

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 3 月 31 日現在

機関番号：93901

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2010～2012

課題番号：22760571

研究課題名（和文） 走査型 3 次元 X 線回折顕微鏡法の開発と金属塑性変形その場観察へ応用

研究課題名（英文） Development of scanning three-dimensional x-ray diffraction microscopy and in-situ observation of plastic deformation of polycrystalline metals

研究代表者

林 雄二郎（HAYASHI YUJIRO）

株式会社豊田中央研究所・分析・計測研究部 ナノ解析研究室・研究員

研究者番号：30435953

研究成果の概要（和文）：

3次元X線回折(3DXRD)顕微鏡法は金属材料内部の各結晶粒の結晶方位と応力を非破壊で観察することを可能にした手法で、金属材料の新しい塑性変形観察手法として期待されている。観察断面内における結晶粒数上限の制約から、3DXRD法の代表的な測定方法では理想的な多結晶塑性の観察が困難となることが懸念される。本研究では、観察断面においてなるべく多くの結晶粒数を有する試料が取り扱えることを可能にする走査型3DXRD法を提案し、試料内部の任意の点を占める結晶粒を特定する原理を実証した。また、荷重負荷下における結晶方位3次元マッピングよりフェライト多結晶のBCCすべり変形を観察した。

研究成果の概要（英文）：

The three-dimensional x-ray diffraction (3DXRD) microscopy is a novel method for non-destructively three-dimensional observation of crystal orientation and stress of each crystal grain in polycrystalline metallic materials. It may be often difficulty to observe ideal polycrystalline deformation in a typical measurement technique due to the limit of number of grains in an observed cross section. In this study, the approach named scanning 3DXRD which allows us to observe specimens with as a large number of grains as possible in the cross section is proposed. The principle of the scanning 3DXRD that identifies the grain at an arbitrary point in a specimen was experimentally proved. The BCC slip deformation of a polycrystalline ferrite was observed from in-situ three-dimensional mapping of orientation under a tensile load.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	600,000	180,000	780,000
2011年度	2,500,000	750,000	3,250,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,100,000	930,000	4,030,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：材料工学、材料加工・処理

キーワード：塑性加工

1. 研究開始当初の背景

3DXRD 顕微鏡法[1]は放射光 X 線を用いて多結晶材料内部の各結晶粒の方位や格子定数を非破壊で決定する新しい手法で、電子顕微鏡的手法ではできなかった材料内部の結晶方位分布や応力分布を観察できる手法として期待されている。本研究で特に注目しているのが、3DXRD 法は高エネルギー X 線を利用するため鉄鋼材料の観察も可能であるという点で、鉄鋼材料の応力解析[2]や塑性変形解析[3]も既に報告されている。鉄鋼材料は強度・剛性・成形性などの機械的特性に加えて経済性・資源供給性を含めた総合評価から非常に優れた材料であるため今後も自動車車体構成材料の主流であると予測される。近年自動車軽量化の要請激化により鋼板材はさらなる高強度化による薄板軽量化に加えて高強度化と相反する成形性も確保することが同時に求められている。薄鋼板材のプレス成形を含めたプロセス設計においては、実験による試行錯誤のコスト低減のため数値シミュレーションによる高効率化が益々重要視されている。塑性成形の高精度予測には材料モデルの高精度化が必須で、結晶集合組織が成形特性に大きく影響することが昔から知られているように結晶塑性モデルの適用が望まれている。3DXRD 法は結晶方位及び格子定数から各結晶粒の塑性変形及び応力を 3 次元で非破壊観察できることから多結晶塑性モデルの実用化へ向けたモデル評価に極めて有用であると期待できる。

2. 研究の目的

本研究では 3DXRD 法を利用してなるべく様々な実用金属材料が観察できるようにすることを最大の目的とする。次節で述べるように 3DXRD 法で観察できる材料は粒径、集合組織、歪や試料外寸により制限される。実用材料の粒径・集合組織・加工歪においては変形特性に影響を及ぼす程度に試料外寸を非常に小さくしなければならないことが懸念される。本研究ではこのような問題を解決するための手法を提案しその有用性を実証する。

