

# 走査型 3DXRD 法による多結晶材料の方位・応力マッピング

林 雄二郎

株式会社豊田中央研究所 分析部 〒480-1192 愛知県長久手市横道41番地の1

広瀬美治

株式会社豊田中央研究所 分析部 〒480-1192 愛知県長久手市横道41番地の1

瀬戸山大吾

株式会社豊田中央研究所 分析部 〒480-1192 愛知県長久手市横道41番地の1

妹尾与志木\*

株式会社豊田中央研究所 分析部 〒480-1192 愛知県長久手市横道41番地の1

\*現在：公益財団法人佐賀県地域産業支援センター 九州シンクロトン光研究センター  
〒841-0005 佐賀県鳥栖市弥生が丘8丁目7

## 要旨

3次元 X 線回折顕微鏡法 (3DXRD) は多結晶材料内部における結晶方位と応力の 3次元非破壊マッピングを可能にした手法であり、金属材料の機械特性評価において重要な応力と塑性ひずみを結晶粒スケールで 3次元可視化できる手法として注目されている。しかし、実用金属材料は結晶粒数が非常に多くモザイク度が大きいため、回折斑点が重なり解析が困難であった。そこで筆者らは走査型の 3DXRD 法を開発した。この方法ではマイクロビームにより回折斑点の重なりを低減し、再構成の指標として各結晶粒から検出される回折斑点数を用いることで回折斑点数が多くても再構成を可能とする。これにより実用冷間圧延鋼板 (1 mm 厚) の非破壊結晶方位マッピングに初めて成功した。本記事では走査型 3DXRD 法とその有用性について概説する。

## 1. はじめに

人工知能やビッグデータなどがニュースを賑わせる中、金属材料分野においても今変革が起ころうとしている。金属素材・部品の成形・製造から劣化・疲労・損傷・破壊に至るまで材料挙動を定量予測しようとする試みである。例えば、金属塑性加工は自動車産業において比較的成熟した技術であると言えるが、軽量化・低コスト化・短納期化が激化する中、より複雑でより大きな変形への要求は今もなお続いている。金属材料の塑性変形は複雑現象であるため、CAE (コンピュータ援用エンジニアリング) による複雑な変形や大変形による形状の予測精度は現状不十分であり実験や試作が避けられない。もし実験や試作が本当に要らなくなるほど予測精度が向上すれば、超低コスト化・超短納期化といった産業への波及効果は極めて大きい。

複雑現象の予測技術のブレイクスルーとしてデータ駆動科学の発展に期待するところは大きい。データ駆動科学の手法を用いると、理論に基づいてモデルを構築する従来法と異なり、大量の観測データから複雑系のモデルを系統的に導き出すことが可能になると期待される。計算機演算能力の向上が背景にあるが、方法論が特に産業界にとって非

常に興味深い。良質で大量のデータを取得できれば、これまで気付かなかった実用的な法則を見出し、従来のモデルを修正あるいは新しいモデルを構築することが可能であることを示唆しているからである。では良質のデータとは何か。精度が高いことは言うまでもないが、現象を的確に反映する指標であることが重要である。連続体力学において最も重要な物理量は応力とひずみである。そしてこの複雑現象の背景にあるものは金属材料の微細組織であり、転位セル組織から結晶粒組織まで広い空間スケールに及ぶ階層構造からなる。これらに関連する情報をバルク材内部 3次元で取得したい。

応力・ひずみ・微細組織を 3次元可視化する手法として、近年、放射光を使った粒界ネットワークスケールの顕微鏡法の進展が著しい。中でも筆者らが注目しているのが H. F. Poulsen らの研究グループによって開発された Three-dimensional x-ray diffraction microscopy (3DXRD)<sup>1-6)</sup>である。この方法では多結晶試料内部の各結晶粒の位置と形状を可視化することができ、各結晶粒の結晶方位と応力が得られる。結晶粒内の方位分布 (粒内方位差) を解析することにより塑性ひずみに関連する情報も得られる。これにより粒界ネットワークスケールにおける応

力、塑性ひずみに関連する情報としての粒内方位差、及び3次元微細組織を得ることができる。高エネルギーX線を用いることで、表面近傍に限らず、(鉄鋼材料において)mmオーダーサイズのバルク試料内部を非破壊可視化できることが特徴である。非破壊であることから塑性変形・疲労・破壊といった金属材料の複雑現象を追跡して3次元データの取得が可能である。この方法を使って多結晶金属材料内部のすべり変形<sup>7-14)</sup>、双晶変形<sup>15-17)</sup>、マルテンサイト変態<sup>18)</sup>、クリープ変形<sup>19)</sup>、衝撃変形<sup>20)</sup>、低サイクル疲労破壊<sup>21)</sup>、き裂先端近傍の応力<sup>22)</sup>、介在物近傍の応力<sup>23)</sup>の可視化や塑性変形モデリング<sup>10,24,25)</sup>への応用が既に報告されている。

しかし現段階の3DXRD法では、試料中の結晶粒数が多くなると解析が困難になるため、結晶粒径を粗大化して、あるいは試料を細くして試料中の粒数を少なくした実験の報告が多く見られる。金属材料は粒径や加工度により機械的特性が大きく変わるため、粗大粒化試料あるいは細くして全体が材料加工層となったような試料は測定のためにモデル化した試料であり、実際の材料の挙動とは定量的には異なる。そこで本記事では、3DXRD法を実際の金属材料に適用するための藤田中央研究所の取り組みについて紹介する。まず3DXRD法の原理(2節)を概説し、実用金属材料への適用へ向けた問題点とその解決方法について解説する(3節)。筆者らの実験方法を示した後(4節)、実用金属材料の結晶方位マッピングを行った結果を紹介する(5節)。また、塑性変形その場観察実験を通して結晶方位から塑性ひずみに関する情報が得られることを示し(6節)、応力解析例として冷間圧延鋼板中に残留する第2種応力の評価結果を紹介する(7節)。

