



平成27年度中性子イメージング専門研究会 於 京都大学原子炉実験所

# パルス中性子透過法による 結晶粒毎の結晶方位イメージング

佐藤 博隆<sup>1</sup>,

藤井 伸弥<sup>1</sup>, 塩田 佳徳<sup>2</sup>, 諸岡 聡<sup>3</sup>, 戸高 義一<sup>4</sup>,

及川 健一<sup>5</sup>, 原田 正英<sup>5</sup>, 張 朔源<sup>6</sup>, 蘇 玉華<sup>5</sup>,

加美山 隆<sup>1</sup>, 大沼 正人<sup>1</sup>, 古坂 道弘<sup>1</sup>, 篠原 武尚<sup>5</sup>, 鬼柳 善明<sup>2</sup>

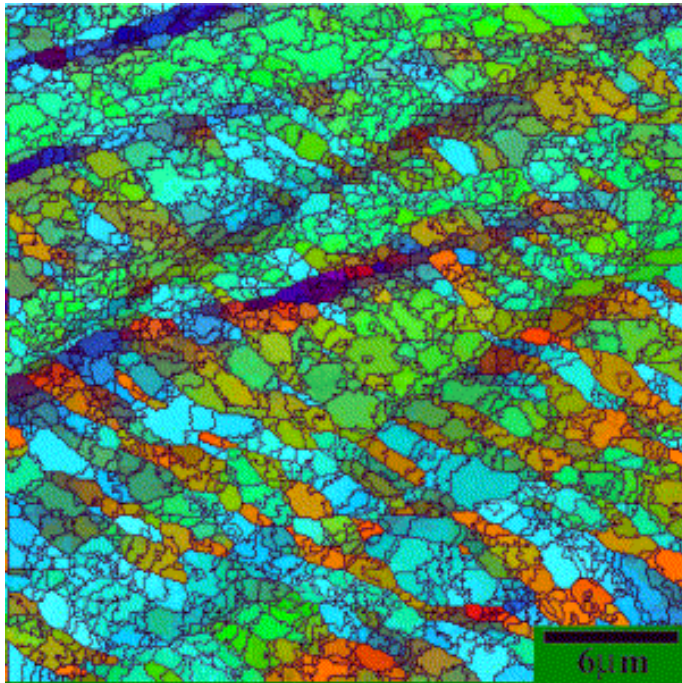
<sup>1</sup>北海道大学, <sup>2</sup>名古屋大学, <sup>3</sup>首都大学東京, <sup>4</sup>豊橋技術科学大学,

<sup>5</sup>日本原子力研究開発機構J-PARCセンター, <sup>6</sup>CROSS東海

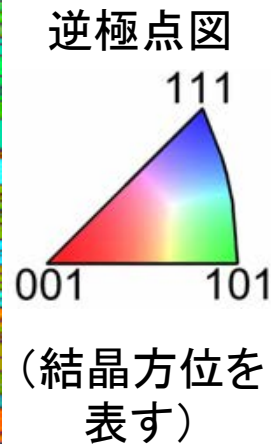
# 研究の背景と目的

# 結晶粒毎の結晶方位イメージング

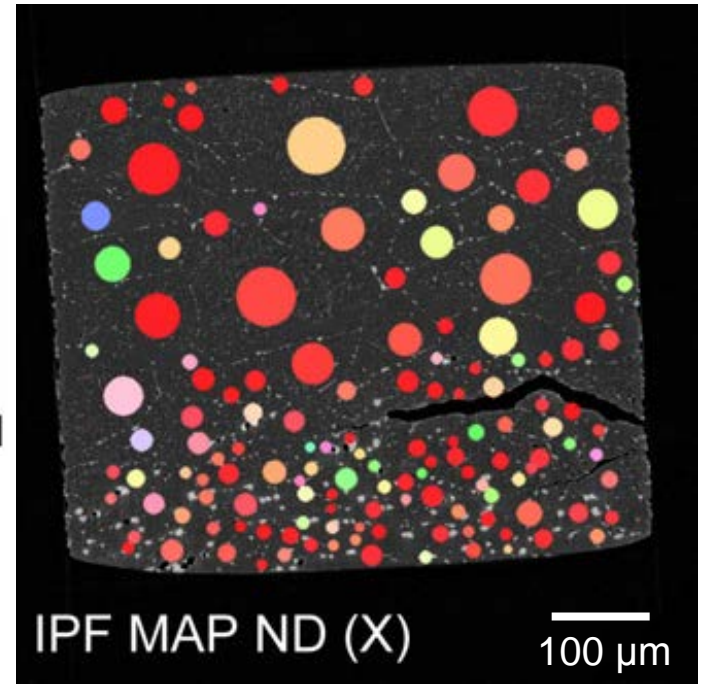
## 電子顕微鏡(EBSD)



結晶方位と結晶子界の可視化  
F. J. Humphreys, *et al.*



## 放射光回折イメージング



結晶方位(回折)と結晶粒界(CT)の可視化  
M. Kobayashi, H. Toda, *et al.*

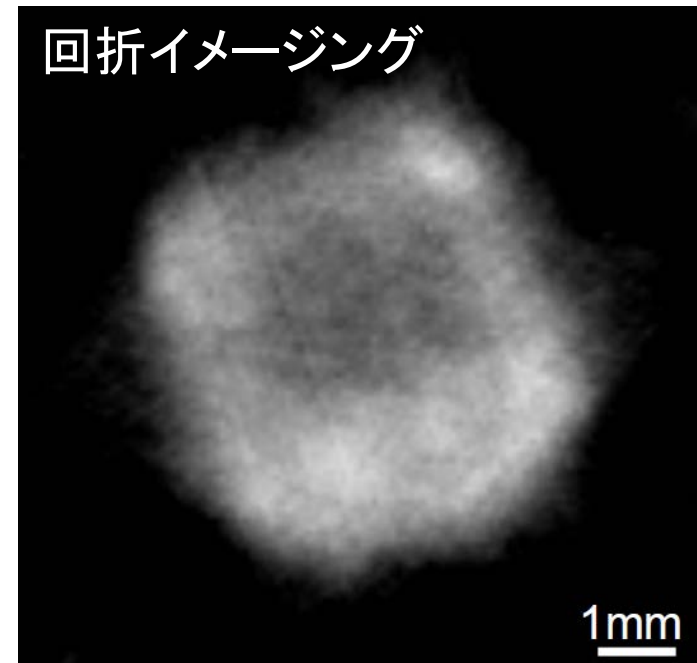
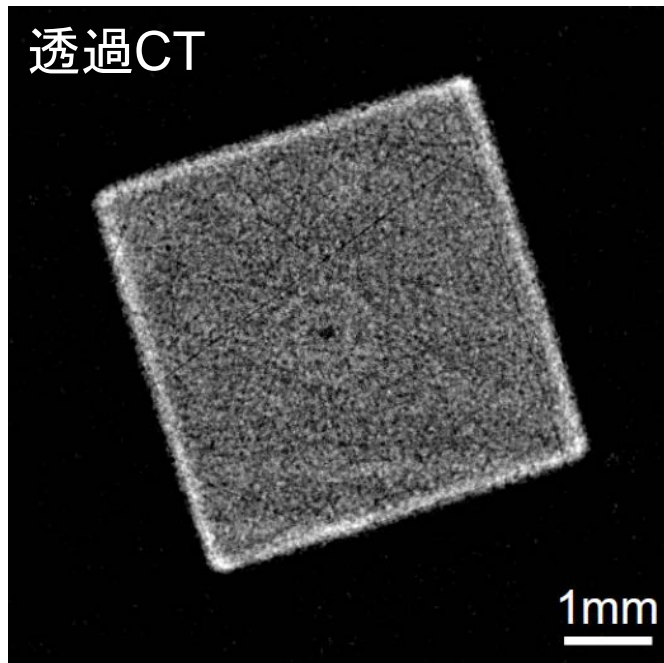
金属材料の**マイクロ組織構造**解析法の一つとして利用されている。

