

特集 記事

中性子の利用 2 大強度陽子加速器 (J-PARC) を利用した材料評価

日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター

諸岡 聡 Satoshi MOROOKA

1. はじめに

中性子回折法は中性子の優れた透過能を生かすことで、数十 mm メーターオーダーの材料深部の応力・ひずみを非破壊で測定できる唯一の測定技術として知られており、種々の機械構造物の残留応力測定を通して、高性能、高信頼性、長寿命化を目指した製品開発や構造設計に大きく貢献している [1]。一方、材料強度や破壊メカニズムを議論するうえでは、単に残留応力を測定するだけでなく、弾性ひずみ(応力)や集合組織、転位密度等のマイクロ組織因子を定量的に評価することが重要である。

多くの実用材料は複数のマイクロ組織(複合組織)で構成されているため、不均一な塑性変形を起こす特徴があり、これに起因して内部応力が発生する。例えば、曲げ加工した板材は、板厚方向にマクロな応力分布が発生する。これを第一種(残留)応力(マクロ応力)と呼び、残留応力測定の主たる対象となる。一方、二つ以上の異なる材料を一体的に組み合わせた複合材料や複合組織を有する合金は、相界面や結晶粒界近傍にマイクロな応力分布が発生する。これを第二種(残留)応力(マイクロ応力)と呼び、マクロ応力と区別する必要がある [2, 3]。このマイクロ応力に起因する弾性ひずみ等の情報を得るうえで、中性子回折法は有効な手段であり、その優れた透過能から、マイクロ組織因子のバルク平均と力学特性との関係を求めて、材料開発や既存材料の信頼性を検討するのに適している。このように、中性子回折法は、従来の残留応力に基づく機械部品等の健全性評価だけでなく、材料の力学特性や機能性向上を目指した材料工学研究などへの応用が期待されている。

本稿では、中性子回折法によるひずみ測定原理などの基礎を説明するとともに、代表的な鉄鋼材料について中性子回折法によるその場測定により行われた材料評価研究の一端を紹介し、本手法の将来を展望する。

2. 中性子回折法による計測技術

2.1 中性子回折法によるひずみ測定

結晶粒は原子が規則正しく整列しており、これら原子は多数の平行な面(格子面)に属していると考えられる。波の性質を持つ中性子は、個々の原子核に当たるとあらゆる方向に散乱されるが、Bragg の回折条件式 (1) を満足する場合は、それらの散乱中性子が同一位相になって相互に干渉し、回折線を生じる。

$$2d^{hkl}\sin\theta^{hkl} = n\lambda \quad (1)$$

ここで、 d^{hkl} は特定の回折面 (hkl) の格子面間隔、 λ は入射中性子の波長、 n は回折次数を表わす。また、 θ^{hkl} は Bragg 角を表わし、 $2\theta^{hkl}$ を回折角と称する。この回折線を測定する方法には、角度分散 (AD : Angular dispersion) 法と飛行時間 (TOF : Time-of-Flight) 法がある。なお、AD 法については、前の「中性子の利用 I」で説明されているため、本稿では TOF 法のみ取り扱う。TOF 法中性子回折は、図 1 に示すように、広範のエネルギーを有する中性子を試料に入射し、中性子のエネルギー毎に、中性子の発生から試料での回折及び計測までの時間を測定する方法を測定原理としている。以下に、この測定原理を詳細に述べる。

TOF 中性子回折法は、図 1 に示すように、3GeV シンクロトロンで加速した陽子を水銀ターゲットに衝突させ、モデレータで減速させた広範のエネルギーを有する中性子を試料に入射し、中性子のエネルギー毎に、中性子の発生から試料での回折及び計測までの時間を測定する方法を測定原理としている。以下に、この測定原理を詳細に述べる。TOF 法では、中性子の粒子としての性質と波動としての性質はアインシュタインとドブロイの関係で結びつけられる。中性子が速度 v で飛行する時、中性子の波長 λ は式 (2) を用いて求められる。

