1. J-PARC で展開される中性子科学

工学材料回折装置の概要と可能性

日本原子力研究開発機構 J-PARC センター ステファヌス ハルヨ

Stefanus HARJO: Introduction of The Engineering Materials Diffractometer and Application Possibilities

The Engineering Materials Diffractometer TAKUMI designed to solve many problems in materials science and engineering including investigations of stresses and crystallographic structures within engineering components is now being developed at J-PARC. TAKUMI views a decoupled-poisoned liquid H₂ moderator with the primary and secondary flight paths of 40 m and 2.0 m, respectively. A curved supermirror neutron guide with the total length of 30 m is installed in between the primary flight path. TAKUMI has a pair main detector with the scattering angle of 90°. The best resolution of this instrument is 0.15 %, which corresponds to the strain value of about 75×10^{-6} . The incident fluxes simulated using a Monte Carlo simulation for a wavelength bandwidth of 0.8-4.31 Å are 4.8×10^7 n/cm²/s at high intensity mode, and 2.2×10^7 n/cm²/s at high resolution mode. The construction is now in a middle stage where some parts are in installation. The construction is planned to be completed as the first phase on April 2008, and the commissioning program will be started during 2008.

1. はじめに

1.1 工学応用の回折

中性子はその大きな透過能力のため結晶材料内部の弾性ひずみを測定するには非常に有効で、材料のさまざまな工学的特性を調べるために最近よく用いられる。¹⁾ 中性子回折によるひずみ測定は、格子面間隔の相対的値の精密な測定に基づく。最近、この測定法は、工学応用の回折手法とよく呼ばれており、模式的に図1に示す。具体的には下記の式で表す。

$$\varepsilon_{hkl} = \frac{d_{hkl} - d_{hkl}^0}{d_{hkl}^0} \quad (1)$$

ここで、 ε_{hkl} は弾性ひずみ、 d_{hkl} は測定された回折面間隔、 d_{hkl}^0 は応力フリー状態の基準回折面間隔である。測定された弾性ひずみは Hooke の法則²⁾ を用いて応力に計算される。例えば、鋼における典型的な弾性（残留）ひずみは 100×10^{-6} 程度であるため、面間隔の変化は Å 表示の場合、下4桁以降に表れる。そのため、工学応用の回折実験を行うために十分な分解能をもつ中性子回折装置を使用しなければならない。また、図1に模式的に説明してあるように、ひずみの存在は面間隔の変化のみでなく、プロファイルの広がりも引き起こす。プロファイル広がりからの解析から粒子サイズおよびマイクロひずみの情報を引き出すことは可能である。工学応用回折手法の実験装置は、機械部品の安全性や寿命にかかわる製造後または使用後に存在する残留応力などの測定に今まではほとんど使用されて

図1 工学応用の回折法の模式図。(Illustrated view of neutron diffraction for engineering application.)

いるため、残留応力解析装置ともよく呼ばれている。

1.2 J-PARC の工学材料回折装置「匠」

わが国では、中性子回折を用いた応力測定やその他の工業的応用は日本原子力開発研究機構の角度分散型の残留応力解析用回折装置 RESA³⁾ ですでに開始しており、多くの有意義な成果を残している。⁴⁾ しかしながら、ビーム強度と試料周りの実験空間などの不足で、より多くの課題、より広い範囲の応用が制限されている。

大強度陽子加速器プロジェクト J-PARC では工学応用を目的とした飛行時間型中性子回折装置（工学材料回折装置「匠」）の建設が進んでおり、最初中性子ビーム発生時期に合わせて完成を目指している。高強度かつ高分解能の工学応用の中性子回折装置の実現によって、材料科学およ

び工学においてより多くの斬新的なチャレンジを可能にする。また、飛行時間型回折法を採用することによって複数のhkl反射を同時に得ることができるため、さらなる応用が期待される。工学応用の回折装置はサイエンス的な研究のほかに産業利用を推進するのに今までよく使われており、どの中性子実験施設には必ず1台が整備されている。現在稼働中の、J-PARCのようなパルス中性子源を用いた工学応用の回折装置はISISのENGIN-X⁵⁾とLANSCEのSMARTS⁶⁾がある。J-PARCとほぼ同時に米国では大強度パルス中性子源SNSの建設が進行中であり、匠と同類の工学応用の装置VULCAN⁷⁾の整備が行われている。匠は現在のRESAに比べると、試料でのフラックスがおおよそ2桁強く、検出器の立体角もおおよそ2桁以上広い。これにより、高い測定効率を実現できる。これにより、より小さいゲージをより深い領域で測定可能にすることだけでなく、その場測定などの実現により、新しい研究分野を展開することが期待できる。

