

令和 4 年 6 月 6 日現在

機関番号：17102
研究種目：基盤研究(B) (一般)
研究期間：2019～2021
課題番号：19H02029
研究課題名(和文) 透過電子顕微鏡中その場変形三次元観察法による金属組織塑性変形挙動定量評価の確立

研究課題名(英文) in-situ 3D transmission electron microscopy toward quantitative deformation structure characterization

研究代表者
村山 光宏 (MURAYAMA, Mitsuhiro)
九州大学・先端物質化学研究所・教授

研究者番号：90354282
交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,800,000円

研究成果の概要(和文)：本研究において当初掲げた研究目標3つは、全てを期間内に達成することができた。その成果として査読あり論文7報(全て英文誌)が掲載され、2報が査読中である。この内1報はthe top 100 downloaded materials science papers for Scientific Reports in 2021としてSpringer Natureより表彰された。さらに、本研究と内容が密接に関係する原著論文・解説が計5報、Nature Materialsなどに掲載された。内1報はBCSJ論文賞を受賞した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、材料に力を加えた時に生じる変形を司るメカニズムがナノスケールではどのような現象として捉えられるのか、さらに、全く異なる現象として認識されている柔らかい(延性)材料と硬い(脆性)材料における変形のメカニズムには類似点がないのか、を最先端の電子顕微鏡法を用いてリアルタイムで直視観察する手法を開発し、実験的に検証することを行った。ここで得られた知見は、省エネルギー社会を目指すための先端機能や安心・安全な社会基盤を目指す構造材料の開発指導原理発見に有用な解析技術として、他の長期大型プロジェクトですでに活用されているなど、学問的な有用性がある。

研究成果の概要(英文)：All primary objectives of this research have been successfully archived. We have published 7 peer-reviewed papers in international journals (one was recognized as "the top 100 downloaded materials science papers for Scientific Reports in 2021"), and two manuscripts are currently under review. In addition 5 closely related papers and reviews have been published in various journals including Nature materials; one original research article won the 2020 BCSJ paper award. The techniques being developed throughout this project are found to be useful in several large, long-term research projects related to advanced functional and structural materials development toward energy sustainably society as well as maintaining social infrastructure. The PI of this research has been participating some of these projects.

研究分野：ナノスケール計測・解析

キーワード：ナノスケール計測・解析 構造用金属材料 透過型電子顕微鏡法 その場観察

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

金属材料の力学特性は、従来の転位論の枠組みに基づく理解から、京都大学の田中功教授、辻伸泰教授らが提唱する変形子(プラストン)によって拡張されたより統一的な理論に基づく理解へと進みつつある。そのため、転位を含む変形子の観察は依然として材料科学・工学の場に興味深い知見を与え、変形子の直接観察を得意とする電子顕微鏡法は今後も金属材料の力学特性と基礎的な変形機構の理解に有益である一方、その場観察手法は動画記録が主な実験結果となることから高速高解像度デジタル記録が可能となったごく近年までは、画質(空間分解能)と時間分解能を両立させることが極めて困難であることから結果の定量性に乏しく、また、特殊形状の試料や試料ホルダーを必要とするなどの理由から組織観察と同時に化学組成や内部歪みを測定するといった静的観察では当たり前に行われてきた計測手法の組合せを行うことが比較的困難であった。

2. 研究の目的

その場観察手法を多次元化でき、また透過電子顕微鏡法の特徴であるイメージングや組成分析の組み合わせを行うことができれば、その場観察の結果を定量化、多層化することが可能になり、全く異なった現象として認識されている塑性変形現象における素過程の類似性と相違性を実験的に明らかにすることに大きく寄与すると考えらる。

そこで本研究では、申請者らによって最近開発されたナノスケールその場変形イメージング法を基に、その場観察手法の多次元化・多層化を確立させ、これを用いて金属材料の塑性変形中に生じる微細組織構造変化の素過程を追跡し、変形子(プラストン)を基礎としたより統一的な理論構築に通じる実験的な知見を得ることを目的とする。

3. 研究の方法

本研究は以下の3つの段階

(1) 鉄鋼、非鉄合金を含む実用金属材料の塑性変形から破断いたる組織変化のTEM中その場観察を実現するための試料作製・固定技術を確立する。具体的には、TEM内での観察と変形が可能な薄膜試料の形状調整から、専用試料ホルダーへの固定、更には荷重負荷に至るまでの一連のプロセスを、多次元・多層化その場観察に最適化していく。

