

微細試料分析における X 線マイクロ CT の
法科学的応用に関する研究

**Forensic applications of X-ray micro-computed
tomography for analyzing fragmented samples**

学位取得年月 2023 年 3 月

多田野 渉

目次

第 1 章 序論	1
1.1. 微細試料とその採取及び鑑定	1
1.2. 微物の異同識別法	3
1.2.1. ガラス	3
1.2.2. 塗膜	4
1.2.3. 単繊維	4
1.3. X 線 CT (computed tomography) 法	8
1.3.1. X 線 CT 法及び画像再構成の原理	8
1.3.2. X 線マイクロ CT 装置における X 線のビーム形状と倍率及び空間分解能	12
1.3.3. X 線 CT による密度推定	13
1.3.4. 法科学分野における X 線 CT の利用	15
1.4. 本研究の目的	17
1.5. 第 1 章のまとめ及び本論文の構成	19
1.5.1. 第 1 章のまとめ	19
1.5.2. 本論文の構成	19
第 2 章 X 線マイクロ CT 装置及び試料保持法	21
2.1. X 線マイクロ CT 装置	21
2.2.1. リガク 高分解能 3D X 線顕微鏡 nano3DX	21
2.1.2. 実験	25
2.1.3. 光学密度の試料厚さ依存測定	26
2.1.4. 2.1 節のまとめ	29
2.2. 試料保持法の検討	30
2.2.1. 試料保持用ホルダーの作製	30
2.2.2. 試料保持法の検討	32
2.2.3. 実験	35
2.2.4. 単繊維の X 線マイクロ CT 測定結果	35
2.2.5. 試料保持法の比較検討	38
2.2.6. 2.2 節のまとめ	39
2.3. 第 2 章のまとめ	40
第 3 章 中空単繊維の形態観察	41
3.1. はじめに	41
3.2. 実験	41

3.3.	中空単繊維の CT 画像.....	43
3.4.	中空単繊維の開口率及び体積の抽出	45
3.5.	CT 画像から抽出した面積の精度及び偏りに関する考察	47
3.5.1.	抽出面積に関する考察	47
3.5.2.	抽出スライス数に関する統計的考察	50
3.6.	中空単繊維の質量推定.....	52
3.7.	第 3 章のまとめ	54
第 4 章	単繊維の密度比較.....	55
4.1.	はじめに	55
4.2.	実験	55
4.3.	1 枚の断層像を用いた光学密度の評価	57
4.4.	光学密度の評価方法に関する統計的検討	61
4.5.	複数の断層像を用いた光学密度の評価	63
4.6.	光学密度と試料密度, 線吸収係数の関係	66
4.7.	第 4 章のまとめ	68
第 5 章	結論	69
5.1.	本研究のまとめ	69
5.2.	今後の展望	70
謝辞 (Acknowledgements)		71
参考文献		73
付録		81
A.	ImageJ Fiji を用いた画像解析	81
A.1.	画像解析の流れ	82
A.2.	断層像の読み込み	84
A.3.	スケールの設定	85
A.4.	2 値化処理	86
A.5.	計測量の設定	87
A.6.	解析	88
B.	研究成果.....	89
B.1.	公表論文	89
B.2.	国内学会発表・講演	89

第 1 章 序論

1.1. 微細試料とその採取及び鑑定

近年では犯罪の手口の巧妙化・複雑化が進んでおり，公判では客観的証拠の存在が重視されるようになった．特に，犯罪の現場に犯人が無意識のうちに遺留する証拠物件は微細な試料であることが多い．ヨーロッパの警察内に初めて証拠物件の科学的分析を行う実験室を作った Locard は，1928 年に "Every contact leaves a trace." とする相互付着の原則 (Locard's exchange principle) を提唱した [1]．これは，人と人，人と物，物と物が接触した際に，必ず相互の物質のやり取りが行われ，犯人はもちろん被害者や物にも物質が付着するという考え方である．

法科学 (forensic science) は，犯罪の事実を解明するため，自然科学の手法を法律に応用する 1 つの学問分野である [2] [3]．証拠となる試料を実験等により検査することを鑑定 [4] といい，得られた事実は鑑定書として報告される．日本の警察では，鑑識担当の警察官が現場で試料を採取し，科学捜査研究所 (科捜研) の研究職員が，警察官とは異なる第三者の立場で鑑定を担当する分業制をとっている．これは，鑑定に都合の良い試料が恣意的に採取される可能性を否定するための措置である．鑑定結果を報告する鑑定書は，公判において検察側から証拠として裁判官へ提出される [5]．ただし，弁護側がこの提出に同意しなかった場合，鑑定人は公判期日に証人として出廷し，尋問を受け，鑑定書が真正¹に作成されたものであることを証言しなければならない [6]．場合によっては再鑑定が必要となることもあるため，公判維持の観点から，試料の消費及び破壊を最小限にする必要がある [7]．

微細試料は微物とも呼ばれ，ガラス，塗膜，繊維などの工業製品，土砂や植物片などの環境由来物，射撃残渣などの火薬類，爆発物などがある [3]．微物の採取には主に，粘着剤及び台紙が無色透明の粘着シートが用いられる．台紙が適度な厚さと硬さで，しわになることなく，曲面にも当てられるものを使用することで，警察官の採取が容易になり，ミスも少なくなる．また，無色透明であることにより鑑定への影響を最小限に抑えられ，特に非破壊検査はシートからはがすことなく実施できる．

微物の鑑定では，事件現場で採取された微物と対照試料を比較し，互いに同

¹ 鑑定人自身が作成したものである「名義の真正」及び記載内容が正しい「記載内容の真正」の 2 つの意味での真正と解釈されている．

じものか否かを判断する「異同識別」が行われる。微物のように大量生産される工業製品や環境由来物の異同識別鑑定では、多くの場合、微物がただ1つの特定のものに由来することは証明できない。この点是指紋、DNA型、音声などといった個人の持つ固有特徴に基づいて行われる異同識別鑑定とは異なる特徴である。しかしながら、工業製品であれば同一工場で同時期に生産されたこと、環境由来物であればその地域が判明すれば、有力な証拠となる。

1.2. 微物の異同識別法

本節では、代表的な微物であるガラス、塗膜、単繊維の異同識別法について述べる。

1.2.1. ガラス

ガラスは建物や自動車の窓、食器など様々な工業製品に利用されている。ガラスが破損して、被疑者や自動車などからガラス片が発見された場合、重要な証拠となる場合がある。ガラス片はひき逃げ、窃盗、傷害、殺人など様々な犯罪で証拠物件となることが想定される。

ガラスの異同識別鑑定では、外観的特徴の観察、屈折率の測定、微量不純物の分析などが行われる [3] [8] [9] [10] [11]。

外観的特徴としては、色調や厚さなどが比較される。しかしながら、外観的特徴で識別できるのは、試料が十分な大きさのものに限られる。鑑定嘱託されるガラス片の径は多くの場合 1mm 程度しかないため、この方法だけでは識別できないことが多い。

ガラスの屈折率 (refractive index: RI) は小数点以下第 2~3 位までであれば識別できないことが多いが、小数点以下第 4 位までの精密な測定を行うことにより、識別が行われる。屈折率の標準偏差は、ガラス容器の場合だと $5 \times 10^{-5} \sim 3 \times 10^{-4}$ 程度 [12] [13], 1 枚の板ガラスの場合だと $2 \times 10^{-5} \sim 2 \times 10^{-4}$ 程度 [14] であることが確かめられている。屈折率の測定には、GRIM3 (イギリス Foster and Freeman 社製) と呼ばれ、ホットステージと位相差顕微鏡が一体となった装置が用いられる [15]。スライドガラス上のガラス片にシリコンオイルを滴下してプレパラートを作製し、ホットステージに装着し、プレパラートを温度範囲約 40~90°C で加熱しながら位相差顕微鏡でガラスの輪郭線を観察する。温度を上昇させるとシリコンオイルの屈折率は下がるが、ガラスの屈折率は測定温度範囲内ではほぼ一定であるため、両者の屈折率はある温度で一致し、ガラスの輪郭線が消滅する。この一致温度を 0.01°C 刻みで測定し、屈折率に換算している。

近年では品質管理の向上により、精密な屈折率測定を行っても識別できない場合があり、微量不純物の分析が必要となることがある。ガラスの多くを占めるソーダ石灰ガラスの主成分は Si, Na, Ca, Mg, Al, K の 6 元素であるが、これらのほかに不純物を含有している。微量不純物の分析には、誘導結合プラズマ質量分析法 (inductively coupled plasma mass spectrometry: ICP-MS) やシンクロトロン放射 (放射光) 蛍光 X 線分析 (synchrotron radiation X-ray fluorescence

spectrometry: SR-XRF) が用いられる。ICP-MS は液体試料を対象とする手法であり、溶解して試料を破壊することや、10mg 程度を必要とすることから、破壊が認められず量が少ない場合は困難となる。SR-XRF は微量の試料であっても非破壊で分析できるが、放射光施設を必要とする。

1.2.2. 塗膜

鑑定嘱託される塗膜で最も多いのが自動車塗膜である。自動車塗膜は、上塗り・中塗り・下塗りといったように層構造をなしている [3]。新車塗膜は工場塗装されたものであるが、補修塗膜の場合、層構成が均一ではなく、この部位の同一性が証明できれば証拠としての価値が高くなる。

塗膜の異同識別鑑定 [3] [8] [9] [10] [11] [16] [17] ではまず、形態観察または材質検査により新車塗膜か補修塗膜かを判別する。次に、各層について色差計（マイクロカラー）による色調検査及び Fourier 変換赤外分光 (Fourier transform infrared spectroscopy: FT-IR) 光度計による材質検査を行い、新車塗膜であれば塗色及び赤外吸収スペクトルのデータベースと照合する。補修塗膜であれば上塗り塗色をデータベースと照合する。

塗膜に関する課題に擦過状塗膜がある。ひき逃げ事件で被害者の衣類に付着した塗膜などが想定されるが、近年の塗膜の接着力の向上に伴い、上塗り層のみが付着しており、層構造が観察できない上に極微量であるため、分析が実施できない場合が多い [3]。向井らは、擦過状塗膜を想定して上塗り層に着目し、X線分析装置付き電子顕微鏡 (scanning electron microscopy and energy-dispersive X-ray spectroscopy: SEM/EDX, SEM/EDS) を用いて検出元素とその強度比を調べた [18] [19] [20]。

1.2.3. 単繊維

繊維は、殺人事件で凶器のロープから脱離したものが被害者に付着していたり、性犯罪で犯人の爪の間に被害者の下着から脱離したものが付着していたりするなど、様々な事件で証拠として採取される。

単繊維には太さ 20 μm 程度のものもあり、その形状や微量無機元素などから用途や製造会社を特定できることがある [3] [21]。

繊維は大きく分けて天然繊維、半合成繊維、合成繊維からなる [3] [21]。天然繊維には木綿、麻などの植物繊維、絹、羊毛などの動物繊維がある。半合成繊維は天然素材を原料とし、化学処理によって作られる。合成繊維はポリエステル

ル、ナイロン、アクリルなどがあり、化学的に全合成されたものである。

米国連邦捜査局 (Federal Bureau of Investigation: FBI) の下部組織 Scientific Working Group for Materials Analysis (SWGMAT) 内にある Fiber Subgroup や、欧州法科学研究所連合 (European Network of Forensic Science Institute: ENFSI) 内にある The European Textile and Hair Group は、単繊維の異同識別鑑定における推奨法・標準法を提案している [22]。日本法科学技術学会 [23] 内部の研究会の1つである「繊維鑑定における標準的手法等に関する研究会」は、これらの提案内容をもとに、繊維鑑定を行う際に最低限遵守されるべき事項として推薦する鑑定法を報告している [24]。具体的には、光学顕微鏡による形態観察、紫外・可視顕微分光分析による色検査、赤外分光分析による材質検査の3手法の分析と単繊維の採取方法が提案されている。上述の3手法を中心に国内外で異同識別法に関する研究が行われている [8] [9] [25] [26] [27] [28] [29] [30] [31]。

鑑定ではじめに行われるのは形態観察である [3] [21] [22] [24] [25] [29] [31]。天然繊維は特徴的な形態を持つため、形態観察だけでも絞り込みが可能な場合がある。合成繊維は射出成型により製造され、ノズルの形状により様々な断面形状を持つことが知られている。断面形状は円形のものが多いが、異形断面を持つ繊維もある。特に、内部に空気層を持たせた中空構造の繊維は、保湿性向上や軽量化を目的とした機能性繊維として用いられている [32] [33]。繊維内部に占める空気層の割合を開口率 (aperture ratio) と呼ぶ¹。文献 [32] では、開口率 40% 以上の中空繊維を題材に、空気層が汗の放出や熱伝導率を下げる役割を担い、中空繊維が四季を通じて快適な着心地を実現する素材であることが解説されている。合成繊維の断面形状は、主に断面を作製して観察されてきたが [34] [35] [36] [37]、試料を破壊してしまうのが難点である。また、断面の作製には熟練が必要であり、失敗のリスクを伴う。このような問題点から、科捜研での異同識別鑑定の実務では断面形状観察を省略されてしまうことも多い。Kirkbride ら [38] や Tedesco ら [39] は共焦点レーザー顕微鏡 (confocal laser scanning microscopy: CLSM) を用いて単繊維や毛髪の断面を非破壊で観察した。CLSM を用いれば、断面形状を非破壊かつ高分解能で観察できる。しかしながら、CLSM は測定対象が透明な試料に限られてしまうことや、全国の科捜研にも導入されていないことから、異同識別鑑定実務への利用が普及していないのが現状である。

色検査には顕微分光光度計 (microspectrophotometry: MSP) が用いられる [3] [21] [22] [24] [25] [26] [28] [29] [31]。測定範囲は紫外部ー可視部透過プロファ

¹中空率 (hollowness)、空隙率 (porosity) と呼ぶこともある。

イル (240~760nm) や可視部透過プロファイル (340~760nm) が用いられる。有色単繊維は透過プロファイル, 黒色単繊維は吸光度プロファイルを測定し, 色調を客観的に評価する。彩度の高い繊維や白色単繊維は紫外光による UV 励起で染料に由来する蛍光を測定する。

材質検査には顕微装置を付属した Fourier 変換赤外分光 (Fourier transform infrared spectroscopy: FT-IR) 光度計が用いられる [3] [21] [22] [24] [25] [26] [29] [31] [40]。この分析により, 合成繊維を構成する成分がナイロン (nylon またはポリアミド (polyamide: PA))6 かナイロン(ポリアミド)6,6 か, アクリル(acrylic) 繊維かモダクリル (modacrylic またはアクリル系) 繊維か¹ [41]などの情報が得られる。本多らは, 放射光を利用した FT-IR 測定を実施した [42]。実験室光源の FT-IR では, 10 μ m 以下の極微細な単繊維だとノイズレベルが高くなり, 100 μ m 以上の太い単繊維だと赤外吸収が飽和してしまうため試料の破壊が必要となる。放射光 FT-IR 測定を行うことで, IR スペクトルのデータベース構築が進められている。また, FT-IR を補完する情報を得るために Raman 分光測定も行われている [3] [21] [22] [25] [26] [29] [31] [43]。

以上の代表的な 3 手法で識別できない繊維に対して, 以下のような検査も行われる。

染色された繊維からは, 薄層クロマトグラフィー (thin-layer chromatography: TLC)や, 高速液体クロマトグラフィー (high performance liquid chromatography: HPLC) によって染料を抽出する [3] [21] [22] [25] [27] [29] [30] [31] [44] [45] [46] [47]。

繊維の製法に由来し光学顕微鏡では観察できないような微細構造を観察したり, 染料等に由来する無機元素を検査したりする場合には, SEM/EDX が用いられる [3] [21] [22] [25] [29] [31]。小松ら [37], 高原ら [48], Sengoku [49] らは, 全反射蛍光 X 線分析 (total reflection X-ray fluorescence spectrometry: TXRF) を適用した。近年では, 無機元素の検査や微細構造の観察に放射光を用いる研究も行われている。西脇らは, 従来法で異同識別が困難な白色ポリエステル単繊維に対し, 放射光マイクロビーム蛍光 X 線分析 (SR microbeam X-ray fluorescence: SR- μ -XRF) を適用して, 製造時の触媒に含まれる微量無機元素を分析した [50] [51]。また, 南ら [52] や本多ら [53] は, 非破壊的に単繊維の周期構造や配向性に関する情報を得ることを目指し, 放射光 X 線小角散乱 (small angle X-ray scattering: SAXS) や放射光広角 X 線散乱 (wide angle X-ray scattering: WAXS) を適用した。

¹ ポリアクリロニトリルを重量比で 85%以上含む繊維をアクリル繊維, 35~85%含む繊維をモダクリル (またはアクリル系) 繊維と呼ぶ。

異なった 2 種類の繊維を同一のノズルから射出して作られた繊維は，FT-IR 測定により複合繊維であることは推定されるが，熱分解ガスクロマトグラフィー質量分析法 (pyrolysis gas chromatography mass spectrometer: Py-GC/MS) によりモノマーまで分解し，組成を明らかにする [3] [21] [22] [25] [27] [29] [31] [54].

1.3. X線CT (computed tomography) 法

本研究では、X線マイクロCTを単繊維、特に合成繊維の断面の形態観察における新たな方法として適用した。前節で述べた共焦点レーザー顕微鏡 (CLSM) は、透明な試料に対象が限定されていたが、X線CTは制限なく幅広い試料を測定対象とすることができる。

本節では、X線CT法及び画像再構成の原理、X線マイクロCTの空間分解能、X線CTによる密度推定、法科学分野におけるX線CTの利用について述べる。

1.3.1. X線CT法及び画像再構成の原理

X線CT法 [55][56] は非破壊検査の代表的な手法の1つで、あらゆる方向から試料の投影像を撮影して集積し、画像を再構成する手法である。世界初の商用装置は医療用途として1973年 Hounsfield によって開発された [57]。1982年に Elliot らはX線管から発生したX線をピンホールで絞り、15 μm の空間分解能で巻き貝の殻を可視化した [58]。これが産業用X線マイクロCTに関する初めての報告とされている。医療用X線CT、産業用X線CT (大試料測定用)、産業用X線マイクロCTにおける、おおよそのX線エネルギー及び空間分解能レベルについて整理したものを表1に示す [55]。一般に空間分解能の上限値は測定時の視野 (FOV) の500~1000分の1程度で、実用空間分解能はさらに低下する。つまり、数 μm 程度の空間分解能で観察するには数mm程度のFOV及びそれ以下の試料サイズでなければならない。また、1984年には Thompson らが Stanford シンクロトロン放射光施設 (Stanford Synchrotron Radiation Lightsource: SSRL) で初めて放射光を用いたX線CT測定を行ったが、豚の心臓を1mm以上の空間分解能で可視化したものであった [59]。現在の放射光X線CTは100nm (サブ μm) 程度の空間分解能で測定可能となっている。

表1 医療用及び産業用X線CTのX線エネルギー及び空間分解能レベル [55]

	X線エネルギー	空間分解能レベル
医療用X線CT	40~60keV	0.1~1mm
産業用X線CT (大試料用)	~1MeV	0.1以下~1mm
産業用X線マイクロCT	数~100keV	0.1~10 μm

投影像で測定されるのは試料に対する透過 X 線強度 I である。単純化のために、強度 I_0 の単色 X 線が均一な密度及び化学組成で厚み t の試料へ入射する場合を考えると、Lambert-Beer 則に従い、次の式が成り立つ。

$$I = I_0 \exp(\mu t) \quad (1)$$

ここで、 μ は線吸収係数 (linear absorption coefficient, 単位は cm^{-1}) である。(1) 式の両辺を I_0 で除して対数をとると、次のようになる。

$$-\ln \frac{I}{I_0} = -\ln T = \mu t \quad (2)$$

ここで、 T は試料に対する X 線の透過率 (transmittance) であり、 $-\ln T$ は光学密度 (optical density: OD) である。 μ が試料内部で均一でない場合、 μ は位置 t の関数となり、右辺は X 線の経路に沿う線積分で表される。光学密度は CT における投影データ p に相当する。図 1 に、単色 X 線の平行ビームを照射し、試料を透過させて 1 次元検出器で検出する場合、ある位置 t 、ある投影角度 θ での透過光強度 $I(t, \theta)$ のプロファイル及び投影データ $p(t, \theta)$ の関係を表した模式図を示す [55]。これを、高さ方向を含めた 2 次元検出器へ拡張し、あらゆる角度 θ について投影像を撮影する。

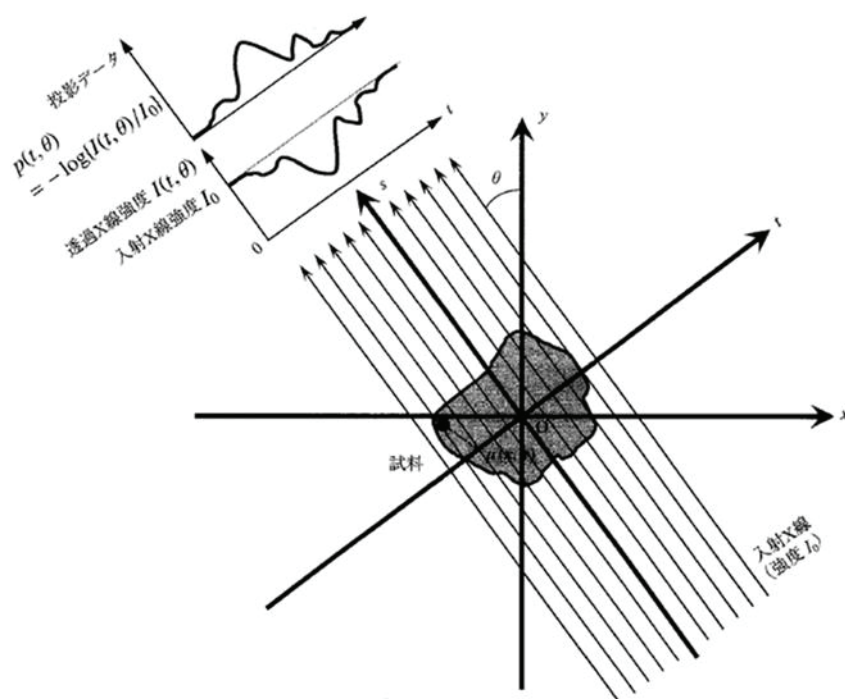


図 1 単色 X 線の平行ビームを照射し、試料を透過させて 1 次元検出器で検出する場合、ある位置 t 、ある投影角度 θ での透過光強度 $I(t, \theta)$ のプロファイル及び投影データ $p(t, \theta)$ の関係を表した模式図 [55]

CTにおける画像再構成は、投影データ $p(r, \theta)$ を線吸収係数の分布 $\mu(x, y)$ に逆投影することを意味している。この操作の逆で、 $\mu(x, y)$ から $p(r, \theta)$ への変換は、発見者の名にちなみ Radon 変換と呼ばれ、次式で表される。

$$p(r, \theta) = \int_{-\infty}^{\infty} \mu(r \cos \theta - s \sin \theta, r \sin \theta + s \cos \theta) ds \quad (3)$$

ここで、直交座標 (x, y) は極座標形式に変換した。Radon 変換の発見から約半世紀後の 1963 年、Cormak により画像再構成の数学的原理が定式化された。Cormak は既に述べた Hounsfield とともに、1979 年にノーベル医学生理学賞を受賞した。

多くの X 線 CT 装置では、画像再構成にフィルター補正逆投影法 (filtered back projection: FBP) が用いられている。図 2 に FBP 法の基礎となる投影定理 (projection theorem, 中央断面定理, 投影切断面定理, Fourier 断面定理などとも呼ばれる) の模式図を示す [55] [60]。再び、単色 X 線の平行ビームを照射し、試料を透過させて 1 次元検出器で検出する場合を考える。様々な角度 θ から得られた投影データ $p(r, \theta)$ を 1 次元 Fourier 変換して、ある角度 θ における 1 次元 Fourier 変換 $P(\omega, \theta)$ を求める。ここで、 ω は角周波数である。 $P(\omega, \theta)$ を全 θ について蓄積して、2 次元 Fourier 変換 $F(\omega \cos \theta, \omega \sin \theta)$ を得る。 $F(\omega \cos \theta, \omega \sin \theta)$ を 2 次元 Fourier 逆変換 (逆投影) することで $\mu(x, y)$ が得られる。しかしながら、このような解析的な手法では画像がぼやけてしまうため、 $P(\omega, \theta)$ に予めフィルター関数 $|\omega|$ をかけて逆投影することによりコントラストを得ている。

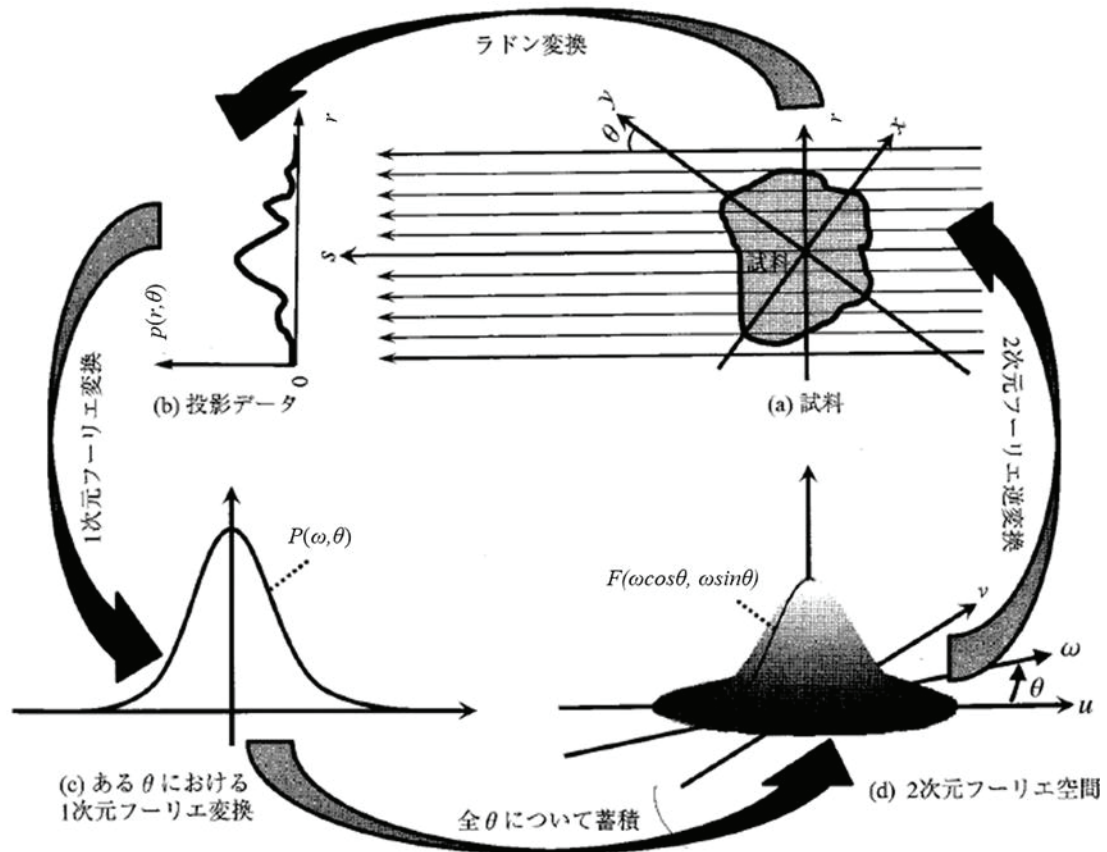


図 2 投影定理の模式図 [55, 60]

