中性子回折による残留応力測定技術の確立と中性子産業利用の促進

林 眞琴

(総合科学研究機構)

Establishment of Residual Stress Measurement Technique and Promotion of Industrial Application of Neutron to Industry

Makoto Hayashi

Comprehensive Research Organization for Science and Society

ABSTRACT

Residual stress measurement technique using neutron diffraction has been developed with supports of Canadian Neutron Beam Center and JAERI (Present JAEA). As Ibaraki Prefecture installed two neutron diffraction apparatuses in J-PARC MLF, I took office as Senior Director. In 2008, I established Industrial Users Society for Neutron Application. Now a number of member is 50 (2 institutes, 48 companies). For the promotion of industrial application, 10 research groups are organized, two type training sessions are held and delivery courses at the companies are held. These activities lead to the allocated proposals for J-PARC MLF occupy about 30% through from 2008 to 2017. This value is incredibly higher compared with the world's most advanced experimental facilities.

Keywords: *Neutron diffraction, Residual stress, Texture, Industrial application*

1. はじめに

中性子回折による残留応力測定の研究に取り組み始めたきっかけは工場からの依頼でした。1990年に原子力プラントの小口径配管の接続部に用いられているソケット溶接継手において疲労き裂の貫通により蒸気漏洩が発生しました。溶接金属ルート部の残留応力が高いことが要因であると推定されましたが、有限要素法の解析に頼るしかないという状況で、検査部門から何とか測定できないかとの相談が持ち込まれました。測定する場所は小口径配管の内部であるため、X線回折法やひずみゲージ法は適用できず、侵入深さの大きい中性子回折法しかないと伝えたところ、測定して欲しいとのことでした。JRR-3で中性子実験を行っていることは承知していましたが、企業が使える環境にないということで、海外の施設を利用することになりました。海外施設の技術レベルと測定費用の見積りを比較調査するため、米国、カナダ、イギリスなど5施設を訪問することになりました。JRR-3は利用できないとしても、実験装置や研究体制がどのようになっているかは把握しておくべきということで、海外調査の2週間前につてを頼って当時の原子力研究所東海研究所材料研究部の船橋達部長を訪問しました。森井幸生氏と皆川宣明氏に中性子回折による構造物内部の残留応力測定方法を説明したところ、その場で共同研究をす

ることになりました。また、偶然ですが私たちが議論している傍に当時室蘭工業大学の博士課程におられた大沼正人北海道大学教授が居合わせておられました。海外調査の結果、当時のAECLのChalk River Laboratories（現在はCanadian Neutron Beam Centre, NRC）で測定することになりました。

Chalk River Lab.ではT. Holden博士や現在所長を務めているJ. H. Root博士らが非常に懇切丁寧に対応してくれました。後述する弾性定数の回折面依存性を明らかにするため、測定費用として支払った大半のお金を使って、回折装置に載る引張試験装置を特注で製作してくれ、中性子回折法による残留応力測定技術を確立することができました。そのうえで、問題のソケット溶接継手や配管突合せ溶接継手における残留応力を測定しました。それらの成果を元に、JRR-3に日本で最初の中性子残留応力測定装置（RESA:Residual Stress Analyzer）を東海研究所と共同で設計・製作し、一般ユーザーの利用に供して来ました。

J-PARCが建設されることになり、茨城県では産業利用のために2台の中性子実験装置（現在のBL20材料構造解析装置「iMATERIA」とBL03生命物質構造解析装置「iBIX」）を整備することになりました。私はそれら2台の装置の統括する茨城県企画部技監に2006年に就任し、実験装置の設計段階から現在の運営体制の確立まで関わりました。

2 台の実験装置の産業利用を図るために、茨城県では 2005 年から茨城県中性子産業利用促進研究会を組織し、13 個の個別研究会を設立しました。私は 2 台の装置の産業利用を促進するためには、産業界としての活動組織を作るべきと考え、中村道治日立製作所副社長(現 JST 顧問)にお願いし、中性子産業利用推進協議会を発足させました。この協議会では中性子の利用促進を図るため 10 個の研究会を組織し、産業界のニーズと施設側のシーズのマッチングを図る努力を重ねてきました。2017 年 4 月現在、研究会の登録メンバーは延べでは 1,660 名です。

