

3D-EBSD法による三次元可視化

3D EBSD Tomography

足立吉隆 Yoshitaka Adachi

(独) 物質・材料研究機構 材料ラボ 融合領域研究グループ 主幹研究員

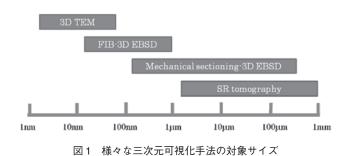
(]) はじめに

パーライト組織は、小さい組織単位から、ラメラー、コロ ニー、ブロックという階層組織で構成される。マルテンサイ ト、ベイナイトはラス、(サブ) ブロック、パケット組織を有す る。フェライト変態の優先核生成サイトであるオーステナイト 粒界には粒界面だけではなく、粒界コーナー、エッジがあ る。様々な表面処理鋼板は複数の相で構成され、その界面は 複雑に入り組んでいる。材料中の亀裂の発生サイトや、伝播 方向については、一断面の観察では確信も持ったことがいえ ない。以上は、鉄鋼材料にかかわる多くの組織が複雑な形態 を有していることを物語っている。一方、組織を定量化する ことも重要であり、複雑な組織のサイズや形態を等軸円換算 や回転楕円体に簡略化してこれまで評価が行われてきた。よ り一階層上の特性や、材料信頼性を得るためには、これまで 行われてきた組織の平均的な固有値 (例えば、結晶粒径)の 究極的な制御に加えて、組織形態の複雑性 (例えば、入り組 み度)を積極的に制御することも今後必要になってくるもの と思われる。例えば、フェライトーマルテンサイト二相鋼 (DP鋼) 中のマルテンサイトの連結性が強度-延性に及ぼす 影響は更なる引っ張り特性を向上するうえで魅力ある課題で ある。さらに組織の不均一性の空間分布および粒径分布が特 性、信頼性(特性のバラツキや、疲労強度、靭性)に及ぼす 影響についても定量的に議論できる段階ではなく、今後の重 要な課題と思われる。

冒頭に述べたパーライト組織一つをとっても、ラメラーやコロニー組織の三次元 (3D) 形態はよくわかっていない。ラメラー間隔は過冷度、変態時の潜熱によって変化することが知られているが、多くの報告があるようにその組織は決して一様ではない。そのような複雑な組織をありのままに評価する手法として、様々な三次元可視化法が、コンピューター性能の向上と相まって、近年大変進歩している。図1には様々

な三次元可視化法がカバーする組織のサイズ範囲を示す。透過型電子顕微鏡 (TEM) 内で薄膜試料を様々な傾斜角度で観察し、その像を再構築する方法はナノ析出物の三次元空間分布を知る上で大変注目される手法である¹¹。この3D-TEM法は結晶方位情報も測定できる長所がある。一方、よりマクロ的な組織の亀裂や結晶粒形態などは高強度 X線トモグラフィー (SR tomography) 法で評価する技術が日々進展しており注目されている²²。SR tomography 法は変形中や加熱中の実時間測定も可能であり、現時点で唯一4D解析が可能な魅力ある手法である。ただし、3D-TEM法はマクロ的な形態の評価には不向きであり、SR tomographyの分解能は100nm程度まで向上しているが、少なくとも現段階では局所的な結晶学的な情報を得ることにはやや不向きである。

シリアルセクショニング法と、走査型電子顕微鏡 (SEM) あるいは電子線後方散乱法 (EBSD) の組み合わせ手法は数十nmからmmオーダーまでのサイズ範囲をカバーすることができる三次元可視化手法である ³-5)。三次元形態評価に加えて、EBSD 法を組み合わせれば結晶学的情報も取得することができ、埋もれた界面の面方位の解析が可能となる。一方、その短所は試料を破壊しなければならず、またセクショニングに時間がかかる点があげられる。この点については、最近、集束イオンビーム (FIB) 銃と SEM 銃を一つのチャンバー内に合わせもつ Dual Beam SEM あるいは Double



