

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

犬塚 将英・房安 貴弘

独立行政法人国立文化財機構
東京文化財研究所

保存科学 第56号 別刷

平成28年度

〔報告〕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

犬塚 将英・房安 貴弘*

1. はじめに

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¹⁾。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同定と定量を行うことができるが、さらにX線回折を併用すれば、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。

これまで可搬型X線回折分析装置を用いた文化財調査の事例として、地方寺院等の塑像片の彩色調査³⁾や高德院の国宝銅造阿弥陀如来坐像（鎌倉大仏）のクリーニング事業の際に実施された銅腐食生成物調査⁴⁾などが挙げられる。また、2015年度に東京文化財研究所で可搬型X線回折分析装置を導入し、飛鳥寺の銅造釈迦如来坐像（飛鳥大仏）の調査⁵⁾やレンガ造建造物に析出している塩類の分析調査⁶⁾などへ適用してきた。

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線回折分析は活用される頻度が低いのが現実である。その理由は、X線回折分析ではX線源と検出器の両方を駆動させながら分析を行う方法が一般的であり、装置の駆動部分が多いために、安全性の観点から、文化財に対する調査がひかえられている。そして、このような事情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ひとつの要因となっている。そこで、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ることに注目した⁷⁾。

本研究では、ガス電子増幅フォイルを用いたX線検出器本体及び2次元イメージングを行うための信号読出しの方法に関する開発を行った。ここでは、開発を行った2次元イメージング検出器を用いた基礎実験の結果について報告する。

2. 検出器開発の概要

2-1. 2次元イメージング検出器の狙い

従来のX線回折分析装置は、一般的に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。このような分析装置を用いると、図1に示すようにゴニオメータを用いて、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(θ - 2θ スキャン)。一方、本研究では図2に示すように分析したい角度領域をカバーし、X線を2次元的に捕えるような検出器を用いることで、装置全体の駆動部を減らすことを目指して

*佐賀大学

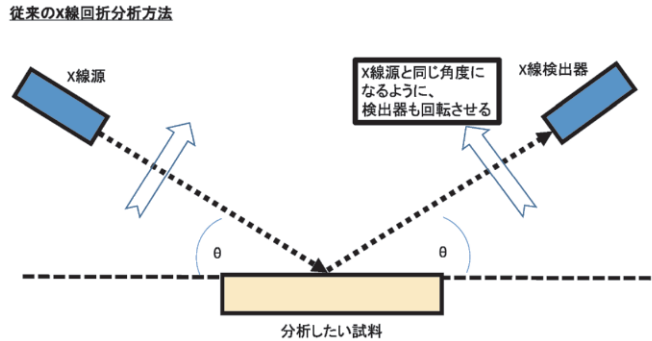


図1 従来のX線回折分析方法

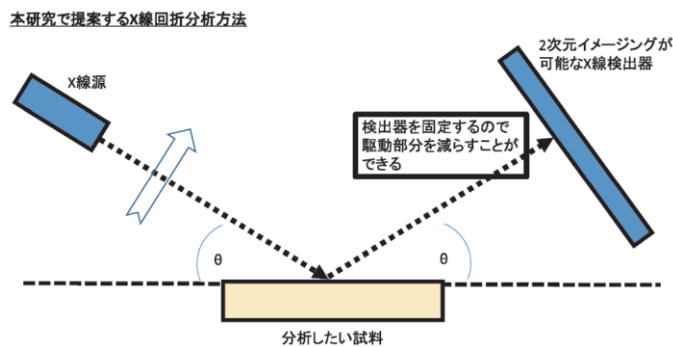


図2 本研究で検討するX線回折分析方法

いる⁷⁾。このような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ことが本研究の目的である。

2-2. ガス電子増幅フォイルを用いたX線検出器

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、著者らが開発を行ってきたガス電子増幅フォイル(Gas Electron Multiplier foil, 以下GEMフォイルと略す)⁸⁾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⁷⁾。

GEMフォイルを用いたX線検出器の動作原理の詳細については参考文献⁷⁾を参照されたい。今回の実験では、厚さ50 μm のポリイミド・フィルムの両面を厚さ5 μm の銅で被覆した有感面積が100mm \times 100mm、 ϕ 70 μm の孔が140 μm ピッチで空けられた構造をしたGEMフォイルを3枚用いて信号増幅を行う検出器で実験を行った。

図3に実験で用いた検出器の外観を示す。この検出器は2-3節で説明する信号読み出し基板に信号増幅用のGEMフォイル3枚が直接設置されており、GEMフォイルの周辺はステンレス製の筐体で覆われている。信号増幅ガスとしてアルゴン：メタン=90：10の混合ガスを選択し、検出器内に約100ml/minの流速で循環させた。