(2) 結晶粒径が変形機構の支配因子の一つとなることを実験的に証明するため、サブミクロンサイズの結晶粒径をもつオーステナイト鋼の変形・破断過程における微細組織変化を観察する。超微細粒材の場合は粒内にin-grownのフランク・リード源があったとしてもその長さが短く、転位発生に必要な応力が粗大粒に比べて大きくなるため粒界が転位源として活動しても不思議はないはずである。また、超微細粒材の場合は双晶変形を起こす場合でも粒界から変形双晶が核生成しているのではないかと考えられる。従来、結晶粒径が小さくなると変形双晶は生じにくくなるとされてきたが、サブミクロンまで微細にするとそれが変わると可能性もあり、さらにこの主変形機構の変化に歪み速度等依存性が見られるかなど、その場観察でこそ得られるユニークな知見を基に変形・破断素過程の理解を深める。

(3) 電子線エネルギー損失分光(EELS)スペクトルの低エネルギー側に見られるこの体積プラズモン損失のピークエネルギー値と材料の弾性率、剛性率などの力学特性値が極めて良い相関を示すことを申請者等は実験およびデータマイニングに基づく文献値の統計処理との比較から明らかにしている。この手法をその場観察と組み合わせ、例えば破壊クラックの進展中に、時効析出相や介在物などの応力負荷下での力学特性値の変化や結晶粒の破碎に伴う母相の力学特性値の変化を評価することを目指す。ここでは、電子線回折パターン解析による結晶構造および歪み分布を加え、微細組織と力学特性値の変化を包括的に捉えることを目標とする。

4. 研究成果

本研究において当初掲げた研究目標3つは、全てを期間内に達成することができた。その成果として査読あり論文7報(全て英文誌)が掲載され、2報が査読中である。この内1報はthe top 100 downloaded materials science papers for Scientific Reports in 2021としてSpringer Natureより表彰された。さらに、本研究と内容が密接に関係する原著論文・解説が計5報、Nature Materialsなどに掲載された。内1報はBCSJ論文賞を受賞した。

本研究では、材料に力を加えた時に生じる変形を司るメカニズムがナノスケールではどのよう

な現象として捉えられるのか、さらに、全く異なる現象として認識されている柔らかい(延性)材料と硬い(脆性)材料における変形のメカニズムには類似点がないのか、を最先端の電子顕微鏡法を用いてリアルタイムで直視観察する手法を開発し、実験的に検証することを行った。ここで得られた知見は、省エネルギー社会を目指すための先端機能や安心・安全な社会基盤を目指す構造材料の開発指導原理発見に有用な解析技術として、他の長期大型プロジェクトですでに活用されているなど、学問的な有用性がある。

本研究の直接成果

1. K. Sasaki, M. Muramatsu, K. Hirayama, K. Endo and M. Murayama, “Nanoscale Defect Evaluation Framework Combining Real-Time Transmission Electron Microscopy and Integrated Machine Learning-Particle Filter Estimation”, Scientific Reports, 2022, in press.”
2. Chang-Yu Hung, Tomotsugu Shimokawa, Yu Bai, Nobuhiro Tsuji, Mitsuhiro Murayama, “Investigating the role of $\Sigma\{111\}$ twin boundary during deformation twin nucleation process in an ultrafine-grained high-manganese steel”, Scientific Reports, 11, (2021) 19298. 【被引用回数 10】
3. Chang-Yu Hung, Yu Bai, Tomotsugu Shimokawa, Nobuhiro Tsuji, and Mitsuhiro Murayama, “A Correlation Between Grain Boundary Character and Deformation Twin Nucleation Mechanism in Coarse-grained High-Mn Austenitic Steel”, Scientific Reports, 11, (2021) 8468 **The top 100 downloaded materials science papers for Scientific Reports in 2021** 【被引用回数 12】
4. Yifang Zhao, Suguru Koike, Rikuto Nakama, Shiro Ihara, Masatoshi Mitsuhashi, Mitsuhiro Murayama, Satoshi Hata, Hikaru Saito, “Five-second STEM dislocation tomography for 300 nm thick specimen assisted by deep-learning-based noise filtering”, Scientific Reports, 11, (2021)20720.
5. Yongpeng Tang, Mitsuhiro Murayama, Kaveh Edalati, Qing Wang, Satoshi Iikubo, Takahiro Masuda, Yuji Higo, Yoshinori Tange, Yasuo Ohishi, Masaki Mito, Zenji Horita, “Phase transformations in Al-Ti-Mg powders consolidated by high-pressure torsion: experiments and first-principles calculations”, Journal of Alloys and Compounds 889, (2021) 161815.
6. Chang-Yu Hung, Yu Bai, Nobuhiro Tsuji, Mitsuhiro Murayama, "Grain Size Altering Yielding Mechanisms in Ultrafine Grained High-Mn Austenitic Steel: Advanced TEM Investigations", Journal of Materials Science and Technology, 86, (2021) 192-203.
7. Yu Bai, Hiroki Kitamura, Si Gao, Yanzhong Tian, Nokeun Park, Myeong-heom Park, Hiroki Adachi, Akinobu Shibata, Masugu Sato, Mitsuhiro Murayama, Nobuhiro Tsuji, "Unique transition of yielding mechanism and unexpected activation of deformation twinning in ultrafine grained high-Mn austenitic steel", Scientific Reports 11, (2021) 15870.

