

(19)日本国特許庁(JP)

(12)特許公報(B2)

(11)特許番号
特許第7362337号
(P7362337)

(45)発行日 令和5年10月17日(2023.10.17)

(24)登録日 令和5年10月6日(2023.10.6)

(51)国際特許分類

F I

G 0 1 N 27/62 (2021.01)

G 0 1 N 27/62 D

G 0 6 N 20/00 (2019.01)

G 0 6 N 20/00

請求項の数 21 (全23頁)

(21)出願番号	特願2019-140177(P2019-140177)	(73)特許権者	000001007
(22)出願日	令和1年7月30日(2019.7.30)		キヤノン株式会社
(65)公開番号	特開2021-21707(P2021-21707A)		東京都大田区下丸子3丁目30番2号
(43)公開日	令和3年2月18日(2021.2.18)	(74)代理人	100126240
審査請求日	令和4年7月26日(2022.7.26)		弁理士 阿部 琢磨
		(74)代理人	100124442
			弁理士 黒岩 創吾
		(72)発明者	河村 英孝
			東京都大田区下丸子3丁目30番2号キ
			ヤノン株式会社内
		(72)発明者	田谷 彰大
			東京都大田区下丸子3丁目30番2号キ
			ヤノン株式会社内
		(72)発明者	吉正 泰
			東京都大田区下丸子3丁目30番2号キ
			最終頁に続く

(54)【発明の名称】 情報処理装置、情報処理装置の制御方法、及びプログラム

(57)【特許請求の範囲】

【請求項1】

固体試料のスペクトル情報、及び前記固体試料と測定対象物質とを含むサンプルのスペクトル情報を学習モデルに入力することにより推定された、サンプル中の前記測定対象物質の種類に関する情報を取得する情報取得手段を有する情報処理装置であって、

前記スペクトル情報が、二次イオン質量分析法により取得される、m/z 毎のフラグメントイオン強度を示すスペクトルであり、

前記学習モデルが、前記固体試料単体のスペクトル、前記測定対象物質を含む前記固体試料のスペクトル、前記固体試料単体のスペクトルのm/z 毎のフラグメントイオン強度にノイズが付与された人工スペクトル、及び前記測定対象物質を含む前記固体試料のスペクトルのm/z 毎のフラグメントイオン強度にノイズが付与された人工スペクトルに少なくとも基づいて生成されることを特徴とする情報処理装置。

【請求項2】

前記二次イオン質量分析法が、飛行時間型二次イオン質量分析法である請求項1に記載の情報処理装置。

【請求項3】

前記測定対象物質の種類に関する情報が、前記測定対象物質の名称、略称、化学的分類、構造式、化学式、及び立体構造図からなる群より選択される少なくとも1種である請求項1又は2に記載の情報処理装置。

【請求項4】

前記固体試料が、樹脂、シリコン基板、及び銅箔からなる群より選択される少なくとも1種を含む請求項1乃至3のいずれか1項に記載の情報処理装置。

【請求項5】

前記固体試料が、樹脂を含む請求項4に記載の情報処理装置。

【請求項6】

前記樹脂が、不飽和カルボン酸エステル類に由来するユニットを有する請求項5に記載の情報処理装置。

【請求項7】

前記測定対象物質が、可塑剤、増粘剤、減粘剤、結晶核剤、結晶化促進剤、結晶化遅延剤、離型剤、難燃剤、難燃助剤、熱分解防止剤、補強剤、導電材、帯電防止剤、熱伝導剤、酸化防止剤、耐候防止剤、紫外線吸収剤、抗菌剤、着色剤、ガスバリア剤、防曇り剤、防反射剤、防汚剤、及び不純物からなる群より選択される少なくとも1種である請求項1乃至6のいずれか1項に記載の情報処理装置。

【請求項8】

前記測定対象物質が、可塑剤である請求項7に記載の情報処理装置。

【請求項9】

前記可塑剤が、界面活性剤である請求項8に記載の情報処理装置。

【請求項10】

前記取得された測定対象物質の種類に関する情報を表示部に表示させる表示制御手段を有する請求項1乃至9のいずれか1項に記載の情報処理装置。

【請求項11】

前記学習モデルが、さらに、測定対象物質を含む固体試料のスペクトルであって、前記固体試料に対する前記測定対象物質の濃度が互いに異なる複数のスペクトル情報に基づいて生成される請求項1乃至10のいずれか1項に記載の情報処理装置。

【請求項12】

前記学習モデルが、固体試料単体のスペクトル情報、及び固体試料に対する測定対象物質の濃度が異なる複数の、固体試料と測定対象物質とを含むサンプルのスペクトル情報に基づいて生成される請求項1乃至10のいずれか1項に記載の情報処理装置。

【請求項13】

前記学習モデルが、さらに、固体試料と、前記複数のサンプルのスペクトル情報で用いる測定対象物質の濃度とは異なる濃度の測定対象物質とを含むサンプルのスペクトル情報に基づいて生成される請求項12に記載の情報処理装置。

【請求項14】

前記固体試料を構成する元素群と、前記測定対象物質とを構成する元素群とが同じである請求項1乃至13のいずれか1項に記載の情報処理装置。

【請求項15】

前記固体試料を構成する元素群と、前記測定対象物質とを構成する元素群が、炭素原子、水素原子、酸素原子、及び窒素原子からなる群より選択される少なくとも1種を含む請求項1乃至14のいずれか1項に記載の情報処理装置。

【請求項16】

前記サンプルのスペクトル情報の m/z が10以上のフラグメントイオン強度の合計に対する、測定対象物質のスペクトル情報におけるイオン強度の割合が、 7×10^{-5} 以下である請求項1乃至15のいずれか1項に記載の情報処理装置。

【請求項17】

固体試料のスペクトル情報、及び前記固体試料と測定対象物質とを含むサンプルのスペクトル情報を学習モデルに入力することにより推定された、サンプル中の前記測定対象物質の種類に関する情報、及び定量的な情報を取得する情報取得手段を有する情報処理装置であって、

前記スペクトル情報が、二次イオン質量分析法により取得される、 m/z 毎のフラグメントイオン強度を示すスペクトルであり、

10

20

30

40

50

前記学習モデルが、前記固体試料単体のスペクトル、前記測定対象物質を含む前記固体試料のスペクトル、前記固体試料単体のスペクトルの m/z 毎のフラグメントイオン強度にノイズが付与された人工スペクトル、及び前記測定対象物質を含む前記固体試料のスペクトルの m/z 毎のフラグメントイオン強度にノイズが付与された人工スペクトルに少なくとも基づいて生成されることを特徴とする情報処理装置。

【請求項 18】

前記測定物質の種類に関する情報の信頼度が取得されることを特徴とする請求項 1 乃至 17 のいずれか 1 項に記載の情報処理装置。

【請求項 19】

固体試料のスペクトル情報、及び前記固体試料と測定対象物質とを含むサンプルのスペクトル情報を学習モデルに入力することにより推定された、サンプル中の前記測定対象物質の種類に関する情報を取得する情報取得工程を有する情報処理装置の制御方法であって、

前記スペクトル情報が、二次イオン質量分析法により取得される、 m/z 毎のフラグメントイオン強度を示すスペクトルであり、

前記学習モデルが、前記固体試料単体のスペクトル、前記測定対象物質を含む前記固体試料のスペクトル、前記固体試料単体のスペクトルの m/z 毎のフラグメントイオン強度にノイズが付与された人工スペクトル、及び前記測定対象物質を含む前記固体試料のスペクトルの m/z 毎のフラグメントイオン強度にノイズが付与された人工スペクトルに少なくとも基づいて生成されることを特徴とする情報処理装置の制御方法。

【請求項 20】

固体試料のスペクトル情報、及び前記固体試料と測定対象物質とを含むサンプルのスペクトル情報を学習モデルに入力することにより推定された、サンプル中の前記測定対象物質の種類に関する情報、及び定量的な情報を取得する情報取得工程を有する情報処理装置の制御方法であって、

