

走査透過電子顕微鏡における 弾性・非弾性散乱信号の オンライン・デジタル演算処理

(研究課題番号 63850078)

平成元年度科学研究費補助金(試験研究(2))
研究成果報告書

平成2年3月

研究代表者 日 比 野 倫 夫
(名古屋大学工学部教授)

平成元年度科学研究費補助金（試験研究（2））研究成果報告書

研究課題番号 63850078

研 究 課 題 走査透過電子顕微鏡における弾性・非弾性散乱信号のオンライン・
デジタル演算処理

1. はしがき

結晶性物質の構造と化学組成の同定には、従来からの種々の分光法、回折法及び電子顕微法を用いる一般的な手法が確立されてきているが、この手法は非晶質試料に対しては適用できない。非晶質試料の解析手段としては、走査透過電子顕微鏡（以下ではSTEMと略記する）を用いることが有力である。これは、STEMの特徴として結像の干渉性が低いため、非晶質試料の個々の粒子を分離・観察するのに適しており、また、電子ビームを細く絞って試料に照射し、透過あるいは散乱電子による時系列信号をもちいて結像するという装置の性質上、微小領域から発生する種々の信号電子を同時に利用できるという利点があるためである。

本研究においては、このようなSTEMの有用性を最大限に引き出して、これを非晶質試料に対する最も有効な観察手段にまで高めることを目的とし、弾性散乱電子、非弾性散乱電子、透過電子の3種類の信号を相互にデジタル演算処理することによって像を形成するシステムを開発する。そのために、検出系の各段における変換・伝送特性に注意を払って3種類の電子を同時に検出してデジタル信号に変換する検出系を構成する。また、各種信号電子によって形成された画像間の演算処理を行い構成元素の原子番号だけに依存するコントラスト（Zコントラスト）を示す像を形成する。さらに、S/N比を改善する演算処理の手法を開発し、原子番号依存コントラストの観察と高解像度観察法の基礎を確立する。



2. 研究組織

研究代表者 : 日比野倫夫 (名古屋大学・工学部・教授)

研究分担者 : 下山 宏 (名古屋大学・工学部・助教授)

研究分担者 : 杉山せつ子 (名古屋大学・工学部・助手)

研究分担者 : 花井孝明 (名古屋大学・工学部・講師)

3. 研究経費

昭和63年度	6,800千円
平成元年度	1,800千円
<hr/>	
計	8,600千円

4. 研究発表

(1) 学会誌等

発 表 者	テ ー マ 名	学 会 誌 名 等	巻 号 頁 年
丸 勢 進, 日比野倫夫	Construction of a high voltage scanning transmission electron microscope	Hawaii Seminar on Electron Microscopy	p.15 (1987)
下 山 宏 他	Developement of field emission gun for 1MV electron microscope	Hawaii Seminar on Electron Microscopy	p.21 (1987)
丸 勢 進, 日比野倫夫	A High Voltage Scanning Transmission Electron Microscope Developed at Nagoya University	Hitachi Instrument News	p.10 (1987)
日比野倫夫, 花 井 孝 明, 丸 勢 進 他	電子レンズの球面収差低減の話	日本電子顕微鏡学会分科会資料	p.5 (1987)
日比野倫夫, 丸 勢 進 他	Reduction of Stastistical Noise of Electrons in STEM	Electron Microscopy 1988	p.63 (1988)
丸 勢 進, 下 山 宏	New Trend of HV-STEM —Development of Field Emission Gun for HVEM —	Electron Microscopy 1988	p.207 (1988)
下 山 宏	磁界重畳型電界放出電子銃の電子光学的特性の理論的解析	豊田研究報告	41 , p.57 (1988)
下 山 宏	超高圧電子顕微鏡用電界放出電子銃の開発	学振 141委員会 第60回研究会資料	No.675 p.32 (1989)
日比野倫夫	入射電子統計ノイズの除去によるSTEMの像質の改善	学振 141委員会 第61回研究会資料	No.690 p.39 (1989)
下 山 宏 他	Emitter and Electron Gun	J. Electron Microscopy	38, suppl., p.S1 (1989)
日比野倫夫	検出・記録	日本電子顕微鏡学会分科会資料	p.20 (1989)
日比野倫夫 他	Detection and Recording	J. Electron Microscopy	38, suppl., p.S23 (1989)
日比野倫夫, 下 山 宏, 丸 勢 進	A High-Voltage Scanning Transmission Electron Microscope at Nagoya University	J. Electron Microscopy Technique	12, 3, p.296 (1989)

(2) 口頭発表

発 表 者	テ ー マ 名	学 会 等 名	発 表 年 月
日比野倫夫 他	STEMにおける各種信号電子像のSN比	日本電子顕微鏡学会 第43回学術講演会	1987. 5
下 山 宏 他	Boersch 効果のモンテカルロ計算結果の評価法	日本電子顕微鏡学会 第43回学術講演会	1987. 5
日比野倫夫 他	不均一支持膜上のAu原子のSTEM観察におけるSN比	昭和62年度電気関係 学会東海支部連合 大会	1987. 10
花 井 孝 明, 日比野倫夫 他	超高压STEMにおける無染色タバコモザイク ウイルス像のSN比	昭和62年度電気関係 学会東海支部連合 大会	1987. 10
花 井 孝 明, 日比野倫夫 他	薄膜レンズ特性の形状による変化	昭和62年度電気関係 学会東海支部連合 大会	1987. 10
花 井 孝 明, 日比野倫夫 他	走査透過電子顕微鏡における像ノイズの測定	昭和62年度電気関係 学会東海支部連合 大会	1987. 10
下 山 宏 他	Boersch 効果に起因する電子ビーム中の密度 分布の変化	昭和62年度電気関係 学会東海支部連合 大会	1987. 10
下 山 宏 他	Remolding によるW Field Emitter の再生	昭和62年度電気関係 学会東海支部連合 大会	1987. 10
花 井 孝 明	電子レンズの高次軸上収差	日本電子顕微鏡学会 分科会	1987. 12
日比野倫夫, 丸 勢 進	STEMにおける電子統計ノイズの低減	日本電子顕微鏡学会 第44回学術講演会	1988. 6
下 山 宏, 丸 勢 進 他	電界放出型電子銃用加・減速電子レンズの特性	日本電子顕微鏡学会 第44回学術講演会	1988. 6
下 山 宏, 丸 勢 進 他	電子線プローブ作製装置におけるBoersch Effect	日本電子顕微鏡学会 第44回学術講演会	1988. 6
日比野倫夫, 丸 勢 進 他	P46粉末蛍光体およびYAG単結晶の残光・ 感度特性	日本電子顕微鏡学会 第44回学術講演会	1988. 6
日比野倫夫	超高压STEM	日本電子顕微鏡学会 関西支部特別講演会	1988. 6

発 表 者	テ ー マ 名	学 会 等 名	発 表 年 月
日比野倫夫, 丸 勢 進 他	超高圧電顕における電子エネルギー損失分光法の検出器の検討	昭和63年度電気関係 学会東海支部連合 大会	1988. 9
花 井 孝 明, 日比野倫夫 他	デジタル表示された像のS/N比と識別限界	昭和63年度電気関係 学会東海支部連合 大会	1988. 9
花 井 孝 明, 日比野倫夫, 丸 勢 進 他	STEMとCTEMにおける電子線照射損傷の比較	昭和63年度電気関係 学会東海支部連合 大会	1988. 9
下 山 宏, 丸 勢 進 他	磁界重畳型電界放出電子銃の電子光学的特性	昭和63年度電気関係 学会東海支部連合 大会	1988. 9
下 山 宏, 丸 勢 進 他	磁界重畳型低加速 point cathode 熱電子銃の特性	昭和63年度電気関係 学会東海支部連合 大会	1988. 9
下 山 宏, 丸 勢 進 他	電界放出型電子銃用3電極加・減速電子レンズの特性	昭和63年度電気関係 学会東海支部連合 大会	1988. 9
日比野倫夫	薄膜レンズを用いる球面収差補正のはなし	日本電子顕微鏡学会 分科会	1989. 4
丸 勢 進	電子顕微鏡の現状と将来—鏡体関係—	日本電子顕微鏡学会 第45回学術講演会	1989. 6
日比野倫夫, 丸 勢 進 他	STEMシンチレータとしてのYAG単結晶の特性	日本電子顕微鏡学会 第45回学術講演会	1989. 6
花 井 孝 明, 日比野倫夫, 丸 勢 進 他	雑音のある像のデコンボリューション処理	日本電子顕微鏡学会 第45回学術講演会	1989. 6
丸 勢 進 他	電子衝撃局所加熱型電子銃：衝撃電子ビームの数値解析	日本電子顕微鏡学会 第45回学術講演会	1989. 6
内 川 嘉 樹, 下 山 宏 他	超高圧電子顕微鏡加速管のレンズ特性	日本電子顕微鏡学会 第45回学術講演会	1989. 6
花 井 孝 明, 日比野倫夫 他	サイドエントリー型薄膜レンズによるプローブフォーミングレンズの球面収差補正	平成元年度電気関係 学会東海支部連合 大会	1989.10

