微小部 X 線応力測定における 最小照射面積と微構造の関係に関する一考察[†]

坂井田 喜 久*

Study on Correlation between Minimum Irradiation Area and Microstructure in Micro X-Ray Stress Measurement

by

Yoshihisa SAKAIDA*

In order to establish an optimum local stress measurement by the $\sin^2\psi$ method using micro X-ray beam, Debye-Scherrer rings of three kinds of polycrystalline Al_2O_3 , and Al_2O_3 -10vol% ZrO_2 were measured as a function of X-ray irradiation area. Each Debye-Scherrer ring image was obtained from image plate by Cu-K α or Fe-K α radiations. X-ray diffraction pattern was also detected from the measured Debye-Scherrer ring image. And then, a correlation between X-ray irradiation volume and X-ray diffraction pattern was examined for each material. The minimum X-ray irradiation volume, where X-ray diffraction pattern and local stress field were approximately equivalent to that from a myriad of grains existed in model materials, was determined. As a result, the minimum irradiation volume was found to correspond to the microstructural volume in which about 10^4 grains existed randomly. Furthermore, by oscillating the X-ray incident angle, the minimum irradiation volume lowered at the volume in which about 2.8×10^3 grains existed. Finally, it was confirmed that local stress of polycrystalline Al_2O_3 could be successfully measured by Synchrotron micro X-ray beam.

Key words : Micro X-ray stress measurement, Microstructure, Irradiation area, Ceramics, Synchrotron radiation

1 緒 言

近年、高集積半導体デバイスや MEMS (Micro Electro Mechanical System) 等のマイクロデバイスの開発に伴い、素子構造内に発生する局所応力が重大な破損を引き起こすケースが急増し、¹⁾ミクロンオーダーの局所応力評価への期待が高まっている。素子の局所応力は主に有限要素法などの計算法によって評価されてきた^{2), 3)}が、SPRING-8 などの大型放射光施設での X 線応力測定技術の向上^{4)~6)}に伴い、マイクロビームを用いた局所応力の実測も現実を帯びてきた。しかし、マイクロデバイスに発生する局所応力は微構造と密接な関係^{7)~9)}があり、マイクロビーム径と微構造の相関関係によって評価される応力が異なる。たとえば、数 10mm の粗大粒で構成される電磁鉄板は、結晶粒内に分布する局所応力が磁気特性を左右するため、個々の結晶粒に X 線を照射する応力測定と単結晶による評価¹⁰⁾が必要となる。それに対して 1 μm 以下の微細粒で構成される PZT (Lead Zirconate Titanate, $\text{Pb}(\text{Zr}, \text{Ti})\text{O}_3$) は、多数粒子に跨ったドメインに圧電特性が左右されるため、多結晶近似を最小限満足したビーム径での局所応力測定が必要となる。回折に寄与する結晶粒の数は X 線照射面積と X 線侵入深さの積に比例し、同じ X 線照射面積でも X 線侵入深さが深いほど増加する。しかし、照射面積の下限界については、X 線照射面積内の表面に約 10^4 個以上の結晶粒が必要であるという目安がある^{11)~13)}ものの、多結晶近似を満足する X 線応力測定の観点から検討した研究はほとんどない。

本研究は、粒径の異なるアルミナを母相とした多結晶セラミックスを用い、X 線照射面積を変化させたときの Debye-Scherrer 環や回折強度分布を測定することによって、多結晶体近似を満足する照射面積と微構造の関係から局所応力測定可能な最小ビーム径について検討した。

2 実験方法

2.1 供試材および試験片

供試材は、粒径の異なる 3 種類の多結晶アルミナとジルコニア粒子を 10vol% 分散させたアルミナである。多結晶アルミナは、市販の透光性アルミナ (日本ガイシ製) と常圧焼結アルミナ (JFCC 製)、および、純度 99.99 mass% の α - Al_2O_3 粉末を加圧成形し、大気中、1650 $^\circ\text{C}$ 、24 時間焼結したものを用いた。ジルコニア粒子分散アルミナは、同じ α - Al_2O_3 粉末に Y_2O_3 を 8mol% 添加した純度 99.1mass% の ZrO_2 粉末を混合後加圧成形し、アルミナと同一条件で焼結したものを用いた。Table I に供試材の密度と弾性率を示す。なお、本報では市販の透光性アルミナと常圧焼結アルミナを Al_2O_3 -1 と Al_2O_3 -2、作製したアルミナを Al_2O_3 -3、ジルコニア粒子分散アルミナを Al_2O_3 - ZrO_2 と定義した。また、供試材 Al_2O_3 -2 から幅 4mm $\times$ 厚さ 3mm $\times$ 長さ 40mm の曲げ試験片を作製し、X 線応力測定に用いた。

