

令和元年6月11日現在

機関番号：82626

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2018

課題番号：15K04730

研究課題名(和文) J-PARCパルス中性子ビームを用いた鉄鋼材料や植物中のホウ素の可視化の研究

研究課題名(英文) Study of boron imaging in steel and plants using a J-PARC pulsed neutron beam

研究代表者

木野 幸一 (Kino, Koichi)

国立研究開発法人産業技術総合研究所・計量標準総合センター・主任研究員

研究者番号：00594285

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,000,000円

研究成果の概要(和文)：J-PARCで得られる高強度パルス中性子ビームを用いて、鉄鋼材料や植物中の微量ホウ素の定量イメージングの計測装置開発、実験およびデータの評価を行った。複数のホウ素濃度をもつ鉄鋼材料や植物の模擬試料に中性子ビームを照射して、ホウ素と中性子の原子核反応に起因するガンマ線を検出した。実用的な計測時間で数ppm程度までのホウ素を定量分析できる事を明らかにした。空間的にホウ素の濃度が異なる模擬試料を、細く絞った中性子ビームでスキャンすることで、ホウ素の分布をイメージングできた。さらに、中性子を10倍の輝度に集光するデバイスも開発し、今後更に優れたイメージングが見込まれる。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、中性子ビームによる非破壊での鉄鋼材料や植物中の微量ホウ素の定量評価およびイメージングの実証を行った。これは、工業や農業に貢献すると考えられる。例えば鉄鋼材料では、焼き入れ性能の向上のために微量ホウ素を添加する手法が用いられているが、ホウ素の分布を可視化することにより、鉄鋼製品の性能向上に資する。また、植物においては、ホウ素濃度の高い土壌における作物のホウ素耐性の研究に貢献すると期待できる。近年ホウ素を有効に排出する蛋白質が発見されており、そのような研究と協力できる。

研究成果の概要(英文)：Development of measurement system, experiments and data analysis of tiny amount boron imaging in steel and plants were performed using an intense pulsed neutron beam from the J-PARC. The neutron beam was irradiated on model samples which include some boron concentrations and γ -rays originating from a nuclear reaction between boron and neutron were detected. It was found that a quantitative analysis at least some ppm level could be possible with a realistic measurement time. By scanning a model sample which has a boron concentration distribution using a collimated neutron beam, a boron distribution image was obtained. Moreover, a device which focuses neutron beam tenfold was developed and better imaging data is expected in future.

研究分野：中性子工学

キーワード：ホウ素 微量分析 イメージング パルス中性子ビーム J-PARC

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

本研究では、鉄鋼材料や植物中の微量ホウ素をイメージングすることを目的とする。鉄鋼材料では焼き入れ性能向上や粒径制御のため、微量ホウ素の添加が行われている。具体的には、ホウ素はオーステナイト粒界に偏析して、冷却時にオーステナイト粒界からのフェライトの核生成を抑制することにより、フェライトの少ないマルテンサイトになることで焼き入れ性能が向上する(図1)。ホウ素は再溶解時に容易に取り除くことも可能であり、リサイクル性に優れている一方、この性質は、熱が加えられた時にホウ素の分布が影響を受けてしまう事を意味する。溶接部や熱影響部ではホウ素の添加効果が消失することなども知られているため、ホウ素のイメージングが有用と考えられる。

また、ホウ素は生物にとって必須な微量元素の一つである一方、高濃度のホウ素は生物にとって有害でもある。高濃度のホウ素を含む土壌は世界中に分布し、作物の生産性を低下させている。このため、作物に高いホウ素濃度の土壌でも生育する性質を付加させるための基礎研究が行われている。近年、ホウ素を有効に排出するタンパク質 BOR4 が発見された。実際にホウ素が植物中でどのように分布し移動しているかの研究も試みられているが、植物を破壊して分析する必要があり、また定量測定にホウ素の化学形が影響する事があるため、本研究の手法は有用と考えられる。

