

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年5月25日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2009～2011

課題番号：21560793

研究課題名（和文） 第一原理と統計解析を統合したグレイボックスモデルに基づく品質実現力強化

研究課題名（英文） Realizing desired quality through gray-box models integrating first principles and statistical analysis

研究代表者

加納 学 (KANO MANABU)

京都大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号：30263114

研究成果の概要（和文）： 物理モデルと統計的モデルを統合したグレイボックスモデル，および，プロセス特性変化に対応できるモデル構築方法である局所 PLS を開発した．グレイボックスモデルについては，鉄鋼産業におけるタンディッシュ内溶鋼温度制御への実用化を進めた．局所 PLS モデルについては，医薬品，半導体，石油化学の様々なプロセスを対象として実用化を進めた．いずれも産業界の現実的課題を解決する成果であり，日本鉄鋼協会の研究賞を受賞するなど大いに注目されており，今後のさらなる展開が期待されている．

研究成果の概要（英文）： A gray-box model integrating a physical model and a statistical model was developed, and also locally weighted PLS that can cope with changes in process characteristics was developed. The gray-box model was applied to a control problem of molten steel temperature in a tundish in the steel industry. The locally weighted PLS was applied to various processes in pharmaceutical, semiconductor, and petrochemical industries. The achievement of this research was significant and awarded a prize from The Iron and Steel Institute of Japan; further development and industrial applications are expected.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	1,400,000	420,000	1,820,000
2010年度	1,100,000	330,000	1,430,000
2011年度	900,000	270,000	1,170,000
年度			
年度			
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：プロセス工学，反応工学・プロセスシステム

キーワード：プロセス情報処理，モデリング，仮想計測技術，ソフトセンサー，グレイボックスモデル，Locally Weighted Partial Least Squares (LW-PLS)，産業応用

1. 研究開始当初の背景

様々な産業界において，圧倒的な国際競争力を持つ高付加価値製品の開発と製造が求められているが，製品品質が安定せず，歩留まりが低水準にとどまるという問題が深刻

化している．その原因は，生産設備の複雑化と製品の高品質化にともない，原料性状や製造条件と製品品質との因果関係を把握することが困難になっていること，さらに現象論的モデルを構築することが極めて困

難であることにある。この状況を打破するには、膨大な操業データから製品品質と製造条件の関係をモデル化できるデータ解析技術が有効である。しかし、高品質化と歩留まり向上を確実に実現できる生産技術力「品質実現力」を確立するためには、統計的アプローチ（データ解析技術）と現象論的アプローチ（現象や生産設備に関する知見）の融合が不可欠である。

2. 研究の目的

本研究の目的は「品質実現力」を強化・支援する生産技術の開発である。現象論的知見を統計的モデルに組み込む方法、プロセス特性の変化に統計的モデルを適応させる方法を中心にして、従来技術が抱えている課題を解決するためのモデリングおよび制御方法を開発し、品質実現力を強化支援するシステムの開発を目指す。

3. 研究の方法

まず、複数の企業を訪問し、生産現場でのヒアリングを実施して、従来技術の問題点と開発するシステムが満たすべき仕様を明確にする。また、この作業と並行して、現象論的知見を統計的モデルに組み込む方法、プロセス特性の変化に統計的モデルを適応させる方法に関する要素技術の開発を進める。

各種産業プロセスの操業データを利用して、各要素技術の検証を実施する。検証用データは、主に共同研究を通して企業から提供されたものを用いる。品質実現力の強化支援を目指す研究であるため、産業界で成果をあげることが我々の目標であり、そのためには、実際の操業データでの検証が不可欠である。検証結果は随時企業にフィードバックすると共に、検証結果に対する評価・批評をフィードバックしていただくことで、要素技術のレベルアップを加速する。

品質実現力強化支援システムの完成に向けて、複数の産業分野を対象とした検証を継続する。各産業分野で対象とするプロセスは全く異なるものであるが、品質や歩留まりの改善が重要課題であること、現象論的知見と整合性のある統計的モデルが必要とされていることなど、本研究で開発を目指す技術が求められているという点で全く同一である。着実に成果をあげつつ、さらなる技術課題を抽出することを怠らず、産業界で広く活用される技術・システムを完成させる。

