

令和4年度 中性子イメージング専門研究会
令和5年1月6日(金)、京都大学複合原子力科学研究所

機械学習を利用した パルス中性子イメージング解析の展開

加美山 隆、笠原 朋樹、大橋亜矢霞、佐藤 博隆
北海道大学 大学院工学研究院

中性子パルスイメージング法による階層的組織構造情報の可視化

中性子透過法

- ・試料深奥部までの情報
- ・広い視野

⇒ **大体積の平均的な構造情報を得るのに最適**
= 材料の基盤的な情報



局所精密測定法
(電顕やX線)

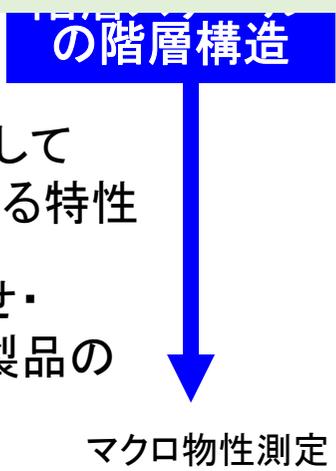
素材の
特性を支配



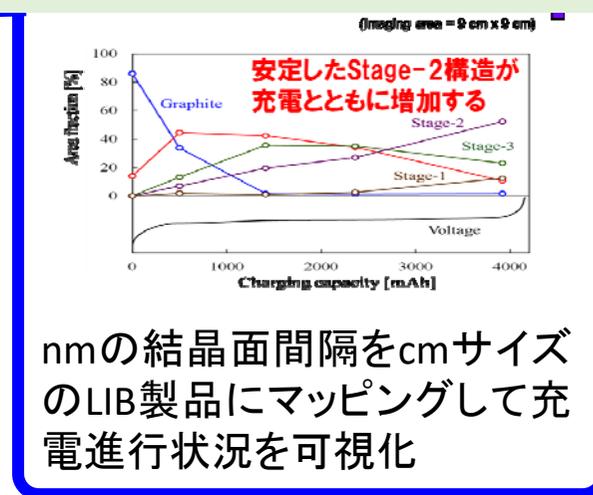
利用拡大には測定結果の信頼性を高めることが重要



素材として
利用する特性



加工・組合せ・
組立により製品の
性能を発現



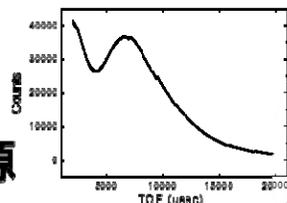
nmの結晶面間隔をcmサイズのLIB製品にマッピングして充電進行状況を可視化

パルス中性子透過イメージング法

中性子透過強度は試料による散乱や吸収の影響を受ける。

飛行時間法による
スペクトル測定

パルス
中性子源



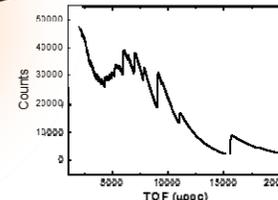
被写体



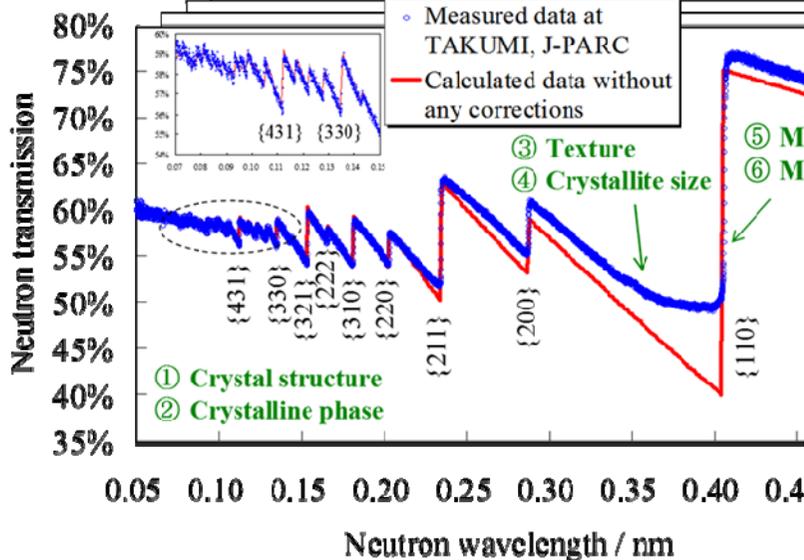
$I(\lambda)$

2次元
検出器

$I_0(\lambda)$



測定対象の実像上にスペクトル解析結果をマッピング



位置毎の
スペクトル

イメージング
対象物

中性子
ラジオグラム

**2次元マッピングには多数
のスペクトル解析が必要**

ブラッグエッジスペクトルの解析

中性子透過率

$$I(\lambda)/I_0(\lambda) = \exp(-\sigma_{\text{tot}}(\lambda) \rho t)$$

σ : 中性子断面積 V_0 : 単位結晶格子の体積
 ρ : 数密度 d_{hkl} : 結晶格子面間隔
 t : 試料厚さ F_{hkl} : 結晶構造因子

中性子全断面積

$$\sigma_{\text{tot}}(\lambda) = \sigma_{\text{coh}}^{\text{el}}(\lambda) + \sigma_{\text{incoh}}^{\text{el}}(\lambda) + \sigma_{\text{coh}}^{\text{inel}}(\lambda) + \sigma_{\text{incoh}}^{\text{inel}}(\lambda) + \sigma_{\text{abs}}(\lambda)$$

ブラッグエッジに関する干渉性弾性散乱断面積

$$\sigma_{\text{coh}}^{\text{el}}(\lambda) = \frac{\lambda^2}{2V_0} \sum_{\text{hkl}} |F_{\text{hkl}}|^2 d_{\text{hkl}} \underbrace{R_{\text{hkl}}(\lambda - d_{\text{hkl}})}_{\text{分解能関数}} \underbrace{P_{\text{hkl}}(\lambda, d_{\text{hkl}}, R_0, \langle HKL \rangle)}_{\text{干渉関数}} \underbrace{E_{\text{hkl}}(\lambda, F_{\text{hkl}}, KD)}_{\text{包絡関数}}$$

ブラッグエッジ解析コード「RITS」(北海道大学・佐藤博隆)

- ・ 結晶構造に由来する物質の断面積を複数のパラメータで再現
- ・ 結晶組織構造情報の定量化に成功
- ・ **利用はやや専門性が必要**

⇒ 非線形最小2乗フィッティングの初期パラメータ選定が難しい

0.0 0.1 0.2 0.3 0.4 0.5 0.6
 Neutron wavelength / nm
 R_0 : March-Dollase係数 (結晶粒配向の度合)
 $\langle HKL \rangle$: 優先方位

