

〈寄稿〉

## 最近の材料研究で活用される X線マイクロトモグラフィ技術

豊橋技術科学大学 機械工学系 准教授 小林 正和  
九州大学 機械工学部門 教授 戸田 裕之

### 1. はじめに

材料研究者は、経験的に材料の性質がその構造によって大きく変化することを知っている。ゆえに、材料構造の観察は、材料工学の研究にとって不可欠な作業である。材料構造の観察手法といえば、図1に示されるような実体顕微鏡や光学顕微鏡、走査型電子顕微鏡あるいは透過型電子顕微鏡などが一般的である。これらの観察

手法は、通常、観察対象の構造サイズによって使い分けられる。最近、材料の分野では、材料構造を特徴づける新しい手段として、三次元観察手法が注目を集めている。三次元アトムプローブ(3DAP)は、材料中の結晶格子に並ぶ原子の配置を三次元で捉えることができる<sup>1)</sup>。三次元透過型電子顕微鏡(3D-TEM)は、数十nm~数百nmサイズの析出物などの形態を三次元で観察することができる<sup>2)</sup>。シリアルセクションングは、数十 $\mu\text{m}$ ~数百 $\mu\text{m}$ の結晶粒や複相組織の観察に適している<sup>3)</sup>。そして、ここで取り上げるX線マイクロトモグラフィ(以下、 $\mu\text{CT}$ とする)は数 $\mu\text{m}$ ~数mmの微細構造の観察ができる<sup>4)</sup>。

X線コンピュータトモグラフィ(CT)は医療用装置が良く知られ、代表的な非破壊検査手法である。X線CTは、材料構造の観察に関しては、3DAPや3D-TEMなどと異なり試料に研磨やエッチングなどの特別な表面処理を必要としない(通常、これらの試料作製は簡単ではなく、熟練を要する)。非破壊検査としての特徴を生かして、時間依存するような事象、たとえば、破壊過程や加熱による変化などを4D(3D空間+時間)観察可能であるなどの特徴がある。最近では、材料研究のため実験室用の装置で数 $\mu\text{m}$ の分解能をうたう装置も実用されている。しかしながら、最も鮮明で高分解能なX線CT観察を可能にするのは、高輝度放射光を使った放射光X線CT<sup>5)</sup>である。放射光X線CTでは、X線の透過が困難な金属などにおいても数百nm~数 $\mu\text{m}$ という高分解能で材料内部の構造を非破壊で観察できる。

