

[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)}, 田中眞奈子^{B)}, 瓜谷章^{A)}, 渡辺賢一^{A)}, 佐藤博隆^{C)}, 篠原武尚^{D)}, 及川健一^{D)}, 二川正敏^{D)}
Yoshiaki Kiyanagi^{#A)}, Akira Uritani^{A)}, Kenichi Watanabe^{A)}, Manako Tanaka^{B)}, Hiroataka Sato^{C)}, Takenao
Shionohara^{D)}, Kenichi Oikawa^{D)}, Masatoshi Futakara^{D)}

^{A)} Graduate School of Engineering, Nagoya University

^{B)} Showa Women's University

^{C)} Graduate School of Engineering, Hokkaido University

^{D)} J-PARC Center, JAEA

Abstract

The neutron is most useful particle to study metallographic structure inside metal materials since in the X-ray diffraction it is very difficult to study the inside of thick metals. We have applied a pulsed neutron imaging method for the study of the metal cultural heritages, such as Japanese swords, matchlock guns and so on. Here, we present results on a whole sword, and a part of samples at fabrication stage. Furthermore, a test experiment performed by using auxiliary diffraction equipment.

Keyword: iron artefacts, pulsed neutron imaging, diffraction, Japanese swords

1. はじめに

日本刀を代表例とする鉄製品は、日本独特の技術を用いて製作されている。古刀には、大和、山城、備前、相州、美濃「五箇伝」という五つの代表的流派に大別した鑑定法がある。しかし、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。従来の日本刀の研究は、形式学や文献史的な研究が中心であった。また、金属学的な研究は破壊による分析が必要となるため、これまで俵国一氏^[1]や北田正弘氏^[2]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おらず、製作地や製作年代に焦点をあてた体系的な研究は、極めて難しい状況であった。金属に対する透過力が大きい中性子を用いたラジオグラフィによる研究が行われたが^[3]、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ていない。最近になって、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開発され、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^[4,5]。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^[6]。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^[7]。

産地・時代また製作者などによる日本刀の金属工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、日本刀をはじめとする金属文化財の金属工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。ここでは、日本刀全体について解析した結果と製作段階の試料の一つについての結果について報告する。また、回折法をイメージング法と併用できるように開発した装置の応用例について述べる。

2. 実験

2.1 パルス中性子イメージングの原理^[4]

エネルギーが数 meV から数十 meV 領域（波長が数オングストローム程度の領域）の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形が変化する。その様な物質を中性子が透過すると波長依存の透過率スペクトルが得られる。鉄の透過率の波長依存性の計算例を図 1 に示す^[6]。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。それぞれのエッジの位置は結晶構造によって決まる。透過率全体の増減は原子密度に依存する。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同一結晶子内で二度の回折が起きる確率が高まるので、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^[8]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。

2.2 イメージング実験用試料と測定方法

日本刀は部位によって、鍛え方、処理の仕方が違う。それによる結晶組織構造の変化を見るために、日本刀（備州長船則光）（図 2 参照）のパルス中性

[H28-02]

子透過実験を行った。刃渡り 45.4cm の脇差しである。部位による変化と鍛錬・処理の仕方に関連が見いだせるかどうか調べるためである。また、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。今回、現代の刀匠が製作した各段階の試料の一部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・処理の仕方と関連づけるのに有用と考えられる。製作段階の一つである‘焼入れ材’試料(図3参照)について予備的に解析した結果について議論する。

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 で広い面積の試料を一度に測定できる。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。

2.3 回折実験

J-PARC MLF の出力 150 kW のパルス中性子を用いることで、照射面積を限定した文化財試料に対し、どの程度の測定時間でどの程度の S/N のデータが得られるか、テスト実験を行った。

イメージング実験と相補的に用いる本検出器システムは、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。図 4 に本検出器システムの実験時の配置を示す。写真奥から細くコリメートされた中性子が入射し、水平/垂直のレーザーが交差する試料位置に照射される。