2.2 X 線回折と X 線応力測定

X 線照射面積と微構造の関係を明らかにするために、Fig. 1 に示すイメージングプレートを検出器とする 2 次元回折装置 (RINT RAPID, 理学電機) を用い、collimator

[†] 原稿受理 平成 15 年 10 月 15 日 Received Oct. 15, 2003

* 正 会 員 静岡大学工学部機械工学科 〒432-8561 浜松市城北, Dept. of Mech. Eng., Shizuoka Univ., Johoku, Hamamatsu, 432-8561

Table I. Densities and mechanical properties of materials.

	Al ₂ O ₃			Al ₂ O ₃ -ZrO ₂
	1	2	3	10vol%
Density (g/cm ³)	4.05	3.92	3.95	4.15
Young's modulus (GPa)	—	372	392	374
Poisson's ratio	—	0.23	0.23	0.24
Bending strength (MPa)	226	354	283	412

Fig. 1. X-ray microdiffraction system with curved image plate.

により X 線照射面積¹³⁾を $\phi = 0.8, 0.3, 0.1, 0.05, 0.03$ mm としたときの Cu-K α 線または Fe-K α 線による Debye-Scherrer 環と回折強度分布を測定した。なお、照射面積 48mm² の回折強度分布は、シンチレーションカウンタを検出器として取付けた X 線回折装置 (Rint2100, 理学電機) により測定した。

微小部 X 線応力測定は、大型放射光施設 SPring-8 の産業ビームライン BL09XU にて行った。Fig. 2 は X 線回折装置の外観を示す。実験は、8keV ($\lambda = 1.5493\text{\AA}$) の単色光を用い、アルミナの 2.0.14 回折 ($2\theta = 132.7^\circ$) に対して並傾法による応力測定を行った。なお、試験片への X 線照射面積は、入射側に取付けた四象限スリットにより応力測定中に常に一定になるように制御した。

3 結果および考察

3.1 供試材の微構造と平均粒径

Fig. 3 は、供試材の微構造写真を示す。Fig. 3 (d) の白い粒子がジルコニアであり、X 線回折の結果、ZrO₂ 粒子の結晶構造は立方晶であった。供試材の平均粒径は、(a) 30 μ m, (b) 1.8 μ m, (c) 7.9 μ m, (d) Al₂O₃ 粒子: 2.1 μ m, ZrO₂ 粒子: 0.92 μ m である。

Fig. 2. Synchrotron X-ray diffractometer.

Fig. 3. Microstructure of samples.

3.2 X 線照射面積と Debye-Scherrer 環

3.2.1 Cu-K α 線による結果 Fig. 4 は、Cu-K α 線を用いて X 線照射面積を 48mm² としたときの Al₂O₃-3 と Al₂O₃-ZrO₂ の回折強度分布を示す。なお、縦軸は 1mm² 当たりの強度で示し、Fig. 4 (b) には立方晶ジルコニアの回折線位置を矢印で示した。なお、Al₂O₃-1, Al₂O₃-2 の回折強度分布は、Fig. 4 (a) とほぼ一致し、配向性や集合組織の存在は認められなかった。照射面積 48mm² に含まれる粒子数は供試材の平均粒径で単純計算すると約 6.8×10^4 個以上であり、多結晶近似を満足している。一方、Fig. 5 は、Cu-K α 線を用いて X 線照射面積を $\phi = 0.3$ mm, 試験片表面に対する X 線入射角 $\omega = 20^\circ$ としたときの供試材の Debye-Scherrer 環を示す。なお、各図には $2\theta = 128, 145, 150^\circ$ の参照線を実線で示した。また、Table II は、X 線照射面積に含まれる Al₂O₃ 粒子数と ZrO₂ 粒子数 N_0 を平均粒径で単純計算した結果を示す。Al₂O₃-1 では、 $\phi = 0.3$ mm に存在する粒子数 N_0 は 10^2 個と非常に少ないため、デバイ環は判別できず、

Fig. 4. X-ray diffraction pattern by Cu-K α radiation.

