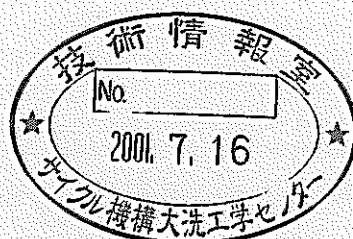


レーザブレイクダウン分光法による ナトリウムエアロゾル検出感度評価試験（Ⅱ）

（研究報告書）



2000年12月

核燃料サイクル開発機構
大洗工学センター

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村村松4番地49
核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to :
Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1184, Japan.

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)
2000

レーザーブレイクダウン分光法によるナトリウムエアロゾル
検出感度評価試験 (II)
(研究報告書)

林田 均*, 荒 邦章*

要 旨

レーザー誘起ブレイクダウン分光法によるレーザーNa漏洩検出システム (Laser Sodium Leak Detector: 以降LLDと略す。)は、レーザー光によりナトリウムエアロゾルをプラズマ化し、それにより発生する蛍光中からナトリウム特有の光スペクトルを検出するもので、ナトリウムを選択的に検出するために、ナトリウム微量漏洩を早期に信頼性高く検出できる可能性がある。

本報告は、昨年度のLLD検出感度評価試験に引き続いて実施した検出感度評価試験(II)の結果についてまとめた。

その結果、以下のような知見を得た。

- 1) LLD信号は、炭酸ガス濃度の影響を受けないことが確認された。
- 2) 本試験において、雰囲気温度(サンプリングガス)温度の上昇に伴い、ナトリウム検出感度が低下する傾向が見られた。但し、雰囲気温度上昇によりブレイクダウンが起こりにくくなっており、本LLD固有の特性とも考えられるので、今後更に試験評価が必要である。
- 3) ナトリウム燃焼に伴い発生したエアロゾルに対しても、昨年度試験に用いたナトリウム蒸気を基に生成したエアロゾルと同様に、LLDは即応性を示した。

本試験及び昨年度試験により、LLDの基本的な微量ナトリウムエアロゾル検出特性を明らかにできた。

* 大洗工学センター 要素技術開発部 原子炉工学グループ

An experimental study of sodium aerosol detection sensitivity by laser induced breakdown spectroscopy (II)

H. Hayashida*, K. Ara*

Abstract

A Laser-induced breakdown spectroscopy Leak Detection technique (abbreviated LLD) of sodium is accomplished by plasmifying the sodium aerosol and then selectively detecting the sodium specific optical spectrum. This method is potentially more reliable as a means of detecting of sodium small leakage.

This report describes test results of detection characteristics of LLD using sodium aerosol. The test was carried out following LLD detection sensitivity evaluation test in last year.

The main results are as follows:

- 1) The LLD signal appeared insensitive to the effect of carbon dioxide concentration in the examined range.
- 2) With the rise in the atmosphere (sampling gas) temperature, the sodium detection sensitivity of LLD tended to be lower. However, it seems to be a peculiar problem of this LLD system, because of decrease of breakdown reaction rate in higher temperature condition of sampling gas (atmosphere temperature). Further evaluation will be needed for this point.
- 3) LLD showed the fast-response for the aerosol which arose with the sodium combustion as well as for the aerosol which was created on the basis of the sodium vapor.

According to the test result, detection property of LLD for very small quantity sodium aerosol was clarified.

* Reactor Engineering Group, Advanced Technology Division, OEC, JNC

目 次

第1章	はじめに	1
第2章	試験内容	2
2.1	試験目的	2
2.2	試験体及び試験装置	2
2.2.1	LLD試験体	2
2.2.2	小型LLD試験体	3
2.2.3	感度評価試験装置	5
2.3	試験項目	6
第3章	試験結果及び検討	9
3.1	予備試験結果	9
3.2	炭酸ガス濃度の影響	10
3.3	燃焼エアロゾルの計測特性	10
3.4	雰囲気温度の影響	11
3.5	試験結果検討	11
第4章	結論	15
	謝辞	16
	参考文献	17

表リスト

表2.3.1	LLD感度評価試験	試験条件一覧表	18
表3.1.1	LLD感度評価試験	LLD設定値	19
表3.1.2	LLD感度評価試験	小型LLD設定値	19

図リスト

図2.1.1	レーザ誘起ブレイクダウン分光法の原理図	20
図2.2.1	LLDの全体構成	21
図2.2.2	LLDの光路	21
図2.2.3	小型LLDの概念図	22
図2.2.4	小型LLDユニット光学部の構成	23
図2.2.5	入射光学系の構成図	23
図2.2.6	受光光学系の構成図	24
図2.2.7	光電変換器の構成と高圧制御方式	24
図2.2.8	小型LLDユニットの構成図	25
図2.2.9	感度評価試験装置フロー図	26
図2.2.10	LLD感度評価試験時(炭酸ガス影響)の構成と配置	27
図2.2.11	LLD感度評価試験時(燃焼エアロゾル計測)の構成と配置	28
図3.1.1	Naベーパー発生器ポット内温度(TC1)とNa温度の関係	29
図3.1.2	LLD Na検出感度特性	30
図3.1.3	ガラス管交換後データと昨年度データ ^{B)} の比較	31
図3.1.4	小型LLDのNa検出感度特性試験結果	32
図3.1.5	小型LLDのNa検出感度特性試験結果 (Na濃度 $4.9 \times 10^{-11} \text{ g/cm}^3$)	33
図3.2.1	炭酸ガスの検出感度への影響	34
図3.3.1	燃焼エアロゾル計測試験時系列データ(120分)	35
図3.3.2	燃焼エアロゾル計測試験時系列データ(20分)	36
図3.3.3	Na燃焼開始直後の挙動	37
図3.3.4	燃焼エアロゾル計測試験結果	38
図3.4.1	サンプリングガス温度の影響(時系列表示)	39
図3.4.2	サンプリングガス温度の影響(ガス温度とLLD出力の関係)	40
図3.4.3	サンプリングガス温度の影響(規格値表示)	41
図3.4.4	サンプリングガス温度の影響確認時の小型LLD温度	42

写真リスト

写真2.2.1	YAGレーザ	43
写真2.2.2	分析セル	43
写真2.2.3	小型LLDユニット光学部外観 (ケースカバーを付けたところ)	44
写真2.2.4	小型LLDユニット光学部外観 (ケースカバーを外したところ)	44
写真2.2.5	小型LLDユニット電源部外観 (ケースカバーを付けたところ)	45
写真2.2.6	小型LLDユニット電源部外観 (ケースカバーを外したところ)	45
写真2.2.7	小型光電変換器外観	46
写真2.2.8	PMTとプリアンプ基盤	46
写真2.2.9	Naベーパー発生器とミキシングチェンバ	47
写真2.2.10	Naエアロゾル捕集用フィルタ	47

第1章 はじめに

原型炉もんじゅの2次冷却系におけるナトリウム（以降、Naと記述）漏洩事故を考えると、将来的な新型計装として、早期に信頼性高くNa微小漏洩を検出する技術を開発することが、漏洩のより早期の段階で適切な対応を可能にすることから望まれる。

そこで、早期かつ信頼性高くNa微小漏洩を検出する技術として、原子発光分析法^{1) 2)}によるレーザNa漏洩検出システム（Laser Sodium Leak Detector）の開発を進めている。開発するレーザNa漏洩検出システムはレーザ誘起ブレイクダウン分光法（LIBS: Laser Induced Breakdown Spectroscopy）^{3) 4) 5)}と言われるもので、その原理は高出力パルスレーザ光を用いて漏洩に伴い発生するエアロゾルをプラズマ化してNa原子を励起する。そして、励起されたNa原子が基底状態に戻るときに発する蛍光のスペクトルからNa特有の波長光（NaのD線：589nm）を検出することでNa漏洩を検知する。これにより、Naのみを選択的に検出することができるので高いSN比が得られ、早期のNa漏洩が信頼性高く検出可能となる。また、レーザ誘起ブレイクダウン分光法のような原子発光分析法は、原子蛍光分析法等^{1) 2) 6)}のような他の原子スペクトル分析法に比べて感度が劣るといわれるが、原子蛍光分析法に必要なプラズマ生成用の原子化装置や波長可変レーザ等⁷⁾が必要なく、構成機器数が少なくなるのでシステムの小型化や信頼性確保が図り易いと考えられる。

本報告は前報⁸⁾に続いて、レーザ誘起ブレイクダウン分光法によるNa漏洩検出について、成立性を判断するのに必要な知見を得るために実施した検出感度試験結果及びその検討結果についてまとめた。試験項目としては、前報で検出感度に影響が認められた雰囲気温度変化と、新たに炭酸ガスの影響を評価した。また、前報で用いたNaエアロゾルは、200°C程度の低温で反応させたものであるので、実際にNaを燃焼させて生成したNaエアロゾルについても試験を行った。

第2章 試験内容

2.1 試験目的

原理的にNaを選択的に検出することが可能なレーザー誘起ブレイクダウン分光法(LIBS:Laser Induced Breakdown Spectroscopy)によるレーザーNa漏洩検出システム(Laser Sodium Leak Detector:以降LLDと略す。)について、Na微小漏洩検出器としての適用性を評価するために実際にNaエアロゾルを用いて検出特性を試験する。

LLDは、高出力パルスレーザーを計測対象物(Na漏洩に伴い発生するNa原子を含んだエアロゾル)に照射してプラズマを生成し、プラズマ生成により励起されたNaが基底状態に戻るときに発光する蛍光(ブレイクダウン光)からNa原子特有の波長の光(NaのD線:589.592nm及び588.995nm)を測定することで、Naを選択的に検出するものである。レーザー誘起ブレイクダウン分光法の原理図を図2.1.1に示す。なお、詳しくは前報⁸⁾に記述してある。

昨年度の試験において、Na濃度に対する出力信号特性と、サンプリングガス流量、酸素濃度、水分濃度、雰囲気温度等の影響を評価した⁸⁾。その結果、Na濃度とLLD信号(蛍光強度)は、Na濃度 $10^{-11} \sim 10^{-8} \text{g/cm}^3$ の広い範囲で比例することと、サンプリングガス流量、圧力等に影響せずLLDがNaを選択的に検出できることが確認できた。しかし、雰囲気温度(検出器近傍のサンプリングガスの温度)が上昇するとLLD信号が低下する傾向が見られた。

そこで本試験では、他に影響が考えられる事項として、生成物の化学組成が変わる可能性のある炭酸ガス濃度の影響について評価を行った。また、昨年度の試験ではNaエアロゾルとして200℃程度の低温のNa蒸気を窒素や酸素と混合させたものを用いたが、直接Naを燃焼させて生成されるNaエアロゾルの検出特性を確認する試験も行った。これら試験に使用したLLDは昨年度試験に用いたものと同じである。

さらに、雰囲気温度の影響については、影響の再確認と詳細に調べるために別のLLD(小型LLDと略す。:可搬性と調整性を向上するためにレーザー、分析セル、Na蛍光信号処理装置等の構成機器を一体化し、昨年度用いたものに比べて小型化を図ったもの)を用いて昨年度試験と同様の条件で試験を行った。

2.2 試験体及び試験装置

2.2.1 LLD試験体

LLD試験体の全体構成を図2.2.1に示す。昨年度試験で用いたものと同じで、レーザー、分析セル、Na蛍光信号処理装置等を組み合わせて簡易的に構築したLLDである。

Nd:YAGレーザーのパルスレーザービーム(波長1064nm, パルス幅4.6ns, 繰り返し10Hz,

約 29mJ/pulse ($285\sim 290\text{mW}$)を、投光・受光光学系からなる照射光学系でエネルギーと光路を調整したのち、ビーム径をスリットで調整して分析セルに照射する。分析セルの透明ガラス管には、予め感度評価試験装置からNaエアロゾルを含むサンプリングガスを導いておく。分析セルの投光光学系で透明ガラス管内に集光投射されたレーザー光により、集光部においてプラズマが発生する。これにより励起されたNa原子等が基底状態に戻るときに発光するブレイクダウン光が分析セル受光光学系で集光される。このブレイクダウン光の中から干渉フィルタ($589.2\pm 0.5\text{nm}$)と光電子増倍管(PMTと略す)を組み合わせたNa蛍光(波長 589.0nm 及び 589.6nm)検出器により、Na蛍光強度信号が抽出される。なお、Na蛍光近傍の光強度も干渉フィルタ($590.7\pm 0.5\text{nm}$)とPMTによって計測し、バックグラウンド(BGと略す)信号としてS/N比向上に用いる(計測されたNa蛍光強度から、BG信号を差し引くことで正味のNa蛍光強度を求める)。これらのPMT出力はNa蛍光信号処理装置で処理して連続記録している。Na蛍光信号処理装置では、計測された電気信号からNa漏洩検出に必要な特徴量を抽出する。本試験では、昨年度試験と同様に、レーザーショット信号入力を基点として、蛍光検出までのゲート遅延時間 T_d を $3\mu\text{s}$ 、ゲート幅時間 T_w を $5\mu\text{s}$ と設定した。従って気中ブレイクダウンを起点として $3\mu\text{s}$ から $8\mu\text{s}$ の間のブレイクダウン光の検出を行った。また、各試験ケースにおいては、 0.1sec 周期でレーザー照射を行ってブレイクダウン光を測定し、90回の測定値を平均化処理してデータとした。

LLD試験体を構成する機器は、レーザーはContinuum社製Surelite III-10(最大出力: 8W , 最大パルスエネルギー: 800mJ/pulse)、PMTは浜松ホトニクス社製のR3896(サイドオン型)、Na蛍光信号処理装置は汎用コントローラと産業用パソコン等からなる。LLDの光路を図2.2.2に、レーザーと分析セルを写真2.2.1~2.2.2に示す。

2.2.2 小型LLD試験体

従来の分析セルは簡易的に構築したもので、構成機器(特にレーザー)が別置きで設置スペースが大きくなるために設置場所が制約されことと、光学系の調整に手間がかかるので他に移動して用いるには問題があった。LLDはシステム構成要素としてYAGレーザー、サンプリングガスを導入するガラス管、レンズ光学系、干渉フィルタ、光電変換器等の組み合わせで構成されており、将来的に実機に適用する上でも構成要素の小型化と長寿命化を図り、シンプルかつコンパクトで信頼性・保守性・経済性に優れたLLDを実現する必要がある。

そこで、小型化と一体化を図り小型LLD試験体を製作した。小型LLDは分析セルとレーザー及び蛍光信号前処理部を全て含めた形とし、分析セルの小型化をはじめLLD測定システムとして小型化を図るとともに持ち運び可能な構造とした。なお、LLDの小型化の実現には高出力小型レーザーと高感度小型光電変換器の使用が不可欠であり、レ

ーザはB M I 社製半導体レーザー励起YAGレーザーDIVA2 (波長1064nm, 最大出力25mJ/pulse) を使用し, 光電変換器の受光素子として浜松ホトニクス社製の小型光電子増倍管H5700を採用した。また, 小型L L Dは光学部と電源部の2ユニットで構成し, 光学部にはレーザー・ヘッドとレンズ光学系及び光電変換器を搭載し, ブレークダウン分光法による蛍光電圧信号を抽出するまでの機能をもたせ, 電源部には光学部駆動用電源と蛍光信号処理装置を搭載し, 蛍光強度信号つまりN a 濃度信号を演算出力する機能をもたせた。光学部と電源部は完全に分離できる構造とし, それぞれケースに収納することで持ち運びを可能とした。製作した小型L L Dの概念図を図2. 2. 3に, 光学部と電源部を写真2. 2. 3～2. 2. 6に示す (寸法及び重量は, 写真2. 2. 3と写真2. 2. 5に記述した。)

光学部は図2. 2. 4に示すように, レーザヘッド部, 入射光学系, ブレークダウン室 (サンプリング室), 受光光学系及び2台の小型光電変換器で構成される。全部品は1枚の定盤上に配置し, 光学調整が容易な構造とした。

レーザーヘッド部は, 小型レーザーとしてB M I 社製DIVA2を使用した。DIVA2は半導体レーザー励起YAGレーザー (DPSSL : Diode Pumped Solid State Laser) であり, 水を使用しない電子冷却+ファン空冷の小型レーザーである。パルスエネルギーは最大25mJ (1064nm), 長寿命 5×10^9 ショットを特徴とするレーザーである。

入射光学系は, レーザ光をブレークダウン室に導き, プラズマを生成するための光学系である。図2. 2. 5に示すとおり照射されるレーザー光を全反射ミラーで 90° 屈折させてブレークダウン室へ直進させる。屈折させたレーザー光は, 凹レンズ (-30mm) で一度拡大した後凸レンズ (+100mm) で平行ビームに戻し, 再度凸レンズ (+25mm) で集光しガラス平板を介してブレークダウンを発生させる。ビームエキスパンダとしての倍率は3. 3倍 (100/30) であり, 焦点におけるエネルギー密度を高めて気中ブレークダウンを発生しやすくしている。

ブレークダウン室は, 高出力パルスレーザー光を照射してプラズマを生成させるサンプリング室であり, サンプリングガスはガラス管に導かれる。従来のガラス管は円筒状のものを使用しているが, ガラス管の位置ずれが生ずるとガラス表面での反射及び円筒形状によるレンズ効果によりレーザー光のパワー減衰と焦点ズレが生じブレークダウンが起こりにくいことが判明している。パルスエネルギー最大25mJのレーザー光照射で安定したブレークダウンを得るために, 円筒形ガラス (ホルダ部) と四角柱状ガラス (10mm×10mm) を組み合わせた特殊形状のガラス管を用いた。

受光光学系は, ブレークダウン室で発生するN a 蛍光を光電子増倍管 (P M T) の光電面まで導くための光学系である。図2. 2. 6に示すとおり, ブレークダウン後発生するN a 蛍光は集光レンズ (f=21mm) で平行化されNDフィルタ (10%透過) で減光された後, ビーム・スプリッタで分岐される。二分された光はN a /バックグラウンド (B G) 測定用の各干渉フィルタを通してそれぞれのP M T光電面に入光される。使用する干渉

フィルタは、Na 蛍光測定用として $589.2 \pm 0.5 \text{ nm}$ 、BG 光測定用として $590.7 \pm 0.5 \text{ nm}$ の帯域透過フィルタであり、いずれも3キャビティとした。受光光学系の構成は前記したLLDと同じものを採用した。