Beam SEM が開発され、そこに EBSD 検出器を備えた複合 機 (3D orientation microscope4)と呼ばれている) も使用さ れ始めている。本解説では、①シリアルセクショニングー② 同一視野の SEM 観察一③ EBSD 測定一④セクショニング画 像のボリューム化一⑤位置のアライメンント一⑥セクショニ ング像の再構築による三次元可視化の一連の流れ(図2)を 説明するとともに、いくつかの三次元可視化例とその材料学 への意味合いについて議論する。ここで注意したい点は、三 次元可視化によって理解が少しでも進むのであればその価値 はあるが、目的がないままやみくもに三次元可視化すること は時間の浪費となる。その見通しがよければ、「2Dの百見 は、3D/4Dの一見にしかず」であるし、「1枚の3D/4D図は、 1000枚の2D図に勝る」こともある。以下でははじめに、如 何に 2D 観察が実際の立体像の理解に不十分であるかを身近 な例をとって説明し、それに引き続いて3D観察で得られた 新たな知見について概説する。EBSD 法のその場測定や弾性 ひずみ評価法としての材料工学への有効性については別報60 を参照願えれば幸いである。



二次元観察の不十分性と 三次元観察の有効性

図3はある物体の断面像である。どれだけの読者の方がこ の断面像から立体像を想像することができるであろうか?こ の物体をほぼ1mm間隔で研磨し、その後携帯電話のデジタ

> ①シリアルセクショニング→②同一視 野のSEM観察→③EBSD測定→4セク ショニング画像のボリューム化→⑤位 置のアライメンント→⑥セクショニン グ像の再構築

図2 三次元可視化の作業手順

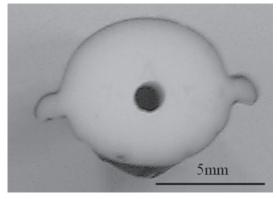


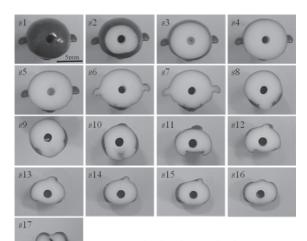
図3 ある物体の断面像

ルカメラで繰り返し連続撮影した断面図を図4に示す。ここ で携帯電話と物体の距離は常に一定になるようにした。この 連続断面図から実像に関する情報は増えたが、まだその本当 の形態を理解するには多大な想像力を要する。このシリアル セクショニング像を三次元再構築ソフトウェアー IMOD7)を 用いて三次元可視化した結果を図5に示す。三次元像は任意 の方向に回転することが可能であり、背面形態を合わせて示 している。ここで注目していただきたい部位はA、B、Cの突 起部である。次に示す実像(図6)と照合すると、この三次元 可視化像がよく対応していることが理解していただけるであろ う。このように図2の一断面像からのみで全体像を理解するこ とはほぼ不可能であり、三次元像を見ることが必要となる。

3 三次元可視化方法

3.1 機械研磨シリアルセクショニング法

数μmから1mm程度の組織の三次元可視化手法として有 効な機械研磨シリアルセクショニングー EBSD 法について述



Sectioning interval: about 1mm

図4 ある物体のシリアルセクショニング像(セクショニング間隔: 約1mm)

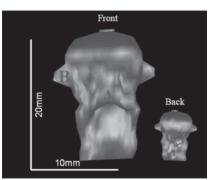


図5 図4の三次元再構築像

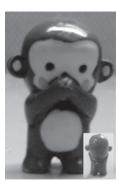


図6 図5の実像

べる。まず試料を EBSD 測定ができるようにコロイダルシリカを使ってひずみを極力残さない鏡面研磨を施す。その後、狙ったところにビッカース圧痕を付す。この圧痕近傍の組織の二次電子像および EBSD 像を得る。コロイダルシリカ研磨によって歪みが減少しているので、反射電子観察でもよい。圧痕の SEM 像は後の工程で像の位置合わせに使うとともに、次式に従って研磨前後のビッカース圧痕の対角線の長さ (d_1, d_2) を使って研磨量 (Δd) の評価にも用いる。

