

令和 5 年 5 月 19 日現在

機関番号：14101

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2020～2022

課題番号：20K05325

研究課題名(和文) 機械学習を実装した電界イオン顕微鏡による原子分解能3次元イメージング

研究課題名(英文) Atomic-resolution three-dimensional imaging by field ion microscope with machine learning

研究代表者

永井 滋一 (Nagai, Shigekazu)

三重大学・工学研究科・准教授

研究者番号：40577970

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：電界イオン顕微鏡(FIM)像の解析手法として、物体検出モデルによる結晶面の自動抽出、およびk近傍法による試料の結晶方位を自動同定するシステムを構築した。その結果、80%以上の精度でタングステン試料の結晶方位を同定できることを実証した。原子位置を反映しているFIM像の各輝点の位置を、電界蒸発中に連続撮影した差分画像から抽出するシステムを構築した。さらに、FIMの観察、記録、原子位置の自動抽出をするため、本研究のシステムを既存のFIM装置に実装し、その運用を進めている。本研究によって、FIMへの機械学習の適用による原子分解能トモグラフィー顕微鏡に関して実現可能性を見出すことができた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

原子分解能を有する電界イオン顕微鏡は比較的簡便な構造で原子分解能像が得られるが、観察条件の選定および像解釈が困難である。本研究で実施したFIMへの最新のデジタル画像解析法と機械学習の適用により、結晶方位、結晶面、および原子位置を自動解析するシステムを構築することができた。この成果は、新たな原子分解能トモグラフィー観察手法としての可能性を示すものである。さらに本システムは簡便かつ安価であり、次世代デバイスの性能向上および特性評価への貢献が期待される。

研究成果の概要(英文)：As a method for analyzing field ion microscope (FIM) images, we developed a system that automatically detects crystal planes using an object detection model and automatically identifies the crystal orientation of a sample using the k-nearest neighbor method. As a result, it was demonstrated that the crystal orientation of a tungsten sample can be identified with an accuracy of more than 80%. A system was constructed to extract the position of each bright spot observed in the FIM image, which reflects the atomic position, from the differential images taken continuously during field evaporation. In addition, we have implemented this system in an existing FIM system for observation, recording, and automatic extraction of atomic positions. We have found the feasibility of applying machine learning to FIM for atomic-resolution tomography microscopy.

研究分野：荷電粒子線工学

キーワード：電界イオン顕微鏡 機械学習 表面構造観察

1. 研究開始当初の背景

電子デバイス、触媒反応、合金などがナノサイズになる事で、物質の原子配列、および組成に極めて敏感になる。そのため、実サイズの材料組成を原子分解能かつ 3 次元的に解析することが重要課題になりつつある。原子分解能で観察可能な顕微手法として、(走査)透過電子顕微鏡、走査トンネル顕微鏡、アトムプローブ分析法が挙げられるが、その構造および操作の複雑さのため誰もが利用可能な状況ではない。一方で、アトムプローブ分析法の前身となる電界イオン顕微鏡(FIM)は、先端を数 10~100 nm に先鋭させた試料と対向するマイクロチャンネルプレートで構成される。この装置に、結像ガスとして導入した希ガスが、突出した位置にある原子直上でのみイオン化して、対向するスクリーン上に原子分解能の顕微鏡像が得られる。さらに電界蒸発現象を併用して連続撮影した FIM 像から、積層欠陥などの内部構造まで推定可能である。しかしながら、電界イオン顕微鏡像も一枚一枚は、1000 個程度の輝点の配列であり、その上、内部構造の詳細まで解析するには数 100~1000 枚近くの画像(データ点 106 以上)が必要となる。そのため、見過ごされた電界イオン顕微鏡像が各研究グループに無数にあることは、容易に想像がつく。近年、計測分析分野でも膨大なデータを解析するために、機械学習の適用が進められている。機械学習の適用により、解釈できていない、あるいは見過ごされた電界イオン顕微鏡像から、新たな知見が得られる可能性は大いにある。

2. 研究の目的

上述した背景の下、本研究課題の目的は、電界イオン顕微鏡は鉄鋼材料を中心とした材料開発の現場において原子分解能を有する新たなトモグラフィー顕微鏡技術としての可能性を示すことである。近年、機械学習、および画像処理技術はめざましい進歩を遂げているが、機械学習の精度を向上させるには、良質な学習データが不可欠である。そこで、動的な過程を観察するには極めて暗い FIM 像を、短時間(1/30s)で観察可能な撮像素子を用いるとともに、申請者が培った電界イオン顕微鏡の観察技術を駆使して標準データベースを構築し、これを学習データとして用いる。これらの結果を用い、機械学習を用いた FIM 試料の結晶方位、表面上の結晶面の同定、および原子位置の自動抽出を検討し、3次元再構成による原子分解能トモグラフィー手法としての可能性を見出すことを目的とする。

