ディフラクトメータによる粗大結晶粒材 におけるX線応力測定法*

英 崇 夫** 福 良 二 郎*** 藤 原 晴 夫***

X-Ray Stress Measurement of Coarse Polycrystalline Materials by Means of a Diffractometer

by

Takao HANABUSA, Jiro FUKURA and Haruo FUJIWARA

(Faculty of Engineering, Tokushima University, Tokushima)

It has been generally accepted that X-ray stress measurement of very coarse polycrystalline materials is difficult because of their spotty X-ray diffraction patterns.

In this paper, we propose to discuss the θ - 2θ and the fixed specimen method, and verify experimentally which method is more profitable for measuring stress of the specimen with very coarse grain.

The results obtained are as follows:

- (1) The fixed specimen method is inadequate for coarse polycrystalline materials.
- (2) By the θ - 2θ method it is ultimately possible to measure accurately the stresses on materials having such a large average grain size as 200 μ .
- (3) The experimentally obtained X-ray elastic constants $E/(1+\nu)$ are almost invariable for materials having average grain size from 5 μ to 120 μ .

(Received Aug. 25, 1967)

1 緒 言

X線回折による応力測定法は、金属材料に対して非破壊的に応力の大きさと方向を知る唯一の手段として、今日工業的に非常に大きな価値をもっている。最近、 $\sin^2\psi$ 法の採用などによりその測定精度が一段と向上したけれども、一般に回折線の幅が大きく broad する場合や、はん点状の不連続な回折環の場合には、応力測定値に精度を期待することができないと言われていた。ところが、回折線の幅の broad な問題に対しては、放物線近似法¹⁾や確率密度関数近似法^{2,3)}を採用すればよいことが報告されている。

一方、回折線がはん点状のものについては、いままではフィルムや試料を揺動させる方法、あるいはその両者を併用する方法などで連続した回折環を得ようとしているが、これらにも限度があり結晶粒がますます大きくなると、たとえ良好な連続環となっても、3本ないし4本の回折環という一見珍奇な現象が生じ、得られる応力値に信頼をおくことができない現状である。

結局X線応力測定法としては、このような回折環を与える粗大結晶粒材の応力測定に対しては無効であるのが現状である。

そこで、本報ではX線応力測定法の工業的利用価値を一段と高める目的で、ディフラクトメータを用いてX線粉末回折法の立場からみて大きいような結晶粒^{*1)}に対しては充分応力測定が可能であるという結果を報告し、あわせて結晶粒の大きさとX線の弾性定数の関係を報告する。

2 試 料

実験に用いた試料は低炭素鋼 S20C で、引張荷重を加えられるように、Fig. 1 のような形に機械加工した。大きい結晶粒を得る目的で再結晶焼なましを施し、30 μ から 200 μ までの数種の grain size の試料を作成した。

また、一般に結晶粒が大きいと言われている溶接部についても測定したが、この grain size は 5 μ 程度であって、粗大結晶の応力測定という本題から多少はずれることになるが、その結果も紹介する。

Fig. 2 は低炭素鋼 S20C の組織写真の一例である。

* 原稿受理 昭和42年 8月25日

** 徳島大学大学院 徳島市南常三島町 2丁目

*** 正 会 員 徳島大学工学部 徳島市南常三島町 2丁目

*1 最も望ましい粒子径は約 10 μ 前後といわれている。

Fig. 1. Specimen.

Fig. 2. Microstructure of the material, S20C.

3 実験装置および方法

本実験に用いた装置は、Fig. 3 に示すような東芝製 X線ディフラクトメータ ADX102 型で、試料台上に引張装置を載せ各引張段階において X線応力測定を行った。試料にかかる負荷は、試料表面にはったひずみゲージにより検出し、あらかじめ島津製 5 t、オートグラフで求めた荷重-ひずみ線図から負荷応力に換算した。

Fig. 3. Experimental apparatus.

Fig. 4. Diffractometer for stress measurement.

