

イメージングプレートを用いた Ni₃Al の X線応力測定[†]

佐々木 敏彦* 後藤 時政**
田畑 裕之** 広瀬 幸雄*

X-Ray Stress Measurement on Ni₃Al Specimens by Using Imaging Plate

by

Toshihiko SASAKI*, Tokimasa GOTO**, Hiroyuki TABATA**
and Yukio HIROSE*

The X-ray stress analysis was examined for an arc-melted Ni₃Al intermetallic compound, which consists of coarse grains and exhibits strongly preferred orientation. The imaging plate was used as an X-ray detector, and continuous Debye-Scherrer rings were obtained from such coarse grained material by applying an X-Y plane oscillation method. Mechanical bending stress was applied to the specimen for measuring the X-ray elastic constants and stress constant. An ideal orientation method was adopted to obtain these parameters. It uses the diffraction lines which belong to the same zone axis. These experimental elastic constants were compared with the theoretical values calculated from the elastic compliance of Ni₃Al single crystal.

The results obtained are summarized as follows;

(1) The X-ray elastic constants measured from Ni₃Al 220 diffractions which appeared at $\psi = 0.537^\circ$ and 60.537° , were $E_X/(1 + \nu_X) = 176\text{GPa}$, $E_X = 220\text{GPa}$ and $\nu_X = 0.253$.

(2) The theoretical Young's modulus E_0 at $\psi = 0^\circ$ was calculated as 207GPa from the elastic compliance of Ni₃Al single crystal. This value means the elastic constant in the direction of the tensile axis for the grains which contribute to the diffraction. Young's modulus E_{60} at $\psi = 60^\circ$ was similarly obtained as 228GPa. The experimental value of X-ray elastic constant E_X (220GPa) was intermediate between the theoretical values.

Key words: X-ray stress measurement, Ni₃Al intermetallic compound, Preferred orientation, Coarse grain, Imaging plate, X-Y plane oscillation method, X-ray elastic constants

1 緒 言

Ni₃Al 金属間化合物は、その強度が温度に比例して増加する、いわゆる逆温度依存性を有している。このため、高温構造用材料としての応用が期待されている材料である。しかし、延性およびじん性が十分とは言えないため、まだ実用化には至っていない。とくに、室温ぜい性は緊急の問題であり、合金元素添加法や一方向凝固法¹⁾などの対策が試みられている。このうち、一方向凝固法は、凝固組織の制御によって室温ぜい性を改善する方法であり、合金元素添加法のように他の特性に悪影響を及ぼすことがなく、有望な方法である。

本研究は、このような一方向凝固法による Ni₃Al 金属間化合物に対し、X線応力測定法²⁾を適用するための基礎的検討を行ったものである。本材料の場合、凝固方向への著しい配向組織を有すると同時に、粗大柱状晶が形成される性質も合わせ持っている。このため、本材料の X線測定においては、粗大結晶による回折環の著しい斑点状化、および、配向により従来の X線応力測定理論の適用限界が問題となる。したがって、X線応力測定にお

いては、斑点状回折環から回折ピーク位置を精度良く測定する工夫、および、力学的異方性を考慮した応力解析が、それぞれ必要である。このため、本材料への X線法の使用は極めて困難である。しかし、X線応力測定法は、残留応力測定や材料強度評価に有効であるので、上述の点を克服し、本材料への適用を可能としていくことは重要であると思われる。

そこで本研究では、まず粗大結晶粒対策として、イメージングプレート (IP)^{3)~13)}を用いた試料平面揺動法¹⁴⁾を適用した。その結果、本材料から比較的均一な回折環が得られるようになり、回折角および X線的ひずみの測定精度が確保できることが判明した。次に、得られた回折データに対して、配向を考慮した応力解析法^{15)~19)}を適用した。その結果、本材料の X線の弾性定数および応力定数を求めることに成功した。最後に、実験的に得られた X線の弾性定数について、Ni₃Al 単結晶の弾性コンプライアンスより計算した理論値と比較検討した。その結果、本測定法による実験値の妥当性がほぼ確認できたので以下に報告する。

† 原稿受理 平成8年10月14日 Received Oct. 14, 1996

* 正会員 金沢大学大学院自然科学研究科 〒920-11 金沢市角間町, Dept. of Mat. Sci. & Eng., Kanazawa Univ., Kakuma-machi, Kanazawa, 920-11