3. 研究の方法

(1) 標準 FIM 像データベースの構築

機械学習に用いる学習データとして、当研究グループで観察したタングステンの FIM 像に加え、Pt, Ir, および W-Re 合金など種々の試料表面の FIM 像を観察、記録した。観察には 800 万画素以上の高感度カメラを使用し、強電界を印加しながら表面原子を電界蒸発させることで、試料内部の原子配列を連続的に記録した。

(2) 試料表面の結晶面と結晶方位の自動判定

FIM 試料は針形状であり先端は半球状になっているため、図 1 のように単結晶材料であっても先端数 10nm の範囲で複数の結晶面が表面に露出している。試料の軸方向の結晶方位を同定するため、観察された結晶面の特徴を物体検出モデルの 1 つである Yolo v3 を用いて学習させた。各結晶面の幾何学的配置を機械学習モデルの 1 つである k 近傍法を用いて分類し、試料の結晶方位の同定が可能であるか検証した。

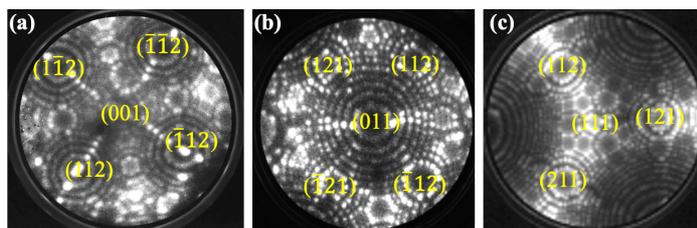


図 1 各結晶方位(a)<001>, (b)<001>, (c)<111>方位のタングステンの FIM 像と(112)面の配置

(3) 原子配列の自動抽出

電界蒸発中に連続撮影された FIM 像の差分画像は、電界蒸発によって試料表面から取り除かれた原子位置を示す(図 2)。そのため、すべての画像の差分画像を積算すれば、試料の表面から内部に亘る原子配列を抽出することができる。しかしながら、FIM で観察される原子位置に対応する輝点の強度および形状は、原子レベルで

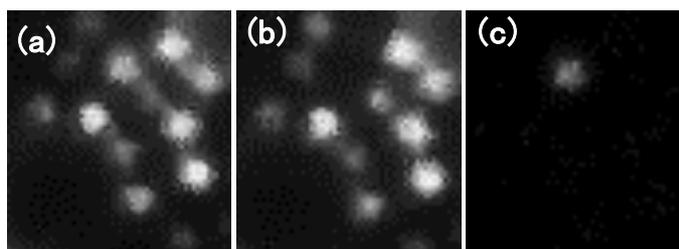


図 2 (a)電界蒸発前の FIM 像, (b)電界蒸発後の FIM 像, (c) 電界蒸発前後の差分画像

の電界分布および結像ガスの供給量などによって異なり、全ての輝点は同じ形状とは限らない。また、観察中に生じる輝点の強度および撮像センサのノイズなども差分画像に含まれるため、単純なパターンマッチングによる原子位置の抽出は難しい。そこで、複数の輝点の形状を物体検出モデル(Yolo v5)に学習させ、原子位置を抽出するプログラムを開発するとともに、画像に適用するフィルターなどの画像処理法を検討した。さらに、既存の電界イオン顕微鏡装置に導入したその場解析システムを構築した。

4. 研究成果

(1) 試料表面の結晶面と結晶方位の自動判定

図3に今回採用した結晶方位の同定のフローチャートを示す。まず、結晶方位の判定に必要な(011)および(112)を学習した物体検出モデルを構築して、FIM像に対して検出を実行する。その後、k近傍法を用いて1枚のFIM像に複数観察される等価な(112)の幾何学配置から、結晶面を同定する手法を検討した。この手法は、研究者がFIM像から試料の結晶方位を同定する場合、FIM像で観察される等価な結晶面の幾何学的配置から導くという発想に基づいている。その発想をもとに、先ず物体検出モデルで検出が容易な(011)および(112)を学習データとして用いた。その際、(011)および(112)の一部を切り出した419個のFIM像を学習データとし、3種の結晶方位のタングステン試料のFIM像に対して結晶面を検出させた。その結果、後述する結晶方位の同定に必要な個数の(011)および(112)を、90%以上のFIM像に対して検出できることが判った。

