

SmartLab Studio IIのTexture（集合組織・配向評価）プラグインによる配向組織の定量分析

長尾 圭悟*, 佐々木 明登**

1. はじめに

多結晶材料に存在する集合組織の状態によって、その材料の物性や特性に大きな影響を及ぼすことが知られている。つまり、配向性（配向の程度）や結晶方位分布関数（Orientation Distribution Function, ODF）を定量的に把握しておく、材料のキャラクタリゼーションや物性予測に役立てることができる。X線回折法（XRD）では極点図（Pole Figure, PF）を測定することによりODFを決定することができる。極点図データからODFを計算することで配向組織の定量分析が可能となるが、ODFを取得するための解決すべき2つの課題として、①複数の極点図データを得るための測定および強度補正などの解析処理、②複数の極点図データからのODFの計算方法が挙げられる。

XRD法での極点測定には2つの取り方がある。0D検出器を使う従来の0次元モード（0D極点測定）と、2D検出器を使用する、より高度な2Dモード（2D極点測定）である。2Dによる極点測定では、通常2つか3つの χ 値において、試料を面内方向（ ϕ ）に試料を1〜5°ステップで回転させて、数百枚の2D画像を取得する。 ϕ のステップ幅は試料の配向性に応じて設定する。これら2つの方法の詳細は、参考文献^{(1),(2)}を参照されたい。2D検出器を用いた極点測定では、2次元回折像を極点図データに変換するための機能が必要となる。

近年では、ODFを計算するための方法として、大きく分けて下記の3種類が用いられている。級数展開法⁽³⁾、コンポーネント法^{(4),(5)}、WIMV法⁽⁶⁾やADC法⁽⁷⁾のような直接法であり、各々に長所短所がある。級数展開法は最も一般的な解析方法ではあるが、ODF計算には多くの極点図データを必要とし、数値計算部分に若干の課題が残る。コンポーネント法は、明確な物理学的説明のつくモデル関数（配向の状態を表す）の組み合わせとしてODFを表現する。コンポーネント法

は、結果の解釈と表記には最も便利な方法だが、優先方位の数や極の形状などのパラメータ選択と変数最適化に時間がかかる場合がある。直接法は方位空間内を分割した離散格子点上でODF数値計算が行われる。直接法は使い勝手の観点で最も単純で便利であるが、ODFの解釈は得られない。

本稿では、SmartLab Studio IIのTexture（集合組織・配向評価）プラグインについて説明する。このプラグインは極点図のデータ処理と配向組織の特定、その定量分析に使うことを目的としている。Textureプラグインでは、上記のODF計算方法のうち、WIMV法とコンポーネント法の2つの方法を実装している。両方法とも、全種類の結晶系についてODF解析が可能であり、極点図の1/4平均化有り無しの2種類の試料対称性に対して用いることができる。また、このプラグインでは、集合組織研究分野で最も一般的な3種類のオイラー角の定義方法を使うことができる。Bunge表記法（ ϕ_1, ϕ, ϕ_2 ）、Roe表記法（ ψ, θ, ϕ ）、Matthies表記法（ α, β, γ ）である。RoeおよびMatthies表記法は、原理的には同等で、表記に使われる文字のみが異なる。

2. 正極点解析処理

Textureプラグインは2次元検出器からの2Dデータを極点図に変換するための優れたアルゴリズムを実装している。最初に挙げられる特長が、同時に複数の反射データを処理できる点である。次の特長として挙げられるのが、プロファイルデータから回折ピークのバックグラウンド値を推定できる点である。そのためバックグラウンド計算に使用する領域をイメージデータ上で指定する必要がある。さらに、1次線形バックグラウンドとGaussianピークを組み合わせた回折パターンのプロファイルフィッティングが可能である。これにより、デフォーカスによるピークの広がり効果を低減できる。プロファイルフィッティングは、複数のピーク位置が近接している場合や、バックグラウンド値の特定がほぼ不可能な場合に極めて有効である。

*株式会社リガク 応用技術センター

**株式会社リガク アプリケーションソフトウェア開発部

ピークが近接し、結果としてプロファイル中にいくつかのピークが含まれる場合でも、ピーク領域を特定して極点図の作成に用いることが可能である。図1に、近接した位置に4つの反射が観測されるNd₂Fe₁₄Bの2次元画像 (a)、極点図に変換する過程で極点図上での強度を見積もるための上述のプロファイルフィッティング結果 (抜粋) (b)、得られた極点図 (c) を示す。この図のような、ややノイズが多いデータでも、この方法により妥当な結果が得られたことが分かる。

