



入門講座

組織の3次元可視化に関する研究-3

電子線トモグラフィーによる 結晶材料組織の3次元可視化

Three-Dimensional Imaging of Crystalline Microstructures Using Electron Tomography

波多聡^{*1}、木村耕輔^{*2}、光原昌寿^{*1}、田中將己^{*3}、宮崎裕也^{*4}、高紅叶^{*1}、松山加苗^{*2}、
松村晶^{*3}、東田賢二^{*3}、池田賢一^{*1}、中島英治^{*1}、森谷智一^{*5}、土井稔^{*5}

1 はじめに

透過電子顕微鏡 (transmission electron microscope : TEM) による3次元観察法としては、人間の目 (複眼) の立体視差を利用したステレオ法が従来から知られている。最近、このステレオ法に代わる勢いで進展を見せているのが、電子線トモグラフィー (electron tomography) である。この方法はX線CT (computed tomography : コンピューター断層撮影法)¹⁾の原理をTEMに応用したもので、関連装置やソフトウェアの進歩と共に、ここ数年、様々な材料研究に用いられてきている。本稿では、結晶性材料の3次元組織観察を目的とした電子線トモグラフィーの手順とその適用例について紹介する。筆者らは電子顕微鏡を材料研究の常用手段としていることから、本稿は、これから電子線トモグラフィーを始めようと考えている読者向けに、やや専門的な内容にも立ち入っていることをご了承いただきたい。

2 電子線トモグラフィー

2.1 基本手順

薄膜試料を透過した高速電子で結像されるTEM像は、基本的に、3次元物体である試料の2次元投影像とみなせる。この基本的性質をもつTEMを、CT¹⁾、すなわち、投影データを集積して物体の断層像を再構成する技術、と融合させた電子線トモグラフィーは、従来、細胞などの非晶質試料を観察対象とする医学、生物学の分野で発展してきた。結晶を基本とする材料系試料への応用が本格的に検討され始めたの

は、2000年前後の比較的最近のことである。以下では、電子線トモグラフィーの基本的な手順について述べる。

まず、試料をTEM内で少しずつ傾斜しながら何枚もの像 (連続傾斜像 : tilt series) を撮影する。試料の傾斜方式は基本的に1軸傾斜であり、完全な3次元画像の再構成には -90° から $+90^\circ$ までの傾斜角度範囲が必要となる。材料系のTEM観察用試料の多くは薄膜であり、この場合、 $\pm 90^\circ$ まで傾斜して観察することはほとんど不可能で、 $\pm 60^\circ \sim \pm 80^\circ$ が限度である。試料傾斜角度範囲が理想値 $\pm 90^\circ$ に満たないことによる2次元投影情報の欠落は、3次元再構成像における分解能の低下やアーティファクト (擬像) をもたらす²⁻⁷⁾。この問題の解決策として、試料を針状に微細加工して $\pm 90^\circ$ まで傾けられるようにする方法⁶⁻¹⁰⁾、同一視野で傾斜軸を変えて2組の連続傾斜像を取得することで投影情報の欠落を減らす方法^{11,12)}、情報欠落の影響を受けにくい新たな3次元再構成アルゴリズム^{3,13-16)}、などが提案されている。

連続傾斜像を撮影する際の試料傾斜の刻み角度は、傾斜角度範囲と共に3次元再構成像の分解能を左右する重要なパラメータである^{2,3,6)}。刻み角度を小さくして投影画像データ数を増やせば3次元再構成像の分解能は向上するが、実際には、TEM像の分解能、試料ステージ駆動系の精度、長時間観察に伴う電子線照射損傷の影響などから、刻み角度は $1^\circ \sim 2^\circ$ に最適化されることが多い。

電子線トモグラフィーを行うためのハード面での必須条件として、試料を高角度 (一般に $\pm 60^\circ$ 以上²⁾) まで1軸傾斜できる必要があり、各電子顕微鏡メーカーで専用試料ホルダーが用意されている。高角度1軸傾斜にステージ回転機構が付

* 1 九州大学大学院総合理工学研究院
* 2 九州大学大学院工学府
* 3 九州大学大学院工学研究院
* 4 メルビル
* 5 名古屋工業大学大学院工学研究科

いたもの、ステージ回転と2軸傾斜機構をもつもの¹⁷⁾、前述の棒状試料を360°傾斜できるもの^{6,9)}などもあるが、使用可能なTEM機種が限られているために、目的に応じて試料ホルダーを自作するケースも少なくない。連続傾斜像の取得は基本的に全て手動で行えるが、通常の像観察に比べると、試料傾斜軸、電子線照射条件、焦点合わせなどの調整に手間がかかる。電子顕微鏡メーカー各社はこのような一連の作業を一部自動化し、連続傾斜像の取得を容易かつ迅速に行えるソフトウェアを開発している。

こうして得られた連続傾斜像を、デジタルデータとしてコンピュータに取り込む。まず、各像の視野ずれなどの補正を行い、連続傾斜像間で試料の傾斜軸を一致させる(傾斜軸合わせ)。その後、フィルター補正逆投影法(filtered back projection:FBP)^{2,3)}や同時反復再構成法(simultaneous iterative reconstruction technique:SIRT)^{3,12,18)}などにより3次元画像の再構成を行う。3次元画像再構成プロセスの良否は、試料傾斜角度範囲と傾斜像枚数(傾斜刻み角度)でおおよそ決まるのに対して、傾斜軸合わせのプロセスでは初心者と熟練者で良否の差が出易い。すなわち、傾斜軸合わせをいい加減に行うと3次元再構成結果にアーティファクトが入り、データの信頼性が低下する²⁾。そのため、傾斜軸合わせの精度を高める目的で、像コントラストの強い金ナノ粒子を試料表面に付着させる場合もある。以上の演算処理を行うソフトウェアは電子顕微鏡メーカー各社から販売されているほか、研究機関などで公開されたソフトウェア^{19,20)}を用いることも可能である。

