

# 同位体を用いた炭酸ガスレーザーの研究

レーザー発振及びガス再生試験

1991年10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 Tokai 4-33, Muramatsu,  
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan

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

## 同位体を用いた炭酸ガスレーザーの研究

### レーザー発振及びガス再生試験

筆者氏名 藤原 重徳\*, 田中 拓, 宮本 泰明  
川越 浩, 長谷川 信

#### 要 旨

同位体炭酸ガスを用いた炭酸ガスレーザーの実用性を調査するため、発振試験による発振ラインの確認と同位体炭酸ガスの取扱い方法について調査を実施した。

同位体炭酸ガスをレーザー媒質とする炭酸ガスレーザーを使用し、発振ラインを確認した。同位体炭酸ガスとしては、 $^{16}\text{O}^{12}\text{C}^{18}\text{O}$ を使用した。

発振試験の結果より以下のことがわかった。

- ① 同位体ガスを用いたレーザー発振試験においては天然組成の炭酸ガスを用いた場合とは異なるラインが確認された。
- ② 同位体炭酸ガスを用いた場合、レーザー発振中のレーザーガス寿命が極めて短く、同位体炭酸ガスの発振ラインは短時間で消失した。
- ③ アルミナ触媒を用いたガス再生試験においても再生効果、レーザー出力の回復はほとんど見られなかった。

同位体を用いた炭酸ガスレーザーにおいて、レーザー発振ラインを確認することができたが、同位体炭酸ガスのハンドリングの難しさが提起され、今後さらに検討を進める必要がある。

---

核燃料技術開発部新型濃縮技術開発室

\* 現(株)東芝 重電技術研究所

## 目 次

1. 研究概要	1
2. 原理と技術背景	2
3. $^{16}\text{O}^{12}\text{C}^{18}\text{O}$ 同位体によるレーザー発振の検討	4
4. レーザー発振試験	6
5. 連続発振試験とガス再生試験	17
6. ガス分析結果	34
7. 試験結果より得られた技術課題	38
8. 結論	40
参考文献	41
別添資料	別添-1

## 1. 研究概要

現在、分子法によるレーザウラン濃縮においては、TEA-CO<sub>2</sub>レーザとTEMA-CO<sub>2</sub>レーザを組み合わせ、それらをパラ水素ラマンレーザに入射してラマン変換し、<sup>235</sup>UF<sub>6</sub>の励起光、解離光としている<sup>(1)</sup>。特にこの励起光は<sup>235</sup>UF<sub>6</sub>に確実に同調させるため、前述のTEMA-CO<sub>2</sub>レーザを励起用光源として用い、波長連続可変としている。

しかしながら、TEMA-CO<sub>2</sub>レーザは波長連続可変とするためには、その原理上から10気圧以上の圧力で放電動作させなければならず、放電技術上の困難さが大きい。

そのため、ここでは同じTEA-CO<sub>2</sub>レーザのうちで、この他に<sup>235</sup>UF<sub>6</sub>の励起に対して有効なものはないか検討し、同位体を内部にもつ炭酸ガスをレーザ媒質とするTEA-CO<sub>2</sub>レーザに波長が異なるものがあることを見出した<sup>(2)</sup>。そこで、これら同位体を内部にもつ炭酸ガスを用いた同位体ガスTEA-CO<sub>2</sub>レーザの発振波長を調査し、それらのうちもっとも有効と思われる<sup>16</sup>O<sup>12</sup>C<sup>18</sup>O炭酸ガスを採用した。

そして、この<sup>16</sup>O<sup>12</sup>C<sup>18</sup>O炭酸ガスを用いた同位体ガスTEA-CO<sub>2</sub>レーザにおいて、レーザ発振試験、ガス再生試験を行ない、これらについてレーザ発振特性、運転寿命、ガスハンドリング性を評価した。その結果、<sup>16</sup>O<sup>12</sup>C<sup>18</sup>O炭酸ガスを用いて異種の発振波長においてレーザ出力が得られることを確認したが、これら同位体ガスの利用においてはガス寿命が短く、レーザ出力が短時間で減少する。またガス再生装置の通常の触媒の利用では、同位体ガスの発振出力の回復は見られなかった。これらにより同位体ガスの利用にはハンドリング性の問題が多いことが明らかになった。

## 2. 原理と技術的背景

図-1に $^{235}\text{UF}_6$ と $^{238}\text{UF}_6$ の励起に最適な $16\mu\text{m}$ 帯の光を発生するために、パラ水素ラマンレーザに入射すべき光に相当する $10\mu\text{m}$ 帯の光を示した。また、その中に炭酸ガスの同位体を用いたときに得られる発振波長をそれぞれの同位体について示した<sup>(3)</sup>。これらの図中の発振波長から $^{235}\text{UF}_6$ の励起に対して最も有効と思われるものを検討した。

ここで、天然同位体組成の炭酸ガス $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$ では $^{235}\text{UF}_6$ の励起に必要な光は10R(30)と10R(32)の発振ラインの間に位置し適切な波長が得られない。同位体炭酸ガス $^{16}\text{O}^{12}\text{C}^{18}\text{O}$ において $^{235}\text{UF}_6$ の励起に必要な波長にきわめて近い発振ラインが得られることがわかる。この他にも $^{17}\text{O}^{12}\text{C}^{17}\text{O}$ においてもかなり近い発振ラインが得られるが、 $^{235}\text{UF}_6$ からやや離れ、さらに $^{238}\text{UF}_6$ に近い側にあり、あまり効果的でない。さらに $^{17}\text{O}$ は自然界での同位体存在比率が低く、その利用が困難である。その他の同位体ガス $^{18}\text{O}^{12}\text{C}^{18}\text{O}$ 、 $^{18}\text{O}^{13}\text{C}^{16}\text{O}$ でも発振ラインは存在するが、適切なものではない。 $^{18}\text{O}^{13}\text{C}^{18}\text{O}$ 、 $^{18}\text{O}^{13}\text{C}^{18}\text{O}$ 、 $^{16}\text{O}^{14}\text{C}^{16}\text{O}$ 、 $^{18}\text{O}^{14}\text{C}^{18}\text{O}$ では、これら必要とする波長領域では発振ラインがゲインの微少なものであること、 $^{14}\text{C}$ の同位体ではこの原子が放射性元素であることなど適切なものではない。

これらを総合して判断すると、 $^{235}\text{UF}_6$ を効率よく励起するには $^{16}\text{O}^{12}\text{C}^{18}\text{O}$ 同位体炭酸ガスを用い、10R(24)のラインにおいて発振させた光を用いるのが最適と考えられる。

ウラン吸収波長とレーザ発振波長

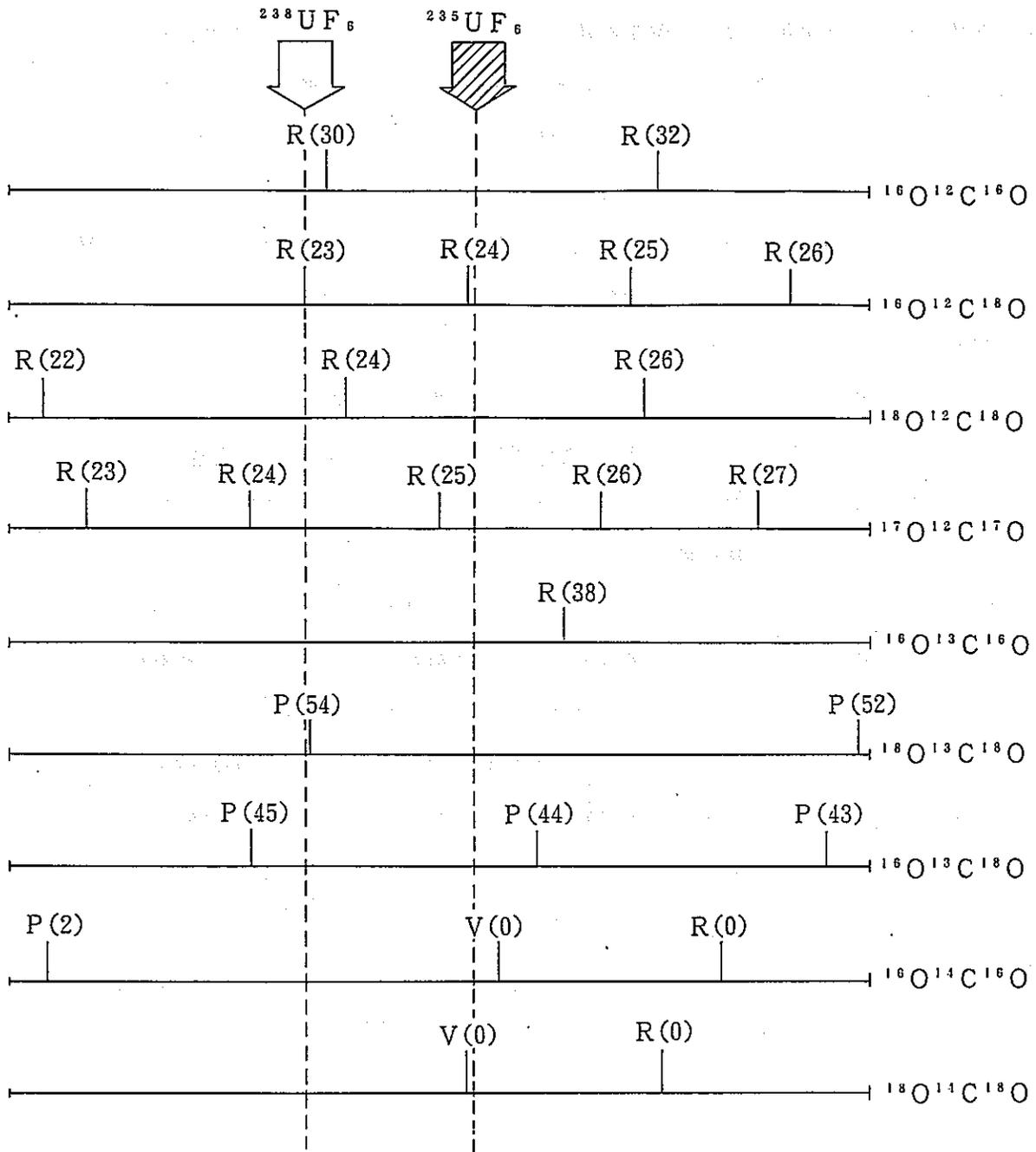


図-1 同位体炭酸ガスの発振波長とウランの吸収波長

3.  $^{16}\text{O}^{12}\text{C}^{18}\text{O}$  同位体ガスによるレーザ発振の検討

図-2に $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$ 、 $^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2$ 、 $^{16}\text{O}^{12}\text{C}^{18}\text{O}$ の各炭酸ガスを用いた場合の発振ラインを10R帯について示した。 $^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2$ ガスでは、炭酸ガス分子中の $^{18}\text{O}$ の質量効果により発振ラインのシフトが生じ、天然組成のものに比べて波長がシフトしたものになっている。この図では縦軸の各棒の長さは各発振ラインの強度を模式的に示したものである。ここで、 $^{235}\text{UF}_6$ の励起に必要とされる波長が天然組成の $^{12}\text{C}^{18}\text{O}$ ガスでは、10R(32)と発振ラインの端の方に属し、低い出力しか得られない。しかし、 $^{12}\text{C}^{18}\text{O}$ 同位体ガスを用いたものでは10R(26)というやや中心寄りの発振ラインに相当し、かなり大きい出力が期待できる。

$^{16}\text{O}^{12}\text{C}^{18}\text{O}$ 同位体ガスの場合には、 $^{18}\text{O}$ による同位体シフトの他に炭酸ガス分子中の酸素 $^{18}\text{O}$ 、 $^{16}\text{O}$ の質量の非対称性により、振動準位が2つに分かれ、天然組成のもの及び $^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2$ のように対称なものに比べ2倍の発振ラインが得られる。このとき $^{235}\text{UF}_6$ の励起に一番有効なものは10R(24)の発振ラインとなり、かなり高い出力が期待できる。

しかし、 $^{16}\text{O}^{12}\text{C}^{18}\text{O}$ 炭酸ガスは炭酸ガス分子間での同位体交換反応を生じるため、 $^{16}\text{O}^{12}\text{C}^{18}\text{O}$ 炭酸ガス単独では存在できない。この構成は $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$ 、 $^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2$ 炭酸ガス50%ずつを混合した時、これらの平衡状態として $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$ ： $^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2$ ： $^{16}\text{O}^{12}\text{C}^{18}\text{O}$ =1：1：2の混合状態としてしか得られない。そのため、 $^{16}\text{O}^{12}\text{C}^{18}\text{O}$ 炭酸ガスは $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$ 、 $^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2$ 炭酸ガスとの同位体混合ガスとしてしか得られない。この同位体混合ガスでレーザ発振させる場合には、 $\text{C}^{12}\text{O}^{16}_2$ 、 $\text{C}^{12}\text{O}^{18}_2$ 、 $^{16}\text{O}^{12}\text{C}^{18}\text{O}$ それぞれの炭酸ガスの発振ラインが存在する。

このとき、レーザ発振のためのゲインは存在する励起分子数に比例する。励起が各分子に対して均一に行なわれるとすれば、各同位体炭酸ガス分子の存在比とエネルギー分配は同じになると考えられる。そこで $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$ 、 $^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2$ 、 $^{16}\text{O}^{12}\text{C}^{18}\text{O}$ の各同位体ガスのもつエネルギー分配は分子存在比と同一となり、1：1：2の割合となる。分配されたエネルギーはさらに各発振ラインに対し、ボルツマン分布にしたがって再分配される。 $^{16}\text{O}^{12}\text{C}^{18}\text{O}$ には全体の $\frac{1}{2}$ エネルギーが分配されることになる。しかし、 $^{16}\text{O}^{12}\text{C}^{18}\text{O}$ 同位体ガスでは発振ライン数が他のガスに比べて2倍となるため、各ラインに分配されるエネルギーは通常のものに対して $\frac{1}{2}$ の割合になる。

以上から、 $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$ 、 $^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2$ 、 $^{16}\text{O}^{12}\text{C}^{18}\text{O}$ 同位体混合ガスでは、エネルギーがボルツマン分布をした形状に各ラインあたり $\frac{1}{4}$ ずつ分配された形になる。その結果、どのガスにおいても各ラインにおいて同様な出力が得られることになる。