3. 研究の方法

3DXRD 法では試料を結晶構造が既知の多結晶体とし、2 次元検出器上で基本的には X 線回折斑点が重ならないような条件の下、回転結晶法的手法により複数の結晶粒の結晶方位及び格子定数を一度に求める[1]。そのため X 線が一度に入射する結晶粒数に上限がある。代表的な 3DXRD 法の測定方法では迅速測定のため 1 次元集光ビームを用いて試料 1 軸

回転により試料断面における複数の結晶粒を一度に再構成する。この方法により粗大粒化純 Fe 線 $\phi 300 \mu\text{m}$ を観察した例を Fig. 1 に示す。入射ビームには Fig. 1(a) のように 1 次元集光の代わりに $20 \mu\text{m}$ の垂直方向スリットを用いた。水平方向の入射ビーム幅は試料外径以上とし、試料を 340° ω 回転しても試料外径全体が常に X 線入射される配置とした。ここで ω は水平面に垂直な試料回転軸である。実験には SPring-8 BL33XU において 40keV の単色放射光 X 線を用いた。X 線 2 次元検出器の画像を ω 回転 0.4° ごとに 340° まで連続的に記録した。3DXRD 解析には ImageD11 [5] を用いた。1 回の ω 回転により Fig. 1(b) のように観察面内全体における各結晶粒の重心座標、結晶方位及び格子定数が得られる。この 3DXRD 法の代表的な測定方法では試料 1 軸回転により複数の結晶粒が一度に解析できるため、時系列観察が必要な鋼の結晶粒成長・相変態のその場観察[4]ができるという利点がある一方で、粗大粒を取り扱うことになるとか、または試料外径を小さくする必要があるという欠点がある。実用材料へ応用する上でこの点が最も問題になると考えられる。そこで本研究では粒径より小さい入射ビーム、例えば 2 次元集光ビームを使って試料

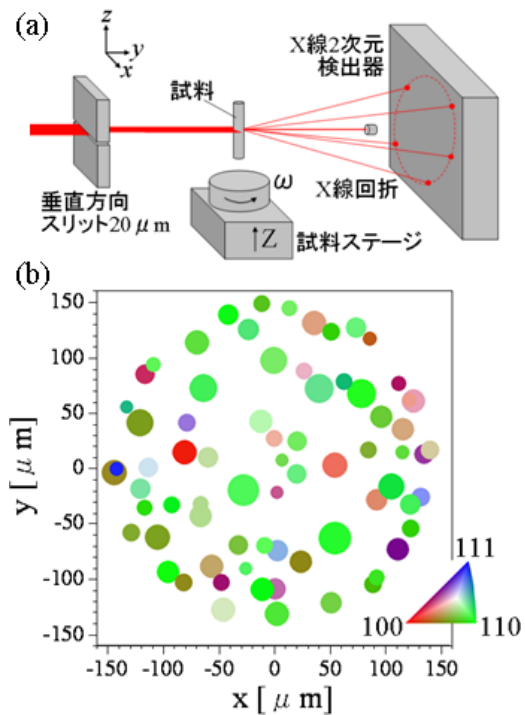


Fig. 1 3DXRD 法の実験配置 (a) と粗大粒化純鉄線(フェライト単相、外径 $300 \mu\text{m}$) の結晶粒 2 次元マップ (b). (b) において丸の中心は各結晶粒の重心位置、色は結晶方位 (z 方向の逆極点図表示)、直径は粒の大きさの目安を表す。

を走査することによって、より小さな粒径またはより大きな試料外寸が取り扱える方法を提案する。この方法の原理について説明すると、まず結晶粒径より小さいビーム径を有する入射ビームを試料中の ω 軸を通るように入射した場合を考える。ここで入射ビームと ω 軸が交差する点を0とする。検出器にはやはり複数の粒からの回折斑点が記録されることになる。この配置で ω を 180° 回転し3DXRD解析で得られる結晶粒のうち点0にある粒からの回折斑点の数が点0以外にある粒からのそれと比べて、単一結晶相で粒径が均一な場合最も多くなると仮定できる。したがって点0にある粒の結晶方位及び格子定数を求めることができる。空間分解能は入射ビーム径と回転ステージの芯振れ精度等により決まり、検出器の空間分解能や回折斑点のプロファイルには依存しない。

