

パルス中性子イメージングの最近の 話題

鬼 柳 善 明

名古屋大学工学研究科 特任教授
北海道大学 名誉教授

協力者

- **Hokkaido University**

T. Kamiyama, H. Sato, Y. Shiota, K. kino, H. Hasemi, T. Negishi, T. Sato,
T. Sakurai, N. Wada

- **J-PARC center and JAEA**

T. Shinohara, K. Kai, K. Aizawa, M. Arai, M. Harada, K. Sakai, K. Oikawa, M. Ooi,
H. Iikura, T. Sakai, K. Nakatani, M. Segawa, M. Kureta

- **Ibaraki University**

K. Iwase

- **KEK**

S. Uno

- **CNR**

F. Grazzi

- **UC Berkley**

A. S. Tremsin

パルス中性子イメージングで現在行っている研究開発

1. 検出器開発
 - 中性子カラーII (持木先生発表)
 - μ -PIC(原田さん、Parkerさん)
 - GEM(宇野先生)
2. マルテンサイト相の解析
3. 3D結晶組織構造イメージング
4. 混合結晶相イメージング
5. 積層金属材の測定
6. 共鳴イメージング
 - 高エネルギー共鳴による元素分布
 - 定量分析(長谷美君発表)
7. 水素元素の運動・束縛状態のイメージングに向けて
8. 磁場イメージング
9. まとめ

Cf: 文化財

日本刀(長嶋君発表)
コイン

1. 検出器開発：中性子カラーI.I.

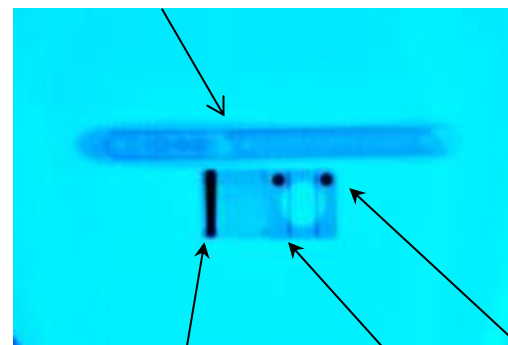
ガンマ線と中性子の画像

T. Kamiyama et al.

北大実験

γ 線

カッターナイフ

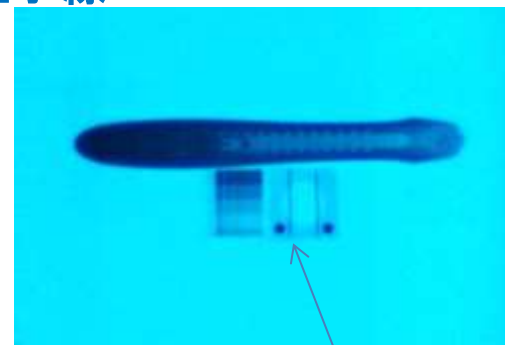


Pb step wedge

Cd bar

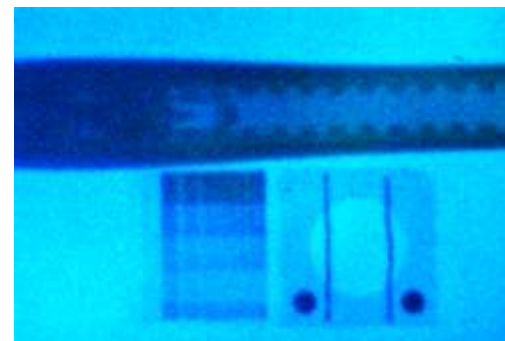
Pb disk

中性子線

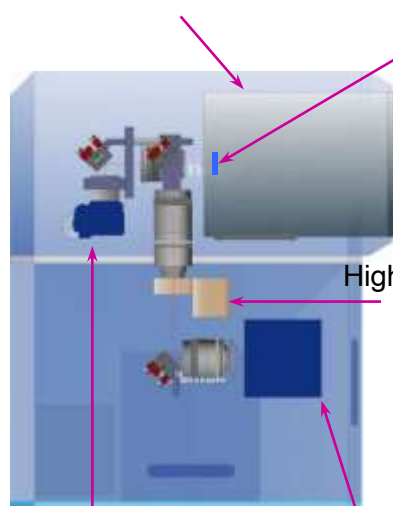


中性子線(拡大)

BN disk



中性子カラーII
Ultimage TCN9100B nab
(TOSHIBA)



Short afterglow phosphor
(Y2SiO5:Ce)

High-speed gated image intensifier unit
C9547-02 MOD
(HAMAMATSU)

High resolution CMOS sensor with 36.3 effective megapixels

(Nikon)

High speed Camera MEMRECAM ST-821-HX
(nac)

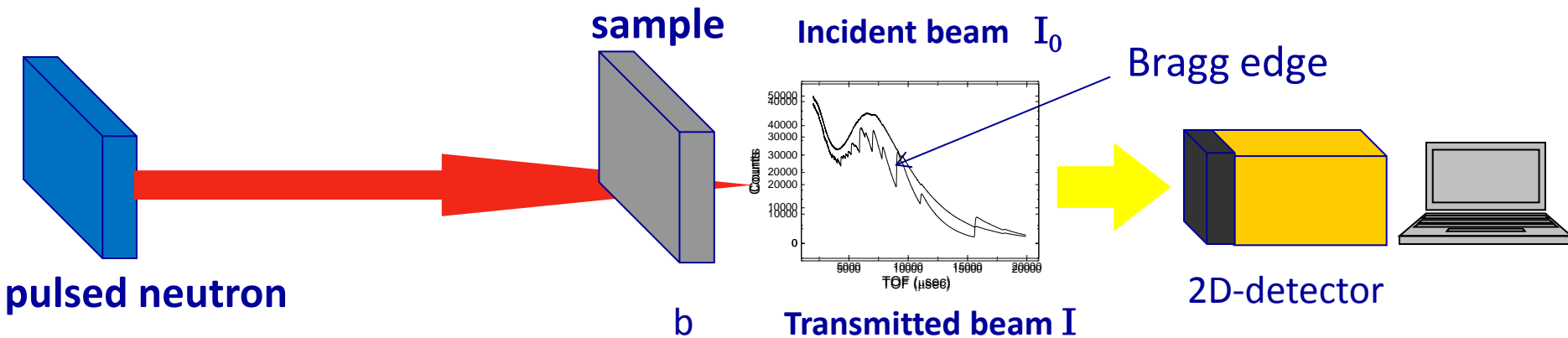
カメラの構成



カメラシステムの写真

Cf: 持木先生発表 tof測定

2. マルテンサイト相の解析

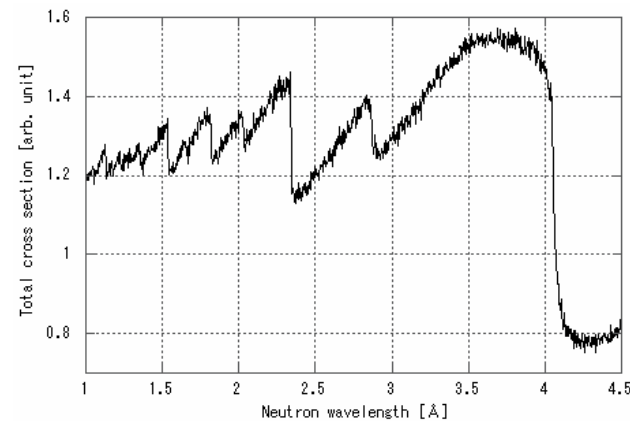


中性子透過断面積

$$\Sigma_{tot}(\lambda) = -\frac{\ln\left(\frac{I(\lambda)}{I_0(\lambda)}\right)}{b}$$

b: Sample thickness

λ : Neutron wavelength



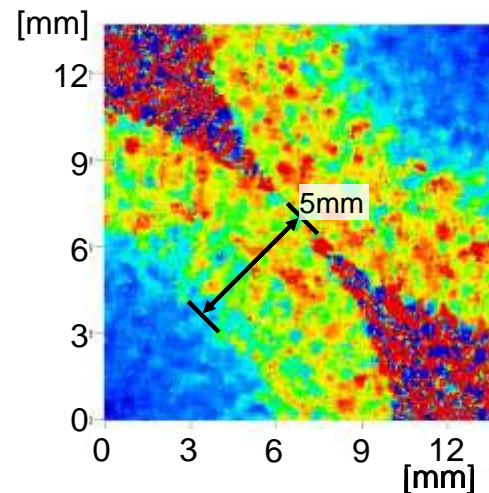
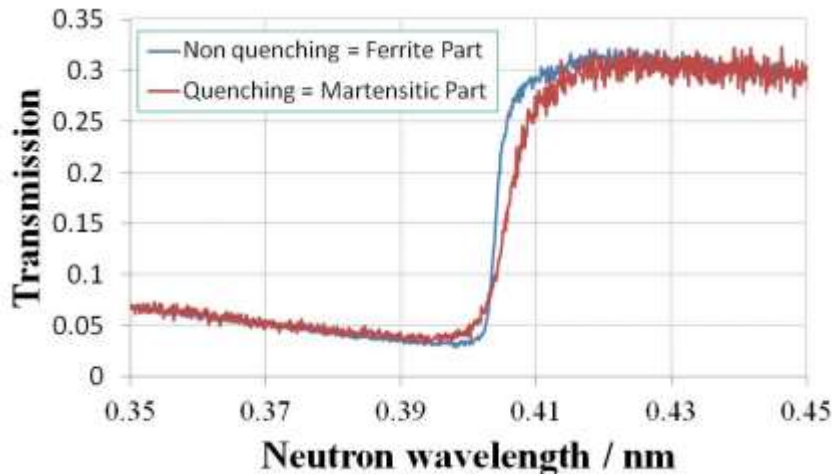
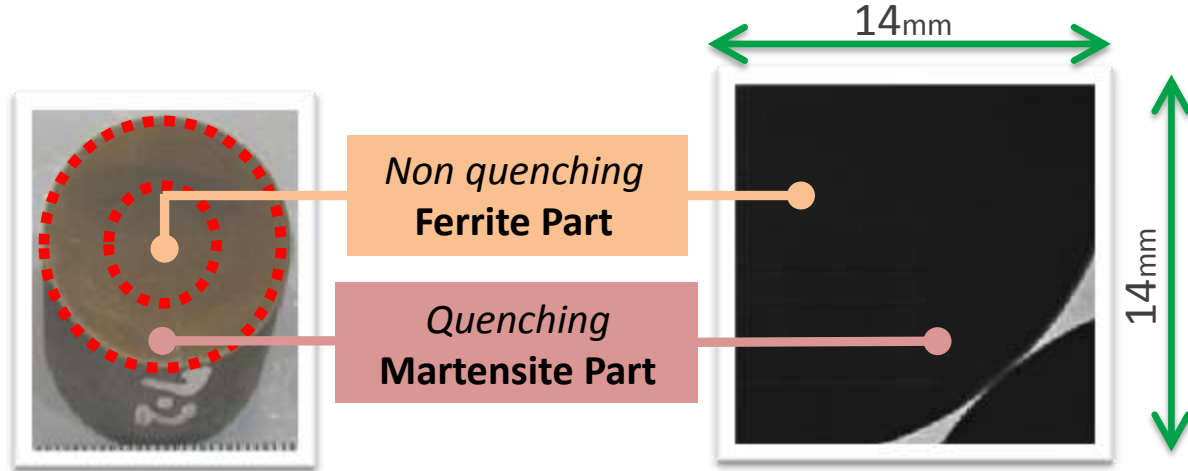
中炭素鋼焼き入れ材

(1) マルテンサイト解析

焼き入れ丸棒鉄

- Quenching thickness
3, 5, 7mm
- Diameter | 26mm
- Length | 20mm

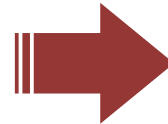
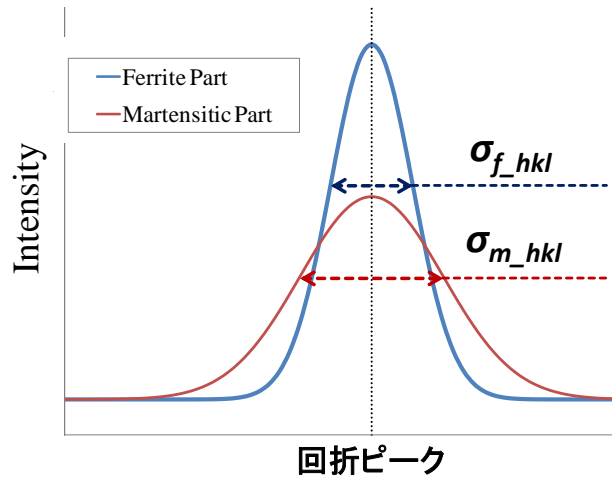
T. Sato, H. Sato, Y. Shiota, T. Kamiyama, Y. Kiyanagi



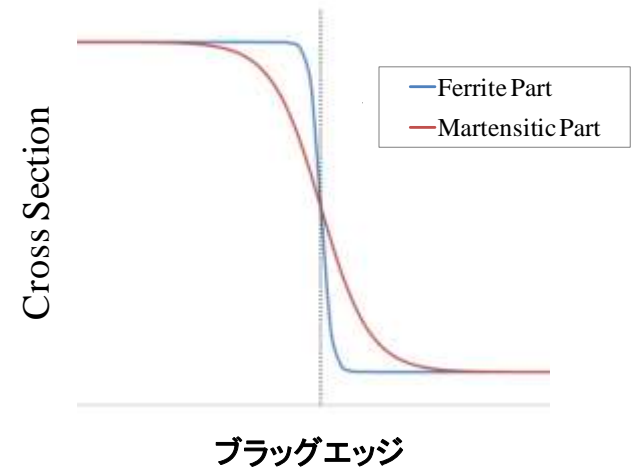
‘d’が大きすぎる。
エッジの変化が違う。
RITSコードにマルテン
サイト解析機能を付加。

ブラッグエッジの傾きに関するパラメータ: σ_{hkl} を考慮したRITSコードの改良

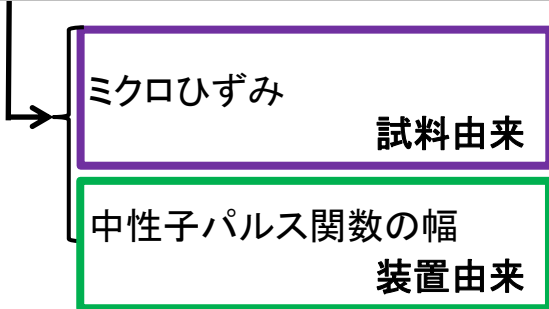
● 結晶格子面間隔に分布があると、回折ピークやブラッグ・エッジの形状に差異が生じる。
 ⇒ 回折ピーク幅とブラッグ・エッジの傾きに関するパラメータ: σ_{hkl}



