

機関番号：10101

研究種目：基盤研究（A）

研究期間：2008～2010

課題番号：20246136

研究課題名（和文）パルス中性子透過分光撮影法の透過断面積変化の解明と新応用分野の開発

研究課題名（英文）Study on change of transmission cross sections and development of new application field in spectroscopic imaging using a pulsed neutron transmission method

研究代表者

鬼柳 善明 (KIYANAGI YOSHIAKI)

北海道大学・大学院工学研究院・教授

研究者番号：80002202

研究成果の概要（和文）：

パルス中性子を用いた透過イメージング法で、中性子透過断面積が金属材料の結晶子配向、結晶子サイズなどの違いによって変化することを明らかにし、それらを定量的に評価できるデータ解析コードを世界に先駆けて開発した。このコードを用いて鉄溶接片における組織構造、結晶子サイズ、さらに引っ張り試験中の鉄版の組織構造、結晶子サイズ、歪イメージの取得に成功した。また、カメラ型検出器のパルス中性子対応化も行なった。

研究成果の概要（英文）：

It has been clarified that texture in metals reflects the neutron transmission cross section and the world's first analysis code for deducing quantitative information of the texture, crystallite size and strain has been developed. By using this code texture and crystallite size of a welded iron were investigated, and also texture, crystallite size and strain of iron during in-situ tensile test were successfully imaged. Furthermore, a camera system applicable to a pulsed neutron source has been developed.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	13,900,000	4,170,000	18,070,000
2009年度	11,100,000	3,330,000	14,430,000
2010年度	10,700,000	3,210,000	13,910,000
2011年度	0	0	0
年度	0	0	0
総計	35,700,000	10,710,000	46,410,000

研究分野：

科研費の分科・細目：総合工学 原子力学

キーワード：加速器、量子ビーム、ラジオグラフィ、中性子、結晶組織構造、歪分布

1. 研究開始当初の背景

パルス中性子源を用いたイメージングにおいて透過スペクトルに表れるブラッグ散乱による構造には、材料の組織構造によって変化があることが分かっていた。しかし、その原因は明らかになっておらず、また、その解析コードも存在しなかった。

2. 研究の目的

新しい材料評価手法として、これまでの手法では出せない情報を出せる可能性があるパルス中性子透過法で、そのスペクトルが含む

情報を明らかにするとともに、その定量化のためのコードを開発し実際に応用すること、また、新しい応用分野の開発などを企図した。

3. 研究の方法

加速器中性子源を利用して、飛行時間法によるエネルギー分析法と2次元検出器を組み合わせ、材料の中性子透過スペクトルを位置依存で測定する。開発したコードで、透過スペクトルを解析し、組織構造情報などを得、2次元位置依存情報として画像化する。

4. 研究成果

(1) 分光的透過法のデータ処理コードの開発とその検証

透過率スペクトルに含まれているブラッグエッジ構造から結晶格子ひずみ・集合組織・結晶子サイズ情報を定量化するためには、データ解析コードが必須である。そこで、広い波長範囲のブラッグエッジスペクトルを解析するためのリートベルト型解析コードを世界で初めて作成した。

このコード「RITS」では、透過率スペクトルをシミュレーション計算し、これを実測スペクトルに対して非線形最小二乗フィッティングすることにより、各結晶組織構造パラメータを決定することができる。このコードの性能を検証するため、一般構造用圧延鋼材 SS400 の TIG 溶接材の結晶組織イメージング実験を行った。SS400 の結晶方位は最終安定状態において、圧延方向 (RD) に $\langle 110 \rangle$ 、その法線方向 (ND) に $\langle 111 \rangle$ が選択配向することが知られている (それぞれ α -fiber、 γ -fiber と呼ばれる繊維集合組織である)。ただし、 γ -fiber ではなく β -fiber と呼ばれる ND // $\langle 211 \rangle$ 組織であるという説もあり、明確な識別は困難であるとされていた。また、溶接部では、結晶粒が微細化していることがわかっている。そこで、集合組織の同定・定量と微細組織 (結晶子サイズ) の定量を正しく行えるのかを、北海道大学 45 MeV 電子線形加速器施設パルス冷中性子源と GEM 型 2 次元画像検出器を用いて行った。その結果得られた結晶組織構造情報イメージングの結果を図 1 に示す。