計数管法には集中法と平行ビーム法があるが、本実験では結晶粒が大きく回折にあずかる結晶粒の数が限られることから、当然回折線強度が低いと考えられるので、強度の大きく得られる集中法を採用した。集中法においては、Bragg-Brentano 集中条件を満足するよう Fig. 4 に示すように X線入射角 ψ と Bragg 角 θ の変化に伴って、計数管をゴニオメータ中心の方向に前進させなければならない。その移動距離 r は

$$r = R \left\{ 1 - \frac{\cos(\psi + 90^\circ - \theta)}{\cos(\psi - 90^\circ + \theta)} \right\}$$

R : ゴニオメータ半径

ψ : 試料表面法線と回折面法線のなす角

θ : Bragg 角

である。本実験では回折線図形上のすべての測定点がこの条件を満足するように計数管を移動させて測定を行なった。

X線管球には Cr の対陰極を用い 35kV, 9mA で使用し、測定に際しては金属バナジウムはくで $K\beta$ 線を除去した。スリットはすべての場合発散 4° 、入射 0.1 mm、散乱 4° であり試料表面への照射面積は 12×10 mm² であった。測定に用いた回折面は (211) 面、 $2\theta_{211} = 156^\circ$ で、回折 X線の強度測定にはガイガー計数管を用い fixed count 法 (80 000 カウント) を採用した。

回折線のピーク位置は放物線近似 5 点法を用いて決定した。回折線が broad したり、バックグラウンドに対する回折線強度比 ($S-N$ 比) が小さい場合にはバックグラウンド、LPA factor (Lorentz, Polarization and Absorption factor) などによる修正を必要とするが、本実験の場合 Fig. 5 に示されるように $S-N$ 比が非常に大きく、かつ sharp な回折線図形が得られ

Fig. 5. An example of diffraction pattern of S20C, $\sigma_M=0$, $\theta-2\theta$ method.

るので無修正のままのピーク位置の測定値を応力計算に用いた。試料に対するX線入射方向は、試料表面法線と回折面法線のなす角 ψ が0, 20, 30, 40および45°でこれらの段階における回折線のピーク位置を格子定数に換算して $\sin^2\psi$ 線図に整理した。

4 実験結果および考察

結晶粒の平均の大きさが数 10μ 以上になると回折にあずかる結晶粒の数が少なくなることから、当然回折環は連続とならずはん点状を示すようになる。Fig. 6

Fig. 6. Examples of the diffraction ring.

(a) に grain size が約 5μ の造船用鋼板の溶接部、同図(b)に grain size 約 120μ の試料 (S20C) について $1\text{mm}\phi$ ダブルピンホールを用い、背面反射法でとった回折環写真の一例を示す。

計数管法は試料を固定したまま測定する方法(試料固定法と呼ぶことにする)と試料の θ 回転に伴い計数管を 2θ 回転させて測定する方法、すなわち一般のディフラクトメータの原理を利用する方法(θ - 2θ 法と呼ぶ)に分類される。

一般に入射X線束はある程度の広がりを持ち、照射領域内の特定の個所に照射されるX線はそのX線束のごく一部である。その部分に存在する結晶からの回折を考えると、一般に背面反射法では α_1 線と α_2 線とは θ にして約 0.5° の差があり、入射X線角度のちがいが小さいために、同一の回折面から同時に α_1 線と α_2 線を回折することはない。そしてX線が回折された場合、回折面は入射方向と回折方向とのなす角の二等分線を法線とする。したがって、Fig. 7(b)のように試料

Fig. 7. Comparison of two measuring methods.

を固定して、計数管のみを回転させた場合には、入射線と回折線のなす角の二等分線が $\text{ONp}_1 \rightarrow \text{ONp}_2$ と刻々変化することになり、 α_1 線と α_2 線は異なる結晶からの回折線である。結晶粒が小さくその数が多い場合には、 α_1 線を回折するものと α_2 線を回折する結晶の数がほぼ等しくなり問題はないが、結晶粒が大きくなりその数が少なくなると、方位によっては結晶の数が多かたり少なかつたりするために、当然回折線の形がくずれてくる。

θ - 2θ 法の場合、試料固定法と比較するために試料が動かないと考えると、Fig. 7(a)に示すように相対的には計数管の θ° 回転に対しX線源がそれと反対方向に θ° 回転することになり、入射線と回折線とのなす角の二等分線は試料に対して常に一定($\text{ONp}_1 = \text{ONp}_2$)である。すなわち、回折面は回折線全体にわたって終始同じ方位の結晶粒のものであり、したがって、この方法で得られる回折線は回折にあずかる結晶粒の数の多少によりそれぞれの回折線の間に相対的に回折強度に変化はあっても常に標準的な形を保っている。

Fig. 8 はディフラクトメータ上で計数管の前にフィ

Fig. 8. Diffraction line on the diffractometer circle.