発 表 者	テ ー マ 名	学 会 等 名	発 表 年 月
花 井 孝 明. 日比野倫夫 他	走査透過電子顕微鏡像のデコンボリューション 処理	平成元年度電気関係 学会東海支部連合 大会	1989. 10
日比野倫夫. 丸 勢 進 他	入射電子による規格化を用いたSTEMの統計 ノイズの低減	平成元年度電気関係 学会東海支部連合 大会	1989. 10
花 井 孝 明. 日比野倫夫 他	信号間ディジタル演算による入射電子の統計ノ イズの除去	平成元年度電気関係 学会東海支部連合 大会	1989. 10
下 山 宏 他	磁界重畳型低加速電界放出電子銃の特性	平成元年度電気関係 学会東海支部連合 大会	1989. 10
下 山 宏 他	電子銃におけるBoersch Effectの計算機シミュ レーション	平成元年度電気関係 学会東海支部連合 大会	1989. 10
下 山 宏 他	電子間相互作用によるエネルギー分布幅増大効 果の計算機シミュレーション	平成元年度電気関係 学会東海支部連合 大会	1989. 10
日比野倫夫	STEMシンチレータとしてのYAG単結晶の 特性	総合研究(A) 報告会	1990. 1

5. 研究成果

(1) 電子検出法の改善

像コントラストを電氣的に容易に調整できるSTEMにおいては、解像限界を定めるのがS/N比であり、ノイズのない電子検出が特に重要である。そのために、電子検出のシンチレータについての検討をまず行った。その結果、従来使用してきているP46粉末蛍光体を用いるシンチレータについては、加速電圧に依存した最適厚さがあり、100kVにおいては最適厚さが0.07mmであることがわかった。さらにYAG単結晶をシンチレータとして使用することを考え、その特性を測定した。感度特性を図1に示すが、ライトガイドとの接合面をマット状（拡散面）にしたYAGが高い感度を示し、厚さ1mmのものがP46粉末蛍光体の約4倍の感度を与えることが分かった。また、約10 μ mに絞った電子プローブを走査させてシンチレータの粒状性を調べた結果を図2に示すが、P46粉末蛍光体では数 μ mから10 μ m程度の感度の不均一が認められるのに対し、YAG単結晶では均一性の良いことが分かる。このように、YAG単結晶はSTEMシンチレータとして優れた特性を示すことが明らかになった。

エネルギー分析器により電子エネルギーの分析後に電子を検出する場合に、スリット近傍で発生するX線がバックグラウンドとして重畳し、ノイズを生ずる。このX線の影響を除くために、図3に模式的に示したように、スリットの後方に新たに偏向用マグネットを設置し、電子のみを90°偏向して検出することを行った。さらに、検出器前面に絞り板を設け、鏡体壁あるいは分析器内壁で反射した電子およびスリット端面を通過した電子を除去することも行った。種々の厚さのカーボン膜のK殻励起電子のジャンプ比（図4の(P+B)/B）について、これらのX線対策の効果を調べた結果を図5、6に示す。大きい検出角の図5の場合には、X線の影響は膜厚が薄いときに顕著で、X線以外のバックグラウンドは薄い膜厚に対してわずかに認められる程度である。一方、小さい検出角（図6）に対しては、X線の影響が大きく、また絞り板を設けることにより、さらにジャンプ比が向上しているのが分かる。このように、偏向用マグネットおよび絞り板がバックグラウンドの除去に有効で、正確な検出を実現するとともに、ノイズを減少するために効果的であることが分かった。

(2) 像信号のデジタル処理システム

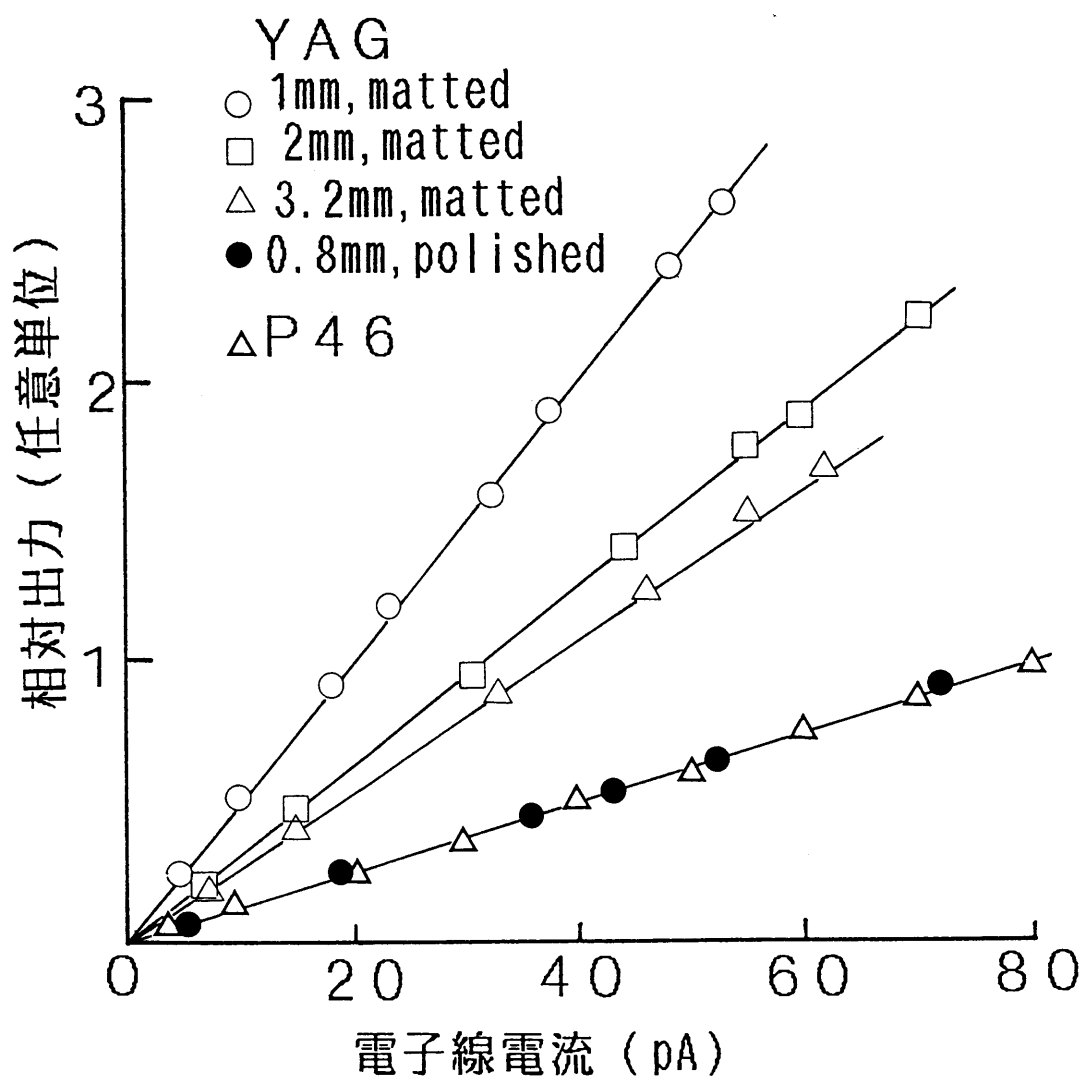
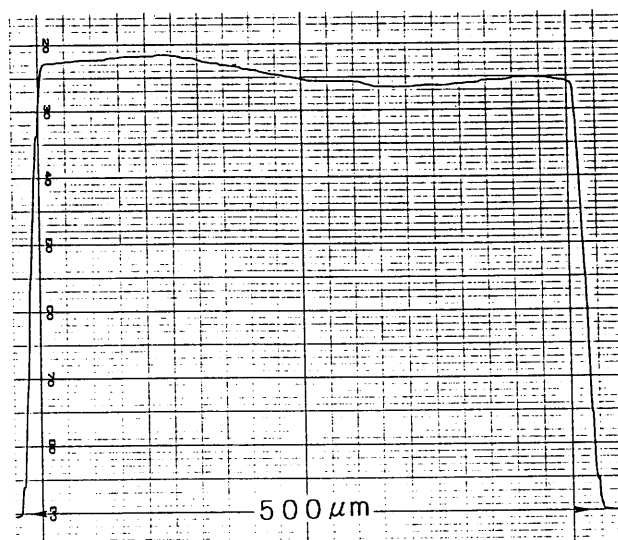
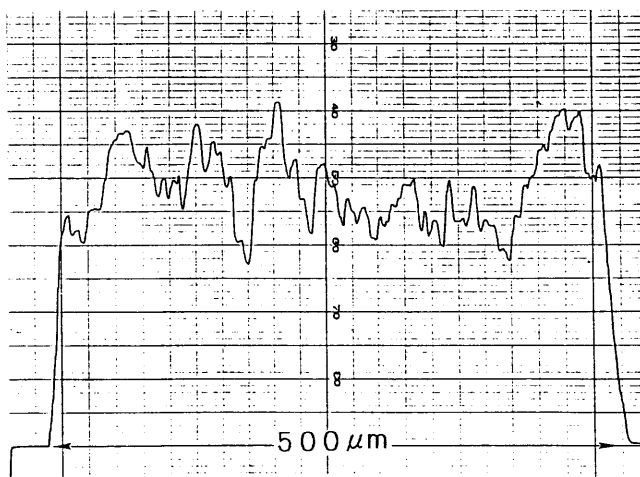


