

展望

中性子の鉄鋼研究への応用-9

中性子産業利用の現状と課題 Neutron Beam Application to Industries and Its Issues

林 眞琴
Makoto Hayashi

茨城県企画部 技監

1 はじめに

大強度陽子加速器 (J-PARC) は平成13年に建設を開始し、平成19年2月現在で進捗率が75%を超え、中性子を用いる実験施設である物質・生命科学実験施設 (MLF: Materials and Life Science Facility) の建屋の建設はほぼ完了した。リニアックの機器の調整が進み、平成18年11月21日に初ビームを出射し、平成19年1月24日には当面の設計値である181 MeVまで加速することに成功し、順調に推移している¹⁾。MLFには平成20年5月頃に3 GeVシンクロトロン加速器から陽子が届くことになっている。その後平成20年11月までMLFに当初整備される実験装置の調整を行い、平成20年12月から共用を開始する予定である。ただし、出力は設計値の10%以下での運転であり、リニアックの400 MeVまでの増強を含めて、4、5年掛けてフルパワーである1 MWに到達させる計画である。

J-PARC/MLFでは産業利用がビームタイムの20-30%を占めることを1つの目標としている。日本での中性子の産業利用は平成4年の著者らの機械構造物内部の残留応力測定が最初ではないかと思われる。その後、中性子の産業利用は徐々にではあるが多くの分野に広がっており、残留応力測定に続いて、集合組織、結晶構造解析、析出物構造解析、高分子構造解析、蛋白質構造解析、単結晶ミスオリエンテーション、粉末構造解析、磁性薄膜構造解析などが行われているが、まだまだ利用率が高いとは言えない状況である。

J-PARC/MLFに整備される鉄鋼材料関係の装置は、原子力機構の残留応力測定装置と小角散乱装置、ならびに茨城県の方法構造解析装置である。原子力機構の装置の機能は装置名が示すとおりである。詳細は後述するが、茨城県の材料構造解析装置には検出器を5種類設けることになっており、多様な使い方が可能である。J-PARC/MLFの強度は定常原子炉であるJRR-3の100倍と言われているが、J-PARC/MLF

はパルス中性子源であり、パルス強度は高いが、積分強度はJRR-3よりも低い。したがって、測定目的に合わせてどちらかを使うか、あるいは相補的に使うことを使い分けることが必要である。

中性子の産業利用や残留応力測定に関わる解説記事はいくつか報告されているのでそれらを参照していただきたい²⁻⁷⁾、本稿では、主に鉄鋼材料に関わる最近の実験結果と課題を紹介する。

2 中性子の特徴

この展望「中性子の鉄鋼研究への応用」の一連の解説で述べられているが、観測子としての中性子の特徴は、

- 1) 高い「透過力」
 - 2) 原子核と力を及ぼし合う「核散乱」
 - 3) 電子の磁気モーメントと力を及ぼし合う「磁気散乱」
 - 4) 波の干渉効果として波紋をつくる「回折」
 - 5) エネルギーをやりとりする「非弾性散乱」
- である。

このような特徴を活かして、これまでは、中性子は主として物性物理や基礎化学の学術的研究に利用されてきた。約10年前から産業応用への展開も図られつつある。鉄鋼材料とは余り関係のない分野もあるが、中性子の産業利用技術としての理解を深めていただくために、簡潔に紹介する。

茨城県の生命物質構造解析装置は、タンパク質の機能解明と創薬に資することを目的としている。後でも述べるが、中性子は水素や重水素に対して感度が高い。主としてC、H、N、Oで構成されるタンパク質のなかでも、水素や水和基(H₂O)が薬剤と反応すると考えられており、中性子により水素・水和構造を含む全原子構造解析を行おうとするものである。更には、タンパク質場の分子認識と化学反応を測定することによって蛋白質構築原理を解明して、高精度な薬物設

計と創薬を目指そうとしている。

小角散乱測定技術を用いると鉄鋼材料のマイクロ組織の定量測定が可能である⁸⁾。小角散乱では鉄鋼などいわゆるハードマターだけでなく、高分子や液晶、ゲル、ミゲルなど、いわゆるソフトマターの様々な構造の解明も可能である。これまでの主要な成果としては、非晶性高分子鎖の広がりやの決定、結晶性高分子鎖の広がりやと折り畳み状態の決定、相分離や体積転移などの臨界現象の解明、高分子ゲルの構造解析と不均一性解析、などがある。最近の特徴的な成果としては、ピアノ線の8倍という超高強度を有するポリエチレン繊維の構造が、折り畳み鎖ラメラ結晶(ケバブ部)と伸張鎖結晶(シシ部)で構成される、いわばシシケバブ構造になっていることを解明した。これにより、更なる超高強度な高分子材料開発の道が拓けている。また、中性子反射率計を用いると表面物性が、スピネコー装置を用いると拡散係数や膜弾性率の測定が可能であり、刺激応答性ブロック共重合体の精密重合や、有機ゲル化剤の高機能化、あるいは、ナノコンポジットゲルの高性能化などの産業応用が期待されている。

新エネルギー材料として、東南海の大陸棚に大量に堆積しているメタンハイドレートがある。このようなガスハイドレートに関する基礎・応用研究として、中性子を用いた構造解析と形成・分解過程の研究が行われている。これは、中性子の軽元素識別能力と中性子の運動察知能力を利用してメタンハイドレートの炭化水素のカゴ構造中におけるメタンの挙動を解明することにより工場や家庭の熱源、あるいは燃料電池自動車の燃料に使えるようにしようとするものである。

中性子は磁気モーメント(物質中の微小磁石)の位置と運動状態を定量的に精度よく観測できるので、磁気ディスクや磁気ドットなどの新しい磁気ナノデバイスや高密度磁気記録媒体の開発に貢献でき、世界のIT化に技術革新をもたらすと期待されている。具体的には、中性子反射率計により磁気薄膜・多層膜の磁気構造とスイッチング現象を観測することにより、スピントロニクス・磁性ナノデバイス・高密度記録技術を開発する。ひいては、磁気記録やMRAM分野で多用される磁性層の磁気構造の解明により高度な磁気構造制御を実現して次世代の情報産業を支援する。また、2大超伝導機構として磁氣的相互作用と電子-格子作用が提唱されているが、これを明らかにするために、4次元空間中性子探査装置により磁気揺らぎと格子振動を観測して高温超伝導発現機構を解明し、それに基づいて、より高温の超伝導体材料の開発や、リニアモーターカーの経済的実現、あるいは、エネルギー輸送や貯蔵などに貢献できると期待されている。

