

ミュオン特性 X 線を用いた元素分析の リチウムイオン電池への応用

Application of elemental analysis by muonic x-ray for a lithium-ion battery

梅垣いづみ¹, 樋口雄紀¹, 野崎洋¹, 二宮和彦², 久保謙哉³, 反保元伸⁴,
河村成肇⁴, Patrick Strasser⁴, 三宅康博⁴, 杉山純¹

1 豊田中研, 2 大阪大学, 3 国際基督教大学, 4 KEK 物構研

ミュオン特性 X 線のエネルギーが、通常の蛍光 X 線に比べて約 200 倍高くなることを利用して、ミュオン特性 X 線を用いた軽元素の非破壊元素分析研究が進められている。ミュオン特性 X 線を用いた元素分析は 30 年以上前から知られていたが[1]、J-PARC で大強度の低エネルギー負ミュオンビームが得られるようになったことで、再び関心を集めている[2-6]。この手法は非破壊(放射化もしない)測定が可能で、深さ分解測定が可能という特徴も有する。すなわちすなわち打ち込む負ミュオンの運動量で試料内部の到達位置が決まるため、試料内部をビーム方向に分割して測定できる。さらに、負ミュオンは X 線と異なり、その高い透過性により試料内部の情報を表面情報を引きずらずに得ることができる。

本研究では本研究ではリチウムイオン電池内部のリチウムイオンの分布を調べることを目的に、ミュオン特性 X 線を用いた元素分析に取り組んだ。アルミラミネートで覆われたパウチセルを測定試料とし、純アルミ製の試料容器に封入し、純アルミ製の試料容器に封入した。信号検出にはゲルマニウム半導体検出器を用いた。負ミュオンの入射運動量を 20 から 25MeV/c まで変えることで、パウチセルの表面から裏側まで、深さ方向の条件を変えての条件を変化させてスペクトルを測定した。表面寄りには、正極活物質に含まれる遷移金属元素、リチウムの信号が観測された。さらに深い位置での測定では、負極の集電箔の銅、負極の主成分である炭素(グラファイト)からの信号が明瞭に明瞭に観測された[7]。

Reference

- [1] H. Daniel *et al.*, Nucl. Instr. Meth. **B3** (1984) 65.
- [2] M. K. Kubo, K. Ninomiya *et al.*, J. Radioanal. Nucl. Chem. **278** (2008) 777.
- [3] K. Ninomiya *et al.*, J. Phys. Conf. Ser. **225** (2010) 012040.
- [4] K. Ninomiya *et al.*, Bull. Chem. Soc. Jpn. **85** (2012) 22.
- [5] K. Terada *et al.*, Sci. Rep. **4** (2014) 5072.
- [6] M. K. Kubo, J. Phys. Soc. Jpn. **85** (2016) 091015.

[7] I. Umegaki *et al.*, J. Phys. Soc.: Conf. Ser., *in press*.

放射化分析による難測定核種分析への適用性検討 Zr から生成した ^{90}Y の m/g 比の算出

Applicability Study of Activation Analysis on Radionuclide Investigation

Calculation of m/g ratio of ^{90}Y generated from Zr

*川上 智彦¹, 田仲 睦¹, 蓼沼 克嘉¹, 関本 俊², 大槻 勤²

¹ 化研, ² 京都大学

1. 緒言

福島原発事故以来、環境中の放射性核種の分析や食品等の安全性を確認するために多くの分析が行われている。 β 線のみを放出する放射性核種は難測定核種といわれ、分析には化学的な分離が必要で、1 か月程度の時間を費やすものもあり、迅速分析法のニーズが高まっている。

本研究では、放射化分析法を用いて Sr-90 から(p,n)反応により生成する Y-90m を Ge 半導体検出器で分析できるかを検討している。今回の発表は Sr-90 迅速分析の基礎検討として金属 Zr にガンマ線を照射することにより生成する Y-90m 及び Y-90 の生成比についての検討結果を報告する。

2. 試験

LINAC から放出された任意のエネルギー(20MeV~40MeV)の電子線を Pt ターゲットに照射し制動放射線を発生させた。この制動放射線を金属 Zr(□ 5mm×0.05mmt)に 10 分間照射した。照射終了後、金属 Zr 中の Y-90m を Ge 半導体検出器で計測した。

