

## CONTENTS

P2-3 中性子産業利用推進協議会活動報告

P3-4 J-PARC/MLFの2016Aにおける課題採択結果

P4-5 中性子実験装置の紹介

P5-7 研究トピックス

P8 お知らせ

## 建設から安定運転と成果最大化へ

J-PARCセンター 齊藤 直人

早いもので、センター長を拝命してから1年半が過ぎようとしています。この間、学術研究と産業利用を両輪とする研究体制をより強固なものにしようと、多くの方々と協力しながら試行錯誤して参りました。その途上において、中性子生成標的の不具合により、二度も施設の運転を長期に亘って停止せざるを得ない状況になりました。ユーザーの立場に立つて考えれば、予定されていたビームタイムがキャンセルされるのは最悪の事態です。建設から運転への過渡期にある物質・生命科学実験施設(MLF)では、より綿密なユーザー対応が求められていることを現場とともに再認識しつつ改善に向けて取り組んでいます。

中性子利用においては、KEKとJAEAの二つの機構に支えられ、また、共用法に基づく登録機関であるCROSSや、第三者BL設置者である茨城県も運営に関わっていただいています。これらのそれぞれの組織の運営と、MLF全体として協力し合っサイエンスと産業利用の成果を最大にするというゴールの間を、如何に有機的に繋ぐのかという課題に、二川副センター長、金谷MLFディビジョン長、横溝CROSSセンター長、茨城県とともに正面から取り組んできました。その一つとして、金谷ディビジョン長のリーダーシップの下に、成果という出口を見据えた会議体とグループを立ち上げてい

ます。現在は、それぞれ研究企画会議とサイエンスグループと呼んでいます。産業利用についてもカバーしていきたいと考えています。ここでは、分野の動向の分析に基づく研究戦略づくりを行い、成果が出るところまでフォローすることを想定しています。形だけに終わらせることがないように、現場とともに汗をかいて行く所存です。

そのような状況において、7月に開催されたJ-PARC/MLF産業利用報告会で国内の大学や海外の研究機関との連携を進めていることを紹介させていただきました。例えば、大阪大学はJ-PARC分室を設置して、複数の研究者を常駐させています。J-PARC施設の可能性を、大学の研究者の視点を直接に生かして最大限に引き出していこうという試みです。学生や若手研究者が大型施設に内部から直に触れながら研究成果を挙げていくことで、ものづくりができる人材の育成や将来の施設展開を計画できるコミュニティづくりにつながることを期待しています。さらに、茨城大学は、量子線科学専攻を新設し、J-PARC/MLFを使った研究や人材育成の機会を大幅に拡大しています。大変嬉しいことに、企業でもJ-PARCに若手研究者を配置して、施設を熟知した人材の育成を計画していただけるようになりました。

今後も、施設と利用者という垣根を大きく超えた交流を進めて、幅広い利用者のニーズに応えられる施設の実現に向けて努力して参ります。

## 中性子への期待、中性子のインパクト

キヤノン株式会社 野間 敬

企業における材料の研究開発では「勘に頼って試行錯誤を繰り返すことは止め、客観的データに基づいて開発を進めるべき」という認識が定着してきました。客観的データというのは、実験や試験の結果を評価することによって得られます。そのためには様々な分析が必要です。私は入社以来、分析の仕事をして来ました。私たちの実験室を訪れた外部の方は、しばしば「何故こんなに多くの分析装置があるのか」と質問されます。私たちは「それぞれの課題に応じて使う分析装置が異なるためだ」と答えています。課題が実験室の分析装置だけでは解けない場合には、外部施設を使います。これまで私たちは「放射光」を使い、「強誘電性液晶」の構造解析や「高品位蛍石」の結晶欠陥評価を実施してきました。多くの分析手段の中から課題を解くために最適な手段を選択することが重要です。これができる「分析の目利き」を多く育て、会社の中で活躍させることが私たちの課題です。

さて、J-PARC/MLFが立ち上がり、「中性子」が分析手段

の選択肢に入りました。私はX線散乱と相補的な特徴を持つ中性子散乱が微粒子材料の解析のための強力な武器となることに期待しています。それだけではありません。約10年前、私は英国の中性子施設ISISを見学しました。当時、ISISでは第二ターゲットステーションの建設が進められていました。そこでエアバス社専用の巨大な実験ステーションを始め、多くの産業利用の実例を目の当たりにして感銘を受けました。今、ISISのホームページへ行くと、「Neutron scattering materials research for modern life」という冊子を見ることができます。ここには中性子散乱が私たちの生活にインパクトを与えている例が多数紹介されています。日本刀の金属組織を解析した研究には特に興味をそそられ、中性子の産業利用の新しい可能性を感じさせられました。

J-PARC/MLFでは多くの方々のご尽力によって、産業界が利用しやすい環境が整ってきています。今後、産業利用の事例が多数公開されるようになれば、新材料開発に対する中性子の有益性・有効性がもっと身近に感じられる日がくるものと思います。

# 中性子産業利用推進協議会活動報告

## ● 平成28年度総会

7月21日(木)に東京秋葉原コンベンションホールにおいて、庄山悦彦副会長、須藤亮運営委員長、会員企業45社・機関(委任状含む)他が出席して平成28年度総会を開催しました。伊藤洋一文部科学省科学技術・学術政策局長を始めとして、非会員企業他からの出席を含めて110名の参加がありました。

初めに、庄山悦彦副会長から「J-PARCセンターの支援により、Liイオン電池や触媒などの分野で製品成果が挙がりつつある。イノベーションを生み出すためには、高度な計測・評価技術が必須であり、J-PARC/MLFとJRR-3の中性子の利用に大いに期待している。成果を挙げるために安定運転を最優先にさせていただきたい」との挨拶がありました。

伊藤洋一局長からは「J-PARCを用いて多くの社会的・経済的に高インパクトな成果が生み出されており、多くの大学や企業が最先端の研究開発リソースを持ち寄り、まさに「共創の場」として活用されている。J-PARCが世界トップレベルの研究拠点として最大限のポテンシャルを發揮し、様々な世界規模の課題の解決にも貢献していくことを期待している」との挨拶がありました。

