

令和 4 年 5 月 31 日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2019～2021

課題番号：19K05102

研究課題名（和文）マルチスケール中性子イメージング法による鉄鋼中ミクロ組織の形成過程の解明

研究課題名（英文）Unveiling microstructural evolution using multiscale neutron transmission imaging

研究代表者

大場 洋次郎 (Oba, Yojiro)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 原子力科学研究所 物質科学研究センター・研究副主幹

研究者番号：60566793

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,400,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、鉄鋼中のミクロ組織の形成過程の解明を目的として、マルチスケール中性子イメージング法を用いた非破壊観察手法の開発を進めてきた。まず、中性子透過率スペクトルの解析手法を高度化し、鉄鋼母相とナノ析出物を同時に、マルチスケールに観測することを可能にした。これを鉄鋼材料の解析に適用し、加工・熱処理によるミクロ組織の変化を捉え、その形成メカニズムに迫ることに成功した。また、赤外加熱炉を導入し、加熱中のミクロ組織変化のその場測定を実現した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

鉄鋼材料の力学特性は、結晶粒、析出物、欠陥等によって構成されるミクロ組織によって大きく影響を受ける。しかしながら、ミクロ組織は、様々なスケールの構造が入り混じった複雑な構成を持つため、その精密な評価が課題であった。本研究は、マルチスケール中性子イメージング法を活用することにより、ミクロ組織の全貌を観察することを可能にした。これにより、ミクロ組織の形成メカニズムの解明が促進され、ミクロ組織の精密な制御に基づく高性能材料の開発へと波及することが期待される。

研究成果の概要（英文）：In this study, we developed the multiscale neutron transmission imaging technique to clarify the evolution mechanism of the microstructures in steels. Simultaneous characterization of steel matrices and nanoscale copper precipitates was enabled by the improvement of neutron transmission spectrum analysis. The changes of the microstructures by processing and heat treatment were successfully observed using the new analysis technique. In addition, a newly introduced infrared furnace allowed in situ neutron experiments.

研究分野：中性子散乱、金属材料、磁性材料

キーワード：中性子 ミクロ組織

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

鉄鋼材料の力学特性は、鉄鋼母相の結晶粒組織や析出物、格子欠陥などによって形成されるミクロ組織に大きく影響を受ける。ミクロ組織を制御するために様々な加工・熱処理手法が利用されているが、ミクロ組織の複雑な形成メカニズムの全貌は未解明のままである。一方、そのメカニズムの一端が解き明かされ、これを制御する手法が確立することで、より高性能な鉄鋼材料が実現してきた。例えば、鉄鋼母相における結晶粒組織の相変態と、微細な炭化物の析出が協調して生じる相界面析出を利用した高張力鋼や、オーステナイト相の応力誘起相変態を利用した TRIP 鋼などが実用化されている。

従来、ミクロ組織の評価には電子顕微鏡などの実空間における観察手法に加え、小角散乱法や回折法などの逆空間における測定手法も相補的に用いられてきた。しかしながら、ミクロ組織は cm から Å の広い空間スケールにわたる階層的・複合的な構造であるのにも関わらず、従来の評価手法では、結晶粒組織のみ、析出物のみといったシングルスケールの情報のみが得られ、これに基づいて議論がなされてきた。このため、ミクロ組織の各構成要素間の相互作用は十分に検討されておらず、ミクロ組織の形成メカニズムは本質的には未解明のままであった。

### 2. 研究の目的

これを打開するためには、広い空間スケールにわたるミクロ組織を一挙に測定し、鉄鋼中におけるミクロ組織の総合的な形成過程を捉える必要がある。そこで本研究では、鉄鋼材料中のミクロ組織形成過程の解明を目的として、マルチスケール中性子イメージング法を開発する。これにより、加工・熱処理によるミクロ組織の変化をマルチスケールに観測し、その形成過程を明らかにする。

### 3. 研究の方法

マルチスケール中性子イメージング法は、パルス中性子を用いて中性子透過イメージング測定を行い、得られた中性子透過率の波長依存性(スペクトル)を解析することにより、ミクロ組織の情報を得る手法である。本研究で着目する 0.1–1.0 nm 程度の中性子の波長域では、中性子透過率スペクトルは、吸収に起因する成分と散乱に起因する成分に分けることができる。このうち、干渉性弾性散乱成分にはミクロ組織の構造が反映されている。このため、中性子透過率スペクトル測定を行い、その干渉性弾性散乱成分を解析することにより、ミクロ組織の情報を抽出できる。これを、パルス中性子透過イメージングにより得られた 2 次元透過像の各ピクセルにおいて行い、ミクロ組織の情報をマッピングすることにより、マクロスケールの解析を行うことができる。

