

課題番号 : 2017A-E10

利用課題名 : 二重露光法を利用した粗大粒および微小領域のひずみ測定への挑戦

Program Title : An attempt to measure strains of coarse grains and micro area using double exposure method

利用者名 : 鈴木賢治¹⁾, 菖蒲敬久²⁾, 安田 良³⁾, 城 鮎美³⁾, 木曾義隆⁴⁾

Username : K. Suzuki¹⁾, T. Shobu²⁾, R. Yasuda³⁾, A. Shiro³⁾, Y. Kiso⁴⁾

所属名 : 1) 新潟大学人文社会教育科学系, 2) 日本原子力研究 開発機構原子力科学研究部門,
3) 量子科学技術研究開発機構量子ビーム科学部門, 4) 新潟大学教育学部

Affiliation : 1) Niigata University, 2) Sector of Nuclear Science Research, JAEA,
3) Quantum Beam Science Research Directorate, NIQRST

キーワード : Strain, Coarse grains, X-ray stress measurement, Synchrotron, Double exposure method, 3D-XRD

1. 概要 (Summary)

中性子および放射光を利用した材料の内部の非破壊的ひずみ測定法として、0次元検出器を利用したひずみスキニング法が提案されている⁽¹⁾。この方法はひずみマップを作成できる優れた方法として、回折が連続環の材料を対象に利用されている。しかし、ひずみスキニング法は、

- 0次元検出器であるために3次元分布を測定するのに時間を要する、
- 粗大粒を持つ材料には適用できない、

などの問題があった。その解決策として2次元検出器と回転スリットシステムを利用した回折斑点追跡法 (DSTM: Diffraction Spot Trace Method) が提案され、粗大粒のひずみ評価が可能となった⁽²⁾。

微小領域のひずみ測定は、測定領域内の結晶数が減少するので、粗大粒問題と同等な問題と見ることができる。本課題においては、試験片を操作せずに透過法で得られる回折像を2カ所で測定し、その画像解析から回折角と回折位置を決定できる新たな測定方法として二重露光法 (DEM: Double Exposure Method) を提案すると共に、その可能性について実験的に検討する。粗大粒の二重露光法は、結晶粒と回折斑点の2点による回折線とX線ビームの2直線に着目し、その点と線の幾何学的関係を解くことで、その結晶粒の位置とひずみを評価する方法である。本方法を実現するには、透過力のある高エネルギーX線と指向性の優れたX線ビームが必要となる。また、2次元検出器、ステージなどの精度も必要となる。そのため、大型放射光を利用することで実現できる実験手法である。

今回は最初のDEM実験であり、二重露光法の完成までには多くの課題がある。本課題では、アルミニウム試験片を対象にして30 keVのX線エネルギーで、回折装置に自動ステージを載せ、検出器としてPILATUS-300Kを利用して二重露光法の実験を実施した。本実験において、既知のひずみを負荷して二重露光法でひずみと位置を同定した。その結果、原理的に二重露光法は可能であることが実証され、

測定精度の改善により実用化できることがわかった。

今後、検出器の空間分解能やより高いX線エネルギーへの対応、回折斑点の位置や二重露光画像のマッチングなどの解析方法について実験と改善を重ねることが求められる。本方法が完成されるならば、微小領域または粗大粒を持つ材料の内部ひずみとその位置が効率的により単純な装置系で実現でき、3D-XRDに並ぶ測定技術として期待できる。

2. 実験 (Experimental)

2.1 二重露光法の原理

高エネルギー放射光X線ビームが試料を透過するとき、透過ビームにある結晶粒から回折X線が得られる。試料が粗大粒ならば、回折に関与する結晶粒は離散的であり、かつ回折像は斑点となる。このような回折現象を考えると、図1で説明されるように1個の任意の結晶からの回折斑点を2次元検出器で測定することができる。

図1に示すように、同一回折斑点を2次元検出器を P_1 と P_2 の2箇所に移動して、位置 $P_1 = (x_1, y_1, z_1)$, $P_2 = (x_2, y_2, z_2)$ を測定する。このとき、X線ビームで描かれる直線 l_X と P_1 と P_2 で構成する直線 l の2直線の関係から回折角 2θ および回折結晶の位置 $P_C = (x_C, y_C, z_C)$ を求めることができる。3次元空間における実験室座標系の位置 (x, y, z) が高精度で決定され、2直線の関係が求められれば、その結晶粒のひずみと位置を知ることができる。この方法

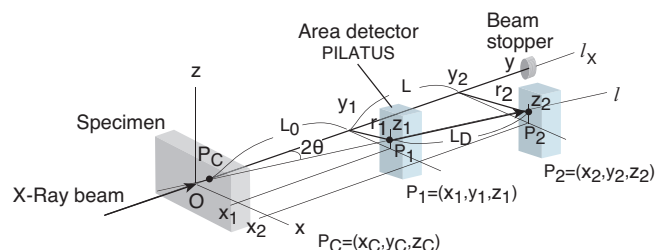


Fig. 1. Optics for double exposure method.