図1 シンチレータの感度特性 (100kV)



(a) Y A G (1mm, matted)



(b) powdered P 4 6 (0.07mm)

図2 感度の均一性 (100kV)

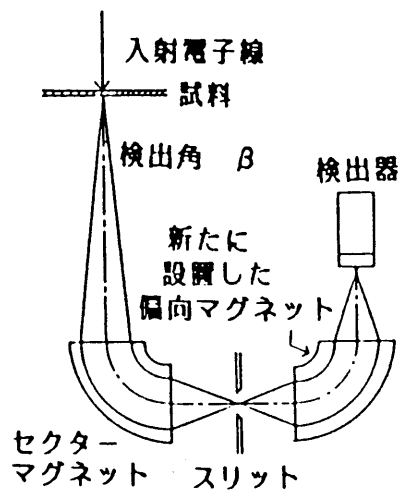


図3 偏向マグネットの設置

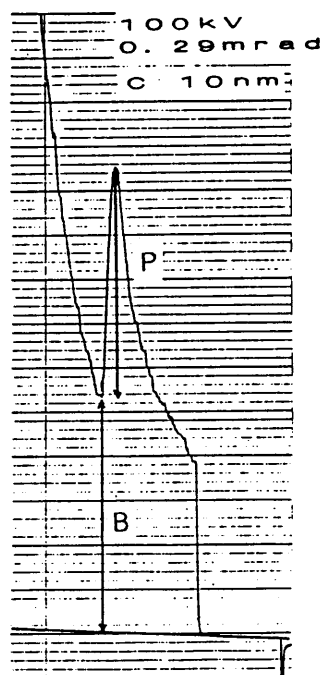


図4 電子エネルギー損失スペクトル
におけるジャンプ比
 $J = (P + B) / B$

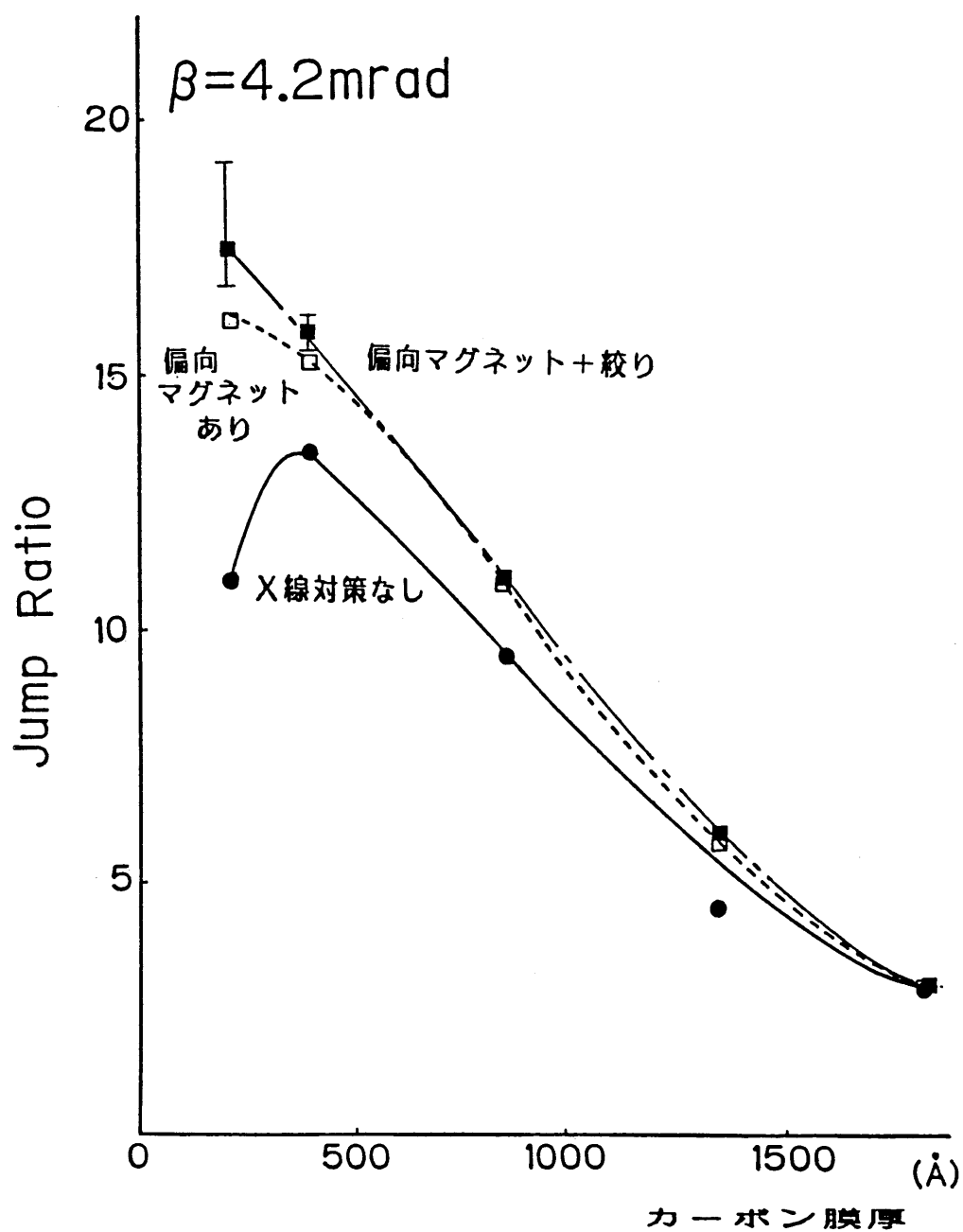


図5 ジャンプ比の膜厚依存性 ($\beta = 4.2 \text{ mrad}$)

