透過 EBSD 法の評価と材料ミクロ組織観察への応用

鈴木 清一

株式会社 TSL ソリューションズ

J. Japan Inst. Met. Mater. Vol. 77, No. 7 (2013), pp. 268–275
© 2013 The Japan Institute of Metals and Materials

Evaluation of Transmission-EBSD Method and Its Application to Observation of Microstructures of Metals

Seiichi Suzuki

TSL Solutions KK, Sagami-hara 252-0131

Transmission-EBSD (t-EBSD) method is proposed as a new method for nano-scale microstructures analysis of materials. t-EBSD uses TEM thin foil specimen. Electrons transmitted through the specimen form EBSD patterns. A EBSD detector used for standard EBSD (s-EBSD) is used to acquire these t-EBSD patterns. The patterns are indexed in the same manner as s-EBSD to get crystal orientation. The conditions to get good t-EBSD patterns, formation of t-EBSD patterns and spatial resolution of this method are studied in this paper.

Specimen thickness affects seriously to the results of orientation mapping by t-EBSD. It is confirmed that t-EBSD patterns are formed at the bottom layer of the specimen. If the specimen is very thin, the patterns become very weak and noisy. If the specimen becomes thicker, t-EBSD patterns lose its contrast and sometimes patterns become weak with reverse contrast bands. This means that total thickness of the specimen is important for t-EBSD method, but overlapped grains look not so big problem to get t-EBSD patterns.

Electron beam spread in the specimen is reduced due to thin foil specimen, and it improves spatial resolution of EBSD orientation map. It is confirmed that it can achieve about 10 nm spatial resolution and about 30 nm size grains can be detected with reasonable thickness specimen. [doi:10.2320/jinstmet.J2013002]

(Received January 15, 2013; Accepted April 4, 2013; Published July 1, 2013)

Keywords: electron backscatter diffraction, transmission electron backscatter diffraction, micro-structure analysis

1. 緒 言

Electron backscatter diffraction (EBSD)法が材料のミクロ組織観察に利用できることが紹介されてからすでに 20 年が経過した。この間に EBSD 法のハードウェア、そしてデータの収集・解析を行うソフトウェアも大きく進歩し、材料のミクロ組織観察装置としてはなくてはならない存在となっている¹⁻⁴⁾。またフィールドエミッション型走査電子顕微鏡 (FE-SEM) との組み合わせ、測定技法の改善、さらに試料作製法の進歩等もあり、現在では 40~50 nm 程度の結晶粒の結晶方位測定も条件によっては可能になっている。しかし 20~30 nm 程度の結晶粒となると、その測定は容易ではない。これは EBSD 法では大きく傾斜させたバルク試料の表面を観察するため、試料内での照射電子線の広がりや空間分解能を制限する大きな要因となっているためである⁵⁾。この問題を克服するために、透過電子顕微鏡 (TEM) の Nano Beam Diffraction 法を用い、SEM と同様に試料上で電子線プローブを走査しながら回折パターンを取込み・指数付することで EBSD 法と同様の結晶方位像を作成する方法が提案されている⁶⁾。この手法では FE-TEM の使用により 1 nm 程度のプローブ径が得られるため、試料の状態が良ければ数

nm の結晶粒の結晶方位の測定が可能である。この手法を実現する装置は既に市販されているが、かなり複雑でその使用には相当の熟練を要する状況である。一方 2011 年に R. R. Keller らにより、薄膜試料を用い試料を透過した電子線から EBSD パターンが得られることが示され、その透過 EBSD (Transmission-EBSD 法：以後 t-EBSD と呼ぶ) パターンの発生領域が、従来の EBSD 法 (Standard EBSD 法：以後 s-EBSD 法と呼ぶ) と比べかなり小さくなることが示され、EBSD 法の分解能改善を示唆する報告がなされた⁷⁾。この t-EBSD パターンを得るためには Fig. 1 に示すように試料を検出器と逆方向に傾斜するようにセットし、透過した電子線を EBSD 検出器で捉えるように配置する。t-EBSD パターンの形成について Fig. 2 に模式的に示したが、通常の菊池パターンの発生原理と同様に説明できる。試料の上側表面から入射された入射電子線は試料内の各原子で全方向に散乱される。このうち試料裏面近傍の各原子で散乱された電子が試料裏表面に到達する間に結晶面で回折され Bragg の回折条件を満たす方向に強度をもって試料裏表面から飛び出してくる。この時、電子線回折は結晶面の両側に対称的に生じる。この Bragg の回折条件を満たした電子線は 2θ の角度を持った 1 対のコーンを形成し、菊池パターンのエクセスコーンとデフェクトコーンに対応する。またその

