

J-PARCにおける中性子イメージング研究

日本原子力研究開発機構 J-PARCセンター

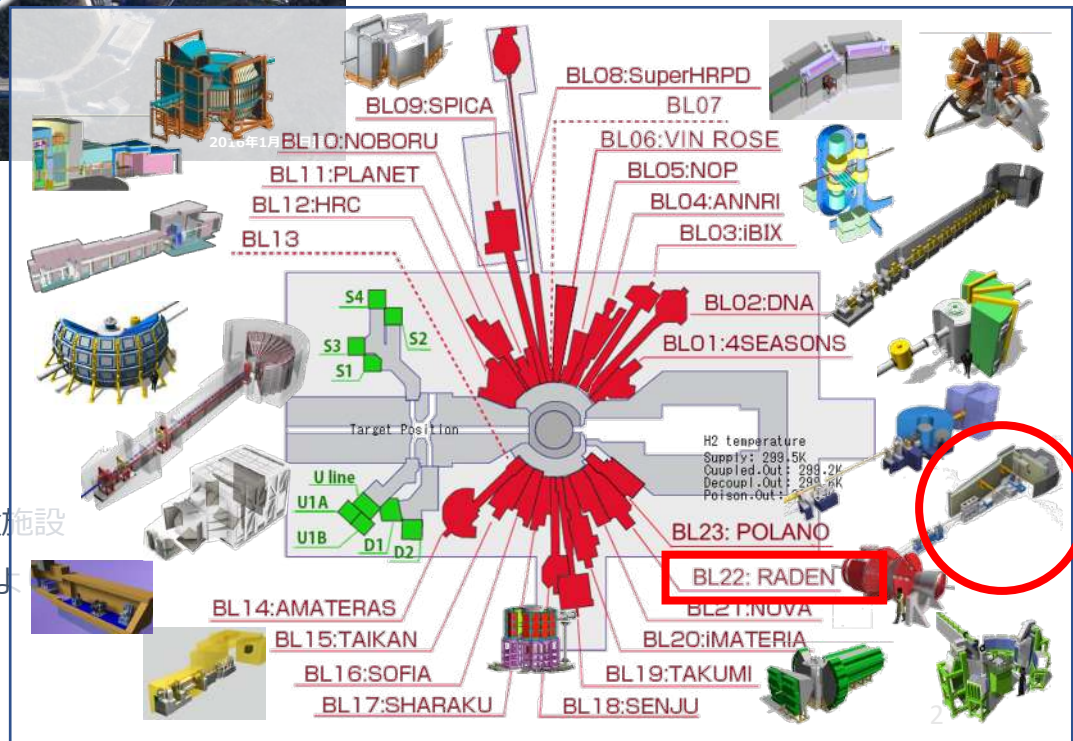
篠原 武尚

takenao.shinohara@j-parc.jp



2008年5月30日に初めて中性子ビームを発生

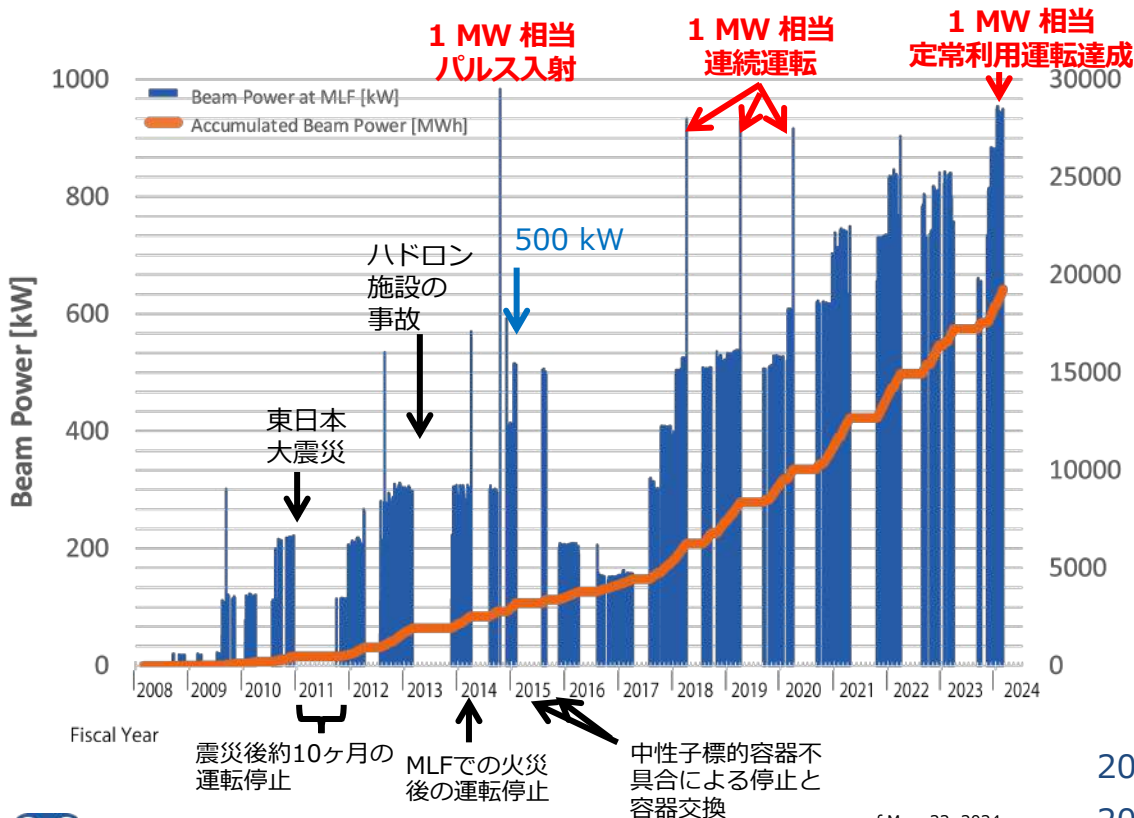
23本の中性子ビームライン
→ 21台の実験装置が稼働中
4本のミュオンビーム孔