Fig. 5. Debye-Scherrer ring image using image plate under $\phi = 0.3\text{mm}$, $\omega = 20^\circ$. In these figures, solid lines are indicated the reference lines, $2\theta = 128$, 145 and 150° .

個々の粒子から回折された Laue 斑点のスポットのみが見られる。一方, $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-3}$ では, 粒子数 N_0 が約 1.4×10^3 個に増加し, 不十分ではあるが, Fig. 4 (a) の回折線位置にデバイ環が形成され, 連続環に近い状態になっている。さらに, $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-ZrO}_2$ では, Al_2O_3 粒と ZrO_2 粒の粒子数 N_0 は 10^4 個以上¹³⁾と非常に多いため, 滑らかな連続環が判別できる。ここで, Al_2O_3 や ZrO_2 の $120^\circ \leq 2\theta \leq 160^\circ$ における回折線に対して並傾法による X 線応力測定を行う場合を考えると, 有効 X 線侵入深さ T は, Fig. 6 のように $\sin^2\psi$ に対して変化する。 $\omega = 20^\circ$ は $0.45 \leq \sin^2\psi \leq 0.73$ に相当し, Cu-K α 線による Al_2O_3 と ZrO_2

Table II. Number of grains, N_0 , included in irradiated area.

	$\text{Al}_2\text{O}_3\text{-1}$	$\text{Al}_2\text{O}_3\text{-2}$	$\text{Al}_2\text{O}_3\text{-3}$	$\text{Al}_2\text{O}_3\text{-ZrO}_2$	
grain	Al_2O_3			ZrO_2	
$\phi=0.8$	711	197530	10255	130612	79012
$\phi=0.3$	100	27778	1442	18367	11111
$\phi=0.1$	11	3086	160	2041	1235
$\phi=0.05$	3	772	40	510	309
$\phi=0.03$	1	278	14	184	111

Fig. 6. Effective penetration depth, T , of Al_2O_3 and $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-ZrO}_2$ for Cu-K α , Fe-K α and 8keV radiations.

の各回折線の有効 X 線侵入深さを求めると約 $20\mu\text{m}$ と $3.9\mu\text{m}$ になる。そこで, $\sin^2\psi = 0.5$ の有効 X 線侵入深さ $T_{\sin^2\psi = 0.5}$ を基準にして, X 線侵入深さ内の結晶粒の数 N を求めると, Fig. 7 に示すように粒子径が $T_{\sin^2\psi = 0.5}$ より小さいと粒子数 N は N_0 よりも増加する。そこで, $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-1}$, $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-3}$, および, $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-ZrO}_2$ のデバイ環を測定し, シンチレーションカウンタを用いた応力測定を想定してデバイ環を円周方向に $\pm 7.5^\circ$ の範囲だけ積算して回折強度分布を求めた。

Fig. 8 と Fig. 9 は, 各照射面積に対する $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-1}$ と $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-3}$ および $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-ZrO}_2$ の回折強度分布を示す。ここで, Fig. 7 より, X 線侵入深さ内の結晶粒子数 N が 10^2 ,

Fig. 7. Number of grains included in irradiated area within effective penetration depth for Cu and Fe-K α radiations.

(a) $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-1}$

(b) $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-3}$

Fig. 8. Change in X-ray diffraction pattern of Al_2O_3 with irradiated area using pinhole collimators ($\omega = 20^\circ$).

Fig. 9. Change in X-ray diffraction pattern of $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-ZrO}_2$ with irradiated area using pinhole collimators ($\omega = 20^\circ$).

