

令和元年6月17日現在

機関番号：10106

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2016～2018

課題番号：16K05961

研究課題名（和文）放射光白色X線による単結晶延性損傷評価法の開発

研究課題名（英文）Development of evaluation method for ductile damage in a single crystal using synchrotron white X-rays

研究代表者

柴野 純一（Shibano, Junichi）

北見工業大学・工学部・教授

研究者番号：60206141

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,500,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、放射光白色X線の透過回折X線を用いて、単結晶の転位セルサイズ、不均一ひずみ、転位密度を評価するプロファイル解析手法を提示した。引張り負荷により延性損傷を受けたアルミニウム単結晶を大型放射光施設Spring-8で測定した。さらに、その試験片のX線測定領域を透過型電子顕微鏡TEMで観察した。その結果を本手法による評価結果と比較した。その結果、本手法で得られた転位セルサイズはTEMによる観察結果よりも大きく評価されたが、転位密度はほぼ同様の値を示した。単結晶における延性損傷評価に対し、本手法が有用であることを確認した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

機械や構造物の破壊の原因となるき裂の発生・進展を非破壊で高精度に推定・評価する手法の開発が産業界から強く望まれている。本研究では、これまで検討してきた放射光白色X線によるプロファイル解析手法を基に、単結晶内部の特定された結晶方位から得られる単一の回折X線プロファイルから、延性損傷パラメータとして転位セルサイズ、不均一ひずみ、転位密度の情報を得るための手法を開発した。本手法は材料破壊の原因究明や材料工学研究においても有効な測定技術として活用できる。

研究成果の概要（英文）：In this study, we presented the profile analysis method to evaluate dislocation cell size, non-uniform strain and dislocation density in a single crystal by using a transmitted diffracted X-ray of synchrotron white X-rays. The aluminum single crystal which received ductile damage with tension load was measured at synchrotron radiation facilities Spring-8. The X-ray measurement area of the specimen was observed by transmission electron microscope TEM. The observations by TEM were compared with the estimate results by this method. As a result, although the dislocation cell size obtained by this method was evaluated more largely than the observations by TEM, the dislocation density indicated almost same value. It confirmed that this method is useful for the ductile damage evaluation in a single crystal.

研究分野：材料強度学

キーワード：延性損傷 単結晶 転位密度 プロファイル解析 装置関数 白色X線 放射光

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19（共通）

1. 研究開始当初の背景

延性材料では塑性変形時の局所的な結晶レベルの損傷（転位の蓄積、点欠陥の発生、マイクロクラックの発生）からマクロき裂が生じ進展することが知られている。き裂の急激な進展は材料の破壊をもたらすため、その発生・進展を非破壊で高精度に推定・評価する手法の開発が産業界から強く望まれている。多結晶材料内部のき裂先端は局所的には1つの結晶粒に達したのち、その結晶粒内部に進展するか結晶粒界を伝播するかは、き裂先端近傍の応力場と結晶方位との関係も決定要因の1つとなることが推測される。したがって、結晶方位とき裂進展の関係を明らかにすることが重要であり、そのためには単結晶レベルでの延性損傷進展に関する基礎的検証が必要となる。

一方、結晶性材料から得られるX線回折プロファイルの形状は結晶レベルの損傷状態を反映することが知られており、半価幅による評価が古くから行われている。研究代表者らは、シンクロトロン放射光から得られる高エネルギー白色X線(50keV~150keV)に着目して、高輝度、高指向性を活かした材料内部の微小領域ひずみ測定に関する研究を行ってきた。2005年からSPring-8において実験を開始し、2007年の実験で、厚さ5mmの高張力鋼内部のき裂先端の透過イメージングとひずみマッピングに成功した。その結果を受けて2009年には、平行部の直径が5mmの丸棒形引張試験片に引張荷重を負荷し、内部き裂のCT撮影と併せてき裂先端近傍のひずみマッピングを行った。これら一連の研究から、き裂の進展が結晶方位の影響を受けている可能性が実験的にも明らかとなった。

