

## CONTENTS

P1 J-PARCセンター副センター長就任1年目を迎えて P2 「製品のありのまま」の観察を目指す中性子顕微装置 P8 MLF装置研究者によるIoT機器開発から実験施設におけるDXを考える  
P13 アルミニウムと鉄の合金を使って水素を貯える P18 企業紹介 ヴィジブルインフォメーションセンター P20 J-PARC MLF情報/JRR-3情報/活動報告 P21 お知らせ

## J-PARCセンター副センター長就任1年目を迎えて

J-PARC センター副センター長  
脇本 秀一

2021年4月にJ-PARC副センター長に就任しました。皆様からご支援をいただきながら、まもなく1年を迎えることができます。

私の専門は中性子や放射光を利用した物性研究(超伝導体や強誘電体など)でしたが、J-PARCに来る前は、平成28年から5年間、JAEAのマネジメント関係の部署に所属していました。そこではJ-PARCやJRR-3に関して文部科学省とのやりとりなどを行うとともに、JAEAが原子力分野以外にも中性子利用などによりイノベーションに貢献していくという方針策定にも携わりました。

これらの業務を通じて実感したことがいくつかあります。ひとつは我が国の中性子利用における産業界とのつながりは極めて深いということです。

J-PARC MLFにおいては、茨城県ビームラインも含めると約25%が、JRR-3においては震災前には供用利用の内の約30%が産業界とつながりのある利用となっています。これは世界の中性子利用施設の中でも極めて高い水準にあり、中性子産業利用推進協議会の会員企業をはじめ、産業界に熱心に中性子を利用いただいた賜物であると思います。毎年産業界から文部科学省宛にご提出いただいている要望書は、国の立場からも中性子利用が産業界に貢献していることを示すものであり、JRR-3運転再開に向けたJAEAの取組においても大変心強い支援となったことは間違いありません。

次に実感したことは、J-PARC MLFにおける産業界利用に関する取組は大変進んでいるということです。

そもそも産業界推進協議会という団体があり、産業界報告会といったイベントも開催されています。またこれはCROSSのご尽力も極めて大きいと感じていま

すが、以前よりコンソーシアムの前身として勉強会活動が開始され、昨年プレス発表されよう分析アライアンスが立ち上がるなど、具体的な活動が展開されています。またこれを下支えするような産業界との人事交流も行われています。このような貴重な活動の立ち上げには関係者、諸先輩方大変なご努力があったものと思います。

以上のように、J-PARCは産業界とのつながりにおいて非常に恵まれた環境にあると思っています。この関係を発展させつつ、前進していくために、引き続いてのユーザーコミュニティとの対話が重要であると思います。

特に毎年提出いただいている要望書の内容における、アクセス道路、利便性の向上、人材育成といった課題に対しては施設としてもしっかりと取り組んでいく必要があります。以前から少々調整が難航していたアクセス道路については令和3年度に関係機関との協議が進み、令和4年度に詳細設計に着手することとなりました。利便性向上の点では今年度にJ-JOINが立ち上がり、MLFとJRR-3を横通した利用相談窓口が開設されました。産業界からは使いたいときに使える仕組みとして、令和2年度に開始したファーストトラックプロポーサル(FTP)制度を評価いただきましたとともに、加えてさらに有償でのFTPの要望もいただきました。引き続きJRR-3とも連携しつつ利便性を向上させることが肝要であると考えています。また、人材育成の観点においては、企業との人事交流を継続・拡大していく必要もあると考えています。

2年目に向けては上記のような取組の具体化に加えて、J-PARC全体の運転に関しては、1 MWに向けて、安定・安全を前提としつつ、必要な研究開発を進め、着実な出力増強の道筋をつくること、また現在MLFで進んでいる将来構想の検討結果を具体化していくことなど、J-PARCのマネジメントとして取り組んでいこうと思っています。引き続きのご指導ご鞭撻をいただきますよう、お願いいたします。

茨城大学工学部  
小泉 智、能田洋平、前田知貴、稲田拓実

大強度陽子加速器施設(J-PARC)の物質生命実験施設MLFの茨城県材料構造解析装置iMATERIA(BL20)を「中性子産業利用の入門装置」として位置づけて装置の開発と利用を展開している。私たちが担当するのは高分子材料を中心とした生活分野の産業課題である。持ち込まれる技術課題は、製品を構成する複合材料の解析にある。専門性の高い単一のビームラインで得られる情報は、複雑な製品の一面を捉えるに留まり、技術課題の解決には「どのビームラインでどのような分光を行えばいいのか」を判断するには不十分である。そこで1つのビームラインで複合的な中性子分光ができて横断的な診断ができれば理想的であろう。私たちはこのような問題意識でiMATERIA装置の高度化を進めている。もともとiMATERIA装置は粉末回折装置としてスタートして小角散乱との同時計測によるマルチスケール観測が得意である<sup>2</sup>。さらに小角散乱用検出器の整備<sup>3</sup>、小角散乱と反射率の併用によるフィルムの方角観測<sup>4</sup>や、小角散乱とイメージングによる実空間と逆空間の同時計測を配備しようとしている。もちろん反射率やイメージングの手法は、専門装置が準備されているので本格的な研究においては専門装置の利用が望ましい。

一方でこの記事で詳説する「動的核スピン偏極法(dynamical nuclear polarization, DNP)」によるコントラスト変調実験は、最先端の中性子顕微法であり、iMATERIA装置ならではの専門性も目指している。DNPの原理と中性子散乱への応用<sup>5</sup>は古くから知られてきたが、産業利用を目的とした中性子散乱装置で日常的に利用できるのは世界的にも前例がなかった。顕微とは「微細で複雑なものを明らかにする」との意味であるが、この装置は、水素の中性子線に対する感度(コントラスト)を変えながら製品を構成する様々な部材から出てくる小角散乱の強度に強弱の色味をつけ複数の逆空間像を得る。従来コントラスト変調では水素を重水素に置き換える化学的な処理が行われてきた。DNPは室温においてばらばらな方向を向いている水素の核スピンを、低温&強磁場の条件のもとで一定の方向に揃えて「偏極」させる画期的なものである。合成法を駆使した水素の置換を行う前処理が不要となり、市販の製品そのものを観測できることから、産業利用にも適したものといえる。iMATERIA装置

では世界に先駆けて課題募集に基づく定期的なDNPのユーザー利用を開始し、2019年度には化学メーカーの4社(住友ゴム工業、富士フイルム、東ソー、クラレ)、2020年度には5社が(パナソニックアプライアンス、住友ゴム工業、メニコン、JSR、東レリサーチ)、2021年度には新規の1社(日本ゼオン)が、それぞれに持ち寄る材料について偏極実験を行った。本報告では水系の高分子電解質膜(ナフィオン)の構造解析と今後の展開を報告する。本研究はドイツ国ユーリッヒ研究(H. Fielinghausら)との共同研究である。以下にiMATERIA装置におけるDNP法の実際や、中性子ラジオグラフィーの同時計測の事例を紹介する。

### 小角散乱という分析技術

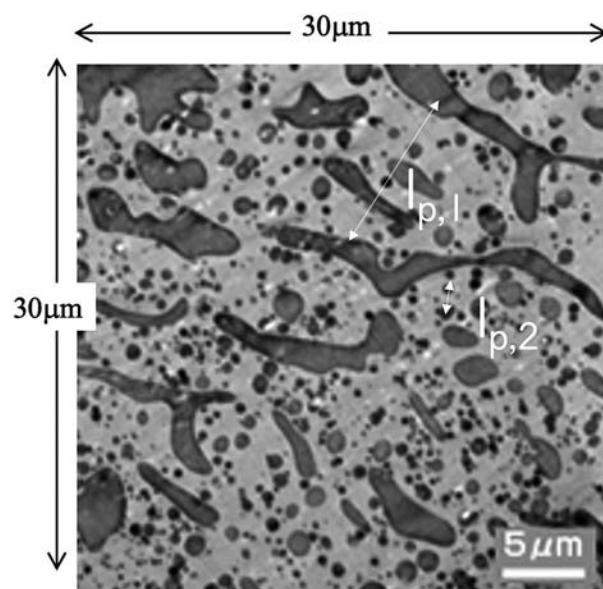


図1 ポリマーアロイ(PP/PMMA)のTEM像(三井化学分析センター(株)HPより転載)。

はじめに透過型電子顕微鏡(TEM)の写真を見ながら小角散乱を解説してみよう。図1はポリマーアロイの写真で、ポリプロピレン(PP)とポリメタクリル酸メチレート(PMMA)という2種類の高分子が相分離している様子が白と黒の濃淡のコントラストで示されている。大きな不規則なドメインと小さな球状のドメインが混在するが、平均サイズや各ドメインの平均組成、界面の厚みはどの程度なのだろうか?この問いに答えるための強力な手法が小角散乱だ。

この写真の2次元フーリエ変換を計算すると図2のカーブ(赤点)を得る。実はこの演算は小角散乱を観察したことと同じある。このカーブは横軸が波数 $q$ で示

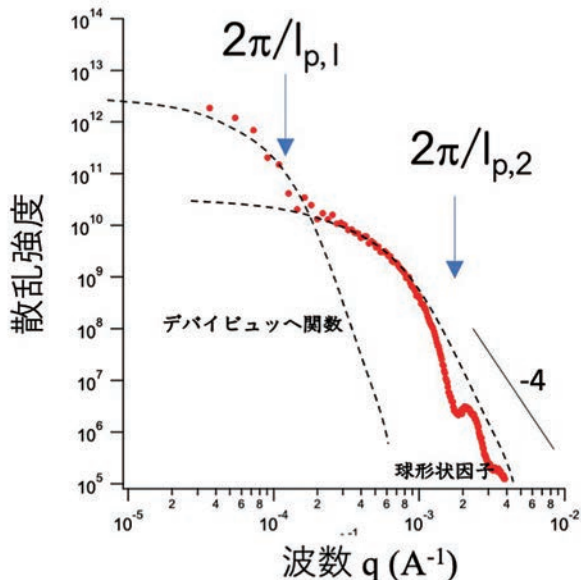


図2 ポリマーアロイ (PP/PMMA) のTEM像の2次元フーリエ変換による逆空間像。

されている。 $q$ の大きなところに現れたカーブは小さな球状ドメインの小角散乱である。 $q$ の小さなところに現れたもう1つのカーブは大きな不規則ドメインの小角散乱に対応する。写真のサイズ、 $l_{p,1}$ 、 $l_{p,2}$ の逆数はおおよそ図の矢印の位置と一致する。写真の解像度に限界があり、写真のフーリエ変換では分子レベルの構造や組成、界面の厚みなどの微細な情報は決定できない。

小角散乱を観測するには、図3のようにサンプルから遠く離れた位置に検出器を設置する。中性子小角散乱では距離が5～10mである。一般にX線装置は小振りで1m程度である。板状の試料を透過した小角散乱を前方の2次元検出機で観察する。ここで入射してくるから中性子の波数ベクトルの大きさを $k_i=2\pi/\lambda$ とする。散乱角が $2\theta$ の方向に散乱したベクトル( $k_f=2\pi/\lambda$ )の向きを変えるが長さは変わらない。変化ベクトルを $q$ ベクトルと呼ぶ(図3の左)。その大きさは幾何学的に $q=(4\pi/\lambda)\sin\theta$ となり、小角散乱の実験はこの波数 $q$ を変化させながら散乱強度を観察する。ところで中性子イメージング(透視画法)は、大面積の検出器を試料に近づけて試料の真後ろで各点の透過する中性子を計測する手法である。図3で検出器を試料のすぐ後ろに移動すればいい。

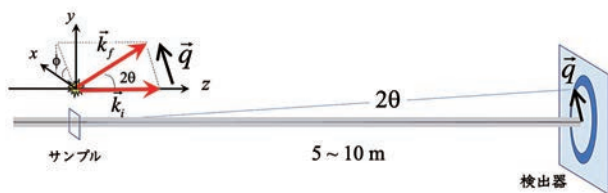


図3 小角散乱の光学系と散乱ベクトル $q$ 。

## ブラッグ父子の干渉条件

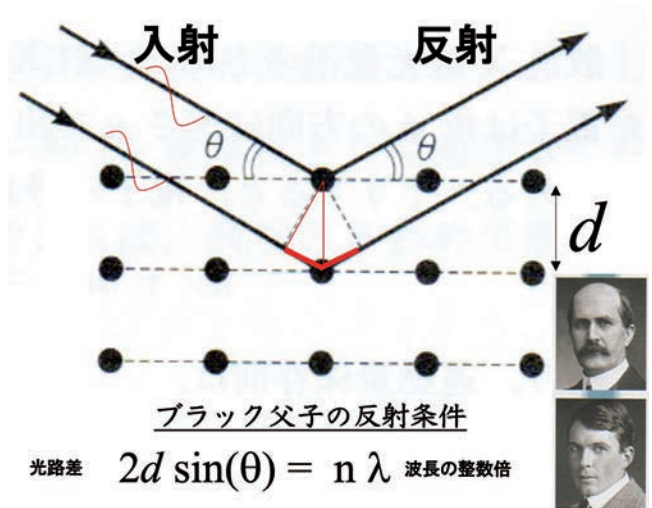


図4 ブラッグ父子の反射条件 (1913年)。

図4のブラッグ父子の干渉条件を示した。原子が作る反射面に2本の放射線が入射すると、下の光線は上の光線よりも図の赤太線の部分だけ遠回りする。つまり光路差( $2d\sin\theta$ )があるわけである。ブラッグ父子は光路差が波長の整数倍( $n\lambda$ )のとき2本の光線は強め合うという干渉条件を見出した。1912年の功績である。さまざまな材料はブラッグの絵にあるような結晶の綺麗な反射面になることは稀で、むしろ乱れた構造(アモルファス、非晶、液体状態)である。しかし乱れた構造の場合でもこのブラッグの式と同じ原理で波の干渉効果が生じる。ブラッグの条件式と先の波数 $q$ の定義式を組み合わせると $d=2\pi/q$ の関係があることがわかる。つまり観測する空間サイズ $d$ が $q$ の逆比例するため、目で観察する空間を実空間と呼ぶのに対して散乱を逆空間と呼ぶ。