Fig. 1 Geometrical arrangement of t-EBSD specimen and EBSD detector. This figure shows the relation between the t-EBSD specimen and EBSD detector at WD 5 mm.

Fig. 2 Schematic illustration for generation of t-EBSD pattern.

コーンに挟まれた領域の電子線密度が若干高くなるので、これを蛍光スクリーン上に投影すればバンドとして認識できる。つまり EBSD パターン中の各バンドは、試料内の結晶面をそのまま空間に広げ蛍光スクリーンに投影したものに相当する。このような EBSD パターンの形成状況を考慮すれば、試料表面から反射する方向に飛び出してくる電子線により形成される EBSD パターンも、試料を透過する方向で形成される EBSD パターンも同じように考えることが可能となる。本研究では、この t-EBSD パターンの特徴を調査しパターンの形成状況を考察するとともに、s-EBSD 法と同様に材料の超微細組織観察に使用できるか、また s-EBSD 法と比較しそのメリットやデメリットの考察を行った。

本手法に関しては、試料を透過した電子線によりその進行方向に形成される回折パターンを使用することから Electron BackScatter Diffraction の頭文字を取った EBSD という名称を使用することが適切であるかと懸念もあった。しかし「EBSD 法」という名称がすでに「SEM を用いて菊池パターンを取込み、結晶方位を連続的に測定することにより結晶方位に基づいた材料組織の観察を行う手法」として定着した感があり、また R. R. Keller らが用いた transmission-EBSD という呼称を尊重し透過 EBSD (t-EBSD) 法とした。

2. 実験方法

t-EBSD パターンの観察のために Fig. 3 に示した試料ホルダーを作製した。この試料ホルダーに TEM 用に作成した 3 mmφ の薄膜試料を取り付け SEM ステージに装着し、そ

のステージを 70° に傾斜した際に試料の傾斜角が水平よりそれぞれ 20°, 40°, 60° と選択できるようにしてある。t-EBSD パターンの取得には日本電子製 SEM (JSM-7001F) に取り付け EDAX 製 OIM システムを用いた。この EBSD システムの検出器は SEM のワーキングディスタンス (WD) が 15 mm 前後で s-EBSD パターンの検出条件が最適となるようにセットされている。Fig. 1 に示した図はこの実験に使用した装置の検出スクリーンと試料を WD 5 mm にセットした時の配置関係を基に作成したものである。WD 5 mm の場合でも、スクリーン上部は試料位置よりもやや高い位置となる。このため機械的に影にならないようにするため試料をある程度 s-EBSD の場合とは逆方向に傾斜する必要がある。加速電圧による t-EBSD パターンの違いを調べるため SEM の加速電圧は 15 kV および 25 kV にて測定を行い比較した。実験に用いた試料は、冷間圧延後焼き鈍し処理を行ったアルミニウム箔を電解研磨法により透過電子顕微鏡 (TEM) 試料としたもの、および 8 クロム焼き戻しマルテンサイト鋼を電解研磨仕上げにより作成した TEM 試料を用いた。TEM 観察には日本電子製透過電子顕微鏡 (JEM-2000EX) を使用し、明視野像観察により行った。

