



解説

研究会成果報告-5

新世代中性子源を活用した鉄鋼材料研究に関する将来展望

Future Perspectives on Neutron Scattering Techniques for Steel Research

大沼正人
Masato Ohnuma

北海道大学
大学院工学研究科
教授

1 はじめに

中性子は散乱・回折法に用いられる3つの量子ビーム(電子・光子(X線)・中性子)の中で鉄鋼材料に対して最大の透過力を有する。この特徴を活用することができれば、鉄鋼材料が実際に使われる形状のまま、すなわち「生きたまま」の状態での結晶構造・応力分配・微細組織などの金属組織情報を得ることができる¹⁾。一方で、中性子は利用できる施設が限られているため、材料工学分野、特に産業界からは「敷居の高い」手法と見なされがちであり、金属組織研究における中性子のポテンシャルが十分に活用されてこなかった。この点を打破すべく、2006年に鉄鋼協会では産発プロジェクト研究の第1号として「中性子利用鉄鋼評価技術の基礎検討に関する研究」を立ち上げ、茨城大学友田教授のリーダーシップのもと、取り組むべき課題設定から測定・解析までを産学官の研究者が連携して取り組み、中性子利用範囲の拡大と材料工学分野における利用モデルの構築を行った²⁾。本誌「ふえらむ」においても2006~2007年に連載記事として各手法の解説記事が掲載されている³⁾。このプロジェクトにより、鉄鋼材料研究において先行していた回折手法に加えて、小角散乱法の利用が進み、イメージング・反射率測定についても実際に測定を行い、鉄鋼材料応用の方向性が検討できた。

産発プロジェクトでは研究用原子炉JRR-3を利用して研究を進めてきたが、並行して、日本の中性子科学分野では極めて重要なプロジェクトが進行していた。すなわち、世界最強クラスのパルス中性子源となる大強度核破砕型中性子源J-PARCの建設である。このJ-PARCの運転開始が2008年末からとなり、産発プロジェクトの最終年度とも重なったため、この新しい中性子源であるJ-PARCの鉄鋼利用への展開を見据え、C型研究会「新世代中性子源を利用した鉄

鋼元素機能研究会」(主査:大沼正人、評価・分析・解析部会)として産発プロジェクトメンバーを母体にしつつ、大学を中心に全国の気鋭の鉄鋼研究者を巻き込み2009年より活動を開始した。活動開始の2009年時点には鉄鋼研究に利用できる装置は茨城県および茨城大学が運営する粉末回折装置iMATERIAと原子力機構が運営する中性子工学回折装置TAKUMIの2つで、出力100kWでの運転であったが、研究会主催テーマで供用初期から測定を行った。2011年には出力も200kWまで上昇し、3月には小角散乱装置TAIKANも立ち上がり、期待が高まっていたが3月の東日本大震災によるJ-PARCおよびJRR-3の長期停止により、国内での中性子実験が停止するという厳しい状況になった。しかしながらこの停止期間中にブラッグエッジ法をはじめとする新たな中性子利用技術、さらには産業利用の門戸を大幅に拡大できる可能性のある小型中性子源利用技術など、新技術の吸収に研究会として十分な時間を費やすことができ、このことが現在の1型研究会「小型中性子源を利用した鉄鋼組織解析法」(主査:理化学研究所 大竹淑恵、評価・分析・解析部会)への発展につながっており、震災停止の期間も含めて有益な活動ができたと考えている。以下に研究会の活動内容を報告する。

2 C型研究会「新世代中性子源を利用した鉄鋼元素機能研究会」の目標

産発プロジェクトで利用してきた中性子源は研究用原子炉JRR-3による連続的に発生する中性子である。ある波長分布をもつ中性子のうち、特定波長を切り出して材料測定に用いる定常炉による解析はX線や電子線を利用した回折実験との比較から理解し易く、使い勝手の良い方法である。しかし、発生した中性子の一部のみを使用し、角度操作を行うため、

通常、数時間の測定となり、数分単位あるいは数秒単位の測定は不可能であった。一方、J-PARCでは加速した陽子が水銀ターゲットに衝突した際に発生するパルス状の中性子を利用する。このとき発生する中性子も定常炉同様、波長分布を有するが飛行時間型の解析を行うため、発生した中性子の大部分を測定に利用できる。さらに、パルス中性子のピークにおける強度は定常炉型中性子の100倍以上(1MW運転時)に到達するため、定常炉では不可能であった分単位あるいは秒単位の測定が中性子でも可能になる⁴⁾。