2.2 投影要件と回折コントラスト

試料が非晶質の場合、TEM像における明暗の差、すなわちコントラストは試料に入射した電子の散乱量で決まるので、像強度は概ね試料の質量と厚みの単調関数となる。この単調関数の関係は投影要件(projection requirement)²⁾と呼ばれ、CTのアルゴリズムを用いて3次元可視化を行う際の必要条件である*⁶⁾。一方、多くの金属材料がそうであるように、試料が結晶の場合には、入射電子の一部が試料内部で回折を起こし、電子線入射方向や試料厚みの変化に敏感な、非単調関数的な像強度を与える(例えば、等傾角干渉縞や等厚干渉縞)。すなわち、結晶性試料のTEM像コントラストは、質量・厚みコントラストに回折コントラストが重なったものであり、上述の投影要件がしばしば破綻する。投影要件の重要性を端的に示す例として、ニッケル四モリブデン

(Ni₄Mo)析出粒子の観察例を図1に示す。(a)の連続傾斜TEM暗視野像では、角型に見えるNi₄Mo粒子の内部は、試料傾斜角度によらず概ね均一な像強度を示している。一方、(b)では試料傾斜に伴い粒子の中央部が暗くなったり、等高線のような縞模様(等厚干渉縞)が現れたりしている。これは、試料傾斜に伴い回折条件が変化したことや、晶帯軸入射で多くの回折波が同時に励起したことが主な原因であり²¹⁾、投影要件が明らかに破綻した像となっている。図1(a)と(b)の連続傾斜像から再構成したNi₄Mo析出粒子の3次元鳥瞰図を、それぞれ図2(a)と(b)に示す。析出粒子の直方体形状が可視化された(a)に対して、(b)では粒子内部が空洞化

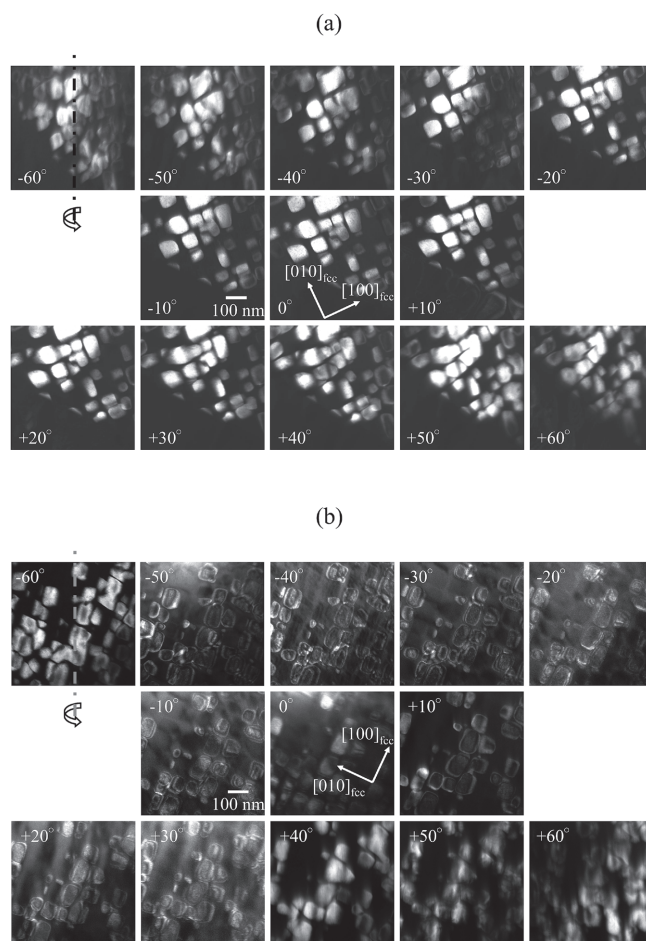


図1 Ni合金(Ni-18at.%Mo)のD1_a型Ni₄Mo析出粒子の連続傾斜TEM暗視野像の一部。D1_a規則格子反射 $g(hkl)=4/5\ 2/5\ 0$ (fcc基本格子を基準とした指数表示)により結像している。(a)では、傾斜像ごとに2波(g と透過波)励起ブラッグ条件を正確に合わせた。各析出粒子はほぼ均一な像強度分布を示している。(b)では、2波励起ブラッグ回折条件からのずれの影響で、析出粒子内部に中空状や等高線状の回折コントラスト(等厚干渉縞)が現れている。

* 6 X線(吸収過程)と電子線(散乱過程)による物体の投影(吸収係数分布の積分とみなす)は、異なる関数系(指数関数系と線形関数系)で近似的に定式化される。したがって、X線CTと同じ3次元再構成アルゴリズムを電子線に適用すると、正解とは異なる解が与えられることになる(具体的には、コントラストの低下を伴う)ので、厳密解を得るためには投影データの関数変換が必要となる。

