

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 22 日現在

機関番号：93901

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2014～2016

課題番号：26870932

研究課題名(和文) マイクロビーム走査型3DXRD顕微鏡法の開発と鉄鋼材料への展開

研究課題名(英文) Development of scanning three-dimensional x-ray diffraction microscopy using a microbeam and its application to steel

研究代表者

林 雄二郎 (Hayashi, Yujiro)

株式会社豊田中央研究所・分析部 量子ビーム解析研究室・研究員

研究者番号：30435953

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：3次元X線回折(3DXRD)顕微鏡法は高エネルギー放射光X線を用いて多結晶金属材料内部の3次元結晶方位マッピングを非破壊で行うことを可能にした新しい方法である。3DXRD法を実用鉄鋼材料に応用するには、(a)大量の結晶粒を含有する試料を取り扱うことができるようにすること、(b)複合組織鋼において母相(フェライト)とその他の組織(パーライトやマルテンサイト等)を分離できるようにすることが課題である。本研究では、放射光マイクロビームを用いた新しい実験方法及び再構成方法によりこれらの課題を解決する方法を提案する。炭素鋼及び二相鋼を用いた検証実験の結果、本方法の妥当性が確認された。

研究成果の概要(英文)：Three-dimensional x-ray diffraction microscopy (3DXRD) has enabled non-destructive three-dimensional mapping of orientations in a polycrystalline alloy. From practical interests, we have tried to apply 3DXRD to practical engineering materials such as steel. Such materials tend to give rise to the massive overlaps of diffraction spots due to a large number of grains or mosaic spreads, which prevent us from reconstructing orientation maps. In addition, the reconstruction of composite microstructures of steel has not been achieved using 3DXRD-based methods. In this study, as a solution of the problems, we propose a scanning type approach termed scanning 3DXRD using an x-ray microbeam. In the scanning 3DXRD method, the microstructures of ferrite-pearlite or ferrite-martensite steel are reconstructed by determining the ferrite microstructure. The validation of the approach has been demonstrated using ferrite-pearlite and ferrite-martensite steel specimens.

研究分野：X線回折

キーワード：X線回折 3次元 3DXRD 走査型 マイクロビーム 非破壊 結晶方位 鉄鋼材料

### 1. 研究開始当初の背景

金属材料の研究は、機械特性の定性的な理解から定量予測へと大きくシフトしようとしている。例えば降伏強度や成形性を定量予測しようという試みがなされており、実現すればモノづくりの高度化に非常に大きく貢献すると期待される。自動車工業においては金属材料の塑性加工が多用されているが、高ひずみ領域における塑性加工 CAE (Computer Aided Engineering) の予測精度が不十分なため試作が避けられない。自動車工業においてコスト削減は最重要課題の 1 つであり、試作は CAE の精度向上により克服すべきコストである。鉄鋼材料を始めとする実際の金属材料の塑性変形の数理モデリングは容易ではないが、計算科学の発達に伴って金属塑性の分野においても複雑なシミュレーションが可能になると予想される。問題は、モデルに基づく塑性シミュレーションが実際の材料の挙動と一致しているかどうか確かめる実験手法が確立されていない点である。近年、高エネルギー放射光 X 線を使って多結晶金属材料内部の結晶方位とひずみを 3 次元非破壊観察する新しい顕微鏡法 Three-dimensional x-ray diffraction microscopy (3DXRD) が研究・開発され、多結晶金属塑性モデルの詳細な検証が可能になると期待されている。