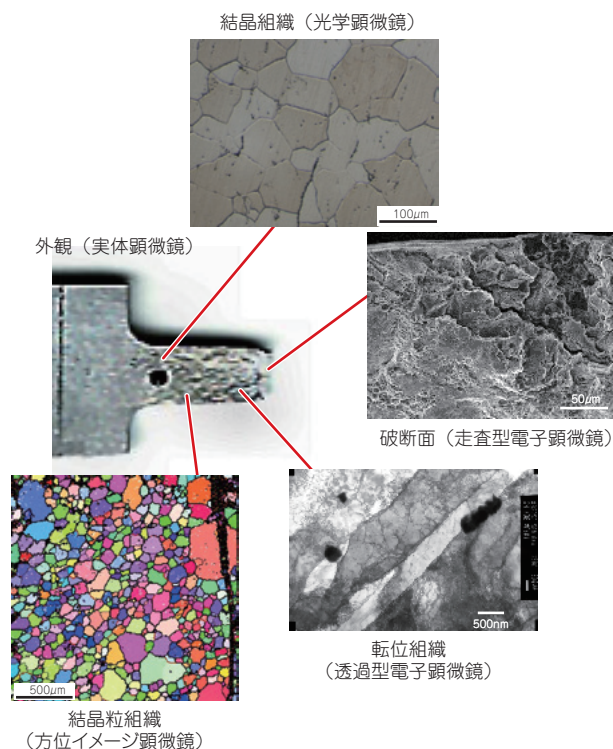


図1 材料研究で使用される従来の観察手法

本稿では、この放射光X線 $\mu$ CTの最近について紹介する。

## 2. 放射光

放射光は、**図2**に示されるように、光速で運動している高エネルギーの電子が軌道を曲げられた際に放出される電磁波(光)である。放射光は、指向性が良く、偏光しているという特徴があり、マイクロ波からX線にいたる広い範囲のスペクトルを持つ。従来のX線発生装置から得られる光の明るさに比べて、比較の条件にもよるがおおよそ $10^6$ 倍の輝度を持つ。現在、第三世代と呼ばれる大型の放射光施設は、欧州のESRF、アメリカのAPS、そして、日本のSPring-8である。SPring-8は世界最大の蓄積リング(周長1436m、ビームライン62本)を持つ。第三世代の放射光施設であれば、**図2**に示すように電子を周期的に小さく蛇行させるように磁石を交互に配置した挿入光源(アンジュレータ)<sup>6)</sup>による干渉効果を利用することで、さらに2桁程度上の輝度の放射光が取り出せる。放射光は指向性が良く、非常に高輝度であるので、光学ハッチに設置された二結晶モノクロメータで任意のエネルギー(任意の波長)に単色化して、単色X線として利用できる。

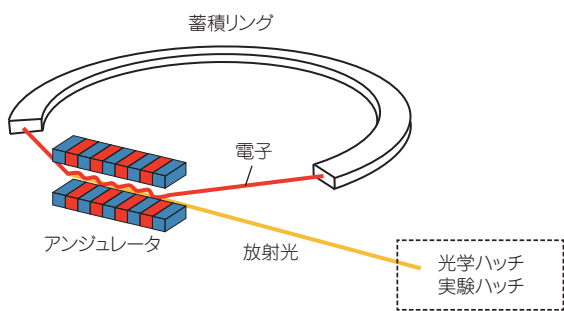


図2 挿入光源(アンジュレータ)による放射光の発生

## 3. 放射光 X 線 $\mu$ CT

放射光 $\mu$ CTのセットアップは、**図3**に示されるように、モノクロメータ、シャッタ、ディフューザ、スリット、回転ステージおよび検出器で構成される。高分解能観察には、利用する検出器の画像画素サイズを下回るような精度の試料ス

テージ群が必要となる。検出器は一般的に、シンチレータ、可視光光学系、科学計測用デジタルカメラで構成され、X線を可視光に変換し画像を取得する。シンチレータはX線を可視光に変換する薄膜であり、シンチレータから生じる可視光像をレンズで拡大して、デジタルカメラで撮像する。最近では、高速かつS/Nの良い科学計測用CMOSイメージセンサを搭載するデジタルカメラが用いられ、露光時間100~300msが適用され、1つの試料の撮像時間は5~15分程度である。**図3**に示したセットアップは投影型と呼ばれ、検出器で可視光を利用する故、最高で約 $1\mu\text{m}$ となる分解能を有する。X線光学素子であるフレネルゾーンプレート<sup>6)</sup>を利用して、X線で画像の拡大を行うセットアップも開発<sup>7)</sup>されており、X線エネルギーとの組み合わせにもよるが、その分解能は180nm程度に達する。なお、デジタルカメラでは、2画素あって初めて物体の境界が認識できることから、通常、検出器が出力する画像のピクセルサイズは分解能の2分の1程度になっている。分解能はビームから検出器までのX線CTのセットアップ全体で決まるので、単純に検出器の出力画像のピクセルサイズを小さくすれば分解能が向上するわけではないことに注意が必要である。

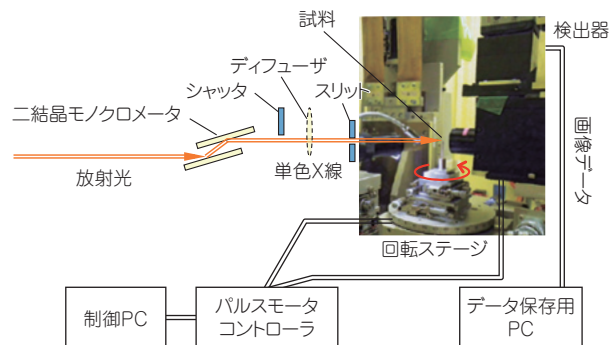


図3 放射光トモグラフィ(CT)のセットアップ

## 4. 断層画像再構成

放射光 $\mu$ CTの実験では、試料を $0\sim 180^\circ$ 回転させながら、**図4**(a)に示すような照射X線および試料の吸収画像(レントゲン像)を1800枚程度得る。これを**図4**(b)のような断層画像(スライス画像)に変換する処理が再構成である。