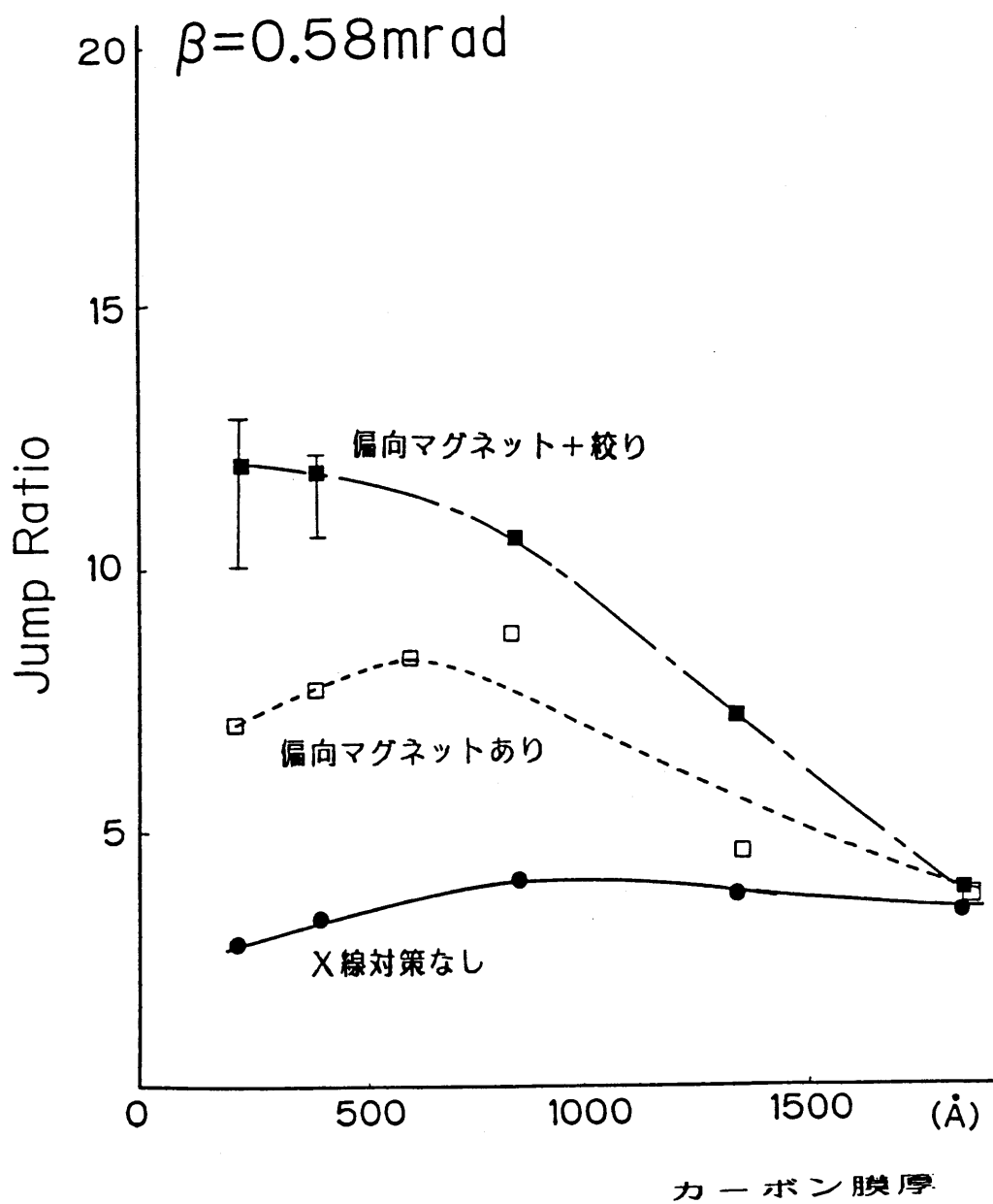


図6 ジャンプ比の膜厚依存性 ($\beta = 0.58 \text{ mrad}$)

3種類の電子信号を独立の系統で増幅して同時サンプリングし、ディジタル化するためのインターフェイスを作成した。このシステムのブロック図を図7に示す。このシステムの特徴は、ナイキスト周波数より高い周波数成分がサンプリングによりそれ以下の帯域に折り変えされることを防ぐバタワース型アンチエイリアシングフィルタを設けたことである。また、演算精度を高めるために、ディジタル化のためのA-Dコンバータとして12ビットのものを使用し、各チャンネルのフィルタの出力を同時サンプリングして1024×1024画素の像としてフレームメモリーに記憶できる。記憶された像をパーソナルコンピュータに転送して、演算処理を行う。

(3) デジタル演算処理

1) フィルタリングおよびデコンボリューション処理

一般に、ぼけにより劣化した像をぼけの点広がり関数(PSF)でデコンボリューションすることにより、劣化前の像を復元することが原理的に可能であるが、雑音のある像に対してデコンボリューションを行うことは実際上困難であった。そこで、デコンボリューションに際して、適切なローパスフィルタを用いて雑音を減少させる方法を試み、デコンボリューションの解像度への影響を調べた。

デコンボリューションは、雑音を考慮して劣化前の像を推定するウィナー・フィルタを、像の空間周波数スペクトルにフーリエ面で掛け合わせるにより行った。雑音のパワーが信号のパワーを上回る周波数領域に対して雑音が増幅されて像に現れるので、その様な領域はローパスフィルタにより減衰させる必要があるが、その際、周波数を有限で打切ることによって像にリップルすなわち擬似像が生ずる、いわゆるギブス現象を抑制する必要がある。そこで、このリップルの大きさを制御できるケイザー窓をローパスフィルタとして用いた。ケイザー窓は

$$W(f) = \begin{cases} \frac{I_0(\alpha \sqrt{1 - (f/f_c)^2})}{I_0(\alpha)} & (|f| \leq f_c) \\ 0 & (|f| > f_c) \end{cases}$$

$$I_0(x) = 1 + \sum_{n=1}^{\infty} \left[\frac{(x/2)^n}{n!} \right]^2$$

で与えられるフィルターである。高い信号周波数成分まで残すためにケイザー窓の

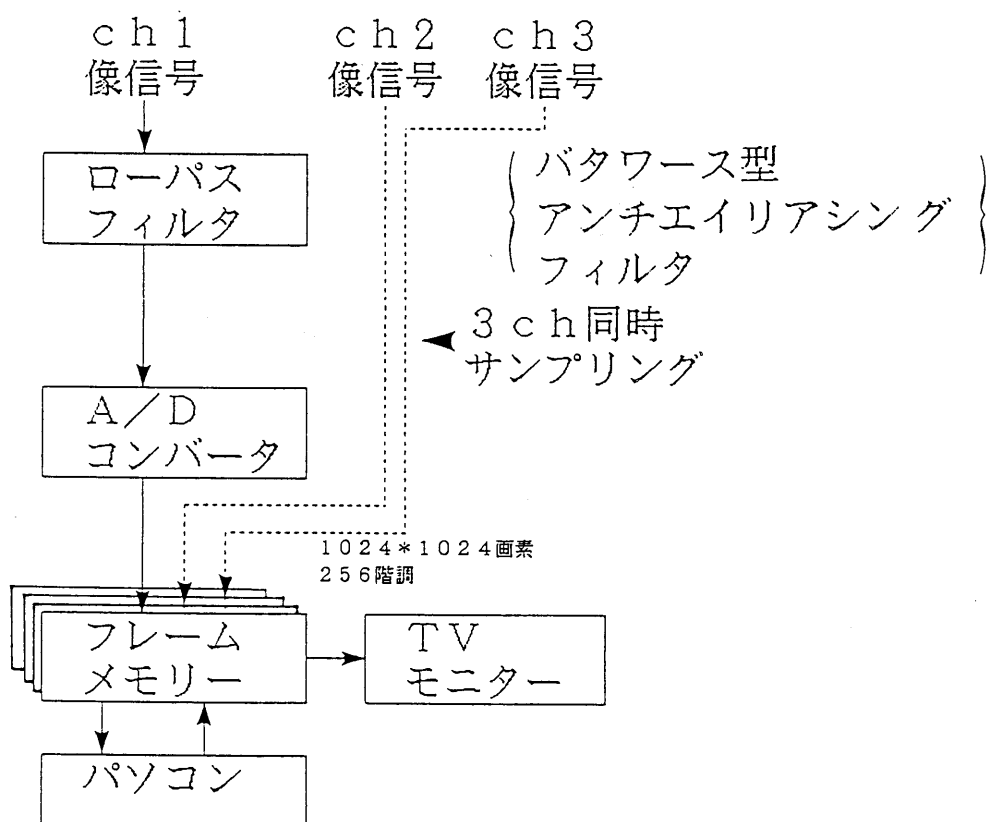


図7 デジタル処理システムのブロック図

カットオフ周波数 f_c を大きく取ると、雑音とこれに伴うリップルが増大するので、 f_c の値および窓の形を適切に選んで雑音とリップルを許容できる大きさに押える必要がある。

STEM像のモデルとして、ランダムに配置した点像をプローブの電流密度として仮定したガウス分布のPSFにより劣化させ、さらに量子雑音を模したガウス性白色雑音を重畳した図8上段のようなモデル画像を作り、これにデコンボリューションを施してえられた下段の復元画像の解像度を調べた。このとき、リップルがピークの10%以内に抑制されるように窓の形を決めた。そのときのカットオフ周波数に対する α の関係を図9に示す。解像度のカットオフ周波数 f_c に対する変化を復元前の像のS/N比をパラメータとして図10に示す。この図に示した範囲をこえて f_c を増加させると、雑音が急激に増大する。 f_c の最適な値を選んだときに得られる解像度の値は復元前と比べて約40%の解像度の向上が得られる結果となった。

