



大阪大学
OSAKA UNIVERSITY



筑波大学
University of Tsukuba



九州大学

九州大学広報室
〒819-0395 福岡市西区元岡 744
TEL:092-802-2130 FAX:092-802-2139
MAIL:koho@jimmu.kyushu-u.ac.jp
URL:http://www.kyushu-u.ac.jp

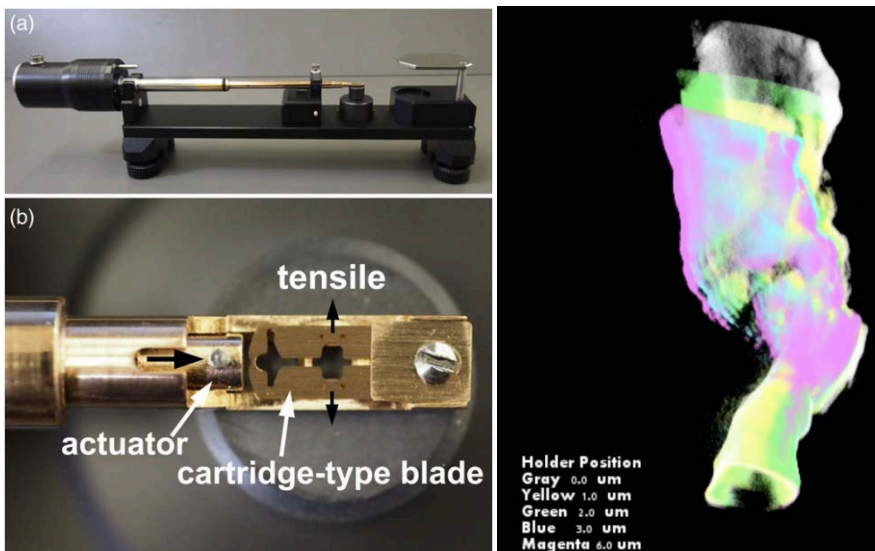
PRESS RELEASE (2016/06/14)

世界初！電子顕微鏡の中で物質のナノスケール塑性変形の三次元観察に成功

九州大学、株式会社システムインフロンティア、大阪大学、筑波大学は、JST 先端計測分析技術・機器開発プログラムの一環として、ナノ（10 億分の 1）メートルスケールで細胞や物質の観察が可能な透過電子顕微鏡（TEM）内で、物質を引張・圧縮変形しながら時系列で三次元画像撮影が行える「その場変形電子線トモグラフィシステム」のプロトタイプを開発しました。2016 年 5 月には、このシステムを使って、株式会社メルビル、バージニア工科大学と共同で、ナノメートル（nm）スケールの金属に力を加えて変形させた塑性変形（元に戻らない変形）の様子を時系列で三次元画像に納めることに成功し、同システムの有効性が実証されました。TEM 内で今回のように不可逆な塑性変形を 3D で直接観察できた前例はありません。

今回開発したイメージング技術は、物質に力を加えて変形を生じさせる時の、nm レベルの構造変化を TEM で三次元観察できることから、先端材料やバイオなど、TEM によるナノ構造解析が活躍する分野での応用が期待されます。今後は、開発技術の洗練と応用事例の蓄積を行います。

本研究成果は、公益社団法人日本顕微鏡学会第 72 回学術講演会（2016 年 6 月 14 日（火）～16 日（木）仙台国際センター）において発表されます。また、研究内容の詳細は別紙のとおりです。



（参考図）左図：電子顕微鏡内で物質を引張りつつ三次元立体観察が行えるその場変形トモグラフィ試料ホルダー（左図(a)）と、試料ステージ部の拡大図（左図(b)）。試料ステージ部の幅は 5 mm。

右図：スズ鉛系はんだ合金の引張に伴う形態変化を三次元立体画像として撮影し、それらを重ねて表示したもの。各色は引張変形量の違いを表している。試料の左右方向の幅は約 1 μm であり、観察領域の各色の位置ずれは 500 nm 以下の微小変形に相当。試料が細くくびれた中央部から上側が大きく変形しており、変形の大きさと方向は試料の場所によって異なることがわかる。記事紹介動画：<https://www.youtube.com/watch?v=Ic7zREgSIMU>