燃料電池はCO₂削減など地球規模での環境問題解決に有力な方法である。自動車エンジンに代わる動力源やコジェネ家庭用電源としても極めて有望である。中性子は、燃料電池

で最も重要な働きをする水素(プロトン)の位置と運動状態を観ることができるので開発に不可欠であり、燃料電池の3大開発要素である、水素供給源(大吸蔵量・低温活性・長寿命水素吸蔵材料)、プロトン伝導膜(高伝導率・長寿命プロトン透過高分子膜)、生成水除去膜(高排水能力)の開発に貢献できる。

試料に中性子を照射して測定対象の元素を放射性核種に変換し、その放射能を測定して定性、定量分析するのが中性子放射化分析法である。その特徴は、1)分析感度が高く、極微量の成分や不純物の定量が可能、2)化学処理を行うことなく非破壊分析が可能、3)少量の試料で多元素の同時定量が可能である。この特徴を活かして、埋蔵文化財の製造場所の同定やタマネギの産地同定などが行われている。

工業的な応用としては、中性子ラジオグラフィや残留応力測定がある。これらについては以下詳細に説明する。

3 中性子ラジオグラフィ

中性子の観測子としての特徴を2章で説明したが、中性子の鉄鋼材料の研究では主に「高い透過力」と「回折」を利用する。高い透過力に関しては、残留応力測定やラジオグラフィで威力を発揮する。図1にX線と中性子の質量吸収係数の原子番号との関係を示す⁹⁾。X線は電子によって散乱するため、実線で示したように、原子番号が大きいほど質量吸収係数は大きい。そのため、X線では原子番号の大きいPbが遮蔽材として使われる。一方、中性子は原子核で散乱するため原子番号依存性がなく、GdやB、Sm、Cdなどが遮蔽材として使われる。また、HやLi、H₂Oも質量吸収係数が大きいため検出感度が高い。図2には自動車用エンジンブロックにおける欠陥検出例を示す。(a)はX線、(b)は中性子による透過写真である。この撮影では欠陥部に水を浸透させて撮像しているので欠陥部が白く強調されたかたちで検出されている。

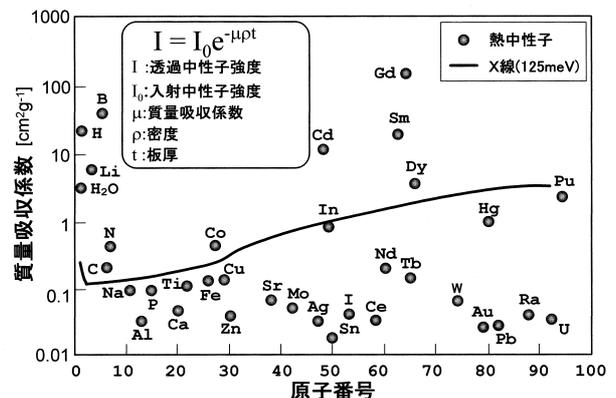


図1 質量吸収係数と原子番号の関係

4 残留応力測定

機械構造物の破損形式には、延性破壊、脆性破壊、疲労破壊、および環境破壊があるが、残留応力はこれらの全ての破壊挙動に影響を及ぼす。残留応力は、熱処理（焼入れ、焼戻し、焼鈍しなど）、塑性変形（圧延、鍛造、押出し、引抜きなど）、機械加工（切削、研削、グラインダ加工、ショットピーニングなど）、表面処理（めっき、浸炭、窒化など）、あるいは溶接・接合（AW、SMAW、TIG、MIG、ロー付けなど）などによって形成される。これらの残留応力はさまざまな手法により測定されている。残留応力測定法の比較を表1に示す。

中性子回折法による利点は、

- 1) 残留応力を非破壊で測定
- 2) 構造物内部の残留応力を測定可能
- 3) 複合材料や多相材料の相間応力を測定可能
- 4) 集合組織が短時間で容易に測定可能

であり、弱点は、

- 1) 測定体積が比較的大きい
- 2) 測定時間がやや長い
- 3) 無ひずみ状態の格子定数の測定が必要である。

一般機械構造物の残留応力測定で重要視されるのが、中性子の侵入深さの大きさである。表2に中性子、第三世代の放射光とX線の各種材料に対する侵入深さを示す。この侵入深さは材料表面に入射したビーム強度が材料内部で1/eまで減衰する距離で定義される。Feで比較するとそれぞれ85 mm、1.4 mm、4 μ mであり、中性子の侵入深さが極めて深く、板厚が40 mm程度の構造物内部の残留応力測定が可能である。また、アルミの場合は侵入深さが1230 mmもあるので、自動車用アルミニウム合金製エンジンブロックの内部の残留応力測定も原理的には可能である。

中性子回折法による残留応力測定技術の詳細については、参考文献3-5)や、この展望でも原子力機構の鈴木裕士博士

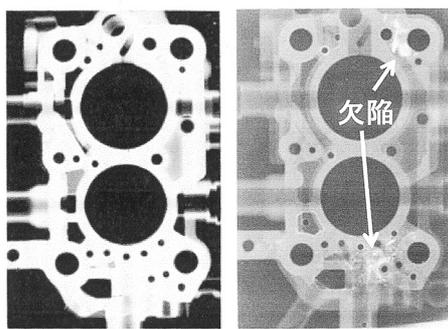


図2 中性子ラジオグラフィによるエンジン部品の欠陥検査

から紹介があったのでそれらを参照されたい¹⁰⁾。また、鉄鋼などの溶接構造物などにおける残留応力測定が行われているので参照されたい¹¹⁻¹⁵⁾。

図3に多結晶構造における応力状態の模式図を示す。第1種応力(σ_1)は材料中のかんりの広範囲の領域に広がる結晶全体の平均的な応力で、疲労強度や破壊強度の評価に使用される。第2種の応力(σ_2)は、結晶が塑性変形を受けたとき、結晶方位によってそれぞれの結晶のすべり(塑性)変形が異なるために生じるもので、粒間応力と呼ばれる。第3種(σ_3)の応力は結晶内部においてもすべり変形が局所的に異なるために生じるものである。

中性子回折においては第2種応力が測定精度に影響する。そのため、粒間応力の影響の大きい回折は残留応力測定に使わないことが望ましい。表3には、結晶系毎に推奨される回折面と推奨されない回折面を示す⁵⁾。 α Feの場合は、X線回

