

# マルチモーダル人工物メトリクスのための 機能性材料の開発（その3）

藤川真樹<sup>1</sup> 原万里子<sup>1</sup> 尾崎悠介<sup>1</sup> 坂野正宗<sup>1</sup> 七井靖<sup>2</sup> 渕真悟<sup>2</sup>

**概要：**著者らは、マルチモーダル人工物メトリクスをセラミックス製品に適用し、複数の光学的な特徴情報を製品から抽出する方法を研究している。本論文では、当該方法を実現する可能性のあるガラス蛍光体の開発について述べる。既発表の論文では、光励起（980 nm）により可視光帯域で2つの発光ピークを示し（アップコンバージョン現象）、着色の少ない透明なガラス蛍光体を開発したことを述べたが、当該蛍光体は励起波長よりも長波長側で発光（ダウンコンバージョン現象）を示すことが今回の実験により検証された。また、当該蛍光体は励起光が照射される場所において観測できる色相（可視光帯域）と発光強度（可視光帯域、近赤外線帯域）に違いをもたらす。これにより、当該蛍光体が添加されたセラミックス製品からは「発光を撮影した画像」という特徴情報に加えて、「発光強度とその比率」という特徴情報が抽出される可能性がある。

## 1. はじめに

### 1.1 背景と目的

有名な窯元やブランドによって製造されるセラミックス製品は知名度と人気が高く、高級服飾品と同様に高値で売買される。偽造者はこのことに目をつけて真正品を模したコピー品を製造し、鑑定スキルの低い者をターゲットとしてこれらを販売する[1]。コピー品の流通は「窯元やブランドが保有する知的財産権を侵害し、彼らが得られるべき適正な利益を減らす」「誤ってコピー品を購入した者に対して精神的・金銭的なダメージを与える」といった問題を引き起こすため見過ごしてはならない。

著者らは鑑定スキルの低い者が誤ってコピー品を購入することがないようにするために、製品の真正性を高い精度で機械的に検証できる方法を研究している。この方法は真正品のクロウンの製造を困難にする機能を有するため、偽造防止技術のひとつである人工物メトリクス[2]に含まれる。文献[3]において著者らは、赤外線励起により近赤外線帯域に1つの発光ピーク波長を示す透明なガラス蛍光体に注目し、この粉末を製品の表面に少量溶着させるアイデアを提案した。この特徴を以下に示す。

- (1) ガラス蛍光体には毒性が認められないため、人体および環境に影響を与えない。また、着色が少なく透明であるため製品の意匠を損ないにくい。
- (2) 真正性の検証に使用する特徴情報（蛍光体の発光を捉えた画像）は、撮影という方法で製品から非接触で抽出できる。
- (3) 偽造者がガラス蛍光体を入手したとしても、真正品のクロウンを製造することは困難である。

マルチモーダルバイオメトリクス[4]にヒントを得た著

者らは、人工物から複数の特徴情報を抽出可能にすることによって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）を提案した[5]。著者らは、当該技術をセラミックス製品に適用し、製品から複数の光学的な特徴情報を抽出可能にする方法を研究しているが、本論文では当該方法を実現する可能性のあるガラス蛍光体の開発について述べる。

本論文では、以下に示す流れで論述を進める。本章ではこのあと人工物メトリクスとマルチモーダル人工物メトリクスの概要を述べる。2章では、ガラス蛍光体のコンセプトと製品から抽出可能な特徴情報について述べる。3章ではガラス蛍光体の開発について述べる。4章で考察を述べ、5章で本論文を総括する。

### 1.2 人工物メトリクスの概要

人工物メトリクスのコンセプトはバイオメトリクスに由来する。個々の人工物はユニークな特徴情報を持つため、人工物から抽出された特徴情報と登録済みの特徴情報との類似度が高いほど真正性の度合いも高くなる。一方、偽造困難性は「特徴情報のクロウンを作製することが困難である」という技術的な裏付けによって成立する。特徴情報は製品の製造過程において自然偶発的に形成されるものであり、真正品の製造者であっても狙った通りに形成できない。このため、特徴情報が形成されるメカニズムを公開しても偽造困難性が低下することはない。

顕微鏡で見ると、個々の人工物は特徴情報を持つ。顕微鏡を用いて観測できる微小な凹凸や色相の違いがこれにあたる。一方、顕微鏡によって撮影できる範囲は微小であるため「登録時に観測した領域」と「検証時に観測する領域」を特定するのに時間がかかる[3]。このため、ユニークかつ抽出しやすい特徴情報を人工物中に形成する人工物メトリクスが提案されている[3, 5, 6]。たとえば、製品の製造過程において物理的特性を持つ材料を添加するという方法がある。添加された材料の粒子は自然偶発的かつランダムに分散して人工物中で安定するが、当該粒子の大きさと分散度

