

令和 5 年 6 月 13 日現在

機関番号：13901

研究種目：挑戦的研究(萌芽)

研究期間：2021～2022

課題番号：21K18819

研究課題名(和文) ベイズ超解像を用いた走査透過電子顕微鏡法による軽元素原子の可視化

研究課題名(英文) Visualization of light elements by STEM imaging with Bayesian super-resolution

研究代表者

原田 俊太 (Harada, Shunta)

名古屋大学・未来材料・システム研究所・准教授

研究者番号：30612460

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 5,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、ベイズ超解像を用いたHAADF-STEM法による軽元素原子の可視化を試みたが、観察試料の制約から、理想的な結果は得られなかった。しかし、積算による酸素原子の可視化に成功し、軽元素原子の可視化手法として新たな可能性を示した。また、EELSデータの超解像に関しては、0.1 eV/chのスペクトルから0.01 eV/chのスペクトルを再構成し、Tiのコアロススペクトルの高解像度再構築に成功した。これらの結果から、ベイズ超解像が高解像度のスペクトルデータ生成における有力な手段であることが確認された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究の成果は、軽元素原子の可視化技術における新たな手法を開拓する可能性を秘めている。特に、金属酸化物中の酸素原子の観察に成功したことは、材料科学、化学、生物学等の幅広い研究領域において、微細な構造の観察・解析に対する新たな道を切り開く可能性を持つ。また、EELSデータの超解像への応用に成功したことは、電子エネルギー損失スペクトルの分析における精度を向上させ、原子レベルでの物質解析の可能性を広げることを示している。これらの成果は、物質科学研究における重要な指針となる可能性がある。

研究成果の概要(英文)：This research attempted to visualize light element atoms using HAADF-STEM methodology with Bayesian super-resolution, but due to the constraints of observation samples, the ideal results could not be achieved. However, successful visualization of oxygen atoms through integration has shown new possibilities as a visualization method for light element atoms. In terms of super-resolution of EELS data, the research succeeded in reconstructing a 0.01 eV/ch spectrum from multiple 0.1 eV/ch spectra and successfully achieved high-resolution reconstruction of Ti core-loss spectra. These results confirm that Bayesian super-resolution is a potent method for generating high-resolution spectral data. While the application of Bayesian super-resolution to HAADF-STEM images could not be realized in this research, the successes in visualization and application to EELS data illuminate the potential for future studies and advances in the field.

研究分野：材料科学

キーワード：ベイズ超解像 軽元素原子 電子線分光 スペクトル超解像

## 1. 研究開始当初の背景

高角散乱暗視野 (HAADF) 走査型透過電子顕微鏡 (STEM) 像は、原子番号 (Z) に応じたコントラストが得られる。無機材料の研究開発では、原子配列を直接観察する手法として、この HAADF-STEM 法が広く用いられている。しかし、電子の散乱能力が低い軽元素からの信号は極めて弱く、軽元素原子の観察には適していない。このため、水素やリチウムといった軽元素エネルギーキャリアの安定サイトや伝導経路の観察は困難となる。

一方で、超解像は高解像度の原画像を推定する画像処理手法で、これには複数の観測画像を利用する。同じ対象から取得した複数の観測画像が、解像度以下の平行移動 (サブピクセルシフト) によって異なる位置で撮影されている場合、その移動量が既知であれば解像度の向上が可能となる。ベイズ超解像は、移動量をベイズ統計に基づいて推定するため、移動量が未知でも超解像が可能となる。さらに、複数の観測を利用して原画像を分布として推定することで、不確実性を低減し、信号対雑音比 (S/N) の向上が期待できる。

## 2. 研究の目的

本研究では、低倍率の広角散乱環状型検出器暗視野走査型透過電子顕微鏡 (HAADF-STEM) 像から単位胞を含む同一箇所ユニット画像を多数抽出し、ベイズ超解像により信号雑音比 (S/N) を高めた高解像度の画像を再構築することによって、これまで HAADF-STEM 法での直接観察が難しかった、軽元素原子の可視化に挑戦する。研究を進める中で HAADF-STEM 像自体のデータのばらつきが大きいため、ベイズ超解像による再構築が困難であることが明らかとなった。一方で、画像データではなく、電子線分光データを含むスペクトルデータに本手法を応用することによって、スペクトルデータの S/N や解像度を高めることが可能となることが明らかとなった。このため、スペクトルデータの超解像解析に関する研究も行った。

## 3. 研究の方法

HAADF-STEM 像から単位胞を含む同一箇所ユニット画像を、テンプレート画像との相関係数を計算することにより抽出するプログラムを作成した。この方法により抽出された画像は、サブピクセルシフトを含んでおり、ベイズ超解像で必要となるデータの条件を満たしている。ルチル型酸化チタンの STEM 観察試料を収束イオンビーム (FIB) 法により作製し、観察画像の取得を行った。同一箇所ユニット画像を約 500 枚抽出し、解析用データとした。スペクトルデータの超解像の検討を行うために、電子線エネルギー損失分光 (EELS) 法により、Ti L<sub>2,3</sub> のスペクトルデータを取得した。ベイズ超解像を行うためには、横軸方向のズレを含むデータを取得する必要があるが、EELS 測定では、電子線の不安定性により、測定のたびにエネルギーシフトが発生するため、意図的にエネルギーシフトを発生させる必要がなく、通常測定時のデータをスペクトル超解像にそのまま利用した。EELS では、広いエネルギー範囲を高分解能で計測することが困難であるため、これをベイズ超解像で克服することを試みた。

## 4. 研究成果

ベイズ超解像により複数の観測データから高分解の測定データを再構築するプログラムの作成を行った。プログラムの性能確認を行うために、ピクセル解像度が 50  $\mu\text{m}$  で

