要約版

川崎製鉄技報
KAWASAKI STEEL GIHO
Vol.21 (1989) No.2

エネルギー分散型全自動正極点図測定装置
Energy Dispersive Full-Automatic Texture Analyzer

前田　千寿子(Tizuko Maeda)　片山　道雄(Michio Katayama)　清水　真人(Masato Shimizu)

要旨：
Mo の白線X線と Ge (Li)半導体検出器を用いたエネルギー分散型全自動正極点図測定装置を開発することにより，正極点図の複数面同時測定が可能となった。α-Fe は設定角度(検出角度の 1/2)を 7°とすれば，エスケープピーク補正により，(110)，(200)および(211)正極点図が同時に測定できる。完全正極点図 1 回の測定所要時間は，約 200min で従来の角度分散型装置より約 40min 長いが，３面測定の所要時間も変わらない。したがって，３面測定データを用いて解析される３次元結晶方位分布関数は，従来の半分以下の時間で求めることができるようになった。

Synopsis：
Energy dispersive full-automatic texture analyzer has newly been developed using Mo white X-ray diffraction. Pole figures of (110), (200) and (211) of α-Fe can be analyzed from respective integral peak intensities measured at the same time with the Ge (Li) detector system set up at 14° from incident X-ray beams, after escape peak correction. Measuring time of a complete pole figure is about 200 min, which is 40 min longer than that of conventional anguler dispersive texture analyzers, but of three kinds of complete pole figures for obtaining an orientation distribution function is less than half the time by conventional texture analyzers.

(c)JFE Steel Corporation, 2003

本文は次のページから閲覧できます。

エネルギー分散型全自動正極点図測定装置*

川崎製鉄技報
21 (1989) 2, 88-92

Energy Dispersive Full-Automatic Texture Analyzer

前田 千寿子
Tizuko Maeda
技術研究本部 計測・物性研究センター

片山 道雄
Michio Katayama
技術研究本部 計測・物性研究センター 主任研究員

清水 真人
Masato Shimizu
技術研究本部 計測・物性研究センター 主任研究員・工博

要旨

Mo の白色X線と Ge(Li) 半導体検出器を用いたエネルギー分散型全自動正極点図測定装置を開発することにより，正極点図の複数面同時測定が可能となった。α-Fe は設定角度（検出角度の 1/2）を 7° とすれば，エスケープピーク補正により，(110)，(200) および (211) 正極点図が同時に測定できる。完全正極点図 1 回の測定所要時間は，約 200 min で従来の角度分散型装置より約 40 min 長いが，3 面測定の所要時間も変わらない。したがって，3 面測定データを用いて解析される 3 次元結晶方位分布関数は，従来の半分以下の時間で求めることができるようになった。

Synopsis:

Energy dispersive full-automatic texture analyzer has newly been developed using Mo white X-ray diffraction. Pole figures of (110), (200) and (211) of α-Fe can be analyzed from respective integral peak intensities measured at the same time with the Ge (Li) detector system set up at 14° from incident X-ray beams, after escape peak correction. Measuring time of a complete pole figure is about 200 min, which is 40 min longer than that of conventional anguler dispersive texture analyzers, but that of three kinds of complete pole figures for obtaining an orientation distribution function is less than half the time by conventional texture analyzers.

1 はじめに

エネルギー分散法を使用したX線回折測定 EDXD (energy dispersive X-ray diffraction) は，強力な白色X線源の出現と半導体検出器のエネルギー分散能の向上により，最近さかんに行われるようになってきている。EDXD の最大の特徴は，検出器を固定したままX線回折パターンを測定できる点である。当所では既に，Bragg-Brentano ゴニオメーターに Ge (Li) 半導体検出器 SSD (solid state detector) を搭載することにより全自動逆極点図測定装置を開発し[1]，以来逆極点図の大量，迅速測定が可能となった。

さらに EDXD を正極点図測定に応用すれば，従来の角度分散型正極点測定装置[2] では行えなかった正極点図の複数面の同時測定が可能となり，3 次元結晶方位分布関数を求める上で大幅な測定時間の短縮となる。本報では，理学電機株式会社と共同開発した，新しいエネルギー分散型全自動正極点図測定装置について紹介する。

