



文部科学省 マテリアル先端リサーチインフラ 令和4年度技術スタッフ表彰 優秀技術賞

TEM データを味わい尽くす

～画像処理・機械学習・統計解析で電子顕微鏡データから有効な情報を引き出す～

受賞者 国立研究開発法人 物質・材料研究機構 上杉 文彦氏に聞く

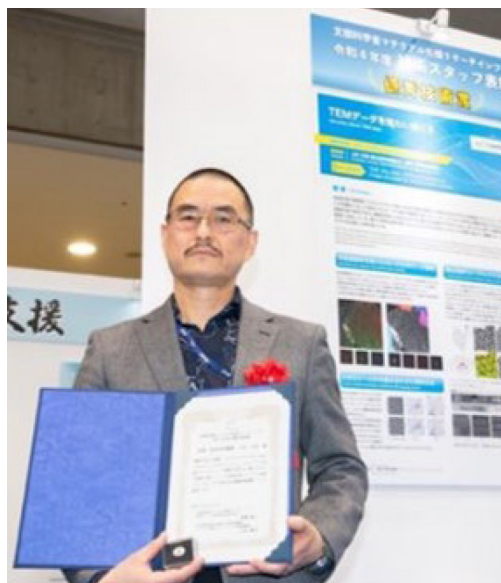
文部科学省「マテリアル先端リサーチインフラ (ARIM Japan)」[1] は、2021 年度 (令和 3 年度) からスタートし、前代プロジェクト「ナノテクノロジープラットフォーム (NPJ)」の最先端装置の共用、高度専門技術者による技術支援に加え、新たにリモート・自動化・ハイスループット対応型の先端設備を導入し、広がり・高度化する応用専門領域の利用者に対応する材料開発のための高度な先端装置の共用や技術支援の提供を行いつつ、装置利用に伴い創出されるマテリアルデータを、利活用しやすいよう構造化した上で提供し、データ駆動型研究開発に貢献することを目的とする。また、文部科学省の革新的機能を有する材料開発を実施する「データ活用型マテリアル研究開発プロジェクト」[2] とも連携して、我が国のマテリアル革新力強化に資することを狙う。

ARIM Japan の基礎となる、全国的な最先端共用設備体制と高度専門技術者による技術支援は、2012 年度 (平成 10 年度) から 10 年にわたり実施してきた NPJ から引き継いだ。最先端共用設備の有効活用には、高度な専門技術を有する技術スタッフの支援が不可欠である。技術スタッフの貢献に報い、その育成を図ろうと、NPJ は 2014 年度より技術スタッフ表彰を始めた。表彰には、優秀技術賞 (類い稀な秀でた技術)、技術支援貢献賞 (技術支援で貢献)、若手技術奨励賞 (35 歳以下の技術スタッフを対象) の 3 つの賞がある。技術スタッフ表彰も ARIM Japan に引き継がれて令和 4 年度は、優秀技術賞 1 件、技術支援貢献賞 4 件が選ばれた [3]。表彰式は 2023 年 2 月 1 日に第 22 回 国際ナノテクノロジー総合展・技術会議 (nano tech 2023, 東京ビッグサイトで開催) の中で行われた。

令和 4 年度 技術スタッフ表彰 優秀技術賞は、国立研究開発法人 物質・材料研究機構 (NIMS) の上杉 文彦氏に贈られた [4]。題目は「TEM データを味わい尽くす」である (TEM: 透過電子顕微鏡)。受賞理由は表彰式で、「収差補正高分解能電子顕微鏡、EDS (エネルギー分散型 X 線分光)、EELS (電子エネルギー損失分光) などの先端 TEM 技術を駆使し、ユーザーにハイレベルの研究創出をもたらした。特に卓越したスキルとして、スクリプト言語のプログラミングに長け、取得データの画像処理や多変量解析により、精緻なデータ解析を可能にし、機械学習を加えてこれまでは得られなかった情報の取得に成功した。」と紹介された。表彰の後日、受賞技術の内容・支援状況を、受賞者の NIMS 技術開発・共用部門 評価プラットフォーム 電子顕微鏡ユニット 主幹エンジニア 上杉 文彦 (うえすぎ ふみひこ) 氏にオンラインで伺った。



実験室の上杉氏



nano tech 2023 ARIM Japan ブースで
賞状と記念バッジとともに



1. ARIM における受賞者の技術支援

1.1 物質・材料研究機構 (NIMS) マテリアル先端リサーチインフラ (ARIM) の概要

ARIM Japan は、7つの重要技術領域（略称で、1. 高度なデバイス機能マテリアル、2. エネルギー変換マテリアル、3. 量子・電子マテリアル、4. マテリアルの高度循環技術、5. バイオマテリアル、6. ナノスケールマテリアル、7. マルチマテリアル化技術・高分子マテリアル）のそれぞれに強みを持つ先端装置群を提供するハブ機関と、特徴的な装置・技術を持つスポーク機関からなるハブ&スポーク体制で、利用者の研究開発を支援する。共用する装置は3つの技術領域（1. 計測・分析、2. 加工・デバイスプロセス、3. 物質・材料合成プロセス）で提供される [1]。ARIM には、装置共用により得られるデータを利用者の許可を得た上で収集・蓄積し、データ活用型研究開発に資するデータベースを構築し共用を図るデータ中核拠点となるセンターハブが設けられた。

NIMS はセンターハブの機能を果たすと共に、ハブが取り上げる上記7重要技術領域のうちの「3. 量子・電子制御により革新的な機能を発現するマテリアル」、「4. マテリアルの高度循環のための技術」の2領域を担当し、上記3つの技術領域、すべての領域の装置を提供している。NIMS マテリアル先端リサーチインフラは、NIMS ARIM の略称で運営され [5]、NIMS 組織における技術開発・共用部門が運営する NIMS Open Facility (NOF) と連携する。NOF は、物質・材料やナノテクノロジーに関する先端装置および大型装置を保有し、NIMS の研究者のみならず国内外の大学、企業、公的機関の研究者が行なう研究開発をサポートする [6]。NOF には、7つのユニットがあり、上杉氏は、その一つ、電子顕微鏡ユニットに所属する。

1.2 NIMS ARIM 共用設備 [5]

NIMS ARIM は3つの技術分野：計測・分析分野／加工・

デバイスプロセス分野／物質・材料合成プロセス分野の装置を共用に供する [7]。NIMS には茨城県つくば市に複数の事業所があり、共用装置は、つくばエリアの千現地区(本部)、並木地区、桜地区の3拠点に設置されている(表1)。表1で、計測・分析分野の共用装置は、NMR、材料分析、3D、TEM の技術分野に分けて示されている。

本稿の関係する TEM 分野(千現地区)の共用装置を、さらに詳しく表2に示した。透過電子顕微鏡、TEM 試料ホルダー、FIB (集束イオンビーム) 試料加工装置、断層像解析ソフトなど16点が ARIM ホームページに掲載されている。

1.3 NIMS ARIM 計測・分析分野の共用装置利用支援

NIMS ARIM 共用装置の利用方法 [8] には、表3に示す3つの形態がある。

利用件数は、NPJ の NIMS 微細構造解析プラットフォーム (ARIM の計測・分析分野に相当) におけるコロナ禍前の2017年度では202件であった。

1.4 受賞者の NIMS ARIM における支援活動

受賞者の上杉氏は、民間の計測・分析会社から、2014年に NIMS に加わり、NIMS 微細構造解析プラットフォームの電子顕微鏡担当技術スタッフとなった。他の技術スタッフ同様、装置の保守・運用、装置使用に当たっての試料作製、機器操作、観察結果の解析まで、電子顕微鏡微細構造解析に関する業務の全てを行なっている。機器利用の支援では、表3の機器利用、技術補助、技術代行のいずれも行うが、3つの支援形態の中では技術代行が多いという。表彰式の受賞者挨拶で上杉氏は、「大学で格子欠陥の研究に従事して電子顕微鏡を扱ってから、30年になる。ニッチなところを歩んできた。長年積み上げてきたものが役に立った。これからも技術向上に励み、変化には柔軟に対応したい。」と語った。ニッチは他人のやらないことでもある。新しいことに挑戦するから、開発・習得した技術は、利用者が容易に利用できるものではな