$$p = \frac{h}{\lambda} = mv \quad (2)$$

ここで、 p は運動量、 h はプランク定数、 m は中性子の質量である。したがって、回折装置に固有な検出器までの中性子飛行距離 L が既知であれば、TOF から波長 λ が式 (3) と式 (4) を用いて決定できる。

$$v = \frac{L}{TOF} \quad (3)$$

$$\lambda = \frac{h}{mv} = \frac{h \cdot TOF}{mL} \quad (4)$$

検出器は特定の回折角 $2\theta^{hkl}$ に固定されているため、Bragg の回折条件式 (1) を用いて、波長 λ から結晶の特定の回折面 (hkl) の格子面間隔 d^{hkl} が測定でき、式 (4) を用いてその変化量からひずみ ε が求められる。

$$\varepsilon = \frac{(d^{hkl} - d_0^{hkl})}{d_0^{hkl}} = \frac{\Delta d}{d_0^{hkl}} \quad (5)$$

ここで、 d_0^{hkl} は無ひずみ状態の格子面間隔である。TOF 法は、一度の測定で広範囲の波長データを得ることができる。すなわち、個々の回折線の解析を行うことによって、回折面依存性を考慮したひずみ解析ができるとともに、複数の回折面からの情報を用いて、Reitveld 解析 [4] 等の格子定数 a の精密化手法を援用することによって、式 (6) を用いて全回折面の平均的なひずみ解析も可能になる。

$$\varepsilon = \frac{(a - a_0)}{a_0} = \frac{\Delta a}{a_0} \quad (6)$$

ここで、 a_0 は無ひずみ状態の格子定数である。

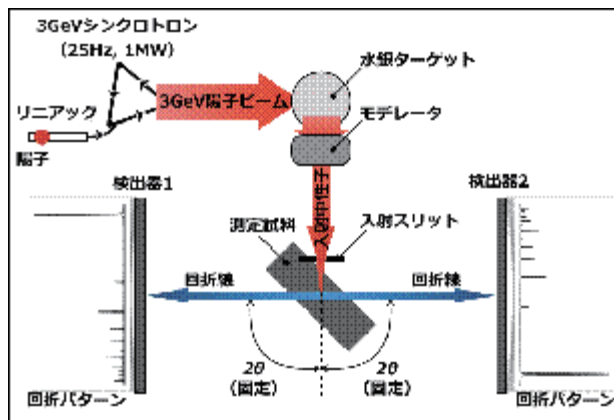


図1 飛行時間中性子回折法の原理

2.2 中性子回折法により得られるマイクロ組織因子

中性子回折法により得られる回折パターンでは、上述したひずみ(応力)以外に、マイクロ組織に関する多くの情報が含まれている。例えば、回折パターンから材料中どのような相がどれだけ含まれ、それらがどのような結晶構造をしているかが分かる。また、力や熱などの外場を加えた際の回折パターンの変化を評価すれば、構成相の体積率、結晶構造の変化が分かる。すなわち、力や熱などで誘起される相変態の様子を「その場観察」することが可能になる [5]。さらに、材料の方位に対する回折強度分布を測定すれば、その集合組織を定量的に評価することができる [6, 7]。

集合組織測定では、オイラークレドールと呼ばれる2軸 $\{\chi, \phi\}$ ゴニオメータ上に試料を設置し、その試料を回転させながら試料方位に対する回折強度分布を測定する。一般的には3つ以上の回折面の集合組織を測定し、そこから得られる結晶方位密度関数 (ODF : Orientation Distribution Function) から集合組織状態を定量的に評価する。TOF 法では、面積の広い検出器を活かすことで、集合組織の迅速測定が可能である [8]。

一方、回折線の幅には、材料に含まれる転位、積層欠陥、ドメインサイズなどの情報が含まれている。X線回折法においては、プロファイル解析として古くから普及している測定技術であるが、最近では中性子回折法への応用も行われている。特に、Ungár らが提案した CMWP (Convolutional Multi Whole Profile Fitting) 法を用いることで、TOF 法による転位密度の定量評価に関する研究が進められている [9]。

