新しい光源による応力評価 3. 中性子回折法による応力測定[†]

秋 庭 義 明^{*}

Stress Evaluation by Diffraction using Neutron and Synchrotron Radiation Ⅲ : Stress Measurement by Neutron Diffraction Method

by

Yoshiaki AKIYAMA^{*}

Key words : Neutron diffraction, Residual stress, Loading stress, Phase stress, Elastic constant, Angle dispersion, Time of flight

1 はじめに

機械構造部材には、外部からの負荷応力のみならず、組み立て時に生じる組み立て応力、表面処理や溶接による残留応力などの初期応力が内在する。部材には、これらの応力と外部からの負荷応力が重畳して作用するため、長期信頼性の確保の観点からも、これらを高精度に評価する必要がある。さらに、機械構造物には、通常何らかの応力集中部が存在し、破壊起点となることが多いため、設計者は最も高い応力が作用する部位と、その値を把握することが求められる。また近年では、疲労強度や応力腐食割れに対する耐久性を向上させることを目的として、各種表面改質法が多用されている。それらの多くは、部材表面に圧縮残留応力を付与するもので、その品質管理のためには、材料内部の応力分布の評価が不可欠である。

X線応力測定法は、多結晶材料中の応力（ひずみ）を、非破壊的に測定する手法として極めて有用であり、その標準化が図られるとともに現場技術として実用化されてきた。¹⁾しかしながら通常のX線法（実験室レベルでのX線）では、X線の侵入深さが数 μm ～数十 μm 程度であるため、機械加工や表面改質によって導入される数100 μm 程度の領域に広がる残留応力分布を得るために、表面層を電解研磨で除去し測定を繰返す手法が用いられてきた。しかしながら、この逐次表面除去法で測定された残留応力には表面除去の補正が必要であり、かつ厳密には非破壊的でないため、実製品そのものには適用できない。これに対して中性子応力測定法では、侵入深さがX線より大きいため、材料内部の測定に適している。特に、狭い切欠き底やカバー越しで直接目視できないような部位などのように、X線では光学径路が確保できないような状況でも、中性子を用いて測定できる場合がある。

中性子法がX線法に比較して最も優れる点は、材料内部への高透過性であり、材料によっては、実験室X線に比較して10000倍以上内部の情報を得ることができる。²⁾一方、短所としては、中性子の強度が低いため、測定体

積を大きくする必要があり、空間分解能に劣るとともに、測定に長時間を要する。また、中性子発生源として、原子炉もしくは大型加速器が必要であるため、現場測定が不可能で、試料を回折装置まで持ち込む必要がある。さらに、核反応によって試料が放射化するため、測定後の試料を容易に移動できない等がある。しかしながら、高透過性より得られる情報は、上述のような短所を補っても余りあるため、中性子法の役割は大きい。本講座では、中性子によるひずみ測定および応力測定法の原理について述べ、実際の測定例を簡単に紹介する。

2 中性子による応力測定法

2・1 中性子の回折

中性子法およびX線法いずれも、結晶のからの回折現象を基礎としており、応力測定に関する基本的な考え方は同様である。ただし、X線が原子核まわりの電子との電磁氣的相互作用によって散乱されるのに対して、電荷を有しない中性子は、核外の電子と静電的相互作用をせずに原子核との核力によって核散乱する。この他に、中性子は磁気モーメントを有するために、原子の不對電子の磁気モーメントとの相互作用で磁気散乱する。これにより磁性体の磁気構造や、原子や磁気スピンの規則的な振動状態を知ることができる。応力測定で利用されるのは前者の弾性散乱である。一般にX線の原子に対する散乱能は原子番号に比例するため、原子番号の小さい原子からはあまり散乱されないが、中性子は原子番号による周期性がなく、軽元素からの散乱を捉えることが可能である。

波長が λ の中性子が角度 θ で回折するときの回折強度は次式ようになる。

$$I_{hkl}(\theta) = K \cdot J \cdot A(\theta, \lambda) \cdot L(\theta) |F_{hkl}|^2 \quad (1)$$

