



実空間ナノスケールその場観察による溶液からの結晶化初期過程の解明

ナノマイクロ科学および
その関連分野

研究者所属・職名 : 低温科学研究所・教授

ふりがな きむら ゆうき

氏名 : 木村 勇気

主な採択課題 :

- [基盤研究\(S\)「非平衡過程の実空間観察手法の転換：TEMによる溶液からの核生成過程の解明」\(2020-2024\)](#)

分野 : ナノ構造物理、結晶成長

キーワード : 核生成、ナノ粒子、透過型電子顕微鏡、その場観察、結晶成長

課題

●なぜこの研究をおこなったのか？(研究の背景・目的)

核生成は、原子や分子などが集合して粒子を形成するプロセスで、生成粒子のサイズや数密度、形、結晶構造などを決めるため、そのメカニズムの理解は物質形成において決定的に重要である。しかしながら、核生成の物理、化学過程の理解は未だに乏しく、そのために核生成理論も発展途上である。我々は、「安定な結晶核の生成までに何が起きているのか?」、「安定な結晶核の生成ルートはどのように決まるのか?」を明らかにすることを目指している。

●研究するにあたっての苦労や工夫(研究の手法)

水溶液から核が形成し、結晶へと成長する過程をナノスケールで観察するために、透過型電子顕微鏡を用いた“その場”観察手法を開拓しながら研究を進めている。透過型電子顕微鏡の鏡筒内は高真空を保つ必要があり、そのままでは水溶液試料を観察することができない。そのため、観察手法を開拓しながら研究を進めてきた(図1)。また、電子線の影響を低減するためや水和層の影響を知るための手法を開拓することで観察対象を拡大してきた。



図1 液中観察を主目的として構築してきた透過型電子顕微鏡。



実空間ナノスケールその場観察による溶液からの結晶化初期過程の解明

ナノマイクロ科学
およびその関連分野

研究成果

●どんな成果がでたか？どんな発見があったか？

本研究では、透過型電子顕微鏡に機械学習を導入することに成功し、その助けを借りた“その場”観察を行うことができるようになった。その結果、画像の鮮明化、核生成の早期検出、粒子サイズ計測を機械学習に任せられるようになった。これにより、溶液から発生する塩の結晶の核発生を検出でき、成長速度の時間変化も同時に解析できるようになった(図2)。その結果、シンプルな溶液からの塩の核生成においても初期はNa⁺とCl⁻イオンが集合した濃度の濃い溶液で、直径400 nm程度になると結晶になる二段階のプロセスで起こることが分かった。

さらに、透過型電子顕微鏡観察中に溶解させた炭酸塩結晶の近傍で、分子が再び凝集して微粒子が生成する様子を原子分解能レベルで観察することに成功した(図3)。微粒子のサイズは数nmであり、直ちに溶解するため、臨界核以下の結晶を捉えている。結晶核が現れる数枚前の画像を教師データとして、揺らぎの中に埋もれているクラスターの構造を機械学習を用いて検出する試みを行ったところ、核生成前のクラスターの検出に成功した。これは、特徴的な構造を持つembryoと呼ばれる前核生成クラスターが溶液中に存在し、核生成に重要な役割を果たしている可能性を示す成果である。また、溶解直後の像からは同様のembryoは観察されなかった。これは、溶解過程は単に核生成過程の逆過程ではないことを示唆している。この非平衡過程のナノスケール実空間観察手法は、核生成過程の理解に新たなアプローチを与える成果である。

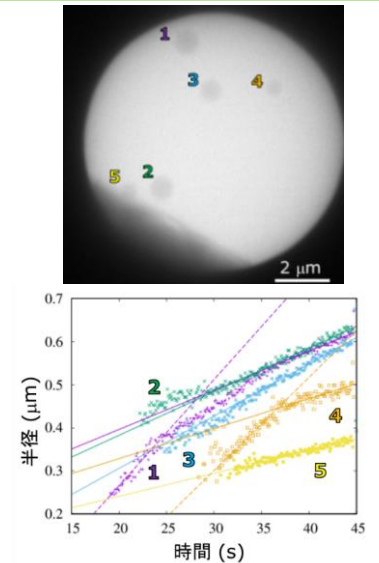


図2 機械学習による核生成イベントの早期検出とサイズ変化の計測例。

今後の展望

●今後の展望・期待される効果

機械学習の助けを借りた非平衡過程の透過型電子顕微鏡による実空間観察(図3)は、微小な空間でランダムに起こる溶液からの核発生の効率的な観察を可能にする。これは、核生成を支配するキーファクターの理解や核生成の理論モデルの構築につながり、原子や分子から材料を作るボトムアップによるナノ粒子や結晶の生成過程をデザインできる世界の到来が期待される。

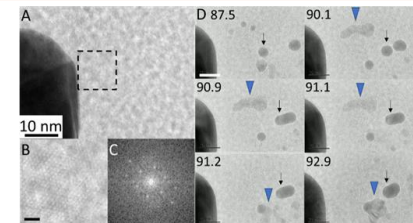


図3 前核生成現象の高分解能透過型電子顕微鏡観察結果。