中性子科学・ミュオン科学を支える国内最大規模の実験施設

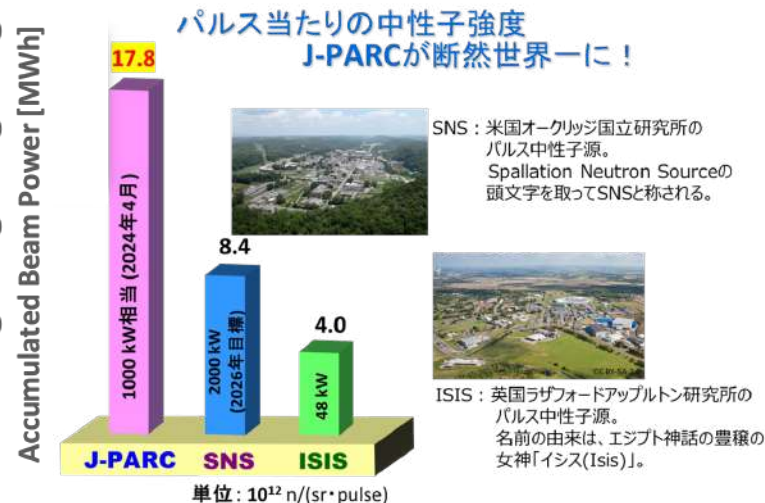
3GeVの陽子ビームを水銀標的に入射し、核破砕反応により大強度パルス中性子を発生し、中性子科学研究に利用

MLF中性子源のビーム運転履歴



2024年4月8日から開始した運転で、目標性能である「1MW相当の陽子ビーム出力での長期に渡る運転」を達成

パルス当たりの中性子強度は米国SNSの2倍以上



2024年5月31日プレスリリース

2024A期は機器異常により1週間前倒しで終了

2024B期も機器異常により運転再開が遅延

パルス中性子イメージング専用ビームライン

基本性能

ビームライン: BL22

減速材: 非結合型液体水素

波長範囲: $\lambda < 8.8 \text{ \AA}$ @L=18m, $\lambda < 6.9 \text{ \AA}$ @L=23m

波長分解能: $\Delta\lambda/\lambda = 0.26\%$ @L=18m, 0.20% @L=23m

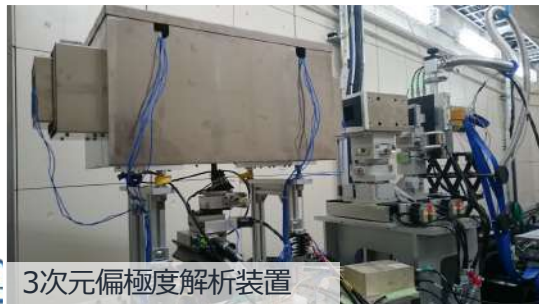
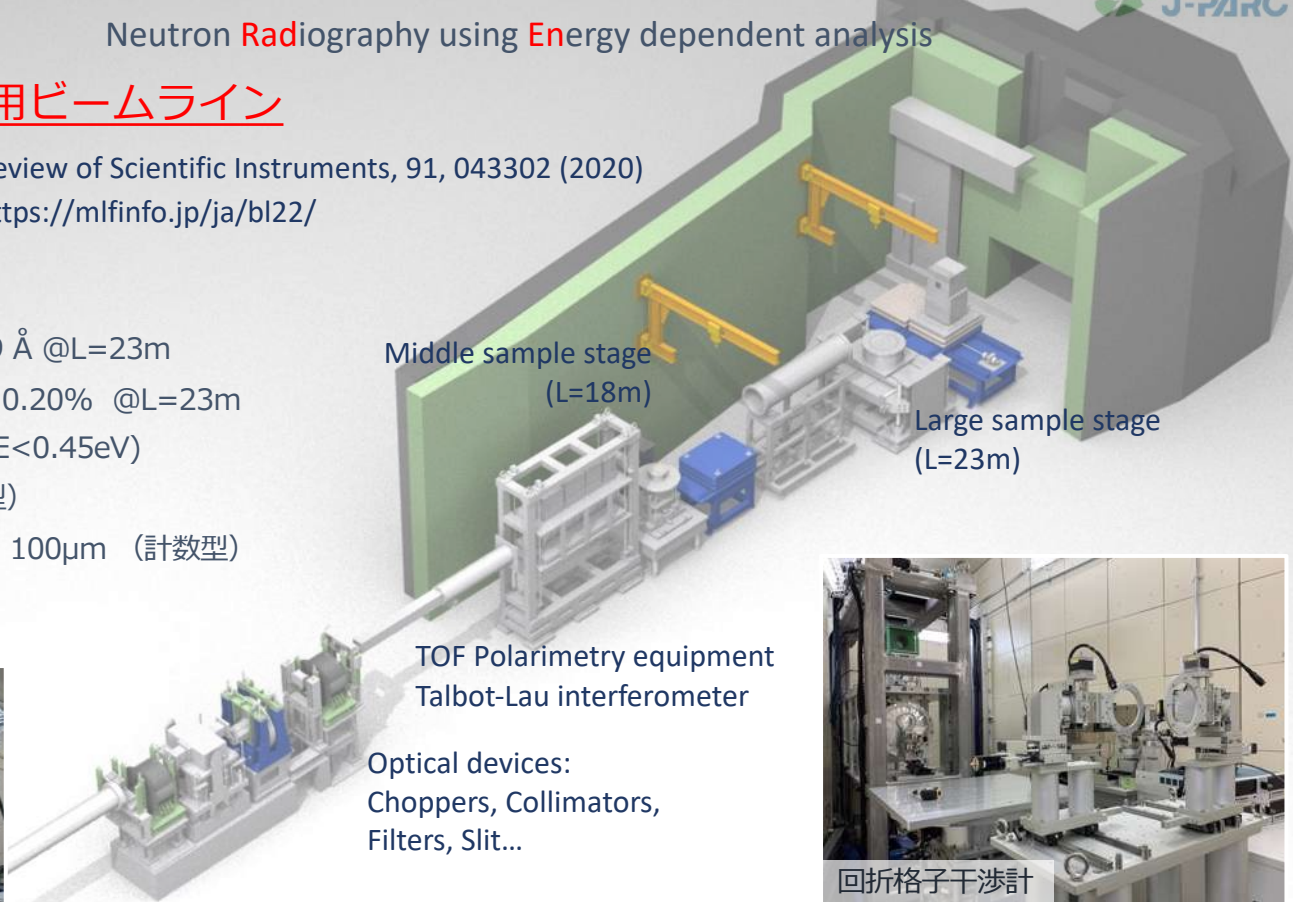
時間平均強度: $1.7 \times 10^7 \text{ n/sec/cm}^2$ (E<0.45eV)