# 中性子回折イメージングによる結晶方位 イメージングの試み

S. Peetermans & E. H. Lehmann (PSI)

中性子に期待されている特長: バルク解析 & 鉄鋼材料解析

測定試料: Fe単結晶(角柱)



結晶方位の決定はできている模様

空間分解能を高めるためには透過イメージング法が有利。

# 研究の目的と内容

---

## 目的

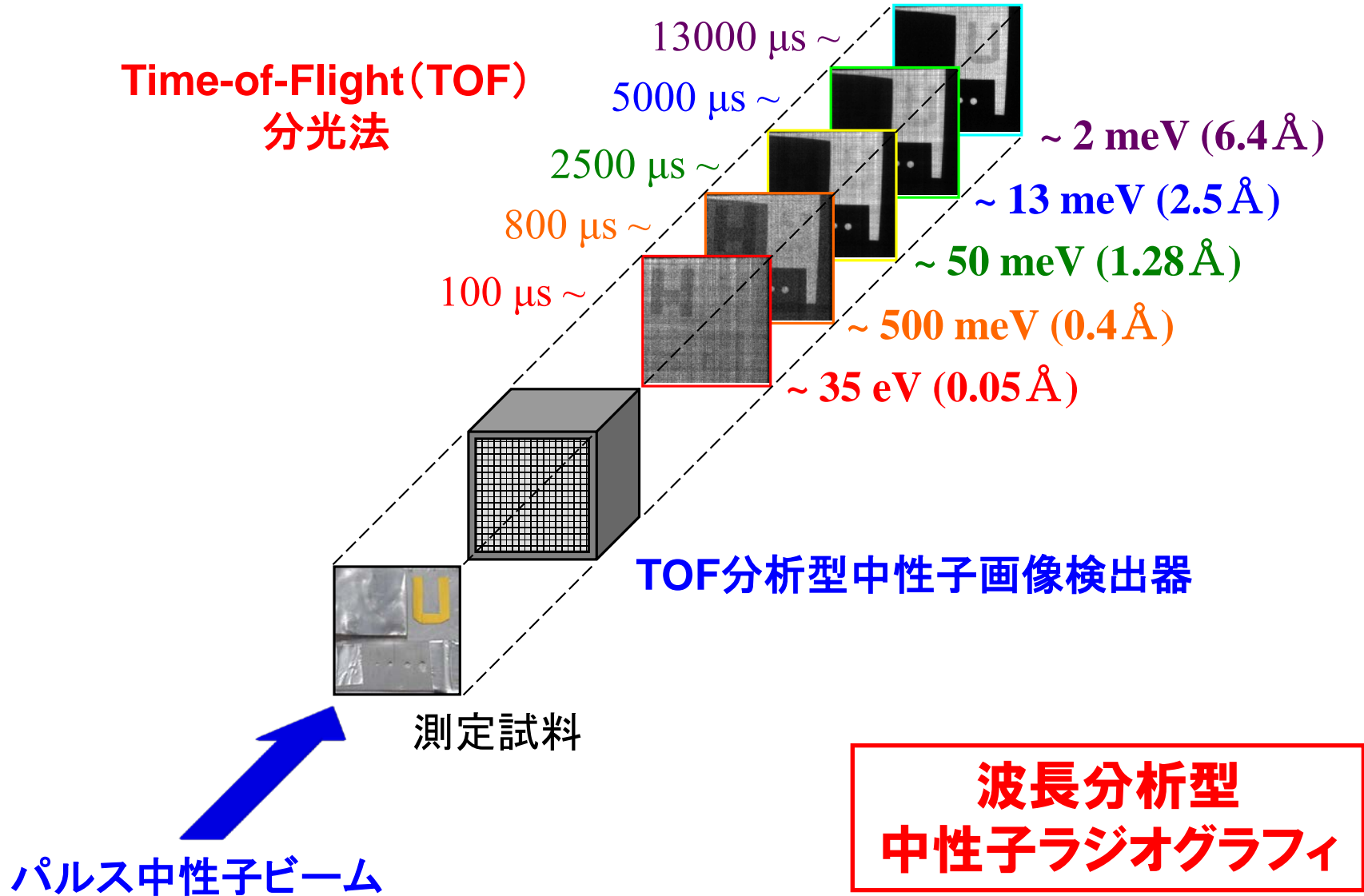
パルス中性子を利用した**波長依存透過イメージング法**による結晶粒毎の結晶方位イメージング法を開発する。