前記スペクトル情報が、二次イオン質量分析法により取得される、 m/z 毎のフラグメントイオン強度を示すスペクトルであり、

前記学習モデルが、前記固体試料単体のスペクトル、前記測定対象物質を含む前記固体試料のスペクトル、前記固体試料単体のスペクトルの m/z 毎のフラグメントイオン強度にノイズが付与された人工スペクトル、及び前記測定対象物質を含む前記固体試料のスペクトルの m/z 毎のフラグメントイオン強度にノイズが付与された人工スペクトルに少なくとも基づいて生成されることを特徴とする情報処理装置の制御方法。

【請求項 21】

請求項 1 乃至 20 のいずれか 1 項に記載の情報処理装置の各手段としてコンピュータを機能させることを特徴とするプログラム。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、情報処理装置、情報処理装置の制御方法、及びプログラムに関する。

【背景技術】

【0002】

所望の機械的、物理的、及び化学的性質を持った樹脂を調製するために、さまざまな添加剤が樹脂に添加されている。そのため、樹脂に添加された添加剤の濃度を知ることが、品質管理や材料設計において重要である。

【0003】

添加剤の分析方法としては、樹脂に添加された添加剤を分離し、紫外線検出器、赤外線検出器、質量分析装置などの分析装置を用いて分析する方法、添加剤が付着した樹脂そのものを直接分析する方法などが挙げられる。

【0004】

樹脂に添加された添加剤を分離する方法としては、溶剤を用いて添加剤を抽出し、液体クロマトグラフィーで添加剤を分離する方法、サイズ排除クロマトグラフィー（SEC）

10

20

30

40

50

で添加剤を含む低分子量成分を分離する方法などが挙げられる。しかし、このような方法は、テトラヒドロフランやクロロホルムなどの有機溶剤を使用するため、環境負荷や作業者の安全衛生の面で好ましくない。

【0005】

添加剤が付着した樹脂そのものを直接分析する方法としては、ダイナミック二次イオン質量分析法（Dynamic SIMS法）、飛行時間型二次イオン質量分析法（TOF-SIMS法）などの二次イオン質量分析法が挙げられる。Dynamic SIMS法は、固体試料にイオンビームを連続的に照射して不純物の深さ方向における分布を得る手法である。一方、TOF-SIMS法は、固体試料にDynamic SIMS法よりも少ない量のイオンビームを照射して固体試料の表面に存在する元素及び分子の情報を得る手法である（特許文献1及び2参照）。ここで、TOF-SIMS法の原理について、詳細に説明する。

10

【0006】

高真空中で固体試料にイオンビーム（一次イオン）を照射すると、固体試料表面の構成成分が真空中に放出される。この過程で発生する正又は負の電荷を帯びたイオン（二次イオン）を、電場によって一方向に収束し、一定距離だけ離れた位置で検出する。固体試料表面の組成に応じて、さまざまな質量を持った二次イオンが発生するが、一定の電界中では、質量の小さいイオンほど速く、質量の大きいイオンほど遅く飛行する。そのため、二次イオンが発生してから検出器に到達するまでの時間（飛行時間）を測定することで、発生した二次イオンの質量を分析することができる。

20

【0007】

TOF-SIMS法は、ppmオーダー、すなわち 10^{11} atoms/cm²の成分を検出できること、有機物・無機物のいずれにも適用可能であること、固体試料の表面から1 nm以下の深さに存在する成分の測定が可能であることなどのメリットを有する。しかし、この方法では、固体試料そのものを直接分析するため、得られるスペクトルには夾雑物のピークが混ざりやすい。また、構成成分の二次イオンへのなりやすさ（イオン化効率）は、固体試料表面の形状や電荷のわずかな違いによる影響を受けやすく、固体試料の測定箇所に応じて二次イオン強度がばらつきやすい。さらに、二次イオン強度は、固体試料の種類や組成の違いの影響を受けやすい。したがって、TOF-SIMS法により得られるスペクトルは煩雑になりやすく、二次イオン強度のみから固体試料の情報を得るのに時間を要する。そこで、固体試料（樹脂）の情報を得るために、機械学習を利用してTOF-SIMS法により得られるスペクトルを解析する方法が検討されている（非特許文献1参照）。

30

【先行技術文献】

【特許文献】

【0008】

【文献】特開2011-68005号公報

特開2007-156093号公報

【非特許文献】

【0009】

【文献】“多変量解析を利用したTOF-SIMSイメージデータフュージョンとスパースモデリングおよび機械学習によるTOF-SIMSスペクトル解析”，Journal of Surface Analysis 25（2）103-114（2018）

40

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0010】

上記の通り、固体試料（樹脂）の情報を得るために、機械学習を利用してTOF-SIMS法により得られるスペクトルを解析する方法が検討されている。しかし、固体試料（樹脂）に付着した付着物（以下「測定対象物質」と記載する場合がある）の種類に関する情報を得るために、TOF-SIMS法により得られるスペクトルを簡便、迅速、かつ、

50

高精度に解析する方法についてはこれまで検討されてこなかった。

【0011】

したがって、本発明の目的は、固体試料と測定対象物質とを含むサンプルのスペクトル情報から測定対象物質の種類を簡便、迅速、かつ、高精度に解析できる情報処理装置を提供することにある。また、本発明の別の目的は、前記情報処理装置の制御方法、及びプログラムを提供することにある。

【課題を解決するための手段】

【0012】

本発明の情報処理装置は、固体試料のスペクトル情報、及び前記固体試料と測定対象物質とを含むサンプルのスペクトル情報を学習モデルに入力することにより推定された、サンプル中の前記測定対象物質の種類に関する情報を取得する情報取得手段を有する情報処理装置であって、前記スペクトル情報が、二次イオン質量分析法により取得されることを特徴とする。

10

【0013】

また、本発明の情報処理装置の制御方法は、固体試料のスペクトル情報、及び前記固体試料と測定対象物質とを含むサンプルのスペクトル情報を学習モデルに入力することにより推定された、サンプル中の前記測定対象物質の種類に関する情報を取得する情報取得工程を有する情報処理装置の制御方法であって、前記スペクトル情報が、二次イオン質量分析法により取得されることを特徴とする。

【発明の効果】

20

【0014】

本発明によれば、固体試料と測定対象物質とを含むサンプルのスペクトル情報から測定対象物質の種類を簡便、迅速、かつ、高精度に解析できる情報処理装置、前記情報処理装置の制御方法、及びプログラムを提供することにある。

【図面の簡単な説明】

【0015】

【図1】本実施形態に係る情報処理装置を含む情報処理システムの全体構成を示す図である。

【図2】本実施形態に係る学習モデルの生成に関する処理手順のフローチャートの一例を示す図である。

30

【図3】本実施形態に係る種類に関する情報を表示する処理手順のフローチャートの一例を示す図である。

【図4】固体試料、及び固体試料と測定対象物質Aとを含むサンプルAのスペクトル情報の一例を示す。

【図5】固体試料、及び固体試料と測定対象物質Bとを含むサンプルBのスペクトル情報の一例を示す。

【図6】固体試料、及び固体試料と測定対象物質Cとを含むサンプルCのスペクトル情報の一例を示す。

【図7】固体試料、及び固体試料と測定対象物質Dとを含むサンプルDのスペクトル情報の一例を示す。

40

【図8】ノイズが付与された教師データの作成手順のフローチャートの一例である。

【図9】情報処理装置における測定対象物質の種類に関する情報の表示例である。

【発明を実施するための形態】

【0016】

以下に、図面を参照しながら、本発明を実施するための形態（実施形態）について説明する。但し、本発明の範囲は以下で説明する各実施形態に限定されるものではない。

【0017】

本発明において、固体試料と測定対象物質とを含むサンプルのスペクトル情報から、目的サンプル中の測定対象物質の種類を簡便、迅速、かつ、高精度に解析するためには、以下の情報処理装置を用いる。情報処理装置は、固体試料のスペクトル情報、及び固体試料

50

と測定対象物質とを含むサンプルのスペクトル情報を学習モデルに入力することにより推定された、サンプル中の測定対象物質の種類に関する情報を取得する情報取得手段を有する。また、これらのスペクトル情報は、二次イオン質量分析により取得される。

【0018】

これにより、サンプル中の測定対象物質の種類に応じたスペクトル情報を準備して学習モデルに入力する必要がなく、目的サンプル中の測定対象物質の種類が未知の場合であっても、測定対象物質の種類の情報を得ることが可能となる。また、固体試料の表面の形状、電荷のわずかな違い、種類や組成の影響を受けて、得られるスペクトルが煩雑になりやすい二次イオン質量分析におけるスペクトル解析にも適用可能である。