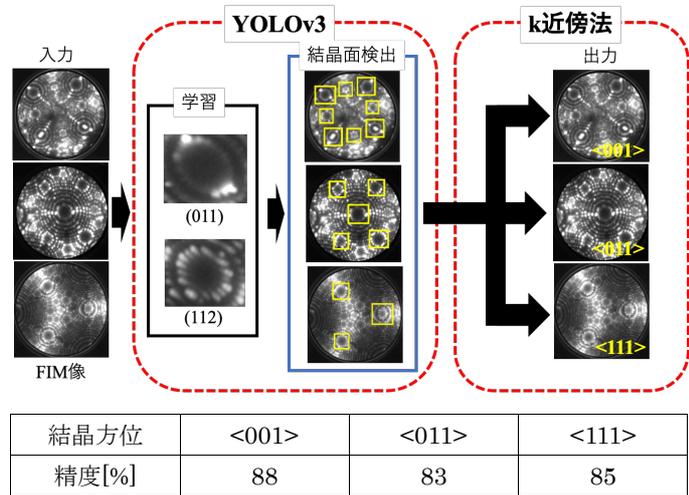


図3 結晶方位の同定方法と結晶方位の同定精度

物体検出モデルで検出した(011)および(112)の幾何学的配置をk近傍法に適用するため、FIM像の中心と検出された結晶面のなす角およびその距離をもつデータセットを作成した。その位置関係は、例えば理想的な<111>方位であれば、FIM像の中心と3つの(112)の距離は等しく、それぞれが120°間隔で配置される。この場合、少なくとも3つの(112)を検出する必要がある。<011>、<111>、<001>方位のタングステンのFIM像に対してk近傍法で分類・同定した結果、全ての結晶方位において80%の精度で正しく同定することができた。正しく検出されていないものは、結晶面の検出位置の精度が不十分であることが要因に挙げられ、(112)および(011)の学習データを増加させることで検出位置の精度の向上によって改善が期待される。

(2) 原子配列の自動抽出

電界蒸発中のFIM像から原子位置を抽出するには、連続撮影したFIM像の差分画像から輝点を抽出する必要がある。ただし原子位置を反映する輝点の形状は同一とは限らないため、種々の形状の輝点を物体検出モデルに学習させて自動抽出させた。その結果、差分画像に単一の輝点として観察される原子であれば容易に検出可能であるが、図4(a)に示す様に、周辺の原子と同時に電界蒸発した場合、本来3つの原子として認識されるべきであるにも関わらず、1つの原子として認識される問題が生じた。そこで、FIM像へのガンマ補正、および各種フィルターによる検出精度の向上を図った。まず、ガンマ補正を1~2.5の範囲で調整したところ、ガンマ値2までは検出数が約1.5倍向上した。しかし、ガンマ値2.5の補正を適用すると、センサノイズおよび輝点の輝度の変化が強調され、FIM像ではない箇所まで原子位置と判定してしまった。