4. 研究成果

本研究では、物理モデルと統計的モデルを統合したグレイボックスモデル、および、プロセス特性変化に対応できる局所 PLS を開発した。グレイボックスモデルについては、鉄鋼産業におけるタンディッシュ内溶鋼温度

制御を具体的な適用対象として、その実用化を進めた。一方、局所 PLS モデルについては、医薬品、半導体、石油化学の様々なプロセスを対象として実用化を進めた。いずれも産業界でのブレークスルーに繋がる成果であり、学会賞を受賞するなど大いに注目されており、今後のさらなる展開が期待されている。

以下に、開発した2つの要素技術について、産業応用に繋がった成果を示す。

(1) 現象論的知見を統計的モデルに組み込む方法

鉄鋼プロセスでは、高品質製品の安定製造が求められている。例えば、転炉から連続鋳造までのプロセスでは、タンディッシュ内溶鋼温度のばらつきが安定製造を妨げる要因となる。このため、タンディッシュ内溶鋼温度を所定の温度に正確に制御する必要があるが、タンディッシュでは溶鋼を加熱できないため、溶鋼温度の制御は容易でない。そこで、タンディッシュ内溶鋼温度を制御するために、二次精錬（RH）終了時の溶鋼温度を操作変数として利用する。このような制御を実現するためには、実現すべきタンディッシュ内溶鋼温度から RH 終了時の溶鋼温度を導出できるモデルが必要である。

本研究では、タンディッシュ内溶鋼温度を推定できるグレイボックスモデルを構築した。溶鋼の輸送に使用される取鍋の輸送工程については、自然対流が発生するために鉛直方向に層状の温度分布が存在し、時間とともに溶鋼上部底部間の温度差が拡大するという数値流体力学シミュレーションの結果を踏まえて、取鍋内溶鋼温度分布を高さと同時間の関数で近似した。溶鋼温度の時間変化については、取鍋およびスラグへの伝熱により溶鋼の平均温度が低下するというエンタルピ収支式を構築し、その計算結果を温度分布に反映させた。さらに、取鍋の耐熱壁が劣化する様子もモデル化した。取鍋が劣化すると、溶鋼から壁への伝熱量と、溶鋼上部底部間の温度差が増加するので、これらが関係するパラメータを取鍋使用回数と同数とした。また、スラグは集中定数系として、ガス温度は定数とした。

取鍋からタンディッシュへの溶鋼を注ぐ出湯工程については、出湯溶鋼温度は取鍋底付近の平均温度であるとし、タンディッシュ内の温度分布を3個の等温槽コンパートメントモデルで表現した。この際、温度変化の要因として、タンディッシュ壁への伝熱などを考慮した。

構築した物理モデルには未知パラメータが存在するため、モデル構築用データを用いてパラメータを決定した。

構築した物理モデルから算出される溶鋼温度と実際の溶鋼温度との間には誤差が存

在する。本研究では、この誤差を統計的モデルを用いて補正するグレイボックスモデルを用いて、推定精度を向上させた。この方法では、最終的な温度推定値は、物理モデルによる温度推定値と統計的モデルによる誤差推定値の和で与えられる。誤差の推定には、転炉から連続鋳造入口までに測定される 61 変数を用いた。統計的モデルには、PLS (Partial Least Squares)、局所 PLS、RF (Random Forest) などを用い、推定精度を比較した上で、最も良いモデルを採用した。

構築したモデルを用いて溶鋼温度を推定したところ、グレイボックスモデルによる推定精度は、物理モデルや統計的モデルを単独で用いる場合と比較して、30~40%向上した。また、グレイボックスモデルに用いる統計的モデルの構築に局所 PLS を用いたときに誤差は最小となった。この結果から、タンディッシュ内溶鋼温度の高精度推定に、開発したグレイボックスモデルが有効であることが確認された。