2 エネルギー分散型正極点図測定の原理と特徴

新しい正極点図測定装置の開発における最大の目的は，測定から結果の出力にいたる一連の処理を合理化することであり，次に示す 3 項目を主眼として開発が進められた。

(1) エネルギー分散法で複数面の正極点図の同時測定を行うことにより，3 次元結晶方位分布関数の測定時間を短縮する。

(2) エネルギー分散測定によるデータ処理とその補正法を確立する。

(3) 測定時間の短い不完全正極点図の測定については，試料交換から結果の出力まで，完全自動で処理される無人化システムを構築する。

これらの項目にしたがい具体的に新しい装置の構成と仕様を述べる前に，エネルギー分散型正極点図測定の原理と特徴について述べる。

正極点図とは，注目している回折面の試料座標系における極密度関数を，ステレオ投影で表示したものである。極密度関数を求めるためには，目的とする (hkl) 回折面の積分強度分布を，試料座標系に対して測定する必要がある。実際の測定では，波長 λ_0 の特性X線を用いるため，検出器は入射X線に対し Bragg の回折条件 (1)式

$$2d_{hkl}\cdot\sin\theta_{hkl}=\lambda_0 \quad \cdots\cdots (1)$$

d_{hkl}: (hkl) 格子面の面間隔

$2\theta_{hkl}$: (nkl) 回折面の回折角

から決まる $2\theta_{hkl}$ の回折位置に固定し，試料を測定光学系に対し座標回転することにより，(hkl) 回折面の積分強度分布を求める。この，いわゆる角度分散測定法では，目的とする (hkl) 回折面の測定ごとに，Bragg の回折条件 (1) 式を満足するように，検出器の位置設定を変更しなければならないので，一度に 1 種類の回折面の測定しか行えず，複数の正極点図から解析される 3 次元結晶方位分布関数の測定には多大な時間がかかるのが普通である。

EDXD は，連続スペクトルをもつ白色X線の回折であるため，一般に回折条件は，(2) 式のように表される。

$$E_{hkl}=hc/\lambda=6.2/(d_{hkl}\cdot\sin\theta) \quad \cdots\cdots (2)$$

ここで，E_{hkl} は (hkl) 面の回折X線光子エネルギーである。測定光学系の設定角度 θ を任意に固定しても，(2) 式が示すように回折X線のエネルギー分析を行うことにより，回折スペクトルを一挙

* 平成元年 1 月26日原稿受付

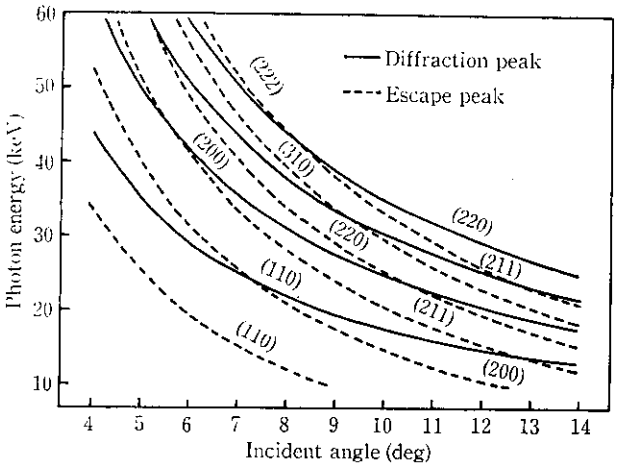

Fig. 1 Incident angle dependences of energy of diffraction X-ray peaks of α-Fe and escape X-ray peaks by SSD

に検出することができる。

Fig. 1 の実線は，(2) 式から求めた α-Fe の各回折X線光子エネルギーの設定角度依存性を示す。設定角度 θ を小さくするほど，また1つの回折スペクトル中では高指数面ほど，回折X線のエネルギーは大きくなる。実際の測定では，次に述べるエスケープピークの制約のため，θ を 7° に設定し，約 25 keV，35.5 keV および 43.5 keV のエネルギーの位置に現れる (110)，(200) および (211) 回折ピークの同時測定を行っている。

