

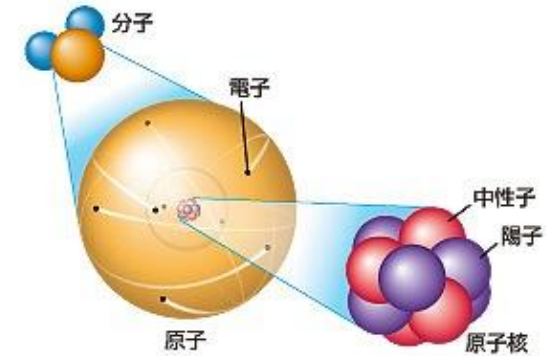
J-PARC物質・生命科学実験施設における PEFCの中性子イメージング

日本原子力研究開発機構（JAEA） 篠原武尚、酒井基亘、川北至信
高エネルギー加速器研究機構（KEK） 大友季哉

NEDO「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

中性子：陽子、電子とともに原子を構成する粒子

- 😬 電氣的に中性な粒子 → 電子による散乱を受けない
高い物質透過能力
- 😬 原子核と直接相互作用 → 相互作用の大きさは原子番号に依存しない
高い軽元素感受性・同位体識別
- 😊 物質波として振舞う → 光学的性質を持つ（散乱・回折・干渉・屈折・反射）
結晶構造解析、原子・分子の運動状態の解析
- 😊 磁気モーメントを有する → 磁場と直接相互作用をする
磁気構造解析



X線や電子線と共に物質科学研究に寄与する重要なプローブの一つ

中性子イメージング：中性子を用いた撮像技術

物質と中性子との相互作用の結果として生じる中性子強度の変化を利用し、観察対象の内部の形状や状態を非破壊で可視化・観察する技術

中性子イメージングの特徴

物質透過能力が高い

バルクの観察対象の扱いが可能（鉄の中も見える）
閉鎖空間の内部を見ることができる（様々な試料環境が使える）

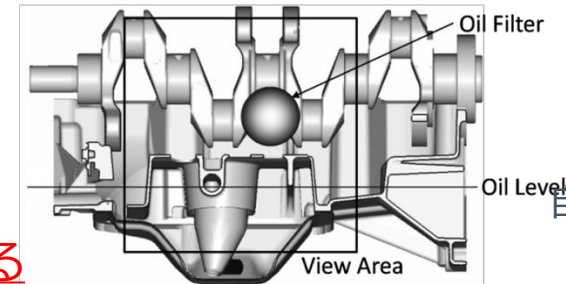
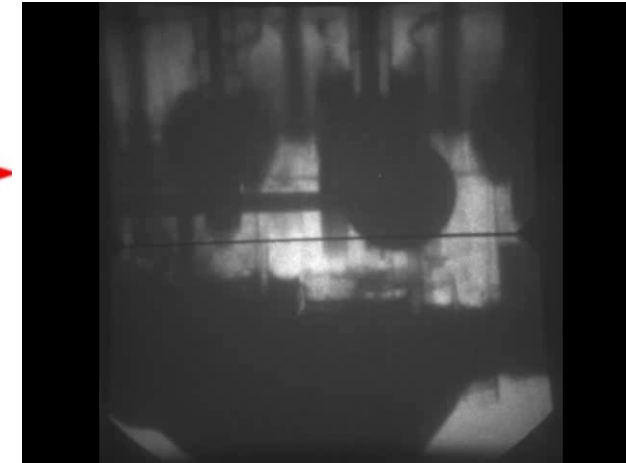
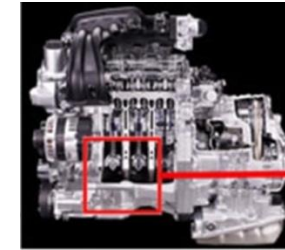
軽元素の感度が高い

水素、リチウム、ホウ素などの軽元素に対して高い感度
水素含有材料や液体などの観察が可能

大面積ビーム

30cmの視野範囲を一度に撮像

身の回りの実製品などをそのまま非破壊で観察できる



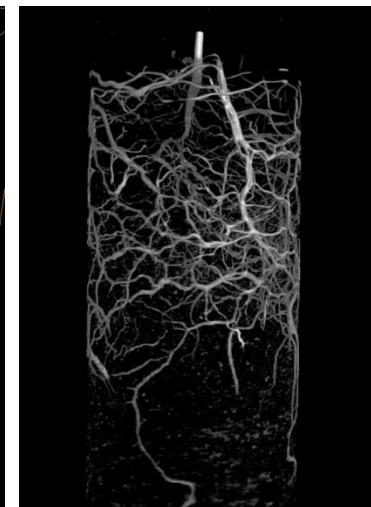
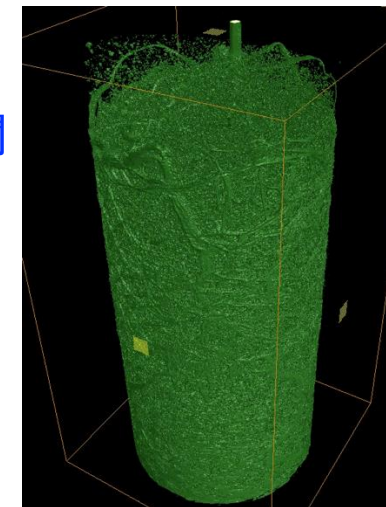
自動車エンジン内部でのオイルの挙動

多彩な応用先

機械や大型構造物の観察（鉄鋼材料・コンクリート、航空・宇宙関連機器）
生物・植物・液体の観察（水の挙動、二相流など）
実際の利用環境や、稼働状態、反応条件下での観察
考古学・文化財などの貴重な試料の分析

水が見える・大視野・拘束条件下でもOK

→ 中性子イメージングは実用燃料電池の観察に適した技術



土壌中での大豆の根の様子

多くの中性子実験施設で燃料電池の実験が実施されている

世界の主要な中性子実験施設



実施されてきた内容

- ・ 流路中の水の挙動（生成・排出）
 2Dでの観察
 in-operando CTによる流路断面の観察
 H₂ガスとD₂ガスによるコントラスト強調
- ・ 水／氷の識別
 中性子と水分子との相互作用のエネルギー依存性を利用して、水と氷を識別
 （現在はPSIとJ-PARCで実施可能）
- ・ MEA内部、GDL中の水の観察
 高空間分解能イメージング
 （NIST、ILL、JRR-3）
 干渉イメージング（PSI）

車載燃料電池の実験

NIST（米国）：GM
 PSI（瑞西）
 J-PARC（日本）
 KAERI（韓国）：HYUNDAI

2001年にNIST、DOE、General Motorsでパートナーシップを結んでプロジェクトを開始。

→ 稼働状態でのPEMFC中での水の移動を可視化する技術と施設を開発

熱中性子イメージング装置(BT-2)
を2003年より利用開始

中性子束 $1.4 \times 10^7 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$
(JRR-3のTNRFの約2倍)

M. Arif, et al., Physics Procedia 69 (2015) 210 – 217.

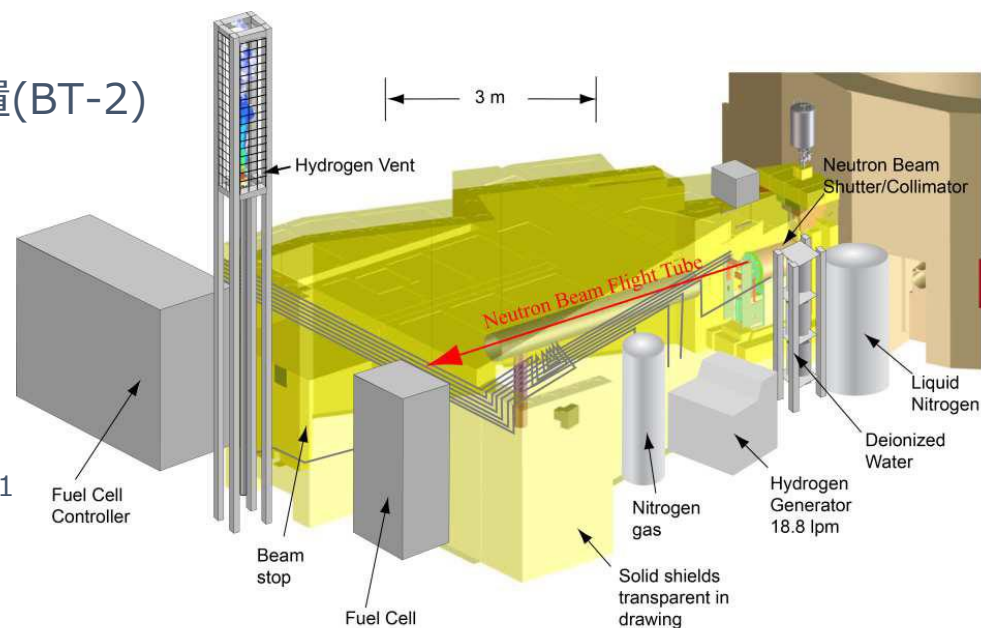
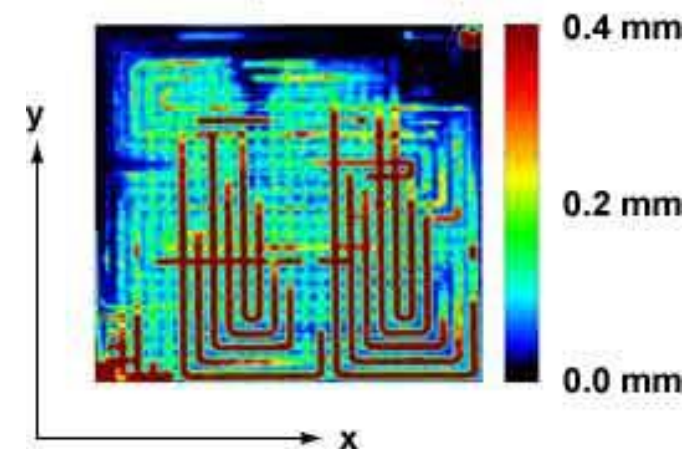