撮像視野: $< 300 \times 300 \text{ mm}^2$ (カメラ型)

空間分解能: $> 10 \mu\text{m}$ (カメラ型) / $> 100 \mu\text{m}$ (計数型)

Review of Scientific Instruments, 91, 043302 (2020)

<https://mlfinfo.jp/ja/bl22/>



3次元偏極度解析装置



回折格子干渉計

2014年11月にビーム受入れ → 10年経ちました

2015年4月よりユーザー利用開始

RADENの状況

エネルギー分析型中性子イメージング装置 RADEN (螺鈿)

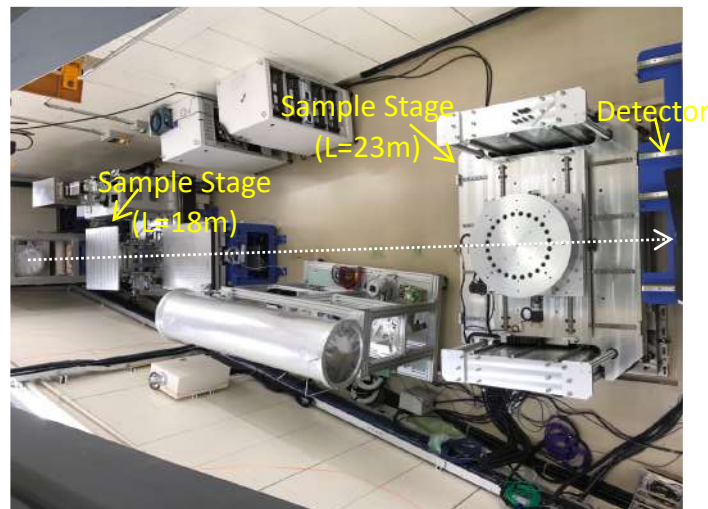
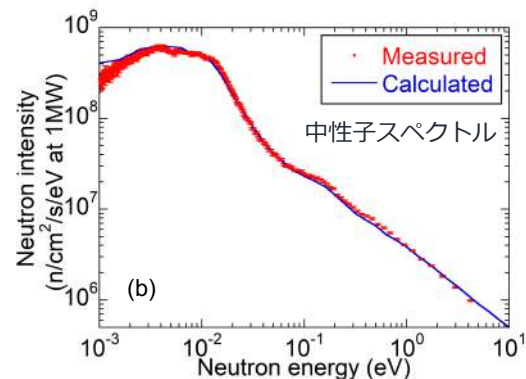
Neutron Radiography using Energy dependent analysis

RADENで実施可能な実験

- ✓ パルス中性子の特徴を活かしたエネルギー分析型イメージング
 - ブラッグエッジイメージング、中性子共鳴吸収イメージング
- ✓ 中性子スピン/光学特性を利用したイメージング
 - 偏極中性子イメージング、位相コントラスト/暗視野イメージング
- ✓ 中性子ラジオグラフィ/トモグラフィ
 - 高空間分解能 ($> 10 \mu\text{m}$)
 - 大視野 $300 \times 300 \text{ mm}^2$
 - エネルギー選択イメージング