## 2. 3DXRD法の原理

3DXRD法は言わば多結晶の回転結晶法である。多結晶試料に50 keV以上の単色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(Fig. 1)<sup>2-6)</sup>。検出器は試料近く(10 mm以内)に配置する高空間分解能検出器D<sub>1</sub>と、遠く(100 mm以上)に配置する大面積検出器D<sub>2</sub>を用いる。D<sub>2</sub>の回折画像の中から、ブラベー格子及び格子パラメータa, b, c,  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$ を既知として“多結晶指数付け”<sup>26-32)</sup>により、ある結晶粒からの回折斑点を抽出する。回折斑点の重心位置からその結晶粒の平均の方位行列 $u_{ij}$  ( $i, j=1, 2, 3$ )及び弾性ひずみを含んだ格子パラメータ $a', b', c', \alpha', \beta', \gamma'$ を決定する。参照試料などにより無ひずみ(無応力)時における格子パラメータ $a_0, b_0, c_0, \alpha_0, \beta_0, \gamma_0$ を決定することができれば、格子パラメータ $a', b', c', \alpha', \beta', \gamma'$ から結晶座標系の弾性ひずみテンソル $\epsilon_{ij}$  ( $i, j=1, 2, 3$ )が得られる。結晶座標系の弾性ひずみテンソルは単結晶の弾性係数テンソル $C_{ij}$  ( $i, j=1, 2, 3, 4, 5, 6$ )

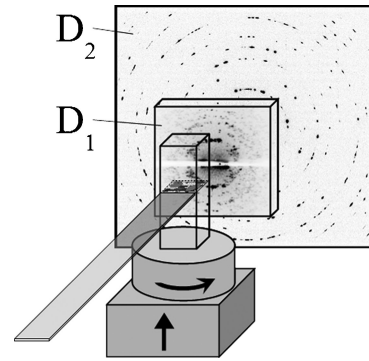


Fig. 1 Schematic of an experimental setup of the 3DXRD method, in which an x-ray sheet-like beam illuminates a polycrystalline sample and diffractions from multiple grains are detected with a near-field detector (D<sub>1</sub>, a high-spatial-resolution area detector) and a far-field detector (D<sub>2</sub>, a large-area detector).

を用いて結晶座標系の応力テンソル $\sigma_{ij}$  ( $i, j=1, 2, 3$ )に変換される。この粒内平均の応力は第2種応力と呼ばれる。結晶座標系の応力テンソルは方位行列を用いて実験室座標系の応力テンソル $\sigma_{ij}$  ( $i, j=x, y, z$ )に変換される。これを回折斑点が得られた各結晶粒に適用する。したがって、ブラベー格子、格子パラメータa, b, c,  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$ 及び弾性係数テンソル $C_{ij}$  ( $i, j=1, 2, 3, 4, 5, 6$ )を既知として、各結晶粒の方位 $u_{ij}$  ( $i, j=1, 2, 3$ )と応力 $\sigma_{ij}$  ( $i, j=x, y, z$ )が得られる<sup>33-36)</sup>。結晶粒の位置と形状の解析には、シート状の入射ビームとD<sub>1</sub>を用いる。D<sub>1</sub>における各回折斑点の位置と形状からビーム入射断面内における結晶粒の位置と形状が解析される<sup>37-40)</sup>。また、回折斑点内の強度分布から結晶粒内の方位分布が解析される<sup>41-46)</sup>。この断面の積み重ねにより3次元再構成が行われる<sup>47-56)</sup>。

## 3. 実用金属材料への適用へ向けた問題点と走査型の提案

3DXRD法では回折斑点の位置や形の情報を基に解析を行うため、異なる結晶粒からの回折斑点が重ならないような実験条件を満たさなければならない。これを満たすため、上述のように、試料中の粒径を粗大化して、あるいは試料を細くして断面内での粒数を少なくする方法がとられる。一方、バルク材の機械的特性を調べる場合、微小試験片のゲージ幅は小さくとも1 mm程度を要する。したがって、粒径を数十 $\mu\text{m}$ 以上に粗大化したモデル試料を使って塑性変形等を調べた3DXRD実験がよく報告されている<sup>7-17,19,20,24,25,45,53-56)</sup>。しかし実用金属材料によく見られる粒径(10 $\mu\text{m}$ 程度)では、1 mmの微小試験片断面内における結晶粒数が多すぎるため、回折斑点が重なり解析不能となる。

この問題を克服するためにマイクロビームを使って一度にX線が入射する粒数を減らすことによって回折斑点の

重なりを抑える方法を提案した<sup>57)</sup>。マイクロビームを使った走査型的手法であることから走査型 3DXRD 法 (Scanning 3DXRD) と呼んでいる。走査型 3DXRD 法では、試料を走査することにより空間分解を行うため  $D_1$  を必要としない。試料周りの空間が広くとれるため、その場観察実験が容易になるという利点もある。また、3DXRD 法では粒内方位分布 (及び粒内応力分布) を解析するためには  $D_1$  上の回折斑点の強度分布データも必要となるが、X 線 2 次元検出器の空間分解能とダイナミックレンジはトレードオフの関係にあるため、粒内分布の再構成は容易ではない。走査型 3DXRD 法では、粒内分布の解析においても  $D_2$  上の回折斑点の位置情報のみを用いて強度情報は用いないため検出器のダイナミックレンジは不要である。

#### 4. 走査型 3DXRD 法の実験方法

走査型 3DXRD 法では細いビームを多結晶試料に入射し、Fig. 2 に示すような回転  $\omega$  により試料を回転しながら、 $D_2$  により回折画像を連続的に記録する。 $\omega$  が  $180^\circ$  回転したら試料を  $-x$  方向に  $\Delta X$  だけ並進させ、これを繰り返し、 $\omega$  及び  $x$  で 2 次元スキャンした回折画像データを得る (Fig. 3 (a))。簡単のため  $x$  方向の入射ビーム幅を  $\Delta X$  とする。2 次元スキャンデータから入射ビームが任意の点  $Q(x_s, y_s)$  を常に通るような  $(\omega, x)$  の関係を満たす回折画像データを抽出する。ここで  $x_s, y_s, z_s$  は試料に固定した直交座標系であり、 $\omega = 0$  のときに実験室座標系  $xyz$  と一致する。 $\omega$  が  $180^\circ$  回転する間入射ビームが点  $Q$  を常に通るとき、Fig. 3 (b) に示すように試料座標系  $x_s, y_s, z_s$  から見ると入射ビームの軌跡は点  $Q$  付近に集中する。そこで、抽出した回折画像の中には点  $Q$  を占める結晶粒の回折斑点が最も多く記録されていると仮定する。正確には、ある結晶粒から検出される回折斑点数  $N$  は結晶方位に依存するため、 $N$  の理論的な最大値を  $M$  として、 $N/M$  が最大となる結

