

放射線検知のための水・水蒸気ラマン信号の解析

武藤 史高¹, 岡田 尚², 三枝 純², 椎名 達雄¹

¹千葉大学 (〒263-8522 千葉県千葉市稲毛区弥生町 1-33)

²日本原子力研究開発機構 (〒319-1194 茨城県那珂郡東海村村松 4-33)

Analysis of water and water vapor Raman signals for radiation detection

Fumitaka MUTO¹, Takashi OKADA², Jun SAEGUSA², and Tatsuo SHIINA¹

¹Chiba Univ., 1-33 Yayoi-cho, Inage-ku, Chiba-shi, Chiba 263-8522

²Japan Atomic Energy Agency, 4-33 Muramatsu, Toukai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1194

Abstract: Remote sensing of radioactivity concentrations is important for decommissioning works at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station, Japan. In this study, we explore the potential of Raman lidar measurements of aerosol hydrates resulting from the ionizing effects of radiations. Preliminary experiments were conducted by injecting water particles into a cubic glass chamber. Raman signals from water and water vapor, 403.7 nm and 407.8 nm, respectively, were observed for an incident light of 355 nm. It was confirmed that water Raman has a wider spectral width than water vapor. From these results, we developed a three-channel Raman lidar with narrow band pass filters with band width of 1.5 nm. Raman lidar measurements are conducted in the humidity controlled environment using sealed Americium radiation sources at the Japan Atomic Energy Agency. Overall, we observed decrease in water vapor signal and increase in water signal as the radioactivity increased.

Key Words: Raman LIDAR, Water cluster, Water vapor, radiation, Fukushima

1. はじめに

放射性物質の測定方法は、検出器を放射性物質に近づけて放出される α 線、 β 線、 γ 線、中性子の放射線測定法が主流であるが、 β 核種や γ 核種が多く共存する高線量下では、これらのノイズに埋もれ α 核種の測定は非常に困難である。種々の核種で汚染された福島第一原子力発電所の廃炉作業においても、 α 核種の性状把握は重要であり、試料から α 核種のみを化学分離して放射線測定をしなければならない。これには高線量・高汚染の環境に対処する防護措置を施した採取作業や化学分離作業を伴い多大な労力を要する。このため α 汚染を合理的に計測できる遠隔計測技術が望まれている。そこで本研究では α 線の計測に、ラマンライダーを用いた遠隔計測法を検討している。 α 線の大気電離によって生成されるエアロゾルは主に水和物の形態をとり、これは大気中の水蒸気の水クラスタを生成したものと想定される¹。すなわち α 核種が存在する周囲では、水蒸気と水クラスタ生成の変化が生じている。先行研究では湿度を制御したチャンバ内に放射線源を配置して遠隔 5m からラマンライダー計測を行った。放射線源近傍 1.5cm にパルスエネルギー 60 μ J の Nd:YLF レーザ (Spectra-Physics, ICT-349-120-CDOH) を照射し、5 分間の積算で水蒸気量の減少と水クラスタの生成の変化を検知した²。本研究ではレーザ出力を上げ、感度の向上・測定時間の短縮を試みる。

2. 水粒子量とラマン散乱光の定量性評価の基礎実験

基礎実験として水と水蒸気のラマン散乱光計測を行った。Table 1 に入射光 355nm に対する水・水蒸気ラマン散乱波長を示す。また水粒子量に対して水・水蒸気のラマン散乱光の強度がどのように変化するかを調べた。Fig.1 に水粒子量とラマン散乱光の定量性評価の実験装置を示す。1 辺 30cm の立方体ガラスチャンバ内に水粒子を流入させ、波長 355nm、出力 60mJ の Nd:YAG パルスレーザ (Continuum, Surelite I) を照射した。流入させた水粒子の量は He-Ne レーザと Photodiode を用いて透過率を求め、その値をチャンバ内水粒子の量の指標とした。分光器はラマン断面積が最大となる入射光の光軸に対して 90 度の方向に設置し、検出器には ICCD カメラ (Roper Scientific, PI-MAX 512RB-SG-43) を用いた。測定は 0.1~0.9 の 9 つの透過率においてそれぞれ 0.9 秒積算で行い、水・水蒸気ラマン散乱光の強度を調べた。Fig.2 に各透過率において 400~410nm でブロードなピークを持つ水ラマン、407.8nm で水蒸気ラマン散乱光を計測した結果を示す。水蒸気ラマンに比べて水ラマンのスペクトル幅が広いのは、液体