## コントラスト変調法

タイヤのような多成分で構成される材料を小角散乱で眺めると、各成分由来する部分散乱関数の総和が観察される。N成分系の小角散乱強度を数式で表現すると、

$$I(q) = \sum_{i=1}^N \Delta b_i^2 S_{ii}(q) + 2 \sum_{i < j} \Delta b_i \Delta b_j S_{ij}(q) \quad (1)$$

ここで $i$ は材料を構成する各部材や分子を示す。全体の小角散乱 $I(q)$ は各部材や分子の部分散乱関数の自己相関の項 $S_{ii}(q)$ と交互相関の項 $S_{ij}(q)$ からなる。タイヤのように非圧縮性の条件が成り立つとき部分散乱関数の数は $N(N-1)/2$ 個である。それぞれの部分散乱関数は、コントラスト(干渉性散乱長密度の差)という $\Delta b$ 因子の自乗で重み付けされ強弱が決まる。ここで

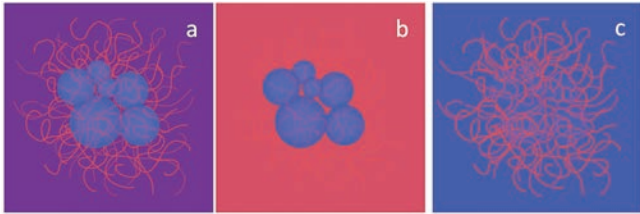


図5 コントラスト変調のイメージ。中性子が感じる色合い(干渉散乱長)を変えると、高分子や微粒子を選択的に観察できる。

実験者が $\Delta b$ 因子を自在に変化させる実験が「コントラスト変調法」である。

コントラスト変調のイメージを図5に示した。中性子が感じる周辺の色(干渉性散乱長)を赤から青へ変化させると微粒子の周辺の高分子や微粒子そのものを消し去ることができる。中性子のコントラスト変調には材料に含まれる水素を利用する。水素の原子核はスピン1/2をもつため、干渉性散乱長は偏極度( $P_H$ )に依存して以下のように記述される。

$$b_H = (-0.374 + 1.456P_H P_N) \times 10^{-12} \text{cm} \quad (2)$$

ここで $P_N$ は中性子の偏極度である(中性子もスピン1/2をもつ)。このため水素の核スピンと中性子の両方の偏極度を変化させることができれば、図5のように水素の色(干渉性散乱長)を変えることができる。これを核スピン偏極コントラスト変調法と呼ぶ。式2の状況を図6に示した。横軸の極性(正負の符号)は、中性子スピンの偏極方向と平行なときを正偏極、反平行なときを負偏極状態と定義する。水素の核スピン偏極度( $P_H$ )を、上向きおよび下向きスピンの存在数( $N_{up}$ と $N_{down}$ )を用いて次式で定義する( $P_H = (N_{up} - N_{down}) / (N_{up} + N_{down})$ )。室温で無磁場の条件では、水素は無偏極状態である( $P_H = 0$ )。

一方で重水素の干渉性散乱長は $b_D = 0.667 \times 10^{-12} \text{cm}$ である。無偏極状態( $P_H = 0$ )の軽水素は $b_H = -0.374 \times 10^{-12} \text{cm}$ と大きく異なるため、材料中の軽水素を重水素で置き換えることでもコントラストの

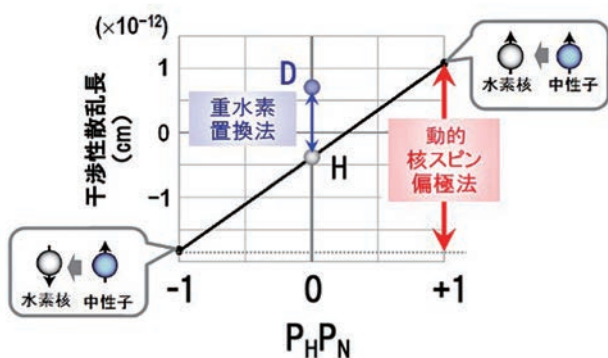


図6 水素および重水素の干渉性散乱長。軽水素の干渉性散乱長は偏極度に従って増減する。

みを変化させることが出来る。これを重水素置換コントラスト変調法という。図6によれば偏極度の効果は、重水素置換の効果より大きいことがわかる。

## 動的核スピン偏極コントラスト変調法

式(2)の第2項( $1.456P_H P_N \times 10^{-12}$ )を実験的に操作するにはどうしたらいいのであろうか。中性子の偏極度 $P_N$ は中性子ビームラインの偏極ミラーを用いて操作する。偏極ミラーは中性子線のアップ、ダウン成分のどちらかを選別するフィルターである。一方で水素の偏極度 $P_H$ は低温&強磁場のもとの操作する。ところが核スピンの磁気モーメントはとて小さく熱平衡状態で高い偏極度を得ることは難しい。そこで磁気モーメントが600倍も大きい不対電子(ラジカル)を原子核に隣接させ、電子の高い偏極状態を水素に移行させる。移行には電子スピンの共鳴周波数付近のマイクロ波を照射する。照射を続けると水素の高い偏極状態を非平衡定常の状態を保つことができるわけだ。これを「動的核スピン偏極」という。この手法の中性子小角散乱への利用は1990年代後半にドイツのStuhrmannらによって実証され<sup>5</sup>、我々はこれを中性子の産業利用のために簡便かつ高性能化した<sup>6,7</sup>。

以上をまとめると動的核スピン偏極法のためには、①中性子ビームラインの偏極に加えて、②強磁場&極低温、③マイクロ波照射、④試料への電子スピン導入という四つの操作が必要である。このうち、①、②、③は中性子施設が担当するのに対して、④は産業界のユーザーが担当する。図7には水溶性の高分子電解質膜(ナフィオン)に電子スピンすなわちTEMPOL分子をドープする様子が示されている。

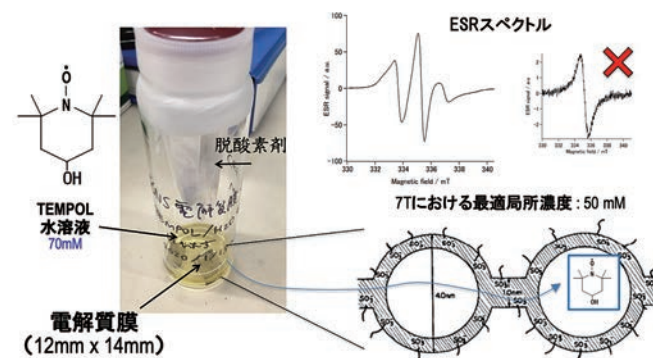


図7 水溶性有機ラジカルTEMPOLのドープの様子。ESRでドープ量と分散状態を確認する。

## 動的核スピン偏極のための超電導マグネット [文献1,11]

強磁場&極低温(②)を操作するために2016年にJ-PARCのiMATERIA装置に新しい超電導マグネット(7テスラ&1K,JASTEC社製)、すなわち新しい中性子顕微装置を開発した(図8)。このマグネットをiMATERIA装置の試料位置に装填する。入射のビームの光軸に沿って横磁場マグネットの一对のコイルがあり、その間に試料をトップロードで装填する。前方の小角散乱、後方の広角散乱を計測するために入射のビームの軌道に沿って下流側および上流側ともに、±20°の開き角のコーン状のアルミ窓が側面に設けられている。

試料は液体ヘリウム(<sup>4</sup>He)中に浸漬することで極低温(②)とする。大型の排気ユニットで試料槽を減圧することで大気圧において4.2Kの液体ヘリウムから気化熱を奪い1Kまで冷却する。中性子は液体ヘリウムの透過性に優れるので、液体ヘリウム自体からの小角散乱(バックグラウンド)は無視できるほど小さい。

強磁場&低温のもとで核スピン状態を維持するためにマイクロ波照射(③)が必要である。新しい超電導マグネットではコンパクトで取り扱いの容易な半導体式のマイクロ波源を採用した。ガン発振器から94GHzのマイクロ波を発生し、さらに倍波器を組み合わせることで2倍の188GHzに変換する。マイクロ波の周波数188GHzは磁場強度7Tのもとで偏極するために最適な周波数である。試料槽の上方にマイクロ波源を設置し、1.2mのステンレス管(導波管)で試料まで導く。

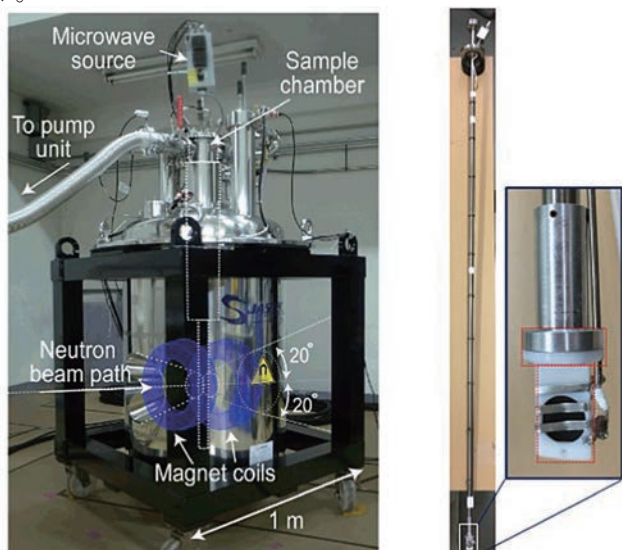


図8 iMATERIA装置専用に開発した動的核スピン偏極装置(7T& 1.2K,JASTEC社製)(左)。試料スティックと先端の試料の取り付け部(右)。NMRで同時に偏極度をモニターできる。

これにより電子スピンから水素核スピンへと偏極移動させる。近年、188GHzという高い周波数帯域でかつ高出力のマイクロ波源の入手が容易となり、高性能で新しい中性子顕微装置が完成した。ポリスチレンフィルムで90%近い偏極度を達成し<sup>8</sup>、iMATERIA装置でのゴム材料<sup>9</sup>への利用を開始した。

## 動的核スピン偏極の親水性材料への発展

ドイツ国ユーリッヒ研究(H. Fielinghausら)とのナフィオン膜の研究事例を示す<sup>10</sup>。DNPでは試料にあらかじめ核偏極の起点となるラジカルをドーピングする必要がある。これまで疎水性のゴム材料にDNP法を適用してきた。ここでは高分子電解質膜Nafion<sup>®</sup>へのラジカルドーピングを図7に従って説明する。高分子電解質膜、ゲルや食品などの親水性の素材にはTEMPO分子に水酸基(OH)に置換したTEMPOLを用いる。準備の手順は、①70mM TEMPOL水溶液(5mL)を作成、②ナフィオンフィルム3枚(厚み0.23mm)を14mm x 12mmにカット、③TEMPOL水溶液中にナフィオンフィルムを浸漬した(24時間)。浸漬の時には密閉できるビンの中に酸素吸収剤(アズワン A500-HS)とともに封入し吸水に伴ってTEMPOLをドーピングした(浸漬浸透法)。ドーピングしたラジカルの状態と量を定量化するために⑤ESR計測でニトロキシド14N核由来の超微細構造を観察し、TEMPOLが個々の分子に分散していることが確認できた。また、ESR信号の積分強度と試料体積の比を標準試料と比較することで試料中のTEMPOL濃度を評価した。ビーム実験までの7日間、⑥試料は遮光袋に入れた上で室温で保存した。実験当日は⑦容器からナフィオンフィルム3枚を取り出し、溶液を拭き取った上で、試料スティック先端のテフロン製の枠内に取り付け、液体ヘリウム槽内へと挿入した。試料周辺は液体ヘリウム(4.2K)で満たされ、減圧することで1.2Kの極低温環境とした。低温へクエンチする際に水の結晶化によって高次構造が破壊しないように配慮した。

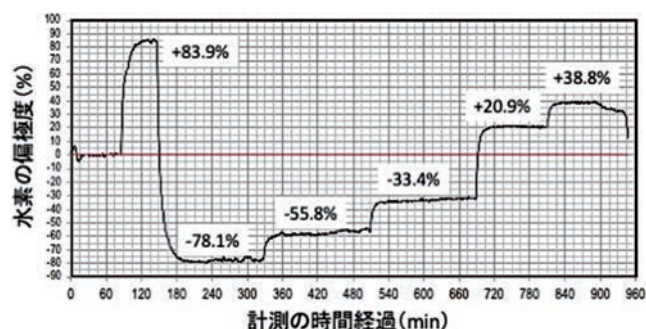


図9 DNP時のナフィオン膜のプロトン偏極度。ナフィオンを膨潤した水が偏極されている。

試料の保管には脱酸素剤が重要な役割を果たす。量子化学によれば酸素分子の共有結合には2つの反結合性軌道が縮退している。ここに互いに平行な電子スピンの格納されるのが三重項状態である。試料中に酸素分子が溶存していると、これらの反結合性の電子スピンによる局所磁場が水素の核スピンの偏極状態を攪乱し偏極度が低下する。この効果を避けるため試料から酸素を取り除く必要がある。

