シンクロトロン放射光によるX線応力測定[†]

吉岡靖夫* 松井久明** 師岡利政*
長谷川賢一*** 中島哲夫****

X-Ray Stress Measurement by Use of Synchrotron Radiation Source
by

Yasuo YOSHIOKA*, Hisaaki MATSUI**, Toshimasa MORO-OKA*,
Ken-ichi HASEGAWA*** and Tetsuo NAKAJIMA****

In the field of X-ray stress measurement of polycrystalline materials, a diffraction plane at higher Bragg angle has to be selected in order to obtain the precise value of stress. However, the stress measurement on an optional (hkl) plane desired is not always possible because the X-ray beam exited from a metal target has a dispersive wave length.

Recently, we have been able to use the synchrotron radiation source (SR) as an excellent X-ray source. In Japan, the facility of synchrotron radiation (Photon Factory, PF) was constructed in the National Laboratory for High Energy Physics (KEK) at Tsukuba academic city. The use of this SR enables the stress measurements on many (hkl) planes with high accuracy in the higher Bragg angle region by providing an X-ray beam having an optional wave length.

We have started the X-ray stress analysis by use of the synchrotron radiation source. This paper reports the system of measurement and some results of preliminarily experiments.

Since a monochromatic X-ray beam is required for the stress measurement, we used a beam line which consists of a double crystal monochromator and a focusing mirror. X-rays between 4 KeV ($\lambda=0.31$ nm) and 10 KeV ($\lambda=0.12$ nm) are available with this optical system. We adopted a constant Bragg angle of $2\theta=154^\circ$ for all the diffraction planes. A PSPC having a carbon fiber anode is made and used as a detector with the use of a fast digital signal processor.

We could observe the diffraction profiles from (200), (211), (220), (310) and (321) crystal plane of alpha iron, respectively, and the residual stresses in these planes except the (200) plane were measured with high accuracy in a short time.

Such feature especially suits the stress analysis of the material which has preferred orientation or stress gradient.

キー・ワード：シンクロトロン放射光，X線応力測定，位置敏感型検出器，残留応力

1 緒 言

X線応力測定法では高い精度の応力値を得るために Bragg 角が 90° に近くなるように特性X線および回折面を選び測定が行われている。例えば，フェライト系鉄鋼材料の応力測定では $\text{CrK}\alpha$ 線を用い $\alpha\text{Fe}(211)$ 面よりの回折線を使用すれば $\theta=78.2^\circ$ となりほぼ前記の条件を満足する。しかしながら，(211) 面以外の格子面の応力測定を計画しても，実際には上記条件を満足するような特性X線と回折面の組合せはあまり得られない。また，非鉄金属の応力測定においても，常に最適の組合せが得られるとは限らない。

この原因は，まず特性X線の波長はX線管球の対陰極の材料によって定まる離散的な値であることと，さ

らにもし Bragg の条件式より計算上適当な組合せが存在したとしても，回折強度や蛍光X線の発生等を考慮に入れると必ずしも現実には良好な状態での回折線を記録し得ないことがある。したがってX線管球を用いて得られる特性X線での研究には一定の限界がある。

最近，高エネルギー物理学研究所にシンクロトロン施設が建設され共同利用実験が開始されている。これは光速近くまで加速された電子を強力な磁場で円軌道上に周回させると接線方向にX線領域から可視光線はもとより電波領域までの非常に強力な電磁波を発生させる装置である。この電磁波のことをシンクロトロン放射光（以下略してSR光）と呼んでいる。このSR光の特長は要約すると次のようになる。

[†] 原稿受理 昭和60年10月9日 Received Oct. 9, 1985

* 正会員 武蔵工業大学 東京都世田谷区玉堤, Musashi Institute of Technology, Tamazutsumi, Setagaya-ku, Tokyo

