

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 5 月 28 日現在

機関番号：13901

研究種目：基盤研究(S)

研究期間：2011～2015

課題番号：23226018

研究課題名(和文)「パルス中性子による物質材料および空間場の組織構造・物理量イメージング」

研究課題名(英文) Imaging of crystallographic structure and physical quantities of materials and spaces by using pulsed neutrons

研究代表者

鬼柳 善明 (KIYANAGI, Yoshiaki)

名古屋大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：80002202

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 204,400,000円

研究成果の概要(和文)：パルス中性子源を用いたエネルギー分析型透過イメージング法の高度化と応用分野の拡大を行った。まず、解析コードを改良し、焼き入れ鉄のマルテンサイト相、日本刀や新材料の結晶組織構造情報の分布を得、硬さ分布の非破壊測定法を見いだした。さらに、CT法の開発を行った。水素貯蔵合金への適応可能性を示すとともに、小角散乱イメージング法を開発し、共鳴吸収スペクトルの定量解析を可能とした。磁気イメージング法の定量性の評価と磁性薄膜への応用、さらに、世界初のパルス中性子による位相コントラスト測定を成功させた。また、高計数率2次元検出器やカメラタイプで短時間チャンネル飛行時間測定ができる検出器の開発に成功した。

研究成果の概要(英文)：We improved a pulsed neutron imaging method using energy analysis and promoted its applications. First, we improved a data analysis code and applied it to analyze martensite phase of quenched steels, a Japanese sword and a new material, and could develop a method to measure hardness non-destructively. CT methods were examined. A hydrogen storage material could be also studied. An imaging method of small angle scattering was developed. Quantitative analysis of a resonance absorption spectrum became feasible. Magnetic field was measured with good accuracy and the method was applied to a magnetic foil. Furthermore, we succeeded in phase contrast measurements using pulsed neutrons firstly in the world. A high counting rate detector and a camera type detector with short channel width of time of flight measurement were successfully manufactured.

研究分野：工学

キーワード：中性子透過イメージング エネルギー分析 ブラッグエッジ 共鳴吸収 結晶組織構造 元素・温度測定 磁場イメージング 検出器

1. 研究開始当初の背景

パルス中性子源を用いた透過画像取得では、画素毎に中性子波長依存の中性子断面積が得られる。それを解析することによって、以下のような情報の2次元空間マッピングができる。低エネルギー領域では、結晶組織構造に基づくブラッグ散乱から、結晶歪み、配向、結晶子サイズなどの情報を、また、含水素物質では、運動状態の違いにともなう断面積の変化から束縛状態情報が得られる。共鳴領域では、共鳴ピークエネルギーから元素同定、その幅から温度測定ができる。また、偏極中性子を用いることによって、空間磁場や磁気ドメインの情報が得られる。

これまでのX線などの測定法では表面や極薄い材料しか扱えなかったが、中性子は透過力が強いので、厚い材料でも非破壊で測定できるという優れた特性がある。本手法は中性子断面積とパルス中性子源の特徴を組み合わせ、これまでできなかった厚い材料や空間・物質磁場についての総合的物理量をイメージング化することを可能とするものであり、材料科学・産業応用にも非常に有用な物質材料評価の手法と期待されている。

2. 研究の目的

(1) 手法開発:

①ブラッグエッジイメージングなど: 解析コードの改良を行う。また、nmスケールの結晶グレインなどの情報を同時に取得するために、空間依存小角散乱法を開発する。立体的な組織構造情報を取得するためにCT画像システムを開発する。位相コントラスト法の開発を行う。

②共鳴吸収イメージング: 元素分布の定量化、温度測定のための解析コードの開発を行なう。透過だけでなく元素分布を立体的にとらえるためCT法を確立する。

③磁気イメージング: より大きなものが測定できる偏極、検極素子を設置し、磁場測定の性能を評価する。また、定量解析のために磁場情報解析コードの開発を行う。

④検出器: GEM型検出器をJ-PARCのような大強度中性子源で使用するためには、高計数率化を図る必要がある。そのため、10MHz以上の高計数率のものを開発する。また、さらに強い中性子強度の場でも使えて高位置分解能ができればと期待されるカメラタイプ検出器については、より短い時間幅での測定を可能とし、適用範囲を拡大する。

