

水中アークプラズマの諸特性評価 電子温度・密度の測定

Argon Arc Plasma Evaluation under Water
Electron Temperature and Density Measurement

松岡祐也* , 赤塚 洋**

*東工大 工学院 , **東工大 研究院,

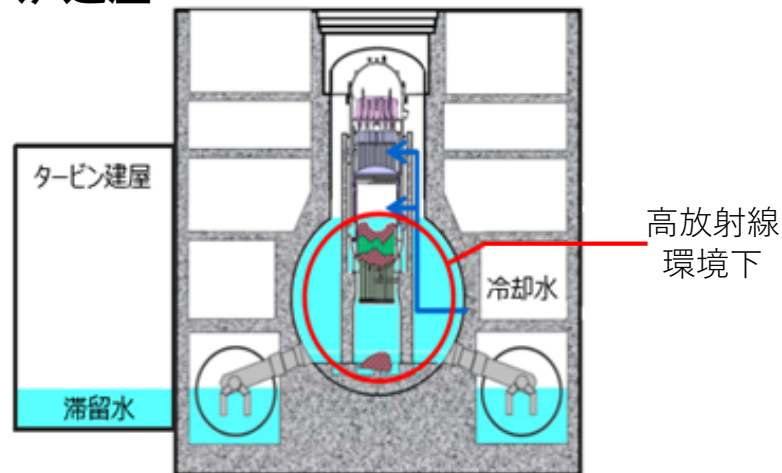
Yuya Matsuoka* , Hiroshi Akatsuka**

*School of Engineering ; Tokyo Institute of Technology,

**Laboratory of Advanced Nuclear Energy ; Tokyo Institute of Technology,

福島第一原子力発電所の廃止措置

原子炉建屋

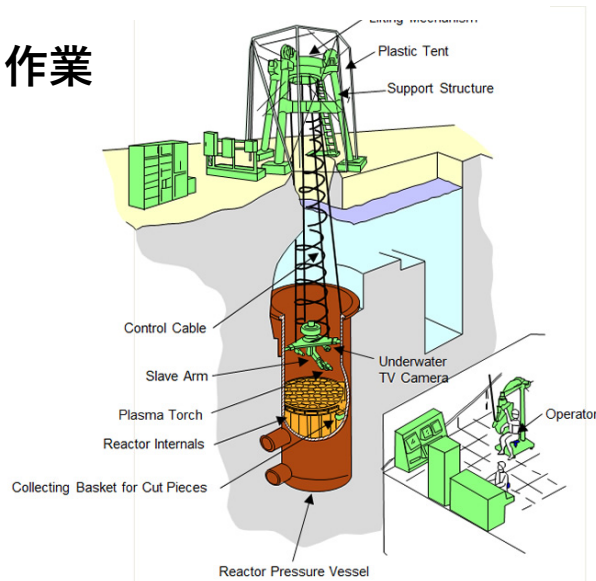


事故後メルトダウンを生じた燃料デブリが格納容器下部に現在も蓄積

放射性物質の飛散対策として冠水工法(格納容器を浸水)が有効

水中でデブリを適切なサイズに切断するにはアークプラズマが有用

取出し作業



目的

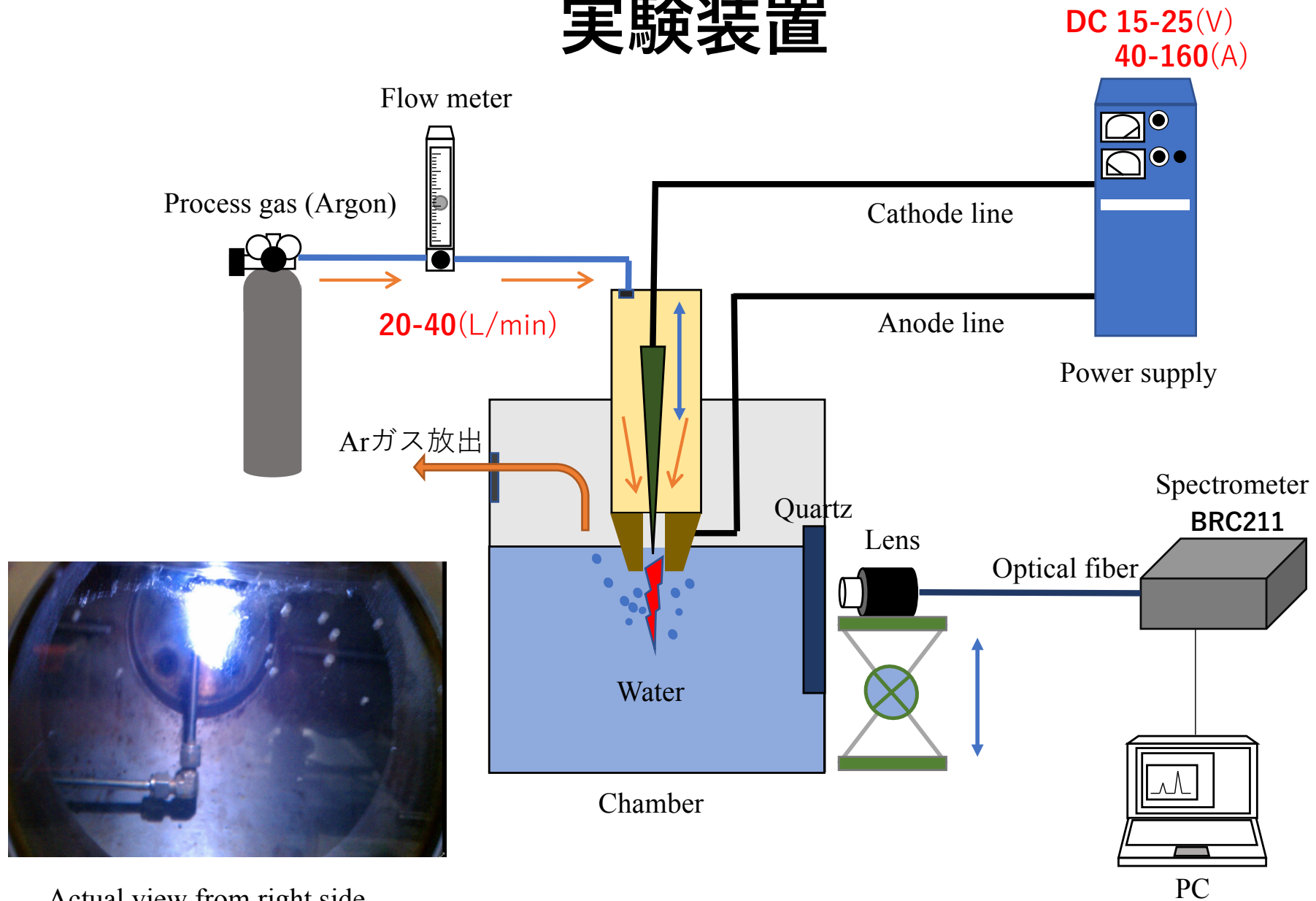
廃止措置に適用される技術は十分な安全性が確認されている必要があるが、水中におけるアーク放電プラズマの挙動、他の物質に与える影響についてはまだ理解が不十分

水中での大気圧アルゴンアークプラズマの電子温度及び電子密度を発光分光計測法により算出

測定結果妥当性確認のために算出方法を変えて比較・検証を実施

放電プラズマの空間分布測定

実験装置

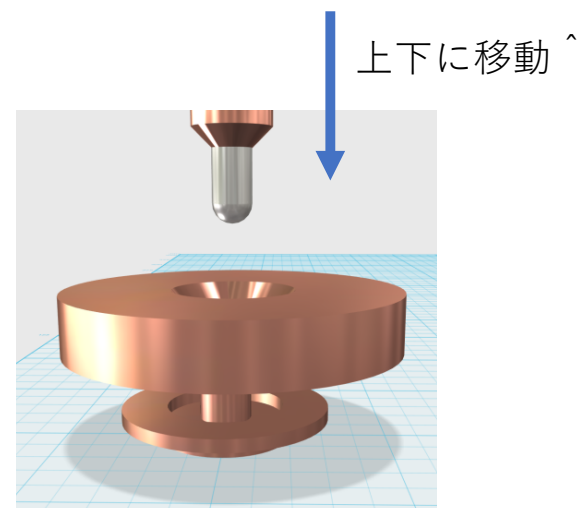


電極部構造

Cathode
トリア(2%)
タングステン



Anode
無酸素銅



Anode + Cathode
(3D_CAD)

