

平成 31 年 5 月 2 日現在

機関番号：10101

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K20876

研究課題名(和文) 高い空間認識特性を持つ結晶粒・結晶方位の逆極点図イメージング

研究課題名(英文) Inverse-pole-figure imaging of crystalline-grain orientations with high spatial-resolution and large field-of-view

研究代表者

佐藤 博隆 (Sato, Hirotaka)

北海道大学・工学研究院・助教

研究者番号：30610779

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：ブラッグ散乱(回折)現象を利用した中性子透過イメージング(レントゲン撮影)法による結晶粒毎の結晶方位を可視化する新しい量子ビーム利用マテリアル解析ツールを開発した。開発研究におけるイメージング(可視化)では、電子顕微鏡(SEM-EBSD)や放射光回折イメージングでも用いられている「逆極点図による結晶方位の可視化」を重視しつつ、「結晶粒の3次元結晶方位解析」「結晶粒の3次元形態解析」という当初目的に加え、「結晶粒の中の変化の検出」と「小規模中性子ビーム利用施設での実現」という先進研究を達成した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

- ・多結晶性材料のための中性子透過ブラッグエッジイメージング法の開発に対し、本研究では、単結晶性材料あるいは大きな結晶粒からなる多結晶性材料のための中性子透過ブラッグディップイメージング法を確立した。
- ・中性子回折法に比べ高い空間認識特性(高空間分解能・広範囲可視化)が期待される。
- ・電磁鋼板やガスタービンブレードといったエネルギー機器や航空機等に用いられる材料の結晶性評価において、これまで見ることはできなかった材料全体の結晶情報の全体像を画像化する新しい測定技術を開発することができた。

研究成果の概要(英文)：A new quantum-beam materials characterization tool which can visualize crystal orientations of crystalline grains by using a neutron transmission imaging method (radiography) with Bragg-scattering (diffraction) analysis function was successfully developed. In this study, one of the important matters is the visualization of crystal orientation by using the inverse pole figure which is used for electron microscope (SEM-EBSD) and synchrotron-radiation diffraction imaging. We successfully developed not only the three-dimensional crystal orientation determination method for a crystalline grain and the three-dimensional shape analysis method for a crystalline grain, but also the inner grain analysis method and the methodology for performing at a compact neutron beam facility.

研究分野：中性子応用工学

キーワード：中性子 透過 イメージング ブラッグディップ 結晶粒 結晶方位 逆極点図

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19（共通）

1. 研究開始当初の背景

ブラッグ散乱（回折）現象を利用した中性子透過イメージング（レントゲン撮影）法は、中性子回折法に比べ高い空間認識特性（高空間分解能・広範囲可視化）が期待される新しい量子ビーム利用マテリアル解析ツールである。これまで、一般的に供されている多結晶性材料のための中性子透過ブラッグエッジイメージング法を開発してきたが、本研究では単結晶性材料あるいは大きな結晶粒からなる多結晶性材料のための中性子透過ブラッグディップイメージング法の開発に取り組むことで、高い空間認識特性を持つ結晶粒・結晶方位のイメージングを実現することを目指した。これにより、電磁鋼板やガスタービンブレードといったエネルギー機器や航空機等に用いられる材料の結晶性評価において、これまで見ることでできなかった材料全体の結晶情報の全体像を画像化する新しい測定技術を開発することが本研究の目標である。

2. 研究の目的

上記の目標の達成を目指し、本研究の目的を「結晶粒毎の結晶方位決定」「3次元結晶方位決定」「結晶粒の3次元形態可視化」とした。また、可視化においては電子顕微鏡技術（SEM-EBSD）や放射光回折イメージングでも用いられている「逆極点図による結晶方位の可視化」を重視することとした。

さらに研究を進めている内に、発展研究として「結晶粒内の結晶性変化の検出」と「小規模中性子ビーム実験施設での実現」という目的も加わった。前者は手法の高性能化、後者は手法の普及をそれぞれ目標としたものである。