## 内容

- ① 大きな結晶粒を有する鉄鋼材料を対象に実験。
- ② 画素毎に結晶方位を解析&マッピング。その解析手法の開発。

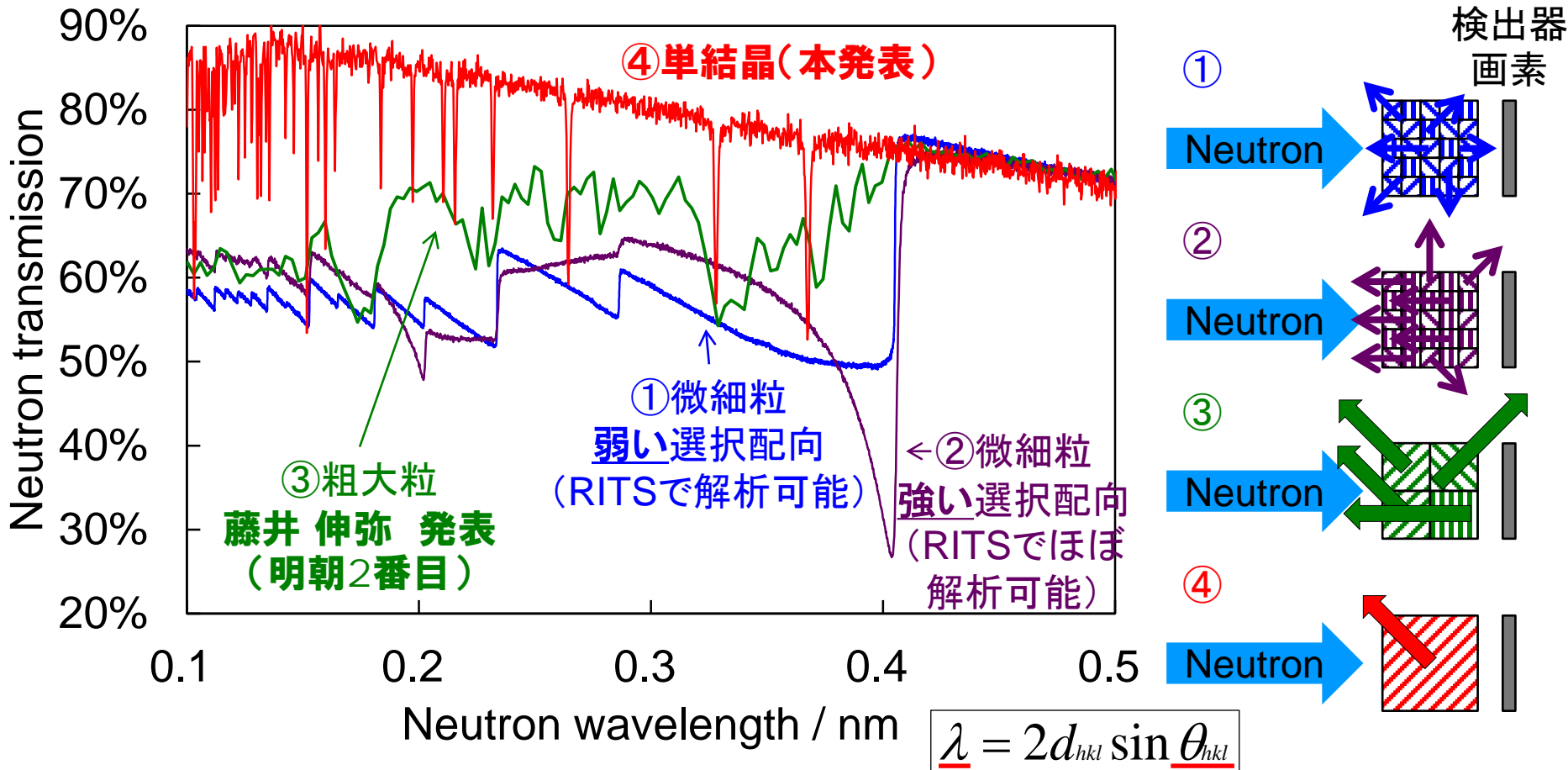
# 波長依存透過イメージング法による 結晶粒とその結晶方位の観測方法について

# パルス中性子TOF分析型ラジオグラフィ



# 中性子透過率スペクトルは4タイプある。

α-Fe (5 mm thickness)



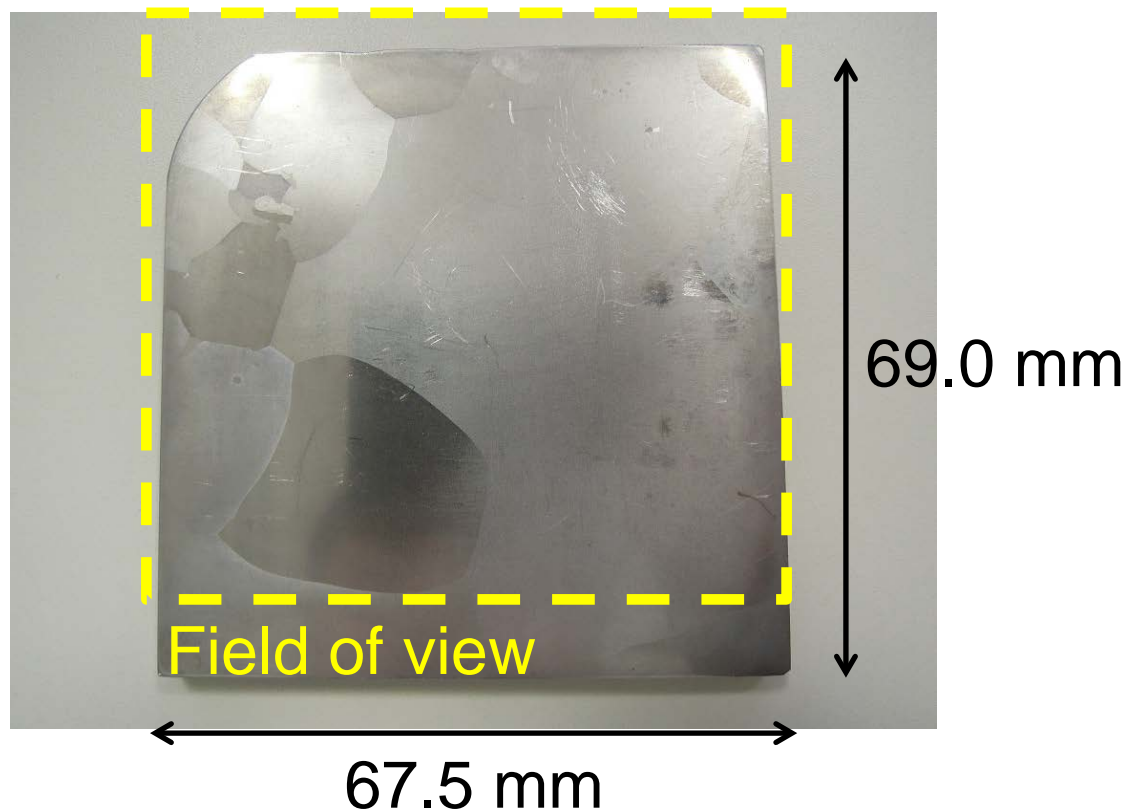
結晶粒1個を観測 ⇔ 単結晶透過率スペクトル  
「ブラッグ散乱ディップ」出現波長から結晶方位がわかるはず。



