

令和 6 年 5 月 29 日現在

機関番号：17102

研究種目：若手研究

研究期間：2021～2023

課題番号：21K13899

研究課題名（和文）プラズマを用いたトリチウム化水素化合物ガスの分解によるトリチウム抽出法

研究課題名（英文）Tritium recovery by plasma decomposition of gaseous tritiated compounds

研究代表者

大宅 諒 (OYA, Makoto)

九州大学・総合理工学研究院・助教

研究者番号：10804750

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,600,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、プラズマを用いたトリチウム化水素化合物ガスの分解によるトリチウム抽出法について、その有効性を明らかにすることを目的とする。メタンの分解により反応容器壁に堆積した炭素が、水蒸気の分解率を向上させることを示した。これは副生成物の酸素と炭素の結合により、分解の逆反応が抑制されたためと考えられる。また、メタンと水蒸気を同時に分解することによって、ともに更に高い分解率を長時間維持できる相乗効果が明らかとなった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

触媒化学反応を用いた従来法では、反応容器内での副生成物（特に炭素）の堆積が問題であり、また、ガス種の分離工程が必要であった。本研究により、プラズマ分解法で反応容器内の堆積炭素を除去しながら、水蒸気を高効率に分解できることを示した。また、プラズマ分解法はガスの化学的性質に依らないため、ガス種の分離なしに一括して分解処理することができ、さらに、メタンと水蒸気の同時分解は共に高い分解率を保つことも示した。これらのことから、プラズマ分解法は、燃料循環システムの要素機器の負荷を低減できる。

研究成果の概要（英文）：The purpose of this study is to clarify the validity of tritium recovery by plasma decomposition of gaseous tritiated compounds. Although carbon was deposited on the reactor wall as a by-product of methane decomposition, the carbon deposition elevated the efficiency of water vapor decomposition. This was because the inverse reaction of the decomposition was suppressed by chemical bonding of carbon and oxygen. Furthermore, in simultaneous decomposition of methane and water vapor, the efficiencies of their decomposition were increased.

研究分野：核融合学

キーワード：水素化合物ガス プラズマ分解 燃料循環システム

1. 研究開始当初の背景

核融合燃料の水素同位体(特にトリチウム)を効率的に利用するため、燃料循環システムの仕様が検討されている。真空容器から排気されるガスには、未反応の水素同位体ガス以外に、トリチウム化水素化合物ガス(炭化水素や水蒸気等)が含まれるため、それらを分解して、トリチウムを抽出する必要がある。

ITERでは触媒化学反応を用いた分解方法が採用されている。しかし、水素化合物ガス毎に化学的性質は異なるため、処理前にガス種による分離が必要となる。また、反応容器内に反応副生成物(炭素等)が堆積し、それが水素を吸蔵する。そのため、高効率で長時間の処理を続けるのは難しいのが現状である。

研究代表者が所属する研究グループでは、プラズマを用いた新しい分解法を提案した。そこでは、低電力(数W~数十W)で低温(1~10eV)のヘリウムプラズマに、炭化水素ガスを導入した。それにより、炭化水素ガスの分解を~99%の高効率で1時間以上維持し、水素の抽出も実証した。[~]

2. 研究の目的

本研究では、プラズマを用いたトリチウム化水素化合物ガスの分解によるトリチウム抽出法において、従来法の問題を克服し、その有効性を明らかにすることを目的とする。そのために、下記2つの観点で、プラズマと材料の両面からの理解にもとづき、本方法の有効性を検証する。

- ・プラズマ中の原子分子過程を理解する

反応容器内で生起する、プラズマ粒子との衝突解離の過程を明らかにする。従来法と比べ、プラズマ分解法は、ガスの化学的性質に依らないため、ガス種の分離なしに一括して分解処理することができる。それにより、燃料循環システムの要素機器の負荷を低減できる可能性を示す。

