

解説

研究会成果報告－25

小型中性子源による鉄鋼組織解析法研究会Iとその後の展開

Characterization of Microstructure in Steels by Compact Neutron Source

大竹淑恵

Yoshie Otake

理化学研究所

光量子工学研究センター

中性子ビーム技術開発チーム

チームリーダー

1 はじめに

鋼材の内部を非破壊で観察するプローブは数種あり、たとえば電子線やX線といった放射線分析プローブと中性子線を比べるとその特徴は、高い透過能と、軽元素に対する高い感度を有することである。つまり、電子線やX線がサンプルの表面近傍数十 μm 内部を詳細に観察できるのに対し、中性子線は数mmから数cm厚サンプル全体の内部の様子や金属組織を評価分析することができる。本稿では、「小型中性子源による鉄鋼組織解析法」研究会I (2014年-2017年 主査 大竹淑恵) における理研小型中性子源システムRANSの開発とともに進んだ研究会活動を中心に報告する。

『鉄鋼材料をバルクで「鉄を傷めることなく」観察できる中性子線は、鉄鋼材料を調べることに最も適していることはこれまでも知られていたが¹⁾、中性子源施設数が限られているため利用できる機会が少ない。このため、鉄鋼材料の評価分析手法としての普及が難しい状況にあるなか、日本鉄鋼協会では2006年に茨城大学友田陽教授(当時、現 産総研)が主査となり産発プロジェクト研究として「中性子利用鉄鋼評価技術の基礎検討に関する研究」を立上げた²⁾。本プロジェクト研究では、研究用原子炉JRR-3の中性子装置を効率的に頻度高く利用し、「産官学の連携による中性子利用範囲の拡大と材料工学分野における利用モデル構築を行った。このプロジェクトにより、鉄鋼組織解析を目的とした中性子回折法ならびに中性子小角散乱法の利用が飛躍的に進んだ。大強度核破砕型中性子源J-PARCの運転開始とともに、2010年から2012年の3年間にわたり、産発プロジェクトメンバーと全国気鋭の鉄鋼研究者を巻き込み、世界最大強度パルス中性子源の鉄鋼利用への展開を見据えたC型研究会「新世代中性子源を利用した鉄鋼元素機能研究会」(主査 NIMS 大沼正人

(現 北海道大学教授) 評価・分析・解析部会)³⁾の活動が展開された。これらの活発かつ強力な研究会の流れから、2013年に中性子源の現場展開への新たな可能性を検討することを目的とした「コンパクト中性子源を利用した鉄鋼組織解析法FS」研究会(1型研究会、主査大竹淑恵)が誕生した。

本研究会の前身である前述FS研究会では、国内で長年の稼働実績のある2か所の中・小型中性子源である京都大学原子炉KUR (Kyoto University Reactor) ならびに北海道大学小型中性子源HUNS (Hokkaido University accelerator-driven compact Neutron Source)⁴⁾に加え、同年中性子発生に成功したばかりの理研小型中性子源システムRANS (RIKEN Accelerator-driven compact Neutron Source、図1参照)⁵⁻⁷⁾の3か所を拠点として研究会活動は行われた。前述3か所の各拠点は、それぞれの特徴ある中性子線源であり、また複数の計測装置を有している。そこで、それぞれの特色を生かしながら、鉄鋼材料のニーズを反映した中性子散乱計測実験を研究会メンバー全員で提案し、その提案された実験の実施、データ解析といった一連の流れを、3か所の拠点を毎月利用し、小型中性子源による鉄鋼材料評価の可能性を精力的に検討した。具体的には、HUNSでは、中小角散乱装置i-ANS (アイアンズ、intermediate angle neutron scattering) の高度化開発ならびに主にサブナノスケールの析出物などに関する組織解析研究を、KURでは小角散乱実験のみならず、中性子のデータからユーザーが必要なパラメータを複雑な解析を経ずに得られることを目指した“ワンクリックアナライザー”開発を、そして、RANSでは中性子イメージングによるバルク鉄鋼サンプル内部非破壊観察、塗膜鋼板腐食及び腐食に関係する水の動きの非破壊観察ならびに定量評価への挑戦などに取り組んだ⁸⁾。このFS研究会活動の後半には研究会メンバーから「世界中で一番中性子線を利用している鉄鋼研究者たち

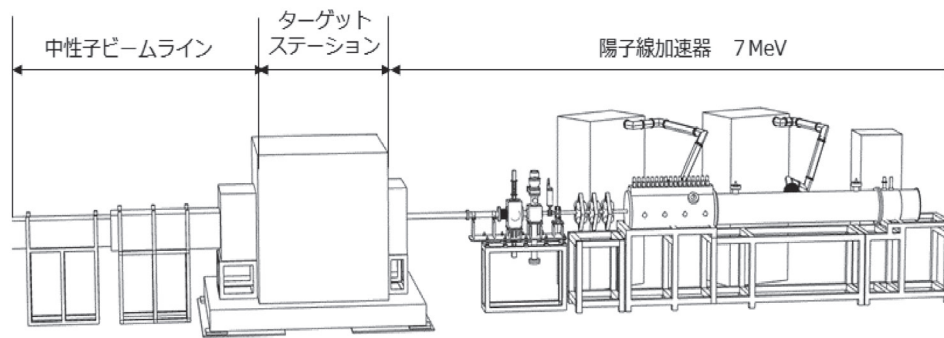


図1 理研 小型中性子源システム RANS (RIKEN Accelerator-driven compact neutron source) 3D図
右側の陽子線加速器 (7MeV) で加速された陽子が中央左の箱ターゲットステーション内の金属ベリリウムと核反応を起こし、中性子線を発生する。ターゲットステーションから下流の中性子ビームラインは取り外し自由であり、実験の種類やサンプルの大きさ、利用検出器により、ターゲットステーション直下から約5m下流まで、飛行距離を選ぶことができる。RANSはパルス中性子源であり、飛行距離が長いほど、エネルギー分解能は高くなる

が我々ではないか？」という声が多くあがり、コンパクト中性子源は鉄鋼研究に当初の目論見以上に有効であることが示され、2014年には「小型中性子源による鉄鋼組織解析法」研究会I (主査大竹淑恵) へと発展した。本研究会は、小型中性子源の可能性や有効性を探るのではなく、鉄鋼組織解析のための新たな小型中性子源に特化した計測システムの開発研究を行うという世界初のプロジェクトである。

本研究会Iでは、3か所の小・中型中性子源を拠点として進めることとした。

[拠点の活動]

1. 北海道大学小型中性子源：HUNS (Hokkaido University accelerator-driven compact Neutron Source)
2. 京都大学原子炉：KUR (Kyoto University Reactor)
3. 理化学研究所小型中性子源システム：RANS (RIKEN Accelerator-driven compact Neutron Source)