3DXRD 法は言わば多結晶の回転結晶法である。多結晶試料に単色 X 線を入射し、試料を回転させながら、試料透過方向に配置した 2 次元検出器により複数の結晶粒からの X 線回折斑点を記録する。回折斑点の位置を基に各結晶粒の結晶方位やひずみを解析するため、異なる結晶粒からの回折斑点がオーバーラップしないような実験条件を満たさなければならない。そのため、熱処理により結晶粒径を粗大粒 (100  $\mu\text{m}$  程度) 化した試料を使って断層面内の結晶粒数を減らした実験がよく報告されている。実際の鉄鋼材料によく見られる粒径 (10  $\mu\text{m}$  程度) では、1  $\times$  1mm<sup>2</sup> 微小引張試験片断層面内における結晶粒数が多すぎるため、回折斑点がオーバーラップし解析不能となる。しかしながら、実験手法の制約により実際の材料とは大きく異なる試料をモデリングすることは、実用金属材料の塑性加工 CAE 高精度化を目指す筆者らのような研究にとっては本末転倒である。この問題を克服するために筆者らは、細い入射光束を使って一度に X 線が入射する結晶粒数を減らすことによって、回折斑点のオーバーラップを抑える走査型 3DXRD 法を提案した。この手法を実証するため JSPS 科研費 JP22760571 の助成を得て、ビームサイズ 20  $\times$  20  $\mu\text{m}$  の放射光 X 線ビーム及び粗大粒化純 Fe 試料 (粒径 60  $\mu\text{m}$ ) を用いた初めての実験を行い、走査型 3DXRD 法の妥当性を確認した。しかし、実用鉄鋼材料に適用できるような実用化には至らなかった。

### 2. 研究の目的

本研究では、粒径 10  $\mu\text{m}$ ・試料断面積 1  $\times$  1mm<sup>2</sup> をもつ実用鉄鋼材料試料内部の非破壊 3 次元結晶方位マッピングの実現を目指して、大強度高エネルギー放射光 X 線マイクロビーム光学系を用いた走査型 3DXRD 実験系の構築を行う。これを、強度と塑性加工性のバランスに優れた複合組織を有するフェライト・パーライト炭素鋼及びフェライト・マルテンサイト二相鋼に適用する。

### 3. 研究の方法

走査型 3DXRD 法では細い X 線ビームを多結晶試料に入射し、図 1 に示すような回転により試料を回転しながら、2 次元検出器により X 線回折画像を連続的に記録する。を 180° 回転したら x 方向に X だけ並進させる。これを繰り返し、及び x により試料を 2 次元スキャンした回折画像データを得る。2 次元スキャンデータから入射ビームが試料中の任意の点 Q(x, y) を常に通るような ( , x) の関係を満たす回折画像データを抽出する。この条件を満たすとき、簡単のため x 方向の入射ビーム幅を X とすると、180° 回転の間、点 Q を中心とした直径 2 X の領域に入射ビームが概ね集中する。したがって、抽出した回折画像の中には、点 Q 及びその周り直径 2 X の空間を占める結晶粒の回折斑点がより多く記録されている。ある結晶粒から検出される回折斑点数 N は、結晶構造及び格子パラメータが既知として、3DXRD 法の研究者により構築された"多結晶指数付け"により決定することができる。走査型 3DXRD 法では、この N を用いて各結晶粒が点 Q (及びその周り直径 2 X の空間) を占める存在確率を計算し、存在確率が最も大きい結晶粒を点 Q を占める結晶粒であると仮定する。多結晶指数付けにより同時に各結晶粒の結晶方位も求まる。したがって、点 Q の結晶方位が求まる。点 Q を視野全体にわたって掃引することにより 2 次元結晶方位マップが得られる。この 2 次元マップを z 方向に積み重ねることにより 3 次元結晶方位マップが得られる。

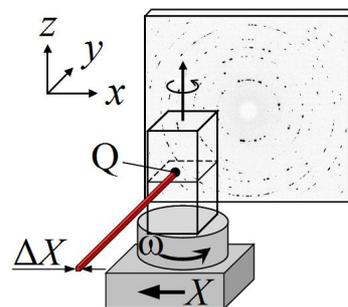


図 1 走査型 3DXRD 法のセットアップ

複合組織鋼への適用にあたって問題は、点 Q に結晶粒が存在しない場合に、それを正し

く評価できるようにすることである。フェライト単相材であれば、介在物や大きなポイド等が存在する場合を除いて点 Q (及びその周り直径  $2 \times X$  の空間) には必ずあるフェライト結晶粒が存在すると仮定することができる。したがって、点 Q において存在確率が最も大きいフェライト粒が点 Q を占めるフェライト粒であると判断できる。しかし、本手法ではパーライトを再構成することができないため、フェライト・パーライト炭素鋼においてフェライト粒が存在しない領域をパーライトとみなす方法が考えられる。フェライト・マルテンサイト二相鋼においても同様である。したがって、フェライト粒が存在しないことを正しく評価することが重要となる。

