

境界抽出ファジィテンプレートを用いた活性炭の透過電子顕微鏡像 からの気孔解析*

宮崎敬**・押田京一***・遠藤守信****

Pore Analysis for Transmission Electron Microscope Images of Activated Carbon Using Fuzzy Templates

Takashi MIYAZAKI Kyoichi OSHIDA Morinobu ENDO

Activated carbons are used, as absorbent materials, in various places. It so numbers of pores that the surface areas of them become very large. The analysis of the microstructure of the pores, especially regarding the shape or morphology of the pores, has not yet been adequately clarified. Generally we use transmission electron microscopy (TEM) images of them in order to analysis the property. TEM provides a very useful technique for analyzing porous materials, because it gives visual and detailed information about the pores. We have tried to use TEM of activated carbons, combined with image analysis, in order to make TEM a quantitative technique. It is important that the pore boundaries are clarified to analyze the pore structure, but extraction of the edges of pores is difficult by conventional techniques because of their irregular density sifts in the TEM images. In this work, we tried to extract of the pore boundaries of the activated carbons by using fuzzy template obtained from notion of a fuzzy phase, which was established as set with an ambiguous limit by the others. In this report we show the good result which was obtained by the experiments.

キーワード：活性炭，TEM，気孔，ファジィ，境界抽出

1. はじめに

炭素材料の解析にはX線回折，磁気抵抗効果および分光分析などの定量的方法と，透過電子顕微鏡（TEM）などの顕微鏡による観察という定性的な方法が相補的に用いられている。このTEM像は対象物を透過撮影した画像である。つまり，材料による電子線の吸収（コントラスト吸収）と電子線回折（回折コントラスト）によるものである¹⁾。本論文で対象とする活性炭は一般にアモルファス炭素体であり，回折は対象材料中でほぼ均一に発生している。したがって，ここでのTEM像のコントラストは，主として吸収コントラストの反映であり，濃淡の明暗はそれぞれ気孔と材料のバルク部分に対応している²⁾。ところが，バルク部分による吸収コントラストは数Åの気孔を対象としており，バルク部分と気孔の境界面には1Å程

り，認識対象物の境界部分が曖昧となっている。しかし，TEM像では画像の濃淡と構造との関連性が高いため，濃淡情報から対象を推定することが可能となる。これは，TEM像に濃淡が現れるのは照射された電子線が試料を透過する際にその一部が散乱し，結像面に到達する電子波強度差が発生するためで度の電子雲が存在しているため，境界部分は当然不明瞭になる。このようなナノレベルの気孔解析では化学吸着法などに比べてTEM像による解析が有効と考えられる。

本論文では，活性炭の一つであるヤシガラ活性炭の気孔の解析を試みた。このヤシガラ活性炭は微細気孔が多くある多孔質の材料であり，その高比表面積ために高い吸着作用を保持している。このため脱臭材料や有害物質の除去材料などとして広範囲に利用されている。この多数の微細気孔が吸着作用への特性を決める大きな要因であるため，気孔の形状解析が重要となる³⁾。この気孔形状の面積や周囲長を求める場合には境界領域を明確にする必要がある。濃淡画像から境界領域を求める方法としては，従来の1次微分画像を，しきい値処理により2値化して

* 1999年12月 日炭素学会年会で一部を発表

** 電気工学科助教授

*** 電子情報工学科助教授

**** 信州大学工学部教授

原稿受付 2000年10月31日

求める方法がある⁴⁾。しかし、これらの手法では境界領域の濃度変化が激しいところはエッジとして得られるが、濃度変化が緩やかで広い部分ではエッジが得られず、結果として対象の境界領域の一部分しか求められない。また、 9×9 のラプラシアンフィルタによる2次微分画像をもとにゼロクロッシングの位置を求める方法があるが⁴⁾、これも広い領域に対しては適切な境界領域が得られない。他にも対象領域を大局的なまとまりとして直接求めるしきい値2値化法があが、しきい値によって局所的な情報が失われてしまう場合があり、雑音のような小領域を検出してしまうこともある⁴⁾。