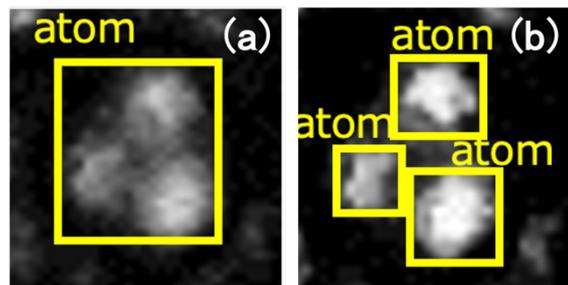


図4 物体検出モデルによる原子位置の自動抽出の例。(a) 画像処理なし、(b)画像処理による隣接原子の分離

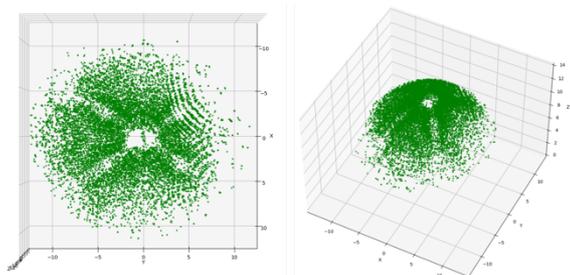


図5 物体検出モデルで抽出した原子位置を3次元再構成した例

そこで、図 4(b)に示す様に、メディアンフィルタおよび中央値フィルタを適用すると、フィルタ無しでは分離して認識しなかった輝点を精度良く抽出することができた。また、この手法で抽出された原子位置は、FIM 像から手動で抽出した原子位置に対して $\pm 2\text{px}$ 以下の精度で抽出することができている。さらに、5 原子層分の原子位置を再構成した画像を図 5 に示す。FIM では球面の FIM 試料先端を平板に投影するため、原子位置の補正が必要であり、本研究では原子層が確認できるようにパラメータを調整している。図 5 に示す様に 1 枚の FIM 像で観察される原子数よりも多くの原子位置が観察されているとともに、再構成像は試料内部の構造を反映している。

本研究で開発した原子位置の自動抽出プログラムを電界イオン顕微鏡に実装し、実験者が観察中に電界蒸発した原子とその位置を把握できるシステムを構築した(図 6)。このシステムは、電界イオン顕微鏡に備え付けられた CCD カメラから直接画像を PC に転送し、記録した FIM 像をその場で解析する構成となっている。解析に要する時間は 50ms 程度であるため、ビデオレート程度速度で観察と解析を実行できる。今後、このシステムに 3 次元再構成プログラムを組み込み、その場観察可能なトモグラフィー顕微鏡の構築を目指す。

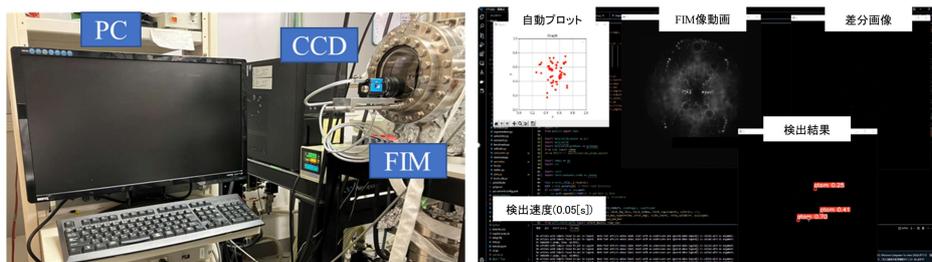


図 6 (左)FIM 像のその場解析システム、(右)その場解析システムの実行画面

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Yamada Mizuki, Okazawa Tadasuke, Nagai Shigekazu, Hata Koichi	4. 巻 20
2. 論文標題 Identification of Crystalline Orientation of Tungsten Tips by Machine Learning Analysis of Field Ion Micrographs	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 e-Journal of Surface Science and Nanotechnology	6. 最初と最後の頁 20～24
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1380/ejssnt.2022-009	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 0件／うち国際学会 3件）

1. 発表者名 Mizuki Yamada, Tadasuke Okazawa, Shigekazu Nagai and Koichi Hata
2. 発表標題 Determination of the orientation of tip in field ion microscope images by machine learning detection of terraces
3. 学会等名 13th International Symposium on Atomic Level Characterizations '21（国際学会）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Haku Uchikoshi, Yuichi Kuwahata, Shigekazu Nagai and Koichi Hata
2. 発表標題 Fabrication of Co/Pt pyramid for spin-polarized electron emission from single atom
3. 学会等名 13th International Symposium on Atomic Level Characterizations '21（国際学会）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 山田 瑞貴、岡澤 正将、永井 滋一、畑 浩一
2. 発表標題 機械学習による電界イオン顕微鏡像の結晶方位の同定
3. 学会等名 2021年表面真空学会学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 岡澤正将, 山田瑞貴, 疇地悠雅, 中居栄斗, 永井滋一, 畑浩一
2. 発表標題 機械学習による電界イオン顕微鏡像における原子位置の自動抽出
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 山田 瑞貴, 岡澤 正将, 古川 滉大, 永井 滋一, 畑 浩一
2. 発表標題 機械学習を活用したW tipの電界イオン顕微鏡像の解析
3. 学会等名 2021年第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Yuga Azechi, Hideto Nakai, Mizuki Yamada, Tadasuke Okazawa, and Shigekazu Nagai
2. 発表標題 Automatic extraction of atomic positions observed in field ion micrographs for a tomographic image by machine learning based procedure
3. 学会等名 14th International Symposium on Atomic Level Characterizations '22 (国際学会)
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------