そこで、これを確認するために2012年から結晶方位が明らかな単結晶を用いた実験による検証を行った。その結果、特定方位が引張荷重方向を向いたアルミニウム単結晶の透過型回折X線プロファイルの半価幅の分布から、結晶方位と延性損傷の進展の関連について定性的ではあるが関連性を明らかにすることができた。その際、回折X線プロファイルに含まれる測定装置や測定方法に由来する装置関数の評価方法を提案したが、転位密度などの測定精度に影響を及ぼすため、その正確な評価が課題となっていた。

2. 研究の目的

これまで検討してきた放射光白色X線によるプロファイル解析手法を基に、単結晶内部の特定された結晶方位から得られる単一の回折X線プロファイルから、延性損傷パラメータとして転位セルサイズ、不均一ひずみ、転位密度の情報を得るための手法を開発する。その際、測定装置や測定方法に依存する装置関数が転位密度などの測定精度に影響を及ぼすため、その正確な評価方法を確立する。透過型電子顕微鏡TEMによる単結晶転位分布観察結果と本手法による評価結果の比較検討を行うとともに、アルミニウムなどの単結晶内部における延性損傷進展と結晶方位との関連を評価し、本手法の有用性を検証する。

3. 研究の方法

(1) 放射光白色X線を用いた単結晶延性損傷評価法の構築

①測定装置や測定方法に依存する装置関数の評価法の検討

回折X線プロファイルの広がりに影響する主な因子として、半導体検出器(SSD)とその電子回路系による広がり(装置関数)がある。この広がりについては、これまで放射性同位元素Co-57やAm-241を利用した評価を行っているが、利用エネルギー範囲である50keV~100keVにおけるデータ点が少ないため他の試料や方法も検討する。

②放射光白色X線の透過回折X線プロファイルから装置関数を分離する方法の検討

単一の回折X線プロファイルに対しプロファイル解析を行い、広がり(積分幅)のガウス成分(不均一ひずみ、転位密度に関連)とコーシー成分(結晶子サイズに関連)を分離し、それらから装置関数による広がり分を除去することで、延性損傷に関連する情報を取得する。

③転位セルサイズ、不均一ひずみ、転位密度の評価法の構築

②で得られた回折X線の積分幅ガウス成分とコーシー成分を用いて、転位セルサイズ、不均一ひずみ、転位密度を算出する方法を確立する。

(2) 放射光白色X線を用いた単結晶延性損傷評価法の有用性の検証

①透過型電子顕微鏡TEMによるシリコン単結晶転位分布観察結果との比較検討

放射光白色X線で測定した単結晶をTEMで測定し転位分布の観察を行う。負荷ひずみの各段階で本手法による転位密度とTEM観察による転位分布を比較検討する。

②本手法の単結晶延性損傷評価法としての有用性に関する考察

放射光白色X線で測定した単結晶を透過型電子顕微鏡TEMで測定し、転位分布の観察を行う。本手法による転位密度とTEM観察による転位密度を比較検討し、本手法の有用性を検証する。

4. 研究成果

(1) 放射光白色X線を用いた単結晶延性損傷評価法の構築

①測定装置や測定方法に依存する装置関数の評価法

装置関数は検出器と主に光学系由来の発散角による広がりのコンボリューションと考えられる。光学系由来の発散角は単結晶においては、入射側の発散角とほぼ同等になると考え、光学系に係るスリットの寸法やスリット間距離から算出する。半導体検出器(SSD)とその電子回路系による広がりについては、これまで放射性同位元素Co-57やAm-241を利用した評価を行っ

たが、利用エネルギー範囲である 50keV~100keV におけるデータ点が少なく評価精度への影響があった。そこで、様々な物質の蛍光 X 線のエネルギーを検討し、本研究では酸化セリウム CeO_2 を使用することとした。これにより、約 45keV~114keV までの間に 7 つのピークが得られるため、利用エネルギー範囲における装置関数のより正確な評価が期待できる。

