

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 9 日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2013

課題番号：24656365

研究課題名(和文)電子後方散乱(EBSD)による準結晶の組織解析

研究課題名(英文)Analysis of microstructure of quasicrystal by electron back scattering diffraction

研究代表者

蔡 安邦(TSAI, An-Pang)

東北大学・多元物質科学研究所・教授

研究者番号：90225681

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,400,000円、(間接経費) 720,000円

研究成果の概要(和文)：準結晶に適用できる後方電子散乱回折(EBSD)の解析ソフトを開発し、準結晶におけるマクロ組織学を可能にすることを目的として本研究を行った。3次元準結晶の方位を菊池バンドから自動読み取るソフトウェアを開発し、Al-Cu-Fe系とMg-Cd-Yb系の準結晶に適用できることを確認した。また、実際にMgと準結晶との共晶組織に適用し、両相の方位関係を明らかにした。これに基づいて、Mgと準結晶との界面構造を検討し、液体状態からの凝固過程の解明の鍵を得ている。

研究成果の概要(英文)：We have developed a new analysis system for studying orientation of quasicrystal (QC) by electron back scattering diffraction (EBSD). The new system has been employed to study a eutectic structure formed by Qc and Mg phases in the Mg-Cd-Yb system prepared by unidirectional solidification process, and hence orientation relationship between QC and Mg phases has been successfully clarified. It is very clear that basal plane of Mg and 2-fold symmetry plane of QC are same lattice spacing. Also, prismatic plane of Mg and 5-fold symmetry plane of QC are same lattice spacing. From EBSD result, it was revealed that growth direction of QC-Mg eutectic is  $\langle 2f \rangle_{QC} // \langle 10\bar{1}0 \rangle_{Mg}$  and a number of orientation relationships between QC and Mg have been verified. Furthermore, there are parallel directions normal to planes which are same lattice spacing, so QC and Mg can form stable interface. The new system will be very powerful to study microstructure of QC in the future.

研究分野：材料工学

科研費の分科・細目：金属物性

キーワード：準結晶 後方電子散乱回折 共晶組織 マグネシウム 方位関係

### 1. 研究開始当初の背景

EBSDを利用して、結晶性試料の方位解析する方法が知られている。通常、 $60\sim 70^\circ$ に傾斜した試料に電子プローブを照射すると、試料に対面した蛍光スクリーン上に電子回折パターン(菊池パターン)が得られる。この電子回折パターンをCCDカメラで取り込み、方位解析を行いながら、電子プローブで試料表面を走査すると、各試料位置の方位情報が取得できる。これを利用して相・方位分布等の高度な情報を含んだ結晶組織解析を行うことができる。EBSDの出現は結晶方位解析に飛躍的な発展をもたらし、結晶材料の機械的性質を支配する組織制御に大きく貢献してきた。EBSDが広く用いられている理由として、X線の極点図の測定では得られない各微小結晶粒の方位と相情報が同時に得られ、再構築によって種々材料組織が結晶方位を含んだ形で視覚的に示されることがある。EBSDはすでに多くの金属材料において凝固集合組織、加工集合組織と再結晶集合組織に適用されており、材料の組織制御に欠かせない強力な武器となっている。

一方、準結晶は発見されて30年を経ようとしており、多くの安定な準結晶の発見および構造解析手法の開発により、準結晶の原子構造が明らかになっているが、金属学の視点からみると、準結晶に関する組織学は進んでいない。その理由には以下の2つが挙げられる。(1)準結晶はこれに特有な20面体あるいは10回対称性を示すので、準結晶の同定には対称性を確認するため、電子回折実験が必要であるが、極めて脆いために透過電顕試料の作製過程中、粒界が破壊され準結晶と隣の(準)結晶との同時観測は極めて困難であった。(2)したがって、準結晶の組織観察にはバルクの多結晶試料を用いる必要がある。このような場合、EBSDが有効な手法であるが、いままでのEBSDは準結晶のような20面体対称性等に対応する解析機能を備えていなかったため、バルクの準結晶合金が多く存在するにも関わらず、組織学が進まず材料への展開が遅れている。

### 2. 研究の目的

上記のような背景下で、本研究は現有のEBSDを用い、準結晶の菊池バンドの指数付けを行い微小準結晶粒の方位を決定するソフトウェアを作成して、測定を実施し、準結晶に適用できる新しいEBSDシステムを開発することを目指している。また、これによって、実際の準結晶や準結晶/結晶複合組織の方位関係の解析や集合組織を解明することを目的としている。

