

分置

公開資料

PNC TN 8410 91-090

# 分子レーザー法ウラン濃縮レーザーシステムの開発

動燃技報 No.77 (1991) 別刷

1991年3月

動力炉・核燃料開発事業団

東海事業所

複製又はこの資料の入手については、下記にお問い合わせ下さい。

〒319-11 茨城県那珂郡東海村大字村松 4 - 33

動力炉・核燃料開発事業団

東海事業所

技術開発推進部・技術管理室

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to: Technology Management Section, Tokai Works, Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation 4 - 33, Muramatsu, Tokai-Mura, Nakagun, Ibaraki-Ken 319-11, Japan.

© 動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation) 1991



技術報告

# 分子レーザー法ウラン濃縮レーザーシステムの開発

宮本 泰明 田中 拓 川越 浩  
 藤原 重徳 長谷川 信 矢戸 弓雄

東海事業所核燃料技術開発部

資料番号: 77-5

Development of Laser System for Uranium Molecular Laser Isotope Separation

Yasuaki Miyamoto Hiroshi Tanaka Hiroshi Kawagoshi  
 Shigenori Fujiwara Makoto Hasegawa Yumio Yato  
 (Nuclear Fuel Technology Development Division, Takai Works)

動燃事業団は、分子レーザー法ウラン濃縮（以下「分子法」と言う。）の開発を昭和63年度から理化学研究所の全面的な協力を得て進めてきた。開発開始から現在まで、約2年半足らずの短期間ではあるが、理化学研究所を始めとした各大学および関係メーカーとの協力体制により、100Hzレーザーシステムによる工学的原理実証を目的とした試験装置（工学実証試験装置）の建設を完了させ、調整運転に入っている。

分子法工学実証試験装置の開発の中で特に重要課題となるのは、分離に必要な $16\mu\text{m}$ レーザー光を作る100Hzレーザーシステムとレーザー光を利用して分離を行うプロセスシステムである。本報告では、100Hzレーザーシステムのうちシステムの主要構成機器要素である

- ①  $10\mu\text{m}$ レーザー光を放射する炭酸ガスレーザーシステム
- ②  $10\mu\text{m}$ レーザー光を $16\mu\text{m}$ に波長変換するラマンレーザーシステム

について、これまでのシステム開発の現状と工学実証試験装置の概要を紹介する。

## 1. はじめに

レーザー法ウラン濃縮技術の開発に関しては、現在世界的にも国内的にも、ウラン金属を操作物質とする原子レーザー法が大勢を占めているが、 $\text{UF}_6$ を操作物質とする分子レーザー法には本質的に魅力ある点がいくつかある。第1には完成度の高い $\text{UF}_6$ ハンドリング技術が応用可能なこと、第2には高いウラン分子密度が達成可能なことである。前者は、現在の基礎研究段階だけでなく将来的にも開発コストを低くできる利点であり、後者は濃縮コストそのものに関係する利点である。1985年当時、同位体選択性が低いとされていた原理上の問題についても、その後の理化学研究所<sup>1)</sup>およびウラニット社を中心としたドイツの最近の研究<sup>2)</sup>によって大きく見直されつつある。

動燃事業団は、分子レーザー法濃縮技術予算が認可された昭和63年度から、理化学研究所の全面的協力を得て、上記の利点を最大限に活用できる理研式分子法(RIMLIS)の開発を表1に示すスケジュール

で進めてきた。開発開始から現在まで約3年足らずの短期間ではあるが、100Hzレーザーシステムによる工学的原理実証を目的とした試験装置（工学実証試験装置）の建設が完了し、調整試験段階に入っている。

分子法のウラン濃縮プロセスは、 $^{235}\text{UF}_6$ と $^{238}\text{UF}_6$ 分子の同位体シフトを利用して行うものであり、まず励起用レーザー光で $^{235}\text{UF}_6$ だけを選択励起し、さらに励起された $^{235}\text{UF}_6$ に解離用レーザー光を照射、解離させ、 $^{235}\text{UF}_6$ とし固体化して濃縮する方法である。

分子法のシステムは、大きく分けて、レーザー光を作るレーザーシステムとレーザー光を用いて分離するプロセスシステムの2つに分けることができる。この概念図を図1<sup>3)</sup>に示す。今回の工学実証試験装置の開発で、特に開発課題が多かった機器の一つに、100Hzレーザーシステム自身の開発がある。

分子法に用いるレーザー光は、励起用、解離用とも波長 $16\mu\text{m}$ 付近の赤外レーザー光であるが、この

表1 理研式分子法工学実証試験スケジュール

項目	昭和63年度	平成元年度	平成2年度	平成3年度
<b>1. 研究開発</b>				
①プロセス機器等の開発	要求機器開発及び特性把握試験			
②プロセスシステム試験	製作製作	UF、超蒸気試験、UF、光床電流測定試験		
②レーザー装置の開発				
①100Hz 共振ガスレーザー	製作開発	実証試験	劣化ガス再生方式試験	
②パルス素ラマンレーザー	装置製作	実証特性把握・効率向上試験等		混合実証試験
③共振ガスレーザー特性試験	装置購入	増幅特性把握試験等		
<b>2. 工学実証試験装置の建設</b>				
①工学実証試験装置の設計	設計			
②レーザー装置の製作	レーザー装置設計製作			
③プロセス装置の製作	プロセス機器設計製作			
④L槽使用変更手続き	申請許可			
⑤L槽改修工事	通心管除去 屋架改修			
機器搬入・据付・調整				
第1期試験				
第2期試験				
<b>3. 運転試験</b>				

