

連載講座



中性子イメージング技術の基礎と応用 (応用編第6回)

中性子イメージングの流体力学への応用-2[†]

竹中信幸, 浅野 等, 梅川尚嗣*, 松林政仁**

神戸大学大学院工学研究科機械工学専攻

657-8501 兵庫県神戸市灘区六甲台町 1-1

*関西大学工学部機械システム工学科

564-8680 大阪府吹田市山手町 3-3-35

**独立行政法人 日本原子力研究開発機構中性子イメージング分析研究グループ

319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2-4

Key Words : neutron, neutron imaging, neutron radiography, industrial application, fluid engineering,
two-phase flow, thermo-fluid machine, fuel cell, fluidized bed

はじめに

前号では、二相流の可視化・計測についての概説と、個々の機器についての最近の応用例として冷凍・冷却機器を紹介した。今回は、中性子ラジオグラフィの流体力学への応用として、燃料電池と流動層を、更に日本原子力研究開発機構における産業利用例を紹介する。章立ては応用編第5回に続いた形になっている。

4. 燃料電池

家庭用熱電供給システムや自動車用の電源として開発が進められている固体高分子形燃料電池 (Polymer Electrolyte Fuel Cell: PEFC) では、燃料 (水素) が供給されるアノードから酸化剤 (空気) が供給されるカソードへ、水素イオンが電解質膜を通して移動し、カソードでの電池反応で水が生成される。電解質膜の水分量が多いほど水素イオンは移動しやすく、水素、空気ともに水の相対湿度がほぼ 100% で供給される。そのため、カソードでは水が結露し、電極への酸素の供給を阻害する恐れがある。すなわち、PEFC では運転時における電解質膜 (Polymer Electrolyte Membrane: PEM) 内の水分、カソード側の電極、気体拡散層そして空気供給路での結露水の有無とその分布の把握が求められ、中性子ラジオグラフィによる計測が期待されている。

Bellows ら¹⁾は、電解質膜内の水分分布の可視化を目的とし、膜と平行に中性子線を照射し、膜での減衰を計測している。このとき、気体拡散層やセパレーターでの中性子散乱の影響を除去するため、図 1 に示すように、電池前後に

[†]Fundamentals and Applications of Neutron Imaging (Applications Part 6).

Application of Neutron Imaging to Fluid Engineering-2.

Nobuyuki TAKENAKA, Hitoshi ASANO, Hisashi UMEKAWA* and Masahito MATSUBAYASHI**: Thermo-Fluid Dynamics, Department of Mechanical Engineering, Graduate School of Engineering, Kobe University, 1-1, Rokkodai-machi, Nada-ku, Kobe-shi, Hyogo Pref. 657-8501, Japan, *Department of Mechanical Systems Engineering, Faculty of Engineering, Kansai University, 3-3-35, Yamate-cho, Suita-shi, Osaka 564-8680, Japan, **Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency, 2-4, Shirane Shirakata, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki Pref. 319-1195, Japan.

