

鉄鋼試料中水素拡散評価を目指したマルチモーダルデータ解析

青柳里果^{1,*}・秋山智美¹・鈴木菜摘¹・宮内直弥²・板倉明子²¹成蹊大学理工学部 ☎ 180-8633 東京都武蔵野市吉祥寺北町 3-3-1²物質・材料研究機構・表界面物理計測グループ ☎ 305-0047 茨城県つくば市千現 1-2-1

(2021年5月17日受付；2021年7月2日掲載決定)

Multimodal Data Analysis for Evaluating Hydrogen Diffusion in Steel

Satoka AOYAGI^{1,*}, Tomomi AKIYAMA¹, Natsumi SUZUKI¹, Naoya MIYAUCHI² and Akiko N. ITAKURA²¹Faculty of Science and Technology, Seikei University, 3-3-1, Kichijoji-kitamachi, Musashino, Tokyo 180-8633²Surface Physics and Characterization Group, National Institute for Materials Science, 1-2-1 Sengen, Tsukuba, Ibaraki 305-0047

(Received May 17, 2021 ; Accepted July 2, 2021)

Multimodal data analysis provides useful information that is not generally obtained from one of the analysis methods. In this study, time-course images of hydrogen distribution on a steel sample measured using electron stimulated desorption (ESD), scanning electron microscopy (SEM) images and electron backscatter diffraction (EBSD) images were fused to create a multimodal image data set. The fused multimodal images were analyzed by principal component analysis, least absolute shrinkage and selection operator (LASSO) and autoencoder. Each method is one of the most popular methods in each field, multivariate analysis, sparse modeling, and unsupervised learning based on artificial neural networks, respectively. The results of PCA, LASSO and autoencoder were consistent, and each method provides different aspects of the sample data information.

KEYWORDS : electron stimulated desorption (ESD), image registration, multimodal data, autoencoder

1. はじめに

金属材料の活用においては、金属材料内部に侵入した水素が材料の亀裂や破壊を引き起こす水素脆化が問題の一つとしてあげられるが、水素脆化については水素分布測定に課題が多いことからまだ十分な解明が進んでいない。近年、電子遷移誘起脱離法 (desorption induced by electronic transition, DIET) の手法の一つである電子衝撃脱離法 (electron stimulated desorption, ESD) を用いて鉄鋼試料の水素分布測定可能なオペランド水素顕微鏡^{1,2)}が開発された。水素脆性を解明するには、鉄鋼試料中の水素の存在位置を、結晶構造やその方位と関連付けて可視化することが重要である。オペランド水素顕微鏡を用いると、金属試料表面での水素分布が電子顕微鏡画像とのフュージョンが可能な程度の高い分解能³⁾で得られる。

走査型電子顕微鏡 (SEM) や後方散乱電子回折 (EBSD) からは、結晶構造や結晶方位がわかる。ここでは鉄鋼試料における水素分布と結晶構造の関係を調べるため、これらの複数手法から得られた測定データを融合して、マルチモーダルなデータとして解析することにより単独の測定手法からでは得られない情報取得を試みた研究例を紹介する。マルチモーダルデータの解析手法としては、主成分分析 (principal component analysis, PCA) などの多変量解析、スパースモデリングの代表的な手法として注目されている LASSO (least absolute shrinkage and selection operator)、人工ニューラルネットワークに基づいた教師なし手法である自己符号化器 (autoencoder) を用いた。これらの手法の特徴についても簡単に述べる。

2. 実験方法と数値解析方法

2.1 試料調整と測定

モデル試料は冷間加工で転位を入れたステンレス

*E-mail : aoyagi@st.seikei.ac.jp

SUS304 鋼で、厚さ 100 μm の薄板状、測定領域は 330 $\mu\text{m} \times 520 \mu\text{m}$ である³⁾。鉄鋼試料背面から水素を供給し、試料を介して表面に透過した水素分布を ESD で測定^{1,3,4)}した。水素分布の経時変化は、65 時間に渡って ESD で計測し、5 時間ごとの ESD 像 13 枚を得た。同一試料の ESD 測定部を含む箇所をオペランド顕微鏡に組み込まれた SEM (JAMP10, 日本電子) で測定した。さらに、オーステナイトに着目し、FCC 構造について、[001], [101], [111] の三方位を EBSD で測定し、それぞれを赤、緑、青 (RGB) の三原色の像として得た。

2.2 イメージデータフュージョン

マルチモーダルデータのイメージフュージョン³⁾では、Matlab (Mathworks 社) のイメージレジストレーション (imregister) を用いて実施した。ESD で取得した 13 枚の水素分布図は、全時間を合計した図を代表として用いた。ESD 代表図を変化させずに、SEM 像を ESD に合わせて imregister で変換した。ESD 像と SEM 像とのイメージフュージョンは、二つの像を同解像度に変化し、各ピクセルにおける強度差の絶対値の合計で評価した。全く同じ図の場合は、各ピクセルにおける強度差は 0 となり、異なるほど大きな値をとる。

