

電子顕微鏡データの定量解析

Quantitative Data Analysis for Electron Microscopy

石塚 和夫

Kazuo Ishizuka

^a有限会社HREM (HREM Research Inc)

要旨 電子顕微鏡は目に見えないものを拡大して、微細構造を観測者の眼前にあらわ(顕)にするものである。このために、観察方法の工夫や、装置の改良による取得データの改善に力が注がれてきた。一方、データ処理により元の画像を肉眼で見ただけでは判らない情報を得ることが可能である。データ処理は本来存在しない情報を生成してはならない。この意味において、データ処理はなんら新しい情報を生み出すことはない。しかし、有用なデータ処理は、データに含まれている情報を人間が認識しやすいように加工しているのである。本稿では、このような画像処理の幾つかについて解説したい。しかし、これらの処理はもろ刃の剣であり、その解釈には観察対象に関する深い知識が必要とされる。このことを頭の片隅において、聡明な読者諸氏にはこのようなデータ処理に果敢に挑んで頂きたい。

キーワード：ウィナーフィルタ、デコンボリューション、最大エントロピー法、Richardson-Lucy法、格子歪み解析

1. はじめに

電子顕微鏡は目に見えないものを拡大して、微細構造を観測者の眼前にあらわ(顕)にするものである。このために、観察方法の工夫や、装置の改良による取得データの改善に力が注がれてきた。しかし、画像等のデータを処理することを忌み嫌う傾向が見られた。本学会のあるシンポジウムでの画像処理の講演に対し、「処理をすることにより、なにか新しいことが判るのか、どのようなメリットが有るのか」という質問があった。すでに構造の認識できる画像からノイズを落とすような処理をしても、何も新たな知見は得られない。単に、見栄えが良くなるだけである。しかし、定量的な解析にはデータ処理が必須となる、また、データ処理により元の画像を肉眼で見ただけでは判らない情報をあらわにすることも可能な場合がある。本稿では、このような画像処理の幾つかについて解説したい。

2. 周期構造の抽出

まず、画像処理としてよく行われるフィルタ処理を紹介する。フィルタ処理とは欲しい情報をろ過、選別することである。画像そのものを処理する場合とフーリエ変換を利用するものがある。ここでは、フーリエ変換を利用した、周期構造の抽出について考える。結晶性試料の電顕像では周期を持たない構造(支持膜、試料損傷、表面汚染、量子ノイズなど)

により周期構造が乱されている場合がよくある。これらの2つの寄与を $f_A(r)$ と $f_B(r)$ とする：

$$f_o(r) = f_A(r) + f_B(r) \quad (1)$$

このフーリエ変換は画像の各部分のフーリエ変換の和であるので、

$$F_o(k) = F_A(k) + F_B(k) \quad (2)$$

となる。周期構造に由来する成分 $F_A(k)$ は周期的に並んだ局在した強いスポットとなる。一方、周期を持たない構造に由来する成分 $F_B(k)$ は緩やかに変化する。この周期的に並んだスポットのみを通過させるマスクを作用させ、逆フーリエ変換を行えば、非周期構造(ノイズ)による寄与を大きくを減少させた周期構造が抽出できる。このとき、各スポット上のマスクのサイズが小さければよりノイズの寄与を小さくできるが、周期構造はマスクサイズに逆比例してより平均化されたものとなる。

さて、周期構造を抽出するためには、周期的に並んだスポットのみを通過させるマスクが必要となる。しかし、周期的に並んだマスクを設定するのはそれほど容易では無い。フーリエ変換の強度の強いところを周期性からのスポットと見なせば、自動的にマスクを作成することができる。抽出したい信号 F_o とその推定値のフーリエ変換 \hat{F}_w の差の二乗和が最小になるように自動的に設定されたマスク M_w はウィナーフィルタ(Wiener Filter)と呼ばれる。

$$\hat{F}_w = M_w F_o = \frac{|F_o|^2}{|F_o|^2} F_o \approx \frac{|F_o|^2 - |\hat{F}_b|^2}{|F_o|^2} F_o \quad (3)$$

