円柱体共振法による多結晶材料の弾性定数の測定*
(低温および高温における測定)

妹 尾 允 史**, 松 室 昭 仁**

Measurement of the Elastic Constants of Polycrystals
by the Resonance Method in a Cylindrical Specimen
(Measurement at Low and High Temperatures)

by Masafumi SENOO and Akihito MATSUMURO

By use of the resonance method in a cylindrical specimen, the elastic constants of polycrystalline materials of pure aluminum are measured at a temperature range from about -190°C to about 300°C . The elastic constants agree well with the reduced values of polycrystals, which are converted from existing experimental results of single crystals of ultrasonic measurement. The influence of dimension and thermal expansion on elastic constants is also estimated. Finally, the applicability of this method to alloy systems is investigated.

Key Words: Resonance Method, Elastic Constants, Metallic Materials, Temperature Dependence, Aluminum, Alloy Systems

1. 序 論

固体の弾性定数の温度依存性は原子間ポテンシャルの非調和性を直接反映する量であり、相変態などの物性研究における意義は大きい。その依存性を精度よく決定できることは最適設計のパラメータとして工業上も有効である。著者らは前報⁽¹⁾で円柱体試験片を用いて三次元共振法による弾性定数の測定法を提案し、アルミニウム多結晶材料の室温における弾性定数を測定した結果について報告した。これによると微小試験片($\phi 6 \times 6 \text{ mm}$)にもかかわらず十分な精度で一組の弾性係数を同時に決定することができ、基礎的な材料試験法の一つとして有効であることが確認できた。本研究では温度範囲を室温以下 -190°C から高温域約 300°C まで拡大し、その横弾性係数 G 、ポアソン比 ν および縦弾性係数 E の温度依存性の測定方法とその結果について報告する。特に温度を変化させた環境で測定を行う場合、試験片寸法が小さいことは利点であるが、十分な共振出力が得られるかどうか、共振振動数に対する熱膨張の影響などの問題があり、これらに

についても考察を加える。また、合金系への拡張の一例として Al-Si 10 at % を試験片として本測定方法の適用の妥当性を検討する。

2. 実験装置および測定法

2.1 測定系 共振振動数の測定系のブロック線図を図 1 に示す。この系は前報と同様に周波数弁別部が発振周波数と同期して掃引できるスペクトルアナライザを利用して行い、5 けたの周波数カウンタで読取り同時に X-Y レコーダで共振スペクトルを記録した。試験片の温度検出はクロメル-アルメル熱電対($\phi 0.3 \text{ mm}$)により行う。

2.2 高温における測定方法 試験片支持部の基

図 1 測定系のブロック線図

* 昭和 59 年 3 月 16 日 東海支部第 33 期総会講演会において講演, 原稿受付 昭和 60 年 9 月 3 日。

** 正員, 名古屋大学工学部 (〒464 名古屋千種区不老町)。

本的構造は前報と同様に試験片をできる限り自由振動条件に近い状態に置かなければならないが、今回はさらに耐熱性に留意する必要がある。その詳細図を図2に示す。振動トランスデューサとして加振、受振ともに高温用ピエゾ板(ムラタ 6 VR-10-10-1000 A, $10 \times 10 \times 1 \text{ mm}^3$)を使用し、その表面に試験片支持用としてサファイア針をザウエルアイゼンセメントを用いて接着した。ピエゾ板は鋳鉄板にひずみゲージ用シリコン樹脂接着剤を用いて接着し、測定系全体の発振を避けるためにグラスウールを介して後述する加熱炉内に挿入するステンレス棒($9 \times 9 \times 180 \text{ mm}^3$)にアスベストひもで固定する。ピエゾ板への入出力用リード線に白金線($\phi 0.2 \text{ mm}$)を使用して導電性のシルベストで接着した。加熱炉は、内径 50 mm, 奥行き 200 mm の炉芯管を有する抵抗横形炉であり、その概観を図3に示す。炉内の温度調節はスライダックによる手動であるが、測定時には $\pm 1^\circ\text{C}$ の範囲で制御できる。設定温度は、室温から約 50°C ステップで測定可能限界の 325°C までの間で昇降温させた。