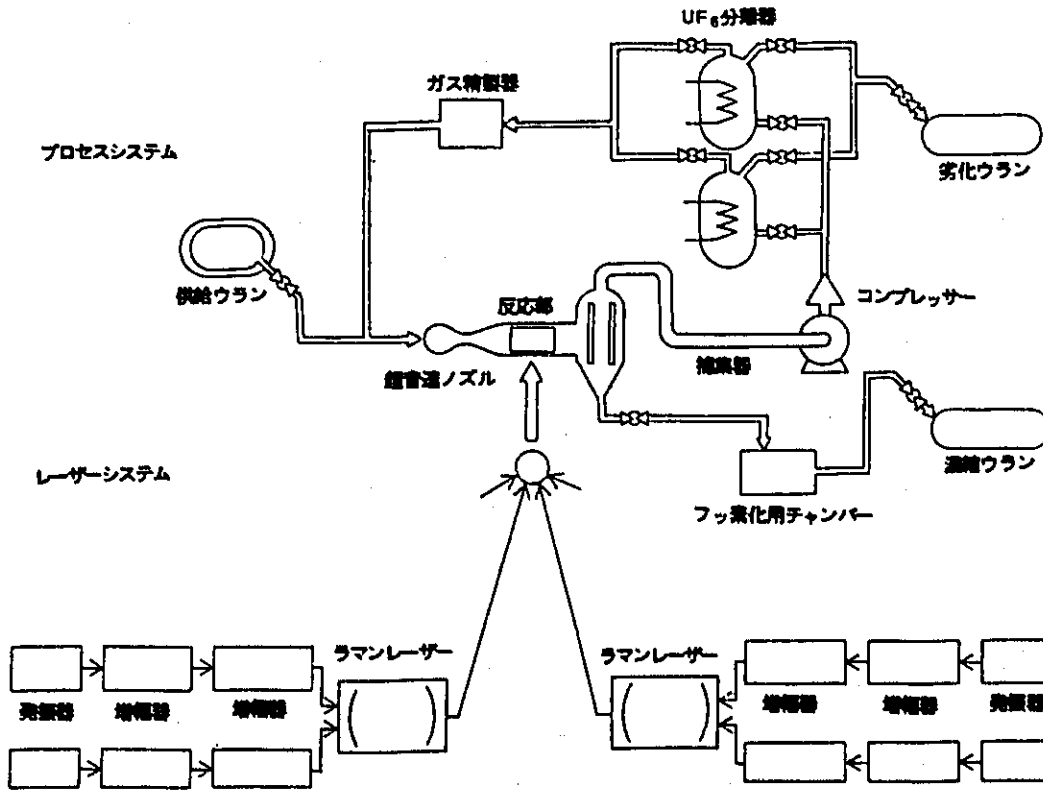


図1 理研式分子法システム概念図

波長に対して同位体分離に必要な出力が得られるのは、 $10\mu\text{m}$ の炭酸ガスレーザー光をバラ水素ラマンレーザーで $16\mu\text{m}$ の波長に変換するパルスレーザーシステムだけである。動燃事業団における今回のレーザーシステムの開発目標は、1パルス当たり数Jの出力を維持しながら、原理実証研究（理化学研究所）当時の数Hzの繰り返し速度を100Hzまで高めることである。

本報告では、100Hzレーザーシステムの中で、主要構成機器である

- ① 炭酸ガスレーザーシステム
- ② バラ水素ラマンレーザーシステム

の開発の現状と工学実証試験装置のレーザーシステム概要を述べることにする。

## 2. 炭酸ガスレーザーシステムの開発

### 2.1 炭酸ガスレーザーの原理

炭酸ガスレーザー<sup>(1)(5)</sup>は、 $\text{CO}_2$ 分子の振動-回転エネルギー準位間のエネルギー遷移によって発振する。この炭酸ガスレーザーのエネルギー準位図を図2に示す。直線3原子分子である $\text{CO}_2$ 分子には、対称伸縮モード $\nu_1$ 、曲げモード $\nu_2$ および非対称伸縮モード $\nu_3$ の3つの振動モードが存在し、 $\text{CO}_2$ 分子の振動エネルギーは、これらの振動モードの量子数を用いて $(\nu_1 \nu_2 \nu_3)$ の形で表す。炭酸ガスレーザーは、これらの振動準位のうち、上準位(001)と下準位(100)および(020)の間で、それぞれ約 $10.6\mu\text{m}$ および約 $9.6\mu\text{m}$ の波長のレーザー光を発振する。これら2つの発振線はレギュラーバンドと呼ばれている。これらの他に、より高い振動準位を利用するホットバンド、シーケンスバンドの発振も報告されている。また、これらの振動準位には量子数Jで与えられる多数の回転エネルギー準位が重畳しており、量子数Jの変化( $\Delta J$ )が+1および-1の遷移が許容されているので、非常に多くの振動・回転準位間で発振することが可能となり、炭酸ガスレーザーは多波長レーザーとなっている。

炭酸ガスレーザーのレーザーガスは、通常 $\text{CO}_2$ 、 $\text{N}_2$ 、 $\text{He}$ の混合ガスが用いられる。 $\text{N}_2$ の準安定状態である $v=1$ 準位とレーザー媒質となる $\text{CO}_2$ の(001)準位とのエネルギー差は、 $18.6\text{cm}^{-1}$ しかない。このため、レーザーガスに $\text{N}_2$ を混合すると、励起された $\text{N}_2$ と $\text{CO}_2$ の間に共鳴的なエネルギー移乗が起こり、 $\text{CO}_2$ を効率良く(001)準位に励起することができる。Lowkeら<sup>(6)</sup>の計算によれば、このような効果を有する $\text{N}_2$ の他に $\text{He}$ を混合した $\text{CO}_2$ 、 $\text{N}_2$ 、 $\text{He}$ 混合ガス系に適切な放電をさせれば、放電によってレーザーガスに注入される電気エネルギーの

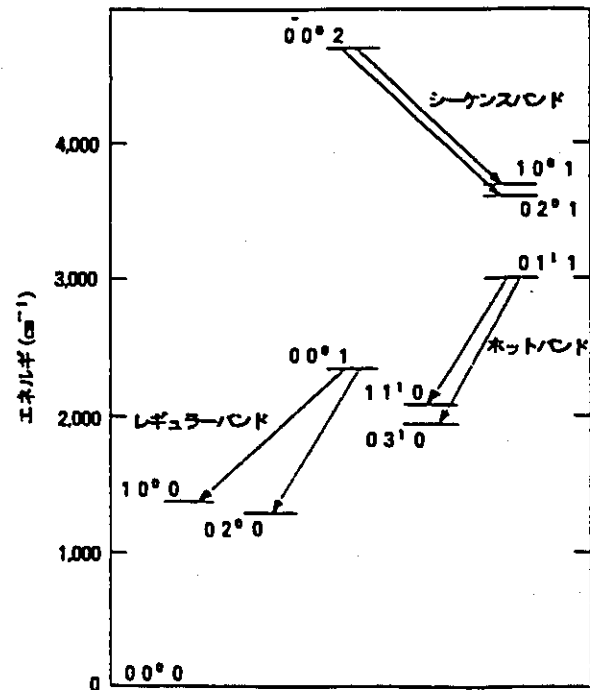


図2 炭酸ガスレーザーのエネルギー準位図

うち80%以上が $\text{CO}_2$ (001)準位と $\text{N}_2$ の $v=1$ 準位の生成に寄与する。このような理由から、炭酸ガスレーザーは高効率で発振できるレーザーとなっている。

### 2.2 TEA炭酸ガスレーザーの開発

#### (1) TEA炭酸ガスレーザーの概要

炭酸ガスレーザーの励起方法には、光励起、熱励起などがあるが、最も一般的な励起方法は放電励起である。放電励起は、その光軸に対して放電を印加する方向によって、縦方向励起と横方向励起に分けられる。横方向励起は、放電の電極間隔が短くできるため、高いガス圧力で動作させるレーザーに多く用いられる。炭酸ガスレーザーはその用途によって、様々なガス圧力で動作するものがあるが、その中でも装置設計および製作が容易なのは、大気圧動作のものである。このような横方向励起大気圧炭酸ガスレーザーはTEA (Transversely Excited Atmospheric) 炭酸ガスレーザーと呼ばれている。TEA炭酸ガスレーザーは通常100ns程度の半値幅で発振する高効率・高出力のパルスレーザーであり、効率24%<sup>(7)</sup>、出力500J<sup>(8)</sup>の報告がある。

工学実証試験装置でバラ水素ラマンレーザーの励起に用いるTEA炭酸ガスレーザーは、バラ水素ラマンレーザーの発振特性によって、レーザー出力、繰り返し速度、パルス幅など一般のレーザーに求められる仕様の他に偏光、縦モード、横モード等ビー

ム質に関する仕様も規定される。このことを考慮して、TEA炭酸ガスレーザーシステムをMOPA (Master Oscillator and Power Amplifier) チェーンで構成することにした。MOPAチェーンは、高いビーム質が得られるレーザー発振器と高い増幅率が得られるレーザー増幅器を組み合わせることによって、ビーム質の高い大出力のレーザー光が得られるシステム構成である。

