

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。

入手の問合わせは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課 (〒319-1195 茨城県那珂 郡束海村)あて、お申し越しください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料セン ター (〒319-1195 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内)で複写による実費頒布をお こなっております。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Research Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, 319-1195, Japan.

> (C) Japan Atomic Energy Research Institute, 2000編集兼発行 日本原子力研究所

JAERI-Research 99-073

リモートモニタリング技術の開発 - 高繰り返しレーザーによるヨウ素の検出特性 -

日本原子力研究所東海研究所環境科学研究部 丸山庸一郎・加藤 政明・大図 章・馬場 恒孝

(1999年12月7日受理)

レーザーを使って大気中を時々刻々拡散する極微量有害物質のその場測定が可能 なリモート(遠隔)モニタリング技術開発の第一段階として、原子力施設の事故で 問題となることの多いヨウ素を取り上げ、その検出予備実験を高繰り返し波長可変 レーザーを用いて行った。実験では、波長可変レーザー光をレーザー装置から15m 先のヨウ素に照射し、その時の蛍光スペクトル、励起特性、検出感度特性などを測 定した。高繰り返しレーザーを利用することでS/Nは改善され、数秒のレーザー照 射で精度の高いデータを得ることができた。さらに実験結果を基に、ヨウ素が1km 先にある場合を仮定して簡単な評価を行った。この結果、本モニタリング手法によ りサブppbの濃度のヨウ素検出の目途が得られた。

東海研究所: 〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根2-4

JAERI-Research 99-073

Development of In-situ Remote Monitoring Technique - Detection of Iodine with the use of High Repetition Rate Tunable Laser -

Yoichiro MARUYAMA, Masaaki KATO, Akira OZU and Tsunetaka BANBA

Department of Environmental Sciences Tokai Research Establishment Japan Atomic Energy Research Institute Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received December 7, 1999)

For the development of advanced laser remote monitoring technique which detects very trace impurities diffusing in atmosphere within very short time, a preliminary study has been carried out using iodine and a high repetition rate wavelength tunable laser. In this experiment, iodine placed at 15 m from the laser is irradiated by the high repetition rate tunable laser light and excitation and detection characteristics are studied. By using the high repetition rate laser, signal to noise ratio (S/N) is improved, and within a few seconds, data with high accuracy are obtained. Based on these experimental data, a simple calculation is carried to evaluate detection limitation of the method. As the result, it can be shown that it will be possible to detect iodine with the concentration of sub-ppb with this technique.

Keywords : Iodine, Tunable Laser, Lidar, Remote Monitoring

 $\overline{\Xi}$

次

Contents

 $\sim 10^{-1}$

 \mathbf{r}

 \mathcal{A}^{\pm}

1. はじめに

技術の進展に伴い大気中の有害物質は増加の一途を辿り、次世代に大きな影響を与える 恐れが指摘されている。大気中のこれら不純物の拡散挙動、濃度等のデータを継続的に測 定・蓄積することは大気環境の保全並びに今後人類が継続して安全に生存していく上で必 要不可欠である。また、工場などから不測の事態によって有害物質が大気中に放出された 場合、その濃度、拡散方向、拡散物質の種類などのデータは周辺住民の適切な避難誘導の 観点から極めて重要である。一方、放射性物質に対しては、その環境及び人体への影響の 大きさから原子力の開発当初より施設周辺への固定放射線測定局の設置、移動測定車によ る環境放射線の測定などが行われている。さらに、緊急時には航空機などを利用して大気 中を拡散している放射性物質の測定も行われているが、いずれも拡散物質の捕集から分析 までにかなりの時間を必要とし、迅速な測定・データの提供は困難である。

このように、従来のモニタリング手法は、(1) 時々刻々拡散移動する微量物質の測定は 困難である、(2)サンプリングから分析を完了するまでにかなりの時間を要する、(3) オン ラインで安全な場所(遠隔)からの測定ができない、などの問題を有している。

また、大気に放出された不純物はシミュレーションにより拡散挙動を予測することが可 能になっている。しかし、その予測精度は大気データに大きく依存する。特に、局所的な シミュレーションではその予測精度は風向、風速等の入力データの精度が重要である。