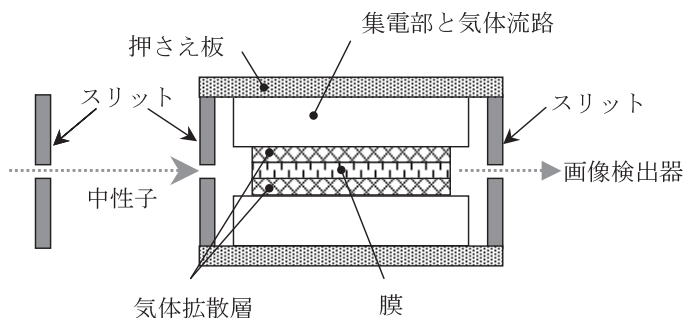


図1 電解質膜内の水分分布可視化装置

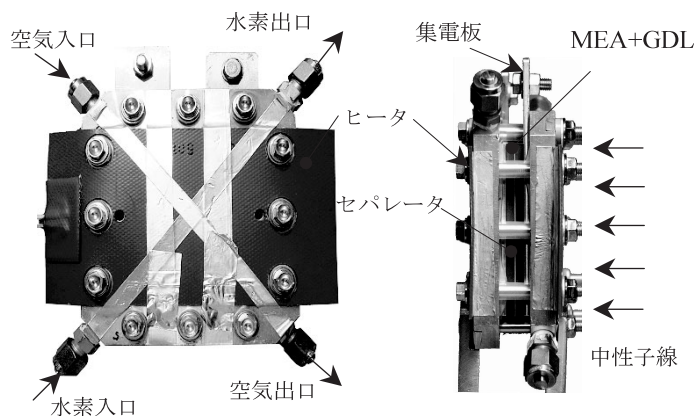


図2 可視化したJARI標準燃料電池

0.9 mm のスリットを設置し、膜に平行な透過中性子線がシンチレータで可視光に変換され、計測された。なお、可視化用に厚さ $500\ \mu\text{m}$ の電解質膜が使用され、膜内の水分分布が計測されている。Trabold ら²⁾、Owejan ら³⁾は、単セル燃料電池（電極面積： $50\ \text{cm}^2$ ）の正面から中性子線を照射し、定常運転時での水分分布及び起動時の水分分布の過渡変化を計測した。同様に単セル内水分分布の計測は、Kramer ら⁴⁾、Zhang ら⁵⁾によっても行われているが、ここでは、空気供給流路のパターン、気体拡散層の種類の影響が評価されている。空気供給流路の気体拡散層での水量が計測され、下流に行くほど、また電流密度が高いほど水の量が多くなる結果を示している。更に、電流密度変化の履歴の影響が考察されている。Pekula ら⁶⁾も同様の計測を行っており、空気流路内での水の流れに着目した

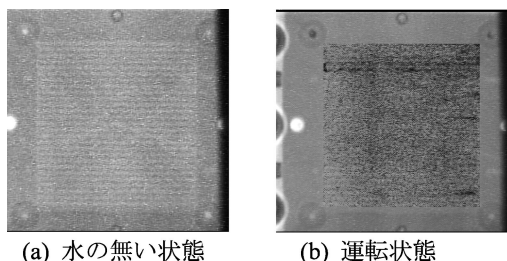
結果が報告されている。

図2は、植田ら⁷⁾が使用した可視化セルの外観である。水計測の解像度を高くするため、締め付け板をステンレス鋼からアルミニウムに、集電板を銅の金メッキからアルミニウムの金メッキに変更し、セパレータの厚さを薄く4 mm にした。電解質膜、気体拡散層、セパレータの材質は、(財)日本自動車研究所 (Japan Automobile Research Institute: JARI) が開発した、JARI 標準セルと同じであり、同一環境下での可視化計測が実現されている。CCD カメラによる可視化画像を図3(a), (b)に示す。図3(a)は水が存在しないとき、図3(b)は発電時での画像である。図3(b)は電極部 ($25\ \text{cm}^2$) に対して図3(a)との画像演算から、水の分布を得て、そのコントラストを強調し

た後、元の画像に張り合わせたものである。水の分布がよく可視化されている。図4(a), (b)には空気側に水を注入した場合の計測結果が示されている。図4(a)は画像処理で得た水の分布であり、その値を水平方向に平均し、流路部とリブ下部と呼ばれる流路の無い部分に分離し、時間変化として示したものが図4(b)である。これより、浸入した水は一定速度で流路を進行するのではなく、下流に行くほど速度は遅くなり、流路の水の流れに同期して隣接する流路の無いリブ下部にも水が浸入していることが確認された。

5. 流動層

流動層は、粉体に気体を吹き込むことで発生する抗力と粉体の自重とのバランスにより、粉体を流体のように取り扱い、固気間の接触面積



(a) 水の無い状態 (b) 運転状態

図3 冷却型 CCD カメラを用いた可視化画像

の大きさや、良好な粉体の混合特性を利用する技術である。化学工業機器やボイラ等で利用されている。この機器の特性は、流動層層材（粉体）挙動に大きく依存することから、その挙動の把握が重要となるが、対象が固気二相流であるために、可視光での観察は奥行き方向に非常に薄い 2 次元流動層のようなものに限定される。このため、光ファイバー、静電容量測定プローブ、RI トレーサを用いた計測が報告されているが、これらの手法も局所的な情報に限定されることやファイバーやプローブ等の挿入による影響が無視できず、 γ 線や X 線のような放射線を用いた可視化がより有力な手法となる。