さらに、研究会としては、以下の2つの課題に取り組むこととした。従来法を高度化させつつ挑戦していく課題として、「残留オーステナイトの相分率計測を現場で可能とするような、世界でも類を見ない中性子回折システムを有する小型中性子源システムの開発」(RANS) ならびに「新たな析出物等の組織解析が手軽に可能となる中性子小角散乱装置の高度化ならびに解析ソフトの開発」(HUNS、KUR) 課題がそれぞれである。また、研究会の強い要望として、小型線源の自由度を生かして、従来の中性子大型施設では困難であった若手研究者の自由な研究活動の場を3拠点で確保することとした。これらの課題や要望を具体的に取るために、2つのワーキンググループを立上げた。

[ワーキンググループ]

1. 標準サンプルWG：「中性子線による評価分析が、将来の標準評価値となる」ことを見据えた研究会参加企業によ

るニーズに基づいた比較計測用「共通サンプル」(Round robin samples) 作成ならびに、異なる線源による計測評価を目指す。具体的には研究会のメンバー企業による、残留オーステナイトを含む鉄鋼材料数種の作成。

2. 萌芽WG：若手研究者による自由な発想による鉄鋼材料研究の取り組みや、挑戦的な研究開発を行う。(ただし、本研究会Iで指す若手とは、自らが中性子線研究または鉄鋼材料研究において、『若手』であるとする委員はすべてメンバーを含む。)

ところで、中性子線による計測技術は、鉄鋼材料の組織解析に利用される中性子線回折や、析出物解の評価などにも利用される中性子小角散乱、中性子線イメージングなどに代表される計測の他に、中性子線を照射することで発生する γ 線のエネルギースペクトル解析によりパルクサンプル内部の元素を非破壊で分析する手法、中性子誘導即発 γ 線解析法や放射化分析などがある。HUNSやKURにおいては中性子小角散乱 (SANS) を中心とした活動を、RANSではFS研究会からの継続課題である、塗膜鋼板腐食に関する水素の可視化イメージング技術の高度化に加えて、新たな挑として若手WGとの共同開発として、新たな小型中性子源用パルス中性子回折計測システムの開発を開始した。さらにHUNSにおいては、WG2の活動としてパルス中性子エネルギー分解イメージング (ブラッグエッジイメージング) の高度化による鉄鋼組織2次元マッピングも行った。

RANSは全長15mのコンパクトなシステムであり、企業などの計測現場への導入も見据えた新たな装置開発ならびに高度化を2013年より行っていることから、2014年開始の本研究会ではRANSにおいて鉄鋼材料解析可能な計測システム開発を行い、ニーズに応える計測時間と計測精度を満足する分析装置開発ならびに評価結果を示すことが、本研究会の大き

な目標の一つであった。この目標達成に向かって、萌芽WG
ならびに標準サンプルWGが協力して理研RANSの装置開発
ならびに計測評価精度検討に取り組んだ。

本稿では本研究会IによるRANSにおける鉄鋼組織解析を
中心に紹介する。

2 理研小型中性子源システムRANS

「いつでも、どこでも中性子」線による非破壊評価分析を手軽
に行えることを目指して、理研では小型中性子源システムRANS
(ランズ、図1参照) による線源の整備、高度化と同時に種々
の中性子散乱計測装置開発ならびに最適化を行っている^{6,7)}。
その開発目標は大きく2つあり、まず鉄鋼材料や自動車に代
表されるようなものづくり現場などで、材料をバルクのま
ま評価することを可能とする加速器小型中性子源非破壊分析
システムの開発。もう一つの目標は、橋梁や高速道路といっ
た社会インフラの非破壊現場観察システムの実現⁹⁾である。

図1に示されるように、RANSは陽子線加速器(7MeV)で
加速された陽子がターゲットステーション内の標的である金
属ベリリウムと核反応を起こし、中性子線を発生する。ター
ゲットステーションから下流の中性子ビームラインは取り外
し自由であり、実験の種類やサンプルの大きさ、利用する検
出器の種類や大きさにより、サンプル照射位置を自由に選ぶ
ことができる。具体的な飛行距離としては、標的から約2cm
から約6m下流までである。RANSはパルス中性子源であり、
飛行距離が長いほど、エネルギー分解能は高くなる。標的
での発生中性子強度は、陽子線線形加速器の最高平均電流値
100 μ Aにおいて毎秒約 10^{12} 個である。これは北大のHUNSと

ほぼ同様の発生強度である。ところで、HUNSでは35MeV
電子線を、RANSでは陽子線線形加速器(全長5m弱、図1右
部参照)を利用している。比較的低エネルギーに加速された
陽子線による中性子発生は、全長5mほどのコンパクトな陽
子線線形加速器により高効率に中性子が得られ、さらに約
12MeV以下の陽子線を利用すれば、2次放射化物の生成を抑
えられ扱いが飛躍的に容易となる。この特性をもとに近年は
ホウ素中性子補足療法などの医療応用などでも、陽子線線
形加速器利用¹⁰⁾が広がっている。

陽子線を利用した小型中性子源では、標的(ターゲット)
における水素脆化が課題の一つであり、理研では以下の回避
する技術を開発した。中性子発生のために金属標的に水素の
原子核である陽子線を衝突させる。陽子が標的内で停止する
と陽子は標的内の電子と結合し水素分子となるため、水素脆
化による標的破壊が発生する。この水素脆化破壊を回避す
るために以下の2点に注目した。まず、RANSでは金属ベリ
リウムに陽子線を衝突させて中性子線を発生させるBe (p,n) B
反応を利用しているが、その発生には1.8MeV以上の陽子線
エネルギーが必要である。言い換えると、1.8MeV以下の陽
子線は標的金属内では中性子を発生させないため、標的を通
過させてから陽子線が停止すれば標的内部での水素脆化は回
避できる。そこでRANSにおいては、中性子発生に必要な最
低厚さの薄い金属Be薄膜(300 μ m厚)をバナジウムのバッ
キングに貼り付けた「長寿命Beターゲットシステム」¹¹⁾を開
発した(図2参照)。本長寿命Be標的システムはRANS稼働
開始の2013年より3年間安定稼働の実績を積んだのち、2016
年に2代目金属Be標的に、さらに2019年8月に3代目標的に
交換している。現在使用後のBe標的的分析方針を検討し、今