10^3 , 10^4 個となる X 線照射面積を求めると Table III に示すようになる。 Al_2O_3 -3 の $\phi = 0.8\text{mm}$ (Fig. 8 (b)) や $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-ZrO}_2$ の $\phi = 0.3\text{mm}$ (Fig. 9) のように、照射面積と侵入深さで囲まれる領域内に含まれる粒子数 N が 10^4 個以上になると、その回折強度分布は多結晶体の回折強度分布 (Fig. 4) とほぼ一致し、応力測定できる可能性が高い。それに対して、 Al_2O_3 -1 の $\phi = 0.3\text{mm}$ や Al_2O_3 -3 の $\phi = 0.05\text{mm}$ のように、 $N \leq 10^2$ 個の照射面積では、Fig. 5 (a) のデバイ環からわかるように十分な回折強度分布は得られず、 $\sin^2\psi$ 法による応力測定は難しいと考えられる。一方、粒子数 N が 10^3 個前後の照射面積では、Fig. 5 (b) のデバイ環のように、Fig. 4 (a) とほぼ同じ位置に回折線が出現するようになり、応力測定できる可能性は非常に高いが、強度比の逆転や分布形が崩れた回折面が存在する。よって、応力測定の下限界は $10^2 < N < 10^4$ の範囲にあると予想できる。

3・2・2 Fe-K α 線による結果 $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-ZrO}_2$ の Cu-K α 線による応力測定では、 Al_2O_3 の回折線位置と ZrO_2 の回折線位置がほぼ重なるため、相応力が評価できないだけでなく、照射面積の影響を判別できない。そこで、Fe-K α 線を用いて $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-ZrO}_2$ の回折強度分布を測定し、粒子数 N との関係を検討した。Fig. 10 と Fig. 11 は、X 線照射面積を $\phi = 0.8\text{mm}$ 、試験片表面に対する X 線入射角 $\omega = 90^\circ$ としたときの回折強度分布と Debye-Scherrer 環の一部を示す。 $\omega = 90^\circ$ は $0 \leq \sin^2\psi \leq 0.22$ に相当し、X 線侵入深さ内の Al_2O_3 粒と ZrO_2 粒の粒子数はそれぞれ 7.2×10^5 個と 1.8×10^5 個と非常に多い。Fig. 10 の回折強度分布はリードベルト解析結果¹⁴⁾とほぼ一致し、回折線 (4) と (8) はジルコニア相の孤立ピークであり、そ

Fig. 10. X-ray diffraction pattern of $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-ZrO}_2$ using image plate under $\phi = 0.8\text{mm}$, $\omega = 90^\circ$.

Fig. 11. Debye-Scherrer ring image of $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-ZrO}_2$ using image plate under $\phi = 0.8\text{mm}$, $\omega = 90^\circ$.

他の回折線はアルミナ相であった。また、デバイ環も明確な連続環となり、多結晶近似を満足している。Fe-K α 線による回折では、母相のアルミナ相と分散相のジルコニア相の回折線はほとんど重ならず、相応力の評価に適している。

Table III より、 Al_2O_3 粒と ZrO_2 粒がともに $N \geq 10^4$ を満足する照射面積は $\phi \geq 0.19\text{mm}$ であり、 $\phi = 0.3\text{mm}$ の回折強度分布は Fig. 10 とほぼ同等になると予想される。Fig. 12 は、X 線入射角 $\omega = 90^\circ$ 、 $\phi = 0.3\text{mm}$ ($N_{\text{Al}_2\text{O}_3} = 1.1 \times 10^5$, $N_{\text{ZrO}_2} = 2.5 \times 10^4$) を基準に、 ZrO_2 粒の粒子数 N が 10^3 個前後となる $\phi = 0.1\text{mm}$ ($N_{\text{Al}_2\text{O}_3} = 1.1 \times 10^4$, $N_{\text{ZrO}_2} = 2.8 \times 10^3$) と $\phi = 0.05\text{mm}$ ($N_{\text{Al}_2\text{O}_3} = 2.8 \times 10^3$, $N_{\text{ZrO}_2} = 7.0 \times 10^2$) の結果と、X 線入射角を微小角度 $\Delta\omega$ 揺動した結果を示す。 $\phi = 0.3\text{mm}$ の回折強度分布は Fig. 10 とほぼ一致した。一方、 $\phi = 0.1\text{mm}$ では Al_2O_3 粒子数は十分存在するが、 ZrO_2 粒子数が 2.8×10^3 個と若干少ないため、

Table III. Optimum irradiated areas of several materials at $N = 10^2$, 10^3 and 10^4 , for Cu and Fe-K α radiations.

