入門講座
組織の3次元可視化に関する研究-1

組織の3次元可視化が材料研究に及ぼす影響

Three-Dimensional Visualization and Characterization of Metallic Microstructure and It's Influence on Materials Research

> 榎本正人 Masato Enomoto

茨城大学 工学部マテリアル工学科 教授

し はじめに

近年、いろいろな分野でコンピューターによる3次元可視 化技術が取り入れられるようになった。金属材料でもX線、 電子線トモグラフィー、3次元アトムプローブなどによりナノ からミリメートルのスケールで組織の3次元画像を合成し、 観察や解析が行われている。これはコンピューターのハード とソフトの急速な発達によって可能になったことは言うまで もない。材料学において、3次元化がどのようなご利益をも たらすかと言えば、組織の形態や大きさ、介在物などの空間 分布、変態や析出物の核生成サイト、ボイドや孔 (porosity) の連結構造などが3次元で観察でき、それによって、理論の 検証や現実に近い解析、評価法の向上などが期待できる。

3次元画像を得るためには対象の全情報を取り込まなくて はならないが、その方法は使用する装置に応じてさまざまで ある。本稿はこのシリーズの第1報として、金相学的なシリ アルセクショニングによって得られた3次元合成画像とその 解析結果を紹介する。なお、3次元可視化については国内外 で解説や特集号が組まれているので参照して頂きたい¹⁵⁾。

23次元化の手順

3次元化の中でシリアルセクショニングは最も時間と労力 のかかる部分である。簡単にその手順を説明すると、試料に 硬さ試験機で圧痕を付け、通常の方法で研磨と腐食を行う。 CCDカメラで組織写真を撮り、パソコンに取り込む。Fig.1 に低炭素鋼の溶接部に生成するアシキュラーフェライトの3 次元化を行ったときの組織写真を示す⁶⁾。圧痕の中心を目印 にして、画像を整列させ、同時に圧痕の対角線の長さの変化 から、研磨の深さを算出する。対象や目的に応じて、必要な枚 数(50~200枚)の組織写真を撮り、整列やマスキングの後、 AVSのような可視化ソフトを用いて3次元画像に変換する^{1,2)}。

3、析出物の形態と成長挙動

初析フェライトなどの変態生成物や析出物の形態は、大き く2つに分けられる。一つは等軸状の粒界アロトリオモルフ (allotriomorph) や粒内イディオモルフ (idiomorph)、もう 一つは研磨面では細長く見えるプレートである。Fig.1で粒 界に沿って生成している等軸状の粒子が粒界フェライトアロ トリオモルフ、粒内に細長く見えるのがフェライトプレートで ある。粒界フェライトアロトリオモルフは全ての温度域で生 成するが、過冷度が大きくなるとプレートが生成し、その割 合も大きくなる。また、イディオモルフは粒内に介在物など の優先核生成サイトがあれば、比較的低過冷度でも粒内に生 成する。プレートというのは大まかな分類であって、形状が 本当にプレートであるかは必ずしも明らかではない。実際、 SpanosらはFe-C-Ni 合金の粒界1次サイドプレート(直接粒 界から生成しているプレート) が三角形の形状をしているに の対し、2次サイドプレート(粒界アロトリオモルフから生成 しているプレート) はラス、またはプレートの形状をしてお り、2次元観察に基づいた形態の分類とは別の分類が3次元



 Fig.1 Hardness indentation for aligning section images (dashed square), applied to acicular ferrite microstructure in the weld deposit of a SM490 base plate ⁶⁾.
 'g.b.' is a prior austenite grain boundary. 形態には必要と報告している^{7,8)}。

低炭素鋼の溶接部に生成するプレート状のフェライトはア シキュラーフェライトと呼ばれるが、筆者らはシリアルセク ショニングによってそれらを3次元合成し、各プレートのサ イズを実測した⁷⁾。Fig.2に生成初期段階におけるアシキュ ラーフェライトの長さ対幅の測定結果を示す。これによる と、プレートと長さ対幅の比は2:1~5:1くらいが最も多 く、実際の形状はラス (lath) に近いものであることがわかっ た。また、成長挙動ははじめに長さと幅が増加し、やや遅れ て厚さが増加する傾向が見られた。さらにラスの面はオース テナイト母相の {111} 面、成長方向は <110> 方向にほぼ平行 であることも明らかになった^{6,9}。

Fe-C-Mo合金やFe-C-Cr合金のTTT曲線は中温域で深 いくびれを有し、くびれ以下の温度では、デジェネレート フェライト(degenerate ferrite)と呼ばれる不規則な形状の フェライトが生成する^{10,11)}。個々のプレートを見ると、成長 方向に垂直な断面の形状は等軸的で、プレートよりもニード ル(needle)に近いことがわかる。これらのプレート(ニード ル)はオーステナイト粒界から多数成長し、成長の過程で合 体して不規則な形状を生ずると考えられる。

