

[課題番号] H28-02

## J-PARC 物質・生命科学実験施設(MLF)を用いた文化財試料等を対象とする 連携研究

### Collaborative Research on Cultural Heritage Samples by Using MLF at J-PARC

鬼柳善明<sup>#A)</sup>, 田中眞奈子<sup>B)</sup>, 瓜谷章<sup>A)</sup>, 渡辺賢一<sup>A)</sup>, 及川健一<sup>C)</sup>, 篠原武尚<sup>C)</sup>, 二川正敏<sup>C)</sup>, 佐藤博隆<sup>D)</sup>  
Yoshiaki Kiyanagi<sup>#A)</sup>, Manako Tanaka<sup>B)</sup>, Akira Uritani<sup>A)</sup>, Kenichi Watanabe<sup>A)</sup>, Kenichi Oikawa<sup>C)</sup>,  
Takenao Shionohara<sup>C)</sup>, Masatoshi Futakara<sup>C)</sup>, Hiroataka Sato<sup>D)</sup>,

<sup>A)</sup> Graduate School of Engineering, Nagoya University

<sup>B)</sup> Showa Women's University

<sup>C)</sup> J-PARC Center, JAEA

<sup>D)</sup> Graduate School of Engineering, Hokkaido University

#### Abstract

Japanese swords can be effectively studied by neutrons since neutron has high penetration power at an energy range where diffraction occur. Therefore, neutron can give crystallographic information as well as transmission image. We have applied a pulsed neutron imaging method and a diffraction method to the Japanese swords. Here, we present results on parts of samples at various fabrication stages, different Tsukurikomi swords as well as difference between neutron and X-ray transmission image, and assessment of possibility of gas analysis in a Fukure by muon.

**Keyword:** Japanese swords, pulsed neutron imaging, diffraction, crystallographic information, neutron and X-ray image, Fukure

#### 1. はじめに

日本刀は日本独特の技術を用いて製作されているが、その製法は口伝によって継承されることが多く、未だにはっきりしないところが残っている。製法や材料などについて調べるためには、金属学的な研究が必要である。しかし、金属学的な研究はこれまで破壊的分析が主であり、俵国一氏<sup>[1]</sup>や北田正弘氏<sup>[2]</sup>などの国内の研究者を中心に極僅かな事例しか報告されていない。製作地や製作年代に焦点をあてた体系的な研究を行うためには、刀剣を傷めることなく測定できる手法の開発が必要であった。

中性子は金属に対する透過力が大きいいため、日本刀研究に向いている。しかし、通常の中性子ラジオグラフィでは、透過強度による濃淡情報だけであり金属学的情報は得られない<sup>[3]</sup>。パルス中性子を用いた分光学的な中性子イメージング法が、このような研究に使用されるようになり、中性子の透過方向の平均ではあるが、結晶組織構造に関する情報が 2 次元空間情報として得られるようになった<sup>[4,5]</sup>。この手法を用いた日本刀の研究を初めて実施し、日本刀は産地・時代によって、さらには部位によって結晶

組織構造に変化があることが示唆された<sup>[6,7]</sup>。また、海外においても中性子回折などを用いた金属学的日本刀研究が行われている<sup>[8]</sup>。

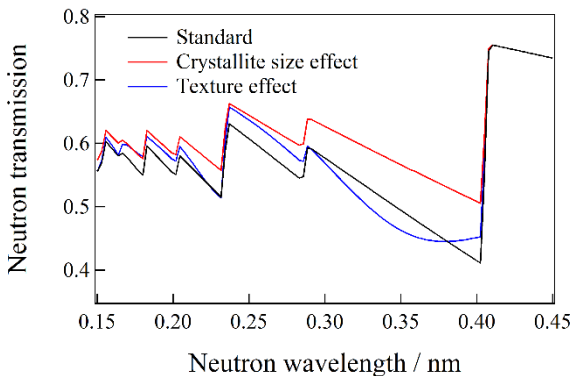
産地・時代また製作者などによる日本刀の金属学的特徴は、その製法に関する有用な情報をもたらすと考えられるが、これらの研究を系統的に実施するには非破壊の測定が必須である。このような背景を踏まえ、本研究では、日本刀の金属学的研究を系統的に実施するために、パルス中性子イメージング法と回折法を主たる解析手段とした、研究手法の開発とその応用研究を進めることを目的としている。

本報告では、製作段階の試料の測定例の一つとして火造りから焼入れと進んだ時の格子面間隔の変化、一種類の鉄の無垢つくりと複数の鉄を使用している本三枚の結晶組織構造の相違の有無の検討、これに関連して X 線と中性子に透過像の違い、「ふくれ」の中のガスのミュオンによる分析の可能性の検討について述べる。