電子温度算出

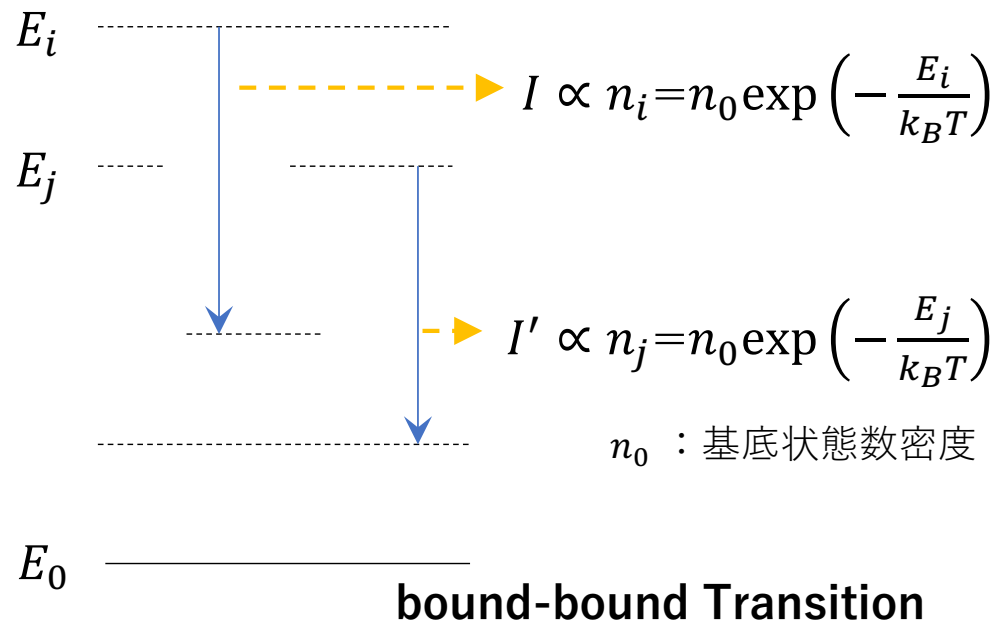
- ①線強度比法
- ②ボルツマンプロット
- ③e-a制動放射による連続スペクトル

※①,②に関しては大気圧プラズマで電子密度が非常に高いことを前提であるとして局所熱平衡状態(LTE)を仮定して計算

同一の取得データに対して算定手法を変えて
比較・精度検証を行う

①線強度比法

励起状態数密度がボルツマン分布に従う場合



E : 上位励起準位エネルギー

I : 発光強度

ν : 遷移により放出される光の周波数

A : 遷移確率

g : 縮退度

「 $'$ 」 比較する発光スペクトルの値

k_B : ボルツマン定数

λ [nm]	Transition	g	E_i (eV)	A_g (s)
794.81	4p'-4s*	3	13.2788	1.96E+07
826.45	4p'-4s*	3	13.3239	1.68E+07
811.53	4p-4s*	7	13.0719	3.66E+07
641.63	6s-4p	5	14.8345	1.21E+06
703.02	6s-4p	5	14.8345	2.78E+06
560.67	5d-4p	3	15.1133	2.29E+06
549.58	6d-4p	9	15.3265	1.76E+06

$$k_B T_{ex} = \frac{E' - E}{\ln(I\nu' A' g' / I' \nu A g)}$$

アルゴン原子の励起準位間遷移で実験系に適したスペクトルの組合せで計算

②ボルツマンプロット

励起状態数密度がボルツマン分布と仮定することで、アルゴン特有の複数のスペクトルから温度を推定可能

$$\ln \left(\frac{\varepsilon \cdot \lambda}{A \cdot g} \right) = \left(\frac{-1}{k_B T} \right) E_i + \ln K$$

E_i : 上位励起準位エネルギー

ε : 放出係数

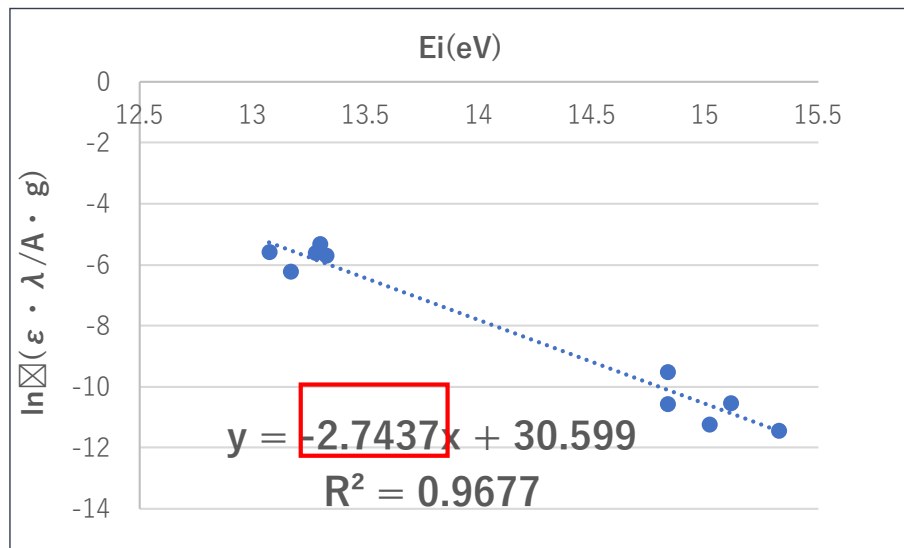
λ : スペクトルの波長

A : 遷移確率

g : 縮退度

k_B : ボルツマン定数

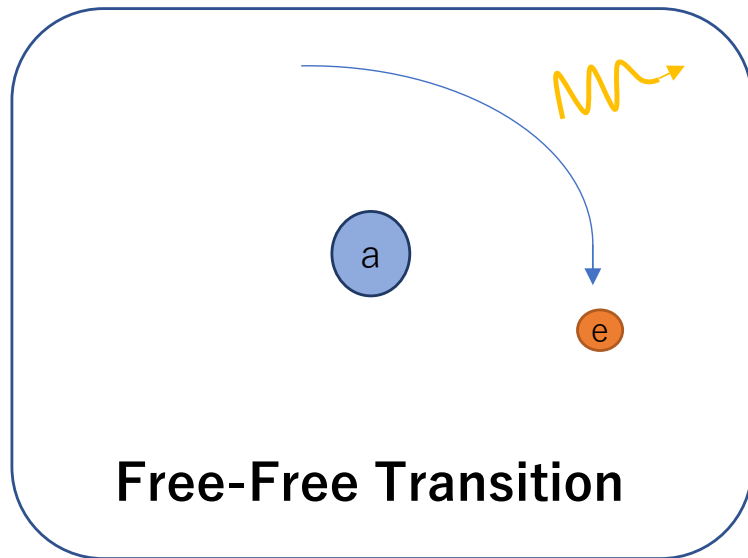
K : 同一原子すべてのスペクトルに等しい定数



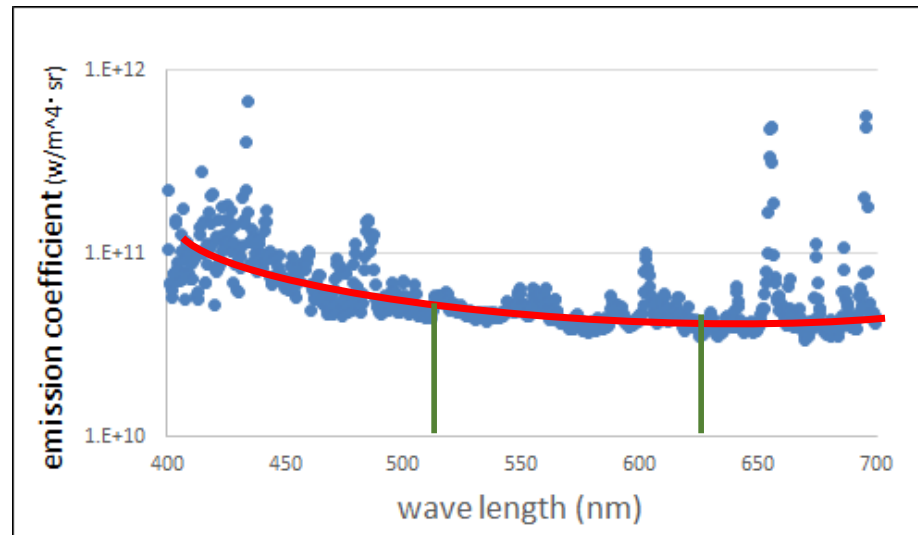
λ [nm]	Transition	g	$E_i(\text{eV})$	$A_g(\text{s})$
706.72	4p'-4s*	5	13.2984	3.95E+06
794.81	4p'-4s*	3	13.2788	1.96E+07
826.45	4p'-4s*	3	13.3239	1.68E+07
811.53	4p-4s*	7	13.0719	3.66E+07
641.63	6s-4p	5	14.8345	1.21E+06
703.02	6s-4p	5	14.8345	2.78E+06
560.67	5d-4p	3	15.1133	2.29E+06
549.58	6d-4p	9	15.3265	1.76E+06

