

小型ラマンライダーを用いた放射線分解による水相計測 Compact Raman Lidar Measurement of Liquid and Vapor Phase Water under the Influence of Ionizing Radiation

千葉大学大学院融合科学研究科 ○椎名達雄、
千葉大学環境リモートセンシング研究センター 斎藤隼人、眞子直弘、久世宏明、
日本原子力研究開発機構 羽生敏紀、金山文彦、福嶋峰夫
Graduate School of Advanced Integration Science, Chiba University, °Tatsuo Shiina
CEReS, Chiba University, Hayato Saito, Naohiro Manago, Hiroaki Kuze,
Japan Atomic Energy Agency, Toshinori Hanyu, Fumihiko Kanayama, Mineo Fukushima

Abstract: The compact Raman Lidar is developed for the atmosphere measurement under nuclear environment, in which radiation ionize the water vapor and generate the water-cluster. In this study, the Raman lidar throws the NUV-beam of 349nm and detects the backscattering echoes of water-Raman(396nm) and the water-vapor-Raman(400nm). ^{241}Am of 9MBq was used for the radiation source of Alpha particles. The results showed that the liquid-water-Raman increased and the water-vapor-Raman decreased under the nuclear environment. Its ratio becomes 3 times. It is well coincide with the estimation. The radius of water cluster was estimated 0.2 μm by the experiment.

1. はじめに

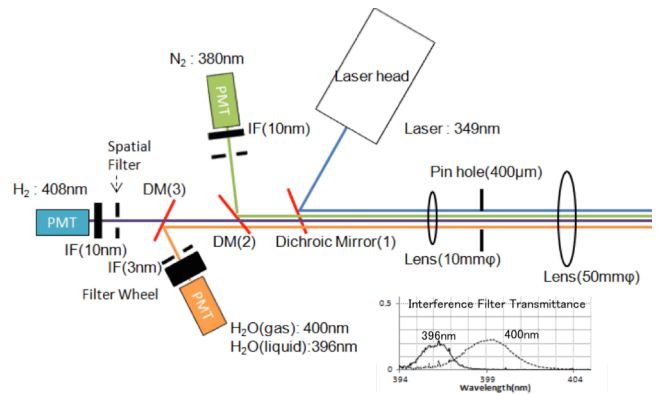
2011年の東日本大震災以降、放射性物質の遠隔分布計測の必要性が高まっている。将来の原子力施設解体作業に伴うダストの飛散状況のモニタリングにおいても、そのニーズは高い。しかし、遠隔での放射性物質の計測手法はガンマカメラに限られ、使用状況にも制限の多いものであった。

本研究では、水素ガス検知用ラマンライダーの発展として光学的遠隔計測手法を利用し、放射性物質の放射線分解の作用による大気電離、ならびにそれによる水相変化を捉えることを考案した。具体的な事象として、放射線分解による大気イオンの上昇に伴って、水蒸気量の減少と水クラスタの生成を予想した。本研究では小型ラマンライダーを用い、放射線環境下での水蒸気ラマンと水ラマンの同時計測によって、放射線分解の水相変化の検知を行った。