** 学生会員 武蔵工業大学 東京都世田谷区玉堤, Musashi Institute of Technology, Tamazutsumi, Setagaya-ku, Tokyo

*** 東京大学工学部 東京都文京区本郷, Faculty of Engineering, University of Tokyo, Hongoh, Bunkyo-ku, Tokyo

**** 高エネルギー物理学研究所 茨城県筑波郡大穂町上原, National Laboratory for High Energy Physics, Uehara, Oho-cho, Tsukuba-gun, Ibaraki

(1) 高輝度であること。従来の光源に比べ極紫外域では約 10^{2-3} 倍, X線域では約 10^{2-4} 倍の強さである。

(2) X線域から電波域に及ぶ連続スペクトル。0.01 ~ 1000 nm ($10^5 \sim 10$ eV) に及び, モノクロメータにより任意の波の取り出しが可能である。

(3) 強度の安定性が高い。

(4) 指向性が強く, ほとんど平行光である。通常の偏向電磁石から出て来るもので水平方向に 10~50 mrad 鉛直方向に 0.4 mrad 程度でよく収束されている。

(5) 光源の性質がよく把握されており, 電磁波の強度, 波長分布, 角度分布などが正確に計算可能で一次標準光源として利用できる。

したがって, これらの性質を利用することにより従来のX線回折法では実現が困難であった問題の解決を図ることも可能となり, X線応力測定分野においても新しい知見が得られる可能性が大である。

SR 光をX線応力測定に使用した場合に予期される特長は次のようなものである。

(1) 任意の波長の単色X線が使用可能なため, 任意の回折面の応力測定が高い精度で可能となる。また従来のX線源では $K\alpha$ 二重線の処理も色々と議論されたが, SR 光では当然のことではあるが無関係である。

(2) 特に集合組織を有する材料の応力の格子面依存性に関する研究も従来よりはるかに容易に行える。

(3) 試料へのX線侵入深さも可変のため, 応力こう配を有する材料の応力測定の研究に対して有利である。

(4) X線強度が強いので位置敏感型X線検出器(PSD)の使用により極めて短時間での応力測定が可能であり, 材料の動的現象の解明にも将来, 寄与が考えられる。

本報はSR光を用いたX線応力測定を開始するに当たり, X線応力測定用の装置を作成して, まず鉄粉末を用いて基礎的な検討を行って応力測定の可能性を調べた後, ショットピーニング加工を施した鋼の残留応力測定を試みた結果の報告である。

2 シンクロトロン放射光施設の概要

その詳細には専門書に譲るが, 入射器は 2.5 GeV の電子線形加速器 (長さ 450m) である。ここで加速された電子ビームは, 偏向電磁石群と4極電磁石群を組み合わせた長さ 150mの入射路で, そのエネルギーと形を調整された後, 2.5 GeV 電子ストレージリング (電子蓄積型加速器) に入射される。ストレージリングは, 長径68m, 短径50mのだ円型である。偏向電磁石で電子軌道をつくり, また4極電磁石で電子ビームを収束させている。偏向電磁石で, 電子は円弧

を描いて軌道を曲げられると, 円弧に直角方向に加速度を受けて放射光を放出する。その波長は連続に分布しており, 0.01 nm の波長の硬X線から $1\mu\text{m}$ の赤外線まで実験に供される。その波長分布を Fig. 1 に示す。

Fig. 1. Spectrum of synchrotron radiation at KEK.

実験には円軌道からいくつもの接線方向に取り出されたビームラインが使用され, 現在, 目的別に9本のビームラインと23の実験ステーションが設けられている。

X線応力測定では, 単色X線を必要とするのでその目的に合致したビームライン (BL-10) とその実験ステーションCを使用した。

BL-10の構成を Fig. 2 に示す。BL-10A, B, C (シャッター, スリットに及ぶ) 各ビームラインは, 水平方向の発散角が各々 4.5 mrad, 2 mrad, 6 mrad となるビームが光源から取り出せるように設計されている。ビームライン, ビームパイプ, チャンパは, ヘリウムガスが 1 atm で満たされている。

BL-10Cの光学システムは, Fig. 3 に示すように光源から14m離れた double-crystal monochromator と, 16m 離れた doubly focusing mirror とで構成されている。モノクロメータは Si(111) 結晶を二個使用し, 入射ビームと平行な反射ビームが得られるようになっている。この光学システムで 4~12 keV (0.1~0.31 nm) のX線が利用できる。また焦点位置でのX線ビ

Fig. 2. Layout of Beam Line 10.