JRR-3 においては 2006 年に開始されたトライアルユース制度の効果が、順調に産業利用が拡大していましたが、残念なことに 3.11 大震災以来運転を停止しています。J-PARC MLF においては 2008 年の供用開始以来、順調に産業利用採択課題が増えていましたが、2012 年以降は 40 件程度でやや停滞気味です。なお、茨城県 BL では産業界の利便性を考慮して 2012 年から運転サイクル毎に課題を受付ける随時受付制度を開始し、2016 年からはいつでも課題を受付ける制度に変更しました。さらには、2014 年から利用者が MLF に来なくても装置グループが測定してデータと試料を返送するメールインサービス制度を始めました。これらの効果があり、「iMATERIA」では約半数の課題が成果専有での利用となっています。

以下、受賞に関わる残留応力測定技術の開発と中性子の産業利用の概要をご紹介します。

2. 中性子回折による残留応力測定

中性子回折による構造物の残留応力測定の試みは 1975 年頃から盛んに行われていました[1]。しかしながら、それらは残留ひずみの測定に留まり、精度良い応力測定とは言えませんでした。それはひずみから応力に変換するときに必要となる弾性定数(ヤング率 E 、ポアソン比 ν)の回折面依存性が考慮されていなかったことにあります。そこで、応力測定技術を確立するため、まず、弾性定数の回折面依存性を明らかにするとともに、弾性定数

Fig. 1. Dependency of elastic constant on diffraction plane.

の回折面依存性を簡易的に評価する手法を開発しました。Fig. 1 に炭素鋼における弾性定数(ヤング率) E の回折面依存性を示します[2]。最も柔らかい 200 回折のヤング率が $E=182\text{GPa}$ であるのに対して、最も硬い 222 回折のヤング率は約 50% 高い $E=268\text{GPa}$ です。このことは弾性定数の回折面依存性を考慮して応力を評価しないと測定精度が悪いことを意味します。

Fig. 2. Comparison of estimated Young's modulus by using Kroner's model and measured Young's modulus.

Fig. 1 のような弾性定数の回折面依存性を調べるには数日を要します。そこで簡易的に弾性定数を求める方法を考案しました。それは Kroner モデルを使って金属単結晶の各回折面の弾性定数を求め、それを金属単結晶のマクロな弾性定数と測定する材料のバルクの弾性定数の比で補正するというものです。そのようにして求めたヤング率を横軸に、中性子回折により測定されたヤング率を縦軸にとって Fig. 2 に示します[3]。測定した材料はアルミニウム合金(A2024)と Zr 合金(Zr-2.5Nb)、オーステナイト系ステンレス鋼(SUS304)、炭素鋼(STS410)の 4 種です。測定値は簡易的に求めたヤング率とほぼ一致します。この方法では引張試験結果さえあれば良いことになり、非常に効率的です。

次に、炭素鋼配管の突合せ溶接継手における残留応力を測定しました。その結果を Fig. 3 に示します[4]。周方向残留応力は溶接金属で降伏応力を超える高い引張応力で、それとバランスするかたちで、溶接金属中心から 20mm 離れたところが圧縮応力となっています。強度上重要な軸方向応力は内面の熱影響部で比較的高い引張応力となっています。この残留応力分布は有限要素法により解析した結果とよく一致しており、有限要素法による解析方法の妥当性を証明するものとなっています。

炭素鋼ソケット溶接継ぎ手における残留応力分布を Fig. 4 に示します[5]。測定位置は図中右上に示したように、溶接ルート部の外面側①からルート部④、ルート部近傍⑤からトウ部⑧の 8 か所です。いずれの位置でも軸方向、周方向、半径方向

Fig. 3. Residual stress distributions in butt-welded carbon steel pipe.

Fig. 4. Residual stress distributions in socket-welded carbon steel pipe.

応力はほぼ同じような値で静水圧的な応力分布となっています。外面①では圧縮応力で、ルート部に向かって引張応力となり、ルート部④では最大130MPaとなっています。配管側⑥、⑦からトウ部⑧では応力の絶対値は50MPa以下と低い応力です。有限要素法で解析した結果、④と⑤を除いてはよく一致しました。①から④に向かっては応力勾配がきつく、ゲージ体積が1mmと大きいため④の局部応力を精度良く測定することができません。有限要素法による解析ではルート部の残留応力は約200MPaで、ソケット継ぎ手の疲労試験結果と一致しました。中性子回折による測定と有限要素法による解析を相補的に利用すべきであるということになります。

Fig. 5. Photograph of first RESA (Residual Stress Analyzer) installed in Guide Hall of JRR-3.

Fig. 6. Tangential residual stress distribution in bent carbon steel plate measured using by RESA.

