



躍動

若手研究者・技術者の取り組みと将来の夢

電子顕微鏡による三次元解析に魅せられて

The Essence of Three-dimensional Analysis Using Microscope

西山武志

Takeshi Nishiyama

JFEスチール(株)スチール研究所
分析・物性研究部 主任研究員

副課長

1 はじめに

私はJFEスチール(株)に2015年に入社し、スチール研究所の分析・物性研究部に配属され、現在入社5年目になります。入社以来、主に電子顕微鏡を用いた鉄鋼微細構造解析を基本とし、観察・解析手法開発や先端材料開発等にも関わらせて頂いております。私が研究者の道を志したのは、学生時代の指導教官である九州大学の金子賢治先生の講義を聞いてからでした。材料学部在籍していた私は、専ら材料研究と言えば新規材料開発&そのプロセス開発とばかりに考えていましたが、材料解析というアプローチに心魅かれた記憶があります。それからは、金子先生指導の下、TEM-tomographyを用いた材料3D解析に取り組んでいました。研究室で扱っていた材料は金属だけでなく、セラミックスから有機材料まで解析対象としており、電子顕微鏡のポテンシャルの高さを実感するとともに、様々な材料に触れた経験が今生きていると感じています。

色々な材料を観察してきたと言いましたが、学生時代は終ぞ鉄鋼材料の観察だけでは携わることがなかったのです。そんな私がなぜ鉄鋼会社に入ったのかというと、現在所属の先輩が突然研究室に現れ、声を掛けられたのがきっかけでした。入社して初めての仕事は、Focused Ion Beam (FIB) / SEMを用いたシリアルセクション3D観察に取り組ませて頂き、現在もFIB/SEMだけでなくX線CTなど3D関係の研究に従事しています。本稿では、私が携わった開発事例について少し紹介させて頂くとともに、普段感じている3D観察・解析について述べさせて頂ければ幸いです。

2 3Dの話

現在、材料組織の3D観察手法は急速な発展を遂げ、試料サイズや観察対象物の大きさに応じた手法を選択可能になっ

ています。皆様もご存知の通り、材料の微細構造は原子空孔や元素の偏析、転位、析出物、結晶粒、などナノ～ミクロンの微小領域からミリメートル、またはそれ以上の広い範囲にわたって存在しており、観察対象に応じて適切な手法を選択することが不可欠です。原子レベルで観察可能な3DAP、TEMの分解能で析出物や転位を3D構築可能なTEM-tomography、 μm^3 の体積を解析可能なFIB/SEM法、サブmm～mまでカバーするX線CT、X線CTとFIB/SEMの観察範囲を埋める光学顕微鏡シリアルセクション法 (Optical Microscope Serial Sectioning : OM-SS)、また有機材料の世界では、クライオ電顕を用いたタンパク質の単粒子解析やミクロトームを用いたSerial Block Face (SBF)-SEMや、Array Tomographyなどの手法が用いられ、その観察手法だけでも多岐にわたります。また、単に形態(3D)情報を得るだけでなく、元素情報や結晶方位情報、時間軸を加えた4D・5D観察にも展開され、代表的な手法を挙げると、TEM-Tomography+Energy dispersive X-ray Spectroscopy (EDS) /Electron Energy-Loss Spectroscopy (EELS)¹⁾、FIB/SEM+EDS/Electron Back Scattered Diffraction Pattern (EBSD)²⁻⁴⁾、X線CT+X-ray Absorption Fine Structure (XAFS) /X-ray Diffraction (XRD) /In-situ^{5,6)}、OM-SS+エッチングなどがあります。更には、従来FIBイオン源として用いられるGa⁺の数十倍の体積を加工可能なXe⁺を用いたPlasma-FIB⁷⁾の登場や、TomographyだけでなくLaminography^{8,9)}、再構築手法に圧縮センシングを用いた低露光(低撮影枚数)・高速化^{1,10)}、X線位相イメージングを利用したCTなど、その進化は目覚ましく驚くべきものです。

このように、先達のすばらしい研究と研鑽のおかげで我々は材料を立体的に観察・構築・解析する上で非常に有効なツールを手にしております。しかしながら、3D解析が多くの分野で汎用利用されていないのが現状です。確かに、上記手法を用いた解析を生業にしている方も多くいらっしゃいます