3. 結果および考察

3.1 t-EBSD パターンにおよぼす試料傾斜角と WD の影響

Fig. 4 には加速電圧 25 kV、試料傾斜角 20°, 40°, 60°, WD 5 mm と 15 mm で得た t-EBSD パターンを示す。R. R. Keller らは、試料傾斜角 10°~30°そして WD は 10 mm 程度を推奨しているが、この結果では試料傾斜角 20°, WD 15 mm の条件ではパターン上部に影が生じている。また試料傾斜角 40°でも WD 15 mm の場合はパターン上部の信号が非常に弱い。また WD 5 mm の場合でも試料の傾斜角が 20°の場合はパターン上部のコントラストがやや弱くなっている。これらは試料と検出器スクリーンの配置関係に依存していると考えられる。試料傾斜角が 20°と浅い場合には検出スクリーン上部に到達する電子線は試料中の通過距離が長くなることにより散乱の効果が大きくなるため、それに応じて t-EBSD パターン中のバンドのコントラストが弱くなることが推察できる。一方空間分解能を考えると傾斜角が大きくなるほど縦方向の電子線の広がりが大きくなるため不利となる。この縦横比は試料傾斜角 40°で 1.31, 50°で 1.56 である。この点では試料傾斜角は小さい方が良いと思われる。これらの点を考慮すると s-EBSD 用に配置された EBSD 検出器を使用した t-EBSD パターンの収集には、WD を極力短く設定し、試料傾斜角は t-EBSD パターンの上部で影や散乱の影響が抑えられる範囲で小さくするのが良いと思われる。今回の実験に用いた装置の場合では、WD は 4~5 mm 程度、試料傾斜角は 40°~50°程度に設定することで良い結果が得られた。また WD を短くすることはより小さな電子線プローブの形成に有利となるため、空間分解能的にも有利となると考えられる。一方、WD を短くして使用するとパターンの発生点から検出スクリーンに垂直に下した点、いわゆるキャリブレーション点が検出スクリーンの上部エッジ

付近となり、s-EBSD の場合よりもかなり上になる。これにより検出スクリーン上部に対し下部では EBSD パターン中のバンドの幅がかなり広がってしまう。この変化に対処するため、t-EBSD 法ではバンドの検出を行う Hough 変換法⁸⁾の検出条件においては Hough 空間上のピークの解像度を低めに設定しピークの分裂を回避する等その設定に注意を要する。

3.2 試料厚さと t-EBSD パターンの関係

EBSD パターンは試料中で散乱された電子が、散乱点か

Fig. 3 t-EBSD specimen holder made for this experiment. A TEM sample is fixed to a specimen plate (b) and the specimen plate is fixed to a specimen holder base (a) to set on the SEM stage. Specimen tilt angle becomes 20, 40 and 60 degrees when the specimen holder base is tilted to 70 degrees by SEM stage.

Fig. 4 Changes in t-EBSD patterns taken with different specimen tilting angle and WD. The specimen is aluminium and Acc. voltage was set at 25 kV.

Fig. 5 Changes in t-EBSD patterns with different specimen thickness. The patterns were acquired by using aluminium specimen with Acc. voltage of 15 kV and 25 kV, and specimen tilting angle was set to 40 degrees.

Fig. 6 Crystal orientation map overlaid on IQ maps for front surface (a) and back surface (b) of aluminium TEM sample. And the same map by using t-EBSD method (c) was acquired with illumination from front surface. Image (b) was reversed left and right, and image (c) was reversed top and down to show the same image direction. We can see (b) and (c) images are nearly the same.