Texture プラグインでは、 2θ 値や χ 等の異なる位置で測定されたデータセットをまとめて読み込み、一度に処理することが可能である。異なる χ 値で測定されたデータセットは、それぞれ極点図中の異なる α 領域を測定しており、これらの領域を繋ぐことでひとまとまりの極点図データとなる。図2に、 χ 値が異なる2セットの2次元回折像により作成されたTiプレート試料の100, 002, 101極点図を示す。実測極点図が得られた後に、0D極点・2D極点に応じて、バックグラウンド補正、吸収補正、デフォーカス補正、対称化等の補正処理を行う。この補正処理は、各指数の正極点データに対して異なる処理を個別に適用することも、全ての指数に同じ処理を適用することも可能である。図3に、図2の極点図に対し、3°左回転処理 (反時計回り)、1/4対称処理、強度規格化を適用した結果を示す。これら補正後の極点図データを用いてODF計算を行う。

Texture プラグインには、解析結果をより分かりやすく、グラフィカルに伝えるためのさまざまな表示機能が備わっている。球形座標や円筒座標 (平面に半球

体を投影した図) による極点図表示、さらに、円筒座標による表示の場合は等角度 (ステレオ投影) または、等面積 (Lambert) 表示のいずれかを選択できる。いずれの方式でも、極点図の値は、色パレットによる塗りつぶし、もしくは等高線を使って表示することができる。

3. ODF 計算

いずれの方法にせよODF計算後、得られたODF図の精度を見積もることは大変重要である。通常、そのような見積もりは、実測した極点図データとODFから再計算された極点図データを比較することにより行われる。計算精度の定量的判定基準として、Rp因子が使われ、極点図データの実測値と再計算値の相対誤差の平均値を示している。

3.1. WIMV 法

WIMV法は、ODF計算の手法の中で、直接法 (数学的な処理による非経験的数値解析) に分類される。3次元回転空間の離散格子上で関数値を計算する。ユーザー視点で見た場合、計算に必要な変数の数が少ないため、この方法が最も簡潔な方法である。図4に、上述のTiプレート試料のWIMV法による計算結果を示す。