現在は、企業との共同研究として、タンディッシュ内溶鋼温度制御システムの実装に向けた研究開発を進めている。

本研究の成果に対して、「物理・統計モデリングによる取鍋内溶鋼温度の高度予測技術」として、日本鉄鋼協会計測・制御・システム研究賞が授与された。

(2) プロセス特性の変化に統計的モデルを適応させる方法

プロセス特性変化に対応する方法としては、低頻度で得られる分析値との誤差で予測値を補正するバイアスアップデートの他に、逐次型アルゴリズムを用いる方法と Just-In-Time モデリングを用いる方法がある。逐次型アルゴリズムの課題は、モデル更新に利用すべきデータと利用すべきでないデータの判別、およびプロセス特性の急激な変動に対応できないことである。本研究では、Just-In-Time モデリングの一種である局所 PLS を開発し、その産業応用を実施した。

Just-In-Time モデリングでは、予めモデルを構築しておくのではなく、入力変数の測定値 (クエリ) が得られ、それに対応する出力変数の推定値が要求されるたびに、クエリに近いサンプルをデータベースから選択し、選択したサンプルを用いて局所的なモデルを構築し、推定を行う。局所的なモデルの構築に線形回帰を利用する方法を局所回帰と呼び、特に線形回帰手法として PLS を用いる局所回帰が局所 PLS である。局所 PLS では、クエリへの近さ・類似度に応じてサンプルに重みを付けることで、推定性能を向上させる。

本研究で開発した重み設定方法の 1 つは、局所 PLS モデルの回帰係数の絶対値を重みとして用いる方法である。具体的には、1) 重

みを付けない状態、つまり近さの指標としてユークリッド距離を用いて局所 PLS モデルを構築し、2) 得られた回帰係数の絶対値を改めて重みとして局所 PLS モデルを構築し、3) 再度この手順を繰り返して、得られた回帰係数の絶対値を重みとして局所 PLS モデルを構築する方法を提案した。

医薬品製造工程の 1 つである混合工程を対象に、局所 PLS と統計的波長選択を顆粒中原薬 (Active Pharmaceutical Ingredient; API) の含量推定に適用し、それらの有効性を検証した。そのために、API 含有量を変更した実験を行い、計 18 ロットを準備し、そのうち 16 ロットを対象として、近赤外分光法 (NIRS) を用いて検量線を作成し、残り 2 ロットのデータを用いてモデルの検証を実施した。スペクトルの前処理には一次微分と Standard Normal Variate を利用し、従来法 (PLS+従来波長選択) と提案法 (局所 PLS+統計的波長選択) とを比較した。推定結果を図 1 に示す。両者の RMSEP はそれぞれ 1.84 と 1.13 であり、提案法により予測誤差が 40% 近くも減少した。この改善効果は顕著であり、PAT ツールとしての局所 PLS への期待が高まっている。

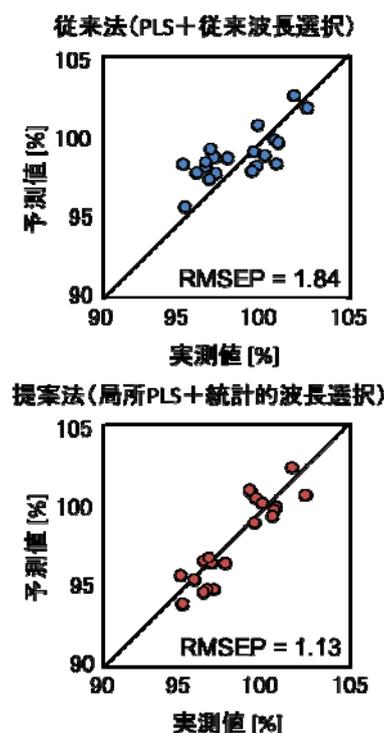


図 1 医薬品製造プロセス混合工程 API 含有量の推定における従来法と局所 PLS の比較

この他にも、製造設備洗浄後の残留薬物量を迅速測定するために、赤外反射吸収分光法 (IR-RAS) と局所 PLS の有用性を検証した。その結果、重みとして対象物質のスペクトルを