0.0 0.1 0.2 0.3 0.4 0.5 0.6
 Neutron wavelength / nm
 KD : 結晶子サイズ

スペクトル解析の高信頼化の試み

パルス中性子ブラッグエッジイメージング法

結晶組織の微細情報の空間分布を人間のスケールで可視化することに成功
歪/残留歪の空間分布、LIB陰極層間構造の充電による変化、マルテンサイト分布、
文化財(日本刀)の材料組織分布の非破壊可視化、…

パルス中性子イメージング法の次のステップのために

- ・ 結果の信頼性を高めたい
- ・ 多数のスペクトルを短時間で処理したい
- ・ スペクトル解析から専門性を排除したい



これらの根底にある課題

スペクトルの多変数フィッティング解析では一般に**非線形**
最小2乗フィッティングを行う = **初期パラメータ選定が難しい**

解決方策：測定データのみを入力とする**データ駆動型解析**の採用

- **直接推定法**：スペクトル形状を直接解析してパラメータを推定
- **機械学習法**：パラメータが異なる多数の教師用スペクトルと
実験データを比較してパラメータを決定

機械学習によるスペクトル解析

基本的な手順：教師有り機械学習(KNN法)

教師用スペクトルとの比較から、近いもののパラメータを用いて最尤値を計算

1. 様々なパラメータ値を持つ教師用スペクトルを多数用意
2. 機械学習コードに教師用スペクトルデータセットを読み込ませ、スペクトル識別モデルを構築
3. 測定したスペクトルを読み込ませ、教師用スペクトルとの類似度で識別モデル内の座標を判別しパラメータを決定

教師用スペクトルデータセットの準備

スペクトル識別のため、多数の教師用スペクトルを準備する必要がある

- 断面積モデルスペクトル計算コードを利用
- 実測データを利用

オプション：教師無し機械学習(PCA解析)

スペクトル間の違いができるだけ大きく表れるように変数(次元)を機械的に決め、変化の大きい順番に新しい変数(次元)として採用

- ✓ 変化の小さい変数(次元)を無視することでスペクトル判別時のデータ量を削減し計算効率を高める(=次元削減)
- ✓ 機械的に抽出した特徴を表す変数による分類に応用可能

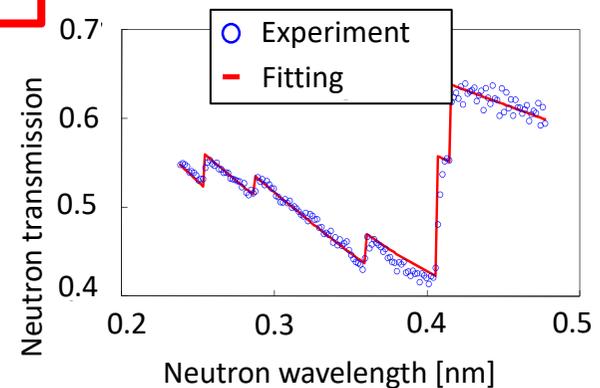
～ 教師有り機械学習の例 ～

断面積モデルスペクトル計算コード
を利用した機械学習解析

断面積スペクトルモデルの計算コードの利用

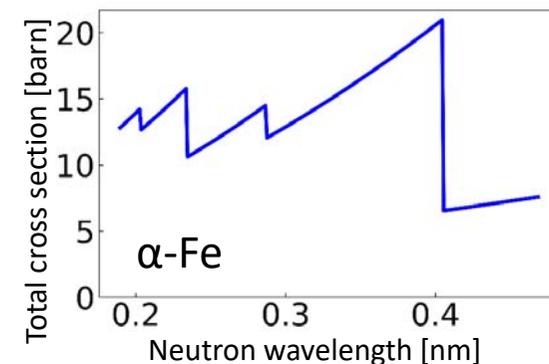
低速中性子透過率スペクトル解析コード RITS

- 複数のモデルを組み合わせた関数から中性子透過率スペクトルを計算
- 非線形最小二乗フィッティングによりモデル関数の結晶組織構造パラメータを精密化



RITSによる微視的全断面積計算

任意の結晶組織構造パラメータ値を用いてモデル関数による中性子全断面積をシミュレーション計算可能



RITSを用い多数のパラメータを変化させながら教師用スペクトルを計算

解析試験用実験データ

1405年(室町時代)に製作された日本刀「則綱」

- データ提供: 鬼柳先生、J-PARC及川さんらによる日本刀実験グループのご協力
- 比較用データ: 佐藤らによるRITS解析結果 (H. Sato *et al.*, Mater. Res. Proc. 15 (2020) 214)

測定試料



- 材質: 鋼
- 試料サイズ: 全長97 cm
- 測定箇所: 刀の切先・中央部・茎の3箇所

実験条件

- 中性子ビームライン: J-PARC MLF BL22「螺鈿(RADEN)」
- 飛行時間(TOF)分析型中性子イメージング検出器: nGEM検出器 (検出面積10 cm × 10 cm, 画素サイズ0.8 mm × 0.8 mm)
- 実験時間: 刀の切先7.1時間・中央部8.4 時間・茎8.2 時間

RITSを用いた教師用スペクトルの作成

RITSモデルのパラメータと教師用スペクトル作成の方針

- V_0 (単位格子体積), d_{hkl} (格子面間隔), F_{hkl} (結晶構造因子): 標準 α -Feに固定
- pt (試料面密度): 教師用スペクトルでは一定値に固定
→ 実験スペクトルを直接推定法による推定面密度で規格化して解析
- R_0 (March-Dollase係数), KD (結晶子サイズ): 教師データで変化させるパラメータ
- HKL (優先方位): 初期トライアルでは比較用RITS解析結果に固定

初期トライアル時の教師データ作成条件

- 結晶構造は α -Fe (BCC構造)
- 集合組織の優先方位は $\langle 210 \rangle$ に固定

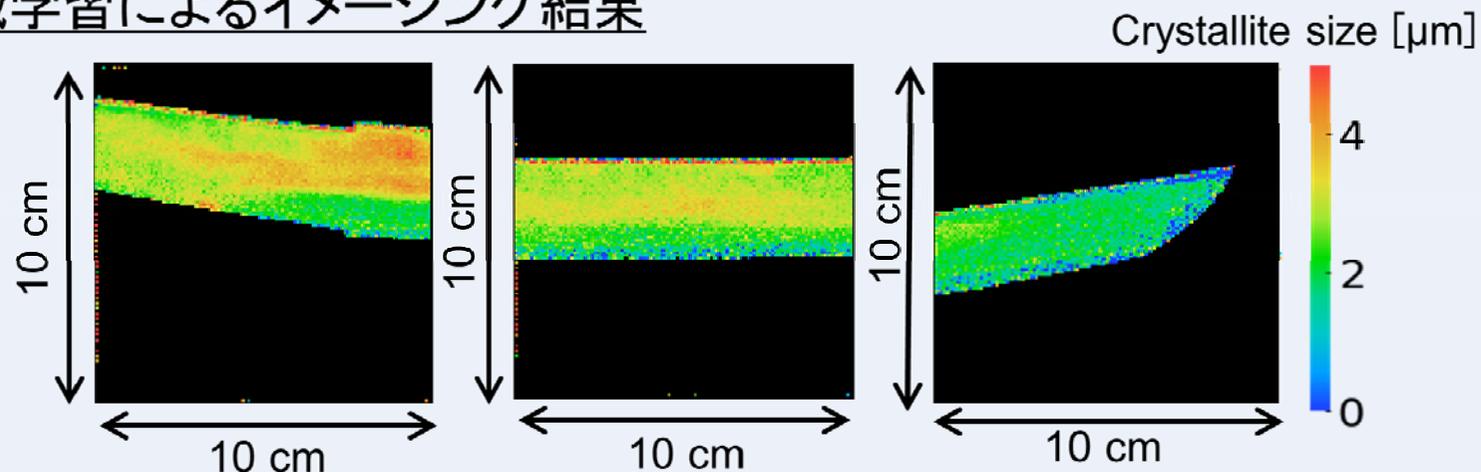
構造パラメータ	最小値	最大値	刻み幅
結晶子サイズ	0.0 μm	5.0 μm	0.1 μm
集合組織係数	0.0	3.0	0.1