走査型 3DXRD 法において、フェライト粒が存在しないことを正しく評価するということは、フェライト粒の存在確率の閾値を正しく求めることに相当する。ある結晶粒の存在確率は、粒中央部から粒界に向かうにしたがって減少する。これは実験条件が理想的ではないことに起因する。また、粒の外側にもその粒の存在確率が存在する。これは  $y$  方向に侵入する入射ビームによって  $xy$  平面の 2次元結晶方位マップを再構成するために生じる原理的なものである。粒内部から粒外側に向かうにしたがって、その粒の存在確率は基本的には単調減少を示すが、粒界で連続的であり、その値が実験条件や粒径に依存する。したがって、その結晶粒の存在の有無を決定するための存在確率の閾値は必ずしも自明ではない。

そこで本研究では、フェライト単相材を使ってフェライト粒の存在確率閾値を求め、それをフェライト・パーライト材に適用する。フェライト単相材では、あるフェライト粒の隣は必ずフェライト粒であると仮定できる。また上述のように、あるフェライト粒の存在確率は粒中央部から粒外側に向かって単調減少する。したがって、フェライト単相試料において存在確率閾値を最大値から下げていき、視野全体にわたってフェライト・フェライト粒界が形成される最大の閾値をフェライト粒の存在確率閾値と定義する。その閾値をフェライト・パーライト材試料に適用し、閾値を下回った領域がフェライト粒が存在しない、つまりパーライトであると定義する。また同様に、フェライト・マルテンサイト材において閾値を下回った領域がマルテンサイトであると定義する。

この方法の妥当性を次の手順により検証する。

(1) 断面積  $1 \times 1 \text{mm}^2$  の鉄鋼材料試料中における粒径  $10 \mu\text{m}$  のフェライト結晶粒を検出するため X 線光子エネルギー  $50 \text{keV}$  大強度放射光 X 線マイクロビーム光学系の構築を行い、2次元結晶方位マッピング実現のため試料走査と同期して露光時間数十 ms で X 線回折画像データを連続的に収録する走査型 3DXRD

測定系を構築する。

(2) フェライト単相試料を用いてフェライト粒の存在確率閾値を決定する。フェライト単相試料の 2次元結晶方位マップにおいて視野全体にわたってフェライトで再構成されることを確認する。フェライト単相試料には冷間圧延鋼板材 SPCC (JIS G 3141) から切り出した断面積  $1 \times 1 \text{mm}^2$  の角棒状試料を用いる。

(3) フェライト単相試料で決定したフェライト粒の存在確率閾値を用いて、フェライト・パーライト材試料の 2次元結晶方位マッピングを行い、フェライト粒が存在しない領域が現れることを実証する。フェライト・パーライト試料には機械構造用炭素鋼鋼材 S35C 及び S45C (JIS G 4051) から切り出した断面積  $1 \times 1 \text{mm}^2$  の角棒状試料を用いる。S35C よりパーライト分率の大きい S45C において、フェライト粒が存在しない領域が増えることを確認する。

(4) フェライト単相試料で決定したフェライト粒の存在確率閾値を用いて、フェライト・マルテンサイト材試料の 2次元結晶方位マッピングを行い、フェライト粒が存在しない領域が現れることを実証する。フェライト・マルテンサイト試料には 780MPa 級二相 (DP) 鋼から切り出した断面積  $1 \times 1 \text{mm}^2$  の角棒状試料を用いる。

