

平成22年 3月26日現在

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2008～2009

課題番号：20760466

研究課題名（和文） 高輝度放射光X線による三次元結晶方位解析手法の開発

研究課題名（英文） Development of three-dimensional orientation analysis method by using high-flux synchrotron X-ray

研究代表者

小林 正和 (KOBAYASHI MASAKAZU)

豊橋技術科学大学・工学部・講師

研究者番号：20378243

研究成果の概要（和文）：金属をはじめとした多結晶材料の変形・破壊挙動解析のために、非破壊で試料内部の結晶方位を測定する手法の開発を行った。ヨーロッパと日本の放射光施設で実験することで、アルミニウム合金の結晶方位を測定した。三次元的な結晶方位分布と試料変形後のひずみを比較し、結晶方位による変形の不均一性を確認した。

研究成果の概要（英文）：For the purpose of deformation and fracture analysis in polycrystalline materials like a metal, the method that measure crystallographic orientation within a sample non-destructively has been developed. The orientation maps of an aluminum alloy were investigated using European and Japanese synchrotron radiation facilities. Inhomogeneous deformation depending on crystallographic orientation was confirmed comparing grain orientation map with strain distribution after deformation in three-dimension.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	1,500,000	450,000	1,950,000
2009年度	700,000	210,000	910,000
年度			
年度			
年度			
総計	2,200,000	660,000	2,860,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：材料工学・構造機能材料

キーワード：放射光，トモグラフィ，X線回折，結晶方位，アルミニウム合金，三次元

## 1. 研究開始当初の背景

放射光を使ったX線コンピュータ・トモグラフィ（CT）は材料内部の粒子，欠陥，き裂などを三次元的に可視化でき，金属材料の変形・破壊の研究に有効な手法である。これまで申請者らは，大型放射光施設 SPring-8 にて CT 実験を行い，三次元画像解析に基づく

金属材料中のマイクロ組織特徴点の追跡法を開発して材料試験中の CT 画像から材料内部の力学情報を取り出すことに成功し，欠陥やき裂が金属材料の変形・破壊過程にどのように影響を与えるのかを調査してきた。また，液体金属を結晶粒界に浸透させることで結晶粒を三次元可視化する手法と三次元画像

解析を組み合わせてによって結晶粒単位の三次元変形解析を試みている。しかしながら、X線CT法では金属材料の結晶方位に関する情報は得られないために、材料の変形・破壊特性へ結晶方位の及ぼす影響を考慮できていない。一般に、金属材料の成形性や加工限界は結晶方位分布に強く依存するとされる。従来の結晶方位解析の手法には、X線回折とSEM/EBSP解析がある。X線を使って行われる結晶方位測定は非常に広範囲の領域を解析対象とすることから、統計的な結晶方位分布状態、すなわち、集合組織を調べるために用いられている。個々の結晶粒の配置など、局所情報を得ることはできない。他方、SEM/EBSP解析法局所的な結晶方位の同定・マッピングは、走査型電子顕微鏡の後方散乱電子線を用いたSEM/EBSP法によってなされている。これは近年材料研究に良く使われている比較的新しい手法である。通常、結晶方位解析手法が適用できるのは材料の表面に限られる。材料の変形・破壊の問題において、材料の表面と内部の応力状態は大きく異なることから、表面における観察・調査のみでは材料内部で起こるメカニズムを完全に理解することはできない。また、変形・破壊の研究に、断面研磨によるセクションングで三次元の結晶方位情報得る手法は適用できない。非破壊で三次元の結晶方位解析手法が必要である。

## 2. 研究の目的

通常、結晶方位解析手法が適用できるのは材料の表面に限られる。材料の変形・破壊の問題において、材料の表面と内部の応力状態は大きく異なることから、表面における観察・調査のみでは材料内部で起こるメカニズムを完全に理解することはできない。また、変形・破壊の研究に、断面研磨によるセクションングで三次元の結晶方位情報得る手法は適用できない。本研究は、多結晶金属材料の変形・破壊メカニズム調査を可能とするため三次元的に結晶方位を測定する手法を開発する。