研究者からひとこと：電子顕微鏡の中で動くものを三次元立体観察する技術の開発に、今、国内外の研究者が取り組んでいます。ものをナノスケールで変形させながら三次元立体観察する今回の技術は、精密なものづくりを得意とする日本ならではの技術です。

【お問い合わせ】

九州大学大学院総合理工学研究院／超顕微解析研究センター
教授 波多 聡(はた さとし)

TEL: 092-583-7580 FAX: 092-583-7580

EMAIL: hata.satoshi.207@m.kyushu-u.ac.jp

※問い合わせ先の詳細は別紙を参照。

国立大学法人九州大学
株式会社システムインフロンティア
国立大学法人大阪大学
国立大学法人筑波大学

世界初！電子顕微鏡内でナノスケール塑性変形過程の三次元観察に成功 ～先端材料などに応用可能、変形させながら立体観察できる時系列三次元イメージング～

国立大学法人九州大学（以下、九州大学）、株式会社システムインフロンティア（以下、(株)SIF）、国立大学法人大阪大学（以下、大阪大学）、国立大学法人筑波大学（以下、筑波大学）は、JST 先端計測分析技術・機器開発プログラムの一環として、ナノスケールで細胞や物質の観察が可能な透過電子顕微鏡（TEM）内で試料を引張・圧縮変形しながら時系列で三次元画像撮影が行える「その場変形電子線トモグラフィシステム」のプロトタイプを開発しました。このシステムにより、株式会社メルビル（以下(株)メルビル）、バージニア工科大学と共同で、金属の引張変形に伴う塑性変形の様子を時系列で三次元画像に納め、同システムの有効性が実証されました。

今回開発したイメージング技術は、塑性変形のような物質に力を加えて生じる nm レベルの構造変化を TEM で三次元観察できることから、先端材料やバイオなど、TEM によるナノ構造解析が活躍する分野での応用が期待されます。今後は、当開発システムの完成度を高めるとともに、開発したイメージング技術の更なる高度化と応用事例の蓄積を行います。

今回の成果は、公益社団法人日本顕微鏡学会第 72 回学術講演会（2016 年 6 月 14 日（火）～16 日（木）仙台国際センター）において発表されます。

開発の背景

透過電子顕微鏡（TEM）はナノメートル（nm）レベルの微細組織観察が可能な装置ですが、得られる情報は二次元画像です。そこで、様々な角度から撮影した画像をコンピューターで演算処理することで三次元化するコンピューター断層撮影（CT）という技術を応用して、nm レベルの立体観察を可能としたのが電子線トモグラフィ（ET）です。同じ原理を応用した装置では X 線 CT が知られています。X 線 CT が主にミリ（mm）からミクロン（ μm ）サイズの物体の三次元観察を行うのに対して、ET では nm サイズの微小な物体の三次元観察を行えるため、材料科学や生命医学の分野を中心に近年注目されてきました。

ET 観察では、TEM 内で 60 度程度以上の高角度まで試料を傾斜させながら複数の二次元透過像を連続撮影し、そこから立体的な三次元画像を構築します。通常は 50～150 枚程度の連続傾斜像が必要であり、1 つの三次元画像に必要な画像データの収録に 30 分から数時間を要するため、動きのある物体・現象の観察にはほとんど用いられてきませんでした。

JST 先端計測分析技術・機器開発プログラムの開発課題「マテリアル開発系リアルタイム電子線トモグラフィシステムの開発」（リーダー：九州大学大学院総合理工学研究院・超顕微解析研究センター 波多聰 教授、サブリーダー：株式会社システムインフロンティア 古河弘光 取締役、共同開発者：筑波大学システム情報系 工藤博幸 教授、大阪大学超高压電子顕微鏡センター 佐藤和久 准教授）では、材料に外から力を加えて生じる nm レベルの構造変化を三次元観察する技術の開発を目指しています。連続傾斜像の撮影法から試料の変形・傾斜法、三次元動画像の再構成法、観察対象となる現象・材料に至る多方面から技術開発に取り組み、これらの要素技術を統合した「リアルタイム ET システム」のプロトタイプ開発を経て、金属の塑性変形過程の時系列三次元画像収録に成功しました。ET の手法開発でこれまで先導的な実績を挙げている(株)メルビルとバージニア工科大学 村山光宏 准教授は、当該プロトタイプ開発と実証実験に参画しました。