この場合のRp因子は約9.8%となり、ODF計算は良好に行われたことを示している。

3.2. コンポーネント法

コンポーネント法は、使い勝手がWIMV法に比べて複雑だが、優先方位の情報を数値で得ることができ

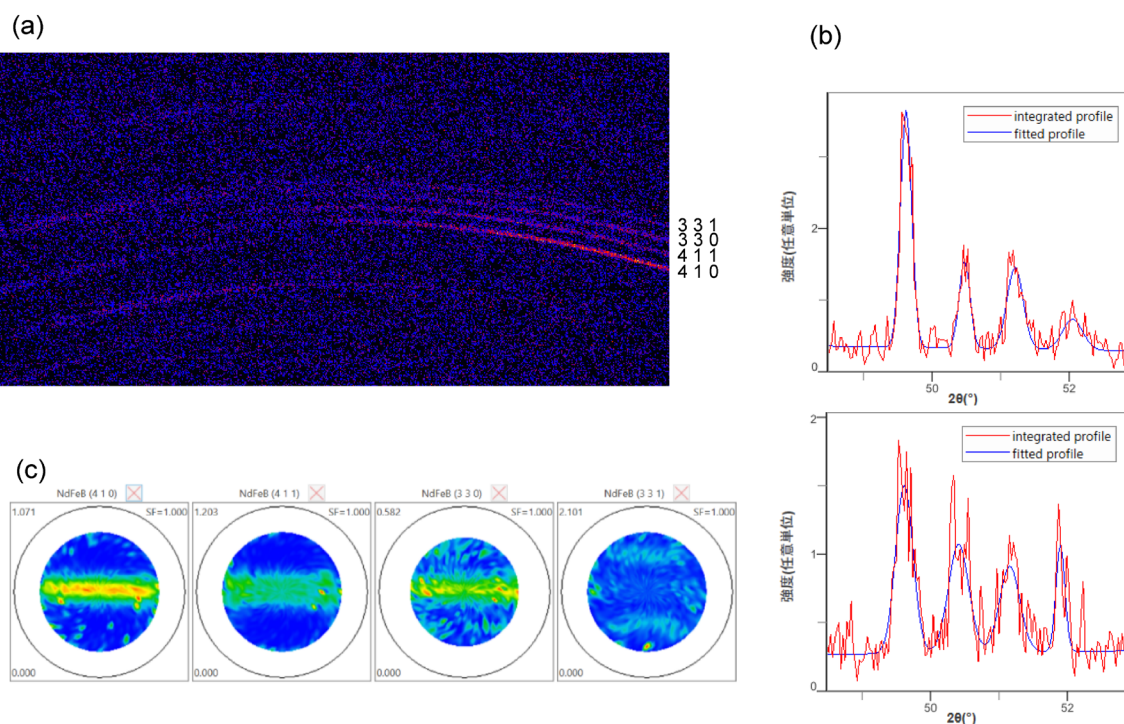


図1. (a) Nd₂Fe₁₄B試料の2Dイメージ, (b) プロファイルフィッティング結果, (c) 410, 411, 330, 331の実測極点図.

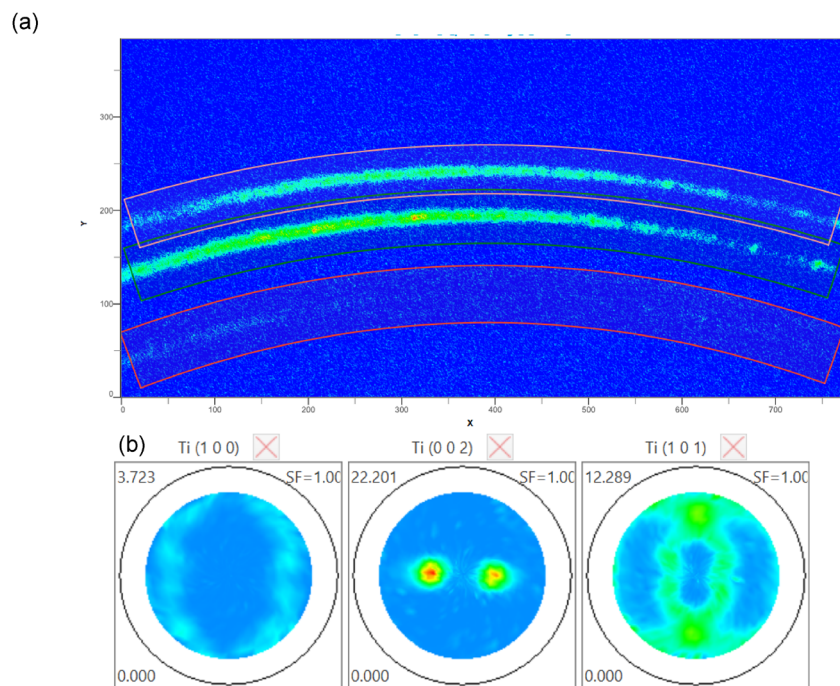


図2. Tiプレートの2Dイメージ (a) と極点図データ (b).

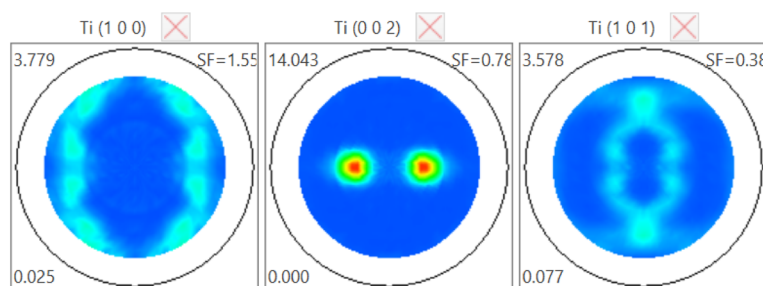


図3. 図2からの極点図データを3°左回転処理, 1/4対称処理, 規格化を適用した後の結果.