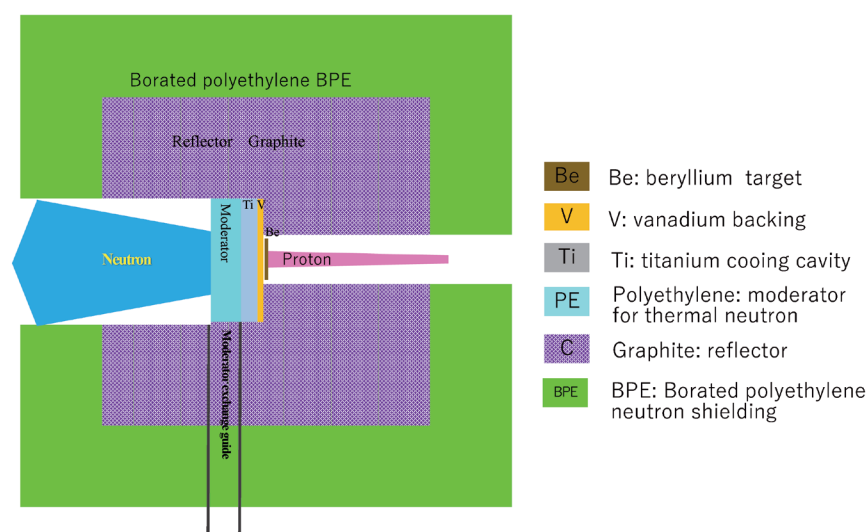


図2 RANS中性子発生近傍の簡易図
Be標的、減速材(ポリエチレンPE)、反射材(グラファイト)、中性子遮蔽(BPE ほう酸ポリエチレン)配置の様子

後の小型中性子源システム標的の耐久性や劣化についての評価分析を進める予定である。また、図2に示される通り中性子標的の下流には、ターゲット冷却のためのチタンキャビティ(Ti)さらに中性子を減速させる減速材を設置している。熱中性子を得るためにポリエチレンを減速材として使用している。ポリエチレン減速材の厚さを変えることにより中性子線のパルス幅とスペクトルを変更することが可能である。標的および減速材等の周り40cm立方はグラファイトの反射体で覆い、より多くの低エネルギー中性子をサンプル位置利用できるように設計されている。

中性子イメージング(ラジオグラフィ)や、鉄鋼組織評価のための中性子線回折法や中性子小角散乱法には、中性子線のエネルギーが数十から数meV(ミリ電子ボルト)、波長にすると0.05nm~1nm領域を利用することが多い。この低エネルギーの中性子線を得るために、減速材と呼ばれる水素を多く含む物質を標的の直後に設置する。我々は熱中性子用の減速材として、ポリエチレン、冷中性子線用の減速材としてメシチレンを利用している。ポリエチレン、メシチレンともに取り扱いが平易であり、将来ものづくり現場でコンパクトな中性子線システムを導入する際のメンテナンスの容易さを優先したシステムの設計である。

具体的に、RANSの中性子取り出し近傍である、標的周りの構造や配置、また得られる中性子エネルギースペクトルを説明する。ターゲットステーション内部には図2に示した中性子発生標的や減速材、反射材を局所遮蔽が囲んでおり、それぞれ25cm厚の中性子遮蔽(BPE:ホウ酸化ポリエチレン)、10cm厚のガンマ線遮蔽である鉛(Pb)、さらにその外側を25cm厚の中性子遮蔽と5cm厚のガンマ線遮蔽が覆っており、遮蔽全体として4層構造となっている(図3参照)。

RANSの中性子線スペクトルを説明する。研究会I終了直後の2017年度に、熱中性子減速材の交換可能とするためのターゲットステーションの改造を行った。これは研究会Iの

大きな目標の一つであった「残留オーステナイトの相分率計測を現場で可能とする」ための中性子回折計の開発に成功(4章参照)をもとに、さらなる鉄鋼材料計測のニーズに応えるための高分解能化の実現を目指すためである。

図4に、ターゲットステーション出口位置での中性子エネルギースペクトルを示す。図4は、ターゲットステーションの出口位置での4種類のスペクトルを示している。それぞれ異なる減速材厚さを示しており、実線は減速材無し(0cm)、点線、破線等は、それぞれ2cm, 4cm, 6cmの厚さの減速材を挿入した際に得られるスペクトルを示している。縦軸は加速器電流値が100 μ Aの時の、単位面積(cm^2)単位時間(s^{-1})あたりの中性子個数を、横軸は中性子線のエネルギーをMeV

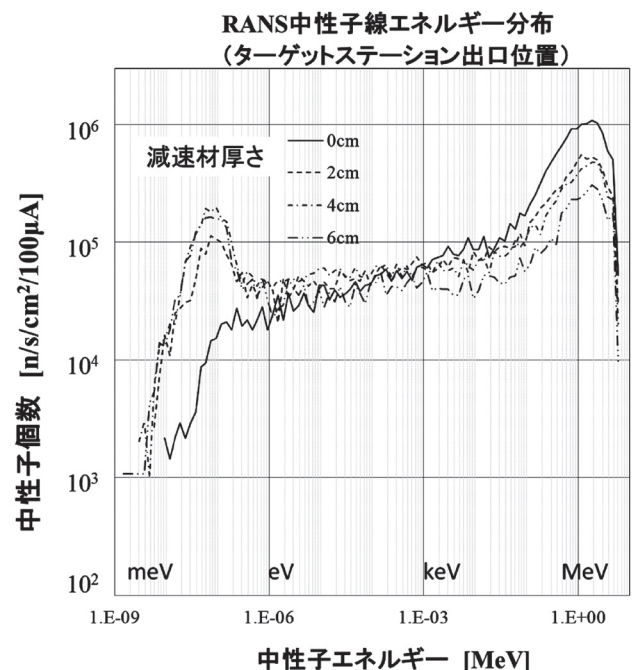


図4 RANS中性子エネルギースペクトル

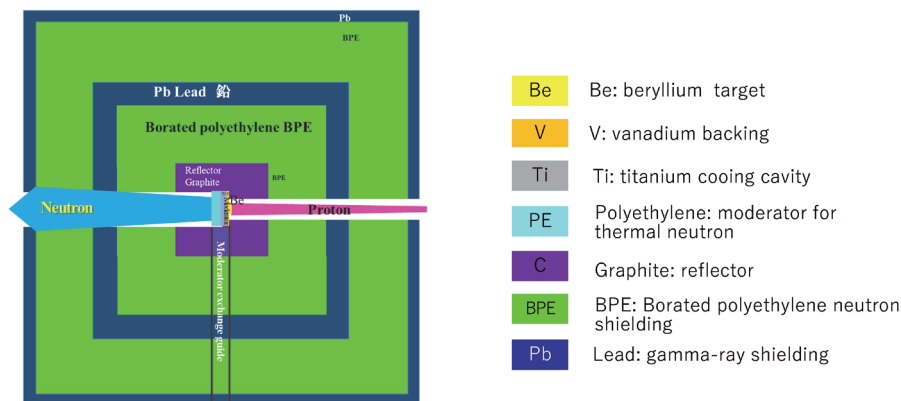


図3 RANS ターゲットステーション内部簡易図：中性子線取り出し発生標的まわりの遮蔽構造

(10^6 eV) で示している。減速材無しでは 10^6 個の高速中性子が単位面積単位時間 (cm^2s^{-1}) あたりに得られ、また減速材装着時には約 10^5 個の熱中性子が cm^2s^{-1} あたり得られる。

