

平成 30 年 6 月 4 日現在

機関番号：82110

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2017

課題番号：16K14542

研究課題名(和文) 超音速プラズマ風洞を用いた同位体比分析法の開発と極低温プラズマによる高分解能化

研究課題名(英文) Development of isotope analysis method using supersonic plasma wind tunnel and spectral resolution enhancement by low-temperature plasma

研究代表者

桑原 彬 (Kawahara, Akira)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 原子力科学研究所 バックエンド技術部・技術・技能職

研究者番号：50732418

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：開発したアーク加熱プラズマ風洞の気流診断を行うため、超音速ノズル下流のプラズマジェットに半導体レーザー吸収分光法を適用した。次に、開発した手法及び装置のデモンストレーションのため、プラズマ化が容易なキセノン安定同位体(気体)に適用し、分析精度と検出感度を評価した。次に、波長軸上における同位体スペクトルの分解能は、プラズマ中の中性粒子の並進温度(ドップラー広がりによって各スペクトルが干渉する)に大きく依存していることから、気流条件の最適化の観点から、気流の温度低減による分解能向上を試みたところ、キセノン安定同位体の分析時において、低温環境を生成(約180K)することに成功した。

研究成果の概要(英文)：An isotope analysis method based on diode laser absorption spectroscopy using supersonic plasma jet has been developed. First, the translation temperature and flow velocity downstream of a supersonic nozzle are measured using an atomic argon transition of 826.45 nm from an excited state.

Next, the trace gas measurement capability is verified injecting natural xenon in the argon plasma, and optical measurements are carried out at an atomic xenon transition to 823.16 nm. The detection limit of xenon over the argon molar ratio is estimated to be 140 parts per million downstream.

Finally, in order to enhance spectral resolution drastically by supersonic plasma jet, a demonstration was carried out using natural stable xenon isotopes. As a result, the temperature was found to be about 180 K and the spectral resolution was about one order of magnitude higher than that of the conventional high-temperature source such as laser ablation plasma plume.

研究分野：原子力工学

キーワード：同位体分析 レーザー吸収分光 同位体シフト 超音速プラズマ プラズマ風洞 ドップラー広がり

1. 研究開始当初の背景

従来、原子力分野の同位体分析には、質量分析装置が広く用いられるが、ウランとプルトニウムだけでなく、複合イオン等のクラスターイオン・二量体イオンによる同重体干渉を回避する必要がある。同重体干渉を回避するためには、質量干渉物となる妨害種に依りて、複雑な化学分離スキームを適用し、干渉物を除去した“クリーンな試料”を装置内へ導入しなければならない。

化学分離を用いることなく、同重体を識別するため、国内外で分光法によるアプローチが提案されており、レーザー吸収分光法に基づくレーザーアブレーション法が開発されてきた。レーザー吸収分光法は、同位体スペクトルよりも狭い線幅を有する半導体レーザーを光源として使用するため、波長軸上において、元素だけでなく同位体も識別するだけの分解能を有している。しかしながら、レーザーアブレーション法は、高強度のレーザーを固体試料表面に照射し、生じるプラズマプルームに対してレーザー分光を行うものである。そのため、試料のプラズマ化に伴い、プルームは高温化することで、原子(同位体)の熱運動に起因するドップラー広がりが大きくなり、各同位体の吸収スペクトルが干渉し、微量同位体は存在量の大きい同位体スペクトルに埋もれてしまう。

2. 研究の目的

本研究においては、試料をプラズマ化するための高温環境と同位体スペクトルを識別するための低温環境を同時に達成するため、従来は航空宇宙分野で利用されている風洞技術を異分野に応用し、超音速プラズマジェットを用いたこれまでにない同位体分析法の開発を目的とする。

