

技術論文

SEM/ECCI法を用いた転位観察技術

Dislocation Observation Technique Using SEM/ECCI Method

森 孝 茂*
Takashige MORI

網 野 岳 文
Takafumi AMINO

谷 口 俊 介
Shunsuke TANIGUCHI

米 澤 隆 行
Takayuki YONEZAWA

谷 山 明
Akira TANIYAMA

抄 録

走査型電子顕微鏡 (SEM) の反射電子観察法の一つで、入射電子ビームと結晶方位の関係に起因する電子チャネリングを利用した電子チャネリングコントラストイメージング (SEM/ECCI) は、研磨されたバルク試料において、粒界や転位などの格子欠陥の直接観察が可能である。今回、結晶面に対する入射電子線の入射方向を精緻に制御した SEM/ECCI 法によりフェライト中の転位組織を観察した。その結果、(1) 明視野 TEM 像で観察されたすべての転位コントラストが SEM/ECCI 法においても観察されること、(2) 転位コントラストは結晶面への電子線の入射方向や加速電圧によって変化し、最適な条件が存在すること、(3) SEM/ECCI 法は、TEM 法と同様に転位の特性評価や転位周囲のひずみ場の評価に利用可能であることが明らかとなった。

Abstract

Electron Channeling Contrast Imaging (ECCI), a type of backscattered electron imaging in scanning electron microscopy (SEM) that utilizes electron channeling effects arising from the relationship between the incident electron beam and crystal orientation, enables direct observation of lattice defects such as grain boundaries and dislocations in polished bulk specimens. In this study, dislocation structures in ferrite were observed using SEM/ECCI with precise control of the incident beam direction relative to the crystal planes. As a result, it was found that: (1) all dislocation contrasts observed in bright-field TEM images were also visible in SEM/ECCI; (2) dislocation contrast varied depending on the incident beam direction and accelerating voltage, indicating the existence of optimal imaging conditions; and (3) SEM/ECCI is applicable for characterizing dislocations and evaluating strain fields around dislocations, similar to TEM.

1. 緒 言

鉄鋼材料は、社会基盤を支える構造物や機械部品に広く用いられており、その性能は使用環境や要求仕様に応じて多様な特性が求められる。中でも、強度、靱性、延性、疲労特性などの力学特性は、材料の信頼性や安全性を左右するため材料の選定および設計において最も重要な指標の一つである。

その力学特性に起因する塑性変形挙動の主たる担い手は転位であり、転位の挙動が、材料の力学特性を支配する。したがって、転位の構造と挙動は、鉄鋼材料の性能向上に直結する重要な分析要素である。

近年、材料内部の微細構造を高精度で観察・定量化する

技術が進展し、転位解析の手法も多様化している。透過型電子顕微鏡 (TEM) は、ナノスケールでの原子配列や転位線の直接観察¹⁾を可能とし、局所域の転位組織の解析や転位密度の定量評価に有効である。一方で、観察試料を薄膜にしなければならず、試料作製に高度な技術を要し、観察可能な領域が限定されるという制約もある。X線回折 (XRD) は、バルク材料に対して非破壊的に転位密度や転位性格を定量評価できる²⁾という利点があり、工業材料の実用的な評価手法として広く用いられている。ただし、XRD による転位解析は空間分解能に限界があり、局所的な転位構造の詳細な把握には不向きである。

こうした中、走査型電子顕微鏡 (SEM) の反射電子観察法の一つで、入射電子ビームと結晶方位の関係に起因する

* 先端技術研究所 解析科学研究部 主幹研究員 兵庫県尼崎市扶桑町 1-8 〒660-0891

電子チャネリングを利用した電子チャネリングコントラストイメージング (SEM/ECCI) により, 研磨されたバルク試料の粒界や転位などの格子欠陥の直接観察例が多数報告³⁻⁶⁾ されている。