** 学生会員 金沢大学大学院 〒920-11 金沢市角間町, Graduate Student, Kanazawa Univ., Kakuma-machi, Kanazawa, 920-11

2 実験方法

2.1 試料および試験片

バルク状の Ni および Al 純金属原料 (純度はいずれも 99.99mass%) より, アルゴン雰囲気下のアーク溶解法により Ni₃Al (75mass%, 86.72wt%) の棒状インゴットを溶製した. インゴットは, 合金組成の均一化を図るために数回の再溶解を繰り返した. その後, 1273K で 129.6ksec アルゴンガス雰囲気中で均質化焼なましを行い, 炉冷した. また X 線応力測定用試験片として, w8mm × t4mm × l 60mm の短冊型形状に加工して使用した. 試験片の加工は, ワイヤ放電加工機にて行った. このとき, 試験片とインゴットの長手方向が一致し, かつ X 線応力測定面が凝固底面と平行になるようにした. このようにして, (110) 面の法線が試料面法線と一致する繊維配向を有する試験片が得られた. なお試験片表面には, エメリーペーパーにて粗いものから細かいものへ順次研磨を施し, 最終的にバフ研磨により仕上げた.

2.2 Ni₃Al の X 線応力測定

2.2.1 X 線測定条件 Fig. 1 に, 本 X 線応力測定の原理図および試料座標系を示す. X 線測定では, 試料平面揺動法を適用し, また検出器として IP を使用した. この場合, パルスカウンターによるポイント測定と比較して, 均一な 2 次元回折像が効率良く得られた. さらに IP の使用により, ソフトウェア的平均化¹⁴⁾が可能となり, 回折環が不完全な場合でも, 回折ピーク位置の決定精度を改善することができた. また, カメラ長の調節により, $2\theta > 165^\circ$ の超高角回折角の利用も可能になり, 本研究では, 後述するように $2\theta =$ 約 167° のピークを使用することができた.

X 線装置には, 市販の X 線応力測定装置のゴニオメータ部分を一部改良したものを使用した. IP を格納する IP カセット治具を本装置に固定して, 回折環を 5in × 5in の IP 上へ撮影した. IP の読取りは, ドラム回転式の装置を用いて行った. 本研究では, 100 μ m ごとに回折 X 線強度分布を読取り, 回折像全体を 1024 画素 × 1140 画素で表した. 画像データの読取り, 回折環のピーク位置 (回折角 2θ) の決定および回折強度の計算は, ワークステーションを使用し, UNIX 上の C++ 言語にて処理した.

詳細な X 線測定条件を Table I に示した. 特性 X 線 VK α にて 220 回折を行い, $2\theta =$ 約 167° の高角な回折角を使用した. 管電圧, 管電流はそれぞれ 30kV, 10mA, ピンホール径は 2mm, カメラ長は 125mm とした. なお, カメラ長は特殊な治具を使用し, 正確に調整した.

試験片への応力負荷には, 4 点曲げ治具を使用し, 測定面に単軸引張応力を与えた. このとき, 試験片表面 (X 線照射点と反対の面) に貼付したひずみゲージにより, 負荷ひずみ量 ϵ_{app} を測定した. なお, 負荷応力値 σ_{app} は, ひずみの値に引張試験より求めた機械的弾性

定数 E_M (210GPa) を掛けて求めた. ϵ_{app} は 0, 100, 200, 300, 400 ($\times 10^{-6}$) の 5 段階を設定し, 測定値は 5 回測定の平均値とした.

2.2.2 試料平面揺動法¹⁴⁾ 試料平面揺動法とは, IP が 2 次元のかつ積分型の検出器であることを利用し, 試験片を X Y 平面に対して平行移動させることにより, 回折に寄与する結晶粒数を増やす方法である. 本研究では, 試験片を負荷ジグにセットした状態で, X Y ステージに乗せて揺動操作を行った. X Y ステージは当研究室で自作したもので, X, Y 方向に各々ステッピングモータ移動が可能なるものである. 各ステッピングモータは, パーソナルコンピュータにて制御可能で, 移動量および移動方向を自由に設定できた. 本測定では, X 線照射点が試験片の表面上を Fig. 1 の矢印に沿って動くように制御した. また, 試験片をビニールテープでマスキングすることにより, X 線が 4 点曲げ治具の内スパン内の結晶粒のみによって回折されるようにした. X 線照射領域は

Table I. Conditions of X-ray stress measurement.

