



入門講座

物理分析入門—初めて使う人のために—4

EBSD法の原理と活用事例

Principle of EBSD and Its Application

鈴木清一

Seichi Suzuki

(株) TSLソリューションズ
代表取締役

1 はじめに

EBSD (Electron BackScatter Diffraction) 法が紹介されてからすでに20年になろうとしており、現在では材料のミクロ組織観察法としてすっかり定着している¹⁻⁴⁾。このEBSD法は結晶方位に基づいた組織観察法で、サブミクロンレベルの結晶粒の結晶方位や相同定も可能であり、光学顕微鏡や走査電子顕微鏡 (SEM) による試料表面観察や試料全体の平均的な配向性を調べるX線回折等に比較しても格段に多くの情報が得られる。いわば材料組織観察に革命をもたらしたと言っても過言ではないかもしれない。しかしながらEBSD法により各種の情報を得るためには、得られた結晶方位マップのデータに適切な処理を施し目的とする情報に加工していくという操作が不可欠となる。正確な方位マップを得ることも重要であるが、得られたデータを適切に加工するという技術も重要である。またEBSD法では電子線回折パターンを扱うため十分な電子線回折や結晶構造の知識が必要と思われるようであるが、必ずしもそうではない。もちろんこれらの知識が十分であればそれに越したことはないが、実際は電子線回折や結晶構造の知識はごく基本的なもので十分である。それよりも解析を進める上では、測定を行った試料に関する知見の方がより重要である。自分の試料を十分に知ってこそより有効な解析が進められる。EBSDパターンの基本的な特性やその指数付け等の概念を説明し、得られたデータの解析法を紹介する。

2 EBSDパターンの発生と試料準備

EBSDパターンは図1に示すようにSEM (走査電子顕微鏡) 中で、試料を70°前後に大きく傾斜し電子線を照射した際に、試料が結晶性でその表面状態が良ければ反射回折によって形成される菊池パターンである。これを蛍光スクリー

ン上に投影・可視化し、画像してとらえる。一般にX線回折や電子線回折の条件は次式に示すブラッグの式で示され、そのパターンは、結晶格子の周期的な情報を表すものである。

$$2d \cdot \sin \theta = n \cdot \lambda$$

EBSDパターンも電子線回折であるから、このブラッグの式には従うが、パターンの発生状況は少々異なる。EBSDでは図2に示すように、大きく傾斜した試料に侵入した照射電子は、各原子で弾性散乱および非弾性散乱をしながら試料中を全方向に広がり、その一部が試料表面より飛び出してくる。この時試料が結晶性であれば、試料表面の方向に回折された電子線はこの結晶面で回折され、上下1対のコーン状に広がり試料表面から飛び出してくる。また散乱方向が図に示した 2θ の範囲に入ったものは、回折の影響は受けないので散乱波 (回折波) の密度が相対的に高くなる。EBSDで使用するSEMの加速電圧 (15kV ~ 25kV) では、 2θ は数°と非常に小さく、蛍光スクリーンに投影された時は図2右側に示したEBSDパターンのようにほぼ均一な幅のバンドとなって検出される。つまり図2に示した1対のコーンは1つの結晶面に