同位体混合ガスの発振ライン分布

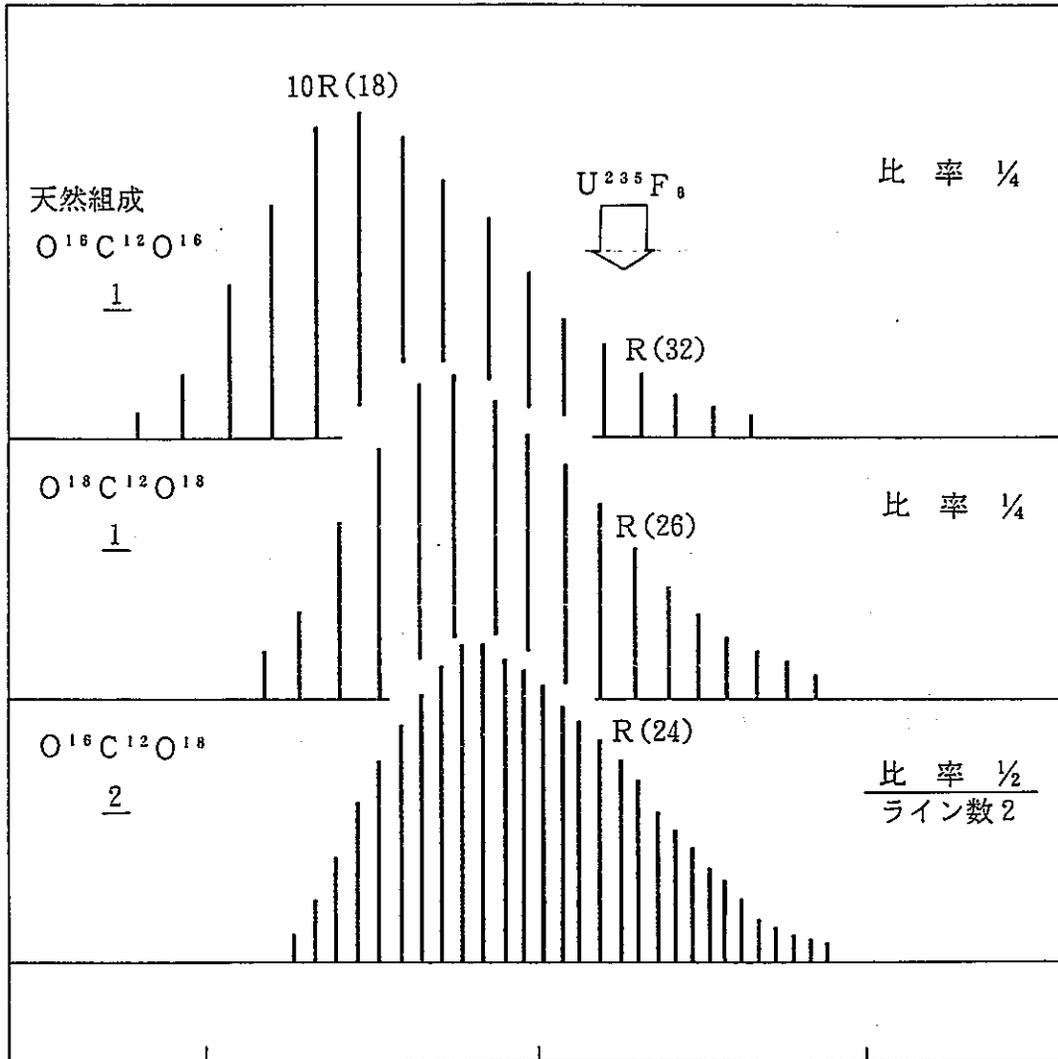


図-2 同位体炭酸ガスの発振ライン分布

## 4. レーザ発振試験

## (1) 試験装置および測定器

図-3に試験装置構成および測定器配置を示した。TEA-CO<sub>2</sub>レーザ発振器としてモニクス社TE-820HP（低圧ガスチューブ、グレーティング付）を用いた。

レーザ発振のための炭酸ガスとして

- ① 天然組成ガス（ほぼ<sup>12</sup>C<sup>16</sup>O<sub>2</sub>）
- ② 同位体単体ガス（<sup>12</sup>C<sup>18</sup>O<sub>2</sub> 95%以上）
- ③ 同位体混合ガス（<sup>12</sup>C<sup>16</sup>O<sub>2</sub> 50%、<sup>12</sup>C<sup>18</sup>O<sub>2</sub> 50%混合）

の3種を用いた。これら同位体ガス、同位体混合ガスは米国アイソテック社によりあらかじめ精製および混合されたものである。この他、He、N<sub>2</sub>ガスは通常のものを用いた。

これら、発振試験において低圧ガスチューブは放電させていない。

発振スペクトルについては、オプティカルエンジニアリング社、スペクトルアナライザ、MODEL16-Aを用いて、天然組成ガスのラインについては同定した。同位体ガスの発振ラインについても同様に観測はできるが、ラインナンバーに対する目盛が異なるため、同定に使うことができない。

レーザ出力の測定はジェンティック社ジュールメータED-500-PRJ-Mを用いた。出力値はデジタル表示にて代表値を読み取った。特別な平均化処理は用いていないので、読み取り値には±5%程度のバラツキが含まれていると考えられる。

一連の試験はガス再生試験を除き、封じ切り状態にてIPPS動作にて連続して測定を行った。

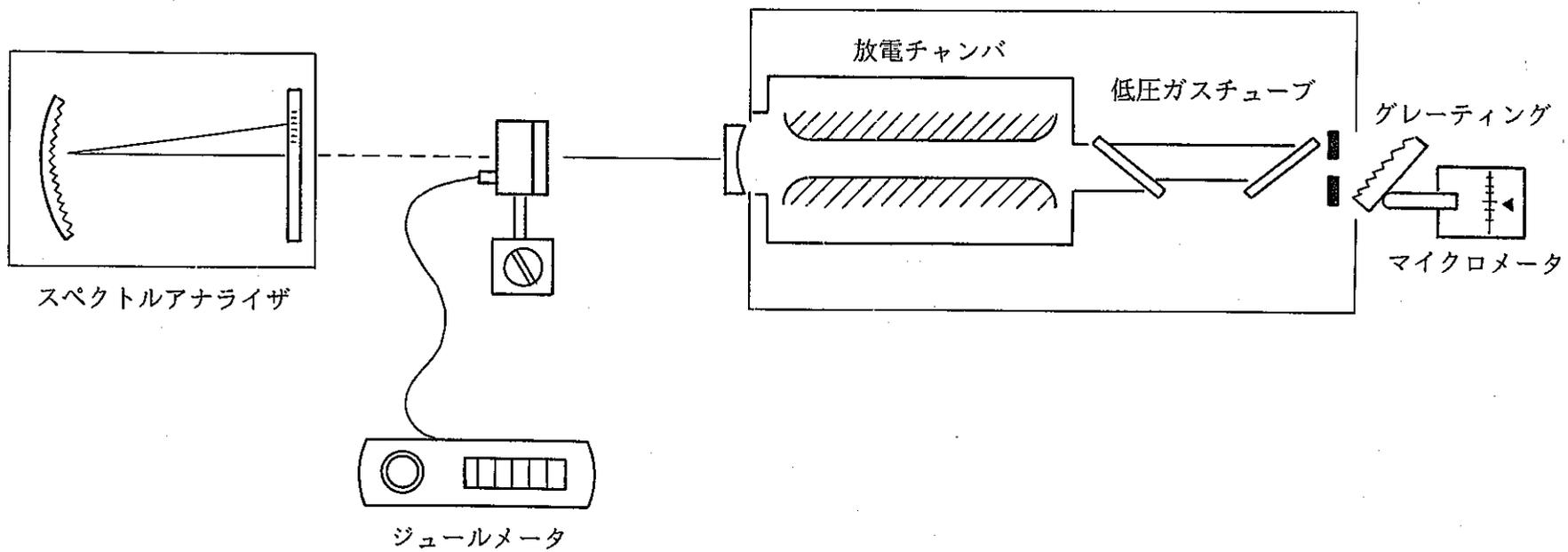


図-3 試験装置構成および測定装置の配置

## (2) レーザ発振ラインの観測とレーザ出力の測定

レーザ発振ラインの測定法を確立するため、次のような予備実験を行なった。まず、天然組成ガス $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$ を用い、ガス混合比 $\text{CO}_2 : \text{N}_2 : \text{He} = 1 : 1 : 8$ に調整し、設定電圧を33kVとしてレーザ発振を行なわせた。そして、スペクトルアナライザを用いて発振ラインを観測しながら、それぞれのラインについての出力値を測定した。その結果を図-4に示した。発振ラインは10R帯について観測し、ラインは10R(4)から10R(38)までのものが観測できた。出力は10R(20)近辺では450mJ以上(アパーチャ開放状態)が得られている。バーンパターンについては図中に示したとおりで、横モードはマルチモードである。

次に、発振ラインを記録として残すためスペクトルアナライザのライン観測部に感熱紙を貼付し、その感熱紙に対し、通常のバーンパターンを焼きつけると同様の要領で、ラインの焼付けを行なった。その結果を図-5に示す。このとき、以下のことが判明した。

レーザ発振器の共振器内に用いられているグレーティングとスペクトルアナライザ内に用いられているグレーティングとが正対(グレーティングの溝方向が平行)していないと、その分光感度が非常に低くなり、ラインが観測しづらいことである。これは、レーザ発振器のレーザ光の偏光方向はグレーティングの溝方向および内部に存在するブリュスターウィンドー等、偏光素子に依存して決定されている。そして分光器内部のグレーティングについても入射する光の偏光方向に対して大きな分光反射率の依存性を持っている。そのため、これらはグレーティングが正対したとき、つまりそれぞれのグレーティングに対し、偏光面が一番よい反射率を持つようにセッティングされたとき、一番よい感度を示す。これについて、グレーティングの溝を分光器とレーザ発振器について直交させて観測したものと正対(平行として)させて観測したものを図-5中に比較して示した。なお、このことはレーザ発振器からのレーザ光が直線偏光のときにのみ言えることであり、このレーザ光が円偏光化されている場合についてはグレーティングの方向に対する依存性はない。分光器中のグレーティングの反射特性を添付資料中に示した。

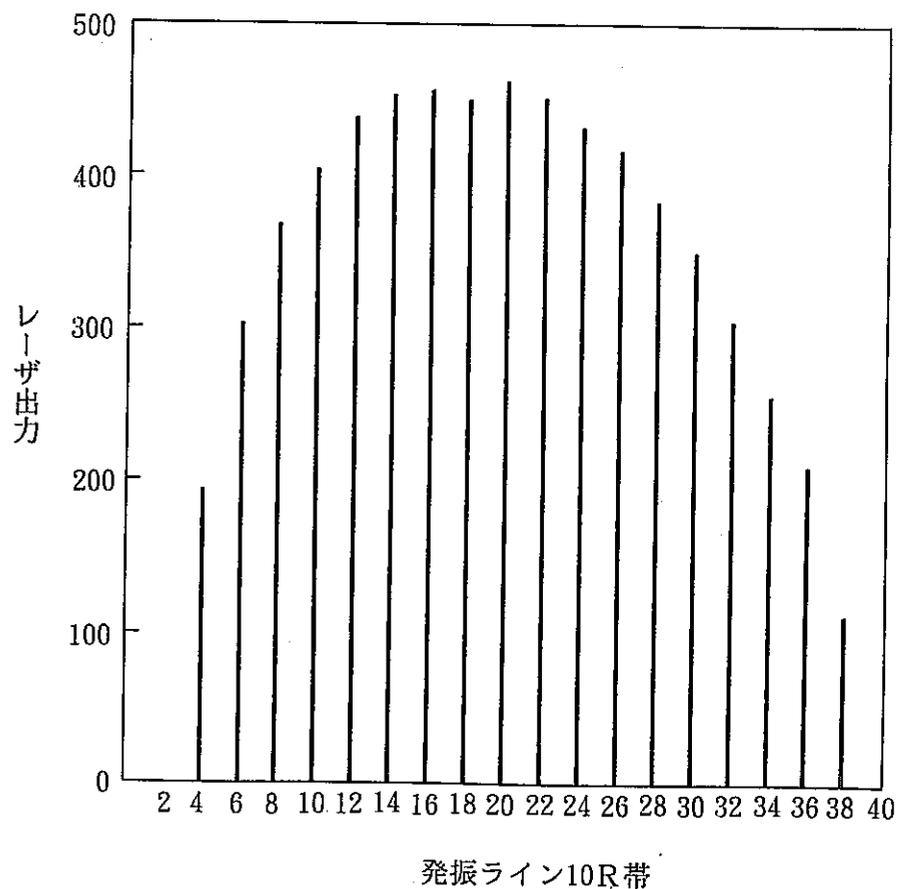
図-5中段に示したように天然組成ガス $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$ において10R(6)から10R(32)までがかろうじて観測できた。このとき、10R(20)においては450mJ程度の出力である。

これらをふまえ、同様の条件において $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$  50%、 $^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2$  50%混合ガスを用いてレーザ発振させたもののライン分布を観測した。感熱紙に焼き付けした結果を図-5下段に示した。図中、20↓は天然組成ガスでの発振ライン位置10R(20)に相当する位置を示す。ここでは明らかに天然組成ガスのライン焼付パターンの形状とこの同位体ガスのライン焼付パ

ターンの形状とは異なっていることが判る。しかし、このスペクトルアナライザーのライン表示には同位体混合ガス用のラインナンバー表示がないため、ラインナンバーを同定できなかった。また、ライン間隔の変化、ライン間への新たなライン出現は観測できなかった。この同位体混合ガスでは最大出力は 250m J 程度であり、その他のラインでは出力がさらに低くなるため、観測されないものと考えられる。

結果として、この方法ではライン位置およびその出力の詳細な観測ができないため、次に述べる共振器グレーティングに付属しているマイクロメータとジュールメータにより、ライン形状、出力を観測することとした。

1989-2-14  
データ



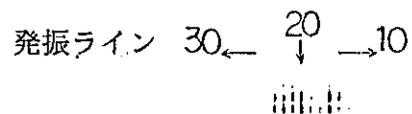
33kV  
 アパーチャ開放 低圧ガスセル真空  
 ガスHe N<sub>2</sub> CO<sub>2</sub> 流しすて  
 8 : 1 : 1  
 くりかえし 1 PPS  
 パーンパターン



図-4 天然組成炭酸ガスの発振ラインとその出力

10R帯での発振ラインの確認

グレーティング 分光器 直交



10R(20)で  
450m J

発振ラインの焼付

10R(20) 450m J

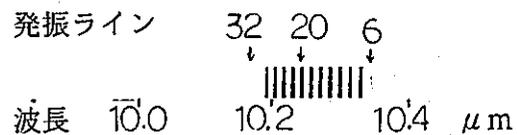
バーンパターン



1989-2-18

グレーティング 分光器 平行

天然組成ガス  
CO<sub>2</sub> N<sub>2</sub> He  
1 : 1 : 8



10R(20)で  
450m J

発振ラインの焼付

バーンパターン

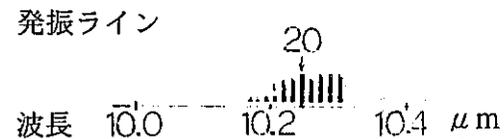


1989-2-22

天然組成ガス担当

<sup>16</sup>CO <sup>18</sup>CO N<sub>2</sub> He  
1 : 1 : 1 : 8

<sup>12</sup>C <sup>16</sup>O<sub>2</sub> + <sup>12</sup>C <sup>18</sup>O<sub>2</sub>  
(<sup>12</sup>C <sup>16</sup>O <sup>18</sup>O)



発振ラインの焼付

図-5 スペクトルメータによる発振ラインの感熱紙への焼付

## (3) レーザ発振試験結果

天然組成ガス $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$ を用い、混合比を $\text{CO}_2 : \text{N}_2 : \text{He} = 1 : 1 : 8$ に調整し、設定電圧を33 kVとして、レーザ発振試験を行なった。

ここでは、レーザ発振器の共振器に設けられたグレーティングのマイクロメータを最小目盛1目盛ピッチにて回転させ、その目盛に対するレーザ出力を測定した。用いられているマイクロメータは三豊製152-388Aで、ストローク2"、最小目盛ピッチ0.001"となっている。主要な発振ラインについては、スペクトルアナライザーによりラインナンバーを同定した。

図-6に測定の結果を示す。横軸はマイクロメータの目盛であり、これがグレーティングの振り角に対応する。10R(20)近辺では350mJ程度の出力が得られており、10R(32)まで観測されている。この図中の○印が1つの観測点に対応し、この測定ピッチがマイクロメータの最小目盛に対応している。

