情報処理の実例 (6)

オージェ像の画像解析

大 岩 烈・田 中 彰 博

アルバック・ファイ(株) 〒253 茅ヶ崎市萩園 2500

(1987年11月30日受理)

Studies of the SAM Image Processing

Retsu OIWA and Akihiro TANAKA

ULVAC-PHI, Incorporated
2500 Hagisono, Chigasaki-shi, Kanagawa 253

(Received November 30, 1987)

Scanning Auger Microscopy is an established surface analysis technique in which specimens are excited with a focused primary electron beam and emitted Auger electrons are detected with an energy analyzer. SAM provides the topographical and elemental information of specimen surfaces also to in a microscopical scale. Image processing softwares enhance the perception and understanding of the data in micro analysis. The accuracy of the Auger data is related to the signal-to-noise ratio and the detection limit.

1. 緒 言

今日、局所分析の要求が、より微量化、微小化および迅速化の方向をめざして進んでいる。オージェ電子分光分析 (Auger Electron Spectroscopy, AES) は、試料に電子線を照射した際に、試料から放出されるオージェ電子をエネルギー分析することにより試料表面の元素の同定、定量を行う分析手法である。得られる情報は、きわめて表面に敏感 ($\sim 30\text{\AA}$ 程度) であり、又、励起源として電子線を用いているので、ビーム径を細く絞ることが可能なために他の表面分析法と比較して、

- ① 微小領域分析に優れている。
- ② 1次電子線を走査することで、2次元の情報が得られる。
- ③ スパッタイオン銃と組合わせることで、3次元の情報が得られる。

などの特長がある。昨今の材料開発にはなくてはならない表面分析装置として広く利用されている。局所分析に優れた機能を有する走査型オージェ分析装置 (Scanning Auger Microscope, SAM) は、電子銃内蔵型 CMA とコンピュータの組合せでさらに機能を充実してきており、特に近年におけるビーム径の微細化とコンピュータ

によるデータ処理における発展には著しいものがある。

オージェ像は、SEM 像が固体表面の形状を主に示しているのに対して、SEM 像と直接に対応した形で固体表面を構成している元素の濃度分布に関する情報を示している。オージェスペクトルの情報と比較して、オージェ像は、分析領域における元素の存在の有無、濃度に対応した強度分布がモノクロームやカラー表示によって認識できるので、材料を直感的に判断する上できわめて有効な手段である。

一方で、測定点数が1万点から7万点近くまでと非常に多いために、測定時間も1画像あたり5min~20min程度を要する。昨今のコンピュータ技術の発展、特にメモリ容量の大幅な改善、データ処理速度の改善がありさらに、高分解能カラーディスプレイと組合せることでいろいろな表現法、処理法が試みられるようになり、さらに利用される様になってきた。この一文では、局所分析の微量化、微小化に伴う要点を解説し、いろいろな画像解析の応用例を示す。

2. 1次電子線の微細化

SAMの開発は、電子顕微鏡に匹敵するSEM機能をいかにしてオージェ電子分光分析装置に付加させるかに

主として力が注がれてきた。1970年に Parmberg ら¹⁾により CMA が開発され、AES が実用的に用いられるようになった。最初の SAM は、それよりも3年後に MacDonald ら²⁾により開発され、走査型電子顕微鏡に CMA を付加した SEM-AES 型の装置であった。しかし、このような SEM-AES 型の装置では、電子顕微鏡を超高真空に対応させることが難しいばかりでなく、

- ① オージェ電子を効率よくアナライザに取り込むことが難しい。
- ② 得られる信号強度が、試料の凹凸の影響を強く受けて2次元分析の信頼性が得られない。特に微量な元素を計測する上で問題になる。
- ③ 最適分析位置、深さ方向分析に用いるイオン銃との位置合わせが難しく、分析結果に対する信頼性、繰り返し再現性に問題がある。

などの理由により SAM の開発は SEM-AES 型の基本的な欠点を改善するために電子銃を CMA の中心部に位置させねばならないという結論に至った。そこで SAM の改善は、電子銃を内蔵した CMA と、このようにした電子銃のビーム径を改善することに主力が注がれてきている。