須藤亮運営委員長からは「9サイクル運転のための予算措置、ならびに、学術成果を挙げるために研究スタッフを充実させる施策をお願いしたい。これからの産業創出においてはオープンイノベーションが必要で、そのためにJ-PARC/MLFを活用したい」との挨拶がありました。



庄山悦彦副会長



伊藤洋一局長



総会会場の様子

総会の議事においては、第1号議案「平成27年度事業報告及び決算報告について(監査報告を含む)」、第2号議案「会員の入退会について」、第3号議案「平成28年度事業計画及び収支予算について」、第4号議案「会則の改訂について」、その他「平成28年度の体制」の各項目について審議と報告があり、審議項目については全て承認されました。

## ● 平成28年度J-PARC/MLF産業利用報告会

7月21日(木)、22日(金)に東京秋葉原コンベンションホールにおいて、初めてのJ-PARC/MLF産業利用報告会を開催しました。

初めに、齋藤直人J-PARCセンター長から開会挨拶があり、続いて、上田光幸文部科学省量子研究推進室長から文部科学省を代表して挨拶がありました。

<J-PARC/MLFセッション1>では、金谷利治MLFディビジョン長が「J-PARC/MLFの現状」と題して水銀ターゲットの状況と論文の投稿実績などを報告され、続いてCROSS東海の林真琴氏が「中性子産業利用の現状」と題して産業利用の現状と利用成果を報告されました。その後、MLFにおける成果として、井手本康東京理科大学教授と池田一貴KEK助教が講演されました。

<J-PARC/MLFセッション2>では、大場洋次郎京都大学助教、NIMSの内藤昌信氏、ならびに、日立製作所の王昶氏がそれぞれ講演されました。

<特別講演1>では、住友ゴム工業(株)の中瀬古広三郎常務執行役員が「量子ビーム解析とシミュレーション連携によるタイヤ用新材料開発」と題して、J-PARCとSPRING-8、ならびに「京」コンピュータを連携利用して開発された「4D Nano Design」というタイヤ設計システムについて講演されました。

22日(金)の<茨城県BLセッション>では、佐藤成男茨

城大学教授、小泉智茨城大学教授、ならびに、菅野了次東京工業大学教授がBL20「iMATERIA」の利用成果などについてそれぞれ講演されました。また、三木邦夫京都大学教授、横山武司富山大学助教、ならびに、田代孝二豊田工業大学教授がBL03「iBIX」の利用成果についてそれぞれ講演されました。

昼食時には会場横のスペースを利用してポスターセッションを行いました。今回は、MLFに整備された中性子実験装置の性能や特長に加えて利用成果を装置グループが紹介するとともに、利用相談にも応じました。

<特別講演2>では、高精細液晶であるIGZOの実用化などで注目されている細野秀雄東京工業大学教授が「鉄系超電導物質における新しい型の磁気秩序相」と題して、鉄系超電導物質が発見されてから10年の研究の進展について講演されました。



報告会場の様子

最後の〈共用BLセッション〉では、CROSS東海の鈴木淳市部長、篠原武尚J-PARCセンター研究主幹、豊田中央研究所の野崎洋氏、ならびに、山本勝宏名古屋工業大学教授が共用BLの現状と利用成果についてそれぞれ講演されました。

21日の報告会には182名、22日の報告会には137名、延べでは225名もの参加者があり大変盛況でした。

21日(木)夕方には、会場脇の「ホワイエ」において懇親会を開催し、96名の方が参加されました。庄山悦彦副会長と上田光幸室長、ならびに、今瀬肇茨城県企画部長の挨拶のあと、横溝英明CROSSセンター長の主催者代表挨拶に続く発声により乾杯し懇談しました。参加者の皆様から、産業利用に繋がる先行研究や産業利用において非常に良い



中瀬古広三郎氏



細野秀雄東工大教授

成果が挙がっているとのコメントをいただきました。グラスを片手に、産学官の懇親を深めるとともに、J-PARC/MLFの産業利用の深化について活発な意見交換がありました。

## ● 要望書の提出

7月4日(月)に、馳浩文部科学大臣ほか文部科学省のJ-PARCやJRR-3に関する幹部に対して、中性子産業利用推進協議会(代表：庄山悦彦副会長(㈱日立製作所名誉相談役))と日本中性子科学会(代表：鬼柳善明会長(名古屋大学特任教授))、茨城県(代表：富田俊郎技監)が合同で、J-PARC/MLFとJRR-3に関する要望書を提出しました。

具体的には、伊藤洋一科学技術・学術政策局長と板倉周一郎大臣官房審議官(研究開発局担当)にそれぞれ面会して、産業界の中性子利用に対する熱い思いを説明のうえ、手渡しました。

協議会からの要望事項は下記の4項目です。

- 1) J-PARC/MLFの安定的運転による利用時間の確保
- 2) J-PARC/MLFを最大活用するための年間9サイクル運転の実現

- 3) J-PARC/MLF中性子出力の所期性能1MWの早期達成
- 4) 先進的な産業利用研究を先導するJ-PARC/MLFの支援スタッフの充実

また、JRR-3の早期運転再開と十分な高経年化対策による安定的運転の確保についても併せて要望しました。

文科省からは、1) J-PARC/MLFを産業界が多角的に利用していることに感謝する、2) いくつかのトラブルでユーザーにご迷惑をお掛けしていることについてはお詫びする、3) トラブルで停止しても早期再開できるシステムを構築する、4) 9サイクル運転については夏場の電気料金がネックである、5) JRR-3は原子力規制委員会との調整があるが、平成29年度中に再開するであろうとの回答がありました。