表1 残留応力測定法の比較

測定方法	手法	測定精度	測定位置	測定体積	備考
ひずみゲージ法	破壊手法	20MPa	表面	5x5x5mm ³	
超音波法	非破壊手法	50MPa	内部	5x5x5mm ³	主応力差
X線回折法		10MPa	極表面		表面から20 μ m平面応力を仮定
放射光回折法		30MPa	表面近傍(1.5mm)	1x1x5mm ³	
中性子回折法		30MPa	内部(25mm)	1x1x3mm ³	3軸方向ひずみの測定

表2 X線、放射光と中性子の侵入深さ

材料	侵入深さ (mm)				
	Al	Ti	Fe	Ni	Cu
熱中性子	1230	50	85	40	53
放射光(70keV)	15.4	3.8	1.4	1.0	1.3
Cu-K α 線	0.074	0.011	0.004	0.023	0.022

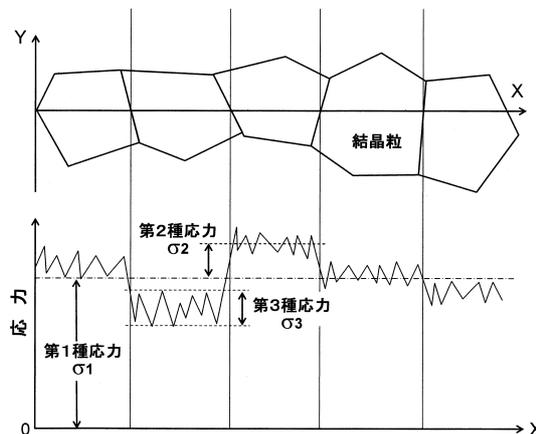


図3 多結晶構造における応力状態の模式図

折で標準的に測定されている211回折が望ましく、200回折は使用を避けた方がよい。

表1に各種の残留応力測定法における測定体積を示したが、中性子による残留応力測定では中性子束密度が低いために、 $1 \times 1 \times 3 \text{ mm}^3$ 程度が限界である。そのため、溶接ルート部など応力勾配の厳しい箇所では十分な精度で測定することは難しい。図4に原子力発電所などの小口径配管で多用されるソケット継ぎ手の溶接部周辺の残留応力を測定した結果を示す¹³⁾。測定部の詳細な形状は省略するが、①が溶接部外周部、④が溶接ルート部、⑧が溶接トウ部である。溶接ルート部④で軸方向、周方向、半径方向ともに残留応力は最大となり、約130 MPaである。このようなソケット継ぎ手を疲労試験した結果を分析したところ、溶接ルート部には200 MPa程度の残留応力が形成されていると推定された。①から④に沿っての残留応力分布からもうかがいられるようにこの部位の応力勾配は大きく、測定寸法1 mmでは十分な精度で測定できないことが分かる。

図4には有限要素法解析および固有ひずみ法により解析した結果も併せて示した¹⁶⁾。測定位置④と⑤を除くと、測定値と解析値は非常によく一致することが分かる。④は溶接ルート部であるため解析値よりは低い。また、⑤は溶接ルート部から少し離れた位置であるが、やはり応力勾配の影響で少し小さい目の測定値となっている。この結果から中性子による

応力集中部の残留応力測定結果をそのまま用いず、固有ひずみ法解析において④⑤を除く6箇所測定値と一致するように補正を掛けることにより④のような応力集中場の応力を評価するハイブリッド測定が望ましい。また、現状の測定寸法1 mmは中性子束密度を上げることにより0.1 mmオーダーに減少させることが望まれ、そのためには、集束効率の高いモノクロメータや集束レンズの開発が必要である。なお、現在原子力機構の残留応力測定装置 (RESA) はモノクロメータや検出器の改良を進めており、 $0.3 \text{ mm} \times 0.3 \text{ mm} \times 10 \text{ mm}$ くらいまで測定体積を縮小できる見通しを得ている。

中性子の侵入深さの大きいことを利用した応力測定に2相応力の測定がある。複合材料の強度評価においては、母相と強化相の応力を把握することが必要であるが、X線では $10 \mu\text{m}$ オーダーの極表面層しか測定できないため、自由表面の効果が無視できず、3軸応力状態にある内部の応力情報を得ることができない。しかし、中性子回折ではそれが可能である。図5には、SiC粒子添加Al合金における負荷応力と格子ひずみの関係を示す¹⁷⁾。これは2014Al合金母相にSiC粒子を体積分率で20%添加したものである。弾性定数が約70 GPaである母相のAlの発生ひずみは、弾性定数が約450 GPaと約6.5倍大きいSiCの約3倍大きい。実線と破線はAlとSiCそれぞれ単相の場合に得られた弾性定数であり、複合化することにより相手の材料に近寄ることが分かる。

中性子回折では測定体積が大きいいため、表面近傍の残留応力分布を例えば0.1 mm刻みで測定したい場合、表面効果のため応力測定精度が悪い。そのため、各種の測定方法が提案されている。1つの方法は測定体積を表面から0.1 mm刻みで変えて回折ピークの見掛けのシフト量を予め測定して置き、実際に測定された回折ピーク位置からそのシフト量を補正するというものである。その方法により表面近傍の残留応力分布を測定した結果を図6に示す¹⁸⁾。これは、水中で60 MPa程度の高圧水をノズルから噴射し、沸騰減圧により

表3 残留応力測定で推奨される回折面

材 料	推奨される回折面 (粒間ひずみ小)	推奨できない回折面 (粒間ひずみ大)
fcc(ni, Fe, Cu)	111,311,422	200
fcc(Al)	111,311,422,220	200
bcc(Fe)	110,211	200
hcp(Ti, Zr)	102,103	002,100,120
hcp(Be)	201,112	002,100,120,102,103