3. RESA の建設と利用

Chalk River Lab.での成果を踏まえ、JRR-3の熱中性子ガイド T2-1 にあった回折装置を改造して RESA を 1992 年に設置しました。当時の RESA の写真を Fig.5 に示します[6]。新たに製作したのは入射側と回折側の飛行管周り xyz3 軸ゴニオメータだけで、その他の機器は従来からあったものです。

RESAを利用して測定した結果の一例をFig.6に示します[6]。測定試料は板厚10mmの炭素鋼 SM400 で、内半径40mmで曲げ塑性加工したもので、その接線方向応力の分布です。多少ばらついていますが、内径側から外径側に向かって引張-圧縮-引張-圧縮の典型的なパターンとなっています。これを手始めに日立製作所と原研東海との共同研究というかたちで様々な構造物の残留応力を測定しました。

4. 集合組織材における残留応力測定

集合組織を有する材料の残留応力測定はX線回折法でも頭を痛めている問題です。中性子回折では測定方向によって測定する回折面を変えることで対応することにしました。これはX線回折法ではできない中性子の特異なところです。方向によって回折面を変えて測定する場合、Fig. 1 に示したように弾性定数の回折面依存性を考慮してひず

みを特定の回折面に合わせて補正することが必要です。ある方向のひずみを 200 回折で測定し、基準とする 222 回折に補正する場合には下式を用います。

$$\varepsilon(222) = \varepsilon(200) \frac{E(200)}{E(222)}$$

この方法をアルミニウム合金 A7050 で作製した冷し嵌め材に適用しました。冷し嵌め材の寸法は、リングが外径 50mm、内径 25mm、長さ 50mm で、プラグは外径 25.1mm です。プラグを液体窒素で冷却してリングに差し込みました。A7050 の集合組織を測定した結果に基づき、軸方向は 200 回折、周方向と半径方向は 111 回折を測定し、111 回折を基準としました。周方向残留応力の測定結果を Fig. 7 に示します。プラグには約 90MPa のほぼ均一な圧縮応力が生じています。リングには内周側で約 250MPa、外周側で約 150MPa の引張応力となっています。これらの分布は有限要素法による解析値とよく一致しました。従って、この方法が集合組織材の残留応力測定法として有効であると言えます。

Fig. 7. Hoop residual stress distribution in shrink-fitted aluminum alloy.

5. 集合組織の測定

4. で述べたように残留応力測定においては集合組織を把握しておくことが必要です。それとは別に鉄鋼材料に限らず多くの材料は塑性加工を受けて集合組織を有しており、それがプレス成形性や疲労強度などに影響を及ぼすため、集合組織は定常的に測定されています。通常は X 線回折法で測定しますが、全極点図を作成する場合、反射法と透過法の両方で測定しなければならず、測定に時間と手間がかかります。また、X 線の侵入深さは数十 μm と小さいので表面層しか測定することができません。一方、中性子は浸入深さが鉄鋼でも数十 mm ありますのでバルク平均を測定できるという強みがあります。茨城県の材料構造解析装置「iMATERIA」では約 1,500 本の ^3He 検出器が試料を取り囲むようにほぼ全方位に配置されているため、集合組織の測定に向いています。

そこで、米国 LANL LANSCE の集合組織測定装置である「HIPPO」用に開発された MAUD という

Fig. 8. Pole figures of 20% cold-rolled duplex stainless steel (SUS329J4L).

ソフトを活用した集合組織解析ソフトを開発しました。パルス中性子源の TOF(飛行時間法)では多数の回折ピークを同時に測定できることを活かしたのが MAUD です。iMATERIA では小角バンク検出器を除く 1,470 本の検出器を 888 領域に分け、それらをさらに 132 群に分けました。方位として抜けているところを補完できるのが MAUD の特長的な機能です。開発したソフトを使って 20%冷間圧延した 2 相ステンレス鋼 SUS329J4L の極点図を Fig. 8 に示します[9]。フェライト相とオーステナイト相で多数の回折面を測定できますが、ここでは代表的な面だけを示しました。集合組織解析に必要な測定時間は MLF のビーム出力が 500kW であれば僅かに 2 分程度と非常に短時間です。MLF のビーム出力が 1MW になれば、鉄鋼の変態時、あるいは、塑性変形中の集合組織の変化を *in situ* で測定することも可能になります。

6. 中性子の産業利用

中性子の産業利用を促進するために 2008 年 5 月に中性子産業利用推進協議会を設立しました。当初は産総研などの研究機関も含めて会員数は 57 でしたが、リーマンショックなどの影響もあり、2017 年度は 2 研究機関と 48 企業の 50 会員で運営しています。協議会の主たる活動は、中性子利用の利便性を改善するために施設や文部科学省に対して提言することと、利用を普及させるための研究会活動です。

