[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 #,A), 渡辺賢一 A), 瓜谷章 A), 及川健一 B)、篠原武尚 B), S. Harjo B), 甲斐哲也 B), 二川正敏 B), 佐藤博隆 C), 大沼正人 C), 松本吉弘 D), Pham Hoang Anh E), 森戸茂一 E), 大庭卓也 E), 伊藤正和 F)

Yoshiaki Kiyanagi#,A), Kenichi Watanabe A), Akira Uritani A), Kenichi Oikawa B), Takenao Shionohara B), S. Harjo B), Masatoshi Futakara B), Hirotaka Sato C), Masato Ohnuma C), Yoshihiro Matsumoto D), Pham Hoang Anh E), Shigekazu Morito E), Takuya Ohba E), Masakazu Ito F)

A) Graduate School of Engineering, Nagoya University
B) J-PARC Center, JAEA
C) Graduate School of Engineering, Hokkaido University
D) Comprehensive Research Organization for Science and Society
E) Faculty of Science and Engineering, Shimane University
F) Office for Regional Collaboration and Innovation, Shimane University

Abstract
Four kinds of Japanese swords were studied by a neutron transmission method. Three of them were produced in 14th and 15th century in Muromach era, and one is in 20th century, a modern sword. We performed Bragg edge transmission measurements and tomography measurements. The Bragg edge imaging gave crystallographic information, namely, distributions of crystallite size, preferred orientation, lattice plane distance and its broadening. From these data we could observed some differences among the swords. Especially, Quenched area decided by the lattice broadening was larger in a modern sword than old swords. Among the old swords some differences in the crystallite size and the preferred orientation were observed. We found some precipitates in the modern sword in the tomographic image.

Keyword: Japanese swords, pulsed neutron imaging, Muromachi era, crystallographic information

1. はじめに

日本刀の製法は、地域や時代、さらには刀匠によって違っていることが考えられるが、その製法については口伝によることが多く、未だに分からないことが残っている。日本刀の系統的な測定を進めるためには、非破壊測定が必要であり、我々は中性子透過法を用いて、日本刀の金属学的な研究を行っている。特に、ブラッグエッジ透過法は、比較的広い 2 次元空間で、一度に結晶子サイズ、焼入れなどの結晶組織情報を得ることができる [1,2]。本研究では、系統的測定の第一歩として、南北朝、室町期の日本刀 3 振り（備前と和泉）と現代刀 1 振りについて、中性子透過測定実験を行い、どのような違いがあるかについて調べた。

2. 測定法

2.1 測定日本刀

測定した日本刀は、盛景 (104cm,)、則綱(97cm)、資正(79cm)、正光 (94cm)である。ここでカッコ内は刀の全長である。盛景(1356~1361 年)は室町（南北朝）の時代、則綱(1405 年)、資正 (1504-1526 年)は室町期に当たる。正光は 1964 年福岡での製作である。盛景、則綱は備前で、また、資正は和泉で製作されている。盛影、則綱、資正、正光については、ブラッグエッジ透過実験を、刀の切先・中央部・茎の 3 箇所について行った。ここでは、解析が終了した盛景以外の結果について報告する。また、盛景、資正、正光についてはトモグラフィー測定を行った。

2.2 実験

パルス中性子の飛行時間（TOF）分析による波長分解型中性子イメージング実験は、大強度陽子加速器施設「J-PARC」の物質・生命科学実験施設「MLF」の中性子ビームライン 22 番（BL22）エネルギー分析型中性子イメージング装置「螺鈿（RADEN）」[3] において行った。実験時、3 GeV 陽子シンクロトロンの出力は 150 kW であった。日本刀試料ならびに検出器は中性子源から 24 m の位置に設置した。中性子源から 8 m の位置にあるロータリー型のピンホールコリメーターは直径 15 mm のものを選び、1 mrad 程度のビーム発散角となっている。波長 0.4 nm

#kiyanagi@phi.phys.nagoya-u.ac.jp

における波長分解能は 0.2%程度となっている。使用した TOF 分析型中性子イメージング検出器は、画素サイズ 800 μm、視野 10.24 cm×10.24 cm の nGEM 検出器 [4]である。