晶粒が点  $Q$  を占める結晶粒であると仮定する。 $N$  は “多結晶指数付け”<sup>26-32)</sup> により決定することができ、 $M$  は理論的に求められる。これにより点  $Q$  を占める結晶粒からの回折斑点が抽出される。3DXRD 法と同様の解析によりこの回折斑点の位置から点  $Q$  を占める結晶粒の方位と応力テンソルが求まる。点  $Q$  を視野全体にわたって掃引することにより方位と第 2 種応力の 2 次元マップが得られる。この 2 次元マップを  $z$  方向に  $\Delta X$  だけずらして積み重ねることにより 3 次元マップが得られる。

#### 5. 結晶方位マッピング

走査型 3DXRD 法による結晶方位マッピング実験を SPring-8 のアンジュレータビームライン BL33XU (豊田ビームライン)<sup>58)</sup> に行った。光学系には Si 311 二結晶分光器、及び Kirkpatrick-Baez 配置集光ミラーを用いた。X 線光子エネルギーは 50 keV、集光ビームサイズは  $1 \sim 2 \mu\text{m}$  である<sup>59)</sup>。検出器には間接型フラットパネル検出器を用いた。試料・検出器間距離は 400 mm 程度で、 $M$  は 100 ~ 200 である。

試料には一般塑性加工用として広く実用に供されている冷間圧延鋼板 SPCC (JIS G 3141) を用いた。1 mm 厚の SPCC から走査型電子顕微鏡用試料を作成し、電子線後方散乱回折法 (EBSD) により得られた表面の方位マップと粒径ヒストグラムをそれぞれ Fig. 4 (a) 及び 4 (b) に示す。走査型 3DXRD 実験用には SPCC からワイヤカット加工により幅 1 mm の試料を切り出し、試料長手方向を  $z$  方向とした。したがって、 $xy$  面内の試料断面積は  $1 \times 1 \text{ mm}^2$  である。ただし、走査型 3DXRD 実験と EBSD 評価に用いた SPCC の製造ロットは異なる。

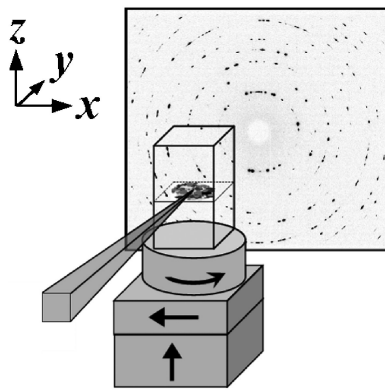


Fig. 2 Schematic of an experimental setup of the scanning 3DXRD method, in which an x-ray microbeam illuminates a polycrystalline sample and diffractions from multiple grains are detected with  $D_2$ .

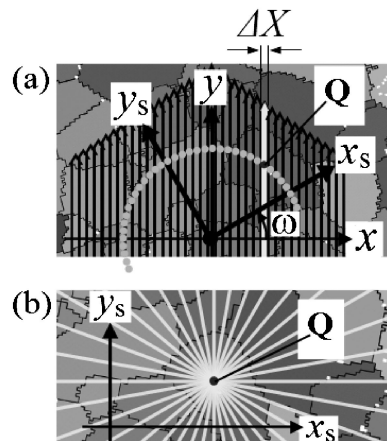


Fig. 3 Geometric illustration of (a) the determination of a grain occupying an arbitrary point  $Q(x_s, y_s)$  in an  $xy$ -plane and (b) incident beam paths observed in a fixed sample system. The sample system  $x_s, y_s, z_s$  is identical to the laboratory system  $xyz$  at  $\omega = 0^\circ$ . For convenience, the  $x$  scan step is set to be equal to the beam width  $\Delta X$ .



走査型 3DXRD 法により  $xy$  面内の 2 次元方位マッピング ( $\Delta X=1\ \mu\text{m}$ ) を行った結果を Fig. 5(a) に示す<sup>60,61)</sup>。方位マップから得られた粒径のヒストグラムを Fig. 5(b) に示す。視野が狭いため統計ばらつきが見られるものの、平均値はおよそ  $15\ \mu\text{m}$ 、分布はおよそ  $5\sim 25\ \mu\text{m}$  となっており、EBSD による評価と概ね一致が得られている。3DXRD 的手法により粒径  $20\ \mu\text{m}$ ・断面積  $1\times 1\ \text{mm}^2$  の実用金属材料

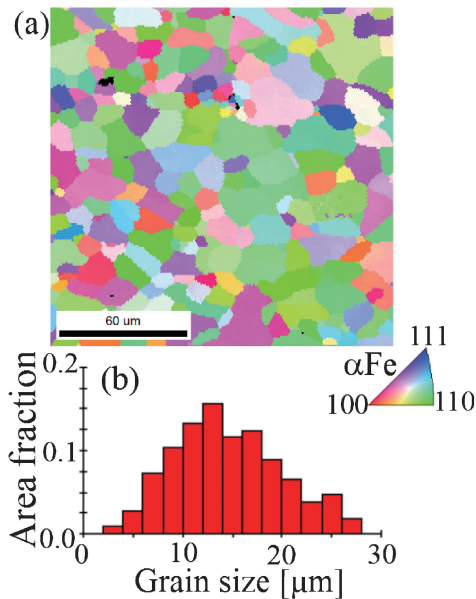


Fig. 4 (Color online) (a) Orientation map and (b) grain size histogram of a cold-rolled low-carbon steel sheet obtained by EBSD.

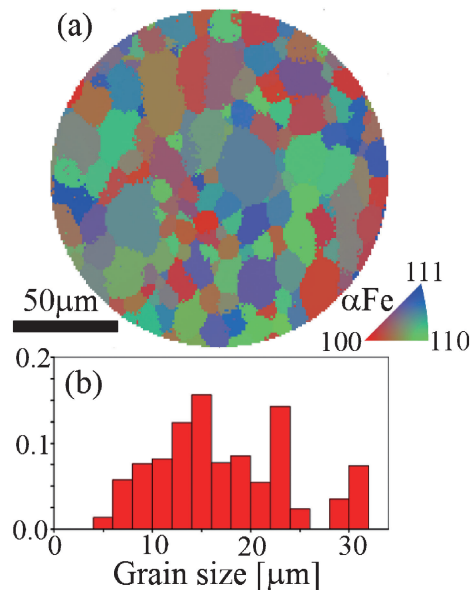


Fig. 5 (Color online) (a) Orientation map and (b) grain size histogram of a cold-rolled low-carbon steel sheet obtained by scanning 3DXRD. The pixel size is  $1\times 1\ \mu\text{m}$ . The orientation is expressed by the inverse pole figure of the longitudinal direction of the sample.

