

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 5 月 8 日現在

機関番号：13904

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26420723

研究課題名(和文) X線回折援用粒界追跡法による3D/4D結晶方位マッピング手法開発

研究課題名(英文) Development of 3D/4D crystallographic orientation mapping by X-ray diffraction amalgamated grain boundary tracking

研究代表者

小林 正和 (Masakazu, Kobayashi)

豊橋技術科学大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：20378243

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円

研究成果の概要(和文)：SPring-8の放射光を使った金属材料の変形組織における3D/4D結晶方位マッピングについて研究を行った。多結晶材料のX線回折シミュレーションの構築，方位マッピングアルゴリズムの検討，塑性変形による回折点の変化の調査，および，アルミニウム合金におけるデモンストレーション実験の実施が行われ，実験による多結晶材料中の変形組織形成メカニズム解明の可能性が示された。

研究成果の概要(英文)：3D/4D crystallographic orientation mapping has been studied in deformed metallic materials by using synchrotron radiation in SPring-8. Development of X-ray diffraction simulation for polycrystalline materials, consideration of orientation mapping algorithm, investigation of diffraction spots changes in plastic deformed metal and demonstration experiment in aluminum alloy were carried out, and then possibility to solve the mechanism of deformation microstructure formation in a polycrystalline metal was shown by the experiment.

研究分野：構造材料

キーワード：放射光 トモグラフィー 変形組織 結晶方位

1. 研究開始当初の背景

放射光を使った 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、変形・破壊の研究に有効な手法である。申請者らは、大型放射光施設 SPring-8 にて CT 実験を行い、ミクロ組織特徴点の追跡法を開発して、材料内部の力学情報を取り出すことに成功し、結晶粒の 3D 可視化手法と組合せて、結晶粒単位の 4D 変形解析を進めている。これまで、結晶粒単位の 4D 変形解析に、一つ一つの結晶粒に結晶方位情報を付与する DAGT 法の開発 (H20~23 科研費 (A), 研究代表: 戸田裕之) を行ってきた。結晶粒には複雑なひずみの局在化がみられる。この局所ひずみの発達の理由は変形組織の発達にある。これを直接的に調査するため、3D 結晶方位測定 of 分解能を飛躍的に向上させる必要がある。これまで、放射光で X 線回折法による変形組織変化の研究は幾つか行われているが、強力な放射光でも、格子ひずみが大きくなると十分な回折が得られなくなるため、回復過程や低ひずみまでの負荷計測に限られており、大きく塑性変形した試料において 3 次元的に結晶方位分布を精密測定できた例は無い。

DAGT 法は、CT 画像と細束 X 線ビームを使うため位置分解能は比較的高い。そして、ビームパスが限られるため、他の結晶粒から生じる X 線回折ノイズが入り難い。ビーム径を小さくすれば、空間分解能の向上が期待できる。しかしながら、ビーム径を小さくすると光量が下がるため、回折 X 線の検出は困難になる。大型放射光施設といえども細束ビームで光量を高めることは難しい。大型放射光施設の X 線は発散角が小さく平行性の高い特徴があるが、最近、SPring-8 研究員の上杉らの報告によると、ビームにほんの少し入射角度をつけて絞った方が回折強度を得やすいことが分かった。これは恐らく、結晶の歪みにビームがマッチし、回折条件を満たしやすくなることによる。そこで、回折強度不足になりがちな細束ビームの形成に、歪んだ結晶でも回折条件を満たしやすくなるための集光装置を導入し、これを変形度合に合わせ最適調整することで変形試料の回折 X 線検出を試みる。

2. 研究の目的

X 線コンピュータトモグラフィー (CT) は、最近、金属材料の変形破壊に関する学術調査において有力なツールとなっている。CT による 4D (=3D+時間) ひずみマッピングと結晶方位情報を与える X 線回折援用粒界追跡法 (DAGT) の組み合わせは、結晶粒レベルの不均一変形状態の研究に利用できる独自手法である。通常では観察困難である結晶粒内の変形ひずみと結晶組織変化を 4D 観察するため、X 線集光デバイスの利用および結晶方位解析の最適探索アルゴリズムを導入することで DAGT を発展させ、変形組織にお