3. 研究の方法

中性子透過ブラッグディップスペクトルを測定するためにはパルス中性子源と飛行時間（TOF）法による白色中性子の波長分解が適当である。そのため実験は、大規模中性子ビーム実験施設として、茨城県東海村にある大強度陽子加速器施設「J-PARC」（日本原子力研究開発機構と高エネルギー加速器研究機構が共同建設・共同運営）の物質・生命科学実験施設「MLF」の核破砕パルス中性子源を利用した中性子ビームライン10番（BL10）に設置された中性子源特性試験装置「NOBORU（NeutrOn Beamline for Observation & Research Use）」において行った。小規模中性子ビーム実験施設として、北海道札幌市にある北海道大学大学院工学研究院の電子線形加速器駆動パルス中性子源「HUNS（Hokkaido University Neutron Source）」を選んだ。

中性子透過ブラッグディップスペクトルを広い面積に渡って空間分解能を持って測定するためには、TOF分析が可能な中性子イメージング検出器が必要である。そこで両実験では、北海道大学の中性子グループも開発に寄与し、高エネルギー加速器研究機構で開発された中性子用 GEM（Gas Electron Multiplier）型画像検出器を使用してスペクトル測定を行った。この検出器は 800 μm の画素サイズ、10.24 cm \times 10.24 cm の視野を持ち、高空間分解能・広範囲可視化が可能なものとなっている。

標準測定試料として、電磁鋼板模擬体を用意した。図1に測定試料の写真を示す。この試料は厚さ 5 mm、7 cm 角程度の 3.4mass%Si 鋼板であり、センチメートル級の結晶粒を含むものである（目視可能）。板の表の面と裏の面の結晶粒の形態を比較すると、少し異なる形態であった。このことから 5 mm の厚さ方向に関して、異なる結晶粒が重なっている箇所が存在していることが示唆された。この試料の 5 mm 厚さの方向にパルス中性子ビームを透過させ、ブラッグディップを含む中性子透過率スペクトルを空間分解能 800 μm で測定した。また、最終結果と比較することを目的として、SEM-EBSD による結晶方位解析も破壊試験ではあるが行った。

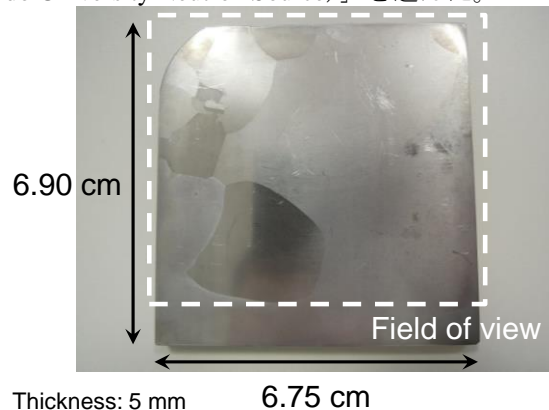


図1：Si 鋼板の写真。

4. 研究成果

(1) ブラッグディップパターン解析による結晶方位決定

図2に各結晶粒のブラッグディップを含む中性子透過率スペクトルを示す。(a)には各波長で得られた中性子透過率画像を示しており、4つの波長で4つの結晶粒が可視化できている。各結晶粒の透過率スペクトルを(b)に示しており、ブラッグディップパターンが異なっていることがわかる。これは結晶方位が異なっていることを表している。また、図2(a)の黒色の破線の楕円で示した所は結晶粒2番と結晶粒3番が重なっていると思われる箇所である。画像からもそれは読み取れるが、図2(c)に示すように、重なっていると思われる領域のブラッグディップスペクトルが結晶粒2番のスペクトルと結晶粒3番のスペクトルの特徴を併せ持っていることから読み取れる。

