

パルス中性子透過法による結晶組織構造情報の 定量的イメージング 学位論文内容の要旨

材料評価法として、電子顕微鏡・X線回折法・放射光イメージングなどが利用されている。これらと比較して中性子は、物質透過能力が高い、水素やリチウムといった軽元素との相互作用が大きい、同位体によって相互作用の強さが変わる、といった他の方法とは異なる特徴を持っており、結晶学や金属材料学の観点から他の方法では得られない情報を提供することが可能であると考えられている。また、透過撮像(イメージング)の観点からは、他の手法に比べて実用材のような厚いバルク試料を広範囲にわたって高位置分解能で非破壊的に調べられるという特長がある。従来は原子炉のような定常中性子源が使用されてきたが、パルス中性子を透過撮像に用いると中性子のエネルギーや波長をその飛行時間から高精度に決定でき、画素毎にエネルギー依存の透過スペクトルを得ることができる。被写体が多結晶性金属材料の場合には、透過中性子スペクトルにブラッグエッジが現れる。ブラッグエッジは中性子の回折に起因しているため、画素毎の被写体の結晶組織構造情報を含んでいることになる。このようなパルス中性子イメージングは、中性子回折法と比較しても、大面積かつ高位置分解の結晶組織構造情報が効率的に得られるというメリットがある。そのため、ブラッグエッジを利用して結晶組織の変化を撮影しようという試みや結晶格子ひずみのイメージングが行われてきた。しかし、ブラッグエッジの出現波長位置からひずみを定量化し、それをイメージング化することは行われていたが、結晶組織の変化を定量的に評価し画像化しようという研究はこれまで行われていない。また、新しい手法であるパルス中性子透過法で得られた結晶組織情報と従来法である中性子回折法で得られる情報との比較は行われていない。

そこで本研究では、パルス中性子イメージングを用いて、集合組織・結晶子サイズ・結晶格子ひずみの情報を定量的に評価する解析法の開発を行い、得られたデータの信頼性を評価するために中性子回折実験との比較を行った。これによって金属材料研究分野へ貢献することを目的とした。具体的な研究項目は以下の4つである。

- ・ ひずみ・集合組織・結晶子サイズを定量化するためのブラッグエッジ解析コードの開発。
- ・ 集合組織と結晶子サイズの定量化。
- ・ スペクトル解析によって得られる集合組織情報と結晶子サイズ情報の中性子回折法による検証。
- ・ スペクトル解析によって得られる結晶格子ひずみ情報の中性子回折法による検証。

第2章では、パルス中性子イメージングのための結晶組織解析コード「RITS(Rietveld Imaging of Transmission Spectra)」を開発した。結晶構造因子を始めとする結晶組織構造モデルに基づいてブラッグエッジ透過率スペクトルをシミュレーション計算し、これを実験で得られたスペクトルに対してフィッティングすると、その結晶組織構造モデルを最適化することができる。このような流れで測定対象の結晶組織構造を決定する方法を回折法においては Rietveld 法と呼んでいるが、これをパルス中性子イメージングに応用した。まず、ひずみ解析を行うためのブラッグエッジプロ

ファイル関数として、中性子のパルス形状に係わらず最適なフィッティングを行うことができる Jorgensen のプロファイル関数を RITS に導入した。また、3段階シングルブラッグエッジプロファイル解析法を導入し、Jorgensen のプロファイル関数と組み合わせることによってこれまで以上に高精度なひずみ解析が可能となった。次に、集合組織の影響を考慮するため、March-Dollase 第2関数という結晶方位分布モデルを導入した。その結果、実験と同じ様なブラッグエッジの変化を理論計算によって初めて再現することに成功し、被写体の配向方位や結晶方位異方性を定量化することが可能となった。最後に、第1次消衰効果の影響を考慮するため、Sabine 関数という結晶子内部における多重散乱モデルを導入した。その結果、実験と同じ様なブラッグエッジの変化を理論計算によって初めて再現することに成功し、被写体の結晶子サイズを定量化することが可能となった。