ここで、 F_o は画像全体のフーリエ変換で、 $|\hat{F}_b|$ は注目して

^a 〒355-0055 埼玉県東松山市松風台14-48

TEL & FAX: 0493-35-3919

E-mail: ishizuka@hremresearch.com

2008年12月17日受付

いる周期構造以外の寄与（バックグラウンド）の推定振幅である。このバックグラウンドはフーリエ変換される面積に比例するが、抽出したい周期性からの信号（スポット）はフーリエ変換される面積（周期の個数）の二乗で大きくなる。このため、フーリエ変換される面積が大きいほど、信号とバックグラウンドの分離は容易になる。すなわち、出来るだけ大きな領域を処理するのがウィナーフィルタの効果を高めるといのがこの分野の常識である^{1,2)}。

ところで、周期構造 $f_A(r)$ と非周期構造 $f_B(r)$ が画像上で2つの領域に分かれている場合を考えてみる。注意したいのは、これらのフーリエ変換 $F_A(k)$ 、 $F_B(k)$ はフーリエ空間で重なっているということである。このため、非周期的な部分のフーリエ変換 $F_B(k)$ の一部が周期構造 $F_A(k)$ のマスクを通過して逆フーリエ変換される。そして、非周期的な部分（非晶質の部分）にも周期構造（周期は同じであるが、構造は $f_A(r)$ とは異なる）が現れる場合がある。しかし、この場合でも、周期構造部分でのフィルタによるノイズの除去効果は損なわれていないことに注意したい。

また、 $f_A(r)$ と $f_B(r)$ が異なる領域の2つの周期構造（あるいは方位の異なる同じ周期構造）の場合、フーリエ変換には2つの構造に由来する局在した強いスポットが重畳して現れる。これらの領域が周期構造に加えて非周期構造を含んでいる場合（例えば、非晶質の担体中に微結晶が包埋されている場合：図1参照）には、2つの領域に起因するスポットをすべて通過させて逆フーリエ変換を行えば、上の議論から判るように、一方の非周期構造のフーリエ変換の成分が他方の構造のマスクを通過して逆フーリエ変換され、一方の周期構造に他方の周期構造が現れる可能性がある。

すなわち、抽出したい周期構造が画像全体に渡っていない場合には、フーリエ変換を用いて画像全体を同時にフィルタ処理するのは好ましくない。このため、全体の画像を分割して、個々の領域を処理することを試みた^{3,4)}。多方位の微結晶が存在する場合には分割領域は概ね微結晶の大きさに取ると良い。こうすることで各処理領域には一方位の周期構造のみとなる。このため、非周期構造の成分が別方位の周期構造のスポット位置を通過することがなくなり、非周期構造によるノイズの除去効果が向上する。また、非晶質の部分と結晶性の部分を分離して処理できるので、非晶質部分に周期構造が現れることがなくなる。

図1はアモルファスシリカ SiO_2 中に電子線照射により成長したダイヤモンド構造の微結晶シリコンの電顕像（512×512画素）である。非晶質中に nm サイズの微結晶が埋まっているので未処理の像から微結晶の存在を確認することは容易ではない。図2は約3×3 nm 毎にウィナーフィルタ処理したものを合成した結果である。粒子Aの格子は処理後により顕著になり、また、さらに処理後に見いだされた周期の小さな格子Bは元の画像では殆ど認識出来ない。フィルタ処理は見栄えをよくするものと思われがちであるが、このように客観的な判断を助けることもある。ただし、今まで

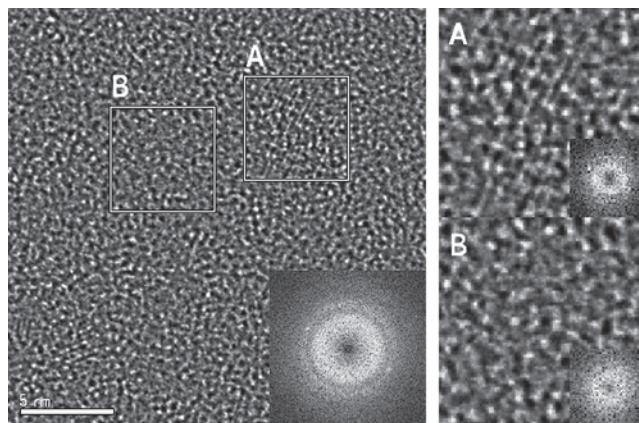


図1 アモルファスシリカ SiO_2 中に電子線照射により成長した微結晶シリコンの電顕像とそのFFT像：スケールバーは5 nm。A, Bの領域に見られる格子縞はそれぞれ(111)と(220)に相当。右にそれぞれの拡大図を表示している。