ここで、 K は装置固有の定数、 J は格子面の多重度因子、 $A(\theta, \lambda)$ は吸収因子、 $L(\theta)$ はローレンツ因子である。また F_{hkl} は構造因子であり、次式となる。

$$F_{hkl} = \sum_j b_j \exp \{ 2\pi i (hk_j + ky_j + lz_j) \} \quad (2)$$

[†] 原稿受理 平成16年11月16日 Received Nov. 16, 2004

^{*} 正 会 員 名古屋大学工学研究科 〒464-8603 名古屋市中千種区不老町, Dept. of Mech. Eng., Nagoya Univ., Chikusa-ku, Nagoya, 464-8603

ここで、 b_j は核散乱振幅である。

2・2 中性子の吸収

中性子が材料中に侵入したとき、原子核との相互作用によって、散乱もしくは吸収のため強度が低下する。単位体積中に n 個の対象原子を含む材料の中で強度 I の中性子が微小距離 dx 進む間の強度変化量 dI は次のように表される。

$$dI = -\sigma n I dx \quad (3)$$

ここで、 σ は断面積と称され面積の次元を有し、元素によって異なる。³⁾作用の様式によって、散乱断面積、核分裂断面積、中性子捕獲断面積等があり、すべての相互作用を考慮した場合には、それらの総和として全断面積が用いられる。なお散乱断面積は、干渉性散乱断面積と非干渉性断面積の和である。 $\sigma n = \mu$ は単位体積当たりの全断面積で、長さの逆数の次元を有し、線吸収係数と称される。線吸収係数は真の吸収 μ_t と散乱に起因する μ_s の和として表される。

$$\mu = \mu_t + \mu_s \quad (4)$$

式 (3)を積分すると次式が得られる。

$$I/I_0 = \exp(-\sigma n x) = \exp(-\mu x) \quad (5)$$

ここで I_0 は、物質への入射強度である。線吸収係数は、全断面積 σ 、アボガドロ数 N_A 、原子量 M および密度 ρ を用いて次式で関係する。

$$\mu/\rho = \sigma N_A/M \quad (6)$$

ここで、 μ/ρ は密度に依存しない物質固有の値となり、質量吸収係数と称される。

2・3 ひずみ測定

中性子によるひずみ測定法は、大きく二つの手法がある。第一の方法は、図1(a)に示すように、核反応によって生成される白色中性子から、モノクロメータを介して特定の波長の単色中性子を取り出し、これを試料に照射する。結晶によって回折された中性子の回折角 2θ を測定することから、後述の方法でひずみを求める方法が角度分散法である。

もう一つの方法では、図1(b)のように白色中性子を試料に照射し、一定の回折角の位置に検出器を固定して回折中性子を検出する。このとき、検出器までの一定距離を中性子が飛行してくる時間 (TOF: Time of flight) を測定することから、中性子の飛行速度すなわち波長を算出してひずみを求める。本手法では飛行時間からひずみを算出するため飛行時間法と称される。

角度分散法では単色化された中性子を用いる。波長 λ の中性子が、間隔 d の格子面で回折するとき、その回折角 θ はX線法と同様に次式のブラッグの条件より定まる。

$$\lambda = 2d \cdot \sin \theta \quad (7)$$

すなわち、既知の波長を用いて、測定された回折角から格子面間隔が求まる。ここで、無ひずみ状態での格子面間隔 d_0 がわかれば、散乱ベクトル方向 (図1(a)の $Q_{\perp}$ 方向) のひずみ ε を求めることができる。