ける 3D/4D 結晶方位マッピングを実現する。これは金属の降伏、加工硬化や変形集合組織発達のメカニズム解明に利用できる。

3. 研究の方法

本申請では、後の方位マッピング解析を容易な状態にするために行う実験の手法研究と、方位マッピング法に関する解析法研究の二つのパートがある。それを放射光施設 SPring-8 での実験 1 解析 1 SPring-8 実験 2 解析 2 のサイクルで推し進める。実験 1 にて、試料の変形条件と X 線集光による効果を明らかにし、最適な実験条件を得る。解析 1 では実験 1 で得たデータの方位探索に複数のアルゴリズムを使い、特徴を捉えて最適なアルゴリズムを見出す。放射光実験 2 では、ベストな条件で変形を受ける金属材料の一連のデータセットを得て、解析 2 で 3D 結晶方位マッピング手法を完成させる。材料変形における 4D 変化をデモンストレーションすることで結晶方位マッピングが強力な解析ツールとなることを示す。

4. 研究成果

3DXRD は、試料を回転させながら高さ $5\mu\text{m} \sim 10\mu\text{m}$ 程度に絞った水平ビームを試料に照射し、それぞれの結晶粒から回折してくる X 線回折点を 2 次元ディテクタで記録し、記録された回折点の中から、個々の結晶粒の回折点を探し出すことで結晶粒の同定を行うものである。しかし、塑性変形量が大きい試料においては、回折点が広がるためそれらのオーバーラップが生じやすくなり、結晶方位決定が困難になる。本研究では、3DXRD では結晶方位決定が困難である、塑性変形量が大きい試料において、変形組織の 3 次元非破壊の結晶方位マッピングを行うことを目的とする。放射光実験試料は、熱処理によって結晶粒サイズを $100\mu\text{m}$ に調整した Al-4mass%Cu 合金である。X 線エネルギーは 25.6keV とし、フレネルゾーンプレートにより集光したペンシルビームを用いた。検出器は CMOS カメラ ($2048\text{pixel} \times 2048\text{pixel}$)、シンチレータ ($\text{Gd}_2\text{O}_2\text{Si:Tb}$)、ビームモニター (BM2) で構成され、ピクセルサイズは $6.5\mu\text{m}$ である。試料 - 検出器間距離は 15.08mm で、試料を 0° から 201° まで回転させながら、ペンシルビームを照射し、 1° 毎に 0.1s の露光時間で撮像を行った。また、試料全体から回折像を取得するため、試料を y 軸 $360\mu\text{m}$ から $+10\mu\text{m}$ ずつ移動させながら計 70 撮像を行った。

結晶粒の同定として、以下の方法を提案する。Fig. 1 に結晶方位決定のフローチャートを示す。まず、試料内部の任意の位置 (y, x) について考える。Fig. 2 に示すように、 $\omega = 0^\circ$ から 201° まで回転する間に、ビームが任意の位置を通るときに生じた回折点を取り出す。取り出した各回折点の回折面における、 $\omega = 0^\circ$ での散乱ベクトルが試料座標系と結晶座

標系が一致した状態の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点の組を探し、その時の結晶方位マトリクス G を特定することで、結晶方位を決定する。試料内部の任意の位置ごとに結晶方位を決定していくことで結晶方位マッピングを行う。また、得られた画像の回折点から結晶方位を算出する必要がある。結晶方位を求めるには、最低でも2つの面が決まれば方位は解析できるが、それでは方位決定の精度が低く、3DXRD ではなるべく多くの回折面の情報を用いて解析を行うことで精度の向上を行っている。そこで、本研究では3つの面の情報から結晶方位を測定することとした。