Fig. 1. Cartoon of NIST Neutron Imaging Facility

Image of water distribution with
thickness represented by color

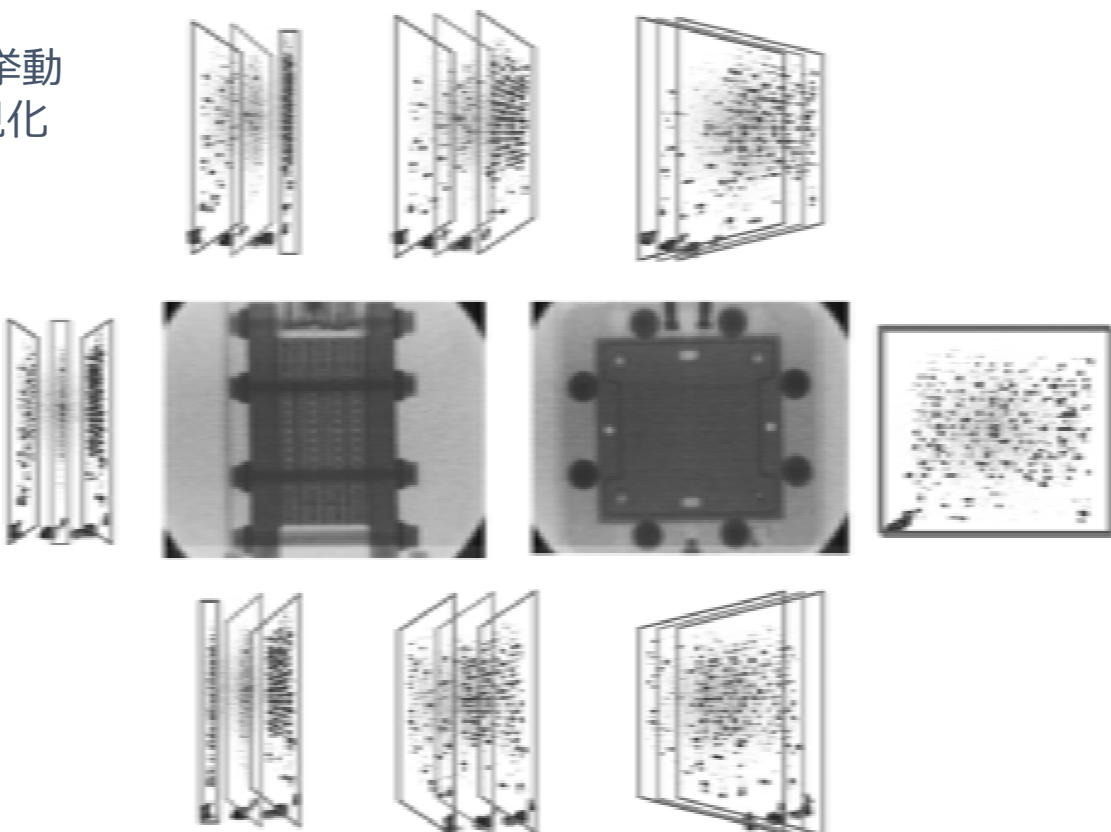


動作条件下での撮像（2002年）
面内での流路中の水の分布の可視化
（空間分解能は250μm）

JRR-3のTNRFにおいて実施

- ・ 高空間分解能撮像（断面のMEA-GDL内部の水分布を観察）
- ・ ダイナミックCT（中性子IIを用いて9秒/CTを実施）

水分布の動的挙動
を3次元で可視化



中性子イメージングを用いた燃料電池研究

NEDOプロジェクト（平成20～21年度）

参画機関：JAEA・神戸大・東京都市大・東工大

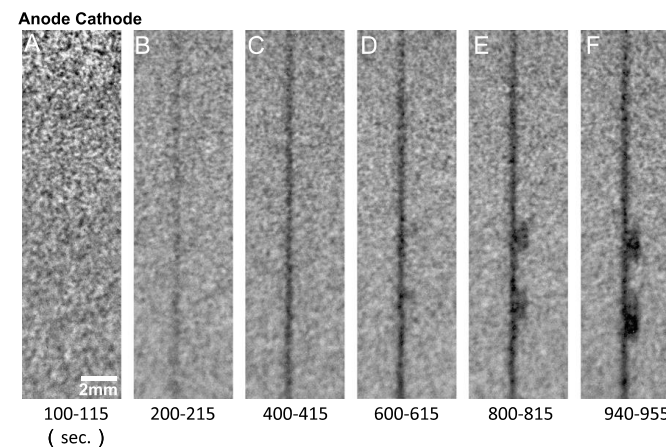
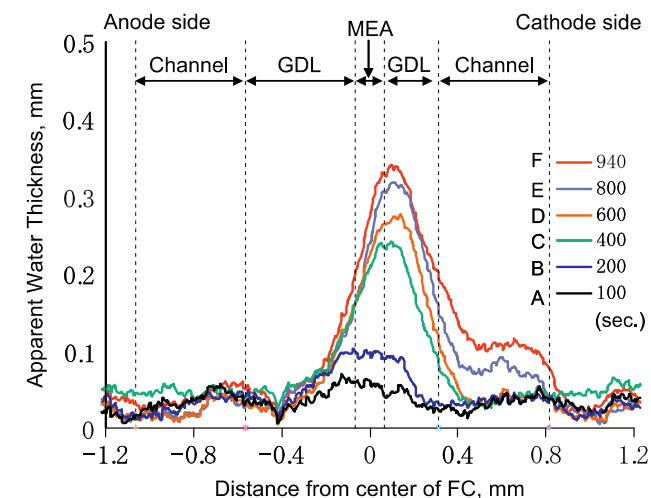


Fig. 4. Water images in in-plane direction during the FC operation.

J-PARCの中性子イメージング装置

エネルギー分析型中性子イメージング装置 RADEN (螺鈿)

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

Review of Scientific Instruments, 91, 043302 (2020)

エネルギー分析型中性子イメージング装置

パルス中性子の特徴を活かした新しいイメージング技術の実用化 → 原子核種情報・結晶組織情報・温度情報・磁場情報の可視化

高性能中性子ラジオグラフィ/トモグラフィ装置

大画角 (<30cm²) から高空間分解能 (~10 μ m) 撮像まで、大型試料、特殊試料環境、その場観察の実験環境を提供

新しいイメージング手法・デバイスの開発環境

イメージング用検出器開発・評価、イメージング手法のテスト、デモンストレーション

ビームライン BL22 (減速材: 非結合型液体水素)

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

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

時間平均強度 @L=18m, L/D=180

$1.1 \times 10^8 \text{ n/sec/cm}^2$ (E<1MeV)

$1.7 \times 10^7 \text{ n/sec/cm}^2$ (E<0.45eV)

撮像視野 < 300 × 300mm² (カメラ型), < 100 × 100mm² (計数型)

空間分解能 > 10 μ m (カメラ型), > 100 μ m (計数型)

試料環境・設備

試料ステージ (大型、中型、小型)

試料加熱装置 (赤外線加熱・抵抗加熱)

ToF 3次元偏極度解析装置

磁場イメージング

Talbot-Lau 干渉計

位相コントラストイメージング, 暗視野イメージング

補助検出器

³He-PSD -中性子回折実験

ガンマ線検出器 -即発ガンマ線分析 (PGA)

燃料電池試験用機器

水素ガス供給用加温配管・希釈装置・凝縮トラップ

RADENの概要

Top View

Shutter

Upstream optics

Experimental room



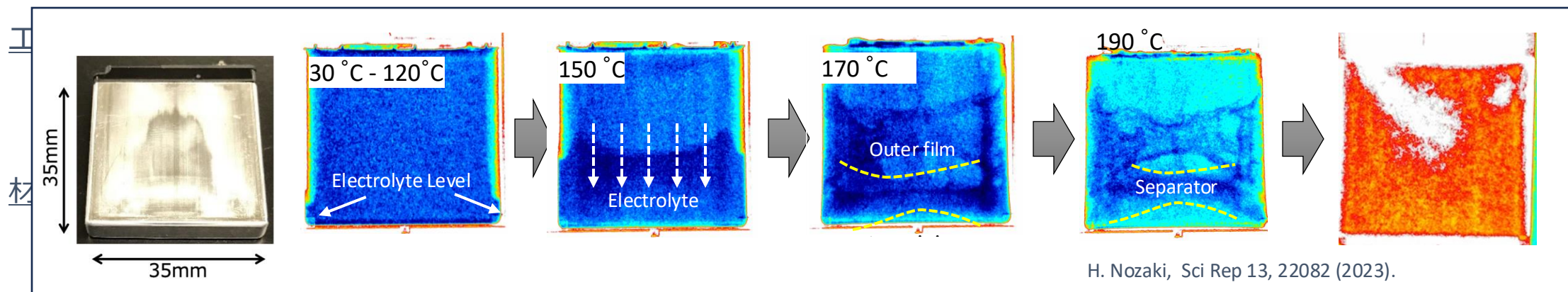
RADENの特徴

- ✓ エネルギー分析型中性子イメージングに適したビーム特性
 - 広いエネルギー範囲・高いエネルギー分解能の中性子ビームを利用可能
熱外中性子～冷中性子までをカバー
非結合型減速材による狭いパルス幅の中性子ビーム
- ✓ パルス中性子イメージング専用の機器を整備
 - 飛行時間分析に対応した3D偏極度解析装置と中性子回折格子干渉計
 - イベント型画像検出器
 - 補助検出器 (中性子回折用PSD検出器, PGA用ガンマ線検出器)
- ✓ ビームライン設計
 - さまざまな試料環境機器を配置して使用できる広い実験室空間
 - In-situ/in-operando実験に適した自由度の高い試料配置

RADENを用いた応用研究

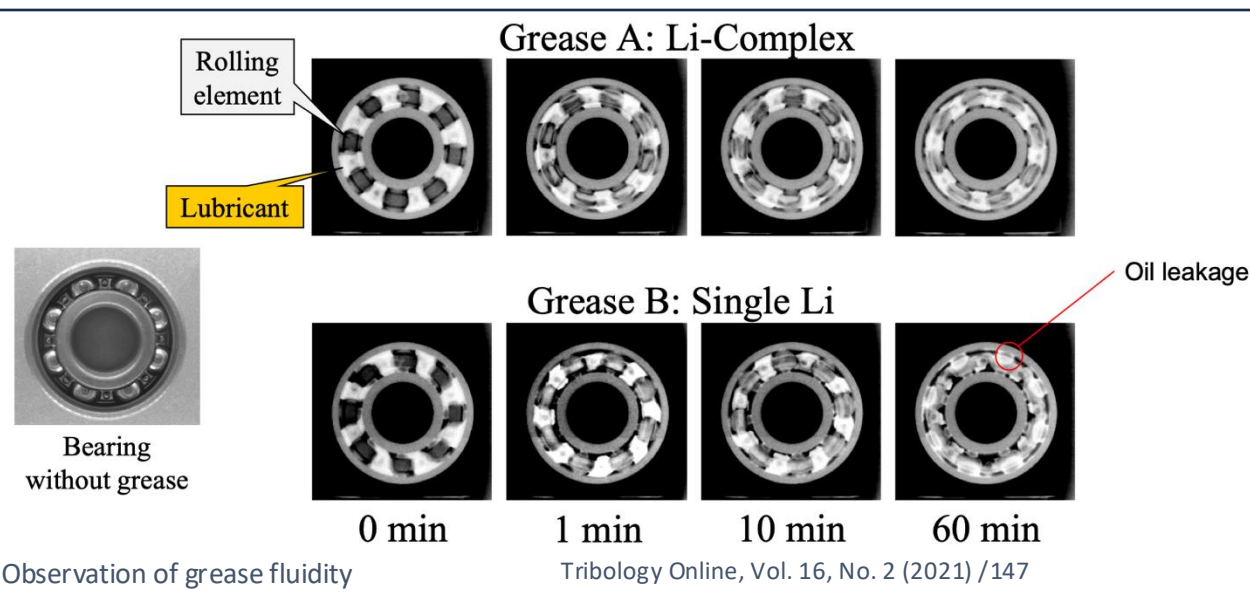
<u>エネルギー関連</u>	Liイオン電池	(熱暴走、過充電試験、イオン拡散)	NR, CT, HighReso, POL, operando
	燃料電池	(車載電池の観察、水／氷識別、高分解能観察)	NR, HighReso, operando
	水電解	(フルサイズセル、断面観察)	NR, HighReso, operando
<u>材料関係</u>	金属材料中の結晶粒成長		BE, in-situ(heating)
	鉄鋼材料（構造・組織・ひずみ）		BE, in-situ(loading)
	金属積層造形技術（3Dプリンティング材料）		BE, CT, nGI, ex-situ(loading)
	PbBi 凝固過程		BE, in-situ(heating)
	軟磁性材料（磁区観察）		POL, nGI
	ベアリンググリース		NR, CT
<u>文化財・考古学研究</u>		日本刀研究、古墳出土品、陶器／磁器	BE, CT, NR
		隕石（はやぶさ2リターンサンプルの解析）	HighReso-CT
<u>その他</u>	原子力関連	埋設技術、模擬燃料、分離技術	NR, RA
	植物・農学	梨の果実	NR, nGI
	実験技術	超臨界水の反応過程	NR, in-situ