Equipment	MSF/2M(Rigaku)
Tube voltage	30 (kV)
Tube current	10 (mA)
Exposure time	600 (sec)
Camera length	125 (mm)
Collimator	$\phi 2$ (mm)
Diffraction line	Ni ₃ Al 220
Characteristic X-ray	VK α
Filter	Ti
Diffraction angle, 2θ	166.927(deg)
$\eta = (180 - 2\theta) / 2$	6.537 (deg)
ψ_0 low	-7, -6, -5 (deg)
high	53, 54, 55 (deg)

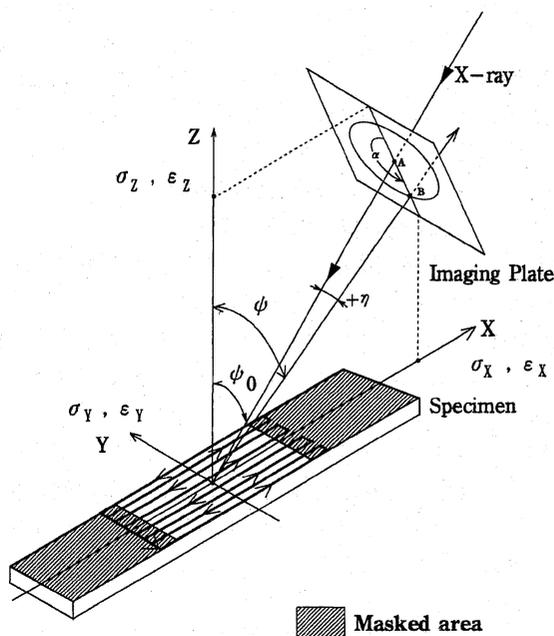


Fig. 1. Schematic illustration of plane oscillation and coordinate system for X-ray stress measurement.

8mm×22mmとした。

2・2・3 配向を考慮した応力解析法¹⁵⁾⁻¹⁹⁾ X線の弾性定数および応力定数は, 得られた回折環の + η 方向 (Fig. 1 参照) のプロファイルを使用して求めた。なお, $\sin^2\psi$ 法は測定材料に対して, 結晶粒のランダムな分布を仮定しているため, 著しく配向している材料に対しては適用できない。吉岡ら¹⁵⁾は, 圧延集合組織を持つ鋼材に, Reuss の応力一定モデルを用い, 単結晶の弾性異方性と理想方位を考慮して応力を求める解析法を適用した。そこで本研究においても, Ni₃Al に対して同一晶帯上に存在する格子面を探して上記の方法を適用した。なお, 本法では, X線の弾性定数 $E_X/(1+\nu_X)$, E_X および ν_X は, $\sin^2\psi$ 法と同様に, 2θ - $\sin^2\psi$ 線図の傾き M および切片 $2\theta_{\psi=0}$ の σ_{app} に対する変化量を次式に代入することにより決定される。

$$\frac{1+\nu_X}{E_X} = -\frac{1}{2} \cdot \left(\frac{\partial M}{\partial \sigma_{app}} \right) \cdot \frac{\pi}{180} \cot \theta_0 \quad (1)$$

$$\frac{\nu_X}{E_X} = \frac{1}{2} \cdot \left(\frac{\partial(2\theta_{\psi=0})}{\partial \sigma_{app}} \right) \cdot \frac{\pi}{180} \cot \theta_0 \quad (2)$$

ただし, M は $\sin^2\psi$ 線図中の 2 点 (ψ_1 および ψ_2) を結ぶ直線より, 次式を用いて求めた。

$$M = \frac{2\theta_{\psi_2} - 2\theta_{\psi_1}}{\sin^2\psi_2 - \sin^2\psi_1} \quad (3)$$

また, 次式より応力定数 K を求めた。

$$K = -\frac{E_X}{2(1+\nu_X)} \cdot \frac{\pi}{180} \cot \theta_0 \quad (4)$$

なお, 本研究においては, それぞれ $\psi_1 = 0.537^\circ$ および $\psi_2 = 60.537^\circ$ である。

2・3 機械的弾性定数の測定

Ni₃Al の機械的弾性定数は, 引張試験により実験的に求めた。実験は, クロスヘッド速度 0.5mm/min で行い, ひずみ量はひずみゲージにより検出した。また, 引張試験片は, X線応力測定用の試験片と同一の凝固箇所から, 互いに引張軸が同じになるように採取した。試験片の形状は, JIS14 号 B に準じ, ゲージ部が w5mm × t2.5mm × l 20mm となるように製作した。なお, 表面を電解研磨処理した後, 実験に用いた。