図4 (b) では、およそ0.6mm角の試験片においてアルミニウム合金内部の粒界上に偏析した析出粒子が明瞭に観察できている。

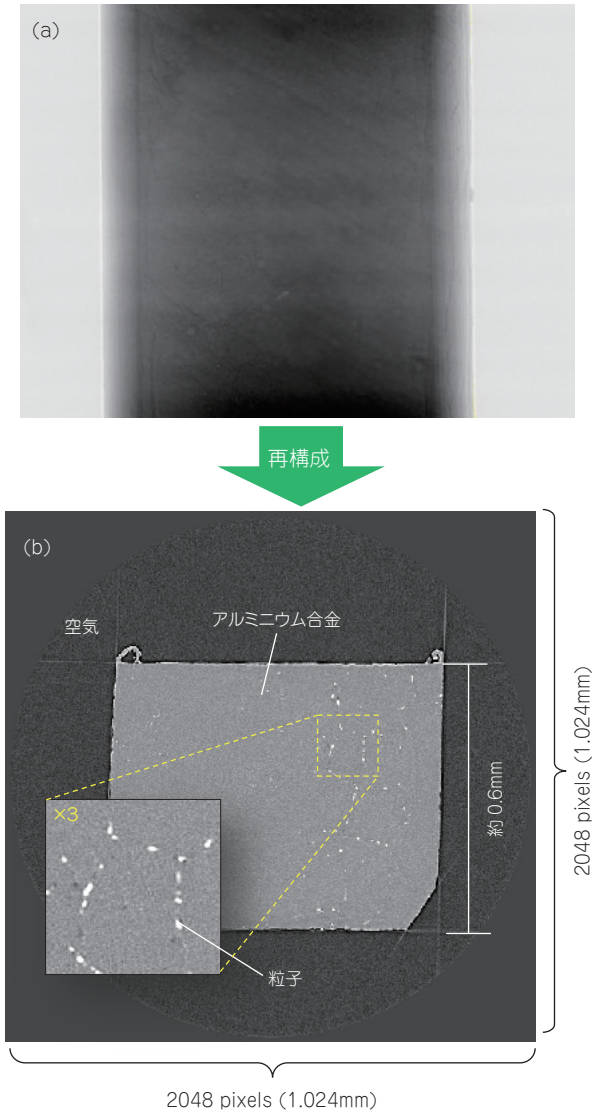


図4 (a) 透過像と (b) 再構成スライス画像

X線CTに関する原理は、意外に古く1917年に数学者J. Radonによって報告されている<sup>8)</sup>。その後、1970年代になって最初の医療目的のCTスキャナが製作され実用に至った。放射光 $\mu$ CT、産業用、ラボ用のCTあるいは $\mu$ CT装置でも再構成の基本原理は同様である。現在、実用されている再構成は、計算機用に離散化し誤差を最小にするような手法<sup>9)</sup>がとられている。よく使われるフィルタ補正畳込積分逆投影法 (Filtered convolution back projection) などの再構成の演

算はコンピュータ並列処理がし易く、最近では、再構成にマルチコアプロセッサやグラフィック処理用のGPUが使われる。図5に示すように、高精細な画像の場合、一昔前は1つの三次元画像の再構成処理に日単位の処理時間が必要であったが、現在では30分程度で再構成が可能となっている。

再構成された断層像は、図6に示したように重ね合わせることで三次元画像データとなる。なお、二次元画像では画素単位にピクセル (pixel) が使われるが、三次元画像ではボクセル (voxel) という単位が使われる。シリアルセクションングなどで、三次元画像を得る場合、研磨によって高さ方向のピッチがふざろいとなるので、解析時のデータ取扱いが難しいが、X線CTの場合等ピッチなので扱いは容易である。通常、縦横が等方である画素を持つデジタルカメラを用いれば、ボクセルは立方体形状になる。最近主流