②放射光白色 X 線の透過回折 X 線プロファイルから装置関数を分離する方法

単一の回折 X 線プロファイルから、不均一ひずみ、転位密度に関連するとされるガウス成分と結晶子サイズに関連するとされるコーシー成分を分離するための関数はいくつかあるが、本研究では Voigt 関数を利用した。プロファイル解析を行うことで分離した各成分から装置関数による広がり分を除去した。

③転位セルサイズ、不均一ひずみ、転位密度の評価法

②で得られた回折 X 線の積分幅ガウス成分とコーシー成分を用いて、転位セルサイズ、不均一ひずみ、転位密度を算出した。

不均一ひずみは、回折 X 線プロファイル積分幅の真のガウス成分と Bragg 角 θ の時に格子面間隔 d で回折する X 線エネルギーを用いて算出した。転位密度は、G. K. Williamson と R. E. Smallman による算出式に、本研究で得られた不均一ひずみの値を用いて算出した。転位セルサイズは Bragg 角、プランク定数、光速度、と回折 X 線プロファイル積分幅の真のコーシー成分から算出した。

(2)放射光白色 X 線を用いた単結晶延性損傷評価法の有用性の検証

①透過型電子顕微鏡 TEM による単結晶転位分布観察結果との比較検討

・図 1 に大型放射光施設 SPring-8 (BL28B2) において放射光白色 X 線での測定に用いた純度 6N (99.9999%) の Al 単結晶の引張試験片とその寸法を示す。試験片は、 $\langle 111 \rangle$ と $\langle 110 \rangle$ が負荷方向に対してそれぞれ 45° 傾き、平行部中央の両側に幅 0.4mm、深さ 0.3mm の 2 ノッチを有している。

・白色 X 線による測定は、試験片を 45° 傾けた状態で行い、図 2 で示したノッチ先端から水平・垂直方向に 0.05mm ずつ移動させた位置を基点 S とし、 $\langle 110 \rangle$ と平行に 0.1mm 間隔の 16 点で実施した。本研究では、白色 X 線の測定点と同一の領域で TEM 観察を行った。

・ノッチ先端からの距離に対して転位セルサイズと転位密度を調査するため、白色 X 線による測定後の引張試験片から観察用サンプルを作製した。ダイヤモンドカッターにより試験後のサンプルを切断し、機械研磨により寸法を 2.6mm×1.0mm×0.1mm に調整した。その後、イオンスライサ (JEOL EM-09100IS) によりイオン研磨を施した。その条件は Ar イオンビームの照射角度を 1.8° とし、加速電圧は 3.0~6.0kV とした。

・図 3 に作製した TEM サンプルを示す。空孔の周辺が TEM での観察領域となる。サンプルは基点 S から 0.65mm の位置に空孔が形成されており、白色 X 線による測定点 0.6mm と 0.8mm の観察用サンプルとなる。同様に、1.1mm と 1.3mm の観察に用いるサンプルも作製した。観察方向は白色 X 線の測定方向と同様である。結晶方位は X 線回折装置 (Rigaku MiniFlex) を用いて事前に確認した。

・TEM 観察は TEM (HITACHI H9000NAR) を用いて行い、低倍率と高倍率での TEM 像から転位セルサイズおよび転位の観察を行った。転位密度の算出には以下に示す Ham の関係式を用

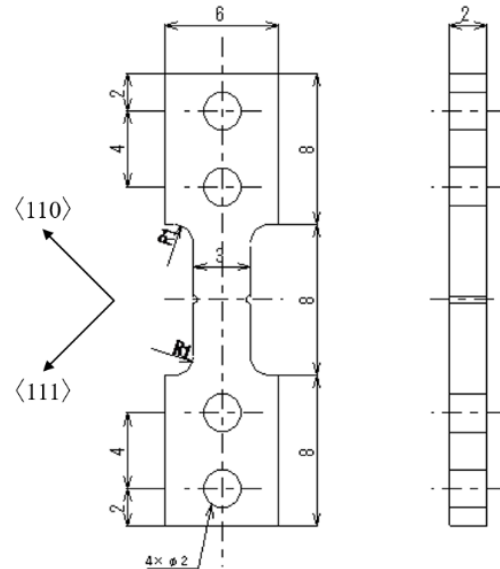


図 1 試験片 (アルミニウム単結晶)

