

画像解析ソフトImageJを用いたポリマーアロイのモルフォロジー定量化

松浦元司*1 渡辺健市*2

Digital Image Analysis for Morphology of Polymer Alloy with the Software “ImageJ”

Motoshi Matsuura*1 Kenichi Watanabe*2

要 旨

画像解析ソフトImage J※を用いて、タルクを含んだオレフィン系ポリマーアロイの、ゴム平均粒子径、アスペクト比、粒子径分布について定量化を検討した。解析方法として、配合比にもとづいてしきい値を決めるという、解析者の任意性を排除した手法を採った。

この手法に基づき、異なる設備で練ったオレフィン系材料のゴム粒子径の定量化に活用した。その結果、ゴム粒子径が大きくなるにしたがい、耐衝撃性が低下する傾向が見られた。粒子径を定量化することで、目標とする耐衝撃性を達成するために、制御しなければならないゴム粒子径の目標を得ることができる。

※) ImageJ : アメリカ国立衛生研究所 (NIH) で科学研究用、特に顕微鏡画像処理のために開発された画像処理ソフト

Abstract

With digital image analysis software called “ImageJ”, we studied to estimate average diameter, aspect ratio, and distribution of the diameter, of the elastomer particles in the morphology formed by olefin-based polymer alloy including talc. The image analysis method we adopted is that the threshold is determined by referring to the composition of material. It excludes arbitrariness of the engineer.

We tried to apply this method to estimate the diameters of particles in the morphology of olefin-based polymer alloy materials extruded by each different machine. As a result, we could observe a tendency that the impact strength value of the molded article of those materials declines as the diameter of the elastomer particle in the morphology of the material is large. By digital image analysis, we can grasp the target value of the diameter of the particle in the morphology to ensure the minimum impact strength of the molded article of the material.

*1 Motoshi Matsuura 材料技術部 材料分析室

*2 Kenichi Watanabe 材料技術部 材料分析室

1. はじめに

近年、高分子の物性発現を予測しての配合設計、材料開発がなされるようになってきている。その中で目標とする物性を得るために、混練り、成型によってどのような高次構造が形成されているかを知ることが必要であり、電子顕微鏡による観察が盛んに行われている。

しかし、電子顕微鏡観察で得られたモルフォロジーと物性の関係を考えるとき、写真のままでは定性的な議論しかできない。

そこで画像を数値化し、物性との関係を分かりやすくすることが重要となる。

本報では、画像解析ソフトウェア『ImageJ』を用いて、オレフィン系ポリマーアロイ材料のモルフォロジー画像の定量化を行った。こうした画像の定量化を行うことにより、構造と物性の関係をより綿密に把握することができるはずである。そして、目標となる物性を発現させる条件を見つける手がかりにもなると考えられる。

『ImageJ』は、アメリカ国立衛生研究所(NIH)で開発されたオープンソースでパブリックドメインの画像処理ソフトである。もともと医療用に開発されたものであるが、特に顕微鏡で撮影した画像の処理を行うことを目的としてつくられており、科学研究者向けの特徴を持っている。

2. 実験

画像解析の主な手順として、

- 1) キャリブレーション
(1画素の寸法を決定)
- 2) 解析領域の指定
- 3) 濃度範囲しきい値の設定
- 4) カットオフ値の設定
(一定面積以下の微粒子を除去)
- 5) 解析実行

が挙げられる。

この中で、濃度範囲しきい値の設定に任意性があり、人によって設定の仕方が違う、あるいは、同じ人物が一連の実験に対して解析していても、時によって、設定の仕方が変わるという課題がある。^{1), 2)} 本材料系の画像解析をすすめるにあたり、この問題が起らないよう、しきい値の設定の仕方を一様にするようにした。単純ではあるが、材

料の配合比に基づいてしきい値を決定する。詳細には、材料の配合と成分の比重から、各成分の体積分率を計算し、解析実行する。結果の対象成分の面積比率を見ながら、体積分率に最も近くなるように、しきい値を設定した。

解析対象領域における各成分が、常に平均の体積分率を保っているとは限らず、変動があると考えられる。よってこの手法により、画像の対象成分領域と抽出画像のフィッティングは多少犠牲となるが、解析者、解析時期によっての結果の変動をなくし、任意性を排除することができる利点を重視している。