EDXD で正極点図を測定する際に留意しておかなければならないのは，試料の集合組織とは直接関係のない，白色X線強度分布，コンプトン散乱X線およびエスケープピークによる影響を測定強度から除去することである[3]。エスケープピークとは，回折X線により SSD の真性領域構成元素である Ge が励起され，その結果生じる Ge-Kα が検出器の素子の外に逃げ出すために，回折X線のエネルギー E_{hkl} から Ge-Kα (9.87 keV) だけ小さいエネルギー位置に，回折ピークに付随して現れるピークのことで，Ge の K 吸収端より大きなエネルギーのX線が入射する場合にのみ生じる SSD 特有の現象である。エスケープピーク強度は，回折X線に対するエスケープ収率で決まるため，回折X線強度に依存する。

正極点図にとって必要なのは，一定のエネルギーをもつ各 (hkl) 回折線の相対的な強度分布である。このため，これら EDXD スペクトルに対する補正のうち，X線のエネルギーに依存する白色X線強度分布とコンプトン散乱X線からの影響は，極密度関数を求める際に無視でき，これら2つの補正は基本的に不要となる。これに対し，エスケープピーク強度は，前述したように回折X線強度に依存するため，回折スペクトルのピークにエスケープピークが重なる場合は，補正が必要である。

Fig. 1 の点線は，α-Fe の回折X線に付随して生じる各エスケープX線エネルギーの設定角度依存性を示す。α-Fe の3次元結晶方位分布関数の計算を精度よく行うためには，一般に (110)，(200) および (211) 正極点図を測定すればよいが，Fig. 1 からわかるように，これらの回折ピークのいずれにもエスケープピークが重ならないように測定光学系を選ぶことはできない。このため新しい正極点図測定装置では，θ を 7° に設定して (110) 回折ピークに (200) 回折X線に付随するエスケープピークを重ね，(110) 回折強度からこのエスケープピーク強度を除去することにより補正する。エスケープピーク強度は，各 SSD に固有の回折X線エネルギー依存性をもつので，あらかじめシリコンなど適当な単結晶試料で回折X線強度に対する比として検量線を作成しておき[3]，これを (200) 測定強度に乗ずれば求めることができる。