3 実験結果および考察

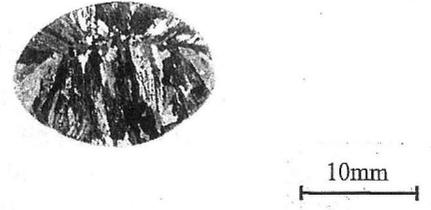
3・1 Ni₃Al 鑄造材の組織的特徴

3・1・1 結晶組織 Fig. 2 に, アーク溶解法にて溶製した Ni₃Al 棒状インゴットの長手方向, および, 横手方向の断面組織写真を示す。何れも, 写真の下方が凝固底面である。本組織は, 凝固方向に成長した直径 300 μm から 1000 μm 程度の粗大柱状晶であり, インゴット内部には表面より成長した結晶粒同士の境界が見られた。そのため, X線応力測定用試験片は, この境界を避けて, インゴット中央部から採取した。このとき, 柱状晶の成長方向が測定面に対して垂直となるように切り出した。

3・1・2 配向状態 試験片測定面上の, Ni₃Al 220 回折に関する極点図を Fig. 3 に示す。測定は, 理学電機



(a) Longitudinal direction.



(b) Transverse direction.

Fig. 2. Macrophotographs of Ni₃Al ingot.

社製の X線回折装置 RAD-2R に極点図測定アタッチメントを取り付け, CuK α 線による Schulz 反射法²⁰⁾にて行った。極点図の右側には, 等高線の強度を付記した。その結果, 220 回折線は, 極点図の中央 (図中円 (a) 内) に島状に集中していることが分かった。したがって, 本試験片の結晶粒は (110) 面の法線が試料面法線と一致し, かつ, 試料面内で回転の自由度を持っていることが分かる。また, Ni₃Al の結晶構造は立方晶であり, {110} 面は互いに 60° もしくは 90° 離れた方位関係にある。しかし, Fig. 3 の場合, 60° 離れた 220 回折線は数個 (図中 (b)) 見られただけであった。繊維配向を有する Al 薄膜などの極点図²¹⁾では, 回折強度分布は回転対称となるが, 本試料のような粗大結晶粒材では, X線照射領域内の結晶粒数が十分でないため, このような結果になったものと考えられる。

Fig. 4 は, 試験片の ψ 方向に関する, 220 回折線の強度分布を示している。測定は, ゴニオメータを使用し, シンチレーションカウンターにて行ったものである。また, 特性 X線には CrK α , スリットには 4mm × 4mm のものを使用した。その結果, このような測定方法では, $\psi = 60^\circ$ 付近に現れるはずの回折線が得られていないことが分かる。この原因は, Fig. 3 の極点図でも述べたように, 本材料が粗大結晶粒材のためであると考えられる。同様な傾向は, 今回作製した他の試験片について共通して認められた。

Fig. 5 には, Fig. 4 の $\psi = -10^\circ$ および 5° での回折プロファイルを示すが, SN 比は ψ により著しく相違し, 低強度のプロファイルでは半価幅中点法によるピーク位置決定は困難であった。

3・2 試料平面揺動法による回折環の測定結果

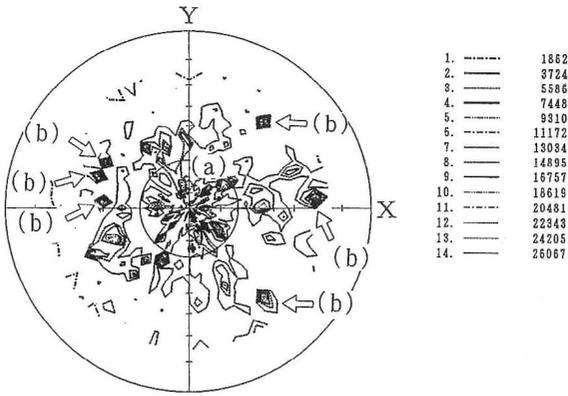


Fig. 3. Pole figure for 220 diffraction.

