

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 10 日現在

機関番号：63902

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2016

課題番号：25420891

研究課題名(和文) 大気圧高周波放電によるプラズマ化学反応を用いたトリチウムの除染

研究課題名(英文) Decontamination of tritium using plasma chemical reaction by atmospheric pressure RF discharge

研究代表者

西村 清彦 (Nishimura, Kiyohiko)

核融合科学研究所・ヘリカル研究部・教授

研究者番号：00180638

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,900,000円

研究成果の概要(和文)：既存の高周波電源、真空排気システム、ガス導入システムを利用して、大気圧高周波放電用の装置を設計、多様な放電が可能な装置として組上げた。また、通常は相当の時間を要する整合調整を、ネットワークアナライザーを利用することによる短時間での整合器調整手法を確立した。トリチウム除染機構を解明するために、分光計測のシステムを準備した。既存の大気圧放電装置の大気圧プラズマを利用して、新規準備した分光計測システムの性能試験を実施し、大気圧プラズマ中の分子の弁別、経時変化の発光量による計測が可能であることを示した。

研究成果の概要(英文)： Using the existing high frequency power supply, vacuum exhaust system, gas introduction system, we designed a device for atmospheric pressure RF discharge and assembled it as a device capable of various discharges. In addition, we have established a matching tool adjustment method in a short time by using a network analyzer, for alignment adjustment which usually takes a considerable amount of time. In order to elucidate tritium decontamination mechanism, a system of spectroscopic measurement was prepared. Performance test of the newly prepared spectroscopic measurement system using atmospheric pressure plasma of the existing atmospheric pressure discharge device was carried out and it was shown that it is possible to discriminate molecules in the atmospheric pressure plasma and to measure the time evolution with the emission amount.

研究分野：核融合学

キーワード：高周波放電 大気圧放電 整合回路 ネットワークアナライザー 除染 分光計測

1. 研究開始当初の背景

トリチウム廃棄物は、核分裂炉の運転、RIトレーサの利用の他、核融合炉開発研究の進展に伴って発生する。材料内部/表面のトリチウム除染処理方法として、払拭法、化学除染法、ベーキング法、低圧高周波プラズマ法、レーザー脱離法、紫外線照射法などが検討されており、その一部は実用されている。一方、核融合炉では、燃料としてトリチウムを用いるため、大量のトリチウム汚染物が発生するので、材料の再利用を進めるうえで、大量処理に適した除染方法の開発が望まれる。

研究代表者は、これまで核融合装置の高周波加熱²⁾の他、グロー放電、ベーキング法を用いた水素脱離研究³⁾を行ってきたが、核融合炉におけるトリチウム汚染物処理を検討している過程で、大気圧下で高密度活性種を利用できる、高周波大気圧放電の有用性に思い至った。大気圧放電は構造が簡単で、物理的な除染だけでなく、プラズマ化学反応も利用することができるため高い除染効率が期待できる。そこで本研究では、効率の良いトリチウム除染法の確立を目的とし、材料とプラズマとの相互作用で起きる基礎反応過程を明らかにする。

2. 研究の目的

核融合炉において炉材料に吸着・浸透するトリチウムの除染は、機器の保守および材料の再利用の観点から重要な課題である。本研究は、大気圧下の高周波放電により生成された高密度活性原子によるプラズマ化学反応を利用することにより、大量処理に適した除染方法を確立することが目的である。計画している具体的項目は、

- (1) 排ガス組成から得られる除染効果と分光計測で計測される活性原子密度分布との関係から、反応機構について考察する、
- (2) 放電により発生する活性原子の発生機構を明らかにする、
- (3) 大気圧放電による除染方法の実用化に向けた研究課題を抽出する、
- (4) 大量処理に有利な大気圧下での除染方法を検討する、

の4つである。

3. 研究の方法

大気圧下でのトリチウム除染手法には、大きく分けて湿式処理と乾式処理があり、湿式処理の一方法である化学除染法は、被除染物を、酸性溶液に浸し、材料表面と内部のトリチウムを溶液中に溶解させるため、効率よく除染できるが、この方法では、トリチウムを含む二次廃棄物が発生するという問題が残る。

