

応力解析の最先端

根津 暁充*・松坂 ひとみ*・横山 亮一*

1. はじめに

本稿では最近のX線応力解析法について解説する。従来から用いられている $\sin^2\psi$ 法以外のX線応力測定・解析法の中で最も実用的と思われる3例を選出した。ここで紹介する解析例は、(1) Multiple-hkl法による残留応力測定、(2) 深さ方向のせん断応力のある試料の残留応力測定、(3) 結晶子ひずみ解析法⁽¹⁾による繊維配向試料における残留応力測定および回折線幅の広がり⁽²⁾の3例である。

2. Multiple-hkl法によるX線残留応力測定

2.1. 微小角入射法による薄膜X線回折測定

硬質セラミックス膜による表面改質は、耐摩耗性や摺動性、あるいは耐熱性や耐食性などに優れていることから、切削工具や機械部品、金型、装飾品、磁気記録媒体などに広く応用されている。代表的なセラミックス膜としては、TiN, TiAlN, TiC, AlN, CrNなどの窒化物が挙げられる。中でもTiN膜は高温下での使用が可能で、高い硬度を持ち、鋼や超合金との密着性も良好なことから、保護コーティング材として広範囲の分野で利用されている。TiN膜の形成にはPVD法やCVD法が用いられている。特にPVD法は、処理温度が500°C以下であり、高速度鋼やダイス鋼に対して焼き戻し温度以下の温度で被覆できるという利点を持つ。さらに、これらの硬質膜は化合物膜であることから、化学組成比をずらすことで高硬度の膜を形成できるなど、従来にはない特性を持たせることができる。そのため、PVD法による皮膜は、新しい機能性材料の実現を目指して精力的に研究開発が行われている。ただし、成膜時や使用中における残留応力・ひずみは膜の剥離や亀裂の発生に影響して材料の寿命を縮めることになるため、膜の応力状態を把握することが非常に重要となる^{(2),(3)}。

残留応力の測定法としてはX線回折法が最も有力な手段であり、非破壊かつ非接触で結晶材料の評価が可能である。しかし、金属やセラミックスに対するX線

侵入深さは数 μm であり、厚さ1 μm 以下の薄膜や極表面層のみの情報を選択的に評価するには汎用測定(2 θ/θ 走査)では限界がある。このとき、X線を試料表面すれすれに入射させる微小角入射法を利用することにより、X線の侵入深さを制御できるため、汎用測定では得られなかった領域の残留応力評価が可能となる⁽⁴⁾。本章では、鉄鋼材上に被覆されたTiN膜に対する残留応力の測定例を紹介する。

2.2. Multiple-hkl法

X線応力測定法として広く知られる $\sin^2\psi$ 法は、多結晶における特定の格子面(hkl)に着目して、 ψ 角を傾けながら任意方位の格子面間隔(d)を観測する手法である。ここで、 ψ は試料面法線と格子面法線のなす角度を表す。 $\sin^2\psi$ 法の利点は、無ひずみ状態の格子面間隔(d_0)が厳密にわからなくても解析が可能であり、横軸に $\sin^2\psi$ 、縦軸に2 θ を取った $\sin^2\psi$ -2 θ 線図と呼ばれるグラフの回帰直線を描くことで簡便に応力値が求まるといふところにある。このとき、回帰直線の傾き(M)と被験物質の弾性定数で決まる応力定数(K)を用いて、 ψ 角を傾ける方向の残留応力(σ)がそれらの積($\sigma=M\cdot K$)として求まる。

ここで薄膜に対する応力測定を考えた場合、 $\sin^2\psi$ 法では1つの格子面(hkl)の面間隔の変化を測定するため、X線の入射角度が大きくなると、回折に寄与する膜の体積が小さくなって十分な回折線の強度が得られず、基板結晶から来る回折線とのS/N比が悪くなるという問題があった。この問題を解決するため、図1に示すように、膜に対してX線を微小角で固定して入

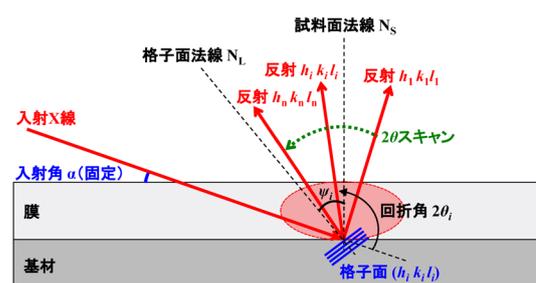


図1. Multiple-hkl法による薄膜X線応力測定。

*株式会社リガク X線機器事業部 応用技術センター

射し、 2θ 走査により複数の格子面の回折線を測定するという方法が提唱された。複数の格子面 ($h_i k_i l_i; i=1\sim n$) を用いて応力を解析することから、この方法は後に Multiple-hkl 法と呼ばれるようになった。 2θ 走査により観測される各格子面の ψ 角がそれぞれ異なり、結果的に ψ 角に伴う格子面間隔の変化を観測することができる。したがって、この測定法は薄膜に対しては X 線回折に寄与する体積を増やすことができ、厚膜に対しても X 線の侵入深さをナノオーダーで制御できるという利点がある。本章で紹介する硬質膜は厚膜に属する繊維配向膜であり、膜中に存在するランダムな方位を持つ結晶粒に着目して、Multiple-hkl 法を適用した。

以下の式 (1) に、結晶および非結晶を含む材料一般について成立するひずみと応力の関係⁽⁵⁾を示した。

$$\begin{aligned} \epsilon_{\phi\psi} = & \frac{1}{2} S_2 \sin^2 \psi \left[\sigma_{11} \cos^2 \phi + \sigma_{12} \sin(2\phi) + \sigma_{22} \sin^2 \phi \right] \\ & + \frac{1}{2} S_2 \left[\sigma_{13} \cos \phi \sin(2\psi) + \sigma_{23} \sin \phi \sin(2\psi) \right. \\ & \left. + \sigma_{33} \cos^2 \psi \right] \\ & + S_1 [\sigma_{11} + \sigma_{22} + \sigma_{33}] \end{aligned} \quad (1)$$