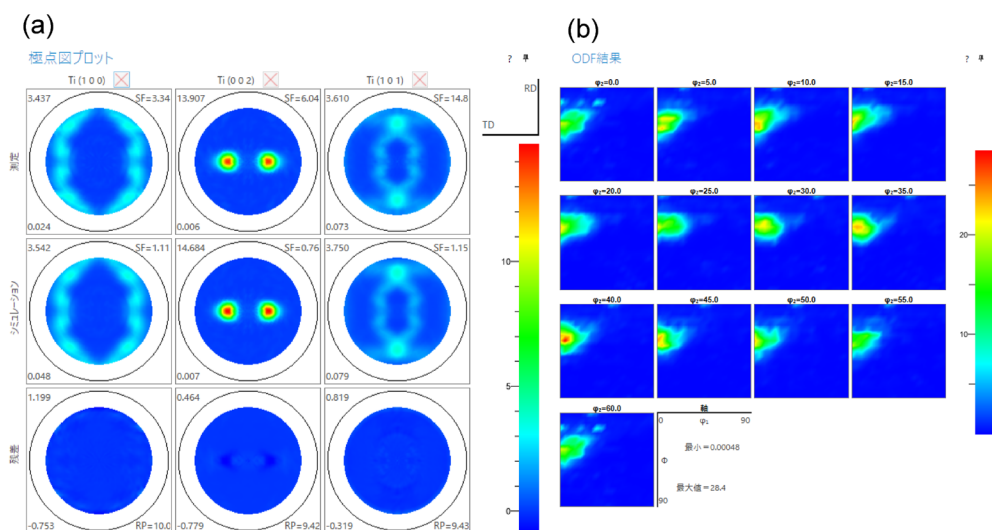


図4. (a) Tiプレートの実測極点図データ (1段目), ODFから計算した再計算極点図データ (2段目), 極点図データの残差 (3段目). (b) WIMV法によるTiプレートのODF図 (ϕ_2 断面).

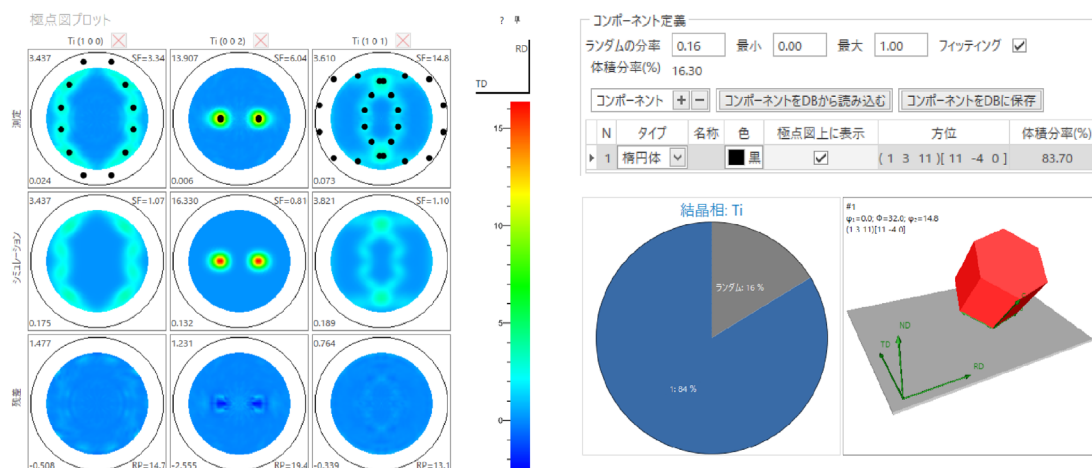


図5. コンポーネント法によるTiプレート試料のODF計算結果、体積分率の算出。

る。Texture プラグインは、3種類のコンポーネント（ベクトル成分）を実装している。それらは、球状（ピーク）、軸状（1軸配向）、楕円状であり、極の形状や配向状態を定義する。この方法では、 $(hkl) [uvw]$ で表される優先方位とコンポーネント（ベクトル成分）の変数の初期値の設定が必要となる。集合組織成分についての先験的 (*a priori*) 情報が全くない場合、解析が大変困難で時間のかかるものになる可能性がある。このような課題を克服するため、本プラグインは、幾つかの機能を実装している。最初に挙げられるのは、コンポーネントマーカーで、設定した優先方位 $(hkl) [uvw]$ が極点図のどの位置に観測されるかを把握するための機能である。図5にあるように、これらのマーカーは、実測（または再計算）極点図データ上に黒点で表示される（マーカー色は変更可能）。おおよその方位が既に分かっている場合は $(hkl) [uvw]$ の値を入力する。方位が未知の場合でもオイラー角 (ϕ_1, ϕ, ϕ_2) をマウス操作で変化させて、実測の極の位置に一致するような (ϕ_1, ϕ, ϕ_2) の値を手動で探すこともできる。