教師データセット内のスペクトル数は、合計**1581**本

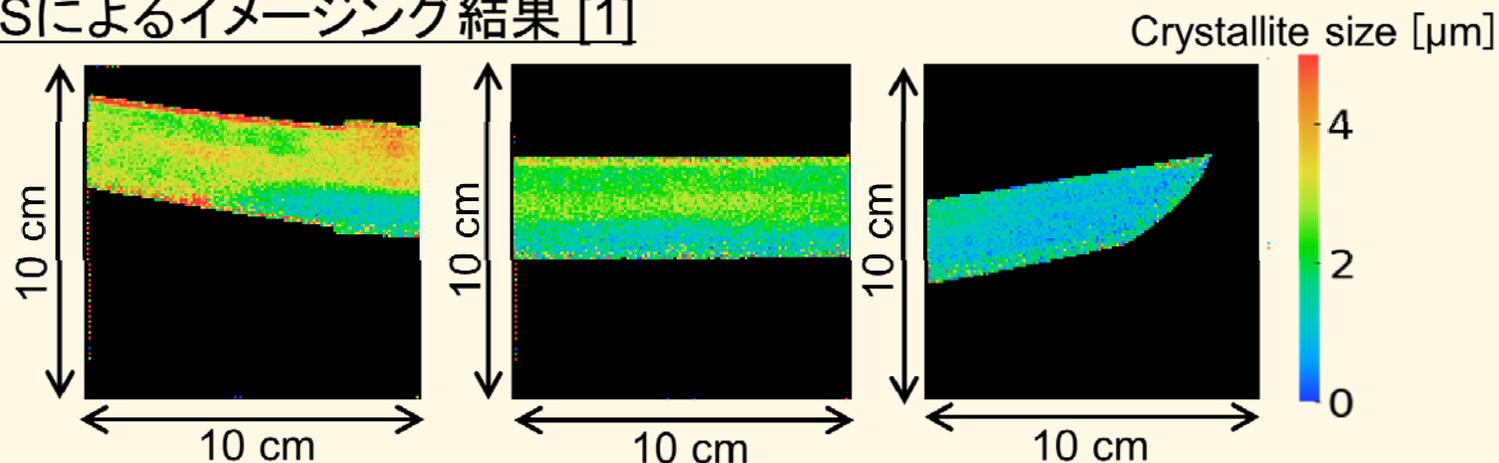
→PCAによる次元削減とKNNによる教師有り機械学習を実施

機械学習による解析結果～結晶子サイズ

機械学習によるイメージング結果



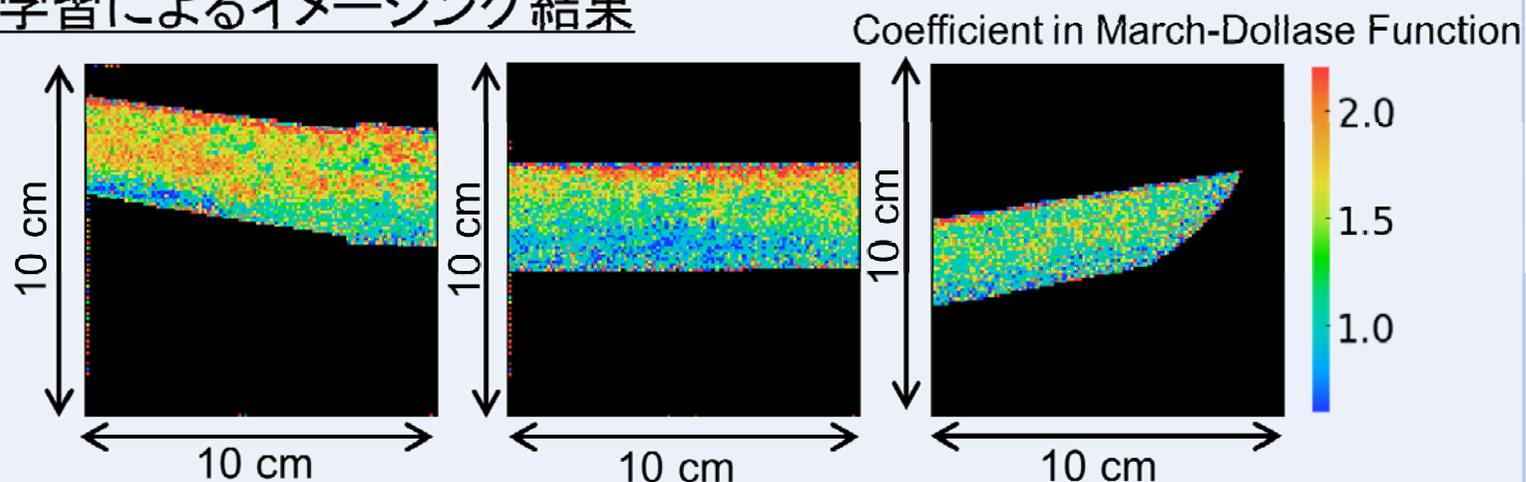
RITSによるイメージング結果 [1]