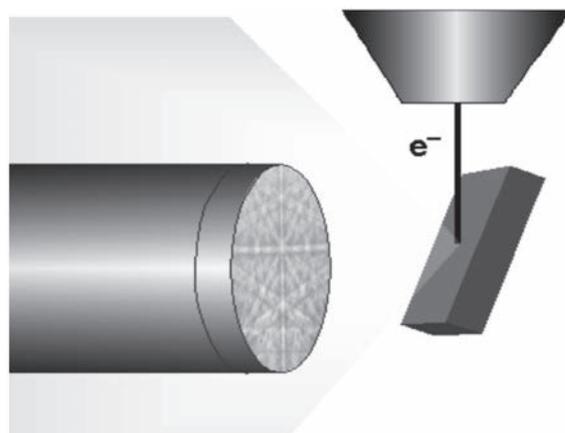


図1 EBSDパターン取り込みの概念図

対応する。すなわち、EBSDパターンのバンドは試料中の結晶面をそのまま空間に広げたスクリーンに投影されたものと考えることができる。このようにEBSDパターンは結晶の実格子を投影したパターンで、結晶格子の周期的な情報を表すパターンではない。ここが通常のX線回折や電子線回折と異なる。通常のX線回折や電子線回折では格子定数を求めるは比較的容易であるが、EBSDではバンドの幅が格子定数に対応するため、この狭いバンド幅から格子定数を正確に求めることは非常に難しい。一方、EBSDパターンは実格子を表すパターンであることから、結晶の対称性やその方位の変化には非常に敏感であり、結晶方位の測定には好都合である。

EBSDパターンのもう一つの特徴は、情報の深さが非常に浅いことである。照射電子線が試料中に深く進入し、内核電子の励起等により大きくエネルギーを失った電子はその波長が大きく変化し前述のブラッグ条件が大きく変化するためEBSDパターンの形成には寄与しなくなる。このことからEBSDパターンは試料表面近傍で回折された電子線のみで形成され、その深さは加速電圧や試料のZ番号にもよるが、15kVの加速電圧でも30～50nmにすぎない。このことは、EBSD測定は試料表面の常態に非常に敏感であり、試料作成には細心の注意が必要であることを示している。試料作成時の研磨による試料表面のダメージ（結晶の乱れ）やコンタミネーションなどはX線元素分析等ではほとんど問題にならないが、EBSDパターンはこれらに非常に敏感である。EBSD法のデータは得られたEBSDパターンより算出したオイラー角で表す一つの結晶方位として記録される。プローブが2つまたは複数の結晶粒にまたがった場合は、それぞれのパターンが重ね合わさった状態で蛍光スクリーンに投影される。その中から指定された数のバンドを抽出しその角度関係から結晶方位を決定する。この時の解はどちらか一方の結晶粒の結晶方位であったり、全く誤った結晶方位となったり、また解析不能となったりする。このようにEBSD測定では、X線元素分析のような平均的な結果になるのではなく、どれか一つの結晶粒の結晶方位が選ばれるか、全く間違った結晶方位が算出されるか、解析不能となって解が得られなくなる

かのいずれかである。したがってEBSD法を使用するには測定する試料組織の大きさとSEMのプローブ径の関係を考えておく必要がある。プローブ径を絞れるショットキー型FE-SEM等を使用すれば、20nm程度の空間分解能を得ることが可能となるが、SEMの条件設定次第でも結果は大きく異なってくる。図3にはTiの強加工材を異なる条件で測定した例を示したが、同じ試料でも測定結果は大きく異なってしまうので、試料にあった最適条件を知ることも重要である。

3 EBSDパターンの指数付と結晶方位の計算

得られたEBSDパターンからバンドを検出し指数付するには図4に示したような過程を経る。すなわち取込んだEBSDパターンからHough変換法⁵⁾によりバンドの検出を行い、検出したバンド間の角度と予め結晶データとして与えておいた結晶面間の角度を比較し検出したバンドのミラー指数付を決定する。そのバンドの指数に基づいて結晶方位を算出する。ここでは紙面の関係でHough変換法についての記述は割愛する。参考文献(1)～(5)を参照していただきたい。

検出したバンドの指数付けを行うには、予め与えられた試料の結晶構造および回折面に関する情報を基に各結晶面の角度関係を予め計算しておく。次に検出したバンドより3本のバンドを選び、これらのバンド間の角度（すなわち結晶面間の角度）と予め計算しておいた各結晶面の角度と比較し、3本のバンド間の角度関係を満足する面指数の組合せを探す。3本のバンドの面指数が決まれば、残りのバンドの面指数は自動的に決まる。3本のバンドに対する面指数の割り当ては1つの場合もあるし複数存在する場合もあるので、これらすべての組み合わせをリストアップする。バンドの指数が決まれば、これらの面指数の組み合わせに対し、対応する結晶方位を計算することができる。この計算は選択されたバンド（通常7-8本）から3本のバンドを選ぶすべての組み合わせに対して行なわれる。元々は1つのパターンであるから、各組み合わせから計算される結晶方位には共通した解があるはずで