次に重要な機能として挙げられるのは、遺伝的最小化アルゴリズムである。前述した、オイラー角 (ϕ_1, ϕ, ϕ_2) を手動で変化させるやり方は、複数の優先方位が存在する場合や極同士がファイバー状に繋がっている場合などでは、実測の極とマーカーを一致させるのが非常に難しい場合がある。このような時に遺伝的最小化アルゴリズムが非常に有用である。アルゴリズムの確率的性質により、正解とかけ離れた初期値から計算を開始しても正しい成分位置を見つけることができる。図5に、一つの楕円成分と等方性成分（ランダム配向の結晶の分率）を用いたTiプレート試料のODF計算例を示す。

コンポーネントを新たに追加した場合の初期値は、オイラー角 $\phi_1 = \phi = \phi_2 = 0$ としており、得られた $(\phi_1, \phi, \phi_2) = (0, 32, 15)$ と比べ大きく離れている。この結果は遺

伝的アルゴリズムにより約50秒で得られた。得られた結果は各コンポーネントの体積分率の円グラフとして表示され、また、試料軸（ND, TD, RD）に対する結晶の向きをグラフィカルに表現することが可能である。この場合のRp因子の平均は約16%で充分低い値であるが、WIMV法による計算で得られたRp因子よりも高い値となっている。この値の差は、真のODF図により近付けるためには他のマイナーな優先方位の追加が必要であることを示唆している。

ODF計算後、全極点図データや、未測定の数値の極点図データをODF図から再計算により求めることができる。また、任意の試料方向について逆極点図 (Inverse Pole Figure, IPF) を計算で求めることもできる。さらにTextureプラグインの有用な機能として、複数の試料のODF図（同様に正極点図、逆極点図）を比較することができる。図6に、上述のTi試料について計算したODF図と逆極点図の結果を、WIMV法とコンポーネント法で比較したものを示す。

この機能は製造条件の違いなど、複数試料における集合組織の差異を観察する場合などに非常に有効である。

4. 鉄鋼材料の極点測定・ODF解析

図7に、厚みが0.5 mmである冷間圧延鋼板 (SPCC) の実測極点図と再計算全極点図を示す。測定は入射側に設置したミラー (CBO- α) で単色化したCo線源を用い、シュルツ反射法で行った。ODFの計算はコンポーネントモデルを用い2つの結晶方位を登録して遺伝的アルゴリズムで解析した。極点図上の極を見ると、強度に分布があるリング状のパターンを示しており、ファイバー状の集合組織を有していることが分かる。このようなパターンの場合には、3.2節で説明したように“楕円体”のタイプを選択する。楕円体のモデルでは、オイラー角3方向に対する極の異方性を3つのFWHM