引き続き、産業界からの要望書を必要に応じて提出して行きたいと考えています。

## J-PARC/MLFの2016Bにおける課題採択結果

J-PARC/MLFの課題公募では、昨年の水銀ターゲットにおける冷却水漏れの不具合発生により2015Bの課題募集は中止されました。平成28年度においては7サイクル運転で154日利用できるようになりましたが、2015Aの採択課題の一部が2016Aにキャリアオーバーされ、そのために70日を利用することになりました。その結果、2016Aと2016Bにはそれぞれ42日を一般ユーザーに供することになりました。

KEKのS型課題やJAEAのプロジェクト研究、および装置グループの利用などを除いて一般利用に供されるのは装置全体で399日であり、比率では58.0%です。

一般課題公募においては、一般利用と成果専有、CROSSの新利用者支援事業を合わせて238件の申請があり、98件が採択されました。採択率は41.2%です。因みに2008から2016Aにおける平均の採択率は57.7%です。

産業界からは成果専有の3件を含めて21件の申請があり、13件が採択されました。採択率は61.9%です。CROSSの新利用者支援事業では産業界から2016Aの継続テーマが3件申請され、3件が採択されました。なお、茨城県のビームラインでは2016Aから定期課題公募を廃止したので、今回の採択結果には計上されていません。

2016Bにおいて成果公開で採択された10件の産業利用

表1 2016Bにおける産業利用採択課題

分類	ビームライン	実験責任者	所属機関
J-PARC 一般公募	BL02 ダイナミクス解析 「DNA」装置	真下 亮	住友ゴム工業
		増井友美	住友ゴム工業
	BL10 中性子源特性試験装置 「NOBORU」	新井大夏	日立製作所
	BL14 冷中性子ディスクチョッパー型分光器 「AMATERAS」	真下 亮	住友ゴム工業
	BL16 高性能試料水平型中性子反射率計 「SOFIA」	川浦宏之	豊田中央研究所
	BL19 工学材料回折装置 「匠」	向井康博	関西電力
	BL22 中性子イメージング装置 「螺鈿」	今川尊雄	日立製作所
CROSS東海 新利用者 支援事業	BL02 ダイナミクス解析装置 「DNA」	茂木昌都	日産アーク
	BL15 大強度型中性子小中角散乱装置 「大観」	小川光輝	富士シリシア化学
	BL17 垂直型偏極反射率計 「SHARAKU」	小池淳一郎	DIC

課題を表1に示します。なお、申請課題の題目は実験を終え、報告書が提出されるまで公開されません。

図1には2016Bにおける採択課題の申請元別分類を示します。産業利用の比率は13.3%で、これまでの平均の約半分です。これは上述したように、茨城県BLでは定期

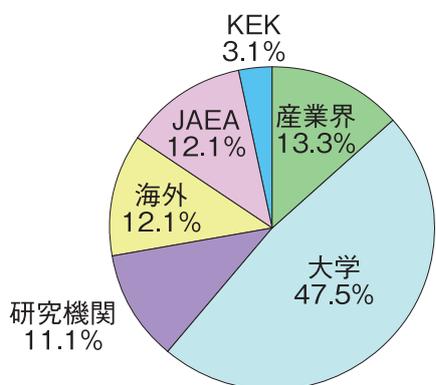


図1 2016Bにおける採択課題の申請元分類

募集をしなくなったためです。図2には利用装置の分類を示します。BL15大強度型中性子小中角散乱装置「大観」が10.2%で最も多く、次いで、BL02「DNA」とBL10「中性子源特性試験装置」、BL11「超高压中性子装置」がそれぞれ8.2%となっています。

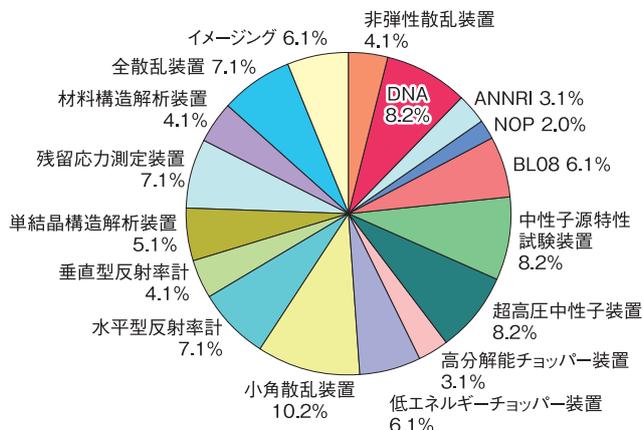


図2 2016Bの採択課題の利用装置分類

## 中性子実験装置の紹介

### 茨城県材料構造解析装置「iMATERIA」で始動した小角&中角散乱計測

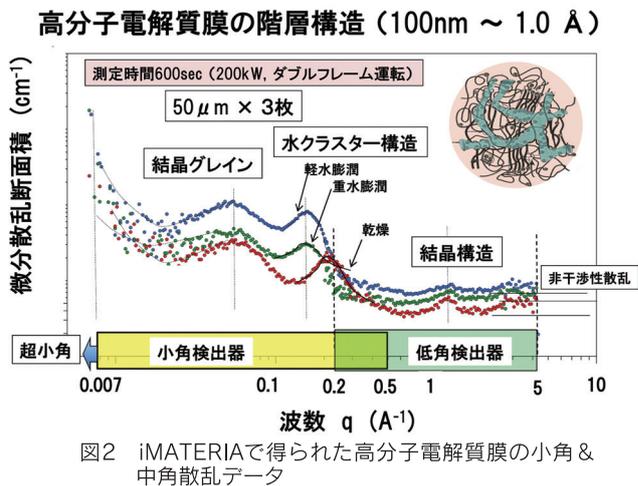
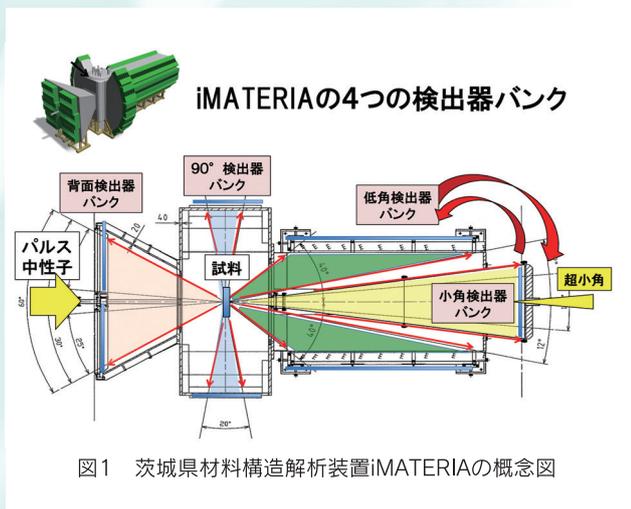
茨城大学 小泉 智、能田 洋平、上田 悟  
松川 健、星川 晃範、石垣 徹