2. 匠の設計および性能について

2.1 匠の設計概念

建設中の匠は、25 Hz 運転の1 MW 級のパルス中性子源をもつJ-PARCの物質・生命科学実験施設(MLF)のビームポートNo.19に設置する。匠の設計では、次のような応用を考慮した：[1] 工業部品内のひずみまたは応力の評価、[2] 変形および熱的なプロセス中の構造変化の評価、[3] 工学材料中の微小領域での結晶構造解析、[4] 製造過程および使用中のその場測定および[5] 集合組織解析、などである。これらの応用を実現するのに次の性能が要求される。高分解能(高精度の測定に必要)、高強度(短い測定時間やその場測定を実現するため)、広い入射波長範囲(複数のhklピークを得るため)および正確な位置や試料の方位を決定できる光学系の整備である。例えば、(i) 分解能 $\Delta d/d$ は0.2%以下、(ii) 1 mm³のゲージでの体積ひずみ評価に必要な測定時間は1時間以内、と(iii) 最大長が1.0 m程度の大きいスケールの部品を測定するた

めに十分な試料スペースをもつ。

匠の基本的な設計概念は粉末回折装置と同じであるが、ひずみ・応力測定を行う装置として、高い分解能のほかに測定する位置および試料に対する測定方位を正確に決定できなければならない。ひずみ(応力)を測定する装置としては、理想的には6つ以上複数のひずみテンソルを同時に得ることである。散乱角および立面内角の異なる複数の検出器バンクを設置することでそれを実現することができ、測定精度は悪い。それは、それぞれの検出器では同じゲージ体積からの散乱を決定することができないだけでなく、測定されるひずみの誤差(精度)が分解能の悪い低い散乱角検出器のデータに大きく影響される。上記のことを考えると、主検出器バンクを2つにしてその散乱角を2つとも90°にし、 100×10^{-6} 以下の許容測定誤差にすることを考えると、検出器バンクの面積を平面内では $\pm 15^\circ$ 、立面内では $\pm 20^\circ$ にする。その立体角は約0.8 srである。

高分解能なおかつ強度を確保するには、対称性の良い回折プロファイルを作ることができるポイズン型の非結合型液体H₂減速材⁸⁾を用いたビームポートを選ぶ。また、飛行時間法装置の場合、分解能を得るには減速材―試料のフライトパスを長くする必要がある。匠は、減速材―試料間(第1)および試料―検出器間(第2)のフライトパスをそれぞれ40 mおよび2.0 mにする。また、検出器としては、横の空間分解能が3 mmのシンチレータ検出器を採用する。匠の三次元模式図を図2に示す。

長い第1フライトパスによるビームのロスを抑えるために、30 m長のスーパーミラーガイド管を減速材と試料の間に導入する。ガイド管は、最初の20 m分が水平方向に緩やかな湾曲状態で、残りの10 mが水平方向に真直ぐだが垂直方向にビームを集光させる幾何学形状をもっている。

試料内の測定位置および試料に対する測定方位を決定するための光学系としては、入射ビーム側にはスリット、試料からの散乱ビーム側にはラジアルコリメータを置く。

図2 工学材料回折装置「匠」の三次元模式図。(Three-dimensional illustration of the Engineering Materials Diffractometer TAKUMI.)

図3 0.75～4.26 Åの波長レンジでシミュレートしたオーステナイト鉄の回折パターン。(Simulated diffraction pattern of austenitic iron with incident wavelength range of 0.75～4.26 Å.)

スリットは幅および高さの変更が自由自在にできる。計画中のラジアルコリメータは4種類で、1 mm、2 mm、3 mm および 5 mm 幅を規定するものであるが、将来はより小さい幅またはより大きな幅を規定することのできるコリメータが整備可能である。

匠の入射波長幅は、25 Hz 運転と全フライトパスの関係から 3.76 Å である。この波長幅を規定し、それ以外の波長の影響を除去するためにガイド管の設置位置よりも前にディスクチョッパーあるいはテールカッターを設置する。ディスクチョッパー運転時に必要な開口時間により、有効入射波長幅は 3.51 Å である。例えば、最短波長を 0.75 Å にし、fcc の鉄を用いて回折シミュレーション（この場合入射強度分布や装置の分解能などを考慮しない）を行うと、図3に示すように、 $0.5 \text{ Å} < d < 3.0 \text{ Å}$ の間にピークの数 が 15 個以上の回折パターンを得ることができる。測定試料によっては最短波長を調整することは可能であり、それでも波長幅が不足な場合、ディスクチョッパーの回転数を加速器の運転の半分 12.5 Hz にして入射波長幅を 7.1 Å 程度に設定することも可能である。この入射波長幅 (3.51 Å) は ENGIN-X (1.4 Å) および VULCAN (1.3 Å) よりも約 2 倍広く、材料変形の異方性解析、多相材料の解析、結晶構造解析や集合組織解析などの実験に、匠は 2 台の装置より使いやすい。