2・3 低温における測定方法 試験片支持部は前報の常温用と同様であり、これをアルミニウム製支持棒($10 \times 10 \times 120 \text{ mm}^3$)にアロンアルファで接着し、さらにマグネットチャック付スタンドに取付け可搬形となっている。これを周囲を断熱材で覆った低温槽の中に入れた。冷却には液体窒素を用いて約 -100°C までは液体窒素容器から低温噴出ガスを吹きつけて冷却し、その噴出量によって温度調節した。これ以下の温度では、直接液体窒素を低温槽の下面に注入し、その量により温度制御した。これらの方法により十分安定した後の温度変動は $\pm 1^\circ\text{C}$ 程度であり、室温から液体窒素の沸点の約 -190°C 付近まで約 20°C ステップで

測定を行うことができた。

2・4 試験片 純アルミニウム試験片には JIS-1050 を採用した。結晶粒を微細にして均質化し、弾性異方性を取り除くために 800°C で溶融後、 $\phi 10 \times 100 \text{ mm}$ のロッド状に再铸造した。これを旋盤加工によって $\phi 6 \times 6 \text{ mm}$ および $\phi 6 \times 30 \text{ mm}$ の円柱体に精密に仕上げた。顕微鏡観察の結果、粒径は $10 \sim 100 \mu\text{m}$ であった。一方、Al-Si 10 at % の 2 相分離体試験片は、上述の JIS-1050 純アルミニウムに高純度 Si を 10 at % 配合し溶融铸造し $\phi 6 \times 6 \text{ mm}$ に加工した。その後、完全な 2 相分離状態にするために Ar 雰囲気中 400°C , 5 時間保持した後炉冷したものである。寸法および質量は万能投影機、精密てんびんで測定した。試験片寸法は表1に示すとおりであるが、純アルミニウム試験片については共振振動数帯を変えた場合の弾性係数の再現性を確認するために、柱軸方向に寸法の異なる試験片を 2 種類用意した。

3. 実験結果および考察

3・1 共振振動モードの同定 弾性定数の決定法は前報で詳述したように、多数のモード(10~20)につ

表 1 試験片の寸法および密度

Material	pure-Al (JIS-1050)	Al-Si 10 at %
Dimension	$\phi 6 \times 6 (\text{mm})$	$\phi 6 \times 30 (\text{mm})$
2R (mm)	5.980	5.993
L (mm)	5.955	29.362
$\rho (\text{g/cm}^3)$	2.708	2.706

- 1 試験片
- 2 サファイア針
- 3 ピエゾ板
- 4 鋳鉄板
- 5 グラスウール
- 6 ステンレス製支持棒
- 7 アスベストひも

図 2 高温用試験片支持部

- 1 加熱炉
- 2 ハイトゲージ
- 3 ステンレス棒
- 4 水平方向微動機構
- 5 移動車
- 6 炉電源スイッチ
- 7 定盤
- 8 ストップ

図 3 加熱炉

いて振動数の測定結果を Rayleigh-Litz 法と有限要素法による計算値と各モードごとに比較する方法である。この際、振動モードの同定には円周方向の波数が零で共振ピークがスプリットしないモードを参照しながら、振動数の低いものから順次対応をつけた。その結果、温度変化に伴う振動モードの順序の逆転は観測されず、モードの同定は比較的容易であった。しかし、高温においては全体的に Q 値が 500~800 と小さく、純アルミニウム試験片 ($\phi 6 \times 6$ mm) について表 2 に示すように試験片の等二軸対称性からのずれによって二つにスプリットするはずのモードについても、重なって観測されるものが多い。逆に低温域においては Q 値