筆者らは、境界が曖昧なものを含む濃淡画像をファジィ集合として捉えることにより、有限ファジィ位相空間を構成できることを示してきた⁵⁾。この中で、ファジィ集合としての画像がファジィテンプレートという構成要素を元に定義できることを証明した。また、このファジィテンプレートを用いて、位相論的な演算操作により処理対象領域の内部、外部および境界領域を抽出できることを示した。今回、このファジィ位相に基づいたファジィテンプレートを使用し、ヤシガラ活性炭のTEM像から微細気孔の境界領域を抽出したところ、良好な結果が得られることが判明した。そこで、作成条件を変えた3種類のヤシガラ活性炭の気孔解析を行った。

2. 有限ファジィ位相の概念⁵⁾

ファジィ集合の概念を用いることにより、通常の位相空間の拡張であるファジィ位相空間が構成できることが知られている⁶⁾。ここでは、ある特定のファジィ集合の族を基にしたファジィ位相構造を導入する。ファジィ集合が定義されている空間全体を X とする。以下、合併、共通部分などの集合演算はファジィ集合の意味での集合演算を表す。

X 上のファジィ集合全体の部分族を T とすると、

$$T \subseteq \{t \mid t : X \text{上のファジィ集合}\}$$

$$\text{ただし、} \bigcup_{t \in T} t = X, \phi \in T \quad (1)$$

を満たすものとする。 T の各元 t をファジィテンプレートと呼ぶことにする。次のようにして T から X 上の位相構造の開基を構成する。まず、 T について有限個の元(ファジィ集合)の共通部分全体を B で表す。すなわち、

$$B = \{ \bigcap_{i \in M} t_i \mid (t_i)_{i \in M} : T \text{の元の有限族}(M \text{は任意の有限添字集合}) \} \quad (2)$$

であり、 $T \subseteq B$ となる。また、 $\beta, \beta' \in B$ のとき、 $(\beta \cap \beta') \in B$ である。

この B の元の任意個の合併全体を τ で表す。すなわち、

$$\tau = \{ \bigcup_{i \in I} \beta_i \mid (\beta_i)_{i \in I} \subseteq B, i \text{は任意の添字集合} \} \quad (3)$$

τ は X 上のファジィ位相構造を定義し、 B は τ の開基になっている。また、 $T \subseteq B \subseteq \tau$ である。実際 τ は次の条件を満たしている。

(I) $X, \phi \in T$

(II) $(O_i)_{i \in M}$ が τ の元の任意の有限族ならば

$$\bigcap_{i \in M} O_i \in \tau$$

(III) $(O_i)_{i \in M}$ が τ の元の任意の族とするとき

$$\bigcup_{i \in M} O_i \in \tau$$

ここで、 X は有限個の画素全体を表しているから、この X 上に定義されたファジィ位相を有限ファジィ位相と呼ぶことにする。 τ に属す X 上のファジィ集合は開ファジィ集合と呼ばれる。また、 X 上のファジィ集合 A の補集合 A^c が τ に属すとき、 A は閉ファジィ集合と呼ばれる。同様に内部、外部および境界が定義される。 A を X 上のファジィ集合とする。 A に含まれる開ファジィ集合全体の和集合は A の内部と呼ばれ、 A^i で表される。すなわち、

$$A^i = \bigcup_{O \subseteq A, O \in \tau} O \quad (4)$$

である。 τ の構成法により

$$A^i = \bigcup_{O \subseteq A, O \in \tau} O = \bigcup_{\beta \subseteq B, \beta \in A} \beta \quad (5)$$