#### 4. 研究成果

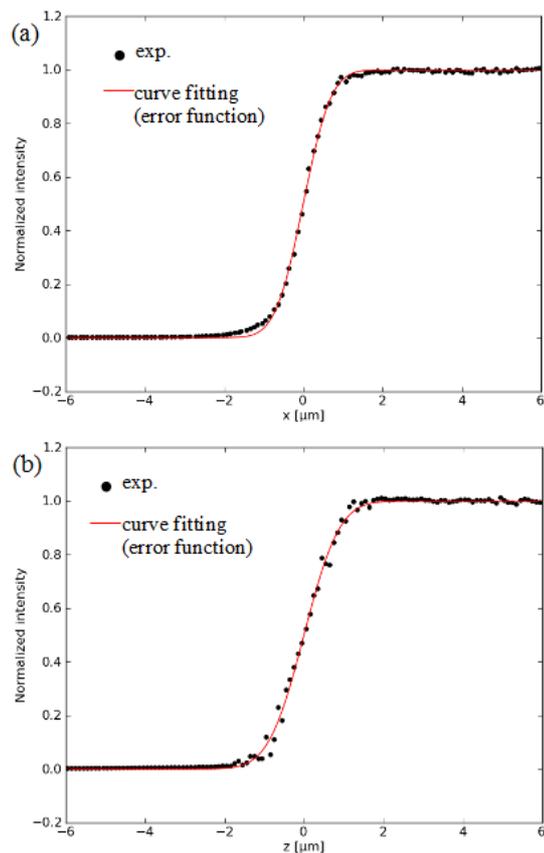


図 2 集光ビームの(a)x 方向及び(b)z 方向におけるエッジスキャンプロファイル

(1) SPring-8 BL33XU においてアンジュレータ放射光を Si311 二結晶分光器により 50keV に単色化し、仮想光源スリット及び K-B ミラーを用いて集光する放射光 X 線マイクロビーム光学系を構築した。集光位置におけるエッジスキャンプロファイルを図 2 に示す。図 2 に赤曲線で示す誤差関数でフィッティングした結果、ビームの半値全幅は  $x$  方向で  $1.6 \mu\text{m}$ 、 $z$  方向で  $1.3 \mu\text{m}$  であった。X 線光子フラックスは  $5.9 \times 10^9 \text{ photons/s}$  であった。

マイクロビームを試料に入射し、透過 X 線回折画像を試料ステージと同期させて連続的に収録する測定系を構築した。試料をエンドレスで定速回転させながら、 $=0^\circ$  でトリガ信号を検出器に入力し、PC のメモリの専用確保領域 (フレームバッファメモリ) に連続回折画像データの取り込みを開始する。

$=180^\circ$  になったら画像取り込みを終了し、データをユーザーメモリ領域に転送する。転送されたら画像のバックグラウンド処理や 16bit/8bit 変換等のデータ処理を施しデータを PC のディスクに保存する。また、 $=180^\circ$  になったら試料を  $x$  方向に 1 ステップだけ並進移動する。 $=360^\circ$  までにこれらを完了させ、 $=360^\circ$  でトリガ信号を検出器に入力する。これを周期約 24 秒で繰り返し行うことで、約 2 時間で  $x$  の 2 次元スキャンデータを得る。

(2) SPCC 試料の 2 次元結晶方位マップを図 3 に示す。色を付けたピクセルがフェライト粒の存在確率閾値を上回ったピクセルで、色を付けていない白色のピクセルがフェライト粒の存在確率閾値を下回ったピクセルである。色は逆極点図方式によるフェライトの結晶方位を表している。同じ色で囲まれた領域が 1 つのフェライト粒であり、平均粒径は  $20 \mu\text{m}$  弱であった。これは電子線後方散乱回折法による粒径評価と概ね一致した。