パルス中性子透過イメージング測定は、J-PARC MLF(物質・生命科学実験施設)に設置された中性子イメージング装置 BL22 螺鈿を利用して行った。中性子発生源から約 23 m の所を試料位置とし、約 24 m の位置に 2 次元検出器を設置して測定を行った。検出器は  $^3\text{He}$  ガス、もしくはホウ素コンバータを用いたマイクロピクセル型イメージング検出器( $\mu\text{-NID}$ )を用いた。ピクセルサイズと検出面サイズは、それぞれ 0.1 mm x 0.1 mm、約 100 mm x 100 mm であった。

また、解析技術の開発のため、J-PARC MLF の中性子小角散乱装置 BL15 大観を利用して中性子透過率スペクトルと中性子小角散乱(SANS)の測定を行った。SANS 測定には、オーストラリア原子力科学技術研究機構(ANSTO)の SANS 装置 QUOKKA、ラウエ・ランジュバン研究所(ILL)の SANS 装置 D33、ポール・シェラー研究所(PSI)の SANS 装置 SANS-I も利用した。

### 4. 研究成果

本研究では、まず、解析手法の高度化を行った。従来、中性子透過率スペクトルからミクロ組織の情報を得る手法として、主に、鉄鋼母相による中性子回折に起因するブラッグエッジの解析が単独で用いられてきた。本研究では、これに小角散乱に起因する中性子透過率の減少を解析する手法を組み合わせ、ブラッグエッジにより得られる鉄鋼母相の情報に加え、ナノ析出物の情報も同時に得る手法を開発した。これにより、階層的・複合的な構造のマルチスケール測定を可能にした。また、フェライト鋼やマルテンサイト鋼を中心とした多くの鉄鋼材料は強磁性体であり、磁気回折に起因する磁気ブラッグエッジを生じる。従来のブラッグエッジ解析では、この磁気ブラッグエッジ成分は無視されることが多かったが、本研究では、従来の手法に磁気ブラッグエッジ成分の定量的な解析手法を取り入れ、鉄鋼母相の情報を高精度に得ることを可能にした。

この手法を適用して、最も基本的な鉄鋼材料である炭素鋼とナノ析出物を含む鋼板の解析を行った。その結果、中性子透過率スペクトルから、鉄鋼母相の結晶粒径と集合組織、析出物の形状とサイズ等の情報を一度に得ることに成功し、マルチスケール中性子イメージング法の有効性を確認することができた。

また、冷間圧延したフェライト鋼板の解析においては、集合組織の発達に伴う中性子透過率スペクトルの変化を捉えることができた(Fig. 1)。この結果について、110 ブラッグエッジにおけるピークの形成を Gauss 関数でフィットすることにより、圧延面に対する{110}結晶面の回転を

簡便に定量評価する手法を確立した。さらに、過去の圧延集合組織に関する研究に基づき、110 ブラッグエッジと 200、211 ブラッグエッジの変化を同時に解析することにより、優先方位の形成を定量的に評価する手法を開発した。これらの手法を適用することにより、ナノ析出物を含む鋼板中では、圧延集合組織として一般的な $\langle 111 \rangle // ND$  と $\langle 322 \rangle // ND$  の優先方位に加え、 $\langle 100 \rangle // ND$  の優先方位も発達していることを明らかにした。ここで、 $// ND$  は圧延面の法線方向の結晶方位であることを示す。 $\langle 100 \rangle // ND$  は、粒界の拘束を受けない単結晶鋼板における主な優先方位成分であることから、ナノ析出物を含む鋼板では、析出強化により粒界の拘束が相対的に弱くなり、 $\langle 100 \rangle // ND$  成分が形成された可能性が考えられる。これに加えて、小角散乱成分の解析により、冷間圧延に伴って Cu ナノ析出物が伸長する様子を捉えることができた。したがって、本研究により、フェライト母相と Cu ナノ析出物の変形を同時に観測できるようになり、鉄鋼におけるミクロ組織形成過程のマルチスケール観測が実現した。

