

令和 3 年 5 月 11 日現在

機関番号：10101

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18K03580

研究課題名(和文) レーザープロセスによる核融合炉用大容量高効率水素同位体吸蔵体の開発

研究課題名(英文) Development of hydrogen isotope occlusion body with large capacity and high efficiency for nuclear fusion reactors by LASER processing

研究代表者

山内 有二 (Yamauchi, Yuji)

北海道大学・工学研究院・准教授

研究者番号：80312388

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では将来の核融合実用炉での使用を指向した新水素同位体吸蔵体の開発を目的に、液中レーザー溶融法を用いたサブミクロンPd球状粒子を作成し、その水素吸収脱離特性を評価した。作成した当該球状粒子に新たな水素捕捉サイトが形成したこと、室温における水素吸収・脱離実験では水溶媒中で作成した当該球状粒子の大気圧での水素吸収量がエタノール溶媒中で作成したものより多くなったこと、30サイクルの室温の水素吸収・脱離でも水素吸収・脱離特性が変化しないこと、水素化物生成のエンタルピーは原料に比べ当該球状Pd粒子の方が小さいこと、液中レーザー溶融法によりPdの水素吸蔵能を向上できる可能性が示唆されたことがわかった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

核融合反応は、燃料がほぼ無尽蔵である点、核反応による暴走事故がない点等から、究極の基幹エネルギー源として期待されている。一方、発電炉として成立するための課題も多い。反応条件が比較的緩い重水素(D)-三重水素(T)反応を用いた発電炉実現に向け現在研究開発が進められているが、課題の一つとして燃料の一つであるTの貯蔵システム開発がある。放射性物質である大量のTを安全・安定に貯蔵し、必要に応じて抽出する必要があるが、現在そのような貯蔵体を用いたシステムはない。本研究で得た、および今後の展開で得られる知見は、核融合炉用大容量高効率水素同位体吸蔵体の開発のため非常に有用である。

研究成果の概要(英文)：In the present study, we aimed development of new hydrogen isotope occlusion body. Sub-micrometer palladium spherical particles were prepared by laser melting in liquid method, then their hydrogen absorption and desorption properties were evaluated. We found new hydrogen trapping site were formed in the spherical particles in addition to the sites in pristine palladium raw materials. Hydrogen adsorption and desorption experiments at room temperature under atmospheric pressure indicated large adsorption capacity for the particles prepared in water, compared with that in ethanol. 30 iteration experiment of the hydrogen adsorption/desorption at room temperature showed no change in hydrogen absorption and desorption properties. Enthalpy of hydride formation for the prepared spherical particles became smaller than that for the raw materials. These results suggest the preparation of palladium particles by the laser melting method might make its hydrogen occlusion properties better.

研究分野：プラズマ工学、核融合炉工学

キーワード：核融合炉開発 トリチウム吸蔵体 レーザープロセス

1. 研究開始当初の背景

将来の基幹エネルギーとして期待されている核融合炉開発では、重水素(D)と三重水素(T)の核融合反応を利用した実用炉(商用炉、発電炉)の開発が目標となっている。当該反応で燃料の一つとなるDは海水などから抽出する一方、もう一つのTは核融合炉内に設置したリチウムと核融合反応で生成した中性子とを核反応させ炉内で生産する。Tが放射性同位元素であること及びスムーズな燃料供給のために、大量のTを適切な方法により貯蔵し、必要に応じて抽出して利用する必要がある。その為、常温で低い平衡圧力でTを保管できること、それほど圧力や温度条件を変えずにTを抽出することが可能であること、さらに取扱い等の安全性や安定した特性であることがT吸蔵体に求められている性質である。

2. 研究の目的

サブミクロン球状粒子製法などレーザープロセスを用いた微粒子製法により、安全性に優れ、水素同位体吸蔵・抽出能やそれらの安定性に優れた大容量の水素同位体吸蔵体を開発することを目的とする。まず初めにレーザープロセスを用いたサブミクロン球状粒子製法での水素同位体吸蔵体作成を試み、評価・検討を行い、作成条件を最適化する。本研究で得られた成果は、核融合炉開発のみならず、原子力発電安全性の向上や、水素医療応用、燃料電池等将来の大規模水素社会にも有用な、安全性に優れた大容量水素吸蔵体製作技術開発への展開も可能である。