画像再構成では、試料のすべての位置にすべての方向から X 線が入射された投影像を撮影する必要がある。つまり、原則として試料はすべての撮影において観察の視野 (field of view: FOV) に収まっていなければ投影データの Fourier 変換ができない。このような状態のことを完浴と呼ぶ。図 3 に完浴の模式図を示す [56]。同図(a), (b)は FOV より試料の方が大きい場合で、(b)のときは A 点及び B 点が FOV に入っているが(a)のときは FOV から外れており、完浴状態ではない。(c), (d)はさらに回転中心も試料中心からずれている状態であり、完浴状態ではないためいずれも再構成できない。同図(e)は完浴しているため再構成可能である。同図(f)は全体が完浴していないものの、C 点及び D 点は完浴している。このような場合、点線円内の領域のみ再構成可能である。

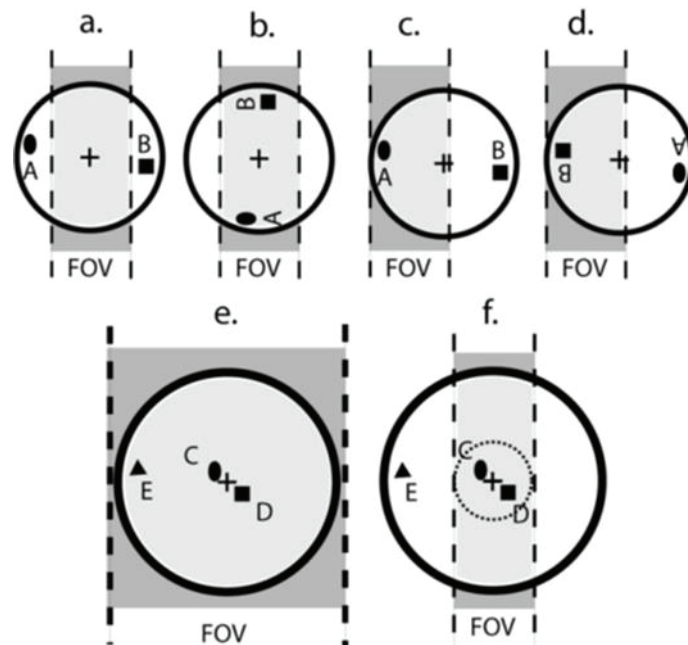


図 3 完浴の模式図 [56] (a)(b) 完浴していない状態
 (c)(d) 完浴せず回転中心も試料中心からずれた状態
 (e) 全体が完浴した状態
 (f) 点線の円内のみ完浴した状態

1.3.2. X線マイクロCT装置におけるX線のビーム形状と倍率及び空間分解能

X線ビーム形状には、コーンビーム、平行ビームなどがあり、それぞれの模式図を図4に示す[55]。コーンビームは多くの産業用X線CT装置で採用され、平行ビームは主に放射光を用いたX線CTに採用されている。コーンビーム方式では、X線焦点から検出器までの距離 (focus-to-image receptor distance: FID¹)とX線焦点から試料(被写体)中心までの距離 (focus-to-object distance: FOD²)の比 FID/FODによって倍率が決まり、X線焦点サイズによって空間分解能が決まる。一方、平行ビーム方式では、試料(被写体)と検出器の距離によって空間分解能が決まる。また、試料が完浴している場合、対称性から、平行ビーム方式で投影データを測定する角度範囲は0°から180°で十分である。

¹同じ意味で source-to-image distance: SID と呼ばれることもある。

²同じ意味で source-to-object distance: SOD と呼ばれることもある。

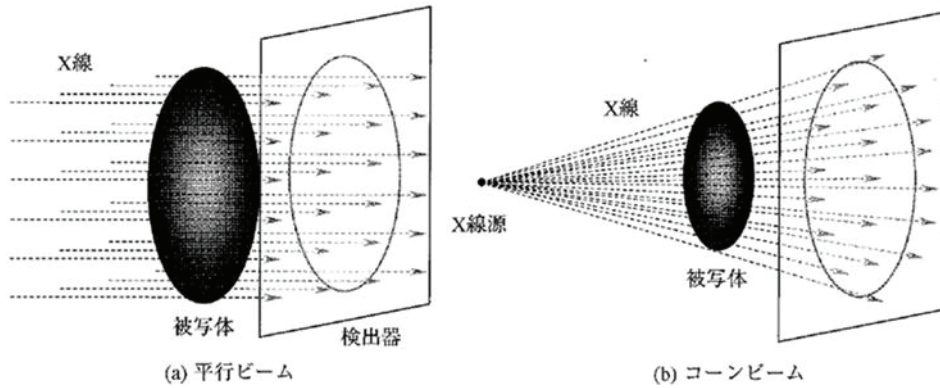


図 4 代表的な X 線ビーム形状の模式図 [55] (a) 平行ビーム, (b) コーンビーム

近年では、擬似平行ビーム及びレンズ拡大方式を採用した市販の X 線マイクロ CT 装置が利用可能となった [61] [62] [63] [64] [65]. 焦点サイズを絞ることで空間分解能を向上させる従来型のコーンビーム方式とは異なり、試料と蛍光板を近づけることで空間分解能が向上し、レンズの倍率で空間分解能が決まり、最高で 330nm の空間分解能が実現できるとされている.

1.3.3. X 線 CT による密度推定

CT 断層像の投影データ (光学密度) は、単位画素¹内における局所的な μ の平均値を示したものであり、CT 画像は μ の分布を濃淡で表示したものと見える. この強度はスキャンごとに 16bit などの高階調で量子化・規格化され、CT 値 (CT value) とも呼ばれる. 医療用 X 線 CT では、空気を -1000 、水を 0 、骨を $+1000$ とする Hounsfield 単位 (Hounsfield Unit: HU) に変換されることが多い. 産業用 X 線 CT では量子化・規格化された値をそのまま CT 値として用いることもあるが、本論文ではすべて光学密度または OD と呼ぶ. 光学密度はスキャンごとに量子化・規格化されるため、同じ試料を測定しても異なるスキャンでは同じ値になるとは限らない.

線吸収係数 μ は物質の原子番号や Z や X 線エネルギー E に依存し、次のような経験式が成り立つことが知られている [66] [67] [68] [69].

$$\mu = \rho \frac{Z}{A} N_A (a + bZ^{3.8} E^{-3.2}) \quad (4)$$

ここで、 A は質量数、 N_A は Avogadro 数、 a は Klein-Nishina の断面積 (E に依

¹ 2次元画素を pixel, 3次元画素を voxel と呼ぶ.

存) [70], b は 9.8×10^{24} (定数) である.

また, μ と密度 ρ を用いて, (5)式のように質量吸収係数 (mass absorption coefficient: μ_m , 単位は cm^2/g) が定義され, (6)式の経験式 (Victoreen の式 [71]) から見積もられる.

$$\mu_m = \frac{\mu}{\rho} \quad (5)$$

$$\mu_m = C\lambda^3 - D\lambda^4 + \frac{\sigma_{\text{KN}}N_A Z}{A} \quad (6)$$

ここで, C 及び D は原子番号 Z によって異なる係数で, 例えば炭素の場合, $C = 1.22$, $D = 0.0142$ [71]である. また, 炭素の場合 $Z/A = 0.4995$ である. σ_{KN} は Klein-仁科の断面積と呼ばれ, (6)式第3項は波長 (エネルギー) によって決まる補正項である. $\sigma_{\text{KN}}N_A$ は, 例えば 8.3keV の場合 0.391cm^2 , 7.8keV の場合 0.392cm^2 となる [71]. さらに, 化合物の質量吸収係数 μ_m^{mix} について, 以下の混合則が成り立つことが知られている.

$$\mu_m^{\text{mix}} = \sum_{i=1}^j \mu_m^i x_i \quad (7)$$

ここで, μ_m^i は i 番目の元素の質量吸収係数を, x_i はその質量分率である. μ_m のデータベースは公開されており (例えば [72] など), (6)式を用いれば, 吸収端から十分に離れたエネルギーの場合, 10keV 以上の X 線で数%以下, 1keV 以上の X 線で 2%以下の誤差で μ_m^{mix} が得られる [73].

以上のように, 単色 X 線を用いれば, CT 測定により得られた光学密度から試料内の μ の分布が得られる. 光学密度はスキャンごとに規格化されるが, 密度を求めたい試料を標準試料とともに測定すれば, 標準試料の光学密度で規格化し, 検量線を作成することで, 密度の測定が可能になる. さらに, 厚み方向に対して均一な試料であれば, 投影像を撮影するだけで密度が求められる.

一方で, エネルギー分布を持つ X 線の場合は, 強度や μ が X 線エネルギーの関数であるため, (2)式のように単純な関係式は成立しない. 試料に入射した X 線は, 低エネルギーの X 線ほど急激に減衰するため, 透過 X 線のエネルギー分布は入射 X 線のものとは異なり, 高エネルギー X 線の寄与が大きくなる. このような現象はビームハードニング (beam hardening) [74] [75]と呼ばれる. ビームハードニングが発生すると, X 線のパスが長くなる角部など, CT 画像における試料界面付近でアーティファクトが生じる原因となることが知られている [55].

CT [66] [67] [68] [69] [75] [76] [77] [78]や投影像 [68] [79] を用いた密度推定の研究例は多く, 錠剤 [66] [75], ローラー圧縮リボン [67] [69], 多孔質食品

[68] , セラミック粉末 [76][77], ポリマーディスク (厚さ 10 mm, 直径 25 mm) [78], セラミックタイル [79] に適用されている. これらの研究はいずれも, 高エネルギー X 線源を使用する市販の X 線 CT 装置で実施されているが, フィルターを用いてビームハードニングの影響を低減するなどの対策が講じられている. しかしながら, 単繊維のような大きさ数十 μm 程度の微細試料に関する密度推定はまだ行われていない.

1.3.4. 法科学分野における X 線 CT の利用

法科学分野における X 線 CT の利用研究の例を表 3 に示す. これまでに発表された X 線マイクロ CT の利用研究のうち, 放射光を利用した土砂中の鉱物に関する研究 [80] 以外は, 数 mm からサブ mm オーダーの実用空間分解能で観察可能なものや, 金属を対象にしたものが中心であり, 微物, 特に有機物を対象とした研究は行われていない.

表 2 法科学分野における X 線 CT の応用例

X 線 CT の応用例		文献
銃創 (gunshot wounds) における射撃残渣 (gunshot residue: GSR) の分布		[81] [82]
骨の工具痕 (tool marks)		[81] [82]
骨格による年齢推定		[81] [82]
骨や肺の病理検査		[81] [82]
ヒトや昆虫の死後経過時間の推定		[81] [82]
歯による個人識別・年齢推定		[81] [83] [84] [85]
骨折部位の観察		[82]
火葬温度推定		[82]
軟部組織の識別		[82]
血痕パターン分析		[82]
胎児の摘出臓器・胎盤検査		[82]
体内の異物金属 (刃物の破片など)		[82]
木材の内部観察		[86] [87]
土砂中の鉱物の識別 (放射光利用)		[80]
電気配線の溶融痕内部のボイド (空孔) 解析 (放射光利用含む)		[88] [89] [90]
撃発済み実包の薬きょう底面に残された撃針痕の深さ方向に対する 3 次元観察		[91]
偽造硬貨の内部観察		[92]

1.4. 本研究の目的

単繊維の異同識別鑑定では形態観察, 色検査, 材質検査などが行われており, 形態観察において, 合成繊維特有の断面形状は異同識別の重要な指標の1つである. 一方, 単繊維の断面作製は破壊を伴う作業で, 技術的にも熟練を要するため, 公判維持の観点から断面観察を省略されることも多く, 非破壊で簡便な手法の開発が望まれている.

X線CTは非破壊で試料の内部構造を簡便に測定できる手法であるが, 従来型のCT装置では有機物を数 μm 程度の空間分解能で測定することは困難であった. 近年, 低エネルギーの特性X線を利用して, 有機物を高分解能で観察できる市販のX線マイクロCT装置が開発された. また, 単色光の場合, 投影データ, すなわち, 光学密度は線吸収係数に対応し, CT画像から試料の密度が得られる. 一方で, 有機物微細試料に対し, X線マイクロCTを用いた数 μm 程度の微細構造観察や密度推定はまだ行われていない. X線マイクロCTが微細試料分析に活用できることが明らかになれば, 法科学的異同識別にも応用できると期待される. 本研究では, X線マイクロCTを用いた微細な有機物試料の分析を実現し, 法科学的異同識別に応用することを目指して, 単繊維の形態観察及び密度比較に取り組んだ. 具体的な目的は, 以下のとおりである.

目的(1) 中空単繊維の形態観察

異形断面の一種である中空構造を持つ単繊維を非破壊で観察し, さらにその開口率及び体積を高精度で抽出できれば, 微細試料分析にX線マイクロCTが活用でき, さらに法科学的異同識別にも応用できると期待される. 本研究では, 単繊維の断面の高分解能CT画像を得るために, 測定中の試料を保持するための方法を検討した. さらに, その保持法を用いて中空単繊維のX線マイクロCT測定を行い, 画像解析により開口率及び体積を抽出した.

目的(2) 単繊維の密度比較

微細試料の質量は数 μg から数十 μg のものもあり, マイクロ電子天秤で秤量するのは困難である. CT画像から体積とともに密度がわかれば, 秤量困難な微細試料の質量を推定できると期待される. また, 試料の密度差が比較できれば, 法科学的異同識別にも応用できると期待される. 一方で, 市販の装置の場合, X線は単色光ではなくエネルギー分布を持っているため, 単純に光学密度から

線吸収係数及び試料密度を求めることはできない。本研究では、特性 X 線の寄与が大きい X 線マイクロ CT 装置を用いた投影像撮影により透過率を測定し、準単色光近似が可能な条件、すなわち、光学密度が試料厚さに対して線形性を示す透過率の範囲を求めた。求めた条件の下で、主成分の異なる複数の単繊維を同時に測定し、密度差を比較した。

1.5. 第 1 章のまとめ及び本論文の構成

1.5.1. 第 1 章のまとめ

犯罪の手口が巧妙化・複雑化し、公判では客観的証拠の存在が重視されるようになってきている。犯罪の現場に犯人が無意識のうちに遺留する微物を適切に採取して科学的に分析し、犯罪との関連を客観的に明らかにすることの重要性は、ますます高まっている。科捜研では、採取された微物と対照試料の工業製品を比較し、同一工場で同時期に生産されたものか否かを判断する「異同識別」鑑定が行われる。代表的な微物の 1 つである単繊維の異同識別鑑定では、光学顕微鏡による形態観察、紫外・可視顕微分光分析による色検査、赤外分光分析による材質検査を中心に様々な検査が行われる。合成繊維は製造方法により様々な断面形状を持つことが知られ、異同識別の重要な指標の 1 つであるが、繊維の断面を作製して観察すると試料を破壊するため、省略されることも多い。

近年では、低エネルギーの特性 X 線を利用して、有機物を高分解能で観察できる市販の X 線マイクロ CT 装置が開発されている。法科学分野においても X 線 CT の利用研究は行われているが、mm からサブ mm 程度の測定が中心で、数 μm 程度の空間分解能を必要とする X 線マイクロ CT 測定に関する研究例はまだない。また、CT 断層像における光学密度（投影データ、CT 値）は各画素における線吸収係数の分布を反映している。線吸収係数は原子番号のべき乗で表され、密度と相関があることは知られているが、X 線マイクロ CT を用いて微細試料の密度を測定した研究はまだ報告されていない。CT 画像から試料の微細構造や密度が得られ、その差を比較できれば、法科学的異同識別にも応用できると期待される。

このような背景から、本研究では、X 線マイクロ CT を用いた微細な有機物試料の分析を実現し、法科学的異同識別に応用することを目指して、単繊維の形態観察及び密度比較に取り組んだ。

次章以降の構成は、以下のとおりである。

1.5.2. 本論文の構成

第 2 章 X 線マイクロ CT 装置及び試料保持法

市販の CT 装置の場合、放射光とは異なり単色光ではないため、密度推定を行うには、X 線を準単色光と近似できる条件を明らかにする必要がある。そこ

で、アルミニウム箔の投影像撮影を行い、準単色光近似が可能な条件、具体的には、光学密度が試料の厚さに対して線形性を示す範囲について検討した。

次に、単繊維の CT 測定を行うための試料保持法について検討した。単繊維はやわらかいため自立せず、CT 測定中の試料台の回転に伴って試料が動くことと再構成に支障をきたしてしまう。単繊維を自立した状態で保持でき、取り付け及び回収が簡便で、紛失のリスクが少なく、透過率の低減やその後の検査への影響を最小限に抑えられる方法を検討した。

第 3 章 中空単繊維の形態観察

機能性繊維として用いられる中空単繊維を対象に、X 線マイクロ CT 測定による断面の形態観察を行った。また、オープンソースソフトウェアを用いた 2 値化処理と認識によって開口率及び体積を抽出し、抽出量の精度及び偏りについて考察した。得られた体積と密度参照値を用いて、マイクロ電子天秤では秤量が困難な単繊維片の質量を推定した。

第 4 章 単繊維の密度比較

まず、第 2 章で求めた準単色光近似が可能な条件の下で、太さが十分なナイロンテグスの X 線マイクロ CT 測定を行い、密度参照試料とテグスの光学密度を比較することで、ポリマーの密度評価の可能性を検討した。次に、単繊維のような細い試料の場合に光学密度を評価するため、統計的に十分な画素数を確保する方法を検討した。その方法を用いて、複数の単繊維を同時に測定し、光学密度と線吸収係数、光学密度と試料密度の関係を調べた。

第 5 章 結論

本研究で得られた結論及び今後の展望について述べる。

第 2 章 X 線マイクロ CT 装置及び試料保持法

本章ではまず，本研究で使用した X 線マイクロ CT 装置について述べる．市販の CT 装置を用いた密度推定の実現可能性を検討するため，X 線の準単色光近似が可能な条件について検討した．

次に，単繊維の CT 測定を行うための試料保持法について述べる．やわらかい単繊維を自立した状態で保持するための試料保持用ホルダーの作製及び保持法の検討を行った．

2.1. X 線マイクロ CT 装置

2.2.1. リガク 高分解能 3D X 線顕微鏡 nano3DX

本研究では，X 線マイクロ CT 装置として，ひろしま産学共同研究拠点に導入されている nano3DX（リガク製）を用いた [61] [62] [63] [64] [65]．写真 1(a) は nano3DX 本体を撮影したもので，同写真(b)は試料測定槽内の拡大写真である [61]．図 5 に nano3DX を用いた CT 測定の模式図を示す．回転対陰極型 X 線源（焦点サイズ $\phi 70\mu\text{m}$ ）から照射された白色 X 線は，擬似平行ビームとして試料に照射され，試料を透過した X 線像は蛍光板により可視光へ変換される．その後，画像はレンズによって拡大され，CMOS (complementary metal oxide semiconductor) カメラで結像される．

(a)



(b)

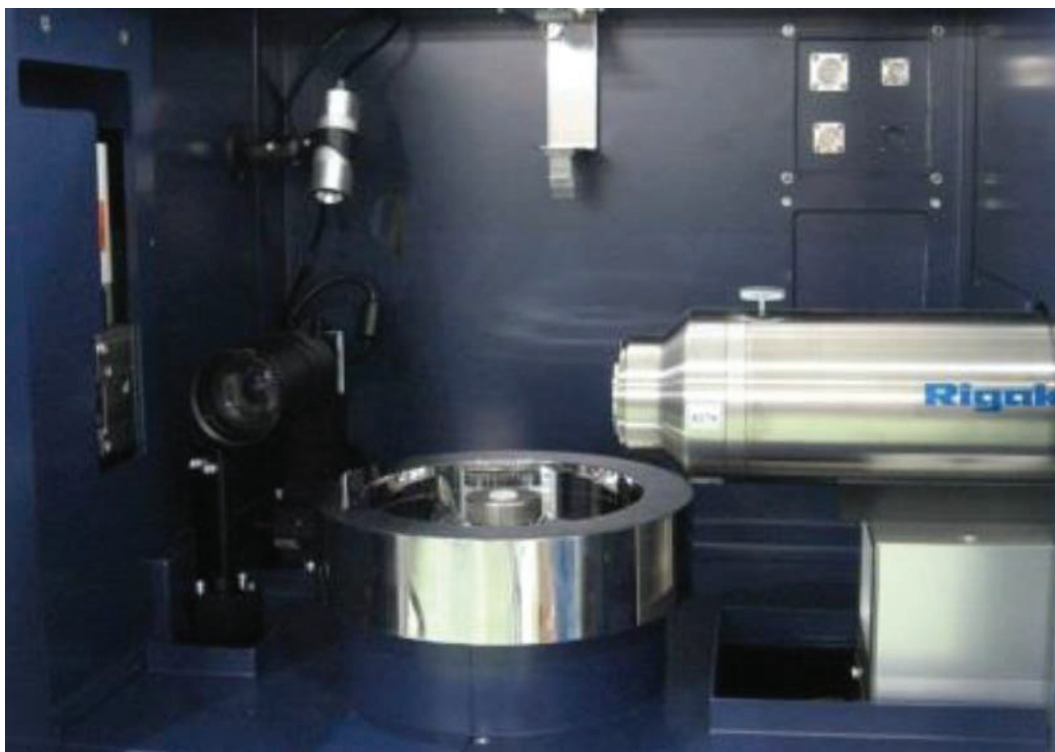


写真 1 (a) nano3DX 本体, (b) 試料測定槽内の拡大 [61]

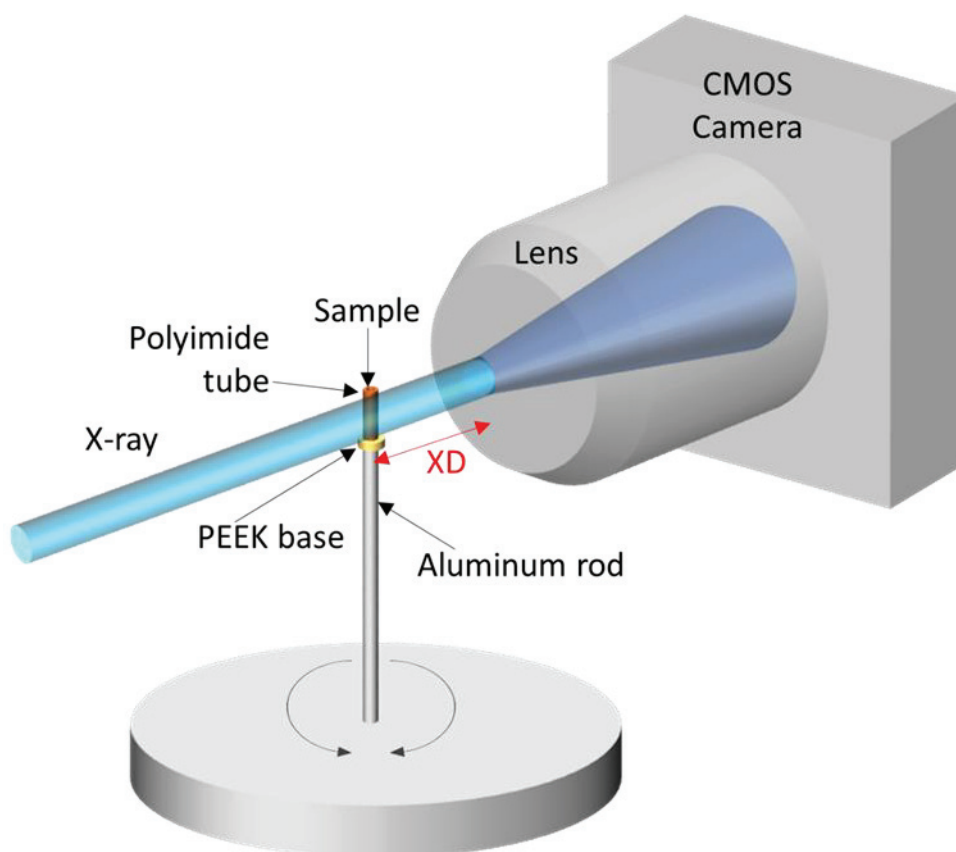


図 5 nano3DX を用いた CT 測定の様式図

nano3DX の擬似平行ビーム方式により，試料と蛍光板の距離が小さいとき，空間分解能はレンズの倍率によって決定する．空間分解能と視野 (FOV) はレンズパラメーターによって調整される．表 3 にレンズの種類の一覧を示す．本研究における CT 測定はすべて L1080 レンズを使用し，試料中心と蛍光板の距離は 5mm (ソフトウェアで制御できるパラメータ XD は 2mm に相当)，ビンニング (binning¹) 1 とし，continuous scan モードで試料ステージを 180 度回転させながら 1000 投影 (1 投影あたり 4 秒，1 スキャンあたり約 83 分間) を撮影した．XD が 2mm であれば試料と蛍光板は十分に近く，ビンニング 1 の測定であれば，レンズの最大空間分解能と voxel size はほぼ等しいとみなせる．

¹ 複数の画素を結合させて 1pixel (または voxel) として扱うこと．Binning 1 は 1×1 画素を結合せずそのまま扱うことである．Binning 2 は 2×2 画素，binning 3 は 3×3 画素…を結合させて扱うことである．

表 3 レンズの種類, 視野及び最大空間分解能 [61]

レンズ	視野 [mm ²]	最大空間分解能, Voxel size [μm/pixel]
L0270	0.66 × 0.66	0.33
L0540	1.3 × 1.3	0.65
L1080	2.7 × 2.7	1.3
L2160	5.3 × 5.3	2.6
L4320	10.6 × 10.6	5.2

擬似平行ビーム方式の他に nano3DX を使用する利点として, Cr, Cu, Mo といったターゲットからの特性 X 線を利用できる点が挙げられる. 表 4 にターゲットの種類及び対象試料の一覧を示す [61] [64]. 従来型の多くの X 線 CT 装置では W ターゲットが採用され, 100keV 以上の制動放射による高エネルギーの連続 X 線を用いることが多かった. nano3DX は低エネルギー X 線を使用することで, 有機物に対して良好なコントラストが得られると期待される. 本研究では Cu ターゲット (40kV, 30mA) を使用した.