図2に示したスペクトルはある数の画素のデータを平均化したものであるため統計誤差が比

較的小さいデータであるが、実際に1画素でスペクトルを目視すると、統計誤差が大きくブラッグディップがノイズに埋もれてしまっても検出することができない。そこで本研究ではブラッグディップシグナルを検出するための「ブラッグ散乱以外のバックグラウンドの除外」と「シグナル増強処理」を施し、有意なブラッグディップシグナルを得るようにして以下(2)の成功をおさめている。

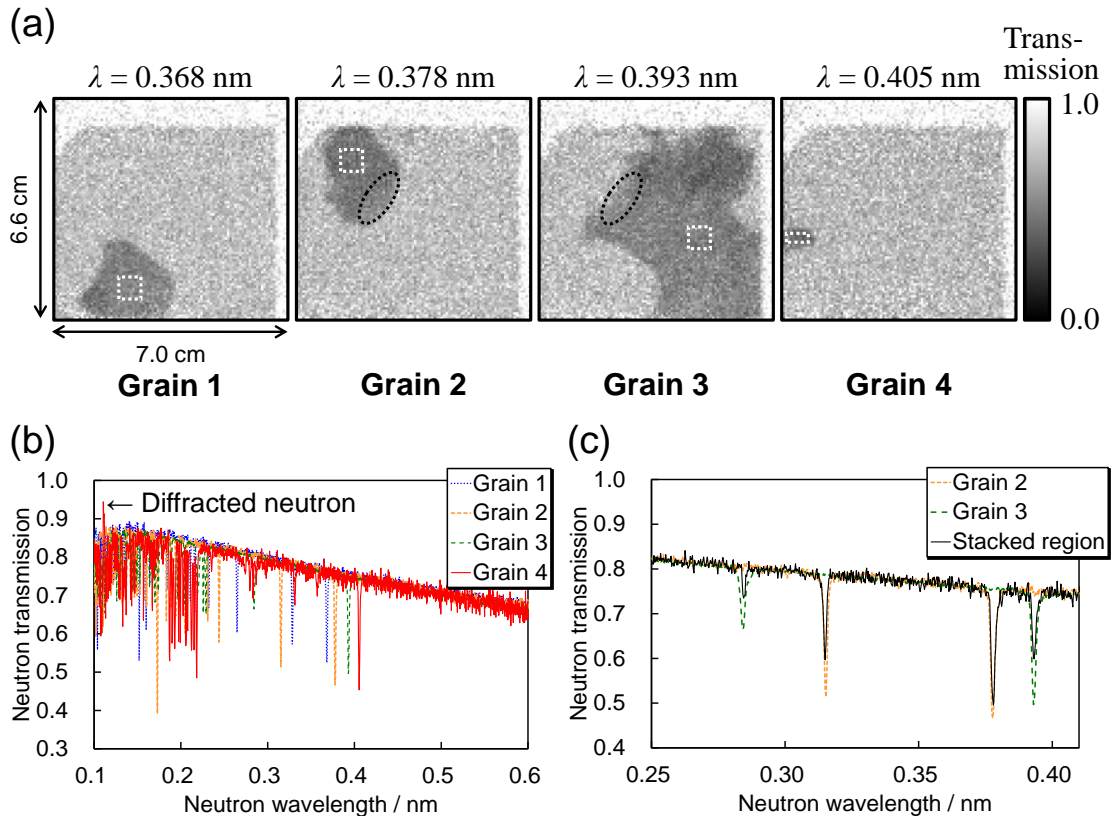


図2：各結晶粒のブラッグディップを含む中性子透過率スペクトル。

図3に図1の最も右上の結晶粒のブラッグディップスペクトルと、それに対して本研究で開発した「データベースマッチング法」による結晶方位同定を施した様子を示す。ここで言うデータベースとは、5151個の中性子ビーム透過方向に関する結晶方位について、それぞれのブラッグディップがどの波長に出現するかを格納したデータベースである。実験データのブラッグディップ出現波長パターンと合致するものがあれば、それがその結晶粒の結晶方位であるということが一意に決められる。一意に決められることを示しているのが図3で、2つの回折指数が同時に同じ波長(約0.21 nm)で重なっていることや、3つの回折指数が同時に同じ波長(約0.27 nm)で重なっていることがマッチングでわかったが、実験データのブラッグディップの深さが、回折指数の重なりが多さに応じて深くなっている。データベースマッチングではディップの出現波長情報のみを実験値から入力しており(ディップの深さ情報は使用していない)、それにも関わらずディップ深さを的中でき、解析法の妥当性を裏付けている。