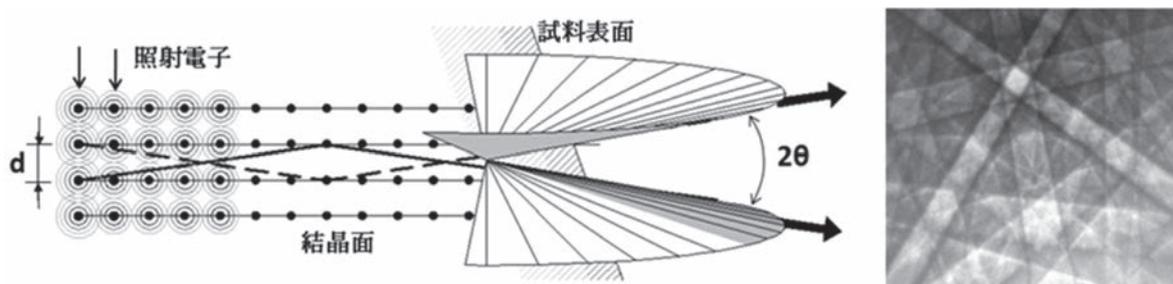


図2 EBSDパターン形成の模式図と実際に得られたEBSDパターン

あり、全体として最も多く現れた結晶方位をその点の結晶方位とする。この結晶方位の算出は、試料が指定された傾斜角(70°)に傾斜されていることを前提に算出されるため、正確な結晶方位の算出には測定時に試料の傾斜角を正しくセットすることが重要となる。またこの結晶方位算出方法では、算出された各結晶方位は共通解の出現数に応じた重み付けができる。これらの重み付けデータを利用し、最終決定した結晶

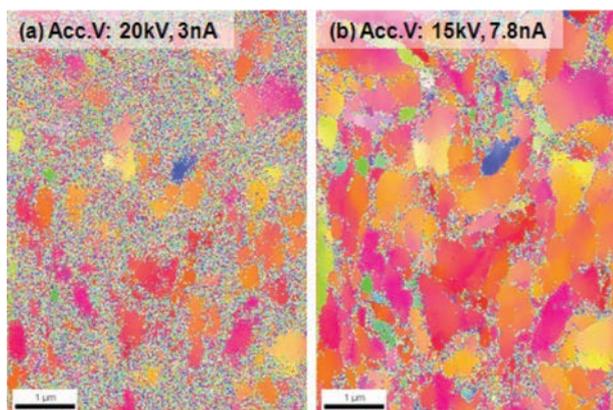


図3 異なる加速電圧、照射電流量で測定したTi強加工材の測定例。(a)の加速電圧が高い場合は、試料中でのプローブの広がりが大きくなり空間分解能が劣化している。

方位の信頼性指数 (Confidence Index : CI値) として表示することも可能であり、後のデータ処理においてデータの選別に役立っている。以上の過程をプローブの移動と連動して行うことで、結晶方位マップのデータを取得している。

4 EBSDデータの解析

前述のような過程を経て収集した結晶方位マップは、いろいろな加工を施すことで、さまざまなデータに展開ができる。EBSD法のデータ解析では、得られたデータに必要とする処理を行い目的とするデータに加工していくことが重要となる。適切なデータ処理を行うには前述のようにまず試料の特性を理解すること、そして与えられている処理方法で何をやっているのか、データ処理の意味合いを十分に理解した上で解析を進めることが重要である。まずEBSDの連続測定で得られたデータは基本的には次の3つの方法で表示される。