$$\Delta d = 0.143 (R_1 - R_2)$$

試料をSEM内から取り出し、再度同じ研磨を続ける。この際に、初めに付けた圧痕が消失しないように注意する必要がある。ここで圧痕がかなり小さくなっていれば、改めて圧痕を付与する必要がある。一回目の圧痕と必ずしも同じ場所に二回目の圧痕を打つ必要はないが、できるだけ近くが望まれる。二回目の研磨後に、改めて同じ個所のSEM像およびEBSD像を得る。場合によっては、EBSD像の取得は省くことがある。三回目以降はまったく同じ手順でセクショニングと組織観察の作業を繰り返して、50枚から100枚のシリアルセクショニング像を得る。このシリアルセクショニングを使って後述する手法で三次元再構築像を得る。

3.2 FIB 研磨シリアルセクショニング法

機械研磨法に比べて、FIB研磨法がカバーする対象組織は 数十nmから数十μm程度の微細組織である。FIB研磨に先 立って、平板状の試料を準備する。その垂直な二面を通常の 機械研磨法で鏡面状態に仕上げる。この研磨は後のFIB研 磨時の表面凹凸を低減する上で重要となる。この試料を Double Beam SEM のチャンバー内に取り付け、面積が大き い方の面のエッジ部にカーボンガス蒸着を行う。この蒸着は 表面を更に平坦にするために行われる。それに引き続いて、 面積が小さい面をイオン研磨する。イオン源はガリウム (Ga) を用いる。設定量の研磨を行うたびに、SEM 像を得 る。このイオン研磨ーSEM像取得を繰り返し行うのである。 現機種では、この作業がほぼ全自動でできるようになってい るので、機械研磨法に比べて、効率が良く、研磨する面積に もよるが $20\mu m x 20\mu m$ の面積を200nmの間隔で約40セクショ ンを得るのに約半日の作業で完了する。Double Beam SEM の場合、SEM 銃が FIB 銃から傾斜しているので、得た像を 傾斜補正することが必要となる(図7)。FIB 銃と SEM 銃間 の角度を θ 度とすると、得た像の高さ(H)(a)と実際の高さ (H_t) (b) の間には次の関係がある。

 $H_1 = H/\cos(90 - \theta)$

なお、水平方向の長さ(W)は傾斜補正する必要はない。この傾斜補正の妥当性は、観察面をSEM銃に対して垂直にした状態で得た像(c)と比較することで確認される。FIB研磨法の利点の一つは、試料を動かすことなく連続してSEM像を得ることができるので、次に述べる三次元再構築する際に位置合わせの手順を省略することができる点があげられる。結晶学的な情報を付加するために、FIB加工の途中で一度試料を取り出し、EBSD測定をする場合がある。ある断面でのEBSD測定結果を基に、セクショニング間隔の情報と合わせれば、晶癖面を求めることが可能である。FIB研磨法の場合、連続してSEM像を取得する時の試料移動がないため、埋もれた界面の結晶学的解析精度も向上する。

FIB装置とEBSD検出器の両方を備えた複合機では、FIB 研磨時の試料の傾斜角度とEBSD測定時の傾斜角度が異なるので、繰り返し傾斜角度を変えるとともに、同じ場所に常に戻すことが必要である。最近では、この作業も自動化されるようになっている40。

3.3 三次元再構築

これまでに得たシリアルセクショニング像を、三次元可視 化ソフトウェアーを使って再構築する手順について述べる。 シリアルセクショニング像は同じ倍率で撮影され、同じ画素 数である必要がある。

まずシリアルセクショニング像を一つのセットとするために、ボリューム化を行う。その後、一枚目の図に合わせて2枚目以降の図の位置合わせを正確に行う。この位置合わせは三次元像の精度を決めるのでできるだけ正確に行うことが求められる。一枚目の図に対するそれ以降の図の位置合わせ情報を保存する。この位置合わせ情報を使って、新たなボリュームファイルを作成する。引き続いて、対象組織の境界を自動あるいは手動で描く。事前に画像処理ソフトを使って