これらの課題を解決する手法の一つとしてレーザーを使ったリモートセンシング技術 (ライダー技術)がある。この技術の研究は、レーザーの発明以前から通常光を使って行 われているが、レーザーの発明以後各所で研究開発が行われている。しかし、この技術 は、これまでレーザーの発振繰り返し数が遅い、レーザーの発振効率が低く大きな電力が 必要など技術上の問題から極めて限定された測定にしか利用されてこなかった。このライ ダー技術を髙度化し、一般的な測定技術として確立することによって、上述した課題が解 決できると考えられる。

このため、原研ではレーザーを利用した極微量物質の遠隔・オンラインモニタリング技 術を確立してその実用化に必要なデータを取得するための技術開発を進めている。この技 術開発は、

(1)高繰り返し波長可変レーザーを利用したS/Nの改善による測定精度の向上、 (2)時々刻々変化する拡散状況を把握するため秒オーダーでの測定技術の確立、

(3)モニタリング機器のコンパクト化による一般的な測定機器としての確立、

(4)多種の大気拡散物質の同時測定技術の開発、

などを目的としている。

ここでは原子力施設の事故で問題となることの多いヨウ素を取り上げ、蛍光法による検 出予備実験を髙繰り返し波長可変レーザーを使って実施し、このデータを基に本法の検出 限界を試算したので報告する。

2. 実験装置

予備実験装置の構成をFig.1に示す。実験装置は測定用レーザー、ヨウ素を封入したガ ラスセル及び蛍光検出系より構成される。測定用レーザーは、ポンプレーザー、波長可変 (色素)レーザー及び色素循環装置より構成され、発振繰り返し数は最大5kHzである。 ポンプレーザーは緑色光で発振し、これによって波長可変レーザーを駆動する。波長可変 レーザーの周波数幅は約10GHzで、その発振周波数はグレーティングによって制御す る。波長可変レーザー光のパルス幅は約100nsである。波長可変レーザーを出たレーザー 光は、ヨウ素を均一な強度で照射するため、拡大率5倍のビーム拡大器で拡大する。拡大 されたレーザー光は測定用レーザーから12mの位置に設置されているヨウ素を封入した ガラスセルへ伝送され、中のヨウ素を励起する。セル中のヨウ素の照射体積(励起ヨウ素

Fig.1 Experimental set-up for the measurement of Iodine fluorescence

個数)はセルの入り口及び側面のスリットを用いて発光体積を調節することによって行 う。セルを出たレーザー光はビームダンプで吸収される。セル内のヨウ素はレーザー光を 吸収して基底状態からあるエネルギー状態へ励起される。この励起されたヨウ素は決まっ た寿命で蛍光を発っして低いエネルギー状態へ遷移する。この時の蛍光をセルから約 15mの位置に設置した望遠鏡で集光する。望遠鏡の有効口径は200mm、f=10である。望 遠鏡で集光された光には蛍光の他に、レーザー光や蛍光灯の光も入っているため、これを 光ファイバーで分光器まで伝送し、分光する。この分光した蛍光を光電子増倍管で増幅 し、その波形をデジタルオシロスコープで測定する。光電子増倍管は浜松フォトニクス製 のR1894で、波長感度領域300nm~850nm、立ち上がり時間は0.8ns、最大増幅利得は 4x105である。光電子増倍管の印加電圧は-800~-1400Vの間で変化させる。

3. 実験結果

3. 1 色素レーザーの特性

Fig.2はヨウ素ヤルの位置で測定した波長可変レーザー光の強度分布である。レーザー 光は、10mの大気中伝播後も位置安定性が高く、またその強度分布はレーザー装置出口 直後と同じスムーズな近ガウシアンとなっており、長距離伝播に適したプロファイルであ る。レーザービーム強度分布の揺らぎ、即ち出力変動、は信号強度に比例する雑音となっ て現れるが、ポンプレーザーの出力安定性が約2%と高く、これに伴って波長可変レーザ ーの出力も安定していることから本測定ではレーザーに起因する雑音は小さい。

Fig. 2 Dye laser beam profile measured at distance of 12m from the laser

Fig.3 Fluorescence spectrum of Iodine at the wavelength between 580 nm and 620 nm

3. 2 蛍光スペクトル

Fig.3にヨウ素を波長585nmの波長可変レーザー光で励起した場合の蛍光スペクトルを 示す。図より580nmから900nmの波長域に比較的強度の高い蛍光が観測される。図はそ の中でも強度の強いスペクトルが観測される590nmから620nmの波長域で、4本の蛍光 が観測できる。測定ではこの中で最も強度の強い波長589nmのスペクトル線を用いる。