ここで示されるひずみ $\epsilon_{\phi\psi}$ は、被験試料の面法線周りで半時計方向に ϕ 回転した方向に ψ 傾けた方位を面法線とする回折面のひずみを示す。 $\sigma_{ij} (i, j=1, 2, 3)$ は応力テンソルの成分を示し、 $S_1, S_2/2$ は式 (2) に示すようにヤング率 (E) とポアソン比 (ν) で表される X 線の弾性定数である。

$$S_1 = -\frac{\nu}{E}, \quad \frac{1}{2} S_2 = \frac{1+\nu}{E} \quad (2)$$

一方、Multiple-hkl 法では、複数の格子面の面間隔 (d_i) の変化率、すなわちひずみ $\epsilon_{\phi\psi}^{hkl} (= (d_i - d_{0i}) / d_{0i})$ を観測することで応力 σ_{ij} を解析することができる。このとき、 d_{0i} は i 番目の格子面の無ひずみ状態の面間隔を示す。

また、等2軸応力状態については、式 (1) において、 $\sigma_{33}=0, \sigma_{23}=\sigma_{13}=\sigma_{12}=0, \sigma_{11}=\sigma_{22}=\sigma$ という条件を設定することで以下の関係式 (3) が得られる。

$$\begin{aligned} \epsilon_{\phi\psi}^{hkl} = & f(\phi, \psi, S_1^{hkl}, S_2^{hkl}) \sigma, \\ f(\phi, \psi, S_1^{hkl}, S_2^{hkl}) = & 2S_1^{hkl} + \frac{1}{2} S_2^{hkl} \sin^2 \psi \end{aligned} \quad (3)$$

式 (3) に着目して、横軸に関数 $f(\phi, \psi, S_1^{hkl}, S_2^{hkl})$ 、縦軸にひずみ $\epsilon_{\phi\psi}^{hkl}$ をプロットすると、この回帰直線の傾きが求めたい膜の応力 σ になることがわかる。ただし、 S_1^{hkl} と S_2^{hkl} は X 線の弾性定数が格子面 (hkl) に依存することを意味している。

2.3. 応力測定装置

本章で紹介する硬質膜の残留応力測定には、図2に示す全自動水平型 X 線回折装置 SmartLab を使用した。

X 線源には高出力 (45 kV, 200 mA) の回転対陰極式 Cu 管球を使用し、入射側に多層膜ミラーを搭載することで高強度の平行ビームを形成した。従来の光学系では、入射側および受光側のスリットを絞ることで擬似的に平行ビームを形成していたが、X 線強度が減少することから、発散角を抑えることに限界があった。これに対して、放物面多層膜ミラーを用いた光学素子 (CBO: Cross Beam Optics) を使用することで、X 線強度の反射率が 70%、発散角が 0.04° の X 線ビームの使用が可能になった。受光側には分解能 0.5° の平行スリットアナライザー (PSA: Parallel Slit Analyzer) を用いて回折 X 線の発散を抑えた。

2.4. Multiple-hkl 法による測定および解析結果

測定試料には、PVD 法に分類されるイオンプレATING 法により TiN 膜を被覆した鉄鋼材を使用した。膜厚は約 $5 \mu\text{m}$ で、膜表面は銀色の光沢を帯びていた。ちなみに、 $\text{Ti}_x\text{N}_{1-x}$ 膜は窒素の含有量によって色が異なり、 $x \approx 0.5$ で金色、 $x > 0.5$ で銀色を呈することが一般に知られている。すなわち、今回使用する試料は銀色であることから窒素の反応量が少ない TiN 膜であることが想定された。

X 線の入射角度を約 0.4° に固定して 2θ 走査により観測した回折プロファイルを図3に示す。実測プロファイルにおける各反射の強度比と、無配向試料の回折プロファイルにおける各反射の強度比を比べて、本試料は $[111]$ 軸方向に弱い優先配向を有していることがわかった。なお、X 線を微小角入射した場合、TiN 膜

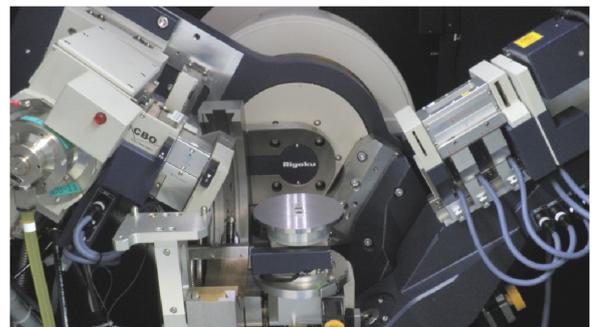


図2. 全自動水平型 X 線回折装置 SmartLab.

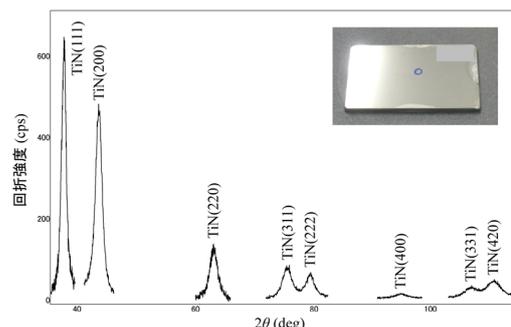


図3. 微小角入射法による TiN 膜の回折プロファイル.

に対するX線の侵入深さは数10 nmであり、膜厚に対して極表層の応力状態を評価することになる。ここで、プロファイルフィッティングから得られたTiN膜の回折ピーク情報を表1に示す。

Multiple-hkl法による応力解析では、ひずみ感度を考慮して、観測された8つの反射のうち高角側の6つの反射を用いて応力値を算出した。式(3)より、TiN膜には応力値が $\sigma=1.99$ GPa、信頼限界値が $\Delta\sigma=0.47$ GPaの引張応力が観測された。なお、関数 $f(\phi, \psi, S_1^{hkl}, S_2^{hkl})$ -ひずみ ϵ_{ϕ}^{hkl} 線図を図4に示す。ヤング率とポアソン比については、均質等方体と見なして $E=429$ GPa, $\nu=0.19$ ⁽⁶⁾を用いた。

表1. TiN膜の回折ピーク情報.

hkl	2θ (deg)	FWHM (deg)	I (counts)
111	37.20	0.92	7182
200	42.93	1.35	5291
220	62.39	1.64	1505
311	74.80	1.88	883
222	78.66	1.66	654
400	94.00	2.33	130
331	105.70	2.80	232
420	109.57	2.64	449

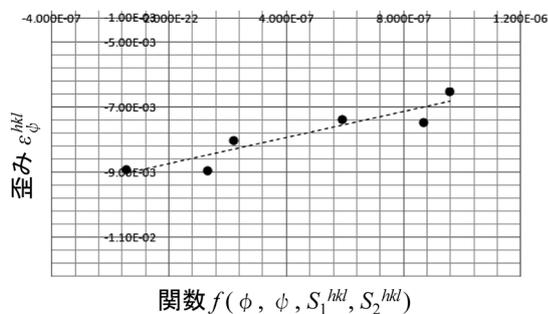


図4. 関数 $f(\phi, \psi, S_1^{hkl}, S_2^{hkl})$ -ひずみ ϵ_{ϕ}^{hkl} 線図.