最小二乗法近似式の傾きの逆数が温度に相当

③e-a制動放射による連続スペクトル



弱電離プラズマにおいてe-a制動放射が支配的



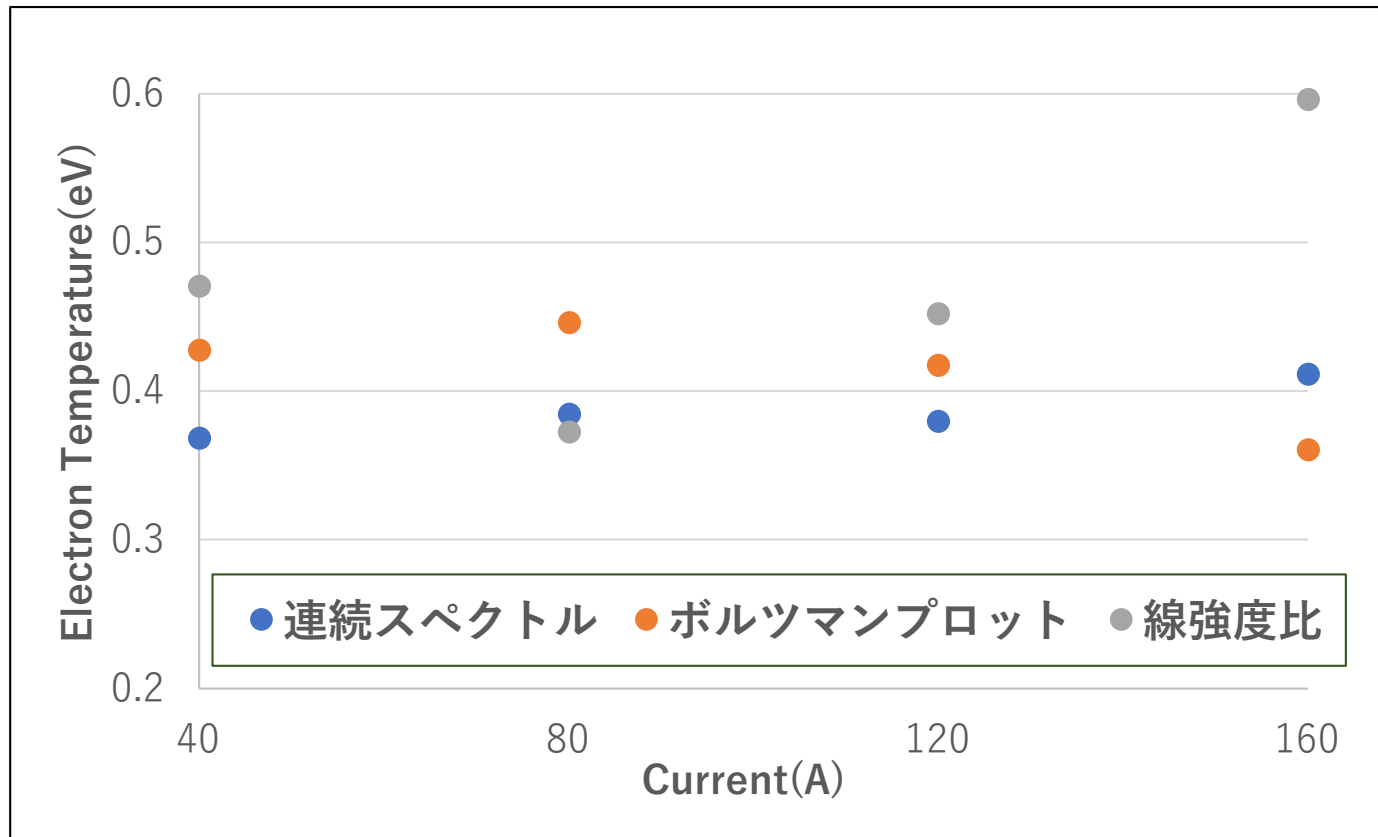
$\lambda_1 : 515\text{nm}$ $\lambda_2 : 633\text{nm}$ で計算

$$\varepsilon_{ea}(\lambda, T) = C_{ea} \frac{n_e n_a}{\lambda^2} \frac{1}{(kT_e)^{3/2}} \int_{h\nu}^{\infty} \sqrt{1 - \frac{hc}{\lambda E}} e^{-E/kT_e} Q_{ea}^{mom}(E) E^2 \left(1 - \frac{hc}{2\lambda E}\right) dE$$

$$\Rightarrow \frac{\varepsilon(\lambda_2, T)}{\varepsilon(\lambda_1, T)} = \frac{\lambda_1^2 \int_{h\nu}^{\infty} F(E, \lambda_2, T) dE}{\lambda_2^2 \int_{h\nu}^{\infty} F(E, \lambda_1, T) dE}$$

二つのスペクトルの放出係数比を求めることによって電子温度を算出

電子温度の算出



- ・ 線強度比法は各スペクトルによってさまざまな要因でばらつきが大きい
- ・ 連続スペクトルは安定した電子温度計測が可能

電子密度の算出

先ほど求めた電子温度を用いる

- ①状態方程式 + サハの熱電離式
- ② e-a制動放射による連続スペクトル + サハの熱電離式

電子数密度と原子数密度の割合を知るためにサハの式を採用。

電子密度 Sahaの熱電離式 + 状態方程式



比較的低温であることから一価のみで計算

サハの方程式

$$\frac{N_e \cdot N_{z+1}}{N_z} = 2 \frac{Z_{z+1}}{Z_z} \frac{(2\pi m_e k_B T)^{\frac{3}{2}}}{h^3} \exp\left(-\frac{\chi}{k_B T}\right)$$

状態方程式

$$+ P = (N_z + N_{z+1} + N_e)k_B T = (N_z + 2N_e)k_B T$$

$z, (z+1)$: イオンの価数, N_e : 電子数密度
 N_z : z 価の数密度 ($z+1$ も同様), m_e : 電子質量
 Z_z : z 価の状態和 ($z+1$ も同様), χ : 解離エネルギー
 h : プランク定数, k_B : ボルツマン定数

P : 大気圧

$$\frac{x^2}{1-x^2} = \left(\frac{1}{P}\right) \left(\frac{2\pi m_e}{h^2}\right)^{\frac{3}{2}} (k_B T)^{\frac{5}{2}} \left(\frac{2g_i}{g_n}\right) \exp\left(-\frac{\chi}{k_B T}\right) \quad : x = \frac{N_e}{N_z + N_e} \text{電離度}$$

$$N_e = \left(\frac{1-x}{x}\right) \left(\frac{2\pi m_e}{h^2}\right)^{\frac{3}{2}} (k_B T)^{\frac{5}{2}} \left(\frac{2g_i}{g_n}\right) \exp\left(-\frac{\chi}{k_B T}\right)$$