ここで紹介する中性子ラジオグラフィも放射線を用いた可視化手法の一つであり、1987 年に Catchen が固定層（未流動化状態）ではあるが、粉体層の可視化結果をもとに流動層への適応の可能性を示した⁸⁾。その後、加藤⁹⁾や Takenaka¹⁰⁾が実際に流動化させた状態での可視化を行っている。

中性子ラジオグラフィを流動層の可視化に用いた場合の利点を考えると、

- (1) 流動層に対して中性子が高い透過性を有すること、
- (2) 流動層層材の中性子に対する減衰特性の調整（造影）が可能であること、
- (3) トレーサ粒子の使用が可能であることの三点が挙げられる。

まず、流動層に対する中性子の高い透過特性について述べる。中性子は、流動層ボイラで流動層層材として用いられることが多いけい砂、並びに層壁を構成する金属に対してもかなり高い透過特性を有しており、照射室の制約がなければ 1 m 程度の厚さを有する場合でも透過可能となる¹¹⁾。また、金属内での可視化が可能であることから、压力容器内に設置した流動層の可視化も可能となり、加圧流動層を想定した実験も実施できる⁹⁾。

次に、中性子に対する透過特性の調整であるが、中性子は X 線のように原子番号の増加とともに減衰係数が増加するというような規則性はなく、透過特性は核種に強く依存する。また、減衰係数の差異も X 線のそれに比べて大きく、質量減衰係数で 2 ~ 3 桁大きい¹⁰⁾。これを利用すると、例えば $\text{Gd}(\text{NO}_3)_3$ や CdSO_4 の水溶液に流動層層材を浸漬させて乾燥させることで、X 線では認識できない程度のごく少量の Gd や Cd を粒子に付着させて中性子に対する造影が可能となる。こうして造影された流動層層材は、