表1 NIMS ARIM の共用設備

技術分野	設置場所	装置例	
物質・材料合成プロセス分野	千現地区	液中原子間力顕微鏡	
計測・分析分野	NMR 分野	桜地区	500 MHz 固体汎用 NMR システム
	材料分析分野	千現・並木地区	走査型デュアル X 線光電子分光分析装置 (HAX-PES/XPS)
	3D 分野	千現地区	微細組織 3 次元マルチスケール解析装置
	TEM 分野	並木地区	単原子分析電子顕微鏡
	TEM 分野	千現地区	実動環境対応電子線ホログラフィー電子顕微鏡
加工・デバイスプロセス分野	千現地区	電子ビーム描画装置 (ELS-F125)	

表2 NIMS ARIM TEM分野（千現地区）の共用装置（抜粋）

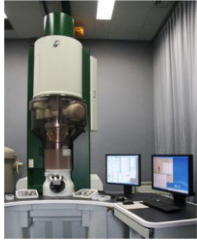





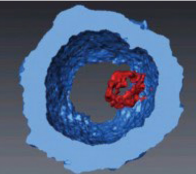

名称	実動環境対応物理分析電子顕微鏡(JEM-ARM200F-G)	200kV 電界放出形透過電子顕微鏡 1 (JEM-2100F1)	200kV 透過電子顕微鏡 (JEM-2100)	2 軸傾斜液体窒素冷却 TEM 試料ホルダー (Gatan 636)
装置				
名称	デュアルビーム加工観察装置(NB5000)	FIB 加工装置 2 (JEM-9320FIB)	電子線トモグラフィー解析システム	TEM 試料作製装置群
装置				

表3 NIMS ARIM の支援形態

支援形態	支援内容
機器利用	利用者自身で操作：機器は利用者自身が操作して実験し、データの解析や考察も利用者が行う
技術補助	技術スタッフが補助：利用者は操作方法などについて、技術スタッフの補助を受けながら機器を使用する
技術代行	利用者に代わり技術スタッフが操作：依頼に基づき、技術スタッフが実験・測定・評価・解析を行う

い。これが、電子顕微鏡利用の難しさに加えて、技術代行が多くなる理由かと推測する。

以前、上杉氏は、NPJ の Web ジャーナル：NanotechJapan Bulletin のインタビューを、装置利用者に並んで受けた。その内容は、最先端の研究設備の共同利用により得られた研究成果を発信する企画特集「ナノテクノロジー PickUp」に「イオン液体中の微細構造解析」として掲載された [9]。イオン液体は、イオン結晶のように陽イオンと陰イオンで構成される液体で、電池の電解質やバイオマスの溶媒などへの応用が期待される新材料である。利用者の東北大学 宮田 智衆氏は、イオン液体中の単原子イオンの挙動を観察したかった。これに対し、液体の電子顕微鏡観察に難色を示すことが多い中、上杉氏が NIMS の高分解能電子顕微鏡による観察支援を引き受けた。新たな液体試料作製法などの新技術開発が加わった支援により、宮田氏は溶媒中の単原子イオンの運動の追跡に初めて成功した。

他人のやらないこと、新しい手法に挑戦する上杉氏は、共用装置利用者の支援業務を遂行する傍ら、電子顕微鏡

のより深い活用法の開拓、即ち、電子顕微鏡の大量データを活用し、画像処理や統計的手法、機械学習などを組み合わせた複合的な解析により、隠れた高度な情報を引き出すことに挑戦した。以下に STEM から大量のデータが生み出される仕組みと、大量のデータから必要な情報を引き出す 3 件の試みと成果を紹介する。

2. TEM（透過電子顕微鏡）データの複合的な解析のきっかけ

2.1 TEM 微細構造解析・画像表示

電子顕微鏡は、試料を透過した電子を蛍光板に拡大・結像させる透過型から始まった。次いで、電子線を走査して試料からの二次電子をブラウン管に表示する走査型が生まれた。二次電子の検出は、検出器に代わり、コンピュータを用いて 2 次元の像を形成するようになり、電子顕微鏡のデジタル化が進んだ。更に、透過電子顕微鏡

(TEM) に走査電子顕微鏡 (SEM) の技術を取り入れ、集束レンズによって細く絞った電子線プローブを試料上で走査し、試料の照射位置で散乱され、透過した電子線を検出し、照射位置と対応させてイメージ (画像) 化する走査透過電子顕微鏡 (STEM, Scanning Transmission Electron Microscope) へと発展する。STEM は、微少領域の電子回折や元素分析が可能のため、原子分解能など高分解能の透過電子顕微鏡 (TEM) の多くは、STEM になった。走査点ごとに集められた検出電子データをコンピュータ処理して、電子顕微鏡画像や電子回折パターンを構成する。デジタルデータの取得、コンピュータ処理は電子顕微鏡の機能の一部となり、市販電子顕微鏡の付属品となった。

図 1 に STEM の構成と機能を示す。STEM の分解能を高

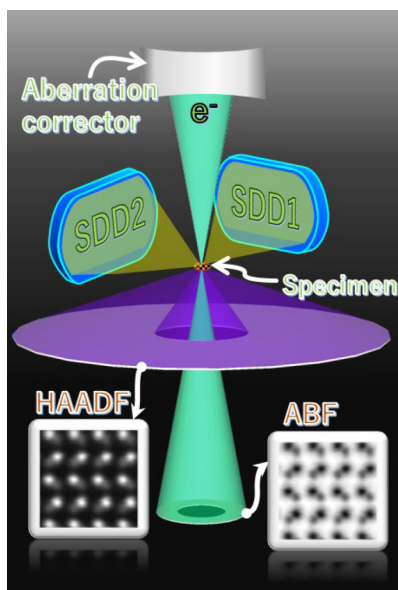


図 1 STEM の概略図

めるために電子レンズの収差を補正する球面収差補正装置 (Aberration corrector) から出力した走査電子線は、試料を透過、直進して環状明視野 (ABF, Annular Bright Field) で検出するか、あるいは試料通過時に大きく散乱され円環状の暗視野領域 (広角環状暗視野: HAADF, High Angle Annular Dark Field) で検出して、画像化される。さらに、試料の照射位置からの特性 X 線を検出器 SDD (Silicon-Drift Detector) で検出・分析する EDS (Energy Dispersion Spectroscopy, エネルギー分散 X 線分光) により照射位置の原子がどの元素であるかを同定できる [10]。

2.2 TEM 画像の複合的な解析のきっかけ

上杉氏は NIMS に入る前の民間の計測・分析会社で TEM を担当し、半導体中の歪み測定を依頼された。Si などの半導体に応力をかけて歪みが生じるとバンドギャップが変わり、キャリア移動度が変化するのでデバイス特性に影響する。依頼は、微細構造 Si MOSFET 内の微細領域の伸び縮みを、TEM の電子回折によって格子定数を測ることで求められないか、というものだった。図 2 中央上部に試料 MOSFET の断面構造を示す。表面に形成されたコンタクト電極の先に SiGe のソース或いはドレイン領域があり、その間の表面にゲート電極が形成されている。赤枠で囲んだ部分が歪みを評価する領域である。そこでまず、観察者が試料を動かし、場所を選んで一点、一点、電子回折図形 (Diffraction pattern: DP) を取得した。これでは時間がかかり十分なデータが取れないばかりか、データを取得したサンプル上の位置を後々保証できない。そこで、ナノスケールの電子ビームを用いる STEM-NBD (Nano Beam electron Diffraction) により (図 2 左)、ビームをスキャンしながら DP を取得した。散乱された電子