RADENを用いた応用研究

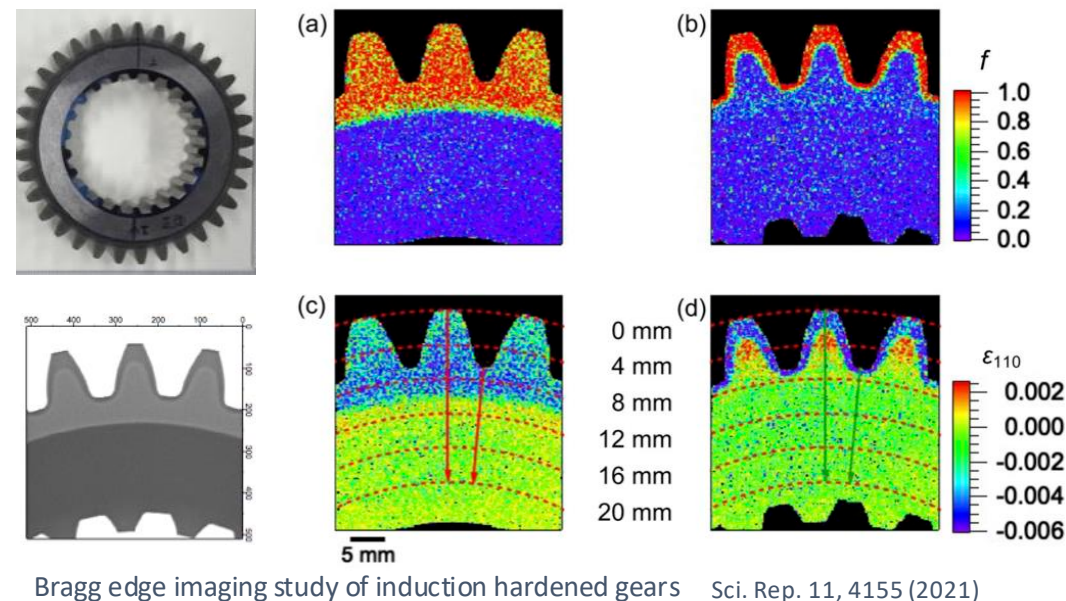


PDBI 凝回廻程
軟磁性材料 (磁区観察)
ベアリンググリース
シンチレータ

BE, in-situ (heating)
POL, nGI
NR, CT
NR, RA, BI



陶器
サン
材料
過程



作動中のフルサイズセル内部の水の観察

燃料電池の出力の向上・高性能化 → 適切な水の管理が必須
 発電中のセル内部の水の観察 → 最適な燃料電池セル運転条件の把握・流路構造の設計に貢献

MIRAIに搭載されたフルサイズの燃料電池を用いて、作動中セル内部の水を観察する

中性子イメージング用フルサイズ燃料電池動作環境の構築

✓ ガス供給設備を中性子実験装置に整備

✓ 発電制御・評価装置を準備



これまでは国外施設においてのみ車載燃料電池の観察が実施されてきたが
 国内の施設でも稼働状態のフルサイズセルの観察が可能になった

作動中MIRAIセル内部の凝縮水の可視化

試験内容

セル温度55℃（重水D₂Oを用いてセルを温調）

アノード露点45℃、カソード無加湿

① 負荷応答試験

- IV測定 電流密度 2.2~0.1 A/cm² (600.1A~27.3A)

② 空気ストイキ応答試験

- 電流密度2.2, 1.5 A/cm² (600.0, 409.5 A)
水素ストイキ：1.25固定。空気ストイキ：2.5~1.2で変化

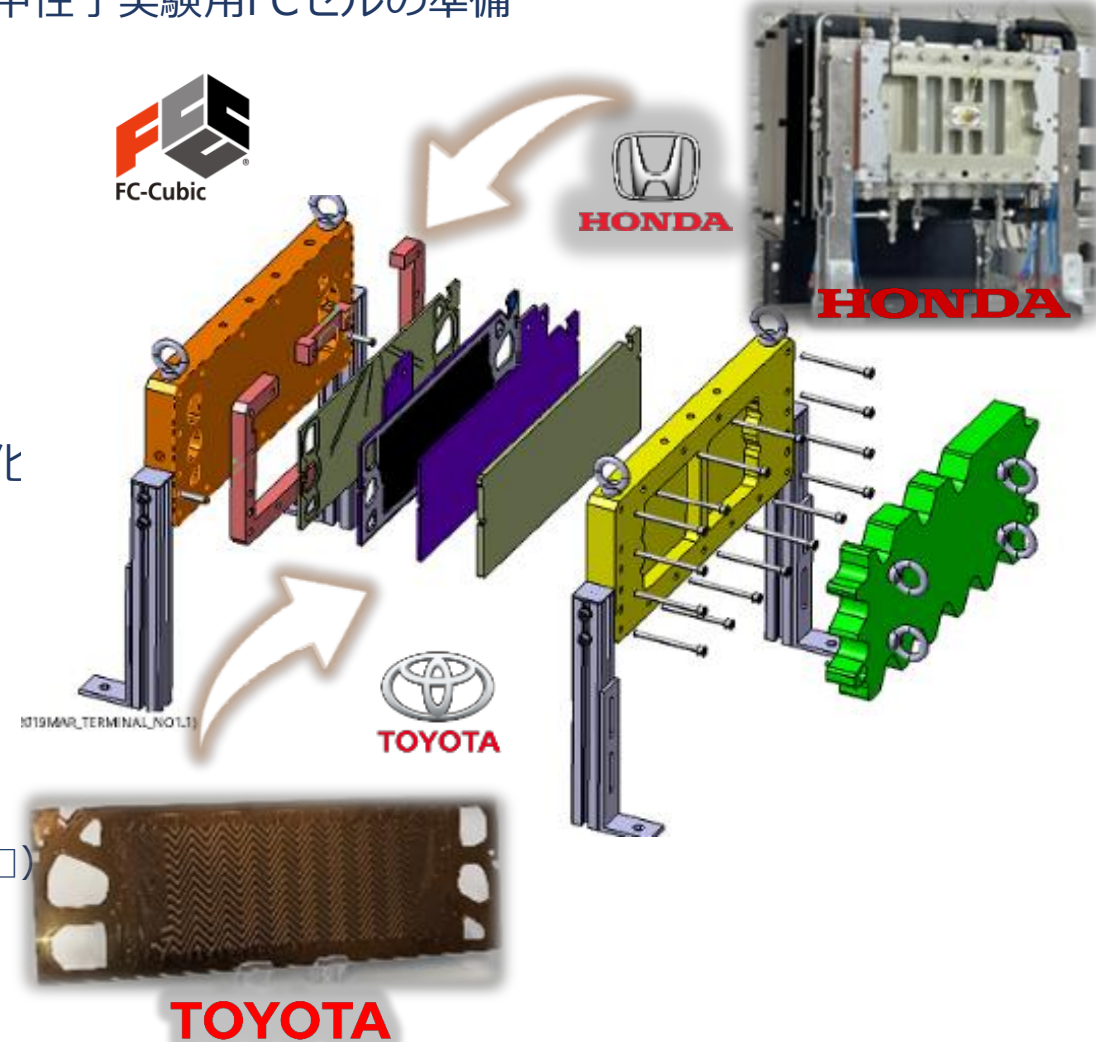
※試験条件はFC-Cubicにおいて事前に試験して決定

撮像条件

- 使用機器
sCMOSカメラ（浜松ホトニクスORCA Flash4.0v3）
光イメージンテンシファイア（浜松ホトニクスORCA Flash4.0v3）
シンチレータ（Scintacor ND-FAST, ZnO/⁶LiF, t=0.3mm, 300mm□）
- 露光時間 1秒×300枚
- 中性子波長範囲 2.3~8.8Å