また、 A の補集合の内部 $(A^c)^i$ は A の外部と呼ばれ、 A^e で表される。さらに、 A の内部でも外部で

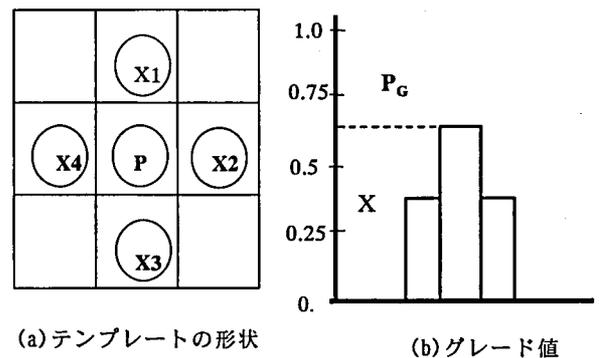


図1. ファジィテンプレートとグレード値

もない部分は A の境界と呼ばれ、ここでは A' で表す。

$$A' = (A' \cup A^e)^c = X - (A' \cup A^e) \quad (6)$$

として求めることができる。したがって、対象の内部または外部でないところとして境界領域が求められる。

3. ファジィテンプレートと境界抽出法

3.1 ファジィテンプレート

ファジィテンプレートの形状は図 1 (a) に示すような 3×3 画素で、上下左右に対称なものとする。中心 P のグレード値は P_c で表し、この値は濃度値

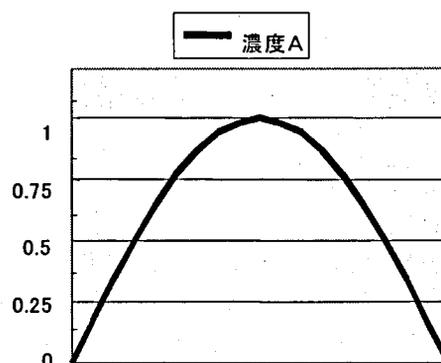
の最大値と最小値の中間値である 0.5 とする。また、上下左右の $X_1 \sim X_4$ のグレード値は X_c で表し、この値はすべて同じで 0.0~0.5 の範囲とする。この値は対象領域の境界部分について濃度変化の度合いや、対象領域の大きさに関連させて決める。境界部が狭く濃度変化が大きい場合にはグレード値を小さく、幅が広く濃度変化が緩やかな場合には大きくする。

3.2 境界抽出法

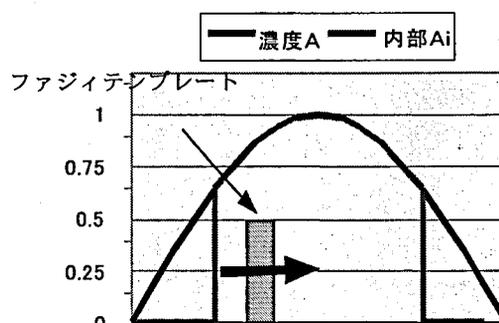
本論では、対象とする TEM 像は、濃度値が 0~255 の 256 階調をもつ濃淡画像である。この濃度値を 0.0~1.0 に正規化した画像をファジィ集合とみなす。本手法による画像中の境界とは、対象領域の内部または外部でないところとして求まる領域になる。また、求まった境界領域の各画素は境界としての程度を表すグレード値をもって抽出できることになる。

[手順]

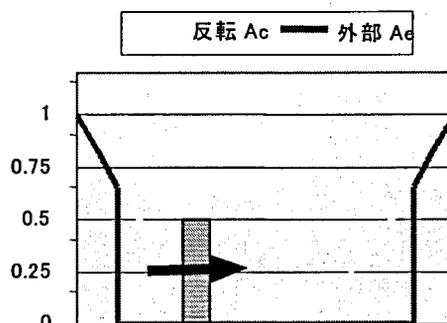
- I) 処理対象画像のヒストグラムを求める。
- II) 濃度の最大値と最小値を求め、[0, 1] に正規化する。
- III) テンプレートのグレード値を決定する。中央のグレード値は 0.5 で、上下左右は 0.0~0.5 の範囲で決める。
- IV) この正規化画像に対して、ファジィテンプレートをラスタ走査し画像との包含関係を調べる。包含関係が成り立つ場合は画像の濃度値を、成り立たない場合は 0 とする。すなわち、 A' を求める。
- V) 次に、正規化された画像の補集合を求める。
- VI) これについて IV) と同様の処理を行う。すなわち、 A^e を求める。
- VII) 最後に境界部分 A' を、式 (6) の定義により、 A' と A^e とから求める。



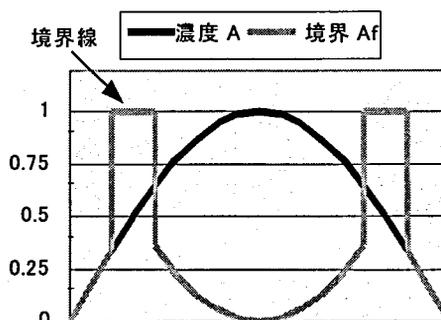
(a) 濃度値の正規化



(b) 内部の抽出



(c) 外部の抽出



(d) 境界の抽出

図 2 モデルによる境界抽出の説明

対象領域から境界を抽出するにはファジィテンプレートを一ラスタ走査し、ファジィテンプレートと正規化画像の包含関係を調べ、対象領域（階調の明るいほうの領域）の内部 A_i を求める。次に、正規化画像の反転画像に対して、同様の処理により外部 A_e を求める。内部 A_i と外部 A_e とから A の境界 A_f を求める。この境界抽出の手順を I) ~ VII) に示す。