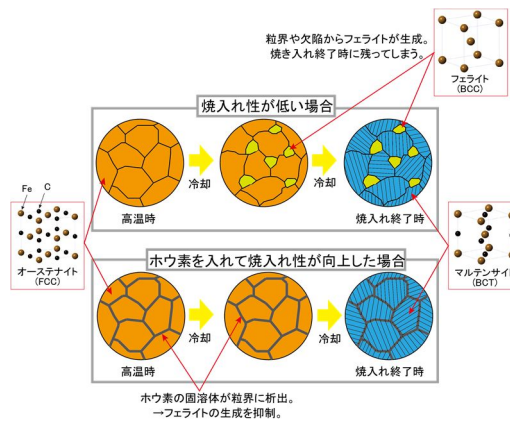


図1 ホウ素による焼き入れ性能の向上。

2. 研究の目的

本研究では、J-PARC 高強度パルス中性子ビームを用いた微量ホウ素検出手法の開発において、次の事柄を目的とした。(1) ホウ素濃度を変えた、金属や植物を模擬した試料において、ホウ素量がどれだけ定量的に得られるか、またそれに必要な測定時間を、実験により明らかにする。(2) 試料中における中性子ビームの散乱や 478 keV ガンマ線が試料中で減衰する効果についてシミュレーションを行い、(1) で得た実験データに含まれる効果を明らかにする。(3) ホウ素に分布をもたせた試料において、中性子ビームが照射される位置を変える実験を行い、ホウ素の分布がどの程度正確に得られるかを明らかにする。(4) 実際のホウ素を含む金属や植物の試料に対して実験を行い、そのホウ素分布を明らかにする。

3. 研究の方法

本研究は、J-PARC 物質・生命科学実験施設の中性子ビームライン 4 番(BL04)において、高強度パルス中性子ビームをホウ素含有試料に照射し、 $^{10}\text{B}(n, \gamma)^7\text{Li}$ 反応により発生した 478 keV ガンマ線を検出することで、微量ホウ素を計測するものである。BL04 では、JSNS の結合型減速材から 21.5m の中性子飛行距離に大立体角の Ge ガンマ線スペクトロメータが設置されている。中性子が 21.5m を飛行する間には、多数の固定コリメータや、2 つの可変コリメータが設置されており、空間的広がりがシャープな中性子ビームを利用可能である。21.5m 位置に設置した試料中で、中性子と試料の原子核との反応で発生した即発ガンマ線が、試料の上下にある Ge ガンマ線スペクトロメータによって検出される。この際、25Hz の繰り返しでパルス状に発生した中性子の 21.5m の飛行時間を、中性子発生タイミングとガンマ線検出時間の差から計測することにより、個々の中性子事象の中性子エネルギーが求められる。さらに、Ge ガンマ線スペクトロメータにより個々のガンマ線のエネルギーが計測されることで、478keV ガンマ線を選択してデータ解析することができる。本研究では、複数のホウ素濃度をもつ鉄鋼や植物の模擬試料を製作して研究に使用しただけでなく、ホウ素分布をイメージングするため、試料を上下左右に駆動する装置を開発した。イメージングを行うのに中性子ビームの位置を変えるのは困難なため、逆に試料の位置を変える方法をとっている。この装置は、上下と左右 2 つの方向に 30mm 程度動くステップモータ駆動のステージとその制御装置から成る。ステージは 21.5m より下流に設置され、ステージに取り付けられたアルミニウム棒の先端に取り付けた試料が 21.5m 位置で上下左右に移動する。制御装置は、Linux PC から Python コードで制御される。またこの Python コードは、BL04 の Ge ガンマ線スペクトロメータの DAQ 用 PC と中性子パルス計数用スケーラーも制御することで、イメージングのためのスキャンを自動化している。

4. 研究成果

はじめに、微量ホウ素の定量計測実験を行った。鉄鋼の模擬試料として、ホウ酸水を染み込ませた紙を 20mm 角で厚さ 1mm の純鉄板 5 枚に挟んだものを用意した。植物の模擬試料として、アルミニウム製容器にホウ酸水を入れたものを用意した。ホウ酸水の中性子ビーム方向の厚さは 1.3mm である。ホウ素濃度は共に、鉄または水に対して 0, 5, 10, 50, 100, 500ppm で異なるものを用意した。中性子ビームライン上の可変コリメータにより、試料に直径 7mm のパルス中性子ビームを照射した。両試料ともに、478keV のガンマ線を検出することができた。ガンマ線エネルギースペクトルを図 2 に示す。両試料ともに ppm レベルから 478keV のガンマ線ピークが見えており、ホウ素濃度が高くなるにつれて、ピークの高さも増加している。511keV のピークは陽電子の対消滅に起因するものであり、ピーク強度はホウ素濃度に依存していない。このように、ホ