SEM/ECCI 法によって任意の領域で転位コントラストを観察するためには, 入射電子線と結晶との配向関係を, 後方散乱電子強度のロッキングカーブが局所的な最小値に達するチャネリング条件まで, 精密に制御する必要がある⁷⁾。しかし, SEM/ECCI 法における転位コントラストに対する電子線入射方向の影響を検討した研究は少ない。Pang ら⁸⁾ は, タンタル中のらせん転位のコントラストを偏差パラメータ w の関数としてシミュレーションした。Kriaa ら⁹⁾ は, 同じ回折ベクトル \mathbf{g} に沿った菊池バンドにおける入射電子線の入射方向の変化によって転位幅が異なることを観察した。Gutierrez¹⁰⁾ は, w の影響を実験的に調査し, 転位コントラストの観察には $w > 1.5 \pm 0.5$ のような大きな正の値を持つチャネリング条件が最適であると結論づけた。

本稿では, 圧電素子を駆動ユニットとして用いることで結晶面に対する電子線の入射方向を高精度に制御しながら SEM/ECCI 観察を行い, フェライト中の SEM/ECCI 法での転位コントラスト変化を詳細に調査した結果¹¹⁾ について紹介する。

2. SEM/ECCI 法における入射電子線の入射方向の角度の影響¹¹⁾

図 1 (a) に, 観察されたフェライト粒の (200) 結晶面に対する入射電子線の入射方向を変化させて取得した ECC 像と, 図 1 (b) に, 加速電圧 15 および 30 kV において, (200) 結晶面に平行な傾斜軸周りの試料の傾斜角 α に対する BSE (後方散乱電子) 強度を示す。BSE 強度は, 各像の同一領域 (図 1 (a) の赤色四角形領域) における 100×100 ピクセルの平均値として測定した。入射電子線の入射方向が (200) 面に対して変化すると, BSE 強度はブラッグ条件付近で大

きく変化した。本研究では, フェライトの (200) と ($\bar{2}00$) のブラッグ位置間の傾斜角幅は 30 kV で約 2.8° であった。一方, チャネリング位置間の傾斜角幅は約 3.6° であり, これは BSE 強度が局所的な最小値に達する入射条件である。これらの実験結果は, ブラッグ条件付近の後方散乱回折強度のロッキングカーブの計算結果⁷⁾ と良く一致しており, チャネリング条件が偏差パラメータ $w > 0$ のとき, すなわちブラッグ条件よりも高角側で満たされることを示している。

SEM/ECCI 法による転位観察には, BSE 強度が局所的な最小値を示すチャネリング条件が必要である。したがって, チャネリング条件付近の転位コントラストを調査した。図 2 は, フェライト粒の ($10\bar{1}$) 結晶面に対する入射電子線方向を変化させて取得した ECC 像である。転位コントラストは, チャネリング条件付近で傾斜角 α に依存し変化した。

転位コントラスト強度 I_{dc} と幅 W_{dc} を, チャネリング条件付近の転位コントラストを定量的に調査するために評価した。図 3 に, 図 2 の赤矢印で示された転位に対する BSE 強度プロファイルの一例を示す。転位に沿って設定した 100 nm の関心領域 (ROI) 内で BSE 強度プロファイルの平均を計算することで, 転位を横切るラインプロファイルを得た。ROI の幅は転位ごとに異なる。

I_{dc} は以下の式 (1) に従って求めた¹⁰⁾。

$$I_{dc} = I_{max} - I_{min} / I_{max} + I_{min} \quad (1)$$

ここで, I_{max} と I_{min} は転位を横切る BSE 強度プロファイルの最大値と最小値である。本研究では, W_{dc} は転位のラインプロファイルに対してガウスフィットを行い, 得られた半値全幅 (FWHM) として評価した。

図 2 の矢印で示した合計 10 本の転位について, フェライト粒の ($10\bar{1}$) 結晶面に対する入射電子線方向を変化させて取得した ECC 像群から, I_{dc} と W_{dc} を評価した。次に, 同一傾斜角の ECC 像におけるそれらの平均値を計算し, 図 4 に傾斜角 α に対する BSE 強度とともにプロットした。