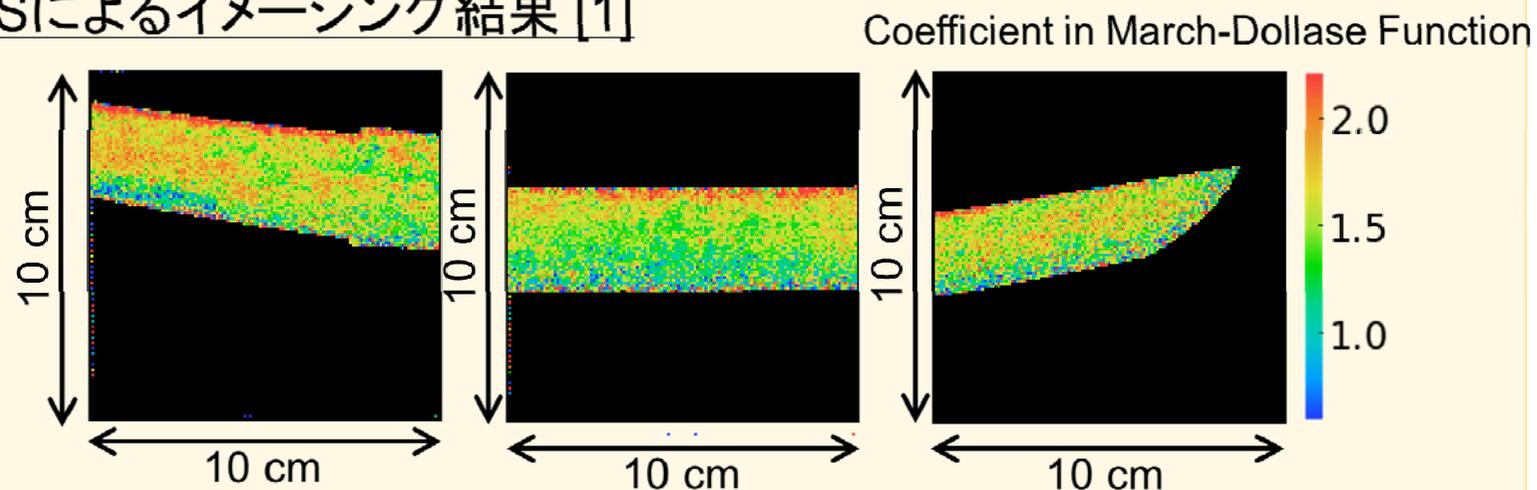
[1] H. Sato *et al.*, Mater. Res. Proc. 15 (2020) 214-220.

機械学習による解析結果～March-Dollase係数

機械学習によるイメージング結果



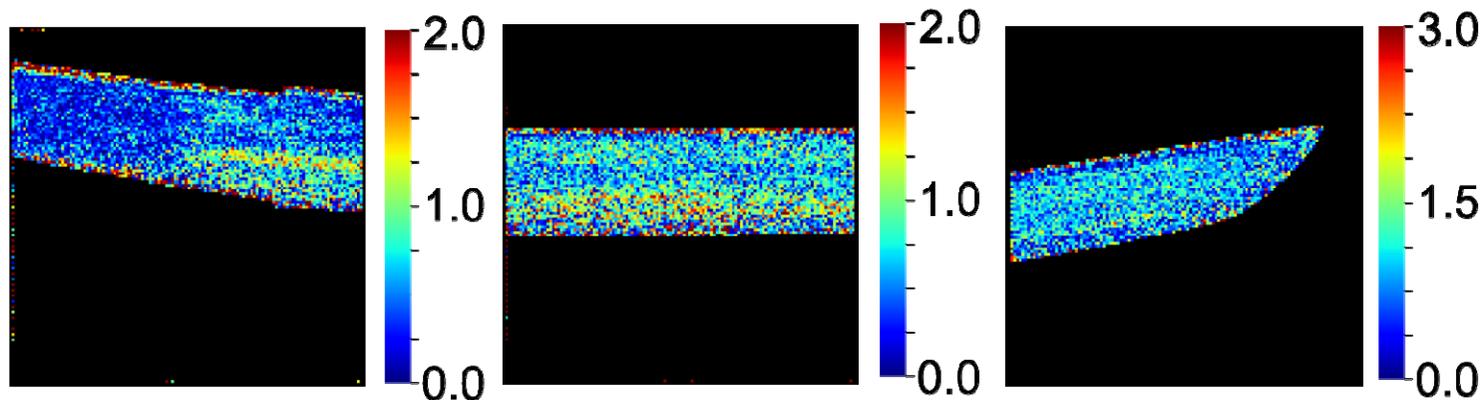
RITSによるイメージング結果 [1]



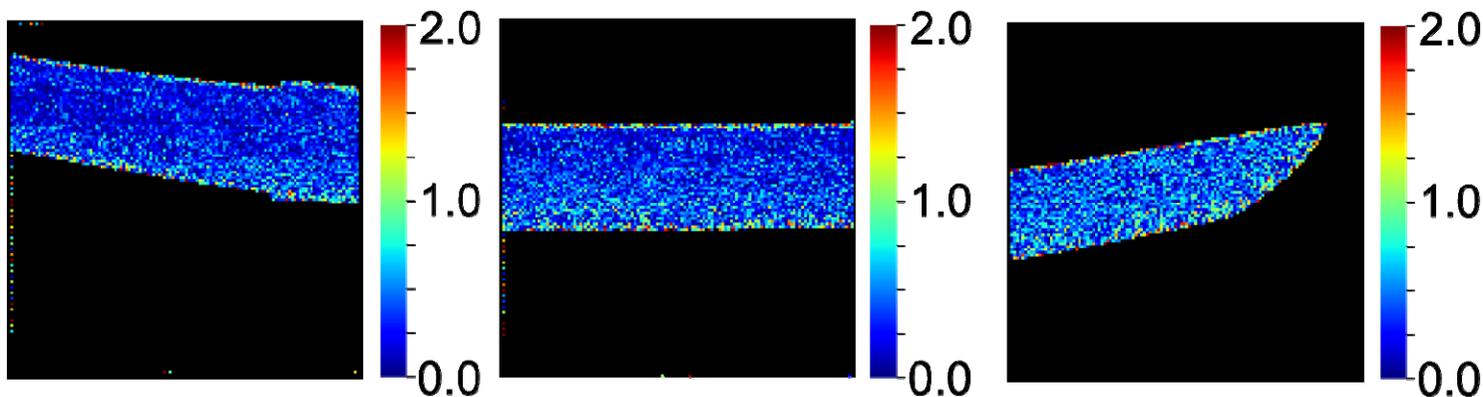
[1] H. Sato *et al.*, Mater. Res. Proc. 15 (2020) 214-220.

