

2. 3 AI活用したビッグデータ解析のモデル実証による評価技術の開発(研究課題3)

2. 3. 1 測定データの信頼性向上技術の開発(研究課題3-1)

(1) 目標

ビッグデータ解析に基づく材料特性評価の確度を高めるには、解析に用いる定量値の信頼性の数値化、すなわち同定量値がどれだけ不確実性をもつ値なのかの評価されていることが極めて重要である。定量値の信頼性を数値として取り扱いたい場合、計測手法毎に主たる不確かさ因子を同定し、測定値に紐づけをすることが極めて有効な手段となる。

本研究課題では先導プログラムにおいて試行した、複合計測分析システムを構成する個別計測法ごと不確かさ因子のFBDによるとりまとめ法を踏襲し、GC-FID、LC-UV、GC-MS、LC-MS、XRFに関して、標準液ないし純金属ベースでの試験により、不確かさ要因の関係整理を行い、FBDの基本骨格をまとめる。さらにSEM、SEM-EDSの測定によるグレイン境界判定に関して、モデル試料等を用いて、判定に影響を及ぼす要因を抽出し、FBDの基本骨格をまとめる。

(2) 実施体制

本研究は、産業技術総合研究所(計量標準総合センター)が実施した。

(3) 成果

1. 各計測装置における不確かさ要因の関係整理

1-1 水素炎イオン化検出器付ガスクロマトグラフ(GC-FID)

GC-FIDはタイヤ材料中のカップリング剤の評価に用いられている。本研究では、GC-FIDによるカップリング剤由来成分の定量値の信頼性を評価するために、不確かさ要因の関係整理を行い、主たる不確かさ因子を選定し、それらをFBDの基本骨格としてまとめた(図2. 3. 1-1)。

まずは標準液を用いた試験に基づく評価を実施し、不確かさ要因を、検量線に起因する因子(共通因子)とそれ以外の試料調製に起因する特殊因子に大別した。さらに共通因子を、試料の不確かさ、検量線の不確かさ、GC-FID測定の不確かさに分類した。

- ① 試料の不確かさ(共通因子)
- ② 検量線の不確かさ(共通因子)
- ③ GC-FID測定の不確かさ(共通因子)
- ④ 試料調製に起因する不確かさ(特殊因子)

①は試料調製における汚染や試料の秤量に起因する不確かさである。汚染に起因する不確かさは、試料調製前の操作のみを対象とし、④に含まれる調製時の汚染と切り離して評価することとした。

②は測定に用いる検量線に起因する不確かさである。この項目において想定される主たる不確かさ因子は、標準液の不確かさ(標準液の濃度、調製精度、安定性を含む)と、検量線の直線性および再現性(検量線の傾き、併行精度)である。

③はGC-FID測定の繰り返し性や安定性に起因する不確かさである。

④は測定溶液をGC-FID測定に供するために行う試料前処理に起因する不確かさである。試料前処理においては、タイヤ材料からのカップリング剤抽出が主たる不確かさ因子である。一方で、タイヤ材料の均質性やカップリング剤の反応性なども因子として大きく寄与することが想定されるが、それら個別因子の明確な切り分けは困難である。したがって、今回のFBD基本骨格には項目としては組み込むが、評価は試料前処理全体を評価することとし、結果の算出式でのファクターである「試料中のカップリング剤由来のピーク面積値」および「カップリング剤の配合量」に起因するばらつきを試料調製に起因する不確かさとして評価することとした。

以上の不確かさ要因の関係整理、不確かさ因子の寄与率評価を目的として、住友ゴム工業株式会社提供の実際の試験データを用いて寄与率を算出した。

①に関しては、実験室環境にカップリング剤の汚染源がなかったこと、供試料量に対して適切な天秤を用いて秤量していたことから、定量値に大きな影響を及ぼさない不確かさ因子であることが確認された(寄与率1%以下)。

②に関しては、標準液の調製濃度範囲設定が適切で、かつ調製方法も確立されていたため、標準液の濃度、調製精度、検量線の併行精度は、定量値に大きな影響を及ぼさないことを明らかにした。カップリング剤は反応性が高いため、ケーススタディとして「標準液の安定性」評価も別途実施したが、検量線の傾きと同程度の寄与で、調製精度や検量線の併行精度と比較すると5倍程度大きかったものの、定量値全体への寄与率は①同様に小さかった(寄与率1%以下)。

③に関しては、GC-FIDは頑健な測定装置であったため、上述因子と同様、定量値に大きな影響を及ぼさないことを明らかにした(寄与率1%以下)。

④に関しては、個別因子の明確な切り分けが困難で、どの特定因子が大きな影響を与えているかは判別できなかったが、「試料中のカップリング剤由来のピーク面積値に起因する不確かさ」は94%以上の寄与率であった。また、「カップリング剤の配合量に起因する不確かさ」は4%以上の寄与率であった。

以上の結果から、GC-FIDはタイヤ材料中のカップリング剤の定量においては、特殊因子である④試料調製の不確かさが支配的であることが明らかとなった。

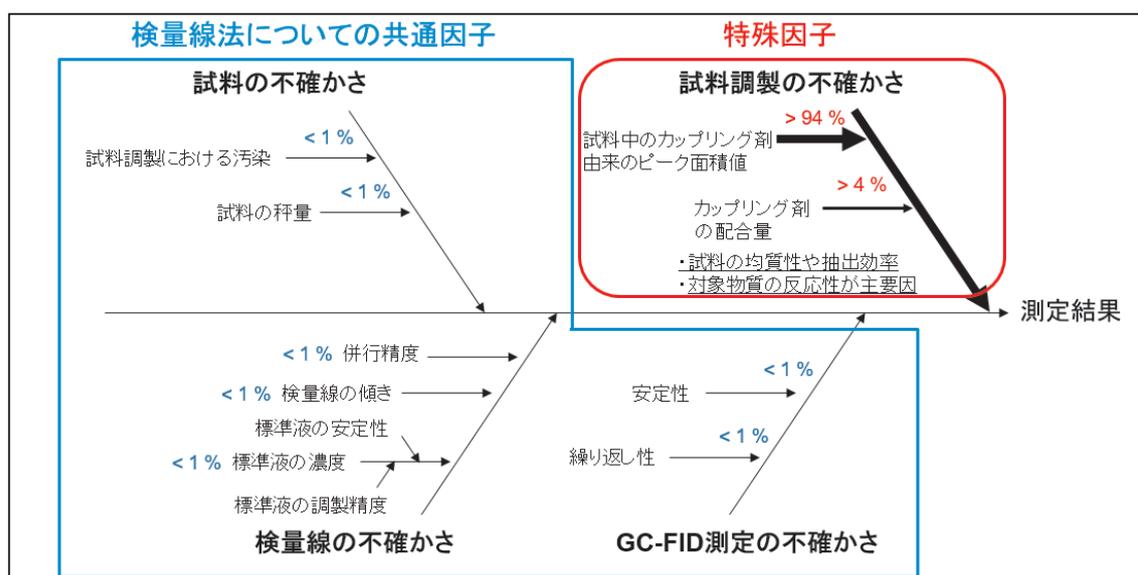


図2.3.1-1 FBD基本骨格(GC-FIDカップリング剤の定量)

1-2 紫外吸光光度検出器付液体クロマトグラフ(LC-UV)

LC-UVは、タイヤ材料中老化防止剤の評価に用いられている。本研究では、GC-FID測定と同様、LC-UVによるタイヤ材料中老化防止剤分析の不確かさ要因の関係整理を行い、主たる不確かさ因子を選定し、FBDの基本骨格としてまとめた(図2.3.1-2)。

標準液ベースでの試験に基づく評価を実施し、不確かさ要因を共通因子と特殊因子に大別した。さらに共通因子を、試料の不確かさ、検量線の不確かさ、LC-UV測定の不確かさに分類した。

- ① 試料の不確かさ(共通因子)
- ② 検量線の不確かさ(共通因子)
- ③ LC-UV測定の不確かさ(共通因子)
- ④ 試料調製に起因する不確かさ(特殊因子)

①は試料調製における汚染や試料の秤量に起因する不確かさである。GC-FID測定と同様、汚染に起因する不確かさは、試料調製前の操作のみを対象とし、④に含まれる調製時の汚染と切り離して評価することとした。

②は測定に用いる検量線に起因する不確かさである。この項目で想定される主たる不確かさ因子は、標準液の不確かさ(標準液の濃度、調製精度など)、検量線の併行精度である。カップリング剤と比較すると、老化防止剤は安定な化合物であるため、標準液の安定性は主たる不確かさ要因とはならないこと、GC-FID測定 of 多点検量線とは異なり、住友ゴム工業株式会社における試験においては一点検量線を用いていることから、検量線の傾きは主たる不確かさ因子とならないため評価対象から除外した。

③はLC-UV測定 of 繰り返し性や安定性に起因する不確かさである。

④は測定溶液をLC-UV測定に供するために行う試料前処理に起因する不確かさである。試料前処理では、タイヤ材料からの老化防止剤抽出が主たる不確かさ因子である。一方で、タイヤ材料の均質性なども因子として大きく寄与することが想定されるが、それら個別因子の明確な切り分けは困難である。したがって、今回のFBD基本骨格には項目としては組み込むが、評価は試料前処理全体を評価することとし、結果の算出式でのファクターである「試料中の老化防止剤由来のピーク面積値」および「検量線溶液中の老化防止剤由来のピーク面積値」に起因するばらつきを試料調製に起因する不確かさとして評価することとした。

以上の不確かさ要因の関係整理、不確かさ因子の寄与率評価を目的として、住友ゴム工業株式会社提供 of 実際の試験データを用いて寄与率を算出した。

①に関して、実験室環境に老化防止剤の汚染源がなかったこと、供試料量に対して適切な天秤を用いて秤量していたことから、定量値に大きな影響を及ぼさない不確かさ因子であることが確認された(寄与率1%以下)。

②に関しては、標準液の調製方法が確立されていたため、標準液の濃度、調製精度は定量値に大きな影響を及ぼさないことを明らかにした。一方、一点検量線を用いたため、試料中の老化防止剤のピーク面積値(数値)の差が測定試料によっては大きくなるため、多点検量線での併行精度と比較すると大きな寄与率となった(寄与率6%以上)。したがって、定量値の信頼性向上(不確かさを小さくする)には、GC-FID測定同様、多点検量線を適用することが望ましいことが判った。

③に関しては、GC-FID同様、LC-UVも頑健な測定装置ため、繰り返し性や安定性の因子は定量値に大きな影響を及ぼさないことを明らかにした(寄与率1%以下)。

④に関しては、個別因子の明確な切り分けが困難であり、どの特定因子が大きな影響を与えているかは判別できなかったが、「試料中および検量線溶液中 of 老化防止剤のピーク面積値に起因する不確かさ」が93%以上の寄与率であった。つまり、GC-FID測定同様、特殊因子である試料調製の不確かさが支配的であることが明らかとなった。

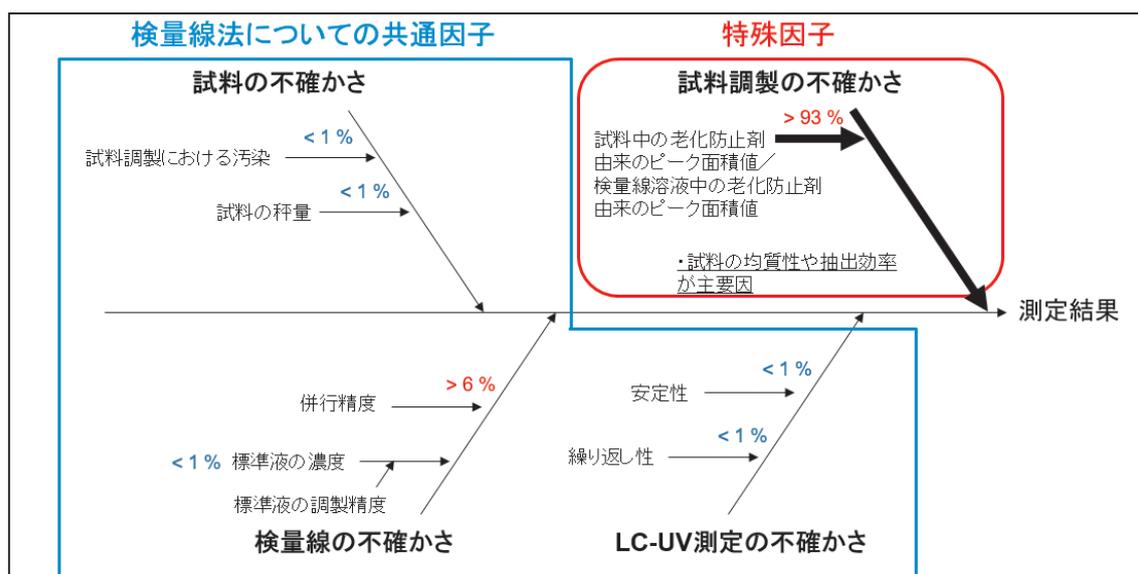


図2.3.1-2 FBD基本骨格(LC-UVタイヤ老化防止剤の定量)

1-3 熱分解—水素炎イオン化検出器付ガスクロマトグラフ(Py-GC-FID)および熱分解—ガスクロマトグラフ質量分析計(Py-GC-MS)

Py-GC-FIDおよびPy-GC-MSは、タイヤ材料を構成するポリマタイプの評価に用いられている。ただし、得られる結果は定量値ではなく、熱分解物3種(イソプレン・スチレン・ブタジエン)の比率であり、住友ゴム工業株式会社では、特殊な検量線をベースにした内作ソフトウェアにて比率を算出しているため、算出式そのものの不確かさ評価は困難であった。また、検量線から導き出される結果(ポリマブレンド比)よりも、得られたフラグメントパターン(ピーク組成比)の方が、より重要な結果であることから、数値化困難な算出式(検量線)の不確かさを除く、他の不確かさ要因(試料調製の不確かさ(Py機種間差、試料の供試量や形状などの差異))を特殊因子として分類し、それらの影響を評価するFBDの基本骨格を作成した(図2. 3. 1-3)。

- ① 試料の不確かさ
- ② 検量線の不確かさ
- ③ GC測定の不確かさ(特殊因子)
- ④ 試料調製に起因する不確かさ(特殊因子)

①は試料調製における汚染に起因する不確かさである。GC-FID測定と同様、汚染に起因する不確かさは、試料調製前の操作のみを対象とし、④に含まれる調製時の汚染と切り離して評価することとした。なお、試料の秤量に起因する不確かさは、供試料量の差異として④として評価することとした。

②は前述のとおり数値化が困難なため、項目としては組み込むが、評価対象としては除外することとした。

③はGC測定に起因する不確かさである。本因子としてはPy-GC-FIDおよびPy-GC-MSの比率評価結果の差異によって評価することとした。

④は測定試料をPy-GC-FID測定に供するために行う試料前処理に起因する不確かさである。操作は測定試料を秤量し、熱分解装置にセットするだけであるので、Py機種間差(熱分解方式の違いで、一つはキュリーポイント方式、もう一つはマルチショット方式)が大きな不確かさ因子として想定される。それ以外に、供試料量や試料形状などの差異も主たる不確かさ因子として想定されるので、同じく評価することとした。

以上の不確かさ要因の関係整理、不確かさ因子の寄与率評価を目的として、キュリーポイント方式においては住友ゴム工業株式会社提供の実際の試験データを用いて寄与率を算出した。マルチショット方式においては住友ゴム工業株式会社提供の標準試料を用いて寄与率算出を別途実施した。

①に関しては、実験室環境にフラグメントパターン(ピーク組成比)に影響を与える汚染源がなかったため、比率の結果の信頼性に影響を及ぼさないことを明らかにした。

③に関しては、検出方法の差異が大きな不確かさ因子であることが明らかとなった。Py-GC-MSではイオン化(通常は電子イオン化(EI)法)された熱分解物3種が検出されるため、熱分解物3種を燃焼して検出するPy-GC-FIDとは検出原理が大きく異なっている。EI法では芳香環が高感度で検出されるため、熱分解物のなかでもスチレンの比率が大きく増加した(Py-GC-FIDと比較すると2倍)。そのため、熱分解物3種のピーク組成比として比較した場合、スチレンの比率が10 %程度高い結果が得られ、検出原理の差異が無視できない不確かさ因子であることが明らかとなった。

④に関しては、Py機種間差を評価した。ピーク組成比としてキュリーポイント方式を基準とした場合、マルチショット方式ではスチレンの比率が約2 %増加し、ブタジエンの比率が約2 %減少した。供試料量の比較では、マルチショット方式の場合、質量増加(200 μg →2000 μg)に伴いイソプレンの比率が減少し、スチレンの比率が増加していた(1 %~3 %程度)。また試料形状の比較では、マルチショット方式の場合、供試料量ほど明確な傾向は観測できなかった。以上の結果から、Py機種間差はあまり大きくはないものの、組成比評価には異なる熱分解方式の装置から得られた結果の比較においては数%の不確かさが生じることが明らかとなった。

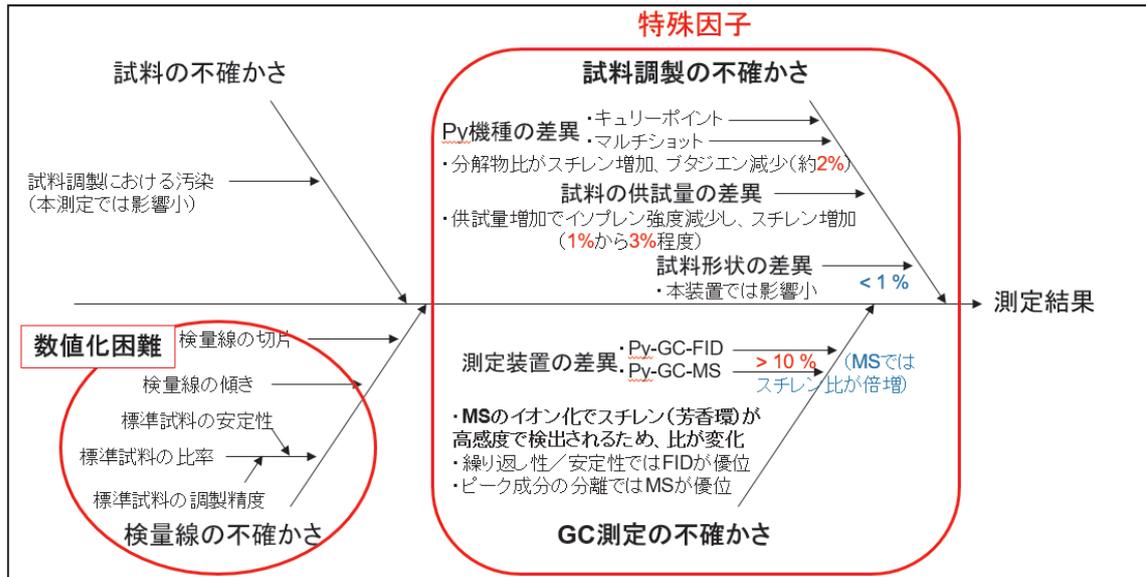


図2. 3. 1-3 FBD基本骨格(ポリマータイプ分析)

1-4 液体クロマトグラフ質量分析計(LC-MS)

LC-MSはタイヤ材料を構成するゴム添加剤の定性分析に用いられている。定性分析自体は、GC-MSやPy-GC-MSの測定結果と合わせて行われる。そこで、定性分析の結果に影響を与える不確かさ要因の関係整理を行い、主たる不確かさ因子を選定し、FBDの基本骨格としてまとめた(図2. 3. 1-4)。

定性分析の不確かさを因子として分類し、それらの影響を評価するFBDの基本骨格を作成した。

- ① 試料の不確かさ
- ② LC-MS/GC-MS/Py-GC-MS測定の不確かさ
- ③ 試料調製に起因する不確かさ

①は試料調製における汚染や試料の秤量に起因する不確かさである。試料調製前の操作のみを因子としてFBDに組み込むこととした。

②は質量分析計を用いた測定に起因する不確かさである。本研究では、イオン化法、繰り返し性、安定性、質量数、定性用データベース(DB)を組み込んだ。

③は測定溶液を、質量分析計を用いた測定に供するために行う試料前処理に起因する不確かさである。因子として溶媒による抽出を組み込んだ。

以上の不確かさ要因の関係整理、不確かさ因子の選定に続き、上記因子の評価を目的とし、影響評価を実施した。ただし、定性分析であるので個々の因子の寄与率算出ができないため、因子の関係整理にとどめた。

①に関しては、実験室環境にゴム添加剤の定性分析に影響を与える汚染源があるかないか、十分な供試料量を天秤で秤量しているかを因子として評価する必要がある。

②に関しては定性につながる測定対象物質をイオン化する方法の適切性、装置状態の管理、得られた結果の質量数値の取扱い、およびその値から検索するDB結果の取扱いの適切性を不確かさ因子として評価する必要がある。

③に関しては、試料前処理として3段階抽出を行うため、各抽出工程での抽出効率が主な不確かさ因子として評価する必要がある。

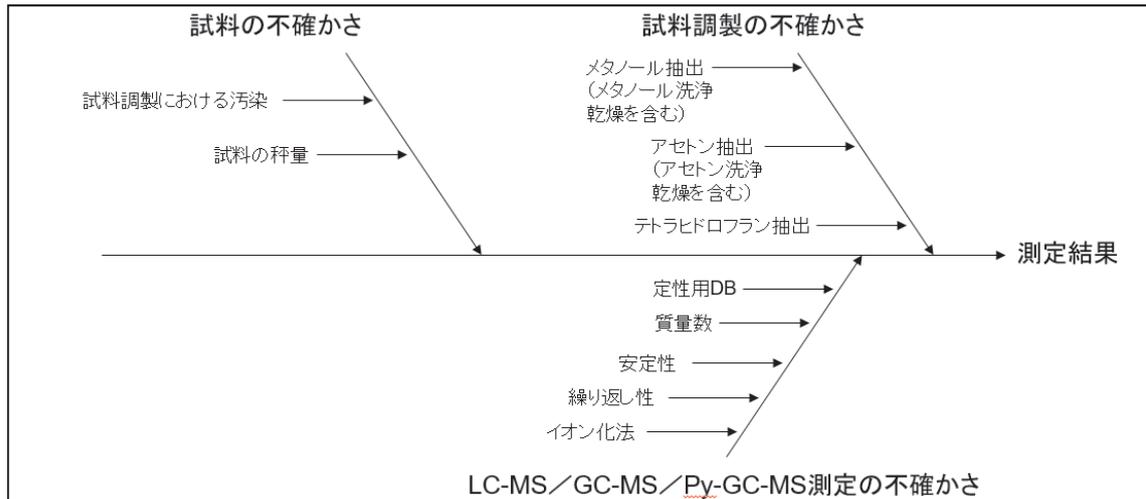


図2.3.1-4 FBD基本骨格(ゴム添加剤の定性分析)

2. 結晶粒材料のグレイン境界判定と磁石モデル試料による検討

微細な結晶粒(グレイン)の集積体である多結晶材料は実用工業材料として幅広く用いられている。その材料は同じ仕様の製造を発注しても材料特性がロット間や製造企業間で異なる場合があることが知られている。その原因として、製法や製造条件の違いにより、結晶粒のマイクロ構造に何らかの差異が生じていることが可能性として挙げられている。そこでマクロな特質である材料性能と、結晶粒のマイクロ構造を現すマイクロ特質の相関を明らかにすることが望まれる。これらのマクロ・マイクロの因果関係を明らかにし、複数のマイクロ特質のうち材料性能に影響を及ぼす順位を明らかにすることで、材料の性能向上、品質管理コストの低減、新材料の開発に結びつけることが期待される。

マイクロな特質を現す項目は複数存在し、各々を測定によって明らかにする必要がある。それらの測定量は、材料によっては一つの測定手法で網羅することが困難であり、各測定量に適した測定手法の選定が必要となる。とくにマイクロ構造のサイズが小さくなるにつれ、測定方法が限定される一方で多面的な測定情報による総合的な判断が求められる。

多結晶材料の測定量のうち、とくにグレインサイズはマイクロ構造をあらわす代表的な測定量である。グレインはその境界の判定によってはじめて個別に識別されるので、グレイン境界判定が可能な測定方法が必要である。測定アプローチとして①グレインの面方位の違いに起因する信号量の差で識別する方法②グレイン粒界に着目して、粒界に偏析する元素の検出や、結晶粒との組成の差の検出、により境界を識別する方法がある。分析手法としては①ではSEM-EBSD(後方散乱電子回折)、SEM-BSE(反射電子像)、 μ -XRDがある。②では、SEM-EDS、 μ -XRFがある。

2-1 鉄鋼材料

鉄鋼材料の標準物質の表面をSEM-BSEで測定した例を右図に示す。この材料ではグレインサイズは100 μm ~ 500 μm である。グレインのコントラストの違いで隣接するグレインと識別ができる(前記①の方法)。

本試料は、表面を鏡面に研磨しており、また面内の場所による組成のばらつきは小さいためSEMではコントラストが付きにくい。一方、SEM-BSEでは結果のようにコントラストが確認された。

SEM-BSEは、試料から放出される二次電子のうち、エネルギーの高い反射電子を検出している。検出器は、照射電子線によって試料面の結晶方位に応じて生成される電子回折像(菊池パターン)から、検出器の設置方向に一致する部分を切り出して検出している。そのためコントラストは測定しているグレインの結晶方位に応じて異なる。また菊池パターンは電子線のエネルギーによっても変化する。これはプローブのエネルギーを変えたときのグレイン毎のコントラストの明暗変化として観測されている。

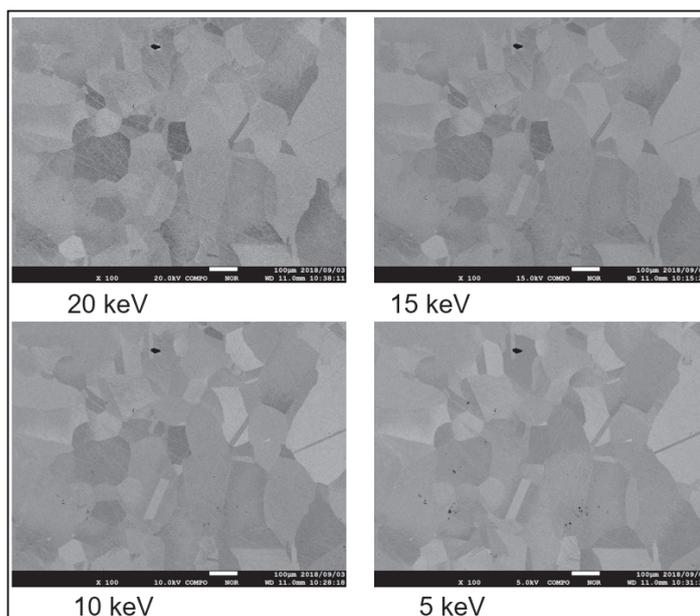


図2. 3. 1-5 鉄鋼材料(NMIJ CRM-1018a Ni(36%)-Fe)のSEM-BSE (COMPO)像。倍率100倍

2-2 磁石材料

磁石モデル試料を用いてグレイン境界の識別方法の検討を行った。この材料は前述の鉄鋼材料よりもグレインサイズは小さく約5 μm である。グレイン境界の幅は数 nm、グレインの組成はNd-richである。磁石試料はTDKより提供を受けた。

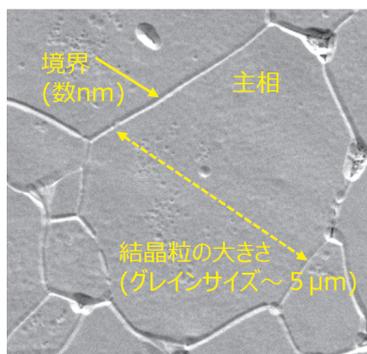


図2. 3. 1-6 磁石材料の結晶粒(グレイン)とグレイン境界のSEM像

磁石材料での重要な材料性能は保磁力である。保磁力との相関を調べたいマイクロな特質について、それらを測定量として示した項目を下図に示す。測定量を大別すると、形状寸法と組成分布となり、それぞれに属する測定量、および測定手法を列挙した。なお、測定量の項目はTDKのヒアリングをもとに設定した。

今回はこれら測定量の中から結晶粒径を測定量と定め、また空間分解能数 nm~10 nmのSEMを用いた。なおグレイン境界は、幅が数 nmでTEM測定が必要なため対象外とした。

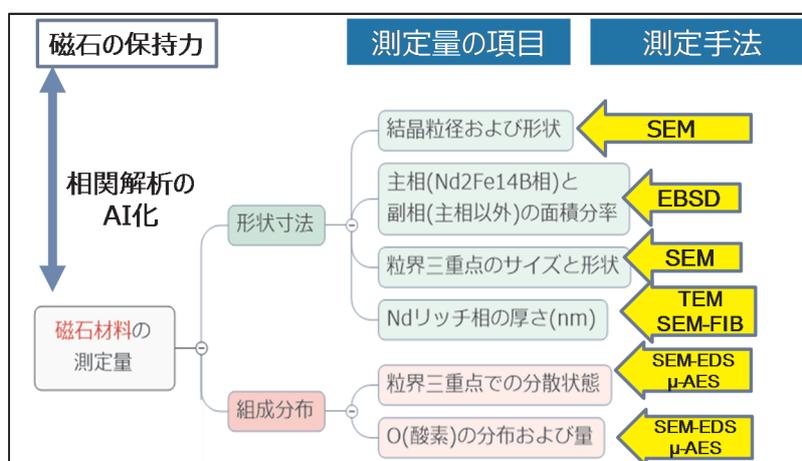


図2. 3. 1-7 磁石材料の測定量とその測定手法

2-3 試料前処理の検討

平滑な磁石材料表面を得るための試料研磨について検討を行った。未研磨の試料は表面凹凸による形状コントラストの寄与が大きく、グレイン観察は困難である。研磨紙を用いた手研磨やハンディラップによる加工によりこの凹凸は低減するが、試料表面には線状の研磨痕が観察され、加工が十分とはいえない。研磨盤を用いた前処理では金属材料研磨と同様の高荷重条件ではグレインの引き抜きや剥がれ、研磨剤の埋め込みが見られた。この問題は研磨時の荷重を小さくすることである程度の改善が見られ、平滑な表面が得られた。若干の引き抜きが見られるものの、粒径の観察・評価に耐える仕上がりととなった。さらに、アルゴンイオンミリングを用いた試料調製も行った。

以上の検討から、試料表面の平滑さの点では、イオンミリングが最適な手法である。しかし、研磨盤による加工では試料全面を研磨可能であるのに対して、アルゴンイオンミリングは一度に加工できる面積が400 μm角程度と狭いことから、グレインの大きさや、解析すべきグレイン数などを考慮して前処理法を検討することが重要である。

2-4 SEM観察条件の検討

SEM観察によりグレインの形状を識別する方法は複数あり、試料に応じて適切な観察条件を選択することで、SEM像にグレイン形状の情報を持つコントラストを与えることができる。本研究で取り扱ったモデル試料はグレイン粒界に主相を取り囲むようにNdリッチな副相が析出していることがわかっている。したがって副相を可視化することで主相の輪郭線が得られる。ここでは主相と副相の平均原子番号の差を利用し、反射電子(BSE)組成像に現れる原子番号コントラストにより副相を識別することとした。

右図にBSE組成像の加速電圧依存性を示す。25 kVから3 kVの加速電圧範囲で副相は主相に対して明コントラストで観察された。加速電圧25 kVでは副相のコントラストは高いが、一次電子の拡散の影響を受け輪郭線が滲んだような像となっている。加速電圧が下がるにつれ、副相のにじみが少なくなり、グレインの形状が明瞭になる。3 kVでは副相のコントラストが低下し、主相と副相区別するのが難しい。

以上の検討から、加速電圧4~5 kVを選択することにより、主相の輪郭線として、にじみを抑制し副相を観察できることがわかった。

2-5 モンタージュSEM観察による広視野・高解像度観察

前項までの検討により、解析に適した画像を得る条件を見出した。グレイン粒径分布についての

情報を得るためには、十分な数のグレインを評価する必要がある。そこで、SEMのモニタージュ撮影(連続視野撮影)により、広範囲を高分解能で撮影した解析用画像の取得を行った。表面研磨したモデル試料のモニタージュ撮影例を下図に示す。本画像は11x11枚のSEM像をつなぎ合わせたものであり、画像全体の視野は約300 μm x 220 μm である。予備解析では3000個弱のグレインが視野内に存在している。個々の画像は倍率4000倍で撮影され、グレインサイズが5 μm 程度であることを考えると十分な空間分解能である。

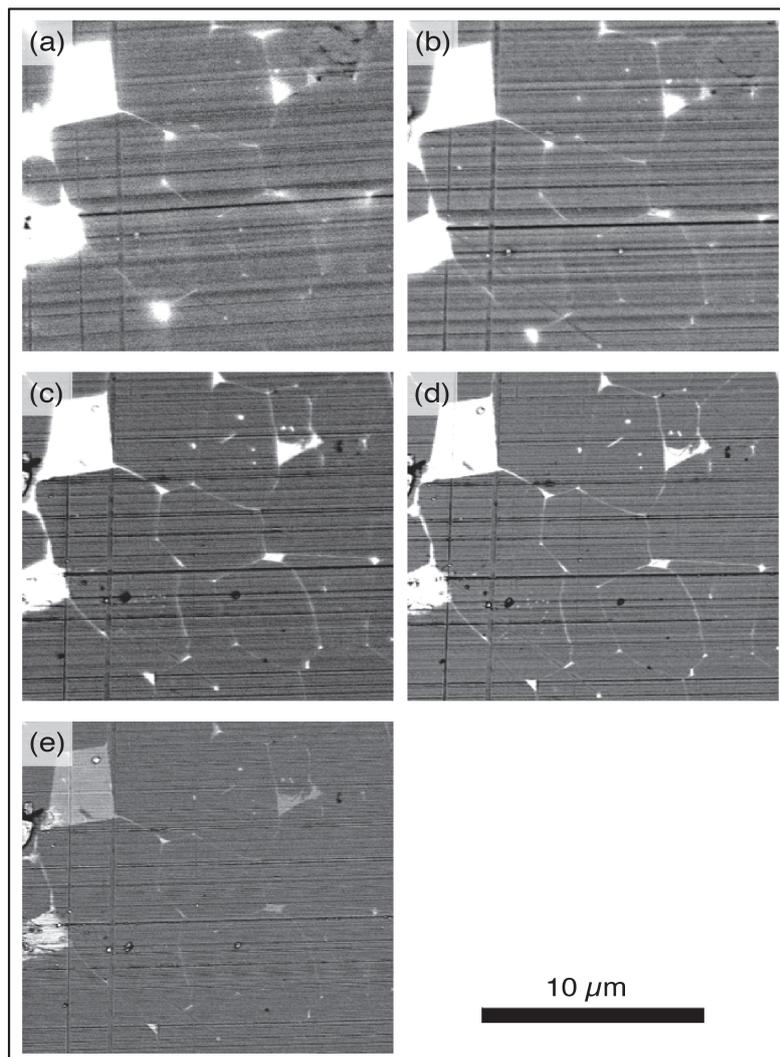


図2.3.1-8 BSE組成像の加速電圧依存性.

(a)25 kV, (b) 15 kV, (c) 5 kV, (d) 4 kV, (e) 3 kV (リターディング使用)

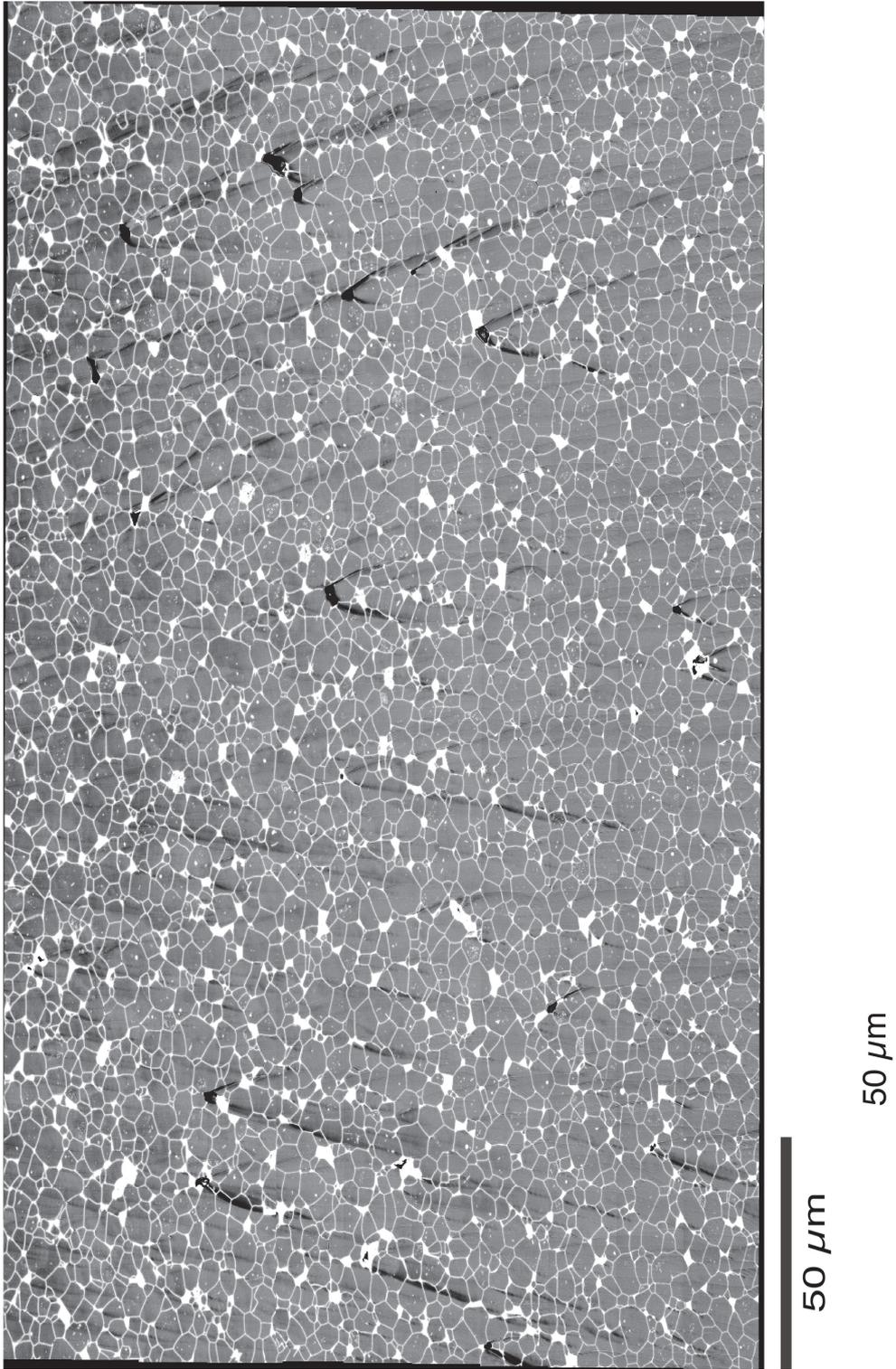


図2. 3. 1-9 磁石材料のモンタージュ撮影法による広視野・高解像度の画像データ

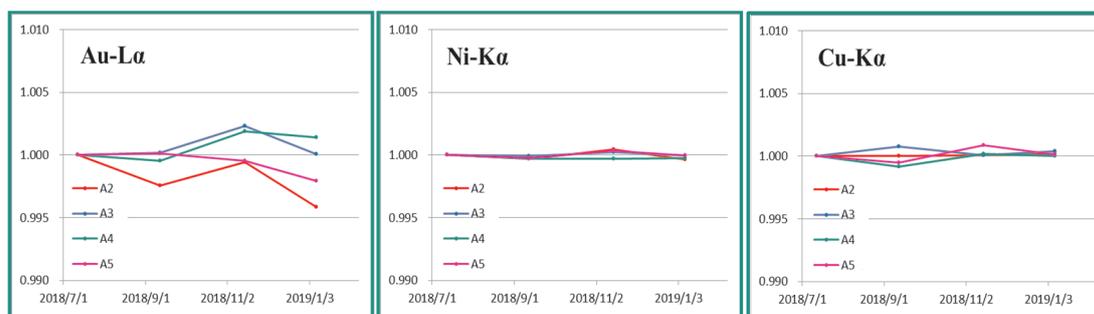
2-6 蛍光X線分析(XRF)

XRFは表面の組成分析を行う手法である。一方SEMコントラストがグレイン間で異なる理由は、グレイン間の結晶方位の違い、表面凹凸形状、グレイン間の組成の違い、が挙げられる。そこでXRFを用いることで上記3要因のうちの一つを調べることができる。

XRFによる測定について、組成分析値の再現性を確認するために、信号強度の安定性を調べた。測定条件は下記である。

- 純金属3種類(Au、Ni、Cu、およびAu 0.1 μm厚/Ni 1 μm厚/Cu 1 μm厚の多層膜試料)
- WD-XRF (X線源50 kV 60 mA、分析領域3 mm径)
- 測定中の試料回転を6 rpmとして結晶粒径無限大を再現
- 測定順序 (Au→Ni→Cu→多層膜試料) × 5巡の測定
- 測定期間 2018年7月から2019年1月の間で4回
- 多層膜試料の信号強度を純金属試料の信号強度で規格化した値(k値)を比較

測定結果を下図に示す。k値の変動量は6ヶ月の間でAuが2%、NiとCuは0.1~0.2%であった。結晶粒のサイズがXRFの分析領域よりも十分大きければ、結晶粒の個別組成が測定でき、粒間の組成比較を高精度で行うことができると期待される。しかしながら今回のモデル試料の結晶粒は小さくXRF測定では識別は不可能であった。



※2018/7/5のk-値を基準に規格化

図2. 3. 1-10 磁石材料の測定量とその測定手法

2-7 二次元測定法における画素の位置情報の校正

グレインの形状の測定には、SEM、SEM-EDS、μ-XRF、EBSD、EPMAなどがある。いずれも画像として測定結果が現われる。画像は、二次元配置された画素のXY座標と信号強度をセットとする情報の集合体である。そのため、画像上の2点間の寸法測定や、形状測定には、画素の位置情報が正確であることが必要である。以下SEMを例に検討を行った。

SEMによるグレイン形状の評価における不確かさ要因の一つに像歪みがあげられる。SEM像は電子ビームで試料表面を走査することにより得られるが、走査速度や倍率により像が歪むことが知られている。とくに、ビームの振り出しでは歪みが大きくリーディングエッジティステーションなどと呼ばれている。グレイン形状の精密な解析を実現するためには定量的な像歪みの評価必要となる。本研究では格子状にドットが配列した認証標準物質を用いることで、SITレーサブルな像の歪み評価・校正法を開発した。

SEM像の歪みを評価するために認証標準物質NMIJ CRM 5207-aを用いた。このCRMは図2. 3. 1-11に示すようにシリコン基板上にタングステンドットが正方格子状に配列した構造をもち、平均ドット間隔がSITレーサブルな認証値として与えられている。CRMは1つの基板状にA、B、Cとドット間隔の異なる3つのドットアレイをもち、観察倍率によってドットアレイを選択することができる。ドットアレイCはピッチ597.7 nm、その拡張不確かさは7.3 nmである。