2.2 分解能および強度のシミュレーション

匠の分解能および強度を、上記の設計パラメーターを用いて、モンテカルロシミュレーションの McStas⁹⁾ で確認する。シミュレーションでは 20 mm 幅のガイド管を仮定し、1.0～5.0 mm 直径のオーステナイト系 Fe 試料をガイド管の出口から下流側に 2.2 m 離して置く（減速材から 40 m の距離）。ガイド管の出口にスリットを設置し、その幅の調整で高分解能および高強度モードを調整する。図4はシミュレーションしたオーステナイト系 Fe の 111 反射を

図4 シミュレーションしたオーステナイト鉄の 111 回折プロファイル。(試料直径および高さが 1.0 mm と 1.0 mm である。)(Simulated diffraction profiles of an austenitic iron 111 reflection with sample diameter and height of 1.0 mm and 1.0 mm, respectively.)

図5 波長に対する入射中性子フラックスの分布。(Incident neutron fluxes in a function of wavelength.)

示す。プロファイルの FWHM を定量化して分解能 $\Delta d/d$ を求めた結果、高分解能モードの場合、直径が 1.0 mm の試料では 0.15 % 程度である。直径が 5.0 mm までの試料では 0.2 % 以下の分解能を確保できる。

図5は入射中性子の強度分布を示す。回折実験によく用いられる波長幅 $0.8 \text{ Å} < \lambda < 4.31 \text{ Å}$ の中性子を積分すると、フラックスが高強度モードで $4.8 \times 10^7 \text{ n/cm}^2/\text{s}$ 、高分解能モードで $2.2 \times 10^7 \text{ n/cm}^2/\text{s}$ となる。高強度モードでの分解能はおおよそ 0.4 % であり、通常の回折実験でも十分な分解能である。

匠は、湾曲状ガイド管を採用したため、0.7 Å 以下の波長の空間分布がガーランド反射のため不均一である。しかし、この波長以下の範囲では、いわゆる $d < 0.5 \text{ Å}$ 以下の領域は通常の回折実験のデータ解析にほとんど使わない。

2.3 その他オプションおよびソフトウェア

装置の中心に 1 トン程度の大きな工業部品を置くことのできる x, y, z と θ 軸をもつ試料テーブルを設置する。本

図6 匠で整備する予定の解析ソフトウェアの一覧および操作の模式的な流れ. (List of softwares and illustration of analysis flow.)

試料テーブルがx, y方向に600 mm, z方向には700 mm以上移動できる. 第2フライトパスが長いことから, 試料空間が広く大きい物体をもち込むことが可能である. 現在, 複雑な物体を含めた試料を装置での位置決めをする方法やそれを支援するソフトウェアが開発中である. 具体的には, 三次元測定器を用いて試料の三次元形状データを取得し, 実験仮想空間内に参照点などを用いて試料を位置決めする. これは従来のトランシットのみを用いて位置決めする方法に比べて時間を大幅に短縮することができる.

また, 一軸引張または圧縮試験や低サイクル疲労試験中のその場ひずみ測定を行うための50 kN試験機を完備する. 応力負荷と高温・低温の雰囲気との組み合わせで高温・低温での変形中のその場測定も行うことが将来可能である. その他, ブラッグエッジ測定のようないくつかのオプションも将来整備することを計画している.

匠には上記に述べたハードウェアの整備のほかに, ソフトウェアの整備も行われており, デバイス制御, データ収集, データ加工までは当然のこと, 得られた測定データを解析し結果可視化するソフトウェアも整備する. データ解析に関しては, ピークサーチ, リートベルト解析 (GSAS など), ピーク広がり解析などを含めたプロファイル解析, ひずみ・応力解析, などである. これらは, 匠で独自に開発するものもあり, iMATERIA⁽¹⁰⁾ で開発されて匠の解析ソフトウェア群として用いるものもある. 整備

予定のデータ解析ソフトウェアの一覧および模式的な解析の流れを図6に示す. これらのソフトウェアはJ-PARCのMLF施設のフレームワーク上に実装され, 装置制御から結果可視化まで1つのワーキングデスクトップ上で行うことが可能である. また, これらのソフトウェアは中性子実験の経験がない利用者にとっても使いやすいように設計され, 解析部分と可視化部分が利用者に配布できるようにスタンドアロンでの実装が可能である.