1 工学院大学  
Kogakuin University  
2 青山学院大学  
Aoyama Gakuin University

表 1 物理的特性と抽出される特徴情報

物理的特性	抽出される特徴情報
光学特性	粒子がもつ光学特性（反射、透過、屈折、蛍光）とその分散度合いが特徴情報に反映される。当該情報は、光の強度をセンシングできるデバイスによって抽出される。
磁気特性	粒子がもつ磁気特性（引力と斥力）とその分散度合いが特徴情報に反映される。当該情報は、磁気の変化をセンシングできるデバイスによって抽出される。
電気特性	粒子がもつ電気特性（電荷）とその分散度合いが特徴情報に反映される。当該情報は、電荷量をセンシングできるデバイスによって抽出される。
振動特性	粒子がもつ振動特性（音波）とその分散度合いが特徴情報に反映される。当該情報は、音波をセンシングできるデバイスによって抽出される。

表 2 アプローチの比較

	アプローチ 1	アプローチ 2
メリット	人工物の成形性や強度に影響を与える可能性が低い	抽出できる特徴情報の数を増やすことができる
デメリット	抽出できる特徴情報の数に制限がある	人工物の成形性や強度に影響を与える可能性が高い

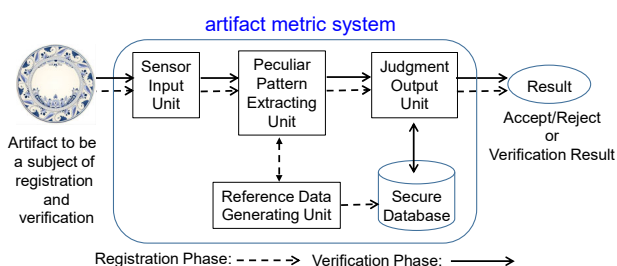


図 1 人工物メトリック・システムの概要

合いが特徴情報に反映される。特徴情報を抽出するときには、当該材料が持つ物理的特性を抽出できるセンシングデバイスが使用される。表 1 に、材料がもつ物理的特性と抽出される特徴情報の例を示す。図 1 は、人工物メトリクスを実装したシステム（人工物メトリック・システム）の概要である（実線と破線で示されている 2 つのフェーズは、バイオメトリック・システムとほぼ同じである）。当該システムでは、人工物の出荷前に特徴情報を抽出して Secure Database に格納する。真正性を検証するときには、対象の人工物から特徴情報を抽出して Secure Database 内の特徴情報と比較する。

### 1.3 マルチモーダル人工物メトリクスの概要

特徴情報を抽出するときの環境（温度、湿度、人工物とセンシングデバイスとの 3 次元的な距離など）は変化するため、同じ特徴情報が安定的に抽出されるとは限らない。当該状況であっても、真正品の場合には Secure Database に登録されている特徴情報と、検証時に抽出された特徴情報との間に強い相関があることを見出せなければ、真正性の検証を安定的に行うことはできない。

両者の間に強い相関を見出す方法として「特徴情報の数を増やす」というアプローチがある[3]。複数の特徴情報を真正性の検証に使用することからマルチモーダル人工物メトリクスと命名された。

当該アプローチは 2 つに分類できる。1 つは材料がもつ 1 つの物理的特性に注目し、人工物から 2 つ以上の特徴情

報を抽出する方法（アプローチ 1）である。文献[3]ではガラス蛍光体が持つ光学特性に注目し、セラミックス製品に溶着した当該粒子の大きさと分散度合いが「発光スペクトル分布」と「発光強度分布」の違いとして現れることから、これらの特徴情報とする方法を文献中（考察が述べられている章）で追加提案している。

もう 1 つは、物理的特性が異なる材料を 2 つ以上人工物に添加することで 2 つ以上の特徴情報を抽出する方法（アプローチ 2）である。たとえば、文献[5]では電気特性を持つ「導電性ポリマー塗料」と光学特性を持つ「赤外線アップコンバージョン蛍光体粉末」を用いて合成樹脂製カード（有価カード）の内部に薄膜を形成する方法が提案されている。薄膜中の蛍光体粒子の大きさと分散度合いが「蛍光体の発光」と「シート抵抗」の違いとして現れることから、これらの特徴情報としている。