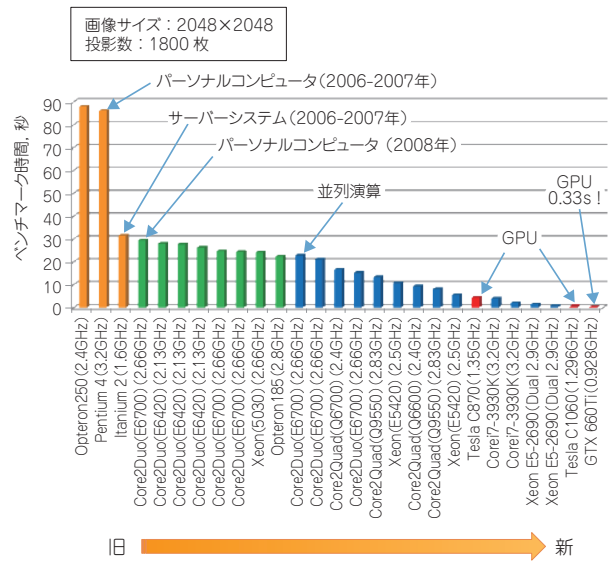


図5 再構成計算速度の向上【文献5】より転載

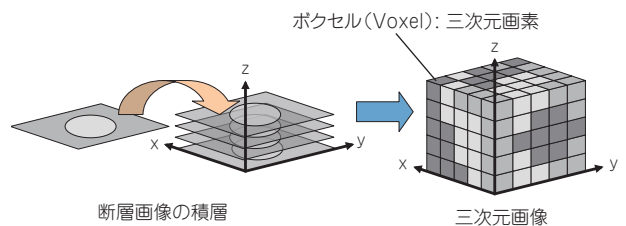


図6 三次元画像データ【文献5】より転載



の2048×2048ピクセルのCMOSカメラを使った場合、(2048×2048)の画像×2048断層の三次元画像が得られ、データ容量は8bit画像(256階調)で約8GB、16bit画像(65535階調)では約16GBになる。大容量の画像データのハンドリングは、意外と労力を要し、必要な情報を取り出すにはある程度の経験を要する。最近、一般的になってきた大容量のsolid state drive (SSD)を使って処理時間を短縮化する必要がある。

図7は、放射光 $\mu$ CTを使い非破壊で内部観察を行った後に、切断と研磨により試料断面を作製し、走査型電子顕微鏡観察して比較を行った結果である。(a)、(b)を比較するとほぼ同一箇所であることが分かる。研磨した試料では、試料作製での研磨傷や粒子が表面より剥がれ落ちている。小さなくぼみは研磨によるものか、粒子の存在によるものかの判断は困難である。これに対し、非破壊検査である放射光 $\mu$ CTでは、試料作製のダメージはなく、小さな粒子まで良好に観察できることが分かる。

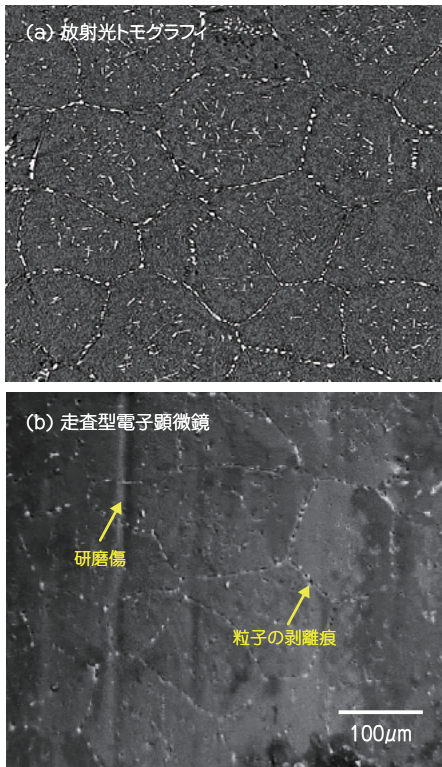


図7 (a)放射光トモグラフィ画像と(b)切断による走査型電子顕微鏡画像の比較(試料:Al-4%Cu合金)