くなる方向に‘厚さ-I’‘厚さ-II’‘厚さ-III’‘厚さ-IV’の4段階に分けて評価した。200 kVでのTEM観察では、‘厚さ-I’とした部分は十分薄くTEM観察に問題なく使用できる程度の厚さである。‘厚さ-II’とした部分はTEM観察では像の鮮明さが欠け始めやや厚すぎる状態である。‘厚さ-III’および‘厚さ-IV’とした部分はTEM観察には試料が厚すぎ不向きな状態の厚さである。‘厚さ-I’とした薄い部分ではt-EBSDパターンは明瞭に観察される。しかし加速電圧が25 kVの場合はコントラストが弱くややランダムノイズの多いパターンとなっている。これはスクリーン方向に回折されてくる電子線量が少ないためと考えられる。試料が極薄になるとパターンのコントラストは非常に弱くなる。‘厚さ-II’とした部分ではパターンは全体的に鮮明であり良好なパターンが得られている。‘厚さ-III’とした部分では中央部のパターンは良好であるが、周辺部になるにしたがいボケが目立ってくるのが分かる。これは試料中で電子線が回折された点から試料表面までの距離が周辺部ほど長くなるため試料内部での非弾性散乱が増えるためと考えられる。ただ指数付けには問題はない。‘厚さ-IV’とした部分のパターンは15 Vのものでより特徴的に表れているが、バンドのコントラストが反転し通常明るくなるEBSDのバンドが暗くなっていることが分かる。これは電子線が複数の結晶粒を透過し回折を受けた結果というわけではない。比較的大きい結晶粒の場合には、電子線がその粒内で最初に回折を受けた点から試料表面まで同じ結晶面上に沿って進む距離が長くなる。このため、Fig. 2で示したエクセスコーンとデフェクトコーンに挟まれた 2θ の範囲に入った電子線が試料表面から飛び出す前に同じ結晶面上の原子で散乱され 2θ の範囲から外れてしまう確率が高くなるため、この2つのコーンに挟まれる部分の電子線の密度が下がることにより暗くなると考えられる。複数の結晶粒が重なっている場合でもt-EBSDパターンは、試料下面の最表面層の結晶粒で回折を受けた電子線がパターンを形成すると考えられる。Fig. 6には前述アルミニウム試料のエッジ部から40 μm 程度の範囲で同じ場所をそれぞれ試料の表側(a)、裏側(b)から得たs-EBSD法による結晶方位像、そして試料の表側から電子線を照射し裏側からEBSDパターンを得たt-EBSD法(c)による結晶方位像にそれぞれのIQ(Image Quality)像に重ねて示した。s-EBSD法では加速電圧15 kV、試料傾斜角は70°で、t-EBSD法では

加速電圧25 kV、試料傾斜角は40°で測定を行った。ステップサイズはいずれも0.1 μm である。ただ本実験に用いたTEM試料の試料表面が少したわんでいたため、観察面の傾斜角がこの試料傾斜角に厳密に一致しているわけではない。s-EBSD法で表面と裏面を測定した場合は、測定面は左右反転の関係になるので裏側(b)の結晶方位像を左右反転し同じように見えるようにして表示した。また、t-EBSD法(c)による結晶方位像は、表側(a)と上下反転の関係になるので、これも上下反転して表示してある。この3つの結晶方位像を比較すると、s-EBSD法で測定した表面(a)と裏面(b)の結晶方位像は大きく異なるが、試料の表側から電子線を照射し裏側から得たt-EBSD法の結晶方位像(c)は、試料裏面から得たs-EBSD法の結晶方位像(b)とほぼ同じであることが分かる。このことよりt-EBSD法の情報は試料下面の表面層の情報を反映したものであることが確認できる。s-EBSD法で得た試料の表側(a)および裏側(b)からの結晶方位像では、矢印で示した結晶粒のように試料表面から裏面まで貫通している結晶粒は左下のエッジ近傍でやや多く認められるが、その他の領域では一致しているものは多くはない。つまりこの試料の大半の部分で複数の結晶粒が重なった状態になっていると推察できる。しかしこの領域の右上部分(試料厚さがかなり厚くなっている部分)を除いたほとんどの部分で得られたパターンはFig. 6で示した‘厚さ-II’または‘厚さ-III’で示したようなパターンであり、当然ながら良好な指数付けがなされており、結果の信頼性も高いものであった。このことからt-EBSDパターンを得るには、結晶粒が重なっていること自体は必ずしも測定の大きな障害にはならないが、試料の厚さ自体にはおのずと制限が生じることが分かる。解析に支障のないパターンを得るという観点から試料の厚さはFig. 5に‘厚さ-III’と示した程度のパターンが得られる厚さに制限されると考えられる。これはTEM観察にはちょうど良い厚さから観察ができないことはないが少々厚すぎるとするような部分に相当している。

3.3 TEM 像, t-EBSD 像, s-EBSD 像の比較

8クロム焼き戻しマルテンサイト鋼のTEM試料を用い、同一場所を観察したTEMの明視野像およびt-EBSD法とs-EBSD法で得たIQ像をFig. 7に示す。TEM観察は加速電圧200 kV、試料傾斜角0°, t-EBSD法は加速電圧25