以下、本研究と内容が密接に関係する原著論文・解説

8. Masaki Mito, Narimichi Mokutani, Hiroki Tsuji, Yongpeng Tang, Kaname Matsumoto, Mitsuhiro Murayama, and Zenji Horita, “Achieving Superconductivity with Higher T_c in Lightweight Al-Ti-Mg Alloys: Prediction using Machine Learning and Synthesis via High-Pressure Torsion Process”, Journal of Applied Physics 131, (2022) 105903. **Editor's Pick**
9. Steven R. Spurgeon, Colin Ophus, Lewys Jones, Amanda Petford-Long, Sergei V. Kalinin, Matthew J. Olszta, Rafal E. Dunin-Borkowski, Norman Salmon, Khalid Hattar, Wei-Chang D. Yang, Renu Sharma, Yingge Du, Ann Chiramonti, Haimei Zheng, Edgar C. Buck, Libor Kovarik, R. Lee Penn, Dongsheng Li, Xin Zhang, Mitsuhiro Murayama, and Mitra L. Taheri, “Towards Data-Driven Next-Generation Transmission Electron Microscopy”, Nature Materials, 20, (2020) 274-279. 【被引用回数 70】
10. Toshiki Shimizu, Domink Lungerrich, Joshua Stuckner, Mitsuhiro Murayama, Koji Harano, Eiichi Nakamura, “Real-time Video Imaging of Mechanical Motions of a Single Molecular Shuttle with Sub-millisecond Sub-angstrom Precision”, Bulletin of the Chemical Society of Japan, 93, (2020) 1079-1085. **2020 BCSJ Award** 【被引用回数 38】
11. S. Hata, T. Honda, H. Saito, M. Mitsuhashi, T.C. Peterson, M. Murayama, “Electron Tomography: An imaging method for materials deformation dynamics”, Current Opinion in Solid State and Materials Science, 24, (2020) 100850. 【被引用回数 8】
12. Ya-Peng Yu, Hiromitsu Furukawa, Noritaka Horii, Mitsuhiro Murayama, “Assessing

Experimental Parameter Space for Achieving Quantitative Electron Tomography for Nanometer-Scale Plastic Deformation”, Metallurgical and Materials Transactions A, 51, (2020) 20-27.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計12件（うち査読付論文 12件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 5件）

1. 著者名 K. Sasaki, M. Muramatsu, K. Hirayama, K. Endo and M. Murayama	4. 巻 12
2. 論文標題 Nanoscale Defect Evaluation Framework Combining Real-Time Transmission Electron Microscopy and Integrated Machine Learning-Particle Filter Estimation	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 in press
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 オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 Chang-Yu Hung, Tomotsugu Shimokawa, Yu Bai, Nobuhiro Tsuji, Mitsuhiro Murayama	4. 巻 11
2. 論文標題 Investigating the role of Sigma-3{111} twin boundary during deformation twin nucleation process in an ultrafine-grained high-manganese steel	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 19298
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41598-021-98875-z	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 -
1. 著者名 Chang-Yu Hung, Yu Bai, Tomotsugu Shimokawa, Nobuhiro Tsuji, and Mitsuhiro Murayama	4. 巻 11
2. 論文標題 A Correlation Between Grain Boundary Character and Deformation Twin Nucleation Mechanism in Coarse-grained High-Mn Austenitic Steel	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 8468
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41598-021-87811-w	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 -
1. 著者名 Yifang Zhao, Suguru Koike, Rikuto Nakama, Shiro Ihara, Masatoshi Mitsuhashi, Mitsuhiro Murayama, Satoshi Hata, Hikaru Saito	4. 巻 11
2. 論文標題 Five-second STEM dislocation tomography for 300 nm thick specimen assisted by deep-learning-based noise filtering	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 20720
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41598-021-99914-5	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 -