3. 研究の方法

サブミクロン球状粒子をはじめとした、レーザープロセスによる水素同位体吸蔵体の製作条件について検討し、原料など種々の条件下で吸蔵体試料を作成する。作成した試料の水素同位体吸蔵・抽出特性を調べ、表面状態等との関係についても把握する。また、吸蔵・抽出試験を繰り返し行い、特性の安定性についても調べる。得られた結果を作成条件に反映させ、当該吸蔵体作成条件の最適化を行う。研究の流れをフローチャートにしたものを図1に示す。

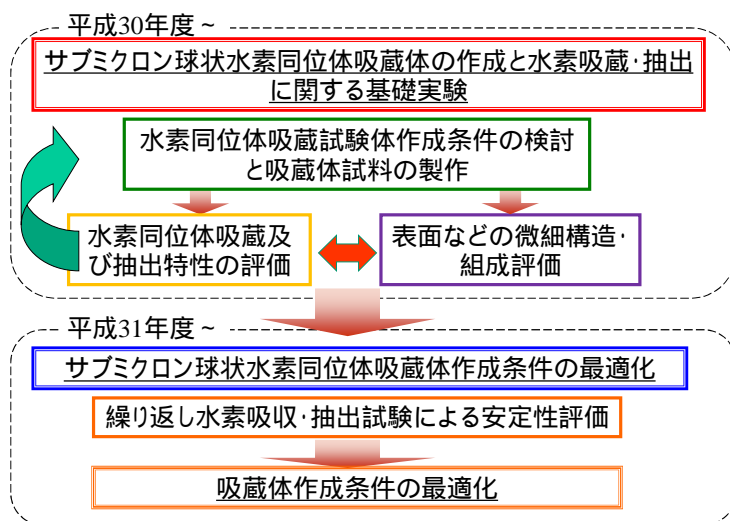


図1 研究計画と研究の流れ。

4. 研究成果

平成30年度は、液中レーザー溶融法を用いたサブミクロン球状パラジウム(Pd)粒子の作成や当該作成条件の最適化を試み、最適な条件で作成したサブミクロン球状Pd粒子の低圧下における水素吸収・脱離特性を評価した。濃度200 wppmのPd(平均サイズ100 nm)溶液にNd:YAGレーザー(波長:355 nm、パルス幅:7 ns)を用いて、溶媒、レーザーのフルエンス、照射時間を変更してパルスレーザーを照射した。走査型電子顕微鏡により得た試料表面画像をもとに最適条件を得た。最適条件でレーザーを照射して作成したサブミクロン球状Pd粒子と原料Pd粒子を試料とし、水素吸蔵・抽出特性の理解のため水素吸収・脱離特性を調べた。得られたレーザー照射の最適条件は溶媒:エタノール、フルエンス:166 mJ pulse⁻¹ cm⁻²、照射時間:25分であり、直径1~10 micrometerの球状粒子を作成することができた。図2に作成したサブミクロン球状Pd粒子と原料Pd粒子の水素脱離スペクトルを示す。原料Pdでは590Kに単一のピークを有するスペクトルが得られたのに対し、サブミクロン球状Pdでは、450K、540K、620Kにピークが現れた。レーザー照射によるサブミクロン球状化により新たな水素捕捉サイトが形成したと考えられる。水素圧力2.0e-4 Pa、吸収温度373Kの水素吸収実験を行った結果、原料Pd粒子に比べ、吸収実験後のサブミクロン球状Pd粒子の水素量が多くなった。当該、サブミクロン球状化により、Pdの水素脱離・吸収特性が大きく変化することが分かった。