幅が広がったことによる回折ピークの減衰の鈍りが、ブラッグエッジの傾きを緩やかにする。



回折ピークの広がりに対応するパラメータ: σ_{hkl}



RITSコードの改良



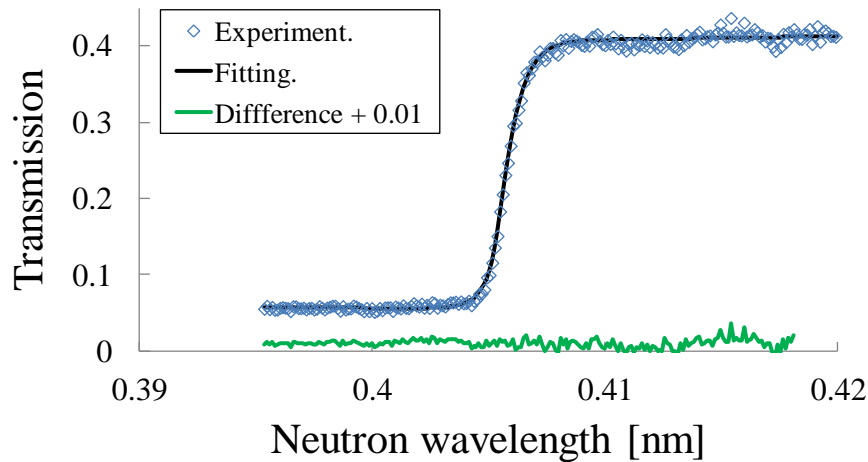
以下の式を用いて、**試料由来**、**装置由来**のパラメータに分離して表現できるようにした。

$$\sigma_{hkl} = \sqrt{\sigma_0^2 + \sigma_1'^2}$$

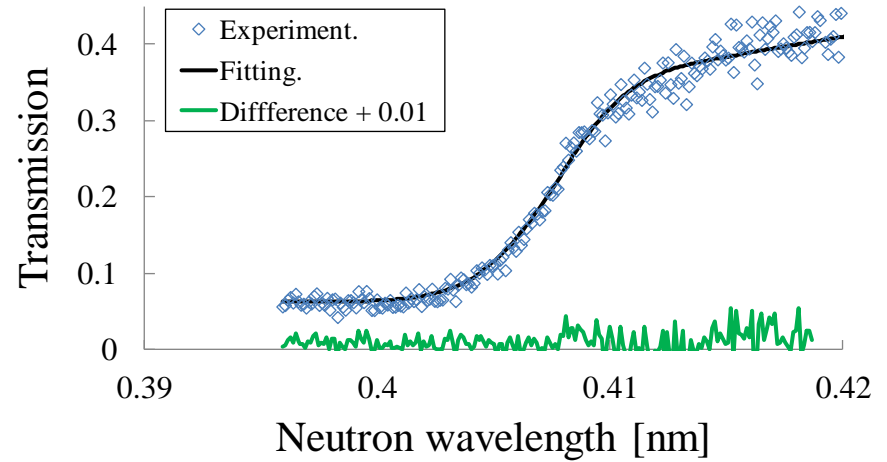
● **試料由来の分散幅: σ_1'**
中性子パルス関数の幅: σ_0

焼入れ深さ3mmの中炭素鋼丸棒

改良RITSコードによる**試料中心部**、**試料外縁部**の{110}面のブラッグエッジに対するフィッティング



試料中心部の{110}面のブラッグエッジ



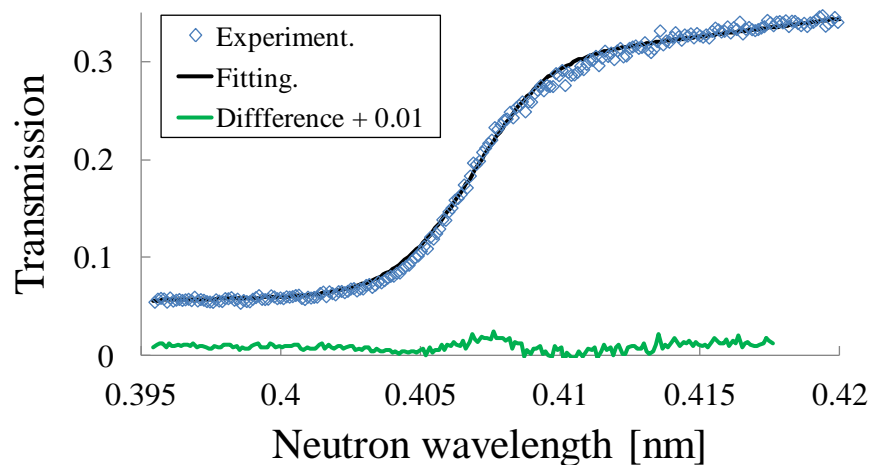
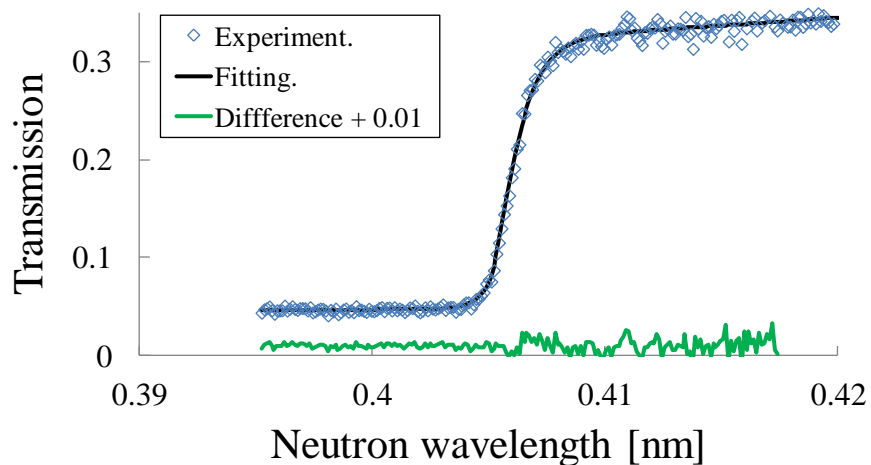
試料外縁部の{110}面のブラッグエッジ

フィッティングパラメータ	試料中心部	試料外縁部
格子面間隔: d_{110} [nm]	0.2026925	0.2029943
マルテンサイト相の格子面間隔分布: σ_1' [μs]	1.6954	93.549
中性子パルス関数の幅: σ_0 [μs]	4.19	
エッジプロファイルパラメータ: α_{110} [μs^{-1}]	0.0411	
エッジプロファイルパラメータ: β_{110} [μs^{-1}]	0.0455	
飛行距離: L[m]	14.04312	

飛行距離、中性子パルス関数を新たに決定。

焼入れ深さ5mmの中炭素鋼丸棒

改良RITSコードによる**試料中心部**、**試料外縁部**の{110}面のブラッグエッジに対するフィッティング



試料中心部の{110}面のブラッグエッジ

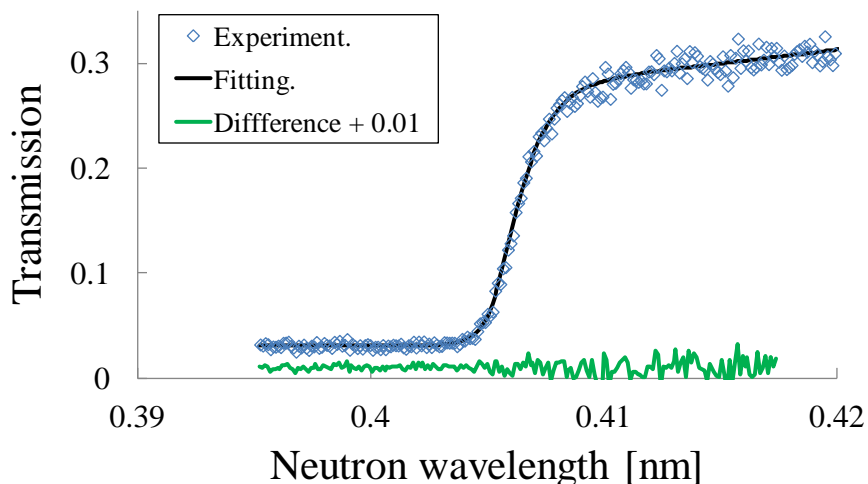
試料外縁部の{110}面のブラッグエッジ

フィッティングパラメータ	試料中心部	試料外縁部
格子面間隔: d_{110} [nm]	0.2026924	0.2027705
マルテンサイト相の格子面間隔分布: σ_1' [μs]	1.9874	75.9965
中性子パルス関数の幅: σ_0 [μs]	4.19	
エッジプロファイルパラメータ: α_{110} [μs^{-1}]	0.0425	
エッジプロファイルパラメータ: β_{110} [μs^{-1}]	0.0325	
飛行距離: L[m]	14.42343	

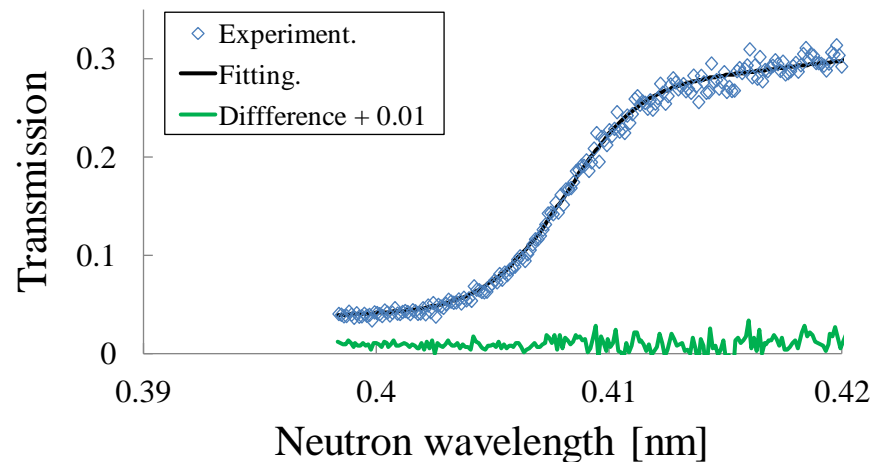
飛行距離、中性子パルス関数を新たに決定。

焼入れ深さ7mmの中炭素鋼丸棒

改良RITSコードによる**試料中心部**、**試料外縁部**の{110}面のブラッグエッジに対する
フィッティング



試料中心部の{110}面のブラッグエッジ

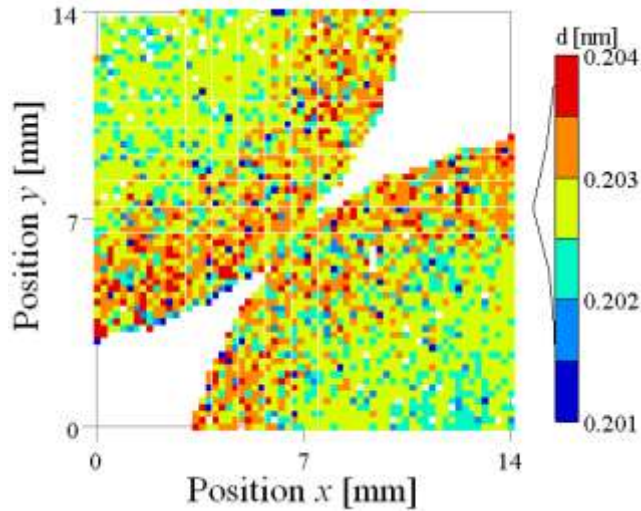


試料外縁部の{110}面のブラッグエッジ

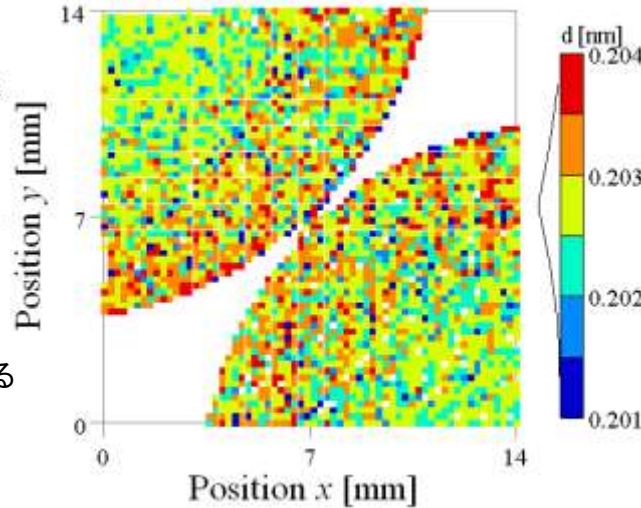
フィッティングパラメータ	試料中心部	試料外縁部
格子面間隔: d_{110} [nm]	0.2026633	0.2032307
マルテンサイト相の格子面間隔分布: σ_1' [μs]	12.828	89.384
中性子パルス関数の幅: σ_0 [μs]	4.19	
エッジプロファイルパラメータ: α_{110} [μs^{-1}]	0.0361	
エッジプロファイルパラメータ: β_{110} [μs^{-1}]	0.0267	
飛行距離: L[m]	14.42352	

飛行距離、
中性子パルス関数を新たに決定。

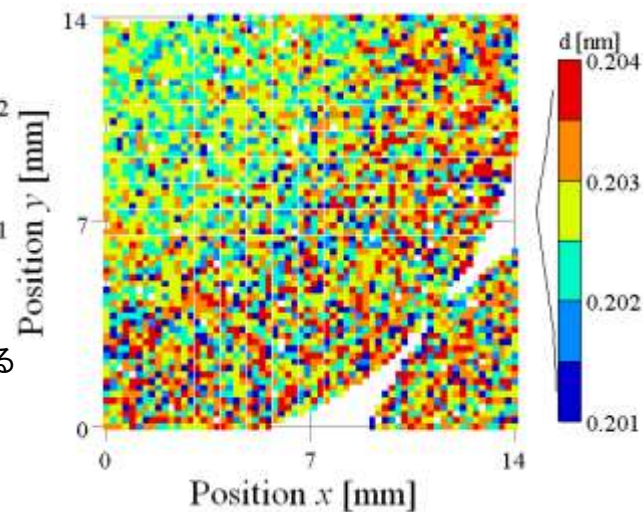
焼入れ深さの違いによる d_{110} の変化



焼入れ深さ**3 mm**の丸棒鋼の{110}格子面における d_{110} のイメージング



焼入れ深さ**5 mm**の丸棒鋼の{110}格子面における d_{110} のイメージング

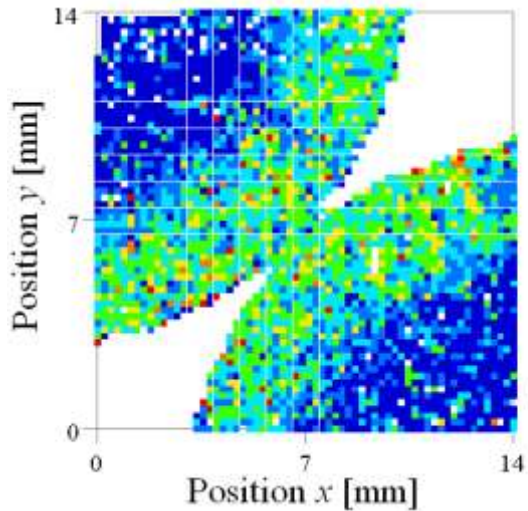


焼入れ深さ**7 mm**の丸棒鋼の{110}格子面における d_{110} のイメージング

※フェライトの $d_{110} = 0.202692$ nm
※マルテンサイトの $d_{110} = 0.203286$ nm

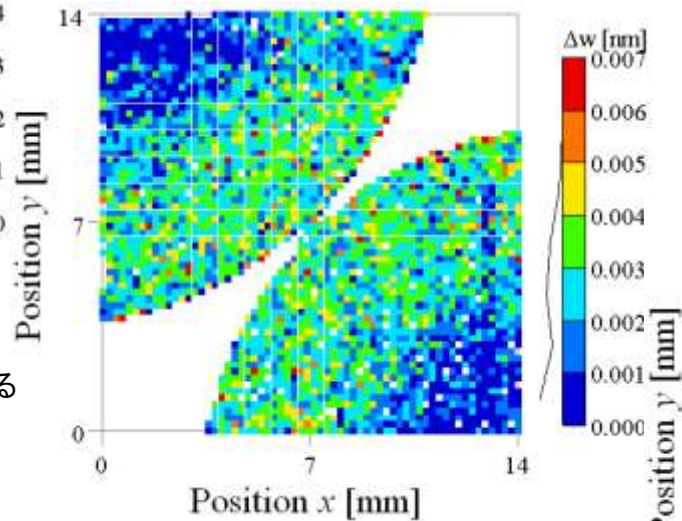
全体的に傾向が似てきているが、7mmの試料外縁部において格子面間隔のばらつきが大きい。