【0019】

(サンプル)

サンプルは、固体試料と測定対象物質とを含む。固体試料としては、樹脂、シリコン基板、及び銅箔からなる群より選択される少なくとも1種であることが好ましく、樹脂であることが好ましい。樹脂は、不飽和カルボン酸エステル類に由来するユニットで構成されることが好ましく、アルキル(メタ)アクリレート類に由来するユニットで構成されることがさらに好ましい。ここで、ユニットとは、1の単量体に由来する繰り返し単位のことを指すものとする。

【0020】

(測定対象物質)

測定対象物質は、固体試料に添加された添加剤や固体試料に付着する付着物であることが好ましい。測定対象物質としては、可塑剤、増粘剤、減粘剤、結晶核剤、結晶化促進剤、結晶化遅延剤、離型剤、難燃剤、難燃助剤、熱分解防止剤、補強剤、導電材、帯電防止剤、熱伝導剤、酸化防止剤、耐候防止剤、紫外線吸収剤、抗菌剤、着色剤、ガスバリア剤、防曇り剤、防反射剤、防汚剤、不純物などが挙げられる。なかでも、測定対象物質は、可塑剤であることが好ましい。可塑剤としては、界面活性剤などが挙げられる。

【0021】

固体試料を構成する元素群と、前記測定対象物質とを構成する元素群とは同じであることが好ましい。固体試料を構成する元素群と、測定対象物質とを構成する元素群は、炭素原子、水素原子、酸素原子、及び窒素原子からなる群より選択される少なくとも1種を含むことが好ましい。

【0022】

(測定対象物質の種類に関する情報)

本実施形態における測定対象物質名に関する情報としては、測定対象物質の名称、略称、化学的分類、構造式、化学式、立体構造図などが挙げられる。

【0023】

(測定対象物質の定量的な情報)

本発明においては、固体試料と測定対象物質とを含むサンプルのスペクトル情報から、目的サンプル中の測定対象物質の種類に関する情報だけでなく、定量的な情報を取得することも可能である。定量的な情報は、固体サンプル中の測定対象物質の含有量、固体サンプル中の測定対象物質の濃度、固体サンプル中の測定対象物質の有無からなる群より選択される少なくとも1種であることが好ましい。また、定量的な情報は、測定対象物質の基準量に対する固体サンプル中の測定対象物質の濃度又は量の比率、固体サンプル中の測定対象物質の含有量又は濃度の比率からなる群より選択される少なくとも1種であることが好ましい。

【0024】

(スペクトル情報)

本実施形態におけるスペクトル情報としては、二次イオン質量分析法により取得されるものである。二次イオン質量分析法としては、Dynamic SIMS法、TOF-SIMS法などが挙げられる。なかでも、二次イオン質量分析法として、TOF-SIMS法を用いることが好ましい。

10

20

30

40

50

【0025】

(情報処理システム、情報処理装置)

次に、図1を用いて、本実施形態における情報処理システムを説明する。図1は、本実施形態に係る情報処理装置を含む情報処理システムの全体構成を示す図である。

【0026】

情報処理システムは、情報処理装置10とデータベース22と分析装置23とを含んでいる。情報処理装置10とデータベース22とは、通信手段を介して互いに通信可接続されている。本実施形態においては、通信手段はLAN(Local Area Network)21で構成される。また、情報処理装置10と分析装置23とは、USB(Universal Serial Bus)などの規格の通信手段で接続されている。なお、LANは、有線LANでも無線LANでもよいし、WAN(Wide Area Network)であってもよい。また、USBはLANであってもよい。

10

【0027】

データベース22は、分析装置23による分析によって取得されたスペクトル情報を管理する。また、データベース22は、後述する学習モデル生成部42により生成された学習モデル(学習済みモデル)を管理する。情報処理装置10は、データベース22で管理されたスペクトル情報や学習モデルを、LAN21を介して取得する。

【0028】

(学習モデル)

本実施形態における学習モデルとは、回帰学習モデルであり、深層学習などの機械学習によって生成されたものを用いることができる。機械学習アルゴリズムに教師データを用いて学習を行い、適切な予測が行えるように構築したものをここでは学習モデルと呼ぶ。学習モデルに用いる機械学習アルゴリズムには多様な種類がある。例えば、ニューラルネットワークを用いた深層学習を使用することができる。ニューラルネットワークは、入力層、出力層、及び複数の隠れ層から構成され、各層は、活性化関数と呼ばれる計算式で結合されている。ラベル(入力に対応する出力)付き教師データを用いる場合、入力と出力の関係が成り立つように活性化関数の係数を決定していく。複数の教師データを用いて係数を決定することで、高精度で入力に対する出力を予測できる学習モデルを生成することができる。

20

【0029】

(分析装置)

分析装置23は、サンプルや固体試料などを分析するための装置である。分析装置23は、分析手段の一例に相当する。なお、前述したように、本実施形態では、情報処理装置10と分析装置23とが通信可能に接続されている。しかし、情報処理装置10の内部に分析装置23を備える形態であってもよいし、分析装置23の内部に情報処理装置10を備える形態であってもよい。さらに、不揮発メモリなどの記録媒体を介して分析結果(スペクトル情報)を分析装置23から情報処理装置10へ受け渡す形態であってもよい。

30

【0030】

本実施形態における分析装置23は、二次イオン質量分析法によりスペクトル情報を取得できるものであれば利用できる。二次イオン質量分析法によりスペクトル情報を取得できる装置としては、飛行時間型二次イオン質量分析装置(TOF-SIMS)などが挙げられる。以下、TOF-SIMSについて詳細に説明する。

40

【0031】

TOF-SIMSは、サンプルにイオンビーム(一次イオン)を照射すると、固体試料表面から元素や分子が放出する。一次イオンとしては、 Ga^+ 、 In^+ 、 Au^+ 、 Bi^+ などが挙げられる。この一次イオンは、幅が0.7ns以下、繰り返し周波数が数kHzから50kHzのパルスに成形されて、サンプルに照射される。そして、引き出し電場によってサンプルから引き出された二次イオンがグリットと検出器との間の無電場空間を一定速度で飛行した後、飛行時間型質量分析計で検出される。その際の飛行速度が二次イオンの質量により異なるため、飛行時間型質量分析計への到達時間の差により、質量分析

50

を行う。なお、反射型飛行時間型質量分析計は、反射型のフライト（ドリフト）チューブを使用して、2 mの距離を飛行する時間により、質量分析を行う。

【0032】

情報処理装置10は、その機能的な構成として、通信IF31、ROM32、RAM33、記憶部34、操作部35、表示部36、及び制御部37を具備する。

【0033】

通信IF (Interface) 31は、例えば、LANカード及びUSBのインターフェースカードで実現される。通信IF31は、LAN21とUSBを介した外部装置（例えば、データベース22と分析装置23）と情報処理装置10との間の通信を司る。ROM (Read Only Memory) 32は、不揮発性のメモリなどで実現され、各種プログラムなどを記憶する。RAM (Random Access Memory) 33は、揮発性のメモリなどで実現され、各種情報を一時的に記憶する。記憶部34は、例えば、HDD (Hard Disk Drive)などで実現され、各種情報を記憶する。操作部35は、例えば、キーボードやマウスなどで実現され、ユーザからの指示を装置内に入力する。表示部36は、例えば、ディスプレイなどで実現され、各種情報をユーザに向けて表示する。操作部35や表示部36は、制御部37からの制御により、GUI (Graphical User Interface)としての機能を提供する。

【0034】

（制御部）

制御部37は、例えば、少なくとも1つのCPU (Central Processing Unit)などで実現され、情報処理装置10における処理を統括制御する。制御部37は、その機能的な構成として、スペクトル情報取得部41、学習モデル生成部42、学習モデル取得部43、推定部44、情報取得部45、及び表示制御部46を具備する。