前処理した値を用いた場合、局所 PLS の適用により、PLS と比較して残留薬物量の測定精度が 40% 近く改善した。

他産業への適用事例として、半導体の化学機械研磨 (Chemical Mechanical Polishing; CMP) プロセスへの適用を検討した。CMP プロセスは機械的消耗部品が多いため、メンテナンスへの対策を講じる必要性が高い。VIP を用いて入力変数を選択した上で、研磨レートの推定精度を検証したところ、図 2 に示すように、局所 PLS の適用によって非常に良好な推定結果を得ることができた。従来から使用されている PLS と比較して、推定誤差は 25% 減小、重回帰分析で局所モデルを構築する局所回帰と比較しても 10% の改善が確認された。

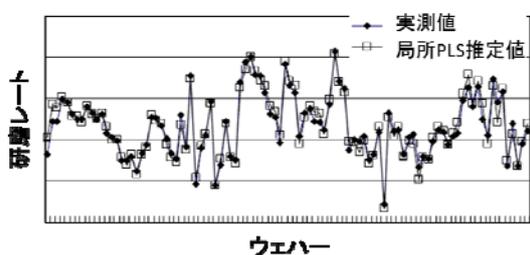


図 2 局所 PLS による半導体 CMP プロセス研磨レート推定結果

上述の成果に加えて、石油化学産業でも複数のプロセスで既に局所 PLS が実用化されており、経済的メリットにも結びついている。

プロセス産業における生産技術を対象として、製造現場が抱える現実の問題の解決を目指し、かつそれを達成した研究として、産業界および学界から注目される研究成果をあげることができた。

グレイボックスモデル構築方法については、既に実用化を検討している方法に加えて、物理モデル内部の未知パラメータを最適化した上で、未知パラメータの最適値と操業条件を統計的モデルによって結び付ける方法も開発しており、今後、さらに検討を進める予定である。

局所 PLS については、データベース更新方法の開発が急務である。産業応用を進める中でえられた示唆を踏まえて、研究を進める予定である。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 2 件)

- ① Hiroshi Nakagawa, Takahiro Tajima, Manabu Kano, Sanghong Kim, Shinji

Hasebe, Tatsuya Suzuki, Hiroaki Nakagami: Evaluation of Infrared-Reflection Absorption Spectroscopy Measurement and Locally Weighted Partial Least-Squares for Rapid Analysis of Residual Drug Substances in Cleaning Processes. *Analytical Chemistry*, 84, 3820-3826 (2012) 査読有

- ② Sanghong Kim, Manabu Kano, Hiroshi Nakagawa, Shinji Hasebe: Estimation of Active Pharmaceutical Ingredients Content Using Locally Weighted Partial Least Squares and Statistical Wavelength Selection. *International Journal of Pharmaceutics*, 421, 269-274 (2011) 査読有

[学会発表] (計 13 件)

- ① Sanghong Kim, Manabu Kano, Hiroshi Nakagawa, Shinji Hasebe, Estimation of Active Pharmaceutical Ingredient Content Using Locally Weighted Partial Least Squares, *Chemical Process Control*, 2012 年 1 月 11-13 日, US
- ② Toshinori Okura, Manabu Kano, Shinji Hasebe, Hiroshi Kitada, Noboru Murata, High Performance Prediction of Molten Steel Temperature through Gray-Box Model, *AIChE Annual Meeting*, 2011 年 10 月 16-21 日, US
- ③ Ryota Okajima, Sanghong Kim, Manabu Kano, Shinji Hasebe, Selection of Similarity Measure for Locally Weighted Partial Least Squares Regression, *AIChE Annual Meeting*, 2011 年 10 月 16-21 日, US
- ④ 加納学, QbD/PAT に基づいて RTRT を実現するための多変量解析技術, 製剤機械技術学第 21 回大会 (招待講演), 2011 年 8 月 14 日, 静岡

6. 研究組織

(1) 研究代表者

加納学 (KANO MANABU)

京都大学・大学院工学研究科・准教授
研究者番号: 30263114

(2) 研究分担者

長谷部 伸治 (HASEBE SHINJI)

京都大学・大学院工学研究科・教授
研究者番号: 60144333

殿村 修 (TONOMURA OSAMU)

京都大学・大学院工学研究科・助教
研究者番号: 70402956