ウ素含有模擬試料において、微量ホウ素の検出が可能であることが分かった。

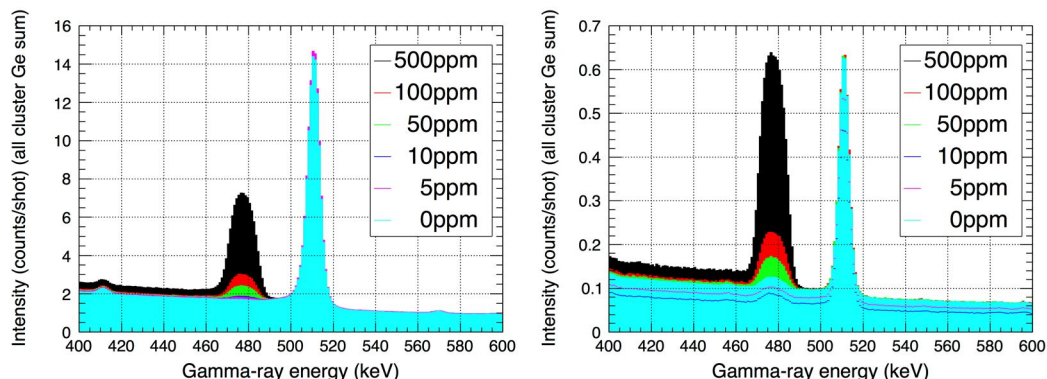


図2 ホウ素含有模擬試料で測定したガンマ線エネルギースペクトル。左が鉄鋼材料、右が植物の模擬試料の結果である。

次に、事象を中性子エネルギー毎に分割して、ホウ素濃度と単位時間あたりの計数の相関を分析した。中性子飛行時間 0~25 ms の間を 8 分割し、それぞれの中心エネルギー、387, 79.9, 33.4, 18.3, 11.5, 7.89, 5.75, 4.38 meV にて相関をプロットしたところ、どのエネルギーにおいても、ホウ素濃度と計数の間には線形の関係が得られた。これは、パルス中性子を用いて中性子のエネルギー分析ができることにより分かったことであり、定量分析に有用なデータである。ただし、鉄鋼材料模擬試料においては、比例関係の切片が僅かにゼロではなく有意にプラスの値となった。試料に用いた純鉄板にはホウ素は含まれていないことが別の分析で分かっており、計測上のバックグラウンドなどが理由として考えられる。今後、遮蔽を強化するなどして解明する必要がある。さらに、毎秒あたりの計数が妥当かどうか絶対値評価を行った。絶対値評価に考慮したものは、(1)中性子ビームフラックス、(2)中性子ビームの広がり、(3)中性子の試料中での反応率、(4)478keV ガンマ線の試料中での減衰、(5)Ge ガンマ線スペクトロメータのガンマ線検出効率、である。(1),(2),(5)はそれぞれ、ホウ素試料によるフラックス計測、イメージングプレートによる中性子ビームの空間分布計測、標準ガンマ線源を用いた検出効率測定にて、実験データから導出した。一方、(3)はモンテカルロコード PHITS を用いて計算した。特に植物模擬試料ではホウ酸水を用いているために中性子が水分子に散乱される効果が強いことが判明した。散乱が無い場合に比べて、例えば 11.5 meV 中性子で反応率は 1.3 倍に増加することがわかった。これは散乱によりホウ酸水中での飛行距離が伸びたり、散乱で中性子エネルギーが下がって反応断面積が大きくなるためと推測される。(4)は幾何学的に鉄鋼試料を 478keV ガンマ線が通る経路長を計算し、ガンマ線の減弱係数を用いて計算した。この結果、鉄鋼模擬試料の場合特に減衰が大きく、Ge ガンマ線スペクトロメータの位置に依存して 44~52%が透過することがわかった。これらの計算値を考慮して導出したガンマ線計数率と実験データを比較した結果、図3のようになった。実験値と計算値はおおよそ一致した。以上から、本研究での微量ホウ素の分析により確信が得られた。若干の差異については、今後より小さいサイズの中性子ビームで実験するなどして解明することが考えられる。

