

EBSD 法による材料組織変化の In-Situ 観察

In-Situ Observation of Micro-Structural Changes by EBSD

鈴 木 清 一

Seiichi Suzuki

株式会社TSLソリューションズ

要 旨 EBSD 法と In-Situ 試験装置を組み合わせ、SEM 中で材料組織の動的変化を直接観察する技法に関して説明する。試料加熱装置では、EBSD 検出器を保護するという観点から投入熱量を制限し、断熱方法を工夫しながら試料を加熱すること、さらに試料の赤熱による可視光および赤外線を遮断する工夫をすることで 1173 K 程度の高温でも問題なく EBSD 観察は可能となる。この加熱試験による Ti 試料の α - β 変態の観察例を示す。試料引張り装置を用いた変形過程の EBSD 観察は、SEM 中での装置の配置等を工夫することで可能である。試料引張り試験では変形位置を特定するうえで工夫が必要である。アルミニウム試料を用いた組織変化の観察例を示す。さらに試料を高温度で引張り変形させながら観察する場合の課題についても説明する。また試料曲げ装置との組み合わせでは、EBSD 観察は比較的容易で有意なデータも得やすい。連続的に変化する微小な方位差と変形量の対応についても説明する。

キーワード：EBSD 法、In-Situ 観察、熱処理、引張り変形、曲げ変形

1. はじめに

EBSD (電子線反射回折: Electron BackScatter Diffraction) 法は、実用的な技術として認識されてからまだ 20 年足らずであるが、今日では結晶方位に基づく材料のマイクロ組織を観察できる装置として定着している。EBSD パターンは試料の表面状態が良ければ、SEM 中で大きく傾斜し電子線を照射することで容易に得られる。この EBSD パターンは菊池パターンと同様の発生原理で説明でき、結晶面をそのまま蛍光スクリーンに投影したいわば実格子を反映したパターンで、結晶方位の変化には敏感である。今日では、得られた EBSD パターンから Hough 変換法¹⁾を用いてバンドを検出し、さらに予め与えられた結晶系データを基にしたバンドの指数付け、結晶方位の算出、さらには結晶系に基づく相判定までの一連の手法等は確立している²⁾。今日では EBSD 用検出器に用いられるカメラの感度の向上や高速化、そしてパソコンの能力向上や処理ソフトの改善等により、実用的なレベルで 1 秒間に 300 パターンの指数付け処理が可能までになっている。さらに電解放射型の電子銃を持つ SEM の普及により 20 nm 以下の空間分解能で材料の組織観察が容易に行えるようになってきている。これらにより EBSD 法はマイクロな材料組織の定量的理解に広く利用される状況となっている³⁻⁵⁾。

この材料組織は材料の特性に大きな影響を与えるが、構成

元素と違い熱処理や塑性変形によって容易に変化する。実際に工業的に素材を加工し製品にしていく過程では、この 2 つの処理は必要不可欠である。これらの処理によって変化する組織を連続的に観察し、材料組織の変化の仕組みを理解し、さらには組織制御に役立てたいと考えるのは必然であろう。実際にこれまでもこの熱処理や塑性変形の段階で生じる変化を SEM や TEM を用いて動的に観察 (In-Situ 観察) する試みは数多くなされてきた⁶⁾。そしてこの連続的に変化するマイクロな材料組織を EBSD 法で観察する試みもなされている。しかし SEM の試料室という限られた空間にこれら In-Situ 試験機を設置し、さらに EBSD 検出器や In-Situ 試験機に取り付けた試料を適切に傾斜した状態にするための空間を確保しなければならぬことを考えると、EBSD 法による In-Situ 観察には特有の難しさが出てくる。現実的な実験手法としてはかなり単純化した次のものに限られてくる。具体的には、熱処理としては試料加熱試験、塑性変形としては引張り試験および曲げ試験、そして両者を組み合わせた加熱引張り試験等が考えられる。本解説では、EBSD 法で連続的な組織変化を観察するための試験装置およびそれらの測定方法について解説し、実際の測定例を紹介する。

2. 試料加熱による In-Situ 観察

SEM 中で試料を加熱する場合には、まず SEM や EBSD の検出器に如何なるダメージも与えないことが重要である。ただ、773 K 程度までの加熱であれば、アウトガスの少ないセラミックヒーターを用い効率的に試料を加熱すること、そして SEM ステージに熱が伝わらないよう断熱を良くすること等に注意した上で、試料を 70° 程度に傾斜できるように