SEM/ECCI 法で転位を観察するには, I_{dc} が高く, W_{dc} が

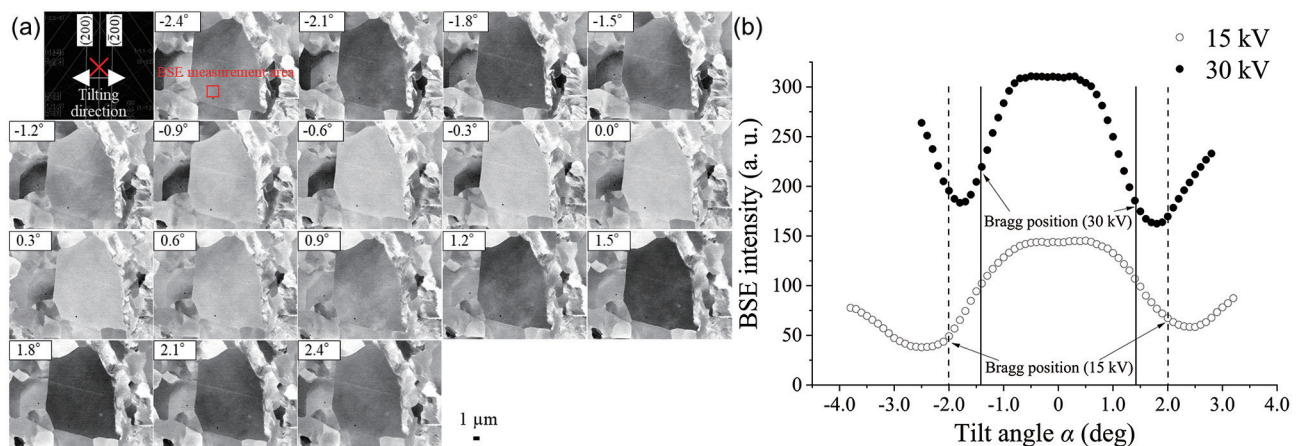


図 1 フェライト粒の (200) 結晶面に対する入射電子線の入射方向に応じた BSE (後方散乱電子) 強度変化¹¹⁾
BSE intensity as a function of the primary electron beam direction to the (200) crystal plane of a ferrite grain¹¹⁾

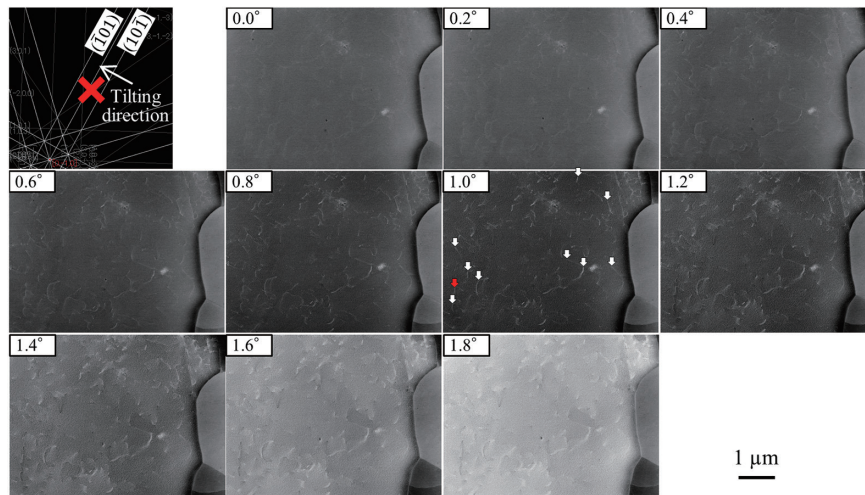


図2 フェライト粒の(101)結晶面に対する入射電子線の方向を変化させて、加速電圧 30kV で取得された電子チャネリングコントラスト (ECC) 像¹¹⁾

Electron channeling contrast images obtained by changing the incident electron beam direction to the (101) crystal plane of ferrite grain at 30kV¹¹⁾