- 各種マッピング像
- 極点図/逆極点図/ ODF等方位のプロット
- 各種データのグラフによる表示

マップデータではさらに非結晶方位関係のマップ、結晶方位に関するマップ、結晶粒に関するマップ、結晶方位差に関

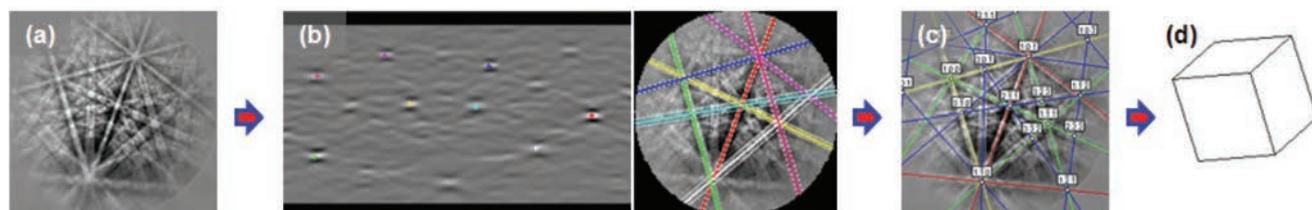


図4 EBSDパターンから結晶方位を算出する手順の概略図。(a) 取込んだEBSDパターン、(b) Hough変換法によるバンドの検出、(c) バンドの指数付け、(d) 結晶方位の算出の順で計算を行う

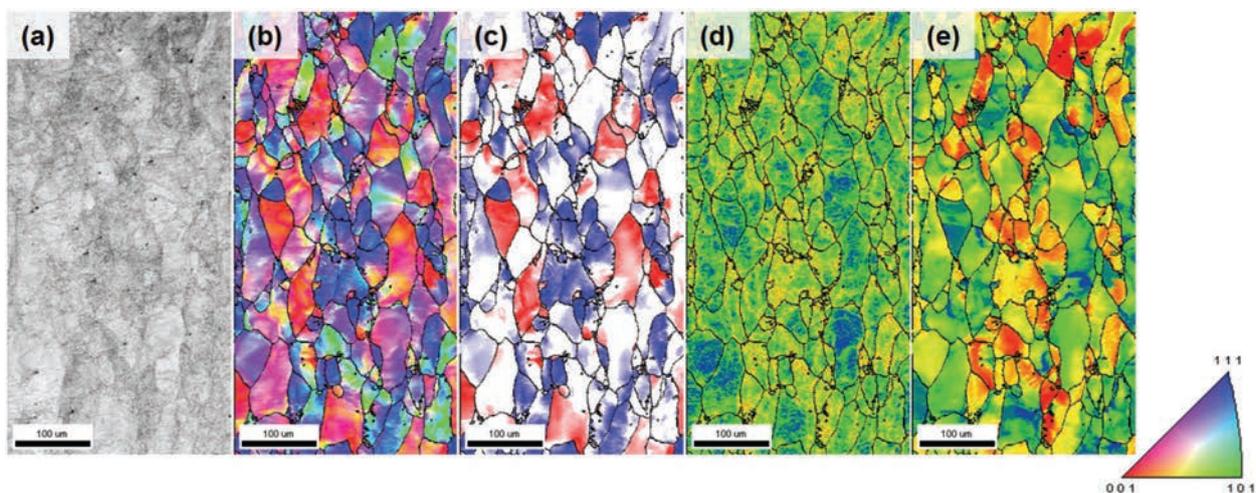


図5 各種マップの表示例。左からa) IQマップ、b) 試料ND方向のIPF結晶方位マップ、c) 紙面垂直方向に20°以内で<111>(青)および<001>(赤)の結晶方位を持つ結晶粒を抽出した結晶方位マップ、d) KAM) 結晶方位差マップ、e) Taylor Factorマップ。右端はb)の結晶方位像のカラーキーを示す