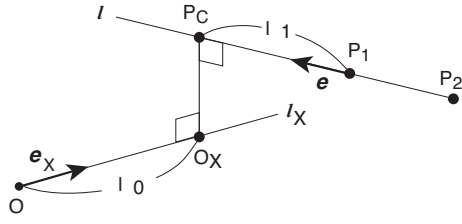


Fig. 2. Intersection between X-ray and diffracted beams.

を二重露光法 (DEM) と名付ける。

DEM の具体的な手法としては、回折装置の 0 次元検出器を取り外し、 2θ のアームに 1 軸の自動ステージを搭載し、その上に 2 次元検出器 (PLATUS) を載せる。X 線ビームを準備した後、透過 X 線ビームをステージを動かして、 P_1 と P_2 の 2 カ所で測定し、直線 l_X を得る。一方、所定の $2\theta_1$ にアームを動かして回折斑点を P_1, P_2 で測定し、直線 l を得る。

このようにして得た 2 直線 l_X と l は図 2 のように示され、 y 軸が l_X に相当するものとする。X 線回折が点から発生するのであれば、理論的には 2 直線の最近点 P_C と O_X が一致するが、実際は一致しないので、DEM では、直線 l の最近点 P_C を回折位置と定義する。本報告書では式の導出については割愛するが、測定に必要な関係式を以下に示す。

回折角 2θ

$$2\theta = \arctan\left(\frac{r_2 - r_1}{y_2 - y_1}\right) \quad (1)$$

ただし、

$$L = y_2 - y_1, \quad L_0 = y_1, \quad L_D = \frac{L}{\cos 2\theta} \quad (2)$$

の関係がある。

粗大粒の位置 P_C

$$P_C = \begin{pmatrix} x_C \\ y_C \\ z_C \end{pmatrix} = P_1 + l_1 e = \begin{pmatrix} x_1 + l_1 e_x \\ y_1 + l_1 e_y \\ z_1 + l_1 e_z \end{pmatrix} \quad (3)$$

ただし、

$$l_1 = \frac{-\cos 2\theta}{L \sin^2 2\theta} [(x_2 - x_1)x_1 + (z_2 - z_1)z_1] \quad (4)$$

$$e = \frac{\cos 2\theta}{L} (x_2 - x_1, y_2 - y_1, z_2 - z_1) \quad (5)$$

で与えられる。

2.2 試験片および X 線条件

前述の DEM によりひずみの測定を行った。試験片材料は、Al-Mg 系合金 A5052 および純アルミ A1050 (純度 99.8%) であり、いずれも市販の平板を購入した。両試験片とも板幅 5 mm、板厚 3 mm の平板試験片とした。加工ひずみを除去するために、 350°C 、1 hr の熱処理を施した。

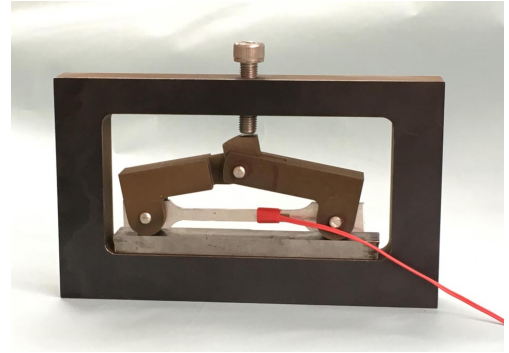


Fig. 3. Jig for tensile test.

試験片に一樣な短軸引張荷重を負荷するために図 3 に示す引張治具を製作した。四角い枠の上にあるボルトを締めるとトラス構造により、試験片の両端のピンが左右に開き、試験片に純粋な短軸引張の荷重が負荷できる。負荷ひずみは、図中のひずみゲージにて測定する。なお、重錘による負荷試験を実施して、ひずみゲージと負荷応力の検定をして、その値により負荷応力 σ_A を決定した。

試験片の回折パターンを図 4 に示す。本実験においては、ひずみ測定の感度を考慮して PILATUS-300K 検出器を搭載した回折計を $2\theta = 26^\circ$ に設定した。また、粗大粒を考慮すると回折斑点が得られないことも懸念されるので、 $2\theta = 26^\circ$ にして、331 回折および 420 回折の 2 つの回折面からの斑点を同時測定することも配慮した¹。331 回折は $2\theta = 25.703^\circ$ 、420 回折は $2\theta = 26.383^\circ$ を得ている。

放射光実験は、SPRING-8 の原子力研究開発機構の専用ビームライン BL22XU を用いた。このビームラインは、挿入光源からの X 線を利用できるので、高エネルギーかつ高輝度の X 線が得られるので、本研究に適したビームラインである。また、大型の回折装置を備え、検出器用の長尺ステージを搭載することもできる。本実験の放射光 X 線の波長は、 $\lambda = 0.4127988 \text{ \AA}$ 、入射スリットは $0.2 \times 0.2 \text{ mm}^2$ に設定した。検出器は PILATUS-300K であり、 $487 \times 619 \text{ pixel}$ 、解像度 0.172 mm/pixel である。検出器の距離については、 $2\theta =$

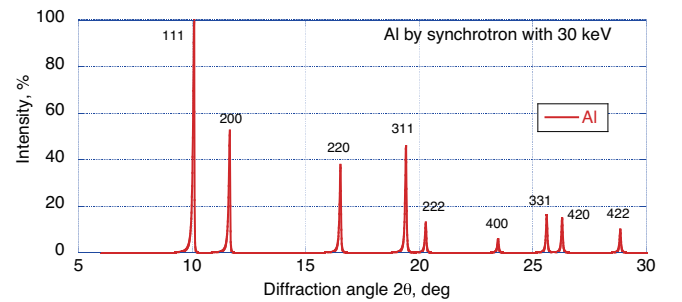


Fig. 4. Powder diffraction for aluminum using Rietveld method.