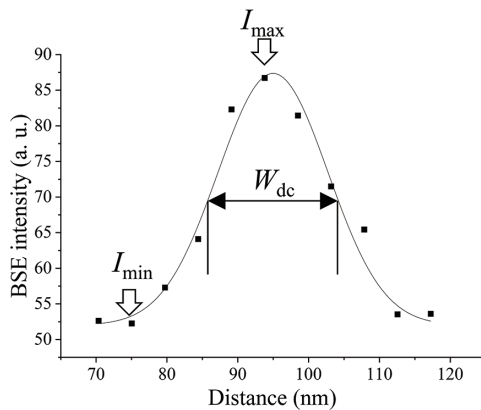


図3 転位コントラスト強度 I_{dc} と幅 W_{dc} の評価方法¹¹⁾

Evaluation of dislocation contrast intensity I_{dc} and width W_{dc} ¹¹⁾

低いことが望ましい。これらの値は傾斜角 α によって変動した。 W_{dc} はチャネリング条件付近で谷型のピークを示す傾向があったが、 I_{dc} のピークトップは BSE 強度が局所的な最小値となるチャネリング条件からずれていた。この実験結果は、最も強い転位コントラストがチャネリング条件よりも高い w で得られることを示している。チャネリング条件下では、転位の種類によって転位線の幅に違いがあり、これは後述のように転位性格によるひずみ場の違いに対応していると考えられる。

3. SEM/ECCI 法における転位コントラストの加速電圧の影響¹¹⁾

SEM/ECCI 法における加速電圧の転位コントラストへの影響についての研究は少なく^{3,12)}、高加速電圧の寄与が正か負かについても議論が続いている。そのため、SEM/ECCI 法による転位観察は 10～30kV の加速電圧で行われているが、最適な加速電圧条件は未だ明確ではない。

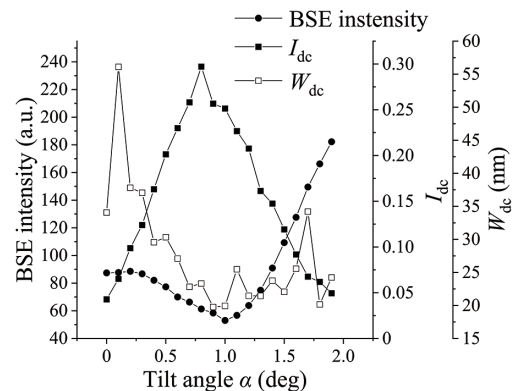


図4 $g=101$ のブラッグ条件付近における傾斜角 α に対する BSE 強度および転位コントラスト変化¹¹⁾

BSE intensity and dislocation contrast as a function of tilt angle α around the Bragg position of $g=101$ ¹¹⁾

上述のように、チャネリング条件を満たす傾斜角 α は加速電圧によって変化するため、同一視野を比較する際にはチャネリング条件への方向制御を繰り返す必要がある。図5に、15～30kVの段階的な加速電圧下で、チャネリング条件を厳密に満たして取得された同一視野の ECC 像を示す。図5の ECC 像において、白矢印で示された10本の転位について、先述の方法で W_{dc} を評価し、加速電圧に対する平均値を図6にプロットした。加速電圧によって BSE 強度が変化するため、ECC 像の明るさとコントラストを調整する必要があり、 I_{dc} は使用できない。

15～25kV では、加速電圧の増加に伴い W_{dc} は減少したが、25～30kV では 30kV で W_{dc} が増加した。加速電圧が高くなるほど、ブラッグ位置付近での BSE 強度の傾き変化が急激になる(図1)。したがって、チャネリング条件における転位線周辺の局所的な結晶回転に伴う BSE 強度の変化は、25kV までの高加速電圧でより急激だったと考えられる。