表 4 ターゲットの種類及び対象試料 [61] [64]

ターゲット	電圧 [kV]	電流 [mA]	適したレンズ	対象試料	X 線の特徴
Cr	35	25	L0270	有機物 ~1mm 厚	Cr K α 線 (5.41keV) Cr K β 線 (5.95keV) 連続 X 線
Cu	40	30	L0270 L1080	有機物 ~3mm 厚	Cu K α 線 (8.05keV) Cu K β 線 (8.90keV) 連続 X 線
Mo	50	24	L1080 L2160	有機物 ~15mm 厚 軽金属 ~4mm 厚	Mo K α 線 (17.48keV) Mo K β 線 (19.61keV) 連続 X 線
W	60	20	L1080 L2160	軽金属 金属	連続 X 線 W L α 線 (8.40keV), W L β 線 (9.67keV)

画像再構成ソフトウェアは TomoShop[®]（緑野リサーチ開発）を用いた。TomoShop[®]は、FBP 法の一種のコーンビーム画像再構成アルゴリズムである TFDK (Tent FDK) 法及び CFDK (Curved FDK) 法を採用している [93]。FDK 法 [94] は、Feldkamp, Davis, Kress により報告された従来型のコーンビーム画像再構成法であるが、標準的な円軌道コーンビーム CT 装置にしか適用できないことが難点とされていた [93]。TomoShop[®]にはフォーカシング機能と呼ばれ、画像再構成による投影データ座標系と実測にける座標系のずれを推定して補正する機能がある。再構成結果は非圧縮の 16bit TIFF 形式や 8bit JPEG 形式などの断層像、voxel size などのパラメータを保存した des ファイルなどとして保存される。CT 断層像を積算表示したボリュームレンダリング (volume rendering: VR) 表示などにより可視化することもできる。

また、第 3 章以降の画像解析では、オープンソースでフリーのソフトウェア ImageJ [95] [96] [97] の上位互換である ImageJ Fiji [98] [99] の ver.2.9.0/1.53v を用いた。商用ソフトの場合はプログラムが非公開であるため処理過程がブラックボックスであるが、ImageJ Fiji はオープンソースであり、プログラムはすべて公開されている。X 線マイクロ CT 及び画像解析を法科学鑑定に実用化する際に、このような汎用性や透明性は公判においても重要である。

nano3DX のように市販の X 線 CT 装置を用いて試料の密度を得るためには、X 線を準単色光と近似できる条件を明らかにし、その条件の下で測定する必要がある。1.3.1 節の(2)式より、光学密度 $-\ln T$ が試料厚さ t に対して線形であれば、単色光の寄与が大きいとみなすことができる。そこで、次節以降では、アルミ箔を用いた投影像撮影により透過率 T を測定し、光学密度がアルミ箔の枚数、すなわち、試料厚さに対して線形性を示すかどうかについて調べ、準単色光近似が可能な条件について検討した。

2.1.2. 実験

市販のアルミ箔（厚さ $12\mu\text{m}$ ）を用いて投影像を撮影した。図 6 に X 線源側から見たアルミ箔の設置状況の模式図を示す。X 線源側（紙面手前側）から見て FOV の左半分の領域がアルミ箔、右半分の領域がブランクの部分となり、FOV が両者の境界を含むように、アルミ箔をスコッチテープで試料ホルダーに貼り付けた。アルミ箔の厚さは 1 枚から 40 枚まで変化させ、露光時間はいずれも 4 秒とした。ブランクの投影像も撮影し、アルミ箔を含む投影像の透過光強度をブランク測定時の透過光強度で規格化した。境界部近傍の $100\times 100\text{ pixel}^2$ 分について、アルミ箔とブランクの規格化透過光強度及びそれらの平均値を求め、平均値の比を透過率とした。

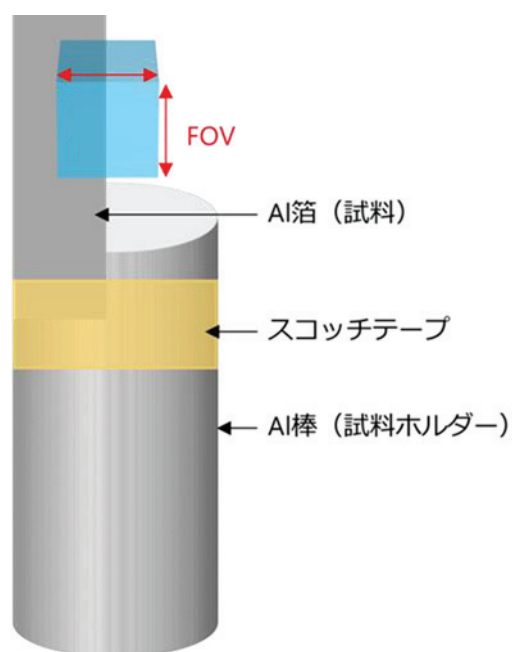
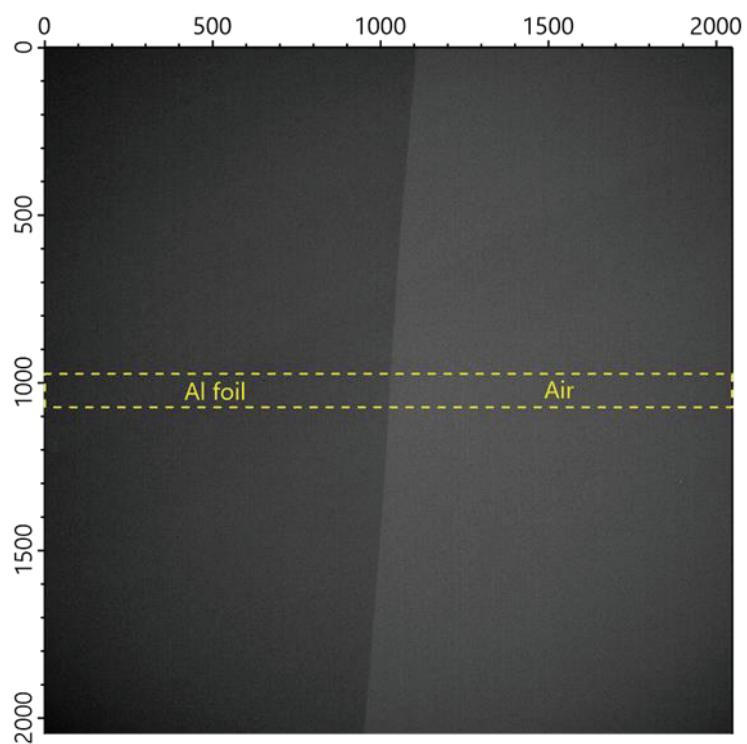


図 6 投影像撮影時のアルミ箔設置状況の模式図 (X線源側から見た状況)

2.1.3. 光学密度の試料厚さ依存測定

図 7(a)にアルミ箔 1 枚のときの投影像を, 同図(b)に同図(a)の点線部における透過光強度プロファイルをそれぞれ示す. 透過光強度は, ブランク測定 of 強度で規格化した. ブランク部分及びアルミ箔に対する透過光強度の比より, 透過率は 92.2%であった. 厚さ $12\mu\text{m}$ のアルミニウムに対する $\text{Cu } K\alpha$ 特性 X 線 (8.05keV) の透過率の計算値は 85.9%である [100] ことから, 計算値に比べて測定値の方が高いことがわかった. この原因は, X 線が完全な単色光ではなく, 最高で 40keV の連続 X 線の寄与が含まれるためと考えられる.

(a)



(b)

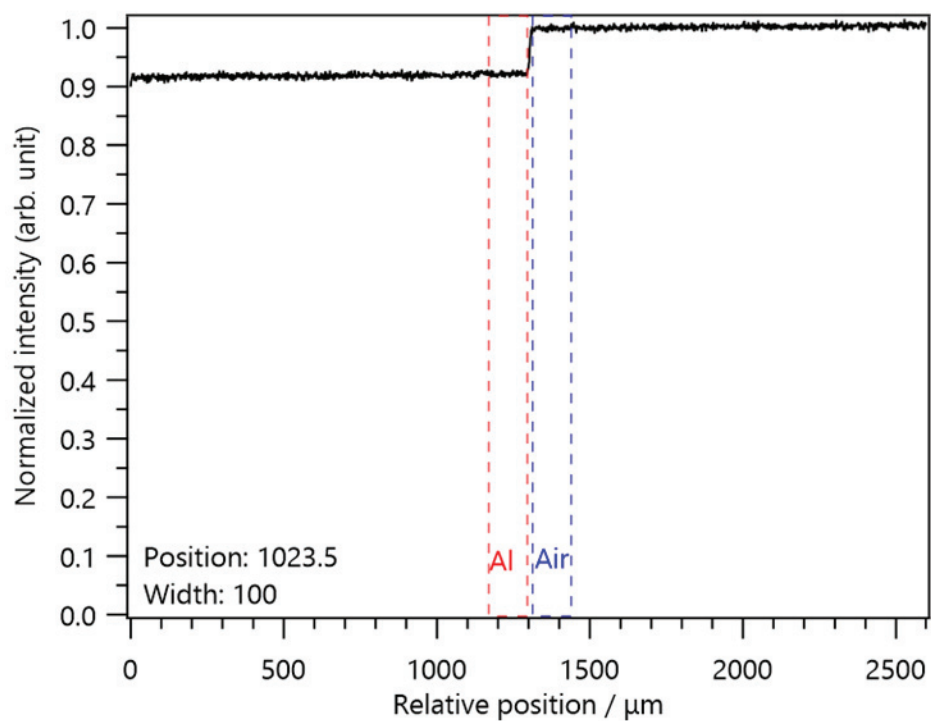


図 7(a) アルミ箔 1 枚の投影像,
(b) (a) の点線内における幅 100 画素分の平均透過光強度のプロファイル

図 8 に光学密度 $-\ln T$ とアルミ箔厚さ t の関係を示す。同図より、 t が $120\mu\text{m}$ (アルミ箔 10 枚) 以下、つまり、 T が 50%以上の範囲で光学密度は線形性を示すことがわかる。このとき、直線 (図 8 の太い実線) の相関係数(correlation coefficient) R を求めたところ、 R は 0.990、直線の傾きは 40.28 cm^{-1} であった。 T が 65%以上の範囲で R を求めたところ、 R は 0.992 まで向上した。また、Cu $K\alpha$ 特性 X 線に対するアルミニウムの透過率を計算し [100]、光学密度の直線 (図 8 の細い実線) の傾きを求めたところ、その傾きは 126.5 cm^{-1} であった。計算値に比べて測定値の傾きが小さくなったのは連続 X 線の寄与によるものと考えられる。このように、Cu $K\alpha$ 特性 X 線の完全な単色光ではないが、光学密度の線形性が成り立つため、特性 X 線の寄与が支配的であり、準単色光近似が可能と考えられる。

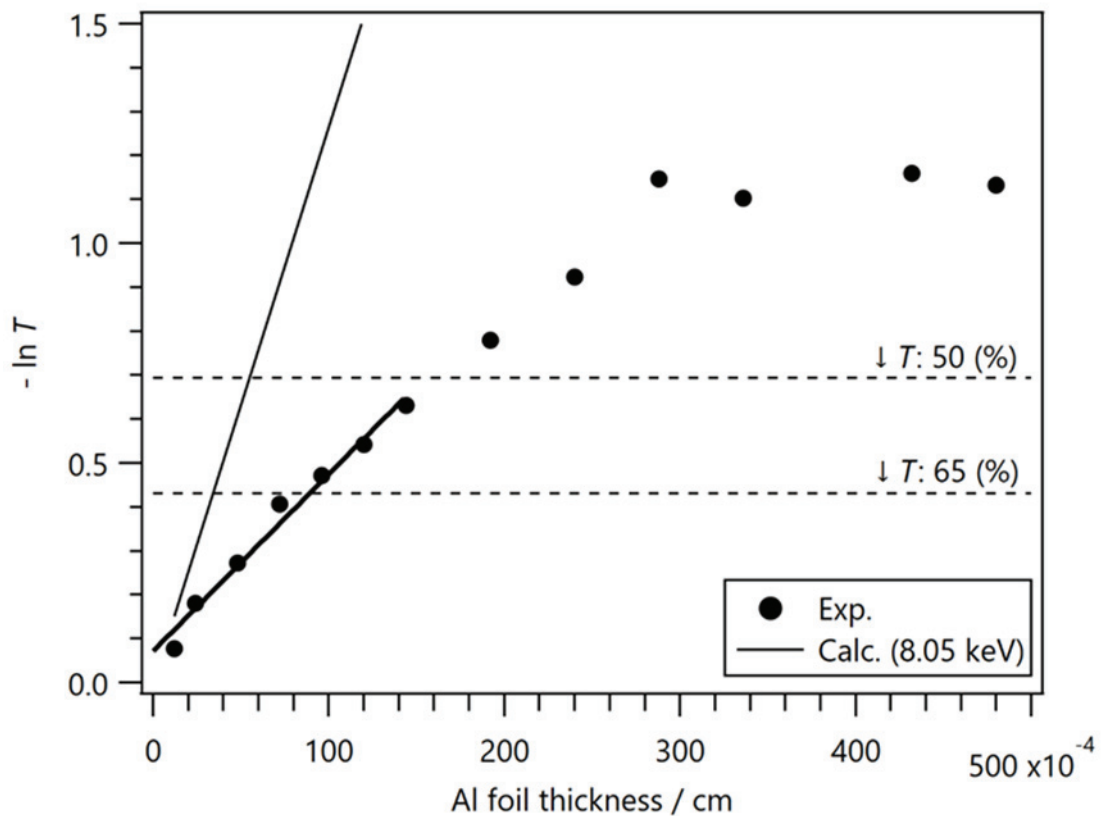


図 8 光学密度 $-\ln T$ とアルミ箔厚さ t の関係

一方で、 T が 50%を下回ると、 t の増加に対する光学密度の変化率が小さくなり、線形性が失われ、 t が $300\mu\text{m}$ 以上のとき、 t によらず光学密度はほぼ一定となった。ここで、連続 X 線の寄与について考える。測定条件から、そのエネルギーは最高で 40keV である。 40keV の単色 X 線のアルミニウムに対する線吸収

係数の計算値は 1.46cm^{-1} である [72]. 透過率を計算すると, アルミ箔 1 枚のとき 99.8%, 40 枚のとき 93.2% であることから, 連続 X 線の高エネルギー成分は試料をほぼ透過すると考えられる. よって, 試料厚さが増大すると, 低エネルギーの Cu $K\alpha$ 特性 X 線は試料で吸収され透過できず, 連続 X 線の高エネルギー成分のみが透過する, ビームハードニング(1.3 節)が発生したと考えられる. 光学密度の線形性が失われた場合, すなわち, T が 50% 以下の領域では準単色光近似が適用できない.

以上のことから, 次節以降では準単色光近似が可能な T が 50% 以上の条件下で X 線マイクロ CT 測定を行った.

2.1.4. 2.1 節のまとめ

X 線マイクロ CT による密度推定を行うため, アルミ箔を用いた投影像撮影により光学密度の試料厚さ依存性を調べた. 透過率が 50% 以上の条件下であれば, Cu $K\alpha$ 特性 X 線の影響が支配的であり, 準単色光近似が可能で, X 線マイクロ CT による密度推定が可能と考えられる.

2.2. 試料保持法の検討

単繊維はやわらかいため自立せず、また、CT測定中の試料台の回転に伴って試料が動くと再構成に支障をきたしてしまう。本研究では、単繊維を自立した状態で保持でき、取り付け及び回収が簡便で、紛失のリスクが少なく、透過率の低減やその後の検査への影響を最小限に抑えられる方法を検討した。

2.2.1. 試料保持用ホルダーの作製

nano3DX 付属の標準試料ホルダーはアルミ棒及び PEEK (polyether ether ketone) をくり抜いたチューブであった。しかしながら、PEEK チューブの肉厚は $500\mu\text{m}$ であったため、Cu $K\alpha$ 特性 X 線 (8.05keV) の透過率は約 47% であり、前節で求めた準単色光近似の条件 (透過率が 50% 以上) の下で CT 測定及び密度推定を行うことができない。本研究では、透過率を向上させるため試料ホルダーを独自に作製した。

図 9 に作製した試料保持用ホルダーの模式図を示す。アルミ棒上端部に M2 のねじ穴を切り、チューブには内径 1mm または 2mm、肉厚 $60\mu\text{m}$ 、長さ約 14mm の Kapton (ポリイミド (polyimide: PI)) チューブを用いた。Kapton チューブに対する Cu $K\alpha$ 特性 X 線の透過率の計算値は 95.2% であった [100]。アルミ棒の M2 ネジ穴に適合し、Kapton チューブを立てる土台として PEEK の部品を作製した。内径 2mm のチューブであっても外径 2.13mm であることから、L1080 レンズ (視野 $2.60\times 2.60\text{mm}^2$) を用いてチューブの中心を軸に試料台を回転させれば、試料を Kapton チューブの中に入れるだけで完浴測定が可能となった。

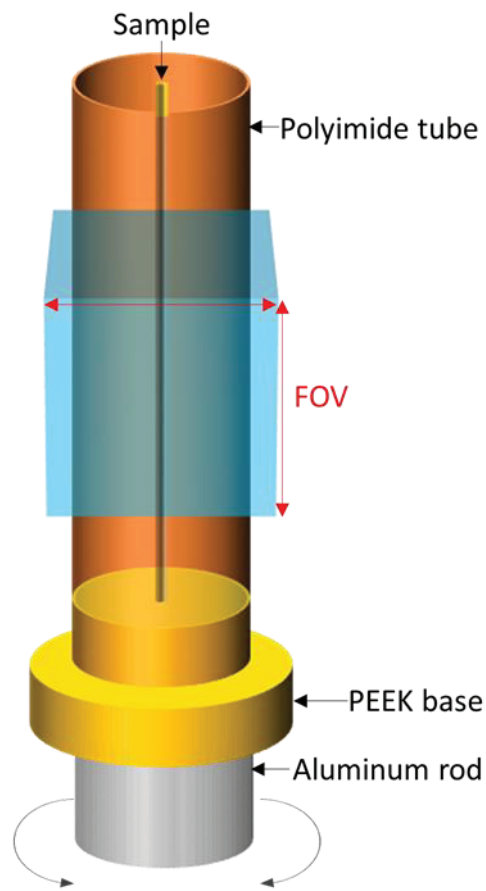


図 9 試料保持用ホルダーの模式図

2.2.2. 試料保持法の検討

1.1 節で述べたように、微物の鑑定では、再鑑定に備えて消費・破壊を最小限にするとともに、紛失のリスクを低減させる必要がある。さらに、高分解能 CT 測定を行うには、測定中に試料台が回転しても試料が動かないように保持しなければならない。密度推定を行うには透過率を下げない工夫も求められる。以上の要求に応えられるような試料保持法として 3 種類の方法を考え、実際に単繊維の X 線マイクロ CT 測定を行い、それぞれの方法を比較した。

1 つ目の方法として、薬包紙 (paraffin film, 博愛社製, 厚さ 31 μm) を使用した。図 10(a) に薬包紙を用いた試料保持の模式図を示す。幅 1mm, 長さ 14mm の短冊状に切断した薬包紙の上下両端に切り込みを入れ、切り込みに単繊維を挟んだ。

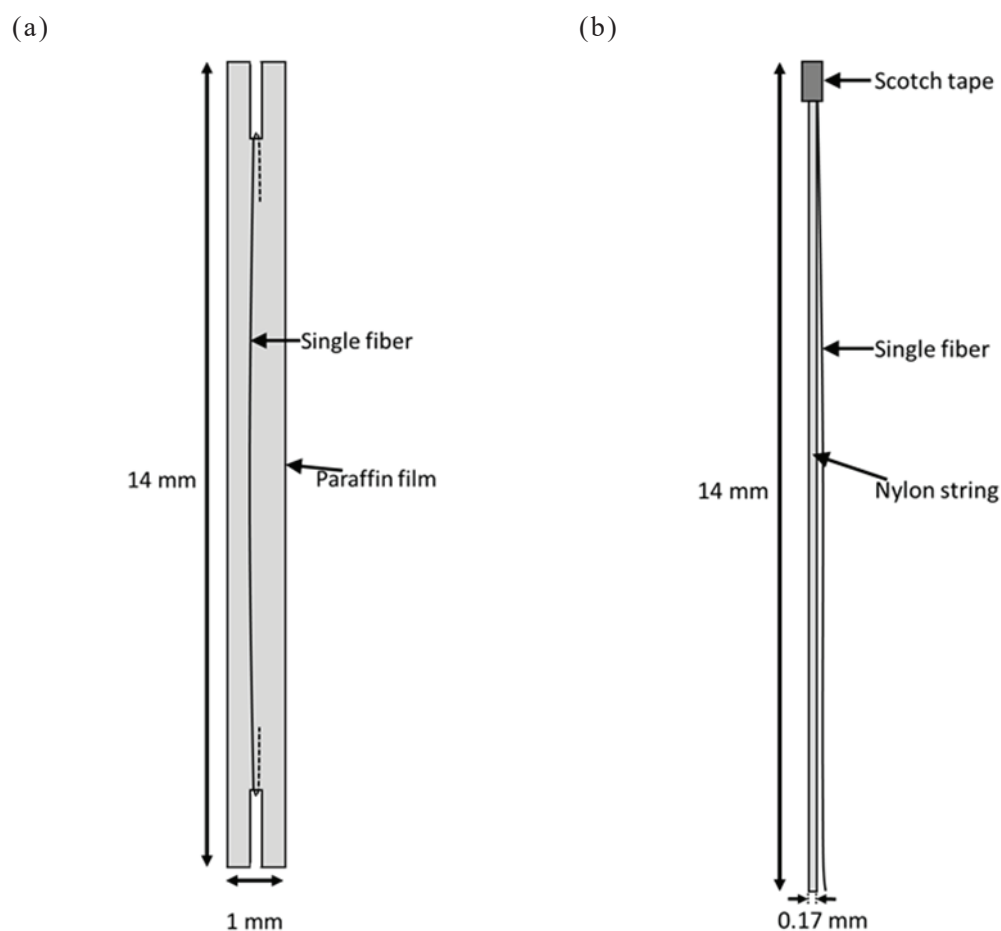


図 10 (a) 薬包紙を用いた試料保持の模式図
(b) テグスを用いた試料保持の模式図

2つ目の方法として、ナイロンテグス (nylon string, トーホー製) を使用した。テグスはナイロン6とナイロン6,6の共重合品で、サイズは1号(外径170 μm)である。図10(b)にテグスを用いた試料保持の模式図を示す。長さ14mmのテグスの一端に単繊維をスコッチテープで貼り付けた。実際の鑑定では長さが14mmもあることはまれであることと、テープを貼る領域を最小限にして回収作業を容易にするため、片持ちの状態に固定した。Cu K α 特性 X 線 (8.05keV) に対するテグスの透過率の計算値は90.6%であった [100]。

3つ目の方法として、粘着シートを使用した。1.2.2節で述べた繊維鑑定における標準的手法等に関する研究会の推薦する単繊維の採取法 [24] では、無色透明な粘着シートの利用が推薦されており、広島県警察の鑑識実務では、統一的に同種の粘着シート EX-G 強 (エクシール製) が用いられている。図11(a)に EX-G 強の構造模式図を示す。EX-G 強は、厚さ110 μm の黒色 PET (polyethylene terephthalate) 台紙に、厚さ125 μm の PET フィルムと厚さ40 μm のアクリル系糊の2層からなる無色透明粘着シートが貼り合わされた構造となっている。PET フィルムには適度な硬さがあるので、手袋をつけた状態で作業しても誤って破れてしまうリスクが低減できると考えられている。鑑識実務では、黒色 PET 台紙から無色透明粘着シートを剥がして単繊維を採取し、糊の層が汚れないように保護する。保護には、黒色 PET 台紙の代わりに、EX-G 強と同じ構造でアクリル系糊の粘着力が弱い EX-G 弱が用いられている。本研究では透過率の低減を抑えるため、糊の層の保護には厚さ6 μm のポリプロピレン (polypropylene: PP) 膜 (リガク製, Cat No. 3377P5) を用いた。図11(b)に粘着シート EX-G を用いた試料保持の模式図を示す。EX-G 及び保護のための PP 膜は、Kapton チューブに入るように幅約1mm、長さ約1cmに切断した。

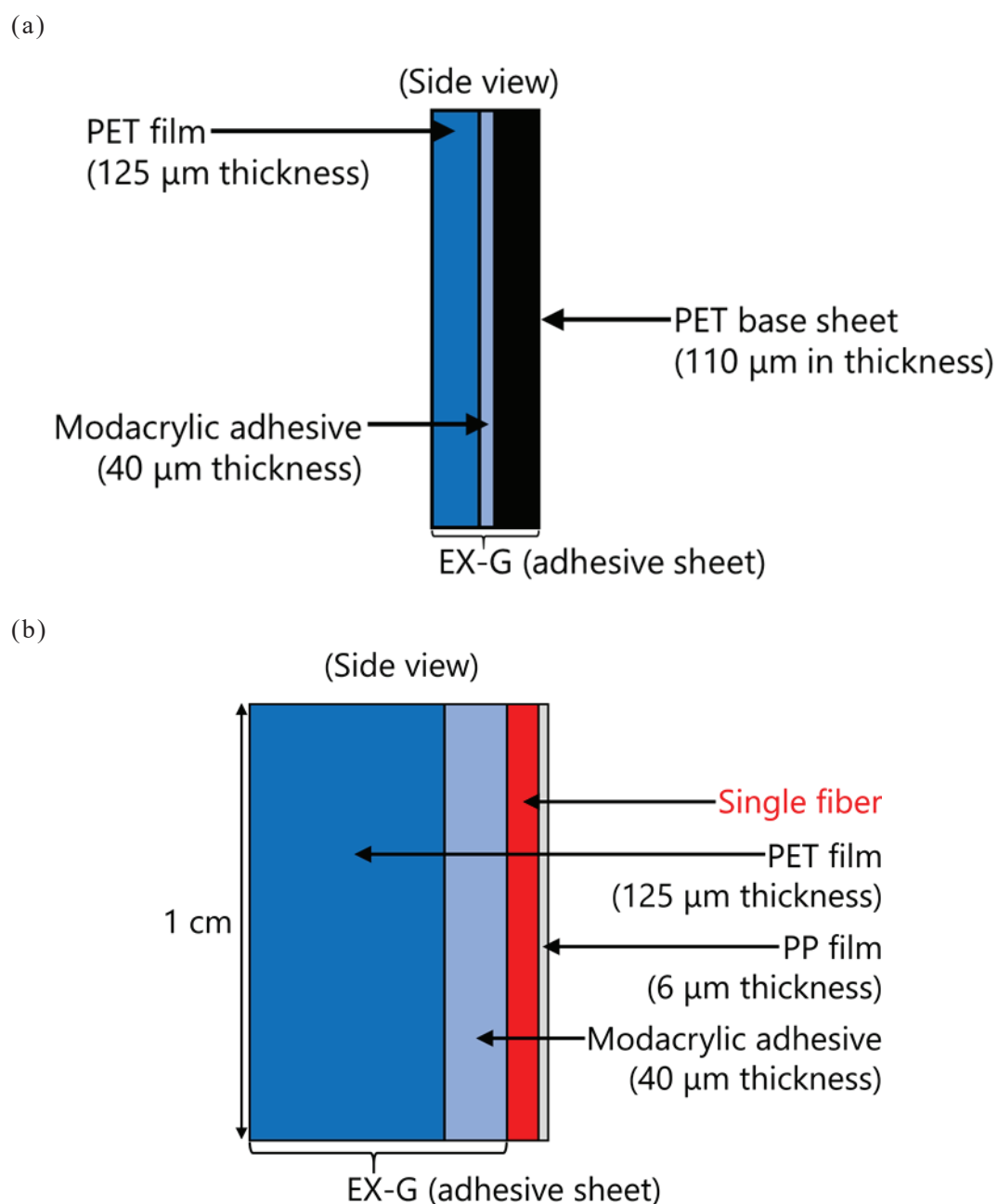


図 11 (a) 粘着シート EX-G 強の構造模式図,
 (b) 粘着シート EX-G を用いた試料保持の模式図

また、EX-G に PP 膜を貼り付け、Kapton チューブに入れて投影像を撮影したところ、透過率は 77.9% (EX-G をビームに対して平行に立てた場合) から 92.1% (EX-G をビームに対して垂直に立てた場合) の範囲内であった。Kapton チューブ内に 2 枚の EX-G を入れても、ビームに垂直に立てた場合の透過率を下回ることはないため、2.2 節で求めた準単色光近似の適用条件を満たしている。

2.2.3. 実験

nano3DX (Cu ターゲット, L1080 レンズ, ビニング 1, XD は 2mm) を用いた X 線マイクロ CT 測定を行った. 測定は continuous scan モードで試料台を 180°回転させながら, 1 投影当たり 1 秒の速度で 1000 投影を撮影した. 1 回のスキャンには約 20 分かかった. 再構成画像は 8bit の JPEG 形式で保存した.

単繊維は断面形状が異なる 2 種類のアクリル繊維 (日本エクスラン工業製) を用いた. 1 つは円形断面のもの (商用名 K8) で, もう 1 つは三角形断面のもの (商用名 F830) である. 繊維の太さを表す単位として d (デニール (denier), 長さ 9000m あたりの質量[g]) が用いられることがあり, 公称値はそれぞれ, 円形繊維が $3d$, 三角形繊維が $2.5d$ とされている. 単繊維は前節で提案した 3 種類の方法で保持し, 内径 2mm の Kapton チューブ内へ入れて, それぞれについて X 線マイクロ CT 測定を行った.

2.2.4. 単繊維の X 線マイクロ CT 測定結果

図 12(a) に葉包紙で保持して測定した単繊維を含む CT 断層像を積層し, ポリウムレンダリング (VR) 表示したものを示す. 同図 (b) に同図 (a) 中央付近高さの CT 断層像を示す. 試料準備の作業中に Kapton チューブが変形してしまったが, 完浴測定できており, 本質的な影響はない. 単繊維は葉包紙から離れているように見えるが, 上下の端のみを固定しているためと思われる. 同図 (c) 及び同図 (d) にそれぞれ円形単繊維及び三角形単繊維の拡大画像を示す. これらを比較すると, 円形と三角形の断面形状が明確に識別できることがわかった.

