

透過回折 X 線を利用した極薄板の応力測定法[†]

柴野 純一* 小林 道明* 三浦 節男*
平田 智之** 西川 真弘***

New Stress Measurement Method of Thin Plate Using Transmission Diffracted X-Rays

by

Jun-ichi SHIBANO*, Michiaki KOBAYASHI*, Setsuo MIURA*,
Tomoyuki HIRATA** and Masahiro NISHIKAWA***

Residual stresses which occur in a thin plate and a film of both MEMS and an electric device have become a direct cause of a deformation and a destruction of them. To evaluate the residual stress is therefore very important for improving their mechanical reliability. A strain gauge is often incapable of using to measure the strain of the thin plate and the film, while X-ray diffraction method is effective in the nondestructive measurement of residual stress of them. If a diffracted X-ray transmitted through the thin plate is available, spacing of the lattice plane orthogonal to the direction along the surface could be measured directly. It suggests potentiality for the strain measurement of thin plate with high precision and efficiency. This paper presents a new measurement method of the stress in a polycrystalline thin plate by using transmission diffracted X-rays. This method is able to determine the principal stress and its direction in the thin plate from the measurement of the lattice spacing with random three directions within thin plate and the vertical direction of thin plate surface. The method was verified using a pure aluminum thin plate of 50 μ m thickness which was loaded with tension using compact tensile loading equipment. The X-ray elastic modulus of Al (311) lattice plane which was measured at the start of the experiment was derived as Young's modulus of 61.7GPa and Poisson's ratio of 0.33. As a result, principal stress and its direction in the aluminum thin plate could be evaluated with errors of less than about 9MPa and 3 degree, respectively. It was confirmed that this method is effective for the stress measurement of thin plate.

Key words : Thin plate, Transmission diffracted X-rays, Strain measurement, Principal stress, Nondestructive evaluation

1 緒 言

IT 関連デバイスや MEMS のように微細化、薄膜化した製品が急速に増えている。しかし、例えば MEMS にみられる極薄板には残留応力が存在することが多く、形状精度の低下や破壊の原因の一つになっている。そのため、これらの微細構造体の機械的信頼性を向上させるためにも残留応力評価が重要となっている。微細構造にはひずみゲージなどが使えないことが多く、残留応力測定には非破壊評価が可能な X 線法が有効となる。一方、測定対象の微細化・薄板化により、これまで中性子^{1)~4)}や高エネルギー X 線^{5)~8)}でしか利用できなかった透過ビームが、市販の X 線装置でも利用できる可能性が高くなった。透過回折 X 線を用いると、薄板表面に直交する格子面間隔が直接測定できる。このことは、面内ひずみをより効率的に測定できる可能性を示す。

本報告では、透過回折 X 線の利点を生かした X 線応力測定法に関する研究として、主応力値とその方向が未知の等方均質弾性体多結晶極薄板内の応力を測定する新た

な方法を提案する。実際に既知の応力を有するアルミニウムの極薄板を測定し本法の有効性を検討する。

2 測定理論

平板の面内残留応力測定法の一つにひずみゲージを用いた方法がある。主応力が未知の場合でも 3 方向のひずみを測定すれば主応力の大きさとその方向を求めることができる。⁹⁾ひずみゲージ法は破壊的測定法であるため非破壊で測定したい場合には X 線回折法が有効である。しかし、X 線回折法で直接得られる物理量はひずみではなく特定の結晶格子の面間隔である。そのため、上記ひずみゲージ法を X 線で行う場合、格子面間隔から主応力の大きさとその方向を求めるための新たな測定方法を構築しなければならない。

Fig. 1 に示すように等方均質弾性体を仮定した薄板内に平面応力場の主応力分布が存在し、その値と方向が未知の場合を考える。試料表面に X-Y 測定座標系を取ると、X 軸から ψ 傾いた方向のひずみは主ひずみとそれとなす角 ϕ を用いて次式で表される。

[†] 原稿受理 平成 18 年 9 月 6 日 Received Sep. 6, 2006 ©2007 The Society of Materials Science, Japan

* 正会員 北見工業大学工学部 〒090-8507 北見市公園町, Dept. of Mech. Eng., Kitami Inst. of Tech., Kouen-cho, Kitami, 090-8507