PP/ゴム/タルクを配合したオレフィン系ポリマーアロイ材料が画像解析の対象である。これにルテニウム酸染色を施し、電子顕微鏡写真を撮影した。図-1はオレフィン系アロイ材料のSTEM観察像である。

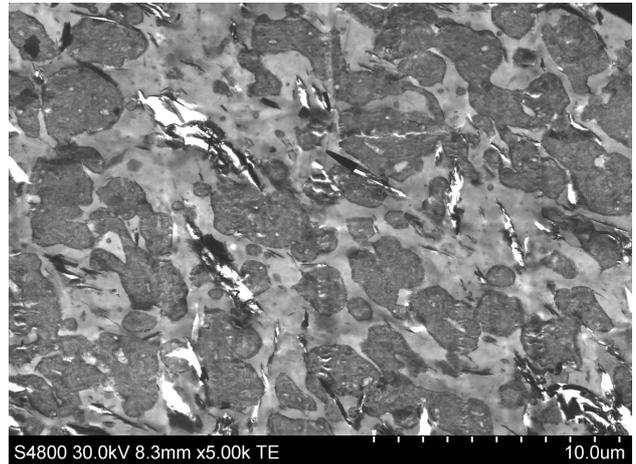


図-1 PP/ゴム/タルクアロイのSTEM観察像

図-1で最も黒い領域がタルク、ルテニウム酸によってグレーに染色された中間の濃度領域がゴム、マトリックスの白い領域がPPである。タルクを含んでいることによって複雑になっている。この写真よりゴム粒径の解析を行う。

配合情報から各成分の体積分率を計算によって、あらかじめ求めておく。

解析対象領域は写真全体とし、まず濃度が濃い側のタルクのしきい値を求める。結果としての面積率がタルクの配合体積分率となるように決める。次にゴムはタルクで決定した低濃度側のしきい値から始まり、同様に面積率がゴムの体積分率になるように設定する。図-2に設定の様子を示す。