上では求める点を ω 軸上に限ったが、必ずしも ω 軸上である必要はない。 ω 軸に垂直な試料断面を考えたとき ω 軸上にはない試料中のある点をQとする。まず入射ビームが点Qを通るように配置し回折斑点を記録する。次に試料を ω 軸の周りに回転し入射ビームが点Qを通るように試料を ω 軸ごとX軸で並進させ回折斑点を記録する。ここでX軸はFig. 2(a)のように水平面内において入射ビームと ω 軸に直交するx方向に ω 軸を移動させる並進軸である。このように常に点Qにビームが入射するような ω , Xで3DXRD解析することにより点Qの結晶方位が求まる。実際には ω , Xの2軸スキャンを行い、次式

を満たすような ω , Xのデータセットで3DXRD解析することによりx, yにおける結晶方位が求まる。

$$X = (x^2 + y^2)^{1/2} \cos(\omega + \tan^{-1}y/x)$$

ここでx, yは試料に固定した直交座標系でその原点は ω 軸上にある。2次元集光ビームを使って試料を走査することからこの方法を走査型3DXRD法と呼んでいる。試料断面観察において3DXRD法では ω の1軸スキャンに対して走査型3DXRD法では ω , Xの2軸スキャンになるため測定時間は長くなるため時系列測定はできないが、本研究で目指している変形挙動解析においては本質的な欠点にはならないと考えられる。

この走査型3DXRD法の原理検証実験を(1)回転中心点0における結晶粒の特定、(2)回転中心にない点Qにおける結晶粒の特定及び結晶方位分布の2次元再構成、(3)結晶方位分布の3次元再構成の3ステップに分けて行う。さらに最初の応用として粗大粒化フェライト多結晶の(4)塑性変形その場観察を行いその有用性を実証する。

4. 研究成果

(1) 回転中心における結晶粒の特定
走査型3DXRD法の最初の原理検証実験とし

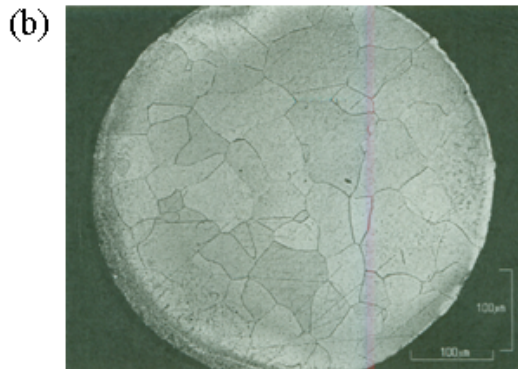
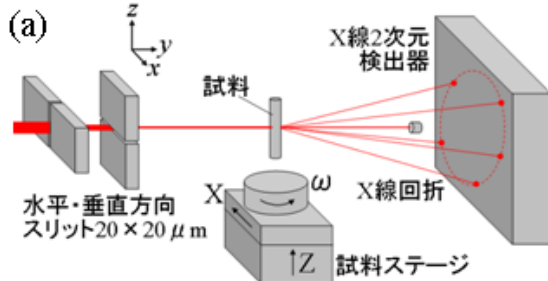


Fig. 2 走査型3DXRD法の実験配置(a)と原理検証実験に用いた粗大粒化純鉄線(フェライト単相、平均粒径 $60\mu\text{m}$ 、外径 $500\mu\text{m}$)の光学顕微鏡組織写真(b).