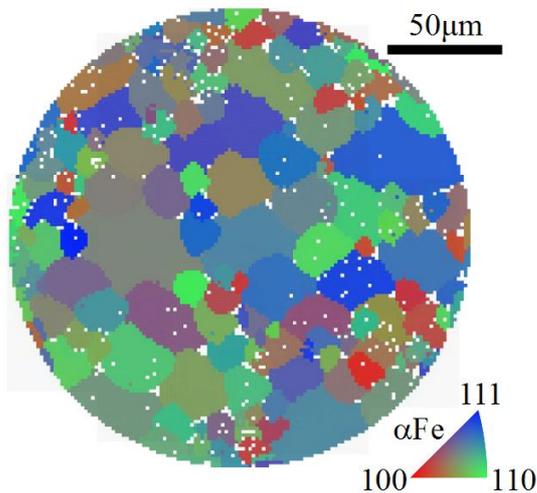


図 3 冷間圧延鋼板 SPCC の結晶方位マップ

図 3 においてフェライト粒の存在確率閾値を下回った白色のピクセルが主に粒界近傍に見られるのは、粒中央部から粒外に向かってその粒の存在確率が減少し、存在確率閾値をフェライト・フェライト粒界が概ね形成される最大の閾値に設定したためである。粒の内部にもフェライト粒の存在確率閾値を下回った白色のピクセルが孤立して見られるが、これは粒内部において存在確率にばらつきがあるためである。このばらつきは実験誤差であると考えられるが、詳細な原因は分かっていない。いずれにしても、フェライト単相試料においてフェライト粒の存在確率閾値を下回ったピクセルは点在しており、フェライト粒径と同程度の面積をもった領域がまとめて存在確率閾値を下回ったことはなかった。

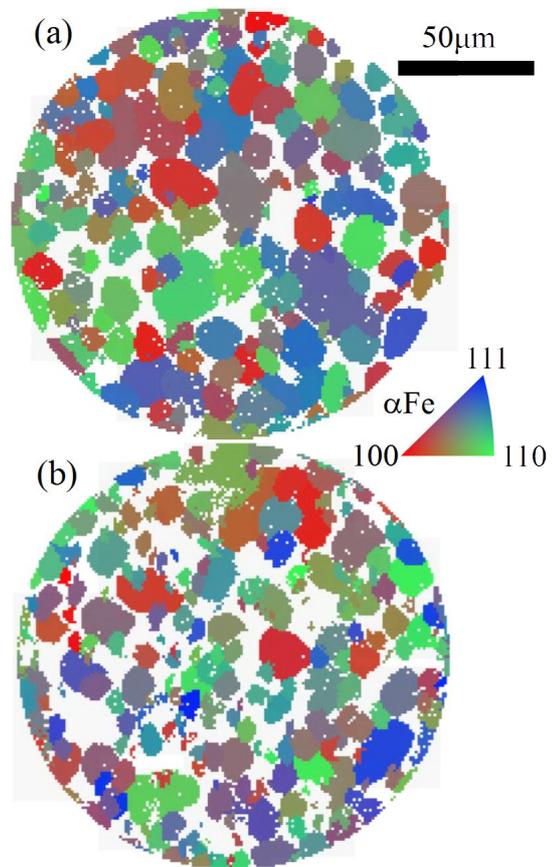


図 4 (a)フェライト・パーライト炭素鋼 S35C 及び(b)S45C の結晶方位マップ

(3) フェライト単相試料で決定したフェライト存在確率閾値を用いて、S35C 及び S45C 試料の 2 次元結晶方位マッピングを行った結果をそれぞれ図 4(a)及び(b)に示す。色が付いた領域がフェライト存在確率閾値を上回った領域で、色が付いていない白色の領域がフェライト存在確率閾値を下回った領域である。フェライト粒径と同程度の面積をもった領域がまとめてフェライト存在確率閾値

を下回っている様子が分かる。これは明らかにフェライト単相試料では見られなかった特徴であり、この領域がパーライトであると推定される。S45CはS35Cと比べてパーライト分率が大きい材料である。S45C(図4(b))はS35C(図4(a))と比べてフェライト存在確率閾値を下回っている面積が明らかに大きくなっている。これは、フェライト存在確率閾値を下回っている領域がパーライトと考えて矛盾しない結果である。

(4) 780MPa級DP鋼試料の回折パターンは、斑点状とデバイ・シェラー・リングが重なったものであった。斑点状がフェライト粒由来でデバイ・シェラー・リングがマルテンサイト由来であると考えられる。この回折画像から回折斑点位置のみを抽出し解析を行った。フェライト単相試料で決定したフェライト存在確率閾値を用いて、780MPa級DP鋼試料の2次元結晶方位マッピングを行った結果を図5に示す。(3)と同様に、フェライト粒径と同程度の面積をもった領域がフェライト存在確率閾値を下回っている様子が分かる。この白色で示した領域がマルテンサイトであると推定できる。