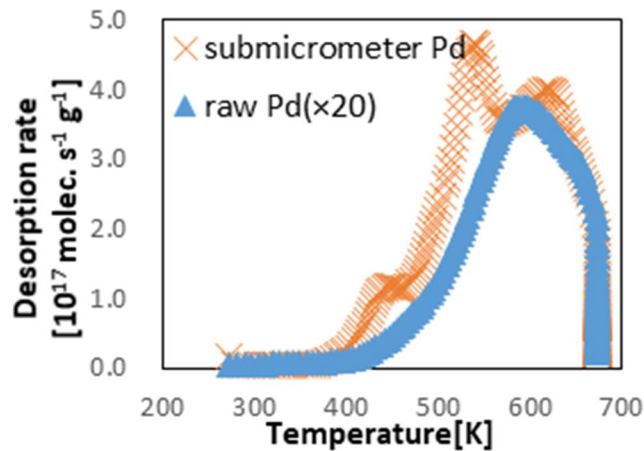


図2 サブミクロン球状 Pd 粒子と原料 Pd 粒子の水素脱離スペクトル。

平成 31 年度は、液中レーザー溶融法を用いて、(0.1-1) micrometer 程度の球状 Pd 粒子を条件を変えながら作成するとともに、その水素吸収・脱離特性を 1 気圧以下の範囲で評価した。さらに核融合炉実機での利用を想定し、水素吸収・脱離を繰り返すことによりその特性が変化するかについて評価した。原料 Pd 粒子を含有したコロイド溶液に Nd: YAG レーザー (波長: 355 nm、パルス幅: 7 ns) を用いてレーザーを照射し、球状 Pd 粒子を作成した。Wako 製原料 Pd 粒子では溶媒に水、エタノール、Aldrich 製原料 Pd 粒子では溶媒に水を用いた。これらの原料 Pd 粒子と作成した球状 Pd 粒子の水素の吸収・脱離特性を評価するため、水素の微小吸収・脱離量を測定できる装置 (PCT (圧力 - 組成 - 温度) 特性測定装置) を設計・製作し、試料の水素吸収・脱離特性を調べた。また、電子顕微鏡などを用いて試料表面・バルク物性を調べ、水素吸収・脱離特性との関連性について検討を行った。液中レーザー溶融法により、平均粒径 150 nm、500 nm、または、1 micrometer の球状粒子を得た。図 3 に作成したサブミクロン球状 Pd 粒子と原料 Pd 粒子の PCT 曲線を示す。試料温度は室温である。エタノール溶媒中で作成した平均粒径 1 micrometer の球状粒子では、大気圧での吸収量が原料の半分となった。X 線回折などから球状粒子中に炭素が固溶して格子が膨張、そのために水素の吸収を阻害したことが考えられた。一方、水溶媒中で作成した球状粒子では、大気圧での水素吸収量が増加した。結晶性に優れた構造の起因する水素拡散の促進のためと考えられた。また、大気圧までの水素吸収・脱離を室温で 30 回まで繰り返したが、水素吸収・脱離特性に変化は見られず、微粉化も起こらなかった。