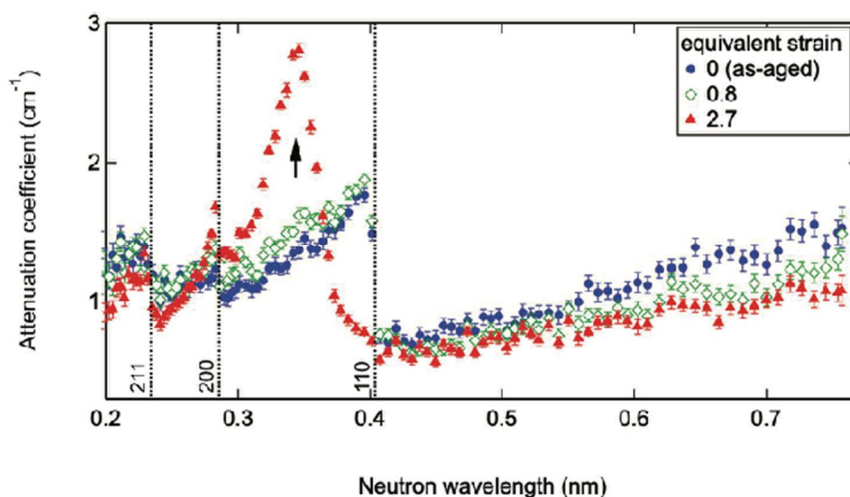


Fig. 1 Cu ナノ析出物を含む鋼板の中性子減衰係数スペクトルの冷間圧延による変化。試料の厚さの違いの影響を除くため、光学におけるランベルト・ベールの法則に基づき、中性子減衰係数に直したスペクトルを示す。点線はそれぞれ 110、200、211 ブラッグエッジの生じる波長を示す。冷間圧延による相当ひずみの増大に伴い、鋸歯状の 110 ブラッグエッジは矢印で示すピークへと変化し、200 ブラッグエッジのジャンプ高さが増大する。また、211 ブラッグエッジは変化が小さい。これらの変化を解析することにより、圧延面における優先方位の定量的な評価が可能である [Y. Oba, et al., ISIJ Int. 62 (2022) 173]。

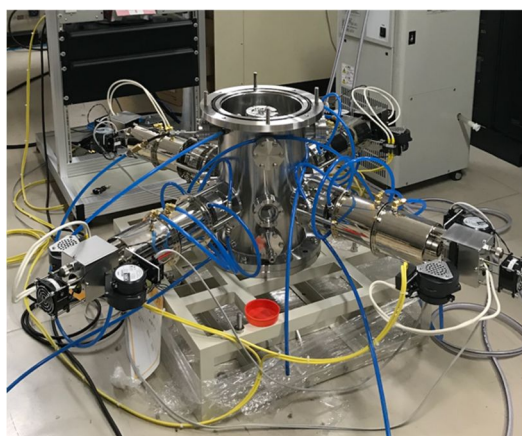


Fig. 2 赤外加熱炉。中央の円筒形チャンバー内に試料を設置し、その周囲に放射状に伸びた 4 台の赤外線発生装置で試料を加熱する。

本研究により開発したマルチスケール中性子イメージング法は、特に、その場測定・非破壊測定に威力を発揮すると期待される。そのため、本研究ではその場中性子測定用の赤外加熱炉の導入を行った (Fig. 2)。これは、4 台の赤外線発生装置により試料を加熱するものであり、中子線の入射方向と透過方向を広く開けることができるという特徴を持つ。議論を単純化するため、室温から高温まで安定な結晶構造を持つ純銅を用いて、加熱中その場測定ができることを確認した。また、加熱による結晶粒径と集合組織の変化を観測することに成功した。