上方に0~255階調のヒストグラムが示されており、ゴムとして中間の濃度の領域を抽出している。

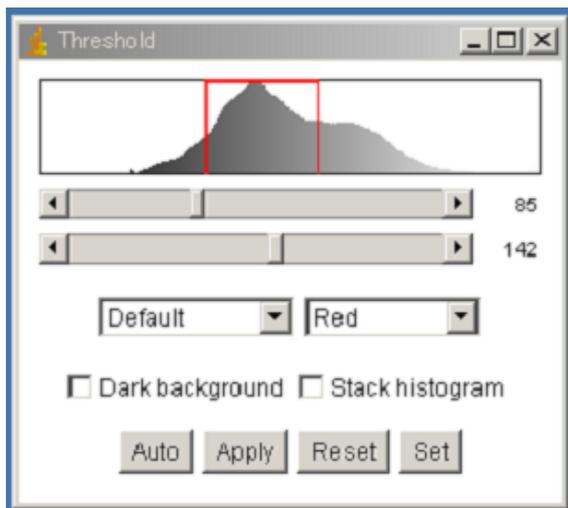


図-2 しきい値設定の画面

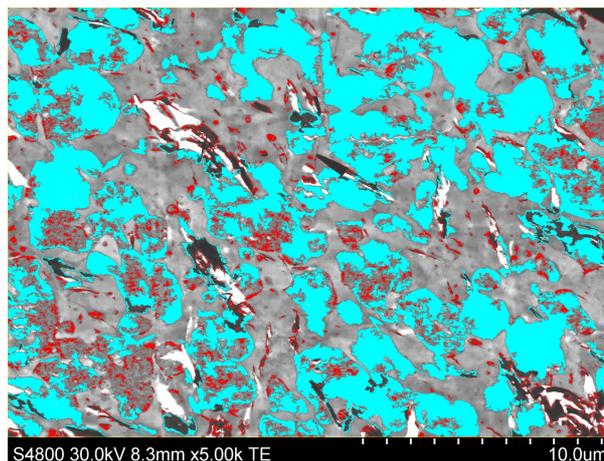


図-4 カットオフによって除かれた粒子（赤）

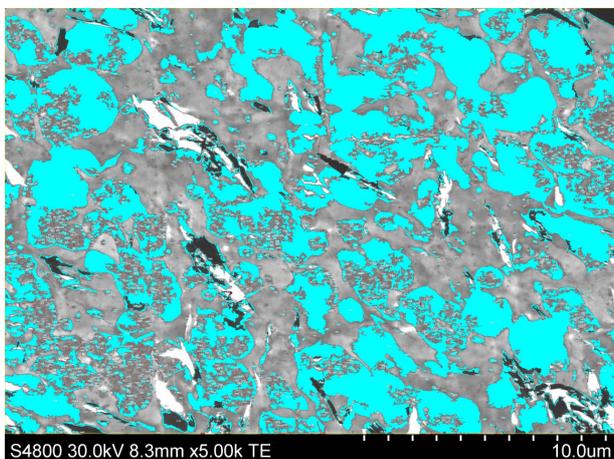


図-3 しきい値で抽出されたゴム領域

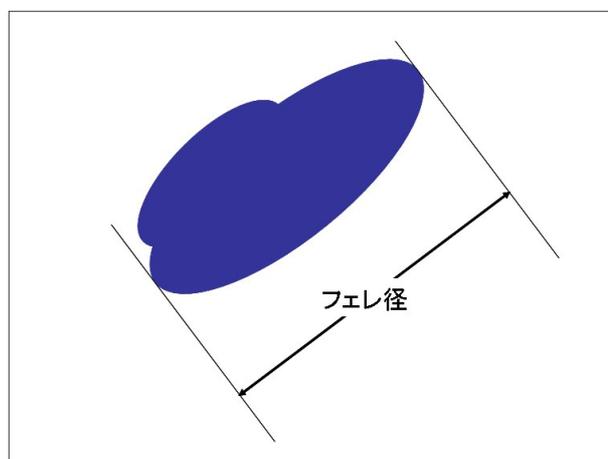


図-5 フェレ径

図-3では、前述のように決定されたしきい値で抽出されたゴムの領域を水色で示している。画像のノイズにより微粒子が発生したり、またゴム粒子中の微細構造によって細かい粒子が形成されることがある。これらの微粒子をそのままにして計算すると、平均粒子径を小さくしてしまう。そこで、カットオフと呼ばれる操作によって一定の面積以下の粒子を除く。ここでは、一様に $0.1 \mu m^2$ としてそのような粒子を除き、粒子径を求めることにした。図-4では除かれた粒子を赤で示している。

平均粒子径は、図-5のような（最大）フェレ径で出力している。ゴム内側で粒子の離脱が生じていても外形をある程度保持していれば、粒径への影響は小さいと考える。

3. 結果

図-4において画像解析した結果より、ゴム領域の粒子の分布は、図-6で示すような結果となった。フェレ径での平均粒子径は $2.12 \mu m$ 、アスペクト比は2.30であった。

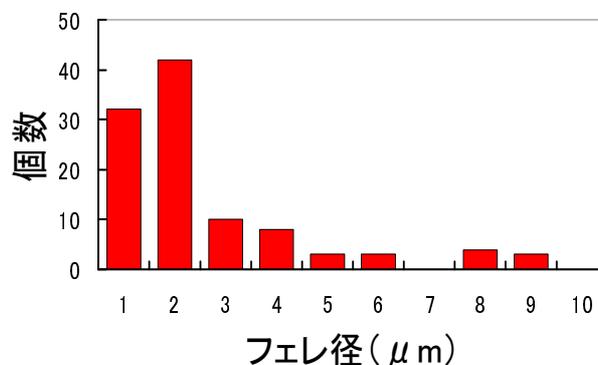


図-6 粒子径分布

解析の再現性を確認するために、同じ材料の顕微鏡写真を全部で5枚撮影し、同様に解析を行った。表-1に解析した粒子径、参考としてアスペクト比の結果を示す。

5回の解析検討で粒子径の標準偏差として0.12 μm程度、RSD（相対標準偏差百分率）として6.3%のばらつきで評価できることを確認した。

表-1 画像解析の再現性

n	フェレ径 (μm)	粒子径分布の標準偏差 (μm)	アスペクト比
1	2.12	1.92	2.30
2	1.98	1.77	2.29
3	1.93	2.15	2.24
4	1.78	2.03	2.08
5	2.02	1.83	2.21
平均	1.96	1.94	2.22
標準偏差	0.124	—	0.0909
RSD値(%)	6.3	—	4.1

4. 適用例

これまで述べたように、粒子が分散した系の平均粒径を求めることができるようになった。そこで、製品性能の中で重要な物性である耐衝撃性との関係について解析した。

PP/ゴム/タルク系のオレフィン系ポリマーアロイの同等配合材料を異なる設備で混練された材料がある。これらの材料を用いてテストピースを成型し、シャルピー衝撃試験を行ったところ、表-2に示す結果となった。