2.3 工学回折装置

現在、日本国内には、研究用原子炉 (JRR-3 : Japan Research Reactor No.3) のガイドホールに角度分散型の中性子応力測定装置 (RESA-1) が1台、大強度陽子加速器施設 (J-PARC : Japan Proton Accelerator Research Complex) の物質・生命科学実験施設 (MLF : Materials and Life Science Experimental Facility) に TOF 型の工学材料回折装置 (TAKUMI) が1台設置されている。なお、RESA-1 については、前の「中性子の利用 I」で説明されているため、本稿では TAKUMI の特徴のみを簡単に紹介する。

J-PARC MLF には、ビームライン No.19 に TOF 型の工学材料回折装置「匠 (TAKUMI)」が設置されている [10]。図2は TAKUMI の外観写真を示す。加速器周期 25Hz で発せられた白色のパルス中性子は、スーパーミラーガイド管を通じて実験ハッチ内に導入される。4象

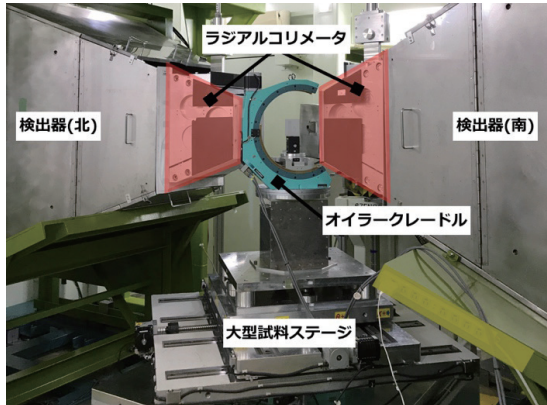


図2 TAKUMI (J-PARC MLF)の外観

限スリットによって成形された中性子は、回折計に設置された試料に入射され、 $2\theta = \pm 90^\circ$ に設置された $\pm 15^\circ$ の見込み角を有する検出器によって回折線が測定される。回折計には、試料台面積 $800\text{mm} \times 800\text{mm}$ 、耐荷重 1000kgf の4軸 $\{X, Y, Z, \theta\}$ ゴニオメータが設置されている。水平方向 (XY 方向) には $\pm 300\text{mm}$ 、垂直方向 (Z 方向) には 800mm 移動できる。TAKUMI の最高装置分解能は最高で 0.2% 以下であり、RESA-1 よりも高いひずみ分解能を有する。また、環境装置として、

1273K までの高温、室温、4K までの極低温環境で試験可能な引張・圧縮試験機、疲労試験機、赤外線加熱炉、熱膨張計、加工熱処理シミュレータ等が整備されている。

3. 応用例

構造材料の用途に応じた力学特性を得るためには、化学組成の適切な選択に加えて、最適なマイクロ組織を作り込むなど、冶金学的な制御が重要である。そこで、このマイクロ組織の変化を定量評価するとともに、その力学特性との関係を明確にすることが、強度特性に優れた材料の創製に必要である。中性子回折法によるその場測定は、中性子の高い透過能を活かすことで、直接観察が困難な、変形中の鉄鋼材料における弾性ひずみ、転位密度、集合組織のバルク平均定量評価できる測定技術として知られている [11]。

中性子回折法による変形中その場測定は、図2で示した中性子回折計の大型試料ステージ上に最大荷重出力 50kN の引張・圧縮試験機を設置して行う。例えば、引張試験を考えた場合、図3(a)に示すように、入射中性子に対して $\pm 90^\circ$ 方向に設置された2台の検出器により、引張軸方向及びその直交方向の回折パターンを同時に測定することができ、その結果から、材料のマイクロ組織と力学特性の変化を評価することができる。