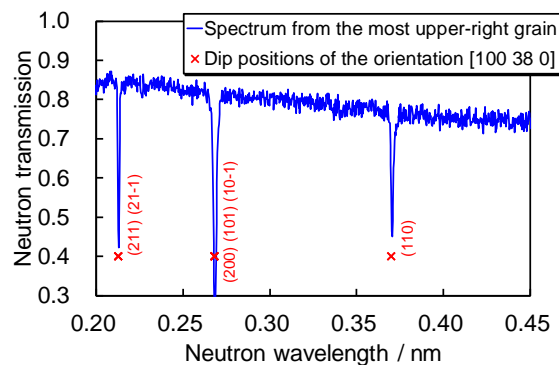


図3：ブラッグディップパターン解析の例。

もし結晶方位が決まらない場合は、複数の結晶粒が重なっているものとし、データベースマッチングをやり直す。この場合、結晶粒数が n 個の場合、マッチングに要する時間は n 乗となるため計算機負荷が大きくなるように思えるが、実際には数個程度でも1秒かかっていないため現在の所は大きな問題となっていない。いずれにせよデータベースマッチング法により、中性子透過方向に存在する結晶粒の数と、それぞれの中性子透過方向に関する結晶方位が同定できるようになった。

もし結晶方位が決まらない場合は、複数の結晶粒が重なっているものとし、データベースマッチングをやり直す。この場合、結晶粒数が n 個の場合、マッチングに要する時間は n 乗となるため計算機負荷が大きくなるように思えるが、実際には数個程度でも1秒かかっていないため現在の所は大きな問題となっていない。いずれにせよデータベースマッチング法により、中性子透過方向に存在する結晶粒の数と、それぞれの中性子透過方向に関する結晶方位が同定できるようになった。

(2) 結晶粒毎の結晶方位の逆極点図イメージング

図4に結晶粒毎の結晶方位の逆極点図イメージング結果を示す。(a)は中性子透過方向に結晶粒が1個しかない箇所を可視化したものである。図2において結晶粒2番と結晶粒3番が重なっていると述べた領域はこの段階では可視化できておらず、黒色となっている。図4(b)と(c)は、図4(a)の可視化結果に、重なっている結晶粒2個の内1個ずつの結晶方位をそれ

ぞれ可視化した結果を重ねたものである。左上の黒色の領域はそもそも測定試料が無い領域である。このことから、この試料は大部分が中性子透過方向に結晶粒が1個もしくは2個であることがわかった。可視化された結晶方位は SEM-EBSD の結果とも矛盾が無く、それどころか測定試料の内部や厚さ 5 mm の裏面にある結晶粒の結晶方位も一挙に可視化できている。このように、大面積に渡ってバルク試料の結晶粒・結晶方位を可視化することができた。