** 北見工業大学大学院 〒090-8507 北見市公園町, Graduate Student, Kitami Inst. of Tech., Kouen-cho, Kitami, 090-8507

*** 西菱エンジニアリング(株) 〒652-0863 神戸市兵庫区和田宮通, Seiryō Eng. Co., Ltd., Hyōgo-ku, Kobe, 652-0863

$$\varepsilon_n = \varepsilon_1 \cos^2 \phi + \varepsilon_2 \sin^2 \phi \quad (1)$$

式 (1) から明らかなように主ひずみとその方向 ϕ を明らかにするためには, 3 方向のひずみを測定する必要がある. そこで, Fig. 1 に示すように 3 方向のひずみを ε_n , ε_k , ε_l とすると, それぞれ次式で表される.

$$\varepsilon_n = \frac{1}{2}P + \frac{1}{2}Q \cos 2\phi \quad (2)$$

$$\varepsilon_l = \frac{1}{2}P + \frac{1}{2}Q \cos(2\phi + 2\alpha) \quad (3)$$

$$\varepsilon_k = \frac{1}{2}P + \frac{1}{2}Q \cos(2\phi + 2\beta) \quad (4)$$

ここで

$$P = (\varepsilon_1 + \varepsilon_2), \quad Q = (\varepsilon_1 - \varepsilon_2) \quad (5)$$

式 (2) より

$$P = 2\varepsilon_n - Q \cos 2\phi \quad (6)$$

式 (6) を式 (3) に代入して Q について整理すると

$$Q = \frac{2(\varepsilon_n - \varepsilon_l)}{(1 - \cos 2\alpha) \cos 2\phi + \sin 2\alpha \sin 2\phi} \quad (7)$$

次に式 (2), (3) より

$$\varepsilon_n - \varepsilon_l = \frac{1}{2}Q \{(1 - \cos 2\alpha) \cos 2\phi + \sin 2\alpha \sin 2\phi\} \quad (8)$$

式 (2), (4) より

$$\varepsilon_n - \varepsilon_k = \frac{1}{2}Q \{(1 - \cos 2\beta) \cos 2\phi + \sin 2\beta \sin 2\phi\} \quad (9)$$

式 (8), (9) より

$$\frac{\varepsilon_n - \varepsilon_k}{\varepsilon_n - \varepsilon_l} = \frac{(1 - \cos 2\beta) + \sin 2\beta \tan 2\phi}{(1 - \cos 2\alpha) + \sin 2\alpha \tan 2\phi} \quad (10)$$

式 (10) を $\tan 2\phi$ について整理して

$$\tan 2\phi = \frac{(\varepsilon_n - \varepsilon_l)(1 - \cos 2\beta) - (\varepsilon_n - \varepsilon_k)(1 - \cos 2\alpha)}{(\varepsilon_n - \varepsilon_k) \sin 2\alpha - (\varepsilon_n - \varepsilon_l) \sin 2\beta} \quad (11)$$

本法では Fig. 2 に示すように試験片厚さ方向に透過した回折 X 線を利用する. この場合でも極薄板内で Bragg の条件にしたがって X 線は回折する. d_n , d_l , d_k を残留応力によりひずんだ結晶の格子面間隔, d_0 を無ひずみ状態の格子面間隔, θ_n , θ_l , θ_k をそれぞれの格子面間隔に対応した Bragg 角, θ_0 を無ひずみ時の Bragg 角とする

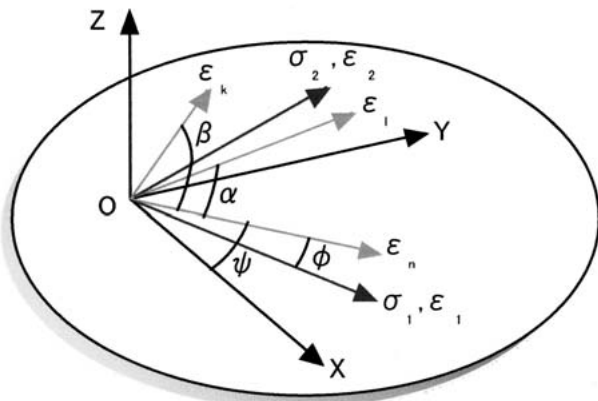


Fig. 1 Coordinate system of principal stress measurement by using transmission diffracted X-rays.