まず、ビーム透過方向に配向している結晶面を同定した画像 (図 1 上) の結果について述べる。ND に中性子を透過させた上側と下側の試料では、その方向に $\langle 111 \rangle$ が選択配向していることが明確に識別された。また、RD に中性子を透過させた中央の試料では、その方向に $\langle 110 \rangle$ が選択配向していることが正しく識別できた。

続いて、結晶方位異方性を定量化した画像 (図 1 中) と結晶子サイズを定量化した画像 (図 1 下) の結果について述べる。溶接部 ($x = 5$ cm のライン上) において、集合組織は弱まり、結晶子は微細化していることを定量的に可視化することができた。これらは、溶接による熔融・再結晶とその時の速い冷却速度を表しており、妥当な結果である。また、上側に設置した 2 つの試料間で結晶子サイズが異なることや、RD に結晶子が引き延ばされていることなども明確かつ定量的に明らかにすることができた。

さらに本試料から小片を切り出し、J-PARC のパルス中性子回折装置「iMATERIA」を利用して中性子回折データを測定し、これをリートベルト解析ソフトウェア「Z-Rietveld」で解析することによって、RITS が与える集合組

織・結晶子サイズの結果の妥当性を詳細に検証した。結晶方位に関する結論は、回折装置由来の影響により得られなかったが、集合組織の発達度は 5 %以内で両者は一致した。結晶子サイズは RITS が 1.5~1.6 倍大きな値を与えるが傾向は一致した。これについては両手法の系統的誤差について検討を要する。しかし、このようにパルス中性子イメージングに RITS を適用することによって、結晶格子ひずみ情報のみならず集合組織や結晶子サイズに関する情報も定量的に可視化することができるようになった。