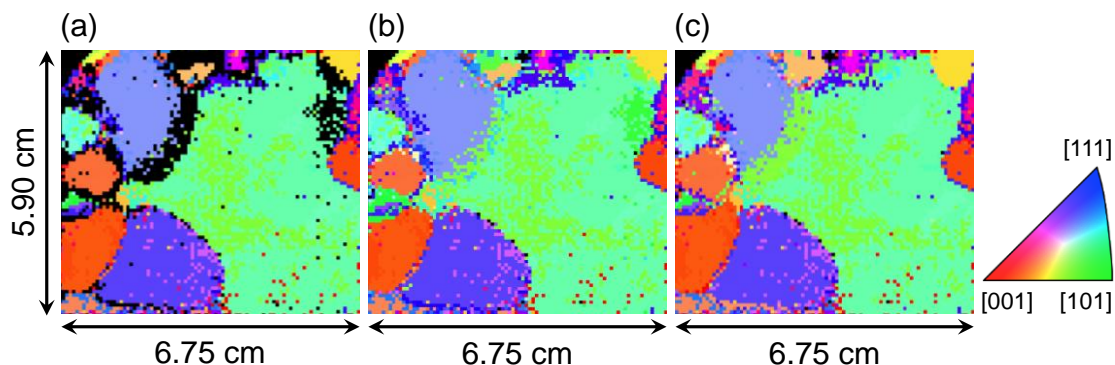


図 4：結晶粒毎の結晶方位の逆極点図イメージング。

(3) 小規模中性子ビーム実験施設における実現と課題

図 5 に HUNS での結果を示す。HUNS ではブラッグディップを観測するためショートパルス型中性子源である非結合型減速材を新たに導入したが、ビーム発散角が J-PARC 装置に比べ大きいことためブラッグディップがブロードニングを起し、まだブラッグディップシグナルが小さく、図 4 に示した J-PARC での結果に比べると Noisy なものとなった。しかしそれでも同じような画像が得られていることがわかる。画素サイズを少し大きくして統計誤差を小さくすることで、より明確な画像が得られるものと思われる（この研究は当初目的にはない先進研究であり、画素サイズに関する検討までは研究期間内に行えていないが、今後このデータを用いて検討を進めていきたい）。

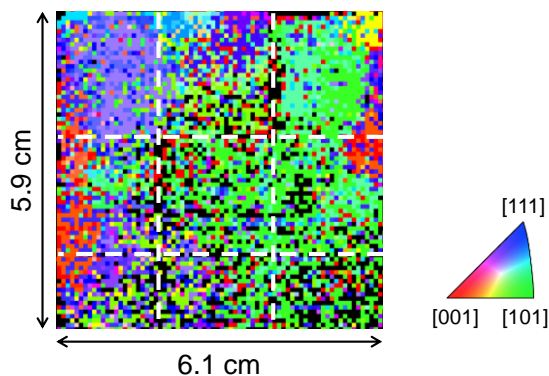


図 5：HUNS でのイメージング結果。

(4) 3次元結晶方位決定法の開発

データベースマッチング法は中性子透過方向に関する結晶方位を決定するものであるが、これではまだ3次元結晶方位が決定できていない（中性子ビーム軸周りの自由度が残っている）。そのため、3次元結晶方位を決定する方法を開発した。その結果、中性子ビームを少なくとも2方向から入射して、それぞれのブラッグディップパターンをデータベースマッチング法で解析すれば良いことがわかった。具体的には、ビーム1番により決定した結晶方位を $[h_1 k_1 l_1]$ 、ビーム2番により決定した結晶方位を $[h_2 k_2 l_2]$ とすると、その直交する結晶方位は $[k_1 l_2 - l_1 k_2 \quad l_1 h_2 - h_1 l_2 \quad h_1 k_2 - k_1 h_2]$ であるので、これらの情報からオイラー角表記つまり完全結晶方位決定が可能となる。

(5) ブラッグディッププロファイル解析による結晶粒の3次元形態（面情報+厚さ情報）の可視化

ブラッグディップの深さ、正確にはディップの積分強度（モザイクネスが変化することによるディップブロードニング効果によっても深さは変わり得るため積分強度の方がより妥当、ディップ深さとディップ幅を乗じたものに比例）は、消衰効果を慎重に考慮すれば、その結晶の厚さを反映したものとなる。そこで図 6 に示すようにブラッグディップの詳細プロファイルを解析し、ディップの出現波長・半値全幅（FWHM）・深さ・積分強度を高精度に求め、さらなる情報の抽出を行った。具体的には出現波長変化から結晶方位のわずかな角度変化を、FWHM 変化からモザイク角変化を、積分強度変化から結晶粒厚さの変化を求めた。