## 5. 4D 観察

他の三次元観察手法に比べてX線CTの優位な点は、非破壊観察のため、時間依存する事象の観察、すなわち、4D観察ができるところにある。ここでの4D観察とは、3次元空間(3D)+時間変化(1D)の意味である。図8に示すような材料試験機を回転ステージ上に設置すれば、ボイドの発生・成長や疲労き裂伝播などを破壊に至るまで観察することができ、これまで破断面観察などで推測するしかなかった破壊とマイクロ組織的要因との間の関係を直接知ることが可能である。

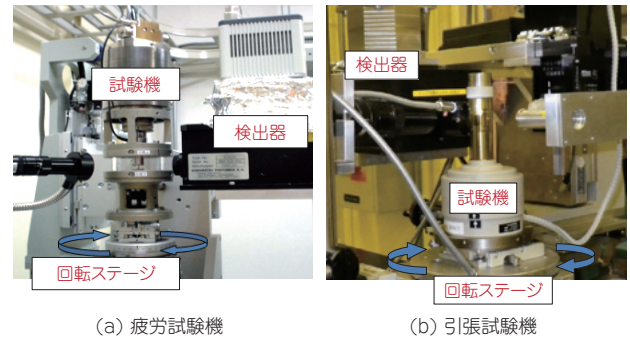


図8 その場観察用材料試験機, (a)エアアクチュエータによる疲労試験機, (b)モータ駆動による引張試験機【文献5)より転載】

図9は、金属材料中を進展する疲労き裂を三次元観察した結果である。このような観察を行えば、試験片の外観からではわからない内部のき裂の進展速度に加え、分岐・偏向などの挙動をマイクロ組織的要因と関連づけて理解することが可能になる。特に破壊の問題のような一部の組織要因がすべてを支配するような場合、直接観察は個別材料の設計にもつながる重要な知見を与えると期待できる。

さらなる応用例として、マイクロ組織特徴点追跡による三次元局所ひずみマッピング<sup>10)</sup>がある。図4や図7で見られるように、放射光 $\mu$ CT画像中には数多くのマイクロ組織特徴点(粒子や小さな欠陥など)が見られる。これをマーカー代わりに利用して、場所ごとのひずみを計測する手法

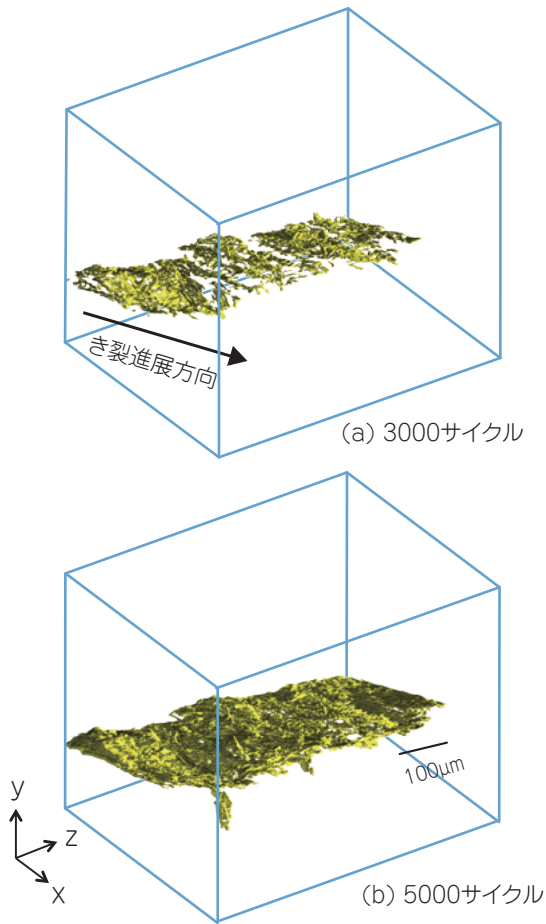


図9 金属材料中のき裂進展過程の観察 (7075Al)