J-PARC/MLFに設置されている茨城県材料構造解析装置BL20「iMATERIA」は、汎用の構造解析装置として開発され、約1,500本の<sup>3</sup>He一次元検出器が4つの検出器バンクに割り振られ、試料を取り囲んでいます(図1参照)。このうち、試料を透過した前方位置の小角バンクと低角バンクの検出器群を利用した小角&中角散乱計測が始動しました。小角散乱のために試料の入射側に専用の4象限スリットを設置し、入射中性子の発散角を整えます。今後、この小角散乱は、高分子ブレンドや金属組織などの材料研究に威力を発揮すると期待されます。

実験者がiMATERIAで入手するのは、飛行時間法で整理

した様々な波長のイベントデータです。この膨大な散乱データを原子炉の単色中性子と同じ発想で整理できるようなデータ処理プログラムを整備し利便性を良くしました。実験中にBL20のキャビンで絶対強度処理された散乱カーブを作成し、実験者のPCにイゴールテキスト形式で出力します。そのため実験者が帰社する途中でデータを確認することができます。

図2には高分子電解質膜ナフィオンの実測例を示します。これは厚さ50 $\mu\text{m}$ の膜を3枚重ねて、乾燥状態、軽水または重水による膨潤状態を計測したものです。小角検出器バンクが $0.007 < q < 0.5 \text{ (\AA}^{-1}\text{)}$ を、また、低角検出器バンクが $0.2 < q < 5 \text{ (\AA}^{-1}\text{)}$ をカバーします。その結果、電解質膜の内部に存在する結晶グレイン(100~10nm)や、イオン伝導に関わる水クラスター(~nm)、基材の結晶(~ $\text{\AA}$ )が階層的に観察できます。また、高波数領域では、水素の非干渉性散乱に



比例してベースラインの増減が確認できます。測定時間は200kW出力時のダブルフレーム運転(80msec)で600秒です。将来1MW出力にてシングルフレーム運転で計測すれば、1/10の約60秒で同等のデータが得られ、材料を加工する過渡状態を観察できるようになります。背面検出器バンクまで連続に繋ぐと、波数は $40\text{\AA}^{-1}$ 程度までとなり、様々な利用が可能になります。

そこで、茨城県では2014年度より、電子顕微鏡や放射光と相補的な中性子利用を追求するために、茨城県中性子利用促進研究会に小角散乱分科会を発足させました。この分科会では中性子が得意とするコントラスト変調法を多成分複合材料に適用することを目指して活動しています。特に、試料に含まれる水素の核スピンを低温強磁

場のもとで偏極して実現する核偏極コントラスト変調のための専用超伝導マグネット(7T, 1K)を整備しています。この手法はタイヤを代表例とする製品そのものの構造解析に大きな威力を発揮すると期待されます。そのほか、特殊な小角散乱の利用方法として、(1)小角検出器バンクのさらに下流での超小角散乱の検出、(2)背面検出器から小角検出器までを同時に活用する広範囲計測による階層構造の解析、(3)イベントデータを活かした動的構造解析、(4)斜入射散乱や反射率を利用した基板試料の解析などを重点課題として推進します。また、理研に整備された小型中性子源小角散乱装置RANS-1の連携利用も進めています。iMATERIAには、地元企業が得意とする金属加工技術や計測プログラム開発技術などが適用され、地域産業の活性化も目指しています。

## 研究トピックス

### ●J-PARC

#### 金属強磁性体 $\text{SrRuO}_3$ のスピンドイナミクスとワイルフェルミオン

高エネルギー加速器研究機構 伊藤 晋一

金属強磁性体 $\text{SrRuO}_3$ のスピンのエネルギーが温度に対して非単調に変化することを検出しました。これは電子状態の量子力学的な位相(ベリー位相)がスピンの運動として観測できることを初めて示したものです[1]。

$\text{SrRuO}_3$ はペロブスカイト型結晶構造をとり、磁性原子Ruがほぼ立方格子に配置される金属強磁性体です。強磁性転移温度 $T_C$ は165Kであり、4d電子系で強磁性を示す珍しい例です。また、鉄を始め、多くの立方晶強磁性体では磁気異方性が小さいのに対して、 $\text{SrRuO}_3$ は例外的に大きな磁気異方性を示します。異常ホール伝導度が温度や磁化に対して非単調に変化することも $\text{SrRuO}_3$ の特徴のひとつです。

$\text{SrRuO}_3$ の特徴的な点はそのバンド構造にあります。強磁性体では、 $\uparrow$ スピンと $\downarrow$ スピンのバンドに分裂し、フェルミエネルギー以下の $\uparrow$ スピンと $\downarrow$ スピンの数の差が磁化を与えます。スピン軌道相互作用がある場合、分裂したバンドが、反対スピンを持つ別のバンドと交差を起すことがあります。このとき、バンド交差のエネルギー分散は相対論的量子力学を記述するディラック方程式で質量をゼロとおいたものと数学的に等価な構造を持ちます。この電子状態はワイルフェルミオン(質量がないと考えられていたニュートリノを記述しようとしたもの)と呼ばれます。ワイルフェルミオン(バンド交差)はベリー位相を生じて運動量空間でのモノポールとして振舞い、その磁場が異常ホール効果の起源となります。 $\text{SrRuO}_3$ の異常ホール伝導度の非単調な振舞いはこの描像で記述できます[2]。この仮想的な磁場をスピンドイナミクスとして検出するためにスピンの観測を試みました。