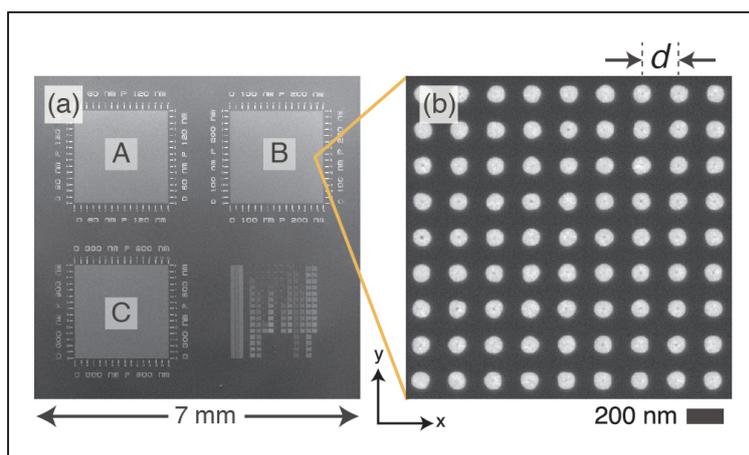


図2. 3. 1-11 NMIJ CRM 5207-aのSEM像

SEM観察条件を変化させながらこのCRMを撮影することで、観察条件が像歪みに与える影響を評価することができる。ここではSEM像の像歪みに大きな寄与を持つ走査速度(撮像時間)を変化させた時の例を示す。

走査条件を下表のように変化させた時(条件1が高速、8が低速)のドットアレイCのSEM像を比較した。加速電圧は15 kV、倍率は4000倍で共通である。積算処理は行わず、1回のスキャンで画像を取得した。走査速度が早い条件では、画像左端部でドット形状が変化しており、歪みが生じた。

表2. 3. 1-1 電子ビーム走査条件

条件	撮像時間(s/frame)
1	0.82
2	1.64
3	3.28
4	6.55
5	13.1
6	26.2
7	76.8
8	153.6

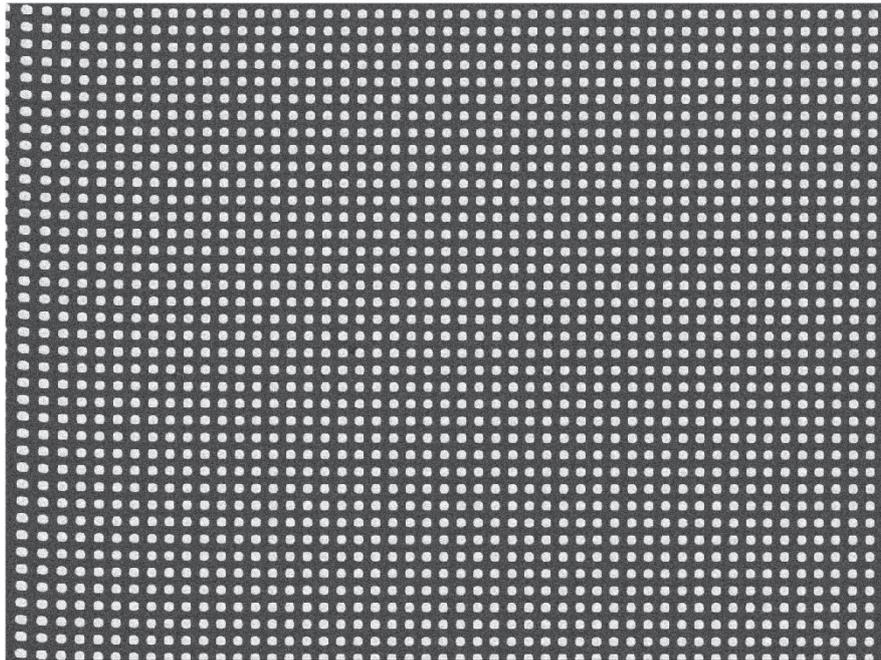


図2. 3. 1-12 CRMのSEM像。表3-1)-2-1での走査条件3

画像解析により得られた画像内の隣接ドット間距離を測定することで、画像の歪みを評価することができる。画像解析によりSEM像端部にかかるドットを除いたSEM像内のドット(50個×38個)を検出し、各ドットの重心位置をもとめ、隣接ドットの重心間距離を決定した。

X方向のドットピッチ分布を図2. 3. 1-13に示す。高速走査条件では画像左側でドット間隔が大きく、ドットピッチの分布幅も広い。走査速度が遅くなるにつれて、ドット間隔は収束し、条件8における平均ドット間距離は $49.2(\text{pixel}) \pm 0.14(\text{pixel})(1\text{SD})$ であった。CRMの認証値よりこの時のピクセルサイズは $12.1(\text{nm}/\text{pixel})$ である。一方、CRMの拡張不確かさ($k=2$)は 7.3 nm であり、これは 0.6 pixel に相当する。したがって、隣接ドット間距離が平均ドット間距離に対して 0.6 pixel 以上離れている場合には有意な像歪みがあると考えられる。

以上、本事業ではCRMを用いた簡便かつSIトレーサブルな画像の歪み評価法を開発した。定量的な像の歪みの評価は、計測の不確かさ評価はもちろんのこと、観察条件検討、解析を行う画像の範囲を選択、あるいは解析前に歪み補正などの前処理検討など、より信頼性の高いグレイン形状評価へ向け取るべきアクションの指標となるものである。

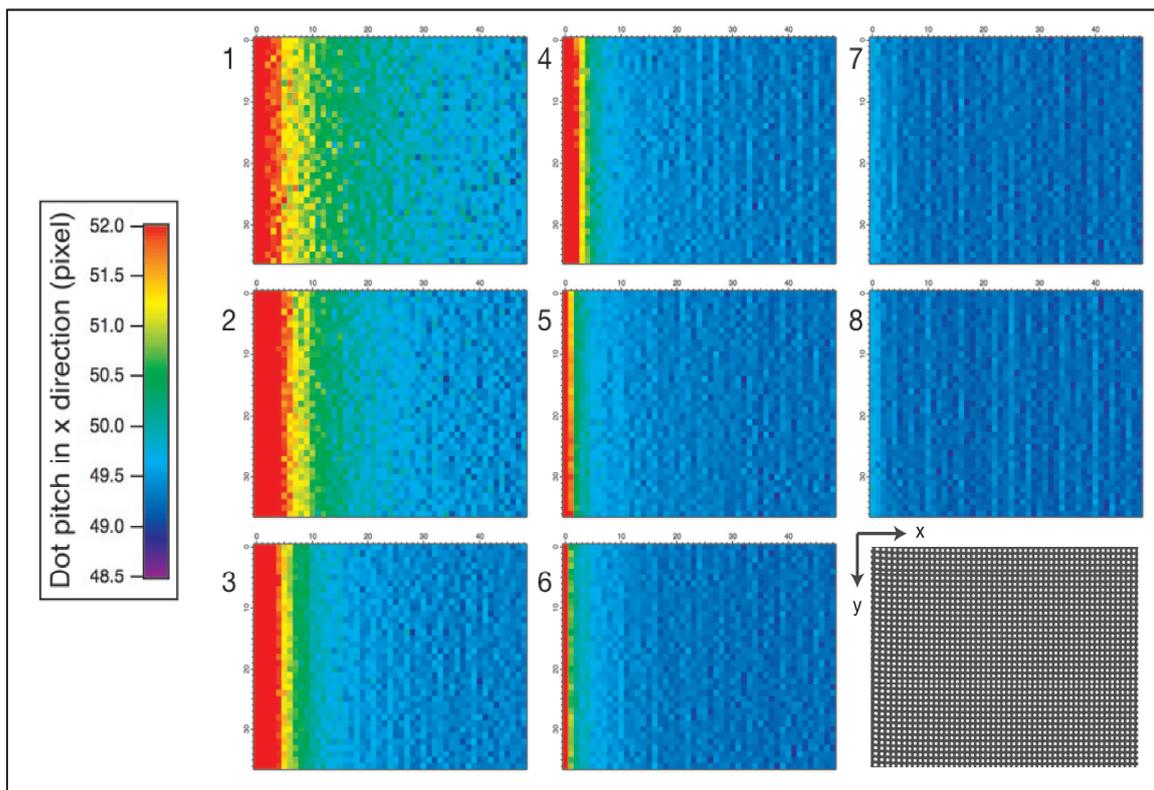


図2. 3. 1-13 走査速度を変化させた時のドットピッチの分布

2-8 粒界構造画像取得に関するFBD

測定結果をもとに、粒界構造の画像測定に影響する要因について、図2. 3. 1-14のFBDにまとめた。要因は二つのグループに大別される。

一つ目はグレイン境界の識別性に影響する要因群であり、画像データの取得に関係する。この中には不確かさの評価が困難な要因が含まれている。試料の前処理は、SEMによるグレイン境界の識別の難易度を左右する重要な要因である。モデル試料では粒界の幅と結晶粒の大きさの比は1:1000以上になる。そのため、単純には、一つの画像上で多数の結晶粒のサイズ測定と結晶粒を囲むグレイン境界の幅測定を同時に測定することは、SEM像の縦横画素数からみて難しい。しかしながら前処理の条件、SEM観察の条件を最適化することによって、測定を行うことは可能である。図2. 3. 1-9はそれを示す結果である。

もう一つのグループは画素の幾何情報に関する因子群である。これは得られた二次元画像データの解析精度に影響を与える因子である。画像データから粒子サイズを求める際に、画素の持つXY座標の精度に影響を与える効果に関係する。

なお、SEM-EDS、XRFの測定方法も同じ要因でFBDを構成すると考えられる。ただし本磁石モデル試料に対しては、FBDの要因のうちの空間分解能の影響が大きく、Labの測定装置では粒界構造画像を得ることはできない。

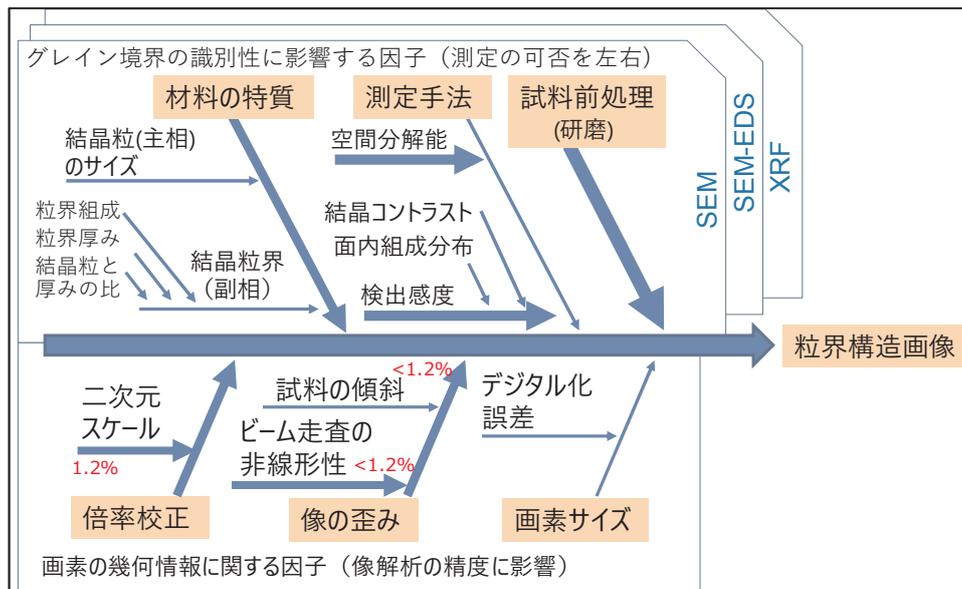


図2. 3. 1-14 SEM, SEM-EDS, XRF測定法による粒界構造画像取得に関するFBD

(4) まとめ

GC-FID、LC-UV、Py-GC-FID(-MS)、LC-MSに関しては、標準液ベースでの試験に基づく評価を実施し、不確かさ要因を検量線に起因する因子(共通因子)とそれ以外の試料調製に起因する特殊因子に大別した。そして不確かさ要因の関係整理を行い、主たる不確かさ因子を選定し、それぞれFBDにまとめた。

成果1-1では、GC-FIDを用いたカップリング剤の定量に関するFBDの基本骨格を作成した。測定データに基づくそれぞれの不確かさの寄与率を算出したところ、主な不確かさ因子は特殊因子(試料調製の不確かさ)であることが明らかとなった。

成果1-2ではLC-UVを用いた老化防止剤の定量に関するFBDの基本骨格を作成し、測定データに基づく寄与率算出を行った。結果として、分析法全体としては特殊因子(試料調製の不確かさ)の寄与率が高いことを明らかにした。また検量線の不確かさの中でも、一点検量線の不確かさ寄与率が多点検量線よりも大きいことも明らかとなった。

成果1-3では、Py-GC-FIDを用いたポリマタイプ分析に関するFBDの基本骨格を作成した。特殊な検量線をベースにした内作ソフトウェアにて測定結果の判定をしていること、その検量線から導き出される結果(ポリマブレンド比)よりも、得られたフラグメントパターン(ピーク組成)の方がより重要な結果であることから、数値化困難な検量線の不確かさを除く、他の不確かさ要因(試料調製の不確かさ(Py機種間差、試料の供試量や形状など))測定データに基づいて評価した。結果として、Py機種間差が若干だが観測されたこと、マルチショット方式では形状の違いによる結果の差異はほとんどなく、供試料量の違いが結果に影響することが明らかとなった。またPy-GC-MSとの比較では、分解物であるスチレン由来のピーク面積値が顕著に大きくなったため、Py-GC-FIDとは明らかな差異を生じることも判明した。

成果1-4では、LC-MSを含む質量分析計を用いたゴム添加剤の定性分析に関するFBDの基本骨格を作成した。この測定は検量線を用いず、定性分析であったため、測定結果の信頼性を評価するための数値化は困難であったことから、定性分析の結果に影響を与える不確かさ要因の関係整理を行い、主たる不確かさ因子を選定した。

グレイン境界判定に関してSEM、SEM-EDS測定に影響を及ぼす要因をモデル試料の測定を行って抽出しFBDの基本骨格をまとめた。XRF測定では純金属を用いた試験により検証した。

成果2-1にてグレインサイズの大きな鉄鋼材料を用いて、SEM測定による結晶粒材料のグレイン境界の識別性について結晶粒のコントラスト変化をもとに検証した。

磁石モデル試料を用いた検討では成果2-2にてグレイン境界の識別方法の検討を行った。測定量の項目として結晶粒径を選択し、測定法にSEMを選択することとした。SEM測定のための試料前処理方法の検討を成果2-3で行い、成果2-4ではSEM観察条件として加速電圧 4~5 kVが適することを見出した。成果2-5にてモデル試料の結晶粒径の解析には広視野・高解像度観察が必要であり、モンタージュSEM観察法でそれが実施できることを示した。

成果2-6にて結晶粒材料の蛍光X線分析(XRF)について、純金属を基準とした信号強度のk値の安定性を6ヵ月間測定し、sub%の精度の測定値の安定性があることを示した。

成果2-7にて二次元測定法における画素の位置情報の校正方法と、SEM像の歪みの検証方法を示した。

以上をとりまとめて、成果2-8にて粒界構造画像の測定取得に影響を与える要因のFBDを示した。グレインサイズが約5 μmのモデル試料では、SEM測定では試料前処理が結果に大きく影響すること、XRFやSEM-EDSではラゴ装置では空間分解能が不足して粒径サイズ測定には不適であることを示した。

目的に照らした達成状況

研究開発項目	目的	達成状況
3-1)測定データの信頼性向上技術の開発	測定結果の信頼性を向上させるため、計測手法毎に主たる不確かさ因子を同定し、測定値に紐づけをする研究開発を行う	<p>測定結果の信頼性を向上させるため、GC-FID、LC-UV、Py-GC-FID(-MS)、LC-MSを用いた測定での主たる不確かさ因子を明らかにし、FBDにまとめるとともに、実データに基づいて主たる因子の寄与を評価した。GC-FIDやLC-UVでは主たる不確かさ因子が試料調製の不確かさであること、Py-GC-FIDではPy機種間差や供試料量による差異が結果に影響を及ぼすことをそれぞれ明らかにした。LC-MSでは定性分析に影響を与える主たる因子を選定した。</p> <p>結晶粒とそれを囲む境界からなる材料についてグレイン境界判定方法を調査した。磁石材料のモデル試料のSEM、SEM-EDS、XRF測定について、結晶粒境界を判定して結晶粒の面積や形状を測定するときに判定精度に影響を与える因子について検討し、SEM測定に関する因子を抽出してFBDの基本骨格を完成した。またSEM法によるグレイン境界判定を容易にする試料の前処理方法を開発し、広範な領域の結晶粒境界判定を可能とした。結晶粒の面積や形状測定の精度評価に必要な二次元画像の歪みの評価方法を開発した。以上のように目標は十分に達成した。</p>

2. 3. 2 相関解析に向けた統合ビューア作製技術の開発(研究課題3-2)

(1) 目標

本研究課題においては、研究課題1で開発された共通データフォーマットと各種計測分析装置用に作製されたデータコンバータをもとに、CPS型複合計測分析システムを構成する個々の計測分析装置の測定結果を共通的にハンドリングし、相関解析に向けて解析結果を視覚化する、統合ビューアの研究開発を行う。研究課題3-3で遂行するモデル実証への展開を想定して、複合階層構造解析用統合ビューア、粒界構造解析用統合ビューアの2種類を試作し、統合ビューア技術を開発することを目標とする。

複合階層構造解析用統合ビューアは、タイヤ材料の研究開発に活用されるマクロ-マイクロ分析の相関解析に向けて、解析結果やその特徴量を視覚化する統合ビューアとする。

粒界構造解析用統合ビューアは、磁石材料の研究開発に活用されるマイクロ-マイクロ分析結果の相関解析に向けて、分析・観察結果の活用の際の課題や問題点を抽出し、観察画像の表示方法および画像による解析のための機能を盛り込むとともに、統合解析のための出力と解析後の結果の入力機能を備えるものとする。

また、統合ビューアで活用される画像を中心とするデータ群に対して、計測・分析条件の違いなどを補償して比較検討が可能なデータを提供するデータ補償ツール、また計測・分析方法や試料作成フローの可視化と追加修正が可能な可視化ツールを試作することを目標とする。

上記の目標遂行に向けて、次の3つのサブ課題に分けて推進する。

- A. 複合階層構造解析用統合ビューアの開発
- B. 粒界構造解析用統合ビューアの開発
- C. データ補償ツール、可視化ツールの開発

(2) 実施体制

相関解析に向けた統合ビューア作製技術の開発では、計測分析機器メーカー4社と九州工大が協力して統合ビューアの仕様策定や機能評価を実施した。

複合階層構造解析用統合ビューアでは、島津製作所がとりまとめ責任を果たし、住友ゴム工業は、取得したデータから得られる特徴量抽出方法を議論し、抽出した特徴量を用いて物性等との相関解析を行い、実証検証を行った。粒界構造解析用統合ビューアの開発では、日立ハイテクは解析結果を視覚化するとりまとめ責任を果たし、TDKは磁石材料の提供および各種測定を行い、相関解析に向けた特徴量抽出方法を議論し、粒界構造解析用統合ビューアの実証検証・有用性の確認を行った。

複合階層構造解析用統合ビューアと粒界構造解析用統合ビューアの開発体制を図2.3.21(a)、(b)に示す。堀場製作所は、ラマン分光分析装置、蛍光X線分析装置を用いて磁石材料のモデルデータを取得し、相関解析に向けた特徴量抽出と課題抽出を行い、統合ビューア表示に必要なソフトウェアの改良を行った。日本電子は、統合ビューア仕様検討に際して、測定データの共通データフォーマット(XMAIL形式)とそのファイル構成(画像、スペクトル、座標部分など)に関する資料を提供した。

データ補償ツール、可視化ツールは九州工業大学が開発した。

複合階層構造解析用統合ビューア技術の開発

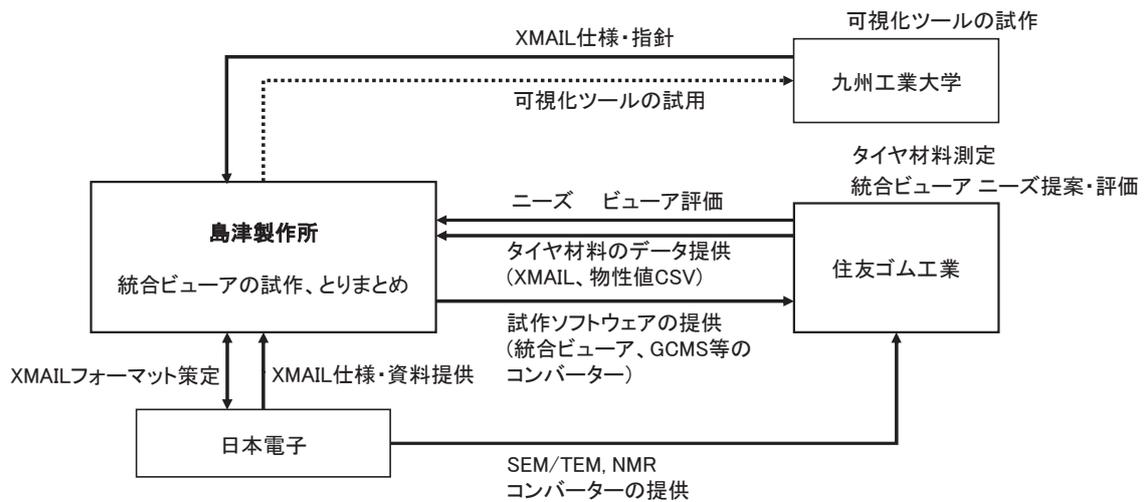


図2. 3. 2-1(a) 複合階層構造解析用統合ビューアの開発体制図

粒界構造解析用統合ビューア技術の開発

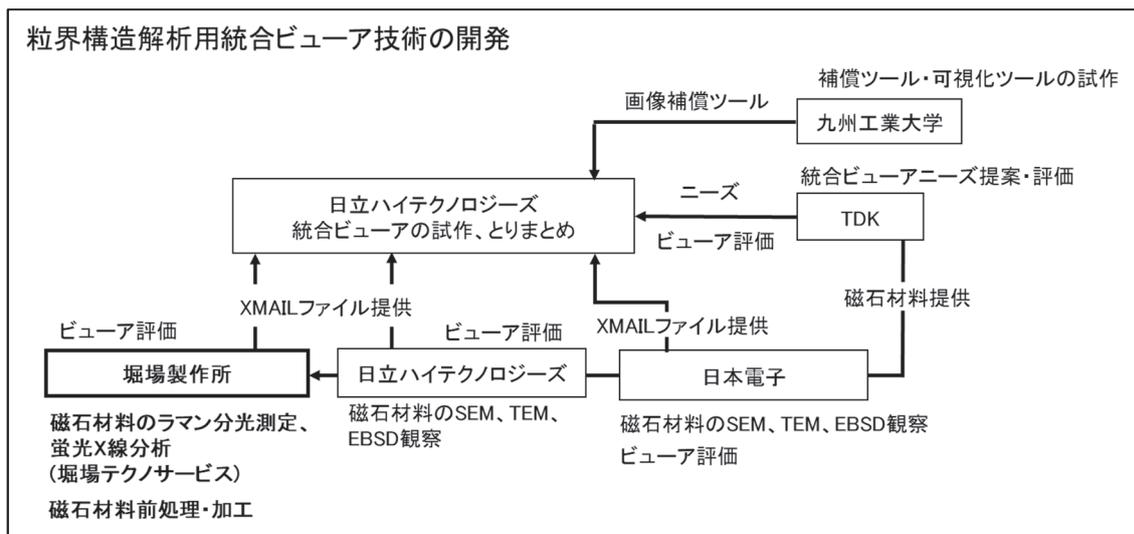


図2. 3. 21(b) 粒界構造解析用統合ビューアの開発体制図

(3) 成果

A) 複合階層構造解析用統合ビューアの開発

複合階層構造解析用統合ビューアは、表2. 3. 2-1に示す個別計測分析装置の出力結果を統合解析する用途に用いるものとして開発した。

表 2. 3. 2-1 複合階層構造解析用統合ビューアで対応する機種

液体クロマトグラフ(LC)
ガスクロマトグラフ(GC)
液体クロマトグラフ質量分析計(LCMS)
ガスクロマトグラフ質量分析計(GCMS)
赤外分光光度計(FTIR)
走査電子顕微鏡(SEM)
透過電子顕微鏡(TEM)
核磁気共鳴装置(NMR)

合わせて複合階層構造解析用統合ビューアへの要求項目と要求仕様を表 2. 3. 2-2 のように決定した。また表 2. 3. 2-2 の要求仕様を満たす統合ビューアとして、図 2. 3. 2-2 のような画面構成の Web アプリケーション(一般的な Web ブラウザ上で動作可能なソフトウェア)を開発した。

表2. 3. 2-2 複合階層構造解析用統合ビューアへの要求項目および要求仕様

要求	要求の詳細	要求仕様
【要求項目I】 複数の計測分析装置の測定結果を統合的に扱いたい	住友ゴム工業で使用される表2. 3. 2-1の装置のデータを管理したい	表2. 3. 2-1の装置のコンバータが出力したXMAILファイルを読み込み、データとして扱えること。 読み込んだXMAILを一覧表示できること。
	異なる装置で測定されたデータを連携させたい	個々の測定データが散逸しないように、プロダクト(試作サンプル)ごとに各データをぶら下げて管理できること。
【要求項目II】 相関解析に向けてデータを視覚化したい	生データのままで扱にくいので特徴量を抽出したい	登録されたXMAILデータ内や付帯するcsvに含まれる結果情報を抽出できること
	個々のデータがどのようなものかを確認したい	個々のデータを閲覧できること。 読み込んだXMAILを一覧表示できること。
	相関解析に必要なデータを束ねたい	特徴量を列方向、プロダクトを行方向に並べたテーブルを表示・出力できること。
	マイクロ情報とマクロ情報を含めた解析をしたい	SEM/TEMデータ(マイクロ情報)とそれ以外のデータ(マクロ情報)からの特徴量を取り混ぜて解析できること。
	材料の配合情報、物性値を同時に扱いたい	材料の配合情報、物性値をインポートできること。 配合情報、物性値を特徴量と同列に扱えること。

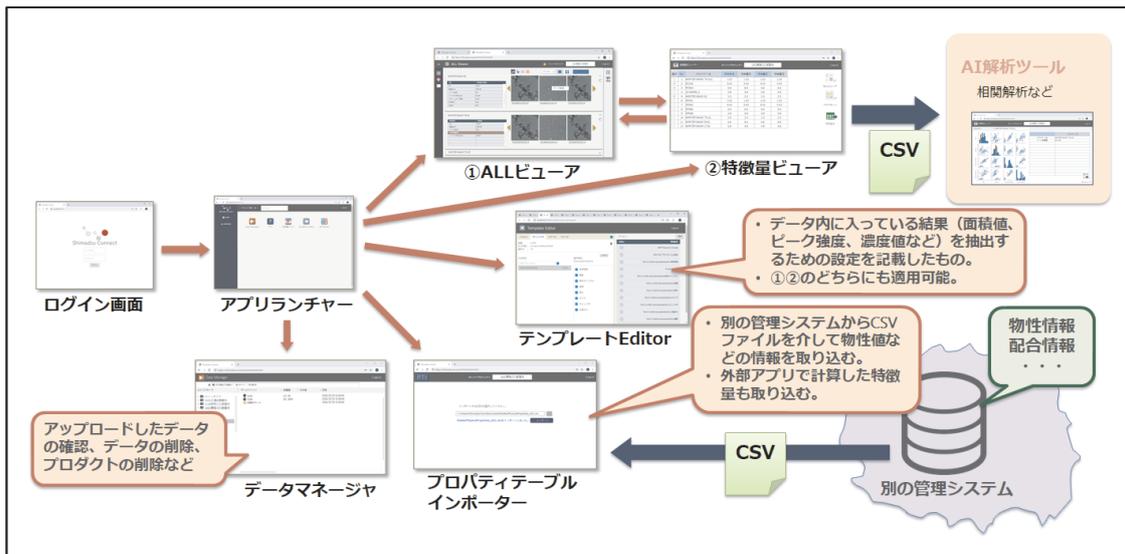


図2. 3. 2-2 統合ビューアの画面構成

Web ブラウザ上で URL を指定するとログイン画面になり、ユーザ認証を求められる。ログインするとアプリランチャ画面となり、そこから用途に応じた表 2. 3. 2-3 のようなアプリを起動できる。

表 2. 3. 2-3 統合ビューアが持つアプリ一覧

アプリ名	機能
データマネージャ	複数の XMAIL ファイルをプロダクト(試作サンプル)の単位で管理できるアプリ。アップロードしたデータの確認、プロダクトの削除などが行える。
All ビューア →図 2. 3. 24(a)、(b)	プロダクト単位で個々のデータを閲覧・比較可能なアプリ。最大4つまでのプロダクトを比較できる。
特微量ビューア →図 2. 3. 2-5、 図 2. 3. 2-6	複数プロダクトの特微量と物性値、あるいは配合情報を束ねることができるアプリ。束ねた情報を 特微量テーブル と呼び、この画面から特微量テーブルを CSV ファイルに出力することで、外部の AI 解析ツールと連携が可能となる。
テンプレート Editor	データから特微量を抽出するためのデータ名の指定をテンプレートとして保存できるアプリ。All ビューアと特微量ビューアの両方で使用可能。
プロパティテーブル・インポータ	外部のデータベースから物性値、配合情報をインポートすることができる。インポート可能な形式は CSV ファイル。

また、この Web アプリ以外に、Web アプリ用データサーバにデータ(XMAIL ファイル)をアップロードするための**アップローダ**をデスクトップアプリとして開発した。このソフトウェアは XMAIL ファイルに変換されていれば他社のデータもサーバに登録できるソフトウェアである(図 2. 3. 2-3)。

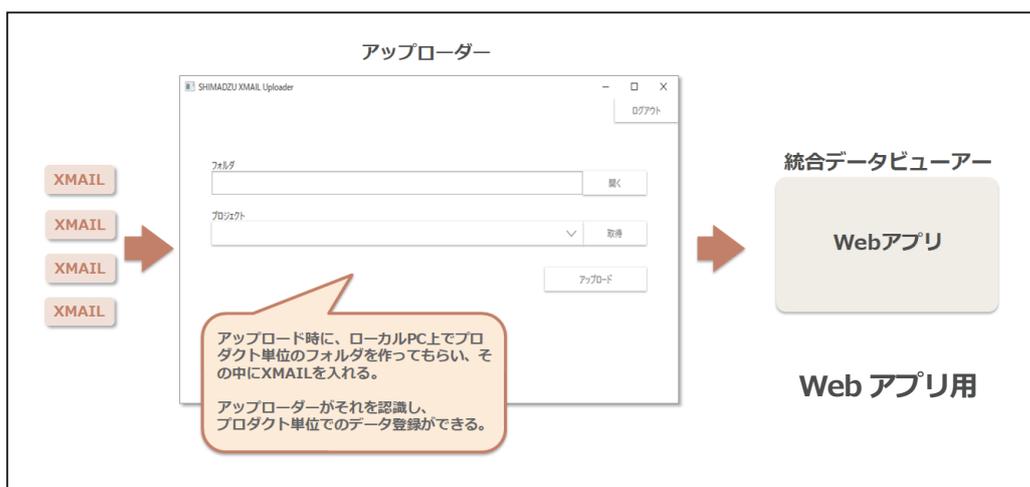


図 2. 3. 2-3 コンバートした分析データ(XMAIL)のアップロードの流れ

Allビューアの詳細について図 2. 3. 2-4(a)、(b)に記す。プロダクト単位で登録されたデータはAllビューアでは物性値、配合情報、特徴量とともに、クロマトグラムや画像などの生データを同時に閲覧することができる。プロダクトは 4 つまで選択でき比較が可能。装置の切り替えアイコンにより、生データの種類を切り替えることができ、同じ装置データが複数個ある場合は、“<” “>” ボタンにより切り替えての表示が可能である。

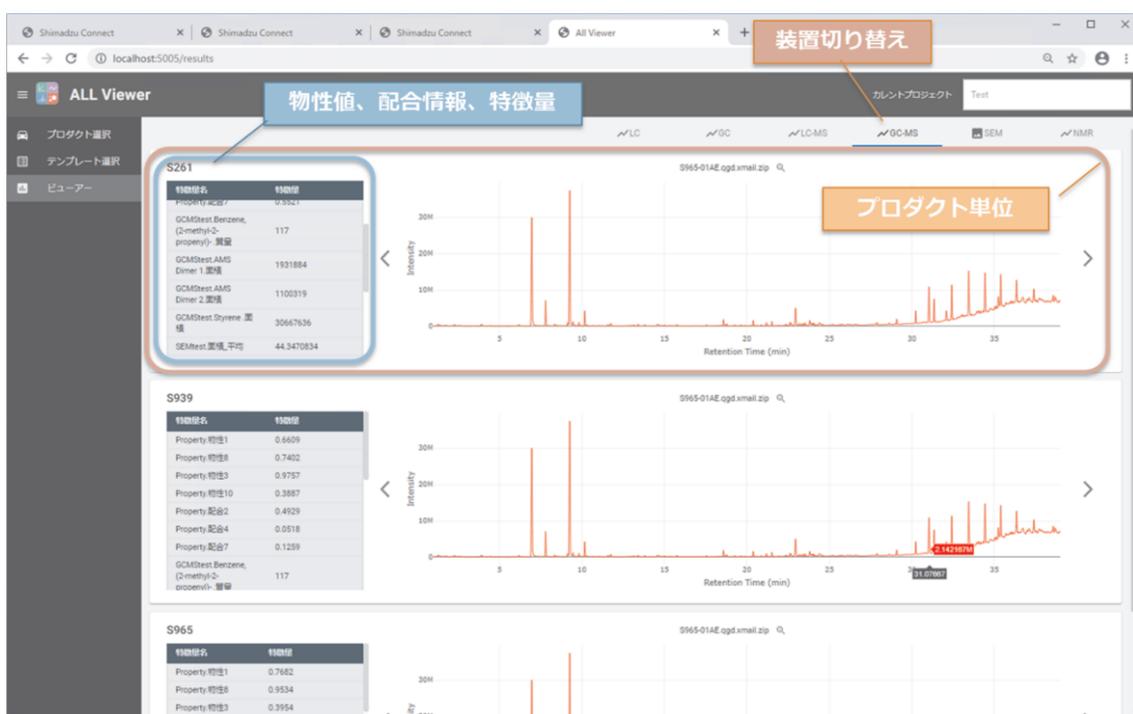


図 2. 3. 2-4(a) ALL ビューアによるデータ表示(GCMS データ)

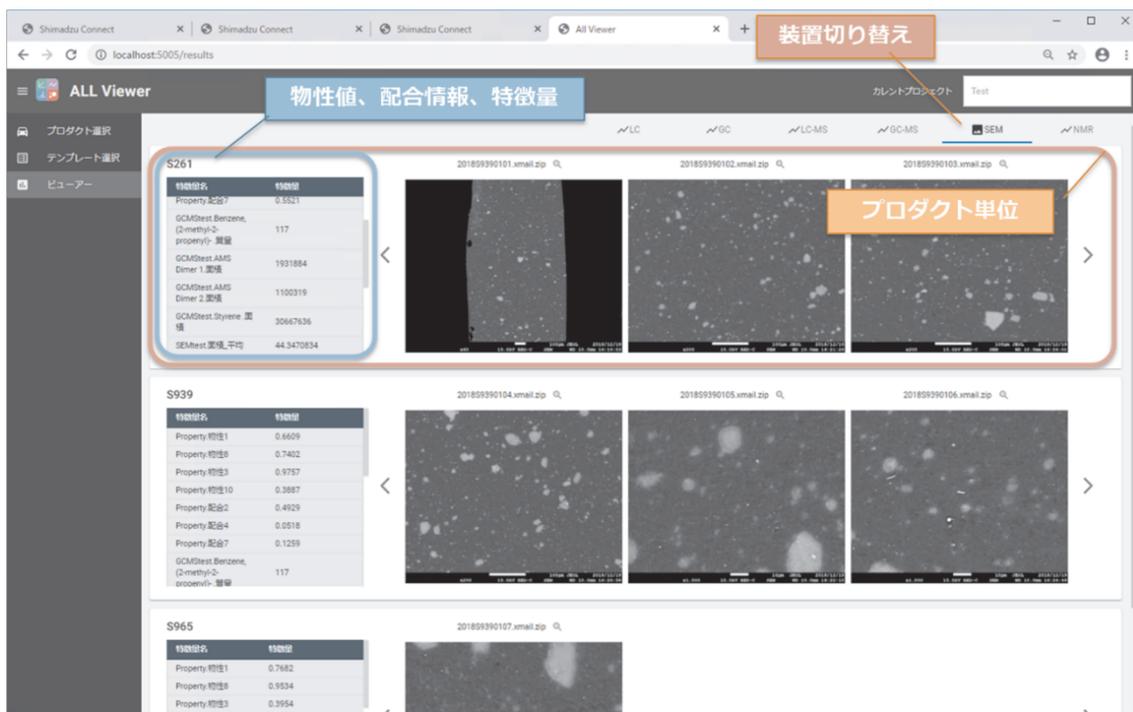


図 2.3.2-4(b) ALLビューアによるデータ表示(SEM 画像)

特徴量ビューアの詳細について図 2.3.2-5、図 2.3.2-6 に記す。プロダクト単位で登録された物性値、配合情報、特徴量は、特徴量ビューアで一覧表として表示することができる。行として表示できるプロダクト数に制限はなし。列情報として表示したい物性値や配合情報、特徴量は予めテンプレートで細かく設定でき、特徴量ビューアを表示する際にテンプレートを指定することで一覧表が作成可能となる。この一覧表を「特徴量テーブル」と呼ぶ。特徴量テーブルでは統計処理で言うところの目的変数となる「物性値」と、説明変数となる「配合情報」「(分析データからの)特徴量」を1つのテーブルに集められる。そのため、この表を CSV 出力したものを基にすれば、他のソフトウェアにて統計処理や機械学習が可能となる。

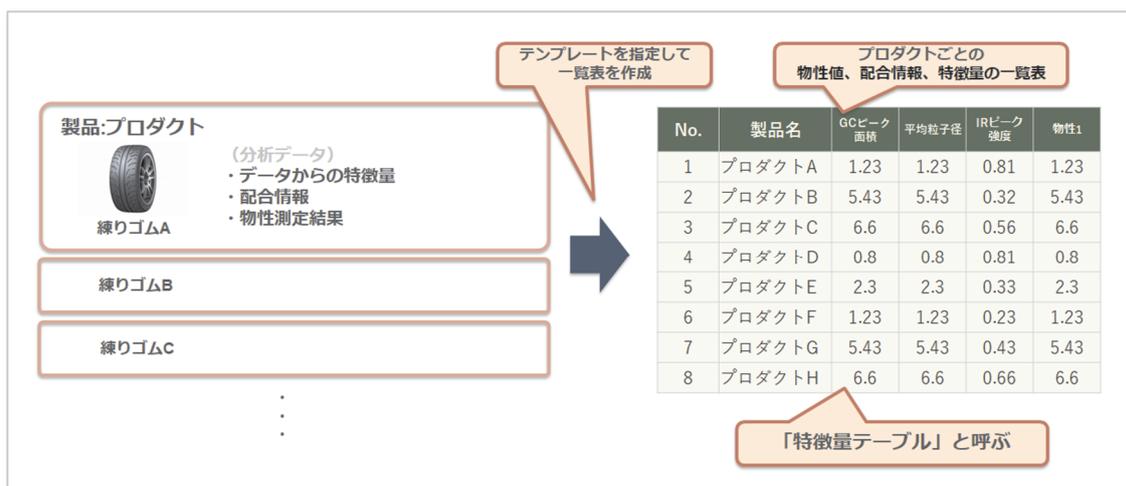


図 2.3.2-5 特徴量ビューアによる特徴量テーブル表示の概念

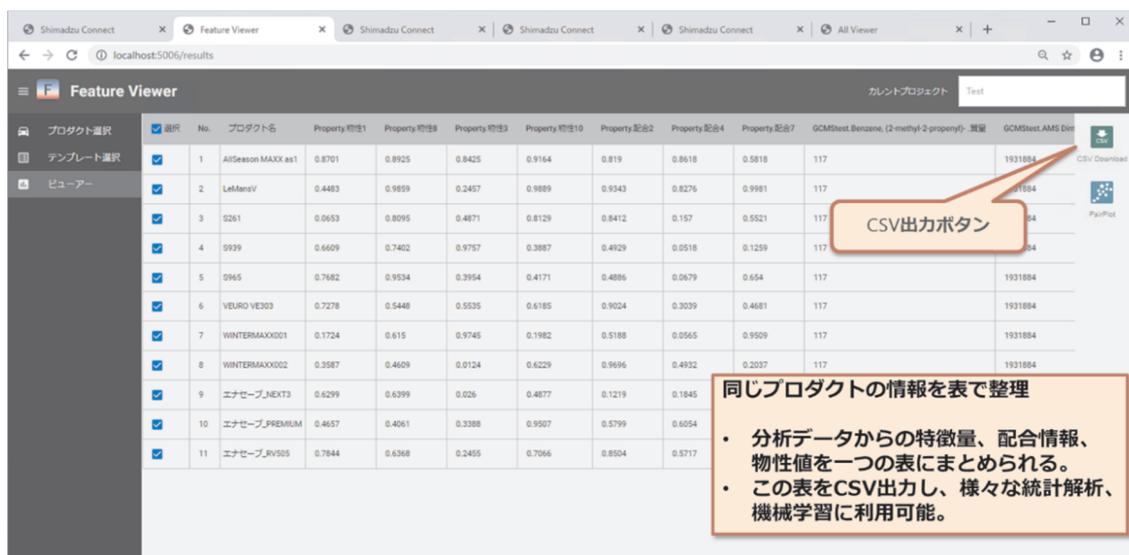


図 2.3.2-6 実際の特徴量ビューア画面と CSV 出力ボタン

以上を踏まえて、表 2.3.2-2 に示す要求項目 I への対応状況を次のように確認した。

①アップローダとWebアプリ用データサーバ

- 課題1で開発したコンバータにより XMAIL に変換されたデータファイルは、図 2.3.2-3 に示す「アップローダ」によりネットワークを介して「Web アプリ用データサーバ」に転送・登録（アップロード）することができる。
- Web アプリ用データサーバにデータが登録されると統合ビューアのいくつかのアプリ（表 2.3.2-3）でデータを閲覧したり、一部の値を抽出したり、それらの値を束ねたりが可能になる。

②データマネージャ

- 登録されたデータは、統合ビューアの「データマネージャ」により一覧表として閲覧可能になる。登録がうまくいったかの確認ができ、また不要なデータの削除が可能。
- データマネージャでは、複数の異なる装置で測定されたデータが、元になったプロダクト（試作サンプル）にぶら下がる形で、Windows のエクスプローラのようにツリー状に整理されて確認することができる。これにより、データの散逸を防ぐことができたり、未測定データが発見出来たりする。

また要求項目IIへの対応状況は次のように確認した。

③テンプレート

- 登録されたデータには、スペクトルやクロマトグラム、画像のような「生データ」と、それらを解析に掛けて得られた「結果情報」が含まれている。相関解析に掛けるのは主に結果情報である。そうすると、データから結果情報を効率よく抽出する手段が必要となり、「どの種類のデータからどの結果を抜き出す」という設定が行える「テンプレート」という機能を開発した。
- データに対して特定のテンプレートを適用すると、解析に必要な結果情報のいくつかを抽出できる。テンプレートは複数種類定義ができ、保存が可能である。テンプレートを定義するアプリを「テンプレート Editor」と呼ぶ。また、抽出した結果情報を「特徴量」と呼ぶ。

④Allビューア

- 図 2.3.2-4(a), (b) に示す「All ビューア」アプリでは、登録されたデータの生データに当たるスペクトルやクロマトグラム、画像の閲覧ができる。抽出された特徴量の値に疑問が出たときなど、生データに立ち返って調べることができる。
- All ビューアでは4つのプロダクトまで並べて閲覧・比較が可能で、プロダクトに複数装置のデータが属している場合は、画面上で容易に装置を切り替えることができ、複数装置の情報を取り混ぜての閲覧が可能である。クロマトデータから SEM 画像への切り替えも 1 クリックで行える。