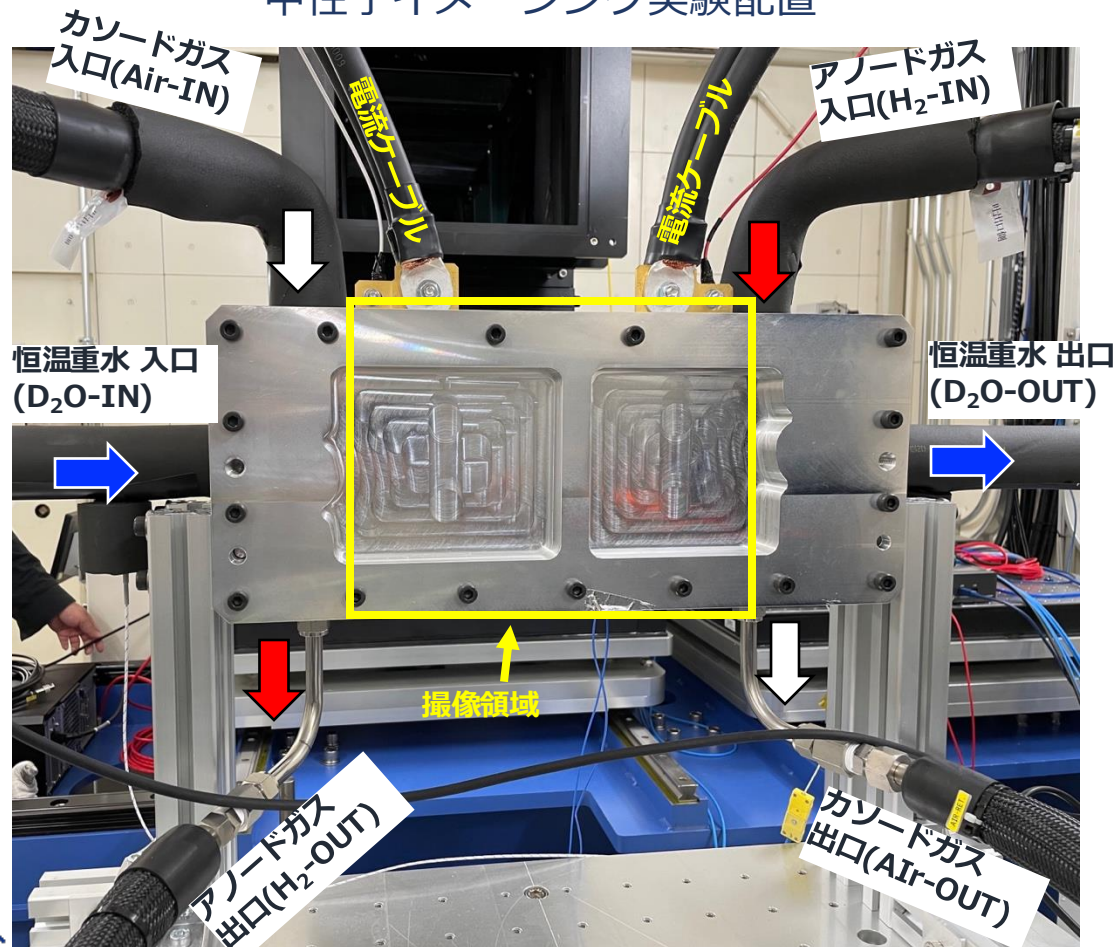
J-PARCでの燃料電池のイメージング

中性子実験用FCセルの準備



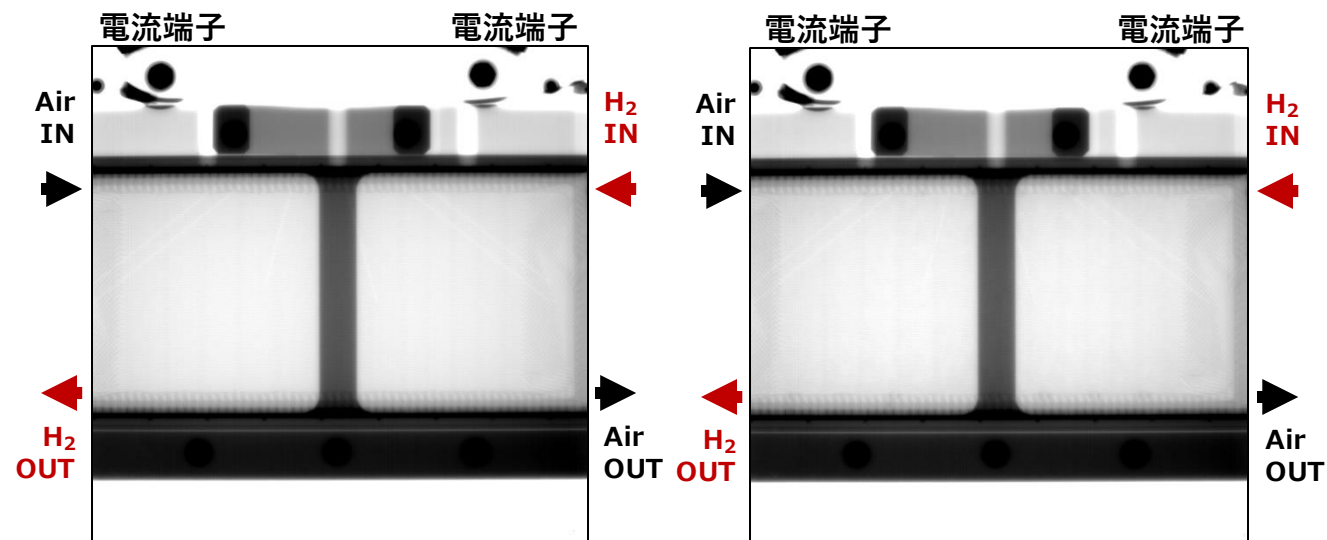
作動中MIRAIセル内部の凝縮水の可視化

中性子イメージング実験配置



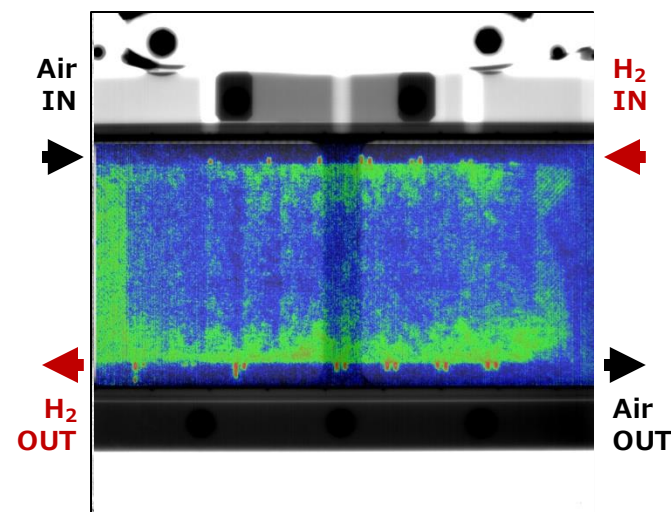
セルは4cm厚のアルミ合金製エンドプレートで拘束
(総厚10.33cm)

J-PARCでの燃料電池のイメージング



中性子透過率像 (55°C 発電前)

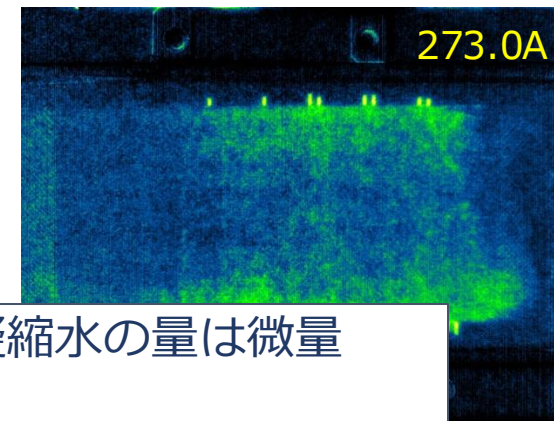
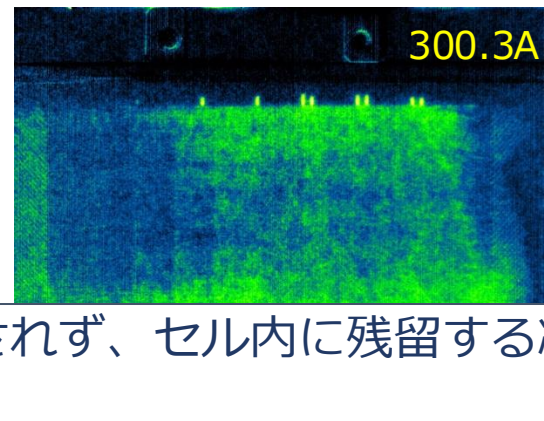
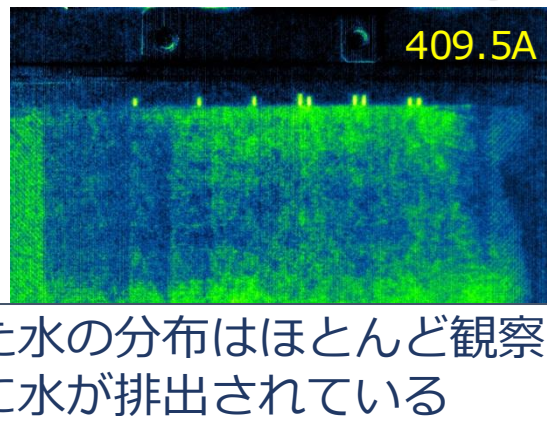
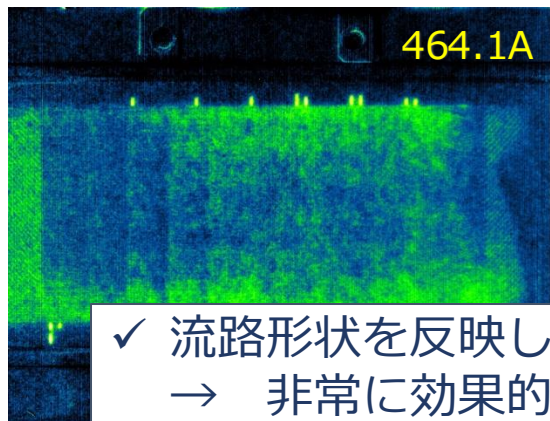
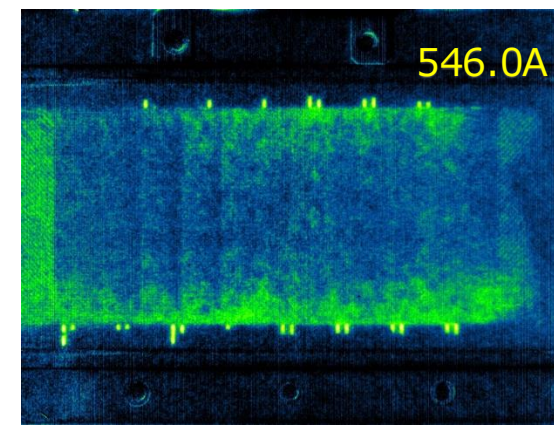
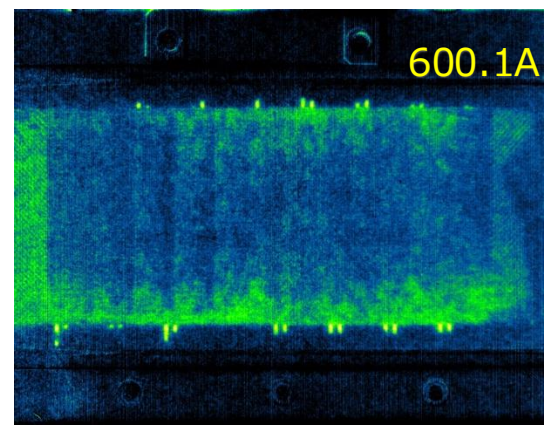
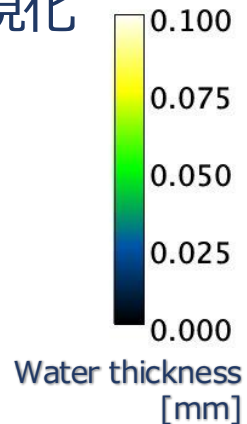
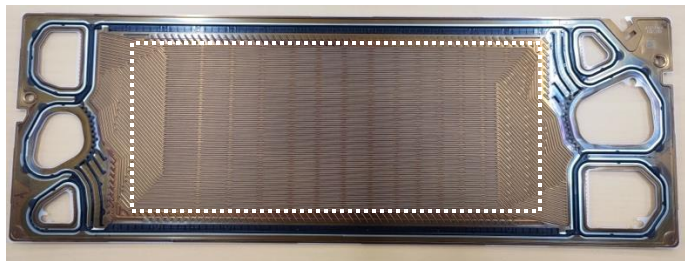
中性子透過率像 (55°C 発電中)