#### 2. 日本刀の測定方法と試料

[課題番号] **H28-02**

2.1 製作段階試料の測定



製作段階試料についてはパルス中性子イメージング法を用いた。ここでは簡単に分光型イメージングであるパルス中性子イメージングについて説明する[4,9]。熱中性子以下のエネルギーでは、中性子透過断面積は結晶構造、結晶配向、結晶子サイズなどを反映して波長依存性を示す。鉄の透過率の波長依存の計算例を図 1 に示す[6,9]。透過率スペクトルに現れるエッジの所の波長は格子面 (hkl) の間隔に対応している。透過率は原子数密度に依存する。結晶配向がランダムで結晶子が十分に小さい多結晶体の場合は、図中黒線のブラッグエッジが得られる。また、結晶子サイズが大きくなると、赤線のように見かけ上透過率が大きくなる。さらに、結晶配向（集合組織）が発達すると青線のようにエッジ形状に変化が現れる。これらの変化を RITS コード[10]を用いて解析することによってこれらの情報を定量的に求めることができる。この方法を用いて製作段階の日本刀の測定を行った。

Figure 1. Bragg-edge transmission spectra of 5 mm thick  $\alpha$  Fe (bcc) obtained by simulation.<sup>(9)</sup>

次に試料について述べる。日本刀は、玉鋼の選別から始まって、積み沸かし、下鍛え、上鍛え、素延べ、火造り、焼入れ、荒研ぎ、赤かまし、鍛冶研ぎなどの段階を経て、刀匠による作業が終了する。現代刀匠が製作した各段階の試料についてパルス中性子イメージング実験を実施した。製作段階での結晶組織構造の変化は、その段階における鍛錬・処理の仕方と密接に関連するため、パルス中性子透過法で得られる結果と鍛錬・処理の仕方を関連づけるのに有用と考えられる。

パルス中性子イメージング実験は J-PARC 物質・生命科学実験施設 (MLF) において行った。用いた検出器は GEM 型検出器で、検出面積は 100mm である。ピクセルサイズは 0.8mm である。各ピクセル毎の透過中性子スペクトルに対して、ブラッグエッジ解析プログラム RITS を使用して結晶子サイズや格子面間隔を求め、その空間依存性を調べた。ここでは、製作段階の一部である火造りと'焼入れ材'試料について透過面全体について解析した格子面間隔の結果について述べる。

2.2 無垢鍛えと本三枚造りの日本刀の測定

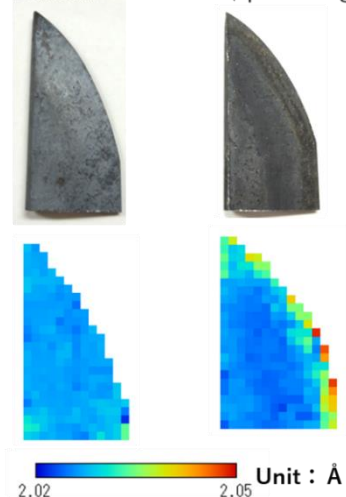
無垢鍛えと本三枚つくりの刀の結晶組織構造に変化があるかについて調べるために、パルス中性子イメージング法と回折法<sup>(9)</sup>を用いた測定を行った。回折法の検出器システムは、直径 1/2 inch、有効長 600 mm の抵抗分割型 He-3 ガス中性子検出器 (1D-PSD) 16 本で構成される。1D-PSD 8 本で 1 ユニットの形成し、各ユニットの中心が背面反射における回折角  $2\theta = \pm 170^\circ$  になるように配置している。試料～検出器ユニット中心の距離は、700 mm である。また散乱パスには、酸化ガドリニウムをコートしたやや粗いラジアルコリメータを形成し、ビームパス方向の空気散乱や試料近傍の構造物による散乱を抑制している。データ収集系は、MLF 標準の PSD 計測システムに準拠しており、イベントデータ方式で生データが蓄積される。生データのヒストグラム化は MLF 標準の万葉ライブラリを用いる空蟬により行われる。ヒストグラム化されたデータは、J-PARC で開発された Rietveld 解析プログラム Z-Rietveld[11, 12]等を用いた。切断試料の断面を領域に分けて測定を行った。また、この試料については X 線と中性子の透過画像の比較も行った。

3. 日本刀の測定結果と考察

3.1 製作段階試料

製作段階の試料は、積み沸かしから鍛冶研ぎまでの 10 ステップのものについて測定を行った。結晶面間隔およびその広がり、結晶子サイズ、結晶配向の空間分布を求めた。積み沸かしから段階が進むにしたがって、鉄が均一になっていく傾向が示された。また、鍛えが進むにつれて、結晶組織構造が変化していくのも観測された。図 2 は切っ先部分の火造り段階と焼入れ段階の試料の(110)面の結晶面間隔の分布を示す。火造りではほぼ均一な面間隔となっているが、焼入れ後のものは刃先の面間隔が大きくなっているのが分る。また、Bragg エッジの広がり求めたところ、このエリアでは結晶面間隔に分布があるという結果もえられており、マルテンサイトの特徴を示している。これは、焼入れ部に特徴的なもので、刃先部分に焼入れがきちんと入っていることを示している。

Hizukuri Yakiire (quening)



[課題番号] **H28-02**

Figure 2. Change of lattice plane distribution from Hizukuri to Yakiire. In the Yakiire large lattice plane occurred around edge region.