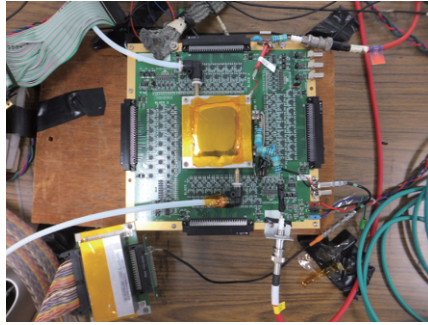


図3 実験に用いたGEM検出器の外観

2-3. 信号読出し方法

GEM フォイルで増幅された電気信号から2次元画像を構築するために、電気信号の読出し方法は重要な検討課題のひとつである。

電気信号を読み出すための素子を2次元的に配列したCMOSセンサーモジュールをGEMフォイルと併用することにより、2次元イメージングを行うことは可能である⁹⁾。このような信号読出し方法を採用すると、信号読出しのための素子が m 個 $\times n$ 個の場合、 m 個 $\times n$ 個の信号処理が必要となる。

一方、図4の概念図で示すような、信号読出し基盤に m 行の1次元ストリップ状の読出しパッドと n 列の1次元ストリップ状の読出しパッドを実装して信号読出しを行えば、必要な信号処理数は m 個 $+n$ 個にまで減らすことができる。例えばX線透過撮影のような高精細な画像の構築を必要としないX線回折分析を目的とした2次元イメージング検出器の信号読出しでは、このように単純化した方法が望ましいと考えられる。

このような信号読出し方法の有用性を調べるために、高エネルギー物理実験において粒子飛跡検出器のために開発された信号読出し集積回路 (STRIPIX)^{10,11)}を実装したGEM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

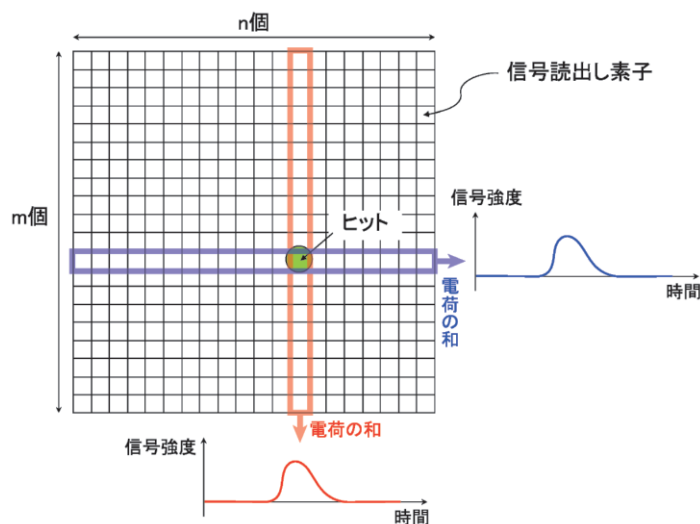


図4 1次元ストリップ読出しの概念図

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 $8\text{ mm} \times 8\text{ mm}$ 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、ピクセル信号は各行・各列の和が STRIPIX 内で回路的に演算され、実質的にストリップ読出しとなるため、出力される信号数の合計は $16 + 16 = 32$ チャンネルとなる。今回の実験で用いた信号読出し基板には縦 2 枚 \times 横 2 枚 $= 4$ 枚の STRIPIX が実装されており、 $16\text{ mm} \times 16\text{ mm}$ の領域の 2 次元信号読出しを行った。各 STRIPIX は専用の ADC ボードを接続することにより、アナログ信号をデジタル信号に変換した。そして各ストリップの信号の大きさの加重平均を計算することにより、各事象で検出された X 線の位置を算出した。このようにして得られた情報を積算することにより、2 次元画像を構築した。

3. 実験方法

図 2 で示した分析方法を検討するために、前節で説明した GEM フォイルと信号読出し基板で構成される X 線検出器を用いて、X 線回折像を捕える基礎実験を行った。図 5 に示すように、分析対象の試料、X 線源、X 線検出器から構成される実験装置を構築した。

今回の実験では、MOXTEK 社製の X 線発生装置 (Moxtek MagPro) を X 線源として用いた (図 5 の左手前に設置された装置)。装置の寸法と重量はそれぞれ $148\text{ mm} \times 46\text{ mm} \times 34\text{ mm}$, 700 g であり、小型・軽量である。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。X 線管中のターゲットとしては Cu が用いられており、管電圧は $4 \sim 60\text{ kV}$ 、管電流は $10 \sim 100\ \mu\text{A}$ の範囲で設定が可能で、出力の最大値は 12 W 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 30 kV , $300\ \mu\text{A}$ 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、長さ 50 mm 、内径 $\phi 2\text{ mm}$ のアルミ製のパイプで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。