(2) 応用研究の展開: ブラッグエッジイメージングでは、新しい応用として日本刀などの古美術的なものについて、組織構造の特徴を明らかにすることを進める。また、実用材料として自動車の軸材などの焼き入れ材の組織情報の測定を行う。水素は中性子が最も感度がよいものであり、その動的状態を調べることを進める。共鳴イメージングでは、実材料における元素分布、不純物元素の測定を行う。磁気イメージングでは、磁性材料の磁気構造についての測定を進めていく。

3. 研究の方法

(1) パルス中性子透過実験

北海道大学電子加速器中性子源 HUNS と J-PARC/MLF の NOBORU および RADEN 装置を用いて飛行時間透過実験を行った。検出器は本研究で開発中の GEM を主に使用した。

(2) データ解析

開発中のブラッグエッジ解析コード RITS および本目的用に改良した共鳴解析コード REFIT を使用した。

4. 研究成果

手法開発と応用についてまとめて述べる。

(1) ブラッグエッジイメージング

ブラッグエッジ透過スペクトル解析コード RITS の高度化を行い、230 種類の結晶構造空間群全てと、多元素物質、二相物質、エッジ幅の解析ができるようにするとともに、計算速度の高速化も行った。

焼き入れ深さを非破壊で測定できれば製品検査などで有用である。焼き入れした丸棒鋼について中性子透過測定を行い、焼き入れ部のマルテンサイト相のブラッグエッジ幅(マイクロひずみなどに関係)の拡大に注目し、改良 RITS コードを用いて図1に示す様にフェライト相とマルテンサイト相分布を得た。

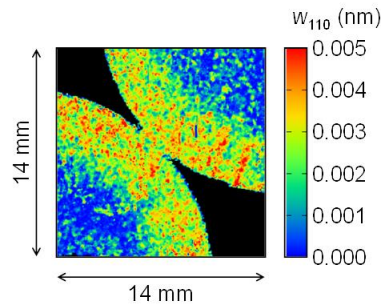


図1 2個の丸棒1/4断面のマルテンサイト(円周)とフェライト(内側)分布

さらに、図2に示すように、エッジ幅とビッカース硬さに比例関係(図中の式)があることを見出し、硬さを求める方法を示した。この方法を拡張することによって非破壊でマルテンサイト相や硬さのCTが可能となる。

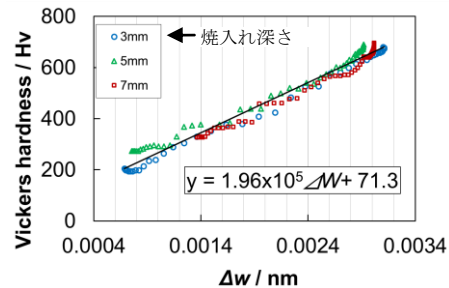


図2ブラッグエッジ幅とビッカース硬さ

文化財分野の応用として日本刀(銘:備州長船則光)の測定をNOBORUで行った。図3に示した分布から、鍛錬回数が多いと結晶子サイズが大きく、配向が強くなるなど製造過程に関する情報が得られることが分かった。

さらに、図2の結果から刃部のビッカース硬さを導出し、日本刀の硬さとして妥当であることが示された。体系的研究を進めるための有用な非破壊測定法であることが分かった。

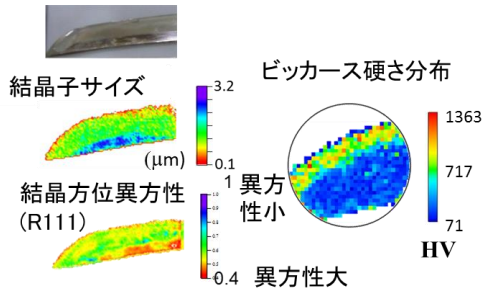


図3 日本刀の結晶組織構造と硬さの分布

また、最先端材料研究への応用として、HPT (High Pressure Torsion) 加工を受けた超微細結晶粒鉄鋼材料について測定を行った。その結果、加工量の多い所から順次強い繊維集合組織が発達していくこと、加工量が少ないと粗大結晶粒が残っていること、強ひずみ加工を受けているにも関わらず結晶格子ひずみは大きくないこと、などのバルク全体にわたる位置依存情報が得られ、この分野へ新たな知見を与えることができた。