〒 252-0131 相模原市緑区西橋本 5-4-30 SIC2-401

TEL: 042-774-8841; FAX: 042-770-9314

E-mail: info@tsl-japan.com

2010 年 5 月 17 日受付

設計することは比較的容易である。しかしさらに温度を上げ、試料温度が 973 K を超えるようになると輻射による熱の移動も大きくなるため状況が複雑になる。一般的には断熱方法や反射板等の設置の仕方等を十分に工夫しないと効率良く試料の温度を上げることができない。一方では EBSD パターンを得るためには、試料から検出器までの 70 ~ 80° の広角で空間を確保する必要があり、この範囲に反射板等の設置はできない。温度を上げるだけなら投入する熱量を増やすことも可能であるが、筆者の経験では EBSD 検出器と試料間の距離にもよるが、試料を 973 K に加熱するのに 20 W 以上の熱量を投入すると EBSD 検出器の蛍光スクリーンにダメージが生じる危険性が高くなる。結局は総発熱量を制限しながら試料を局所的に効率よく加熱することが重要となる。また SEM のステージを保護する観点から考えると投入する熱量が 10 W を超える場合、または加熱温度が 873 K を超える場合には水冷等により SEM ステージに熱が伝わるのを防ぐ必要がある。図 1 には筆者が開発した EBSD 観察用 1073 K 対応の高温型試料加熱ステージを示した。小型セラミックヒーターを使用した発熱体、5×5 mm と小さく制限した試料サイズ、体積を極力小さくした加熱部分、さらに断熱性の良好な試料の固定方法の採用により 10 W 弱の投入熱量で 1073 K の加熱が可能となった。これ以上の温度はヒーターと試料の接触状況等に大きく依存するが、条件が良ければ試料表面温度で 1173 K 程度の加熱が可能である。また EBSD パターンを観察する上で問題となるのは、試料が 873 K 以上になると影響が認められる可視光や赤外線である。EBSD 検出器の CCD カメラは赤外線にも感応する。この対策として EBSD 検出器に用いる蛍光スクリーンの Al コーティング膜の厚さを厚くすることで可視光を完全に遮光し、かつ波長が 700 nm 以上の赤外線をカットするフィルターを使用している。これにより、1173 K に以上に加熱した試料からでも特に問題なく EBSD パターンを得ることが可能となる。図 2 には 1153 K および 1193 K で得た Ti 試料の α 相および β 相の EBSD パターンの例を示す。適切な対策により、高温下でも EBSD 測定は問題なく行えることが判る。

次に試料加熱実験では、試料温度測定に注意が必要である。試料を加熱する際には、試料の観察位置での温度とヒーター

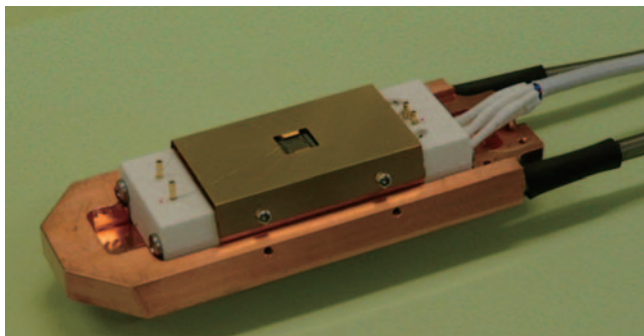


図 1 試料を 1073 K 以上に加熱可能な EBSD 用試料加熱ステージの外観。

の温度は通常大きく異なっている。筆者の制作した試料 773 K 対応の加熱ステージではチャージ防止の観点から 0.25 mm のカーボンプレートを挟んでセラミックヒーターと試料を密着させているが、それでも 0.8 mm の Si 板の表面とヒーター温度には、試料温度が 673 K の時で 150 K 近い温度差が生じていた。また、Al 試料の場合は接触が良いためと考えられるが、同程度の試料温度で 100 K 弱の違いとなっていた。いずれも試料とカーボンプレートの接触面の状態に大きく左右されるようである。したがって正確な実験には試料の観察位置近傍の温度を直接測定することが不可欠である。この加熱ステージでは極細のシース型熱電対を試料に接触させることで温度測定をしている。前述の高温型の加熱ステージでは、熱電対のシース管自体が冷却源となるため、熱電対線を試料に直接溶接し温度測定を行っている。もう一つの課題として、試料やステージの熱膨張等に起因するドリフトが挙げられる。熱膨張による観察位置の変化は避けられないものもあるが、SEM 中での試料加熱では発熱体が比較的小さいので、発熱体を中心とした対称性を考慮した設計を行うことでドリフトの影響は軽減できる。また、観察では試料を発熱体の中心に配置し、さらに試料中心を観察するようにすると熱膨張によるドリフトの影響を軽減できる。図 3 には Ti 試料を加熱し、 α Ti から β Ti に変態する様子を測定した例を示した⁷⁾。上段には結晶方位マップ (IPF map: Inverse Pole Figure map) を、下段には相分布マップを EBSD パターンの鮮明さをパラメータ化した IQ マップ (Image Quality map) に重ねて示した。各マップの測定には約 3.5 分要している。Ti の α - β 変態点は 1153 K であるが、この測定では表示温度 1193 K まで昇温して初めて β 相の出現が認められた。また 1193 K の測定終了から 1188 K の測定開始まで約 7 分置いているが、 β 相の広がりも緩やかである。また同様に 1153 K から 1133 K の測定開始までも約 7 分置いているが α 相の成長も緩やかである。Ti の α - β 変態はかなりゆっくり進行する反応であることが推察される。また α 相内では、変態点以上の温度でも、変態とは関係なく結晶粒の成長も起こっていることが判る。試料表面では、変態によると思われる凹凸の出現やサーマルエッチと思われる粒界近傍の凹凸等が観察された。