# パルス中性子透過イメージング実験

# 測定試料

## 巨大結晶粒を有する3.4mass%Si鋼板 厚さ 5 mm



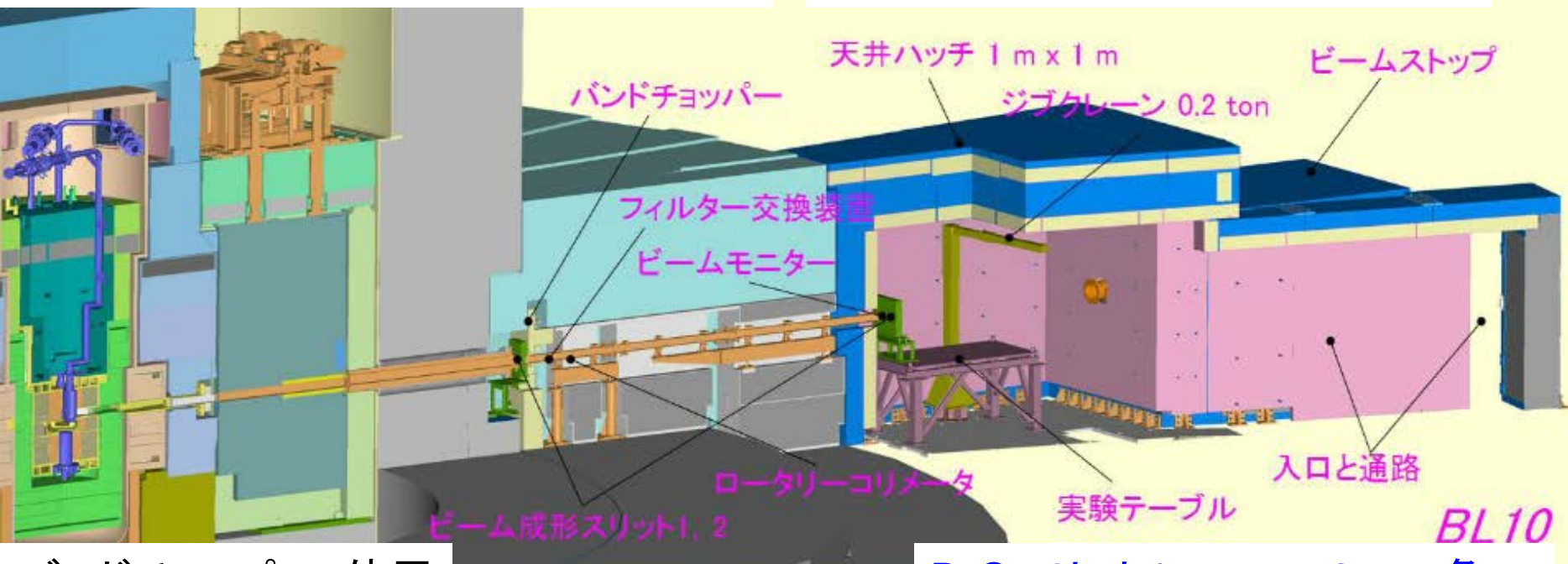
cm級の大きな結晶粒 → 単結晶スペクトルが観測されるはず

# 波長分析型中性子透過イメージング実験

## J-PARC MLF BL10 中性子源特性試験装置「NOBORU」 波長分解能: 0.34% ( $\lambda = 0.4 \text{ nm}$ )

陽子加速器出力: 400 kW  $\rightarrow$  500 kW  
非結合型 20 K 超臨界パラ水素減速材

中性子飛行距離: 14.28 m  
L/D = 2410、本影サイズ: 9.65 cm



バンドチョッパー: 使用  
フィルター: なし  
ロータリーコリメーター at 8 m: 大 (31.6 mm角)

B<sub>4</sub>Cスリット1 at 7 m: 3 mm角

B<sub>4</sub>Cスリット2 at 12.8 m: 9 cm角

ダクトコリメーター at 12.5 m: なし

# 波長毎の中性子透過画像と透過率スペクトル

使用した計数型中性子画像検出器：**nGEM検出器**

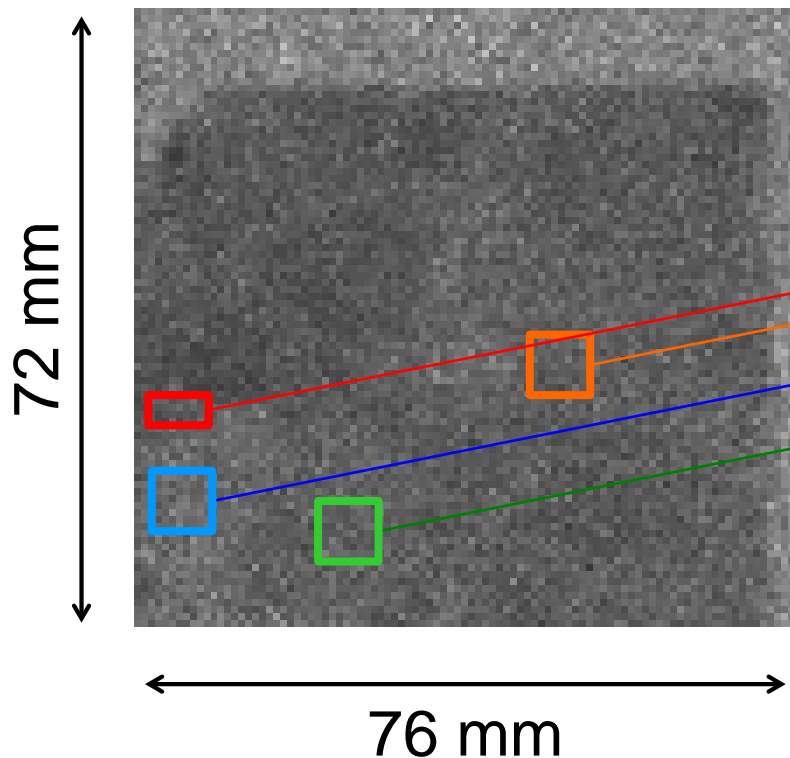
画素サイズ：**800  $\mu\text{m}$   $\times$  800  $\mu\text{m}$**