¹回折シミュレーションには純アルミニウムのデータとして、 $a_0 = 4.0494 \text{ \AA}$ 、S.G.= $Fm\bar{3}m$ 、空間群のテーブル番号 A-225、波長 $\lambda = 0.413267 \text{ \AA}$ を用いた。

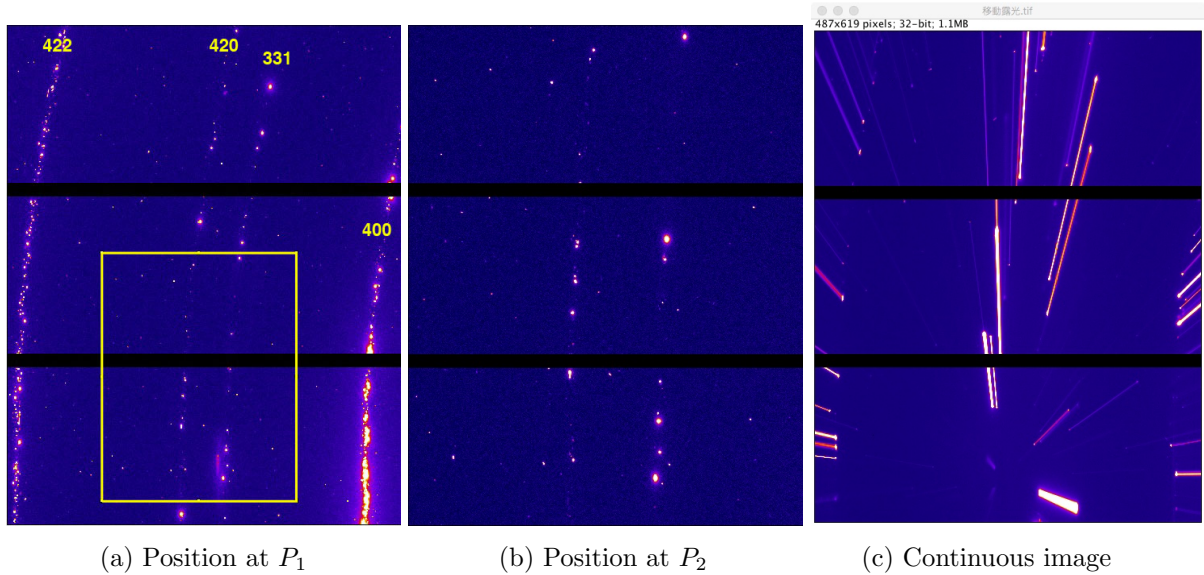


Fig. 5. Diffraction images using double exposure method with PILATUS-300K.

26.00° で、 $y_1 = L_0 = 707.989$ mm, $y_2 = 1419.735$ mm, $L = 711.746$ mm, $L_D = 791.89$ mm である。PILATUS-300K の露光時間は 10 s とした。

多結晶体の回折弾性定数については、Kröner モデルにより計算した⁽³⁾。331 回折については $E_{331} = 71.39$ GPa, $\nu_{331} = 0.344$ 、331 回折については $E_{420} = 69.36$ GPa, $\nu_{420} = 0.348$ を得ている。また、機械的弾性定数については $E_m = 70.07$ GPa, $\nu_m = 0.347$ を用いた。なお、Kröner モデルに用いるアルミニウムの単結晶のスィフネス c_{ij} については文献の値を引用し、 $c_{11} = 106.78$, $c_{12} = 60.74$, $c_{44} = 28.21$ GPa を用いた⁽⁴⁾。Kröner モデルによる回折弾性定数を計算するサイトを用意した⁽⁵⁾。

3. 結果と考察 (Results and Discussion)

3.1 二重露光法による X 線像と処理

前述の二重露光法により測定した回折像の例を図 5 に示す。図 (a) は、前方の位置 P_1 にて測定した像であり、図 (b) は後方の位置 P_2 で測定した回折像である。参考のために、 P_1 から P_2 に移動するとき連続して撮影した回折像が図 (c) である。図 (c) では、回折斑点が移動して線分で回折が示されている。図 (a) に長方形の枠で示された領域が、後方の P_2 で測定される領域に相当する。図 (a) を見ると、422 回折斑点が数も多く明瞭かつ高い回折角であり、311 回折や 420 回折よりも DEM に適している可能性がある。