## 3. 研究の方法

### (1)ESRFでの3D-XRD

試料は、アルミニウムに三次元ひずみマッピングのためにマーカーとなるPb粒子を含むAl-4wt%Pb合金である。試料は鋳造後、50%圧延、460°C-2hの熱処理で100~200 $\mu$ m程度の結晶粒サイズに調整した。試料からFig. 1に示すような小型引張試験片を作製した。

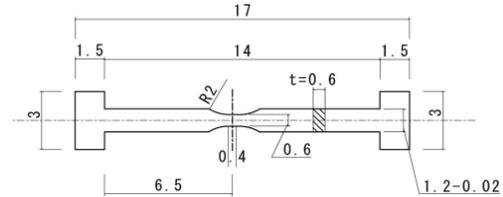


Fig. 1 Tensile specimen

試料に含まれるPb粒子サイズは6 $\mu$ m程度まで分布し、高分解能CTの画像解析による平均サイズは1.88 $\mu$ mであり、粒子の密度は16万点/mm<sup>3</sup>であった。この試料の引張強さは、試験片が小さいのでばらつきが見られたが、おおよそ50~90MPa程度であった。

Fig.2に3D-XRDの試料と検出器のジオメトリを示す。試料を $\omega$ 回転させることで、X線に対する結晶面の角度 $\theta$ を変化させる。X線の回折はブラッグの条件を満たすときのみ得られる。

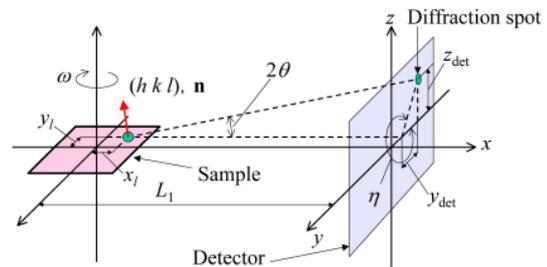


Fig. 2 3DXRD geometry

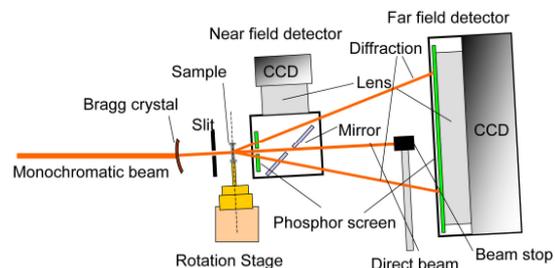


Fig. 3 3D-XRD setup at ID11 in ESRF

Fig. 3にESRFのID11におけるセットアップの模式図を示す。光源からのX線ビームはモノクロメータにより単色化され、光学ハッチへと導かれる。本実験では46.9keVの単色X線が使われた。ビームは、湾曲させられた単結晶Siによって集光し、スリットを通ることで、高さ10 $\mu$ m、幅数mmのフラットビームとなる。ここでビームは光源からのビーム方向に対して数度上向きになる。それに合わせて、回転ステージおよびディテクタは水平から傾けて設置される。回折像の取得には、大小2つの可視光変換型の2Dディテクタが使われた。試料に近接した小さなディテクタ(画素数1536 $\times$ 1024、画素サイズ4.3 $\mu$ m)には、ダイレクトビームが当たらないよう、可