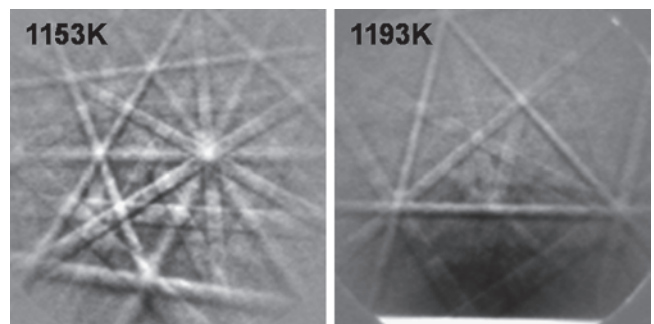


図 2 1153 K および 1193 K で得た Ti の α 相および β 相の EBSD パターンの例。

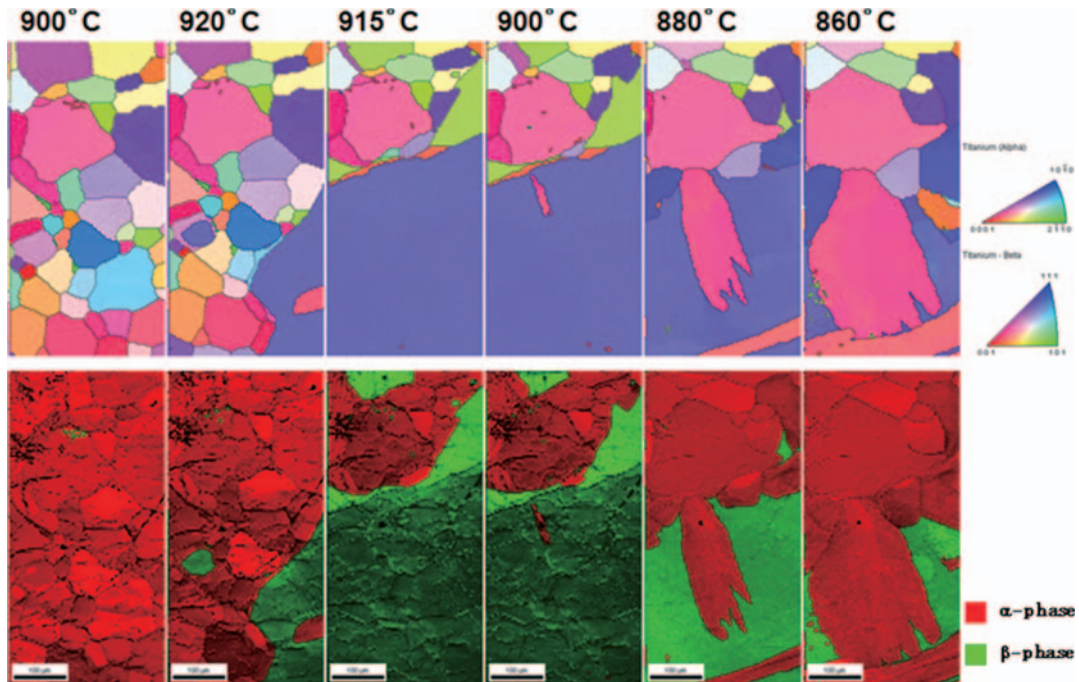


図3 Tiの α - β 変態のEBSD測定例。上段は各温度におけるIPF map (ND方向)を下段は相分布マップをImage Qualityマップと重ねたものを示す。

3. 試料引張りによるIn-Situ観察

次に試料変形を行う試験装置の例として試料引張り試験装置について説明する。まず引張り試験装置では、引張り試験片となる試料を70°傾斜した状態でEBSD測定に十分な観察領域が確保でき、さらに研磨等の取扱中に変形が生じることを避けるため試料自体にある程度の強度が必要となる。これらの点を考えると、観察部の断面は、幅が1~2mm、厚さは0.5~1.0mm程度は必要となる。この試料の断面積と金属試料の降伏応力等を勘案すれば引張り試験機としては、試料の種類にもよるが500~2000N程度の引張り力が必要となる。またSEMのステージを大きく改造することなく引張り試験機を装着するためには必然的に大きさや重量に制限が生じる。試験機が大型になり重量が増えるとSEMステージで試料を傾斜することが困難となる。また引張り駆動部は、観察部の移動を極力小さくするため、両側引張りの機構が基本となる。引張り方式は図4に示すように一軸引張り方式と二軸引張り方式がある。図4ではEBSD検出器はいずれも上方から試料を見る配置となる。一軸引張り方式は、SEMステージで試験機を傾斜することができないため試料を予め70°傾斜して取り付ける場合に採用されることが多い。図5にはこの一軸引張りタイプの加熱引張り試験機の外観を示した。引張り試験用としてはこの配置は使いやすい。しかし試料に引張り力を与える主軸のネジに対して、試料の配置を対称にできないため図4(a)に示したように主軸にかなり大きな曲げモーメントがかかる。このためこの方法では最大引張り荷重が1000N程度に限られる。最大荷重を増やすには図4(b)