P_1 と P_2 の斑点の対応については、線形写像として取り扱う。直接ビームによる P_1 と P_2 におけるビームセンターは、

$$(O_{x1}, O_{y1}) = (250.0316, 554.1019)$$

$$(O_{x2}, O_{y2}) = (264.1488, 545.1944)$$

となり、 P_2 上の検出器位置 (x_2, y_2) が、以下の手続きで P_1 検出器上の (x_1, y_1) に写像される。

P_1 から P_2 への拡大率 α は以下となる。(mm)

$$\alpha = \frac{L_0 + L}{L_0} = 2.005307$$

$$L_0 = 707.989, \quad L_0 + L = 1419.7350$$

P_2 上の検出器位置 (x_2, y_2) が、ビームセンターからの相対位置で縮小されるので、 P_1 の検出器位置 (x_1, y_1) は、以下の式にて変換する。

$$\begin{pmatrix} x_1 \\ y_1 \end{pmatrix} = \alpha^{-1} \begin{pmatrix} x_2 - O_{x2} \\ y_2 - O_{y2} \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} O_{x1} \\ O_{y1} \end{pmatrix} \quad (6)$$

この写像により、 (O_{x2}, O_{y2}) は (O_{x1}, O_{y1}) に変換される。

回折斑点の画像には、画素単位のスパイク・ノイズがあるので、メジアンフィルターによるノイズ除去を施した。

1. オリジナルの画像は、487 × 619 画素、32bit データである。測定画像データ (xxx.tiff) を ImageJ で読み込み、テキスト出力 (約 2.4Mbyte, xxx.txt) 出力する。
2. 以下の 3 × 3 のメジアンフィルター処理を行う。 $B(i-1, j-1) \sim B(i+1, j+1)$ の 9 個セルの輝度を大から小のランキングでソートして、5 位のデータを $B(i, j)$ の輝度に代入する (バブルソート + メジアンフィルター)。

画像全体のノイズ処理後、 P_1 および P_2 の画像から回折斑点の位置を検出しなければならない。はじめに、極大値を用いてピークを検出して、回折斑点位置を見つけようと試みた。しかし、その位置が、回折斑点の頂点と一致しない例も見られたので、本実験については、輪郭を利用して回折斑点を検出する方法を検討した。

輪郭を抽出する前に、以下の 2 つのフィルターを用意し、

1. 移動平均法 (3 × 3) により平滑化するフィルター。
2. 相互相関解析 (CCF: Cross-correlation function, 1, 10, 10²) で x, y の 2 方向でピークを強調した後、2 方向の積を計算し、対数処理するフィルター。

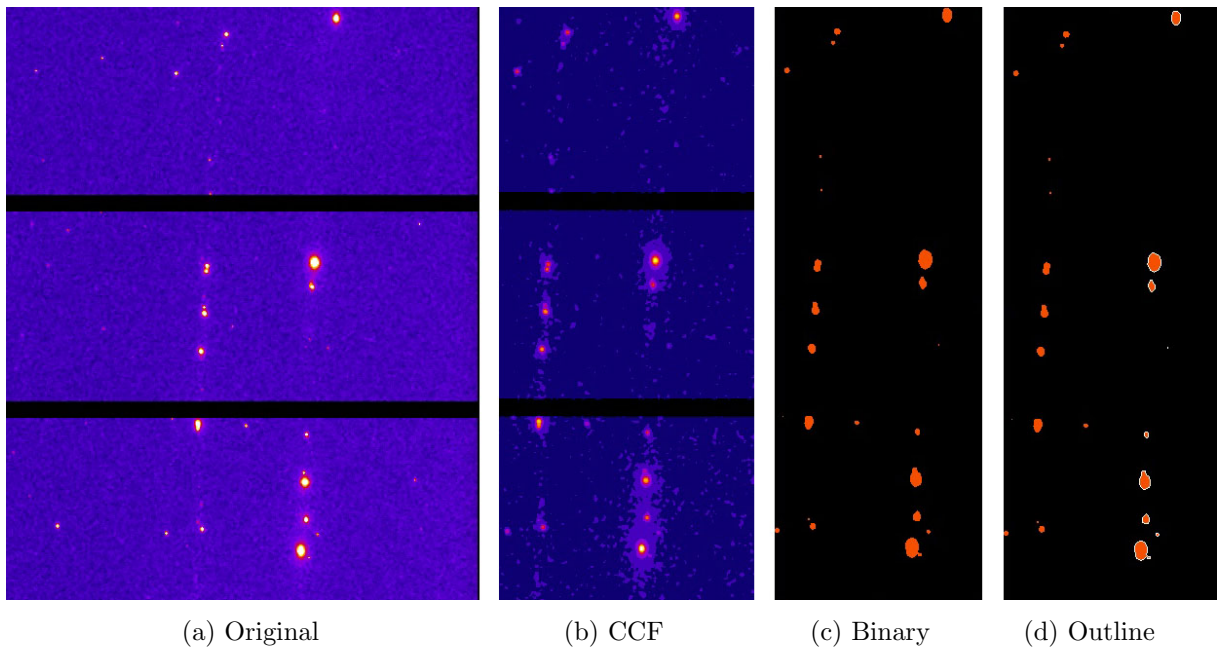


Fig. 6. Image processing and detecting outline of spots

これらのフィルターを必要に応じて選択できるようにした。その上で、閾値を選択して、2 値化して輪郭を検出処理して斑点を特定した。

前述の処理例を図 6 に示す。輪郭抽出までの一連の処理を自動で行うように専用のプログラムを作成した。さらに、 P_1 および P_2 の各画像で輪郭を抽出した後、輪郭内の輝度を用いて重心法にてピーク位置 $P_1(x, y)$ および $P_2(x, y)$ を決定した。