して粒子同士の立体配置が辛うじてわかる程度であり、回折コントラストによる投影要件の破綻が3次元再構成結果に及ぼす影響が一目瞭然である。

2.3 像観察モード

結晶性試料における回折コントラストの問題を克服するために、高角度環状暗視野走査透過電子顕微鏡法 (high-angle annular dark-field scanning TEM : HAADF-STEM) やエネルギーフィルター TEM 法 (energy-filtered TEM : EFTEM) がトモグラフィー観察に用いられるようになった^{2,22-24)}。これらの観察法では、主に非弾性散乱電子で像を形成するために、通常の TEM 明・暗視野像に比べて回折コントラストの影響が弱く、試料が結晶でも投影要件が概ね満足される*7。特に、前者の HAADF-STEM の有効性と簡便性が認知されつつある最近では、結晶性試料の3次元観察は HAADF-STEM で行うことが標準となっており、適用例も多い^{2,22-24,25-28)}。また、エネルギー分散特性 X 線 (EDX) 分析を用いた元素マップの3次元可視化も報告されており²⁹⁾、今後、X 線検出器の感度が向上して元素マップの短時間取得が可能となれば、EFTEM と並ぶ3次元元素マップ取得法として普及する可能性がある。

しかし、HAADF-STEM や EFTEM は結晶性試料のトモグラフィー観察において万能ではない。例えば、転位をはじめとする格子欠陥、多結晶材料中の結晶粒の形態、合金の規

則格子ドメイン構造における結晶方位バリエーションや逆位相境界など、質量・厚みコントラストでは可視化できないものが観察対象の場合である。結晶由来のこれらの組織が回折コントラストで可視化されることは、トモグラフィー観察でも同じである。前に述べたように、回折コントラストは電子の入射方位や試料厚みに敏感なので、投影要件を満足する回折コントラスト像を得ることは容易ではなく、現在でも研究が続いている。線状欠陥の転位については、観察条件や3次元再構成法を工夫すればトモグラフィー観察が可能であることが示されている³⁰⁻³⁴⁾。また、やや専門的になるが、消衰距離の長い (結晶構造因子の小さい) 規則格子反射で結像する TEM 暗視野法であれば、回折コントラスト像でありながら投影要件を満足できるという着想で、規則格子ドメイン組織の3次元形態観察を実施した例もある^{21,35-41)}。

転位の電子線トモグラフィー観察を最初に報告したケンブリッジ大学のグループ^{30,31)}は、像観察法に TEM 暗視野弱ビーム法を用いた。TEM 暗視野法では特定の回折波を対物絞りで選択することから、バーガースベクトルまで考慮した転位の3次元観察が行える。ただし、TEM 暗視野法では転位のコントラストに加えて等厚干渉縞など母相の回折コントラストも強く現れるために、転位の明瞭な3次元画像を得るには画像処理で転位のコントラストを抽出するといった工夫が必要となる^{30,31)}。一方、同グループ³²⁾および筆者らのグループ^{33,34)}は、STEM をトモグラフィー観察に導入している。STEM では通常、大角度 ($\sim 10\text{mrad}$) に収束した電子線を試料に入射する。この場合、転位の観察を妨げる等厚干渉縞や等傾角干渉縞はほとんど現れなくなり、転位組織、特に高密度転位群の3次元観察に有効である。

3 電子線トモグラフィーの適用例

3.1 合金析出組織

ここでは、ニッケル基超合金の析出組織の3次元観察に電子線トモグラフィーを適用した例を紹介する。図3の TEM 暗視野像は、ニッケル・アルミニウム・チタン (Ni-8.5at.%Al-5.4at.%Ti) 合金の2段階時効処理過程における組織変化を示している。1213K 時効材 (a) では、 γ 母相中に角型の γ' 粒子が析出した典型的な $\gamma + \gamma'$ の2相組織が得られている。この試料をさらに1023K で時効すると、 γ' 粒子が相分離を起こし、微細な γ 析出物が生成する (b)。この γ' 粒子の相分離では、 γ と γ' の組成分配が1213K と1023K で異なること⁴²⁾が駆動力になっているものと解釈される⁴³⁾。 γ 析出物は粗大化と共

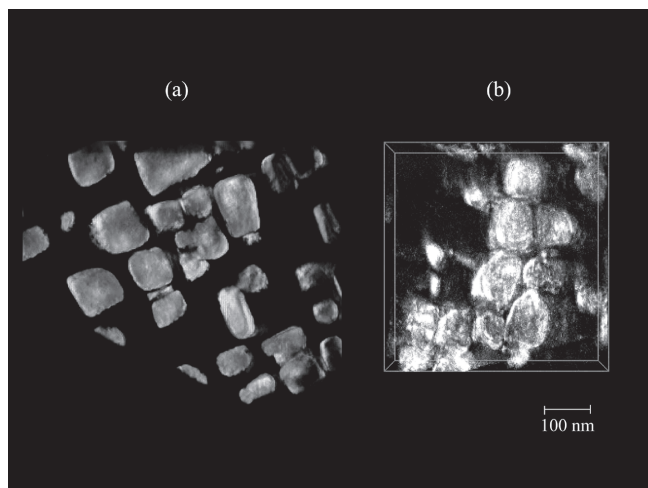


図2 図1 (a) および (b) の連続傾斜 TEM 暗視野像による3次元再構成結果。ブラッグ条件を正確に合わせた場合には (図2 (a))、析出粒子の3次元形態が明瞭に可視化されている。一方、回折コントラストの影響で投影要件が破綻した場合には (図2 (b))、析出粒子同士の相対位置は可視化されているものの、粒子の形態が不明瞭である。

*7 結晶 (周期ポテンシャル場) に入射した高速電子は、非弾性散乱するまでは弾性散乱、すなわち、動力学的回折を繰り返しながら結晶中を伝播する。したがって、HAADF-STEM、EFTEM いずれの像においても、厳密には、回折の影響はゼロにはならない。