RANSでは、熱中性子線、高速中性子線、それぞれの特徴を生かしたニーズに応える様々な計測手法、計測技術開発を行っており、特に研究会Iでは、大型施設J-PARCでの計測を積極的に取り入れながら、鉄鋼材料研究に役に立つコンパクトな中性子源システムの整備・高度化に取り組んだ。次章以下では、RANSにおける塗膜鋼板腐食と水の動きを課題として中性子イメージングとその解析法の高度化の取り組み、残留オーステナイトや集合組織の中性子回折計開発高度化による取り組みを紹介する。

3 塗膜鋼板腐食と水の動きの可視化から定量化への挑戦—小型から大型への展開例—

2013年4月FS研究会第1回研究会において、神戸製鋼所中山氏より、腐食を伴う供試サンプルが研究会に供試サンプルとして提示された。水素に感度の高い中性子線の特性を利用した、理研小型中性子源システムによる塗膜鋼板腐食と水の動きの非破壊可視化に成功⁸⁾につながる初めての手軽な、中性子イメージングの実施であった。その後研究会Iでは、普通鋼と防食合金鋼を観察対象とした塗膜鋼板腐食に関する水の動きの2次元時間変化の可視化の高度化に取り組み、水の保持しやすさの解析手法の開発を行ない¹²⁾、J-PARCにRANSイメージング検出器システムを持ち込み、高分解能短時間の腐食に関する水の変化観察を実施した。ここでは、研究会I終了報告書¹³⁾をもとに説明をはじめめる。

塗膜鋼板試料は2種あり、6 mm厚の普通鋼板 (JIS-SM400相当) と耐食鋼板 (0.8Cu-0.4Ni-0.05Ti) (合金鋼) に250 μm 厚の変性エポキシ塗料を塗装したものに傷をつけ、JIS403に基づく耐食加速試験を6か月間行ったものである。RANSにおいて、試料を水に浸し含水させたあとに、大気中での乾燥過程で中性子透過画像を1枚あたり5分から10分で撮像した。本試料の乾燥状態での中性子透過率は約50%であり、含水した場合はその透過度はさらに数%程度低下する。

我々は中性子イメージングにより得られる中性子透過率を定量的に評価するために、水の重量変化と中性子イメージングの同時計測を行い、以下の定式化を利用した、中性子線による非破壊観察法による腐食と水の関係の定量評価に挑戦した。

中性子線による非破壊イメージング乾燥過程での湿潤した試料の透過イメージとほぼ乾燥しきった試料の透過イメージを比較することにより、試料中の水の分布を定量的に得た。乾燥した試料による中性子の減衰長を L_d 、厚さを t_d とする

と、乾燥試料の中性子透過は

$$I_d = I_d^0 e^{-\frac{t_d}{L_d}} \dots\dots\dots (1)$$

と記述できる。ここで I_d は透過した中性子強度で、 I_d^0 は透過前の中性子強度である。含水した試料は、乾燥した試料に水を追加したものなので、水の減衰長を L_w 、厚さを t_w 、含水試料を透過した中性子強度を I_{d+w} 、透過前の中性子強度を I_{d+w}^0 とすると、

$$I_{d+w} = I_{d+w}^0 e^{-\frac{t_d}{L_d} - \frac{t_w}{L_w}} \dots\dots\dots (2)$$

となる。式 (2) を式 (1) で割ることによって、指数項内の乾燥試料に起因する項はキャンセルされ、

$$\frac{I_{d+w}}{I_d} = \frac{I_{d+w}^0}{I_d^0} e^{-\frac{t_w}{L_w}} \dots\dots\dots (3)$$

が得られる。式 (3) を水の厚さ t_w について解くと、

$$t_w = L_w \left\{ \text{Log} \left(\frac{I_{d+w}}{I_d} \right) - \text{Log} \left(\frac{I_{d+w}^0}{I_d^0} \right) \right\} \dots\dots\dots (4)$$

が得られる。式 (4) の最初のLogの項は、サンプル無しでのイメージの輝度比 (濃淡の比) で2番目のLogの項は、ピクセル毎の乾燥試料イメージと含水試料イメージの輝度の比をピクセル毎に計算することで得られる。ここで、水の減衰長を L_w は放射線輸送シミュレーションで求めた。

RANSでの塗膜鋼板腐食と関係する水の動き観察ならびに上記解析手法を、さらなる詳細な水の動きを捉えることを目的に、大型中性子源JPARKのBL10ビームラインを用いて、RANSでの測定と同様の実験をおこなった。時間分解能と空間分解能の向上がその目的であり、中性子強度はRANSでは線源から約5mにサンプルを置いた場合の熱中性子強度は約 $10^4 \text{ cm}^2\text{s}^{-1}$ に対して、J-PARC BL10では $10^7 \text{ cm}^2\text{s}^{-1}$ であり、中性子の角度発散はRANSでは1/37 Radで行ったのに対して、BL10では1/140 Radであった。試料を含水させて、湿度を制御した環境下での乾燥過程の中性子による透過イメージを、含水から30分後から15秒間隔で連続撮像を行った。普通鋼ならびに耐食性合金鋼イメージングのピクセル毎の水の厚さを式 (4) で計算し、求められた水の分布の時間変化を図5と図6に示す。

両図ともに、(a) は撮像開始直後、(b) は500、(c) は2000、(d) は8000秒後の水の分布である。色の濃淡は水の厚さを示し、色が濃くなるほど厚いことを意味している。水の厚さによる画像の濃淡スケールは図5と図6で同じにしている。特に図5より普通鋼では水の時間経過による水の厚さは、場所ごとに減り方が違っていることが顕著になっていることがわかる。