小型LLDユニットには2台の光電変換器を搭載し、Na 蛍光レベルとBG 光レベルを同時に計測する。Na/BG計測用の2台の光電変換器は全く同一のものを使用し、受光面前に設置する干渉フィルタ（バンドパスフィルタ）で差別化を計っている。光電変換器には浜松ホトニクス社製光センサモジュールH5700（小型光電子増倍管）を使用する。H5700は微弱光検出モジュールとして、高感度でありかつ優れたDCリニアリティを特徴とし、高圧電源を内蔵して+15VDC単一電源で動作し非常にコンパクトである。図2.2.7に示す様に高圧制御（コントロール電圧 $\sim 1.2 \text{ VDC}$ ）は、外付抵抗制御でポテンショメータ操作により容易に可能である。なお、H5700シリーズにはアンプ内蔵タイプも市販されているが、周波数帯域が最大200kHzであり本ユニットには適用不可であるため、東芝製プリアンプPRE0445基板と組み合わせて使用した。PRE0445基板はH5700出力電流信号を電圧変換し増幅出力するための基板であり、H5700とアッセンブリして同じケースにパッキングし、小型光電変換器としてユニット化している。また、H5700の光電面前面にLED（東芝製TLY143K）を設け、その点灯時における出力レベルを定期的を確認することにより、光電面の劣化診断が可能になっている。小型光電変換器外観とPMTとプリアンプ基板を写真2.2.7と写真2.2.8に示す。

電源部には、レーザ電源1台とPMT制御用直流電源1台、またPMT高圧制御部品及び蛍光信号処理部品（処理基板等）を収納している。図2.2.8に示す様に電源部に収納された蛍光信号処理基板と計算機（Notebook等）を、LAN接続することで信号の伝送が可能となり、測定パラメータの設定及び測定結果表示モニタが可能となる。

2.2.3 感度評価試験装置

感度評価試験装置は、昨年度試験⁸⁾で用いたものと同じである。試験装置は、Na ベーパ（蒸気）発生器、ミキシングチャンバ、検出、ガス排気ユニット等から構成される（試験装置のフロー図を、図2.2.9に示す。）。

Na ベーパ発生器は、ステンレス円筒容器でできており、約20gのNaを入れられる受け皿を収納している。容器の外側に設けたマイクロヒータで、最高400℃程度まで昇温できるようになっており、Na ベーパ発生器に供給されるN₂ガスと混合したNa ベーパを、ミキシングチャンバに送り出す。

ミキシングチャンバは、容量約24リットルのステンレス円筒容器で、N₂O₂ポンベから供給されるO₂により、Na ベーパに酸素を反応させて酸化Naエアロゾルに転換し、模擬Naエアロゾル（サンプリングガス）を生成する。なお、N₂O₂ラインに設置された加湿器により湿分の混合も可能である。また、昨年度試験と異なる炭酸ガス影響確

認と燃焼エアロゾル計測時には、図2.2.10または図2.2.11の様に試験装置を構成した。

検出ユニットのラインには、試験体であるLLD（または小型LLD）を設置する。LLDの下流側の輸送ガス流路には2個のフィルタフォルダ（フィルタ径47mm、「富士フィルム製FMシリーズ・マイクロフィルタ型番FM-80（材質：トリアセチルセルロース、孔径：0.8 μ m）」）が並列に設けられており、交互に切り替えて輸送ガス中Naエアロゾルをフィルタで捕集する。一定流量の輸送ガスを一定時間流したあとにフィルタを取り出し、一定量の純水中に浸してNaを溶出させ、原子吸光装置でNa濃度を定量する。これを捕集時間とガス流量で換算することにより輸送ガス中の平均Na濃度を定量する。なお、検出ユニットのラインには、動作確認用にRID（放射線イオン化式Na漏洩検出器）をLLDと直列に設置している。

また、試験では昨年度試験と同様に、試験装置の安定な運転が容易でNaエアロゾルを一定濃度で長時間供給することが可能であり、ほぼ一定の試験条件が設定できる「押込試験（ポンベから加圧供給される輸送ガスが大気圧との圧力差によって系内を流れ、最下流のガス排気ユニットの放出口から大気中に放出される。）」を基本とした。なお、実際のプラント等のNa微量漏洩検出系では配管や容器等の近傍から雰囲気を吸引して検出器に導くサンプリング方式が用いられているが、昨年度試験で押込試験と結果に違いがないことを確認している。

試験装置のNaペーパー発生器とミキシングチャンバを写真2.2.9に、Naエアロゾル捕集用フィルタを写真2.2.10に示す。

試験においては、図2.2.9のフロー図に示す各部で計測し、主要計測量をデジタルレコーダまたはチャートレコーダに連続記録した。なお、主な計測量は、Naペーパー発生器及びミキシングチャンバへの供給ガス流量、Naペーパー発生器及び出口配管の各部温度、RID付近の室温、Naペーパー発生器圧力、ミキシングチャンバ圧力、検出部圧力、ミキシングチャンバ内ガスの水分濃度（露点）等である。

2.3 試験項目

昨年度に引き続いてLLDの基本的なNa検出特性を把握する試験を実施した。試験項目は、昨年度実施した以外の検出感度に影響が考えられる事項としての炭酸ガス濃度の影響の確認、昨年度と異なる直接Naを燃焼させて生成されるNaエアロゾルの検出特性、昨年度影響が認められた雰囲気温度（サンプリングガス温度）の影響にの再確認とした。前の二項目の試験に使用したLLDは昨年度試験に用いたものと同じであるが、雰囲気温度の影響については、LLDに起因する原因を検討するために別の小型LLDを用いた。

なお、分析セルガラス管内圧力変化の影響確認の試験以外では、本試験では検出部までのサンプリングガス（輸送ガス）は、押し込み条件（Naエアロゾル発生部からエア

ロゾルを、サンプリングガスで検出部まで押し出して輸送する方法で、流量制御が容易となる。) で実施している。

試験項目を以下に記述する。また、試験条件をまとめた一覧表を、表2.3.1に示す。なお、昨年度試験と同様に、サンプリングガス流量は2L/min(押込試験)で、同時にRIDのNa検出特性も測定した。

(1)炭酸ガス影響の確認

炭酸ガスをエアロゾルに混合し、炭酸Naを含んだNaエアロゾルを生成する。それにより、炭酸ガスのLLDのNa検出感度に与える影響を把握する。構成及び配置は、図2.2.10の通りである。試験条件は、Na濃度 10^{-9} g/cm³から 10^{-11} g/cm³の範囲で、水分濃度を1vol%及び2vol%(各露点は7, 18°C)とし、輸送ガスとしては、酸素濃度20vol%、炭酸ガス濃度0.2vol%(通常雰囲気の2倍)の窒素・酸素・炭酸ガス混合ガスを使用し、サンプリングガス流量は2リットル/minでLLD出力値を測定した。

なお、水分と炭酸ガスの両方が存在する雰囲気にNaエアロゾルが存在すると炭酸Naが生成されるが、水分濃度が高く(2vol%など)、また炭酸ガス濃度が通常雰囲気の2倍(0.2vol%)の状態、ミクロンオーダのNaエアロゾルを導入すれば、生成物として酸化Na以外に炭酸Naが十分に生成されるものと考えられる。

(2)燃焼エアロゾルの計測特性確認

昨年度試験や他の項目の試験では、Naエアロゾルとして200°C程度の低温のNa蒸気を窒素や酸素と混合させたものを用いている。実際のNa漏洩では、漏洩部でのNa燃焼が考えられるので、Na蒸気ではなく直接Naが燃焼したときに発生するNaエアロゾルに対するLLD出力値を測定し、LLD検出特性に違いがあるか確認する。試験では、金属Na約10gを燃焼させ、発生したNaエアロゾルについてLLD出力の計測試験を行った。構成及び配置は、図2.2.11の通りである。

試験は、250°Cに昇温した約10gの金属Naに、コンプレッサにより圧縮した実験室内の空気をサンプリングガス流量2リットル/min(押込試験)で送り、直接Naベーパー発生器内で燃焼させてNaエアロゾルを生成し、それを用いてLLD出力の計測を行った。なお本試験装置は、Naの燃焼を制御する機能を持っていない。そのため試験時のNa濃度は予め設定することはできず、試験後のフィルタ分析によってNa濃度を確認した。

(3)雰囲気(サンプリングガス)温度に対する影響確認

雰囲気(サンプリングガス)温度が変化した場合のLLD出力電圧の状況を計測し、雰囲気温度の影響を比較する。雰囲気温度の変更はLLD入り口配管部を電気ヒータ

で加熱して行い、試験範囲はサンプリングガス温度約20℃（室温）から50℃前後までとした。また、昨年度試験よりも詳細なデータを得るために、サンプリングガス温度を連続的に変化させて、それに対応するLLD出力を連続的に測定した。Na濃度は $10^{-10}\text{g}/\text{cm}^3$ 、サンプリングガス流量は2リットル/min、酸素濃度は20vol%、水分濃度は0.01vol%以下の一定条件で試験した。

なお、昨年度のサンプリング温度影響試験及び前記(1)～(2)の試験項目と異なり、本試験では小型LLDを使用した。

第3章 試験結果及び検討

まず、本試験の結果を昨年度試験⁸⁾と比較できる様にするため、試験装置のNaベーパー発生量等の確認とLLD及び小型LLDの調整を実施するとともに、LLD及び小型LLDのNa検出感度を予備試験で測定した。その後、炭酸ガス濃度影響等の感度評価試験を実施した。

3.1 予備試験結果

昨年度試験の試験項目の最後では、保温材加熱放出ガスの影響確認試験を実施している。保温材はバインダ成分を含んでおり、試験によりNaベーパー発生器、配管、弁等に黒色のバインダ成分が付着した。そのため、感度評価試験装置を分解・清掃して組立を実施している。そこで、試験装置の機能が健全であるか、Naベーパー発生器のヒータ昇温機能、サンプリングガス流量及びNa蒸気発生量等について調べた。

Na蒸気発生量の確認は、Naベーパー発生器の温度に対するNa蒸気発生量について、Na濃度 10^{-9}g/cm^3 から 10^{-11}g/cm^3 の範囲で行った。図3.1.1に、Naベーパー発生器のポット上部空間の温度であるポット内温度(TC1:熱電対測定値)とNa濃度の関係の結果を示す。昨年度試験時のデータと比較すると、ポット内温度に対するNa濃度の傾きが小さくなっている。

次にLLDを昨年度試験時と同値に設定した(表3.1.1参照:なお、昨年度試験報告書⁸⁾中の同表値は誤記載)。昨年度試験時と同様に、Naの蛍光スペクトル以外の光強度をバックグラウンド(BG)として測定し、Naの蛍光スペクトルの光強度(SIG)との差を求めてLLD信号とすることでSN比の向上を図った(干渉フィルタ(589.2 \pm 0.5nm)を通したNa蛍光(波長589.0nm及び589.6nm)のSIG信号と、干渉フィルタ(590.7 \pm 0.5nm)を通したBG信号を用いた。)

最初に、Naエアロゾル濃度が 10^{-9}g/cm^3 ~ 10^{-10}g/cm^3 程度、輸送ガスとしては酸素濃度20vol%の窒素・酸素混合ガスを使用し、サンプリングガス流量は2L/min、水分濃度は0.001vol%以下、炭酸ガス濃度は0vol%で試験を行い、LLDのNaエアロゾル検出感度を昨年度試験結果と比較したものを図3.1.2に示す。この結果は、感度が昨年度試験結果に比べて約1/3になっている。レーザ出力、PMT感度、光軸ずれなどを確認し異常がないことから、分析セルのブレイクダウン室のガラス管を新しい物と交換して再度試験を行ったところ図3.1.3の結果を得た。

小型LLDについても同様にNaエアロゾル検出感度を測定した。なお、小型LLDの設定値は表3.1.2の通りである。図3.1.4に、小型LLDについて、Naエアロゾル濃度が 10^{-9}g/cm^3 ~ 10^{-11}g/cm^3 程度、輸送ガスとしては酸素濃度20vol%の窒素・酸素混合ガ

スを使用し、サンプリングガス流量は2L/min、水分濃度は0.01vol%以下、炭酸ガス濃度は0vol%で試験を行い、昨年度のLLDのNaエアロゾル検出感度と比較した結果を示す。また、Na検出感度特性試験での出力信号の一例として、Na濃度 $4.9 \times 10^{-11} \text{g/cm}^3$ 時のLLD出力波形を、図3.1.5に示す。

3.2 炭酸ガス濃度の影響

炭酸ガス濃度の変化に対するNa検出特性への影響を調べるために、炭酸ガス濃度0Vol%（水分濃度0.01Vol%以下）及び0.2Vol%（水分濃度1Vol%及び2Vol%以上）、サンプリングガス流量2リットル/minで試験を行った。なお、試験におけるNa濃度は $10^{-8} \text{g/cm}^3 \sim 10^{-11} \text{g/cm}^3$ （設定値であり、実際の値は近傍の値になる。）とした。

試験結果を、昨年度報告書⁸⁾と同様にLLDの感度変化を表すために規格化して図3.2.1に示す。この図で、縦軸はLLD信号出力/Na濃度（規格化値）、横軸はNa濃度である。

なお、試験工程の都合上、本試験は一部、3.1項で記したLLDの感度低下状態（図3.1.2：分析セルのブレイクダウン室のガラス管の交換前）で試験を行っているが、それらデータについては昨年度試験結果及びLLD感度正常状態（ガラス管交換後）と比較できるようにLLD出力信号に補正係数を乗じている（図3.1.2のデータより線形近似で係数3.33を求めて用いた。）。

3.3 燃焼エアロゾルの計測特性

Naペーパー発生器をポット底部温度250℃、ポット内（空間）温度200℃以上に昇温し、コンプレッサにより圧縮した実験室内の空気を、直接Naペーパー発生器内にサンプリングガス流量2L/minで送り、金属Naを約10gを燃焼し、発生させたNaエアロゾルについてLLD出力の計測を行った。実験室の室温は24℃で、雰囲気に含まれた水分は0.4～0.5Vol%（露点-3℃）であった。なお、実機条件を考慮して本試験時にはミキシングチェンバ下流に30mのホースを接続した（図2.2.9の試験装置フローを参照）。

燃焼エアロゾル計測試験の120分間の時系列データを図3.3.1に、それを拡大した試験開始後20分～40分の時系列データを図3.3.2に示す。また、燃焼開始直後の挙動を確認するためにY軸を拡大した説明図を、図3.3.3に示す。蛍光信号処理装置の保存装置に記録されたデータを、図3.3.4に示す。図3.3.1～図3.3.3では、LLD及びRIDの各信号は、データレコーダの計測レンジの関係で高濃度のNaエアロゾルにより飽和している。同様に図3.3.4でも蛍光信号処理装置の保存回路までの計測系で、LLD-SIG（Na蛍光）が飽和しているが、LLD-BG（Na蛍光以外の比較用バックグラウンド信号）は飽和していない。また、試験時に同時に取得したRID出力は、参考に図示したものである。

3.4 雰囲気温度の影響

サンプリングガス温度（雰囲気温度）に対するNa検出特性への影響を調べるために、LLD検出器近傍のサンプリングガス温度を約20℃（室温）から40℃強まで昇温し試験を行った。試験では、LLD入口の配管を加熱したが、加熱ヒータの性能から昨年度のLLDを用いた同試験に比べて試験最高温度が低いものとなった。試験におけるサンプリングガス流量は2リットル/minとした。試験時のNa濃度は、フィルタ分析結果によれば $1.8 \times 10^{-10} \text{g/cm}^3$ であった。なお、昨年度試験でもLLDを用いて同様の試験を実施しているが、サンプリングガス温度上昇によりNa検出感度が低下する傾向が見られた。用いたLLDでは、ブレイクダウン室のガラス管が円筒形であり熱変形時の光軸変化がNa検出感度に影響することが考えられたが、本試験では、それら影響を排除した構造を持つ小型LLDを用いた。

図3.4.1に試験結果を示す。図3.4.1は、サンプリングガス温度を上昇させたときの小型LLD信号強度（Na蛍光強度、BG光強度、それらの差等）を表したものである。Na蛍光強度とBG光強度の差であるLLD出力を、サンプリング温度との関係で表すと図3.4.2の様になる。昨年度試験結果及び前記の他の試験項目と同様に、縦軸をLLD信号/Na濃度（規格化値）として表すと、サンプリングガス温度の影響は図3.4.3の様になる。なお、図3.4.3では、ガス温度上昇に伴い単位体積当たりのNa密度が低下する効果を補正している（理想気体モデルで考え、温度1℃上昇と共に密度が $1/273$ 減少するとした。）。

図3.4.4に、ガス温度上昇に伴う小型LLD光学部の温度分布状況及び光学部温度測定ポイントを示す。

3.5 試験結果検討

(1) 予備試験結果

図3.1.1のNaベーパー発生器のポット上部空間の温度とNa濃度の関係の結果を、昨年度試験時のデータと比較すると、ポット内温度に対するNa濃度の傾きが小さくなっている。しかし、ポット内温度を150℃程度とすればNa濃度 10^{-11}g/cm^3 程度、250℃程度とすればNa濃度 10^{-9}g/cm^3 程度となるので、ポット内温度を調節することで、昨年度試験時と同様に所定のNa濃度が設定できることが確認できた。

LLDのNaエアロゾル検出感度を昨年度試験結果と比較した図3.1.2は、感度が昨年度試験結果に比べて約 $1/3$ になったが、分析セルのブレイクダウン室のガラス管を新しい物と交換すると図3.1.3の結果となり、昨年度試験結果とほぼ同感度が得られた。これらの結果は、昨年度試験で保温材燃焼などによりガラス管内面に清掃しにくい物質が付着したために、十分な清掃ができなかったため光学的に減衰が生じて

いたためと考えられる。

図3.1.4の小型LLDのNa検出感度特性は、Na濃度 $10^{-11}\text{g}/\text{cm}^3$ オーダの計測が可能であり、Na濃度 $10^{-9}\text{g}/\text{cm}^3\sim 10^{-11}\text{g}/\text{cm}^3$ の範囲でほぼ直線性が得られているので、Na濃度と感度がほぼ比例していることが分かる。また、LLDを用いた昨年度試験結果と比較すると、両対数グラフ上で、ほぼ同じ様な傾きであることが分かる。なお、昨年度試験結果のLLDは、Na濃度 $10^{-8}\text{g}/\text{cm}^3\sim 10^{-11}\text{g}/\text{cm}^3$ の測定が可能ないように調整を行ったが、今回新たに用意した小型LLDは、より低濃度における検出性能の向上を目的としてNa濃度 $10^{-9}\text{g}/\text{cm}^3\sim 10^{-11}\text{g}/\text{cm}^3$ の測定に適した感度の調整を信号処理部に行っており、これに伴って同一Na濃度に対するカウント数が一桁程度増加している。また、図3.1.5の小型LLDの出力信号は、LLD (LLD-SIG) - (LLD-BG) : Naの蛍光信号とバックグラウンド信号強度の差) のカウント値が約400で、ほぼ一定の安定な出力が得られている。また、約43分後の位置でNa蒸気の発生を停止しているが、その後LLD信号強度が追隨して0近傍となる様子も示されており、適正な出力特性の状況であることが分かる。

(2)炭酸ガス濃度の影響

図3.2.1からLLD信号は、炭酸ガス濃度（つまり生成物である炭酸Na濃度）の影響をほとんど受けないことが分かる。しかしながら、炭酸Naが存在する場合にはややばらつきが大きくなる傾向が見られるが、有意な差と言えるほどではなく、水分及び炭酸ガスが存在する実機条件においてもNa検出感度は影響されないと考えられる。