試料-検出面距離：**4 cm**

測定時間：直達ビーム：**7.2時間** & 透過ビーム：**14.5時間**

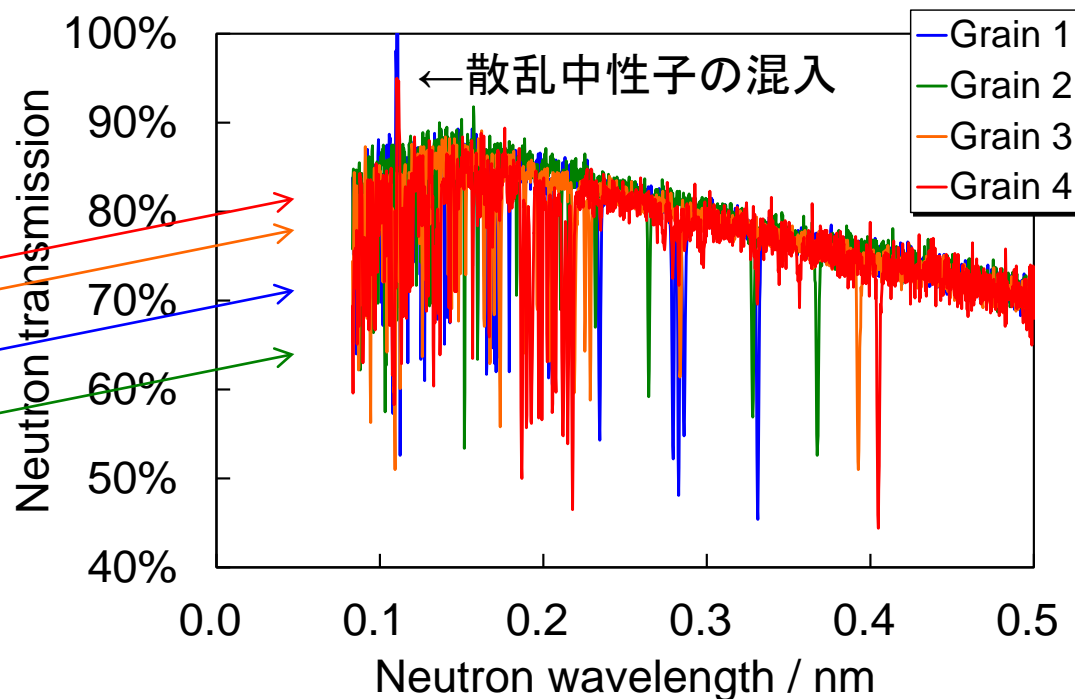
計数率：**約160 kHz**

波長毎の中性子ラジオグラフィ



得られた中性子透過率スペクトル

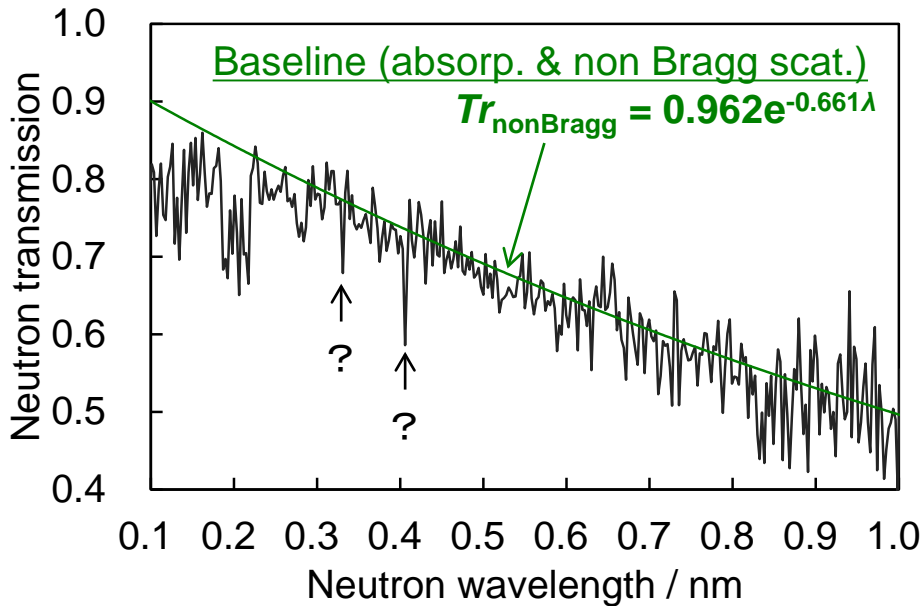
→ **単結晶透過率スペクトル**



# 単結晶透過率スペクトル解析による 結晶方位の同定

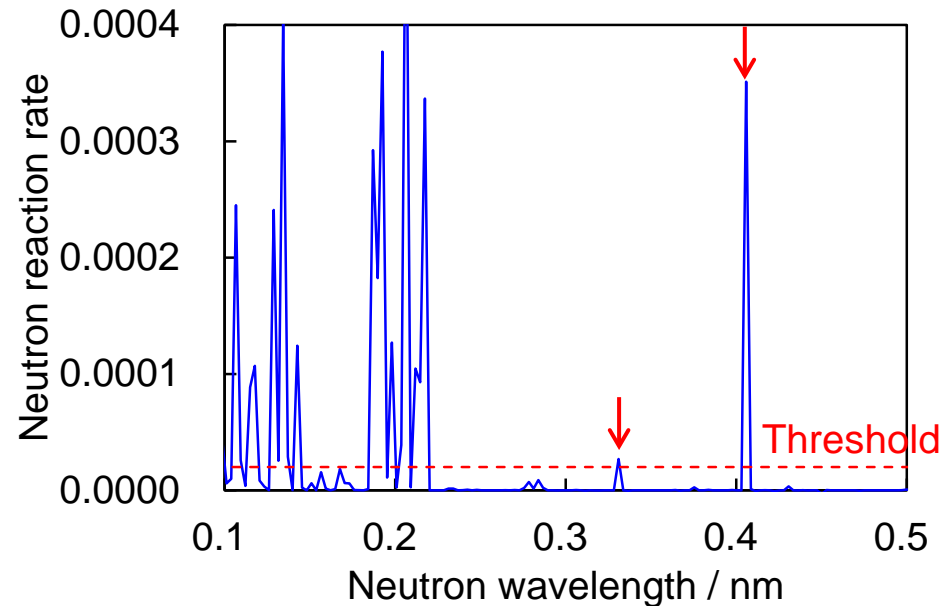
# 実験データ処理:ブラッグ散乱ディップの検出

処理前の透過率スペクトル  
(1画素の透過率スペクトル)



処理後の反応率スペクトル

$$(1 - Tr_{\text{measure.}} / Tr_{\text{nonBragg}})^5$$



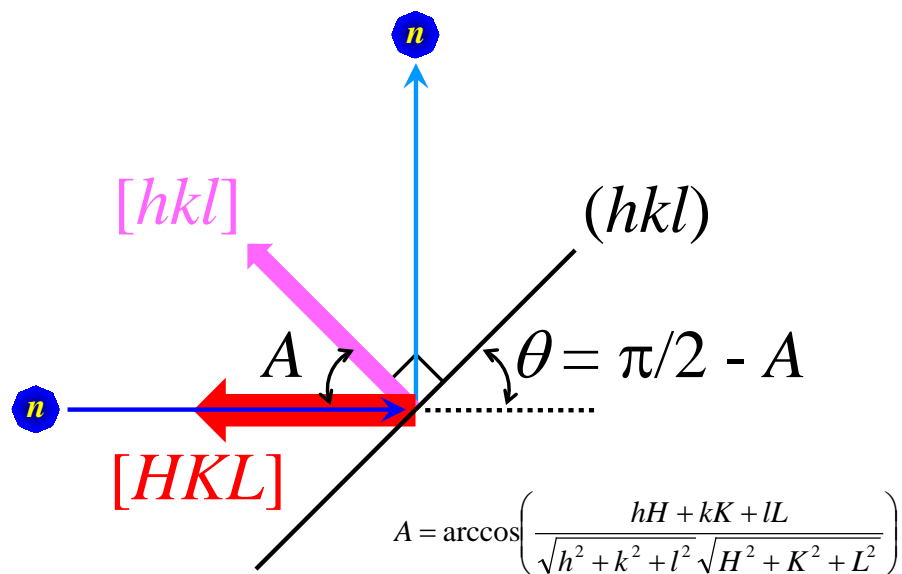
ブラッグ散乱ディップを強調して検出  
(負の値は負の値のまま、S/N比を大きくする)