3. 則綱のブラッグエッジ透過測定結果

測定された中性子透過率の TOF スペクトルには回折現象に起因する「ブラッグエッジ」と呼ばれる特徴的なパターンが観測される。「則綱」のスペクトルは α-Fe（フェライト鋼）のパターンを示したが、マルテンサイト相（高いミクロひずみを持つ微細組織）の存在によりブラッグエッジが緩やかになったり、集合組織（結晶方位分布が異方的な組織）の存在によりスペクトル形状が変化したり、結晶粒・結晶子のサイズによりスペクトル強度が変化したりする。これを定量的に評価（結晶組織構造情報を解析）するために、ブラッグエッジ解析コード「RITS」[5,6]を測定された中性子透過率スペクトルに適用した。

図 1 に、刀の棟と刃の間のボディ部(a)と刃部(b)の{110}ブラッグエッジスペクトルとフィッティング解析結果を示す。刃においてブラッグエッジが緩やかになっている（ブラッグエッジがブロードニングを起こしている）ことがわかる。これはマルテンサイト相の存在を表しており [4]、測定されたブラッグエッジブロードニングから装置分解能の寄与を除く解析を RITS により行うことで、結晶格子面間隔の分布の半値全幅（FWHM）を定量的に評価することができる。そのような解析により得たイメージング結果が図 2 である。これは切先部付近のみについて結果を示したものである。黄色の矢印で示した赤い色の領域が結晶格子面間隔分布の FWHM が大きな領域（マルテンサイト相が存在する領域）であり、刃の部分と、切先においてはその棟側にも存在することがわかる。およそ刃紋が存在する領域に一致しており、焼入れによる硬化が施されている領域を表している。FWHM 値は現代の焼き入れ鋼のそれに近いことから [7]、現代の鋼と同程度の硬さであることが推定される。ただし、マルテンサイト相の存在する領域の広さは現代刀に比べると狭いこともわかった。元々狭かったのか、刃先が研がれたことにより領域が減ったのかはわからないが、「則綱」に関する重要な知見の一つであると言える。

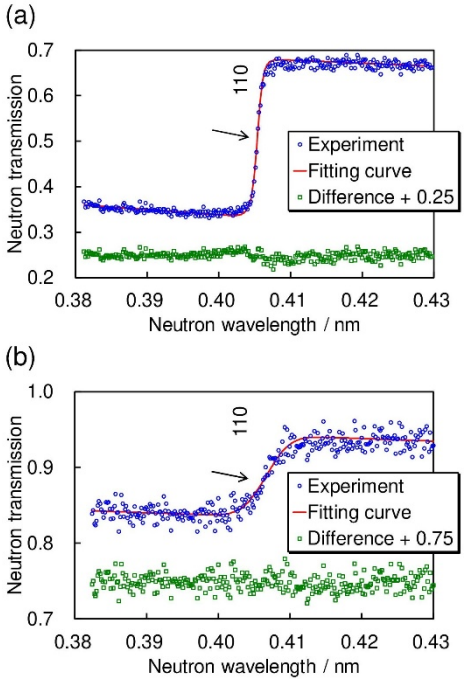

Figure 1. Results of single Bragg-edge fitting analysis at (a) the blade body region and (b) the cutting-edge region[7].

図 3 に「則綱」の茎の棟側の「棟区」において測定された中性子透過率スペクトルを示す。粗大結晶粒（およそ数百 μm）が存在する時に表れるディップが観測された。このタイプのスペクトルが観測されたのは「則綱」の「棟区」領域のみであり、「則綱」の特徴であると考えられる。

集合組織については、刀全体として集合組織はそれほど発達していないものの、刃の板面と平行な方向に<210>方位が選択配向していることがわかった。ただし、茎の一部に選択配向ベクトルが逆転している箇所も観測された。

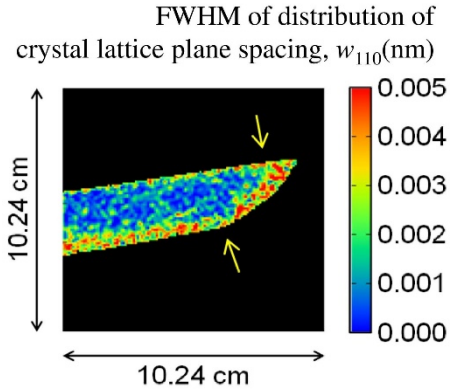

Figure 2. Imaging result of FWHM of the distribution of {110} crystal lattice plane spacing at the dip region[7].