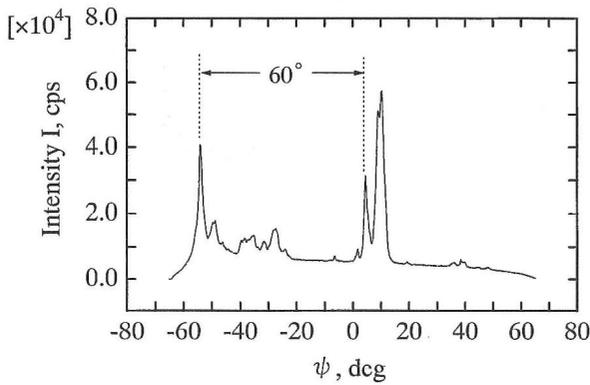


Fig. 4. Intensity distribution of 220 diffraction in the direction of ψ .

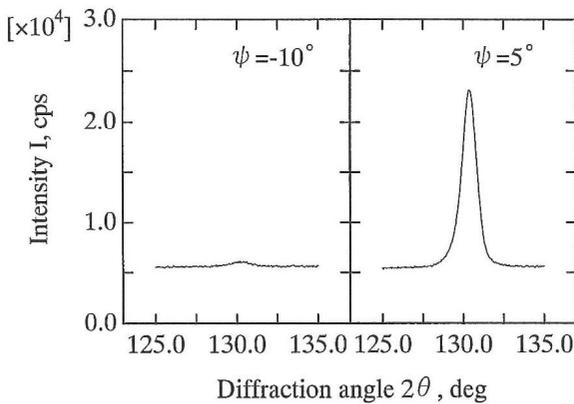


Fig. 5. X-ray diffraction profiles of $\psi = -10^\circ$ and $\psi = 5^\circ$ on Fig. 4.

X線入射角 ψ_0 が 0° の場合について、試料平面揺動を行わない場合および行った場合の回折環をそれぞれ Fig. 6 (a), (b) に示す。また、同図 (c), (d) には、各々の回折環の $+\eta$ 方向のプロファイルを示す。本測定では、 η は 6.5 度と狭いことから、垂直入射の場合、極点図の中央にみられた 220 回折線が環上に現れるはずである。しかしながら、同回折線は、揺動をしない場合の回折環では明瞭に観察できなかつた。また、粗大結晶粒の影響により著しく斑点状を呈し、均一回折環は得られなかつた。これに対して、揺動を行った回折環では、全体に回

折が現れるようになり、プロファイルの SN 比も良好となった。このことより、試料平面揺動法は、配向を有する粗大結晶試料に対する測定においても有効であることが判明した。なお、揺動後の回折環の全周における平均的な半価幅値は 2.54° であつた。

Fig. 7 には、試料平面揺動を行い、X線入射角 ψ_0 を順次変化させて撮影した回折環の様子を示す。図より、環の回折強度は、 ψ 方向の 220 回折強度分布 (Fig. 4) にしたがって変化していることが分かる。また、それぞれの環の $+\eta$ 方向の回折強度を調べたところ、 $\psi_0 = -6^\circ$ および 54° ($\psi = 0.537^\circ$ および 60.537°) で強いことが分かつた。これらは互いに 60° 離れていることから、同一晶帯に属する回折面からの回折線と見なすことができた。そこで、それらの近隣の ψ にて、プロファイルの回折ピーク位置 2θ 値および回折強度 I を測定したところ、 ψ に対して Fig. 8 のようになった。図より、 2θ 値は、最大回折強度が得られる ψ 角の前後で、右上がりの直線的分布を示していることが分かる。これは ψ_0 一定法の光学系に起因するものであることが既に明らかにされている。¹⁵⁾

次に、Fig. 8 に破線で示すように、最大強度位置に対応する 2θ 値を求め、このようにして求めた 2 点を直線で結んだ。同様の操作を 100, 200, 300, 400 ($\times 10^{-6}$) のひずみを負荷した場合においても行った。このようにして得られた $2\theta - \sin^2 \psi$ 線図を Fig. 9 に示した。各直線は $\sin^2 \psi = 0.25$ 付近で交わり、通常の等方多結晶材の場合と同様の挙動を示していることが分かる。また Fig. 10 には、 $2\theta - \sin^2 \psi$ 線図の直線の傾きおよび切片について、負荷応力 σ_{app} に対する変化量を示した。その結果、いずれの場合にも良好な直線関係が得られていることが分かる。以上より、IP を使用し、同一晶帯上の強いピークを用いることによって、精度の高い測定が可能となることが判明した。

