

令和 5 年 5 月 31 日現在

機関番号：17102

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2021～2022

課題番号：21K20491

研究課題名(和文) 機械学習による高速STEM像の高精度化および3次元転位その場観察への応用

研究課題名(英文) Machine learning-based noise filtering for rapid scan STEM image and its application to in-situ 3D dislocation observation

研究代表者

井原 史朗 (Ihara, Shiro)

九州大学・先端物質化学研究所・助教

研究者番号：60909745

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,400,000円

研究成果の概要(和文)：走査透過電子顕微鏡法(STEM)によってその場観察にも適用できるような高速撮像を行うと、STEM特有のノイズや像ひずみが生じる。このことから、事実上、STEMをその場観察に用いることは不可能であった。本研究では、STEMによる高速撮像に伴う像ひずみ補正アルゴリズムを開発すると共に、深層学習によるノイズ除去を行った。更に、このように開発された画像処理手法をTEM内その場観察にも適用し、本手法の汎用性を示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

STEMはTEMで扱える範囲よりも厚い試料を観察可能である等、広く用いられているTEMよりも優れた点が多いものの、高速撮像には不向きであったことから、これまでその場観察に用いられることは少なかった。本研究で開発した手法によって、高速かつ高品質な像取得が可能となり、STEMを用いたその場観察をより実用化に近づけられた。今後、ナノスケールにおける動的な現象の解明に貢献し得ると考えられる。

研究成果の概要(英文)：Fast imaging adaptable to in situ observation by using scanning transmission electron microscopy (STEM) yields STEM-specific noise and image distortion. This study developed the image distortion scheme and performed deep learning to restore the quality of STEM images acquired by fast scanning. The developed series of scheme was also utilized to in situ observation.

研究分野：金属材料

キーワード：走査透過電子顕微鏡法 深層学習 その場観察 転位

### 1. 研究開始当初の背景

金属における塑性変形および変形から破壊に至る過程は複雑であり、単結晶における加工硬化過程ですらこれを完全に予測できる物理モデルが確立されていない。モデル構築の困難さは、変形に伴って、なぜ、どのように転位が構造（転位下部組織）をつくるのか、さらに、その構造が与えるマクロ力学特性への影響はなにか、の2つを完全に理解できていないことが一因にあると考えられる。このような問題の解決のために、ナノスケールにおけるその場観察技術を向上させる必要がある。

走査透過電子顕微鏡 (STEM) は通常の TEM よりも色収差の影響が少ないことから厚い試料の観察を可能にし、さらには動力学的回折効果の影響を緩和できることから、表面の影響を可能な限り減らしながら明瞭な転位下部組織の像を得られやすい。このような観察技術とその場観察とを組み合わせることで、塑性変形中に生じる挙動をより詳細に捉えられると期待できる。しかし、STEM を用いて動的現象を捉えるために高速撮像を行うと、STEM 特有のノイズや像ひずみが生じる。図 1(a)[1] は 100 ns/pixel という高速走査条件下で撮像を行った結果であり、5 μs/pixel という低速走査条件下では見られない、電子線走査方向への柵引きが確認できる。この柵引きは BM3D[2] と呼ばれる高性能と言われるノイズフィルタを用いても解決は困難である。さらに、図 1(b) に示すように、高速撮像で得られた像（高速 STEM 像）は低速撮像のもの（低速 STEM 像）と一致せず、非線形的なひずみを示す。このようなことから、その場観察に用いることができるような高速撮像条件下で STEM を用いることは原理的に困難であった。

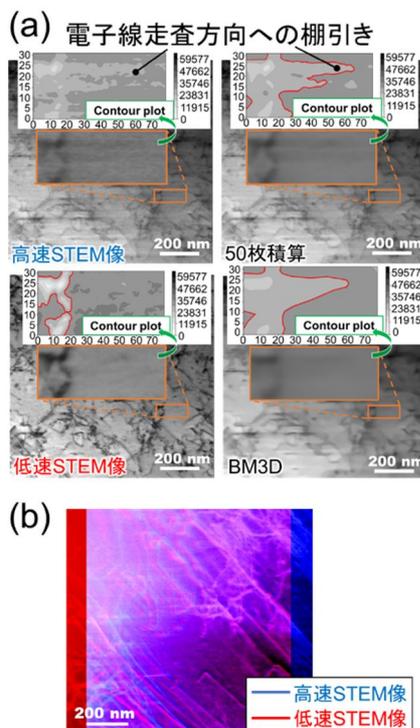


図 1 (a)高速撮像条件下 (100 ns/pixel) における STEM 像, その 50 枚積算像, 低速撮像条件下 (5 μs/pixel) における STEM 像, および BM3D 処理した高速 STEM 像. (b)同一視野における高速 STEM 像および低速 STEM 像を重ねた結果. [1]