この図からも明らかなように、マイクロメータの目盛を基準として各発振ラインを観測することができる。その発振ラインの幅が広く見えるのは共振器中のグレーティングの波長分解能と、その共振器でのミスアライメントからくるもので、実際のライン幅ではない。また、マイクロメータには送りのガタがあるため波長を絶対較正することはできないが、基準とするラインとの相対関係としてはマイクロメータの目盛値を使用してもよいと考える。

また、参考として10R(20)、10R(32)の波数を図中に示した。

(4) 同位体ガス $^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2$ のレーザ発振試験

同位体ガス $^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2$ を用い、混合比 $\text{CO}_2 : \text{N}_2 : \text{He} = 1.4 : 1.6 : 7$ に調製し、設定電圧を35 kVとして、レーザ発振を行なった。このとき、グレーティングの振り方は天然組成ガスと同じである。

測定結果を図-7に示した。ここで、図-6と図-7を比較すれば明らかに発振ラインの分布形状が異なることが分かる。ここで、絶対波長の比較はむずかしいが、ライン分布形状とスペクトルアナライザーを用いたライン観測で天然組成ガスのライン位置と比較することにより、図中に示したような同位体ガス $^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2$ の発振ラインを同定した。このとき図-6と図-7の横軸としたマイクロメータの目盛にはずれが生じていることは前述のとおりである。

これらにより、同位体ガス $^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2$ ガスの発振ラインとして10R(10)から10R(30)まで

が測定できたと考えられる。また、図中には同位体ガス $^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2$ の10R(20)と10R(24)に相当する波数を示しておいた。

(5) 同位体混合ガス ( $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2 + ^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2$ ) のレーザ発振試験

天然ガス $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$ と同位体ガス $^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2$ をそれぞれ50%ずつ混合し、混合比を $\text{CO}_2 : \text{N}_2 : \text{He} = 1.4 : 1.6 : 7$ に調製し、設定電圧を35kVとしてレーザ発振させた。この時のグレーティングの振り方、測定方法は前述のものと同様である。

測定結果を図-8に示した。ここで、天然組成ガスのラインと推定できるものが5本得られ、スペクトルアナライザにより10R(12)から、10R(22)と同定した。そして、この天然組成ガス $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$ の発振ラインと同定したものの間に、同定できないラインを観測した。図中には斜線として示した。

これらは、同位体ガス $^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2$ あるいは $^{16}\text{O}^{12}\text{C}^{18}\text{O}$ のいずれかの発振ラインと推定されるが、今回の測定方法では波長の絶対測定ができないため、ラインの特定はできない。また、図中に各ガスの発振ラインに対応する波数を示したが、これらからはこの観測されているラインが2つのガスの発振ラインの重なり合いであることも考えられる。特に天然組成ガスの10R(26)のラインに相当するところでは同位体ガス $^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2$ 、 $^{16}\text{O}^{12}\text{C}^{18}\text{O}$ の2つのラインも重なり合い、計3本のラインの合計として他のラインとは離れた位置に発振ラインが観測されていると思われる。

結果として、同位体混合ガス ( $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2 + ^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2$ ) の発振ラインは観測することができた。しかしながら、今回目標とする $^{16}\text{O}^{12}\text{C}^{18}\text{O}$ の10R(24)に相当する部分での発振ラインは得られなかった。このあたりでの発振出力を得ることは今後の課題である。

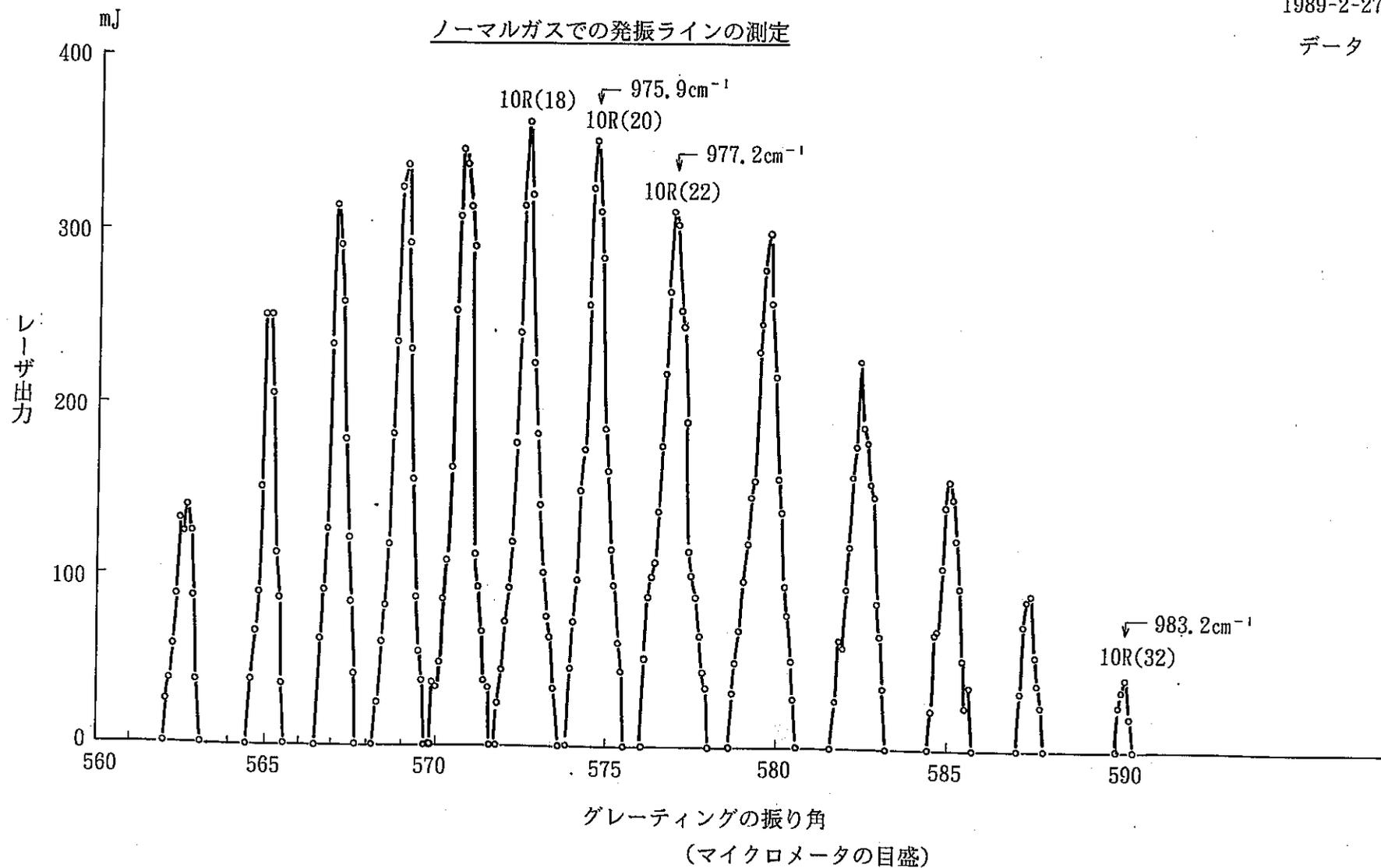


図-6 天然組成炭酸ガスの発振ラインの測定結果

同位体ガスでの発振ラインの測定

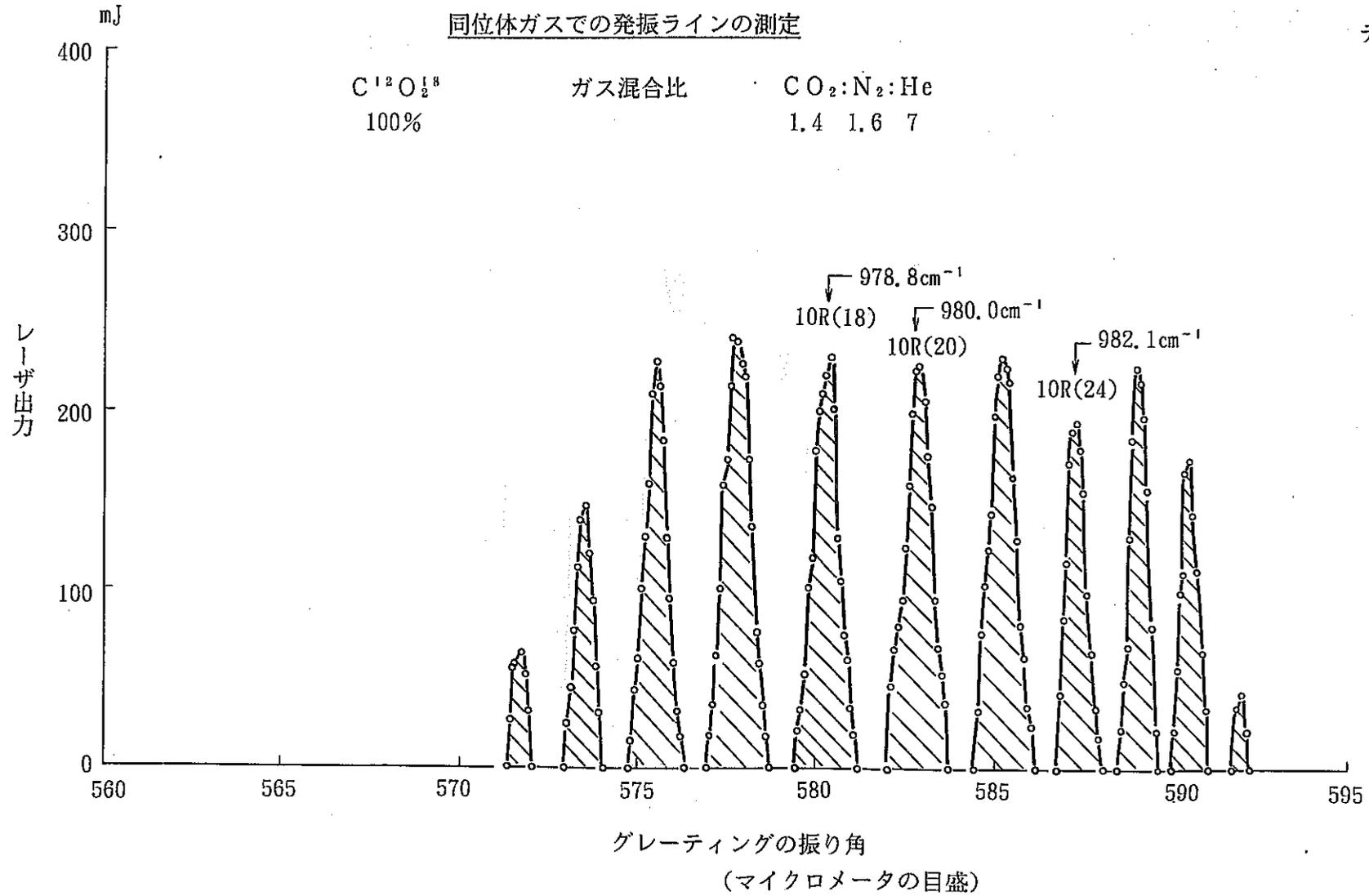


図-7 同位体炭酸ガス $^{12}C^{18}O$ の発振ラインの測定結果



## 5. 連続発振試験とガス再生試験

### (1) 試験装置構成および測定器

図-9に試験装置構成を示した。用いた発振器は前項同様にルモニクス社製TE-820HPである。レーザガスは通常的气体ボンベより配管により供給される。このとき、CO<sub>2</sub>ガスの配管は分岐し、同位体ガス<sup>12</sup>C<sup>16</sup>O<sub>2</sub>+<sup>12</sup>C<sup>18</sup>O<sub>2</sub>、あるいは<sup>12</sup>C<sup>18</sup>O<sub>2</sub>のガスボンベが接続してある。レーザ放電チャンバにはAPI社製ガス再生装置モデルCT-1500を接続している。

アルカテル社真空ポンプ2008Aをガス再生装置に接続してあり、ガス再生装置を真空排気すると共に、ガス再生装置を通してレーザ放電チャンバを真空排気することができる。真空排気ラインについては、ガスサンプリング用ポンベが接続できるようにしてあり、ガスのサンプリングによる分析が行なえるようにした。

レーザ出力はジェンティック社ED-500-PRJ-Mを用いて測定し、そのレコーダ用出力を横河製レコーダLR-8100に接続して記録した。この出力は大きなハンチング状のものとなるが、この振れ幅の最大値をレーザ出力の値として採用することにした。

同位体ガス レーザ発振実験 (ガス循環経路) 1989-3-3

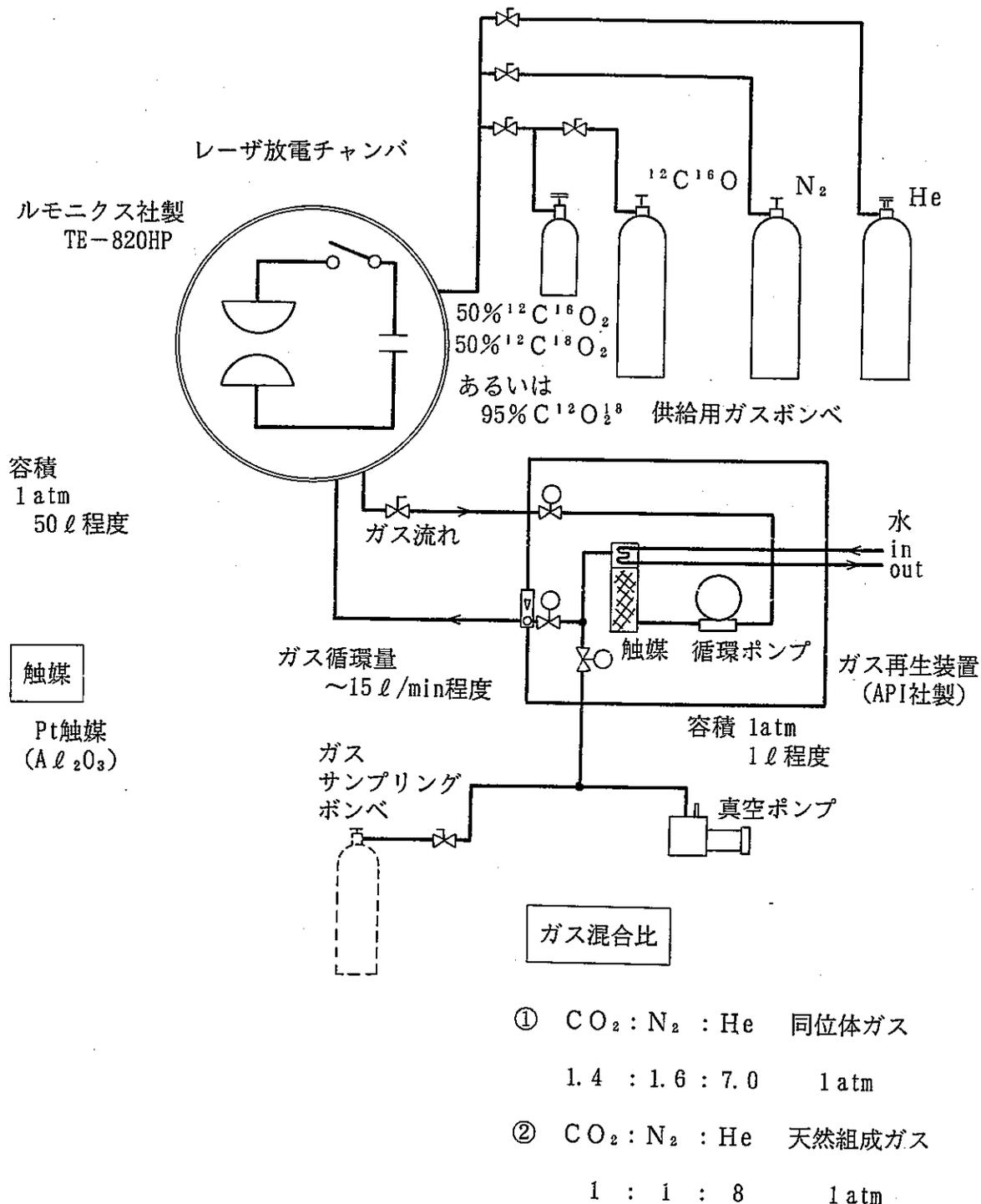


図-9 試験装置構成およびガス供給系とガス再生系

(2) 天然組成ガス $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$ による連続発振試験

以下のような種々の条件で、天然組成ガス $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$ を用いて連続発振させ、その出力の変化を記録した。レーザの運転条件は、ガス混合比 $\text{CO}_2 : \text{N}_2 : \text{He} = 1 : 1 : 8$ 、設定電圧33kV、使用したラインは10R(20)、アパーチャ開放である。運転周期IPPSである。