3・3 X 線の弾性定数^{21), 22)}

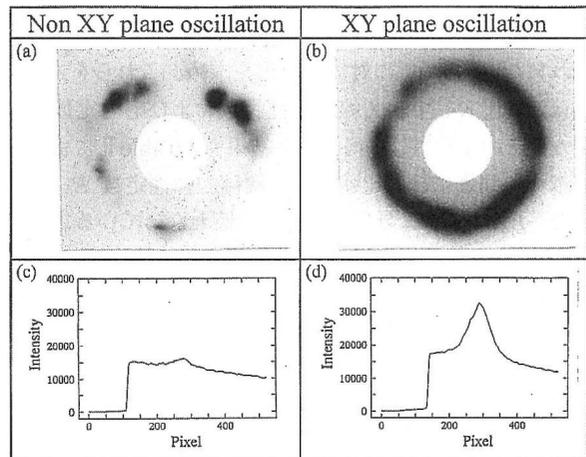
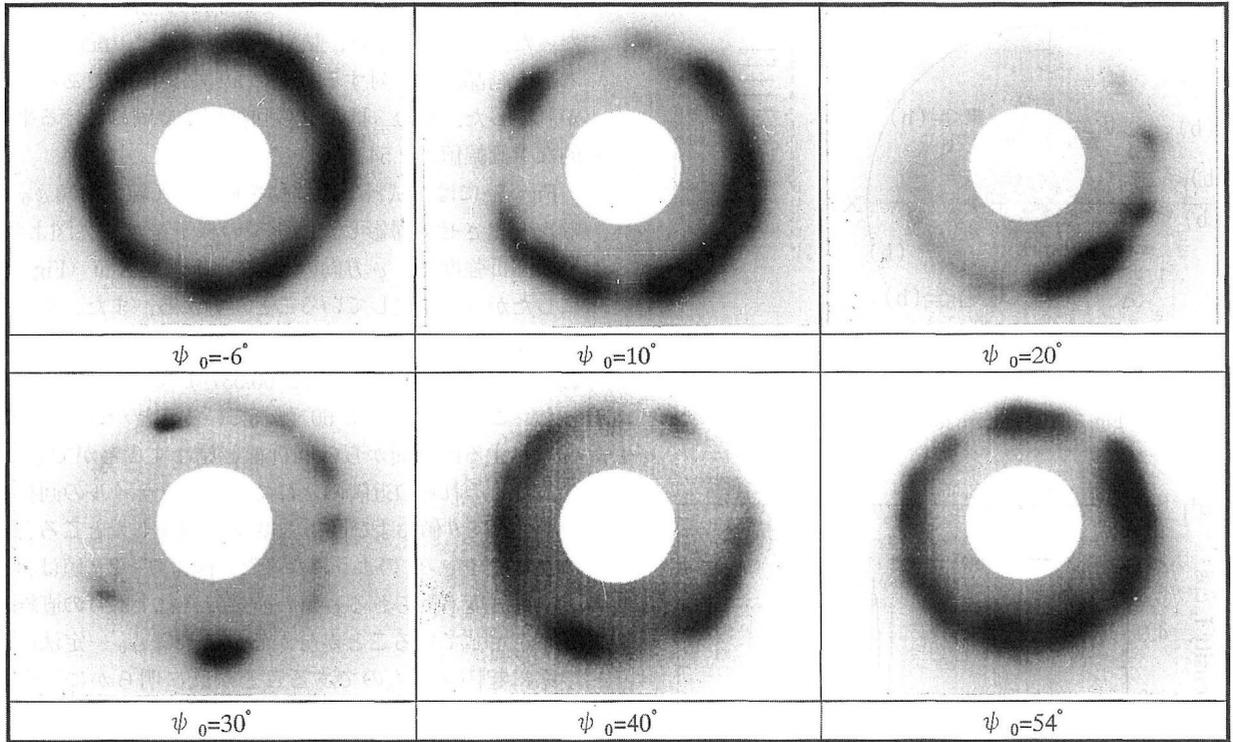
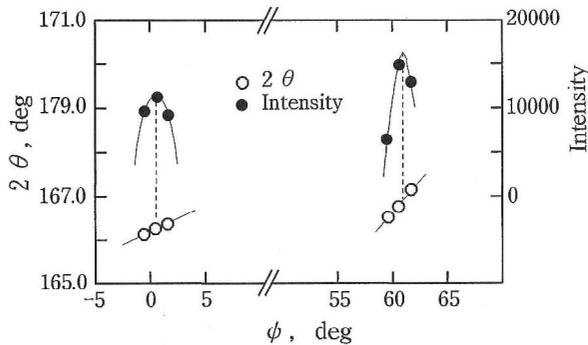


Fig. 6. Effects of plane oscillation on Debye-Scherrer rings and diffraction profiles in the direction of $+\eta$. (left) non-oscillation, (right) oscillation.