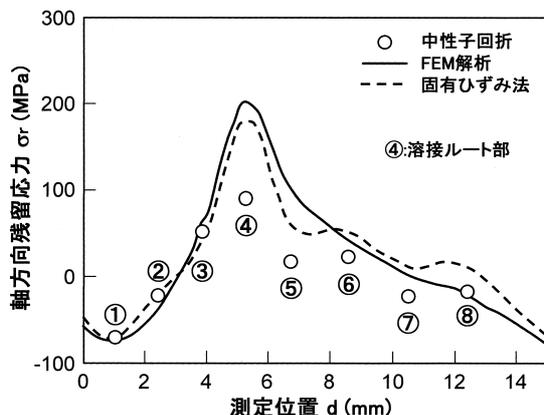


図4 ソケット溶接継ぎ手の残留応力

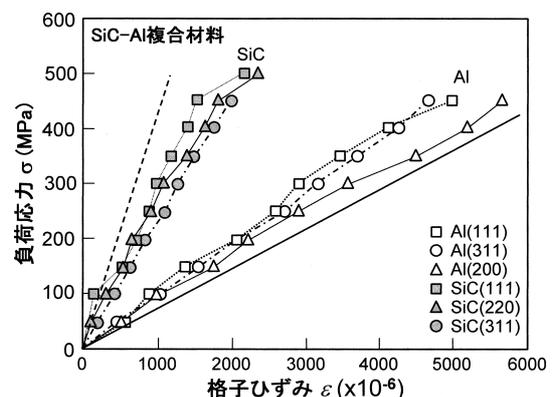


図5 SiC-Al複合材料における負荷応力と格子ひずみの関係

大量に発生したキャビテーションの崩壊圧を利用して高い圧縮残留応力を均一に形成することができるウォータージェットピーニングを施工したSUS316NGステンレス鋼板における表面近傍の残留応力分布である。表面の残留応力は-400～-550 MPaの高い圧縮応力で、内部に向かって急速に減少し、深さ約0.5 mmで引張応力に変わり、約1.5 mm以上の深さではほぼ応力は0 MPaである。ウォータージェットピーニングは鋼球を高速で材料表面に衝突させるショットピーニングと同様に方向性を有しないため、X、Y方向で基本的には差は生じないはずであるが、100 MPa程度の差が認められる。X線回折法の逐次研磨法により測定した結果も併せて示したが、中性子回折法による測定結果と非常によく一致する。この結果からは中性子回折法でも表面近傍の応力分布を0.1 mmの空間分解能で測定できる見通しがあると言える。

5 集合組織の測定

金属材料が圧延加工されたり、強い引張変形を受けたりするとすべり変形により結晶方位が揃って集合組織が形成される。X線回折法で集合組織を測定するために極点図を作成する場合、侵入深さが浅いために反射法と透過法の2通り測定する必要があり、測定時間が長大となる。一方、中性子回折法では侵入深さが大きいため、透過法だけで全極点図を作成できる。また、大きい入射・回折スリットを用いて、直径が10 mmを超える大きい試料を測定できるというメリットもある。

熱間押し出し後に冷間引抜き加工したZr-2.5Nb合金パイプを熱処理したものにおける111回折の極点図を図7に示す¹⁹⁾。これは、板厚が5 mmで直径が10 mmの円板試料を3枚重ねてアルミ合金ホルダに固定して測定した結果である。入射・回折スリットのサイズは25 mm×25 mmである。試

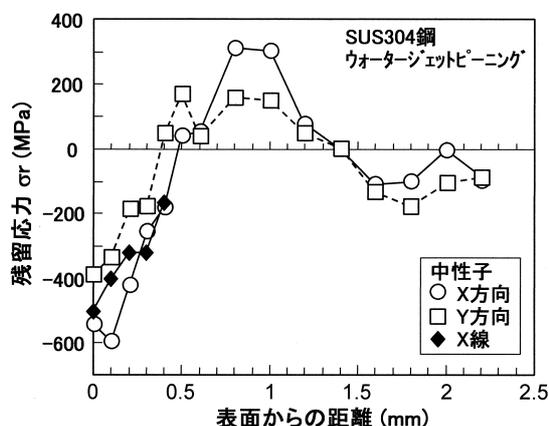


図6 ウォータージェットピーニング施工したSUS304鋼の表面近傍の残留応力分布

料を回転させる角度間隔を ω 軸、 λ 軸ともに2degとし、各角度における積分時間を2sとした場合、全極点図を作成するに要する時間はわずかに4.5hとX線に比して約1/5以下の短時間である。

図7の極点図より、111は軸方向(L)と周方向(H)には強く配向しているが、半径方向(R)にはほとんど配向していないことが分かる。

このような集合組織が強い材料で残留応力を測定する場合、3軸方向で同じ回折面からひずみを測定できないことがある。そうした場合には、方向毎に別の回折面のひずみを測定し、弾性定数の回折面依存性に基づいてひずみを補正して3軸方向応力を求める方法が提案されている²⁰⁾。

6 パルス中性子源による測定

高エネルギー加速器研究開発機構(高エネ研)にあったKENSやJ-PARCの物質・生命科学実験施設はパルス中性子源である。パルス中性子源では白色中性子を用いて飛行時間法(TOF)により測定するため、多くの回折面の情報を同時に得ることができるという利点がある。図8に高エネ研

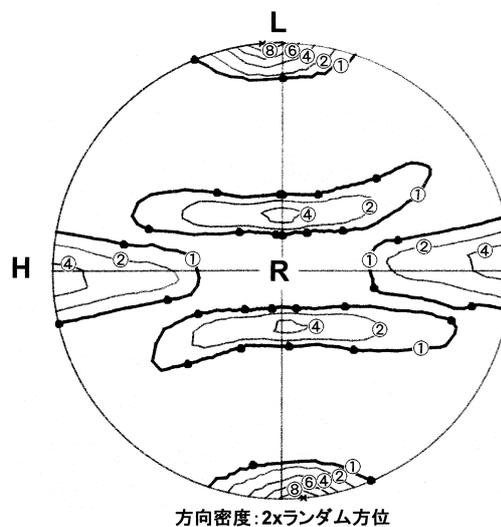


図7 Zr-2.5Nb合金(熱処理材)の111極点図

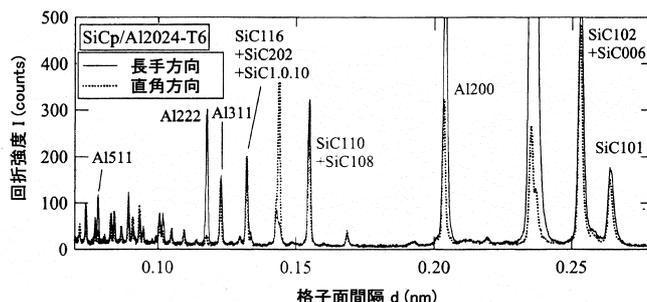


図8 TOF法で測定したSiC粒子強化アルミニウム合金(SiCp/Al2024-T6)の回折プロフィール

KENSのSiriusを用いて測定したSiC粒子強化アルミニウム合金 (SiCp/Al2024-T6) の回折プロフィールを示す²¹⁾。

図8は引張試験片を測定した結果であり、図中の実線は、散乱ベクトルが試料長手方向に平行な場合で、破線はそれと垂直な場合のプロフィールである。白色中性子のため、強化材であるSiC粒子と母材のAlからの多数の回折ピークが同時に得られている。アルミニウム合金単体の場合には圧延されたり、押し出し加工されることが多いため、集合組織が発達しているが、複合材料の場合には、Alのパウダーを素材としているため集合組織はそれほど強くない。ただし、Al111やAl220回折はSiCの回折が混合するため、残留応力測定には適さない。また、SiC粒子はランダムな方位で分散しているため、散乱ベクトルの方向によらず回折強度はほぼ等しいことが分かる。