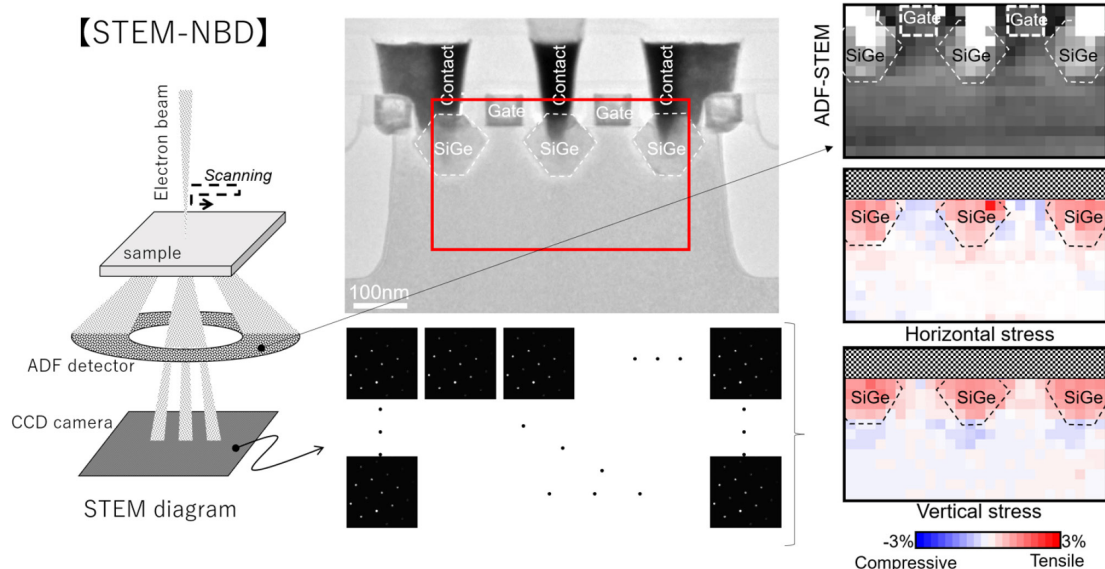


図 2 STEM-NBD による Si MOSFET 内部の歪み測定

線は環状検出器によって検出され、ADF 像が取得できる。ADF 像から DP の取得位置は保証される。本手法を用いることにより自動で多くのデータを取れるようになったが（図 2 中下）、今度は人間が解析するにはデータが多過ぎる。そこで、Gatan 社の DigitalMicrograph というアプリケーションのスクリプト機能を用いて回折スポットの距離を自動で測るプログラムを作成し、0.1%の精度で歪み変化を捉えることに成功した。図 2 右中・下に、評価結果の歪み分布を色分けして（圧縮は青、伸張は赤）示した [11]（図 2 の測定結果は、同じ手法を用いて NIMS において測定したもの）。

2.3 TEM 画像の複合的な解析に向けて

当時は図 2 に示すように ABF 像の検出に CCD カメラを用いているが、その後さらに高感度・高速のカメラが開発された。264 × 264 pixels なら、毎秒 1,000 フレームの速度（1,000 fps）で画像が撮れる。4 k × 4 k の高解像度でも 25 fps のフレーム速度が得られる。取得できるデータの数も以前は多くても 100 枚だったのが、近年の PC の処理能力とストレージの大容量化により今では何万枚もの回折図形を撮れるようになった。試料上で電子プローブを走査する各点ごとに、DP を記録する手法は、試料走査面での 2 次元に加え、検出面での 2 次元情報が得られるので、4D-STEM 法とも呼ばれる。

TEM で取得される DP には、空間群、結晶構造、歪み、原子配列などの結晶に関する情報が豊富に含まれている。しかし、これまでの TEM は選ばれた領域の電子回折といった一部のデータしか利用していない。

一方、大量のデータ、所謂ビッグデータを扱う機械学習や統計処理が近年注目を集めている。例えば、国民生活では国勢調査から得られるビッグデータの統計処理で

人口動態の将来予測や、コンビニのレジから得られたビッグデータから顧客性向などの有効な知見を導き出している。ビッグデータに機械学習や統計処理を適用することで、個々のデータを解析するのとは質の異なった情報が得られる。

上杉氏は、TEM で得られる大量データの有効利用に、統計的手法や機械学習が使えないかと考えた。前節に複合解析のきっかけとした歪み検出では、興味ある場所で DP のスポット間の距離を測って格子定数を求め、無歪の領域の格子定数と比べて歪みがどれだけあるかを見ていた。先の解析は単結晶を対象としたものであるが、多結晶や多層ナノシートから得られる複数の DP が重なった状態を解析しなければいけない場合もある。少数の DP の解析では、結晶の情報、面と面の角度関係、消滅則などの知識を使って個々の DP に分離し、その後所望の解析を行うことができる。しかし、4D-STEM データのように多量に DP がある場合には人間技では到底無理である。さまざまな DP が重なっている DP から個々の DP を分離できないかと考えた。その際、EELS や EDS のスペクトル解析で、重なったスペクトルを統計処理の多変量解析で分解している論文を見つけた [12]。

図 3 で、観測された電子回折像に一本の線を引いてみるとその線に沿って電子線強度のラインプロファイルがとれる。これをスペクトルと見なすと、縦の線ごとにスペクトルが得られる。電子回折像はスペクトルの重ね合わせとなるから、2 次元のデータを並べ替えて 1 列のデータにすることで同じ手法が使えないかと考え、TEM データの多変量解析を試みるようになった。

これに続き、TEM データから人力だけでは難しい有効情報の抽出に向け、多変量解析に加えて、機械学習を伴うトポロジーと AI（人工知能）を組み合わせた解析、同心円状ウェーブレットによる画像処理を行なった。

【Beginning of the delusion】

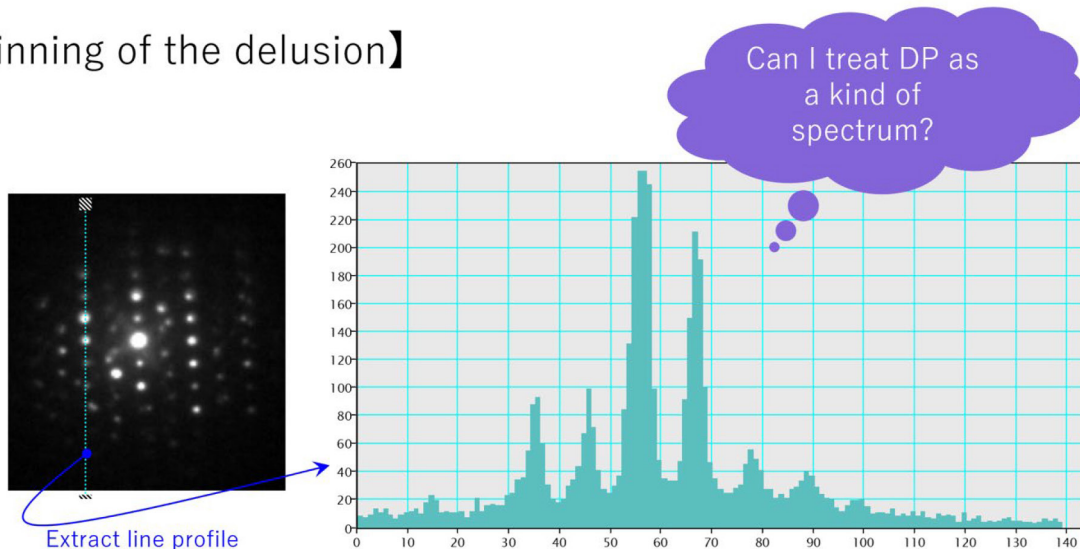


図 3 電子回折パターンのスペクトル展開のアナロジー



3. TEM データから人力だけでは難しい有効情報の抽出

3.1 多変量解析を用いた 4D-STEM データ解析 [13]