Fig. 7. Debye-Scherrer rings obtained with IP for each ψ_0 angle.Fig. 8. Changes in diffraction angle 2θ and diffraction intensity of notable 220 diffraction lines which belong to one zone axis observed at 0.537° and 60.537° in ψ .

2θ - $\sin^2\psi$ 線図の直線の傾きおよび切片について、それぞれ負荷応力 σ_{app} に対する変化を求め、これらを式 (1)~(4) に代入して、X線の弾性定数および応力定数を求めた。このようにして得られた結果を、Table II にまとめて示す。同表には、比較のため機械的弾性定数 E_M を示した。 E_X は E_M より少し大きめの値となっていることが分かる。そこで、これらの実験によって得た弾性定数の妥当性を調べるために、本材料の弾性定数を、 Ni_3Al 単結晶の弾性コンプライアンス²³⁾ を使って理論的に計算してみた。

なお、理論計算では、Fig. 11 に示すように、試料内すべての結晶粒の $[110]$ 方向が P_3 軸方向 ($\psi = 0^\circ$ 方向) と一致すると仮定する。前節の $\psi = 60^\circ$ 方向の X 線測定において、回折に寄与すると考えられる結晶粒は、結晶方位関係より $[101]$, $[10\bar{1}]$, $[011]$, $[01\bar{1}]$ 方向が $\psi =$

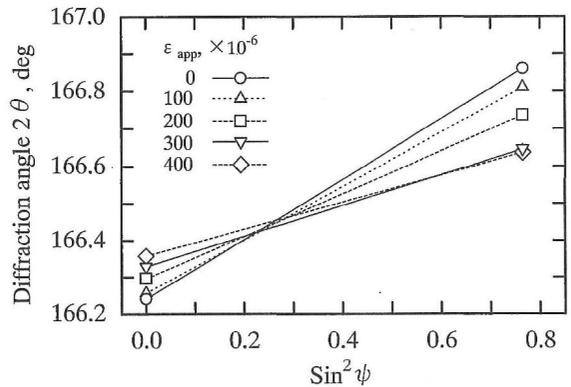
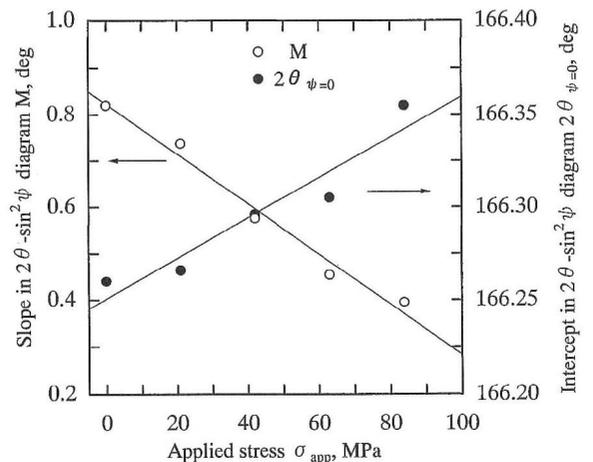
Fig. 9. Change in 2θ - $\sin^2\psi$ diagram due to mechanical stress.Fig. 10. Slopes in 2θ - $\sin^2\psi$ diagram (M) and intercept ($2\theta_{\psi=0}$) as a function of applied stress.

Table II. X-ray elastic constants, stress constant and mechanical Young's modulus obtained in the present study.

X-ray compliance		X-ray elastic constant			Stress constant K MPa/deg	Mechanical Young's modulus E _M GPa
(1+ν _x)/E _x 10 ⁻³ /GPa	ν _x /E _x 10 ⁻⁴ /GPa	E _x /(1+ν _x) GPa	E _x GPa	ν _x		
5.69	1.15	176	220	0.253	-185	210

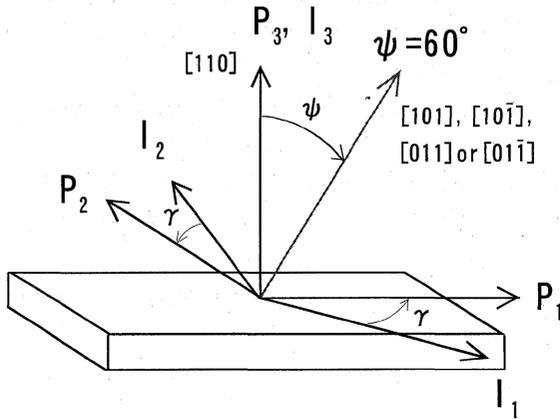


Fig. 11. Relation among <110>, specimen system P₁ and intermediate system I₁.