両者の違いを表 2 に示す。前者は後者よりも抽出できる特徴情報の数に限りがあるが、人工物の総量に対する材料の量を抑えることができる。後者は前者よりも抽出できる特徴情報の数を増やすことができるが、人工物の総量に対する材料の量も増えるため、人工物の成形性や強度に影響が出る可能性がある。

今回著者らが開発するガラス蛍光体は光学特性を持つ。また、著者らはガラス蛍光体が添加された製品から複数の特徴情報を抽出することを目標としていることから、アプローチ 1 に該当する。

## 2. 設計

### 2.1 コンセプト

上記のアプローチを実現するために、著者らは図 2 に示すように単一の励起波長によって複数の発光ピーク波長を示す、毒性がなく、かつ着色の少ない透明なガラス蛍光体を開発する。

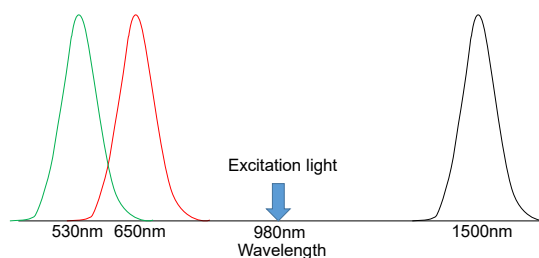


図 2 励起波長と発光ピーク波長

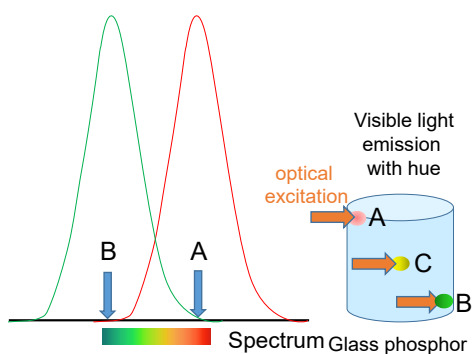


図 3 発光ピーク波長と発光イメージ（可視光帯域）

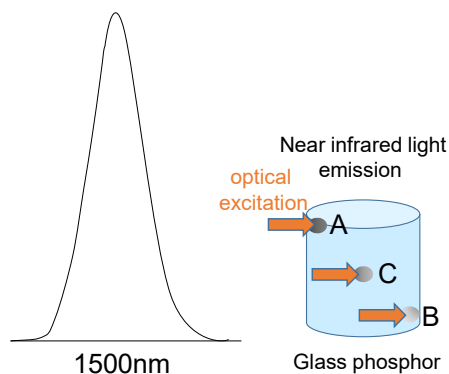


図 4 発光ピーク波長と発光イメージ（近赤外線帯域）

当該蛍光体は、可視光帯域において2つの発光ピーク波長（赤色、緑色）を、近赤外線帯域において1つの発光ピーク波長（1500 nm 付近）を示す。励起波長よりも短波長側で発光することをアップコンバージョン現象といい、長波長側で発光することをダウンコンバージョン現象というが、図2で示したように、今回開発する蛍光体は2つの現象を1つの励起光で実現する。

図3に、可視光帯域におけるガラス蛍光体の発光イメージを示す。当該蛍光体は励起光が照射されると発光するが、当該光が照射される場所によって発光する色と発光強度が異なる。例として、蛍光体上の点Aでは発光強度の低い赤色が、点Bでは発光強度の高い緑色が観測されるものとする。点Cにおいて発光強度が中程度の黄色が観測される場合、そこでは発光強度が同程度の赤色と緑色の2色が発光していることを意味する。

一方、近赤外線帯域に注目すると発光強度の違いが観測される（図4に発光イメージを示す）。例として、赤色が観測されていた点Aでは発光強度の低い近赤外線が、緑色が観測されていた点Bでは発光強度の高い近赤外線が観測されるものとする。当該図のイメージでは、点Cにおいて発光強度が中程度の近赤外線が観測されている。

## 2.2 3つの発光ピーク波長をもたらす希土類酸化物

図2に示したガラス蛍光体を実現する材料として、 $\text{Yb}_2\text{O}_3$ （酸化イットルビウム）と  $\text{Er}_2\text{O}_3$ （酸化エルビウム）という2つの希土類酸化物を用いる。 $\text{Yb}_2\text{O}_3$ は、励起光（980 nm

の近赤外線）を吸収しながら、これを励起エネルギーとしてErイオンに伝達する。一方、Erイオンは可視光帯域において赤色と緑色の発光を示すとともに、近赤外線帯域（1500nm 付近）で発光を示す。