Fig. 3. Optics of BL-10C, which consists of a double crystal monochromator and a bent mirror.

ームの寸法はほぼ 6 mm(H)×1 mm(V) である。

3 実験方法, 実験装置など

3・1 応力測定用ゴニオメータ

SR 光施設では任意波長のX線の取り出しが可能であるため、波長を選ぶことにより、ある結晶格子面からの回折線を決められた位置（ブラッグ角）に記録することが可能である。

いま、ゴニオメータの角度を 2θ で 154° に設定、すなわち無ひずみ状態の材料よりの回折線ピークがこの位置に来るように波長を選ぶとする。そこで αFe の各回折面について波長を算出すると BL-10C では、Table I のように計算上からは (110) 面より (422) 面までは記録可能である。例えば (211) 面の回折線を記録する場合には波長を 0.2280 nm に選ばばよい。

Table I. Wavelength and multiplicity in each crystal plane when diffraction peak appears at $2\theta=154^\circ$.

Material: αFe Bragg angle $2\theta: 154^\circ$

Plane	Wave length (nm)	Energy (keV)	Multiplicity
(110)	0.394994	3.14	12
(200)	0.279303	4.44	6
(211)	0.228050	5.43	24
(220)	0.197497	6.28	12
(310)	0.176647	7.02	24
(222)	0.161256	7.69	8
(321)	0.149294	8.31	48
(400)	0.139652	8.88	6
(411)	0.131665	9.42	24
(420)	0.124908	9.93	24
(332)	0.119095	10.41	24
(422)	0.114025	10.88	24

cf K absorption edge of Fe: 0.174346 nm

そこで本研究では、Fig. 4 に示すような構成のゴニオメータを用いて応力測定を行った。このゴニオメータは、ビームスリット、試料台、検出器台をまとめて 300 mm×300 mm×10 mm の硬質アルミ板の上につくり、BL-10C 付属の低温回折計の試料台の上に載せている。検出器には PSPC を用いて 154° 付近に回折線

Fig. 4. Layout of goniometer for X-ray stress measurement, which consists of an ion chamber, a beam slit, a specimen holder and a PSPC.

ピークが来るように配置してある。また、試料台はパルスモータにより ψ 角回転が行われるようになっている。ビームスリットに関しては、SR 光の平行性の高いことからソーラスリット等の必要性は全くなく、単に照射領域の調節のみを行う目的で簡単なシングルスリットを用いた。実験装置の外観を Fig. 5 に示す。

ただ、(222) 面以上の回折面では鉄の K 吸収端の波長より、使用するX線の波長が短いため蛍光X線が発生し一般的にはバックグラウンドが高くなり回折線との弁別ができなくなるのでエネルギー弁別器の使用などが必要になる。

Fig. 5. View of experimental apparatus.

3・2 X線検出器 (PSPC)

使用している PSPC はこの研究のために新たに製作したものである。著者らは、PSPC に抵抗線を平面板に巻いてカソードとする方式をこれまで採用して来⁶⁾ていたが、最近、名大の森らはカーボンファイバをアノードとする方式を開発して β 線測定用として好結果を得ており、この方式をX線応力測定用に応用を試みた。Fig. 6 に試作した PSPC の構造を示す。1辺 8 mm のコの字型のカソードの中央にカーボンファイバがアノードとして張ってある。このカーボンファイバは東邦レイヨン、HTA-7W-3000 で直径 $7\mu\text{m}$ 、抵抗 $4\text{ k}\Omega/\text{cm}$ で、円形断面かつ滑らかな表面を有しアノード線として最高の品質である。有効長は 120 mm である。Ar 90%, CH 10% の混合ガスを用いたガスフロー型で、約 1 気圧で使用している。

Fig. 6. Schematic construction of single anode PSPC.