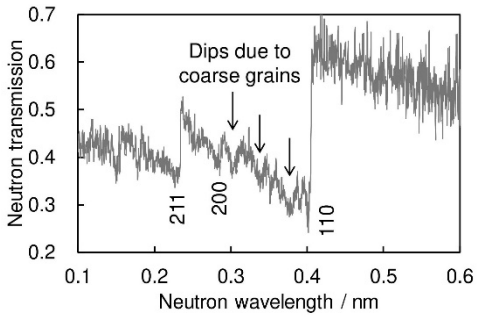

Figure 3. Coarse-grain type transmission spectrum observed near the notch at the back of the tang region[7].

[H28-02]

図 4 に結晶子サイズのイメージング結果を示す。緑色の矢印で示された結晶子サイズの小さな領域と、桃色の矢印で示された結晶子サイズの大きな領域が、明確に分かれて存在していることがわかった。小さな結晶子サイズの鋼は「皮鉄」、大きな結晶子サイズの鋼は「芯鉄」であると推察され、分布の仕方は他の刀とも異なり「則綱」の特徴である。

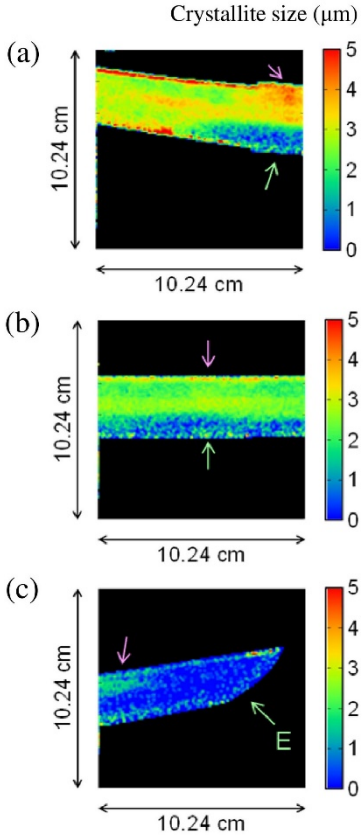

Figure 4. Imaging of crystallite size of (a) the tang region, (b) the middle region and (c) the tip region[7].

4. 資正のブラッグエッジ透過測定結果 [8]

シングルエッジ解析により得られた結晶面 110 の格子面間隔 d_{110}及びその広がり w_{110}を、図 5 及び図 6 に示す。焼入れの様子は、w_{110}の空間分布において、より明瞭に可視化された。これは、得られた d_{110} の値とも併せ考えると、焼入れにより刃先に形成されたマルテンサイトの分布を示しているものと考えられる。図 5(a)及び図 6(a)から、茎部にはほとんど焼入が入っていないことも分かり、刀の製作工程として現代に伝わる様式と良く一致していると考えられる。ただし、昭和時代の現代刀「正光」と比べると、「資正」の d_{110}及び w_{110}は共にやや小さな値を示している。また、フルパターン解析により得られた投影原子数密度、結晶子サイズ、結晶配向の空間分布を、図 7 から図 9 に示す。「資正」には樋（“ひ”又は“とい”）が彫られておらず、原子数密度はほぼそのまま刀の厚みに対応していると考えて良い。「資正」において特徴的な組織構造としては、切先部及び中央部に見られるきめの細かい結晶子サイズの様子（図 8）が挙げられる。この解析結果のみから断定は出来ないが、刀身を形作る工程の「造り込み」において、炭素量の異なる素材を組合せることなくそのまま鍛える「無垢鍛え」により製作されている可能性があると考えられる。茎部において明らかに結晶子サイズの大きな部位が見られるが、これは刀部に比べ製作工程における折り返し鍛練の回数の違い等を反映しているのではないかと考えられる。もしくは、折り返し鍛練の終盤で茎部を鍛接しているか。図 9 に示す結晶配向も図 8 の結晶子サイズと様相がやや似ており、切先部及び中央部において配向はそれ程強くない値を示している。一方で、茎部は比較的配向が強く、しかもその

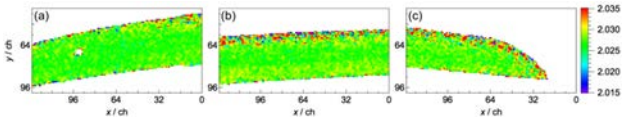

Figure 5. 2D maps of the lattice (110) plane spacing d_{110} (Å) of the Sukemasa[8].