結晶粒厚さの変化がわかれば、図 4 に示した「面」に関する結晶粒の寸法変化に加え、その法線方向に関する寸法変化がわかるため、結晶粒の3次元形態が可視化できる。図 7 に結晶粒 2 番と結晶粒 3 番が重なっている

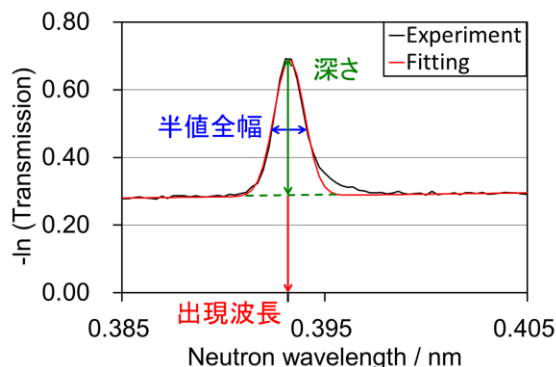


図 6：ディッププロファイルの詳細解析。

領域付近のブラッグディップ積分強度のイメージング結果を示す。結晶粒が重なっている領域では各結晶粒の厚さが薄くなっている（積分強度が小さくなっている）ことがわかる。このようにイメージング画像の面方向に関する結晶粒の形態のみならず、その法線方向に関する結晶粒の形態も可視化することができ、結晶粒の形態を3次元的に把握することができた。

(6) ブラッグディッププロファイル解析による結晶粒内の結晶性変化の検出・可視化

図8に結晶粒3番のブラッグディップ出現波長のイメージング結果を示す（これまでの図とは画像が時計回りに90°回転していることに注意）。左が(101)ディップ、右が(110)ディップの出現波長である。楕円で囲んだ領域がわかりやすいが、片方のディップの出現波長が短波長側あるいは長波長側にずれると、もう片方のディップの出現波長はそれと逆の方向に変化していることがわかる。これは、図4で同一結晶方位とみなされた結晶粒3番の中に、さらにわずかに結晶方位の異なる領域が存在していることを表している。検知できた方位差は0.4°未満であった。

ブラッグディッププロファイルの詳細解析により、ほかにも、FWHM解析ならびに消衰効果解析により結晶粒内のモザイクブロックの検出・可視化などができた。このように、ブラッグディッププロファイルの詳細解析により、結晶粒内の結晶性変化の検出・可視化が可能となり、中性子透過ブラッグディップイメージング法の性能をさらに向上させることができた。