が、いうなればまだまだ“バズっていない”と感じます。その理由の一つについて、3D解析には、大きな「どうするか問題」があるからだと考えています。それは、Ⅰ. 3Dを観察するための「装置や手法」についてどうするか、Ⅱ. 観察された3Dから対象物を認識・分類する「セグメンテーション」をどうするか、Ⅲ. 分類された物体からその特徴を表す記述子を抽出する「定量化」をどうするか、Ⅳ. 得られた記述子と「材料特性との相関」をどうするか、があると考えています。つまり、材料を観察し、目的対象物を見つけ、情報を引きだし、物性と結びつけるという材料解析に必須の要素全てに問題が存在するのです。例えば、SEMなどで二次元像を取得し、結晶粒径を測定した後、Hall-Petchの関係を用いて結晶粒径が強度に及ぼす影響を見積もることが出来ます。逆に言えば、強度が異なる材料があるとき、強度に影響を及ぼす因子に結晶粒径がある→結晶粒径を観察しよう！となるわけです。では3Dの場合はどうでしょうか。そもそも3D構造の何がどう特性と相関があるのか分かっていない現状では何を見ていいのかわかりません。つまりHall-Petchの関係のような粒径（構造を表す記述子）と強度（材料特性）の定式化が出来ていないため、特性が変化したときに、3D構造のここに着目しようという算段が立てられません。何が解明できるのか分からない観察・解析手法を進んでやってみようという方が少ないのは当然かなとも感じています。

3 立ち塞がる困難

「装置や手法」についてですが、3D観察可能な装置自体はすでにかなり普及しており、自前で所有していなくても分析会社に出すことで取得自体は簡単になってきたと感じています。しかし、見たいものを見られるかという観点ではまだまだ困難があります。図1にFIB/SEMにより取得したパーライトのシリアルセクション3D像のyz面（図1 (a)）を示します¹¹⁾。FIBで加工しながらSEMで連続断面を取得していく手法ですが、セクション方向とセメンタイトの位置関係により、3D像が変化してしまいます。セクション方向と成す角が小さいセメンタイトでは、FIB加工幅を変化させても、得られた3D断面像（図1 ((b-c))）に大きな違いはありません。しかし、成す角度が大きい場合、FIB加工幅の違いにより観察される像が大きく異なってしまいます（図1 (d-e)）。細かい加工幅（図1 (d)）ではセメンタイトが線（板）状になっているのが確認できますが、粗い加工幅（図1 (e)）ではぶつ切りになっており、あばら骨の様相を呈しています。これは、観察組織の方向・方位によって見かけの分解能が変化するという事を意味しています。一般的にFIB/SEMのセクション方向の分解能はFIB加工幅で決まりますが、そ

の幅を設定するためには材料に関して、どのような組織をどのような方向からどのように観察するかを把握する必要がありますということを示しています。またセメンタイトのコントラストが明瞭になるようSEM観察条件を決定しなければならないなど、材料や装置に関して深い知識が必要になります。

また、加工に関しては単に方向だけではなく、その加工条件也非常に大切になります。図2 (a) (b) に示すのは、鋼板中の残留 γ 相のEBSD Phase-mapになります。FIB加工前では観察されていた残留 γ がFIBで加工を進めると全く観察されません。FIBによる加工をいくら進めても結果は変わらず、FIBによる加工で残留 γ がマルテンサイト変態していることが後の調査で分かりました¹²⁾。このように、単純に装置があれば見たいものが見れます、という話にはならず、まず“見る”だけでも困難が付きまといます。

また、3Dが得られた後でも、対象物を「セグメンテーション」しなければなりません。私は最近、セグメンテーションに関するセミナーに良く参加するのですが、そこには無機材