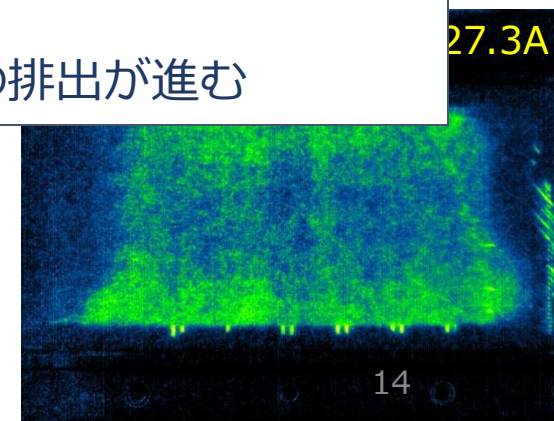
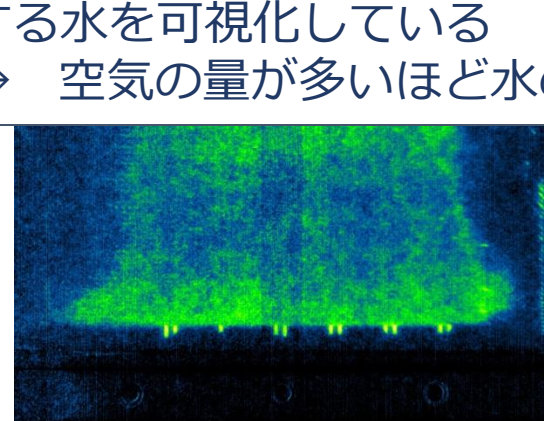
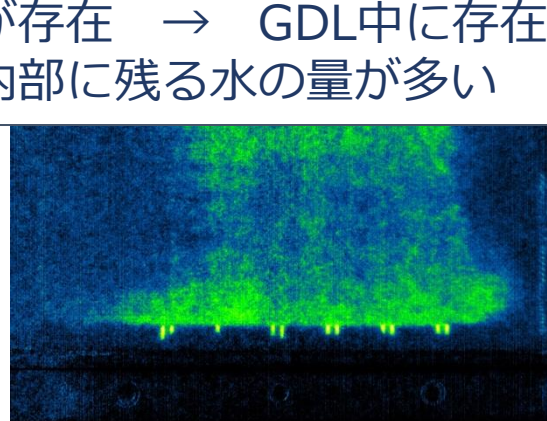
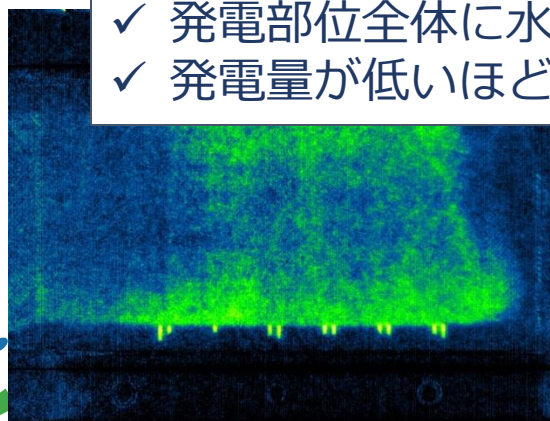
凝縮水による中性子透過率像

作動中MIRAIセル内部の凝縮水の可視化

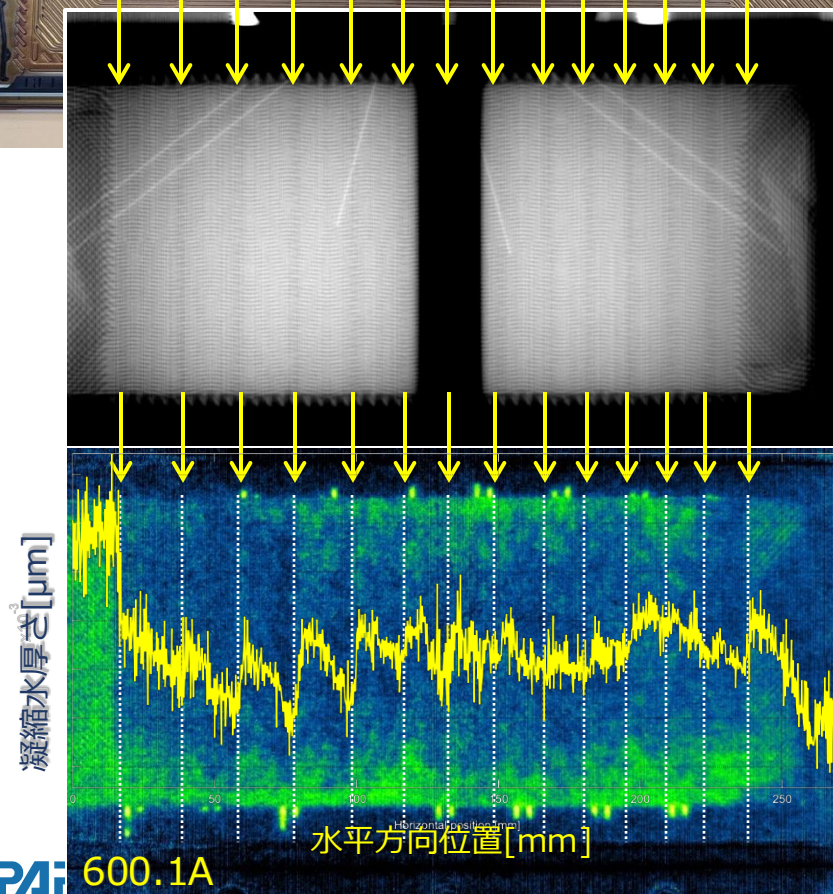
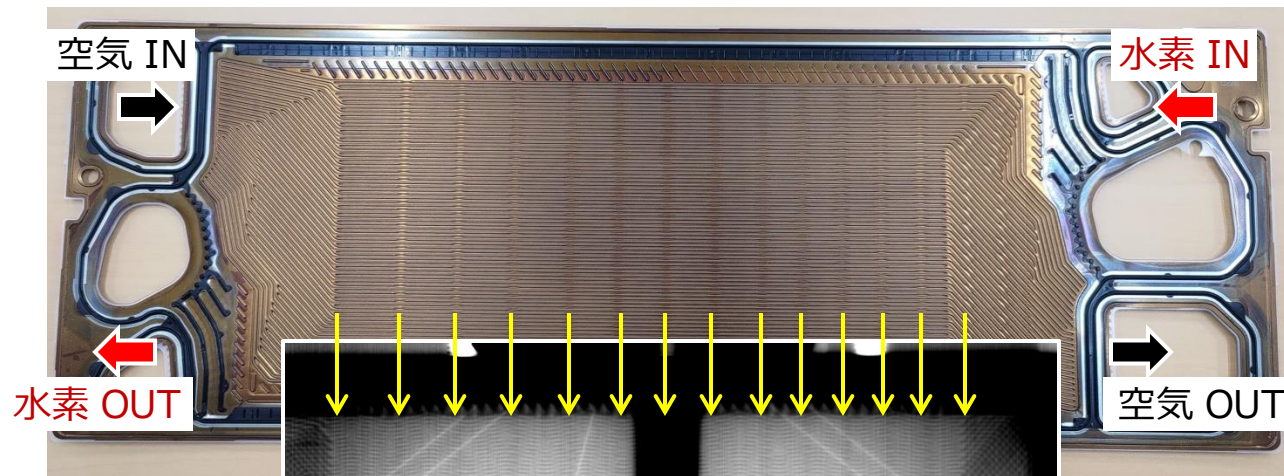
実験① 負荷応答試験結果



- ✓ 流路形状を反映した水の分布はほとんど観察されず、セル内に残留する凝縮水の量は微量
→ 非常に効果的に水が排出されている
- ✓ 発電部位全体に水が存在 → GDL中に存在する水を可視化している
- ✓ 発電量が低いほど内部に残る水の量が多い → 空気の量が多いほど水の排出が進む