RADENの特徴

- ✓ エネルギー分析型イメージングに適した中性子ビーム特性
 - 広波長帯域、高エネルギー分解能、大強度
熱外中性子から冷中性子までを利用可能
非結合型減速材から供給されるパルス幅の狭い中性子ビーム
- ✓ パルス中性子イメージングに特化したデバイス類
 - 飛行時間分析に対応した3次元偏極度解析、中性子用回折格子干渉計
 - ToF画像検出器と補助検出器(中性子回折用PSD、即発ガンマ線分析用ガンマ線検出器)
- ✓ イメージング実験に適したビームライン設計
 - さまざまな試料環境機器や大型試料を取り扱い可能な広い空間
 - 光学部品や自動ステージを利用した自由度の高い機器配置
 - 電気、冷却水、ガス供給などのユーティリティ設備
(その場観察や稼働条件下での観察に適した環境)



受託／共同研究

NEDOプロジェクト「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」
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（R02～R06）

→ 燃料電池評価技術の開発

共同研究 「自動車用電池・パワーコントロールユニット等を対象とした可視化研究」（H31～）

→ 燃料電池・リチウムイオン2次電池・水電解技術

JST 革新的GX技術創出事業（GteX）蓄電池領域 「低環境負荷・高特性リチウム硫黄電池の開発」（R05～R10）

→ リチウム硫黄電池

機器整備

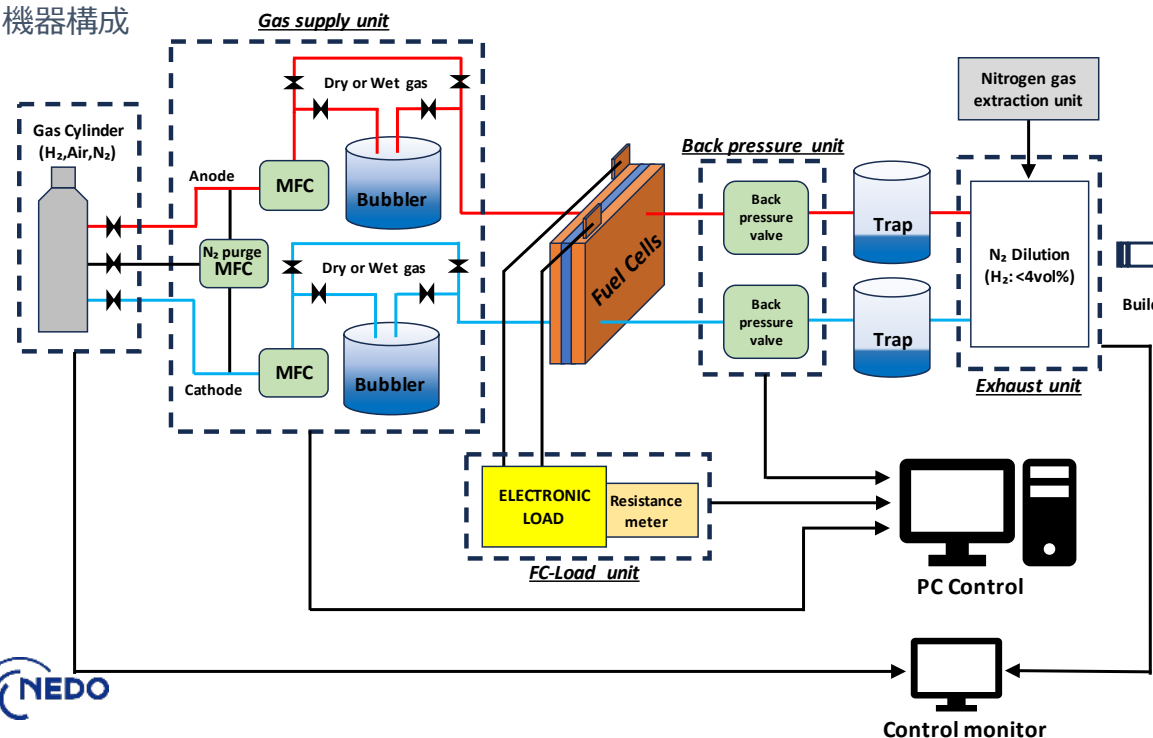
- 車載燃料電池実験環境の構築
水素ガス利用環境の整備 → いろいろ不具合とか使いにくい点があったので改修中
ガス加温・加湿・加圧設備、電子負荷装置等の燃料電池評価環境の整備
- 小型の燃料電池実験用機器の整備
小型の水素ガス希釈装置を準備、ガス制御装置の整備もMLFで実施中
→ 可搬型なのでBL22以外でも使用可能

最近の技術開発

- 高空間分解能撮像技術の高度化
- スピンエコー法による磁場イメージング技術の高度化
- 散乱中性子を用いたイメージング技術の検討

中性子実験装置内での使用を考慮した専用の評価装置

機器構成



燃料電池とガス制御装置との距離が離れていたためにレスポンスに問題があった

- ・ ビームラインの内部に機器を配置できるように構成機器をユニット化

放射線環境での使用を考慮

- ・ 制御部を可能な限り遮蔽体外部に配置
- ・ PCと本体電源は遮蔽体外部に設置
- ・ 遠隔での機器制御
状態監視とインターロック機能
プログラム運転機能

機器仕様

ガス条件

アノード (H₂) : 100~500 kPaG、0.3~15NL/min
カソード (Air) : 100~500 kPaG、1.6~80NL/min

加湿・加温範囲 : 0~100%RH (90℃)

電子負荷装置 電圧 : -2V~60V (最小動作電圧0V)
最大電流 : <1000A
電力 : 5kW

Liイオン電池(LIB)のリユース・リサイクルの重要性

- ✓ 電気自動車(EV)の急速な普及
 - より高い安全性の確保が求められる
 - 使用済みLIBの増加
 - 中古LIBの価値が向上
 - **リユース／リサイクルがGX、脱炭素化において必須に**
- ✓ 問題:
 - 中古電池の状態（劣化状態）が不明
 - 安全性の把握する方法の確立が急務
 - = LIBの信頼性の向上の必要性

