

偽造防止技術の陶磁器への適用 (2つの光学特性を持つ光励起型蛍光体の開発)

小山 紗季[†] 藤川 真樹[†] 瀧 真悟[‡]

工学院大学[†] 青山学院大学[‡]

1. はじめに

有名な窯元やブランドによって製造される陶磁器は知名度と人気が高く、高級な服飾品（時計、鞆など）と同様に高値で売買される傾向がある。偽造者は、このような傾向に目をつけて真正品を模したコピー品を製造し、インターネット上のショッピングサイトやオークションサイトを販路としてコピー品を販売している[1]。

著者は、マルチモーダルバイオメトリクスにヒントを得て、複数の特徴情報を陶磁器に付加することによりその真正性の確度と偽造困難性を高めるための技術（マルチモーダル人工物メトリクス）を提案する。本研究のゴールは、

(1) 2つの光学的な特徴情報（発光強度と色相）を示すガラス蛍光体の開発と、(2) 製品の真正性の確度と偽造困難性を高める手法の提案と、(3) 当該手法の有効性を証明することである。本論文ではその第1ステップとして、2つのピーク波長を示すガラス蛍光体の作製と、当該蛍光体の粉末を陶磁器に添加する実験（色相と発光強度の観測）を行う。

2. 関連研究

人工物メトリクスの技術を用いた偽造防止技術の研究は、これまでも行われてきた。文献[2]では、光励起により近赤外線（ピーク波長1,000nm）を発光する透明度の高いガラス発光体の粉末を陶磁器の釉薬層や絵具層に添加して焼成する方法を提案している。

当該手法には2つの課題がある。1つ目は、ガラス蛍光体粒子が発する光を捉えるためには、近赤外線カメラという特殊かつ入手が容易ではない光学系を使用する必要があることである。2つ目は、蛍光波長のピークが1つであるため、光学的特性を持つ特徴情報の数を増やせないことである。

3. 提案手法

本研究では文献[2]の蛍光体とは異なり、励起光を照射する場所によって、異なる色相を示す

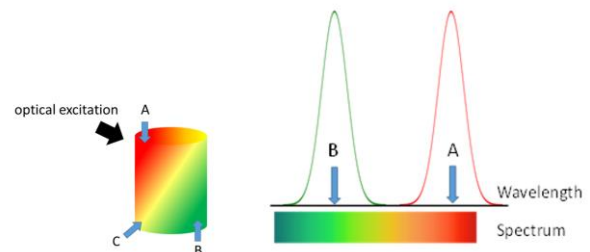


図1 蛍光体のイメージ

ガラス蛍光体を用いる。当該蛍光体のイメージを図1（左）に、発光と2つの発光ピーク波長との関係を図1（右）に示す（各図における記号（A, B）は一致している）。たとえば、図1（左）の観測位置Aでは赤色が、Bでは緑色が観測される。これを波長で示したものが図1（右）である。もし、蛍光体上で黄色が観測される場合（観測位置C）、当該位置では赤色と緑色の2つの光が出ている。このように、観測点によって色相の違いが生じる理由は、蛍光体に含まれる複数の酸化希土類のイオンの数の比率が観測点ごとに異なるためである。

陶磁器への添加は文献[2]と同様に、当該蛍光体を粉末にし、これを釉薬や絵具に混ぜるアプローチをとる。イオンの数が不均一さを残した状態で当該粉末が陶磁器に溶着した場合、観測位置から「発光スペクトル分布（色相）」と「発光強度分布」という2つの特徴情報を抽出できる。一般的に、可視光帯域にピーク波長を示し、赤外線を励起光源とするアップコンバージョン蛍光体（発光の波長が励起光の波長よりも短波長側にシフトするもの）は、1つの鋭いピーク波長を示すこと（単色を発光すること）を目標として開発される。本研究のように、酸化希土類イオンの比率を変えることで2つのピーク波長を示すアップコンバージョン蛍光体を開発することは、著者らの知る限りにおいてなされていないため新規性があるといえる。

4. 実験

4.1 ガラス蛍光体の作製

ガラス蛍光体を持つ色と透明度、励起光を照射した際の発光の色は、配合する酸化希土類の種類とその割合、母体ガラスの組成により決まる。

Anti-counterfeiting Technique for Ceramics (Phosphor Development with Two Optical Features)