次に実際のSTEM像にこの手法を適用した。図11上段はプローブ径8 nmで撮影した金粒子のSTEM像で、そのSN比は約1.2である。下段の像はその復元画像で、原画像で分離して識別できない粒子が明らかに分離しており、解像度が向上していることが分かる。同じ視野をよりプローブ径を絞ってとった像と比較し、疑似像が発生していないことも確認できる。

2) 入射電子による規格化の手法を用いるノイズ低減処理

電子の統計変動に起因するノイズは不可避である。STEMにおいては、電子の統計変動は入射電子数および試料との相互作用により信号電子となる過程において生ずる。ところで、薄い試料をSTEMで観察する場合には、透過する各種信号電子すべてを検出して合計すれば、入射電子が求められる。こうして求めた入射電子で各信号電子を規格化すれば、入射電子の統計変動に起因するノイズを除去することができる。

アニュラー検出器を用いて大きな角度に散乱する弾性散乱電子を検出し、アニュラー検出器中央穴を通過する電子（明視野信号電子）を別の検出器で検出し、両者の和で各種信号電子を規格化することを行った。厚さに段差のあるカーボン膜（厚さ6.5 nmと13 nm）の明視野信号電子像についての例を図12に示す。規格化していない像においては電子の統計ノイズである細かいノイズが顕著であるのに対し、規格化した像ではノイズが減少しているのが見られる。図13は、これらの