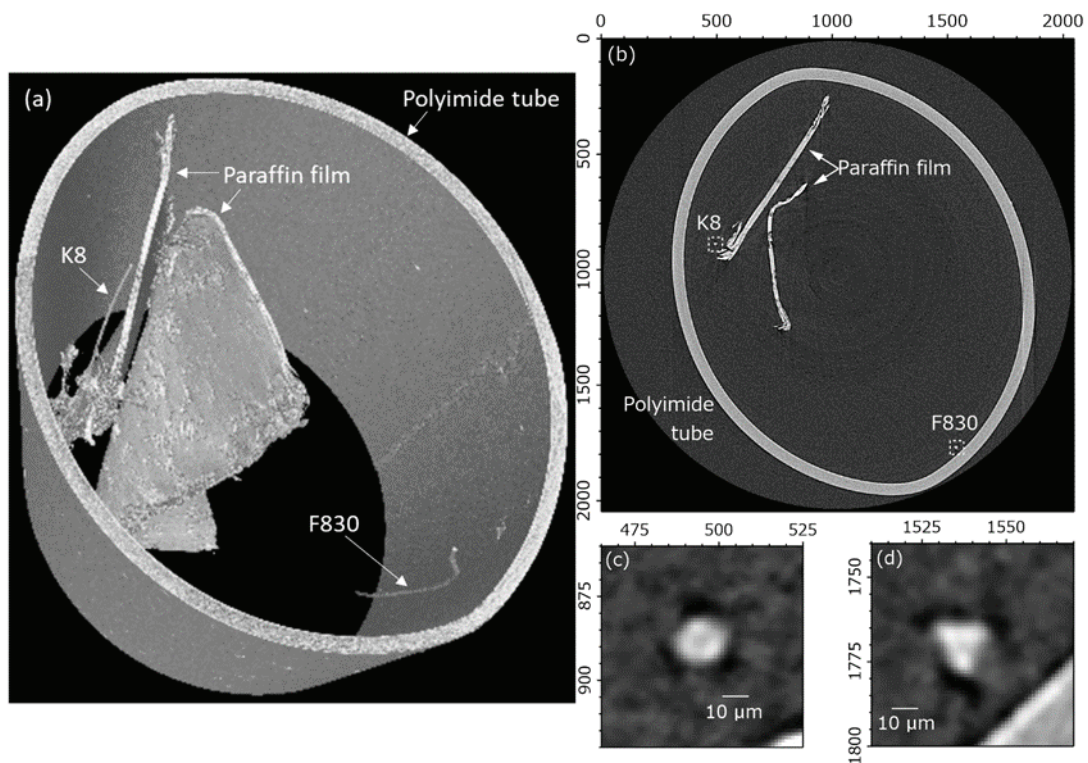


図 12 (a) 薬包紙で保持して測定した単繊維を含む CT 画像の VR 表示
 (b) (a)の中央付近高さの CT 断層像,
 (c) (b)の円形単繊維の拡大,
 (d) (b)の三角形単繊維の拡大

図 13(a)にテグスで保持して測定した単繊維を含む CT 画像を VR 表示したものを示す. 同図(b)に同図(a)中央付近高さの CT 断層像を示す. 単繊維はテグスから離れているように見えるが, 繊維の一端のみを固定しているためと思われる. 同図(c)及び同図(d)にそれぞれ円形単繊維及び三角形単繊維の拡大画像を示す. これらを比較すると, テグスで保持した場合についても円形と三角形の断面形状が明確に識別できることがわかった. また, 再構成ソフトウェア Tomoshop[®]の計測ツールを用いて単繊維を計測したところ, 円形単繊維の直径は約 $19.5\mu\text{m}$, 三角形単繊維の 1 辺の長さは約 $22.1\mu\text{m}$ であった. 断面積を計算すると, 円形単繊維は約 $299\mu\text{m}^2$, 三角形単繊維は約 $211\mu\text{m}^2$ であった. アクリル繊維はポリアクリロニトリルを 85%以上含む繊維と定義されているが, その他の成分は公開されていないため, ポリアクリロニトリル 100%と仮定し, 密度参照値 $1.184\text{g}/\text{cm}^3$ [101] を用いて 9000m あたりの質量 (デニール) を計算したところ, 円形単繊維は約 3.2d, 三角形単繊維は約 2.3d であり, 太さの公称値と概ね対応することが確認された.

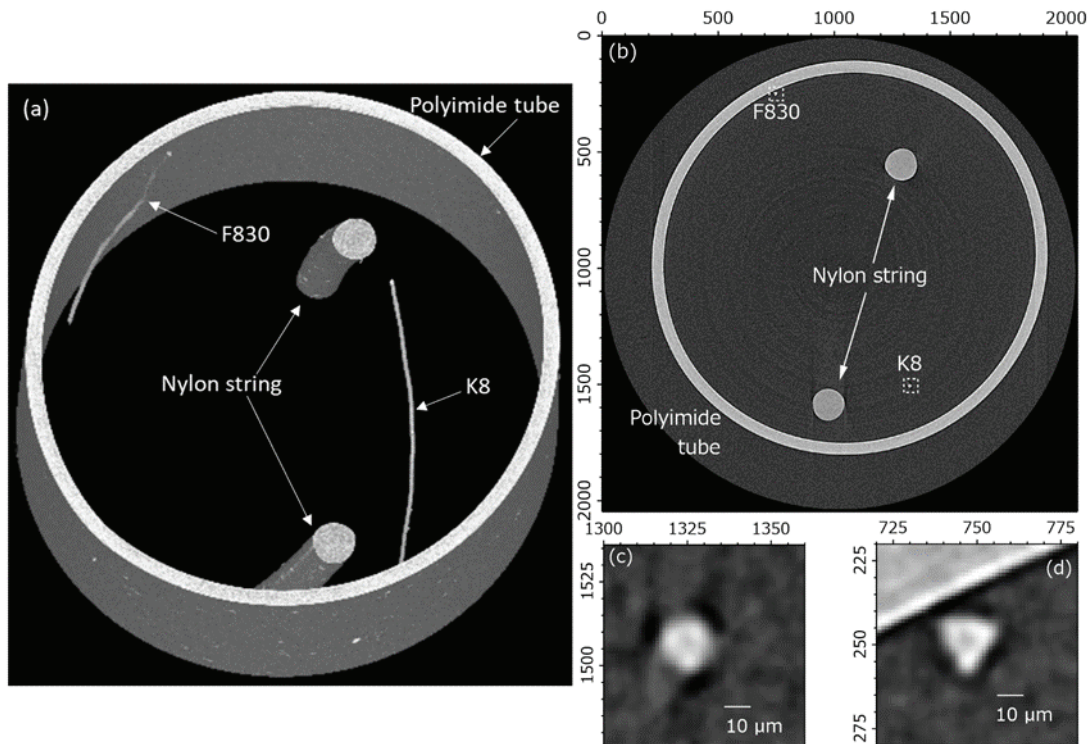


図 13 (a) テグスで保持して測定した単繊維を含む CT 画像の VR 表示
 (b) (a)の中央付近高さの CT 断層像,
 (c) (b)の円形単繊維の拡大,
 (d) (b)の三角形単繊維の拡大

図 14(a)に粘着シートで保持して測定した単繊維を含む CT 画像を VR 表示したものを示す。同図(b)に同図(a)中央付近高さの CT 断層像を示す。同図(c)及び同図(d)にそれぞれ円形単繊維及び三角形単繊維の拡大画像を示す。円形単繊維は EX-G 強及び PP 膜とほぼ密着された状態であり、円形であることは明確に判断できなかった。同図(e)に円形単繊維周辺を拡大した VR 表示画像を示す。同図より、単繊維が粘着シートに採取されていることは確認できた。これらのことから、測定前に断面が潰れた可能性がある。単繊維を密着させ過ぎない程度の力で採取することは、単繊維の断面形状を潰さないようにする点でも重要であり、単繊維の一部が EX-G 強のアクリル系糊に貼り付いていれば落下や紛失の危険性は少ないと考えられる。円形単繊維の断面形状は採取方法の改善で確認できる可能性がある。

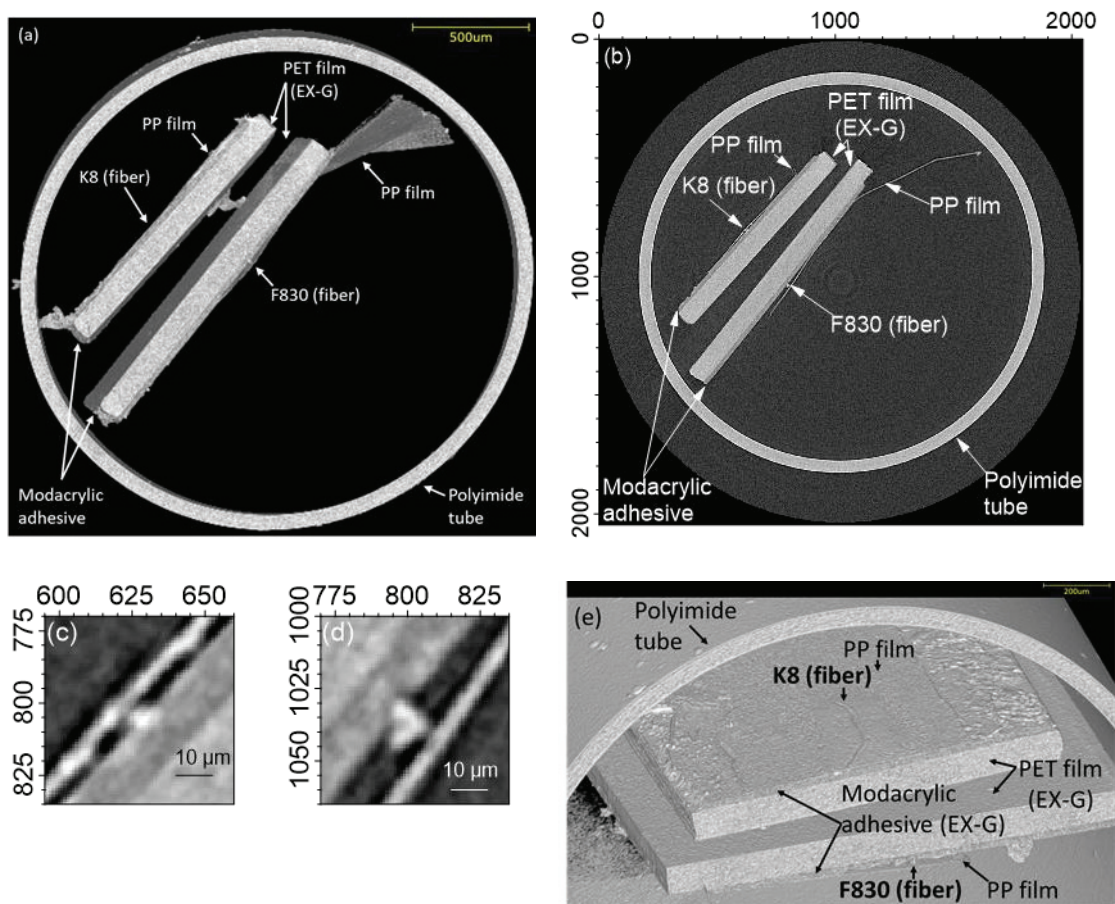


図 14 (a) 粘着シートで保持して測定した単繊維を含む CT 画像の VR 表示，
 (b) (a)の中央付近高さの CT 断層像，
 (c) (b)の円形単繊維の拡大，
 (d) (b)の三角形単繊維の拡大
 (e) (a)の VR 表示による (c)の円形単繊維付近の拡大

以上の結果から，試料保持法の違いによらず，太さ $20\mu\text{m}$ 程度の単繊維を μm スケールの空間分解能で CT 測定可能なことがわかった．断面が潰れないよう採取されていれば，断面形状の違いを識別できることも確認された．

2.2.5. 試料保持法の比較検討

前節では，3種類の試料保持法すべての場合について，単繊維を非破壊で CT 測定できることが明らかになった．また，測定中に単繊維が動くこともなく適切に保持され，準単色光近似が可能な透過率の条件も満たされていることが確認された．以上の点について，各方法に優劣はないと言える．本節では各方法の難易度と回収の確実性について法科学鑑定実務への応用の観点から比較検討

を行う。表 5 に各手法の比較結果を整理して示す。

表 5 試料保持法の作業難易度と回収の確実性に関する比較

方法	作業難易度	回収の確実性
薬包紙	難（要練習）	少しの風で紛失の恐れあり
テグス	薬包紙に比べて易	スコッチテープから剥がす際に試料を破壊する恐れあり
粘着シート	（鑑定人は特別な操作不要）	直接手を加えないため紛失リスクが小さい

薬包紙を用いた方法は何度か練習が必要で、単繊維に上下両端の切り込みで折り返し可能な長さが必要とされる。単繊維は薬包紙に貼り付けられていないため汚れないのは長所であるが、固定時・回収時ともに少しの風で容易に紛失してしまう恐れがある。

テグスを用いた方法は薬包紙を用いる場合に比べて容易に取り組めるが、スコッチテープの糊が単繊維に付着する。CT 測定は糊の付いていない領域で実施できるが、形態観察が鑑定の序盤に行われる検査であることを踏まえると、後の検査に影響する可能性はあると思われる。また、回収時にはテープから単繊維を剥がす必要があるため、破壊しないよう注意する必要がある。

粘着シートを用いた方法は、鑑識実務で実際に行われる手順のうち、保護層を EX-G 弱から PP 膜に変更しただけである。鑑定では、単繊維は粘着シートと保護層に挟まれたままの状態で行われるため、この手法を用いれば鑑定人は単繊維に直接手を加える必要がない。粘着シートの糊は現行の鑑定作業でも単繊維に付着しているため、新たな影響として加わるわけではない。ただし、鑑識の試料採取時には粘着シートと保護層を単繊維に押し付けて密着させ過ぎないようにし、断面形状を潰さないよう注意する必要がある。

以上の検討結果から、次章以降では粘着シートを用いた方法で単繊維を保持し、X 線マイクロ CT 測定を行うこととした。

2.2.6. 2.2 節のまとめ

単繊維を自立した状態で保持するための試料保持用ホルダーを作製したことで、試料を Kapton チューブの中に入れるだけで完浴状態での X 線マイクロ CT 測定が可能となった。また、単繊維の保持法を 3 種類提案し、比較した。太さ 20 μ m 程度の単繊維を用いた X 線マイクロ CT 測定を行い、保持法の違いによらず、断面形状の違いを識別できることがわかった。次章以降では、実務での運用方法に最も近い粘着シートを用いた保持法で X 線マイクロ CT 測定を行う。

2.3. 第 2 章のまとめ

本研究で使用した X 線マイクロ CT 装置 nano3DX の特徴について述べた。nano3DX は擬似平行ビーム方式を採用していることで、最高数百 nm オーダーの高分解能測定が可能である。また、ターゲットからの特性 X 線の寄与が大きいことや、低エネルギー X 線が有機物の測定に適している点も挙げられる。

X 線マイクロ CT による密度推定を行うため、透過率を測定し、光学密度の試料厚さ依存性を調べ、準単色光近似が可能な条件を求めた。透過率が 50%以上の条件下であれば、Cu $K\alpha$ 特性 X 線の影響が支配的であり、準単色光近似が可能で、X 線マイクロ CT による密度推定が可能と考えられる。

単繊維の CT 測定を行うための試料保持用ホルダーを作製し、保持法について検討した。広島県警察の鑑識実務で使用されている粘着シートに採取された状態の単繊維をそのまま Kapton チューブホルダー内に入れるだけで、完浴状態での CT 測定ができた。また、単繊維の断面形状の違いを μm スケールで測定し、識別することができた。

本章で述べた準単色光近似が可能な条件及び試料保持法をもとに、次章以降の研究を実施する。

第 3 章 中空単繊維の形態観察

3.1. はじめに

合成繊維の断面形状は、主に試料を破壊して断面を作製して観察されてきた [34] [35] [36] [37]. 鈴木ら [36] は、伸ばした繊維をスライドガラスに貼り付け、マイクロームで切断し、作製された断面を蛍光顕微鏡で観察した。中空の構造についても断面を観察できているが、試料の破壊や失敗のリスクが懸念される。非破壊な手法として共焦点レーザー顕微鏡 (CLSM) を用いた報告もある [38] [39]. CLSM は、特別な前処理を必要とせず、断面形状を非破壊かつ高分解能で観察できる手法であるが、その測定対象が透明な試料に限られてしまうという難点がある。

2.2 節では、太さ $20\mu\text{m}$ 程度で断面形状の異なるアクリル単繊維の X 線マイクロ CT 測定を行い、画像再構成ソフトウェアの簡易計測モードで直径や辺の長さを計測した [102]. X 線マイクロ CT 法は対象とする試料が透明か否かに制約がないため、CLSM より適用範囲が幅広い手法である。また、計測精度について詳細な検討が必要である。

異形断面の繊維の中には、中空加工して内部に空気層を持たせることで保湿性を向上させるなどの機能性繊維として製造されたものがある [32] [33]. 本章では、材質がアクリル以外の中空単繊維を用いて X 線マイクロ CT 測定を行った。断面形状の非破壊観察を行うとともに、オープンソースソフトウェアを用いた 2 値化処理と認識によって開口率及び体積を抽出し、抽出量の精度及び偏りについて考察した。得られた体積と密度参照値を用いて、マイクロ電子天秤では秤量が困難な単繊維片の質量を推定した。

3.2. 実験

nano3DX (Cu ターゲット, L1080 レンズ, ビニング 1, XD は 2mm) を用いた X 線マイクロ CT 測定では、continuous scan モードで試料台を 180° 回転させながら、1 投影当たり 4 秒の速度で 1000 投影を撮影した。1 回のスキャンには約 83 分かかった。再構成画像は 16bit で非圧縮の TIFF 形式で保存した。画像解析には ImageJ Fiji [98] [99] を用いた。画像解析の詳細な手順については付録 A で述べる [103].

中空単繊維は Microtrace Forensic Fiber Reference Collection (アメリカ合衆国 Microtrace LLC) [104] に含まれる繊維標準試料 200 種類のうち、ナイロン (ポリアミド, PA) 繊維 3 種類及びポリエステル繊維 1 種類の計 4 種類を選択した。単繊維の詳細を表 6 に示す。また、ナイロン繊維 3 種類について、共焦点レーザー顕微鏡 (CLSM) OPTELCIS H1200A (Lasertec Corp. 製) を用いて撮影された画像を図 15 に示す。同図は CLSM による観察結果であるが、試料を破壊して断面を作製し、白色光で観察されたものである。単繊維をシアノアクリレート (cyanoacrylate) 樹脂に包埋し、カミソリで切断することにより、断面が作製されている。単繊維は粘着シートを用いた方法で保持し、内径 1mm の Kapton チューブ内に入れて完浴状態で測定された。

表 6 本章で用いた中空単繊維試料 [104]

試料番号	材質	製造会社	製造国	商用名	主成分	断面形状
#81	ナイロン	Allied Signal Fibers	USA	1220MBX	PA-6	三葉型 3 つ穴
#88	ナイロン	BASF	USA	H110S	PA-6	五角形 6 つ穴
#91	ナイロン	Du Pont	USA	496A	PA-6,6	四角形 4 つ穴
#140	ポリエステル	Du Pont	USA	Hollofil II®	PET	中空

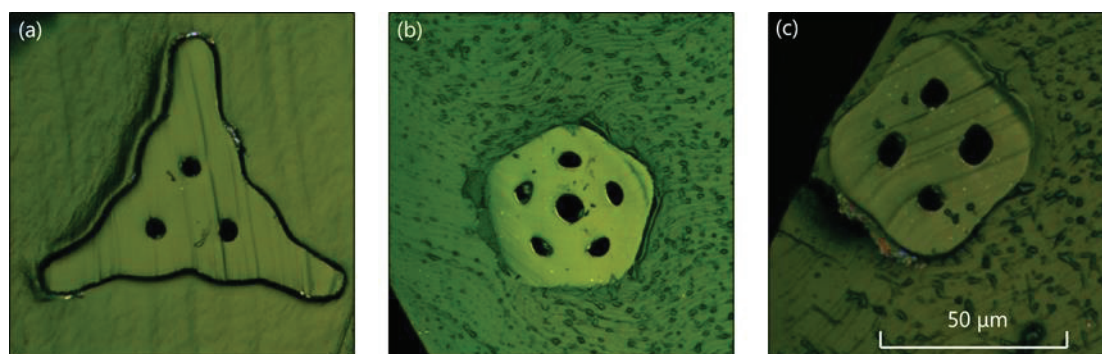


図 15 中空ナイロン繊維の断面を作製し CLSM (白色光) で撮影した画像¹

¹元奈良県警察本部刑事部科学捜査研究所長，元高輝度光科学研究センター (JASRI, SPring-8) の本多定男様より提供

3.3. 中空単繊維の CT 画像

図 16(a)に, 五角形の中空単繊維 (#88) を保持して測定した CT 断層像の一例を示す. 同図(b)は単繊維の拡大図である. EX-G 強の粘着力では単繊維, アクリル系糊, PP 膜が完全には密着しなかったものと思われ, 繊維の周囲に空気の間隙が認められた.

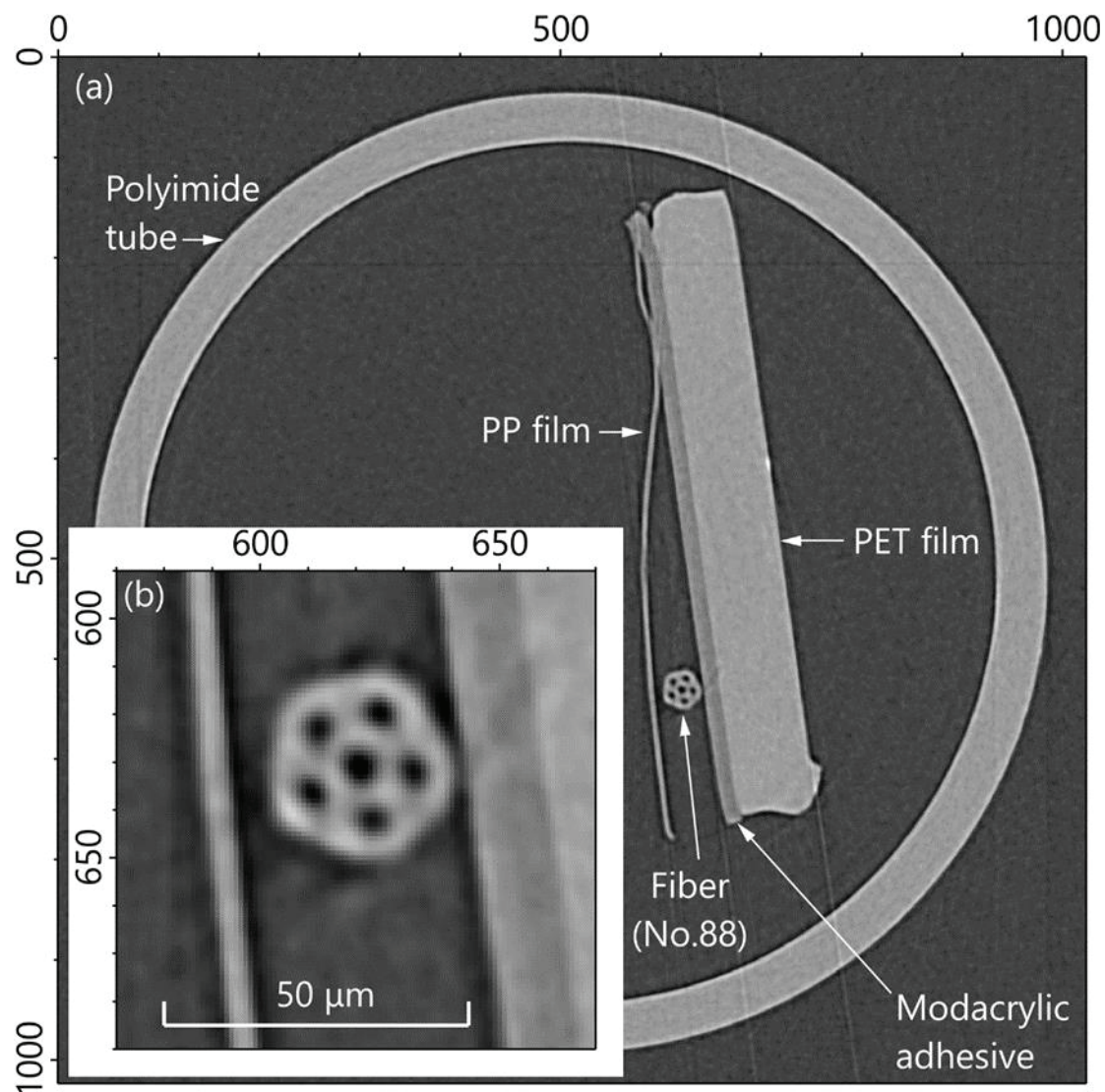


図 16 (a) 五角形の中空単繊維 (#88) を保持して測定した CT 断層像の一例
(b) (a)の単繊維の拡大図

図 16 と同様に測定して得られた各単繊維の CT 断層像について、単繊維を拡大したものを図 17 に示す。表 6 及び図 15 の断面を、X 線マイクロ CT 測定により非破壊で簡便に得ることができ、形状の違いを明確に識別できた。また、アクリル繊維だけでなくナイロン繊維やポリエステル繊維も測定できたことから、X 線マイクロ CT が幅広い試料を対象にできることも確認された。

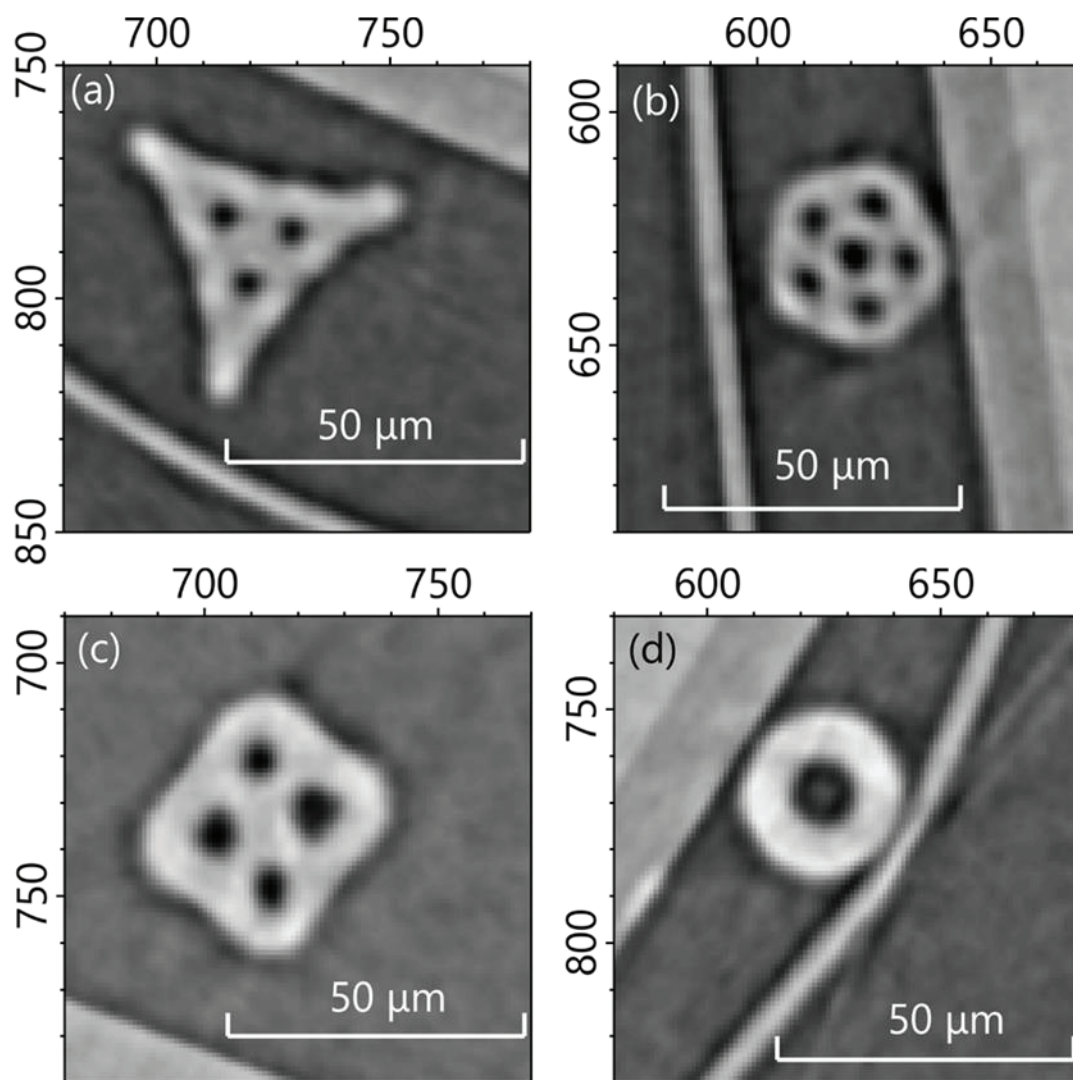


図 17 CT 断層像（中空単繊維の拡大）(a) 三葉型の中空単繊維 (#81),
 (b) 五角形の中空単繊維 (#88),
 (c) 四角形の中空単繊維 (#91),
 (d) 中空単繊維 (#140)