表 2 $\phi 6 \times 6$ mm 純アルミニウム試験片の
300°C での実験値と測定値の比較
 $G=21.92$ (GPa), $\nu=0.3480$

Mode	Exp. (kHz)	Cal. (kHz)	$\frac{\Delta f/f}{\Delta \nu/\nu}$ (%)	$\Delta f/f$ (%)
OE-2	239.56	238.86	0.0	0.293
2E-1	298.47 299.14	299.65	0.3	-0.282
10-2	305.27 307.57	306.40	6.6	0.007
1E-2	352.81	354.43	0.1	-0.457
00-2	356.69	353.95	0.9	0.774
20-2	379.57	380.28	4.6	-0.187
10-3	432.05	432.07	12.1	-0.005
OE-3	448.76	447.87	20.7	0.199
1E-3	469.91	470.75	5.1	-0.178
00-3	476.29	477.73	0.0	-0.301
00-4	481.23	482.34	24.9	-0.230
3E-1	485.13	483.52	0.3	0.333
2E-2	485.89	486.85	3.4	-0.198
30-1	505.72	507.07	1.4	-0.266
10-4	520.38	521.09	6.5	-0.136
OE-4	543.74	542.23	5.5	0.278
30-2	550.96	552.78	2.7	-0.329
1E-4	612.18 613.95	612.06	10.7	0.164
2E-3	619.62 620.19	615.34	2.6	0.742

表 3 $\phi 6 \times 6$ mm 純アルミニウム試験片の
-147°C での実験値と測定値の比較
 $G=28.54$ (GPa), $\nu=0.3365$

Mode	Exp. (kHz)	Cal. (kHz)	$\frac{\Delta f/f}{\Delta \nu/\nu}$ (%)	$\Delta f/f$ (%)
OE-2	272.71	272.54	0.0	0.062
2E-1	341.05 341.14	341.86	0.3	-0.224
10-2	349.22 349.65	348.75	6.7	0.196
1E-2	373.26	373.13	1.5	0.035
20-1	403.25 403.85	404.38	0.1	-0.205
00-2	404.18	403.71	0.9	0.116
20-2	433.27	433.15	4.7	0.027
10-3	490.37 491.06	490.83	12.0	-0.023
OE-3	504.60	507.21	20.4	-0.514
1E-3	536.26 536.64	536.12	5.1	0.062
00-3	544.82	545.07	0.0	-0.046
00-4	545.96	545.21	25.5	0.138
3E-4	550.79 551.78	551.62	0.3	-0.061
2E-2	554.76 555.06	554.80	3.4	0.020
30-1	577.16 578.44	578.25	1.4	-0.078
10-4	593.27 593.49	593.16	6.4	0.037
OE-4	617.50	617.43	5.5	0.011
30-2	629.59 629.50	630.11	2.6	-0.090
1E-4	695.53 696.57	696.64	10.6	0.059
2E-3	701.53 701.94	701.44	2.5	0.042

も 1000~6000 と非常に大きく、表 3 に示すようにスプリットも顕著に出現しモードの同定は高温域と比較すると格段に容易であった。表 4, 5 に $\phi 6 \times 30$ mm 純アルミニウム試験片、表 6, 7 に Al-Si 10 at % 試験片の高温および低温域における振動モードそれぞれを示す。

3.2 純アルミニウムの弾性定数の温度依存性

図 4~6 に横弾性係数 G , ポアソン比 ν , そして G と ν から算出した縦弾性係数 E の加熱および冷却時における温度依存性を示す。測定に際しヒステリシス効果を検討するために室温から高温域と低温域のそれぞれについて加熱, 冷却を行ったが, 両者の間の顕著な差はみられなかった。また, 多結晶体の弾性変形では結晶粒界によるすべりなどのために非弾性的な効果が現れ, 振動数によって弾性定数に差の見られることがある。この影響を調べるために, 本実験では軸長の異なる 2 種類の試験片を用いたが, 図 4~6 に示すように弾性定数にはほとんど差は見られず, この程度の振動数範囲 (20 kHz~700 kHz) では弾性変形に本質