3.3 境界抽出のモデル化

図 2 に本手法の境界抽出過程を、画像の濃度値を 1 次元的にモデル化したものを使って説明する。1 次元では正規化画像の濃度値は折れ線で示され、ファジィテンプレートは図 2(b) のように X_4 , P , X_2 の 3 画素で表される。図 2(a) は正規化した原画像を示している。図 2(b) はファジィテンプレートによって求めた対象領域の内部 A_i を示している。ファジィテンプレートのグレード値 P_G は 0.5, X_G は 0.5 としている。境界領域を求めるには、ファジィテンプレートのグレードを持つ 3 画素と、対応する画像の 3 画素のグレード値とを比較する。 X_4 , P , X_2 がすべて含まれる場合には、ファジィテンプレートの中央の画素に対応する画像の画素のグレード値を残す。1 画素でも含まれなければ 0 とする。図 2(c) は対象領域の外部を、正規化画像の反転画像の内部として求めていることを示している。なお、図 2(b) および (c) の中の矢印は、内部および外部を求

めるためのファジィテンプレートのラスタ走査を表している。図 2(d) は、図 2(b) の内部 A_i と図 2(c) の外部 A_e から $A_i \cup A_e$ を求めた結果とその反転したもので、本手法によって得られる境界領域を表している。この境界領域が境界の程度を表すグレード値とともに得られることがわかる。

4. 実験結果

実験に用いたヤシガラ活性炭の TEM 像を図 3(a) に示す。この TEM 像は加圧電圧 200 kV, 倍率 20 万倍の条件で撮影した明視野透過像で、解像度 1200dpi, 256 階調の 512×512 画素の画像として入力している。画像中の暗い領域はヤシガラ活性炭のバルク部分で、白く明るく見える領域が気孔と考えられる。

本手法により、この TEM 像に対して行った処理過程の結果を図 3(a) ~ (f) に示す。用いたファジィテンプレートのグレード値 P_G と X_G は 0.5 である。図 3(b) と (c) は原画像の気孔領域の抽出結果と原画像の反転画像からの気孔領域でない領域の抽出結果である。図 3(d) は両者から得られた境界領域を求めたものである。図 3(e) は気孔部分を 2 値化により白く表したものである。また、図 3(f) は図 3(d) をしきい値 127 で 2 値化後に、Hildich の細線化処理⁷⁾を行い境界領域の中心位置（真っ白な線の部分