上述の研究の遂行中に、強ひずみ加工した鉄鋼材料においては、当初の予想よりも強い磁場に

において強い磁気小角散乱成分が観測されることを見出した。強磁性の鉄鋼材料は、弱い磁場においては磁区構造を持ち、これに由来する強い磁気小角散乱を生じる。これは、主な観測対象であるナノ析出物の小角散乱を観測する際に妨害となるため、通常の測定では、1 T程度の強い磁場を試料に印加し、試料を単磁区化することによって、磁区による磁気小角散乱成分を消失させる。しかしながら、強ひずみ加工した鉄鋼材料では、1 Tの磁場においても微小な磁区による磁気小角散乱成分が観測された。純鉄では、この散乱成分は約 10 Tまで残ることが分かった。したがって、強ひずみ加工した試料においては、解析の精度を向上させるためには、1 Tよりも強い磁場を印加する必要があることが明らかとなった。しかしながら、10 Tの磁場の利用するためには、試料サイズや環境等の制約が大きくなり、中性子透過率スペクトル測定の利用を狭める要因となり得る。そこで、この課題を解決するため、ルクセンブルク大学と共同研究を行い、マイクロマグネティクスに基づいて磁気小角散乱成分を解析する手法を取り入れた。これにより、ミクロ組織の解析の精度を向上させるのみならず、試料の磁気的情報も同時に得ることを可能にした。一方、この磁気小角散乱は、強ひずみ加工により、鉄鋼材料内部に約 10 Tに匹敵する磁気異方性が誘起されていることを示唆している。磁気異方性は、磁性材料としての応用上重要な特性であり、軟磁性材料ではこれを小さな磁気異方性に制御し、永久磁石材料ではより大きな磁気異方性を付与することが必要とされる。そのため、本研究の結果は、強ひずみ加工が、新たな磁性材料開発手法として利用できる可能性を持っていることを示すものである。これを検証するために、最も単純な強磁性体であるニッケルを用いて、強ひずみ加工により同様の磁気異方性の強化が生じることを確認できた。

また、派生的な成果として、溶融状態の金属では、ブラッグエッジの代わりに、緩やかな波状の中性子透過率スペクトルが観測された。この波状のスペクトル形状は、結晶構造を持つ固体におけるブラッグエッジと同様に、液体の中性子回折パターンを用いて説明できることを明らかにした。この知見は、液体の構造を解析するための新たな実験手法の開発に繋がるものと期待される。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計10件（うち査読付論文 10件 / うち国際共著 4件 / うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Bersweiler Mathias, Pratami Sinaga Evelyn, Peral Inma, Adachi Nozomu, Bender Philipp, Steinke Nina-Juliane, Gilbert Elliot Paul, Todaka Yoshikazu, Michels Andreas, Oba Yojiro	4. 巻 5
2. 論文標題 Revealing defect-induced spin disorder in nanocrystalline Ni	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review Materials	6. 最初と最後の頁 044409-1--7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevMaterials.5.044409	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Oba Y., Bersweiler M., Titov I., Adachi N., Todaka Y., Gilbert E. P., Steinke N.-J., Metlov K. L., Michels A.	4. 巻 5
2. 論文標題 Role of higher-order effects in spin-misalignment small-angle neutron scattering of high-pressure torsion nickel	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review Materials	6. 最初と最後の頁 084410-1--9
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevMaterials.5.084410	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Oba Yojiro, Morooka Satoshi, Ohishi Kazuki, Suzuki Jun-ichi, Tsuchiyama Toshihiro	4. 巻 62
2. 論文標題 Characterization of Deformation by Cold Rolling in Ferritic Steel Containing Cu Particles Using Neutron Transmission Analysis	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 ISIJ International	6. 最初と最後の頁 173 ~ 178
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2355/isijinternational.ISIJINT-2021-144	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 V. Zaporozhets, Y. Oba, A. Michels, K. L. Metlov	4. 巻 accepted
2. 論文標題 Small-angle neutron scattering by spatially inhomogeneous ferromagnets with a nonzero average uniaxial anisotropy	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Applied Crystallography	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Miura Daisuke, Kumada Takayuki, Sekine Yurina, Motokawa Ryuhei, Nakagawa Hiroshi, Oba Yojiro, Ohhara Takashi, Takata Shin-ichi, Hiroi Kosuke, Morikawa Toshiaki, Kawamura Yukihiko, Ohishi Kazuki, Suzuki Jun-ichi, Miyachi Yoshiyuki, Iwata Takahiro	4. 巻 54
2. 論文標題 Development of spin-contrast-variation neutron powder diffractometry for extracting the structure factor of hydrogen atoms	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Applied Crystallography	6. 最初と最後の頁 454 ~ 460
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1107/S1600576721000303	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Adachi Nozomu, Matsuo Yasutaka, Todaka Yoshikazu, Fujimoto Mikiya, Hino Masahiro, Mitsuhara Masatoshi, Oba Yojiro, Shiihara Yoshinori, Umeno Yoshitaka, Nishida Minoru	4. 巻 155
2. 論文標題 Effect of grain boundary on the friction coefficient of pure Fe under the oil lubrication	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Tribology International	6. 最初と最後の頁 106781 ~ 106781
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.triboint.2020.106781	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Oba Y., Adachi N., Todaka Y., Gilbert E. P., Mamiya H.	4. 巻 2
2. 論文標題 Anomalous magnetic anisotropy and magnetic nanostructure in pure Fe induced by high-pressure torsion straining	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review Research	6. 最初と最後の頁 033473-033473
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevResearch.2.033473	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 Mori Kazuhiro, Okumura Ryo, Yoshino Hirofumi, Kanayama Masaya, Satoh Setsuo, Oba Yojiro, Iwase Kenji, Hiraka Haruhiro, Hino Masahiro, Sano Tadafumi, Kawabata Yuji, Kamiyama Takashi, Otomo Toshiya, Fukunaga Toshiharu	4. 巻 33
2. 論文標題 Commissioning of Versatile Compact Neutron Diffractometer (VCND) at the B-3 Beam Port of Kyoto University Research Reactor (KUR)	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 JPS Conference Proceedings	6. 最初と最後の頁 011093-011093
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSCP.33.011093	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 熊田 高之、元川 竜平、中川 洋、大場 洋次郎、関根 由莉奈	4. 巻 31
2. 論文標題 SANS-JとPNOの紹介	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 波紋	6. 最初と最後の頁 5-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 大場 洋次郎	4. 巻 30
2. 論文標題 中性子透過率スペクトルを利用した中性子散乱実験および中性子イメージング	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 波紋	6. 最初と最後の頁 90-93
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計11件 (うち招待講演 1件 / うち国際学会 6件)