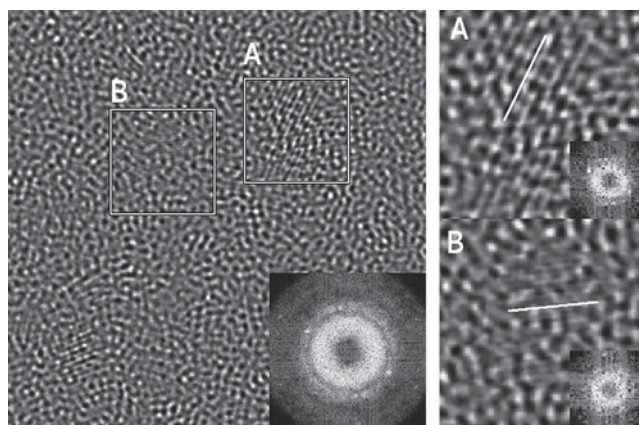


図2 ウィナーフィルタ処理像：約3×3 nm（64×64画素）毎にウィナーフィルタ処理したものを合成した結果。領域Aの格子縞（111）は処理後により顕著になり、また、元の画像では殆ど確認できない領域Bの格子縞(220)も認識可能になった。

のようなウィナーフィルタ処理はこのような多結晶の場合には殆ど役に立たない。さらにチューブ状鉱物に適用されたローカルウィナーフィルタの効果の顕著な処理例が文献3に報告されている。

3. 格子歪みの計測

半導体材料の格子の歪みはその性能を大きく左右する。このため、結晶格子の歪みの計測は重要である。電子顕微鏡を使った格子の歪みを計測する手法としては、収束電子線回折、ナノビーム回折、格子像の解析等の方法が知られている。収束電子線回折でのHOLZ線の解析では 10^{-4} の歪みの計測が可能であるとされている。ナノビーム回折ではナノ領域の平行照射による回折スポットの位置をもとにローカルな格子定数を求め、 10^{-3} 程度の格子歪みを計測する。

一方、格子像からは格子縞や原子コラム位置の注意深い解析により 10^{-2} 程度の歪みの計測が可能である。しかし、格

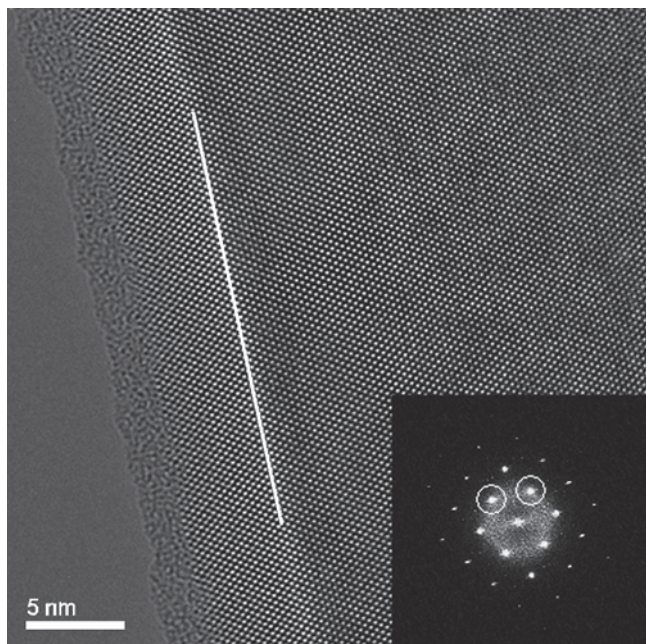


図3 Si/Ge/SiGeの格子像：界面は(100)で実線に平行。右下はそのフーリエ変換で、位相像計算に使用するスポットと、マスクの大きさを示している。

子縞や原子コラム位置を手作業で繰返し測定するのはそれ程容易ではない。図3はSi/Ge/SiGeの格子像であるが、目視により格子定数の異なる3つの相を認識することは不可能である。しかし、格子像をフーリエ変換すると、格子の歪みがあれば各スポットは基本周期に対応する回折点の回りに拡がる。実際、画像を小さな領域に分け、個々の領域をフーリエ変換し、スポット位置の変化より格子歪みを検出することも可能である^{5,6)}。ここでは、格子歪みを測定する簡便で高精度な方法であるGeometrical Phase Analysis(GPA)を紹介する⁷⁾。