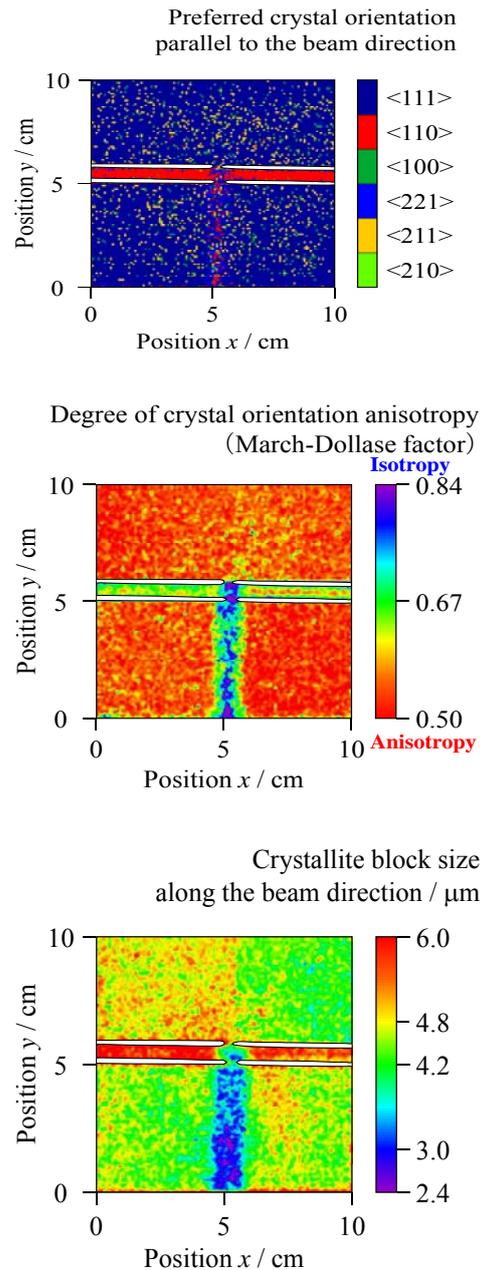


図 1 RITS を用いた選択配向方位 (上)、集合組織の発達度 (中)、結晶子サイズ (下) の定量的イメージング。

(2) 鉄板の引張試験中の組織構造変化

原子炉、飛行機や鉄道などの構造物に生じる亀裂や疲労破壊は重大事故につながるだけに、材料内部に残っている残留応力の分布を捉えることが必要である。パルス中性子透過法は、非破壊検査法として有用な手法の一つであり、歪み量の測定だけでなく歪み部位の変化をマッピングすることも可能という利点がある。同一の試料に対して、中性子回折実験・透過実験を行いそれぞれ得られた格子歪みを比較し、透過法の特徴を明らかにした。中性子回折法は、材料内部の歪みのみならず残留応力測定が可能な唯一の方法である。

試料の上下に大きな切欠きを入れた鉄板 (bcc 構造、100×200×5mm、図2参照) を引張試験機によって荷重を増加させながら、材料内部の格子歪みの変化を測定した (In-situ 測定)。検出器は縦横 16x16 ピクセルからなる 2 次元ピクセル型測定領域は 50×50mm である。

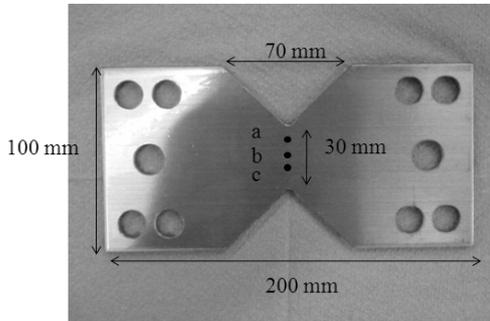


図2 鉄板試験片。

引張試験機の最大荷重は 50kN である。荷重、10kN、20kN、25kN、27.5kN、30kN、32.5kN、40kN、49kN 下で測定を行った。

図3に中性子回折・透過法から得られた {110} 反射に由来する格子歪を示した。回折測定の際に用いた照射領域は 40×4mm 程度であり、透過検出器のピクセル No. 1-9 にはほぼ一致する。荷重の増加によって、回折法・透過法による圧縮歪みが共に増加していることがわかる。各荷重に於いて、透過法によって得られた格子歪みには、分布が観察され位置

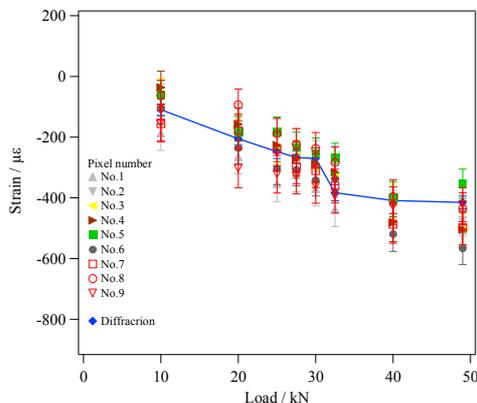


図3 {110}の回折・透過による格子歪の変化。

によって格子歪が大きく異なることがわかる。同様な結果が図4に示す {211} からのも得られた。回折法から得られる歪みは、照射領域の平均値を表わしていると言える。回折法によって得られた歪みは、透過法によって得られた値の分布内に存在し、解析結果に矛盾が無い事が明らかになった。

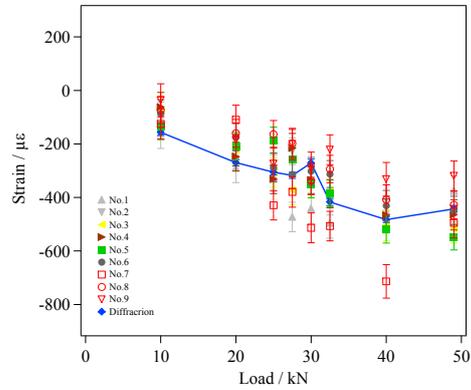


図4 {211}の回折・透過による格子歪の変化。

透過法による格子歪測定精度は、回折法と同等程度であり、図3、4に示すように、透過法の歪み変化は、回折法と同様の傾向を示しており、一回の測定で照射領域内の格子歪み分布が得られる長所を考慮すると、実用材料の格子歪み測定への応用が期待される。