⑤プロパティテーブル・インポータ

- ・ All ビューアでは、抽出した特徴量とともに、「配合情報」や「物性値」をテーブルとして閲覧できる(図 2. 3. 2-4(a), (b))。それらの配合情報、物性値を外部ファイルから取り込むためのアプリが「プロパティテーブル・インポータ」である。取り込める形式は図 2. 3. 2-7 のような CSV ファイルである。

⑥特徴量ビューア

- ・ 特徴量ビューアでは、図 2. 3. 2-5 のようにデータから抽出した「特徴量」をテーブルの形で列方向に並べることができる。行方向はプロダクトである。その結果、図 2. 3. 2-6 のようなテーブルの表示が可能で、ここでは例えば SEM データからの結果(マイクロ情報)と GCMS の結果(マクロ情報)を取り混ぜて扱うことができるようになる。
- ・ また、特徴量ビューアには特徴量だけでなく、プロパティテーブル・インポータによって取り込んだ「配合情報」や「物性値」も同列に並べることができる。
- ・ 特徴量ビューアで列方向にならべる値も前述のテンプレートを用いて設定が可能である。
- ・ 特徴量ビューアは、図 2. 3. 2-6 のようなテーブルを CSV 形式で外部ファイルに出力することができる。チェックが入った行のみを出力する。この CSV ファイルを用いて、外部のソフトウェアで統計解析や AI 解析を行うことができる。

以上の記載をもって、要求 I、II は達成されていることを確認した。

プロダクト名	物性 1	物性 2 - 1	物性 2 - 2	物性 2 - 3	物性 2 - 4	物性 2 - 5	物性 3	物性 4	物性 5 - 1	物性 5 - 2	物性 6	物性 7 - 1	物性 7 - 2	物性 7 - 3	物性 7 - 4
2018-S853	0.791	0.56	0.69	0.413	0.693	0.951	0.615	0.604	0.5	0.307	0.367	0.574	0.569	0.59	0.104
2018-S854	0.766	0.52	0.65	0.397	0.657	0.907	0.605	0.604	0.74	0.207	0.395	0.448	0.444	0.564	0.082
2018-S855	0.765	0.54	0.68	0.413	0.553	0.78	0.61	0.604	0.715	0.215	0.435	0.467	0.461	0.596	0.09
2018-S856	0.778	0.5	0.63	0.387	0.673	0.94	0.608	0.605	0.77	0.199	0.49	0.531	0.524	0.61	0.102
2018-S857	0.778	0.52	0.65	0.397	0.693	0.931	0.598	0.604	0.77	0.199	0.453	0.515	0.51	0.582	0.094

図2. 3. 2-7 プロパティインポータで取り込めるCSVファイルの形式

上記のビューア構築に際して、日本電子は表 2. 3. 2-4 の計測分析装置群の共通データフォーマット(XMAIL 形式)とファイル構成を提供した。

表2. 3. 2-4 日本電子が担当した計測分析装置と出力ファイルリスト

装置種	機種型番	ファイル名
走査電子顕微鏡(SEM)	JSM-7200F	S1-5-5-1-C-分析x1500-06-2.xmail.zip
透過電子顕微鏡(TEM)	JEM-1400	JEM-1400-COMS-NANO.xmail.zip
エネルギー分散型X線分析装置(EDS)	JED-2300	S1-5-5-1-C_0000014.xmail.zip
電子線プローブマイクロアナライザ(EPMA)	JXA-8500F	20191203_EPMAサンプル
核磁気共鳴装置(NMR)	JNM-ECA600	1%CHCL3_1h_lineshape-1. zmail. zip
蛍光X線分析装置(XRF)	JSX-1000S	QEA metal_1_12_16_35_58.xmail.zip
電子線後方散乱回折装置(EBSD)※	EDAX	1901023-1-20kV-70.0.xmail.zip、粒度分布

※TSL社製EBSD

住友ゴムにおいて、クロマトグラフ、NMR、顕微鏡の各装置のデータコンバートと共にXMAIL内に特微量を内包する手法を検討し、開発した複合階層構造解析用統合ビューアに実装した。特微量を含むXMAILを表示が可能となったビューアを活用することで、これまで複数の分析装置で取得したデータを解析のために装置に付属されているPCで行っていたが、これらの分析結果を1画面で確認することができるようになった。この改善により次のような効果が確認できた。

- ・ 単体の装置からのデータ解析では不可能であった統合的な解析がより簡単に行える
- ・ 誰もが統合ビューアに集約されたデータにアクセス可能で、分析装置間移動・解析用PCの占拠などの制約がなくなった(5時間/週の削減効果)
- ・ 常に同じデータを共有しているため、データ管理について担当者への問い合わせ回数を削減できた(2.5時間/週の削減効果)
- ・ 常に同じフォーマットで解析可能なため、後工程でもデータ管理が容易になった
- ・ データの有無で測定状況が判断可能になり、プロジェクト進捗管理が容易になった

B) 粒界構造解析用統合ビューアの開発

粒界構造解析用(マイクロ-マイクロ分析結果の相関解析用)統合ビューアを開発するにあたり、日立ハイテクがビューア試作の責任企業となり分析機器メーカーである日本電子、堀場製作所とユーザ企業であるTDKとの間で、仕様の検討と評価をおこなった。

初年度はTDKからの要求仕様に基づき、ビューアの骨格をつくりXMAIL非対応のプロトタイプを試作した。この試作ビューアは基本的に日立ハイテクのSEM(走査型電子顕微鏡)のデータを読み込ませることができる仕様として、ユーザインターフェースや表示機能、解析機能と使用感、および解析データを表示する機能の確認を各社と行った。特にTDKにおいては、要求仕様が満足されているかとその到達水準の面での評価を行い、改良のためのリストアップを図った。また分析機器メーカー間では、最終要求仕様であるXMAILファイルのフォーマット構造や記述内容、ファイル構成(XMAILファイルの中にすべてを記述するのか、またはXMAILファイルと同じフォルダの中に外部参照ファイルとして格納し、そのURIをXMAILに記述するのか)などそれぞれについて情報の交換と検討を行った。

図2. 3. 2-8に粒界構造解析用統合ビューアVer1.0(UIおよび基本解析動作確認用)の動作確認結果を、図2. 3. 2-9に課題1で開発されたデータコンバータのXMAIL_zipファイル内部構造の例を示す。

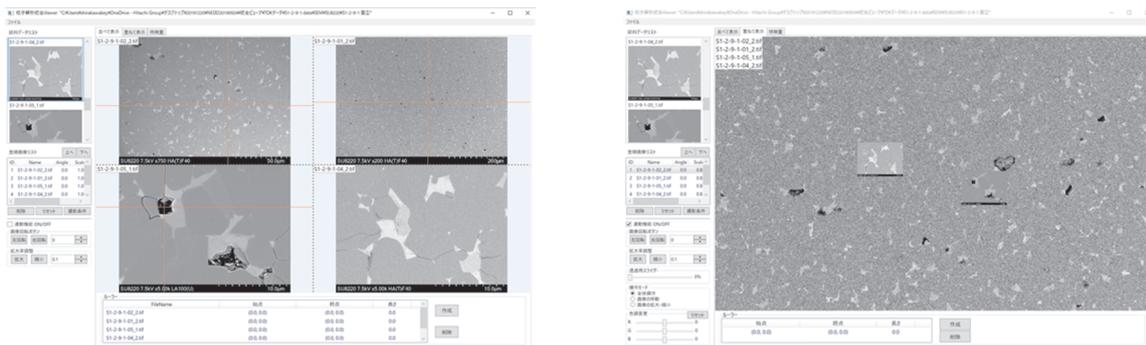


図2. 3. 2-8 粒界構造解析用統合ビューアVer1.0(UIおよび基本解析動作確認用)。SEM画像はTDKの磁石材料で検証

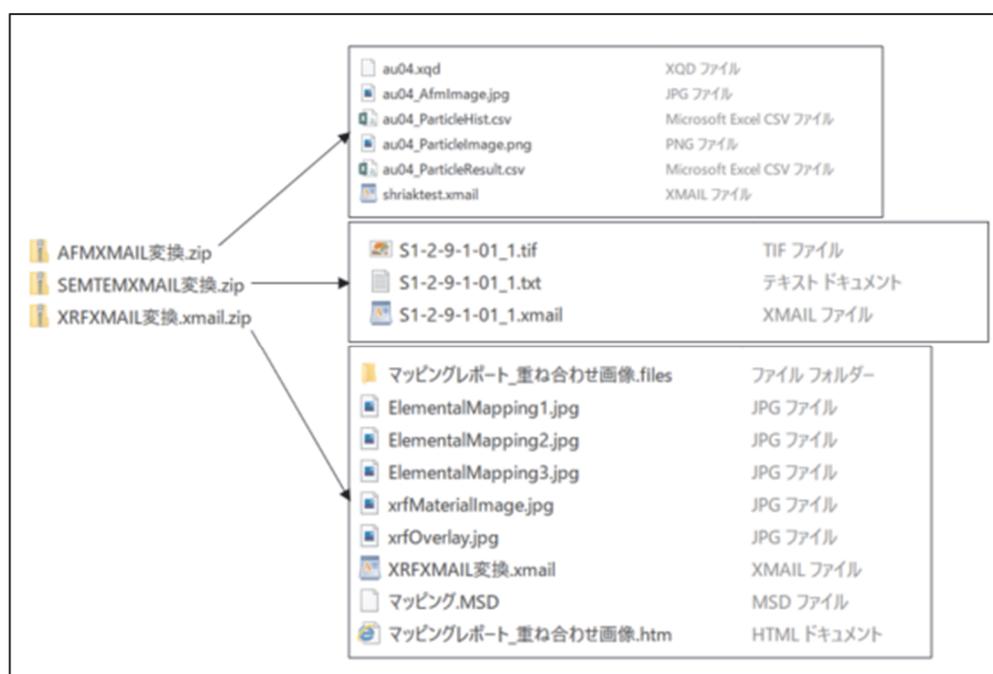


図2. 3. 2-9 データコンバータのXMAIL_zipファイル内部構造(日立ハイテクのAFM、SEMおよびXRF装置からのXMAILファイルとURIで関係づけられた外部フィルの例)

合わせてXMAILを開発した九州工業大学や複合階層構造解析用統合ビューアを開発した島津製作所と共に、XMAILファイル内の構造や記述方法、リンケージ構造や方法などを相互に確認し、最終的なすべてのXMAILフォーマットを読むための課題の抽出を行った。これは課題1で開発された各社のXMAILコンバータはZIPファイル内の構造まで指定しておらず、XMAILファイルを粒界構造解析用統合ビューアで読み込む際に、これらの構造の違いがデータ読み込み時のエラーを起こす原因になることが懸念されたためである。図2. 3. 2-10にXMAILファイルの記述に不一致がある場合に生じたエラーの一例を示す。

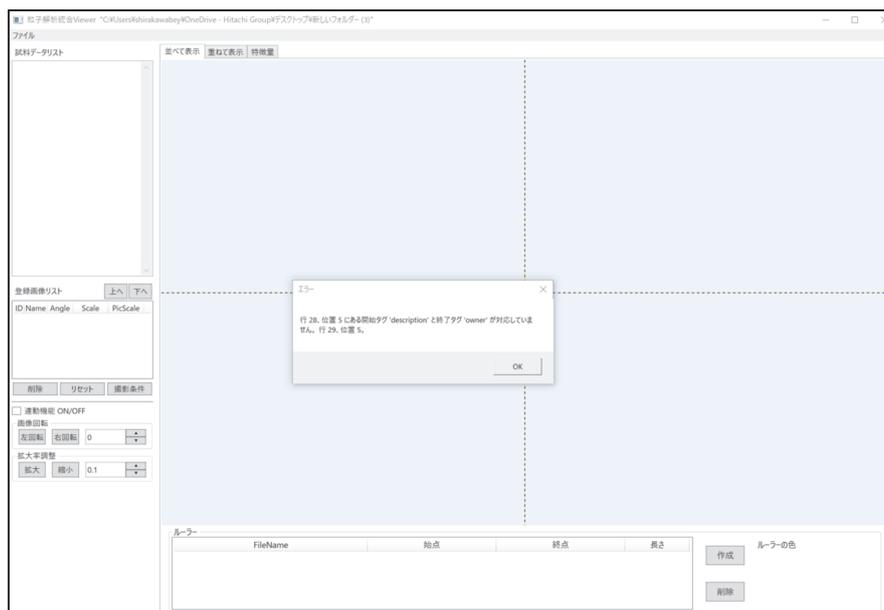


図2. 3. 2-10 XMAILファイルの記述に不一致がある場合のエラー例(ファイルを開くことができず、エラーの行数と理由がBOXに表示される)

粒界構造解析用(マイクロ-マイクロ分析結果の相関解析用)統合ビューアの開発は、次の3つの段階、1)日立ハイテクのフォーマットによるUIと要求仕様と動作確認、2)ユーザの要望を組み込んだ機能追加、3)その完成形をXMAIL対応にする、を設定して進めた。第二段階での開発においては、ユーザ企業であるTDKからの使い勝手の改善要求である、重ね合わせ時の各画像のRGB変調機能、透過度可変機能、ルーラーの追加、スクリーンショット保存、作業履歴の保存と結果の読み出しなどが要望され、必要な機能を追加した。これらの段階を設定して開発した理由は、前述のとおり各社各装置のXMAILファイルの記述が完全に一致しておらず、粒界構造解析用統合ビューアがそれらのファイルを読み込むことができない懸念があったためである。図2. 3. 2-11(a)、(b)、(c)にエンドユーザTDKの要望を反映した粒界構造解析用統合ビューアVer2.0の画面表示例を示す。



図2. 3. 2-11(a) エンドユーザTDKの要望を反映した粒界構造解析用統合ビューアVer2.0(1)
赤枠は画像ごとにRGB色調を可変できるスライダー調整部

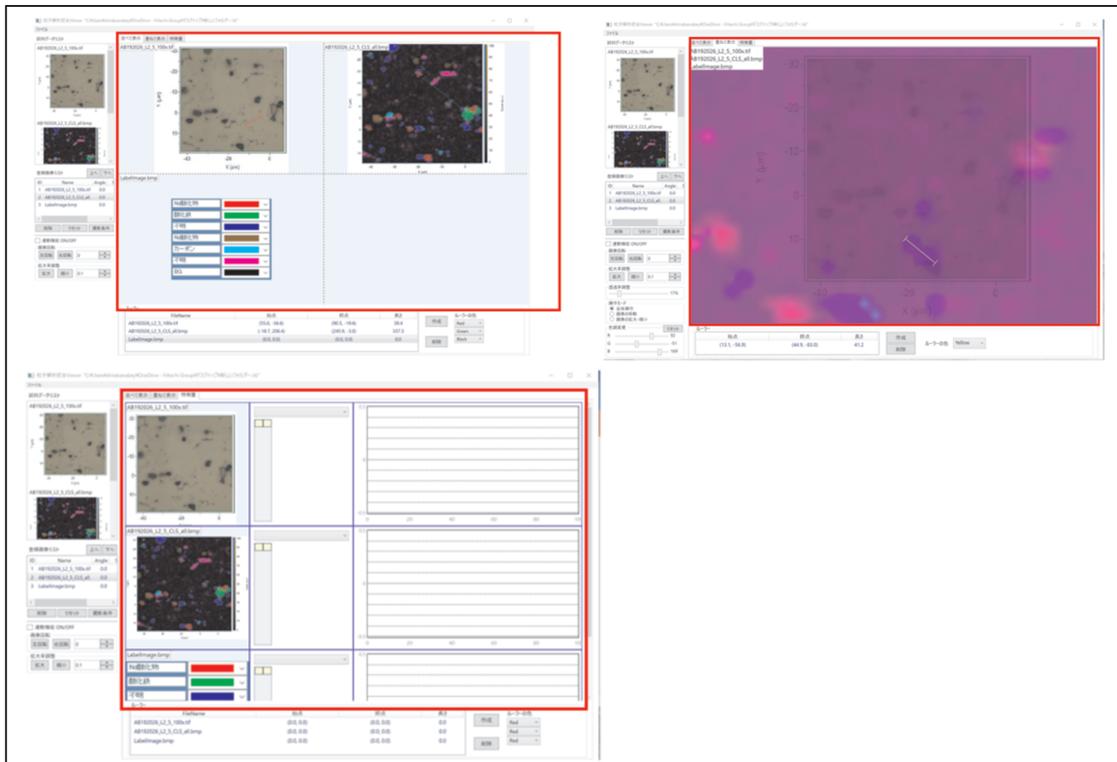


図2. 3. 2-11(b) エンドユーザTDKの要望を反映した粒界構造解析用統合ビューアVer2.0(2)
赤枠はキャプチャ可能な領域。画像ファイル名は左上に記載される。

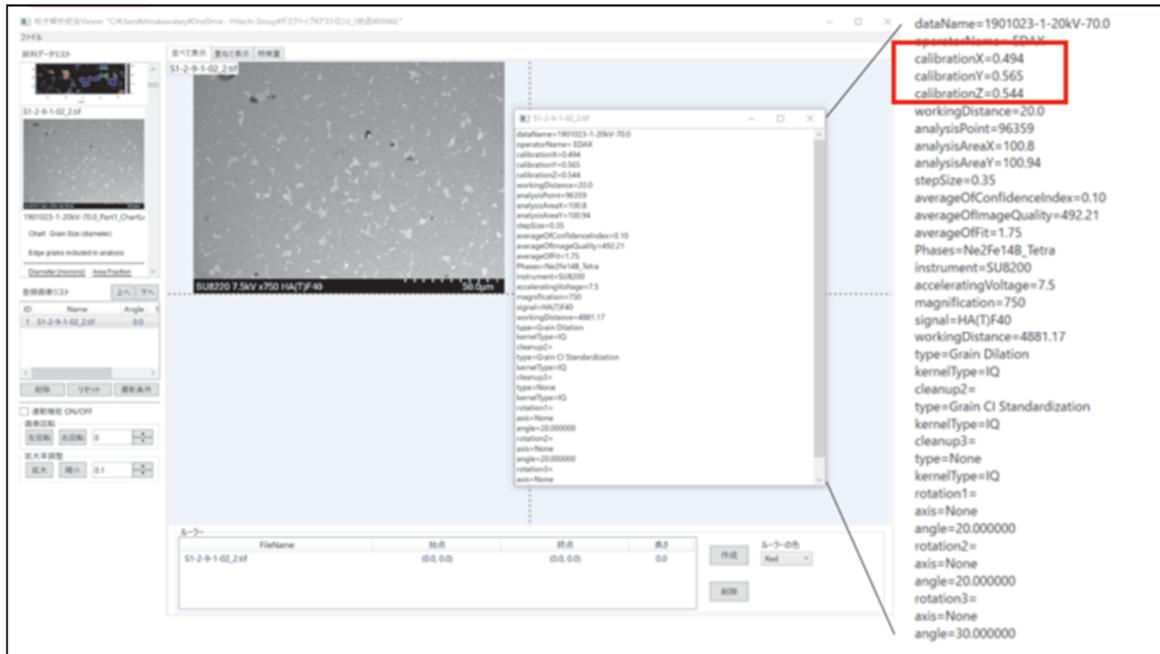


図2. 3. 2-11(c) エンドユーザTDKの要望を反映した粒界構造解析用統合ビューアVer2.0 SEM画像に付随した測定条件などの詳細情報。赤枠は観察時のステージ位置情報を示している。他にはWD(焦点距離)や各種条件が格納され、必要に応じてポップアップで表示可能な機能を有する。

XMAILの記述内容は研究課題1の成果と密接に関係している。粒界構造解析用統合ビューアは、もともと研究課題1におけるXMAILコンバート時の記述の各社・各装置の記述内容の整合性完了を待って、XMAIL対応開発を行う計画であった。しかしながら本プロジェクトは中間評価までの3か年を待たず2か年で終了となることが明らかになった。このため日立ハイテックでは本プロジェクトにおける粒界構造解析用統合ビューアの作製(相関解析に向けて解析結果を視覚化する統合ビューアの研究開発)を優先させ、XMAILファイルの読み込み機能について、最終的に各社の装置を限定することで実装を完了させた。

開発された粒界構造解析用(マイクロ-マイクロ分析結果の相関解析用)統合ビューアは、圧縮されたXMAILを読み込み可能であり、読み込まれた複数のデータは画像データとして一覧に表示される。ユーザは表示された画像から所望の画像を選択し最大4画像をビューアに表示させることができる。ビューアは3つのタブ(ページ)にて構成されており、表紙は選択した画像のタイリングによる閲覧、2ページ目にはそれぞれの画像の重ね合わせ表示機能を有し、3ページ目には特徴量表示の試作版を具備している。

1ページと2ページでの機能は以下のとおりである。

- 画像の拡大、縮小は単独でも最大4枚までの連動も可能であり、同一視野の取得イメージであればステージ位置情報も一致するため、より細密な解析を実現できている。
- 画像の回転は単独でも最大4枚までの連動でも可能であり、回転角度は数値入力によって、最小角度での微調整と大きく回転させる粗調整が可能になっている。
- 各画像とも RGB レベルが任意に変更できるため、重ね合わせの際の特徴点の強調のために、これらの設定を使うことができる。
- 各画像とも透過度の変更が個別に設定できる。また重ね合わせ順位が自由に設定できる。この機能によって特徴点を様々な角度から解析することができる。例えば透過度の変更によって通常の重ね合わせでは埋もれてしまう特徴点を抽出することができる。
- XMAIL フォーマットには画像の座標情報の記述があるため、座標情報によってそれぞれの画像の位置関係(同一試料の場合には部位)がわかる為、形状や偏析などの違いによる比較解析が容易になる。

- ・ XMAIL フォーマットには画像の座標情報の記述があるため、研究課題 2-2 で提案された測定位置精密位置合わせ技術を用いて各装置間、各社間の異なる手法、異なる装置によって獲得された同一部位の解析が可能となり、特徴点の複合解析を容易にする。

3ページ目の機能として、解析結果とその時の画像の表示機能を試作し組み込んだ。なお現状ではこの機能を特徴量の表示機能としているが、表示すべき情報はユーザによって多様であることが今回の研究で明らかになったため、将来アドオン表示などWEB-APIを用いた機能化などが必要であることを把握した。

ユーザ企業であるTDKが磁石材料の材料提供および各種測定を行い、相関解析に向けた特徴量抽出の議論・提案を行い、特徴量をもとに物性との回帰解析などを行い、磁石材料のマイクロ-マイクロ統合ビューアの実証検証・有用性の確認を行うために、日立ハイテクはSEM(走査型電子顕微鏡)、日本電子はSEM(走査型電子顕微鏡)およびEBSD(電子線後方散乱回折法)、堀場製作所はラマン分光顕微鏡のデータをそれぞれ読み込むことを可能にする、変換テーブルを付与した形でそれぞれのXMAILファイルを読みこむことが可能な粒界構造解析用(マイクロ-マイクロ分析結果の相関解析用)統合ビューアを完成させた。図2. 3. 212に粒界構造解析用統合ビューアVer3.0 XMAIL対応版の操作画面例を示す。

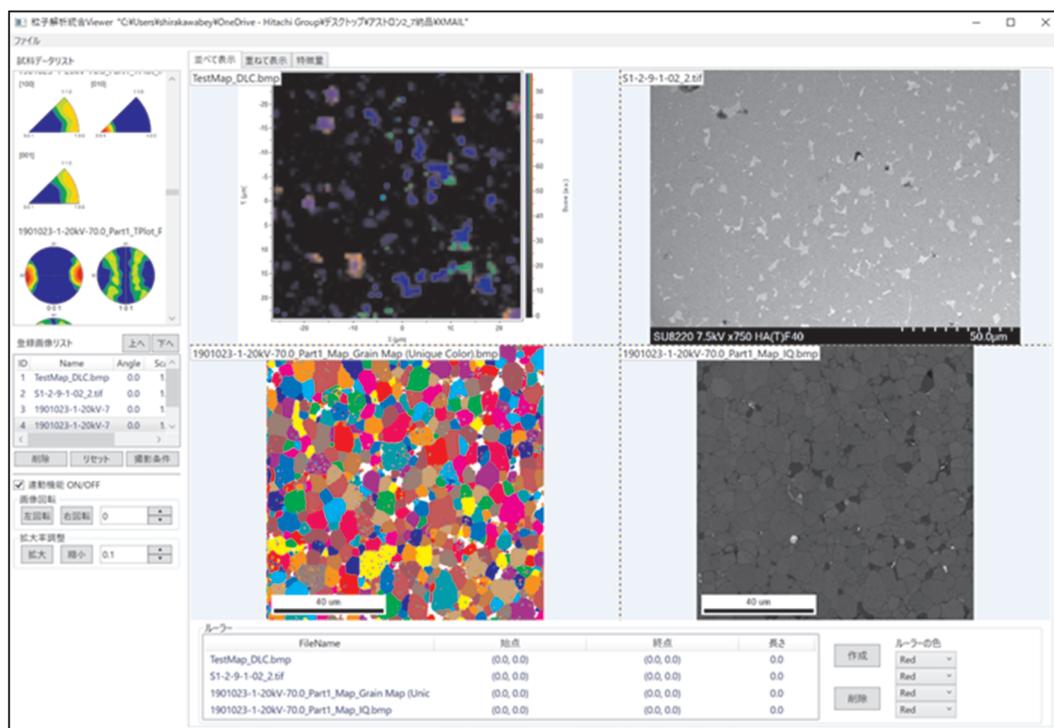


図2. 3. 2-12 粒界構造解析用統合ビューアVer3.0 XMAIL対応版。日立のSEM、日本電子のEBSD、SEMおよび堀場製作所のラマン顕微鏡の観察像が取り込まれている

本研究開発は、ビッグデータ解析時代の到来を見据えて、複数の計測分析装置をサイバー空間で結合することを特徴とするCPS(Cyber-Physical-System)型複合計測分析の基盤を構築し、個別の計測分析装置の測定対象情報を統合解析して、機能解析や故障解析を実現することを目指すものである。日立ハイテクはこの課題に対して、各社がXMAILに変換した結果をセキュアな環境でやり取りできる仕組みのとしてExTOPE(IoTサービスポータル)を提案し運用した。ExTOPEは各社からの共通フォーマットであるXMAILファイルを格納するデータ管理層をもち、共通ライブラリ層にはユーザの管理、装置の管理、セキュリティなどの機能を持つ。さらにアプリケーションインターフェースを介して、アプリケーション層にあ

る各種サービスアプリやビューアやAI解析機能などの機能へのデータ移送を認証の上で行い、安全性を確保する構造を持つ。またログイン時のIDとパスワード管理によってログの記録が管理者によって行われ、ユーザのダウンロード記録なども把握する安全性を担保している。なお、アクセス権は管理者によって自由に設定できるため、ユーザとメーカーのグループ区分やメーカー・メーカー、ユーザ・ユーザ間の情報のコンタミネーションも防止することが考慮されている。

本研究において、日立ハイテクは実際にアプリ部にWEB-APIを活用して粒界構造解析用統合ビューアを組み込むことによって、データをローカル環境に置かずCPS環境から引き出し、結果をCPS環境に戻す構造を構築した。これによってCPSの安全性を確保しつつユーザがストレスなくデータのアップデートと解析が可能になる環境を提供する仕組みを開発した。これらの構造を図2. 3. 2-13(a)~(e)に示す。

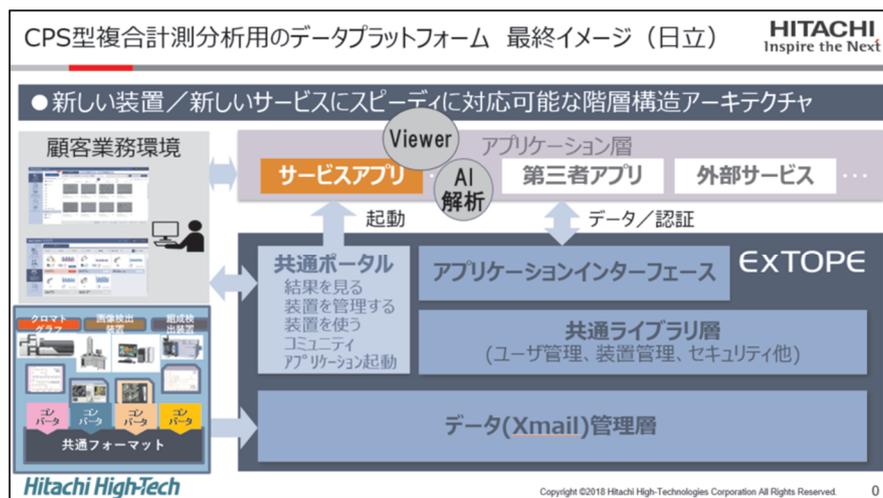


図2. 3. 2-13(a) ExTOPE(IoTサービスポータル)の構造と機能



図2. 3. 2-13(b) ExTOPEのログイン画面(IDとパスワードにより管理され、管理者はログインやダウンロード履歴を監視できる)

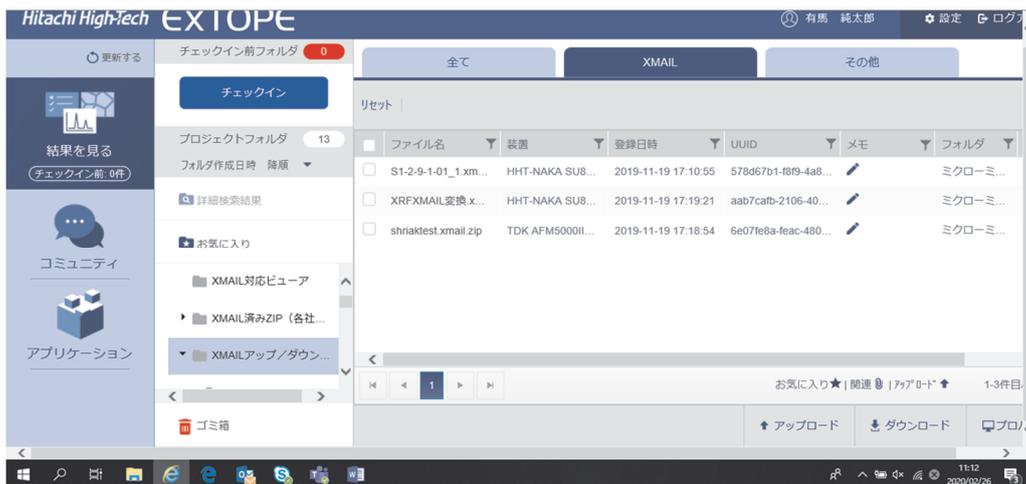


図2. 3. 2-13(c) ExTOPEのXMAIL仕分け画面

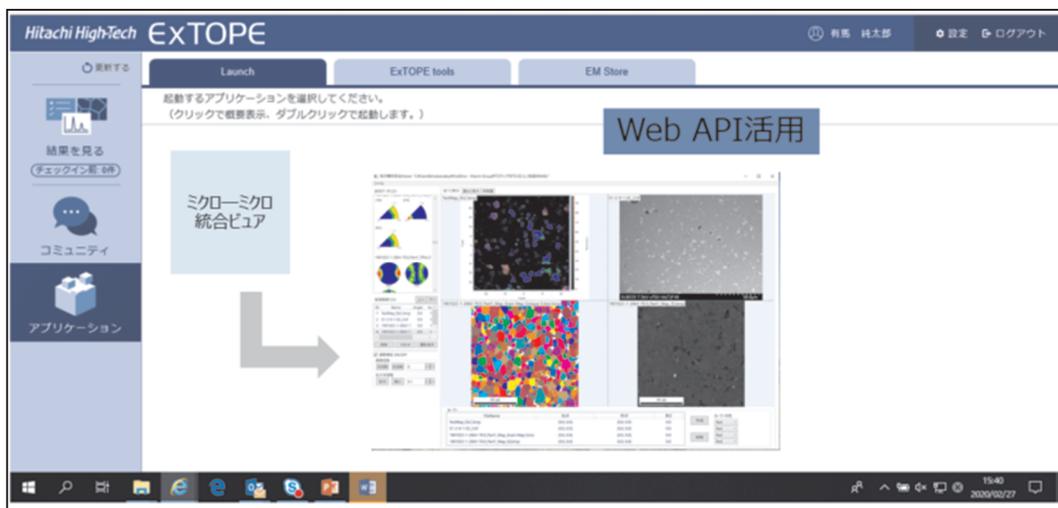


図2. 3. 2-13(d) ExTOPEのアプリ起動画面(粒界構造解析用統合ビューアをLaunchから起動するイメージ)

・ExTOPEではファイルが保存されるフォルダごとに、予め定義するユーザGrを割り当てることで、割り当てられたユーザGrに属するユーザのみフォルダが可視化される。
 割り当てられていないユーザGrに属するユーザはフォルダそのものが表示されない。
 ・1フォルダに対して複数のユーザGrを割り当てる事ができる。
 ・サブフォルダは親フォルダのユーザGrを継承する。(サブフォルダは親フォルダのユーザGrを継承するため、個別設定は不可)

ユーザGr

課題 1 Gr	課題 2 Gr	リーダー Gr
XX様	〇〇様	A様
...	△△様	B様
	□□様	...

課題 1 フォルダ	課題 1 フォルダ	課題 1 フォルダ
課題 2 フォルダ	課題 2 フォルダ	課題 2 フォルダ

○ 参照可 ⊘ 参照不可(表示されない)

図2. 3. 2-13(e) ExTOPEによるファイル共有イメージ

粒界構造解析用統合ビューアの開発に際し、堀場製作所は、ラマン分光測定装置および蛍光X線分析装置の統合ビューア表示項目について検討した。次項の研究課題3-3において詳細に述べるが、これらの装置で計測できる項目のうち、磁石材料の磁気特性に影響を与える計測項目としては、材料中に含まれる添加元素組成比、結晶粒界に存在する化合物相が主な項目として挙げられる。TDKの解析のニーズを勘案し、以下を統合ビューアに表示させる項目として選定した。

〈ラマン分光測定装置〉

- ・測定条件、・光学顕微鏡像1、・ラマンマッピング像1(化合物相)、
- ・マッピングラベル1(化合物相)、・ラマンスペクトル1(任意)

〈蛍光X線分析装置〉

- ・測定条件、・CCDカメラ画像1(試料画像)、・定量結果1(元素組成比表)、
- ・X線スペクトル1

次に研究課題1で製作したラマン分光測定装置と蛍光X線分析装置用のコンバータによって出力されたXAILファイルおよび元データファイル群を圧縮したzipファイルを日立ハイテクに提供した。開発効率を考慮してラマン分光測定装置(堀場LabRAM HR Evolution)のみが粒界構造解析用統合ビューアの構成装置となったため、他の構成装置である走査電子顕微鏡(日本電子JSM-7200、日立ハイテクSEM)、EBSD(TSL社製:日本電子がコンバータ開発担当)の測定データ(測定条件、画像など)と合わせてデータ表示状況を確認し、ユーザのニーズに基づく表示形態、XMAILファイルの記述形式、コンバータ仕様などに関する課題を抽出した。

図2. 3. 2-14(a)にマイクロ解析用統合ビューアでラマン分光測定装置の計測データを表示させた画像を示す。磁石材料の材料組織の観察画像、酸化物相のマッピング画像、マッピングのラベル画像が表示されている。また撮影条件ボタンで測定条件が表示される仕様となっている。図2. 3. 2-14(b)にはラマン分光測定装置で測定したデータのマッピング画像と光学顕微鏡像の重ね合わせによる比較例を示す。統合ビューアは画像を重ね合わせしやすいうように画像を半透明にできる機能を有しており、光学顕微鏡で観察された材料組織像のどの部位がマッピング像のどの構成物に該当するか可視化できるようになっている。研究課題2で開発した共通ホルダによる位置合わせの技術を適用すれば、この機能は異なる測定装置間でも可能であり、たとえば電子顕微鏡の元素マッピング像とラマン分光測定装置のマッピング像を重ね合わせることで何の化合物相であるかの判定が可能となるなど、複合解析にあっては非常に有効なツールとなりうる。

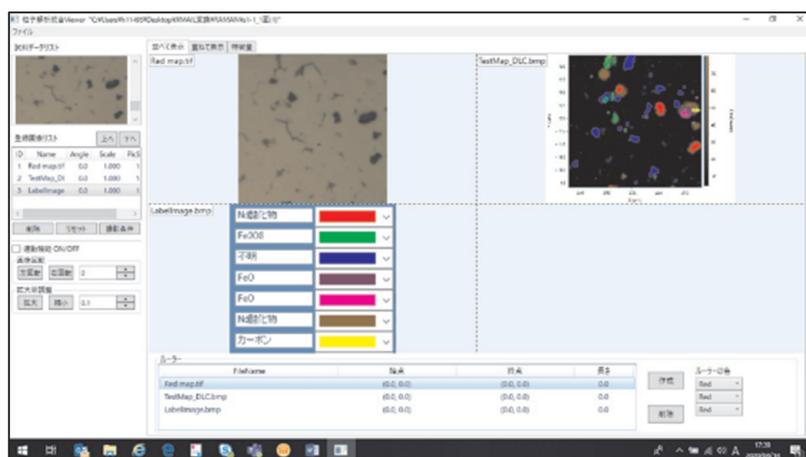


図2. 3. 2-14(a) 統合ビューア ラマン分光測定結果の表示画面

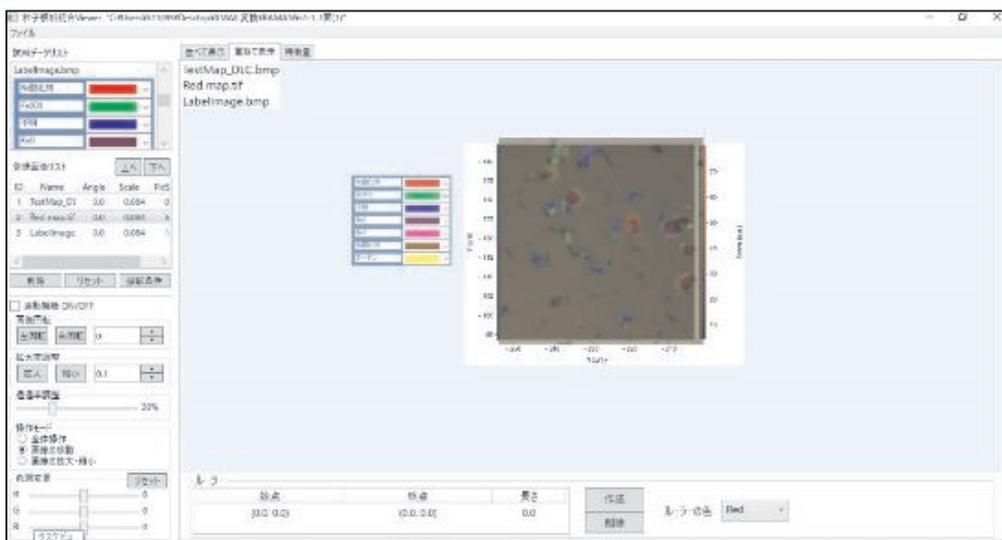


図2. 3. 2-14(b) ラマン分光測定装置画像の重ね合わせ

上記統合ビューアを試用して抽出された課題を以下にまとめる。

1) XMAIL に記載される分析装置の呼称

各装置から出力されたXMAILファイル内にはどんな分析装置で計測されたデータであるかが記載されているが、これらは装置メーカ各社で呼び方が異なっており、例えば電子顕微鏡(SEM)においては、ある装置では”SEM”とXMAILファイルに記載されているが、他の装置では”EM”と記載されていたりする。統合ビューアではこれらを走査電子顕微鏡(SEM)データと認識するために、記載を統一する必要がある。具体的にはXMAILファイル内の”instrument”の<name>の値を同一にする必要がある。堀場製作所のラマン分光測定装置においてもXMAILファイルには”LabRAM HR Evol”と記載されており、ラマン分光測定装置と認識できる一般的な表記とは言い難く、”instrument”の<name>は”RAMAN”とすることとした。

このように装置から出力される装置名や計測条件の単位など、個々のデータはメーカごとに表記のされ方が異なっているため、統合ビューアでXMAILファイルデータを読み込む際には、それに応じた変換が必要となる。今回試作したビューアでは、”テンプレート”と呼ばれるファイルを装置毎に作成し、装置ごとの差異を埋め合わせるアルゴリズムが組みこんである。

2) 同観察位置表示のための座標データの記載、読み込み

統合ビューアで複数の装置データを複合的に解析する上で、異なる装置で観察した同一場所の画像を重ねて表示したいというユーザーニーズが大きい。研究課題2で開発した位置合わせ技術を使うことで可能となるが、どのように共通試料ホルダの座標データをXMAILファイルに記載し、統合ビューアでどのように読み込んで、ビューア上で重ねて表示させるアルゴリズムとするかは詳細に決められていない。今回試作した統合ビューアには各観察画像に座標データが付与されて読み込めるようになっており、SEMから出力されるステージのポジションデータをXMAILファイルに記載するようになっている。堀場製作所のラマン分光測定装置では観察位置座標(ステージ位置座標)の装置画面での表示はできるが、データファイルに付与して出力できるようになっていないので、手入力による対応しかできないため、現状はXMAILファイルへの記載およびコンバータの仕様にも未適用である。

今後、ビューア上で重ねて表示させるためのアルゴリズムが詳細に決められれば、XMAILファイルに記載できるよう装置側での対応を決定することができる。

3) 特徴量の XMAIL ファイルへの記載

後述の研究課題3-3の項で詳細に述べるが、磁石材料の磁気特性との相関解析の結果から選定されたNd酸化物相の面積率や粒径を特徴量候補として、統合ビューアに表示させるには、XMAILファイルに記載することになるが、解析の対象が異なれば着目すべき特徴量も変わるので、XMAILファイルにどの様に記載すべきか検討が必要である。今回の磁石材料のラマン分光測定モデルケースではZipファイル中にエクセルデータとして添付したが、さらにデータコンバートして特徴量のみをXMAILファイル化し、元XMAILファイルとのリンクのさせ方が検討すべき課題と考えられる。

4) XMAIL ファイル読み込み時の文字化け

XMAILファイルはその仕様の定義において、文字コードはutf-8テキストを使用することになっているが、統合ビューア読み取り時に文字化けを起こすケースがあった。これは使用しているパソコンの環境(設定)によって、自動でテキストファイルの文字コードを判定することによるものと考えられる。例えば今回、ラマン分光測定装置で出力したXMAILファイルはsift-JISコードで読み込むと文字化けが起こる。具体的には温度の表記で“°C”が単位として使用されているが、sift-JISコードで読み込むことにより文字化けが生じてしまっていた。統合ビューアソフトが、パソコンの環境に応じて自動で判別し文字化けが発生しているものと推定され、ビューア側に文字コードの読み込み指定をする必要があると考えられる。

5) XMAILファイル誤記の対応

ラマン分光測定装置から出力されたXMAILファイルの誤記が現時点でも残存しており、修正が必要である。XMAILファイルのバージョン表示や計測条件のパラメータの単位(s)に誤記がある。今回の試用ではXMAILファイルを手入力で修正し、統合ビューアの評価で使用した。

6) 蛍光X線分析装置の統合ビューア表示

今回の統合ビューア評価には組み込まれていないので課題は未抽出であるが、カメラ画像(bmp)、スペクトル表示(bmp)と定量元素構成比(表形式)の表示であり、ラマン分光測定装置と表示の形態は大きく変わらないので課題としてはラマン分光測定装置と同様と考えている。

上記1)-3)、5)についてはコンバータ仕様へ、4)については統合ビューア仕様への反映事項であり、概略の修正項目は明確にできており、各仕様に対してフィードバックすることができた。

