

高分解能結晶方位解析法 (FESEM/EBSP法) による超微細結晶粒組織の解析

鉄鋼材料をはじめとする構造用金属材料においては、強度・靱性・耐食性などの機械的性質を飛躍的に向上させることを目的として、結晶粒径を $1\mu\text{m}$ 以下にまで超微細化する研究がさかに行われており、超微細結晶粒を得るための手段としては粉末メカニカルミリング法など、いくつかの強ひずみ加工法が提案されている。

なかでも、斎藤、辻らによって開発された繰返し重ね接合圧延 (Accumulative Roll-Bonding ; ARB)¹⁾ は、大型バルク材に適用可能なプロセスとして注目されている強ひずみ加工法であり、これまでに、ARBにより平均結晶粒径 $1\mu\text{m}$ 以下の超微細結晶粒組織が得られることが明らかになっている。

超微細結晶粒組織の結晶粒界の方位差や集合組織 (結晶方位分布状態) は、その機械的性質を大きく左右する重要な因子であり、ARBで得られた超微細結晶粒は隣接する粒と大きな方位差を持つことが透過電子顕微鏡内での菊池線解析により証明されている^{2)~4)}。

しかし、この方法では測定領域が狭い範囲に限られることから、これら超微細結晶粒の結晶方位に関する解析は、これまで十分に行なわれていなかった。

今回、電界放射型高分解能走査電子顕微鏡 (Field emission scanning electron microscope ; FESEM) を用いたEBSP (Electron backscatter diffraction pattern) による結晶方位解析法 (以下、FESEM/EBSP法と記す) の適用により、超微細結晶粒組織の広範囲にわたる方位解析が可能となった⁵⁾ので、その概要を紹介する。

B-1

結晶粒径と結晶方位解析法

結晶方位解析をおこなう場合、測定対象となる材料の結晶粒径によって採用すべき方位解析法が決まる。結晶粒径とそれに適した結晶方位解析方法を第1表に示す。

第1表 測定材料の結晶粒径と対応した結晶方位解析方法

結晶粒径	結晶方位解析法	使用する電子顕微鏡
$1\mu\text{m}$ 以上	SEM/EBSP法	熱電子放出型SEM (W-SEM, LaB ₆ -SEM) 冷陰極電界放出型SEM (Cold-FESEM) ショットキー型FESEM (Schottky-FESEM)
$0.01\sim 1\mu\text{m}$	FESEM/EBSP法	
$0.01\mu\text{m}$ 以下	電子線回折法 (菊池線利用)	透過電子顕微鏡 (TEM)

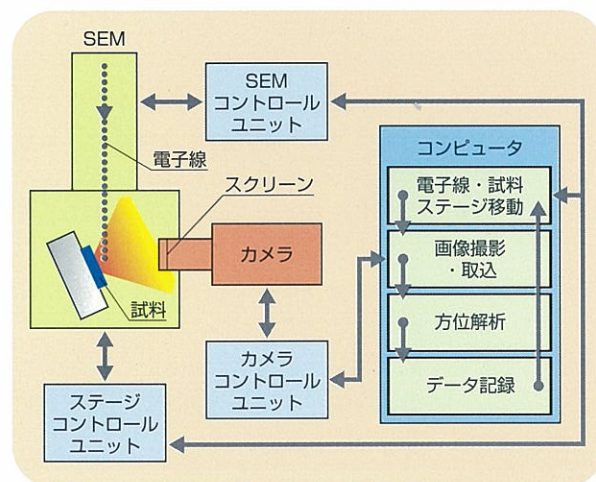
EBSP法は、走査電子顕微鏡 (Scanning electron microscope ; SEM) の鏡筒内にセットした試料に電子線を照射したときに発生する後方散乱電子回折像 (Electron backscatter diffraction pattern ; EBSP) から結晶方位を解析する手法である。

約10年前に自動測定・解析システム (第1図) が商品化された後、コンピュータ性能の向上やシステム改善などにもともなって、数年前から急速にその利用が普及しはじめ、今では多結晶材料の組織評価には欠かせない手法の一つとなっている^{6)~10)}。