SAM における1次電子線は、限られた CMA 内部の空間に電子銃を据え付けるために、当初は $5\mu\text{m}\phi$ 程度にしか1次電子線を絞ることができなかった。その後、さまざまな改良が加えられ、最新の装置ではおよそ $200\text{\AA}$ にまで改善されてきている^{3,4)}。

1次ビームを微細化する上で、一般にレンズ系の球面収差係数の小さい電磁レンズ系のほうが静電レンズ系に比べて絞りやすい。しかしながら、表面分析に不可欠な良質の UHV を得るためには、装置全体を $150\sim 250^\circ\text{C}$ で加熱バークアウトする必要がある。バークアウトに耐えうる電磁コイルは 1979 年に開発され、市販の SAM に用いられるようになった⁵⁾。このことにより飛躍的に性能が向上した。又、フィラメント材として、W-フィラメントよりも最近では LaB₆ が最も一般的に用いられている。最近フィールド・エミッションも試みられているが、取扱いにくさや固有のノイズの問題があり、実用的な点でまだ LaB₆ を凌ぐまでには至っていない。

3. 検出限界

局所分析は SAM のユニークな特長であるが、1次電子線の微細化は、一方でスペクトルの S/N 比を低下させ、オージェ電子の検出限界の低下につながる。

微小部分の分析には、より微細な入射電子ビームが必要となる。最近の SAM においては、 $10^{-9}\text{A}\sim 10^{-10}\text{A}$

という小さな入射電流でも測定可能ではあるが、分析時間、検出感度を考慮して、実用的な分析には 10^{-8}A 台が望ましい。こうした低電流では、 S/N 比が検出限界に大きく影響する。AES における S/N を原理的に決めるものは、2次電子のエネルギー分布関数 $N(E)$ におけるバックグラウンドの不規則な信号雑音による。検出される電子の数を n とし、オージェピーク強度を n_A とすると n_A は、

$$n_A = |n_p - n_b| \quad (1)$$

と定義することができる。

このとき、 n_p はオージェピークのピーク最大値の電子の数、 n_b はスペクトルのバックグラウンド値である。

入射電子数を n_i とすれば、

$$n_p \propto n_i, \quad n_A \propto n_i$$

の関係が成り立つ。

S/N を入射電流 I_p と各点での計測時間 T_d 、表面で注目している元素の濃度を C_s として書き表すと、

$$S/N = n_p / \sqrt{n_b} = K C_s \sqrt{I_p \cdot T_d} \quad (2)$$

となる。 K は信号雑音係数と呼ばれ、例えば $K=1 \times 10^5$ と仮定すると、

$$I_p = 10^{-6} \text{ \AA}, \quad T_d = 1 \text{ sec} \text{ の場合には}$$

C_s が 1 の場合、 S/N 比が 100 になり、

C_s が 0.03 の場合、 S/N 比が 3 になる。

K の値は、各種の純元素試料について、実測され、およそ $10^4 \sim 10^5$ 程度の値である⁶⁾。

又、(2)式は、 S/N 比を 10 倍良くするためには、電流と分析時間の積を 100 倍にする必要があることを意味している。SAM の場合、1次電子線の電流値 I_p は、それぞれの試料に合わせて頻繁に変える必要がある。特に局所分析の場合、鮮明な2次電子像が要求される。しかし、2次電子像を撮るときの I_p は AES には不適当である。ビーム径 D を大きくすれば I_p は増加し、したがって S/N 比は D に比例して改善される。又 AES の場合、背面散乱電子によって励起されるオージェ電子のために必ずしも1次電子線のビーム径がオージェ電子の面分解能と一致せず、幾分広くなる。こうしたことからオージェ像の測定では、試料の要求に対して許される限りビーム径を太くして、 S/N 比を改善することが重要になる。このように分析領域を小さくすることと S/N 比の良いオージェスペクトルを得ることは相反している。**Fig. 1** に1次電子線の電流値 I_p を変化させたときのオージェスペクトルの S/N 比の違いを示す⁷⁾。

S/N 比を改善するために一般に行われるのが、シグナルプロセッサやコンピュータを用いて行われるデータの積算である。スペクトルの S/N 比は積算回数 n の平方根に比例して改善される。

Fig. 1 The decrease in signal to noise ratio of GaAs Auger spectra resulted from changing beam current from 0.1 μA to 0.001 μA .