視光変換スクリーンおよびミラーにスリットが設けられている。離れた位置に設置された大きなディテクタ（画素数 2048×2048、画素サイズ 50 $\mu\text{m}$ ）の前にはダイレクトビームストップが置いてある。試料ディテクタ間の距離は近いもの遠いもの、それぞれ、約 5mm と 250mm である。回転ステージ上で試料が回転中心にあるように位置合わせを行い、試料にビームを照射し、立方晶の対称性を考慮して、回転角度が  $-22.5^\circ \sim 22.5^\circ$  および  $67.5^\circ \sim 112.5^\circ$  で回折像のスキャンを行った。スキャン条件は、露光時間 10s で露光中  $1^\circ$  回転させた。画像は 2つのディテクタで同時に取られ、1 断層のデータ（90 枚）の取得に約 15 分かかる。1 断層の回折スキャンが終わったら、10 $\mu\text{m}$  試料を下げて、試験片並行部の 40 層 (=400 $\mu\text{m}$ ) を繰返しスキャンした。3D-XRD スキャンされた試料は、次に CT スキャンされる。無負荷状態を撮像後、4.8% および 8.8% の引張変形ひずみを与えた状態で撮像を行った。各結晶粒の結晶方位は次の手順で求められた。まず、画像処理で X 線回折画像から回折位置を特定した。試料と検出器のずれを補正し、各回折の回折面とその面法線ベクトルを求める。面法線ベクトルがアルミニウム面法線ベクトルの空間配置と同じになる回折の組みを探し、その組みから結晶粒の方位を導出する。求められた結晶方位のマッピングには GrainSweeper を使った。

## (2) SPring-8 での 3D-XRD

SPring-8 の BL20XU で 3D-XRD を行った。BL20XU は CT をはじめとするイメージング用のビームラインである。BL20XU の第 2 ハッチにて、CT 用の機材を流用し、3D-XRD による測定を行った。回転ステージ、ディテクタは既存の CT 用のものを用いた。ESRF では中央にスリットのある 3D-XRD 専用のディテクタが使われているが、SPring-8 ではそのようなものは利用できない。そこでディテクタをビームより上方に置き、回折リングの上半分のみを利用することとした。ビームより下半分の不足情報は、立方晶系結晶の対称性を利用して回転角度  $\omega$  を増すことで補う。セットアップの概略図は Fig. 4 に示される。ESRF の回折実験用ビームライン ID11 では、一つの回折画像の取得のために回転ステージとカメラの連動したコントロールが可能となっている。すなわち、任意の回転角度  $\omega$  間を任意の秒数で走査した画像をコントロールコマンド一つで得ることができる。一方、BL20XU の CT では通常ステージを一定速度で回転させ、等間隔で画像を得る。加えて、

CCD から PC への画像の転送に高速なカメラでも約 300ms 程度の時間が必要であることも考慮し、ステージの回転を往復させ、往路では偶数番目の画像を取得し、復路では奇数番目の画像を取得するコントロールを採用することにした。そうすることで、次の画像取得のまでの空き時間は、CCD から PC へのデータ転送に利用できる。このような手法で  $-180^\circ \sim 180^\circ$  もしくは  $-90^\circ \sim 90^\circ$  の回転角  $\omega$  の間を  $1^\circ$  毎に 1s または 0.5s の露光時間で撮像を行った。露光 0.5s の条件は今回使ったのシステムで最も速く撮像できる条件である。試したディテクタサイズは、可変倍率のレンズを使い画素数 2000×1312 で画素サイズ 6.63 $\mu\text{m}$  と 16.9 $\mu\text{m}$  である。試料とディテクタ間の距離はそれぞれ、約 8mm、約 19mm である。X 線エネルギーは BL20XU で Si(111) 二結晶モノクロメータで利用可能な 35keV を選定した。また、3D-XRD の計測と同時に同一箇所の CT の断層像も得られると解析場所の確認などができ便利である。試料の確実な位置合わせと CT 撮像を行うため、マイクロ CT 用のセットアップ（画素数 2000×1312、画素サイズ 0.5 $\mu\text{m}$ ）も準備した。ディテクタを入れ替えることで 3D-XRD と CT の測定が容易に行える。

