

令和元年6月11日現在

機関番号：14301

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2017～2018

課題番号：17H06792

研究課題名（和文）極微量元素分析を可能とする超小型3D光学系蛍光X線分析装置開発と鉄鋼分析への応用

研究課題名（英文）Development of Low-Power X-ray Fluorescence Spectrometer in 3D geometry for Trace Element Determination in Alloys and Its Application to Steel Analysis

研究代表者

田中 亮平（Tanaka, Ryohei）

京都大学・工学研究科・助教

研究者番号：40804323

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,200,000円

研究成果の概要（和文）：低出力X線管を用いて3次元偏光光学系蛍光X線分析装置を試作し、アクリル偏光子を用いてステンレス鋼の測定を行った。3Dプリンタを用いて製作した樹脂製部品を組み合わせて用いることで、スペクトル中のバックグラウンド・妨害ピークを低減し、ステンレス鋼に含まれる微量元素を検出することができた。小型X線偏光度測定装置を製作、アクリル板および鉛板からの散乱X線の偏光度を測定し、アクリル板からのコンプトン散乱線が鉛板からの弾性散乱線よりも高い偏光度を有することを示した。軽元素偏光素子から発生するコンプトン散乱線は高い偏光度を有するが、XRFスペクトル中の特性X線強度の変化要因となることを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

スペクトル中のバックグラウンドの低減により高感度分析が可能な3次元偏光光学系蛍光X線装置の小型化を達成することは、河川や土壌などの環境試料中有害元素のその場分析など簡便・迅速な分析につながるだけでなく、スクラップ鋼材のスクリーニングや製鋼工程でのオンサイト・オンライン分析などへの応用が期待でき、鋼材の生産性・品質性双方の向上が見込まれるため、産業面での貢献が考えられる。また、小型装置を用いて、高偏光性と白色性を併せ持つ励起X線の生成手法が確立されれば、実験室系における高感度多元素同時迅速分析が可能となり、新たな偏光X線生成手法の確立というX線物理における学理の構築にも貢献するものと考えられる。

研究成果の概要（英文）：A three-dimensional polarized X-ray fluorescence spectrometer was assembled with a low-power X-ray tube of 40 milliwatts, and a sample of stainless steel was measured with an acrylic polarizer. By using the spectrometer combined with regin equipment made by a 3D printer, trace elements included in stainless steels could be detected. The polarization measurement of scattered X-rays from an acrylic and lead plates substantiated that Compton scattered X-rays from an acrylic plate had higher degree of polarization than the elastically scattered X-rays from a lead plate. Highly polarized Compton scattered X-rays from the light-element polarizer leads to the background reduction and the changes of the characteristic X-ray intensity in XRF spectra measured by our laboratory-made spectrometer.

研究分野：金属資源生産工学

キーワード：蛍光X線分析 鋼材分析 微量分析 偏光X線 白色X線 軽元素偏光素子 Compton散乱 3Dプリンタ

1. 研究開始当初の背景

鉄鋼材料をはじめとする合金材料は輸送機器・社会インフラ等、種々の場面で利用される。合金の部材としての信頼性を担保し、持続的な利用を実現するためには、外的要因に対する機能特性の評価が必要となる。金属材料の機能特性に影響を与える重要な要因の一つとして添加元素の影響が挙げられる。鉄鋼材料ではC、Siをはじめとする合金元素が特性の向上を目的として添加され、中でもCuやSn、Pbなどトランプエレメントと呼ばれる添加元素は鋼材特性に影響を及ぼし、微量元素を添加することで機能を向上した鋼材が工具鋼など身近なデバイスにも用いられている。しかしトランプエレメントは不揮発性であり鋼材のリサイクル過程の中で不純物として蓄積され、部材の割れを誘引するなど悪影響をもたらす得る。そのためスクラップ鋼材など原料中に含まれるトランプエレメントをはじめとする合金中微量添加元素を高精度・高感度に定量することは実用材料としての合金の利用を考える際必要不可欠となる。高感度な微量元素定量分析手法として3D光学系を用いた蛍光X線分析(XRF)が挙げられる。3D光学系を用いた蛍光X線分析は線源由来のX線に起因するスペクトルは観測されず、散乱に起因するバックグラウンド強度が理論上ゼロとなるため、高感度な分析が可能となる分析手法である。3D光学系により偏光X線を得る方法としては散乱現象[T. G. Dzubey et al., Nucl. Instrum. Methods 115, 297 (1974)]やBragg反射[H. Aiginger et al., Nucl. Instrum. Methods 120, 541 (1974)]を用いる手法が考案されている。これらの方法に基づき、3D光学系を取り入れたX線分析装置の開発が行われ、微量元素高感度分析装置として実用化されているが、スペクトル強度が小さくなる、格子面間隔の制限で測定可能な元素が制限されるなどの短所がある。また、これらの先行研究においては、3D光学系がスペクトル中のバックグラウンド強度に与える影響に関する議論が主として行われ、蛍光X線スペクトル強度そのものに与える影響に対する実験および理論的研究は行われておらず、ブラックボックスとなっている現状があった。