(3) 焼入れ鋼および中世の刀の組織構造測定への応用

ここでは、本手法の応用例として焼入れ鉄および中世の刀の組織構造測定に関する結果を述べる。

・焼き入れ鋼の測定

鋼の熱処理法の一つに焼き入れがある。これは鋼の硬さを増すために行われるが、靱性が低下するという欠点もある。そのため、用途に合わせた適当な焼き入れを行う必要がある。焼き入れ鋼は外観上殆ど変化がなく、また焼き入れ組織であるマルテンサイト相は体心立方格子の1軸のみをランダムに引き伸ばすため、結晶構造解析で焼き入れ部を特定することも難しい。そこで数種の深さまで焼き入れされた棒鋼のブラッグエッジスペクトルをパルス中性子透過分光法により取得し解析することにより、焼き入れ深さの特定及び均一性を検討した。本実験は J-PARC/MLF 施設で実施し、検出器は空間分解能 55 μm/pixel の MCP (Macro channel Plate) デテクターを用いた。試料は焼き入れ深さ 3mm、5mm、7mm とされた 26mm φ の棒鋼を中性子透過率を考慮して厚さ 20mm に切断したものである。

図5、6に、それぞれ焼き入れ深さ 3mm および 5mm の試料に対して得られたブラッグエッジスペクトルを位置毎に解析し、{110} 面の

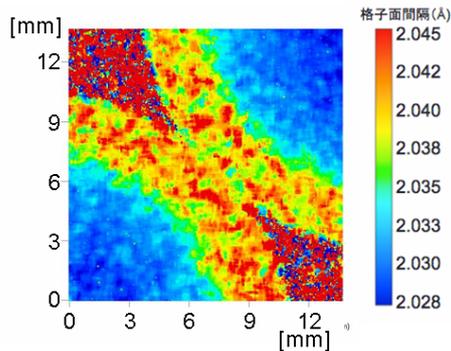


図5 焼き入れ深さ 3mm の棒鋼の {110} 格子面間隔。右上と左下の 1/4 円が試料。

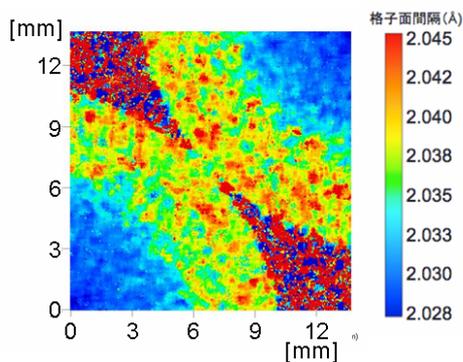


図6 焼き入れ深さ 5mm の棒鋼の {110} 格子面間隔。右上と左下の 1/4 円が試料。

面間隔を導出して可視化したイメージを示す。20mm 厚の円筒状試料を対角状に 2 個同時に設置してあるため、試料の約 1/4 の領域が対角状に見られている。いずれの図でも試料の外側に面間隔の大きい領域が見られており、マルテンサイト変態により面間隔の増加した焼き入れ部が存在することを示している。また、焼き入れ深さ 3mm の試料では面間隔の増加部がほぼ約 3mm の深さ、5mm の試料では約 5mm の深さまで存在することが明瞭に見て取れ、従前の方法では測定不可能な厚い材料でも、焼き入れ状態がはっきりと観測された。

・中世の刀の測定

日本刀の製作ではその硬度や靱性を調整するため、焼き入れ等の手法を古くから取り入れてきた。一般に考古学的試料は貴重なものであり、本手法を応用した、中世期の日本刀の組織構造を検討した。

本実験は英国ラザフォード・アップルトン研究所の ISIS 施設で実施し、検出器は 8×8 ピクセルの Li ガラス直読式検出器である。試料は室町時代に作製された日本刀(図 7)である。日本刀は刃となかごで製造工程が異なると考えられるので、2 箇所測定を行った。図 8、9 に、刀身部となかご部それぞれに対

