

Synthèse de filtres locaux pour la déconvolution des spectres de perte d'énergie des électrons

David BRIE¹, Christian HEINRICH¹, Nathalie BOZZOLO²

¹CRAN CNRS ESA 7039 Université Henri Poincaré, B.P. 239, 54506 Vandœuvre Cedex, (France)

²LETAM CNRS UMR 7078, Université de Metz, Ile du Saulcy, 57045 Metz Cedex (France)

david.brie@cran.uhp-nancy.fr, christian.heinrich@cran.uhp-nancy.fr,
bozzolo@letam.sciences.univ-metz.fr

Résumé – Dans cet article, on propose une nouvelle approche pour la déconvolution des spectres de perte d'énergie des électrons qui est une technique de caractérisation des matériaux. Cette approche repose sur l'utilisation de filtres locaux dont la largeur de bande évolue en fonction des caractéristiques locales (non-stationnaires) du signal à restaurer. La synthèse du filtre se fait au moyen de trois paramètres dont les valeurs optimales sont déterminées par optimisation d'un critère composite. Les performances de cette approche sont illustrées sur un exemple.

Abstract – This article proposes a new approach to the deconvolution of Electron Energy Loss Spectra, used for material characterization. This approach is based on local filters with varying bandwidth, adapted to the local (non-stationary) characteristics of the signal to restore. The local filter synthesis is achieved by means of three parameters determined by optimizing a compound criterion. The effectiveness of this approach is shown on an example.

1 Introduction

La spectroscopie de perte d'énergie des électrons (EELS : *Electron Energy Loss Spectroscopy*) est une technique de caractérisation des matériaux qui permet d'obtenir des informations concernant par exemple la composition chimique de l'échantillon ou ses propriétés électroniques. Outre la distorsion introduite par l'instrument, l'interprétation des spectres EELS est compliquée par les phénomènes de diffusions multiples [3]. L'objectif de la déconvolution EELS est de supprimer les effets de ces deux phénomènes (diffusion multiple, réponse de l'instrument). Les approches classiques de la déconvolution EELS [3, 1] admettent une interprétation en terme de filtrage linéaire invariant, et par suite peuvent s'implanter de façon efficace. Elles souffrent cependant des défauts inhérents au caractère global (isotrope) des filtres linéaires invariants, notamment l'impossibilité de reconstruire des discontinuités en gardant un niveau de bruit résiduel acceptable. L'idée, à la base de l'approche proposée, est de remplacer l'opération de filtrage linéaire invariant par un filtrage linéaire variant (local) adapté aux caractéristiques du signal à restaurer.

2 Modélisation du problème direct

2.1 Le spectre de perte d'énergie

Typiquement, un spectre EELS [3] se décompose en trois parties :

Pic sans perte (réponse de l'instrument) : le pic le plus intense du spectre, centré sur 0, est représentatif des électrons incidents qui n'ont subi aucune interaction avec la matière.

Région des basses pertes d'énergie (BPE) : dans la gamme des pertes d'énergie comprise typiquement entre 0 et 100 eV se situe la région dite des basses pertes d'énergie. Cette gamme de perte d'énergie est représentative des interactions avec les électrons des couches de valence.

Région des seuils d'ionisation à haute perte d'énergie (HPE) : au-delà de 100 eV se situe la région des seuils d'ionisation qui est principalement représentative des interactions avec les électrons des couches internes.

Du point de vue du traitement, ce sont les seuils d'ionisation qui offrent les plus grandes difficultés puisqu'ils se présentent sous la forme de fronts abrupts (créneaux) auxquels se superposent des pics d'amplitudes et largeurs très variables (voir figure 2).