[†]Saki Koyama, Masaki Fujikawa, Kogakuin University

[‡]Singo Fuchi, Aoyama Gakuin University

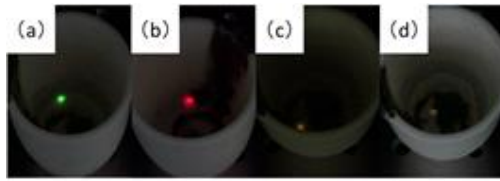


図2 坩堝の発光の様子
(a): 緑色, (b): 赤色, (c): 橙色, (d): 黄色

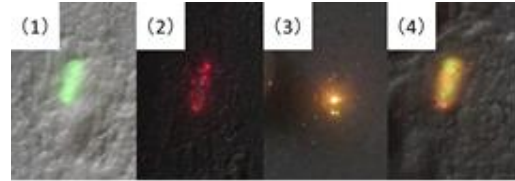


図3 皿の発光の様子
(1): 緑色, (2): 赤色, (3): 橙色, (4): 緑と赤の混合

今回開発する蛍光体は、1種類の酸化希土類（ネオジウム（Nd））を含んだ蛍光体[2]とは異なり、2種類の酸化希土類（酸化イットルビウム（Yb₂O₃）、酸化エルビウム（Er₂O₃））を含む。これらの組成は焼成時に、蛍光体中にイットルビウムイオンとエルビウムイオンの数が自然偶発的に不均一になる場所を発生させる可能性があり、これによって観測点ごとに異なる発光スペクトル（色相）と発光強度が観測できる。発光スペクトル（色相）を変えるのは、イットルビウムイオンの数とエルビウムイオンの数の比率である。一方、発光強度を変えるのは、エルビウムイオンの数である。実験では、母体ガラスの組成（酸化亜鉛（ZnO）、三酸化アンチモン（Sb₂O₃）、二酸化ゲルマニウム（GeO₂））と酸化希土類の組成を少しずつ変えた試薬を秤量し、坩堝に入れて焼成することでガラス蛍光体を作製した。当該蛍光体の発光の様子を図2に示す。観測点ごとに異なる色相と発光強度の様子が確認できる。

4.2 蛍光体の陶磁器への添加

4.1節で作製した蛍光体の粉末を陶器皿の表面に焼き付けたあと、励起光を照射した際の発光の様子を確認する。以下は、蛍光体粉末を陶器皿に添加するための作業手順である。

- (1) 透明釉薬を乾燥させて粉末にする。当該釉薬は、無色透明のガラス質を陶磁器の表面に形成する。
- (2) 透明釉薬を皿に掛ける。釉薬の乾燥を確認したあと、蛍光体の粉末を皿に付着させる。
- (3) 蛍光体粉末の上に、(1)で作製した釉薬の粉末をふりかけ、指で馴染ませる。これにより、釉薬と蛍光体粉末が混合した状態となる。

以上の手順の後に、8時間かけて1,230度になるように設定した炉内で皿を焼成する。焼成後の皿に、励起光を照射した際の様子を図3に示す。観測点ごとに異なる色相と発光強度の様子が確認できる。

5. 考察

5.1 結晶の除去

皿から2つの特徴情報を抽出することに成功

したが、皿の表面に小さな白い結晶の塊が点在する。当該結晶は意匠を損なうことから、これを除去しなくてはならない。結晶が発生した原因として3つが考えられる。1つ目は、使用している試薬が十分に溶解できていないことである。これは、融点が高い試薬に変えることで解決できると考える。2つ目は、皿を焼成する際の炉の温度が低いことと、焼成時間が短いことである。これは、炉の温度を高くしつつ、焼成時間を長くすることで解決できると考える。3つ目は、釉薬をかけた後の乾燥が足りなかったことである。これは、1日以上乾燥時間を設けることで解決できると考える。

5.2 皿に発光画像を貼り付けた場合の対応

真正品が発光している様子を撮影した画像を偽造品に貼り付けた場合、人間の眼では偽造品と判別できても、機械では真正品と誤断する可能性がある。この対応策として光変調方式を採用する。発光画像を偽造品に貼り付けた場合、励起光を照射していない状態でも発光しているような様子が確認できるため、検証毎に異なる乱数を発生させ、そのタイミングに合わせて励起光を照射させる装置を用いる。受光器は乱数を知っているため、励起光を照射していないタイミングで皿が発光していることを感知した場合、画像を貼り付けた偽造品であることがわかる。

6. まとめ

光励起によって、任意の観測位置から「色相」と「発光強度」という2つの光学的な特徴情報を抽出できるガラス蛍光体を開発した。当該蛍光体の粉末を皿に添加したところ、観測点ごとに異なる色相と発光強度が確認された。

参考文献

- [1] 藤川真樹, 小田史彦, 森安健吾, 渕真悟, 竹田美和, “有価陶磁器に対する人工物メトリクス適用のための研究”, コンピュータセキュリティシンポジウム2013 論文集, vol.2013, no.4, pp.949-956, 10月(oct.)2013
- [2] 藤川真樹, 小田史彦, 森安健吾, 渕真悟, 竹田美和, “有価陶磁器製品に対する人工物メトリクス適用のための研究”, 情報処理学会論文誌, vol.55, no.9, pp.1992-2007, 9月(sep.)2014.