これに対し γ-Fe では，θ=7° の設定でエスケープピークの重なりを生じないので，以上の補正は不要である。

3 装置の構成および仕様

装置の外観を **Photo 1** に，また構成および主な仕様を，**Fig. 2** および **Table 1** に示す。

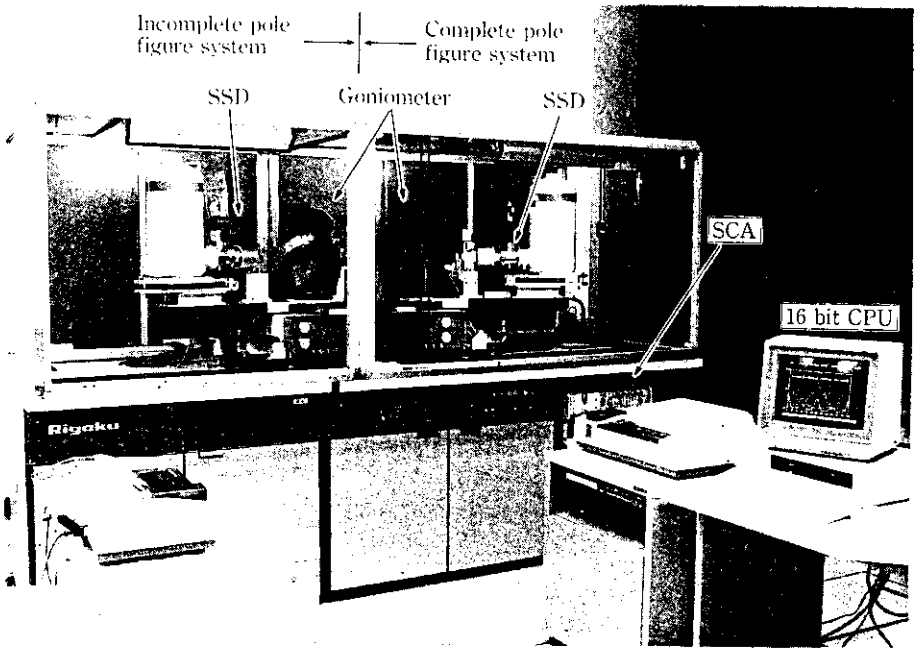

Photo 1 Energy dispersive full-automatic texture analyzer

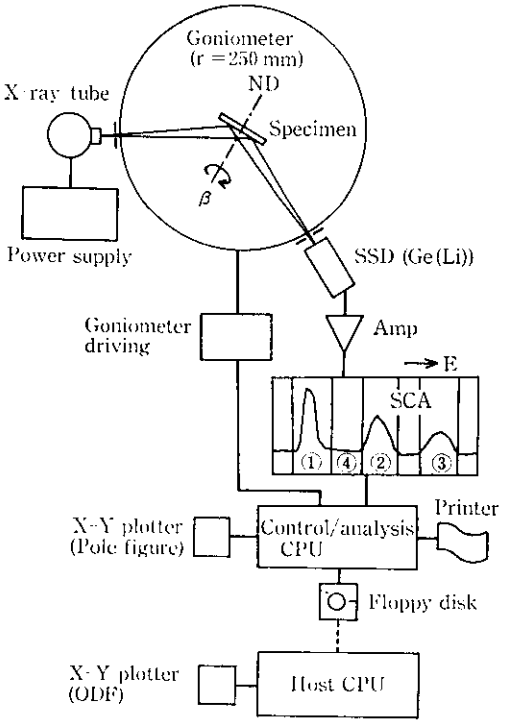

Fig. 2 System diagram

Table 1 Specifications

	Complete pole figure	Incomplete pole figure
X-ray tube		
Target	Mo (white X-ray)	
Power	≦60 kV, 300 mA (max 18 kW)	
Focus	0.5 mm × 10 mm	
Goniometer	r=250 mm (Schulz geometry)	r=250 mm (Schulz geometry)
α-scanning	0-40° (trans.) 30-90° (ref.)	10-90° (ref.)
β-scanning	0-360° (trans./ref.)	0-360° (ref.)
Detector	Ge(Li) SSD	Ge(Li) SSD
Energy analyzer	SCA × 4	SCA × 4
Count meter	Dual counter	Dual counter

3.1 X線光学系

X線源は強力な白色X線を必要とするため，Mo 回転対陰極（最大 60 kV，300 mA，最大許容負荷 18 kW）を使用している。ゴニオメーターは，**Fig. 3** に示すように通常の極点図用 α (RD 回転)-β (ND 回転)-γ(水平揺動) 駆動ゴニオメーターで，Schulz 発散ビーム光学系[4] である。実際の装置では，X線源を中心に左右対称に不完全正極点図測定装置と完全正極点図測定装置が設置されており，全く独立に使用することが可能である。不完全正極点図では全測定範囲を反射法で行い，完全正極点図では幾何学的な制約から，α=0～40° までを透過法，α=30～90° を反射法で測定し，α=30～40° の間で両方のデータのスケーリングを行っている。なお駆動ステップは，簡便測定である不完全正極点図では $\Delta\alpha$=10°，$\Delta\beta$=5° で行い，データの精密さが必要とされる完全正極点図では $\Delta\alpha$，$\Delta\beta$ ともに 5° で行っている。以上述べた完全，不完全正極点図の測定方法は，従来の角度分散法[2] と同様である。