熱電子放出型SEM (W-SEM, LaB₆-SEM) を用いたSEM/EBSP法は、もっとも古くから普及しているタイプであり、比較的大きな結晶粒を持つ材料の測定には適しているが、分解能が低いため、 $1\mu\text{m}$ 以下の超微細結晶粒の結晶方位を精度良く測定することは不可能である。

超微細結晶粒の測定には、第1表から高分解能のFESEM/EBSP法が適していることがわかる。

しかし、数年前までは、EBSPシステムを搭載可能なFESEMは、冷陰極電界放出型SEM (cold-FESEM) のみであった。この機種には、ビーム電流の安定性が悪く、数時間以上の連続測定が不可能という問題点があり、



第1図 自動EBSP法の概略図

1) Y.Saito et al. : Acta Mater., Vol.47 (1999), p.579.

2) 辻 伸泰ほか：まてりあ, Vol.39 (2000), p.961.

3) 伊藤良規ほか：日本金属学会誌, Vol.64 (2000), p.429.

4) N.Tsuiji et al. : Ultrafine Grained Materials, (2000), p.207, TMS.

5) N.Tsuiji et al. : to be published in Scripta Mater., (2002)

6) 鈴木清一：まてりあ, Vol.40 (2001), p.612.

7) 梅澤 修：熱処理, Vol.41 (2001), p.248.

8) B.L.Adams et al. : Electron Backscatter Diffraction in Materials Science, (2000), Kluwer Academic/Plenum Publishers

9) 与田利花：こべるにくす技術ノート, Vol.9 (2000), Apr., p.10.

10) 鈴木康平：こべるにくす技術ノート, Vol.10 (2001), Oct., p.4.

広い範囲を詳細に測定することが求められる構造用材料の結晶方位解析には、cold-FESEMによるFESEM/EBSP法は適さなかった。

いっぽう、従来から知られている透過電子顕微鏡 (Transmission electron microscope ; TEM) による電子線回折法を用いると、サブミクロンの超微細結晶粒の結晶方位を解析することは可能である^{2)~4)}が、EBSP法のような広い範囲を測定することは、測定および解析に要する時間と労力の点から事実上不可能に近かった。

このように、構造用材料の超微細結晶粒の方位解析に関しては、EBSP法が広く普及した後も長年の間、最適な手法がなかったために十分な解析を行うことができなかった。

しかし、最近になってビーム電流安定性の良いショットキー型FESEMにEBSPシステムを搭載したFESEM/EBSP法が実用化され、構造用材料における超微細結晶粒組織の広範囲にわたる結晶方位解析がはじめて可能となった。

繰り返し重ね接合圧延(ARB)法によって得られた超微細結晶粒組織の結晶方位解析 C-2

実験方法

実験には、板厚1mm×幅20mm×長さ300mmのチタン添加極低炭素鋼 (0.0031%C-0.15%Mn-0.01%P-0.005%S-0.049%Ti) 圧延板を使用し、第2図に示すようなARBプロセスを5サイクル繰り返すことにより、相当圧下ひずみ4.0まで強ひずみ加工を行った¹⁾。

得られた板から、圧延方向 (Rolling Direction : RD) に平行な板厚断面を測定面とする短冊状試片を切り出し、電解研磨法により鏡面仕上げを行い、FESEM/EBSP測定用試料とした。測定に使用したFESEMはショットキー型FESEM (FEI製XL30S-FEG)、EBSPシステムはTexSEM Lab. Inc.のOIMTMシステムである。

測定位置は、ARB板の板厚中心部近傍 (中心から50 μ m上方) および上部表層部近傍 (表面から50 μ m下方) の2か所であり、それぞれ10×50 μ mの広い領域を0.05 μ mのピッチで測定した。

結晶方位解析結果

第3図に各測定領域のイメージオリティマップを示す。イメージオリティは、試料から発生したEBSPの鮮明さを数値化したもので、マップではそれをグレースケールで表示している。イメ