2.2 Modèle du spectre EELS

Soit $Z(E)$ le pic sans perte d'intensité $I_0 = \int Z(E)dE$ où E représente la perte d'énergie. Si on suppose que les différents phénomènes de diffusion sont indépendants les uns des autres, un modèle du spectre EELS mesuré, noté $J(E)$, est donné par [3] :

$$J(E) = Z(E) \star \left\{ \delta(E) + \frac{S(E)}{I_0} + \frac{S(E) \star S(E)}{2! I_0^2} + \frac{S(E) \star S(E) \star S(E)}{3! I_0^3} + \dots \right\}, \quad (1)$$

où $S(E)$ représente le spectre de diffusion simple qui est le signal que l'on désire estimer. En notant $j(\omega), s(\omega), z(\omega)$ les transformées de Fourier de $J(E), S(E), Z(E)$, la transformée de Fourier de l'équation 1 s'écrit :

$$j(\omega) = z(\omega) \exp\left(\frac{s(\omega)}{I_0}\right). \quad (2)$$

Compte-tenu des propriétés de la *self-convolution* (convolution d'un signal avec lui-même), une bonne approximation du spectre dans les hautes pertes d'énergie est donnée par [3] :

$$J_{HPE}(E) \simeq J_{BPE}(E) \star S_{HPE}(E), \quad (3)$$

où $J_{HPE}(E)$ et $S_{HPE}(E)$ représentent le spectre EELS et le signal de diffusion simple dans les hautes pertes d'énergie et $J_{BPE}(E)$ correspond au spectre EELS dans les basses pertes d'énergie.

3 Approches classiques de la déconvolution EELS

Les approches classiques de la déconvolution EELS [3, 1] reposent sur l'utilisation de filtres passe-bas pour régulariser la solution. Ainsi pour la déconvolution des seuils d'ionisation à haute perte d'énergie, l'utilisation du modèle (3) conduit à la solution :

$$S_{HPE}(E) = \mathcal{F}^{-1} \left\{ h(\omega) \frac{j_{HPE}(\omega)}{j_{BPE}(\omega)} \right\}. \quad (4)$$

De même, pour la déconvolution des spectres EELS dans les basses pertes d'énergie, et compte-tenu du modèle (2), la solution est donnée par :

$$\frac{S(E)}{I_0} = \mathcal{F}^{-1} \left\{ h(\omega) \log \left(\frac{j(\omega)}{z(\omega)} \right) \right\}. \quad (5)$$

Une solution alternative est donnée par [1] :

$$\frac{S(E)}{I_0} = \mathcal{F}^{-1} \left\{ \log \left(1 + h(\omega) \frac{j(\omega) - z(\omega)}{z(\omega)} \right) \right\}. \quad (6)$$

Dans tous les cas, $h(\omega)$ est un filtre passe-bas, choisi de façon à gérer au mieux le compromis résolution / amplification du bruit.

4 Une approche par filtrage local

La principale limitation des approches classiques provient de l'utilisation d'un filtre qualifié de global, dans le sens où la fonction de lissage est la même quelque soit la zone du signal considéré. L'idée à la base de l'approche proposée est d'adapter le filtre de lissage aux caractéristiques non-stationnaires du signal à restaurer. Typiquement, la largeur de bande du filtre doit être importante dans les zones où le signal a une forte dynamique et plus faible dans les zones peu dynamiques. Ce faisant, on est naturellement amené à envisager l'utilisation de filtres linéaires variant que l'on désigne par filtre locaux¹. Intuitivement, ce point de vue peut s'apparenter à celui qui consiste à introduire des *variables cachées* [2] dans une approche bayésienne (voir par exemple [4]).

¹ La dénomination classique d'un tel filtre est linéaire variant dans le temps. Cependant, dans le contexte de la déconvolution EELS, la variable d'évolution n'est pas le temps mais la perte d'énergie. C'est ce qui nous a amené à le désigner sous le terme de filtre local.