Materials		Al_2O_3 -1	Al_2O_3 -2	Al_2O_3 -3	$\text{Al}_2\text{O}_3\text{-ZrO}_2$	
N	X-ray	Al_2O_3			ZrO_2	
10^2	Cu	$\phi 0.3$	$\phi 0.005$	$\phi 0.045$	$\phi 0.006$	$\phi 0.014$
	Fe	$\phi 0.3$	$\phi 0.007$	$\phi 0.065$	$\phi 0.009$	$\phi 0.019$
10^3	Cu	$\phi 0.95$	$\phi 0.015$	$\phi 0.14$	$\phi 0.021$	$\phi 0.044$
	Fe	$\phi 0.95$	$\phi 0.022$	$\phi 0.21$	$\phi 0.030$	$\phi 0.060$
10^4	Cu	$\phi 3.0$	$\phi 0.049$	$\phi 0.45$	$\phi 0.065$	$\phi 0.14$
	Fe	$\phi 3.0$	$\phi 0.071$	$\phi 0.65$	$\phi 0.094$	$\phi 0.19$

Fig. 12. Change in X-ray diffraction pattern of $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-ZrO}_2$ with oscillation angles under $\phi = 0.1\text{mm}$, $\omega = 90^\circ$.

ZrO₂-333 回折の回折強度分布形が乱れる傾向があるが、X 線入射角を $\Delta\omega = \pm 1^\circ$ または $\pm 3^\circ$ 揺動することにより Fig. 10 と同等の回折線を得ることができた。なお、 $\phi = 0.05\text{mm}$ では Al₂O₃ 粒子数も 2.8×10^3 個に減少し、揺動によって Al₂O₃-226 回折や Al₂O₃-2.1.10 回折、ZrO₂-422 回折の回折強度分布は改善されたが、十分な判別を行うには測定時間をさらに長くするか、放射光 X 線などの高輝度 X 線を用いた実験を行う必要がある。

上述の傾向は、デバイ環の比較からもよく理解できる。Fig. 13 は、 $\phi = 0.3, 0.1\text{mm}$ のときの Debye-Scherrer 環の一部を示す。 $\phi = 0.3\text{mm}$ のデバイ環は、 $\phi = 0.8\text{mm}$ (Fig. 11) と比較すると斑点密度が若干低下しているが、回折に寄与する粒子数は前述のように比較的多いので、デバイ環の水平ラインから積算される回折強度分布は十分な形と強度を持っている。それに対して、 $\phi = 0.1\text{mm}$ では強度比の高い回折線(4)(5)(7)(8)の斑点密度も著しく低下し、それ以外のデバイ環は判別し難いが、 $\pm 3^\circ$ の揺動によってデバイ環がより鮮明になったことがわかる。

Fig. 14 は、 $\sin^2\psi$ 法による応力測定を行う場合を想定して X 線入射角を $\omega = 25^\circ$ に変更し、 $\phi = 0.1\text{mm}$ の条件で十分な回折強度分布が揺動により得られるか検討した結果を示す。 $\omega = 25^\circ$ は $0.36 \leq \sin^2\psi \leq 0.65$ に相当する。 $\phi = 0.1\text{mm}$ の揺動なしでは十分な回折強度が得られない場合が存在するが、揺動によって $\phi = 0.3\text{mm}$ と同程度の回折強度分布が得られ、Fig. 12 の結果 ($\omega = 90^\circ$) とあわせて $\sin^2\psi$ 法による応力測定が実施できる可能性が高いと結論づけられる。

Fig. 13. Debye-Scherrer ring image of Al₂O₃-ZrO₂ using image plate under several conditions (Fe-K α , $\omega = 90^\circ$).

Fig. 14. Change in X-ray diffraction pattern of Al₂O₃-ZrO₂ with oscillation angles under $\phi = 0.1\text{mm}$, $\omega = 25^\circ$.