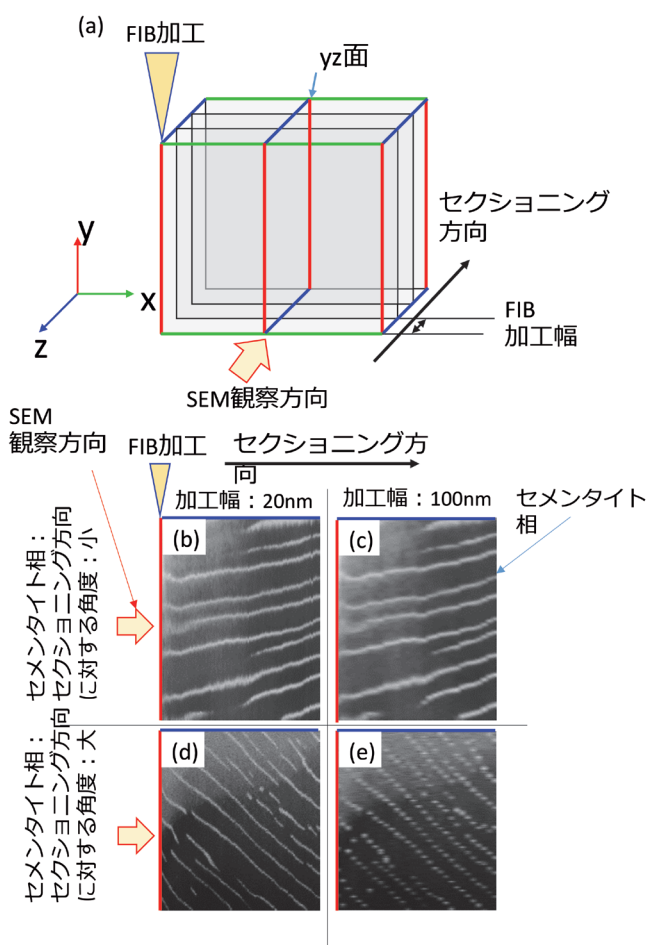


図1 (a) FIB/SEM-3D観察模式図
加工方向とほぼ平行なセメンタイトの場合：加工幅 (b) 20nm
(c) 100nm
加工方向に対して角度を持つ場合：加工幅 (b) 20nm
(c) 100nm

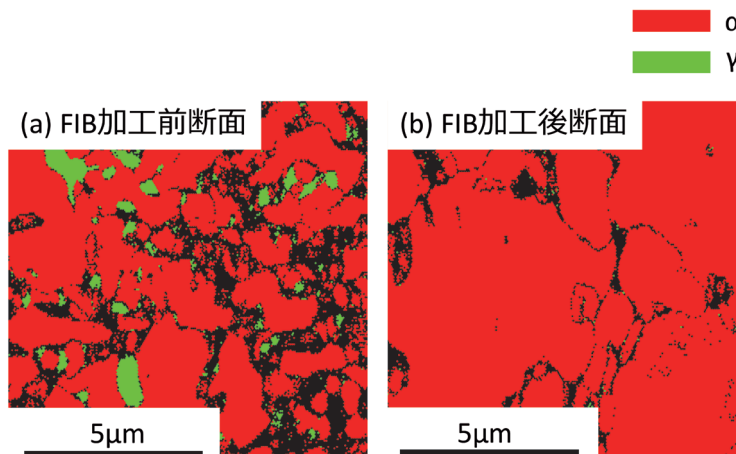


図2 FIB加工 (a) 前 (b) 後 の断面から取得したEBSD Phase-map

料だけでなく、むしろ有機材料系の方が多くいらっしゃいます。少し話させて頂くと、鉄は見えるからいいよね、有機材料はそもそも“見えない”のだからセグメンテーションが難しいよ、と仰る方が多くいらっしゃいます。そこで、私が良く返すのは、鉄鋼材料の世界では、結晶方位によるコントラスト等、“同じものであっても違うように見える”ためにセグメンテーションが困難という難しさがありますよ！ということです（結晶方位が異なるので違う物、とも言えますが）。図3にパーライトのFIB加工断面でのSEM観察像を示します。場所によるフェライト粒のコントラスト変化が大きいことや、フェライトとセメンタイトの明るさがほぼ同じ領域では、セメンタイトが確認困難になっていることが分かります。各相の分類は、人の目で見ればやってやれないことはありませんが、非常に時間のかかる作業となり、3Dを構築する数百枚の全ての画像に行うのはとても現実的ではありません。セグメンテーションはこれが出来ないと次に進めないという意味では、現状の3D解析の中で一番重要であり困難な過程であると言えます。

これらを乗り越えて、ようやく「定量化」に向かうことが出来ます。先ほどセグメンテーションが一番重要で困難だと言いましたが、この「定量化」と「材料特性との相関」がある意味3D解析の価値を左右する所とも言え、解決すべき課題だと思っています。セグメンテーションは目的を達成する手段、つまり分類すること自体は非常に困難ではありますが、何を見たいかという目標は定まっています。対して定量化は、目的物の形態やサイズ、分散状態などとりあえず求めることは出来ますが、その目標が不明瞭です。つまり、何に着目し、どのように組織構造を定量してやれば良いのか、過去知見や経験から推し量ることは出来ますが、まだまだファジーな状態であるかと思います。また材料特性が、ある一つ