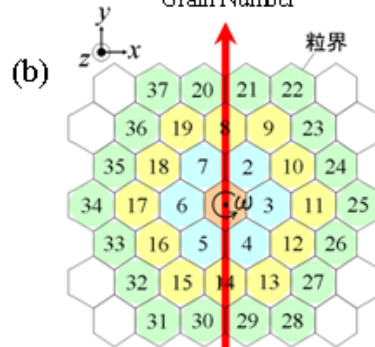
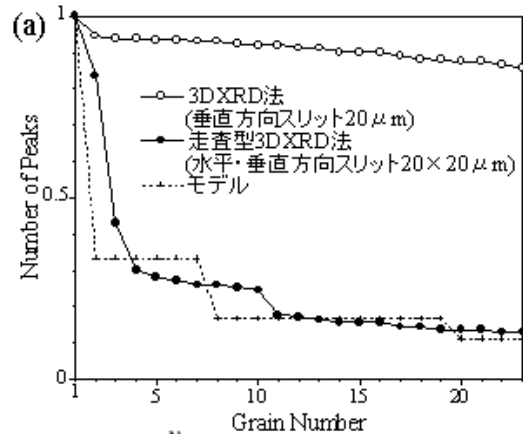


Fig. 3 3DXRD法及び入射ビームが試料回転軸上を貫くときの走査型3DXRD法において各粒に割り当てられた回折ピーク数のヒストグラム(a)と走査型3DXRD法を説明する単純化したモデル。(a)において横軸は各粒に付した番号で回折ピーク数が多かった順に粒番号1, 2, 3, ... とする。

て回転中心点0における結晶粒を特定する実験を行った。Fig. 2(a)のように2次元集光ビームの代わりに水平・垂直方向スリット $20 \times 20 \mu\text{m}$ を通してビームが ω 軸を通るように配置した。試料には純Fe(純度 99.5%)の線材(直径 $500 \mu\text{m}$)を真空炉で $1250^\circ\text{C} \cdot 5$ 時間焼鈍し、フェライト単相で平均粒径 $60 \mu\text{m}$ に粗大化した試料を用意した。光学顕微鏡による組織写真を Fig. 2(b)に示す。試料を線材長手方向が z 方向と平行になるように配置し、回折画像を ω 回転 0.4° ごとに 180° まで記録した。Fig. 1(b)と同様に ImageD11 [5] による 3DXRD 解析を行い各粒に割り当てられた回折ピーク数のヒストグラムを Fig. 3(a)に示す。横軸は各粒に付した番号でピーク数が多かった順に粒番号 1, 2, 3, ... としている。比較として垂直方向スリットのみを用いた Fig. 1(b)の結果も Fig. 3(a)に示す。水平・垂直スリットを用いた場合、ピーク数が最も多かった粒番号 1 のピーク数が突出して多いため点 0 を占める結晶粒は粒番号 1 の粒であると特定できる。

粒番号 2 以降について回折ピーク数のヒストグラムの妥当性を考察するためここでは最も単純化したモデルを考える。xy 平面において Fig. 3(b)のように同じ大きさの正六角形の2次元粒を隙間なく並べた粒界分布に対してある正六角形の中心に点 0 をとり、幅を無視したビームを点 0 を貫くように入射する。点 0 を中心として ω を 180° 回転させると入射ビームが全ての粒を横切ることになる。点 0 上の粒に対する最近接粒の数は 6 個であるため最近接粒をビームが横切る ω 回転角は点 0 上の粒に対して約 $1/6$ となる。回折ピーク数がその粒のビームが横切る ω 回転角に比例すると近似すると最近接粒の回折ピーク数 N_1 は $N_1/N_0 \sim 1/6$ となる。ここで N_0 は点 0 上の粒のピーク数である。同様に第 2 近接粒数は 12 個あるため第 2 近接粒の回折ピーク数は $N_2/N_0 \sim 1/12$ となる。このモデルによる各粒における回折ピーク数のヒストグラムを Fig. 3(a)に示す。この単純化したモデルでも粒番号 11 以降の実験結果を概ね再現できることが分かる。粒番号 2 から 10 の回折ピーク数が再現できないのは、実際には入射ビームの幅が無視できないこと、粒径が均でないこと、点 0 が粒の中心に位置しているとは限らないためである。