### 3.2 無垢鍛えと本三枚日本刀の結果

無垢鍛えの刀と本三枚の造り込みで作っている刀で結晶組織構造に差があるかどうかを調べてみた。無垢鍛え 2 本と本三枚 1 本の刀を 3 分割にしたものの測定を行った。図 3 に 3 本の刀の写真を示す。それらについて X 線透過撮影も実施した。その 1 例を図 4 (a) に示す。また、同じ刀の中性子イメージを図 4 (b) に示す。しかし、X 線撮影では、見えなかった波紋の形（焼入れの形）が中性子の波動性によるものと考えられる。しかし、3 本の透過画像に

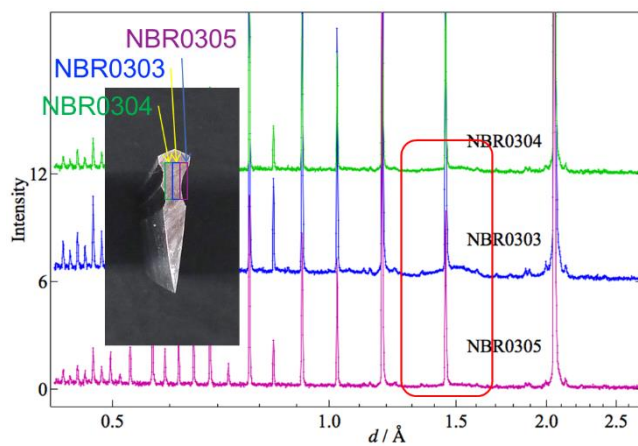


は差が無かった。また、パルス中性子透過法によって、結晶面間隔などを求めたが、それらの分布にも差が見られなかった。さらに詳細なデータを得るために位置依存の中性子回折測定を行った。無垢鍛えの刀では、場所による差は見られなかった。図 5 に本三枚の刀の結果を示す。図中に測定領域を示しているが、この結果では、3 か所の解析データの 1.47Å あたりのピーク近傍のバックグラウンドに僅かな差が見られる。しかし、それが有意なものかどうかについては更なる検討が必要である。

Figure 3. Different Tsukurikomi Japanese swords. The upper and middle are Mukutsukuri, and lower Honsanmai.

Figure 4. X-ray transmission image (a) and neutron transmission image (b).

Figure 5. Neutron diffraction patterns of the Honsanmai sword at the cutting plane.



## 4. ミュオンによるふくれ内のガス分析の可能性の検討

日本刀製作中にできるふくれは、鉄中にガスが溜まったものと考えられる。このガスの成分によってどの段階でふくれの原因が生じたかの情報が得られる可能性がある。ミュオンを用いてガス分析を行うことができれば、非破壊で測定ができることになり、非常に有用である。そこで、その可能性について検討を行った。