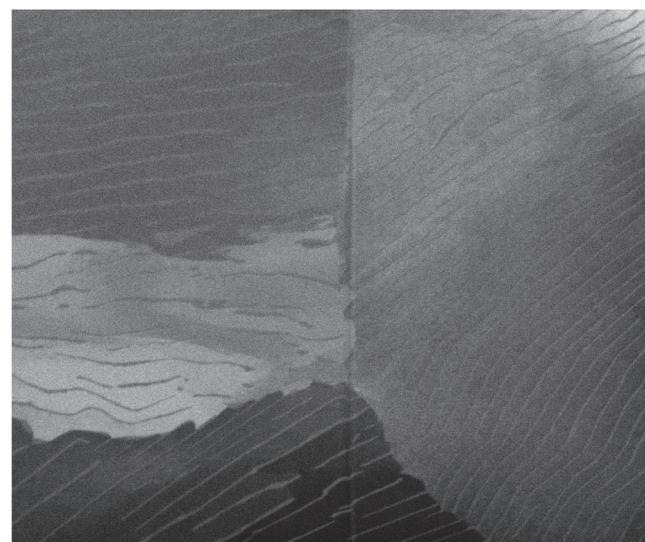


図3 パーライト鋼のFIB断面SEM観察像

の因子に大きく依存している状態であればまだやりようはありますが、昨今のように組織が微細化・複雑化し、より多くの因子が絡み合っている状態で全ての因子を網羅的に解釈することは非常に困難です。この因子の解明並びに特性との相関が得られなければ、何の為に3D解析をするのか、という話になります。

4 どうするか問題をどうするか

非常に難しい「セグメンテーション」や構造の「定量化」について次の一手として注目されている物があります。自分が出来ないのならできる人を連れてくれば良い、人間にできないのなら機械にやらせれば良い、表現できないのなら表現できるものを持ってくれば良い、という事でAIを用いた画像

認識技術と、数学という言葉を利用した構造抽出が盛んに行われています¹³⁻¹⁷⁾。セグメンテーションに関して、人間の目で見れば確かにあるのに、どうやってもうまく行かないという経験は良くあります。機械は画像の単一ピクセルの輝度しか判断せず、界面に固有の輝度勾配や組織毎に固有のテクスチャーの認識が出来ないからです。AIによる画像認識技術を用いることで、こうした状況を打破することが可能であり、すでに鉄鋼材料に適用した報告もあります¹⁵⁾。また、構造抽出に関して、例えば析出物が分散している状態を上手く表現しようとした時、ひとまず個々の粒子のサイズや形態を求め、その後、個々の粒子の集まりをある群として近接距離や動径分布、全体に対しての体積率などを求めます。こうした作業の後、あるサンプルでは粒子が小さく細かく分散していて、またあるサンプルは粒子が大きく、凝集している～等解釈していきます。しかし、これだけでも5つ6つと因子があり、それらを全て横に並べて比較するのは難しく、何がどう相関があるのか理解するのは困難です。例えば、そうしたある分散した系に対して、複数の要素を盛り込んだある一つの因子に落としこむ、つまり構造の本質を抽象化・数値化が出来れば非常に扱いやすくなります。例の一つとして、シリカの構造解析に、数学の位相情報を用いた解析が非常に効果を発揮した報告があります¹⁶⁾。こうした解析手法は、問題として考えている「セグメンテーション」や構造の「定量化」にまさに直撃の手法であり、非常に感銘を受けました。現在では、私の専門である観察技術と上記技術を生かした解析手法の融合を目指しております。

5 おわりに

今回ここで述べさせて頂いたことは、大部分がこの分野の中で当然に議論がなされている事であり、まだまだ若輩な私がかかったような話をする事をご容赦頂ければ幸いです。3D観察やその解析・解釈に関して、目下の課題はセグメンテーションであり、次に情報抽出の世界であると考えています。セグメンテーションはAIの力、構造情報の抽出は数学という言葉を用いることでブレイクスルーが生まれつつあります。個人的に、次は3Dの定量化という構造記述子に加えて、その構造の変化・変形・変態状態を表す、変形記述子のような特徴量が必要なのではとも考えています。そこで、私は3Dだけではなく、In-situ観察も開始しています。今はまだIn-situ観察分野の動向を探りつつ味見をしている程度ですが、3D+In-situは今後の解析技術の根幹を成すだろうと感じており、邁進していく所存です。最後に、このような機会を与え下さったことを感謝いたします。