1. 著者名 Yongpeng Tang, Mitsuhiro Murayama, Kaveh Edalati, Qing Wang, Satoshi Iikubo, Takahiro Masuda, Yuji Higo, Yoshinori Tange, Yasuo Ohishi, Masaki Mito, Zenji Horita	4. 巻 889
2. 論文標題 Phase transformations in Al-Ti-Mg powders consolidated by high-pressure torsion: experiments and first-principles calculations	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Alloys and Compounds	6. 最初と最後の頁 161815
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jallcom.2021.161815	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 -

1. 著者名 Chang-Yu Hung, Yu Bai, Nobuhiro Tsuji, Mitsuhiro Murayama	4. 巻 86
2. 論文標題 Grain Size Altering Yielding Mechanisms in Ultrafine Grained High-Mn Austenitic Steel: Advanced TEM Investigations	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Materials Science and Technology	6. 最初と最後の頁 192-203
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jmst.2021.01.031	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 -

1. 著者名 Yu Bai, Hiroki Kitamura, Si Gao, Yanzhong Tian, Nokeun Park, Myeong-heom Park, Hiroki Adachi, Akinobu Shibata, Masugu Sato, Mitsuhiro Murayama, Nobuhiro Tsuji	4. 巻 11
2. 論文標題 Unique transition of yielding mechanism and unexpected activation of deformation twinning in ultrafine grained high-Mn austenitic steel	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 15870
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-021-94800-6	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 -

1. 著者名 Masaki Mito, Narimichi Mokutani, Hiroki Tsuji, Yongpeng Tang, Kaname Matsumoto, Mitsuhiro Murayama, and Zenji Horita	4. 巻 131
2. 論文標題 Achieving Superconductivity with Higher Tc in Lightweight Al-Ti-Mg Alloys: Prediction using Machine Learning and Synthesis via High-Pressure Torsion Process	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 105903
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0086694	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 -

1. 著者名 S.R. Spurgeon, C. Ophus, L. Jones, A. Petford-Long, S.V. Kalinin, M.J. Olszta, R.E. Dunin-Borkowski, N. Salmon, K. Hattar, W.-C. D. Yang, Renu Sharma, Y. Du, A. Chiamonti, H. Zheng, E.C. Buck, L. Kovarik, R. Lee Penn, D. Li, X. Zhang, M. Murayama, M.L. Taheri	4. 巻 20
2. 論文標題 Towards Data-Driven Next-Generation Transmission Electron Microscopy	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Nature Materials	6. 最初と最後の頁 274-279
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41563-020-00833-z	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 -

1. 著者名 Toshiki Shimizu, Domink Lungerrich, Joshua Stuckner, Mitsuhiro Murayama, Koji Harano, Eiichi Nakamura	4. 巻 93
2. 論文標題 Real-time Video Imaging of Mechanical Motions of a Single Molecular Shuttle with Sub-millisecond Sub-angstrom Precision	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Bulletin of the Chemical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 1079-1085
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/bcsj.20200134	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 -

1. 著者名 S. Hata, T. Honda, H. Saito, M. Mitsuahara, T.C. Peterson, M. Murayama	4. 巻 24
2. 論文標題 Electron Tomography: An imaging method for materials deformation dynamics	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Current Opinion in Solid State and Materials Science	6. 最初と最後の頁 100850
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cossms.2020.100850	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 -

1. 著者名 Ya-Peng Yu, Hiromitsu Furukawa, Noritaka Horii, Mitsuhiro Murayama	4. 巻 51
2. 論文標題 Assessing Experimental Parameter Space for Achieving Quantitative Electron Tomography for Nanometer-Scale Plastic Deformation	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Metallurgical and Materials Transactions A	6. 最初と最後の頁 20-27
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s11661-019-05345-3	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0件

〔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
研究 分担者	波多 聡 (Hata Satoshi) (60264107)	九州大学・総合理工学研究院・教授 (17102)	
研究 分担者	朴 明駿 (Park Myeong-heom) (90803479)	京都大学・構造材料元素戦略研究拠点ユニット・特定助教 (14301)	現所属:京都大学材料工学科 助教

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
---------	---------