そこで本研究会ではJ-PARCの「大強度」性を活用した鉄鋼研究の基盤技術の確立を目指し、以下の目標の下、活動を開始した。

1. 大強度時分割中性子測定など、中性子を活用した研究を遂行する。
2. 課題設定・実験・解析までを産学官の研究者が共同で推進する体制を構築し、研究会を通じて鉄鋼研究の新しいツールとしての中性子の普及を図る。
3. 産学官の連携の下、世界最高レベルの中性子源を活用し science と industry の両面で世界をリードする鉄鋼中性子研究という新分野を確立し、その拠点構築につながるような大型プロジェクトへの提案する。

このため、本研究会には共同でのマシンタイム提案やプロジェクト提案を機動的に行える体制と、研究会メンバーが中性子に関する先端情報をいち早くかつ幅広く獲得できる体制の両方が必要であると考え、企業メンバーを中心とした幹事会と大学・研究機関の研究者を中心としたメンバーを加えた研究会の2つを設定し、前者においては年間4回程度の定例幹事会に加え、プロジェクト提案時には臨時の幹事会を随時、開催することとした。後者については講演大会での討論会開催を含めて、年間3回程度の開催を予定した。

3 C型研究会「新世代中性子源を利用した鉄鋼元素機能研究会」の活動概要

3.1 大強度時分割測定先導研究の遂行

研究会発足時のJ-PARCの強度増加スケジュール(大型加速器は最大出力で運転するまで数年を要する。J-PARCの予定最大出力は1MW)や散乱測定用各装置の建設計画からJ-PARCについては2010年後半からの本格利用を念頭とし、2009年は研究用原子炉JRR-3による基礎実験を通じての共通実験試料の選定を予定していたが、点検停止期間の長期化による大幅なマシンタイムの縮小により困難となった。原子炉運転再開後も中性子小角散乱装置SANS-Jの検出器トラブル等による計画遅れとマシンタイム不足が生じ、国内で唯一の

大型施設のみに頼る中性子利用研究の難しさを痛感する状況となった。このことが研究会として小型中性子源に着目した調査研究を震災前より行うことにつながった。2010年度はJ-PARCではiMATERIAおよびTAKUMIにより、3号炉ではSANS-Jおよび残留応力測定装置RESAによるデータの蓄積が進んだ。ただし、この時点では、J-PARCによる実験データの解析ソフト環境が必ずしも整っておらず、手元のコンピュータによりデータを眺められる状況になるまで実験後数ヶ月要する等、極めて多数の検出器と飛行時間ごとにそれらの検出器に届く中性子強度を測定することで中性子の活用効率を高めるパルス中性子実験ならではの莫大なデータ処理の難しさに直面した。2010年は3号炉も順調に稼働し、友田らによるナノベイナイト変態のその場観察技術⁵⁾や大沼らによるX線と中性子小角散乱の複合利用組成評価法の確立⁶⁾などの新評価技術の開発につながった。また、マシンタイム不足という視点からは残留応力測定が可能なRESA-2の活用⁷⁾やナノサイズ析出物の解析が行える小型小角散乱装置mfSANSの開発⁸⁾など、「性能」を追求した装置ではなく、鉄鋼研究への中性子利用を進める上で重要となる「アクセス性の良さ」に注目した装置が開発され、マシンタイム不足の解消に貢献することが期待された。

しかしながら2011年3月に発生した東日本大地震により、J-PARCおよび3号炉の長期停止により計画の大幅な変更を余儀なくされた。J-PARCについては関係各所の尽力により2012年3月に運転再開したが、強度増加スケジュールは大幅に遅れ、研究会のタイトルに掲げた元素機能解明についてはその目的に資する基盤技術開発(「中性子/X線複合利用による組成評価」)は行えたものの、その場実験による時分割測定の実施に関しては目標を達成するには至らなかったと言わざるを得ない。また、材料研究者にとって扱い易く、既に十分なノウハウが蓄積されてきた3号炉が現在も停止中である点は鉄鋼中性子利用研究を進める上で、極めて大きな損失となっている。