3・3 放射光 X 線による微小部応力測定

前節より、粒径の異なる供試材に対して照射面積を変化させた回折強度分布を測定することによって X 線侵入深さ内に 2.8×10^3 個程度の結晶粒が存在すれば $\sin^2\psi$ 法による応力測定が実施できる可能性が高いことがわかった。ここで、供試材 Al₂O₃-2 に対して応力測定を行う場合を考えると、Fig. 7 より $N = 2.8 \times 10^3$ を満足する照射面積は Cu-K α 線では $\phi = 0.026\text{mm}$ 、Fe-K α 線では $\phi = 0.038\text{mm}$ となり、この照射面積が応力測定の下限界となる可能性がある。しかし、実験室の X 線源では回折強度が非常に低く、ひとつの $\sin^2\psi$ 線図を得ただけでも莫大な時間を要する。本研究では 8keV の放射光 X 線を用い、 $\phi = 0.025\text{mm}$ 程度の微小照射面積で局所応力が測定できるか検討した。

Fig. 15 は、四象限スリットによる X 線照射面積を $1 \times 10\text{mm}^2$ ($N_0 = 3.9 \times 10^6$, $N = 4.7 \times 10^7$) としたときの Al₂O₃-2 の X 線回折強度分布⁴⁾を示す。8keV の単色光を用いたため、K α_2 線に相当する回折線が存在しない。また、X 線の平行性が非常に高いので、Fig. 4 (a) の回折線に比べて回折線幅が狭く、実験室の X 線源を用いる場合より、実質的に回折に寄与する結晶粒が減少する。よって、以下の放射光 X 線による 2.0.14 回折の応力測定は、 $\pm 1^\circ$ の揺動を行った。

Fig. 16 は、試験片に 243MPa の曲げ応力を負荷した状態で、照射面積を $0.1 \times 0.5\text{mm}^2$ ($N_0 = 1.9 \times 10^4$, $N = 2.3 \times 10^5$) としたときの 2.0.14 回折の回折強度分布を示す。なお、図の実線は実測値を示し、点線はガウス近似曲線を示す。X 線侵入深さ内には約 2.3×10^5 個の粒子が存在することから、いずれの ψ においても実測値はガ

Fig. 15. X-ray diffraction pattern⁴⁾ of Al₂O₃-2 by 8keV synchrotron radiation.

Fig. 16. Diffraction profiles of Al₂O₃-2 from 2.0.14 plane by 8keV radiation with $0.1 \times 0.5\text{mm}^2$.

ウス分布で近似できた。一方, Fig. 17 は, 同じ負荷条件で照射面積を $0.1 \times 0.1 \text{ mm}^2$ ($N_0 = 3.9 \times 10^3$, $N = 4.6 \times 10^4$) としたときの結果を示す。照射面積内の粒子数 N_0 は約 3.9×10^3 個に減少したが, 侵入深さ内に約 4.6×10^4 個の粒子が存在するため, 回折強度分布はガウス近似できた。

Fig. 18 は, $0.1 \times 0.5 \text{ mm}^2$ と $0.1 \times 0.1 \text{ mm}^2$ の 2θ - $\sin^2\psi$ 線図を示す。 $\sin^2\psi$ 線図はばらつきの範囲内ではほぼ一致し, 照射面積内の粒子数 N_0 が 3.9×10^3 個程度の局所領域でも十分応力測定できることが確かめられた。

Fig. 19 と Fig. 20 は, 照射面積を $0.05 \times 0.05 \text{ mm}^2$ ($N_0 = 9.8 \times 10^2$, $N = 1.1 \times 10^4$) と $0.025 \times 0.025 \text{ mm}^2$ ($N_0 = 2.5 \times 10^2$, $N = 2.8 \times 10^3$) としたときの 2.0.14 面の回折強度分布を示す。照射面積内の粒子数 N_0 は 10^3 個以下と大幅に減少したが, X 線源の輝度が桁違いに高いのでこのよ

Fig. 17. Diffraction profiles of Al_2O_3 -2 from 2.0.14 plane by 8keV radiation with $0.1 \times 0.1 \text{ mm}^2$.