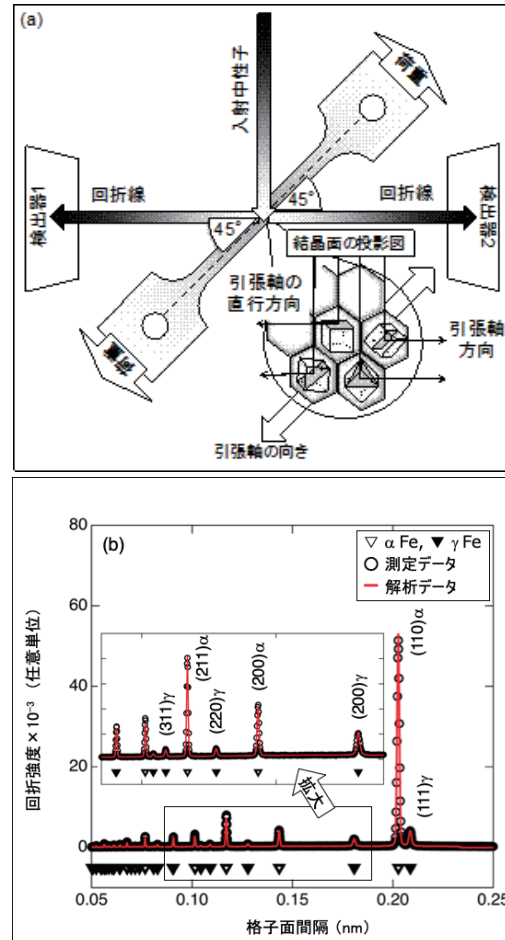


図3 中性子回折法による変形挙動その場観察の模式図 (a) と TOF 法による低合金 TRIP 鋼の回折パターン例 (b)

図3(b)は中性子線源出力 300kW 時における TOF 型の TAKUMI を使用して、約 5min の蓄積時間で得られた低合金 TRIP 鋼の回折パターンの一例を示す。これは TAKUMI に設置された片側の検出器2で測定されたもので、格子面間隔 0.05 から 0.25nm までのデータである。例えば、低合金 TRIP 鋼では、体心立方格子 (b.c.c. : body center cubic) である αFe と面心立方格子 (f.c.c. : face center cubic) である γFe で構成された複合組織鋼である。この回折パターンから得られる複数の回折面からの情報を使用して、Reitveld 解析を援用することによって、 αFe と γFe のそれぞれの格子定数と体積率を求めることができる。

3.1 ステンレス鋼の変形挙動その場観察

ステンレス鋼は、表面に不動態被膜という、非常に薄い保護被膜を形成する働きを持つため、錆びに強く、いつまでも美しい状態を維持する鋼で、主に鉄 (Fe) に 11% 以上のクロム (Cr) を含有する合金鋼である。そのため、輸送機器、建築・土木、医療、野外彫刻等、幅広

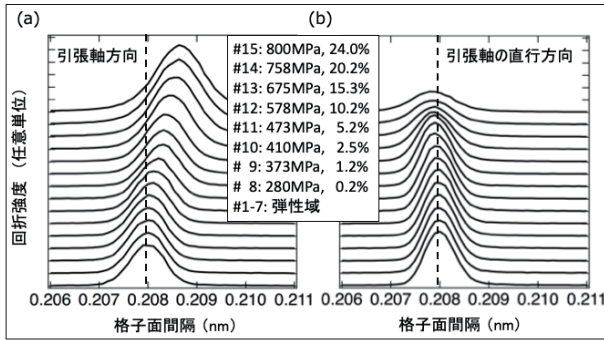


図4 中性子回折法による変形挙動その場観察で得られたステンレス鋼の引張応力に伴う111回折の引張軸方向(a)とその直交方向(b)の変化

い用途で使用されている。

図4は、中性子回折法による変形挙動その場観察で得られたステンレス鋼の引張軸方向及びその直交方向の111回折の外力に対する変化を示す。引張軸方向では外力の増加に伴い格子面間隔が広がり、回折強度が大きくなる(図4(a))。一方、直交方向では外力の増加に伴い格子面間隔が狭まり、回折強度が小さくなる(図4(b))。すなわち、多結晶体中の{111}結晶粒群における荷重負担の変化とすべり変形に伴う結晶回転({111}変形集合組織の形成)を反映した結果が得られている。ここで、{hkl}結晶粒群とは、引張軸方向及びその直交方向等の任意の方向に散乱ベクトルの向く結晶粒の集合体を示す。