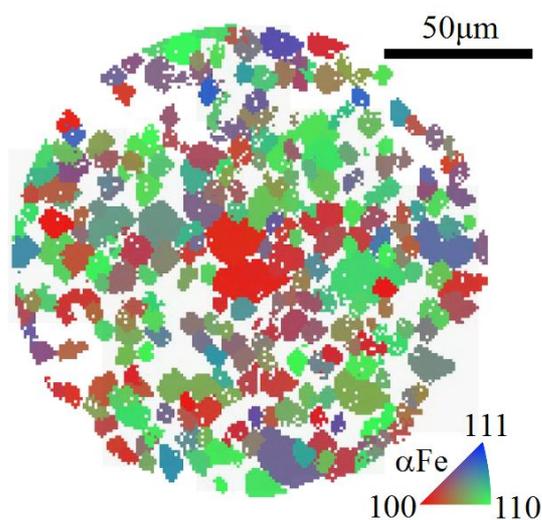


図5 780MPa級フェライト・マルテンサイト二相鋼の結晶方位マップ

本研究では、高エネルギー放射光X線マイクロビームを用いた走査型3DXRD測定系を構築し、粒径20μm程度・試料断面積1×1mm<sup>2</sup>の冷間圧延鋼板内部の非破壊2次元結晶方位マッピングに世界で初めて成功した。フェライト単相試料によりフェライト結晶粒の存在確率閾値を求めて、それを使ってフェライト・パーライト炭素鋼及びフェライト・マルテンサイト二相鋼中のフェライト粒の方位マッピングを行った。その結果、フェライト粒の存在確率閾値を下回る領域が現れた。これはフェライト単相試料には見られ

なかった特徴である。これにより、フェライト粒の存在確率閾値を下回った領域がパーライトまたはマルテンサイトであるとする方法が概ね妥当であることが確認された。

このように参照試料(フェライト単相試料)を使って再構成パラメータ(フェライト粒の存在確率閾値)を決定することで、フェライトとパーライトまたはマルテンサイトを分離できる可能性があることが定性的に示された。パーライトまたはマルテンサイトの分率の再現性を定量的に評価することは今後の課題であるが、この方法では定量性及びロバスト性が不十分であると予想される。参照試料を使わずに、試料の実験データのみから再構成パラメータを決定する方法を開発することが今後の最大の課題の1つである。また本研究ではフェライトの存在確率分布が正しいと仮定してフェライトとパーライトまたはマルテンサイトの分離の問題に取り組んだが、実際はフェライトの存在確率分布の再構成方法も発展途上にある。つまり、フェライト単相試料であっても正確には粒径や粒形状を再現できていない。したがって、フェライトの存在確率の信頼性を向上させることが大きな課題である。今後は、フェライトの存在確率とその閾値について、参照試料を使わずに定量性・信頼性を向上させる方法の開発に取り組み、複合組織鋼の非破壊組織観察を目指す。

#### <引用文献>

H. F. Poulsen, An introduction to three-dimensional x-ray diffraction microscopy, *Journal of Applied Crystallography*, Vol. 45, 2012, pp.1084 - 1097

S. F. Li et al., Three-dimensional plastic response in polycrystalline copper via near-field high-energy x-ray diffraction microscopy, *Journal of Applied Crystallography*, Vol. 45, 2012, pp.1098 - 1108

G. Winther et al., Grain interaction mechanisms leading to intragranular orientation spread in tensile deformed bulk grains of interstitial-free steel, *International Journal of Plasticity*, Vol.88, 2017, pp.108 - 125

T. J. Turner et al., Crystal plasticity model validation using combined high-energy diffraction microscopy data for a Ti-7Al specimen, *Metallurgical and Materials Transactions A*, Vol.48A, 2017, pp.627 - 647

E. M. Lauridsen et al., Tracking: a method

for structural characterization of grains in powders or polycrystals, Journal of Applied Crystallography, Vol.34, 2001, 744 - 750

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計6件)