ひずみ CT は材料開発や製品検査の上で非常に重要な方法である。しかし、ひずみは方向依存性があるテンソル量であり、新しい方法が必要となる。開発したテンソル CT 法を用いて、国際標準試料「VAMAS」(周ひずみと径ひずみの2成分が軸対称に分布)のひずみ CT を行った結果、図4に示すように周ひずみは画像再構成に成功した。しかし、径ひずみはうまく再現できず、アルゴリズムの改良が必要であることが分かった。

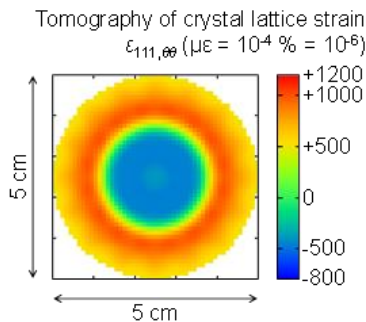


図4 周ひずみの再構成結果

(2) 水素貯蔵合金への応用

TiCrMo 固溶体型 bcc 合金の吸蔵過程に注目し、中性子透過法による全断面面積の変化から結合状態や運動状態を検討・評価することを試みた。TiCrMo 合金は最大水素吸蔵量が 1.6 H/M (水素原子数と金属原子数の比) に達する。吸蔵前の bcc 構造から、最大水素吸蔵時に CaF₂ 構造に変化する。吸蔵前 (0 H/M)、最大吸蔵時 (1.6 H/M)、放出後 (0.6 H/M) の3試料に対して中性子透過測定を行い、全

断面面積値を求めた。水素吸蔵量の増加と共に全断面面積値が上昇していた。吸蔵量の増加と共に合金内を占有できるサイト数が減り、拡散係数が減少することが知られており、全断面面積の変化は、水素の拡散状態を反映していることが示唆された。放出後 (0.6 H/M) と最大吸蔵時 (1.6 H/M) の透過スペクトルを比較した結果、振動状態の異なる水素原子が存在していることが示唆された。吸蔵量の増加と共に透過スペクトル、全断面面積が大きく変化することが明らかになったので、今後、水素の挙動を調べるために中性子透過法も選択肢の一つになり得ると考えられる。

(3) 小角散乱イメージング

小角散乱 (SANS) を位置依存で測定するためには、通常スキニング法を用いる。ここでは、効率を向上させるために、多数の入射ビームを同時に複数の小領域に入射するときに、特別なパターンで入射・非入射し、その入射ビームパターンとの相関をとることにより、散乱ビームの重なりが無い SANS パターンを得るという方法を用いた。その原理検証実験を HUNS で行った。7 本の入射ビームで行うために、2⁷-1=127 パターンで変調するような入射ビーム変調器を作成した。高窒素鋼と粘土鉱物 2 種類の試料を別々の場所に置き、試料無しの所と合わせて 3 パターンが再現できるかの検証を行い、個別の SANS パターンを得ることに成功した。この結果、約 3.5 倍の効率となることが確認された。

(4) 共鳴吸収イメージング

共鳴吸収スペクトルは共鳴吸収断面面積に中性子源からの中性子放出時間分布が畳み込まれた形となっている。J-PARC 中性子源の時間分布をシミュレーションにより求め、任意の中性子エネルギーで透過スペクトル解析ができるようにした。NOBORU ビームラインにおいて 10 μm 厚タンタル箔と 1 mm 厚銀板を測定し、本目的用に改良した REFIT コード [1] により解析を行ったところ、図5に例を示す様に、誤差%以内での密度分析に成功した。CT は従来法で再構成が可能であった。