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^{9, 10)}等を用いて解析される。

3. パルス中性子イメージング実験

3.1 結晶配向・結晶子サイズの空間依存性^[11]

日本刀内に含まれる鉄の結晶の配向や子サイズは鉄の製造の仕方と関係すると考えられる。日本刀に限らず、現代の圧延鉄においても、圧延方向に結晶面が揃ってきて、結晶子サイズも大きくなっていく

ことが示されている^[8]。このような結晶組織構造の変化の傾向は日本刀の鍛錬によっても同様に起きることが考えられる。

日本刀全体の結晶子サイズマップを図3に示す。図3の上の図は日本刀の写真であり、測定部位を一緒に示している。中央の図が結晶子サイズである。切先から中央部に至るまでは棟から刃にかけて結晶子サイズは小さくなる傾向がある。刃の付け根、区あたりでは、その傾向が弱まっているように見える。刃部は日本刀鍛錬時に加工を受けて結晶粒は微細化されたものと推測され、同様の理由で結晶子サイズも小さくなっていると考えられる。また、刃部は焼き入れによってマルテンサイト組織になっていて、転位密度が高くなって結晶子サイズが小さくなっている。茎部は大きな加工を与えられていないので、結晶子は比較的大きくなり、元の鉄の性質を残している。

中性子透過方向に対し、結晶面(111)が優先配向していると仮定して、配向係数 (R_{111}) を計算した結果を図4の下図に示す。この測定において、中性子透過方向と日本刀鍛錬時の加工面法線 ND がほぼ等しい状態になるように試料配置したことから、配向係数 R は ND の結晶配向と捉えることが出来る。完全にランダムな結晶配向の場合、この係数値は 1 となり、0 に近づくほど ND に対し強い (111) が配向していることを示す。ND(111)繊維集合組織は α Fe の熱間加工後に見られる集合組織であり、日本刀の鍛錬時も熱間鍛造にあたるので同様の組織発達が見られると考えられる。より強い加工と高い加熱を受けた部位に集合組織の発達が期待される。区から中央部にかけて刀身中心に $R_{111}=1$ に近い等方的な結晶がある。鉄鋼の場合、この様な等方的な結晶組織は加工が少なく、よく焼き鈍しされた状態でしか得られない。刃側は $R_{111}=0.6$ 程度の強い集合組織が比較的均質に見られる。刃側は一番強く加工を受け集合組織の発達も強いと考えていたが、峰側に最も強い ND(111)繊維集合組織が見られた。製作段階で棟部も鍛錬して形を整えられたものと推測される。茎や刀身中心はあまり叩かれず、ほぼ刃部のみを叩いて加工されていると推測される。その加工程度によって結晶配向の程度が変わるので、系統的に調べることで、その刀固有の配向が特徴付けられるかもしれない。鉄の集合組織は加工法、加工量、加熱温度と時間が影響して発達する。日本刀の製造法の差によって集合組織の発達程度が異なると考えられる。

3.2 製造段階試料の予備的解析

日本刀はいくつもの段階を経て製作されることは先に述べた通りである。初期の段階は、均一な鉄を作成するために折り返し鍛錬を行うものであり、できた鉄も空間的に均一なものとなっていると考えられる。その後、刀の形へ整形して行く過程では、場所によって鍛え方が異なり、刀の部位によって鉄の性質が変化することも予想される。今回解析を行った焼入れ材は、刃部を焼入れしたもので、その部分がマルテンサイトになるため、位置による面間隔の

[H28-02]

変化が最も大きくなると期待される。焼入れ材について(110)面の格子面間隔 d の解析を、RITS コードを用いて行った。その結果を図 4 に示す。左側が棟側、右側が刃側である。全体の傾向として、棟側から数 mm 位までは d がほぼ一定で、それから 10mm あたりが底になるような感じで、減少・増加の傾向を見せている。17mm 位からは急激に大きくなっている。刃側で大きくなっているのは焼入れによってマルテンサイト相が形成されているためであり、焼入れがきちんと入っていることが分る。途中で d が減少するのは歪みに依るものかどうか、現在検討中である。