参考文献

- 1) S.M.Collins and P.A.Midgley : Ultramicroscopy, 180 (2017), 133.
- 2) M.A.Groeber, B.K.Haley, M.D.Uchic, D.M.Dimiduk and S.Ghosh : Materials Characterization, 57 (2006), 259.
- 3) P.G.Kotula, M.R.Keenan and J.R.Michael : Microscopy and Microanalysis 12 (2006), 36.
- 4) G.D.West and R.C.Thomson : J. Microscopy, 233 (2009), 442.
- 5) H.Toda, E.Maire, Y.Aoki and M.Kobayashi : The J. Strain Analysis for Engineering Design, 46 (2011), 549.
- 6) A.King, G.Johnson, D.Engelberg, W.Ludwig and J.Marrow : Science, 321 (2008), 382.
- 7) T.L.Burnett, R.Kelley, B.Winiarski, L.Contreras, M.Daly, A.Gholinia, M.G.Burke and P.J.Withers : Ultramicroscopy, 161 (2016), 119.
- 8) F.Xu, L.Helfen, T.Baumbach and H.Suhonen : Optics Express, 20 (2012), 794.
- 9) 古君修, 竹田祐二, 山本正之, 荒牧正俊, 宗藤伸治, 竹内晃久, 井手洋文, 中崎盛彦 : 鉄と鋼, 103 (2017), 33.
- 10) 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 : 顕微鏡, 51 (2016), 48.
- 11) 西山武志, 仲道治郎, 名越正泰 : 材料とプロセス, 29 (2016), 871.
- 12) T.Nishiyama, H.Nakamichi and M.Nagoshi : 19th International Microscopy Congress, Sydney, (Sept 2018)
- 13) 例えば 足立吉隆 : まてりあ ミニ特集「マテリアル・プロセス・計測インフォマティクスを一層推進するための最新数学・情報工学の基礎と材料工学への適用例」, 58 (2019), 6.
- 14) 例えば 出村正彦 : まてりあ ミニ特集「SIP-MIプロジェクト」, 58 (2019), 488.
- 15) 田口茂樹, 弘川奨悟, 安田格, 徳田耕平, 足立吉隆 : 鉄と鋼, 103 (2017), 3.
- 16) Y.Hiraoka, T.Nakamura, A.Hirata, E.G.Escolar, K.Matsue and Y.Nishiura : Proc. National Academy of Sciences of the United States of America, 113 (2016), 7035.
- 17) M.Januszewski, J.Kornfeld, P.H.Li, A.Pope, T.Blakely, L.Lindsey, J.Maitin-Shepard, M.Tyka, W.Denk and V.Jain : Nature Methods, 15 (2018), 605.

(2019年7月16日受付)

先輩研究者・技術者からのエール

九州大学 工学研究院 エネルギー量子工学部門 教授

村上 恭和

材料分野の将来を担う若手に対して期待と親しみを込めて、本稿では敢えて“西山さん”と呼ばせて頂きます。原稿を拝読してまず感じた事は、熱意と行動力の両方を備えた若手研究者に対する99%の敬意と、1%の嫉妬心（むしろ憧れと言った方が良いかもしれません）という所かと思います。体当たりで研究に臨める若手の時期は、朝目覚めたとき、外を出歩いているとき、シャワーで1日の疲れを洗い流しているとき、至る所にひらめきや反省のチャンスが潜んでいると思います。おそらく西山さんも、そのような時期にあるのではないのでしょうか。

筆者の専門である電子顕微鏡に話しを移すと、まず微細構造の三次元再構成（以下3Dと略す）の手法が抱える技術的課題や、同手法の普及を阻んでいる諸問題を、多面的で冷静に分析されていると思います。このうち「セグメンテーション」の問題提起で、本質的に像コントラストがつきにくい生体関連試料と、逆にコントラストは強くても回折・散乱に関わる複雑な解釈を要する金属試料を対比させている部分は、3D技術に携わる研究者・技術者の肉声を聞いたというだけでなく、内容そのものに感心を持ちました。金属材料やセラミックス材料の解析では、回折・散乱に起因するコントラストは厄介者でもあり、その一方、極めて貴重な情報源でもあります。このコントラストを時には回避しつつ、時には積極的に使いこなして、分析手法としての強化・発展を進めて頂