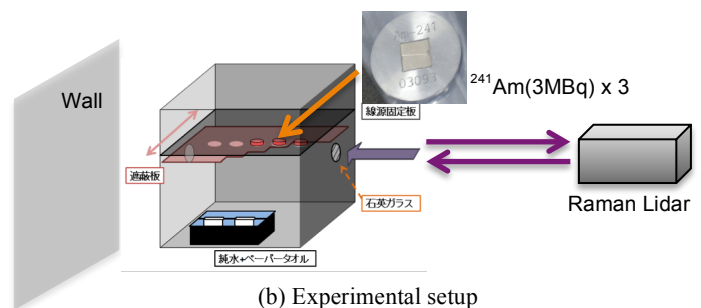
2. 水相計測用小型ラマンライダー

本研究ではこれまでに開発してきた、水素ガス漏洩検知用小型ラマンライダーに水蒸気ラマンならびに水ラマンエコーを計測するためのポートを追加することで、水相計測を行った。ラマンライダーの構成を Fig.1(a)に示す。水ラマン(396nm)と水蒸気ラマン(400nm)の測定は透過スペクトル幅 3nm の干渉フィルタを切り替えて計測した。各ラマン光の計測はPMTを介して、ホトカウンティング法によって行った。ここで、水ラマンはスペクトル幅が広がりを持ち、4nm離れた水蒸気ラマンの出力にも検出されることを確認し、その補正を考慮した。具体的補正として、396nmの水ラマン計測値1に対し、400nmの水蒸気0.9が出力されることを考慮して水蒸気測定値を補正した。

放射線源にはアメリシウム(^{241}Am)を用いた。放射能は3MBq、線量は50 $\mu\text{Sv/h}$ の線源を3つ使用した。放射線分解による相互作用を確認するため、線源をチャンバに入れ、その雰囲気を加湿した。Fig.1(b)に加湿型放射線源チャンバの概要を示す。バットに入れた純水をペーパータオルで吸い上げ、加湿した。加湿によるチャンバ内湿度は90%に達した。ラマンライダーは視野重なりを考慮して、12m前方からレーザー光を射出し、チャンバ内に導入した。今回は放射線源の1.5cm下にビームを通すことで、短距離で多くのエネルギーを散失する α 線の電離作用に起因する水クラスタ生成による水および水蒸気ラマン散乱の強度変化を測定した。



(a) Improved compact Raman lidar



(b) Experimental setup

Fig.1 Raman lidar for water phase measurement.

3. 水相変化の測定結果と考察

実験は放射線源(Am:3MBq x 3)をレーザー光に近づけた場合と遮蔽した場合との比較を行った。結果を Fig.2 に示す。カウント値の評価では大気エコーを背景光としてカットし、パルス幅を考慮した2点間平均を用いた。また、水ラマンエコーの水蒸気出力への影響を補正した。湿度 90%で、放射線源 9MBq を挿入した場合、水ラマン(396nm)では 16%のカウント値増加、ならびに水蒸気ラマン(400nm)では 5%のカウント値減少となった。水ラマンと水蒸気ラマンエコーの変化の比は 3.3 倍であった。実験では湿度を変えて実験し、また、ミストを発生させた環境で実験を行い、同様の結果を得ている。