開発内容と成果

今回開発したリアルタイム ET システムにはいくつもの新技术が盛り込まれています。一つ目は、TEM 内で試料を nm スケールで引張・圧縮変形しつつ 60 度以上まで傾斜できるその場変形トモグラフィ試料ホルダー（Straining-And-Tomography (SATO) holder）です（図 1 [1]）。ひずみ速度 $10^{-4}\sim 10^{-6}/\text{sec}$ の範囲で、最小変位量 1 nm という超微小変形が可能です。二つ目は、SATO holder に装着した試料を TEM 内で微小変形したまま傾斜し、3 分間以内で三次元画像を再構成するのに必要な 1 フレーム分の連続傾斜像を収録し、かつその「試料変形」と「高速連続傾斜像収録」を同一のソフトウェアから自動的に繰り返し行うことを可能にした統合制御アプリケーションソフトウェアです（図 2）。これにより、nm スケールの試料変形過程の三次元画像を 3 分以内ごとに毎時 20 フレーム以上で初めて連続収録でき

るようになりました。三つ目は、三次元静止画像およびそれらを連結した三次元動画の再構成ソフトウェア (TEMography™) です [2]。圧縮センシングを用いた新アルゴリズム (ISER) の開発により、連続傾斜像の枚数が少ない場合やノイズを含む画像の場合でも、実際の物体の三次元形態を正しく再構成することが可能となりました [3]。

リアルタイム ET システムを用いた観察対象としては、変形を加えることで物理現象や材料機能が観測される固体が考えられます。また、変形そのものが観察対象となる場合もあり、その代表例が金属材料です。金属は、固体の中でも強度と塑性変形能を兼ね備えた素材として大小様々な構造用部材に用いられていますが、強度や塑性変形能といった力学的機能は原子レベルから μm スケールの微視的構造およびそれらの動的挙動を起源とすることが多く、電子顕微鏡による微細構造観察が頻繁に行われます。今回の実験では、大きな塑性変形量が期待される実用金属材料として、スズ鉛系はんだ合金を観察対象に選びました。図 3 は、リアルタイム ET システムで撮影した同合金の連続傾斜像の例です。はんだは、電気回路における基板と素子の接合に不可欠な低融点金属材料であるとともに、熱サイクルに伴う繰り返し応力に耐えなければならないなど、高い力学的特性が要求される実用金属材料です。今回の実証実験では、市販のスズ鉛系ハンダ合金に機械圧延を施した後、液体窒素温度付近まで冷却しつつイオン研磨で薄膜化し、SATO holder の試料ステージに固定して、TEM 内で 10~1000 nm の変位ステップで繰り返し引張力を加えました。その結果、薄膜化した試料が塑性変形（厳密には弾塑性変形）と局所破断を繰り返す過程で図 3 のような約 1 μm 幅の紐状の領域が形成されました。その部分を連続傾斜観察したのが図 3 左図です。試料に加える引張方向の変位を一旦停止し、試料の動きが止まった数秒~数十秒後に、毎秒 1 度の傾斜スピードで試料を傾斜しつつ 2 度おきに TEM 像を収録しました。合計 49 枚の連続傾斜像の収録時間は 2 分未満でした。これらの連続傾斜像から再構成した三次元画像が図 3 右図です（三次元画像の再構成は TEM 連続傾斜像の収録実験後に PC を用いて別途行う作業であり、現状では最短でも数十分~数時間を要します）。連続傾斜像（二次元投影）における明暗のコントラストから、試料表面の微細な凹凸が立体的に可視化されています。すなわち、スズ鉛系はんだ合金の破断面は nm~サブ μm サイズの凹凸構造を有していることがわかります。この試料を更に段階的に引張変形し、変形を中断した状態で図 3 と同じ場所を連続傾斜観察し、再構築した三次元画像を重ねたものが図 4 です。約 1 μm 幅の紐状のスズ鉛系はんだ合金が形態を変えていく様子が、ナノレベルで明確に捉えられています。この時系列三次元画像データから、試料の各点における変位を三次元測定すれば、塑性ひずみの分布とその変化が三次元テンソル量で求められます。さらに、試料を構成しているスズ相と鉛相の分布や結晶粒の形態・方位等を TEM 観察から求めれば、観察視野における塑性変形と微細構造の関係を調べることができます。このように、実用金属材料の変形挙動とナノスケールの微細構造を直接結びつけることができる実験研究はまだ少なく、リアルタイム ET システムは関連分野の研究に新たな進展をもたらすものと思われます。

