

FIB-SEMによる空隙構造の3Dイメージング

東京大学 生産技術研究所

正会員 ○鎌田 知久

東京大学 生産技術研究所

フェロー会員 岸 利治

1. はじめに

コンクリート中への各種有害物質の移動特性を把握するうえで、空隙構造の理解は極めて重要である。空隙構造の評価には、定量的な情報を取得可能な水銀圧入法やガス吸着法等が広く活用されている。また、実際の空隙の形状や連続性を直接観察する試みとして、近年、X線CTやEPMAを応用した検討も進められており^{例(例えば)1)}、空隙構造のマクロな三次元情報の取得に大きく貢献している。しかし、これらの手法は、解像度の問題もあり、nmスケールのミクロな情報の取得は困難であるのが現状である。

一方、半導体材料や電池材料等の分野では、微細構造を観察する手法として、FIB-SEMによる3Dイメージングが注目されている。本手法は、ナノ・マイクロスケールの微細構造を高解像度で取得することが可能であり、コンクリートの空隙構造の観察にも適用され始めている²³⁾。そこで本研究では、空隙構造の詳細な三次元情報を取得することを目指し、本手法をセメント硬化体の空隙構造の観察に応用する際に課題となる、試料の観察方法について検討することを目的とした。

2. 実験概要

2. 1 FIB-SEMによる3Dイメージング

本研究では、(国研)物質・材料研究機構が所有する直交配置型FIB-SEM(SMF-1000)を用いて観察を実施した。FIB-SEMでは、集束したイオンビーム(ガリウムイオン)を試料に照射し、試料表面を数nm間隔で削りながら、その都度、SEMにより試料研削面を撮像することで、積層画像データを取得することができる。本研究では、加工・観察条件として、FIBでは、加速電圧を30kV、プローブ電流値を280pAに設定し、試料の約 $6 \times 6 \mu\text{m}$ の領域を3nm間隔で約1000回($3 \mu\text{m}$)研削した。SEMでは、加速電圧を0.5kV、APを $30 \mu\text{m}$ に設定し、検出器Chamber-SEを用いて撮像した。そして、市販の画像解析ソフトを用いて、

取得した積層画像データ中の空隙を抽出し、三次元画像に再構築することで、空隙構造の三次元画像を取得した。

2. 2 観察における課題

FIB-SEMでは、試料を約1000回研削し、その都度撮像するため、観察に12時間以上を要する。さらに、セメント硬化体の場合、試料内部からの水分の逸散が原因となり、観察中にドリフトが生じてしまう。図-1にその一例を示すが、ドリフトが生じると観察視野が移動してしまい、三次元画像の構築可能範囲(緑枠)が限定されてしまう。また、画像が移動することで、三次元画像を構築した際に連続した空隙が蛇行した形になり、正確な空隙の形状を取得することが出来ない。このため、ナノスケールの空隙構造の高精度な三次元情報を取得するためには、このドリフトによる影響を低減する必要がある。

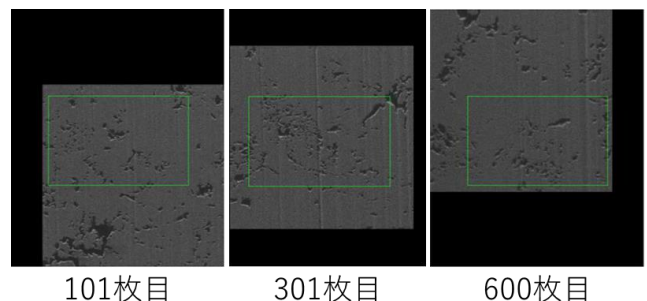


図-1 ドリフトによる画像の移動例

2. 3 試料概要

10mm角の型枠に普通セメント(密度: $3.15\text{g}/\text{m}^3$)を用いた水セメント比55%のセメントペーストを打込み、表面をラップで覆った状態で28日間の封緘養生を与え、養生終了後に湿式切断機を用いてペースト底面から $4 \times 4 \times 2\text{mm}$ の試料を採取した。その後、 40°C 乾燥を24時間与えてから、試料内部の水分を除去するため、D-dry法により試料を24時間乾燥させた。なお、採取した試料のサイズは、FIB-SEMの試料ホルダーに取り付けられる最大サイズである。