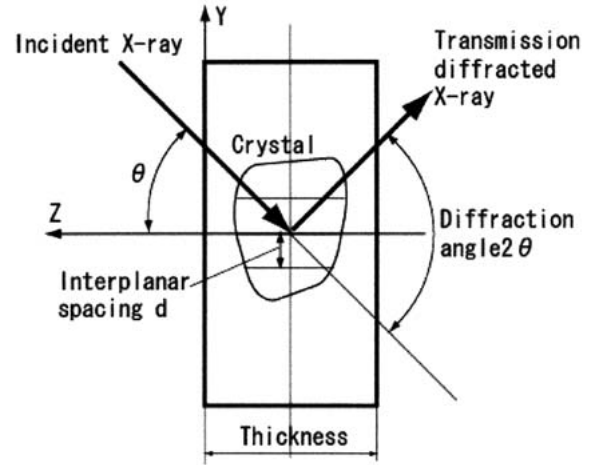


Fig. 2 Diffracted X-ray path through specimen.

と, これらには, 使用する特性 X 線の波長を λ として以下の関係がある.

$$\lambda = 2d_n \sin \theta_n \quad (12)$$

$$\lambda = 2d_l \sin \theta_l \quad (13)$$

$$\lambda = 2d_k \sin \theta_k \quad (14)$$

$$\lambda = 2d_0 \sin \theta_0 \quad (15)$$

したがって, 透過回折 X 線を用いると, 各方向のひずみは次式で得られる.

$$\varepsilon_n = \frac{d_n - d_0}{d_0} = \frac{\sin \theta_0 - \sin \theta_n}{\sin \theta_n} \quad (16)$$

$$\varepsilon_l = \frac{d_l - d_0}{d_0} = \frac{\sin \theta_0 - \sin \theta_l}{\sin \theta_l} \quad (17)$$

$$\varepsilon_k = \frac{d_k - d_0}{d_0} = \frac{\sin \theta_0 - \sin \theta_k}{\sin \theta_k} \quad (18)$$

式 (16)~(18) を式 (11) に代入して整理すると

$$\tan 2\phi = \frac{(d_n - d_l)(1 - \cos 2\beta) - (d_n - d_k)(1 - \cos 2\alpha)}{(d_n - d_k) \sin 2\alpha - (d_n - d_l) \sin 2\beta} \quad (19)$$

式 (19) より主応力の方向角 ϕ は 3 方向の格子面間隔測定値から決まる.

次に式 (7) に式 (16), (17) を考慮して,

$$Q = \frac{2}{(1 - \cos 2\alpha) \cos 2\phi + \sin 2\alpha \sin 2\phi} \frac{d_n - d_l}{d_0} \quad (20)$$

一般に式 (20) に含まれる d_0 を厳密に測定するのは難しい. そこで, X-Y 面に垂直な方向の格子面間隔を測定し, そのひずみ関係式から d_0 を消去することを考える. 平面応力状態における垂直方向のひずみを ε_v とすると次式で表せられる.

$$\begin{aligned} \varepsilon_v &= \frac{d_v - d_0}{d_0} = \frac{\sin \theta_0 - \sin \theta_v}{\sin \theta_v} \\ &= -\frac{\nu}{1 - \nu} (\varepsilon_1 + \varepsilon_2) = -\frac{\nu}{1 - \nu} P \end{aligned} \quad (21)$$

ここで, d_v は平面応力状態でひずんだ結晶の垂直方向の格子面間隔, θ_v は d_v に対応した Bragg 角, ν はポアソン比である. 式 (21) より

$$d_0 = \frac{1 - \nu}{1 - \nu - \nu P} d_v \quad (22)$$

式 (22) を式 (20) に代入して

$$Q = \frac{2}{(1 - \cos 2\alpha) \cos 2\phi + \sin 2\alpha \sin 2\phi} \frac{d_n - d_l}{d_v} \left(1 - \frac{\nu P}{1 - \nu}\right) \quad (23)$$

式 (6) に式 (16), (17), (22), (23) を代入して P について整理する.

$$P = \frac{(1 - \nu) \{2(d_n - d_v) - A(d_n - d_l) \cos 2\phi\}}{(1 - \nu) d_v + 2\nu d_n - A\nu(d_n - d_l) \cos 2\phi} \quad (24)$$

ここで

$$A = \frac{2}{(1 - \cos 2\alpha) \cos 2\phi + \sin 2\alpha \sin 2\phi} \quad (25)$$

式 (24), (25) を式 (23) に代入して

$$Q = \frac{A(1 + \nu)(d_n - d_l)}{(1 - \nu) d_v + 2\nu d_n - A\nu(d_n - d_l) \cos 2\phi} \quad (26)$$