Y. Hayashi, D. Setoyama, Y. Seno, Scanning three-dimensional x-ray diffraction microscopy with a high-energy microbeam at SPring-8, Materials Science Forum, 査読有, 印刷中

林 雄二郎, 広瀬 美治, 妹尾 与志木, 吉田 友幸, 走査型 3DXRD 顕微鏡法の開発, SPring-8/SACLA 利用者情報, 査読無, Vol.22, No.1, 2017, pp.8 - 13, <https://user.spring8.or.jp/sp8info/?p=34503>

Y. Hayashi, Y. Hirose, Y. Seno, Scanning three-dimensional x-ray diffraction microscopy using a high-energy microbeam, AIP Conference Proceedings, 査読有, Vol. 1741, 2016, pp.050024, DOI: 10.1063/1.4952944

Y. Hayashi, Y. Hirose, Y. Seno, Polycrystal orientation mapping using scanning three-dimensional x-ray diffraction microscopy, Journal of Applied Crystallography, 査読有, Vol.48, 2015, pp.1094 - 1101, DOI:10.1107/S1600576715009899

Y. Hayashi, Y. Seno, D. Setoyama, Scanning three-dimensional x-ray diffraction microscopy for non-destructive observation of plastic deformation in metallic materials, SPring-8/SACLA Research Frontiers 2015, 査読無, 2015, pp.114 - 115, [http://www.spring8.or.jp/pdf/en/res\\_fro/15/114\\_115.pdf](http://www.spring8.or.jp/pdf/en/res_fro/15/114_115.pdf)

〔学会発表〕(計11件)

林 雄二郎, 走査型 3DXRD 法による実用鋼板中の 3 次元非破壊結晶方位マッピング, 第 30 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, 2017 年 1 月 7 日~9 日, 神戸芸術センター(兵庫県・神戸市)

林 雄二郎, 走査型 3DXRD 顕微鏡法とデータ解析, 第 8 回 SPring-8 先端利用技術ワークショップ, 2017 年 1 月 7 日, 神戸芸術センター(兵庫県・神戸市)

林 雄二郎, 走査型 3DXRD 顕微鏡法による冷間圧延鋼板内部の結晶方位 3 次元マッピング, 日本金属学会 2016 年秋季講演大会, 2016 年 9 月 21 日~23 日, 大阪大学(大阪府・豊中市)

林 雄二郎, 走査型 3DXRD 顕微鏡法の開発, SPring-8 シンポジウム 2016, 2016 年 8 月 29 日~30 日, 関西学院大学(兵庫県・三田市)

Y. Hayashi, Scanning 3DXRD technique using a microbeam for in-situ orientation and stress mapping, The 3rd International Congress on 3D Materials Science (3DMS) 2016, 2016 年 7 月 10 日~13 日, Illinois (USA)

林 雄二郎, 走査型 3DXRD 顕微鏡法による冷間圧延鋼板中の第 2 種残留応力測定, 第 29 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, 2016 年 1 月 9 日~11 日, 東京大学柏の葉キャンパス駅前サテライト(千葉県・柏市)

Y. Hayashi, Scanning three-dimensional x-ray diffraction microscopy with a high-energy microbeam at SPring-8, 8th International Conference on Mechanical Stress Evaluation by Neutrons & Synchrotron Radiation (MECASSENS2015), 2015 年 9 月 30 日~10 日 2 日, Grenoble (France)

林 雄二郎, 走査型 3 次元 X 線回折顕微鏡法の実用鋼板への適用, 日本金属学会 2015 年秋季講演大会, 2015 年 9 月 16 日~18 日, 九州大学(福岡県・福岡市)

Y. Hayashi, Scanning three-dimensional x-ray diffraction microscopy using a high-energy microbeam, 12th International Conference on Synchrotron Radiation SRI2015), 2015 年 7 月 6 日~10 日, New York City (USA)

林 雄二郎, 豊田ビームラインにおける高エネルギーマイクロビームを用いた走査型 3DXRD 顕微鏡装置の概要, 第 28 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, 2015 年 1 月 10 日~12 日, 立命館大学(滋賀県・草津市)

## 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・分析部・研究員  
研究者番号: 30435953