焼入れ深さの違いによる Δw の変化

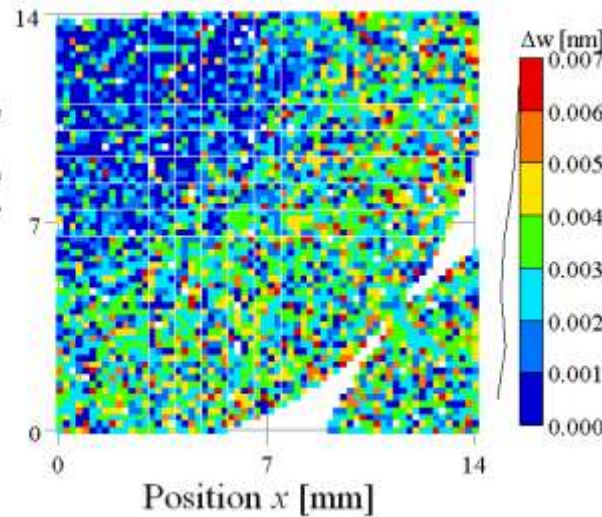


焼入れ深さ**3 mm**の丸棒鋼の{110}格子面における Δw のイメージング

それぞれの試料中心付近がフェライト部であると仮定して、 Δw を算出した。



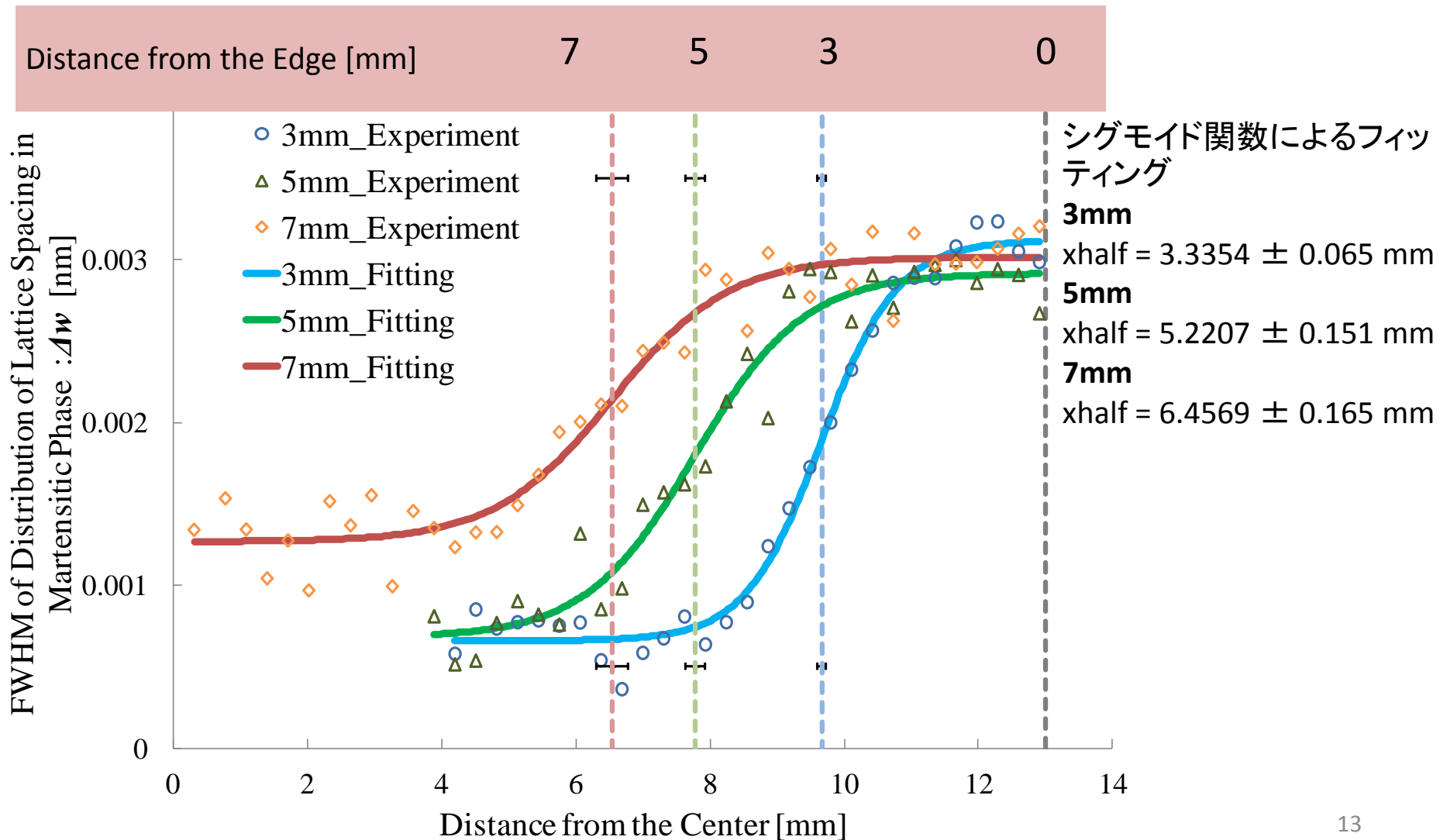
焼入れ深さ**5 mm**の丸棒鋼の{110}格子面における Δw のイメージング



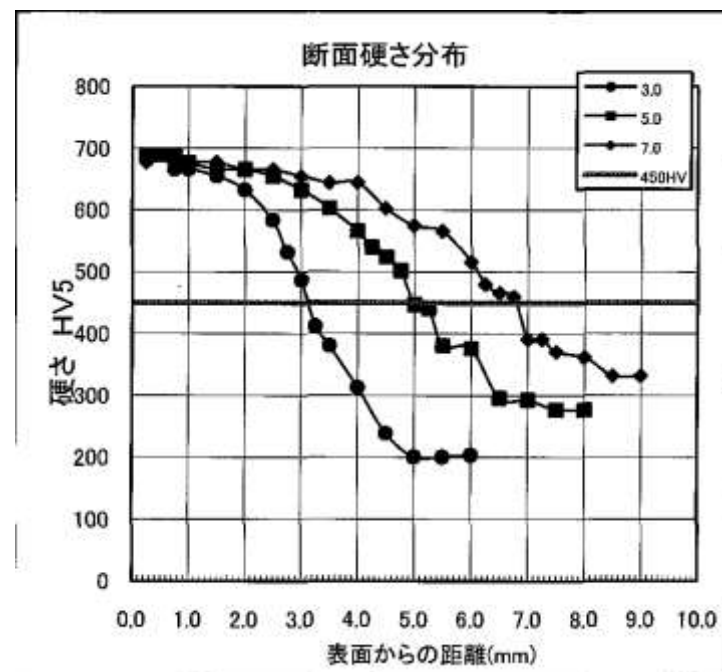
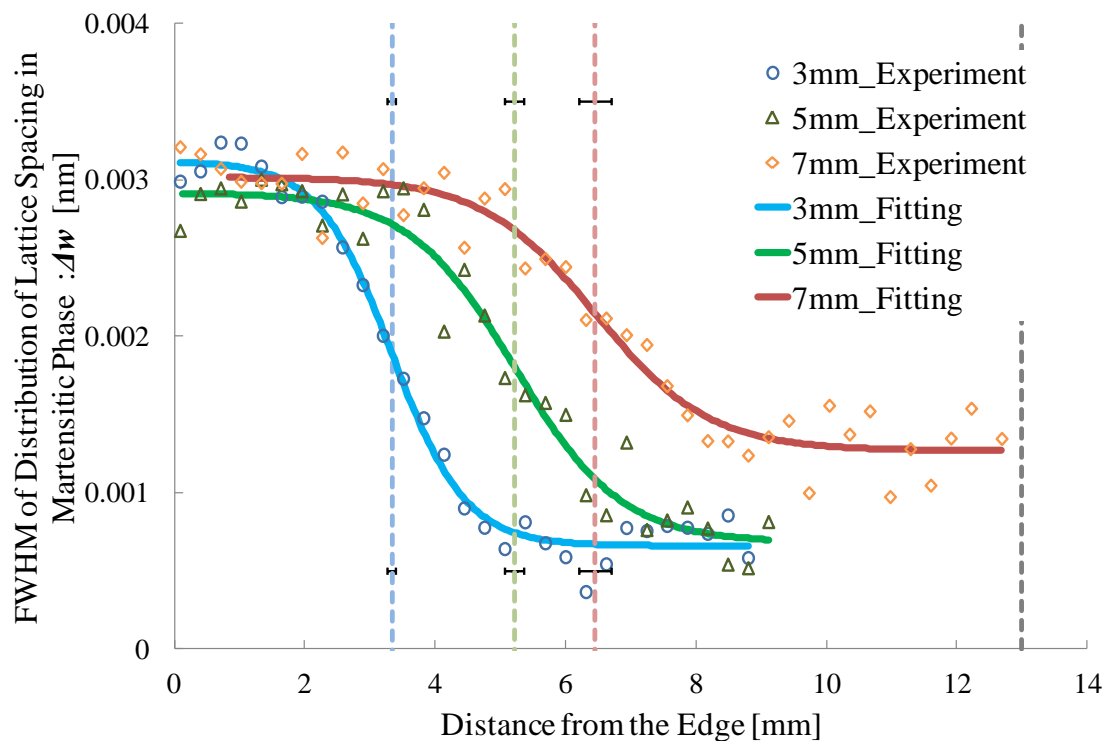
焼入れ深さ**7 mm**の丸棒鋼の{110}格子面における Δw のイメージング

全体的に傾向が似ている。

焼入れ深さ3, 5, 7 mmの中炭素鋼丸棒の {110}格子面における Δw の変動



中炭素鋼丸棒の硬さ分布との比較

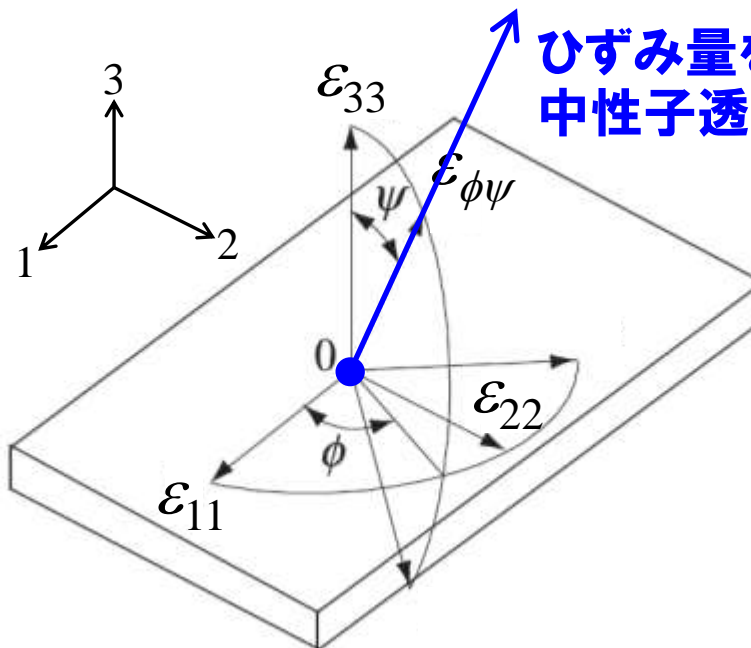


試料深さにおける Δw の変動と硬さ分布には相関があるように見える。

3. 3D結晶組織構造情報イメージング

H. Sato et al.

ひずみテンソル



ひずみ量を観測している
中性子透過方向

観測方向によって
観測値が変わる。
(赤線部参照)

観測されるひずみ量

$$\epsilon_{\phi\psi} = \underbrace{\epsilon_{11} \cos^2 \phi \sin^2 \psi}_{\text{垂直ひずみ①}} + \underbrace{\epsilon_{22} \sin^2 \phi \sin^2 \psi}_{\text{垂直ひずみ②}} + \underbrace{\epsilon_{33} \cos^2 \psi}_{\text{垂直ひずみ③}} + \underbrace{\epsilon_{12} \sin 2\phi \sin^2 \psi}_{\text{せん断ひずみ①}} + \underbrace{\epsilon_{23} \sin \phi \sin 2\psi}_{\text{せん断ひずみ②}} + \underbrace{\epsilon_{31} \cos \phi \sin 2\psi}_{\text{せん断ひずみ③}}$$

垂直ひずみ①

垂直ひずみ②

垂直ひずみ③

せん断ひずみ②

せん断ひずみ①

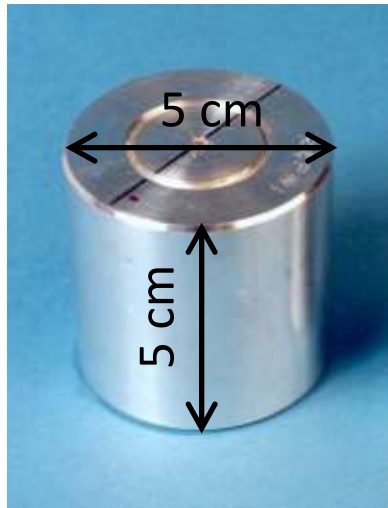
せん断ひずみ③

同一空間座標に存在する**複数のスカラー要素を**
それぞれ個別にCT画像再構成できれば良いはず。

ひずみ分布既知サンプル「VAMAS」

2012年10月にRALより取り寄せ

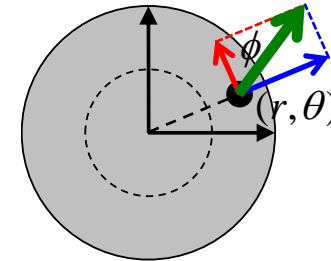
中性子回折法用応力ひずみ解析国際標準サンプル「冷やし詰め」(アルミニウム製)



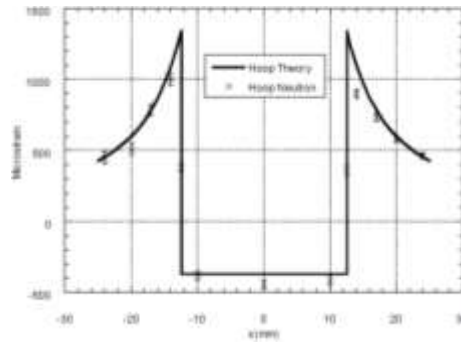
内柱の直径:
2.5 cm

観測されるひずみ

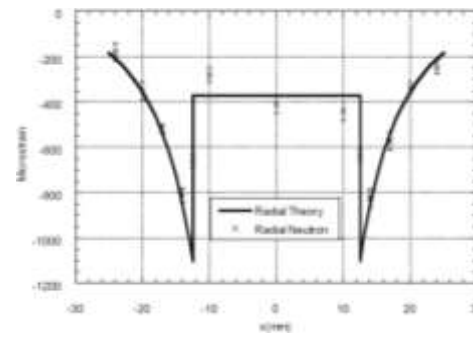
$$\varepsilon(r, \theta, \phi) = \varepsilon_{\theta\theta}(r, \theta) \cos^2 \phi + \varepsilon_{rr}(r, \theta) \sin^2 \phi$$