### 2. 研究の目的

本研究では、STEM をその場観察に適用可能とするために、像ひずみ補正アルゴリズムの開発および深層学習を用いたノイズ処理手法を開発した。さらに、それを実際のその場観察にも適用し、本手法の有用性を実証した。

### 3. 研究の方法

SUS316L (FCC) 単結晶をイオンスライサ (日本電子社製) によって薄膜化し、Titan Cubed G2 (Thermo Fisher Scientific 社製) にて STEM 観察を行った。画像サイズは 512 × 512 pixels とし、100 ns/pixel で 50 枚連続撮像を行った後に、5 μs/pixel での撮像を行った。

図 2 に本研究のフローチャートを示す [1]。同図に示すように、予めひずみ補正を行った後に深層学習を行った。訓練用の画像は 50 視野用意し、検証用には 16 視野用意した。

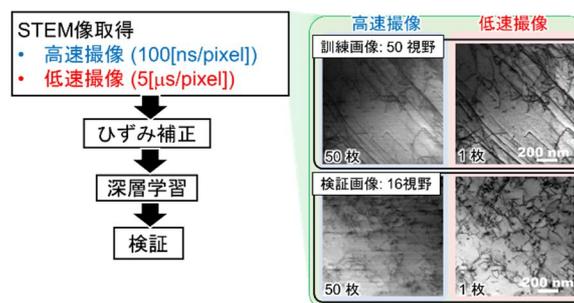


図 2 ノイズ除去までのフローチャート. [1]

ひずみ補正のフローチャートを図 3(a) に示す [1]。同図に示すように、高速 STEM 像と低速 STEM 像間でのドリフトや像ひずみに伴う視野ずれを補正した後、電子線走査方向となる水平方向においてひずみ補正を行った。本画像処理はノイズの影響を極力減らすため、50 枚積算した高速 STEM 像において行っており、本操作で求めた切り取り位置やひずみ等は各高速 STEM 像に適用している。水平方向における視野ずれの補正では、図 3(b) に示すように、低速 STEM 像の端にあたる部分を画像相関によって探索し、一致した箇所の外側を切り取ったのちに元の画像サイズに引き伸ばす。非線形ひずみの補正では図 3(c) に示すように、50 枚積算像を短冊に分割後、その短冊に対して変形を加えていき、低速 STEM 像との画像相関が最も高くなる変

形を探索していく．非線形ひずみは代表的な視野に対して求められ，このようにして求めたひずみ分布は各画像に適用される．

深層学習は図 4[1]に示すように，U-net[3]を用いて，ひずみ補正後の高速 STEM 像を入力として低速 STEM 像との最小二乗誤差が小さくなるように学習を行った．

#### 4. 研究成果

ひずみ補正の結果を図 5[1]に示す．同図におけるラインプロファイルが示すように，転位の位置が本研究で開発したひずみ補正アルゴリズムによって一致していることがわかる．

図 6[1]に深層学習による画像処理結果を示す．図 6(a)-(d)では，元の高速 STEM 像，それを 50 枚積算した結果，低速 STEM 像，(a)に対する深層学習フィルタの適用結果をそれぞれ示し，さらにそれらの高速フーリエ変換 (FFT) 結果も示している．図 6 (a) では，電子線走査方向の柵引きに伴うノイズが，FFT 図形上の縦線として明瞭に表れており，50 枚積算してもこれは取り除けていない．深層学習フィルタではこのようなノイズ消えており，FFT においても同様に確認できる．さらに詳細に見た結果が図 6(e)であり，柵引きが消え，転位線が明瞭に映っていることがわかる．

このように作成したノイズフィルタを加熱その場観察にも適用した．本研究では，20%冷間圧延した A1050 を集束イオンビーム装置 (Thermo Fisher Scientific 社製) にて薄膜化し，加熱用 MEMS チップ (Norcada 社製) に搭載後，加熱ホルダー (Mel-build 社製) を用いてその場観察を行った．学習時とは材料は異なるものの，撮像速度，画像サイズおよびおおよその画素値の範囲は同じとなるように設定した．