- ・反応容器壁での表面過程を理解する

従来法で問題となっていた副生成物(炭素等)の堆積について、プラズマ分解法で低減する方法を探索する。具体的には、水蒸気の分解で生じた酸素等による化学損耗を促進して、堆積した炭素を除去できれば、高効率の長時間維持の可能性を示すことができる。

3. 研究の方法

(1) 実験装置

九州大学の高周波プラズマ発生装置(図1)を用いて、水素化合物ガスであるメタンと水蒸気のプラズマ分解実験を行った。高周波プラズマは、ステンレス製の内径35mmの円筒状真空容器内に発生させ、高周波の投入電力を30~150Wに変化させた。プラズマパラメータは、電子温度11~14eV、電子密度 $4\sim 5 \times 10^{16} \text{m}^{-3}$ である。本研究の実施に当たり、実験装置に下記3点の工夫を加えた。

- ・流量調整可能な水蒸気生成システムの構築

水蒸気の発生には、酸化銅による酸化還元反応を利用した。水素5% + アルゴン95%のガスを350に加熱した酸化銅に流通させて、水蒸気を生成した($\text{H}_2 + \text{CuO} \rightarrow \text{H}_2\text{O} + \text{Cu}$)。

- ・ガス組成分析機器の導入

分解後の粒子種分布と分解率を測定するために、プラズマ後方の真空容器端に、四重極質量分析器(Quadrupole Mass Spectrometer: QMS)を設置した。

- ・真空容器内への金属試料の設置

真空容器の壁材料表面の影響を調べるため、容器内に金属試料を設置した。プラズマ分解実験後に、金属試料を取り出し、走査型電子顕微鏡や元素分析などの表面分析を実施した。

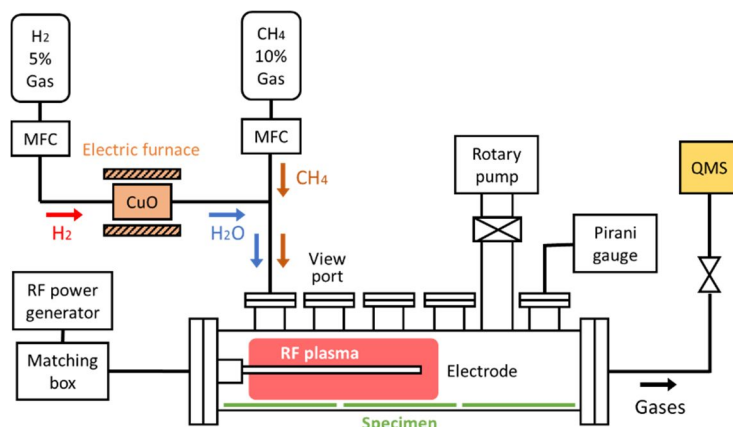


図1 実験装置概略図

(2) 実験および解析内容

水素化合物ガスのプラズマ分解法について、プラズマ中の原子分子過程と材料の表面過程を調べるため、主として下記3つの実験を行った。

(1) 容器壁の炭素堆積が水蒸気のプラズマ分解に与える影響

メタンのプラズマ分解により、メタンは分解して水素が生成されるが、副生成物の炭素は容器壁などに堆積する。そこで、容器壁に炭素を堆積させた状態で、水蒸気のプラズマ分解実験を実施した。水蒸気の分解率をもとに、水分子と電子の衝突断面積のデータベースを用いた解析を行うとともに、容器内に設置した金属試料の詳細な表面分析を行った。さらに、QMSの校正により関与するガスの分圧を厳密に評価し、容器内の物質収支を検討した。

(2) 容器壁の表面材料が水蒸気のプラズマ分解に与える影響

酸素吸着金属である銅に着目し、水蒸気のプラズマ分解に与える影響を調べる実験を実施した。薄い銅板(厚さ0.1mm)を丸めて円筒形状にして、容器壁を覆うように設置し、水蒸気の分解率を調べた。また、プラズマ分解実験後の銅板について、表面分析を実施した。