また，不完全正極点図測定装置には，12 枚装着可能なオートサンプルチェンジャが装備されており，試料セットから結果の出力まで完全無人運転が可能である。

3.2 X線検出系

試料からの回折X線は，主要な回折ピークが現れる 10～50 keV で検出効率の高い Ge(Li) SSD で検出され，増幅後，並列に 4 台設

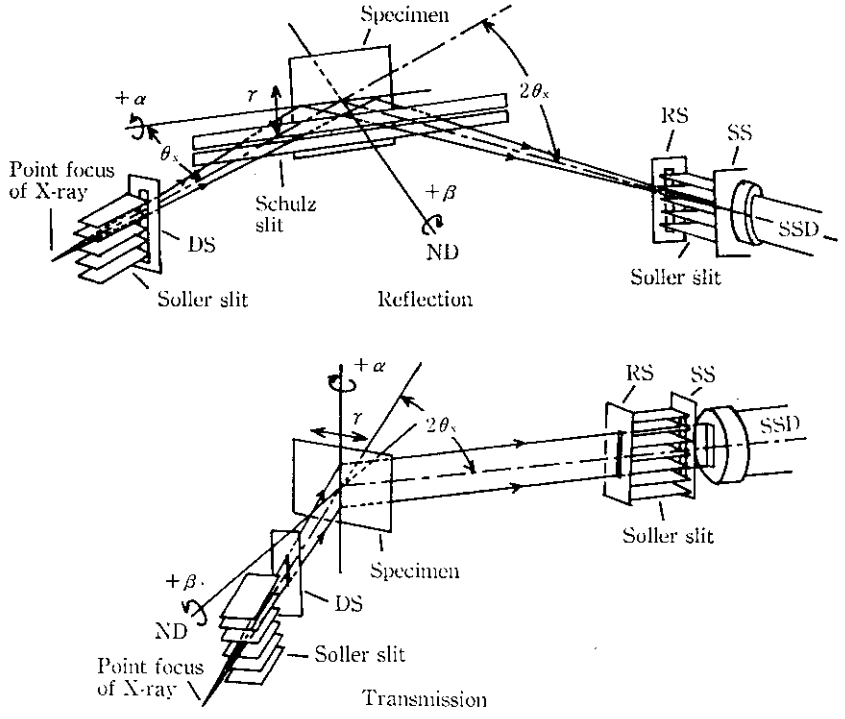

Fig. 3 Reflection and transmission geometries

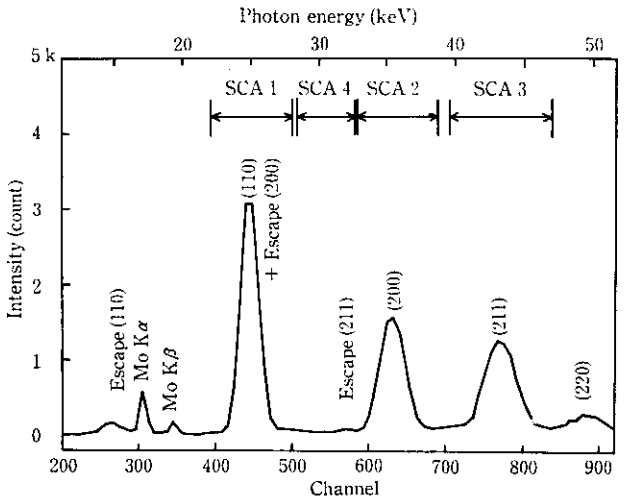

Fig. 4 Diffraction spectrum of α-Fe by energy dispersive technique at $\theta=7$ deg

置された単波高分析器 SCA(single channel analizer) で各回折ピークごとに計数される。**Fig. 4** は $\theta=7°$ で測定した1ステップにおける α-Fe の回折スペクトルの1例である。SCA 1~3 で (110), (200) および (211) 回折強度を，SCA 4 でバックグラウンドを測定する。各回折ピークのバックグラウンドは，SCA 4 で計測したバックグラウンド値に SCA 4 のウィンドゥに対する各 SCA 1~3 のウィンドゥの比率をかけて求められ，各回折ピークから除去される。またこのとき，(200) 回折線によるエスケープピークも (110) 回折強度から差し引かれる。

3.3 システム制御およびデータの解析

新しい正極点図測定装置では，試料交換から測定結果の出力まですべて，各装置に独立に接続されている 16 ビットパーソナルコンピュータで制御することにより，自動運転が行われる。測定の概要を次に述べる。

測定開始にあたり，まず測定ステップ角度，1ステップあたりの計数時間などの測定条件，およびバックグラウンド決定のためのウィンドゥの比率，エスケープピーク強度比，完全正極点図の解析に必要な μt 値（μ は試料の線吸収係数，t は試料厚）などのデータ処理条件を入力する。これにより，フロッピィディスクには (110), (200) および (211) 回折強度のデータファイルが作成され，自動的に測定が開始される。SCA 1~3 で計測される各回折ピークの積分強度は，測定1ステップごとに逐次バックグラウンドとエスケープピークが除去され，ファイルに記憶されてゆく。また測定中の回折データは α 角の1ステップごとに逐次パソコンの画面でモニターすることができるようになっている。

不完全正極点図の測定では，測定終了後ただちに次の試料がセットされ再び測定が開始される。この間に，すでに測定が終了した試料の不完全正極点図の作成が行われ，最高 12 枚まで不完全正極点図の無人測定が続行される。