試料において粒径が評価できる程度の方角マップが得られたのはこれが初めてである。

実用材料への有用性は実証できたが、課題は 3 次元方位マップを得るのに 3 次元スキャン ( $\omega, x, z$ ) を要する点である。高フレームレートタイプに属する市販の  $D_2$  用検出器を用いて、 $\omega$  スキャンを連続・ノンストップ・エンドレス回転として 3 次元スキャン実験を行った。検出器のフレームレートを 33 Hz、 $\omega$  回転速度を  $20^\circ/\text{sec}$ 、測定時間を約 12 時間としたとき、ボクセル数  $37\times 37\times 37$  の 3 次元マップが得られる。初めての 3 次元方位マッピング実験 ( $\Delta X=2\ \mu\text{m}$ ) の結果を Fig. 6 に示す<sup>59)</sup>。まだ不鮮明ではあるものの 3 次元的な結晶粒ネットワークを確認できる。最新の研究によれば再構成アルゴリズムのブラッシュアップ等により 3 次元粒界は徐々に鮮明になってきている。SPring-8 の高エネルギー高輝度放射光 X 線を用いることにより現実的な時間で 3 次元マッピングが可能であることが実証されたと言える。

## 6. 塑性変形の観察

実用金属材料の塑性加工は主にすべり変形現象を利用している。すべり変形は、転位を含む結晶にせん断応力が作用し転位がすべり面を移動することにより、結晶面にずれが生じることにより起こる。応力が作用した状態ですべりが起きると結晶の回転が生じ、結晶回転は結晶方位の変化をもたらす。したがって、塑性変形は結晶方位の変化として検出することができる。本節では走査型 3DXRD 法により塑性変形に伴う方位変化を測定した例を紹介する。

試料には純鉄線材 (純度 99.9%、直径  $0.5\ \text{mm}$ ) を焼鈍し平均粒径  $60\ \mu\text{m}$  に粗大粒化したものを用いた。線材の長手方向を  $z$  方向としてその場観察引張試験機に装着し、長手方向に単軸引張を加えた。走査型 3DXRD 測定は BL33XU にて Si 220 チャンネルカット分光器を用いて行った。X 線光子エネルギーは  $40\ \text{keV}$  とし、入射ビームには

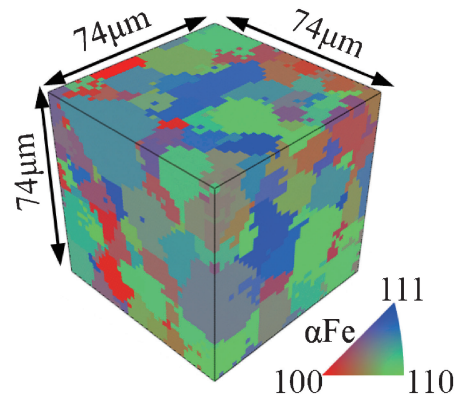
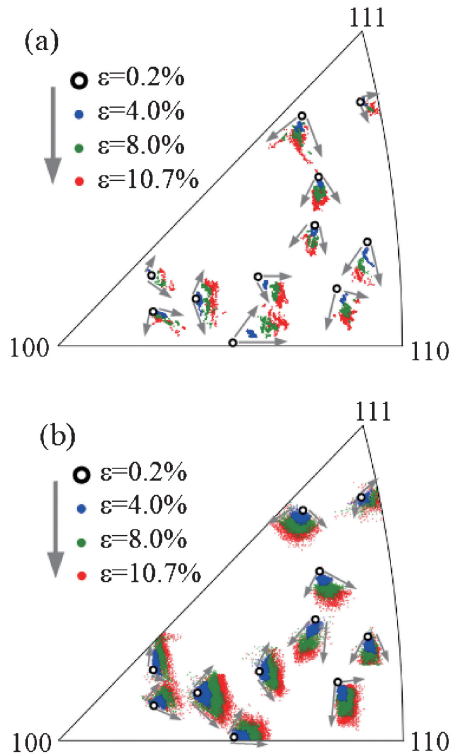


Fig. 6 (Color online) Three-dimensional orientation map of a cold-rolled low-carbon steel sheet by scanning 3DXRD. The voxel size is  $2\times 2\times 2\ \mu\text{m}$ .



**Fig. 7** (Color online) (a) Observed and (b) simulated changes in orientation of 11 grains in a coarse-grained pure Fe wire deformed by  $\varepsilon=0.2\%$ ,  $4.0\%$ ,  $8.0\%$  and  $10.7\%$ . The orientations are represented by the inverse pole figures of the tensile direction.

集光素子を用いずに  $20\ \mu\text{m}$  開口スリットを用いた。

引張ひずみ  $\varepsilon=0.2\%$ ,  $4.0\%$ ,  $8.0\%$ ,  $10.7\%$  において 3 次元結晶方位マッピングを行い、主に粗大な 11 個の結晶粒の方位を抽出した。結果を引張方向の逆極点図として **Fig. 7(a)** に示す<sup>62)</sup>。 $\varepsilon$  が大きくなるにつれて (i) 平均的には体心立方格子の単軸引張優先方位である  $\langle 110 \rangle$  に向かって概ね回転しており、マクロに平均的な結晶回転挙動と一致する。(ii) 結晶粒ごとに見ると  $\langle 110 \rangle$  以外の方向への複雑な回転が見られる。これは多結晶においては外部荷重が単軸であっても内部では多軸応力が発生している (3 軸応力状態にあると言う) ことを示唆している。また、(iii) 結晶粒内の方位が不均一になる様子が見られる。これは、方位の異なる隣接粒に 3 次元的に拘束された結晶粒は自由に変形することができずに粒内において不均一に変形することを示している。走査型 3DXRD 法により結晶粒内の方位差が観測されるのは、**Fig. 3(b)** を見ると分かるように、 $180^\circ$  回転で抽出された回折斑点の位置は結晶粒内において特に点 Q の方位を反映するためである。ただし、点 Q 以外の点における方位も少なからず寄与し平均化されるため、粒内方位差は過小評価されていると考えられる。

