

## ナノ電子顕微分光への情報処理技法の応用

名古屋大学未来材料・システム研究所 武藤俊介

近年の TEM/STEM/SEM による分光分析 (EDX, EELS, CL など) は, 指定した領域から自動データ収集するいわゆる「スペクトラムイメージ (SI)」と呼ばれる一種のビッグデータと見なすことができる. データキューブと呼ばれる数学的構造をこれらのデータは持っており, 各空間座標のスペクトルデータは,  $\mathbf{X} = \mathbf{C}\mathbf{S}^T + \mathbf{E}$  ( $\mathbf{X}$ ,  $\mathbf{C}$ ,  $\mathbf{S}$ ,  $\mathbf{E}$  はそれぞれ実験データ, 各成分スペクトルの重み, スペクトル成分, 統計誤差を表す行列) のようにいくつかの成分スペクトルの一次結合で表されるという仮定の下, 多変量解析の手法を適用することによって, 先験的知識なしにデータ全体に含まれる有意な情報を余すことなく抽出を行うことが一般的になってきた. 今では主成分解析 (PCA), 非負行列対角化 (NMF), 独立成分解析 (ICA) などの様々な解析法が提案されている.

我々の研究グループでは 5 年以上前から特に STEM-EELS/SI データに多変量スペクトル分解 (MCR) 法を適用し, 異なる化学結合状態を持ったスペクトルを分離し, 各成分の空間分布を表示する「物性画像診断」を提唱してきた[1,2]. PCA, ICA などの数学的に良く定義された手法に比べ, MCR は解がユニークで無いという欠点が内在していたが, 抽出されたスペクトルをそのまま解釈することが可能という利点を有している. 特に EELS では, 各スペクトル成分がエネルギー損失軸において重なり合うという特徴が解の決定に困難を生じる主な原因となっていた.

解決すべき問題は, (1)ユニーク解へ収束させる適当な拘束条件を設定すること, (2)データ自身から含まれる成分数を決定すること, の二点が挙げられる. (1)に対して, 重み行列  $\mathbf{C}$  においてスパース性 (各成分の直交性) を導入することで, (2)に対して ARD アルゴリズム [3]を導入することを試みた. (1)は, 多くの場合強力な拘束条件を与え, 特に EDX 元素マッピングや半導体素子などの相分布マッピングにおいて正しいスペクトル成分へと安定に収束させることがわかった[4].

今後さらに微弱な信号をデータから抽出するなどの要求に応えるためにもこのような情報統計学の応用はデータ解析において欠かせないものとなるであろう. しかしそのためには各データがそれぞれ有している特徴をよく理解したうえで, その特徴に応じた適切なアルゴリズムを選択する必要があることを強調したい.

[1] 武藤俊介, 顕微鏡, 46 (2011) 24.

[2] 武藤俊介, 日本金属学会会報「まてりあ」, 51 (2012) 423.

[3] V. Y. F. Tan & C. Fevotte, IEEE Trans on Pattern Analysis and Machine Intelligence, 35 (2013) 1592.

[4] M. Shiga, K. Tatsumi, S. Muto and K. Tsuda, Ultramicroscopy, submitted.