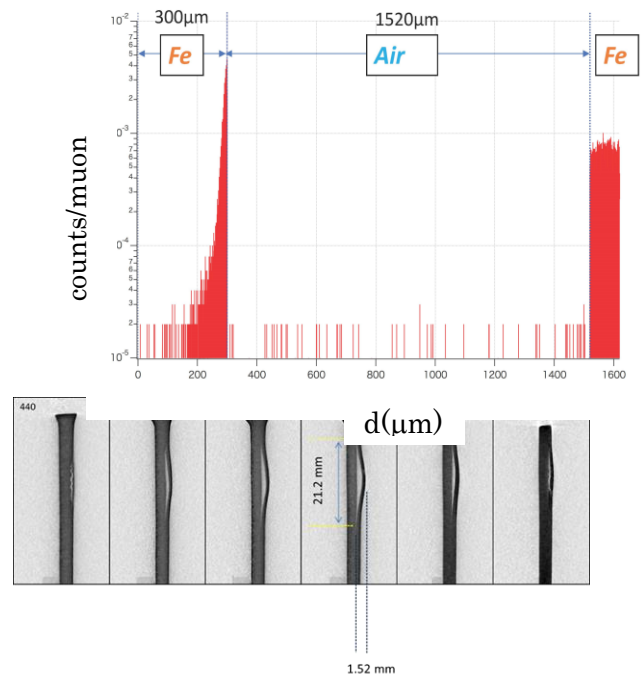
ガス層までミュオンが到達するまでに通過する鉄層で発生するバックグラウンドによってガスからのシグナルが隠されてしまう恐れがあるため、その影響について調べた。図 6 は中性子 CT によって得られた透過画像の一部である。空隙周囲の鉄の厚さが、これによって明らかとなった。これを元に鉄の厚さ 300 $\mu\text{m}$ 、空気層、1520 $\mu\text{m}$  と概算しミュオンビームは 30.6MeV/c とし計算した。図 7 に厚さ方向のフォトン強度の変化を示す。最初の鉄の所で非常に強度が強くなっており、ガス層の強度は極めて小さくなっている。殆どのミュオンは鉄で止まってしまい、空気層に止まるミュオンは 1.3%程である。Stopping Rate が 1%強の空気の定量は、シミュレーション上でも窒素の Ka ピークがバックグラウンドに埋もれてほとんど検出できないため、実験で時間をかけてもピークの検出は難しいという結論になった。現状では、ミュオンでのガス分析は断念せざるを得ない。

Figure 6. CT images of the Fukure part. The numbers in the figures are order of the CT corresponding the length orientation.

Figure 7. Photon intensity distribution along the muon beam.

## 5. まとめ

パルス中性子イメージングによって、日本刀の製作段階の結晶組織構造を解析した結果、このような情報は日本刀の作成時の鍛錬や処理の仕方を反映していることが示唆された。造り込みの違いによる差



[課題番号] **H28-02**

については、結晶組織構造には殆ど差が見られなかった。一方、中性子回折データでは、無垢鍛えでは場所による差が無かったが、本三枚では差があるように見えた。今後の詳細な解析が必要である。一方、中性子透過画像には、波紋（焼入れ部）の領域が明瞭に見えているが、X 線の透過画像には、それは見えなかった。X 線は空間分解能が高いため、析出物などの情報をえることができるので、両者をうまく使うことによって、より詳細な解析ができるようになると思われる。造り込みの違いは、少なくとも狭い領域の回折のような詳細な測定が必要である。ミュオンによるガス分析は、バックグラウンドの方が強く不可能であることが分った。

新しい日本刀の測定も進めており、今後も実験・解析を進めていく予定である。

### 謝辞

本研究の一部は日本鉄鋼協会第 24 回鉄鋼研究振興助成、科学研究費補助金 No.23226018 ならびに同 No.26702004 によるものである。ミュオンのシミュレーション計算は、KEK の三宅康博教授のグループによって行われたものです。ここに感謝の意を表します。

- 米田憲司、岡本賢一、KURRI-TR-252 (1983) 39-43.
- [4] 鬼柳善明、加美山隆、日本中性子科学会誌「波紋」、Vol.21, No.3, pp.174-179, (2011)
- [5] Y. Kiyanagi, H. Sato, T. Kamiyama and T. Shinohara, J. Physics, Conference Series 340, 012010 (2012).
- [6] 鬼柳善明、塩田佳徳、中性子科学会誌「波紋」、Vol.25, No.1, pp.3-7 (2015)
- [7] Yoshinori Shiota, Hiroyuki Hasemi, Yoshiaki Kiyanagi, Physics Procedia 88 (2017) 128 – 133.
- [8] F. Salvemini, F. Grazzi, S. Peetermans, F. Civita, R. Franci, S. Hartmann, E. Lehmann, M. Zoppi, J. Analytical Atomic Spectrometry, 27 (2012) 1494-1501.
- [9] 鬼柳善明他、平成 29 年度原子力機構施設利用共同研究連携重点研究成果報告書
- [10] H. Sato, T. Kamiyama and Y. Kiyanagi, Mater. Trans. 52, 1294-1302 (2011).
- [11] R. Oishi, M. Yonemura, Y. Nishimaki, S. Torii, A. Hoshikawa, T. Ishigaki, T. Morishima, K. Mori, T. Kamiyama, Nucl. Instr. Meth. A 600 94-97 (2009).
- [12] Oishi-Tomiyasu, R., M. Yonemura, T. Morishima, A. Hoshikawa, S. Torii, T. Ishigaki, T. Kamiyama, J. Appl. Cryst. 45 299-308 (2012).

### 参考文献

- [1] 俵國一、日本刀の科学的研究、日立評論社 (1953).
- [2] 北田正弘、室町期日本刀の微細構造:日本刀の材料科学的研究、内田老鶴圃 (2008).
- [3] 増澤文武、平岡栄一、古田純一郎、桂山幸典、辻本忠、