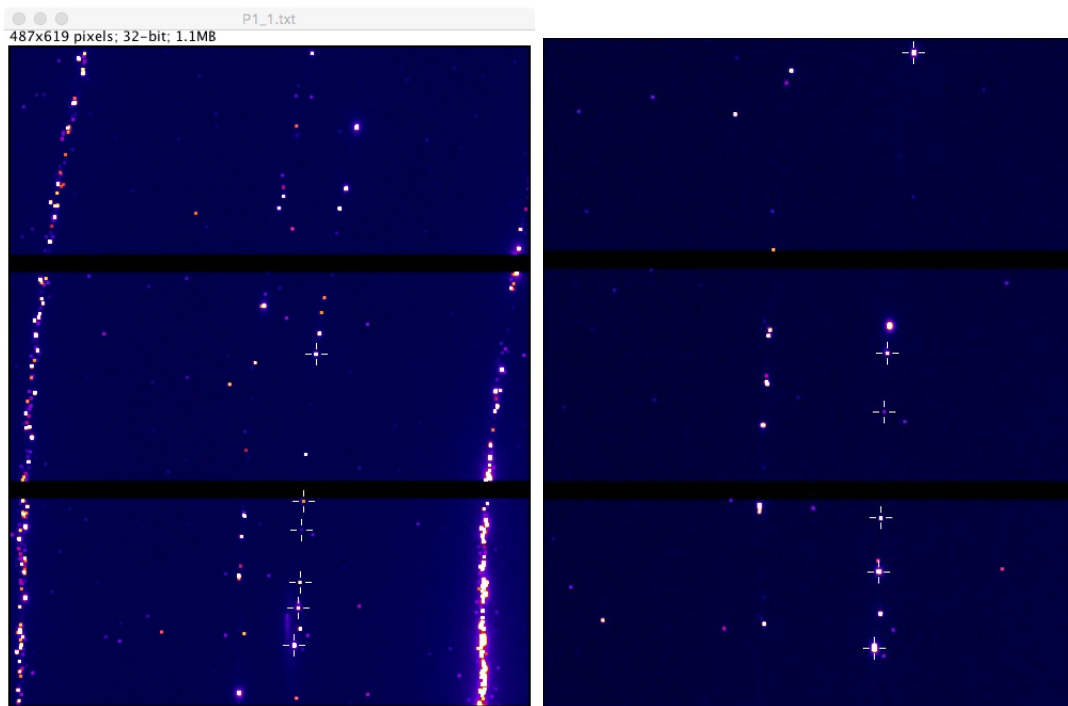
回折斑点のピーク位置を決定した後、 P_2 の各斑点群を P_1

の画像に変換し、一定の近い斑点をもってマッチングさせた。その結果、図 7 の結果を得た。図からわかるように、斑点位置は白い十字で示され、その組み合わせから、式 (1) から回折角 2θ 、式 (6) から回折位置 $P_C(x_C, y_C, z_C)$ を決定した。

なお、画像処理から回折斑点の対を計算し、各画像から 2θ , $P_C(x_C, y_C, z_C)$ を決定するシステムを自作した。

3.2 Al-Mg 合金試験片 (A5052) のひずみ測定

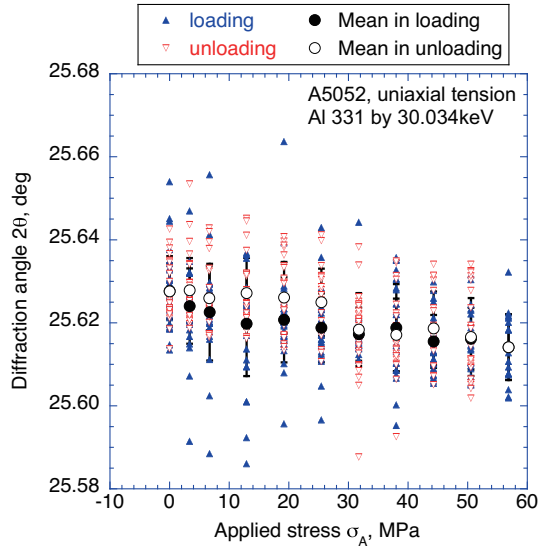
試験片の板厚方向に透過してた回折像を DEM により測定した。各負荷応力において、0.5 mm 間隔で、5 箇所を透



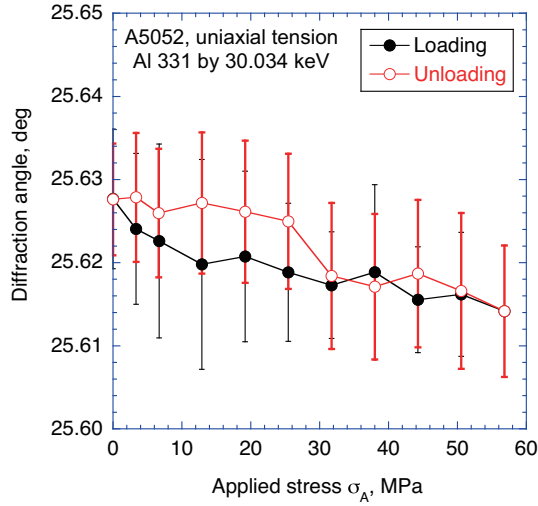
(a) Position at P_1

(b) Position at P_2

Fig. 7. Processed images. The pair of spots is indicated with a cross mark.