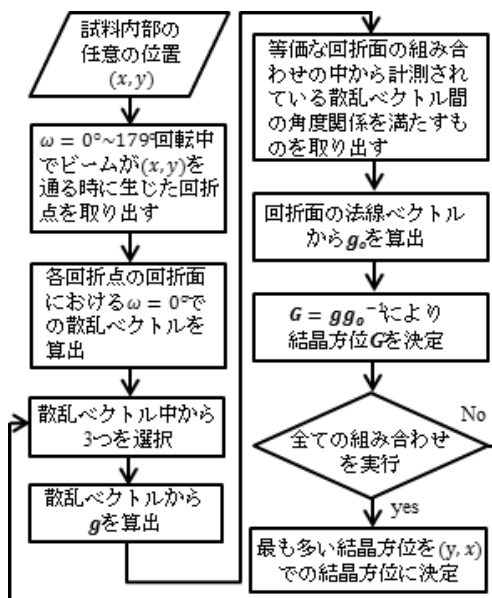


Fig. 1 Flowchart for determination of crystallographic orientation

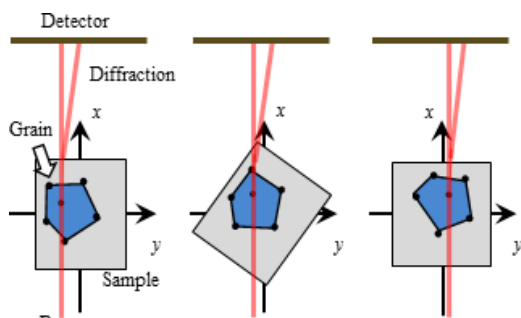


Fig. 2 Beam-pass and diffraction generation position

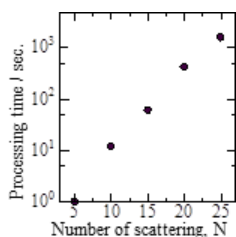


Fig. 3 processing time

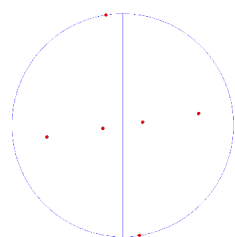


Fig. 4 (001) pole figure

XRD 画像を用いて、結晶方位マッピングを行った。はじめに、入力する散乱ベクトルの数に応じて組み合わせ数の増加から、結晶方位を決定する処理時間が長くなることが予想される。入力散乱ベクトルの数を変化させ、結晶方位決定に要する処理時間を調べた。Fig. 3 に散乱ベクトルの数と方位の算出に要する処理時間の関係を示す。また、Fig. 4 に算出した方位の(001)極点図を示す。Fig. 3 から、散乱ベクトルの数が増え、散乱ベクトルの組み合わせが増えるほど処理時間が増加している。放射光実験より得られた回折像をもとに散乱ベクトルを算出した場合、任意の位置以外からの回折点も含まれるため、散乱ベクトルの数は 600 から 700 程度となり、この場合、方位の算出にはおよそ 1.56×10^9 時間かかり、膨大な時間を要することとなる。多結晶材料を結晶方位マッピングする際は試料内に複数の結晶粒が含まれているため、任意の結晶粒から回折した回折点から算出された散乱ベクトルのみを用いて方位を算出する必要がある。そこで、それぞれ異なる方位を有する隣接した 2 つの結晶粒(a), (b) を仮定し、結晶方位マッピングを行った。隣接する 2 つの結晶粒のうち、それぞれ一方の結晶粒内に任意の位置(y, x)を定め、試料が 0° から 180° まで回転するうちにその位置から回折した回折点のみを取り出し、散乱ベクトル、方位を求めた。Fig. 5(a) には結晶粒(a) から算出した方位の(0 0 1)極点図を、Fig. 5(b) には結晶粒(b) から算出した方位の(0 0 1) 極点図をそれぞれ示す。なお、結晶粒(a) には入力値として、Fig. 4 で与えた方位と同じ方位を与えてある。Fig. 4, Fig. 5(a), および Fig. 5 (b) より、試料内に他の結晶粒が存在する場合においても任意の結晶粒から方位が算出できていることが分かる。