(2) 回転中心にない点における結晶粒の特定及び結晶方位分布の2次元再構成

次に回転中心にない点 Q における結晶粒を特定する実験を行った。 ω , X の 2 軸スキャンを行い、式(1)を満たすような ω , X のデータセットで回転軸上点 0(前節)と同様の解析を行うことにより点 Q(x, y)における粒を特定する。点 0 と同様の ω スキャンを X を並

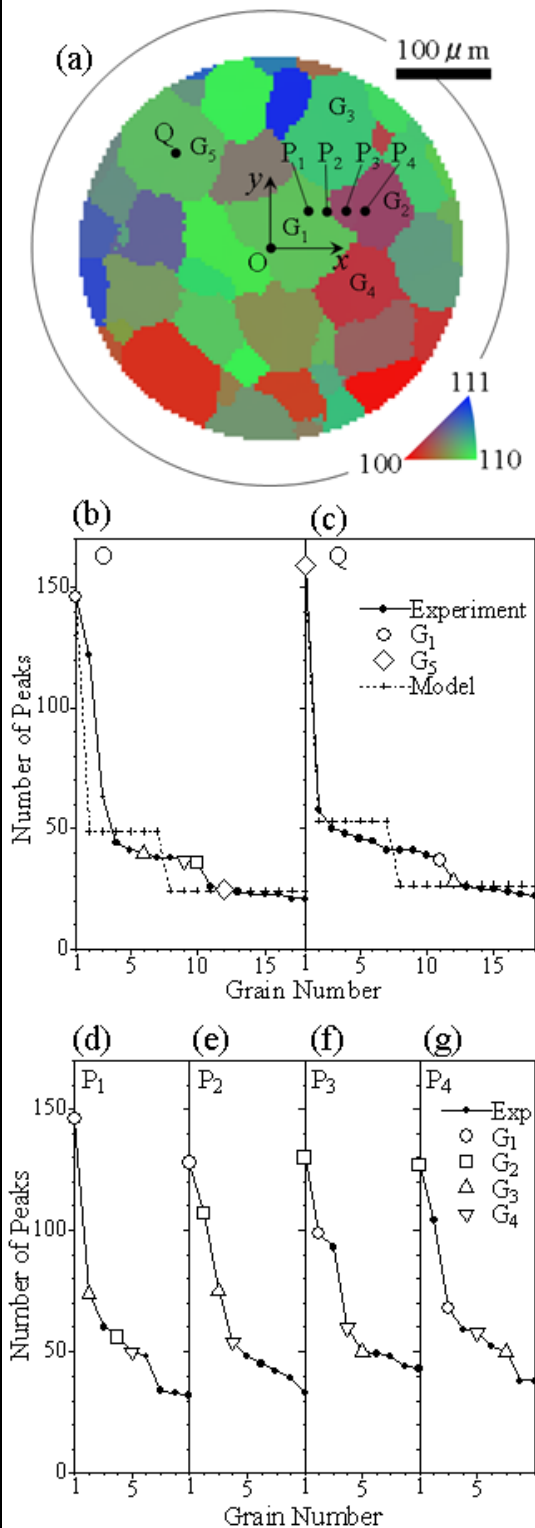


Fig. 4 走査型 3DXRD 法による結晶方位の 2 次元マッピング (a) と点 $0(x, y) = (0, 0)$ (b), 点 $Q(-100 \mu\text{m}, 100 \mu\text{m})$ (c), 点 $P_1(40 \mu\text{m}, 20 \mu\text{m})$ (d), 点 $P_2(60 \mu\text{m}, 20 \mu\text{m})$ (e), 点 $P_3(80 \mu\text{m}, 20 \mu\text{m})$ (f), 点 $P_4(100 \mu\text{m}, 20 \mu\text{m})$ (g) において各粒に割り当てられた回折ピーク数のヒストグラム。(a)において 1 ピクセルは $20^2 \mu\text{m}^2$, 結晶方位は z 方向の逆極点図表示, 実線の丸は試料外径 $500 \mu\text{m}$.