多変量解析 (Multivariate Analysis) は、多変量のデータの特徴を要約する統計手法である。多変量解析には様々な手法があり、PCA (Principal Component Analysis, 主成分分析) だと負の成分が出て、直感的に理解しにくい。MCR (Multivariate Curve Resolution: 多変量スペクトル分解) は、非負値行列因子分解 (NMF: Nonnegative Matrix Factorization) ともいい、成分は正になるので解析結果を理解し易い。このため MCR を用いて、TEM データの多変量解析を行なった。

まず、TEM の 4D データを行列に変換する。図 4 において 4D データから右上の回折パターン、 $n \times n$ のピクセルイメージを行列に変換し、左下の 1D 回折データから成る 3D データを 2 次元行列に変換して、4D-STEM データの 2D 行列 X とする。

4D-STEM データは試料中の異なる点からの電子回折の重なりである。特定の点からの電子回折を多変量解析で分離するのは、実験で得られた信号の行列 X を、着目する点を表す行列 C と回折図形の行列 S に分解することになり、

$$X = SC \quad (1)$$

である。この関係式から S を求めて行くが、初めは何も

わからないので C の要素には乱数を入れておく。両辺に C の転置行列 C^T を掛け、 $C C^T$ の逆行列を掛けると S が求まる。

$$XC = SCC^T, S = (XC^T)(CC^T)^{-1} \quad (2)$$

得られた S の要素で負のものは 0 にし、この S を用いて C を改める。

$$S^T X = S^T S C, C = (S^T S)^{-1}(S^T X) \quad (3)$$

この C でも負の要素は 0 に修正し、式 (2) に戻って式 (3) に進む。これを収束するまで繰り返す。収束の結果として得られた行列 S が分離された回折図形である。この MCR 計算は標準的なパソコンで行い、以下に示す例では、収束までの反復回数は 100 回程度、計算時間は 20 分程度であった。

この手法の検証には酸化チタン (Ti_xO_y) ナノシートの構造解析を用いた。酸化チタンには TiO_2 , Ti_2O_3 といった複数の化合物があり、試料の酸化チタンナノシートは酸素濃度 y の異なる領域が混在しており、さらにナノシートの層数も異なっている。この試料から得た ADF-STEM 像と 4D-STEM データの解析結果を図 5 に示す。実験で得られる 4D データは酸素濃度の異なる複数の領域からの DP の重ね合わせである。図 5 (a) は ADF-STEM 像 (中央) と解析前の 4D-STEM によって得られた DP の一部が周りに示してある。赤の数字は ADF-STEM 像の強度から推定できるシートの層数である。層数が多いほど複雑な DP で