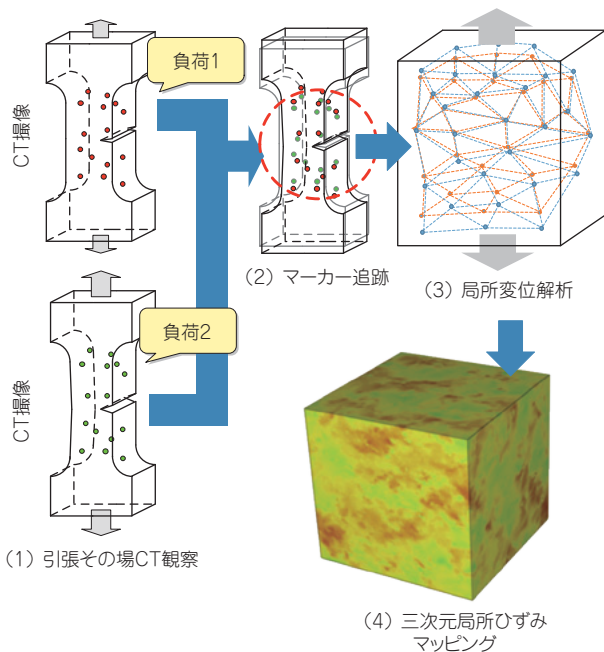


図10 ミクロ組織特徴点追跡による三次元局所ひずみマッピング

がミクロ組織特徴点追跡による三次元局所ひずみマッピング法である。図10のように、数段階に分けて試料の変形過程をCT撮像する。得られた2つのCT画像の位置合わせを行い、同一の粒子などを特定する。おおよそ数千から数十万点のミクロ組織特徴点が画像中には含まれるので、自動マーカー追跡のソフトウェアなどが必要となる。追跡できたマーカーを頂点とする四面体を作製し、四面体の変形量からその場所の局所三次元ひずみを計算する。そのひずみ量を三次元画像としてマップ化すると、三次元局所ひずみマッピングを得ることができる。この手法を用いれば、変形や破壊の様子を見るだけでなく、局所的なミクロ組織の変形破壊への影響を定量的に評価することができる。

## 6. おわりに

X線CTによる観察は、X線が試料を透過し、ある程度の吸収差が得られれば、材料によらず可能である。ラボスケールの装置の性能も向上しており、今後、X線 $\mu$ CTは材料研究の標準的な微視構造観察ツールの一つとなると思われる。一方、非常に高輝度な光源である放射光は、われわれが主に研究対象としているX線吸収の大きな金属などを十分透過できるところが魅力である。また、単色X線を使うため、高い定量性が得られ、物質密度の同定ができる。さらには、元素固有の吸収端を使うことで、濃度分布の評価も可能である<sup>11, 12)</sup>。われわれがこれまで行ってきた研究の中にもさまざまな解析事例<sup>13-17)</sup>があるので、本稿にて興味を持たれた方は、文献を参照していただきたい。また、X線CTで得られる三次元の画像データは、空間分布や形態情報を含むので、イメージベースのコンピュータ・シミュレーションへの展開が容易であり、現在、現実とシミュレーションをつなぐツールとしても期待されている<sup>18, 19)</sup> ことも書き添えておきたい。

## 参考文献

- 1) M. K. Miller: Atom Probe Tomography, Kluwer Academic/ Plenum Publishers, New York (2000).