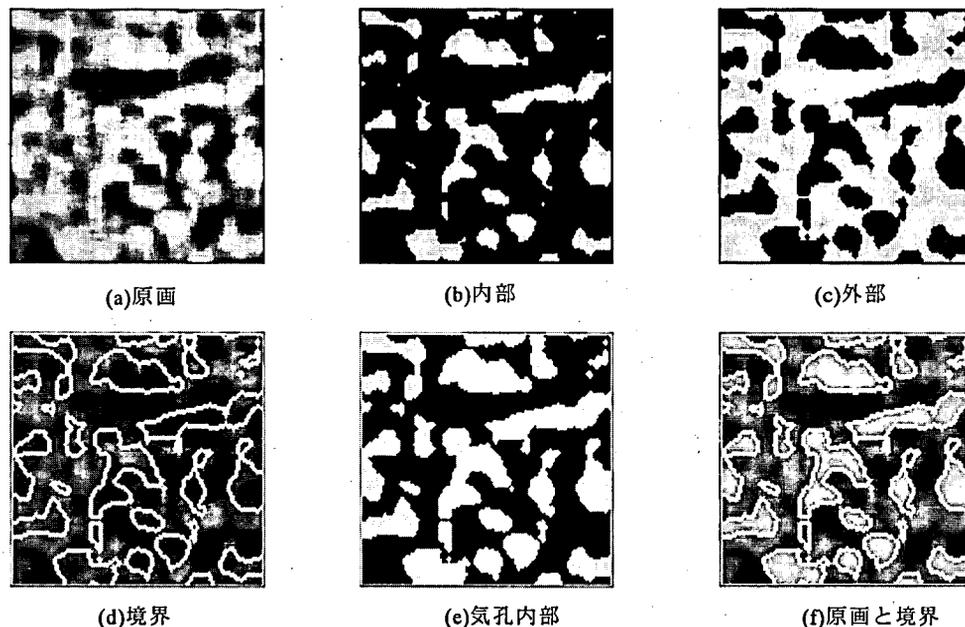


図 3 本手法による境界領域抽出の過程

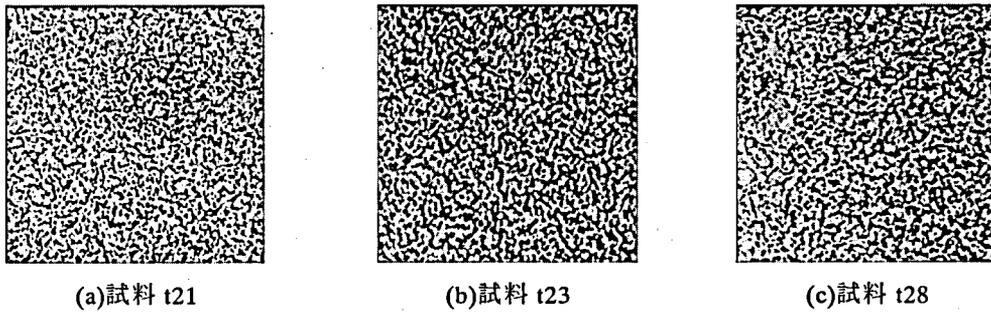
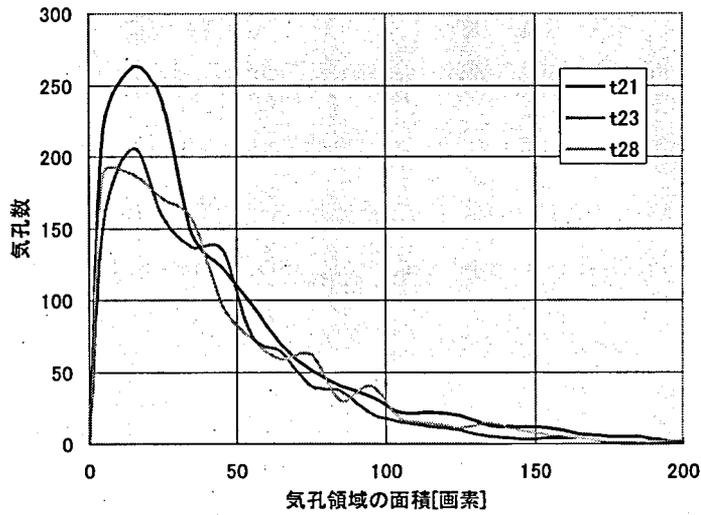
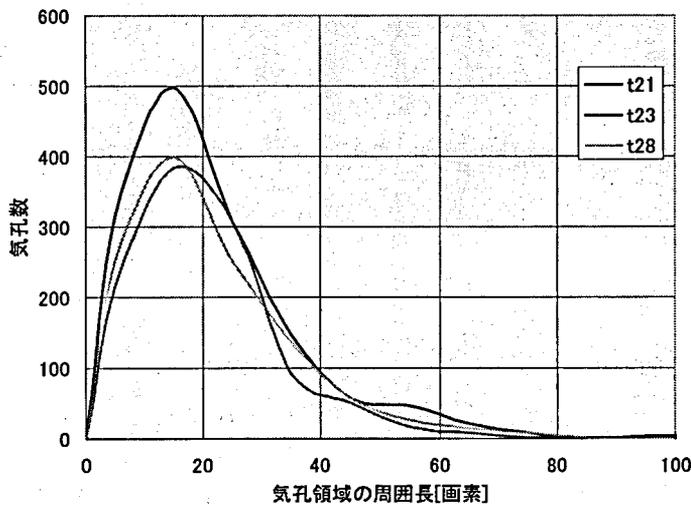