実験結果の妥当性を定量的に調べるために結晶塑性有限要素法 (CPFEM) によるシミュレーションを行った<sup>63)</sup>。シミュレーションでは初期方位分布を  $\varepsilon=0.2\%$  における

実験データをそのまま採用し、実験データのない周辺部分を等方弾塑性体とした上で周期境界条件とし、理想短軸引張変形を行った。結果を **Fig. 7(b)** に示す。(i) 平均的な回転方向と回転量は実験と CPFEM シミュレーションで概ね一致している。(ii) 粒ごとに見られる多方向への複雑な回転については、CPFEM シミュレーションにもそのような傾向が見られるが、実験とシミュレーションで回転方向と回転量に不一致が見られる。これは、本実験のボクセルサイズ ( $25 \times 25 \times 25\ \mu\text{m}$ ) が大きく、シミュレーションにおける結晶粒形状のモデル化精度が不十分であることが主な原因であり、マイクロビーム化により改善される見込みである。(iii) 粒内方位差量については CPFEM シミュレーションに比べて実験結果が明らかに小さい。これは、上述のように現状の走査型 3DXRD 法は粒内方位差を過小評価するためであり、走査型 3DXRD 実験のフォワードモデリングなどを用いて再構成方法を修正することにより定量性向上が可能であると考えられる。

## 7. 応力解析

本節では応力評価の例として 5 節の 2 次元方位マッピング (**Fig. 5**) に用いた実験データを使って応力解析を行った結果を紹介する。実験データから格子パラメータを求め、その平均値を無ひずみ時の格子パラメータと仮定し、結晶方位と  $\alpha\text{Fe}$  の弾性係数として  $C_{11}=228.09\ \text{GPa}$ ,  $C_{12}=133.48\ \text{GPa}$ ,  $C_{44}=110.86\ \text{GPa}$  を用いて実験室系応力テンソル  $\sigma_{ij}$  ( $i, j=x, y, z$ ) に変換した。これにより第 2 種応力が評価され得る。

応力テンソル成分のうち y 方向の垂直応力を **Fig. 8(a)** に示す<sup>60)</sup>。比較のため結晶方位マップ (**Fig. 8(b)**) と並べると、結晶粒径と同程度の大きさからなる不均一性が  $\sigma_{yy}$  マップ (**Fig. 8(a)**) に見られることが分かる。これは結晶粒ごとの応力差が捉えられていることを示唆している。その応力差は最大で  $400\ \text{MPa}$  にのぼる。SPCC 材の降伏強度・引張強度は JIS に規定されていないが、引張試験より降伏強度は約  $110\ \text{MPa}$ 、引張強度は約  $150\ \text{MPa}$  であった (ただし、引張試験と応力マッピング実験の試料個体は異なる)。つまり商用流通 SPCC 材に既に引張強度の 2 倍以上の応力が残留していることになる。筆者らの知る限り従来の巨視的な応力測定により加工前の SPCC 材にこれほど大きな残留応力が確認された報告はなく、本手法により SPCC 材の第 2 種応力が測定できるようになって初めて得られた知見である可能性がある。巨視的な破壊も微視的な損傷を起点に発生するため、従来巨視的な応力測定で説明できなかった破壊現象も微視的な応力測定により解明できる可能性がある。ただし、本手法の応力測定精度は従来の回折計を用いた応力測定法と比べて低く、2 次元検出器の姿勢パラメータ等の精度にも依存するため、現在結果の確からしさの検証を行っている。

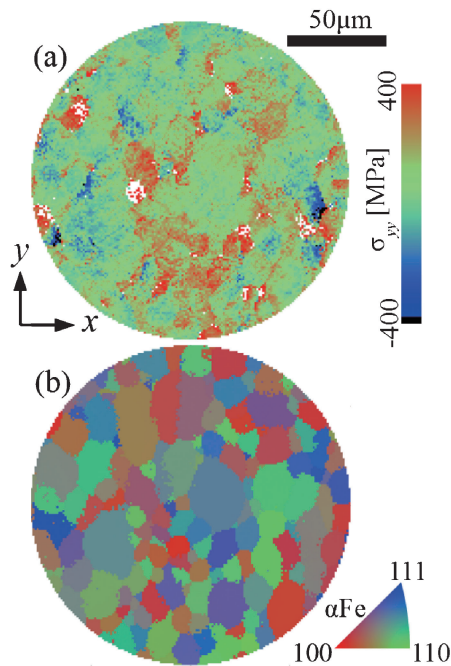


Fig. 8 (Color online) Maps of (a) residual stress  $\sigma_{yy}$  and (b) orientation of a cold-rolled low-carbon steel sheet.

本手法のもう1つの大きな特徴は応力テンソル全成分を一度に測定することができる点である。3軸応力状態において異なる方向の垂直応力の差が大きいかほど塑性変形が生じ易い。一方、平均の垂直応力が大きいかにも関わらず垂直応力差が小さいと破壊が生じ易いと言われている。前節でも見られたように最も単純な変形の1つである単軸引張試験でも、多結晶材料内部では各結晶粒が3次元的に拘束され自由に塑性変形できないため複雑な3軸応力が発生する。また、すべり変形にはすべり面に作用するせん断応力が深く関わっている。応力テンソル全成分が得られればこのような変形・破壊挙動の詳細な解析が可能となる。

## 8. まとめ

3DXRD法は高エネルギー放射光X線を使って多結晶金属材料内部における結晶方位と応力の非破壊3次元観察を可能にした新しい手法である。3DXRD法で最大の問題となる回折斑点の重なりを解決するためマイクロビームを用いて試料を走査し再構成の指標として結晶粒ごとの回折斑点数を用いる走査型3DXRD法を考案した。走査型3DXRD法では高エネルギーX線マイクロビームを用いて3次元スキャンを必要とするが、SPring-8の高エネルギー高輝度放射光X線によりこれが可能であることを示した。高エネルギーX線マイクロビームを用いた走査型3DXRD法により、一般塑性加工用として広く実用に広く供されている冷間圧延鋼板(SGCC, 1mm厚, 粒径20 $\mu$ m)の非破壊結晶方位マッピングに初めて成功した。また、結