-4、 粒内変態・析出の核生成サイト

母相の結晶粒界は変態や析出の優先核生成サイトである。 そのため、2次元断面において、粒内に析出物が観察される と、粒界に核生成した後で粒内に成長したものかどうかが常 に問題となる。介在物を起点とする粒内フェライト変態でさ え、研磨面上で介在物と接触していないフェライトは、オー ステナイト粒界に核発生して粒内に成長した可能性を捨てき れない。また、Ti合金で粒内に観察されるαプレートが真に 粒内プレートであるかもしばしば問題になる。

Fig.3はシリアルセクショニングによってTi-9Mo 合金の粒



Fig.2 Distribution of lengths and widths of acicular ferrite plates. The specimen, taken from the weld deposit of low carbon steel weld, was austenitized at 1350°C for 150s and isothermally held at 570°C for 1 and 55 ⁹⁾.

内プレートを3次元合成したものである¹²⁾。途中にくびれは あるが、表面下で母相粒界に接していることがわかる。接し てはいるものの、むしろ点接触という感じである。これか ら、粒界で核発生したとは断定できないが、少なくとも粒界 に接していることは確認できる。これとは対照的に、S(硫 黄)とVをそれぞれ0.01%と0.05%含むFe-0.09C-1.5Mn-0.2Si合金では、観察した領域に属するすべての粒内フェラ イトが粒内介在物(MnS+VN)を含むか、接していることが 観察された¹³⁾。また、溶接部のアシキュラーフェライトの中に は、介在物と接していないものも多く見られたが、これらは共 鳴核生成によって、プレート表面に核生成したと考えられる。

シリアルセクショニングにより粒界の核生成サイトとし て、粒界面、エッジおよびコーナーを識別して核生成挙動を 観察できる。2次元断面における粒界三重点は粒界エッジと 試料表面との交点である。セクショニングを続けていったと き、粒界がFig.4に示すように変化すれば、2つの断面の間 に粒界コーナーが存在することがわかる。このような方法で Co-15Fe 合金を用い、fcc(γ)母相粒界のコーナーに核生成 した bcc(α)析出物の数を数えたところ、γ/(γ+α)境界





Fig.3 3D-reconstructed image of an intragranular α plate in a Ti-9Mo alloy, solution treated at 1000°C for 600 s and isothermally held at 750°C for 18 ks¹².



Fig.4 α particle nucleated at the grain corner of the γ matrix in a Co-15Fe alloy, austenitized at 1000°C for 1.8 ks and isothermally held at 650°C for 24 h¹⁴.

より~100℃低い温度で保持した試料では、~60%のコーナー に α 粒が析出しているという結果が得られた¹⁴⁾。

5 多結晶粒の幾何学的性質

多結晶材料の機械的性質は平均粒径だけではなく、粒径の ばらつきにも依存する。一方、粒成長は粒径だけでなく局所 的な面数の相違が引き金になって起こる。粒径は2次元断面 における測定から、立体統計により一定の精度で推定できる が、面数については3次元観察が必要である。粒成長を起こ している2次元のセル組織の平均角数は6より小さいが^{15,16}、 これは周囲より面数(あるいは角数)が小さい結晶粒が収縮 して粒成長が起こるためと考えられる。3次元結晶粒のモデ ルとして Kelvinの14 面体がよく用いられるが、3次元で粒 成長を起こすためには、平均面数は14 以下であると予想さ れる。Fig.5 はシリアルセクショニングにより、正常粒成長の 途上にある純鉄の~1,000 個の結晶粒の面数を測定した結果 である¹⁷⁾。これによると、最も数が多かったのは11面体であっ た。全体の平均値は12.1 であり、予想通り14より小さい。

多結晶粒の面数については、隣接する結晶の間で、アボア ブ-ウェア (Aboav-Weaire) 則と呼ばれる相関関係があると 言われている¹⁸⁾。ある結晶粒の面数を*f、それを*取り囲む*f* 個 の結晶粒の平均面数を*m*とすると、上記の相関はA、Bを定 数として、

$$m = A + \frac{B}{f} \qquad (1)$$

のように書き表される。ただし、





Fig.5 Face number distribution of polycrystalline grains of iron, 70% cold rolled and annealed at 750°C for 1 h ¹⁷⁾. For white and black circles see Fig.3 of ref.17.

miはi番目の隣接粒の面数である。結晶粒の大きさは面数と ともに増大する関係にあるので(3次元の周長則)、Aboav-Weaire則は大きい結晶粒の周辺には、小さい結晶粒が集ま る傾向があることを示唆している。Fig.5の~1,000個の結晶 粒のうち、測定体積の内部にあって、隣接粒の面数がすべて 測定できた~280個の結晶粒について、隣接する結晶粒との 相関を調べた結果、Fig.6に示すようにほぼ直線関係にある ことが示された¹⁷⁾。