2.5. 考察

薄膜の残留応力は、基材と膜の線膨張係数の差から生じる熱応力が主に原因とされている。FeとTiNの室温付近での線膨張係数はそれぞれ $11.8 \times 10^{-6}/K$, $9.2 \times 10^{-6}/K$ ⁽⁷⁾であり、成膜後は基材の熱収縮に伴って膜には圧縮応力が残留すると考えられる。しかし、本測定では膜厚に対して極表層の応力状態を評価しており、膜と基材の境界付近とはひずみ方が異なることは十分に考えられる。つまり、境界付近では基材の拘束を強く受ける一方で、膜表面では応力緩和が生じている可能性がある。その他、関数 $f(\phi, \psi, S_1^{hkl}, S_2^{hkl})$ -ひずみ ϵ_{ϕ}^{hkl} 線図に直線関係が見られることから、式(3)の導出に用いた条

件は膜の応力状態を反映しており、膜表面には引張応力が等方的に残留していることがわかる。もし異方性を考慮するならば、式(1)で $\sigma_{11} \neq \sigma_{22}$, $\sigma_{12} \neq 0$ とにおいて解析すればよい。また、観測した線図の直線性からX線侵入深さ内において応力勾配が影響していないことがわかる。

2.6. Multiple-hkl法の検討

Multiple-hkl法のもう1つの利点として、狭小部の応力測定が挙げられる。ギヤの狭い歯底やホイールの内側など、X線の入射角を固定することで測定が容易になるような箇所には出射角のみ考慮すれば良いことになる。

以上のことから、Multiple-hkl法は薄膜および狭小部の残留応力評価に有効であり、汎用的なX線応力測定法を補足する上で欠かせない分析手法である。

3. 深さ方向のせん断応力がある試料の残留応力評価

3.1. 従来の残留応力測定法との比較

1軸応力測定法である $\sin^2\psi$ 法を多結晶試料に適用する場合、試料は以下の4つの条件を満たさなければならない。

- ① 試料のX線照射域内に多数の結晶粒が存在する。
- ② 強い優先配向を有しない。
- ③ X線侵入深さ内で平面応力状態にある。
- ④ X線侵入深さ内に応力勾配がない。

$\sin^2\psi$ 法では上記前提条件が存在するため、試料の結晶状態に依存して $\sin^2\psi-2\theta$ 線図にばらつきが出たり、あるいは湾曲して非線形になったりすることがある。その原因としては、上記①から④に対応して、次の①'から④'で示される4つの結晶状態が考えられる⁽⁸⁾。

- ①' 粗大結晶粒が形成されており、X線照射領域内に十分な数の結晶粒が存在しない。
- ②' 集合組織が存在する。
- ③' 試料表面下のX線侵入深さ内に深さ方向のせん断応力成分(σ_{13} あるいは σ_{23})を有する。
- ④' 試料表面下のX線侵入深さ内で急峻な応力勾配を有する。

さらに、これらの結晶状態に対して3軸応力状態を考慮することで、上記①'から④'に対応して、以下の①''から④''で示される4つの特徴が $\sin^2\psi-2\theta$ 線図に現れることが知られている。

- ①'' 連続的なプロファイルが観測されないため、 $\sin^2\psi-2\theta$ 線図の傾きの誤差が大きい。
- ②'' 特定の方向の ψ で観測したプロファイルのピー

ク強度が著しく低い。

- ③” ψ スプリットを生じる⁽⁹⁾⁻⁽¹¹⁾。
- ④” $\sin^2\psi$ - 2θ 線図にうねりを生じる。

$\sin^2\psi$ 法の適用範囲を超えた結晶状態にある試料に対して、これまでに様々な残留応力測定・解析法が提唱されてきた。ただし、ここで示されるような現象が $\sin^2\psi$ - 2θ 線図に現れる場合でも、信頼限界($\sin^2\psi$ - 2θ 線図と回帰直線との一致度を示す指標)が大きくなければ、 $\sin^2\psi$ 法の適用が可能であることは周知の事実である。

本章では ψ スプリットを生じる結晶状態について考える。応力を測定する方向が互いに 180° 異なる $+\psi$ と $-\psi$ 方向で観測した2つの $\sin^2\psi$ - 2θ 線図の形状が異なっていて、 $\sin^2\psi$ - 2θ 線図の回帰直線の傾きが $+\psi$ と $-\psi$ 方向で異なる場合には、観測されるそれぞれの応力も互いに異なる。このとき、従来の $\sin^2\psi$ 法により単に片側の応力を評価する場合には、評価値と実際の応力値の間に大きな隔たりを生じることがある。

従って $\sin^2\psi$ 法を適用する上で問題となる ψ スプリットに対する残留応力評価法を紹介し、これを ψ スプリット法と呼ぶことにする。ただし、ここではラボ用X線を用いることから、深さ方向の応力を0とした($\sigma_{33}=0$)。

3.2. ψ スプリットを生じるメカニズムと残留応力の評価方法

ある材料に対して残留応力を評価するときに、せん断応力成分(σ_{13} あるいは σ_{23})が含まれるような試料として挙げられるのは、切削・研削加工などにより有向性加工層が形成される試料である。本章では、故意に1方向から施工したショットピーニングにより形成された有向性加工層を持つ試料を例に取り、 ψ スプリットが生じるときの残留応力評価法について解説する。

