MLF-BL22

ブラッグエッジ解析コード GUI-RITS の更新 Update of Bragg edge analysis code "GUI-RITS"

及川健一¹、佐藤博隆²、渡辺賢一³、蘇玉華¹、 篠原武尚¹、甲斐哲也¹、鬼柳善明³、加美山隆² 1 原子力機構、2 北海道大学、3 名古屋大学

エネルギー分析型イメージング手法の一つであるブラッグエッジイメージン グのスペクトルデータは、北大佐藤らが開発したブラッグエッジ解析コード RITS[1,2]によりシングルエッジ解析やフルパターン解析を行うことができる。 本プログラムは、中性子波長依存の中性子パルス関数、原子数密度、結晶組 織構造等を考慮した中性子透過率データの生成と、非線形最小二乗法による 関数フィッティングを行うことにより、測定データからこれらのパラメータを抽出 する機能を有する。

MLF の BL22 では、本プログラムを Fortran から C/C++に書き換え、Python から呼び出し GUI 化したものをユーザーに提供してきた[3]。本 GUI-RITS ソフ トウェアは、1 本のスペクトルのフルパターンをフィットする「RITS」及びシング ルエッジをフィットする「EDGE」プログラム、また最大 512×512 本のスペクトル をマルチスレッドでフィットする「RITS2」及び「EDGE2」プログラム、およびシミュ レーションパターンを生成する「RITS Simulation」プログラムにより構成される。 本年度、サポート終了となるプラットフォーム Scientific Linux 6 及び言語 Python 2 による動作環境を、Windows10 及び Python 3 に更新することを主目 的とした作業を行うとともに、いくつか使い勝手を向上させるための機能追加 を行った。

当日は新旧プログラムによる同一データの解析結果具体例を示し、データ 解析効率の比較などを行う。

- [1] H. Sato et al., Mater. Trans. 52, 1294 (2011).
- [2] H. Sato et al., Phys. Procedia 88 322 (2017).
- [3] T. Shinohara et al., Rev. Sci. Instrum. 91 043302 (2020).

MLF-BL10, BL22

中性子を用いたホウ素定量測定とホウ化物識別 Quantitative measurement of boron and boride identification using neutron beam

土川 雄介¹、甲斐 哲也¹、阿部 雄太¹、佐藤 一憲¹、大石 佑治²、 Yifan Sun²、及川 健一¹、中谷 健¹、Joseph D. Parker³、松本 吉弘³ 1 JAEA, 2 Osaka Univ., 3 CROSS

福島第一原子力発電所の廃炉に伴い、炉心内部に残留するホウ素やホウ 化物の定量分析、及びホウ素化合状態の同定が一つの重要な調査項目とな っている。J-PARC/MLF において純ホウ素や、ホウ化ジルコニウム,ホウ化 鉄をはじめとしたホウ化物試料の中性子照射実験を行ってきた。透過中性子 測定や即発ガンマ線測定を行い、得られた透過率/反応率の中性子エネルギ 一依存性を用いてホウ素密度を測定した。一連の測定で評価したホウ素定量 精度についてまとめる。

またホウ化物毎の即発ガンマ線のエネルギー幅を用いた化合物の同定可 能性について検討した。金属,非金属ホウ化物ではそれらの即発ガンマ線ピ ーク幅に顕著な違いが見られた一方で、ホウ化ジルコニウムとホウ化鉄では 幅の違いが微小であった。ガンマ線エネルギースペクトル解析でこれら金属ホ ウ化物の違いを詳細に測定し評価した[1]。

最後に、エネルギー分析型二次元検出器を用いた二次元並びに三次元定 量測定に向けた取り組みについて、現状の実験、解析結果を簡単に紹介する。 [1] Y. Tsuchikawa et al., Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A 991 (2021) 164964.

シュリーレン顕微鏡のための

新しい位相回復像解析手法とプログラムの開発 Development of New Phase-Retrieval Method and Program for the X-ray Schlieren Microscopy

西村龍太郎・KEK-IMSS、鈴木芳生・KEK-IMSS、杉山弘・KEK-IMSS、 若林大佑・KEK-IMSS、平野馨一・KEK-IMSS、五十嵐教之・KEK-IMSS、 船守展正・KEK-IMSS

現在、KEK Photon Factory 基盤技術部門 X 線光学チームにおいては、フレネ ルゾーンプレート(FZP)を用いた X 線結像光学系における実験高度化に向け た取り組みを進めている。この一環として、FZPを用いた X 線結像型顕微鏡に よって得られるシュリーレン像から位相回復を行うための新手法とその解析プ ログラムの開発を進めている。