の水は水素結合と分子間相互作用が強く動的な変化が大きいためである³。また各カーブの色はそれぞれの透過率に依存し、透過率が小さい、すなわち水蒸気量が多いほどラマン散乱光の強度が大きいことが分かる。Fig.3 に各透過率における水・水蒸気ラマン信号強度の対数プロットを示す。透過率の減少に伴いラマン散乱光の強度は指数関数的に増加していることが確認でき、これはランベルト・ベールの法則に則っている⁴。Fig.4 に透過率に対して水・水蒸気ラマンの強度比をプロットした結果を示す。透過率 0.3~0.7 までは横ばいになり、他の透過率ではその傾向から外れる。ランベルト・ベールの法則より数密度 N と吸光断面積 σ と光路長 L を用いて比は以下の式でかける。

$$Ratio = \exp(N_v \sigma_v L - N_w \sigma_w L) \quad (1)$$

式(1)より、透過率の小さいところは水粒子が多いため比は小さくなり、透過率の大きい所では水粒子が減って相対的に湿度が大きいためだと考えられる。水粒子の量に対して水・水蒸気ラマンが指数関数的に変化することから放射線の電離効果による水蒸気と水クラスタ生成の変化を見ることができる。

Table 1 Raman scattering wavelength at 355 nm⁵

Molecule	Raman shift	Wavelength
Water	3400 /cm	403.7 nm
Water Vapor	3652 /cm	407.8 nm

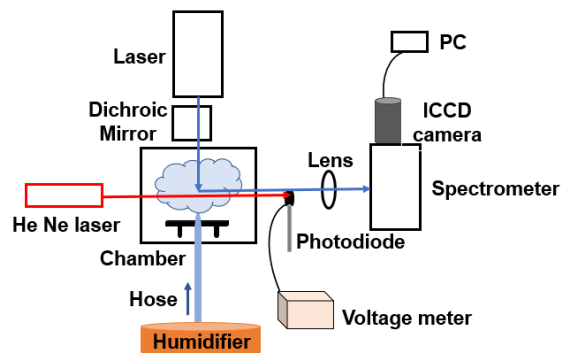


Fig.1 Experimental equipment for quantitative evaluation of water particle amount and Raman signal

