージング：従来の可視・近赤外分光写真法では識別できない油絵の具の分布や、2種類のトナーによる印字を識別できた。3、近赤外ハイパースペクトルイメージングの文化財保存修復作業への応用：絵画上のニスや陶器上の接着剤の分布を可視化できた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

人間の眼や、従来の可視/近赤外分光/蛍光写真法では識別できない、試料上の材質の差を可視化する手法を研究した。ミクロな試料を測定する装置はすでに市販されているが、文化財や印刷物など、10cm四方程度の試料を短時間で測定する装置は存在しないので、本研究で開発し、その有用性を検証した。また、高価なMCT検出器ではなく、安価なボロメータ検出器を用いた場合に、どのような試料が測定可能かも検証した。

研究成果の概要(英文)：1, Mid-infrared hyperspectral imaging using a bolometer camera: When organic substances such as adhesives and varnish were faintly mounted on a high reflectance mirror such as an aluminum plate, the spectrum could be measured properly, and the identification of the sample and the visualization of the distribution were also possible. In addition, the spectrum of high-reflectance paper such as glossy paper could sometimes be measured. 2, Wide-field mid-infrared hyperspectral imaging using MCT: It was possible to distinguish the distribution of oil paint and the printing by two kinds of toners which can not be distinguished by the conventional visible / near-infrared spectrography. 3, Application of near infrared hyperspectral imaging to cultural property preservation and restoration work: It was possible to visualize the distribution of glue on varnish and pottery on paintings.

研究分野：文化財科学、法科学

キーワード：infrared spectroscopy hyperspectral imaging cultural heritage forensic science machine learning fourier spectroscopy ink paper

## 1 . 研究開始当初の背景

文化財の保存や修復には、各種光学的手法による対象物の可視化が欠かせない。たとえば経年変化や焼失等により不可視な状態になった文化財は、波長 0.4 ~ 1 $\mu$ m の可視・近赤外分光写真法、紫外光及び可視光の励起による蛍光写真法、蛍光 X 線分析装置による特定元素のマッピング法、テラヘルツ光を用いた分光イメージング法等を用いて可視化できる場合がある。しかし用いられ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ことも多い。

そこで本研究では文化財の新たな可視化手法として、波長 2.5 ~ 15 $\mu$ m の中赤外分光イメージング法を提案する。これは試料上の全ての点の中赤外分光スペクトルを測定し、それらの結果を解析して、試料上の成分の差異を見分ける手法である。中赤外分光スペクトルは、インクや紙、溶剤、繊維などの材料の同定に頻繁に利用されている。したがってこの波長帯の分光イメージングにより、既存法では可視化されない試料上の成分の差異が可視化されると期待される。

中赤外分光イメージング装置はすでに市販されており、研究代表者は塗抹文字の顕在化に利用したことがある。また潜在指紋の顕在化、薬物の錠剤や自動車塗膜片の異同識別、美術品である絵画の分析などにも、これら市販の装置を応用する研究がおこなわれている。しかしいずれの市販装置も、印刷物や絵画のような大きな試料の測定には多大な時間を要する。また試料の表面が平坦でなければならないという制約もある。

## 2 . 研究の目的

本研究では、試料の形状や大きさに制約がなく、広範囲を短時間で測定できる中赤外分光イメージング装置を開発する。そして従来法では可視化されない文化財を可視化できるようにする。

これまでの研究で、広視野赤外分光イメージング装置が実験室レベルで試作された。そして、アルミ板上の吸光度の低いインクや、ポリスチレンフィルムなど、特定の試料については、10cm $\times$ 10cm の試料上の、480 $\times$ 720 点の中赤外分光スペクトルが、約 2 分で計測できた。一方、紙や吸光度の高いインク、トナーなどの中赤外分光スペクトル測定にはまだ成功していない。本研究ではそれら吸光度の高い物質のスペクトルも測定できるようにする。そのために、光源からの迷光の除去や、光源の配置や数の改善、解析プログラムの改善によるベースライン補正などにより、装置の性能を高める。そしてポ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で測定可能な試料の範囲を見極める。

また、すでに存在する試作機の法科学や文化財科学への応用可能性も検証する。例えば継ぎ目のある陶器を修復する際には、古い接着剤をきれいに除去してから新しい接着剤を塗布する必要がある。現在この古い接着剤の分布を可視化する手法がないので、本手法で測定可能であるかを検証する。

また、試料によってはどうしてもポロメータカメラの検出感度では測定できないものもあると考えられる。そのような試料に対しては、高感度な MCT 検出器を備えた計測装置で測定する機会を作る。また、中赤外光ではなく波長 1 ~ 2.3 $\mu$ m の近赤外光を用いた広視野分光イメージング装置で代替可能かも検証する。

## 3 . 研究の方法

我々が開発している装置と既存の装置との間には大きな違いが 2 つある。1 つ目は、検出器として 480  $\times$  720 素子のマイクロポロメータを活用しているため、多数の点の中赤外分光スペクトルが同時測定できる。2 つ目は試料とフーリエ分光計の間に投影レンズが存在すること

