

半導体レーザーを用いた原子分光によるナトリウム漏洩検出法の開発

Development of a Sodium Leak Detector based on Atomic Spectroscopy using a Laser Diode

名古屋大学工学研究科	小倉 智志	Satoshi OGURA	Nonmember
名古屋大学工学研究科	渡辺 賢一	Kenichi WATANABE	Nonmember
名古屋大学工学研究科	山崎 淳	Atsushi YAMAZAKI	Nonmember
名古屋大学工学研究科	瓜谷 章	Akira URITANI	Nonmember
日本原子力研究開発機構	伊藤 主税	Chikara ITO	Nonmember

We proposed a novel sodium leak detection technique based on laser spectroscopy to improve the reliability of sodium leak monitoring. In this technique, sodium atoms are excited into a first excitation level by atmospheric plasma before laser spectroscopy. The detection limit concentration was preliminarily evaluated to be comparative to the sodium aerosol detector. We confirmed that the maximum of 3p level population can be achieved at a proper plasma burning condition.

Keywords: Sodium cooled fast reactor, Sodium leak detector, Laser spectroscopy, Laser diode, Atmospheric plasma

1. 緒言

現在、高速増殖炉の最有力候補であるナトリウム冷却炉においては、その化学的活性の高さから、ナトリウム管理技術が重要課題の一つとして考えられている。ナトリウム冷却炉は軽水炉に比べ、冷却材圧力が低いため、冷却材の微小漏洩を早期検知することで配管破断前に炉停止することも可能であるため、ナトリウム微小漏洩検知技術が、ナトリウム管理技術の中でも非常に重要な位置づけとなっている。現在、原型炉「もんじゅ」では、ナトリウム微小漏洩検出器として放射線イオン化式検出器、ナトリウムイオン化式検出器、差圧式検出器等が用いられているが、これらはいずれもナトリウムそのものではなく、ナトリウム漏洩時に発生するエアロゾル等をモニタしているに過ぎない。そこで、ナトリウムを分光学的に、特にレーザー分光により検出する手法がいくつか提案されているが、どれも研究用の高性能・高価かつメンテナンスに多くの労力を要するレーザー装置が必要であり、原子炉プラントといった厳しい環境での実用化には、依然として大きな壁があるのが現状である。そこで我々は、安価で様々な産業分野で利用されている半導体レーザーを光源として、簡易な検出器構成でナトリウム元素を分光学的に検出するナトリウム漏洩検出器を提案している。

2. 分光スキーム

ナトリウムをレーザー吸収分光する場合に最も効

率がよい波長は 590 nm ($3s \ ^2S_{1/2} \rightarrow 3p \ ^2P^{\circ}_{1/2,3/2}$) である

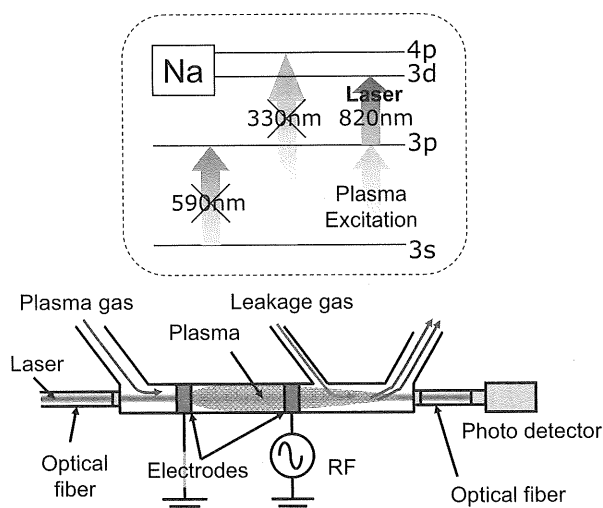


Fig.1 Conceptual drawing of a sodium leak detector based on an atmospheric plasma assisted laser spectroscopy and sodium spectroscopic scheme.

が、市販の半導体レーザーでは発振不可能な波長領域である。さらに $3s$ 準位を下準位とする他の励起スキームを用いる場合には 330 nm 以下の短波長レーザーが必要になるが、それも現在市販されている半導体レーザーでは発振不可能である。そこで第一励起状態である $3p$ を下準位とした励起を考えると、 820 nm ($3p \ ^2S_{1/2} \rightarrow 3d \ ^2D_{3/2,5/2}$) の波長で励起可能で、これは市販の半導体レーザーで発振可能である。したがって本研究ではこの遷移を利用してナトリウムを吸収分光することを考えている。

しかしここで問題となるのはナトリウム原子を $3p$

連絡先: 小倉 智志
 名古屋大学工学研究科
 〒464-8603 名古屋市千種区不老町
 E-mail: ogura.satoshi@f.mbox.nagoya-u.ac.jp

準位如何に励起するかである。その方法として我々が提案するのは大気圧プラズマを利用する方法である。大気圧プラズマを用いることで真空チャンバーなどの大掛かりな装置を必要とせず、シンプルな検出器構成となる。サンプルガスを大気圧プラズマ中に直接通すことで比較的簡易な装置構成でサンプルガスを励起することができる[1]。Fig. 1 に大気圧プラズマとレーザーを組み合わせたナトリウム漏洩検出器の概略図およびナトリウムの分光スキームを示す。