Fig. 7 Comparison of TEM bright field image (a), t-EBSD IQ image (b) and s-EBSD IQ image by using 8 chromium tempered martensite TEM specimen. Fine black lines shown by black arrows in image (b) are not dislocation. They show small angle boundaries.

kV, 試料傾斜角 40° , s-EBSD 法は加速電圧 15 kV, 試料傾斜角 70° , そして EBSD 法におけるステップサイズはいずれも 20 nm で測定した. IQ 像は EBSD パターン中のバンドの鮮明さおよび明るさをパラメータ化した像であり, パターン中の大半のバンドの強度情報を合算したものである. この点を考慮すれば, IQ 像は TEM の明視野像と似たような意味を持つ像と考えることも可能である. 一方この IQ 像は TEM 像でいう回折コントラスト像ではないので, 試料傾斜角の違いによるコントラストの変化やバンドコンターは見られない. 黒矢印で示した線状の模様も転位というわけではなく微小な方位差を持つ小傾角粒界(亜粒界)である. この 2 つの像を比較すると t-EBSD による IQ 像の方が一見鮮明に見えるが, これは TEM 像では厚さ方向の情報をすべてまとめて 1 枚の像に投影しているが, t-EBSD では前項の説明のように試料下層面の情報のみを表示しているため, 情報量が制限されることにより像が鮮明に見えていると考えられる. s-EBSD 法では試料表面の凹凸の影響をより受けやすいこと, また薄膜であっても試料傾斜角が大きいため照射電子線が試料表面上では上下方向に大きく広がるため, その空間分解能, 特に縦分解能は明らかに良くないことが分かる. この 2 つの像からも t-EBSD 法の空間分解能は, s-EBSD 法のそれよりもかなり優れていることが分かる. また t-EBSD 法は s-EBSD 法と比較して試料傾斜角が小さいこともあり, 試料表面の凹凸の影響を受けにくいと考えられる.

Fig. 8 には, Fig. 7 の t-EBSD 法で得た像の結晶粒像(隣り合うピクセル間の方位差が 5° 以内の場合を同一結晶粒としてまとめる), および紙面に垂直方向の結晶方位像に IQ 像を重ねて示した. EBSD 法はもともと各ピクセルの結晶方位を厳密に測定する方法であるから, 結晶粒像や結晶方位像を示すのは容易である. また粒界の傾角等も容易に算出できる. 例として Fig. 8(a) の結晶粒像に矢印で示した部分の粒界を赤線で示したが, この粒界では両側の結晶粒が $\langle 111 \rangle$ 軸を共通回転軸として 60° 回転している関係, いわば双晶の関係になっている結晶粒界を示している. また Fig. 8(b) の結晶方位像において ABCD で示した部分の結晶方位を単位胞により重ねて示した. A-B, B-C, C-D 間はそれぞれ 6° 前後の方位差があるが, A-C および B-D 間の方位差は 2° 前後で, これらの部分がマルテンサイトにおけるバリエーションの結晶方位関係⁹⁻¹⁰⁾になっていることが推察できる. 一方 TEM 観察においては, このような観察領域全体の結晶方位を測定することは容易ではない. また薄膜試料の回折パターンは微小な結晶方位の変化にそれほど敏感ではない. このため TEM 像では明確な結晶粒の認識や連続的に結晶粒界の角度差等を測定することは必ずしも容易ではない. これらの点を考慮すれば結晶方位情報に関しては, t-EBSD 法で得られる情報が TEM 観察の場合よりも格段に多いことが分かる.

3.4 t-EBSD 法と s-EBSD 法の空間分解能の比較

EBSD 法の空間分解能を決める要素は, ステップサイズ(測定間隔), 電子線プローブ径そして試料中での電子線の広がり方の 3 つである. まず EBSD 法で得られた結晶方位像等の画素はステップサイズで指定した測定間隔により決ま

る. したがって EBSD 法における空間分解能はこのステップサイズより良くなることはない. 次に電子線プローブ径は使用する SEM の電子銃のタイプおよび使用条件でほぼ決まってしまう. 今回使用した SEM における測定条件ではおよそ $10 \text{ nm}\phi$ 程度と言われている. これに関してはあまり議論の必要はないと思われる. 最後に試料中の電子線の広がり方は, 使用する加速電圧や試料の厚さや平均 Z 番号などいろいろな要素に影響される. ここではこの点を中心に検討をする.