Hoop strain



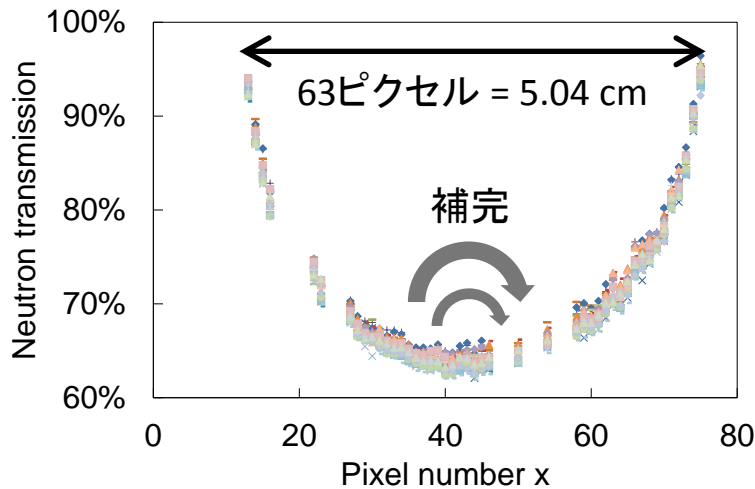
Radial strain



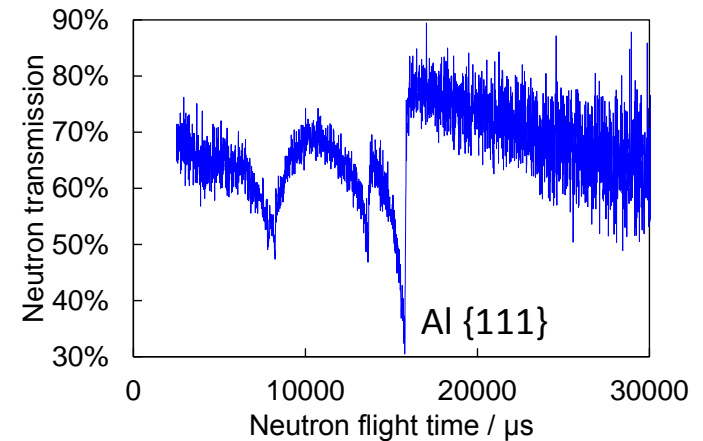
軸対称&2つのひずみ要素という条件でテンソルCTをテスト

データ処理・解析：投影データ作成まで

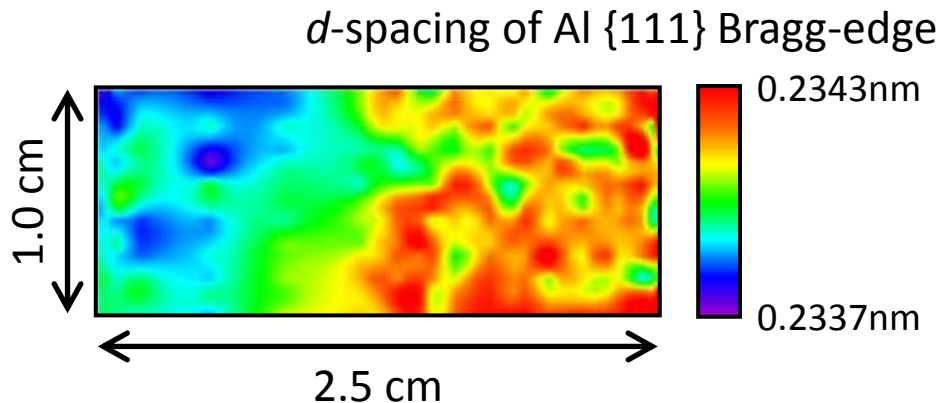
① 解析ピクセルの選定



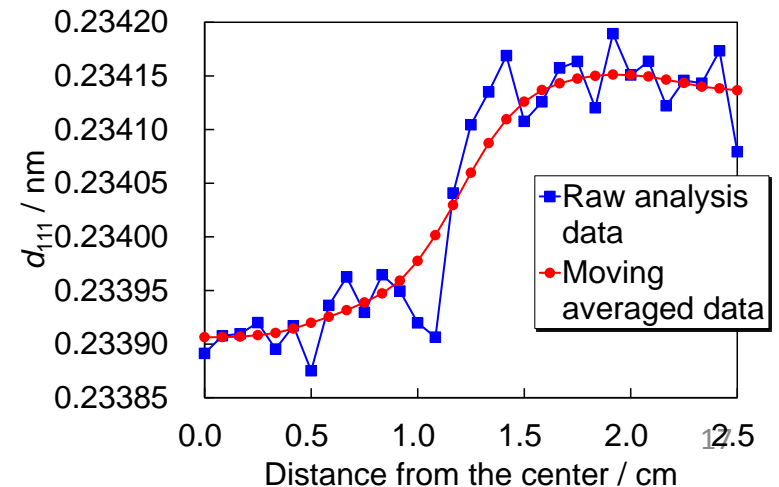
② 測定試料中央部のデータ (1ピクセル・10 μ s TOF分析)



③ RITSによる2Dひずみイメージング



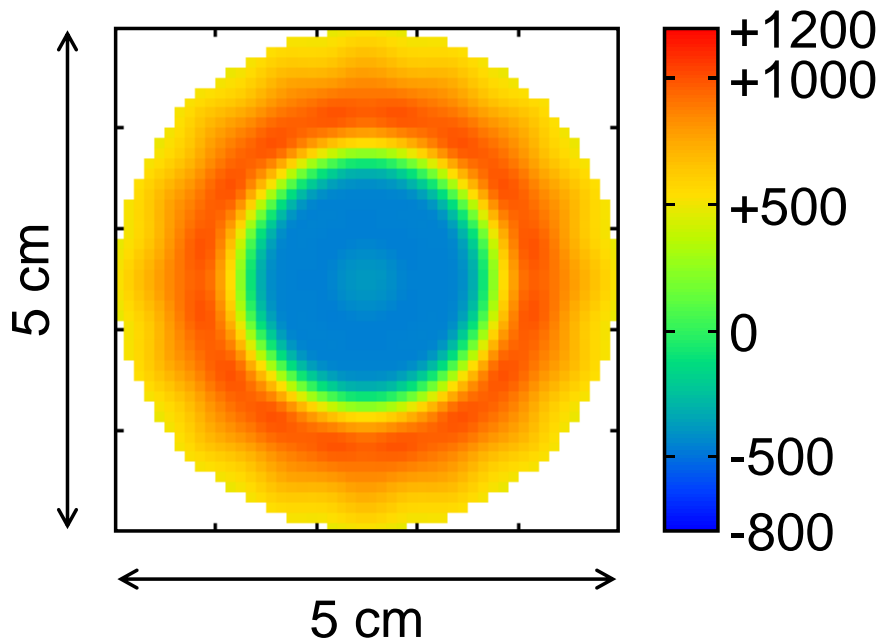
④ 鉛直方向平均化／スムージング



FBP-EM (Filtered Back Projection-Expectation Maximization)によるひずみCTの結果

Hoop strain

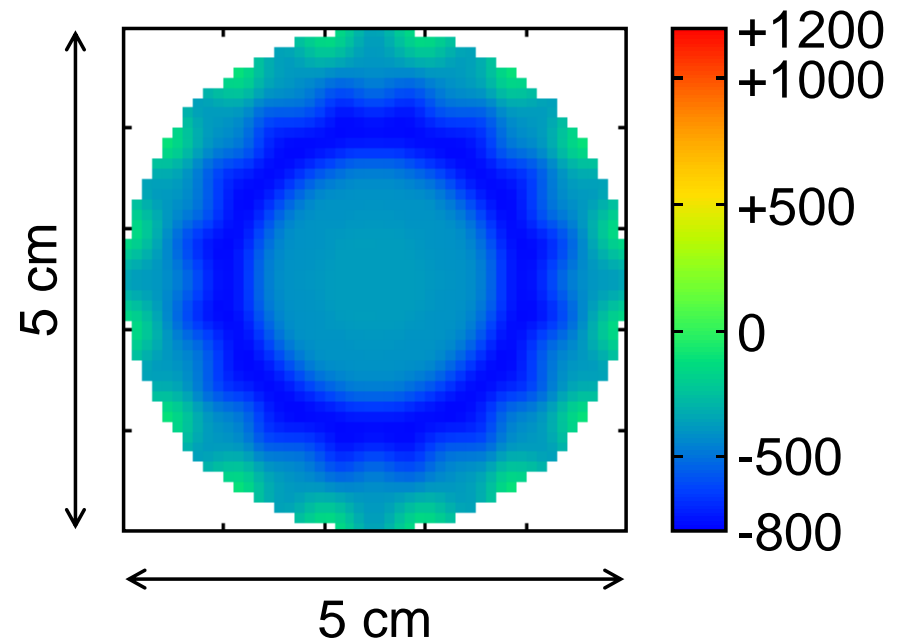
Tomography of crystal lattice strain
 $\varepsilon_{111,\theta\theta}$ ($\mu\varepsilon = 10^{-4} \% = 10^{-6}$)



妥当な画像再構成結果...?

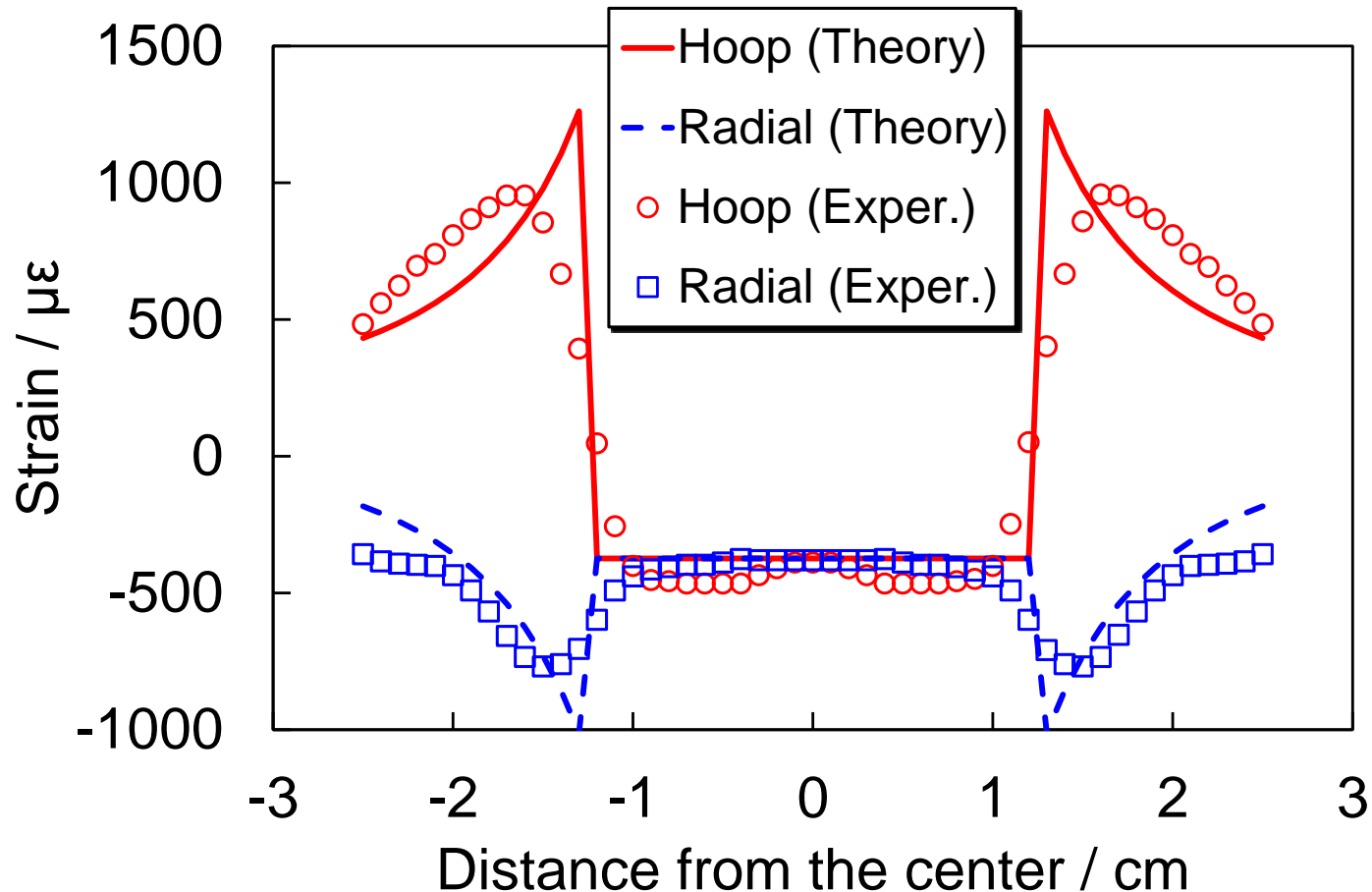
Radial strain

Tomography of crystal lattice strain
 $\varepsilon_{111,rr}$ ($\mu\varepsilon = 10^{-4} \% = 10^{-6}$)



妥当な画像再構成結果...?

FBP-EMひずみCT: 理論値との比較

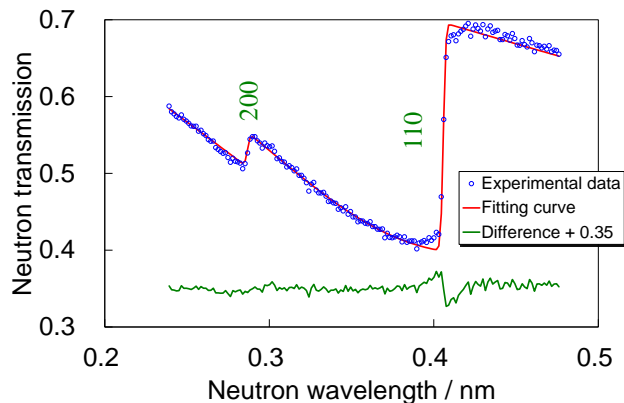


FBP-EM法は今まで考案してきたテンソルCT法の中で最も良い画像再構成ができています。

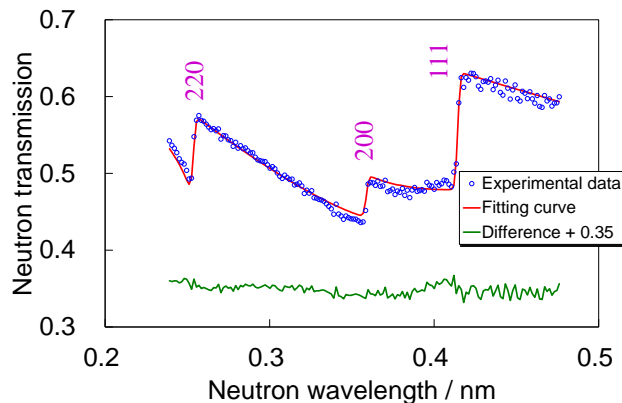
4. 混合結晶相のイメージング

解析コードRITSは230種類すべての結晶タイプに対応可能

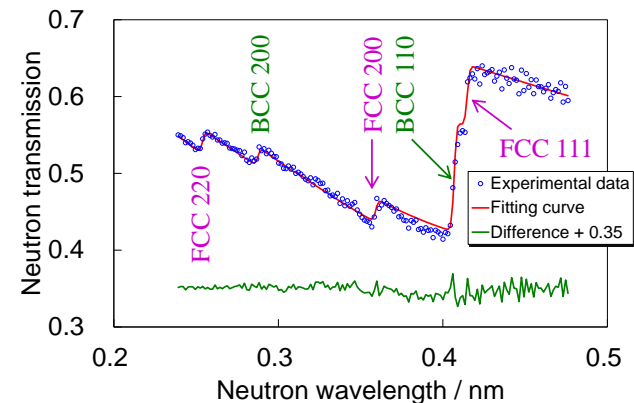
BCC phase zone



FCC phase zone

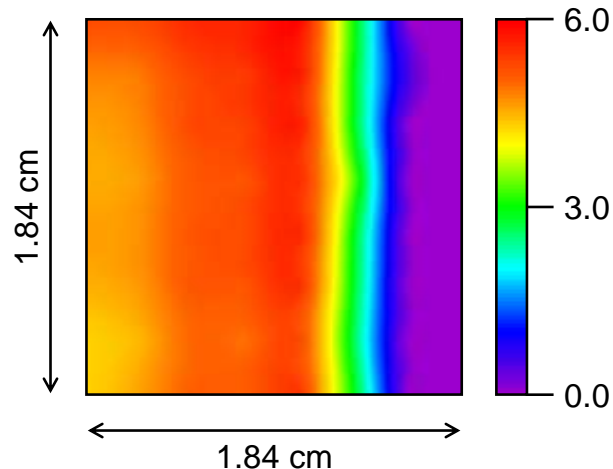


Mixture zone



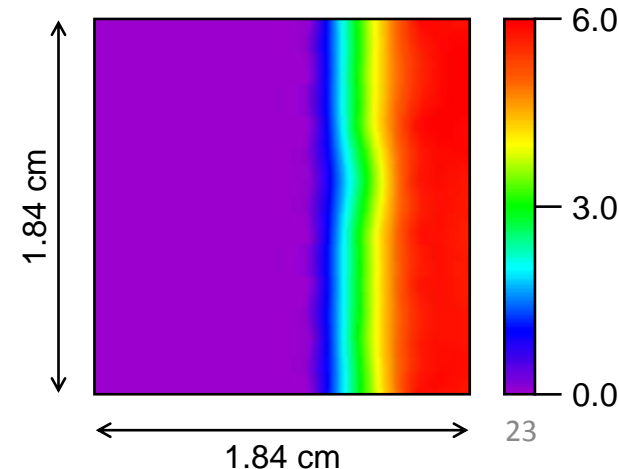
BCC phase image

Projection data of atomic number density of SS400 (BCC) phase ($\times 10^{22} \text{ cm}^{-2}$)