機械学習法とRITS解析結果の違い

両者の解析法で得られた結晶子サイズの解析結果の差の絶対値



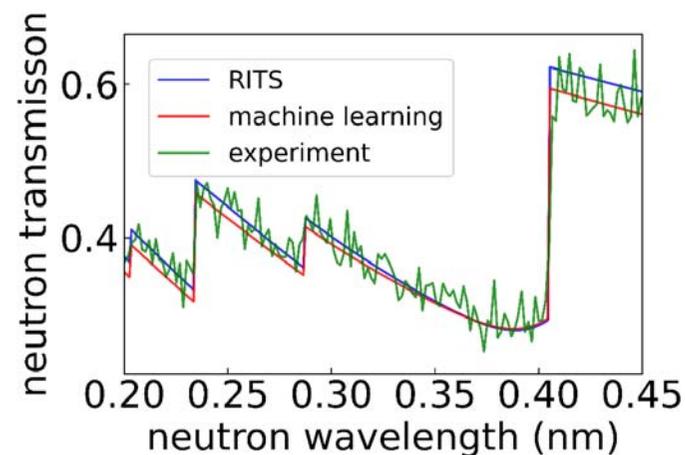
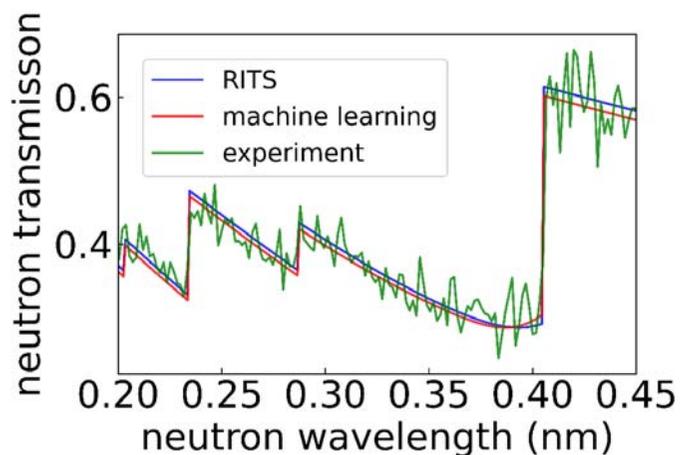
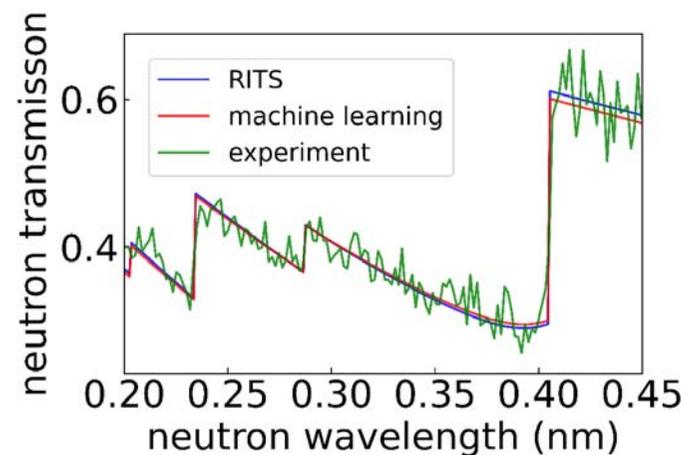
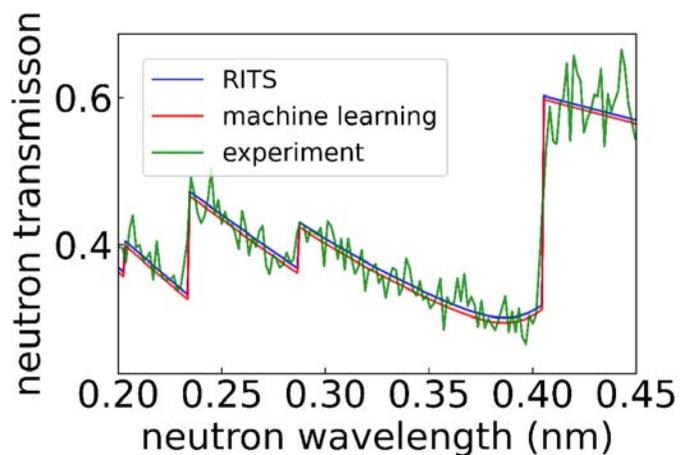
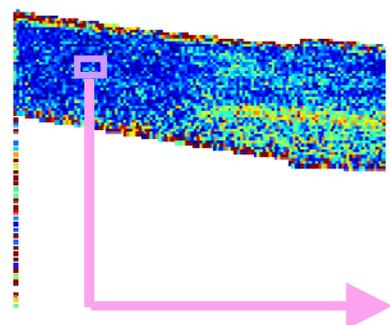
両者の解析法で得られたMarch-Dollase係数の解析結果の差の絶対値



機械学習解析結果を用いた再構成スペクトル(1)

[茎領域] 機械学習とRITSの差が小さい位置

結晶子サイズの差

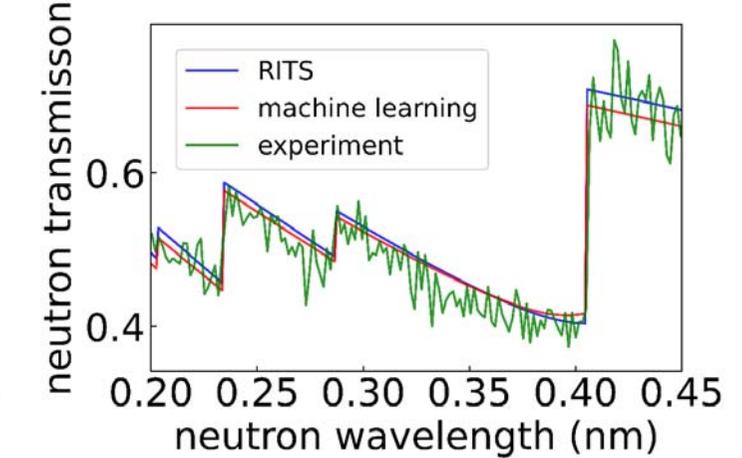
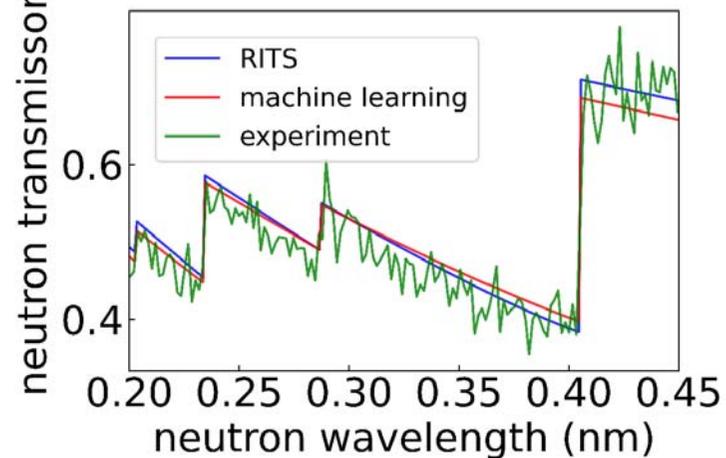
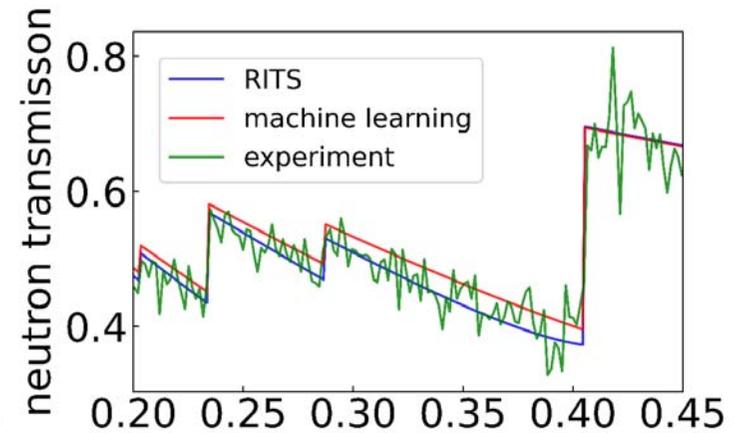
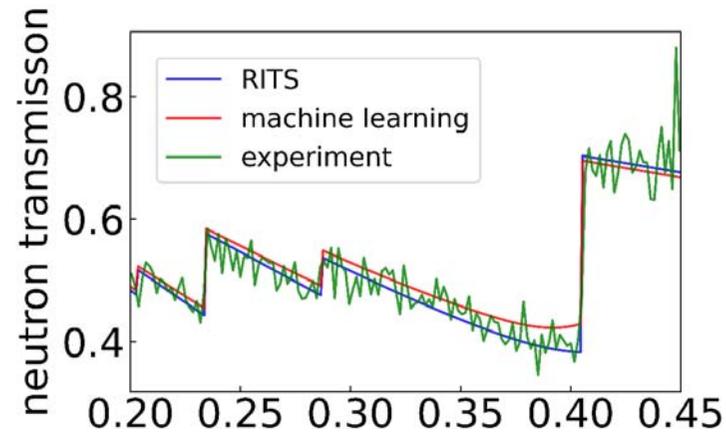
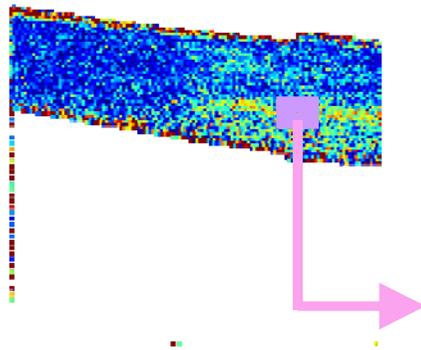