3.2 産学官による基盤技術確立のための共同推進体制の構築

前述のとおり、本研究会は産発プロジェクト「中性子利用鉄鋼評価技術の基礎検討に関わる研究」を母体として立ち上がった研究会であり、産業界メンバーを中心とした幹事会を定期的に開催することで、鉄鋼研究における中性子利用研究のニーズを把握しながら、必要な評価技術、評価すべき材料の選定を進める体制が構築できた。この体制の基本構造は1型研究会「小型中性子源を利用した鉄鋼組織解析法(大竹主査)」にも受け継がれ、鉄鋼中性子利用研究の入り口から標準的な測定法の検討、さらには鉄鋼研究に利用できる新技術の取り込み、個別的共同研究構築、など、国内中性子利用研究

活動のコアとなっている。

3.3 鉄鋼中性子研究という新分野の確立と普及・国家プロジェクトへの提案

研究会では合計7回の研究会、鉄鋼協会講演大会における討論会(1回)および国際シンポ(2回開催準備・震災および台風により中止)、シンポジウム(1回)を開催し、研究会メンバー以外の産業界および中性子研究者も招聘し、メンバーと外部研究者、測定技術側とニーズ側との意見交換を広く行った。特に、新技術の取り込みについては、パルス中性子ならではの技術であるブラッグエッジを活用したイメージング技術(結晶構造、方位、ひずみなどの情報のマッピング技術)⁹⁾について、早い段階から着目し、2010年にはその研究会を開催している。本手法のための専用ライン(RADEN)は今年立ち上がり、次年度には供用開始となる予定で、回折実験・小角散乱実験に加えて、今後、鉄鋼材料研究に大いに活用される技術となると期待される。また、大型プロジェクト提案に関して、取り組むべき課題として、加工熱処理中のその場観察に加え、「水素脆化」「腐食」「非破壊長期(クリープ研究)」に着目し、当該分野を代表する研究者と意見交換を進め、提案に向けた課題整理も2010年に行っている。研究会期間中は震災の影響でその成果を活かすことができなかったが、現在の1型研究会や個別の共同研究において、それらの課題への取り組みを行っている。

研究会では国際セッションの開催を企画し、海外の中性子施設(オークリッジ国立研究所(合衆国)、オーストラリア国立核科学研究所、韓国原子力研究所)における材料分野での利用状況について情報収集を行った。震災および台風による講演大会の中止により、通常の講演は行えなかったが別途、開催した臨時研究会において、アメリカの新ビームライン設置と同時に周辺機器の整備状況(応力印加装置、加熱炉)、オーストラリアの周辺機器の整備計画(疲労試験機をビームラインに導入計画あり)、韓国の中性子施設側からの産業界への利用促進など、感心させられる点が多かった¹⁰⁾。これら、海外の中性子をとりまく状況から導きだせる結論として、中性子施設に材料研究者が居ることの重要性を指摘したい。上述の海外施設では中性子散乱装置を材料研究に最大限に活用する方法を装置開発と一括りで考えられる研究者が、ある程度の人数規模で活躍している。幸い、産発プロジェクトから続く鉄鋼協会の活動を通じて、国内中性子施設において活躍する(鉄鋼)材料研究者の数が確実に増加している。このことは将来的に国内中性子施設の使い易さに必ず、良い影響をもたらすであろう。