そこで、核融合炉におけるトリチウムの除染には、煩雑な操作・手順を必要とせず、被除染物の形状に依存しない、二次廃棄物の発生が少ない除染方法が望まれる。

提案する方法の概念図を図1に示す。材料中のトリチウムは、大気圧放電のイオン衝突による物理作用と、化学反応により、材料の表面から除去される。材料表面のト

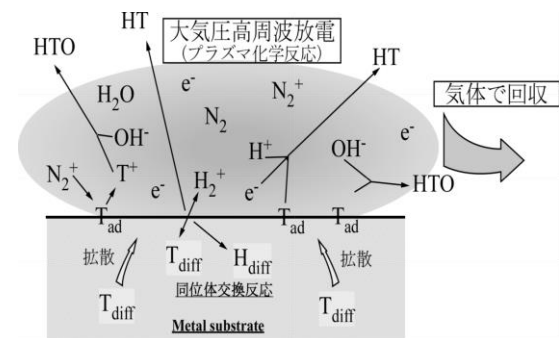


図1 提案する除染手法の概念図

リチウム濃度が下がることにより、材料中のトリチウムが表面に拡散してきて、除染が進行していく。除去されたトリチウムは、気体として回収され、燃料として再利用される。

本研究の独創的な特徴は、トリチウムの除染を、大気圧高周波放電による物理作用と、プラズマ化学反応を用いた化学作用を利用して行う乾式処理法である。

大気圧放電は、

- (1) 真空排気が不要、
- (2) 高密度活性種を生成するため、物理的スパッタリングによる除染とプラズマ化学反応による除染を同時に利用できる、

他に類を見ない特徴を持つ。また、提案する大気圧プラズマによる高温化学反応場の利用は、これまでに提案されていない領域での除染方法であり、大気圧プラズマの、トリチウム除染に対する物理的/化学的挙

動を解明する研究もこれまでにない。

本研究の手法として、

- (1) プラズマは、大気圧下で高周波放電により生成する。
- (2) 被除染材としてはステンレス鋼 (SUS316:15Wx15Dx0.5t) を対象とする。
- (3) 大気圧プラズマの診断には分光計測法を用い、発光スペクトルより電子温度/密度/中性ガス温度/活性種の同定を行う。
- (4) 大気圧プラズマと材料相互作用で発生するガス種の同定に、排気ガス中のガス分析を行う。
- (5) プラズマ分光計測と排気ガス組成分析により、プラズマ化学反応による材料除染の基礎過程の解明を行う。具体的には以下のように研究を進める

<大気圧グロー放電装置>

研究代表者が保有している周波数 13.56MHz (1.2kW) の高周波電源と整合器を利用して大気圧グロー放電装置を製作する(担当:西村)。装置は高周波電源、放電電極、プラズマ生成用容器、試料ガス用質量流量制御器で構成される。実験に用いる試料は、現在取り組んでいるベーキング法による水素脱離研究と比較するため、同じSUS316板試料を用いる。比較的小片試料のため、プラズマの均一照射が図れるとともに、実験装置を小型化できる。

大気圧プラズマは、平板電極を用いて生成する。大気圧放電では、真空機器を必要としないが、目的とするプラズマ化学反応による基礎過程を解明するために、周囲から不純物ガス(空気成分など)の混入がないように、放電容器を実験装置として製作する。除染としては、空気による大気圧放電が理想であるが、均一な放電が得にくい場合には、バックアップとして窒素、ヘリウム、アルゴン、水素などのガスを大気圧で利用できるように準備する。

<診断システム>

基本計測である水素同位体計測は田中が担当する。ガス分析に必要なガスクロ

マトグラフィ装置、差動排気付四重極型質量分析計、データ記録装置は研究所に既存のものを用いる。

プラズマ内の活性種を計測するため、高分解能分光計測機を購入し、反応基礎過程を分光計測により計測する。具体的には、発光スペクトルを用いた、振動温度や回転温度(近似的にガス温度に相当する)、電子温度の診断、反応粒子種の同定。また、分光計測による水素同位体の診断は、水素同位体バルマー線の発光スペクトルを分解($H\alpha$: 656.2849 nm、 $D\alpha$: 656.1032 nm)し、同位体比とその時間発展を測定し、水素同位体挙動の診断手法を確立する。

<被除染試料>

本研究では、除染の対象を水素(H)もしくは重水素(D)とし、被除染試料は、SUS316(15Wx15Dx0.5t)に、室温(25°C)で軽水素(99%)と重水素(1%)の混合ガスを、適当な圧力下(大気圧~1 kPa程度)で暴露させて作成する。試料への暴露は既設の暴露装置を用いて行う。