3. 研究の方法

本手法の概念図を図1に示す。超音速プラズマ風洞は、ノズル上流及び下流(真空チャンバ側)の圧力差により、ノズル上流で生成したプラズマを断熱膨張により真空チャンバに引き出すものである。ノズル上流の熱エネルギーを運動エネルギーに変換することによって、プラズマを冷却することができる。本手法は、この現象を利用し、冷却したプラズマ中において、半導体レーザーを用いたレーザー吸収分光を行う。

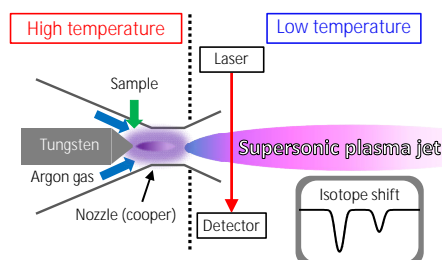


図1 開発した分析法の概念図

実験装置の全体図を図2に示す。本研究に

おいては、プラズマ風洞として作動原理が単純な直流放電型のアーク加熱プラズマ風洞を開発した。高温プラズマと接触するノズル上流部(陽極)には、熱伝導率が高い銅を使用し、冷却水が通る構造とした。また、陰極には、トリエーテッドタングステンを用いた。通常のタングステンに比べてプラズマ着火性に優れ、電極損耗が少ないという利点を持つ。

レーザー分光の光源には、縦シングルモードの半導体レーザー(Hitach: HL8325G)を用いた。同位体吸収スペクトルを連続的に取得するため、コントローラー及びファンクションジェネレータを用いて、電流変調により波長掃引を行った。

プラズマジェットの温度及び流速を同時に計測するため、気流に対して約10°の角度でレーザー光を入射した。これにより、ドップラー効果で中心波長が僅かにずれるため、静的なプラズマ(グロー放電プラズマ)の中心波長との相対的な波長シフト量を用いて流速を算出することができる。また、温度については、低圧プラズマ中で圧力広がりを見捨てるため、ガウス分布を仮定することでフィッティングにより算出した。

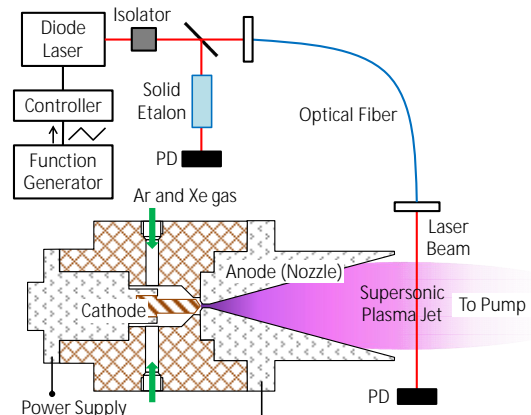


図2 実験装置の全体図

4. 研究成果

開発したアーク加熱プラズマ風洞について、気流診断を実施した。半導体レーザー吸収分光法(DLAS)を用いて、断熱膨張後(超音速ノズルの下流部)の温度及び流速を計測した結果を図3に示す。ノズル下流における中心軸上のデータを用いることで、ノズル上流の温度を算出することができるが、DLASはトモグラフィ手法であるため、レーザー光を空間掃引してデータを取得し、その後、軸対象を仮定したアーベル変換を行い半径方向の空間分布を算出した。次に、中心軸上の温度と流速から、等エントロピー流れを仮定し、エンタルピーの総和から最終的にノズル上流の温度を算出したところ、6,490Kであることが明らかになった。本計算において、アーク加熱プラズマ風洞のプラズマジェットは弱電離プラズマであり、電子の影響を無視できるとした。以上より、ノズル上流では、固体試料を気化するだけの高温環境が生成