次に、ESD 図と融合した SEM 像を変化させずに、EBSD の代表図を SEM 像に合わせて imregister で同様に変換し、他の EBSD 像も合わせて変換した。イメージフュージョンした測定図は、最終的に全て同じ解像度 (256 \times 256) とした。

2.3 マルチモーダルデータの数値解析

イメージフュージョンした各測定図を 256 \times 256 = 65536 行の 1 列行列に変換し、ESD で取得した 5 時間から 65 時間までの 5 時間毎の水素分布図 13 枚に対して、SEM 像 1 枚を足し、65536 \times 14 の行列とした。さらに、EBSD 像 3 枚を足して、65536 \times 17 の行列データも用意した。

測定ごとに得られる数値強度範囲が異なるため、標準化 (auto scaling) して、主成分分析した。主成分分析は、Matlab 上で動作する PLS Toolbox (Eigenvector Research 社) を用いた。SEM 像と関連する ESD 像を L_1 正則化に基づいて LASSO で選出した。LASSO は、Python 用のライブラリー group LASSO⁵⁻⁷⁾を用いた。

自己符号化器は、Matlab の Neural Network Toolbox を用いて、Kullback-Leibler (KL) divergence および L_2 正則化を課した Sparse Autoencoder で実施した。

3. 結果と考察

3.1 主成分分析

ESD 像と SEM 像を融合した 14 枚の画像 (Fig. 1) に

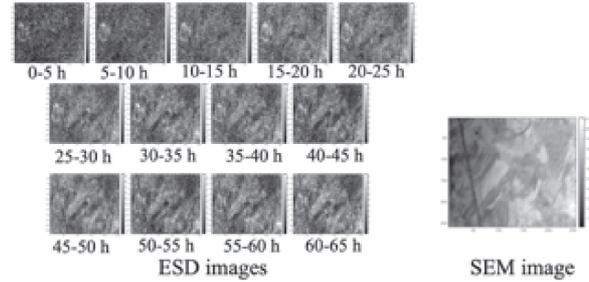


Fig. 1. ESD and SEM images after image data fusion by image registration (Matlab).

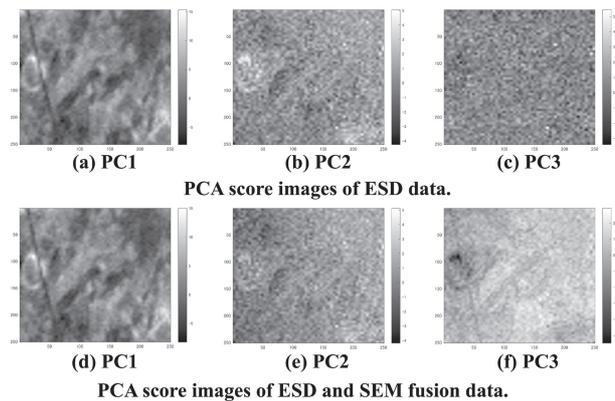


Fig. 2. PC score images of the ESD data and those of the image fusion data of the 13 ESD images and the SEM image.

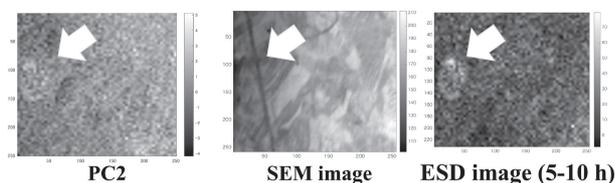
ついて、数値解析した結果を説明する。Fig. 1 に示す像から 65536 \times 14 の行列を得て、主成分分析した結果、得られた主成分得点分布図を Fig. 2 に示す。主成分 1 (PC1) は、元のデータの約 57% の情報を集約している。

ESD と SEM のフュージョンデータの PC1 の負荷量 (loading) は、Table 1 に示すように、ESD 像と SEM 像を表す全ての変数に対して正の値を取るため、PC1 の得点は、全ての変数 (13 の ESD 像と一つの SEM 像) の合計を示すが、SEM 像に対する負荷量は最も小さいため、PC1 への SEM 像の寄与は小さい。この点は、PC1 は、ESD データのみで主成分分析した PC1 とほぼ等しいこととも合致する。一方 PC2 得点図は、ESD データのみの主成分分析結果の PC2 得点図と同様ではあるが、負荷量が 2 番目に高い要素が SEM 像である。Fig. 3 に矢印で示すように、PC2 得点分布図の左端に見られる白く明るい円形の分布が SEM 像と関連があることが示されている (Table 2)。