<実験方法>

軽(重)水素を暴露した被除染材は、大気圧グロー放電装置に設置し、プラズマ照射下での、活性種と水素同位体を、分光により計測する(図2参照)。動作ガスは、窒素ガスを主とし、発展タイプとして水素、酸素、水蒸気などを添加した混合ガスの利用も対象とする。

選定した分光機器の測定波長範囲は、260 nm ~ 780 nmで、窒素の遷移スペクトル(300 nm~400 nm)、OHラジカルの発光ライン(306 nm付近)、 $H\alpha$ 線(656 nm付近)の診断が可能である。発行強度比や、発光スペクトルの解析により、プラズマパラメータ、活性種の推定を行う。発光強度比のボルツマンプロットより回転温度(ガス温度)、 $H\alpha$ 線(486 nm)の広がりから電子密度を推定する。

プラズマ化学反応で生成されたガス組成は、質量分析計、ガスクロマトグラフ装置で解析する。プラズマ分光計測と、ガス組成分析により、プラズマ中の化学反応過程と、その反応生成物を同定し、除染効率との相関を明らかにする。

試料金属からの脱離量から、除染効率

を定量的に把握し、プラズマ化学反応による材料除染の基礎過程を明らかにする。

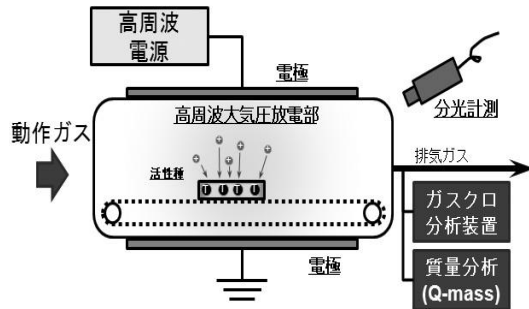


図2 実験方法の概念図

4. 研究成果

(1) 高周波回路の整合調整

通常の高周波装置では、装置の形状等が固定されているため、整合器の調整幅はそれほど大きくする必要はない。しかしながら、装置形状そのものの変更を伴うようなフレキシブルな実験装置では、幅広い調整代が必要となり、コイルを交換することによりインダクタンスを調整することが一般的に行われている。

図3に本研究における実験装置の概要図を示す。本研究のために用意した既存の整合器の調整幅はせいぜい 0.5MHz であるため、整合器内部の C_1 および C_2 では調整しきれず、外部インダクタンスとして L_{out} を挿入して、整合を取る必要があるが、 L_{out} の値(形状)を決定することは容易ではない。そこでネットワークアナライザーを用いて高周波回路の VSWR を測定する方法を試みた。図4に VSWR 測定波形の概略図を示す。この図では、発信機の周波数 13.56MHz に対して、VSWR の極小値が約 12.8MHz の位置にあり、整合器の調整範囲を超えている。そこで VSWR の極小値がほぼ 13.56MHz となるような L_{out} を製作、調整することにより整合器の調整範囲に収めることができた。この手法では直接 VSWR の周波数依存性が画面上で確認しながら、その場で L_{out} を調整 することができる。また、実験の進展により回路変更や電極形状変更等が必要となるが、この手法を用いることにより、整合器調整を 非常に短時間で行うことができ、実験の効率を上げることができる。

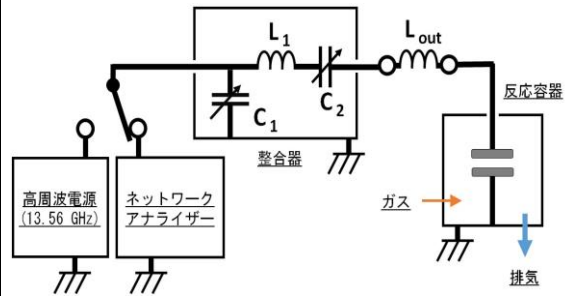


図3 整合調整システム概要図

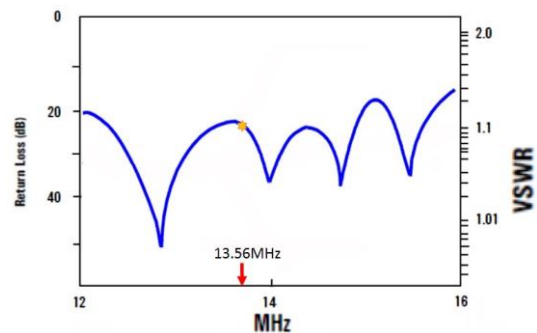


図4 VSWR 測定波形の概略図

(2) 分光計測

大気圧放電プラズマにおける反応生成物の同定に、本研究で用意した分光器による計測が有用であるかの検証は、他の大気圧放電装置のプラズマを用いて実施した。

図5に実験装置の概略構成図を示す。プラズマは Ar , O_2 , CH_4 の混合ガスを用いて、 2.45GHz のマイクロ波電源と整合器により大気圧で生成されている。