に γ' 粒子を分断し(c)、組織の粗大化を遅らせる(d)。これは、Ni-Al 基合金の力学特性を考える上で有利な特徴であり、Ti 以外の第3元素を添加した場合やFe-Al 基3元合金の場合にも類似の相分離挙動が見出されている⁴⁴⁾。このような2段階時効処理で生成する析出物の形態は、合金組成や時効条件に依存する。本研究ではこの点に着目し、TEM 暗視野法とEFTEM の2種類のモードで電子線トモグラフィ観察を実施した。

まず、 $L1_2$ 規則格子反射 $g(hkl) = 001$ による連続傾斜TEM 暗視野像の観察を行った。回折図形における透過波と001回折斑点が、 $\pm 60^\circ$ の試料傾斜角度範囲内で常に傾斜軸上に位置するように試料の向きを調整した。試料傾斜により001回折波がブラッグ条件からずれたり、低指数の晶帯軸入射条件になったりすると、図1(b)のように、アーティファクトの原因となる等厚干渉縞などの回折コントラストが現れる。これを避けるために、入射電子ビームを微傾斜させて、透過波と001回折波の2波励起条件を常に維持しながら、 2° 傾斜ごとに連続傾斜像を撮影した^{21,41)}。具体的には、暗視野像を見ながら観察領域の γ' 粒子が最も明るくなる(ブラッグ条件を満足する)ようにビーム入射方向を調整した。

図4に、図3(d)の試料から得た連続傾斜TEM 暗視野像の一部を示している。各像の中央部に位置する角型 γ' 粒子(図中矢印)の内部には、3個の γ 析出物が確認でき、それらの形態は板状または棒状に見える。この連続傾斜像から求めた3次元再構成結果を図5に示す。試料傾斜角度不足の影響で、 γ' 領域の像強度分布が不均一であり、内部の γ 析出物を確認することが困難であったため、適当な像強度のしきい値を設定して γ/γ' 界面のみの表示を試みたところ、 γ' 内

部の γ 析出物が明瞭に可視化された。3個の γ 析出物はいずれも $\{100\}$ 面に平行な四角平板状であり、 γ' 粒子からの弾性拘束の影響⁴⁵⁾を受けた特徴的な空間配置を取っている。同様の観察を図3(b)の微細 γ 析出物についても実施した結果、析出初期では板状ではなく、等軸粒状または棒状の形態をとることがわかった。すなわち、 γ 析出物は粗大化に伴い等軸粒状→棒状→板状へと形態変化していることが3次元観察により明らかとなった。

次に、EFTEMによる連続傾斜Tiマップの観察を行った。試料の傾斜角度範囲を $\pm 75^\circ$ 、傾斜刻み角度を 3° とし、Tiの $L_{2,3}$ 内殻電子励起に寄与した非弾性散乱電子によるTiマップをThree window法⁴⁶⁾で取得した。試料の傾斜軸には高指数方向を選び、回折コントラストの影響が強くなる低指数の晶帯軸入射条件を極力避けた。この傾斜軸の選択法は、HAADF-STEM観察ではもちろんのこと、上記のTEM 暗視野法の場合にも有効である。

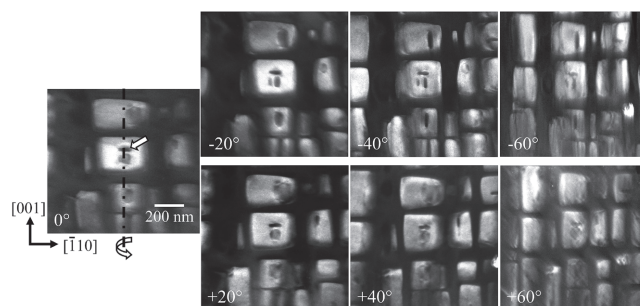


図4 図3(d)の試料の連続傾斜TEM 暗視野像の一部。矢印で示した γ' 粒子内部には3個の γ 析出粒子が存在していることがわかる。

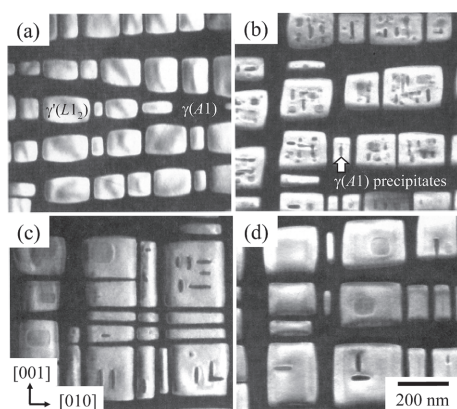


図3 Ni-Al-Ti 合金 (Ni-8.5at.%Al-5.4at.%Ti) の2段階時効過程のTEM 暗視野像観察。図中の明るい領域が γ' - $L1_2$ 規則相領域、暗い領域が γ -A1 (fcc) 不規則相領域である。 γ 単相域で溶体化処理を施した後、(a)は1213Kで0.75h時効処理を行った。(b)、(c)、(d)はその後さらに1023Kでそれぞれ12h、48h、192hの時効処理を施した。1023K時効処理により、 γ' 粒子から微細な γ が析出し、 γ' 粒子を分断するまで粗大化していく。