式 (5) と式 (24), (25), (26) より主ひずみは次式で求めることができる.

$$\varepsilon_1 = \frac{1}{2}(P + Q) \quad (27)$$

$$\varepsilon_2 = \frac{1}{2}(P - Q) \quad (28)$$

主応力は式 (27), (28) より得られた主ひずみから次式で求められる.

$$\sigma_1 = \frac{E}{1 - \nu^2} (\varepsilon_1 + \nu \varepsilon_2) \quad (29)$$

$$\sigma_2 = \frac{E}{1 - \nu^2} (\varepsilon_2 + \nu \varepsilon_1) \quad (30)$$

主応力 σ_1 の X 軸からの方向角 ($\psi - \phi$) は式 (19) より次式で得られる.

$$\psi - \phi = \psi$$

$$-\frac{1}{2} \tan^{-1} \left\{ \frac{(d_n - d_l)(1 - \cos 2\beta) - (d_n - d_k)(1 - \cos 2\alpha)}{(d_n - d_k) \sin 2\alpha - (d_n - d_l) \sin 2\beta} \right\} \quad (31)$$

上式中の d_n , d_l , d_k は測定される回折角 $2\theta_n$, $2\theta_l$, $2\theta_k$ より式 (12) ~ (14) で算出すればよい.

3 実験

3.1 透過回折 X 線による応力測定の可能性の検討

現在一般に利用できる特性 X 線から代表的なものを Table 1 に示す. また, MEMS の極薄板や電子デバイス

の配線に用いられている主な材料の各特性 X 線に対する線吸収係数と代表的な格子面の回折角を Table 1 に示す. 線吸収係数は Victreen の実験式¹⁰⁾で算出した.

入射 X 線に対する透過回折 X 線の強度減衰率は Fig. 2 より式 (32) で算出できる.

$$\frac{I}{I_0} = \exp\left(-\mu \frac{t}{\cos \theta}\right) \quad (32)$$

ここで, I_0 は入射 X 線の強度, I は透過回折 X 線の強度, μ は線吸収係数, t は試料の厚さ, θ は Bragg 角である. Table 1 の値を基に式 (32) で計算される各材料の厚さと透過回折 X 線の強度減衰率の関係を Fig. 3 に示す. 図から銅を透過するときの回折 X 線の強度減衰が最も大きくアルミニウムが最も小さいことが確認できる. 透過回折 X 線の測定が可能な強度減衰率の基準は明らかではないが, 反射型の X 線回折測定における有効侵入深さの算出に用いられている強度減衰率 $1/e = 0.37$ を一つの基準と考えると, Mo-K α 以上の高エネルギーの X 線であれば, どの材料でも厚さ 20 μm 程度までは測定の可能性がある. アルミニウムであれば厚さが 20 μm 以下のとき Table 1 の全ての特性 X 線で測定が可能と思われる. また, Fig. 3 から測定試料の厚さに適した特性 X 線を選択することも可能である.

3.2 試験片

3.1 節の検討結果と試験片の製作および負荷荷重を考慮し, 試験片には厚さ 50 μm のアルミニウム極薄板 (Nilaco 製 Al13292 純度 99% 以上) を使用した. 本試料の顕微鏡組織観察から結晶粒界を明らかにすることは困難であったが, 鏡面研磨後の弗酸 (濃度約 3%) による腐食によって表面に見られた細かい線状の白濁痕の分布から, 結晶粒は圧延方向に細長く変形しており, その長さは数 100 μm のオーダーと推測された. 加工代を考慮して縦 70mm, 幅 15mm に材料を切断した後, 6 枚ずつ重ね, 計 12 枚をまとめて加工した. その際, 試料の形状が変形しないように厚さ 2mm の同サイズのアルミニウム板で試料を挟んで NC フライス盤により加工した. 引張試験片として長さ 65mm, 幅 10mm, 平行部の幅を 5mm, 長さ 20mm に成形した (Fig. 4).

Table 1 Parameters for calculation of transmission diffracted X-ray intensity ratio.