## 2.3 発光の違いをもたらす2つのイオン

一方、図3と図4で示した発光の違いは、YbイオンとErイオンの「数の比率」と「イオン間の距離」が、励起光が照射される場所ごとに異なることで生じる。この差異が発生する理由は、ガラス蛍光体の材料（母体ガラスと希土類酸化物）を炉内で熔融している間、YbイオンとErイオンの「数の比率」と「イオン間の距離」が自然偶発的に不均一になる場所がガラス蛍光体中に発生するためである。

可視光帯域において発光色と発光強度を変えるのはYbイオンとErイオンの「数の比率」と「イオン間の距離」である。一方、近赤外線帯域（1500 nm 付近）における発光強度を変えるのは「Erイオンの数」である。

一般的に、赤外線を励起光とし、可視光または赤外線帯域にピーク波長を示す蛍光体は、1つの鋭いピーク波長を示すこと（単色の発光）を目標として開発される[a]。一方、希土類イオンの「数の比率」や「イオン間の距離」に不均一を持たせることで、図3と図4のような発光を示す蛍光体を開発することは、著者らの知る限りにおいて報告されていないため新規性があると考えられる。

近赤外線による励起の代わりに、波長の短い紫外線を励起光として使用し、図3と図4のような特徴を持つ蛍光体を開発することは技術的には可能であるが、著者らは採用しない。これは、紫外線は顔料を退化させるため[7]、セラミックス製品が持つ意匠に影響が出る可能性があるためである。

## 2.4 抽出が期待される特徴情報

図3と図4のような発光を示すガラス蛍光体をセラミックス製品に添加した場合、当該製品に励起光を照射することで4つの特徴情報を抽出できる可能性がある。1つは、既発表の論文[3, 8, 9]で紹介したように、発光を撮影した画像である（図5に例を示す）。当該情報は、可視光カメラと近赤外線カメラにより非接触で得られる。

残りの3つは、発光強度に関するものである。励起光を照射する場所によって発光の違いが観測されることはすでに述べたが、この現象と残り3つの特徴情報の関係を説明するために図6を示す（これは、励起光を照射した場所XとYについて、分光検出器を用いてそれぞれの発光強度を非接触で観測した様子を示すイメージ図である）。Xでは各発光帯の発光強度の最大値として  $R_x, G_x, N_x$  が、Yでは  $R_y, G_y, N_y$  が観測されたと仮定する。このとき、Xにおける特徴情報は以下のように定義できる。

a 単色を発光する蛍光体を開発する場合、発光色に色ムラが発生することを避ける。本研究のコンセプトは色ムラの発生を逆手に取り、これを積極的に利用するものである。

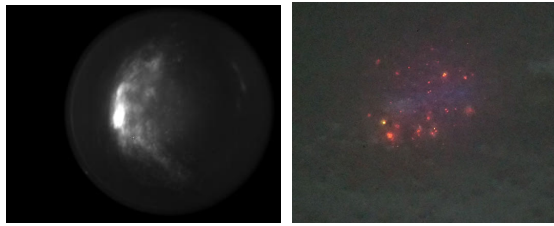


図 5 近赤外線カメラが捉えた発光の画像（左）と可視光カメラが捉えた発光の画像（右）

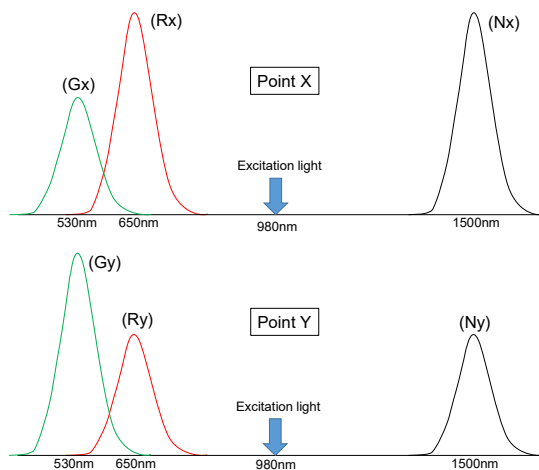


図 6 励起光の照射場所による発光強度の違い（上図：X における発光，下図：Y における発光）

- **発光強度**：Rx, Gx, Nx が特徴情報となる。
- **発光強度比率 1**：観測される光の総量を  $Lx\_max$  とした場合，当該値との比率（Rx :  $Lx\_max$ , Gx :  $Lx\_max$ , Nx :  $Lx\_max$ ）が特徴情報となる。
- **発光強度比率 2**：各発光帯の強度比率（Rx : Gx, Gx : Nx, Rx : Nx）が特徴情報となる。