またTDKは、日立ハイテクとマイクロ・マイクロ統合ビューアのGUIに関して要望し、プロト版をデモ検証して表2.3.2-5の改良点を提案した。図2.3.215(a)は並べて表示した場合の事例である。拡大率、縮小率を4画面個別に表示することが可能となり、それぞれの画像の倍率を変えても赤の十字が連動して動き、同じ座標を示すようになった。また拡大縮小のステップサイズ、線を引いた距離を測る測長機能、ファイル名表示の「削除」と「リセット」、テキスト情報(XMAILメタデータなど)のポップアップ、画像の回転について、提案通りに改善されていることを確認した。図2.3.2-15(b)は日立ハイテク(HITACHI)と日本電子(JEOL)のSEM像を並べて表示した結果をプリントスクリーンで保存したものである。XMAILに変換した日本電子のデータも読み込むことが可能となり、装置、観察条件の違いで見え方が異なることが明らかである。

表2. 3. 2-5 TDKでのデモ検証に基づく改良点

表示モード	提案した改良点
並べて表示	縦横のラインの交点が、4画面で同期して動くようにする
	マウスのスクロールでの拡大縮小で、0.01ステップで入力可能にする
	拡大率、縮小率を4画面個別に表示する
	線を引いた距離を測る測長機能を付ける
	始点、終点をそれぞれ拡大して決める(2点打ち)方法で測長する
	ファイル名表示のwindowに「削除」と「リセット」ボタンを設ける
	画像上で右クリックするとテキスト情報(XMAILメタデータなど)がポップアップし、測定条件など確認できるようにする
	回転の方向(LとR)を逆にする。角度ステップは1度
重ねて表示	色を付けた諧調に変換できるようにする(赤、青、黄色など)
	「ノーマル」の表示を「全体連動」に変更する
特徴量表示	今回はヒストグラム表示(特徴量抽出項目が決まった段階で再考)
	結果を出力(印刷)できるようにする

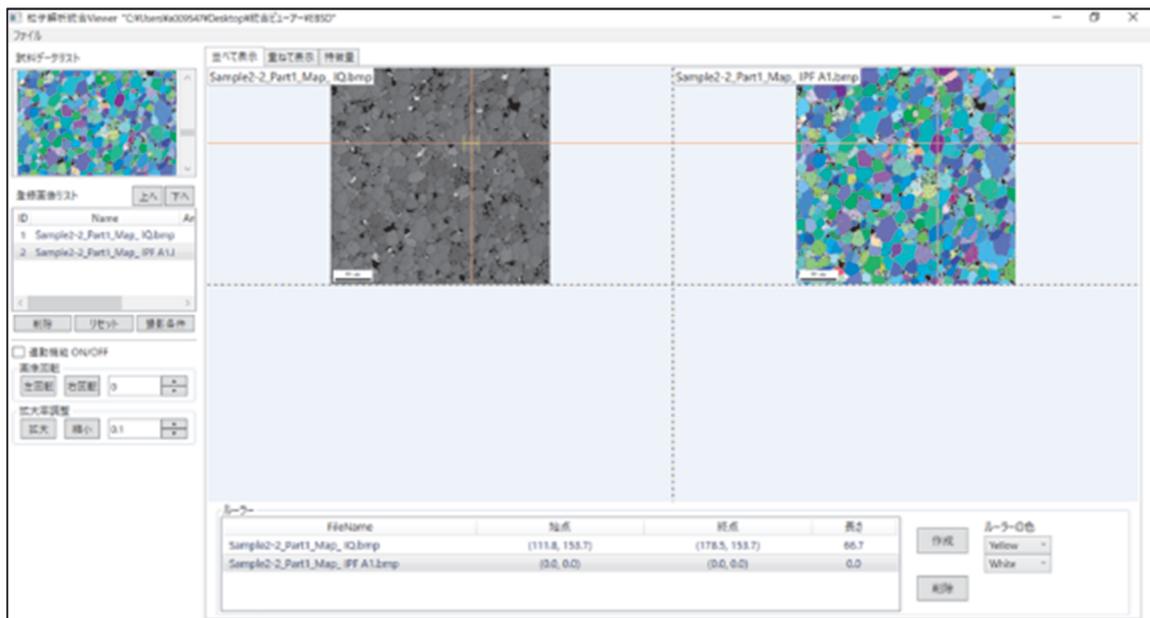


図2. 3. 2-15(a) EBSDのイメージオリティマップ(IQ map)と方位マップ(IPF Map)を並べて表示した例

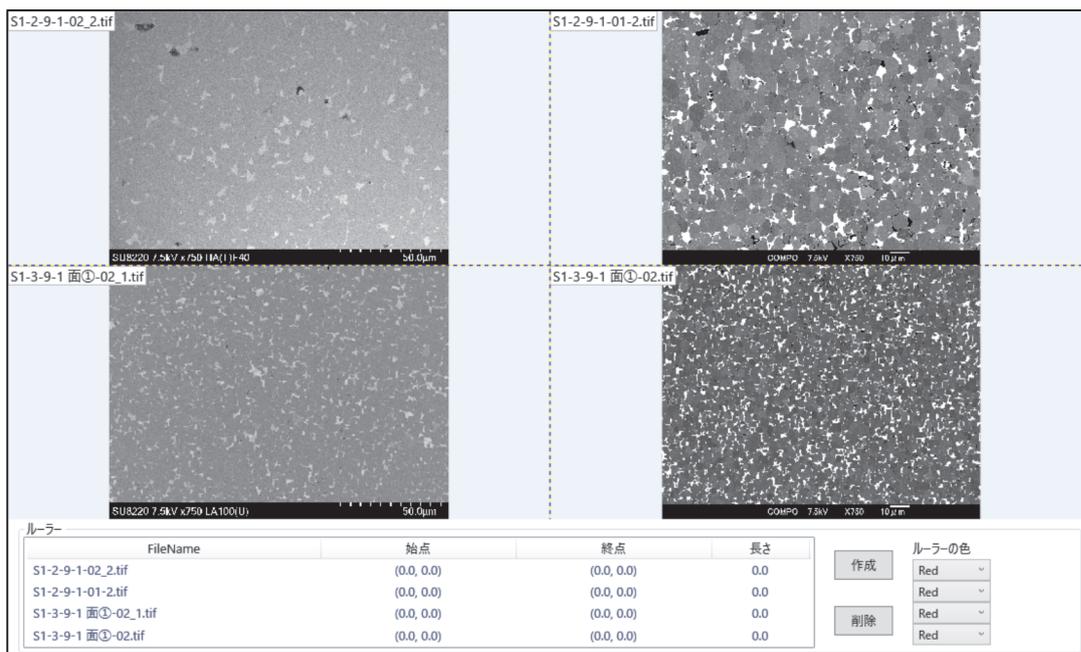


図2. 3. 2-15(b) 異なるメーカーSEM画像を並べて表示した例(左:HITACHI、右:JEOL)

図2. 3. 2-16は重ねて表示した場合の事例である。RGBIに色を付けた諧調に変換できるように改善された。また透過率調整で割合を変えることで重ねた画像の下の像も透かして見ることができるようになった。これにより、細かい構造を比較できるようになった最終版の動作を確認した。

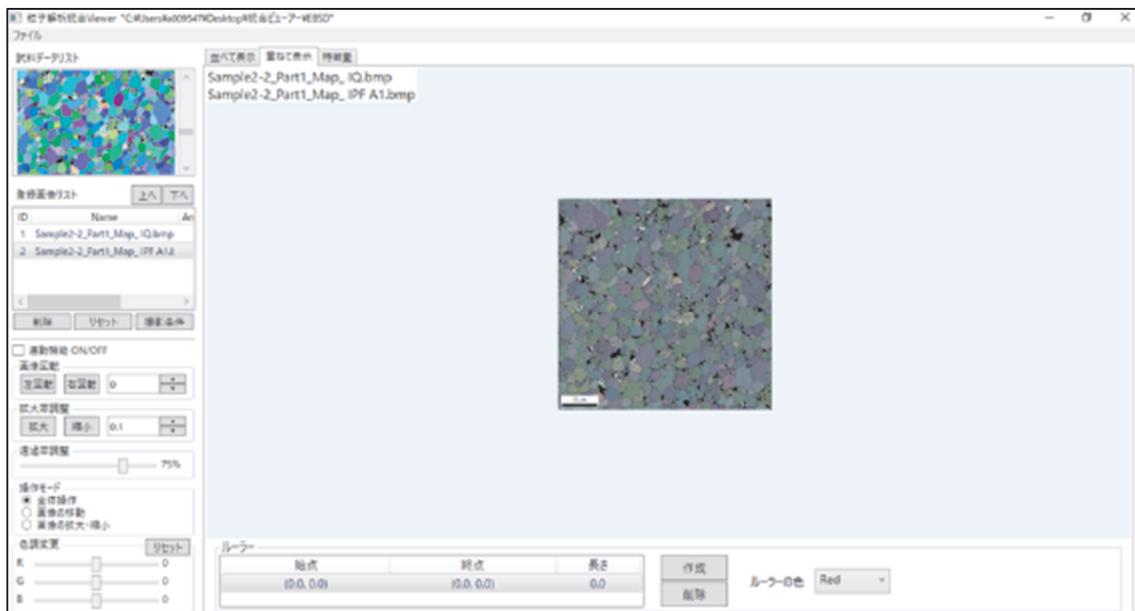


図2. 3. 2-16 EBSDのイメージクオリティマップ(IQ map)と方位マップ(IPF Map)を重ねて表示した例

C) データ補償ツールおよび可視化ツール開発

① データ補償ツール

今回、2年間の事業の中で、透過型電子顕微鏡画像のみに絞って、ある条件、ある電子顕微鏡で撮影した画像のデータ補償を行い、異なる条件、異なる電子顕微鏡で撮影された画像と比較できるようにするためのデータ補償ツールを開発した。フローの概要を図2.3.2-17に示した。

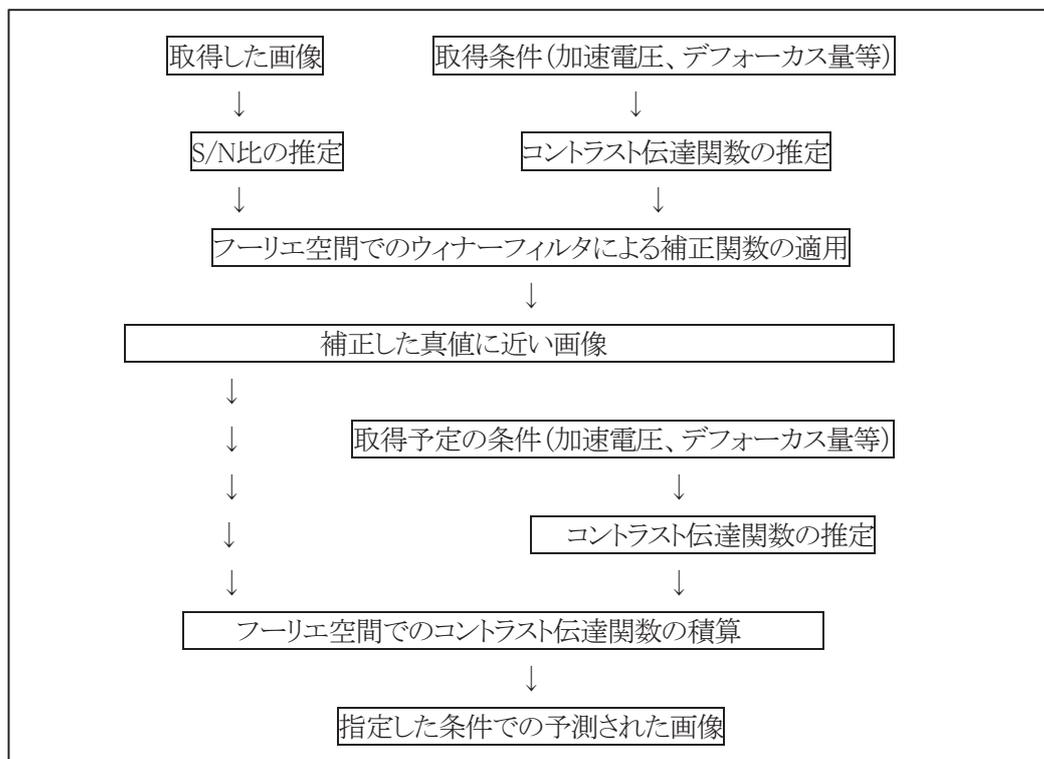


図2.3.2-17 データ補償ツール(透過型電子顕微鏡に対応)のフロー

これらはC言語を用いて開発され、大量のデータを一気に補償するためのCUI型のツール(command名: mrclmgaeCTFCompetition)である。しかし、これまで九州工業大学において開発されてきた pione/pione-client や zephyr と呼ばれるツールを使うことでネットワークを介して、CUI型のコマンドを実行することが出来る。これらのツールは、github/OSDN上に公開されている。

次に、実際に補正したものを図2.3.2-18示す。

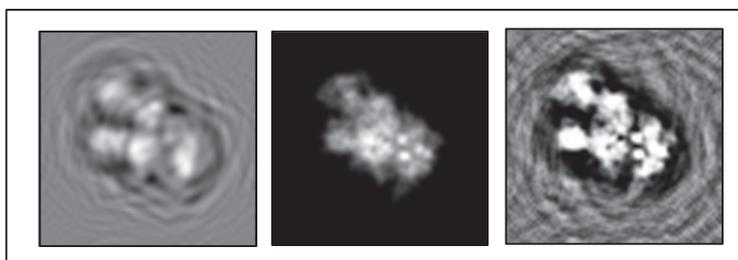


図2.3.2-18 モデルで示した電子顕微鏡補償ツールの実際
左: 電子顕微鏡画像、中央: 真値の画像、右: 補償画像

図2. 3. 2-18からわかる様に補償画像は真値の画像のコントラストに近く、白黒の関係が正しく補正されていることが分かる。左の像は、200 kVの加速電圧で、デフォーカス量が2 μmの測定条件で計測される場合の電子顕微鏡写真のモデル図である。真値像は、対象とする物体からシミュレーションされた密度マップを示したものである。右は、左図のデフォーカス量によるボケ(変調)を見積もり、左図のフーリエ変換像を求め、その位相情報を補正した後、実像に戻すことで、画像のボケ(変調)を補正した図である。左図でボケ、また、場所によって白黒が反転しているものが、中央の図と同様の白黒パターンを持っている。ただし、現時点では、まだ、高周波が強調された画像となっており、さらなるアルゴリズムの改善は必要で超解像法による空間補正を加える予定である。また、厚み方向の情報を考慮するために、2D画像からの3次元画像構築のアルゴリズムを提案した。角度方向の決定のために、特に工夫を凝らしたものである。

②フロー可視化ツールの実装

本フロー可視化ツールは、2つの点を考慮して作成されたものである。第一は、複数のXMAIL内に記述された計測・分析のフローを可視化し、その後接続等が誤っている場合に修正する、また、最終的にはXMAILの作成の際の補助を行う事である。本事業では、可視化し、接続がおかしい部分を明確にすることで修正できるツールを試作した。修正は現時点では、XMAILの対応部分を直接変更する必要があり、ユーザフレンドリなツールとしては不十分である。

第二は、この可視化ツールが本事業等で作成される統合ビューア等から利用できる方法を提供することである。これはRESTful APIを備えたものとして開発する事で、ブラウザ等から呼び出せるものとした。

第一の観点に関しては、XMAILで記述されたデータの中には、<protocol>タグで示された領域に、計測・分析のフローがPNML形式と対応する形で記述されている。また、<eventLog>タグの中には、このフローが実施された時刻、<data>には、その結果得られた計測分析結果が示されている。<protocol>タグ内に示されたPNML形式は、ペトリネットと呼ばれる離散分散システムを数学的に表現するための記法である。XMAIL内では、ペトリネット形式を利用して、実際の計測、分析で実施された条件、材料と計測・分析方法、そしてその出力が条件とともに記述されている。本フロー可視化ツールでは、そのフローを可視化した。

その具体的な開発は、Graph DB(Neo4j)をプラットフォームとして活用し、XMAIL-Viewer(仮名)として試作した。そのシステムの全体像を図2. 3. 2-19に示した。

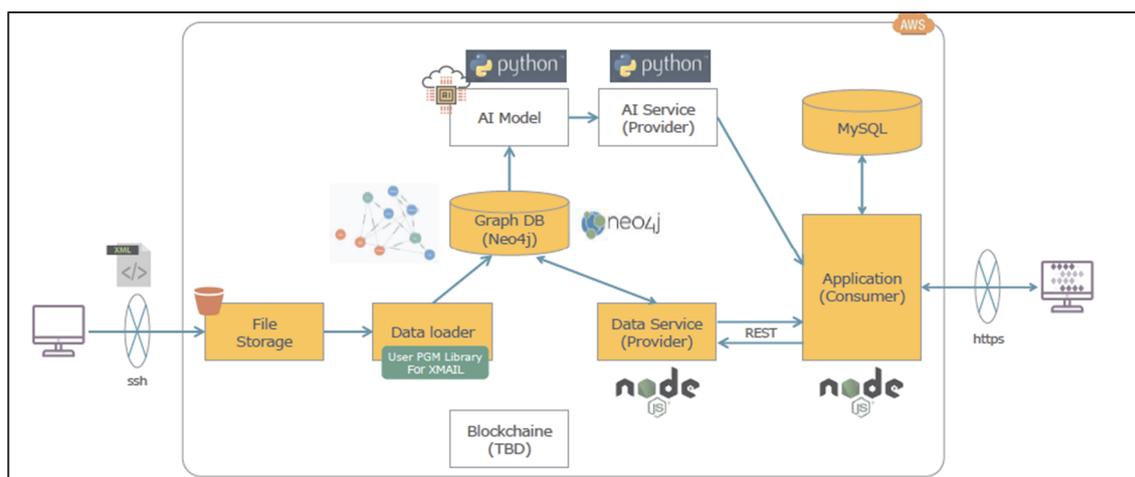


図2. 3. 2-19 XMAIL-Viewer(仮名)の概要。Graph DB(neo4j)を中心に、データローダとデータプロバイダを設計。アプリケーションからRESTful APIを通して取り出せる。

このシステムの中心をなすものは、ペトリネット等のネットワーク型の情報を効率良く探索するためのグ

ラフ型データベースである。本事業では、試作の中で、当該データベース等が本事業の目的とするXMAILによる表現の可視化に実用的であるかどうかを示すことも目的であった。結果として、ネットワーク型DBは、計測・分析のフローをデータとして取り扱うのに適していることがわかった。

実際に、Web Browserを介して、XMAILのデータをGraph DB上に取り込み、Cypher言語(Neo4j上の検索言語)を用いて、PNMLのリンク関係を示したビューアの実例を図2. 3. 2-20(a)に示した。青丸が計測分析そのものを、白丸がその際の条件、材料および結果を表現したものであり、接続している矢印がそのフローの流れを示している。

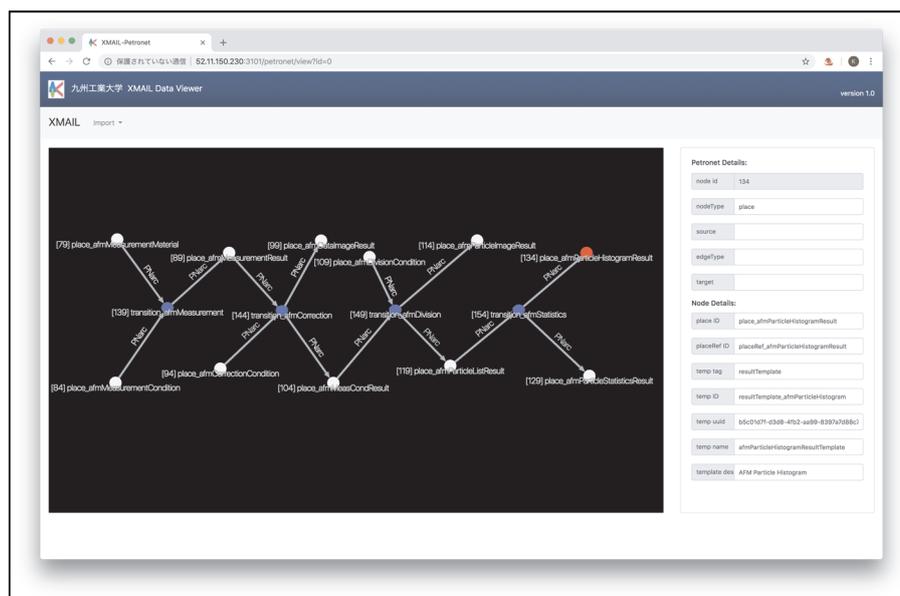


図2. 3. 2-20(a) 試作したXMAIL Viewerの実例1：AFMデータを用いたプロトコルのフローの表示。(青丸が計測分析に対応するtransition、白丸は条件、材料、結果に対応するplaceを示す。右は選択したplace(赤丸)の記述情報を示している。)

ここで示したものは、AFM等で撮影後、その画像から粒径等を取り出してくる画像解析を行う流れを示したものである。<protocol>に記述されたフローとそのフローのそれぞれが示す条件を表示できる。これにより、当該計測結果がどのような過程を経て得られたものか、また、その条件や試料がどのようなものであったかを可視化することに成功した。このことから、当初の目的を達した。また、これらは全てブラウザにおいて表示されており、RESTful型APIによる読み出しのみで表示可能である。ブラウザ依存でないこともSafari/Chrome/IEにて表示できることをもって確認した。したがって、他の統合ビューアからも呼び出すことが出来る。

図の中では、赤丸で表示されているノードが存在するが、これは選択したものである。その内容が右のメニューで表示できている。現在は<protocol>に記述された内容のみを表現しているが、今後、<ref>で関係している<eventLog>(計測分析時刻等の情報)および<data>(実際に獲得されたデータの情報)等に記述された内容を取り込むこととすることで更に有用性をあげることが出来る。

図2. 3. 2-20(b)はXMAILで表現されたSEMデータを用いたものである。これは、その前の計測段階で得られた2つの結果を次のステップ(transition:遷移)で利用していることを表現した事例である。計測/分析においては、複数の結果を利用する様な事例は多いが、図に示した形での可視化に成功した。

図2. 3. 2-20(c)は、ICPM法による計測分析の場合のフローを示している。図2. 3. 2-20(a)~(c)は、異なる計測装置から出力されたXMAIL型フォーマットの情報である。そのいずれも本システムを使ってその計

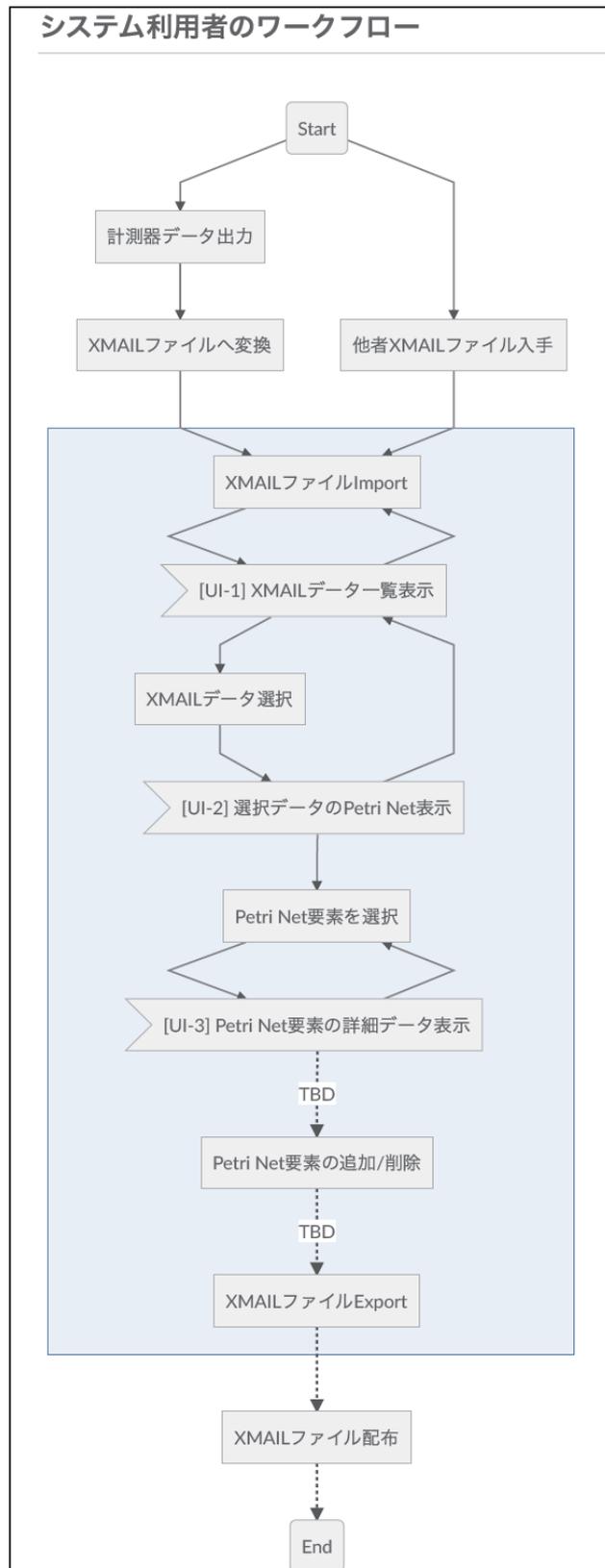


図2. 3. 2-21 XMAIL Viewerの利用者のフロー。複数のXMAILの間で、同一UUIDをもつ材料や結果を結びつけることが可能。

図2. 3. 2-22には、複数XMAILを読み込んだ際の表示テーブルを示した。ここでは、内部情報もあり、nullの形で表示しているが、実際のデータではその値が表示される。個々のファイルがどのような計測方法で、また、誰によって、どの機器で計測されたかを知ることが出来る。

NID	File Name	XMAIL uuid	XMAIL name	XMAIL description	Creatir uuid	Creatir name	Creatir description	Vendor uuid	Vendor name
0	./XMAIL/Hitachi/20171031173821.xmail	41805eae-7d56-46dd-a557-55ba87e9d592	afmDataFile	AFM DataFile	0e8b10d0-1938-4fab-a772-170a3307dfc4	Creator	Atomic Force Microscopy	bcccd90f-4535-4e89-9abb-879d75379e3e	HHS
704	./XMAIL/Horiba/SIO2-FracA_0082.xmail	null	null	null	null	null	null	null	null
1680	./XMAIL/Horiba/SIO2-FracA_0083.xmail	null	null	null	null	null	null	null	null
2660	./XMAIL/Horiba/SIO2-FracA_0084.xmail	null	null	null	null	null	null	null	null
3640	./XMAIL/Horiba/SIO2-FracA_0085.xmail	null	null	null	null	null	null	null	null
4620	./XMAIL/Horiba/SIO2-FracA_0088.xmail	null	null	null	null	null	null	null	null
4612	./XMAIL/Horiba/SIO2-FracA_0089.xmail	null	null	null	null	null	null	null	null
3632	./XMAIL/Horiba/SIO2-FracA_0090.xmail	null	null	null	null	null	null	null	null
5564	./XMAIL/Horiba/SIO2-FracA_0091.xmail	null	null	null	null	null	null	null	null

図2. 3. 2-22 XMAIL Viewerで複数ファイルを読み込んだ際のテーブル表示

(4) まとめ

実施計画に記載した課題3-2に関する最終達成目標は、次の2項目である。

- ・ 複合階層構造解析用(マクロ-マイクロ分析結果の相関解析用)の統合ビューアと、粒界構造解析用(マイクロ-マイクロ分析結果の相関解析用)統合ビューアの2種類を試作し統合ビューア技術を開発する。
- ・ 統合ビューアで活用される画像データを補償する補償ツールを試作し、計測・分析方法や試料作成等のフローを可視化し、修正するための可視化ツールを試作する。

研究開期間が2年に短縮され、研究課題1で開発するデータコンバータの完成(作製)時期との調整で困難な面はあったものの、上記③の研究開発の成果に詳しく記載したように、この目標のいずれも達成した。

今後の課題を含めた特記事項は下記の通りである。

A. 粒界構造解析用統合ビューアは、現在のところ、XMAILファイルで読み込み可能な装置を限定している。これはXMAILフォーマットの仕様が各社・各装置間で一部異なるためであり、テンプレートファイルを作成してこの差異を吸収して読み込みを実現している。フォーマットの違いの実例として、日時フォーマットがある。これを統一化する上で、以下のような検討と修正が求められる。

- ・ 作成日時は「必須項目」とし、スキーマ上一つの要素(Element)として昇格させる
- ・ 日付・データ型はXMLスキーマ(x3cのxsd:dateTime)およびISO8601で定義されているため、フォーマット文字列を指定しない

今後XMAILフォーマットの仕様が統一された際にはテンプレートファイルは不要となり、各社・各装置のXMAILフォーマットの読み込みが可能となる。

その他の検討課題として、文法(スキーマ)仕様(装置種類や使い方に拘わらない話)と運用仕様(装置種類等に特有のパラメータや構成各社間の規格化)の分離、必須およびオプション項目の整理がある。さらにデータの安全性に関する指針として、トレーサビリティ機能(UUIDの付与)が必要である。これには、コンソーシアム等で管理した方が良いもの(機関名、計測手法、装置種類等)と個々の機関で自由管理す

るもの(測定者、機種、XMAILの識別子等)を分けて考えること、それぞれの管理単位でトレース/検索できる機能を付与することが必要である。

このように、研究課題1と連動してこれらを整備することによって、XMAILに変換した結果をセキュアな環境で安全にやり取りでき、開発されたXMAIL対応の粒界構造解析用(マイクロ-マイクロ分析結果の相関解析用)統合ビューアの利用範囲が広がるものと考えられる。

B. 計測・分析条件の違い等を補償して比較検討が可能なデータを提供するデータ補償ツールの成果は、OSDN(<https://ja.osdn.net/projects/eos/>)を通して公開した。

2. 3. 3 相関解析に向けたAI活用技術の開発とモデル実証による評価(研究課題3-3)

(1) 目標

本研究課題においては、AI活用に必要な解析用ソフトウェア環境(アプリケーションフィールド)の構築と、データの収集・蓄積(データベース化)およびデータ解析に向けた支援技術の開発を行うことを目標とする。このため、次3つのサブ研究課題に分けて推進する。

[1] 相関解析用ソフトウェア環境(アプリケーションフィールド)の構築

タイヤ材料開発に特徴的なマクロ-マイクロ構造の相関と、磁石材料開発に特徴的なマイクロ-マイクロ構造の相関に着目して、相関解析用ソフトウェア環境(アプリケーションフィールド)の構築を行う。それぞれ、研究課題3-2で試作した複合階層構造解析用統合ビューア(マクロ-マイクロ構造の相関解析用)と粒界構造解析用統合ビューア(マイクロ-マイクロ構造の相関解析用)の2種類を活用して遂行する。

[2] データの収集・蓄積とライブラリー化

様々な計測分析手法を活用してタイヤ材料、磁石材料の複合計測を行い、相関解析に向けたデータ収集・蓄積を遂行する。合わせて、材料の組成や界面構造、欠陥等の因子に関する情報をもとに、数100程度のデータを有する構造化ライブラリーを作製し、材料の性能予測を可能とする評価項目を選定する。ライブラリーの作製は、タイヤ用ゴム材料(マクロ-マイクロ構造用)、磁石材料(マイクロ-マイクロ構造用)を対象に行う。

[3] データ解析技術の開発とモデル実証

タイヤ材料、磁石材料を対象に、相関解析に向けた特徴量抽出・評価を試行する。タイヤ材料では、使用されるポリマ、添加剤(組合せ)のグリップ性能向上に資する特徴量抽出・評価とともに、原料フィラーの走査電子顕微鏡、透過電子顕微鏡観察画像から形態や分散状態の差異を特徴付け、ゴム特性との関係性を明らかにする。磁石材料では、走査電子顕微鏡画像情報(結晶粒組織のサイズや異方性など)を対象として、材料組織情報に変換するための自動セグメンテーション技術の開発を実施し、組成や結晶方位など抽出した特徴量と磁石特性に対する関係評価を行う。

(2) 実施体制

相関解析用ソフトウェア環境(アプリケーションフィールド)の構築は、計測分析機器メーカー4社が協力して行った。その際、複合階層構造解析用統合ビューアを活用したソフトウェア環境構築は島津製作所が、粒界構造解析用統合ビューアを活用したソフトウェア環境構築は日立ハイテクがとりまとめ責任を果たした。

データの収集・蓄積とライブラリー化では、TDKが磁石材料試料の選定と計測分析サービス会社を活用したデータ収集・蓄積を行い、日本電子、堀場製作所がデータ収集に参画した。名古屋大学は住友ゴム工業との連携の下に、マトリックス(ゴム材料)の分子量分布、フィラーの分散状態やパーコレーション構造、フィラーの空間的分布や配向、有機材料の結晶化度、異種成分間界面の状態などに着目して複合計測分析を実施し、マクロ-マイクロ構造パラメータの抽出・ライブラリー化を行った。またTDKとの連携の下に、磁石の結晶相、磁性粒子の界面構造などの粒界や欠陥などに着目した複合計測分析を実施

し、マイクロ-マイクロ構造パラメータの抽出・ライブラリ化を行った。

データ解析技術の開発とモデル実証は、産総研と早稲田大学(再委託先)が関係機関の協力の下に推進した。まず住友ゴム工業との連携の下に、タイヤ材料に使用されるゴム中分散フィラーの走査電子顕微鏡、透過電子顕微鏡観察画像から形態や分散状態の差異を特徴付け、ゴム特性との関係性を明らかにするとともに、フィラー、ポリマ、添加剤(組合せ)のグリップ性能向上に資する特徴量抽出・評価を行った。またTDKとの連携の下に、主として走査電子顕微鏡(SEM)画像情報(結晶粒組織のサイズや異方性など)を対象として、これまで手作業に頼る他なかった材料組織情報に変換するためのセグメンテーションを自動化し、組成や結晶方位など形態的特徴量として抽出することで磁石特性に対する関係評価が行えるようにした。

タイヤ材料、磁石材料の相関解析に向けたAI活用技術の開発体制を、図2.3.3-1(a),(b)に示す。

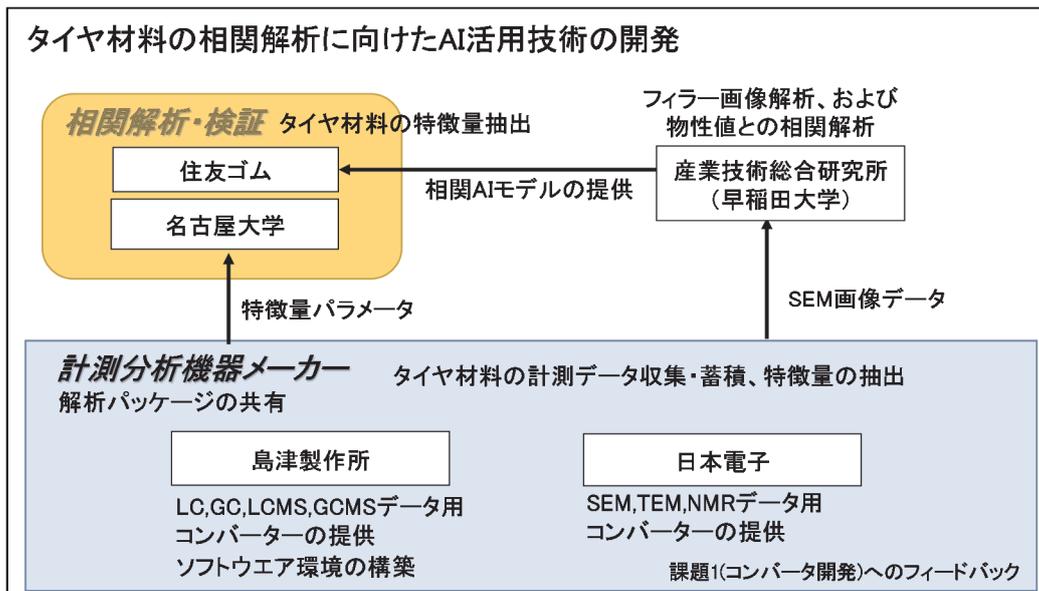


図2.3.3-1(a) タイヤ材料の相関解析に向けたAI活用技術の開発体制図

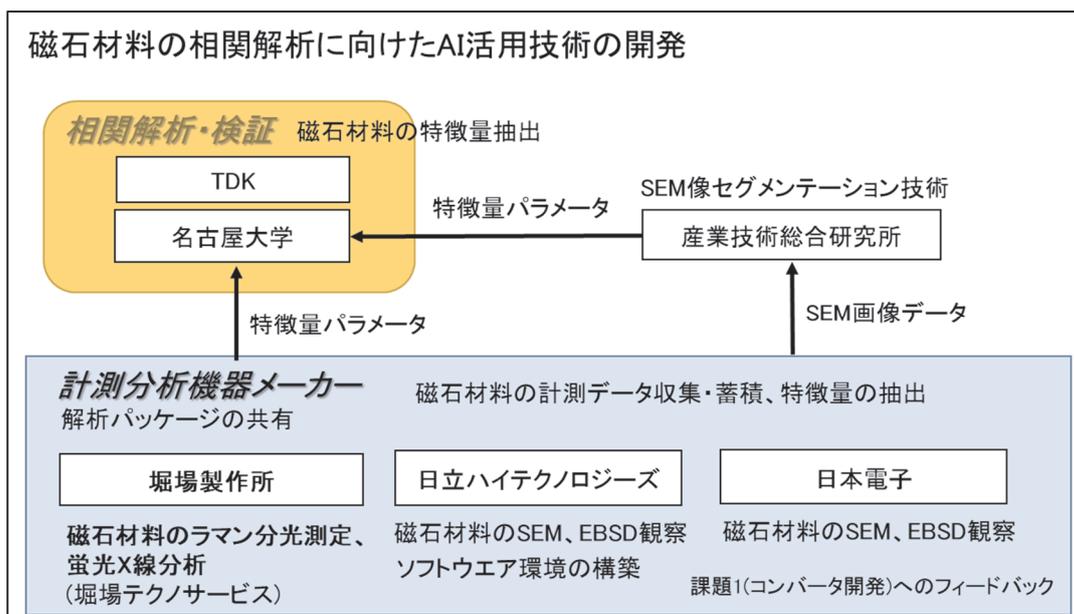


図2.3.3-1(b) 磁石材料の相関解析に向けたAI活用技術の開発体制図

(3) 成果

[1] 相関解析用ソフトウェア環境(アプリケーションフィールド)構築の成果

A. ゴム材料開発に向けたソフトウェア環境構築

ゴム材料開発に向けたソフトウェア環境構築にあたり、CPS 型複合計測分析システムによる測定データ群から新たな相関関係やそこから導かれる知見(因果関係)を導きだすため、島津製作所は以下の要求事項を設定した。

[要求Ⅰ] ゴム材料開発に向けた統合ビューア、関連ソフトウェアパッケージ等が協調動作できるソフトウェア環境構築を行うこと

[要求Ⅱ] タイヤ材料の過去データをもとにビッグデータ・AI 活用のプラットフォームを構築するために 必要な項目を共有し、研究課題 1、研究課題 3-2 にフィードバックすること

[要求Ⅲ] タイヤ材料のビッグデータ・AI活用に向けたプラットフォームをモデル構築し、モデル計測 データや解析データの授受を通して研究課題 3-2 にフィードバックすること

[要求Ⅰ]への対応では、ユーザ企業の住友ゴム工業に対し、研究課題1で開発したコンバータおよび研究課題 3-2 で開発したソフトウェア一式(表 2. 3. 3-1 参照)を 1 台のデスクトップ PC にインストールし、動作確認を行って、住友ゴム工業にその PC を据えつけた。住友ゴム工業は、各社から提供のコンバータを用いて、主に GCMS、NMR、SEM データについて約 200 プロダクト分を統合ビューアに登録・使用した。

表 2. 3. 3-1 ゴム材料開発のためのソフトウェア

コンバータ(島津製)
LC、GC、LCMS、GCMS、FTIRに対応
アップローダ
統合ビューア
データマネージャ
Allビューア
特徴量ビューア
テンプレートEditor
プロパティテーブル・インポータ

[要求Ⅱ]への対応では、統合ビューアの仕様を策定するにあたっては、住友ゴム工業に以下のようなインタビューを行い、研究課題 1 や研究課題 3-2 へフィードバックした。

表 2. 3. 3-2 インタビュー項目と仕様への反映

インタビュー項目	仕様への反映
ゴム材料開発に用いている分析装置、ソフトウェアのバージョン	研究課題 1:XMAIL フォーマットの装置や Creator の表現、コンバータで対応するデータファイルのバージョン
データ管理で困っていること	研究課題 3-2:統合ビューアでのプロダクト(試作サンプル)に紐づいたデータ管理
複数装置データの閲覧で困っていること	研究課題 3-2:統合ビューア of Allビューア機能
分析データのうち、解析に用いている結果データ	研究課題 3-2:統合ビューアの特徴量抽出機能、テンプレート機能
解析に用いたい配合情報、物性値データの例	研究課題 3-2:統合ビューアの特徴量ビューア機能

[要求Ⅲ]への対応では、要求Ⅰへの対応で記載した統合ビューアを住友ゴム工業に使用してもらい、以下のような評価を得た。

- ▶ 統合ビューアを使用して複数の装置にまたがる分析結果を 1 画面で確認することができた。これにより、以下のような効果があった。
 - ・ 単体の装置からのデータ解析では不可能であった統合的な解析が簡単に行えるようになった。
 - ・ 誰もがデータにアクセス可能で、移動・解析 PC の占拠などの制約がなくなった。(5 時間/週の削減)
 - ・ 常に同じデータを共有しているため、データ管理について担当者への問い合わせ回数を削減できた。(2.5 時間/週の削減)
 - ・ 常に同じフォーマットで解析可能なため、後工程でもデータ管理が容易になった。
 - ・ データの有無で測定状況が判断可能になり、プロジェクト進捗管理が容易になった。
- ▶ 統合ビューアを使用している課題として、表 2.3.3-3 に示す改善要望が提示された。

表 2.3.3-3 統合ビューアへの改善要望

カテゴリ	改善要望
全般	<ul style="list-style-type: none"> ・ 測定データの拡大・移動の連動、on/off 切替したい。 ・ データマネージャで、測定データ毎の削除がしたい。(現状はプロダクトごと) ・ テンプレート Editor で、特徴量の追加を記入方式から選択方式にしてほしい。
クロマトグラム	<ul style="list-style-type: none"> ・ MS ライブラリを使って検索したい。 ・ EIC および MS スペクトルを表示したい。 ・ リテンションタイム補正機能が欲しい。
NMR	<p>基本的には、全般で記載した要望で問題ないが、さらなる利便性の向上を期待するのであれば、</p> <ol style="list-style-type: none"> ① Chemical shift 補正機能 ② 積分計算機能 ③ 位相補正機能 ④ ベースライン補正機能などの一般的なデータ処理機能が欲しい。これらの機能があれば、一々解析 PC に立ち戻って、再度 XMAIL 化する必要がなくなり、さらなる工数削減が可能になる。
電顕(SEM/TEM)	<ul style="list-style-type: none"> ・ 表示時の拡大機能を充実させてほしい。
特徴量の表示方法	<ul style="list-style-type: none"> ・ 相談して仕様を決定していきたい。
その他	<ul style="list-style-type: none"> ・ コンバート、アップロードに非常に手間がかかった。改善してほしい。