Characteristic X-ray	Cr-K α	Fe-K α	Co-K α	Cu-K α	Mo-K α	Ag-K α	W-K α
Wave length, nm	0.22913	0.19373	0.17903	0.1542	0.07107	0.05609	0.02123
Energy, keV	5.407	6.395	6.921	8.035	17.434	22.089	58.361
Absorption coefficient, 1/cm	Cu	7043.15	5371.61	4604.66	3336.76	457.21	236.95
	α Fe	6006.83	4180.14	3479.14	2417.69	301.57	154.56
	Ti	2573.32	1698.49	1387.41	937.29	109.02	55.44
	Al	408.21	252.51	201.22	130.72	13.88	7.12
Diffraction angle 2θ , deg.	Cu(111)	66.55	55.28	50.77	43.34	19.60	15.44
	α Fe(211)	156.49	111.74	99.81	82.43	35.36	27.73
	Ti(101)	61.43	51.17	47.04	40.21	18.23	14.37
	Al(111)	58.68	48.95	45.02	38.51	17.48	13.78

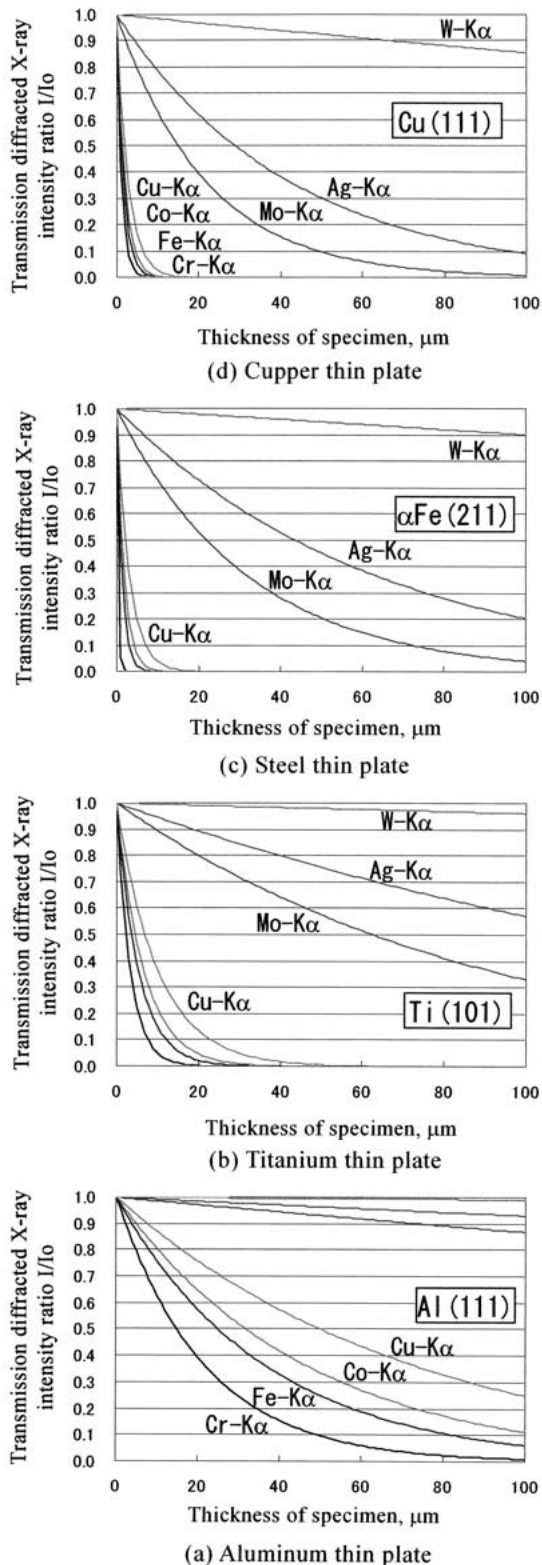


Fig. 3 Relation between transmission diffracted X-ray intensity ratio and thickness of specimen.

3・3 試験装置

試験片に引張荷重を加えた状態でX線を照射し格子面間隔の変化を測定するため、X線装置内で引張試験が可能な小型試験機を製作した。概観および寸法をFig. 5に示す。この試験機は小型モータによるねじ駆動で負荷荷重を制御できる。荷重の検出には4ゲージ法によるロードセルを使用した。予め40Nまで荷重較正を行い負荷荷

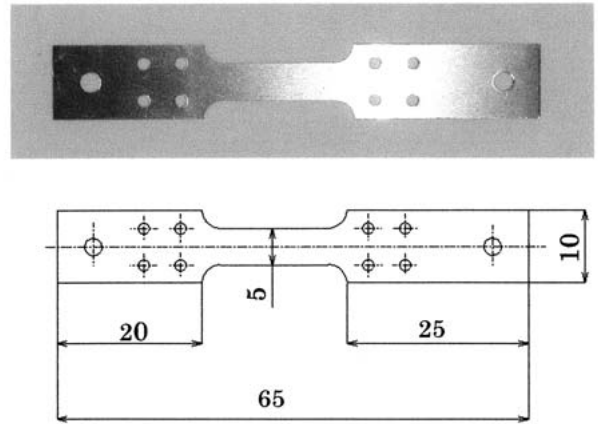


Fig. 4 Specimen of aluminum thin plate.