(3) 核融合実験装置からの真空排気ガスを想定した実証実験

核融合実験装置からの主たる真空排気ガスとなる、メタンと水蒸気について、同時に容器内に流入させ、プラズマ分解の実験を実施した。

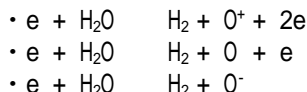
4. 研究成果

(1) 容器壁の炭素堆積が水蒸気のプラズマ分解に与える影響

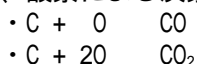
まず、水蒸気のみをプラズマ容器に流入させ、プラズマを点火して分解実験を行った。分解後の粒子種分布と分解率を測定した結果、水分子の分解とそれによって生成された水素と酸素が確認され(図1-a)、流入させた水蒸気のうち30%が分解したことが分かった(図2)。

次に、炭素堆積が水蒸気の分解率に与える影響を調べる実験を実施した。予めメタンのプラズマ分解実験を実施し、容器壁に炭素を堆積させた。その後、水蒸気のプラズマ分解を行ったところ、分解率は最大で70%にまで上昇した(図2)。分解後の粒子種分布を調べたところ、酸素が消失し、一酸化炭素と二酸化炭素が生成されていることが確認された(図1-b)。

プラズマ中の原子分子過程を調査するため、衝突断面積を用いた解析を行った。プラズマ中での反応は、下記のような解離性電子衝突が支配的であると考えられる。電子との衝突により水分子は分解して水素が発生するとともに、副生成物として酸素が発生する。



一方、材料の表面過程を調べるため、容器内に設置したステンレス試料の表面分析を行った。その結果、水蒸気分解実験後に炭素が除去されていることが確認された。また、分解後のガス組成には、一酸化炭素と二酸化炭素が含まれている。これらのことは、容器壁において、下記のような、酸素による炭素の化学損耗が起きていることを示している。



以上のことから、プラズマと堆積炭素の相互作用により、プラズマ分解の副生成物である酸素が減少し、酸素原子と水素分子の再結合反応(分解の逆反応)が抑制された結果、水蒸気の分解が促進されたと考えられる。また、容器内の物質収支の検討により、容器壁に水素が吸蔵されていることも示唆されている。よって、分解率の向上には、容器壁でのプラズマ-壁相互作用が重要だと考えられる。

本実験により、従来法で問題となっていた炭素堆積を除去できるばかりでなく、水蒸気の分解率の向上に利用できることを示した。これは、本研究で提案するプラズマ分解法の優位性を示している。