まず EBSD 法における各画素のデータは例えば SEM の 2 次電子像のような 1 次情報のデータではない. 各画素のデータは, 得られた情報をデジタル的に処理し, 結晶方位等そのピクセル固有のデータとして表示している. したがって結晶方位像等で明確な境界を示しても, それは計算によりデジタル的にデータを処理し振り分けた結果であり, 必ずしも空間分解能を示すものではない. ただ IQ 像はパターンが混在している場合でも, そのままバンドの強度のみを処理した信号であり, 比較的アナログ的な信号に近いという特徴がある. この IQ 像を EBSD 法の空間分解能を判定する 1 手段として使用することは合理性があると考えられる. Fig. 9 には Fig. 6 に示した (b) および (c) の結晶方位像と IQ 像を重ねた像において試料の薄い部分と厚い部分に対応する部分を拡大して示した. (b-1) (b-2) が s-EBSD 法で (c-1) (c-2) が t-EBSD 法で得たもので, (b-1) (c-1) が厚い部分 (b-2) (c-2) が薄い部分の像である. この 2 つの EBSD 像の加速電圧等の測定条件はそれぞれの測定方法で最善と思われるように設定しているため前述のように異なっているが, ステップサイズは $0.1 \mu\text{m}$ に揃えてある. まず, この 2 つの手法で得た像を比較すると s-EBSD 法で得た (b-1) (b-2) 像において IQ 像によって表示される粒界の状況にほとんど違いはないが, t-EBSD 法で得た (c-1) (c-2) の像のそれは大きく異なる. (b-2) と (c-2) の像を比較すると IQ 像で示される粒界は t-EBSD 法で得た像の方がより鮮明であるが, (b-1) と (c-1) の像を比較すると逆になっている. (b-1) と (c-1) および (b-2) と (c-2) の違いは試料の厚さのみである. このことより s-EBSD 法は試料の厚さの影響をそれほど受けないが, t-EBSD 法の空間分解能は試料の厚さに大きく影響されることが分かる. この試料中の電子線の広がり方を検討する手段として試料中の電子線の挙動をモンテカルロ法にてシミュレーションした例を Fig. 10 に示す. 計算の条件は, 試料厚さを 400 nm と 100 nm とし, (a) には t-EBSD 法を想定した加速電圧 25 kV 試料傾斜角 40° とした場合, および (b) には s-EBSD 法を想定した加速電圧 15 kV 試料傾斜角 70° とした. この図では 200 本の電子線のトレースを重ねて表示している. このシミュレーションでは, 非弾性散乱の結果大きくエネルギーを失った電子線も含まれているので電子線の広がり大きめに表示されているが, 傾向は良く示されている. EBSD パターンの発生深さは加速電圧にもよるが 30~50 nm 程度と言われている. s-EBSD 法の場合は試料厚さが 400 nm と 100 nm の場合でも赤丸で示した試料表面から 30~50 nm 程度の部分の状況はほぼ同じである. それに対して t-EBSD 法の場合はあくまでも試料を透過し下面から 30~

Fig. 8 Grain colour map (a) and crystal orientation map (b) shown by using the same data as the map (b) in Fig. 6. Grain boundaries shown by red lines in map (a) show the boundaries with twin relation. Small orientation differences at the position ABCD in map (b) were shown by using unit cells.

Fig. 9 Crystal orientation map of s-EBSD and t-EBSD at thinner part and thicker part of Fig. 6 (b) and (c) were compared. (b-1) and (c-1) maps show the crystal orientation map at thicker part. (b-2) and (c-2) maps show the same maps at thinner part.

Fig. 10 Simulation of electron beam spread in specimen by Monte Carlo method. Specimen thickness was set at 100 nm and 400 nm, and Acc. voltage was set at 25 kV for t-EBSD and 15 kV for s-EBSD respectively for these calculations.