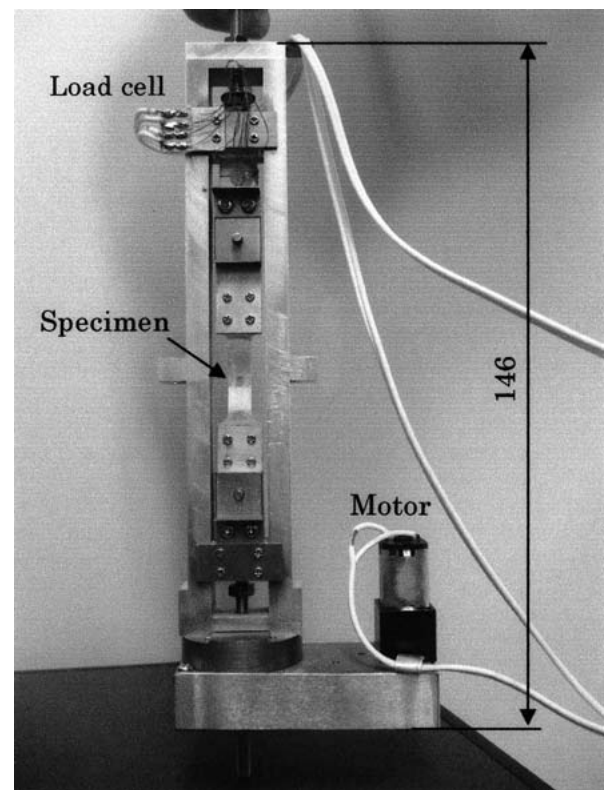


Fig. 5 Compact tension equipment for transmission diffracted X-ray method.

重と検出電圧に比例関係が保たれていることを確認した。小型引張試験機用回転治具に試験機を取り付けX線装置に設置した様子をFig. 6に示す。

3・4 実験方法

透過回折X線による負荷ひずみ測定にはPHILIPS製のX線回折装置(X'Pert-Pro)を用いた。特性X線Cu-Kα(0.15405nm)を使用し、管電圧45kV、管電流40mAとした。ステップスキャンモード(4sec/step)で測定した。X線は平行ビームとし、照射ビーム寸法は高さ3mm×幅4mmとした。Fig. 7に示すようにAl(222)面の回折強度が高く圧延方向への[111]配向が見られたが、Al(311)面は測定方向を変えても強度変化が少なかったため、測定格子面にはAl(311)面を用いた。

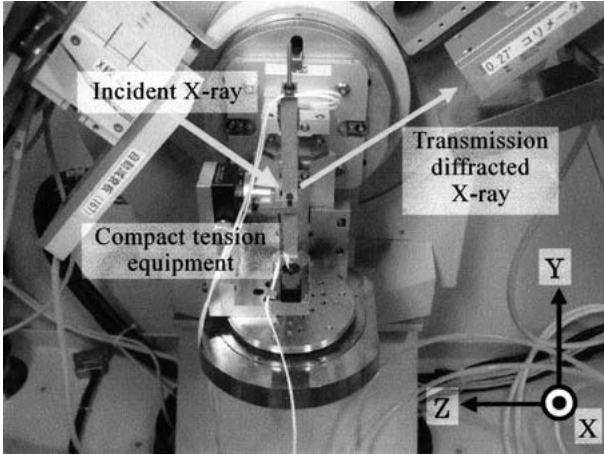


Fig. 6 Experimental setup to measure transmission diffracted X-rays.