## (2) TEA炭酸ガスレーザー増幅器の開発

励起電源方式は、半導体スイッチと磁気圧縮回路を組み合わせた全固体素子電源方式<sup>9)</sup>とサイラトロンを用いた方式の2種類の装置の開発を行った。ここでは、特徴のある全固体素子電源方式の装置について説明する。

レーザーガスの動作圧力は大気圧とし、予備電離方式は、従来より一般的に用いられているUVスパーク自動予備電離<sup>10)</sup>を採用し、放電体積の両側から予備電離する方法を取った。

パルス電源を全固体電源で構成した電気回路図を図3に示す。全固体素子パルス電源は、放電電極や絶縁ガスの消耗など寿命要因を持つ放電スイッチを用いていないので、寿命は半永久的であり、高繰り返しレーザー用電源として、最も適したものと考えられている。

電気回路図に基づいて、このパルス電源の動作を説明する。充電電源からSCRサイリスタでスイッチングした電気パルスは、充電コンデンサー $C_0$ に充電される。蓄えられた静電エネルギーはGTOサイリスタによって、所定のパルス幅でスイッチングされ、パルストランスで昇圧されて磁気圧縮回路に送られる。磁気圧縮回路は2段で構成され、送られた電気パルスを1段目でパルス幅を約1/4に、2段目でさらに1/3に圧縮している。

レーザーガスに放電エネルギーを注入すると、そのエネルギーによってレーザーガス温度が上昇し、レーザーガス密度の乱れを発生させるほか、化学反応によってレーザーガス媒質以外の不純物を生成させる。さらに、放電によって生成したイオン、電子の衝突によって放電電極から不純物がレーザーガス中に放出される。高繰り返しレーザーでは、これらが原因となって、レーザー出力の低下、放電の不安定化が起こる<sup>11)</sup>。これを防止するために、放電部のレーザーガスを高速で循環させる方式がとられる。放電幅と繰り返し速度の積に対する放電部におけるレーザーガスの流速の比をクリアランス比と呼んでおり、本装置では、繰り返し速度100Hzにおいてクリアランス比10が確保できるような設計とした。

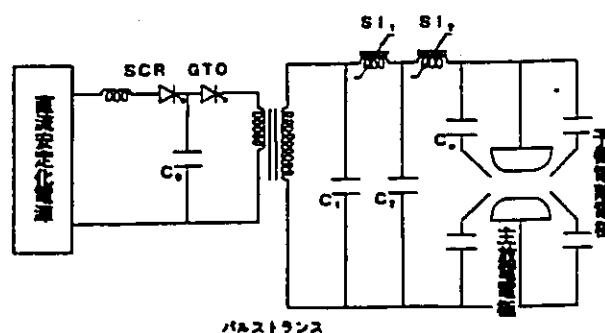


図3 全固体電源で構成した電源回路図

このようにして設計・製作されたTEA炭酸ガスレーザー増幅器について、放電試験および増幅試験を行った。

まず、放電試験では、レーザーガスとして大気圧の $\text{CO}_2 : \text{N}_2 : \text{He}$ 混合ガスで繰り返し速度を変えながら放電状態を目視観測した結果、約100Hzまで安定した放電が得られることを確認した。

次に、増幅試験では、励起用として使用する発振線で小信号利得係数と飽和光エネルギー強度を測定し、工学実証試験装置の設計の基礎データとした。

## (3) TEA炭酸ガスレーザー発振器の開発

励起電源方式については、増幅器と同じ全固体素子電源方式を採用した。発振器の電源およびガス循環部については、増幅器と同様に設計した。

製作したTEA炭酸ガスレーザー発振器本体は、増幅本体に比べて多少小さいことを除けば、ほぼ同一の構造である。

この発振器の特性を調べるために、放電試験、横モードに関する発振試験、縦モード（注入同調法<sup>12)</sup>）の安定化試験を行った。

放電試験では、レーザーガスとして大気圧の $\text{CO}_2 : \text{N}_2 : \text{He}$ 混合ガスを用い、約100Hzまで安定した放電が得られることを確認した。

横モードに関する発振試験では、回折格子と出力鏡を外部共振器として用い、共振器内の絞りの直径を変えて、パルスレーザー出力とレーザーのバーンパターンの計測を行った。その観測結果、絞りの直径を約10mm以下にしたとき $\text{TEM}_{00}$ 横モードのみで発振することを確認した。

最後に、縦モードを安定化するため注入同調法における自動同調制御の試験を行った。注入同調法とは、単縦モードの炭酸ガスレーザーを注入光としてTEA炭酸ガスレーザー発振器の共振器内に同軸上に注入し、この注入光を共振器内で増幅させ、他の縦モードより早くこの縦モードを発振させることにより縦モードの単一化を行う方法である。した

パルス形状	波形の数	割合
オスムースパルス	381	97.69%
$\Delta$ 僅かにビートのあるパルス	1	0.25
$\Delta$ 多少ビートのあるパルス	2	0.51
$\Delta$ ビートの目立つパルス	6	1.53

図4 注入同調法による縦モードの安定性

がって、注入同調法においては、注入するレーザー（主レーザー）と注入されるレーザー（従レーザー）の縦モードを同一にする必要があり、共振器内に共振器長を調整できる機能をもたせた。本装置では、共振器を構成する全反射鏡に圧電素子を取り付けてこの機能を持たせた。しかし、レーザーを長時間運転する場合、温度変化によって共振器長が変化し両者の縦モードが一致しなくなる。特に高繰り返しレーザーにおいては温度変化が著しく、単一縦モードを維持することが困難になることが予想される。そこで、圧電素子による共振器長の調整をフィードバック制御によって自動化する方法を採用した。

この方式での制御性を確認するため、約100Hzでレーザー発振させ、縦モードの観測を行った。図4に示すように、98%程度の確率で安定した単一縦モード発振の制御が可能であることを確認した。

### (3) TEA炭酸ガスレーザーシステム

以上の述べてきたTEA炭酸ガスレーザー発振器と増幅器を用いてMOPAチェーンを構成した結果、濃縮試験に必要な発振線について、最大12Jのパルスレーザー出力を得た。しかし、工学実証試験で行う100Hz動作では、常用出力は助起用および解離用ともに400W（4J/パルス）までにとどめる計画である。

## 2.3 TEA炭酸ガスレーザーの開発

### (1) TEA炭酸ガスレーザーの概要

炭酸ガスレーザーは、前述したように多数の発振線を有する多波長レーザーであるが、それらの発振線は離散的で連続波長可変レーザーではない。連続

波長可変レーザーにするのが高気圧（数～100atm程度）で動作する炭酸ガスレーザーであり、TEA炭酸ガスレーザーに対してTEMA (Transversely Excited Multiple Atmospheric) 炭酸ガスレーザー<sup>13)</sup>と呼ばれている。

レギュラーバンドのRブランチにおいて、炭酸ガスレーザーの回転準位の違いによる発振線の線間隔は約40GHz<sup>14)</sup>である。これに対して、炭酸ガスレーザーの利得の圧力拡がり $\Delta\nu$ (GHz)は、

$$\Delta\nu = 5.76(P_C + 0.73P_N + 0.64P_H) (300/T)^{1/2}$$

ただし、

$P_C, P_N, P_H$ : CO<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>, Heの分圧 (atm)

T: ガス温度 (K)

で与えられ<sup>15)16)</sup>、レーザーガスの動作圧力を10気圧程度に高めれば利得の圧力拡がりが発振線の線間隔に等しくなり、連続波長可変レーザーにすることができる。