中性子イメージングの輝度比から得られる水量と、実際の

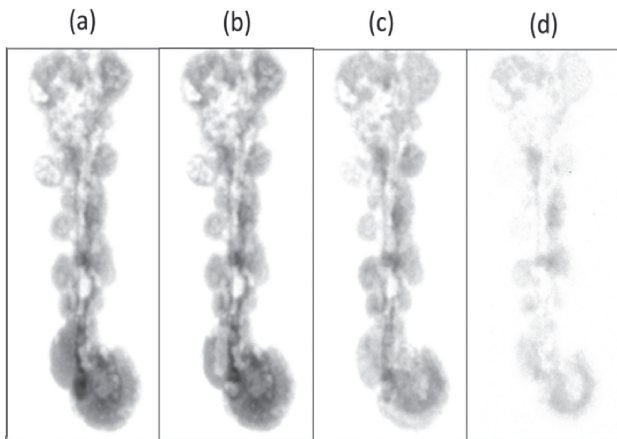


図5 J-PARC BL10での普通鋼腐食に関する水の動き

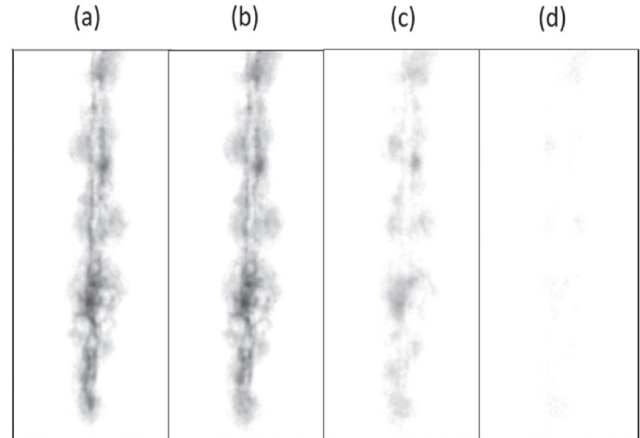


図6 J-PARC BL10での耐食性合金鋼腐食に関する水の動き

水の量との対応は、RANS実験において、上記2種サンプルを用いた透過イメージング実験時に同時にサンプルの重量経時変化計測を実施し、詳細な解析を行うことにより可能となった。その結果を図7に示す。図7はRANSでの中性子イメージングで測定した腐食ふくらみ部分の水の総量の時間変化と重量計測のグラフである。中性子イメージングの輝度比から見積もった水分量は、普通鋼は×、耐食合金鋼は●で示し、電子天秤で測定した重量変化は、普通鋼は点線で、耐食合金鋼は実線で示した。中性子イメージングから得られた水の総量は重量測定からのデータと誤差の範囲で一致しており、中性子透過イメージングから、腐食に関する水の量が定量的に非破壊で測定できることを示している。研究会I終了後、我々は、さらに腐食のメカニズム解明を目指し、腐食中の水の滞留の指標となりうる保水能 (Water Holding Capacity) の2次元のマッピングを非破壊で得る¹⁴⁾ などさらなる鋼材腐食と水に関する研究開発を進めている。

ここで紹介した中性子イメージング法による比較的薄い水素含有量を非破壊で定量的に評価できる本評価分析解析の技術は、普段使いが可能な小型中性子源を利用した鋼板腐食メカニズムの解析や、異種金属接着状態の評価など今後さらに広い範囲のニーズに応える新たな手法となることが期待されている。

4 RANS オーステナイト定量評価、集合組織観察への挑戦

小型中性子源システムの良さは、「日常的に中性子線を利用できる」ことであり、その「手軽さ」と「利用頻度高く使える」点である。それは、大強度施設に比べて中性子線源の強度 (ターゲットでの発生中性子数) が数千分の1から1万分の1以下であることから、施設全体としての放射線の取り扱い

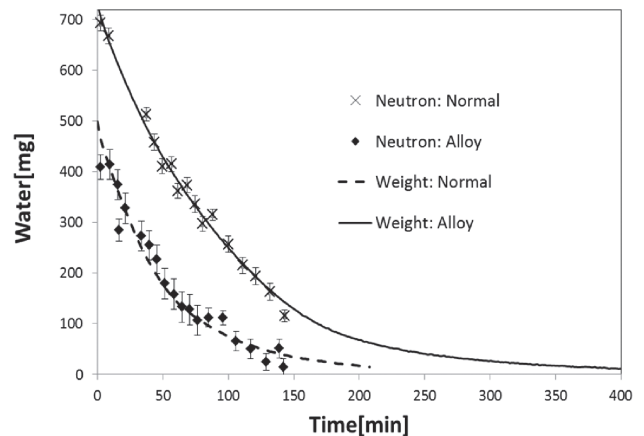


図7 RANSにおける中性子イメージング輝度比による水の量と重量計測

が比較的容易となっている点があげられる。線源の弱さばかりが比較されるが、実は、発生量が少ないために線源まわりの遮蔽が劇的に小さくなり、特にRANSでは線源から約1.5mから6mまで自由にサンプル位置を選ぶことができ、サンプル位置での強度を10倍以上稼ぐことができる。また計測環境も自由度が高く、強度重視の計測または分解能重視の計測など、目的に応じてセッティングを調整することが可能である。ここでは、残留オーステナイト相分率計測評価システムならびに鉄鋼材料集合組織を可能とする小型中性子源に特化した定量評価可能な中性子回折計の最適化システムの開発について述べる。

構造材料の開発は、その軽量化につながる高強度材料の開発がしのぎを削って行われており、中心課題は「高強度と加工しやすさ (延性) を両立する新たな材料開発」といわれている。この「強度と延性」の両立を実現するために、現在では2つ以上の異なる結晶構造が混ざりあって存在する「複相鋼板」等が開発されている。複相とは、たとえば、面心立方 (fcc)

と体心立方 (bcc) の2相が混ざりあって存在する材料であり、鉄鋼現場ではオーステナイト (fcc) の混合率すなわち、相分率が鋼板の質を決めている。研究会Iの大きな目標の一つである「残留オーステナイト量の定量分析を小型中性子源で可能とする」ために、小型中性子源RANSでは複相鋼板の中のfccを定量分析可能とすることが達成目標の一つとなった。

萌芽WGが中心となり、パルス中性子源であるRANSの特徴を生かした飛行時間 (TOF) 法によるエネルギー分解能の計測精度向上、バックグラウンド低減を含めた小型中性子源用回折計の開発とともにRANS中性子回折法による鉄鋼材料の組織観察への挑戦を開始した。2014年からの挑戦に関しては、ここでも研究会I終了報告書¹⁵⁾をもとに説明する。

まず、オーステナイト相分率評価のために、RANSでの回折計の光学学系を組み、鉄鋼材料評価を目的とした中性子回折計の開発を行った¹⁶⁾。第1期RANSにおける回折計を図8に示す。第1期回折計は、そのまわり全体を中性子遮蔽材 (5cmのホウ酸ポリエチレン) が囲み、面積直径90mmのシンチレータと光センサー (RPMT) を組み合わせた2次元飛行時間検出システムを用いた。強度の低い小型中性子源においては、非常に弱い回折シグナルを捉える必要があることから、バックグラウンドノイズを出来る限り低減することが重要になる。検出器前方にあるカメラボックス壁やサンプル位置確認用のイメージング検出器など、バックグラウンドノイズの原因となる散乱体をB4Cゴムシートで隠すことにより、