$$\varepsilon = \frac{d - d_0}{d_0} \quad (8)$$

(a) 角度分散法

(b) 飛行時間法

図1 中性子応力測定模式図

式 (7), (8)より回折角変化 $\Delta\theta$ を用いると次式になる。

$$\varepsilon = -\cot \theta \cdot \Delta\theta \quad (9)$$

図2(a)に示すように、中性子法で測定されるひずみは、入射側スリットと検出器側スリットで制限される領域内の平均と考えることができ、材料による吸収が無視できる場合には、その代表点は測定領域内の重心位置となる。角度分散法では、ゴニオメータ上に試料が設置され、散乱ベクトルが常に一定方向となるように、試料は検出器とともに $\theta-2\theta$ 回転する。このとき、測定領域が完全に試料の内部にある場合には、回転中心と測定領域の重心位置は一致するが、図2(b)のように測定領域内に自由表面が存在する場合には、両者の位置は一致せず、回折角が変化し、応力勾配が無い場合でも、表面効果のために、見かけ上回折角が変化するため注意が必要である (本講座第1回参照)。この場合、無ひずみ材料との比較から、もしくは幾何学的な補正によってひずみを求めることができる。

一方、白色中性子を用いる飛行時間法では、中性子の

(a) 材料内部の測定領域

(b) 材料表面近傍の測定領域

図2 測定領域の重心位置とゴニオメータ回転中心

物質波としての性質を用いる。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 で飛行するとき、中性子の波長 λ および振動数 f は次式を用いて求められる。

$$E = hf = \frac{1}{2}mv^2 \quad (10)$$

$$p = \frac{h}{\lambda} = mv \quad (11)$$

ここで E はエネルギー、 p は運動量、 h はプランク定数、 m は中性子の質量である。従って、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、飛行時間 TOF より波長 λ が決定できる。

$$\lambda = \frac{h}{mv} = \frac{h \cdot TOF}{mL} \quad (12)$$

検出器は特定の回折角に固定されているため、波長より結晶の格子面間隔 d が測定でき、その変化量からひずみが求められる。

$$\varepsilon = \frac{d - d_0}{d_0} = \frac{\lambda - \lambda_0}{\lambda_0} \quad (13)$$

ここで、 λ_0 は無ひずみ材の波長である。飛行時間法では、一回の測定で広範囲の波長のデータを得ることができる。すなわち、個々の回折プロファイル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、リートベルト法等の格子定数の精密化手法を援用することによって、全回折面の平均的なひずみ解析も可能となる。⁴⁾

上述のように角度分散法および飛行時間法いずれの場合でも、一回の測定によって、一つの散乱ベクトル方向

の垂直ひずみ成分を測定することができる（飛行時間法で、検出器を二方向に設置した場合には、二方向のひずみ成分が得られる）。三軸応力状態にある場合のひずみ成分は6個あるため、少なくとも6方向の垂直ひずみを測定すれば、すべてのひずみ成分を決定することができる。図3は試験片座標系 P_i と実験室座標系 L_i の関係を示す。中性子法で測定される L_3 方向の垂直ひずみを $\varepsilon_{\phi\psi}$ とすると、試験片座標系 P_i のひずみ成分 ε_{ij} との関係は次式のようなになる。

$$\begin{aligned} \varepsilon_{\phi\psi} = & \varepsilon_{11} \cos^2 \phi \sin^2 \psi + \varepsilon_{22} \sin^2 \phi \sin^2 \psi \\ & + \varepsilon_{33} \cos^2 \psi + \varepsilon_{12} \sin 2\phi \sin^2 \psi \\ & + \varepsilon_{13} \cos \phi \sin 2\psi + \varepsilon_{23} \sin \phi \sin 2\psi \end{aligned} \quad (14)$$

一般には、主応力方向が推定可能な場合が多く、その場合には主軸である3方向の垂直ひずみを測定すればよい。

2・4 応力の算出

測定されたひずみは、複数の結晶の平均ひずみであり、連続体力学が適用できる。応力とひずみはフックの法則で関係し、次式で表される。

$$\varepsilon_{ij} = \frac{S_2}{2} \sigma_{ij} + 3\delta_{ij} S_1 \sigma_m \quad (15)$$