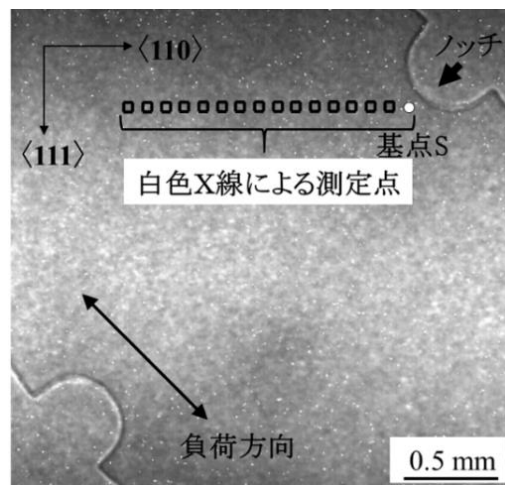


図 2 放射光白色 X 線による測定位置

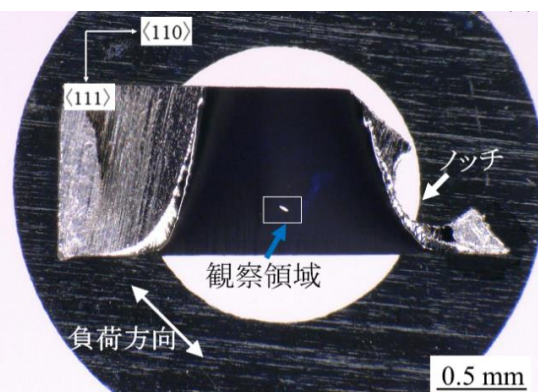


図 3 TEM サンプル

いた。

$$\rho = 2N/Lt$$

ここで、 ρ は転位密度、 N はメッシュと転位の交点の数、 L はメッシュ全長、 t はサンプルの厚さである。メッシュは一辺の長さが 600nm であり、 $L=4800\text{nm}$ とした。厚さ t は 100nm とした。

・図 4 (a) と図 5 は基点 S から 0.6mm の位置での低倍と高倍の TEM 写真である。これらから転位が局所的な領域に見られ、また、引張負荷方向と $\langle 110 \rangle$ に沿った転位の絡み合いが見られた。低倍では 300nm、高倍では 100nm 程度の転位セルが確認できた。低倍と高倍から転位セルの平均は 200nm であった。図 4 (b) と図 6 に 0.8mm の位置の低倍と高倍の TEM 像を示す。0.8mm では低倍、高倍の両方で広く均一に転位が認められ、転位の切り合いも見られた。転位セルは比較的大きい数百 nm のものが存在することが確認できた。それらの平均は 275nm であった。図 4 (c) と図 7 は基点 S から 1.1mm の位置での低倍と高倍の TEM 像である。低倍写真から 1.1mm では転位が複雑に切り合い、特定の方角や負荷方向に関連した組織の状態は認められなかった。大きいものでは 1000nm を超える亜結晶も確認できた。また、高倍では 150nm 程度の転位セルが確認され、場所によっては転位セルが密集し、50nm サイズのものも見られた。それらの平均は 500nm であった。図 4 (d) と図 8 に 1.3mm の位置の TEM 像を示す。1.3mm では 1.1mm と同様ではあるが、複雑な転位の切り合いにより転位セルが微細になっていることが認められた。低倍では 1500nm を超える亜結晶が確認できた。また、高倍では 50nm サイズのものが見られた。それらの平均は 450nm であった。この位置は、 $\langle 110 \rangle$ と $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ との交点であり、塑性ひずみの増大の影響が考えられた。