係したマップなどに分類される。またピクセル間に一定以上の方位差があれば、その境界を粒界として認識することも可能である。図5には、50%冷間圧延を行ったIF鋼のデータを使用しこれら各種マップの例を示す。(a) に示したIQマップはパターン鮮明さ、つまり結晶性の良し悪しに関する情報を表すマップである。一見SEM像に似ているところもあるが意味合いは全く異なる。IQマップが明るく表示されているのにCI値が低く指数付けがうまくできていない場合は、EBSDパターンは出ているのに結晶系データまたはキャリブレーションが適切でなく指数付けが良くできていないというケースが多い。(b) に示したIPF結晶方位マップは、逆極点図をカラーキーとして結晶方位を色で表すマップである。この場合は試料のどの面 (RD, TD, ND) と平行な結晶方位を示しているかを明示しておくことも重要である。また (c) には $\langle 111 \rangle$ 方位 (青) および $\langle 001 \rangle$ 方位 (赤) が試料ND方向に 20° 以内入っているピクセルのみを抽出した結晶方位マップを表示した。EBSD法で結晶方位を扱う場合は、結晶方位そのものでも結晶面の法線方位でも自在に扱える。しかし同じミラー指数を持つ結晶方位と結晶面の法線方位は、立方晶以外の結晶系では物理的には異なる方向を示すので注意が必要である。特にX線回折を扱っている研究者は結晶方位という場合には結晶面の法線方位をさす場合が多く誤解が生じやすい。(d) には隣接するピクセル間の方位差を基にして描いたKAM (Kernel Average Misorientation) 結晶方位差マップを示した。色が青から赤に近づくにしたがい局所的な方位差つまり塑性変形が大きくなっていることを示している。これにより圧延による変形がけて均一には生じていないことが判る。(e) には上下方向が圧延方向とした時のTaylor Factor⁶⁾ マップを示した。EBSD法では各点の結晶方位が判っているの

で、変形させる方向や結晶のすべり面や滑り方向を指定すればこのような機械的特性を示すマップが描ける。このマップでは赤くなるにしたがいTaylor Factorが大きく滑り変形にくい結晶方位の配置になっていることが示されている。次に結晶粒に関しては、一定の方位差以内の連続した測定点をまとめることで結晶粒を定義でき、その粒径分布も知ることがきる。EBSD法におけるこの結晶粒の認識方法は、結晶粒の定義に忠実で最も正しい結晶粒の認識法と考えられる。結晶粒を定義すれば、その周囲は粒界となる。粒界は定義上閉じているか、測定境界に接していなければいけない。しかしEBSD法では、それ以外にそこに方位差があることを示すということで境界線を引くことも可能である。この場合は連続している必要は無い。また双晶境界のような特定の方位関係にある粒界を示すことも容易にできる。またそのような特定の粒界を結晶粒の認識から外した状態で結晶粒を定義させることも可能である。結晶粒の認識方法に関しては、再結晶組織においては全く問題が無い。しかし塑性変形を受けた、つまり粒内に方位変化がある試料では単純ではない。何度以上の方位差を粒界として扱うべきか、またそれは同じ試料でも測定間隔によってもピクセル間の方位差は違ってくるため、測定間隔の違いにより結晶粒の認識が変わるという奇妙なことも生じることもある。図6には強加工を施した鉄系合金を焼鈍した試料で、結晶粒を 3° 、 5° 、 15° の方位差で認識した場合の結晶粒の分布状況を示した。何度かの方位差で結晶粒を認識するかということで結晶粒の状況は全く異なる。この場合はどれが正しい結晶粒の認識かという議論はあまり意味がなく、解析の目的によって判断せざるを得ない。そのように考えると強加工材のような組織では、結晶粒を定義するにも解析の目的に応じて慎重に検討しながら扱う必要がある。