【0035】

（スペクトル情報取得部41）

スペクトル情報取得部41は、固体試料と測定対象物質とを含む目的サンプルの分析結果、具体的には目的サンプルのスペクトル情報を分析装置23から取得する。なお、あらかじめ分析結果が格納されたデータベース22から、目的サンプルのスペクトル情報を取得してもよい。また、同様に固体試料のスペクトル情報、及び固体試料と測定対象物質とを含むサンプルのスペクトル情報を取得する。この固体試料のスペクトル情報は、固体物質が単一で存在した場合のスペクトル情報である。固体試料と測定対象物質とを含むサンプルのスペクトル情報は、例えば、サンプル中の測定対象物質の含有量が0.2%、0.4%など異なる量の測定対象物質を含む複数種のサンプルを用意し、各サンプルから得られるスペクトル情報のことである。

【0036】

そして、スペクトル情報取得部41は、取得したサンプルのスペクトル情報を推定部44に出力する。また、取得したサンプルのスペクトル情報、及び固体試料のスペクトル情報を学習モデル生成部42に出力する。

【0037】

（学習モデル生成部42）

学習モデル生成部42は、スペクトル情報取得部41が取得した固体試料、及びサンプルのスペクトル情報を用いて教師データを生成する。そして、学習モデル生成部42は、教師データを用いて深層学習を実行し、学習モデルを生成する。教師データの生成及び学習モデルの生成に関する詳細な説明は、後述する。そして、学習モデル生成部42は、生成した学習モデルを学習モデル取得部43へ出力する。なお、学習モデル生成部42は、生成した学習モデルをデータベース22へ出力してもよい。

【0038】

（学習モデル取得部43）

学習モデル取得部43は、学習モデル生成部42が生成した学習モデルを取得する。なお、学習モデルがデータベース22に格納されている場合には、学習モデル取得部43は

10

20

30

40

50

、データベース 22 から学習モデルを取得する。そして、学習モデル取得部 43 は、取得した学習モデルを推定部 44 へ出力する。

【0039】

(推定部 44)

推定部 44 は、学習モデル取得部 43 が取得した学習モデルに、スペクトル情報取得部 41 が取得した目的サンプルのスペクトル情報を入力することにより、目的サンプルに含まれる測定対象物質の種類に関する情報を学習モデルに推定させる。そして、推定部 44 は、推定された種類に関する情報を、情報取得部 45 へ出力する。推定部 44 は、目的サンプルのスペクトル情報を学習モデルに入力することにより、測定対象物質の種類に関する情報を推定する推定手段の一例に相当する。

10

【0040】

(情報取得部 45)

情報取得部 45 は、学習モデルが推定した種類に関する情報を取得する。すなわち、情報取得部 45 は、目的サンプルのスペクトル情報を学習モデルに入力することにより推定された、測定対象物質の種類に関する情報を取得する情報取得手段の一例に相当する。そして、情報取得部 45 は、取得した種類に関する情報を表示制御部 46 へ出力する。

【0041】

(表示制御部 46)

表示制御部 46 は、情報取得部 45 が取得した種類に関する情報を表示部 36 に表示させる。表示制御部 46 は、表示制御手段の一例に相当する。

20

【0042】

なお、制御部 37 が具備する各部の少なくとも一部は、独立した装置として実現してもよい。また、それぞれが機能を実現するソフトウェアとして実現してもよい。この場合、機能を実現するソフトウェアは、クラウドをはじめとするネットワークを介したサーバ上で動作してもよい。本実施形態では各部はローカル環境におけるソフトウェアによりそれぞれ実現されているものとする。

【0043】

また、図 1 に示す情報処理システムの構成はあくまで一例である。例えば、情報処理装置 10 の記憶部 34 がデータベース 22 の機能を具備し、記憶部 34 が各種情報を保持してもよい。

30

【0044】

次に、図 2 を用いて、本実施形態における学習モデル生成の処理手順を説明する。図 2 は、本実施形態に係る学習モデルの生成に関する処理手順のフローチャートの一例を示す図である。

【0045】

(S201: 固体試料単体、及び固体試料と測定対象物質 A、B、C、D のいずれか 1 つを含むサンプルを分析)

まず、分析装置 23 は、固体試料単体、及び固体試料と測定対象物質を含むサンプルを分析する(ステップ S1)。分析条件は、感度や分析時間などの観点から適宜選択すればよい。固体試料と測定対象物質とを含む試料を分析する場合は、測定対象物質の濃度を何通りか変化させて分析する。どの程度の数が必要であるかは、物質の性質などによっても異なるが、一般的に 3 点以上変化させることが好ましい。測定対象物質が複数種ある場合は、それぞれ分析することが好ましいが、測定対象物質同士の信号が十分に分離できる場合は、同時に測定してもよい。

40

【0046】

そして、分析装置 23 は、取得したスペクトル情報を情報処理装置 10 に出力する。情報処理装置 10 は、分析装置 23 からスペクトル情報を受信し、RAM 33 又は記憶部 34 に保持する。スペクトル情報取得部 41 は、こうして保持されたスペクトル情報を取得する。

【0047】

50

なお、前述したように、分析結果であるスペクトル情報は、データベース 22 が保持してもよい。この場合、スペクトル情報取得部 41 は、データベース 22 からスペクトル情報を取得する。また、分析装置 23 が被検物質を分析するタイミングは、ステップ S3 におけるスペクトル情報の選択よりも前に実行されれば、どのようなタイミングであってもよい。

【0048】

(S202: 教師データを生成)

学習モデル生成部 42 は、ステップ S201 で得られた固体試料単体、及び固体試料と測定対象物質とを含むサンプルのスペクトル情報を用いて、教師データを生成する。その際、第1のスペクトル情報、及び第2のスペクトル情報に基づいて、教師データを生成する。以下、第1のスペクトル情報、及び第2のスペクトル情報を詳細に説明する。

10

【0049】

第1のスペクトル情報とは、固体試料単体のスペクトル情報、固体試料と測定対象物質とを含むサンプルのスペクトル情報、及びノイズスペクトルを用いて作成されたスペクトル情報のことである。

【0050】

第2のスペクトル情報とは、第1のスペクトル情報群から抽出された、測定対象物質の濃度が異なるサンプルのスペクトル情報から作成されるものである。具体的には、測定対象物質に関して、その濃度が、抽出された2つの第1のスペクトル情報の濃度の間に含まれるものである。以下、作成したスペクトルを人工スペクトル、このスペクトルの作成方法を濃度補間と記載する。

20

【0051】

次に、ノイズ付与を行った教師データ作成方法について述べる。スペクトル情報は、各フラグメントで測定されたイオン強度、又は m/z の所定の範囲内のフラグメントが持つイオン強度の合計で除算し正規化されたイオン強度からなるもので、その数値は、分子量 m をイオン価数 z で除算した m/z ごとに測定されている。

【0052】

固体試料及び測定対象物質を含むサンプルのスペクトル情報の m/z が 10 以上のフラグメントイオン強度の合計に対する、測定対象物質のスペクトル情報におけるイオン強度の割合は、 7×10^{-5} 以下であってもよい。測定対象物質のスペクトル情報のイオン強度の割合が 7×10^{-5} 以下と小さい場合でも、本発明の情報処理装置を用いれば、簡便、迅速、かつ高精度に測定対象物質の種類に関する情報を得ることが可能となる。前記割合は、 7×10^{-5} 未満であることが好ましい。

30

【0053】

本実施形態においては、固体試料単体のスペクトル情報において、それぞれのイオン強度に 0.1 から 5.0 の間の任意の数値を乗算する。この任意の数値を乗算したスペクトルをノイズスペクトルとし、また、この乗算作業をノイズ付与と記載する。次に、固体試料と測定対象物質とを含むサンプルのスペクトル情報のうち、同じ m/z 値を持つイオン強度と乗算した値を平均した値、イオン強度と任意の数値を乗算した値との平均値、又は最も大きい値をもって新たに作成したイオン強度とするとよい。この作業をすべての m/z に対して行い、第1のスペクトル情報とする。

40

【0054】

教師データの生成において濃度補間とノイズ付与は、どちらを先に行ってもよい。

【0055】

(S203: 学習モデルを生成)

生成した教師データを用いて、所定のアルゴリズムに従った機械学習を実施して学習モデルを構築する(ステップ S203)。具体的な学習の手法としては、たとえば、一般的な機械学習手法であるニューラルネットワークやサポートベクターマシンなどを用いてもよい。また、隠れ層が多層になった深層学習手法として、DNN (ディープニューラルネットワーク) や CNN (コンボリュショナルニューラルネットワーク) などを用いても