絞り流路構造の効果



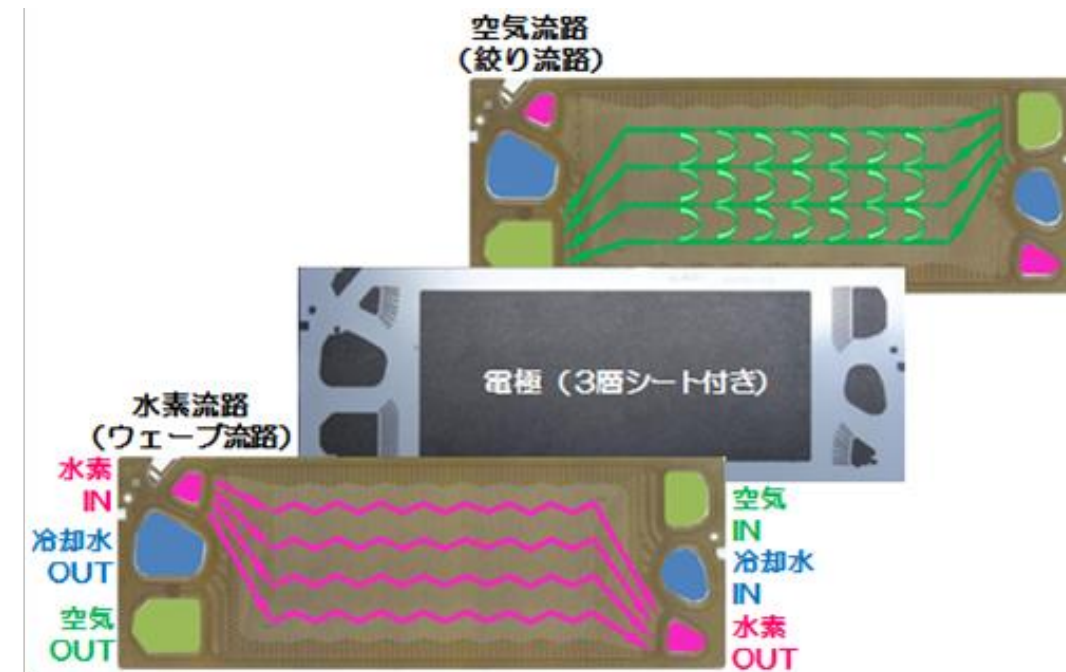
J-PARCでの燃料電池のイメージング

空気極の流路構造

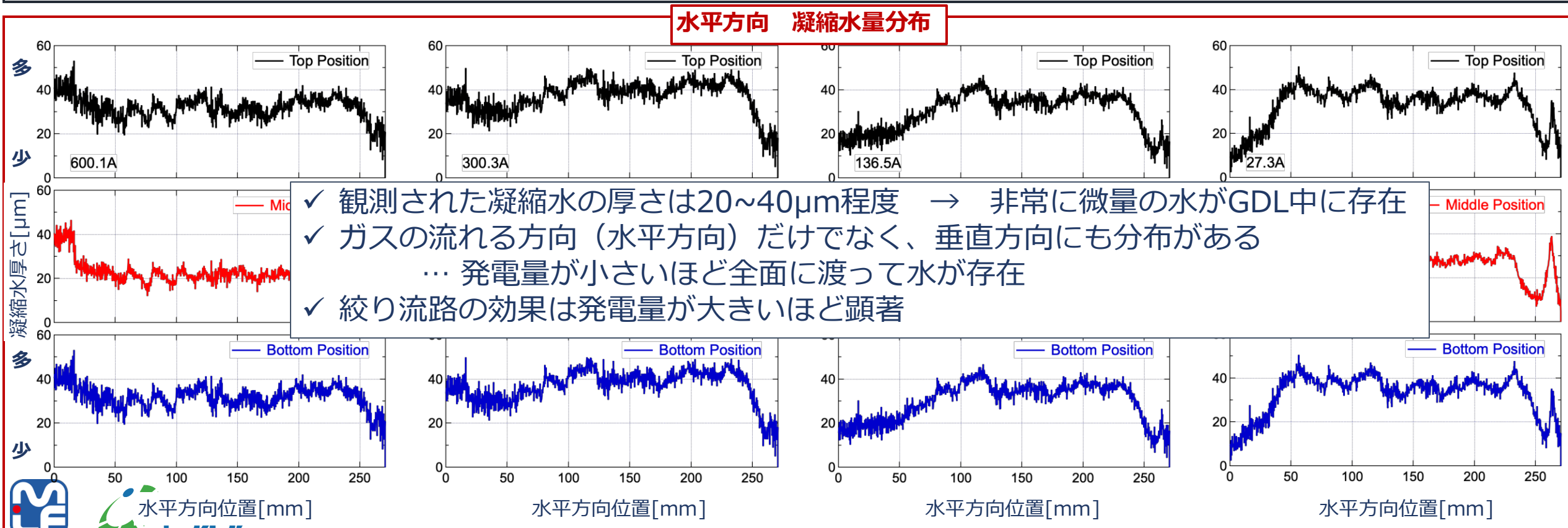
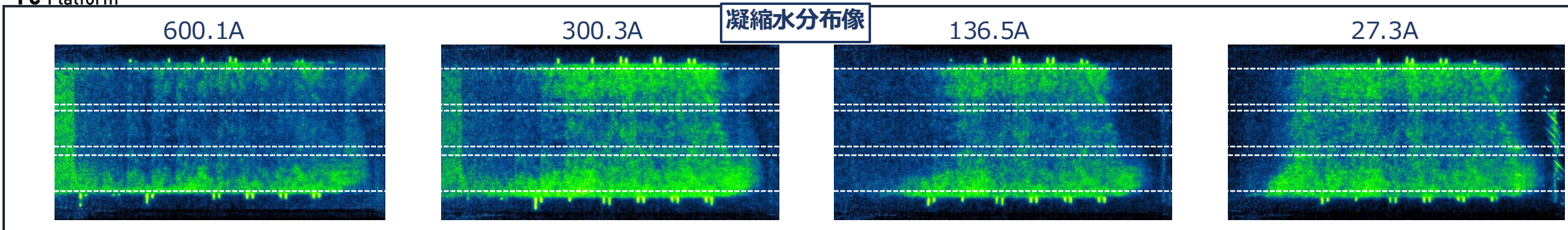
第1世代：3D ファインメッシュ流路

第2世代：絞り流路構造

絞りにより強制的に空気を電極内部に潜り込ませる
= 触媒層への酸素供給と拡散層内の排水性を促進



- ✓ 絞り流路の下流側で水分量の増加が繰り返されている
- ✓ 空気入口側ほど絞り流路による水分量変化が大きい

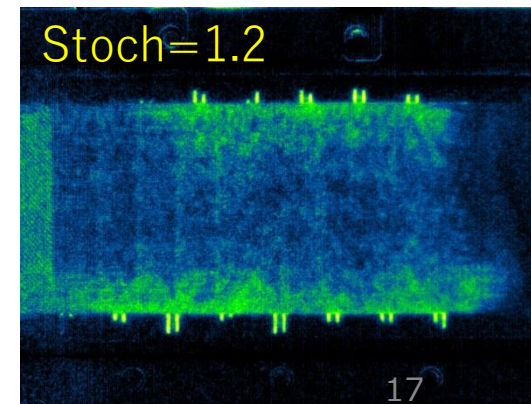
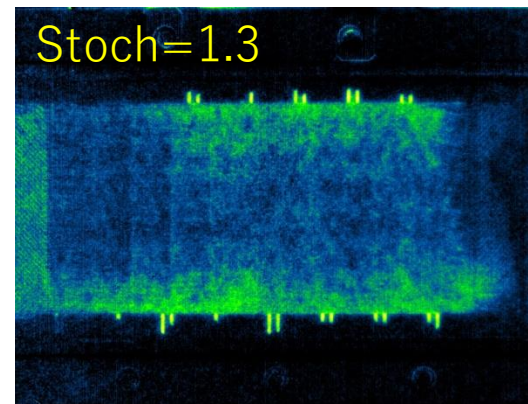
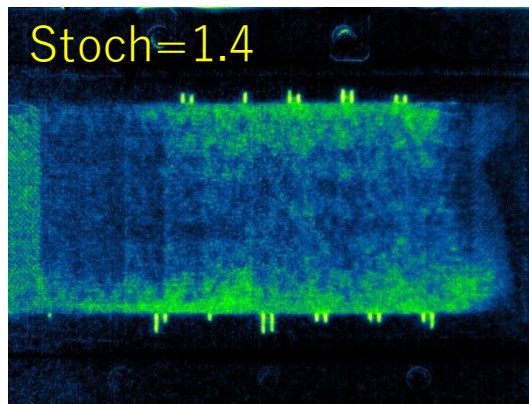
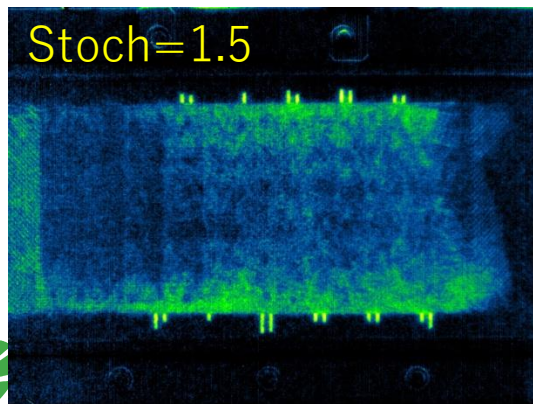
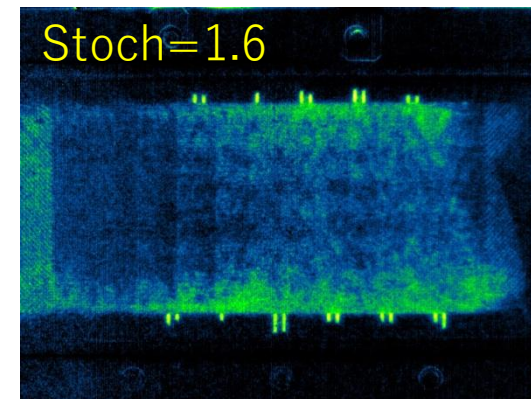
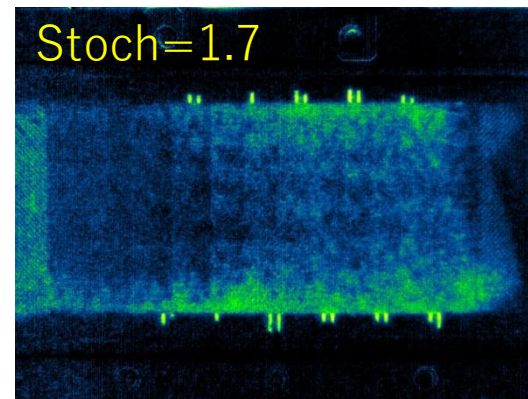
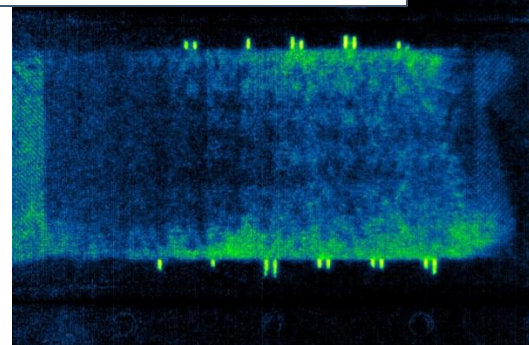
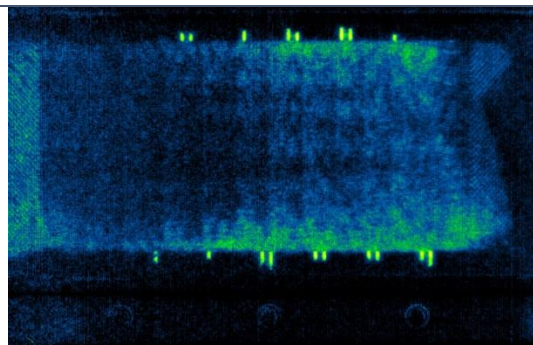
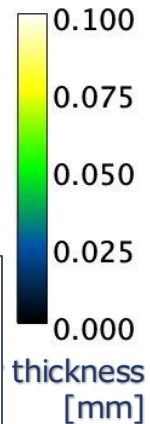