(3)燃焼エアロゾルの計測特性

図3.3.1～図3.3.3の様に、本試験では約20分後（20.6分）にNaベーパー発生器に空気を導入しているが、初期Na温度が 200°C と比較的低いためNaはすぐには燃焼を開始せず、ポット内温度は空気の導入により低下傾向にある。ポット内温度は23分前後で一定となりその後上昇してゆくが、この時点でNa燃焼が開始したと考えられる。LLD-SIG及びLLD-BGは22.8分あたりから上昇を開始し、24分過ぎから急激に出力が上昇している。なお、出力上昇の初期の段階では、LLD-BGの方がLLD-SIGよりも上昇は早いため、LLD-差はマイナスとなっている。一方、参考のために計測したRID信号に最初の徴候が現れたのはRID-1, RID-2とも25.0分頃であり、ここから急激に出力が上昇している。そして、27分あたりでLLD, RIDとも出力が飽和した。ポット内温度は28分あたりで 300°C に到達し、その後低下傾向に転じており、Na燃焼が終息方向に向かったと考えられる。LLD及びRIDの出力飽和はその後も継続し、33分過ぎに計測範囲に復帰している。

なお、Na濃度を定量するために、27分から30分にかけて3分間フィルタサンプリングを行った（写真2.2.10のフィルタ写真は、本試験時の状態で白色のNa酸化物が多量捕集されている。）。原子吸光分析を行って確認したNa濃度は $8.8 \times 10^{-7} \text{g/cm}^3$ という高濃度であった。

また、蛍光信号処理装置で記録保存されたデータである図3.3.4も燃焼にともないLLD出力（LLD-SIG, LLD-BG）は上昇し始め、Na蛍光信号であるLLD-SIGが飽和した。一方バックグラウンド信号であるLLD-BGは、LLD-SIG飽和後も増加し続けている。図3.3.4のLLD-BG信号は、図3.3.1～図3.3.3の記録計器と異なる信号処理回路部分があり計測レンジの違いにより、LLD-BGは飽和しなかったものと考えられる。これより、実際のNaエアロゾルは、図3.3.4のLLD-BG信号のようになめらかに上昇して下降したものと類推できる。なお、信号が飽和しているために、図3.3.3と図3.3.4のLLD出力（LLD-差）は実際とは異なる値である。特に図3.3.4では、演算される一方の信号（LLD-SIG）が飽和し、もう一方の信号（LLD-BG）が飽和していないので、Na濃度上昇により減衰する逆方向への誤った信号と成っている。

図3.1.4で中央部分のデータ欠落しているのは、LLD-BG信号が減少傾向に転じた時、分析セルのガラス管のくもりが心配されたため、2分間にわたりレーザを停止し、分析ガラス管を目視でチェックしたためである。その結果、くもり等の異常は観測されなかったが、この間、LLD信号データの記録が中断している。

以上のように、本試験結果により、LLDがNa燃焼エアロゾルに関しても十分な感度と応答を示すことが分った。特に、LLDはRIDで検出不可能なNa燃焼初期の徴候を捕らえており、Na漏洩の低濃度における早期検出の可能性が確認できた。但し、本LLDの信号処理系は、Naの低濃度時の感度を高める様に設定していたために、他の感度評価試験項目に比べて高いNa濃度となった本試験項目ではLLD信号が飽和してNa濃度に比例する正しい値にならなかった。Na濃度に比例した信号値を得るには、低濃度と高濃度の計測では計測系の設定を変えるなどの対応をとる必要があると考えている。

また、今回実施した燃焼試験は試験工程の都合上、1ケースのみであるとともに、信号処理系が飽和して正確なLLD出力値が分からなかった。燃焼エアロゾルの影響を詳細に評価するためには、さらに低濃度域のNa濃度による試験を行いデータを蓄積することが必要と考えられる。

(4) 雰囲気温度の影響

小型LLDの検出部入り口配管を加熱してサンプリングガス（雰囲気）温度を変化させたときの小型LLD出力（LLD-SIG, LLD-BG, (LLD-差：LLD-SIGとLLD-BGの差))は、時系列グラフで示すと図3.4.1の様にサンプリングガス温度上昇に伴い下がる傾

向が見られる。サンプリング温度に対するLLD出力(LLD-差)で整理すると図3.4.2のようになる。図3.4.2をガス温度上昇に伴い単位体積当たりのNa密度が低下する効果を補正すると図3.4.3の様に若干緩和されるものの、ガス温度上昇に伴い明らかに出力低下が見られる。これらは小型LLDの試験結果は、昨年度試験のLLDを用いた同試験項目結果⁸⁾と同様である。

まず、サンプリングガス温度変化時における検出部の光学的な影響を考えると、光学部において検出信号に影響を与えそうな所はブレイクダウンを行うガラス管部とその金属ホルダ部である。ガス温度上昇に伴い小型LLD光学部の温度分布状況は図3.4.4の様になり、ガラス管部温度はガス温度に追従するとともにホルダ部は最大約8℃上昇する。しかしながら、本試験に使用したガラス管は平板を使用しているため、熱膨張により位置ずれが発生してもLLD出力に影響は余りないと考えられる。

もう一つの原因として、LLDはブレイクダウン光を検出するものであるが、図3.4.3で補正したサンプリングガス温度上昇によるNa密度の減少以外に、ガス温度が上昇したことにより空気の密度が減少しブレイクダウンが起りにくくなりブレイクダウン時の発光量自体が減少することが知られている¹⁾。本試験でも、サンプリングガス温度の上昇により図3.4.1の様に、Naに依存しないバックグラウンドのブレイクダウン光強度(LLD-BG)そのものが減少していることがわかる。更にサンプリングガス温度を上昇させるとNa蛍光強度とBG光強度は更に減衰して、ほぼ零となることが予想されるが、実際に試験時においてサンプリングガス温度を約50℃にした場合、ブレイクダウンの発生頻度が著しく低下し、本小型LLDでは出力信号(LLD-SIG, LLD-BG, LLD-差)を計測できなくなった。なお、この時、昇温したサンプリングガスをLLD部分から一時的にバイパスすると、LLD検出部温度は昇温時と変わらないにもかかわらず、ブレイクダウンは安定して正常に発光することも確認されており、検出部の熱膨張の影響ではないことがわかる。

以上の様に、本試験においても昨年度試験と同様にLLDにはサンプリングガス温度依存性の傾向が認められる。これについては、実プラントでのLLDの使用温度(例えば最高55℃以上)を考慮しても、今後更に詳細な試験評価をすることが必要であると考える。また、サンプリングガス温度影響を減少させる方法として、ガス温度上昇によりNa蛍光信号(LLD-SIG)とBG光信号(LLD-BG)の双方が同様に減少することから、現状のLLDで採用しているNa蛍光信号とBG光信号の差を用いる手法から、それらの比を用いる手法にすることも有効と考えられる。

第4章 結論

昨年度⁸⁾に引き続いて、レーザ誘起ブレイクダウン分光法を用いたNa漏洩検出器(LLD)の感度評価試験を行い、以下の知見を得た。

- 1) 炭酸ガス濃度のNa検出感度への影響は、試験範囲であるNa濃度 10^{-9} g/cm³から 10^{-11} g/cm³、水分濃度0.01vol%以下～2vol%、炭酸ガス濃度0.2 vol%、サンプリングガス(輸送ガス)流量2リットル/minにおいて認められなかった(これは炭酸Naが存在するような条件を含む)。これにより、実機条件のような水分や炭酸ガスが存在する状態でもLLDの検出性能は変化ないことが分かった。
- 2) 燃焼エアロゾルの計測特性は、実験室内の空気を直接Naペーパー発生器内にサンプリングガス流量2リットル/minで送り、金属Na約10gを燃焼させて計測した。燃焼により発生したNaエアロゾルは 8.8×10^{-7} g/cm³という高濃度になり、本LLDの信号出力は飽和して正確な計測値を得られなかった。しかしながら、LLDの信号はNa燃焼初期の段階から反応を示しており、Na蒸気を反応させてエアロゾルを生成したときと同様に即応性が認められる。漏洩Naにより発生したエアロゾルに対しても、LLDは十分な検出感度と早期検出性を示すと考えられる。
- 3) 昨年度試験時に、雰囲気温度(サンプリングガス温度:LLD検出部近傍の温度)上昇によりLLDのNa検出感度が低下する傾向が見られた。本試験では、温度変化による光学系の影響を減少させるために、ブレイクダウン室のガラス管を昨年度試験で用いた円筒状のものから四角柱形状にし、かつレーザ及び受光部等を小型一体化した小型LLDを用いた。しかしながら、雰囲気温度上昇によりLLD出力が低下する傾向が見られ、昨年度試験結果と同様の結果になった。但し、雰囲気温度上昇によりブレイクダウンが起こりにくくなっており、本LLD固有の特性とも考えられる。

今後は、LLDのシステム適用性を明らかにするために、低濃度のNaエアロゾルに対する検出特性評価を行う予定である。また、雰囲気温度影響に関しても、さらに詳細な影響評価を行う予定である。

謝 辞

本試験の実施及び試験データ整理等で御助力頂いた株式会社東芝の竹島徳幸氏，試験データ整理において御協力頂いた原子力システム株式会社の大和田康雄氏に感謝致します。

また，本試験を通して御助言及び御助力頂いた敦賀本部もんじゅ建設所改革推進Grの池田真輝典主幹，滝田雅美氏に感謝致します。

参考文献

- 1) 日本分析化学会編：“原子スペクトル分析（上）”，丸善，（1979）
- 2) 日本分析化学会編：“原子スペクトル分析（下）”，丸善，（1979）
- 3) T. R. Loree and L. J. Radziemskie, et. al.：“Laser-Induced Breakdown Spectroscopy Time-Integrated Applications”，Plasma Chemistry and Prasma Processing, Vol. 1 No. 3, （1981）
- 4) D. A. Cremers and L. J. Radziemski：“Detection of Chlorine and Fluorine in Air by Laser-Induced Breakdown Spectrometry”，Analytical Chemistry, Vol. 55 No. 8, （1983）
- 5) Kay Niemax and Wolfgang Sdorra：“Optical emission spectrometry and laser-induced fluorescence of laser produced sample plumes”，Applied Optics, Vol. 29 No. 33, （1990）
- 6) 不破敬一郎 他：“ICP発光分析”，南江堂，（1980）
- 7) 上原国男，吉川孝三 他：“レーザ励起型ナトリウム漏洩検出器の開発”，日本機械学会通常総会講演会講演論文集，Vol. 68 PP430-432, （1991）
- 8) 林田均，荒邦章：“レーザーブレイクダウン分光法によるナトリウムエアロゾル検出感度評価試験”，JNC TN9400 2000-020, （1999）

表2.3.1 LLD感度評価試験 試験条件一覧表

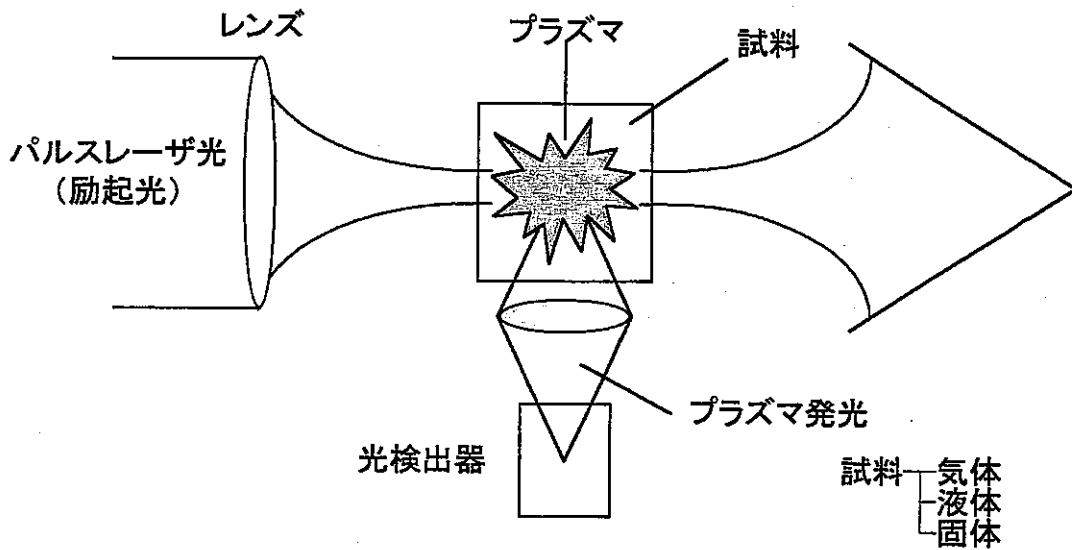
試験項目		Na濃度 (g/cm ³)	流量 (L/min)	酸素濃度 (Vol%)	炭酸ガス濃度 (Vol%)	水分濃度 (Vol%)	備考		
(1) 炭酸ガス影響の確認	1	10 ⁻⁹	2	20	0.2	1			
	2	10 ⁻¹⁰							
	3	10 ⁻¹¹							
	4	10 ⁻⁹							
	5	10 ⁻¹⁰							
	6	10 ⁻¹¹							
	7	10 ⁻⁹						0	0.01以下
	8	10 ⁻¹⁰						0	0.01以下
	9	10 ⁻¹¹						0	0.01以下
(2) 燃焼エアロゾルの計測特性確認		8.8 × 10 ⁻⁷ (試験結果)	2	20	—	0.4~0.5 (実験室)			
(3) 雰囲気温度に対する影響確認		10 ⁻¹⁰	2	20	0	0.01以下	温度: 約24°C~約50°C 小型LLD使用		

表3.1.1 LLD感度評価試験 LLD設定値

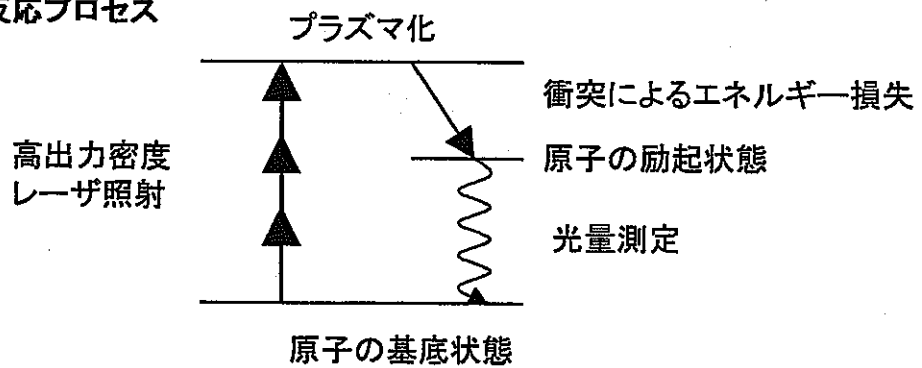
(1) レーザ	パルス出力	約29mJ/pulse(285~295mW)
	繰り返し周波数	10Hz
	波長	1064nm
	パルス幅	4.6ns
(2) 分析セル	NDフィルタ透過率	10%
	Na蛍光用干渉フィルタ	589.2±0.5nm
	BG用干渉フィルタ	590.7±0.5nm
	PMT高圧	約300V
(3) 蛍光信号処理装置	蛍光ゲート遅延時間Td	3 μ S
	蛍光ゲート幅時間Tw	5 μ s
	平均化処理点数	90回(1s周期)


表3.1.2 LLD感度評価試験 小型LLD設定値

(1) レーザ	パルス出力	
	繰り返し周波数	20Hz
	波長	1064nm
	パルス幅	10ns
(2) 分析セル	NDフィルタ透過率	10%
	Na蛍光用干渉フィルタ	589.2±0.5nm
	BG用干渉フィルタ	590.7±0.5nm
	PMT高圧	500~600V
(3) 蛍光信号処理装置	蛍光ゲート遅延時間Td	3 μ S
	蛍光ゲート幅時間Tw	5 μ s
	平均化処理点数	90回(1s周期)