- 2) A. J. Koster, U. Ziese, A. J. Verkleij, A. H. Janssen, K. P. de Jong: Three-Dimensional Transmission Electron Microscopy: A Novel Imaging and Characterization Technique with Nanometer Scale Resolution for Materials Science, *J. Phys. Chem. B*, 104, (2000), 9368.
- 3) J. E. Spowart: Automated serial sectioning for 3-D analysis of microstructures, *Scripta Mater.* 55, (2006), 5.
- 4) 戸田裕之, 小林正和, 久保貴司, 茂泉健, 杉山大吾, 山本裕介, 原田俊宏, 林憲司, 半谷禎彦, 村上雄一朗: 産業用 X 線トモグラフィ装置による材料欠陥およびミクロ組織の 3D 可視化, *軽金属*, 63, (2013), 343-349.
- 5) 小林正和, 戸田裕之, 上杉健太郎, 竹内晃久, 鈴木芳生, 材料科学分野における最近の X 線トモグラフィの進歩, *軽金属*, 64, (2014), 510-517.
- 6) J. Als-Nielsen, D. McMorrow: *Element of Modern X-ray Physics - 2nd ed.*, Johon Wiley & Sons, Ltd, (2011).
- 7) H. Toda, K. Uesugi, A. Takeuchi, K. Minami, M. Kobayashi, T. Kobayashi: Three-dimensional observation of nanoscopic precipitates in an aluminum alloy by microtomography with Fresnel zone plate optics, *Appl. Phys. Lett.*, 89, (2006), 143112.
- 8) J. Radon: *Ber. Verh. Sächs. Akad. Wiss.*, 69 (1917), 262.
- 9) A. C. Kak and M. Slaney: *Principles of Computerized Tomographic Imaging*, (Soc. Indus. Appl. Math.), (2001).
- 10) M. Kobayashi, H. Toda, Y. Kawai, T. Ohgaki, K. Uesugi, D. S. Wilkinson, T. Kobayashi, Y. Aoki, M. Nakazawa: *Acta Mater.*, 56, (2008), 2167-2181.
- 11) H. Toda, K. Shimizu, K. Uesugi, Y. Suzuki, M. Kobayashi: Application of dual-energy K-edge subtraction imaging, *Mater. Trans.*, 51, (2010), 2045.
- 12) M. Kobayashi, H. Toda, A. Takijiri, A. Takeuchi, Y. Suzuki, K. Uesugi: W-Concentration 3D Mapping in SKH51 Steel by Dual-Energy K-Absorption Edge Subtraction Imaging, *ISIJ Inter.*, 54, (2014), 141.
- 13) H. Toda, H. Oogo, K. Horikawa, K. Uesugi, A. Takeuchi, Y. Suzuki, M. Nakazawa, Y. Aoki, M. Kobayashi: The true origin of ductile fracture in aluminium alloy, *Metal. Mater. Trans. A*, 45, (2014), 765.
- 14) H. Toda, S. Masuda, R. Batres, M. Kobayashi, S. Aoyama, M. Onodera, R. Furusawa, K. Uesugi, A. Takeuchi, Y. Suzuki: Statistical assessment of fatigue crack initiation from sub-surface hydrogen micropores in high-quality die-cast aluminum, *Acta Mater.*, 59, (2011), 4990.
- 15) H. Toda, I. Sinclair, J. Y. Buffiere, E. Maire, K. H. Khor, P. Gregson, T. Kobayashi: *Acta Mater.*, 52, (2004), 1305-1317.
- 16) H. Toda, S. Yamamoto, M. Kobayashi, K. Uesugi, H. Zhang: Direct measurement procedure for three-dimensional local crack driving force using synchrotron X-ray microtomography, *Acta Mater.*, 56, (2008), 6027.
- 17) H. Zhang, H. Toda, P. C. Qu, Y. Sakaguchi, M. Kobayashi, K. Uesugi, Y. Suzuki: Three-dimensional fatigue crack growth behavior in an aluminum alloy investigated with in situ high-resolution synchrotron X-ray microtomography, *Acta Mater.*, 57, (2009), 3287.
- 18) 戸田裕之, バトレス ラファエル, 桑水流理, 小林正和, 細川明秀, リバース 4D 材料エンジニアリング: その構想と最近の展開, *軽金属*, 64, (2014), 518-524.
- 19) 桑水流理, 金属材料のイメージベースモデリングと有限要素解析, *軽金属*, 64, (2014), 525-532.

#### 筆者紹介



#### 小林正和

豊橋技術科学大学 機械工学系 准教授  
 日本金属学会, 軽金属学会, 日本鉄鋼協会, 鑄造工学会など  
 博士 (工学)  
 放射光 CT データの解析・評価に関する研究に従事



#### 戸田裕之

九州大学 機械工学部門 教授  
 日本金属学会, 軽金属学会, 日本鉄鋼協会, 鑄造工学会など  
 博士 (工学)  
 放射光 CT 用いた構造材料の破壊に関する研究に従事