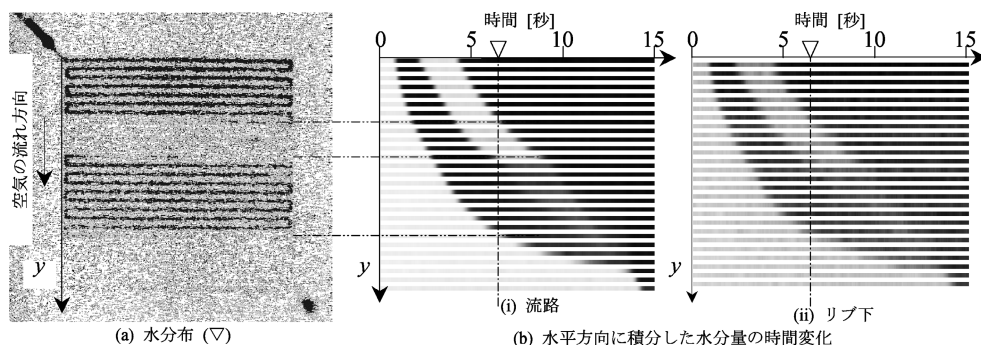


図4 水が入った時の水分分布の画像と水分量の時間変化

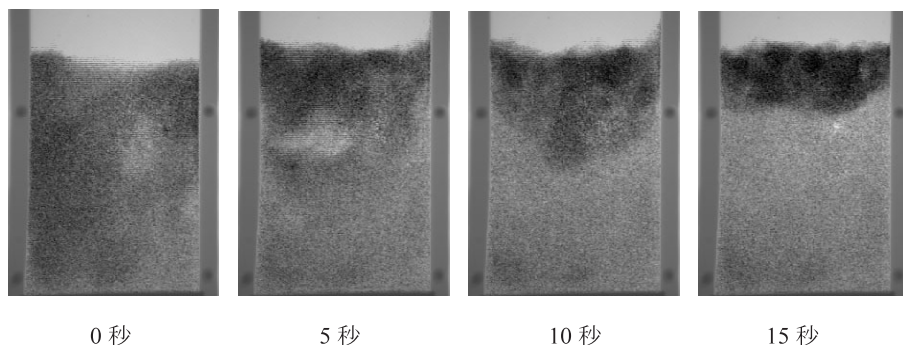


図5 セグリゲーションの可視化

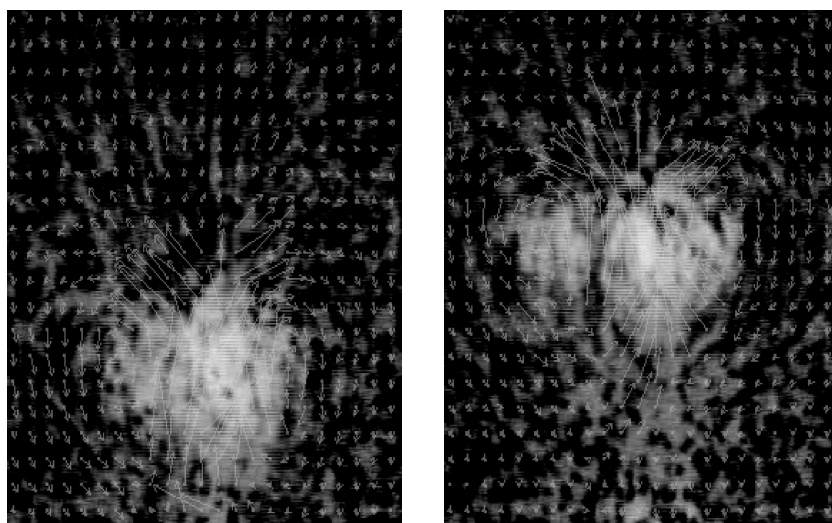


図6 気泡周りの速度分布計測の例

密度や形状のように層材挙動に影響するような物理的特性は同一で、中性子に対する透過特性だけが異なるものとなる。層材を適量混合することで、層の中性子に対する透過特性を調整することや、層内に透過特性の異なる粒子を配置することで層内部の対流構造の可視化が可能となる。この利点がうまく活用されたものが、図5に示すような粒径差異による二成分偏析（セグリゲーション segregation）挙動の計測である。測定では粒径の違う二種類の粒子の片方に中性子吸収剤を浸漬し、粒径の違う粒子が分離する偏析特性の動的計測を行っている¹²⁾。

最後にトレーサ粒子に関して述べておく。トレーサ粒子も先の造影と同様、中性子の減衰係

数が核種に大きく依存することを利用したものである。ここでは、粘土をバインダーとして B_4C で作成したトレーサ粒子を使用している。同様のことをX線ラジオグラフィで実施する場合には、減衰係数の関係でトレーサ粒子は重くならざるを得ず、これを層内に混入した場合は沈降し層材挙動の情報は得ることができない。中性子ラジオグラフィによる本手法を適用した図6の例では、前述のトレーサ粒子を流動層層材に混入して取得した可視化画像に対して、PIV (Particle Image Velocimetry) や PTV (Particle Tracking Velocimetry) と呼ばれる粒子追跡の画像処理法を適用することで、層内局所の粒子挙動に関する情報を得ている¹³⁾。

6. 日本原子力研究開発機構における産業利用

独日本原子力研究開発機構（原子力機構）では平成 18 年度から所有する施設の共用制度を開始した¹⁴⁾。JRR-3 に設置されている中性子ラジオグラフィ装置もこれに該当し、既に施設共用制度を利用した実験が行われた。施設共用制度は産業界のみを対象としたものではないが、産業界が以前から希望していた「成果非公開」での利用が有償利用により認められるようになった。また、役務提供も可能となり、中性子ビーム実験に不慣れな企業ユーザーでも、原子力機構のスタッフの技術的支援を得て実験及び解析ができるようになった。残念ながら、成果非公開の利用に関しては利用者自らが成果を公開する場合を除いて、他のユーザーが成果の内容を知ることとはできない。新しい動きとして、文部科学省が進めている「中性子利用技術移転推進プログラム」(通称、トライアルユース)がある¹⁵⁾。平成 18 年度は放射線利用振興協会が受託して実施し、電源立地地域の企業、自治体、研究機関が中性子利用を公開で試みるために実験装置の優先利用枠を確保して行われた。JRR-3 の熱中性子ラジオグラフィ装置も、年間で 30 日程度のトライアルユース制度による利用があった。トライアルユース制度は成果公開を前提としていることから、近いうちに成果が公開される予定である¹⁶⁾。ここでは施設共用制度開始以前に、JRR-3 の中性子ラジオグラフィ装置を利用して共同研究として企業と実施した内容について紹介する。