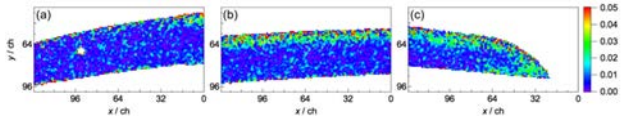

Figure 6. 2D maps of the edge broadening w_{110} (Å) of the Sukemasa[8].

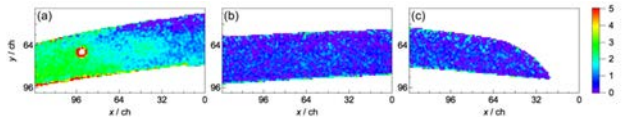

Figure 7. 2D maps of the projected density ρt (10^{22}cm^{-2}) of the Sukemasa. The projected densities for the red area in (a) exceed the maximum scale of the current plots[8].

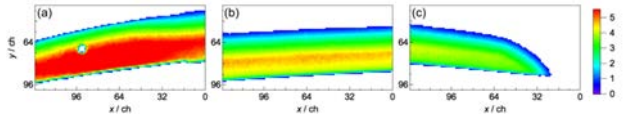

Figure 8. 2D maps of the crystallite size s (μm) of the Sukemasa[8].

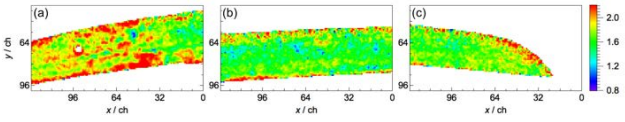

Figure 9. 2D maps of the preferred-orientation parameter r of the Sukemasa. The values of r in the red areas of (a) exceed the maximum scale of the current plots[8].

値が急峻に変化して構造は他に比べやや“粗”であると見做せる。検出器の実空間分解能は 1mm であるが、そのスケールにおける透過率スペクトルには、“粗大粒”由来のいわゆるブラッグディップはいっさい捉えられていない。解析結果と併せ総合的に考えると、「資正」は非常に丁寧に作られていることが窺い知れる。

5. 正光のブラッグエッジ透過測定結果 [9]

析により得られた結晶面 110 の格子面間隔 d_{110}及びその広がり w_{110}を、図 10 及び図 11 に示す。焼入れの様子は、w_{110}の空間分布において、より明瞭に可視化された。これは、得られた d_{110}の値とも併せ考えると、焼入れにより刃先に形成されたマルテンサイトの分布を示しているものと考えられる。それ以外の領域はフェライトを示している。マルテンサイトが形成されている幅は 8 mm 程度となっており、室町、南北朝時代に作られた古刀「資正」、「則綱」より広くなっている。焼き入れの条件がこれら古刀とは異なっていた可能性が示唆される。一方、図 10 の格子面間隔 d_{110}の分布からは刃と棟、あるいはマルテンサイトとフェライト相の間の領域でやや小さい値を取っている傾向が見られる。 また、フルパターン解析により得られた投影原子数密度、結晶子サイズ、結晶配向の空間分布を、図 12 から 14 に示す。図 12 の投影原子数密度は刃側に向けて徐々に小さくなる分布を取っており、そのまま刀の厚みに対応していると考えて良い。図 13 の結晶子サイズの分布は、全体として小さな値を取っている。図 14 では、結晶配向のモデルである March-Dllase 関数のパラメータ r を fitting により決定し、その空間分布を示している。r = 1 が完全なランダム配向を示し、指定した例えば<hkl>方位が中性子入射方向に選択配向していると r は 1 より小さく、中性子入射方向と垂直方向に配向すると r は 1 より大きくなる。図 14 を見ると、切先部では全体としておおよそ r = 1 に近い値を示している一方で、刃と棟、あるいはマルテンサイトとフェライト相の間の領域でやや高い値を取っている傾向が見られる。

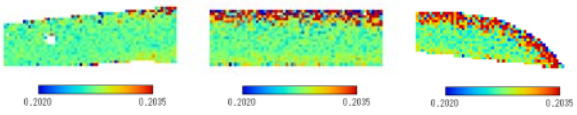

Figure 10. 2D maps of the lattice (110) plane spacing d_{110} (nm) of the Masamitsu[9].