現在、10 個の研究会では MLF の利用成果や放射光などを利用した関連研究成果などを紹介する研究会を年間 12 回程度開催するとともに、中性子実験技術講習会や、いわゆる「出前講座」である企業セミナーなどを開催しています。Fig.9 に研究会の登録者数の推移を示します。2009 年に 250 名余りであった登録者数が徐々に増え、2017 年には 1,354 名となりました。複数の研究会に登録されている方もおられ、延べでは 1,660 名です。

その結果、Fig. 10 に示すように産業利用課題数はこの数年、各期約 40 件で推移しています。茨城県ではユーザーが利用し易いように 2012A 期から運転サイクル毎に課題申請できる随時課題受付制

Fig. 9 Trend of number of members registered for studying group.

Fig. 10 Trend of industrial usage in J-PARC MLF.

Fig. 11 Classification of proposal application to MLF.

度を開始し、さらに、2016A 期からは年間 2 回受け付けていた定期課題募集を止め、いつでも課題を受け付ける制度に変更しました。この場合、申し込みから 45 日以内に実験できます。また、2014B 期からは iMATERIA においてメールインサービスも開始しました。これはユーザーが MLF に来る必要はなく、試料を茨城県が提供するホルダーに詰めて送付すれば、装置グループが測定し、測定終了後、試料と測定データをユーザーに送り返すというもので、ユーザーにとっては大変利用しやすい制度です。

このような施策により、MLF の産業利用は順調であり、Fig. 11 に示すように 2008 年の供用開始以来の課題数に占める産業界の割合は 29.1%と、世界の同様な施設に比して非常に大きいという結

果になっています。また、Fig. 10 に示してありますが、随時受付制度を開始した 2012A 期以降の iMATERIA における成果専有の利用比率は約 50% となっています。このことは中性子が材料開発において非常に有効であることを産業界が認識されていることを示しています。

7. おわりに

1991 年に JRR-3 改造炉が運転開始するまで産業界が中性子を利用することは皆無でした。私は偶々必要があって利用を始め、残留応力測定技術の基本的なところを開発し、様々な構造物を測定して原子力機器の信頼性向上に寄与して来ました。その結果、J-PARC MLF に茨城県が産業利用ビームラインを整備するに当たって、運営統括する技監に就任することとなり、中性子産業利用推進協議会を設立して産業利用促進活動を推進して来ました。最近、産業界の利用比率が以前に比して少し低迷している感がなきにしも非ずですが、20% 程度が妥当なところではないかと思います。これを維持できるように引き続き利用促進活動を推進して行きたいと思いますので、施設側のご支援、ご協力を賜りますようお願い申し上げます。

謝辞

中性子による残留応力測定技術を確立するに当たりましては当時の Chalk River Laboratories や原子力研究所東海研究所、日立製作所など多くの皆さまのご協力をいただきました。この場を借りて心よりお礼申し上げます。

参考文献

- [1] A. J. Allen, M. T. Hutchings and C. G. Windsor, *Advances in Physics*, **34**, 445 (1985).
- [2] 林眞琴, 石渡雅幸, 皆川宣明, 船橋達, J. H. Root, *材料*, **45**, 1115-1120 (1995).
- [3] M Hayashi, S. Ohkido, Y. Morii and N. Minakawa, *Mat. Sci. Res. Int. STP-1*, 418-423 (2001).
- [4] 林眞琴, 石渡雅幸, 森井幸生, 皆川宣明, *材料*, **45**, 772-778 (1996).
- [5] 林眞琴, 石渡雅幸, 皆川宣明, 船橋達, *材料*, **44**, 1464-1469 (1995).
- [6] 林眞琴, 大城戸忍, 皆川宣明, 森井幸生, *材料*, **47**, 420-426 (1998).
- [7] 林眞琴, 木本寛, 道下秀紀, J. H. Root, *材料*, **46**, 743-749 (1997).
- [8] 大城戸忍, 林眞琴, 秋庭義明, 田中啓介, 皆川宣明, 森井幸生, *材料*, **54**, 333-338 (2005).
- [9] Y. Onuki, A. Hoshikawa, S. Sato, P. Xu, T. Ishigaki, Y. saito, H. Todoroki and M. Hayashi, *J. Appl. Cryst.* **49**, 1579-1584 (2016).