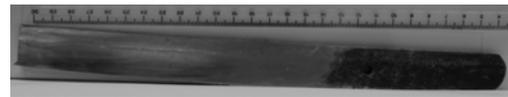


図7 日本刀試料

し、{211} 面のブラッグエッジ解析から得た面間隔の分布を示す。なかご部は全体に格子面間隔がほぼ均一である。一方、刃身部では刃と背の部分は柄部とあまり変わらないものの、中心付近がそれよりやや縮んでいる傾向のあることがわかった(0.09%)。この結果は、日本刀のなかご部と刃身部の製造工程における処理の違いを示すと考えられる。

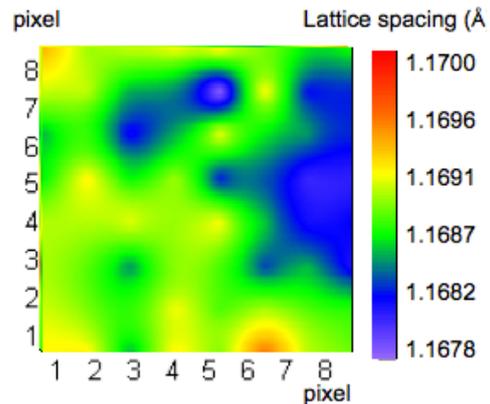


図8 日本刀刀身部の {211} 格子面間隔

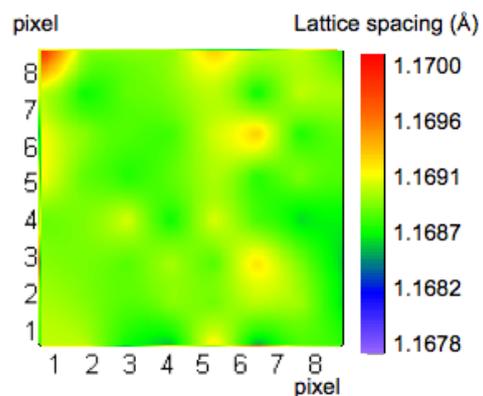


図9 日本刀なかご部の {211} 格子面間隔

(4) カメラ型検出器

これまでの 2 次元位置敏感検出器を使用して透過像を取得する場合には、システムの空間分解能は 1mm 程度が限界であった。空間分解能が 1mm 以下となるカメラ型の検出器の開発を行った。

撮像システムは透過像撮像用高速 CMOS カメラ(DITECT 社 HAS-D3)、ビデオキャプチャボード(DITECT 社 DPX-CLM100)及び画像取得用パソコンで構成されている。高速カメラにはグローバルシャッター機能が付いた高速撮像用 CMOS イメージセンサ LUPA-3000 が搭載されているカメラに、本研究で必要な機能を追加するた

めの改造を行った。追加した機能は以下のとおりである。

①エネルギー分解能を考慮し、時間分解能 $40\mu\text{s}(25000\text{fps})$ と $80\mu\text{s}(12500\text{fps})$ の追加した。これらの場合、画像はそれぞれ 160×136 画素と 224×224 画素となる。

②レートリガモードを追加した。これは、ライナックからのレートリガを受信後、図 10 にあるように、任意に設定されたディレイ時間後に等間隔に最大 500 フレームを連続して記録するモードである。なお、各フレームの露光時間は $1\mu\text{s}$ 単位で $1\sim 39\mu\text{s}$ あるいは $1\sim 79\mu\text{s}$ の範囲で設定できる。