表 4 $\phi 6 \times 30$ mm 純アルミニウム試験片の
250°C での実験値と測定値の比較
 $G=22.40$ (GPa), $\nu=0.3567$

Mode	Exp. (kHz)	Cal. (kHz)	$\frac{\Delta f/f}{\Delta \nu/\nu}$ (%)	$\Delta f/f$ (%)
10-2	26.89	25.80	12.4	0.042
OE-2	—	48.12	0.0	—
1E-2	62.34	62.34	11.4	0.000
00-2	78.79	79.01	12.4	-0.003
00-3	95.97	96.24	0.0	-0.003
10-3	106.29	106.40	10.1	-0.001
OE-3	144.35	144.36	0.0	0.000
1E-3	152.82	153.54	9.1	-0.005
OE-4	156.14	156.43	10.6	-0.002
00-4	191.98	192.69	0.0	-0.004
10-4	199.75	209.56	7.6	-0.047
00-5	229.83	230.32	7.6	-0.002
OE-5	240.00	241.43	0.0	-0.006

表 5 $\phi 6 \times 30$ mm 純アルミニウム試験片の
-180°C での実験値と測定値の比較
 $G=29.16$ (GPa), $\nu=0.3329$

Mode	Exp. (kHz)	Cal. (kHz)	$\frac{\Delta f/f}{\Delta \nu/\nu}$ (%)	$\Delta f/f$ (%)
10-2	31.58	29.19	12.0	0.082
OE-2	—	54.90	0.0	—
1E-2	70.67 70.60	70.59	10.8	0.001
00-2	89.04	89.39	12.0	-0.004
00-3	109.77	109.81	0.0	-0.000
10-3	120.63 120.14	120.57	9.7	-0.002
OE-3	164.19	164.71	0.0	-0.003
1E-3	173.14 173.91	174.13	8.6	-0.003
OE-4	176.49	177.20	10.3	-0.004
00-4	218.84	219.85	0.0	-0.005
10-4	226.52 226.49	237.87	7.3	-0.048
00-5	260.47	261.42	7.5	-0.004
OE-5	273.44	275.46	0.0	-0.007

的な差異はないと思われる。また、ポアソン比 ν は横弾性係数 G に比較して見かけのばらつきが大きい、これは横弾性係数 G による振動数への寄与が振動モードに無関係に50%であるのに対して、ポアソン比 ν による寄与が表2～表7に示されるように一般にこれよりも小さいためであると思われる。しかし、等方体における弾性係数間の関係を用いて縦弾性係数 E に換算すればこのばらつきも小さくなる。それぞれの弾性定数について $-100^{\circ}\text{C}\sim 200^{\circ}\text{C}$ の範囲で最小二乗法を適用して直線近似した値を表8に示す。ここで、 a は 1°C 当たりの弾性定数の温度こう配、 b は 0°C での弾性定数の値である。本近似直線による 20°C における値は前報の弾性定数、 $G=26.2$ (GPa)、 $\nu=0.345$ 、 E

表6 $\phi 6\times 6$ mm Al-Si 10 at % 試験片の
247 $^{\circ}\text{C}$ の実験値と測定値の比較

Mode	Exp. (kHz)	Cal. (kHz)	$\frac{\Delta f/f}{\Delta \nu/\nu}$ (%)	$\Delta f/f$ (%)
0E-2	257.60	255.75	0.0	0.007
2E-1	321.34 324.63	324.73	0.3	-0.005
10-2	327.15 330.01	327.98	6.8	0.002
1E-2	349.79 352.97	352.29	1.5	-0.003
00-2	379.37	379.98	1.0	-0.002
20-1	381.30 384.35	383.17	0.1	-0.001
20-2	400.52 408.08	409.08	4.7	-0.013
10-3	463.78	467.44	11.8	-0.008
0E-9	482.11	486.85	20.6	-0.010
1E-3	504.20 506.73	508.09	5.0	-0.005
00-3	518.14	511.49	0.0	0.013
00-4	522.94	522.75	13.3	0.000
3E-1	—	523.42	13.6	—
2E-2	—	524.94	3.4	—