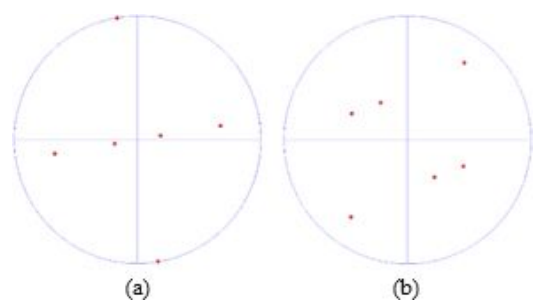


Fig. 5 (001) pole figure

次に、3次元結晶方位マッピング手法の開発のために、結晶粒の塑性変形による放射光 X 線回折点の変化の調査を行った。試料は、熱処理によって結晶粒サイズを $100\mu\text{m}$ に調整した Al-4mass%Cu 合金の微小引張試験片である。試験片に単軸引張変形によるひずみを与えるために引張試験機を用いた XRD 実験は SPring-8 の BL20XU で行った。試料を 360° 回転させながら、X 線を入射させ、 0.5° 毎に 0.1s の露光時間で撮像を行った。XRD は X 線エネルギーを 37.7keV 、検出器は

提案した結晶方位マッピングが正しいことを確認するため、単結晶アルミニウムの

CMOS カメラを用い、シンチレータは $Gd_2O_2S:Tb$ を用いた。試料 - ディテクタ距離は 27.9mm とした。引張試験機で、 $\epsilon=1.83\%$, 5.15% , 8.97% , 11.21% , 13.29% のひずみを与え、計 5 段階で XRD 実験を行った。

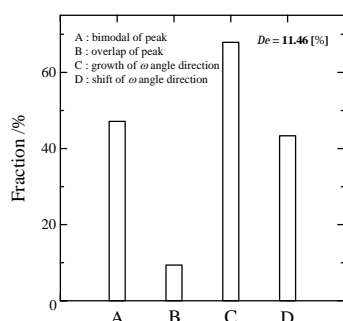


Fig. 6 Classification of diffraction spots

得られた XRD 画像から各荷重段階の回折点の重心座標、試料回転角度(ω)、体積、回折強度を求めた。10 pixel、回折強度 300 以上の回折点について評価した。各荷重段階で同一の回折点の特定を行い、回折点の引張り負荷による様々な変化の解析を行った。

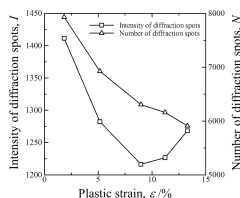


Fig. 7 Intensity and number of diffraction spots vs. plastic strain

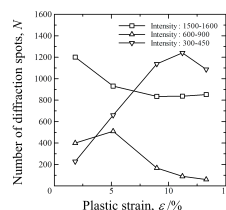


Fig. 8 Number of diffraction spots vs. plastic strain

XRD 実験により得られた回折点から任意に 53 点を選び、その変化を目視により 4 パターンに分類した。Fig. 6 に各パターンの割合を示す。A はピークが複数に分かれるもの、B はピークが重なるもの、C は ω の角度方向に広がるもの ($\epsilon=13.29\%$ で $\omega=2^\circ$ 以上)、D は ω の角度方向にシフトするものである。Fig. 6 より、C の ω の角度方向に広がる特徴をもつ回折点の割合が 67.9% と最も多かった。任意に選んだ 53 点の回折点を観察した結果、ひずみの増加に伴い回折点は ω の方向、ディテクタ上に広がる傾向があると観察できた。塑性変形によるひずみと回折点の 1 pixel あたりの回折強度の平均値、回折点の個数の関係を Fig. 7 に示す。個数はひずみの増加に従って減少している。回折強度も減少するが、 $\epsilon=8.97\%$ から上昇している。Fig. 8 にはひずみの増加に対する強度範囲 300 450, 600 900, 1500 1600 における回折点の個数を示す。ひずみの増加に伴って、強度 300 450 の回折点の個数は増加し、600 900 の回折点の個数は減少する。強度 1500 1600 の回折点の個数はほとんど変化しない。変形初期の強度の減少は、回折点の広がりによるものであり、後半の強度上昇は、変形しても強度が減