今回の実験の分析対象試料として、粉末状の NaCl を用いた。回折角 θ が小さい場合、X 線を検出する際に、入射 X 線が試料に照射された時の散乱 X 線による寄与が大きくなってしまふ。このため、本実験では $2\theta = 75.3^\circ$ のデバイーシェラー環による 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 $\theta = 37.6^\circ$ 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 $\theta = 37.6^\circ$ を有感領域に入れて、試料表面からの距離を 20 cm となるように設置した。開発を行った X 線検出器を用いて実験を実施する前に、同検出器の代わりにイメージングプレート¹²⁾ ($25\ \mu\text{m}$ 間隔での読み取り) を設置して、 $2\theta = 75.3^\circ$ 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。



図 5 実験セットアップ

上記の実験セットアップで得られた2次元画像がデバイ-シェラー環の一部であることを検証するために、本実験ではNaClの粉末試料を入射X線の方向に沿って元の位置から6 mm, 7 mmとX線発生装置から離して同様の計測を行った。この時に、デバイ-シェラー環は検出器に向かって右側のSTRIPIXチップへ移動することが予測される。

4. 実験結果

本節では図5で示した実験セットアップで $2 \times 2 = 4$ 個のSTRIPIXから得られた信号から構築した2次元画像を用いて実験結果を示す。このようなセットアップでは、デバイ-シェラー環は縦の線として捕えられることになる。

デバイ-シェラー環を左側のSTRIPIXチップで捕えるように検出器を設置して計測した時に得られた2次元X線画像を図6に示す。図中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。左下に配置されたSTRIPIXチップ内で上下方向に帯状でX線の強度が高い箇所(図中の矢印で示した箇所)が、デバイ-シェラー環の一部を捕えていると考えられる。左上部分については、該当するSTRIPIXチップの信号読出し基板に対する実装部分の接続不良等が疑われる原因により、2次元X線画像に欠損が生じてしまった。

前節で示したように、NaClの粉末試料を入射X線の方向に沿って元の位置から6 mm, 7 mmとX線発生装置から離して計測を行った時に得られた2次元X線画像を図7と図8に示す。図中の矢印で示したように、X線の強度が高い帯状の部分は右側のSTRIPIXチップの領域へ移動した。ただし、図7では右上のSTRIPIXチップ上でデバイ-シェラー環の幅が広すぎる部分が生じており、一方図8では右下のSTRIPIXチップ上で信号強度が弱すぎてデバイ-シェラー環が鮮明に示されていない部分が生じた。STRIPIXチップの実装の不具合、ノイズ処理やキャリブレーションが十分でなかった、などが問題の原因として考えられ、今後の開発における課題となった。

以上の結果から、GEMフォイルを用いた検出器に1次元ストリップ読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。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。しかし、文化財の調査のための実用化に向けて：