進させて複数回行った。X のスキャンピッチは水平方向スリットの開口と同じ $20\mu\text{m}$ 、スキャン範囲は $\pm 200\mu\text{m}$ とした。ここで入射ビームが点 0 を貫く X を $X=0$ としている。これにより Fig. 4(a) のように試料観察断面 $\phi 500\mu\text{m}$ に対して $\phi 400\mu\text{m}$ の観察視野が得られる。回転中心にない点 Q における解析の例として $(x, y) = (-100\mu\text{m}, 100\mu\text{m})$ において各粒に割り当てられた回折ピーク数のヒストグラムを回折ピーク数が多い順に並べた結果を Fig. 4(c) に示す。Fig. 4(b) に示した ω 軸上の点 0(0, 0) の結果 (Fig. 3(a) と同じデータ) と比較して点 Q $(-100\mu\text{m}, 100\mu\text{m})$ でも同様に粒番号 1 の回折ピーク数が突出して多いことが分かる。したがって ω 回転中心軸にない点においても結晶粒の特定が可能である。

観察視野 $\phi 400\mu\text{m}$ 全体にわたって X スキャンピッチと同じ $20\mu\text{m}$ のピッチで解析を行い、各点を占める結晶粒を特定し、結晶方位の 2 次元分布を再構成した結果を Fig. 4(a) に示す。結晶粒内で隣り合った点において結晶方位の連続性が見られ、粒径が Fig. 2(b) と同程度であるため 2 次元再構成が成功していると言える。2 次元再構成の結果より点 0(0, 0) は粒界、点 Q $(-100\mu\text{m}, 100\mu\text{m})$ は粒中心に近いことが分かる。点 0(0, 0) 及び点 Q $(-100\mu\text{m}, 100\mu\text{m})$ における回折ピーク数のヒストグラムと Fig. 3(b) のモデルによるヒストグラムを比較した結果をそれぞれ Fig. 4(b) 及び (c) に示す。最隣接粒の中で最も回折ピーク数が多い粒番号 2 の回折ピーク数が点 0(0, 0) では実験の方がモデルより十分多く、点 Q $(-100\mu\text{m}, 100\mu\text{m})$ では実験とモデルが同程度となっていることが分かる。モデルでは回転中心が粒中心にあると仮定しているため、粒界の近くにある点 0(0, 0) よりも粒中心近くにある点 Q $(-100\mu\text{m}, 100\mu\text{m})$ の方がモデルにより再現できていると説明できる。

ここで粒界付近の状況について少し詳しく見てみる。例えば Fig. 4(a) に示した粒 G_1 と G_2 の粒界付近をピックアップして $P_1(40\mu\text{m}, 40\mu\text{m})$, $P_2(60\mu\text{m}, 40\mu\text{m})$, $P_3(80\mu\text{m}, 40\mu\text{m})$, $P_4(100\mu\text{m}, 40\mu\text{m})$ において各粒に割り当てられた回折ピーク数のヒストグラムをそれぞれ Fig. 4(d)-(g) に示す。Fig. 4(d)-(g) では粒 G_1 , G_2 が識別できるように特定のプロットで示している。点 P_1 , P_2 は粒 G_1 、点 P_3 , P_4 は粒 G_2 に属している。点 P_1 , P_2 における粒 G_2 の回折ピーク数に注目すると粒界から離れる点 $P_2 \rightarrow P_1$ の順に粒 G_2 のピーク数が減少している。一方、点 P_3 , P_4 における点 G_1 の回折ピーク数に注目すると粒界から離れる点 $P_3 \rightarrow P_4$ の順に粒 G_1 のピーク数が減少している。粒界から粒中心方向へ離れるにしたがって隣接粒の回折ピーク数が減少するのは、粒界から離れるにしたがって ω を 180° 回転させる間に入射ビームが隣