図5に示されるように有向性加工層(Bのライン上)において、力の面内成分(赤矢印)に平行な残留応力を $\sin^2\psi$ 法により評価するとき、 $+\psi$ 方向と $-\psi$ 方向に

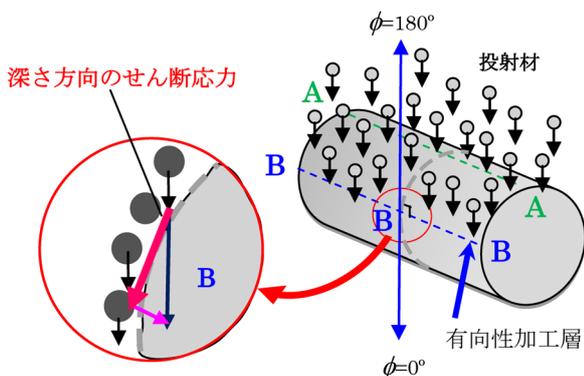


図5. ショットピーニングにより付加されるせん断応力。

ついて観測される2方向の $\sin^2\psi$ - 2θ 線図は楕円形の上下に分かれることが知られている。以降は、 $+\psi$ 方向を ψ_+ 方向、 $-\psi$ 方向を ψ_- 方向と表記する。ここでは、鉄製丸棒に対して1方向からショットピーニングを施工することにより故意に ψ スプリットを発生させた試料に対してX線残留応力を評価した。

図5でクローズアップした図は、投射材が丸棒に付加する応力成分を丸棒の断面から見たものである。投射材が丸棒に当たる周方向の位置AとBに対して、Aでは投射材が試料表面に垂直に当たる。一方、Bでは斜め方向から摺るように当たるため、Bでは試料表面に平行な応力(ひずみ)成分、すなわちせん断応力成分が発生して有向性加工層が形成される。

次に、有向性加工層Bにおける3軸応力状態を図6示した。ショット材の投射方向を σ_1 - σ_3 面に平行にとると、深さ方向のせん断応力成分 σ_{13} が存在するため、主応力軸(赤矢印:すべての方向のせん断応力成分が0になるときの3つの垂直応力成分を主応力という)が σ_2 軸回りに回転することで、 σ_3 軸は試料面法線方向(σ_{33} 軸方向)から傾くことになる。

また、試料座標系のひずみと応力の関係は、3軸応力状態を示す一般式(1)に対して、ここで仮定している $\sigma_{33}=0$ とおくことにより、以下の式(4)で示される⁽¹²⁾。

$$\begin{aligned} \epsilon_{\phi\psi} = & \frac{1}{2} S_2 (\sigma_{11} \cos^2 \phi + \sigma_{12} \sin 2\phi + \sigma_{22} \sin^2 \phi) \sin^2 \psi \\ & + S_1 (\sigma_{11} + \sigma_{22}) + \frac{1}{2} S_2 (\sigma_{13} \cos \phi + \sigma_{23} \sin \phi) \sin 2\psi \quad (4) \end{aligned}$$

ここで得られた式(4)に対して、 ϕ に対する ψ_+ 方向と ψ_- 方向のひずみ $\epsilon_{\phi\psi_+}$ と $\epsilon_{\phi\psi_-}$ は、 ϕ と $\phi+180^\circ$ に対する ψ のひずみ $\epsilon_{\phi\psi}$ と $\epsilon_{\phi+180^\circ\psi}$ にそれぞれ対応する。したがって、式(4)を用いてこれらのひずみの平均値($\epsilon_{\phi\psi} + \epsilon_{\phi+180^\circ\psi}$)/2 ($\phi=0^\circ$ として)を計算すると以下の式(5)が得られる。

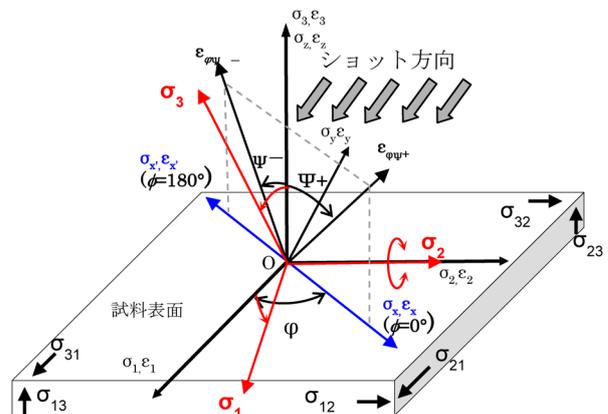


図6. 位置Bにおける3軸応力状態。

$$\frac{1}{2}(\varepsilon_{0^\circ\psi} + \varepsilon_{180^\circ\psi}) = \frac{1}{2}S_2\sigma_{11}\sin^2\psi + S_1(\sigma_{11} + \sigma_{22}) \quad (5)$$

さらに、ひずみの定義からX線回折法における結晶面のひずみは $\varepsilon_{\phi\psi}=(d-d_0)/d_0$ と表されるため、ブラッグの式 $2d\sin\theta=n\lambda$ ($n=1$)を用いて $\varepsilon_{\phi\psi}=\sin\theta_0/\sin\theta-1$ を得る。したがって、 ψ_+ 方向の回折角を $2\theta_+$ 、 ψ_- 方向の回折角を $2\theta_-$ とすると、式(5)において 2θ を $\sin^2\psi$ で偏微分し、 $S_2/2=(1+\nu)/E$ を用いて整理すると、以下の式(6)が得られる。ただし、 $\sigma=\sigma_{11}$ とする。

$$-(\partial 2\theta_+ + \partial 2\theta_-)\cot\theta_0/2 = \frac{2(1+\nu)}{E}\sigma\partial\sin^2\psi \quad (6)$$