励起寿命と飽和特性 $3₁$ 3

Fig.4は指数関数的に減衰する波長589nmの蛍光の測定結果で、この測定から励起寿命 は約200nsであり、レーザーのパルス幅の2倍程度の長さで十分効率良く励起できる。

Fig.4 Decay characterisitic of excited iodine

 $-4 -$

Fig.5は波長589nmにおけるヨウ素の飽和特性を測定した結果である。検出される蛍 光強度は光電子増倍管に印加する電圧とともに増加し、約-1000Vの印加電圧から飽和特 性を示すようになる。蛍光強度は励起レーザー光の強度の増加にともなって増大し、約 40μJのパルスエネルギーで飽和し始める。この結果から、以下の測定ではレーザーのパ ルスエネルギーを40 uJに設定する。

Fig.5 Saturation characteristics of Iodine as a function of dye laser pulse energy

 3.4 繰り返し数とS/N

Fig.6はレーザーの繰り返し数 (照射回数) を変化させた場合に測定される信号を示し たものである。(a)は繰り返し数2Hz、(b)は20Hz、(c)は2kHzである。レーザーの繰り返 しが遅い(a)では信号は殆どノイズの中に埋まっている。レーザーの繰り返し数を増し、 積算回数を増すことによってノイズは低下させ、信号は明確にすることができる。ノイズ は積算回数のルートで減少するから、レーザーの繰り返し数が2kHzでは、2Hzの場合の 約30分の1以下に減少することになる。数Hzの繰り返し数の領域でのノイズレベルは0.2 ~0.4mVであることから、2kHzでは計算上は4~8μV/div程度まで減衰できることにな

る。測定に使用したデジタルオシロスコープの測定限界は0.1mV/divであるから計算値 はこれに比べて極めて低い。このため信号増幅器 (Stanford社製SR-445) を使ってノイ ズを測定した結果、その値は約3μVであり、計算値と良く一致している。従って、2kHz では信号強度が1mVであるからS/Nは、約330となる。なおこの時レーザー照射に要した 時間は1秒である。従来の繰り返し数が10Hz程度のレーザーで同じ回数レーザー照射して データの平均化を行おうとすると約3分の時間を要する。オンラインモニタリングでは測 定に要する時間が短いほど精度の高いデータが得られる。従って、高繰り返しレーザーを 使用することによってS/Nの高いデータを短時間で取得できることが確認できた。

 $(b) PRF=20$

 $(d) PRF = 2,000$

Fig.6 Signal and noise characteristics as a function of dye laser pulse repetition frequency (PRF). Top trace is signal, and bottom trace reference laser pulse

3.5 ヨウ素までの距離

Fig.7(a)は、レーザー出口の隣にある光検出系までの伝播に要する時間の測定結果であ る。この測定から、この間の伝播に要する時間は約28nsであり、距離は8.4mとなる。(b) はレーザーパルスと蛍光を測定したものでピーク間の時間は129nsである。従って、ヨウ 素と望遠鏡までの距離は望遠鏡から検出系を引いた値を2で割ったものに光速を掛けたも のに等しく15.2mとなる。この値は実測と良く一致している。また(c)は検出系に増幅器 を入れた時のもので、時間は218nsまで広がっている。従って、増幅器内での信号の増幅 に89nsを要することが分かる。現在使用しているレーザーで発生するパルスの時間幅は 約100nsである。これをより短くすることによって距離の測定精度を向上させることも可 能である。

(a) Time delay between laser and detector

(b) Time delay between laser and fluoresce

(c) Time delay between laser and fluorescence with signal amplifier

Fig.7 Time delay between wavelength tunable laser and a detector with and without signal amplifier

 3.6 検出感度特性

Fig.8は発光体積を変えた場合に得られる信号量とヨウ素個数の関係を示したものであ る。ヨウ素の個数が多い領域では光電子増倍管が飽和するため1013個以下の低個数領域 での測定結果を示している。得られる信号量はヨウ素の発光個数の減少に伴って低下し、 8 x 10¹⁰個以下の個数では信号が散乱レーザー光に起因する迷光に隠されて観測できなく なる。従って、迷光の一層の抑制によって、109個の領域のヨウ素の検出も可能と考えら れる。また、この測定においてもノイズレベルは約3μVであった。従って、本測定での 最大S/Nは約2.700である。

Fig.8 Signal intensity of iodine as a function of number of iodine.