元素 X の測定に対して、 S/N 比はその濃度 C_x に比例し、相対感度係数 S_x に比例している。そこでその比例定数を H_x とすれば H_x は次式で定義できる。

$$H_x = \frac{S/N}{C_x \cdot S_x} \quad (3)$$

従って、

$$C_x = \frac{S/N}{H_x \cdot S_x}$$

であるから、 H_x を知っていれば被測定元素の感度係数 S_x を知り、要求される S/N 比の値を知ることによって、そのために必要な濃度（または、要求される S/N 比に対する検出限界） C_x を知ることが可能になるわけである。

一方、信号雑音係数 K は近似的に次のように書き換えることが可能である。

$$K = k S_x \sqrt{W} \quad (4)$$

k はアナライザに取り込んだ電子に関する単位の換算係数 S_x は、成分 X の感度係数、 W は実効的な電子の取り込み立体角と試料からの放出方位分布の積の積分値で

Fig. 2 Primary electron beam current, I_p , as a function of τ , analysis time per point. The value of H_x is held constant.

ある。（ここでは実効取り込み立体角とよぶ。）

この値と(3)式から、

$$H_x = k \sqrt{W} \cdot I_p \cdot \tau$$

となる。 $k \sqrt{W}$ は装置によって決まる値である。装置を定めて、 I_p, τ に対する H_x の値を求めた例を Fig. 2 に示す。

Fig. 2 は、 H_x に装置上の特性を示す条件を入れて、積分時間と1次電子線電流の関数としてプロットした図である。Fig. 2 から Cu (920 eV のピーク) を測定する条件を求めてみる。Cu の相対感度因子は、オージェハンドブックより、 $S_x = 0.20$ である。いま、1次電子線電流 I_b を 1 nA とし、 $S/N = 2$ 程度の精度で、 $\tau = 1$ s として測定するものとする。Fig. 2 より、 $H_{Cu} \sim 350$ が得られる。これを(3)式に入れると、

$$H_{Cu} = \frac{2}{(c O_{Cu})(0.20)} = 350 \quad c O_{Cu} = 0.029$$

となる。従って、この条件での Cu の検出下限濃度は、およそ 3 % である。

この様に、測定条件に対する検出下限濃度をあらかじめ推測できれば、実際の測定に対してはきわめて有効である。

もう一つ、SAM の S/N 比に大きく影響する要因として、CMA の分解能をあげることができる。現在市販されているほとんどの CMA は、取り込みアパーチャーの径を外部より変えることで CMA の分解能を可変することができる⁸⁾。

CMA の分解能を変えることで分解能のよいスペクトルを得られるばかりでなく、同じ1次電子線の電流値に対して S/N 比の良いスペクトルや線分析、面分析が得られる。

Fig. 3, 4, 5 に CMA の分解能を変えたときの変化を示す。又、取り込みアパーチャーを換えることで、

Fig. 3 The increased in signal amplitude of the low energy Auger peaks resulted from changing analyzer energy resolution. S and Cl peaks in the 100 to 200 eV region obtained with energy resolution R , of 0.3%, 0.6% and 1.2% are shown.

Fig. 4 The spectra obtained from an Al specimen with an aluminum oxide surface layer (approximately 20 Å thick) demonstrates the advantage of high energy resolution for separating closely spaced, high energy Auger peaks.

Fig. 5 S/N ratio vs energy resolution R . Sample shown is Si wafer with graphite flakes.

Fig. 6 Acceptance area of analyzer vs energy resolution R using Fe foil.

CMA 自身の分析領域も変化するため、特に低倍率の SAM 像を得る場合には、測定領域が広がっていることに留意する必要がある。Fig. 6 に CMA の分解能を変えた場合の分析領域の変化を示す。

4. 材料の凹凸によるオージェ信号強度への影響

オージェ像の濃度分布を量的に評価する上で、オージェ信号強度について考察しておくことは重要である⁹⁾。オージェ電子信号強度と表面濃度を対応づけるために、

- 1) 背面散乱電子によるオージェ生成への寄与
- 2) オージェ電子の脱出深さを与える物理量

Fig. 7 Isometric drawings of the primary electron beam geometries for orthogonal and coaxial CMAS.