既発表の論文[8, 9]よりも特徴情報が3つ増えることから，真正性の確度と偽造困難性の向上につながるものと期待される。

## 2.5 ガラス蛍光体の溶着

セラミックス製品から 2.4 節で述べた特徴情報を抽出するために，著者らは既発表の論文[3, 8, 9]と同様にガラス蛍光体を粉末にし，セラミックス製品の表面に溶着させる。粉末を溶着させること（蛍光体の粒子の溶着にばらつきを持たせること）は，希土類イオンの「数の比率」と「イオン間の距離」が不均一さを残すことになるため，励起光が照射される場所ごとに図 3 と図 4 のような発光の違いが観測できる。

## 3. 実験

### 3.1 母体ガラスの作製（修飾酸化物の探索）

ガラス蛍光体は，希土類酸化物と母体ガラスの混合物を坩堝に入れて炉内（約 1230 度）で熔融したあと，炉から取

り出して冷却することで得られる。母体ガラスに対する希土類酸化物の量は少ないため，着色が少なく透明なガラス蛍光体を作製するためには，母体ガラスも着色が少なく透明であることが望ましい。

著者らは，これまでの研究成果[8, 9]をもとにして母体ガラスの組成（母体ガラスを形成するガラス形成酸化物と修飾酸化物）を見直した[b]。酸化物原料を選定するにあたり，著者らは以下に示す条件を設けた。

- (1) 着色がない（修飾酸化物は粉体として提供されるため，光の散乱により白色を呈する。このため，全体的に白色を呈するものを選定する）。
- (2) 融点が 1400 度以下である（陶磁器が製造される際の焼成温度（800～1300 度）で完全に熔融し，セラミックス製品に溶着する必要があるため）。

著者らは，上記の条件を満たす酸化物原料の候補として以下の 5 つを選定した。

- 二酸化ゲルマニウム ( $GeO_2$ )
- 酸化テルル ( $TeO_2$ )
- 酸化アンチモン ( $Sb_2O_3$ )
- 酸化モリブデン ( $MoO_3$ )
- 炭酸リチウム ( $Li_2CO_3$ )

上記の候補について，表 3 に示す組み合わせを用いて母体ガラスを作製した。なお，No.1～6 の組み合わせが(a)～(e)による総当たりの組み合わせになっていない理由は以下の通りである。

- No.1 ( $GeO_2$ ) はガラス形成酸化物とも呼ばれ，単体でガラスが形成できる。
- No.2 ( $TeO_2$ ) と No.3 ( $Sb_2O_3$ ) はガラス形成能力が高い修飾酸化物であるため，それぞれ単独でガラスが形成できることを検証する狙いがある。
- No.4 ( $GeO_2-Sb_2O_3$ ) については  $Sb_2O_3$  を修飾酸化物と捉え，単体でガラスが形成できる  $GeO_2$  と混合することでガラスが形成できることを検証する狙いがある。
- No.5 ( $GeO_2-MoO_3$ ) と No.6 ( $GeO_2-Li_2CO_3$ ) については， $MoO_3$  と  $Li_2CO_3$  が修飾酸化物であり単体ではガラスが作製できないことが明確である。このため，単体でガラスが形成できる  $GeO_2$  と混合することでガラスが形成できることを検証する狙いがある。

表 3 母体ガラスの組成

No.	組成	No.	組成
1	$GeO_2$	4	$GeO_2-Sb_2O_3$
2	$TeO_2$	5	$GeO_2-MoO_3$
3	$Sb_2O_3$	6	$GeO_2-Li_2CO_3$

b 論文[8]（2018年7月発表）では， $Bi_2O_3$  と  $Sb_2O_3$  が修飾酸化物として使用された。 $Bi_2O_3$  が黄色を呈しているため，作製されたガラス蛍光体も黄色を呈した。



compositions could generate points i  
 here the numbers of Ytterbium and E  
 distance between them would be spe  
 ng the synthesis process. This p  
 e different emission spectra (hue) a  
 varied observation points. The emis  
 changed by the distance between  
 numbers of Ytterbium and Erbiu  
 density was controlled by the numb