## ① ガス流しすてによる運転

上述のレーザの運転条件において、レーザガスを混合比 $\text{CO}_2 : \text{N}_2 : \text{He} = 1 : 1 : 8$ を保ちつつ、20ℓ/分の率で導入、ガスの流しすて交換を行ないながらレーザの連続発振試験を行った。

結果を図-10に示す。レーザ出力は開始時、約450mJであった。チャートより読み取れるように、約40分の運転期間においてほぼ出力の変化はなく一定している。このような運転条件であれば20ℓ/minのガス交換により、ほぼレーザ出力は一定に保てると言える。

## ② ガス封じ切り運転

上述と同一の運転条件、ガス混合比 $\text{CO}_2 : \text{N}_2 : \text{He} = 1 : 1 : 8$ においてガスの導入交換を行わず、レーザの発振試験を行なった。

結果を図-11に示す。図中に見られるようにガス流しすて時、初期出力440mJで定常状態のところでガスの導入を停止し、ガス封じ切り動作と行なわせた。このとき、封じ切り後2～3分で出力が微増する現状が見られる。この時の出力は450mJである。その後、出力は直線的に低下し、60分の経過により410mJまで低下する。これは1時間あたり約10%の低下に相当する。

この出力の低下は放電に伴うガスの分解、劣化によるものと推定される。これは、封じ切り時の圧力1.0atmが60分の封じ切り動作後、1.05atmに上昇していることから分子数の増加、あるいはガス温の上昇があったものと推定できる。また、封じ切り直後の出力の一時的上昇は原因不明であるが、このガス分解等による放電入力条件の変化によるものも一因となっていると考えられる。

## ③ ガス再生試験1

第②項のガス封じ切り動作を行なわせたあとで、その状態からガス再生装置の動作を開始させ、ガス再生を行なわせた。結果を図-12に示した。ガス封じ切り動作90分においてレーザ出力が410mJまで低下している状態から、ガス再生装置の動作開始時に一時出力が400mJまで再度低下するが、その後10分のガス再生器の運転により430mJまで回復し、その後430mJで一定化した。このときのガス再生器のガス循環量は、13ℓ/分であ

り、触媒設定温度は800℃である。

430m J の出力に安定化した後、レーザ共振器のアライメント確認のため、アライメント操作を行なった結果、レーザ出力は 440m J まで回復した。バーンパターンを図-12中に示したが、この出力の変化はアライメントの変化と考えられる。そして、この 440m J という値は第②項ガス封じ切り動作前の出力値 440m J と同一であり、出力は完全に回復したと言える。

#### ④ ガス再生試験 2

1 P P S の連続運転でのガス再生装置の能力を調査した。数分のガス封じ切り状態において、レーザ出力を確認した後、ガス再生装置によるガスの循環を行なった。結果を図-13に示す。

1 P P S 数分の封じ切り動作時、レーザ出力は 540m J となっている。ガス再生装置の運転を開始した直後において、出力がやや低下する現象が見られる。その後、2～3分で出力上昇し、550m J まで達し安定化する。これは、約30分の連続運転において変化は見られない。

このガス再生装置運転開始時のレーザ出力の一時的低下は、ガス循環開始時に、ガス再生装置を真空排気しているため、それによる全系での圧力の低下が生じることによっていると思われる。その後の出力上昇はガス再生装置の効果と、ガス組成の微少な変化による入力条件の変化によっていると考えられる。

#### ⑤ ガス再生試験 3

ガス再生装置において、ガス循環を行ないながら 1 P P S 約 1 時間の連続運転を行なった。結果を図-14に示す。

ガス再生装置により、レーザチャンバのレーザガスを数分間循環させ、そこでレーザを 1 P P S で動作させた。この条件では、レーザ出力は開始直後よりほぼ安定している。この一時間の連続運転中において、レーザ出力は微少であるが、やや上昇の傾向が見られる。

このレーザ出力の変化原因は微少な変化であるため、原因追求はむずかしいが、長期間的なゆるやかな変化であるため、アライメントの変化である可能性が一番大きい。また、前述同様に、ガス組成の微少な変化による入力条件の変化も考えられる。このときのチャンバの真空もれ率は、真空放置試験において 0.0atm→0.45atm/17時間であった。ルモニクス社 T E - 820 H P の容器体積 50 ℓ とすると、もれ率は  $4 \times 10^{-4} \ell / \text{sec}$  となり、1 時間でのもれ量は 1.3 ℓ となる。しかし、これは大気圧動作時のもれ率とは対応していない

め、この数値により判断することはできない。

#### ⑥ ガス再生試験 4

レーザ発振繰りかえし数を5 P P Sとした時のガス再生試験を行なった。運転条件は1 P P Sでの動作と同じであり、ガス再生装置のガス循環量も13ℓ/分と同じ率で動作させた。結果を図-15に示す。

ガス再生装置により、ガス循環を行なわせながら、5 P P Sでレーザを動作させた。その結果、レーザ出力は最初の2分間で約8%低下し、その後ほぼ安定する。その後、ガス再生装置の運転を停止させ、ガス封じ切り動作とした。その後、20分間でレーザ出力は徐々に低下し、その出力低下率は30%である。その時点でも出力は安定しておらず、さらに連続して運転をつづければ、さらにレーザ出力が低下すると思われる。

これにより、レーザの発振繰りかえし数5 P P Sではガスの劣化はかなり大きい。このとき、ガス再生装置を用いると、完全にレーザ出力の低下を防ぐことは出来ないが、わずかな出力低下でその出力の安定状態を保つことができる。

なお、5 P P Sでは測定に用いたジュールメータがレーザ出力を正確に測定できていないおそれがあるが、ここではそのメータ出力の変化した値を相対変化量として採用した。

#### (3) 同位体混合ガス $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$ 50%、 $^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2$ 50%での連続発振試験

同位体混合ガス $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$  50%、 $^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2$  50%のガスを用いて、レーザを1 P P Sで連続運転を行ない、そのレーザ出力の変化を測定した。ガス混合比は同位体炭酸ガス組成 $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$  50%、 $^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2$  50%、 $\text{CO}_2 : \text{N}_2 : \text{He} = 1.4 : 1.6 : 7$ 、設定電圧35kVである。このとき、出力測定を行なった発振ラインは天然組成炭酸ガス $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$ の10R(20)に相当するラインである。また、この出力測定以前に発振波長の調査のため、1時間程度のレーザ発振を行なっている。

測定結果を図-16に示した。測定開始直後より、レーザ出力は直線的に低下している。測定開始直後の出力は100mJであったが、60分経過後、45mJまで低下している。別項にて詳しく述べるが、この連続運転後、 $^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2$ あるいは $^{16}\text{O}^{12}\text{C}^{18}\text{O}$ の発振ラインは見い出せなかった。

この同位体混合ガスでの連続運転結果図-16は、天然組成ガスでの連続運転結果図-11と比較して大きな違いがあることが判る。これらの連続運転結果より、同位体混合ガスでのガス劣化はかなり大きいと言える。

(4) 同位体混合ガス $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$  50%+ $^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2$  50%でのガス再生試験と発振ラインの観測

同位体混合ガス $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$  50%+ $^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2$  50%を用い、発振スペクトルの観測を行ない、その後に連続発振試験を行なった後、API社製のガス再生装置の運転を行ない、ガス再生試験を行なった。この試験は2-(5)項、および前述の5-(3)項に継続して行なったものである。

運転条件は、ガス混合比 同位体炭酸ガス組成 $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$  50%、 $^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2$  50%、 $\text{CO}_2$  :  $\text{N}_2$  :  $\text{He}$  = 1.4 : 1.6 : 7、設定電圧35kVである。このとき、レーザ出力の測定は天然組成炭酸ガス $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$  の10R(20)に相当するラインで行なった。また、ガス再生直前とガス再生後において、レーザの発振ラインもグレーティングのマイクロメータを振ることより測定した。

レーザ出力の変化を測定した結果を図-17に示す。レーザの出力は50mJ程度であったものが、ガス再生装置によるガス循環により突然10mJ程度増大するが、2分後すぐ50mJまで戻り、その後出力が増大し、10分間程度で140mJに達する。そこで出力はほぼ安定するが、わずかな増大傾向が見られる。

この試験時、ガス再生装置使用前に測定したレーザの発振ラインを図-18aに示す。また、このガス再生装置によるガス循環後、出力の安定した時点で測定した発振ラインを図-18cに示す。これを見ればわかるように、ガス再生前ではわずかな発振ラインしか観測されず、その出力も低い。ガス再生後では、レーザ出力はかなり回復し、数多くの発振ラインは観測できた。しかしながら、図-8で見られたような同位体混合ガスを用いて初期に観測された特有の発振ラインは観測できなかった。

これらをまとめると、同位体混合ガスにおいて初期においては同位体炭酸ガスのラインは観測できるが、その連続運転による出力低下とともに、同位体炭酸ガスのラインは消失する。ガス再生装置の運転により、天然組成炭酸ガスのラインは8割程度まで回復するが、同位体炭酸ガスのラインが観測されていた領域には、発振ラインは現われてこない。これは、ガス再生装置により、天然組成炭酸ガスのガス再生は行なえるが、同位体混合ガスでのガス再生はできないことを意味する。

(5) 同位体ガス $^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2$ でのガス再生試験

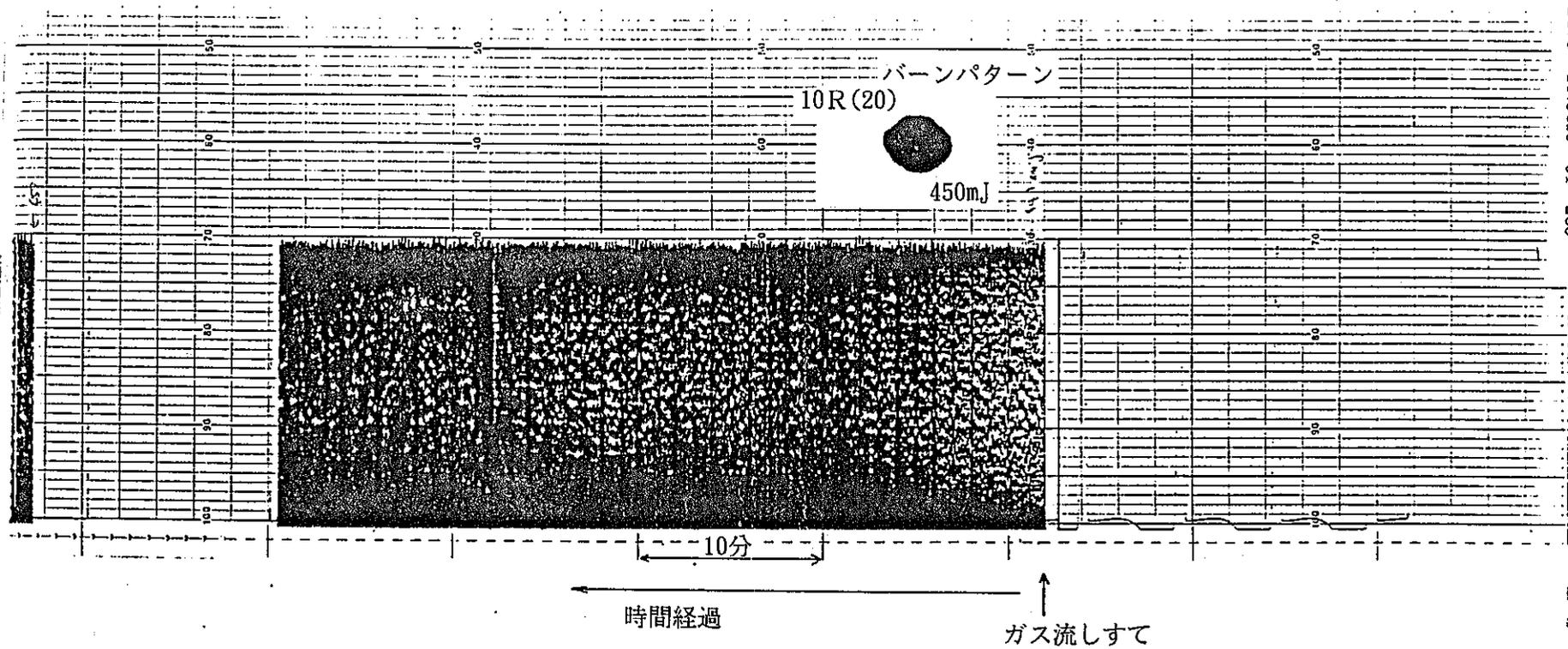
同位体ガス $^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2$ 単体ガスを使用し、連続発振試験を行ない、このときのガス再生装置によるガス再生試験を行なった。

運転条件は、ガス混合比 同位体炭酸ガス $^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2$ (95%以上)  $\text{CO}_2 : \text{N}_2 : \text{He} = 1.4 : 1.6 : 7$ 、設定電圧35kVである。

ガス封じ切り状態において、発振ライン測定を行なった後、同位体ガス $^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2$ の発振ライン10R(24)に相当するラインで出力を測定した。この封じ切り時のレーザ出力は21mJであった。結果を図-19に示す。