晶粒ごとの応力差(第2種応力)、及び、結晶方位の変化(結晶回転)から塑性変形が評価できることを実験的に示した。

## 9. 最後に

金属材料の塑性変形のような複雑現象の定量予測にはモデリングが不可欠であり、3DXRD法のような実験データの重要性が今後一層増していくことは冒頭で述べた通りである。本記事で紹介した3DXRD法の実用材料への適用は重要なステップであるが、CAEレベルでの実用化を目指す著者らの研究においてはまだ初期の段階であると言える。実験データだけをとっても、方位マッピングにおけるアーティファクトの低減、粒内方位差量の定量性の向上、粒内応力分布(第3種応力と呼ばれる)の再構成、空間分解能の向上、複合組織(例えば、フェライト・パーライト炭素鋼など)の再構成、ボクセル数の向上(または測定時間の短縮化)等々、課題は山積している。空間分解能のマイルストーンとしては、微細粒(数 $\mu$ m)、サブグレイン(数百nm)、転位セル(100nm)の可視化の順となるであろう。高エネルギーであるためビームサイズを小さくするのは容易ではないが、加えて、 $\omega$ 回転ステージの芯振れ、振動、ドリフトなどを低減し、ビームと $\omega$ 回転ステージの軸合わせ精度、検出器の感度などを向上させる必要もある。

生産・加工技術高度化のためのモデリングに限らず、金属材料は構造物の荷重を支える部材として使用されるため疲労やクリープのような寿命に関わる材料挙動の理解においても3DXRD法の非破壊の特徴は非常に有用である。現在、EBSDによる方位像顕微鏡(OIM)が金属材料のキャラクタリゼーションに欠かせない顕微鏡法になっているが、EBSD-OIMでは自由表面の応力緩和状態における力学的挙動の観察に限られる。3DXRD的手法は、3次元拘束化の3軸応力状態における非破壊方位・応力マッピングを可能にし、材料内部で実際に起こっている変形・損傷・破壊挙動を観察することができる。このような非破壊観察は、例えば、自動車材料マルチマテリアル化の鍵である異種接合の耐久性に関わる損傷・破壊メカニズム解析などにも有用である。産業界においてこのような非破壊評価のニーズは非常に根強い。しかし、本記事で紹介したようなX線の透過能では適用できるケースが限られてしまうことが多い。マイクロビームの更なる高エネルギー化が実現すれば産業界に広く展開できるようになるため次世代放射光源に期待するところは非常に大きい。

結晶学の観点から見ると3DXRD法により多結晶指数付けが可能になったことが大きな進歩である。最初の段階として、多結晶試料において結晶構造を既知として方位・ひずみを解析し、それを顕微鏡法的に利用する有用性が示された。最近、次の段階への進展が見られる。結晶構造が



未知の場合の多結晶指数付けである<sup>64</sup>)。重なりのない多結晶回折斑点データからアプリアリな結晶学的情報なしに結晶構造を特定する。問題は現実的な計算時間にするためのアルゴリズムである。現在、鉱物の結晶構造を用いたシミュレーションで数百個の結晶粒の多結晶指数付けが報告されている。多結晶指数付けの高速化の研究も行われている。将来的には、単結晶や粉末にできない多結晶試料、または多結晶のまま解析したい試料の結晶構造解析が可能になると期待できる。

## 謝辞

マイクロビーム集光装置の導入にあたり(公財)高輝度光科学研究センター(JASRI)の大橋治彦博士及び湯本博勝博士に多大なるご協力を頂きました。ここに感謝申し上げます。本研究開発は SPring-8 BL33XU において実施したものです(課題番号2010A7002, 2010B7002, 2011B7002, 2012A7002, 2012B7002, 2014B7002, 2015A7002, 2015B7002, 2016A7002)。また、本研究は JSPS 科研費 JP22760571, JP26870932 の助成を受けたものです。長年にわたり(株)豊田中央研究所の門浦弘明氏、高谷恭弘氏、木村英彦氏、鈴木智博氏、山口聡氏、野中敬正氏、堂前和彦氏にご協力頂きました。

