

令和 5 年 6 月 8 日現在

機関番号：17102

研究種目：挑戦的研究(萌芽)

研究期間：2020～2022

課題番号：20K21093

研究課題名(和文) その場試料変形電子顕微鏡法と機械学習による転位の自由飛行の動的観察

研究課題名(英文) Dynamic observation of dislocation glide by machine-learning-assisted in-situ electron microscopy

研究代表者

斉藤 光 (Saito, Hikaru)

九州大学・先端物質化学研究所・准教授

研究者番号：50735587

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)：走査透過電子顕微鏡法(STEM)の現在の時間分解能は従来の透過電子顕微鏡法に比べてはるかに低い。高速走査に伴う画像の歪み、信号不足、一方向のぼやけはビデオレート STEM 実現の障害であった。この研究では、STEM 高速画像取得のための深層学習ノイズフィルタと画像歪み補正を開発し、統計的なノイズだけでなく一方向のぼやけも除去できるようにした。開発手法は、厚さ 300 nm の鋼片であっても、わずか 5 秒のデータ取得時間で3次元転位配置を可視化する高速 STEM トモグラフィーを実現した。また、熱活性化転位滑りのビデオレートSTEM観察も実現した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

豊かで安全な生活の追求、継続的な社会インフラの整備には材料開発が欠かせない。材料組織の変形過程をナノスケールで直接観察することが可能になれば、マクロスケールでの材料機能や特性を材料微細組織と結びつけた理解がより進展し、開発速度の飛躍的な向上や新たな開発アプローチのヒントを得ることが期待できる。本開発手法は転位運動だけでなく種々の材料中の動的現象のナノイメージングによる解析に広く応用可能である。また、試料への電子線照射量の大幅な低減を可能とし、電子線に対して耐久力の低いソフトマテリアルや反応性物質、生体の電子顕微鏡解析にも役立つ。

研究成果の概要(英文)：Current temporal resolution of STEM is far below that of conventional TEM. Rapid image acquisition in the millisecond per frame or faster generally causes image distortion, poor electron signals, and unidirectional blurring, which are obstacles for realizing video-rate STEM observation. In this study, we have developed a deep learning (DL)-based denoising and image distortion correction for STEM rapid image acquisition, which can remove not only the statistical noise but also the unidirectional blurring. By using this DL-based denoising method, we have achieved rapid STEM tomography visualizing 3D dislocation arrangement only within five-second acquisition of all the tilt-series images even in a 300 nm thick steel specimen. Video-rate STEM observation of thermally activated dislocation glide was also realized.

研究分野：電子顕微鏡

キーワード：透過電子顕微鏡 転位 その場観察 機械学習 ノイズフィルタリング

1. 研究開始当初の背景

本研究では、結晶材料の塑性変形を担う線状欠陥である転位運動を直接観察可能な高速電子顕微鏡法の開発に取り組んだ。高速カメラの開発等、透過電子顕微鏡 (TEM) の撮像速度は近年飛躍的に向上しており、TEM 内での試料への応力印加や試料加熱を伴ったその場観察例は多数報告されてきた。この背景には TEM 装置自体の発展に加え、MEMS 技術を応用した試料ホルダーの汎用化が進んでいることなどがあり、TEM を用いた材料研究は今後も更に幅広いものになると期待された。TEM 用の高速カメラはミリ秒/フレームの速度に達しており、遅い転位運動であればその動的観察の実現が期待された。しかしながら、どれほどハードウェアが進化しても、試料が許容できる総電子線ドーズ量、または単位時間あたりの電子線ドーズ量には制限があり、撮像速度の向上に伴って1フレームあたりの信号量が減少することは避けられない。ミリ秒時間分解能の動的観察には、極低信号画像から目的の情報を抽出する画像処理技術が必要とされていた。