第3章では、RITS を利用した集合組織と結晶子サイズの定量的なイメージングの原理実証実験を行った。測定試料として、圧延方向に {110}、その法線方向に {111} が配向する一般構造用圧延鋼 SS400 (α -Fe) の溶接片を用意した。 α -Fe の圧延集合組織特性は既知である。また、溶接片は溶接金属部・熱影響部 (HAZ)・母材の領域が明確に分かれており、結晶子の大きさも変化しやすい。空間分解能 $800 \mu\text{m}$ ・検出面積 $10\text{cm} \times 10\text{cm}$ で透過率スペクトルを測定することができる GEM (Gas Electron Multiplier) 検出器を用いて北海道大学のパルス中性子実験施設で実験を行った。全画素の透過率スペクトルを RITS で Rietveld 法的に解析し、配向方位・結晶方位異方性・結晶子サイズの定量的なイメージングを行った。その結果、配向方位は α -Fe の圧延集合組織特性 {111}<110> に一致した。他の実験手法では {211}<110> との区別が難しいと言われていたが、RITS は明確に {111}<110> を識別した。また、結晶方位異方性と結晶子サイズはどちらも溶接部において小さくなっており、光学顕微鏡を用いた結晶粒観察による推定と一致した。すなわち、集合組織と結晶子サイズの定量的なイメージングに初めて成功し、RITS の有用性も示された。また、北大加速器のような小型パルス中性子源が有効に利用できることも示され、本手法が on-site 材料評価法としての可能性を有することがわかった。

第4章では、第3章の結果の信頼性を、大強度陽子加速器施設 J-PARC 中性子源に設置されているパルス中性子回折装置「iMATERIA」と専用解析ソフトウェア「Z-Rietveld」を使用して検証した。その結果、配向方位は異なる結果となってしまった。iMATERIA では、Time-focusing 法というデータ収集システムを用いて高計数データを得ている。しかし、Time-focusing 法は結晶方位分布情報を弱める可能性があるため、異なる結果が得られた可能性がある。一方、結晶方位異方性は RITS も Z-Rietveld も 5% 以内で一致し、その信頼性が保証された。また、結晶子サイズは RITS の方が Z-Rietveld よりも 1.5~1.6 倍ほど大きく見積もられるということが明らかとなった。しかし、比例関係は存在し、溶接部において結晶子が小さくなるという傾向については一致した。今後、それぞれの測定法を詳細に検討し、観測しているものの違いについてさらに検証していく必要があるものと思われる。

第5章では、ひずみイメージングの信頼性を、J-PARC のパルス中性子回折装置「TAKUMI」を使用して検証した。測定試料は引っ張り試験下にある α -Fe で、パルス中性子イメージングと TAKUMI の測定を同時に行った。引っ張り荷重を様々な値に変更することで計9パターンの異なるひずみ状態を作り出し、イメージング法と回折法でそれぞれのひずみを解析・比較した。その結果、世界最高クラスのひずみスキャナーである TAKUMI の限界ひずみ分解能と同程度の精度で測定・解析は行われており、その値は誤差範囲内で一致していることが示された。これにより、ひずみイメージングの信頼性が確認された。

本研究では、まったく新しい非破壊材料解析ツールであるパルス中性子イメージングにおいて、集合組織ならびに結晶子サイズに関する情報の定量化に初めて成功し、その解析精度を確認した。結晶格子ひずみ測定については、世界最高クラスの中性子回折装置と同程度のデータが得られることが明らかとなった。以上のことから、パルス中性子イメージング法によって得られるデータは、材料評価において他の手法では得られない有用な情報を非破壊的に提供できることがわかった。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 鬼 柳 善 明

副 査 教 授 古 坂 道 弘

副 査 教 授 渡 辺 精 一

学 位 論 文 題 名

パルス中性子透過法による結晶組織構造情報の 定量的イメージング

材料評価法として、電子顕微鏡・X線回折法・放射光イメージングなどが利用されている。これらと比較して、中性子は物質透過能力が高い、同位体によって相互作用の強さが変わる、といった他の方法とは異なる特徴を持っており、結晶学や金属材料学の観点から他の方法では得られない情報を提供できると考えられている。また、透過撮像（イメージング）の観点からは、他の手法に比べて実用材のような厚いバルク試料を広い面積にわたって高位置分解能で非破壊的に調べられるという特長がある。パルス中性子を透過撮像に用いると、中性子のエネルギーや波長をその飛行時間から高精度に決定でき、画素毎にエネルギー依存の透過スペクトルを得ることができる。被写体が多結晶性金属材料の場合には、透過中性子スペクトルにブラッグエッジが現れる。ブラッグエッジは中性子の回折に起因しているため、画素毎の被写体の結晶組織構造情報を含んでいることになる。そのため、ブラッグエッジを利用して結晶組織の変化を撮影しようという試みや結晶格子ひずみのイメージングが行われてきた。しかし、結晶組織構造の変化を総合的に定量評価し画像化しようという研究はこれまで行われていない。また、新しい手法であるパルス中性子透過法で得られた結晶組織情報と従来法である中性子回折法で得られる情報との比較も行われていない。