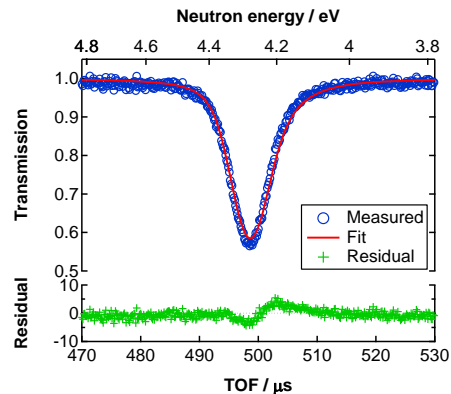


図5 10 μm 厚タンタル箔の 4.28 eV 共鳴に対するフィッティング結果

また、温度測定に、触媒としてよく用いられる白金が使えれば適用範囲が拡大する。しかし、白金は核データが十分に整備されてい

ないために、計算で評価することが難しい。そこで、白金 (0.05mm) の 12eV の共鳴幅と温度測定で実績のあるタンタル (0.1mm) の共鳴幅の温度に対する変化を測定し、結果を比較した。共鳴幅の広がり方は、ほぼ同程度であることが明らかになり、白金も十分に利用可能であることが分かった。

(5) 磁気イメージング

偏極中性子を用いて、中性子ビーム経路中の磁場強度とその方向を定量的に調べることが可能となる。そこで、NOBORU および HUNS に偏極パルス中性子偏極度解析実験体系を構築した。さらに磁場方向を検出するため、3次元中性子スピン解析を導入した。まず磁場強度と方向の定量性の検証を、ソレノイドコイルで行った。磁場を中性子により測定し、その結果を有限要素法に基づく磁場計算結果と比較した。その結果、実験データと計算結果はよく一致し、偏極度解析による磁場強度は約 1%の精度で決定できることが示された。さらに、この手法をイメージングに展開し、図6に示すようにコイルの内部の磁場分布の可視化を実施した。また、応用研究として、軟磁性アモルファス金属箔内部の磁場分布の可視化を行った。その結果、金属箔内部に磁化方向の異なる 2mm 程度の幅の縞状の構造が存在することが確認された。これは軟磁性材料特有のストライプ磁区を可視化したものと考えられる。以上より、空間磁場および磁性体内部磁場の可視化が可能となった。

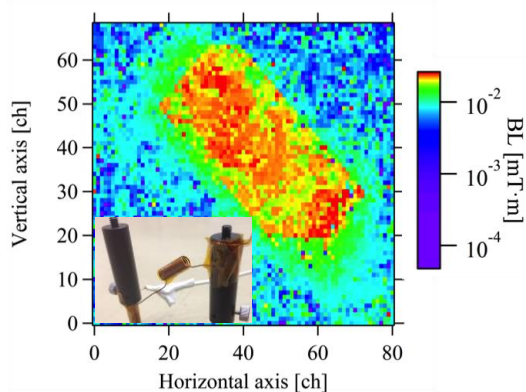


図6 ソレノイドコイル写真 (左下) とその内部の磁場強度分布

(6) 位相イメージング

中性子位相イメージング法は中性子の干渉現象を利用した可視化手法であり、吸収コントラストでは判別することができないような微小な密度や形状の違いを高感度で検出することができる。Tabot-lau 干渉計を用いた位相イメージングをパルス中性子源で実施するために、必要となる中性子用回折格子と吸収格子を製作し、RADEN において試験を実施した。その結果、図7に示すように、パルス中性子を利用した初めての中性子干渉によるモアレパターンを複数波長で同時観測し、位相イメージングに必要な技術開発に成功した。

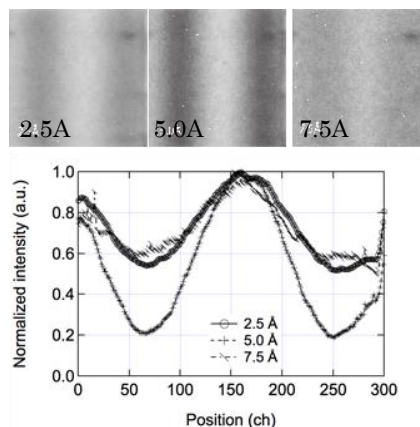


図7 複数の波長で観測したモアレパターン (上) とその強度分布 (下)