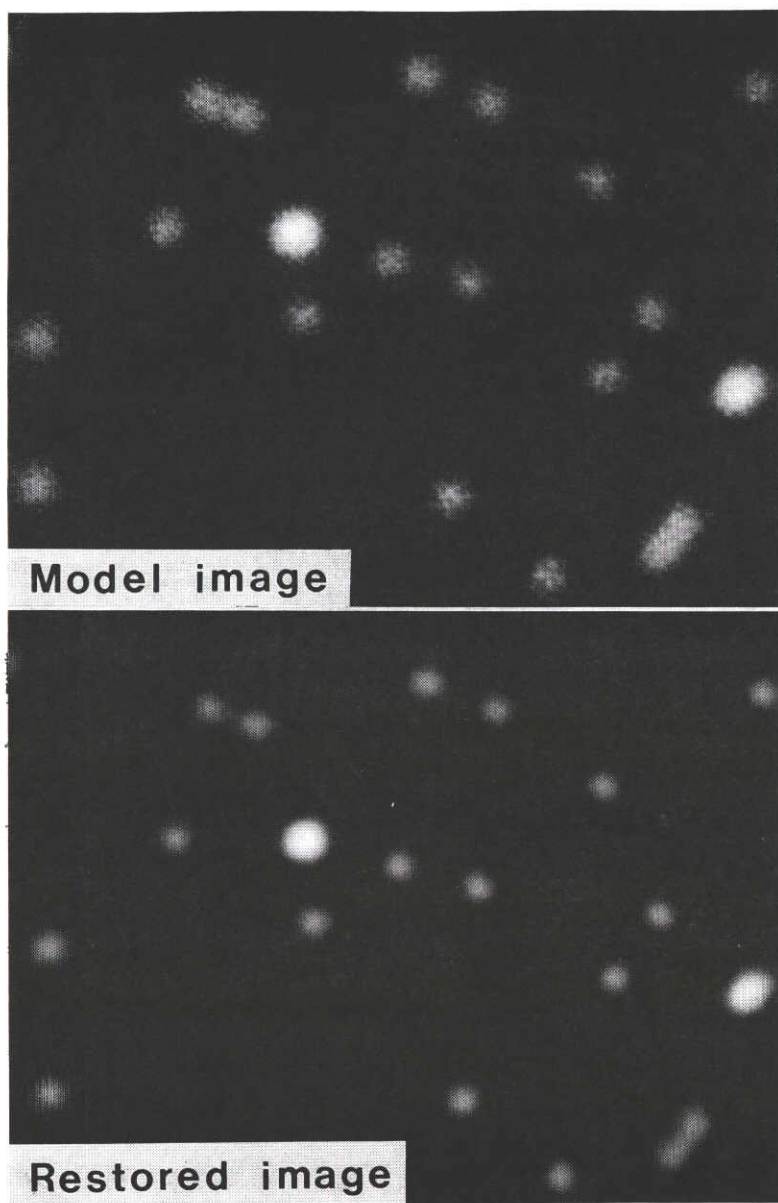


図8 モデル画像

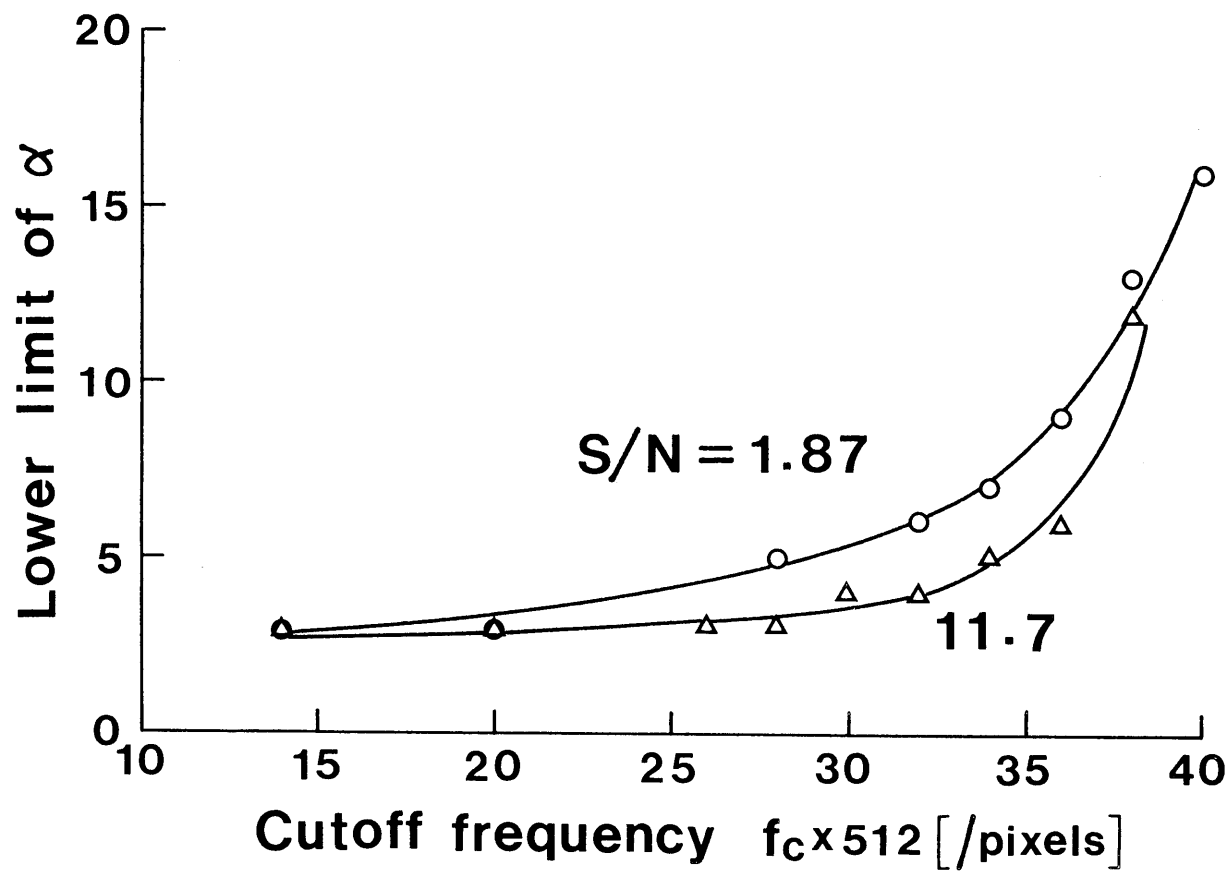


図9 カットオフ周波数と α の関係

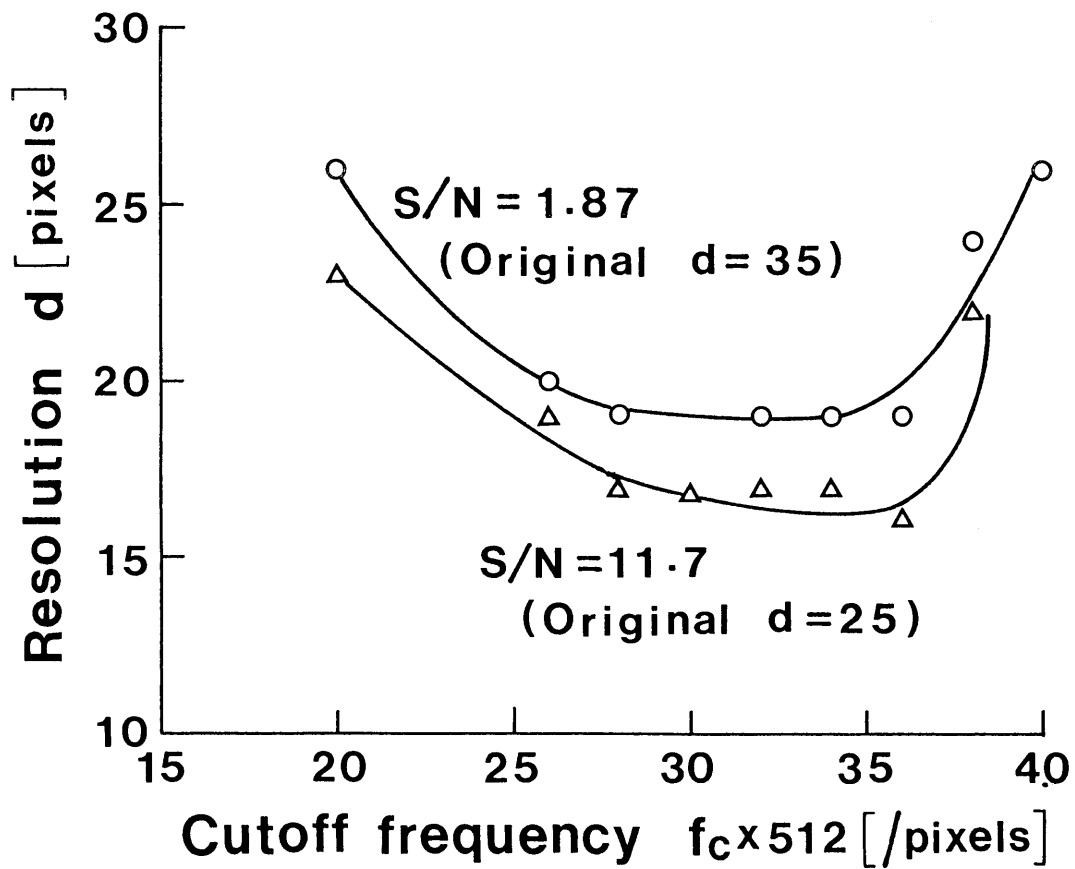


図10 カットオフ周波数に対するぼけの半値幅の変化

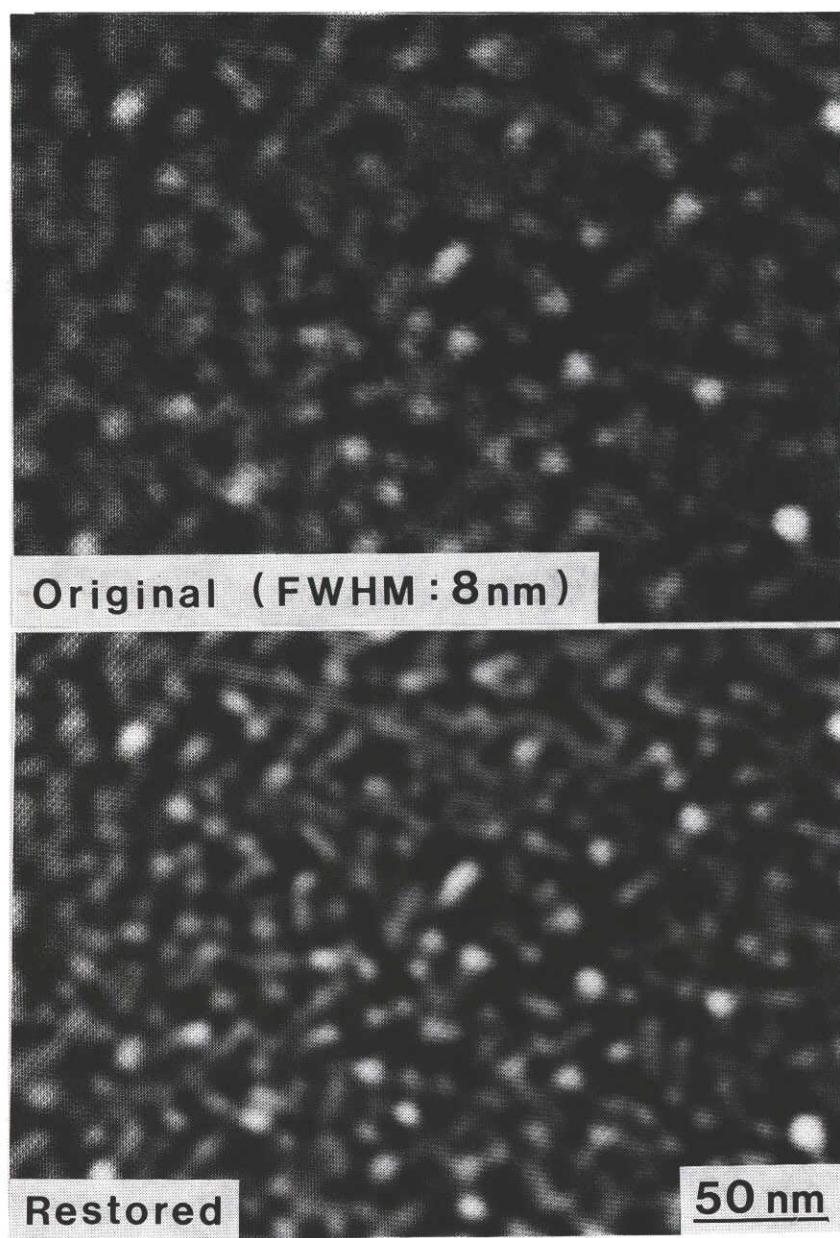


図11 金粒子のSTEM像

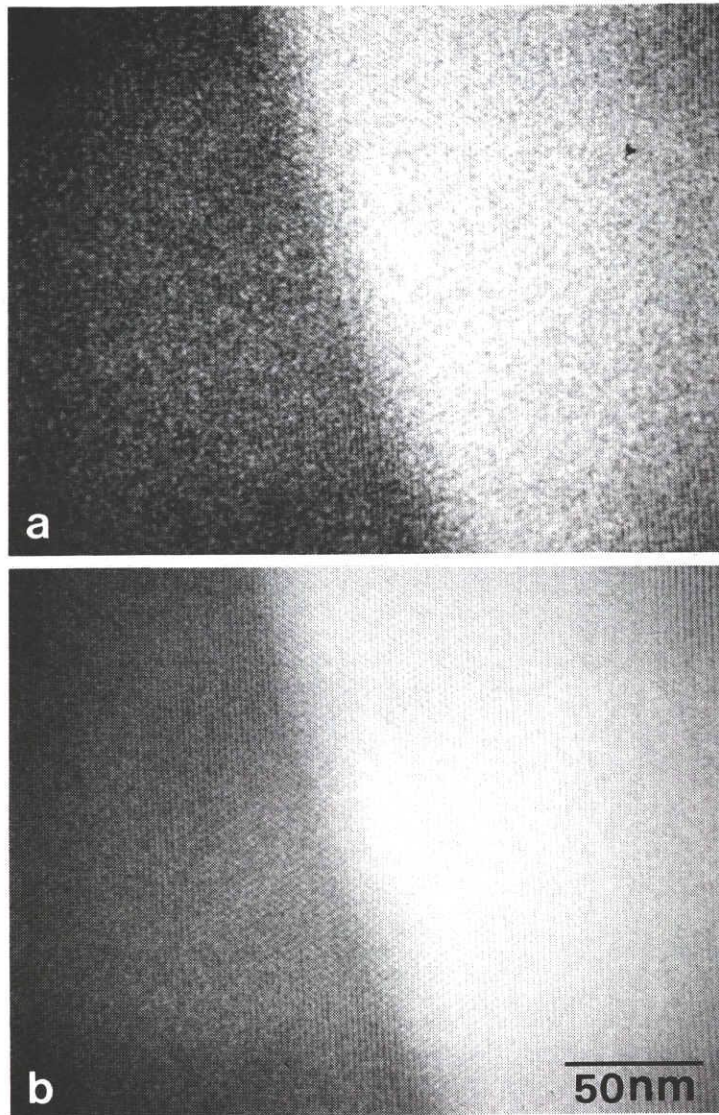


図12 カーボン膜の明視野像
(a) 規格化してない像, (b) 規格化像

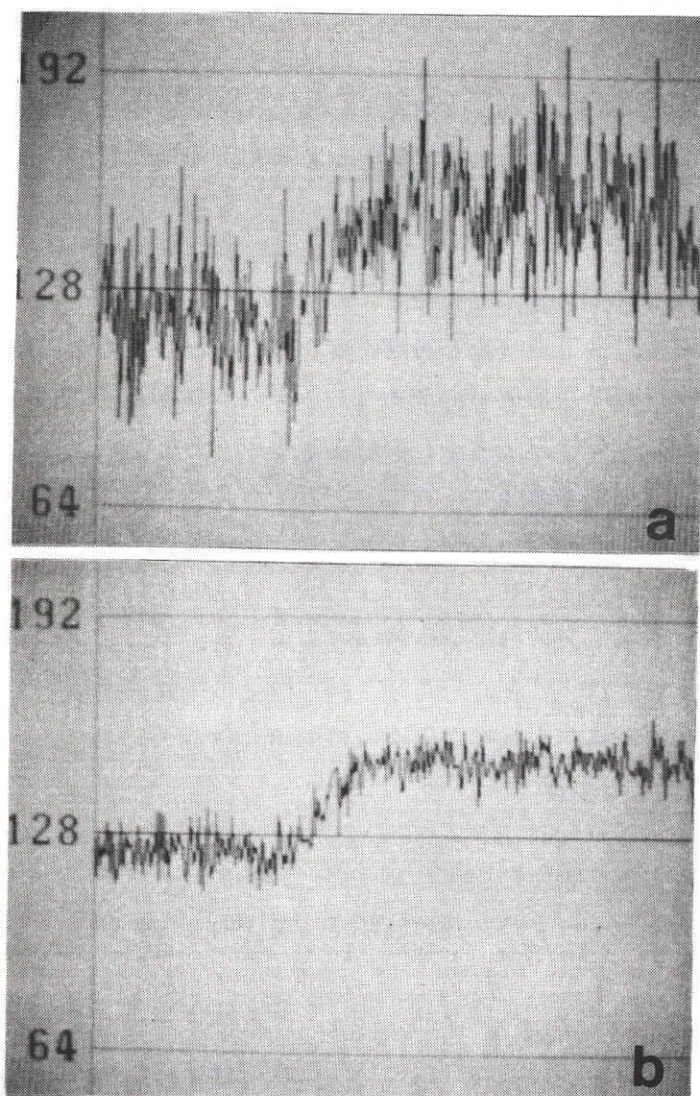


図13 図12の像の横ラインに沿っての強度変化

像の横方向のラインに沿っての像強度を表示したものであるが、規格化像のノイズが大幅に低減しているのが分かる。入射電子による規格化の効果は入射電子が信号電子となる確率 p に依存し、電子の統計的性質を考慮した計算によると、信号の平均値と標準偏差（ノイズ）の比が $1/\sqrt{1-p}$ 倍改善されることが期待できる。種々の厚さの（種々の p ）のカーボン膜について、平均値／標準偏差の値の規格化による効果を調べた結果を図14に示す。実線は計算値であるが、測定値が計算値とよく一致している。このことは、入射電子による規格化が期待どおりの効果があることを示すとともに、開発した処理システムが高精度で動作していることも実証している。

3) 原子番号依存コントラスト

明視野および暗視野STEM像で通常観察されるのは、試料の局所的な厚さと弾性散乱の平均自由行程の比の違いによるコントラストである。ところで、アナログ検出器で検出される弾性散乱電子およびエネルギー分析器によって分離される非弾性散乱電子は、収集効率を1とすれば、次式で与えられる。