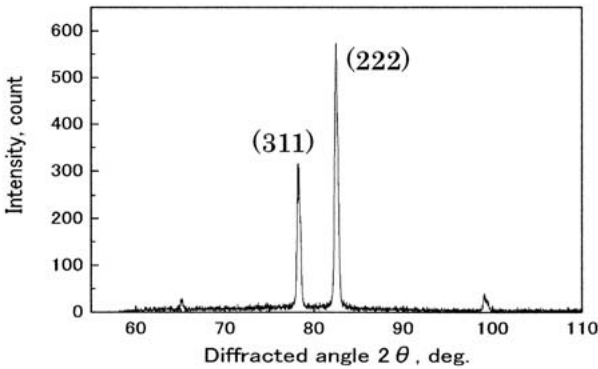


Fig. 7 Transmission diffracted X-ray profile of aluminum thin plate specimen.

はじめに 2 枚の試験片に弾性域の範囲で 0N から 14.7N まで負荷をかけ、透過回折 X 線により格子面間隔の変化を測定し X 線の弾性定数を求めた。次に、主応力値と主応力方向の測定では、Fig. 8 および Table 2 に示すように主応力の方向が $\psi-\phi = 90^\circ$ 、主応力の大きさが $\sigma_1 = 58.8\text{MPa}$ (荷重 14.7N) になるように設定し、 ψ 方向 3 方向、 α 角は -30° 、 β 角は -60° で測定を行った。

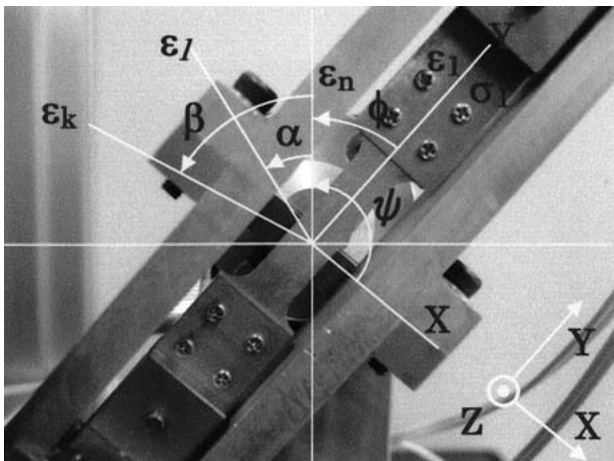


Fig. 8 Three measurement directions for transmission diffracted X-ray method.

4 結果と考察

4.1 透過回折 X 線による X 線の弾性定数の測定

応力-ひずみ線図を Fig. 9 に示す。縦弾性係数を E 、ポアソン比を ν とすると、透過型回折 X 線による Y 方向測定値と反射型回折 X 線による Z 方向測定値から式 (33) の関係が得られる。

$$\epsilon_Y = \frac{1}{E}\sigma_Y, \quad \epsilon_Z = -\frac{\nu}{E}\sigma_Y \quad (33)$$

負荷方向のひずみが直接求められるため、反射型回折 X 線のみを用いた方法に比べ測定回数が少なく効率的である。Fig. 9 の応力-ひずみ関係と式 (33) から、Al (311) 面の X 線の弾性定数として、縦弾性係数 $E = 61.7\text{GPa}$ 、ポアソン比 $\nu = 0.33$ が得られた。

4.2 主応力値と主応力方向の測定

測定結果を Table 2 の下段に示す。求められた主応力 σ_1 は、いずれも設定主応力 (58.8MPa) より最大で約 9MPa 低い値を示した。試料が完全な等方均質弾性体でないことの影響や、3 方向測定中の負荷荷重変動による誤差もわずかであるが含まれていると考えられる。角度 ψ の設定を変えてもほぼ同様な測定値が得られており、任意の角度で測定しても主応力を評価することができている。また、主応力の方向を示す角 $\psi-\phi$ は設定角 90° に対し、全ての測定結果が誤差約 3° 以内を示した。主応力方向についてもほぼ正確に推定することができている。

しかしながら、一般的に極薄板や細線においては等方均質弾性体の仮定が成り立たないことが多いため、そのような材料への本法の適用を今後検討する。

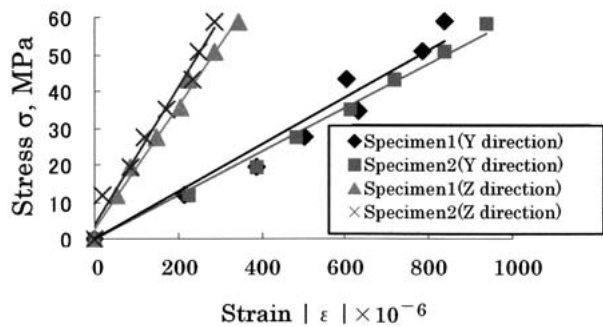


Fig. 9 Stress-strain curve of Al (311) lattice plane using transmission diffracted X-rays.