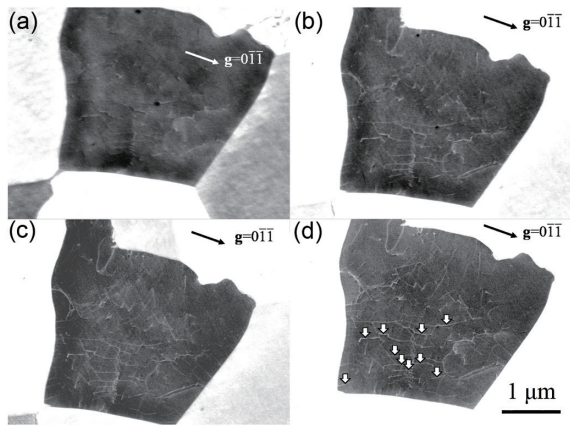


図5 チャネリング条件(回折ベクトル $g=011$)を厳密に満たした状態で、加速電圧を段階的に(a) 15, (b) 20, (c) 25, (d) 30kV に変化させて取得した同一視野の ECC 像

ECC images of the same field of view obtained under stepwise accelerating voltages of (a) 15, (b) 20, (c) 25 and (d) 30kV, strictly satisfying channeling conditions with $g=011$ excitation

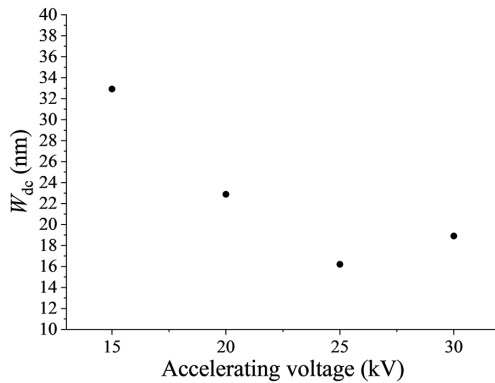


図6 加速電圧に対する転位コントラスト幅 W_{dc} の変化¹¹⁾
Dislocation contrast width W_{dc} as a function of accelerating voltages¹¹⁾

さらに、電子線のプローブサイズも W_{dc} に影響する要因と考えられる。本研究では、すべての ECC 像を同一の WD (作動距離) 4mm と対物絞り径 $30\mu\text{m}$ で取得し、電子プローブの収束半角は同一であった。しかし、プローブサイズを最小化する収束半角は加速電圧によって異なり、主に高加速電圧での回折収差や球面収差の影響による¹³⁾。したがって、30kV での W_{dc} は 25kV よりも悪化したと考えら

れる。電子プローブの収束半角は対物絞りの径、WD、装置の電子光学系によって変化するため、入射電子線方向の制御とともに最適な観察条件の設定が必要である。

4. SEM/ECCI と明視野 TEM との転位コントラストの直接比較¹¹⁾

転位コントラストの観察手法としての SEM/ECCI 法の妥当性を検証するため、フェライト粒子の同一薄膜に対して明視野 TEM (BF-TEM) 観察を行った。図 7(a) に、薄膜の表側から $g=110$ の励起条件で取得したフェライト粒子の BF-TEM 像、図 7(b) ~ (d) は、薄膜の表側および裏側から $g=110$ を励起して取得したフェライト粒子の ECC 像を示す。BF-TEM 像では、端点を持つ各転位が薄膜の表側および裏側でそれぞれ独立して観察された。ここでは、BF-TEM 像中の転位に番号 i ~ x (図 7(a)) を付け、ECC 像(図 7(b) ~ (d)) 中の対応する転位との一致を確認した。特に、viii および x に対応する転位に注目した。これらは BF-TEM 像(図 7(a)) および試料の表側から取得した ECC 像(図 7(b)) では観察されたが、裏側から取得した ECC 像(図 7(c)) では観察されなかった。その結果、viii および x に対応する転位は、薄膜の表面および粒界に端点を持つ転位であることが示された。

さらに、vii および ix に対応する転位は、BF-TEM 像(図 7(a)) では完全な転位線として観察された。一方、ECC 像では vii および ix の中心付近の転位線が観察されなかった。これは、これらの転位が薄膜の表側および裏側を貫通しており、300kV で取得された BF-TEM 像では試料全体の厚さが観察可能であるのに対し、30kV の SEM/ECCI 法では情報深さが浅いため、試料全体の厚さを観察できなかったためである。BF-TEM 法と SEM/ECCI 法による転位コントラストは、同一の回折ベクトル、同一視野で取得され、良好な対応が得られた。したがって、入射電子線方向を制御することでチャネリング条件を厳密に満たす SEM/ECCI 法が、BF-TEM 法と同様に単一の転位の観察が実験的に示された。