ある X 線検出器（フラットパネルセンサー）を用いて撮影した X 線トポグラフィー像を用いて超解像を行った。その結果、SiC 基板上的レーザーマークの観察画像の解像度を  $7\ \mu\text{m}$  まで向上させることに成功し、作成したプログラムの妥当性が検証された。

本プログラムを用いて HAADF-STEM 像の超解像を試みたが、ユニット画像間のコントラストレベルに差異があるため、超解像の再構築が思うように実施できなかった。ベイズ超解像を HAADF-STEM 像に適用するためには、均一な観察像が必要であることが明らかとなったため、STEM 試料の作製条件等を検討したが、最終的に、ベイズ超解像による再構築に耐えられる観察試料を作製することはできなかった。イオンミリング等の加工手法を用いて、同一視野での厚さの均一性を確保し、試料へのコンタミネーションやダメージを低減する方法を検討することで、良質な観察試料が準備できれば、ベイズ超解像による解析が可能となると考えられる。

ベイズ超解像の適用は困難であったが、抽出した画像約 500 枚を積算することにより信号強度を増幅し、酸化チタン中の酸素原子の観察を行うことに成功した。相関係数を計算しテンプレート画像を抽出するテンプレートマッチング法を活用しユニット画像を抽出し積算することで、軽元素原子の可視化を行うことができることが示唆された。

EELS データの超解像に関しては、 $0.1\ \text{eV/ch}$  で測定された複数のスペクトルから、 $0.01\ \text{eV/ch}$  のスペクトルを再構成することを試みた。Fig. 1 は、測定データのエネルギーシフトを確認するために、ゼロロスピークの最大値のエネルギーを各データに対してプロットした結果である。ここから 200 回の測定の中に、ピークは、最大で  $0.6\ \text{eV}$  程度変動していることが明らかになり、スペクトルデータの超解像が可能であることが示された。さらに、ベイズ超解像を行った結果、Ti のコアロススペクトルの高解像度な再構築に成功した。これは広範囲において、高解像度のスペクトルを再構築できることを

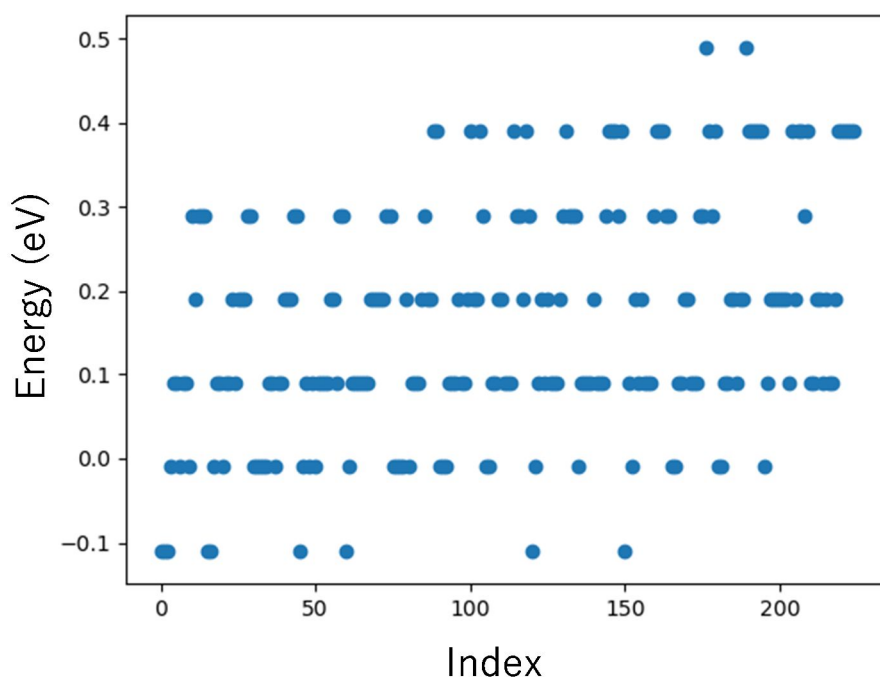


Figure 1. 測定データのエネルギーシフト。

示している。

以上のように、ベイズ超解像を HAADF-STEM 像に応用し、軽元素原子の可視化を実現することはできなかったが、積算により、酸素原子の可視化に成功し、また EELS のデータに応用することによって、スペクトルデータの超解像が可能となることが本研究より明らかとなった。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 2件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 Shunta Harada
2. 発表標題 Application of Bayesian super-resolution to spectroscopic data for precise characterizaion
3. 学会等名 Pittcon 2023 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 原田 俊太, 辻森 皓太, 野本 豊和, 伊藤 孝寛
2. 発表標題 ベイズ超解像を用いたX線光電子分光測定の高速度化
3. 学会等名 第70回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 原田俊太, 辻森皓太, 野本豊和, 伊藤孝寛
2. 発表標題 ベイズ超解像によるX線光電子スペクトルの高速取得
3. 学会等名 第59回表面分析研究会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 原田俊太
2. 発表標題 ベイズ超解像による分光分析の高精度化と応用展開
3. 学会等名 顕微鏡計測インフォマティクス研究部会 (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 長坂 野乃子, 辻森 皓太, 原田 俊太, 廣谷 潤
2. 発表標題 ベイズ超解像によるラマン散乱スペクトルの高精度化
3. 学会等名 第59回炭素材料夏季セミナー
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 原田俊太
2. 発表標題 ベイズ超解像による分光分析の高精度化
3. 学会等名 応用物理学会 インフォマティクス応用研究会 第4回研究会「計測インフォマティクス」(招待講演)
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