FCC phase image

Projection data of atomic number density of SUS304 (FCC) phase ($\times 10^{22} \text{ cm}^{-2}$)



SS400 SUS304



5. 積層金属材の測定

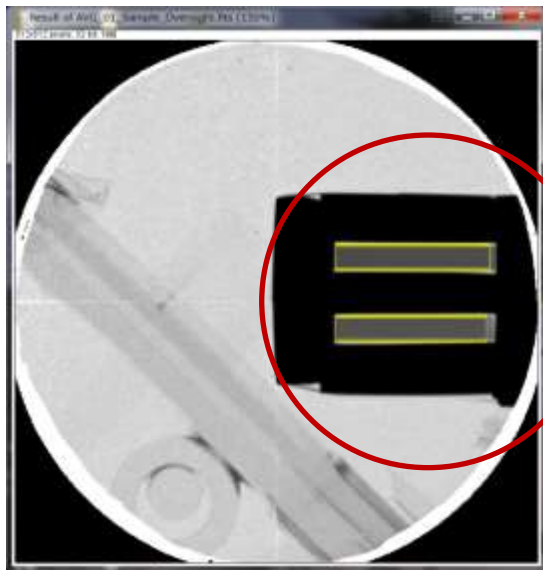
- 鉄、アルミニウムを含む積層金属の透過測定を実施した。
- 鉄、アルミニウム、またその両方含んでいると思われる部分についての透過率を計算し、その変化を見た。

サンプル写真



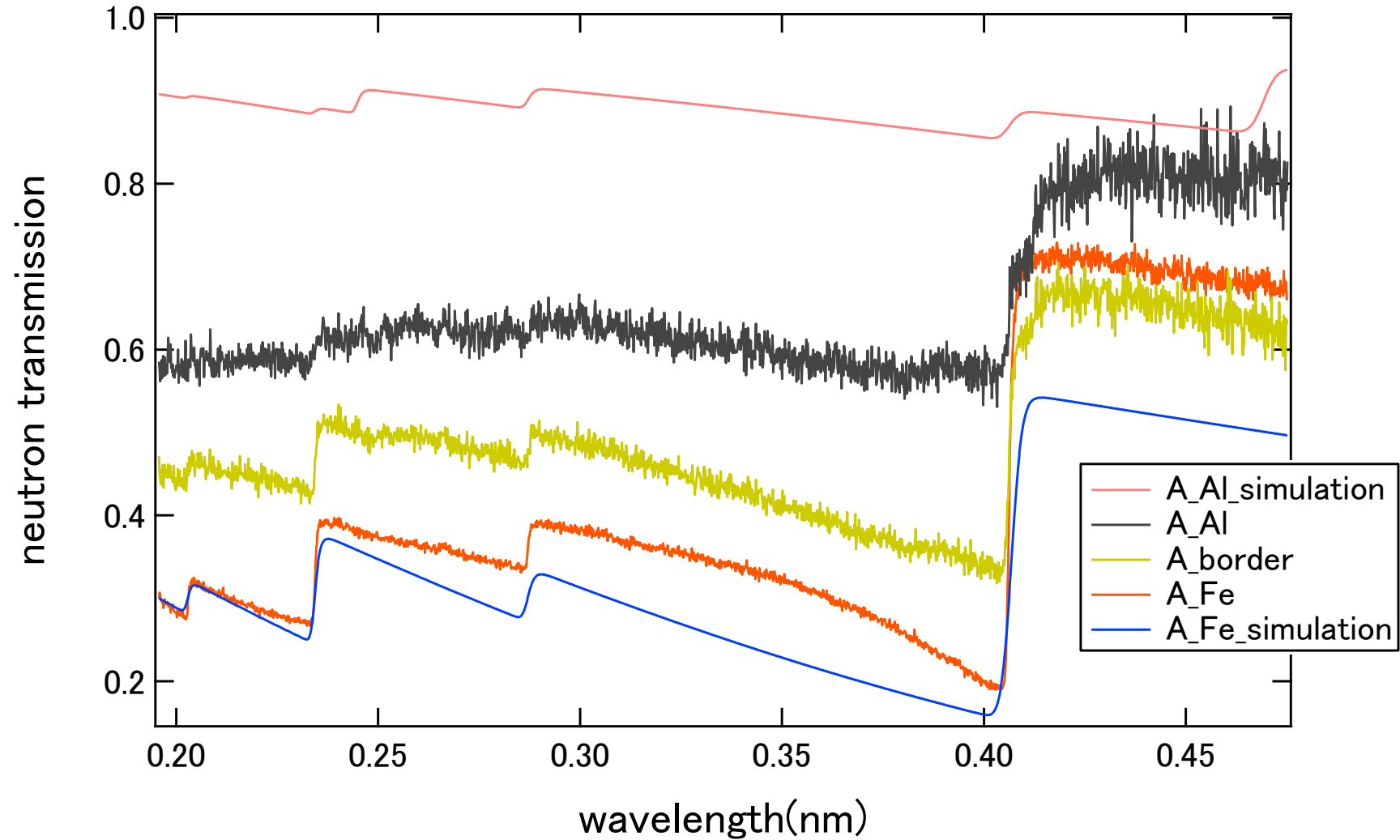
積層金属の中で中心部分のFe、端の部分のAl、そしてその境の部分のborderと3つに分けて透過率を計算した。

図で上のサンプルをA、下のサンプルをBとした。
またAの厚さは10.5mm、Bの厚さは9.7mmである。



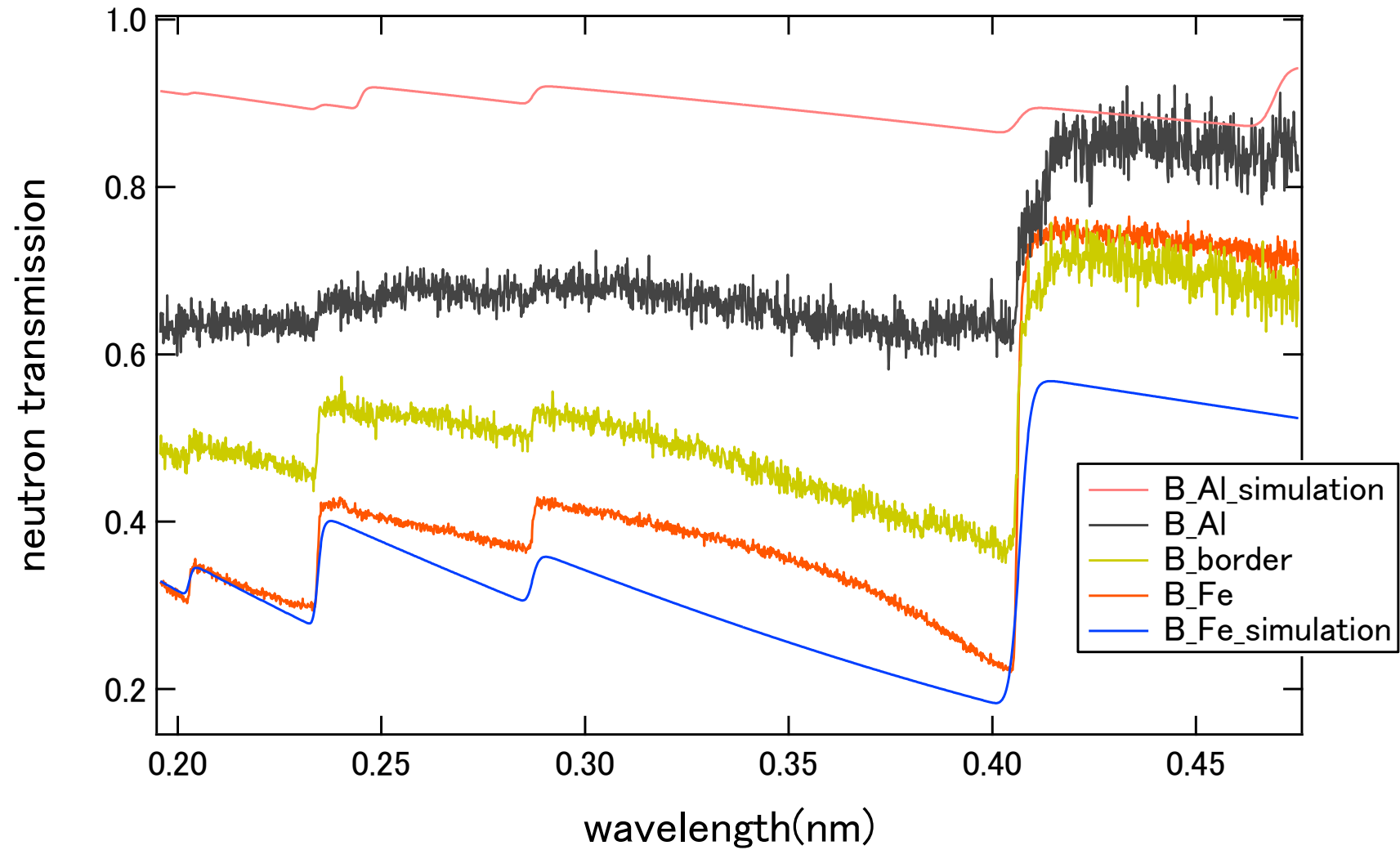
Al_1
border_1
Fe
border_2
Al_2

Sample Aの透過率



sampleのAlの部分でも透過率が低いので、鉄が多く含まれていると考えられる。

Sample Bの透過率



sampleBでもsampleAと同様である。

6. 共鳴イメージング

(高エネルギー測定へ)

重元素:

低い共鳴エネルギー

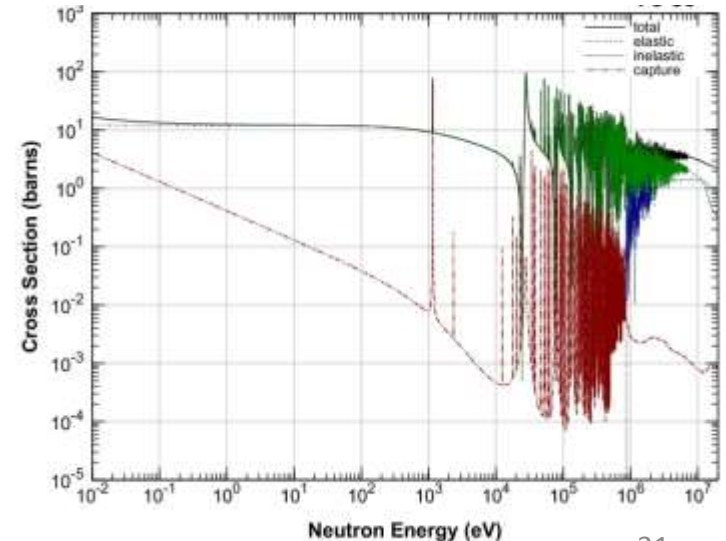
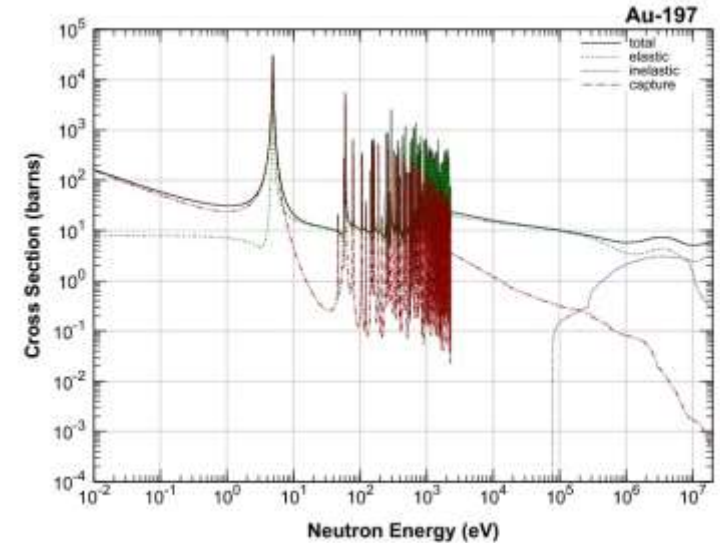
軽元素:

高い共鳴エネルギー

測定できる元素の範囲を広げるためには、測定可能なエネルギーをより大きくしていく必要がある。

(定量化に向けて)

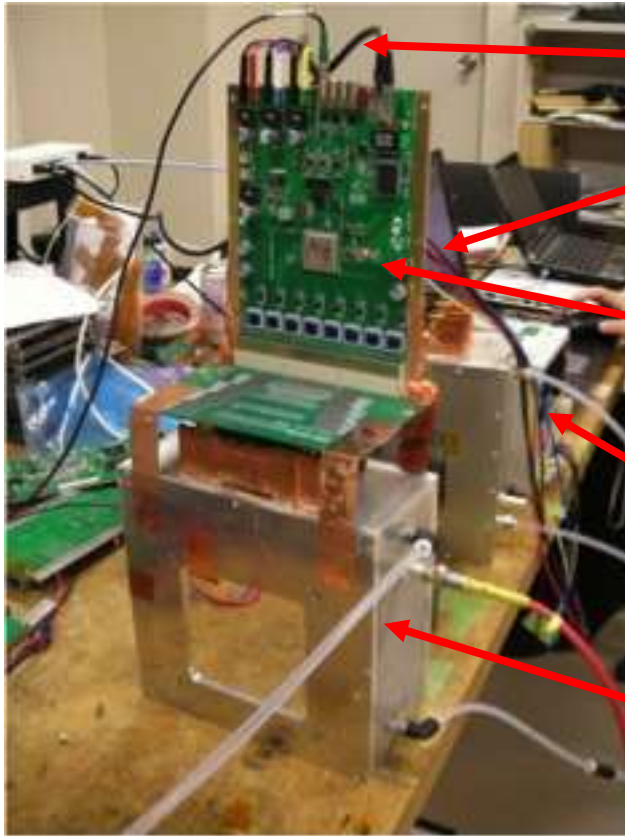
装置関数(パルス関数)の作成
解析コード (長谷美君発表)