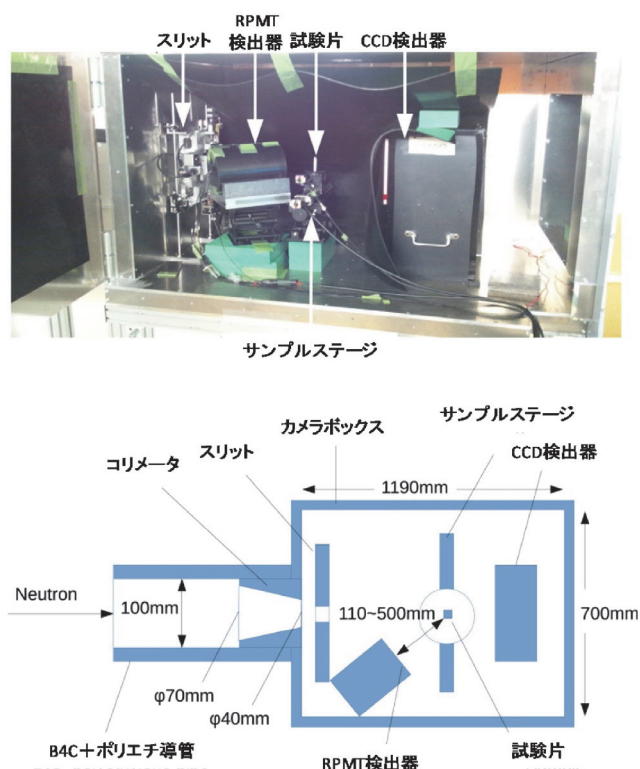


図8 第1期 RANSにおける回折光学系

4分の1程度にバックグラウンドを低減できることが分かった。この測定条件をもって、10mm角の鉄鋼試料 (SM400A) の回折パターンを測定した。このとき、RANSの減速材表面から試験片までの距離は約5m、試験片から検出器までの距離を120mmとし、中心位置における回折角 2θ が150度となるように検出器を設置した。その結果、図9に示すように、たった10分間の測定でも0.1nmから0.5nmの波長範囲に、明らかにBCC構造を有する鉄からの複数の回折ピークを得ることができた。このように、小型中性子源においても、測定条件や測定環境を最適化することにより、飛行時間法により鉄鋼材料の回折パターンの測定が可能であることを世界で初めて実証した。さらに、残留オーステナイト量の測定を模擬するため、フェライト試料 (SM400A) にオーステナイト試料 (SUS316) を挟みこんだ試験片について、そのオーステナイトの相分率の測定を試みた。このとき、RANSのモデレータから試験片までの距離を約5m、試験片から検出器までの距離を140mmとし、中心位置における回折角 2θ が140度となるように検出器を設置した。測定時間は60分とした。その結果、結晶構造の異なるフェライト相とオーステナイト相の回折パターンを分離するだけの分解能があることが分かった。これらの回折強度比から、残留オーステナイト量の定量分析が可能と考えられるが、ここでは、Z-Rietveld¹⁷⁾によるリートベルトフィッティングによりオーステナイトの相分率を評価した。その結果、設定値である19.1%に対して、約16.7%と見積もられた。また、鉄鋼材料の集合組織測定も試みた。用いた試験片は、20%の引張変形前後のフェライト鋼JSC440Wとした。RANSのモデレータから試験片までの距離を約5m、試験片から検出器までの距離を470mmとし、中心位置における回折角 2θ が90度となるように検出器を設置した。測定時間は90分とした。その結果、20%の引張変形により110回

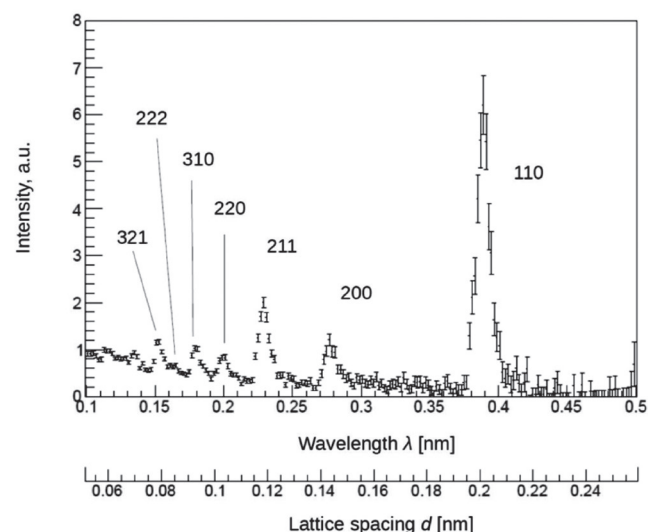


図9 第1期RANSで測定した鉄鋼試料 (SM400A) の回折パターン

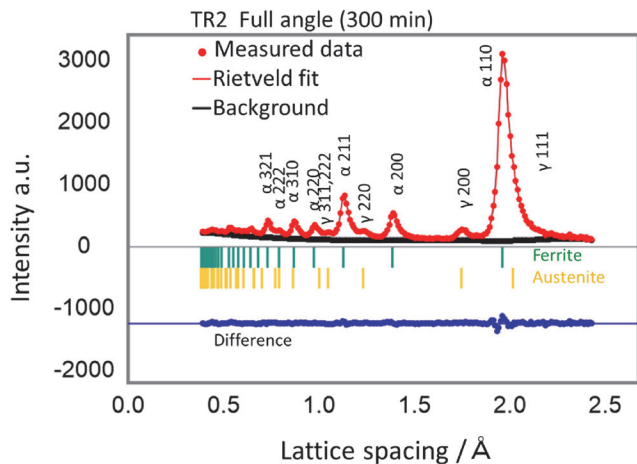
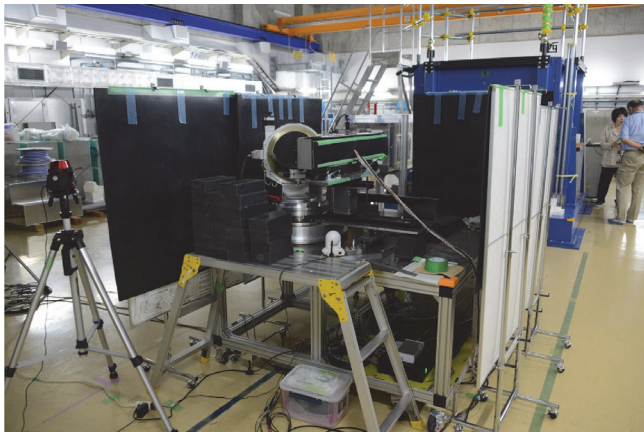


図10 (A) 第2期RANS回折計 (B) 研究会標準サンプル相分率 回折パターン

折の回折強度が高くなる一方で、200回折と211回折の強度が低下するなど、集合組織の変化を捉えることができた。

第1期RANS回折計により、定量評価が小型中性子源システムRANSで十分可能であり、計測結果から得られる精度は数%と高い精度で得られることが分かった。そこで、鉄鋼組織評価専用計測システムの開発を行った。計測時間の高効率化、短時間化、バックグラウンド低減、高分解能化などが、高度化すべき要素技術である。相分率計測については、誤差をさらに低減するための最適化、バックグラウンドの更なる低下、さらにはエネルギーの高分解能化を、また集合組織計測を短時間で実施するためには、検出器の検出効率の高効率化と大面積化を行った。具体的には、90mm直径の光センサーベースの2次元TOF検出器から600cm長さ幅10cmの3He位置敏感型検出器への高度化を行った。これにより、検出効率は3倍に、検出面積は約20倍になり、全体としては60倍の高効率化を実現した。また、計測システムとしては、モーター制御可能なステージを導入し、回折角、 2θ および ϕ と χ は遠隔操作可能なステージを構築し、第2期RANS回折計(図10(A) 参照)が完成した。