LIB内部で起こる現象をそのままの状態を観察したい

LIBの熱安定性を理解するため、中性子イメージングによるその場観察を実施

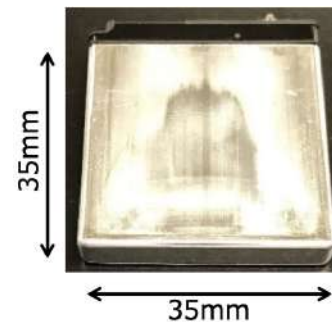
→ 加熱中のLIBが熱暴走するまでの過程において起る現象を把握し、熱暴走のメカニズムを理解する

蓄電池研究（その1） LIBの熱暴走・過充電試験

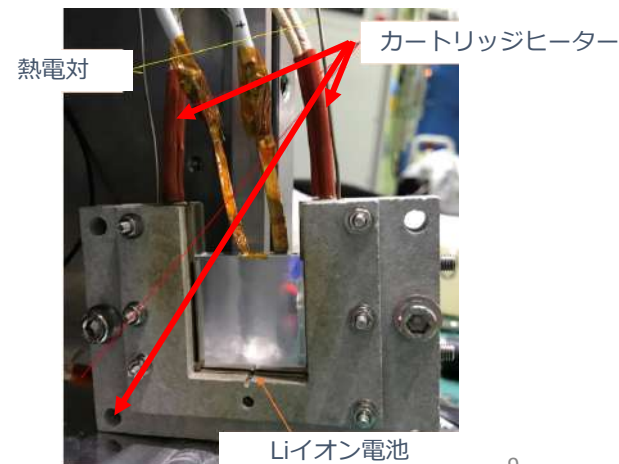
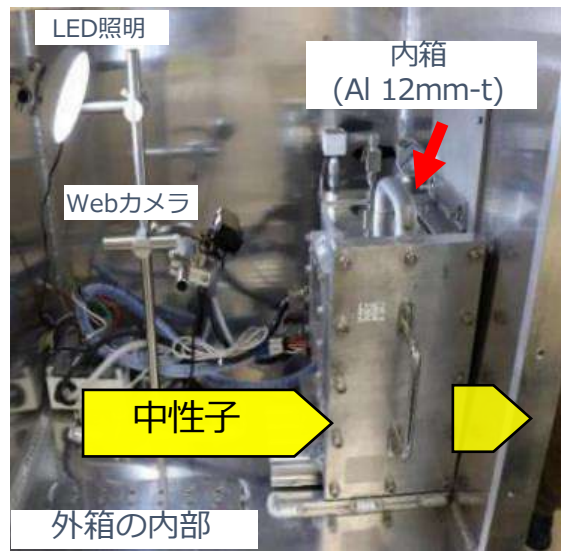
熱暴走試験用密閉容器を構築

- ✓ 実験装置内で安全に加熱実験を行うための二重構造の気密容器を設計
 - 放射化した熱暴走生成物を外部に漏らさない
 - アルミニウム容器（外箱：5 mm-t、内箱：12 mm-t）
ビーム経路中のアルミニウムの厚さは全部で 34 mm
 - 内箱は耐圧1.5MPaで設計（熱暴走後に発生する気体を閉じこめる）
 - 3本のカートリッジヒーターで250℃までLiイオン電池を昇温可能

外箱 (Al 5mm-t)



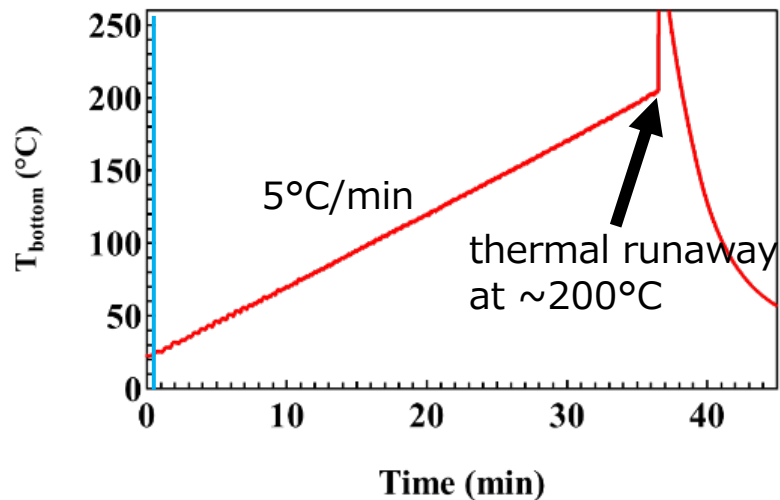
- A cuboid- shaped Commercial LIB
- 35 x 35 x 6.1 mm, 1Ah
- Cathode: $\text{Li}(\text{Ni}_{0.81}\text{Co}_{0.15}\text{Al}_{0.04})\text{O}_2$
- Anode: Graphite