B. 磁石材料開発に向けたソフトウェア環境構築

磁石材料開発に向けたソフトウェア環境構築にあたり、ユーザ企業であるTDKでは、下記[2]項に記載のように5種類の磁石材料の画像データを各種装置で取得した。日立ハイテクは、それぞれの装置を用いた測定データを解析に使用するために、研究課題3-2で開発した粒界構造解析用統合ビューアを活用した。統合ビューアで任意に選択した画像を解析に用いることができるように、統合ビューアにデータの外部出力機能を追加した。また解析された各種のデータや相関図などを観察画像とともに表示することも可能にし、かつ解析結果を表示する機能も試作した。本研究において解析結果は様々な情報が想定されることから、今回の開発においては画像とパレート図を表示する構成とした。表示したい解析データの要望に応じてこのタブの機能は変更可能である。図2.3.3-2に粒界構造解析用統合ビューアの保存機能と保存されたファイル例を示す。

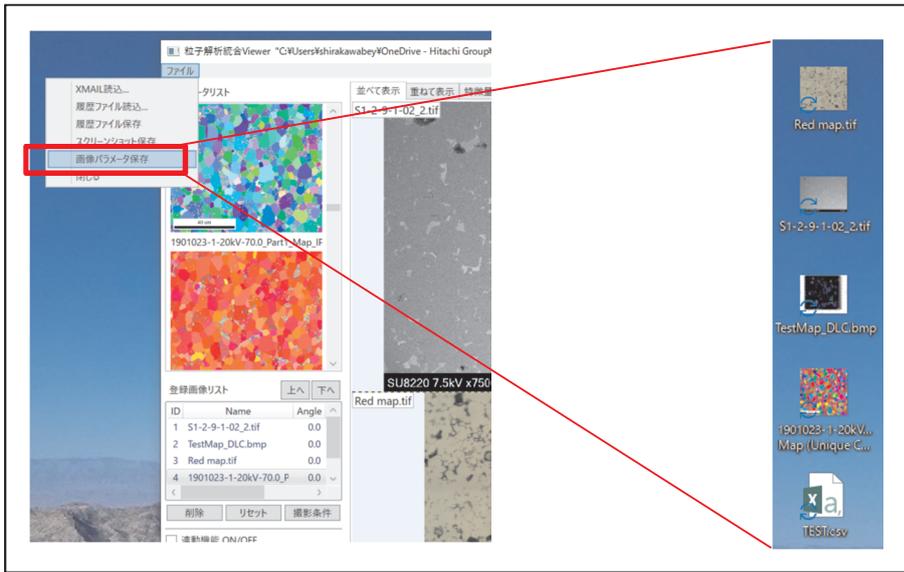


図2. 3. 3-2 粒界構造解析用統合ビューアから画像と倍率情報などを外部パラメータとして保存する機能と保存されたフィル一覧(画像とSCV)

[2] データの収集・蓄積とライブラリ化の成果

A. 磁石材料データの収集・蓄積

A-1 特性の異なるNd-Fe-B系磁石サンプルの準備

ネオジム磁石は高純度の原料を成形・焼成して製造されており、 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ の微細な結晶粒子が多数集合した多結晶体となっている。ネオジム磁石は性能を示す指標の一つである最大エネルギー積(BHmax)が量産レベルでも55MOeを超えるものが実現されており、高い材料技術と工法技術の融合によるものである。さらなる性能向上のためには主相の $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相の存在比を高めることと粒界に偏析する不純物の徹底的な排除が必要である。不純物の主なものは、製造工程におけるNdの酸化により形成されるNd酸化物(Nd_2O_3)と言われている^{1),2)}。さらに詳細に調査した結果²⁾では $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相粒界に存在するのは金属Ndリッチ相と、fcc-NdOx相とhcp-Nd₂O₃相と考えられている。またNdFeB以外に元素として添加されている、Cu、Co、Dy、Pr(プロセオジウム)などの化合物相も存在している。2粒子粒界に存在する化合物相は10 nm以下と非常に薄い、粒界の3重点に大きな相として存在している。これらの化合物相は磁石特性を決定づける磁区反転の核形成に大きく影響を与えており、添加元素化合物相やNd酸化物相の量、大きさや厚みが、磁石の特性を左右する重要な因子となっている³⁾。

本研究においてTDKは、モデル試料として特性の異なるネオジム磁石(Nd-Fe-B系磁石)5種類の仕様を決定し、株式会社KRIに製作を依頼した。表2. 3. 3-4(a)に5種類のモデル試料(S1-1~S1-5)の特徴一覧を示す。モデル試料作製に際しては、2つの特性量(特性Aと特性B)をもとに示す要求仕様特性を設定した。要求特性は、特性Aを横軸に特性Bを縦軸にプロットし、第一象限から第四象限それぞれと中心に位置する特性の試料作製を依頼した。表2. 3. 3-4(b)に出来栄え特性と要求仕様特性の比較を、図2. 3. 3-3に出来栄え特性の位置付けを示す。S1-3を中心として、第一象限にS1-5、第二象限にS1-4、第三象限にS1-2、第四象限にS1-1が位置する狙い通りの特性を持つ試料が準備できた。

<参考文献>

- 1) 宝野和博, 大久保忠勝: "Nd-Fe-B 磁石の高保磁力化をめざした微細組織制御(総説)", 日本金属学会誌, Vol. 75(2011)
- 2) TDK企業HP TECK JOURNAL "ネオジム磁石の高特性化HAL工法"
- 3) M. Sagawa, S. Hirose, H. Yamamoto, S. Fujimura and Y. Matsuura, Jpn J. Appl. Phys. 26(1987), p785

表2. 3. 3-4(a) Nd系磁石5種類のモデル試料の特徴一覧

	特性(A, B)	粒径	組成偏析	粒界偏析	粒界幅	硬さ	ヤング率
S1-1	第四象限	中	均質	Zr	小	中	中
S1-2	第三象限	大	B, Dy	Nd, Pr, Cu	中	大	中
S1-3	中心	小	Nd, Pr	Nd, Pr, Cu	大	小	中
S1-4	第二象限	中	Nd, Pr, Dy, O, C	Nd, Pr, O	小	小	小
S1-5	第一象限	中	Nd, Pr, Dy, O, C	Nd, Pr, O	小	大	大

表2. 3. 3-4(b) Nd-Fe-B系磁石の出来栄え特性と要求仕様特性

サンプル	出来栄え特性		要求仕様特性	
	特性A	特性B	特性A	特性B
S1-1	100	55	100	45
S1-2	86	57	87	50
S1-3	90	84	93	80
S1-4	87	105	87	99
S1-5	97	107	103	99

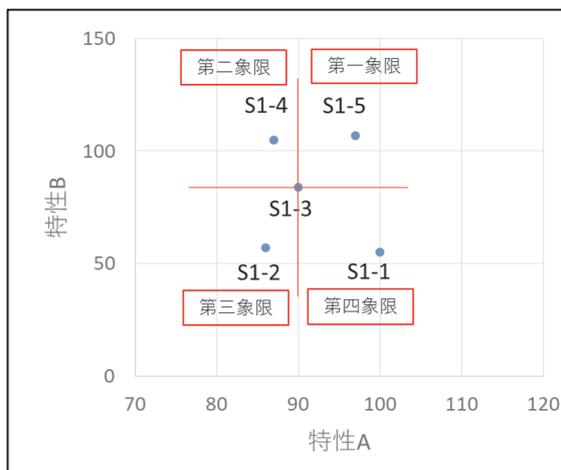


図2. 3. 3-3 5種類のNd系磁石出来栄え特性の位置付け

作製した試料は、名古屋大学、産総研、日本電子、堀場製作所に下記の取扱注意事項とともに提供した。

- ・ 観察前には表面を研磨すること
- ・ 研磨に決して水を使用してはならない(エタノール系の研磨液はOK)
- ・ 乾式研磨、イオン研磨(CP, FIB)を推奨
- ・ 研磨後、なるべく早く観察すること
- ・ 研磨後、真空デシケータあるいはグローブボックス内でArガスをパージしてパックすること。
- ・ 研磨して長時間経ったものあるいは表面が変質している場合は、再研磨すること
- ・ 磁石には近づけないこと(サンプルが磁化するとSEM観察等できなくなる)

- ・ インレンズタイプのSEMには入れないこと

図2. 3. 3-4に堀場製作所で観察したNeFeB磁石試料(7x7x7 mmの直方体)の外観、および圧延方向に垂直な断面と圧延方向に平行な2断面の計3断面を切り出した測定用試料の外観を示す。ネオジム磁石は成型時に磁場をかける工法で製造され、圧延方向に磁化異方性を持っている。圧延方向によるマイクロ構造などの違いがあるかどうかを観察するために断面を特定し、上記の注意事項に従って試料を準備した。C面と記載している面が圧延方向に垂直な方向の断面、L面①②は圧延方向に平行な断面となる。

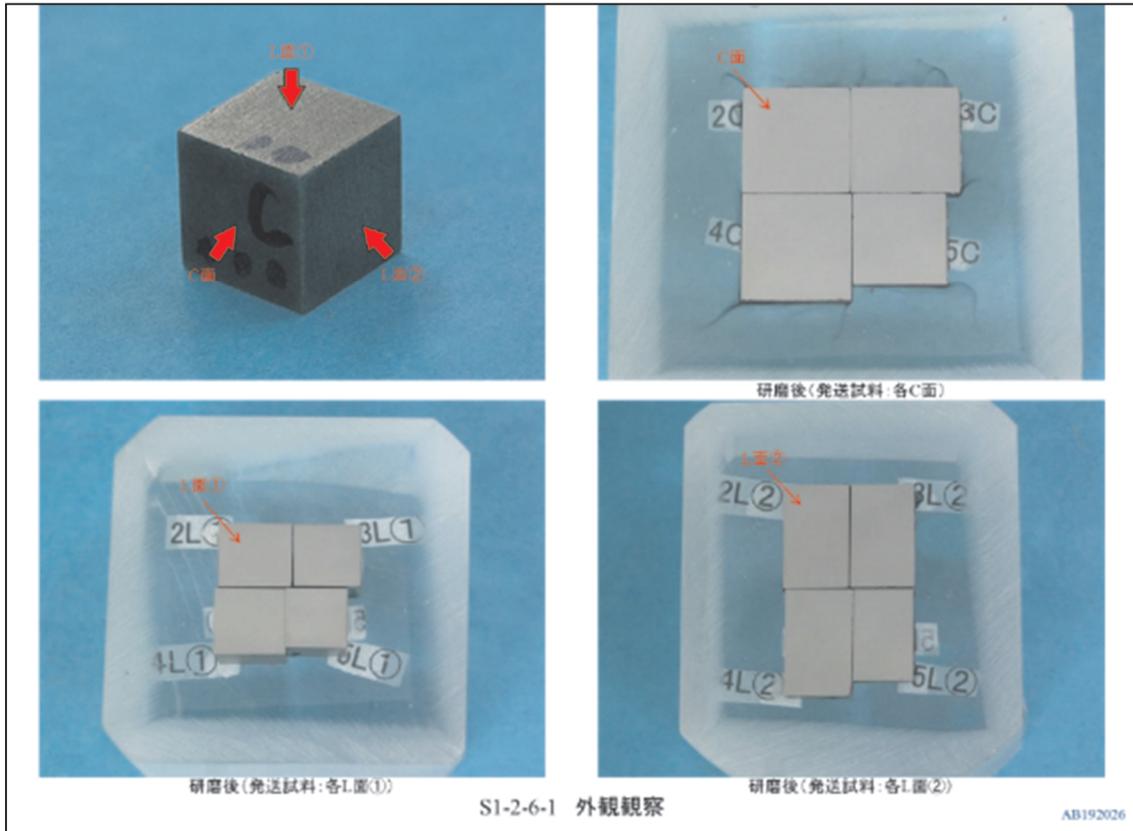


図2. 3. 3-4 ネオジム磁石から切出した断面試料外観

図2. 3. 3-5(a)-1～図2. 3. 3-5(e)-3に、5種類の材料(s1-1～s1-5)の3つの断面(CおよびL1、L2)のSEM観察像を示す。画像中明るいグレーに見える部分が化合物相(Ndリッチ相やNd酸化物相)と考えられ、粒界や粒界3重点に存在している。図からは圧延方向による化合物相の分布や占有面積に大きな違いは見られない。

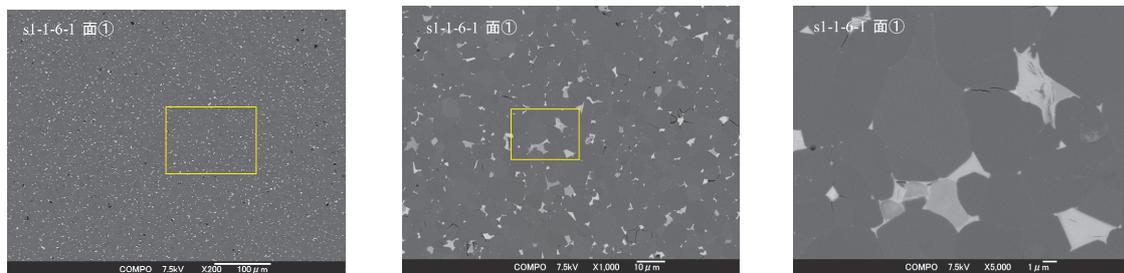


図2. 3. 3-5(a)-1 ネオジム磁石s1-1の断面C試料SEM観察像

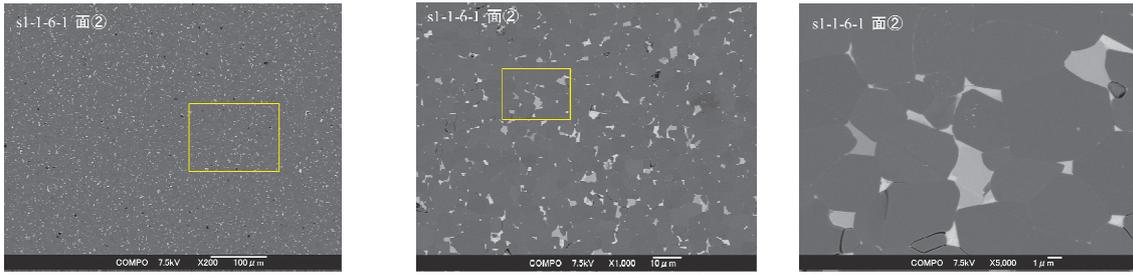


図2. 3. 3-5(a)-2 ネオジム磁石s1-1の断面L1試料SEM観察像

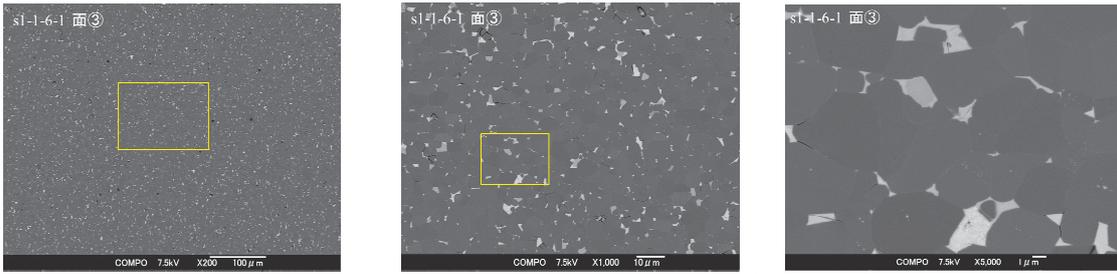


図2. 3. 3-5(a)-3 ネオジム磁石s1-1の断面L2試料SEM観察像

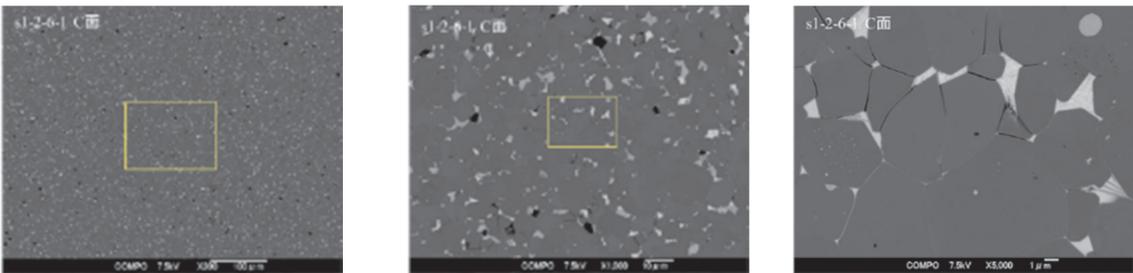


図2. 3. 3-5(b)-1 ネオジム磁石s1-2の断面C試料SEM観察像

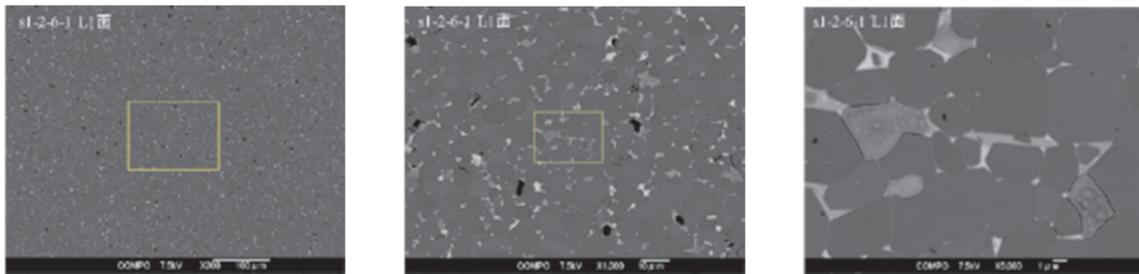


図2. 3. 3-5(b)-2 ネオジム磁石s1-2の断面L1試料SEM観察像

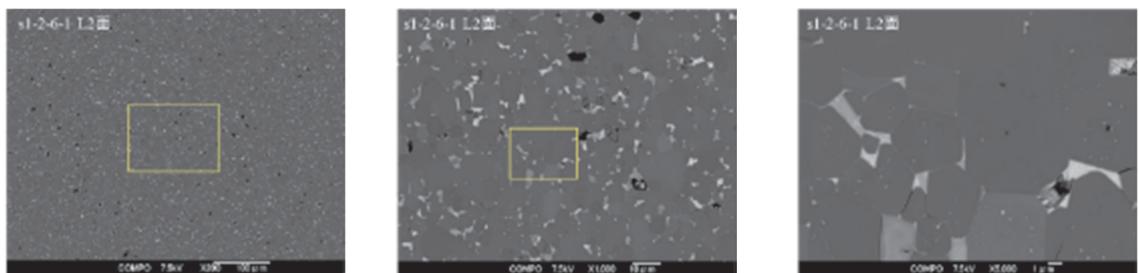


図2. 3. 3-5(b)-3 ネオジム磁石s1-2の断面L2試料SEM観察像

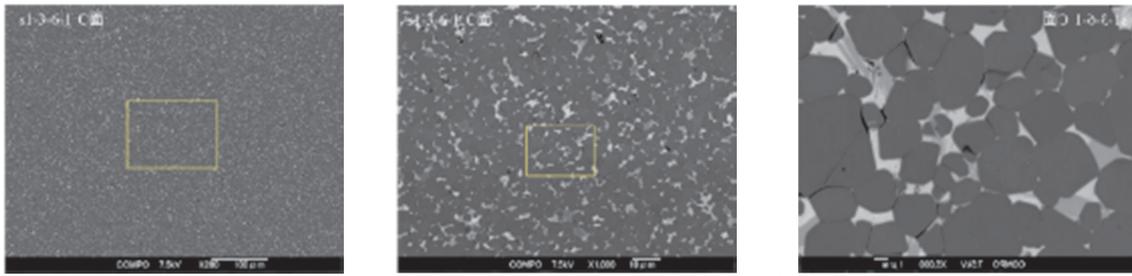


図2. 3. 3-5(c)-1 ネオジム磁石s1-3の断面C試料SEM観察像

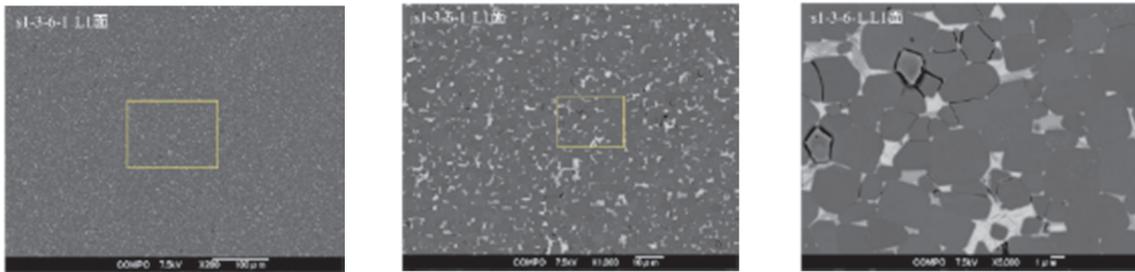


図2. 3. 3-5(c)-2 ネオジム磁石s1-3の断面L1試料SEM観察像

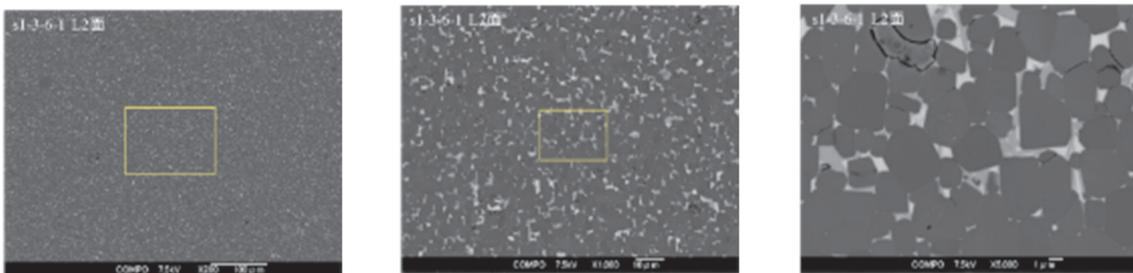


図2. 3. 3-5(c)-3 ネオジム磁石s1-3の断面L2試料SEM観察像

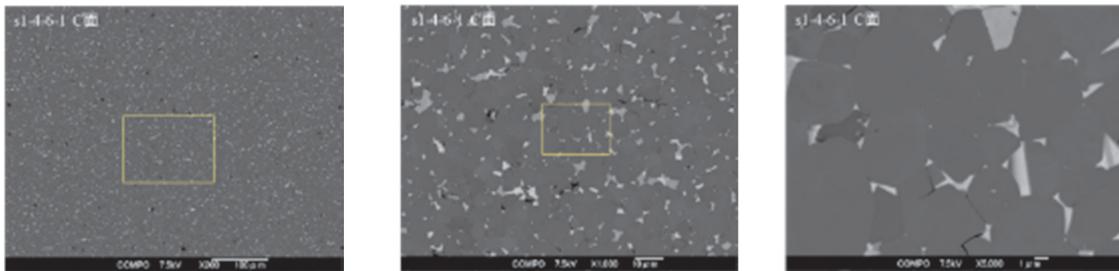


図2. 3. 3-5(d)-1 ネオジム磁石s1-4の断面C試料SEM観察像

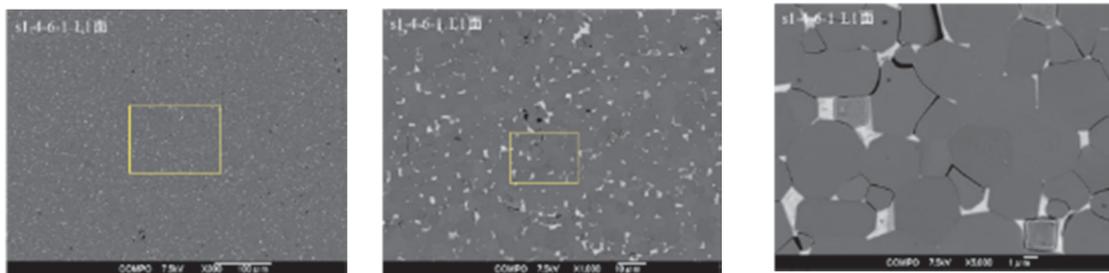


図2. 3. 3-5(d)-2 ネオジム磁石s1-4の断面L1試料SEM観察像

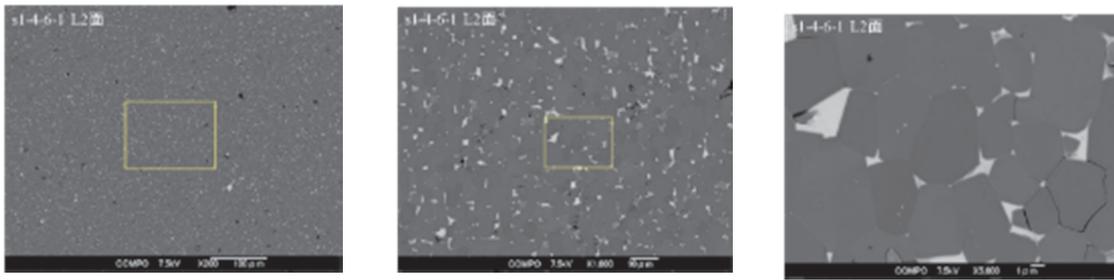


図2. 3. 3-5(d)-3 ネオジム磁石s1-4の断面L2試料SEM観察像

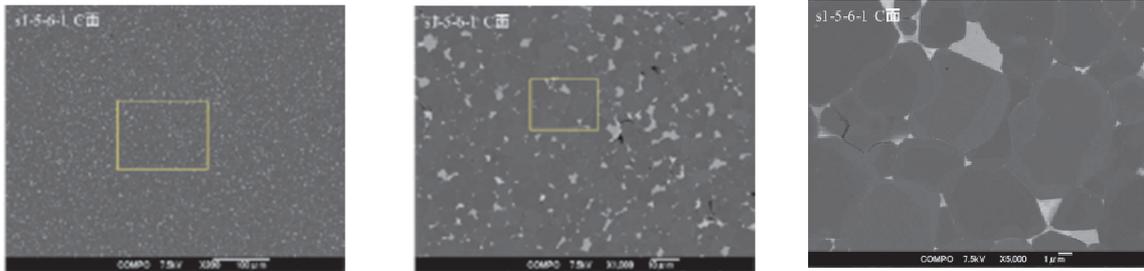


図2. 3. 3-5(e)-1 ネオジム磁石s1-5の断面C試料SEM観察像

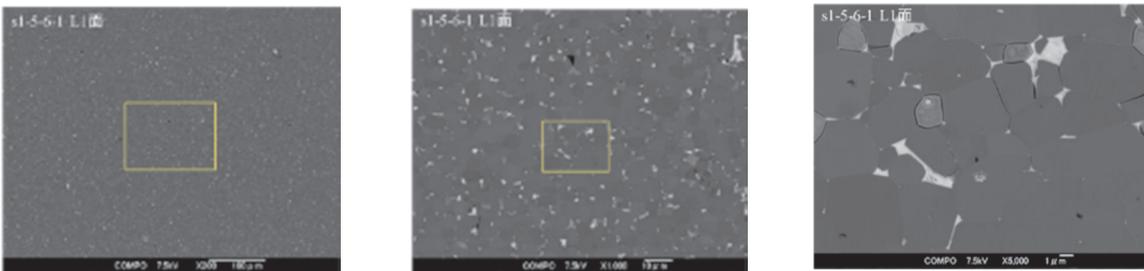


図2. 3. 3-5(e)-2 ネオジム磁石s1-5の断面L1試料SEM観察像

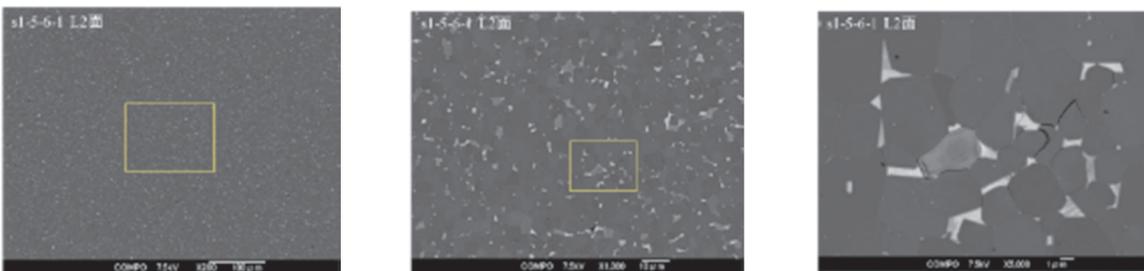


図2. 3. 3-5(e)-3 ネオジム磁石s1-5の断面L2試料SEM観察像

表2. 3. 3-5に蛍光X線分析装置MESA-50により測定した各材料の元素組成を示す。名古屋大学にて測定した磁気特性の結果も併せて示した。蛍光X線分析装置では構成元素であるBは検出できないため、Bを除く元素で組成比を算出した。保持力向上を目的としたDy、Pr、Cuなどが添加されている。特にDvが添加されたs1-4、s1-5は高い保持力Hcを示している。

表2. 3. 3-5 各材料の元素組成と磁気特性(MESA-50にて測定)。磁気特性は名古屋大学で測定

磁石材料	s1-1	s1-2	s1-3	s1-4	s1-5
元素	(wt%)	(wt%)	(wt%)	(wt%)	(wt%)
Fe	63.3	62.9	59.4	61.6	61.8
Nd	25.2	20.3	27.9	21.9	22.3
Pr	7.8	6.4	8.9	7.0	5.7
Tb	2.10	1.99	1.85	3.06	8.30
Co	0.99	1.26	1.50	1.42	0.88
La	0.42	2.17	-	-	-
Zr	0.10	0.12	0.24	0.12	0.12
Ga	0.08	0.06	0.17	0.09	0.08
Cu	0.03	0.07	0.13	0.08	0.02
Ce	-	4.7	-	-	-
Dy	-	-	-	4.80	0.92

磁気特性	s1-1	s1-2	s1-3	s1-4	s1-5
残留磁化 M_R (emu/cm ³)	1,120	901	965	994	632
保磁力 H_C (Oe)	12,272	12,704	19,682	24,695	24,500

A-2 磁石材料データの取得

磁石試料のデータ取得は、TDKからの外注による分析受託会社2社(コベルコ科研、JFEテクノリサーチ)と日本電子、堀場製作所が行った。5種類の試料に対して、下記に詳述するそれぞれの分析(画像)のデータを取得し、本プロジェクトの共用サーバであるExTOPEにアップロードした。取得したデータの一覧を表2. 3. 3-6(a)に、その際に用いた各手法のメーカーと機種名を表2. 3. 3-6(b)に示す。

表2. 3. 3-6(a) 取得データ一覧

サンプル	手法 メーカー	SEM		EDS(SEM)				EPMA	EBSD	TEM	EDS(TEM)		Raman	nano-Indenter
		JEOL	HITACHI	JEOL	HORIBA	Thermo	Noran	JEOL	TSL+JEOL SEM	JEOL	Thermo	JEOL	HORIBA	
S1-1-8-1	JFEテクノリサーチ	○				○		○	○	○	○			
S1-2-8-1	JFEテクノリサーチ	○						○	○	○	○			
S1-3-8-1	JFEテクノリサーチ	○						○	○	○	○			
S1-4-8-1	JFEテクノリサーチ	○						○	○	○	○			
S1-5-8-1	JFEテクノリサーチ	○						○	○	○	○			
S1-1-9-1	コベルコ科研	○	○		○		○	○	○					○
S1-2-9-1	コベルコ科研	○	○		○			○	○					○
S1-3-9-1	コベルコ科研	○	○		○			○	○					○
S1-4-9-1	コベルコ科研	○	○		○			○	○					○
S1-5-9-1	コベルコ科研	○	○		○			○	○					○
S1-1-5-1	日本電子	○		○				○	○					
S1-2-5-1	日本電子	○		○				○	○					
S1-3-5-1	日本電子	○		○				○	○					
S1-4-5-1	日本電子	○		○				○	○			○		
S1-5-5-1	日本電子	○		○				○	○			○		
S1-1-6-1	堀場製作所												○	
S1-2-6-1	堀場製作所												○	
S1-3-6-1	堀場製作所												○	
S1-4-6-1	堀場製作所												○	
S1-5-6-1	堀場製作所												○	
タングステンドットアレイ	コベルコ科研	○	○		○		○	○	○					
タングステンドットアレイ	JFEテクノリサーチ	○				○		○	○					
タングステンドットアレイ	日本電子	○		○										

表2. 3. 3-6(b)データ取得機種一覧

計測機関	手法	メーカー	機種名
JFEテクノリサーチ	SEM	JEOL	JSM-7100F
JFEテクノリサーチ	EDS	Thermo	Noran System 7
JFEテクノリサーチ	EPMA	JEOL	JXA-8500F
JFEテクノリサーチ	EBSD	TSL	OIM
JFEテクノリサーチ	TEM	JEOL	JEM-2100
コベルコ科研	SEM	JEOL	JSM-7000F
コベルコ科研	SEM	日立	SU8220
コベルコ科研	EDS	HORIBA	EMAX
コベルコ科研	EBSD	TSL	OIM
コベルコ科研	EPMA	JEOL	JXA-8500F
日本電子	SEM	JEOL	JSM-7200F
日本電子	EDS	JEOL	JED-2300
日本電子	EBSD	TSL	OIM
日本電子	TEM	JEOL	ARM300
堀場製作所	Raman	HORIBA	LabRAM HR Evolution

【SEM画像取得】

Nd系磁石の主相の結晶粒径を計測する複合計測分析システム構築用の画像として、電界放出型走査電子顕微鏡(FE-SEM:Field-Emission Scanning Electron Microscope)により反射電子像を取得し、組織観察を行った。測定に際しては、以下の手順で試料調製を行った。

- ・ 試料を低速カッターにて乾式切断
- ・ 直径 25 mm の導電性樹脂に埋め込み
- ・ イオンミリング加工用に 5 mm×10 mm×5 mm 程度のサイズに乾式切断
- ・ イオンミリングにより断面試料を作製

イオンミリング加工に使用した装置は日立ハイテック社製IM4000(加速電圧:6 kV、使用イオン種:Ar イオン)である。

図2. 3. 3-6(a)は、600倍から750倍の低倍率での反射電子像、図2. 3. 3-6(b)は、5,000倍の高倍率での反射電子像である。横はサンプルごとに並べて表示した。縦には、データ取得機関とSEMの機種および加速電圧を示した。

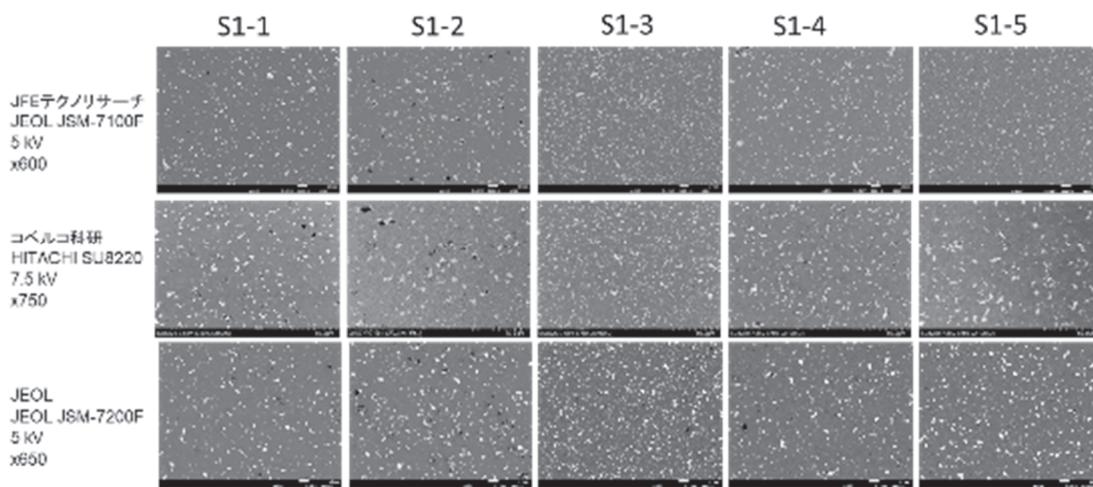


図2. 3. 3-6(a) Nd系磁石のSEM観察(低倍率)

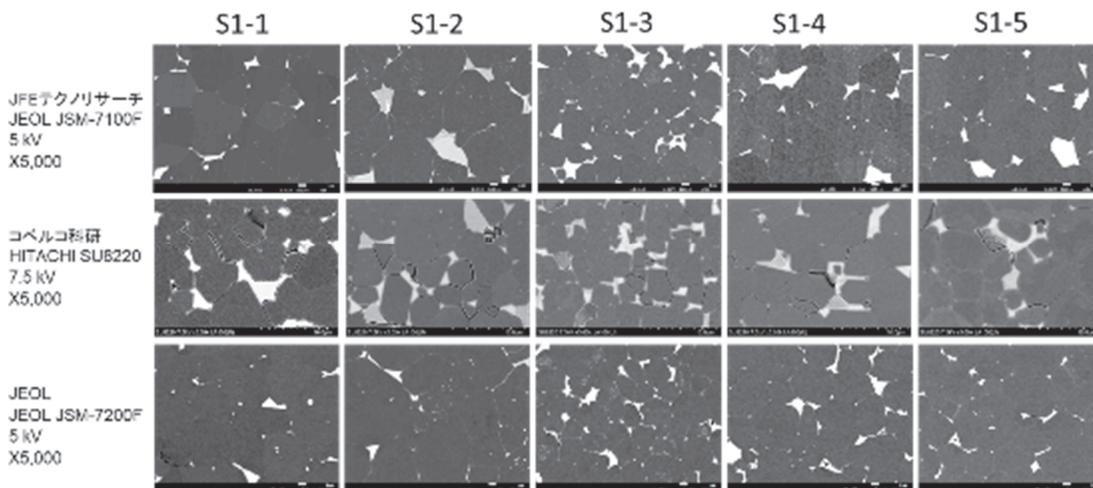


図2. 3. 3-6(b) Nd系磁石のSEM観察(高倍率)

一見すると粒径の違い、粒界の明瞭さの違い、白く見えている三重点の分布の違いなどが見て取れるが、定性的であり、これを定量的に把握することができれば、AI利用など材料開発、製品の安定供給に

寄与できる。

【EBSDデータ取得】

EBSD (Electron Back-scattering Diffraction Pattern: 後方散乱電子回折パターン) による結晶構造解析を実施し、SEM 反射電子像、方位マップ (Inverse Pole Figure: IPF マップ)、粒界マップの画像データと粒子サイズ分布データを測定した。図 2. 3. 3-7(a) に示すように、方位マップ (IPF Map) の色は方位に対応している。図 2. 3. 3-7(b) に EBSD 測定結果を示す。方位マップ像は Axis 1 の方向に対しての画像である。

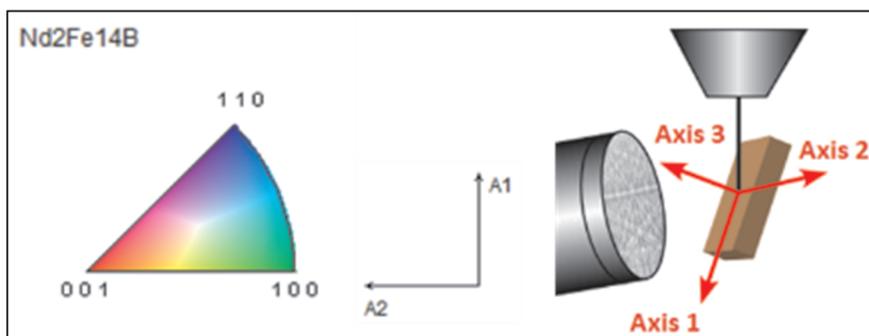


図 2. 3. 3-7(a) 方位マップ (IPF マップ) の方位を表す色と座標軸

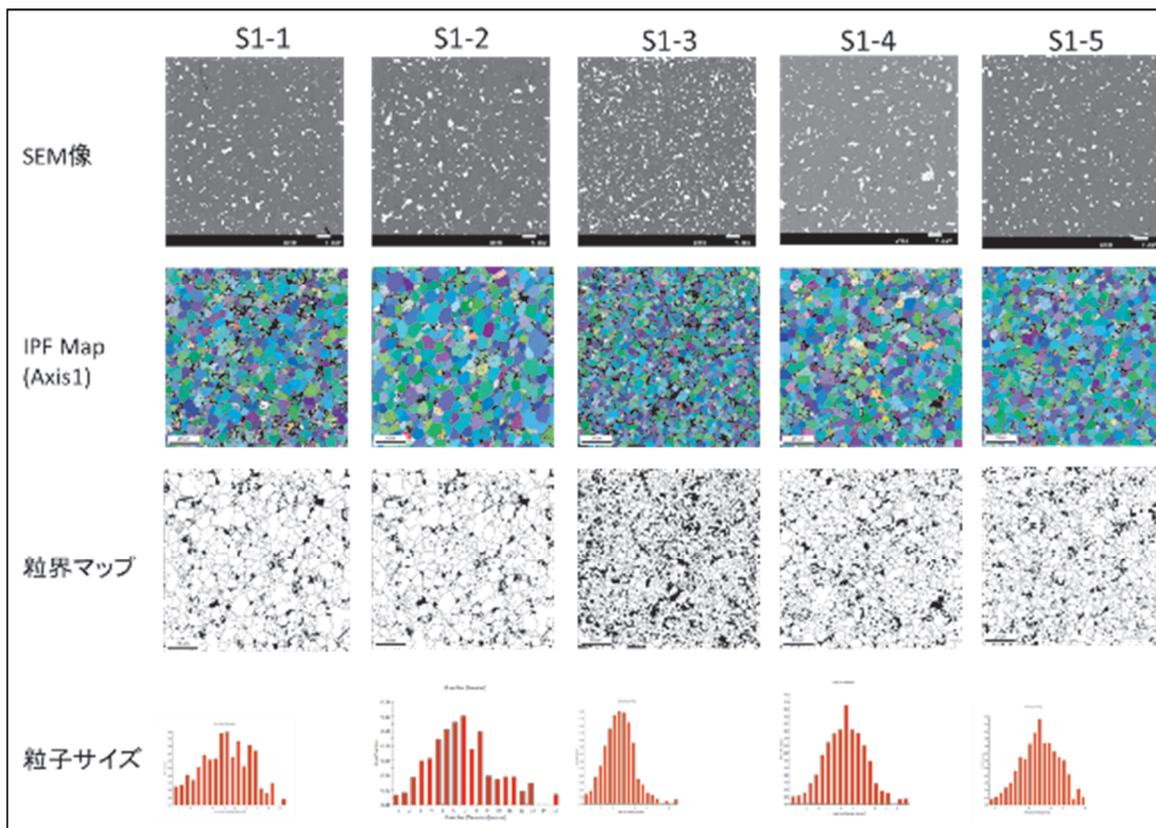


図 2. 3. 3-7(b) Nd系磁石のEBSD

S1-3の粒子サイズが他と比べて小さいことがわかる。一方、S1-2は大きい粒子も存在し、小さい粒子から大きい粒子まで分布している。IPF Mapや粒界マップでもその違いは明らかである。特徴量を見出しやすくするために特性が大きく異なる試料の作製を依頼したが、仕様通りの試料となっていた

ことが確認できた。なお、**図2. 3. 3-7(b)**に示した画像は日本電子がデータ取得し、使用装置・測定条件は下記の通りである。

SEM装置: JSM-7200F

加速電圧:15 kV、倍率:x150、測定範囲: 120 μm \times 120 μm 、測定ピッチ: 0.3 μm 、

測定点数:185031点

EBSD装置:TSL社製

EBSD分析ソフトウェア: TSL OIM Data Collection 5.31

EBSD解析ソフトウェア: TSL OIM Analysis 7

なお、これとは異なる条件で測定したデータも取得した。

【EPMAデータ取得】

特徴量抽出のためには、元素分布は重要なパラメータの一つである。電界放出型電子線マイクロアナライザ(FE-EPMA: Field-Emission Electron Probe Micro Analyzer)を用いて測定した元素マッピング画像を**図2. 3. 3-8**に示す。