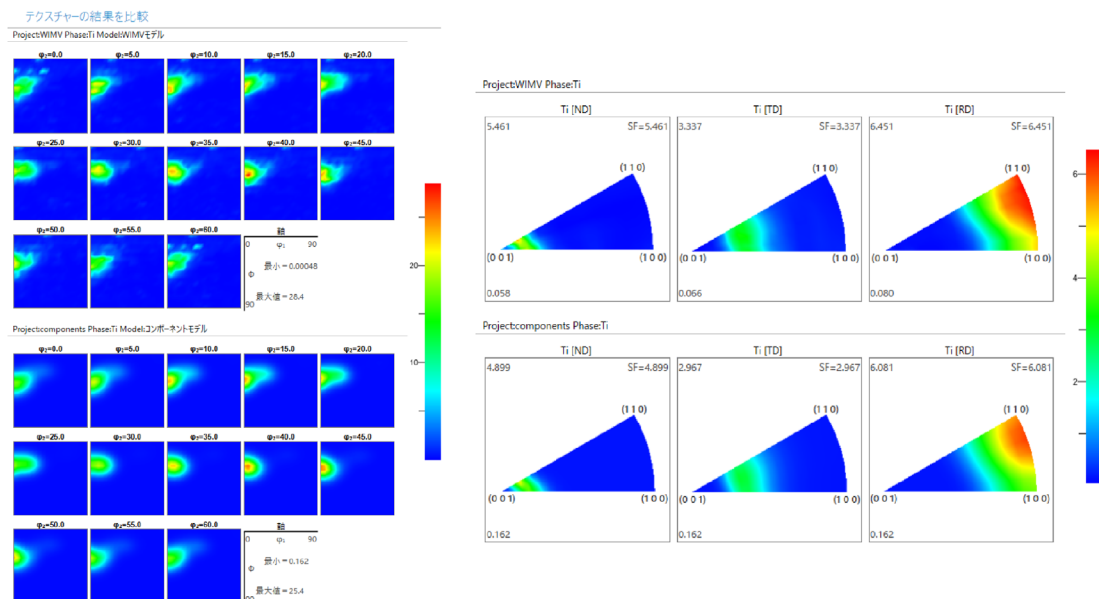


図6. Tiプレート試料のWIMV法とコンポーネント法によるODF図と逆極点図データの比較 (上段: WIMV法, 下段: コンポーネント法)。

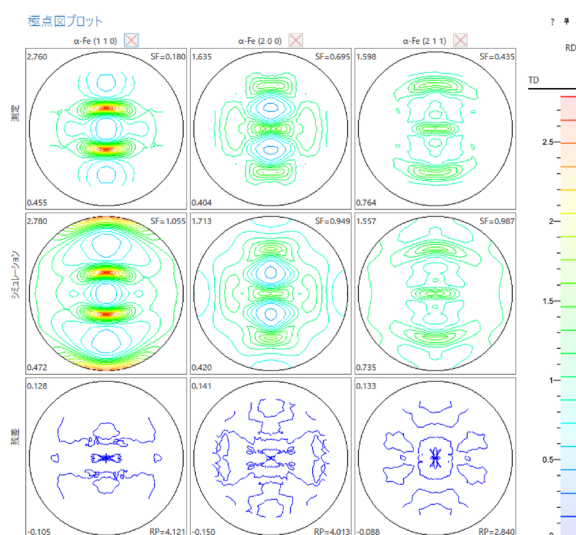


図7. コンポーネント法による冷間圧延鋼板の実測極点図とODF解析による再計算全極点図。

とその向き ($\alpha_d, \beta_d, \gamma_d$) で定義する (図8)。この設定での精密化後のRpの値は2.8~4.1%となり非常に良い一致を示した。

結晶方位 (hkl) [uvw] は精密化すると大きい数値が算出されることがあり、一般的に認知された結晶方位の値ではなくなることが多い。認知された結晶方位のまま計算を行う場合は、 ϕ_1, ϕ, ϕ_2 の“フィッティング”チェックボックスをオフにする。Texture プラグインにはコンポーネントデータベースがあり、インストール時に立方晶と六方晶において、よく認知された結晶方位が予め登録されている。また、測定極点図に対して精密化された結晶方位を今後も利用したい場合は、このコンポーネントデータベースに登録しておくこと



図8. コンポーネント法 (楕円体モデル) の精密化パラメータ。

が可能である (図9)。

図10に $\phi_2: 45^\circ$ のODF図を示す。一般的に、鉄鋼材料の γ -Fiberは、(111) 配向であり、 ϕ_2 断面では $\phi: 54.7^\circ$ の位置で ϕ_1 の方向に幅広い極が観測される。本試料でもこの γ -Fiber 状の極が観測された。

5. ポリマーフィルムの透過・反射極点測定と配向係数の算出

図11に2軸延伸ポリプロピレン (以下、PP) フィルムの110, 040透過極点図, 反射極点図を示す。反射極点測定では装置の χ 軸を用いて α 角を変化させるが、透過極点測定では、試料を ω 方向に 90° 回転させた状態で、入射角 ω を変化させて α 角を制御する。Cu線源を用いた平行ビーム光学系で、受光側にPSA (Parallel Slit Analyzer) を用いたODモードで測定を行った。ポ

名称	方位	結晶系
b-2	(0 1 0)[1 0 0]	六方晶
S	(1 2 3)[6 3 -4]	立方晶
C-1	(0 0 1)[2 1 0]	六方晶
C-2	(0 0 1)[1 0 0]	六方晶
111_pseudo fiber	(1 1 1)[-1 -4 5]	立方晶
Brass	(1 1 0)[-1 1 2]	立方晶
Cube	(1 0 0)[0 0 1]	立方晶
Copper	(1 1 2)[1 1 -1]	立方晶
b-1	(-1 2 0)[2 1 0]	六方晶
b-3	(-1 2 0)[0 0 1]	六方晶
b-4	(0 1 0)[0 0 1]	六方晶
Taylor	(4 4 11)[11 11 -8]	立方晶
Goss	(1 1 0)[0 0 1]	立方晶

図9. テクスチャーコンポーネントデータベース.