6 パーライト層間隔、 粒界面方位の測定

パーライトの層間隔は、等温保持で生成した場合でもコロ ニーごとにばらつきがあると言われている¹⁹⁾。ばらつきを生 ずる物理的な原因は、統計的なゆらぎや、パーライト変態に 伴って発生する潜熱による再輝 (recalescence) などが考え られている。層間隔のばらつきは以前から研究されている が、筆者らはシリアルセクショニングに伴うセメンタイトラメ ラーの水平方向のずれからラメラーと試料表面の角度を決め、 コロニーごとに層間隔を直接測定することを試みている²⁰⁾。 Fe-0.8C 合金におけるパーライトコロニーの層間隔の分布を Fig.7に示す。ばらつきの原因が統計的なゆらぎであれば、 真の層間隔の平均値、再輝がばらつきの原因とすれば、最小



Fig.6 Experimental verification of Aboav-Weaire's law concerning the spatial correlation of face numbers. 'm' is the mean value of the face numbers of all the grains surrounding a central grain whose face number is denoted f¹⁷.



Fig.7 Distribution of true interlamellar spacings of pearlite colonies in a Fe-0.8%C alloy measured by serial sectioning. The specimen was austenitized at 1100°C for 10 min and isothermally held at 680°C for 2 h ²⁰⁾.

値が理論と比較されるべき値となろう。

EBSPによる方位解析と合わせれば、同様な原理で粒界や 異相界面の方位を決定することができる。粒界は母相粒の方 位差と粒界自身の面方位と合わせて、5つの自由度がある。 これらのうち、母相粒の方位差は測定が容易であり、析出挙 動や粒界移動が方位差と関係付けて論じられることは多い。 しかるに、粒界の面方位も粒界エネルギーやモビリティー、 あるいは析出物の核生成能に大きく影響するので、面方位も 重要なパラメーターの一つである。また、マルテンサイトの 界面ファセットの方位分布の測定も行われている²¹⁾。

ろ 終わりに

3次元可視化による効用として、第一にあげられるのは対 象をリアルに観察できることによる教育的効果であろう。そ れ以上に重要なのは、2次元観察では得られない新規の情報 が得られることである。本稿では、金相学的なシリアルセク ショニングによる3次元合成について述べたが、FIBを SEM の真空チェンバー内に設置してセクショニングと組織観察を 自動的に繰り返す装置も出回ってきている。今後 FIB-SEM、X線、電子線トモグラフィなどにより、迅速で効率の よい3次元のキャラクタリゼーション技術が開発され、それ により従来の理論の検証や高精度の解析が可能になり、それ らを利用した材料開発のブレークスルーが各方面で実現する と期待される。

参考文献

- M.V. Kral, M.A. Mangan, G. Spanos, and R.O. Rosenberg: Mat. Char., 45 (2000), 17.
- 2) 榎本正人: 鉄と鋼、90 (2004), 183.
- 3) G. Spanos: Scripta Mater., 55 (2006), 3.
- 4) M.D. Uchic: JOM, 58 (2006), 24.
- 5) 大東ら:まてりあ,46 (2007) 12,783.
- 6) M. Enomoto, K.M. Wu, Y. Inagawa, T. Murakami and

S. Nanba: ISIJ Int., 45 (2005), 756.

- M.V. Kral and G. Spanos: Metall. Mater. Trans.A, 36A (2005), 1199.
- 8) G. Spanos, A.W. Wilson and M.V. Kral: Metall. Mater. Trans.A, 36A (2005), 1209.
- K.M. Wu, Y. Inagawa and M. Enomoto: Mat. Char., 52 (2004), 121.
- 10) K.M. Wu and M. Enomoto : Scripta Mater., 46 (2002) , 569.
- 11) R.E. Hackenberg, D.P. Nordstrom and G.J. Shiflet : Scripta Mater., 47 (2002), 357.
- 12) H. Guo and M. Enomoto: Acta Mater., 50 (2002), 929.
- 13) T. Yokomizo, M. Enomoto, O. Umezawa, G. Spanos and R.O. Rosenberg: Mater.Sci.Eng., A344 (2003), 261.
- 14) T. Takeuchi, Y. Adachi, D. Dorner and M. Enomoto : Mater. Sci. Forum, 561-565 (2007), 69.
- 15) H. Hsu: Can.Met.Quart., 13 (1974), 275.
- 16) F.C. Hull: Mater.Sci.Tech., 4 (1988), 778.
- 17) C.Zhang, A.Suzuki, T.Ishimaru and M. Enomoto : Metall.Mater.Trans.A, 35A (2004) , 1927.
- 18) S.F. Edwards and K.D. Pithia : Physica A, 205 (1994) , 577.
- 19) G.E. Pellisier, M.F. Hawks, W.A. Johnson and R.F. Mehl: Trans.ASM, 30 (1942), 1049.
- 20) G. Zhang, T. Miyamoto and M. Enomoto : CAMP-ISIJ (Preprint of 155th ISIJ Meeting), 2008, March, 628.
- 21) D.J. Rowenhorst, A. Gupta, C.R. Feng and G. Spanos: Scripta Mater., 55 (2006) , 11.

(2008年5月7日受付)