- ・今回の実験で見つかった実装や信号処理に関する不具合の改善
- ・検出したX線の位置分解能のさらなる向上

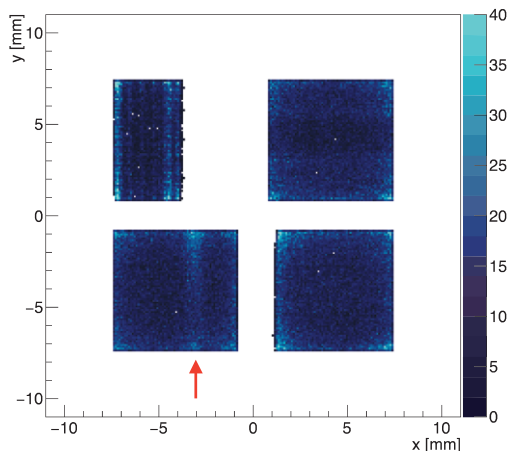


図6 デバイ-シェラー環を捕えた2次元X線画像の例

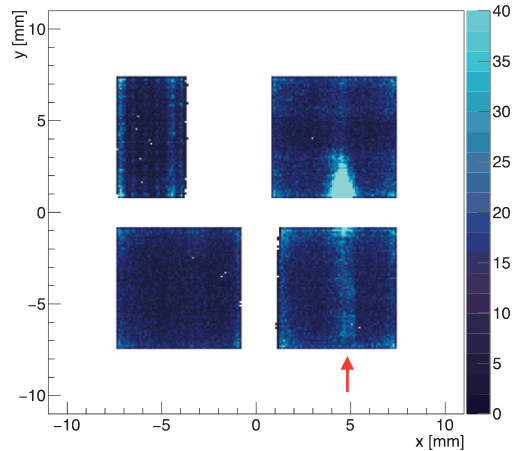


図7 デバイ-シェラー環を捕えた2次元X線画像の例

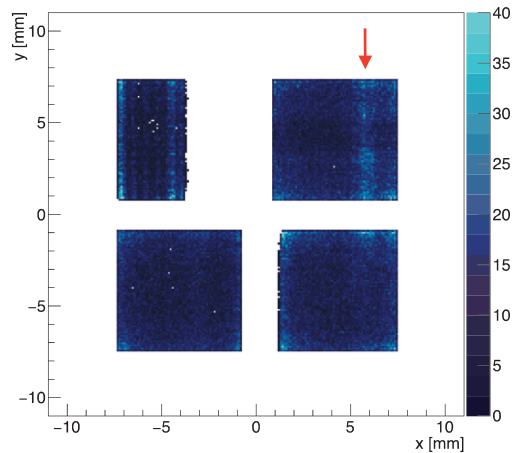


図8 デバイ-シェラー環を捕えた2次元X線画像の例

- ・調査時における文化財に対する安全性を向上するために、検出器をより堅牢かつシンプルな構造にする。
- 等が今後の課題として挙げられる。

5. まとめ

本研究では、X線回折分析の駆動部分を減らすことを目的に、X線を2次元的に捕えるようなX線検出器の開発を検討した。GEM フォイルと1次元ストリップ読み出し方法を採用した信号読み出し基板で構成されるX線検出器を用いて、X線回折像を捕える基礎実験を行った結果、X線回折像を捕えることに成功した。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。

謝辞

本研究の一部は JSPS 科研費 JP26560148 の助成を受けたものです。

参考文献

- 1) 三浦定俊：『古美術を科学する』、廣濟堂出版（2001）
- 2) Non-Destructive Examination of Cultural Objects—Recent Advances in X-Ray Analysis—, Proc. of “The 28th International Symposium on the Conservation and Restoration of Cultural Property”, National Research Institute for Cultural Properties, Tokyo (2006)
- 3) 朽津信明、前尾修司、谷口一雄、中井泉：古代地方寺院で用いられた彩色の特徴について、文化財保存修復学会第27回大会研究発表要旨集、56-57（2005）
- 4) 藤澤明、犬塚将英、増渕麻里耶、森井順之、早川典子、佐藤孝雄：高德院国宝銅造阿弥陀如来坐像の科学的金属状態調査、文化財保存修復学会第38回大会研究発表要旨集、220-221（2016）
- 5) 犬塚将英、早川泰弘、皿井舞、藤岡穰：可搬型X線回折分析装置を用いた銅造釈迦如来坐像（飛鳥大仏）の材質調査、保存科学、56、65-75（2017）
- 6) 佐々木淑美、犬塚将英：レンガ造文化財の保存環境と塩類析出に関する調査—INAX ライブミュージアム窯のある資料館を事例に一、保存科学、56、175-187（2017）
- 7) 犬塚将英：ガス電子増幅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）
- 8) 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)
- 9) 犬塚将英：ガス電子増幅フォイルを用いた文化財調査用X線検出器の開発II、保存科学、47、173-178（2008）
- 10) 宮下遼、池野正弘、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：ピクセル型ガス検出器の読み出し用インターポーザの開発と実装、日本物理学会第69回年次大会（2014）
- 11) 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）
- 12) 松島朝秀、三浦定俊：透過X線撮影における FCR とフィルムの濃度特性の比較、保存科学、43、17-24（2003）

キーワード：非破壊分析 (non-invasive analysis)；X線回折 (X-ray diffraction)；ガス電子増幅フォイル (gas electron multiplier foil)；2次元イメージング (two-dimensional imaging)；信号読出し (signal readout)

Development of a Two-dimensional Imaging Detector for Investigation of Materials Composing Cultural Properties

Masahide INUZUKA and Takahiro FUSAYASU*

If portable apparatuses for X-ray diffraction analysis are applied more practically in the field of conservation science, it would be possible to obtain further information about the materials used in cultural properties. The aim of the present study is to develop a two-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, new IC chips called "STRIPIX", which were developed for tracking detectors in high energy physics, were mounted on the signal readout board. Pixel-type electrodes are arranged two-dimensionally on the STRIPIX chip and electric signals deposited on each row and column are collected and added, thus reducing the number of readout channels. By using this new and simple system, the Debye-Scherrer ring from a powder sample was successfully detected as a two-dimensional image.

The next step is to improve the resolution of images and safety to cultural properties during investigation.

*Saga University