シュリーレン像とは、FZP の集光位置にナイフエッジを挿入することによって得 られる位相情報を含んだ像である。このシュリーレン像から位相情報を抽出し、 位相回復像を作成するための手法として、エッジ走査フィルターを用いるもの が存在する[1]。しかし、この手法においてはナイフエッジを+方向から-方向 に走査して得られた画像 *L*と、一方向から+方向に走査して得られた画像 *L*の 2 枚の画像が必要となるため、撮像時間や記録画像数が増加し、コンピュータ トモグラフィー(CT)撮像等への応用に当たってこれらが問題となる場合が存在 する。そこで、我々は対象試料が純粋弱位相物体に近似できる場合に1 枚の 画像から位相情報を抽出できる新手法を考案した。この新手法においては、 負の回折波を全部遮蔽して得られる1 画像から位相情報を抽出できるため、 従来手法で必要であった走査処理が不要となり、CT 撮像等への応用が容易 になることが期待される。また、新手法における解析アルゴリズムを C++言語 で実装した解析プログラムを開発し、PF BL-20B にて撮影したシュリーレン像 を用いて位相情報の抽出が行えることを確認した。本発表ではこれらの詳細 について報告する。

[1] N. Watanabe et al., AIP Conf. Proc. 1365, 313 (2011).

BL19 における cSTXM 専用試料回転ホルダーの開発と 炭素π軌道配向イメージング

Development of an azimuthal-rotation sample holder for carbon π orbital orientation analysis

原野貴幸^{1,2}、武市泰男^{2,3}、大東琢治^{2,4}、信藤大祐⁵、根本英治⁵、 若林大佑^{2,3}、山下翔平^{2,3}、村尾玲子¹、木村正雄^{2,3} 1日本製鉄、2 総研大、3 物構研 PF、4 UVSOR、5 神津精機

ゴム、ポリマーブレンド樹脂、炭素繊維、炭素繊維強化プラスチックな どの炭素材料の力学的特性は、各材料の欠陥と空間分布だけでなく、化学 状態の空間分布も重要な因子のひとつである [1]。走査透過型 X 線顕微 鏡(STXM)は、化学状態の分布を約 50 nm の空間分解能で観察可能な X 線顕微鏡の一つである。ある分子軌道への励起に由来する X 線吸収強 度は、X 線の偏光とその軌道の向きの相対関係により変化する[2]。 STXM と試料回転を組み合わせることにより、入射 X 線の光軸を中心に 複数の角度で試料を回転させて、X 線吸収像を取得することで、約 50 nm 毎の X 線吸収強度の変化から、その位置における分子軌道配向の平均配 向角度を算出し、その 2 次元分布を得ることができる。本研究では、KEK-PF BL-19A に常設されている cSTXM [3]のために開発したサンプル回転 ホルダー(Fig. 1)の性能を評価するために、直交する 2 偏光の X 線(LH、 LV)を用いて天然球状黒鉛の炭素二重結合(C=C)に由来するπ軌道の 空間分布を評価した結果について報告する[4]。

[1] B. Watts *et al.*, 2011, Adv. Funct. Mater., 21, 1122.

[2] T. Ohigashi *et al.*, 2016, AIP Conf. Ser., 1741, 050002.

[3] Y. Takeichi et al., 2016, Rev. Sci. Instrum., 87, 013704.

[4] T. Harano et al., 2020, J.Synchrot. Radiat., 27, 1167.



Figure 1 (a) Overview of the developed sample rotation holder for cSTXM. (b) A picture of he developed sample rotation holder used in cSTXM.

MLF-BL22

パルス中性子を用いた水/氷識別イメージング Using pulsed neutron imaging for differentiation of ice and liquid water

樋口雄紀¹、瀬戸山大吾¹、伊勢川和久²、土川雄介²、松本吉弘³ Joseph Don Parker³、篠原武尚²、長井康貴¹ 1 豊田中研、2 JAEA、3 CROSS

車載用燃料電池の氷点下始動性向上のために、内部における水の凍結挙 動の解明が求められている。燃料電池セルの流路における凍結挙動の解析 には、約10 meV 以下のエネルギーの中性子の断面積が水と氷とで異なるこ とを利用した水/氷識別イメージングが有力なツールである[1]。フルサイズの 車載用燃料電池セルの測定には、おおよそ A4 サイズの視野で高い分解能 が必要であり、そのために大面積・大強度のエネルギー分解された中性子ビ ームを利用する必要がある。