図 7[1]に 90 から 150 まで 1 /s で加熱し，その後 150 を維持するという過程を，2000 frames の撮像で捉えた結果を示す．なお，同図における STEM 像は全てひずみ補正を行っている．図 7 に示すように，高速撮像で生じたノイズは除去されていることがわかる．加熱終了後に取得した低速 STEM 像と深層学習ノイズフィルタ処理をした像とを比べると概ね一致しており，深層学習ノイズフィルタによるノイズ除去の有用性が見て取れる．

このように，本研究で開発した画像処理手法によって，STEM を用いた高速撮像でも低速撮像の場合と同等の結果が得られることがわかった．高速撮像は動的現象を捉える場合だけでなく，高分子のような電子線に大して脆弱な材料を観察する場合にも有効であることから，

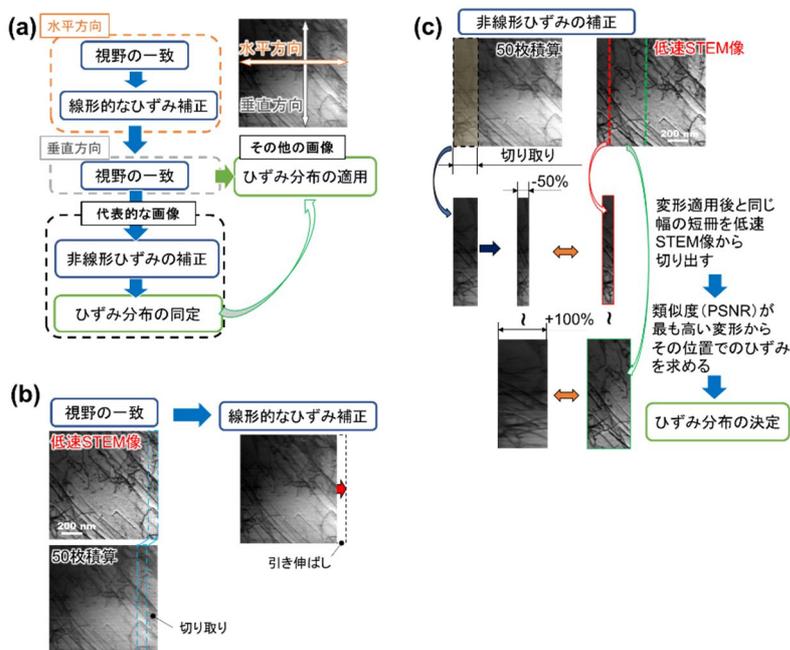


図 3 ひずみ補正アルゴリズムの詳細[1]．(a)フローチャート．(b)低速 STEM 像と高速 STEM 像間の視野一致および線形ひずみ線形的なひずみ補正．(c)非線形ひずみ補正の概要．