Fig. 8 Calculated Auger signal intensity along the x -axis of a spherical particle of unit radius for the orthogonal and coaxial geometries.

(オージェ電子の平均自由行程)

を考慮する必要がある。

又、入射 1 次電子線と検出器の位置関係による信号強度への影響についても、十分に考慮する必要がある。そこで、一つの試料でいろいろな形状を代表することが可能なことから球状の試料に対して Fig. 7 に示すような検討がなされた。SEM-AES 型と同軸円筒型の二つの方法に対して、形状によるオージェ電子信号強度への影響が調べられている¹⁰⁾。

固体内深さ Z の所で発生したオージェ電子が固体から放出される量を計算した結果を Fig. 8 に示す。又、実験により試料形状による影響を比較した結果を Fig. 9 に示す。この様に SAM において面分析をするうえで、試料の凹凸による信号強度の変化の影響を受けにく

Fig. 9 SEM (a and b) and SAM (c through f) photos of spherical Ni alloy particles pressed into In foil. Photos c and e were obtained using the orthogonal geometry method and photo d and f using coaxial method.

い一次電子線と検出器の幾何学的配置の重要性が示されている。

5. SAM の画像解析の応用例

オージェ像は、CMA 内蔵の電子銃から細く絞られた電子線を試料の分析領域に走査し、照射された際に発生するオージェ電子をエネルギーアナライザにより分光、抽出しながら画像を形成して行く。オージェ像の画素数は、装置の機能上は一般に 1000×1000 や 2000×2000 もの画素数が可能であるが、実用的な分析時間やデータの出力系の機能なども考慮して、100×100 から 200×200 程度の範囲で用いられている。それでも一画像当りに要する分析時間は5~10分程度を要するし、又、一画像当りのデータ容量は 100 kbytes にもなる。以下に一般に用いられている画質の向上、カラー表示などの画像処理法を示す。

5.1 スムージング

データ信号中に含まれる不規則な雑音成分を除去し、

画質の向上を目的とした処理方法である。一般に Savitzky-Golay のコンボリューション法が用いられている。画面内の1点に注目し、その点を中心とする 3×3 平方領域の濃度の平均を求め、新しい信号値として置き換える方法である。**Fig. 10** (b) にスムージング処理の効果を示す。ヒストグラム表示上で信号が平均化されたことがわかる。画面内の i, j 点におけるスムージング処理を行った後の新しいデータ値を P (i, j) とすると 3×3 画素領域における最も一般的な係数を下記に示す。

$$P(i, j) = \frac{1}{10} \begin{pmatrix} 1 & 1 & 1 \\ 1 & 2 & 1 \\ 1 & 1 & 1 \end{pmatrix}$$

この他にも

$$P(i, j) = \frac{1}{32} \begin{pmatrix} 3 & 4 & 3 \\ 4 & 5 & 4 \\ 3 & 4 & 3 \end{pmatrix}$$

の様に自由に係数を選択することができる。後者の方がノイズの除去効率は高いが、一方で像のシャープネスが損なわれることもある。従って、画像処理の効果をモニ

Fig. 10 Histogram shown in (a) was calculated from a titanium boride sample SEM image. Data were treated by smoothing (b) and median filter (c).

ターしながら最適な係数が選択できることが望ましい。この他に、画素領域を 5×5 へ拡張する場合もある。

5.2 スパイク状のノイズ除去

オージェ像の中にはスパイク状のノイズが含まれることがよくある。前出のスムージング処理は不規則なノイズ成分を除去する目的において効果があるが、他の信号強度と著しく強度の異なるスパイク状のノイズがある場合には、かえってその信号の前後の点に対してはノイズレベルを拡大する危険が伴う。Fig. 10(c)に Median Filter 処理の効果を示す。ヒストグラム表示上で信号強度の強い(図中右方向)領域が除去されている。Median Filter 法はこのような不連続のスパイク状のノイズを除去するような場合には有効な処理法である。Median

Filter 法は画面内 i, j 点と近接する 4 点を含めた 5 つの画素に対する信号値の中央値を新しい i, j 点の信号値として置き換えて行く方法である。この様にして他の信号値と著しく異なるようなスパイク状のノイズは除去される。