2. 研究の目的

蛍光X線スペクトル強度の偏光依存性を取り入れた多元素同時分析可能なppbオーダーの定量精度を有する分析装置の開発を最終的な目的とし、本研究期間内においては、装置の幾何学的配置や材質に依存するノイズファクターを実験的に解明し取り除くことで、既存の分析装置と同程度以上の定量精度であるppmオーダーの合金中微量元素定量分析を可能とする、低出力X線源を用いた小型3D光学系蛍光X線分析装置の開発を目的とする。

3. 研究の方法

合金中微量元素の高感度定量分析を行うには「線源由来のX線の検出」を防ぐ必要がある。線源由来のX線の検出される原因として、装置の配置・材質・X線の偏光度に関する要因が大きいと考えられる。具体的には「線源から検出器に直接入射X線が照射される」「試料台や装置部品に起因するスペクトルが観測される」「偏光子の偏光能が低い」などの点が挙げられる。これらを実験的に評価し解決するため、装置の幾何学的配置・材質に依存するノイズ因子の評価、偏光子の入射X線に対する偏光性能の評価について取り組み、ノイズ要因を取り除く。また改良を行った自作装置により鉄鋼試料などの多元素を含む試料の測定を行うことで鋼中微量元素の測定が可能かどうかを確認する。

4. 研究成果

低出力 X 線源を用いた小型 3D 光学系 XRF 装置の試作とそれを用いた鋼材分析を行うことで、3D 光学系を用いた際の XRF スペクトルに対するノイズ要因の解明および Compton 散乱を用いた X 線の偏光生成手法に関する、以下 3 つの成果を得た。

1. 装置の改良と妨害ピークの低減およびステンレス鋼材分析への応用(図1, 2)

微量元素の分析では、制動放射に伴うバックグラウンドに加え、装置から発生する特性 X 線や散乱 X 線も感度に影響する。特に、試料台由来の特性 X 線の影響は顕著でありその改善を行った。具体的には、試料台の金属製治具から生じる銅や亜鉛の K 線が鋼材を測定する上で妨害ピークとなっていたが、試料台を 3D プリンタにより製作した樹脂製部品に置換し、それらの強度を著しく低減できた。また、コリメータの設置及び X 線管・検出器位置の最適化を行い、散乱線の発生を抑制できた。妨害ピークの強度を低減するように改良した自作装置を用いて、偏光素子にアクリル板を用いステンレス鋼 SUS304 および SUS316L の XRF スペクトルを測定し、2 鋼種の同定が可能かどうかを確かめ、SUS304 中に含まれるモリブデン(約 0.2 mass%)を定量することができた。