50 nm 程度のところで EBSD パターンが形成されると考えると、その発生領域は図(a)の赤丸で示したように試料厚さにより大きく異なることが分かる。これが Fig. 9 の(c-1)と(c-2)の違いになっていると考えられる。

次に Fig. 7 で示した 8 クロム鋼の焼き戻しマルテンサイト組織の試料で t-EBSD 像の一部をステップサイズ 10 nm で再測定した例を Fig. 11 に示した。この試料は TEM 観察も十分行える厚さの試料である。黄色の矢印で示した粒界部分は隣り合うピクセル間で明確に方位の違いを示しており IQ 像のボケもない。この点で見れば t-EBSD 法はこの条件下では 10 nm 程度の分解能を持ち得ることが分かる。一方他の粒界はややボケており、そのボケ方は粒界によって異なる。これは粒界面が試料面に対して垂直か傾いているか等により影響されたためと考えられる。また、10 nm 離れた 2 点の違いを識別できることが 10 nm の粒子を識別できるということにはならない。10 nm の 1 つのピクセルで 1 つの粒子を表示できるかということは極めて疑問である。赤矢印で示した微小な粒はクロム炭化物の析出物である。TEM 像では分かりにくい t-EBSD 像ではこれらの析出物が小傾角粒界(方位差が 3°~8°程度)上に析出していることが明確に示されている。ここで認識できる析出物の最少サイズのは 6~7 個のピクセルからなり、サイズにすれば直径換算

で 30 nm 程度のものとなる．s-EBSD 法ではこのサイズの結晶粒を認識するには試料の表面状態を含めよほどの好条件が揃わないと困難であるが，t-EBSD 法では試料が十分に薄ければこの程度の粒子の測定は十分にできると考えられる．

Fig. 11 High resolution t-EBSD crystal orientation map overlaid on IQ maps at the same area shown in Fig. 6 with 10 nm step size. The part shown by an yellow arrow shows no blurring in IQ map which suggests about 10 nm spatial resolution. Small particles shown by red arrows are precipitates of chromium carbide which came appear on small tilt angle boundaries.

このように s-EBSD 法の空間分解能は試料厚さにはあまり依存しないが，t-EBSD 法の空間分解能は試料中での電子線の広がりつまり試料厚さに大きく依存することが分かる．また試料中での電子線の広がりには加速電圧にも依存する．この点では反射を基本とする s-EBSD では低加速電圧の方が好ましいが，透過を基本とする t-EBSD 法では高加速電圧の方が好ましいと推察できる．Fig. 12 には前述のアルミニウム電界研磨試料を用い中央の穴から右に行くにしたがって試料が厚くなっていく部分を加速電圧 15 kV および 25 kV にて t-EBSD 法で観察した例である．この 2 つの測定の違いは加速電圧の違いによる試料内での電子線の広がり方のみである．黄色矢印で示した付近の試料の極薄い部分では 15 kV の方が鮮明であるが，全体としては 25 kV の方が広い領域にわたり解像力が高いことが分かる．このように適切な厚さの試料を用い，さらに試料傾斜角，加速電圧そしてステップサイズ等の条件を適切に設定することにより，t-EBSD 法では 10 nm 程度の空間分解能は十分に可能になると考えられる．

3.5 s-EBSD と t-EBSD の座標系について

s-EBSD 法では通常傾斜した試料の下側が SEM のモニ

Fig. 12 Effects of Acc. voltage in t-EBSD. Higher Acc. voltage gives generally better specimen resolution. Specimen is Al thin foil polished by electro-chemical etching. Dark parts of left side are holes of this TEM sample.

Fig. 13 Crystal orientation taken by s-EBSD (a) and t-EBSD (b) are shown by unit cells on the same map as shown in Fig. 9. Pole figure of grains shown by red and blue arrows in s-EBSD map and t-EBSD map respectively is also shown in (c). t-EBSD sees samples from back side and its crystal orientation is in inversion relationship against the crystal orientation taken by s-EBSD.