図 7 作製した母体ガラス

表 4 希土類酸化物の比率

No.	1	2	3	4	5	6
Yb <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1.0	1.0	1.0	2.0	2.0	2.0
Er <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.07	0.1	0.13	0.05	0.07	0.1
No.	7	8	9	10	11	12
Yb <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	2.0	3.0	3.0	3.0	3.0	3.5
Er <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.13	0.03	0.07	0.1	0.13	0.07
No.	13	14	15	16		
Yb <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	3.5	4.0	5.0	5.0		
Er <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.1	0.06	0.07	0.08		

実験の結果、No.6の母体ガラス(75GeO<sub>2</sub>-25Li<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>)は着色が最も少なく、透明度が最も高かった(図7参照)。

ところで、当該ガラスは吸湿性のあるLi<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>が使用されている。吸湿性のある材料が母体ガラスに含まれる場合、時間経過とともに空気中の水分を吸収し、ガラス全体が白濁する可能性がある。このため、No.6の母体ガラスを9か月間空気に触れさせ、外観を経過観察したところ外観は変化しなかった。これは、ガラス化したことでLi<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>が吸湿性を示さなくなったものと考えられる。ガラス蛍光体には長期的な安定性が求められることから、著者らは今後も外観の経過観察を行う予定である。

### 3.2 ガラス蛍光体の作製

母体ガラスの組成が決定したことから、著者らは2章で述べたガラス蛍光体が作製できることを確認するために実験を行った。表4に、母体ガラスと混合させるYb<sub>2</sub>O<sub>3</sub>とEr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の比率を示す。当該比率は、既発表の論文[9](2019年1月発表)においてNo.9の比率(3.0 Yb<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-0.07 Er<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)を持つガラス蛍光体が図3と図4のような発光を示したことから、No.9とその近辺の比率(合計16)について、発光帯ごとの発光を観測するためである。なお、作製するガラス蛍光体サンプルの重量は文献[9]と同様に5gにした。

はじめに、作製したサンプルに励起光を照射しながら、発光が最も顕著に見られる部分を探索した。つぎに、当該部分について分光検出器で発光スペクトルを測定し、発光強度の積分値を計算した。当該値をグラフにまとめたのが図8~図10である(図8は赤色帯(640~690 nm)の積分

値を、図9は緑色帯(538~568 nm)の積分値を、図10は近赤外線帯(1435~1689 nm)の積分値を、それぞれ示す)。グラフにおいて赤色を示すほど、また、円の大きさが大きいほど発光強度が高いことを示す。それぞれのグラフより、試作したサンプルは各発光帯において発光を示すが、それぞれの発光帯において強い発光を示したのはNo.11の比率であった。図11に、当該比率(3.0 Yb<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-0.13 Er<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)により作製されたガラス蛍光体を示す。図7と比較すると、Erが持つピンク色が反映されていることが分かるが、着色度合いは低く透明であることが分かる。

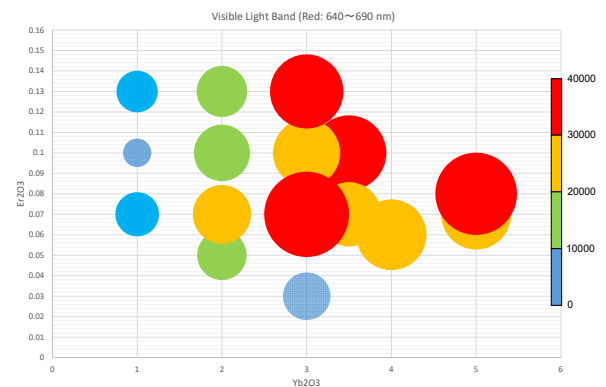


図 8 可視光帯域(赤色)における発光(積分値)

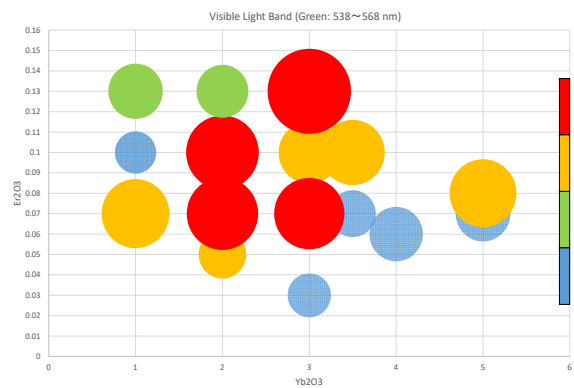


図 9 可視光帯域(緑色)における発光(積分値)