に示すように主軸のネジを2本配置しその間に試料を配置し、主軸にかかる曲げモーメントを極力減らすことが必要である。この場合は、試験機自体がやや大きくなる。さらにこの配置で試料を70°傾斜しEBSD観察を可能とするためには、SEMステージにて引張りステージ全体を傾斜することが不可欠となる。ただ二軸方式の引張りステージは比較的大きくなるため、SEM試料室内の他の検出器や対物レンズ等との干渉のためSEMステージのみで70°傾斜することは困難である。このため通常試料を2-30°程度傾斜した状態で引張り試験機に取り付け、SEMステージで4-50°傾斜し、試料表面で70°の傾斜を確保するようにしている。図6には二

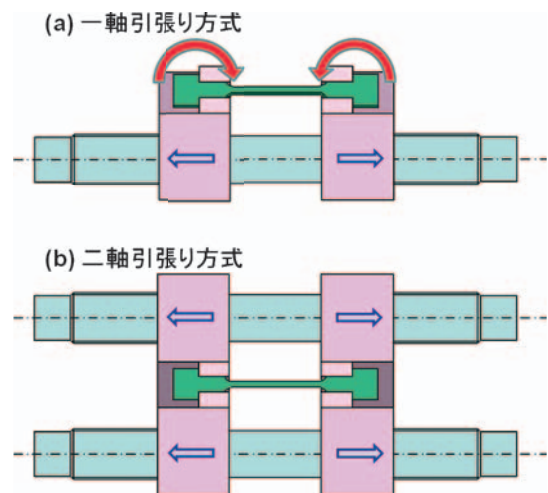


図4 (a)一軸引張り方式、(b)二軸引張り方式の模式図。

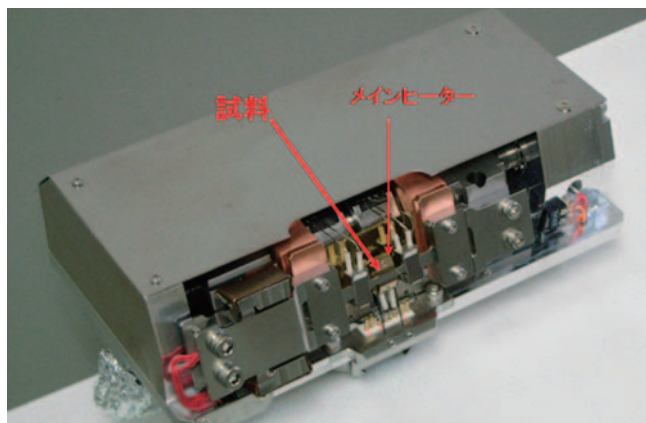


図5 一軸引張り方式の試料加熱引張り試験装置。

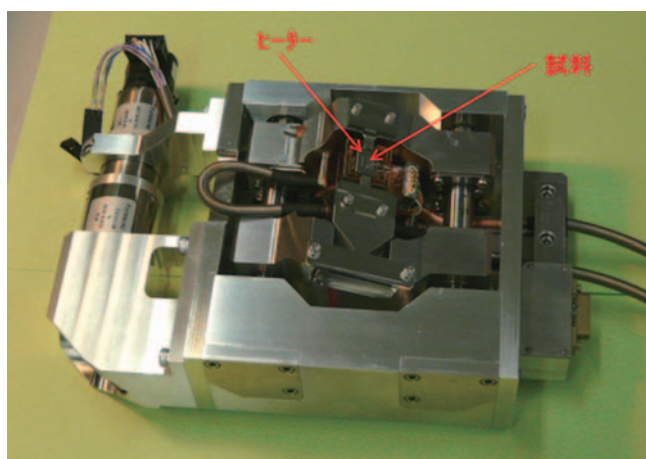


図6 二軸引張り方式の試料加熱引張り試験装置。

軸方式の試料引張り試験装置を示した。試料引張り試験の実際の観察では、試料の平行部のどの位置で大きな変形が生じるか予測は困難である。このため、試料に予めノッチ等を加え変形が生じる場所を特定しておくのも現実的な対処である。図7にはアルミニウムの試料を室温で引張り試験を行った際の試料表面の変化の様子を示した。試験片の平行部は