SEM 像で白く明るく示されている部分はおもにオーステナイト構造に対応するが、PC2 得点図の左端の円形の明るい分布は、SEM 像には明確には示されていない

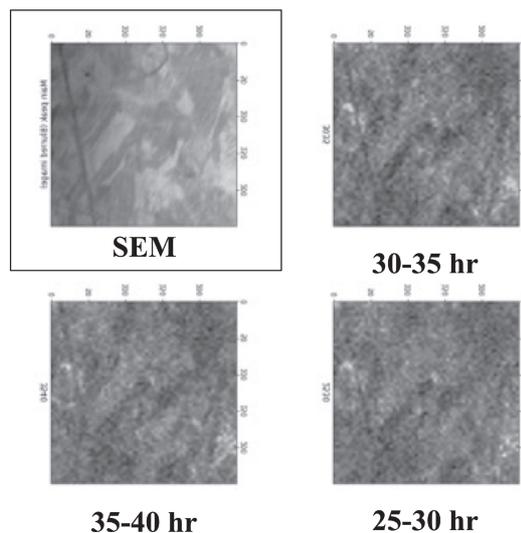
Table 1. PC loadings of PC 1 (57.16%).

Loading	Time (h)
3.02E-01	60_65
3.01E-01	50_55
3.00E-01	45_50
2.99E-01	40_45
2.98E-01	55_60
2.97E-01	35_40
2.96E-01	30_35
2.84E-01	25_30
2.81E-01	20_25
2.62E-01	15_20
2.38E-01	10_15
2.15E-01	5_10
1.79E-01	0_5
9.89E-02	SEM image

**Fig. 3.** The ring image in PC score, SEM and ESD images.**Table 2.** PC loadings of PC 2 and PC3.

PC 2 (7.62%)		PC 3 (6.29%)	
Loading	Time (h)	Loading	Time (h)
5.36E-01	0_5	8.36E-01	SEM image
5.33E-01	SEM image	1.16E-01	55_60
4.05E-01	5_10	8.45E-02	45_50
2.18E-01	10_15	8.01E-02	60_65
1.45E-01	15_20	7.12E-02	50_55
2.18E-02	20_25	5.44E-02	40_45
-6.54E-03	25_30	4.39E-02	35_40
-6.05E-02	30_35	2.86E-02	30_35
-8.21E-02	35_40	-3.48E-03	25_30
-1.64E-01	40_45	-4.16E-02	20_25
-1.82E-01	45_50	-1.44E-01	15_20
-1.98E-01	50_55	-2.46E-01	10_15
-2.01E-01	60_65	-2.68E-01	5_10
-2.13E-01	55_60	-3.30E-01	0_5

分布であり、ESDの初期の時間から見られる明るい円形上の分布に類似している。この円形の分布は、ESD像とSEM像のフュージョンデータによる主成分分析結果のPC3得点図では、暗い分布として表され、PC3負荷量からSEM像の寄与はないことが示されている。また、ESD像のみの主成分分析結果ではPC3とそれ以降の主成分からは有意な特徴が引き出されていない。こ

**Fig. 4.** LASSO suggested ESD images related to SEM image.

のように、複数の測定データを融合したマルチモーダルデータを解析することにより単独の手法からは得られない知見が得られることが示された。この分布については、EBSD像のデータをさらに加えることにより、fcc構造の特定の方位との関連が示唆されている⁸⁾。

また、同じデータセットに対して、多変量スペクトル分解 (multivariate curve resolution, MCR) も適用して解析したが、主成分分析とほぼ同様の結果が得られた。

3.2 LASSO

Fig. 4 に、SEM像との関連がLASSOによって示唆されたESDによる水素分布図を示す。

ESDによる観察像の25~40 hrの水素分布図が選ばれているが、これらの図は、ESD像とSEM像のフュージョンデータの主成分分析結果のPC2得点図で示された左端の円形の分布をはっきり示す時間帯でもある。ESD像からもオーステナイト構造に対応した分布が明瞭に見られるのは、観察終期の時間帯であるが、それらよりも中間の時間帯が関連が高い像として選ばれたことは興味深い。

3.3 Autoencoder

最後にAutoencoderで、ESDとSEMのフュージョンデータを解析した結果を紹介する。Autoencoderは、主成分分析のように、データセットから特徴を抽出する手法であるが、設定によっては非線形データに対して柔軟な情報抽出が可能であることから、主成分分析からは得られない情報が得られる可能性がある。**Fig. 5** に、ESDデータのみとESDとSEMのフュージョンデータについて、抽出する特徴サイズを5とした場合のAutoencoderによる解析結果を**Fig. 5**と**Table 3**に示す。

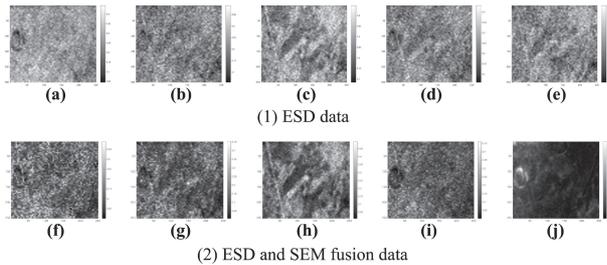


Fig. 5. Autoencoder results of ESD data (1) and those of ESD and SEM fusion data (2).

