

アルゴンプラズマを用いたヨウ素・セシウムの捕集技術開発(I)*

砂川武義^{*1}, Glenn HARVEL^{*2}, 青木祐太郎^{*1}, 梅田昌幸^{*1}, 井野博貴^{*1}, Pinyapach TIAMDUANGTAWAN^{*3}

Development of Iodine and Cesium Collection Technique by Ar Plasma (I)

Takeyoshi SUNAGAWA^{*1}, Glenn HARVEL, Yutaro AOKI, Masayuki UMEDA, Hiroataka INO, and Pinyapach TIAMDUANGTAWAN

^{*1}Faculty of Engineering Department of Applied Nuclear Technology

From the event of a nuclear plant accident in which the nuclear fuel has been damaged, radioactive iodine gaseous species such as iodine-131 and cesium-137 could be released into the plant environment and nearby. In order to extract these radioactive isotopes from the environment, complicated chemical methods are required. However, in this work, we used an efficient yet less complicated plasma technique to extract iodine and cesium. To improve our measurement accuracy, proper setup of a high-pressure microwave was needed. Temperature of the plasma was one of factors that could significantly affect radioisotope clean-up. In our work, we determined the plasma temperature from the emission spectra of argon (Ar). The procedures started with using Pyrex and quartz tubes under different configurations to determine plasma ignition, which had an igniter (plasma seed) to generate electrons. To identify the atomic spectral emissions from the plasmas, a black comet spectrometer (StellarNet-Inc) was used. The acquired data would then be used to calculate the plasma temperature using Saha's equation.

Key Words : Ar Plasma, Microwave Discharge Technique, Saha Plot

1. 緒 言

2011年3月に起きた東日本大震災に伴う東京電力福島第一原子力発電所事故で様々な放射性物質が放出された。事故後の廃炉の際には、放射性廃棄物の中の核種に対して化学分析が行われており、化学分析の際の分離捕集工程において被ばく等のリスクを軽減できる手法の確立が求められている¹⁾。本研究室では高気圧マイクロ波放電法で生成したArプラズマを用いて、放射性廃棄物の中のヨウ素化合物から、ヨウ素を分離、捕集する手法を確立した²⁾。現在、本手法の実用化研究に伴い、正確なプラズマ制御が求められている。従来の手法において、Arプラズマの発光スペクトルの測定からプラズマ温度の決定を試みたが、発光スペクトル測定に使用した分光器(BLACK-Comet (StellarNet 社製))の分解能が悪く、正確な発光スペクトルの情報を得ることが出来ていなかった。そこで本研究では、波長範囲可変小型高分解能分光器(ASP-150 (AVESTA PROJECT 社製))を用いて、Arプラズマの発光スペクトルを測定し、プラズマ温度を求めることを試みた。

2. プラズマ温度測定の原理

プラズマは高温であるため、熱電対等の固体のプロープで直接接触させて測ることは困難である。また、プラズマ中へプロープを挿入した場合プラズマを乱す可能性がある。したがって、プラズマとは非接触で測定する分光測定法を用いることが望まれる。プラズマからの光はプラズマ中で起こる電子衝突、イオン衝突、光子衝突等

* 原稿受付 2018年2月28日

^{*1} 工学部 原子力技術応用工学科

^{*2} オンタリオ工科大学 (2000 Simcoe Street North Oshawa, Ontario, Canada L1H 7K4)

^{*3} カセサート大学 (50 Ngam Wong Wan Rd, Lat Yao Chatuchak Bangkok 10900)

E-mail: sunagawa@fukui-ut.ac.jp

の目視することの出来ない様々な微視的過程の結果として発光したもので、プラズマ内部に多くの情報を含んでいる^{3,4)}。ArやHeなどの単原子分子のプラズマにおいて、電子温度、イオン化温度、励起温度、ガス温度の四つの温度は、局所的熱平衡(LTE: Local Thermodynamic Equilibrium)が成立している場合、これらの温度は一致する。しかし、マイクロ波のような高周波を用いた大気圧弱電離プラズマではLTEが成立しないため、これらの温度は等しくならず、(電子温度, イオン化温度) > 励起温度 > ガス温度 となることが知られている³⁾。

しかし、プラズマに熱平衡が成り立っているかどうかにかかわらず、同種粒子のエネルギー準位間ではボルツマン分布が成立していることが多い。プラズマ中の中性原子において異なるエネルギー準位の原子密度分布がボルツマン分布に従っていると仮定した場合、次式が得られる。

$$\ln\left(\frac{I}{g_k \times A_{ki} \times \nu}\right) = C - \frac{E_k}{kT} \quad (1)$$

式(1)は、Sahaの式として知られている。ここで、 T は原子の各エネルギー準位に存在する割合を規定する温度(励起温度)、 I :放射される光の強度、 g_k :準位 k の統計的体重み、 A_{ki} :準位 k から i への遷移確率、 E_k :準位 k の励起エネルギー、 k :ボルツマン定数、 ν :放射される光の振動数、 C :定数である³⁾。