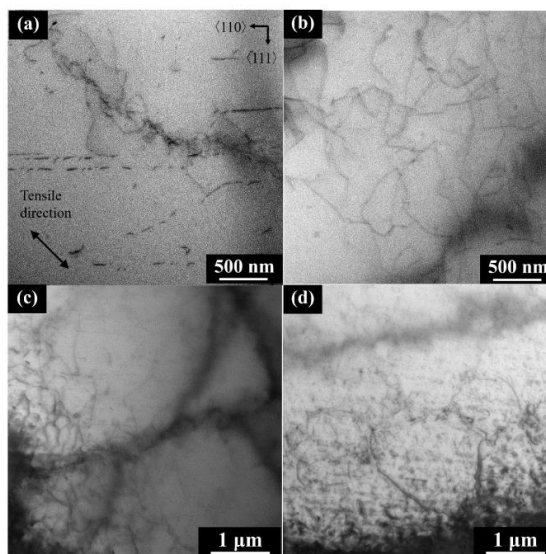


図 4 TEM 画像 (低倍率)

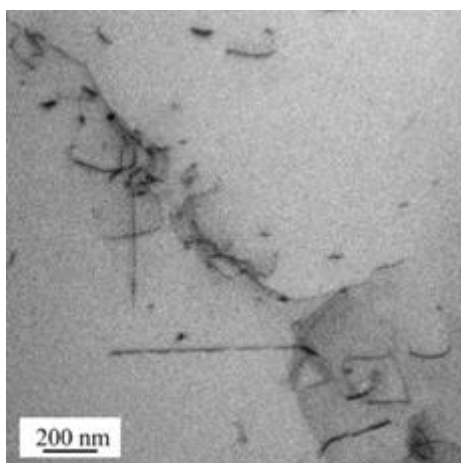


図 5 TEM 画像 (高倍率 基点 S から 0.6mm)

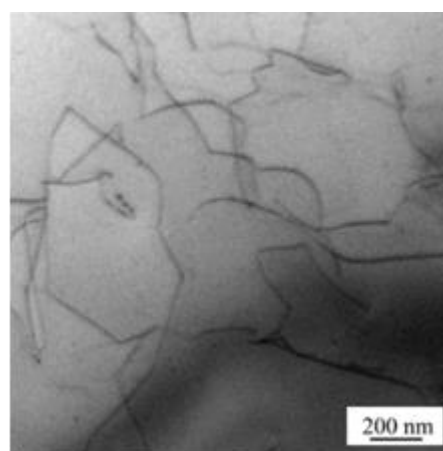


図 6 TEM 画像 (高倍率 基点 S から 0.8mm)

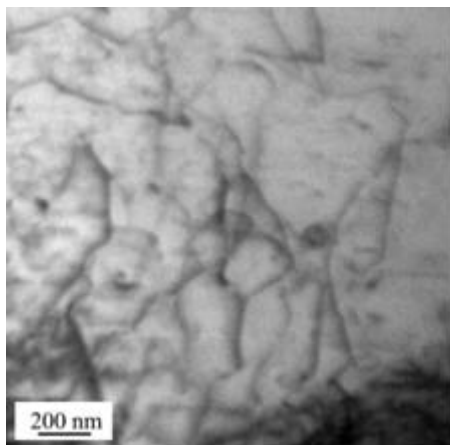


図 7 TEM 画像 (高倍率 基点 S から 1.1mm)

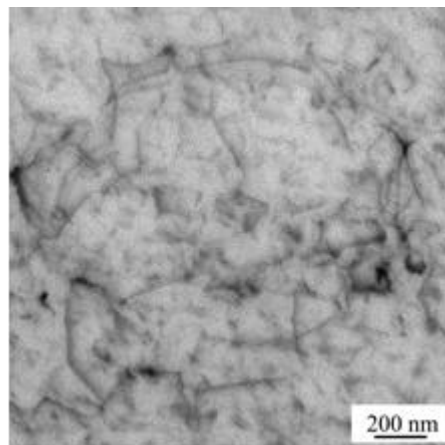


図 8 TEM 画像 (高倍率 基点 S から 1.3mm)