5.3 モザイク画像処理

それぞれの画素に相当する信号を CRT 等に表示する場合に、点として表示する代わりに相当する領域をその信号強度に対応した信号強度で塗りつぶす方法である。像をそれぞれの点の集合体として考えると画素数が 1000×1000 や 2000×2000 点の場合にはこの処理を用いる必要性はないが、画素数が 100×100 以下の場合には点として出力するよりも画素数で分割された領域を塗りつぶすモザイク画像の方が元素などの分布が見え易くなる場合が多い。

5.4 像の凹凸補正

表面に凹凸のある試料の場合、凹凸による信号強度の変化の影響を取り除く目的で利用することができる。オージェスペクトルは大きなバックグラウンドを伴う。ピーク強度もバックグラウンド強度も凹凸の影響を受けるのでピーク強度のかわりにピーク強度とバックグラウンド強度の比を用いることにより、凹凸による効果を除去することが可能になる。電子銃内蔵型 CMA の場合において凹凸の影の影響がないので、有効に用いることができるが、SEM-AES 型の場合には、影の効果に大きく左右されるので取り扱う上で注意が必要である。

5.5 ヒストグラム表示

モノクロトーン写真について考えてみると、いかにして中間調を表現するかが画質に大きな影響を及ぼし、ひいては画像解釈の可能性を左右する。こうした濃淡の設定に対してヒストグラム表示は威力を発揮する。すなわち、ヒストグラム表示を利用して濃淡階調を指定することで最も見やすく、しかも合理的な画像表現が可能になる。操作性という点でいえば、撮影結果によって露出を考えて取り直す必要が全くなくなるばかりでなく、量的表現をオージェ像の中に盛り込むことが可能になる。特に後者において画像の情報量を増大させることが可能であることは大きな利点である。

- ① 何色で表示すると最もよく直感と一致するか。
- ② 何色を割り振るか。
- ③ 微少な差を表現するかしないか。

などを判断する上で、きわめて有効な表示方法である。特にヒストグラム上に色付けを行って画面を対比させると、統計的分布を確認することになり、きわめて有意義になる。オージェ像の強度分布を示すヒストグラムを **Fig. 11** に示す。

Fig. 12 Split-screen quadrant display of images of a test pattern. SEM, silicon, oxygen and carbon Auger images are shown for easy comparison using one photograph.

5.6 四分割表示

画像表現によるデータを解釈する場合に、幾つかのデータを並べて相互比較を行う。このような場合、従来は一枚ずつの写真を並べて比較を行っていたが、同一画面上に一挙にできれば極めて便利である。分析試料の SEM 像とそれに対応する幾つかのオージェ像を対比しながらデータを編集するような場合には、不可欠といってもよい。特に、画素数が少ない場合のオージェ像においては、画面分解能の劣化が事実上起こらないため、情報密度のみを高めることが可能である。**Fig. 12** に四分割表示の例を示す。

5.7 線分析表示のオージェ像上への重ね合わせ

オージェ像は、SEM 像と直接に対応した形で元素の濃度分布を示しており、材料を直感的に判断する上で極めて有効な表示方法である。とはいえ、量的表現という点では、わかりやすさでもやや不満が残る。

この点では、濃度に相当する信号を線分析表示し、オージェ像上に重ねて描くと、定量的表現を補強することができる。さらに、こうして情報が補強された結果として、実効的にオージェ像の情報量を拡大させることになる。例を **Fig. 13** に示す。この様に、オージェ像上に線分析結果を重ねて描くことにより、量的なわかりやすさが大いに補強され、きわめてわかりやすい像が得られる。

5.8 カラー表示

1) 15 階調表示

オージェ像は、デジタル・カラー CRT 上に最大 15 階調表示することができる。白黒の濃淡による表示と比べると、

- ① 強度分布の表現が容易であり、わかりやすい。

(a)

(b)

Fig. 13 SEM image of an inclusion in zirconium based alloy. Line shows location of Auger line scan photo (a) shows location and intensity of the iron Auger signal and photo (b) for nickel. Correlation between subtle features on the image and surface chemical composition can be seen.