J-PARC BL10 中性子照射実験

GEM検出器システム

検出器サイズ150mm × 150mm × 510mm



Ethernet

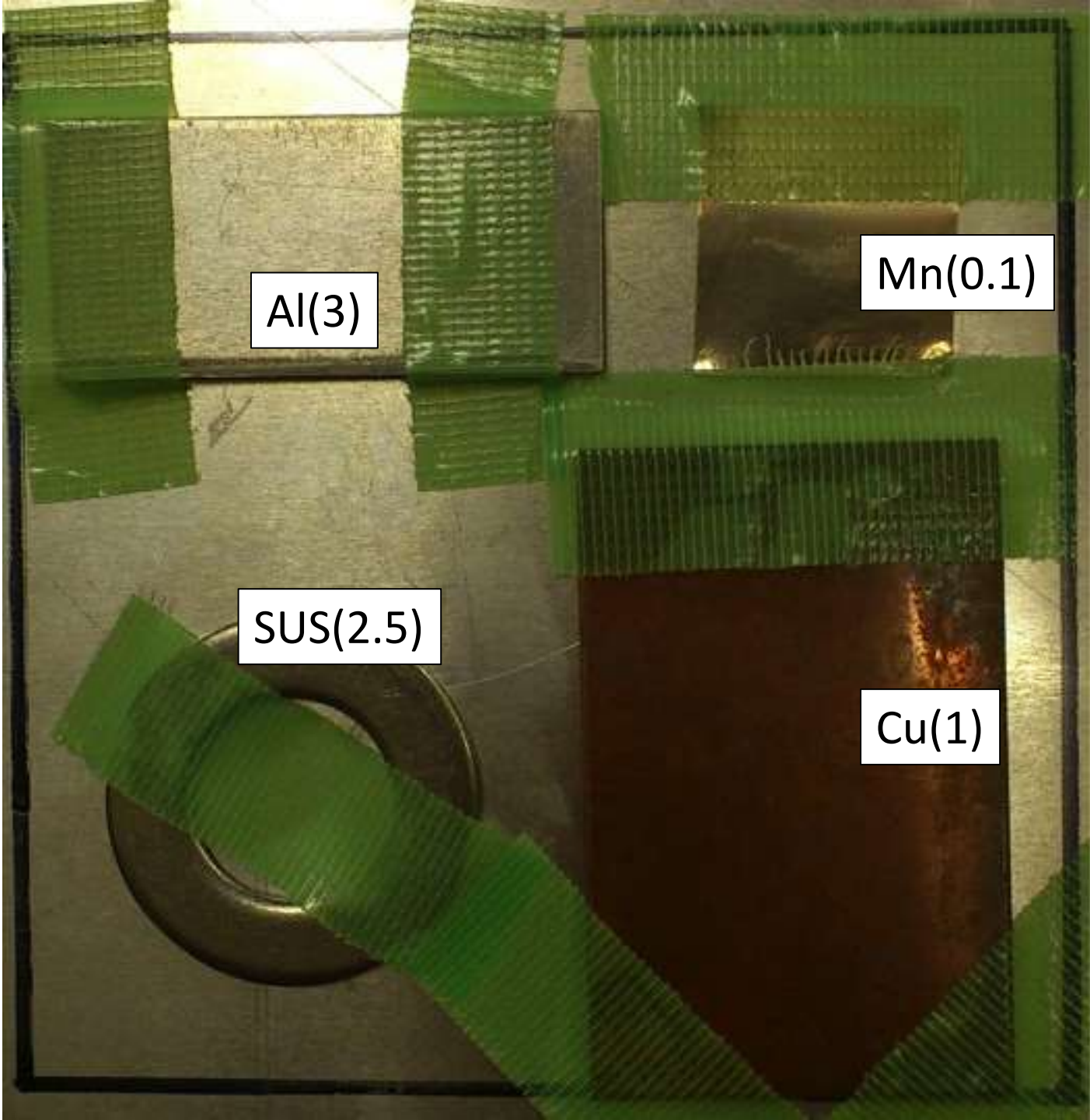
ノートPC

エレキ部

低電圧電源

GEM
チェンバー部





Al(3)

Mn(0.1)

SUS(2.5)

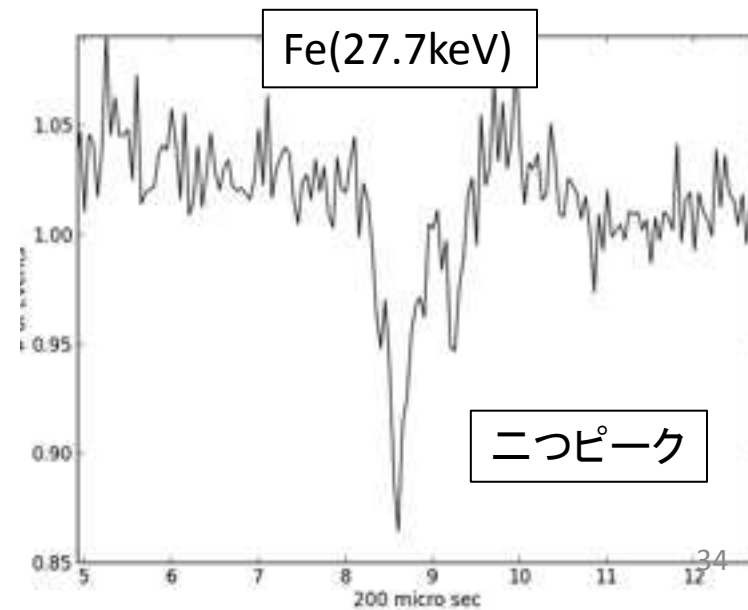
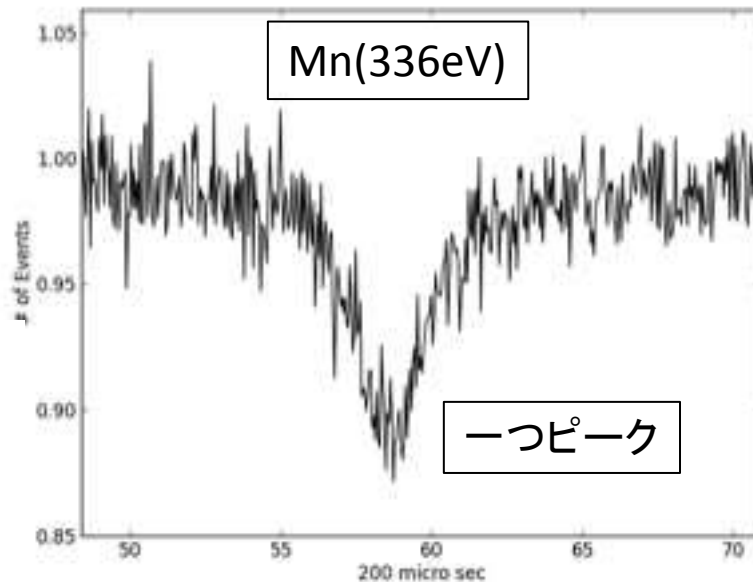
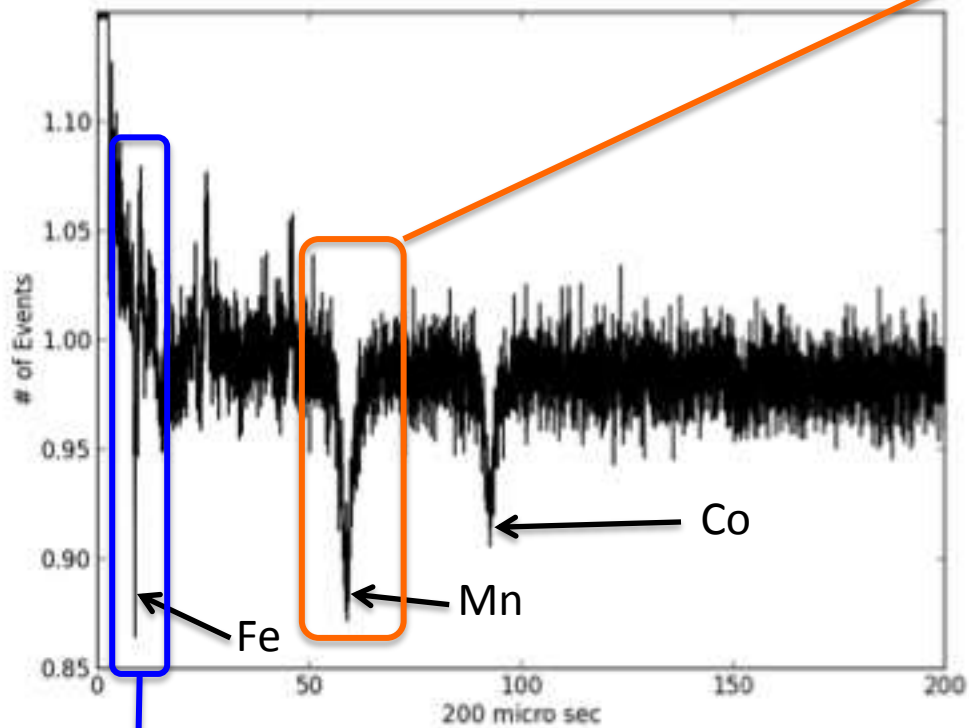
Cu(1)

SUSのTOF(サンプル有り/無し)

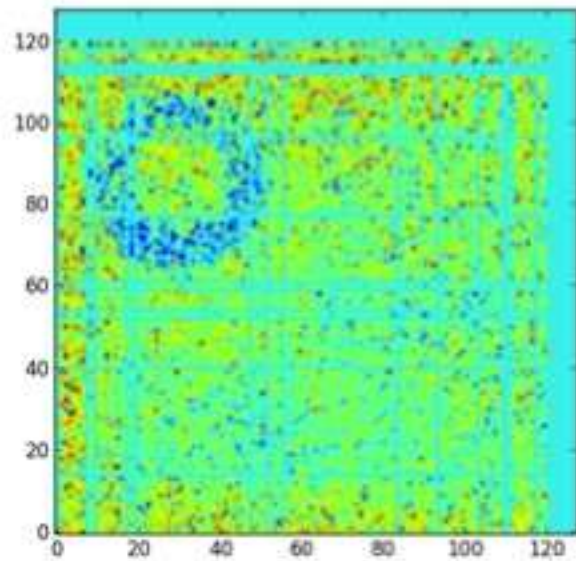
SUS304の主な化学成分 (単位: %)

Fe	Ni	Cr	Mn
68~73	8~10	18~20	~2

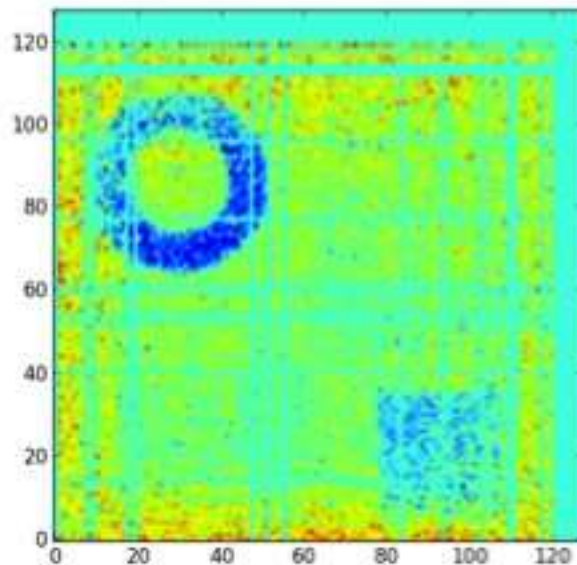
(CoはNi原料中に含有)



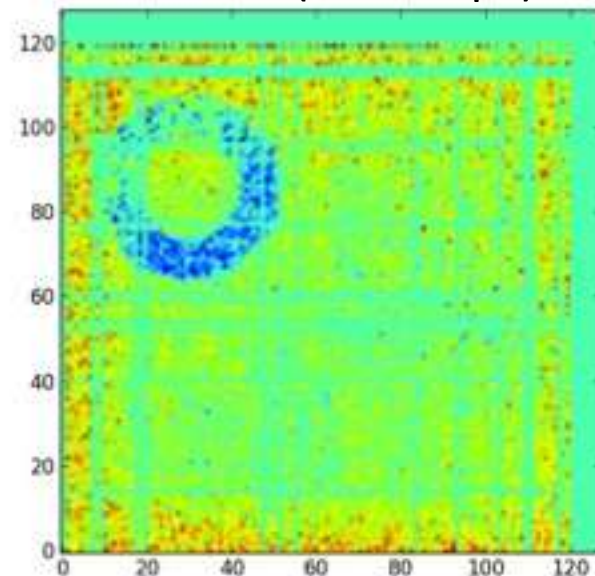
Fe試料(8.3~9.4 μ s)



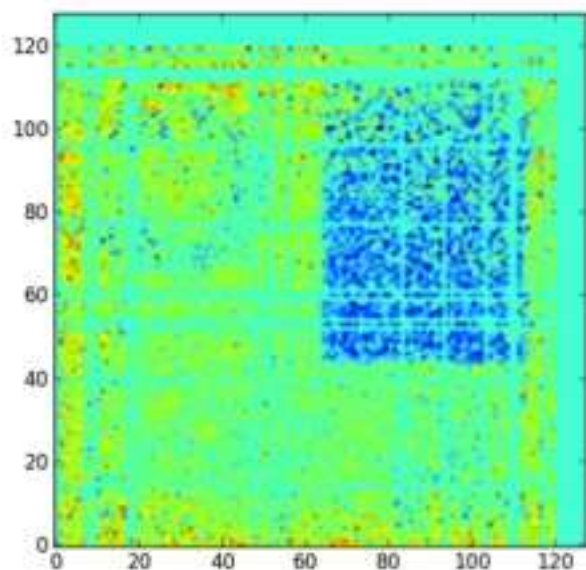
Mn試料(57.5~60 μ s)



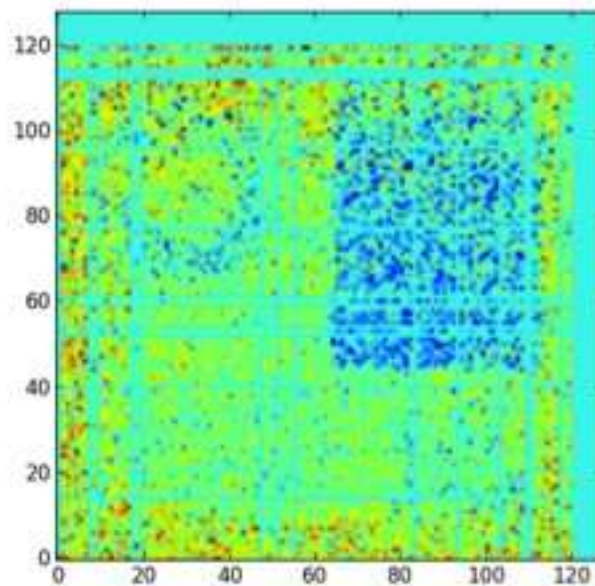
Co試料(91~93 μ s)



Cu試料(25~25.8 μ s)



Cu試料(45~45.8 μ s)

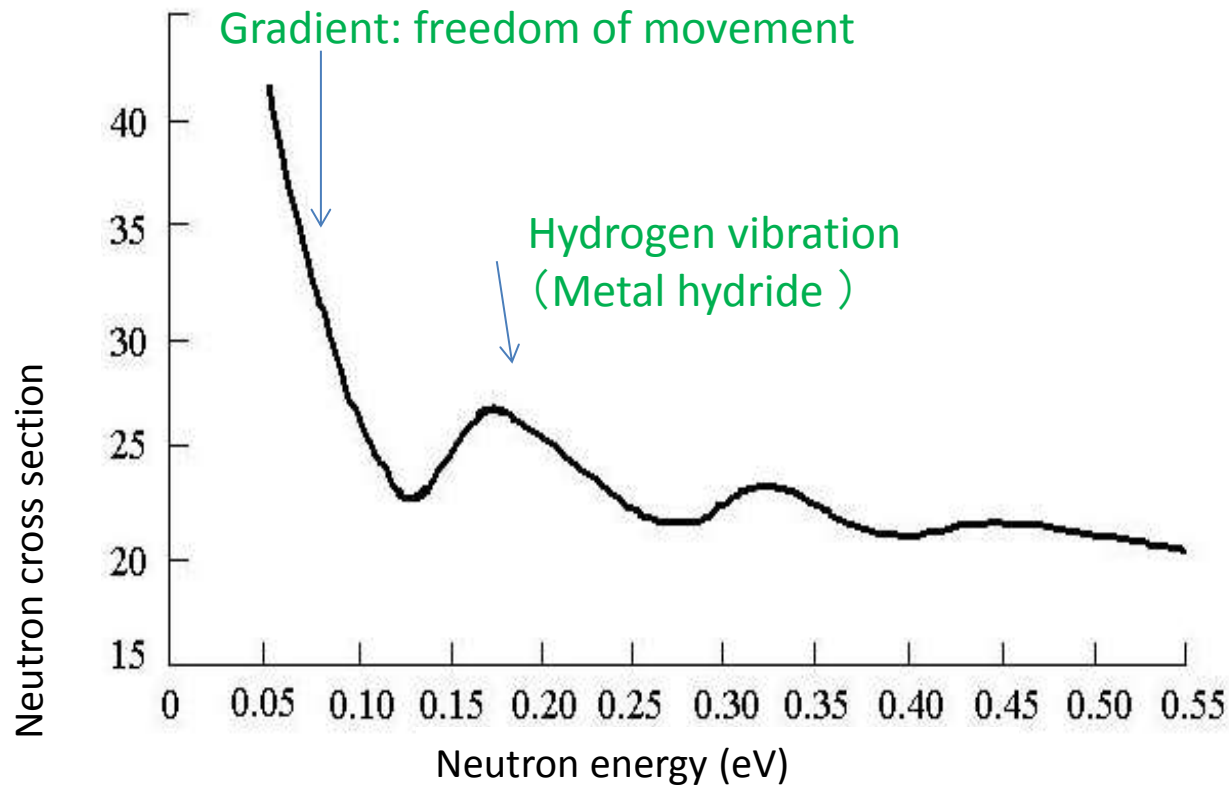


サンプル有り/無し

7. 水素元素の運動・束縛状態のイメージングに向けて

水素断面積

(Dynamical property of hydrogen)