(a) All measured data



(b) Mean of measured data

Fig. 8. Change in diffraction angles measured by DEM with applied stresses.

過した回折像を DEM で測定した。その結果をプロットしたのが、図 8 (a) となる。

図からわかるように、DEM で測定された回折角 2θ は、大きくばらついている。1 カ所の測定では不十分であり、5 カ所の透過回折像を測定することが必要であった。図中に白丸、黒丸で除荷および負荷の平均値を示している。このように回折角 2θ が大きく分散するのは、本質的なメカニズムによるものなのか、それとも測定系の誤差によるものか、明確な判断はつけにくい。個々の結晶粒が回折を起こして、斑点を形成するのであり、各結晶粒の応力状態は一様でなく、かなりばらついていることは、容易に想像できる。また、斑点の大きさは小さく、回折角をより正確に決定するには、2 次元検出器の解像度が必要となる。

図 8 (b) は、図 (a) の回折角データの平均および標準偏差を示したものである。負荷応力のレベルに対応して回折角

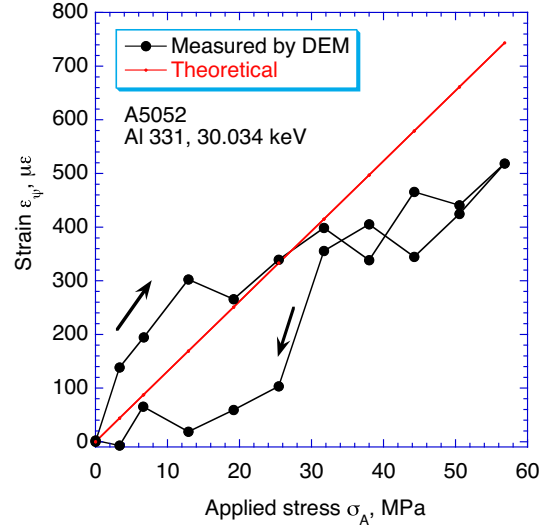


Fig. 9. Strain measurement by DEM

2θ が変化し、負荷と除荷にも対応しているが、負荷による回折角の変化よりも、標準偏差のほうが大きい。より負荷応力の大きい材料に変更すること、測定精度の向上することなどを検討する必要がある。

図 9 に負荷応力 σ_A と DEM による測定ひずみ ε_ψ を示す。負荷応力 σ_A に対応して 331 格子面のひずみが増加する様子がわかる。負荷応力 σ_A に対して、どれくらい格子面ひずみが生じるかを、理論的に求めるには以下の式により導くことができる。試験片軸方向に単軸引張応力 σ_A を負荷したとき、主応力 σ_1, σ_2 および σ_3 は、以下ようになる⁽⁶⁾。

$$\left. \begin{aligned} \varepsilon_1 &= \frac{1}{E} \sigma_A \\ \varepsilon_2 &= -\frac{\nu}{E} \sigma_A \\ \varepsilon_3 &= -\frac{\nu}{E} \sigma_A \end{aligned} \right\} \quad (7)$$

一方、ひずみの測定方向 $\phi\psi$ のひずみ $\varepsilon_{\phi\psi}$ は、各方向の主ひずみで以下のように表される。

$$\varepsilon_{\phi\psi} = \varepsilon_1 \cos^2 \phi \sin^2 \psi + \varepsilon_2 \sin^2 \phi \sin^2 \psi + \varepsilon_3 \cos^2 \psi \quad (8)$$

今回の実験では、 σ_1 方向の応力を測定しているので、 $\phi = 0^\circ$ より

$$\varepsilon_\psi = \varepsilon_1 \sin^2 \psi + \varepsilon_3 \cos^2 \psi \quad (9)$$

となる。さらに、 $\psi = \pi/2 - \theta$ の関係を代入して

$$\varepsilon_\psi = \frac{\sigma_A}{E_{hkl}} (\cos^2 \theta - \nu_{hkl} \sin^2 \theta) \quad (10)$$

の関係が得られる。

回折角 θ を代入して、ひずみ ε_ψ を計算した結果を図 9 に赤線で示した。理論値と完全に一致しないが、おおよその傾向は一致していることから、測定の精度を改善することで、応力評価できる可能性がある。

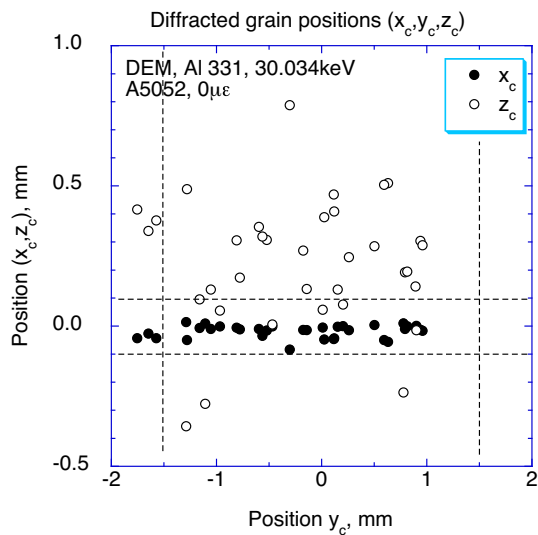


Fig. 10. Positions of crystal grains.