3.4. 中空単繊維の開口率及び体積の抽出

図 16(b)で示した五角形の中空単繊維 (#88) について、付録 B の手順で 2 値化処理し、認識したものを図 17(a)に示す。また、画像の白黒を反転させ、認識する面積範囲を絞り込むことにより、6 つの空気層 (穴) を認識した画像を図 17(b)に示す。ここで、単繊維の部分の面積を A 、空気層の面積の和を B とおき、以下では断面積を $(A+B)$ [μm^2]、開口率を $B/(A+B)$ (%), 長さ 1cm 分の体積を A [$10^4\mu\text{m}^3/1\text{cm}$]でそれぞれ定義する。4 種類の中空単繊維について、100 スライス分の画像から断面積、開口率、長さ 1cm 分の体積の平均値、標準偏差、相対標準偏差 (coefficient of variation: CV) 求め、整理したものを表 7 に示す。同表より、3%以内の CV で中空単繊維の断面積、開口率、体積を抽出できることがわかった。CV に違いが生じた原因として、単繊維がまっすぐ伸ばした状態で垂直に立てて保持されているわけではなく、傾きがあることが考えられる。傾きを θ とすると、水平断面の断面積は $\cos\theta$ 倍される。 $\cos\theta = 1$ のように近似できる θ はおよそ 5° 以内である ($\cos 5^\circ = 0.9962$, $\cos 6^\circ = 0.9945$) ため、単繊維が傾いた状態で保持されていれば CV は大きくなると思われる。

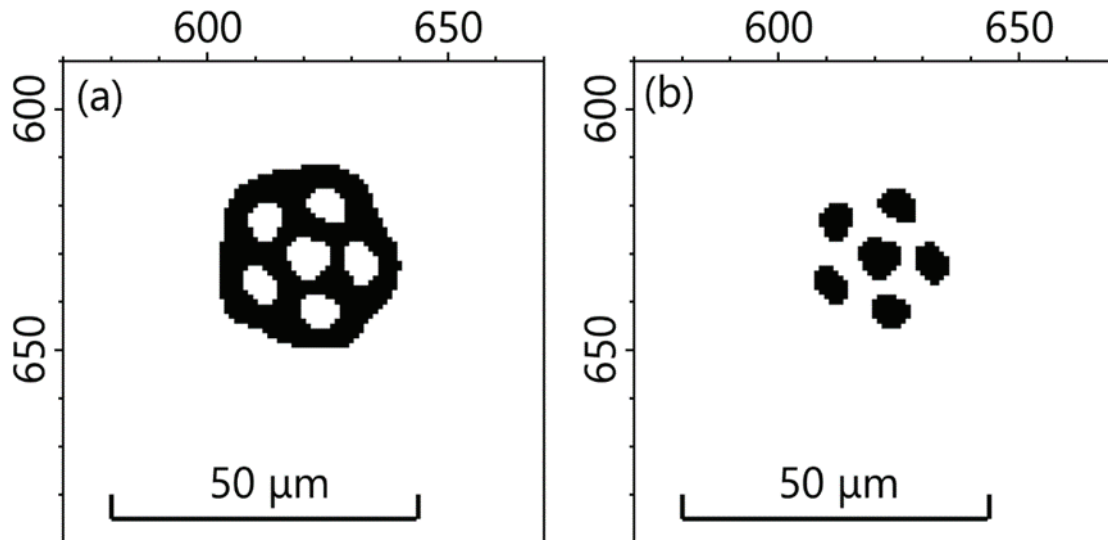


図 18 (a) 図 16(b)の五角形の中空単繊維 (#88) を認識・抽出した画像
(b) 図 16(b)のうち五角形の中空単繊維 (#88) の空気層を認識・抽出した画像

表 7 100 枚の断層像から求めた中空単繊維の断面積，開口率，体積の平均値及び標準偏差. ()内に CV を示す.

試料番号	断面積 ($A+B$) [μm^2]	開口率 $B/(A+B)$ (%)	長さ 1cm 分の体積 A [$10^4\mu\text{m}^3/1\text{cm}$]
#81	1987 ± 12 (0.6%)	11.0 ± 0.3 (3%)	1768 ± 13 (0.7%)
#88	1827 ± 9 (0.5%)	24.0 ± 0.4 (2%)	1388 ± 10 (0.7%)
#91	3537 ± 78 (2%)	17.3 ± 0.2 (1%)	2924 ± 65 (2%)
#140	1561 ± 13 (0.8%)	18.2 ± 0.3 (1%)	1276 ± 11 (0.9%)

3.5. CT 画像から抽出した面積の精度及び偏りに関する考察

3.5.1. 抽出面積に関する考察

本節では、内径及び肉厚が既知である Kapton チューブの断面積について、CT 画像から抽出された断面積と計算値を比較する。図 19(a)は、図 16(a)を 2 値化処理して Kapton チューブ及びその内部を抽出した画像である。図 19(b)は、図 16(a)の Kapton チューブ部分を抽出した画像である。図 19(c)は、図 16(a)の Kapton チューブ内部を抽出した画像である。

まず、内径 1mm、肉厚 60 μm を用いてそれぞれの面積を計算すると、以下のようになる。

$$\text{図 19(a)} : \left(\frac{1000}{2} + 60\right)^2 \pi = 9.85 \times 10^5 [\mu\text{m}^2]$$

$$\text{図 19(b)} : \left(\frac{1000}{2} + 60\right)^2 \pi - \left(\frac{1000}{2}\right)^2 \pi = 2.00 \times 10^5 [\mu\text{m}^2]$$

$$\text{図 19(c)} : \left(\frac{1000}{2}\right)^2 \pi = 7.85 \times 10^5 [\mu\text{m}^2]$$

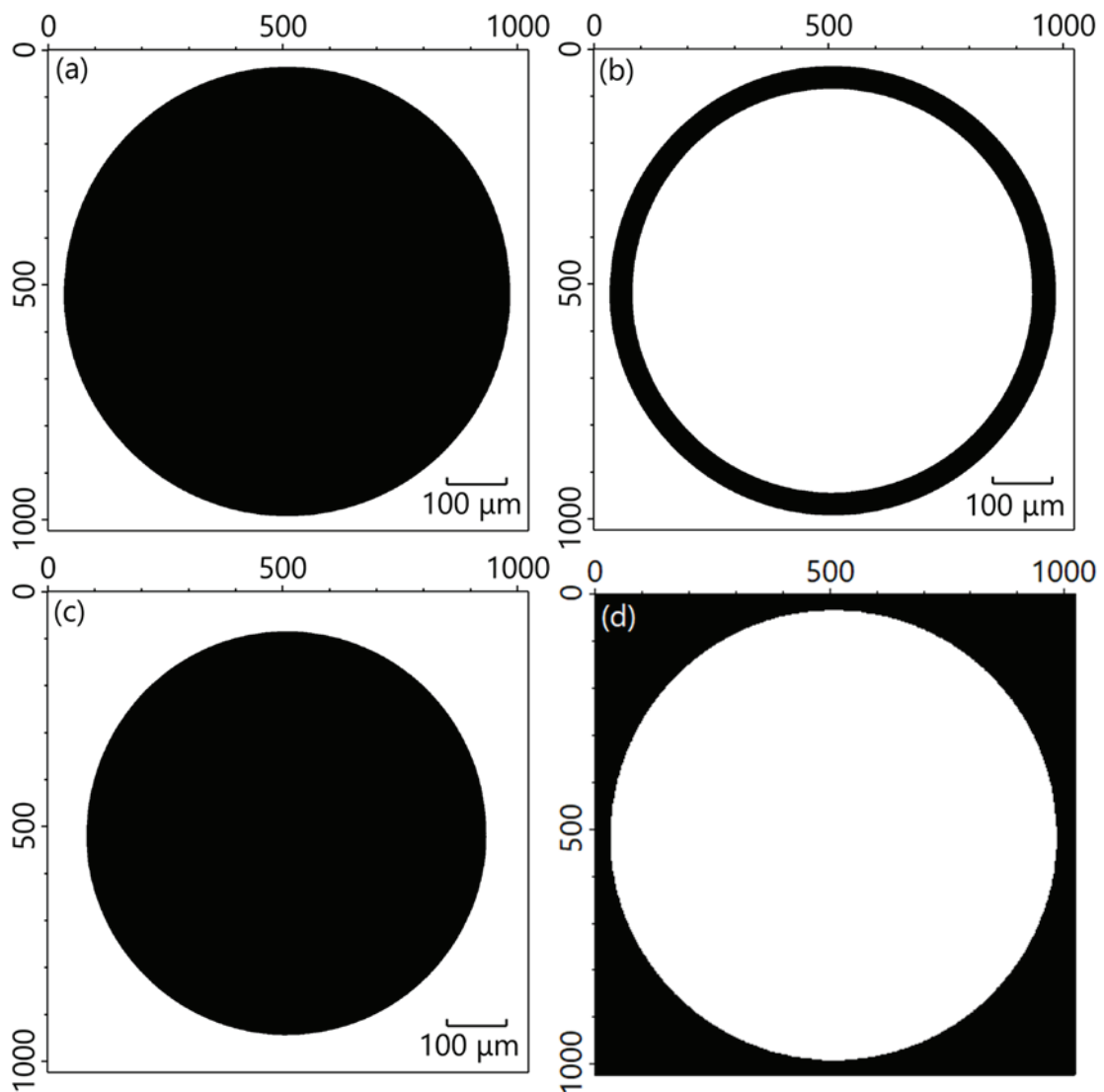


図 19 (a) 図 16(a)を 2 値化処理して Kapton チューブ及びその内部を抽出した画像

(b) 図 16(a)の Kapton チューブ部分を抽出した画像

(c) 図 16(a)の Kapton チューブ内部を抽出した画像

(d) 図 16(a)を白黒反転した画像

次に、CT断層像 100 スライス分の断面積、標準偏差、CVを求めた。計算及び測定の結果を表 8 にまとめて示す。図 15(a)の面積と外周部の面積の和がほぼ $1024^2 (=1048576)$ になることから、適切に 2 値化処理されていることが確認された。また、測定結果の CV は 0.01~0.05%であり、高精度で測定されることがわかった。3.4 節の単繊維の場合とは異なり、Kapton チューブはほとんど傾いていないため、CVを低減できたと考えられる。一方で、計算値に対する測定平均値の比は 1.13 から 1.18 であり、偏りが生じている（面積を多く抽出している）ことがわかった。図 20 に、図 16(a)の断層像における光学密度のヒストグラムを示す。左側のピークが空気、右側のピークが Kapton チューブ等のポリマーに対応する。2 値化処理の閾値を光学密度 8870、すなわち空気のピークの上限側に設定していることから、Kapton チューブと周囲の空気との境界部分はすべて Kapton 側で 1pixel 分としてカウントされ、Kapton の面積を多く、周囲の空気の面積を少なく抽出した可能性がある。逆に閾値をポリマーのピークの下限側に設定する、つまり、閾値を下げると Kapton の面積が過小評価される可能性が考えられる。中空繊維の空気層のように面積が数十 μm^2 程度の場合は、単繊維と空気の境界部、すなわち、閾値の設定による影響がさらに大きくなり、3.4 節で抽出した値の偏りを較正する必要が生じると考えられる。また、本章では材質が均一な繊維を測定したが、繊維と空気層を区別できるように閾値を設定すればよいため、本手法は複数成分の繊維にも適用可能と考えられる。

表 8 CT断層像 100 スライス分から抽出した平均断面積、標準偏差、CV。計算による面積と、計算面積に対する抽出面積の比も示す。

	画素数	抽出面積 [$10^5\mu\text{m}^2$]	計算面積 [$10^5\mu\text{m}^2$]	比 (抽出/計算)
チューブ 及び内部 Fig.19(a)	714779 ± 81	11.529 ± 0.001 (CV: 0.01%)	9.85	1.17
チューブ Fig.19(b)	140026 ± 60	2.258 ± 0.001 (CV: 0.05%)	2.00	1.13
チューブの 内部 Fig.19(c)	574752 ± 96	9.270 ± 0.001 (CV: 0.02%)	7.85	1.18
チューブの 外側 Fig.19(d)	333798 ± 82	5.383 ± 0.001 (CV: 0.02%)	—	—

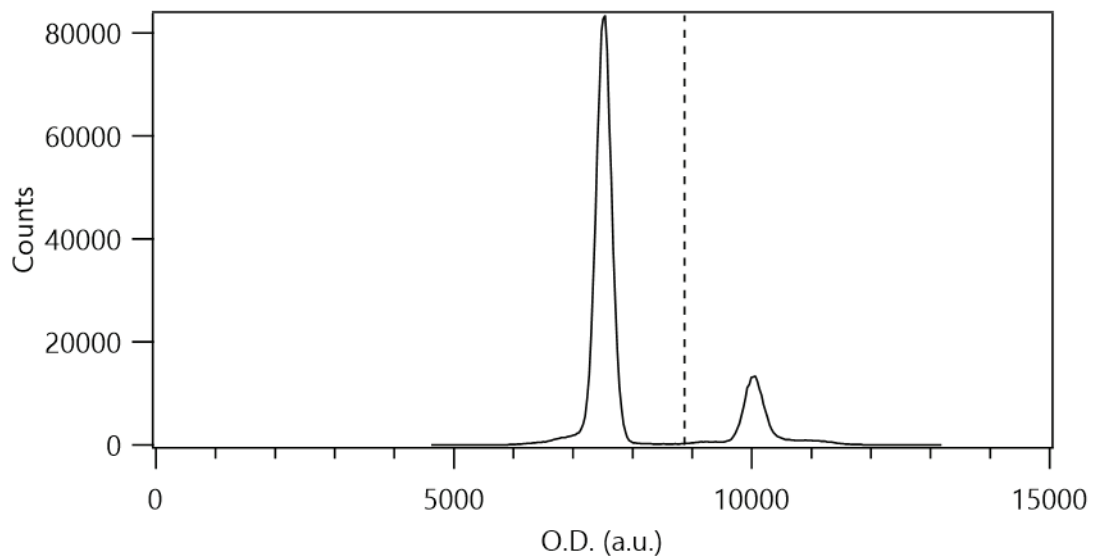


図 20 図 16(a)における光学密度 (O.D.) のヒストグラム

3.5.2. 抽出スライス数に関する統計的考察

3.4 節及び前節では 100 スライス分の計測面積から開口率及び体積の平均値及び標準偏差を求めた．本節ではスライス数 N が開口率及び体積の CV に及ぼす影響について検討した．

図 21 に五角形の中空単繊維 (#88) から抽出した CV と N の関係を示す．グレー菱形のプロットが開口率の CV，黒色菱形のプロットが空気層の面積 B の CV，黒丸のプロットが単繊維部分の面積 A の CV にそれぞれ対応する．同図より，CV は N が 20 枚程度になるまで増加し，さらに N を増やしても CV の変化は緩やかで大きく改善しないこと，また，CV は N によらず 2% 以内に収まっていることがわかる．これらのことから， N は 100 枚でなく半分の 50 枚でも統計的に十分と思われる．また， N が 20 枚以下のとき， N に対して CV が増加したのは， N が統計的に不足しており，断層像 1 枚ごとの計測面積のばらつきが CV に反映されたためと思われる．さらに， N に対する開口率の CV は空気層の面積の CV と類似した傾向を示した．各空気層の面積は $30 \sim 70 \text{ pixel}^2 (38 \sim 89 \mu\text{m}^2)$ 程度であり，そのうち半分程度の画素が境界部にある．2 値化の閾値設定により，境界部の画素を空気とみなすか繊維とみなすかの違いが CV に影響するものと思われる．

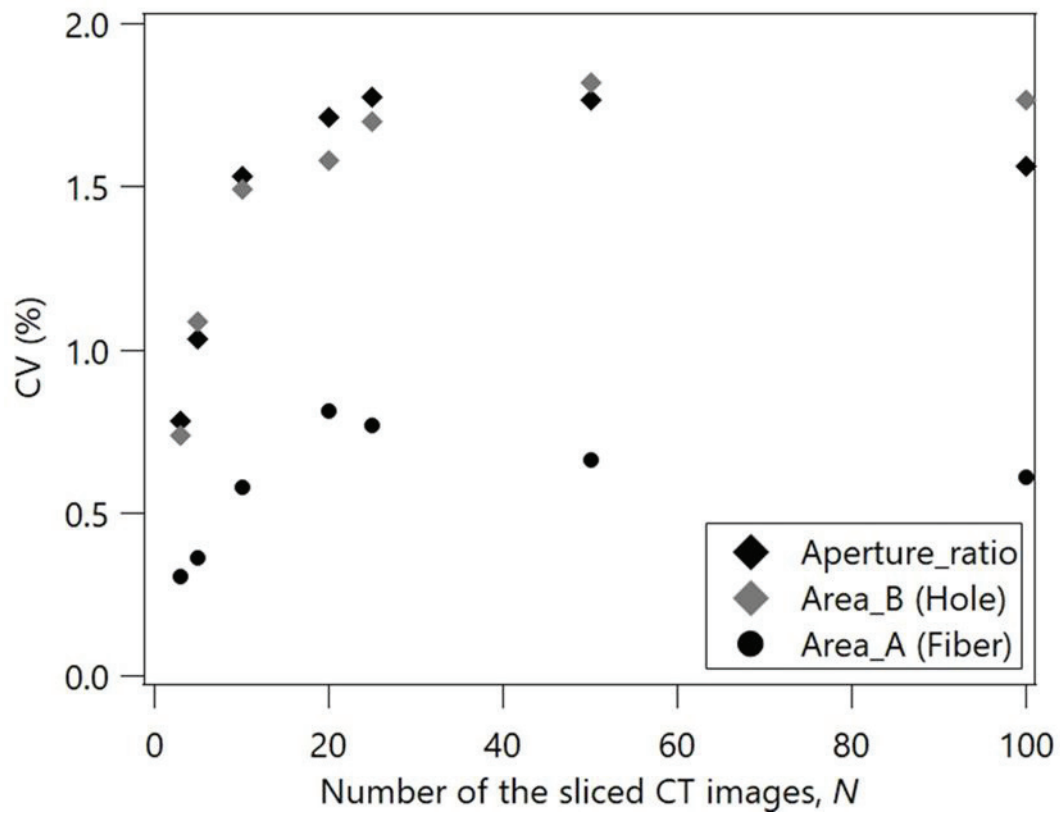


図 21 五角形の中空単繊維 (#88) から抽出した開口率及び体積の CV とスライス数 N の関係

3.6. 中空単繊維の質量推定

3.4 節で抽出した体積に加えて密度がわかれば、単繊維の質量を推定できる。CT 画像から推定される質量の妥当性について検討する必要があるが、単繊維はマイクロ電子天秤を使用しても秤量できない。そこで、2.3 節で試料保持に用いたナイロンテグス 1 号（外径 170 μm ）を秤量した。長さ約 13m のテグスをマイクロ電子天秤で秤量した結果、質量は 0.328g であった。次に、CT 画像から体積を求めた。ここで、**図 22** は**図 11(a)**の CT 画像を 2 値化処理し、右上のテグスを認識した画像である。

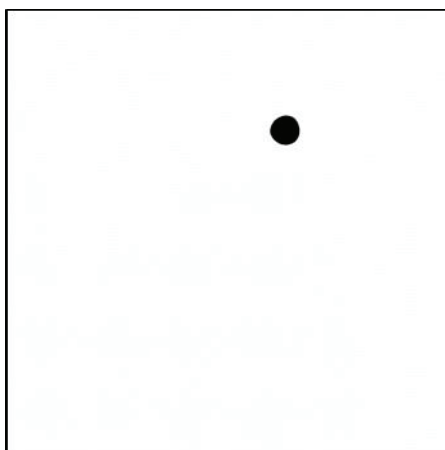


図 22 **図 11(a)**の CT 画像を 2 値化処理し、右上のテグスを認識した画像

50 スライス分のテグスの平均断面積が 23578 ± 28 [μm^2]であったことから、外径を求めると、

$$2\sqrt{\frac{S}{\pi}} = 173 [\mu\text{m}]$$

であり、公称値とおおむね一致した。公称値 170 μm を用いて体積を計算すると、以下のようなになった。

$$\pi \times \left(\frac{170 \times 10^{-4}}{2}\right)^2 \times 13 \times 10^2 = 0.295 [\text{cm}^3]$$

秤量した質量と上で求めた体積から、平均密度は 1.11 g/cm³と求められた。テグスはナイロン 6 とナイロン 6,6 の共重合品（割合は非公表）であり、密度参照値は、ナイロン 6 が 1.12 g/cm³、ナイロン 6,6 が 1.08 g/cm³である [101]。秤量した質量と CT 画像から求めた体積を用いて算出された密度が参照値と概ね一致したことから、CT 画像を用いた体積の抽出及び質量推定は有効と考えられる。

上述の検討を踏まえて、単繊維の質量を推定した。表 8 に示した五角形の中
空単繊維 (#88) 1cm 分の体積及び密度参照値 (ナイロン 6 : 1.12 g/cm³) [101] か
ら、質量は 15.5 ± 0.1 μg と算出された。ナイロン 6,6 及び PET の密度参照値
[101] は、それぞれ 1.12 g/cm³, 1.385 g/cm³ であることから、他の 3 種類の中
空単繊維についても同様にして質量を推定できる。CT 測定の CV 値は 3%以内
であったことや、単繊維片の秤量はマイクロ電子天秤では困難なことから、X 線
マイクロ CT は高精度で単繊維片の質量を推定できる点でも手法として優れて
いると考えられる。

3.7. 第3章のまとめ

本章では、機能性繊維として用いられる中空単繊維の X 線マイクロ CT 測定を行い、断面の形態観察を行うとともに、開口率及び体積を抽出し、単繊維片の質量を推定した。X 線マイクロ CT は 3 大合成繊維とされるポリエステル、ナイロン、アクリルをはじめ、対象に制限がなく幅広く利用可能であり、10 μm 以下の空気層を観察するとともに、構造の違いを明確に識別できた。オープンソースソフトウェアを用いた 2 値化処理と認識によって、開口率及び体積を抽出した結果、3%以内の相対標準偏差 (CV) で測定できた。さらに、得られた体積と密度参照値を用いて、マイクロ電子天秤では秤量が困難な単繊維片の質量を推定することができた。

第 4 章 単繊維の密度比較

4.1. はじめに

第 3 章では、中空単繊維から抽出した体積と密度参照値を用いて、単繊維片の質量を推定した [105]. 既に述べたように、CT 断層像は各画素における線吸収係数の分布を示しており、線吸収係数と密度には相関があることが知られている. また、2.1 節で述べたように、nano3DX の Cu ターゲットを用いて透過率 50%以上で測定すれば、準単色光と近似できる [106]. X 線マイクロ CT 測定による密度推定ができれば、密度差による微物の異同識別や、未知試料の質量推定も可能になると期待される.

本章ではまず、2.2 節で試料保持に用いたナイロンテグス 1 号 (外径 170 μm) の X 線マイクロ CT 測定を行い、1 枚の CT 断層像から、光学密度のプロファイルにより密度を評価した. 一方、太さが数十 μm 程度の単繊維の場合、1 枚の断層像から光学密度を抽出できる画素数が統計的に不足するため、工夫の必要がある. そこで、試料中心部の画素における光学密度を鉛直方向の複数の断層像から抽出する方法について検討した. この方法を用いて、材質の異なる複数の単繊維の密度を比較した. さらに、光学密度と線吸収係数、密度参照値の関係を調べ、検量線を作成した.

4.2. 実験

nano3DX (Cu ターゲット, L1080 レンズ, ビニング 1, XD は 2mm) を用いた X 線マイクロ CT 測定では、continuous scan モードで試料台を 180°回転させながら、1 投影当たり 4 秒の速度で 1000 投影を撮影した. 1 回のスキャンには約 83 分かかった. Tomoshop[®]を用いた再構成画像は 16bit で非圧縮の TIFF 形式で保存した. 画像解析には ImageJ Fiji [98] [99]を用いた. 付録 B の手順で CT 画像を 2 値化処理し、単繊維の中心座標を求めた. 光学密度のプロファイルは、予め範囲を選択した状態で「Analyze」メニューから「Plot Profile」を選択して表示した.