3. 応用例および可能性

匠で行うことのできる応用例および今後可能な研究例について図7および図8に示す. 匠のような装置は残留応力解析装置として今までよく認識されており, 機会部品内における製造や使用後の残留応力分布を測定するのによく用いられている. このような測定は構造部品の安全設計や寿命予測には非常に重要な課題であり, 例として使用済み鉄道レールの頭部の応力分布²⁾を図7aに示す. 最近, 機械工学的な応用のみならず材料工学・科学への展開が多くなりつつある. 例えば, 吊り橋のメインケーブルの材質である強伸線加工したパーライト鋼 (層状の αFe と Fe_3C)の強化機構は引張変形中その場中性子回折実験で初めて明らかにされた.⁽¹¹⁾ 結果の一部を図7bに示す. 強伸線 (引抜き) 加工した試料では, 変形中に通常の2相材料で起こっている応力の分配が起こらず, 破断後に残留応力やマイクロひずみも変形前の状態とはほとんど変化しない.

図7 匠を用いた応用例および今後の研究の可能性.
(Examples of applications and new possibilities at TAKUMI.)

今までの同種装置に比べて測定効率が高い匠では、鍛造、圧延などのような製造プロセス中のその場測定も十分に実施可能である。ほかに、変形と温度変化の組み合わせによる実験、集合組織測定なども行うことが可能である。図8に模式的に示すように、一般的な粉末回折装置では実現がなかなか難しい異なる位置での同時測定を行うことは可能である。図8には試料の表面と内部の集合組織状態が異なる試料を測定した例を示したが、異なる位置における変形や加熱下での相変態の割合、電池の異なる電極における充電や使用中での構造変化などの測定にも適用可能である。

図8 その場実験における異なる位置における同時測定の模式図.
(Illustration of simultaneous measurements at different positions during *in-situ* experiment.)

4. 他装置との比較

匠の試料位置でのフラックスと検出器の立体角の情報を現在ある装置と比較した一覧¹²⁾を表1に示す。これらの装置は応力測定専用でない粉末回折装置であるが、匠は基本的に粉末回折装置と構成が同じであるため比較できる。匠の測定効率は立体角が非常に広い検出器をもつISISのGEMよりも勝ることがわかる。また、匠の分解能が高いことは特記すべき点である。匠の高い分解能を考慮するとILLのDRACULAの測定効率を上回らないが、その値に近づける。本誌「粉末回折装置の概要と構造科学・材料開発に与えるインパクト」の図1は、現在の中性子回折装置およびこれから建設される装置の分解能および強度に関する比較を示す。匠は分解能に関して同類の工学応用回折装置の中で一番高く、強度に関してSNSのVULCANと同程度の強さをもっている。VULCANの0.9～2.2 Å (1.3 Åのバンド幅) 範囲でのシミュレーション積分フラックスが高強度モードで 1.2×10^8 n/cm²/s、高分解能モードで 3×10^7 n/cm²/sである。高強度モードの場合のフラックス値は匠に比べると約2倍であるが、高分解能モードの場合、匠とVULCANの測定効率は同程度である。注意書きとして、VULCANの最高分解能は0.2%程度である。また、材料変形の異方性、多相材料や相変態などを研究する場合、比較的広い範囲のhkl回折面の測定を必要とし、匠の場合、そのままでは十分対応できる。一方、VULCANの場合、入射波長バンド幅を2倍に広げる必要

表1 中性子粉末回折装置との比較。(Comparison among neutron powder diffractometers.)