3. 実験方法

3.1 使用機器・使用薬品

S-band 高気圧マイクロ波放電装置 (1.3kW 空洞共振器 共振モード TE113, 共振周波数 2.45GHz, $Q > 6000$ (マイクロ電子社製)), 小型分光器 ASP-150 (AVESTA PROJECT 社製), BLACK-Comet (StellarNet 社製), 石英管, 石英ウール, シリコンチューブ, パイレックス管, 高次光カットフィルタ(東京インスツルメンツ社製), Ar ガス (宇野酸素(株), 99.999%), カーボンファイバ(ユニオンカーバイト社製)

3.2 分光器の分解能に関して

小型分光器の分解能を確認するため、BLACK-Comet と ASP-150 を用いて、Na ランプの D スペクトル (D1: 589.955nm, D2: 589.592nm) の測定を行った。ここで、BLACK-Comet の分解能は、カタログスペックにおいて 0.85~1.5nm であり、ASP-150 は 0.3nm である⁵⁾。Fig.1 に Na ランプの D スペクトルを測定した結果を示す。ここで、縦軸は発光の強度、横軸は波長である。BLACK-Comet は、1本のスペクトルに対して、ASP-150 は、D1, D2 を分けて測定できることが確認出来た。

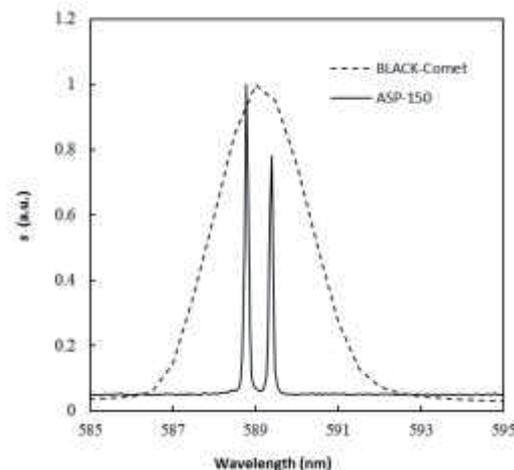


Fig.1 Na lamp measurement using spectroscopy

3.3 プラズマ生成発生容器

Figure 2 に Ar プラズマ生成に用いたプラズマ生成反応容器と S-band 高気圧マイクロ波放電装置の空洞共振器の概略図を示す。プラズマ生成種として使用したカーボンファイバーは電場強度が最も高い空洞共振器中心に設置した。

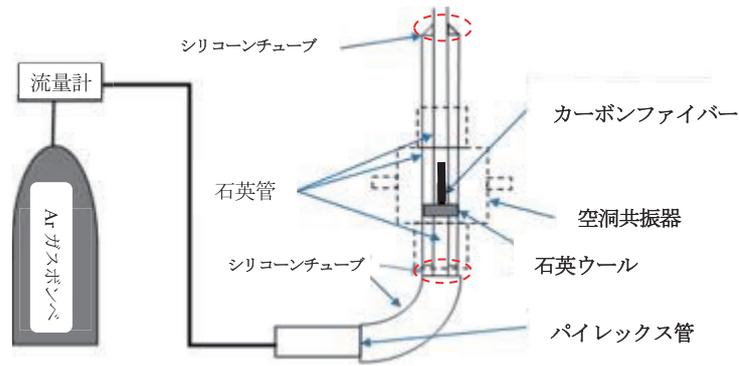


Fig. 2 Plasma reaction container

3.4 プラズマ温度測定

Figure 3 にプラズマ分光測定機器の配置の写真を示す。空洞共振器側面に空けた観察窓の位置に、高次光カットフィルタを設置し、光ファイバーを用いて分光器に接続した。



Fig. 3 Plasma spectroscopy measurement apparatus

Ar プラズマの発光スペクトル測定は、マイクロ波入力電力 0.7 kW, Ar の体積流量 2L/min, 分光器の露光時間 3000ms の条件で行った。分光器の感度補正は AVESTA PROJECT 社から提供されたデータを用いた。測定波長は他の研究者の論文³⁾を参考に、近接した波長を選んだ。