単繊維は Microtrace Forensic Fiber Reference Collection (アメリカ合衆国 Microtrace LLC) [104] に含まれる繊維標準試料 200 種類のうち、ナイロン (ポリアミド, PA) 繊維 2 種類及びオレフィン (ポリプロピレン, PP) 繊維 1 種類

の計 3 種類を選択した。単繊維の詳細を表 10 に示す。光学密度はスキャンごとに 16bit ($2^{16}=65536$ 段階) で規格化されるため、同じ試料を測定しても異なるスキャンの光学密度を互いに比較することができない。本章では 3 本の異なる単繊維を 1 枚の粘着シートで保持し、内径 2mm の Kapton チューブ内に入れて完浴状態で同時に測定した。また、ポリマーの数を増やすため、粘着シート EX-G 強の PET フィルムと Kapton チューブの光学密度も比較対象とした。

表 9 本章で用いた単繊維試料 [104]

試料番号	材質	製造会社	製造国	主成分	断面形状
#117	ナイロン	Shaw Industries	USA	PA-6	三葉型
#119	ナイロン	Wellman Inc	USA	PA-6,6	円形
#127	オレフィン	Shaw Industries	USA	PP	三角形

4.3. 1枚の断層像を用いた光学密度の評価

図 23(a)は図 13(b)と同じ CT 断層像で、図 23(a)の直線部に対応する光学密度のプロファイルを図 23(b)に示す。プロファイルの横軸は μm 単位に換算した。左右のピークは Kapton チューブに対応し、中央のピークはテグスに対応する。それぞれのピークの半値幅は、Kapton チューブの肉厚 ($60\mu\text{m}$) 及びテグスの外径 ($170\mu\text{m}$) の公称値と概ね一致した。Kapton チューブまたはテグスと空気との境界部には幅 $10\mu\text{m}$ 程度のアーティファクトが認められた。このアーティファクトは、X 線の屈折によるもので、放射光を利用した X 線 CT などコヒーレンスの高い平行ビームの場合に見られる現象として知られている [55] [56] [107] [108]。nano3DX も準単色光の擬似平行ビームであるため、試料界面付近を透過して位相シフトされた X 線の波面が変形し、近接する波と干渉して、界面が過剰に強調された屈折コントラストと考えられる。バックグラウンド(BG)は空気吸収に対応すると考えられる。表 10 に、Kapton (ポリイミド) とナイロン (ポリアミド) の平均光学密度、標準偏差、CV、密度を示す。Kapton の密度は参照値 [101] であり、ナイロンの密度は 3.6 節で秤量して得た値である。光学密度は、X 線の屈折の影響を受けていない試料中央部について、BG の値を差し引いて 50 画素分から平均値及び標準偏差を求めた。同表より、Kapton とナイロンの密度は明確に識別でき、光学密度の比と密度の比が概ね一致することが確かめられた。

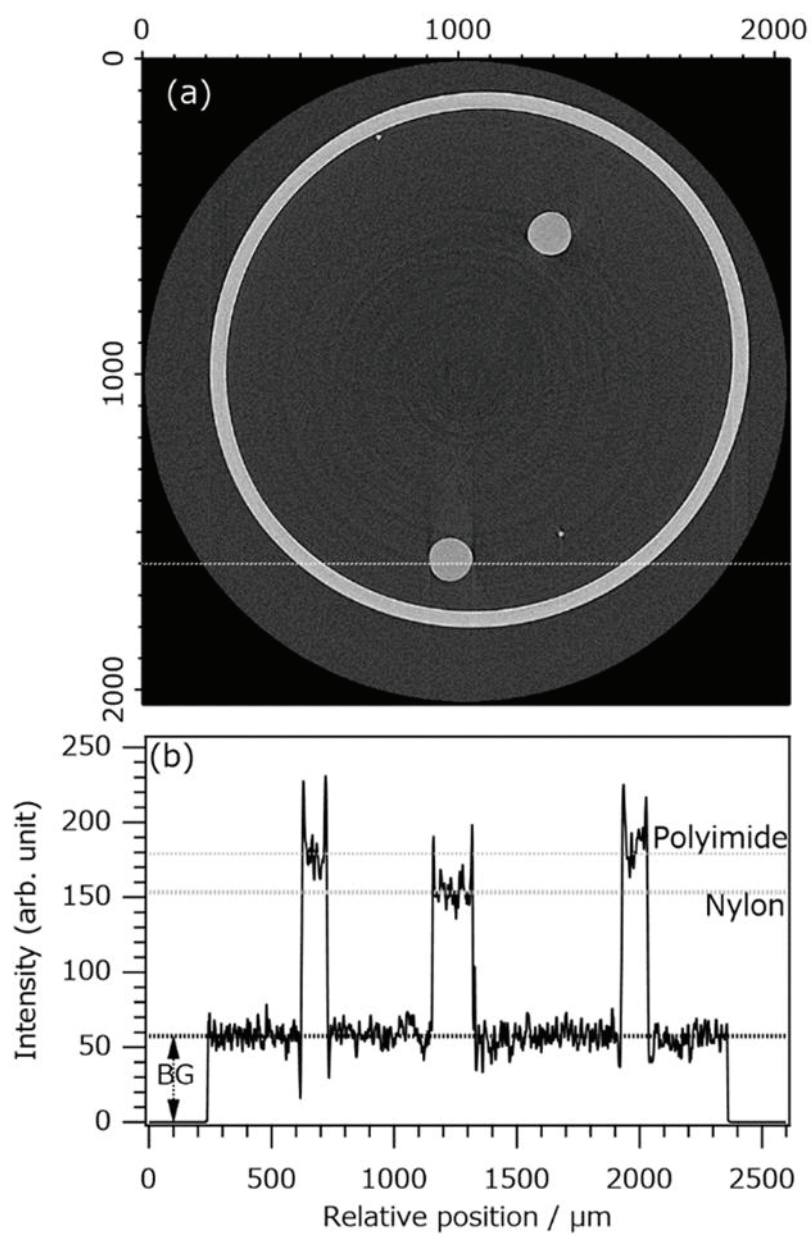


図 23 (a) 図 13(b)と同じ CT 断層像，
 (b) (a)の直線部に対応する光学密度のプロファイル

表 10 試料中央部 50 画素から求めた平均光学密度，標準偏差，CV 及び密度 [101]

	平均光学密度	密度
Kapton	121 ± 9 (CV: 7.4%)	1.4 g/cm^3 [101]
ナイロン	93 ± 7 (CV: 7.5%)	1.1 g/cm^3
比 (Kapton/ナイロン)	1.3 ± 0.2 (CV: 15.4%)	1.3

図 24(a)は図 13(b)と同じ CT 断層像を示す。同図の実線部及び点線部に対応する光学密度のプロファイルを図 24(b)に黒色実線及び灰色実線でそれぞれ示す。プロファイルの横軸は μm 単位に換算した。左右のピークは Kapton チューブに対応する。アクリル単繊維 K8 及び F830 に対応するピークを図中に矢印で示す。また、同図(c), (d)にプロファイルの単繊維相当部を拡大して示す。アクリル繊維の 85%以上を占めるポリアクリロニトリルの密度参照値は $1.184\text{g}/\text{cm}^3$ [101] であり、ナイロンと同程度の光学密度となることが期待されたが、試料界面付近での屈折コントラストにより、見かけの光学密度が増大した。単繊維 K8 及び F830 の外径及び辺の長さは $20\mu\text{m}$ 程度であったことから、テグスと同じ方法では界面が過剰に強調されて本来の光学密度を評価できない。

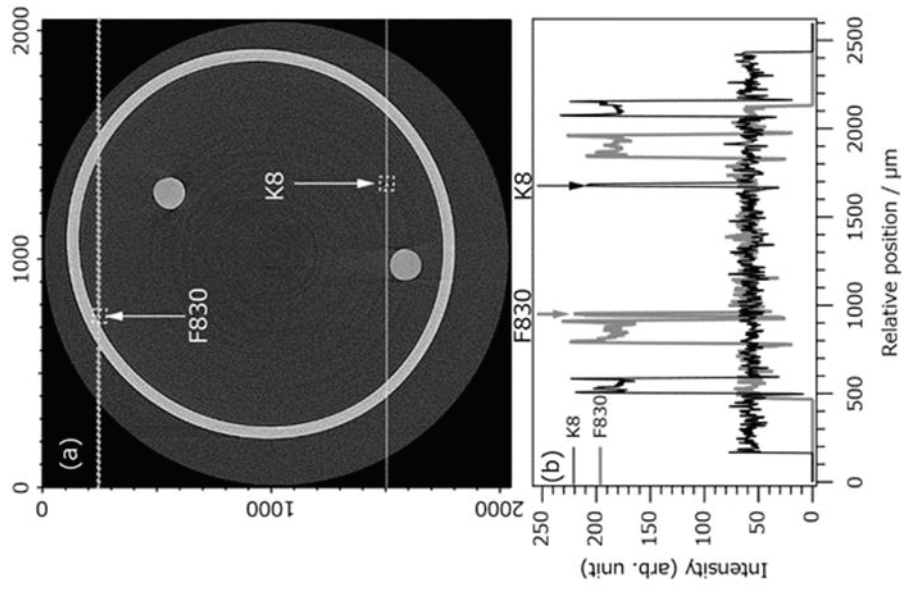


図 24 (a) 図 13(b)と同じ CT 断層像,

(b) (a)の実線部及び点線部に対応する光学密度のプロファイル,

(c) (b)の光学密度のプロファイルにおける単繊維 K8 相当部の拡大,

(d) (b)の光学密度のプロファイルにおける単繊維 F830 相当部の拡大

4.4. 光学密度の評価方法に関する統計的検討

本研究では、屈折の影響を受けていない試料中心部分の画素における光学密度を、複数の断層像から求めることで、画素数を増やす方法を採用した。本節では、上述の方法と前節の方法について、光学密度の CV を比較し、統計的に十分な画素数を調べた。

内径 1mm の Kapton チューブ内にナイロンテグス 1 号を入れ、4.2 節の条件で X 線マイクロ CT 測定を行い、得られた CT 断層像の一例を図 25(a)に示す。同図の空気吸収相当部における光学密度の CV を調べた。

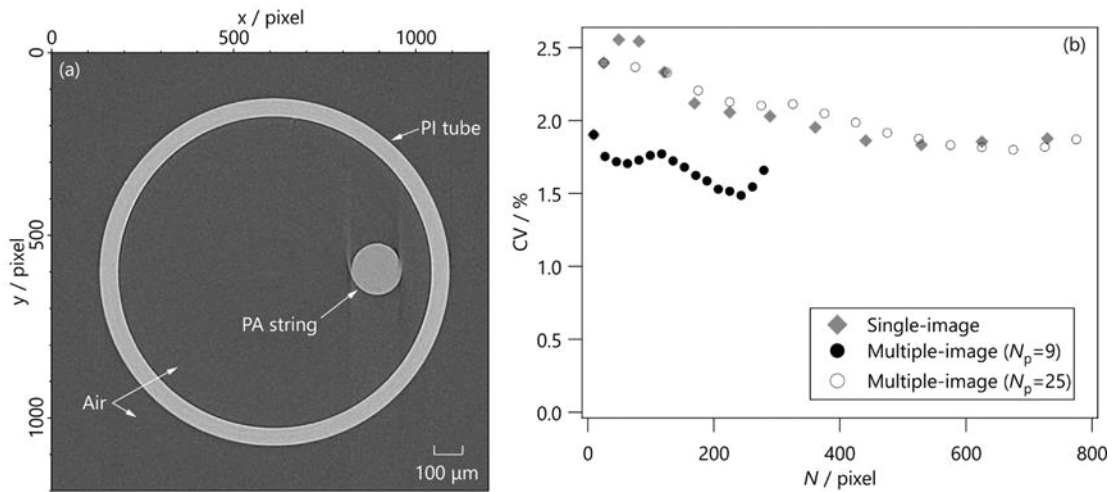


図 25 (a) CT 断層像の一例, (b) 光学密度の CV と画素数 N の関係

まず、4.3 節と同様に 1 枚の断層像を用いて、座標 (50, 50) の点を中心に画素数 N を $1^2, 3^2, \dots, 27^2$ のように正形状に増やして、平均光学密度の CV を求めた。図 25(b)に CV と N の関係を灰色菱形で示す。 N が 200 以上になると、CV は約 2% で一定になることが確認された。

次に、1 枚の断層像における画素数を N_p 、断層像の枚数を N_s として、複数の断層像から平均光学密度及び CV を調べた。 $N_p = 9$ として、座標 (50, 50) の点を中心に 9 画素分の光学密度を、 $N_s = 1, 3, 5, \dots, 31$ について求めた。図 25(b)に CV と $N (= N_p N_s)$ の関係を黒丸で示す。 $N_p = 9$ の CV は N の増加とともに減少し、 $N = 243$ ($N_p = 9, N_s = 27$) のとき約 1.5% で最小となった。また、1 枚の断層像から求めた光学密度の CV に比べて小さくなった。

$N_p = 25$ として、座標 (50, 50) の点を中心に 25 画素分の光学密度を、 $N_s = 1, 3, 5, \dots, 31$ について求めた。図 25(b)に CV と N の関係を白丸で示す。 $N_p =$

25 の CV は N の増加とともに減少したが、1 枚の断層像から求めた光学密度の CV を求めた場合と同様に 2% 以下までは減少しなかった。

以上の検討内容から、断層像 1 枚あたり 9 画素 ($N_p = 9$)、鉛直方向に 27 スライス ($N_s = 27$) の計 243 画素分について光学密度を求めれば、統計的に十分と考えられる。また、voxel size が $1.27\mu\text{m}$ であることから、 $N_p = 9$ は $(3.81\mu\text{m})^2$ の正方形の面積に、 $N_s = 27$ は $34.29\mu\text{m}$ 分の高さにそれぞれ相当する。屈折により強調される界面の幅が約 $10\mu\text{m}$ であることを考慮すると、外径が $30\mu\text{m}$ 以上、長さ $35\mu\text{m}$ 以上の単繊維であれば、今回の方法で光学密度を評価するのに十分な大きさであると考えられる。次節以降は $N=243$ ($N_p = 9, N_s = 27$) の条件を採用して光学密度を評価した。

4.5. 複数の断層像を用いた光学密度の評価

図 26 に、3 種類の単繊維を保持して測定した CT 断層像の一例を示す。同図 (b), (c), (d) は単繊維の拡大図である。EX-G 強の粘着力では単繊維、アクリル系糊、PP 膜が完全には密着しなかったものと思われ、繊維の周囲に隙間が認められた。同図 (b), (c), (d) の繊維中心部 9 画素（正方形で示した画素）について、平均光学密度を求めた。また、EX-G 強の PET フィルム及び Kapton チューブについても、界面での X 線の屈折の影響を受けない内部の 9 画素から平均光学密度を求めた。4.3 節では空気吸収に対応するバックグラウンド (BG) を予め差し引いたが、減算処理を加えることで標準偏差が約 $\sqrt{2}$ 倍になるため、本節では BG は差し引かなかった。同様の作業を 27 枚の断層像について行った。

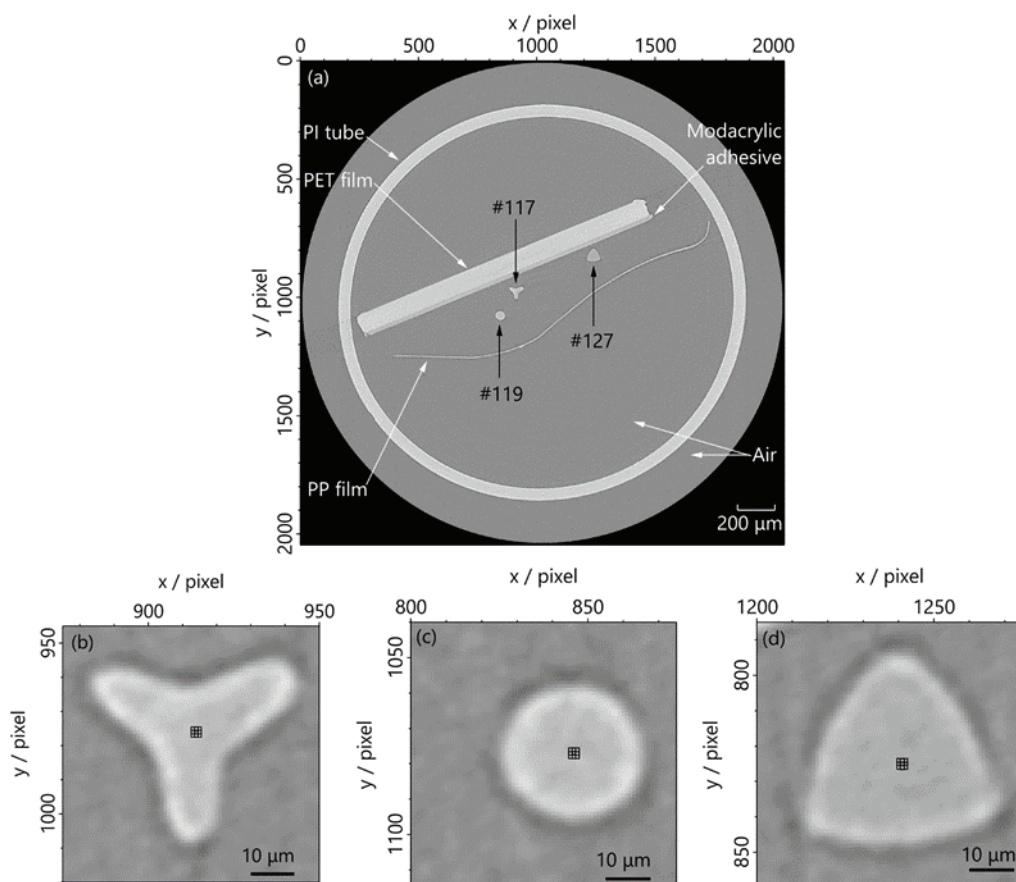


図 26 (a) 3 種類の単繊維を保持して測定した CT 断層像の一例
(b) 三葉型の単繊維 (#117) の拡大
(c) 円形の単繊維 (#119) の拡大,
(d) 三角形の単繊維 (#127) の拡大,
(b)から(d)については、光学密度を求めた中心部の 9 画素を図示

各ポリマーの化学式，平均光学密度，標準偏差，CV，密度参照値 [101]，質量吸収係数 μ_m [72]，線吸収係数 μ を表 11 に示す．ここで，ポリマーの質量吸収係数 μ_m は，Cu $K\alpha$ 特性 X 線に対する各元素の質量吸収係数を文献 [72] から求め，質量分率をかけて総和を計算し求めた．線吸収係数 μ は，密度参照値と質量吸収係数の積により求めた．光学密度の CV は 1.5% から 2.0% の範囲内であった．

表 11 各ポリマーとその化学式, 平均光学密度, 標準偏差, CV, 密度参照値 ρ [101], 質量吸収係数 μ_m [72], 線吸収係数 μ

	ポリマー	化学式	試料	平均光学密度	ρ [g/cm ³]	μ_m [cm ² /g]	μ [cm ⁻¹]
1	PP	(C ₃ H ₆) _n	三葉型単繊維 (#127)	6203 ± 101 (CV: 1.6%)	0.9	3.663	3.330
2	PA-6,6 (ナイロン 6,6)	(C ₁₂ H ₂₂ N ₂ O ₂) _n	円形単繊維 (#119)	6747 ± 123 (CV: 1.8%)	1.08	5.157	5.570
3	PA-6 (ナイロン 6)	(C ₆ H ₁₁ NO) _n	三角形単繊維 (#117)	6853 ± 137 (CV: 2.0%)	1.12	5.157	5.776
4	PET	(C ₁₀ H ₈ O ₄) _n	EX-G 強の PET フィルム	7305 ± 113 (CV: 1.5%)	1.385	6.313	8.744
5	PI (Kapton)	(C ₂₂ H ₁₀ N ₂ O ₅) _n	Kapton チューブ	7259 ± 121 (CV: 1.7%)	1.4	5.745	8.043

4.6. 光学密度と試料密度，線吸収係数の関係

表 11 をもとに，光学密度と密度参照値 ρ [101] の関係を 図 27(a) に示す．直線回帰を行ったところ，相関係数 R の値から，光学密度と試料密度に良い相関が認められることが確認された．これらの図表から，PP とナイロンの密度差を光学密度により明確に識別できることがわかった．一方，ナイロン 6 とナイロン 6,6 の密度差（約 4%）や PET と PI（参照値がほぼ同じ）の密度差については，平均値に差があった一方で，CV が大きいいため統計的に有意な差は認められなかった．また，回帰直線の切片は 4457 ± 895 であった．同図(a)における BG の光学密度はおおよそ 4800 から 5200 程度であった．切片が BG の光学密度と概ね一致することから，BG を予め差し引かなくても同図(a)のような検量線を作成することで，光学密度と試料密度の対応関係が得られることがわかった．BG を減算しないことで CV の増加を抑えることが可能である．また，切片（空気）と Kapton チューブ（PI）の密度から検量線を作成できるため，チューブ内に未知試料を入れて X 線マイクロ CT 測定を行えば，微細試料の密度や質量を推定することも可能と考えられる．

表 11 をもとに，光学密度と線吸収係数 μ の関係を 図 27 (b) に示す．同図(a)と比較すると，光学密度は線吸収係数の方がより高い相関係数を示した．PET と Kapton の密度参照値の大小関係が，線吸収係数では逆転していることがわかる．Kapton に比べて PET に占める酸素の割合が大きいため，PET に比べて Kapton の質量吸収係数 μ_m が大きくなり，線吸収係数の大小関係が逆転し，相関係数に影響したと考えられる．光学密度の違いは試料密度の違いを反映すると考えられているが，この考え方の背景には，有機物の質量吸収係数をほぼ炭素のみで近似する仮定がある．本研究のように，低エネルギーの X 線を用いた X 線マイクロ CT 測定によって，有機物どうしの数%の密度比較を試みる場合は，酸素など炭素以外の元素の質量分率が光学密度に影響すると考えられる．以上のことから，密度差だけでなく線吸収係数を比較することで，単繊維を含むポリマーをより幅広く識別できると考えられる．

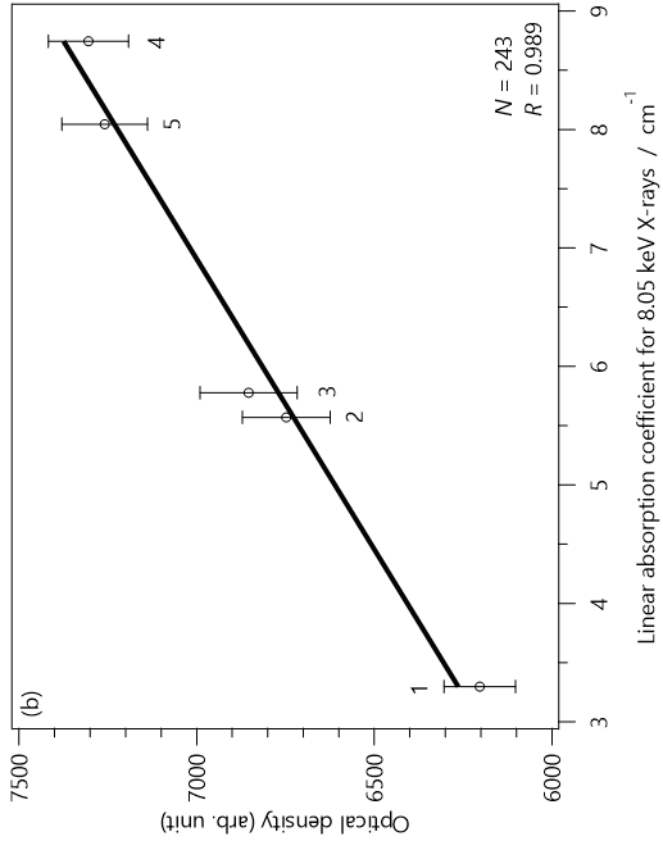
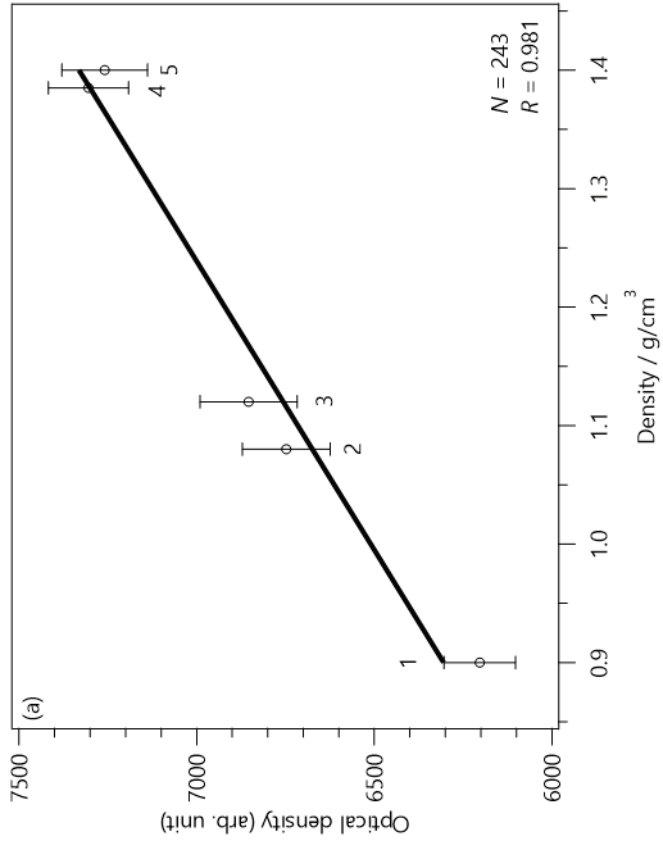


図 27 (a) 光学密度と密度参照値 ρ [101] の関係, (b) 光学密度と線吸収係数 μ の関係

4.7. 第4章のまとめ

本章では、材質の異なる単繊維の X 線マイクロ CT 測定を行い、光学密度による密度差の比較を試みた。1 枚の断層像では、X 線の屈折により界面が過剰に強調されることや、試料が極微細であることによる画素数の不足で単繊維本来の光学密度を評価できない。そこで、試料中心画素のまわり 9 画素の光学密度を鉛直方向の断層像複数枚から評価する方法を提案した。この方法であれば、外径が $30\mu\text{m}$ 以上、長さ $35\mu\text{m}$ 以上の単繊維であれば十分と考えられる。材質の異なる複数の単繊維を含むポリマーの密度を比較した結果、オレフィン (PP) 繊維とナイロン繊維や、ナイロン繊維と PET (またはポリイミド) の密度差は明確に識別できたが、密度の近いナイロン 6 とナイロン 6,6 や、PET とポリイミドの密度差を識別することは困難であった。

また、光学密度と密度参照値、線吸収係数の関係を調べ、検量線を作成した結果、光学密度は密度参照値、線吸収係数のいずれともよい相関を示した。グラフの切片は空気吸収に対応することから、Kapton チューブと空気の 2 点で検量線を作成すれば、未知試料の密度及び質量が推定できると考えられる。さらに光学密度は、試料密度との関係に比べ、線吸収係数に対する相関係数の方が高いことが確認された。有機物どうしの密度を比較する場合は、酸素など炭素以外の元素の質量分率が光学密度に影響すると考えられる。以上のことから、密度差だけでなく線吸収係数を比較することで、単繊維を含むポリマーをより幅広く識別できる可能性がある。

第 5 章 結論

5.1. 本研究のまとめ

本研究では、X 線マイクロ CT を用いた微細な有機物試料の分析を実現し、法科学的異同識別に応用することを目指して、単繊維の形態観察及び密度比較に取り組んだ。具体的な結論は、次のとおりである。

結論(1) 中空単繊維の形態観察

単繊維の CT 測定を行うための試料保持用ホルダーを作製した。鑑識実務で使用されている粘着シートに採取した単繊維をホルダー内に入れるだけで、完浴状態での CT 測定ができた。

機能性繊維として用いられている中空単繊維の X 線マイクロ CT 測定を行い、断面形状の違いが明確に識別できた。オープンソースソフトウェアを用いた 2 値化処理と認識によって、開口率及び体積を 3%以内の相対標準偏差 (CV) で抽出することができた。さらに、得られた体積と密度参照値を用いて、マイクロ電子天秤では秤量が困難な単繊維片の質量を推定することができた。

結論(2) 単繊維の密度比較

透過率が 50%以上のとき、nano3DX の Cu ターゲットからの X 線は、特性 X 線の影響が支配的であり、準単色光近似が可能で、X 線マイクロ CT による密度推定が可能である。

CT 断層像を複数枚用いる方法により単繊維を含むポリマーの光学密度を比較した。オレフィン (PP) 繊維とナイロン繊維の密度差や、ナイロン繊維と PET (またはポリイミド) の密度差を明確に識別することができた。

光学密度は試料密度、線吸収係数のいずれに対してもよい相関を示し、空気とポリイミド (試料ホルダー) の光学密度から、密度に関する検量線を作成できることがわかった。検量線から未知の微細試料の密度及び質量の推定ができるとともに、密度差だけでなく線吸収係数を比較することで、単繊維を含むポリマーをより幅広く識別することができる可能性が示唆された。

以上のように、X 線マイクロ CT 法は、単繊維など数十 μm 以下の微細な有機物試料の分析における新たな手法として、開口率及び体積の抽出を含む形態観察に加え、密度や質量の推定ができ、法科学的異同識別にも応用可能である。

5.2. 今後の展望

本研究では、X線マイクロCT測定により中空繊維内部の径 $10\mu\text{m}$ 以下の空気層の観察を実現した。通常のCT測定では完浴状態でないと再構成できないが、nano3DXには大視野観察機能があり、視野以上の大きな試料を測定できることも特徴とされている。本研究では視野の制約から使用しなかったが、nano3DXでは最高 330nm の高分解能測定が可能なL0270レンズ($0.66 \times 0.66\text{mm}^2$)が利用できる。大視野測定を行えば視野が約1.6倍に拡張され、内径 1mm のKaptonチューブ内部をカバーできる可能性がある。画像のつなぎ合わせの正確性や、つなぎ合わせた画像の光学密度の評価方法について検討し、知見を積み重ねることで、形態観察・密度比較双方の識別能力向上が期待される。

nano3DXによる密度比較では、Crターゲットを用いた測定により硬質ポリエチレン(0.93g/cm^3)と軟質架橋ポリエチレン(0.88g/cm^3)の判別(密度差は約5%)が可能とされている。また、試料と空気の境界部には、X線の屈折(位相シフト)に由来するアーティファクトが生じた。屈折コントラストは試料と検出器の距離を可能な限り近づけることで低減できるとされていることから、 $\text{XD} = 0[\text{mm}]$ での測定により低減が期待できる[55]。また、光学密度のCVは2%程度であり、ナイロン6とナイロン6,6の密度差による識別は実現できていない。露光時間1秒と4秒で空気吸収の光学密度のCVを比較したところ、19.8%(露光時間1秒)から11.1%(露光時間4秒)まで改善する結果が得られている。露光時間を長く(ステージの回転速度を遅く)することで、CVの低減が期待される。

また、吸収コントラストでは試料の線吸収係数の分布が反映されていたのに対し、屈折コントラスト(位相コントラスト)では試料の密度の分布が反映される。準単色光近似が可能な平行ビームであるnano3DXのX線はコヒーレンスが高く、位相コントラストを利用したイメージングに適していると期待される。軽元素の場合、線吸収係数の差に比べて密度による位相シフトを利用した方が、1000倍程度のコントラストが得られることが知られている[107]。一方で、位相コントラストはその定量化が課題である。本研究では検討できなかったが、大視野測定とともに位相コントラストを利用した密度分解能向上は意義深いテーマの1つである。

謝辞 (Acknowledgements)

本研究を行うにあたって、平成 27 年 4 月の入学から 6 年間（うち 3 年 1 か月在学，2 年 11 か月休学），たくさんの方々にご指導・ご支援をいただきました。ありがとうございました。

材料分析化学研究室の早川慎二郎教授にはテーマ決めの段階から論文受理まで全般にご指導いただきました。採用から間もない段階で自分の業務内容も十分に理解できていなかったときに入学を決めたこともあり，特に前半の 3 年間は業務都合も含め大半を休学し，随分とご心配をおかけしました。打ち合わせが土日中心になるためご負担もおかけしましたが，最後まで見守っていただき大変感謝しております。特に *Journal of Forensic Sciences* へ論文を投稿するのは在学中の目標でしたので，貴重な経験ができました。博士号取得者としての心構えについても，様々な場面でご指導いただきました。同研究室の駒口健治准教授からは月間報告のゼミや論文投稿時に有益なコメントをいただきました。I am grateful to the former assistant professor Jens Rüdiger Stellhorn for his constructive suggestions in the regular meeting and for his comments to our English papers. I would like to thank the former assistant professor Alvaro Muñoz Noval for his judgment in my entrance examination.