作動中MIRAIセル内部の凝縮水の可視化

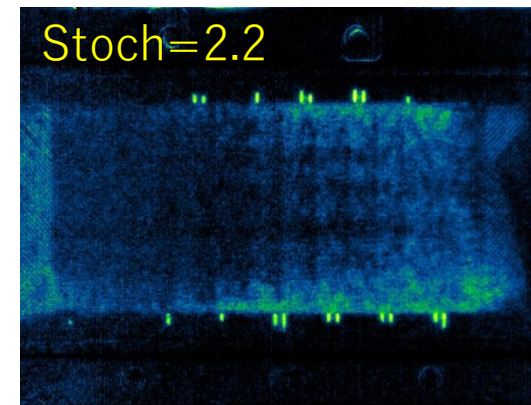
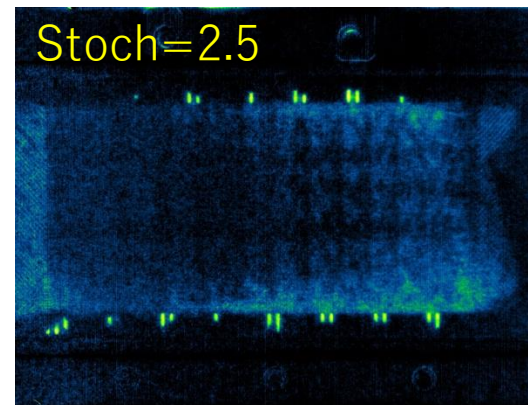
実験② 空気ストイキ応答試験結果