電子密度 e-a連続スペクトル + サハの熱電離式

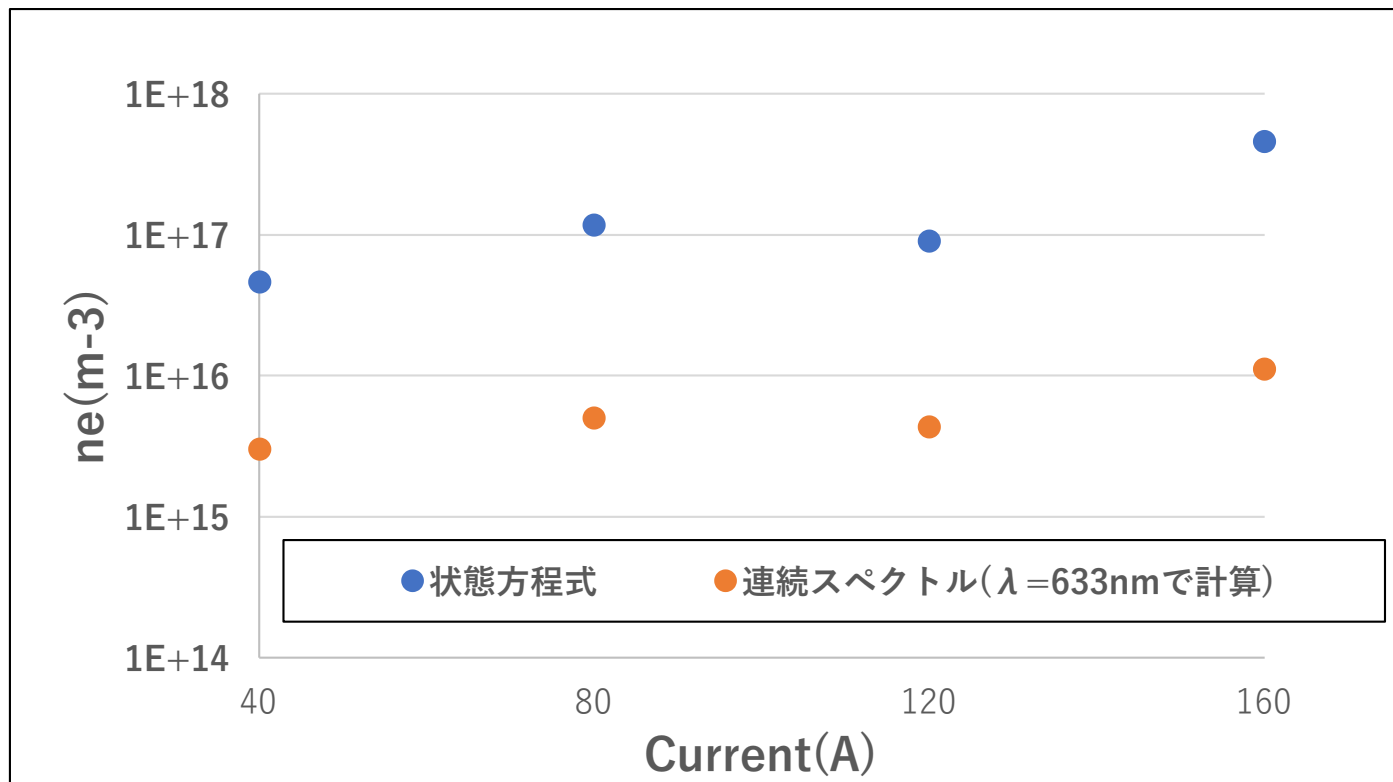
$$\begin{aligned} \text{Emission coefficient } \varepsilon_{ea}(\lambda, T) &= C_{ea} \frac{n_e n_a}{\lambda^2} \frac{1}{(kT_e)^{3/2}} \int_{h\nu}^{\infty} \sqrt{1 - \frac{hc}{\lambda E}} e^{-E/kT_e} Q_{ea}^{mom}(E) E^2 \left(1 - \frac{hc}{2\lambda E}\right) dE \\ &+ \\ \text{Saha's equation } \frac{N_e \cdot N_{Z+1}}{N_Z} &= 2 \frac{Z_{Z+1}}{Z_Z} \frac{(2\pi m_e k_B T_e)^{3/2}}{h^3} \exp\left(-\frac{\chi}{k_B T_e}\right) \\ &\quad (N_Z = n_a, \quad N_e = N_{Z+1} = n_e) \end{aligned}$$



$$n_e = \left[\frac{\varepsilon_{ea}(\lambda, T) \cdot 2 \frac{Z_{Z+1}}{Z_Z} \frac{(2\pi m_e k_B T)^{3/2}}{h^3}}{C_{ea} \int_{h\nu}^{\infty} \sqrt{1 - \frac{hc}{\lambda E}} e^{-E/kT_e} Q_{ea}^{mom}(E) E^2 \left(1 - \frac{hc}{2\lambda E}\right) dE} \right]^{\frac{1}{3}} \cdot \exp\left(-\frac{\chi}{3k_B T}\right) \cdot \lambda^{\frac{2}{3}} \cdot (k_B T_e)^{\frac{1}{2}}$$