5. SEM/ECCI による転位の性格解析¹¹⁾

図 8(a) ~ (d) に、3 種類の異なる回折ベクトル g を用いて、

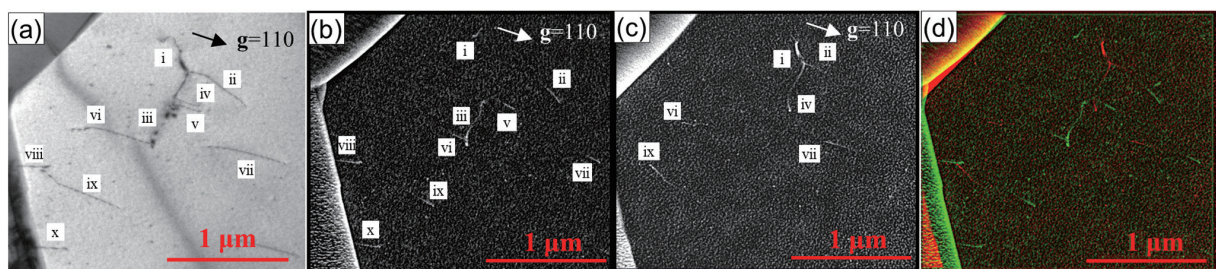


図7 BF-TEM 像と ECC 像における転位コントラストの詳細な直接比較¹¹⁾
Direct comparison of details in the dislocation contrast of bright-field (BF) TEM and ECC images¹¹⁾

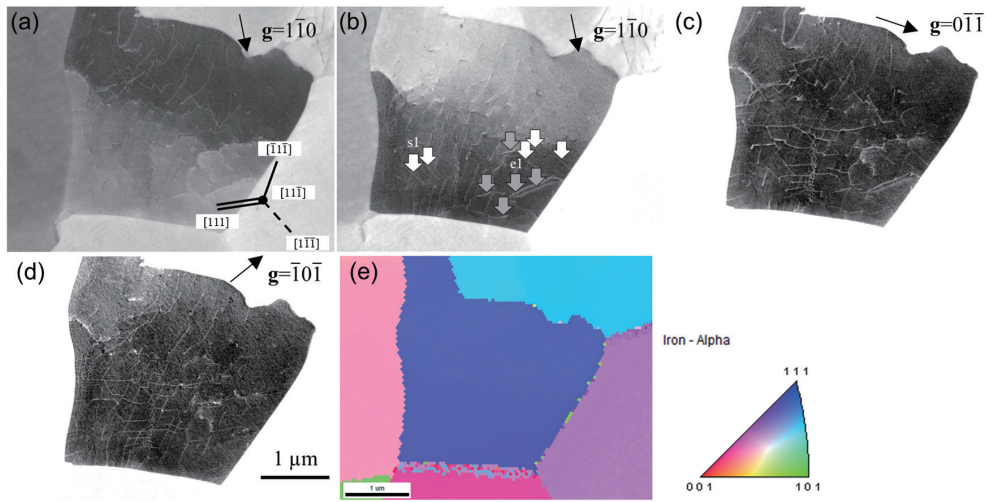


図 8 転位の性格解析¹¹⁾
Characteristic analysis of dislocations using the $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} = 0$ invisibility criterion¹¹⁾