4. 結果と考察

Figure. 4 に 425nm~435nm の範囲で測定した Ar プラズマの発光スペクトルを示す。縦軸は発光の強度、横軸は波長を示す。

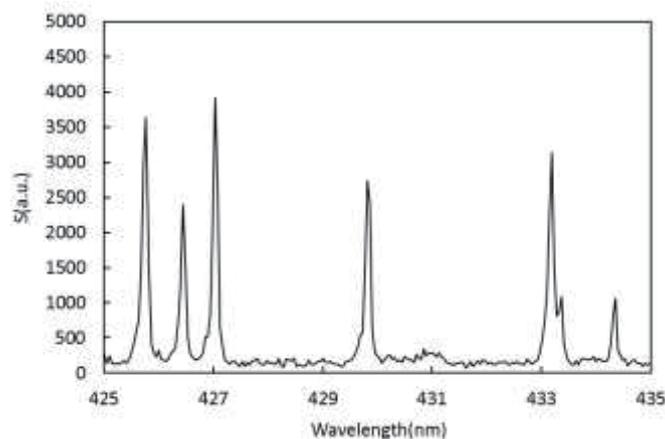


Fig.4 The emission spectrum of Ar plasma

Table 1 に, Fig.4 のスペクトルの発光強度 I 及び NIST Atomic Spectra Database⁶⁾において与えられた E_k , g_k , A_{ki} から求めた $\ln(I/g_k A_{ki} \nu)$ を示す.

Table 1 Ar plasma data

λ (nm)	ν (10^{14} Hz)	I	$g_k A_{ki}$ (10^5 s^{-1})	E_k (10^{-18} J)	$\ln(I/g_k A_{ki} \nu)$
425.768	7.041	3634.12	39.8	2.361	-41.1866
426.443	7.03	2391.48	15.6	2.3275	-40.6669
427.028	7.02	3921.68	23.9	2.3269	-40.5975
429.817	6.975	2732.24	18.8	2.3239	-40.7124
433.188	6.921	3137.03	28.4	2.3531	-40.979
433.368	6.918	1082.5	11.6	2.3529	-41.1472
434.356	6.902	1061.91	8.91	2.3519	-40.9003

Fig. 5 に Table 1 の結果から式(1)の Saha の式を基にプロットした結果を示す.

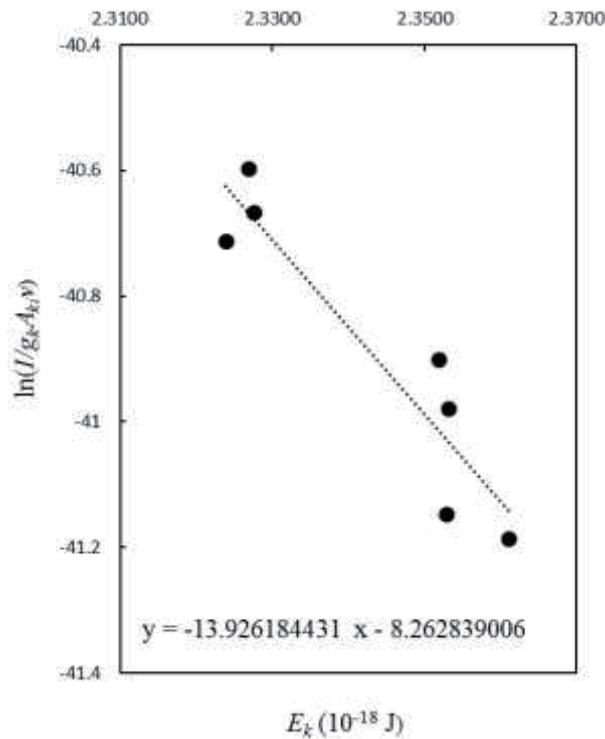


Fig. 5 Saha plot

Figure 5 のプロットの傾きから, プラズマ温度を求めた. プラズマ温度は 5200K であった.

5. 結 言

本研究は, AVETA PROJECT 社製の波長範囲可変小型高分解能分光器 ASP-150 を使用し, 測定波長, 高次光や分光器の感度補正, 露光時間等を検討し得られた発光スペクトルデータを用いて, Saha の式から Ar プラズマの温度を得る手法を確立した.

文 献

- (1) 「平成 24 年度地層処分技術調査等事業 高レベル放射性廃棄物処分関連 先進的地層処分概念・性能評価技術高度化開発(原子力事故廃棄物の処理・処分にかかる対応)」独立行政法人日本原子力研究開発機構 (2013).
- (2) 砂川武義, 山本香帆, Glenn HARVEL 福井工業大学研究紀要 第 46 号 (2016), pp.160-168.
- (3) 沖野晃俊 「大気圧気流安定化無電極プラズマに関する研究」,東京工業大学大学院 博士論文 (1994).
- (4) 山田諄 プラズマ・核融合学会誌 第 69 巻, 第 7 号 (1993), pp.784-792
- (5) 東京インスツルメンツ <http://www.tokyoinst.co.jp/products/detail/AV19/index.html>, <http://www.tokyoinst.co.jp/products/detail/SN01/index.html> (参照日2018年2月28日)
- (6) NIST Atomic Spectra Database https://physics.nist.gov/PhysRefData/ASD/lines_form.html (参照日2018年2月28日)

(平成 30 年 3 月 31 日受理)