50

よい。測定対象物質が複数種ある場合には、それぞれの物質に対して学習モデルを生成する。そして、学習モデル生成部 42 は、RAM 33、記憶部 34、又はデータベース 22 に、生成した学習モデルを格納する。

【0056】

以上のようにして、固体試料単体、及び固体試料と測定対象物質とを含むサンプルのスペクトル情報に基づいて、目的サンプルに含まれる測定対象物質の種類に関する情報を推定する学習モデルを生成する。

【0057】

次に、種類に関する情報を表示する方法について、説明する。図 3 は、本実施形態に係る種類に関する情報を表示する処理手順のフローチャートの一例を示す図である。

【0058】

(S301: 目的サンプルを分析)

分析装置 23 は、固体試料と測定対象物質とを含む目的サンプルを分析し、目的サンプルのスペクトル情報を取得する。分析条件は、前述したステップ 201 と同一の条件とする。そして、分析装置 23 は、取得したスペクトル情報を情報処理装置 10 に出力する。情報処理装置 10 は分析装置 23 からスペクトル情報を受信し、RAM 33 又は記憶部 34 に保持する。スペクトル情報取得部 41 は、こうして保持されたスペクトル情報を取得する。なお、前述したように、分析結果であるスペクトル情報は、データベース 22 が保持してもよい。この場合、スペクトル情報取得部 41 は、データベース 22 からスペクトル情報を取得する。また、分析装置 23 がサンプルを分析するタイミングは、ステップ S302 における種類に関する情報の推定よりも前に実行されれば、どのようなタイミングであってもよい。

【0059】

(S302: 種類に関する情報を推定)

学習モデル取得部 43 は、RAM 33、記憶部 34、又はデータベース 22 に格納された学習モデルを取得する。そして、推定部 44 は、取得された学習モデルに、ステップ S301 で取得された目的サンプルのスペクトル情報を入力することにより、目的サンプルに含まれる測定対象物質の種類に関する情報を推定させる。また、必要に応じて、推定部 44 は、推定された種類に関する情報を、表示部 36 において表示する形式に換算する。表示部 36 において表示する形式としては、 g/L 、 mol/L などの濃度でもよいし、基準量（標準量）に対する割合でもよい。学習モデルにより推定される値がこれらの表示形式であれば、換算する必要はない。そして、情報取得部 45 は、推定された種類に関する情報を推定部 44 から取得し、RAM 33 又は記憶部 34 に格納する。

【0060】

(S303: 種類に関する情報を表示)

表示制御部 46 は、ステップ 302 で学習モデルにより推定された、目的サンプルに含まれる測定対象物質の種類に関する情報を表示部 36 に表示させる。その際、グラフ形式や表形式に整理して表示してもよい。図 7 に、表示部 36 に表示された画面（ウィンドウ）の一例を示す。さらに、“高い”、“低い”など推定濃度の数値に応じて、そのレベルを表示してもよい。

【0061】

本発明は、上述の実施形態の 1 以上の機能を実現するプログラムを、ネットワーク又は記憶媒体を介してシステム又は装置に供給し、そのシステム又は装置のコンピュータにおける 1 つ以上のプロセッサがプログラムを読み出し実行する処理でも実現可能である。また、1 以上の機能を実現する回路（例えば、ASIC）によっても実現可能である。

【0062】

<実施例>

以下に、実施例および比較例を挙げて本発明をより詳細に説明する。なお、本発明は以下の実施例に限定されるものではない。

【0063】

10

20

30

40

50

(実施例 1)

〔固体試料の作製〕

モノマーとしてのメチルメタクリレートと、架橋剤としてのトリメチロールプロパンメタクリレート（いずれも東京化成工業製）を 49.5 g ずつ混合した。さらに、混合した溶液に、重合開始剤としての Omnirad 819 (IGM Resins B.V. 製) を 1 g 添加した。次に、得られた溶液から 1 g を分取し、ミキサー（あわとり練太郎 AR-100、シンキー製）を用いて、5 分間攪拌した。そして、攪拌した溶液から 0.3 g を分取し、フッ素樹脂フィルム（ネオフロン PFA フィルム、ダイキン工業製）で挟み、水銀ランプ (UL 750 HOYA 製) をフッ素樹脂フィルムの 30 cm 遠方から 5 分間照射した。これにより、光硬化樹脂が得られ、これを固体試料とした。

10

【0064】

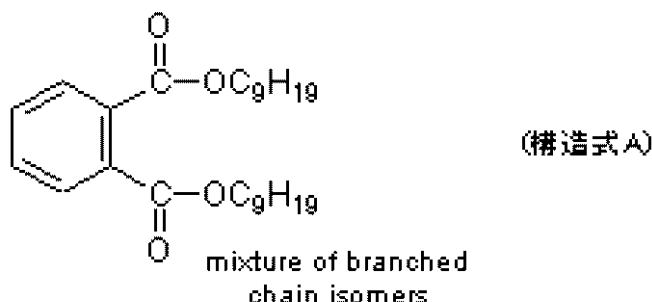
〔固体試料と測定対象物質とを含むサンプルの作製〕

〔サンプル A の作製〕

固体試料の作製において得られた攪拌した液体から 1 g に、可塑剤として測定対象物質 A であるジイソノニルフタレート（下記構造式 A、富士フィルム和光純薬製）を 0.001 g 添加し、固体試料に対して測定対象物質 A を 0.1 % 含むサンプル A を作製した。

【0065】

【化 1】



20

【0066】

なお、可塑剤を添加して得られた溶液から光硬化樹脂を得る方法は、固体試料の作製と同様の方法である。

30

【0067】

さらに、可塑剤の添加量を変更することで、固体試料に対して測定対象物質 A をそれぞれ 0.2 %、0.4 %、0.6 %、0.8 %、1.0 %、10.0 % 含むサンプルを作製した。可塑剤の添加量を変更したこと以外は、サンプル A の作製方法と同様の方法でサンプルを作製した。

【0068】

〔サンプル B の作製〕

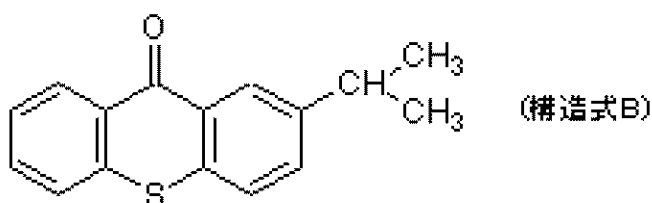
可塑剤を測定対象物質 B である 2-イソプロピルチオキサントン（下記構造式 B、東京化成工業製）に変更したこと以外は、サンプル A の作製と同様の方法でサンプル B を作製した。その際、可塑剤の添加量を変更することで、固体試料に対して測定対象物質 B をそれぞれ 0.1 %、0.2 %、0.4 %、0.6 %、0.8 %、1.0 %、10.0 % 含むサンプルを作製した。

40

【0069】

50

【化 2】



【0070】

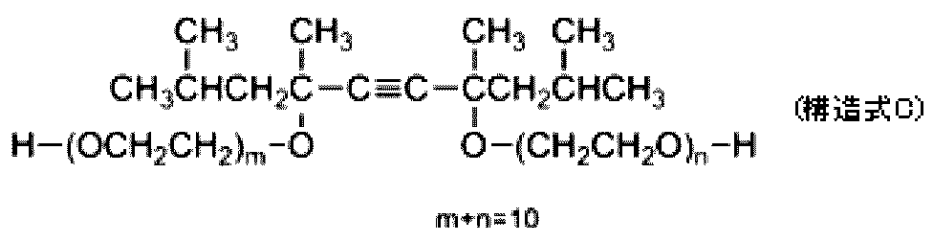
10

〔サンプルCの作製〕

可塑剤を測定対象物質CであるアセチレノールE100（下記構造式C、川研ファインケミカル製）に変更したこと以外は、サンプルAの作製と同様の方法でサンプルCを作製した。その際、可塑剤の添加量を変更することで、固体試料に対して測定対象物質Cをそれぞれ0.1%、0.2%、0.4%、0.6%、0.8%、1.0%、10.0%含むサンプルを作製した。

