

## Al 合金中の水素ボイドの USAXS による評価のための予備測定 Preliminary USAXS measurement for evaluation of voids in Aluminum alloys

奥田浩司<sup>a</sup>, 荒尾亮<sup>a</sup>, 落合庄治郎<sup>a</sup>, 佐藤真直<sup>b</sup>  
<sup>a</sup>Hiroshi Okuda, <sup>a</sup>Ryo Arao, <sup>a</sup>Shojiro Ochiai, <sup>b</sup>Masugu Sato

京都大学工学研究科<sup>a</sup>, (財)高輝度光科学研究センター<sup>b</sup>  
<sup>a</sup>Dept.Mater.Sci.Eng, Kyoto University, <sup>b</sup>JASRI

アルミニウム基合金中の微小ボイドを USAXS によって評価するための基礎データ取得を目的とし、モデル材料試料として AlMg 合金ならびに AlCu 基合金の散乱強度測定を試みた。散乱強度測定において厚い結晶材料を比較的高エネルギーの X 線を利用して評価する場合に重要となる、材料内部組織による小角散乱成分とは異なる寄生散乱の出現条件や頻度、再現性に関する検討および、測定データの再現性および均一性などの小角散乱成分に関する検討を試みた。

キーワード： USAXS、アルミニウム合金、ボイド

### 背景と研究目的：

アルミニウム合金中のボイド生成、成長は構造材料用として利用されるアルミ合金の疲労破壊過程と密接にかかわっている。水素濃度の比較的高い材料の場合、高温熱処理によって明瞭な水素ボイドが形成され、成長してゆく様子が豊橋技科大の戸田らによって放射光トモグラフィ法によって比較的大きく成長したボイドについて示されている[1]。一方、ボイド形成開始やその成長初期過程など、より微小な時点での分布状態については定量的な把握が困難であるのが現状であるが、組織とボイド生成・成長の関係は材料の組織制御の観点からは把握したい情報である。小角散乱法は非破壊でマクロな領域の試料の平均情報、具体的にはボイドの平均半径などを評価することが出来ることから、より初期のボイド形成過程から力学的に問題になるサイズに成長するまでの過程を追うことが出来ると期待される。一方、金属材料においてこのような実用材料系の比較的に厚い試料を 20keV 前後の比較的高いエネルギーの X 線をもちいて散乱測定を行った場合、多重回折効果など、通常の小角散乱測定では問題とならない散乱過程によって試料内部のナノマイクロ構造を反映した小角散乱とは無関係な強い散乱強度が観測される場合が頻繁にあることが知られている[2]。このような散乱が重畳された場合、小角散乱強度としての解析は不可能となる。そこで今回は上記のアルミ合金における水素ボイドの USAXS 評価に必要な基礎データとして、想定される試料サイズに対して 18keV 程度のエネルギーでの USAXS 測定を行う場合に対し、具体的に多重散乱効果などによる悪影響がどのような条件で現れるかといった条件検討を中心に予備評価測定を行った。

### 実験：

測定は BL19B2 においてカメラ長約 40m、入射 X 線エネルギー 18 keV ならびに 12keV を利用して行った。19B2USAXS では高調波の影響が心配されたものの、より低散乱ベクトル側のデータ取得の可能性を探るため、12keV での測定もおこなった。試料は Al-Mg, Al-Cu 合金板材および長さ標準資料用に粉末試料を用意した。検出器は BL 備え付けのピラタス検出器を用いた。

### 結果および考察：

図 1 は AlCu 合金の USAXS パターンである。生成した粗大析出物の散乱パターンに対応する肩成分が認められる。試料は 0.5mmx 1mmx 30mm 程度の大きさであり、図では試料先端部分から順次下方向に移動して USAXS パターンを測定している。縦方向で 0.5mm ずつ移動して測定した各位置での散乱パターンは一致していることが分かる。これは、析出物に関しては試料内では位置

によらず、同じ大きさ、量で均一に分布していることを示している。この場合のサイズについては Guinier 近似を行うことにより、慣性半径約 65nm であることが明らかとなった。BL19B2 の USAXS では試料位置でのビームサイズは約 0.2mm 程度であるので、これを試料の位置分解能として試料内のミクロンから数十 nm 程度の組織の不均一性を評価することが出来ることがわかった。