ここで、 ψ_+ 方向と ψ_- 方向について $\sin^2\psi$ 法により処理したときの $\sin^2\psi-2\theta$ 線図の傾きをそれぞれ M_+ と M_- 、また応力定数を K とすると、最終的に応力 σ は以下の式で表される。

$$\sigma = -\frac{E}{2(1+\nu)}\cot\theta_0 \cdot \frac{\pi}{180} \cdot \left(\frac{\partial 2\theta_+}{\partial \sin^2\psi} + \frac{\partial 2\theta_-}{\partial \sin^2\psi} \right) / 2 = K \cdot (M_+ + M_-) / 2 \quad (7)$$

$$K = -\frac{E}{2(1+\nu)}\cot\theta_0 \cdot \frac{\pi}{180} \quad (8)$$

$$M_+ = \frac{\partial 2\theta_+}{\partial \sin^2\psi} \quad (9)$$

$$M_- = \frac{\partial 2\theta_-}{\partial \sin^2\psi} \quad (10)$$

すなわち、式(7)で示される応力は、 ψ_+ 方向と ψ_- 方向についてそれぞれ $\sin^2\psi$ 法により処理したときの残留応力 $\sigma_{0^\circ\psi}$ と $\sigma_{180^\circ\psi}$ の平均値 σ_{ave} に等しいことが示される。

ここで、 ψ_+ 方向と ψ_- 方向についてそれぞれ $\sin^2\psi$ 法

表2. 測定条件

特性X線	Cu K α
回折面	α -Fe (3 1 0)
無ひずみ回折角度	$2\theta_0=116.38^\circ$
測定法	ψ 一定法 (並傾法)

表3. 解析条件

解析手法	$\sin^2\psi$ 法
ヤング率	223300 MPa
ポアソン比	0.28
応力定数	-941.53 MPa $^\circ$

により評価したときの応力に対応する信頼限界値をそれぞれ $\Delta\sigma_{0^\circ\psi}$ 、 $\Delta\sigma_{180^\circ\psi}$ とすると、 $\sin^2\psi$ 法により評価した応力は、以下のように示される。

$$\sigma_{0^\circ\psi} \pm \Delta\sigma_{0^\circ\psi} = K(M_+ \pm \Delta M_+), \quad \sigma_{180^\circ\psi} \pm \Delta\sigma_{180^\circ\psi} = K(M_- \pm \Delta M_-) \quad (11)$$

ただし、 ΔM_+ と ΔM_- は ψ_+ 方向と ψ_- 方向に対する $\sin^2\psi-2\theta$ 線図のそれぞれの傾き M_+ と M_- の誤差を示す。

従って、 ψ スプリット法によって求めた応力 σ_{ave} およびその誤差 $\Delta\sigma_{ave}$ は、 $\sin^2\psi$ 法により求めた $\sigma_{0^\circ\psi}$ 、 $\sigma_{180^\circ\psi}$ 、 $\Delta\sigma_{0^\circ\psi}$ 、 $\Delta\sigma_{180^\circ\psi}$ を用いて、それぞれ平均を取ることににより以下の式(12)で表される。

$$\sigma_{ave} = \frac{\sigma_{180^\circ\psi} + \sigma_{0^\circ\psi}}{2}, \quad \Delta\sigma_{ave} = \frac{\sqrt{\Delta\sigma_{0^\circ\psi}^2 + \Delta\sigma_{180^\circ\psi}^2}}{2} \quad (12)$$

このようにして、 ψ スプリットの起こる試料では、 $\sin^2\psi$ 法により ψ_+ 方向と ψ_- 方向の応力値の平均を求め、簡便に残留応力を評価することができる。

3.3. 測定例の紹介

X線残留応力測定には、全自動水平型X線回折測定装置SmartLab(図2)を用い、平行ビーム法光学系において並傾法で測定を行った。表2に測定条件、および表3に解析に用いたパラメーターを示す。

ここで測定する応力は、図5のBに対して、ショット方向である $\psi_+(\phi=0^\circ)$ とその反対方向である $\psi_-(\phi=180^\circ)$ の2方向とした。図7にSmartLabの試料台に試料を設置したときの応力の測定方向を示す。

ψ_+ 方向($\phi=0^\circ$)と ψ_- 方向($\phi=180^\circ$)に対して $\sin^2\psi$ 法に

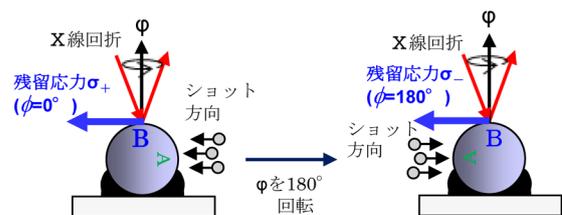


図7. 丸棒の断面側から見た測定点Bにおける応力測定方向。

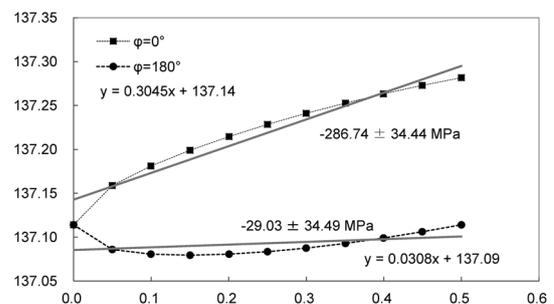


図8. 測定点Bにおけるショットピーニングの加工方向($\phi=0^\circ$ 、 $\phi=180^\circ$)における $\sin^2\psi-2\theta$ 線図。

(試料提供：東京都市大学大谷眞一教授)

より得られた $\sin^2\psi$ - 2θ 線図を図8に示す. 測定点Bでは, $\phi=0^\circ$ と $\phi=180^\circ$ ともに圧縮応力が観測されたが, $\sin^2\psi$ - 2θ 線図が湾曲しており, 応力値がそれぞれ異なる典型的な ψ スプリットが観測された. 測定点Bの $\phi=0^\circ$ 方向の残留応力値は -286.74 ± 34.44 MPa, $\phi=180^\circ$ 方向の残留応力値は -29.03 ± 34.49 MPaとなった. したがって, ψ スプリットの発生した測定箇所の残留応力値は, ψ スプリット法により -157.89 ± 24.37 MPaと求まった.