また、炭酸ガスレーザーのレーザー媒質であるCO<sub>2</sub>を構成する炭素原子、酸素原子には、それぞれ<sup>12</sup>C、<sup>13</sup>C、<sup>14</sup>Cおよび<sup>16</sup>O、<sup>17</sup>O、<sup>18</sup>O等の同位体が存在し、これらを組み合わせたCO<sub>2</sub>は多数の同位体異性体を持つことになる。同位体異性体の発振線はわずかに異なる<sup>14)</sup>ため、数種類の同位体から成るCO<sub>2</sub>を混合して用いれば、発振線の線間隔は約40GHzよりもさらに小さくなり、低いガス圧力でも連続波長可変レーザーにすることが可能となる。

### (2) TEA炭酸ガスレーザー発振器の開発

本節では、同位体異性体を含むCO<sub>2</sub>を用いた発振器の開発について述べる。

同位体CO<sub>2</sub>混合ガスとしては、通常の<sup>12</sup>C<sup>16</sup>O<sub>2</sub>の他に、発振線の波長、レーザーガスのコストを考慮して、<sup>12</sup>C<sup>16</sup>O<sup>18</sup>Oと<sup>12</sup>C<sup>18</sup>O<sub>2</sub>の混合ガスとした。この中でも、<sup>12</sup>C<sup>16</sup>O<sup>18</sup>Oは炭素原子を挟む酸素原子の質量数が異なる非対称の分子となるため、奇数、偶数を問わずすべての回転エネルギー準位に分布することができ、通常の<sup>12</sup>C<sup>16</sup>O<sub>2</sub>のような対称の分子の2倍の発振線を有する。また、<sup>12</sup>C<sup>16</sup>O<sub>2</sub>と<sup>12</sup>C<sup>18</sup>O<sub>2</sub>を1:1に混合すると同位体交換反応により、<sup>12</sup>C<sup>16</sup>O<sub>2</sub>、<sup>12</sup>C<sup>16</sup>O<sup>18</sup>O、<sup>12</sup>C<sup>18</sup>O<sub>2</sub>が1:2:1の割合で生成する。島田ら<sup>17)</sup>の計算によれば、この同位体混合レーザーガスを4気圧にすれば利得の分布はほぼ連続的になる。

試験に用いたレーザー装置では、電源の動作条件を容易に変えられるようサイラトロン方式のパルス電源を、また予備電離にはUVスパーク自動予備電離を採用した。共振器は、全反射鏡に回折格子、出力鏡に半透過鏡を用いて構成した。

この装置特性を調べるために、放電試験と発振試

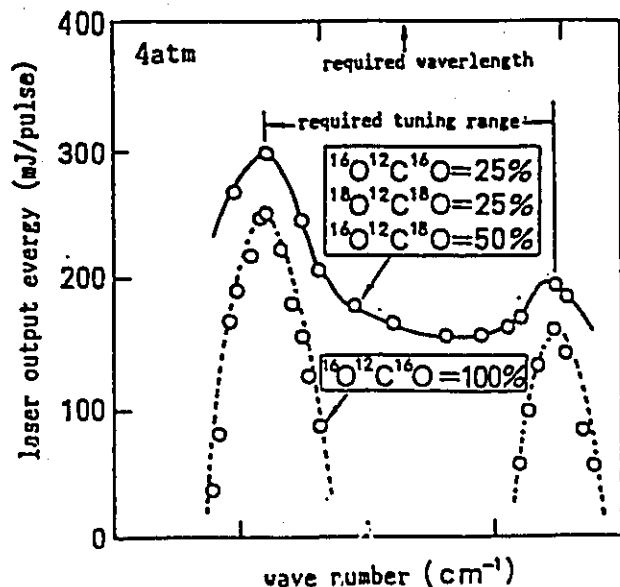


図5 TEA炭酸ガスレーザー発振器の出力特性

験を行った。

放電試験では、 $^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2$  :  $\text{N}_2$  :  $\text{He}$ の混合したレーザーガスを用いて、ガス圧力4気圧、繰り返し速度100Hzで安定に放電することを確認した。

また、同位体異性体から成る $\text{CO}_2$ を用いた発振試験を、 $\text{CO}_2$  :  $\text{N}_2$  :  $\text{He}$  :  $\text{CO}$ の混合した4気圧レーザーガスを用いて行った。発振試験において、必要とされる波長域で回折格子で波長を変化させたときのパルスレーザー出力を図5に示す。図より、必要波長域で連続波長可変となっていることを確認した。

### (3) TEA炭酸ガスレーザー増幅器の開発

増幅器については高価な同位体炭酸ガスを用いない10気圧のTEA炭酸ガスレーザーの開発を行った。

予備電離には、TEA炭酸ガスレーザーと同じUVスパーク自動予備電離を採用した。電源方式はTEA炭酸ガスレーザーで述べた全固体素子電源を採用したが、TEA炭酸ガスレーザーに比べガス圧力が高く安定で均一な放電を得るのが困難であるため、電源の出力パルス幅を半分以下とした。構造はTEA炭酸ガスレーザーと同じであるが、10気圧の圧力に耐える構造の容器となっている。

この増幅器の特性を調べるため、放電試験と増幅試験を行った。

放電試験では、主放電電極、予備電離電極の構造などを改善して、安定な高繰り返し放電が得られる条件を模索した。その結果、 $\text{CO}_2$  :  $\text{N}_2$  :  $\text{He}$ の混合した10気圧のレーザーガスにおいて繰り返し速度約100Hzの安定放電が得られる。

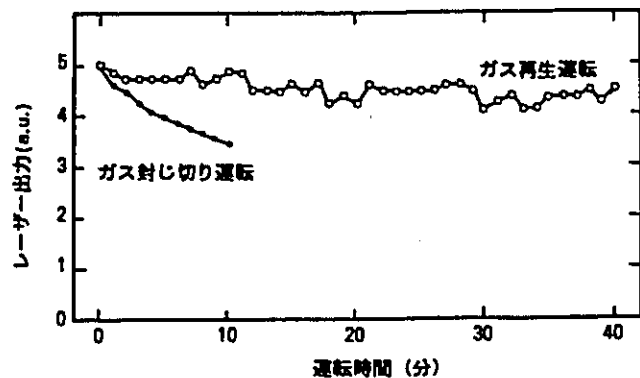


図6 TEA炭酸ガスレーザー出力の経時変化

また、増幅試験では、小信号利得係数 $g_0$ の測定を行った結果、目標値の1.5倍の $g_0$ が得られた。

## 2.4 レーザーガス再生装置の開発

### (1) レーザーガス再生装置の概要

放電励起炭酸ガスレーザーは、 $\text{CO}_2$ 、 $\text{N}_2$ 、 $\text{He}$ などを含むレーザーガスに放電によってエネルギーを与えて発振させるが、放電によって誘起される分子と電子の衝突によって、 $\text{CO}_2$ の分解反応が起こり、 $\text{CO}$ と $\text{O}_2$ が発生する。さらに、二次的な反応で $\text{NO}$ 、 $\text{NO}_2$ 、 $\text{O}_3$ も発生する<sup>18)</sup>。レーザーの長時間動作では、これらの不純物の発生による放電エネルギー移動の影響および $\text{CO}_2$ 濃度の減少による出力低下が発生する。この防止対策は、あらかじめレーザーガスに $\text{CO}$ 、 $\text{H}_2\text{O}$ などを添加する方法<sup>19)20)</sup>、分解したガスを再生する方法が行われている。高繰り返し、大出力のTEA炭酸ガスレーザーを長時間動作させる対策として、ガス再生装置でレーザーガスを再生する方法を採用した。