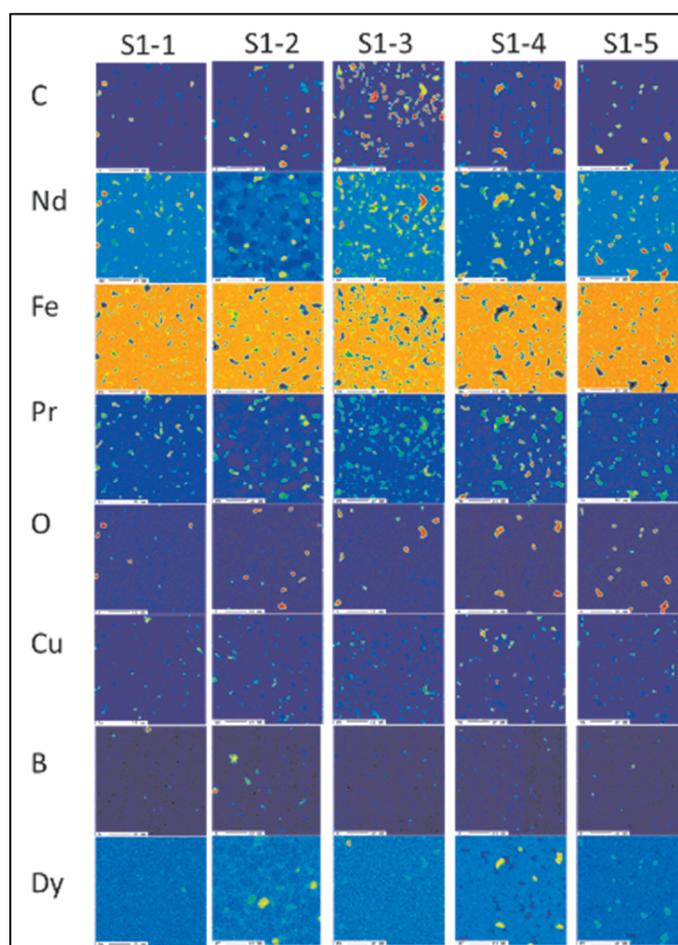


図2. 3. 3-8 Nd系磁石のEPMA元素マッピング

図2. 3. 3-8の元素マッピングにそれぞれ特徴がみられる。S1-1は他の試料と比べると均質である。S1-2はBやDyの偏析が見られる。S1-3は、Nd-Prが細かく分布している。S1-4とS1-5とではNd-Pr-Dy-O-Cからなる粒子が見られる。なお、測定はJFEテクノロジーが行い、測定装置、測定条件は下記の通りである。

EPMA装置: 日本電子製 JXA-8500F

加速電圧: 15kV(形態観察、マッピング)、照射電流: 100 nA、取込時間: 50 msec/point、分析領域: 51.2×51.2 mm(0.2 mmステップ、256点)

【EDSデータ取得】

FE-SEM/EDSを用いて、元素マッピング画像を以下の機関、装置を用いて取得した結果を図2. 3. 3-9に示す。EPMAほど一見しての違いが見いだせないが、SEM像との連動性が良く、高倍率での元素マッピングできるため、三重点などの局所的な元素マッピング取得には適している。また元素の粒子形状などから特徴量を抽出できる可能性が見出された。

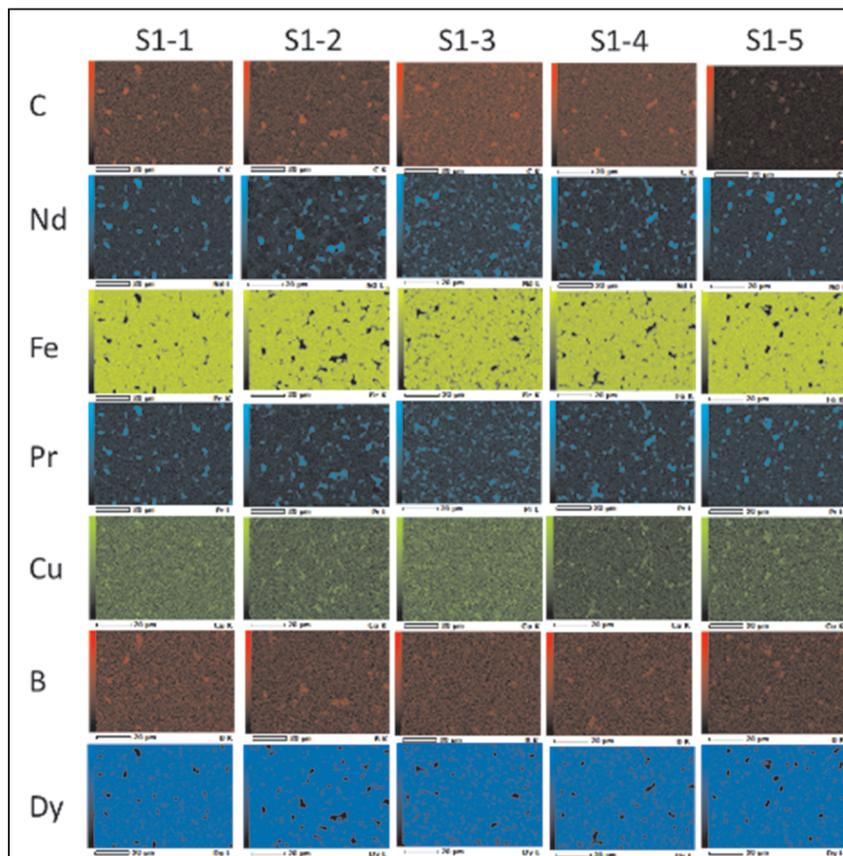


図2. 3. 3-9 Nd系磁石のEDS元素マッピング

データの取得は日本電子が行い、測定装置、測定条件は下記の通りである。

EDS装置: JSM-7200F(FE-SEM)および JED-2300 DRY SD(EDS)

加速電圧: 5 kV(SEM観察)、15kV(EDS分析)、倍率: x1,500、2.0 nA 0.1 ms 30回

【硬さとヤング率データ取得】

Nano-Indenterを用いて、硬さとヤング率のマッピング画像を2つの装置を用いて取得した。図2. 3. 3-10 (a)にXPM(バーコピッチ型測定方法)による圧痕のSEM像、図2. 3. 3-10 (b)にCSM(連続剛性測定)による圧痕のSEM像を示す。図2. 3. 3-10 (c)は2つの装置で得られた硬さ・ヤング率マッピング像の比較結果を示したものである。測定はコベルコ科研が行い、測定装置、測定条件は下記の通りである。

XPM(バーコピッチ型測定方法)に使用する装置

Hysitron 製 TI980 TriboIndenter(TI)

圧子形状 : バーコピッチ型測定方法 : XPM

測定荷重 : 5000 μ N(設定)測定範囲 : 50 μ m \times 50 μ m
 測定点数 : 121 点測定点間隔 : 5 μ m
 CSM(連続剛性測定)に使用する装置
 MTS Systems 製 Nano Indenter XP/DCM ナノインデントー・システム(NI)
 圧子形状 : ダイヤモンド製バーコピッチ型
 測定方法 : CSM(連続剛性測定)押し込み深さ : 2000 nm(設定)
 測定点数 : 3 点測定点間隔 : 100 μ m
 測定環境 : 室温23 $^{\circ}$ C(空調装置) 標準試料: フェーズドシリカ

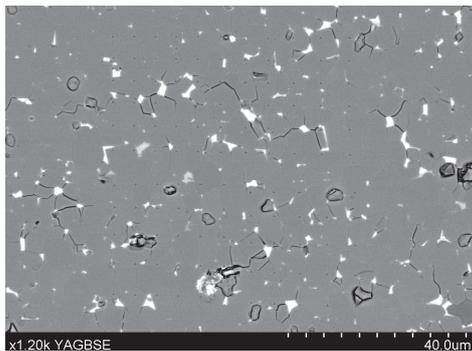


図2. 3. 3-10(a) Nd系磁石の硬さ・ヤング率(XPM)による圧痕のSEM像

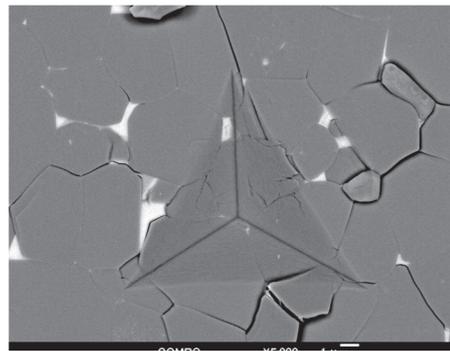


図2. 3. 3-10(b) Nd系磁石の硬さ・ヤング率(CSM)による圧痕のSEM像

名古屋大学より、後述のモデル試料の相関解析およびパス解析の途中結果から、硬度計によるデータと磁気特性との相関が示された。マイクロ-マイクロ統合解析では、画像データを扱うことから、ナノインデントによる硬度およびヤング率のマッピングデータを取得することにした。その結果を図2. 3. 3-10(c)に示す。

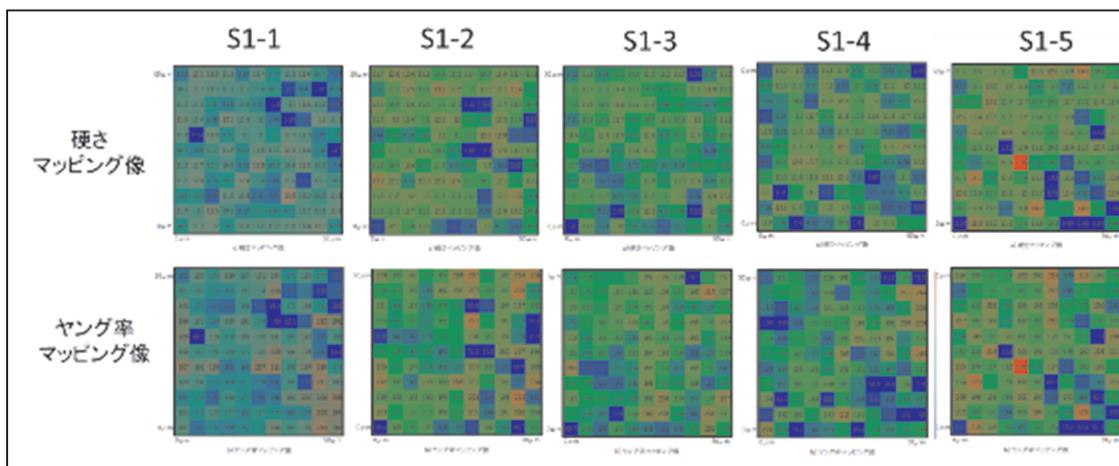


図2. 3. 3-10(c) Nd系磁石の硬さ・ヤング率マッピング像

表2. 3. 3-7 Nd系磁石の硬さ・ヤング率(平均値)

S1-1		S1-2		S1-3		S1-4		S1-5	
硬さ GPa	ヤング率 GPa								
10.1	173.0	10.4	174.2	9.8	174.8	9.6	162.5	10.3	177.1

それぞれの試料の硬さとヤング率の平均値を表2. 3. 3-7にまとめた。硬さとヤング率との関係を図2. 3. 3-10(d)に示した。相関係数は0.55とあまりよくないが、正の相関がみられた。粒界や三重点など場所によっては、正確なデータになっていないと思われる。データ解析に際しては圧痕の場所を確認して、データを採用すべきと考えている。

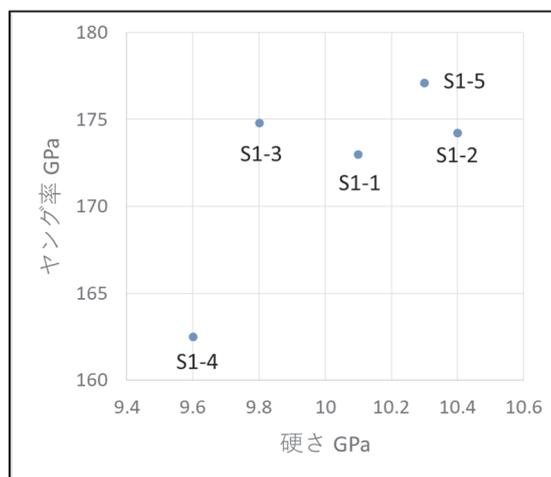


図2. 3. 3-10(d) Nd系磁石の硬さとヤング率との相関

【TEMデータ取得】

STEM/EDSを用いて、粒界部の構造を比較した結果を図2. 3. 3-11に示す。

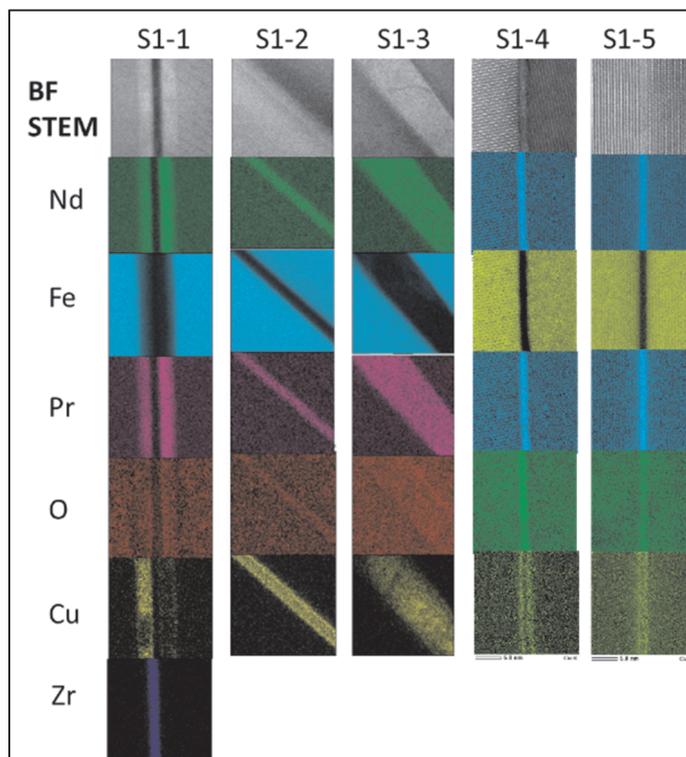


図2. 3. 3-11 Nd系磁石粒界部のSTEM観察およびEDSマッピング像

S1-1はZrが粒界に偏析している特徴的な構造である。S1-2とS1-3は粒界にNd, Pr, Cuが偏析しており、S1-3は粒界幅が広いのが特徴である。S1-4とS1-5は、粒界にNd, Pr, Oが偏析し、両者とも粒界幅は狭かった。この測定は日本電子が行い、測定装置、測定条件は下記の通り。

装置：ARM-300(Cs-STEM)およびJED-2300 DRY SD(EDS)

加速電圧：300 kV、観察倍率：x10M

【ラマン分光測定データ取得】

粒界に存在するNd酸化物相の結合構造や分布は、特徴量として磁気特性に影響を及ぼすと考えられるため、堀場製作所はラマン分光測定装置を用いて、粒界に存在するNd酸化物相を測定した。

切り出したネオジム磁石の断面試料をラマン分光測定装置LabRAM HR Evolutionにより測定した測定条件を表2. 3. 3-8に示す。x100倍の対物レンズで計測エリアは、およそ□50 μm、0.8 μmピッチで計測し、レーザーは532 nmを用いた。64x64の4096点のスペクトルを測定し、多変量解析、CLS(Classical Least Squares)法を用いて、各成分のマッピングを行った。

表2. 3. 3-8 ラマン分光測定条件

Instrument	LabRAM HR Evol	Acq. time (s)	3.5
Accumulations	1	Laser	532nm_Edge
Hole	79.9925	Slit	
Detector	Syncerity OE	Grating	300(600nm)
ND Filter	10%	Power	2mW at sample
Objective	x100_VIS	Windows	

マッピング
 エリア：50 μm
 測定間隔：0.8 μm
 測定時間：約8.5時間

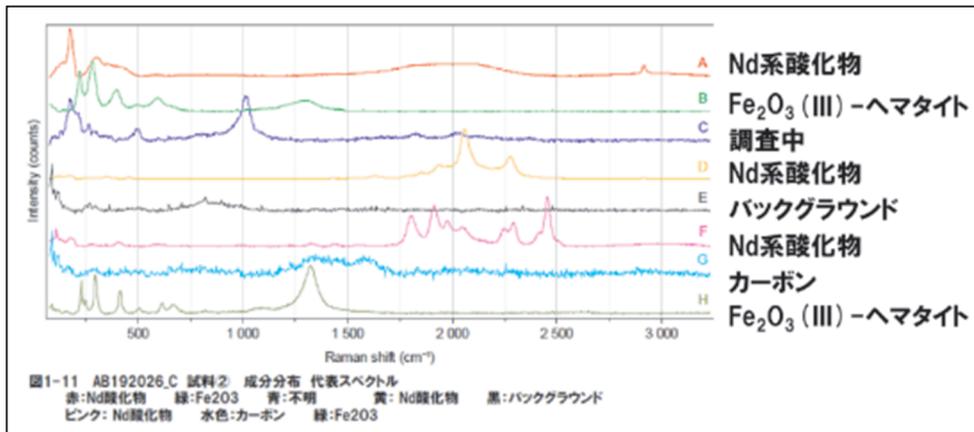


図2. 3. 3-12(a) 磁石材料のラマン分光測定結果(s1-2_C面の場合)

典型的な結果を図2. 3. 3-12(a)に示す。図にある様にNd酸化物、Fe酸化物の相が観察された。それぞれの相の同定はスペクトルライブラリや文献から参照した。マッピング図中の青すなわち青色のスペクトルに関しては、ライブラリ、文献等を通じて同定が難しかったため、ラマン分光測定装置と電子顕微鏡SEMを用いて、同位置を観察し(図2. 3. 3-12(b))、マッピング図中の青く示した部分はNd系酸化物であることが判った。

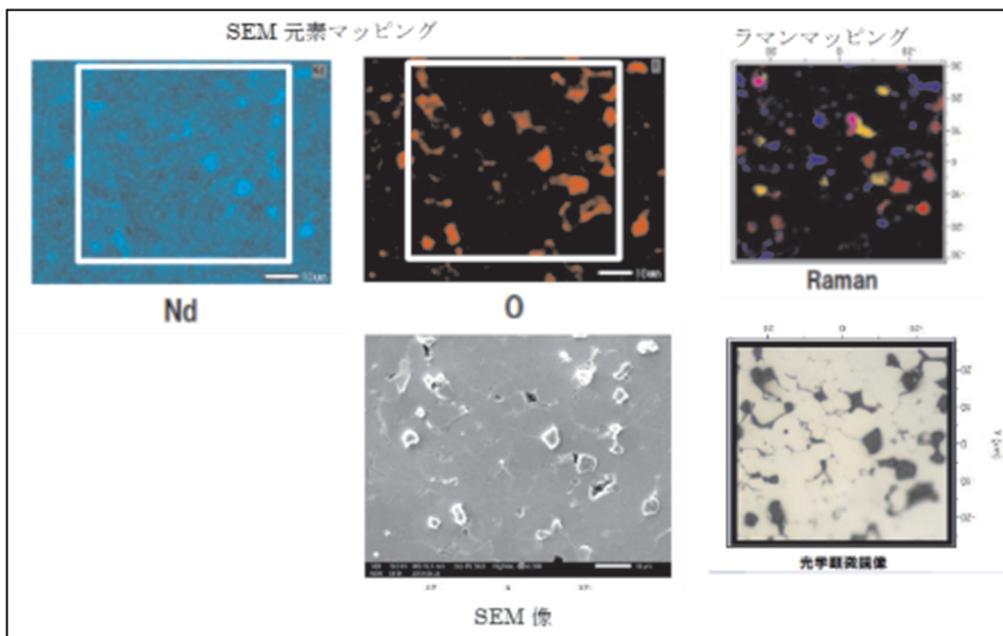


図2. 3. 3-12(b) 不明な相のラマン分光/SEM同位置の観察結果

次に5種類のネオジム磁石材料(s1-1～s1-5)のラマン分光測定を行った。その結果を図2. 3. 3-12(c)～図2. 3. 3-12(g)に示す。代表例としてs1-1は①面(圧延方向不明)を、s1-2～s1-5はC面(圧延方向と垂直断面)の計測結果を示す。マッピング観察で認識できるNd酸化物相は全部で5種類あり図2. 3. 3-12(h)に各Nd酸化物相のラマンスペクトルを示す。

前述したようにこれら磁石材料には機能向上のために様々な元素が添加されており、Nd酸化物はこれら添加元素との複合酸化物となっている可能性が考えられ、複合酸化物に含まれる元素に応じたスペクトルとなっているものと考えられる。しかし、Nd複合酸化物のスペクトルに関するデータベース情報はほとんどなく、どのような複合酸化物であるかの詳細な特定は現状できていない。さらに観察が大気中であるため、試料表面の酸化が起こりうるのでこの点も注意が必要である。

今回のラマン分光測定結果では圧延方向の影響は明確に差異が見られなかったため、各材料別にNd酸化物相の面積率、酸化物相の粒径を整理したものを表2. 3. 3-9に示す。表のデータは各材料でn=4～6程度(各断面ごとにn=1or2)のラマン分光測定をした結果の平均値である。どの酸化物相も平均粒径は2.5～4.5 μmで、Nd酸化物相2の径が比較的小さめで、酸化物相3, 4の径が大きい。図2. 3. 3-12(i)に酸化物相面積率を整理したものを示すが、磁石材料によっては存在するNd酸化物と存在しない酸化物があり、添加元素と関連しているものと考えられる。酸化物相としては、Fe系の酸化物相も存在しているが、もともと含有するものであるか、試料観察中あるいは試料前処理中に生成したかの判別が難しく、今回の整理ではFe系酸化物は含めていない。今後の相関解析の結果を見て、加える必要があるかどうか検討をする必要がある。

また酸化物でない化合物相、例えばNd₂Fe₁₄BのNdにPrやDyが置き換わった構造を持つ金属化合物相やCoやCuが固溶した相などは残念ながらラマン分光測定装置では検出することができない。これらの化合物相も磁気特性に寄与しており、他の測定装置の計測結果と合わせた複合的な相関解析についての検討も必要と考えられる。

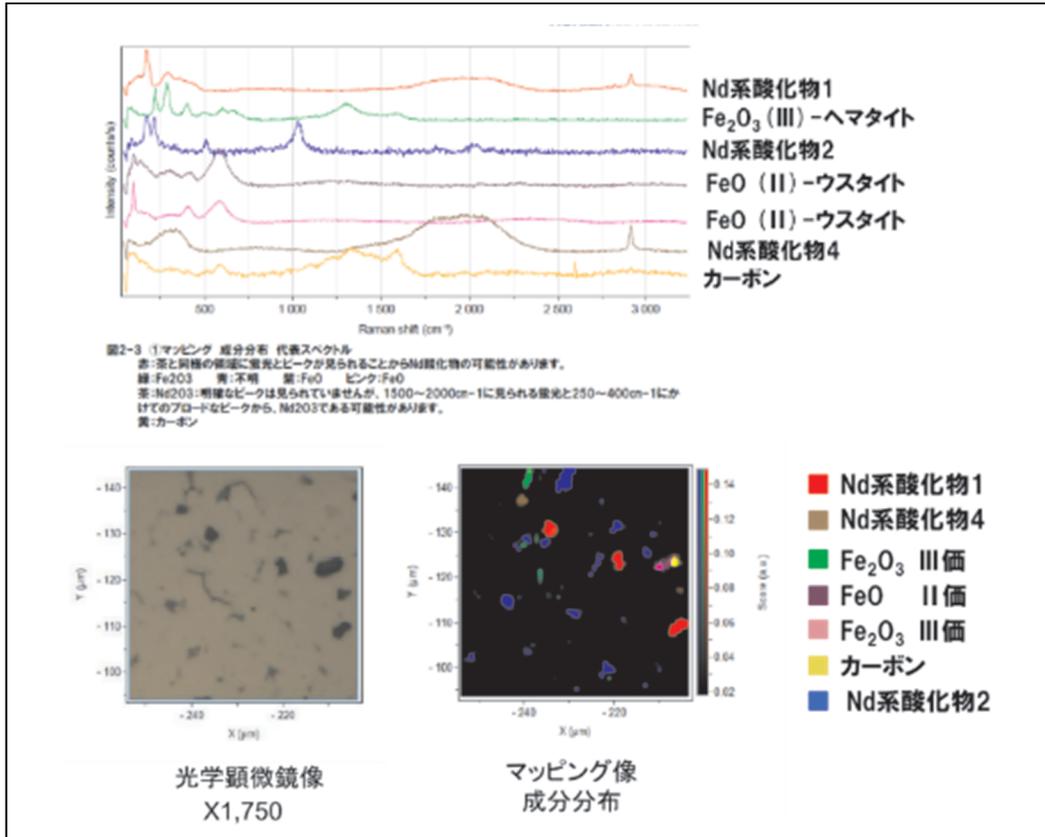


図2. 3. 3-12(c) s1-1(1)面のラマン分光測定結果

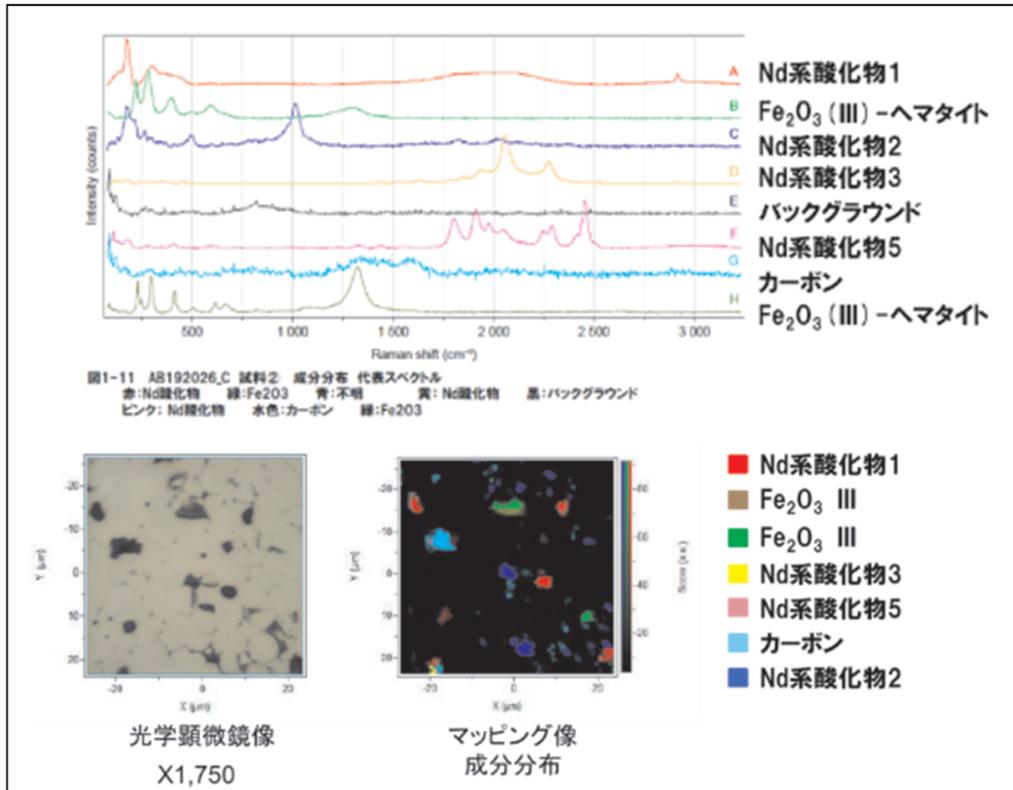


図2. 3. 3-12(d) s1-2 C面のラマン分光測定結果

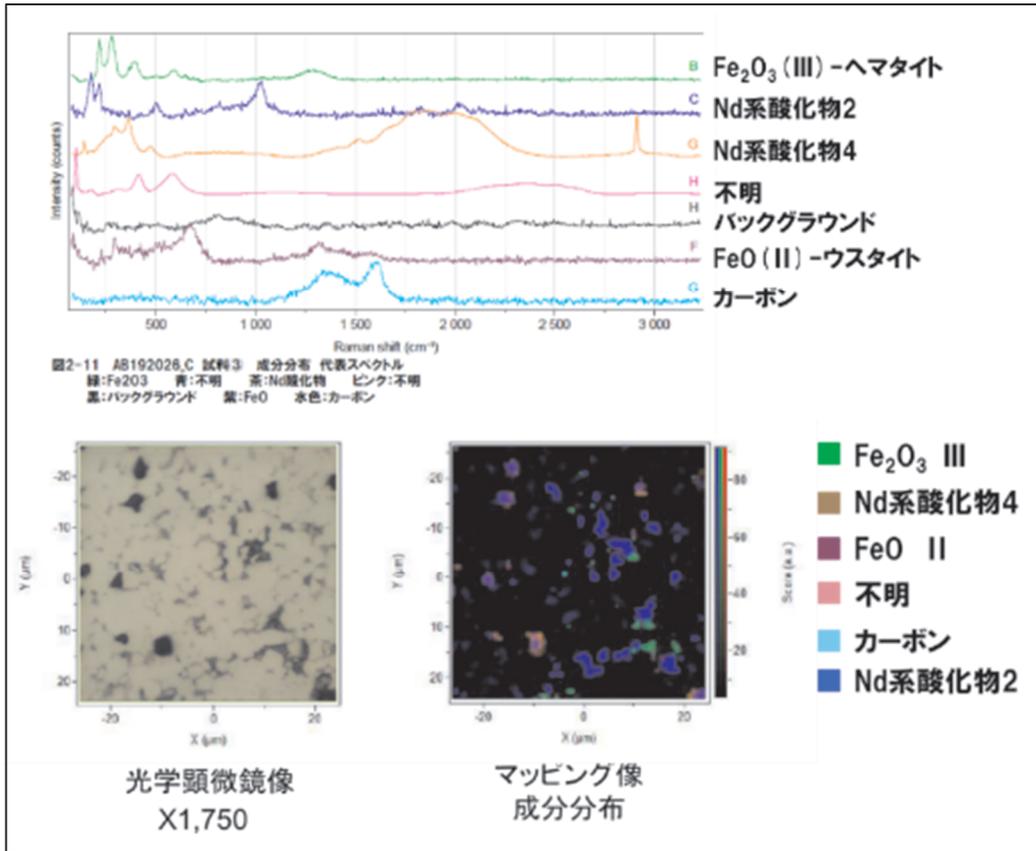


図2. 3. 3-12(e) s1-3 C面のラマン分光測定結果

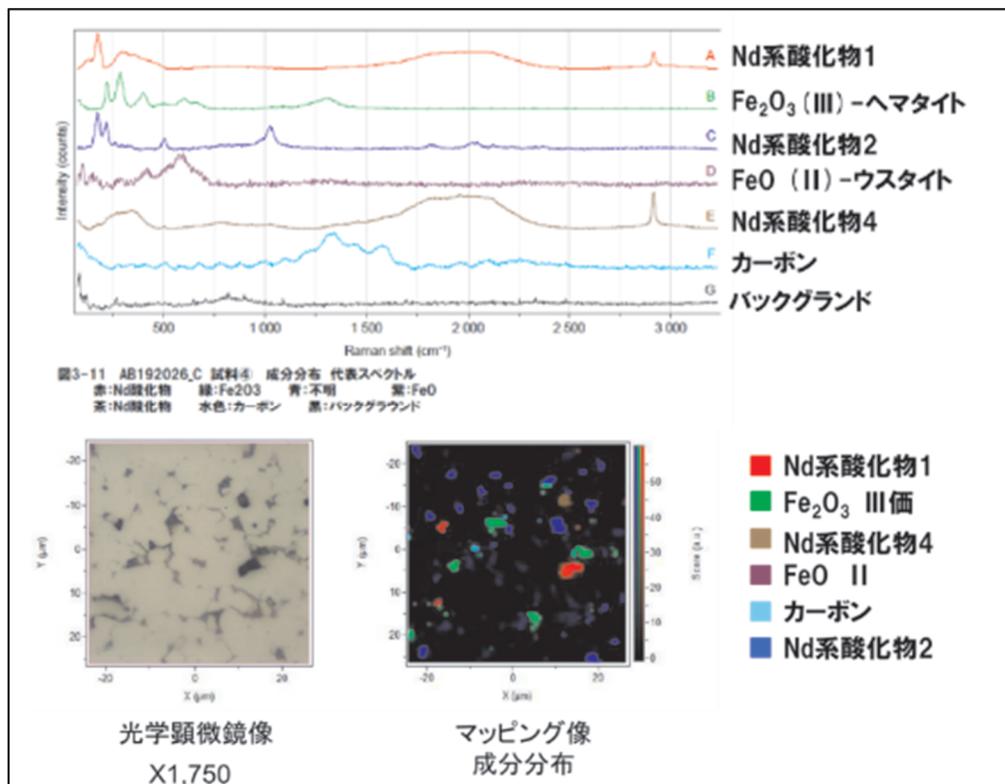


図2. 3. 3-12(f) s1-4 C面のラマン分光測定結果

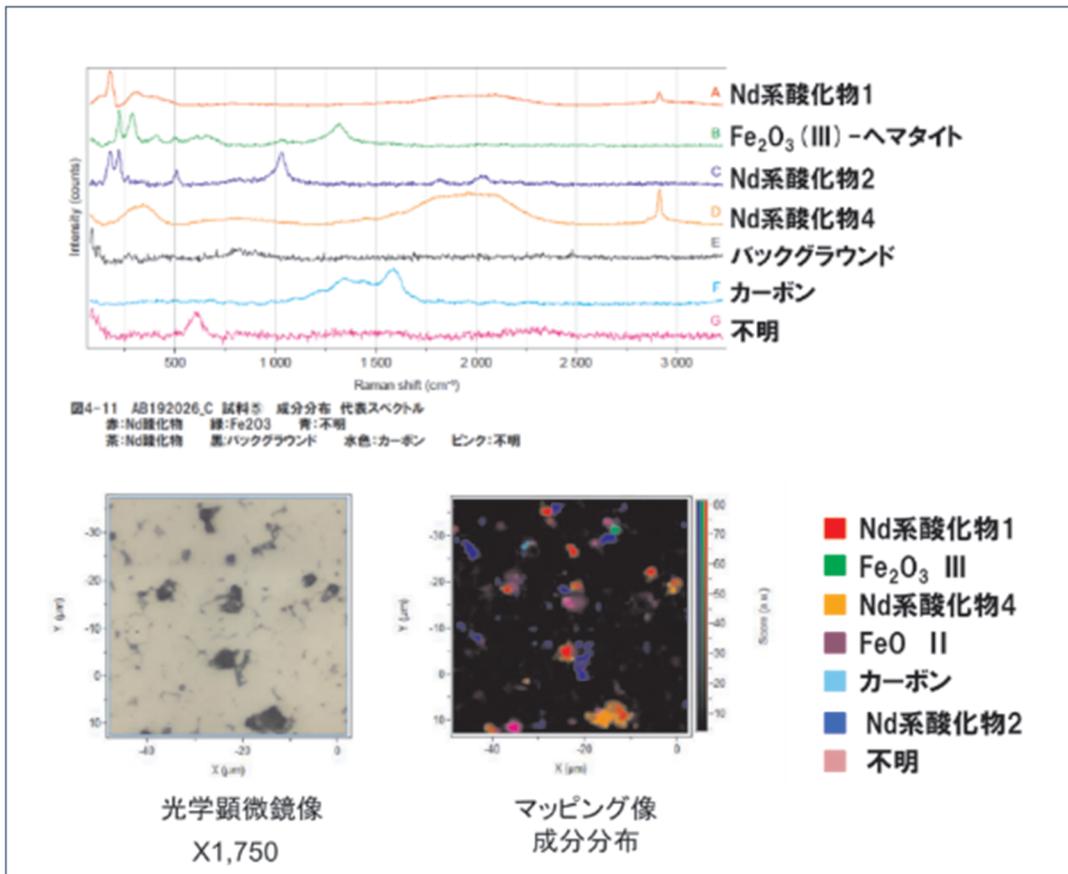


図2. 3. 3-12(g) s1-5 C面のラマン分光測定結果

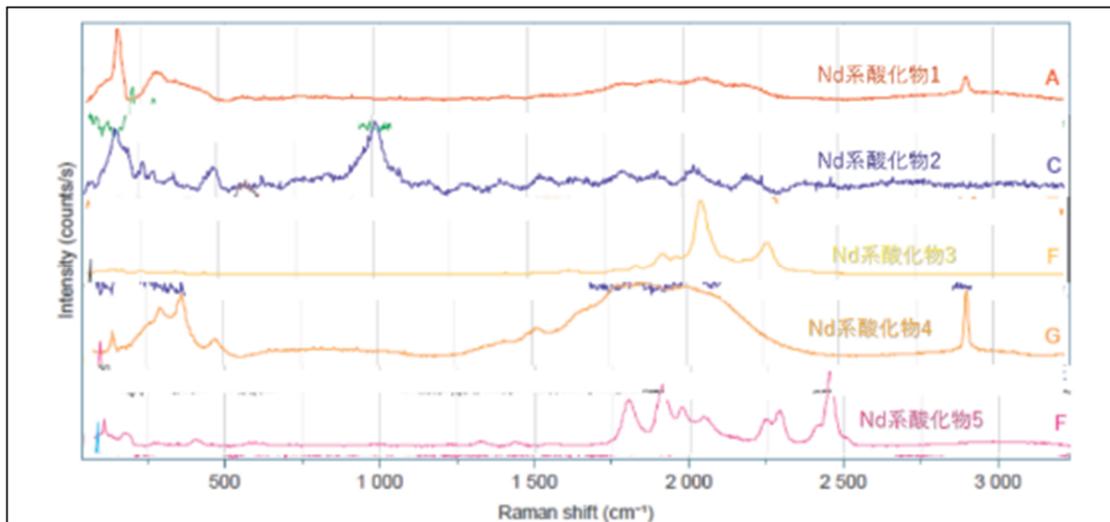


図2. 3. 3-12(h) Nd系酸化物相の各ラマンスペクトル(5種)

表2. 3. 3-8 Nd系酸化物相の面積率と平均粒径(平均値)

酸化物面積率					
磁石材料	Nd酸化物 1	Nd酸化物 2	Nd酸化物 3	Nd酸化物 4	Nd酸化物 5
s1-1	1.5%	1.9%	-	1.0%	-
s1-2	2.2%	1.9%	0.3%	1.4%	0.1%
s1-3	-	2.5%	2.3%	1.5%	-
s1-4	0.4%	1.4%	0.1%	2.3%	0.0%
s1-5	1.7%	1.7%	-	1.7%	-

酸化物平均粒径					
磁石材料	Nd酸化物 1	Nd酸化物 2	Nd酸化物 3	Nd酸化物 4	Nd酸化物 5
s1-1	3.1um	2.4um	-	3.8um	-
s1-2	3.6um	2.8um	2.9um	3.5um	2.7um
s1-3	-	2.7um	3.8um	3.6um	-
s1-4	3.5um	2.6um	4.1um	4.2um	-
s1-5	3.4um	2.6um	-	3.4um	-

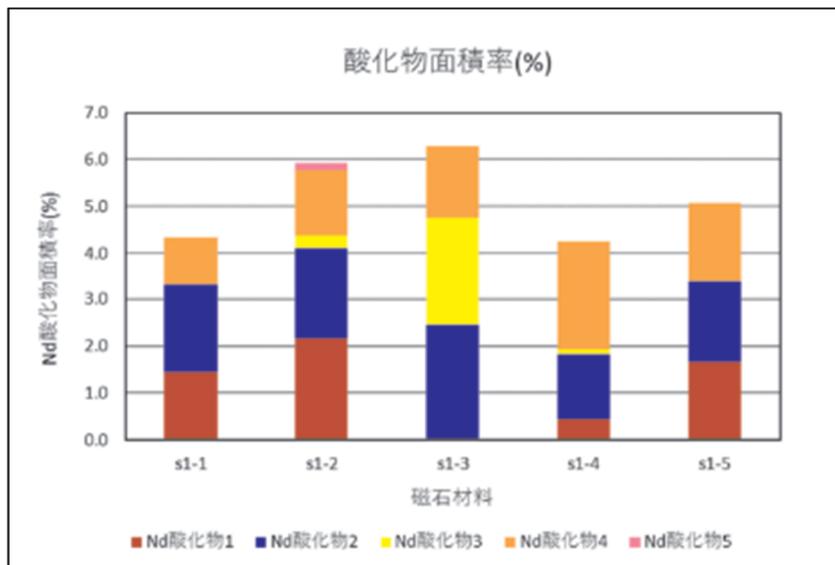


図2. 3. 3-12(i) Nd酸化物相の面積率

B. ライブラリ化

B-1 構造化ライブラリの構築

名古屋大学は、モデル材料を用いた構造-特性データの取得とデータ間の相関解析を行うに際して、材料の構造-特性データの相関関係を踏まえた構造化されたライブラリ形式で示すことが各変数間の関係性を理解する上で重要であると位置づけた。名古屋大学が考えた構造化ライブラリと統合ビューアとの連携関係を図2. 3. 3-13に模式的に示す。

この位置づけの下にタイヤ用ゴム材料および磁石材料に関して、プロジェクトメンバーである製造メーカー(住友ゴム、TDK)から提供を受けたモデル試料を用いて、AI活用に向けた構造化ライブラリの構築に必要な構造データおよび特性データの測定と構造方程式モデリングを用いた相関解析を行った。