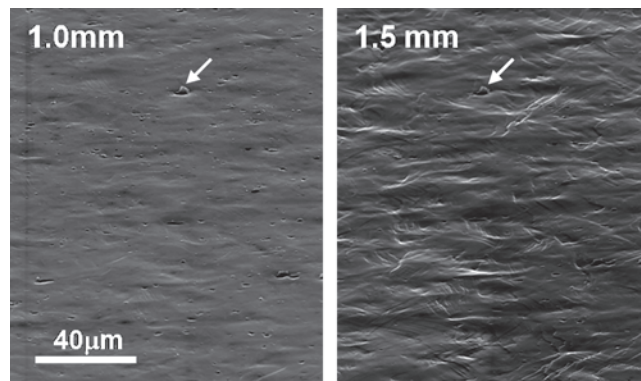


図7 試料引張り変形時の試料表面の変化。赤矢印が同じ場所を示している。

10 mm である。1 mm 引張った状態ではまだ平行部全体が均一に変形している状態であり、試料表面全体に多数の滑り線が観察された。1.5 mm 引張った状態の写真では、観察位置がちょうど試料のくびれ部分に近い位置となったため、変形量が大きくすべり線がより顕著に見えるようになると同時に試料表面の凹凸が激しくなっている。このような凹凸はEBSD測定には障害となってくる。この引張り試験の過程で行ったEBSD測定のIPFマップを図8に示す。図中の数値は試料全体の伸び量を示している。また黒矢印で示した場所が同一の場所である。1.65 mmの伸びた状態で測定したIPFマップでは、全体の結晶方位や結晶粒の形状が大きく変化している。これは測定場所がちょうど試料のくびれ部分にかかってしまったため、試料の測定面の傾斜状況が大きく変化したためである。変形の進行とともに試料表面の凹凸が激しくなり測定が困難になってくるが、試料のマイクロ組織上の変化として粒界近傍で結晶粒が微細化していることが認められる。また同一の結晶粒に注目して見ると、変形の進行に伴い粒内でも方位変化が生じていることが判る。

試料引張りステージに試料加熱機構を付加し、加熱状態で試料引張り実験を行うこと自体はそれほど難しいことではないが、その状態でEBSD観察を行うことはかなり難しい。

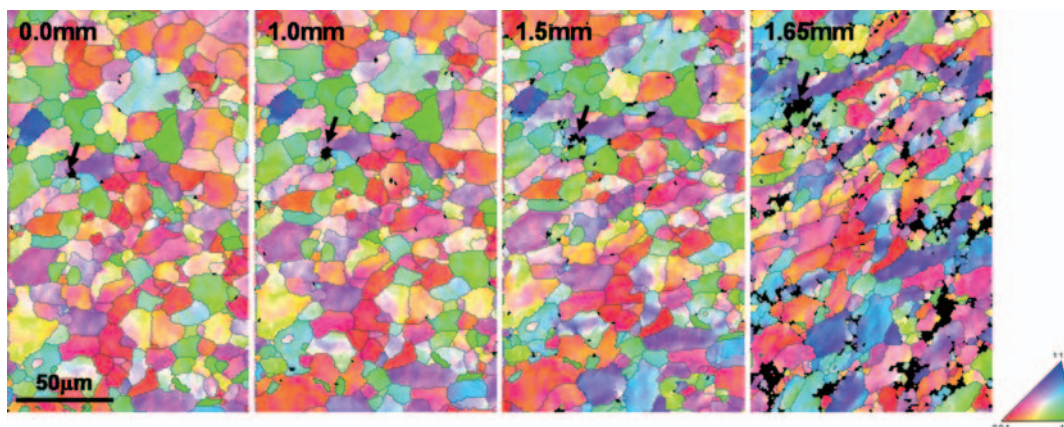


図8 アルミニウム試料を引張り変形させたときのIPFマップの変化。左上の数値が試料の伸び量を示している。

まず試料を加熱する場合には引張り部、特にロードセルに熱の影響が出ないようにする必要があり、投入する熱量を極力小さくし、観察部のみを効率的に加熱する工夫も必要である。通電加熱は試料自体を発熱体とするので効率は良いが、加熱に必要な電流が数十アンペアになり、装置が大型になってしまう。また試料の変形が大きくなり、くびれが生じ始めると温度制御が難しい。一般的にはヒーターにより試料を加熱する。SEM 試料室は比較的良好な真空度のためガス分子による熱伝達は期待できない。873 K くらいまでは接触による熱伝導で試料を加熱することになるため、加熱効率は試料とヒーター部の接触状況に大きく依存する。試料引張り試験機では、試料の平行部（観察部）の裏側にヒーターを配置し、これを試料に押し当てることで加熱する場合が多い。しかしこの方法では引張りに伴い試料が動きかつ変形するため、試料面とヒーター間で良好な接触を維持することが必ずしも容易ではない。この点を少しでも改善するため、図 6 に示した試料引張り試験装置では、引張り試験片自体にヒーターを取り付けている。一方最も熱が逃げる部分は試料両端のチャック部である。引張り試験片のチャック部分では、引張り荷重がかかると密着性は非常に良くなる。このため荷重がかかると熱伝導による熱の逃げが急に大きくなり、試料温度が低下するという困難さが伴う。特にアルミや銅といった熱伝導性の良い試料では、この影響が大きい。チャック部分の断熱を工夫し、熱の逃げを制御することが観察部の温度を上げる上で重要となる。ここで温度を上げるため、熱の投入量を増やすと試験機全体の温度が上がり、ロードセルに熱影響が及び応力測定に影響が出たり、また前述のように EBSD 検出器の蛍光スクリーンにダメージが生じたりする。