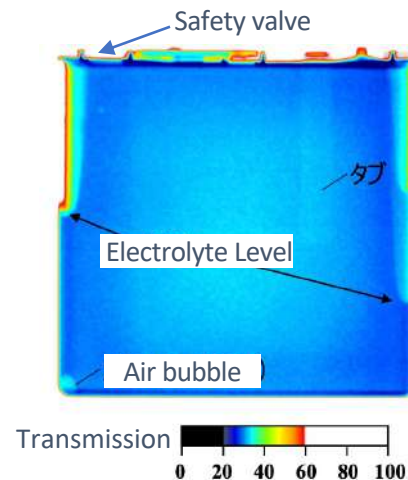
LIBの加熱試験

実験条件

- ・ 初期電池 (満充電状態)
- ・ 昇温速度 5°C/min.
- ・ 撮像系: sCMOSカメラ&光イメージインテンシファイア
- ・ 視野範囲 : 47.6 mm角, 露光時間: 0.48 s/frame

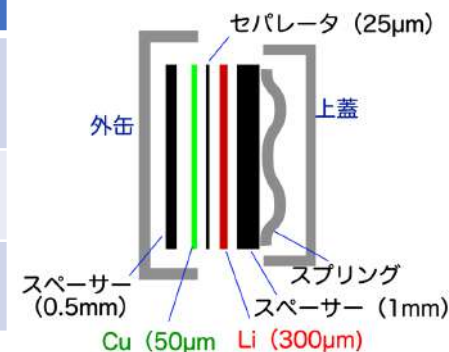


LIB

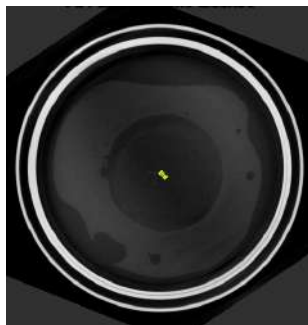


サンプル（慶應大学片山教授提供）

Coin Cell No.	WE Material	CE Material	Electrolyte	Separator	Li deposition	
					Current density (mA/cm ²)	Electric charge (mAh/cm ²)
#1	Cu (φ14mm)	Li (φ14mm)	LiFSA:MOEMPFS A = 1:1	Celgard (φ17mm)	-	-
#2	Cu (φ14mm)	Li (φ14mm)	LiFSA:MOEMPFS A = 1:1	Celgard (φ17mm)	1.0	10



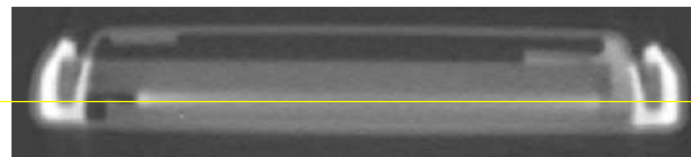
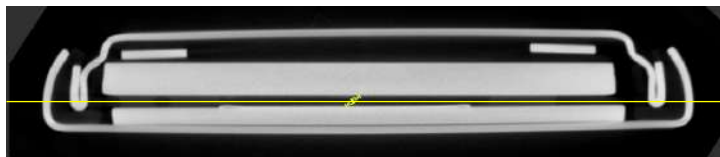
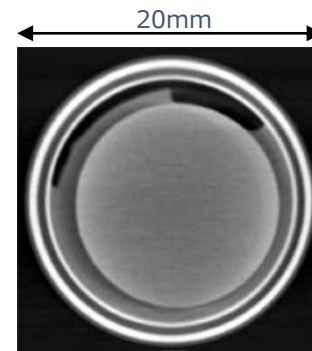
Cu 箔とセパレータの間に 48.5 μm の Li が析出していると予想



X線CT

- 中性子では円板状のLiが視認できる
- X線では金属部品が、中性子はLiと樹脂がよく判別できる
- X線の画像は中性子の画像よりも鮮明（分解能が高い）

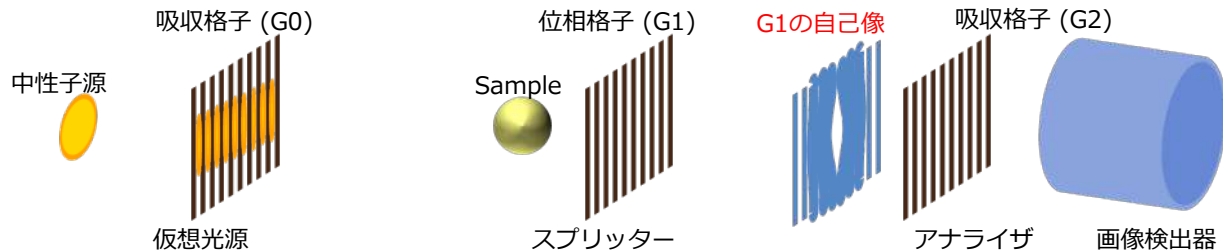
中性子CT


 明 : 吸収 大
 暗 : 吸収 小

蓄電池研究 (その2)

コインセル内部の観察

中性子Talbot-Lau 干渉計を使ったイメージング

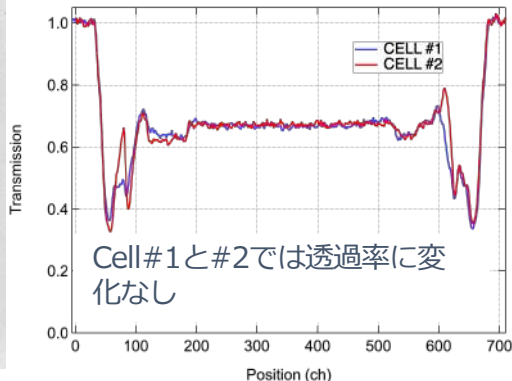
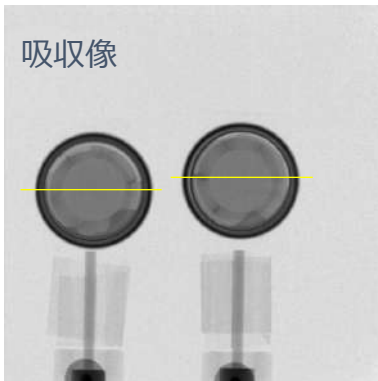