信号処理回路は電荷分割方式で、特に割算部を従来のアナログ方式から16ビットの乗算器を使用したデジタル方式にして演算速度の向上を図っている。この方式はアナログ方式のような温度による変動がほとんどなく安定した測定が行える。また、波高弁別もデジタル方式で A+B 入力の ADC 出力で行われる。この出力と位置デジタル出力を2次元メモリ(128×128)で分類、記憶表示ができるようになっていて、エネルギー選択が容易に行える。

試作した PSPC の角度分解能は、Fig. 7 に示すように 200 mm 離れた点に X 線源を置いたときに中央部で約 0.15° 両端部で約 0.3° であり X 線応力測定用として十分である。また直線性も良好で最高計数率は、ほぼ 5×10^4 cps であった。

Fig. 7. Angular resolution of the single anode PSPC.

4 測定結果および考察

4.1 回折強度曲線の観察

まず、焼なましを行った α 鉄粉末を用いて種々の結晶格子面よりの回折線を記録することを試みた。Fig. 8 は (211) 面, (220) 面, (310) 面および (321) 面についての回折強度曲線を示したものである。これらの格子面のうち (211), (220) および (310) 回折線は容易に測定することが可能であった。すなわち、検出器回路の波高分析器によりエネルギー選別をほとんど

Fig. 8. Examples of diffraction profile by SR. Specimen is iron powder annealed.

行うことなしに低バックグラウンドのシャープなプロフィールを得ることができた。しかし (321) 面については、Table I に示したように $2\theta = 154^\circ$ としたとき用いる X 線の波長が鉄の K 吸収端よりも短いため蛍光 X 線が発生し、そのため波高分析器によりエネルギー選別を行っても十分なプロフィールが得られなかった。そこで Ni 箔を PSPC 窓にフィルターとして取り付け、さらにアルミ箔で X 線強度を下げてプロフィールを得ることができたが、それでもなお他のプロフィールに比べてバックグラウンドの大きいプロフィールしか得られない。

回折線記録に要した時間はピーク計数値が 1024 カウントの場合、(220) 面と (310) 面は 3～4 秒、(211) 面が 5 秒程度であったのに対して (321) 面の場合は前述のエネルギー選別を行ったために 60 秒程度の時間を要した。

また得られた (211), (220), (310) 面のプロフィールをよく観察すると、この順に少しではあるがバックグラウンドが増大していることが認められ、K 吸収端に波長が近づくとたとえ波長がそれより長くとも蛍光 X 線が発生していることが認められた。しかし、この程度のバックグラウンドの増加は測定には差し支えないのでエネルギー弁別は後の測定でも使用しなかった。

つぎに、各回折面についての $\sin^2\psi$ 線図を Fig. 9 に示すがいずれの回折面でもこう配はほとんど 0 であり、これらの面については応力測定が可能と判断した。

さらにこの他の格子面として (200) 面, (222) 面および (400) 面の回折線を測定することを試みた。その

Fig. 9. 2θ - $\sin^2\psi$ diagrams for several crystal planes in annealed iron powder.