## 中性子小角散乱の実測

図9に実験で得られた偏極度の時間経過を示した。核スピン偏極度はマイクロ波周波数を変えることで制御できるので周波数の制御を自動で行い、夜間においても無人で小角散乱の計測を継続することができように整備した。1.2Kの無偏極状態から始まり水の水素の偏極度について $P_H=83.9\%$ をスタートにして、偏極状態を反転させ $P_H=-78.1\%$ から順次正偏極へ段階

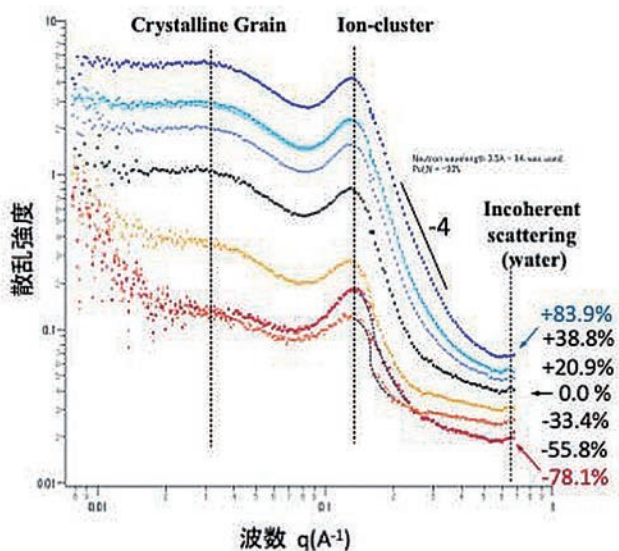


図10 iMATERIA装置におけるナフィオン膜のDNPコントラスト変調実験の結果。

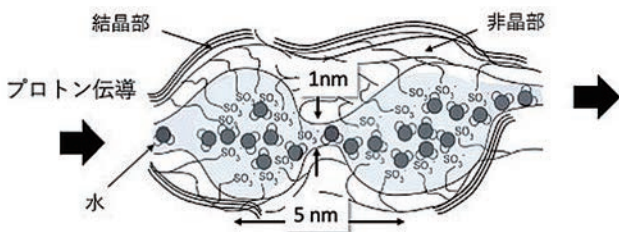


図11 ナフィオン膜で形成される水クラスターネットワークのイメージ。ナフィオンの主鎖が結晶相を形成する。

的に変化させた。各偏極状態を2時間程度保ちながら、この間に中性子小角散乱を計測した(図10)。一連の計測は夜間に無人で実施した。水の水素が偏極された結果、波数が $q < 0.3 \text{ \AA}^{-1}$ の領域の干渉性

散乱の強度が大きく変化した。特に偏極度が-55.6から-78.1%において結晶性グレインの散乱の強度が減少していることがわかる。イオンクラスターのピーク位置と比較すると相対的な強度比が変化している。このことから単純な2相系ではなく、散乱コントラスト $\Delta b$ に関して3成分以上であることが示唆される。また非干渉性散乱は偏極度の変化に応じて順次、減少していることがわかる。

ナフィオンの主鎖(PTFE)と側鎖(-SO<sub>3</sub><sup>-</sup>)のマイクロ相分離の結果で形成される。ナフィオンのマイクロ相分離に関する解析の歴史は長く、クラスターネットワークモデル(Gierke)を図11に示した。ナフィオンの一次構造は、疎水性の主鎖骨格に親水性のスルホ基を有する側鎖がある櫛形で、このため膜の内部ではスルホン酸基が凝集したイオンクラスターと呼ばれるマイクロドメインが形成され、チャンネルで連結している。水はこのチャンネルを出入りしており、中性子小角散乱で定量的に観察できる。ナフィオンの主鎖は剛直性に富んだポリテトラフルオロエチレン(PTFE、テフロン)であるので一部が結晶化する。結晶性グレインとイオンクラスターの間には3番目の成分として非晶性のドメインが存在し、一部の水を抱え込んでいるであろう。

図10のDNP法による結果を用いて、1)結晶性グレイン、2)イオンクラスター、3)非晶性ドメインの3種の部分散乱関数に分解した。水の自己相関関数に結晶性グレインと同様な散乱ピークが現れることが確認できる。また結晶とイオンクラスターの交互散乱関数(クロスターム)がマイナスであり、イオンクラスターが結晶性グレインの外側に存在することが明瞭に示された。詳細は近日投稿する論文をご覧ください。

## 水素利用の燃料電池

高分子電解質膜であるナフィオンは、水素を利用する固体高分子形燃料電池(PEFC)の心臓部を支える素材である。PEFCは燃料の水素を燃やしながら発電する燃焼釜で、マンガン電池やアルカリ電池などのいわゆる一次電池や、鉛蓄電池やリチウムイオン電池の二次電池とは異なる。PEFCでは水素を負極(アノード)に、酸素を正極(カソード)に供給する。白金を触媒としてアノードで生成したプロトン(H<sup>+</sup>すなわち陽子)は、ナフィオン(高分子電解質膜)の中の水と共にカソードへ移動し、酸素と反応して水が生成する。プロトンの伝導を担うために適量の水は必須である。しかし発生した水が触媒やガス流路付近に溜まると、反応に必要な燃料ガスの供給が滞る。これをフラッディング

グと呼び、セル電圧の低下の原因である。そのため、PEFCの内部での水管理は重要であり、発電中の電池の内部を観察するためには、透過性の高い中性子線による透視画像観察、中性子ラジオグラフィが有効である。このとき膜は水を管理する貯水池のような役割も担う。そこで膜の含水状態と、フラッディングを同時に計測したいという要求がある。

現在、iMATERIA装置ではNEDOの支援を受けて中性子小角散乱と中性子ラジオグラフィの同時計測システムを開発中である(図12)。この試みは、原子炉のSANS-J-II装置で製作した同時計測システム<sup>11</sup>をさらに発展させてのものである。図13にはiMATERIA装置専用に完成した中性子カメラと模擬的な燃料電池セルのガス拡散層周辺の水を観察した例を示した。暗い部分はフラッディングで水が溜まっている部分である。この画像をもとに電池の各場所の膜の状態を中性子小角散乱で評価できるわけだ。

最後に作動中のPEFCのその場観察において、同位体置換によるコントラスト変調法が使えることを述べておく。燃料である水素を重水素に入れ替えると、生成する水が重水となり膜の中の水の色(コントラスト)が変化する。このアイデアに基づき軽水素/重水素ガス交換コントラスト変調による水履歴の追跡の実験を行った<sup>12</sup>。重水素ガスで燃料電池を運転するとカソード極ではそれぞれに重水が生成し、この水の一部はや

がてMEAを膨潤させた。そのとき中性子小角散乱に対して異なる散乱コントラストを生じた。ピーク散乱強度の変化を解析すれば重水と軽水の割合が決定した。またフラッディングに伴い発電状態が時間変動する様子が捉えられこれを呼吸モードと命名した。iMATERIA装置で金属とゴムの固着について反射率で評価した事例は別項を参照されたい<sup>13</sup>。

## 終わりに

中性子小角散乱は散乱角に依存する拡大鏡として活躍し、物質のありのままの姿を非破壊でその場観察できるという「生きたままを見る分析技術」である。茨城県材料構造解析装置iMATERIAにおける開発は茨城県中性子BL運転維持管理等に関する事業委託のもとで実施された。また2012年度から着手した動的核スピピン偏極法のNMR機器の開発は住友ゴム工業による共同研究費の支援のもとで実施された。固体高分子型燃料電池に関する計測技術の開発は、NEDO「固体高分子形燃料電池実用化戦略的技術開発/基礎的・共通課題に関する技術開発/物質輸送現象可視化技術」(実施期間H20~21年度)から12年間にわたり継続して、現在は「燃料電池等利用の飛躍的拡大に向けた共通課題解決型産学官連携研究開発事業/共通課題解決型基盤技術開発/「プラットフォーム材料の解析及び解析技術の高度化の技術開発」(2020年度~2022年度)」の枠組みで実施している。この場を借りてご支援いただいた皆様に感謝申し上げます。

文献：

- 1) 「製品のありのまま」というキャッチフレーズは2012年頃の住友ゴム工業の岸本浩通氏との議論で生まれたものである。
- 2) S.Koizumi, Y.Noda, T.Maeda, T.Inada, S.Ueda, T.Fujisawa, H.Izunome, R.A.Robinson, H.Frielinghaus, *Quantum Beam Sci.* **2020**, *4*, 42. <https://doi.org/10.3390/qubs4040042>
- 3) Y.Noda, H.Izunome, T.Maeda, T.Inada, S.Ueda, S.Koizumi, *Quantum Beam Sci.* **2020**, *4*, 32. <https://doi.org/10.3390/qubs4040032>
- 4) これを立体小角散乱とよび詳細は、S.Koizumi&J.Suzuki, *J.Appl.Cryst.*(2006).39,878-888. <https://doi.org/10.1107/S0021889806039082>
- 5) H.B.Stuhrmann, *Rep.Prog.Phys.* **2004**, *67*, 1073. <https://iopscience.iop.org/article/10.1088/0034-4885/67/7/R02/meta>

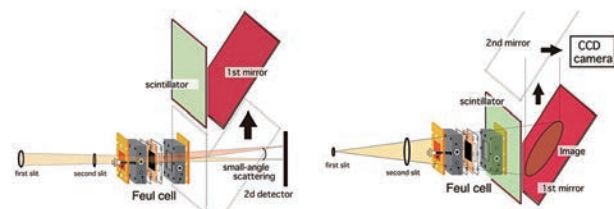


図12 中性子小角散乱のビームラインで(左)中性子小角散乱と(右)中性子ラジオグラフィを切り替え同時計測を行う。原子炉中性子小角散乱装置 SANS-J-IIの事例。



図13 iMATERIA装置専用の中性子カメラ(左)。解像度100 $\mu$ mで数センチ角の画角を目指す。模擬燃料電池の観察例。0.7mm幅の流路と水を可視化した実測例(右)。

- 6) 小泉 智; 能田洋平 高分子 **2017**,66,406.  
<https://main.spsj.or.jp/c5/kobunshi/kobu2017/1708.html#406>
- 7) 小泉 智; 能田洋平; 前田知貴, 稲田拓実 日本ゴム協会誌, 第94巻 第12号 (2021) 387-394.  
<https://www.srij.or.jp/newsite/magazines/mokuji/mokujilist/94/?page=12>
- 8) Y.Noda, S.Koizumi, *Nucl.Instrum.Methods Phys. Res., Sect.A* **2019**,923,127.  
<https://www.sciencedirect.com/science/article/abs/pii/S0168900219301044>
- 9) Y.Noda, T.Maeda, T.Oku, S.Koizumi, T.Masui, H.Kishimoto, *Quantum Beam Sci.* **2020**,4, 33.  
<https://doi.org/10.3390/qubs4040033>
- 10) S.Koizumi, Y.Noda, T.Maeda, T.Inada, H.Frielinghaus and O.Holderer, in preparation.
- 11) H.Iwase, S.Koizumi, H.Iikura, M.Matsubayashi, D.Yamaguchi, Y.Maekawa, T.Hashimoto. *Nucl Inst & Meth in Phys Res A* 605(2009)95-98.  
<https://doi.org/10.1016/j.nima.2009.01.165>
- 12) S.Koizumi, S.Ueda, P.Ananda, and Y. Tsutsumi, *AIP Advances* 9,065206(2019);  
<https://doi.org/10.1063/1.5099498>
- 13) 小泉 智; 麻生脩平; 前田知貴; 上野真寛、仲摩 季、武山慶久 月刊ソフトマター 2020年12月号 ページ14-16.  
<https://www.fujisan.co.jp/product/1281701442/b/2054029/>

## MLF装置研究者によるIoT機器開発から実験施設におけるDXを考える

総合科学研究機構 中性子科学センター  
 富永 大輝

### 1. はじめに

デジタルトランスフォーメーション(Digital Transformation、DX)はスウェーデンのウメオ大学の Erik Stolterman 氏によって2004年に、“情報技術(IT)の浸透が、人々の生活をあらゆる面でより良い方向に変化させる”という概念[1]として提唱された。経済産業省が2018年にまとめた「DX推進ガイドライン」によるとDXは、「データとデジタル技術を活用して製品やサービス、ビジネスモデルを変革するとともに、業務そのものや組織、プロセス、企業文化・風土を変革し、競争優位を確立すること」と定義されている。

J-PARC MLFのような特定先端大型研究施設においても、ITをより有効活用するDXについて考える機会が増えている。MLFの各中性子散乱装置において、実験データはどの装置もPC制御で取得するが、装置の運転や、実験の遂行に必要な機器類は現場で目視確認し手動操作するものが多数ある。これらもコンピュータ等を用いて操作/管理する体制への移行が議論されている。機器やシステムの自動化・スマート化は、定型反復作業由来の誤操作確率の低減のみならず、良質な成果創出に必要な実験データ解析や科学の議論や未来を語る時間への有効活用が期待できる。

筆者はMLFに設置されているダイナミクス解析装置(BL02) [2]の装置付研究者である。本稿では、本

実験装置の運転管理や実験サポートの観点から先導的に開発したモノのインターネット(Internet of Things, IoT)で使用する機器(以降‘IoT機器’と呼ぶ)を紹介し、科学実験施設におけるDXについて考える。

### 2. BL02におけるIoT機器開発

J-PARC MLFでは標準実験装置制御ソフトウェアフレームワーク(IROHA2) [3]を使用できる。IROHA2は、各装置内が制御する機器の運転状況を記録管理することができる。中性子実験データ収集系プログラムとも連動し、実験に関連する機器群の時系列ステータスも出力することもできる。機器の登録/解除はWebブラウザによって、簡便に行うことができる。実験者や装置担当者は各装置が統括するIROHA2に組み込むIoT機器を開発することにより、多種多様な実験に併せて自在に必要な機器を組み込み、実験中の機器の制御や監視、時系列データの記録ができる。