機械学習とRITSの結果は比較的よく一致

機械学習解析結果を用いた再構成スペクトル(2)

[茎領域] 機械学習とRITSの差が大きい位置

結晶子サイズの差

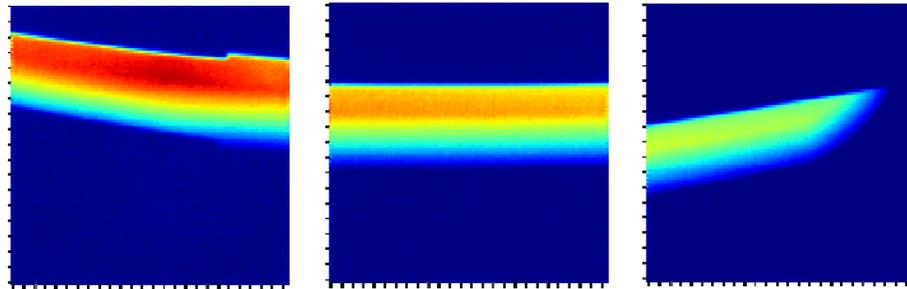


機械学習の結果は実験値から離れている傾向

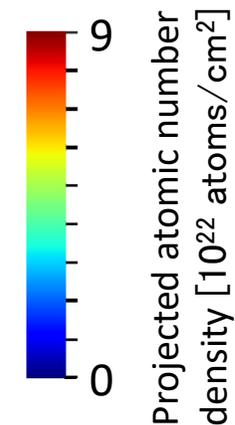
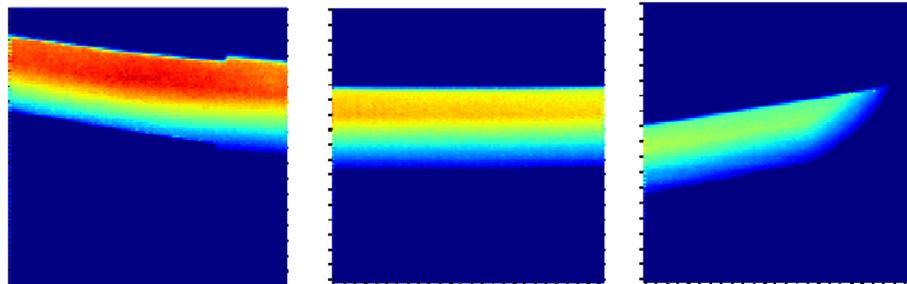
結晶子サイズに差が出る原因

- ✓ 結晶子サイズは長波長側ブラッグエッジのエッジ高さから判定
- ✓ エッジ高さは面密度 ρ_t 決定の正確度が強く影響
- ✓ この解析において ρ_t は測定スペクトルを中性子波長 $\lambda=0$ へ外挿した値から推定

直接推定法



RITS



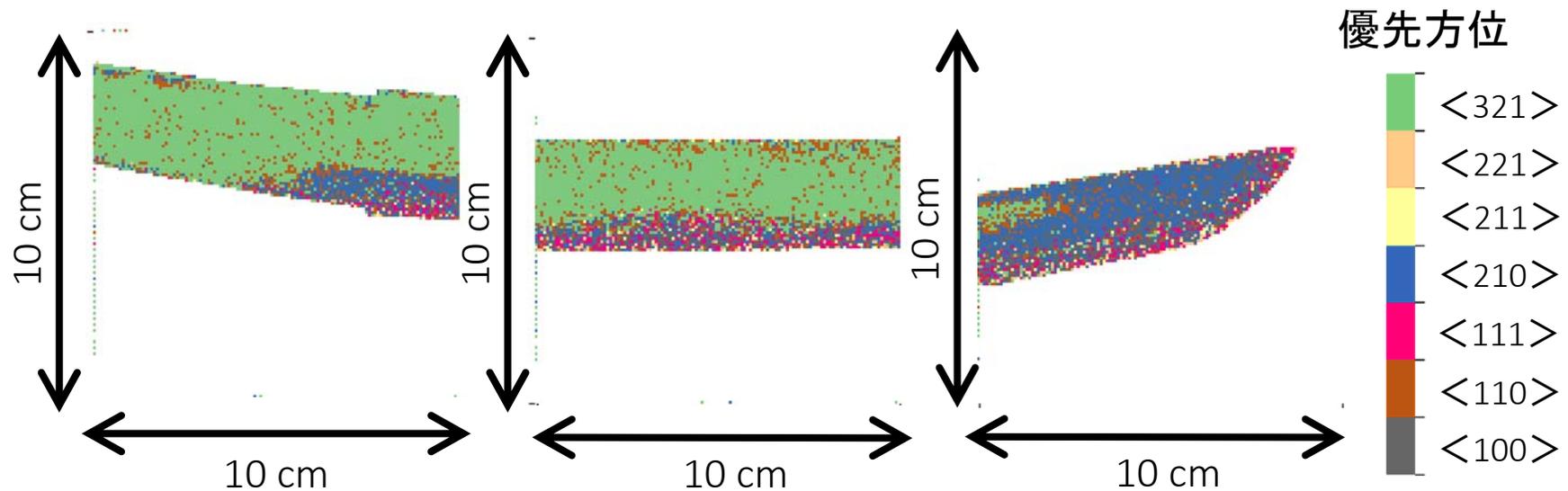
現在の機械学習法では面密度を変数パラメータとして扱っていない
→ 面密度推定の精度改善が必要