広島県立総合技術研究所西部工業技術センター生産技術アカデミー製品設計研究部の田邊栄司主任研究員には nano3DX を用いたマイクロ CT 測定の実験指導とともに，ひろしま産学共同研究拠点の設備を業務として利用させていただくための手続きに関して数多くの助言をいただきました。

元奈良県警察本部刑事部科学捜査研究所長で元高輝度光科学研究センター (JASRI, SPring-8) の本多定男様からは Forensic Fiber Reference Collection の繊維標準試料，共焦点レーザー顕微鏡を用いた単繊維の断面写真，X 線小角散乱 (SAXS) の測定データ等をご提供いただきました。高知大学教育学部の西脇芳典教授とともに，平成 29 年 7 月の SPring-8 出張へ同行させていただいた際にもお世話になり，科学捜査研究所での業務内容など貴重なお話を伺うことができました。また，西脇教授からは社会人博士の先輩として，業務と研究の両立に関するアドバイスや論文に対するコメントなど貴重なご助言もいただきました。

株式会社リガクの佐々木勝成様からは nano3DX のビームの準単色性，光学密度の評価，焦点サイズに関して，また，社会人博士の先輩としても，貴重なコメントをいただきました。さらに，3 報の投稿論文を nano3DX の利用研究成果として貴社のホームページ [65] に掲載・宣伝していただきました。

ひろしまものづくりデジタルイノベーション創出プログラム「材料モデルベースリサーチプロジェクト」部門長で，有機元素材料化学研究室の大下浄治教授にはひろしま産学共同研究拠点に nano3DX を導入していただきました。同プロジェクトメンバーであるマツダ株式会社の住田弘祐様からも有益なご助言等をいただきました。

ものづくりプラザの浅田竜也様には，試料保持用ホルダーの作製にあたり PEEK 部品

及びアルミ棒の加工を行っていただきました。

口頭発表や講演を行った日本法科学技術学会学術集会，X線分析討論会，X線分析研究懇談会では，参加者の皆様から数多くの質疑や有益なご助言をいただきました。

博士課程前期までの指導教員であった放射光科学研究センターの澤田正博准教授には，科搜研で採用されたばかりの平成28年10月に社会人博士のご相談をさせていただいたところ，すぐに私を早川教授に紹介していただき，これまでの研究生活のきっかけを提供していただきました。同センターでお世話になっていた佐藤仁准教授にも研究活動を応援し，見守っていただきました。

材料分析化学研究室の学生の馬玉潔さん，川嶋海音さん，中村光一君，山川拓馬君には月間報告のゼミでお世話になりました。私が在学していた6年間に卒業・修了された皆様，特に，平成29年度修了の大和拓馬君，平成30年度修了の金田敦徳君，近藤涼介君には上述のSPring-8出張で，令和3年度修了の吉本陽佳さんには月間報告のゼミでお世話になりました。

令和3年度以降の在学期間中は，先進理工系科学研究科から給付型の研究奨学金をいただきました。工学系統括支援室及び工学部Ⅲ類事務室の皆様にも大変お世話になりました。

広島県警察本部刑事部科学捜査研究所の八幡みどり所長，新木久志次席，中木真一管理官，角田弘所長補佐には，研究活動にご理解いただき，通常の鑑定業務との両立を支援していただきました。歴代所長・次席・庶務担当の皆様，特に，高橋健二元所長（平成28年度）には，採用間もない段階にも関わらず入学試験の受験を許可していただき，脇坂章吾元所長（令和元年度）には，長期休学から復学を決めた際に力強く後押ししていただき，光成育子前所長補佐（令和2・3年度）には，業務としてひろしま産学共同研究拠点へ出張してCT実験を行うことをはじめ，通常の鑑定業務と研究の両立を目指すための環境作りに労を惜しまず力を尽くしていただきました。物理研究室の直属の上司・先輩である岡本雅樹室長，横山忠尚総括研究員，植木裕太研究員には，研究活動を応援していただき，CT実験の出張等で私が不在時の業務を負担していただきました。岡本室長には研究テーマの相談に乗っていただくとともに，課程博士取得時の貴重なお話を聞かせていただきました。化学研究室の中本晃弘室長，武内将総括研究員には論文の共著者に加わっていただくとともに，3.3節で使用したアクリル繊維2種類を含む約60種類もの単繊維試料や粘着シートEX-Gをご提供いただきました。武内総括研究員からは単繊維の異同識別鑑定の実務経験に基づく有益なコメントをいただきました。中木管理官，中本化学研究室長とともに，法医研究室の森川俊雄室長，日野大樹主席研究員，小林美紀主席研究員からは，研究と業務の両立に関して，社会人博士の先輩として有意義なアドバイスをいただきました。広島県警科捜研の全所員の皆様，科学警察研究所及び各地の科学捜査研究所の私を応援してくださった皆様にも謝意を申し上げます。

最後に，本論文は，早川教授，大下教授，放射光科学研究センターの島田賢也教授，高分子化学研究室の田中亮准教授，本多様に審査していただきました。ご多忙のところにもかかわらず貴重なお時間を割いていただき，審査では有益な質疑及びご助言をいただき，ありがとうございました。

参考文献

- [1] E. Locard, "Dust and its Analysis: An AID to Criminal Investigation," *Police J.: Theory, Practice and Principles*, vol. 1, no. 2, pp. 177-192, 1928.
- [2] 高取健彦, 捜査のための法科学 第 1 部 (法生物学, 法心理学, 文書鑑識), 令文社, 2005.
- [3] 高取健彦, 捜査のための法科学 第 2 部 (法工学, 法化学), 令文社, 2005.
- [4] "最高裁判所判例," 19 Feb. 1953. [Online]. Available: https://www.courts.go.jp/app/hanrei_jp/detail2?id=54695. [Accessed 20 Jan. 2023].
- [5] "刑事訴訟法 第 317 条," 10 Jul. 1948. [Online]. Available: <https://elaws.e-gov.go.jp/document?lawid=323AC0000000131>. [Accessed 20 Jan. 2023].
- [6] "刑事訴訟法 第 320・321 条," 10 Jul. 1948. [Online]. Available: <https://elaws.e-gov.go.jp/document?lawid=323AC0000000131>. [Accessed 20 Jan. 2023].
- [7] "犯罪捜査規範 第 186 条," 11 Jul. 1957. [Online]. Available: <https://elaws.e-gov.go.jp/document?lawid=332M50400000002>. [Accessed 20 Jan. 2023].
- [8] E. Mistek, M. A. Fikiet, S. R. Khandasammy and I. K. Lednev, "Toward Locard's Exchange Principle: Recent Developments in Forensic Trace Evidence Analysis," *Anal Chem.*, vol. 91, no. 1, pp. 637-654, 2019.
- [9] T. Trejos, S. Koch and A. Mehlretter, "Scientific foundations and current state of trace evidence—A review," *Forensic Chem.*, vol. 18, p. 100223, 2020.
- [10] M. Bailey, M. Puit and F. Romolo, "Surface Analysis Techniques in Forensic Science: Successes, Challenges, and Opportunities for Operational Deployment," *Annu. Rev. Anal. Chem.*, vol. 15, pp. 173-196, 2022.
- [11] J. Almirall and T. Trejos, "Interpol review of paint, tape, and glass evidence 2019–2022," *Forensic Sci. Int.: Synergy*, vol. 6, p. 100306, 2023.
- [12] J. Locke and M. Underhill, "AUTOMATIC REFRACTIVE INDEX MEASUREMENT OF GLASS PARTICLES," *Forensic Sci. Int.*, vol. 27, no. 4, pp. 247-260, 1985.
- [13] Y. Suzuki, R. Sugita, S. Suzuki and Y. Marumo, "Forensic Discrimination of Bottle Glass by Refractive Index Measurement and Analysis of Trace Elements with ICP-MS," *Anal. Sci.*, vol. 16, no. 11, pp. 1195-1198, 2000.
- [14] C. Munger, K. Gates and C. Hamburg, "Determining the Refractive Index Variation within Panes of Vehicle Windshield Glass," *J. Forensic Sci.*, vol. 59, no. 5, pp. 1351-1357, 2014.
- [15] 株式会社セントラル科学貿易, "鑑識分析装置『fftA/GRIM3 ガラス微細片屈折率測定装置』," [Online]. Available: <https://premium.ipros.jp/cscjp/product/detail/2000295589/>. [Accessed 20 Jan. 2023].
- [16] B. Lavine, J. Almirall, C. Muehlethaler, C. Neumann and J. Workman, "Criteria for comparing

- infrared spectra – A review of the forensic and analytical chemistry literature," *Forensic Chem.*, vol. 18, p. 100224, 2020.
- [17] J. Duarte, N. Sales, M. Sousa, C. Bridge, M. Maric and J. Gomes, "Automotive paint analysis: How far has science advanced in the last ten years?," *Trends Anal. Chem.*, vol. 132, p. 116061, 2020.
- [18] 向井中, 艸谷卓, 本多定男 and 中澄博行, "SEM/EDX による元素分析を利用した青色自動車塗膜の識別," *日本法科学技術学会誌*, vol. 10, no. 2, pp. 119-125, 2005.
- [19] 向井中, 艸谷卓, 中井清太, 本多定男, 中澄博行, "SEM/EDX による元素分析を利用した青色自動車塗膜の識別(2)," *日本法科学技術学会誌*, 第 12 巻, 第 1 号, pp. 53-60, 2007.
- [20] 向井中, 村田紗弥香, 西尾昌浩, 艸谷卓, 中井清太 and 本多定男, "SEM/EDX による元素分析を利用した緑色モデル塗膜の識別," *日本法科学技術学会誌*, vol. 25, no. 1, pp. 105-114, 2020.
- [21] J. Robertson, C. Roux and K. G. Wiggins, Eds., *Forensic Examination of Fibres*, 3rd ed., CRC Press, 2017.
- [22] The European Textile and Hair Group, European Network of Forensic Science Institute, "Best Practice Manual for the Forensic Examination of Fibres," [Online]. Available: <https://enfsi.eu/wp-content/uploads/2022/07/BPM-for-the-Forensic-Examination-of-Fibres.-ENFSI-BPM-THG-04.-final-version.pdf>. [Accessed 20 Jan. 2023].
- [23] "日本法科学技術学会," [Online]. Available: <https://www.houkagaku.org/>. [Accessed 20 Jan. 2023].
- [24] 繊維鑑定における標準的手法等に関する研究会, "法科学において推奨する標準的繊維鑑定法 I," *繊維鑑定における標準的手法等に関する研究会報告*, 2017.
- [25] S. Farah, K. R. Kunduru, T. Tsach, A. Bentolila and A. J. Domb, "Forensic comparison of synthetic fibers," *Polym. Adv. Technol.*, vol. 26, no. 7, pp. 785-796, 2015.
- [26] P. P. Meleiro and C. García-Ruiz, "Spectroscopic techniques for the forensic analysis of textile fibers," *Appl. Spectrosc. Rev.*, vol. 51, no. 4, pp. 278-301, 2016.
- [27] D. Śmigiel-Kamińska, J. Pośpiech, J. Makowska, P. Stepnowski, J. Wąs-Gubała and J. Kumirska, "The Identification of Polyester Fibers Dyed with Disperse Dyes for Forensic Purposes," *Molecules*, vol. 24, no. 3, p. 613, 2019.
- [28] C. Hu, H. Mei, H. Guo and J. Zhu, "Color analysis of textile fibers by microspectrophotometry," *Forensic Chem.*, vol. 18, p. 100221, 2020.
- [29] L. Lepot, K. Lunstroot and K. Wael, "Interpol review of fibres and textiles 2016–2019," *Forensic Sci. Int.: Synergy*, vol. 2, pp. 481-488, 2020.
- [30] A. Sałdan, M. Król, M. Woźniakiewicz and P. Kościelniak, "Application of Capillary Electromigration Methods in the Analysis of Textile Dyes—Review," *Molecules*, vol. 27, no. 9, p. 2767, 2022.

- [31] L. Lepot, M. Vanhouche, T. Driessche and K. Lunstroot, "Interpol review of fibres and textiles 2019-2022," *Forensic Sci. Int.: Synergy*, vol. 6, p. 100307, 2023.
- [32] 西村雅樹, "微細孔を有する中空繊維の機能," *繊維学会誌*, vol. 61, no. 4, pp. 103-105, 2005.
- [33] 三菱レイヨン株式会社, MRC パイレン株式会社, "三芯中空断面繊維《ライブエア》の開発と販売について," 三菱ケミカル株式会社, [Online]. Available: <https://www.m-chemical.co.jp/news/mrc/detail/20150722120143.html>. [Accessed 20 1 2023].
- [34] S. Palenik and C. Fitzsimons, "Fiber cross-sections, part I," *Microscope*, vol. 38, no. a, pp. 187-195, 1990.
- [35] S. Palenik and C. Fitzsimons, "Fiber cross-sections, part II," *Microscope*, vol. 38, no. b, pp. 313-320, 1990.
- [36] 鈴木正美 and 下田修, "白色系単繊維識別のスクリーニングへの蛍光顕微鏡の応用," *日本法科学技術学会誌*, vol. 11, no. 1, pp. 95-104, 2006.
- [37] H. Komatsu, H. Takahara, W. Matsuda and Y. Nishiwaki, "Nondestructive discrimination of red silk single fibers using total reflection X-ray fluorescence spectrometry and synchrotron radiation X-ray fluorescence spectrometry," *J. Forensic Sci.*, vol. 66, no. 5, pp. 1658-1668, 2021.
- [38] K. P. Kirkbride, "The application of laser scanning confocal microscopy to the examination of hairs and textile fibers: An initial investigation," *Forensic Science International*, vol. 195, no. 1-3, pp. 28-35, 2010.
- [39] M. Tedesco and M. Browne, "Identifying and measuring individual micrometre-sized fibres in environmental samples by light and confocal microscopies," *Chem. Eng. J.*, vol. 417, no. 1, p. 129218, 2021.
- [40] A. Aljannahi, R. Alblooshi, R. Alremeithi, I. Karamitsos, N. Ahli, A. Askar, I. Albastaki, M. Ahli and S. Modak, "Forensic Analysis of Textile Synthetic Fibers Using a FT-IR Spectroscopy Approach," *Molecules*, vol. 27, no. 13, p. 4281, 2022.
- [41] 日本産業標準調査会 JIS, "JISL0204-2 繊維用語 (原料部門) 一第2部: 化学繊維," [Online]. Available: <https://www.jisc.go.jp/app/jis/general/GnrJISNumberNameSearchList?show&jisStdNo=L0204-2>. [Accessed 20 Jan. 2023].
- [42] 本多定男, 橋本敬, 森脇太郎, 池本夕佳 and 木下豊彦, "科学鑑定のための短繊維片の赤外放射光 FTIR 分析," *SPring-8/SACLA 利用研究成果集*, vol. 6, no. 1, pp. 141-144, 2018.
- [43] P. Rydzak, K. Elwick, N. Damaso and J. Robertson, "Assessment of detection limits for dyed and mounted textile fibers using Raman spectroscopy," *J. Forensic Sci.*, vol. 67, no. 6, pp. 2278-2290, 2022.
- [44] A. Saldan, M. Król, D. Śmigiel-Kamińska, M. Woźniakiewicz and P. Kościelniak,

- "Development of the Microemulsion Electrokinetic Capillary Chromatography Method for the Analysis of Disperse Dyes Extracted from Polyester Fibers," *Molecules*, vol. 27, no. 20, p. 6974, 2022.
- [45] R. Matsushita, S. Watanabe, T. Iwai, T. Nakanishi, M. Takatsu, S. Honda, K. Funaki, T. Ishikawa and Y. Seto, "Forensic discrimination of polyester fibers using gel permeation chromatography," *Forensic Chem.*, vol. 30, p. 100428, 2022.
- [46] R. Matsushita, T. Nakanishi, S. Watanabe, T. Iwai, M. Takatsu, S. Honda, K. Funaki, T. Ishikawa and Y. Seto, "Effects of Machine Washing on the Chromatography Parameters of Polyester Fiber Gel Permeation," *ACS Omega*, vol. 43, no. 7, pp. 38789-38795, 2022.
- [47] C. Hu, Z. Liu, H. Mei, H. Guo, Z. Sun, Y. Li, G. Song, J. Huang and J. Zhu, "Determination of disperse dyes on polyester fibers by UHPLC–Orbitrap MS," *Sci. Justice*, vol. 1, no. 83-89, p. 63, 2023.
- [48] H. Takahara, W. Matsuda, Y. Kusakabe, S. Ikeda, M. Kuraoka, H. Komatsu and Y. Nishiwaki, "An Evaluation of Total Reflection X-Ray Fluorescence as a Tool for Forensic Discrimination of Single Polyester Fibers," *Anal. Sci.*, vol. 37, no. 8, pp. 1123-1129, 2021.
- [49] Y. Sengoku, Y. Tokuoka, H. Komatsu, Y. Nishiwaki and S. Kunimura, "Analysis of Single Synthetic Fibers Using a Portable Total Reflection X-ray Fluorescence Spectrometer," *Anal. Sci.*, vol. 37, no. 12, pp. 1829-1833, 2021.
- [50] 西脇芳典, 石井健太郎, 竹川知宏 and 蒲生啓司, "放射光蛍光 X 線分析を用いたポリエステル白色単繊維の非破壊異同識別," *日本法科学技術学会誌*, vol. 21, no. 1, pp. 67-73, 2016.
- [51] Y. Nishiwaki, S. Honda, T. Yamato, R. Kondo, A. Kaneda and S. Hayakawa, "Nondestructive Differentiation of Polyester Single White Fibers Using Synchrotron Radiation Microbeam X-ray Fluorescence Spectrometry with Vertical Focusing," *J. Forensic Sci.*, vol. 5, no. 1474-1479, p. 65, 2020.
- [52] 南幸男, 本多定男, 中野和彦, 牧野由紀子, 早川慎二郎, 二宮利男, 青山光輝 and 八木直人, "X 線小角散乱法による法科学分野における単繊維の異同識別," *SPring-8/SACLA 利用研究成果集*, vol. 5, no. 2, pp. 164-166, 2017.
- [53] 本多定男, 橋本敬, 青山光輝 and 八木直人, "科学鑑定のための単繊維片の放射光 X 線小角/広角散乱分析," *SPring-8/SACLA 利用研究成果集*, vol. 5, no. 2, pp. 193-197, 2017.
- [54] T. Nacci, F. Sabatini, C. Cirrincione, I. Degano and M. Colombini, "Characterization of textile fibers by means of EGA-MS and Py-GC/MS," *J. Anal. Appl. Pyrolysis*, vol. 165, p. 105570, 2022.
- [55] 戸田裕之, X 線 CT —産業・理工学でのトモグラフィー実践活用—, 共立出版, 2019.
- [56] S. R. Stock, *MicroComputed Tomography: Methodology and Applications*, 2nd ed., CRC Press, 2020.
- [57] G. N. Hounsfield, "Computerized transverse axial scanning (tomography): Part 1. Description

- of system," *Brit. J. Radiol.*, vol. 46, no. 552, pp. 1016-1022, 1973.
- [58] J. Elliott and S. Dover, "X-ray microtomography," *J. Microsc.*, vol. 126, no. 2, pp. 211-213, 1982.
- [59] A. Thompson, J. Llacer, L. Finman, E. Hughes, J. Otis, S. Wilson and H. Zeman, "Computed tomography using synchrotron radiation," *Nucl. Instrum. Methods. Phys. Res.*, vol. 222, no. 1-2, pp. 319-323, 1984.
- [60] 工藤博幸, 藤井克哉, 橋本康, 矢代航 and W. Voegeli, "トモグラフィ画像再構成の基礎とトレンド~解析的再構成法から圧縮センシングを経て深層学習まで~, " *日本金属学会会報「まてりあ」*, vol. 61, no. 1, pp. 7-14, 2022.
- [61] リガク, *高分解能3DX線顕微鏡 nano3DX 取扱説明書*.
- [62] 武田佳彦 and 濱田賢作, "高分解能 X 線顕微鏡 nano3DX による観察の基礎—よりよい画像を得るために—," *リガクジャーナル*, vol. 45, no. 2, pp. 7-12, 2014.
- [63] Y. Takeda and K. Hamada, "A primer on the use of the nano3DX high-resolution X-ray microscope," *Rigaku J.*, vol. 31, no. 1, pp. 10-15, 2015.
- [64] 田邊栄司, "サブミクロン領域 X 線 CT 断層像への線質の影響," *広島県立総合技術研究所西部工業技術センター研究報告*, vol. 63, p. 12, 2020.
- [65] Rigaku, "Rigaku X-ray CT Publications," [Online]. Available: <https://imaging.rigaku.com/learning/rigaku-x-ray-ct-publications>. [Accessed 20 Jan. 2023].
- [66] I. C. Sinka, S. F. Burch, J. H. Tweed and J. C. Cunni, "Measurement of density variations in tablets using X-ray computed tomography," *Int. J. Pharmaceutics*, vol. 271, no. 1-2, pp. 215-224, 2004.
- [67] A. M. Miguélez-Morán, C. Y. Wu, H. Dong and J. P. K. Seville, "Characterisation of density distributions in roller-compacted ribbons using micro-indentation and X-ray micro-computed tomography," *European J. Pharmaceutics Biopharmaceutics*, vol. 72, no. 1, pp. 173-182, 2009.
- [68] S. Kelkar, C. J. Boushey and M. Okos, "A method to determine the density of foods using X-ray imaging," *J. Food Eng.*, vol. 159, pp. 36-41, 2015.
- [69] R. Wiedey and P. Kleinebudde, "The Density Distribution in Ribbons from Roll Compaction," *Chemie Ingenieur Technik*, vol. 89, no. 8, pp. 1017-1024, 2017.
- [70] "International Tables for Crystallography Volume C: Mathematical, physical and chemical tables," [Online]. Available: <https://it.iucr.org/C/>. [Accessed 20 Jan. 2023].
- [71] J. Victoreen, "The Calculation of X-Ray Mass Absorption Coefficients," *J. Appl. Phys.*, vol. 20, pp. 1141-1147, 1949.
- [72] "Mucal Periodic Table, Illinois Institute of Technology," [Online]. Available: <http://www.csrrri.iit.edu/periodic-table.html>. [Accessed 20 Jan. 2023].
- [73] D. F. Jackson and D. J. Hawkes, "X-ray attenuation coefficients of elements and mixtures,"

- Phys. Rep.*, vol. 70, no. 3, pp. 169-233, 1981.
- [74] J. F. Barrett and N. Keat, "Artifacts in CT: Recognition and Avoidance," *RadioGraphics*, vol. 24, no. 6, pp. 1679-1691, 2004.
- [75] V. Busignies, B. Leclerc, P. Porion, P. Evesque, G. Couarraze and P. Tchoreloff, "Quantitative measurements of localized density variations in cylindrical tablets using X-ray microtomography," *Eur. J. Pharm. Biopharm.*, vol. 64, no. 1, pp. 38-50, 2006.
- [76] D. H. Phillips and J. J. Lannutti, "Measuring physical density with X-ray computed tomography," *NDT & E Int.*, vol. 30, no. 6, pp. 339-350, 1997.
- [77] S. Burch, "Measurement of density variations in compacted parts using X-ray computerised tomography," *Met. Powder Rep.*, vol. 57, no. 2, pp. 24-28, 2002.
- [78] A. d. Plessis, M. Meincken and T. Seifert, "Quantitative Determination of Density and Mass of Polymeric Materials Using Microfocus Computed Tomography," *J. Nondestruct. Eval.*, vol. 32, no. 4, pp. 413-417, 2013.
- [79] J. Amorós, J. Boix, D. Llorens, G. Mallol, I. Fuentes and C. Feliu, "Non-destructive measurement of bulk density distribution in large-sized ceramic tiles," *J. Eur. Ceram. Soc.*, vol. 30, no. 14, pp. 2927-2936, 2010.
- [80] 橋本敬, 上杉健太朗, 星野真人, 本多定男, 木村滋 and 土山明, "土砂中一次鉱物の CT 画像からの定性および定量について," *SPring-8/SACLA 利用研究成果集*, vol. 8, no. 1, pp. 172-174, 2020.
- [81] G. N. Ritty, A. Brough, M. J. P. Biggs, C. Robinson, S. D. A. Lawes and S. V. Hainsworth, "The role of micro-computed tomography in forensic investigations," *Forensic Sci. Int.*, vol. 225, no. 1-3, pp. 60-66, 2013.
- [82] G. Franchetti, G. Viel, P. Fais, G. Fichera, D. Cecchin, G. Cecchetto and C. Girauda, "Forensic applications of micro-computed tomography: a systematic review," *Clin. Transl. Imaging*, vol. 10, pp. 597-610, 2022.
- [83] E. Nguyen and E. Doyle, "Dental Post-mortem Computed Tomography for Disaster Victim Identification: A literature review," *J. Forensic Radiol. Imaging*, vol. 13, pp. 5-11, 2018.
- [84] C. A. Belgin, G. Serindere and K. Orhan, "Accuracy and reliability of enamel and dentin thickness measurements on micro-computed tomography and digital periapical radiographs," *J. Forensic Radiol. Imaging*, vol. 18, pp. 32-36, 2019.
- [85] I. Campioni, R. Pecci and R. Bedini, "Ten Years of Micro-CT in Dentistry and Maxillofacial Surgery: A Literature Overview," *Appl. Sci.*, vol. 10, no. 12, p. 4328, 2020.
- [86] 板宮裕実, 杉田律子 and 小川好則, "X 線 CT 装置を用いた微細な木質試料の非破壊観察," *日本法科学技術学会誌*, vol. 26, no. Suppl., p. 65, 2021.
- [87] 柏木伸之, 板宮裕実, 山崎宏樹, 藤本純平, 市川俊和, 本間正勝 and 岡本勝弘, "X 線 CT 装置による放射加熱を受けた建築材料の被熱痕跡観察," *日本法科学技術学会誌*, vol. 26, no. Suppl., p. 88, 2021.