GPAではまず格子像をフーリエ変換する。そして、他のスポットが入らないような大きさのマスクを選択したスポットに作用させ、そのスポットを原点に持ってきて、逆フーリエ変換する。格子の変化が全く無い場合には、逆フーリエ変換された像の振幅は一定で、位相も一定となる。格子の変化がある場合には、逆フーリエ変換された像の位相 $P_g(\mathbf{r})$ は基本周期に対する格子縞のずれ $\mathbf{u}(\mathbf{r})$ に比例する：

$$P_g(\mathbf{r}) = -2\pi\mathbf{g}\cdot\mathbf{u}(\mathbf{r}) \quad (4)$$

ここで、 \mathbf{g} は選択した基本周期に対応する逆格子ベクトルである。位相は逆格子ベクトル \mathbf{g} と格子縞のずれのベクトル $\mathbf{u}(\mathbf{r})$ の内積(スカラー積)であるので、選択したスポットの方向(基本周期の縞に垂直方法)の格子縞のずれが計算される。そして、実際の格子のずれ $\mathbf{u}(\mathbf{r})$ は、平行ではない2つのスポットから計算される格子のずれより求められる。格子変化が基本周期に対して小さい場合にも格子のずれは累積されるので、位相は積算される。このため、GPAでは 10^{-3} 程度の格子歪みを計測することも可能である。ある領域で(基本

周期とは異なるが)格子間隔が一定であれば、位相勾配が一定となる。逆に、位相勾配が変化しているところは、(基本周期を基準として)格子間隔が変化していることを表している。このため、位相図の変化(微分)より格子歪みが求まる。

ここで重要なのは如何にして基本周期に対応する回折点を正確に原点に持ってくるかである。格子の歪みがあれば各スポットは基本周期に対応する回折点の回りに拡がる。また、基本周期に対応する回折点がフーリエ変換の計算点に正確に一致することはまれである。GPAではこの問題を以下のようにして解決している。まず、各スポットの最大強度の位置を原点に持ってきて逆フーリエ変換を行い、最大強度の位置を基準とした位相を求める(図4の上段)。このとき、最大強度の位置が基本周期に対応する回折点と異なっていると、基本周期に対応する領域でも位相勾配がゼロにはならない。このことを逆に利用して、基本周期に対応する領域(P2の右上の長方形)での位相勾配がゼロになるように位相そのものを調整をする(図4の下段)(これは逆フーリエ変換時のスポット位置の微調整に相当する。実際にはスポット位置を微調整して再度逆フーリエ変換を行い、位相を求める必要はない)。このようにして図3に示した2つのスポットに対する位相が求まれば、格子歪みが図5のように求まる。ここでは格子歪みの座標系を界面(100)に沿ってx軸(図3の実線)、垂直にy軸をとっている。歪みはy軸に沿って存在し(Eyy)、x軸に沿った歪み(Exx)は殆ど存在しないことが明瞭である。図6は界面に垂直な歪み(Eyy)のラインプロファイルである。基本周期の領域と2%前後の正および負の格子歪みの領域があることが明瞭である。

4. STEM-HAADF 像の超解像

STEM-HAADF 像の信号は熱散漫散乱(TDS)された電子であると説明されている。そして、このTDS電子のHAADF像の信号への寄与は各厚さにおける散乱体分布とそこでのプローブ強度の積を厚みに対して積算したもので近似できる(ここではTDS電子の多重散乱を無視している)。プローブが散乱体分布に対して移動(走査)していくときの信号を考えると、信号強度は散乱体分布(物体関数)とプローブ強度(装置関数)とのコンボリューションで与えられる⁸⁾。すなわち、観測データであるSTEM-HAADF像は物体関数が装置関数によりぼかされたものである。この近似のもとでは、観測データを装置関数でデコンボリューションすれば、ぼけが除去された物体関数が求まる。すなわち、観測データそのものよりも高解像度の物体関数が求まるので、これはまさに超解像である。