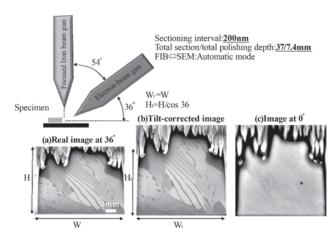


図7 Double beam SEM の構成と傾斜補正

像の二値化をすると、この境界の描写を自動で行うことができる。この作業を全セクションについて実施する。もし、対象組織が複数ある時は、新たなオブジェクトとして同じ作業を繰り返す。次に、各セクションの間隔を指定する。これらの手順の後、各セクション像を重ね合わせて、そのセクション間にメッシュをかけて三次元像を得る。メッシュは通常最近接セクション間にかけられるが、指定するセクション間にもかけることができる。このようにして得たのが、図5である。得た像は任意の角度から見ることができることに加えて、任意の断面で見ることも可能である。

3.4 三次元可視化例

3.4.1 パーライト組織

パーライト組織のラメラー組織を FIB 法で研磨した像をもとに三次元可視化した一例を図8に示す®。供試材は二元系の共析鋼である。ここではコロニー境界も半透明で示している。ラメラーは必ずコロニー境界に接していることがわかる。任意断面ではラメラーが曲がって観察される場合があるが、実際には捩じれていることがわかる。この捩じれが弾性変形、塑性変形のいずれで生じているのか検討が必要である。ラメラー間隔は一つのコロニー内であっても変化しており、パーライト鋼の変形挙動に影響することが想像される。パーライト鋼の特性のバラツキにこのような組織の空間的不均一性がどのように影響するのか興味が持たれる。また、なぜラメラー組織が捩じれているのかその機構解明が待たれる。図8中A、B部でのフェライト/セメンタイト晶癖面や、フェライト方位の変化を調べたところ、いずれも変化していることが明らかとなった®。

3.4.2 レンズマルテンサイト組織

マルテンサイトの優先的核生成サイトはオーステナイト粒 界であることが知られている。しかし、レンズマルテンサイ

トの場合一次の大きなレンズ組織に加えて、その間を埋め尽 くしている小さな二次のレンズ組織がある。その二次のレン ズ組織の形態が観察面垂直方向に延びた板状なのか、笹の 葉状なのかは報告例がない。また、その二次のレンズ組織の 生成サイトがオーステナイト粒界か、一次のレンズとオース テナイトの境界であるかについも不明である。そこで、部分 的にマルテンサイト変態した Fe-32mass%Ni 合金に生成した レンズマルテンサイト組織を三次元可視化した例を図9に示 す。ここでは機械研磨法を採用した。一次のレンズマルテン サイトは必ずオーステナイト粒界に接しているのに対し、二 次のレンズマルテンサイトは一次のレンズとオーステナイト の相界面に生成していることがわかる。その形態は竹の子状 である。この他にも、ラスマルテンサイトのブロック、パケッ ト形態の三次元可視化が進められており、複雑な入り組んだ 組織が報告9)されている。この組織の入り組み度は靭性とも 密接に関係しているようであり、単位体積あたりの表面積 や、フラクタル次元を使った定量化が必要である。

3.4.3 フェライト変態の優先的核生成サイト

オーステナイト粒界はすべての低温変態相の優先的な核生成サイトである。オーステナイト粒界には四つの粒が接している点に対応するコーナーと、三つの粒が接している線に対応するエッジと、二つの粒が接している面が存在する。この中で最も優先的な核生成サイトは理論的には粒界コーナーと考えられるが 10)、これまで粒界コーナーでの核生成挙動に関する実験的研究は大変少ない。これは、粒界コーナーが空間の中に存在する点であり、一断面でこの点を見つけ出すことが容易ではないことに起因するものと思われる。図 10 はシリアルセクショニング中に現れた粒界コーナーを示す 11,12)。ここではフェライト変態を模擬するため fcc 相から bcc 相が析出する Ni-43Cr 合金を用いている。研磨前後の隣接粒の配置の変化から、粒界コーナーを同定することが可能となる。こ