## 参考文献

- 1) L. Margulies, G. Winther and H. F. Poulsen: *Science* **291**, 2392 (2001).
- 2) H. F. Poulsen: *Three-Dimensional X-ray Diffraction Microscopy* (Springer, Berlin, 2004).
- 3) D. Juul Jensen, E. M. Lauridsen, L. Margulies, H. F. Poulsen, S. Schmidt, H. O. Sørensen and G. B. M. Vaughan: *Mater. today* **9**, 18 (2006).
- 4) H. F. Poulsen: *Advanced Tomographic Methods in Materials Science and Engineering*, edited by J. Bannhart (Oxford University Press, New York, 2008), p. 249.
- 5) D. Juul Jensen and H. F. Poulsen: *Mater. Charact.* **72**, 1 (2012).
- 6) H. F. Poulsen: *J. Appl. Cryst.* **45**, 1084 (2012).
- 7) H. F. Poulsen, L. Margulies, S. Schmidt and G. Winther: *Acta Mater.* **51**, 3821 (2003).
- 8) G. Winther, L. Margulies, S. Schmidt and H. F. Poulsen: *Acta Mater.* **52**, 2863 (2004).
- 9) H. O. Sørensen, B. Jakobsen, E. Knudsen, E. M. Lauridsen, S. F. Nielsen, H. F. Poulsen, S. Schmidt, G. Winther and L. Margulies: *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **246**, 232 (2006).
- 10) R. Pokharel, J. Lind, A. K. Kanjarla, R. A. Lebensohn, S. F. Li, P. Kenesei, R. M. Suter and A. D. Rollett: *Annu. Rev. Condens. Matter Phys.* **5**, 317 (2014).
- 11) J. Oddershede, J. P. Wright, A. Beaudoin and G. Winther: *Acta Mater.* **85**, 301 (2015).
- 12) R. Pokharel, J. Lind, S. F. Li, P. Kenesei, R. A. Lebensohn, R. M. Suter and A. D. Rollett: *Int. J. Plasticity* **67**, 217 (2015).
- 13) G. Winther, J. P. Wright, S. Schmidt and J. Oddershede: *Int. J. Plasticity* **88**, 108 (2017).
- 14) Z. Huang, L. Wang, B. Zhou, T. Fischer, S. Yi and X. Zeng: *Scripta Mater.* **143**, 44 (2018).
- 15) C. C. Aydiner, J. V. Bernier, B. Clausen, U. Lienert, C. N. Tomé and D. W. Brown: *Phys. Rev. B* **80**, 024113 (2009).
- 16) L. Wang, J. Lind, H. Phukan, P. Kenesei, J.-S. Park, R. M. Suter, A. J. Beaudoin and T. R. Bieler: *Scripta Mater.* **92**, 35 (2014).
- 17) H. Abdolvand, M. Majkut, J. Oddershede, J. P. Wright and M. R. Daymond: *Acta Mater.* **93**, 246 (2015).
- 18) P. Sedmák, J. Pilch, L. Heller, J. Kopeček, J. P. Wright, P. Sedlák, M. Frost and P. Šittner: *Science* **353**, 559 (2016).
- 19) J. C. Schuren, P. A. Shade, J. V. Bernier, S. F. Li, B. Blank, J. Lind, P. Kenesei, U. Lienert, R. M. Suter, T. J. Turner, D. M. Dimiduk and J. Almer: *Curr. Opin. Solid State Mater. Sci.* **19**, 235 (2014).
- 20) D. B. Menasche, J. Lind, S. F. Li, P. Kenesei, J. F. Bingert, U. Lienert and R. M. Suter: *J. Appl. Phys.* **119**, 154902 (2016).
- 21) A. D. Spear, S. F. Li, J. F. Lind, R. M. Suter and A. R. Ingraffia: *Acta Mater.* **76**, 413 (2014).
- 22) J. Oddershede, B. Camin, S. Schmidt, L. P. Mikkelsen, H. O. Sørensen, U. Lienert, H. F. Poulsen and W. Reimers: *Acta Mater.* **60**, 3570 (2012).
- 23) D. Naragani, M. D. Sangid, P. A. Shade, J. C. Schuren, H. Sharma, J.-S. Park, P. Kenesei, J. V. Bernier, T. J. Turner and I. Parr: *Acta Mater.* **137**, 71 (2017).
- 24) T. Turner, P. A. Shade, J. V. Bernier, S. F. Li, J. C. Schuren, P. Kenesei, R. M. Suter and J. Almer: *Metall. Mater. Trans. A* **48**, 627 (2017).
- 25) H. Abdolvand, J. P. Wright and A. J. Wilkinson: *Nat. Commun.* **9**, 171 (2018).
- 26) E. M. Lauridsen, S. Schmidt, R. M. Suter and H. F. Poulsen: *J. Appl. Cryst.* **34**, 744 (2001).
- 27) M. Moscicki, P. Kenesei, J. P. Wright, H. Pinto, T. Lippmann, A. Borbély and A. R. Pyzalla: *Mater. Sci. Eng. A* **524**, 64 (2009).
- 28) J. V. Bernier, N. R. Barton, U. Lienert and M. P. Miller: *J. Strain Anal. Eng. Des.* **46**, 527 (2011).
- 29) H. O. Sørensen, S. Schmidt, J. P. Wright, G. B. M. Vaughan, S. Teichert, E. F. Garman, J. Oddershede, J. Davaasambu, K. S. Paithankar, C. Gundlach and H. F. Poulsen: *Z. Kristallogr.* **227**, 63 (2012).
- 30) H. Sharma, R. M. Huizenga and S. E. Offerman: *J. Appl. Cryst.* **45**, 693 (2012).
- 31) H. Sharma, R. M. Huizenga and S. E. Offerman: *J. Appl. Cryst.* **45**, 705 (2012).
- 32) S. Schmidt: *J. Appl. Cryst.* **47**, 276 (2014).
- 33) J. Oddershede, S. Schmidt, H. F. Poulsen, H. O. Sørensen, J. Wright and W. Reimers: *J. Appl. Cryst.* **43**, 539 (2010).
- 34) M. B. Cil, K. Alshibli, P. Kenesei and U. Lienert: *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **324**, 11 (2014).
- 35) R. C. Hurley, S. A. Hall and J. P. Wright: *Proc. R. Soc. A* **473**, 20170491 (2017).
- 36) L. Renversade and A. Borbély: *J. Appl. Cryst.* **50**, 1144 (2017).
- 37) H. F. Poulsen, S. F. Nielsen, E. M. Lauridsen, S. Schmidt, R. M. Suter, U. Lienert, L. Margulies, T. Lorentzen and D. Juul Jensen: *J. Appl. Cryst.* **34**, 751 (2001).
- 38) S. F. Nielsen, E. M. Lauridsen, D. Juul Jensen and H. F. Poulsen: *Mater. Sci. Eng. A* **319-321**, 179 (2001).
- 39) H. F. Poulsen and X. Fu: *J. Appl. Cryst.* **36**, 1062 (2003).
- 40) L. Rodek, H. F. Poulsen, E. Knudsen and G. T. Herman: *J. Appl. Cryst.* **40**, 313 (2007).
- 41) A. Alpers, H. F. Poulsen, E. Knudsen and G. T. Herman: *J. Appl. Cryst.* **39**, 582 (2006).
- 42) M. Hefferan, S. F. Li, J. Lind, U. Lienert, A. D. Rollett, P.