絶対感度校正を行った分光器より放出係数を求めて算出

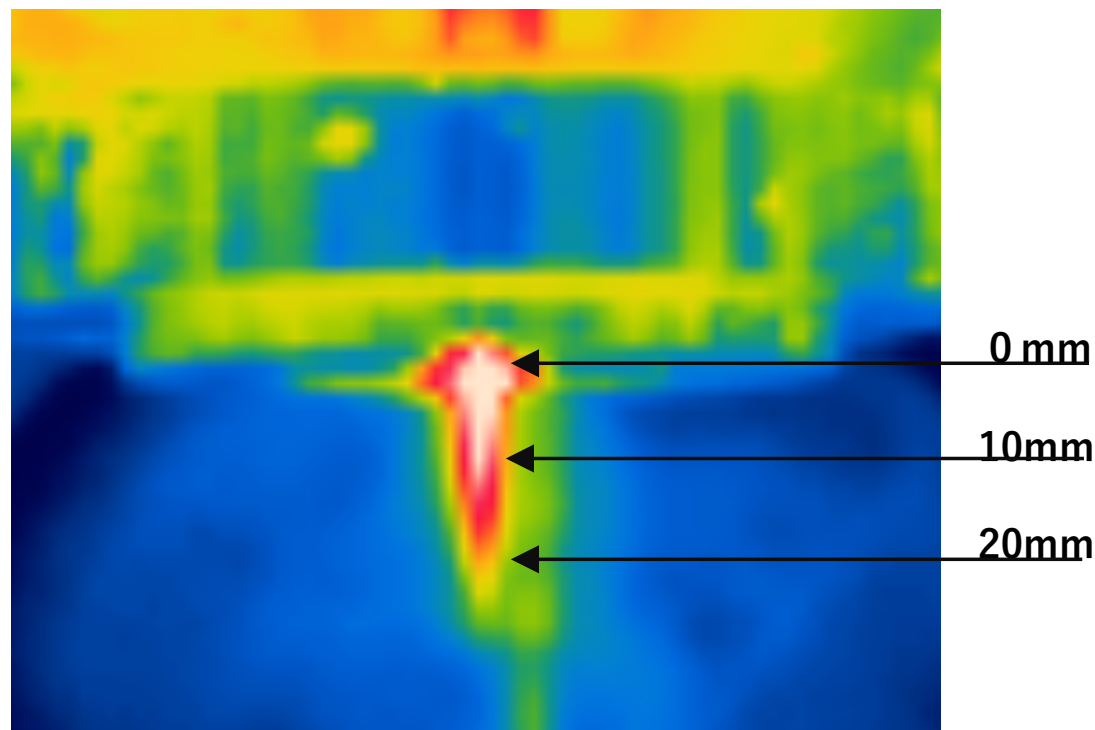
電子密度算出結果



電子温度は連続スペクトルの比から算出した値

数密度算出方法において相応の妥当性あり

アーク放電温度分布



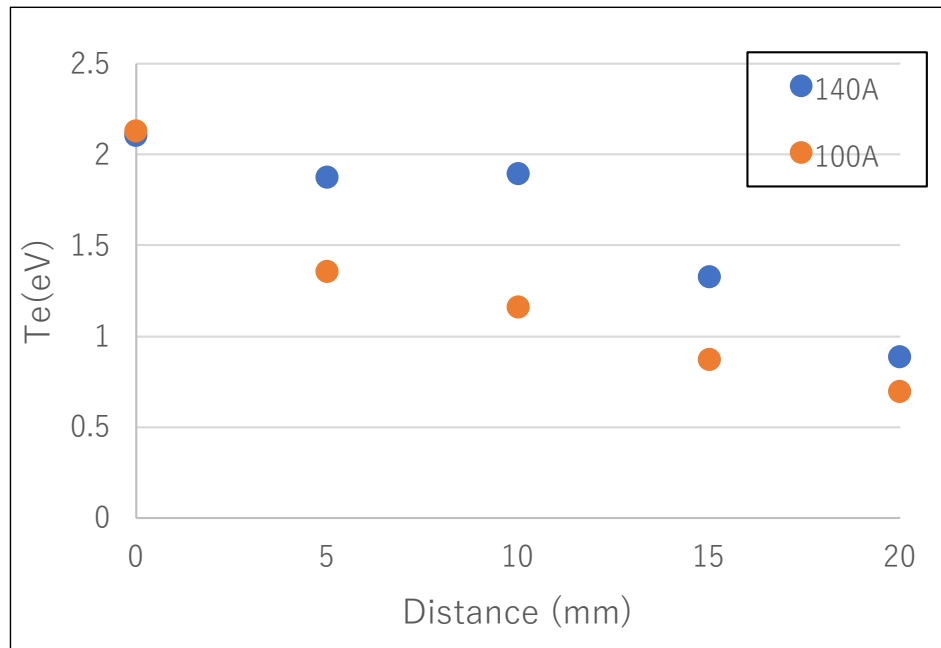
サーモグラフィ (CPA-T500 CHINO)による
気中放電の外観

※上記は気中での画像ですが、実際は水中プラズマの空間分布測定です。

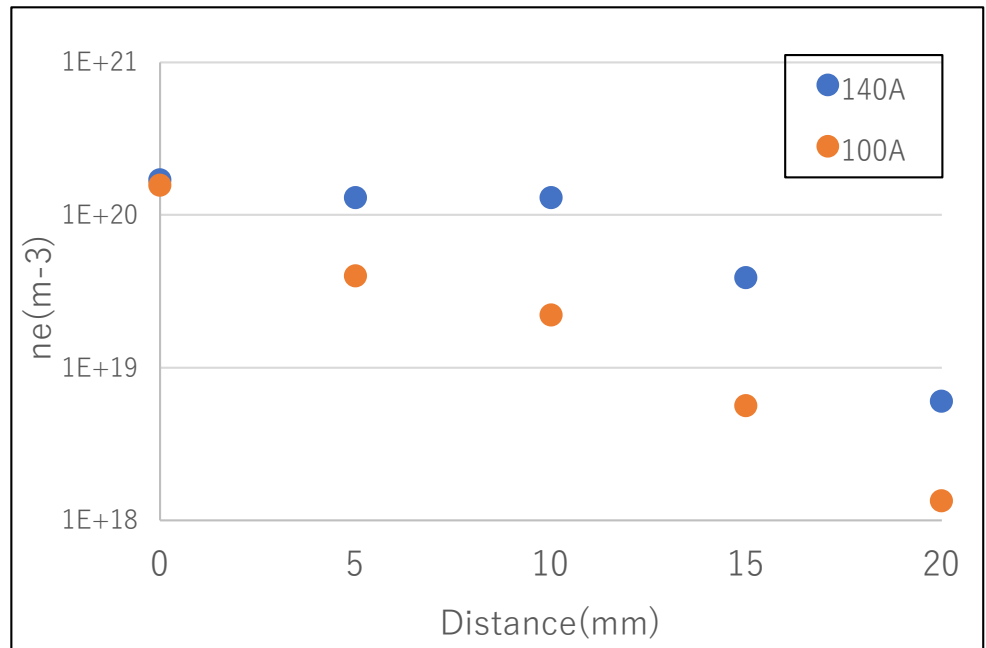
Anode出口を0mmとして下流域20mmまで計測

水中アーク放電プラズマ空間分布

電子温度の距離変化



電子密度の距離変化



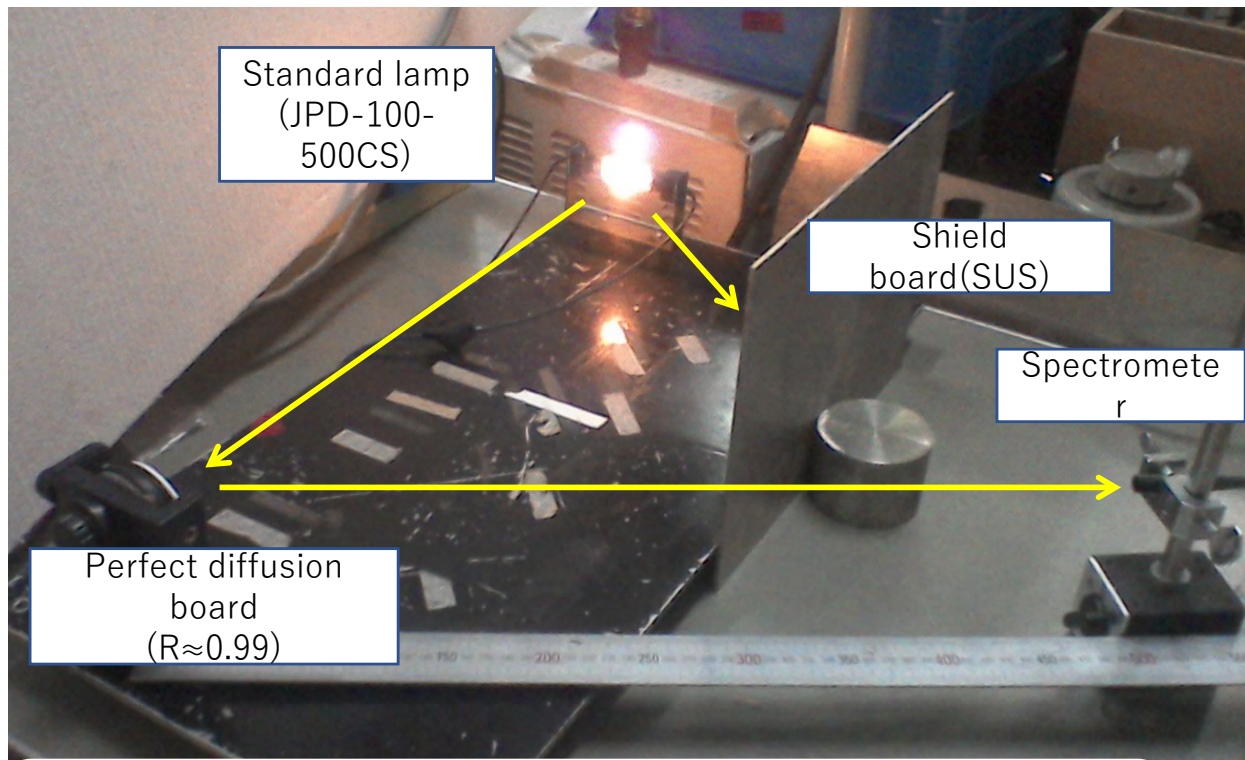
それぞれ連続スペクトルから算出

プラズマ下流域ほど電子温度・密度数が低下

まとめ

- ・ 水中アークプラズマの電子温度・密度の算定手法の精度について確認し相応に一致、特に連続スペクトル法は安定して測定可能。
- ・ アーク放電プラズマの空間分布は以下の範囲
 $0.8\text{eV} < T_e < 2.0\text{eV}, \quad 10^{18} (\text{m}^{-3}) < \text{Ne} < 10^{21} (\text{m}^{-3})$
- ・ プラズマ下流ほど冷却されている
- ・ 電極間電流が高いほど、下流でも電子温度が維持される傾向にある

Calibration Experimental Setting

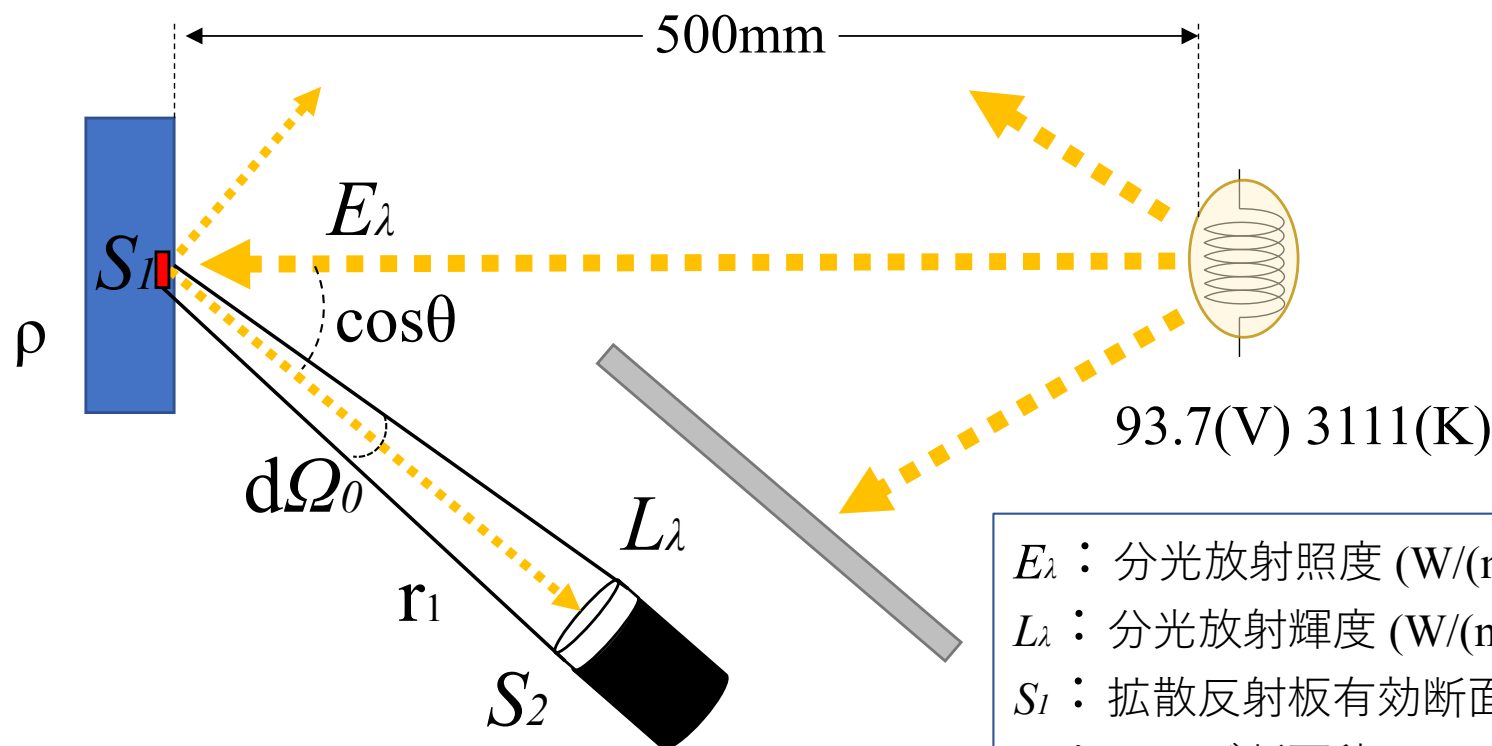


光源と拡散反射板間500mm('04.03校正試験条件)
分光放射照度は当時の値を使用

Distance between the lamp and diffusion board should be exactly 500 mm at calibration condition.