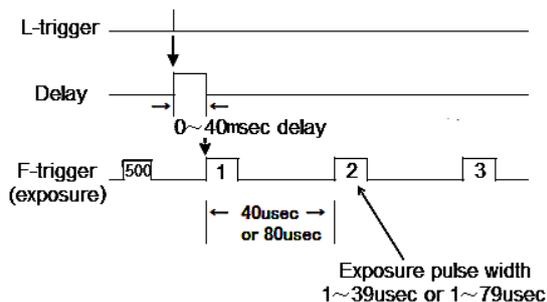


図 10 レートリガモード

③トリガが 256 回に達するまでカメラのメモリ内で積算処理し、積算後の画像データを間断なく CameraLink を用いてパソコンに転送する機能を追加した。オリジナルのカメラでは画像メモリを 2GB 内蔵しているが、データが全て記録してから転送するため、ビームの利用効率が極めて悪くなっていた。そこで、転送するデータ量を減らすために、トリガ後の 500 フレームを繰り返し積算し、トリガ 256 回分を積算後に転送することとした。このメモリを 2 セット用意して、交互に行うことで、大幅に転送データ量を削減し、途切れなく中性子を利用できるようにした。

④黒レベル差分処理機能を追加した。光信号が無い場合でも、カメラからはイメージセンサ固有の微弱なオフセット信号が固有のパターンで出力されている。これを黒レベル

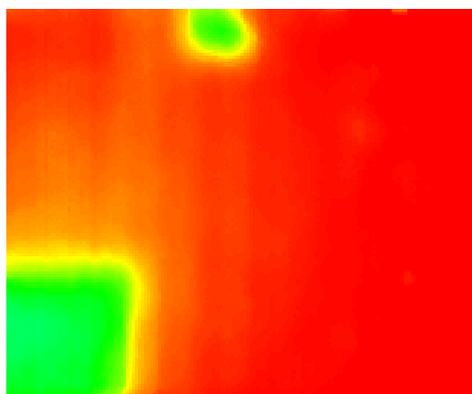


図 11 3meV 中性子による金属試料の透過像

といい、あらかじめ取得して内蔵メモリに記録し、光信号を処理する際に、このデータを用いて逐次差分処理を行い、正味の信号成分を記録できるようにする機能である。

これらの撮像システムを用いて、北大において実験を行い、積算透過像を得た。図 11 は、Pb、Cd、B4C およびポリエチレンからなる試料に対する積算透過像データの一例である。

以上、日本で開発された新しい手法であるパルス中性子透過分光撮影法を進展させ、結晶組織構造解析および 2 次元空間のイメージングのために、RITS 解析コードを開発し、これまで取得できなかった厚い物質の結晶組織構造の空間 2 次元イメージ化に成功し、その有用性を明らかにするとともに、応用分野について新しい方向を示すことができた。今後、これまで利用されていない中性子断面積の特徴の利用によって、この手法は新しい評価分野を開く可能性があり、より多くの分野への応用が期待される。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 13 件)

1. Y. Kiyanagia, T. Kamiyama, H. Sato, T. Shinohara, T. Kai, K. Aizawa, M. Arai, M. Harada, K. Sakai, K. Oikawa, M. Ooi, F. Maekawa, T. Sakai, M. Matsubayashi, M. Segawa and M. Kureta, Design study of the imaging beam line at J-PARC MLF, ERNIS, Nuclear Inst. and Methods in Physics Research, A 査読有 (2011) 掲載決定
2. H. Sato, T. Kamiyama, K. Iwase, T. Ishigaki, Y. Kiyanagi, Pulsed neutron spectroscopic imaging for crystallographic texture and microstructure, Nuclear Inst. and Methods in Physics Research, A 査読有 (2011) 掲載決定
3. H. Sato, O. Takada, K. Iwase, T. Kamiyama and Y. Kiyanagi, Imaging of a spatial distribution of preferred orientation of crystallites by pulsed neutron Bragg edge transmission, Journal of Physics: Conference Series 査読有 251, 2010, pp. 1-4
4. O. Takada, T. Kamiyama, Y. Kiyanagi, Study on phase transition of Pb-Bi eutectic alloy by neutron transmission spectroscopy, Journal of Nuclear Materials 査読有 398, 2010, pp. 129-131
5. 鬼柳善明、佐藤博隆、篠原武尚、パルス中性子を用いた新しいイメージングの展