### (2) TEA炭酸ガスレーザーの特性把握試験

ガス再生装置の開発に必要な長時間動作でのガス成分およびレーザー出力の変化を、TEA炭酸ガスレーザー増幅器を用いて行った。レーザー出力の測定は、増幅器に共振器を取付け、約50Hzの繰り返し速度で行った。

レーザー出力の経時変化を図6に示す。レーザー出力は測定開始直後から低下し始め、5分後には約80%になる。その時の $\text{CO}$ 濃度は、6300ppmであった。この濃度測定から、放電1回で発生する $\text{CO}$ 量を計算すると $0.52\text{cm}^3$ となる。この量は、Hokazonoら<sup>18)</sup>が計算した $0.42\text{cm}^3$ と良く一致している。

### (3) レーザーガス再生装置の開発

ガス再生装置の開発は、Pt系触媒を利用した炭酸ガスレーザー用ガス再生技術<sup>21)</sup>を利用した。

触媒の選定には、 $\text{CO}$ と $\text{O}_2$ の結合反応の温度およ



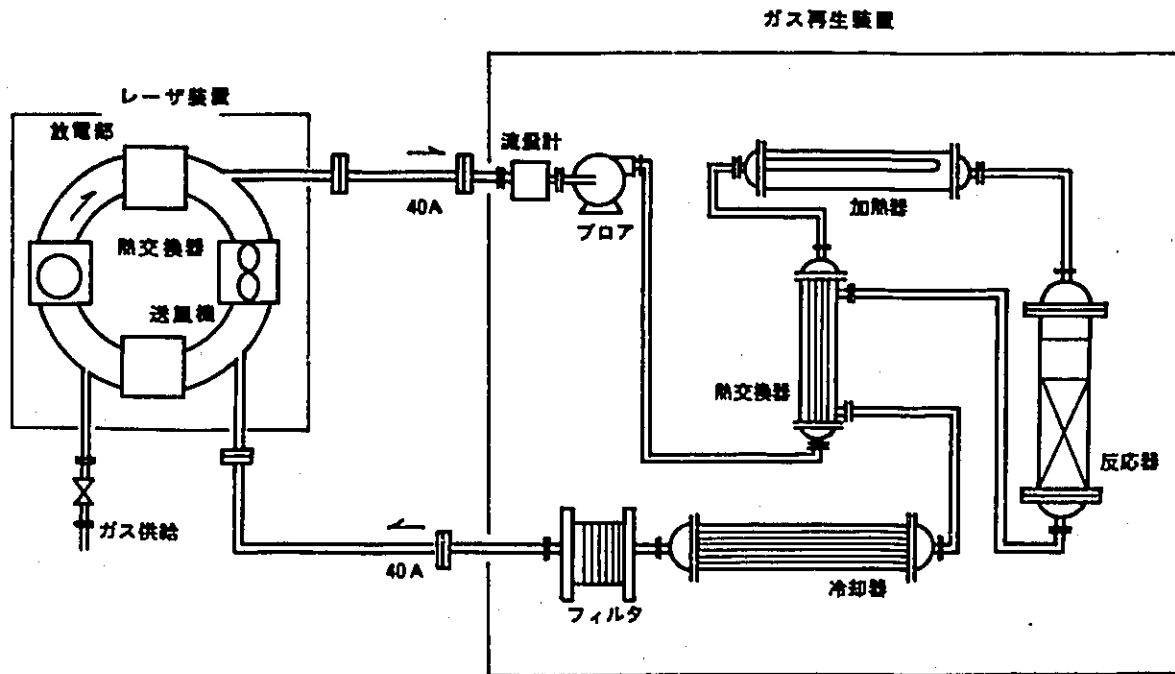


図7 レーザーガス再生装置のプロセスフロー

び時間より、Pt系/ $Al_2O_3$ 触媒を選定した。また、ガス再生容量は、レーザー特性試験結果から最大循環容量を1000 ℓ/minとした。触媒の反応温度は、副次的に生成する $NO_2$ も還元分解できる温度に設定した。

製作した大容量ガス再生装置のプロセスフローを図7に示す。加熱器、冷却器の容量および消費電力を低減化するため、反応器から出る高温ガスの排熱を利用して未処理ガスを加熱するため、処理済ガス-未処理ガス間の熱交換器を設けた。

このガス再生装置の性能を確認するため、TEA炭酸ガスレーザーとの組み合わせた試験を行った。その結果、CO濃度を約4500ppmに抑制することができ、レーザー出力の経時変化は図6に示す通り、40分間開始直後の約85%に維持できた。

### 3. ラマンレーザーシステムの開発

#### 3.1 ラマンレーザーの概要

##### (1) ラマンレーザー

一般に、気体や固体などには分子振動や格子振動などの固有振動が存在するため、これに光を照射すると相互作用により入射光の振動数 $\nu_p$ が固有振動の振動数 $\nu_R$ だけずれた振動数 $\nu_s = \nu_p \pm \nu_R$ の光が散乱される現象がある。この現象には、光学活性の分子振動や光学的フォノンに基づいたラマン散乱と音響波や音響的フォノンが関与したブリュアン散乱があり、固有振動数 $\nu_R$ をストークスシフト、振動

数の低い散乱スペクトル $\nu_p - \nu_R$ をストークス線、高い散乱スペクトル $\nu_p + \nu_R$ を反ストークス線と呼んでいる。

散乱光強度が入射光強度に比例する自然散乱過程では、単一指向性の入射光(レーザー光)を照射しても単一指向性の散乱光は発生しないが、入射光強度があるしきい値を超えると、スペクトル幅の狭い単一指向性をもった散乱光が生ずる。これが一般に誘導散乱と呼ばれる現象で、特に、誘導ラマン散乱で入射レーザー光が波長変換されるレーザーをラマンレーザーという。

ラマンレーザーは、このように分子固有の遷移線を利用するため、発振線によって制限される光励起レーザーに比べて、励起波長に対する制約がない。したがって、入射レーザーが波長可変であればラマンレーザーも波長可変となり、適当なレーザーと媒質の組合せで、希望する波長域で波長可変レーザーを構成することができる。また、ラマンレーザーは反転分布を用いないため飽和強度が大きく、理論的に光子変換効率100%を得ることが可能である。

##### (2) 赤外パラ水素ラマンレーザー

赤外パラ水素ラマンレーザーは、図8に示すようにパラ水素分子の回転量子単位 $J=0, J=2$ 間の誘導回転ラマン散乱を利用し、約10 $\mu m$ の $CO_2$ レーザー光を16 $\mu m$ に波長変換するレーザーで、1976年にByer<sup>22)</sup>によって分子法用レーザー光として提唱された。その後、赤外領域におけるラマンレーザー