干渉像の解析により、以下の3種類の画像を取得できる

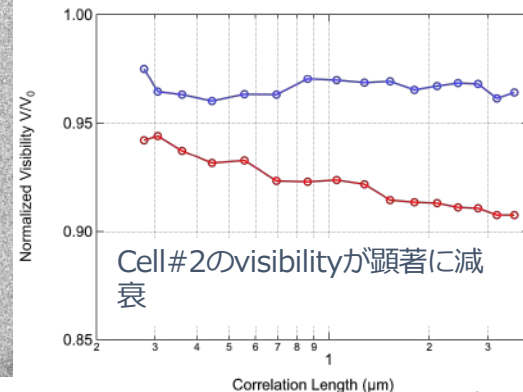
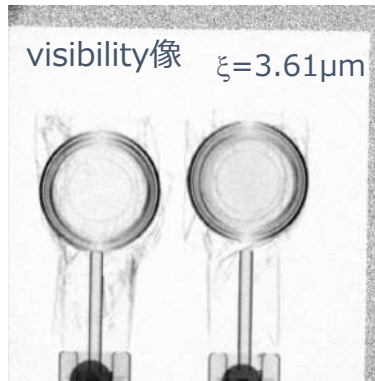
- ・吸収像 (吸収断面積) : 構成する原子数・密度の空間分布
- ・微分位相像 (可干渉性散乱長) : 物体による中性子の屈折 = 端部や輪郭を強調した画像
- ・visibility像 (小角散乱断面積) : サブ μm ~10 μm 程度の大きさの微細な構造の空間分布