研究会Iの最終年度には、標準サンプルWGから提供さ

れる、企業試供サンプルによる複相鋼板相分率評価を行った¹⁸⁾。サンプルの集合組織の影響の除去、またJ-PARCでの計測条件と合わせる計測など複数の取り組みを実施した結果を図10(B)に示す。縦軸は回折中性子線強度に対応する量であり、横軸は計測サンプルの結晶構造による格子間隔を表す格子定数をnm単位であらわしたものであり、図9の横軸の中性子波長に比例する量である。図10(B)の右側の大きなピークは、bcc(110)結晶ピークとオーステナイト量を示すfcc(111)構造を含んだピークが得られている。RANSにおいて測定したTR2の「全方位(full angle)」のオーステナイト相分率計測結果は13.1%となった。一方J-PARC(BL19匠)で測定した結果13.9%との差は0.8vol.%である。「全方位(Full angle)」の方法を採用すれば、大型施設で得られる結果に比べても、1%以内の誤差で測定可能であることが分かった¹⁸⁾。RANSでの1方向の回折パターンは約2分で得られる。ここで述べた高精度計測となる「Full angle」計測は300分、計測点240回折パターンの平均操作を実施した。小型中性子源システムを実用化する上で重要な点の一つは、ものづくり現場においては、「要求精度」と「計測時間」のバランスである。すべてのものを高精度で計測する必要は無く、「素早く全体の様子を、数多くのサンプルに対して分析評価する」ことも重要であり、RANSにおける中性子回折分析評価システムは、「素早い網羅的分析評価」と「詳細高分解能分析評価」両方を兼ね備えているのである。

大型施設に比べて、その強度が1000分の1以下、エネルギー分解能も低い、小型中性子源においても、計測手法に応じた遮蔽、検出系の設計等を行うことにより材料開発の定量分析評価に十分こと足りることを示すことが出来た。本研究会での最大の成果の一つである。

我々の研究室では、塑性加工変形シミュレーションにデータ同化を取り入れた計算精度の向上に取り組んでおり、この小型中性子源システムによる計測結果を組み込んだシステムへと発展させ、よりものづくり現場ニーズに応える体系を目指している。

集合組織計測についても、国内外の大型施設による計測結果との比較を行った結果(国内国外2か所)RANSにおいては、ODF、極点図ともに十分な精度で得られることが示されている¹⁹⁾。

5 研究会Iによる成果 (研究会終了時2017年度末時点)

「小型中性子源による鉄鋼組織解」研究会I(2014年3月から3年間)による成果として研究会研究成果報告書(関係者限定公開 2018年10月25日発行)に掲載した論文リストを

下記に記す。

- ・佐藤成男・黒田あす美・佐藤こずえ・熊谷正芳・ステファヌス ハルヨ・友田陽・齋藤洋一・轟秀和・小貫祐介・鈴木茂：中性子回折ラインプロファイル解析によるフェライト系およびオーステナイト系ステンレス鋼の引張変形中の転位増殖その場観察，鉄と鋼，Vol. 104 (2018) No.4, p.201-207, DOI : <http://dx.doi.org/10.2355/tetsutohagane.TETSU-2017-082>
- ・池田義雅・高村正人・箱山智之・大竹淑恵・熊谷正芳・鈴木 裕士：小型中性子源の現場利用を目指した残留オーステナイト相分率測定手法の開発，鉄と鋼，Vol. 104 (2018) No. 3, p.138-144. DOI : <http://dx.doi.org/10.2355/tetsutohagane.TETSU-2017-080>
- ・Yo TOMOTA, Nobuaki SEKIDO, Stefanus HARJO, Takuro KAWASAKI, Wu GONG and Akira TANIYAMA : In situ Observations of Transformation Behavior upon Heating for a 1.5Mn-1.5Si-0.2C Steel -Comparison between Neutron Diffraction, XRD, EBSD and Dilatometry-, ISIJ International, Vol. 57 (2017) , No. 12, pp. 2237-2244. DOI : <http://dx.doi.org/10.2355/isijinternational.ISIJINT-2017-272>
- ・友田陽・関戸信彰・徐平光・川崎卓郎・ハルヨ ステファヌス・田中雅彦・篠原武尚・蘇玉華・谷山明：種々な方法による Mn-Si-C 鋼の残留オーステナイト体積率測定の比較，鉄と鋼，Vol. 103 (2017) No. 10, p.570-578. DOI : <http://dx.doi.org/10.2355/tetsutohagane.TETSU-2017-045>
- ・友田陽・佐藤成男・ステファヌス ハルヨ：中性子・X 線回折ラインプロファイル解析の最近の進歩，鉄と鋼，Vol. 103 (2017) No. 2, p.73-85. DOI : <http://dx.doi.org/10.2355/tetsutohagane.TETSU-2016-085>
- ・Atsushi TAKETANI, Masako YAMADA, Yoshimasa IKEDA, Takao HASHIGUCHI, Hideyuki SUNAGA, Yasuo WAKABAYASHI, Syoichi ASHIGAI, Masato TAKAMURA, Shunsuke MIHARA, Shinzo YANAGIMACHI, Yoshie OTAKE, Takumi WAKABAYASHI, Kenji KONO and Takenori NAKAYAMA : Visualization of Water in Corroded Region of Painted Steels at a Compact Neutron Source, ISIJ International, Vol. 57 (2017) , No. 1, pp. 155-161. DOI : <http://dx.doi.org/10.2355/isijinternational.ISIJINT-2016-448>
- ・Yoshimasa Ikeda, Atsushi Taketani, Masato Takamura,

Hideyuki Sunaga, Masayoshi Kumagai, Yojiro Oba, Yoshie Otake, Hiroshi Suzuki : Prospect for application of compact accelerator-based neutron source to neutron engineering diffraction, Nuclear Inst. and Methods in Physics Research, A, 833 (2016-10) , pp. 61-67.

DOI : <http://dx.doi.org/10.1016/j.nima.2016.06.127>

- ・Yojiro OBA, Satoshi MOROOKA, Hirotaka SATO, Nobuhiro SATO, Kazuki OHISHI, Jun-ichi SUZUKI and Masaaki SUGIYAMA : Simultaneous Characterisation of Precipitates and Matrix in a Steel Using Small-Angle Neutron Scattering and Bragg-Edge Transmission Analysis, ISIJ International, Vol. 55 (2015) , No. 12, pp. 2618-2623.

DOI : <http://dx.doi.org/10.2355/isijinternational.ISIJINT-2015-315>

- ・Shi HE, Yo TOMOTA, Yuhua SU, Wu GONG, Stefanus HARJO and Gang ZHAO : Unusual Tempering Behavior of Fe-Cr-C Martensite, ISIJ International, Vol. 55 (2015) , No. 3, pp. 686-690.

DOI : <http://dx.doi.org/10.2355/isijinternational.55.686>

- ・土田紀之・ステファヌス ハルヨ・大貫貴久・友田陽：鉄鋼材料の応力-ひずみ曲線，鉄と鋼，Vol. 100 (2014) No. 10, pp. 1191-1206.