ここで δ_{ij} はクロネッカーデルタで σ_m は平均応力、 S_1 、 S_2 は弾性定数である。

$$\sigma_m = (\sigma_{11} + \sigma_{22} + \sigma_{33})/3 \quad (16)$$

$$S_1 = -\frac{\nu_D}{E_D}, \quad \frac{S_2}{2} = \frac{1 + \nu_D}{E_D} \quad (17)$$

ひずみから応力を求めるには次式を用いればよい。

$$\sigma_{ij} = \frac{2}{S_2} \left\{ \varepsilon_{ij} - \delta_{ij} \varepsilon_V \frac{S_1}{S_2/2 + 3S_1} \right\} \quad (18)$$

ここで $\varepsilon_V = \varepsilon_{11} + \varepsilon_{22} + \varepsilon_{33}$ である。 E_D および ν_D はヤング率およびポアソン比である。ただし、これらの値は、特定の回折面に対して定まる値で、回折弾性定数と称され、機械的な試験で得られる値とは異なるため注意が必要である。なお、強塑性加工された圧延材や押し出し材のような場合には、集合組織が発達するため、複数の方向のひずみ成分を同一の回折面を用いて求められない場合がある。異なる回折面を用いてひずみを測定すると、回折面ごとに回折弾性定数が異なることがあるため、単純には応力が求められない。このような場合に応力値に変換す

図3 試験片座標系 P_i と実験室座標系 L_i

るための、いくつかの方法が工夫されている。^{5), 6)}

式 (18) よりわかるように、応力には、ひずみの精度が直接反映される。ひずみは式 (8) もしくは式 (13) より算出されるため、無ひずみ状態での格子面間隔 d_0 もしくは波長 λ_0 の測定精度に大きく依存する。また、これらの値は、化学成分量によっても異なるため、対象とする材料ごとに高精度に測定する必要がある。このことが中性子による残留応力測定の高難度の一因となっている。

2・5 回折弾性定数

前述のように回折弾性定数は回折面に固有の値であり、機械的な値とは異なるため、対象とする回折面に対してあらかじめ求めておく必要がある。回折弾性定数を実測するには、一軸引張負荷下でのその場中性子測定がなされる。既知の応力を負荷した状態での試料の格子ひずみを中性子法によって測定し、負荷応力と荷重軸方向の格子ひずみの関係からヤング率を、またそれと垂直方向の格子ひずみからポアソン比を求める。X線法で求めている場合には、それを用いればよい。

回折弾性定数は、単結晶の弾性定数をもとにして、理論的に計算することもできる。⁷⁾

2・6 多相材の応力測定

近年、部材の軽量化、高機能化が強く求められるようになり、従来までの単相材ではその要求に応えることが困難になってきた。これに対して、多相からなる材料もしくは異種材料を種々の形態で複合化することによって、その特性を発現させた素材の開発が進んでいる。このような素材の開発もしくは強度評価のためには、素材を構成する各相の応力状態を把握することが要求される。

X線法や中性子法のような回折を利用した測定法は、各相の結晶からの情報が独立に測定できるため、極めて有用な情報を得ることができる。X線法では、侵入深さが浅いため、侵入深さ以上の寸法の構成相からなる多相材では、試料の自由表面による応力解放の効果が顕著に表れるため、材料内部の応力状態が評価できない。試料形状にも依存するが、中性子法では表面近傍の情報に比較して内部の情報の割合が高く、試料全体の平均的な特性が得られるため、多相材料の評価には有効である。

各構成相の回折弾性定数がわかっていると、各相について測定されたひずみから、相の平均応力（相応力）を求めることができる。巨視的（マクロ）な応力 σ_{ij} は相の平均応力 $\langle \sigma_{ij} \rangle_k$ と体積率 f_k を用いて、複合則によって求めることができる。

$$\sigma_{ij} = \sum_k \langle \sigma_{ij} \rangle_k f_k \quad (19)$$

マクロ応力と各相応力の差は、ミクロ応力 $\langle \sigma_{ij} \rangle_k^\mu$ であり、次式で与えられる。

$$\langle \sigma_{ij} \rangle_k^\mu = \langle \sigma_{ij} \rangle_k - \sigma_{ij} \quad (20)$$