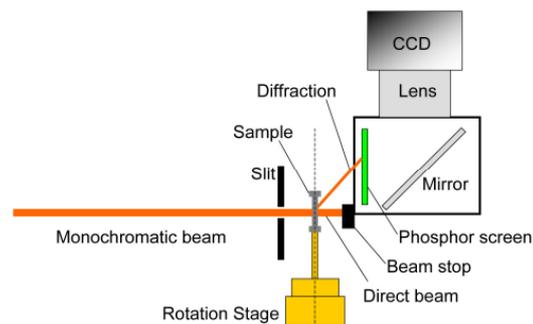


Fig. 4 3D-XRD set-up at BL20XU in SPring-8

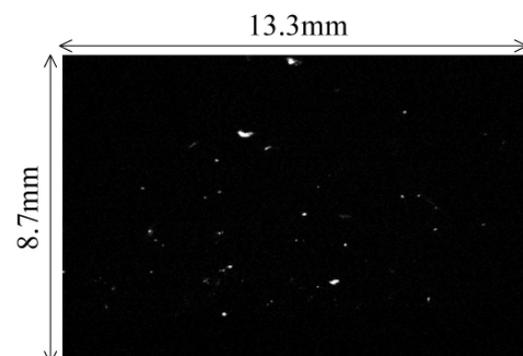


Fig. 5 Diffraction snapshot in Al-4wt%Pb alloy

試料とディテクタ間の距離およびディテクタの傾きの算出は、部分的に単結晶になっている焼なました純アルミニウムの  $\phi 25\text{mm}$  の

ワイヤーを用いて行った。3D-XRDを試した試料は、多結晶材料の変形調査のためモデル試料として作製した Al-4wt%Pb 合金である。この試料の結晶粒サイズは圧延、再結晶により約 200nm に調整されている。組織中には 1mm 程度の Pb 粒子が含まれている。Fig. 5 に画素サイズ 6.63 $\mu$ m のディテクタでの回折像を示す。

#### 4. 研究成果

##### (1) ESRF での 3D-XRD

Fig. 6 に 3D-XRD による結晶方位測定結果を示す。マップは引張軸 TA に対する逆極点図マップとなっている。結晶粒形態およびサイズが確認できる。試料の結晶粒方位はほぼランダムだった。

CT 画像を解析することで、ひずみ計測のマーカとなる粒子の位置、体積および表面積を求めた。変形前後の粒子位置を位置合わせし、マッチングパラメータ法を使って対応する粒子を見つけだした。空間内に不規則に分布する粒子を頂点とする、四面体を作成し、その四面体の変形ひずみを粒子の変位から求めた。得られたひずみ分布は線形内挿することで 3D 画像とされた。Fig. 7 に得られた相当ひずみ分布を示す。(a)0% は初期状態で、このひずみ分布は変形前の試料を 2 回 CT 撮像することで得た。変形ひずみが (b)4.8% と (c)8.8% と不均一に発達している。側面を見るとひずみは 45° 方向に分布している。Fig. 4 と照らし合わせて見ると、結晶粒の配置がひずみ分布に影響を与えている様子がわかる。なお、何箇所か(a)0%および(b)4.8%において、大きなひずみが点状にでているところが見られるが、これはひずみの集中があるわけではなく、追跡エラーに起因するものである。

##### (2) SPring-8 での 3DXRD

回折像には、幾つかの歪な形状の大きな回折点と、小さな回折点が見られる。幾つかの条件を試したところ、露光時間 0.5s のスキャンはデータの抜け落ちなく可能である。しかし、位置合せ用の  $\phi$ 25mm のワイヤーの回折像の回折強度を見ると、画素サイズ 6.63 $\mu$ m で 0.5s の露光では回折強度が不足し、画像処理で回折スポットの位置を割り出すことは難しい。この条件で撮像するならば、より X 線のフラックスが必要である。画素サイズ 6.63 $\mu$ m でも 1s の露光ならば、十分な回折強度が得られた。Al-4wt%Pb 試料では、結晶粒が大きいこともあり、回折強度の最も強い(111)面のスポットはディテクタのレンジをオーバーしてしまう場合があった。