閾値を超えたピークの出現波長をディップ出現波長とした。

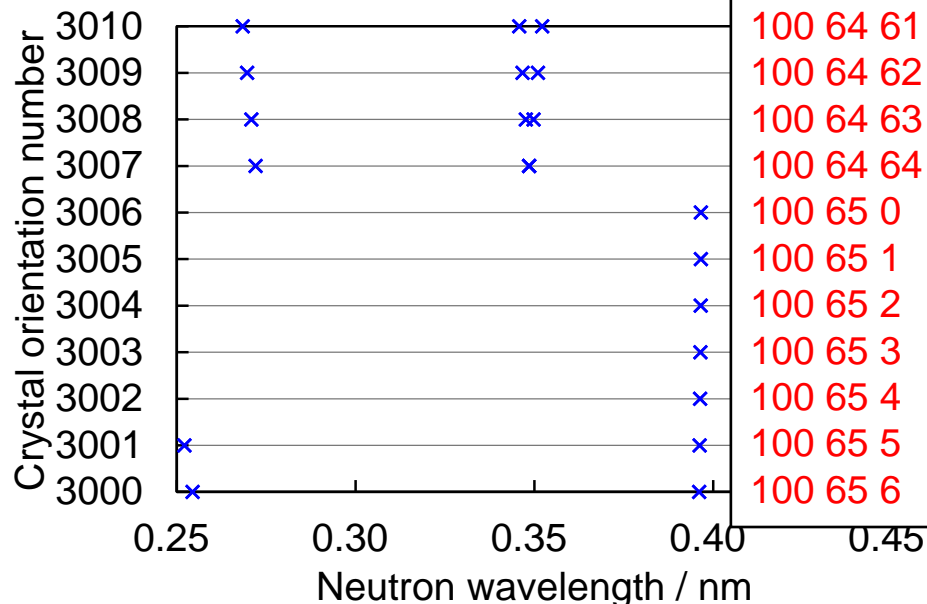
課題: 累乗処理の値。閾値。適用する波長範囲(現在は0.25 nm以上のみ使用)。

# ディップ出現波長の計算データベースと照合

## 結晶方位 $[HKL]$ と回折面 $(hkl)$ の関係



## 各 $[HKL]$ のディップ出現波長(計算)



### ① ビーム方向の結晶方位 $[HKL]$ を仮定

(これが求めたい情報)