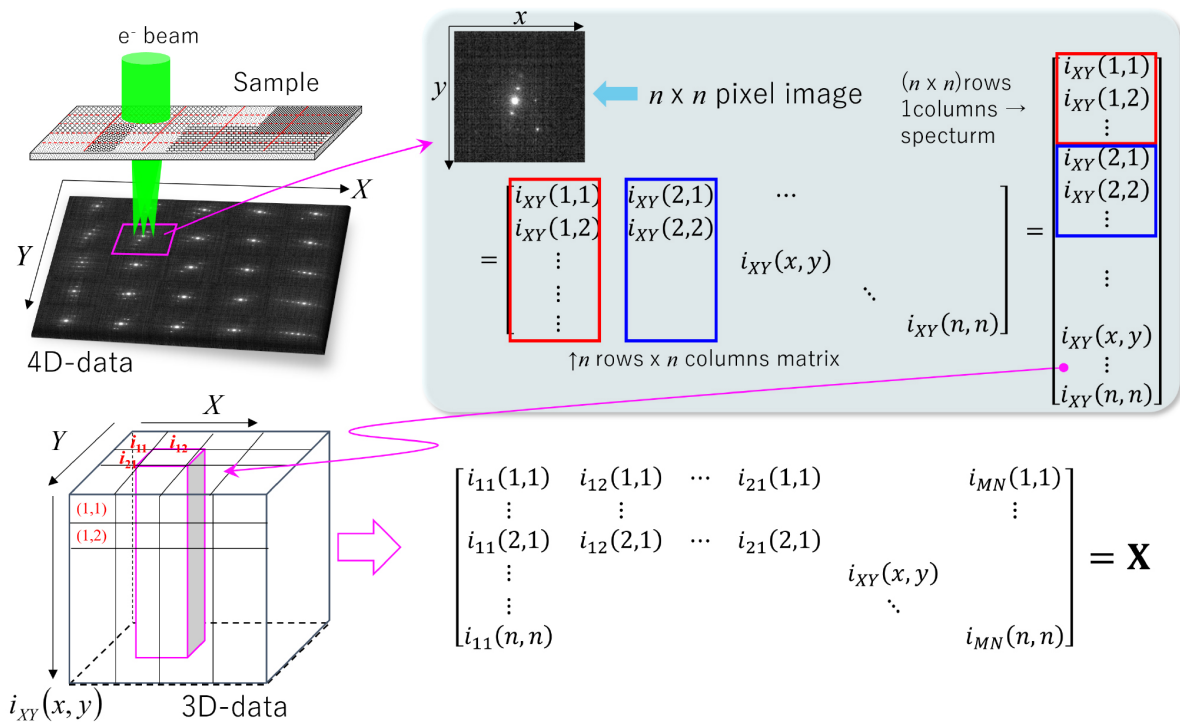


図 4 多変量解析のための 4D-STEM データ変換

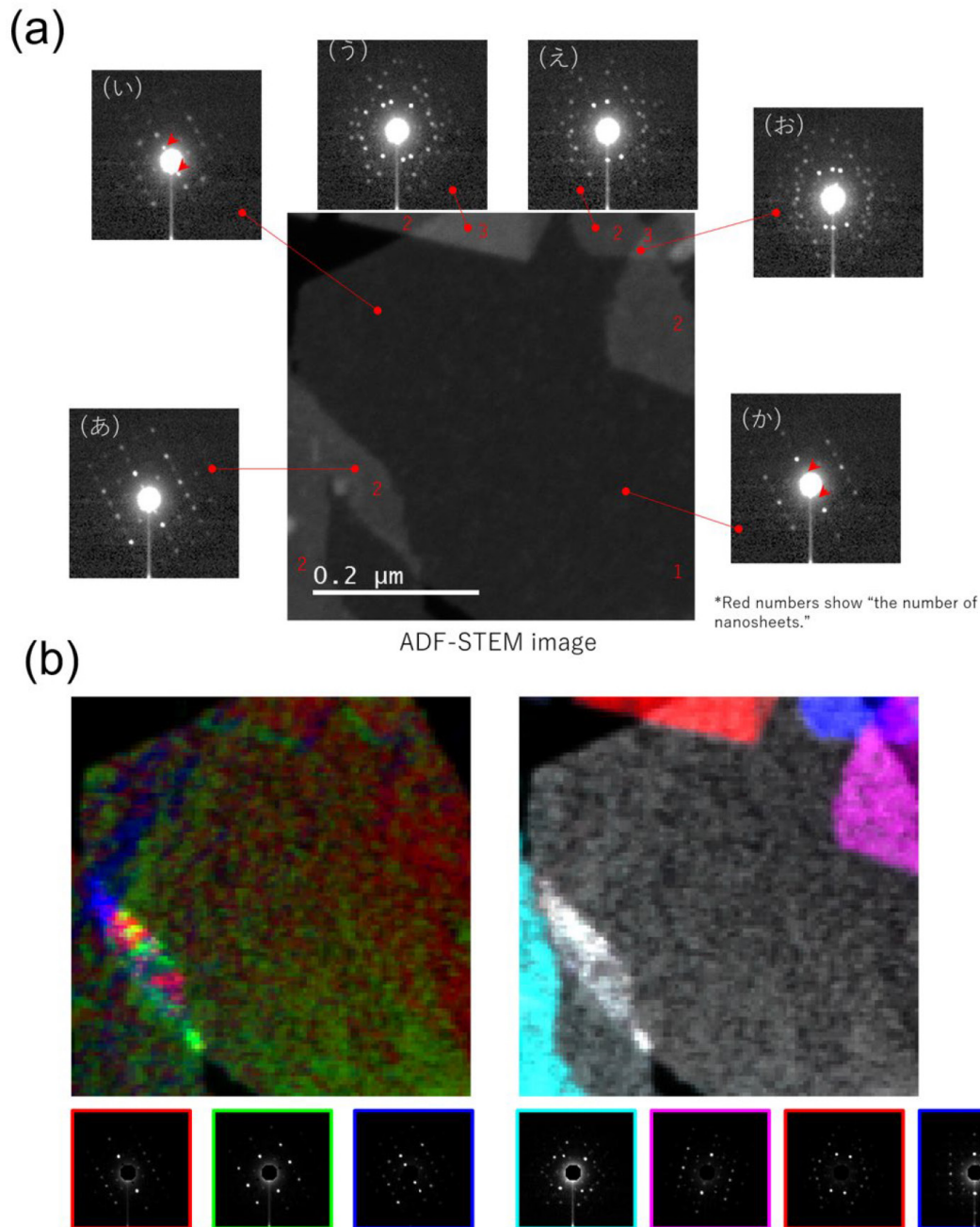


図5 酸化チタンナノシートからの4D-STEMデータの多変量解析結果。(a) 酸化チタンナノシートのADF-STEM像と多変量解析結果前のDP。(b) 多変量解析によって分解後のDP(下段)とそれぞれのDPに対応した領域(上段: DPの枠の色と領域の色は対応している)

あることがわかる。図5(b)は、多変量解析によって分解されたDP(下段)とそれらのDPが生じる領域を示してある。DPの外枠の色と領域の色は一致している。図5(b)右の水色の枠と赤の枠で囲まれたDPは一見双晶からのDPに見え、分解が不十分であるように思われるかもしれない。それらに含まれる個々のDPを生じるような領域がサンプル上に存在すれば、それぞれのDPの情報を用いてそれらは分解できるが、今の場合、重なったナノシートしかこの領域に無いのでこれ以上分解できない。多変量解析が実験によって得られた大量の情報を用いて、少数の要素を見つけ出していることがわかる。

3.2 トポロジーとAIを組み合わせた解析方法[14]

TEM解析の対象は結晶質とは限らない。半導体LSIの素子分離領域は、 SiO_2 、 SiN_x の反復CVD(化学気相蒸着)とパターンエッチングによる浅溝分離(STI: Shallow Trench Isolation)などで作るから、結晶質のSi基板と非晶質の SiO_2 、 SiN_x 絶縁膜が混在する。異種物質との接合によりSiに歪みが生じ、製造条件により非晶質領域の構造が変わる。結晶質領域と非晶質領域を分離して解析したい、といった要求が起こる。しかしアモルファス(非晶質)材料のTEM像の解析は、結晶のもつ周期性がない

ため難しい。とはいえ、長距離の規則性、周期性はなくとも、アモルファスの中で短距離の規則性は存在し、原子は繋がっている、上杉氏は、データの繋がり方（トポロジー）を解析するトポロジカルデータ解析に着目した。

トポロジカルデータ解析では、データの繋がり方（トポロジー）がデータの集合の特徴を表していると考え、繋がり方によって生ずる環や空隙といった「穴」に対応する構造の定量化を行う。その手法として、トポロジカルデータ解析の一つであるパーシステントホモロジー（Persistent Homology, PH）を取り上げた。図6にその概要を示している。図の上段に示すように、データ点を中心にした円を描き、その半径を $r_1, r_2, r_3 \dots$ と増やしていったときに、 r_2 でデータ点のリングの円が繋がってリングが生成され、穴ができる（birth）。 r_3 で穴が被覆されて消滅する（death）。 r_4 で二つのリングが形成され、その一つは r_5 で穴が消滅し、もう一つは r_6 で穴が消滅する。図6上段2列目は、一列目の状況変化をデータ点の接続関係で表現したもので、穴の消滅は、リンクを黒く塗り潰している。図6の下段は、これらの変遷を、横軸に生成（birth）時の半径、縦軸に消滅（death）時の半径を取って、リングごとにプロットしたパーシステント図（PD）である。データ点が散在する複雑な図形が、PDにより数値データに変換され、この数値データを機械学習や統計解析に利用する。

PHによりアモルファス状態を解析する手法の妥当性を確かめようと、TEM画像で液体状態とアモルファス状態がPHによって識別できるか、シミュレーションを行なった。まず、 $50 \text{ \AA} \times 50 \text{ \AA} \times 50 \text{ \AA}$ の大きさの結晶モデルを作成し、計算化学ソフトウェアLAMMPS[15]を用いて分子動力学（MD）シミュレーションを行なった。1000 K, 4000 K, 6000 Kで昇温と300 Kへの急冷を行った。昇温状態の原子座標と急冷したものでPH解析を行った結

果を図7に示す。その結果4000 Kのものでは、実際には融点が2500 Kであるにもかかわらず、原子座標はランダムにはならず溶融していることは確認できなかった。さらにそれを急冷したもののPDは1000 Kのものと同じとした。分子動力学ではこのようなことはよくある。6000 Kでは原子座標は全く1000 K, 4000 Kと異なり急冷したのも同様に1000 Kおよび4000 Kの急冷のものと同様になっていた。そこで以後6000 Kのもので液体（without RT）とアモルファス（with RT）の原子座標を用いてTEMシミュレーションを行い、これらについてPH解析を行った。TEM像は電子線画像シミュレータ（ELBIS）を用いて作成した。一部を図7の中央の列に示してある。

TEM画像は完全に焦点が合った状態で取得できると限らないので、 $\pm 100 \text{ \AA}$ の範囲で焦点を振った画像を用意した。これらの画像のPDを作成し、機械学習（Logistic classification）を行い、液体からの像とアモルファスからの像を分離できるように学習した。PDは0次と1次のもを連結したものを使った。学習した結果、 $\pm 100 \text{ \AA}$ では75%程度、just focusに近いところでは85%以上の正答率を得られた。液体では、Birth-DeathペアがPDの対角線に近い側に、アモルファスではそれより遠くに生じやすいという結果が得られた（図8。暖色の領域が液体、寒色がアモルファス）。液体では構造が完全にランダムになっているのに対し、アモルファスではある程度秩序があることが2次元のTEM像でも表れていることがうかがえる。

3.3 同心円状ウェーブレットによる画像処理 [16]