少しないものがあるためである。X 線 CT によって得られたひずみ分布を確認したところ、変形していない領域が確かに存在していた。(1)引張り変形により回折点広がって、強度が低下する。(2)強度の変化が少ない回折点も存在し、それは材料内部の不均一変形でほとんど変形しない結晶粒がいるためである。

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 11 件)

Masakazu Kobayashi, Yuuki Kawamura, Soutaro Ueno, Hiroyuki Toda, Hiromi Miura, Measurement of local plastic deformation in aluminum alloy by means of X-ray 3D imaging technique, *Procedia Engineering*, 査読有, 81, 2014, 1408-1413

DOI:10.1016/j.proeng.2014.10.165

小林正和, 戸田裕之, 三浦博己, 放射光マイクロトモグラフィによる材料微細構造評価, *設計工学*, 査読有, 49(11), 2014, 558-564

河野亜耶, 小林正和, 戸田裕之, 三浦博己, 放射光三次元計測した局所ひずみに基づくアルミニウム合金の変形集合組織形成シミュレーション, *軽金属*, 査読有, 64(11), 2014, 557-564

DOI:http://doi.org/10.2464/jilm.64.557

小林正和, 戸田裕之, 上杉健太郎, 竹内晃久, 鈴木芳生, 材料科学分野における最近の X 線トモグラフィの進歩, *軽金属*, 査読有, 64(11), 2014, 510-517

DOI:http://doi.org/10.2464/jilm.64.510

Hui Li, Hiroyuki Toda, Kentaro Uesugi, Akihisa Takeuchi, Yoshio Suzuki, Masakazu Kobayashi, Application of Diffraction-Amalgamated Grain Boundary Tracking to Fatigue Crack Propagation Behavior in High Strength Aluminum Alloy, *Materials Transactions*, 査読有, 56(3), 2015, 424-428

DOI:http://doi.org/10.2320/matertrans.M

2014340

Masakazu Kobayashi, Jun Komori, Kaiji Shimidzu, Masanobu Izaki, Kentaro Uesugi, Akihisa Takeuchi, Yoshio Suzuki, Development of vertically aligned ZnO-nanowires scintillators for high spatial resolution X-ray imaging, *Applied Physics Letters*, 査読有, 106, 2015, 081909

DOI: http://dx.doi.org/10.1063/1.4913867

M. Kobayashi, H. Miura and H. Toda, Non-destructive and three-dimensional measurement of local strain development during tensile deformation in an aluminium alloy, *IOP Conf. Series:*

Materials Science and Engineering, 査読有, 89, 2015, 012030

DOI:10.1088/1757-899X/89/1/012030

Han Li, Leonardo Gutierrez, Hiroyuki Toda, Osamu Kuwazuru, Wenli Liu, Yoshihiko Hangai, Masakazu Kobayashi, Rafael Batres, Identification of material properties using nanoindentation and surrogate modeling International Journal of Solids and Structures, 査読有, 81(1), 2016, 151-159

DOI:10.106/j.ijsolstr.2015.11.022

Hiroyuki Toda, Takanobu Kamiko, Yasuto Tanabe, Masakazu Kobayashi, D.J. Leclere, Kentaro Uesugi, Akihisa Takeuchi, Kyosuke Hirayama Diffraction-amalgamated grain boundary tracking for mapping 3D crystallographic orientation and strain fields during plastic deformation, Acta materialia, 査読有, 107, 2016, 310-324