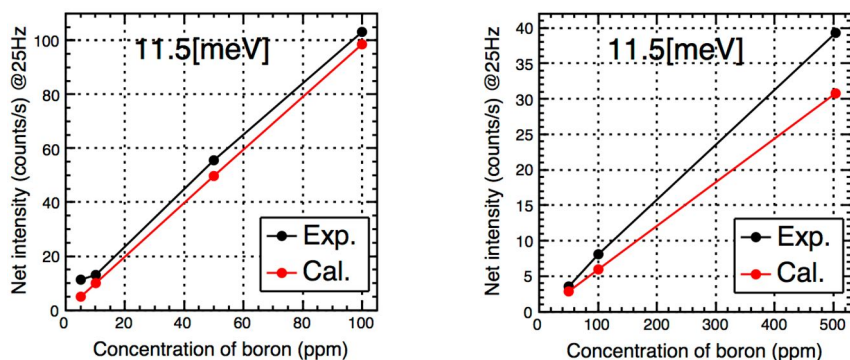


図3 ホウ素含有模擬試料で測定した 478keV ガンマ線計数率の実験値と計算値の比較。左が鉄鋼材料、右が植物の模擬試料の結果である。

次に、鉄鋼材料を模擬してホウ素濃度分布をつけた試料のイメージングを行った。試料は、20mm角で厚さ 1mm の純鉄板の間にホウ素含有アモルファスフォイルを挟んで製作した。これを、本研究で製作した試料駆動装置の先端に取り付けた。中性子ビームはコリメータで直径 3mm に細くし、この試料に照射した。試料を 3mm ステップで上下左右に駆動することで、イメージングデータを取得した。この結果を図4に示す。実験結果と試料のホウ素分布を比較すると、おおよそ一致している事がわかった。このように微量ホウ素分布をイメージングできることが実証で

きた。ただし、中性子ビーム径が3mmと大きく荒い画像となっている。今後よりサイズの小さいビームを用いることで、実用試料に有効な空間分解能を得る必要がある。また、実験データには大きなバックグラウンド478keVガンマ線が存在した。原因として試料駆動装置による散乱中性子が考えられ、今後遮蔽を強化することが考えられる。

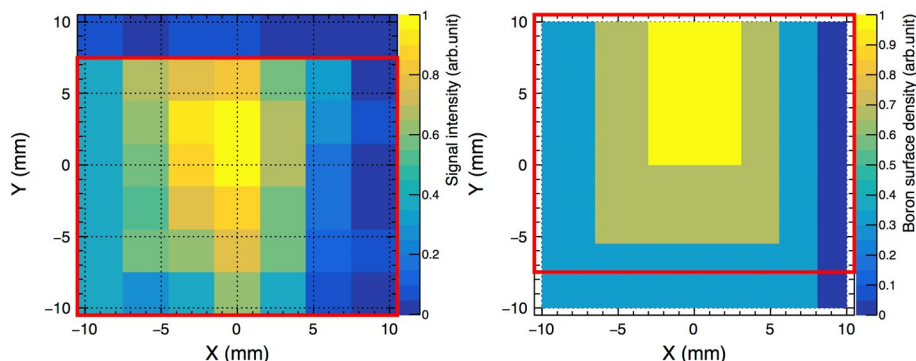


図4 ホウ素濃度分布をつけた鉄鋼材料模擬試料のイメージング結果。左が実験結果、右が試料のホウ素分布である。両方の赤枠内が同じ位置である。

本研究の発展を目指して、近年開発が盛んな金属基板中性子スーパーミラー技術を活用して、回転放物面中性子集光ミラーを製作した。長さ200mm、中性子入射側のミラー直径が約18mmの回転放物面で、回転方向は120度分である。アルミニウム合金基板の上にメッキしたニッケル-リンを精密切削し、この上に3.5Q_cのスーパーミラーを成膜することで集光ミラーを実現している。このミラーの集光試験を、北海道大学小型加速器中性子源で、J-PARC/BL04を模擬した中性子ビームで行った。この結果、図5のように集光することができた。集光スポットは約1mmであり、先にBL04で実験したときの直径3mmビームよりも格段に小さい。さらに、0.5nm以上の波長で、集光ミラーが無い場合に比べて約10倍の輝度が得られた。この結果は、本研究の終了後の微量ホウ素イメージングの発展に道筋をもたらした。

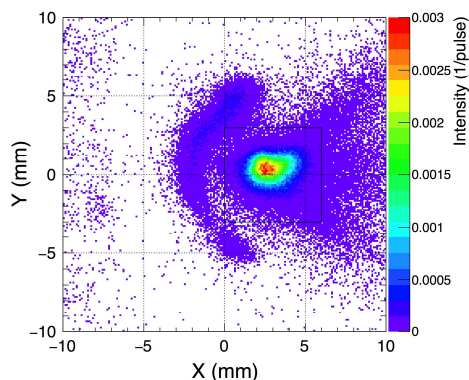


図5 中性子集光ミラーの集光実験結果。

以上のように本研究では、パルス中性子ビームを用いた微量ホウ素の定量評価、イメージング、更なる高速化・高精度化をもたらすデバイスの製作に成功した。今後、鉄鋼材料や植物の実材料に用いることが期待できる。

5. 主な発表論文等

〔学会発表〕(計 2 件)

木野幸一、吉岡拓矢、“ANNRI の産業応用研究 ～微量ホウ素のイメージングを目指して～”、ANNRI 研究会、東京工業大学、2016年8月4日

木野幸一、吉岡拓矢、“J-PARC パルス中性子ビームを利用した鉄鋼材料や植物中のホウ素イメージングの基礎研究”、日本原子力学会「2016年春の年会」、東北大学、2016年3月27日

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。