② 結晶構造の種類・格子定数より、回折可能結晶面 $(hkl)$ とその面間隔 $d_{hkl}$ を全て計算。

③  $[HKL]$ と $[hkl]$ のなす角 $A$ を計算。

④  $\lambda = 2d_{hkl} \sin(\pi/2 - A)$ より、**全てのブラッグ散乱ディップの出現波長 $\lambda$** を計算。

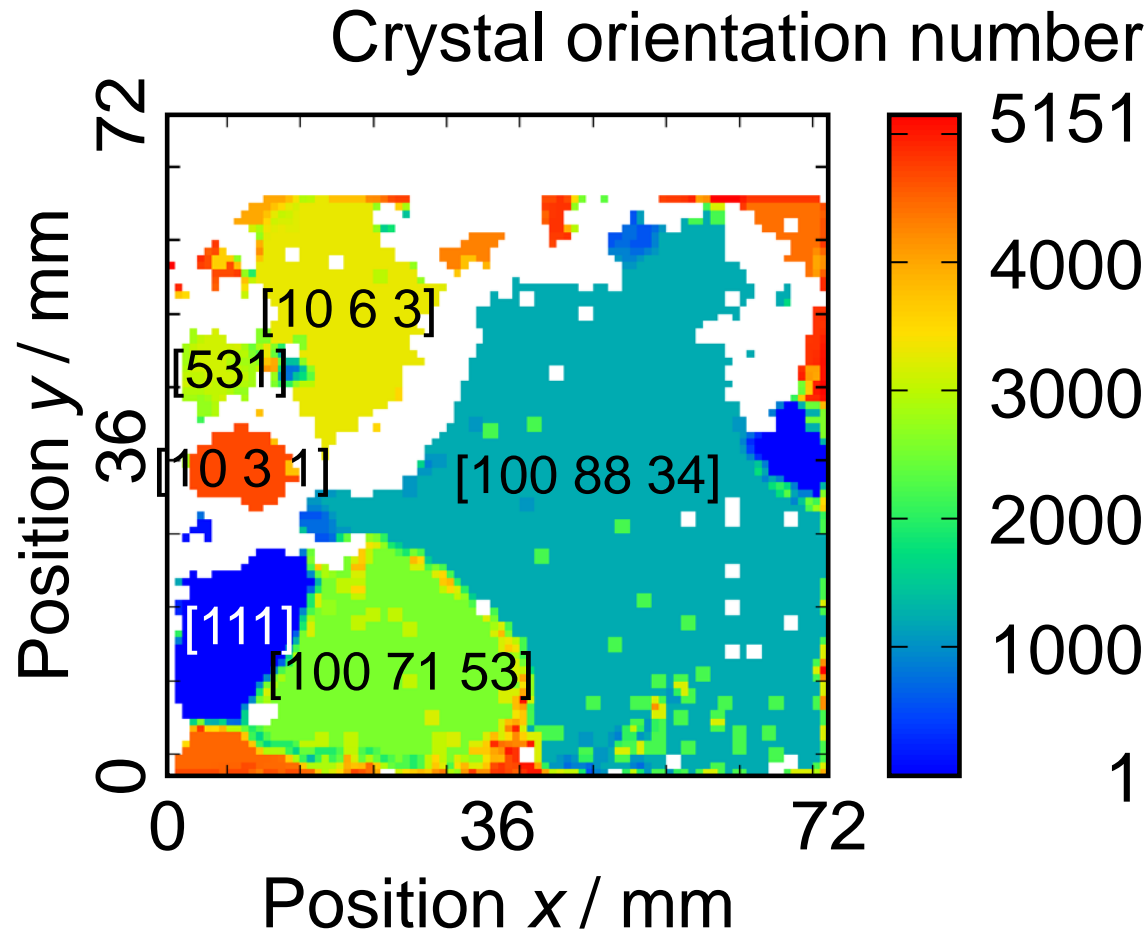
⑤ 以上を全 $[HKL]$ についてデータベース化。

**実験データのディップ出現パターンと照合し、結晶方位 $[HKL]$ を同定**

# 結晶方位イメージングの結果



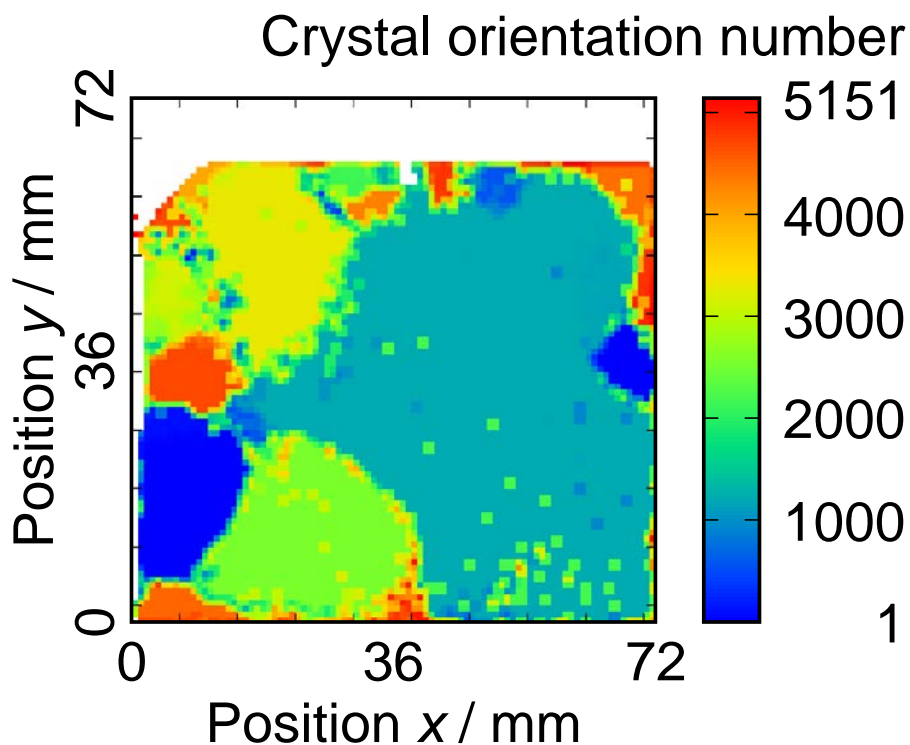
# ビーム方向に関する結晶方位イメージング



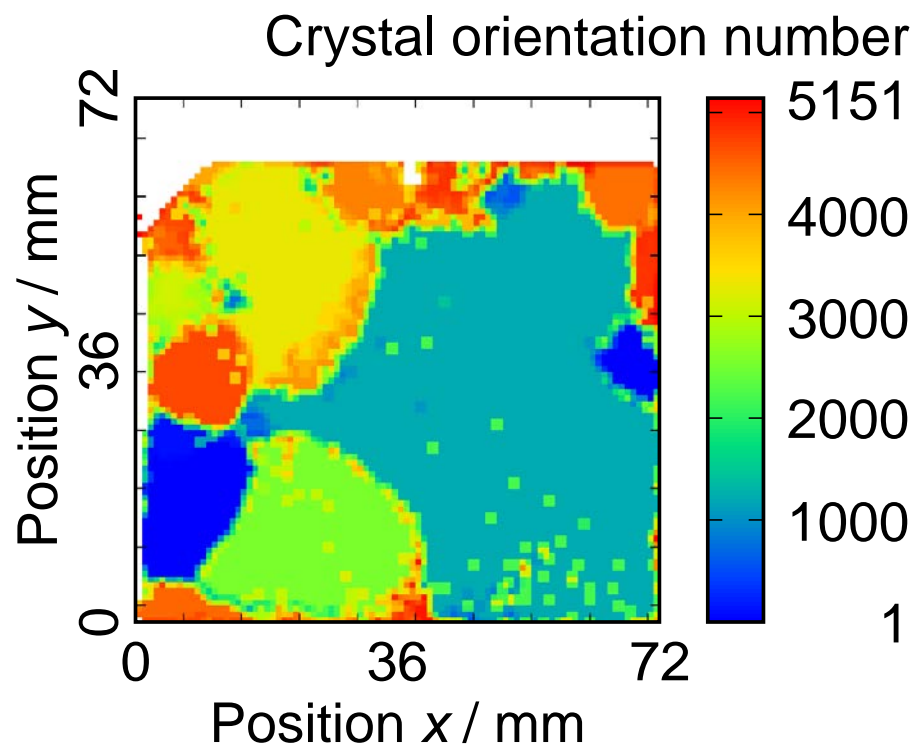
1つの結晶粒では透過率スペクトルが説明できない領域が存在

# 中性子透過経路中に2つの粒が存在すると仮定して行った結晶方位イメージング

第1粒の方位を表示した画像



第2粒の方位を表示した画像



- **中性子透過法によるビーム方向に関する結晶方位イメージング！**
- この試料に関しては、結晶粒が3個以上重なっている領域は、ほぼ無い。
- ✓ 材料工学研究のためには**逆極点図表示**する必要がある(担当:首都大)。
- ✓ 電子顕微鏡(**EBSD**)により、方位同定の精度を検証中(担当:豊橋技科大)。
- ✓ 粒の表裏の存在領域の判別はできていない。→ **3D化が今後の課題**

# まとめ

## ● 進捗状況

- 中性子透過イメージング法を利用した**結晶粒毎の結晶方位イメージング法**の開発を行った。
  - ✓ 中性子の特長 → バルク鉄鋼材料解析・非破壊測定
  - ✓ 透過イメージング法の特長 → 高空間分解能・広い視野
- **単結晶透過率スペクトル**から結晶方位情報を抽出する解析手法を開発した。
  - ✓ 実験値と計算値のスペクトル照合により方位を同定
  - ✓ 数個程度の結晶粒なら個数と方位を同定することが可能