4. 考察

蛍光法のライダー方程式は、ELをレーザーエネルギー、Noを基底状態にある不純物の 個数、をを検出系の透過率、Rを距離、Aoを集光用望遠鏡の有効面積、Tを大気の透過 率、σを断面積、κ_Lをレーザーの減衰率、κを蛍光の減衰率、F_Lを蛍光のプロファイル とし、測定対象の光学的厚さが十分に薄いと仮定すると以下のように表される1)。

$$
E(\lambda, R) = E_L T K \xi \frac{A_0}{R^2} N_0 \frac{\sigma}{4\pi} \frac{F_L}{\kappa_L + \kappa}
$$

今回の実験ではレーザー装置から10mの距離にあるヨウ素の蛍光を測定している。実際 には上の式を用いて、検出される蛍光エネルギーから測定対象物質の濃度を評価する。し かし、ここでは、今回の実験結果を用いて、等法的に放出される蛍光が距離の2乗に反比 例して減衰することから、空気の透過率、蛍光のスペクトル形状、減衰率などが同じと仮 定して、測定対象が1km先にある場合その検出が可能かどうか考察する。

まず、10 (m) の位置でのヨウ素の個数を N_{10} 、信号量をS₁₀、R (m) 先にあるヨウ素 をレーザー照射して得られる信号量をSRとする。現在の測定系で、R (m) 先の測定対象 の個数をNg、大気の光透過率をT、光ファーバー結合部及び分光器など測定系での光損失 をL、ヨウ素による蛍光の自己再吸収率をRAとすると、Spは次式で与えられる。

$S_R = S_{10} \times (N_R/N_{10}) \times T \times I \times RA / (R/10)^2$

本法の実用化に際して利用する集光光学系は集光効率を高めるため、移動可能な最大のも のとし、また極微少信号を検出するために信号増幅器を利用する。そこで現在使用してい る望遠鏡の面積をA10、本技術の実用化時に使用する集光用望遠鏡の面積をAR S/NをM として上の式を書き直す。

 $S_R = S_{10} x (A_R/A_{10}) x M x (N_R/N_{10}) x T x (1-L) x (1-RA) / (R/10)^2$

この式を使って信号量を求める。まず、A_Rは移動を考慮して有効口径を400mmとする。 A_{10} の口径200mmであるから(A_{1000}/A_{10})は4となる。微少信号を増幅する場合、その S/Nが増幅の限界を決定する。髙繰り返しレーザーを使った今回の実験では、S/Nとして 2.700が得られているから、ここまでは信号の増幅が可能である。そこで信号増幅器とし て、市販で入手可能な周波数帯域DC~300MHz、増幅利得1000のものを考え、M=1000と する。大気の透過率Tは距離Rに依存する値であるが、通常大気の吸収、散乱は小さいと

仮定してよいから1とする。測定系の光損失Lは現在80%であることからこの値を採用す る。大気を構成する分子の個数は2.7x10¹⁹個/cm³である。従って、1ppbの不純物の個数 は2.7x10¹⁰個/cm³となる。照射レーザー光のビーム径を5cm、1ppbのヨウ素が1mにわ たって大気中に拡散していると考えると、全ヨウ素個数は5.3x1013個となる。ヨウ素の吸 収断面積は4.6x 10⁻¹⁸cm⁻²であるから、ヨウ素の吸収によるレーザー光の減衰率は0.02% となり、光学的には十分薄いと考えて良く、自己吸収による蛍光の減衰も小さいと仮定し てよい。(Ng/N₁₀) としては0.75 となる。現在測定に利用しているオシロスコープの測 定限界は0.2mVである。従って、S/Nが高いので、この5倍の1mVの信号量があれば十 分高い精度の測定が可能である。そこで1km先のヨウ素から1mVの信号を得るに必要な 10m地点での信号量は、

 S_{10} = SRX $(R/10)^2 / (A_R/A_{10}) / M / (N_R/N_{10}) / T / (1-L) / (1-RA)$

となる。ここに上述の値を代入すると、S₁₀として17mVが得られる。これまでの実験結 果から5.3x1013個のヨウ素数では20mVの信号出力が得られているので、今後さらなる S/Nの改善、励起波長や検出系の最適化、光損失の低減などによりサプppbの濃度のヨウ 素の検出は十分可能と考えられる。