できており、今後試料の導入方法において、試料の熱容量を考慮して要求される滞留時間を確保することができれば、固体試料の直接分析が実現できるものと考える。

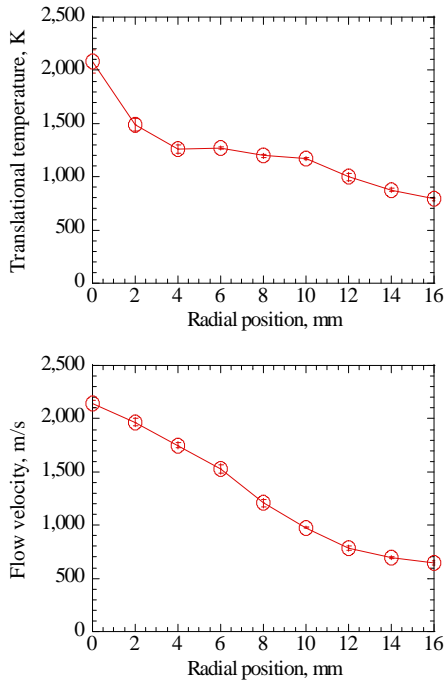


図3 プラズマジェットの温度・流速の半径方向分布(上:温度、下:流速)

開発した装置のデモンストレーションとして、キセノン安定同位体に適用した。キセノンは希ガスでプラズマ化が容易であり、プラズマ化効率の評価が不要であるだけでなく、安定同位体が9つ存在し、スペクトル指標として評価しやすい利点がある。ノズル下流におけるキセノン同位体の吸収スペクトル(823nm)を図4に示す。取得した吸収スペクトルは、理論値と非常によく一致しており、本手法が同位体分析法として妥当であることが確認された。次に、キセノンガスの流量(主流アルゴンガスとのモル分率)をパラメータとして、キセノンガスの検出感度を評価した。キセノンガスの流量と信号強度の関係を図3に示す。DLASによるキセノン同位体の検出感度は、約140ppmであることが明らかになった。

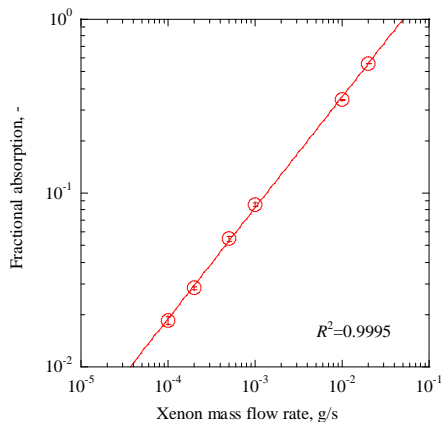


図4 キセノンガス流量と信号強度の関係

同位体スペクトルの分解能(波長分解能)は、断熱膨張による冷却で大幅に向上しているものの、ストロンチウム等の中重元素を識別するためには、200K以下までプラズマを冷却する必要があることから、気流生成条件の最適化を目指し、実験を行った。結果として、過膨張流の生成時において、180Kまでプラズマを冷却(キセノン同位体の吸収スペクトルに対して、ガウスフィッティングした際のスペクトル広がりから温度を算出)することに成功した(図5参照)。キセノン同位体の吸収スペクトル(823nm)は、21個のスペクトルで構成されているため、温度をパラメータとしてこれら全スペクトルをコンボリューションしたフィッティング関数で解析を行った。得られたスペクトルの分解能は、約200MHzであり、ストロンチウム同位体を識別するだけの分解能を得ることができた。また、この分解能は、従来のレーザーアブレーション後のプラズマブルームと比較すると10分の1程度のスペクトル分解能である。将来的なホット試験への展開を見据え、キセノン安定同位体のうち、奇数同位体(¹²⁹Xe及び¹³¹Xe)を指標にスペクトルを検討した(図6参照)ところ、各同位体のスペクトルは干渉しておらず、高精度な分析を実現できることを確認した。