そこで、J-PARC MLF の大強度パルス中性子源を用いて BL22 において 30cm 角の視野で水の相識別イメージングを行った[2]。水を充填したキャピラ リーなどを並べた模擬試料を室温~-30℃の範囲で温度変化させた。昇温 時(氷の融解過程)における水/氷識別イメージング結果を図 1 に示す。水の体 積変化と図中に色相で示す相の変化が対応しており、フルサイズの車載用燃 料電池セルの流路をカバーする大きな視野で氷の融解過程における相変化 を可視化できた。



図1 融解過程の水/氷識別イメージング結果

(a) 透過像 (b-d)相識別像 氷と識別したピクセルを青、水と識別したピクセルを赤で 表示している

 M. Siegwart et al., "Spatially Resolved Analysis of Freezing during Isothermal PEFC Cold Starts with Time-of-Flight Neutron Imaging", Journal of The Electrochemical Society, Vol. 167 (2020), 064510.
Y. Higuchi et al., "Pulsed neutron imaging for differentiation of ice and liquid water towards fuel cell vehicle applications", Phys. Chem. Chem. Phys., vol.23, (2021), 1062 – 1071, DOI:10.1039/D0CP03887C.

PF BL-20B, AR-NE1A

2 つの FZP を用いた結像型 X 線ズーミング顕微鏡の開発 X-ray zooming microscope with two FZPs

若林大佑、鈴木芳生、平野馨一、杉山弘、西村龍太郎、柴崎裕樹、 五十嵐教之、船守展正

高エネルギー加速器研究機構物質構造科学研究所放射光実験施設

フレネルゾーンプレート(FZP)を用いた X 線顕微鏡は、FZP を集光素子とし て用いる顕微鏡と結像素子として用いる顕微鏡の二つに大別される。前者は 走査型、後者は結像型顕微鏡に相当し、それぞれの特長を活かした測定が 広く行われている。特に、平行照明の結像型顕微鏡には、集光点にナイフエッ ジや位相板を挿入することで、容易にマルチコントラスト像を得られるというメ リットがある[1]。しかし、結像型では、エネルギーと FZP、検出器の位置関係 によって一意に倍率が決定されるため、連続的な倍率の変更は容易ではない。 そこで、フォトンファクトリー(PF)では、レンズ(FZP)を複数枚用いた X 線ズー ミング顕微鏡の開発を進めている。

結像型顕微鏡において FZP を 2 枚用いると、試料と検出器の位置を固定し たまま、FZP の位置を変えることで連続的に倍率を変更することができる。 Applied Nanotools 社製の 2 枚の FZP と浜松ホトニクス社製の X 線 sCMOS カ メラを用いて、PF の BL-20B にて試験測定を行った。1 枚目の FZP を凸レン ズ、2 枚目の FZP を凹レンズとして用いることで、6 keV において 20-100 倍の 倍率変更が可能なことを確認した。さらに、エネルギー領域と到達可能倍率の 拡大を目指して AR-NE1A の試験利用を行ったところ、10keV においても 30-300 倍の範囲で観察可能であることが確認できた。現在、さらにシグナルを稼 ぐために、集光ビームを用いたイメージング試験を行うことを計画している。発 表では、光学系の詳細とこれまでの試験測定の結果を紹介する。

[1] N. Watanabe et al., AIP Conf. Proc. 1696, 020044 (2016).

MLF-BL22

高温高圧超臨界水の中性子イメージング観察 Neutron imaging of supercritical water at high temperature-pressure condition

阿部淳¹、松本吉弘¹、宮崎司¹、野間敬¹ 1 CROSS

水は 374 ℃、22.1 MPa 以上の高温高圧になると超臨界状態となる。超臨 界水は非常に高い反応性を持ち、近年、廃棄物の分解処理など多岐の反応 に利用されている。しかしながら、高温高圧下での反応実験では金属製の耐 圧容器が用いられることから、内部観察が困難であり、その反応機構につい ては不明な点が多い。そこで本研究では、中性子イメージング用高温高圧反 応容器を製作し、反応容器内の軽水の可視化を行うこととした。

高温高圧反応容器の主な仕様は、設計温度・圧力が 500°C、50MPa であり、 反応管は、材質に SUS316 を用い、内径 4.8mm、外径 14.1mm、管内の高さ 205mm、内容積は 3.7ml である。バッチ式の反応容器であり、圧力は反応容器 内に封入する試料の充填率と温度で決まる。中性子イメージング実験は MLF BL22「螺鈿(RADEN)」にて行った。反応管に軽水を封入し、高温高圧下にて 中性子透過像を撮影した。静止画および動画を撮影し、画角は 100mm 角、空 間分解能は 150 µm、時間分解能は 0.1~0.05 sec.に設定した。