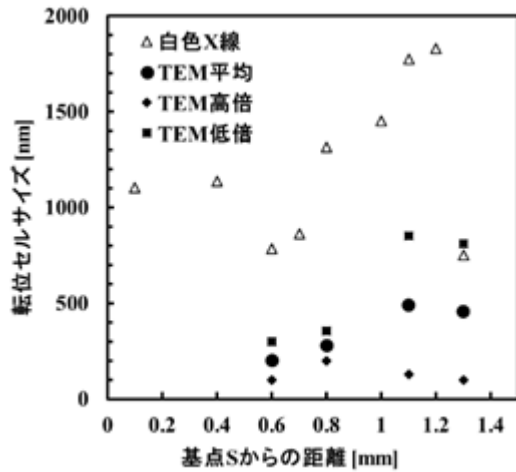


図9 転位セルサイズ分布 <110>方向

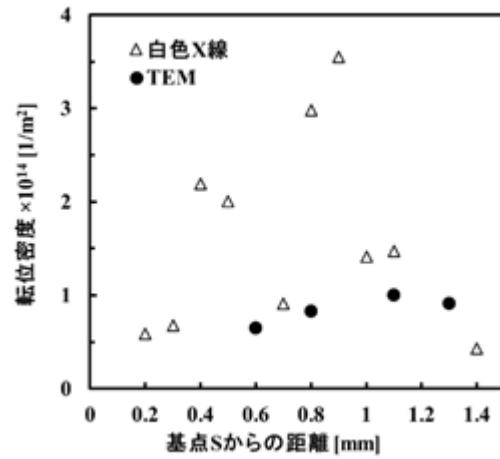


図10 転位密度分布 <110>方向

②本手法の単結晶延性損傷評価法としての有用性に関する考察

・図9は白色X線による測定から得られた転位セルサイズとTEM像観察から得られた結果を比較したものである。白色X線の結果では1000nmを超える転位セルサイズがあり、基点Sから0.1mm、0.4mmの位置で1100nm程度の転位セル、0.50mmの位置では1400nm程に上昇し、0.6mmと0.7mmでは800nm程度に減少した。0.8mmから1.2mmでは1300nmから1800nmまでの増加傾向となった。1.3mmでは1.2mmから減少し800nmとなった。一方、TEM像より得られた転位セルサイズは、0.6mmでは200nm、0.8mmでは275nm、1.1mmでは500nm、1.3mmでは450nmとなった。<111>と<110>との交点付近での減少は白色X線の結果とも一致した。

・図10は白色X線による本法とTEM写真から得られた転位密度を比較したものである。白色X線の結果は、起点Sから0.2mmの位置では $0.59 \times 10^{14}/\text{m}^2$ 、0.3mmでは $0.68 \times 10^{14}/\text{m}^2$ と上昇し、0.4mmでは $2.19 \times 10^{14}/\text{m}^2$ となった。0.5mmでは $2.00 \times 10^{14}/\text{m}^2$ と下がり、0.7mmでは $0.91 \times 10^{14}/\text{m}^2$ まで減少した。0.8mmでは $2.98 \times 10^{14}/\text{m}^2$ 、0.9mmでは $3.55 \times 10^{14}/\text{m}^2$ と上昇した。その後、1.0mm、1.1mm、1.4mmでは減少傾向を示し、 $0.43 \times 10^{14}/\text{m}^2$ まで減少した。

高倍のTEM像からHamの関係式により算出した転位密度は、0.6mmでは $0.65 \times 10^{14}/\text{m}^2$ 、0.8mmでは $0.83 \times 10^{14}/\text{m}^2$ 、1.1mmでは $1.00 \times 10^{14}/\text{m}^2$ 、1.3mmでは $0.91 \times 10^{14}/\text{m}^2$ となった。