BL02[2]の運転や実験にはたくさんの機器が関わっている(図1)。それらを実験者目線から分類すると、①実験に直接関わる試料環境等機器類、実験データの取得に必要なサーバ群、②中性子検出器や真空ポンプなど、実験遂行に関わらず常時正常稼働が必要な機器類、③実験に必要な不可欠なユーティリティ(電気、水(冷却水)、ガス、圧縮空気)に分類できる。③は実験時の環境インフラに相当し、安定供給されている状況で、はじめて②が正常運転でき、②が常時稼働状態で①が正しく動作するというピラミッド型システムを構築している。①、②については、電気制御機器である



ことが多く、潜在的にIoTに組み込みやすいが、③については、多くの場合IoTに組み込まれていないことが多い。

ここでは、BL02で開発した、試料温度制御を行う真空チャンバーのガス制御システムを紹介する。試料はBL02のクライオスタット内真空チャンバー内に設置される。真空チャンバーの外側に接続されている冷凍機と、試料の入った容器上部アダプタ部に埋設されているカートリッジヒータで、温度コントローラを介して試料温度を精密制御する。低温下では真空チャンバー内に導入した比熱容量が大きいヘリウム(He)ガスを用いて冷凍機の設定温度を試料セルに伝えて温度制御し、高温下では真空チャンバーを真空断熱状態に排気し、カートリッジヒータからの熱伝導によって、試料温度を制御する。従って、試料交換時は余計な水分等が真空チャンバー内に混入しないように、低温から高温へ(またその逆に)温度制御を切り換える場合は、注意深く手動操作して真空チャンバー環境を精密制御する。



図2 BL02分光器上に常設されたrTMP[5], DICE[4]の制御パネルとPEACEと名付けた自動試料交換機[4]の関連制御機器

筆者らはこの煩雑な反復動作を電磁バルブやゲートバルブを用いて駆動する自動ガス置換システム(DICEと名付けた)を開発(図2)し、温度制御方式切替に伴う真空チャンバー環境の変更等の一部のプロセスを、IROHA2からリモート制御、監視ができるように組み込んだ[4]。DICEの正常稼働には、高真空環境を作るためのターボ分子ポンプ(TMP)が常時稼働している必要がある。そこでIROHA2と通信して起動/停止や運転状況を監視可能なターボ分子ポンプ(remote TMP, rTMP)を開発した(図2) [5]。他に、DICEの運用に、Heガスも必要である。デジタル圧力計付圧力調整器を用いて、Heガスボンベの残圧量をモニターできるIoT機器も開発した(図3) [6]。我々が開発したIoT機器のカテゴリは、DICEや温度コントローラは①、rTMPは②、Heの残ガス圧モニタは③に分類される。

これらIoT機器はBL02のローカルエリアネットワークに接続され、同ネットワーク内の機器群全体を統括するIROHA2が、各機器の出力値や状況を管理し、中性子実験と連動できるように組み込まれている。また、IROHA2は読み込んだ情報を可視化できるので、情報の一部を異常時等のアラートとして装置担当者等が情報を閲覧でき、また成立条件により装置担当者の判断を待たずにプログラムが各機器に信号を自動送信し、関連する機器群を連携して安全に動作/停止することもできる。

DICEとこれに関連するIoT機器の連携運用を2021年1月より開始し、要望に応じて機能を追加しながら1年以上安定稼働している。加えて自動試料交換機[4]も開発(図2)し、ユーザー実験に積極的に活用されている。これらIoT機器は手動操作回数を減らし、実験

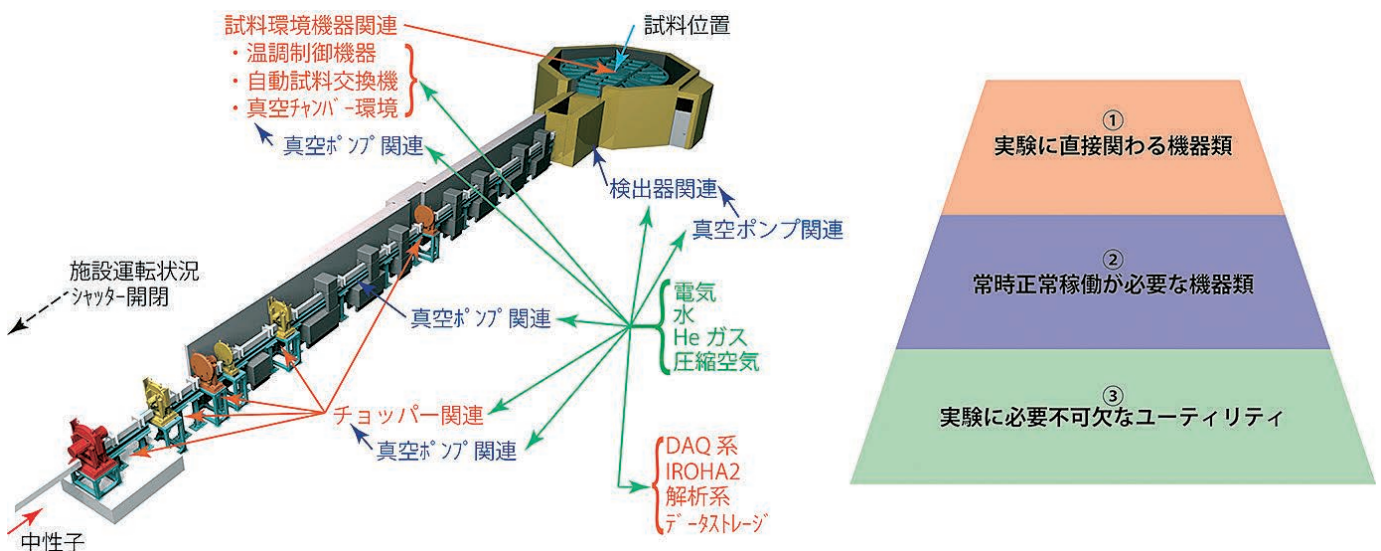


図1 BL02中性子実験装置の運転・実験に必要な機器類(文字色はそれぞれ右図の①~③に対応)



図3 Heガスの一次圧を取得したデジタルレギュレタシステム [6]

者や我々装置担当者における負担軽減に大きく貢献している。

中性子実験に直接関わる試料環境機器の自動化・スマート化により、これに付帯する機器類のIoTへの組み込みをも促進し、更なる安全性や利便性の向上が可能であることが判った。これら一連のIoT機器を開発し、運用して以下の経験を得た。

- 1)IoT機器の使用者(研究者)が創り上げた仕様に基づき、「設計→組立→通信→プログラム」それぞれの専門技術者によるチームが開発するのが良い。
- 2)必要最小限の制御が可能な中央処理装置(CPU)等を用い、相互通信するIoT機器の統合システムとして構築するのが良い。多少予算増にはなるが、不具合箇所を特定、拡張性を担保しやすい。複数のIoT機器の連携には、IROHA2などのネットワーク上位のプログラムによって制御/監視していくのが良い。
- 3)小規模なIoT機器は、低予算かつ短期間での開発・導入を促進できる。高信頼性が必要なIoT機器には、ファクトリーオートメーション分野等で使用される堅牢性の高い機材の使用が適切である。
- 4)IoT機器のメンテナンスは必要であり、IoTの積極導入が大きな予算削減効果や定期保守からの解放を期待できるとは限らない。
- 5)IoT機器それぞれの時系列データの記録の要不要を判断し、必要な場合は保存期間・場所とその閲覧方法を検討しておく。IoT機器が出力する情報/データが、使用者が必要なタイミングで機器に問い合わせるpull型か、実験条件変更などのイベントや機器異常などの発生時に機器が発報するpush型、のどちらが適切かを考えておく。pull型データの取得タ

イミングは個々に委ねられているので問題にならないがpush型のデータにおいて‘ヒトが知りたいタイミング’には個人差がある。

### 3. MLFにおけるIoT

実験科学では多種多様な試料・測定条件を想定する必要があるため、高いフレキシビリティが必要である。MLFでは、IROHA2と通信可能なIoT機器の新規製作、あるいは非IoT機器の改造が現状ではベストな選択である。最先端の科学実験を開拓する上では実験に必要な機器を初めからIoTへ全て組み込むことは開発予算や研究の遅延などの理由から必ずしも最優先とすべきではないが、手法を最適化後は効率的な実験遂行の点から機器のIoTへの組み込みを積極的に進める価値はあるだろう。

さて、視点を広げてMLF実験施設のDXにおける‘手段のIT化’という部分について大雑把に分類すると、

A)実験施設や装置の運転、維持管理におけるDX

B)実験実施、データ処理/解析におけるDX

が挙げられる。2項で取り上げた一装置に属する機器群のIoTへの組み込みは、A)の一部にすぎない。施設管理の観点からは各装置の全てを把握する必要はないが、非常やその兆候に関わる情報等、装置担当者からは施設の運転情報等の相互共有が必要である。このように必要な情報を階層を超えて相互通信できることは施設においてDXを達成するためのインフラとして重要である。現状では、施設、装置問わず機器類の異常やその兆候のチェックは定期パトロールやパトランプ等の利用にその多くを依存している。またネットワークカメラを運用することで、pull型の情報収集により遠隔監視が可能になる。また、画像情報処理や、電気信号の処理から必要な情報をpush型のデータとして抽出することもできる。先述の通り、機器ごとに情報の保存期間や検索しやすさ等の検討を要する上に、施設が管理する情報は、当然、厳選しても装置のそれよりもはるかに膨大であり、負担や責任が大きいことも容易に想像できる。

中性子実験は、実験者が実験施設に来所して、実験やデータ処理を行うオンサイト型が一般的である。昨今のコロナ禍の影響もあり、B)に関する実験の実施やデータ処理/解析についてのDXも検討されている。具体的には実験施設の敷地外からセキュリティ保護下で外部アクセスから操作する実験条件等の入力とその実行、得られたデータの同リモート処理/解析である。リモート実験の遂行には、先述の自動試料交換機を

はじめとするIoT機器群などハード面の整備のみならず、実験中のデータを吟味しながら実験を実施することで、より良いデータの取得にする直結するため、リモート実験やデータ処理/解析に対応したソフトウェアも整備する必要がある。最近では、オペレーティングソフト(OS)等の基本ソフトウェアのサポート年限が短いため、クロスプラットフォーム対応の解析プログラムを開発するより、オンライン解析の有効性が大きい印象がある。

海外の中性子散乱施設では、各装置の実験状況を日本から閲覧できるばかりでなく、情報セキュリティ保護下で、日本からリモート実験が実施可能な装置もある。MLFにおいても、関係各所と調整しながらリモート実験を試験的に実施し、リモート実験の運用を目指している。我々の装置でも、リモート実験/解析における誤操作防止等諸問題を考慮したリモート実験に向けて、オンサイトで使用中の万葉ライブラリや空蟬プログラム[3]の機能を拡張するなど、検討を始めている。

MLFへの外部からのアクセスがIT無しでは進まない一方で、情報セキュリティ対策をせずに利用することは困難である。一方、DXが目指す、快適生活の実現の観点に立つと、例えば、一般に鍵の種類と数でセキュリティレベルは上がるが、手間が増えることはストレスとなり、結果としてその鍵やサービスは使用されなくなる可能性がある。一律に全ての情報を管理するのでなく、情報の種類によって保護レベルを変えるなどなんらかの知恵を絞る必要がある。他のセキュリティ関連課題は、同時接続するマルチユーザーとその対象データに関する管理に関わることである。毎日、適切に対象者に関わるアクセス権の譲渡/失効をヒトが判断して対応することは負担が大きいことは容易に想像できる。その他、データ科学を活用した新材料開発を狙うマテリアルDX (MDX)への展開も想定される。実験者が取得したデータの管理だけでなく、クレジットや実験データに付帯する使用装置・試料・試料環境情報などの保護管理についても同様に慎重な議論が必要であろう。

ITを用いたインフラ整備や開発は今後、多方面で充実させていく必要がある。減ることのないデータストレージ対応や、寿命が長くない高速計算機の置換えに対する負担を軽視できない。負担を確実に減らすための堅牢なものかつ、拡張性などフレキシビリティを有する運用コンセプト(フレームワーク)を描くことが求められる。

## 4. 技術開発や教育・研究におけるDX

科学実験に関わるマーケットが小さいことが1つの要因だと思われるが、我々が開発したIoT機器の量産化を検討して頂けるほどの評価は得られていない。また、研究者側の研究予算の節約思想、そもそもIoT機器でなくても実験や研究が成り立つだろうという現状維持思想、IoT機器に仕事を奪われることを懸念する心理、IoT機器開発成果の評価しにくさが、IoT機器類の普及を遅らせている。

IoT機器開発は、プログラミングが必須となる点でデジタル教育における題材として適している。さらに、成功体験から新規IoT機器開発など創造的な学習効果[7]も期待できることから、このようなデジタル教育を教育におけるDXと位置づけることもできるかもしれない。一方で、2項で述べたとおり、IoT機器システムの構築には、これまでの技術開発や科学研究の手法に新たに通信やデータサイエンスが加わるので幅広い視野と、良質な人脈の構築が必要になる。各技術や各科学研究の革新には失敗や無駄とも見える試行錯誤の経験が必要不可欠であり、そのための時間が必要である。教育や学習(実験や研究を含む)の全てをDXに頼るのではなく、現場(オンサイト)で五感に触れ、思考時間を十分に確保し、また多分野の専門家と議論、共創することは極めて重要である。