キーワード 空隙構造, FIB-SEM, 3Dイメージング, 三次元画像, セメントペースト

連絡先 〒153-8505 東京都目黒区駒場4-6-1 東京大学生産技術研究所 Be406 TEL 03-5452-6098

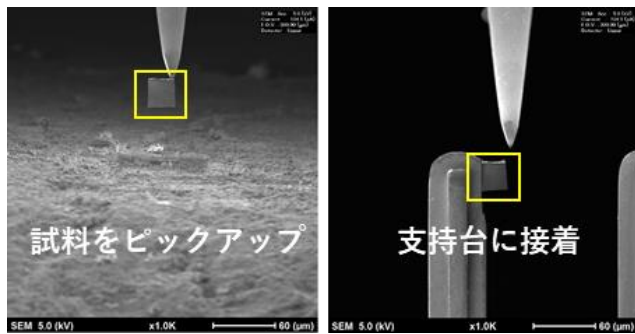


図-2 ピックアップ法による薄膜試料の採取

2. 4 ピックアップ法による観察試料の採取

FIB-SEM による三次元観察では、試料の端部を直接観察する方法と母体試料から薄膜試料を採取して観察するピックアップ法とがある。図-1 に示したドリフトの一例は、前者の方法で観察した結果であるが、この方法では試料サイズが大きく、水分の逸散による影響が顕著であった。一方、ピックアップ法は、一般に TEM 試料の加工等で用いられるが、この方法で採取した試料のサイズは数十 μm 角程度と極めて小さいため、試料からの水分逸散を抑制できると考えた。そこで本研究では、図-2 に示すようにピックアップ法により採取した試料に対して 3D イメージングを実施した。

3. 三次元観察結果

ピックアップ法で採取した薄膜試料を用いて三次元観察を行った際のドリフト状況を図-3 に示す。図を見ると、30 枚目から 966 枚目まで画像がほとんど移動しておらず、図-1 と比較して明らかにドリフトを抑制できていることが分かる。図-4 には、取得した積層画像データに対して画像解析により 3D イメージングを実施した結果を示している。解析には、937 枚の画像を使用し、 $3 \times 3 \times 2.8 \mu\text{m}$ の領域の三次元画像を構築した。1 ボクセル当たりの解像度は 3nm である。図中、同色の空隙は、連続していることを示しており、濃い青色の空隙は画像上面から下面まで連続している。この濃い青色の空隙の体積（観察領域）あたりの空隙率は 7.97% であり、別途実施した水銀圧入試験で得られた体積当たりの連続空隙率 7.60% と概ね一致していた。以上より、ピックアップ法により薄膜試料を採取することで、セメント硬化体の三次元観察の課題であるドリフトを大幅に抑制でき、三次元画像を精度よく取得できることを確認した。

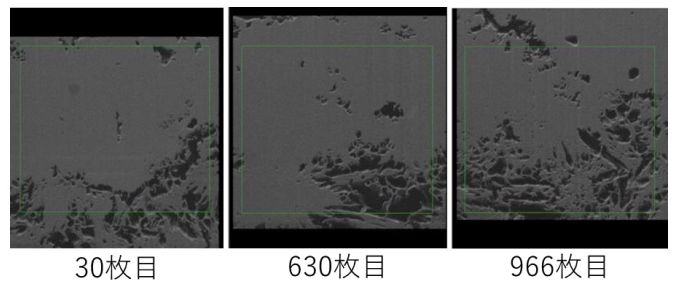


図-3 ピックアップ法によるドリフトの抑制

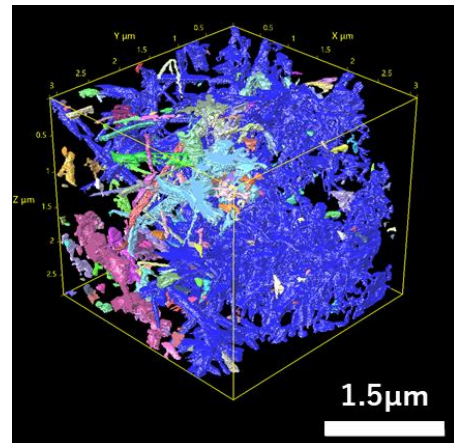


図-4 空隙構造の三次元画像 ($3 \times 3 \times 2.8 \mu\text{m}$)

4. まとめ

FIB-SEM によるセメント硬化体の三次元観察において、観察中のドリフトを抑制する方法として、薄膜試料を採取するピックアップ法が有効であることを確認した。

謝辞

本研究は、文部科学省委託事業ナノテクノロジープラットフォーム課題として物質・材料研究機構微細構造解析プラットフォーム (NMCP) の支援を受けて実施されました。NMCP の原徹氏、中村晶子氏には FIB-SEM による観察でオペレーション等、多大なるご支援を賜りました。ここに記して謝意を表します。

参考文献

- 1) 杉山隆文ほか：高解像度型 X 線 CT による AE モルタル中の空隙構造の透視，土木学会論文集 E2, Vol.67, No.3, pp.351-360, 2011
- 2) 酒井雄也，岸利治：臨界浸透確率による閾細孔径の評価と FIB-SEM による空隙構造観察，セメント技術大会梗概集，Vol.68, pp.120-121, 2014
- 3) Yang Song et al.: Pore network of cement hydrates in a High Performance Concrete by 3D FIB/SEM — Implications for macroscopic fluid transport, Cement and Concrete Research, Vol.115, pp.308-326, 2019