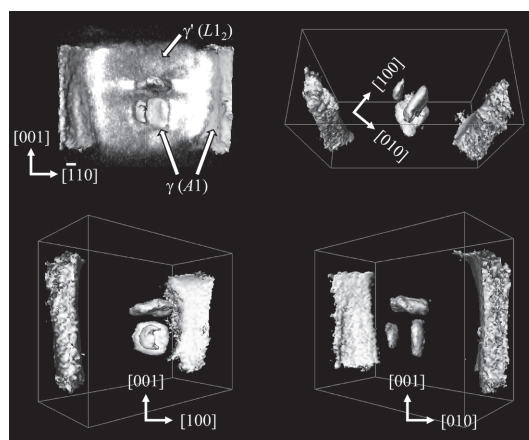


図5 図4の連続傾斜TEM 暗視野像による3次元再構成結果を4通りの方向から見たもの。左上の図では、 γ' 規則相と γ/γ' 界面を、他の3つの図では γ/γ' 界面のみを明るく表示している。 γ' 粒子中の微細 γ 粒子の3次元形態と配置関係が明瞭に可視化されている。

図6は、図3(c)の試料から得た連続傾斜Tiマップの一部である。観察領域は電解研磨で特に薄くなった部分であり、明るい γ' 粒子が広範囲に見られない暗い領域は γ 母相または真空領域である。Tiマップの像コントラストは、図3、4のTEM暗視野像のものと類似している。すなわち、 γ 母相および γ 析出物は γ' 粒子よりもずっと暗く、Tiは γ' 側に多く存在していることがわかる。試料傾斜角度が 0° および $+21^\circ$ のTiマップを見ると、暗い帯状の回折コントラストが現れており、 γ 析出物との区別がしづらくなっている。ただし、このような回折コントラストは試料傾斜に伴い出現位置が敏感に変化させるために、合計51枚の連続傾斜像から求めた3次元再構成像(図7)には深刻なアーティファクトは認められなかった。

図7は、図6の連続傾斜像から再構成した3次元Tiマップの解析例である。図7の左側には、図6のTiマップに矢印

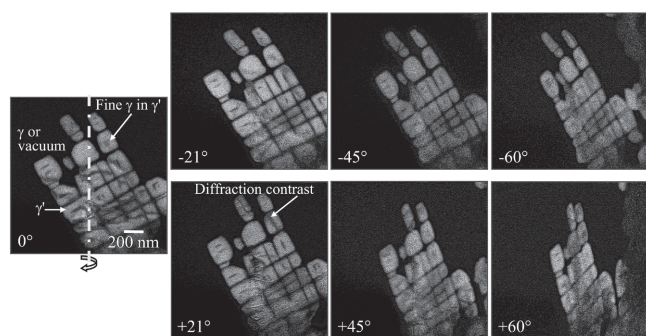


図6 図3(c)の試料についてエネルギーフィルターTEM法で撮影した連続傾斜Tiマップの一部。 γ' 規則相にTiが濃化している様子が明瞭に観察されている。一部のTiマップでは、暗い帯状の回折コントラスト(図中Diffraction contrast)が γ' 粒子内部の微細 γ 粒子(図中Fine γ in γ')の観察を困難にしている。

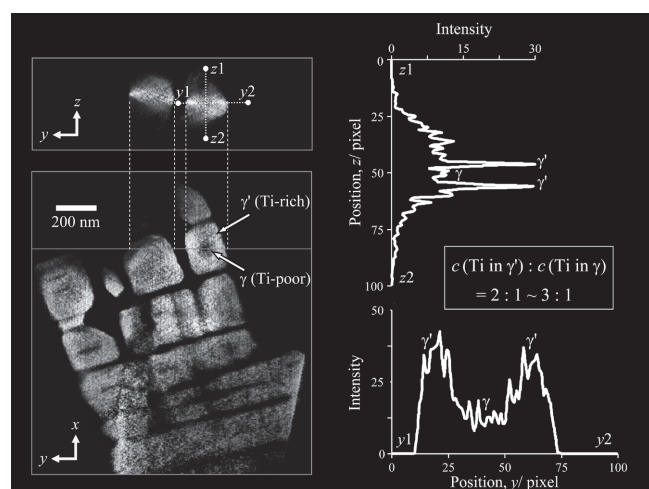


図7 図6の連続傾斜Tiマップから再構成した3次元Tiマップの断面図。Tiマップ断面図中に示した2つの直線y1-y2およびz1-z2に沿った像強度プロファイルより、 γ' 粒子とその内部の γ 析出物におけるTi濃度の比は2:1~3:1と求められる。

で示した γ 析出物(Fine γ in γ')を含む水平x-y断面と垂直z-y断面(投影ではないことに注意)を示している。図7の右側には、z-y断面上の2本の直線y1-y2およびz1-z2に沿った像強度、すなわち、Ti濃度のプロファイルを示している。これより、 γ' 粒子とその内部にある γ 析出物のTi濃度比は2:1~3:1と求められる。さらに、この γ 析出物は周りの γ' 粒子に接する γ 母相と同じか、わずかに高いTi濃度を有することが同様の像強度分布測定から明らかとなった。通常のEDX分析では、電子線入射方向に沿って γ および γ' 相が重なってしまうために、 γ' 粒子内部の γ 析出物の組成を直接求めることは不可能であり、図7の解析例は、電子線トモグラフィーを利用した新たな組成分析法と位置づけられる。

ここで、前述の像観察モードについて議論する。本稿で紹介したNi-Al-Ti合金は、 γ -Niと γ' -Ni₃Alからなる2元系2相合金にTiを添加したものである。構成元素の原子番号Z(Ni)=28、Z(Al)=13、Z(Ti)=22を考えると、NiとAlの中間の原子番号を持つTiが γ' 相を選択的に占有することで、 γ 相と γ' 相における平均原子番号の差は小さくなる。その結果、本合金のHAADF-STEM(原子番号コントラスト)像は、 γ/γ' のコントラストが弱く、3次元再構成像の分解能を大きく左右する信号/ノイズ(S/N)比⁴⁷⁾の点で不利となった。これは、HAADF-STEMが材料系試料の3次元観察に万能ではないことの一例であり、多元系合金では起こり易いケースといえる。一方、L₂規則格子反射によるTEM暗視野像やEFTEMによるTiマップでは、 γ/γ' のコントラストが強く、高S/N比の連続傾斜像が得られた。このことが、 γ' 内部の γ 析出物の3次元形態や組成を明瞭に可視化し得た要因といえる。