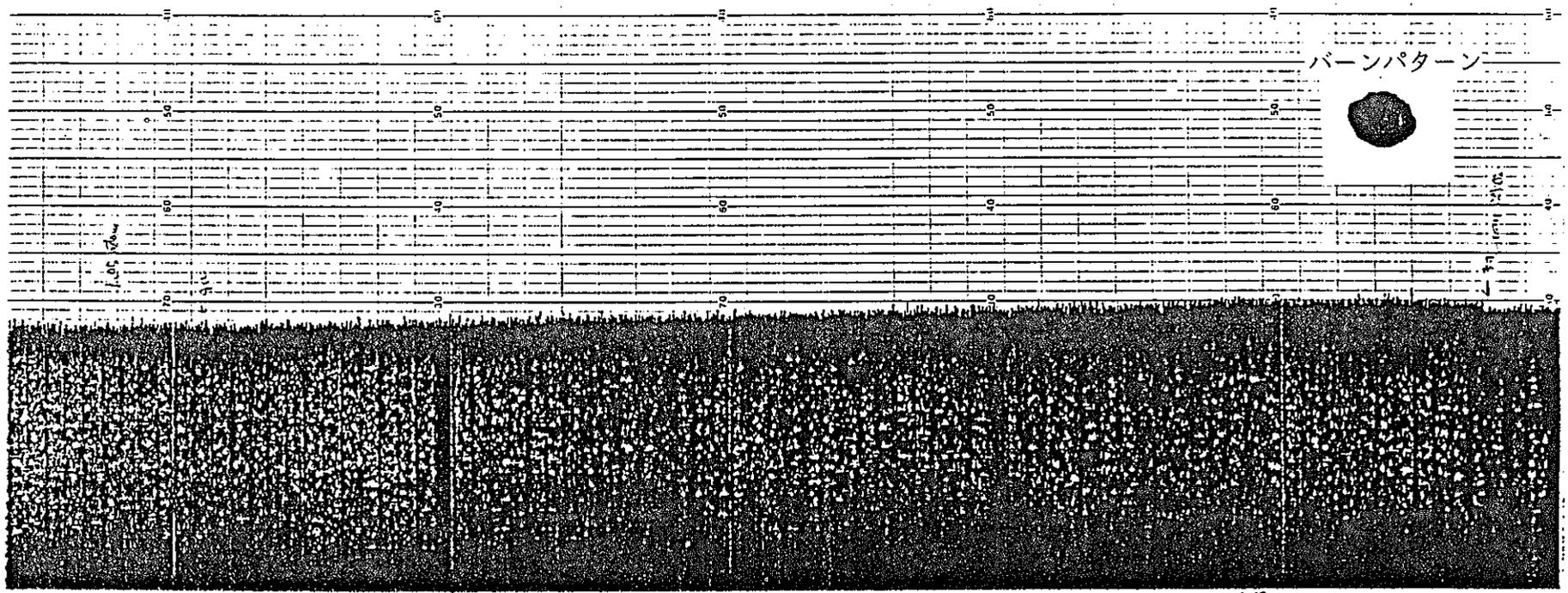
ここで、前述同様にAPI社ガス再生装置をその触媒温度を上げず、定温に設定してガスの循環を行なった。ガス循環の直後では、2割程度の出力の落ち込みが見られるが、その後の5分間でレーザ出力は急激に回復し、2倍程度の40mJとなる。以後は徐々に出力は低下している。出力の回復後、20分経過時に触媒温度を100°Cに設定し、触媒の温度を上昇させた。その結果、急激に出力の低下を生じ、5分間で同位体ガス $^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2$ の発振ライン10R(24)での出力は消失してしまった。この状態で他の発振ラインの調査を行なったところ、天然組成ガス $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$ の発振ライン10R(20)に相当するところに30mJの出力が見られた。同位体ガス $^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2$ の発振ラインに相当する部分ではレーザの出力は観測されなかった。

同位体ガス $^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2$ に対しては触媒は低温時においては期待どおり作用しているが、高温状態において何らかの異常な作用を行ない、レーザ出力を消失させている。



ガス流しすて状態にて      40分間      始め～終り      1989-2-15  
 ガス流量    total~20 ℓ/min                      440mJレベルで有意な変化なし  
 He N<sub>2</sub> CO<sub>2</sub>                      33kV  
 8 : 1 : 1                      1PPS

図-10 ガス流しすて試験 天然組成炭酸ガスによるガス流しすて運転試験

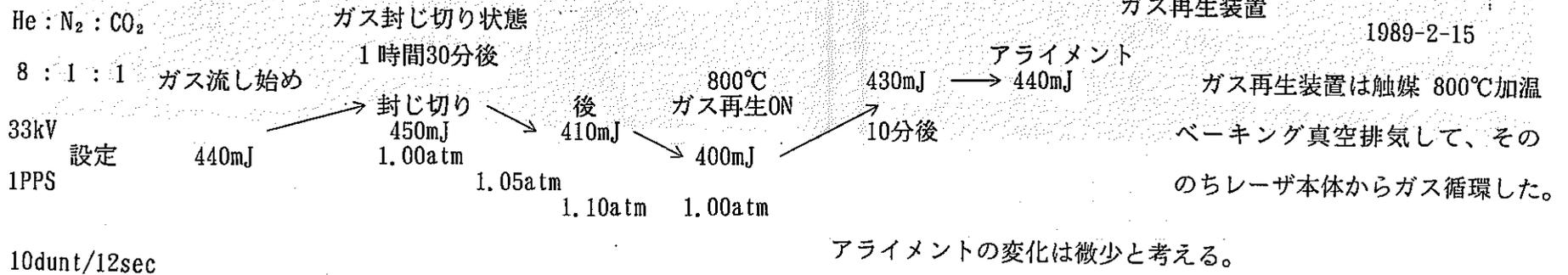
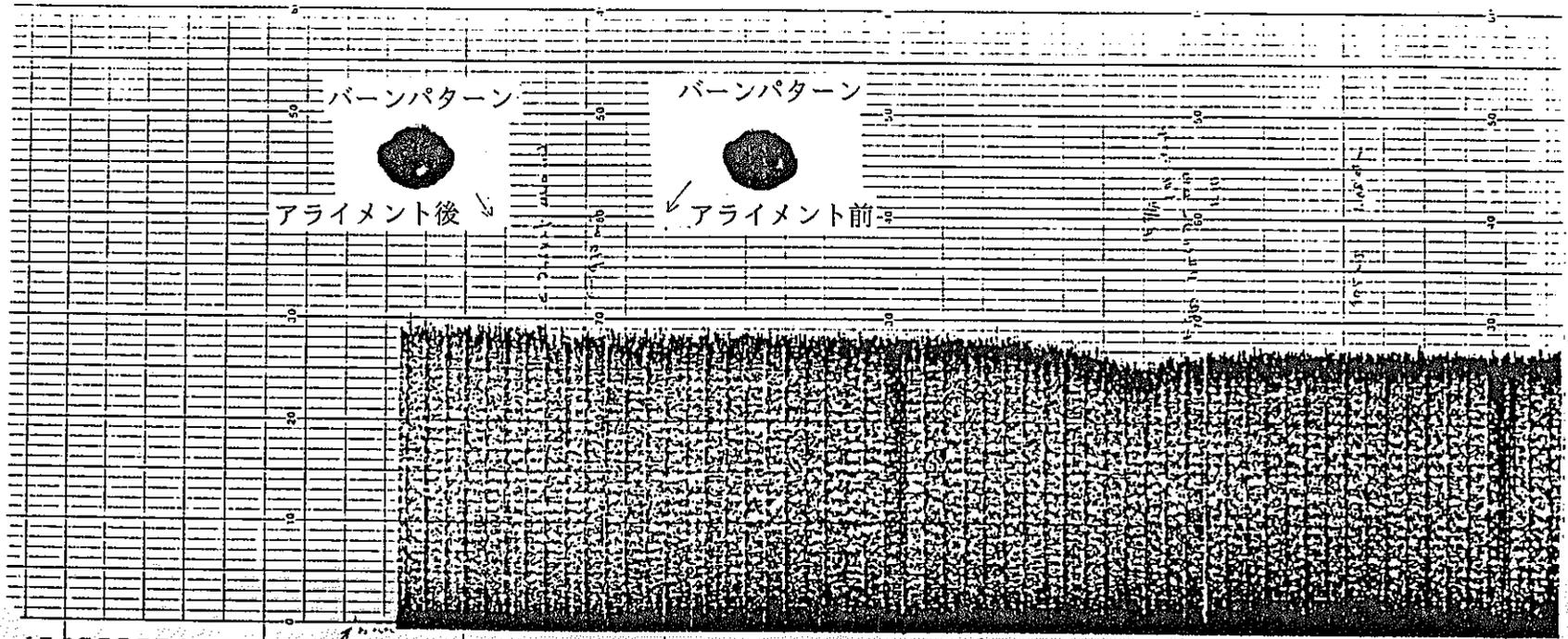


ガス流しすて→ガス封じ切り                      He : N<sub>2</sub> : CO<sub>2</sub>                      33kV                      1989-2-15  
 440mJ → 450mJ (原因不明?)                      8 : 1 : 1                      1PPS  
 ガス封じ切り 60分間

始め 450mJ → 後 410mJ    10% down  
 ガス圧 1.05atm                      1.05atm  
           (0.0kg/cm<sup>2</sup>G)                      (0.05kg/cm<sup>2</sup>G)

ガス封じ切り状態では1 P P S 1 時間の  
 運転で出力約10%低下

図-11 封じ切り試験 天然組成炭酸ガスによる封じ切り運転試験



ガス再生装置の使用により400mJに低下した出力が430mJとなった。

図-12 ガス再生試験1天然組成炭酸ガスによる封じ切り運転試験後のガス再生試験

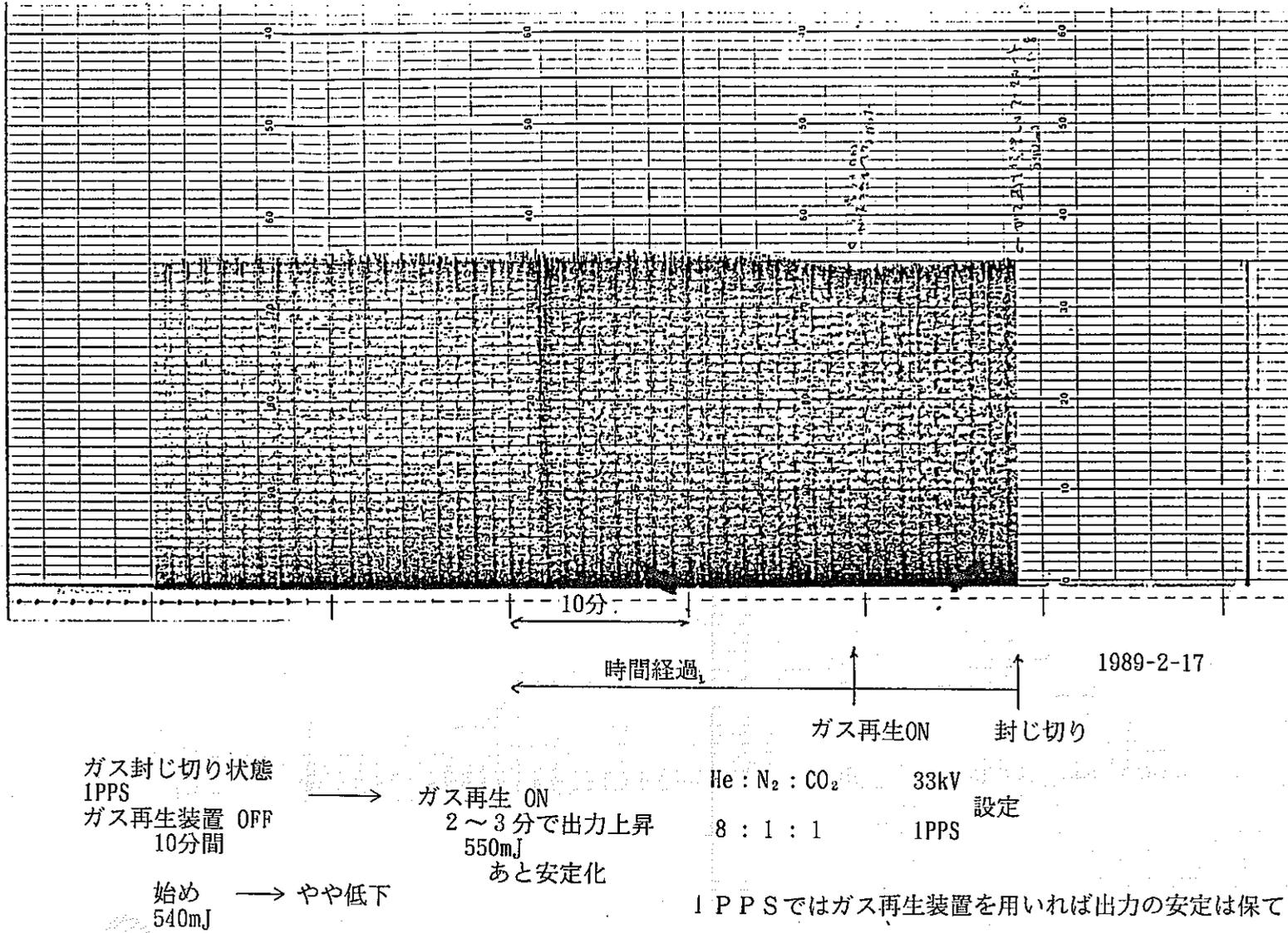
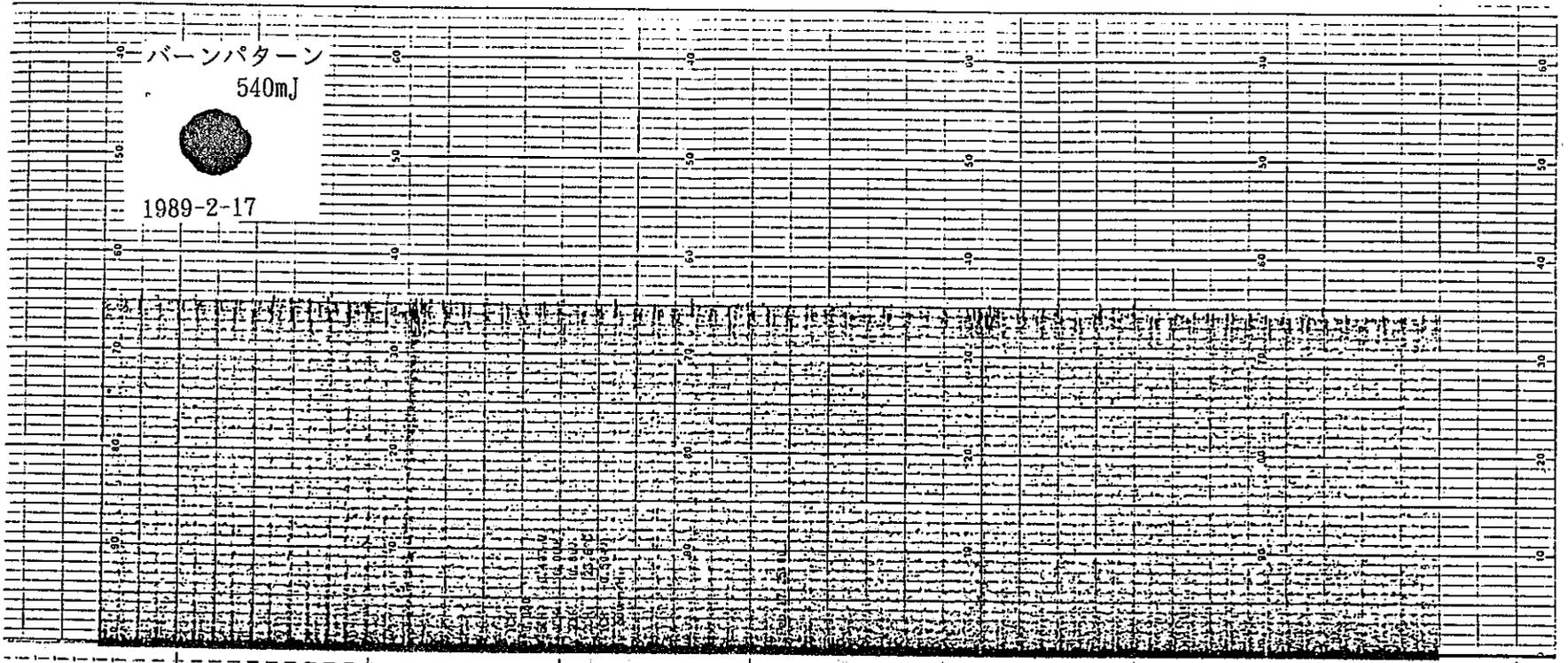