## 5. まとめと展望

MLFにおいても施設インフラ、計算環境、情報セキュリティ、試料持込/持出をはじめ、各部署でDXについて議論され、少しずつではあるが進展している。我々が開発したIoT機器は、装置において実験者や装置担当者の負担を軽減し、以前よりデータや科学研究に関する議論の時間が増え、研究成果も増加傾向にあることから、MLF・装置への更なるIoT導入の効果は期待できる。

コロナ禍による様々な制約により来所できない実験者が多い。MLFは、来所できないユーザー代わって装置担当者が実験することを義務付けておらず、ユーザーが来所できない場合は採択課題をキャンセルとすることを事前に伝えているが、装置担当者が実施可能な多くの実験で代行実験が実施されている。実験プランを装置担当者に完全一任するものから実験中も装置担当者と実験者がやりとりするものまで様々な形態で代行実験が執り行われている。数年前から運用を目指して開発していたIoT機器が我々の装置でも代行実験の遂行に幸か不幸か大いに役に立っている。現行の代行実験は先述の形態により、負担が少なく依頼分析

サービス様に実質データを取得できる点で一部のユーザーには好評であるが、オンサイト実験に比べて様々な雑務をしながらの実験となるため、実験に集中できないとする声も聞く。実験者と装置担当者との物理的距離が、意思疎通を困難にしているなど課題も多い。その他、試料受取～分光器へ試料設置、実験計画の立案や調整など、装置担当者側の負担が増加傾向にある。代行実験は原則、非常時対応と位置付け、必要なインフラを整備した上で、オンサイト実験をプライマリ、リモート実験を、セカンダリオプションとすべきであると考えている。

オンサイト実験・リモート実験に関わらず、科学実験におけるDXの潮流は世界的に今後も続くと思われる。来るSociety 5.0[8]時代を切り拓く人材の育成や確保の他、中性子実験施設における技術や経験の伝承方法についても早急に審議が必要である。次世代を担う大学・専門学校の学生等を対象にMLFにおけるDXに関わる課題を募集し、共に未来を考えるのも良いかもしれない。

家電化が進む自家用車において、車載の全地球測位システム(GPS)の情報と連動した緊急通報、スマートフォンと連動した車輻追跡などが可能な‘繋がるクルマ’が注目されている[9]。車輻という性格から高速かつ無線の通信方式が採用されていると推察される。仮に、10年後を見据えた時にどの通信方式が大型実験施設あるいは科学実験にとって最適なのだろうか？

筆者らが行ったIoT機器の装置への導入はDXにおいては‘手段の変化’の一手にしか過ぎない。DXの本質は企業文化改革、コミュニティ改革とする著書[10]が対象とする産業にMLFのような科学研究施設は含まれていない。MLFにおいては、単純にビジネス・サービスの改革としてDXを導入するのではなく、バイオ・ナノ・量子における物質科学研究、関係する技術や知識や経験の次世代への伝承も含むDXとして、どのような未来を描くか、またどう促進すべきかを議論する時期にきている。

## 参考文献

- [1] E. Stolterman, Anna Croon Fors. “Information Technology and The Good Life” , Relevant Theory and Informed 2004.  
[https://doi.org/10.1007/1-4020-8095-6\\_45](https://doi.org/10.1007/1-4020-8095-6_45)
- [2] 柴田薫ら “J-PARC パルス中性子源における結晶アナライザー逆転配置分光器 DNA” 波紋, 2016, 26, 1, 37-41.  
[https://doi.org/10.5611/hamon.26.1\\_37](https://doi.org/10.5611/hamon.26.1_37)
- [3] 稲村泰弘 “MLF計算環境グループの活動” 波紋 2021, 31, 3, 121-127.
- [4] T. Tominaga, et al. “Position-Encoded Automatic Cell Elevator for BL02, J-PARC MLF” JPS Conf. Proc. 2021, 33, 011095.  
<https://doi.org/10.7566/JPSCP.33.011095>
- [5] Y. Kawakita, et al. “Current Status of BL02 DNA in 2020” MLF Annual Report 2020. pp.84-85  
[https://mlfinfo.jp/\\_src/resource/PEPngy9XwF/MLF\\_AR\\_2020.pdf](https://mlfinfo.jp/_src/resource/PEPngy9XwF/MLF_AR_2020.pdf)
- [6] 富永大輝ら “MLFでSociety 5.0を考える” CROSS T&T, 2021, 69, 39-43.  
[https://www.cross.or.jp/pdf/TandT/CROSS-TT\\_69.pdf](https://www.cross.or.jp/pdf/TandT/CROSS-TT_69.pdf)
- [7] ジョン・カウチら 花塚恵(訳) “Appleのデジタル教育” かんき出版 2019.
- [8] [https://www8.cao.go.jp/cstp/society5\\_0/](https://www8.cao.go.jp/cstp/society5_0/)
- [9] 河口信夫 高田広章 佐藤健哉 “つながるクルマ” (モビリティイノベーションシリーズ 3) コロナ社 2020.
- [10] 黒川通彦ら “マッキンゼーが解き明かす生き残るためのDX” 日本経済新聞出版 2021.

## 謝辞

IoT機器の開発・本稿の執筆には、川北至信氏、松浦直人氏、山田武氏、小林誠氏、笠井聡氏、桐山幸治氏、大内啓一氏、花島隆泰氏、曾山和彦氏の協力、助言を頂きました。ここに謝意を表す。

量子科学技術研究開発機構 量子ビーム科学部門関西光科学研究所  
放射光科学研究センター 高圧・応力科学研究グループ 齋藤 寛之

## はじめに

水素は材料中で様々な化学状態を取ることができるため、水素の化合物である水素化物は多様な機能性を発揮する [1]。近年では常温超伝導、ヒドリド伝導、高速イオン伝導などの機能性水素化物の研究が広範にわたり進められているが、半世紀以上の研究開発の歴史を有する水素吸蔵合金の研究も、水素エネルギー社会の実現に向けて、引き続き精力的に進められている。

水素はエネルギー利用時に温室効果ガスを発生しないクリーンなエネルギーキャリアとして、また、様々な一次エネルギーから変換可能で長期保存が可能なエネルギーキャリアとして期待されている。一方で、水素は私たちが生活している常温常圧で気体であるため、エネルギー密度が低いという問題がある。水素吸蔵合金では水素を原子状の固体で貯えることが可能となるため、体積水素密度を液体水素以上に高くすることが可能であるというメリットを有する一方、金属を用いるため重量面に課題がある。また、エネルギー貯蔵材料として大量生産・使用する場合、材料コストも課題となる。

水素吸蔵合金を探索する上では、「水素化し易い金属と水素化し難い金属を合金化させる」という指針が良く知られている [2]。また、水素吸蔵合金に限らず、これまで合成されている水素化物はほぼ例外なくこの指針に従う。ここで「水素化し易い金属」とは常圧近傍の水素圧力で容易に化学量論組成に近い水素量の水素化物を形成する金属を指し、周期表でアルカリ金属からV族までの元素とPdが該当する。これに対して「水素化し難い金属」は化学量論組成に近い水素量の水素化物を形成するのに少なくとも1万気圧以上の高圧水素が必要な金属を指し、周期表でCr族からCu族の元素のうちPdを除くものが該当する。水素吸蔵合金の場合では、水素化しやすい金属はその水素化物が安定に過ぎるため、水素放出に高温が必要となってしまう。水素化しやすい金属に、水素化し難い金属を混ぜることで適切な温度で水素放出が可能となるように調整している。この考え方の基本となっているのが、二種類の金属を合金化させ水素吸蔵させた時に、合金水素化物の安定性が構成元素それぞれの水素化物の安定性の中間になるという点である。この考えに基づけば、難

水素化金属を組み合わせても安定な水素化物は得られないはずである。

この水素吸蔵合金の探索指針は非常に有用である一方、材料探索の幅を制限しているとも言える。これまで水素吸蔵量や水素吸放し性能に優れた材料としてLaNi<sub>5</sub>やTiFeといった吸蔵合金が開発され、既に実用にも供されている。これらの合金は比較的高価な金属を含み、また、重量水素密度を向上させたいというニーズがあるが、上述の探索指針の範囲内では有効な金属の組み合わせは多くなく、材料探索からこれらの課題を解決することは困難であることが推察される。

筆者らは、もし従来の水素吸蔵合金の探索指針にとらわれること無く、難水素化金属のみから構成される合金の水素化物を得ることができれば、材料探索の幅が飛躍的に広げられるようになるのではないかと考えた。難水素化金属の中でも特に軽量安価な金属であるアルミニウムを豊富に含み、難水素化金属のみから構成される合金の水素化反応を探索している。最近、アルミニウムと鉄という私たちにとって最も身近といってもよい金属を組み合わせた合金が、従来の探索指針に反して水素化物を形成すること、そして、得られた水素化物が常圧近傍でも熱力学的に安定である可能性を示す結果を得たので、これらの成果について紹介する。また、水素化物研究には欠かすことのできない中性子利用技術についても本研究成果と併せて紹介する。

## 高温高圧水素化

従来の水素吸蔵合金の探索指針に従わない材料を従来の合成方法で実現することは容易では無い。筆者らは高温高圧水素化技術を使って新規水素化物の探索を進めている。理想気体の反応性(化学ポテンシャル)は圧力の対数で増加するので、気体の反応性に対する圧力効果はそれほど大きくないように思える。しかし、水素が理想気体の振舞いから外れる高圧下(約1000気圧以上)では水素の反応性は圧力に対して急激に増加し、金属の水素化反応が進行しやすくなる。これを利用して常圧近傍では合成できない新規水素化物の探索を高温高圧下で行う。高圧下で得られる新規相は高圧安定相なので、常圧に戻すと不安定化してしまうのではと想像される読者も多いと思われる。その指摘は正しく、筆者らが高圧で合成に成功した水素化物の幾種かは、減圧過程で水素を放出してしまい、常圧下に

回収できなかった。しかしながら、反応性に富む水素の効果は水素反応カイネティクスの向上にも貢献するため、例えば常温常圧で安定な水素化物を形成できるにもかかわらず、合金表面が化学的に安定な不動態で覆われているため水素化が実現していなかった様な材料は、高温高压下で水素化物を形成して、それが分解することなく常圧に回収される。本で紹介する材料も現時点では水素化に高压が必要であるが、熱力学的には常圧近傍でも水素化物を形成可能と考えられるものである。

高温高压水素化はキュービック型マルチアンビルプレスと呼ばれる高压発生装置を用いて行った。この装置の模式図を図1に示す。この装置では試料を含む立方体形状の圧力媒体を6個の炭化タングステン製のピストン(=アンビル)で等方的に圧縮することで、試料位置に超高压を発生させる。この立方体の中に円筒状のグラファイトヒータをセットし、電極と上下のアンビルを通して電力を供給することで、ジュール熱により内部から試料を加熱する。ここでさらに円筒状グラファイトヒータの内部に高温高压水素化を実現するためのパーツをセットする。この技術は深井らによって開発されたもので、国内外の高温高压水素化物合成研究グループで広く使われている[3,4]。ポイントとなるのは以下の3点である。(1)内部水素源：高压合成に必要な量の水素気体を常温常圧下から高压装置に封

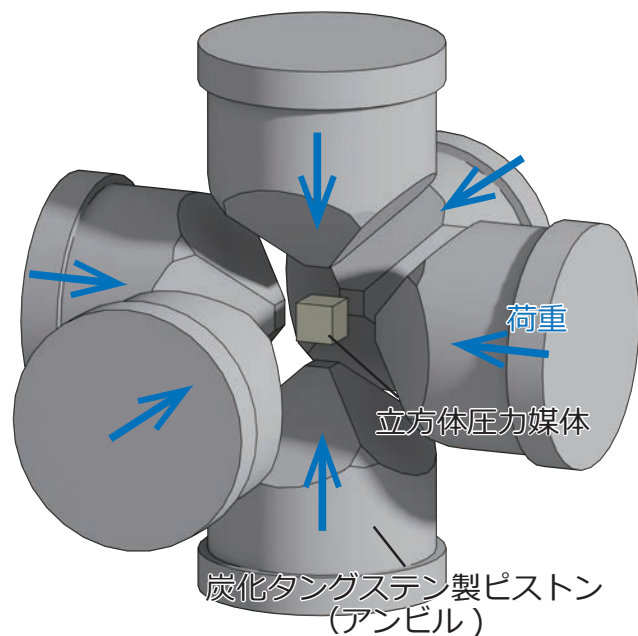


図1. 本研究で用いた高温高压装置(キュービック型マルチアンビルプレス)の圧力発生部の模式図。試料は立方体形状の圧力媒体中にセットされており、6個の炭化タングステン製のピストンで圧縮することにより、試料位置に超高压を発生する。

じ込めるのは容易では無い。この技術では内部水素源と呼ばれる、高压下での加熱により水素を放出する化学物質を用いる。内部水素源としては $\text{NaBH}_4$ と $\text{Ca(OH)}_2$ の混合粉末、 $\text{AlH}_3$ 、 $\text{NH}_3\text{BH}_3$ などが用いられることが多い。(2)水素封止カプセル：内部水素源から高温高压下で水素が放出されても、それを封じ込める工夫をしないと拡散性に富む水素は容易に系外に逃げてしまう。ここで粉末の $\text{NaCl}$ で作製したカプセルを用いると高温高压の水素を閉じ込めることが可能となる。 $\text{NaCl}$ は0.1 mmの厚さでも10万気圧、 $800^\circ\text{C}$ の高温高压水素を十分に封じることが可能であり、よく最適化された高压合成用のパーツを用いると2-3日の間、10万気圧、 $800^\circ\text{C}$ の水素を封じておくことが可能である。(3)セパレータ：内部水素源が水素を放出した後には、何らかの副生成物が残る。この副生成物と試料が接触すると意図しない反応が進行する可能性がある。ここで試料と内部水素源の間に窒化ホウ素で作製したセパレータをセットする。この窒化ホウ素セパレータは化学的に安定なため、副生成物と試料の反応は阻害する。一方、セパレータは高温高压水素を通すことができるため試料位置に水素が供給される。(1)～(3)の組み合わせにより、高温高压下での試料の水素化反応が実現する。