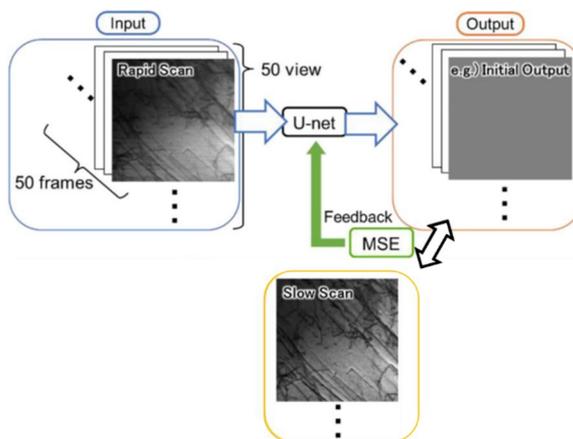


図 4 深層学習の概要．ひずみ補正後の画像を用いて学習を行っている．

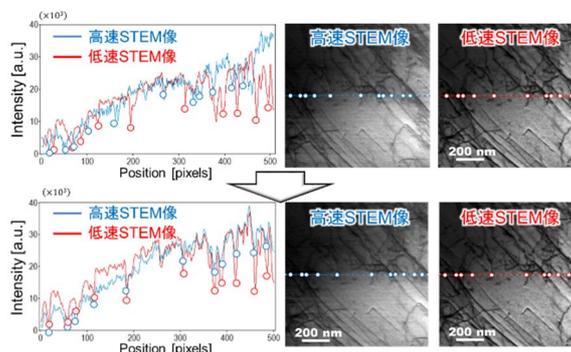


図 5 ひずみ補正前後のラインプロファイル．白丸は転位を示している．

幅広い材料の観察に用いることが可能と考えられる。

参考文献

- [1]井原史朗, 斉藤光, 村山光宏, 「深層学習を援用した高速走査透過電子顕微鏡法によるその場観察および3次元観察」, 材料, 掲載予定.
- [2] Y. Mäkinen, L. Azzari and A. Foi, "Collaborative filtering of correlated noise: exact transform-domain variance for improved shrinkage and patch matching," IEEE Trans. Image Process., vol. 29, pp. 8339-8354 (2020).
- [3] O. Russakovsky, P. Fischer and T. Box, "U-net: Convolutional networks for biomedical image segmentation," in MICCAI, Springer, pp. 234-241 (2015).

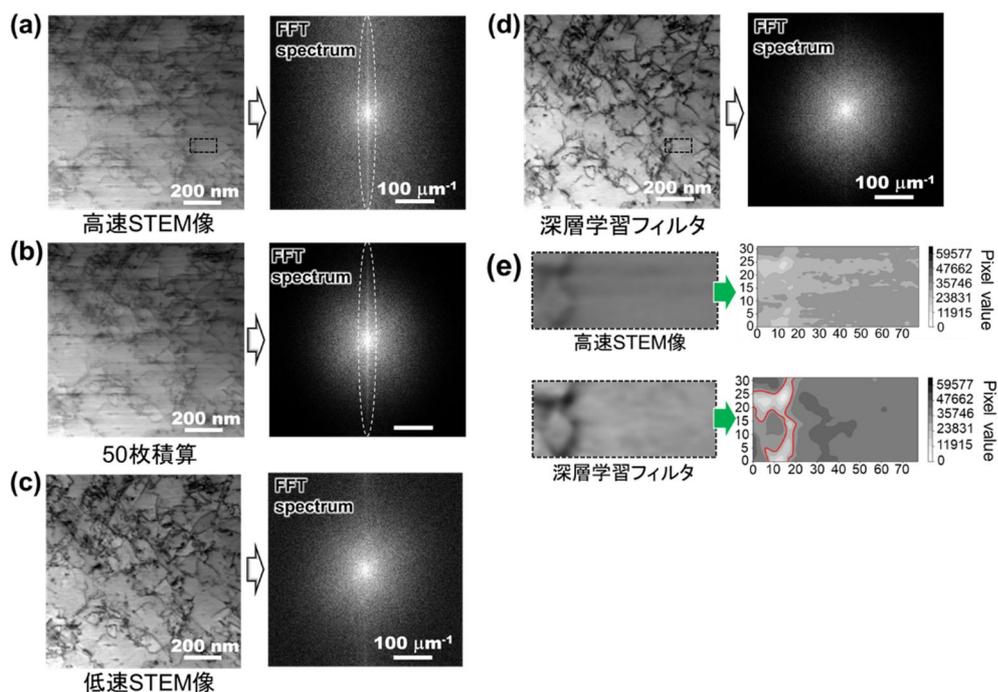


図6 検証画像の比較。(a)高速STEM像。(b)50枚積算像。(c)低速STEM像。(d)図6の方法で作成した深層学習フィルタを高速STEM像に適用した結果。(e)(a)および(d)における破線で囲われた画像のコンター図。