6・1 ポリエチレン中の水トリー劣化観察(相手企業：電線メーカー)

架橋ポリエチレンを絶縁材料に用いた電力ケーブルでは、絶縁体中の異物、ボイド等を起点とした、水トリー (water tree) と呼ばれる水で満たされた樹枝状亀裂の発生が問題となっていた。電力ケーブルの信頼性向上のため、水トリーを非破壊で検出する方法として中性子ラジ

オグラフィの適用を試みた。その結果、水トリー部に強中性子吸収材である Gd をドーブしたりして、ポリエチレンに対するコントラストを強調させた場合には、非破壊で検出可能であること、特に、銅テープなどの遮蔽材料に影響されないことから、ケーブル中の異物、劣化状況の非破壊観察には有効な手法であることが確認できた。

6・2 微細流管内冷媒挙動の検出(相手企業：自動車関連)

カーエアコンの冷凍機等の車載部品は、軽量化・高性能化の過程で小さく複雑になり、部品の構造がその性能に強く影響することから、実部品内部における冷媒挙動の理解がますます重要となる。冷凍機部品の場合、構造が複雑な上、内部圧力が高くしかも部品の壁を介した熱交換が冷媒挙動に強く影響することから、ガラス、透明樹脂等の代替材料を使用して可視化はできない。このため、中性子ラジオグラフィを用いて微細流管内の冷媒挙動の可視化可能性が検討され、その結果、冷媒の厚さが薄く冷中性子を用いても十分なコントラストを得ることは困難であるが、静止画であれば画像処理により液冷媒を検出できることがわかった。

6・3 水素吸蔵合金等中の水素拡散過程可視化^{17), 18)} (相手企業：金属材料)

特に携帯用デバイスで使用される燃料電池への水素供給源として期待される水素吸蔵合金内の H の拡散の様子を中性子ラジオグラフィで可視化した。

TiCrV 系合金及び TiCrMo 系合金に対して 500 ～ 600 ppm 程度の低濃度で H を吸蔵 (固溶体領域) させた場合、表面から内部にかけて均一に水素が分布しており、拡散は比較的速いことが確認された。超小型水素吸蔵合金タンク中の合金の分布について水素化 1 回目と 30 回繰り返した後の様子を観察した結果、