また EBSD による観察もドリフトの影響で容易ではない。まず応力付加状態で加熱すると、試料自体の熱膨張で付加荷重は急激に低下する。このため熱膨張の影響を避け付加荷重を一定にするフィードバック制御を付加してみた。これは一種のクリープ試験のような状態となる。このような制御下では付加荷重は一定に保たれるが、変形は連続的に進行する。そのため僅かではあるが荷重を一定に保つためモーターも常に動いている。つまり試料が常に少しずつ動くという状態となる。これは EBSD 観察にとっては極めて困難な状況となる。また、変化を一時止めるため温度を下げる方法もあるが、温度を下げると試料の熱収縮が生じ付加荷重が急激に増加する。この熱収縮による付加荷重の変化をフィードバック制御で適切に緩和しながら試料温度制御を行う必要がある状況が複雑になる。EBSD 法を用いた加熱状態での引張り試験では、試料の位置変動を補正するため SEM の Image Shift 機能と組み合わせるなど何らかの対策を講じる必要があるだろう。図 9 には図 7 で示したものと同一素材のアルミニウムを用い軽い引張り荷重を与えながら 593 K で再結晶させ、その温度で 1.1 mm 引張った時の試料表面の変化を示した。図 7 で示した室温で引張った際の変化と異なり、主として粒界滑りにより変形が生じていることが判る。図 9 の下部の影部は

EBSD 測定を試みた跡であるが、この時はドリフトが大きく良好な測定結果を得るには至らなかった。しかしマグネシウム試料を用いた加熱引張りの結果が西澤らによって報告されている⁸⁾。

4. 試料曲げによる In-Situ 観察

EBSD 測定のためのもう一つの塑性変形観察用試験機として試料曲げ試験機がある。試料曲げ試験機は 3 点曲げあるいは 4 点曲げが一般的であるが、2 点曲げによる装置も報告されている⁹⁾。曲げ試験には断面観察および平面観察の 2 種類の構成が可能であるが、筆者は図 10 に示すような比較的簡単に使用できる断面観察用 3 点曲げ試験機を作製してみた。試料形状は厚さ 1 mm 幅 5 mm で、両側の支点間距離 24 mm とすれば、ほとんどの金属試料は 200 N 以下の荷重で曲げられる。曲げ試験器ではこの最大荷重が比較的小さいので、装置本体を小型化できるというメリットがある。さらに曲げ試験のメリットは変形箇所が明確なため、変化の連続的な観察には非常に都合が良い。一方断面観察では、支点に近い方は圧縮力が、遠い部分は引張り力が働く部分となり、変形挙動が複雑であり、データの解析には注意を要する。また曲げ