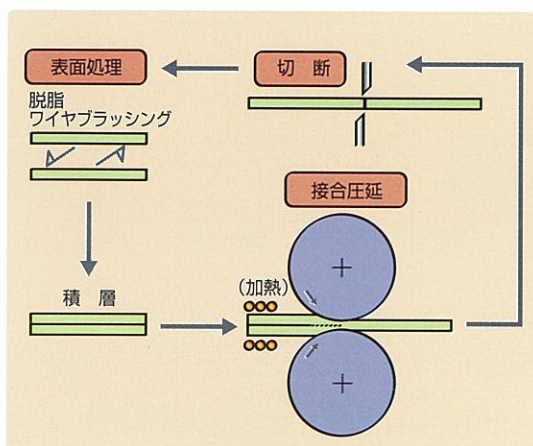
ージクオリティが高い、すなわち、得られたEBSPが鮮明なほど、マップ上では白色に近い色で表される。

一般に、結晶粒界はひずみが高いこと、あるいは二つの結晶からのパターンの重畳によってイメージオリティが低下することから、マップ上では黒色の線として現れる。

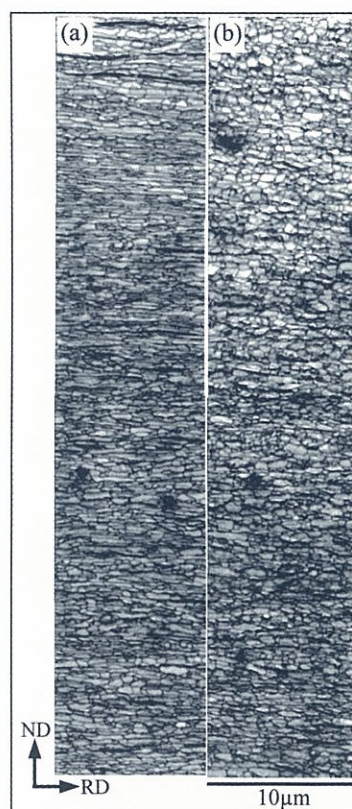
熱電子放出型SEM (W-SEM、LaB₆-SEM) をもちいたSEM/EBSP法では、このような強ひずみ加工材からは鮮明なEBSPは得られなかったが、FESEM/EBSP法の採用により、ほぼすべての領域において良好なEBSPが得られることがわかった。

また、第3図は、各測定領域における超微細粒組織を良く再現しており、結晶粒の形状が圧延方向に伸びた伸長粒であること、表層部の方がより等軸粒に近い形状であることがわかる。

1) N.Tsuji et al.: Scripta Mater., Vol.40 (1999), p.795.



第2図 繰り返し重ね接合圧延(ARB)の概略図



(a)板厚中心部近傍
(b)表層部近傍

第3図 イメージオリティマップ

第4図および第5図は、板厚中心部近傍および表層部近傍の一部分を拡大した、ND (Normal Direction、今回の場合は板厚方向と一致する) 方向の結晶方位、RD方向の結晶方位および結晶粒界の方位差を表すマップである。

結晶粒界の方位差は、隣り合う測定点間に15度以上の方位差がある場合は緑色で、2度以上15度未満の方位差の場合は、赤色で粒界を描いている。この図から、中心部、表層部とも、ほぼすべての超微細粒が方位差15度以上の大角粒界に囲まれていることがわかる。

この特徴は測定領域全域にわたって同様であり、ARB法により得られる超微細結晶粒が互いに大きな方位差を持つことが広範囲で証明された。

さらに結晶方位カラーマップより、中心部と表層部では集合組織 (結晶方位分布状態) が大きく異なっており、中心部はRD//<110>なる圧延集合組織を、表層部はND//<110>なるせん断集合組織を有していることが明らかとなった。これらは板厚方向のせん断ひずみ分布¹²⁾とよく対応している。