$\text{SrRuO}_3$ は、中性子非弾性散乱実験に必要な大型の単結晶試料が最近まで合成できませんでした。多結晶試料のスピンの中性子散乱強度は、運動量ゼロ近傍のみが残り、運動量が大きくなると粉末平均によって減衰します。運動

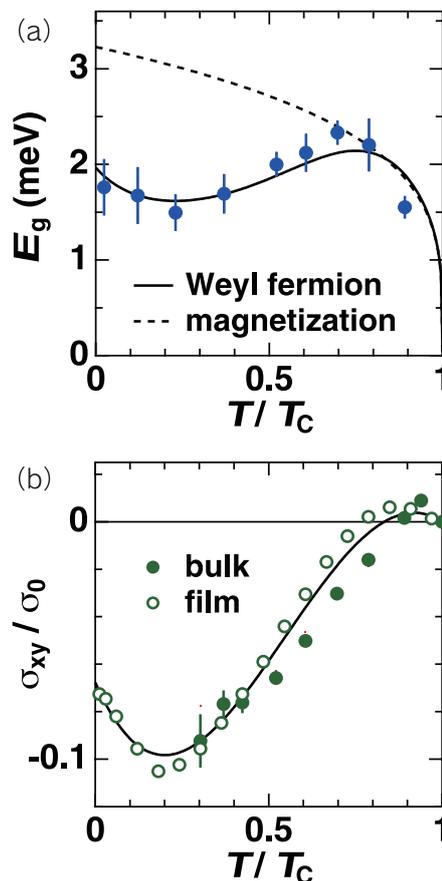


図1  $\text{SrRuO}_3$ のスピンのエネルギー $E_g$ (a)と異常ホール伝導度 $\sigma_{xy}$ (b)の温度変化。横軸は温度 $T$ を $T_C$ で割ったもの。(a)の実線は $\sigma_{xy}$ を用いて表される理論曲線、(a)の点線は磁化 $M$ 、(b)の実線は実験値を表現するもの。 $E_g$ が単調な温度変化をする $M$ に比例しないことが内部磁場以外の要因の存在を示している。

量ゼロ近傍を観測する前方散乱近傍の中性子非弾性散乱を中性子ブリルアン散乱(NBS)と呼びます。J-PARC/MLFの高分解能チョッパー分光器BL12「HRC」では、同種の分光器に比べて、低散乱角に中性子検出器が配置され、高いエネルギーの中性子を高分解能で利用できるため、NBSが可能になりま

す [3]。NBSは、多結晶を始め、非晶質や液体などの単結晶ではない系の中性子非弾性散乱実験が可能です。

SrRuO<sub>3</sub>の多結晶試料を用いてHRCでNBSによりスピン波のエネルギーを温度の関数として測定しました[1]。スピン波のエネルギーは、磁気異方性などの内部磁場を反映し、単調に温度変化します。しかし、SrRuO<sub>3</sub>のスピン波のエネルギーの温度変化は図1 (a) に示すように非単調であり、図1 (b) に示す異常ホール伝導度の関数として図1 (a) の実線のように表わされることを見い出しました。

異常ホール効果は、電子状態の量子力学的な位相であるベリー位相の効果で生じる現象であり、異常ホール伝導度はベリー位相で表わされます。ベリー位相は、これまで、

スピントロニクスの研究において、輸送現象で議論されてきましたが、今回、輸送特性以外の現象、すなわち、スピンドイナミクスとして観測できることを初めて示しました。

この成果は、スピンドイナミクスの研究に新しい視点を与えるものであり、大きな学術的意義があります。将来的には、次世代太陽電池や、超高密度の記録デバイス、磁気センサーの開発に繋がるのが期待されます。

参考文献

- [1] S. Itoh, Y. Endoh, T. Yokoo, J.-G. Park, Y. Kaneko, K. S. Takahashi, Y. Tokura, N. Nagaosa, Nature Communications 7, 11788 (2016)
- [2] Z. Fang et al., Science 302, 92 (2003)
- [3] S. Itoh et al., J. Phys. Soc. Jpn. 82, 043001 (2013)

## 中性子準弾性散乱による電池材料のイオン伝導解析

(株)豊田中央研究所 野崎 洋

二次電池候補材料中のイオン伝導度を中性子準弾性散乱(QENS)で解析した結果、材料固有のイオン伝導度を求めることができ、また、活性化エネルギーはバルク材料よりも低いことが分かり、性能向上の指針が得られました。

化石燃料を有効利用できるエンジンとモータを組み合わせたいわゆるハイブリッド(HV)車が広く普及してきました。さらに、モータのみで走行する電気自動車(EV)も目にするようになってきました。HV車やEV車はこれまでのエンジン車にはない技術が多く使われています。特に、電気を蓄える二次電池は非常に重要なキーデバイスとなっています。HV/EV車の二次電池には、急な加減速に対応するために、高い充放電性能が求められます。そのためには二次電池を構成する各材料が高性能を有していることが必要です。また、従来はニッケル水素電池が多く用いられてきましたが、より長い距離を走行できるように、高容量が期待されるリチウム二次電池が普及しつつあります。本研究では、リチウム(Li)の動きに敏感な中性子準弾性散乱(QENS)を用いて、電池材料中のイオン伝導を解析しました。