光反応プロセス



光波長は原子に固有  成分同定


光強度 ∝ 原子密度  定量

図2. 1. 1 レーザ誘起ブレイクダウン分光法の原理図

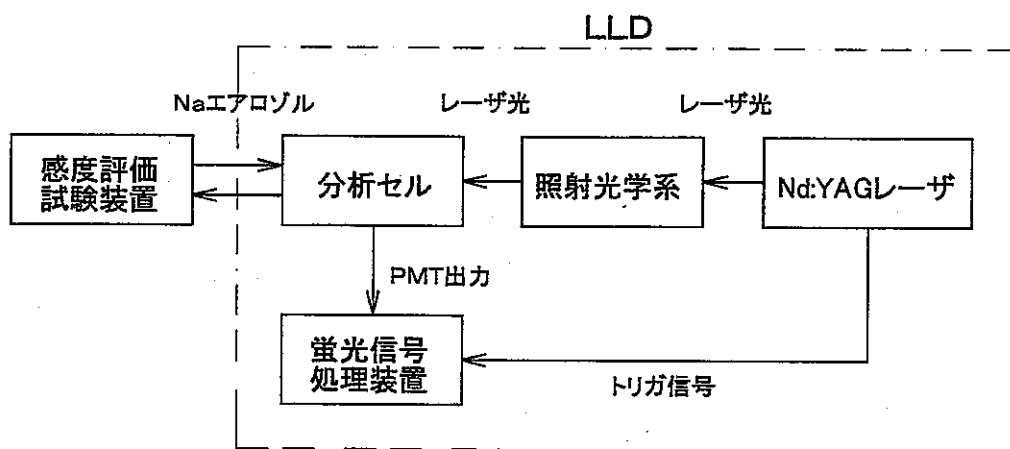


図2. 2. 1 LLDの全体構成

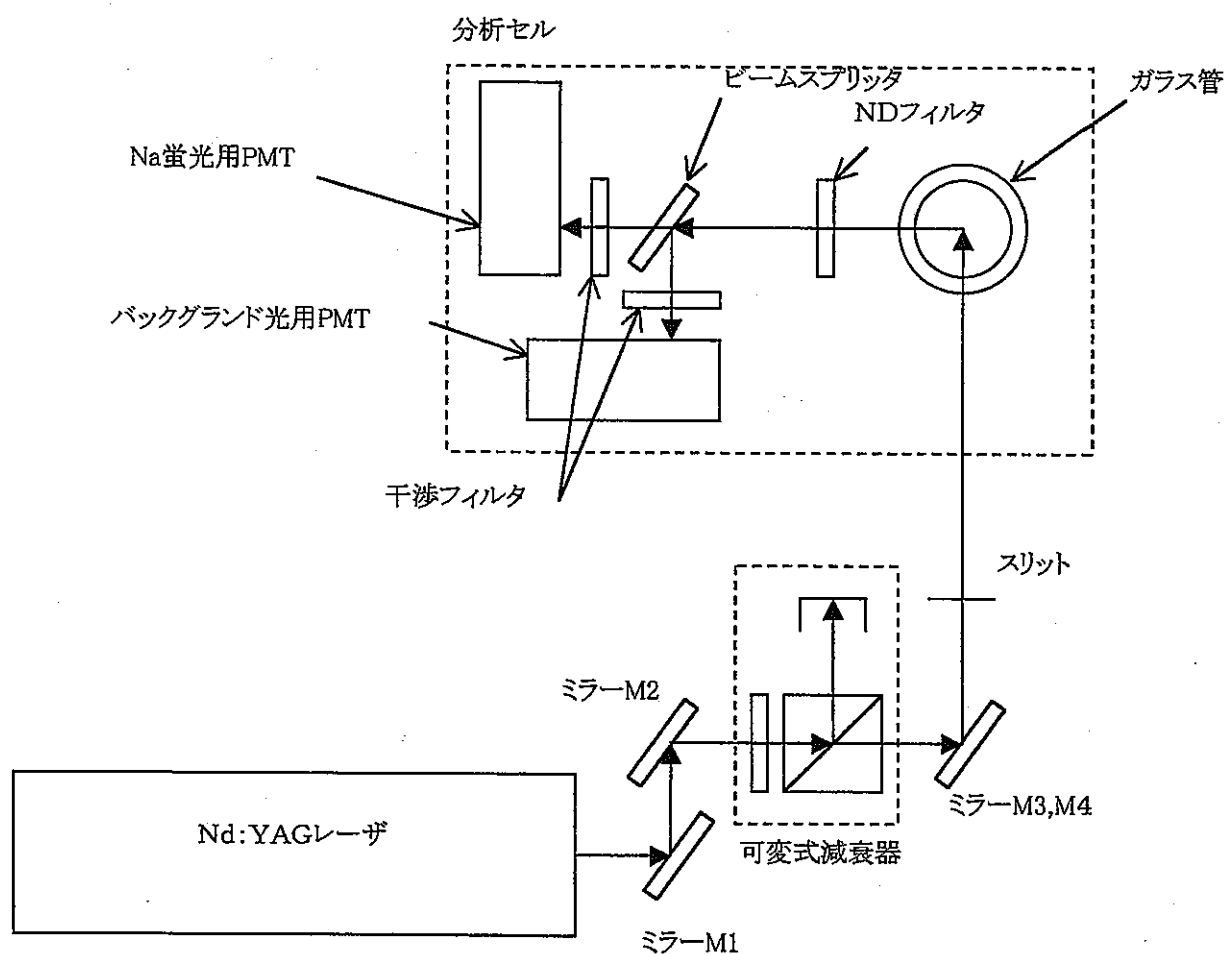
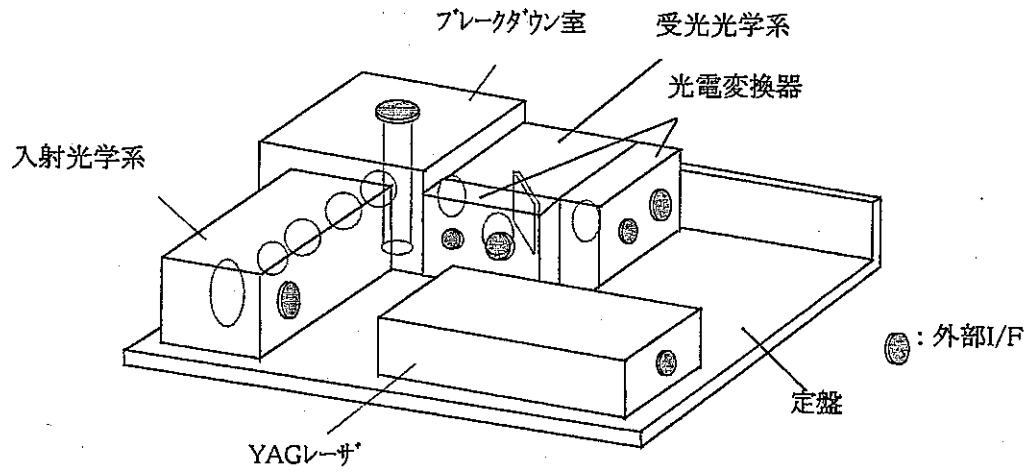