今後の展開（期待される内容）

今後の展開として、先端材料の機能と構造の関係解明に貢献できるものと考えられます。例えば、結晶構造を有する固体の塑性変形は、転位と呼ばれる線状の格子欠陥が結晶内部で発生・移動・消滅することによるものと考えられてきましたが、最近の物質・材料研究の進展とともに、転位以外の塑性変形メカニズムの存在にも注目が集まっています。塑性変形のメカニズムを理解し、それを制御することは、優れた力学的機能が求められる構造・機能材料の開発に結びつきます。固体の塑性変形の微視的挙動を直接観察する手段の一つとして、電子顕微鏡による「リアルタイム観察」がこれまで用いられてきました。今回開発したリアルタイム ET システムは、「リアルタイム観察」に「三次元 TEM 観察」を組み合わせ、TEM の二次元（投影）観察からくる構造決定の不確かさを克服し、先端材料の未知な微視的構造とそのダイナミクスを明確に可視化します。観察対象は、ここに紹介した金属材料に留まらず、応力に応答した機能を発揮する物質や細胞などにも及ぶことが期待されます。

リアルタイム ET システムは平成 29 年 3 月までに開発を完了し、(株)SIF から製品販売を行う予定です（SATO ホルダーは(株)メルビルからも販売予定）。

参考文献

- [1] K. Sato, H. Miyazaki, T. Gondo, S. Miyazaki, M. Murayama and S. Hata, “Development of a novel straining holder for transmission electron microscopy compatible with single tilt-axis electron tomography”, *Microscopy*, 64(5), 369-375 (2015)
- [2] 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、宮崎裕也、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、57, 276-284 (2015)
- [3] 工藤博幸、董建、加茂勝己、堀井則孝、古河弘光、波多聰、村山光宏、佐藤和久、宮崎伸介、“圧縮センシングを用いたトモグラフィー画像再構成”、顕微鏡、51(1) (2016)