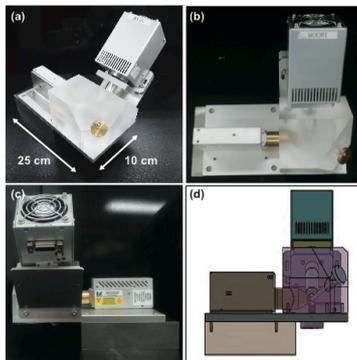


図1 改良した3次元偏光光学系 XRF 装置。(a-c)装置の概観 (d)3D-CAD による模式図

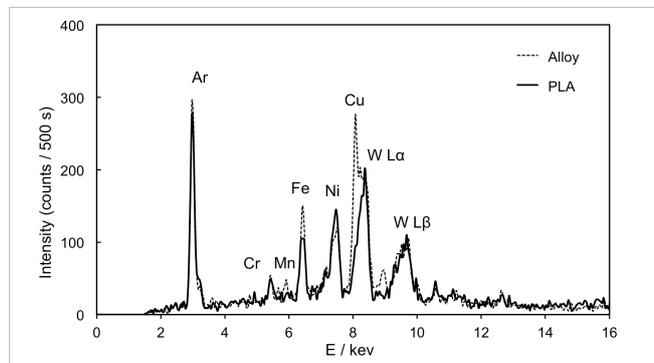


図2 自作装置によるブランク測定のスเปクトル。破線は金属製試料台、実線は 3D プリンタ製樹脂製ホルダを用いた場合

2. XRF スペクトル強度への Compton 散乱の影響の解明(図 3)

偏光素子にアクリル板と鉛板を用いステンレス鋼 SUS316L の XRF スペクトルを測定した。X 線の吸収を考慮し偏光素子の厚さを最適化し、W ターゲット X 線管を用いた際の 2 次元および 3 次元光学系でのスペクトル比較によると、アクリル板を用いた際には鉛板に比べ Ni 線強度が減少することを見出した。これは線源由来の W 線が偏光素子上で 90 度方向に Compton 散乱を起こし、Ni K 吸収端より低エネルギー側にシフトしたことに起因するものであり、偏光光学系では Compton 散乱を定量値に影響を与えうる因子として扱う必要があることがわかった。

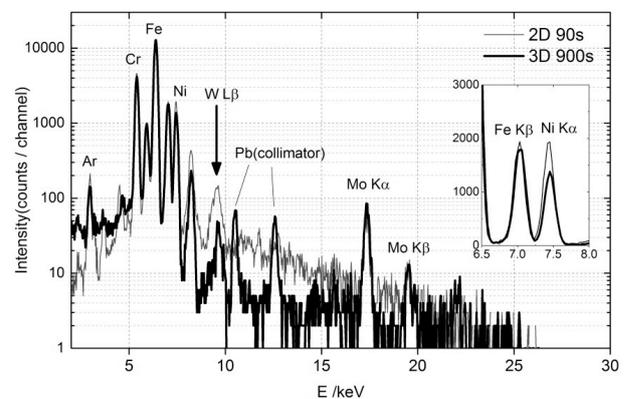


図3 ステンレス鋼 SUS316L の XRF スペクトル。3 次元偏光光学系を用いた場合、偏光素子上で発生する Compton 散乱の影響で NiK α 線の強度が変化

3. 3Dプリンタによる簡易X線偏光度測定装置の開発と偏光白色X線偏光度測定(図4)

偏光光学系XRFによる未知試料中微量元素の高感度分析には、高い偏光度を有する白色X線が適している。我々のグループでは、X線入射方向に対して90度方向に発生するCompton散乱を用いた白色X線の偏光生成手法を、Compton散乱の波動論描像に基づき考案した。そこで、偏光素子にアクリル板および鉛版を用いた際に得られる偏光X線の偏光度を、3Dプリンタ製の偏光度測定装置により測定した。その結果、Compton散乱強度の大きくなるアクリル板を用いた場合のX線の偏光度が鉛版を用いた場合に比して約3倍となることがわかり、偏光素子を構成する元素のCompton/弾性散乱断面積比とX線偏光度との相関を見出した。