高温高压法は新規水素化物合成に有効な方法である一方、合成条件に圧力が加わることで、条件探索や最適化に多数の実験が必要になる。通常は合成パラメータを一つずつ変化させて高压実験を行い、常温常圧下に回収された試料を分析し、それらの結果を比較することで合成条件の探索や最適化を進める。ここで高輝度、かつ、指向性の高い放射光X線を利用すると、高温高压下での試料の結晶構造を粉末X線回折によりその場で観察可能になる。これにより、目的とする水素化反応が進行しているかどうかといった情報がほぼリアルタイムに得ることができる。新規水素化物の合成条件の探索と最適化が効率的に進められる様になる。ここで一つ注意が必要なこととして、放射光X線回折によるその場観察実験では、水素に関する情報は得ることはできない点が上げられる。放射光X線回折では水素化による金属格子の膨張や変形を検出することで水素化の有無を判断する。この実験だけで水素化物生成を確定することはできないので、回収試料の分析結果と合わせて新規水素化物の生成を判断する必要がある。

## アルミニウム鉄合金の水素化

アルミニウムと鉄の合金について、アルミニウムに富む組成領域の合金の高圧水素化反応を放射光その場観察法により探索したところ $\text{Al}_{13}\text{Fe}_4$ 合金が7万気圧、650°C以上の高温高圧下で水素化し、新規水素化物 $\text{Al}_3\text{FeH}_4$ を形成することを見いだした[5]。以下に実験と結果について説明する。

出発物質はアーク溶解炉を用いて作製した $\text{Al}_{13}\text{Fe}_4$ 合金を用いた。得られたボタン形状のインゴットを乳鉢で粉砕し、直径1mm、高さ0.4mmの円筒形状に圧縮成型し、窒化ホウ素製の試料カプセル兼セパレータにセットした。内部水素源である $\text{AlH}_3$ 、または、 $\text{NH}_3\text{BH}_3$ と共にNaCl製の水素封止カプセルに試料を組込み、加熱用のグラファイトヒータとともに立方体圧力媒体にセットし、キュービック型マルチアンビルプレスで加圧した。試料は室温で9万気圧まで加圧された後、アンビルに加える荷重を一定にした状態(≒圧力一定)で750°Cまで加熱された。内部水素源から約600°Cで水素が放出され、それ以上の高温で試料は水素中に保持された。750°Cに到達後、約2時間試料を水素中に保持し、その後室温まで降温し常圧まで減圧した。以上の過程を大型放射光施設SPring-8の量研専用ビームラインBL14B1において、粉末X線回折

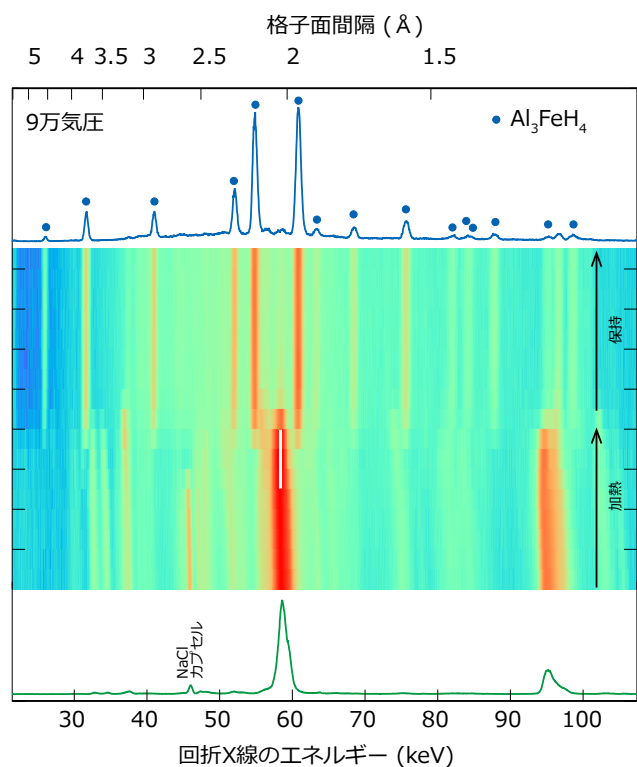


図2. 9万気圧における $\text{Al}_{13}\text{Fe}_4$ 合金の水素化反応過程の放射光その場粉末X線回折測定結果。室温での9万気圧までの加熱では $\text{Al}_{13}\text{Fe}_4$ の結晶構造は変化しなかった(最下段のプロファイル)。水素中で加熱したところ、約600°Cで構造変化の開始が観察された。

測定によりその場観察した。常温常圧下に回収された試料は粉末X線回折、粉末中性子回折、支差熱天秤-質量分析装置(TG-MS)等により評価した。

図2に放射光その場観察により得られた $\text{Al}_{13}\text{Fe}_4$ 合金の粉末X線回折プロファイルを示す。 $\text{Al}_{13}\text{Fe}_4$ 合金を室温で9万気圧まで加圧した際には圧力印加による格子の収縮のみが観察され、構造相転移等は生じなかった。9万気圧で試料を加熱したところ、約600°C付近で内部水素源から水素が放出されたが、それとほぼ同時に合金からのブラッグピーク強度の減少と、新しいブラッグピークの出現が観察された。このプロファイル変化は750°Cに到達後、約5分で完了した。既に述べたとおり、この放射光その場観察のプロファイルのみから水素化物が生成しているか否かを判断することは難しいが、後に述べる回収試料の分析結果と合わせると、9万気圧750°Cでの水素処理により、 $\text{Al}_{13}\text{Fe}_4$ 合金が水素化し、新規水素化物 $\text{Al}_3\text{FeH}_4$ を形成することが分かった。ここで、出発物質の合金のアルミニウム濃度が水素化物のそれよりも若干(約8at%)多くなっている。 $\text{Al}_3\text{Fe}$ 組成の合金を作製して同じ温度圧力条件下で水素化することで $\text{Al}_3\text{FeH}_4$ を得ることが可能であるが、その場合、水素化反応に12h以上の保持時間が必要であることが分かっている。余剰なアルミニウムが自己フラックス的な役割を果たし、水素化反応速度が向上していることが考えられる。

得られた新規水素化物 $\text{Al}_3\text{FeH}_4$ は9万気圧での降温、および、室温での減圧でも分解すること無く、常温常圧下に回収することができた。回収された試料が水素化物であることを確認するために、TG-MSを用いて加熱による水素放出の有無を測定した。TG-MSの測定結果を図3に示す。 $m/z=2$ のイオン強度が水素放出量に対応しているが、図に示すとおり約150°C付近での水素放出を確認した。水素以外のガス種の放出

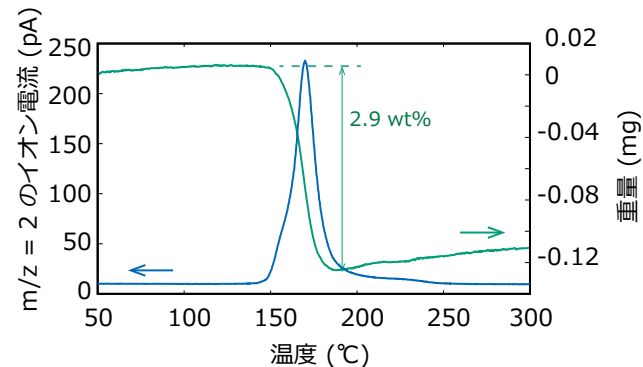


図3. 回収試料の支差熱天秤-質量分析装置(TG-MS)による分析結果。約150°Cから水素を放出していること、および、水素放出時の重量減少量からと、得られた水素化物が2.9wt%の水素を含むことが確認された。

は検出されなかったため、水素放出時の重量減少量から試料の水素量を算出したところ約2.9 wt%の水素を含んでいることが分かった。本研究はまだ基礎研究の段階であり、既に実用化段階にある水素吸蔵合金との比較はあまり意味が無いかも知れないが、従来の探索指針では水素を吸蔵しないと考えられていたアルミニウムと鉄を組み合わせた合金が、重量水素密度、および、体積水素密度とともにLaNi<sub>5</sub>やTiFeといった水素吸蔵合金と同程度の水素吸蔵量を示したことは、特筆すべき結果である。

ここまで説明してきたとおり、放射光その場観察を活用することで高温高压下の試料の構造情報をその場で得ることが可能となるため、新規物質が生成する温度圧力条件を迅速に決定することが可能となる。加えて、放射光その場観察では生成した水素化物の分解温度圧力条件も決定できることから、得られた材料の熱力学的安定性を評価することも可能である。実際に放射光その場観察により決定されたAl<sub>3</sub>FeH<sub>4</sub>の生成反応の平衡温度圧力条件を示したものを図4に示す。こ

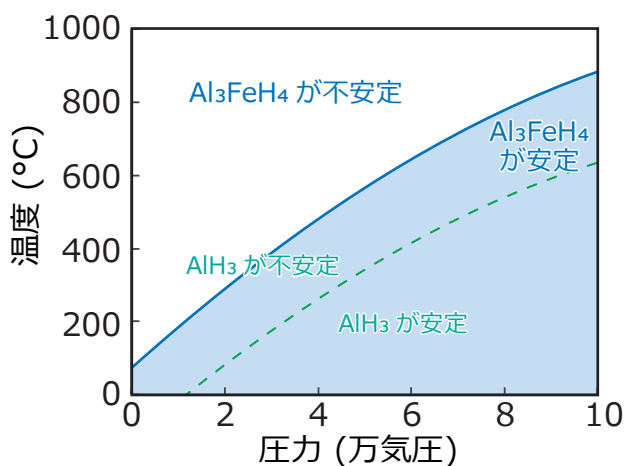


図4. Al<sub>3</sub>FeH<sub>4</sub>とAlH<sub>3</sub>の安定領域の比較。青色実線と緑色点線がそれぞれAl<sub>3</sub>FeH<sub>4</sub>とAlH<sub>3</sub>の分解曲線を表す。分解曲線より低温側で水素化物が安定となる。

では比較のために純アルミニウム水素化物の生成反応の平衡条件も示した。この図から重要な結果が2点読み取れる。第一には、今回得られた新規水素化物Al<sub>3</sub>FeH<sub>4</sub>は常温常圧近傍でも熱力学的に安定である可能性が高いことである。すなわち、Al<sub>3</sub>FeH<sub>4</sub>は常圧近傍でも合成することが可能であり、適切な反応パスを見つけることができれば本材料を常圧付近で水素吸蔵材として使用することが可能と考えられる。それではなぜ現時点でAl<sub>3</sub>Fe<sub>4</sub>合金を水素化するために7万気圧以上の超高压が必要なのだろうか。一般的にアルミニウムに富む合金ではその表面に化学的に非常に安定な自然酸化膜が形成することが知られており、今回

のAl<sub>3</sub>Fe<sub>4</sub>合金でも同様である。この酸化膜が内部の水素化反応を妨げていると考えられる。

第二のポイントは、Al<sub>3</sub>FeH<sub>4</sub>はそれぞれの構成元素単体の水素化物であるAlH<sub>3</sub>、および、FeH<sub>x</sub>と比べて高い熱力学的安定性を有している点である。なお、FeH<sub>x</sub>は2万気圧以下では分解してしまうため図4では省略した。これは従来の水素吸蔵材料の探索指針のもととなる考え方である「水素化し易い金属は水素放出温度が高いため、水素化し難い金属と組み合わせて適切な水素放出温度を実現する」という考え方とは整合していない。従来の水素吸蔵材料の探索指針では説明できないAl<sub>3</sub>FeH<sub>4</sub>は、特異なメカニズムで安定化している可能性が高い。そこで結晶構造を調べることで金属-水素間にどのような結合が生じ、それらが水素化物の安定化にどのように寄与しているかを考察することとした。

## 中性子を利用した結晶構造精密化と水素化物の安定化機構の考察

これまで説明してきたとおり、新規水素化物の高温高压合成において、放射光X線回折によるその場観察は合成条件の探索や安定性の評価のための非常に強力なツールとなっている。しかし、放射光X線では水素の情報を得ることが原理的に困難であるため、結晶構造から金属と水素の結合様式を調べようとすると別の手段を講じる必要がある。筆者らは常温常圧下に回収されたAl<sub>3</sub>FeH<sub>4</sub>の中性子回折測定とリートベルト解析による構造精密化を行い、得られた結晶構造から水素化物の安定化機構を考察した。

中性子回折実験においては軽水素化物試料では非干渉性散乱の割合が高くなってしまい構造精密化に不利となる。そこでアルミニウム鉄合金の重水素化物を合成し中性子回折実験を行うこととした。高压水素化の場合、内部水素源を重水素化物に置き換えることで、目的とする重水素化物を得ることが可能となる。本研究では純アルミニウムの重水素化物を重水素源として用いた。水素の同位体効果による結晶構造の変化は格子定数がわずかに異なる程度であり、構造自体が変化することはほとんど無い。一方、内部重水素源が重水素を放出する温度が、軽水素源と比較して最大で100°C程度変化することもあり、試料合成の最適条件は変化する場合がある。本試料についても合成条件の最適化を再度行い、アルミニウム鉄合金の重水素化物Al<sub>3</sub>FeD<sub>4</sub>を得た。筆者らが用いている高压合成装置では一回の実験につき0.5 mg程度のAl<sub>3</sub>FeD<sub>4</sub>を合成可能であるが、中性子回折測定を行うには量が不十分