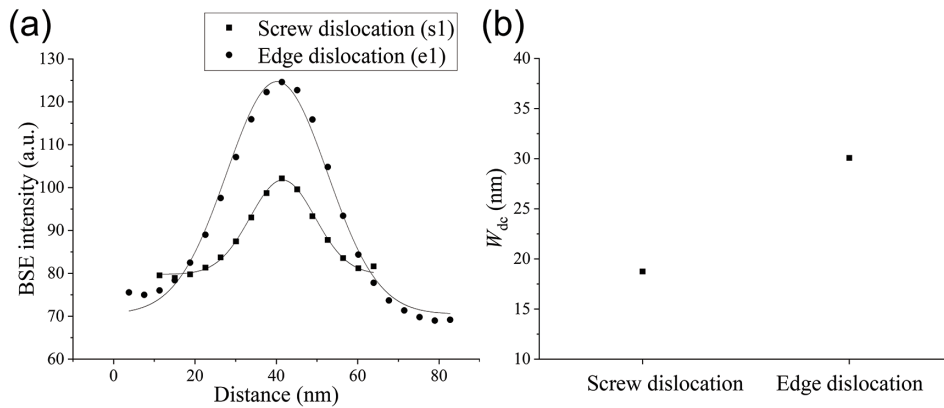


図 9 らせん転位と刃状転位の転位線幅比較¹¹⁾
Comparison of dislocation width of screw and edge dislocations¹¹⁾

同一視野で取得された ECC 像を示す。図 8(e) は、観察された粒の逆極点図 (IPF マップ) であり、粒の配向は試料表面に対してほぼ $[11\bar{1}]$ 方向である。観察された粒は、中心にある小角粒界の影響で、 $(1\bar{1}0)$ に平行な軸周りにわずかに回転していた。図 8(a) では、観察粒の上部をチャネリング条件に合わせて撮影した。次に、試料ステージを $(1\bar{1}0)$ に平行な軸周りに 0.8° 傾けることで、粒の下部の像を取得した (図 8(b))。例えば、回折ベクトル $\mathbf{g} = 1\bar{1}0$ で取得された ECC 像では、 $[1\bar{1}\bar{1}]$ のトレースラインに対応する転位コントラストが消失していた (図 8, 白矢印)。フェライト粒中の観察された転位のバーガースベクトル \mathbf{b} が BCC 構造の最密方向である $a/2 \langle 111 \rangle$ (ここで a は格子定数) であると仮定すると、 $\mathbf{b} = a/2 \pm [1\bar{1}\bar{1}]$ および $\mathbf{b} = a/2 [11\bar{1}]$ は、回折ベクトル $\mathbf{g} = 1\bar{1}0$ に対して $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} = 0$ の関係を満たす。 $\pm [1\bar{1}\bar{1}]$ 方向は観察粒の表面に垂直であるため、白矢印で示された転位のバーガースベクトル \mathbf{b} は $a/2 \pm [1\bar{1}\bar{1}]$ と判断できる。さらに、転位線ベクトル \mathbf{u} が \mathbf{b} と平行であることから、これらの転位は $\mathbf{b} = a/2 \pm [1\bar{1}\bar{1}]$ を持つらせん転位であると判断できる。

同様に、転位の性格解析により、転位コントラストが消

失した転位の多くがらせん転位であることが示された。加えて、バーガースベクトル \mathbf{b} と転位線ベクトル \mathbf{u} が互いに直交する刃状転位も観察された (図 8, 灰色矢印)。

図 9(a) に、図 8 の転位 s1 (らせん転位) と e1 (刃状転位) における転位コントラストの比較を示す。図 8 の白矢印と灰色矢印で示されたらせん転位と刃状転位の W_{dc} を評価し、それぞれの平均値を図 9(b) にプロットした。らせん転位と刃状転位の幅には違いがあり、刃状転位の線幅はらせん転位よりも広がった。

動力学的理論に基づく BF-TEM 像の計算結果^{14, 15)} によれば、試料表面に平行に存在する純粋な刃状転位の幅は、純粋ならせん転位の約 2 倍であり、これは転位周囲のひずみ場の違いによるものである。本実験結果 (図 9) は、BF-TEM 像の計算結果と一致していた。したがって、SEM/ECCI 法は、電子線の入射方向を精密に制御できることから、TEM 法と同様に転位の特性評価や、らせん転位と刃状転位のひずみ場の違いの観察に有効な手法である。