Fig. 18. 2θ - $\sin^2\psi$ diagram of Al_2O_3 -2 for Al_2O_3 -2.0.14 plane from 8keV radiation.

Fig. 19. Diffraction profiles of Al_2O_3 -2 from 2.0.14 plane by 8keV radiation with $0.05 \times 0.05 \text{ mm}^2$.

Fig. 20. Diffraction profiles of Al_2O_3 -2 from 2.0.14 plane by 8keV radiation with $0.025 \times 0.025 \text{ mm}^2$.

うな微小照射面積においても S/N 比のよい回折強度分布が得られ, 照射面積と X 線侵入深さで囲まれる領域内に 2.8×10^3 個以上の粒子が存在する照射面積まで応力測定できる可能性が高いことが示された。なお, X 線侵入深さ内の粒子数 N_0 が 10^4 個以下に減少すると, ψ や照射位置によって回折に寄与する粒子数 N が極端に増減し, 回折強度分布の一部欠落や非対称化, 強度上昇などが起こる場合があるが, 応力測定値にはあまり影響しない。

3・4 粒子数とマクロ応力の関係

微小部 X 線応力測定では, 照射面積内の粒子に働くミクロ応力の平均値が, マクロ応力を反映しているかが重要である。

そこで, Al_2O_3 -3 の微構造写真から Fig. 21 (a) に示すような 2 次元粒子モデルを作成し, Fig. 21 (b) のように任意寸法の正方領域を切出して上下または左右方向に 243MPa に相当する強制変位を負荷して領域に発生する応力を有限要素法解析により計算した。そして, 特定の領域に含まれる粒子に働くミクロ応力の平均値 σ_{mean} とマクロ応力 σ_{macro} ($= 243 \text{ MPa}$) の関係を検討した。なお, 各粒子の結晶方位はランダムに与え, Table IV に示す単結晶アルミナの弾性定数を入力した^{7), 8), 15)}

Fig. 22 は, 切出し領域に含まれる粒子数 N と粒子に働くミクロ応力の平均値 σ_{mean} を計算した結果を示す。なお, 粒子数 N 毎に結晶方位の異なる 20 個の領域を計算し, 図にはマクロ応力の $\pm 1\%$ の範囲を点線で示した。領域内のミクロ応力の平均値がマクロ応力の $\pm 1\%$ 以内に収まるには $N \geq 400$ の領域が必要であることがわかる。また, Fig. 23 は, $N = 465$ の領域内の粒子に働くミクロ応力分布を示す。 $N \geq 400$ のミクロ応力分布は左右対称形を示し, その平均値はほぼマクロ応力と一致する。⁸⁾ よ

Fig. 21. Two-dimensional grain model of Al_2O_3 -3.

Table IV. Stiffness matrix c_{ij} of single crystal alumina.^{7), 8), 15)}

c_{11} (GPa)	c_{12} (GPa)	c_{13} (GPa)	c_{14} (GPa)	c_{33} (GPa)	c_{44} (GPa)
496.8	163.6	110.9	-23.5	498.1	147.4

Fig. 22. Relationship between mean micro stress, σ_{mean} , and number of grains, N , under $\sigma_{macro} = 234$ MPa. Fig. 23. Micro stress distribution, σ_{micro} , arisen in the model at $N = 465$ under $\sigma_{macro} = 234$ MPa.

て、多結晶近似を満足し、応力測定方向のマイクロ応力の平均値がマクロ応力と一致するには、 $N \geq 400$ の粒子数が必要であることがわかる。X線応力測定の場合に言い換えれば、入射X線に対してある特定回折面を満足する結晶粒のみが回折に預かるので、各 ψ の回折線から求めるはずが、多結晶近似を満足するには回折面法線が一致する結晶粒子が最低400個必要となる。しかし、これらの粒子は回折面法線以外は面内ランダムであり、各粒子のLaue斑点はデバイ環上の任意位置に分布する。いま、応力測定方向を中心に $\pm 7.5^\circ$ 範囲のデバイ環が検出されると仮定すると、検出される回折線に粒子400個のLaue斑点が含まれるには $N = 360/15 \times 400 = 9.6 \times 10^3 \approx 10^4$ 個の粒子がX線侵入深さ内に存在する必要がある。実際のデバイ環はBragg角から少し外れた回折面をもつ粒子からの回折も加わって回折強度を形成している¹⁶⁾ので、最低粒子数 N は 10^4 よりも小さくなる。また、揺動によって必要粒子数はさらに減少する。以上の傾向は、前節までの実験結果とよく一致する。