3.2 転位

転位の連続傾斜像の取得方法は、基本的に前述の析出粒子の観察と同様である。すなわち、回折図形を見ながら結像に用いる回折波を試料傾斜軸上で2波励起条件に合わせ、試料傾斜中もその回折条件を保ちつつ連続傾斜像を撮影する。しかし、研磨面を制御した単結晶薄膜試料のように、試料ステージ上での試料の向きのみで回折条件を合わせられる場合を除けば、1軸傾斜ホルダーで回折条件を一定に保ち続けることは困難である。回折条件が変わると、試料傾斜の途中で転位のコントラストが消滅したり、転位芯周りのコントラストの分布が変化したりするために、3次元再構成した転位像は図2(b)の析出物の例のように不鮮明なものとなる。そのため、入射ビーム傾斜により回折条件のずれを補正する作業が必要となる。ただし、この方法にも問題があり、ビーム傾斜量が増大してレンズの中心(光軸)から大きく離れたところを電子線が通るようになると、レンズの収差の影響で像にボケ

が生じてしまう。図1や図4のように比較的大きな析出粒子ではその影響は小さいものであるが、数nm幅しかない転位線やナノサイズ粒子の観察になると、収差の影響は無視できなくなると予想される。

以上のような検討の結果、筆者らは、2軸傾斜ホルダーが3次元回折コントラストの高分解能観察に不可欠との見解に至り、その開発に着手した。最終的には、2軸傾斜に試料ステージ回転機構を加えて高傾斜3軸ホルダーを製作した¹⁷⁾。図8(a)と(b)に示すように、この試料ホルダーは $\pm 80^\circ$ までの1軸(図中X軸)傾斜を確保しつつ、それと直行するY軸において $\pm 7^\circ$ の傾斜と、 $\pm 5^\circ$ までの試料ステージ回転を可能としている。この試料ホルダーを用いれば、回折コントラストによる連続傾斜像の取得の成否が試料に依存する割合は、確実に低くなる。また、回折条件のずれを補正するための入射ビーム傾斜量を減らせるので、レンズ収差の影響も抑えられる。

図8(c)と(d)は、上記の試料ホルダーとSTEM暗視野法を用いて、クラックの導入で発生したシリコン単結晶中の転位を3次元観察した例である。 $\pm 60^\circ$ の試料傾斜角度範囲内で $g(hkl) = 220$ 回折波がブラッグ条件を常に満足するように調整した後、撮影した連続傾斜STEM暗視野像が図8(c)である。等厚干渉縞などの回折コントラストに邪魔されることなく、転位線のみが高いコントラストで観察されている。この連続傾斜像の3次元再構成結果を図8(d)に示している。試料傾斜角度不足に伴う転位線コントラストの広がり認められるものの、各転位の3次元形態や位置は明瞭に可視化されており、結晶材料の破壊と転位の関係の解明に3次元観察の

有効性が期待できる³⁴⁾。

転位線の可視化という目的に限定すれば、転位を1、それ以外を0というように像強度を二値化しても問題ない。その場合、傾斜角度不足によるアーティファクトの出にくい3次元再構成アルゴリズム¹³⁻¹⁵⁾が適用できると考えられ、転位の3次元可視化技術は今後、短期間のうちに高分解能化が進むものと予想される。また、本誌⁴⁸⁾で既に紹介されているように、厚い試料が観察できる超高压電子顕微鏡もこの3次元観察技術を強く後押しするものであり、材料評価の新しい展開が具体的に見えつつある。

4 おわりに

本稿では、結晶材料の3次元組織観察を目的とした電子線トモグラフィーについて概説した。結晶材料の電子線トモグラフィーでは、回折コントラストの問題が常に付きまとい、時にはそれが3次元再構成結果に深刻な影響をもたらす。回折コントラストの影響を抑えるための種々の像観察技術の開発により、それらの問題の一部は克服され、種々の結晶材料への電子線トモグラフィーの適用が始まっている。ただし、定量解析や高分解能解析といった観点からみれば、結晶材料の電子線トモグラフィーは未だ発展途上の技術であり、本稿では詳しく述べなかった動力学電子回折に関わる問題を克服するためのアプローチが今後必要である。しかし、見方を変えて、結晶内での電子の回折現象をうまく制御、利用できれば、結晶材料ならではのユニークな3次元観察の世界が拓ける可能性もある。例えば、トモグラフィーの例ではないが、回折コントラスト像と電子線ホログラフィーを組み合わせた広範囲のひずみ分布の可視化⁴⁹⁾は、回折現象を巧みに利用した好例といえる。

一方で、放射光を用いたX線CT⁵⁰⁻⁵³⁾など、電子線トモグラフィー以外の3次元可視化技術の進歩には目覚ましいものがあり、各手法の分解能はオーバーラップしてきている。異なる手法間での3次元データの比較を通じて、材料研究における電子線トモグラフィーの真価と役割は明らかになっていくものと推測される。実際に、金属材料の分野における他の3次元可視化法を用いた研究と比較してみると、電子線トモグラフィーの材料研究への貢献はまだこれからという印象を受ける。このような状況を鑑み、シーズを提供する電子顕微鏡研究技術者サイドからは、データの定量性、分解能、3次元計測のメリット、これらを研究事例の中でわかりやすくアピールしていくべきであろう。一方で、材料研究技術者サイドから新しいアプリケーションを開拓していく動きにも期待したいところであり、両サイドからの融合的な努力が電子線トモグラフィーを発展へと導くものと考えられる。