### 3. 研究の方法

本研究では準結晶のEBSD測定システムを開発し、これを準結晶に関連する材料へ適用することを目指している。初年度は、Al-Cu-Fe準結晶の多結晶体に対して、電子回折パターンをCCDカメラで取り込み、方位解析を行いながら、電子プローブで試料表面を走査するところまで行う。第二年度に得られた結晶粒の方位情報を再構築し、組織全体の結晶方位の可視化を計る。そして、現在開発している準結晶分散Mg合金における、加工集合組織および準結晶とMg結晶との方位関係の解明に応用し、強度への組織の寄与を明らかにする。

本研究は従来の結晶を対象としているEBSDの測定システムを準結晶にも適用できるように再開発し、今まで遅れている準結晶の組織学を確立することを目指すために、蔡は準結晶分散Mg合金の開発段階で準結晶に適用できるEBSD測定システムの必要性を認識し、本研究の提案に至った。研究全体の統括を担当するとともに、本研究に必要な準結晶試料の作製を担当する。共同研究者出村はEBSDを用いた金属間化合物の加工・再結晶集合組織の研究に長い経験を有し測定システムの仕組みを熟知している。測定、解析およびシステムとソフトウェアとの統合を担当する。ソフトウェアの開発は、準結晶構造解析およびその関連ソフトウェアの開発に豊かな経験を有する研究協力者山本が担当する。このように全く異なる専門のエキスパートからなるチームを構成し、本研究を遂行する。

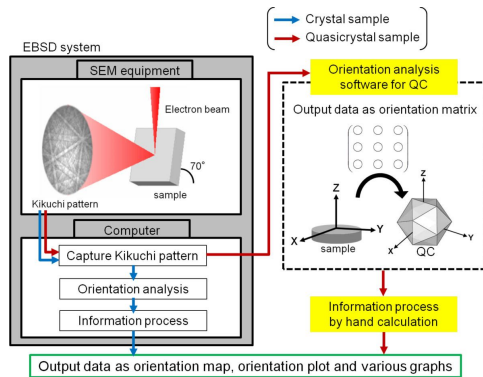
### 4. 研究成果

#### 4.1 電子線後方散乱回折(EBSD)による準結晶方位解析

本研究の目玉である電子線後方散乱回折(EBSD)は結晶方位に基づいた材料の微細組織を観察する手法である。図1に本研究で行った準結晶試料におけるEBSD法の概略図を示す。準結晶においても結晶の場合と同様に菊池パターンを解析することで準結晶方位を測定することは可能であるが、現時点で市販のEBSD解析ソフトには準結晶に対応できるものは存在していない。本研究において、準結晶の菊池パターンの自動解析が行える新規ソフトウェアを作成した。この新規ソフトウェアでは、画像データとして取り込んだ準結晶由来の菊池パターンについて、そのバンドの位置や角度を自動で認識し、解析の結果により得られた方位情報をオイラー角(もしくは方位マトリクス)として出力する。これは、試料と(準)結晶との相対的な関係を表すものである。

#### 4.2 準結晶 / Mgの成長方位および方位関係の解明

図 2(a)に下降速度：90 mm / h 共晶組成の凝固方向に垂直な断面を EBSD ソフトで方位マッピングした結果を示す。Pink の領域は準



結晶相、Blue の領域は  $\beta$ -Mg 相である。一方方向凝固が成功していることが確認でき

図 1 準結晶における EBSD 法の概略図

る。ここで興味深いのは、ロッド状組織や荒く不規則な組織など、組織の形態に関係なく、どの領域でも方位が揃っていることである。準結晶相のマッピングは fcc として認識させた結果であるが、実際にこの Pink の領域ではどの位置に電子線を当てても準結晶の同じパターン（同じ方位由来のパターン）が現れる。図 2 (b)と 2 (c)にそれぞれ準結晶(QC)と Mg の菊池パターンを示す。図 3 (a)と(b)はそれぞれ準結晶と Mg の成長方位と一致する結晶方位を逆極点図にプロットした結果であり、成長方向はほぼ  $\langle$  二回対称軸  $\rangle_{QC} // \langle 1010 \rangle_{Mg}$  であることが分かった。得られた方位マトリクスを基に準結晶と Mg のステレオ投影図を描い