【0071】

【化 3】



20

【0072】

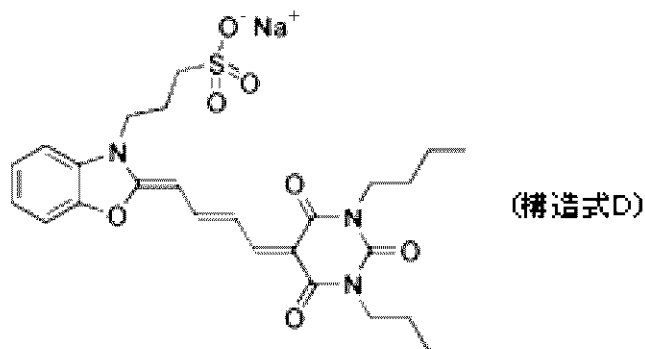
〔サンプルDの作製〕

可塑剤を測定対象物質Dであるメロシアニン（下記構造式D、FDB-009、山田化学製）に変更したこと以外は、サンプルAの作製と同様の方法でサンプルDを作製した。その際、可塑剤の添加量を変更することで、固体試料に対して測定対象物質Dをそれぞれ0.1%、0.2%、0.4%、0.6%、0.8%、1.0%、10.0%含むサンプルを作製した。

30

【0073】

【化 4】



40

【0074】

〔TOF-SIMS法による測定〕

作製した固体試料、及び固体試料と測定対象物質とを含むサンプルをそれぞれ1cm角の正方形に切り出し、以下の条件でTOF-SIMS法による測定を行った。

50

測定機種：TOF-SIMS 5 (ION-TOF 製)
 一次イオン種：Bi³⁺
 一次イオン電流：0.4 pA (Pulse 電流)
 一次イオンエネルギー：25 keV
 測定モード：Bunching Mode (バンチングモード)
 検出範囲：1～800 amu
 電子銃：帯電補正用電子銃
 測定真空度：7×10⁻⁸ Pa
 測定領域：300 μm×300 μm
 測定点数：測定領域内の128×128点
 積算：16回測定モード ネガティブイオン
 測定回数：各サンプルに対しそれぞれ6回

10

以上の測定により図4～7に記載のスペクトル群を得た。図4は、固体試料、及び固体試料と測定対象物質Aとを含むサンプルAのスペクトル情報の一例である。図5は、固体試料と測定対象物質Bとを含むサンプルBのスペクトル情報の一例である。図6は、固体試料と測定対象物質Cとを含むサンプルCのスペクトル情報の一例である。図7は、固体試料と測定対象物質Dとを含むサンプルDのスペクトル情報の一例である。

【0075】

(比較例1)

表1に示すTOF-SIMSの作業従事年数がさまざまなオペレータ4名が、測定対象物質A、B、C、Dのうちいずれかを0.1%、0.4%、又は0.8%含むサンプルのスペクトル群(各6組、計72組)を利用して、サンプル中の測定対象物質を同定した。その際、測定対象物質A、B、C、Dのいずれか1つを10.0%含むサンプルのスペクトル群(各6組、計24組)を参考にした。いずれの測定対象物質も正しく同定できたものの、表1に記載の通り、人の力による測定対象物質の同定には、1時間以上かかることが分かった。

20

【0076】

【表1】

表1: 人の力によるスペクトル情報の解析

30

オペレータ	作業従事年数	解析所要時間
α	10年以上	約1時間
β	8年	約1時間
γ	3か月	約3時間
δ	1か月	約半日

【0077】

(実施例2)

教師データの作成方法については、図8のフローチャートに基づいて説明する。

40

【0078】

[ノイズ付与による教師データの作成]

実施例1で測定されたスペクトル情報を用いて、下記の方法で作成した。

【0079】

固体試料単体のスペクトル(計6組)のイオン強度をm/z毎に比較し、最も高い値を持つイオン強度を抽出した。これら最高値を持つイオン強度をm/zが10から700まで組み合わせた上で、各m/z毎に0.1から5.0の間でランダムに選ばれた任意の数値を掛け合わせてノイズスペクトルを作成した。

【0080】

次にこのノイズスペクトルと固体試料単体のスペクトルのイオン強度をm/z毎に比較

50

し、最も高い値を持つイオン強度を抽出した。これら最高値を持つイオン強度群を m/z が 10 から 700 まで組み合わせた人工スペクトルを作成した。

【0081】

以上の作業を 6 組ある固体試料単体のスペクトルそれぞれに対し 10 回行い、測定対象物質を含まない人工スペクトルからなる教師データを計 60 組作成した。なお、任意の数値は毎回新しい値に更新している（ステップ：S401）。

【0082】

さらに、ノイズスペクトルと、測定対象物質 A を 0.2% 含むサンプル A のスペクトルに対し、イオン強度を m/z 毎に比べ、最も高い値を持つイオン強度を抽出した。そして、これら最高値を持つイオン強度群を m/z が 10 から 700 まで組み合わせた人工スペクトルを作成した。この作業を 6 組ある測定対象物質 A を 0.2% 含むサンプル A のスペクトルそれぞれに対し 10 回行い、測定対象物質 A を 0.2% 含むサンプル A の人工スペクトルからなる教師データを計 60 組作成した（ステップ：S402）。

【0083】

次に、測定対象物質 A をそれぞれ 0.6%、1.0% 含むスペクトルに関しても、測定対象物質 A を 0.2% 含むサンプル A の人工スペクトルからなる教師データの作成と同様な作業を行い、それぞれ 60 組の教師データを作成した。

【0084】

以上より、第 1 のスペクトル群から、計 240 組の教師データを作成した（ステップ：S403 と S404）。

【0085】

さらに、測定対象物質 B、C、及び D のいずれか 1 種をそれぞれ 0.2%、0.6%、1.0% 含むスペクトルに関しても、測定対象物質 A を含むサンプル A の人工スペクトルからなる教師データの作成と同様な作業を行った。これにより、それぞれ 60 組の教師データを作成した。

【0086】

以上より、ノイズ付与による教師データの作成において、得られる教師データは、計 780 組となった。

【0087】

〔濃度補間による教師データの作成〕

固体試料単体のスペクトルからなる教師データ（計 60 組）と、測定対象物質 A を 0.2% 含むサンプル A のスペクトルからなる教師データ（計 60 組）の中から、それぞれスペクトル 1 つずつ抽出した。さらに、各 m/z 毎に計算式（1）～（3）を用い、測定対象物質 A を 0.05%、0.1%、0.15% を含むサンプル A のスペクトル（人工スペクトル）を作成した。

【0088】

〔数 1〕

$$[I_{0.05}] = [I_0] \times \frac{3}{4} + [I_{0.2}] \times \frac{1}{4} \quad (1)$$

$$[I_{0.1}] = [I_0] \times \frac{1}{2} + [I_{0.2}] \times \frac{1}{2} \quad (2)$$

$$[I_{0.15}] = [I_0] \times \frac{1}{4} + [I_{0.2}] \times \frac{3}{4} \quad (3)$$

【0089】

ここで、 I_0 は、固体試料単体のスペクトルからなる教師データのイオン強度であり、 I_n は、測定対象物質Aをn%含むスペクトルのイオン強度である。以上の作業を、固体試料単体のスペクトルからなる教師データを60組と測定対象物質Aを0.2%含む教師データを60組に対し総当たりで行い、 $60 \times 60 \times 3 = 10800$ 個の教師データを得た（ステップ：S405）。

【0090】

同様の方法で測定対象物質Aを0.2%含む教師データ群と、測定対象物質Aを0.6%含む教師データ群から、測定対象物質Aを0.3%、0.4%、0.5%それぞれ含む計10800組の教師データを作成した。

【0091】

また、同様の方法で測定対象物質Aを0.6%含む教師データ群と、測定対象物質Aを1.0%含む教師データ群から、測定対象物質を0.7%、0.8%、0.9%それぞれ含む計10800組の教師データを作成した。以上より、第2のスペクトル群から、計32400組の教師データを作成した（ステップ：S406とS407）。

【0092】

さらに、測定対象物質B、C、及びDに関しても、測定対象物質Aを含むサンプルAの濃度補間による教師データの作成と同様な作業を行い、それぞれ32400組の教師データを作成した。