Table 3. Encoder weights of features 4 and 5 of autoencoder results of ESD and SEM fusion data.

Feature 4		Feature 5	
Weight	Time (h)	Weight	Time (h)
0.317943	55_60	0.913257	0_5
0.269734	60_65	0.820351	5_10
0.266606	50_55	0.712612	10_15
0.200716	45_50	0.563166	15_20
0.058049	40_45	0.361629	20_25
0.025241	35_40	0.353044	50_55
-0.05888	0_5	0.305837	60_65
-0.08551	30_35	0.279972	35_40
-0.09932	25_30	0.275918	45_50
-0.18306	20_25	0.258749	55_60
-0.29365	10_15	0.255854	30_35
-0.84412	SEM image	0.216895	40_45
-1.07063	15_20	0.186195	25_30
-4.54849	5_10	-3.76375	SEM image

ESD データのみの場合も、フュージョンデータの場合も主成分分析と同様に、SEM 像で示されたオーステナイト構造を表す特徴と、Fig. 3 に示した円形の分布に対応する特徴が抽出されている。ただし、Fig. 5 (j) で示される 5 番目の特徴 (feature 5) に注目すると、円形の分布のみが明確に強調されている。主成分分析結果では、円形分布以外にも明るい分布が示されていたため、いくつかの特徴が混合した状態で特徴が抽出されていたが、Autoencoder の解析結果では、抽出される特徴がより限定された結果となった。Fig. 5 (i) Feature 4 と Fig. 5 (j) Feature 5 に注目すると、Feature 5 は、明るい分布が注目する円形の分布であることから、Table 3 のエンコーダー重みが正に大きい要素と関連が深く、

Feature 4 では暗い部分が注目する円形の分布であることから Table 3 のエンコーダー重みが負に大きい要素と関連が深い。

したがって、Feature 5 は、初期の水素分布にのみ関連し、Feature 4 は、初期の水素分布および SEM 像と関連することが示された。Feature 4 の暗部と Feature 5 の明部で示される円形の分布は完全には一致せず、Feature 5 は Feature 4 で示される円形分布の辺縁部分を示す。この辺縁は水素透過が早い時期から観測されやすい構造であり、円の内部はオーステナイトと関連の高い構造であることが示唆された。

これらの数値解析結果は、水素の拡散速度のシミュレーション結果⁹⁾とも合わせて評価している。

4. ま と め

ESD, SEM および EBSD の複数の測定データを融合させたマルチモーダルデータを数値解析することで、水素分布と特定の結晶構造との関係が示唆されるなど、単一の測定手法からでは得られない情報の抽出に成功した。

文 献

- 1) N. Miyauchi, K. Hirata, Y. Murase, H.A. Sakaue, T. Yakabe, T. Gotoh, S. Takagi and A.N. Itakura : *Scr. Mater.* **144**, 69 (2018).
- 2) 宮内直弥, 岩澤智也, 村瀬義治, 高木祥示, 板倉明子 : *表面と真空*, **62**, 27, (2019).
- 3) T. Akiyama, N. Miyauchi, A.N. Itakura, T. Yamagishi and S. Aoyagi : *J. Vac. Sci. Technol., B* **38**, 034007 (2020).
- 4) N. Miyauchi, T. Iwasawa, Y. Murase, T. Yakabe, M. Kitajima, S. Takagi, T. Akiyama, S. Aoyagi and A.N. Itakura : *Appl. Surf. Sci.* **527**, 146710 (2020).
- 5) S. Bakin : "Adaptive regression and model selection in data mining problems", Theses sis/Library (The Australian National University, 1999).
- 6) M. Yuan and Y. Lin : *J. R. Stat. Soc. B* **68**, 49 (2006).
- 7) L. Meier, S. van de Geer and P. Bühlmann : *J. R. Stat. Soc. B* **70**, 53 (2008).
- 8) N. Miyauchi, T. Iwasawa, Y. Murase, T. Yakabe, M. Kitajima, S. Takagi, T. Akiyama, S. Aoyagi and A.N. Itakura : *Appl. Surf. Sci.* **527**, 146710 (2020).
- 9) A.N. Itakura, N. Miyauchi, Y. Murase, T. Yakabe, M. Kitajima and S. Aoyagi : *Sci. Rep.* **11**, 8553 (2021).