- [88] 宮本直樹, 四宮康治, 渡邊誠也 and 高野秀和, "放射光 X 線 CT 法を用いた電線の溶融痕の内部観察," *日本法科学技術学会誌*, vol. 11, no. Suppl., p. 101, 2006.
- [89] 独立行政法人製品評価技術基盤機構, "電源コード溶融痕の内部に生じる気泡の三次元解析 (第一報)," Nov. 2014. [Online]. Available: <https://www.nite.go.jp/jiko/event/houkoku/houkoku2014.html>. [Accessed 20 Jan. 2023].
- [90] 独立行政法人製品評価技術基盤機構, "X 線 CT による電源コード短絡痕に生じる気泡の三次元解析," Nov. 2015. [Online]. Available: <https://www.nite.go.jp/jiko/event/houkoku/houkoku2015.html>. [Accessed 20 Jan. 2023].
- [91] K. Alsop, D. Norman, G. Remy, P. Wilson and M. A. Williams, "Quantitative characterisation of ballistic cartridge cases from micro-CT," *Forensic Sci. Int.*, vol. 236, p. 110913, 2021.
- [92] 斎藤修二, "X 線 CT 装置を用いた加工された硬貨の検査," *日本法科学技術学会誌*, vol. 10, no. Suppl., p. 215, 2005.
- [93] 楊海圈, 富井和仁 and 工藤博幸, "コーンビーム画像再構成・可視化・計測を一体化した CT ソフトウェアの開発— 基本機能と歯科用 CT 装置への応用—," *Med. Imaging Technol.*, vol. 30, no. 4, pp. 192-200, 2012.
- [94] L. A. Feldkamp, L. C. Davis and J. W. Kress, "Practical cone-beam algorithm," *J. Opt. Soc. Am. A*, vol. 1, no. 6, pp. 612-619, 1984.
- [95] "ImageJ," [Online]. Available: <https://imagej.nih.gov/ij/>. [Accessed 20 Jan. 2023].
- [96] M. D. Abràmoff, P. J. Magalhães and S. J. Ram, "Image Processing with ImageJ," *Biophotonics Int.*, vol. 11, no. 7, pp. 36-42, 2004.
- [97] C. A. Schneider, W. S. Rasband and K. W. Eliceiri, "NIH Image to ImageJ: 25 years of Image Analysis," *Nat. Methods*, vol. 9, no. 7, pp. 671-675, 2012.
- [98] "ImageJ Fiji," [Online]. Available: <https://imagej.net/software/fiji/>. [Accessed 20 Jan. 2023].
- [99] J. Schindelin, I. Arganda-Carreras, E. Frise, V. Kaynig, M. Longair, T. Pietzsch, S. Preibisch, C. Rueden, S. Saalfeld, B. Schmid, J. Tinevez, D. J. White, V. Hartenstein, K. Eliceiri, P. Tomancak and A. Cardona, "Fiji - an Open Source platform for biological image analysis," *Nat. Methods*, vol. 9, no. 7, pp. 676-682, 2012.
- [100] "The Center for X-ray Optics (CXRO)," [Online]. Available: <https://www.cxro.lbl.gov/>. [Accessed 20 Jan. 2023].
- [101] "Scientific Polymer Products Inc.," [Online]. Available: <https://scipoly.com/>. [Accessed 20 Jan. 2023].
- [102] W. Tadano, E. Tanabe, J. Stellhorn, K. Komaguchi, M. Takeuchi and S. Hayakawa, "Feasibility Studies of X-Ray Computed Tomography for Forensic Examination of Single Fibers," *Anal.Sci.*, vol. 37, no. 10, pp. 1401-1406, 2021.
- [103] 多田野渉 and 早川慎二郎, "微細試料の X 線マイクロ CT 画像解析—ImageJ Fiji を用いた単繊維の開口率及び体積の抽出—," *X 線分析の進歩*, vol. 54, 2023(採録決定済み).

- [104] "Microtrace Forensic Fiber Reference Collection," Microtrace LLC, USA, [Online]. Available: <https://www.microtrace.com/service/forensic-fiber-reference-collection/>. [Accessed 20 Jan. 2023].
- [105] W. Tadano, M. Takeuchi, E. Tanabe, J. Stellhorn, K. Komaguchi, A. Nakamoto, S. Honda and S. Hayakawa, "Non-destructive analysis of hollow-shaped single fibers using X-ray computed tomography," *J. Forensic Sci.*, vol. 67, no. 4, pp. 1461-1467, 2022.
- [106] W. Tadano, E. Tanabe, J. Stellhorn, K. Komaguchi and S. Hayakawa, "Density estimations and comparisons of a fragmented single fiber using X-ray computed tomography," *Anal. Sci.*, vol. 39, no. 2, pp. 235-240, 2023.
- [107] 百瀬敦, "位相コントラスト X 線イメージング," *光学*, vol. 29, no. 5, pp. 287(17)-294(24), 2000.
- [108] L. Brombal, G. Kallon, J. Jiang, S. Savvidis, P. D. Coppi, L. Urbani, E. J. Forty, R. C. Chambers, R. Longo, A. Olivo and M. Endrizzi, "Monochromatic Propagation-Based Phase-Contrast Microscale Computed-Tomography System with a Rotating-Anode Source," *Phys. Rev. Appl.*, vol. 11, p. 034004, 2019.
- [109] R. Corzo, T. Hoffman, T. Ernst, T. Trejos, T. Berman, S. Coulson, P. Weis, A. Stryjnik, H. Dorn, E. Pollock, M. Workman, P. Jones, B. Nytes, T. Scholz, H. Xie, K. Igowsky, R. Nelson, K. Gates, J. Gonzalez, L. Voss and J. Almirall, "An interlaboratory study evaluating the interpretation of forensic glass evidence using refractive index measurements and elemental composition," *Forensic Chem.*, vol. 22, p. 100307, 2021.

付録

A. ImageJ Fiji を用いた画像解析

ImageJ [95] [96] [97] は、アメリカ国立衛生研究所 (National Institutes of Health, NIH) で開発され、1997 年にリリースされた、オープンソースでフリーの画像処理ソフトウェアであり、生命科学分野を中心に画像解析用途で世界的に広く利用されている。

ImageJ Fiji [98] [99] は、ImageJ に機能を追加して開発された ImageJ の上位互換ソフトウェアであり、ImageJ2 とも呼ばれる。図 28 に ImageJ Fiji のメイン画面を示す。本研究で行う画像解析は ImageJ に標準搭載されている機能で実施可能であるが、Fiji を使用した。以下では、第 4 章で行った中空繊維の開口率及び体積の抽出を例に、解析の具体的手順について述べる。

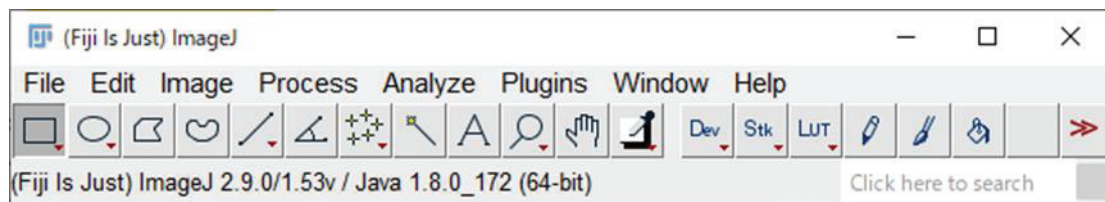


図 28 ImageJ Fiji のメイン画面

A.1. 画像解析の流れ

本研究で行う画像解析手順全体の流れを図 29 に示す。断層像をスタック画像として読み込んだ後、閾値を設定して2値化処理を行い、粒子解析を行った。画像のスケールを設定したり、出力したい計測量を選択したりすることも可能である。以下では、図 16(a)を含む断層像を題材に各手順の詳細を述べる。

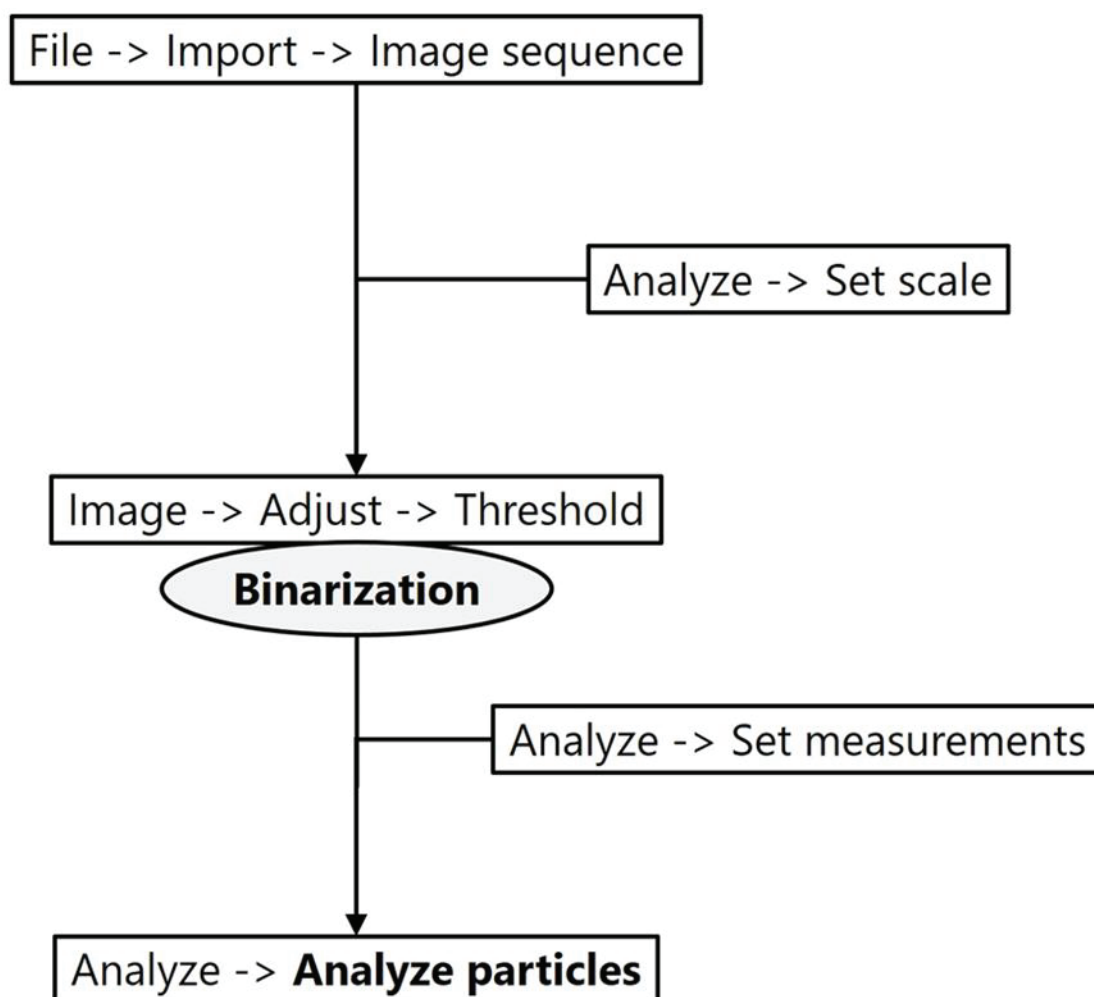


図 29 画像解析手順全体の流れ

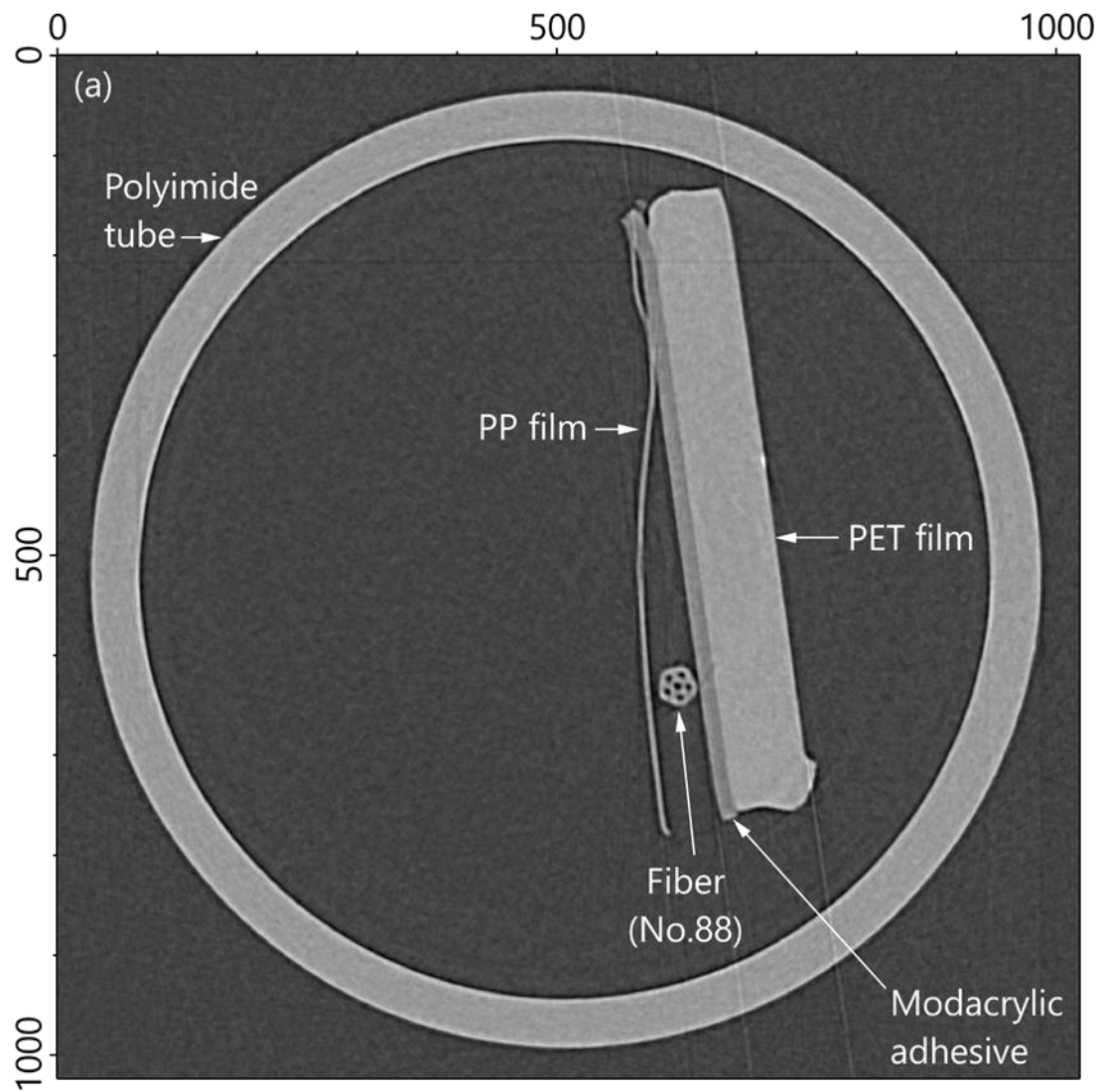


図 16 (a) 五角形の中空単繊維 (#88) を保持して測定した CT 断層像の一例 (再掲載)

A.2. 断層像の読み込み

まず、画像ファイルのみを収録したホルダーを作成する。Tomoshop を用いた再構成を行うと、断層像と同階層に「rlt ファイル」及び「des ファイル」が保存されている。これら2つのファイルは断層像を Tomoshop でスタック画像として起動する際に必要なファイルであるが、ImageJ Fiji での起動時には不要である。

次に、「File」メニューから「Import」、さらに「Image Sequence...」を開き（図 30）、前段で準備した断層像ファイルのみが収録されたホルダーを選択する。断層像をスタック画像として読み込むことができる。

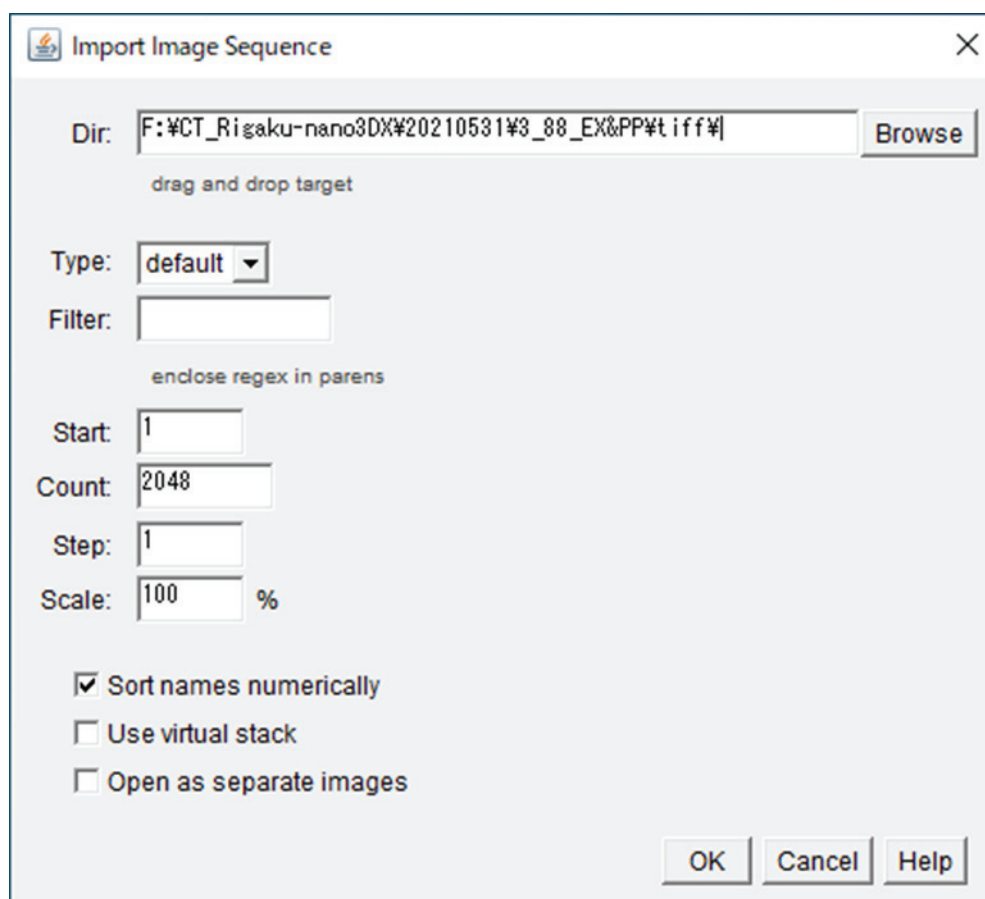


図 30 「Image Sequence...」の表示画面

A.3. スケールの設定

「Analyze」メニューから「Set Scale...」を開くと、画像のスケールを設定できる。「Set Scale...」の表示画面を図 31 に示す。「Distance in pixels」に基準とするピクセル数を、「Known distance」に基準に対応する長さを、「Unit of length」に単位をそれぞれ入力すると、画面下部にスケールが表示される。また、「Distance in pixels」に「0」を入力すると、ピクセル単位のまま解析できる。本研究ではピクセル単位のまま解析・出力した後で単位換算した。

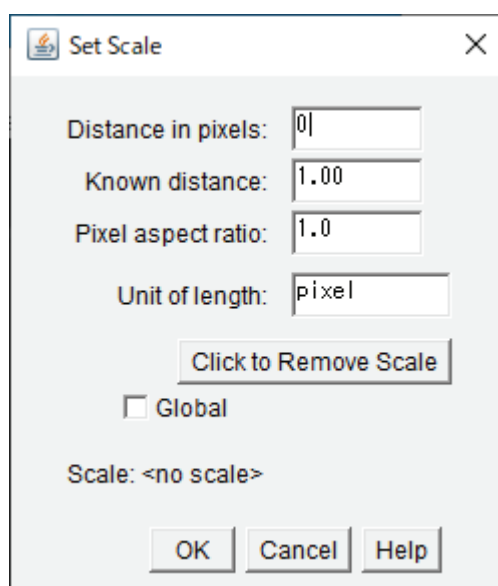


図 31 「Set Scale...」の表示画面

A.4. 2 値化処理

「Image」メニューから「Adjust」、さらに「Threshold...」を開いた画面を図 32 に示す。上部に表示された光学密度のヒストグラムをもとに中部のスクロールバーで閾値を設定できる。閾値の手動入力が必要な場合は、右下の「Set」をクリックして手動入力する。「Dark Background」のチェックを外すと白黒反転できる。単繊維を認識する場合は同図のように光学密度 8870 以上を 1 とし、空気層を認識する場合は逆に光学密度 8869 以下を 1 として 2 値化した。

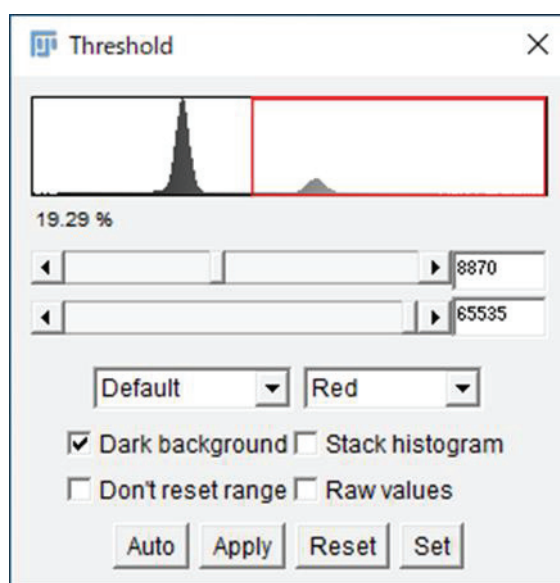


図 32 「Threshold...」の表示画面

A.5. 計測の設定

「Analyze」メニューから「Set Measurements...」を開くと、計測を選択できる。「Set Measurements...」の表示画面を図 33 に示す。「Area (面積)」、「Perimeter (周長)」、「Shape descriptors (真円度など)」、「Centroid (中心座標)」等から必要なものにチェックを入れ、「Decimal places (小数点以下の表示桁数)」も設定する。



図 33 「Set Measurements...」の表示画面

A.6. 解析

「Analyze」メニューから「Analyze Particles...」を開いた画面を図 34 に示す。計測する粒子を面積範囲や真円度(Circularity)で絞り込むことができ、結果の表示方法(Fig.3(b)ではMasksを選択)の設定、結果を一覧表で出力する「Display results」、画面の端で見切れた粒子を計測対象から除外する「Exclude on edges」などの機能がある。また、「Analyze」メニューを開く前に長方形ツールなどで領域を選択しておく、選択した範囲内にある粒子のみを抽出できる。「OK」選択後は、「Process Stack?」の画面が表示され、スタック全体を計測する場合は「Yes」、表示中の1スライスのみを計測する場合は「No」を選択する。単繊維を認識する場合は図のようにサイズ「500~1000pixel²」(真円度は「0.00~1.00」)と設定し、空気層を認識する場合はサイズ「25~100pixel²」、真円度「0.80~1.00」と設定した。

計測結果はFig.3(b)の画面で指定した形式で表示される。一覧表はcsv形式で保存できる。また、測定終了時には「ROI Manager」画面が表示される。認識されたすべての粒子が番号付けされており、不要な粒子が認識された場合の除外などが可能である。

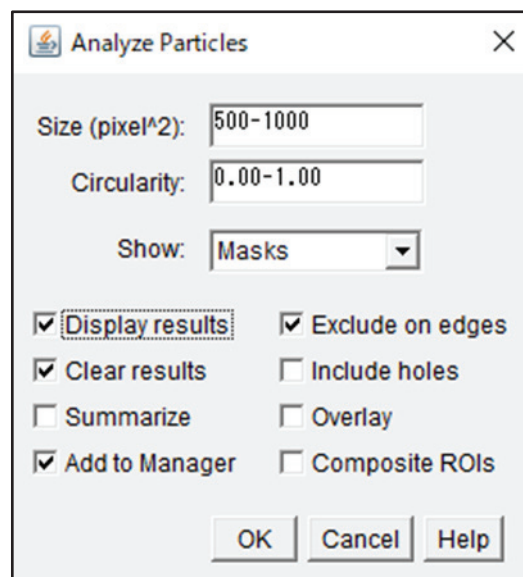


図 34 「Analyze Particles...」の表示画面

B. 研究成果

B.1. 公表論文

著者： Wataru Tadano, Eishi Tanabe, Jens R. Stelhorn, Kenji Komaguchi, Masaru Takeuchi, Shinjiro Hayakawa

題目： Feasibility Studies of X-Ray Computed Tomography for Forensic Examination of Single Fibers

雑誌名： Analytical Sciences Vol.37, No.10, pp.1401-1406 (2021)

著者： Wataru Tadano, Masaru Takeuchi, Eishi Tanabe, Jens R. Stelhorn, Kenji Komaguchi, Akihiro Nakamoto, Sadao Honda, Shinjiro Hayakawa

題目： Non-destructive analysis of hollow-shaped single fibers using X-ray computed tomography

雑誌名： Journal of Forensic Sciences Vol. 67, No. 4, pp. 1461-1467 (2022)

著者： Wataru Tadano, Eishi Tanabe, Jens R. Stelhorn, Kenji Komaguchi, Shinjiro Hayakawa

題目： Density estimations and comparisons of a fragmented single fiber using X-ray computed tomography

雑誌名： Analytical Sciences Vol.39, No.2, pp.235-240 (2023)

著者： 多田野 渉, 早川 慎二郎

題目： 微細試料の X 線マイクロ CT 画像解析

－ ImageJ Fiji を用いた単繊維の開口率及び体積の抽出－

雑誌名： X 線分析の進歩 第 54 巻, 採録決定済み (2023)

B.2. 国内学会発表・講演

発表者： 本多 定男, 金田 敦徳, 大和 拓馬, 多田野 渉, 西脇 芳典, 早川 慎二郎, 鈴木 真一, 木村 滋

題目： 綿埃の放射光 XRF 分析

学会名： 日本法科学技術学会第 23 回学術集会（口頭発表，2017 年 11 月 東京都 中野サンプラザにて）

発表者：多田野 涉，田邊 栄司，STELLHORN, Jens R.，駒口 健治，早川 慎二郎

題 目：X線CTを用いた単繊維の異同識別に関する基礎的検討

学会名：日本法科学技術学会第26回学術集会（口頭発表，2020年11月オンライン開催）

発表者：多田野 涉，田邊 栄司，STELLHORN, Jens R.，駒口 健治，武内 将，本多 定男，早川 慎二郎

題 目：X線CTを用いた単繊維の非破壊分析

学会名：第57回X線分析討論会（口頭発表，2021年11月オンライン開催）

発表者：多田野 涉，田邊 栄司，STELLHORN, Jens R.，駒口 健治，武内 将，本多 定男，早川 慎二郎

題 目：X線CTを用いた中空構造単繊維の非破壊分析

学会名：日本法科学技術学会第27回学術集会（口頭発表，2021年11月オンライン開催）

講演者：多田野 涉

題 目：X線マイクロCT法を用いた微細試料の法科学的異同識別に関する基礎的検討

講演会：X線分析研究懇談会第278回例会（口頭発表，2023年1月 東広島芸術文化センターくららにて）