

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 13 日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25286027

研究課題名(和文)結晶材料組織解析のための電子線トモグラフィー技術の高度化

研究課題名(英文)Development of electron tomography methods for microstructural analysis in crystalline materials

研究代表者

波多 聡 (Hata, Satoshi)

九州大学・総合理工学研究科(研究院)・教授

研究者番号：60264107

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,300,000円

研究成果の概要(和文)：透過電子顕微鏡(TEM)により結晶の内部ナノ構造を3次元観察するための試料ホルダーシステムおよびソフトウェアを開発した。さらに、強磁性を有する材料について非磁性材料と同様に3次元観察を行う手法を開発した。これらの成果により、多結晶試料中の転位(線状の結晶格子欠陥)などを電子線トモグラフィーにより3次元観察する技術が大きく進歩するとともに、これまで不可能と考えられてきた鉄鋼材料など強磁性体の3次元ナノ構造観察が可能となった。

研究成果の概要(英文)：This project developed new methods of three-dimensional (3D) transmission electron microscopy (TEM) imaging for nanoscale microstructural features in crystalline materials. For example, a newly developed triaxial specimen holder system enables to visualize the 3D geometrical arrangement of dislocations (line-shape structural defects in crystalline grains) in a polycrystalline sample. A method for acquiring a tilt-series dataset from ferromagnetic samples (e.g. ferritic steels) in both TEM and STEM modes was also established.

研究分野：電子顕微鏡、金属材料

キーワード：電子顕微鏡 3次元 電子線トモグラフィー 磁性 試料ホルダー 転位

1. 研究開始当初の背景

透過電子顕微鏡(TEM)による三次元(3D)観察法、電子線トモグラフィー(ET)は、結晶性材料、例えば鉄鋼材料などへの適用が遅れている。これは、TEM内での結晶方位調整の難しさ、試料の形状や磁性に由来した3D画像の取得の制約や像分解能の著しい低下など、種々の課題による。

2. 研究の目的

本研究では、試料形状から試料ホルダー、3D画像再構成アルゴリズムに至るまでに種々の新案を投入し、上記の諸課題を解決することを目的とした。具体的には、(1)結晶方位制御ET観察手法の確立、(2)強磁性体試料のためのET観察手法の確立、および(3)3D画像における試料厚み方向の寸法再現精度の改善を目標とした。

3. 研究の方法

(1)結晶方位制御 ET 観察手法の確立

試料ホルダー上での試料回転角を測るソフトウェアの作成、および任意の角度に試料を回転させることを可能にする 180° 回転試料ホルダー台の製作を行った。

(2)強磁性体試料のための ET 観察手法の確立

試料形状、加速電圧、フォーカス調整法、回折条件調整法など、結晶材料組織の連続傾斜像取得に関わる種々の実験条件が、強磁性体試料からどのような影響を受けるかを実験的に測定し、磁性の影響を回避できる最適条件を求めた。

(3)3D 画像における試料厚み方向の寸法再現精度の改善

圧縮センシングに基づく新規アルゴリズムの有用性を、連続傾斜画像データの 3D 再構成に適用し、画像枚数を減らせる効果の有無を検討した。

4. 研究成果

(1)結晶方位制御ET観察手法の確立

結晶方位制御ET観察に不可欠な試料傾斜軸と回折条件の調整を可能かつ容易にするために、試料ホルダー上での試料回転角を測るソフトウェア、およびホルダー上で任意の角度に試料を回転できる試料ホルダー台を開発し

た。これらを、過去に開発した高傾斜三軸試料ホルダーと組み合わせることにより、試料ステージ上での試料回転角の調整をピンセット作業なしに行えるようになり、作業効率と回折条件設定精度が向上した。例えば、一般的な多結晶金属試料の二波励起条件を得る際に、高傾斜三軸試料ホルダーと従来のホルダー台の組み合わせでは、試料回転角 $\pm 5^\circ$ を超える場合にピンセットによる手動の試料回転角度調整が必要となるため、結果として5回以上、電子顕微鏡外での試料回転角度調整を要した。一方、今回開発した180° 回転機構付き試料ホルダー台と回転角度測定ソフトウェアを高傾斜三軸試料ホルダーに組み合わせると、ピンセットによる手動の試料回転角度調整が不要となるため、最短2回で二波励起条件を整えることができた。

(2)強磁性体試料のためのET観察手法の確立

強磁性体試料でも非磁性試料と同様なET観察が行えるかどうかを検討した。薄膜形状の鉄系試料の場合、試料厚みの低減が有効であった。具体的には、機械研磨で30ミクロンまで薄くすると、連続傾斜観察が可能になるほど磁性の影響が抑えられ、更に試料高さで像のフォーカスを合わせつつ連続傾斜像を撮影すれば、非磁性材料の場合に匹敵する空間分解能で鉄中の析出物の3D観察が可能となった。一方、試料傾斜に伴うナノスケールでの局所的な変形や破損は、試料の体積や厚みを減らしても避けられないことがあり、試料形状アプローチの限界が示された。