TEMの性能向上とTEMを制御するコンピュータの高速化がもたらした大量データの活用には画像処理が重要になる。ノイズ除去、特徴抽出、図形や輪郭の強調など

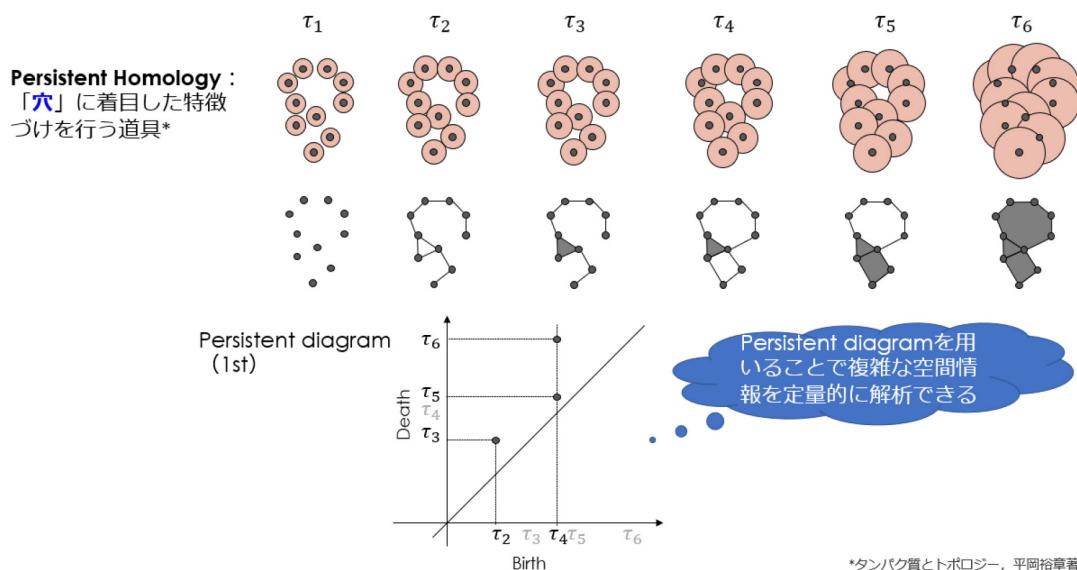


図6 パーシステントホモロジー（PH）の概念図

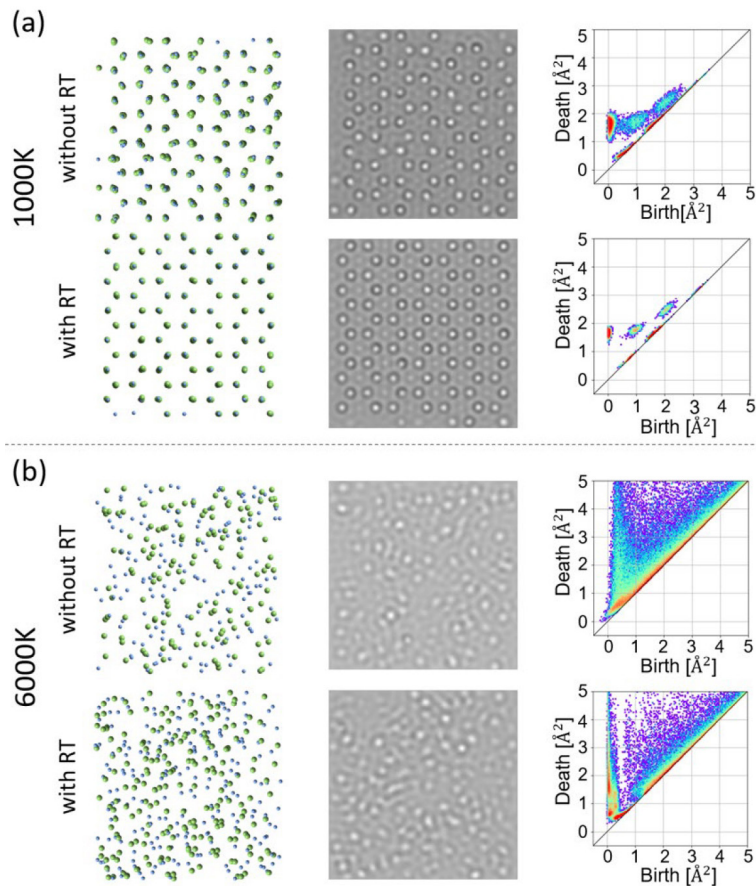


図7 MDによって作成した結晶モデルの俯瞰像（左）、TEMシミュレーション像（中央）と3次元データからの1次PD（右）

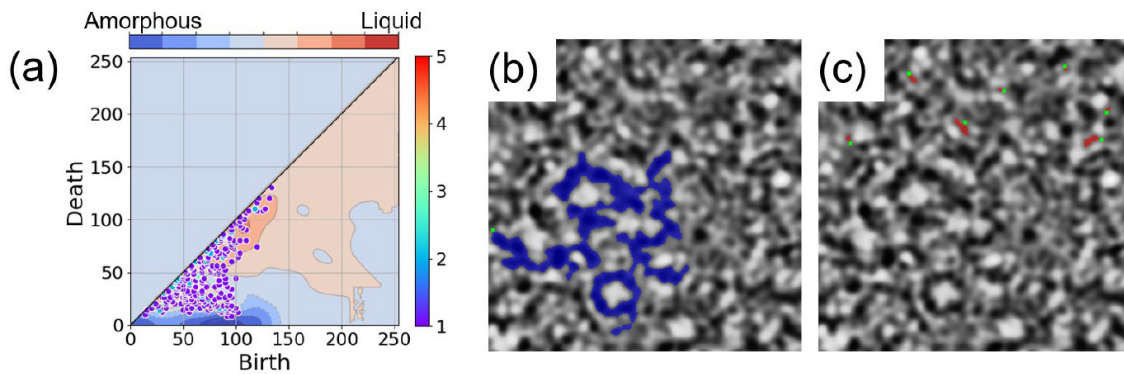


図8 PHを用いたアモルファス解析.

(a) 機械学習によって領域分けした1次のPD. (b), (c) 逆解析結果. アモルファスと液体の領域ある点が像のどこから生じたかを示す.

を行えば、TEMデータから追加の情報を引き出すことができる。

TEMデータにおいて、図形や輪郭の強調にはフーリエ変換（Fourier Transform, FT）が用いられてきた。次元ならFTは次式で表され、

$$f(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} f(x)e^{-i\omega x} dx$$

入力関数 $f(x)$ の周波数 ω におけるFTには、 x に関する情報がなくなっている。窓関数を用いる窓フーリエ変換WFTにより x の情報を残すことができるが、窓幅を周波

数に合わせて固定するため、広い周波数領域の解析には向かない。これに対し、小さい波（Wavelet）を拡大縮小、平行移動して足し合わせることで、入力波形を表現するため広い周波数領域の解析が容易になるウェーブレット変換（WT）が考え出された。WFTの窓関数に相当するマザーウェーブレット $\psi(x)$ を用いて入力データ $f(x)$ のウェーブレット変換 $(W_\psi f)$ は次式で表される。

$$(W_\psi f)(b, a) = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{1}{\sqrt{|a|}} \psi\left(\frac{x-b}{a}\right) f(x) dx$$

ここで、 a は局在度、 b は位置を表し、 a, b を調整してマ

ザーウェーブレットを作る。画像のような二次元データには二次元ウェーブレット変換 2D-WT が定義されるが、従来の画像変換に用いられたメキシカンハット型の中心対称 (centrosymmetric) のウェーブレットを使うと、格子状に配列した円を変換した時に、元々あった円の上に新たに円が現れるといった不都合が起きる。そこで、図 9 に示す同心円状 (concentric) ウェーブレットを用いることとした。

同心円状ウェーブレットによる画像処理では、図 9 (a) の一連のマザーウェーブレットで画像データを変換する。ウェーブレットは鳥瞰図で見ると図 9 (b) の形状で、中心付近の強度分布は図 9 (c) のように双峰性を示し、同心円状に強度が高くなっている。

処理の手順は、図 10 に示すように、原画像と一連のウェーブレットの相互相関関数で得られた変換画像群から、必要な画像を選んで再構成する、というものである (図 10 の★は相互相関関数を表す)。