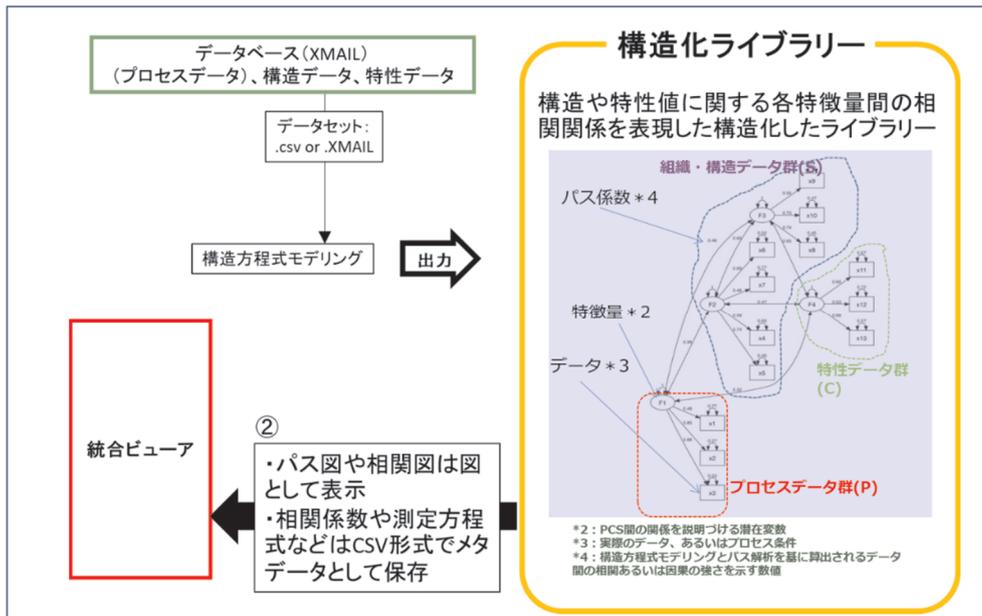


図2. 3. 3-13 構造化ライブラリおよび統合ビューとの連携に関する模式図

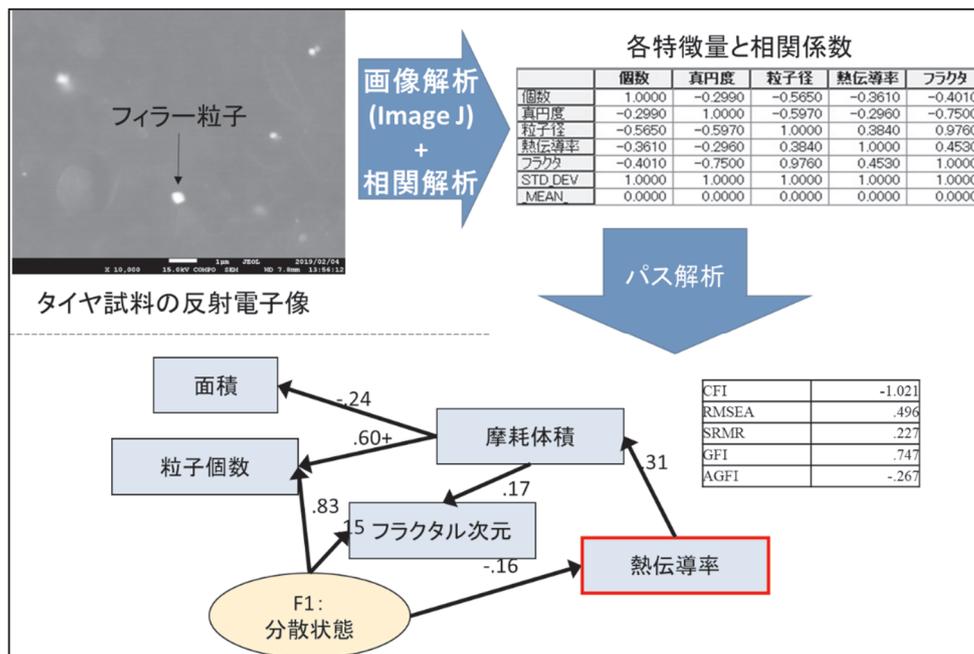


図2. 3. 3-14(a) タイヤ用ゴム材における代表的な構造化ライブラリの一例

タイヤ用ゴム材では、製造メーカーから提供頂いた試料20検体に加え、名古屋大学でも市販のタイヤ材について追加測定を行い、それぞれの試料において反射電子画像から画像解析で得られる添加ファイラー粒子の粒子径や真円度、粒子个数、フラクタル次元数などを特徴量として抽出し、特性データとしてはアクロン摩耗試験による比摩耗量、温度波法を用いて測定した熱伝導率を特徴量として抽出した。得られたデータを用いて、数十パターンパス図を作成し、構造方程式モデリングを用いてパス解析を行い各観測変数間の関係をパス係数で表現した構造化ライブラリ(パス図)を作製した。図2. 3. 3-14(a)には相関の強い変数のみで構成した代表的な構造化ライブラリ(パス図)を示す。図2. 3. 3-14(a)より特徴量間の相関性から性能評価を可能とする評価項目として、従来のタイヤ材では性能評価に用いて

いなかった材料の熱伝導率と、タイヤ特性の一つである摩耗量との相関関係が示されており、以上の事から性能予測を可能とする項目として材料の熱伝導率が有用であることが示唆された。

また、タイヤ用ゴム材の原料であるゴム材原料の分子量分布推定の精度について、ベイズ推定を用いた精度と不確かさを定量化する手法についても検討を行った。現在、高分子化合物の分子量の測定法としてゲル浸透クロマトグラフィー(Gel Permeation Chromatography, GPC)が広く用いられている。GPCによる分子量測定では分子量を分布として求めることができる。GPCに関して1960年代から多くの研究¹⁾があるが、得られた分子量分布の不確かさについては考えられていない。この問題に対し、本研究ではマルコフ連鎖モンテカルロ(MCMC)法を用いて分子量分布の不確かさを定量的に評価可能な手法を開発した(図2. 3. 3-14(b))。

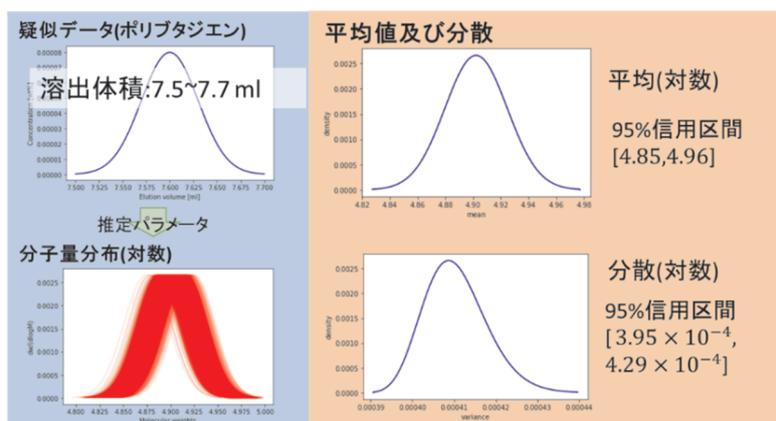


図2. 3. 3-14(b) ベイズ推定法を用いたゴムモデル材(ポリブタジエン)の分子量分布の推定結果と不確かさの定量評価結果

磁石材料に関しても同様に、TDKからの依頼分析により得られたEBSD解析から得られる粒子径とノインデンタ試験によるビッカース硬度やヤング率、堀場製作所が測定したラマン分光測定から得られる各結晶相の面積率およびXRF測定による組成情報と、名古屋大学で測定を行ったビッカース硬度およびVSM測定による磁化特性、TEM観察結果などを特徴量として用いた。特徴量がサンプルサイズと比較して多い条件であったため、観測変数間での多変量相関図を作成し、特徴量間の相関係数の大きさにより関係性の強いものを選出し、それを基に数十パターンのパス図を作成した。図2. 3. 3-15(a)にEBSDからの粒子径-ビッカース硬度-磁化特性間の多変量相関図を示す。図2. 3. 3-15(a)より磁石性能を示す特性値である残留磁化や保磁力などとビッカース硬度は相関係数 >0.8 の強い相関関係が得られており、多変量相関図からもビッカース硬度は性能予測を可能とする評価項目であることが示唆された。

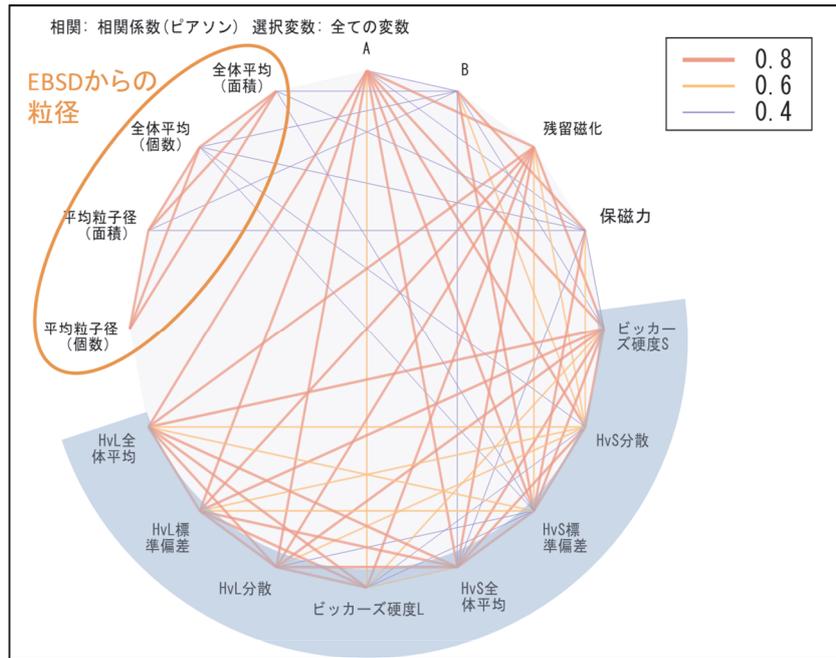


図2. 3. 3-15(a) 磁石材料における多変量相関図

作成したパス図に関して構造方程式モデリングを用いて相関解析を行い、モデル適合度の高いものを構造化ライブラリとした。代表的な一例を図2. 3. 3-15(b) に示す。図2. 3. 3-15(b)より測定した特徴量間に潜在変数を3つ導入したパス図において高いモデル適合度が得られた。これまでの知見を元に、それぞれの潜在変数の物理的意味は、それぞれF1:材料硬度、F2:粒界強度や配向性、F3:磁壁の移動度であると想定した。また、磁石材料の残留磁化や保磁力などの磁化特性に対するパス係数が従来報告されている粒子径との相関よりも高い値を示していることから、性能予測する新たな評価項目としてピッカース硬度が有用であることが示された。

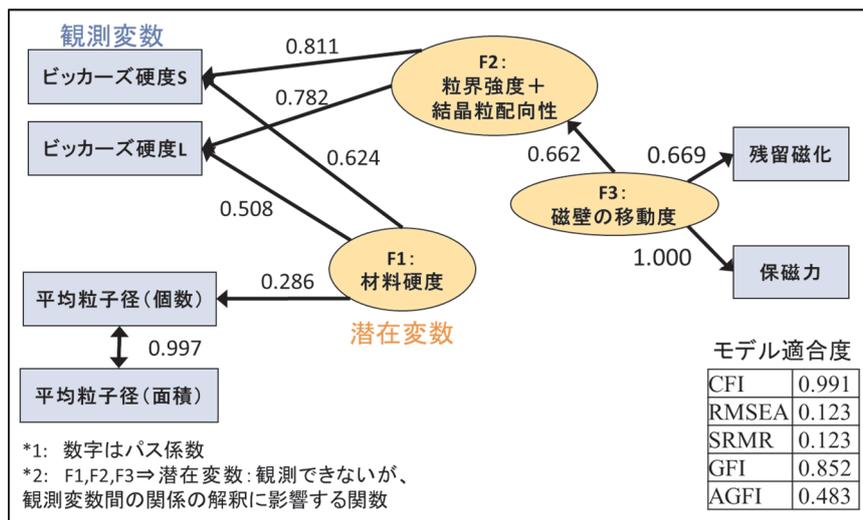
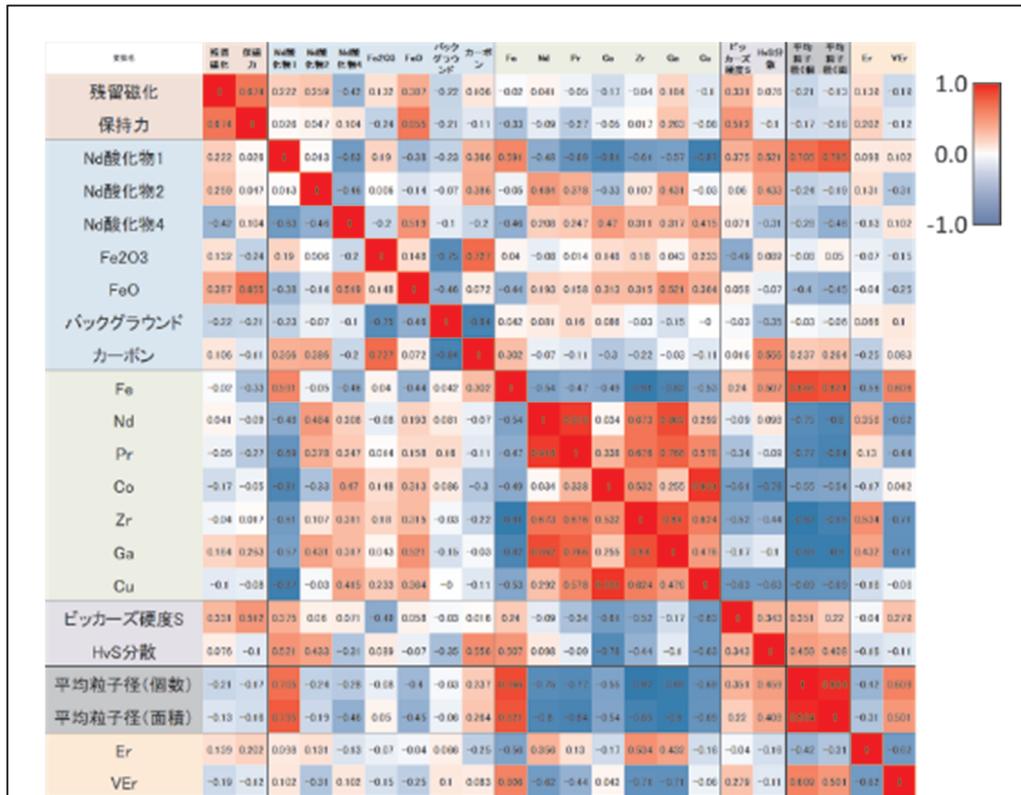


図2. 3. 3-15(b) 磁石材料における構造化ライブラリの一例

B-2 ネオジム磁石特性の相関解析(XRF元素組成分析およびラマン分光測定結果)

堀場製作所はラマン分光測定およびXRF元素組成分析データをもとに、名古屋大学と共同で磁気特性等との相関解析を行った。その概略を図2. 3. 3-16に示す。図は磁気特性(Hc、BHmax)、Nd酸化物面

積率(ラマン分光測定)、元素(XRF分析)、平均粒子径(EBSD)、ビッカース硬度の相関を一覧に示したものである。濃い赤が正の相関が強く、濃い青が負の相関が強いということが一覧で可視化されている。このほかにももっと項目を限定して相関を別形式で可視化したダイアグラムもあり、これらを統合ビューアで可視化できるような仕様とすることになっている。



Raman分光分析-XRF-EBSD 相関解析

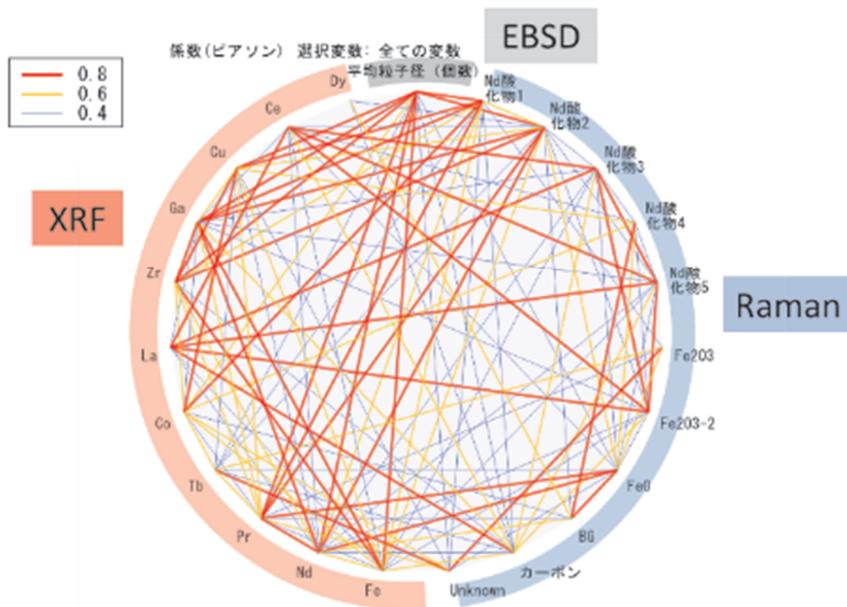


図2. 3. 3-16 各種計測手法による観測変数間の相関解析結果

[3] データ解析技術の開発とモデル実証の成果

A. タイヤ材料

A-1 顕微鏡画像からのシリカ粒子の自動抽出とソフトウェアパッケージ化

ゴム材料の物性にはゴムに含まれる粒子の配置や密度といった特徴量が関連していると考えられている。そのため、これまで顕微鏡画像に対して半分手動で粒子検出を行っていたが、時間も手間もかかるため、そこから先の分析のボトルネックになっていた。そこで、**図2. 3. 3-17(a)**に示すような U-net と呼ばれるセグメンテーションで用いられる畳み込みニューラルネットワーク(CNN)を用いてSEM画像を入力とし、粒子抽出された画像を出力させるように学習させ、注目粒子を自動抽出するモデル構築を行った。

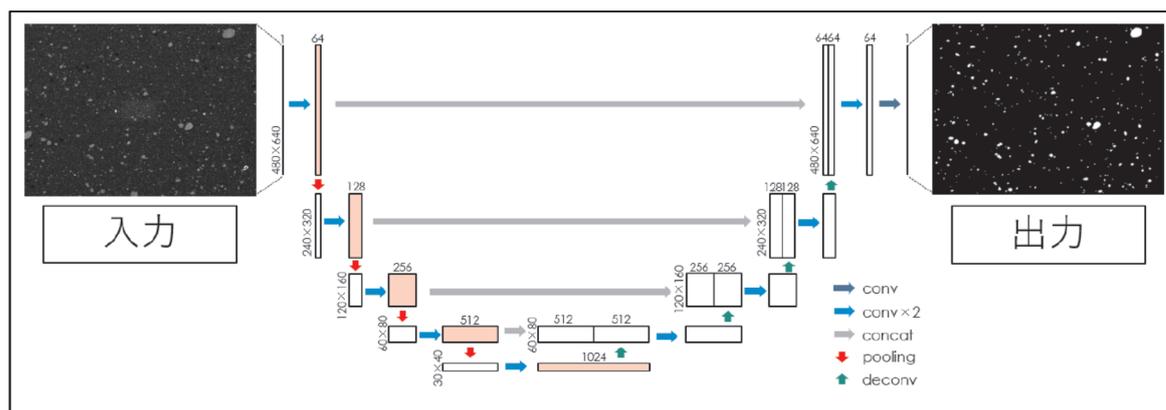


図2. 3. 3-17(a) 粒子自動抽出のためのニューラルネットワーク(U-net)

ディープニューラルネットワークの学習には通常大量の学習データが必要である。しかしながら、今回粒子抽出のアノテーションがつけられたデータの数で十分でないことが問題として考えられたため、上下左右反転させた画像も学習データとして追加する Data Augmentation の技術も併用し、269枚の画像から 1076枚に水増した。テスト画像に対する学習モデルの精度は IoU 指標で0.822 となり、従来手法の一つである大津の二値化による0.677を大きく上回った。また、単に精度だけではなく、関心の対象でない粒子(酸化亜鉛など)は除き、シリカの粒子のみを高精度に選択的に抽出することができることを確認した(**図2. 3. 3-17(b)**)。

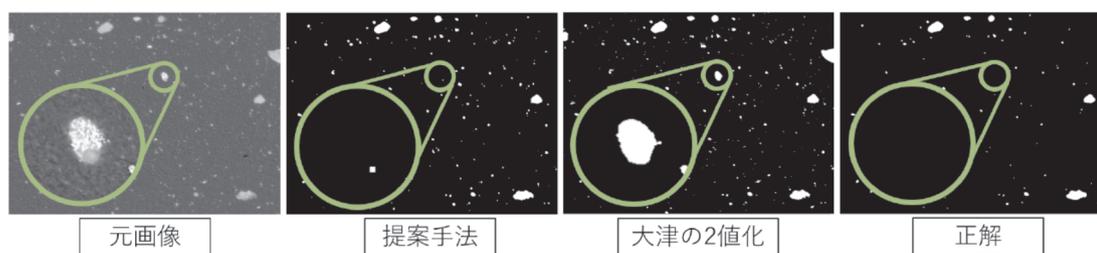


図2. 3. 3-17(b) 画像からの粒子抽出結果の比較

また、学習モデルを仮想環境の一つである Docker 上にパッケージ化したソフトウェアとして開発し、計算機プラットフォームに依存しない形で使えるようにした。これは、ディープニューラルネットワークの学習が、Python をフロントエンドとした大きなプラットフォームを前提としていて、そのソフトウェアインストールをユーザ側に課してしまうと利便性において大きなハードルとなる。そこで、ソフトウェア環境ごと学習結果を利用可能なものとして仮想環境を利用するという結論に至った。

A-2 ゴム物性に関連する特徴量の探索

それでは実際に画像の中にはゴムの物性にかかわるどのような特徴量が含まれているのかを調べるた

めに、画像から物性値を予測するニューラルネットワークモデルを構築した。具体的には、上に述べた粒子の自動抽出タスクと物性値を予測するタスクの複数を行うマルチタスク学習(図2. 3. 3-18(a)に概念図を示す)によって、比較的少ないデータ数から高い予測精度をもつ学習モデルの構築をめざした。

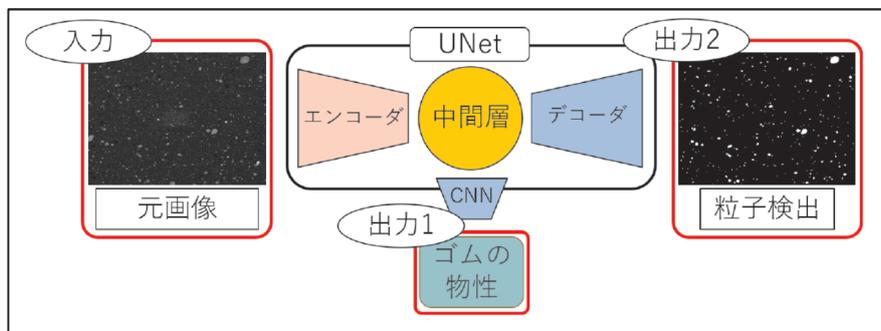


図2. 3. 3-18(a) マルチタスク学習の概念図

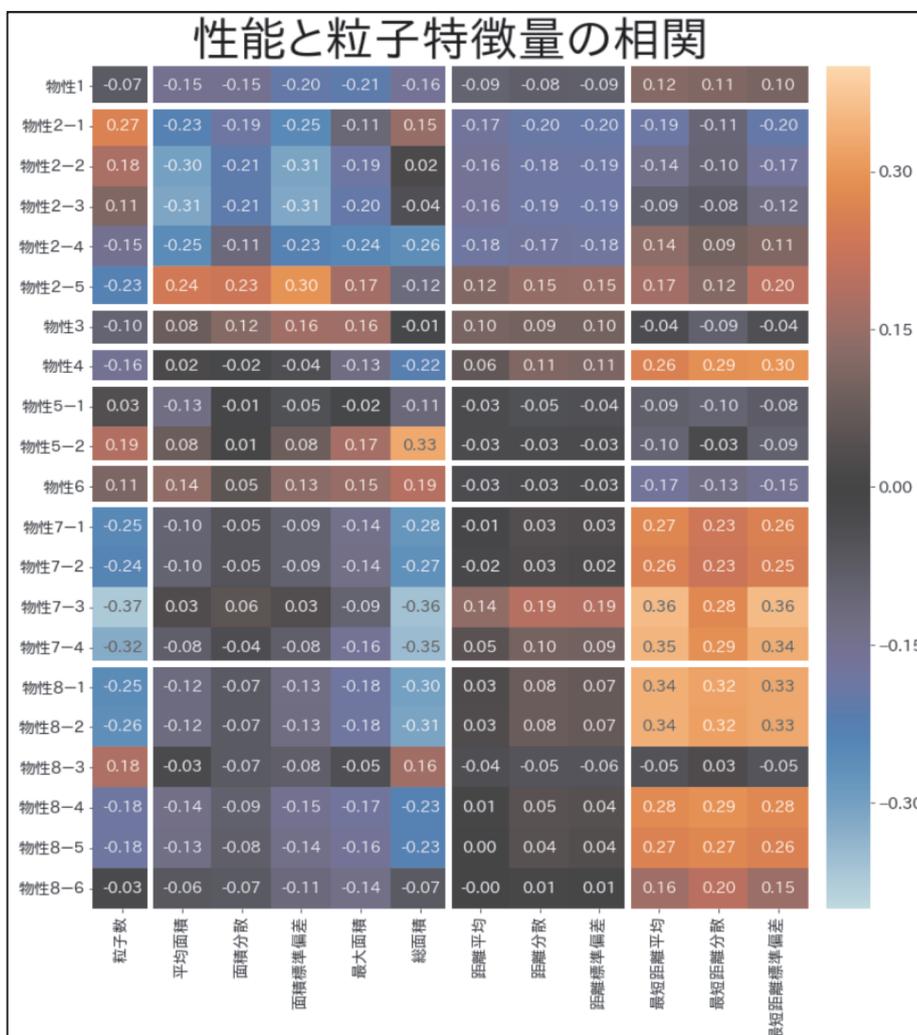


図2. 3. 3-18(b) 粒子特徴量と物性との相関値

まず、物性値がこれまで関連すると考えられている粒子の特徴量とどのような相関があるかについて相関解析を行った。物性値は(匿名化されているものが)大分類8種、小分類計21個ある。また、ディープニューラルネットワークによって抽出された粒子画像から、粒子数・面積特徴・粒子間距離特徴などの特

微量を抽出しデータ化を行った。その上で、物性値とそれらの特徴量との相関を調べた。図2. 3. 3-18(b)にその結果を示す。

その結果、いくつかの物性値は粒子の面積特徴量、距離特徴量と有意な相関がみられた。ただし、その場合でも高々0.4未満程度の相関係数しか存在しないことがわかった。そこで、粒子抽出に用いた U-net の中間層から物性値を予測するネットワークを追加し、マルチタスク学習を行うことによって予測精度を向上させることを試みた。このアーキテクチャを用いた背景として、画像から end-to-end で物性値を予測する学習を行うと、粒子抽出後の画像から予測を行うよりも、元画像から予測の方が性能が高いことが予備的な実験からわかったため、元画像に重要な情報が残っていることが考えられたためである。また、end-to-end ではどうしてもデータ数の不足で十分な学習ができないため、粒子抽出と同時並行的に行うことでタスク間の学習の転移による精度向上をねらった。図2. 3. 3-18(c)に、その学習結果の性能を示す。

いくつかの物性値については重回帰に比べれば高い相関係数0.5~0.75程度は達成した(R二乗値で0.25~0.5)。相関が低いものについては、確かに SEM 画像だけでは性能の予測が難しいであろうという議論が行われた。

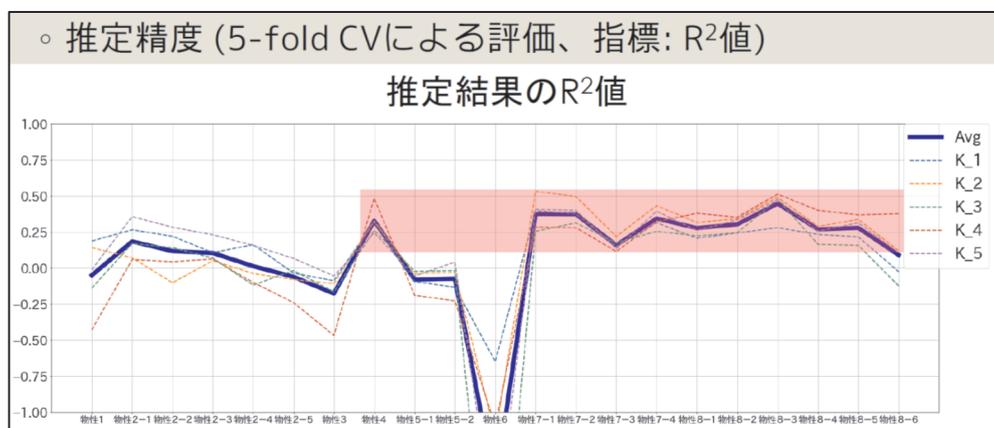


図2. 3. 3-18(c) ニューラルネットワークによる物性予測の推定精度

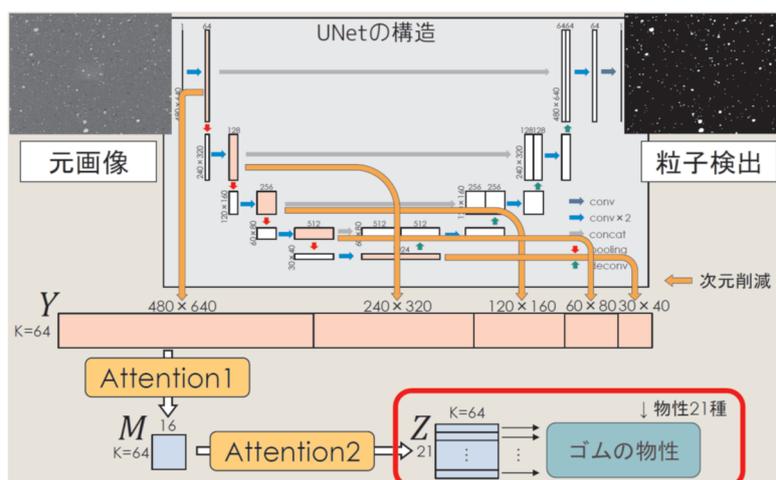


図2. 3. 3-18(d) アテンションメカニズム

次のステップとして、相関の高いものもそれほど予測精度自体は高いとは言えないので、本来の目的である特徴量の探索へと研究を進めた。その際に導入したのがアテンションと呼ばれるメカニズムであり、ディープニューラルネットワークの大量の特徴量を重要度で重みづけする仕組みを加えた学習モデルである。こうして得られた学習モデルに画像を入力しアテンションの値をアテンションの重要度を示したのが

図2. 3. 3-18(e)である。重ね合わせて可視化したのが次に示す図2. 3. 3-18(f)である。物性ごとにどの領域に注目して物性値を予測しているかが異なることがわかる。

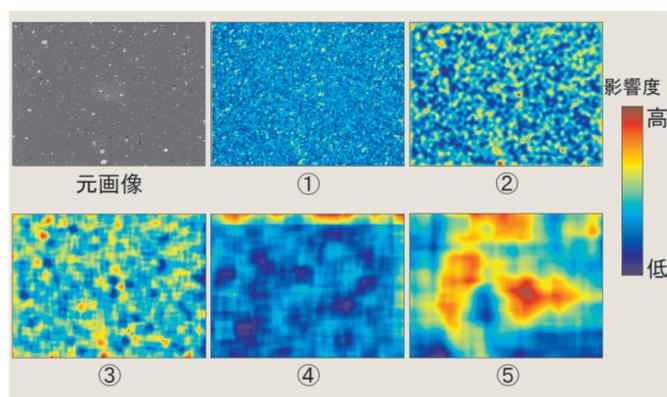


図2. 3. 3-18(e) 各階層でのアテンションの値

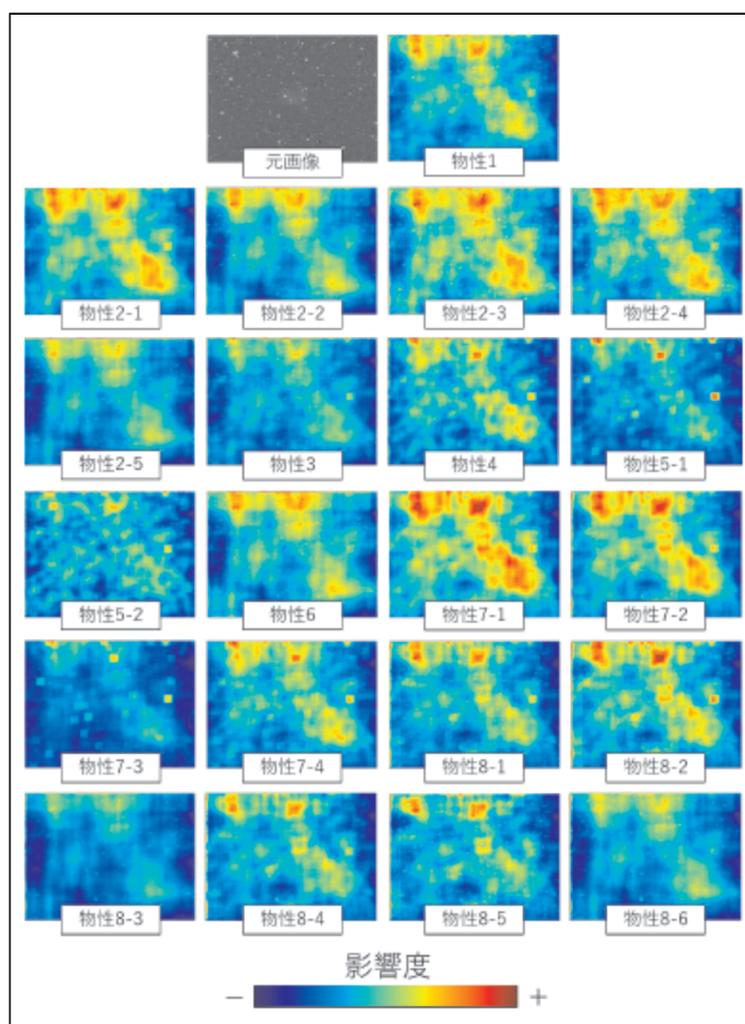


図2. 3. 3-18(f) 物性ごとのアテンション値の重ね合わせ

このような可視化技術をより進めていくことにより、具体的にどの特徴量がゴム物性に関与しているかを解釈・理解することにつながると期待される。

A-3 ユーザ機関(住友ゴム)による評価

前項A-1およびA-2に記述したように、産総研および早稲田大学により、主に画像(顕微鏡)データを中心とした粒子抽出等の精力的な検討が行われた。この結果これまで手作業が中心であったフィラーの分散状態の評価を様々なAI、機械学習の手法を用いて自動化できるようになった。また、ディープラーニングを用いて画像の平均的な部分より物性が異なりそうな領域の可視化も可能になった。

住友ゴムで取得している種々のタイヤ物性との相関関係を確認したところ、例えば、**図2. 3. 3-18(f)**の「物性2」は顕微鏡視野の比較的広い領域の特徴量と相関関係が確認できた。一方で「物性7」および「物性8」は視野の狭い領域の特徴量と相関関係が確認できた。つまり、「物性2」は、顕微鏡視野全体のフィラーの均一分散状態を反映する特徴量と相関があり、「物性7」および「物性8」は顕微鏡視野の特定の部分(例えば、フィラーの凝集している部分)と相関があることが示唆された。さらに画像領域内の可視化の検討結果から、例えば**図2. 3. 3-19**の画像のように「物性7」に関わる領域を可視化することができ、フィラーの凝集状態と「物性7」の関係をより深く理解することができた。これらの知見は経験的には知られていたが、今回の一連の取り組みで明確に相関関係として示され、新たな材料開発の指針を得ることができた。

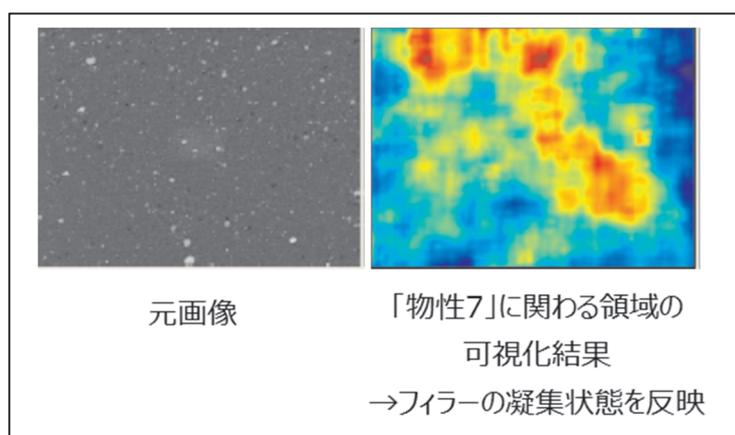


図2. 3. 3-19 物性7に関するアテンション可視化結果

B. 磁石材料

B-1 実証課題の絞り込みと分析

磁石材料の省エネ製品開発、生産性向上をなすために必要なAI活用技術開発とモデル実証を目的として、TDKと共にまずは製品開発上の律速過程となり得る問題の絞り込み、分析を行い以下の知見を得た。

- ・ 保磁力や帯磁率などの磁石特性は、磁区との関係上、結晶粒主相や副相の形状や分布など結晶粒組織に強く影響を受けるとされ、結晶粒組織の定量評価は材料開発に関わる重要な課題となっている。
- ・ 具体的には**図2. 3. 3-20**に示されるような結晶粒(界)観察SEM画像等を元に、結晶粒サイズやサイズ分布、粒の形状、配向異方性、副相の割合などの数値として特徴付けを行うための画像処理および解析が行われるが、必ずしも容易では無い。

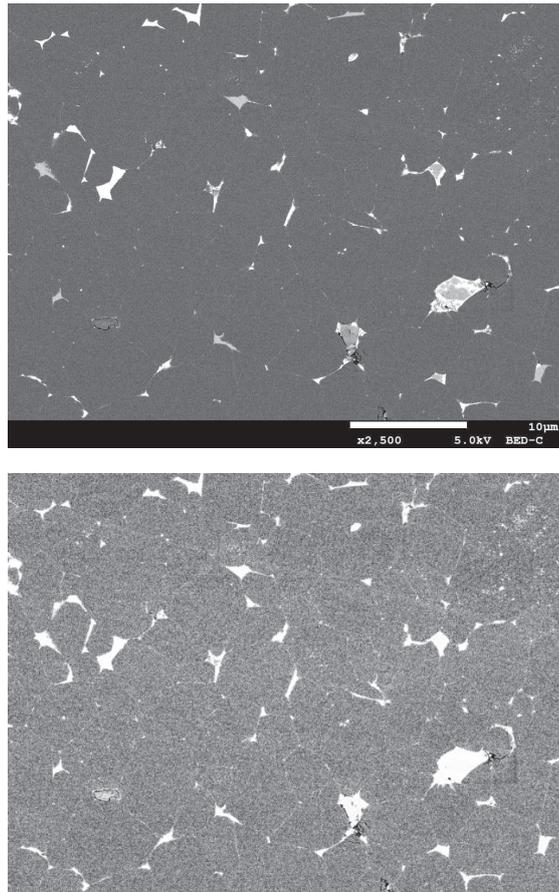


図2. 3. 3-20 上)磁石結晶粒界面SEM観察画像例(2500倍)。暗色部の主相結晶粒と白色の副相部分が混在している。副相は主相結晶粒内にも点状に分散している事が分かる。下)不要となるスケールバーを除去し、ヒストグラム平滑処理を実施したもの。

- ・ 粒界が非常に薄い場合、高倍率あってもその判別は容易でない。出来たとしても図中に見られる様な研磨痕や走査ノイズがある場合は従来のノイズ除去+エッジ強調などの画像処理手法では分離が非常に困難であるし、測定者の好み、装置メーカーによっても画像は異なるため、定型的な画像処理、パラメータ設定といったものは存在しないものと考えねばならない。
- ・ 現状では熟練者が経験と勘に基づきマウスやペン入力により塗り分けるなど、多くの時間と労力が掛かっており、生産性向上の足枷となっている。
- ・ プロセスデータ等との関係性の解析なしに、まずは上記の問題の解決だけでも省エネ製品開発につながるものと考えられる。
- ・ 開発環境としては利用者が見込めるMATLABで、まずは行う。

以上の課題の絞り込みと分析により、解析側でSEM画像を中心にこれまで画像の見た目を頼りに人間が入力デバイスで行っていた非定型な結晶粒セグメンテーション作業を機械学習やAIを用いて代替、自動化し、膨大な画像であっても気軽に形態的特徴量採取可能とすることを課題の中心とした。

B-2 イメージフィルタの近似処理学習に基づく粒界セグメンテーション

結晶粒抽出をパラメーターフリー、自動化するためには、サンプル物質の違いだけでなく、研磨痕や前処理の仕方、撮像時の倍率、加速電圧等によるコントラストや陰影、走査ノイズなど、画像毎の違いがあっても、それに影響されることなく頑健に識別処理が行えることが必要である。これは限られた範囲で予想される状況とその処理を全て場合分けし、プログラミング内で事前に記述しておく、いわゆる「ルールベース」のアプローチでは実現困難なものである。

一方、人の柔軟性と計算機の高速な繰り返し処理、両者の優れた部分を合わせ持つ処理が行えることで知られるディープニューラルネットワーク(深層学習)が各種セグメンテーション問題に盛んに適用されている。U-Net など非常に良い成績を示す事が明らかとなっており、本課題においても当然その適用を躊躇するものではない。しかしながらサンプルSEM画像や予備的実験から、通常の End-to-end でのセグメンテーションだけでは期待される結果を得るのは困難であると判断した。理由は下記である。

- ・ 「結晶粒界非常に薄く、局所的にノイズや研磨痕等の影響により判別不可能な部分が存在する」⇒ 結晶粒をセグメンテーションするのに、見えない結晶粒界(線)を見分けなければならないというのは問題設定として無理がある。⇒対応に困るセグメンテーション不能部分が生じるのならば、最初からその部分への後付け処理(補正機構)を見込んだ全体最適化を行う方が効率的である。
- ・ 「粒界と重なり合う様に存在する研磨痕や走査ノイズは明らかな識別誤差原因である」⇒無視してセグメンテーションするのもアリだが、研磨痕等を識別除去してからの方が成績は良いようだし、除去しきれず成績が上がらない場合への対応がどのみち必要。⇒ならば最初からそれを見込んで開発する方が効率的である。

結晶粒組織の形態学的情報を得るために必要なのは、結晶粒界を縁取り結ぶ粒界(線)とそれ以外(主相、副相を構成する結晶粒)とに識別された二値化画像である。ここでは通常のセグメンテーションを行う代わりに、複数の深層学習イメージフィルタを新たにデザインし、従来の画像処理の様に複数の深層学習フィルタの組み合わせにより、二値化画像を得ることとした。深層学習イメージフィルタは、下図に示すように所望するフィルタ処理をマルチスケールコンテキスト集約ネットワーク(CAN)で近似処理として深層学習させる方法を採用した。(図2. 3. 3-21参照)

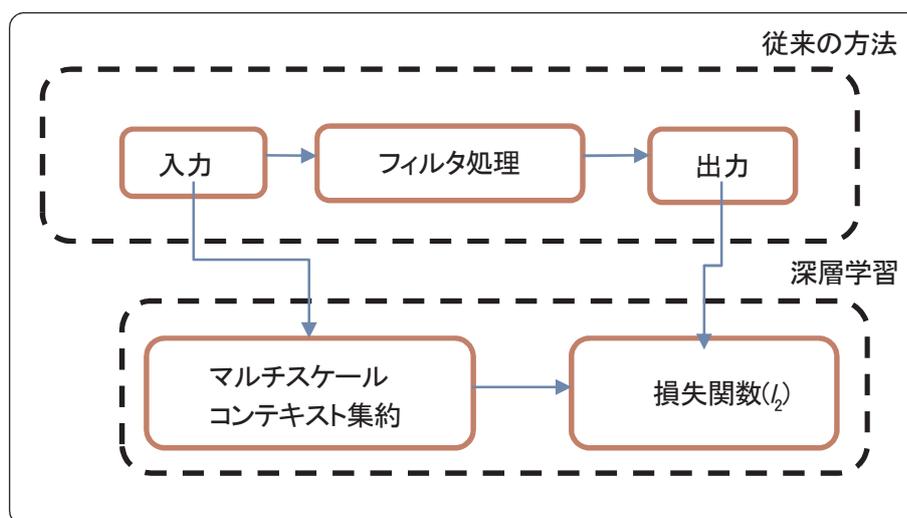


図2. 3. 3-21 従来型のフィルタ処理を、損失関数を最小化するようにマルチスケールコンテキスト集約で学習(Mathworks社MATLAB Image Processing Toolbox資料より改変)。入力、出力画像を調整することで、代替するだけでなく、ある程度新たな機能付与も可能。

上記は、学習データセットを工夫することで、目的に応じた自由度の高い画像(フィルタ)処理を実現することが可能である。そのため、むしろどのようなフィルタ処理をデザインすべきか、またそのためにはどのように学習データセットを作れば良いか? など、新たな問題が生じることとなった。しかしながら(結果論であるが)これらの問題は逆に、学習データセットを工夫さえ出来れば全体性能最適化のための自由度を得られることを意味し、End-to-end なAIによるブラックボックス化を最小限に留めた上で開発が行えるメリットとして捉えるべきものであることが分かった。

B-3 深層学習イメージフィルタの機能デザインと処理アルゴリズムの策定

SEM観察画像に対して従来型のイメージフィルタ処理を実施し、従来手法の問題点を把握しつつ、新たに必要となる深層学習フィルタの機能設計を行った。同時に精度良く最終セグメンテーションを行うための処理アルゴリズム(手順)の最適化も行った。以下図2. 3. 3-22に、最終二値化セグメンテーション画像を得るまでの処理を示す。また、それぞれの処理内容や必要性についてコメントを以下に記す。