ラボ機A、量産機Bで練った材料の耐衝撃性が量産機C、量産機Dで練った材料より、相対的に

表-2 材料、使用設備と衝撃試験値

混練設備	シャルピー衝撃試験値 (kJ/m ²)	フェレ径 (μm)
ラボ機 A	27.5	1.51
量産機 B	25.8	1.56
量産機 C	15.7	2.15
量産機 D	15.0	2.05

低い値となっている。このように異なる押出機で練られた材料は、ゴムの分散状態が異なっている可能性が考えられる。開発途上の材料をラボスケールから量産機へスケールアップする時など、材料技術者が練りの状態の変化を注意しているところである。

この衝撃試験値の違いの原因を明らかにするため、同様のルテニウム酸染色を実施し、モルフォロジー観察を行ったところ、図-7(1)~(4)のSTEM観察像を得た。

これらの写真を比較して、ゴム分散状態に差があるように見られる。図-7に示したSTEM観察像から画像解析を行い、ゴム部の平均粒子径を求め、結果を同じ表-2に示す。またフェレ径とこれらの材料のシャルピー衝撃値の関係を図-8に示す。粒子径が大きくなるとともに、耐衝撃性が低下する傾向が見られる。

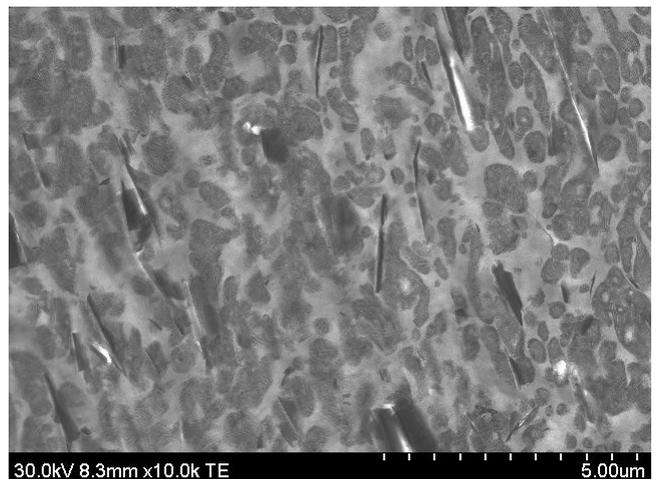


図-7(1) ラボ機A混練

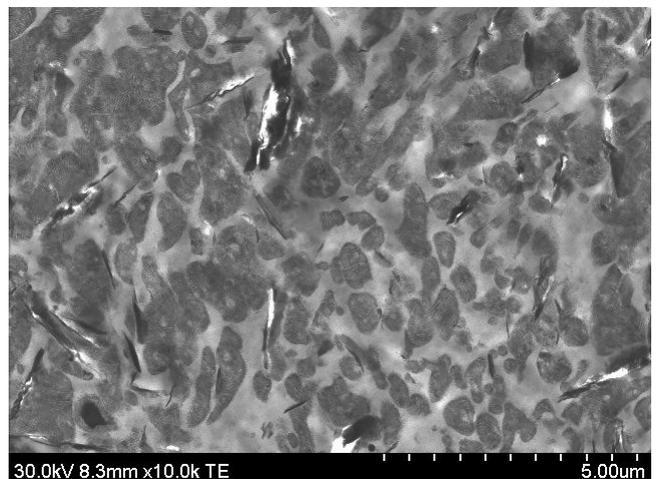


図-7(2) 量産機B混練

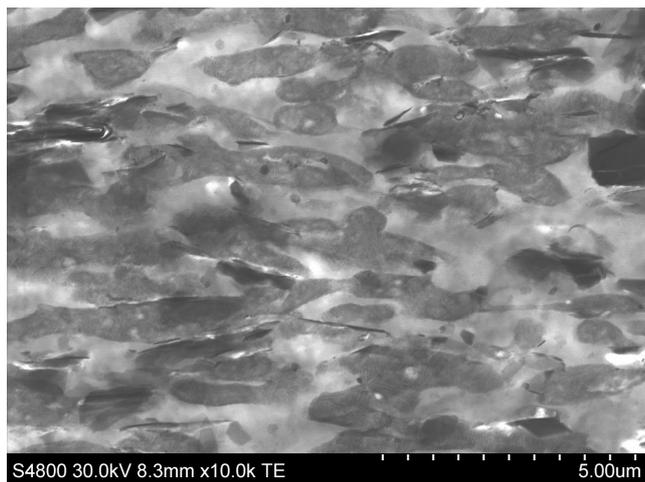


図-7 (3) 量産機 C 混練

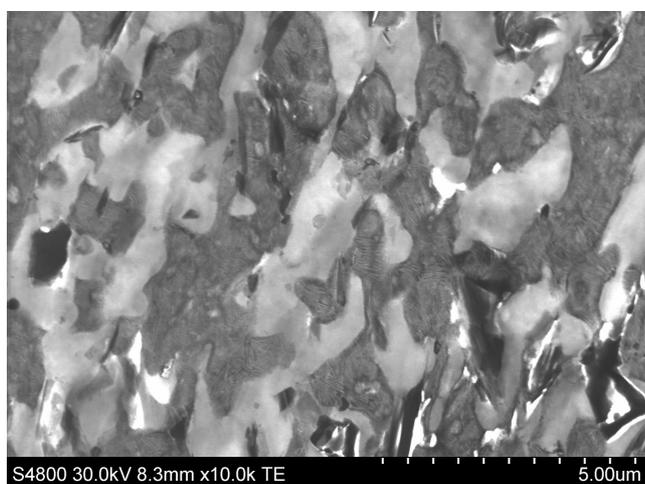


図-7 (4) 量産機 D 混練

図-8を描くことで、フェレ径と衝撃値の関係を定量的にイメージすることができる。たとえば図-8のようにある耐衝撃性の目標値を入れれば、確保しなければならない粒子径が明確となり、構造制御という観点で物性を管理することができる。電子顕微鏡写真の情報しかない場合には、数値的な感覚がないため、対応は難しい。