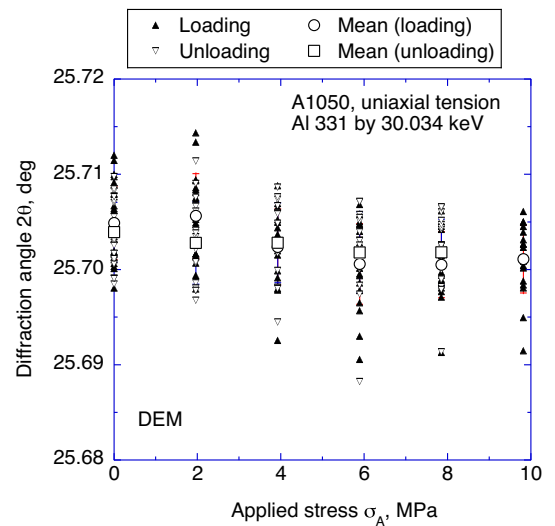
さて、無ひずみの時の測定結果から、回折斑点の結晶位置を求めた結果を図10に示す。図の横軸が y であり、X線ビームの通過した板の厚さ方向となる。破線で示した $y_C = -0.15$ mm がX線入射側、 $y_C = 0.15$ mm がX線の抜け側に相当する。また、X線照射領域の水平側位置が x_C であり、垂直側位置が z_C になる。

板厚さ方向の位置精度 y_C を見るとややX線の上流に約0.5 mmほどずれている。水平側位置 x_C については、ほぼ照射域内(± 0.1 mm)にあることから精度よく結晶位置を捉えている。結晶粒の垂直方向の位置 z_C については、 ± 0.1 mm から大きく外れており、精度が得られなかった。これは、検出器位置が水平ゴニオメータを利用していることから、 x と y の水平方向の交差する2直線を利用して結晶の位置を決定しているために精度が得られている。垂直方向の交差角は非常に小さいために精度が得られない結果となった。このことは、3軸方向での測定精度を得るためには、2次元検出器を水平と垂直の2方向に設置することが必要であることを示唆している。結晶粒の位置については、一定の精度で決定できる可能性が十分あることがわかる。

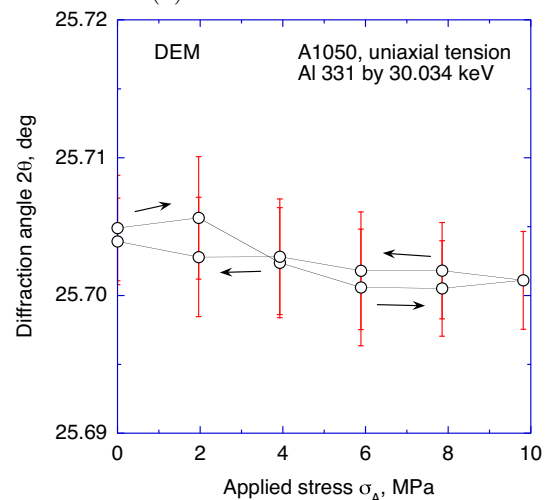
3.3 純アルミニウム試験片 (A1050) のひずみ測定

さて、前述のA5052試験片と同様の引張荷重・除荷におけるDEMによるひずみ測定の実験を純アルミニウム試験片(A1050)を用いて実施した。

引張荷重・除荷に伴う回折角 2θ の変化を図11に示す。図(a)は、0.5 mm間隔で5カ所の回折像からDEMにより得られた全データの 2θ と σ_A の関係をプロットしている。また、図(b)は、各負荷応力での回折角の平均と標準偏差を示している。純Alは、Al-Mg合金と異なり低い負荷応力で降伏するので、純Al試験片では負荷応力 σ_A を10 MPa以下にした。非常に小さい応力範囲のために、負荷応力に対する回折角の応答が見られるか否かが心配された。図(a)、(b)を見ると、負荷応力に対応する回折角の変化挙動を捉える



(a) All measured data



(b) Mean of measured data

Fig. 11. Change in diffraction angles measured by DEM in loading and unloading for A1050.