次に、図5は111回折から311回折の格子ひずみの変化と外力との関係を整理した結果であり、{hkl}結晶粒群により異なる傾向を示した。多結晶体では、{hkl}結晶粒群の回折弾性係数がそれぞれ異なるため、弾性域のひずみ変化量に差が現れる。これが弾性異方性であり、この傾向はマイクロメカニクスによって説明できる。外力が0.2%耐力に達すると、それぞれの回折面のひずみ変化の差はより大きくなる。これは、{hkl}結晶粒群ごとに異なる不均一な塑性変形を生じた結果であり、その結果、例えば引張軸方向の{200}結晶粒群は、{220}結晶粒群より大きな引張応力を担うことになる。このように、マクロには単純な弾塑性変形を示す単相多結晶材料であっても、ミクロな視点で見れば、結晶粒群ごとに異なる変形挙動を示すことが分かる。一方、塑性変形により生じる結晶粒界のミクロな不整合ひずみは、材料内部の不均一な応力場を発生させる。この応力場は、線欠陥(転位)の動きに対して抵抗になるため、ステンレス鋼の初期の大きな加工硬化を生み出す要因になると考えられている[12]。

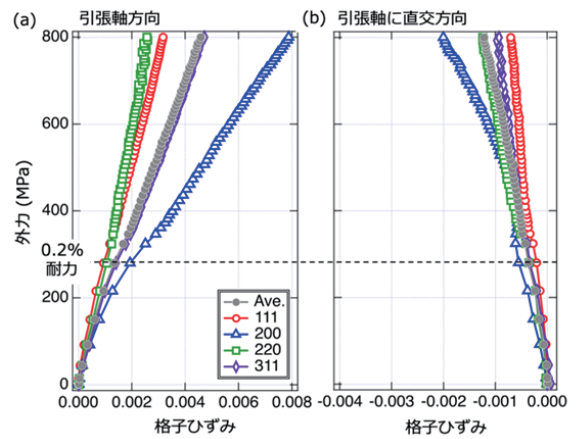


図5 中性子回折法による変形挙動その場観察で得られたステンレス鋼の外力と引張軸方向(a)とその直交方向(b)の格子ひずみの関係

3.2 低合金 TRIP 鋼の変形挙動その場観察

低合金 TRIP 鋼のような延性2相合金の場合、引張応力の変化は、2相とも弾性変形する段階(Stage I)、片方の軟質な相のみが塑性変形する段階(Stage II)、2相とも塑性変形する段階(Stage III)、局部変形する段階(Stage IV)の4つの段階で分類できる[13]。さらに、この低合金 TRIP 鋼は、これらの段階に加えて、塑性変形や衝撃等の外力が加えられることで、 γ Fe が鋼組織で最も硬いマルテンサイトに変態する加工誘起変態も関係する。そこで、図4(a)及び(b)の図中に示すように、 α Fe 結晶相の塑性変形が開始する引張応力を“P1”、 γ Fe 体積率が減少する加工誘起変態が開始する引張応力を“P2”、 γ Fe 結晶相の塑性変形が開始する引張応力“P3”と定義し、上述の分類を基にそれぞれの段階を Stage I、Stage II、Stage IIIと記述する。

図6(a)は、外力と α Fe及び γ Feの格子ひずみの変化の関係を整理した結果であり、 α Fe及び γ Fe結晶相の結晶構造により異なる傾向を示した。ここで、 α Fe及び γ Fe結晶相とは、引張軸方向及びその直交方向に散乱ベクトルの向く結晶相を示す。Stage Iでは、引張軸方向の α Fe及び γ Fe結晶相が、正(引張ひずみ)方向に、引張軸の直交方向の α Fe及び γ Fe結晶相が、負(圧縮ひずみ)方向に、Hooke則に従うように直線変化する。