ルムを置いてとった回折写真の一例である。(a)は $K\alpha_1$ ピークに計数管を設定した場合、(b)は $K\alpha_2$ ピークに設定した場合の写真である。この二つの写真から、(a)の α_1 回折線に相当する模様と(b)の α_2 回折線に相当する模様(特に顕著なものを矢印で示す)が同じであることから、 θ - 2θ 法では、 2θ が異なっても同一結晶群からの回折線を捕えていることが確認される。したがって、 θ - 2θ 法を用いると回折にあずかる結晶粒の数が少なくなっても、回折強度の低下をきたすだけで常に標準的な回折線図形が得られるであろう。一方、試料固定法の場合は同図(a)において水平方向に計数管を走査させることに相当し、結晶粒が粗大になると、回折にあずかる結晶粒の回折環上の位置によってピーク位置も大きく左右され、また、回折線の形もくずれてくることが考えられる。

Fig. 9 は grain size 約 70μ の無応力状態の試料に

Fig. 9. Difference of diffraction patterns due to θ - 2θ method and fixed specimen method, $\sigma_M = 0$. Grain size, 70μ .

Fig. 10. Diffraction patterns obtained by fixed count method, $\psi = 0^\circ$, $\sigma_M = 0$.

ついて (211) 面の回折線をX線ディフラクトメータによって自動記録させたプロフィールであり、またFig. 10は $\psi = 0^\circ$ において fixed count 法で得られた回折線図形である。それぞれ(a)は θ - 2θ 法、(b)は試料固定法によって得られたものである。非常になめらかな標準的な回折線図形が得られている θ - 2θ 法に対して、試料固定法の場合は明らかに回折線の形がくずれており、その上ピーク位置にもかなりのずれが認められる。これは grain size が大きいいため、回折に寄与する結晶

Fig. 11. $\sin^2\psi$ diagrams, $\sigma_M = 4\text{kg/mm}^2$.

粒の回折環上の位置によって大きく左右されるためである。Fig. 11は負荷応力 $\sigma_M = 4\text{kg/mm}^2$ に対して得られたものを $\sin^2\psi$ 線図に整理したものであり(a)は θ - 2θ 法、(b)は試料固定法の場合の例である。前述のような理由から θ - 2θ 法の場合は直線性もよく、X線の応力値も $\sigma_x = 3.6\text{kg/mm}^2$ となり σ_M に対応しているが、試料固定法の場合には $\sin^2\psi$ 線図に大きなばらつきを示し、応力値も $\sigma_x = 1.6\text{kg/mm}^2$ となつてかなりの誤差を生じている。

Fig. 12は試料固定法の場合のX線応力値と機械的

Fig. 12. X-ray stress values vs. applied stress values, specimen fixed method, grain size 70μ .

応力値の対応を示すが、ばらつきが非常に大きく、機械的応力値に対応していない。したがって結晶粒が大きい場合の測定法としては、試料固定法は不適当である。

次に、 θ - 2θ 法では試料の回転に伴ってX線照射面積が変化するので、結晶粒が大きいとその変化が $\sin^2\psi$ 線図に影響を与えるのではないかと考えられ、試料表

Fig. 13. Effect of the irradiated area on the $\sin^2\psi$ diagram, $\sigma_M = 0$, θ - 2θ method.

面に鉛板をおおって照射面積を一定に保った場合とそうでない場合の比較をした。その結果は Fig. 13 に示すように、一定に保った場合 (○印) とそうでない場合 (●印) にはそれほどの変化が見られなかった。したがって、照射面積の変化はほとんど無視できるものと思われる。

Fig. 14 は θ - 2θ 法によって得られた grain size の

Fig. 14. Examples of $\sin^2\psi$ diagram, $\sigma_M=0$, θ - 2θ method.

異なる試料に対する無応力状態での $\sin^2\psi$ 線図の例を示す。Grain size が大きくなってもほとんどばらつきが見られず、ほぼ水平に近い直線性が得られ、 θ - 2θ 法によると応力測定が可能なが再確認される。これらの $\sin^2\psi$ 線図より最小二乗法によってこう配を求めて X 線の応力値を計算し、加えた応力と対応させるとそれぞれの試料について Fig. 15 のような結果が得られた。なお、X 線の応力値は次式によって計算した。

$$\sigma_x = \frac{E}{1+\nu} \frac{M}{a_0}$$

ここで E は機械的弾性定数であり、ポアソン比 ν は 0.28 を用いた。 M は $\sin^2\psi$ 線図における直線のこう配、 a_0 は無応力状態における格子定数である。

Fig. 16(e) は grain size 約 150μ の試料について X 線照射位置を変えて測定した結果である (○印と●印

は照射位置の異なることを示す)。この結果、照射位置を移動させても応力値のばらつきは $2\sim 3\text{ kg/mm}^2$ の範囲内で、測定の際の誤差範囲に含まれることがわかった。