4 結 言

粒径の異なる3種類の多結晶アルミナとジルコニア粒子を10vol%添加した粒子分散強化アルミナを例にとり、微小照射X線による局所応力測定の下限界寸法と微構造の関係について検討した結果、次のようなことが明らかとなった。

(1) 多結晶近似を満足し、応力測定方向のマイクロ応力の平均値がマクロ応力と一致するには、微小領域内に400個以上のランダム粒子が必要である。

(2) X線侵入深さ内に 10^4 個以上の結晶粒子が存在する照射面積まで回折強度分布は多結晶とほぼ一致し、多結晶近似を満足した $\sin^2\psi$ 法による応力測定が可能である。

(3) 揺動法を併用することにより、X線侵入深さ内に 2.8×10^3 個程度の粒子数が存在する照射面積まで局所応力を測定できる可能性が高い。たとえば、Cu-K α 線を用いて平均粒径 $2.0\mu\text{m}$ の多結晶アルミナを測定する場合、 $\phi = 0.03\text{mm}$ の照射面積まで可能である。

本研究の放射光利用実験は、SPRING-8のBL09XU(課題番号2003A0543-ND3-np)で行った。また、IPを用いたX線回折では理学電機製の土性明秀氏に多大な協力を頂いた。なお、本研究の一部は工業技術院産業科学技術研究開発制度「シナジーセラミックスの研究開発」の一環としてNEDOの委託とスズキ財団の科学技術研究助成のもと行われたものである。ここにあわせて謝意を表する。

参 考 文 献

- 1) S. Ikeda, Y. Hagiwara, H. Miura and H. Ohta, Pro. Int. Electron Device Meeting, San Francisco, 77 (1996).
- 2) S. M. Hu, J. Appl. Phys., **67**, 1092 (1990).
- 3) 斉藤直人, 坂田信二, 清水 翼, 磯前誠一, 増田弘生, 日本機械学会論文集, **A-55**, 1652 (1989).
- 4) 坂井田喜久, 田中啓介, 秋庭義明, 沢木洋三, 材料, **52**, 1225 (2003).
- 5) 矢加部久孝, 日本機械学会 P-SC327 放射光応力評価研究分科会研究成果報告書, 53 (2003).
- 6) J. Matsui, Y. Tsusaka, S. Takeda, Y. Kagoshima and K. Yokoyama, Pro. ATEM'03, OS04W0319, Nagoya, 1 (2003).
- 7) Y. Sakaida, Y. Sawaki and S. Ogawa, Pro. ATEM'03, OS08W0215, Nagoya, 1 (2003).
- 8) 坂井田喜久, 池田 泰, 河本 洋, 沢木洋三, 構造物の安全性および信頼性, **5**, 159 (2003).
- 9) R. L. Mullen, R. Ballarini, Y. Yin and A. H. Heuer, Acta Mater., **45**, 2247 (1997).
- 10) 鈴木裕士, 秋田貢一, 三沢啓志, 今福宗行, 材料, **51**, 730 (2002).
- 11) 日本材料学会編, "X線応力測定法", p. 137 (1990) 養賢堂.
- 12) X線材料強度部門委員会編, "X線応力測定法標準", p. 79 (1982) 日本材料学会.
- 13) X線材料強度部門委員会編, "X線応力測定法とその材料評価への応用に関する講習会", p. 16 (1998) 日本材料学会.
- 14) 中井 泉, 泉富士夫編著, "粉末X線解析の実際", p. 122 (2002) 朝倉書店.
- 15) J. B. Wachtman, W. E. Tefft, D. G. Lam and R. P. Stinchfield, J. Res. Natl. Bur. Std.-A. Phys & Chem., **64A**, 213 (1960).
- 16) 松村源太郎訳, "X線回折要論", p. 91 (1987) アグネ.