表7 $\phi 6\times 6$ mm Al-Si 10 at % 試験片の
 -158°C での実験値と測定値の比較
 $G=30.29$ (GPa), $\nu=0.3352$

Mode	Exp. (kHz)	Cal. (kHz)	$\frac{\Delta f/f}{\Delta \nu/\nu}$ (%)	$\Delta f/f$ (%)
0E-2	283.02	281.11	0.0	0.007
2E-1	353.79 356.69	356.87	0.3	-0.005
10-2	360.55 361.76	359.14	6.7	0.006
1E-2	384.47	386.90	1.5	-0.006
00-2	417.35	417.43	1.1	0.000
20-1	419.16	421.15	0.1	-0.005
10-3	507.76 509.44	510.42	11.6	-0.004
0E-3	525.48	529.04	20.1	-0.007
1E-3	555.18	556.91	5.0	-0.003
00-3	564.92	562.23	0.0	0.005
00-4	567.19	566.31	25.2	0.002
3E-1	572.31	575.23	0.3	-0.005
2E-2	574.85	575.91	3.4	-0.002

表8 純アルミニウムにおける弾性定数の
温度依存性の直線近似

	E	G	ν
a	-0.038	-0.015	0.000056
b	71.39	26.61	0.3415

$=70.4$ (GPa)とよく一致している。図4～6で比較されているKamm⁽²⁾とGerlichら⁽³⁾の測定値は超音波法により単結晶体について測定されたものを、Voigtの条件より弾性スティフネスを平均することから算出した多結晶体の値である。また、Reuss条件より弾性コンプライアンスを平均した下限値は G では約0.2 (GPa)、 E では約0.6 (GPa)ほど低く、ほとんど差は見られない。したがって単結晶における超音波速度の測定による弾性定数の温度依存性の測定値と多結晶

図4 純アルミニウム試験片の横弾性係数の温度依存性

図5 純アルミニウム試験片のポアソン比の温度依存性

図6 純アルミニウム試験片の縦弾性係数の温度依存性

体における本共振法によるものとの間に基本的な差異はないものと思われる, また, Köster の測定⁽⁴⁾は多結晶体の動的測定法により得られたものであるが, 縦弾性係数 E について加熱時と冷却時の間にヒステリシスがあり, 本実験は冷却時の測定値に近くなっている. K_e ⁽⁵⁾は, 多結晶体では結晶粒界ですべりが発生し, せん断応力の緩和が起こるために 200°C 以上では横弾性係数 G が急激に低下すると報告している. しかし, 本実験では高温域での G の急激な低下は観測されなかった. この原因は K_e による実験のねじり振動数が 0.8 kHz と非常に低いのに比べて, 本共振法は数百 kHz と高振動数であるため粒界すべりが発生しなかったことにあると思われる.

3.3 熱膨張による補正 一般に温度を変化させた測定では試験片の熱膨張のために, その寸法, 密度が変化するはずであるが, 上述した弾性定数の値は全領域にわたり室温での寸法, 密度を用いて計算処理を行った. そこで, 熱膨張による本測定値の誤差を確かめるために純アルミニウムについて線膨張係数 ($23.2 \times 10^{-6}/\text{deg}$) を用いて補正し, 新たに G と ν を決定した. その結果を表 9 に示すが, それらの誤差は 1% 以下でありこの程度の温度領域, 線膨張係数ならば測定精度の範囲内であり補正を要しないことが確かめられた. 一方, 本実験では多数のモードの振動数を測定しているので, 逆に二つの弾性定数に加えて線膨張係数もパラメータとして計算処理に算入することも理論上可能であるが, 熱膨張による共振振動数への影響が小さいためにこれらの量の同時決定は困難であった.