4. 回折実験

4.1 回折データの予備的解析

NIST の標準試料 Si を用いて線源のプロファイルパラメータの導出並びに装置定数を補正した後、ブラッグエッジイメージング実験において検出器位置校正に用いている標準鉄を測定し、その格子定数を求めたところ、左右のユニットでそれぞれ 2.866265(9) Å、2.866310(9) Å となった。同試料を MLF の工学回折装置 TAKUMI で測定した解析結果の 2.8663(2) Å と非常に良い一致を示した。

文化財試料のテスト測定として、図 5 に示す日本刀を用いて、ビーム照射面積を直径約 4 mm に絞った条件で回折実験を行った（図 5 の赤丸印が直径約 4 mm の照射エリアを示す）。測定時間は一箇所につき 30 分強（50000 ショット）である。

得られた回折パターンを図 6 に示す。刃側→棟側の順に NBR0307→NBR0310 である。刃はほぼ単相のマルテンサイト相になっているのが分かる。一方、棟は回折ピークの鋭さからマルテンサイト相は認められず、フェライトとセメンタイト（パーライト）の二相状態であると考えられる。

これら 150 kW のビーム出力でのテスト測定により、試料位置で直径約 4 mm のビーム照射で、厚さ数 mm の刀の測定には、本検出器システムの測定時間はおよそ 30 分で S/N の良いデータが取れる見込みを得た。

5. まとめ

パルス中性子イメージングによって得られる結晶組織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。これらの関連をより確かなものにするためには、日本刀全体の解析をさらに進めて行くとともに製作段階における特徴を十分に明らかにし、相互の関連を十分に検討する必要がある。また、中性子回折はポイント的により詳細な情報を与えることができるため、併用することは、今後の日本刀の研究に有用であることが示された。

謝辞

備前長船則光の日本刀は名古屋大学の広田克也氏に提供して頂いた。貴重な日本刀をご提供頂き心より謝意を表したい。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。

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、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. Kiyonagi, 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] F. Salvemini, F. Grazzi, S. Peetermans, F. Civita, R. Franci, S. Hartmann, E. Lehmann, M. Zoppi, J. Analytical Atomic Spectrometry, 27 (2012) 1494-1501。
- [8] H. Sato, T. Kamiyama and Y. Kiyonagi, Mater. Trans. 52, 1294-1302 (2011)。
- [9] 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)。
- [10] Oishi-Tomiyasu, R., M. Yonemura, T. Morishima, A. Hoshikawa, S. Torii, T. Ishigaki, T. Kamiyama, J. Appl. Cryst. 45 299-308 (2012)。
- [11] Y. Shiota, H. Hasemi and Y. Kiyonagi, to be published in Proc. International Topical Meeting of Neutron Radiography。

[H28-02]

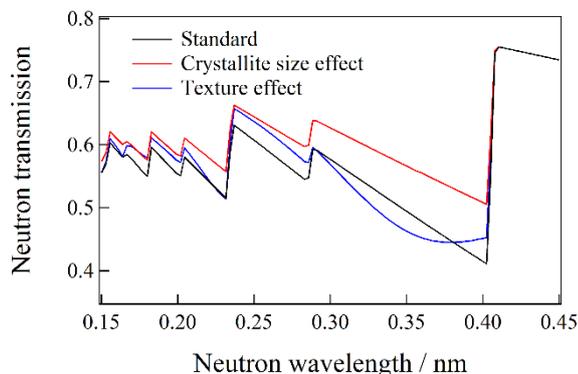


Figure 1. Example of Bragg-edge transmission spectra of 5 mm thick α Fe (bcc).