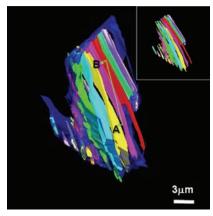


図8 共析鋼のコロニー、ラメラー組織の三次元可視化像

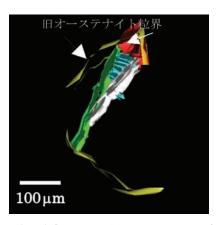


図9 Fe-32Ni 鋼に生成したレンズマルテンサイトの三次元可視化像

の場合、約60%の粒界コーナーが析出物で覆われていた。一部の粒界面ですでに析出が生じているにもかかわらず、残りの40%のコーナーには析出物は観察されず、粒界コーナーの核生成サイトとしての能力に範囲があることが推定される。この点をより詳しく解析するために、EBSD法でコーナーを構成する粒界の方位差や、粒界面方位の解析が進められている120。大角粒界のみで構成されている粒界コーナーに限っても、析出率は70%である。

4

最後に

組織観察の理想像は、刻々と変化する三次元形態を任意の時間で、任意の方向から、任意の倍率で評価することであろう。様々なサイズの組織がその対象となる。今現在、万能の手法はまだ確立されていない。場合に応じて手法を選択する必要があるが、様々な組織を3D/4Dで観察できるようになりつつある。「2Dの百見は、3D/4Dの一見にしかず」ではあるが、本来の組織観察の目的を見失ってはならない。3D/4D観察することが目的ではなく、それによって組織形成機構や、特性ばらつきの原因など2D観察ではわからなかったことの理解が深まることが必要である。本解説がその参考

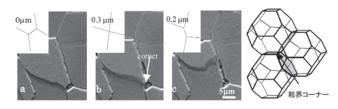


図 10 シリアルセクショニングによる粒界コーナーの同定。各組織 写真挿入図中の数値は研磨量を示す。 $a \rightarrow b: 0.3 \, \mu m$ 研磨。 $b \rightarrow c: 更に 0.2 \, \mu m$ 研磨。

になれば幸いである。

参考文献

- 1) P. A. Midgley, M. Weyland: Ultramicroscopy, 96 (2003), 413.
- 2) H. Toda, I. Sinclair, J.-Y. Buffière, E. Maire, K. H. Khor, P. Gregson and T. Kobayashi: ACTA MATERIALIA, 52 (2004) 5, 1305.
- 3) C.Y. Hung, M.A. Mangan, G. Spanos and R.O. Rosenberg: ACTA MATERIALIA, 50 (2002), 3781.
- 4) S. Zaefferer: Mater Science Forum. 495-497 (2005), 3.
- 5) M.D. Nave, J.J.L. Mulders and A. Gholinia: Chinese Journal of Stereology and Image Analysis, 10 (2005) 4, 199.
- 6) 鈴木清一, 足立吉隆: まてりあ, 47 (2008) 2, 72.
- 7) R. Kremer, D.N. Mastronarde and J.R. McIntosh: J. Struct. Biol., 116 (1996), 71.
- 8) Y. Adachi, S. Morooka, K. Nakajima and Y. Sugimoto: Acta Materialia, in print.
- 9) S. Morito, Y. Adachi and T. Ohba, Submitted to Scripta Materialia.
- 10) P.J. Clemm and J.C. Fisher: Acta Metall., 3 (1955), 70.
- 11) 竹内友章:未発表研究,(2007).
- 12) T. Takeuchi, Y. Adachi, D. Dorner and M. Enomoto: Materials Science Forum, 561-565 (2007), 69.

(2008年6月12日受付)