@T=55deg, I=409.5A

- 水は上下の端の方に少量存在するだけ。
- ストイキが小さいほうが水が多い。
- ストイキが大きいほどカソードガス入口側の水の量が少ない。



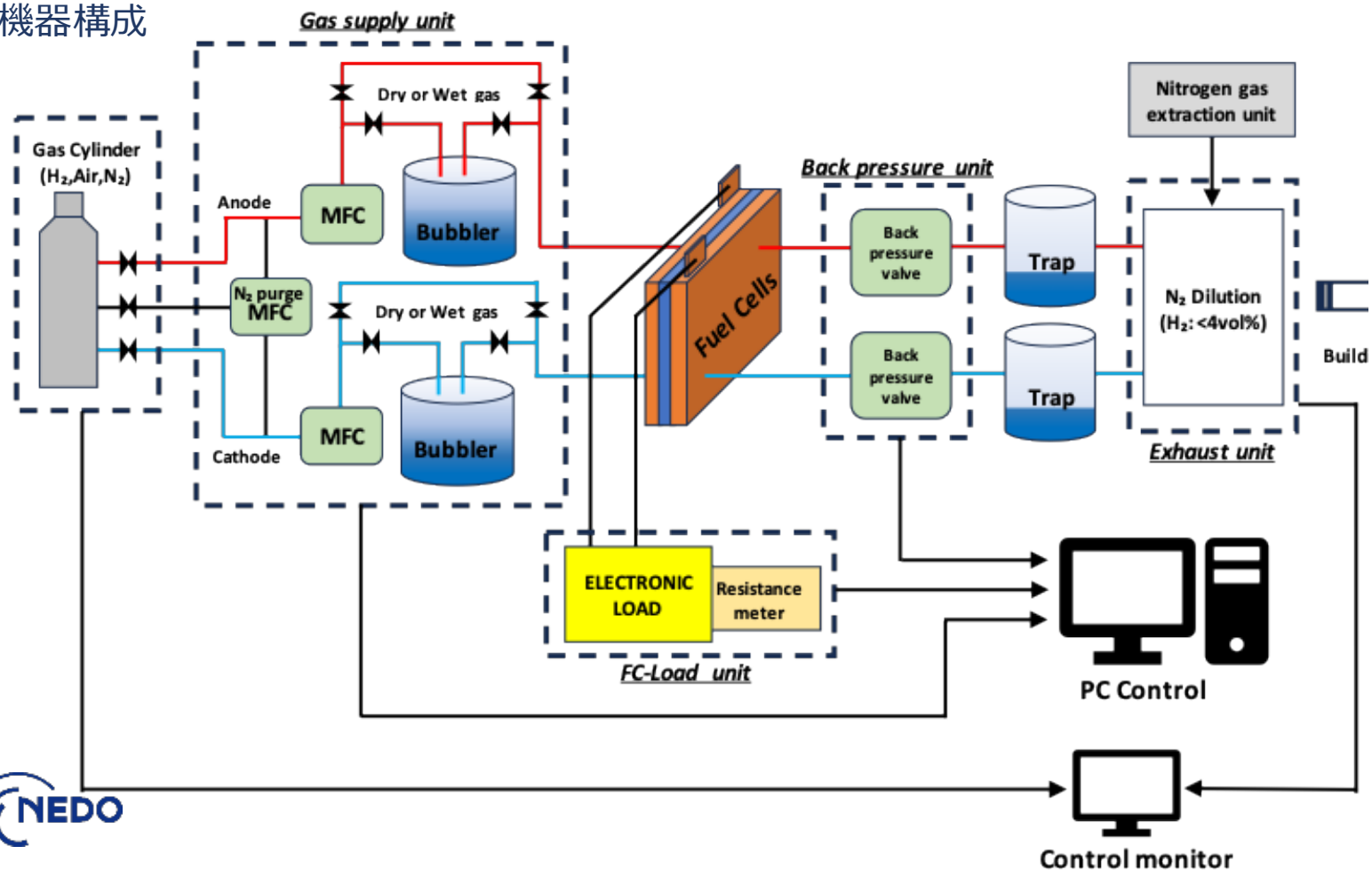
J-PARCでの燃料電池のイメージング



フルサイズセル評価装置の整備

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



J-PARCでの燃料電池のイメージング

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

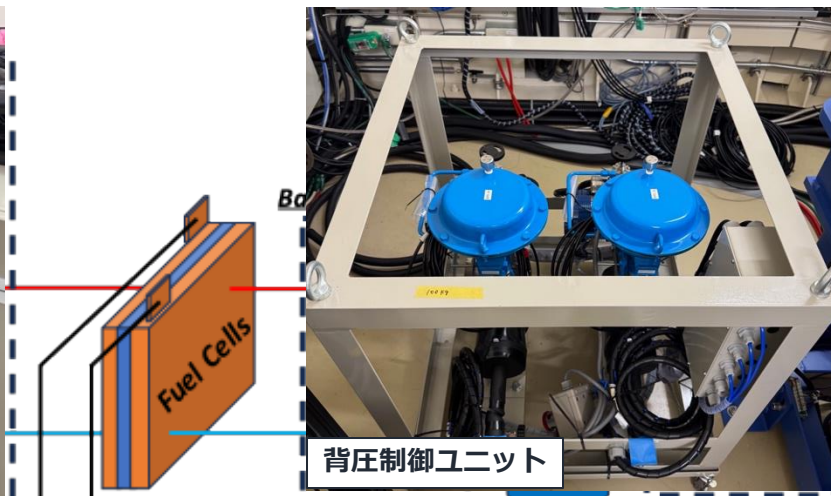
フルサイズセル評価装置の整備

中性子実験装置内での使用を考慮した専用の評価装置

J-PARCでの燃料電池のイメージング



ガス制御ユニット



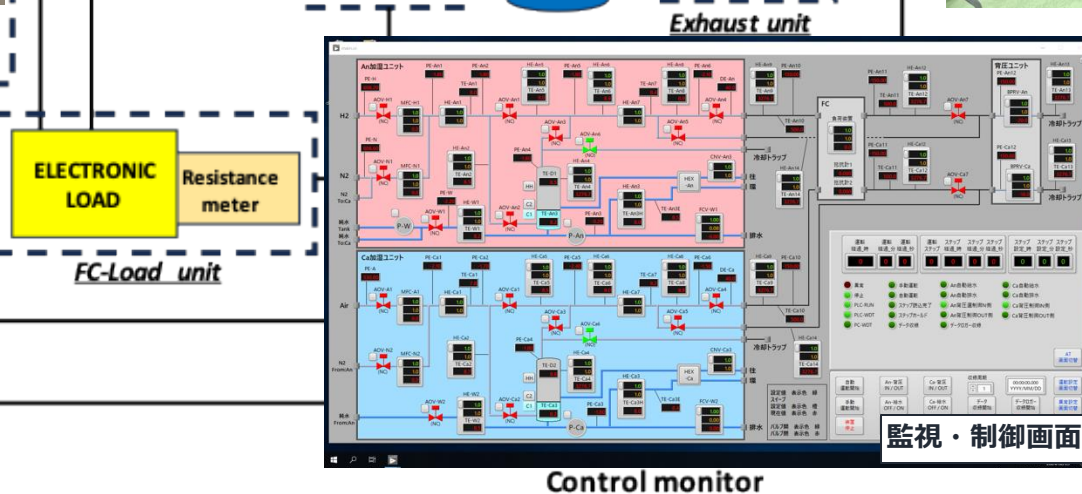
背圧制御ユニット



ガス供給・希釈/排気ユニット



電子負荷装置



ELECTRONIC LOAD
Resistance meter
FC-Load unit

監視・制御画面



制御電源

- 2024年度にオフビーム/オンビームでの動作試験を完了
- 2025年度より本格利用開始

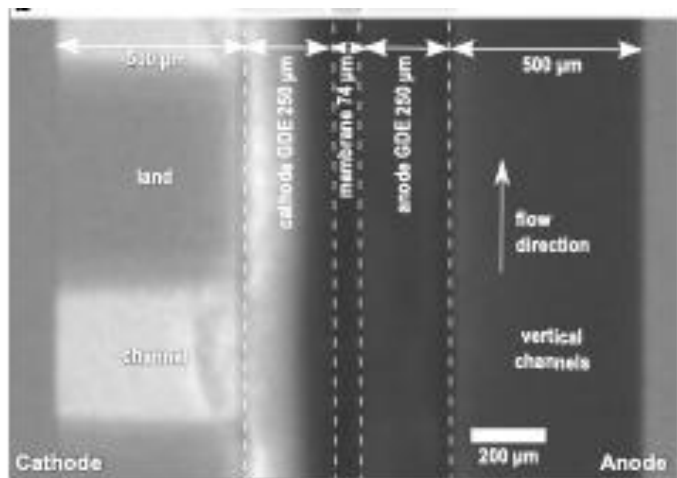
国内での中性子イメージングによる燃料電池研究

- KUR : 小型セル
- JRR-3 : 小型セル、動的観察、CT
- J-PARC : 小型～車載セル、中性子エネルギー選択

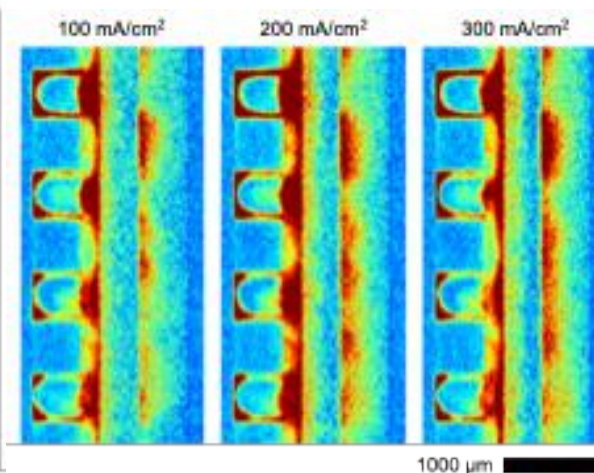
中性子イメージング
への要望

- ✓ より微小な領域の観察
- ✓ 車載セルの撮像時間の短縮

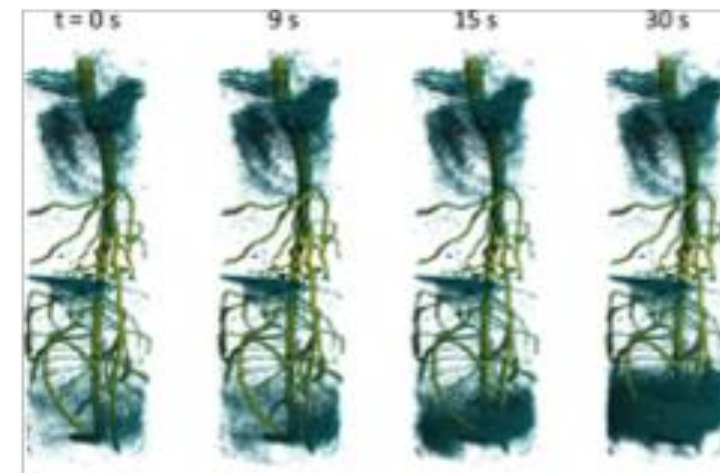
→ 現状のRADENの性能では中性子強度が不足



High-resolution imaging @ NeXT of ILL



Nature Communications, 2022, 13, 6099



High-speed tomography @ NeXT of ILL
1.5sec/rotation

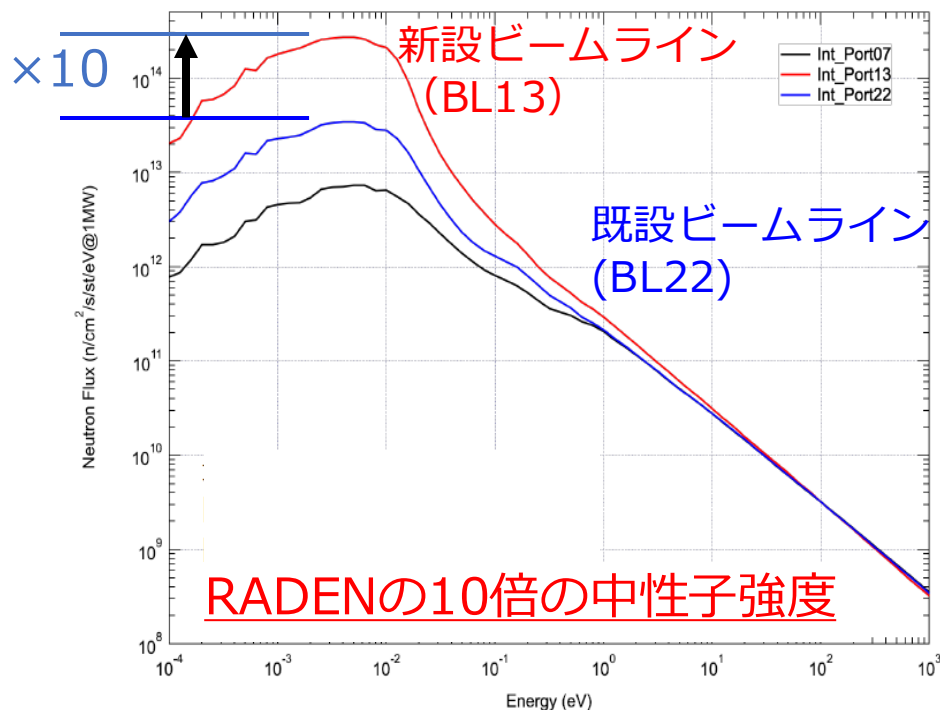
中性子実験への要望

- ✓ プロセスの評価
(材料開発・生産技術への展開)

→ SANSとイメージングの連携・融合

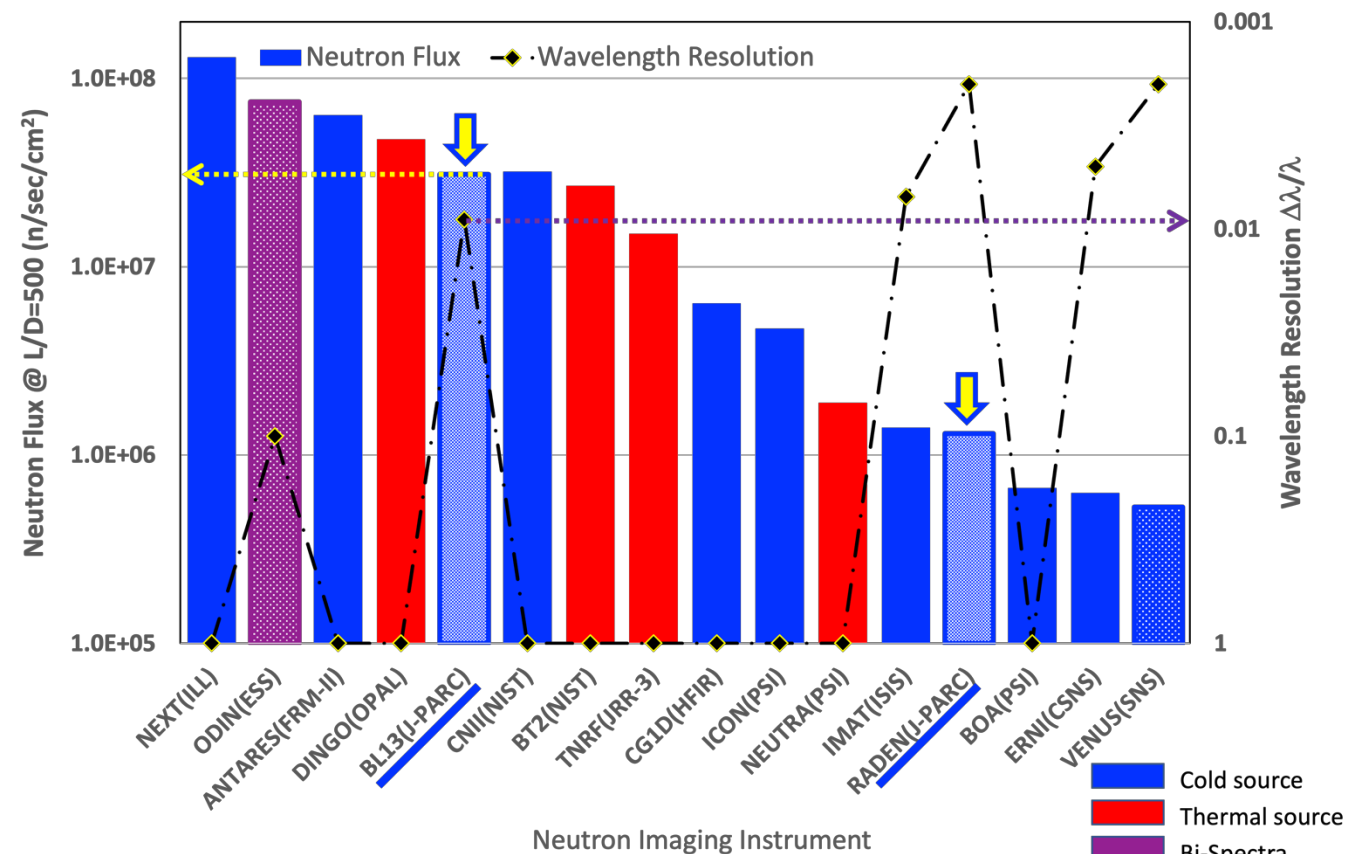
新しい実験環境の必要性

燃料電池研究に利用可能な新しい中性子実験装置をBL13に建設する



期待性能

- ✓ 最大中性子束: 1.5×10^8 n/sec/cm²
- ✓ 波長分解能: < 0.6%
- ✓ 波長範囲: 0.5~7.2 Å
- ✓ 最大視野範囲: 40 cm x 40 cm
- ✓ 最小空間分解能: < 3 μm



- ✓ JRR-3のTNRを上回る中性子強度（しかも冷中性子）
→ 海外の大強度イメージング装置と匹敵する性能
- ✓ 低エネルギー分解能だけでも飛行時間分析ができる



新設ビームラインの建設計画

より高度なオペランドイメージング機能 (cm~μmスケールの実空間観察) …RADENの10倍の性能を実現

- 車載～モデル燃料電池まで (40cm角～1cm角以下までの視野サイズ) をカバー
- 高空間分解能 数μmの分解能を実現 (中性子イメージングとしては世界トップレベル)
- 短時間撮像
 - 動的撮像 25Hz (J-PARCのパルス周期での撮像)
 - フルサイズ燃料電池 < 1秒
 - 水／氷識別 (中性子エネルギー選択イメージング) 10～15秒 (通常)
 - CT

オペランドSANS実験環境 (nm~μmの逆空間解析)

触媒層などを構成する材料開発、生産技術評価への貢献

JRR-3とJ-PARCのイメージング装置の性能比較

		Method								
		Radio-graphy	Tomo-graphy	Dynamic Imaging	High resolution	Bragg edge	Resonance Absorption	Energy selective	Polarized neutron	Grating interferometer
JRR-3	TNRF	◎	◎	◎	△	×	×	×	×	×
	CNRF	○	○	○	△	×	×	×	×	×
J-PARC	RADEN	◎	◎	△	○	◎	◎	◎	○	○
	BL13	◎	◎	△	◎	△	×	◎	◎	◎

- ✓ TNRF: 高効率な中性子ラジオグラフィ・トモグラフィと動的イメージング
- ✓ RADEN: 高い中性子エネルギー分解能でのイメージングと高エネルギーイメージング
- ✓ BL13: 低い中性子エネルギー分解能でのイメージングと高分解能イメージング



J-PARCの中性子イメージング装置RADENに燃料電池実験環境を整備 MIRAI用の燃料電池を使用した動作条件下での凝縮水の可視化を実現

- 発電条件による凝縮水の分布の違いを可視化
負荷条件、ガス流量に依存した凝縮水の生成量・分布の違いを観測
- 絞り流路構造に対応した凝縮水の分布の可視化
絞り流路の位置と凝縮水の量・分布の関連を確認
- 実験環境の改良
中性子イメージング実験専用の評価装置の整備
設備の高度化（ガス供給装置、撮像装置、環境機器）

より高度な中性子イメージング実験の実現に向けた取り組み

- 新設ビームライン計画
大強度の中性子イメージング装置の実現
短時間・高空間分解能のイメージングを実現
SANSとイメージングの組み合わせにより広い空間スケール評価技術を確立