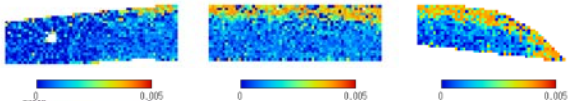

Figure 11. 2D maps of the edge broadening w_{110} (nm) of the Masamitsu[9]

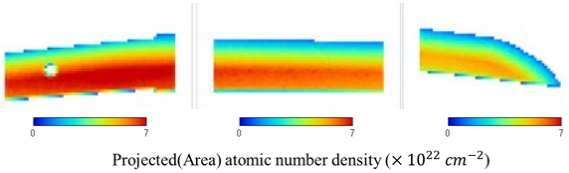

Figure 12. 2D maps of the projected density ρt (10^{22}cm^{-2}) of the Masamitsu[9].

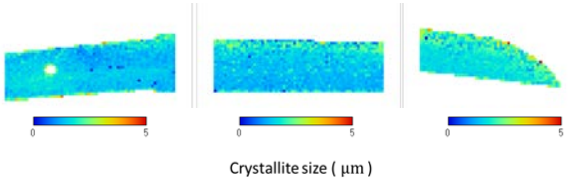

Figure 13. 2D maps of the crystallite size s (μm) of the Masamitsu[9].

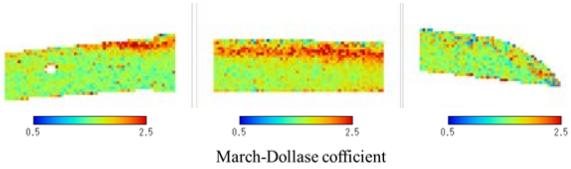

Figure 14. 2D maps of the preferred-orientation parameter r of the Masamitsu[9].

6. 盛景、資正、正光のトモグラフィー測定結果 [10]

測定はカメラ型検出器を用いて行った [3,11]。検出画角を 150 x 150 mm^2、露光時間を 100 秒とし、試料を中性子の入射方向に対して 1 度刻みで 360 度回転させて投影像を取得した。取得した投影像から、フィルタ逆投影法により試料断面の再構成を行った。図 15 に日本刀の長手方向に対して垂直な断面（Transverse plane）と平行な縦断面（Longitudinal plane）を示す。盛景の場合、刃先近傍と内部領域で濃淡の違いが見て取れる。盛景について行ったブラッグエッジイメージング測定から、刃先から約 3 ㎜の範囲に焼入れ硬化によりマルテンサイト鉄が形成されていることが分かっている。従って、断層像に現れた濃淡差はマルテンサイト鉄とフェライト鉄の分布を反映していると考えられる。盛景とは対照的に、資正の断層像には刃先と内部領域の濃淡差が殆ど現れておらず、均質なフェライト鉄分布が優勢であると考えられる。 資正について行ったブラッグエッジイメージング測定では、刃先の極狭い領域を除いた場所の結晶子サイズ分布が均一であることが明らかとなっている。盛景と資正は同じ室町期に作刀された古刀であるが、その製法は大きく異なると推察される。正光の場合、盛景と同様にマルテンサイト鉄が刃先近傍に分布していることが断層像から見て取れるが、その分布範囲が大きく異なる。正光ではマルテンサイト鉄が刃先から 8 mm 以

上内部まで広がっており、刃の表面に現れた波紋形状とよく似ている。刃紋文様を明瞭に出すため、刀の深部まで焼き入れ硬化が施されたことに因ると考えられる。ブラッグエッジイメージグ測定からも同様の傾向が確認されている。さらに、特に縦断面（Longitudinal plane）において、輝度値の高い（明るい）複数の筋状構造も確認できる。この構造は、中性子断面積が大きい成分（例えば、作刀過程で使用される硼砂など）を含む介在物に相当すると考えられる。正光の作刀で使用された製法・原材料や残留物は、古刀のものとは大きく異なると推察される。本研究では、中性子トモグラフィー測定とブラッグエッジイメージング測定のシナジーにより、日本刀の製法や原材料に関する知見を得ることに成功した。