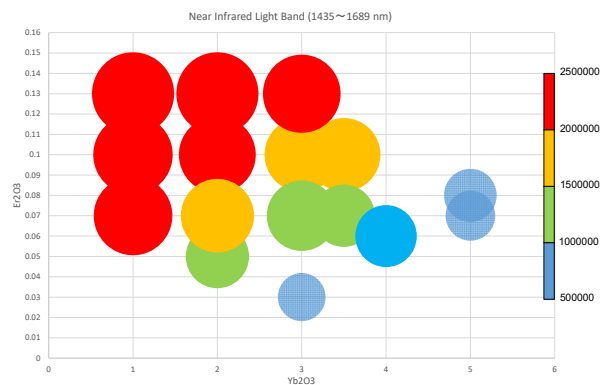


図 10 近赤外線帯域における発光(積分値)

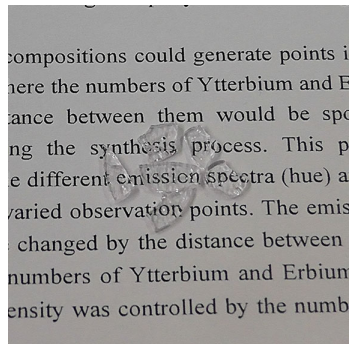


図 11 作製したガラス蛍光体

## 4. 考察

### 4.1 ガラス蛍光体の安全性

ガラス蛍光体は、希土類酸化物とガラス形成酸化物と修飾酸化物によって形成される。はじめに、今回使用した酸化物の安全性を以下に述べる。

- 希土類酸化物として  $\text{Er}_2\text{O}_3$  と  $\text{Yb}_2\text{O}_3$  を使用したが、希土類には明らかな毒性は見られないというのが専門家の見解である[10]。
- 修飾酸化物として  $\text{Li}_2\text{CO}_3$ 、ガラス形成酸化物として  $\text{GeO}_2$  を使用した。  $\text{Li}_2\text{CO}_3$  は医薬品および耐熱磁器や耐熱ガラスの配合剤として利用されており[11]、安全であると考えられる。一方、  $\text{GeO}_2$  にはヒトおよび環境に対する毒性は見られない[12]。

つぎに、ガラス蛍光体の安全性について述べる。

- 希土類酸化物と母体ガラスの化合物であるガラス蛍光体は、不燃性・不溶性のある、化学的に安定した酸化物ガラスである[3]。

これらのことから、希土類酸化物と修飾酸化物、およびこれらから作製されるガラス蛍光体は人体と環境に影響を及ぼすリスクが極めて低く、安全であると考えられる。一方で、それぞれの粉末を取り扱う際には、吸い込んだり目に入ったりすることがないように留意する必要がある。

### 4.2 製造コスト

表 5 に、5 g のガラス蛍光体の作製に使用された希土類酸化物(試みに、表 4 における No.11 の比率( $3.0 \text{ Yb}_2\text{O}_3 - 0.13 \text{ Er}_2\text{O}_3$ )) と修飾酸化物の量、およびそれぞれの 1 瓶あたりの重量と販売価格を示す[c]。これにより、5 g のガラス蛍光体の作製にかかった試薬の価格は約 4,113 円となる[d]。

既発表の論文[3]において、陶器皿 1 枚に溶着させたガラス蛍光体の量は約 0.05 g であるため、1 皿あたりの蛍光体の価格は約 41 円となる。この金額は、溶着させたガラス蛍光体の面積と同じ大きさの RFID タグ 1 個の平均的な価格(80~120 円前後)と比べて安価である。RFID タグは貼り

c 炭酸リチウムはガラス蛍光体を作製する際の焼成により化学反応を起こし酸化リチウムと二酸化炭素に分離するため、作製されるガラス蛍光体を 5g にするために使用する試薬量は 5g よりも多くなる。

d 厳密に言えば、電気炉を稼働させたときの電気料金が含まれるべきであるが、ここでは考慮しないものとする。

表 5 各試薬の使用量、重量および価格

試薬名	使用量(g)	重量/瓶	販売価格/瓶
$\text{Yb}_2\text{O}_3$	0.618	25g	58,500 円
$\text{Er}_2\text{O}_3$	0.026	25g	45,000 円
$\text{GeO}_2$	3.976	25g	16,200 円
$\text{Li}_2\text{CO}_3$	0.936	25g	1,190 円
総量	5.556		

付けによって製品の意匠を損なうがあるが、ガラス蛍光体は少量であれば製品の意匠を損ないにくい。このことから、ガラス蛍光体は意匠を損ないにくい、比較的安価なセキュリティ製品といえる。