一方完全正極点図は，後で述べるようにデータ点数が多く測定時間も不完全正極点図より長い，データ処理に必要な μt 値が試料によって異なるという理由のため，試料セットから完全正極点図の作成までをバッチ処理で行う。各試料の μt 値は，従来の装置[2] で行っていたのと同様，正極点図の測定にさきだち，あらかじめこの装置により実測することができる。ut 値測定は，入射X線強度に対する垂直透過X線強度の比から，(3) 式により求められる。

$$\mu t=-\ln(I/I_0) \quad \cdots\cdots (3)$$

ここで，I_0 は入射X線強度で，実際の測定には適当な試料の回折X線を用いる。I は試料を垂直に透過するX線強度である。μt 値測定試料は，専用の試料ホルダーにより受光スリット直前に，回折X線の光軸に対して垂直に取付けられる機構となっている。

正極点図の解析は，従来の角度分散法[2] で行っていたのと同様，結晶配向性のないランダム標準試料の回折強度（ランダム強度）に対する比を規格化することにより，吸収補正を行うことなく極密度関数を求める方法で行う。新しい装置ではこれ以外に，理論吸収補正式[4] により回折幾何学条件の変化に対して回折強度を吸収補正した後，規格化を行い極密度関数を求めることも可能である。

3次元結晶方位分布関数は，Roe の Euler 角表示方法[5] を用い，(110), (200) および (211) 極密度関数から解析される。解析は，16 ビットパソコンではメモリー容量が足りないため，フロッピィディスクを介して大型ホストコンピュータで行う。

4 測定例

Fig. 5 は，新しいエネルギー分散型全自動正極点図測定装置で同時測定した冷延鋼板の (110), (200) および (211) 完全正極点図

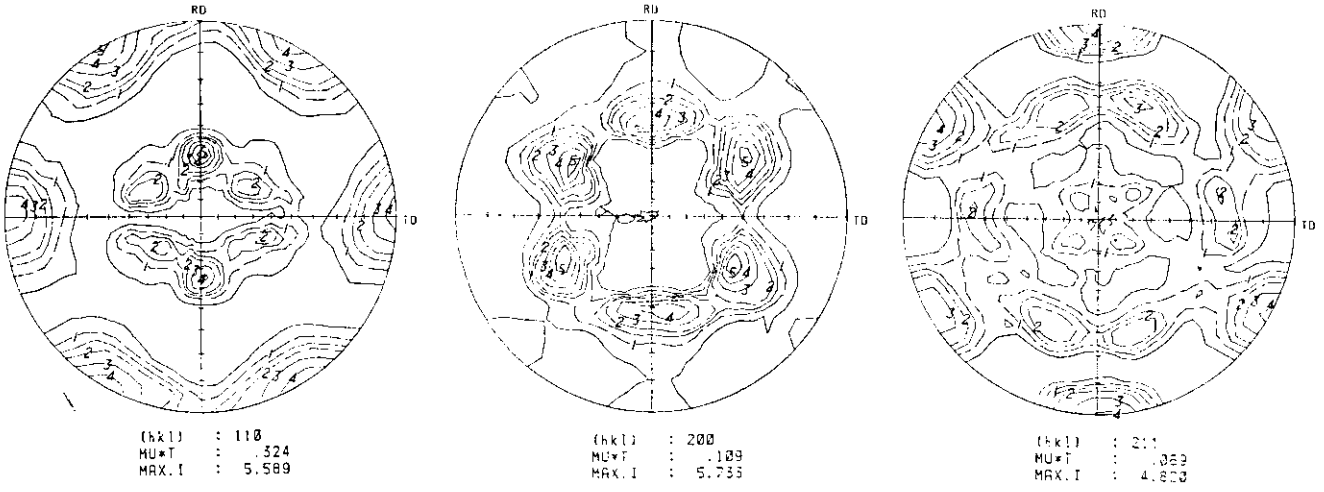

Fig. 5 Complete pole figures of cold rolled steel sheet by newly developed system at $\theta=7$ deg (MU(μ), absorption coefficient; T, thickness of specimen)