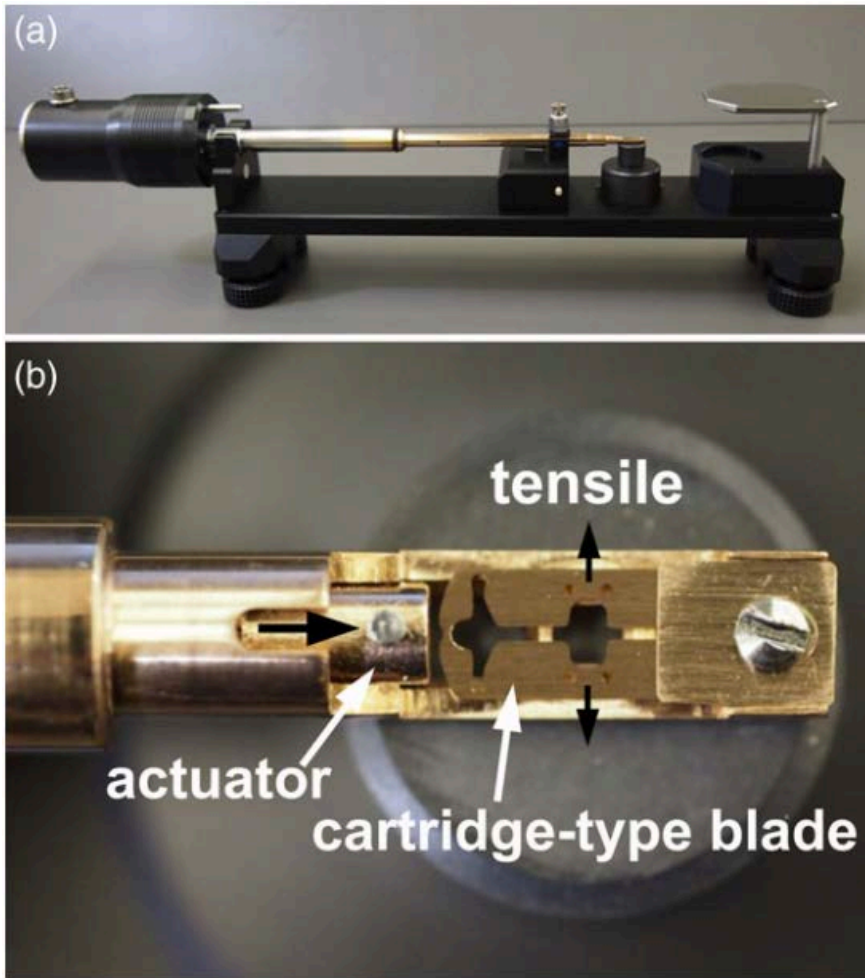


図1 (a) その場変形トモグラフィー試料ホルダー (SATO holder) の外観。(b) 試料ステージ部の拡大図。試料ステージ部の幅は約 5 mm。

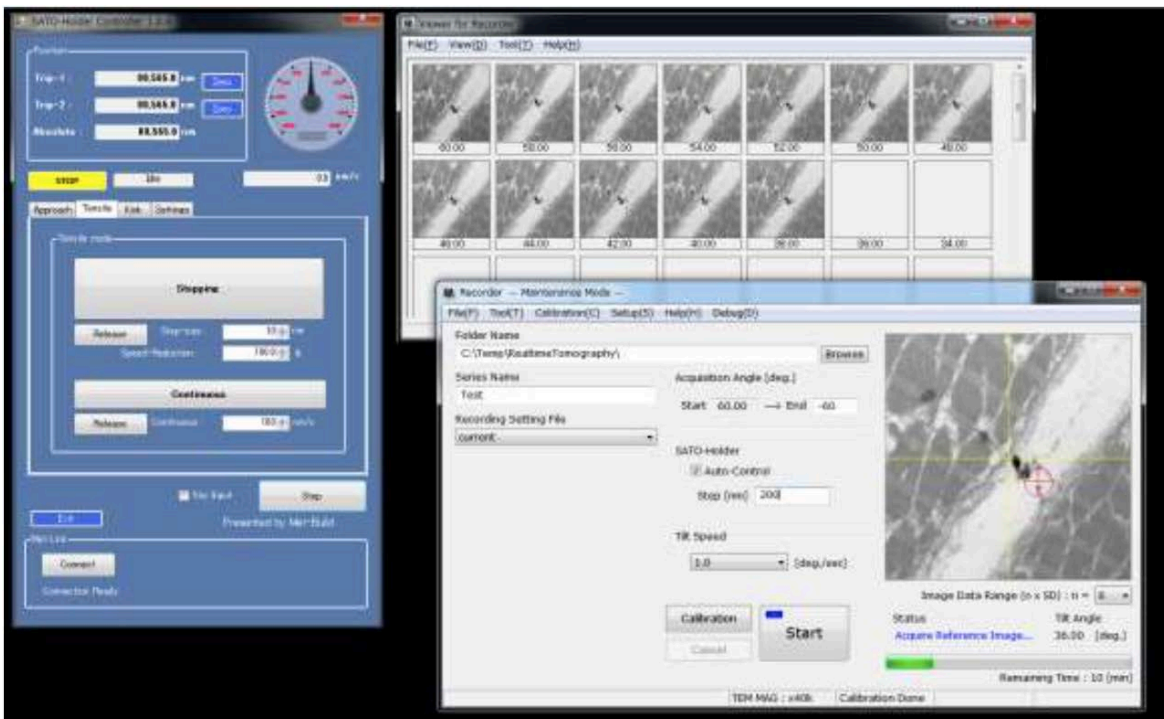


図2 統合制御アプリケーションソフトウェアのグラフィックユーザーインターフェースの例。

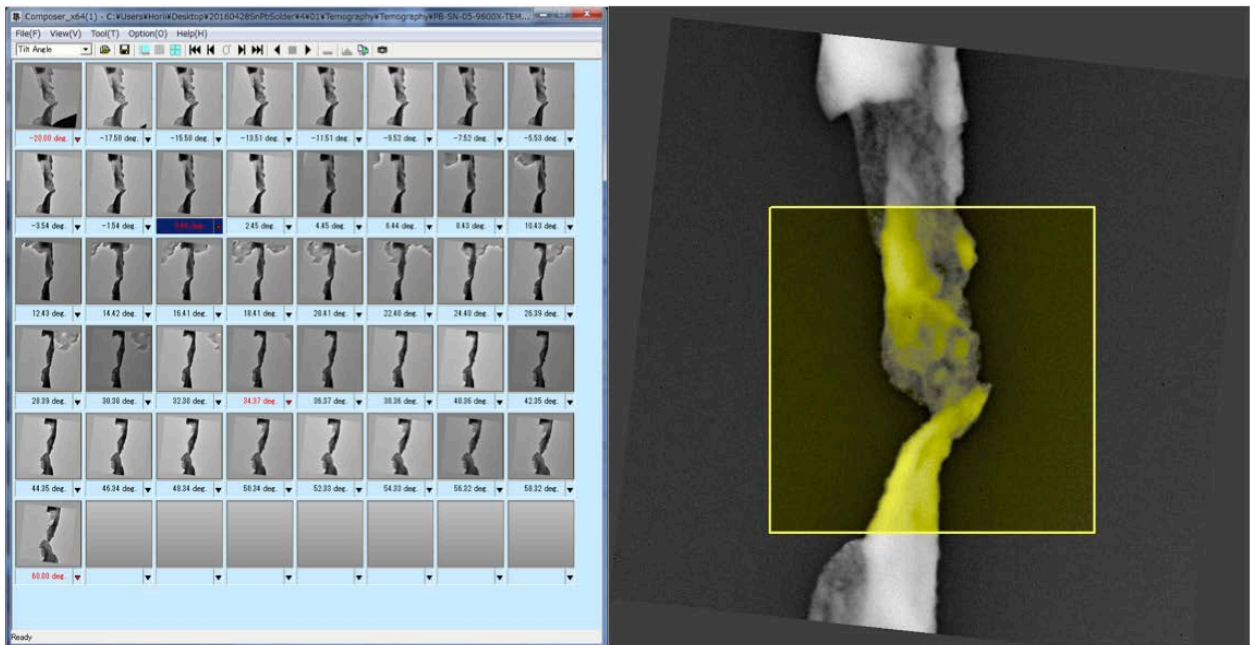


図3 (左図) スズ鉛系はんだ合金の連続傾斜観察の例. 直接観察倍率 9800 倍で視野サイズは $3.4 \mu\text{m}$ 四方. 試料傾斜角度の範囲は 80 度で、毎秒 1 度の傾斜スピードで試料を傾斜しつつ、2 度おきに合計 49 枚の TEM 像を 2 分未満で収録。(右図) 連続傾斜像から再構成した三次元画像. 画像収録前に行った変形と破断により紐状形態を有した同はんだ合金試料の表面に、ナノスケールの凹凸構造が形成されていることが、三次元画像から明瞭に認識できる。