	D20 ILL	GEM ISIS	DRACULA ILL	匠
フラックス 10^7 n/cm ² /s	5	0.2	~10	4.8
検出器立体角 (sr)	0.27	4	1.5	0.8 (90°bank)
分解能 (%)	0.5	0.4	0.5	0.2
測定効率 (フラックス×検出器立体角)	1.7	1	18	4.8

があり、それとともに強度が半分程度となる。これらを考えると匠とVULCANの測定効率は同程度である。

RESAの試料位置でのフラックスが約 10^5 n/cm²/sであり、狭い範囲の波長のみを比較すると匠のフラックスよりも若干大きいと同じ程度である。しかし、匠の検出器の立体角がRESAより2桁程度広いため、匠の検出効率はRESAより高い。また、広い波長範囲を用いて広い d レンジの測定を行うときは測定効率の差がより大きくなる。

匠で必要な測定時間を見積もるために、稼働中のISISのENGIN-Xと比較する。ENGIN-Xと匠の検出器立体角はほぼ同程度である。一方、J-PARCの線源がISISの約6~7倍であることから、匠の測定効率はENGIN-Xのほぼ6~7倍と見積もられる。ENGIN-Xでは、Al材について、 $2 \times 2 \times 2$ mm³ ゲージと50 mm パス長さの条件で、同様に、Fe材について $2 \times 2 \times 2$ mm³ ゲージと30 mm パス長さの条件で、 50×10^{-6} 格子定数の精度で測定するには、それぞれ5分および20分の計測時間が必要である。¹³⁾ これらのことから、匠の場合、それぞれ1分以内および3~4分の測定時間で実現可能と考えられる。Fe材の $4 \times 8 \times 4$ mm³ ゲージでの引張試験の場合、ENGIN-Xでは1.5分の計測時間で実現できることから、匠では15秒程度の計測時間で実現可能と考えられる。

5. 終わりに

匠は、J-PARCの物質・生命科学実験施設の「day-one」装置の1台であり、材料工学や材料強度学などに広範囲に及ぶ共同利用および産業利用を促進するために外部ユーザーに開放する予定である。匠の建設は予算決定とともに正式的に平成18年4月からスタートしており、平成20年5月に記念すべき実験施設への最初のビームが供給さ

れるまでに第1段階の完成を目指している。コミッショニングが終了した後、パワーユーザーとの共同研究でテスト実験をするだけでなく一般ユーザーへの宣伝となるインパクトのある成果を導き出す必要がある。現段階では一般ユーザーへの利用開放は平成21年4月と予定されている。コミッショニング中にも残りの機器、ソフトウェアなどの製作や据付を行い、一般ユーザーへの開放時期にすぐに使用可能な状態に仕上げる予定である。

謝 辞

本装置の開発は、日本原子力研究開発機構の盛合敦氏、鈴谷賢太郎博士、相澤一也博士、坂佐井薫博士、曾山和彦博士、新井正敏博士、森井幸生博士、茨城大学の友田陽教授、武蔵工業大学の秋田貢一准教授および鈴鹿高専の白木原香織助教らの協力のもと進めている。

文 献

- 1) M. T. Hutchings and E. D. Krawitz: Measurement of Residual and Applied Stress Using Neutron Diffraction. Kluwer Academic Publishers (NATO ASI series, Applied Sciences 26) (1992).
- 2) 例えば: S. Harjo, 友田 陽: 熱処理 **40** [3], 97 (2000).
- 3) M. Hayashi *et al.*: Proc. ICRS-5, 762 (1997).
- 4) 鈴木裕士, 友田 陽: 波紋 **17**, 228 (2007).
- 5) M. W. Johnson *et al.*: J. Appl. Cryst. **35**, 49 (2002).
- 6) M. A. M. Bourke *et al.*: Appl. Phys. A **74** [Suppl.], S707 (2002).
- 7) X. -L. Wang *et al.*: Physica B **385-386**, 673 (2006).
- 8) I. Tamura *et al.*: Proc. ICANS XVI, 529 (2003).
- 9) K. Lefmann and K. Nielsen: Neutron News 10/3, 20 (1999).
- 10) 石垣 徹, 神山 隆, 星川晃範, 米村雅雄: 本特集号第4章「粉末回折装置の概要と構造科学・物質材料開発に与えるインパクト」.
- 11) Y. Tomota, P. Lukas, D. Neov, S. Harjo, Y. R. Abe: Acta Materialia **51**, 805 (2003).
- 12) A. Hewat: <http://www.ill.fr/dif/AlanHewat/Dracula-Proposal-Draft2.pdf>
- 13) J. A. Dawn *et al.*: Physica B **350**, e511 (2004).

プロフィール

ステファヌス ハルヨ Stefanus HARJO
日本原子力研究開発機構 J-PARC センター
J-PARC Center, Japan Atomic Energy Agency
〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根2-4
2-4 Shirakata-Shirane, Tokai-mura, Naka-gun,
Ibaraki 319-1195, Japan
e-mail: harjo.stefanus@jaea.go.jp
専門分野: 材料工学, 中性子回折
現在の研究テーマ: 金属材料変形機構の解明, 工
学材料回折装置の開発