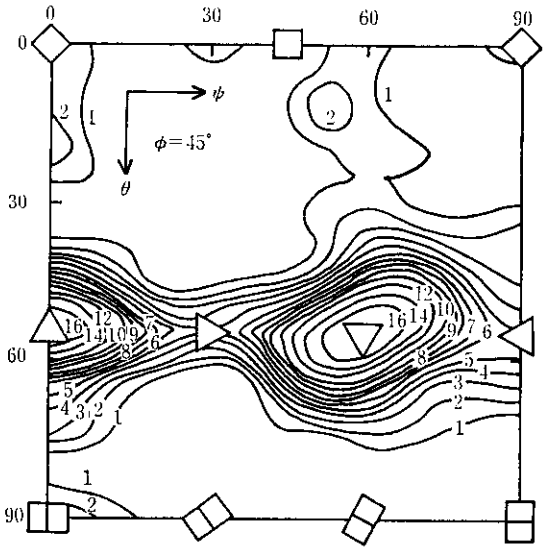

Fig. 6 Crystallite orientation distribution function (ODF) calcurated from (110), (200) and (211) pole figures of Fig. 5

である。**Fig. 6** は，これら3つの正極点図から計算した $\phi=45°$ における3次元結晶方位分布関数である。Fig. 5 の正極点図から，典型的な冷延集合組織の1つである {111}〈112〉方位が発達していることが，定性的にわかる。Fig. 6 から，これらの主方位は $(\bar{1}11)$ $[1\bar{1}2]$ および $(\bar{1}11)$ $[12\bar{1}]$ で，いずれもランダム強度の約16倍の強さであることがわかる。

5 測定所要時間の比較

正極点図では通常，極密度関数を等強度線で表示するため，1ステップあたりの計数時間が最終結果に及ぼす影響が必ずしも明瞭ではなく，したがって厳密に従来の角度分散型装置と新しいエネルギー分散型装置の測定所要時間を比較することは難しい。参考までに，ほぼ同等の最終結果が得られる測定時間について述べる。

不完全正極点図の1回の測定に要する時間は，新装置と従来装置で差はなく，回折X線の計測が 44 min (4 s/ステップ×648 ステップ)，ゴニオメーターの駆動などX線の計測以外の時間が 25 min で，合計約 70 min である。これは，1ステップあたりの計数時間が，従来装置と新装置で 4 s と変わらないためである。ただし，新装置に設置されているオートサンプルチェンジャを使用すると，終夜12枚の試料が新たに測定できるようになり，大幅な能力アップとなっている。

一方，完全正極点図では1回の測定所要時間は，新装置で 208 min，従来装置で 168 min と，新装置の方が 40 min 長くなっている。この原因は，1ステップあたりの計数時間が，従来装置の計数時間 4 s であるのに対し，透過測定領域で 2 s と半分になったものの，総ステップ数の多い反射測定領域で 8 s と2倍に増加したためである。このように変更したおもな理由は，回折X線が従来の MoKα(17.44 keV) よりエネルギーの高い白色X線となり，試料の線吸収係数 μ が従来法の 1/3～1/15 に減少するため，その結果，透過X線強度と反射X線強度の差が大幅に拡大するからである。しかしながら一般に，完全正極点図は3次元結晶方位分布関数を目的として測定されることが多く，3面測定に要する時間で比較すると，3面同時測定が行える新装置は従来装置の半分以下となっていることがわかる。

6 結　言

(1) Mo の白色X線と Ge(Li)SSD を用いたエネルギー分散型全自動正極点図測定装置を新しく開発することにより，完全自動で正極点図の複数面同時測定が可能となった。

(2) α-Fe は設定角度 θ を 7° とすれば，エスケープピーク補正を行うことにより，(110)，(200) および (211) 回折強度の同時測定が可能である。γ-Fe の測定は，θ を 7° に設定してもエスケープピーク補正は不要である。

(3) 新しいエネルギー分散型装置による1回の測定所要時間は，不完全正極点図では約 70 min と従来の角度分散型装置と変わらない。一方，完全正極点図では約 200 min と従来の角度分散型装置より約 40 min 多い。ただし，3面測定の所要時間も変わらないので，3次元結晶方位分布関数は従来の半分以下の時間で求められる。

参 考 文 献

1) 片山道雄，清水真人，小西元幸，北川 孟，森本一三：鉄と鋼，**70** (1984) 5, S564
2) 北川 孟，片山道雄，森本一三，丸山英雄，鶴岡一夫：鉄と鋼，**63** (1977) 1, 147-153
3) 山中高光：日本結晶学会誌，**30** (1988) 4, 245-253
4) 長嶋晋一編：「集合組織」，(1984)，9，(丸善)
5) R. J. Roe: *J. Appl. Phys.*, **36** (1965) 6, 2024-2031