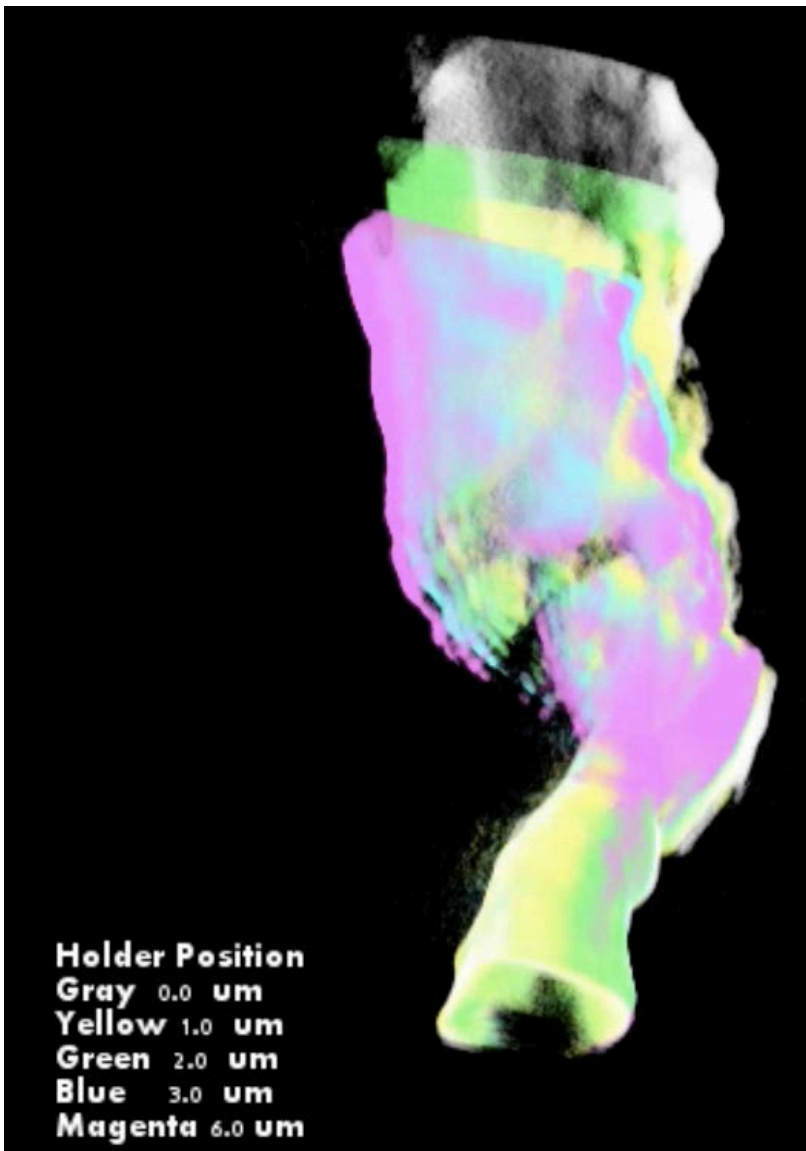


図4 図3の状態から更に同試料を変形させて撮影した連続傾斜像から再構成した三次元画像のうち、図1の四角で囲んだ領域を重ねたもの. 各色は試料ステージの変位量 (グレー: $0 \mu\text{m}$ 、黄色: $1 \mu\text{m}$ 、緑: $2 \mu\text{m}$ 、青: $3 \mu\text{m}$ 、赤: $6 \mu\text{m}$) を表している. 試料の左右方向の幅は約 $1 \mu\text{m}$ なので、観察領域の各色の位置ずれは 500 nm 以下の塑性変形によるもの. 試料が細くくびれた中央付近より上側が大きく変形しており、その変形の大きさと方向は場所により異なっていることがわかる。

参考動画

リアルタイム ET システム概要紹介動画

<https://www.youtube.com/watch?v=1c7zREgSIMU>



問い合わせ先

<研究に関するお問い合わせ>

九州大学大学院総合理工学研究院・

超顕微解析研究センター

教授 波多 聡

Tel: 092-583-7580 Fax: 092-583-7580

Email: hata.satoshi.207@m.kyushu-u.ac.jp

株式会社システムインフロンティア

技術部 TTWS チーム(担当:古河)

Tel: 042-526-4363 Fax: 042-526-4370

Email: hiromitsufurukawa@sifi.co.jp

<広報・報道関係のお問い合わせ>

九州大学 広報室

Tel: 092-802-2130 Fax: 092-802-2139

Email: koho@jimu.kyushu-u.ac.jp

株式会社システムインフロンティア

技術部 TTWS チーム(担当:古河)

Tel: 042-526-4363 Fax: 042-526-4370

Email: hiromitsufurukawa@sifi.co.jp

大阪大学超高压電子顕微鏡センター

准教授 佐藤 和久

Tel: 06-6879-7941 Fax: 06-6879-7942

Email: sato@uhvem.osaka-u.ac.jp

筑波大学 システム情報系

教授 工藤 博幸

Tel: 029-853-5516

Email: kudo@cs.tsukuba.ac.jp

大阪大学 工学研究科総務課 評価・広報係

Tel: 06-6879-7231 Fax: 06-6879-7210

Email: kou-soumu-hyokakouhou@office.osaka-u.ac.jp

筑波大学 広報室

Tel: 029-853-2039 Fax: 029-853-2014

Email: kohositu@un.tsukuba.ac.jp