優先方位解析の可能性

教師データセットの作成

<100>, <110>, <111>, <210>, <211>, <221>, <321>の7方位について、

構造パラメータ	最小値	最大値	刻み幅
結晶子サイズ	0.0 μm	5.0 μm	0.1 μm
March-Dollase係数	0.1	3.0	0.1



優先方位は部位/部材により異なる？

→ 面密度推定を含めた機械学習法の改善が必要

～ 教師無し機械学習の例 ～
実験データを直接利用する
機械学習解析

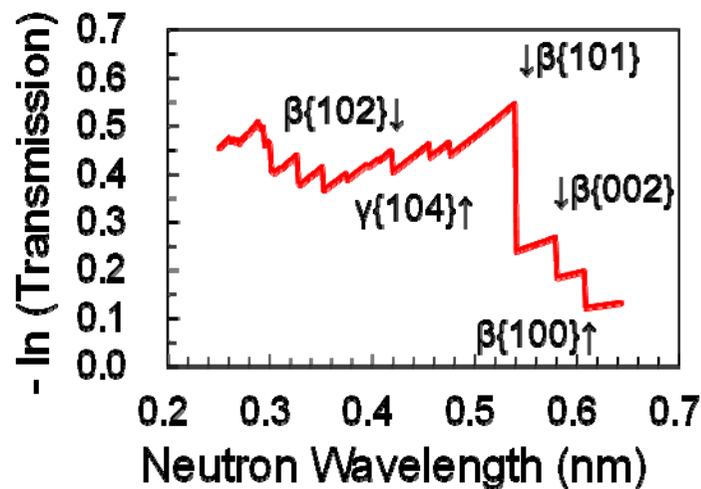
機械学習法によるPb-Bi共晶合金(LBE)の凝固組織の分類

中性子透過実験によるPb-Bi共晶合金(LBE)の凝固組織解析

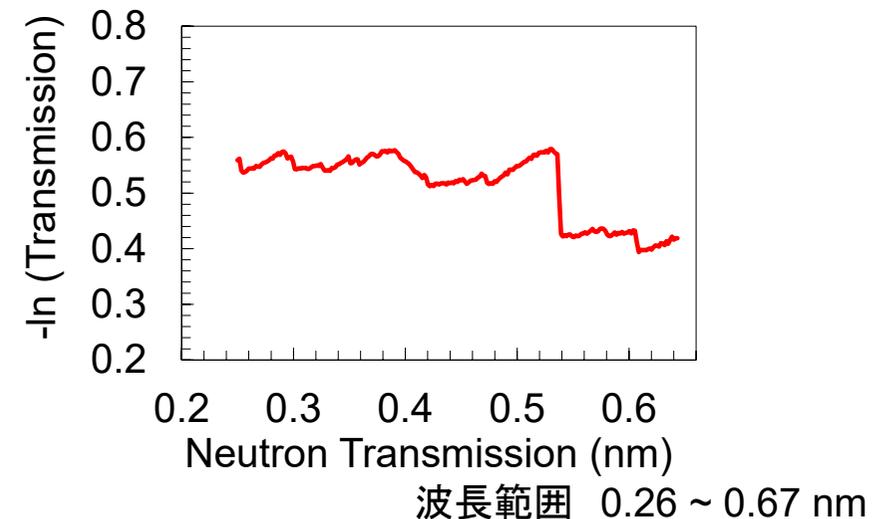
データ提供:伊藤大介先生、斎藤泰司先生ら、京都大学KURRIグループのご協力

- ✓ LBEの結晶構造の複雑さ (β 相と γ 相の共晶組織)
- ✓ 異なるスペクトル形状の組織が、空間的に入り乱れて存在
- ✓ 1画素で得られるスペクトルの統計誤差が大きい

LBE固相のスペクトル



LBE固相の実験的平均スペクトル



⇒ 教師無し機械学習によるスペクトル形状の分類を導入

教師無し機械学習によるスペクトル分類の手順

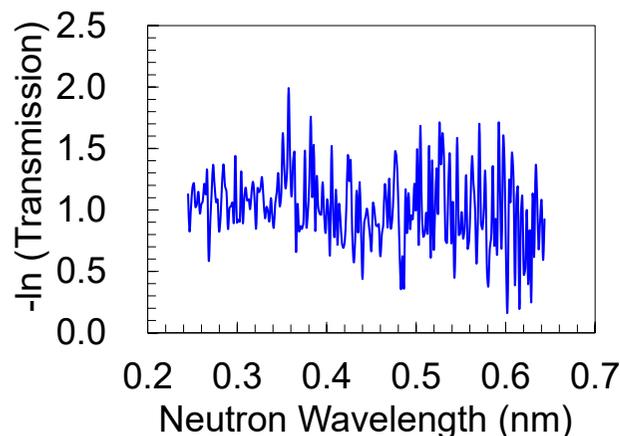
1. 主成分分析 (PCA) によるスペクトルデータの次元削減

- 統計誤差に対し**ロバスト化**
- 結晶組織情報を保持したままのデータ量削減

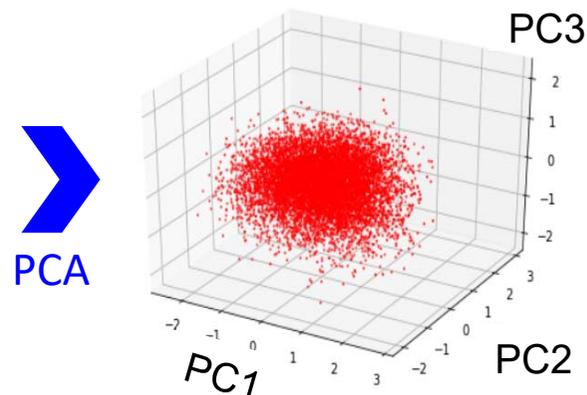
2. クラスタリング分析 (Clustering Analysis)

- スペクトルの類似度ごとにクラスター (集団) を作り分類。
(K平均法による非階層クラスタリング)