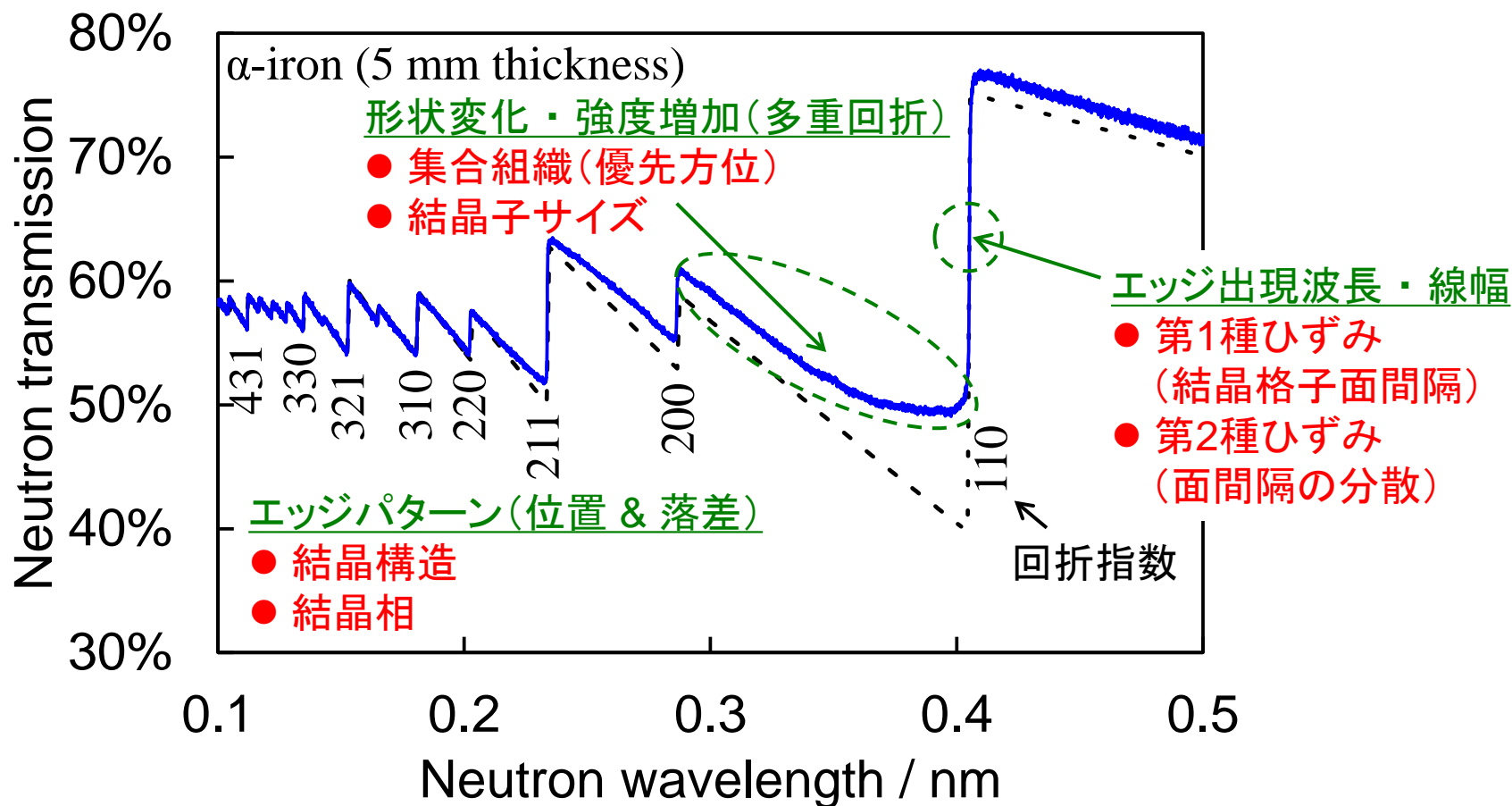
## ● 今後の課題

- 単結晶スペクトル解析法：ブラッグ散乱ディップの検出方法の最適化、結晶粒の数が増えた時の対処法
- イメージング：**逆極点図表示**、**EBSDとの比較**、3D化、ビーム方向の法線方向に関する結晶方位の同定

# Appendix

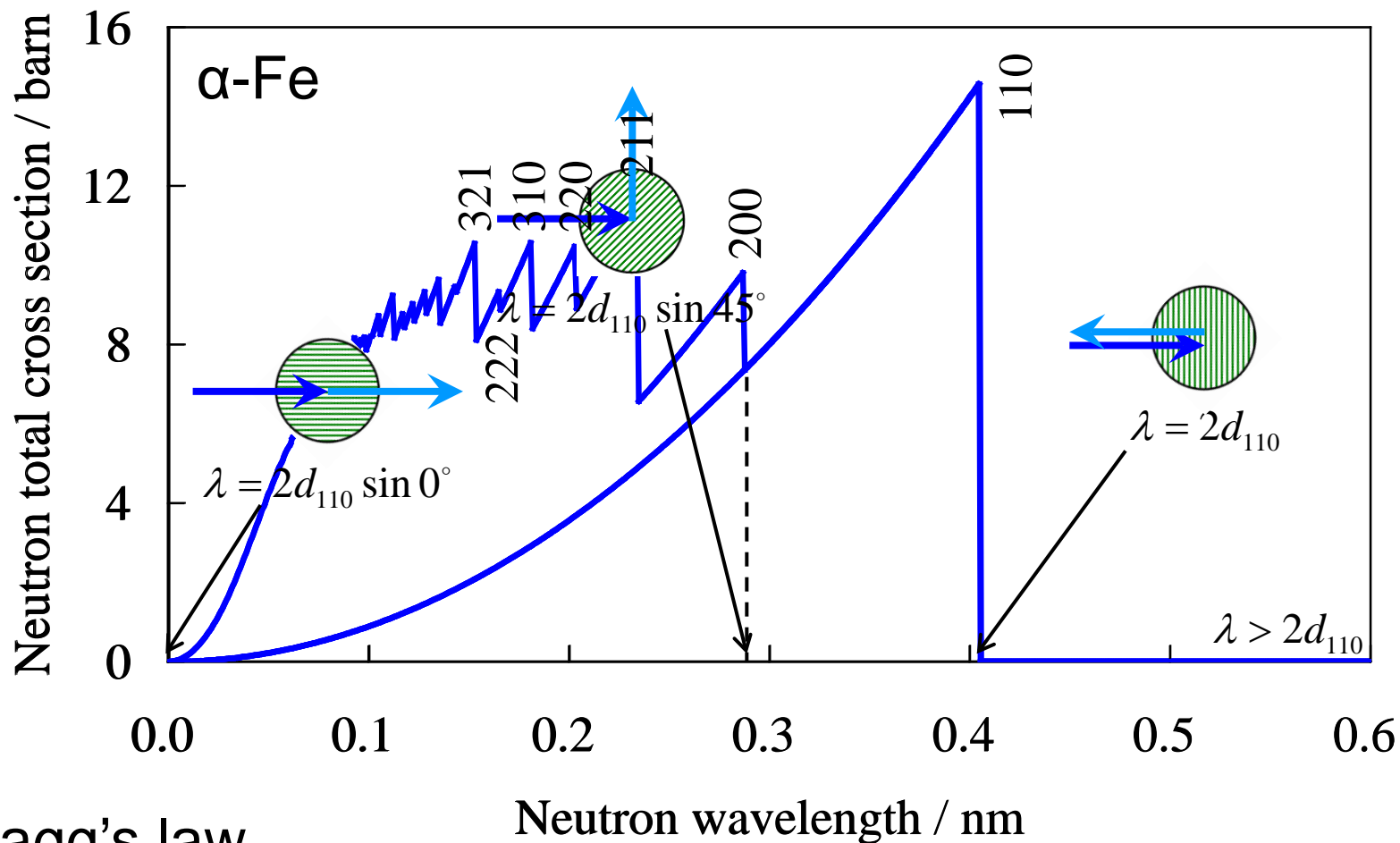
# 中性子透過「ブラッグエッジ」スペクトル

1つの画素で測定される透過率スペクトルとそれに含まれている情報



画素毎の解析 → **結晶組織構造情報**の広範囲マッピング

# Bragg "sawtooth"



Bragg's law

$$\lambda = 2d_{hkl} \sin \theta_{hkl}$$

Information of **all orientations** of **all lattice planes** is observable.