このほかにも、画像解析が必要とされる場面として、観察した試料間で粒子径に差があるかどうか、目視ではほとんど判断できないような場合、統計的な手法を用いて、有意差の有無を明確に判断するのに使うことができる。

あるいは、樹脂の流れにより、粒子形状が写真上で円形から楕円に変化するような場合においても、画像解析検討で述べたアスペクト比によって、粒子形状を定量的に比較する、など様々な場面で活用が考えられる。

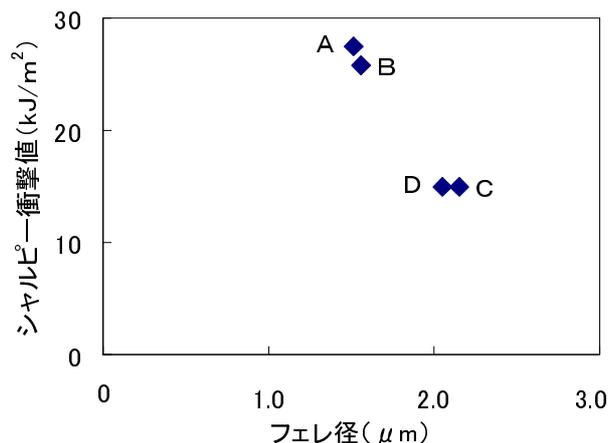


図-8 フェレ径とシャルピー衝撃値

5. まとめ

1) 『Image J』を用いて、タルクを含んだ複雑なオレフィン系ポリマーアロイの画像解析検討を実施し、平均ゴム粒子径、アスペクト比、粒子径分布などの結果を得た。解析手法として、配合比にもとづいてしきい値を決めるという、解析者の任意性を排除した手法を採ったが、粒子径においてn増し検討を行って、再現性のある結果が得られた。

2) 異なる設備で練った同等配合材による成型品にて、耐衝撃性の差が現れた。これらの材料について、モルフォロジー観察を行い、画像解析でゴム粒子系を求めた。同等配合材のゴム粒子径と耐衝撃性に関して、粒子径が大きくなるに従い、耐衝撃性が低下する傾向を数値の上で見ることができた。この手法によって、目標とする耐衝撃性を得るための目安となる粒子径も把握できる。

『Image J』を用いた本手法は、このような事例に限らず、構造と物性の関係を明らかにしていく際に、種々の適用が期待できることから、今後の材料開発に活用していきたいと考えている。

参考文献

- 1) 西敏夫：日本ゴム協会誌 67, 736 (1994)
- 2) 西敏夫：日本ゴム協会誌 68, 834 (1995)