4. 結晶子ひずみ解析法による繊維配向試料における残留応力測定および回折線幅の広がり

4.1. 結晶子ひずみ解析法による残留応力測定

多結晶を構成する結晶子から残留応力を解析する手法がある. 一般に, この手法は欧州ではcrystallite group method (CGM) (13) として知られている. 解析方法が多結晶を構成する結晶子の方位とひずみに着目して結晶全体のひずみを求めることから, これを結晶子ひずみ解析法と呼ぶことにする. 本章では, 繊維配向する結晶試料に対して結晶子ひずみ解析法を適用する手法について解説する. 繊維配向膜に関するこの測定法の開発は, 英(14)により六方格子について提唱され, その後佐々木(15), 江尻(15), 田中(16)らによって平面応力/3軸応力の解析法も提唱された. 最近では, 横山ら(1)によって結晶子について単結晶の対称性を考慮することで得られるひずみと応力との関係式にまとめられた. また, 繊維配向試料について結晶子ひずみを考慮するとき, 結晶子の対称性由来する半価幅の広がりが発生することもわかってきた(17). この半価幅の広がりについても併せて解説する.

図9において, 多結晶体中の1つの結晶子に着目して, 試料の応力座標系 P_i を考える. 着目した結晶子が試料内の結晶座標系 X_i で表されるとき, 図10で示さ

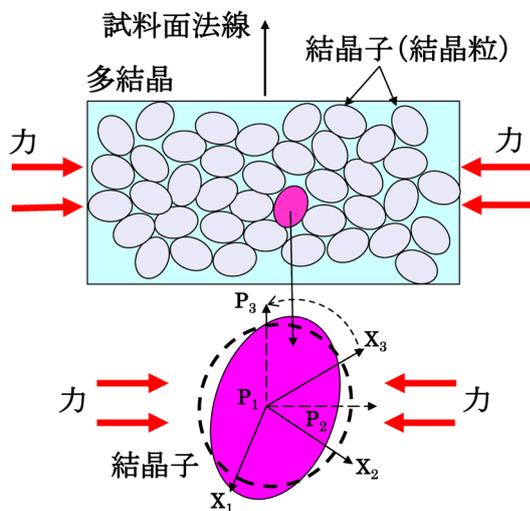


図9. 無数の結晶子(結晶粒)から構成される多結晶体. 各結晶子(結晶粒)はそれぞれの座標系を持つ.

れるように, ひずみを測定する結晶面の実験室座標系を L_i とする. このとき, X線で観測される結晶面のひずみの方向を L_3 軸方向に取る.

このように多結晶体の応力を解析するときに取りられる3つ(あるいは4つ)の座標系間の関係を図11に示した.

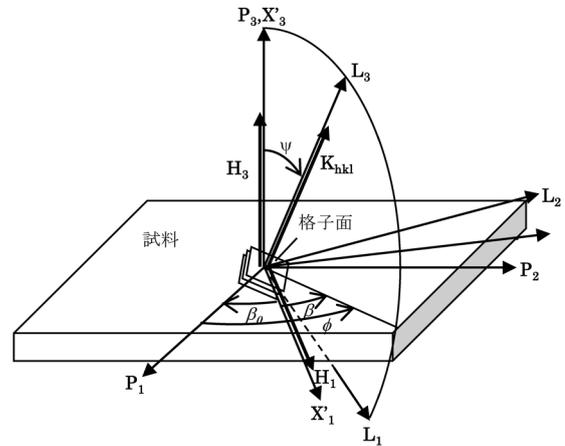


図10. 多結晶体中の4つの座標系 X'_i, P_i, L_i, X_i . K_{hkl} は L_3 方向の散乱ベクトルを示す.

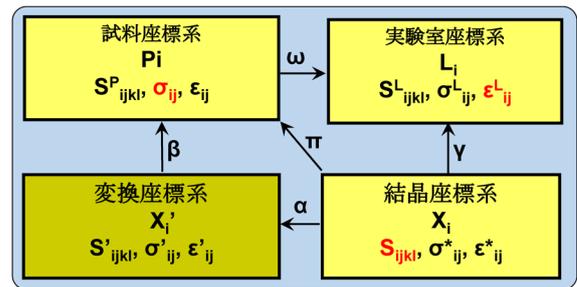


図11. 4つの座標系間を繋ぐ変換行列($\alpha, \beta, \pi, \omega, \gamma$). X' は便宜的に追加された座標系を示す.

これら4つの座標系は, 変換行列 $\alpha, \beta, \pi, \omega, \gamma$ を用いて, 各座標系間で互いに変換される. ひずみ・応力は2階のテンソルで表されるため, X線で観測される L_3 軸方向のひずみ ϵ_{33}^L を試料座標系の応力 σ_{kl}^P で表すとき, ϵ_{33}^L は式(13)から(16)により求められる.

$$\epsilon_{ij} = S_{ijkl}^P \sigma_{kl} \tag{13}$$

$$S_{ijkl}^P = \pi_{ip} \pi_{jq} \pi_{kr} \pi_{ls} S_{pqrs} \tag{14}$$

$$\epsilon_{33}^L = \omega_{3i} \omega_{3j} \epsilon_{ij} \tag{15}$$

$$\epsilon_{33}^L = \omega_{3i} \omega_{3j} S_{ijkl}^P \sigma_{kl} \tag{16}$$

すなわち, 多結晶体内の1つの結晶子について単結晶のひずみと応力との関係から求めたひずみが ϵ_{33}^L である.

ここでは, 応力を解析する繊維配向した多結晶体試料についてReussモデルを仮定することで, 結晶内の各結晶子の応力がマクロ応力に等しいものとした. 多結晶体における平均のひずみ $\langle \epsilon_{33}^L \rangle$ は以下の式で表される.

$$\begin{aligned} \langle \varepsilon_{33}^L \rangle &= \langle \omega_{3i} \omega_{3j} S_{ijkl}^P \sigma_{kl} \rangle \\ &= \langle \omega_{3i} \omega_{3j} S_{ijkl}^P \rangle \sigma_{kl} \end{aligned} \quad (17)$$

式(17)は、Reussモデルでは応力が試料の平均応力(マクロ応力)に等しくなるため、応力 σ_{kl} が括弧 $\langle \rangle$ の外に出ている。

図12において、 $\langle 111 \rangle$ 軸を繊維配向軸に持つ試料を構成する結晶子が立方晶系に属してラウエ対称にm-3mを持つとき、 $\langle 111 \rangle$ 軸方向に対するステレオ投影図を示した。各結晶子は、単結晶の対称性から $\langle 111 \rangle$ 軸と逆格子軸 a^*, b^*, c^* を含む各面に鏡面を持つため、 $\langle 111 \rangle$ 軸周りには6個の等価な反射が存在する。これら6つの等価反射を(a), (a)', (b), (b)', (c), (c)'とすると、(a) (b) (c)の3反射と(a)' (b)' (c)'の3反射はそれぞれ120°の回転対称の関係にあり、また(a)と(a)'のように対応する反射はそれぞれ鏡面関係にある。