4.1 Filtres locaux

Un filtre local est entièrement caractérisé par la donnée de sa réponse impulsionnelle $H(E, E')$, représentant la réponse du filtre à la perte d'énergie E à une impulsion centrée sur E' . Cette réponse impulsionnelle étant supposée connue, la réponse à une excitation quelconque est donnée par la relation d'entrée/sortie généralisée :

$$Y(E) = \int H(E, E - E') X(E') dE'. \quad (7)$$

On définit également la réponse fréquentielle locale comme :

$$h(E, \omega) = \mathcal{F}_{E' \rightarrow \omega} \{ H(E, E') \} = \int H(E, E') e^{-j\omega E'} dE', \quad (8)$$

dont on déduit :

$$\begin{aligned} Y(E) &= \iint h(E, \omega) X(E') e^{j\omega(E-E')} d\omega dE' \\ &= \int h(E, \omega) x(\omega) e^{j\omega E} d\omega. \end{aligned} \quad (9)$$

4.2 Déconvolution EELS par filtrage local

On note $S(E)$ le signal restauré par filtrage local. Pour les hautes pertes d'énergie, l'équivalent de la méthode (4) est :

$$S_{HPE}(E) = \int h(E, \omega) \frac{j_{HPE}(\omega)}{j_{BPE}(\omega)} e^{j\omega E} d\omega. \quad (10)$$

Pour les basses pertes d'énergie, l'équivalent de la méthode (5) est :

$$\frac{S(E)}{I_0} = \int h(E, \omega) \log \left(\frac{j(\omega)}{z(\omega)} \right) e^{j\omega E} d\omega, \quad (11)$$

tandis que l'équivalent de la méthode (6) est :

$$\frac{S(E)}{I_0} = \int \log \left(1 + h(E, \omega) \frac{j(\omega) - z(\omega)}{z(\omega)} \right) e^{j\omega E} d\omega. \quad (12)$$

5 Synthèse du filtre local de déconvolution

Pour la synthèse du filtre local de déconvolution, nous adoptons un point de vue non-stationnaire. Typiquement, l'idée consiste à considérer un filtre passe-bas gaussien dont la largeur de bande instantanée est adaptée à celle du signal à restaurer :

$$h(E, \omega) = \exp \left(-\frac{\omega^2}{2\Omega(E)} \right). \quad (13)$$

Dans ce contexte, l'opération de synthèse du filtre local est ramenée au problème de l'estimation de $\Omega(E)$. L'approche proposée est la suivante :

Estimation initiale du signal à restaurer le signal initial, noté $S^0(E)$ est obtenu par filtrage passe-bas global (équations 4, 5 ou 6).

Estimation de $\Omega(E)$: la quantité $\left|\frac{d}{dE}S^0(E)\right|^2$ est proportionnelle à la largeur de bande instantanée du signal $S_0(E)$. Elle peut donc être interprétée comme un estimateur très imparfait de la largeur de bande du signal à restaurer. Pour compenser les imperfections de cet estimateur, la largeur de bande est estimée selon :

$$\Omega(E) = \alpha \left(1 + \beta \left| \frac{d}{dE}S^0(E) \right|^2 \right)^\gamma, \quad (14)$$

où α , β et γ sont les paramètres de synthèse qui permettent de modifier la forme de $\Omega(E)$. Le filtre local et, par suite, le signal restauré par filtrage local, sont des fonctions de ces paramètres, notées respectivement $h_{\alpha,\beta,\gamma}(E,\omega)$ et $S_{\alpha,\beta,\gamma}(E)$.