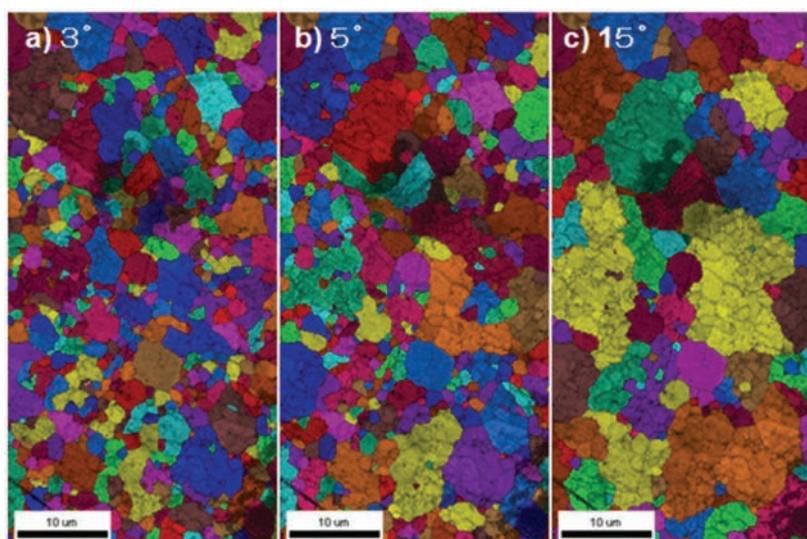


図6 結晶粒認識に用いる方位差の違いによる結晶粒認識状況の違い

次に測定領域全体の配向性等の表現には、各測定点の方位データをステレオ投影上にプロットした極点図や逆極点図が利用できる。オイラー角を3次元的にプロットすればODF (Orientation Distribution Function) となる。また、これらのデータはグラフにして表現することも可能となる。さらにマップやグラフそして極点図等に関連づけて特徴を抽出することも可能である。EBSD法ではX線による極点図等の測定と異なり、個々の測定点の結晶方位が特定できているため、マップ上の各結晶粒が極点図や逆極点図のどの位置を占めているかも明確に示すことができ、局所的な方位情報を材料の組織解析に生かすことが可能である。図7には図5で示したIF鋼試料の極点図および逆極点図そして方位差 5° で認識した結晶粒径分布のグラフを示した。またEBSD法ではマップ、極点図/逆極点図そしてグラフを関係づけデータの抽出等が可能である。図8には、図7の結晶粒径グラフを用い $50\mu\text{m}$ 以下の結晶粒を抽出し、そのデータのみでIPF結晶方位マップを描いた例を示した。このようにEBSD法におけるデータ解析では、必要とするデータのみを抽出して解析することも可能である。