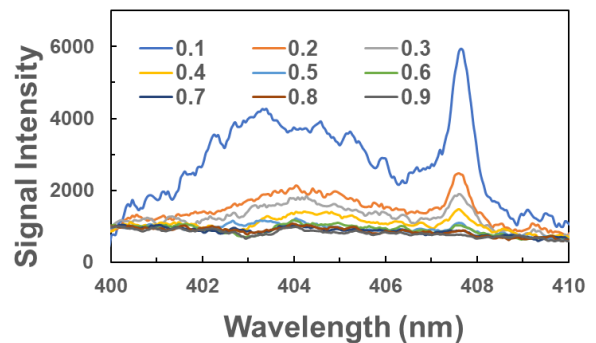


Fig.2 Raman measurement results for each transmittance

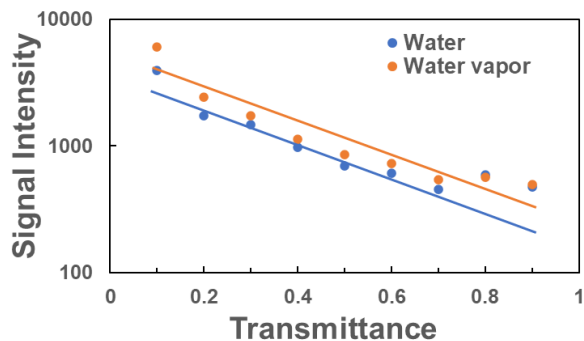


Fig.3 Logarithmic plot of signal intensity

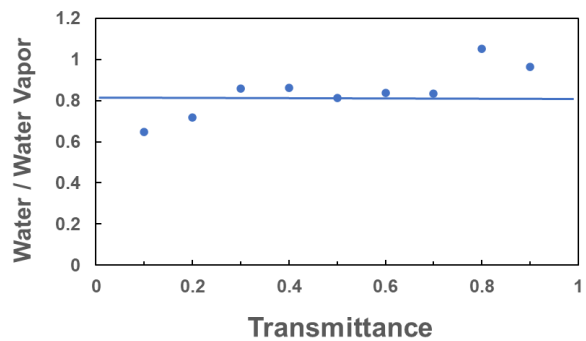


Fig.4 Transmittance and signal intensity ratio

3. ラマンライダーの開発と放射線計測

基礎実験を踏まえて開発した大きさ 600mm×450mm×250mm, 窒素・水・水蒸気の3チャンネル小型ラマンライダーを Fig.5 に示す. また送信部と受信部の仕様を Table 2,3 に示す. レーザはパルスエネルギー30mJ の Nd:YAG パルスレーザー (LOTIS TII, LS-2131M) を使用した. 送受信同一で後方散乱のラマン光を受光するため, 感度を補うために受光部には PMT (HAMAMATSU, H6780 (窒素), H6780-03(水,水蒸気)) を用いた. また水と水蒸気のラマン散乱光の干渉を軽減するために, 帯域幅 1.5nm の波長幅の干渉フィルタを選択した. 窒素チャンネルは濃度正規化のために用いる. Fig.6 に放射線計測の実験装置を示す. 湿度制御装置を使用してチャンバ内の湿度を制御し, Am-241 の密封線源を配置した. 線源 1 つあたりの放射能は 3MBq であり, 線源は 3 つ使用した. 遠隔 5m から放射線近傍 1.5cm にレーザを照射し, 水と水蒸気の後方散乱のラマン光を受光した. 測定は 0MBq, 3MBq, 6MBq, 9MBq の 4 つの放射能で行い, 線源をダミーで置き換えた場合の計 8 つの条件を各 3 データずつ 13 秒の平均を測定した.

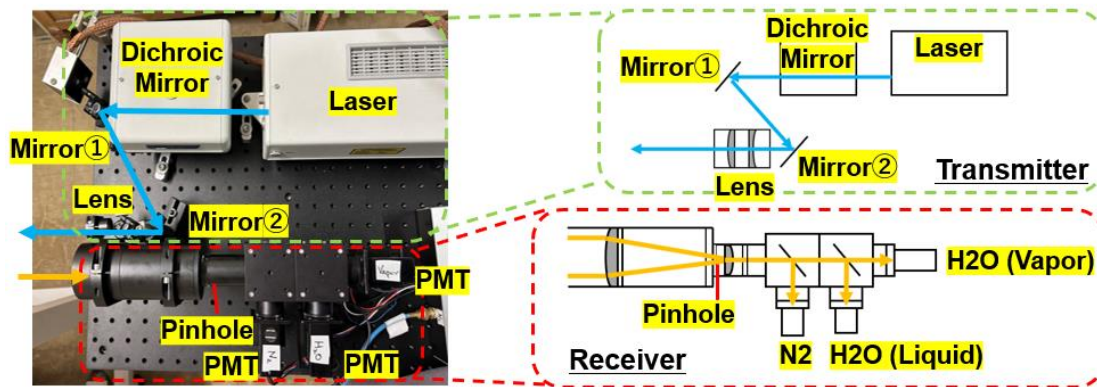


Fig.5 Developed Raman lidar

Table 2 Specifications of transmitting system

Laser	Lotis TII Nd:YAG laser LS-2131M-10
Center Wavelength	355 nm
Pulse energy	30 mJ
Pulse width	7~9 ns
Repetition Rate	10 Hz

Table 3 Specifications of light receiving system

Detector (N2 / H2O,Vapor)	Hamamatsu PMT (H6780 / H6780-3)
Wavelength range	300~650 nm / 185~650 nm
Peak sensitivity wavelength	420 nm
Effective area	8 mmφ