Valeurs optimales de α , β et γ : soit le critère :

$$\mathcal{C} \{S_{\alpha,\beta,\gamma}(E)\} = \mathcal{Q} \{S_{\alpha,\beta,\gamma}(E)\} + \lambda \mathcal{R} \{S_{\alpha,\beta,\gamma}(E)\}. \quad (15)$$

On définit alors les valeurs optimales de α , β et γ et par suite, l'estimateur optimal du signal $S(E)$ selon :

$$\hat{S}_{\alpha,\beta,\gamma}(E) = \underset{\alpha,\beta,\gamma}{\operatorname{argmin}} \mathcal{C} \{S_{\alpha,\beta,\gamma}(E)\}. \quad (16)$$

5.1 Construction du critère

Le critère $\mathcal{C} \{S_{\alpha,\beta,\gamma}(E)\}$ est un critère composite, la valeur de λ permettant de régler le poids relatif de chacun des deux termes du critère :

- le premier terme du critère $\mathcal{Q} \{S_{\alpha,\beta,\gamma}(E)\}$ est une mesure d'adéquation aux données :

$$\mathcal{Q} \{S_{\alpha,\beta,\gamma}(E)\} = \int |J(E) - J_{\alpha,\beta,\gamma}(E)|^2 dE, \quad (17)$$

où $J_{\alpha,\beta,\gamma}(E)$ correspond au spectre EELS estimé selon les modèles (1) ou (3) avec $S(E) = S_{\alpha,\beta,\gamma}(E)$;

- le second terme est un terme de régularisation :

$$\mathcal{R} \{S_{\alpha,\beta,\gamma}(E)\} = \int \Psi(|\mathcal{D}S_{\alpha,\beta,\gamma}(E)|) dE. \quad (18)$$

Les choix de la fonction de régularisation $\Psi(\cdot)$ et de l'opérateur différentiel \mathcal{D} doivent être faits en fonction des connaissances *a priori* disponibles sur le signal à restaurer. L'opérateur différentiel est généralement de la forme $\mathcal{D} = \frac{d^n}{dE^n}$ et l'ordre de dérivation est choisi en fonction du signal à restaurer. Typiquement, un opérateur de dérivation d'ordre n est adapté à la reconstruction d'un signal dont la dérivée $n^{\text{ième}}$ est nulle (dérivée première pour un signal constant par morceaux, dérivée seconde pour un signal affine par morceaux,...). Le choix de la fonction de régularisation $\Psi(\cdot)$ est également crucial [5]. Pour fixer les idées, on considère le cas de la restauration d'un signal constant par morceaux, pour lequel l'opérateur différentiel adapté est la dérivation simple. Si l'on choisit $\Psi(t) = t^2$, qui correspond à une fonction de régularisation quadratique classique, les fortes valeurs de la dérivée auront un coût élevé ce qui interdit la reconstruction de ruptures franches. L'obtention de ruptures franches impose de choisir une fonction de régularisation qui pénalise beaucoup moins les fortes valeurs de la dérivée. Elle doit être minimum en 0

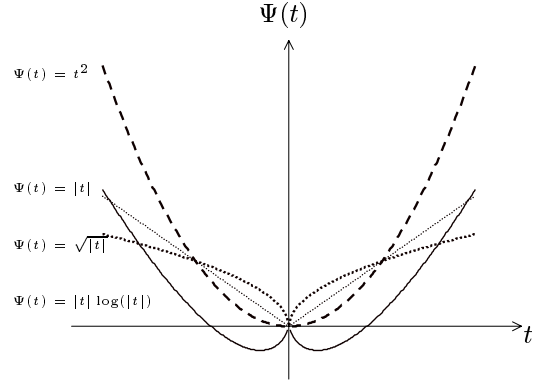


FIG. 1: Différentes fonctions de régularisation.

pour que les segments plats (constants) aient un coût minimal. A ce titre, la fonction $\Psi(t) = |t| \log(|t|)$ est mal adaptée puisque son minimum n'est pas en 0. Le comportement du critère autour de 0 va pour sa part conditionner l'allure de la solution dans les zones non dynamiques. Ainsi, $\Psi(t) = t^2$ est minimum en 0 ce qui stipule que les segments plats ont un coût nul. Cependant la tangente est faible au voisinage de 0, ce qui se traduit par un coût faible des petites variations du signal à restaurer. La reconstruction du signal constant par morceaux impose donc de choisir une fonction de régularisation qui :

- pénalise faiblement les fortes valeurs de la dérivée, ceci afin de restituer les contours ;
- soit minimale en 0, mais qui ait une dérivée forte afin de restituer des segments plats autour de 0.