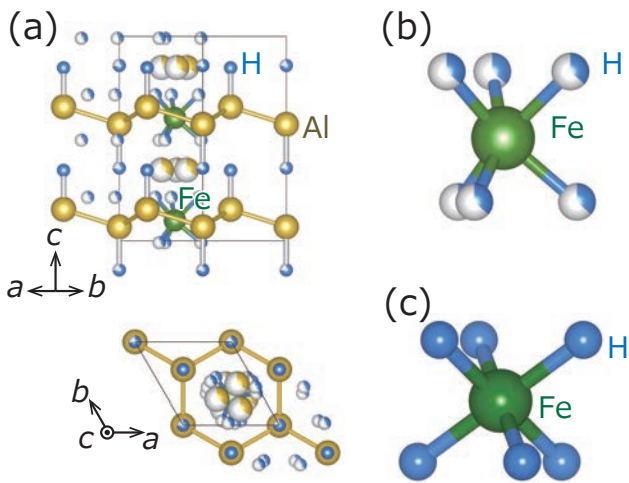


図5.(a)  $\text{Al}_3\text{FeH}_4$ の結晶構造の模式図。(b) $\text{Al}_3\text{FeH}_4$ 中のFe-Hからなる構造ユニット。水素は1/3の部分占有である。(c) $\text{Li}_4\text{FeH}_6$ 中の $[\text{FeH}_6]^{4-}$ 錯イオン。

である。本研究では10回以上の高圧合成実験を行い、得られた9.1 mgの試料について大強度陽子加速器施設J-PARCの物質・生命科学実験施設に設置された高強度全散乱装置NOVAを用いて測定を行った。また同じ合成方法で作製した別の $\text{Al}_3\text{FeD}_4$ 試料を大型放射光施設SPring-8のBL22XUにて粉末X線回折測定を行い、中性子とX線回折の両データを用いてリートベルト解析を行った。構造精密化は重水素化物を対象に行ったが、以下では記述の単純化のため、単に水素化物、または、 $\text{Al}_3\text{FeH}_4$ と記述する。

解析の結果得られた結晶構造の模式図を図5(a)に示す。放射光その場観察で得られたプロファイル変化(図1)からも確認されたが、水素化前の $\text{Al}_3\text{Fe}_4$ の結晶構造とは完全に構造が異なっていることが確認された。結晶構造を保ったまま原子状水素が格子間の隙間に入ることで形成される侵入型水素化物とは別種類の水素化物が形成していることが示唆された。得られた結晶構造の単位格子は空間群 $P3c1$ (No.158)に属し、格子体積 $V=153.7 \text{ \AA}^3$ と比較的対称性の高い単純な構造の見えるが、結晶構造をよく見てみると水素サイトも金属サイトも部分占有サイトが多く含まれている。金属-水素間の結合に着目して、もう少し詳しく結晶構造を見てみる。

図5(b)に鉄元素まわりの水素サイトの模式図を示す。鉄元素のまわりに6個の水素サイトがあり、鉄元素を中心とした八面体を形成していることが見てとれる。この形状と鉄-水素間の距離は、典型的な錯体水素化物である $\text{Mg}_2\text{FeH}_6$ や $\text{Li}_4\text{FeH}_6$ 中に含まれる $[\text{FeH}_6]^{4-}$ 錯イオン(図5(c))と近いことが明らかになった。しかし、錯体水素化物中の $[\text{FeH}_6]^{4-}$ 錯イオンは正八面体であり水素サイトは完全に占有されているのに

対して、 $\text{Al}_3\text{FeH}_4$ 中の構造ユニットでは水素サイトが1/3の部分占有であり、かつ、八面体が正八面体から歪んでいるといった違いもあった。

$\text{Al}_3\text{FeH}_4$ 中で見られたこの構造ユニットは、 $\text{LaMg}_2\text{Ni}$ の水素化反応過程で報告されている $[\text{NiH}_4]^{4-}$ 錯イオンの前駆体[6]に類似したものと考えている。 $\text{LaMg}_2\text{Ni}$ 合金を水素化すると最終的に $\text{LaMg}_2\text{NiH}_7$ を形成し、この結晶構造の中には完全な錯イオンである $[\text{NiH}_4]^{4-}$ が含まれている。 $\text{LaMg}_2\text{Ni}$ を水素化する場合、 $\text{LaMg}_2\text{NiH}_7$ を形成する過程で $\text{LaMg}_2\text{NiH}_{4.6}$ という水素量が少ない水素化物を形成する。この水素化物中には $[\text{NiH}_4]^{4-}$ と類似の構造ユニットながら水素量が少ない $\text{NiH}_{1.9}$ 、および、 $\text{NiH}_{3.3}$ といった構造ユニットが含まれていることが報告された。これらの結晶構造ユニットは、偶然 $[\text{NiH}_4]^{4-}$ に似た原子配置をしているという訳では無く、第一原理計算や中性子非弾性散乱実験から、Ni-H間に共有結合性が生じていること、すなわち、金属-水素間の結合の観点からも錯イオンの前駆体が形成していることが示された。 $\text{Al}_3\text{FeH}_4$ 中にも水素錯イオンの前駆体の様なユニットが形成することで、水素化物の熱力学的安定性が向上したものと考えている。

## 今後の中性子への期待

以上に述べたとおり、高温高圧の反応性に富む水素を合金と反応させることで新しい水素化物が合成可能となる。この様な研究を進める上で、高温高圧下で進行する水素化反応をその場で観察可能とする放射光計測技術、および、常温常圧下に回収された試料の水素位置も含めた結晶構造を解析可能な中性子回折測定技術は欠かすことができない。ここで、もし、高温高圧下での水素化反応の様子を中性子回折でその場観察できれば、水素位置も含めた構造変化が捉えられるようになり、新物質合成に有用な知見が得られるようになると期待できる。

高圧下での中性子回折実験はJ-PARC MLFの超高圧中性子回折装置PLANETにおいて6軸型マルチアンビルプレス「圧姫」を使用することで可能となっている。高圧中性子回折実験においては、必要な試料体積の確保が重要なポイントの一つであるので、高圧水素化のための部材を導入することでさらに試料体積を少なくすることは測定を困難にする。しかし、すでに複数のグループから高温高圧下の金属の重水素化反応過程のその場観察を行った研究成果が報告されるようになってきた[7, 8]。この技術を新規水素化物合成に活用することで、探索研究が飛躍的に進むことが期待で

きる。反応の進行に伴いどのような様な金属-水素結合が形成していくかを調べる事が可能となるため、基礎的な水素科学の知見を得る目的のみならず、特定の副生物の生成を抑制する方法を検討できる様になるなど合成条件最適化にも有用である。

## 謝辞

本成果は科研費新学術領域研究 “水素科学” (JP18H05513, JP18H05518)、東北大学金属材料研究所における共同研究(19K0049, 20K0022, 202012-RDKGE-0066)のもと、芝浦工大佐藤豊人先生、東北大高木成幸先生、折茂慎一先生、KEK池田一貴先生、大友季哉先生、QST谷上真惟氏、町田晃彦先生、綿貫徹先生、田口富嗣先生、山本春也先生、八巻徹也先生との共同研究により実施して得られたものです。図5の結晶構造の模式図はVESTAプログラム[9]を用いて描画しました。

## 参考文献

- [1] S. Takagi and S. Orimo, *Scr. Mater.* **109**, 1 (2015).  
<https://doi.org/10.1016/j.scriptamat.2015.07.024>
- [2] 新版 水素吸蔵合金 - その物性と応用 -, 大角泰章, アグネ技術センター 1993, p14.
- [3] Y. Fukai and N. Okuma, *Jpn. J. Appl. Phys.* **32**, L1256 (1993).  
<https://iopscience.iop.org/article/10.1143/JJAP.32.L1256>
- [4] A. Kamegawa, Y. Goto, R. Kataoka, H. Takamura, and M. Okada, *Renew. Energy* **33**, 221 (2008).  
<https://doi.org/10.1016/j.renene.2007.05.008>
- [5] H. Saitoh, T. Sato, M. Tanikami, K. Ikeda, A. Machida, T. Watanuki, T. Taguchi, S. Yamamoto, T. Yamaki, S. Takagi, T. Otomo, and S. Orimo, *Mater. Des.* **208**, 109953 (2021).  
<https://doi.org/10.1016/j.matdes.2021.109953>
- [6] T. Sato, K. Ikeda, M. Matsuo, K. Miwa, T. Otomo, S. Deledda, B.C. Hauback, G. Li, S. Takagi, and S. Orimo, *Int. J. Hydrogen Energy* **42**, 22449 (2017).  
<http://hdl.handle.net/11250/2479982>
- [7] R. Iizuka-Oku, H. Gotou, C. Shito, K. Fukuyama, Y. Mori, T. Hattori, A. Sano-Furukawa, K.I. Funakoshi, and H. Kagi, *Sci. Rep.* **11**, 12632 (2021).  
<https://www.nature.com/articles/s41598-021-91801-3>
- [8] D. Ikuta, E. Ohtani, A. Sano-Furukawa, Y. Shibasaki, H. Terasaki, L. Yuan, and T. Hattori, *Sci. Rep.* **9**, 1 (2019).  
<https://www.nature.com/articles/s41598-019-43601-z>
- [9] K. Momma and F. Izumi, *J. Appl. Crystallogr.* **41**, 653 (2008).  
<https://doi.org/10.1107/S0021889808012016>

## 企業紹介 株式会社 ヴィジブルインフォメーションセンター

弊社は昭和57年に創立された独立系ソフトウェアハウスです。科学分野、特に原子力やその周辺分野のソフトウェアに特化しており、解析計算やソフトウェア設計・開発の受託、自社開発ソフトウェアの販売を主な事業としています。2022年2月現在で従業員数は60名ほどの小規模な企業ですが、受託業務に関しては研究機関や省庁、自治体、大学等から直接受注し、社内に取りまとめて納品するという、ワンスルーでの対応を原則としております。受注した業務全体を手掛けることで、関連する技術や知見をすべて社内に蓄積して経験値を積み上げながら、より高度な要請に応えることができるよう成長して参りました。

『四季』の読者の皆様は、中性子を利用した研究・開発に携わっていらっしゃる方が多いかと存じますの

で、以下では、J-PARC関連の弊社の主な実績をご紹介します。

### ■ J-PARC 施設の遮蔽計算

弊社とJ-PARCの関係が始まったのは、今から約25年ほど前、施設の設計段階まで遡ります。弊社は創業以来、放射線遮蔽計算の受託や遮蔽計算コードシステムの開発を中心事業の1つとしていますが、その実績を日本原子力研究所(現・日本原子力研究開発機構)に評価していただき、放射線遮蔽の観点からJ-PARC施設の設計業務に協力して参りました。J-PARCの運転に伴い、施設からは放射線が発生します。その影響を防止することを目的として、線量計算用パラメータの検討と各施設で発生する線量計算を繰

り返し行い、放射線に対する施設の設計目標値を満足する遮蔽材の厚さを決定しました。また、計算用のツールも作成し、これらの成果は原研のレポートとしても取りまとめられています。

## ■加速器制御関連のソフトウェア開発

2つ目に紹介するのは、加速器制御関連のソフトウェア開発です。J-PARCの加速器施設では、KEKや米国SNSで開発された加速器設計・制御用のソフトウェア群が利用されています。これらのソフトウェアをそのまま、あるいはJ-PARC用にカスタマイズして用いるために、保守管理や機能拡張性を高めた実行環境の作成やライブラリ類の作成を、弊社社員がメインとなって実施しました。また、J-PARCの運転データをデータベースに保存するためのツールの開発・改良作業にも協力して参りました。これらの開発の経緯は、加速器学会で毎年発表するなど、外部発表も積極的に行なって参りました。

## ■MLF実験装置用ソフトウェア開発

物質・生命科学実験施設(MLF)では、2022年2月現在、中性子ビームラインが21本、ミュオンビームライン3本稼働しています。

中性子ビームライン向けには、実験データの解析・可視化用ソフトウェアとして、単結晶回折用のSTAR Gazerと、粉末結晶回折用のZ-Codeの開発・

高度化に協力しています。これらのソフトウェアは、装置担当者の方々だけでなく、実験を行ったユーザーの皆様にもご利用いただいています。装置担当者とのやり取りを密に行なうことにより、担当者のリクエストに応えることを基本としながらも、弊社からも改良提案を出していくスタイルで、より簡便かつ高機能にすることを目的として、改良作業を継続中です。

ミュオンビームライン用としては、Kalliopeと呼ばれる検出器の調整を行うKallipeTuneや、ビームラインに設置されたデバイスの設定値を最適化するForTuneといったソフトウェアの開発を行なって参りました。後者のForTuneは、人の手で進んでいたデバイス調整作業の自動化に貢献し、装置担当者の方から好評をいただいております。

この他、多くのビームラインで利用されている測定制御用ソフトIROHA2の高度化や、中性子データ処理ソフト空蟬の配布用パッケージ作成システム構築などの業務にも協力して参りました。