うち (200) 面は測定可能であったが、エネルギー選別を行わないにもかかわらず、測定時間が 200 秒と他の場合に比べて極端に長かった。このことは、まずモノクロメータによる単色 X 線の強度がほぼ波長の長さに反比例するというに起因する。一般に回折ビームの相対強度 I は近似的に

$$I = |F|^2 \cdot P \cdot \{(1 + \cos^2 2\theta) / (\sin^2 \theta \cdot \cos \theta)\}$$

で表されるが、モノクロメータは Si(111) 面であり F 、 P および $\sin \theta / \lambda$ は一定であるので LP 因子のみに強度は依存する。また結晶を二個用いているので強度はほぼ LP 因子の二乗に反比例することになり、すなわち波長の増加にしたがって強度が大きく低下することが分る。そして計算上から、(310) 面の相対強度を 10 とすると (220)、(211) 面の強度は 6.05、3.11、そして (200) 面のそれは 1.17 と大幅に減少することが認められる。また、波長が長くなると空気中での X 線の吸収も大きく、現用の装置では X 線の導管を出て試料に照射するまでの距離がほぼ 650 mm と長いので、特に (200) 面測定時のように波長が 0.279 nm ともなるとこの部分での強度減少が著しく、さらに (200) 面の多重因子が 6 と低いことも相まって測定時間の増大をまねいている。したがって現状で (200) 面の測定を効率良く行うことは不可能と考え、以後の測定は行わなかった。今後、長波長での測定を行うためには、X 線導入パイプを試料直前まで延長して空気中での吸収をできるだけ防止するなどの処理が必要である。

つぎに (222)、(400) 面の測定を試みたが不可能であった。いずれの格子面とも多重因子が 8、6 と小さいため回折強度が本来低いことと、特に (222) 面は用いる波長が K 吸収端の極く近傍のためエネルギー弁別が困難であり、今後もこの条件では測定は期待できない。

い。

(400) 面は測定のための X 線エネルギーは、K 吸収端のエネルギーと約 2.5 keV 差があり、(321) 面が測定可能なことを考えると、たとえ多重因子が低くとも測定可能と考えたが、今回の測定条件では不可能であった。しかし、この測定に成功している例もあり⁸⁾、エネルギー分解能の高い PSD の開発、封入ガスの検討などにより測定の可能性もあるものと考えられる。

(400) 面は (200) 面と等価な面であるから、(200) 面が効率良く測定できれば、その方がより得策と考える。ただ、等価な面の挙動を比較することは特に集合組織を持つ材料では有効であり、その点からはやはり二つの等価な面を測定可能にすることは意義のあることである。

4.2 ショットピーニング試験片の応力測定例

中炭素鋼 S45C のアルメン型試験片にショットピーニングを行い、アークハイト高さ 0.49 mm とした試験料の表面軸方向の残留応力を (211)、(220)、(310) および (321) 面について測定した。sin²ψ 線図を Fig. 10 に示す。(211)、(220)、(310) 面はのばらつきは僅かであるのに対して、(321) 面は前項でも触れたようにバックグラウンドが高く SN 比が他のものに比べて劣るため多少のばらつきが見られる。しかしいずれの場合も 2θ -sin²ψ 関係は直線的であり、集合組織の影響は見られない。ただ、(310) 面のこう配は他のものに比べて明らかに大きいことが認められる。

つぎに、応力計算を行った。この際、ここでは 4 種の格子面について測定をしているため用いる弾性係数についてもこの点を考慮する必要があると考え、(1) Voigt のひずみ一定モデル、(2) Reuss の応力一定モ

Fig. 10. 2θ - $\sin^2\psi$ diagrams for several crystal planes in a shot-peened steel specimen.

デルに基づく弾性係数の2種類を想定して, 計算, 比較を行った。

各回折面のX線の弾性係数

$$K = -E/2(1+\nu) \cdot \cot \theta$$

とそれによる応力の計算結果を Table II に示す。

Table II. Elastic constant and stress value in each crystal plane. Specimen: shot-peened steel.