- 
- Wynblatt and R. M. Suter: *Comput. Mater. Continua* **14**, 209 (2009).
- 43) S. West, S. Schmidt, H. O. Sørensen, G. Winther, H. F. Poulsen, L. Margulies, C. Gundlach and D. Juul Jensen: *Scripta Mater.* **61**, 875 (2009).
- 44) K. J. Batenburg, J. Sijbers, H. F. Poulsen and E. Knudsen: *J. Appl. Cryst.* **43**, 1464 (2010).
- 45) S. F. Li, J. Lind, C. M. Hefferan, R. Pokharel, U. Lienert, A. D. Rollett and R. M. Suter: *J. Appl. Cryst.* **45**, 1098 (2012).
- 46) S. F. Li and R. M. Suter: *J. Appl. Cryst.* **46**, 512 (2013).
- 47) X. Fu, H. F. Poulsen, S. Schmidt, S. F. Nielsen, E. M. Lauridsen and D. Juul Jensen: *Scripta Mater.* **49**, 1093 (2003).
- 48) S. Schmidt, S. F. Nielsen, C. Gundlach, L. Margulies, X. Huang and D. Juul Jensen: *Science* **305**, 229 (2004).
- 49) X. Fu, E. Knudsen, H. F. Poulsen, G. T. Herman, B. M. Carvalho and H. Y. Liao: *Opt. Eng.* **45**, 116501 (2006).
- 50) S. Schmidt, U. L. Olsen, H. F. Poulsen, H. O. Sørensen, E. M. Lauridsen, L. Margulies, C. Maurice and D. Juul Jensen: *Scripta Mater.* **59**, 491 (2008).
- 51) V. E. Borthwick, S. Schmidt, S. Piazzolo and C. Gundlach: *Geochem. Geophys. Geosyst.* **13**, Q05005, 1–9 (2012).
- 52) B. Lin, Y. Jin, C. M. Hefferan, S. F. Li, J. Lind, R. M. Suter, M. Bernacki, N. Bozzolo, A. D. Rollett and G. S. Rohrer: *Acta Mater.* **99**, 63 (2015).
- 53) P. A. Shade, B. Blank, J. C. Schuren, T. J. Turner, P. Kenesei, K. Goetze, R. M. Suter, J. V. Bernier, S. F. Li, J. Lind, U. Lienert and J. Almer: *Rev. Sci. Instrum.* **86**, 093902 (2015).
- 54) E. Wielewski, D. B. Menasche, P. G. Callahan and R. M. Suter: *J. Appl. Cryst.* **48**, 1165 (2015).
- 55) L. Renversade, R. Quey, W. Ludwig, D. Menasche, S. Maddali, R. M. Suter and A. Borbély: *IUCrJ* **3**, 32 (2016).
- 56) N. Y. Juul, G. Winther, D. Dale, M. K. A. Koker, P. Shade and J. Oddershede: *Scripta Mater.* **120**, 1 (2016).
- 57) Y. Hayashi, Y. Hirose and Y. Seno: *J. Appl. Cryst.* **48**, 1094 (2015).
- 58) T. Nonaka, K. Dohmae, Y. Hayashi, T. Araki, S. Yamaguchi, Y. Nagai, Y. Hirose, T. Tanaka, H. Kitamura, T. Uruga, H. Yamazaki, H. Yumoto, H. Ohashi and S. Goto: *AIP Conf. Proc.* **1741**, 030043 (2016).
- 59) Y. Hayashi, Y. Hirose and Y. Seno: *AIP Conf. Proc.* **1741**, 050024 (2016).
- 60) Y. Hayashi, D. Setoyama and Y. Seno: *Mater. Sci. Forum* **905**, 157 (2017).
- 61) Y. Hayashi, Y. Seno and T. Yoshida: *Acta Crystallogr. A* **73**, C854 (2017).
- 62) Y. Hayashi, Y. Hirose and D. Setoyama: *Mater. Sci. Forum* **777**, 118 (2014).
- 63) D. Setoyama, Y. Hayashi and N. Iwata: *Mater. Sci. Forum* **777**, 142 (2014).
- 64) C. Wejdemann and H. F. Poulsen: *J. Appl. Cryst.* **49**, 616 (2016).



## 著者紹介

**林雄二郎**

㈱豊田中央研究所 研究員

E-mail: y-hayashi@mosk.tytlabs.co.jp

専門：X線回折，金属材料

**【略歴】**

2006年九州大学総合理工学府先端エネルギー理工学博士後期課程修了，博士（工学）。北海道大学電子科学研究所博士研究員，日本学術振興会特別研究員を経て，2008年より現職。

**瀬戸山大吾**

㈱豊田中央研究所 研究員

E-mail: daigo@mosk.tytlabs.co.jp

専門：X線回折，材料力学

**【略歴】**

2005年大阪大学大学院工学研究科原子力工学専攻博士後期課程修了，博士（工学）。2005年より現職。

**広瀬美治**

E-mail: yoshih@mvc.biglobe.ne.jp

**【略歴】**

1976年名古屋大学工学研究科修士課程卒業（応用物理学専攻）。1976年㈱豊田中央研究所入社。2008～2014年SPring-8常駐を経て，2015年定年退職。

**妹尾与志木**

公益財団法人佐賀県地域産業支援センター九州シンクロトン光研究センター 副所長

E-mail: seno@saga-ls.jp

専門：金属材料，回折法を中心とした材料解析

**【略歴】**

1986年九州大学大学院総合理工学研究科材料開発工学専攻博士後期課程修了，工学博士。1986年㈱豊田中央研究所入社。2017年より現職。

## Orientation and stress mapping in polycrystalline materials by the scanning 3DXRD method

**Yujiro HAYASHI**

Materials Analysis & Evaluation Division, Toyota Central R&D Laboratories Inc., 41-1, Yokomichi, Nagakute, Aichi 480-1192, Japan

**Yoshiharu HIROSE**

Materials Analysis & Evaluation Division, Toyota Central R&D Laboratories Inc., 41-1, Yokomichi, Nagakute, Aichi 480-1192, Japan

**Daigo SETOYAMA**

Materials Analysis & Evaluation Division, Toyota Central R&D Laboratories Inc., 41-1, Yokomichi, Nagakute, Aichi 480-1192, Japan

**Yoshiki SENO\***

Materials Analysis & Evaluation Division, Toyota Central R&D Laboratories Inc., 41-1, Yokomichi, Nagakute, Aichi 480-1192, Japan

\*Present affiliation is SAGA Light Source, 8-7, Yayoigaoka, Tosu, Saga 841-0005, Japan

**Abstract** Three-dimensional x-ray diffraction microscopy (3DXRD) has enabled non-destructive 3D mapping of orientations and stresses in polycrystalline materials. One of important challenges of 3DXRD is mechanical 3D characterization of engineering materials such as steel. The main difficulty of grain map reconstruction for such materials is caused by the overlap of polycrystalline diffraction spots due to a large number of grains with mosaic spreads. As a solution, we have proposed a scanning-type approach, termed scanning 3DXRD. In this method, an x-ray microbeam is used to reduce the overlaps of polycrystalline diffraction spots. For robust reconstruction of a grain map from a large number of polycrystalline diffraction spots, the number of diffraction spots per grain is analyzed. We demonstrated non-destructive orientation mapping in a commercial cold-rolled low-carbon steel sheet with a thickness of 1 mm for the first time. This review gives the current summary of the scanning 3DXRD method.