別の見方をすれば、このデコンボリューション処理はソフトウェアによる球面収差補正といえる。すなわち、最適なデフォーカスにおけるプローブの拡がり(球面収差により左右されているが、デコンボリューションはこのプローブの拡がりを除去している。では、デコンボリューション像はハードウェアにより収差補正されたSTEM像と等価であるかという点、

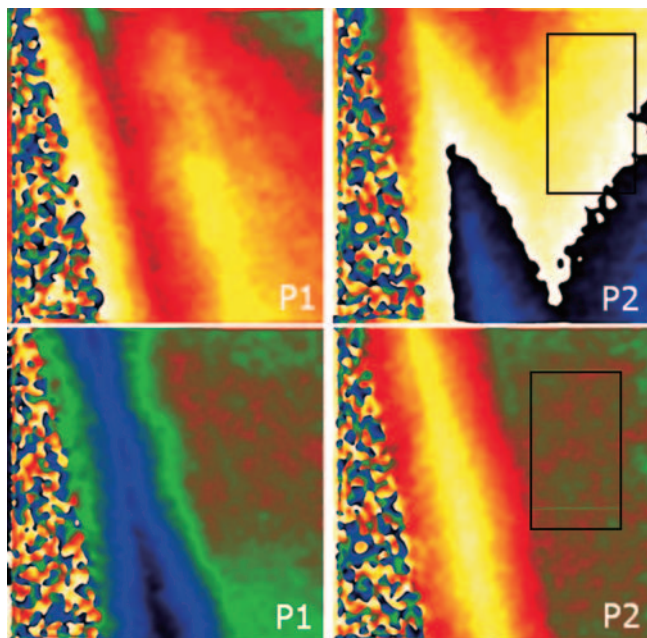


図4 格子のずれによる位相像:上段は選択された2つのスポットの最大強度の位置を基準とした位相. 下段は基本周期に対応する領域 (P2 に描かれた長方形) での位相勾配がゼロになるように調整した位相.

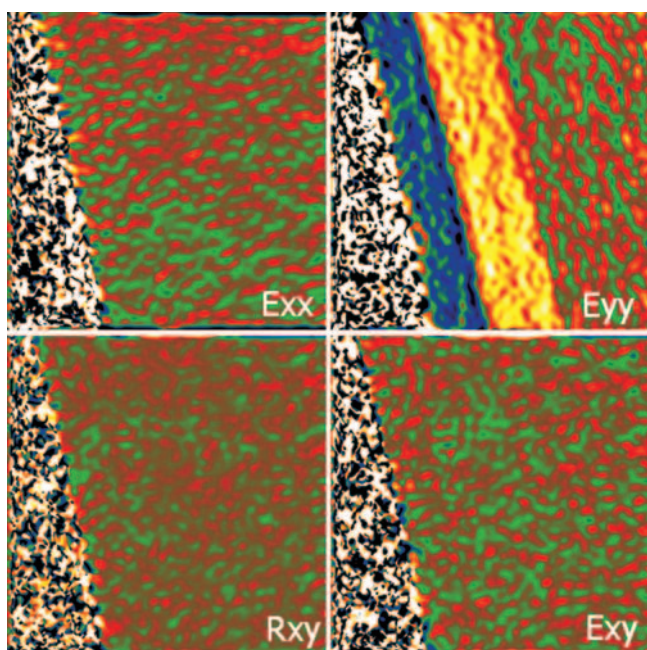


図5 位相像を元に計算された格子歪み:歪みてテンソル (Exx, Eyy および Exy) および回転 (Rxy) を示している. 界面に垂直な格子歪みである Eyy 以外は殆ど位置に依存していないことが判る.

幾つかの違いが考えられる. まず, 収差補正 STEM ではより細い形状のプローブが伝播するという物理現象が異なる. また, 収差補正 STEM では解像度の向上に見合うように装置の安定性が向上されている. これらの違いにより, 高価な

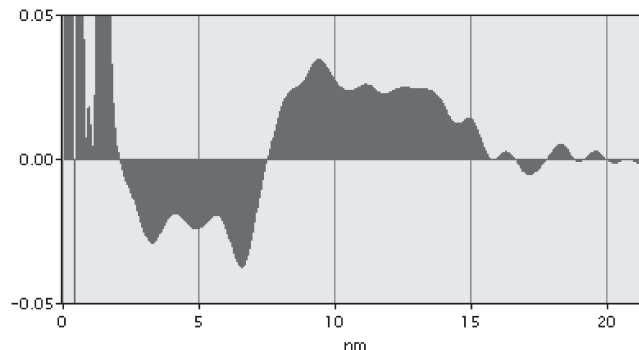


図6 界面に垂直な歪みのラインプロファイル:変動を低減するためにラインに垂直に 200 画素にわたって平均している. 右端は非晶質の領域で, 格子歪みを表しているのではない. 格子定数の異なる3つの相があることが判る.