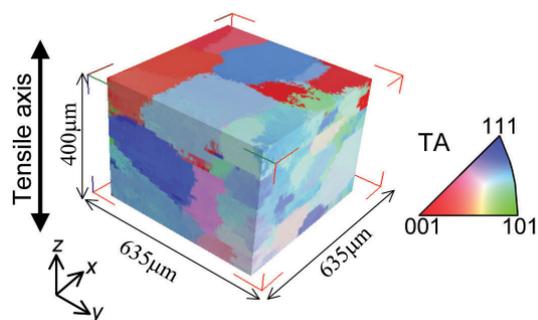


Fig. 6 Inverse pole figure map for tensile axis

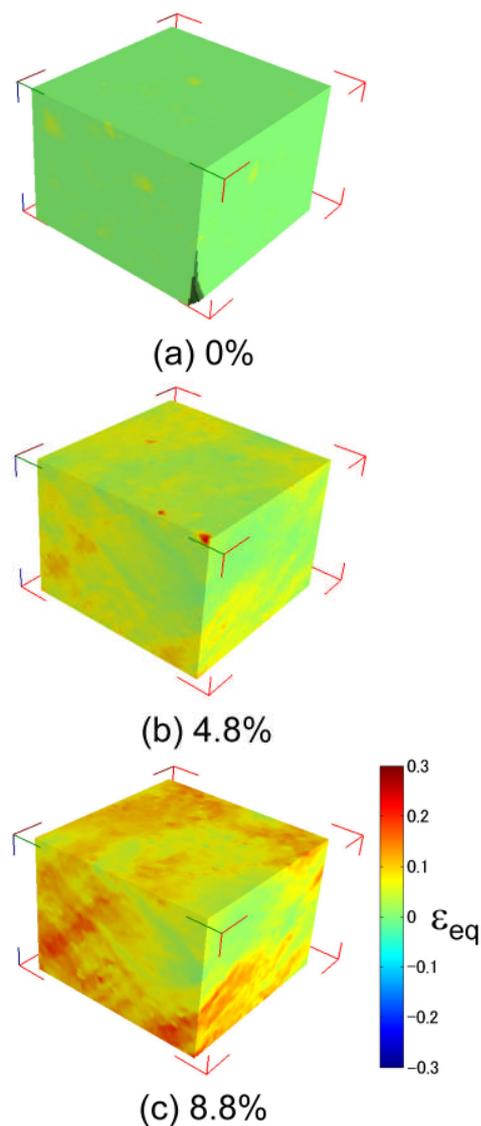


Fig. 7 Development of equivalent strain

#### 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)

[学会発表] (計 3 件)

(1)小林正和, 戸田裕之, 3D-XRD による 3D 結晶方位解析, 日本鉄鋼協会 材料の組織と特性部会, 平成 21 年 9 月 16 日, 京都大学

(2)小林正和, H.F.Poulsen, 戸田裕之, 大川嘉一, 放射光を利用したアルミニウム合金の変形 3D 解析, 軽金属学会秋季講演大会, 平成 21 年 11 月 15 日, 電気通信大学

(3)小林正和, 戸田裕之, 3D-XRD による結晶組織の 3D 観察, SPring-8 金属材料評価研究会 (第 2 回: イメージング観察の新手法), SPring-8 利用推進協議会 研究開発委員会, 平成 22 年 3 月 1 日, ゆうほうと 東京都品川区

## 6. 研究組織

### (1)研究代表者

小林 正和 (KOBAYASHI MASAKAZU)

豊橋技術科学大学・工学部・講師

研究者番号: 20378243

### (2)研究協力者

戸田 裕之 (TODA HIROYUKI)

豊橋技術科学大学・工学部・教授

研究者番号: 70293751

上杉 健太郎 (UESUGI KENTARO)

高輝度光科学研究センター・利用研究促進  
部門・研究員

研究者番号: 80344399