Calibration calculation (1)

分光器の量子効率



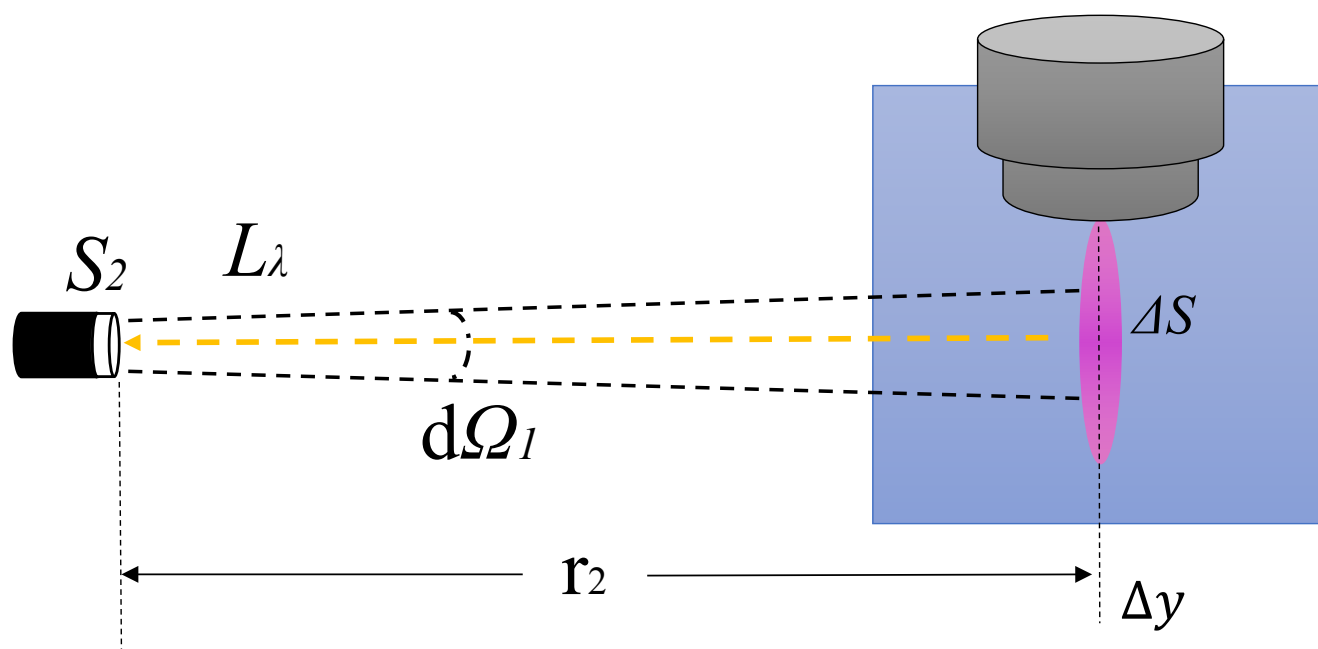
$$\varphi_{\lambda} = \frac{S_1 S_2 \cos \theta \cdot \rho \cdot \lambda}{hc \pi r_1^2} \cdot E_{\lambda} \quad \text{Equivalent to emitted photon number}$$

$$\eta = \frac{y_0}{\varphi_{\lambda}} \quad \text{Sensitivity of spectrometer per photon}$$

E_{λ} : 分光放射照度 ($\text{W}/(\text{m}^2 \cdot \text{nm})$)
 L_{λ} : 分光放射輝度 ($\text{W}/(\text{m}^2 \cdot \text{nm} \cdot \text{sr})$)
 S_1 : 拡散反射板有効断面積 (m^2)
 S_2 : レンズ断面積 (m^2)
 $d\Omega_0$: 測定立体角(sr)
 $\cos\theta$: 軸と分光器の設置角度
 ρ : 反射率
 φ_{λ} : 分光分子数レート ($\text{s}^{-1}\text{nm}^{-1}$)
 y_0 : 分光器のカウント数
 η : 量子効率

Calibration calculation(2)

Emission Coefficient



$$\Phi_\lambda = h\nu \frac{y_1}{\eta}, \quad \Phi = \Delta S \cdot \Delta y \cdot \varepsilon \cdot d\Omega_1$$

$$\varepsilon = \frac{S_1}{\Delta S} \cdot \frac{r_2^2}{r_1^2} \cdot \left(\frac{\cos \theta}{\pi \cdot \Delta y} \right) \cdot \rho \cdot \lambda \cdot \frac{y_1}{y_0} \cdot E_\lambda$$

$$L_\lambda = \frac{\Phi_\lambda}{\Delta S \cdot d\Omega_1} \quad (\varepsilon \Delta y = L_\lambda \lambda)$$

Δy : プラズマ厚さ (m)

$d\Omega_1$: 測定立体角(sr)

Φ_λ : 分光放射束(W/m)

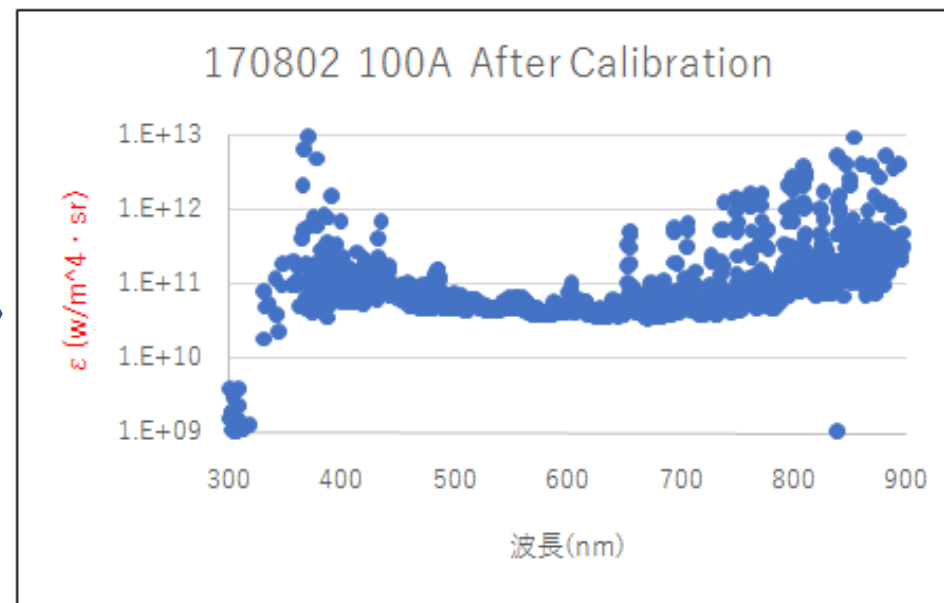
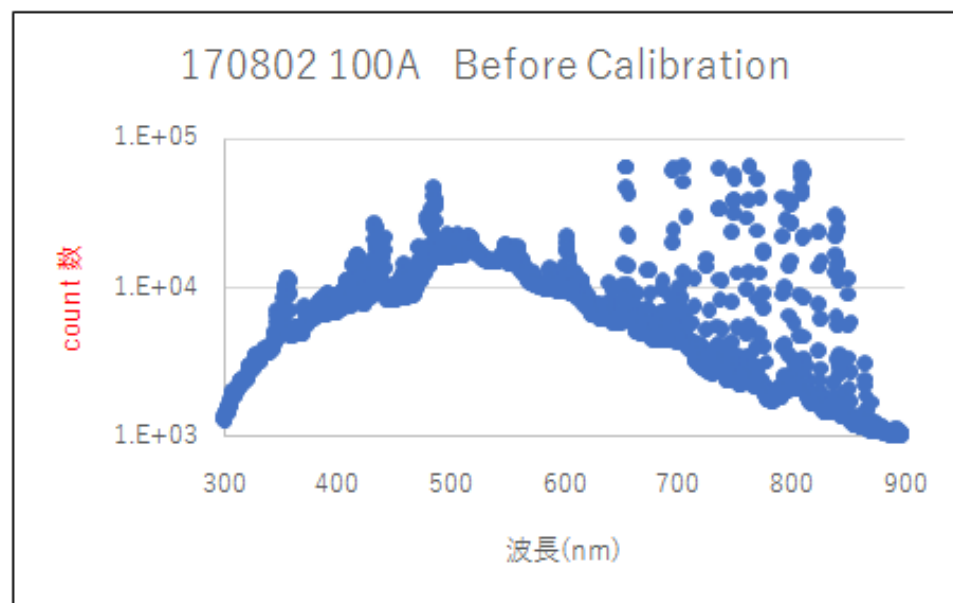
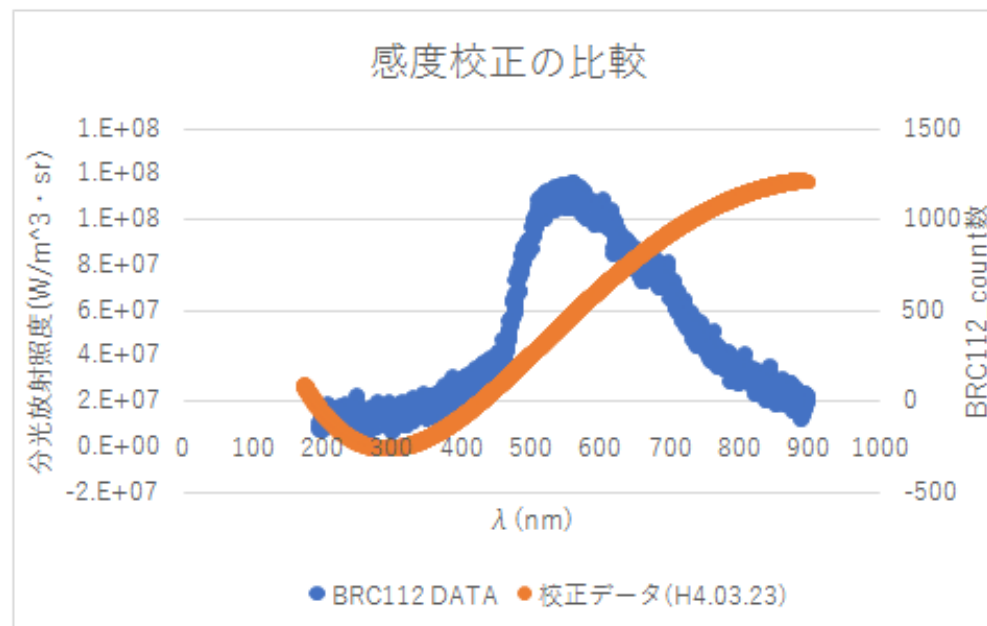
Φ : 放射束(W)