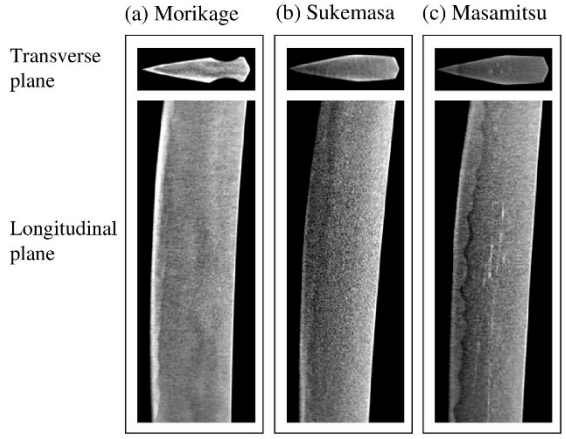

Figure 15.　The computed tomograms around the middle area of the blades of the ancient Japanese swords (a) Morikage and (b) Sukemasa and the modern Japanese sword (c) Masamitsu[10].

7.　まとめ

室町期に作られた古刀三振りと昭和に製作された現代刀一振りについて、中性子ブラッグエッジ透過測定とトモグラフィー測定を行って、その結果を比較検討した。古刀一振りについては、まだ最終解析が終わっていないが、比較した古刀二振りの間でも、それぞれの製作法に起因すると思われる、組織構造の違いが見られた。それが産地（備前と和泉）によるものかは今後の系統的な測定を待たなければならないと考えられる。また、現代刀と古刀の間には、焼入れについて顕著な差が見られた。

今後は、さらに解析と検討を進めるとともに、系統的測定を継続していきたいと考えている。

参考文献

[1] 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）
[2] Yoshinori Shiota, Hiroyuki Hasemi, Yoshiaki Kiyanagi, Physics Procedia 88 (2017) 128 – 133.
[3] T. Shinohara, T. Kai, K. Oikawa, M. Segawa, M. Harada, T. Nakatani, M. Ooi, K. Aizawa, H. Sato, T. Kamiyama, H. Yokota, T. Sera, K. Mochiki and Y. Kiyanagi, J. Phys. Conf. Ser. 746 (2016) 012007.
[4] S. Uno, T. Uchida, M. Sekimoto, T. Murakami, K. Miyama, M. Shoji, E. Nakano, T. Koike, K. Morita, H. Satoh, T. Kamiyama and Y. Kiyanagi, Phys. Procedia 26 (2012) 142-152.
[5] H. Sato, T. Kamiyama and Y. Kiyanagi, Mater. Trans. 52 (2011) 1294-1302.
[6] H. Sato, T. Sato, Y. Shiota, T. Kamiyama, A. S. Tremsin, M. Ohnuma and Y. Kiyanagi, Mater. Trans. 56 (2015) 1147-1152.
[7] H. Sato, Y. Kiyanagi, K. Oikawa, K. Ohmae, A. H. Pham, K. Watanabe, Y. Matsumoto, T. Shinohara, T. Kai, S. Harjo, M. Ohnuma, S. Morito, T. Ohba, A. Uritani and M. Itoh, Mater. Res. Proc. (under review).
[8] K. Oikawa, Y. Kiyanagi, H. Sato, K. Ohmae, A. H. Pham, K. W, Y. Matsumoto, T. Shinohara, T. Kai, S. Harjo, M. Ohnuma, S. Morito, T. Ohba, A. Uritani, M. Ito, Mater. Res. Proc. (under review).
[9] K. Ohmae, Y. Kiyanagi, H. Sato, K. Oikawa, A.H. Pham, K. Watanabe, Y. Matsumoto, T. Shinohara, T. Kai, S. Harjo, M. Ohnuma, S. Morito, T. Ohba, A. Uritani and M. Ito, Mater. Res. Proc. (under review).
[10] Y. Matsumoto, K. Watanabe, K. Ohmae, A. Uritani, Y. Kiyanagi, H. Sato, M. Ohnuma, A.H. Pham, S. Morito, T. Ohba, K. Oikawa, T. Shinohara, T. Kai, S. Harjo, M. Ito, Mater. Res. Proc. (under review).
[11] Y. Matsumoto, M. Segawa, T. Kai, T. Shinohara, T. Nakatani, K. Oikawa, K. Hiroi, Y.H. Su, H. Hayashida, J.D. Parker, S.Y. Zhang and Y. Kiyanagi, Physics Procedia 88 (2017) 162.