各相のミクロ応力は次式でバランスする。

$$\sum_k \langle \sigma_{ij} \rangle_k^\mu = 0 \quad (21)$$

多相材料のマクロ応力を求めるためには、上述のように各相の相応力を測定し、式 (21) を用いて決定される。

多相材料において、マクロ応力と特定の構成相の測定ひずみの関係から得られる弾性定数を多相材料の回折弾性定数として用いる場合がある。これは、マクロ応力を簡便に評価する方法として便利であるが、その適用に際しては注意が必要である。例えば、線膨張係数の相異に起因する熱応力を考えると、各相には熱ひずみが発生するが、マクロ応力は存在しない。このように各相の eigen strain の相異によって生じる微視的な相応力が存在する場合には、特定の相のひずみ測定から、マクロ応力を求めることはできず、すべての相応力から決定されなければならない。

3 応力測定例

3・1 負荷応力と残留応力測定

中性子法による実際の応力測定例については、次の第4回の講座にて詳しい紹介がなされるため、ここでは代表的な測定例を示すにとどめる。

図4には飛行時間法による炭素鋼の回折プロファイルの一例を示す。⁸⁾ 高エネルギー加速器研究機構の中性子科学研究施設の高分解能粉末解析装置 Sirius で約 90min の蓄積時間で得られたものである。90°バンクの検出器で測定されたもので、格子面間隔が 0.06 から 0.22nm までのデータを示した。Sirius は、図1(b)と同様に2つの90°バンクに検出器を有しており、同時に2方向のひずみ測定が可能である。右側の検出器で軸方向のひずみを、左側でそれと垂直方向のひずみを測定する。

図5は炭素鋼の負荷応力と格子ひずみの関係である。弾性範囲内で一定応力を負荷した状態で、図3と同様の回折プロファイルを測定し、比較的回折強度の大きな個々の回折ピークについて解析したものである。(a)は荷重軸方向のひずみで、いずれのデータもほぼ直線で近似可能であるが、回折強度が小さい場合には、ばらつきがやや大きい。また、200回折の傾きが最も小さく、回折面ごとに弾性係数が異なることがわかる。(b)はそれと垂直方向のひずみで、この場合にもよい直線性が得られている。これらより得られる回折弾性定数は、 α -Feの単結晶の弾性定数をもとにして、Krönerモデルによって求めた弾性定数とよく一致することが確認されている。なお、ISO/TTA⁹⁾では、種々の材料に対して推奨回折面および不適な回折面を示している。フェライト系の炭素鋼に対しては110および211面での測定が推奨されている。

同様な単軸負荷下のひずみ測定は、複合材料においても実施されており、図6は炭化ケイ素粒子強化アルミニウム複合材料の測定結果である。¹⁰⁾ 日本原子力研究所の第3号炉に設置されている残留応力解析装置 RESA で、角度分散法にて測定された結果である。炭化ケイ素およびアルミニウム合金両相の軸方向およびそれと垂直方向の測定ひずみをもとに、相応力が求められた。図中の一点鎖線および破線は、マイクロメカニクスモデルに基づく理論線¹¹⁾であるが、実験結果とよく一致している。

複合材料では、構成相の熱残留応力が問題となるが、図7は、アルミナ・ジルコニア複合セラミックスにおける相応力と、アルミナの体積含有率の関係である。¹²⁾ 線膨

図4 飛行時間法による炭素鋼の回折プロファイル

(a) 荷重軸方向ひずみ

(b) 荷重軸垂直方向ひずみ

図5 炭素鋼の単軸引張負荷下の負荷応力と格子ひずみの関係

図6 炭化ケイ素粒子強化アルミニウム合金の単軸引張負荷下の負荷応力と炭化ケイ素中の相応力の関係

張係数の大きなジルコニア相は引張で、最大でおよそ800MPaの引張残留応力が導入されていることがわかる。この場合も、図中の実線もしくは破線で示すマイクロメカニクスによる予測値とよく一致している。