y_1 : プラズマ測定時のカウント数

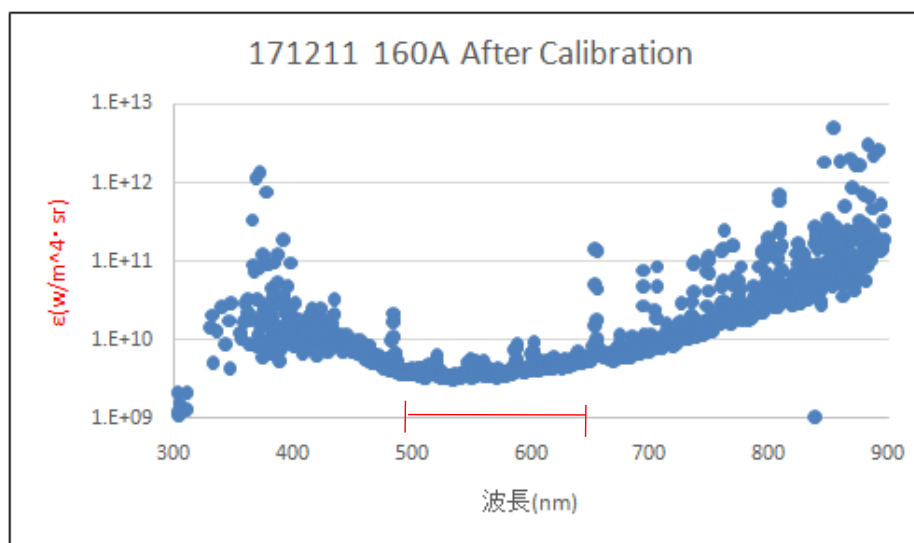
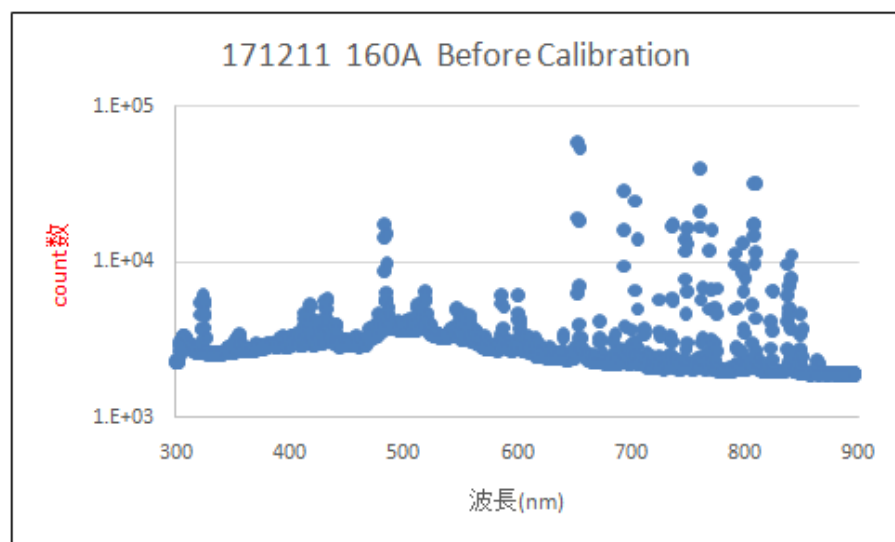
ε : 放出係数 ($\text{W} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{sr}^{-1}$)

L_λ : 分光放射輝度 ($\text{W} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{sr}^{-1}$)

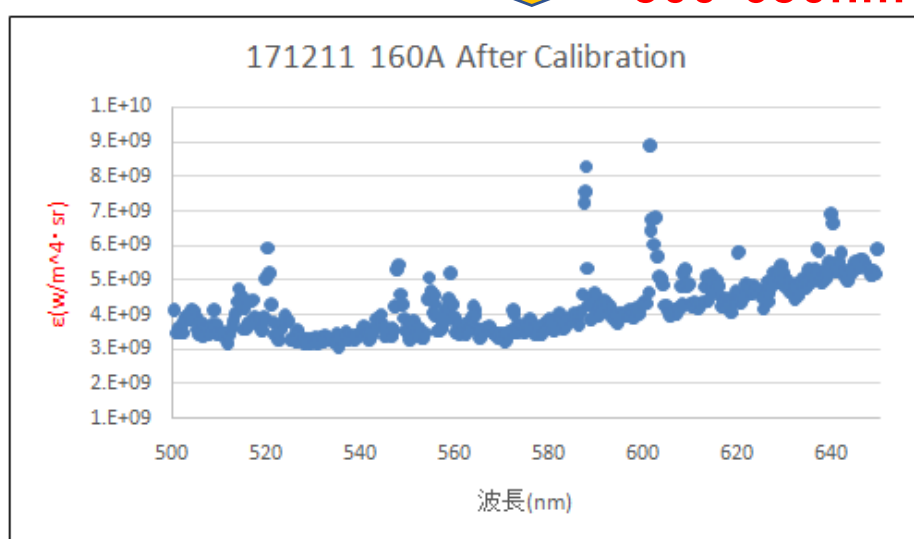
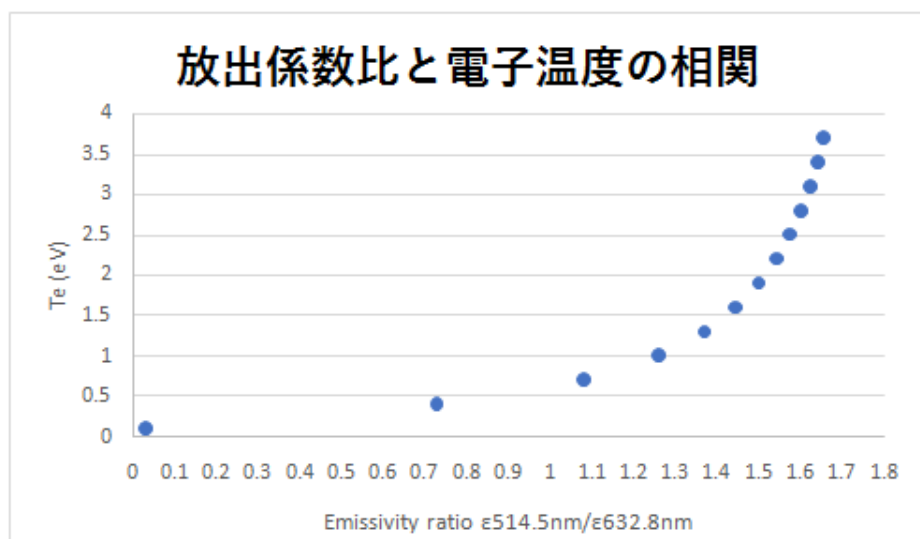
絶対感度校正(1)