(7) 検出器開発

ガス電子増幅器 (GEM) と固体ボロンコンバーターを用いた高計数率の2次元画像中性子検出器の開発を行い、パルス発生器で 12MHz、実際の中性子測定で 3.65MHz の最大計数率を達成した。これは、この空間分解能で飛行時間測定が可能なもの最高である。検出器から得られる微弱信号を処理する特殊用途集積回路 (ASIC) の改良を行い、欠けのない画像を取得することに成功した。ASIC とデータ処理・転送を行う (FPGA) を組み合

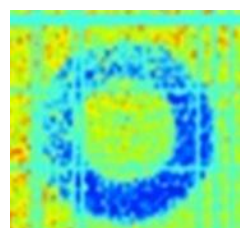


図8 共鳴による微量元素の測定例

わせた 1 枚の読み出し電子回路基板を開発し、コンパクトで高計数率の検出器システムを完成した。図8に共鳴吸収法で測定したステンレスワッシャ中の微量元素 Mn の分布を示す。

カメラ型検出器として、中性子イメージンテンシファイア (I. I.)、光 I. I. および最多 4096 フレームの積算機能つき高速度カメラからなる撮像システムを開発した。その構成を図9に示す。視野は直径が 9、7 および 5.5 インチから選択できる。中性子飛行時間測定チャンネル幅は 10、33.3、および 100 μ s から選択でき、これらのフレーム周期に対応して、カメラの画素数は 320 \times 240、512 \times 512 および 960 \times 960 画素となる。5.5

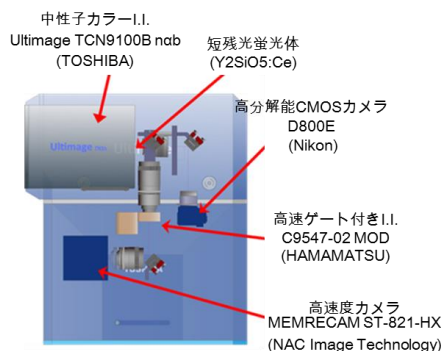


図9 中性子カラー-I. I. の構成

インチモードで960×960画素で撮像すると、1画素の分解能が約100μmとなり、高位置分解能が達成できる。HUNSにて和包丁の透過実験を行った。オーステナイト（FCC）とフェライト（BCC）の分布を図10に示す。0.54mmの画素サイズでブラッグエッジイメージング解析に成功し、小型中性子源での結晶相解析ができることを証明できた。

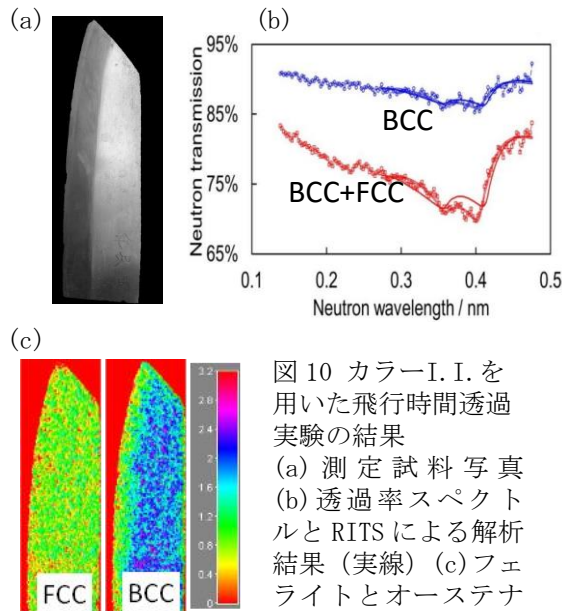


図10 カラーI.I.を用いた飛行時間透過実験の結果
(a) 測定試料写真
(b) 透過率スペクトルとRITSによる解析結果（実線）
(c) フェライトとオーステナイト結晶相の分布