ことはできる。しかし、各斑点の回折角のばらつきが、回折角の変化よりも大きいことも事実である。そのため、個々の回折斑点を追跡すると、回折角の変化 $\Delta 2\theta$ は負荷応力の変化に対応せず、関係のない振る舞いをした。

さて、このような挙動が各結晶粒の本質的挙動であるのか、測定の誤差によるものかは、判断がつかないが、粗大粒のひずみ評価で重要な問題になることは間違いない。その解決のためには、結晶粒の挙動を捉えられる測定精度を確立しておくことが何よりも大切である。また、降伏点の大きい材料を利用することも必要である。塑性しにくい六方晶の結晶を持つ材料で実験することも一案である。

図12に、負荷応力と測定ひずみの関係を示す。赤線で示した応力と格子面ひずみの関係は、前節3.1で示した式(10)により計算したものである。理論と比較して誤差があるものの、回折角の平均の挙動は負荷応力に対応した変化を示している。平均を利用することで、負荷・除荷の挙動が捉えられているが、個々の測定ひずみは、それと一致していな

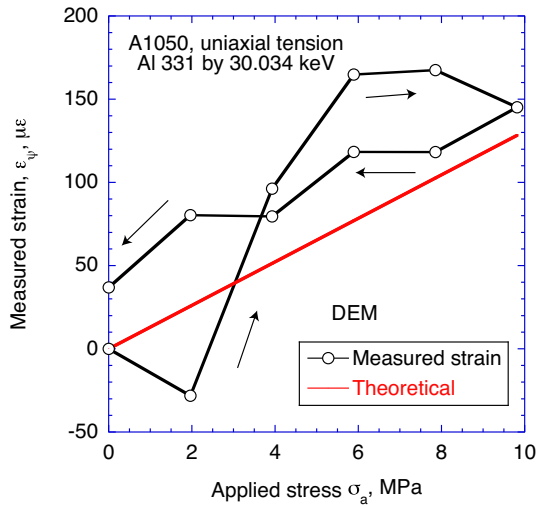


Fig. 12. Strain measurement by DEM for A1050.

い。ただし、0~10 MPaの範囲を考えると、DEMによるひずみ測定は十分に期待できる。

図13に測定された回折斑点の位置を示す。 x 座標の位置は精度よく測定され、ビームの照射域の ± 0.1 mmの範囲に入っているが、 x 座標の位置は大きな誤差を含んでいる。このことは、前述のように検出器を水平ゴニオメータの 2θ 軸に置いてあるために、垂直方向の角度が 0° に近いために、 z 座標の決定精度が低下するためである。一方、 y 方向の位置が、 $-3.0 \sim 0$ mmの範囲に分布している。試験片の厚さが3 mmであることを考慮すると、試験片の設置が検出器の測定系から1.5 mmほど入射側にあったことを示している。

本DEMにおいては、試料の位置がずれていても角度測定に影響はない。このことは、試料の位置決めが困難であったり、試料の形状が複雑で測定に困難を要するものであっても、DEM法であれば、それらの影響を受けずに測定できるメリットがある。試料位置、形状に対するロバスト性の高い

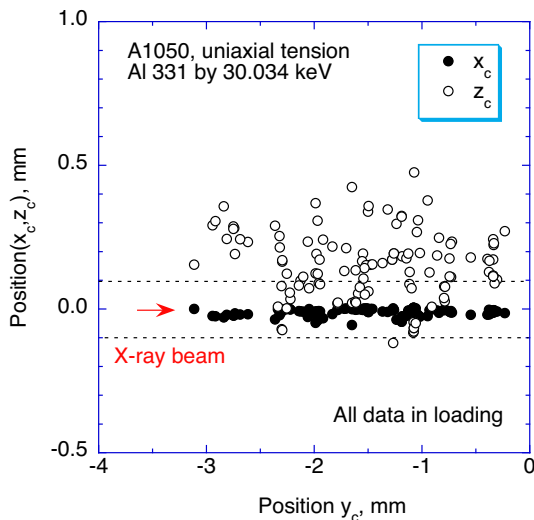


Fig. 13. Positions of crystal grains for A1050 sample in loading.

測定手法といえる。ゴニオメータを利用しない、回折中心を問わないDEM法は、試料が振動したり、形状が変化するなどの動的測定に適している。

3.4 結論

本課題を実施した結果、以下の結論を得た。

1. 二重露光法 (DEM) は、粗大粒または微小領域の内部ひずみおよび回折位置の測定方法として十分な可能性を持っている。
2. 検出器および測定系の精度の向上が達成できれば、実用技術として活用することができる。
3. 二重露光法 (DEM) は回折中心を必要としないひずみ測定方法であることから、複雑形状ゆ位置決め困難、振動や変形のある測定対象に適用できる。

4. その他・特記事項 (Others)

参考文献

- (1) P.J. Withers, P.J. Webster, Neutron and Synchrotron X-ray Strain Scanning, Strain, Vol. 37, Issue 1, pp. 19–23 (2001).
DOI: 10.1111/j.1475-1305.2001.tb01216.x
- (2) 鈴木賢治, 菖蒲敬久, 城 鮎美, 張 朔源, 2次元検出器を利用した粗大粒の内部応力評価, 材料, Vol. 63, No. 7, pp. 527–532 (2014).
- (3) E. Kröner, Berechnung der elastischen Konstanten des Vierkristalls aus den Konstanten des Einkristalls, Zeitschrift Physik, Vol. 151, pp. 504–518 (1958).
- (4) G.N. Kamm and G.A. Alers, Low-temperature elastic moduli of aluminum, J. Appl. Phys., Vol 35, pp. 327–329 (1964).
- (5) <https://www.rigaku.com/ja/technique/c02> (2017年9月30日)
- (6) 田中啓介, 鈴木賢治, 秋庭義明, 残留応力のX線評価 — 基礎と応用, p. 101 (2006), 養賢堂.