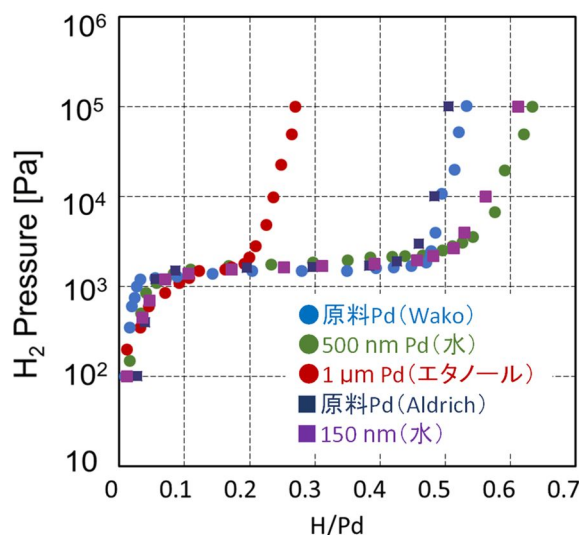


図3 サブミクロン球状 Pd 粒子と原料 Pd 粒子の室温における PCT 曲線。

最終年度である令和元年度は、液中レーザー溶融法を用いたサブミクロン球状 Pd 粒子の水素吸収・脱離の温度依存性を調べ、水素化物生成のエントルピーなどを評価した。原料と球状粒子の 125 における圧力-組成等温線 (吸収時) を測定した結果、球状粒子のプラトー圧の大幅な減少が見られた。これはレーザー照射により結晶構造が変化したためであると考えられる。しかしプラトー端の H/Pd の比較から、球状粒子の吸収量が減少したことが確認できた。図 4 に作成したサブミクロン球状 Pd 粒子と原料 Pd 粒子の van 't Hoff プロットを示す。得られた van 't Hoff プロットの傾きから原料と球状粒子それぞれの水素化物生成のエントルピーとして 29.7,

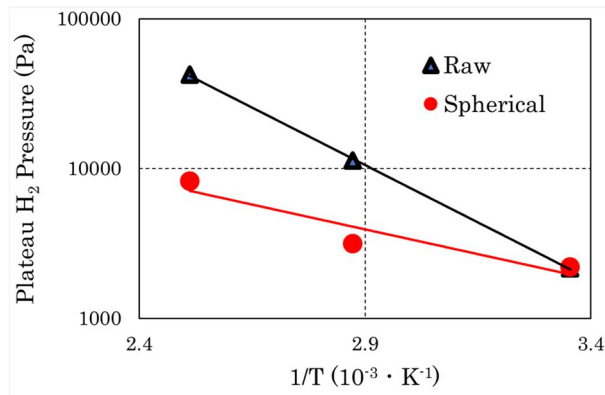


図4 サブミクロン球状Pd粒子と原料Pd粒子のvan ' t Hoff プロット.

12.7 kJ mol⁻¹を得た。このことから、液中レーザー溶融法によってPdの水素吸蔵能を向上できる可能性が示唆された。

全研究期間で得られた知見は、作成した当該球状Pd粒子に新たな水素捕捉サイトが形成したこと、室温における1気圧程度までの水素吸収・脱離実験では水溶媒中で作成した当該球状Pd粒子の大気圧での水素吸収量がエタノール溶媒中で作成したものより多くなったこと、30サイクルの室温の水素吸収・脱離でも水素吸収・脱離特性が変化しないこと、水素化物生成のエンタルピーは原料に比べ当該球状Pd粒子の方が小さくなり、液中レーザー溶融法によりPdの水素吸蔵能を向上できる可能性が示唆されたこと、である。

以上本研究により、液中レーザー溶融法にて作成したサブミクロン球状Pdは、市販のPd原料より優れた水素吸蔵能を持つこと、作成条件の最適化でさらなる吸蔵能向上が期待できることがわかった。核融合実用炉用水素同位体吸蔵体の開発に有益な知見が得られたと考えている。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 佐藤基岐、山内有二、越崎直人、富岡智、石川善恵、松本裕
2. 発表標題 パラジウムを用いた核融合炉用水素同位体吸蔵体開発及びその劣化特性に関する研究
3. 学会等名 第36回 プラズマ・核融合学会 年会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 佐藤基岐、山内有二、越崎直人、富岡智、石川善恵、松本裕
2. 発表標題 パラジウムを用いた核融合炉用水素同位体吸蔵体開発に関する研究
3. 学会等名 第6回日本金属学会水素化物に関わる次世代学術・応用展開研究会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 佐藤基岐、山内有二、越崎直人、富岡智、石川善恵、松本裕
2. 発表標題 パラジウムを用いた核融合炉用水素同位体吸蔵体開発に関する研究
3. 学会等名 日本金属学会秋期(第165回)講演大会
4. 発表年 2019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
研究分担者	越崎 直人 (Koshizaki Naoto) (40344197)	北海道大学・工学研究院・特任教授 (10101)	

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
---------	---------