Table III. Elastic compliance of Ni₃Al single crystal.²³⁾

Compliance	S ₁₁	S ₄₄	S ₁₂
(TPa) ⁻¹	8.04	7.58	-3.07

60°方向と一致するものに限られる。これらの結晶粒において、P₁軸方向の平均的弾性定数 E₆₀は、単結晶の弾性コンプライアンスを用いて式(5)で与えられる。²²⁾また、S₀は式(6)で与えられる。

$$\frac{1}{E_{60}} = S_0 \left(\cos^4 \gamma + \frac{1}{2} \sin^4 \gamma \right) + S_{12} + \frac{1}{2} S_{44} \quad (5)$$

$$S_0 = S_{11} - S_{12} - \frac{1}{2} S_{44} \quad (6)$$

ただし式中のγは、結晶座標系(C系)→中間座標系(I系)→試料座標系(P系)の座標変換過程において、中間座標系を試料座標系に変換する際に使われるP₃軸回りの回転角であり、[110]配向のとき、測定する回折面hklにより次式で与えられる。

$$\gamma = \arctan \left(\frac{k-h}{\sqrt{2} \cdot l} \right) \quad (7)$$

なお、測定する回折面が(101), (101̄), (011), (011̄)の場合、γは各々-144.74°, -35.26°, 144.74°, 35.26°となる。次にψ=0°方向の測定では、全ての結晶粒が回折に寄与するものと考えられる。したがって、この場合のP₁軸方向の平均的な弾性定数E₀は、式(5)をP₃軸回りに回転平均することにより式(8)で与えられる。

$$\frac{1}{E_0} = \frac{9}{16} S_0 + S_{12} + \frac{1}{2} S_{44} \quad (8)$$

そこで、Table IIIに示したNi₃Al単結晶の弾性コンプライアンスを用いて、これらの弾性定数を計算してみたところ、E₆₀, E₀はそれぞれ228, 207GPaとなった。両者が一致しない原因は、[110]配向材料のE₀が、全結晶粒の平均値に対応しているのに対して、E₆₀は前述の方位関係を持つ結晶粒のみの平均値であることによる。また、同様の理由により、機械的弾性定数E_MとE₀がほぼ同一の値となったものと考えられる。2θ-sin²ψ線図において、2点を結ぶ直線から求めたX線の弾性定数E_xは、これらの弾性定数の中間的な値を示すと同時に、詳細に見るとE₀よりもE₆₀により近い値となった。以上のように、本実験結果は、文献22)による理論値とよく対応しており、概ね妥当なものと考えられる。

なお、理論計算では完全理想配向およびReussモデルを仮定しており、材料の状態によっては実験と対応しなくなることも予想される。この点については、今後さらに検討する必要があると思われる。

4 結 言

凝固方向に著しい配向を有し、しかも粗大な柱状晶からなるNi₃Alアーク溶解材のX線応力測定を行い、以下の結果を得た。

(1) 回折環のX線測定用として、イメージングプレートを使用した試料平面揺動法を適用し、また応力解析法として、同一晶帯上に存在する回折面からの回折線を用いた解析を行った結果、X線の弾性定数E_x/(1+ν_x)=176GPa, E_x=220GPa, ν_x=0.253, および応力定数K=-185MPa/degを得ることができた。

(2) 同一晶帯上に属する{110}面からの回折線が現れるψ=0°および60°の結晶粒に対して、引張軸方向の弾性定数を単結晶の弾性コンプライアンスより理論的に求めたところ、各々207GPa, 228GPaとなった。本研究により実験的に得たX線の弾性定数E_xは、これらの中間的な値を示すことが判明した。この結果は、本法の有効性を支持するものであると考えられる。

参 考 文 献

- 1) 平野敏行, 金属, **62**, No.868, 82 (1992).
- 2) 日本材料学会編, "X線応力測定法" (1982) 養賢堂.
- 3) J. Miyahara, K. Takahashi, Y. Amemiya, N. Kamiya and Y. Satow, Nucl. Instr. and Meth. A, **246**, 572 (1986).