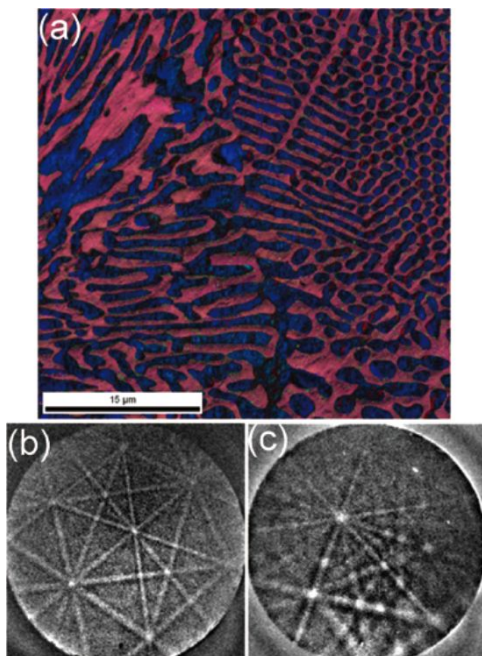


図 2 [001]方位としてのマッピング(a)と

準結晶(b)と Mg (d) の菊池パターン

た結果から、 $\langle$  二回対称軸  $\rangle_{QC} // \langle 0001 \rangle_{Mg}$ 、 $\langle$  五回対称軸  $\rangle_{QC} // \langle 1010 \rangle_{Mg}$  など、複数の主要な方位が平行に近い関係にあることが分かった。面間隔の近い面に垂直な方位が平行になっていることが明らかになり、それが安定な界面を形成できる原因であると考察される。

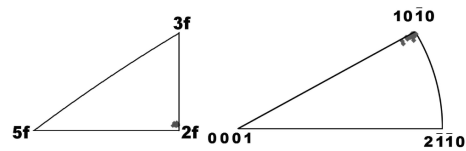


図 3 EBSD で求めた準結晶と Mg の極点図

本研究において、準結晶の菊池パターン解析には開発したソフトウェアを用い、解析結果に基づく準結晶方位のプロットや各種データのグラフ化等は手計算で行った。ソフトウェアによる準結晶方位の解析は有効であることを証明した。しかし、現時点でこのソフトウェアでは、複数の画像（菊池パターン）を連続的に解析し位置情報と方位情報を対応させることによる方位マッピングや方位のプロット、グラフの表示等には対応していない。この部分は実際の装置メーカーとの共同開発が必要である。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 3 件)

S. Ohhashi, K. Suzuki, A. Kato, A.P. Tsai, Phase formation and stability of quasicrystal/  $\beta$ -Mg interfaces in the Mg-Cd-Yb system, *Acta Mater.* 68(2014)116-126. 査読有

A.P.Tsai, Discovery of stable icosahedral quasicrystals: progress in understanding structure and properties, *Chem. Soc. Rev* 42(2013)5352. 査読有

N. Fujita, H. Takano, A. Yamamoto, A.P. Tsai, Cluster packing geometry for Al-based F-type icosahedral alloys, *Acta Cryst.* A69(2013)322-340. 査読有

[学会発表](計 5 件)

田中伶, 大橋諭, 出村雅彦, 山本昭二, 蔡安邦, EBSD による準結晶/Mg の方位解析、日本金属学会 2013 年春期 (第 152 回) 大会、東京 2013.3.27-29.

田中伶, 大橋諭, 蔡安邦, 出村雅彦,

“ Mg-Cd-Yb 合金における準結晶同士及び Mg/準結晶の方位関係 ”、日本金属学会 2012 年秋期 (第 151 回)大会、松山 2012.9.17-19.

田中怜, 大橋諭, 蔡安邦, “ Mg-Cd-Yb 合金における準結晶/Mg 共晶組織と方位関係 ”、日本金属学会 2012 年春期 (第 150 回)大会、横浜、2012.3.28-30

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
出願年月日：  
国内外の別：

取得状況(計 0 件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
取得年月日：  
国内外の別：

〔その他〕

特になし。

## 6. 研究組織

### (1)研究代表者

蔡 安邦 (TSAI, An-Pang)  
東北大学多元物質科学研究所・教授  
研究者番号：90225681

### (2)共同研究者

出村 雅彦 (DEMURA, Masahiko)  
物質・材料研究機構・水素利用材料ユニット・主任研究員  
研究者番号：10354177

### (3)連携研究者

山本 昭二 (YAMAMOTO, Akiji)  
物質・材料研究機構・水素利用材料ユニット・リサーチアドバイザー