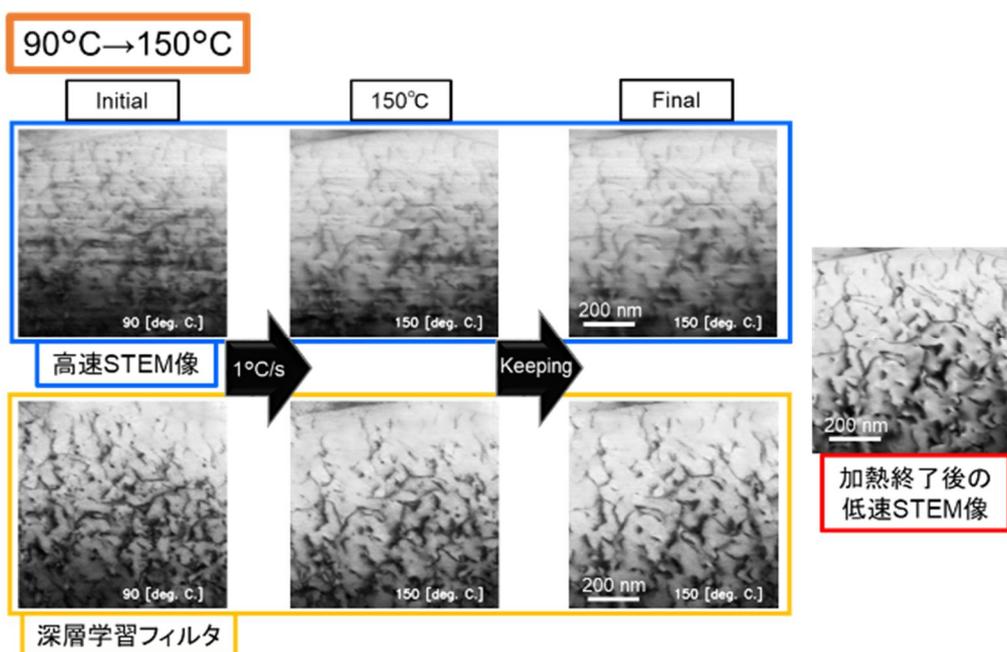


図7 加熱その場観察における深層学習フィルタの適用結果[1]

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 IHARA Shiro, SAITO Hikaru, CHO Ichihō, KOIKE Suguru, NAKAMA Rikuto, YOSHINAGA Mizumo, MITSUWARA Masatoshi, HATA Satoshi, MURAYAMA Mitsuhiro	4. 巻 2021.34
2. 論文標題 Application of STEM observation aided by Machine Learning-based noise filtering	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 The Proceedings of The Computational Mechanics Conference	6. 最初と最後の頁 150
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1299/jsmecmd.2021.34.150	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 YOSHINAGA Mizumo, IHARA Shiro, SAITO Hikaru, MURAYAMA Mitsuhiro	4. 巻 2021.34
2. 論文標題 High definition of high-speed scanning transmission electron microscope (STEM) images by noise filtering based on machine learning	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 The Proceedings of The Computational Mechanics Conference	6. 最初と最後の頁 185
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1299/jsmecmd.2021.34.185	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Ihara Shiro, Saito Hikaru, Yoshinaga Mizumo, Avala Lavakumar, Murayama Mitsuhiro	4. 巻 12
2. 論文標題 Deep learning-based noise filtering toward millisecond order imaging by using scanning transmission electron microscopy	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 13462
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41598-022-17360-3	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 該当する

1. 著者名 井原史朗, 斉藤光, 村山光宏	4. 巻 -
2. 論文標題 深層学習を援用した高速走査透過電子顕微鏡法による その場観察および3次元観察	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 材料	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計5件（うち招待講演 2件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 義永瑞雲, 井原史朗, 斉藤光, 村山光宏
2. 発表標題 機械学習ノイズフィルタリングによる 高速走査透過電子顕微鏡(STEM)像の高精細化
3. 学会等名 日本機械学会第34回計算力学講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 井原史朗, 斉藤光, 趙一方, 鯉池卓, 仲間陸人, 義永瑞雲, 光原昌寿, 波多聡, 村山光宏
2. 発表標題 機械学習ノイズフィルタリングを援用した走査透過電子顕微鏡(STEM)観察の応用
3. 学会等名 日本機械学会第34回計算力学講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 井原史朗
2. 発表標題 機械学習を活用した電子顕微鏡観察手法の開発と実践
3. 学会等名 第56高エネルギー速度加工分科会 - 第24回爆発衝撃加工専門部会（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 井原史朗, 斉藤光, 義永瑞雲, 村山光宏
2. 発表標題 その場観察に向けた高速STEM撮像における深層学習ノイズフィルタの開発
3. 学会等名 日本顕微鏡学会第78回学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 井原史朗
2. 発表標題 STEM を用いた加熱その場観察における機械学習の応用
3. 学会等名 超高分解能顕微鏡法分科会 研究討論会（招待講演）
4. 発表年 2023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
---------	---------