収差補正機で得られた STEM-HAADF 像と同等の結果をデコンボリューションで得ることは望めない. しかし, デコンボリューション像では, コントラストが低く, 識別しにくかった原子コラムが明瞭になる. また, 最大エントロピー法 (MEM) や Richardson-Lucy 法でデコンボリューションを行うと STEM-HAADF 像でみられるランダムな量子ノイズが抑制されたスムーズな像を得ることが出来る. このように, デコンボリューション像では元の STEM-HAADF 像よりも客観的な像解釈が可能になる.

では, 収差補正 STEM 像をデコンボリューションするとどうなるか. 通常, 収差補正では3次の球面収差が対象である. 3次の球面収差を補正しても, さらに高次の収差がある. また, 色収差によるデフォーカス効果が存在する. 5次の球面収差に対して, 3次の球面収差とデフォーカスを調整すれば, 広い領域に渡って波面収差を小さくできる (ゼロに近づけられる). プローブ形成時の収束角は, この波面収差が無視できる領域, または色収差によるデフォーカス効果の無視できる領域よりも大きくすることはできない. このため, 収差補正 STEM 像のプローブは有限の大きさとなる. 収差補正 STEM 像のデコンボリューションではこのプローブの拡がりを除去することが出来る.

ここでは STEM 用収差補正子を装備した JEM-2100F により得られた decagonal 準結晶 $\text{Al}_{64}\text{Cu}_{22}\text{Co}_{14}$ の STEM-HAADF 像⁹⁾ (図 7a) のデコンボリューションの例を示す. 収差補正 STEM ではプローブ形成のための収束角を大きくとれるので, プローブが小さくなり, 照射系による物理的な縮小ソース径の影響が有意になる場合がある. また, 収束角が大きいため, 焦点深度が浅くなり, 色収差から来る focus spread を考慮する必要が出てくる. 図 7b は Cs = 0 mm, 収束角 24 mrad, ジャストデフォーカスの条件でプローブを計算し, MEM によりデコンボリューションを行った結果である. 実験像にあるゴマ塩ノイズが減少し, ボケたコントラストがシャープになっている. 一方, 実験像からはその存在が予想しにくいピークも現れている. この処理結果を元にすれば,

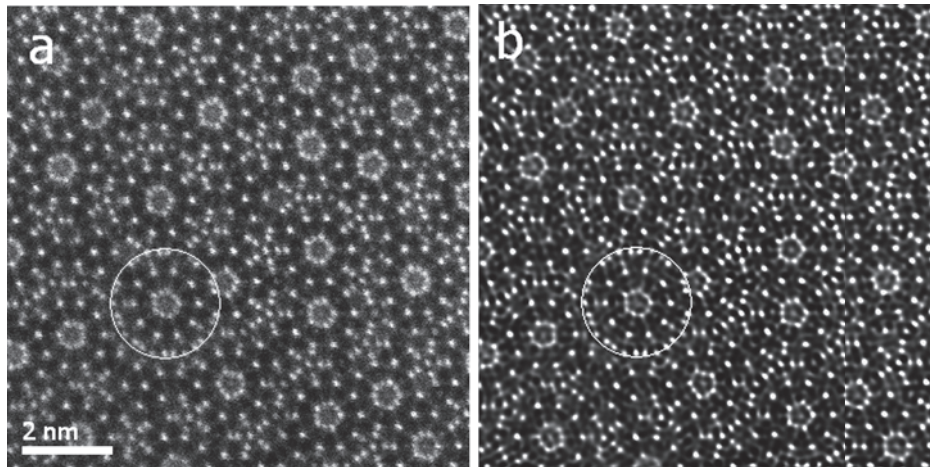


図7 STEM-HAADF 像のデコンボリューション：(a) STEM 用収差補正子を装備した JEM-2100F により得られた decagonal 準結晶 $\text{Al}_{64}\text{Cu}_{22}\text{Co}_{14}$ の STEM-HAADF 像。(b) MEM によるデコンボリューション像，使用したプローブの条件：Cs = 0 mm，収束角 24 mrad，ジャストデフォーカス，縮小ソース径 = 半値幅 2 ピクセルのガウス分布，focus spread = 半値幅 5 nm のガウス分布。