2. 研究の目的

機械学習を用いた高性能ノイズフィルターを開発し、ミリ秒オーダーでの転位運動観察を可能にし、転位運動ダイナミクスの解明へと繋げることを目的とした。

3. 研究の方法

研究開始当初、高速カメラと組み合わせた TEM により本研究を遂行することを想定していたが、検討を重ねた結果、前例が少ない走査型 TEM (STEM) の高速撮像を可能とする研究開発のほうが、学術的価値が高いと考えた。TEM と比較して STEM は原理的に色収差が少ないため厚い試料の観察に有利であり、動力学的回折効果の影響を軽減しやすく転位観察に有利という面もある。本研究で用いた TEM/STEM 装置 Titan Cubed G2 (Thermo Fisher Scientific 社) では 100 ns/pixel の画素滞留時間で走査可能であり、512 × 512 pixel の画像サイズであれば 30 ミリ秒/フレームの速度で STEM 像が取得できる。このレベルの高速走査で生じる問題点を図 1 に示す。高速 STEM では、信号不足に由来するランダムノイズに加え、走査方向 (図 1 の横方向) に特有のアーティファクトが生じる。ランダムノイズに対しては、同視野で取得された多数枚の像を重ねるという手法で克服できることもあるが、このアーティファクトは積算でも取り除き切れない。非学習型として最高水準のデノイズ性能を有する BM3D を適用してもこのアーティファクトは取り除けなかった。この電子線走査方向へ信号が柵引くアーティファクトは STEM 検出器の応答遅延に起因していると考えられ、現行の STEM 検出器を用いて高速撮像を追求するには不可避の問題である。さらに、高速 STEM 像は図 1 (b) に示すように、非線形像ひずみが生じ、同視野で取得された低速 STEM 像と重ならない。この像ひずみは電子線走査用のコイルの特性に起因していると考えられる。このようなハードウェアの制約から、高速走査で十分な品質の像を得るには、画像処理手法の援用が必須である。

本研究では数 10 ミリ秒/フレームの高速 STEM 像の品質を一般的な秒オーダーのフレーム時間で取得された像 (低速 STEM 像と呼ぶ) の品質に近づけるために、U-net を用いたフィルターを作成した。同視野で取得された高速 STEM 像と低速 STEM 像との間で学習を行った。図 2(b) で示した非線形的な像ひずみの影響しないように、予めひずみ補正を行った上で深層学習を行うことが重要であった。

4. 研究成果

本研究で作成した深層学習フィルターを熱的に誘起された転位運動のその場観察に適用した。20%冷間圧延した多結晶純アルミニウム (A1050) を集束イオンビーム装置 Versa3D (Thermo Fisher Scientific 社) で薄膜化した後に MEMS チップヒーター (Norcada 社) に載せ、加熱ホル

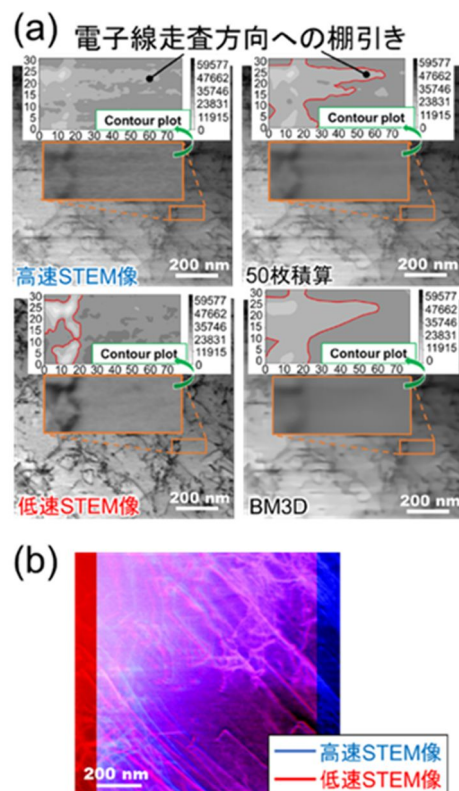


図 1 STEM における高速撮像の問題点 . (a)高速撮像条件下 (100 ns/pixel) における STEM 像, その 50 枚積算像, 低速撮像条件下 (5 μ s/pixel) における STEM 像, および BM3D 処理した高速 STEM 像 . (b)同一視野における高速 STEM 像お

と低速 STEM 像との間で学習を行った。図 2(b) で示した非線形的な像ひずみの影響しないように、予めひずみ補正を行った上で深層学習を行うことが重要であった。

ダー (Melbuid 社) を用いてその場観察を実施した。図 2 に、90 ° -150 ° まで 1 °/s で昇温後、150 ° で一定に保持する過程を 30 ミリ秒/フレームの速度で連続撮像した結果の一部を示す。取得された像に開発した深層学習フィルターを適用すると、転位線が格段に鮮明に観察できることがわかる [1]。