DOI : <http://dx.doi.org/10.2355/tetsutohagane.100.1191>

6 おわりに

鉄鋼材料を、傷めることなく、バルクでそのまま内部組織を観察できる中性子線を、「必要なときに、いつでもどこでも」利用できる小型中性子源システムを利用した鉄鋼組織評価分析を、北海道大学小型中性子源HUNS, 京都大学原子炉KUR, 理研小型中性子源システムRANSの3か所の線源を高頻度で利用し、かつそれぞれの装置の高度化開発を行いながら取り組んできた。

評価・分析・解析部会の研究会Iとしての活動は、上記鉄鋼組織解析に関する活動を、広くアピールするとともに、国際的交流や高度化を睨み、国際シンポジウムおよび同シンポジウムサテライトミーティングの開催、ならびに『材料の組織と特性部会』『鉄鋼インフォマティクス研究会』（足立吉隆主査）との合同シンポジウムを毎年度、計3回開催した。インフォマティクス研究会との合同シンポジウムは大変活発な議論を毎回持つことができ、鉄鋼協会の他の部会との「縦糸と横糸」の関係を強化する方針のもと、ここで紹介したコンパクトな中性子源、手で使える中性子源は鉄鋼組織解析にとって有用であることを示せたと考えている。

本稿では、理研RANSの取り組みを中心に紹介し、北大

HUNS 小角散乱による定量評価, KUR KUMA-SANS についての紹介は、研究会で行ってきたシンポジウム資料などに譲りたい。

最後に、1型FS研究会から、本研究会Iの4年間、研究会委員の皆さま関係者の皆さま、特に北海道大学の大沼先生、京都大学複合原子力研究所の杉山先生はじめ幹事の皆さまには、一方ならぬご指導、ご協力をいただきました。篤く御礼申し上げます。また、本研究会終了後の2017年に開始した研究会I「鉄鋼のミクロ組織要素と特性の量子線解析」(主査：佐藤成男先生)においては、従来の量子ビームに中性子線をスタンダード手法として含めた広い枠組みでの鉄鋼組織解析へと発展していただいていますことを改めて御礼申し上げます。

参考文献

- 1) 小松原道郎：波紋 19 (2009), 246.
- 2) 日本鉄鋼協会：産発プロジェクト「中性子利用鉄鋼評価技術の基礎検討に関わる研究」最終報告書, (2009)
- 3) 大沼正人：ふえらむ, 20 (2015), 62.
- 4) M.Frusaka, H.Sato, T.Kamiyama, M.Ohnuma and Y.Kiyanagi : Physica Procedia, 60 (2014), 167.
- 5) Y.Otake (partial author), M.Uesaka and H.Kobayashi : Compact Neutron Sources for Energy and Security, Reviews of Accelerator-Science and Technology, Accelerator Applications in Energy and Security, 08 (2015), 196, World Scientific, <http://doi.org/10.1142/S1793626815020014>
- 6) Y.Otake : A Compact Proton Linac Neutron Source at RIKEN, Applications of Laser-Driven Particle Acceleration ed. by P.Bolton, K.Parodi and J.Schreiber, June 5 (2018) CRC Press Chapter 19, 291.
- 7) 大竹淑恵：理研小型中性子源システムによる非破壊内部観察, パリティー (丸善), 34 (2019) 5, 42.
- 8) 山田雅子, 大竹淑恵, 竹谷篤, 須長秀行, 山形豊, 若林琢己, 河野研二, 中山武典：鉄と鋼, 100 (2014), 429.
- 9) Y.Otake, Y.Seki, Y.Wakabayashi, Y.Ikeda, T.Hashiguchi, Y.Yoshimura, H.Sunaga, A.Taketani, M.Mizuta, Y.Oshima and M.Ishida : Journal of Disaster Research, 12 (2017) 3, 585. <https://doi:10.20965/jdr.2017.p0585>
- 10) H.Kumada, F.Naiito, K.Hasegawa, H.Kobayashi, T.Kurihara, K.Takada, T.Onishi, H.Sakurai, A.Matsumura and T.Sakae : Development of LINAC-Based Neutron Source for Boron Neutron Capture Therapy in University of Tsukuba, Plasma and Fusion Research, 13 (2018), 2406006-1-6.
- 11) Y.Yamagata, K.Hirota, J.Ju, S.Wang, S.Morita, J.Kato, Y.Otake, A.Taketani, Y.Seki, M.Yamada, H.Ota, U.Bautista and Q.Jia : J.Radioanal. Nucl. Chem., 305 (2015) 3, 787.
- 12) A.Taketani, M.Yamada, Y.Ikeda, T.Hashiguchi, H.Sunaga, Y.Wakabayashi, S.Ashigai, M.Takamura, S.Mihara, S.Yanagimachi, Y.Otake, T.kobayashi, K.Kono and T.Nakayama : ISIJ Int., 57 (2017) 1, 155, <https://doi.org/10.2355/isijinternational.ISIJINT-2016-448>
- 13) 竹谷篤, 若林泰生, 大竹淑恵, 池田裕二郎, 若林琢己, 河野研二, 中山武典：塗膜下腐食と水の動きの定量化への挑戦, 「小型中性子源による鉄鋼組織解析法」, 研究会I最終報告シンポジウム報告書, 日本鉄鋼協会, (2017), 44.
- 14) A.Taketani, Y.Wakabayashi, Y.Otake, Y.Ikeda, T.Wakabayashi, K.Kono, T.Kai, K.Oikawa, H.Sunaga, M.Yamada and T.Nakayama : Mater. Trans., 59 (2018) 6, 976. <https://doi.org/10.2320/matertrans.M2018017>
- 15) 鈴木裕士, 池田義雅, 熊谷正芳, 戸高義一：萌芽ワーキンググループの成果と挑戦～小型中性子源における回折計の構築～, 研究会I最終報告シンポジウム報告書, 日本鉄鋼協会, (2017), 36.
- 16) Y.Ikeda, A.Taketani, M.Takamura, H.Sunaga, M.Kumagai, Y.Oba, Y.Otake and H.Suzuki : Nucl Inst. Meth. in Phys. Res. A, 833 (2016), 61. <https://doi.org/10.1016/j.nima.2016.06.127>
- 17) R.Oishi, M.Yonemura, Y.Nishimaki, S.Torii, A.Hoshikawa, T.Ishigaki, T.Morishima, K.Mori and T.Kamiyama : Nuclear Instruments and Methods A, 600 (2009), 94.
- 18) 池田義雅, 高村正人, 箱山智之, 大竹淑恵, 熊谷正芳, 鈴木裕士：鉄と鋼, 104 (2018) 3, 138. <https://doi.org/10.2355/tetsutohagane.TETSU-2017-080>
- 19) P.Xu, R.Kakuta, M.Takamura, Y.Otake and H.Suzuki : Bulk Texture Measurement Technique using Compact Neutron Source, UCANS8 (Union for Compact Accelerator-based Neutron Sources 8), Paris, France July, (2019)

(2020年2月17日受付)