Plane	K (Voigt)	σ	K (Reuss)	σ
(211)	-358	-198	-345	-191
(220)		-232	-345	-223
(310)		-298	-230	-191
(321)		-197	-345	-190

K: [MPa/deg.], σ : [MPa]

Voigt のひずみ一定モデルでは弾性係数は回折面に関係なく一定であるために (310) 面の応力が大きくなるが, Reuss の応力一定モデルに従えば四つの回折面とも多少の差はあるもののほぼ同じ応力値となることが認められる。ただ過去に行われた解析や実験からは (310) 面の弾性係数は Reuss モデルと Voigt モデルのほぼ中間に来るといわれており, 実際は各回折面ごとの弾性係数を正確に測定することが必要である。ただ, 従来のこの種の研究では回折角が異なるために K 値が大幅に異なることがあり同一精度下での比較が困難であったが, SR 光で波長可変とした本研究では解決を要する問題はあつたもののほぼ同一精度で各回折面の応力値の比較が可能である。

5 結 言

従来の金属対陰極より発生するX線に代わって, シンクロトロン放射光より生ずるX線を用いて応力測定を行うことを試みた。そのため, PSPC を検出器とする応力測定用ゴニオメータを試作して高エネルギー物理学研究所放射光施設より発生する単色X線を用いて α 鉄およびショットピーニングした鋼について実際に応力を測定した。その結果を要約すると次の通りである。

(1) 取扱う波長範囲が材料のK吸収端より長くかつ, 0.2 nm 程度以下であれば極めて単時間に高品位の回折プロファイルが得られる。

鉄鋼材料であれば, ブラッグ角を 154° としたとき (211), (220), (310) 面は極めて短時間でしかも高精度で応力測定が可能であった。

(2) 鉄の (200) 面の測定ではX線強度が弱いことと, 低多重度因子の双方の原因より測定に要する時間が非常に長く現状では不可能と判断した。しかし, X線強度に関しては空気中での吸収を減少させることによ

て測定が行える可能性は大きい。その場合には低バックグラウンドの高品位の回折線が得られると考える。

(3) 材料のK吸収端より短い波長範囲での測定ではフィルター, およびエネルギー弁別器の使用により鉄の (321) 面の測定が可能であった。しかし, バックグラウンドが高く, 低品位の回折線であり, 精度上改善の余地がある。さらに (400) 面の測定は現状では不可能であった。

これらの結果より今後検討すべき事項は, まず検出器を含む回路等の改善によりエネルギー分解能を高め, K吸収端より波長が短い範囲での測定を可能にすることである。この問題の解決は, SR 光による応力測定を真の意味で意義あるものとするため不可欠である。さらに, 今回は PSPC のガスとして PR ガスを使用したため計数効率の劣る短波長域での測定を断念したが, ガスの交換または計数効率の波長依存性の少ない PSD の開発を行うことも今後の測定では重要なことである。

これらの措置により多数の回折面での応力測定が可能となれば, 集合組織材を問わずX線の弾性定数に関する問題に大きく寄与するものと考えられる。

終りに, 検出器関係のソフトウェアの開発に協力された武蔵工業大学研究員 (現 Schlumberger) Bertrand Guimard 君に感謝する。

また, 本研究は文部省科学研究費一般研究(B)によって行った。

(昭和60年7月18日 第22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) 例えば, “数理学「特集フォトンファクトリー」”, No. 243 (1983) サイエンス社; 日本物理学会編, “加速器とその応用”, 15章 (1981) 丸善。
- 2) “Photon Factory Activity Report 1983/83”, KEK.
- 3) *ibid.*, p. IV-47.
- 4) *ibid.*, p. V-7.
- 5) *ibid.*, p. V-8.
- 6) 例えば, 吉岡靖夫, 長谷川賢一, 持木幸一, 材料, **27**, 216 (1976); Y. Yoshioka, K. Hasegawa and K. Mochiki, Adv. X-ray Anal., **26**, 209 (1983).
- 7) 森千鶴夫, 青山隆彦, 渡辺 鏡, 日本原子力学会秋の分科会予稿集1, F35, 325 (1983).
- 8) M. Barral, J.-M. Spraul, J.-L. Lebrun, G. Maeder and S. Megtert, Adv. X-ray Anal., **27**, 149 (1984).
- 9) 例えば, X線材料強度部門委員会, 材料, **20**, 1257 (1971).