図-13 ガス再生試験 2 天然組成炭酸ガスによるガス再生運転試験



10分  
経過時間  
2.5時間  
休止後

ガス封じ切り  
再生器ON状態で60分以上運転  
レーザー出力にほとんど変化なし  
(上昇する傾向が見られる。)

チャンバ本体の真空もれ率  
前日 PM 4:30~翌日 9:30  
0.0atm → 0.45atm

ガス再生ON  
1PPS

1989-2-17

図-14 ガス再生試験3 天然組成炭酸ガスによるガス再生装置を使用した連続運転試験

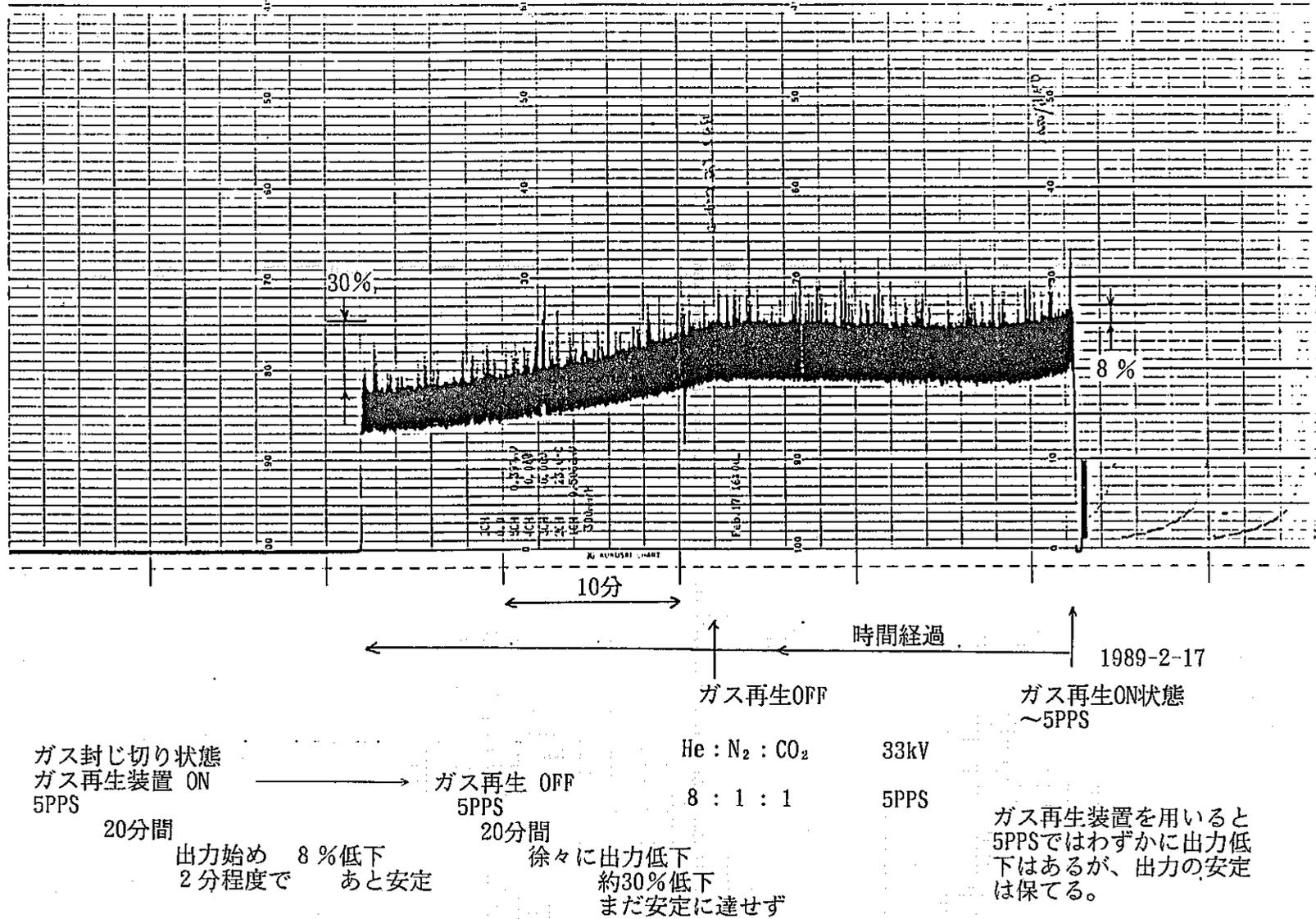


図-15 ガス再生試験4 レーザ発振5PPS運転での天然組成炭酸ガスによる連続運転試験

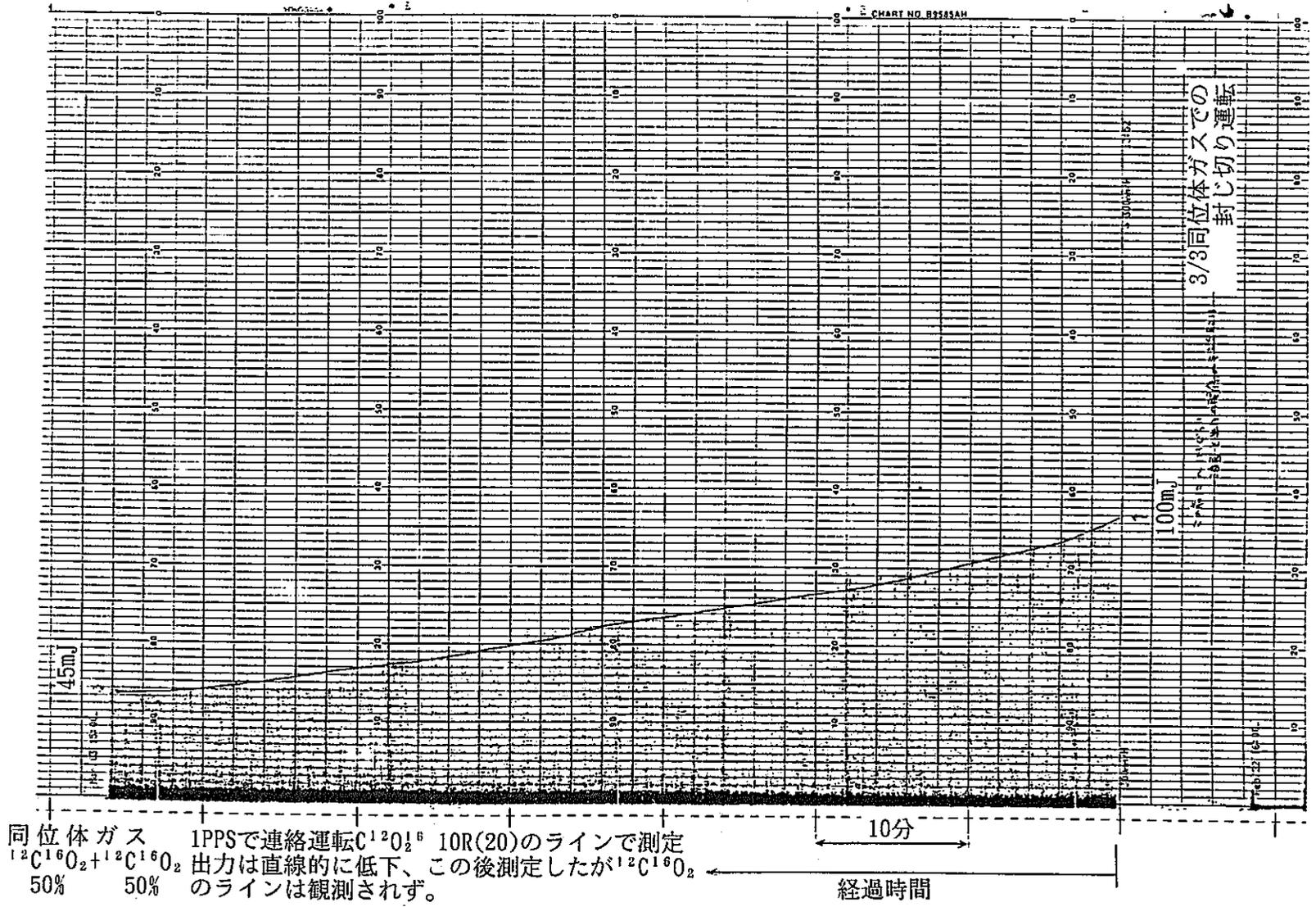


図-16 封じ切り試験同位体混合炭酸ガス ( $^{12}C^{18}O$  50% +  $^{12}C^{16}O$  50%) による封じ切り運転試験

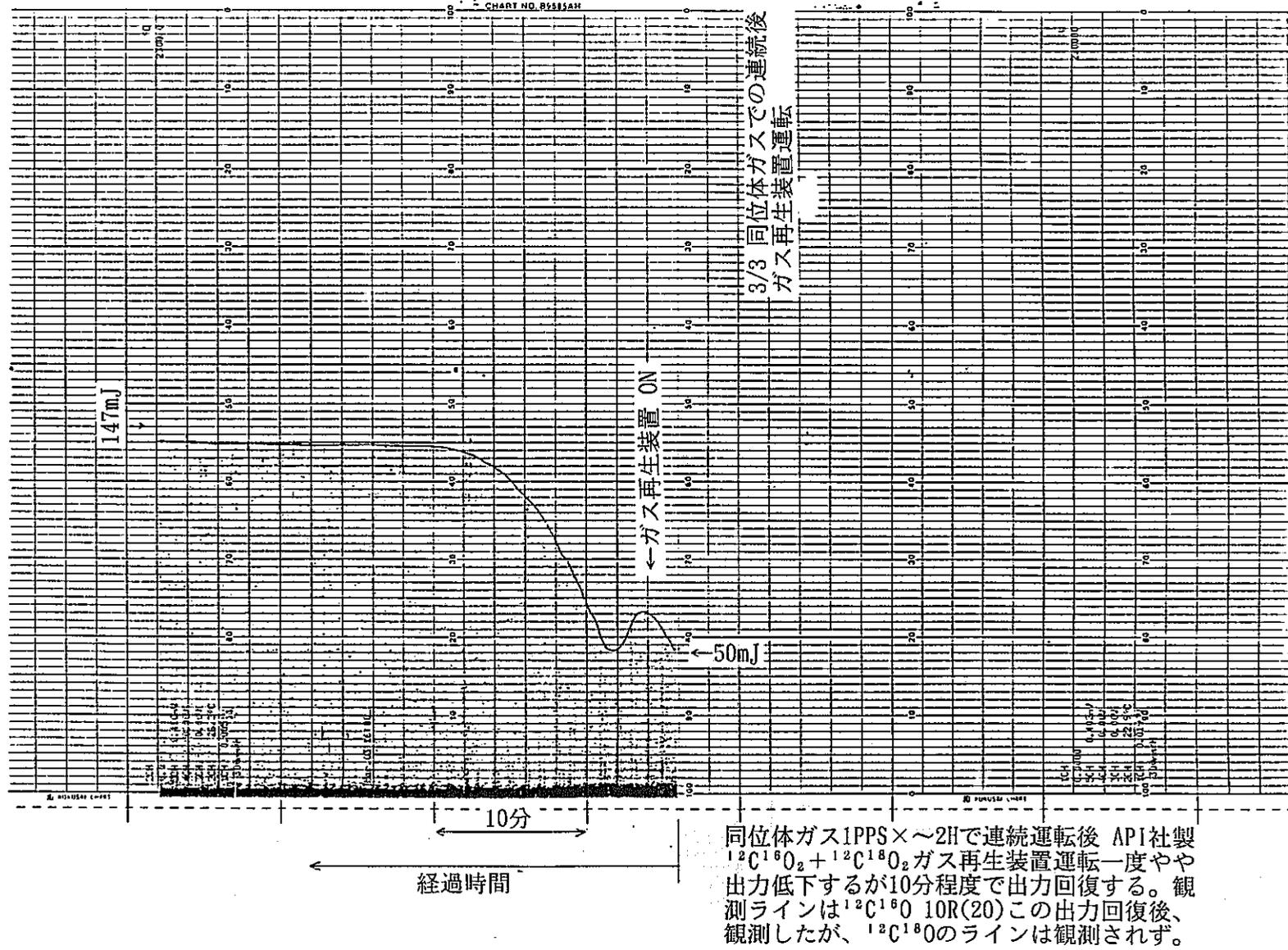
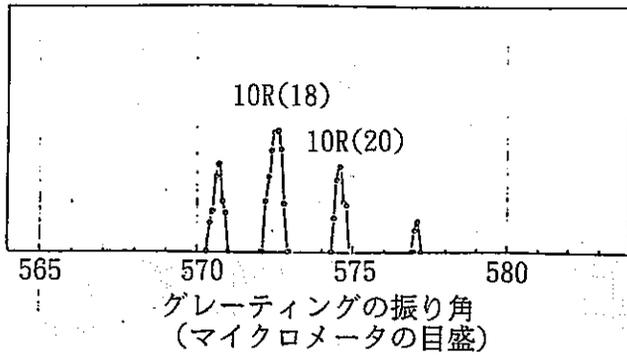


図-17 ガス再生試験 同位体混合炭酸ガス ( $^{12}\text{C}^{16}\text{O}$  50% +  $^{12}\text{C}^{18}\text{O}$  50%) によるガス再生運転試験 (高温)

ガス再生装置の運転結果



ガス再生前

図-18 a

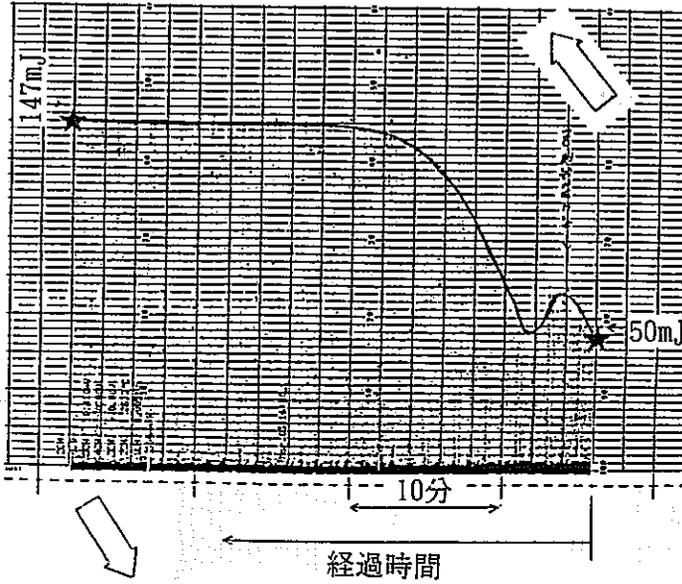
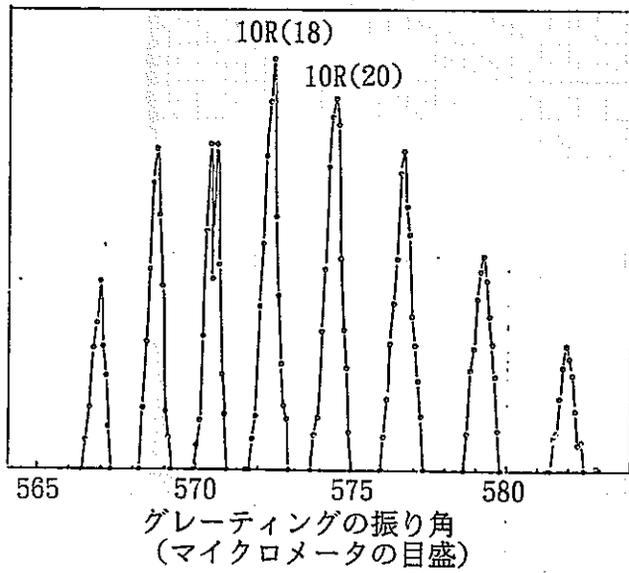