上述のとおり、震災の影響に振り回された研究会ではあったが、震災による実験の中断にはプラスの側面もあった。中

性子コミュニティの国際的なサポートにより、メンバーの国外施設での実験(オークリッジ国立研、韓国原子力研究所)が行われた点である。講演を聞くことに加えて、実際に実験施設を使ってみることで、得られる情報は桁違いに大きくなる。著者の韓国での実験の際には、疲労試験を行った直徑3mm程度の試料測定が行われていた。通常利用するビームサイズ(10mm程度)と比較すると著者には躊躇する実験であるが、「実験のために試料を作る」のではなく、「試料にあわせて実験を行う」という材料研究では重要なことをチャレンジできる中性子利用環境が整っていることが窺える。実際、小角散乱装置については韓国原子力研究所には2種類の小角散乱装置があり、1台が世界トップクラスの性能を狙った装置(40mSANS)、もう1台が汎用性・機動性を狙って運用される装置(18mSANS)と使い分けられていた¹¹⁾。材料研究推進にはJ-PARCの高性能を活用してチャレンジすべき「その場・時分割測定」に加えて、「汎用性・機動性」を重視した装置群が不可欠であり、3号炉の早期運転、もしくは小型中性子源を利用した新たな中性子利用環境の構築を国内でも急ぐ必要がある。以上のような認識のもと、研究会最終年度には理化学研究所に新たに設置された小型中性子源の活用をめざし、小型中性子源研究者を研究会に加え、JST機器開発プロジェクトにもプロジェクト申請を行った。研究会名にある「新世代中性子源」は研究会発足時にはJ-PARCを意味していたが、最終的にはやはり新世代技術と言える小型中性子源も含めた活動へ方向修正した形である。

このJSTプロジェクトへの申請も含め、鉄鋼協会からの積極的な支援により、研究会メンバーを骨格に3件の大型プロジェクト提案(CREST元素戦略を基軸とする物質・材料の革新的機能の創出(平成23年)およびJST機器開発プロジェクト(平成23年および24年))を行った。結果は不採用であったものの、中性子利用技術の現状および将来認識を整理する上で大いに役立ったとともに、構造材料研究を中性子利用分野の重要な柱として、文科省や経産省等のプロジェクト募集側にも広く認識を広げることができた。以上のような状況のもと、文科省元素戦略構造材料プロジェクト、経産省革新的構造材料研究プロジェクトに引き継がれ、中性子利用研究がプロジェクトの公募の際のキーワードとして含まれるようになりつつある。

3.4 残された課題

上述のとおり、研究会期間前半はJ-PARC装置群が十分に立ち上がっていなかったこと、後半には震災で停止したことから、J-PARCの性能をわかりやすい形で発信できなかった。この点は現在の1型研究会をコアとする研究会や鉄鋼協会での討論会開催等を通じ、残された課題として1型研究会

メンバーと協力し、引き続き推進予定である。また、鉄鋼産業から期待される代表的な測定については、今後も共通課題として取り組むことを予定しており、現在、大竹主査のもと、「残留オーステナイト量の評価」など具体的なテーマについて実施準備を進めている。今後はブラッグエッジ法を含め、新技術の利用方法についても研究会を中心に引き続き基礎的な情報を随時公開し、普及を図っていく予定である。

4 将来展望

鉄鋼材料に対する強い透過力から、非破壊微細組織解析法の切り札として中性子への期待は大きく、鉄鋼材料の種々の課題に中性子が利用されるようになりつつある。一方で、中性子研究の進行速度に不満をもっておられる方も多いと推測する。その主因の一つは中性子研究が、これまでは大型施設の利用に限られてきたことにある。世界最高クラスの中性子強度を有するJ-PARCでは世界からあらゆる分野の研究者がマシンタイム申請を行い、申請内容が審査され、課題が採択される。このプロセスが現在は年2回行われている。このため、研究計画立案から実施まで半年程度の時間が必要となってくる。また、申請内容が物質・材料分野に留まらず、生命科学から惑星科学分野まで広範にわたっており、それらの申請と比較しても競争力を持たなければならない。その場合、この枠内では、鉄鋼材料研究における「その場・時分割」測定を活用した基礎的課題を単発的に行う、打ち上げ花火的な利用法に留まってしまう可能性がある。複数組成からなる鉄鋼材料の元素機能を検討して行く上では、種々の組成の組み合わせを繰り返し検討していく必要があるが、上述の公募枠でのみでは反復的な測定を進めることは難しい。この点は施設側も十分に認識しており、プロジェクトタイプの研究枠（「鉄鋼元素機能研究」などの大枠で1年から2年程度の期間にわたり、決められた日数を配分する運用）¹²⁾など、新たな試みがなされている。この枠を利用して成果をあげ、運用枠を拡大する方向に導く必要がある。

鉄鋼材料研究における中性子の活用は「その場・時分割」測定に留まらない。元素の見え方（相互作用の強さ）がX線や電子線とは異なる中性子の活用範囲は材料特性の支配因子を探る研究でも重要である。この場合、時分割測定は不要であるが、多数の試料を測定する必要がある。この目的では、有償枠の活用が考えられる。これを利用すれば多数の試料を半年に1回程度まとめて測定するような利用形態が考えられる。また、実験者は出かけずに試料のみを郵送し、測定結果のみを受け取るメールインサービスも回折実験などについては検討されている¹³⁾。