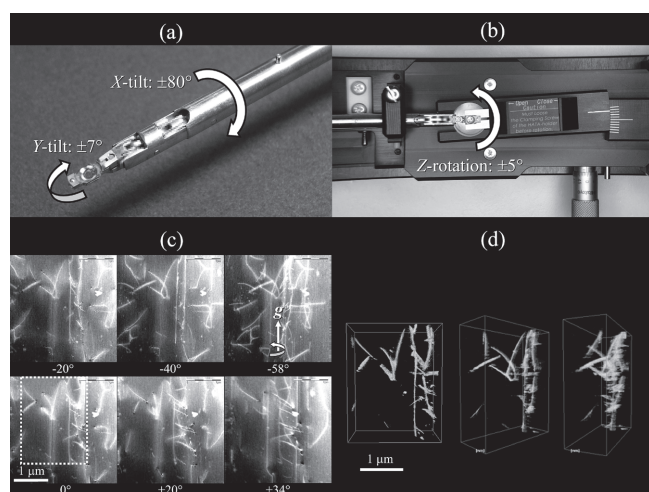


図8 新開発の高傾斜3軸試料ホルダーと3次元転位観察への応用例。(a) 試料ホルダー先端部。試料ホルダーに平行な傾斜軸(X)について $\pm 80^\circ$ の最大傾斜角度を確保しつつ、X軸に垂直な軸(Y)について $\pm 7^\circ$ までの傾斜が可能。(b) 専用の試料ホルダー台を用いて、試料ステージを $\pm 5^\circ$ まで回転可能。(c) クラック導入後の単結晶シリコンにおける転位の連続傾斜STEM暗視野像の一部。(d) 連続傾斜像から再構成した3次元転位像。

電子線トモグラフィーに興味をお持ちの読者にとって、本稿が参考になれば幸いである。電子線トモグラフィーのより詳しい内容については、書籍^{54,55)}、文献^{2,56)}、各種学会誌特集号^{57,58)}などを参照していただきたい。

謝辞

本稿で紹介した研究の一部は、J.S.Barnard 博士、J.R.Tong 氏、J.Sharp 氏、P.A.Midgley 教授 (ケンブリッジ大学) と共同で行った。研究の遂行において、金子賢治博士、友清芳二教授、桑野範之教授、板倉賢博士 (九州大学) から有益な助言と協力をいただいた。紹介した研究の一部は、九州大学大学院総合理工学府奨励研究費、同大学スーパースタープログラム若手研究リーダー、文部科学省科学研究費補助金、同省日英ナノテクノロジー若手研究者国際交流プログラム、池谷科学技術振興財団、コニカミノルタ画像科学振興財団の支援を受けた。ここに謝意を申し上げます。

参考文献

- 1) 田中敏幸：ふえらむ, 13 (2008), 483.
- 2) P.A.Midgley and M.Weyland : Ultramicrosc., 96 (2003), 413.
- 3) 馬場則男：顕微鏡, 39 (2004), 4.
- 4) 馬場則男：蛋白質核酸酵素, 49 (2004), 1601.
- 5) R.McIntosh, D.Nicastro and D.Mastronarde : Trends in Cell Biol., 15 (2005), 43.
- 6) N.Kawase, M.Kato, H.Nishioka and H.Jinnai : Ultramicrosc., 107 (2007), 8.
- 7) 古河弘光：日本接着学会誌, 44 (2008), 161.
- 8) M.Fukuda, S.Tomimatsu, K.Nakamura, M.Koguchi, H.Shichi and K.Umemura : J.Electron Microsc., 53 (2004), 479.
- 9) T.Kamino, T.Yaguchi, M.Konno, T.Ohnishi and T.Ishitani : J.Electron Microsc., 53 (2004), 583.
- 10) M.Kato, N.Kawase, T.Kaneko, S.Toth, S.Matsumura and H.Jinnai : Ultramicrosc., 108 (2008), 221.
- 11) D.N.Mastronarde : J.Struct.Biol., 120 (1997), 343.
- 12) J.R.Tong, I.Arslan and P.A.Midgley : J.Struct.Biol., 153 (2006), 55.
- 13) S.Bals, K.J.Batenburg, J.Verbeeck, J.Sijbers and G.Van Tendeloo : Nano Lett., 7 (2007), 3669.
- 14) J.R.Jinschek, K.J.Batenburg, H.A.Calderon, R.Kilaas, V.Radmilovic and C.Kisielowski : Ultramicrosc., 108 (2008), 589.
- 15) N.Baba and E.Katayama : Ultramicrosc., 108 (2008), 239.
- 16) M.F.Schmid and C.R.Booth : J.Struct.Biol., 161 (2008), 243.
- 17) Mel-Build website : <http://www.melbuild.com/>
- 18) P.Gilbert : J.Theor.Biol., 36 (1972), 105.
- 19) J.R.Kremer, D.N.Mastronarde and J.R.McIntosh : J.Struct.Biol., 116 (1996), 71.
- 20) The IMOD HomePage : <http://bio3d.colorado.edu:80/imod/>
- 21) K.Kimura, S.Hata, S.Matsumura and T.Horiuchi : J.Electron Microsc., 54 (2005), 373.
- 22) M.Koguchi, H.Kakibayashi, R.Tsuneta, M.Yamaoka, T.Niino, N.Tanaka, K.Kase and M.Iwaki : J.Electron Microsc., 50 (2001), 235.
- 23) H.Stegmann, H.-J.Engelmann and E.Zschech : Microelectronic Eng., 65 (2003), 171.
- 24) J.Yamasaki, N.Tanaka, N.Baba, H.Kakibayashi and O.Terasaki : Philos.Mag., 84 (2004), 2819.
- 25) K.Inoke, K.Kaneko, M.Weyland, P.A.Midgley, K.Higashida and Z.Horita : Acta Mater., 54 (2006), 2957.
- 26) M.Wayland, T.J.V.Yates, R.E.Dunin-Borkowski, L.Laffont and P.A.Midgley : Scripta Mater., 55 (2006), 29.
- 27) K.Kaneko and P.A.Midgley : Nano Lett., 7 (2007), 421.
- 28) 光原昌寿, 池田賢一, 波多聰, 中島英治, 若井隆純：まてりあ, 46 (2007), 800.
- 29) G.Möbus, R.C.Doole and B.J.Inkson : Ultramicrosc., 96 (2003), 433.
- 30) J.S.Barnard, J.Sharp, J.R.Tong and P.A.Midgley : Science, 313 (2006), 319.
- 31) J.S.Barnard, J.Sharp, J.R.Tong and P.A.Midgley : Philos.Mag., 86 (2006), 4901.
- 32) J.S.Barnard, J.Sharp and P.A.Midgley : Microsc. Microanal., 13 (2007), 150.
- 33) 波多聰, 田中将己, 東田賢二, 宮崎裕也：まてりあ, 46 (2007), 785.
- 34) M.Tanaka, K.Higashida, K.Kaneko, S.Hata and M.Mitsuhara : Scripta Mater., 59 (2008), 901.
- 35) S.Hata, K.Kimura, T.Horiuchi, S.Matsumura and Y.Tomokiyo : Microsc.Microanal., 11 (2005), 18.
- 36) K.Kimura, S.Hata, S.Matsumura, Y.Tomokiyo, T.Moritani and M.Doi : Microsc.Microanal., 11 (2005), 344.