De ce point de vue, c'est la fonction $\Psi(t) = \sqrt{|t|}$ qui, parmi les quatre fonctions représentées sur la figure 1 et pour le cas considéré, est la mieux adaptée.

5.2 Minimisation du critère

L'estimation des valeurs optimales de α , β et γ selon (16) impose de disposer d'un algorithme de minimisation du critère. Nous n'avons pas obtenu de forme explicite du gradient du critère, ce qui conduit à envisager une méthode ne nécessitant pas de calcul du gradient. Une possibilité est d'utiliser un algorithme de Nelder et Mead [6], procédure qui, compte-tenu du faible nombre (3) de paramètres à estimer, reste d'un coût de calcul raisonnable en étant toutefois sous-optimale puisqu'elle ne garantit pas d'atteindre le minimum du critère. D'autres procédures peuvent également être employées (algorithmes stochastiques d'optimisation) ; ce point n'a cependant pas été étudié plus en détail.

6 Résultats expérimentaux

Les résultats présentés ont été obtenus sur le spectre EELS d'un échantillon de nickel pur d'épaisseur $\frac{t}{\mu} = 1.4$ (t est l'épaisseur de l'échantillon et μ le libre parcours moyen). Le signal considéré (voir figure 2, courbe 1) montre les seuils L_1 (1010 eV), L_2 (872 eV) et L_3 (854 eV) du nickel [7]. Compte-tenu de l'épaisseur de l'échantillon, l'effet des diffusions multiples est assez important : atténu-

ation du seuil L_2 , réhaussement de la valeur moyenne du spectre EELS au-delà de 880 eV, seuil L_1 presque invisible. La courbe 2 de la figure 2 montre le spectre déconvolué par la méthode d'Egerton. Cette approche permet effectivement d'atténuer l'effet des diffusions multiples et rend le seuil L_2 plus visible. Cependant le gain en résolution est faible. Il subsiste cependant dans les zones peu dynamiques des fluctuations résiduelles qui rendent l'interprétation du spectre délicate, notamment dans la zone du seuil L_1 . Les courbes 3 et 4 montrent les spectres déconvolués par filtrage local pour différentes valeurs de λ dans le critère (15) ($\lambda = 20$ pour la courbe 3, $\lambda = 10$ pour la courbe 4), la fonction de régularisation étant dans les deux cas $\Psi(t) = \sqrt{|t|}$. Il apparaît que l'approche par filtrage local permet d'avoir simultanément une meilleure résolution dynamique et des fluctuations résiduelles plus faibles (le seuil L_1 est notamment plus facile à mettre en évidence). La comparaison des courbes 3 et 4 montre que l'influence du coefficient de régularisation λ dans le critère (15) est conforme à ce que prévoit la théorie : plus λ est élevé, plus le lissage est important.

La figure 3 montre l'allure du critère (15) ($\Psi(t) = \sqrt{|t|}$, $\lambda = 10$) autour des valeurs optimales de α, β et γ fournies par l'algorithme de Nelder et Mead. On peut notamment remarquer la présence de minima locaux autour du minimum global qui correspond à la solution fournie par l'algorithme de Nelder et Mead. La procédure d'optimisation a été mise en oeuvre en changeant la valeur initiale des paramètres α, β et γ ; dans tous les cas elle a convergé vers les mêmes valeurs de α, β et γ , ce qui laisse supposer qu'il s'agit effectivement du minimum global du critère.