- ② 強い信号領域と弱い信号領域において視覚との関係での分解能が向上する。

- ③ 濃度の強弱による変化が、色等高線で表示される。

等、多くの利点を持っている。特に、強度に対するヒストグラムとの対応により、強度表現は極めて明確になる。

例えば、強度はきわめて強いが、数の少ない点の場合には、白黒濃淡表示では表現が極めて難しかった。こうした場合に、明るさだけでなく、色相も変化することによって明確にみてとることが可能になる。又、人間の目は、白に近い領域や黒に近い領域を見て取ることは、この領域での目の分解能が高くないためになかなか困難

Fig. 11 The histogram is now displayed in six colors at equal intervals shown in (b) along with the corresponding image in (a). Again using histogram (b), the boundary between the two highest gray-levels has been shifted to fall between the main histogram peak and the shoulder on its right side illustrated by (d). The corresponding image is shown in (c).

Fig. 14 Boron Auger image of a fractured titanium boride ceramic. Pseudo-color imaging enhances subtle signal intensity variations in the image.

Fig. 15 Split-screen quadrant display of titanium, boron, silicon Auger images and overlay of a titanium boride sample. Auger color composite image are formed by superimposing the three individual Auger images, where each Auger image modulates the intensity of one of the three primary colors. Where elements overlap, the primary colors mix to form a new color.

Fig. 16 Split-screen quadrant display of images of tantalum, gold, silicon Auger images and overlay of an IC pattern.

Auger color composite image are formed by super imposing the three individual Auger images, where each Auger image modulates the intensity of one of the three primary colors. Where elements overlap, the primary colors mix to form a new color. (See colour page 2, frontispiece.)

であるが、こうした点を色相が補う。

さらに、介在物がチャージアップを起こしているような場合には、明暗の差が余りにも大きいために、その周囲でハレーションを生じる。その結果として、介在物周囲の情報が事実上失われてしまうことになる。この様なとき、色 vs 強度対応の場合には、画面も写真もハレーションを生じることはあり得ず、周囲の情報を失うことなく表示することが可能になる。

2) 重ね合わせ表示

三原色（赤：R，緑：G，青：B）をそれぞれの元素に対応させて、1つの画面に表現することができる。このとき複数成分が同じ点に共存する場合には、濃度に対応した混合が行われることになり、色によって状況を把握することが極めて容易になる。例を **Fig. 16** に示す。

6. おわりに

いままで述べたようなオージェ画像解析の技術は、それぞれは、特に新しい手法というわけではないが、昨今のコンピュータの能力の著しい向上に負うところが大きく、非常に身近な技術となった。画像処理の技術は、その情報の豊富なことから、今後の key technology の1つである。これからのコンピュータの能力の発展を考えると、その重要性は著しく大きくなっていく。

以上のことから、オージェの表面分析における画像処理技術と関連する基礎的な事項についてまとめた。

なお、本文に用いた写真を出力するにあたり、アルバック・ファイ(株) T. Smith 氏と木村一朗君にご協力いただいた。

文 献

- 1) P. M. Palmberg, G. K. Bohn and J. C. Tracy: Appl. Phys. Lett. **15**, 254 (1969).
- 2) N. C. MacDonald: "Electron Microscopy; Physical Aspects" (Wiley, 1974).
- 3) C. T. Hovland and W. C. Johnson: Application of the 595 Multiprobe (Perkin Elmer).
- 4) P. E. Luscher and K. C. Raychiv: Characterization of VLSI Metallization and Process High Resolution Scanning Auger Microscopy: 29th National Sample Symposium (1984).
- 5) R. L. Gerlach: Electron Microscopy Analysis, **3**, 210 (1980).
- 6) M. Ono, H. Shimizu and K. Nakayama: Japan J. Appl. Phys. Suppl. 2, Pt. 1, 359 (1974).
- 7) S. P. Clough: The PHI Interface **6**, No. 1, 7 (1983).
- 8) PRODUCT BULLETIN-Physical Electronics Industries, Inc. 6-15-76-7601 (1976).
- 9) 一村信吾, 志水隆一: 真空 **25**, 645 (1982).
- 10) R. L. Gerlach: Electron Optical System (p. 201 SEM Inc., AMF O'Hare Chicago), IL 60666-0507, USA.