6. 結 言

本稿では、SEM/ECCI 法を用いてフェライト中の転位組織を詳細に観察した例を紹介した。明視野 TEM 像で観察されたすべての転位コントラストが SEM/ECCI 法においても観察されること、転位コントラストは結晶面への電子線の入射方向や加速電圧によって変化し、最適な条件が存在すること、SEM/ECCI 法は、TEM 法と同様に転位の特性評価や転位周囲のひずみ場の評価に利用可能であることを示した。結晶面に対する入射電子線の入射方向を精密に制御し、SEM/ECCI 観察を行うことで、薄片試料を作製せずとも、TEM 観察と同様の転位コントラストを観察することが可能である。また、バルク試料を用いた転位コントラスト観察など、応用範囲が拡大し、より広範な観察が可能になると期待する。

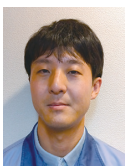
謝 辞

大阪大学 杉山昌章教授、丸山直紀教授には、データの解釈について議論、ご指導いただきました。深く感謝いたします。

参考文献

- 1) 谷口俊介, 亀谷美百合, 小林由起子, 伊藤一真, 山崎真吾: 鉄と鋼. 109, 438 (2023)

- 2) Yonemura, M., Inoue, K.: Metal. Mater. Trans. A 47, 6384 (2016)
- 3) Gutierrez-Urrutia, I., Zaefferer, S., Raabe, D.: Scri. Mater. 61, 737 (2009)
- 4) Mansour, H., Guyon, J., Crimp, M.A., Gey, N., Beausir, B., Maloufi, N.: Scri. Mater. 84-85, 11 (2014)
- 5) L'hôte, G., Lafond, C., Steyer, P., Deschanel, S., Douillard, T., Langlois, C., Cazottes, S.: Scri. Mater. 162, 103 (2019)
- 6) 高山篤史, 森孝茂, 早川守, 中山英介, 加藤孝憲, 牧野泰三, 丸山直紀, 山本三幸: 材料. 73, 896 (2024)
- 7) Zaefferer, S., Elhami, -N-N.: Acta Mater. 75, 20 (2014)
- 8) Pang, B., Jones, P., Chiu, Y., Millett, J.C.F., Whiteman, G.: Philos. Mag. 97 346 (2017)
- 9) Kriaa, H., Guitton, A., Maloufi, N.: Sci. Rep. 7, 9742 (2017)
- 10) Gutierrez-Urrutia, I.: Ultramicroscopy. 206, 112826 (2019)
- 11) Mori, T., Amino, T., Yokoyama, C., Taniguchi, S., Yonezawa, T., Taniyama, A.: Microscopy. 73, 308 (2023)
- 12) Kamaladasa, R.J., Liu, F., Porter, L.M., Davis, R.F., Koleske, D., Mulholland, G., Jones, K.A., Picard, Y.N.: J. Microsc. 244, 311 (2011)
- 13) Reimer, L.: Scan Electron Microscopy. Springer, Berlin, 1985
- 14) Howie, A., Whelan, M.J.: Proc. Roy. Soc. A 267, 206 (1962)
- 15) Hirsch, P.B., Howie, A., Nicholson, R., Pashley, D.W., Whelan, M.J.: Electron Microscopy of Thin Crystals. Butterworths, Boston, 1965



森 孝茂 Takashige MORI
先端技術研究所 解析科学研究部
主幹研究員
兵庫県尼崎市扶桑町1-8 ☎660-0891



網野岳文 Takafumi AMINO
先端技術研究所 解析科学研究部
課長 博士(工学)



谷口俊介 Shunsuke TANIGUCHI
先端技術研究所 解析科学研究部
主幹研究員



米澤隆行 Takayuki YONEZAWA
厚板・建材事業部 厚板技術部
主幹 博士(工学)



谷山 明 Akira TANIYAMA
公益社団法人日本金属学会
事務局長 博士(工学)
(前 日本製鉄(株)先端技術研究所
解析科学研究部 室長)