この同心円状ウェーブレット変換をストロンチウム化

合物 SrAlSi₄N₇ の ADF-STEM 画像に適用して画像処理をした結果を図 11 に示した。この化合物は、図 11 (c) に重ねられているように、Sr 原子と Al 及び N の鎖構造からなる。原画像：図 11 (a) の中心部を FT 処理して拡大すると図 11 (b) となる。Sr の像だけが残る、他の原子は消えてしまう。512 × 512 の画像を 256 枚の同心円状ウェーブレットで処理し、全てを足し合わせると (Slices 0-255), 原画像と同等の画像：図 11 (d) だが、一部のウェーブレット (Slices 27-62) を足し合わせた図 11 (c) では Sr 原子が図 11 (d) より鮮明に表示されている。

また、64 × 64 ピクセルというデータ量の比較的小さい α-SiN の EDS マッピングに同心円状ウェーブレット画像処理を適用して画質向上を図った。画素数が小さな画像ではフィルタが使いにくく FT による特徴抽出は難しい。未処理の N のマップ (図 12 の上段の右列) を見るとほとんどノイズにしか見えないが、本手法を用いたマップ (同図下段右列) では強度の高いところが N サイトに一致していることがわかる。本手法を適用した N マップ

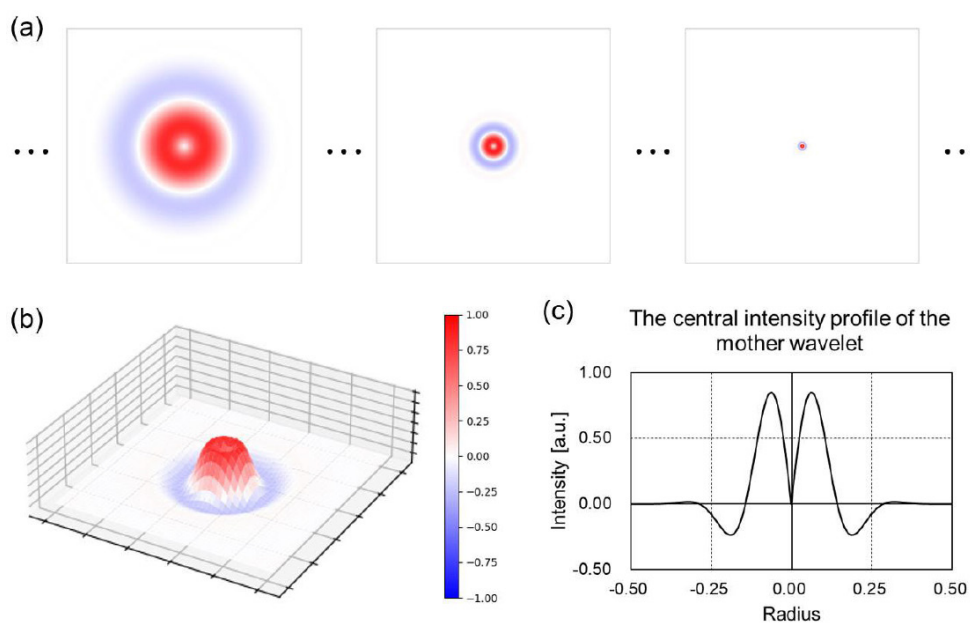


図 9 同心円状ウェーブレット

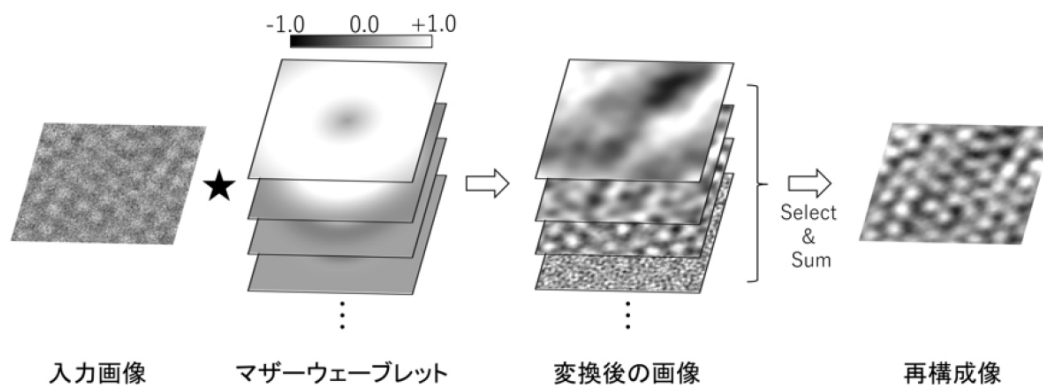


図 10 同心円状ウェーブレットによる画像変換

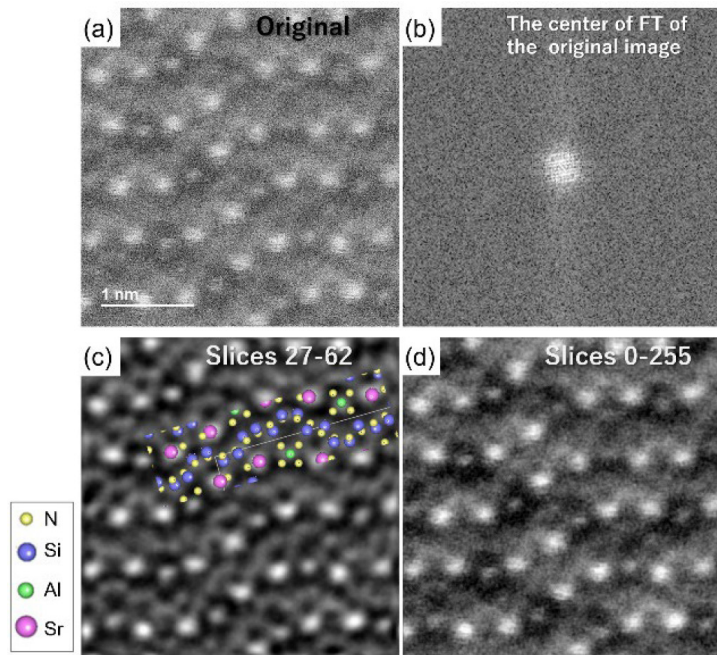


図 11 一部ウェーブレット選択による画像強調

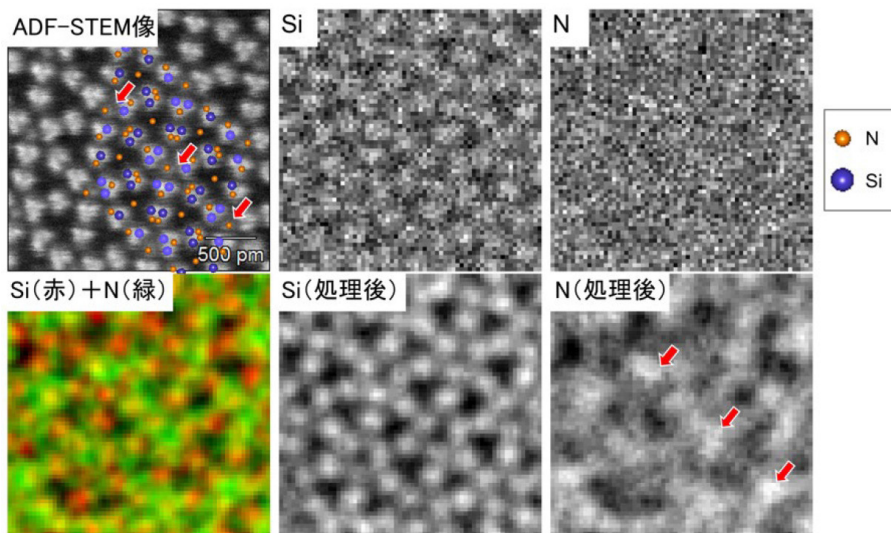


図 12 EDS 元素マップの画像強調

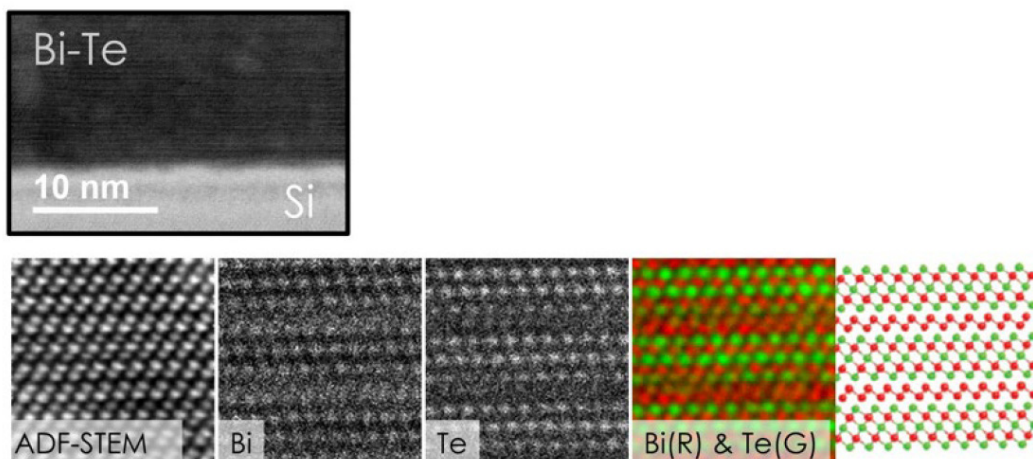


図 13 2次元多層薄膜材料の構造解析

を一度見た後、未処理の画像を見てみると、処理後のマップで強度が高く表示されている箇所は未処理のマップでもノイズに埋もれながらも高い強度を示していることに気づくことができる。画像処理は人間の認知の助けになることがわかる。

一方、グラフェンのような2次元物質は、3次元物質に比べて優れた、特異な物性を示す。層状結晶となるBi-Teの多層薄膜成長を行い、組成などの相の異なる層が得られているか確認するのにADF-STEM観察を行い、同心円状ウェーブレット画像処理を行った(図13)。Si基板にマグネトロンスパッタで形成されたBi-Te層のADF-STEM像がBiまたはTeの原子配列に分解され(図13下段)、Bi-Te層状配置像に変換された。組成の異なるBi-Te二次元膜の重なりを、TEMで直接、観察することに成功した(図13上段)。この解析は、NPJの装置共用における微細構造解析の技術代行の中で行われた[17]。

同心円状ウェーブレット画像処理は、フーリエ変換による画像処理よりも柔軟性があり、画像強調やノイズ処理の有効な手段である。「画像処理は、偽物の画像を作り出してしまふような好ましくない手法と思われる方もいると思うが、時と場合によって適宜使い分けることがデータ解析では必要なのではないか」と上杉氏は云う。

4. おわりに

電子顕微鏡はナノテクノロジーの世界を観察する主要手段である。分解能は、走査透過電子顕微鏡(STEM)で原子レベルに達した。STEMでは試料面の2次元走査と検出面の2次元位置を合わせた4Dデータが得られる。装置の高精度化・高速化、装置を制御する計算機の高速度化とメモリーの大容量化により取得できるデータは飛躍的に増大した。大量のデータから有効な情報を抽出すべく、上杉氏は、画像処理、統計的手法、機械学習などの活用を提案した。提案した手法には技術代行で利用したものもあるが、このほか、10~20行の小さなスクリプトを日常的に作成・使用して、技術代行における画像の加工やデータの整理に役立てているという。しかし、このような活動、解析の過程は、解析結果に比べて表に出にくい。これからは、電子顕微鏡構造解析におけるデータ処理の重要性を再認識し、大容量データからより多くの情報を引き出すことにより、材料データの集積が進み、材料革新が促進されることを期待する。

参考文献

- [1] ARIM Japan 文部科学省 マテリアルリサーチインフラ
<https://nanonet.mext.go.jp>
- [2] 「データ創出・活用型マテリアル研究開発プロジェクト

ト事業」について

https://www.mext.go.jp/a_menu/kagaku/nano/data_driven_fs_00001.html

- [3] 令和4年度技術スタッフ表彰
https://nanonet.mext.go.jp/page/awards_for_technical_staff_R04.html
- [4] 【優秀技術賞】「TEM データを味わい尽くす」
https://nanonet.mext.go.jp/data/doc/1675129320_doc_10_0.pdf
- [5] NIMS ARIM
<https://www.nims.go.jp/arim/>