吸収像



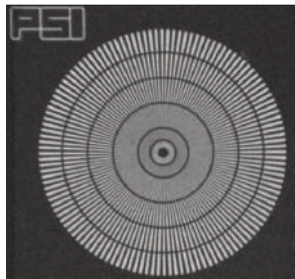
visibility像



高分解能撮像系の開発

高中性子束の効果の検証

BL15でテスト撮像を実施



PSI製のシーメンススターパターンで評価

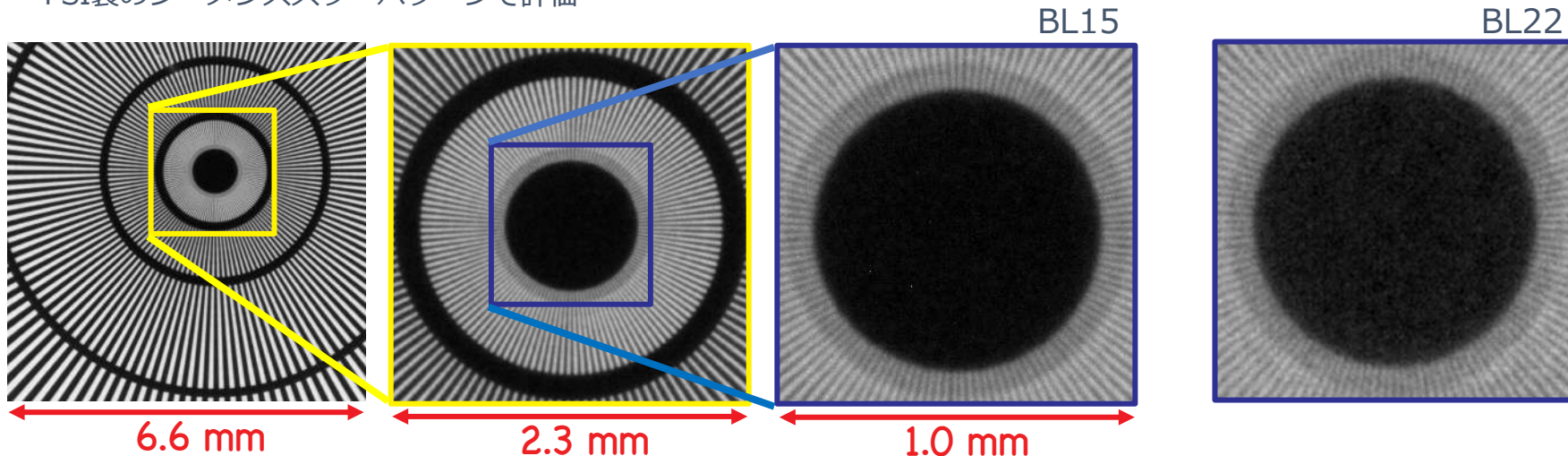
撮像装置 : ORCA Flash

拡大率 : 2 倍

シンチレータ : GAGG 100 μ m-t

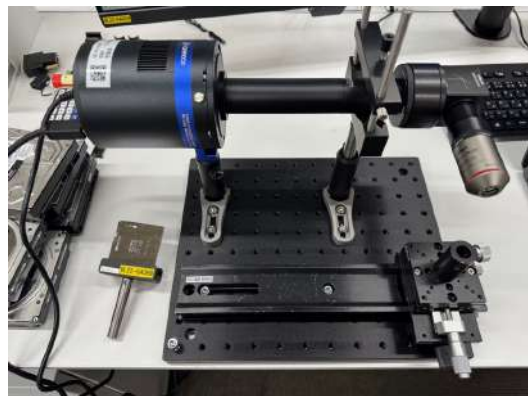
撮像時間 : 10sec x 20times

BL22で得た画像と比較して鮮明な画像が得られた
→ 大強度によるS/N向上の効果は大きい

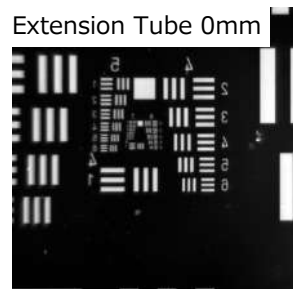


Edge spread functionで分解能を評価すると6 μ m

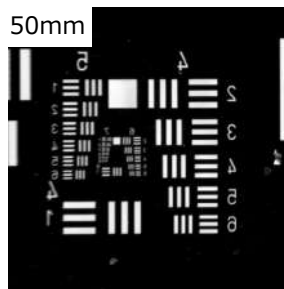
高分解能撮像系の開発



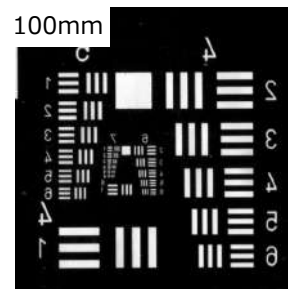
エドモンド分解能パターンの撮影（1000ピクセル角を拡大）



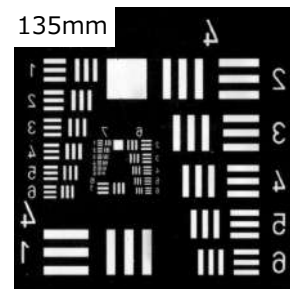
1.85 $\mu\text{m}/\text{pix}$



1.36 $\mu\text{m}/\text{pix}$

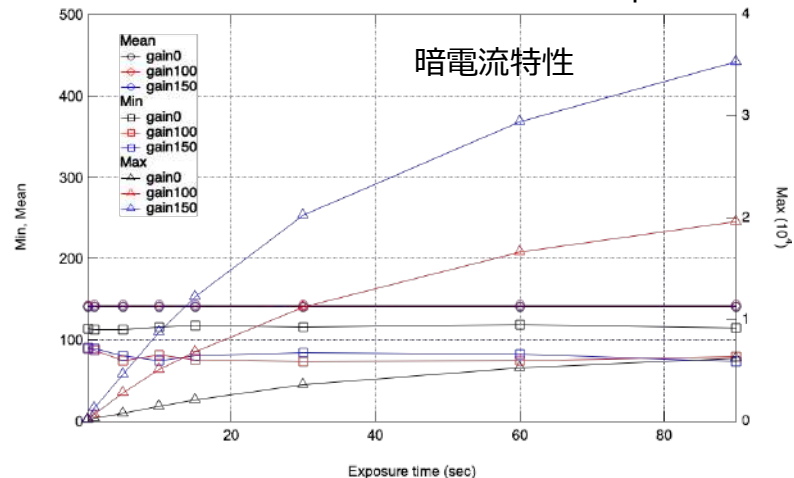
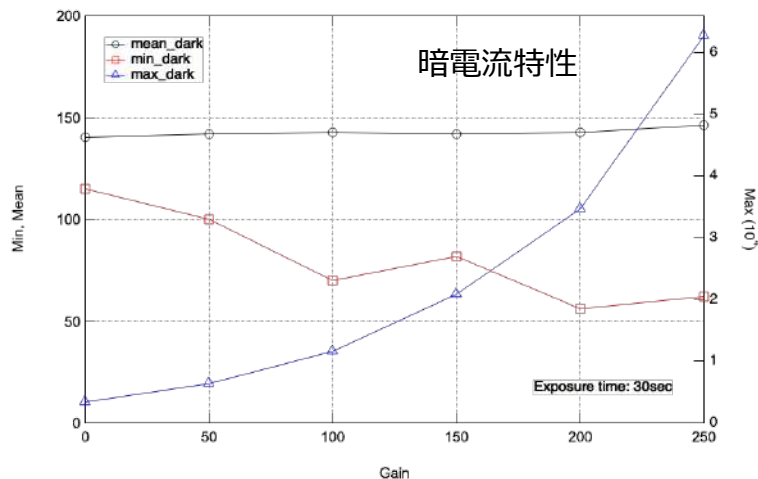


1.05 $\mu\text{m}/\text{pix}$



0.96 $\mu\text{m}/\text{pix}$

ピクセル分解能は1 μm を実現



長時間露光しても暗電流ノイズの影響はなさそう → 中性子で撮像系の分解能を調べる

- J-PARCのRADENの現状
 - 2015年から継続してユーザー利用を実施中
 - エネルギー分析型イメージングの実施環境
 - 多彩な撮像条件での中性子ラジオグラフィ／トモグラフィ環境
- 機器整備・撮像技術の高度化・手法開発
 - インフラ整備（水素ガス利用）
 - 検出器の高性能化（高分解能化・短時間撮像・etc…）
- パルス中性子・RADENの特徴を活かした応用研究の推進
 - 電池関係の研究への利用、稼働状態、特殊条件下での観察
 - 産業応用

RADENの詳細: <https://mlfinfo.jp/ja/bl22/>
連絡先: mail2raden@ml.j-parc.jp