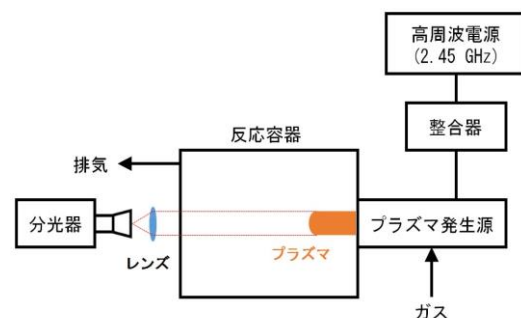


図5 分光計測概略図

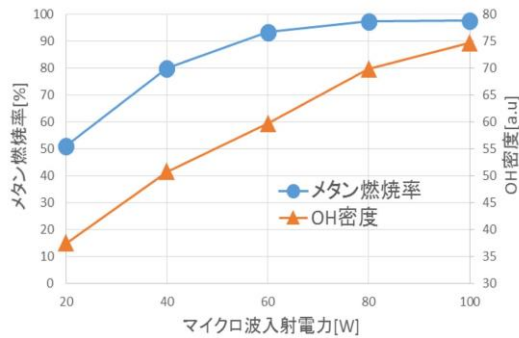


図6 メタン燃焼効率、OH密度の入射電力依存性

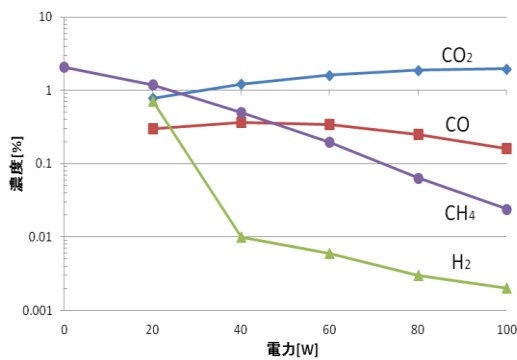


図7 反応生成物濃度の入射電力依存性

図6に反応容器内でのメタン燃焼実験における燃焼効率とOHラジカル密度の入射電力依存性を示す。図7に反応容器内での反応生成物濃度の入射電力依存性を示す。メタン燃焼における反応生成物(CO, CO₂, H₂)が、分光により計測できた。

本研究で用意した分光器により、大気圧放電プラズマにおける反応生成物が同定できることが検証された。

これらの結果は研究協力者により学会で報告された。

<引用文献>

- 1) 平田慎吾 他, FAPIG, 124, (1990), 40; 平林孝圀, RADIOISOTOPES, 49, (2000), 243.
- 2) K. Nishimura, et al., Fusion Eng. Des., Vol.26, no1-4 (1995), 179.
- 3) K. Nishimura, et al., J. Nucl. Mater., Vol.337-339 (2005), 431.

5. 主な発表論文

[学会発表] (計2件)

- ① 永井初、中島利郎、堀口勝三、江角直道、田中康規、澤田圭司、田中将裕、高山貞次、西村清彦、プラズマ・核融合学会第33回年会、(東北大学青葉山キャンパス 宮城県・仙台市)、2016.11.29-12.2、01aP10
- ② 永井初、中島利郎、堀口勝三、江角直道、田中康規、澤田圭司、田中将裕、高山貞次、西村清彦、プラズマ・核融合学会第32回年会(名古屋大学東山キャンパス・豊田講堂 愛知県・名古屋市)、2015.11.24-27、25aD04P

6. 研究組織

(1) 研究代表者

西村 清彦 (NISHIMURA, Kiyohiko)
核融合科学研究所・ヘリカル研究部・教授
研究者番号：00180638

(2) 研究分担者

田中 将裕 (TANAKA, Masahiro)
核融合科学研究所・ヘリカル研究部・准教授
研究者番号：00435520

(3) 研究協力者

永井 初 (NAGAI Hajime)