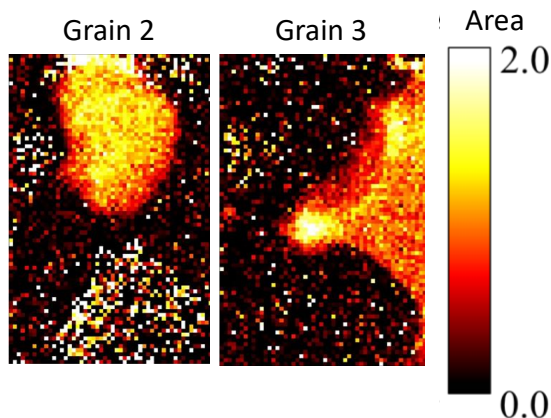


図7：ディップ積分強度のイメージング。

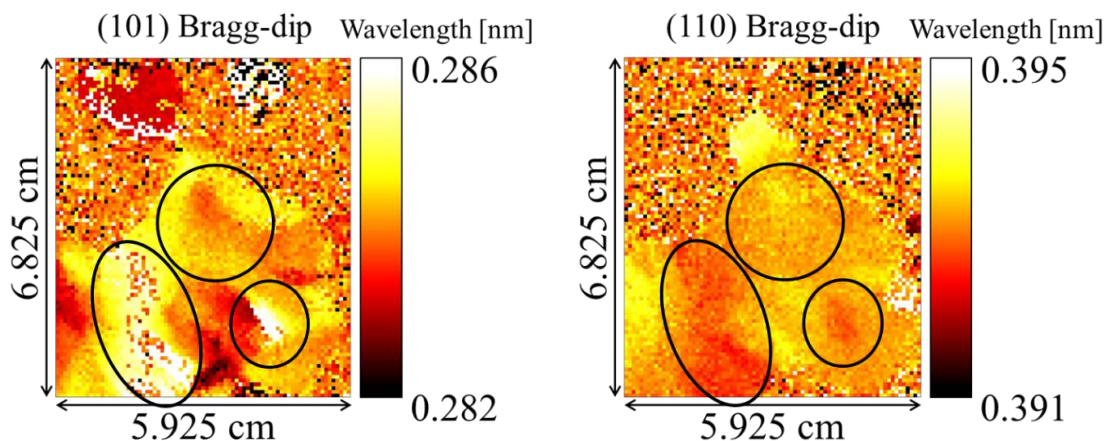


図8：ブラッグディップ出現波長のイメージング。これまでの図とは画像が時計回りに90°回転していることに注意。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 6 件)

- ① H. Sato, Y. Shiota, S. Morooka, Y. Todaka, N. Adachi, S. Sadamatsu, K. Oikawa, M. Harada, S. Y. Zhang, Y. H. Su, T. Kamiyama, M. Ohnuma, M. Furusaka, T. Shinohara and Y. Kiyonagi, Inverse Pole Figure Mapping of Crystalline Grains by Bragg-dip Neutron Transmission Imaging, J-PARC Annual Report 2017 Volume 2: Materials and Life Science Experimental Facility (MLF Annual Report 2017), J-PARC Center, J-PARC 18-04, pp. 8-10, 2019 (査読無)
- ② H. Sato, T. Sasaki, T. Moriya, H. Ishikawa, T. Kamiyama and M. Furusaka, High wavelength-resolution Bragg-edge/dip transmission imaging instrument with a supermirror guide-tube coupled to a decoupled thermal-neutron moderator at Hokkaido University Neutron Source, Physica B: Condensed Matter, Volume 551, pp. 452-459, 2018 (査読有、DOI : 10.1016/j.physb.2017.12.058)
- ③ 佐藤博隆, パルス中性子透過ブラッグディップ解析による結晶粒ごとの結晶方位イメージング, 中性子産業利用推進協議会季報『四季』, Volume 38 (2018年春号), pp. 8-9, 2018 (査読無)
- ④ H. Sato, Deriving quantitative crystallographic information from the wavelength-resolved neutron transmission analysis performed in imaging mode, Journal of Imaging, Volume 4, Issue 1, 7, 2018 (査読有、DOI : 10.3390/jimaging4010007)
- ⑤ H. Sato, Y. Shiota, S. Morooka, Y. Todaka, N. Adachi, S. Sadamatsu, K. Oikawa, M. Harada, S. Y. Zhang, Y. H. Su, T. Kamiyama, M. Ohnuma, M. Furusaka, T. Shinohara and Y. Kiyonagi, Inverse pole figure mapping of bulk crystalline grains in a polycrystalline steel plate by pulsed neutron

Bragg-dip transmission imaging, Journal of Applied Crystallography, Volume 50, Part 6, pp. 1601-1610, 2017 (査読有、DOI : 10.1107/S1600576717012900)

- ⑥ 佐藤博隆, 中性子透過ブラッグエッジ法による金属組織情報のイメージング, 日本金属学会報『まてりあ』, 55 巻 11 号, pp. 532-536, 2016 (査読無、DOI : 10.2320/materia.55.532)

[学会発表] (計 12 件)