初めにLiイオンを伝導させる固体電解質としてガーネット型酸化物のQENS測定結果を示します。図1に典型的なスペクトルを示します[1]。試料に打ち込まれた中性子は試料中のLiに衝突して散乱されます。このとき試料中のLiが動いていなければ、入射中性子と同じ速度で散乱され、エネルギー損失ゼロの位置にピークのみが観測されます。一方、試料中のLiが動いている場合には、入射した中性子がエネルギーを失って(または得て)散乱されるので、幅の広いピークが観測されます。このときのピークの広がりから、Liの拡散係数は600 Kで10<sup>-8</sup>cm<sup>2</sup>/s程度であることが分かりました。また、ピーク高さから動いたLiの数が分かります。Liが動いた数の温度依存性から、活性化エネルギーを求めたところ、図2に示すように、バルクより低い値が得られました。これはシステムをより効率化できる可能性があることを示唆しています[2]。最近、Naイオン伝導のQENS測定を実施しました。その結果、Naのジャンプ距離は結晶構造の変化とよく対応することが分かりまし

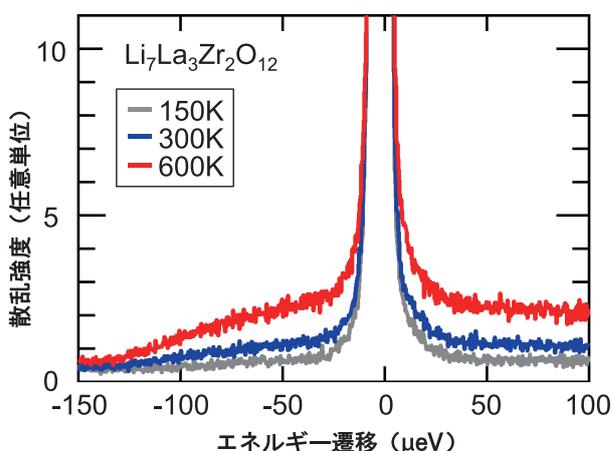


図1 ガーネット酸化物の準弾性散乱スペクトル

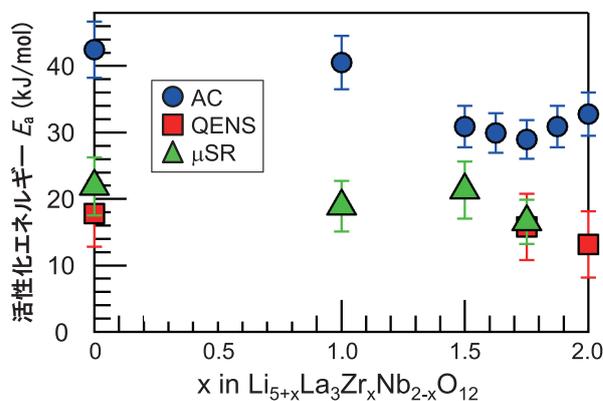


図2 電気化学測定、QENS、μSRから求めたガーネット酸化物の活性化エネルギー

た。また、Naの活性化エネルギーはLiとほぼ同程度で電池材料として有効なことが分かりました[3]。

以上より、比較的速いLiとNaの動きに関する材料固有の情報をQENSで取得でき、二次電池のシステム設計に有効なことが分かりました。

本研究は、J-PARC/MLFの課題番号2012B0023と、米国SNSの課題番号IPTS-5823として実施しました。中性子準弾性散乱測定に際しては、BL14「AMATERAS」の中島健次博士、SNS BL2のNiina Jararvo博士とEugene Mamontov博士にご支援いただきました。Naイオン伝導体試料は豊田工大(元名大)の竹内恒博教授に合成していただきました。QENS測定

際には、CROSS東海の蒲沢和也博士、弊社の太田慎吾博士、梅垣いづみ博士、杉山純博士にご協力いただきました。この場を借りて感謝申し上げます。

#### 参考文献

- [1] H. Nozaki et al., Solid State Ionics, 262, 585 (2014)
- [2] H. Nozaki et al., JPS Conf. Proc. 2, 010303 (2014)
- [3] H. Nozaki et al., QENS2014/WINS2014, 43 (2014)

## ●茨城県BL

### 超イオン伝導体を発見し全固体セラミックス電池を開発 —高出力・大容量で次世代蓄電デバイスの最有力候補に—

東京工業大学

菅野 了次

高エネルギー加速器研究機構

米村 雅雄

リチウムイオン二次電池の3倍以上の出力特性を有する全固体型セラミックス電池の開発に成功しました。また、従来のリチウムイオン伝導体の2倍という過去最高のリチウムイオン伝導率をもつ超イオン伝導体を発見し、蓄電池の電解質に応用して実現しました。

電気自動車やプラグインハイブリッド車、スマートグリッドが社会に浸透するための鍵を握るデバイスが、電気を蓄える電池です。その容量・コスト・安全性のいずれの面でも、現在のリチウムイオン電池を超える次世代電池の開発が喫緊の課題となっています。次世代の蓄電池開発の鍵をにぎるのが電解質です。

現在のリチウムイオン電池は電解質として有機電解液が用いられていますが、全固体電池では固体電解質を用います。電解質を固体化することにより、従来の電解液系電池では実現できないバイポーラ積層構造など、既存の電池パック設計の常識を覆すコンセプトの導入が可能となり、電池のさらなる高容量化・高出力化が可能となります。電池を全てセラミックスで構成することにより、安定性がさらに高まるため、全固体電池は次世代の蓄電デバイスとして位置付けられています。しかし、これまでの固体電解質としてのイオン伝導体の特性が十分ではなく、その実現を阻んできました。我々の研究グループでは、2011年に有機電解質に匹敵するイオン伝導率を有する材料である $\text{Li}_{10}\text{GeP}_2\text{S}_{12}$  (LGPS, イオン伝導率:  $12\text{mS cm}^{-1}$ 程度)の開発を行ってきましたが、これまでに構築した全固体電池の特性は、既存の電解液系電池の特性を凌駕するものではありませんでした。

今回、我々の研究グループでは、超イオン伝導体 $\text{Li}_{9.54}\text{Si}_{1.74}\text{P}_{1.44}\text{S}_{11.7}\text{Cl}_{0.3}$ と、広い電位窓を有し、リチウム金属負極の電解質として利用できる超イオン伝導体 $\text{Li}_{9.6}\text{P}_3\text{S}_{12}$ を発見しました。これらを用いて不燃性・高安全性の面で期待されていた全固体セラミックス電池を製作し、現在のリチウムイオン電池よりもはるかに高速充電と高出力が本質的に可能であることを実証しました。