接粒を貫く ω 回転角が減少するためである。このようにその点を占める結晶粒の回折ピーク数だけでなく隣接粒の回折ピーク数ももっともらしい結果が得られた。

(3) 結晶方位分布の 3 次元再構成

3 次元再構成は 2 次元マップを z 方向に重ね合わせることで行う。測定は ω スキャンを Fig. 4(a) と同じとし、X スキャンピッチ及び範囲を $25\mu\text{m}$ 及び $\pm 100\mu\text{m}$ 、Z スキャンピッチ及び範囲を $25\mu\text{m}$ 及び $\pm 75\mu\text{m}$ とした。X スキャンピッチと同じ $25\mu\text{m}$ で再構成した 2 次元マップを Z スキャンピッチと同じ $25\mu\text{m}$ ピッチで積み重ねて 3 次元再構成を行った。結晶方位分布の 3 次元再構成結果を Fig. 5(a) に示す。粒内において 3 次元的に結晶方位の連続性が見られることから 3 次元再構成が成功していると言える。

(4) 塑性変形その場観察

走査型 3DXRD 法の主要な応用である変形挙動解析に向けた塑性変形その場観察実験を行った。走査型 3DXRD 専用その場観察引張試験機を製作し、同様の試料を試験機にセットし試験機ごと ω 回転ステージで回転させた。単軸引張方向は z 軸に平行である。塑性変形前 (引張歪 0.2%) 及び単軸引張塑性変形後 (引張歪 4.0%) 荷重負荷下における結晶方位 3 次元マッピングをそれぞれ Fig. 5(a) 及び (b) に

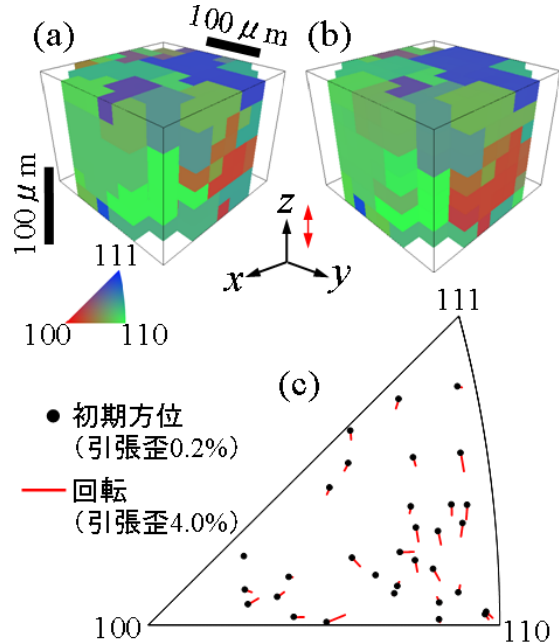


Fig. 5 走査型 3DXRD 法による塑性変形前 (引張歪 0.2%) (a) 及び引張塑性変形後 (引張歪 4.0%) (b) の結晶方位 3 次元マッピングと各粒の結晶方位変化 (c). 引張方向は z 軸に平行. (a), (b) において 1 ボクセルは $25^3\mu\text{m}^3$. (a) - (c) において結晶方位は単軸引張方向の逆極点図表示.

示す。結晶方位3次元マッピングより位置・大きさ・方位から塑性変形前後で同一の粒と特定できた粒の結晶方位変化を Fig. 5(c)に示す。BCC 多結晶の単軸引張変形に伴う集合組織の優先方位[110]方向に概ね変化している様子が分かる。多結晶試料内部における各結晶粒のすべり変形が非破壊観察できることが実証できたと言える。

次に、格子定数より弾性歪の解析を行った。格子定数の中から3つの軸長を用いて体積歪を、3つの軸角よりせん断歪を評価した。せん断歪の評価には3つの軸角変化率の絶対値の平均値を用いた。塑性変形前(引張歪 0.2%)及び塑性変形後(引張歪 4.0%)における体積歪の3次元マッピングをそれぞれFig. 6(b-1)及び(b-2)に示す。同様に塑性変形前後のせん断歪をそれぞれ Fig. 6(c-1)及び(c-2)に示す。特にせん断歪についてFig. 6の歪スケールで見ると塑性変形前にはほとんど見られなかったせん断歪(Fig. 6(c-1))が塑性変形後に観察されていることが分かる(Fig. 6(c-2))。塑性変形前において体積歪が確認できる(Fig. 6(b-1))の、試料の線材が必ずしも真っ直ぐなものが用意できなかった上(無歪時に線材が曲がった状態)、試料の引張試験機へのセットアップの都合上、塑