$$I_{el} = I_0 [1 - \exp(-N\sigma_{el}t)]$$

$$I_{in} = I_0 \exp(-N\sigma_{el}t) [1 - \exp(-N\sigma_{in}t)]$$

ここで I_0 は入射電子、 N は単位体積当りの原子数、 t は試料の局所的な厚さ、 σ_{el} と σ_{in} はそれぞれ弾性散乱および非弾性散乱の散乱断面積である。 $N\sigma t \ll 1$ が成り立つ場合には、上式は次のように簡単になる。

$$I_{el}/I_0 \approx N\sigma_{el}t$$

$$I_{in}/I_0 \approx N\sigma_{in}t$$

σ_{el} 、 σ_{in} は近似的に物質の原子番号 Z についてそれぞれ $Z^{4/3}$ 、 $Z^{1/3}$ に比例するので、弾性散乱電子および非弾性散乱電子の比および差は

$$I_{el}/I_{in} \propto Z$$

$$\alpha I_{el} - I_{in} \propto I_0 N t Z^{4/3} (\alpha - 1/Z)$$

とかける。すなわち、比の演算により局所厚さにはよらない Z に比例するコントラスト（ Z コントラスト）が得られ、また重みをかけた減算により特定の Z の試料構成元素のコントラストを消すことができることになる。

しわのあるカーボン膜上に窒化アルミニウム（AlN）粒子をのせ、さらに斜め蒸着により金を粒子状に蒸着した試料について行った演算処理例を図15、16に示す。両図の(a)、(b)はおのおの I_{el} 、 I_{in} の像である。図15(c)は比の演算