図2. 2. 2 LLDの光路

《光学部》



《電源部》

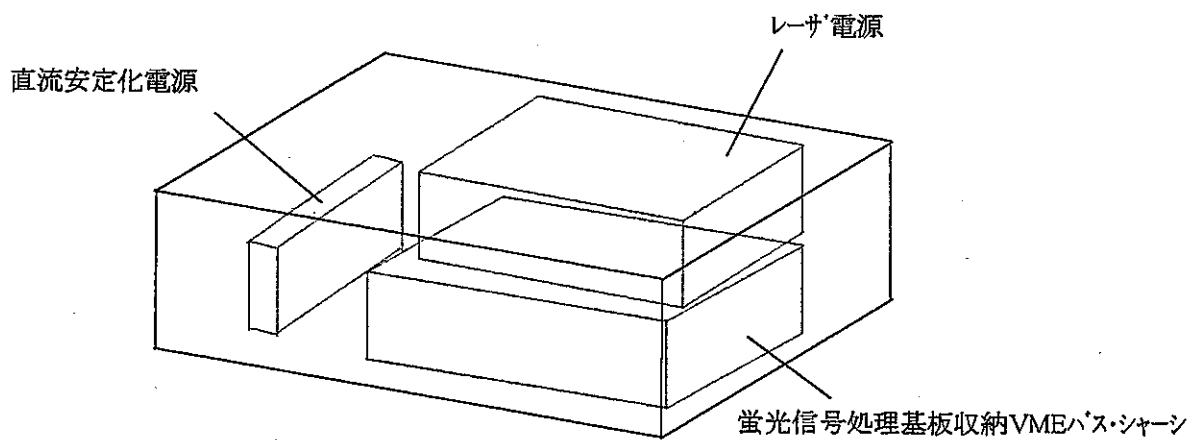


図2. 2. 3 小型LLDの概念図

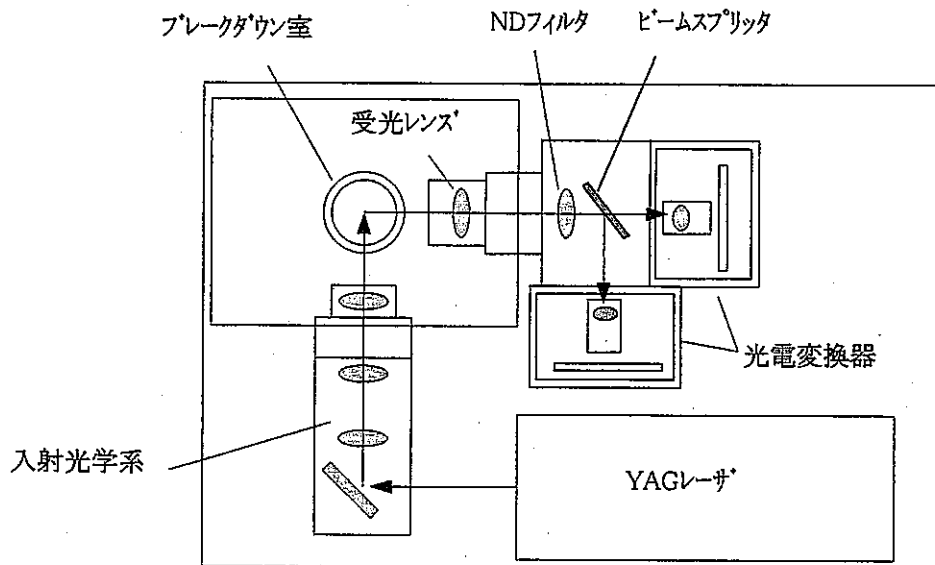


図2. 2. 4 小型LLDユニット光学部の構成

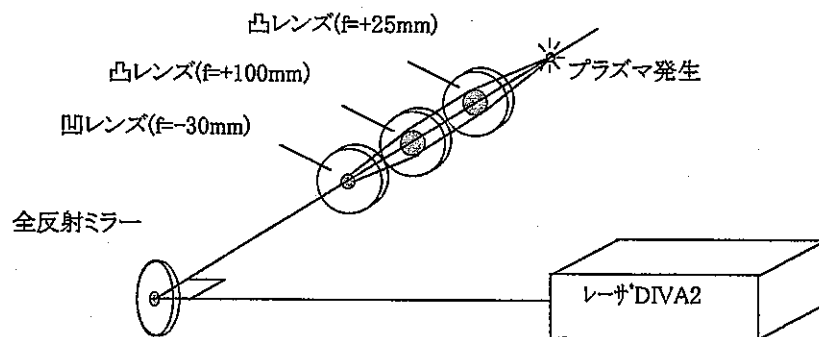


図2. 2. 5 入射光学系の構成図

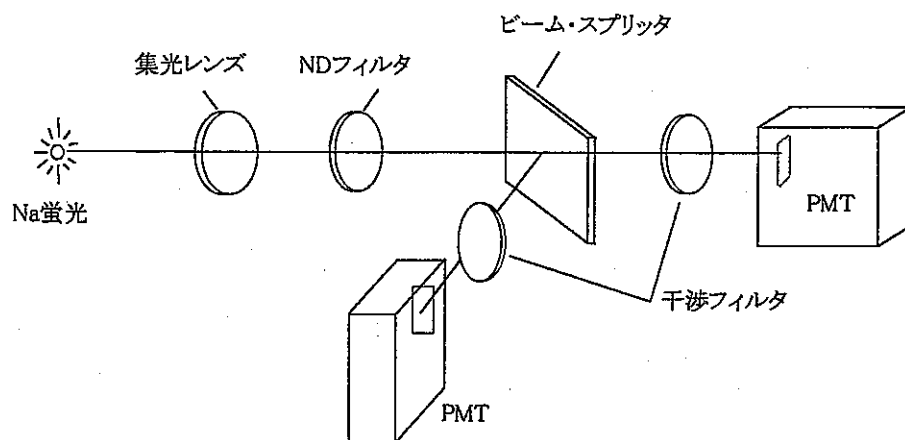


図2. 2. 6 受光光学系の構成図

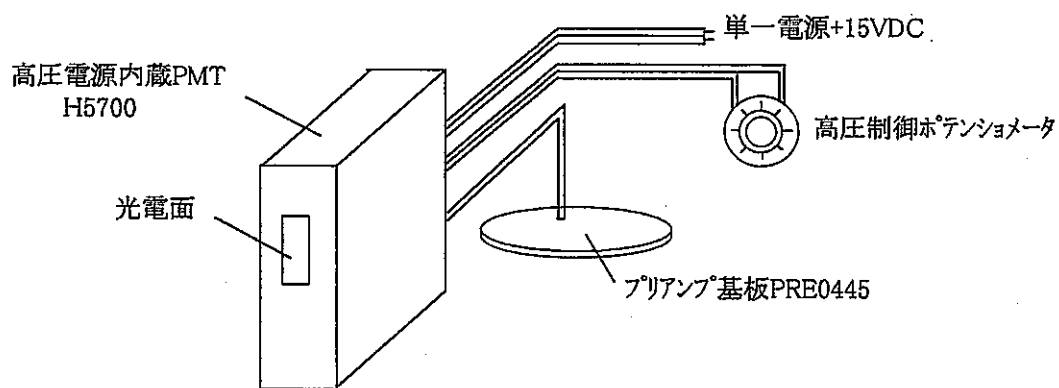


図2. 2. 7 光電変換器の構成と高圧制御方法

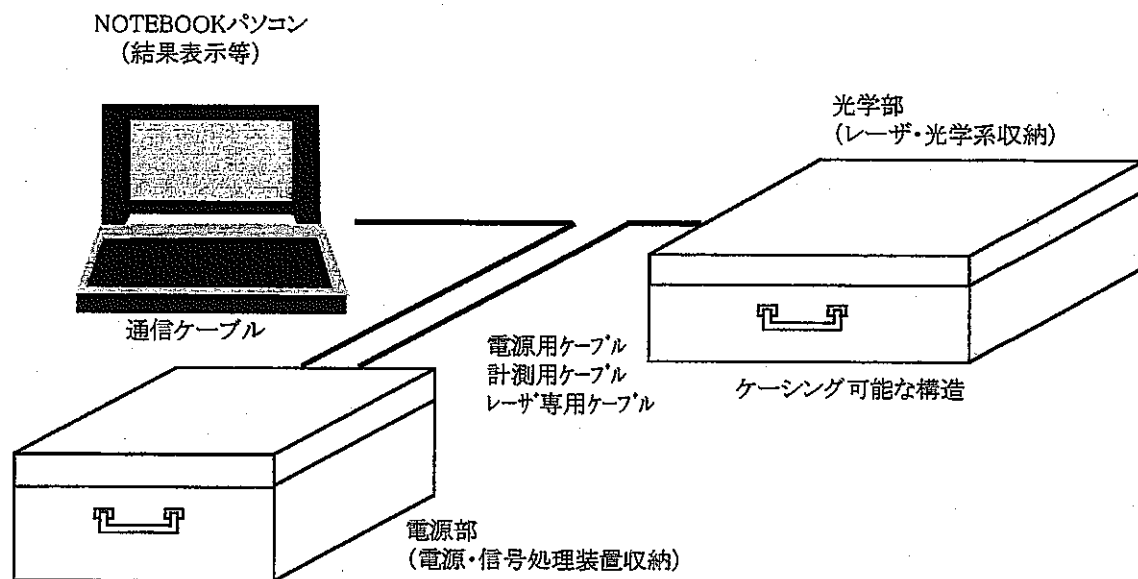


図2. 2. 8 小型LLDユニットの構成図

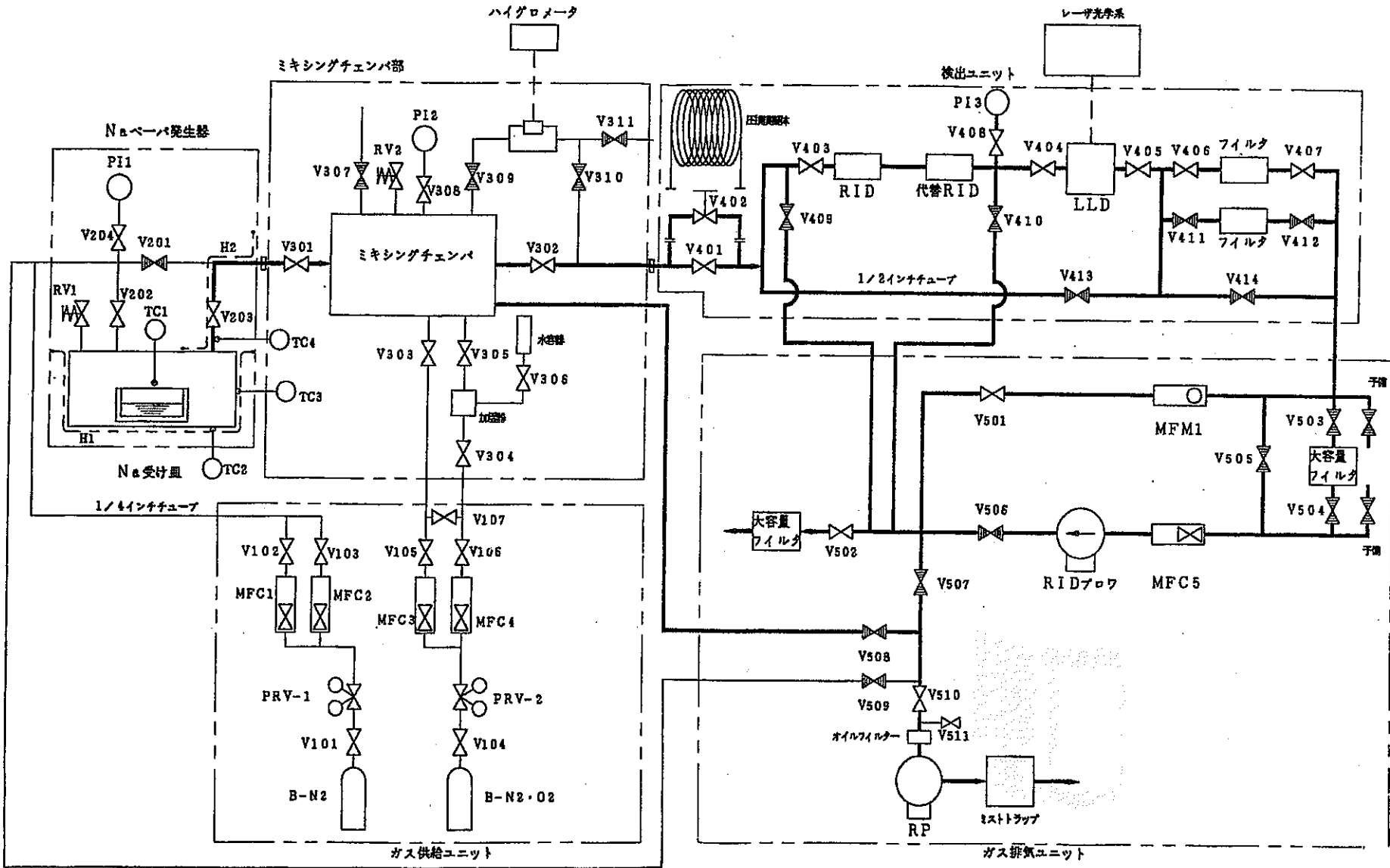


図2. 2. 9 感度評価試験装置フロー図

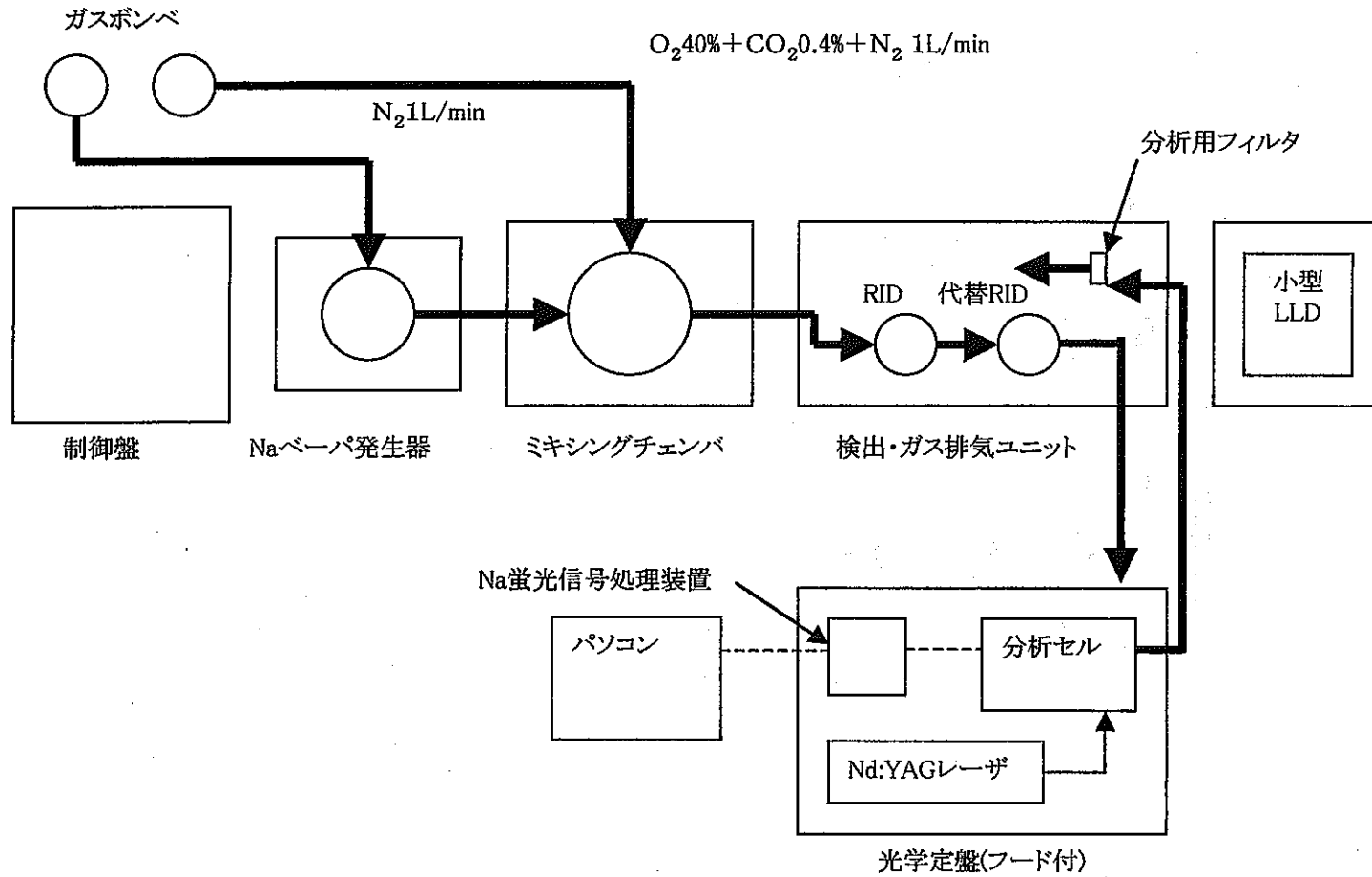


図2. 2. 10 LLD感度評価試験時(炭酸ガス影響)の構成と配置

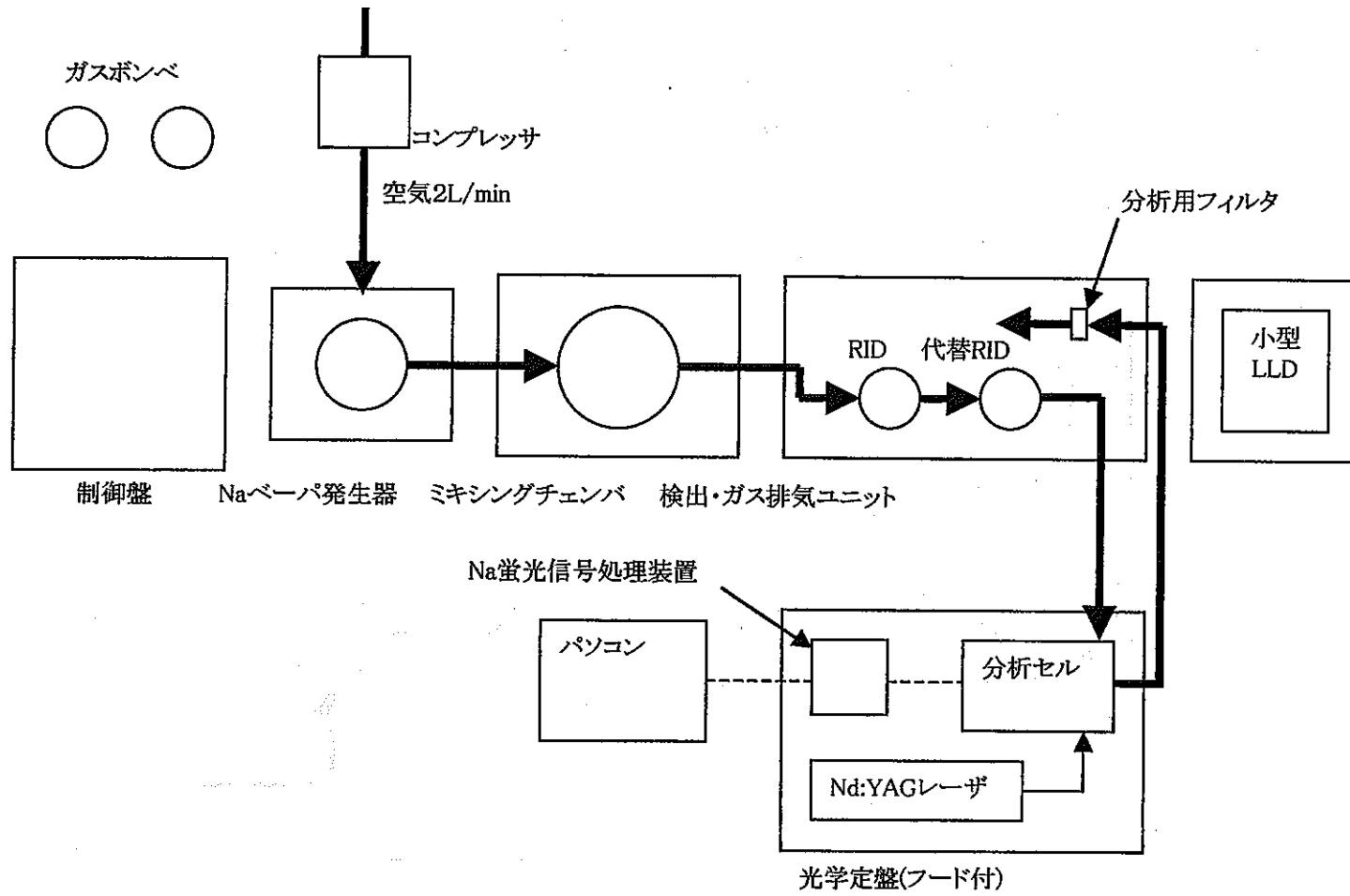


図2. 2. 11 LLD感度評価試験時(燃烧エアロゾル計測)の構成と配置