水素貯蔵合金の断面積の変化の測定

目的:

T. Sakurai, K. Iwase, Y. Kiyanagi

水素貯蔵量によって断面積に変化あるかどうか？

Hydrogen storage material

$\text{Ti}_{0.45}\text{Cr}_{0.25}\text{Mo}_{0.30}$ (Solid dispersion alloy, powder)

Arc melting method

1400°C-3h annealing after then in ice-water

Processing to keep hydrogen

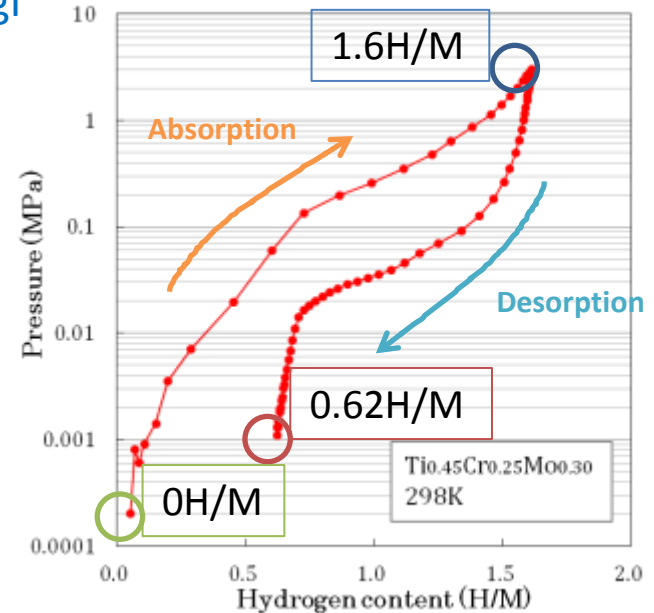
Samples

$\text{Ti}_{0.45}\text{Cr}_{0.25}\text{Mo}_{0.30}\text{H}_{1.6}$ → 1.6H/M

$\text{Ti}_{0.45}\text{Cr}_{0.25}\text{Mo}_{0.30}\text{H}_{0.62}$ → 0.62H/M

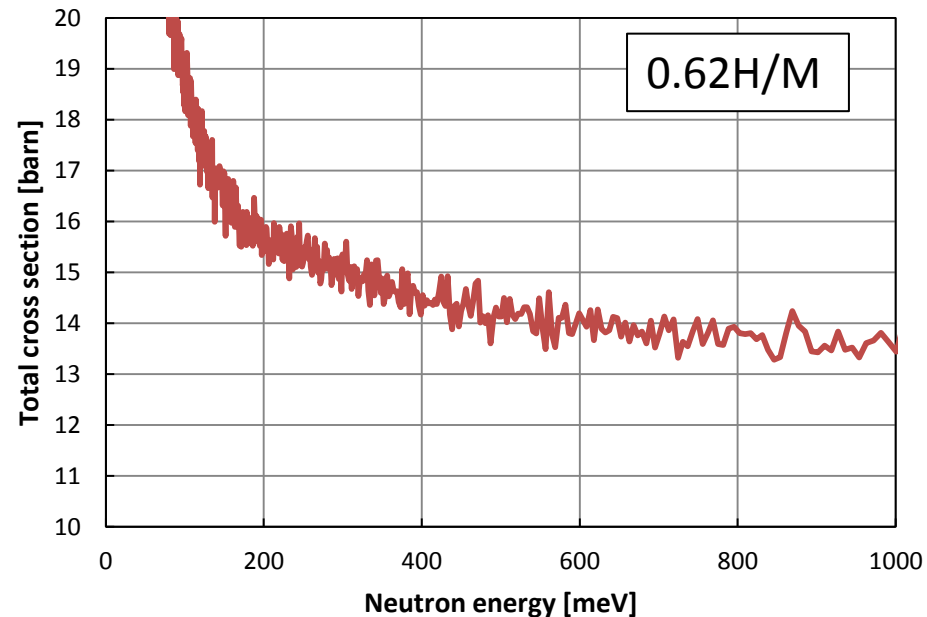
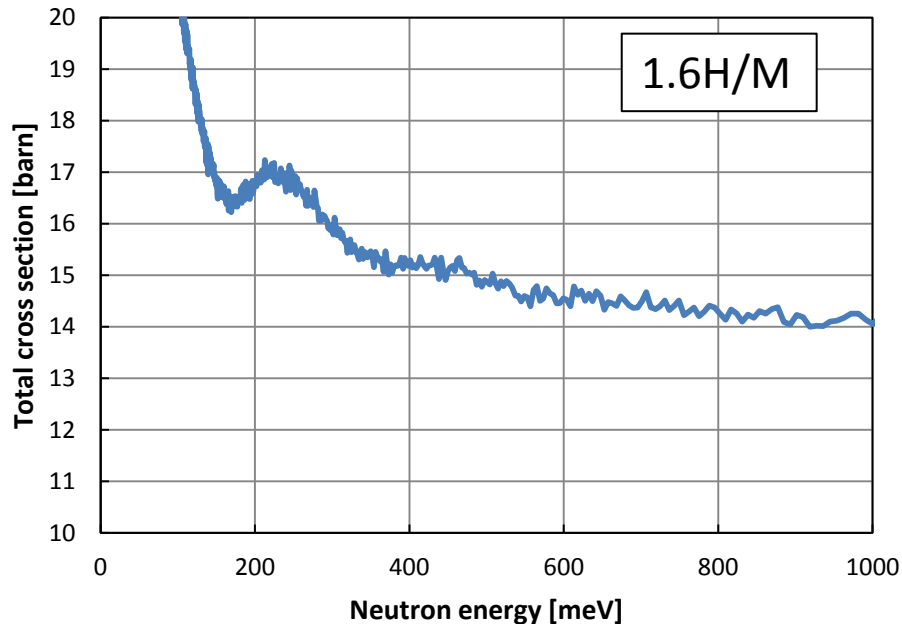
$\text{Ti}_{0.45}\text{Cr}_{0.25}\text{Mo}_{0.30}$ → 0H/M

Transmission cross sections of hydrogen in 1.6H/M, 0.62H/M are deduced by subtracting 0.62H/M data.



Sample and sample cell

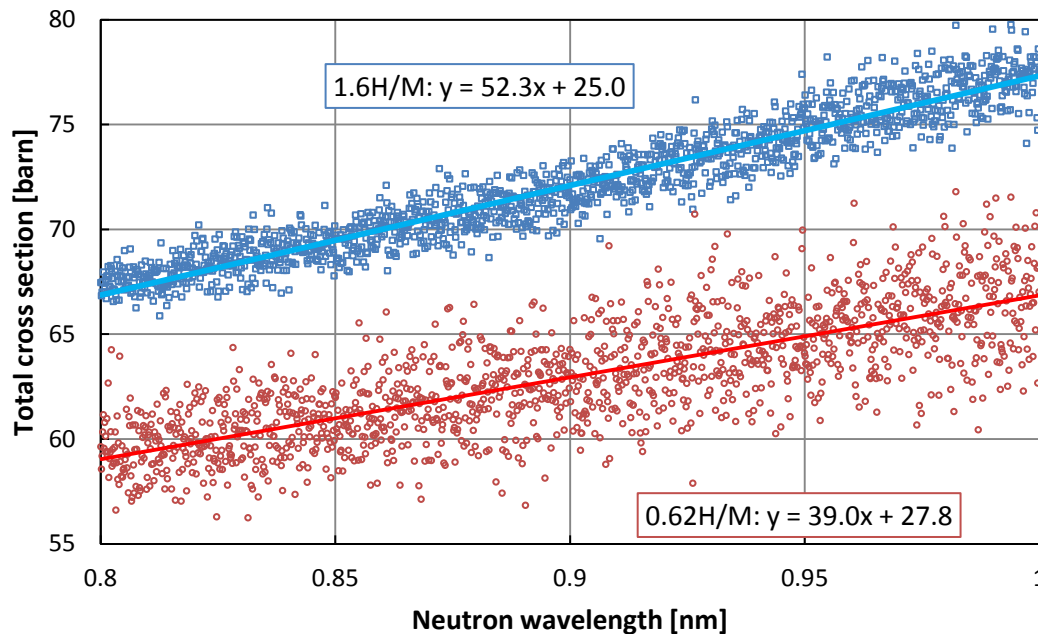
水素の振動の断面積



- 1.6H/M: hump appeared → metal hydride formation
- 0.62H/M: no hump → less or no metal hydride formation

Difference is observed at epi-thermal region!

低エネルギーでの断面積の傾きの違い



Gradient:

large → freely movement
small → less freedom of movement

Sample	Gradient
0.62 H/M	a=39.0
1.6 H/M	a=52.3

※0.8~1nm least square fit
※gradient a [barn/nm]

The gradient is larger for the high hydrogen content than low hydrogen one.

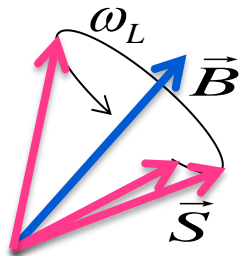


This imply that at high content more freely moving hydrogen increases.

Even at long wavelength there exists difference! We can use this feature to study the bound state of hydrogen depending on position. 39

8. 磁場イメージング

◇ 中性子のラーモア歳差運動



$$\frac{d\vec{S}}{dt} = \gamma[\vec{S} \times \vec{B}]$$

$$\varphi = \omega_L t = \frac{\gamma}{v} \int_{path} B ds = \frac{\gamma m_n \lambda}{h} \int_{path} B ds$$

歳差運動の回転方向はスピンの極性に依存す

歳差角は中性子波長と磁場の経路積分の積に比例する。

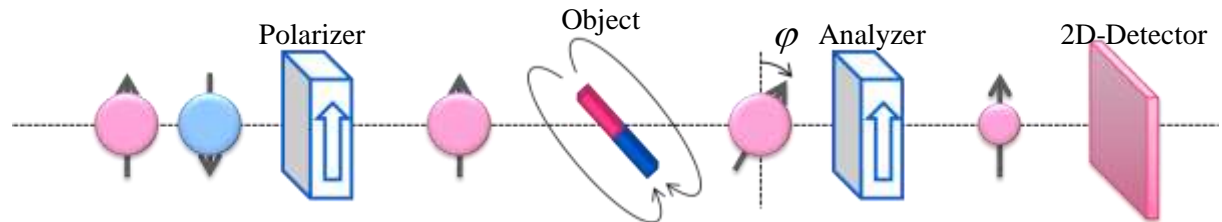
ω_L : Larmor frequency	λ : Wavelength
γ : Gyromagnetic ratio	h : Planck's constant
v : Neutron velocity	m_n : Neutron mass

偏極した単色中性子を用いて歳差角を測れば磁場強度が求められる。

◇ 偏極度

$$P = \frac{n_+ - n_-}{n_+ + n_-}$$

(n_+ : Number of spin-up neutrons
 n_- : Number of spin-down neutrons)



歳差角を偏極度として測定する。ただし 2π の周期性がある。

◇ パルス中性子の利用..偏極度の波長依存性を容易に取得できる

中性子が磁場中に滞在した時間 \propto 中性子の波長 \rightarrow 偏極度変化はラーモア歳差運動に同期する。

$$\varphi = \omega_L t = \omega_P \lambda \quad \rightarrow \quad \int_{path} B ds = \frac{h}{\gamma m_n} \omega_P$$

(ω_P : Polarization frequency)

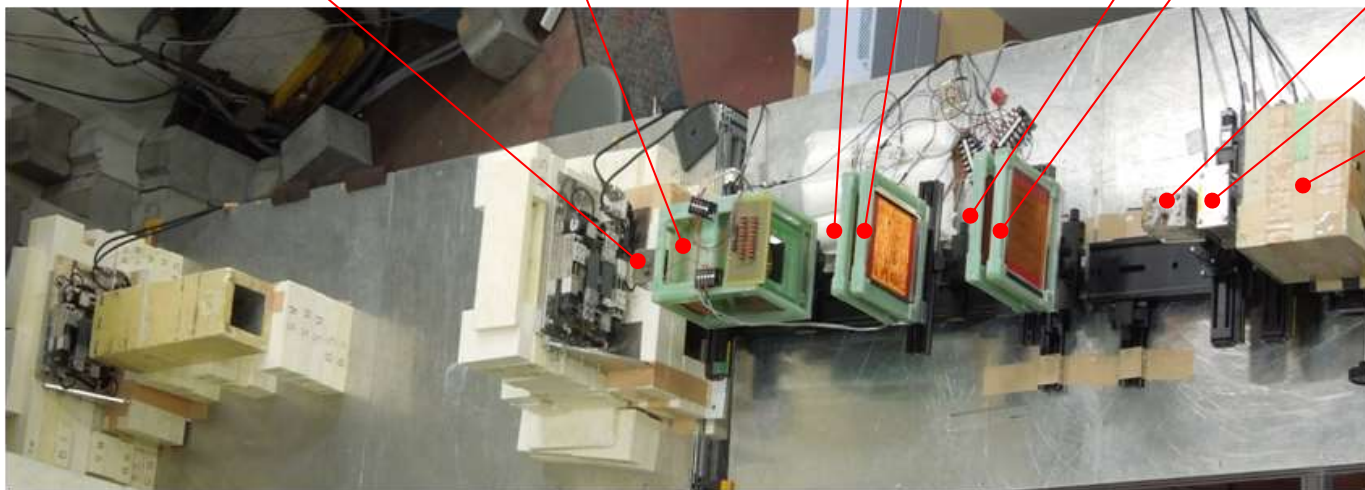
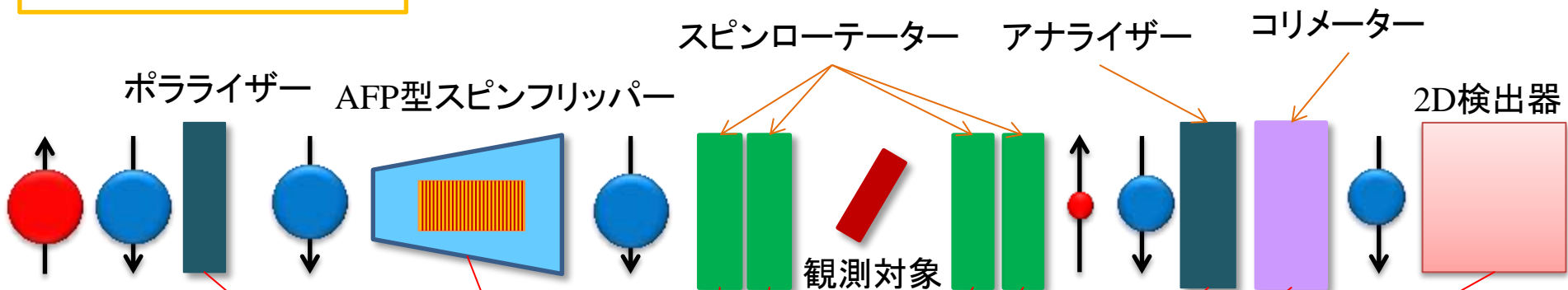
偏極度の波長依存性から磁場の強さを定量的に求めることができる！
 磁場の方向も定量的に求められる。