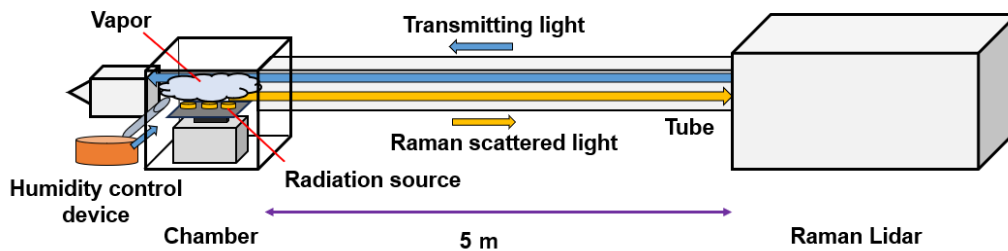


Fig.6 Experimental equipment for radiation measurement

Fig.7に放射能度の違いによる水と水蒸気ラマンの増減の結果を示す。3データを平均化して信号を積算した。次に大気中の窒素ラマンで水・水蒸気信号を正規化し、チャンバ内の絶対湿度で水蒸気信号の正規化を行った。その後線源からダミーの結果を差し引いた。また広いスペクトル幅を持つ水ラマンは水蒸気チャンネルに寄与してしまうため、その補正も行った。測定結果から放射能度を大きくするに伴い、水の増加傾向と水蒸気の減少傾向を確認した。これは α 線の大気電離によって大気中の水蒸気が水クラスタを生成するという原理と符合する。また今回の結果では水蒸気の減少率に対して水がその1.5倍の増加率を示した一方で、先行研究では水の減少に対して3.3倍の増加率を示していた。光子数から求めた水ラマンと水蒸気ラマンの変化率は2.8倍であり、今後は実験と理論の両面で水と水蒸気の変化率を評価することに加え、測定再現性の向上、水クラスタ径の試算を行う。

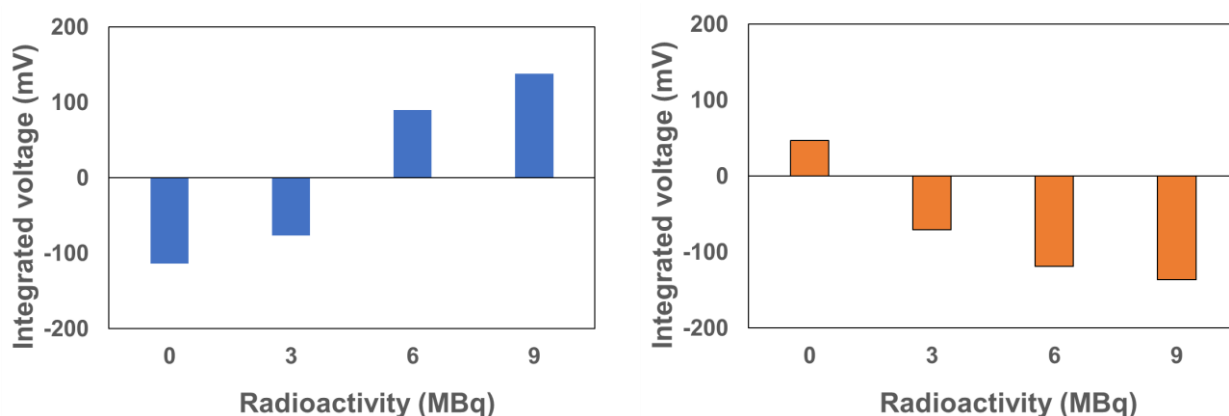


Fig.7 Changes in Raman signals due to ionizing effects of radiation (left), water particles (right), water vapor

4. まとめ

α 汚染の遠隔計測技術として、本研究ではラマンライダーを用いて α 線の大気電離により生成されるエアロゾル水和物における水蒸気と水クラスタ生成の変化から放射線検知を試みた。基礎実験として水粒子量とラマン散乱光の定量性の評価を行い、水粒子の量に対して水・水蒸気ラマンが指数関数的に変化することを確認した。また透過率に対して水と水蒸気ラマンの強度比をプロットすると透過率0.3~0.7では比は一定であり、電離効果による水蒸気と水クラスタ生成の変化を見れることを確認した。また水ラマンは水蒸気ラマンに比べて広いスペクトル幅を持つことを確認したことから、水と水蒸気のラマン散乱光の干渉を軽減するために、帯域幅1.5nmの波長幅の干渉フィルタを用いたラマンライダーを開発した。開発したラマンライダーを用いて日本原子力研究開発機構にてAm-241の密封線源を用いた放射線計測を行い、水蒸気の減少傾向と水の増加傾向を確認した。今後は実験と理論の両面から水と水蒸気の変化率の評価を検討している。

参考文献

- 1) 渡辺 一夫, 稲葉次郎: 放射線と人体 くらしの中の放射線 (研成社, 1999) p.13.
- 2) 千明 倫之: 第33回レーザセンシングシンポジウム (2025) p.146-147.
- 3) Walrafen, G.E: Journal of Chemical Physics Vol.40, No.11(1964) p.3249-3256.
- 4) 高橋 文穂, 平尾 邦雄, 伊藤富造: 東京大学宇宙航空研究所報告 **15** (1979) p.97-106.
- 5) Sun-Ho Park: Journal of the Optical Society of Korea Vol.14, No.3.(2010) p.209-214.