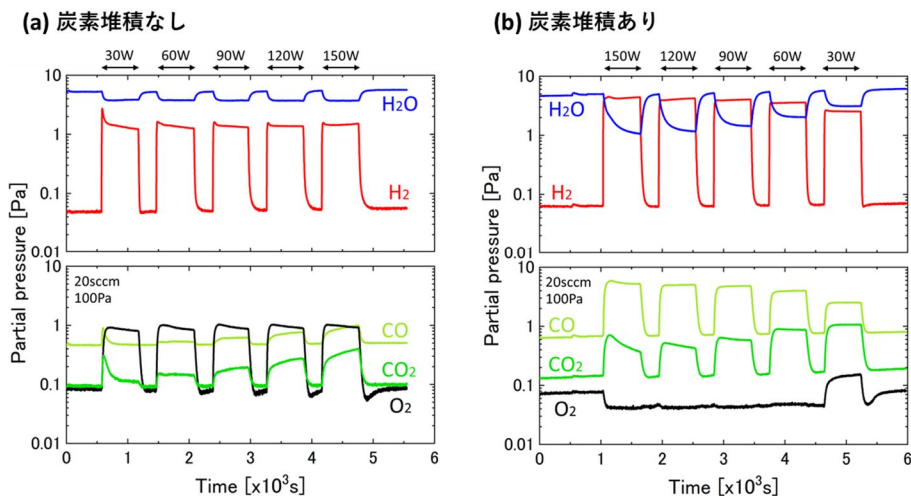


図2 水蒸気のプラズマ分解実験における各粒子種の分圧の時間変化

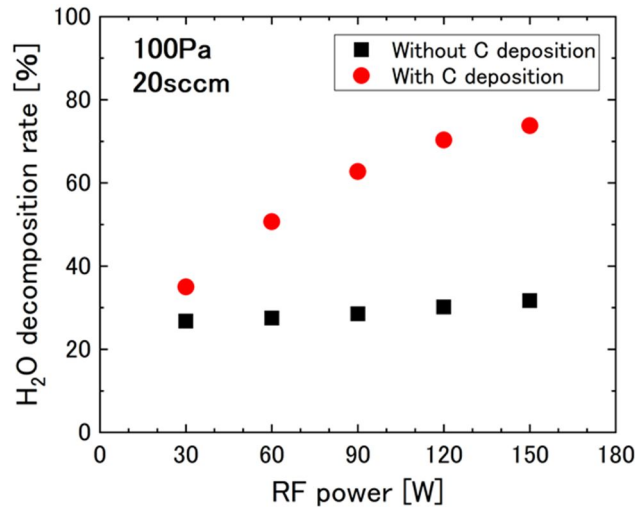


図3 炭素堆積の有無と水蒸気の分解率

(2) 容器壁の表面材料が水蒸気のプラズマ分解に与える影響

上記(1)の実験において、容器壁の堆積炭素とプラズマの相互作用により、容器内の酸素が減少して、水蒸気の分解を促進できることが明らかとなった。そこで、容器内の酸素を減少させる目的で、炭素堆積の代わりに、酸素吸着金属として銅板を容器内に設置し、水蒸気の分解実験を実施した。その結果、水蒸気の分解率は、銅板の無い場合に比べ減少した。また、分解実験後の銅板の表面分析を行ったところ、酸素割合の増加は僅かであることが確認された。

以上のことから、副生成物の酸素によって銅板表面に酸化銅は形成されているものの、同時に水素により酸化銅が還元されていると考えられる。それにより、酸素原子と水素分子の再結合反応（分解の逆反応）が促進されたため、分解率が減少したと考えられる。

酸化銅のように酸化物が固体の場合、分解実験中に容器内に留まり続けるため、再結合反応が促進される原因になると考えられる。その一方で、二酸化炭素のように酸化物が気体状の場合、容器内から素早く排気されるため、再結合反応を抑制していると考えられる。

本実験により、水蒸気分解における炭素堆積の優位性が確認された。

(3) 核融合実験装置からの真空排気ガスを想定した実証実験

核融合実験装置からの主たる真空排気ガスとなる、メタンと水蒸気を同時にプラズマ分解する実験を実施した。その結果は、メタンの高い分解率を示すとともに、水蒸気の分解率が更に向上することが確認された（図3）。

メタンと水蒸気の同時分解の際には、酸素と炭素の結合反応が、容器壁だけでなくプラズマ中でも生起するためと考えられる。このことは、炭化水素と水蒸気は分離せずにまとめて分解した方が、共に高い分解率が持続されることを示す。また、ガス種分離工程が必要な従来の分解に比べて、本研究で提案するプラズマ分解法の優位性も示している。

以上の研究成果から、プラズマを用いたトリチウム化水素化合物ガスの分解によるトリチウム抽出法において、従来法の問題を克服し、その有効性を明らかにすることができた。本研究では、水素を用いた実験を実施したが、トリチウムにおいても同等の結果が得られると考えられる（化学的性質と衝突断面積が類似しているため）。