図 4 実験に用いた試料



(a) t21,t23,t28における気孔領域面積の度数分布の比較



(b) t21,t23,t28における気孔領域周囲長の度数分布の比較

図 5 抽出した気孔領域の面積と周囲長

を求め、この結果を原画像に重ね合わせたものである。

図 4(a)~(c)に条件を変えた 3 種類のヤシガラ活性炭の TEM 像を示す。この TEM 像の観察では気孔サイズの判別がつきにくいのがわかる。そこで、ファジィテンプレートを用いて気孔領域の境界を特定した上でサイズとして面積と周囲長を計測して、その分布をグラフ化したのが図 5(a), (b)である。ただし、ファジィテンプレートは大きさ 3×3 でグレード値は $P_G = X_G = 0.5$ のものを使用した。

TEM 像では判別できなかったが、t21 気孔の面積および周囲長において他の 2 つの材料よりも気孔サイズが大きいことがわかる。また、t23 と t28 は気孔の面積および周囲長に関してよく似てはいるが、t28の方が面積の小さな気孔が少し多く分布に関していることがわかる。周囲長しても t28の方がわずかであるが小さい気孔が多いことがわかる。

5. おわりに

本論文では、ヤシガラ活性炭の TEM 像の中に現れる気孔を解析するために、有限ファジィ位相論から導いたファジィテンプレートを使って求められる内部および外部の概念により、気孔の境界領域の抽出を行った。試料として 3 種類のヤシガラ活性炭の TEM 像について、本手法により境界抽出をおこない、気孔のサイズとして面積および周囲長を計測してその分布を調べたところ、通常の視覚による観測では判別しにくかった特徴を定量化することが可能となった。

従来のエッジ抽出を応用した方法では、濃度変化が急峻な部分の境界領域については抽出可能であるが、緩やかに変化する部分では境界領域が検出しにくい欠点があった。ところが、本手法では画像の濃度勾配の影響を受けずに境界領域が求められ、また、境界が求められると同時に境界としてのグレード値も求められる長所がある。さらに、ファジィテンプレートの上下左右のグレード値 X_G を上げることで、境界領域のほぼ中心を境界線として直接求められることがわかった。

本手法の計算量については加算 $4 \times N^2$ 回と乗算 $1 \times N^2$ 回の演算のみで求まるため、処理速度が早いという利点もある。

このように、本手法の有効性が確認されたので、従来困難とされていた活性炭の TEM 像のような曖昧な境界領域の自動抽出が可能となる。今後、ファジィテンプレートの大きさや形状を変えて、気孔形状のサイズを選択的に検出できるように各種実験を繰り返していくつもりである。さらに、 α -近傍などを利用し、濃淡画像の連結性を扱うことを可能とすることにより、ラベリングや細線化などの処理への応用を検討する予定である。

最後に、本研究の一部は平成 11 年度長野高専教育研究特別経費の助成を受けて行われたものであり、ここに深く感謝の意を表します。

参考文献

- 1) P. Hirsch, A. Howie, R. Nicholson, D. W. Pashley, and M. J. Whelan: "Electron Microscopy of thin crystals", Robert E. Kreger Publishing Company Malabar, Florida (1965).
- 2) M. Endo, T. Furuta, F. Minoura, C. Kim, K. Oshida, G. Dresselhaus, and M. S. Dresselhaus: "Visualized observation of pores in activated carbon fibers by HRTEM and combined image processor", *Supramolecular Sciences*, Vol.5, pp.261-266 (1998).
- 3) 遠藤守信, 押田京一, 竹内健司, 佐須田好洋, 松林健一, M. S. Dresselhaus: 「活性炭素繊維におけるポア構造のフラクタル解析」, 信学論 C-II, Vol. J77-C-II, No. 3, pp.139-147 (1994).
- 4) 高木幹夫, 下田陽久(監修): 画像解析ハンドブック, 東京大学出版会, (1991).
- 5) 宮崎敬, 師玉康成, 中村八東, 山浦弘夫: 「ファジィテンプレートを基にしたファジィ位相空間の構成と画像処理への応用」, 9th Fuzzy System Symposium, TD6-2, pp.529-532 (1993).
- 6) 水本雅晴: 「ファジィ理論とその応用」, サイエンス社 (1988).
- 7) C.J.Hildich: "Linear form square cupboards", in *Machine intelligence*, vol.6, Edinburgh Univ.Press, pp.403-420, (1969).