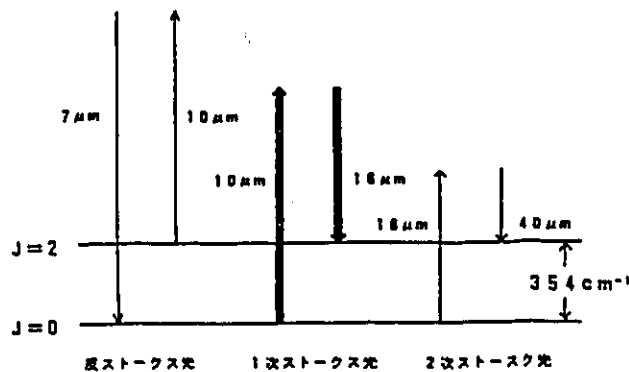


図8 パラ水素ラマンレーザーにおける誘導回転ラマン散乱概念図

の低利得性を補うマルチパスセル<sup>23)24)</sup>の考案により、分子法用レーザーとして最有力視されるようになった。

マルチパスセルは、図9に示すように2枚の凹面鏡を対向させた構造で、レーザー光をセル中心付近に集光させながら往復し、円周上に配された反射位置を周回するものである<sup>25)</sup>。マルチパスセルの採用により、媒質中の光伝搬距離を長くできることおよび凹面鏡による周期的な集光効果で利得の増加を図ることが可能になった。その結果、ストークス光発生のおしい値が大幅に低下した。

赤外域のラマン変換の低利得性を補うマルチパスセルの採用は、ラマンレーザーの大出力発振を可能としたが、その主な要因は以下の3点である。

- ① セル長の数十倍の実質媒質長
- ② 凹面鏡による周期的な集光効果
- ③ セル内でのビーム交差効果

### 3.2 ラマンセル光学系の最適化

従来のラマンセルでは、マルチパスの光路調整を容易にするために、ラマンセル近傍に入射窓を配置する構造を採用してきた。この構造では、入射光を集光させた場合、入射窓でレーザー光強度が大きくなり、窓材が光学的損傷を受けやすく、1 Hz程の

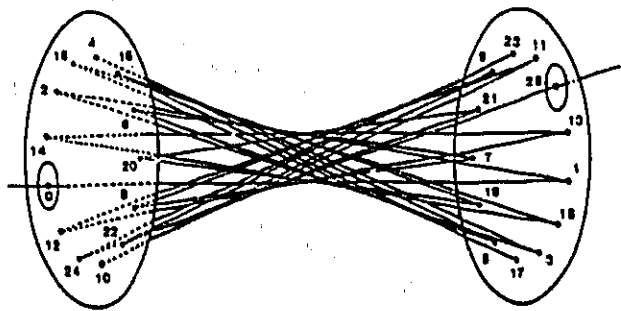


図9 マルチパスセル構造図

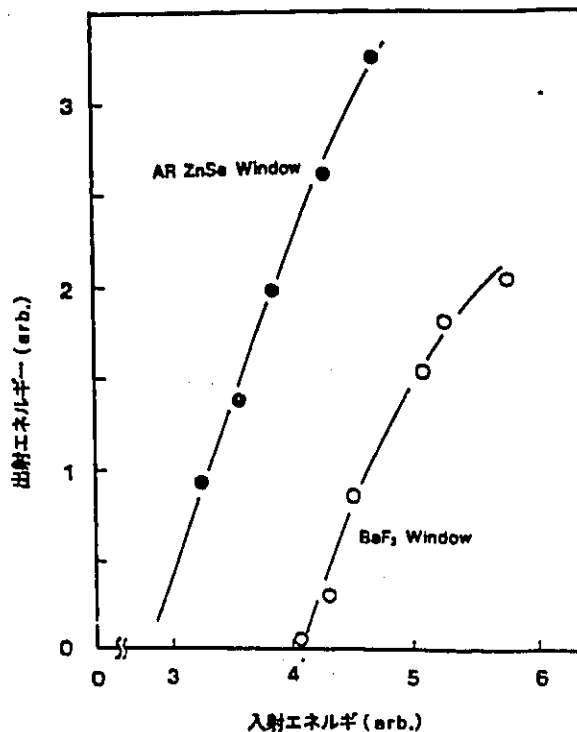


図10 光学系の最適化によるラマン変換特性

低繰り返し条件においても透過率を犠牲にし、耐光強度の大きい窓材を採用しなければならず、ラマン変換効率も室温条件で20%程度にとどまっていた。

ラマン変換効率を向上させる対策として、ラマンセル入射窓をセル本体から離して設置し、入射窓面でのレーザー光強度を小さくして窓材の破損を防止することで、耐光強度が小さいため使用できなかった高透過率の光学材料の採用を可能とした。これを用いて、光学系の最適化設計を行った結果、図10に示すように、ラマン変換効率を30%程度までたかめることができた。また、波長変換に必要な入射光エネルギーの下限を従来に比較して75%に低減できた。

### 3.3 ラマン変換基礎特性の把握

#### (1) 試験装置の構成

入射レーザー光の装置構成は、図11に示す最大繰り返し速度10HzのTEA炭酸ガスレーザー発振器1台と増幅器2台のMOPAチェーン構成とした。発振器からのレーザー光は、発振器直後に配置したλ/4板により直線偏光から円偏光に変換され、増幅器でレーザー光を数J/パルスまで増幅できるようにした。発振器は、全反射鏡に回折格子を用いた波長可変機能、共振器内の絞りと低圧ガスセルを挿入した横モード、縦モードの調整機能を持たせた。

以上の装置で発生させた入射光をラマンレーザー

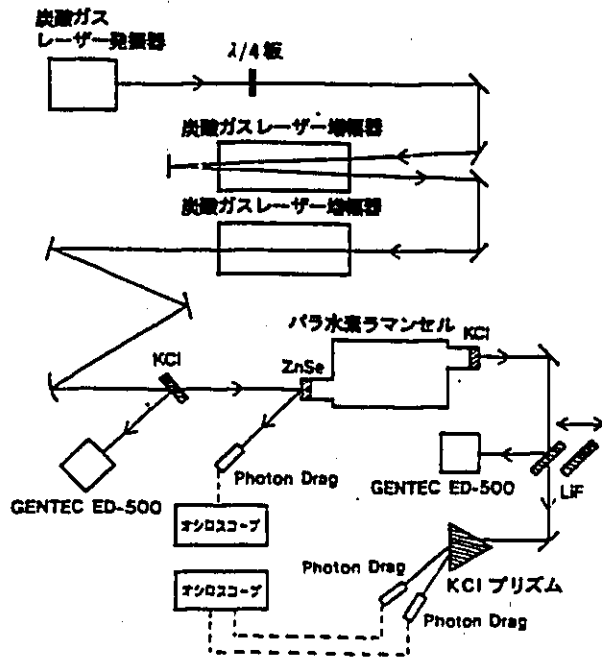


図11 ラマン変換特性試験装置概略図

を導入して、その特性を調べた。

入射レーザー光のエネルギーは、ラマンセル直前に配置した KCl の反射光をエネルギーメータ (GENTECED-500) で計測し、入射レーザー光の波形は、ラマンセル入射窓の反射光を波形センサー (PHOTON DRAG) で測定した。ラマンセル出射後のストークス光のエネルギーの計測は、LiF の反射