外力が0.2%耐力に達すると、それぞれの結晶相のひずみ変化の差はより大きくなる(Stage II)。これは、結晶相ごとに異なる不均一な塑性変形を生じた結果であり、その結果、 γ Fe結晶相は、 α Fe結晶相より大きな引張応力を担うことになる。すなわち、 α Fe結晶相が優先的に塑性変形を開始(P1)したことで荷重負担が減少し、それを補うために γ Fe結晶相への荷重負担が増

加した結果である。この荷重荷担の変化は、 α Fe 結晶相と γ Fe 結晶相の界面にマイクロな不整合なひずみを生じさせる。この不整合なひずみは、塑性変形によって新たに導入される転位の大きな障害となるため、加工硬化の促進につながると考えられている。また、外力が P1 に達すると、 α Fe 結晶相が塑性変形を開始することから、この低合金 TRIP 鋼の 0.2% 耐力は、 α Fe 結晶相のマイクロ応力に依存していることもわかる。ここで、図 6(b) を見ると、外力が P1 に達すると、 γ Fe 体積率も減少する加工誘起変態が開始する (P2)。

さらに、Stage III では γ Fe 結晶相のひずみ変化が小さくなり、再び α Fe 結晶相のひずみ変化が大きくなる。この変化は、 γ Fe 結晶相が塑性変形を開始 (P3) したことで荷重荷担が減少し、それを補うために転位が導入され、加工硬化した α Fe 結晶相への荷重荷担が増加した結果である。

このように、加工誘起変態が、局所変形を抑制することで大きな加工硬化を生み出す役割を果たすことが知られている低合金 TRIP 鋼であっても、マイクロな視点で見れば、 γ Fe 結晶相自体も加工硬化を促進させる振る舞い、すなわち転位の抵抗となる応力場を生み出す働きをしていることがわかる。本実験結果は、このような γ Fe 結晶相の変形挙動も低合金 TRIP 鋼の高い加工硬化能を発現する要因の一つであることを証明している。

以上のように、中性子回折法によるその場観察は、バルク平均のマイクロ組織変化の定量評価に有効な手段であり、本測定技術を用いることで、鉄鋼材料の変形機構や強度発現機構の理解につながる重要な知見を得ることができる。

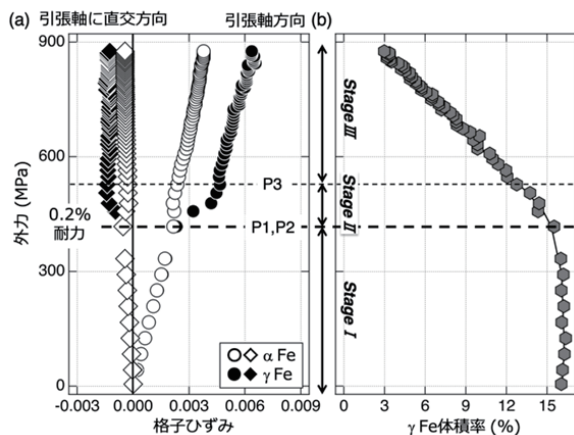


図 6 中性子回折法による変形挙動その場観察ので得られた低合金 TRIP 鋼の外力と引張軸方向とその直行方向の格子ひずみの関係 (a) と外力と γ Fe 体積率の関係 (b)

4. おわりに

本稿では、中性子線による応力・ひずみ測定技術および既存の工学回折装置の特徴について、応用例を交えて紹介した。中性子回折法は、中性子の優れた透過能を活かすことで、試料全体のバルク平均の応力・ひずみ状態を測定できる特徴があり、材料の力学的性質との関係を求めて材料開発や既存材料の信頼性を検討するのに適している。

これまでは、単軸変形等の比較的遅い現象の材料評価研究が行われてきたが、近年、J-PARC の中性子線源出力が 500kW へ増強されたことで、高温環境下での試験等の比較的速い現象の材料評価研究も可能になった。更に、最初は、マイクロメカニクスの理論構築のために複合材料の実験が多く見受けられたが、近年では、ハイエントロピー合金やミルフィュー構造材料等の話題性のある新材料の研究が増えている。