(1) 1 回目は水素吸放出口付近に多少水素濃度

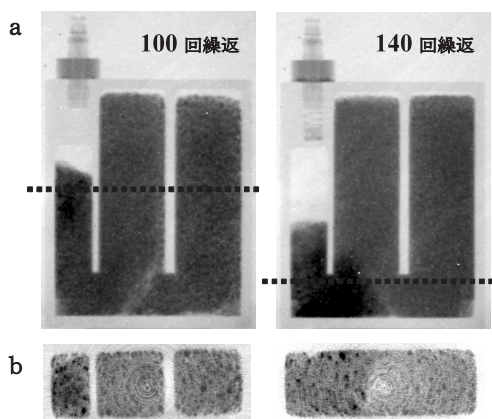


図7 改良型水素吸蔵合金タンク内部の可視化
a) 投影画像
b) 投影画像上の点線で示された位置の断層像

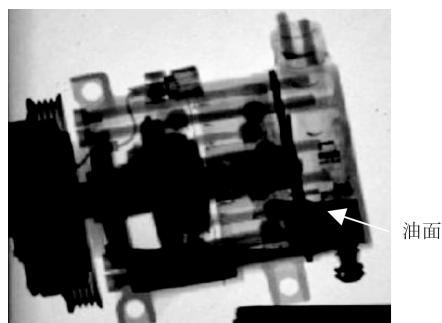


図8 車載エアコン用コンプレッサ内部の液面可視化

が低い部分があるものの比較的均一に分布していたが、

(2) 30 回繰り返した後では水素吸放出口付近やタンク底面部に大きな水素濃度分布ができており、水素の注入・放出に伴ってあるいは合金の膨張・収縮により合金粉末の移動が起こっていることがわかった。更に、寸法の実測により水素化前後でタンク外壁に膨れの発生がわかっており、膨れの分布と水素濃度分布が比較的良好一致を示すことが確認され、タンク製造技術へフィードバックできる結果が得られた。更に水素化回数を増やし 100 回と 140 回繰り返した改良型水素吸蔵合金タンクについて断層 (CT : Computed Tomography) 撮影を実施した。その結果、図 7 に示すように、どちらの画像でも水素濃度の高い領域がガス吸放出口付近で観察

され、合金粉末の移動がタンクを変形させる要因となっているものと推察された。

6・4 自動車用機器の非破壊可視化¹⁸⁾ (相手企業：自動車関連)

省動力 (省燃費) エアコン技術が望まれる中、ピストンストロークを電子制御しているコンプレッサ内の液冷媒の挙動が問題であると推測されている。このため、中性子ラジオグラフィ法を用いてコンプレッサの内部空間 (クランク室) 内の液面を非破壊かつ正確に把握することを目的として実施した。図 8 はコンプレッサを傾けた状態で内部の液面を冷却型 CCD カメラシステムを用いて観察したものである。本体のほとんどがアルミニウム合金製であることから内部が良く観察できている。この結果を受けて、撮像システムをリアルタイムの可視化が可能な SIT (Silicon Intensifier Target) 管カメラに変更して電動モーターで駆動した状態で毎秒 30 フレームの可視化を行った。モーターの容量により回転数は 300 rpm と低かったが、回転に伴うオイルの挙動及び液面の変化をはっきり観察することができた。

文 献

- 1) Bellows, R. J. et al., *J. Electrochem. Soc.*, **146**(3), 1099-1103 (1999)
- 2) Trabold, T. A. et al., *Int. J. Heat Mass Transfer*, **49**, 4172-4720 (2006)
- 3) Owejan, J. P., *Int. J. Heat Mass Transfer*, **49**, 4721-4731 (2006)
- 4) Kramer, D. et al., *Electrochim. Acta*, **50**, 2603-2614 (2005)
- 5) Zhang, J. et al., *Electrochim. Acta*, **51**, 2715-2727 (2006)
- 6) Pekula, N. et al., *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.*, **A542**, 134-141 (2005)
- 7) 植田忠伸, 他, 第 43 回日本伝熱シンポジウム講論集, **B222** (2006)
- 8) Catchen, G. L. et al., *Chem. Eng. Commun*, **54**, 73-84 (1987)
- 9) 加藤泰男, 他, JRR-3M 中性子ラジオグラフィ

- 研究会 (1995)
- 10) Takenaka, N. et al., *Flow Meas. Instrum.*, **1**, 149-156 (1990)
- 11) Umekawa, U. et al., 3rd International Symposium on Measurement Techniques for Multiphase Flows, **1-3**, 121-128 (2000)
- 12) Umekawa, U. et al., *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.*, **A542**, (1-3), 219-225 (2005)
- 13) Onodera, T. et al., *Nondestr. Test. Eval.*, **16**, 391-402 (2001)
- 14) 「原子力機構の共用施設」(パンフレット), 日本原子力研究開発機構産学連携推進部施設利用課
- 15) 「中性子利用技術移転推進プログラム」(パンフレット), 財団法人放射線利用振興協会
- 16) 「中性子利用技術移転推進プログラム説明会」(文部科学省主催), 平成 19 年 2 月 26 日, 日本科学未来館
- 17) Progress report on neutron science, JAERI-Review 2005-013
- 18) Progress report on neutron science, JAEA-Review 2007-004
-