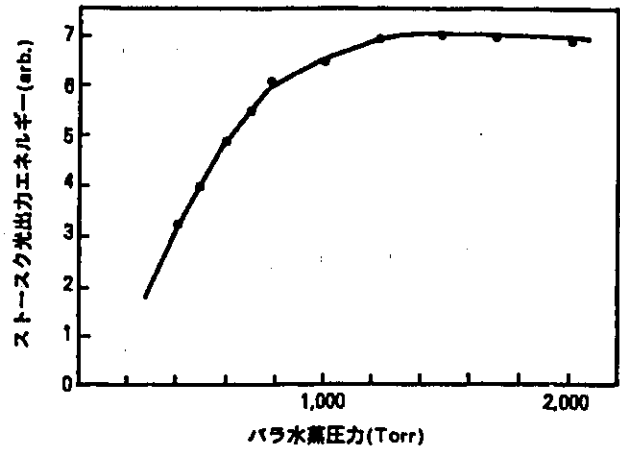


図12 入射光に対するラマン変換特性

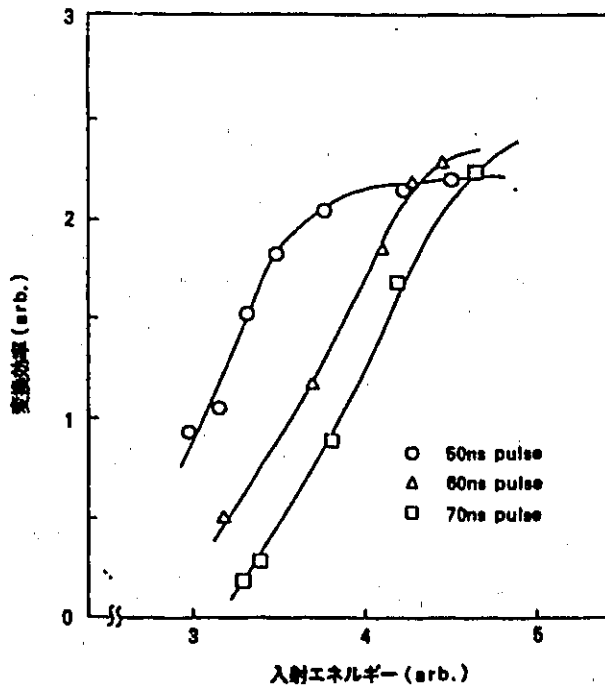
光をエネルギーメータで測定、波形の計測は KCl プリズムにより入射レーザー光とストークス光を分離後、波形センサーでそれぞれ測定した。

(2) 入射レーザー光パルス幅依存性試験

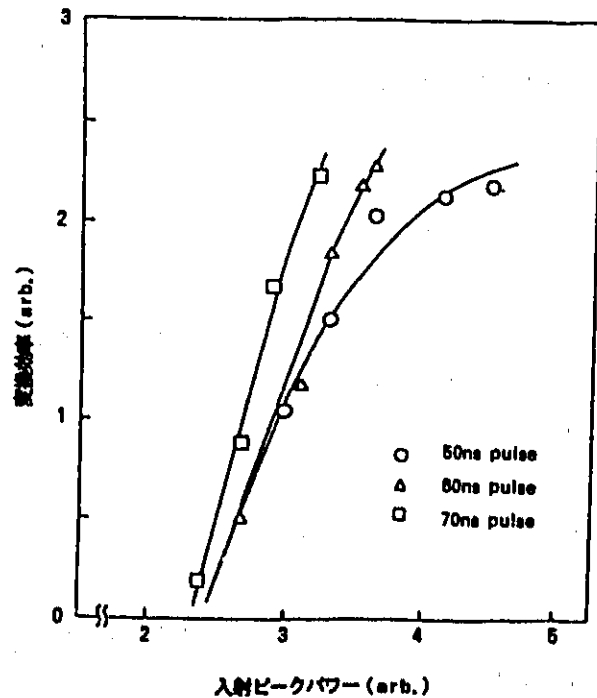
ラマン変換特性は、入射する炭酸ガスレーザーの波形に依存する。本節では、特に炭酸ガスレーザーのパルス幅に対する依存性を評価した。

炭酸ガスレーザー光のパルス幅の設定方法は、発振器の He ガス混合比を変化させることで対応した。パルス幅の変更範囲は、炭酸ガスレーザーの出力制限から 50ns~70ns とした。

図12(a) に各パルス幅でのラマンレーザー入力エネルギーとラマン変換の関係を示す。ストークス光



(a) 入射光エネルギーに対するラマン変換特性



(b) 入射光ピークパワーに対するラマン変換特性

は、横軸目盛り約2.5～3から出力を開始し、入射光エネルギーにしたがって増加する。特に、入射光エネルギー目盛り4.3以下の領域ではラマン変換効率は短パルス光の方が、横軸目盛り4.3以上の領域では逆に長パルス光の方が大きくなる傾向にある。さらに入射光エネルギーを増加した場合には、変換効率は飽和する傾向を示している。

次に、図12(b)に入射エネルギーをパルス幅で割ったピークパワーとラマン変換効率の関係を示す。入射光ピークパワーが低い領域では、ラマン変換効率は入射光ピークパワーに依存する傾向にあるが、ピークパワー目盛り3から入射光ピークパワーに依存しなくなる傾向にあり、パルス幅50nsではピークパワーは目盛り3.5以上でラマン変換効率が飽和している。

以上の試験結果からラマン変換は、入射光ピークパワーが小さい領域では入射光ピークパワーに依存する変換が主で、それ以上の領域ではパルスのエネルギーに依存する変換が支配的となると評価できる。

### 3.4 工学実証試験用ラマンレーザーシステム

工学実証試験用ラマンレーザーを高効率、低しきい値で安定発振させるための検討を行った。

#### (1) ラマンセルのバス方式

バス回数 $n$ のマルチバスセルは、ビームが $n$ バス目を反射すると入射孔に戻る性質がある。この性質

を利用した偶数バスのラマンセルは、奇数バスに比較して1バス分ラマン利得が多くすることができる。さらに、出射ポートが不要となりセル全長を短縮することも可能である。

工学実証試験用ラマンレーザーは、高効率化およびコンパクト化のため、上記理由でラマンセルを偶数バス方式とした。

#### (2) 室温動作と低温動作の比較検討

入射光エネルギーを同一として、水素ガスを室温で使用する室温動作条件と液体窒素温度まで冷却する低温動作条件で、バス回数とラマン利得の関係を比較した。その結果、水素ガスを低温にすることでラマン利得が室温の時の約2.5倍に増加していることがわかった。

工学実証試験用ラマンレーザーを高効率および低しきい値で発振させるため、液体窒素温度でラマンセルを動作させる方式とした。

#### (3) マルチバス共振器構造の検討

マルチバス共振器内の光の伝搬を効率的に行うためには、エネルギー損失および回折損失をできるだけ少なくする必要がある。特に、レーザー光がラマンセルミラーに設けた入出射孔を通過する時、回折によるリップルが生じないようにすることである。

レーザー光が $TEM_{00}$ 横モードとして、回折損失を考慮したエネルギー透過率<sup>26)</sup>の計算から、透過率99%以上とした回折影響を押さえる条件を求めると、孔の径を $d \geq 4.6 \omega$  (=ビーム強度に対する $1/e^2$