DOI:10.1016/j.actamat.2016.01.072

小林正和, 三浦博己, 平面ひずみ圧縮されたアルミニウム合金内部の不均一変形と局所方位差の関係, 軽金属, 査読有, 66(11), 2016, 589-594

DOI: <http://doi.org/10.2464/jilm.66.589>

M. Kobayashi, T. Matsuyama, A. Kono, H. Toda, H. Miura, Construction of finite element meshes for polycrystal grains model from X-ray CT image, Materials Transactions, 査読有, 57(12), 2016, 2089-2096

DOI:<http://doi.org/10.2320/matertrans.M2016260>

〔学会発表〕(計 22 件)

小林正和, 河野亜耶, 三浦博己 放射光三次元計測による局所ひずみを考慮した変形集合組織形成シミュレーション, 軽金属学会第 126 回春期大会, 2014, 5 月, 広島大学, 概要 p.255-256

M. Kobayashi, Y. Kawamura, Variation Analysis of Grain Deformation in Aluminum Alloy, 14th International Conference on Aluminium Alloys (ICAA14), 2014, June, Trondheim, Norway, Abstract, p.16-17

M. Kobayashi, Y. Kawamura, 3D Evaluation of Inhomogeneous Plastic Deformation of Grains in Aluminum Alloy, The 2nd International Congress on 3D Materials Science 2014 (3DMS2014), 2014, June, Annecy, France, Congress Proceedings, p.79-84

川上和樹, 亀山昌稔, 小林正和, 三浦博己, 3D/4D 塑性変形解析のための放射光 XRD シミュレーション開発, 軽金属学会第 127 回秋期大会, 2014, 11 月, 東京工業大学, 概要 p.37-38

松山智彦, 小林正和, 三浦博己, 戸田裕之,

上杉健太郎, 竹内晃久, 鈴木芳生, アルミニウム合金の結晶塑性イメージベースシミュレーション, 軽金属学会第 127 回秋期大会, 2014, 11 月, 東京工業大学, 概要 p.35-36

M. Kobayashi, T. Matsumoto, A. Kouno, H. Miura and H. Toda, Characterization of inhomogeneous local strain during plastic deformation in aluminum alloy, TMS2015, 144th Annual Meeting & Exhibition, 2015, May, Orlando, Florida, USA, Abstract p.132 (Invited)

小林正和, 星野弘樹, 戸田裕之, 三浦博己, 7075 アルミニウム合金における水素脆化変形挙動の 3D/4D 解析, 軽金属学会 128 回春期大会, 2015, 5 月, 東北大学, 概要集 p.101-102

Masakazu Kobayashi, Kentaro Uesugi, Hiroyuki Toda, Hiromi Miura, Three-dimensional local plastic strain mapping by using synchrotron radiation micro-tomography, 54th Annual Conference of Metallurgists, 2015, August, Tronto, Canada, Abstract p.74

小林正和, 川上隆之, 戸田裕之, 三浦博己, 7075 アルミニウム合金の疲労き裂開口挙動の三次元解析, 日本金属学会秋期講演大会(第 157 回), 2015, 9 月, 九州大学, 概要集 p.447

M. Kobayashi, H. Miura and H. Toda, Non-destructive and three-dimensional measurement of local strain development during tensile deformation in an aluminium alloy, 36th Risoe International Symposium on Material Science, 2015, September, Roskilde, Denmark, Proceeding p.337

S. Gennai, O. Kuwazuru, M. Kobayashi, H. Toda, Geometrical Evaluation of Silicon Particles in Cast Aluminum Alloy and Its Effect of Fatigue Fracture, International Conference on Advanced Technology in Experimental Mechanics 2015, 2015, October, Toyohashi, Japan, Abstract p.57

K. Matsumura, R. Mizutani, O. Kuwazuru, M. Kobayashi, H. Toda, 4D Observation of Fatigue Cracking in Cast Aluminum Alloy using Synchrotron Radiation CT International Conference on Advanced Technology in Experimental Mechanics 2015, 2015, October, Toyohashi, Japan, Abstract p.56