7 中性子の産業利用

中性子の産業利用に対するニーズの高まりを受けて、原子力機構では、平成15年に有償産業利用を開始した。

有償利用では、

○必要ときに使える

(随時申し込みによるビーム実験が可能)

○使い易い

(実験室X線装置や放射光と同じセンスで使える)

○利用料金が安い

(申込み料：10,300円、使用料：約50千円/日(ガイドホール)、約100千円/日(炉室))

○十分な利用支援が得られる

(原子力機構職員の手厚い測定支援)

ことを目指した。

平成18年度からは原子力機構施設共用制度を開始した。施設共用枠は基本的には有償利用であるが、成果を公開する場合はほぼ無償で利用できる²²⁾。

図9にJRR3における中性子ビームの利用の平成6年からの推移を示す。大学の共同利用と原子力機構の独自研究がそれぞれほぼ半分を占めている。課題申請日数は4,500日から徐々に増加し、平成11年以降は約7,000日前後で推移している。この間実績日数は約4,000日であり、課題採択率は約60%である。産業利用は平成10年に10日程度であったが、徐々に増加している。特に、平成15年の有償化以降急増し始め、平成18年度からの共用化で平成17年度に比べて一挙に倍増する勢いである。

JRR-3に整備されている原子力機構の13台の装置の利用産業利用は時間比率で見ると、平成17年度は企業が代表者として申請された課題は5%で、企業が協力している課題が

6%であったが、平成18年度にはそれぞれ7%と11%にまで増加している。なお、この数値には共同研究分、ならびに、この後述べるトライアルユース制度分も含まれている。

一方、平成18年度から文部科学省の委託事業として「中性子利用技術移転推進プログラム(通称、トライアルユース制度)が放射線利用振興協会(RADA)の運営の元で開始された²³⁾。この制度の目的は、産業界等がJRR-3を用いて試行的に中性子ビームを利用して貰うものである。進め方は以下の通りである。

○中性子ビーム利用提案は年2回定期公募し、コーディネータ会議と課題審査委員会で審査し採否を決定する。随時受け付けも可能

○コーディネータと支援スタッフが利用者を一貫支援する

○原子力機構は実験装置15台を提供。装置担当者が役務提供と技術支援を行う

○実験結果は公開し、潜在ユーザーの利用を掘り起こす

○利用料金はRADAが肩代わり

○利用は電源立地地域(14府県)の企業や公的研究機関等に限る

平成18年度は初年度にも拘わらず57件もの課題を実施し、優先ビームタイム枠210日のほぼ全てを利用した。図10

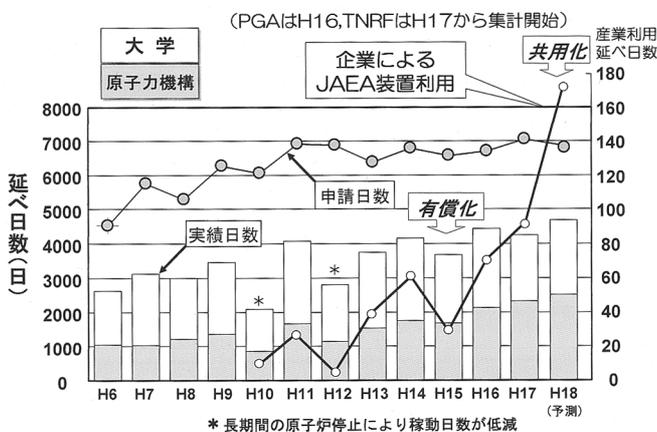


図9 JRR-3の中性子ビーム利用の推移

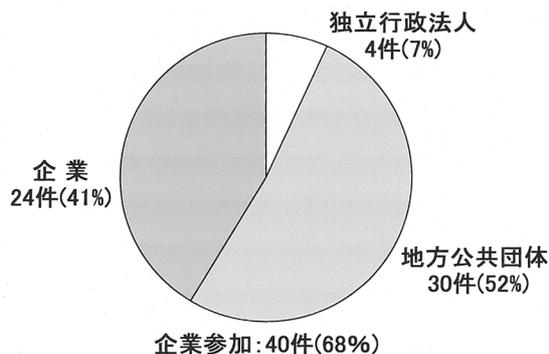


図10 平成18年度トライアルユース制度の利用者

にトライアルユース制度の利用者の内訳を示す。地方公共団体が52%と半数を占めているが、これは茨城県が平成16年度から運営している中性子利用促進研究会²⁴⁾からの応募が含まれているからであり、実態としては企業の利用が40件あり、全体の68%に達している。

装置の利用内訳を図11に示す。即発 γ 線分析が15件、残留応力測定が12件、中性子ラジオグラフィが11件で、この3台の装置だけで全体の2/3を占めている。

主な応募課題をみると、中性子ラジオグラフィでは、

- ・植物中の水分動態の可視化
- ・建築材料における水分移動の可視化と定量化
- ・古文化財の非破壊可視化観察

であり、即発 γ 線分析では、

- ・農作物中の重金属の即発 γ 線分析
- ・地質試料等の他元素同時非破壊定量
- ・材料系及び生物系組成標準物質中の元素の非破壊分析

である。中性子残留応力測定では

- ・ボイラ水管溶接部の残留応力測定
- ・浸炭材の深さ方向残留応力分布測定
- ・浸炭炭素鋼の格子定数と残留歪み変化の測定
- ・建設機械における溶接構造物の溶接内部ひずみ分布評価が実施されている。

平成19年度上期の課題審査を実施中であるが、定期募集で50件に達しており、既に3件の随時応募の申請が来ている。平成18年度と同様に残留応力測定や即発 γ 線分析への応募が多いが、注目すべきは、平成18年度に整備した中性子反射率測定装置への応募が12件もあることである。この装置では高分子や磁性薄膜などの界面構造を詳細に解析できる点に期待が集まっていることを端的に表している。