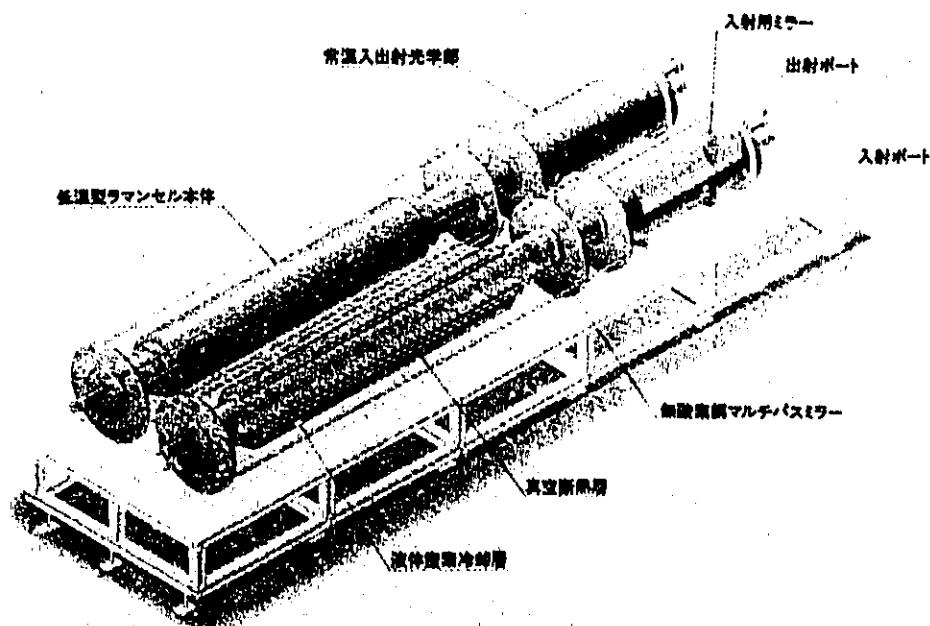


図13 工学実証試験用ラマンレーザー概念図

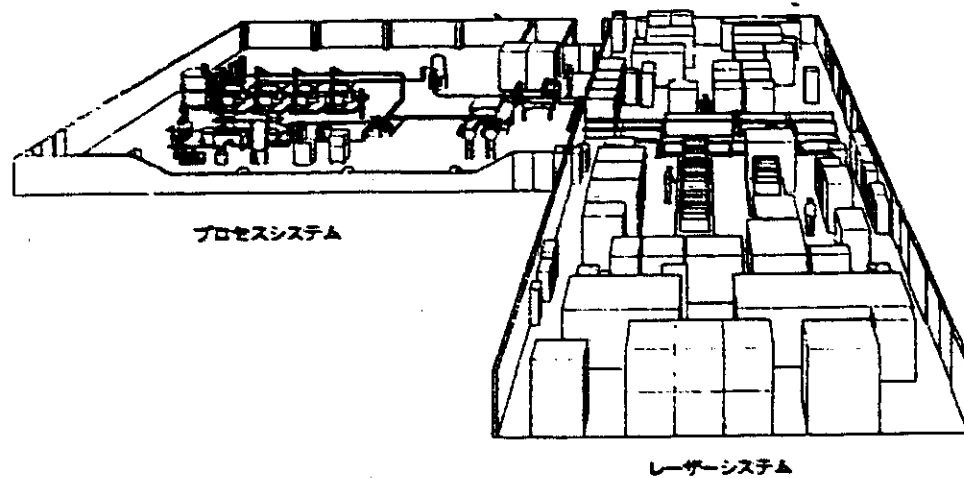


図14 工学実証試験装置の外観図

での半径)にする必要がある。

この径をビーム径としてマルチパスを従来から採用している2波長同時ラマン変換方式で設計すると、現在製作可能なラマンセルミラー直径以上になるため、工学実証試験のラマンレーザーは、同一構造を持つラマンセルを2台並列に配置した双子型(Twin型)の構成を採用することとした。

この方式は、従来方式と比較してスペースを約2倍必要とするが、励起用および解離用の異なる2つの炭酸ガスレーザー光に対してそれぞれ適切な条件下でラマン変換が可能となる。

これまでの基本設計に基づいて計画したラマンレーザーの概念図を図13に示す。

#### 4. おわりに

分子レーザー法ウラン濃縮技術については、理化学研究所の原理実証研究において得られた成果を基礎として、動燃事業団で製作した工学システムを用いた工学的原理実証の段階に入っている。この工学実証試験装置も、現在、機器の据付けが完了し、各機器の調整試験を行い、濃縮試験の準備を開始した。工学実証試験装置の外観を図14に示す。

濃縮試験は、本年度下期から開始する第1期濃縮試験と平成3年度より実施する第2期濃縮試験の2つに分けることができる。第1期濃縮試験では、レーザーシステムをTEA炭酸ガスレーザーとラマンレーザーによる構成で行う。第2期濃縮試験では、第1期濃縮試験の装置構成にレーザー波長が連続可変な高気圧炭酸ガスレーザーを加えた3波長に

よる試験を実施する計画である。

この分子レーザー法ウラン濃縮用100Hzレーザーシステムでは、原理実証試験でこれまで10時間程度要していた試験を数分間程度まで短縮することができる。本レーザーシステムの完成により、分子法の多岐にわたる各種パラメータ試験を広範囲に実施できる強力な手段が得られたこととなり、意味はきわめて大きい。

#### 参考文献

- 1) K. Takeuchi et al.; Laser Science Progress Report of IFCR, 10, 56 (1988)
- 2) G. Schweizer; 2nd Workshop on Separation Phenomena in Liquid and Gases, p 653-662 (1989)
- 3) 田代 実夫; OPTRONICS, 4, 210(1990)
- 4) C.K.N. Patel; Phys. Rev. Lett., 12, 588 (1964)
- 5) W.J. Witteman; The CO<sub>2</sub> Laser, Springer Series in Optical Sciences, 53
- 6) J.J. Lowhe et al.; J. Appl. Phys., 44, 4084 (1973)
- 7) Y.L. Pan et al.; Rev. Sci. Instrum., 43, 982 (1972)
- 8) A.J. Desautels; Proc. IEEE, 59, 867 (1971)
- 9) H. Tanaka et al.; Rev. Sci. Instrum., 61, 2092 (1990)
- 10) H.M. Lambertson and P.R. Pearson; Electron. Lett., 7, 141 (1971)
- 11) H. Hatanaka et al.; SPIE vol. 1031 GCL, 467 (1988)
- 12) F.A. van Goor; Opt. Commun., 65, 404 (1983)
- 13) 野田 昌幸 他; 電気学会研究会資料, QGD-89-16, 47 (1989)
- 14) C. Freed et al.; IEEE J. Quant. Electron., QE-6, 1195 (1980)
- 15) O.R. Wood; Proc. IEEE, 62, 355 (1974)
- 16) R.L. Abrams; Appl. Phys. Lett., 25, 609 (1974)
- 17) T. Shimada et al.; Technical Digest of Conf. on Lasers and Electro-Optics, Anaheim, April, 1988, p. 422
- 18) H. Hokenono and H. Fujimoto; J. Appl. Phys., 62, 1585 (1987)
- 19) P. Pace and M. Lacombe; IEEE J. Quant. Electron., QE-11, 774 (1978)
- 20) H. Hokenono and M. Obara; Appl. Phys. Lett., 57, 4 (1990)
- 21) C. Wills and J.G. Purdow; J. Appl. Phys., 50, 385 (1979)
- 22) R.L. Byer; IEEE J. Quant. Electron., 732 (1976)
- 23) R.L. Byer and W.R. Trutna; Opt. Lett., Vol. 3, No. 4, 144 (1978)
- 24) P. Rabinowitz et al.; Opt. Lett., Vol. 3, No. 4, 147 (1978)
- 25) D. Herriot et al.; Appl. Opt., Vol. 3, 523 (1964)
- 26) Siegman; "LASERS", University Science Books, 663 (1976)