3. 実現性の検討

本検出器の検出下限濃度は以下の式で求まる。

$$1 - \frac{I}{I_0} = 1 - \exp(-\sigma N_0 f L) \approx \sigma N_0 f L > \alpha$$

ここで、 I_0, I は試料透過前後のレーザー強度、 σ は吸収断面積、 N_0 は原子数密度、 f は第一励起準位の励起割合、 L は試料ガス中の光路長であり、 α は吸光度の検出下限である。この条件式を満たす最も小さい N_0 がナトリウムの検出限界濃度を示している。この条件式の中で、不確定な項は第一励起準位の占有割合 f および吸光度の検出下限 α である。励起準位の占有割合 f は電子温度 T に依存するため、大気圧 He プラズマジェットで行った予備実験より得られた電子温度 $T=2160$ K を採用し、 f を算出した。さらに、一般的な吸光分光における吸光度の検出下限 α を 10^{-3} と仮定すると、ナトリウムの検出限界はおおよそ 15 ppb と見積もられた。これは従来のナトリウム漏洩検出器と同等の値である。以上により、本手法は従来法と異なりナトリウム原子そのものからの信号を取得しているにも関わらず、従来と同等の検出限界を確保できる手法となり得るとの見通しが得られた。

4. 大気圧プラズマの点灯条件

本手法においてナトリウムの検出限界濃度を決定している主要因は、吸光分光における検出下限 α および電子温度 T である。本報では、電子温度 T に着目し、その大気圧プラズマ点灯条件に対する依存性について検討を行った。電子励起がボルツマン分布に従うと

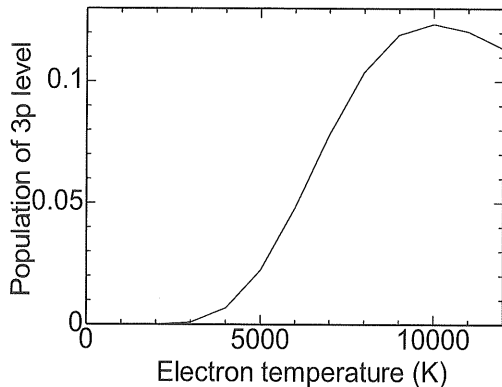


Fig. 2 The dependence of 3p level population for sodium on the electron temperature.

すると電子温度 T における励起準位 i への励起割合 P_i は以下の式で表される。

$$P_i = \frac{g_i \exp(-E_i / kT)}{\sum_j g_j \exp(-E_j / kT)}$$

ここで g_i, E_i は励起準位 i の統計的重率、励起エネルギーであり、 k はボルツマン定数である。ナトリウムの 3p 準位に関して、励起割合の電子温度 T に対する依存性を求めたものを Fig. 2 に示す。電子温度を上げることで、励起割合も増加するが、ある温度を越えると 3p 準位より上の準位へ励起される割合が増加するため、3p 準位への励起割合はむしろ減少する傾向を示した。

実際に大気圧プラズマの一種である誘導結合プラズマ (ICP) 中に NaCl 溶液のエアロゾルを導入し、Na の D 線 (589 nm) 発光強度のプラズマ電源出力に対する依存性を調べた結果を Fig. 3 に示す。横軸は各々のプラズマ電源出力時に Ar プラズマの発光線強度比より求めた電子温度である。電子温度が上昇するにつれて Na の発光強度は増加するが、ボルツマン分布から予測されるように、ある温度以上では Na の発光強度は飽和傾向を示した。以上のように、大気圧プラズマの点灯条件には最適値が存在することがわかった。

4. 結言

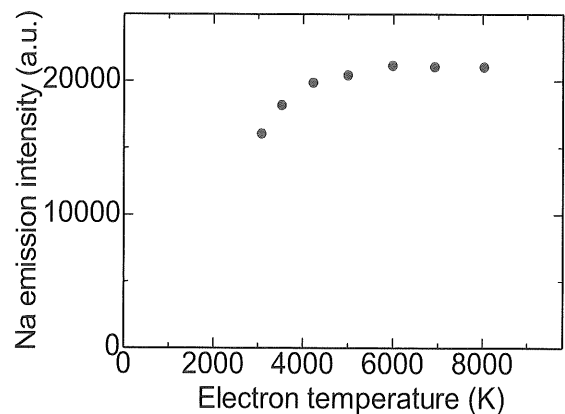


Fig. 3 The dependence of 3p level population for sodium on the electron temperature.

微小漏洩ナトリウムを高い信頼性で検出するため、ナトリウムのレーザー原子分光に基づく手法を、簡便な装置構成で実施すべく、半導体レーザーと大気圧プラズマを組み合わせた手法を提案した。予備的に検出限界濃度を評価した結果、従来のナトリウムエアロゾル検出器と同等の検出限界濃度を達成できる見通しを得た。また、プラズマの点灯条件に関する検討を行った結果、励起準位をした準位とする分光スキームを採用する場合、最適なプラズマ点灯条件が存在することがわかった。

参考文献

- [1] S.Okazaki, M.Kogoma, M.Uehara, Y.Kimura, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **26**, 888 (1993)

(平成 22 年 5 月 20 日)