開発された深層学習フィルターは、その場観察の他、電子線トモグラフィーの撮像速度向上にも大きく貢献することがわかった。電子線トモグラフィーでは、試料を連続傾斜させながら複数の角度からの投影像を取得し、その複数枚の像を基に 3 次元像の再構成計算を行う。一般的に連続傾斜像の取得に数分～数十分を要する。本研究では、高速撮像条件下で取得した連続傾斜像に対して深層学習フィルターを適用し、連続傾斜像取得に要する時間の短縮を試みた。様々な角度からの投影像に対してフィルターが機能するため、深層学習には様々な傾斜角度で取得された教師データを用いた。その結果、傾斜角度 -70 ° から 70 ° までの回転移動を 5 秒まで短縮しても、その間に数十枚の高速 STEM 像の取得が可能であり、それらから再構成された 3 次元像は、従来の方法で取得されたデータと遜色ない 3 次元位置決定精度を有することが判明した (図 3) [2]。この 5 秒の取得時間は電子線トモグラフィーとして現世界最短クラスである。これまでに報告されている類似の高速電子線トモグラフィー観察は、ほとんどが高速カメラを用いた TEM モードでの成果であったこと付記する。

本研究では、高速撮像における STEM 特有のノイズや像ひずみといった現状の装置では避けられない問題を、画像処理や深層学習というソフトウェア側から解決を図った。高分子材料や一部の鉱物のような電子線照射に対して脆弱な試料では、電子線照射量を極力抑えて観察することが求められるが、その場合でも同様にノイズの問題は顕在化する。本研究で開発された手法は、本研究で応用された転位の観察だけでなく、様々な観察に応用可能であり、STEM 観察の適用範囲を大きく広げるものと期待できる。

本研究では、高速撮像における STEM 特有のノイズや像ひずみといった現状の装置では避けられない問題を、画像処理や深層学習というソフトウェア側から解決を図った。高分子材料や一部の鉱物のような電子線照射に対して脆弱な試料では、電子線照射量を極力抑えて観察することが求められるが、その場合でも同様にノイズの問題は顕在化する。本研究で開発された手法は、本研究で応用された転位の観察だけでなく、様々な観察に応用可能であり、STEM 観察の適用範囲を大きく広げるものと期待できる。

[1] S. Ihara, H. Saito, M. Yoshinaga, L. Avala and M. Murayama, "Deep learning-based noise filtering toward millisecond order imaging by using scanning transmission electron microscopy," Scientific Reports, vol. 12, 13462 (2022).

[2] Y. Zhao, S. Koike, R. Nakama, S. Ihara, M. Mitsuhashi, M. Murayama, S. Hata and H. Saito, "Five-second STEM dislocation tomography for 300 nm thick specimen assisted by deep-learning-based noise filtering," Scientific Reports, vol.11, 20720 (2021).