5 EBSDパターンによる相の分離

EBSD法ではパターンの指数付けの際に参照する結晶系のデータを複数指定することにより、得られたパターンが最も

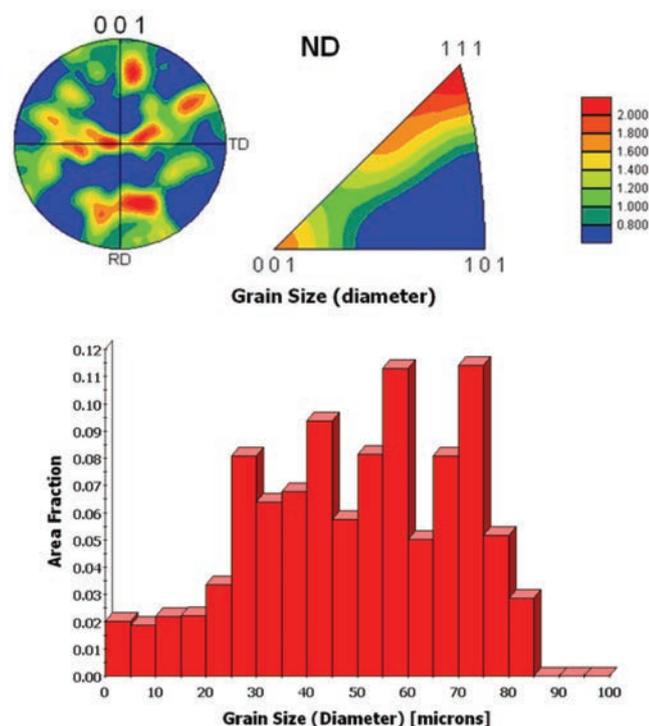


図7 図5で示したIF鋼試料の(001)極点図、ND逆極点図および方位差 5° で粒界を認識した結晶粒径分布

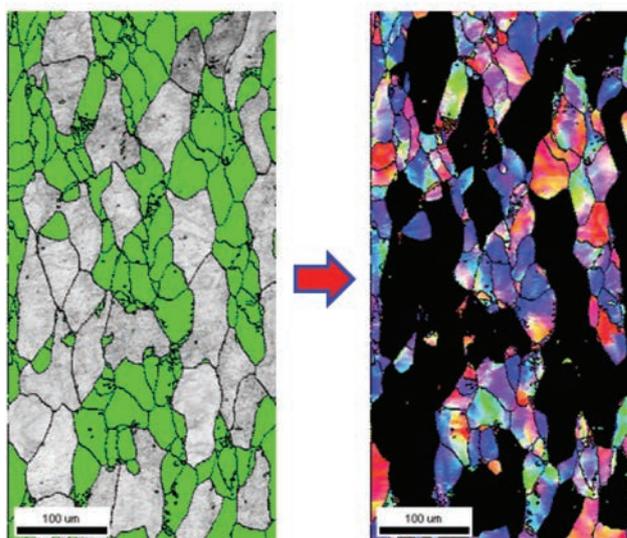
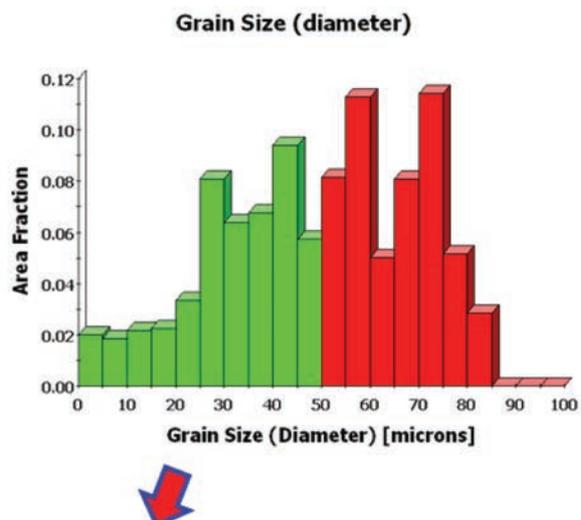


図8 結晶粒径分布のグラフを用い $50\mu\text{m}$ 以下の結晶粒を選択し、それらのデータのみを新たなデータとしてIPF結晶方位マップを描いた例

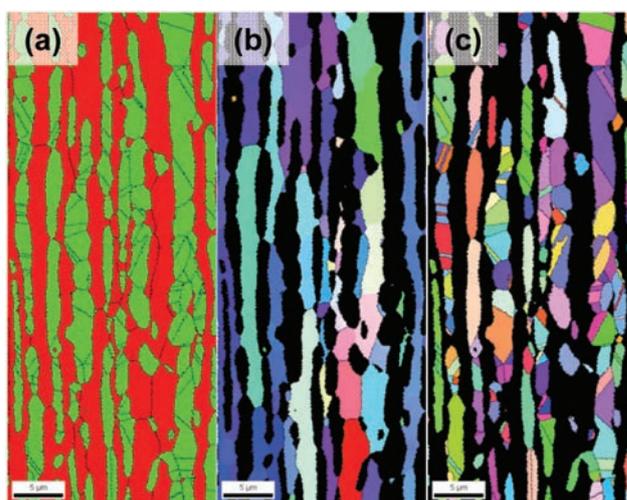


図9 2相ステンレスの解析例。左から(a) FCC (赤)、BCC (緑)で示した相分布マップ、(b) BCC相のみの結晶方位マップ、(c) FCC相のみマップの結晶方位 (カラーキーは図4を参照)

よく一致する結晶系データを抽出することで相の同定が可能となる。ただEBSD法では、このパターンの指数付けをそれぞれの相の格子定数を使用するのではなく、バンド間の角度関係によりを行っているため、同じ結晶構造を持つ相の分離は困難である。例えば銅にニッケルメッキを施した接合界面では、EDS (エネルギー分散型X線分析) 等を用いたX線による元素分析法ではこの2相の分離は問題無く可能であるが、双方が同じ立方晶 (FCC) の結晶構造を持つため、EBSD法では結晶方位や組織の違いは表示できても、銅とニッケルの2相の識別は困難である。図9にはオーステナイト (FCC) とフェライト (BCC) が混在する2相ステンレスの測定例を示した。EDSでは構成元素がほぼ同じこの2相の識別は極めて困難であるが、結晶系の違いや結晶方位を測定するEBSDではFCCとBCCは問題なく識別できる。この点から材料の分析においてEBSDとEDSが相補的な測定方法になることが判る。