これらに加えて、中性子の非破壊性や大試料の平均情報ゆ

えの統計精度の高さ、さらには試料調整の容易さを考慮すると、材料使用環境下での長期にわたる連続測定や品質管理的な利用法も考えられる。しかしそのためには長期占有できる装置や「思い立ったらすぐの実験」ができるような装置が必要となる。この目的で、J-PARCもしくはJRR-3への鉄鋼材料専用ビームラインも引き続き検討課題である。もう一つの可能性として期待が高まってきたのは小型中性子源の活用である。これまでは中性子強度の問題から材料研究への活用は困難と思われてきたが、最近になってイメージングや小角散乱で十分な精度で測定が可能であることが証明されてきた。拠点研究機関や企業研究所などに中性子測定施設を設置することも、夢物語ではなくなりつつある。大領域の精度の良い平均情報も重要となる鉄鋼材料と中性子との相性の良さを考えると、中性子を日常的に使用可能な環境が生まれれば、鉄鋼材料研究においては欠かすことのできない基本ツールとして、「まずは中性子で見て、どの試料を電顕でみるか決めよう」というような使い方となる可能性もある。このような可能性も考え、現在、活動中の1型研究会では大型施設と小型中性子源との双方をバランス良く使って、中性子利用研究をいかに効率よく進めていくかについても検討課題となっている。

J-PARCの出力は随時、増強されており、今年になって、世界最強のパルス強度を記録する等、利用環境は日々、向上している。小型中性子源やブラッグエッジ法等の新手法も含め、今後、2~3年の間に材料研究への活用範囲は、大幅に拡大していくことが期待される。研究会主催のシンポジウム、討論会などを通じて、今後の展開に注目いただければ幸いである。

最後になりましたが研究会委員の皆様、特に幹事の皆様にはご多忙の中、ご協力いただきましたことを御礼申し上げます。また、オブザーバーとしてご協力いただきました方々、特に鉄鋼協会の皆様には大型プロジェクト申請時に大変にお世話になりました。改めて御礼申し上げます。

参考文献

- 1) 小松原道郎：波紋，19 (2009)，246.
- 2) 日本鉄鋼協会：産発プロジェクト「中性子利用鉄鋼評価技術の基礎検討に関わる研究」最終報告書，(2009)
- 3) ふえらむ 展望 中性子の鉄鋼研究への応用-1~8 (ふえらむ，11 (2006)，567~12 (2007)，282に亘って掲載)
- 4) 新井正敏：まてりあ，48 (2009)，347.
- 5) W.Gong, Y.Adachi, S.Harjo P.G.Xu and Y. Tomota : CAMP-ISIJ, 24 (2011)，377.
- 6) Y.Oba, S.Koppoju, M.Ohnuma, T, Murakami, H.Hatano, K.Sasakawa, A.Kitahara and J.Suzuki : ISIJ Int., 51

- (2011) , 1852.
- 7) JRR-3 ユーザーズオフィスホームページ,
<http://jrr3uo.jaea.go.jp/about/institution/resa1.htm>
- 8) Y.Oba, M. Ohnuma, S. Ohnuma, M. Furusaka, S. Koppoju
and S. Takeda : J. Magn. Magn, Mater., 334 (2013) , 45
- 9) H. Sato, T. Kamiyama and Y. Kiyanagi : 52 (2011) , 1294.
- 10) 日本鉄鋼協会 : C型研究会「新世代中性子源を利用した
鉄鋼元素機能研究会」最終報告書, (2014)
- 11) 韓国原子力研究所ホームページ,
<http://sampleenvironment.org/facilities/kaeri/>
- 12) J-PARC ホームページより,
<https://j-parc.jp/researcher/MatLife/ja/applying/index.html>
- 13) 茨城県中性子ビームラインの産業利用ホームページ,
http://www.pref.ibaraki.jp/kikaku/kagaku/ibaraki_bl/gaiyo/zairyo_kouzo.htm

(2014年12月4日受付)