8 RESA改造計画

現在、産業利用で最も多いのが上述したように、中性子ラジオグラフィ、即発 γ 線分析と残留応力測定である。JRR-3

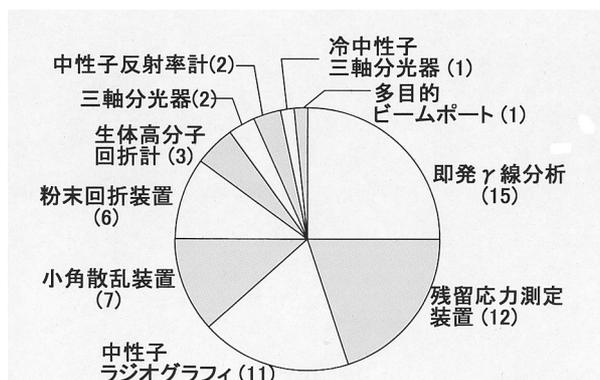


図11 平成18年度トライアルユース制度での中性子実験装置の利用分布

の残留応力測定装置 (RESA) はフル稼働中である。これまでの原子力機構の実績およびトライアルユース制度の測定を通して浮かび上がってきた技術課題として、

- 1) 試料設定時間の短縮
- 2) 測定時間の短縮
- 3) 精度の向上
- 4) 測定体積の減少
- 5) 3軸回転型試料ホルダーの開発
- 6) 大型試料の測定

などがある。そこで現在原子力機構の鈴木裕士博士を中心に関係者が集まってRESAを改良することを進めている。その内容は、

- 1) Off-line 試料セッティング治具
- 2) 非対称モノクロメータ
- 3) 100 mm窓幅の1次元検出器
- 4) 大型XYZゴニオメータ
- 5) 低床ディフラクトメータ
- 6) ロボットアームによる試料位置決め機構
- 7) クォーターユーレリアンクレードル (C型)

である。それぞれの詳細な説明はいずれ鈴木博士から説明していただくので省略するが、測定時間の大幅な短縮に繋がる100 mm窓幅の1次元検出器の根拠について説明しておきたい。ディフラクトメータから検出器までの距離(ゴニオ半径)を1000 mm、回折プロフィルの半値幅FWHMを0.5degと仮定すると、Debye環の広がり $b=8.73$ mmとなる。検出器の窓幅100 mmの端におけるDebye環のずれは角度にして $\omega=2.8642$ degである。この位置での回折ピークのずれは $\Delta\theta=0.0715$ degとなり、半値幅FWHMが0.5degから0.5715degに広がるに過ぎない。なお、この場合回折側にはラジアルコリメータは設けない。代わりに、窓幅に対応して、例えば入射スリットの高さが2 mmで、回折スリットがディフラクトメータ中心から100 mmにあるとすれば、窓幅100 mmを見込むように12 mmとすることが必要である。窓幅が現状の5 mmから100 mmに増加することによりカウントレートは10倍以上に増加することが期待される。このような長尺型1次元検出器の採用により測定時間の短縮、精度の向上、並びに測定体積の縮小が可能となる。

上記の1) から7) の項目は平成19年度中に整備したいと考えており、実現すれば、直径500 mm、長さ1000 mmの大径配管溶接部が測定でき、表面改質材(浸炭、窒化)のような、組織勾配を有し、格子定数が深さ方向で変化する材料内部の残留応力分布も測定できるようになると思われる。また、試料セッティング時間が大幅に短縮されるし、自動測定も可能となる。さらには測定時間そのものも大幅に短縮されると期待している。

9 J-PARCの実験装置

茨城県では科学技術振興策の1つであるサイエンスフロンティア21 (SF21) 構想を立案し、J-PARCの物質・生命科学実験施設 (MFL) に整備される23本のビームラインのうち2本 (材料構造解析装置と生命物質構造解析装置) を整備して産業利用を図り、引いては産業創生を目指して計画を進めている。

本稿では構造材料に関わる材料構造解析装置について紹介する。装置の概要を図12に示す。この装置の目的は、新規材料構造評価システムを開発し高付加価値材料の創成を実現することにある。産業への貢献あるいは応用としては、

- ・ 環境問題への貢献

- 高性能燃料電池の開発や水素吸蔵材料の開発

- ・ 大容量小型電池の開発—Liイオン電池材料
- ・ 高密度磁気メモリの開発
- ・ 高温超伝導材料の開発—超伝導磁石
- ・ 生体用材料の開発

を想定している。

本装置の特徴は以下のとおりである。

- 1) X線では困難な水素やLiのような軽元素の位置と量を決定可能
- 2) 原子サイズからナノ領域まで幅広い材料構造解析が可能
- 3) 温度、圧力などを変化させた条件での測定が可能。また、条件の変化に伴う材料の結晶構造の変化挙動を測定可能
- 4) 従来の装置の50倍から100倍の効率での短時間測定 (数分程度)
- 5) X線解析装置を使う手軽さで測定可能

これらを実現するため、装置には背面散乱検出器、特殊環境検出器、低角散乱検出器と小角散乱検出器の4組の検出器を配置している。

達成すべき性能として考えているのは下記のとおりである。

- 1) 最高分解能レベル $\Delta d/d \approx 0.16\%$ (一定値) を $0.15 < d$ (\AA) < 4 で実現する

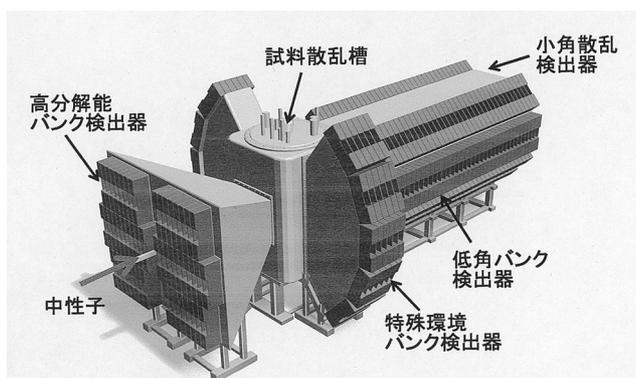
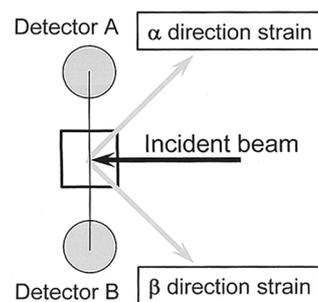
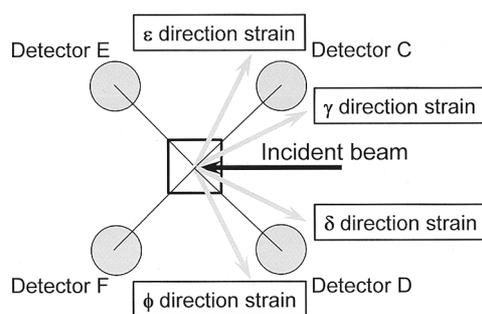