6 材料組織観察におけるEBSD法の展開

EBSD法による材料組織観察の歴史は比較的浅い。言い換えれば解析手法やその応用が日々進歩している状況である。最近では次に挙げるような技法が開発されている。

- EDS法とEBSD法を融合した相分析
- EBSD法によるその場 (In-Situ) 観察
- 残留歪 (弾性歪/塑性歪) の測定
- 連続セクションニングによる3次元観察

EDSとEBSDは、材料の特性を決める構成元素とマイクロ組織を測定する装置で相補的な関係にあることは前述の通りである。この2つのデータを同時に測定することで、これまで特定が困難であった相の分離・同定が可能になってきている。

また材料の組織構造は構成元素とは異なり、圧延等の加工や熱処理によって刻々と変化する。その場 (In-Situ) 観察はSEM中に試料引張りステージや試料曲げステージ、あるいは加熱ステージをセットし、この加工や熱処理による材料組織の変化過程を直接観察しようという試みである。実験手法としては必ずしも容易ではないが、材料の変形挙動や再結晶挙動の解明の一助になってきている⁷⁾。

金属材料に圧延等の加工を施すと結晶の乱れすなわち塑性歪みが導入される。この塑性歪みは材料の強度や硬度に大きな影響を与えるが、これらの塑性歪みには必ず微少な結晶方位差が伴うので、局所的な結晶方位差から塑性歪みを評価しようという試みがなされている⁸⁾。また高解像度のEBSDパターンを取込み、参照パターンと詳細を比較することで格子歪 (弾性歪) を定量的に捉えようという試みもなされてい

る^{9,10)}。

またこれまでは材料組織の一部を2次元像として観察してきた。しかしEBSDマップで丸い形状の結晶粒を捉えても、それが球状の一部なのか、円盤状なのか、あるいはラグビーボールのような形状の断面なのかはわからない。材料は薄膜として利用する場合以外は体積のある3次元的なものであり、その平面の組織だけを観察しても本当に特性と結びつくのかという疑問が残る。これらは3次元的に観察し初めて確定できるものである。これを可能にする手法として試料を連続的にスライスしながらその都度同じ場所を測定し、それら一連のデータを積み上げることで材料の組織構造を3次元的に再構築し解明しようという試みもなされている¹¹⁾。

7 おわりに

EBSD法は、材料の集合組織解析をマイクロな観点から解析することを起点として発展してきた技術である。無機材料の大半は結晶性のものであり、それらの各種特性は構成元素のみならず結晶粒径や結晶方位の配向性といったミクロ的な構造にも大きく左右される場合が多い。このミクロ的な構造を調べる基本である結晶粒一つ一つの結晶方位を明らかにし、さらには統計的に有意なデータとして測定することも可能にした点でEBSD法は画期的である。しかしこのEBSD法のデータを有意義に使用するためには、試料そのものの知見や解析法の理解も重要になることを忘れてはならない。

参考文献

- 1) B.L.Adamus, S.I.Wright and K.Kunze : Metall. Trans. A, 24A (1993) , 819.
- 2) 鈴木清一 : 顕微鏡, 39 (2004) 2, 121.
- 3) 鈴木清一 : 顕微鏡, 39 (2004) 3, 180.
- 4) L.N.Brewer, D.P.Field and C.C.Merriman : Electron Backscatter Diffraction in Material Science 2nd Edition, Springer, (2009)
- 5) N.C.Krieger Lassen, K.Conradson and D.J.Jensen : Scanning Microscopy, 6 (1992) , 115.
- 6) 稲垣祐輔 : 日本金属学会誌, 69 (2005) 3, 283.
- 7) 鈴木清一 : 顕微鏡, 45 (2010) 3, 165.
- 8) 釜谷昌幸 : 日本機械学会論文集A編, (2008) 74, 215.
- 9) A.J.Wilkinson : Electron Backscatter Diffraction in Material Science, KA/PP (2000) , Cp19, 231.
- 10) 鈴木清一 : 顕微鏡, 42 (2007) 2, 89.
- 11) 足立吉隆 : ふえらむ, 13 (2008) 10, 676.

(2013年3月29日受付)