以上、J-PARC関連だけでも多様な実績を有してお

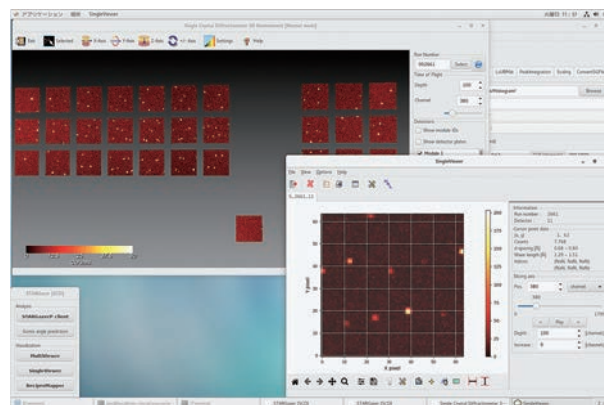
りますが、これら以外にも、大気・地中・海洋における環境負荷物質の挙動解析(福島第一原発事故における放射性物質の拡散シミュレーションでは、拡散分布状況を関係者や研究者に私信として提供し、初期影響の把握に寄与しました)、原子力防災に関わる解析やツールの開発、環境モニタリング情報をWebブラウザや携帯電話で閲覧するソフトの開発、最近では農業関係の画像処理ソフトの開発など、得意とする分野は多岐にわたります。測定機器の制御ソフトやネットワーク構築、クラウドを利用したシステムの構築といったニーズにも対応可能です。

ソフトウェアを取り巻く環境は日々変化しており、ご紹介した業務に関わる中でも新たな技術や知見に触れる機会が多々ありました。そのような機会を与えてくださった研究機関や大学、自治体などの皆様に感謝申し上げるとともに、今後も最先端の研究分野からの要請に応じていけるよう、日々取り組んで参ります。また、一般企業で研究・開発に携わる方々とのコラボレーション、いわゆるBtoBにおいて、弊社の力を発揮する機会も増やして参りたいと考えておりますので、『四季』をご覧いただいている企業の皆様からのお問い合わせもお待ちしております。

株式会社 ヴィジブルインフォメーションセンター：  
茨城県那珂郡東海村村松440  
URL : <http://vic.co.jp/>



IQBRC内事業所



MLF単結晶回折装置用データ処理ソフトウェア  
STAR Gazerによる実験データの可視化例

## J-PARC MLF 情報

- 2022B期の利用申請期間  
2022年4月18日(月)～5月11日(水)となる予定です。
- 2022年4月から6月までの利用運転スケジュールが公開されました。Meet@MLFの運転情報にてご確

認下さい：<https://mlfinfo.jp/ja/operation.html>

- MLF Annual Report 2020 が発行されました：  
[https://mlfinfo.jp/\\_src/resource/PEPngy9XwF/MLF\\_AR\\_2020.pdf](https://mlfinfo.jp/_src/resource/PEPngy9XwF/MLF_AR_2020.pdf)

## JRR-3 情報

- 2022年度第2回施設供用利用課題募集  
5月頃となる予定です。決定次第、JRR-3のサイトや本協議会のサイトでお知らせします。  
<https://jrr3.jaea.go.jp/>

- 2022年度の運転スケジュールはJRR-3のサイトで公開されています：  
<https://jrr3.jaea.go.jp/5/51.htm>

## 活動報告

### ◆中級者向けZ-Code講習会を開催(2021年12月1日～2022年2月28日。オンデマンド開催)

本年度の本講習会も事前に収録した講義映像を特設サイトに掲載して、都合の良い時間に視聴して学習いただく、オンデマンド方式での開催としました。今回は参加が見込まれる方々が年末年始は多忙と考えることができるため、開設期間を3か月と設定としました。内容は講義と実習から成っています。講義としては、東北大学・木村宏之先生による「回折結晶学の基礎」、茨城大学・石垣徹先生による「TOF粉末回折法」、九州大学・富安亮子先生による「Conographを用いた指数付け」の3講義です。これらを視聴いただいた上で、Z-Rietveldの実習として、KEK・神山崇先生、総合科学研究機構・石川喜久先生、JAEA・萩原雅人先生による7件の実習を視聴いただきました。ご講演の先生方には事前の収録に大変ご協力をいただいております。講義がのべ約3.5時間、実習がのべ約10.5時間となりましたが、内容は毎年少しずつ見直しており、参加された方には意義あるものとなったものと思われれます。参加者は35名(うち、大学教員10名、学生11名、研究機関7名、協議会会員企業5名、一般企業2名)でした。来年度以降もこの方法での講習を考えています。

### ◆金属材料研究会を開催(2022年1月18日)

本研究会では金属材料への新たな中性子利用の展開をめざして、データに基づく議論を活動の中心としています。また、議論の結果がまとまるまでは、企業からの参加者は協議会会員企業からのみとし、少人数で深い議論を行う運営を行っています。今回は議論に資する話題提供として、総合科学研究機構・鈴木淳市先生に「中性子小角・広角散乱装置(大観)における金属材料研究」と題して、JAEA・大場洋次郎先生に「活動再開したSANS-J」と題してリモートでご講演をいただき、それに続いて、既存のデータ、公開可能なデータを中心にその解釈、解析方法を中心に議論を行いました。参加者は19名(うち、会員企業8名、大学2名、研究機関9名)でした。

### ◆有機・高分子材料研究会を開催(2022年1月25日)

今回は、小角散乱法の第3回目として、CROSSの岩瀬裕希先生から「中性子小角散乱(SANS)：MLFとJRR-3のどちらを利用すれば良いか」と題してご講演をいただきました。過去2回の開催を受けて、小角散乱を利用する上での疑問にも応えていただく内容でもあり、参加者間で更に詳しく議論を行いました。参加者は35名(うち、大学教員2名、研究機関12名、協議会会員企業15名、一般企業2名)でした。

#### ◆磁性材料研究会を開催(2022年2月16日)

今回は再開後の初回として、この分野の全体感と最新の研究情報を伺うこととし、総合科学研究機構・社本真一先生から「磁性材料におけるダイバシティ」と題して、次に、東京大学・中島多朗先生より「磁気スキルミオンをはじめとしたトポロジカル磁気秩序研究のための中性子散乱技術」と題して2件の講演を行い、活発な議論が交わされました。また、この研究会は15日から2日間にわたって開催された東北大学金属材料研究所ワークショップ「二大中性子源を活用する偏極中性子スピン科学の推進」(16講演)に続いての開催とし、この分野での中性子利用拡大による成果創出や分野開拓に繋げるべく企画しました。参加者は30名(うち、大学教員12名、学生4名、研究機関11名、協議会参加企業1名、一般企業2名)でした。

#### ◆CBI研究機構量子構造生命科学研究所／中性子産業利用推進協議会生物・生体材料研究会合同シンポジウムを開催(2022年3月4日)

本年度第2回目の生物・生体材料研究会(主査：上村みどり氏)を前回同様、CBI研究機構・量子構造生命科学研究所(所長：上村みどり氏)のとの合同シンポジウムとして開催しました。今回も、現在世界的に大きな注目を浴びているクライオ電子顕微鏡に関する最新動向を知るための講演を中心に、Biorius社・Dr.Jack Janによる「Cryo-EM services of Biorius」、Shuimu Biosciences社・Dr.Xiaodan Niによる「Advances and Applications of Cryo-Electron Microscopy : Prospects of Resolution Revolution in Drug Development」、理化学研究所・横山茂之先生による「無細胞タンパク質合成法を用いたGPCR試料の調整」、SPring-8／東北大学・米倉功治先生による「クライオ EM と ED による高精度解析—水素の可視化とその先へ」の4講演を行いました。このような最新の動向をふまえて、今後この分野において中性子が果たす役割について改めて考えていくことにつながっていきたいと考えています。参加者は133名(うち、CBI機構3名、大学教員28名、学生2名、研究機関24名、協議会参加企業14名、一般企業62名)でした。

#### ◆ものづくり基盤研究会を開催(2022年3月10日)

本研究会は、2019年度まで設置していた「残留応力・ひずみ研究会」での活動を受けて、対象とする材料を限定することなく順次拡大し、内部応力、ひずみの測定技術をより深く理解し、更なる利用につなげるべく、基礎的事項から最新の測定技術を知る場として設定しました。すなわち、「内部応力・ひずみ測定を様々な材料で考える」場となることを目指します。初回である今回は、最初に内部応力測定の基礎理論をレビューした上で、個別事例として鉄鋼単独ではない材料での解析事例を紹介することとし、新潟大学・鈴木賢治先生に「内部応力測定の基礎理論—シンクロトロン放射光を中心に—」と題して、JAEA 菅蒲敬久先生に「複合材料の相応力測定～鉄筋コンクリートでの解析事例～」と題してリモートでご講演をいただき、質疑・討論を行いました。参加者は52名(うち、大学教員10名、学生1名、研究機関17名、協議会参加企業22名、一般企業2名)でした。

#### ◆中性子構造生物学研究会を開催(2022年3月15日)

今回の研究会は「タンパク質科学・構造生物学と創薬への展開」と題してオンラインで開催しました。質疑・討論を行いました。講演は、東京大学・胡桃坂仁志先生による「クロマチン構造生物学の現状と将来」、横浜市立大学・小野田浩宜先生による「タンパク質の構造予測ツールAlphaFold2の現状と高難度な予測の解決方策」、東京大学・津本浩平先生による「次世代抗体工学と創薬への展開」、大阪大学・高木淳一先生による「受容体の構造生物学研究から新しいバイオ医薬の創製へ」4件で、それぞれ最新の研究動向をご紹介いただき、中性子利用拡大の観点からも質疑・討論を行いました。参加者は148名(うち、大学教員55名、学生15名、研究機関21名、協議会参加企業14名、一般企業43名)でした。

#### ◆運営委員会・研究開発委員会幹事会合同委員会を開催(2022年1月21日)

今回は、2021年度の事業経過報告・決算見込、2022年度の事業計画・予算案の審議と、2022年度に提出する「要望書」の内容について事務局案を叩き台として、リモートにて議論・意見交換を行いました。2021年度事業計画・決算および2022年度計画・予算については、次回合同委員会(2022年5月27日に開催予定)にて総会付議事項として審議される予定です。

## お知らせ

### ◆中性子産業利用推進協議会サイトのURLを変更しました。

2022年2月1日から以下に変更しました。また、協議会のサイトは暫くの間リニューアルのための工事を行っています。

<https://j-neutron.com/>

### ◆総会開催日程

本年は下記日時、会場での実開催を予定しています：  
2022年7月14日(木) 10:00～12:00 (予定)

開催場所：秋葉原コンベンションホール

<http://www.akibahall.jp/index.html>

### ◆中性子産業利用報告会開催日程

本年は恒例であった、総会開催後に同じ会場で実開催を予定しています。プログラムは準備ができ次第、CROSSのサイトで公開される予定です。<https://neutron.cross.or.jp/ja/>

第1日：2022年7月14日(木) 13:00～16:50

第2日：2022年7月15日(金) 8:50～16:15

開催場所：秋葉原コンベンションホール

<http://www.akibahall.jp/index.html>

### ●第22回日本中性子科学会年会開催日程

日本中性子科学会年会の開催日、開催場所、年会URLが発表されました。

会期：2022年10月26日(水)～28日(金)

会場：幕張メッセ国際会議場

大会サイト：<https://jsns2022.jp/>

### ◆リンクのご案内

中性子・ミュオン利用ポータルサイトJ-JOIN：<https://jrr3ring.jaea.go.jp/jjoin/>

J-PARC：<http://j-parc.jp/c/index.html>

J-PARAC MLF (Meet@MLF)：<https://mlfinfo.jp/ja/>

J-PARAC MLF (Meet@MLF)パンフレット：<https://mlfinfo.jp/ja/reports/published.html>

J-PARCセンターユースオフィス：<http://is.j-parc.jp/uo/ja/index.html>

茨城県中性子ビームライン：<https://www.pref.ibaraki.jp/sangyo/kagaku/tyusei/bl-top.html>

J-PARC MLF 成果検索：<https://mlfinfo.jp/ja/publications.html>

JRR-3：<https://jrr3.jaea.go.jp/>

JRR-3 Twitter：[https://twitter.com/JAEA\\_JRR3](https://twitter.com/JAEA_JRR3)

JRR-3 ユースオフィス：<https://jrr3uo.jaea.go.jp/>

(一財)総合科学研究機構(CROSS)中性子科学センター：<https://neutron.cross.or.jp/ja/>

J-PARC MLF 利用者懇談会：<http://is.j-parc.jp/MLFuser/>

茨城県県内中性子利用連絡協議会：<http://www.htc.co.jp/neutron/>

日本中性子科学会：<https://www.jsns.net/>

日本中性子科学会・国内の中性子実験施設：<https://www.jsns.net/facilities/>

日本中間子科学会：<http://jmeson.org/>

## 中性子産業利用推進協議会(IUSNA) 季報「四季」【22年・春】Vol.54

季報「四季」編集委員会

委員長 杉山 純(CROSS)

委員 勅使河原 誠(J-PARC)・佐野 亜沙美(J-PARC)・水沢 多鶴子(CROSS)・

富安 啓輔(日産アーク)・久米 卓志(花王)

事務局 日比 政昭・綿引 美知枝(中性子産業利用推進協議会)

発行日 2022年3月25日

発行元 中性子産業利用推進協議会

〒319-1106 茨城県那珂郡東海村白方162-1 いばらき量子ビームセンター D201

TEL:029-352-3934 FAX:029-352-3935 E-mail:info@j-neutron.com

<https://j-neutron.com/>(2022年2月1日よりURLを変更しました)

※「四季」のバックナンバーは下記のサイトでご覧いただくことができます：<https://j-neutron.com/siki.htm>