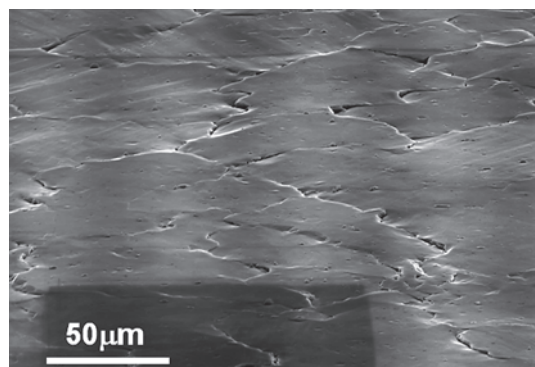


図 9 アルミニウム試料を 593 K に加熱し引張り変形させたときの試料表面の変化。

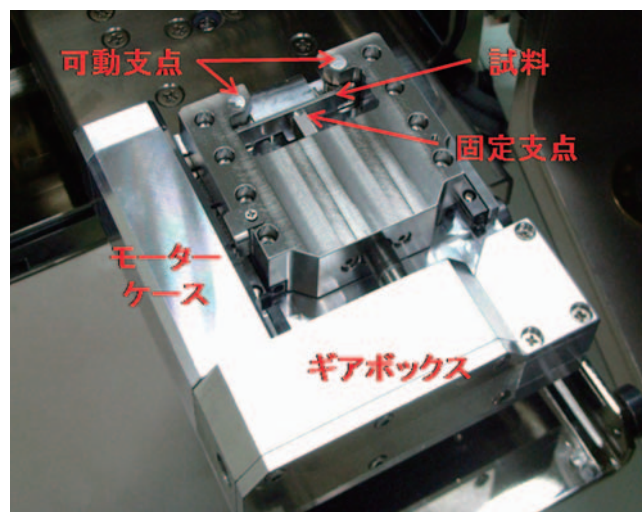


図 10 試料 3 点曲げ試験装置の外観。

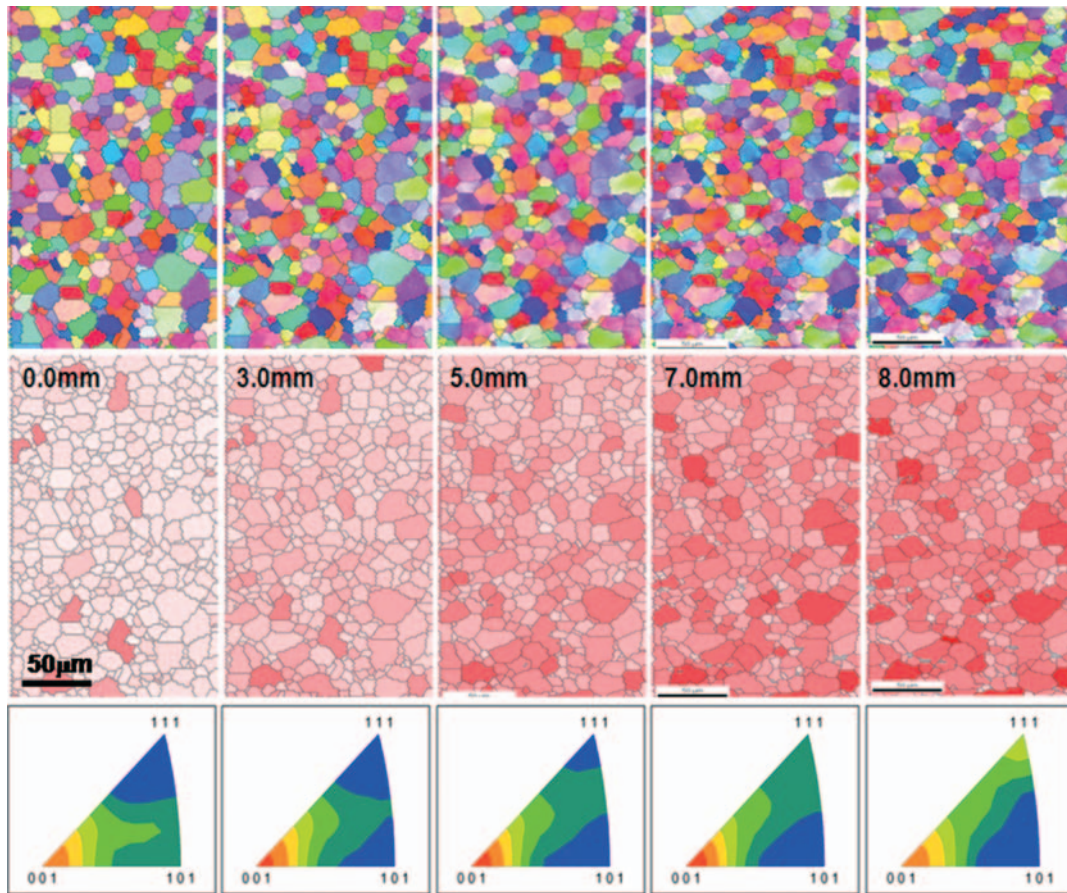


図 11 試料曲げ試験による結晶方位マップ，結晶方位差（GOS）マップおよび逆極点図の変化. 中段左上の数字が曲げ量を示す.

角度が限られるため変形量に限界がある. 装置の設計としては観察位置の動きを最小にするため，3点曲げでは中央の支点を固定し，両サイドの支点を動かすという方法を取っている. 実際の測定では，曲げの進行に伴い試料が板幅方向に反ってくるため観察面の傾斜角度に変化が生じる. そのためデータの解釈では，この補正を行う必要がある. 前述サイズのアリウム試料を測定した場合，8 mm 曲げ(約 90° 曲げ)で 11.5° の反り返りがあり，初期状態で 70° にセットした測定面の傾斜が 59.5° になっていた. 次にこの曲げ試験機を用いて十分に焼鈍されたアリウム試料の曲げ試験測定例を図 11 に示す. 測定場所は引張り力が働く部分で，マップの横方向に引張り変形が生じている. 中段マップ中の数値は可動支点の移動量を示しており，8 mm の移動量で約 90° に曲げに相当する. 中央支点の曲率半径は 1 mm であるが，この試料では 90° 曲げの状態での曲率半径はこれよりかなり大きいものとなっていた. マップ上で伸び量を測定すると 8 mm 曲げで 14% の伸びとなっていた. 上段にはこのマップの横方向の結晶方位変化を示す IPF マップを示した. 中段には各結晶粒内のすべてのピクセル間の結晶方位差を算出し，その平均値をその結晶粒の値として示したもの（GOS map: Grain Orientation Spread）である. 下段はこのマップの横方向の方位変化を逆極点図で示したものである. まずこの変形