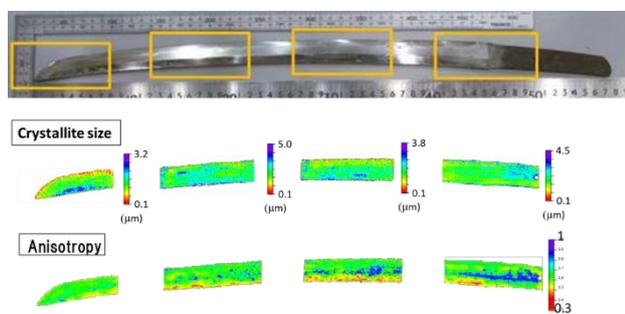


Figure 2. Crystallite size and anisotropy index distribution. Upper: Photo of the sword and areas observed. Middle: Crystallite size distribution Lower: Anisotropy index (R111) distribution

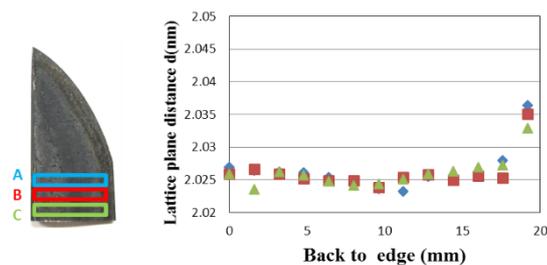


Figure 3. Change of lattice plane distribution from back to edge. Right photo is the sample and the analysed areas. Left figure shows change of the lattice plane distance.

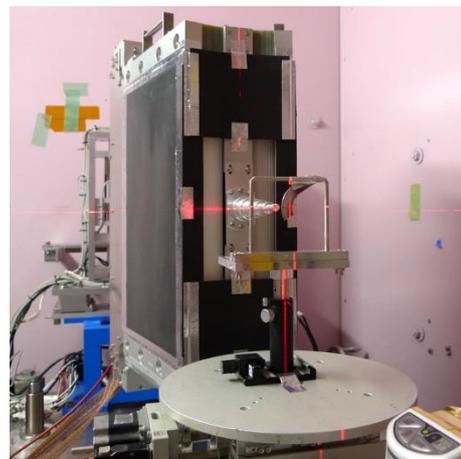


Figure 4. A compact diffractometer using 1D-PSD system with a radial collimator for a backward geometry.

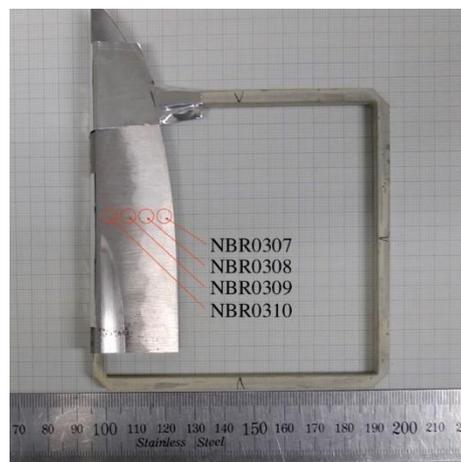


Figure 5. The Japanese sword on a graph paper. Red circles present the irradiated areas for each measurement.

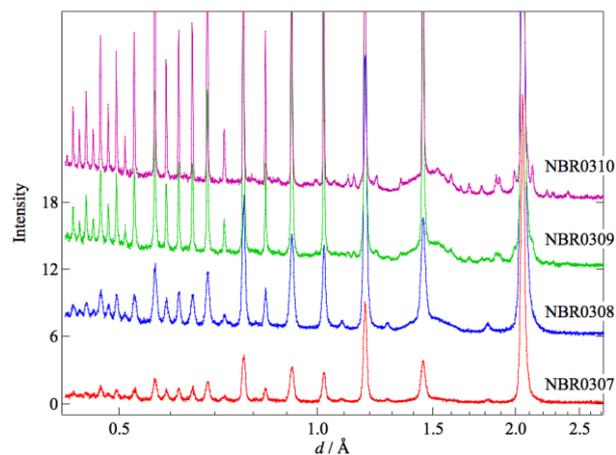


Figure 6. Neutron diffraction patterns of the measured sample.