5. おわりに

高繰り返し波長可変レーザーを使ってヨウ素の検出試験を行い、以下の結果及び見通し を得た。

- (1)高繰り返しレーザーを使用することによりS/N約3.000が得られ、高精度の測 定 が可能である、
- (2)高繰り返しレーザーを利用することによって測定時間が従来の分のオーダーか ら、秒のオーダーへ短縮でき、かつS/Nの高いデータが得られるため、時々 刻々変化する拡散状況を高い精度で把握できる、
- (3)実験で取得したデータを基に行った簡単な試算によりサプppbレベル濃度のヨ ウ素の検出が可能との見通しが得られた。

今後は、

(1)測定対象の移動速度とレーザー繰り返し数、レーザー波長(励起エネルギ

- ー)、検出系の最適化などによるS/Nの一層の向上を図る。
- (2)蛍光法では励起された原子又は分子と大気を構成する分子間の衝突による脱励 起などが測定に大きな影響を与える。このため極短パルスレーザーの利用及び 吸収法について検討、実験を行う5)。
- (3)大気中及び測定対象中のレーザー光の伝播、再吸収などを考慮したより詳細な 解析を行う。

謝辞

本実験に関しては原研関西研究所光量子科学研究センター副主任研究員赤岡克昭氏から 有益な助言を多数頂きました。感謝致します。

参考文献

(1) R.M. Measures, "Selective Excitation Spectroscopy and Some Applications," J.Appl. Phys., 39, 5232-5245(1968)

(2) R.M.Measures."Lidar Equation Analysis-Allowing for Target Lifetime, Laser Pulse Duration, and Detector Integration Period," Appl. Opt., 16, 1092-1103(1977) (3) T.J.McIlrath, "Fluorescence Lidar," Opt. Eng. 19,494-502(1980)

(4) R.M. Measures," Laser Remote Sensing," A Wiley-Interscience Publication, 1984 (5) V.E.Privalov, V.G.Shemanin," Parameters of differential absorption lidar for detcting molecular iodine in the atmosphere," J. Opt. Technol. 66, 112-114 (1999)

国際単位系 (SI)と換算表

表1 S1基本単位および補助単位

ųŀ			称 ¥,				号 記
ĸ		さ	Х		Ь	ル	m
ŤĨ		Ιįξ	キ	n	グラム		kg
時		間			秒		S
電		流				7	A
	熱力学温度		ヶ	ル	К		K
物	ŤÍ	ht	壬			ル	mol
光		度	ヵ	ン	デ	ラ	ed
ψ	Иi	ſŋ	ラ	Ÿ	7	ン	rad
Ϋ́.	体	角		ステラジアン			sr

表3 固有の名称をもつSI組立単位

粘 度 IPa·s(N·s/m²)=10P(ポアズ)(g/(cm·s)) 動粘度 $1m^2/s=10^4St(Z + - 2 Z)(cm^2/s)$

表2 SIと併用される単位

称	号
¥.	記
分, 時, - 11 度、分、 秒 トル ı) ッー	min, h, d $^{\prime}$ Ö. - 1.
k ッ	
電子ボルト	$_{\rm eV}$
原子質量単位	u

1 eV=1.60218×10 $^{\circ 0}$ J 1 u= 1.66054×10^{-27} kg

表 4 SIと共に暫定的に $40 + 6 \times 45 = 20615$

 \overline{a}

1 Å=0.1nm=10 10 m $\,$ 1 b=100fm²=10 28 m² $1 bar = 0.1 MPa = 10⁵ Pa$ 1 Gal-1cm/s²=10⁻²m/s² $1 \text{ Ci}=3.7\times10^{10}\text{Bq}$ $1 R = 2.58 \times 10^{-1} C/kg$ $1 rad = 1 cGy = 10^{-2} Gy$ 1 rem=IeSv=I0 2 Sv

表5 SI接頭語

(iE)

- 1. 表1-5は「国際単位系」第5版,国際 度量衡局 1985年刊行による。ただし,1 eV および1 uの値はCODATAの1986年推奨 値によった。
- 2. 表4には海里、ノット、アール、ヘクタ ールも含まれているが目常の単位なのでこ こでは省略した。
- 3. bar は、JISでは流体の圧力を表わす場 合に限り表2のカテゴリーに分類されてい \mathbf{Z}_\circ
- 4. EC閣僚理事会指令では bar, barnおよ び「血圧の単位」mmHgを表2のカテゴリ ーに人れている。

換 篊 表