3・2 材料評価

回折法では回折角の変化のみならず、回折線の広がりも重要なパラメータとなる。図8は引張試験によって種々のひずみを負荷した SUS316NG の半価幅変化を示したもので、²⁾負荷ひずみの増大とともに半価幅が大きくなる。この関係を用いれば半価幅変化から負荷ひずみ量を推定することが可能である。

この他、中性子法では集合組織の測定も容易であり、また、温度もしくは変形にともなう相変化も容易に捉えることができる。中性子法では回折強度が弱いため、極微小領域の応力測定は困難であるが、積層膜¹³⁾や疲労き裂近傍の応力測定も試みられており、¹⁴⁾中性子法の適用範囲が広がっている。

4 ま と め

中性子法において絶対値としての応力を得るためには無ひずみ材の高精度な格子面間隔が常に要求されることが課題であるが、これについては参照値としてX線法で測定される表面近傍の応力を用いることによって解決することが可能である。表面近傍はX線法、少し内部は放

図7 アルミナ・ジルコニア複合セラミックスの熱残留応力とアルミナ含有率の関係

図8 ステンレス鋼の半価幅と全ひずみの関係

射光，さらに内部は中性子法とそれぞれの特徴を生かした測定法の棲み分けが必要である。

中性子による応力測定に関しては，既に ISO/TTA にて標準が制定されており⁹⁾，実用化が進みつつある。日本では，日本材料学会 X 線強度部門委員会において標準化

を目指した作業が進んでいる。また，中性子応力測定の実用化に際して大きな障害となっている，低中性子強度の問題に対しては，現在 J-PARC¹⁵⁾の一貫として大型パルス中性子による残留応力測定専用ビームラインの設置計画が進んでいる。本装置は世界的にもトップレベルの解析装置を目指しており，一日も早い完成が待たれるところである。

参 考 文 献

- 1) 日本材料学会，“X線応力測定法標準 —鉄鋼編—”，JSMS-SD-5-02 (2002)。
- 2) K. Tanaka, Y. Akiniwa and M. Hayashi, Material Science Research international, **8**, 165 (2002)。
- 3) G. E. Bacon, “Neutron Diffraction (Second edition)”, p.61 (1967) Oxford University Press。
- 4) M. R. Daymond, M. A. M. Bourke and R. B. Von Dreele, J. Appl. Phys., **82**, 1554 (1997)。
- 5) M. Hayashi, S. Ohkido, Y. Morii and N. Minakawa, Mater. Sci. Res. Inter., Special Tech. Publ., No.1, 418 (2001)。
- 6) 鈴木裕司，皆川宣明，盛合 敦，旗谷充彦，森井幸生，第 47 回日本学術会議材料連合講演会講演論文集，293 (2003)。
- 7) E. Kröner, Z. Phys., **151**, 504 (1958)。
- 8) 秋庭義明，木村英彦，田中啓介，神山 崇，未発表。
- 9) ISO/TTA 3, “Polycrystalline materials-Determinations of Residual Stresses by Neutron Diffraction” (2001) ISO, Geneva, Switzerland。
- 10) 秋庭義明，田中啓介，竹園拓也，林眞琴，皆川宣明，森井幸生，材料，**47**，755 (1998)。
- 11) T. Mori and K. Tanaka, Acta Metall., **21**, 21 (1973)。
- 12) Y. Akiniwa, K. Tanaka, N. Minakawa and Y. Morii, Mater. Sci. Res. Inter., **6**, 281 (2000)。
- 13) P. Scardi, M. Leoni, L. Bertini, L. Bertamini and F. Cernuschi, Surface Coat. Technol., **108-109**, 93 (1998)。
- 14) M. Ceretti, C. A. Hippsley, M. T. Huchings, A. Lodini and C. G. Windsor, Physica, **B234-236**, 969 (1997)。
- 15) 例えば http://jkj.tokai.jaeri.go.jp/index_j.html