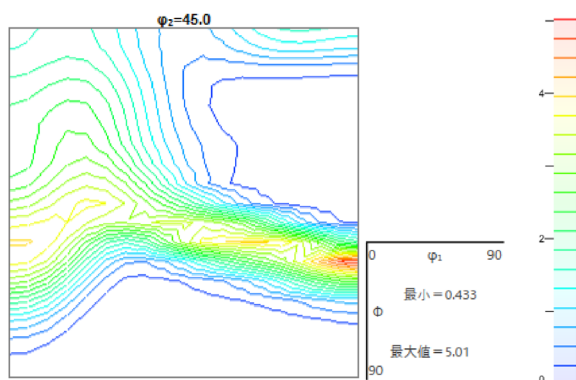
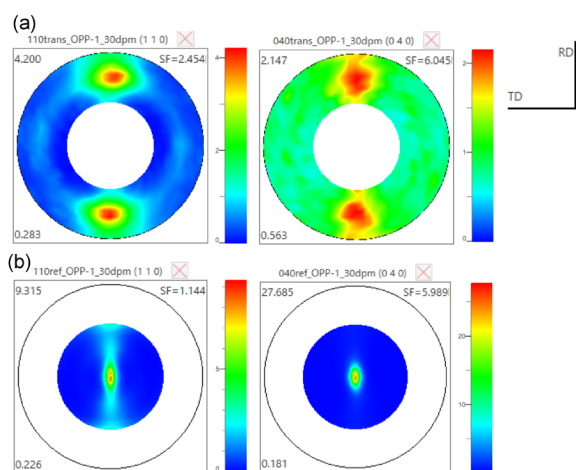
図10. 冷間圧延鋼板の結晶方位分布図 (ϕ_2 : 45°断面).

図11. 2軸延伸PPフィルムの透過極点図 (a) と反射極点図 (b).

リマー材料は低角度側に回折ピークが密集していることが多く、PSAを用いると χ や ω が変化しても回折ピーク幅が変わらないという大きなメリットがあるので、反射極点測定時に χ 軸を使用して試料が大きく傾いた時に近接した回折線の強度を取り込んでしまうことがない。極点図の接続は、透過・反射極点図の各々でバックグラウンド補正, 吸収補正, デフォーカス補正 (反射のみ)⁽²⁾ を行った後に行う。

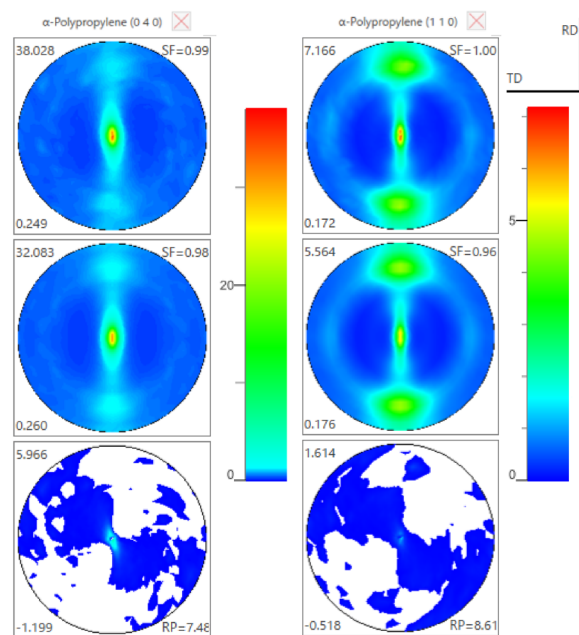


図12. 2軸延伸PPフィルムの接続された実測極点図 (上段) とODF解析 (WIMV法) による再計算全極点図 (中段), 残差 (下段)。

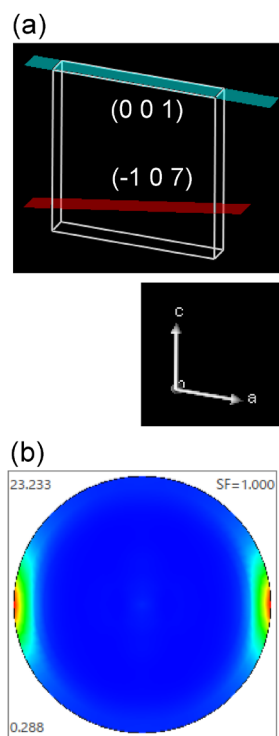


図13. PPの結晶構造 (a) と2軸延伸PPフィルム (-1 0 7) 再計算全極点図 (b)。

図12に接続した全極点図とWIMV法を用いたODF解析による再計算全極点図を示す。Rp値は10%以下となり良好な値を示した。ポリマーの配向解析では、PPのc軸の方位や分布の程度に着目することが多い。PPは単斜晶であり、(001)の格子面法線はc軸と平行ではないため、PP (001) の再計算全極点図からはc