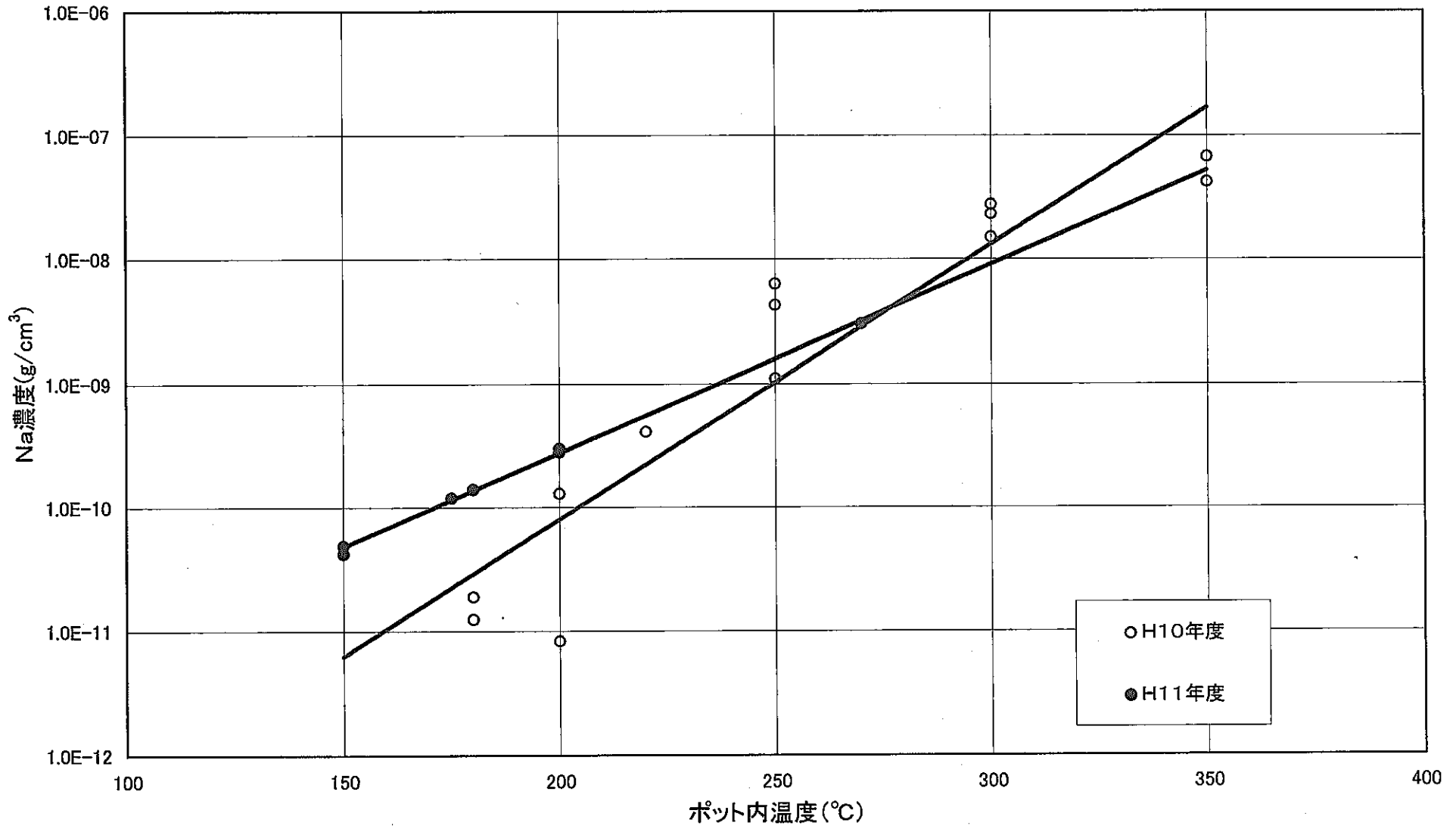


図3. 1. 1 Naペーパー発生器ポット内温度(TC1)とNa濃度の関係

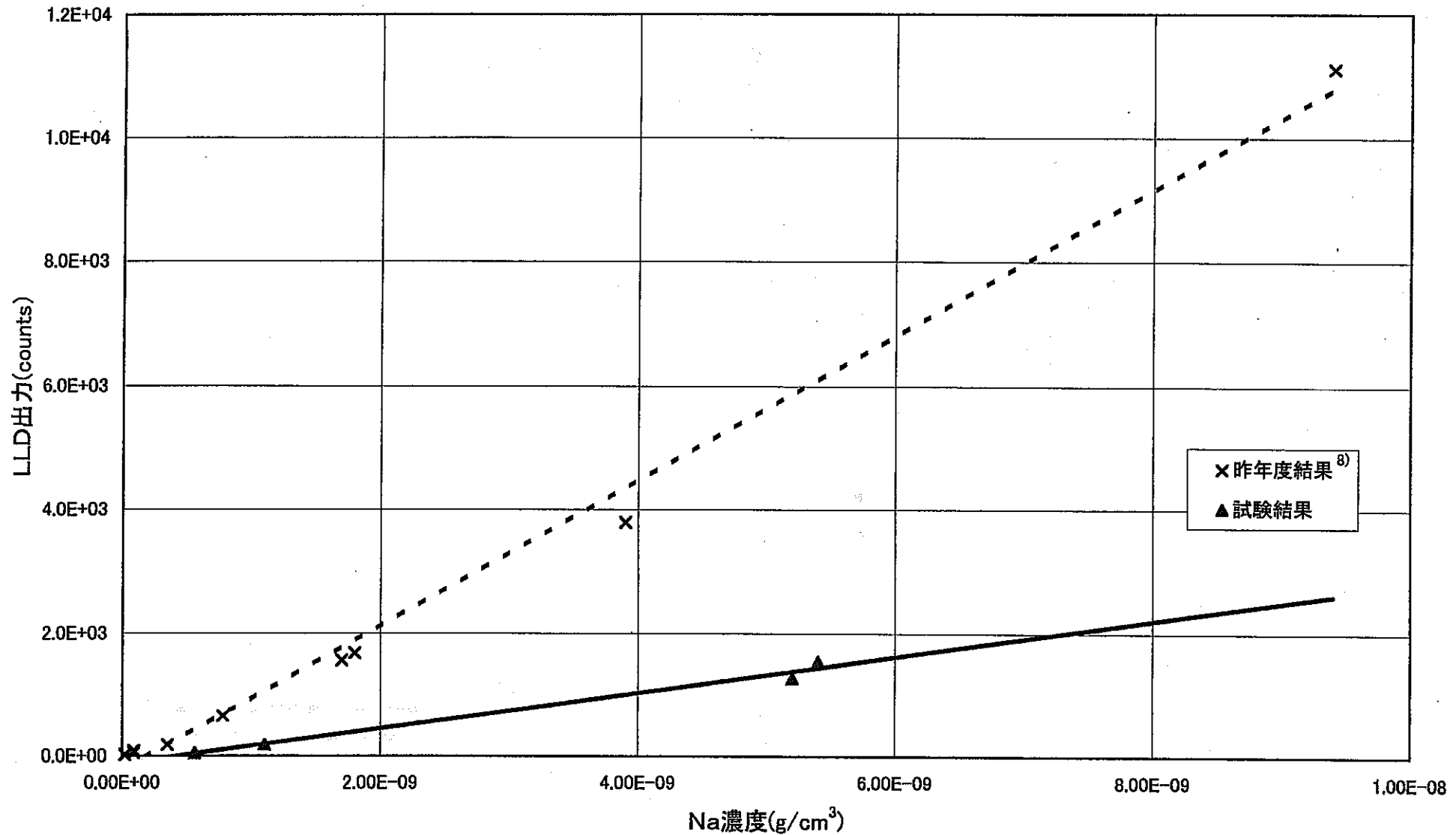


図3. 1. 2 LLD Na検出感度特性

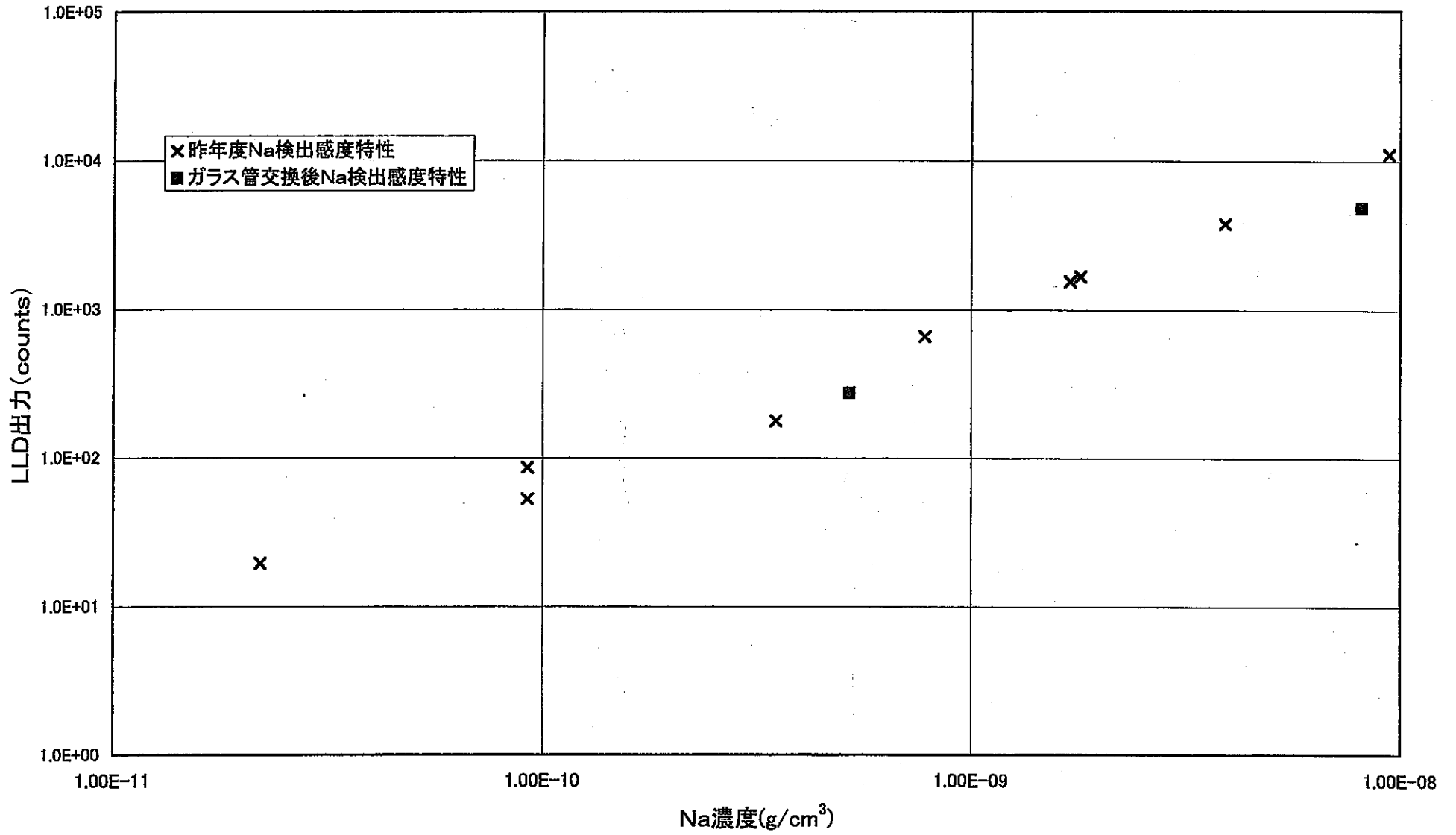


図3. 1. 3 ガラス管交換後データと昨年度データ^{B)}の比較

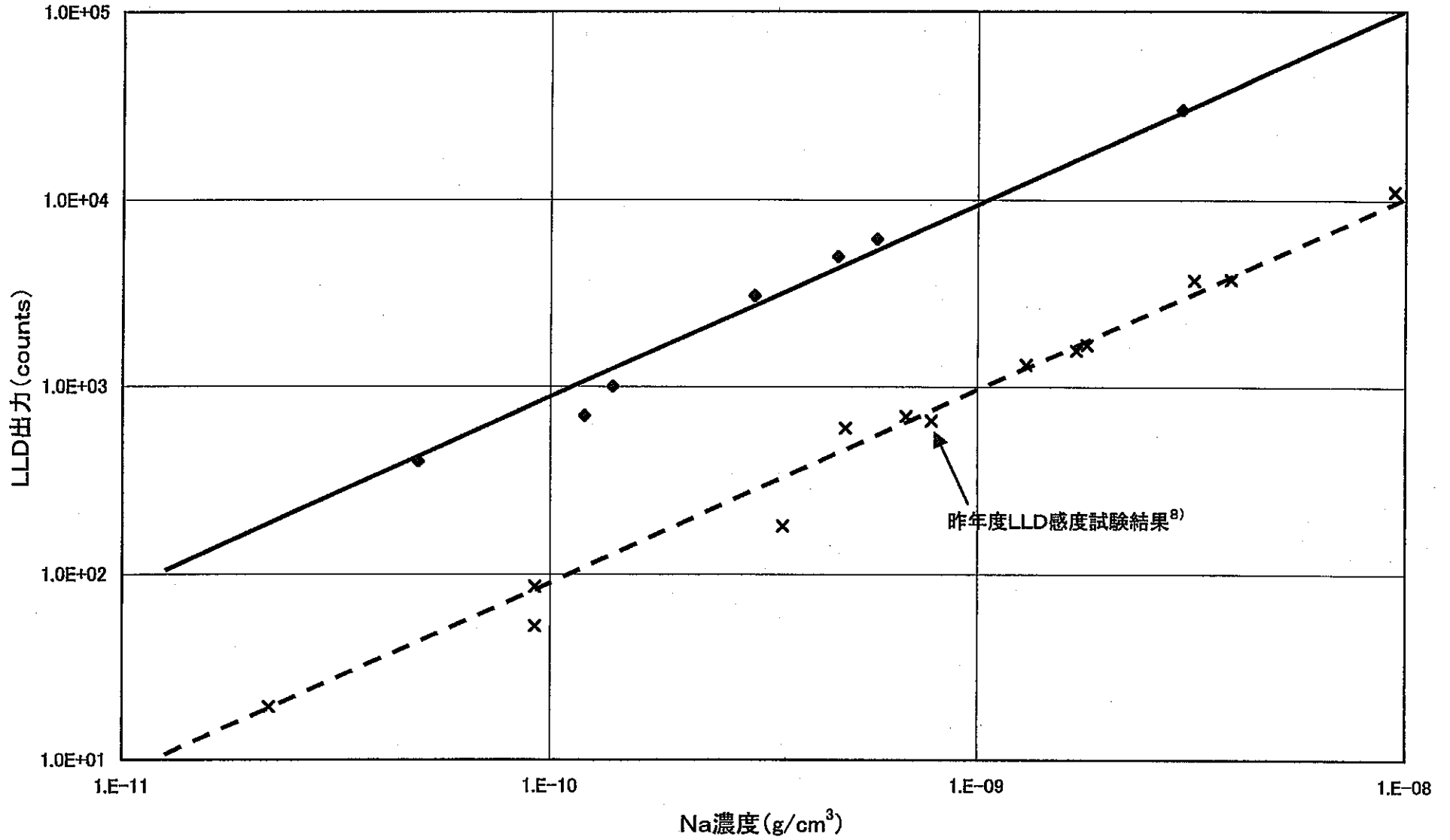


図3. 1. 4 小型LLDのNa検出感度特性試験結果

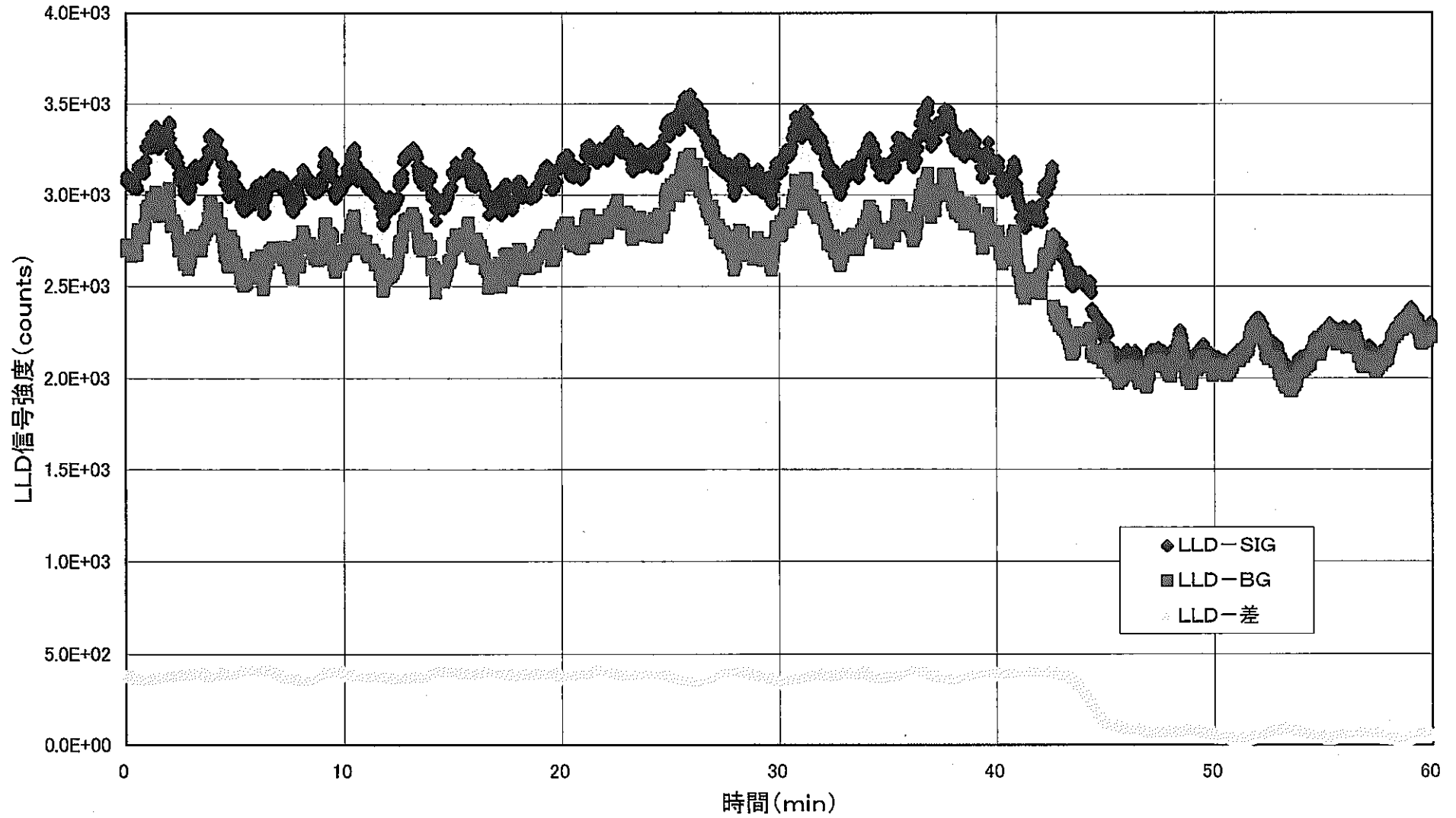


図3. 1. 5 小型LLDのNa検出感度特性試験結果
(Na濃度 $4.9 \times 10^{-11} \text{g/cm}^3$)

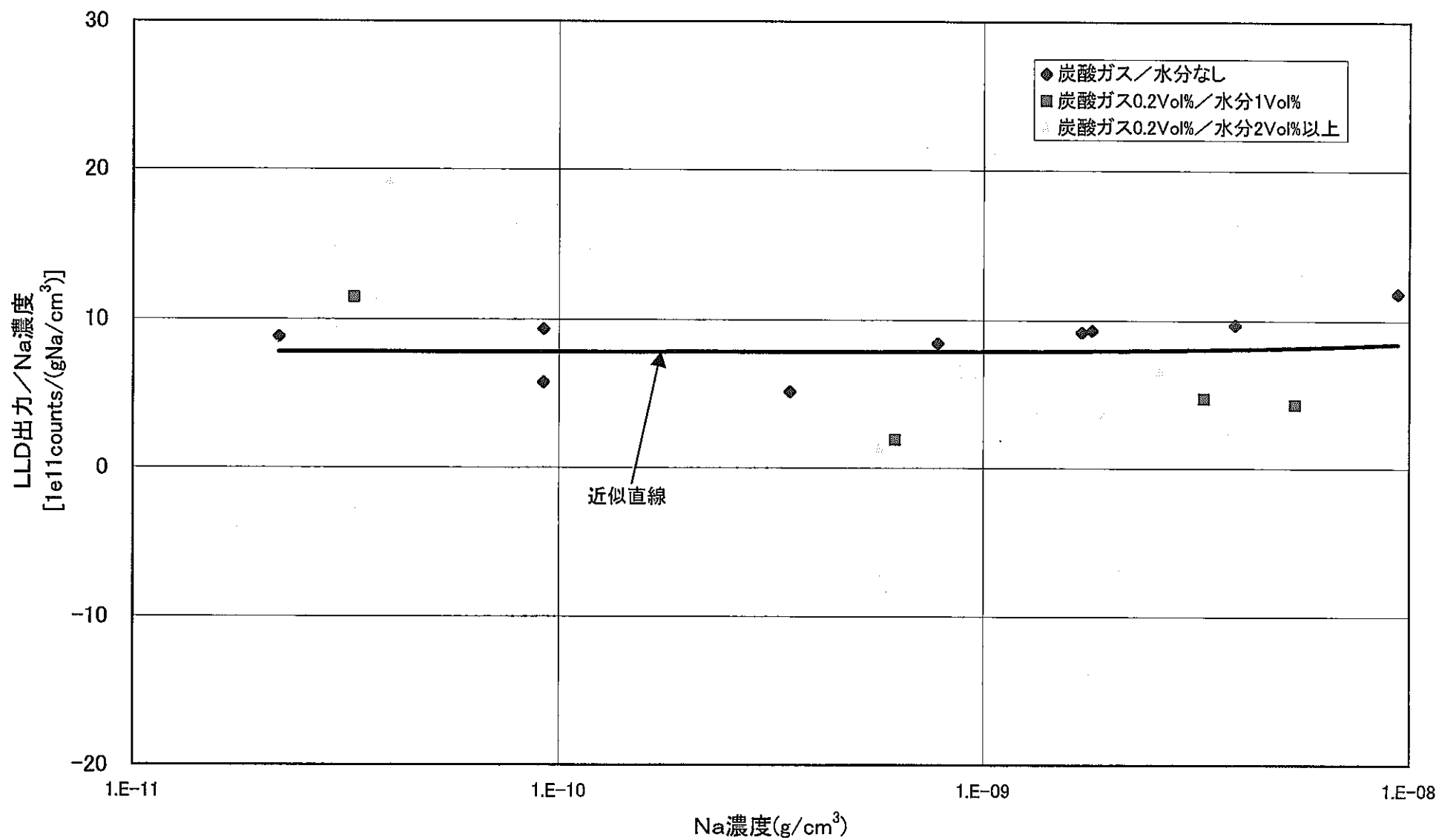


図3. 2. 1 炭酸ガスの検出感度への影響

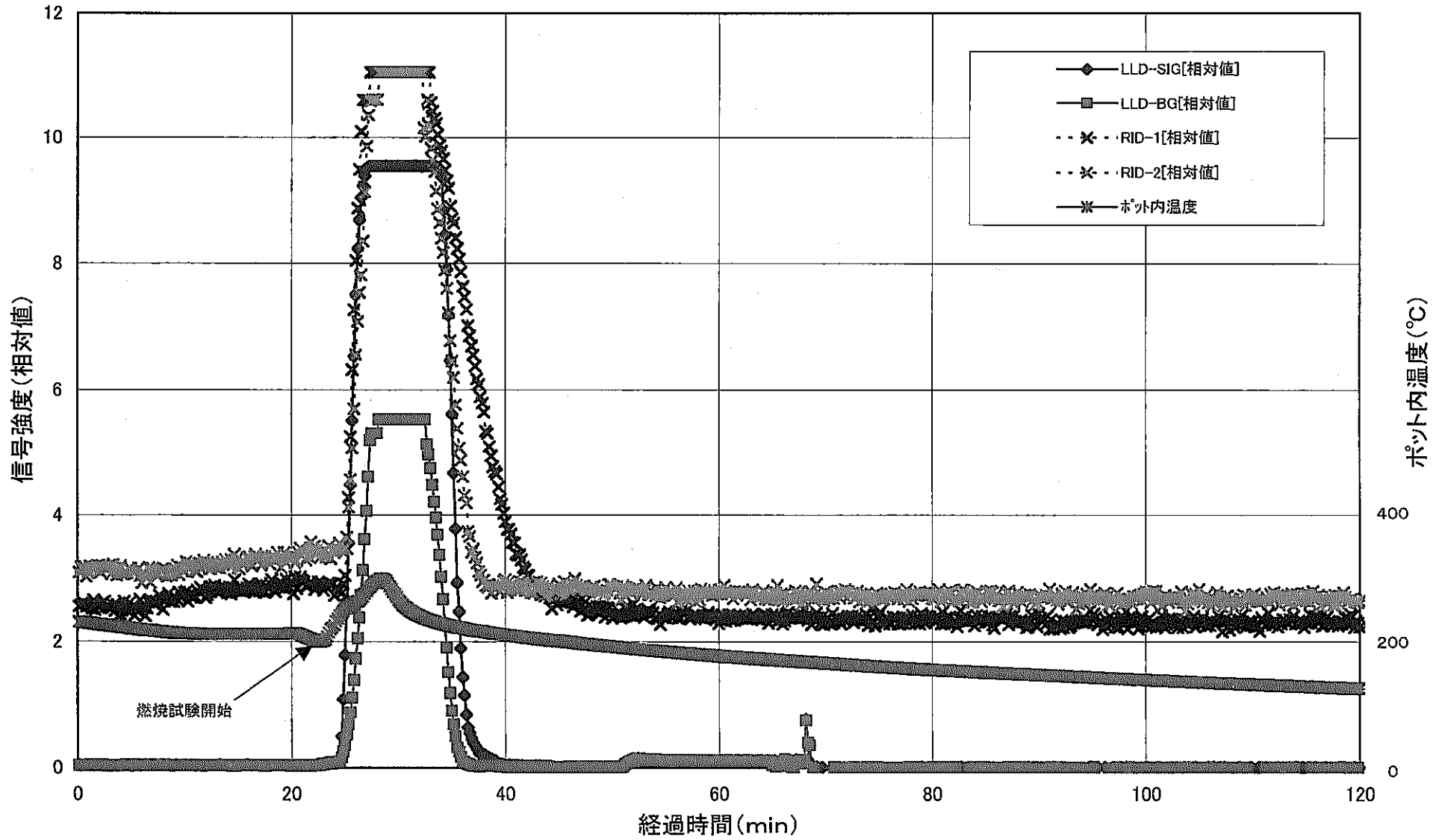


図3. 3. 1 燃焼エアロゾル計測試験時系列データ(120分)

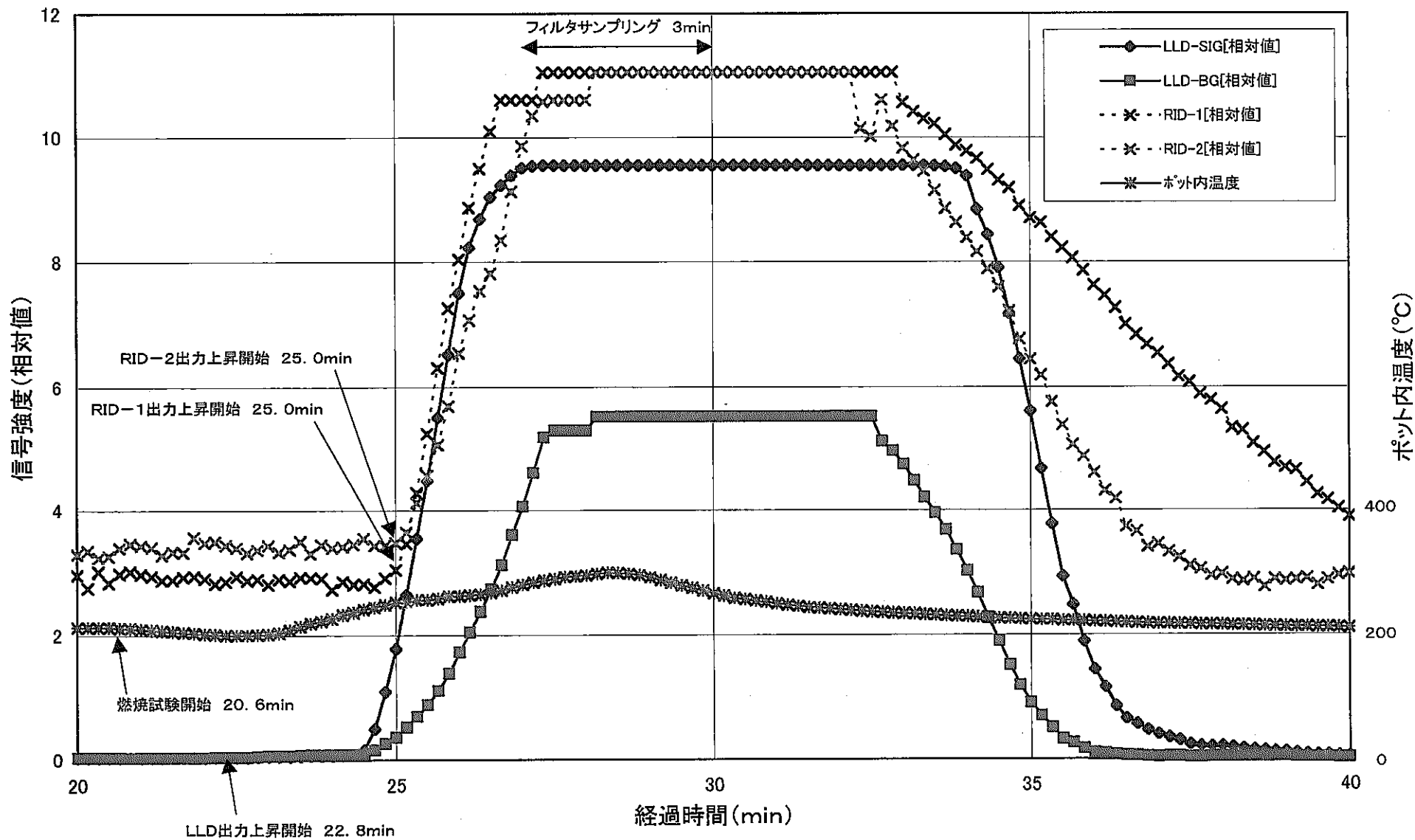


図3. 3. 2 燃焼エアロゾル計測試験時系列データ(20分)