図1に高温高圧下で撮影した中性子透過像を示す。輝度の高いところが反応管の金属部分であり、中心の輝度の低いところが軽水部分に対応する。温度圧力条件による軽水の密度変化に対応して、輝度も変化する様子が観察された。また、撮影された動画からは、反応管内部で高温高圧の軽水が対流する様子が観測された。

今後は、油水の反応やプラスチックの分解反応などをその場観察し、反応 メカニズムの詳細を明らかにする予定である。



図1. 高温高圧反応容器 の中性子透過像. (a)常温常圧、 (b)200°C, 1.0 MPa、 (c)440 °C, 44.9 MPa

螺鈿におけるカメラ型及び計数型検出器を用いた エネルギー選択型コンピュータ断層撮影 Energy-Selective Computed Tomography Utilizing Camera- and Event-Type Detectors at RADEN

Joseph D. Parker¹、松本 吉弘¹、蘇 玉華²、篠原 武尚²、甲斐 哲也² 1 CROSS、2 JAEA

Located at the MLF, BL22/RADEN [1] is the world's first dedicated pulsedneutron imaging instrument, where we perform both conventional neutron radiography and tomography using CCD/CMOS camera systems, as well as energy-resolved neutron imaging using advanced, event-type neutron imaging detectors. Conventional radiography/tomography are used extensively for non-destructive investigations of materials, but quantitativity is limited. Energy-resolved techniques add an additional layer of information, allowing one to measure the macroscopic distribution of microscopic quantities, such as crystallographic structure, isotopic density and temperature, and magnetic structure, by analyzing the energy-dependent neutron transmission point-bypoint over a sample. We are currently exploring the combination of conventional and energy-resolved imaging techniques to provide improved quantitativity and flexibility for radiography/tomography measurements at RADEN.

In the current presentation, we describe an example of a guided energyselective computed tomography measurement of pre-stressed magnesium blocks. Under compression, magnesium undergoes a type of deformation known as twinning, effecting the strain-hardening behavior and material performance. Using an energy-resolved technique (e.g., Bragg-edge imaging [2]), we identified an energy range which provided good contrast between the twinned and un-twinned regions of the samples. We then performed an energyselective tomography measurement with CCD camera, using a disk-chopper to select the previously identified energy range, allowing us to visualize the twinning distribution in three dimensions. We will present the methodology and results for the above measurement, along with a discussion of other such possible combined techniques.

This work was carried out under CROSS Development Prop. No. 2020C0006.

References

- [1] T. Shinohara et al., Rev. Sci. Inst. **91**, 043302 (2020).
- [2] H. Sato et al., J. Phys.: Conf. Series 251, 012070 (2010).

X線マルチモーダル・ズーミング光学系の開発 Development of multi-modal x-ray zooming optics

平野馨一、杉山弘、若林大佑、西村龍太郎、鈴木芳生

五十嵐教之、船守展正

KEK-IMSS-PF

放射光実験施設・基盤技術部門では、現在、X 線光学チームが中心となっ て、観察倍率を連続的に変えることのできる X 線ズーミング光学系の開発に 取り組んでいる。放射光によるX線イメージングでは、これまで固定倍率の光 学系が主に利用されてきたため、試料内の関心領域を最適倍率で観察する のが容易ではないという問題があったが、X 線ズーミング光学系によりこの問 題の解決を図ることを目指している。

ズーミング光学系を実現するには様々な方法が考えられるが、数ミリ角~ 数センチ角程度の視野を確保できる手法として、結晶によるX線の非対称反 射を利用する方法がある [1]。この方式では、結晶の方位角を制御することに より、倍率を 1/100 から 100 倍程度の範囲で連続的に変えることができる。ま た、この方式では、様々な特徴を持つX線検出器の利用が可能であり、例え ば Pilatus のような二次元検出器と組み合わせれば、高感度・広ダイナミックレ ンジのイメージングが可能になる [2]。さらに、この方式はアナライザー結晶を 利用したマルチモーダルイメージング [3]との相性が良いため、試料の吸収 像だけでなく、屈折像、位相像、USAXS 像も比較的容易に取得できる。そこで 今回、Photon Factory のビームライン BL-14B でマルチコントラストの CT 像の 取得を試みたので、その結果について報告する。

- [1] K. Hirano *et al.*: J. Synchrotron Rad. **22** (2015) 956–960.
- [2] K. Hirano et al.: AIP Conf. Proc. 1741 (2016) 040020.
- [3] E. Pagot et al.: Appl. Phys. Lett. 82 (2003) 3421.