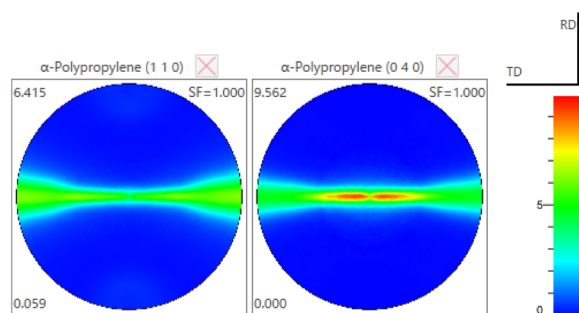


図 14. 1 軸延伸 PP フィルムの 110, 040 全極点図.

表 1. 1 軸延伸, 2 軸延伸 PP フィルムの配向係数値.

(a) 1 軸延伸 PP.			
	ND	RD	TD
{0 4 0}	0.406	0.079	0.516
{1 1 0}	0.555	0.032	0.414
a 軸	0.382	0.105	0.513
b 軸	0.555	0.032	0.414
c 軸	0.054	0.885	0.061
(b) 2 軸延伸 PP.			
	ND	RD	TD
{0 4 0}	0.596	0.249	0.155
{1 1 0}	0.312	0.476	0.212
a 軸	0.280	0.493	0.227
b 軸	0.596	0.249	0.155
c 軸	0.120	0.252	0.628

軸の向き・分布を評価できない。(−1 0 7) の格子面法線が c 軸とほぼ平行であり, c 軸の向きや分布の程度はこの (−1 0 7) の再計算極点図から評価できる (図 13)。

図 14 に 1 軸延伸 PP フィルムの全極点図を, 表 1 に 1 軸, 2 軸延伸 PP フィルムの配向係数を示す。この配向係数は全極点図から計算される。配向係数は, 着目している格子面の法線や, PP の a, b, c 軸が RD (MD), TD, ND のどちらに多く向いているかを数値で表したものである^{(8), (9)}。1 軸延伸では c 軸は MD (RD) にほぼ向いており, 一方, 2 軸延伸での c 軸は TD に多く向

いていることが分かる。このように, 配向係数を用いれば試料の物性やパフォーマンスとリンクさせて結晶の方位や配向の程度を数値で評価することができる。

ここでは PP の例を示したが, 別の材料でも SmartLab Studio II 標準のソフトウェアである Material Manager にその結晶系と格子定数を登録すれば, 立方晶を除く任意の材料で配向係数の解析が可能である。

6. まとめ

本稿では, SmartLab Studio II ソフトウェアの Texture (集合組織・配向評価) プラグインを紹介した。このプラグインは, 材料の集合組織の分析に必要な機能をフル装備している。0D 検出器で測定した極点図データも, 2D 検出器から得られたデータも扱うことができるため, さまざまな装置構成の回折装置で測定された極点図データについて, Texture プラグインで解析可能である。2D データからの極点図の作成は非常に簡便に操作できるようになっている。また, ODF 計算プログラムは 2 つ実装されているため, 目的に応じて使い分け信頼性の高い解析が可能である。配向制御を伴う材料開発において便利で有効なツールとなることが期待される。

参考文献

- (1) 稲葉克彦: リガクジャーナル, **49** (2018), No. 1, 13–19.
- (2) 長尾主悟, 鏡英理奈: リガクジャーナル, **41** (2010), No. 2, 1–8.
- (3) H. J. Bunge and F. Haessner: *J. Appl. Phys.*, **39** (1968), 5503–5514.
- (4) G. Wasserman and J. Grewen: *Texturen metallischer Werkstoffe*, Springer, Berlin, (1962).
- (5) S. Matthies: *Phys. Status Solidi B*, **101** (1980), K111–K115.
- (6) S. Matthies and G. Vinel: *Phys. Status Solidi B*, **112** (1982), K115–K120.
- (7) K. Pawlik: *Phys. Status Solidi B*, **134** (1986), 477–483.
- (8) P. H. Hermans and P. Platzek: *Kolloid Z.*, **88** (1939), 68.
- (9) R. S. Stein: *J. Polymer Sci.*, **31** (1958), 327.