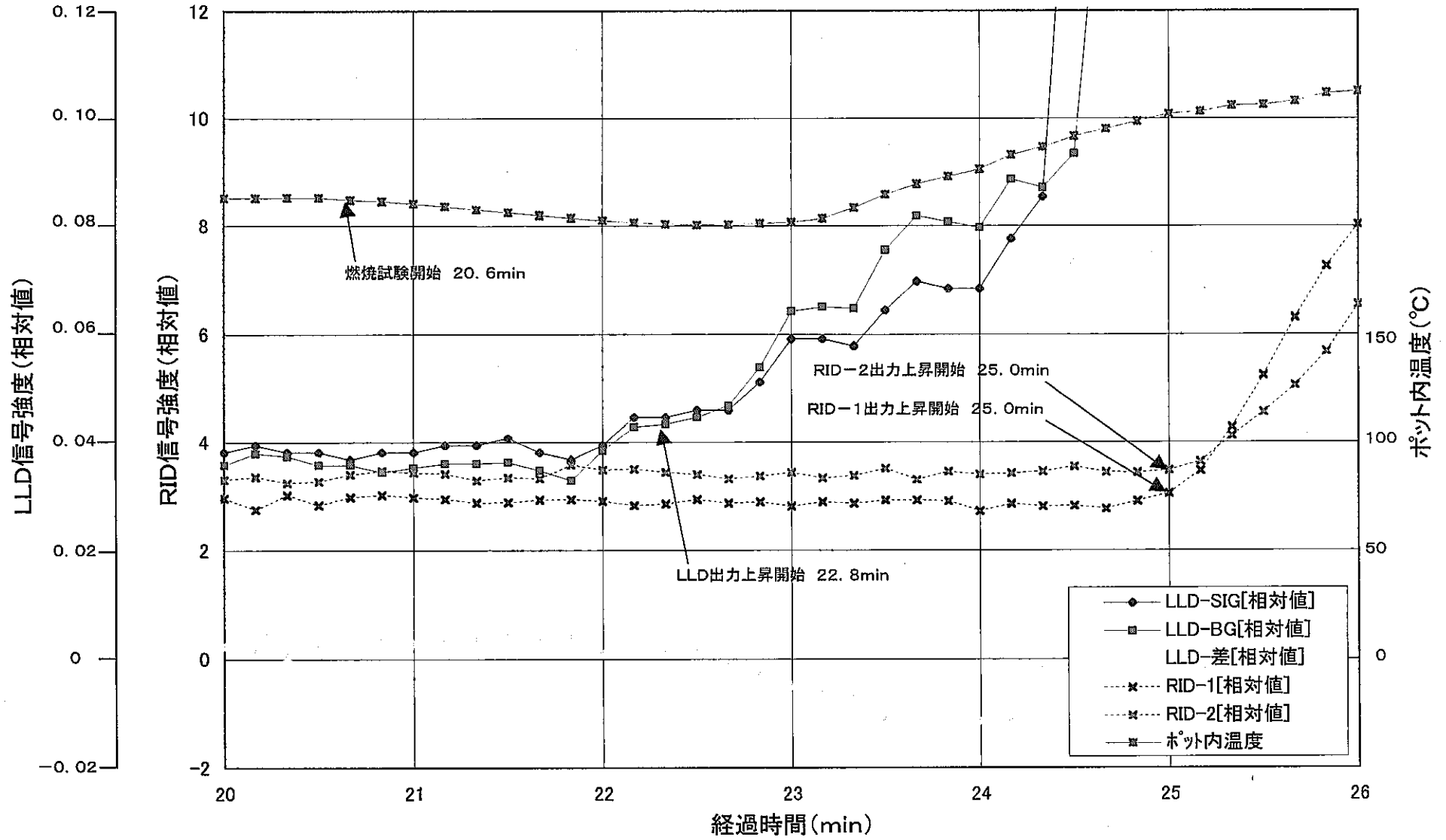


図3.3.3 Na燃焼開始直後の挙動

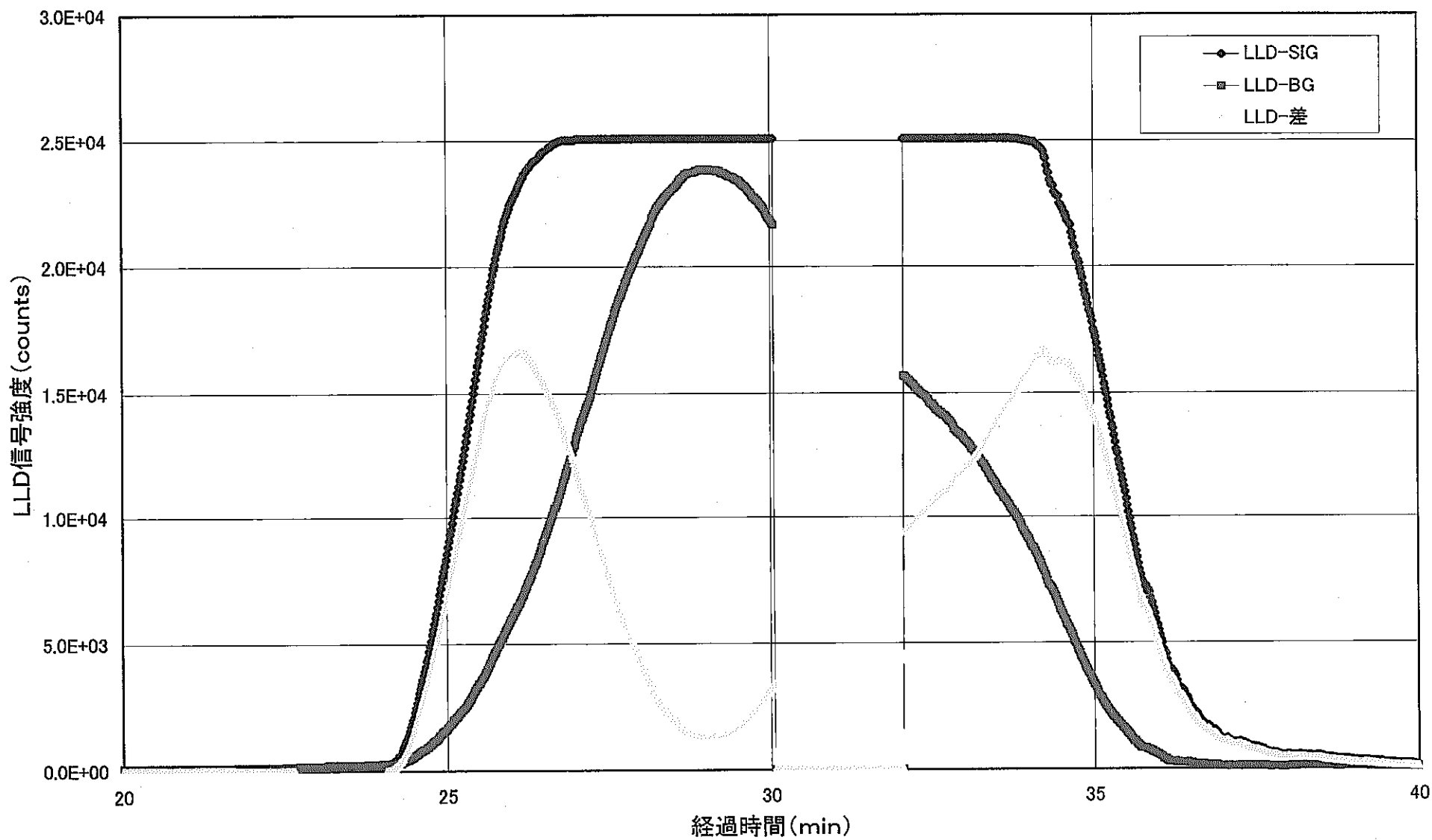


図3.3.4 燃焼エアロゾル計測試験結果

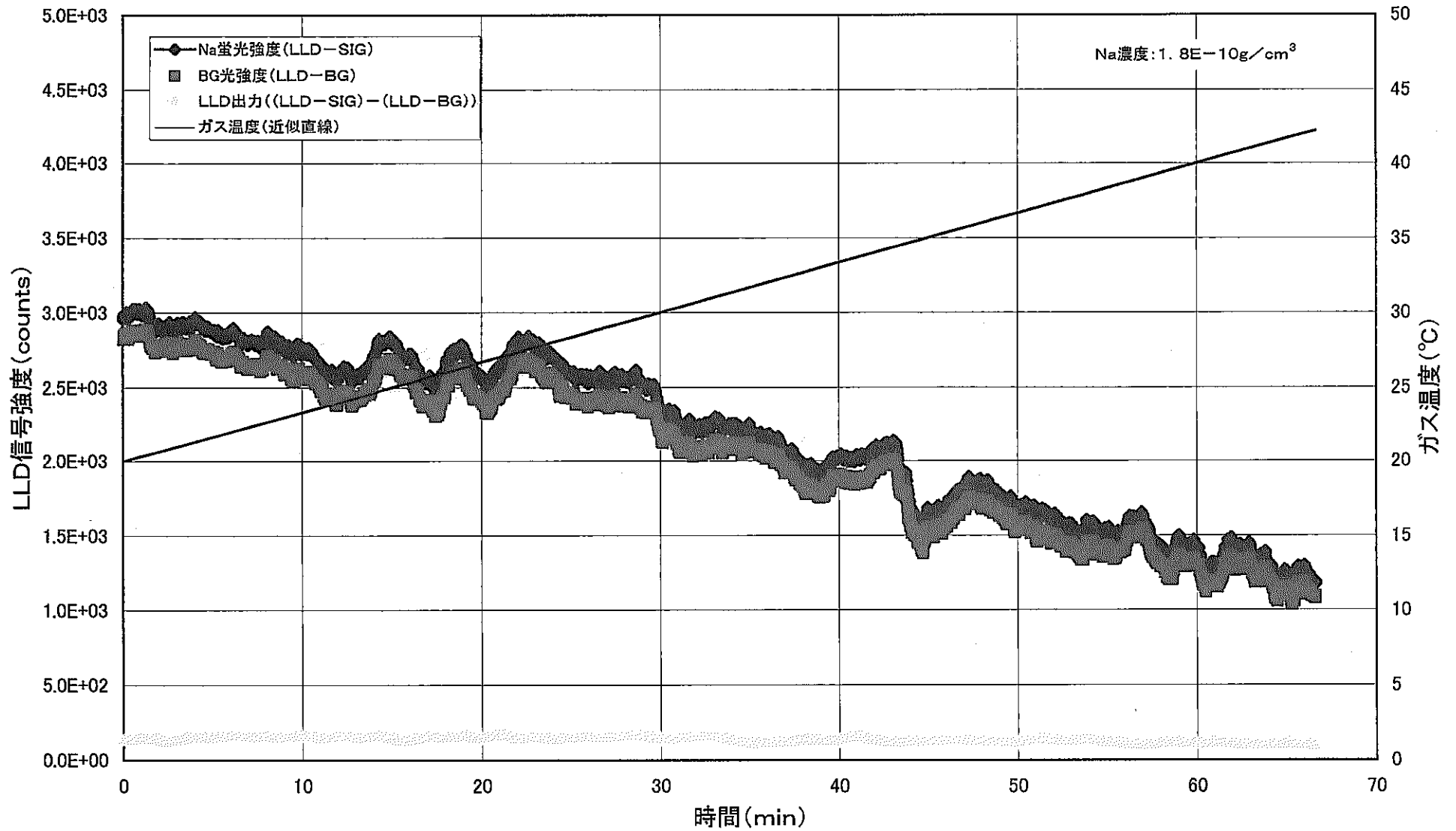


図3. 4. 1 サンプルングガス温度の影響
(時系列表示)

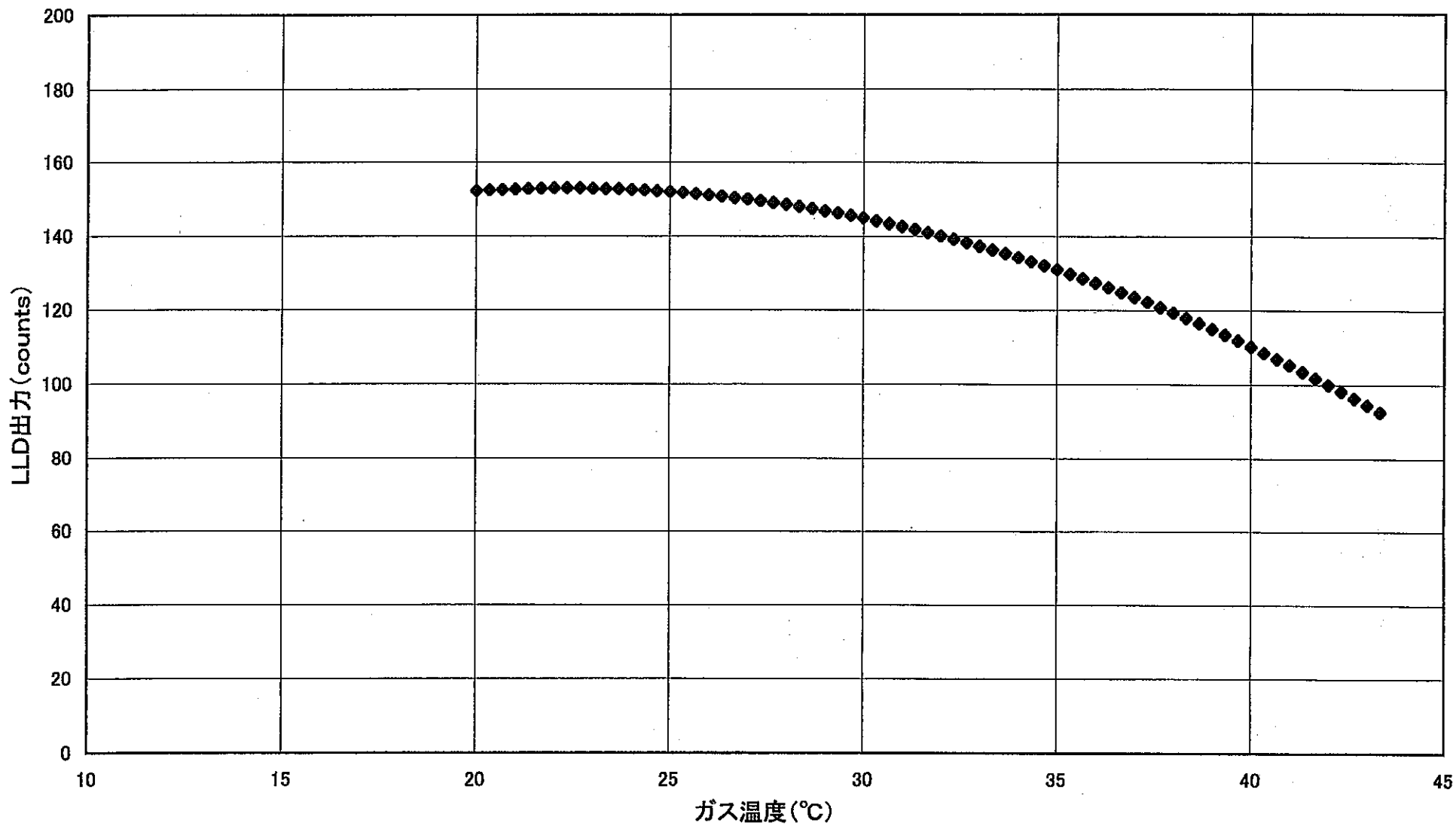


図3. 4. 2 サンプルガス温度の影響
(ガス温度とLLD出力の関係)

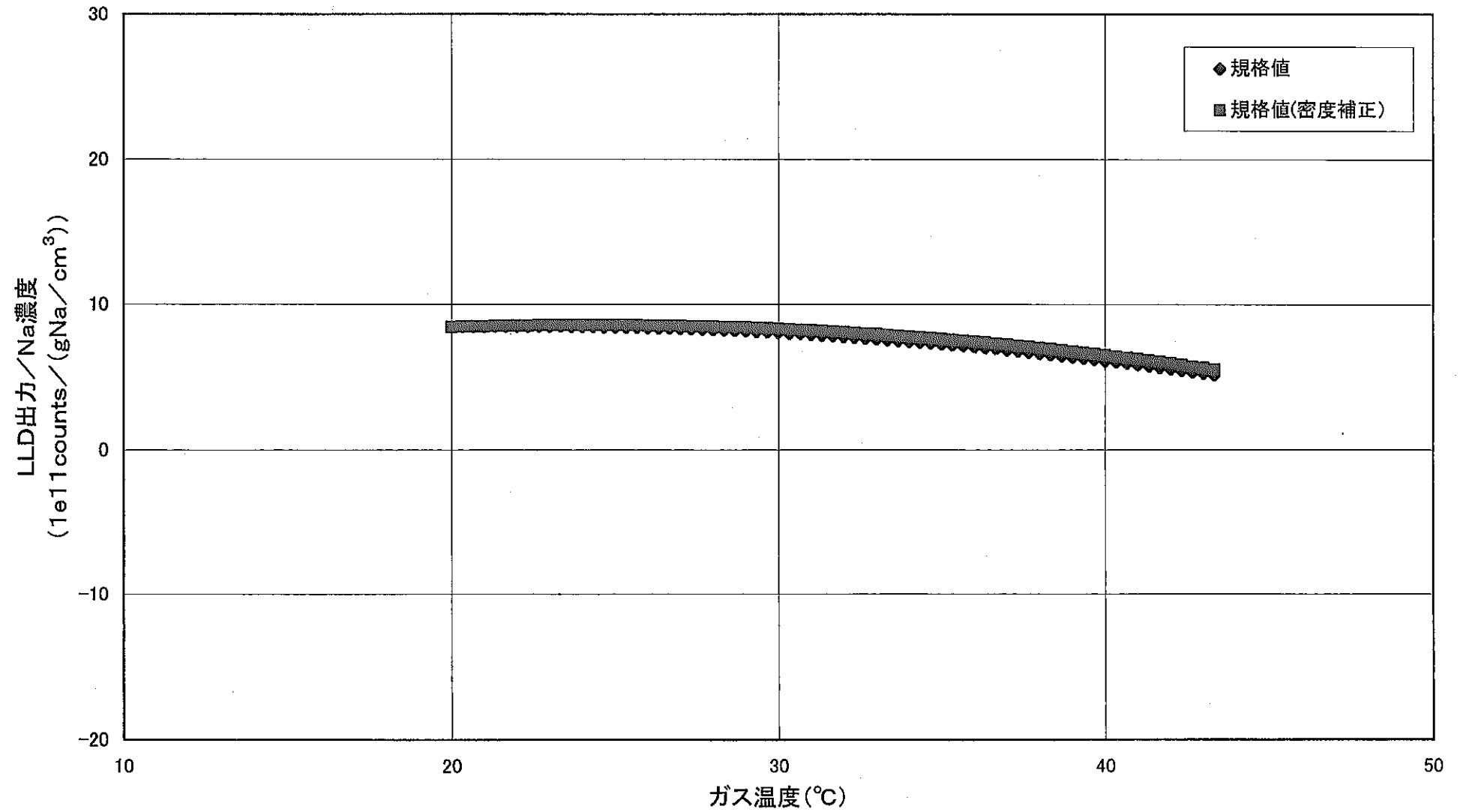
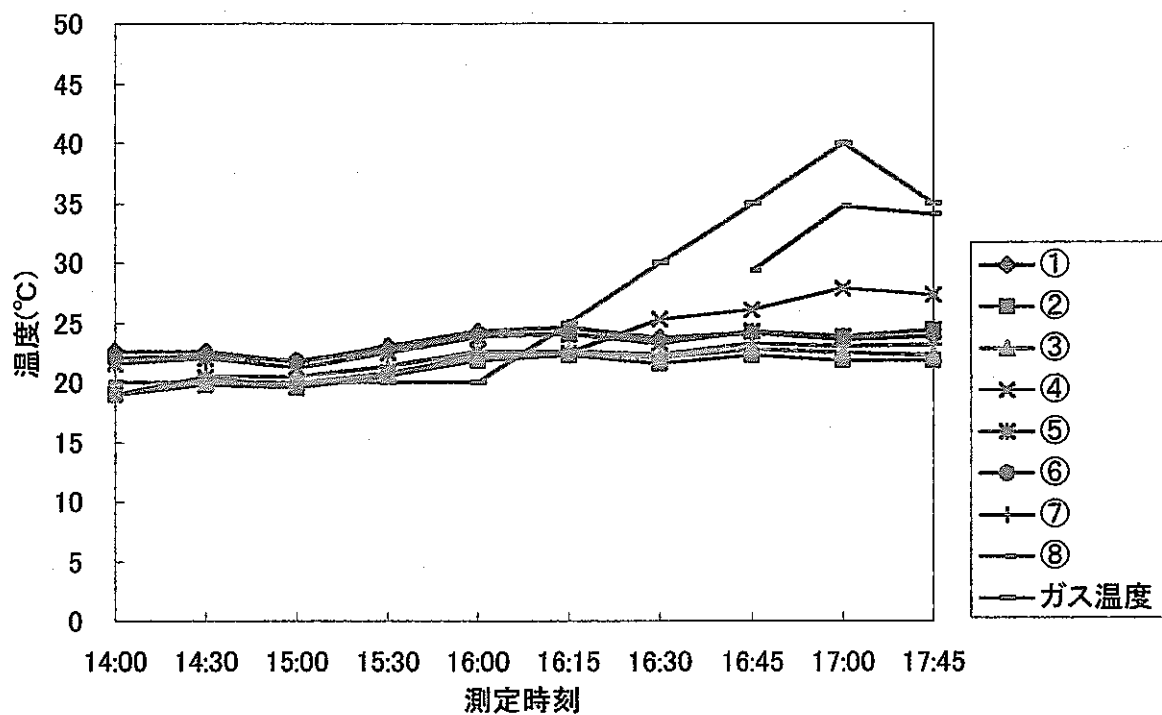
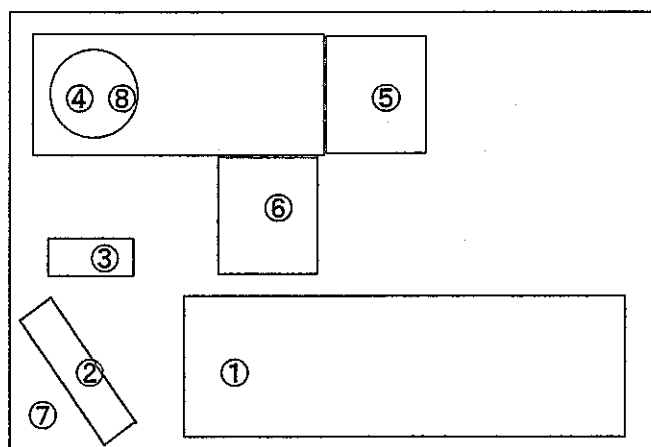