- [6] NIMS Open Facility
<https://www.nims-open-facility.jp>
- [7] NIMS ARIM 利用装置
<https://www.nims.go.jp/arim/facilities/facilities2.html>
- [8] NIMS ARIM 利用について
<https://www.nims.go.jp/arim/use/flow.html>
- [9] イオン液体中の微細構造解析, *NanotechJapan Bulletin* Vol. 13, No. 1, 2020
https://nanonet.mext.go.jp/data/doc/1654488562_doc_10_0.pdf
- [10] 原子分解能 STEM-EDS マッピングによる原子カラムの可視化
NanotechJapan Bulletin Vol. 11, No. 2, 2018
https://nanonet.mext.go.jp/data/doc/1653013123_doc_11_0.pdf
- [11] Fumihiko Uesugi, Akira Hokazono, and Shiro Takeno, "Evaluation of two-dimensional strain distribution by STEM/NBD", *Ultramicroscopy*, Vol. 111, Issue 8, pp. 995-998 (2011)
- [12] Shunsuke Muto, Tomoko Yoshida, and Kazuyoshi Tatsumi, "Diagnostic Nano-Analysis of Materials Properties by Multivariate Curve Resolution Applied to Spectrum Images by S/TEM-EELS", *Materials Transactions*, Vol. 50, No.5, pp. 964-969 (2009)
- [13] Fumihiko Uesugi, Shogo Koshiya, Jun Kikkawa, Takuro Nagai, Kazutaka Mitsuishi, and Koji Kimoto, "Non-negative matrix factorization for mining big data obtained using four-dimensional scanning transmission electron microscopy", *Ultramicroscopy*, Vol. 221, pp. 113168-113173 (2021)
- [14] Fumihiko Uesugi, and Masashi Ishii, "Classification for transmission electron microscope images from different amorphous states using persistent homology", *Microscopy*, Vol. 71, No. 3, pp. 161-168 (2022)
- [15] Aidan P. Thompson, H. Metin Aktulga, Richard Berger, Dan S. Bolintineanu, W. Michael Brown, Paul S. Crozier, Pieter J. in 't Veld, Axel Kohlmeyer, Stan

G. Moore, Trung Dac Nguyen, Ray Shan, Mark J. Stevens, Julien Tranchida, Christian Trott, and Steven J. Plimpton, "LAMMPS - a flexible simulation tool for particle-based materials modeling at the atomic, meso, and continuum scales", *Computer Physics Communications*, Vol. 271, February 2022, 108171

[16] Fumihiko Uesugi, "Proposal of a new image processing method inspired by wavelet transform", Submitted to *Nanoscale*

[17] Yuta Saito, Paul Fons, Kotaro Makino, Kirill V.

Mitrofanov, Fumihiko Uesugi, Masaki Takeguchi, Alexander V. Kolobov, and Junji Tominaga, "Compositional tuning in sputter-grown highly-oriented Bi-Te films and their optical and electronic structures", *Nanoscale*, Vol. 9, pp. 15115-15121 (2017)

(図 1 以外の図は全て NIMS 上杉氏から提供された)

(古寺 博)