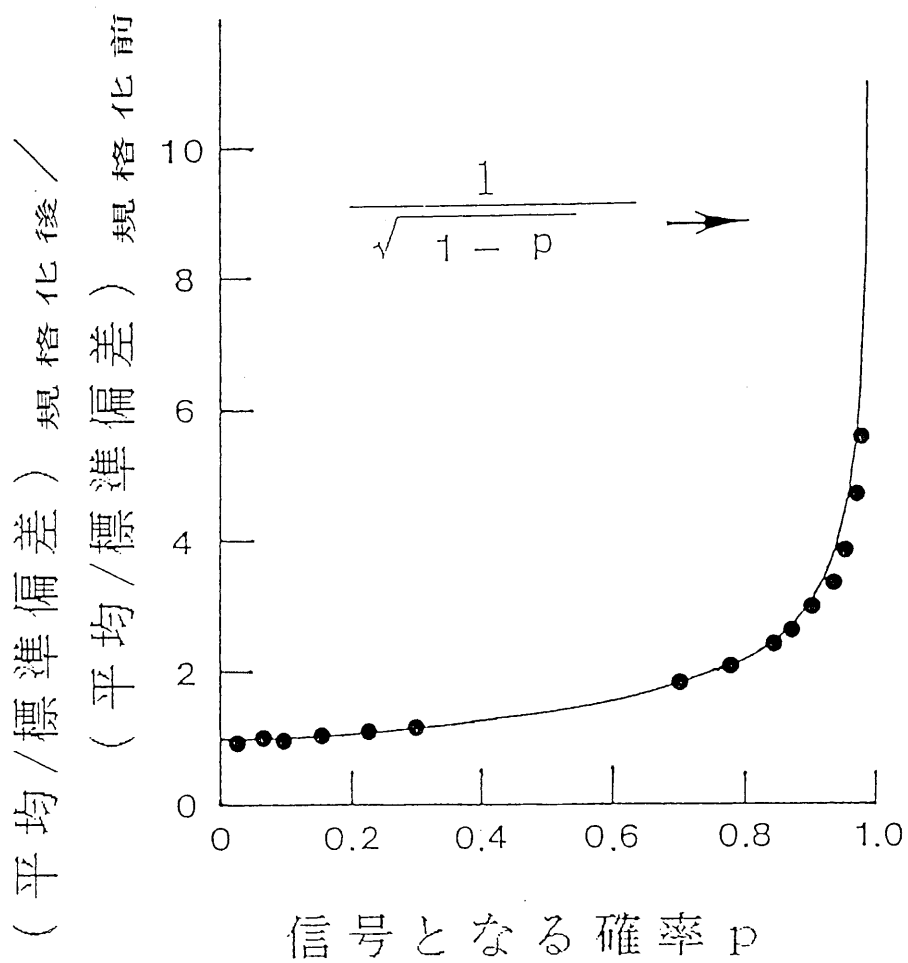


図14 測定結果と理論値の比較

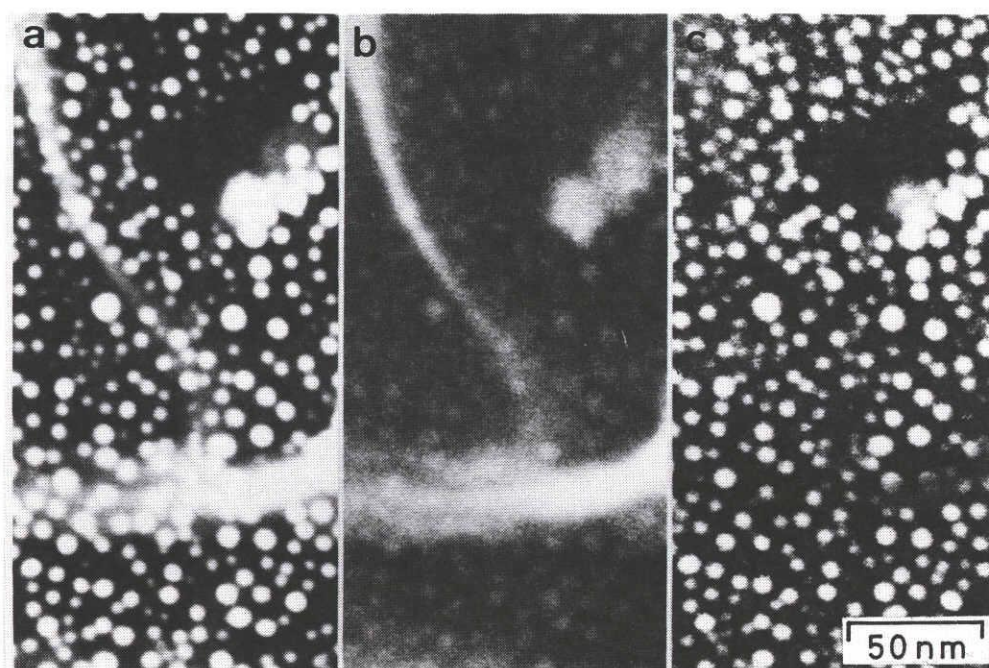


図15 しわのあるカーボン膜上の金，窒化アルミニウム粒子
(割算処理)

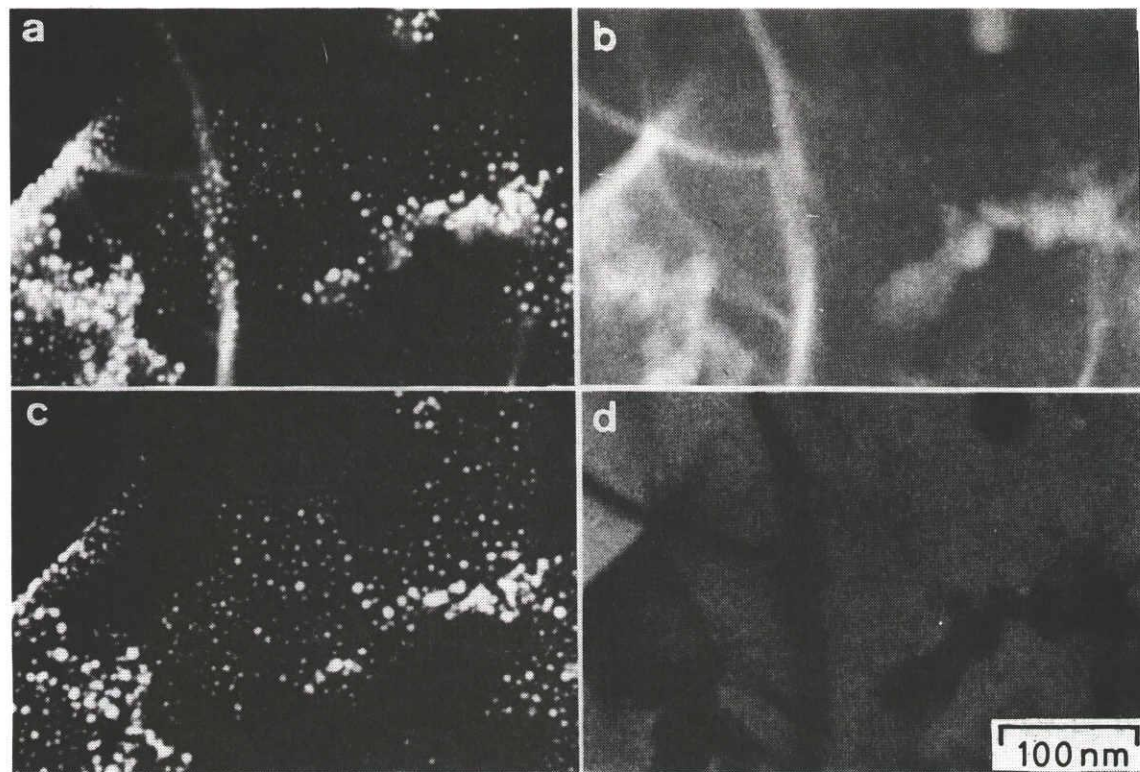


図 16 しわのあるカーボン膜上の金，窒化アルミニウム粒子
(減算処理)

像で、カーボン膜のしわや窒化アルミニウム粒子の軽元素のコントラストはほぼ消え、大きなZの金粒子が高いコントラストで観察されている。図16(c), (d)は減算の演算像で、(c)ではカーボンのコントラストを、(d)では金のコントラストが消去されている。このように、弾性および非弾性散乱電子の分離検出・演算により、原子番号に依存するコントラストを得たり、特定元素の構造のコントラストを消去することができ、試料構成元素のある程度の同定ができることを明らかにすることができた。

6. おわりに

近年、新素材の開発に対する社会的要請は高まる一方であるが、材料のミクロな構造とその物性との関係は必ずしも明らかでない。特に非晶質の材料については、結晶材料程研究が進んでいないのが現状である。このような非晶質試料の構造解析を困難にしているのは、試料損傷と装置の空間分解能の不足という二つの問題である。従来ミクロな構造の決定に威力を発揮してきた電子顕微鏡法は、必然的に電子線による試料損傷を伴う。特に、空間的な繰り返しをもたない非晶質試料では、微細構造に関する情報を引き出すのに電子線を局所に集中させる必要があり、このため結晶試料の場合と比較して損傷を受け易くなる。また、結晶の場合のように回折コントラストを利用した高分解能電子顕微鏡観察を行うことができないという理由により、分子レベルの空間分解能での構造解析は実現されていない。一方STEMは、単原子あるいは非晶質試料の結像に適する特徴を有し、また、複数の検出器を備えれば一つの試料から様々な情報を同時に引き出すことができ、これらの情報を有効に利用する手段が開発されれば試料損傷の点でも格段の改善が期待できる。

従来、複数の検出器からの信号を同時に取り込みながらその画像相互の演算をオンラインで行う処理は、アナログ演算回路によって行われてきた。これは、デジタル画像処理装置の処理速度や記憶容量がこのような目的のためには十分でなかったためである。しかしながら、アナログ演算回路には避けることのできない信号レベルのドリフトとノイズがあり、演算結果の再現性、信頼性は低かった。また、アナログ処理で行える演算は四則演算程度の簡単なものに限られる。一方この1, 2年の間に、デジタルシグナルプロセッサ(DSP)を用いた並列処理と、高速のDRAMをもちいた大容量フレームメモリの出現により、画素数 1024×1024 程度の高精細度画像間の演算処理をオンラインで行うことが不可能でない状況がもたらされた。こ

れまでアナログ回路を用いて行ってきた処理をデジタル的に行うことができれば、演算回路のドリフトやノイズの影響を受けずに演算が実行でき、散乱電子によってもたらされた試料に関する情報を損なうことなく高い信頼度の演算像を得ることが期待できる。さらに、四則演算以外の複雑な演算を実行できるようになるため、より高度な処理や高速フーリエ変換を用いた画像評価やSTEM装置の制御など、応用範囲を広げることができる。

本研究において、STEMの特徴を活用したデジタル処理について種々の成果をあげ、従来の通常型電顕が不得意としていた領域をSTEMがカバーする基礎が得られた。今後は、この研究成果を活用して広い分野の応用研究に役立てたい。