図12 茨城県材料構造解析装置の概要

- 2) $4 < d$ (\AA) < 800 ($0.01 < Q$ (\AA^{-1}) < 1.6) では、1) の領域での測定と強度の点でマッチングをとりつつ、分解能は緩やかに変化する最小限の値を実現する
 - 3) 小角バンクを設置することで $Q \approx 0.01 \text{\AA}^{-1}$ ($d \approx 80 \text{nm}$) までのナノ領域の測定も可能とする
 - 4) 高分解能結晶PDF解析を行うために、背面バンクで $Q \approx 50 \text{\AA}^{-1}$ までの測定を可能とする
 - 5) 特殊環境測定に対応した90度バンクの設置
 - 6) 標準的な試料量を実験室粉末X線回折で用いられる数百mg程度とし、このときの標準測定時間を5min以内とする
 - 7) 材料研究に必須である外場、高温、低温、ガス雰囲気、ガス圧力、光、磁気、電気化学などの実験環境を実現する
- 平成19年3月現在装置本体の概念設計を終了し、発注先が確定したところである。なお、前述したトライアルユース制度や原子力機構の共用枠での応募では残留応力測定に対するニーズが非常に高い。そこで茨城県が整備する材料構造解析装置に残留応力測定機能を付加することを検討している。この装置には特殊環境測定に対応した90度バンクがあり、回折角 $2\theta = \pm 90 \text{deg}$ に検出器が2個配置されている。図13 (a) に材料構造解析装置の入射ビームの水平面内の検出器の配置の概要を示した。この配置では $\pm 90 \text{deg}$ のA検出器とB検出器により直交する2軸方向 (α 、 β 方向) のひずみを測定できるので、この状態でひずみを測定した後、試料を α 方向あるいは β 方向に 90deg 回転させて、 α 方向と β 方向に直交する



(a) 90度バンク検出器の配置



(b) 追加4検出器の配置

図13 材料構造解析装置への残留応力測定用検出器の追加配置

γ 方向のひずみを測定すれば、2回の測定で3軸方向のひずみを測定できるので残留応力を測定することが可能である。

しかし、主応力方向と主応力を知りたい場合には6軸方向のひずみ測定が必要である。幸い材料構造解析装置の試料槽には多少の空間的な余裕がある。そこで残りの4方向のひずみを測定するための検出器を試料槽内部に配置することを考えた。図13 (b) に垂直面内の4個の検出器の配置を示す。C、D、E、Fの検出器では γ 、 δ 、 ϵ 、 ϕ の4方向のひずみを測定できる。 γ と ϵ 方向あるいは δ と ϕ 方向のなす角度がやや小さいため主応力方向と主応力を決定するにはやや難がある。しかし、1回の測定にすれば測定時間が半減される(試料のセッティングを考慮すると更に短縮できる)、2回測定する場合には試料を90deg回転させることにより測定領域がずれることがあるということを中心に心配しなくて良いという利点には魅力が大きいと考える。

図13の検出器は二次元検出器である。であれば、RESAの改良計画で述べたことと同じであるが、検出範囲を広げて測定時間を短縮することが可能である。図14に3軸応力場におけるMohr円を示す。二次元検出器で回折角度 $2\theta = 90\text{deg}$ の中央位置から $\varphi = \pm 5\text{deg}$ の範囲の検出器でカウントしたとしても、応力値では $\Delta\sigma = 1.5\%$ しか変動しないことになる。例えばもっと測定範囲を広げて $\varphi = \pm 10\text{deg}$ の範囲をカウントしても応力値では $\Delta\sigma = 6.0\%$ であり、応力測定精度としては十分である。

J-PARCでの白色中性子源を用いたTOF測定の利点を改めて記すと、

- 1) 多数の回折面の同時測定が可能
- 2) 多相複合材料の各相応力の同時測定が可能
- 3) 異方性材料(強集合組織材)の測定が可能

が挙げられる。集合組織の測定では単色中性子の場合、 hkl 回折毎に検出器角度を固定して測定するため、例えばfcc材料では主要な111、200、220回折の極点図を別々に3回測定しなければならないが、TOFでは同時に測定することができる。また、図12の材料構造解析装置では背面散乱検出器、特殊環境検出器、低角散乱検出器を組み合わせると同時に集合

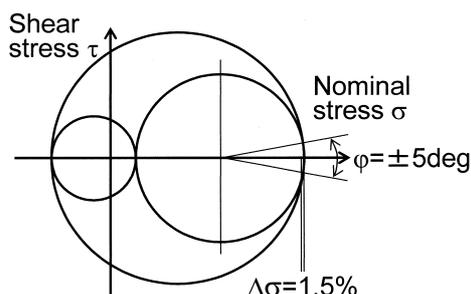


図14 3軸応力状態におけるMohr円

組織測定に供するため、 ω 角で3回、 φ 角で2回、合計6回試料を回転させるだけで全極点図を測定できるので、極めて短時間で集合組織の測定が可能となる。

J-PARCのパルス中性子源のピーク強度はJRR-3の約100倍もある高輝度中性子源である。このように明るい中性子源を用いると、表面近傍の勾配のきつい応力分布、微小領域・微小材料、ならびに動的測定が可能であると期待される。

J-PARCの残留応力測定装置に期待される性能としては、

- 1) 応力測定精度： $\Delta\sigma < 20\text{ MPa}$
(ひずみ測定精度： $\Delta d/d < 10^{-5}$)
 - 2) 高分解能：半値幅FWHM $< 0.3\text{deg}$
 - 3) 空間分解能： $< 0.1\text{ mm}$
 - 4) 測定時間：20～30 min / profile
- が挙げられる。