以上、パルス中性子イメージング法について解析コードの高度化を行うとともに、測定手法の高度化、新手法の開発を行った。さらに、いくつかの分野に適用し、本手法の有用性を確認した。得られる情報が増えること、また、適応範囲が広がって行くことが今後期待される。

[1] M.C. Moxon, J.B. Brisland, AEA-InTec-0630, AEA Technology, October (2008).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕（計30件）

1. H. Sato, Y. Shiota, T. Shinohara, T. Kamiyama, M. Ohnuma, M. Furusaka, Y. Kiyanagi, Development of the tensor CT algorithm for strain tomography using Bragg-edge neutron transmission, *Physics Procedia*, Vol. 69, pp.349-357, 2015, 査読あり
doi: 10.1016/j.phpro.2015.07.049
2. N. Wada, T. Shinohara, H. Sato, H. Hasemi, T. Kamiyama, Y. Kiyanagi, Evaluation of magnetic field vector by polarization analysis using pulsed neutrons at HUNS for magnetic field imaging, *Physics Procedia*, Vol. 69, pp.427-435, 2015, 査読あり
doi: 10.1016/j.phpro.2015.07.093
3. H. Sato, T. Sato, Y. Shiota, T. Kamiyama, A. S. Tremsin, M. Ohnuma, Y. Kiyanagi, Relation between Vickers Hardness and Bragg-Edge Broadening

in Quenched Steel Rods Observed by Pulsed Neutron Transmission Imaging, *Materials Transactions*, Vol. 56, pp.1147-1152, 2015, 査読あり

doi: 10.2320/matertrans.M2015049

4. H. Hasemi, M. Harada, T. Kai, T. Shinohara, M. Ooi, H. Sato, K. Kino, M. Segawa, T. Kamiyama, Y. Kiyanagi, Evaluation of nuclide density by neutron resonance transmission at the NOBORU instrument in J-PARC/MLF, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, Vol. 773, pp.137-149, 2015, 査読あり
doi: 10.1016/j.nima.2014.11.036
5. Y. Kiyanagi, T. Kamiyama, K. Kino, H. Sato, S. Sato, S. Uno, Pulsed neutron imaging using 2-dimensional position sensitive detectors, *JINST*, Vol. 9, pp.C07012, 2014, 査読あり
doi: 10.1088/1748-0221/9/07/C07012
6. Y. Kiyanagi, H. Sato, Y. Shiota, T. Kamiyama, K. Iwase, S. Uno, Development of Energy Selective Neutron Imaging, *Journal of Physical Society of Japan, Conf. Proc.* 1, pp.014008 1-6, 2014, 査読あり
doi: 0.7566/JPSCP.1.014008
7. H. Sato, Y. Shiota, Y. Todaka, T. Shinohara, T. Kamiyama, M. Ohnuma, M. Furusaka, Y. Kiyanagi, Radiographic and Tomographic Neutron Bragg Imaging for Quantitative Visualization of Wide Area Crystalline Structural Information, *Mat. Sci. Forum*, Volume 738-786, pp.2109-2114, 2014, 査読あり
doi:10.4028/www.scientific.net/MSF.783-786.2109
8. K. Kino, N. Ayukawa, Y. Kiyanagi, T. Uchida, S. Uno, F. Grazzi, A. Scherillo, Analysis of Crystallographic Structure of a Japanese Sword by the Pulsed Neutron Transmission Method, *Physics Procedia*, Vol. 43, pp.360-364, 2013, 査読あり
doi: 10.1016/j.phpro.2013.03.043
9. K. Iwase, H. Sato, S. Harjo: In situ lattice strain mapping during tensile loading using the neutron transmission and diffraction, *Journal of Applied Crystallography*, Vol.45, pp.113-118, 2012, 査読あり
doi: 10.1107/S0021889812000076
10. Y. Kiyanagi, H. Sato, T. Kamiyama, T. Shinohara, A new imaging method using pulsed neutron sources for visualizing structural and dynamical information, *Journal of Physics, Conference Series* 340, pp.1-10, 2010,