金属 Zr を溶解後、化学操作により金属 Zr から Y-90 を分離・精製し、シュウ酸イットリウムとしてろ紙上にマウントし、ローバックカウンター(LBC)で計測した。シュウ酸イットリウム中の夾雑物は、Ge 半導体検出器で γ 線放出核種を確認し、低バックグランド β 線スペクトロメー(PICOBETA)による β 線スペクトルから核種を推定した。

3. 結果

照射直後のガンマ線スペクトロメトリより Y-90m を定量した。分離・精製後には、Y-90 の他に、放射性核種として Y-93 及び Y-91 を確認した。Y-93 は、半減期が 10.18h と Y-90 (64.00h) よりも短いため消滅を待ち影響を無くした。Y-91 の影響を考慮し、時間を置いて LBC 測定を繰り返し行い、連立方程式より Y-90 の値を算出した。その結果、図 1 のように m/g 比を求めた。

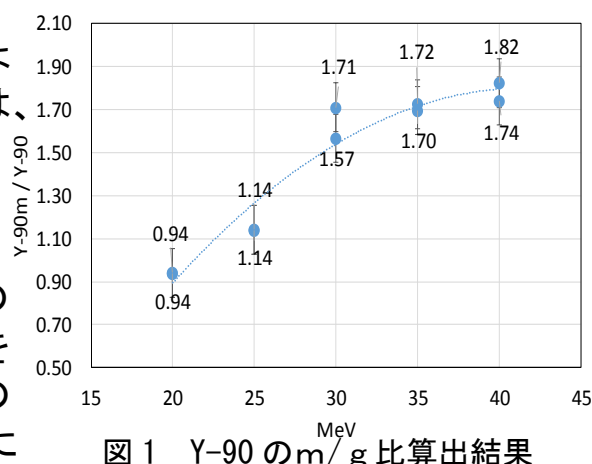


図 1 Y-90 の m/g 比算出結果

ガラス固化技術高度化のための放射光 XAFS 研究 Synchrotron radiation based XAFS research for advancement of the vitrification technology

岡本芳浩¹、永井崇之²、小林秀和²、塩飽秀啓¹、菖蒲康夫²
1JAEA 物質科学研究 C、2JAEA 核サ研

我々は、原子力機構内におけるガラス固化技術開発と放射光分析技術を担う部署間で協力し、放射性廃棄物のガラス固化技術の高度化に、放射光 XAFS 分析技術を利用している。元素選択性に優れた XAFS は、ガラス中に取り込まれた多種類の元素のうちから、目的元素の化学状態を抜き出して知る目的に適している。一方、ガラス中の元素は、全てが均一に分布しているとは限らない(たとえば白金族元素)。そのような元素の測定は、均質な試料が求められる XAFS には本来は適さない。また、均一に分布していないことそのものが、重要な情報でもある。そこで、空間分解能を備えたイメージング XAFS 分析を整備し、試料内の元素分布を求め、任意の領域から XAFS 信号を取り出せるようにした。ガラス溶融炉等から採取し板状に切り出したガラス試料の放射光イメージング観察は、極めて有意義であった。図1は、ガラス試料内に人為的に発生させた結晶相「イエローフェーズ(モリブデン化合物)」の、イメージング撮影による画像である。イメージング XAFS を使用すれば、試料中に成長した針状結晶の1本からの XAFS 信号を抜き出すことができる。