を通じて全体として結晶粒自体の形状が大きく変化するほどの変形は生じていない. しかし，個々の結晶粒内では，色合いの変化が増加していることが判る. IPF マップでは，曲げ前の状態では緑色の割合がある程度認められるが，8 mm 曲げた状態でのマップではその割合が減り，やや青みがかってきていることが認められる. これは下段の逆極点図ではより鮮明に現れているが，変形の進行とともに引張り軸方向に $\langle 101 \rangle$ 方位から $\langle 111 \rangle$ および $\langle 001 \rangle$ 方位に配向するように

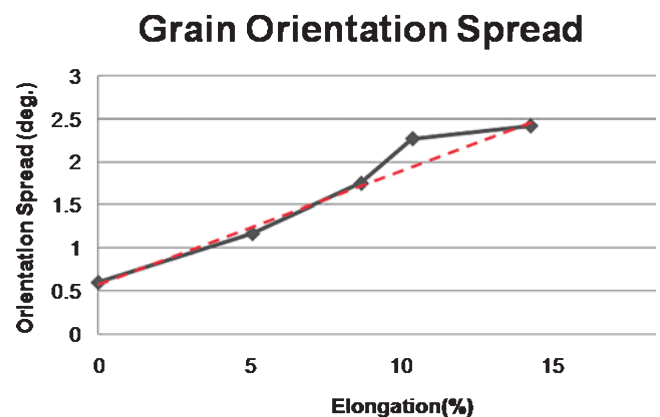


図 12 GOS の平均値と試料の伸び量の関係.

変化している。8 mm 曲げの逆極点図で判るように、引張り軸方向には逆極点図で (001) と (111) 面の法線方位を結ぶ線上の方位が配向することが判る。また中段に示した GOS マップは方位マップの測定間隔や結晶粒の定義により詳細な結果は異なるものの、全体としては右に行くほど色合いが濃くなっており粒内の方位差が増大していることが判る。この GOS 値は各結晶粒毎に計算される値であるが、この値を各マップ全体で平均しその値を試料の伸び量に対してプロットしてみると図 12 のようになる。伸び量と GOS の平均値にはほぼ直線的な比例関係があることが判る。これは伸び量（変形量）が大きくなると直線的ではなくなってくるが、20%程度の伸び量まではほぼ直線的に変化する傾向がある。したがって、目的とする金属試料で一度このようなデータを得ておけば、同一条件で GOS 値を測定することにより、伸び量（変形量）を推測することができる可能性がある。

5. おわりに

本解説では EBSD 法と In-Situ 観察法を組み合わせた材料組織観察法について紹介した。EBSD 法との組み合わせでは、EBSD 検出器に対する考慮が必要で In-Situ 試験装置の配置が難しくなるという点はあるが、適切に対応すれば材料組織の変化に関して多大な情報が得られる。また EBSD 観察用 In-Situ 試験装置は設計者や使用者の工夫次第で実験のやり方を大きく改善することも、また新しい装置を製作することも可能である。本解説が EBSD 法と In-Situ 観察法を組み合わせた材料組織観察の発展の一助になれば幸いである。

謝 辞

本解説中に紹介した各種の In-Situ 試験装置の開発にあたり、制御系の設計・製作で試験装置の完成に多大な貢献をしていただいたシステムアートの高橋君夫氏に深く感謝いたします。また EBSD 用試料曲げ装置の開発にあたり東京工業大学大学院竹山雅夫准教授に多大なアドバイス等ご支援をいただきましたこと深く感謝いたします。

文 献

- 1) Krieger Lassen, N.C., Conradsen, K. and Jensen, D.J.: *Scanning Microscopy*, 6, 115 (1992)
- 2) Adamus, B.L., Wright, S.I. and Kunze, K.: *Metall. Trans. A*, 24A, 819 (1993)
- 3) Brewer, L.N., Field, D.P. and Merriman, C.C.: *Electron Backscatter Diffraction in Material Science* 2nd Edition, Springer, Cp18, p251 (2009)
- 4) 鈴木清一：顕微鏡, 39(2), 121 (2004)
- 5) 鈴木清一：顕微鏡, 39(3), 180 (2004)
- 6) 杉山昌章, 重里元一：新日鉄技法第 381 号, 11 (2004)
- 7) 松本克史, 工藤 健, 村上昌吾, 逸見義男：第 144 回日本金属学会講演概要, 476 (2009)
- 8) 西澤正行, 森 宏治, 大石幸広, 阿部 望, 鎌土重晴：軽金属第 59 巻第 7 号, 333 (2009)
- 9) 鈴 拓也, 魚田剛史, 山本厚之：軽金属学会第 116 回春季大会講演概要, 37 (2009)