実験データの任意の
1画素のスペクトル

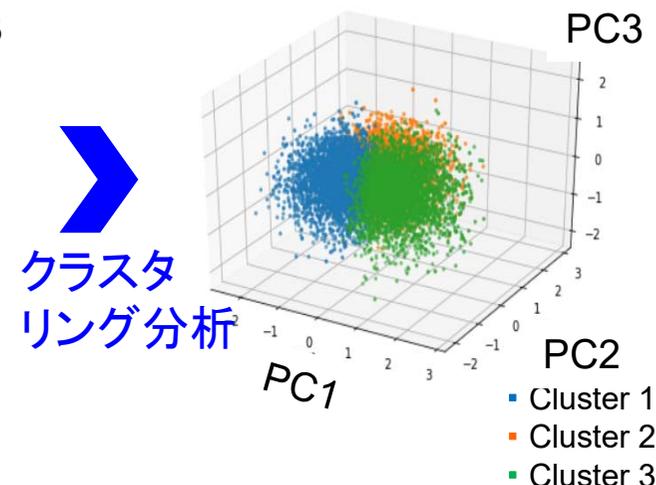


9500スペクトルの
PCA結果



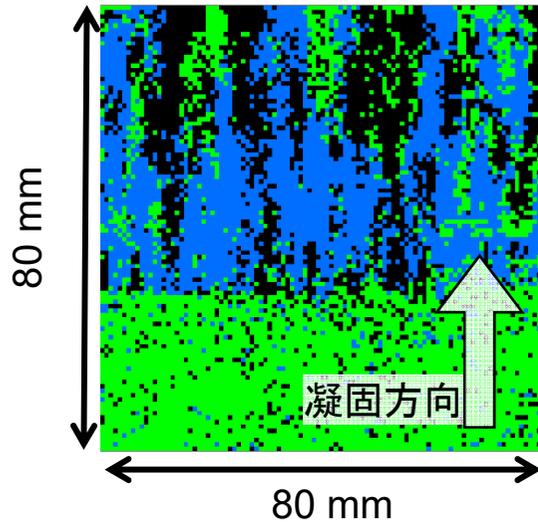
第1主成分、第2主成分、
第3主成分の3次元分布

一例として3クラスターに
分類(K平均法)

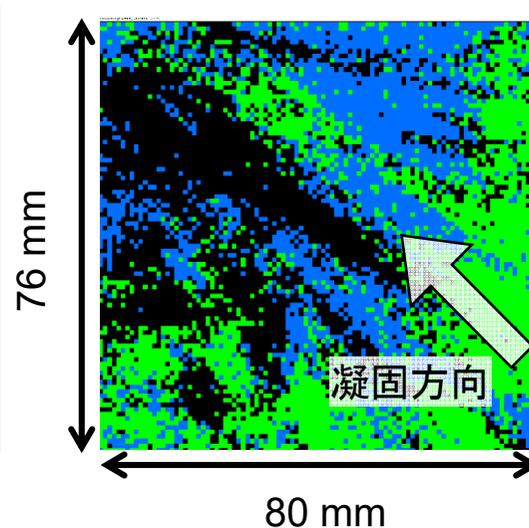


LBE凝固組織のイメージング

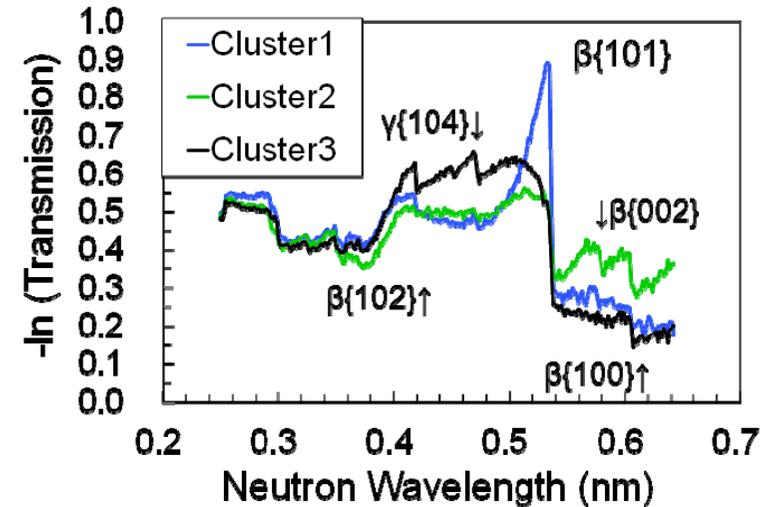
1次元凝固



2次元凝固



各クラスターの積算平均スペクトル



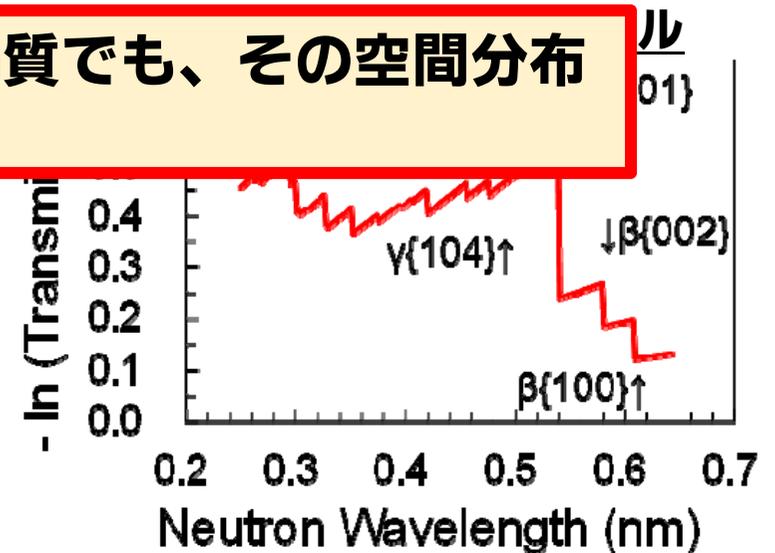
結晶組織が入り組んだ構造を持つ物質でも、その空間分布情報を広範囲に可視化できる

～それぞれ異なる集合組織が発達

Cluster 2(緑)

均一な組織に近い?

→ 凝固速度と関係している可能性



まとめ

ブラッグエッジイメージングの課題

- 非線形最小2乗フィッティング解析の信頼性
- 多パラメータのフィッティング解析のため熟練解析者が必要
- 多量のスペクトル解析に伴う長い解析時間

→ データ駆動型解析に向けた機械学習法の導入

➤ 教師有り機械学習によるBEスペクトル解析

- ✓ 断面積スペクトルのモデル計算コードとの組み合わせ
- ✓ MD係数 R_0 や結晶子サイズ KD についてはある程度の結果
- ✓ 面密度 ρ_t の推定に課題
- ✓ 優先方位 HKL 解析についてもコード化可能

➤ 教師無し機械学習によるクラスタリング解析

- ✓ 結晶組織の複雑な空間分布を広範囲に可視化可能

最終目標：ブラッグエッジイメージング法のロバスト化

**誰がどこの施設で測定したデータを解析しても、
短時間に一定な結果が得られる**