【0093】

ノイズ付与により作成されたサンプルの教師データ720組と、濃度補間により作成されたサンプルの教師データ129600組とを合わせた130320組を教師データとして、機械学習を行い、学習モデルを生成した。機械学習の手法として、全結合ニューラルネットワークを用い、活性化関数としてrelu関数、及びsoftmax関数を用いた。損失関数として平均二乗誤差を用い、最適化アルゴリズムにはAdamを用いた。十分な同定精度を得るには、1000エポック程度の繰り返し演算が必要であった。

【0094】

次に、測定対象物質A、B、C、及びDのいずれかを0.1%、0.4%、0.8%含むサンプルのスペクトルを各6組ずつ用意し、得られた学習モデルに適用し、サンプルに含まれる測定対象物質の種類を予測した。すなわち、softmax関数を用いて算出される各測定対象物質の分類確率を比較し、最も高い確率である測定対象物質を、機械学習による判定結果とし、その確率を信頼度とした。また、この予測は、TOF-SIMSを扱ったことのない人が行った。表2に記載の通り、経験がなく、解析スキルを持たない人でも、迅速（わずか5秒）、かつ、高精度に測定対象物質を同定することができた。

【0095】

【表2】

表2: 同定精度の結果

実際の試料中の測定対象物質	試料中の測定対象物質の濃度	機械学習による判定結果	判定信頼度	正誤評価	判定に要した時間
A	0.10%	A	70.5%	正答	合計5秒
A	0.40%	A	65.1%	正答	
A	0.80%	A	67.2%	正答	
B	0.10%	B	84.3%	正答	
B	0.40%	B	73.2%	正答	
B	0.80%	B	88.1%	正答	
C	0.10%	C	65.3%	正答	
C	0.40%	C	70.1%	正答	
C	0.80%	C	85.2%	正答	
D	0.10%	D	65.4%	正答	
D	0.40%	D	62.1%	正答	
D	0.80%	D	92.1%	正答	

【0096】

(実施例3)

実施例2におけるノイズ付与を行わなかったこと以外は、実施例2と同様の方法で学習モデルを作成した。具体的には以下に示す通りである。

【0097】

固体試料単体のスペクトルと測定対象物質A、B、C、及びDのいずれか1つをそれぞれ0.2%、0.6%、1.0%含むサンプルのスペクトル各6組の計72組のスペクトルを第1のスペクトル情報とした。

【0098】

[濃度補間による教師データの作成]

固体試料単体のスペクトル6組と測定対象物質Aを0.2%含むサンプルAのスペクトル6組のなかからそれぞれスペクトル1つずつ抽出した。さらに、各 m/z 毎に前記計算式(1)～(3)を用い、測定対象物質Aをそれぞれ0.05%、0.1%、0.15%含むサンプルAのスペクトル(人工スペクトル)を作成した。

【0099】

この作業を固体試料単体のスペクトル6組と測定対象物質Aを0.2%含むサンプルAのスペクトル6組に対し総当たりで行い、 $6 \times 6 \times 3 = 108$ 個の教師データを得た。

【0100】

同様の方法で測定対象物質Aを0.2%含むスペクトル6組と、測定対象物質Aを0.6%含むスペクトル6組から、測定対象物質Aをそれぞれ0.3%、0.4%、0.5%含む計108組の教師データを作成した。

【0101】

また、同様の方法で測定対象物質Aを0.6%含むスペクトル6組と、測定対象物質Aを1.0%含むスペクトル6組から、測定対象物質をそれぞれ0.7%、0.8%、0.9%含む計108個の教師データを作成した。以上より、計324組の第2のスペクトル情報とした。

【0102】

さらに、測定対象物質B、C、及びDに関しても、測定対象物質Aを含むサンプルAの濃度補間による教師データの作成と同様な作業を行い、計1296組の教師データを作成した。

【0103】

以上、第1と第2のスペクトル計1368組を教師データとし、機械学習を行い、学習モデルを生成した。機械学習の手法として、全結合ニューラルネットワークを用い、活性化関数として relu 関数、及び softmax 関数を用いた。損失関数として平均二乗誤差を用い、最適化アルゴリズムには Adam を用いた。十分な同定精度を得るには、1000エポック程度の繰り返し演算が必要であった。

【0104】

次に、測定対象物質A、B、C、及びDのいずれかを0.1%、0.4%、0.8%含むサンプルのスペクトルを各6組ずつ用意し、得られた学習モデルに適用し、サンプルに含まれる測定対象物質の種類を予測した。すなわち、 softmax 関数を用いて算出される各測定対象物質の分類確率を比較し、最も高い確率である測定対象物質を、機械学習による判定結果とし、その確率を信頼度とした。また、この予測は、 TOF-SIMS を扱ったことのない人が行った。表3に記載の通り、経験がなく、解析スキルを持たない人でも、迅速(わずか5秒)、かつ、高精度に測定対象物質を同定することができた。

【0105】

10

20

30

40

50

【表 3】

表3: 同定精度の結果

実際の試料中の 測定対象物質	試料中の測定 対象物質の濃度	機械学習に よる判定結果	判定信頼度	正誤評価	判定に要した 時間
A	0.10%	A	43.7%	正答	合計5秒
A	0.40%	A	58.6%	正答	
A	0.80%	A	53.8%	正答	
B	0.10%	B	59.0%	正答	
B	0.40%	B	58.6%	正答	
B	0.80%	B	79.3%	正答	
C	0.10%	C	37.8%	正答	
C	0.40%	C	53.0%	正答	
C	0.80%	C	49.7%	正答	
D	0.10%	D	45.5%	正答	
D	0.40%	D	55.9%	正答	
D	0.80%	D	82.9%	正答	

10

【0106】

(比較例2)

実施例3における濃度補間による教師データの作成を行わなかったこと以外は、実施例3と同様の方法で学習モデルを作成した。具体的には以下に示す通りである。

20

【0107】

固体試料単体のスペクトル6組と測定対象物質Aを0.2%含むサンプルAのスペクトル6組と、測定対象物質Aを0.6%含むサンプルAのスペクトル6組と、測定対象物質Aを1.0%含むサンプルAのスペクトル6組を教師データとした。

【0108】

さらに、測定対象物質B、C、及びDに関しても、測定対象物質Aと同様の方法で、それぞれ18組の教師データを得た。

【0109】

これら計72組を教師データとし、機械学習を行い、学習モデルを生成した。機械学習の手法として、全結合ニューラルネットワークを用い、活性化関数として relu 関数、及び softmax 関数を用いた。損失関数として平均二乗誤差を用い、最適化アルゴリズムにはAdamを用いた。十分な同定精度を得るには、200エポック程度の繰り返し演算が必要であった。

30

【0110】

次に、測定対象物質A、B、C、及びDのいずれかを0.1%、0.4%、0.8%含むサンプルのスペクトルを各6組ずつ用意し、得られた学習モデルに適用し、サンプルに含まれる測定対象物質の種類を予測した。すなわち、 softmax 関数を用いて算出される各測定対象物質の分類確率を比較し、最も高い確率である測定対象物質を、機械学習による判定結果とし、その確率を信頼度とした。表4に記載の通り、精度よく測定対象物質を同定できなかった。

40

【0111】

50

【表 4】

表4: 同定精度の結果

実際の試料中の 測定対象物質	試料中の測定 対象物質の濃度	機械学習に よる判定結果	判定信頼度	正誤評価	判定に要した 時間
A	0.10%	B	17.5%	誤答	合計5秒
A	0.40%	B	60.2%	誤答	
A	0.80%	D	21.5%	誤答	
B	0.10%	A	23.6%	誤答	
B	0.40%	A	17.6%	誤答	
B	0.80%	B	39.6%	正答	
C	0.10%	B	18.9%	誤答	
C	0.40%	D	21.2%	誤答	
C	0.80%	C	59.2%	正答	
D	0.10%	C	36.4%	誤答	
D	0.40%	C	39.1%	誤答	
D	0.80%	B	58.0%	誤答	