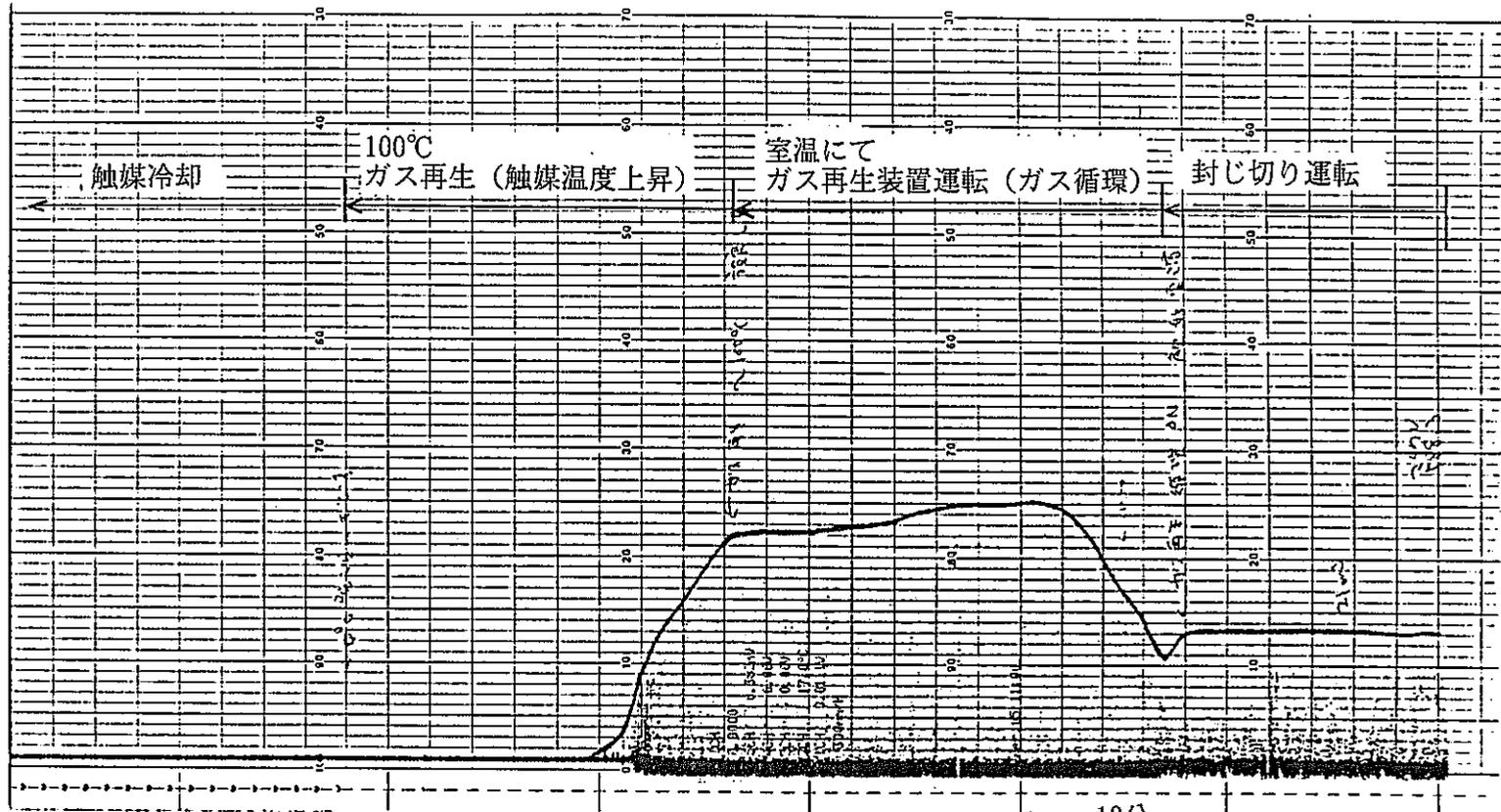
図-18 b



ガス再生後

図-18 c

図-18 ガス再生装置の運転と発振ラインの観測結果



3/23 → 4/4 同位体ガス封入放置後

マイクロメータ 588.3設定 同位体  $C^{12}O^{18}$  10R(24)あたりのみ出力

1 PPSにて10分間変化なし  
 ガス再生装置 触媒温度上げずにガス循環  
 約2倍に出力上昇するが、その後やや低下、一定になる。

ガス再生装置 触媒 100°Cに設定  
 触媒温度が上昇するにつれ、急激に出力がなくなる。

↓  
 グレーティングにより出力の 出るところをさがす → マイクロメータ575.0  
 ノーマルガスで10R(20) 相当に30mJ程度出力

経過時間

図-19 ガス再生試験同位体混合炭酸ガス $^{12}C^{18}O$ によるガス再生運転試験 (低温および高温)

## 6. ガス分析結果

一連の同位体ガスを用いたレーザ発振試験をにおいて、その実験途中あるいは実験終了後においてサンプルガスをサンプリングポンベに採取し、分析を行なった。

ガスのサンプリングは図-9に示したように、真空ポンプと並列にサンプリングポンベを接続し、真空ポンプによりガスサンプリングポンベを真空排気した後、バルブ切換を行ない、ガス再生装置、レーザチャンバからガスをサンプリングポンベ内に導入する。導入されたガスは負圧0.7atm程度であり、このまま封じ切ってサンプル分析依頼を行なう。

ガス分析はガスメーカーである日本酸素に依頼して行なった。使用した分析器は島津9 P 300で四重極の原理を用いたものである。分析は質量数1から100までのものについて行なったがここではその中で $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$ 、 $^{16}\text{O}^{12}\text{C}^{18}\text{O}$ 、 $^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2$ のみに注目し、検出器出力はそこに存在する分子数に比例しているものと仮定して、その高さより比率を計算した。他のガスについては感度が異なるため、割合としての比較ができないため、炭酸ガスの同位体についてのみその存在比率として求めてある。

### (1) 購入ガスの分析

購入した同位体ガスについて、そのポンベに残っている残ガスの分析を行なった。

#### ① 同位体ガス $^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2$ (表-1参照)

購入仕様	$^{18}\text{O}$ 率	95 %以上
分析結果	$^{18}\text{O}$ 率	91.7%

#### ② 同位体混合ガス $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$ 50%+ $^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2$ 50% (表-1参照)

購入仕様	$^{18}\text{O}$ 率	50 %
分析結果	$^{18}\text{O}$ 率	48.0%

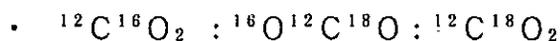
分析結果は仕様と比べ、やや低い値となっているが、分析における精度は±5%程度(日本酸素 担当者)とのことより、ほぼ妥当なものと言える。同位体炭酸ガスとしての存在比率は表-3中に示してある。

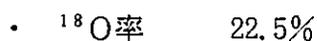
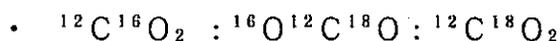
### (2) レーザ発振(放電)およびガス再生後のガス分析

レーザチャンバ内に同位体ガスを導入し、レーザ発振に利用し、その後、ガス再生装置によりガス循環を行なった後のガスについてガスのサンプリングを行ない、そのガス分析を行なった。運転条件は5項の試験時のものである。

① 同位体混合ガス $^{12}\text{C}^{16}\text{O}_2$  50% +  $^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2$  50%

放電後の分析結果 (表-2 参照)



$$60 \quad : \quad 35 \quad : \quad 5$$
② 同位体ガス $^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2$  (95%以上) (表-4 参照)

$$13.1 \quad : \quad 45.3 \quad : \quad 41.6$$


①項、②項ともかなりの率で $^{18}\text{O}$ が減少している。そして、いずれの場合も全体の圧力は変化しておらず、分析結果からは $^{16}\text{O}$ が増えていることになる。これは、レーザガス中に含まれていた $^{18}\text{O}$ がレーザチャンバ構成物、ガス再生装置構成物、あるいはそれらに吸着されている天然組成の $\text{CO}_2$ ガス、 $\text{O}_2$ ガスとの同位体交換反応により $^{16}\text{O}$ に置き換えたものと推定される。このような反応は触媒上では活発に行なわれると考えられ、ガス再生装置中の触媒 (アルミナに白金を塗布したものと推定) が大きな作用をしたものと考えられる。また、この作用は温度が高いほど激しく行なわれることを考えれば、5-(5)項同位体ガスでのガス再生時に触媒を高温化したことにより、同位体ガス $^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2$ の発振ラインは急激に消失したことがよく解釈できる。

# 分析結果報告書

依頼元 動力炉・核燃料事業団 殿 発行番号 No.124A-6

支社名 北関東支社 筑波営業所 発行年月日 平成 元年 4月 1日

依頼年月日 平成 元年 3月 8日

**日本酸素株式会社**  
開発本部分析センター

〒210 川崎市幸区塚越4-320  
Tel. 川崎 (044) 522-3261 (代表)

試料名 炭酸ガス (18O)

採取場所 \_\_\_\_\_

採取年月日 平成 年 月 日

部長	主査	係員

1. 原料分析

成分名	単位	95%18O	50%18O	分析方法
		17 9969	17 9947	
18O炭酸ガス	%	91.7	48.0	質量分析

表-1

2. 混合ガス

成分名	単位	2MR-53405	分析方法
C12O16O	%	60.0	質量分析
C12O18O	%	35.0	質量分析
C16O18O	%	5.0	質量分析

表-2

(備考) 混合ガスの値は、構成比として算出した。原料の組成比は添付資料参照の事。

(124A-Gの添付資料)

\*原料分析(構成比)

成分名	単位	95%18O	50%18O	分析方法
		17 9969	17 9947	
C12O16O	%	0.1	26.4	質量分析
C12O18O	%	15.3	50.5	質量分析
C16O18O	%	84.6	23.1	質量分析

表-3

ガスの分析結果

## 分析結果報告書

依頼元 動力炉・核燃料事業団 殿 発行番号 No.124A-292

支社名 北関東支社 筑波営業所 発行年月日 平成 元年 6月 9日

依頼年月日 平成 元年 5月 11日

日本酸素株式会社  
開発本部分析センター

〒210 川崎市幸区塚越4-320  
TEL 川崎 (044) 522-3261 (代表)

試料名 サンプリング (C<sup>18</sup>O<sub>2</sub>)

採取場所 \_\_\_\_\_

採取年月日 平成 年 月 日

部長	主査	係員

成分名	単位	10数 サンプルボンベ		分析方法
C <sup>12</sup> O <sup>18</sup> O	%	13.1		質量分析
C <sup>12</sup> O <sup>16</sup> O	%	45.3		質量分析
C <sup>16</sup> O <sup>18</sup> O	%	41.6		質量分析

(備考) 上記の値は、構成比として算出したものである。  
封入分圧については、分析困難のため算出せず。

表-4

ガス分析結果

## 7. 試験結果より得られた技術課題

今回の一連の実験において、同位体炭酸ガスを用いたレーザ発振の実用化については、種々の技術課題があることが判った。これらについてその課題と対応案について考えておく。

### (1) 同位体炭酸ガスでの出力の確保

今回の実験で得られているように、同位体炭酸ガスでのレーザ出力は、天然組成炭酸ガスに比べて低いように見受けられる。また、同位体混合炭酸ガスでは原理的予測からも出力は低くなると思われ、実際に必要とするラインでの出力が得られていない。これにあわせ、今後は同位体炭酸ガスを用いたときのレーザ発振のためのゲインの確保が必要となる。

このゲインを高くするには、放電入力密度を高くする。また、炭酸ガスの密度を高くする等が考えられる。また、これらゲインにあわせ、ゲインが低い場合には共振器パラメータの最適化を行なう必要がある。共振器内での損失を極力減らし、出力ミラーは高反射率として発振しきい値をさげて、レーザ出力を確保する必要がある。

### (2) 同位体炭酸ガスのハンドリング法

同位体炭酸ガスを用いてレーザ発振を行なわせた結果、天然組成炭酸ガスを用いた時よりも連続発振時の出力低下率が大きい。これは、同位体炭酸ガスのガス分解、あるいはチャンバー内構造物、またその吸着酸素との同位体交換反応が生じることによっていると思われる。

このとき、ガス再生装置の運転を行ないガス再生を行なおうとすると、触媒の作用により同位体交換反応が促進されるため、目的とする同位体炭酸ガスの発振ラインが消失してしまう。

これらは、同位体炭酸ガス中の分子内に持つ同位体炭酸 $^{18}\text{O}$ が同位体交換反応が失なわれてしまうことによっている。これを抑制するためには、チャンバー内の構成物との同位体交換反応を生じないようにすること、またそれら構成物に大気中の天然組成の酸素 $^{16}\text{O}$ を吸着させないようにすることが必要である。

ガス再生装置においても、用いる触媒において同位体交換反応を生じさせずにガスの再結合を行なえるようにすることが必要である。そのためには、一般に用いられているアルミナ基板 $\text{Al}_2\text{O}_3$ のように酸素を含むもの、また酸素吸着量の多いものはさける必要がある。

(3) 同位体ガスの入手方法

自然界では同位体炭酸ガス $C^{18}O_2$ 、 $^{16}O^{12}C^{18}O$ はほとんど存在せず、利用するには特別に濃縮しなければならない。自然界での $^{18}O$ の存在比率は0.204%である。

現在、この同位体炭酸ガスは国内では入手できず、外国のメーカ機間よりの輸入となる。また、そのため価格、納期、また入手数量に問題がある。これらは別添資料としてまとめた。

このため、通常の炭酸ガスは使いすてにしているが、同位体炭酸ガスを用いる場合、封じ切りあるいはガス再生を行なう必要があり、さらに、ガスの回収保存方法を確率しなければならない。また、長期的運転に関しては同位体炭酸ガスの継続して入手できるようにすることが必要である。

## 8. 結 論

同位体炭酸ガスを用いて炭酸ガスレーザを動作させ、天然組成炭酸ガスで得られる発振ラインとは異なる位置に発振ラインが得られることを確認した。

しかし、同位体炭酸ガスの封じ切り動作では天然組成炭酸ガスの動作時に比べ、その出力の低下率が数倍大きい。

また、現状のガスさいん再生装置は、天然組成炭酸ガスではガス再生効果は充分に発揮するが、同位体炭酸ガスあるいは同位体混合炭酸ガスを用いた場合には、同位体炭酸ガスの発振ラインは消失してしまい、出力が回復しない。

本試験により、同位体炭酸ガスによるレーザ発振の可能性は確認できた。しかし、この同位体炭酸ガスによるレーザ発振の実用性には課題が多いことが明らかになった。

参考文献

- (1) 田代 : レーザー研究 Vol. 14 (1986)442
- (2) R. B. Gibson, A. Javan and K. Boyer : Appl. Phys. Lett. 32(1978)726
- (3) 緑川, 岡田, 久保村, 田代, 難波 : レーザー科学研究 No. 8(1986)45
- (4) K. Midorikawa, M. Okada, H. Tashiro and S. Namba : Appl. Phys. Lett. 48(1986)1237
- (5) T. Carman and P. E. Dyer : J. Appl. Phys. 49(1978)3742
- (6) A. J. Alock, K. Leopold and M. C. Richardson : Appl. Phys. Lett. 23(1973)562
- (7) K. Midorikawa, K. Wakabayashi, M. Obara and T. Fujioka : Appl. Phys. Lett. 48(1986)1237
- (8) R. J. M. Bonnie and W. J. Witteman : Appl. Phys. B44(1987)37
- (9) R. B. Gibson, K. Boyer and A. Javan : IEEE J. Quantum Electron. QE-15(1979)1224
- (10) 川越, 宮本, 須藤 : 特願 昭63-288025号
- (11) W. J. Witteman : "The CO<sub>2</sub> Laser" Springer-Verlag Berlin Heidelberg New York