しかし、隣接する微細粒は多くの場合異なる色を有しており、上述のように隣り合う超微細結晶粒間にはたしかに大きな方位差が存在すること、

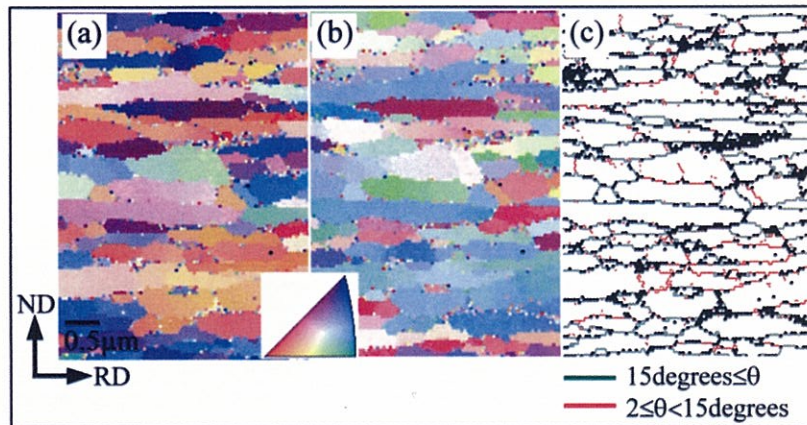
強ひずみ加工後であっても集合組織の集積度はそれほど強くないことを示している。

ARBをもちいた強ひずみ加工によって得られた平均結晶粒径 $1 \mu\text{m}$ 以下の超微細結晶粒組織について、FESEM/EBSP法を用いることにより、それらの方位差と集合組織が広範囲にわたって初めて明らかとなった。

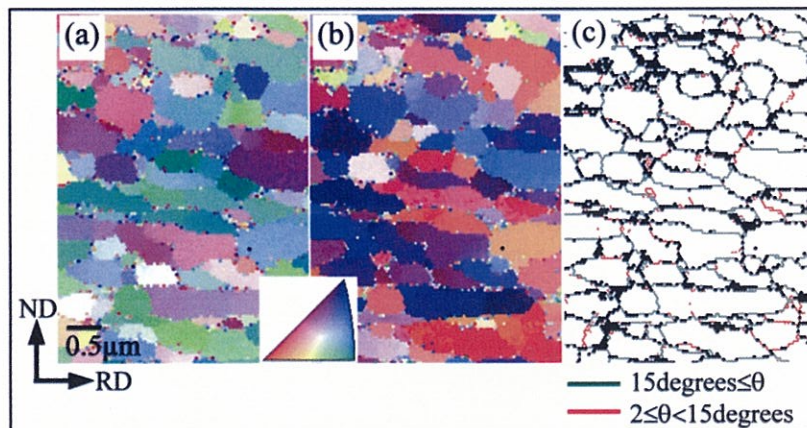
今回は鉄鋼材料への応用例を紹介したが、高い分解能を持つFESEM/EBSP法は、超微細組織を持つ半導体材料など幅広い分野への適用が可能である。また、測定スピードの高速化などEBSP法の技術は年々進歩しており、当社では最新装置による測定・解析を行っている。本技術が多結晶材料の研究開発において大いに活用されることを期待している。

最後にARB材のFESEM/EBSP測定時に種々のご指導をいただき、かつ研究成果の本稿への掲載を快諾いただいた、大阪大学大学院工学研究科知能・機能創成工学専攻辻伸泰助教授に深く感謝の意を表する。

[加古川事業所 技術室 与田利花]



(a)ND方向の結晶方位 (b)RD方向の結晶方位 (c)結晶粒界の方位差
第4図 板厚中心部近傍の結晶方位解析結果 (一部を抜粋)



(a)ND方向の結晶方位 (b)RD方向の結晶方位 (c)結晶粒界の方位差
第5図 表層部近傍の結晶方位解析結果 (一部を抜粋)

12) S.H.Lee et al. :
Scripta Mater., Vol.46
(2002), p.281.