2012, 査読あり

doi: 10.1088/1742-6596/340/1/012010

[学会発表] (計 150 件)

1. M. Isono, M. Tanaka, Y. Shiota, K. Watanabe, Y. Kiyonagi, A. Uritani, Pulsed neutron Bragg-edge transmission analysis of steel materials with different carbon content for applied research of iron cultural heritages, The 15th Korea-Japan Meeting on Neutron Science, 6-8, Jan. 2016, Busa, Korea.
2. T. Shinohara, Magnetic Field Imaging Using Polarized Pulsed Neutrons, Polarized Neutrons for Condensed Matter Investigations (PNCMI2014), 16 September 2014, Sydney (Australia)
3. Y. Kiyonagi, Development of Energy Selective Neutron Imaging, The 12th Asia Pacific Physics Conference 2013, 14-19 July 2013, Makuhari Messe International Conference Halls (Yokohama)
4. 篠原武尚, 中性子ビームを用いた新しいイメージング手法の開発と今後の展望, 日本顕微鏡学会 第 69 回学術講演会, 2013年5月20~22日, ホテル阪急エキスポパーク (大阪)
5. Y. Kiyonagi, Micro-structural physical information imaging in a real space of material by using pulsed neutrons, IUMRS-International Conference on Electronic Materials (IUMRS-ICEM 2012), 23-28 September 2012, PACIFICO YOKOHAMA (Yokohama)

[図書] (計 1 件)

1. 佐藤博隆, エス・ティー・エス, しなやかで強い鉄鋼材料の開発最前線 節 2-2-3 「パルス中性子イメージングによる結晶組織の広範囲解析」, 320 (内、8 ページを執筆), 2016

[産業財産権]

○取得状況 (計 1 件)

名称: パルス中性子ブラッグエッジイメージング用結晶組織構造解析プログラム「RITS」

発明者: 佐藤博隆

権利者: 同上

種類: プログラム著作物登録

番号: P 第 10160 号-1

取得年月日: 平成 24 年 11 月 15 日

国内外の別: 国内

[その他]

HP:http://toybox.qe.eng.hokudai.ac.jp/kakenhi_S/index.html

中性子科学学会賞 2015 年 12 月

日韓中性子科学会ポスター賞 2016 年 1 月

6. 研究組織

(1)研究代表者

鬼柳 善明 (KIYANAGI, Yoshiaki)

名古屋大学・工学研究科・特任教授

研究者番号: 80002202

(2)研究分担者

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

古坂 道弘 (FURUSAKA, Michihiro)

北海道大学・大学院工学研究院・教授

研究者番号: 60156966

宇野 彰二 (UNO, Shoji)

高エネルギー加速器研究機構・素粒子原子核研究所・教授

研究者番号: 70183019

持木 幸一 (MOCHIKI, Koichi)

東京都市大学・工学部・教授

研究者番号: 80107549

篠原 武尚 (SHINOHARA, Takenao)

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: 90425629

(3)連携研究者

木野 幸一 (KINO Kohichi)

北海道大学・大学院工学研究院・准教授

研究者番号: 00594285

佐藤 博隆 (SATO, Hirotaka)

北海道大学・大学院工学研究院・助教

研究者番号: 30610779

長谷美 宏幸 (HASEMI, Hiroyuki)

北海道大学大学院 工学研究院

研究者番号: 50773743

甲斐 哲也 (KAI, Tetsuya)

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: 90354737

塩田 佳徳 (SHIOTA, Yoshinori)

名古屋大学・工学研究科

研究者番号: 90556010

岩瀬 謙二 (IWASE, Kenji)

茨城大学・工学部・マテリアル工学科・准教授

研究者番号: 00524159

矢代 航 (YASHIRO, Wataru)

東北大学・多元物質科学研究所・准教授

研究者番号: 10401233

大竹 淑恵 (OTAKE, Yoshie)

理化学研究所・光量子工学研究領域光量子技術基盤開発グループ・チームリーダー

研究者番号: 50216777