3.4 Al-Si 10 at % 合金の弾性定数の温度依存性 図 7 に横弾性係数 G , ポアソン比 ν , 縦弾性係数 E の

表 9 熱膨張による弾性定数への影響
() 内は補正值を示す

	$\phi 6 \times 6 \text{ mm}$		$\phi 6 \times 30 \text{ mm}$	
Temp. (°C)	300		250	
G (GPa)	21.92	(21.80)	22.40	(22.23)
ν	0.3480	(0.3479)	0.3566	(0.3574)
E (GPa)	59.10	(58.77)	60.78	(60.35)
S.D. (%)	0.35	(0.32)	0.36	(0.19)

表 10 Al-Si 10 at % における単結晶体からの換算値と本測定値との比較

Temp. (°C)	Shear modulus			Young's modulus		
	Voigt (GPa)	Reuss (GPa)	Exp. (GPa)	Voigt (GPa)	Reuss (GPa)	Exp. (GPa)
-180	33.36	30.43	30.69	87.96	81.84	81.72
25	31.38	28.20	28.62	82.18	75.34	76.49

温度依存性を示す. Al-Si 系合金の弾性定数の温度依存性の測定例はこれまでに見られず, 直接他のデータと比較することはできない. そのため 2 相分離状態を応力一様またはひずみ一様を仮定し, 前述の Voigt および Reuss の条件を用いて Al および Si の単結晶体の超音波法による測定値⁽⁶⁾からそれぞれ多結晶体へ換算を行い, 成分の容積比により Al-Si 10 at % 多結晶体の弾性定数を算出した. その結果を表 10 に示す. なお -180°C での換算値は直線近似による内挿値である. この結果から判断できるように, 本測定値は全温度範囲にわたってほぼ Voigt および Reuss の条件による換算値の中間であり, 合金系においても弾性定数の温度依存性の決定に本測定法が十分適用できるものと思われる.

4. 結 論

アルミニウム多結晶体および Al-Si 10 at % 合金を試験片として円柱体共振法を用いて, 低温域約 -190°C から高温域約 300°C の温度領域で弾性定数の測定を行い次のような知見が得られた.

(1) 純アルミニウム試験片について本実験で得られた縦弾性係数 E および横弾性係数 G は全温度領域にわたり既存の単結晶による超音波速度の測定から得られた結果を多結晶体に換算した値とほぼ一致した.

図 7 Al-Si 10 at % 試験片の弾性定数の温度依存性

一方、ポアソン比 ν の測定はかなりばらつきが大きく、値そのものも若干低い、その温度依存性は単結晶による測定とほぼ一致している。

(2) 熱膨張係数による補正量は小さく、本実験の範囲内ではその補正は不要であった。また、逆にこの実験から熱膨張係数を決定することも不可能であった。

(3) Al-Si 10 at.%試験片を用いて合金系へ本測定法を適用した。その結果、それぞれの単結晶から体積成分率により多結晶合金に換算した範囲内であり合金系の測定にも十分応用できる。

最後に、試験片および装置等の作製にご協力していただいた名古屋大学工学部 正中康博技官に謝意を表

する。また、数値計算は名古屋大学大型計算機センター FACOM M-382 によったことを記し感謝する。

文 献

- (1) 妹尾・ほか2名, 機論, 50-451, A (昭59), 440.
- (2) Kamm, G. M. and Alers, G. A., *J. Appl. Phys.*, 35-2 (1964), 327.
- (3) Gerlich, D. and Fisher, E. S., *J. Chem. Solids*, 30-5 (1969), 1197.
- (4) Köster, W., *Z. Metallkd.*, 32-8 (1940), 282.
- (5) Ke, T. S., *Phys. Rev.*, 71-8 (1974), 533.
- (6) Simmons, G. and Wang, H., *Single Crystal Elastic Constants and Calculated Aggregate properties*, (1971), 5, M. I. T. Press.