【入力画像】(定型処理)

.bmp 等の形式で与えられる初期入力SEM画像(1280x1024画素)から画像処理の邪魔になるスケールバーや倍率が記述してある部分(多くは下部だが、装置により左端の場合もあり)を自動で除去し(1280x960画素)、ヒストグラム平滑化を用いてコントラスト調整済みの入力画像を準備。(図2. 3. 3-20を参照のこと)

【研磨痕除去】(AI化項目)

研磨痕や電子線走査に伴う線状ノイズは太さ的にも輝度的にも粒界と近い場合が多く、粒界セグメンテーションの最大誤差要因である。試料毎、撮像条件毎に違うため、定型のフィルタ処理では対応困難。人間は複数の結晶粒に跨り連なる線とそうでない線として区別している？ようなので、そのような学習データセットを作るのが課題。

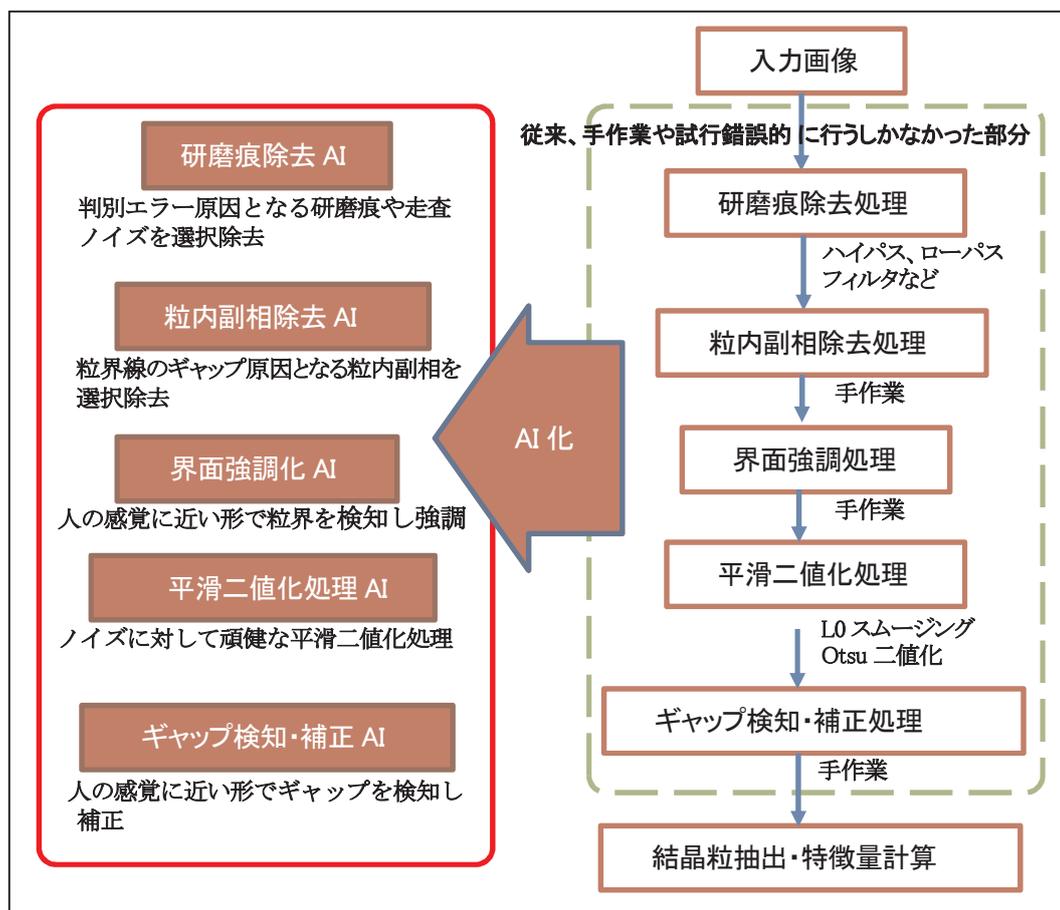


図2. 3. 3-22 必要なイメージフィルタ処理と対応AI

【粒内副相除去】(AI化対象処理)

図2. 3. 3-20に示される様に、副相は粒界面以外には主として三つ以上の主相結晶粒が接し合う三重重点領域に形成されるが、結晶粒内にも一部形成される。これらはその後のギャップ検知の中間点、起点と誤認されるため、この段階にて選択的に分離、除去が必要。

【界面強調処理】(AI化対象処理)

粒界は非常に薄く(～nm)、高倍でも画素レベル程度とのこと。そのため寄った(拡大して狭い領域を見た)場合、結晶粒内部と粒界の違いが砂嵐状ノイズ(スペckルノイズ)による区別が全くつかなくなる。一方で引いた(縮小して広い範囲で見た)場合には飛び石的な画素の繋がりを人間が勝手に見出し、粒界があるとようやく認識できるレベル。画素強度の微分処理や種々のエッジ処理では検出・強調化が困難な存在であり、人の感覚に近い形で検出し強調するほかない。

【平滑二値化処理】(AI化対象処理)

粒界「線」を強調後の画像をそのまま二値化処理しても、あるいはエッジ強調処理しても必要とする粒界線の抽出はできない。電子線照射によるスペckルノイズが輝度値的に高いものも多く、強調領域と輝度的に被るためである。線状の粒界強調領域は変えずに、比較的構造の少ない結晶粒内部のスペckルノイズだけを選択的に平滑化可能な、例えばL0スムージング処理が必要。また、同時に強調領域の途切れ(ギャップ)があれば自動で検知し、途切れ具合や周囲の様子に合わせて自動結線(補正)するのが望ましい。

【ギャップ検知・補正処理】(AI化対象処理)

平滑二値化直後の画像では、完全な結晶粒セグメンテーションが必ずしも得られるとは限らない。そのため線状の強調領域に途切れ、ギャップがあればそこを自動的に検知し、補正(結線)処理が必要である。画像解像度に応じて強調線の太さも変わったり、擦れたりするため、それらに対応したギャップ検知・補正であることが求められる。

【結晶粒抽出・特徴量計算】(定型処理)

二値化後は、MATLAB の関数機能を用いて、事前分離された副相のサイズ等の形態的特徴量、主相結晶粒のそれぞれのサイズや方位、形態的特徴量を計算する。指定ファイルにテーブル形式にて出力、研究課題3-1で作成されるマイクロ-マイクロ統合ビューアに提供。

B-4 深層学習用データセット生プログラムの作成

AI化対象処理が決まったのであれば、それを実現する学習データセットが必要となる。本課題においては、例えば研磨痕除去AIであれば、多数の研磨痕除去された画像と除去前のSEM画像の組が事前準備されてなければならないが、それらは一切存在しない。当初は十分な性能を発揮するためにはどれくらいの枚数が最低限必要なのかははっきりせず、これらをどのように準備するのが最大の課題となった。

まず初めは、結晶粒界観察画像と類似の画像、具体的には「城の石垣」や「アスファルトの路面」の写真を大量に撮影し、研磨痕を真似た線を付加することで学習データセットとして用いたが、実結晶粒界画像での除去実験結果は、あまり芳しいものではなかった。理由として、もちろん結晶粒界画像を元にしたデータセットでないこともあるが、枚数が数百枚程度しか準備できなかったことが理由と考えられる。データ増し等しても学習に十分な枚数をそろえることができなかったことを踏まえ、必要な枚数(数万、数十万であろうとも)、必要な画像内容(粒子密度、研磨痕数密度、撮像濃淡、副相の有無等、およびこれらのゆらぎ)すべて容易に変更可能な形で数値生成できるプログラムを作成することで解決した。基本的な作画アルゴリズムを図2. 3. 3-23(a)に、生成される学習データセット例を図2. 3. 3-23(b)に示す。

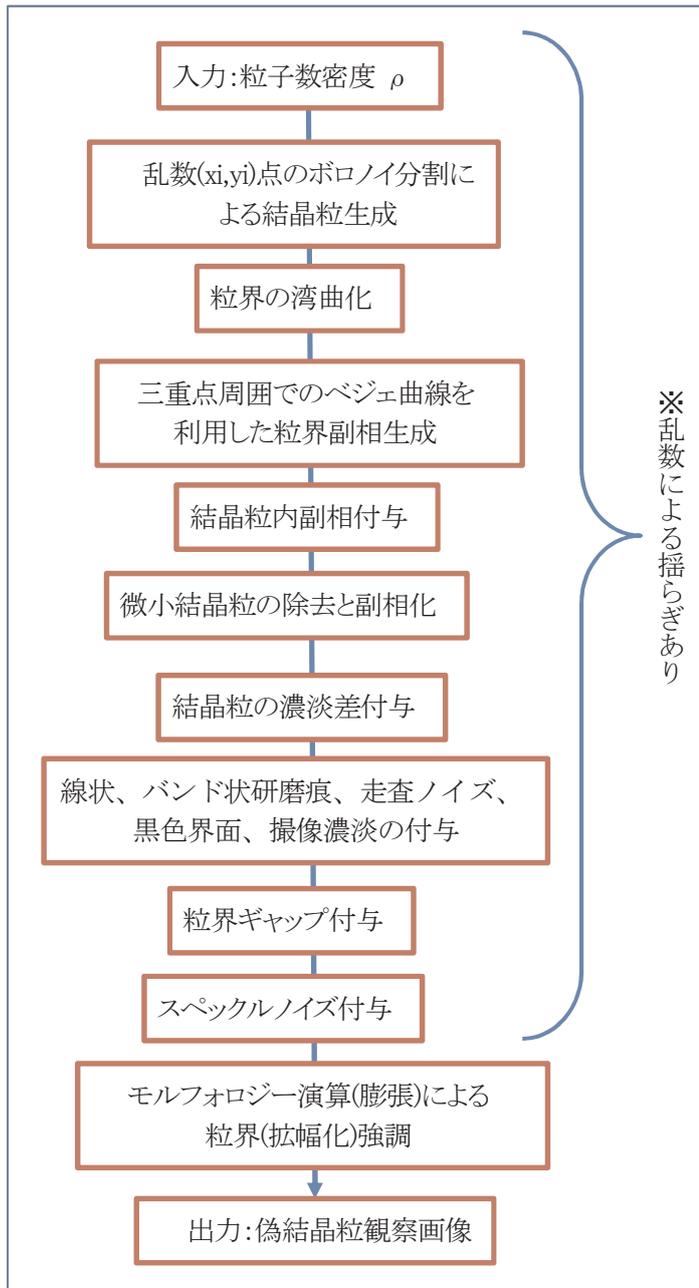
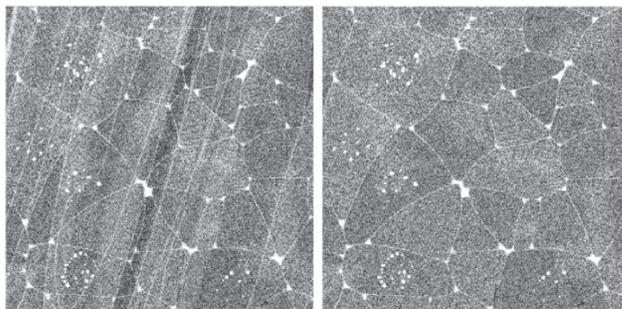


図2. 3. 3-23(a) 偽画像生成アルゴリズム

研磨痕除去



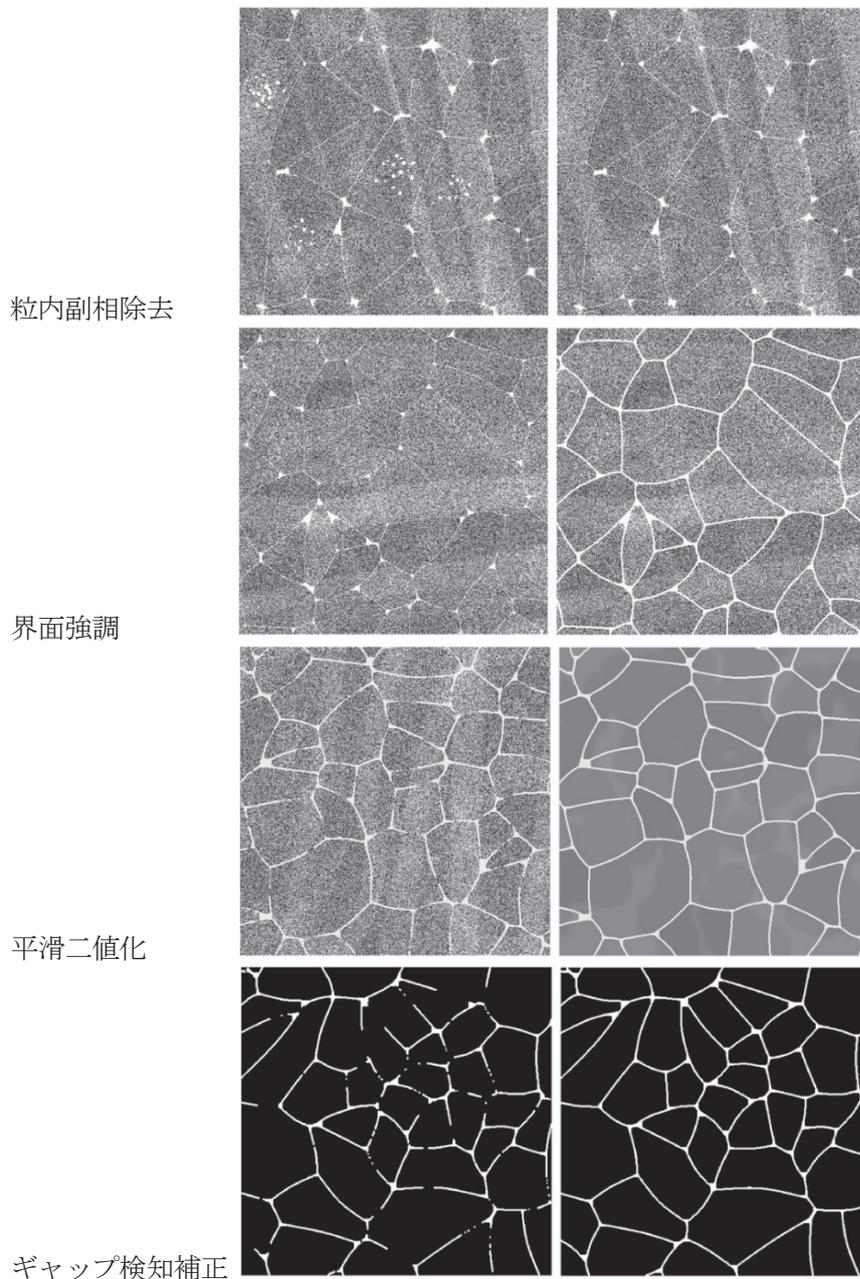


図2. 3. 3-23(b) 学習データセット例。左(512x512)から右(同)を生成するよう学習。生成プログラムは、一回作れば終わりと言うことでは無く、学習⇒偽and/or実SEM画像への適用⇒結果の確認⇒生成プログラムの修正⇒学習データセット生成⇒学習、を繰り返し、最適化を実施。

B-5 深層学習イメージフィルタ毎のテスト

学習は何れのAIにおいても5万から40万個のデータセットを用いた。実画像への適用結果を以下に示す。学習は512x512のサイズの画像で行っており、それよりも大きい実画像では縦2x横3=6枚の512x512のサイズの画像に分割、処理を実施した。

【研磨痕除去AI】

例示に用いた入力画像(2500倍)は粒界と同程度の幅と輝度を持った研磨痕が多数混在する、非常に厳しい条件のものである。一回の適用では取り切れず、都合5回繰り返し処理を行った(図2. 3. 3-24(a)右図)。粒界を除去せずに、研磨痕を選択的に除去できていることがわかる。問題は、処理に伴い副相部

分の輝度が粒界輝度に引きずられる様に低下してしまい、コントラスト低下＝検出エラーを生じ易くなってしまふことであり、偽SEM画像のさらなる最適化が必要なところでもある。

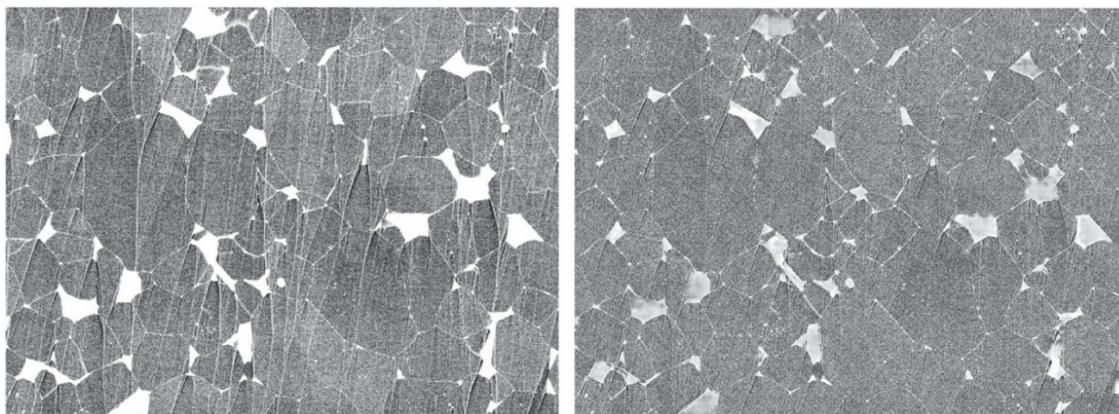


図2. 3. 3-24(a) 研磨痕除去AIの結果例 左)入力画像 右)5回適用結果

【副相除去AI】

上記とは異なる、比較的研磨痕の無い画像(2500倍)への適用結果を示す。界面強調の邪魔になる粒内副相の大部分を除去できていることがわかる。しかし、研磨痕様、残念ながら粒界面副相部分での輝度低下を引き起こしてしまっている。

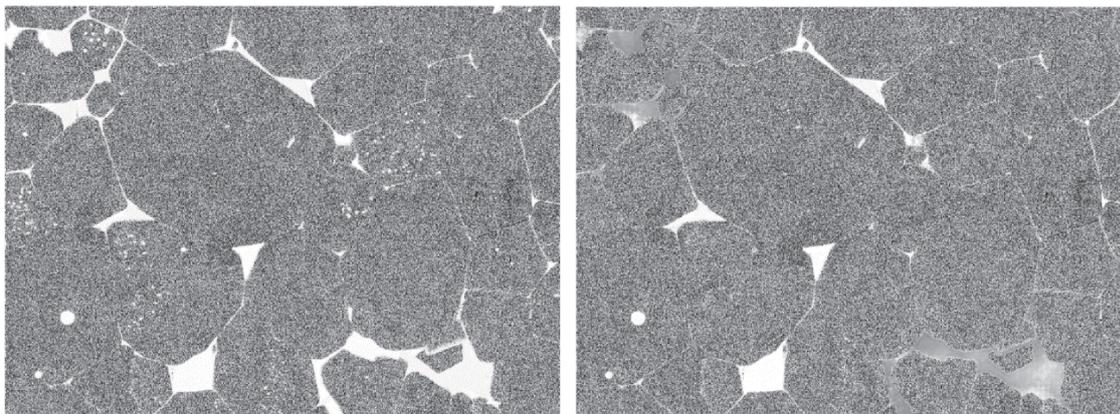


図2. 3. 3-24(b) 副相除去AIの結果例 左)入力画像(一部拡大) 右)処理画像(一部拡大)

【界面強調AI】

粒内副相除去処理せず、界面強調処理を5回繰り返し適用した結果を示す。偽画像での学習でも、本物画像の結晶粒界面のかなりの部分を自動で検知、強調できることがわかる。すべての画像とは条件が悪いものが、ここまで来るために、上手く強調できていない部分の特徴を「人」が分析し、その特徴を再現すべく生成プログラムを修正、偽画像を本物画像に似せるよう幾度となく最適化を行っていることに注意されたし。

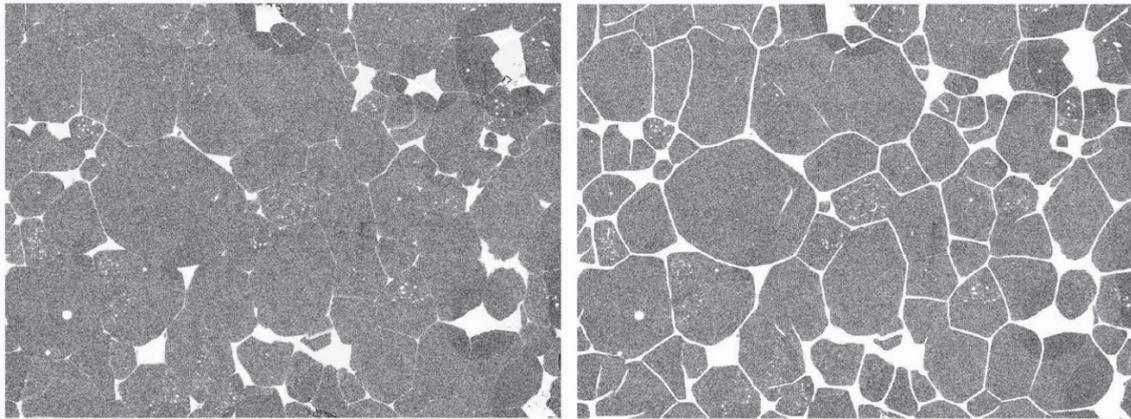


図2. 3. 3-24(c) 界面強調AIの結果例 左)入力画像 右)5回実施

【平滑二値化AIとギャップ検知・補正AI】

上記図2. 3. 3-24(c)右図に平滑二値化AIを適用した後、ギャップ検知・補正AI適用結果を示す。粒内副相を粒界三重点と誤認し、粒界ギャップを誤補正してしまう箇所が見受けられるが、人の目でも識別困難な粒界の強調から、ギャップ補正まで実行できることがわかる。

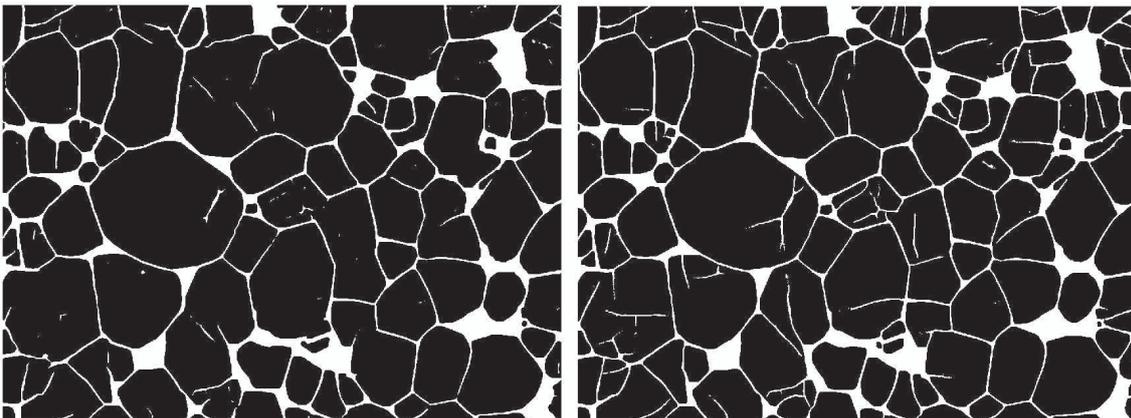


図2. 3. 3-24(d) 左)平滑二値化AIを後AIの結果と入力画像 右)ギャップ検知・補正AIの適用結果

B-6 最終セグメンテーション結果とそれに基づき計算される特徴量の出力

粒界ギャップ検知・補正後、結線されずに残る部分の除去を目的にモルフォロジー処理(クロージング)し、最終セグメンテーション画像とした。図2. 3. 3-25(a)にその結果(上)二値化画像と(下)現画像との重ね合わせを示す。赤い楕円部分は本来粒界として検知される

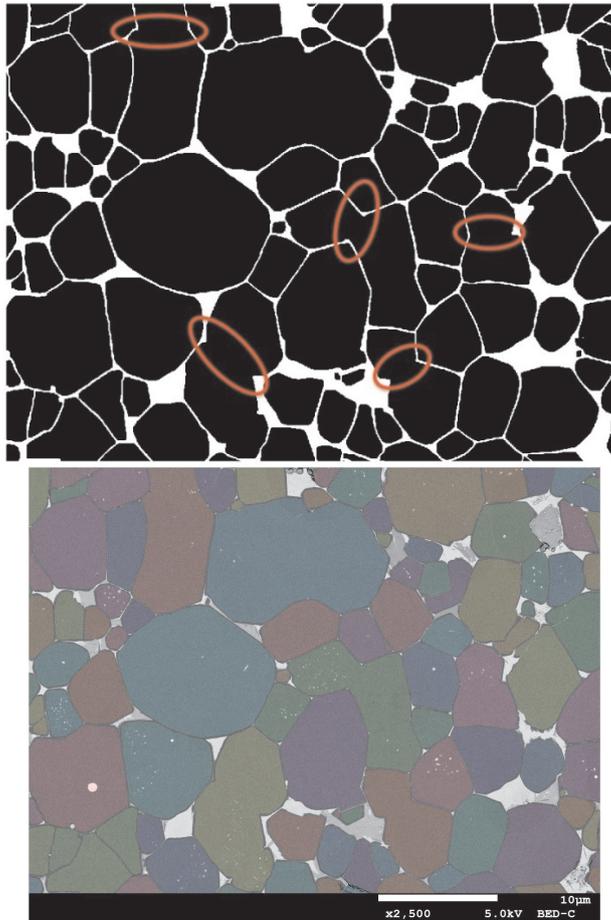


図2. 3. 3-25(a) セグメンテーション出力 (上) 二値化像、下) 入力画像との重ね合わせ

べき部分であるが、残念ながら検知できなかった部分である。粒内の副相を完全に除去出来ていない場合、三重点領域における副相との識別が難しく、検出エラーを生じてしまう様である。

この画像を元に、結晶粒の形態学的特徴量を計算し、テーブルデータとして出力する。

出力される形態学的特徴量:

- 粒面積、重心座標、楕円長軸長、短軸長、離心率、長軸角、凸包内面積、真円度、円相当直径、粒面積/凸包面積、粒面積/境界 box 面積、周長、最大フェレ径、その方位と座標、最小フェレ径、その方位と座標。(※Matlab 内であれば各粒のイメージも利用可能)

上記特徴量の英語名リスト:

'Area', 'Centroid', 'MajorAxisLength', 'MinorAxisLength', 'Eccentricity', 'Orientation', 'ConvexArea', 'Circularity', 'EquivDiameter', 'Solidity', 'Extent', 'Perimeter', 'MaxFerretProperties', 'MinFerretProperties'

	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J	K	L	M	N
1	Area	Centroid_1	Centroid_2	MajorAxisLength	MinorAxisLength	Eccentricity	Orientation	ConvexArea	Circularity	EquivDiameter	Solidity	Extent	Perimeter	MaxFeretDiameter
2	56923	85.3551991	188.6861901	367.1523094	233.7335205	0.771184361	-88.51107785	61836	0.648255256	269.2148113	0.920547901	0.581374922	1050.451	392.2958068
3	37709	68.0980403	566.4547721	318.9142673	162.9155703	0.859673188	-77.95367168	38039	0.715284202	219.1177537	0.991324693	0.713658472	813.932	324.9184513
4	19409	50.7934979	787.8690814	248.9617315	114.5191611	0.887925648	70.17036199	19944	0.569226233	157.2014832	0.97317489	0.574774935	654.582	281.7800561
5	18938	120.858433	844.0591932	274.8869084	104.5051002	0.924914619	52.26969476	20891	0.537294776	155.2823573	0.906514767	0.37779285	665.527	281.9645368
6	66016	208.900236	409.0714524	356.7708611	249.2089034	0.71559786	79.29153936	68345	0.810828515	289.9209923	0.965922891	0.641866796	1011.498	394.060909
7	17377	195.825229	915.3341198	222.4694923	111.5478264	0.865211376	12.99454726	17571	0.644800344	148.7450287	0.98895908	0.613594633	581.942	242.5386567
8	43864	265.149576	86.93664598	303.33408	200.8337389	0.744129669	-24.31438408	44154	0.769696807	236.3247329	0.993432079	0.679177505	846.306	329.2512944
9	33652	251.295049	731.877624	284.5156374	154.9779503	0.838625763	-64.41875752	35035	0.790123031	206.9953071	0.960525189	0.56489626	731.582	285.7708873
10	18177	363.139847	672.7750454	198.5826229	123.3569601	0.783662306	-48.38079769	18467	0.778771488	152.1304546	0.984296312	0.581384935	541.578	207.0603777
11	21162	361.398167	523.6614687	208.6030331	143.7754232	0.724542826	-71.22679543	22330	0.720713505	164.1471756	0.947636866	0.579463308	607.438	238.461737
12	11900	391.093697	931.5705882	231.0138418	68.12580993	0.955528351	-1.76656272	12090	0.578766792	123.0916349	0.984284533	0.877063679	508.312	215.3787362
13	37781	460.030624	823.2835288	287.7720566	178.1131111	0.785439725	8.794235507	39322	0.757274643	219.3268411	0.960810742	0.603530351	751.799	319.7561571
14	69388	499.599931	328.1794402	370.7054561	240.4103364	0.761175993	-19.2420738	70159	0.872681244	297.2331501	0.989010676	0.707326272	999.584	394.060909
15	8288	433.379344	467.4671815	197.9019038	63.9515393	0.946348527	-44.71025247	9200	0.498214963	102.7258942	0.900809565	0.342932804	457.216	197.6081982
16	38990	515.768146	112.0287766	301.7715915	172.8408793	0.819727321	31.51828218	40448	0.734022577	222.80846	0.963953718	0.646825594	817.009	345.3881874
17	2790	413.899283	23.63046595	69.55856072	56.76097731	0.578007714	33.19096	2869	0.769321406	59.60149604	0.972464273	0.668103448	213.478	80.72174428
18	5936	496.02746	595.442217	156.3142403	52.81344522	0.941193814	10.34897184	6286	0.582833453	86.9364707	0.944320713	0.631892697	357.75	159.1100248
19	459	453.688453	661.9803922	30.55772965	19.52829939	0.769154802	-85.34017026	475	0.903727936	24.17471719	0.966315789	0.833030853	79.89	31.01612484
20	2854	492.152418	16.69060967	113.2915441	35.16748925	0.950600868	12.36050662	2936	0.504141754	60.28122146	0.972070845	0.614953674	266.72	124.3261839
21	14270	559.806587	511.7639103	177.7509583	106.106518	0.802287301	31.79644732	14694	0.780700075	134.792909	0.971144685	0.680893059	479.264	200.8780725
22	14731	536.962079	678.8848008	166.483963	124.5182276	0.663778442	-84.35537458	15403	0.772088401	136.9528814	0.956372135	0.688300159	489.652	174.7340837
23	6510	556.0851	920.7430108	123.8378699	74.51068776	0.798737377	42.31529332	6971	0.695498686	91.04278904	0.933868885	0.631916133	342.963	141.4284271
24	46073	747.89791	729.828231	369.6765197	197.1034076	0.8456119200	-17.8623619	67970	0.81071019	748.9369066	0.977976619	0.817770207	976.67	371.7707607

図2. 3. 3-25(b) 結晶粒毎に得られる形態学的特徴量出力のテーブルデータイメージ

例として、結晶粒毎に計算される特徴量の出力イメージを図2. 3. 3-25(b)に示す。出力されるデータはXmail化されていないが、一般的な形式のテーブルデータであり、容易に別の解析ソフトを用いて容易にヒストグラム化したり、平均値の違いをサンプル毎に比較したりすることが出来るものである。

B-7 ユーザ機関(TDK)による評価

磁石材料のSEM観察画像データにおいて、粒界が非常に識別しにくい構造であることから、これまで、経験と勘を頼りに人の手で境界に線を入れて、結晶粒界を決定してきた。人によるばらつきの改善と従来1日1視野と非常に悪い生産性の向上が求められていた。

B-1項からB-5項に記述したように、産総研によりSEM観察画像データから粒界抽出について様々な検討が行われた。その結果、研磨痕や走査ノイズなどを除去するAI、粒内の副相を除去するAI、界面を強調するAI、ギャップを検知するAIなどが開発され、粒界を自動抽出することが可能となった。これにより、人によるばらつきを抑えることが可能となった。さらにB-6項に示したようにこの粒界を抽出した画像を元に、結晶粒の形態学的特徴量を計算し、出力することが可能となった。

ノイズ除去から粒界抽出、形態学的特徴量出力までの一連の処理が1視野辺り約100秒で行えるようになった。従来、1視野/日であった作業が、この効果によって、1日の作業時間7時間として、250視野/日が可能となり、開発スピード向上に寄与するとともに250倍の省エネが実現できた。

得られた形態学的特徴量を加えて、名古屋大学により行われた図2. 3. 3-15(a)で示された磁石材料における多変量相関図を作成すれば、物性値との相関係数の大きさから関係性の強い項目に注目して開発することが可能となり、開発スピードの短縮につながる可能性が見出された。特に図2. 3. 3-15(a)でビッカース硬度との強い相関が見出されたことは、新たな材料開発につながる一つの成果である。

(4) まとめ

実施計画に記載した課題3-3に関する最終達成目標は、次の4項目である。

- [1] 磁石材料およびタイヤ材料を対象として、材料の組成や界面構造、欠陥等の因子に関する情報を多数の計測分析装置を使って収集した結果をもとに、構造化ライブラリを試作開発する。合わせて物性との相関を誤差要因も考慮して解析し、製品の性能の予測が可能となる評価項目の候補を決定する。
- [2] タイヤ材料、磁石材料を対象にファイラ形態や粒界構造等に関する特徴量抽出とこれに基づく解析

アルゴリズムを試作開発する。

- [3] タイヤ材料、磁石材料のビッグデータ・AI活用に向け、モデル計測データやモデル解析データの授受を通して複合計測分析システムモデルの評価を行う。タイヤ材料開発の効率化に向けて共通フォーマットに変換されたデータ群の蓄積を進め、統合ビューア等を活用して、モデル部素材の構造と物性の相関を迅速に解明できるか検証する。
- [4] 磁石材料開発の効率化に向けて、多種の計測分析装置で収集された複合・補間データと粒界構造解析用統合ビューア等を活用して、モデル部素材の構造と物性の相関を迅速に解明できるか検証する。

項目[1]に関しては、図2.3.3-14(a)、図2.3.3-15(b)にタイヤ材料、磁石材料の例を示すように、構造化ライブラリを試作開発した。また製品性能を予測する評価項目に関しても、タイヤ材料に関しては材料の熱伝導率、磁石材料に関してはビッカース硬度を新に示唆することができた。

項目[2]に関しては、3-3-3 [3]項にタイヤ材料、磁石材料について詳述したように、フィラー形態や粒界構造等に関する特徴量抽出を行い、これに基づく解析アルゴリズムを試作開発した。タイヤ材料解析に向けては、フィラーサイズやフィラー粒間距離などの形態学的特徴量抽出するソフトウェアパッケージを試作開発した。磁石材料開発に向けては、実際の結晶粒界画像から特徴量を自動抽出できるソフトウェアパッケージや、開発した関数パッケージとともにMatlab機能を利用する新たな変換・表示用ソフトウェアパッケージを試作開発した。

項目[3]に関しては、島津製作所を責任機関とする計測機器メーカー4社の協力により、モデル計測データやモデル解析データの授受が可能な複合計測分析システムモデル(複合積層構造解析用統合ビューアを用いた相関解析用ソフトウェア環境)を構築した。プロジェクト期間が2年に短縮されたにもかかわらず、住友ゴムによる実証評価を行い、モデルシステムを用いることで、これまで経験的にしか知られていなかった相関関係を明確化することが可能になり、新たなタイヤ材料開発の指針を得ることが可能となった。

項目[4]に関しては、日立ハイテクを責任機関とする計測機器メーカー4社の協力により、複合計測分析システムモデル(粒界構造解析用統合ビューアを用いた相関解析用ソフトウェア環境)を構築した。プロジェクト期間が2年に短縮されたため、扱える画像解析可能な計測分析装置の種類(機種)を限定する形になったが、Nd系磁石5種類のモデル試料を用いて収集された多量な複合・補間データを活用して、構造と物性の相関を迅速に解明できることを明らかにした。

以上により、最終目標のいずれも達成した。合わせて、開発システムの総合解析を通して、研究課題1のコンバータの仕様に反映すべき今後の検討項目も明らかにした。

総括(全体のまとめ)

本事業は、部素材の各種計測分析データをサイバー空間に集約して統合的な解析を容易に行う環境作りと、ビッグデータやAI等による高度な解析技術をもとに、部素材開発の効率化(加速化)を進めるための基盤技術の開発を目的として開始した。このため、ビッグデータ時代、AI活用時代の新しい計測分析技術として提唱したCPS型複合計測分析技術を実証すること、部素材開発のモデル事例としてタイヤ材料開発、磁石材料開発を選んで、それらの研究開発の高度化・効率化を検証すること、さらにはそれらを通して省エネ効果を実証すること等を研究課題として設定した。

本事業は2018年からプロジェクト期間5年間(2018年度～2022年度)の計画でスタートしたが、政府予算の変更に伴い、2018年度と2019年度の2年間のプロジェクトに短縮となった。このため、部素材開発の効率化(加速化)による省エネ効果の実証という当初の目標も見直され、新しい計測分析技術であるCPS型複合計測分析技術の実証が主たる目標となった。

見直し後の達成目標は下記の通りである。

1)研究課題1関係

【共通データフォーマット】

計測分析装置で測定した結果に測定条件、試料処理などの情報を付与し、データの遡及性、信頼性、再現性を確保した共通データフォーマットを開発する。

【データコンバータ】

異なる計測分析装置の測定データを変換して、共通に取り扱うことを可能にする装置群のデータコンバータを開発する。

【データ収集・管理技術】

測定データのデータインテグリティ(DI:データの完全性)に関し、秘密性・安全性を確保したデータ収集・データ管理技術の仕様を作成する。

【X線検出器】

放射光施設での測定データとCPS型複合計測分析システムの測定データを連携させるために要求される機能・性能を明らかにし、X線画像検出器の標準評価プロトコルを確立する。

2)研究課題2関係

【試料ホルダ共通化】

4種類の画像検出型分析装置に適用する試料ホルダを開発する。2社のクライオ電子顕微鏡用の共通試料ホルダ(温度可変型)を試作し、汎用化への提案を行う。

【試料状態モニタ】

測定中の温度、湿度、電子ビーム照射量が測定可能なアダプタが搭載可能な仕様を作成する。

【精密位置合わせ】

複数の装置間の位置再現精度を、位置合わせマーカとアライメント法の確立により実現する。蛍光顕微鏡、走査電子顕微鏡、透過電子顕微鏡において、同一試料の観察位置を分散したナノ粒子をマーカとして3 μm以下の精度で合わせこむ測定位置合わせ技術を開発する。

【ナノ材料の均質分散法・評価法・試料調整法】

ナノ材料の液中均質分散に係る要件を確定し、分散状態評価法、分散液安定性評価法を開発する。ナノ材料等の顕微鏡用試料の調製法、展開試料の均質性評価手法を開発する。

3)研究課題3関係

【測定データの信頼性向上】

タイヤ材料の開発に使われる計測分析法4種類、磁石材料の開発に使われる3種類の手法について、不確かさ因子を検討しFish-bone図(フィッシュボーンダイアグラム:以下FBD)の基本骨格をまとめる。

【統合ビューアの作製】

2種類の統合ビューアを試作し統合ビューア技術を開発する。統合ビューアで活用される画像データ補償ツールと、計測・分析方法や試料作成等のフローの可視化ツールを試作する。

【データの収集・蓄積とライブラリ化】

磁石材料およびタイヤ材料を対象として、構造化ライブラリを試作開発する。合わせて物性との相関を

誤差要因も考慮して解析し、製品の性能の予測が可能となる評価項目の候補を決定する。

【データ解析技術】

タイヤ材料、磁石材料を対象にファイラー形態や粒界構造等に関する特徴量抽出とこれに基づく解析アルゴリズムを試作開発し、ビッグデータ・AI活用に向け複合計測分析システムモデルの評価を行う。

【モデル実証】

タイヤ材料開発、磁石材料開発の効率化に向けて、統合ビューア等を活用して、モデル部素材の構造と物性の相関を迅速に解明できるか検証する。

本報告書の前章(2. 研究開発の目標と、実施体制と成果)に詳しく記述したように、上記の目標は下記のように達成した。

研究課題1関係では、【共通データフォーマット】構造を提案し、それに基づいて、計測分析機器メーカーの実施機関4社が下記記載の装置群の【データコンバータ】を開発した。ただし、開発期間の短縮化の関係で、装置種によりコンバートする対応データを限定した。

島津製作所 液体クロマトグラフ、ガスクロマトグラフ、液体クロマトグラフ質量分析計、ガスクロマトグラフ質量分析計、赤外分光光度計)

日本電子 走査電子顕微鏡、透過電子顕微鏡、エネルギー分散型X線分析装置、電子線プローブマイクロアナライザ、核磁気共鳴装置、蛍光X線分析装置、電子線後方散乱回折装置)

日立ハイテク 走査電子顕微鏡、透過電子顕微鏡、原子間力プローブ顕微鏡、蛍光X線分析装置)

堀場製作所 ラマン分光分析装置、蛍光X線分析装置)

また【データ収集・管理技術】では、DIを確保するための仕様を確定し、【X線検出器】では課せられた調査を実施し、標準的な評価プロトコルを検討した。しかしながらプロジェクト期間が短くなったため、日本分析機器工業会の協力を得て進める予定であった評価プロトコルの確立までは至らなかった。

研究課題2関係では、走査電子顕微鏡、電子線プローブマイクロアナライザ、顕微赤外分光光度計、ラマン分光分析装置で共通に利用できる試料ホルダと透過電子顕微鏡用の共通クライオホルダを試作して、【試料ホルダ共通化】の目標を達成した。また【試料状態モニタ】が可能なアダプタを作製(仕様作製)して目標を達成し、アラインメントマーカ付き標準ホルダを用いた持ち回り試験(ラウンドロビン試験)を実施して、【精密位置合わせ】に関する目標も達成した。また1年限りのプロジェクト期間と制限されたが、【ナノ材料の均質分散法・評価法・試料調整法】も目標通り達成した。

研究課題3関係では、【測定データの信頼性向上】に向けて3種類の計測分析法の不確かさ要因を検討し、FBD図の基本骨格をまとめ目標を達成した。またタイヤ材料解析に向けた複合階層構造解析用(マクロ-マイクロ分析結果の相関解析用)と、磁石材料解析に向けた粒界構造解析用(マイクロ-マイクロ分析結果の相関解析用)の2種類の【統合ビューアの作製】を行い、合わせて画像データ補償ツールとフローの可視化ツールを試作して目標を達成した。さらに、ビッグデータやAI等による高度な解析技術の関連では、磁石材料およびタイヤ材料を対象として【データの収集・蓄積とライブラリ化】を進め、ファイラー形態や粒界構造等に関する特徴量抽出など【データ解析技術】を開発し、目標を達成した。最後の達成目標であるタイヤ材料開発、磁石材料開発の効率化の【モデル実証】は、研究期間の短縮化により統合ビューア開発、データ解析技術開発等と同時並行で進めるという困難な問題に直面した。このため実証対象は限定的になったが、タイヤ材料では手作業が中心であったファイラーの分散状態の評価を様々なAI、機械学習の手法を用いて自動化し特定の物性量の相関理解が可能になったこと、磁石材料開発ではノイズ除去から粒界抽出、形態学的特徴量出力までの一連の処理が250倍程度に加速できたことを実証し、目標を達成した。