図3. 4. 3 サンプルングガス温度の影響
(規格値表示)



(a) 小型LLD光学部の温度分布



- ① レーザヘッド出射口上面
- ② 全反射ミラー上面
- ③ 凹レンズ上面
- ④ ガラス管金属ホルダー上面
- ⑤ Na測定用小型光電変換器上面
- ⑥ BG測定用小型光電変換器上面
- ⑦ 光学部定盤上面
- ⑧ ガラス管表面

(b) 小型LLD光学部の温度測定ポイント

図3. 4. 4 サンプルングガス温度の影響確認時の小型LLD温度



写真2. 2. 1 YAGレーザー

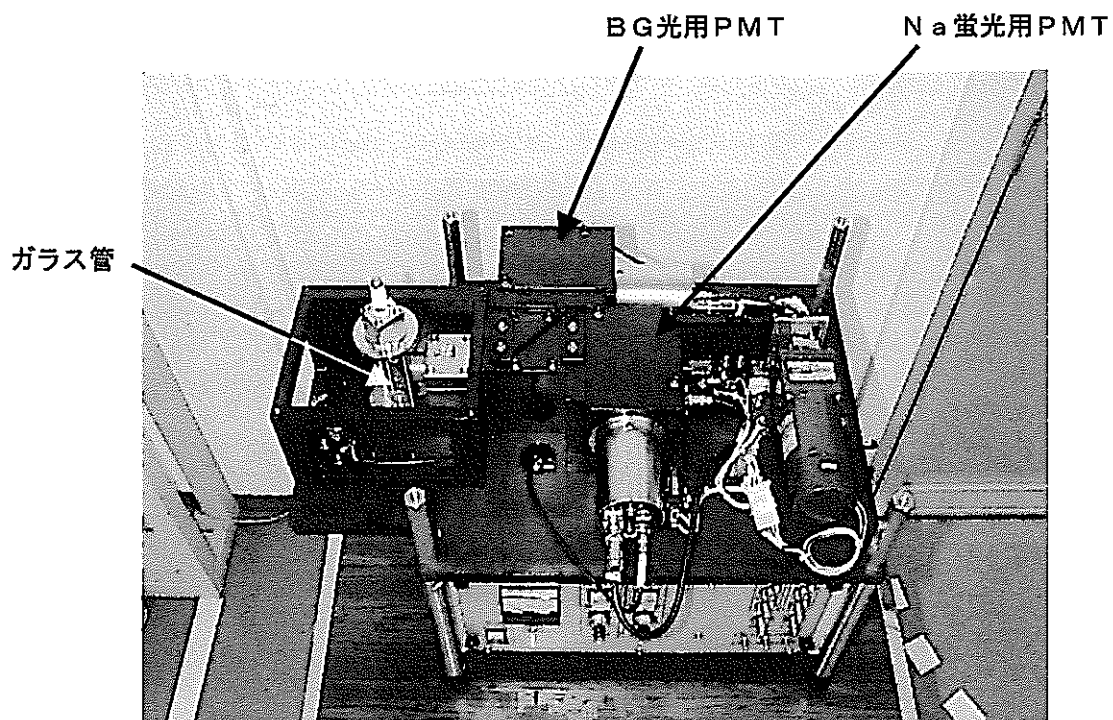
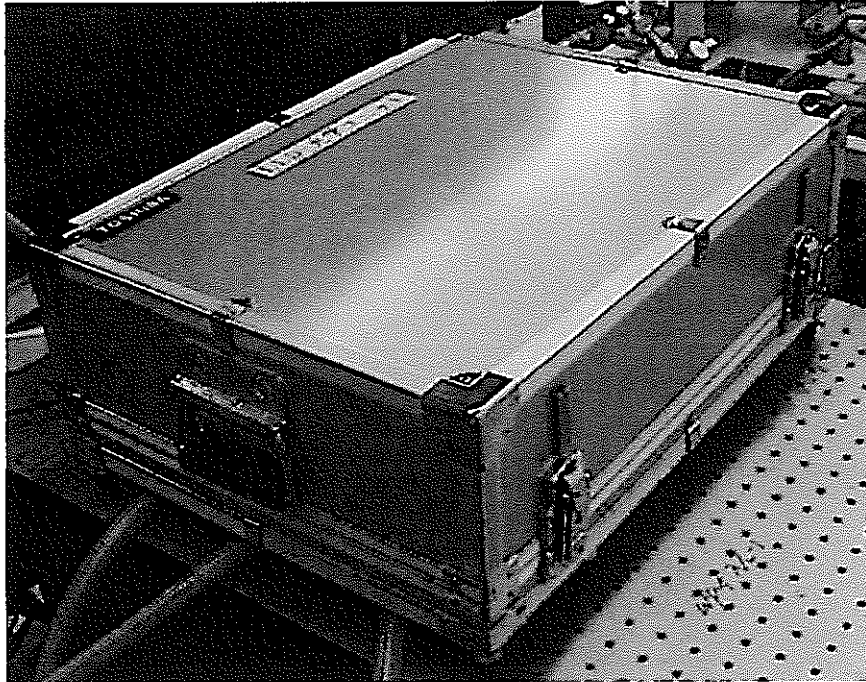


写真2. 2. 2 分析セル



寸法 184mm×468mm×370mm 重量 23.5kg

写真2. 2. 3 小型LLDユニット光学部外観
(ケースカバーを付けたところ)

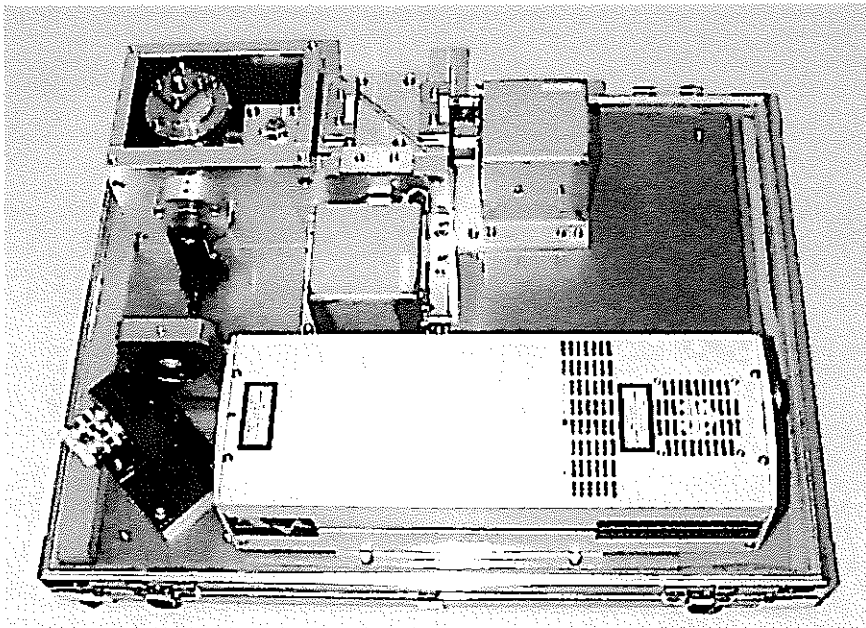


写真2. 2. 4 小型LLDユニット光学部外観
(ケースカバーを外したところ)



寸法 210mm×492mm×359mm 重量 17.4kg

写真2. 2. 5 小型LLDユニット電源部外観
(ケースカバーを付けたところ)

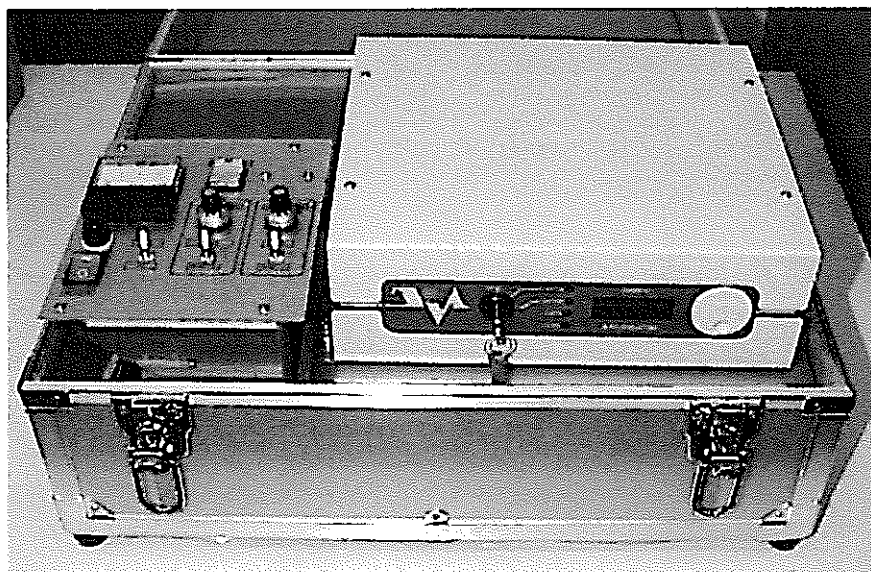


写真2. 2. 6 小型LLDユニット電源部外観
(ケースカバーを外したところ)

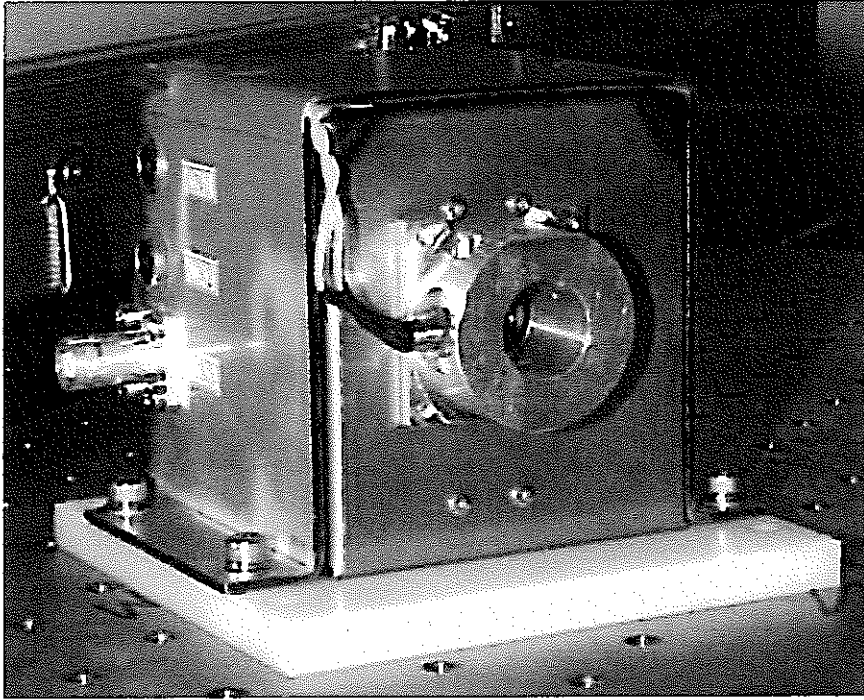


写真2. 2. 7 小型光電変換器外観

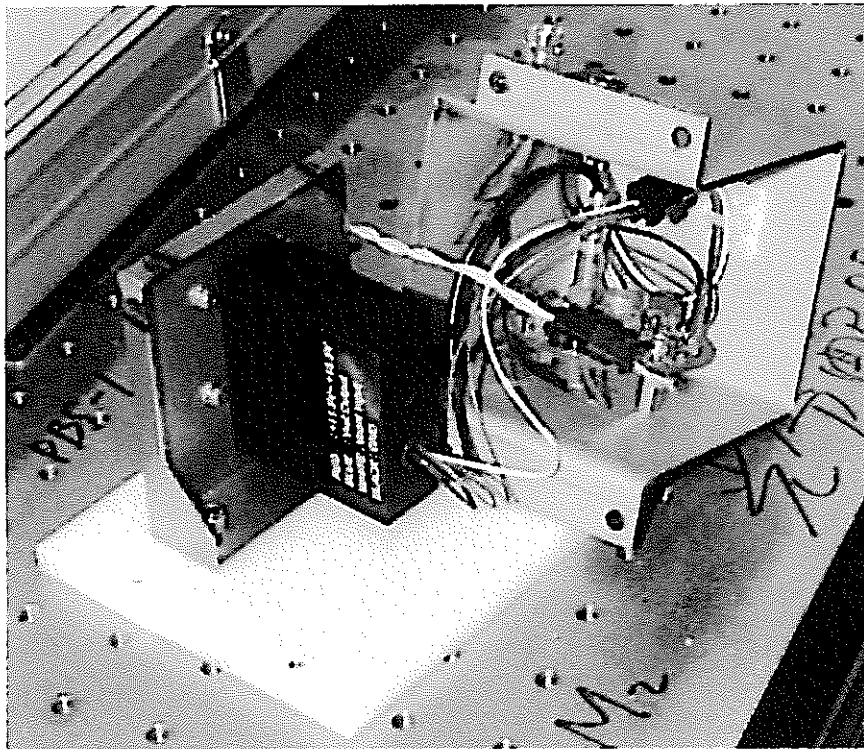


写真2. 2. 8 PMTとプリアンプ基板
(小型光電変換器内蔵)

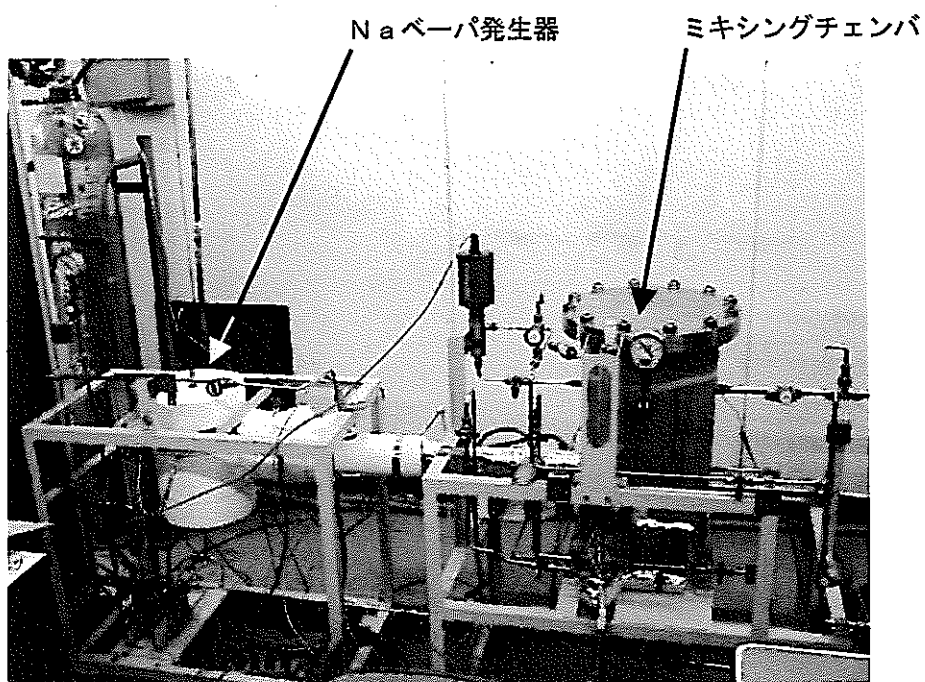


写真2. 2. 9 Naベーパー発生器とミキシングチェンバ



写真2. 2. 10 Naエアロゾル捕集用フィルタ