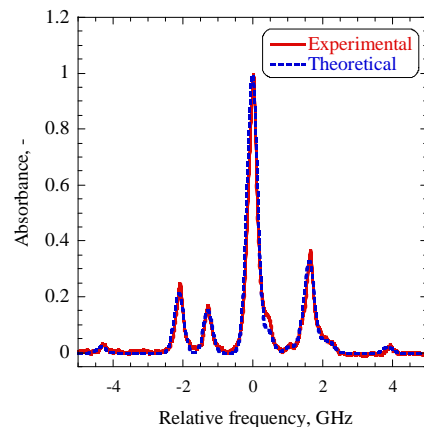


図5 キセノン同位体の吸収スペクトル

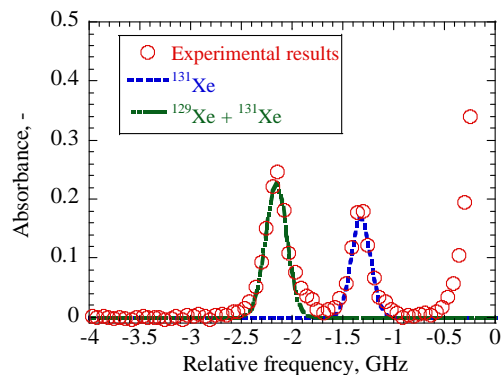


図6 一部拡大した吸収スペクトル

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計1件)

Akira Kuwahara, Yasuaki Aiba, Shiya Yamasaki, Takuya Nankawa and Makoto Matsui, Development of isotope analysis method based on diode laser absorption spectroscopy using arc-jet plasma wind tunnel, Journal of Analytical Atomic Spectrometry, 査読有, No. 33, 893 - 896, 2018
DOI: 10.1039/C8JA00040A

〔学会発表〕(計9件)

相羽祇亮、桑原彬、松井信、塩化ストロンチウム粉末を混合したアルゴンアークジェットの発光スペクトルの相対強度測定、第65回応用物理学会春季学術講演会、2018

桑原彬、南川卓也、松井信、同位体分析のための光共振器を用いた高感度レーザー吸収分光システムの開発、日本原子力学会2018年春の年会、2018

Aiba Yasuaki, Akira Kuwahara, Makoto Matsui, Atomization of Strontium Powders Using Arcjet for Isotope Detection System, 11st International Workshop on Hybrid Functionally Materials, 2018

Akira Kuwahara, Aiba Yasuaki, Takuya Nankawa, Makoto Matsui, Development of Isotope Analytical Method Based on Diode Laser Absorption Spectroscopy Using Arc-Jet Plasma Wind Tunnel, 2018 Winter Conference on Plasma Spectrochemistry, 2018

相羽祇亮、桑原彬、松井信、同位体分析のためのアークプラズマ風洞を用いたストロンチウム粉末試料の原子化、第78回応用物理学会秋季学術講演会、2017

桑原彬、相羽祇亮、南川卓也、松井信、アークジェットプラズマを用いたレーザー分光分析の特性評価、日本原子力学会2017年秋の大会、2017

桑原彬、相羽祇亮、松井信、南川卓也、半導体レーザーを用いた同位体分析における圧力広がりの影響、平成29年度北関東支部原子力学会若手研究発表会、2017

Akira Kuwahara, Yasuaki Aiba and Makoto Matsui, Investigation of Al_2O_3 plasma reduction by liquid phase samples using laser absorption spectroscopy, 2017 International Symposium Toward the Future of Advanced Researches in Shizuoka University, 2017

桑原彬、相羽祇亮、松井信、南川卓也、飽和吸収分光におけるスペクトル形状の評価、平成28年度北関東支部原子力学会若手研究発表会、2016

〔産業財産権〕

出願状況(計1件)

名称: 同位体分析装置及び同位体分析方法
発明者: 桑原彬、南川卓也、藤平俊夫、松井信
権利者: 同上
種類: 特許
番号: 特願 2017-64440
出願年月日: 平成29年3月29日
国内外の別: 国内

6. 研究組織

(1) 研究代表者

桑原彬 (Kuwahara Akira)
国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 原子力科学研究所 バックエンド技術部・技術・技能職
研究者番号: 50732418

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし

(4) 研究協力者

なし