著者らは、希土類酸化物として  $\text{Er}_2\text{O}_3$  と  $\text{Yb}_2\text{O}_3$  を使用したが、これらは入手しやすく、母体ガラスとの重量比は 13 % 程度と低い。実運用ではガラス蛍光体の量産が見込まれるため、上記の金額よりも安く生成できると考えられる。

## 5. まとめ

マルチモーダル人工物メトリクスをセラミックス製品に適用することを目的として、著者らは母体ガラスの組成と希土類酸化物の比率を変えたガラス蛍光体を作製した。当該蛍光体は 2.1 節で述べた特徴を持ち、透明であり、既発表の蛍光体と比べて着色が少ない。この蛍光体の粉末をセラミックス製品の製造過程において溶着させることにより、2.4 節で述べた 4 つの光学的な特徴情報を製品から抽出することができる。

上記のガラス蛍光体を開発するために、著者らは母体ガラスの組成(母体ガラスを形成するガラス形成酸化物と修飾酸化物)を見直した。その結果、 $75\text{GeO}_2 - 25\text{Li}_2\text{CO}_3$  が最良となった。これには吸湿性のある  $\text{Li}_2\text{CO}_3$  が含まれるが、9 か月間空気に触れさせても白濁することがなかった。

母体ガラスに適したガラス蛍光体を作製するために、 $\text{Er}_2\text{O}_3$  と  $\text{Yb}_2\text{O}_3$  の比率を変えたガラス蛍光体のサンプルを作製したところ、いずれも 3 つの発光帯において発光が見られた。サンプルはいずれも透明であり淡いピンク色を呈する。特に、 $3.0 \text{ Yb}_2\text{O}_3 - 0.13 \text{ Er}_2\text{O}_3$  のときに各発光帯において強い発光が示された。

ガラス蛍光体およびそれを作製するための材料は人体と環境に与えるリスクが極めて低いため安全である。また、材料は比較的入手しやすいことから、大量生産によって製造コストを抑えることができる。今後著者らは、蛍光体の粉末をセラミックス製品に溶着させ、特徴情報の抽出を行う予定である。

**謝辞** この研究は、科研費(課題番号 18K11302)および公益財団法人大倉和親記念財団の支援を受けた。謹んで感謝の意を表する。

## 参考文献

- [1] 中島誠之助, 陶磁郎 BOOKS 中島誠之助のやきもの鑑定, 双葉社, 1996 年
- [2] 松本勉, 人工物メトリクス入門, 日本印刷学会誌, Vol. 49, No. 3, pp. 185/189 (2012)
- [3] 藤川真樹, 小田史彦, 森安健吾, 瀧真悟, 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, 情報処理学会論文誌, Vol. 55, No. 9, pp. 1992/2007 (2014)
- [4] 瀬戸洋一, バイオメトリック技術の開発動向, 日本印刷学会誌, Vol. 49, No. 3, pp. 190/196, (2012)
- [5] 藤川真樹, 實川康輝, 瀧真悟, マルチモーダル人工物メトリクスの研究 (合成樹脂製品への適用), 産業応用工学会論文誌, Vol. 5, No. 2, pp. 52/62 (2017)
- [6] 青木あゆみ, 池田孝史, 山田努, 竹村泰司, 松本勉, 軟磁性ファイバを利用した証書認証技術の解析評価, 電気学会論文誌. A, 基礎・材料・共通部門誌, 126(5), pp. 269/275, (2006)
- [7] 大倉研, 顔料の耐久性, 色材協会誌, Vol. 46, No. 2, pp. 113/120, (1973)
- [8] 藤川真樹, 原万里子, 小山紗季, 瀧真悟, セラミックス製品を対象とする人工物メトリクスのための機能性材料の開発, マルチメディア, 分散, 協調とモバイル (DICOMO 2018) シンポジウム, 5C-5, pp. 954/962 (2018)
- [9] 藤川真樹, 原万里子, 瀧真悟, マルチモーダル人工物メトリクスを実現する機能性材料の開発 (その 2), 暗号と情報セキュリティシンポジウム (SCIS 2019), 3D4-4, (2019)
- [10] 鈴木康雄, ポピュラーサイエンス 希土類の話, pp.144/146, 裳華房 (1998).
- [11] 昭和化学株式会社, 安全データシート (炭酸リチウム), SDS No. 12147250
- [12] 純正化学株式会社, 安全データシート (酸化ゲルマニウム)