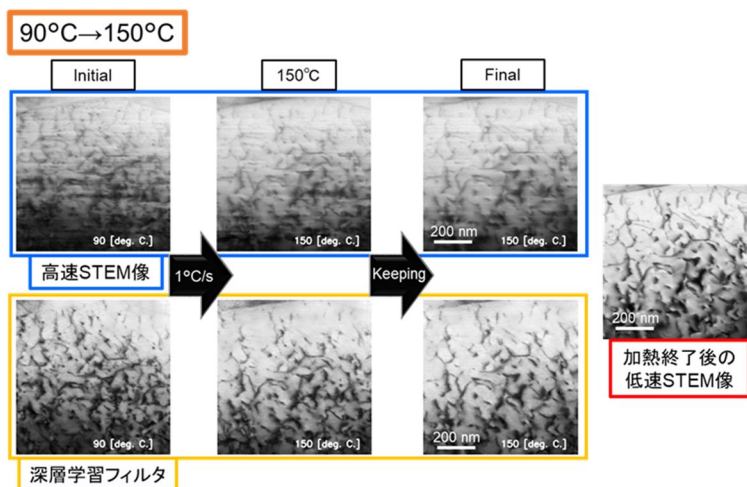


図 2 加熱その場観察における深層学習フィルターの適用結果。フィルター適用前 (上段) よりも適用後 (下段) は鮮明に転位線が観察できる。

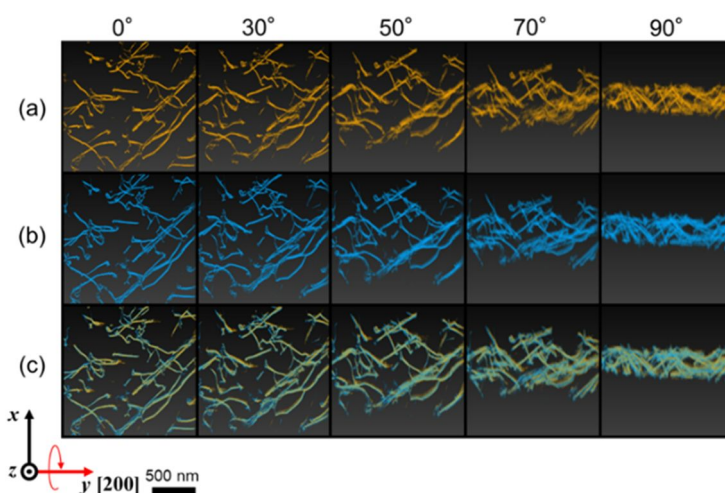


図 3 3 次元再構成結果 . (a)深層学習フィルターを適用した高速 STEM 像による再構成結果 . (b)低速 STEM 像による再構成結果 . (c) (a)と (b)を重ね合わせた結果 .

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 5件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Zhao Yifang, Koike Suguru, Nakama Rikuto, Ihara Shiro, Mitsuhiro Masatoshi, Murayama Mitsuhiro, Hata Satoshi, Saito Hikaru	4. 巻 11
2. 論文標題 Five-second STEM dislocation tomography for 300nm 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 Shiro Ihara, Hikaru Saito, Mizumo Yoshinaga, Lavakumar Avala, Mitsuhiro Murayama	4. 巻 12
2. 論文標題 Deep learning-based noise filtering toward millisecond order imaging by using scanning transmission electron microscopy	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Scientific reports	6. 最初と最後の頁 13462
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41598-022-17360-3	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 波多聡, 趙一方, 井原史朗, 斉藤光, 光原昌寿, 村山光	4. 巻 61
2. 論文標題 TEM/STEM トモグラフィーによる最近の研究	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 まてりあ	6. 最初と最後の頁 84-88
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.2320/materia.61.84	査読の有無 無
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 Avala Lavakumar, Shuhei Yoshida, Jesada Punyafu, Shiro Ihara, Yan Chong, Hikaru Saito, Nobuhiro Tsuji, Mitsuhiro Murayama	4. 巻 230
2. 論文標題 Yield and flow properties of ultra-fine, fine, and coarse grain microstructures of FeCoNi equiatomic alloy at ambient and cryogenic temperatures	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Scripta Materialia	6. 最初と最後の頁 115392
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.scriptamat.2023.115392	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 Norio Baba, Satoshi Hata, Hikaru Saito, Kenji Kaneko	4. 巻 72
2. 論文標題 Three-dimensional electron tomography and recent expansion of its applications in materials science	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Microscopy	6. 最初と最後の頁 111-134
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1093/jmicro/dfac071	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 Jesada Punyafu, Sukyoung Hwang, Shiro Ihara, Hikaru Saito, Nobuhiro Tsuji, Mitsuhiro Murayama	4. 巻 862
2. 論文標題 Microstructural factors dictating the initial plastic deformation behavior of an ultrafinegrained Fe-22Mn-0.6 C TWIP steel	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Materials Science and Engineering: A	6. 最初と最後の頁 144506
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.msea.2022.144506	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4件 (うち招待講演 2件 / うち国際学会 0件)

1. 発表者名 斉藤光、井原史朗、波多聰、村山光宏
2. 発表標題 機械学習支援高速STEMの開発とトモグラフィへの応用
3. 学会等名 日本顕微鏡学会第64回シンポジウム (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 斉藤 光
2. 発表標題 材料熱処理過程のその場トモグラフィ観察手法の開発
3. 学会等名 日本顕微鏡学会 超高分解能顕微鏡法分科会 研究討論会 (招待講演) (招待講演)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 井原史朗、根北翔、加來公子、斉藤光、村山光宏
2. 発表標題 高分子材料のTEM内引張その場観察およびEELSによる破壊状態解析
3. 学会等名 日本物理学会2023年春季大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 井原史朗、斉藤光、木原孝太郎、村山光宏
2. 発表標題 結晶性金属材料におけるき裂進展過程のナノスケール解析
3. 学会等名 日本材料学会第8回材料WEEK
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
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)	

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