発見したリチウムイオン伝導体は、室温 ( $27^\circ\text{C}$ ) で $\text{Li}_{9.54}\text{Si}_{1.74}\text{P}_{1.44}\text{S}_{11.7}\text{Cl}_{0.3}$ が $25\text{ mS cm}^{-1}$ という極めて高いイオン伝導率を示しました。また、 $\text{Li}_{9.6}\text{P}_3\text{S}_{12}$ はリチウム金属負極に対しても安定に作動して、全固体電池の電解質材料として優れていることを明らかにしました。

開発した全固体電池は、室温の出力特性が既存のリチウムイオン電池の3倍以上になるとともに、有機電解液を用いるリチウムイオン電池の課題である低温 ( $-30^\circ\text{C}$ ) や高温

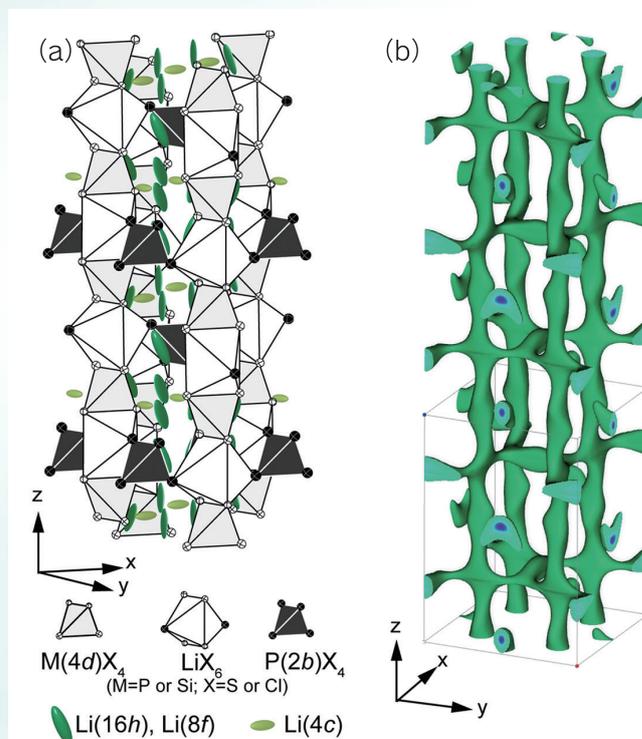


図1 今回発見した超イオン伝導体の構造  
(a)Rietveld法で精密化した $\text{Li}_{9.54}\text{Si}_{1.74}\text{P}_{1.44}\text{S}_{11.7}\text{Cl}_{0.3}$ の結晶構造、  
(b)MEM解析によるリチウムイオンの伝導経路。リチウムイオンが三次元的に連なり、室温での三次元的なイオン拡散を示している。

( $100^\circ\text{C}$ )でも優れた充放電特性を示しました。また、室温や高温での高電流放電において1,000サイクルまで安定した特性を有し、実用電池に匹敵する耐久性を兼ね備えていることを明らかにしました。

BL20「iMATERIA」を利用した中性子構造解析により、 $\text{Li}_{9.54}\text{Si}_{1.74}\text{P}_{1.44}\text{S}_{11.7}\text{Cl}_{0.3}$ が三次元骨格構造を有する物質であり、その骨格構造内にリチウムが鎖状に連続して存在していること、室温で三次元的な伝導経路を持っていることが、高いリチウム伝導性を実現していることを明らかにしました(図1)。新しく発見した固体電解質は、これまでのLGPS系固体電解質とは異なり、室温においても三次元のイオン伝導経路が存在し、革新的な電池性能の発現に寄与していると考えています。開発した全固体電池は急速充放電が可能なキャパシターより出力特性が優れていること、リチウムイオン電池は無論のこと、現在、次世代電池として開発が進んでいるナトリウムイオン電池やリチウム空気電池、マグネシウム電池、アルミニウム電池などと比較しても、はるかに優れた出力とエネルギー特性を有することを明らかにしました。

本研究は、東工大、トヨタ自動車、高エネルギー加速器研究機構の共同研究による成果です。詳細については、*Nature Energy*, 1, 201630, (2016)をご参照ください。

# お知らせ

## ◆研究会

### ●金属組織研究会

日時：平成28年11月11日(金) 10:30-17:00  
会場：エッサム神田ホール3F会議室  
中性子産業利用推進協議会と茨城県が主催し、CROSS東海とJ-PARC/MLF利用者懇談会が協賛して、「量子ビームによるイメージング技術の最前線」をテーマに開催します。  
茨城県の富田俊郎技監によるJ-PARC/MLFにおける産業利用の現状の説明、並びに、CROSS東海の林田洋寿氏によるBL22

「RADEN」の現状紹介のあと、J-PARC/MLFやSPRING-8、X線CT装置、赤外線サーモグラフィなどの各種イメージング技術の最前線について、戸田裕之九大教授や奥田金晴東北大教授、佐藤博隆北大准教授、富岡智北大助教、豊田中央研究所の瀬戸山大吾氏、JFEスチールの川崎由康氏に講演していただきます。  
鉄鋼の新材料や信頼性評価技術の開発にとって非常に有益な議論の場になると考えます。

### ●ソフトマター中性子散乱研究会

日時：平成28年11月17日(木) 10:00-17:00  
会場：エッサム神田ホール401会議室  
中性子産業利用推進協議会と茨城県、CROSS東海が主催し、J-PARC/MLF利用者懇談会が協賛して「散乱法と観察法におけるコントラスト変調技術の最前線」をテーマに開催します。  
初めにJ-PARC/MLFでの中性子散乱を使ったソフトマターに関する成果の概要について報告した後、散乱法と直接観察法におけるコント