1. 発表者名 M. Bersweiler, Y. Oba, and A. Michels
2. 発表標題 Revealing defect-induced spin disorder in nanocrystalline Ni
3. 学会等名 Neutron Scattering Days 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 M. Bersweiler, E. P. Sinaga, I. Peral, N. Adachi, P. Bender, N.-J. Steinke, E. P. Gilbert, Y. Todaka, Y. Oba, and A. Michels
2. 発表標題 Revealing defect-induced spin disorder in nanocrystalline Ni
3. 学会等名 2022 Joint MMM-INTERMAG (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 大場洋次郎
2. 発表標題 中性子小角散乱法を用いた格子欠陥による磁気ナノ構造の観察
3. 学会等名 中性子産業利用推進協議会「金属材料研究会」
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 大場洋次郎
2. 発表標題 磁気小角散乱を利用した鉄鋼材料中のマイクロ組織の解析
3. 学会等名 日本鉄鋼協会 自主フォーラム「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」勉強会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 大場洋次郎
2. 発表標題 高圧下ねじり加工に誘起された鉄とニッケル中のスピンミスアライメント
3. 学会等名 物性研短期研究会 中性子散乱研究会 - 海外実験支援プログラムの成果報告と、再稼働したJRR-3の現在地 -
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Y. Oba
2. 発表標題 Microstructural characterization in steel using small-angle neutron scattering and neutron transmission
3. 学会等名 3rd Asia-Oceania Conference on Neutron Scattering (国際学会)
4. 発表年 2019年



1. 発表者名 S. Morooka, G. Miyamoto, Y. Oba, K. Ohishi, and S. Takata
2. 発表標題 Pulse type of Small Angle Neutron Scattering and 3D-Atom Probe Tomography Study on the formation of the Fe-C cluster in a High-Ni-C Steel
3. 学会等名 3rd J-PARC symposium (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Y. Oba
2. 発表標題 Magnetic texture analysis in steel using neutron diffraction
3. 学会等名 Workshop WAND2 - complementarity and synergy effects with the JRR-3 instrument suite (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Y. Oba, D. Ito, Y. Saito, Y. Onodera, J. D. Parker, T. Shinohara, and K. Oikawa
2. 発表標題 Energy-resolved analysis of neutron transmission of molten lead bismuth eutectic
3. 学会等名 10th Workshop on NEUtron WAVElength Dependent Imaging (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 大場 洋次郎
2. 発表標題 小角散乱法による金属組織の解析
3. 学会等名 2019年度 学術討論会・技術交流フォーラム 合同講演会 (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 大場 洋次郎
2. 発表標題 中性子透過率スペクトルを用いた小角散乱解析
3. 学会等名 令和元年度金属組織研究会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	戸高 義一 (Todaka Yoshikazu)  (50345956)	豊橋技術科学大学・工学(系)研究科(研究院)・教授  (13904)	
研究分担者	篠原 武尚 (Shinohara Takenao)  (90425629)	国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 J-PARCセンター・研究主幹  (82110)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関			
ルクセンブルク	ルクセンブルク大学			
フランス	ラウエ・ランジュバン研究所			
オーストラリア	オーストラリア原子力科学技術 研究機構			