現在、中性子回折法による応力・ひずみ測定を行う場合、国内に 2 箇所ある研究炉又は、加速器による大型中性子実験施設を利用することになる。特に、J-PARC は、中性子線源の 1MW へ向けた出力増強と各種実験機器の増設が進められており、中性子回折法を用いた材料評価研究は、新しい発展を迎えることが期待される。

参考文献

- [1] 鈴木裕士：“中性子回折法による応力測定技術とその応用”，真空，Vol.53, No.12, pp.11-17 (2010).
- [2] P. J. Withers, H. K. D. H. Bhadeshia: “Overview Residual stress Part 1 – Measurement techniques”，Materials Science and Technology, Vol.17, pp.355-365 (2001).
- [3] P. J. Withers, H. K. D. H. Bhadeshia: “Overview Residual stress Part 2 – Nature and origins”，Materials Science and Technology, Vol.17, pp.366-375 (2001).
- [4] R. Oishi, M. Yonemura, Y. Nishimaki, S. Torii, A. Hoshikawa, T. Ishigaki, T. Morishima, K. Mori, T. Kamiyama: “Rietveld analysis software for J-PARC”，Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, Vol.600, pp.94-96 (2009).
- [5] M. R. Daymond and H. G. Priesmeyer, “Elastoplastic deformation of ferritic steel and cementite studied by neutron diffraction and self-consistent modelling”，Acta Materialia, Vol.50, pp.1613-1626 (2002).

- [6] P. G. Xu, K. Akita, H. Suzuki, N. Metoki and A. Moriai, “Establishment and Optimization of Angle Dispersive Neutron Diffraction Bulk Texture Measurement Environments” , Materials Transactions, Vol.53, pp.1831-1836, (2012).
- [7] P. G. Xu, S. Harjo, M. Ojima, H. Suzuki, T. Ito, W. Gong, S. C. Vogel, J. Inoue, Y. Tomota, K. Aizawa, K. Akita, “High stereographic resolution texture and residual stress evaluation using time-of-flight neutron diffraction” , Journal of Applied Crystallography, Vol.51, No.3, pp.746-760 (2018).
- [8] Y. Onuki, A. Hoshikawa, S. Sato, PG. Xu, T. Ishigaki, Y. Saito, H. Todoroki, M. Hayashi, “Rapid measurement scheme for texture in cubic metallic materials using time-of-flight neutron diffraction at iMATERIA” , Journal of Applied Crystallography, Vol.49, No.5, pp.1579-1584 (2016).
- [9] 友田 陽, 佐藤 成男, ステファヌス ハルヨ, “中性子・X線回折ラインプロファイル解析の最近の進歩” , 鉄と鋼, Vol. 103, pp.73-85 (2017).
- [10] S. Harjo, T. Ito, K. Aizawa, H. Arima, J. Abe, A. Moriai, T. Iwahashi and T. Kamiyama, “Current Status of Engineering Materials Diffractometer at J-PARC” , Materials Science Forum, Vol. 681, pp.443-448 (2011).
- [11] 友田 陽: “しなやかで強い鉄鋼材料—革新的構造用金属材料の開発最前線, 一第2節 量子線回折による弾塑性変形挙動の解析—”, エヌ・ティー・エス, 東京, (2016).
- [12] K. Suzuki and T. Shobu: “Intergranular Strains of Plastically Deformed Austenitic Stainless Steel” , EJAM, Vol. 10, No. 4, pp. 9-17 (2019).
- [13] 友田 陽, 田村今男, “延性2相高強度鋼板の強度・延性と組織” , 鉄と鋼, Vol. 68, pp.1147-1158 (1982).

(2020年2月24日)

著者紹介

著者: 諸岡 聡
 所属: 日本原子力研究開発機構
 物質科学研究センター
 専門分野: 材料工学、量子線工学