ラスト変調技術の最先端の話題をご紹介します。散乱法については茨城大学の小泉智教授と能田洋平講師、直接観察法については東京工業大学の中島健教授や、産業技術総合研究所の小川真一氏、日本原子力研究開発機構の青木裕之氏から話題提供をいただき、多成分系試料の観察に有効なコントラスト変調の最先端手法を概観します。  
高分子材料を始め、ソフトマターの材料開発に役立つ最新の分析技術を議論する場になると考えます。

### ●電池材料研究会

日時：平成29年1月25日(水) 10:00-17:00  
会場：研究社英語センター大会議室  
中性子産業利用推進協議会と茨城県が主催し、CROSS東海とJ-PARC/MLF利用者懇談会が協賛して「二次電池構造解析研究における最新成果と新たな展開」テーマに開催します。  
初めにJ-PARC/MLFにおける産業利用の現状と、BL20「iMATERIA」における電池材料の解析技術について紹介したあと、菅野了次東工大教授に基調講演として「蓄電池材料研究の現状と新

たな展開」と題して講演していただきます。さらに、特別講演としてRISING 2 PROJECTのリーダーである松原英一郎京大教授に「RISING2プロジェクトの挑戦」と題して講演していただきます。その他、量子ビームによるRISINGプロジェクトの成果、電池材料の界面・表面解析、並びに、電池材料における拡散現象解析の新たなアプローチの3つのセッションで、合計7件の講演があります。  
技術開発の進む二次電池材料研究に役立つ情報提供の場となるものと考えます。

## ◆講習会

### ●Z-Code講習会

日時：平成28年10月11日(火) 9:30-17:00  
会場：LMJ東京研修センター  
受講料：無料(ただし、資料代として2,000円いただきます。なお、中性子産業利用推進協議会会員企業の方は無料です)  
J-PARC/MLFディビジョンとKEK物質構造科学研究所、茨城県、茨城大学フロンティア応用原子科学研究センター、中性子産業利用推進協議会、CROSS東海が共催して、粉末構造解析ソフトウェア

Z-Codeの中級者向け講習会を開催します。  
J-PARC/MLFの粉末構造解析が可能な装置を利用して、回折データの解析経験がある方が対象です。その経験の元に、実際に測定された各種結晶構造の回折データを用いて少し高度な解析を実習します。  
構造パラメータを理解しながら、少し高度な構造解析をほとんど指導を受けずに実行できるようになることを目指します。結晶構造解析に関心をお持ちの皆さまの参加をお願い致します。

### ●中性子実験技術基礎講習会(レベル1講習会)

日時：平成28年12月14日(水) 9:55-16:50  
会場：エッサム神田ホール601会議室  
受講料：10,000円(協議会会員企業の方と日本中性子科学会会員の皆さま、ならびに学生は無料です)  
中性子産業利用推進協議会と日本中性子科学会、茨城県、CROSS東海が共催して、中性子実験技術の初心者の方を対象に中

性子実験技術の基礎的事項を紹介し、パルス中性子実験施設であるJ-PARC/MLFへの課題申請に役立てていただくことを目的として、「中性子実験技術基礎講習会(レベル1講習会)」を開催します。  
中性子の基礎、結晶構造解析、残留応力測定、小角散乱、反射率、準弾性散乱、ラジオグラフィ、ならびに、中性子の産業利用の8件の講義を行います。中性子実験技術の基礎を学びたい方の参加をお願い致します。

## ◆茨城県研究会

### ●小角散乱分科会

日時：平成28年11月1日(月) 13:00-16:50  
会場：エッサム神田ホール401会議室  
茨城県中性子利用促進研究会が主催し、中性子産業利用推進協議会が共催し、CROSS東海とJ-PARC/MLF利用者懇談会が協賛して、「iMATERIAにおける小角散乱機能の進展」をテーマに開催します。  
初めにiMATERIAにおける産業利用の現状とiMATERIAの小角散乱機能の現状について紹介したあと、<チュートリアル>セッション

では、豊田中央研究所の原田雅史氏と能田洋平茨城大学講師に小角散乱解析とコントラスト変調小角散乱について講演していただきます。<最近の実験例>セッションでは茨城大学の稲田拓美氏と蟹江澄志東北大准教授、武野宏之群馬大准教授、日産化学の工藤佳宏氏に各種高分子材料の小角散乱研究成果について講演していただきます。  
iMATERIAの小角散乱機能を利用する各種材料開発の今後を議論する場にしたいと考えます。是非多数の皆様参加をお願い致します。

### ●磁石材料分科会

日時：平成28年11月14日(月) 10:30-16:50  
会場：エッサム神田ホール401会議室  
茨城県中性子利用促進研究会が主催し、中性子産業利用推進協議会と元素戦略プロジェクト磁性材料研究拠点が共催し、CROSS東海とJ-PARC/MLF利用者懇談会が協賛して、「新規磁石材料研究と量子ビームによる構造解析の進展」をテーマに開催します。  
<チュートリアル>セッションでは分科会代表の小野寛太KEK准教授に「量子ビームによる磁石材料研究の進展」と題して講演していた

たきます。<特別講演>セッションではトヨタ自動車の庄司哲也氏と杉本諭東北大准教授に磁石材料研究の現状と将来の進展について講演していただきます。そのあと、<量子ビームを用いた磁石研究>セッションでは4件の講演があります。  
HEVやEVなどに必要とされる高性能モーターのキー材料となる高性能磁石の開発指針を提供できる場にしたいと考えます。是非多数の皆様参加をお願い致します。

協議会HP(<http://www.j-neutron.com/>)には、J-PARC/MLFやJRR-3の運転情報などを提供するサイトや、研究成果を紹介するサイトなどが設けてあります。研究会や講習会などの詳細についてはHPに順次新規情報を掲載しています。是非HPにアクセスして活用してください。

## 中性子産業利用推進協議会 季報【16年・秋】Vol.32

発行日 2016年9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研究センター2F D201  
TEL:029-352-3934 FAX:029-352-3935 E-mail:info@j-neutron.com URL:<http://www.j-neutron.com/>