$\langle 111 \rangle$ 軸を繊維配向軸に持つ試料であることから、 $\langle 111 \rangle$ 軸回りにランダムに無数の結晶子が配列していると考えられる。すなわち、ある結晶子の(a)の位置には別の結晶子の等価反射(a)', (b), ..., (c)'が重なっている。ただし、複数の結晶子の反射の重なる(a) (b) (c), あるいは(a)' (b)' (c)'に対しては、一般にそれらの反射の区別は付かない。

次に結晶の対称性と応力との関係について考える。図12に示すように $\phi=0^\circ$ においてひずみを観測するとき、120°の回転対称にある(a) (b) (c)あるいは(a)' (b)' (c)'はそれぞれ区別が付かない等価反射となるため、それぞれの1点ずつの代表点を取って(a)と(a)'のみについて応力状態を考慮すれば十分である。これらの関係を図12のtype Iとtype IIに示した。ここで、type Iとtype IIにおいて回折条件が満足するとき観測されるひずみをそれぞれ $\varepsilon_{33I}^L, \varepsilon_{33II}^L$ とすると、平面応力状態を仮定して $\varepsilon_{33I}^L, \varepsilon_{33II}^L$ は式(16)から以下のように計算される。

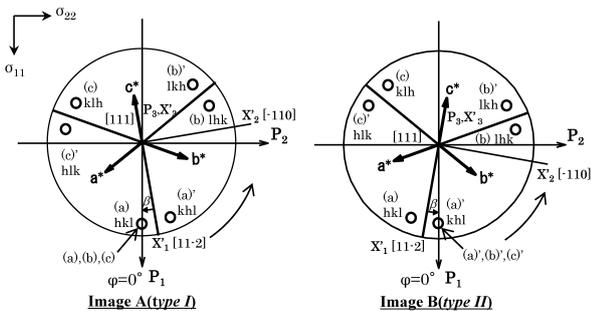


図12. 立方晶系 $\langle 111 \rangle$ 軸に配向する繊維配向試料における2つの結晶子の方位, type Iとtype II.

$$\begin{aligned} \varepsilon_{33I}^L &= \frac{1}{12} \{ (3s_{44} + 3s_{44} \cos 2\phi + 2s_0 \cos 2\phi) \sin^2 \phi \\ &\quad - 2\sqrt{2} s_0 \cos(3\beta - 2\phi) \sin 2\psi + 12s_{12} + 4s_0 \} \sigma_{11} \\ &\quad + \frac{1}{12} \{ (3s_{44} - 3s_{44} \cos 2\phi - 2s_0 \cos 2\phi) \sin^2 \phi \\ &\quad + 2\sqrt{2} s_0 \cos(3\beta - 2\phi) \sin 2\psi + 12s_{12} + 4s_0 \} \sigma_{22} \\ &\quad + \frac{1}{6} \{ (3s_{44} + 2s_0) \sin 2\phi \sin^2 \psi \\ &\quad + 2\sqrt{2} s_0 \sin(3\beta - 2\phi) \sin 2\psi \} \sigma_{12} \end{aligned} \quad (18)$$

$$\begin{aligned} \varepsilon_{33II}^L &= \frac{1}{12} \{ (3s_{44} + 3s_{44} \cos 2\phi + 2s_0 \cos 2\phi) \sin^2 \phi \\ &\quad - 2\sqrt{2} s_0 \cos(3\beta + 2\phi) \sin 2\psi + 12s_{12} + 4s_0 \} \sigma_{11} \\ &\quad + \frac{1}{12} \{ (3s_{44} - 3s_{44} \cos 2\phi - 2s_0 \cos 2\phi) \sin^2 \phi \\ &\quad + 2\sqrt{2} s_0 \cos(3\beta + 2\phi) \sin 2\psi + 12s_{12} + 4s_0 \} \sigma_{22} \\ &\quad + \frac{1}{6} \{ (3s_{44} + 2s_0) \sin 2\phi \sin^2 \psi \\ &\quad - 2\sqrt{2} s_0 \sin(3\beta + 2\phi) \sin 2\psi \} \sigma_{12} \end{aligned} \quad (19)$$

ただし、 $\sigma_{11}, \sigma_{22}, \sigma_{12}$ は試料座標系における応力成分、 ϕ, ψ は図10に示す ε_{33}^L の観測される方位、 β は図12に示されるように鏡面から(a)あるいは(a)'までの角度である。また、 s_{11}, s_{12}, s_{44} は単結晶の弾性コンプライアンス定数、 $s_0 = s_{11} - s_{12} - s_{44}/2$ を示す。ここで、 ψ と β が図10に示される散乱ベクトル \mathbf{K}_{hkl} 、ベクトル $\mathbf{H}_1, \mathbf{H}_3$ となす関係を以下に示す。

$$\phi = \cos^{-1} \left(\frac{\mathbf{H}_3 \cdot \mathbf{K}_{hkl}}{\|\mathbf{H}_3\| \|\mathbf{K}_{hkl}\|} \right), \quad (20)$$

$$\beta = \cos^{-1} \left(\frac{(\mathbf{K}_{hkl} \times \mathbf{H}_3) \cdot (\mathbf{H}_1 \times \mathbf{H}_3)}{\|\mathbf{K}_{hkl} \times \mathbf{H}_3\| \|\mathbf{H}_1 \times \mathbf{H}_3\|} \right) \quad (21)$$

このとき、試料のある応力状態において異なる2種類のひずみが1つの観測点($\phi=0^\circ$)で同時に観測されることが予想される。これは繊維配向をなす試料の結晶性がロッピングカーブで0.01°以下となるような結晶性を持たないことと、測定するX線源が角度発散および波長分散を持つことに起因している。したがって、type Iとtype IIにおけるそれぞれの結晶面のひずみは異なるが、実際に観測される回折線にはそれらの回折面で回折された反射が重なり合って1つのピークが形成されていることが予想される。