7 Conclusion

Dans cet article, une approche pour la synthèse de filtre locaux appliquée à la déconvolution EELS a été proposée. Elle repose sur l'adoption d'un point de vue non-stationnaire au sens où le filtre local à une largeur de bande variable adaptée au signal à restaurer. La construction effective du filtre consiste à déterminer les trois paramètres de synthèse qui minimisent un critère composite formé d'une mesure d'adéquation aux données et d'un terme de régularisation permettant de prendre en compte des connaissances *a priori* sur le signal à reconstruire. L'efficacité de cette approche a été illustrée sur un spectre EELS correspondant aux seuils L_1, L_2 et L_3 d'un échantillon de nickel.

Références

- [1] D. Brie, N. Bozzolo et P. Wahlbring. Déconvolution des spectres de perte d'énergie des électrons. *Actes du dix-septième colloque GRETSI*, Vannes, pp. 1165–1168, 1999.
- [2] G. Demoment et J. Idier. *Chapitre III : Approche bayésienne pour la résolution des problèmes inverses en imagerie*. ARAGO, vol. 22, OFTA, TEC & DOC édition, pp. 59–77, 1999.

- [3] R. F. Egerton. *Electron Energy Loss Spectroscopy in the Electron Microscope*. Plenum Press, 1986.
- [4] S. Geman and D. Geman. Stochastic relaxation, Gibbs distributions and the Bayesian restoration of images. *IEEE Trans. on Pattern Analysis and Machine Intelligence*, vol. 7, pp. 721–741, 1984.
- [5] D. Geman and G. Reynolds. Constrained restoration and the recovery of discontinuities. *IEEE Trans. on Pattern Analysis and Machine Intelligence*, vol. 14, pp. 367–383, 1992.
- [6] W. H. Press, S. A. Teukolsky, W. T. Vetterling et B. P. Flannery. *Numerical recipes in C* Cambridge University Press, 1992.
- [7] L. Reimer, U. Zepke, J. Moesch, S. Schulze-Hillert, M. Ross-Messemer, W. Probst and E. Weimer. *EELSpectroscopy. A Reference Handbook of Standard Data for Identification and Interpretation of Electron Energy Loss Spectra and for Generation of Electron Spectroscopic Images*. Zeiss, Oberkochen 1992.

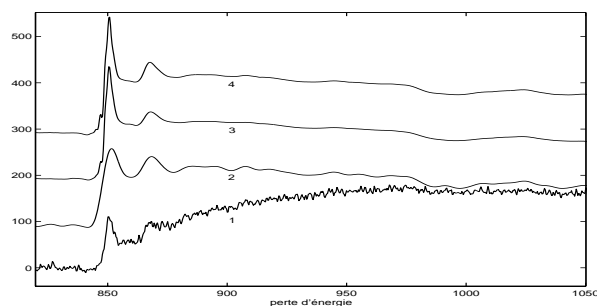


FIG. 2: Un exemple de déconvolution EELS. Pour améliorer la lisibilité de la figure, les courbes ont été décalées d'une valeur constante. La courbe 1 correspond au spectre EELS brut, la courbe 2 au spectre déconvolué par la méthode d'Egerton, les courbes 3 et 4 aux spectres déconvolués par filtrage local.

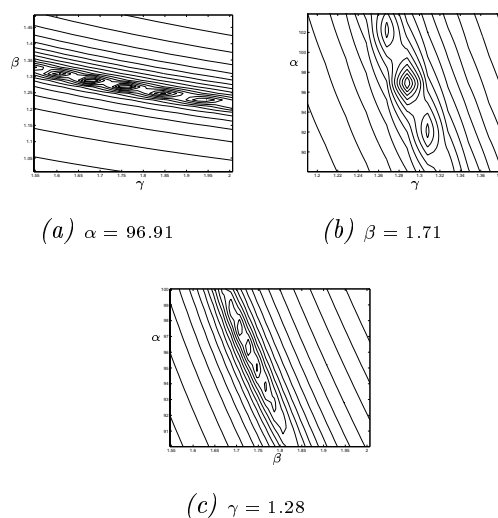


FIG. 3: Allure du critère autour du minimum global.