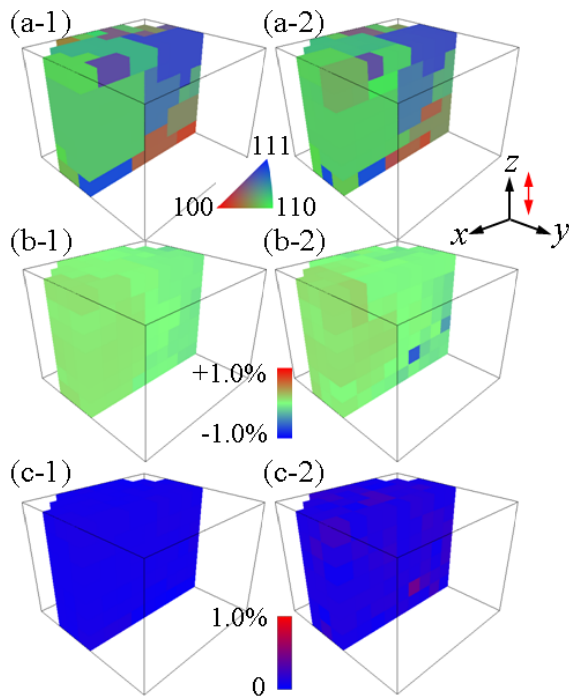


Fig. 6 塑性変形前(引張歪 0.2%) (a-1) 及び塑性変形後(引張歪 4.0%) (a-2)における結晶方位(a), 体積歪(b), せん断歪(c)の3次元マッピング. 1ボクセルは $25^3 \mu\text{m}^3$. 結晶方位は単軸引張方向の逆極点図表示. 体積歪は(b-1)における視野平均をゼロとした. せん断歪は3方向のせん断歪の絶対値の平均を表示している.

性変形前の観察において 0.2%の引張歪を負荷する必要があったため曲げ変形が加わってしまっていると思われる。次にFig. 6(b-2)及び(c-2)で共に大きな歪が確認できる1ボクセルについてその位置に注目してみるとFig. 6(a-2)の結晶方位分布より粒界三重点付近であろうことが分かる。歪観察の妥当性については今後結晶塑性有限要素法等による検証が必要であるが、上記の定性的な考察から変形による弾性歪が捉えられていると考えられる。

[1] H.F. Poulsen "Three-Dimensional X-Ray Diffraction Microscopy" Springer (2004).

[2] J. Oddershede et. al., J. Appl. Cryst. 43, 539-549 (2010).

[3] J. Oddershede et. al., Proceedings of the 31st Riso International Symposium on Materials Science, 369-374 (2010).

[4] S.E. Offerman et al., Acta Mater. 52, 4757 (2004).

[5] <http://sourceforge.net/apps/trac/fable/wiki/imagel1>

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1件)

① 林雄二郎, 広瀬美治, "3DXRD 顕微鏡法による自動車用金属薄板材料の塑性変形その場観察手法の開発", 第1回豊田ビームライン研究発表会プロシーディングス, 査読無, 2011, 20-25

〔学会発表〕(計4件)

① 林雄二郎, 瀬戸山大吾, 広瀬美治, "走査型3DXRD 顕微鏡法の開発と塑性変形その場観察", 第26回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, 2013年1月, 名古屋.

② 林雄二郎, 広瀬美治, "走査型3DXRD 顕微鏡法の開発", 日本金属学会 2012年度秋期(第151回)講演大会, 2012年9月, 松山.

③ 林雄二郎, 広瀬美治, "豊田ビームラインにおける3DXRD 顕微鏡法の開発", 第25回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, 2012年1月, 鳥栖.

④ 林雄二郎, 広瀬美治, "BL33XU 豊田ビームラインにおける3DXRD 顕微鏡法による金属材料塑性変形その場観察手法の開発", 第24回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, 2011年1月, つくば.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

林 雄二郎 (HAYASHI YUJIRO)

株式会社豊田中央研究所

分析研究部 ナノ解析研究室・研究員

研究者番号: 30435953