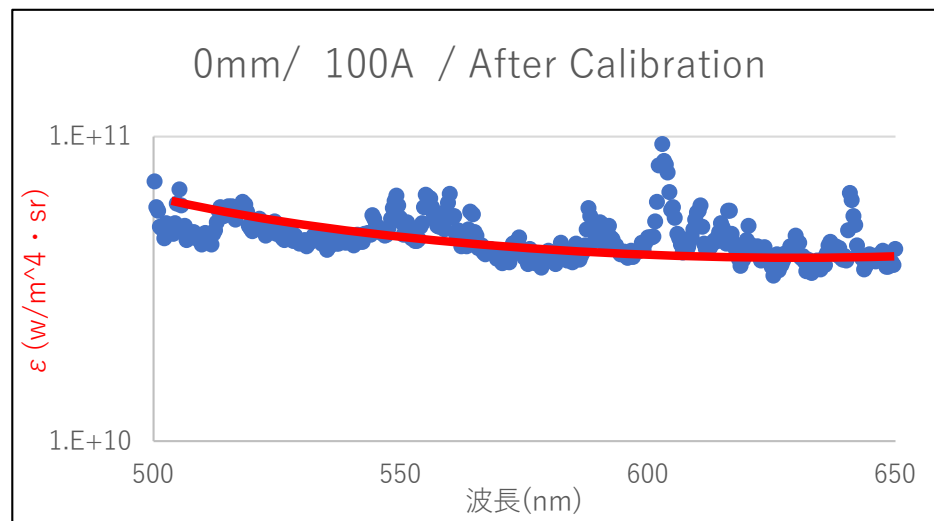
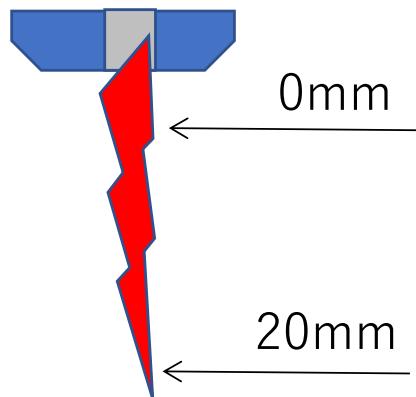
絶対感度校正(2)



500-650nm

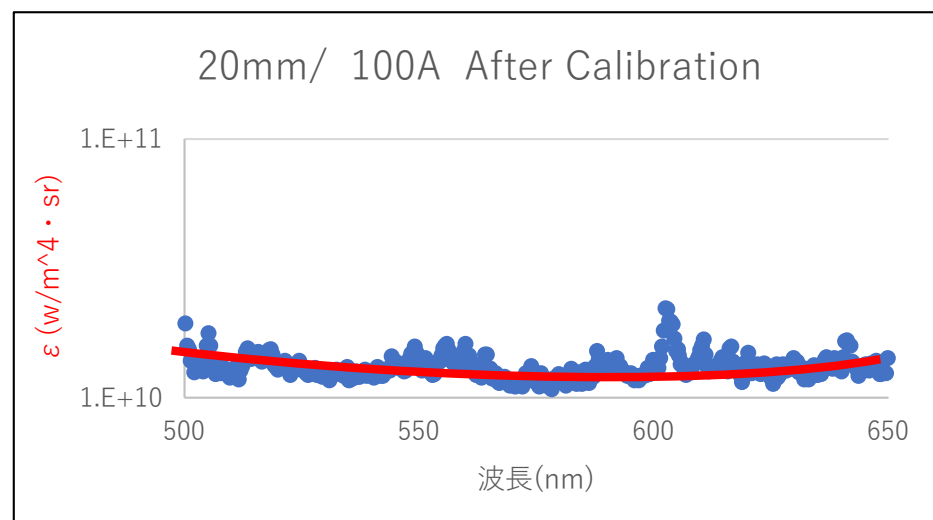


連続スペクトルの距離変化



$$\epsilon_{515} / \epsilon_{633} = 1.57$$

$$T_e = 2.1(eV)$$

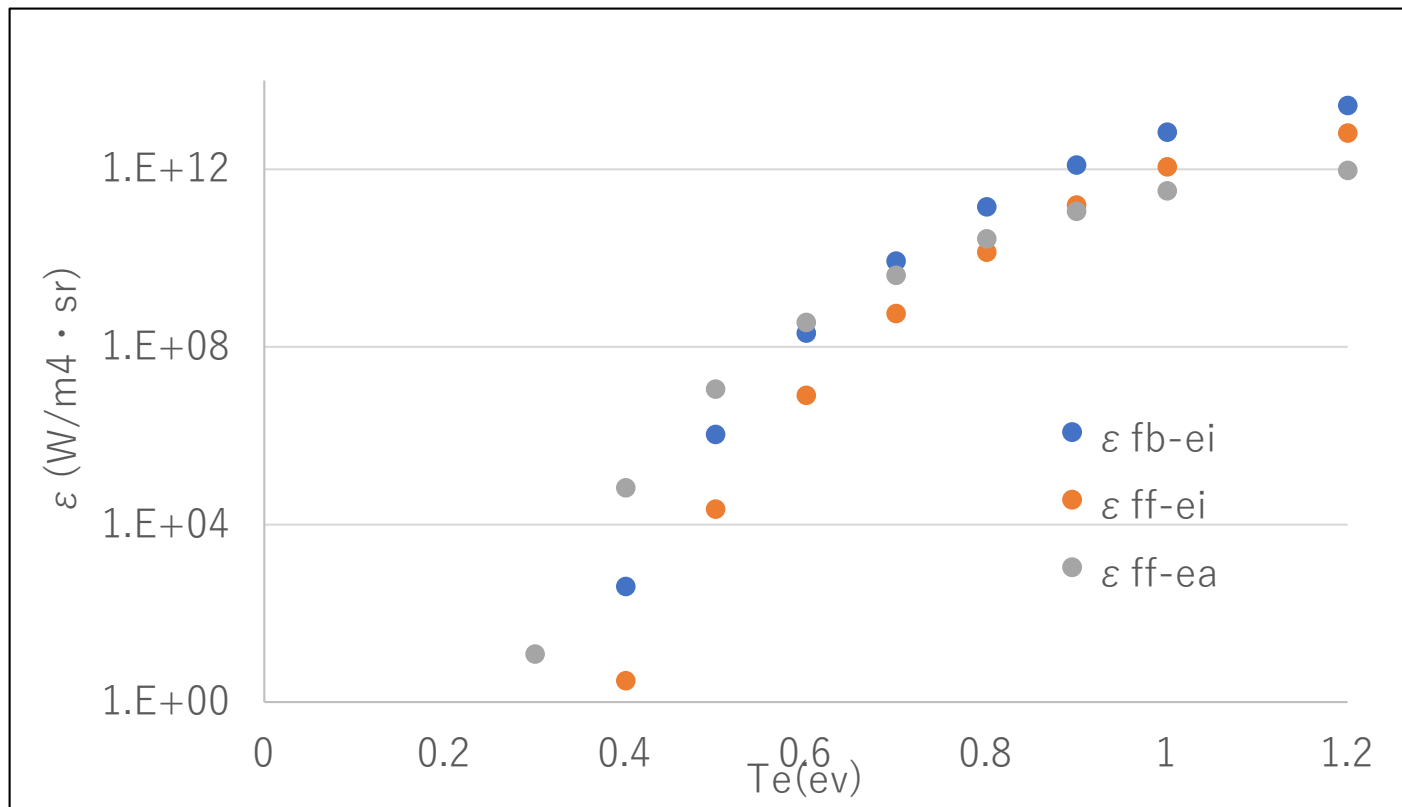


$$\epsilon_{515} / \epsilon_{633} = 1.20$$

$$T_e = 0.8(eV)$$

Three Continuous Emission Coefficient Ratio

Total measured continuous emission coefficient $\varepsilon = \varepsilon_{ia}^{ff} + \varepsilon_{ie}^{ff} + \varepsilon_{ie}^{fb}$



As excitation temperature rises , e-i bremsstrahlung and e-I recombination radiation increases rapidly.