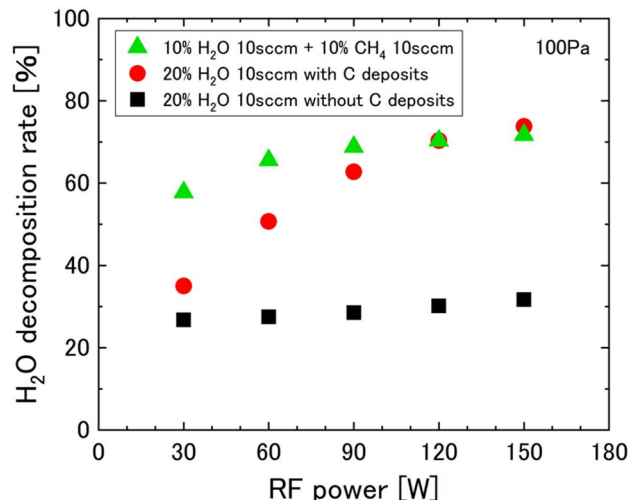


図4 メタンと同時分解時の水蒸気の分解率

<引用文献>

K. Katayama et al., Fusion Engineering and Design 85(2010)1381-1385.

M. Oya et al., Plasma and Fusion Research 15(2020)2405032.

M. Oya et al., Plasma and Fusion Research 17(2022)2405087.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 M. Oya, R. Ikeda, K. Katayama	4. 巻 17
2. 論文標題 Effective Decomposition of Water Vapor in Radio-Frequency Plasma with Carbon Deposition on Vessel Wall	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Plasma and Fusion Research	6. 最初と最後の頁 2405087
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1585/pfr.17.2405087	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計9件（うち招待講演 0件/うち国際学会 3件）

1. 発表者名 大宅諒, 星野一生, 朝倉伸幸, 坂本直照, 大野哲靖, 花田和明
2. 発表標題 原型炉ダイバータにおけるタングステンモノブロックの損耗と再堆積の評価
3. 学会等名 第40回プラズマ・核融合学会年会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 増田健太郎, 大宅諒, 片山一成
2. 発表標題 高温条件下におけるタングステン堆積層形成過程の水素透過フラックス測定
3. 学会等名 第40回プラズマ・核融合学会年会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 M. Oya, K. Katayama, N. Hayashi
2. 発表標題 Hydrogen Extraction Characteristics from Organic Matter by Radio-Frequency Plasma
3. 学会等名 The 13th International Symposium on Applied Plasma Science (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 M. Oya, K. Hoshino, N. Asakura, Y. Sakamoto, N. Ohno, K. Hanada
2. 発表標題 Predictive calculation of fuel inventory in plasma-facing walls of JA DEMO reactor
3. 学会等名 31st International Toki Conference on Plasma and Fusion Research (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 大宅諒, 孫昊男, 片山一成
2. 発表標題 プラズマを用いた水蒸気の分解による水素抽出法と炭素堆積の影響
3. 学会等名 第14回核融合エネルギー連合講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 大宅諒, 片山一成, 林信哉
2. 発表標題 高周波プラズマによる有機物からの水素抽出特性
3. 学会等名 第83回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 大宅諒, 星野一生, 朝倉伸幸, 坂本宜照, 大野哲靖, 花田和明
2. 発表標題 原型炉プラズマ対向壁の燃料インベントリー評価とヘリウム照射効果
3. 学会等名 第39回プラズマ・核融合学会年会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 M. Oya, R. Ikeda and K. Katayama
2. 発表標題 Effective Decomposition of Water Vapor in RF plasma with Carbon Deposition
3. 学会等名 30th International Toki Conference on Plasma and Fusion Research (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 大宅諒, 星野一生, 朝倉伸幸, 坂本直照, 花田和明
2. 発表標題 原型炉におけるプラズマ対向壁の燃料インベントリー評価と再結合係数の影響
3. 学会等名 第38回プラズマ・核融合学会年会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------