10

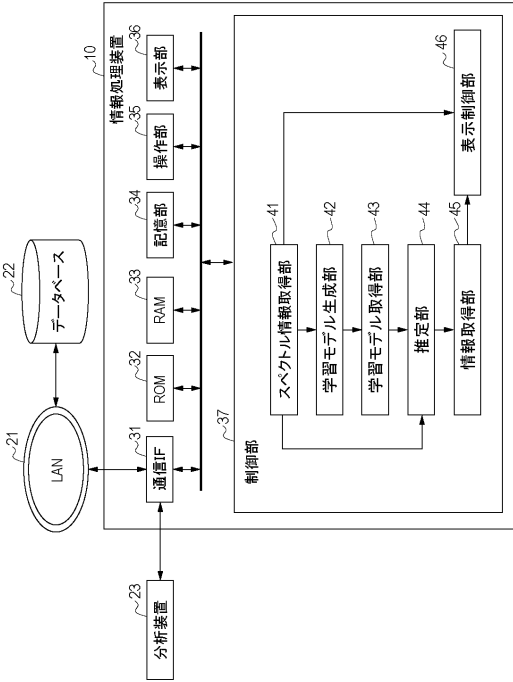
20

30

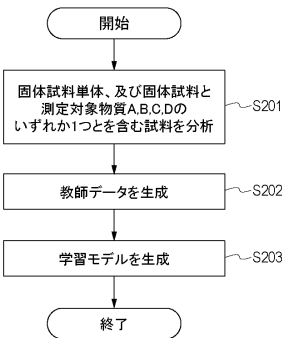
40

50

【図面】
【図 1】



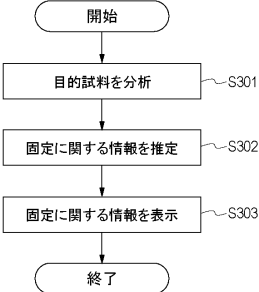
【図 2】



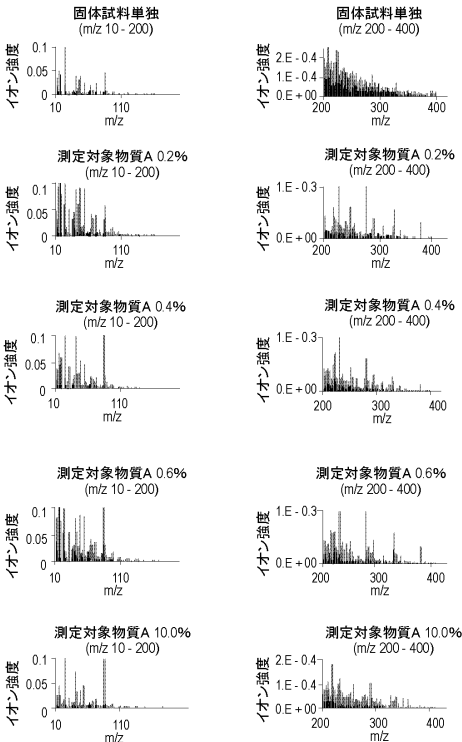
10

20

【図 3】



【図 4】

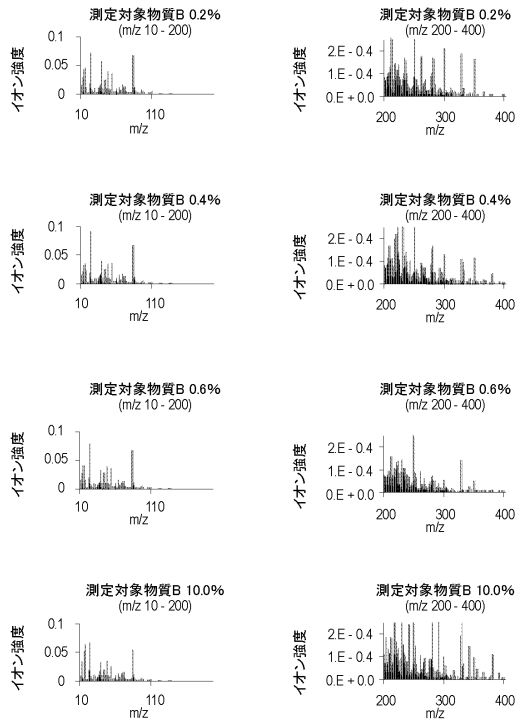


30

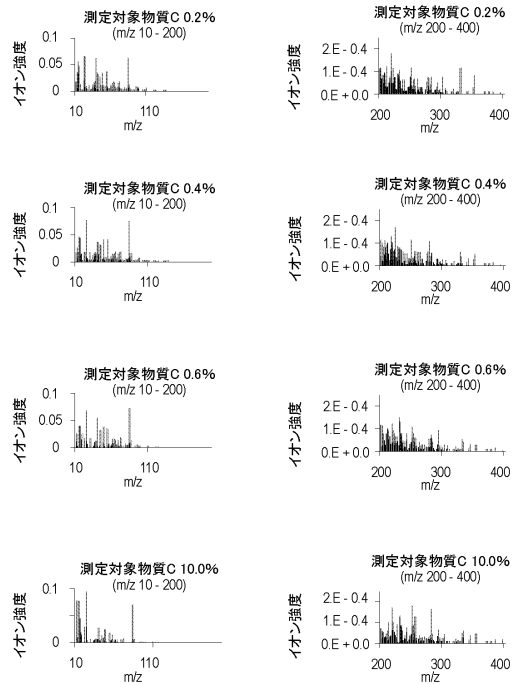
40

50

【図 5】



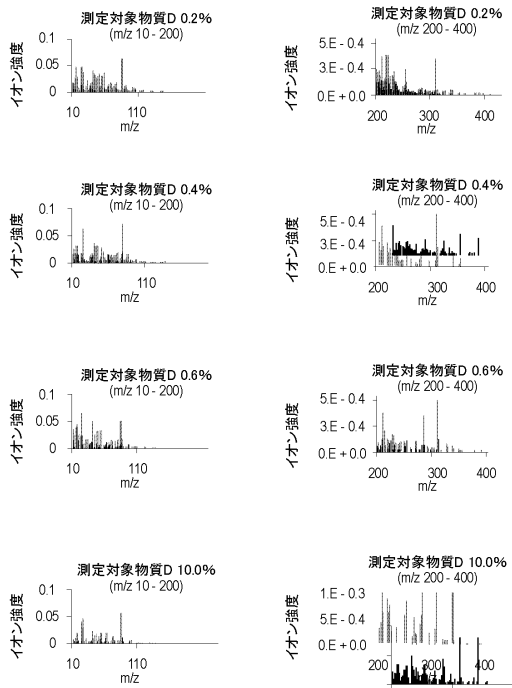
【図 6】



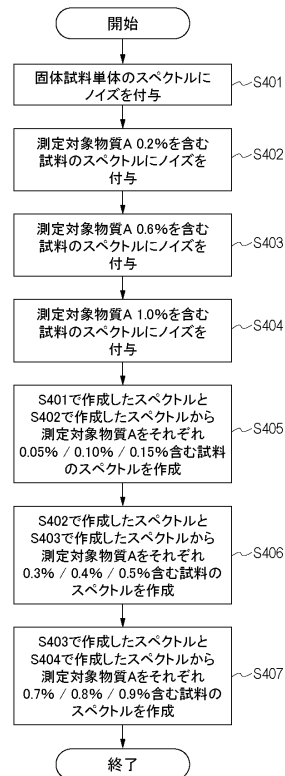
10

20

【図 7】



【図 8】



30

40

50

【図 9】

試料に含まれる 測定対象物質	ジイソノニルフタレート
判定信頼度	70.5%

10

20

30

40

50

フロントページの続き

ヤノン株式会社内

(72)発明者 塚本 雅美

東京都大田区下丸子3丁目30番2号キヤノン株式会社内

審査官 吉田 将志

(56)参考文献 特開2008-175654(JP, A)

特開平06-027057(JP, A)

特開2012-145530(JP, A)

特開2014-020831(JP, A)

特表2015-516570(JP, A)

特開2016-028229(JP, A)

石倉航他, 多変量解析を利用したTOF-SIMSイメージデータフュージョンとスパースモデリングおよび機械学習によるTOF-SIMSスペクトル解析, Journal of Surface Analysis, 2018年, Vol.25/No.2, PP.103-114

(58)調査した分野 (Int.Cl., DB名)

G01N 27/60 - G01N 27/70

G01N 27/92

G06N 20/00