(3)3D画像における試料厚み方向の寸法再現精度の改善

フィルター逆投影FBPや逐次反復計算SIRTなどの既存手法と圧縮センシング(CS)による3D再構成法を、金属ナノ粒子のTEM明視野連続傾斜像データに適用し、CSを比較評価した。その結果、FBPの1/10程度の連続傾斜像枚数でもCSでは解析に耐え得る3D再構成画像が得られることや、FBPおよびSIRTに比べて試料傾斜角度不足による3D画像分解能の異方性が低減され、試料厚み方向の寸法再現精度が向上することが明らかとなった。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者に

は下線)

〔雑誌論文〕(計3件)

1. 波多聰、光原昌寿、中島英治、池田賢一、佐藤和久、村山光宏、工藤博幸、宮崎伸介、古河弘光、電子線トモグラフィーによる格子欠陥の三次元観察、日本結晶学会誌、査読有、57、2015、276-287、https://www.jstage.jst.go.jp/article/jcrsj/57/5/57_276/_pdf.
2. S. Hata, K. Sato, M. Murayama, T. Tsuchiyama, H. Nakashima, An experimental protocol development of three-dimensional transmission electron microscopy methods for ferrous alloys: towards quantitative microstructural characterization in three dimensions, ISIJ International, 査読有, 55, 2015, 623-631, DOI: <http://dx.doi.org/10.2355/isijinternational.55.623>.
3. 波多聰、佐藤和久、村山光宏、土山聡宏、中島英治、鉄鋼材料における定量的三次元組織解析手法の検討：電子線トモグラフィーの強磁性材料への適用に向けて、鉄と鋼、査読有、100、2014、73-80、https://www.jstage.jst.go.jp/article/tetsutohagane/100/7/100_889/_pdf.

〔学会発表〕(計23件)

1. 波多聰、吉本健朗、齊藤光、池田賢一、中島英治、強磁性鉄系材料の電子線トモグラフィー観察条件の検討、日本金属学会2016年春期講演大会(第158回)、2016年3月23~25日、東京理科大学葛飾キャンパス(東京都)。
2. 波多聰、電子線トモグラフィーの手法開発と応用崎の開拓に関する最近の取り組み、第1回構造材料関連プロジェクト交流会、2016年3月17日、エッサム神田(東京都)。
3. 波多聰、TEMでナノ組織を3次元観察する方法：電子線トモグラフィー、日本金属学会中国四国支部第124回金属物性研

究会-電子顕微鏡による微細組織解析-、2016年1月13日、香川大学工学部(香川県)。

4. 波多聰、九州大学における3次元電子顕微鏡法の開発、九州大学超高压電子顕微鏡室開設40周年記念講演会、2015年12月19日、九州大学西新プラザ(福岡県)。
5. S. Hata, M. Shimizu, K. Ikeda, H. Nakashima, Electron tomography observation of dislocation morphology near surfaces of Mo(001) thin foils, East-Asia Microscopy Conference (EAMC2), 2015.11.24-27, Himeji (Japan).
6. 波多聰、TEMによる金属表面近傍の欠陥の形態観察、日本顕微鏡学会 様々な極微イメージング技術研究部会 第3回研究会「表面の様々な極微イメージング」、2015年11月23日、志んぐ荘(兵庫県)。
7. 波多聰、山本知一、松村晶、電子線トモグラフィーにおける3次元画像再構成に関連したトピックの紹介～材料系の立場から～、「データ行動科学の新展開」ミニ研究会、2015年10月8日、九州大学伊都キャンパス(福岡県)。
8. 波多聰、ナノ構造解析のための三次元電子顕微鏡法の進展、日本金属学会2015年秋期講演大会(第157回)、2015年10月8日、九州大学伊都キャンパス(福岡県)。
9. S. Hata, Developments in three-dimensional electron microscopy methods for dislocations in crystals, International Conference on Electron Microscopy and XXXVI Annual Meeting of the Electron Microscopy Society of India (EMSI-2015), 2015.7.8-10, Mumbai (India).
10. 波多聰、佐藤和久、村山光宏、中島英治、磁性体のための電子線トモグラフィー