本論文ではパルス中性子透過法を用いて、集合組織・結晶子サイズ・結晶格子ひずみの情報を定量的に評価・イメージング化するための解析コードの開発、鉄溶接材をサンプルとした結晶組織構造のイメージング、さらに中性子回折法によるデータとの比較検討を行っている。これにより、パルス中性子透過法による新しい材料評価法の確立を目的としている。以下に概要を述べる。

第2章では、パルス中性子イメージングのために開発した結晶組織解析コード「RITS(Rietveld Imaging of Transmission Spectra)」について述べている。回折法において用いられている Rietveld 法をベースにし、パルス中性子透過法独自の中性子断面積の構築、シミュレーション法を開発している。まず、ひずみ解析を行うためのブラッグエッジプロファイル関数として、中性子のパルス形状にかかわらず最適なフィッティングを行うことができるプロファイル関数を RITS に導入し、これまで以上に高精度なひずみ解析を可能とした。次に、集合組織の影響を考慮するため、March-Dollase 第2関数という結晶方位分布モデルを導入し、被写体の配向方位や結晶方位異方性の定量化を可能とした。最後に、結晶子サイズに関係するものとして、Sabine 関数という結晶子内

部における多重散乱モデルを導入している。さらに非線形フィッティング法を取り入れ、結晶構造因子を始めとする結晶組織構造モデルに基づいたパラメータを変化するシミュレーション計算を行い、これを実験で得られたスペクトルに対してフィッティングすることにより、その結晶組織構造に関する最適パラメータを得ることができるシステムを完成した。

第3章では、RITSを利用した集合組織と結晶子サイズの定量的なイメージングの原理実証実験を行っている。測定試料として、圧延方向に{110}、その法線方向に{111}が配向する一般構造用圧延鋼SS400(α -Fe)の溶接片を用意した。 α -Feの圧延集合組織特性は既知である。また、溶接片は溶接金属部・熱影響部(HAZ)・母材の領域が明確に分かれており、結晶子の大きさも変化しやすい。空間分解能 $800\ \mu\text{m}$ ・検出面積 $10\text{cm} \times 10\text{cm}$ で透過率スペクトルを測定することができるGEM(Gas Electron Multiplier)検出器を用いて北海道大学のパルス中性子実験施設で実験を行い、全画素の透過率スペクトルをRITSで解析し、配向方位・結晶方位異方性・結晶子サイズの定量的なイメージングを行った。その結果、配向方位は α -Feの圧延集合組織特性{111}<110>に一致した。他の実験手法では{211}<110>との区別が難しいと言われていたが、明確に{111}<110>を識別できている。また、結晶方位異方性と結晶子サイズはどちらも溶接部において小さくなっていった。すなわち、集合組織と結晶子サイズの定量的なイメージングに初めて成功し、RITSの有用性も示した。また、北大加速器のような小型パルス中性子源が有効に利用できることも示し、本手法がon-site材料評価法としての可能性を有することがわかった。

第4章では、第3章の結果の信頼性を、大強度陽子加速器施設J-PARC中性子源に設置されているパルス中性子回折装置「iMATERIA」と専用解析ソフトウェア「Z-Rietveld」を使用して得られたデータとパルス中性子透過法によるデータの比較によって検証している。配向方位に関しては異なる結果となってしまった。iMATERIAでは、広い角度に渡るデータをまとめて取得するということで高統計データを得ている。このことは結晶方位分布情報を弱めると考えられる。一方、結晶方位異方性については、両者は5%以内で一致し、その信頼性が保証された。また、結晶子サイズは透過法の方が回折よりも1.5~1.6倍ほど大きく見積もられるということが明らかとなった。しかし、溶接部において結晶子が小さくなるという傾向については一致した。以上、両手法のデータの比較により、信頼性の確認と課題について明らかにした。

第5章では、ひずみイメージングの信頼性を、J-PARCのパルス中性子回折装置「TAKUMI」を使用して得られたデータと比較検討することで検証している。測定試料は引っ張り試験下にある α -Feで、パルス中性子イメージングとTAKUMIの測定を同時に行った。引っ張り荷重を0-49kNの間で変化させ、イメージング法と回折法でひずみの大きさを求め比較している。その結果、世界最高クラスのひずみスキャナーであるTAKUMIの限界ひずみ分解能と同程度の精度であり、その値は誤差範囲内で一致していることを示した。これによって、ひずみイメージングの信頼性を確認した。

以上、本論文は、まったく新しい非破壊材料解析ツールであるパルス中性子透過イメージング法の基礎を確立し、その有用性を明らかにしたものであり、中性子工学の発展に対する貢献は大なるものがある。よって著者は、北海道大学博士(工学)の学位を授与される資格あるものと認める。