これらより、TEMの結果は白色X線の結果より低い値ではあるが、0.6mmから1.3mmの範囲内において、転位密度の増加と減少の傾向やその値については、ほぼ一致した結果が得られた。

(3) 研究成果のまとめ

放射光白色X線を用いて、単結晶内部の特定された結晶方位から得られる単一の回折X線プロファイルから、延性損傷パラメータとして転位セルサイズ、不均一ひずみ、転位密度の情報を得るための手法を提示した。その際、転位密度などの測定精度に影響を及ぼす装置関数のより正確な評価方法を示した。アルミニウム単結晶を用いて、透過型電子顕微鏡TEMによる転位分布観察結果と本手法による評価結果の比較検討を行った。その結果、転位セルサイズでは本手法で得られるサイズがTEMによる観察結果よりも大きく評価されたが、転位密度では測定位置によってはほぼ同様の結果が示された。以上のことから、単結晶における延性損傷進展評価に対し、本手法の有用性を確認することができた。

(4) 今後の展望

本研究では、主に面心立方晶のアルミニウム単結晶を用いて検討を進めた。その中で、最密六方晶であるマグネシウム単結晶への本手法の適用も検討した。しかしながら、結晶系の違いから転位密度の算出式がそのまま適用できなかった。しかし、本報告には記載していないが、回折X線プロファイルの半価幅や積分強度などの基本的データから、双晶の発生や転位密度の増加・減少の傾向が推測できた。今後は、放射光白色X線による様々な結晶系における延性損傷評価のための手法を検討する。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計3件)

- ① Y. Yoshida, J. Shibano, K. Fukuda, K. Terabayashi, M. Eguchi, K. Kajiwara, T. Shobu, A. Shiro, Crystal rotation and microstructures in an aluminum single-slip system under tensile loading, *Materials Characterization*, 査読有, Vol. 146 pp. 121-126, 2018
- ② 柴野純一、清谷真平、越村瑞樹、梶原堅太郎、菖蒲敬久、チタンと骨組織の接触界面近傍の放射光白色X線を用いたひずみ測定、非破壊検査、査読有, Vol. 66, No.6, pp.261-265, 2017
- ③ S. Kawai, Y. Yoshida, H. Asano, S. Miura, M. Kobayashi, J. Shibano, Acoustic emission response of magnesium alloy during cyclic and creep tests, *Materials Science and Engineering A*, 査読有, Vol. 668, pp. 120-124, 2016

〔学会発表〕（計 5 件）

- ①立石優河、吉田裕、蓮本翔、柴野純一、回折 X 線による極薄板内部の応力評価、日本設計工学会 秋季研究発表講演会、2018 年、9 月（鳥取）
- ②吉田裕、寺林賢吾、柴野純一、梶原堅太郎、城鮎美、菖蒲敬久、放射光白色 X 線を利用したアルミニウム単結晶の延性損傷評価及び検討、第 52 回 X 線材料強度に関するシンポジウム、2018 年、7 月（静岡）
- ③菖蒲敬久、安田良、城鮎美、吉田裕、徳田奨、柴野純一、熊谷正芳、引張破壊試験片の転位密度評価、第 31 回日本放射光学会放射光科学合同シンポジウム、2018 年 1 月（つくば）
- ④菖蒲敬久、城鮎美、吉田裕、徳田奨、柴野純一、熊谷正芳、放射光を用いたラインプロファイル解析法による鉄鋼材料転位密度評価、第 51 回 X 線材料強度に関するシンポジウム、2017 年 7 月（神戸）
- ⑤江口雅人、本間与主愛、宇佐美翔也、吉田裕、柴野純一、透過 X 線回折による引張負荷中の純マグネシウムの損傷評価、日本金属学会第 160 回春期大会、2017 年 3 月（東京）

6. 研究組織

(1) 研究分担者

研究分担者氏名：吉田 裕

ローマ字氏名(YOSHIDA, yutaka)

所属研究機関名：北見工業大学

部局名：工学部

職名：准教授

研究者番号（8 桁）：30626122

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。