- 37) 木村耕輔, 波多聰, 松村晶: まてりあ, 44 (2005), 958.
- 38) K.Kimura, S.Hata and S.Matsumura: Adv.Mater. Processes, 164 (2006), 46.
- 39) 木村耕輔, GaoHong-Ye, 波多聰, 森谷智一, 松村晶, 土井稔: まてりあ, 45 (2006), 863.
- 40) 木村耕輔, 松山加苗, 波多聰, 松村晶: まてりあ, 46 (2007), 792.
- 41) S.Hata, K.Kimura, H.Gao, S.Matsumura, M.Doi, T.Moritani, J.S.Barnard, J.R.Tong, J.H.Sharp and P.A.Midgley: Adv.Mater., 20 (2008) 1905.
- 42) W.-H.Tian, T.Sano and M.Nemoto: J.Jpn.Inst. Metals, 53 (1989), 1013.
- 43) M.Doi, D.Miki, T.Moritani and T.Kozakai: Superalloys 2004, ed.by K.A.Green et al., (2004), 109.
- 44) M.Doi, T.Moritani, T.Kozakai and M.Wakano: ISIJ Int., 46 (2006), 155.
- 45) M.Doi: Prog.Mater.Sci., 40 (1996), 79.
- 46) R.F.Egerton: Electron Energy Loss Spectroscopy in the Electron Microscope, 2nd ed., Plenum Pub. Corp., New York (1996)
- 47) H.Friedrich, M.R.McCartney and P.R.Buseck: Ultramicroscopy, 106 (2005), 18.
- 48) 松村晶, 東田賢二: ふえらむ, 13 (2008), 487.
- 49) M.Hýtch, F.Houdellier, F.Hüe and E.Snoeck: Nature, 453 (2008), 1086.
- 50) H.Toda, K.Uesugi, A.Takeuchi, K.Minami, M.Kobayashi and T.Kobayashi: Appl.Phys.Lett., 89 (2006), 143112.
- 51) L.Li, H.Toda, T.Ohgaki, M.Kobayashi, T.Kobayashi, K.Uesugi and Y.Suzuki: J.Appl. Phys., 102 (2007), 114908.
- 52) L.Qian, H.Toda, K.Uesugi, M.Kobayashi and T.Kobayashi: Phys.Rev.Lett., 100 (2008), 115505.
- 53) M.Kobayashi, H.Toda, Y.Kawai, T.Ohgaki, K.Uesugi, D.S.Wilkinson, T.Kobayashi, Y.Aoki and M.Nakazawa: ActaMater., 56 (2008), 2167.
- 54) Electron Tomography: Three-dimensional Imaging with the Transmission Electron Microscope, ed.by J.Frank, Plenum Press, New York, London (1992)
- 55) Advanced Tomographic Methods in Materials Research and Engineering, ed.by J.Banhart, Oxford University Press (2008)
- 56) 伊野家浩司, 金子賢治, 堀田善治: まてりあ, 45 (2006), 598.
- 57) 鷹岡昭夫, 田中信夫, 馬場則男: 顕微鏡, 39 (2004), 2.
- 58) 大東琢治, 金子賢二, 杉山昌章, 田中信夫, 土屋浩一, 廣澤渉一, 宝野和博, 松原英一郎, 松村晶, 村田薫, 戸田裕之: まてりあ, 46 (2007), 783.

(2008年8月21日受付)