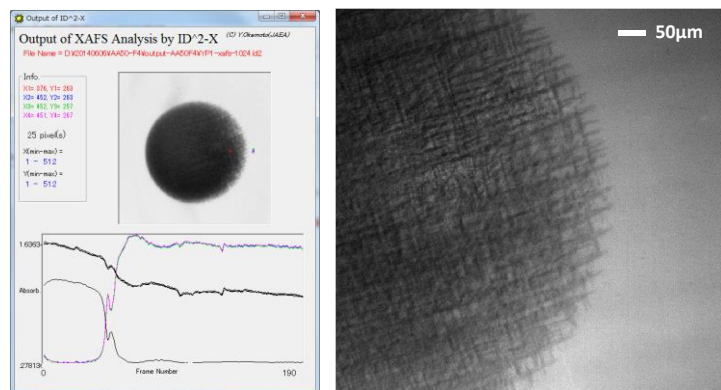


図1 放射光イメージングで観察された、人為的に調製されたイエローフェーズの針状結晶の様子

ガラス溶融炉の運転条件、ガラス原料の種類や廃棄物の充填率をパラメータとし、さらに 30 以上にもなる廃棄物成分元素のすべてを網羅した系統的な XAFS データを取得・解釈することは容易ではない。しかし、過去数年にわたる XAFS 測定の積み重ねから、ガラス固化試料中の各元素の化学状態が徐々に明らかになりつつある。たとえば、複数の原子価状態を取り得る鉄は、ガラス固化試料の化学状態の評価に好んで分析されてきた。しかし、系統的な XAFS の結果、廃棄物成分として加えられた鉄が、ガラスの骨格構造に入る、つまり、ゲストがホストに変わる可能性を見いだした。本発表では、XAFS 分析を通して得られたこのような成果をまとめて報告する。

リチウムイオン実電池の充電による応力変化計測 Measurement of Stress Change in Lithium-Ion Battery Cell after Charge Process

平野辰巳¹、山木孝博¹、石川喜久²、米村雅雄²
1 京大、2 KEK

1. 緒言: 車載用リチウムイオン実電池(LIB)のサイクル時の劣化要因として、高い電流レートにおける電池内部の温度上昇、リチウムイオンの正負極間移動にともなう電極の膨張・収縮による応力などが指摘されている。そこで、中性子回折法により角型 LIB 内部の充電による応力変化を評価した。

2. 実験: 中性子回折実験は MLF の BL09 で実施した(図参照)。2つの 90 度バンク検出器を使用し、角型 LIB を水平および垂直方向に設置して回折した中性子を測定した。ビームサイズ: 20 mm 角、MLF 運転条件: 151 kW、測定時間: 3h/点などの条件で測定した。角型 LIB を電流: 1C (1C は 1 時間で充電もしくは放電する電流に相当) で充電し、充電状態 (SOC: State of Charge): 0、100% における応力を評価した。負極集電体である Cu の [111] 面間隔の変化から歪を算出し、3 方向の歪から応力を算出した。

3. 結果: SOC: 0→100% の充電により面内方向 (x、y) には 31~39 MPa の引張応力、厚み方向 (z) には 9 MPa の引張応力が発生することが判明した。充電によりリチウムイオンは正極から負極に移動し、負極は厚み方向に膨張するが、外装による拘束により厚み方向に圧縮応力、面内方向に引張応力が発生すると考えられる。

謝辞: 本研究は、国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構 (NEDO) の委託事業の支援および課題番号: 2014S10 により実施した。

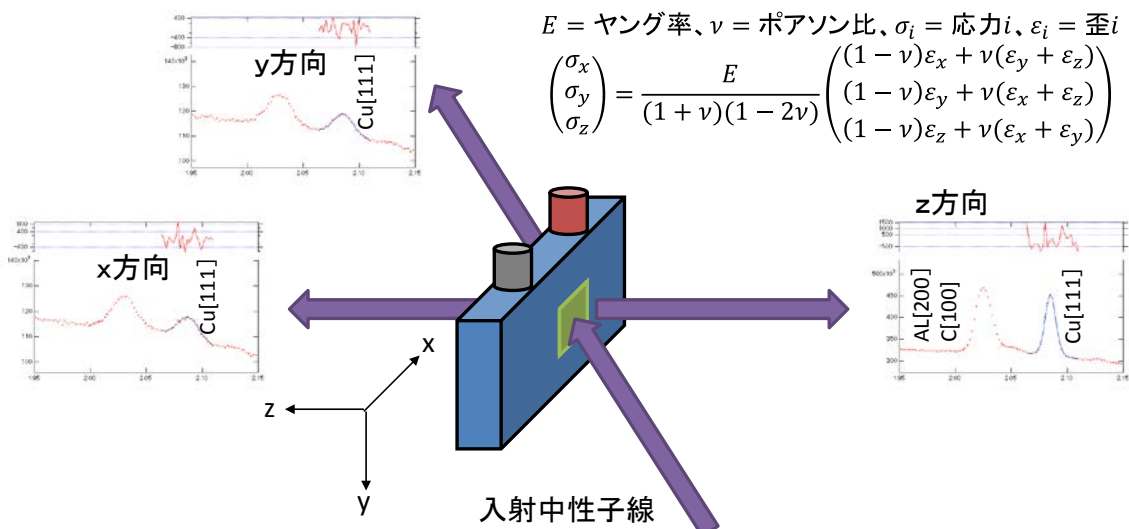


図 中性子回折による角型リチウムイオン実電池の応力測定の概要