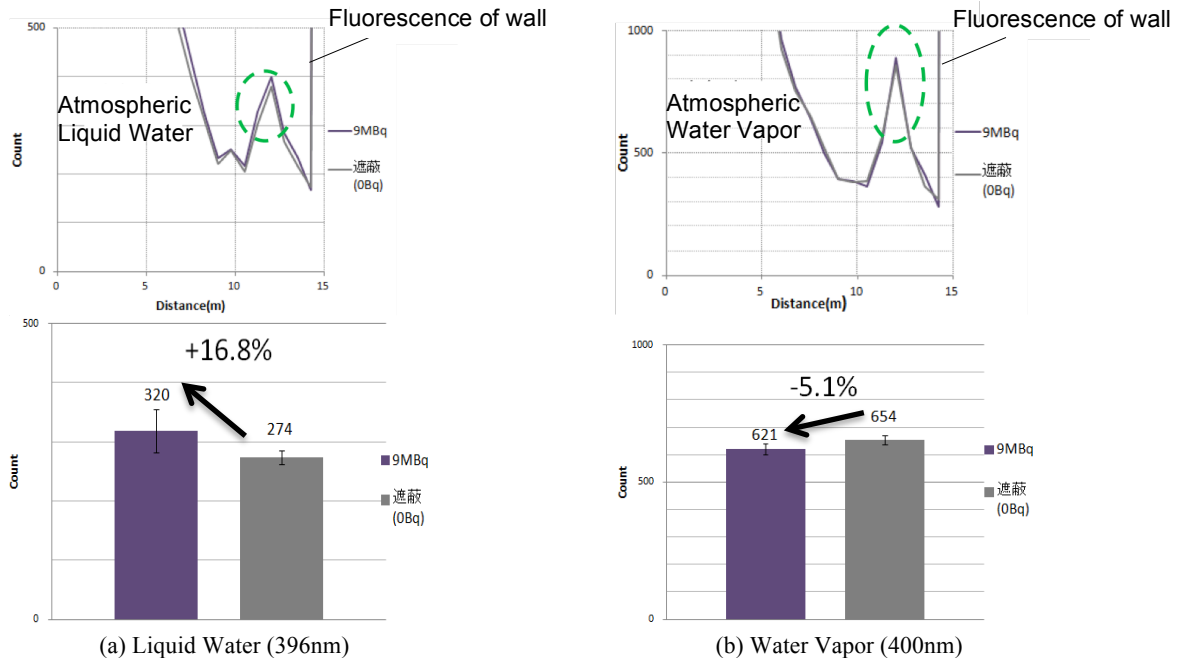


Fig.2 Water phase measurement.

測定観測結果について考察した。水ラマン(396nm)のカウント値増加は、水クラスターの生成によるものと仮定すると、水蒸気ラマン(400nm)のカウント値減少は、放射線分解によって水蒸気がイオン化した作用を反映したものと考えられる。ライダーのラマン散乱光計測は、カウントされる光子数 N として次式で表される。

$$N(R) = n \cdot l \cdot s \cdot \frac{A_r}{R^2} \cdot P(r) \cdot f / \frac{hc}{\lambda} \quad (1)$$

ここで、 n : 対象の数密度, s : 対象の微分散乱断面積, l : 光路長, A_r : 受信望遠鏡開口面積, R : 望遠鏡から対象までの距離, $P(R)$: レーザー強度, f : レーザー周波数, λ : レーザー波長, h : プランク定数, c : 光速である。水ラマンおよび水蒸気ラマンの散乱断面積はそれぞれ、 $5.6 \times 10^{-29} \text{ cm}^2 / \text{sr}$ 、 $2.0 \times 10^{-29} \text{ cm}^2 / \text{sr}$ である。[2][3] 実質的にカウントされる光子数はこの散乱断面積に依存する。つまり、水ラマンと水蒸気ラマンのカウントされる光子数の比はそれぞれの散乱断面積の比になり、実験の結果として得た水蒸気ラマンのカウント値の減少率と水ラマンのカウント値の増加率の比がおおよそ3倍になったことはこの結果を裏付けている。放射線分解の作用により、水蒸気がイオン化し、水クラスターが生成されたことをライダーの測定実験で検証できたことを意味している。次に生成した水クラスター中の水分子が等しくラマン散乱に寄与すると仮定して水クラスターの半径 r を求めた。

$$\frac{4}{3} \pi r^3 = \frac{M}{N_A} \cdot n \quad (2)$$

ここで、水の分子量 M 、アボガドロ数 N_A である。 n は倍率で、先の実験による結果(3.3 倍)を代入して、半径 $0.2 \mu\text{m}$ と算出された。水蒸気 (一般に 1nm 径) と比べて十分に大きく、水クラスターとして水ラマン散乱光を発生させるのに妥当な大きさであると考えている。今後、放射線量の変化、湿度の変化に伴う定量的な計測を行って行く予定である。

参考文献

- [1] 千明倫之他、第 32 回レーザーセンシングシンポジウム、pp.42-43, 2014.
- [2] D. Turner and D. Whiteman Eds., *Handbook of Vibrational Spectroscopy*, Chichester, Wiley & Sons(2002)
- [3] B. Li and A. Myers, *J. Phys. Chem.* 94, pp.4051-4054(1990)