実験像そのものからとは異なるモデルの構築も可能になると思われる。

ここでの最大エントロピー法や Richardson-Lucy 法は EELS のデコンボリューションと原理的に同じなので，興味のある方は EELS のデコンボリューションの解説¹⁰⁾ を参照されたい。

5. おわりに

ここで、「処理をすることにより，なにか新しいことが判るのか」という問い掛けに対して再度考えてみよう。データ処理は本来存在しない情報を生成してはならない。この意味において，データ処理はなんら新しい情報を生み出すことはない。しかし，有用なデータ処理は，データに含まれている情報を人間が認識しやすいように加工しているのである。「見栄え」が良くなり，処理結果が客観的に議論できるようになるだけでも，実際的なメリットは大きいと言えよう。

このように，データ処理により元の画像を肉眼で見ただけでは判らない情報を得ることが可能である。今回は紙面の都合で述べられなかったが，複数枚の電顕像から球面収差を補正し，色収差で決定される情報限界まで解像度を向上することも可能である¹¹⁾。しかし，これらの処理結果は充分注意して解釈されるべきである。すなわち，これらの処理はもろ刃の剣であり，その解釈には観察対象に関する深い知識が必要とされる。このことを頭の片隅において，聡明な読者諸氏にはこのようなデータ処理に果敢に挑んで頂きたい。

最後に，データ処理の立場でハードウェアに期待することを述べたい。STEM のプローブはプローブ径に対して半分程度変動していても実効プローブ径は 1 割ほど大きくなるだけである。しかし，プローブ強度でデコンボリューションを行う場合，プローブそのものによる拡がりや除去されるので，よりプローブ位置の安定性が必要になる。また，EELS での電圧安定性に関しても同様のことがいえる。例えば，入射電子

のエネルギー幅が 0.8 eV であれば，加速電圧に 0.4 eV 程度の変動があってもコアロス観察にはそれほど影響はない。しかし，デコンボリューションは入射電子のエネルギー幅の効果を相殺するので，加速電圧の変動が有意になってくる。

顕微鏡データのソフトウェアによる処理は顕微鏡のハードウェアの改良と同様に有用なものである。すでに述べたように，データ処理により生データよりも高精度の結果を得ることが可能である。しかし，ソフトウェアによるデータ処理が有効になるためには，電子顕微鏡が安定に動作することが大前提である。

謝 辞

本報告で使用しましたデータをお借りした三留正則氏，阿部英司氏，Martin Hytch 氏に感謝します。

文 献

- 1) Marks, L.D.: *Ultramicroscopy*, **62**, 43–52 (1996)
- 2) Kilaas, R.: *J. Microscopy*, **190**, 45–51 (1997)
- 3) Ishizuka, K., Eilers, P.H.C. and Kogure, T.: *Microsc. Microanal.*, **13** (Suppl 2), 902–903CD (2007)
- 4) Ishizuka, K., Eilers, P.H.C. and Kogure, T.: *Microscopy Today*, 16–20 (2007)
- 5) 井出 隆：電子顕微鏡，**36**, 160–162 (2001)
- 6) Ide, T., Sakai, A. and Shimizu, K.: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **37**, L1546–L1548 (1998)
- 7) Hytch, M.J., Snoeck, E. and Kilaas, R.: *Ultramicroscopy*, **74**, 131–146 (1998)
- 8) Pennycook, S.J. and Jesson, D.E.: *Ultramicroscopy*, **37**, 14–38 (1991)
- 9) Taniguchi, S. and Abe, E.: *Phil. Mag.*, **88**, 1949–1958 (2008)
- 10) 石塚和夫：電子顕微鏡，**36**, 160–162 (2001)
- 11) 例えば，Meyer, R., Kirkland, A. and Saxton, W.: *Ultramicroscopy*, **92**, 89–109 (2002)