開, J. Vac. Soc. Jpn. 査読有 Vol. 53, No. 12, 2010, pp. 758-764

6. 鬼柳善明、パルス中性子を用いた分光的イメージング、Isotope News 2010年6月号 査読無 No. 674, pp. 2-7

7. K. Iwase, K. Sakuma, T. Kamiyama, Y. Kiyonagi, Bragg Edge Transmission Imaging of strain and microstructure using a pulsed neutron source, Nuclear Instrm. and Methods in Physics Research, A, 査読有 605, 1-2, 2009, pp1-4

8. Y. Kiyonagi, T. Kamiyama, O. Takada, K. Morita, K. Iwase, S. Suzuki, M. Furusaka, F. Hiraga, S. Tomioka, K. Mishima, N. Takenaka and T. Ino: Imaging and texture observation of materials by using a pulsed neutron spectroscopic transmission method, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A, 査読有 600, 2009, pp. 167-169

[学会発表] (計 33 件)

1. 山下純征、持木 幸一、加美山隆、鬼柳 善明 「パルス中性子源を用いた中性子透過分光撮影のための画像取得システムの開発」第58回応用物理学関係連合講演会、2011年3月24日、神奈川工科大学
2. 高森隆輔、加美山隆、鮎川直彦、佐藤博隆、鬼柳善明、Tremsin Anton、甲斐哲也、篠原武尚、大井元喜、前川藤夫、Strobl Markus 「パルス中性子透過分光法による熱処理を施した鉄のブラッグエッジ解析」日本原子力学会 2011年春の年会、福井大学、2011年3月1日
3. 鬼柳善明 「中性子ビームによる材料微細組織構造イメージング」日本金属学会2010年秋期(第147回)大会、2010年9月26日(基調講演) 北海道大学
4. 加美山隆、佐藤博隆、鬼柳善明 「中性子共鳴吸収分光法によるダイナミクスの測定」日本金属学会2010年秋期(第147回)大会、2010年9月26日、北海道大学
5. 鬼柳善明 「J-PARC パルス中性子源によるエネルギー分析型中性子イメージング」第47回アイソトープ・放射線研究発表会、日本科学未来館(東京)2010年7月8日(特別講演)
6. 佐藤博隆、加美山隆、鬼柳善明、「パルス中

性子イメージングによるバルク結晶組織分布の定量的可視化」日本材料学会第59期学術講演会、2010年5月23日、北海道大学

[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]

ホームページ等

無

6. 研究組織

(1) 研究代表者

鬼柳 善明 (KIYANAGI YOSHIAKI)

北海道大学・大学院工学研究院・教授

研究者番号：80002202

(2) 研究分担者

古坂 道弘 (FURUSAKA MICHIRO)

北海道大学・大学院工学研究院・教授

研究者番号：60156966

加美山 隆 (KAMIYAMA TAKASHI)

北海道大学・大学院工学研究院・准教授

研究者番号：50233961

持木 幸一 (MOCHIKI KOHICHI)

東京都市大学・工学部・教授

研究者番号：80107549

(3) 連携研究者

平賀 富士夫 (HIRAGA FUJIO)

北海道大学・大学院工学研究院・助教

研究者番号：00228777

金子 純一 (KANEKO JUNICHI)

北海道大学・大学院工学研究院・准教授

研究者番号：90333624

岩瀬 謙二 (IWASE KENJI)

茨城大学・フロンティア応用原子科学研究センター・

助教 研究者番号：00524159

原田 正英 (HARADA MASAHIDE)

日本原子力研究開発機構・J-PARCセンター・研究

副主幹 研究者番号：50354733

大井 元喜 (OOI MOTOKI)

日本原子力研究開発機構・J-PARCセンター・研究

員 研究者番号：90446401

佐藤 節夫 (SATO SETSO)

高エネルギー加速器研究機構・物質構造科学

研究所・前任技師

研究者番号：60391744

下ヶ橋 秀典 (SAGEHASHI HIDENORI) 高エ

ネルギー加速器研究機構・物質構造科学

研究所・技師

研究者番号：40391750