O. Kuwazuru, M. Teranishi, K. Matsunura, M. Kobayashi, H. Toda, 3D Image-based Micromechanical Analysis of Cast Aluminum Alloy under Cyclic Loading International Conference on Advanced Technology in Experimental Mechanics 2015, 2015, October, Toyohashi, Japan, Abstract p.49

K. Hirayama, H. Toda, Y. Tanabe, T. Shimoji, K. Tanaka, M. Kobayashi, K. Uesugi, A. Takeuchi, Plastic Deformation

Behavior of Aluminum Alloy Investigated Means of Diffraction-Amalgamated Grain-Boundary Tracking (DAGT) Technique, International Conference on Advanced Technology in Experimental Mechanics 2015, 2015, October, Toyohashi, Japan, Abstract p.45

M. Kobayashi, T. Matsuyama, H. Toda, H. Miura, Image-base Modeling of Grain Structure in Aluminum Alloy Based on X-ray Microtomography International Conference on Advanced Technology in Experimental Mechanics 2015, 2015, October, Toyohashi, Japan, Abstract p.46

河野亜耶,小林正和,三浦博己,戸田裕之,結晶塑性イメージベースシミュレーションによるアルミニウム合金の局所変形評価,軽金属学会第129回秋期大会,2015,11月,日本大学生産工学部,概要集 p.85-86

放射光を使った高分解能 X 線 CT による材料評価とそのアルミニウム鋳物合金への応用,日本鋳造工学会東海支部三重地区「技術講演会」,2015,11月,三重県桑名市中央公民館(招待講演)

放射光を使った多結晶金属材料の不均一塑性変形の解析評価,第52回 X 線材料強度に関する討論会 テーマ「企業における非破壊検査の現状と課題および放射光を利用した非破壊材料評価技術の現状と課題」,日本材料学会,2015,12月,岡山国際交流センター(招待講演)

Masakazu Kobayashi, Hiromi Miura, Tomoya Aoba, Synchrotron Radiation Micro and Nano Tomography for Material Science, International Conference of Global Network for Innovative Technology 2016 (IGNITE2016), 2016, January

Masakazu Kobayashi, Aya Kouno, Tomohiko Matsuyama, Hiroyuki Toda, Hiromi Miura, 3D Characterization of Inhomogeneous Deformation in Grain Microstructure of Aluminum Alloy, The 3rd International Congress on 3D Material Science 2016, 2016, July, St. Charles, Illinois, USA, Abstract p.8

(21) Masakazu Kobayashi, Hiromi Miura, Characterization of Locally Deformed Grain Microstructure in Aluminum Alloy Containing Small Lead Particles, The 6th International Conference on Recrystallization and Grain Growth, 2016, July, Pittsburgh, Pennsylvania, USA, Abstract p.18

(22) アルミニウム合金鋳物欠陥の放射光 X 線トモグラフィを用いた限界評価寸法について,日本鋳造工学会東海支部第121回非鉄鋳物研究部会,2016,9月,愛知県産業労働センター ウィンクあいち 1102 会議室

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

取得状況(計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

<http://str.me.tut.ac.jp/>

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・工学研究科・准教授

研究者番号: 20378243

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

三浦 博己 (MIURA, Hiromi)

豊橋技術科学大学・工学研究科・教授

研究者番号: 30219589

青葉 知弥 (AOBA, Tomoya)

豊橋技術科学大学・工学研究科・助教

研究者番号: 50757143

戸田 裕之 (TODA, Hiroyuki)

九州大学・工学研究院・教授

研究者番号: 70293751

(4) 研究協力者

上杉 健太郎 (UESUGI, Kentaro)

公益財団法人高輝度光科学研究センタ

ー・その他部局等・研究員

竹内 晃久 (TAKEUCHI, Akihisa)

公益財団法人高輝度光科学研究センタ

ー・その他部局等・研究員