ター上では上側に表示される。一方 EBSD 検出器から見ると試料の上部がそのまま上側となり、ND 軸に 180° 回転した状態となっている。つまり測定した結晶方位と SEM 像の向きには 180° の回転関係が生じている。これは試料や結晶の対称性を考慮すると通常の集合組織の解析等では問題にならないため、補正を入れることなくそのまま解析される場合が多い。Fig. 13 には像と対応させるため Fig. 9 の s-EBSD 法で得た結晶方位像の結晶方位を ND 回りに 180° 回転した上で 3 つの結晶粒についてユニットセルを用いその方位を示した結晶方位像を示した。t-EBSD 法では EBSD 検出器の上下と SEM 像で表示される試料の上下方向は一致している。しかし SEM 像は試料表面から見た像になっているのに対し、EBSD 検出器は試料の裏側から見た結晶方位を測定している。t-EBSD 法で得た結晶方位像(b)上に前述(a)と同じ結晶粒の結晶方位をユニットセルで示した。またこの 2 つの結晶方位像で赤および青矢印で示した結晶粒の(001)極点図(c)も同時に示した。この 2 つの結晶方位マップは、試料の ND 面に平行な結晶面の法線方位で示しているのでもまったく同じ色合いになっているが、結晶方位自体は同じにはなっていないことに注意を要する。t-EBSD 法の結晶方位は s-EBSD 法の結晶方位に対して ND 軸回りに 180° 回転した関係のように見えるが、正確には裏側から見た反転対称の関係になっていることに注意を要する。結晶方位としては(a)の s-EBSD の例として示したものが正しい方位となる。現状の EBSD 法の指数付けソフトでは、t-EBSD 法で得たパターンの方位が反転対称の関係にあることを補正して指数付けおよび結晶方位の計算を行うことは考慮されていないので注意を要する。

4. お わ り に

t-EBSD 法は s-EBSD 法の課題の 1 つであった空間分解能を大幅に改善できる可能性がある。試料を薄膜にするという制限はあるものの、30 nm 程度の析出物でも十分に観察可能でありことが示された。また TEM 観察では視野全面に対応する結晶方位像を正確に決めることは極めて困難であった

が、同じ試料にて t-EBSD 法を用いれば TEM 観察を行った部分の結晶方位像を比較的容易に得ることができ、また EBSD 法で使用されている多機能な解析ソフトの利用も可能となる。これまでの TEM 観察法では成し得なかった観察やデータの解析が可能になる部分も多々ある。また、この方法は簡便で試料ホルダーを少々工夫すれば既存の EBSD 装置をそのまま使用することが可能であり、極めて汎用性が高く有用な測定技法であることが確認できた。ただ、観察している結晶方位は試料を裏面から見た方位となり、SEM 像に対しては反転対称となる方位を表示していることになる。これは通常の集合組織解析では問題にならないが、TEM 像で観察した粒界面となる結晶面の面指数を決めようとする場合などには、この点を考慮しないと正確には決められない。EBSD 法の測定ソフトにおいて結晶方位計算の過程でこの補正を行うことは今後の課題となる。

本実験を行うに当たり、アルミニウムの薄膜試料を提供していただいた住友軽金属工業株式会社の田中宏樹博士に感謝の意を表します。

文 献

- 1) B. L. Adamus, S. I. Wright and K. Kunze: Metall. Trans. A **24** (1993) 819–831.
- 2) S. Suzuki: Microscopy **39** (2004) 121–124.
- 3) S. Suzuki: Microscopy **39** (2004) 180–184.
- 4) A. J. Schwartz, M. Kumar, B. L. Adams and D. P. Field: *Electron Backscatter Diffraction in Material Science 2nd Edition*, (Springer, 2009) pp. 251–337.
- 5) S. Zaefferer: Ultramicroscopy **107** (2007) 254–266.
- 6) P. Moeck, S. Rouvimov, E. F. Rauch, M. Veron, H. Kirmse, I. Hausler, W. Neumann, D. Bultreys, Y. Maniette and S. Nicolopoulos: Crystal. Research and Technol. **46** (2011) 589–606.
- 7) R. R. Keller and R. H. Geiss: Journal of Microscopy **245**, Issue 3 (2012) 245–251.
- 8) N. C. Krieger Lassen, K. Conradsen and D. J. Jensen: Scanning Microscopy **6** (1992) 115–121.
- 9) A.-F. Gourgues, H. M. Flower and T. C. Lindley: Mater. Sci. Technol. **16** (2000) 26–40.
- 10) N. Takayama, G. Miyamoto and T. Furuhashi: Acta Mater. **60** (2012) 2387–2396.