Reussモデルの場合、実際に観測されるひずみ、すなわち試料の平均のひずみ $\langle \varepsilon_{33}^L \rangle$ はtype Iとtype IIに対するひずみ ε_{33I}^L と ε_{33II}^L の平均値として以下のように計算される。

$$\begin{aligned} \langle \varepsilon_{33}^L \rangle = & \frac{1}{12} \{ (3s_{44} + 3s_{44} \cos 2\phi + 2s_0 \cos 2\phi) \sin^2 \psi \\ & - 2\sqrt{2} s_0 \cos(3\beta - 2\phi) \sin 2\psi + 12s_{12} + 4s_0 \} \sigma_{11} \\ & + \frac{1}{12} \{ (3s_{44} - 3s_{44} \cos 2\phi - 2s_0 \cos 2\phi) \sin^2 \psi \\ & + 2\sqrt{2} s_0 \cos(3\beta - 2\phi) \sin 2\psi + 12s_{12} + 4s_0 \} \sigma_{22} \\ & + \frac{1}{6} \{ (3s_{44} + 2s_0) \sin 2\phi \sin^2 \psi \\ & + 2\sqrt{2} s_0 \sin(3\beta - 2\phi) \sin 2\psi \} \sigma_{12} \end{aligned} \quad (22)$$

通常、ひずみを観測した数点のデータに対して、最小二乗法を式 (22) に適用して応力を求める。ここでは平面応力を仮定して、結晶子のひずみと応力の関係を求めたが、3軸応力状態においても同様に式 (16) から求めることができる。

4.2. 結晶子ひずみ解析法による回折線幅の広がり

前章で求めた繊維配向試料における2つのタイプの結晶子のひずみ type I と type II により、異なるひずみが発生した場合、回折線幅が広がるのが予想される⁽¹²⁾。

そこで、式 (18), (19) のひずみの差を $\Delta\varepsilon_{33II-I}^L$ として回折線幅の広がり $\Delta 2\theta(\beta, \phi, \psi)$ を以下に求めた。

$$\begin{aligned} \Delta 2\theta(\beta, \phi, \psi) = & |\delta 2\theta(I) - \delta 2\theta(II)| \\ = & \left| -2 \tan(\theta_0) \Delta\varepsilon_{33II-I}^L \right| \end{aligned} \quad (23)$$

式 (23) を用いて、立方晶系 $\langle 111 \rangle$ 軸を繊維配向軸に持つ試料の回折線幅の広がりとなるひずみの差 $\Delta\varepsilon_{33II-I}^L$ を計算した結果を以下に示す。

$$\begin{aligned} \Delta\varepsilon_{33II-I}^L = & \varepsilon_{33,II}^L(\beta, \phi, \psi) - \varepsilon_{33,I}^L(\beta, \phi, \psi) \\ = & -\frac{1}{3} \sqrt{2} s_0 \sin 3\beta \{ (\sigma_{22} - \sigma_{11}) \sin 2\psi \sin 2\phi \\ & + 2\sigma_{12} \sin 2\psi \cos 2\phi \\ & + 2(\sigma_{23} \cos \phi - \sigma_{13} \sin \phi) \sin^2 \psi \} \end{aligned} \quad (24)$$

式 (24) から垂直応力成分の差 (σ_{11} と σ_{22} の差) が大きいとき、すなわち異方性応力状態のときには、 $\phi = 45^\circ$ 方向に回折線幅の広がりの影響が大きく表れる傾向があり、逆に $\phi = 0^\circ$ 方向にはせん断応力成分 $\sigma_{12}, \sigma_{23}, \sigma_{13}$ の影響が大きく表れる傾向のあることがわかる。

5. おわりに

今回紹介した3例のX線応力解析法(測定法)は、通常の解析法としてあまり紹介されてこなかったが、実践的で有効な応力解析法である。残留応力の定量化は、材料や構造物の強度の指標となるため、材料評価の上で重要な課題である。ここで示した手法の一部は、日本ではリガクが製品化している。

参考文献

- (1) R. Yokoyama and J. Harada. *J. Appl. Cryst.*, **42** (2009), 185–191.
- (2) 鷹合滋樹, 安井治之, 粟津 薫, 佐々木敏彦, 広瀬幸雄, 桜井健次: *BUNSEKI KAGAKU*, **55** (2006), 405–410.
- (3) 木幡 護: 表面技術, **43** (1992), 641–649.
- (4) C. H. Ma, J. H. Huang and H. Chen: *Thin Solid Films*, **418** (2002), 73–78.
- (5) U. Welzel, J. Ligot, P. Lamparter, A. C. Vermeulen and E. J. Mittemeijer: *J. Appl. Cryst.*, **38** (2005), 1–29.
- (6) 田中啓介, 秋庭義明, 河合雅典, 伊藤登史政: *J. Soc. Mater. Sci., Japan*, **54** (2005), 704–709.
- (7) 山本兼司, 佐藤俊樹, 岩村栄治: 表面技術, **50** (1999), 52–57.
- (8) X線によるばねの残留応力評価法研究委員会: ばね論文集, **57** (2012), 59–79.
- (9) T. Hanabusa and H. Fujiwara: *J. Soc. Mater. Sci. Jpn.*, **30** (1981), 1095–1101.
- (10) T. Hanabusa and H. Fujiwara: *J. Soc. Mater. Sci. Jpn.*, **31** (1982), 227–233.
- (11) 若林三記夫, 中山 守, 玉村謙太郎: 精密機械, **49** (1983), 48–54.
- (12) 大谷真一: 日本ばね学会基礎技術セミナー (2013).
- (13) U. Welzel and E. J. Mittemeijer: *Material Science Forum*, **443–444** (2004), 131–134.
- (14) T. Hanabusa: *J. Soc. Mater. Sci. Res. Int.*, **5** (1999), 63–73.
- (15) S. Ejiri, Z. Lin, T. Sasaki and Y. Hirose: *J. Soc. Mater. Sci. Jpn.*, **46** (1997), 750–755.
- (16) K. Tanaka, Y. Akiniwa, T. Ito and K. Inoue: *Jpn Soc. Mech. Eng. Int. J. Ser. A*, **42** (1999), 224–234.
- (17) R. Yokoyama, J. Harada and Y. Akiniwa: *J. Appl. Cryst.*, **42** (2009), 776–782.