- ① 櫻井洋亮, 佐藤博隆, 加美山隆, 中性子透過ブラッグディッププロファイル解析による結晶粒内の詳細情報のイメージング, 日本原子力学会北海道支部第 36 回研究発表会, 札幌, 2019 年 2 月
- ② 佐藤博隆, 分光型中性子イメージングによる結晶組織構造情報の広範囲マッピング, 日本金属学会「量子ビーム散乱測定による金属組織形成過程のマルチスケール解析研究」第 1 回若手研究グループ集会, 札幌, 2018 年 6 月
- ③ 佐藤博隆, 中性子透過ブラッグエッジ・ディップ解析による結晶・組織情報のイメージング, 日本鉄鋼協会材料の組織と特性部会「量子ビームによる組織解析に基づく力学的機能発現機構の理解」自主フォーラム, 東京, 2018 年 6 月
- ④ 佐藤博隆, 中性子イメージングによる鉄鋼材料組織情報の広範囲定量解析, 日本鉄鋼協会評価・分析・解析部会鉄関連材料のヘテロ構造・組織の解析研究フォーラム「量子ビームを用いた鉄鋼の微視組織と力学的特性評価に関するシンポジウム」, 東京, 2017 年 11 月
- ⑤ 佐藤博隆, 小型中性子源 HUNS でも出来た結晶相・ひずみ・結晶粒方位イメージング, 日本鉄鋼協会材料の組織と特性部会 2017 年度第 2 回微細構造制御と定量化手法の発展に関する若手フォーラム, 札幌, 2017 年 9 月
- ⑥ H. Sato, T. Sasaki, T. Moriya, H. Ishikawa, T. Kamiyama and M. Furusaka, The high wavelength-resolution Bragg-edge transmission imaging instrument at Hokkaido University Neutron Source with a supermirror guide-tube coupled to a decoupled moderator at ambient temperature, International Conference on Neutron Scattering 2017 (ICNS2017), Daejeon, Korea, July, 2017
- ⑦ 佐藤博隆, 中性子透過スペクトル解析によるひずみ・金属組織情報の広範囲イメージング, 日本材料学会第 331 回疲労部門委員会・第 185 回 X 線材料強度部門委員会, 釧路, 2017 年 7 月
- ⑧ 佐藤博隆, 透過スペクトル解析による結晶組織構造情報の定量的可視化, 中性子産業利用推進協議会 2016 年度非破壊検査・可視化・分析技術研究会, 東京, 2017 年 2 月
- ⑨ H. Sato, Bragg-edge/dip transmission imaging at accelerator-driven pulsed neutron sources HUNS and J-PARC MLF for engineering materials research, Special Lecture at Nuclear Systems Division, School of Mechanical Engineering, Pusan National University, Busan, Korea, February, 2017
- ⑩ 佐藤博隆, 中性子透過ブラッグイメージングによる結晶組織構造パラメーターの広範囲可視化, 中性子産業利用推進協議会 2016 年度金属組織研究会, 東京, 2016 年 11 月
- ⑪ H. Sato, Y. Shiota, S. Morooka, Y. Todaka, N. Adachi, S. Sadamatsu, K. Oikawa, M. Harada, S. Zhang, Y. Su, T. Kamiyama, M. Ohnuma, M. Furusaka, T. Shinohara and Y. Kiyonagi, Mapping of inverse pole figure of crystalline grains by pulsed neutron transmission, 8th International Topical Meeting on Neutron Radiography (ITMNR-8), Beijing, China, September, 2016
- ⑫ H. Sato, Y. Shiota, S. Morooka, Y. Todaka, K. Oikawa, M. Harada, S. Zhang, Y. Su, T. Kamiyama, M. Ohnuma, M. Furusaka, T. Shinohara and Y. Kiyonagi, Grain orientation imaging by pulsed neutron transmission measurements, 8th International Workshop on Neutron Wavelength Dependent Imaging (NEUWAVE-8), Abingdon, UK, June, 2016

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

- 出願状況 (計 0 件)
○取得状況 (計 0 件)

[その他]

6. 研究組織

※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。