いずれの grain size の場合にも負荷応力が $6\sim 8\text{ kg/mm}^2$ までは X 線の応力値は $\pm 1\text{ kg/mm}^2$ 以内のばらつきではほぼ直線的に増加している。この結果から、試料固定法の結果 (Fig. 12) と比べて θ - 2θ 法は粗大結晶の応力測定に有力であることが確認され、grain size 200μ までの応力測定が可能ながわかる。また、それ以上の負荷応力に対しては X 線の応力値はより低い値となり比例関係を示さなくなる。これは、除荷後に圧縮の残留応力が存在することを示すことから、弾性範囲内においても一部の結晶粒が塑性変形しているものと思われる⁵⁾。この比例関係を示す限界と結晶粒の大きさとの関係は今後検討する予定である。

これらの直線部分を用いて最小二乗法によりこう配を求めると、grain size が 120μ までのものについては $\sigma_x = 0.83\sim 0.97\sigma_M$ となり、従来の CrK α 線による結果とよく一致しているが、 150μ のものでは $\sigma_x = 0.66\sigma_M$ 、 200μ では $\sigma_x = 0.54\sigma_M$ となる。直線のこう配は弾性定数の値のとり方によって変化するもので、ここではすべての場合、機械的弾性定数を用いている。そこで、それぞれの場合について X 線の弾性定数を求めることにする。

ここで、負荷応力を σ_M とすると、X 線の弾性定数を求める式は次のように表わされる。

$$\frac{\partial}{\partial \sigma_M} \left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial \sin^2\psi} \right) = \frac{1+\nu}{E}$$

それぞれについて X 線の弾性定数 $E/(1+\nu)$ を計算し、grain size との関係を示すと Fig. 16 のような結果が得られ、grain size が約 120μ までは $E/(1+\nu)$ の

Fig. 15. X-ray stress values vs. applied stress values, (a) 5μ , (b) 30μ , (c) 100μ , (d) 120μ , (e) 150μ , (f) 200μ of the grain size. θ - 2θ method.

Fig. 16. X-ray elastic constant vs. grain size, θ - 2θ method.

値はほぼ一定であり、 120μ 以上になると grain size が大きくなるに従って $E/(1+\nu)$ の値も直線的に増加していることがわかる。

以上は焼なまし材についてであるが、次に、grain size が 150μ の S20C に数%の塑性変形を与えたものについて同様の実験を行なった。その結果、塑性変形後 3.8kg/mm^2 の圧縮残留応力を示し、X線の応力値 σ_x よりこの値を引き去って整理すると、Fig. 17 に示すように、粗大結晶粒の試料をわずかに塑性変形させたものについても、十分な精度で測定が可能になることがわかる。

Fig. 17. X-ray stress values vs. applied stress values for plastically deformed specimen, θ - 2θ method.

5 結 言

以上の実験結果および考察から、ディフラクトメータによる θ - 2θ 法を採用すると grain size が 150μ あるいは 200μ という値に達しても X線応力測定が可能である。また、粗大結晶粒材にわずかな塑性変形を与えても、充分測定が可能である。一方、試料固定法を用いた場合には $\sin^2\psi$ 線図にも相当のばらつきを示し、その結果応力値にもかなりの誤差を生ずるので、この方法は、粗大結晶粒材の応力測定法としては不適當である。

Grain size と X線の弾性定数の関係についてはさらに詳しい実験を行なう必要があるが、grain size が約 120μ までは X線の弾性定数はほぼ一定であり、従来の値を採用しても支障のないことが実験的に判明した。

(昭和42年7月11日 第6回X線材料強度に関するシンポジウムにて講演)

参 考 文 献

- 1) Koistinen, D.P., and R.E. Marburger, Trans. ASM, **51**, 537 (1959).
- 2) 福良二郎, 藤原晴夫, 日本機械学会論文集, **32**, 1597 (1966).
- 3) 福良二郎, 藤原晴夫, 徳島大学工学部研究報告, **12**, 121 (1967).
- 4) たとえば, Cullity, B.D., "Elements of X-ray Diffraction", p. 445 (1959) Addison Wesley.
- 5) Karashima, S., H. Fujiwara, and K. Kojima, Proc. 1st. Japan Congress on Testing Materials, p.59 (1958).
- 6) 日本材料学会編, "X線応力測定法", p.258(1966) 養賢堂
- 7) 日本材料学会編, "X線応力測定法", p.93 (1966) 養賢堂
- 8) 五十嵐克己, 東芝レビュー, **21**, 183 (1966).