Table 2 Principal stress measured by transmission diffracted X-ray method.

Specimen	No.1	No.2	No.3	
ψ , deg	130	130	125	135
ϕ , deg	40	40	35	45
α , deg	-30	-30	-30	-30
β , deg	-60	-60	-60	-60
$\epsilon_1 \times 10^{-4}$	8.09	9.15	8.36	8.22
σ_1 , MPa	49.6	54.1	51.4	51.5
$\psi-\phi$, deg	93.05	92.08	89.56	90.58

5 結 言

本報告では透過回折 X 線の利点を生かした極薄板の X 線応力測定法を提案した。実際に本法を用いて、既知の応力を付与した多結晶アルミ極薄板の主応力値とその方向を測定した。その結果、以下のことが得られた。

(1) 透過回折 X 線を用いれば X 線の弾性定数の測定において測定回数が少なくなり時間的効率が向上する。

(2) 本法によって、面内の任意の 3 方向の格子面間隔と垂直方向の格子面間隔の測定から、無ひずみ試料を用いなくても極薄板内の主応力の方向と主応力の大きさを評価することができる。

本実験の遂行にあたり、北見工業大学技術部の堂田誠治氏、山田忠永氏に多大なご協力をいただいた。ここに記して感謝の意を表す。

参 考 文 献

- 1) Y. Akiniwa, K. Tanaka, T. Takezono, M. Hayashi, N. Minakawa and Y. Morii, "Neutron and X-ray diffraction measurements of phase stresses in SiC particulate reinforced Aluminum composite", *Journal of the Society of Materials Science, Japan*, Vol.47, No.7, pp.755-761 (1998).
- 2) H. Suzuki, T. M. Holden, A. Moriai, N. Minakawa and Y. Morii, "Residual stress evaluation of butt weld sample of high tensile strength steel using neutron diffraction", *Journal of the Society of Materials Science, Japan*, Vol.54, No.7, pp.685-691 (2005).
- 3) Y. Akiniwa, H. Kimura, K. Tanaka and T. Kamiyama, "Stress measurement of silicon carbide particulate reinforced aluminum alloy by time-of flight neutron diffraction", *Journal of the Society of Materials Science, Japan*, Vol.54, No.7, pp.692-697 (2005).
- 4) S. Machiya, Y. Akiniwa, H. Kimura, K. Tanaka, Y. Suzuki, A. Moriai and Y. Morii, "Stress measurement near surface region by strain scanning method using neutron diffraction", *Journal of the Society of Materials Science, Japan*, Vol.55, No.7, pp.654-660 (2006).
- 5) W. Reimers, M. Broda, G. Bruschi, D. Dantz, K. D. Liss, A. Pyzalla, T. Schmackers and T. Tschentscher, "Evaluation of residual stresses in the bulk of materials by high energy synchrotron diffraction", *Journal of Nondestructive Evaluation*, Vol.17, No.3, pp.129-140 (1998).
- 6) M. Croft, Z. Zhong, N. Jisrawi, I. Zakharchenko, R. L. Holtz, J. Skaritka, T. Fast, K. Sadananda, M. Lakshminpathy and T. Tsakalakos, "Strain profiling of fatigue crack, overload effects using energy dispersive X-ray diffraction", *Int. Journal of Fatigue*, Vol.27, pp.1408-1419 (2005).
- 7) A. M. Korsunsky, W. J. J. Vorster, S. Y. Zhang, D. Dini, D. Latham, M. Golshan, J. Liu, Y. Kyriakoglou and M. J. Walsh, "The principle of strain reconstruction tomography: Determination of quench strain distribution from diffraction measurements", *Acta Materialia*, Vol.54, pp.2101-2108 (2006).
- 8) T. Shobu, J. Mizuki, K. Suzuki, Y. Suzuki, Y. Akiniwa and K. Tanaka, "Application of scanning method to stress measurement of austenitic stainless steel", *Journal of the Society of Materials Science, Japan*, Vol.55, No.7, pp.647-653 (2006).
- 9) Edited by The Society of Materials Science, Japan, "X-ray stress measurement method", pp.212-215 (1981) Youken-do.
- 10) C. H. Macgillivray, G. D. Rieck and K. Lonsdale, "International tables for X-ray crystallography", Vol.3, pp.157-161 (1962) The Kynoch Press.