実験体系

偏極度: $P = \frac{n_+ - n_-}{n_+ + n_-}$

n_+ :スピントリッパーON時のカウント数
 n_- :スピントリッパーOFF時のカウント数

スピントリッパーOFF

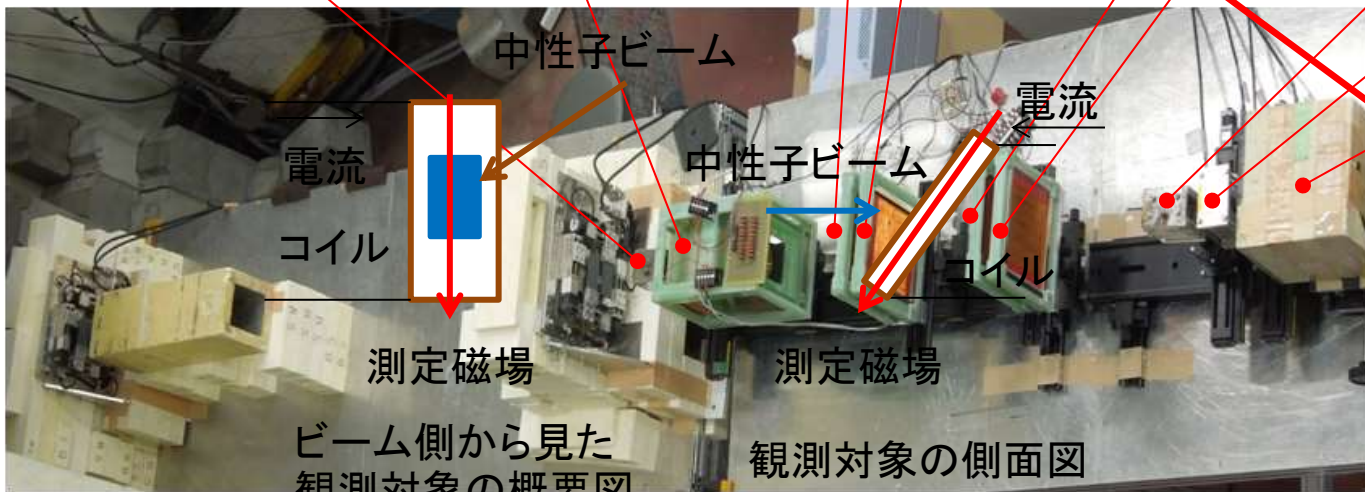
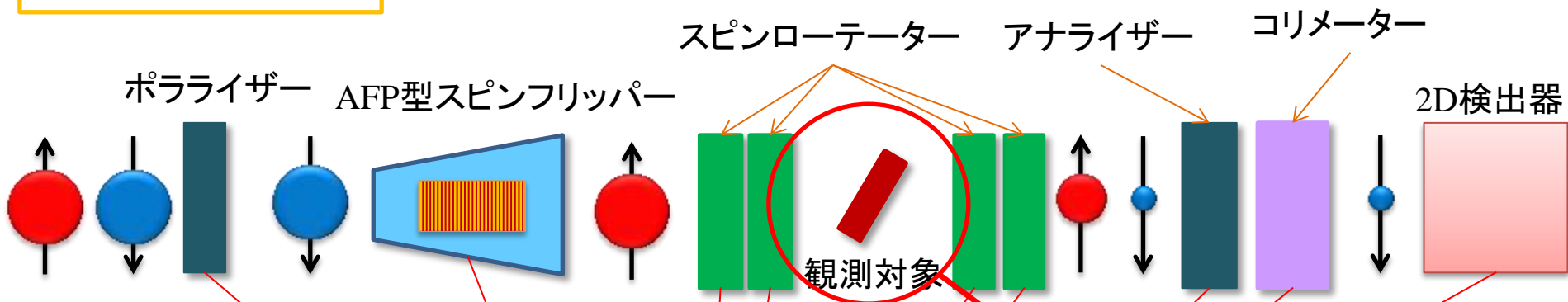


実験体系

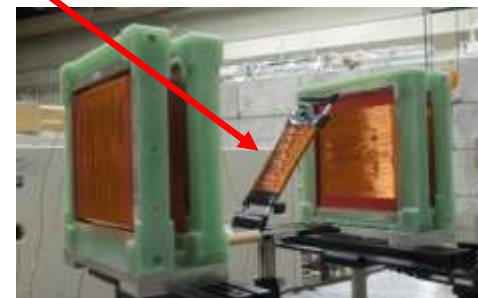
偏極度: $P = \frac{n_+ - n_-}{n_+ + n_-}$

n_+ :スピントリッパーON時のカウント数
 n_- :スピントリッパーOFF時のカウント数

スピントリッパーON



磁場経路はL=1.16 cm



実験体系



- ◆中性子源 :北大LINAC Right
- ◆ポラライザー/アナライザー :積層湾曲型磁気ミラー
偏極度:90%以下
- ◆検出器 :5-inch RPMT
シンチレーター :ZnS(Ag)/LiF
- ◆ビームサイズ :20mmH × 10mmW
- ◆測定時間 :スピンプリッパ-ON/OFFそれぞれ30分(90000 pulse)

3次元に拡張した偏極度解析法

- 磁場をベクトル的に取得するには、偏極度をベクトルに拡張する必要がある。

$$\mathbf{P}(t) = \mathbf{D} \cdot \mathbf{P}(0)$$

$$\mathbf{D} = \begin{bmatrix} D_{xx} & D_{xy} & D_{xz} \\ D_{yx} & D_{yy} & D_{yz} \\ D_{zx} & D_{zy} & D_{zz} \end{bmatrix}$$

$$\left(\begin{array}{l} \mathbf{P}(t): \text{磁場空間通過後の偏極度ベクトル} \\ \mathbf{P}(0): \text{入射中性子の偏極度ベクトル} \\ \mathbf{D}: \text{Depolarization 行列式} \end{array} \right)$$

\mathbf{D} は磁場の各軸への方向余弦とラーモア周波数によって表現される。



波長依存性をフィッティングすれば、 \mathbf{D} の各成分の取得によって、磁場のベクトル情報を定量的に取得できる。

対角成分) $D_{ii} = 1 - (1 - \cos(\omega_p \lambda)) \cdot (1 - n_i^2)$

$$\int_{\text{path}} B ds = \frac{h}{\gamma_n m_n} \omega_p$$

非対角成分) Subtract: $\frac{D_{ji} - D_{ij}}{2} = n_k \sin \omega_p \lambda$

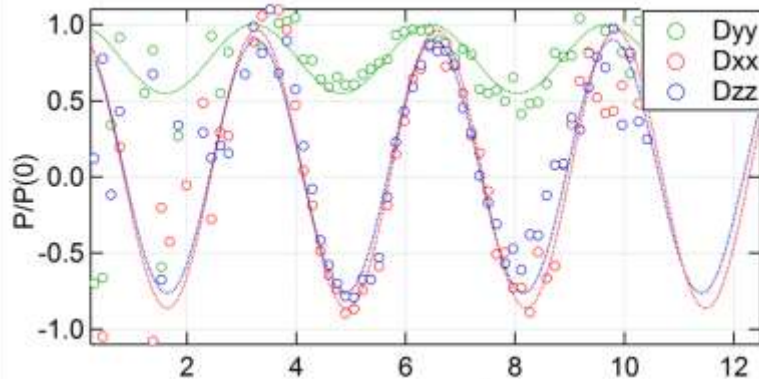
方向余弦は各軸からの角度を表す。

- Depolarization各成分の取得のために、スピローテーターを導入する。

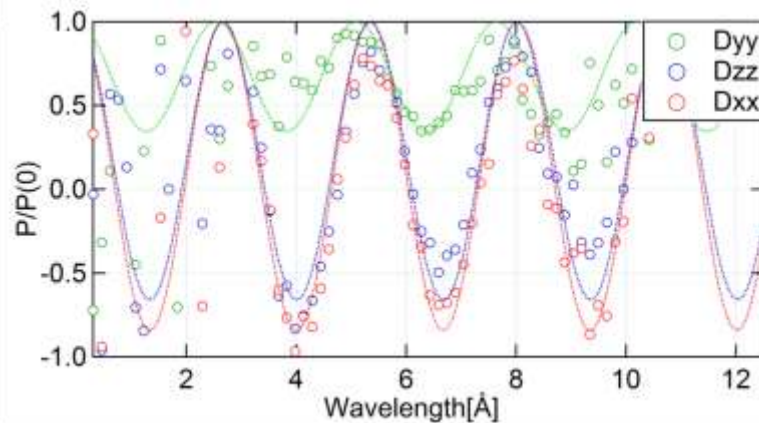


偏極度の波長依存性(対角成分)

$D_{ii} = 1 - (1 - \cos\omega_p\lambda) \cdot (1 - n_i^2)$ ガウスマーターでの実測値3.56 mT (1.5A)、4.61 mT(2.0A)



対角成分	磁場強度 B(mT)	実測値に対する比(%)
D_{xx}	3.569 ± 0.011	99.75 ± 0.502
D_{yy}	3.636 ± 0.032	97.97 ± 1.724
D_{zz}	3.575 ± 0.013	99.58 ± 0.724

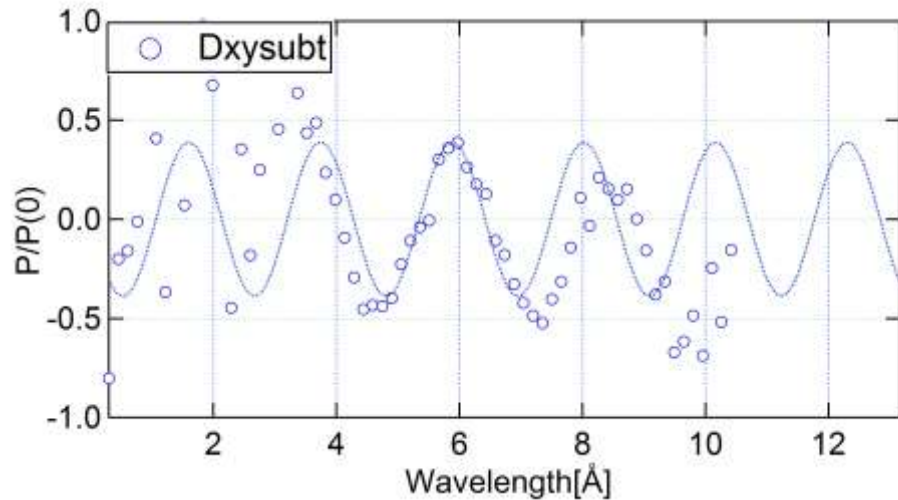


対角成分	磁場強度 B(mT)	実測値に対する比(%)
D_{xx}	4.379 ± 0.015	94.99 ± 0.651
D_{yy}	4.589 ± 0.041	99.54 ± 0.913
D_{zz}	4.374 ± 0.017	94.88 ± 0.738

a).印加電流1.5Aのコイルの磁場、b).印加電流2.0Aのコイルの磁場

ガウスマーターによる実測値とのずれは最大でおよそ5%

偏極度の波長依存性(非対角成分)



○ Subtract : $\frac{D_{yx} - D_{xy}}{2} = n_z \sin \omega_p \lambda$

(y-z、z-y)、(z-x、x-z)の偏極度の波長依存性を同様に解析する。

graph:b)の非対角成分(x-y、y-x)

Table: 非対角成分における偏極度の振幅・振動軸と量子化軸からの傾き

各軸からの傾き(°)	実測傾斜角度(°)	実験値に対する実測値の比(%)
96.89±1.098	90.00	91.85±2.105
141.4±4.450	144.46	99.02±4.188
64.72±1.531	54.46	82.20±3.983

・環境磁場の影響

実測傾斜角度とのずれは最大でおよそ15%

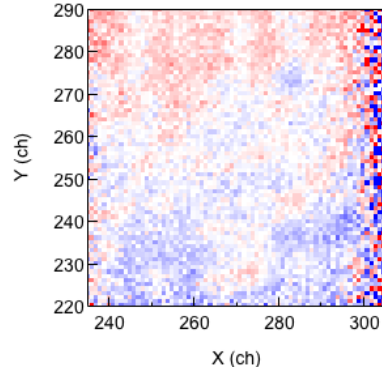
軟磁性フォイルの磁気ドメイン

T. Shinohara, et al.

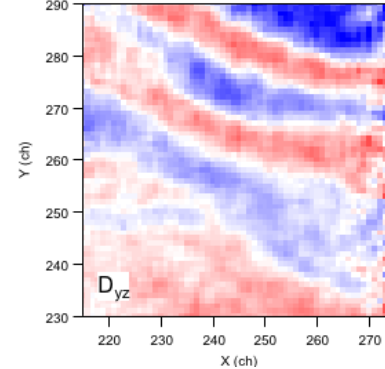
0.25mm/channel

Distribution of polarization @ $\lambda=4.4\text{\AA}$

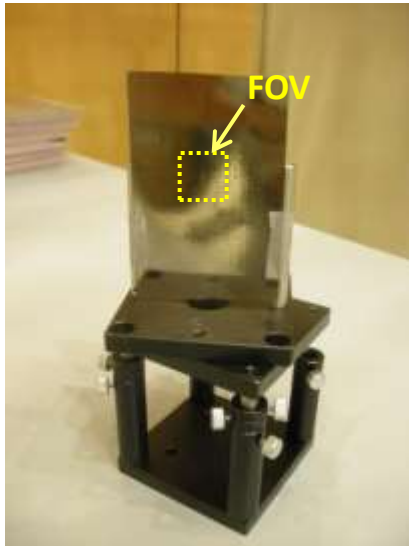
Before heat treatment



After heat treatment

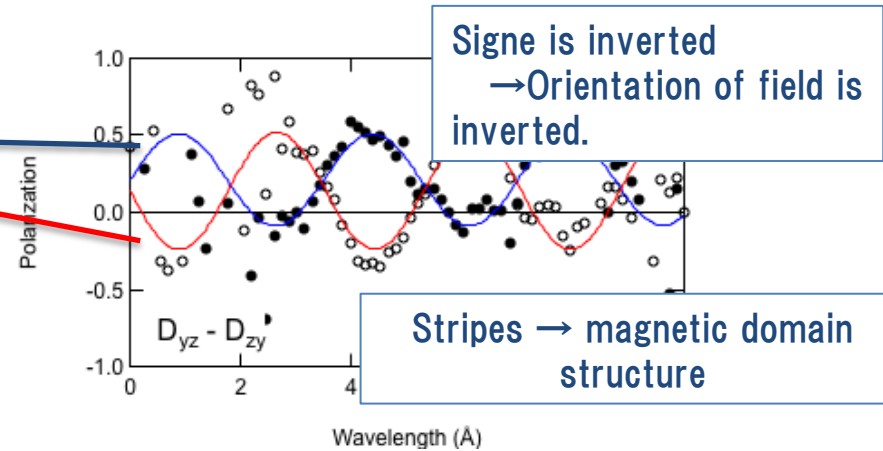
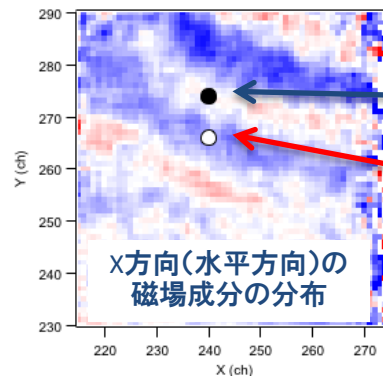


Stripe structure appeared



Fe based foil
(Iron core of a trans)
 $t : 30\mu\text{m}$

波長依存性の解析



Period of oscillation $\omega \rightarrow B = 1.28 \pm 0.07$ [T]

Amplitude $\rightarrow n_x : n_y : n_z = 0.41 : 0.84 : 0.36$

磁気ドメインがあらわれている。磁場の向きも観測

9. まとめ

1. パルス中性子イメージングによる色々な対象物への応用がすすめられている。
2. 新しい対象に対する実験手法の開発と物理量を得るための解析コードの開発の両者が調和して発展することが必要である。各種の実験にトライすることによって、解析法も発展してきている。
3. 新しい課題が発展の原動力である。
面白そうなテーマの提案、大歓迎！

この発表の大部分は科学研究費S (No. 23226018)の成果である。