これらが実現すると、旧UKAEA(英国原子力庁)のHarwell Lab.やカナダChalk River Lab.ではアルミニウム合金製自動車エンジンブロックの残留応力を測定しているが、そうしたことが可能となる。また、表面を炭化処理により強度を非常に高くしているクランクシャフトやカムシャフトなどの測定も可能となる。ただし、これらの表面処理材の残留応力測定においては、表面近傍の応力勾配が厳しいため、空間分解能をできるだけ小さくすること、および、炭化状態が深さによって変化する、言い換えれば、組織が異なるため、熱処理によって無ひずみ状態の格子面間隔を測定することができないため、できるだけ小さい試料を切り出し、ランダムに回転させて平均的格子面間隔を測定する必要がある。平成18年度のトライアルユース制度での測定において、炭化材のように応力勾配が厳しく、組織勾配も有する材料では2mm角程度の大きさのクーボンを用いて無ひずみ状態の格子定数を求めるのは無理があるということが明らかとなった。そのため、別の手段として、深さ方向に細く切り出した棒状クーボンを用い、放射光を利用して無ひずみ状態の格子定数を測定することを検討中である。文部科学省では平成17年度に量子ビームプラットフォームの構築について検討会を持たれたが、単にX線や放射光、中性子を相補的に利用するだけでなく、上述のようなハイブリッド的な測定方法も追及していくべきと考える。

中性子回折による残留応力測定における今後の課題を纏めると、

- 1) 中性子束密度の改善による測定精度の向上と測定時間の短縮
- 2) 弾性定数の回折面依存性の簡易評価法
- 3) 組織勾配材の残留応力評価手法の開発
- 4) 表面近傍の残留応力評価手法の開発
- 5) 集合組織材の残留応力測定法

6) $\sin^2 \Psi$ 法の精度評価

7) TOF法による残留応力測定法の確立

が挙げられる。

鉄鋼材料における中性子実験に対する期待としては、大沼正人博士と鈴木淳市博士が解説された小角散乱によるマイクロ組織の定量測定があるが、自動車用鋼板に代表される高強度鋼などにおいては、水素脆化に対する課題がある。強度を上げるために元素を添加して微細析出物を形成させたときに、どこに水素がトラップされるのか、また、その水素が安定的にそのトラップサイトに留まっているのかを評価するには、水素に対して感度の高い中性子に期待が寄せられている。また、燃料電池自動車では、走行距離を一般自動車並みにするためには、水素を貯蔵する圧力を現状の300気圧から700気圧に上げることが必要である。安全性を考慮すると、アミラド繊維あるいはCCコンポジット材のような軽量で強度の高い材料による容器が必要となるが極めて高価になる。そのため、高強度鋼で代替することも検討されている。しかし、水素の充填と放出は平均的な走行距離の場合1週間に1度となり、低サイクル疲労に起因する損傷部に水素が集積して水素脆化を生じる可能性があり、これに対する安全性の評価にやはり中性子を利用することが考えられる。

また、鉄鋼材料に限らないが、金属材料の高温プロセスにおける介在物や析出物の挙動、あるいは、凝固組織の形成過程の把握に対するニーズも高いし、溶接凝固時のデンドライト組織の成長挙動や凝固収縮に伴う残留応力の形成過程のIn-situ観察などに対しても中性子の適用が考えられる。

10 あとがき

本稿では中性子の産業利用の状況について、主に残留応力測定や集合組織測定について述べたが、機械部品や構造物の信頼性に関わる残留応力の測定については残された課題がまだ多数ある。特に、国際競争力の強い自動車産業に関わる各種部品については中性子測定により信頼性を確保しつつ、生産コストを低減できる限界を狙った材料設計に貢献できる可能性が高いので、測定技術の高度化を図って行きたい。

鉄鋼材料に関しても析出物や介在物の挙動、あるいは、水素脆化の問題など多くの材料信頼性に関わる事象に対して中性子の適用が考えられ、トライアルユース制度や原子力機構の共用枠などの活用を通して測定実績を積み上げるとともに、開発課題の掘り起こしと測定技術の改良を進めるべきと考えている。また、J-PARCでのTOF測定ではJRR-3での角度分散法とは違う新しい測定手法も考えられ、放射光との相補的な利用、あるいはハイブリッド測定などについても関係者で知恵を出しあって挑戦して行きたいと思う次第である。

参考文献

- 1) 大強度陽子加速器計画：http://www.j-parc.jp/参照
- 2) 林眞琴：日本機械学会論文集 (A編), 67 (2001), 363.
- 3) 林眞琴：波紋, 5 (2001), 363.
- 4) M. Hayashi, S. Okido, Y. Morii and N. Minakawa : Materials Science Research Int., Special Technical Publication-1, (2001), 418.
- 5) K. Tanaka, Y. Akiniwa and M. Hayashi : Materials Science Research Int., 8 (2002), 165.
- 6) K. Tanaka and Y. Akiniwa : JSME International Journal, Series A, 47 (2002), 252.
- 7) 秋庭義明：材料, 54 (2005), 785.
- 8) 大沼正人, 鈴木淳市：ふえらむ, 11 (2006), 631.
- 9) Neutron Radiography Handbook, D. Reidel Publishing Company, 20.
- 10) 鈴木裕士, 菖蒲敬久：ふえらむ, 11 (2006), 701.
- 11) 林眞琴, 石渡雅幸, 皆川宣明, 船橋達, J.H. Root : 材料, 44 (1995), 1115.
- 12) T. M. Holden, J. H. Root, R. A. Holt and M. Hayashi : Physica, B213&214, (1995), 793.
- 13) 林眞琴, 石渡雅幸, 皆川宣明, 船橋達 : 材料, 44 (1995), 1464.
- 14) 鈴木裕士, T.M. Holden, 盛合敦, 皆川宣明, 森井幸生 : 材料, 54 (2005), 685.
- 15) H. Suzuki and T.M. Holden : J. Strain Analysis, 41 (2006), 575.
- 16) M. Mochizuki, M. Hayashi and T. Hattori : Trans. ASME, 122 (2000), 98.
- 17) A.J. Allen, M.T. Hutchings and C.G. Windsor : Advances in Physics, 34 (1985), 445.
- 18) Private letter from S. Okido
- 19) 林眞琴, 木本寛, 道下秀紀, J.H. Root : 材料, 46 (1997), 743.
- 20) M. Hayashi, S. Okido, Y. Morii, N. Minakawa and J.H. Root : Materials Science Forum, 426-432, (2003), 3969.
- 21) 秋庭義明, 木村英彦, 田中啓介, 神山崇 : 材料, 54 (2005), 692.
- 22) 日本原子力研究開発機構：http://www.jaea.go.jp/参照
- 23) (財)放射線利用振興協会：http://www.rada.or.jp/参照
- 24) 茨城県中性子利用促進研究会：http://www.sf21-ibaraki.jp/index.html参照

(2007年3月22日受付)