- 観察条件の検討、日本顕微鏡学会第 69 回学術講演会、2013 年 5 月 20～22 日、ホテル阪急エキスポパーク（大阪府）。
11. 波多聰、吉本健朗、秋吉竜太郎、池田賢一、中島英治、鉄系試料の電子線トモグラフィ観察の実際、日本顕微鏡学会第 71 回学術講演会、2015 年 5 月 13～15 日、国立京都国際会館（京都府）。
 12. 吉本健朗、秋吉竜太郎、波多聰、池田賢一、中島英治、強磁性材料の電子線トモグラフィ観察手法の検討、第 56 回日本顕微鏡学会九州支部総会・学術講演会、2014 年 12 月 6 日、宮崎市民プラザ（宮崎県）。
 13. 波多聰、山崎重人、光原昌寿、池田賢一、中島英治、電子線が拓く新しい 3 次元イメージング、平成 26 年度日本結晶学会年会及び総会 物質・鉱物系シンポジウム 量子ビームの拓く新しい 3 次元イメージング、2014 年 11 月 3 日、東京大学本郷キャンパス（東京都）。
 14. 波多聰、清水真、池田賢一、中島英治、金属 Mo の転位の形態に及ぼす結晶界面の影響、日本顕微鏡学会第 70 回記念学術講演会、2014 年 5 月 11～13 日、幕張メッセ国際会議場（千葉県）。
 15. 清水真、波多聰、池田賢一、中島英治、モリブデン双結晶中の転位に及ぼす鏡像力の影響、日本金属学会 2014 年春季講演大会、2014 年 3 月 21 日、東京工業大学大岡山キャンパス（東京都）。
 16. 波多聰、金属材料組織観察のための透過電子顕微鏡観察技法の観察と応用、日本金属学会 2014 年春季講演大会、2014 年 3 月 21 日、東京工業大学大岡山キャンパス（東京都）。
 17. 波多聰、透過電子顕微鏡を用いた 3D/4D 観察の課題、第 167 回春季講演大会 材料と特性部会 鉄鋼ゲノムの解明フォーラム シンポジウム 組織・特性解析における三次元組織利用の展開、2014 年 3 月 21 日、東京工業大学大岡山キャンパス（東京都）。
 18. 波多聰、最近の TEM 技法による金属材料組織の観察事例、第 5 回中性子小角散乱解析法研究会～金属材料への適用に向けた産・学・官の取り組み～、2014 年 3 月 3 日、研究者英語センター（東京都）。
 19. 清水真、波多聰、池田賢一、中島英治、電子線トモグラフィを用いたモリブデン内の転位に働く鏡像力の評価、第 55 回日本顕微鏡学会九州支部学術講演会、2013 年 12 月 14 日、九州大学伊都キャンパス（福岡県）。
 20. S. Hata, Electron tomography observation of microstructure in crystalline materials, International Center for materials research (ICMR) Summer School on Materials in 3D: Modeling and Imaging at Multiple Length Scales, 2013.8.19, Santa Barbara, CA (USA).
 21. S. Hata, K. Sato, M. Murayama, H. Nakashima, Optimise electron tomography observation conditions for ferromagnetic samples: the case of ferritic steel, International Conference on Electron Microscopy Society of India (EMSI), 2013.7.3-5, Kolkata (India).
 22. 吉本健朗、秋吉竜太郎、嶋田雄介、波多聰、池田賢一、中島英治、強磁性材料の透過電子顕微鏡観察における電子線の偏向の測定、日本金属学会九州支部 日本鉄鋼協会九州支部 軽金属学会九州支部共催平成 25 年度合同学術講演大会、2013 年 6 月 8 日、くまもと県民交流館パレア（熊本県）。
 23. 波多聰、宮崎伸介、光原昌寿、木本浩司、池田賢一、中島英治、高傾斜 3 軸試料ホルダーの高機能化、日本顕微鏡学会第 69 回学術講演会、2013 年 5 月 20～22 日、ホテル阪急エキスポパーク（大阪府）。

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計0件)

取得状況(計0件)

〔その他〕

1. 研究代表者ホームページ
<http://www.asem.kyushu-u.ac.jp/qq/q01/top-j.html>

2. 新開発試料ホルダー台関連ホームページ
http://www.melbuild.com/newprouct_HATA_With_Flexa_M3.html

6. 研究組織

(1)研究代表者

波多 聡 (Satoshi HATA)
九州大学・大学院総合理工学研究院・教授
研究者番号：60264107

(2)研究分担者

該当なし

(3)連携研究者

該当なし

(4)研究協力者

吉本 健朗 (Takeru YOSHIMOTO)
九州大学・大学院総合理工学府・修士課程

清水 真 (Makoto SHIMIZU)
九州大学・大学院総合理工学府・修士課程

秋吉 竜太郎 (Ryutaro AKIYOSHI)
九州大学・大学院総合理工学府・博士課程

嶋田 雄介 (Yusuke SHIMADA)
東北大学・金属材料研究所・助教

光原 昌寿 (Masatoshi MITSUHARA)
九州大学・大学院総合理工学研究院・准教授

池田 賢一 (Ken-ichi IKEDA)
北海道大学・大学院工学研究院・准教授

中島 英治 (Hideharu NAKASHIMA)
九州大学・大学院総合理工学研究院・教授

村山 光宏 (Mitsuhiro MURAYAMA)
バージニア工科大学・材料工学科・准教授

株式会社メルビル (Mel-Build)・技術部