きたいと思います。また、大規模な画像データの解析に機械学習の支援を導入するという取り組みは、まさに時流を踏まえた試みだと思います。そこで人工知能（AI）に教え込むものは、電子顕微鏡像の正しい読み取り方であり、ここでも回折や散乱の理論に基づく解釈が重要となります。材料科学と回折理論の両方に見識のある西山さんのような研究者に、是非ともリーダーシップを発揮して頂きたい新興分野だと思います。

最後に、益々のご活躍を祈念したコメントで締めくくりたいと思います。材料評価の手法は、どれも得手・不得手を伴うと思います。西山さんの原稿では、三次元再構成されたデータをどのように定量化し、どのように材料物性・材料機能の探求へとつなげて行くか、という思考プロセスの重要性が説かれていました。王道と言える描像・見解で、大いに賛同します。それに加えて、例えば完全無欠の定量化に至らずとも、「この部分は3Dでない」といって類いの問題についても、ぜひ開拓心を持ち続けて頂きたいと思います。例えば医療分野では、患者個人の血管配置などを予め三次元的に掌握し、外科手術の手順をテーラーメードする事例があると、小耳に挟んだことがあります。材料組織の解析でも、「3Dにはこんな使い方があるのか」という、西山スペシャルの提案を期待しています。西山さんの一層のご活躍を確信しています。

株式会社メルビル 研究開発部 部長

權堂 貴志

電子顕微鏡に携わる同年代の若手研究者の中でも西山さんの電子顕微鏡の操作技術とそれに対する情熱は際立つものがあるように感じます。彼と私の歳はさほど変わりませんが、その差はやはり電子顕微鏡に没頭して人生を捧げた時間の違いにあるのかもしれませんが。彼とは学生時代から付き合いがあり、彼の研究に対する姿勢を見てきた経緯もあり、同じ電子顕微鏡に携わる者として私はまだ駆け出しではありますが、諸先輩方に前に僭越ながら今回のコメントを引き受けさせていただきました。

西山さんが本稿で述べているように、三次元観察は近年、比較的容易に取得できるような仕組みが確立しつつありますが、手法や原理、その課題を知ることの重要性は未だ失われておらず、また、対象の材料をよく知っておくことは必須であると思います。そうでなければ、いろいろな罫にもハマりうるし、見えていないはずのものが見えてしまうことだってあります。つまり、故意でなくても嘘の結果や意味のない結果に行き着く可能性があるということです。もちろん、他の装置や解析でも全く同様のことが言えるのかもしれませんが、三次元解析はセグメンテーションという色塗り（二値化）工程があるので、恣意的な結果に陥る可能性も否定できません。このような観点から、西山さんが着眼しているようなAIを用いた手法などはより客観的に解析を行う上で、今後より重要な位置づけになると感じています。

西山さんがトピックスとして上げている三次元解析とその問題点、特に“どうするか問題”は、三次元解析に携わる方であればおそらく同じ思いの方も多いのではない

かと思います。私が思う“どうするか問題”は一言でいうと、大量の情報をどうするかということです。つまり、3次元データからは、知識と解析技術次第で無数の情報が得られてしまいます。もちろん何でも数値化すればいいわけではありませんが、確固たる解析の方針がないと定量された値と特性をどう結びつけていいのかわからない場合が多く、初めて三次元解析を行う場合は注意が必要となります。本稿は、諸先輩方にもう一度この課題に対して問いかける意味でも、後輩らに意識を働かせる意味でも非常に有意義なものになったと思いました。もちろん、それぞれがそれぞれの考えで“どうするか問題”に対応してきているはずではありますが、より多くの人が用いることのできる“一般的な手法”として確立していくために、携わる皆にもう一度考えを巡らせてもらういい機会になったのではないのでしょうか。

また、本稿で3D + In-situについて触れられています。分野は異なりますが似た着眼点で研究している研究者を幾ばくか知っています。私の知る限り3D+In-situの応用の幅は広く、実現することができれば材料科学の分野のみならずその先の産業界にもブレークスルーをもたらす可能性を秘めていると感じています。西山さんがこれから続ける仕事には新しい技術を活用した三次元解析のいわば未来的側面とともに、これまでも、また、これからもあり続ける課題に対する答えを見つけていくための厳しい道のりのように思いますが、今後の西山さんの活躍に大いに期待したいと思います。