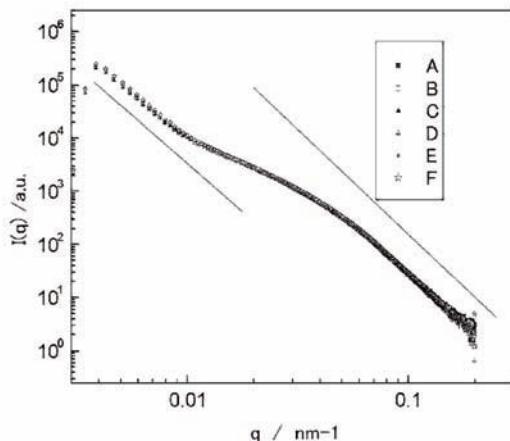


図 1. Al-Cu 試料 USAXS プロファイルの位置による変化

また、18keV での USAXS パターンと 12keV の USAXS パターンを重ねて示したものが図 2 である。今回の試料では典型的な析出物パターンが現れる位置より低散乱ベクトル側の指数則領域が 12keV での USAXS で拡張された部分になるが、図より明らかなように散乱強度は 18keV のものからスムーズに低散乱ベクトル側に延長されており、明確な高調波の影響は認められなかった。今回用意した長さ標準用試料ではこの延長部分を特徴的に調べられるものがなかったため、拡張された部分に関する分解能や高調波の影響の定量性に関する評価にはいたらなかった。

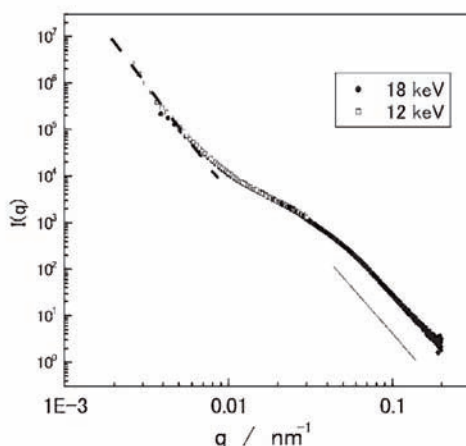


図 2. Al-Cu 試料における 18/12keV の USAXS プロファイル

以上に示すように良好な USAXS プロファイルが測定できる場合には試料内部の析出組織を反映して小角散乱と同様の解析が問題なくおこなえる信号が得られる。一方、従来から指摘されているように[1]、高エネルギー X 線を使うほど、また厚い試料による測定を行うほど多重回折による散乱強度プロファイルの著しい劣化が観察される確立が高くなる。波長を短くしていった場合

の小角散乱強度プロファイルの劣化の問題はX線に限らないが、今回は特に極端な高エネルギーX線を使わないため、効果は限定的であると予想された。測定中、実際に内部組織に起因する小角散乱とは全く異なるストリーク成分が出現することがしばしば確認された。この成分は試料の位置や入射方位に敏感であることが明らかとなった。従って2次元検出器により散乱パターンを観察し、必要に応じて試料を微調整することによりほぼ避けられることが分かった。しかしながらその出現条件については例えば殆ど同じテクスチャーを持っているはずであるにもかかわらず、ある部分では明確に現れ、隣接する位置では全く現れないなど、本申請で利用した多結晶試料では出現条件を詳細に検討することは出来なかった。このような効果によるストリークなどの寄生的散乱成分は強度的にはターゲットとしている小角散乱成分より一桁以上強い場合も認められたため、いったん現れると強度解析に大きな影響を与えてしまう。したがって、単結晶あるいは制御された強い集合組織をもつ試料を用いた検討が必要であろう。水素ボイドについては今回は初期条件で有意な信号が得られるかどうかの確認をおこなった。Cu析出物と比べるとはるかに強度が弱く、高濃度チャージされたものについてのみBGレベルと比較して有意な信号が今回のUSAXSの散乱ベクトルの高角ぎりぎりに現れた。一方これは従来型のSAXSでは低角ぎりぎりであることから、この試料の熱処理によるボイドの成長過程を観察するには本BLが適していると結論付けられた。

#### 今後の課題：

今回、通常の金属材料の高エネルギー小角散乱で問題となる寄生散乱などの問題がどの程度の頻度で起こるかについては確認が出来たが、その詳細な出現条件についてはより単純な単結晶モデル材料を使った検討が必要であると結論づけられた。また、サブミクロンからミクロン領域においては長さ標準に関する試料は比較的容易に入手できるが、強度標準については提案されているものはあるものの、入手性と校正の容易さの観点から満足できる状況ではない。今回も強度標準という観点からは望ましい信号の得られるものがなかった。USAXSの産業利用という観点からは、非破壊で通常のSAXSより大きなスケールの組織がどのような分布形態を持つかについての定量性が求められることから、今後の検討課題として重要な項目のひとつであると考えられる。

#### 参考文献：

- [1] H.Toda et al., Acta Mater. 57(2009)2277.
- [2] J.P.Simon J.Appl.Cryst.40 (2007)s1.