である。レンズで投影された試料の縮小像を分光イメージングするので、縮小倍率を変えるだけで、様々な大きさの試料を測定点数や測定時間を変えずに測定できる。以上の2つの特徴により、我々の装置は大きなサンプルでも高速測定できる。

我々は、法科学に関連した試料として印刷物や筆記文字、身分証などを、文化財科学に関連した試料として陶器上の接着剤、絵画上のニス、布などを測定する。測定データの解析方法として、主成分分析や相関係数だけでなく、機械学習なども活用する。

## 4. 研究成果

### ポロメータカメラを用いた中赤外ハイパースペクトラルイメージングについて

安価で汎用性が高いが、感度の低いポロメータカメラを検出器として用いた場合、どのような試料が測定可能かを検証した。アルミ板のような高反射率鏡面上に、接着剤やニスなどの有機物がうっすらと乗っている場合、スペクトルがきちんと測定でき、試料の同定や分布の可視化も可能であった。また、光沢紙のような高反射率の紙のスペクトルも、測定できる場合があった。

### MCT を用いた広視野中赤外ハイパースペクトルイメージングについて

Bruker Optics 社製の中赤外ハイパースペクトラルイメージング装置 HI90 を利用する機会があった。本装置は 256×256 画素の MCT アレイ検出器を備え、測定波長領域は 7.4 ~ 11.2  $\mu\text{m}$ 、測定時間は十数秒であった。従来の可視・近赤外分光写真法では識別できない油絵の具の分布や、2種類のトナーによる印字を識別できた。それゆえ、本手法を用いて文化財を検査すれば、異なる材料の分布が可視化されることが明らかとなった。

### 市販の FTIR イメージングシステムによる測定結果について

高感度かつ広視野の測定法が確立されている、近赤外波長域の装置を使って、インク、紙、接着剤、ニスなどを測定し、各試料のスペクトルの形状を確認した。近赤外スペクトルはピークの帰属が難しく、さらにインクのスペクトルは紙にしみこむことによって形状が大きく変動もする。そこで、機械学習を用いて、スペクトルのわずかな差異から試料を同定する手法も開発した。

### 波長 1.0 ~ 2.35 $\mu\text{m}$ の近赤外ハイパースペクトラルイメージングについて

高感度かつ広視野の測定法が確立されている、近赤外波長域の装置を使って、インク、紙、接着剤、ニスなどを測定し、各試料のスペクトル形状を確認した。近赤外スペクトルはピークの帰属が難しく、さらにインクは紙にしみこむことによって、そのスペクトルの形も大きく変化する。そこで、機械学習を用いて、スペクトルのわずかな差異から試料を同定する手法を開発した。

### 多点測定による不均一試料の異同識別の高精度化

赤外分光を使えば、複数の紙試料が同種のものであるか否かを非破壊的に検査できる。しかし紙は不均一な物体なので、測定個所により、得られるスペクトルがわずかに変動する。それゆえ複数の試料のスペクトルを比較した場合、スペクトルの差が試料の不均一性に由来するのか、あるいは試料の差に由来するのかがわからないことがある。我々はハイパースペクトラルイメージングを用いて、不均一試料の様々な個所のスペクトルを短時間で大量に測定した。そして得られたスペクトル群を機械学習を用いて分析することで、試料を高精度で識別できるようになった。

### 近赤外ハイパースペクトラルイメージングの文化財保存修復作業への応用

文化財には定期的なメンテナンスが必要である。例えば絵画上の古いニスを除去し新しいニスを塗りなおしたり、陶器の破片をつなぐ古い接着剤を除去し新しい接着剤を塗りなおした

りしなければならない。しかしニスも接着剤も無色透明なので、古いニスや接着剤が完全に除去されたのか肉眼で判断するのは難しい。そこで我々は近赤外ハイパースペクトルイメージングを用いて、絵画上のニスや陶器上の接着剤を測定した。そして得られたスペクトル群を解析することで、絵画上のニスや陶器上の接着剤の分布が可視化された。

### **近赤外分光による黒色色材や紙の異同識別**

近赤外分光は中赤外分光と比べて、これまで文化財科学や法科学ではあまり使用されてこなかった。しかし装置の小型化やファイバーの使用が可能、大型のアレイ素子が入手しやすいといった利点がある。そこで本研究では、ポータブル近赤外分光計を用いて、カーボンブラックを含む黒色色材や紙の異同識別が可能であるか検討した。測定されたスペクトル群を主成分分析や二次判別分析したところ、近赤外分光も黒色色材や紙の異同識別に有効であることが示された。

## **5 . 主な発表論文等**

### **〔雑誌論文〕(計4件)**

- Middle Infrared hyperspectral imaging of adhesives, varnishes and inks on Al plate and papers by using a bolometer camera and an imaging type interferometer., Shigeru Sugawara, Mistuhiro Yoshida, Tsubasa Saito, Yoshihiko Nakayama, Yasuyuki Tsutsui, Hideya Taniguchi and Ichiro Ishimaru, Proc. SPIE 9987, 99870B-1(2016).
- Wide-field mid-infrared hyperspectral imaging of adhesives using a bolometer camera., Shigeru Sugawara, Yoshihiko Nakayama, Hideya Taniguchi, Ichiro Ishimaru, Scientific Reports 7, Article Number:12395(2017).
- Obliterated writing decipherment using an infrared hyperspectral imaging system., Shigeru Sugawara, Forensic Chemistry, 6, p.44-51 (2017).
- Identification Accuracy Improvement of non-uniform samples, Shigeru Sugawara, Yoshihiko Nakayama, Hideya Taniguchi, Natsumi Kawashima, Ichiro Ishimaru Infrared Physics & Technology, 97, p.217-223 (2019).