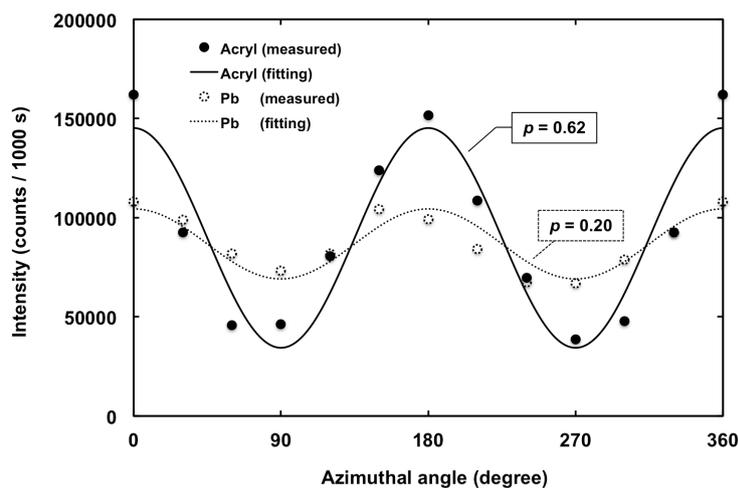


図4 アクリルおよび鉛板を偏光素子として用いた場合の散乱X線強度の検出角度依存性。変調曲線の平均値に対する振幅の大きさとして偏光度 p を評価。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 5 件)

[1]R. Tanaka, T. Sugino, D. Yamashita, N. Shimura, J. Kawai, “Polarized XRF Spectrometer with a 40-mW X-Ray Tube”, *Analitika i Kontrol* **22**, 128(2018). DOI: 10.15826/analitika.2018.22.2.010
査読有

[2]T. Sugino, R. Tanaka, J. Kawai, Y. Takenami, J. Kadono, “3D-printed compact XRF spectrometer”, *International journal of PIXE* **27**, 87 (2017). DOI: 10.1142/S0129083518500080
査読有

[3]田中亮平, 河合潤, “コンプトン散乱により 45 度方向に反跳する電子のド・ブロイ波を回折格子とした波長に依存しない X 線偏光素子”, *X 線分析の進歩* **49**, 189 (2018). 査読有

[4]田中亮平, 森崎聡志, 山下大輔, 山本大地, 堤麻央, 杉野智裕, 河合潤, “3D プリンタによる分光器の試作”, *X 線分析の進歩* **49**, 53 (2018) 査読有

[5]杉野智裕, 田中亮平, 河合潤, “小型偏光 X 線励起による鋼材の XRF 測定”, *X 線分析の進歩* **49**, 177 (2018). 査読有

〔学会発表〕(計 13 件)

[1]Ryohei Tanaka, Jun Kawai, “Compton Scattering Polarizes Continuous X-rays”, *European Conference on X-Ray Spectrometry 2018*, 24-29 June, Ljubljana, Slovenia (2018). (国際学会)

[2]Ryohei Tanaka, Daisuke Yamashita, Jun Kawai, “Polarization Measurement of Compton Scattered X-rays by 3D-Printed Polarimeter”, *European Conference on X-Ray Spectrometry 2018*, 24-29 June, Ljubljana, Slovenia (2018). (国際学会)

[3]Ryohei Tanaka, “Polarization properties of X-rays and Their Applications to X-ray Analysis”, 14th International Symposium on Radiation Physics, 7-11 Oct., Córdoba, Argentina (2018). (招待講演) (国際学会)

[4]Ryohei Tanaka, “3D-printed Spectrometers and Their Applications”, 5th International conference on X-ray Analysis, 12-14 Sep., Ulaanbaatar, Mongolia (2018). (招待講演) (国際学会)

[5]田中亮平, 河合潤 “45°にコンプトン散乱される電子のド・ブロイ波を回折格子とした X 線偏光子”, 第 53 回 X 線分析討論会, 10 月, 徳島 (2018).

[6]田中亮平, 山下大輔, 河合潤, “高偏光白色 X 線生成のための偏光子材の検討”, 日本鉄鋼協会第 175 回春季講演大会, 3 月, 千葉 (2018).

他 7 件

〔図書〕 (計 0 件)

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 0 件)
なし

○取得状況 (計 0 件)

なし

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.process.mtl.kyoto-u.ac.jp/index.html>

6. 研究組織

(1) 研究分担者
なし

(2) 研究協力者
なし

※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。