### **〔学会発表〕(計14件)**

- 広視野中赤外ハイパースペクトルカメラによるフィルム、インク、紙の測定、菅原 滋、川嶋なつみ、藤原 大、谷口秀哉、中山 芳彦、石丸 伊知郎、文化財保存修復学会第37回大会、F064 (2015).
- ボロメータを用いた広視野中赤外分光写真装置による接着剤の分布測定に関する研究、菅原 滋、吉田光宏、西藤翼、藤原 大、楠原果奈、中山 芳彦、谷口秀哉、石丸 伊知郎、日本法科学技術学会第21回学術集会、F-12 (2015).
- 油絵の具、トナーおよび紙の、中赤外ハイパースペクトルイメージング、菅原 滋、Rene Braun、文化財保存修復学会第38回大会、F044 (2016).
- Middle Infrared hyperspectral imaging of adhesives, varnishes and inks on Al plate and papers by using a bolometer camera and an imaging type interferometer., Shigeru Sugawara, Mistuhiro Yoshida, Tsubasa Saito, Yoshihiko Nakayama, Yasuyuki Tsutsui, Hideya Taniguchi and Ichiro Ishimaru, Proc. SPIE 9987, 9987-11 (2016).
- Study of the optimal merge number for hyperspectral imaging technology that uses a bolometer camera and an imaging type interferometer, Shigeru Sugawara, Mistuhiro Yoshida, Tsubasa Saito, Yoshihiko Nakayama, Yasuyuki Tsutsui, Hideya Taniguchi and Ichiro Ishimaru, International Symposium on Optomechatronic Technology, SS1-4 (2016).

- MCT 検出器を備えた広視野中赤外ハイパースペクトラルイメージング装置の文書鑑定への応用に関する研究、菅原 滋、Rene Braun、日本法科学技術学会第 21 回学術集会、E-02 (2016).
- コンパクトな広視野中赤外ハイパースペクトラルイメージング装置による文化財関連材料の測定結果について、菅原滋、中山芳彦、谷口秀哉、石丸伊知郎、文化財保存修復学会第 39 回大会 (2017).
- Efficient wavebands for the detection of obliterated writings by mid-infrared hyperspectral imaging, Shigeru Sugawara, 21st International Association of Forensic Sciences (IAFS 2017).
- Preliminary study of wide-field near-infrared (1000-2350 nm) hyperspectral imaging for document examination, Shigeru Sugawara, Akane Ishida, Yoshihiko Nakayama, Hideya Taniguchi, Ichiro Ishimaru, Annual meeting of American Society of Forensic Document Examiners (ASQDE 2017).
- 波長 1.0 ~ 2.35  $\mu\text{m}$  の近赤外ハイパースペクトラルイメージングと機械学習の組み合わせによる紙の異同識別の予備的検討、菅原滋、中山芳彦、谷口秀哉、石丸伊知郎、日本法科学技術学会第 23 回学術集会 (2017).
- 近赤外ハイパースペクトラルイメージングと機械学習を用いた不均一試料の異同識別、菅原滋、中山芳彦、谷口秀哉、石丸伊知郎、第 33 回近赤外フォーラム (2017).
- 波長 1.0 ~ 2.35  $\mu\text{m}$  の近赤外ハイパースペクトラルイメージング法の文化財保存修復作業への応用可能性についての研究、菅原滋、中山芳彦、谷口秀哉、石丸伊知郎、文化財保存修復学会第 40 回大会 P054 (2018).
- 波長 1600 ~ 2400 nm の近赤外分光法によるカーボンブラックを含んだ色材の異同識別、菅原滋、Christian W. Huck、法科学技術学会第 24 回学術集会 E-02 (2018).
- 近赤外分光計による紙の異同識別、菅原滋、Christian W. Huck、第 34 回近赤外フォーラム O-09 (2018).

**〔図書〕(計 0 件)**

**〔産業財産権〕**

出願状況 (計 0 件)

取得状況 (計 0 件)

**〔その他〕**

ホームページ等 なし

**6 . 研究組織**

**(1) 研究分担者**

研究分担者氏名：石丸伊知郎

ローマ字氏名：Ichiro Ishimaru

所属研究機関名：香川大学

部局名：工学部

職名：教授

研究者番号 (8 桁)：70325322

**(2) 研究協力者**

研究協力者氏名：

ローマ字氏名：

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。