別 添 資 料

## 別添資料

$^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2$  同位体ガスの入手性について  
(97%以上)

### 1. $^{12}\text{C}^{18}\text{O}_2$ ガス生産メーカ → 商社

動燃納入業者

(1) アメリカ アイソテック社 → 日本酸素 → トモエ商会

↑

(2) フランス サクレー研究所 → セティカンパニー → 帝国酸素

### 2. 納期

(1) ~5ℓ程度                      発注後                      2~3ヶ月

(2) ~50ℓ程度                      発注後                      5~6ヶ月

入手性                      3ヶ月に1回                      50ℓが提供できる程度

(この例はセティ社の話)

### 3. 価格

1~5ℓ                      10~20万円/ℓ

~50ℓ                      5~10万円/ℓ

価格の大半は輸入手数料、輸送費

50ℓ以上であれば、それ以上価格は下がらない。

(生産が公社であるため、コスト評価のみ積算)

また、全世界で供給調整、価格調整を行なっているとのこと。

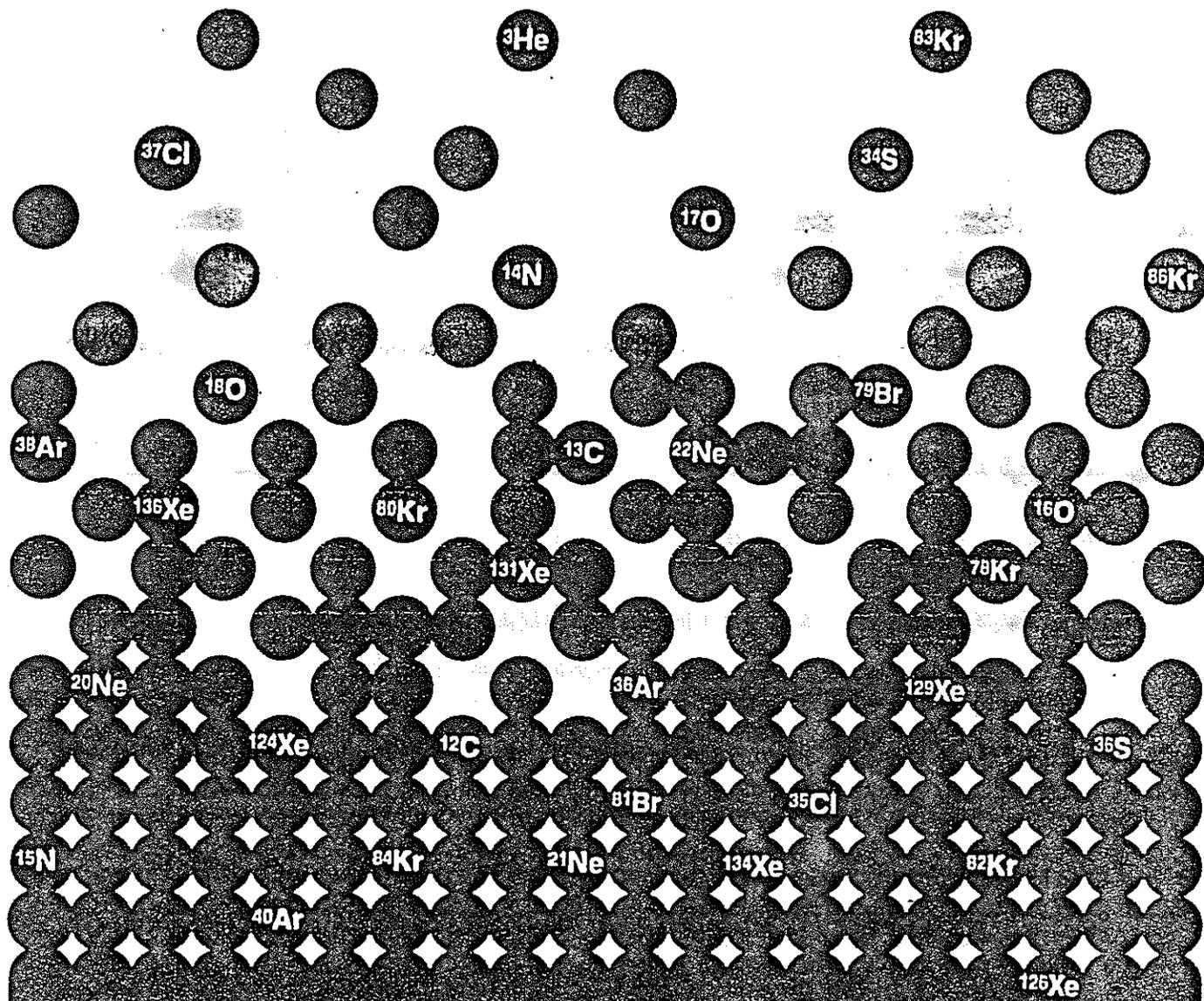
# STABLE ISOTOPES

FOR RESEARCH AND INDUSTRY

別添資料 1



アイソテック社 日本酸素カタログ



**安定同位元素**  
 研究・工業用

## 日本酸素

## 日本酸素の安定同位元素について

安定同位元素は、各種の研究機関で主にトレーサーとして広く利用されています。

安定同位元素は、放射性同位元素と比較して放射能による被曝の危険がありません。また、従来より問題とされている分析方法についても、高精度なNMR分析計や質量分析計の普及と分析方法の確立により、改めて注目されています。

わが国においても、近年、医療、バイオ関連、ライフサイエンス、化学、理工学、原子力など、多くの分野で安定同位元素が利用されるようになりました。

一方、安定同位元素は、一部を除き、国内では製造されていません。そのため、大部分を輸入に頼っているのが現状です。

日本酸素が販売する安定同位元素は、米国のアイソテック社の製品を中心に、世界数カ国に供給先を確保しております。当社は国内での安定同位元素販売に先立ち、1986年2月にアイソテック社を買収いたしました。そして、直接輸入した高品位の安定同位元素を低価格で、安定供給することに努めています。

### アイソテック社の安定同位元素

アイソテック社は、ヘリウム-3、窒素-15、炭素-13、希ガス類の単体同位元素に関し、世界一の実績を誇るメーカーです。

同社の高度な技術は、米国エネルギー省(DOE)の関連研究機関における研究から始まりました。そして豊富なノウハウを生かし、熱拡散や低温蒸留に独自のコンピューター制御を行い、高品位の製品を製造しています。

また、アイソテック社では、1987年より酸素-18、窒素-15の製造プラントおよび炭素-13、重水素、窒素-15による標識化合物合成設備を増強しております。

今後は、従来のヘリウム-3、希ガス類に加え、炭素-13、重水素、窒素-15の標識化合物についても、品ぞろえを充実させてまいります。

## 安定同位元素の主な用途

### 1. 極低温研究用(He-3)

アイソテック社では、極低温研究用として、スタンダードグレード( $\geq 99.95\text{atom}\%$ )、ケミカルピュアグレード( $\geq 99.95\text{atom}\%$ 、 $\text{Total He} \geq 99.995\%$ )、アイソトピックグレード( $\geq 99.9999\%$ )の3種類の品ぞろえを用意しています。

日本酸素では、最も需要の多いスタンダードグレード品を常時、国内に在庫して、お客さまの用途に迅速に対応しております。

### 2. レーザー研究用混合ガス(He-3/Ne-20/Ne-22)

ヘリウム・ネオンレーザーは、ガスレーザーの中で、最も親しまれており、各種の光学実験に広く利用されていますが、ヘリウムおよびネオンを濃縮した安定同位元素で置き換えることにより、高出力を安定して得られることが知られています。

このような希ガス類の混合品は、タグガスカプセル開発計画にも採用されております。

アイソテック社では、ヘリウム-3とネオン-20、またはネオン-22の2種混合だけでなく、ヘリウム-3、ネオン-20、ネオン-22の3種混合についても供給しております。

混合比、数量、容器サイズについても、お客さまのご要望にお応えいたします。お問い合わせください。また、発振用以外に、吸収波長の同位体効果測定用の安定同位元素についても、ご相談ください。

### 3. ライフサイエンス用安定同位元素(C-13、N-15、O-18)

植物の光合成効果や、動物の代謝反応の研究用、あるいは化学研究用として、炭素-13、窒素-15、重水素、酸素-18の安定同位元素を用意しております。

アイソテック社では、炭素-13の幅広い品ぞろえに加え、今後、重水素および窒素-15に関してもラインアップを強化してまいります。カタログに記載していない化合物についてもお問い合わせください。

### 4. ポジトロンCT(PET)原料用安定同位元素

フッ素-18、酸素-15、炭素-11は、半減期の短い放射性同位元素で、 $\beta^+$ 崩壊により急速に非放射化されます。その際、陽電子が物質を構成する電子と結合し、一対の消滅光子( $\gamma$ 線対)を $180^\circ$ の方向に放出しながら消滅します。

この性質を応用したのが、PET臨床法です。短半減期の放射性同位元素で標識した薬剤を人体に投与します。そして、それぞれの薬剤の局所的な代謝の違いを利用して、患部のイメージングを行い、臨床に役だてるものです。

日本酸素では、ポジトロンCT原料用として、酸素-18標識水( $\text{H}_2^{18}\text{O}$ 、F-18の原料)、窒素-15( $^{15}\text{N}_2$ 、O-15の原料)などを用意しています。

### 5. メタルアイソトープ

メタルアイソトープは、核物理学の実験に広く利用されていますが、その生産量は世界的に見てもきわめて少量です。

日本酸素では、お客さまの要望にお応えするために世界数カ国に供給先を確保しております。

濃縮度、在庫の有無については、その都度、確認する必要があります。カタログを参考にお問い合わせください。

# OXYGEN LABELLED COMPOUNDS

## 酸素標識化合物

カタログ番号	化合物名	化学式	濃縮度 ATOM %	数量
<b>OXYGEN-18</b>				
酸素-18				
天然存在比：0.204%				
81-70009	Carbon- <sup>12</sup> C Dioxide- <sup>18</sup> O <sub>2</sub> (gas) 二酸化炭素- <sup>12</sup> C- <sup>18</sup> O <sub>2</sub> (気体)	<sup>12</sup> C <sup>18</sup> O <sub>2</sub>	95 99.9( <sup>12</sup> C)	0.1ℓ 0.5ℓ 1ℓ
81-70000	Carbon- <sup>13</sup> C Dioxide- <sup>18</sup> O <sub>2</sub> (gas) 二酸化炭素- <sup>13</sup> C- <sup>18</sup> O <sub>2</sub> (気体)	<sup>13</sup> C <sup>18</sup> O <sub>2</sub>	95 99( <sup>13</sup> C)	0.1ℓ 0.5ℓ 1ℓ
81-70012	Carbon- <sup>12</sup> C Monoxide- <sup>18</sup> O(gas) 一酸化炭素- <sup>12</sup> C- <sup>18</sup> O(気体)	<sup>12</sup> C <sup>18</sup> O	95 99.9( <sup>12</sup> C)	0.1ℓ 0.5ℓ 1ℓ
81-70001	Carbon- <sup>13</sup> C Monoxide- <sup>18</sup> O(gas) 一酸化炭素- <sup>13</sup> C- <sup>18</sup> O(気体)	<sup>13</sup> C <sup>18</sup> O	95 99( <sup>13</sup> C)	0.1ℓ 0.5ℓ 1ℓ
88-70002	Carbon Dioxide- <sup>18</sup> O <sub>2</sub> (gas) 二酸化炭素- <sup>18</sup> O <sub>2</sub> (気体)	C <sup>18</sup> O <sub>2</sub>	95 98.9( <sup>12</sup> C)	0.5ℓ 1ℓ 5ℓ
88-70003	Carbon Monoxide- <sup>18</sup> O(gas) 一酸化炭素- <sup>18</sup> O(気体)	C <sup>18</sup> O	95	1ℓ 5ℓ
88-70006	Oxygen- <sup>18</sup> O(gas) 酸素- <sup>18</sup> O <sub>2</sub> (気体)	<sup>18</sup> O <sub>2</sub>	50	1ℓ 5ℓ 10ℓ
88-70008	Oxygen- <sup>18</sup> O <sub>2</sub> (gas) 酸素- <sup>18</sup> O <sub>2</sub> (気体)	<sup>18</sup> O <sub>2</sub>	95	0.5ℓ 1ℓ 5ℓ
88-70023	Water- <sup>18</sup> O,normalized 水- <sup>18</sup> O	H <sub>2</sub> <sup>18</sup> O	10	50g 100g 500g 1kg
88-70005	Water- <sup>18</sup> O,normalized 水- <sup>18</sup> O	H <sub>2</sub> <sup>18</sup> O	95	1g 5g 10g 25g 50g
81-70002	Water- <sup>18</sup> O,not normalized 水- <sup>18</sup> O	H <sub>2</sub> <sup>18</sup> O	97 70( <sup>2</sup> H)	1g 5g

ここに記載していない数量については、お問い合わせください。

お問い合わせ先：特殊ガス開発プロジェクト ☎ 03-581-8339

## 天然存在比

原子番号	同位元素	天然存在比
1	H-1	99.9844
	2	0.0156
2	He-3	$1.3 \times 10^{-4}$
	4	99.99986
3	Li-6	7.40
	7	92.6
6	C-12	98.89
	13	1.11
7	N-14	99.63
	15	0.37
8	O-16	99.759
	17	0.037
	18	0.204
10	Ne-20	90.92
	21	0.257
	22	8.82
12	Mg-24	78.70
	25	10.13
	26	11.17
14	Si-28	92.27
	29	4.68
	30	3.05
16	S-32	95.02
	33	0.75
	34	4.21
	36	0.017
17	Cl-35	75.40
	37	24.60
18	Ar-36	0.337
	38	0.063
	40	99.60
19	K-39	93.08
	40	0.012
	41	6.91
20	Ca-40	96.947
	42	0.64
	43	0.135
	44	2.083
	46	0.186
	48	0.18
22	Ti-46	7.95
	47	7.75
	48	73.45
	49	5.51
	50	5.34
23	V-50	0.24
	51	99.76

原子番号	同位元素	天然存在比
24	Cr-50	4.31
	52	83.76
	53	9.55
	54	2.38
26	Fe-54	5.84
	56	91.68
	57	2.17
	58	0.31
28	Ni-58	68.274
	60	26.095
	61	1.25
	62	3.68
29	Cu-63	69.1
	65	30.9
30	Zn-64	48.89
	66	27.81
	67	4.11
	68	10.56
	70	0.62
31	Ga-69	60.2
	71	39.8
32	Ge-70	20.55
	72	27.37
	73	7.67
	74	36.74
	76	7.67
34	Se-74	0.87
	76	9.02
	77	7.58
	78	23.52
	80	49.82
	82	9.19
35	Br-79	50.69
	81	49.31
36	Kr-78	0.354
	80	2.27
	82	11.56
	83	11.55
	84	56.90
	86	17.37
37	Rb-85	72.15
	87	27.85
40	Zr-90	51.45
	91	11.23
	92	17.11
	94	17.4
	96	2.8

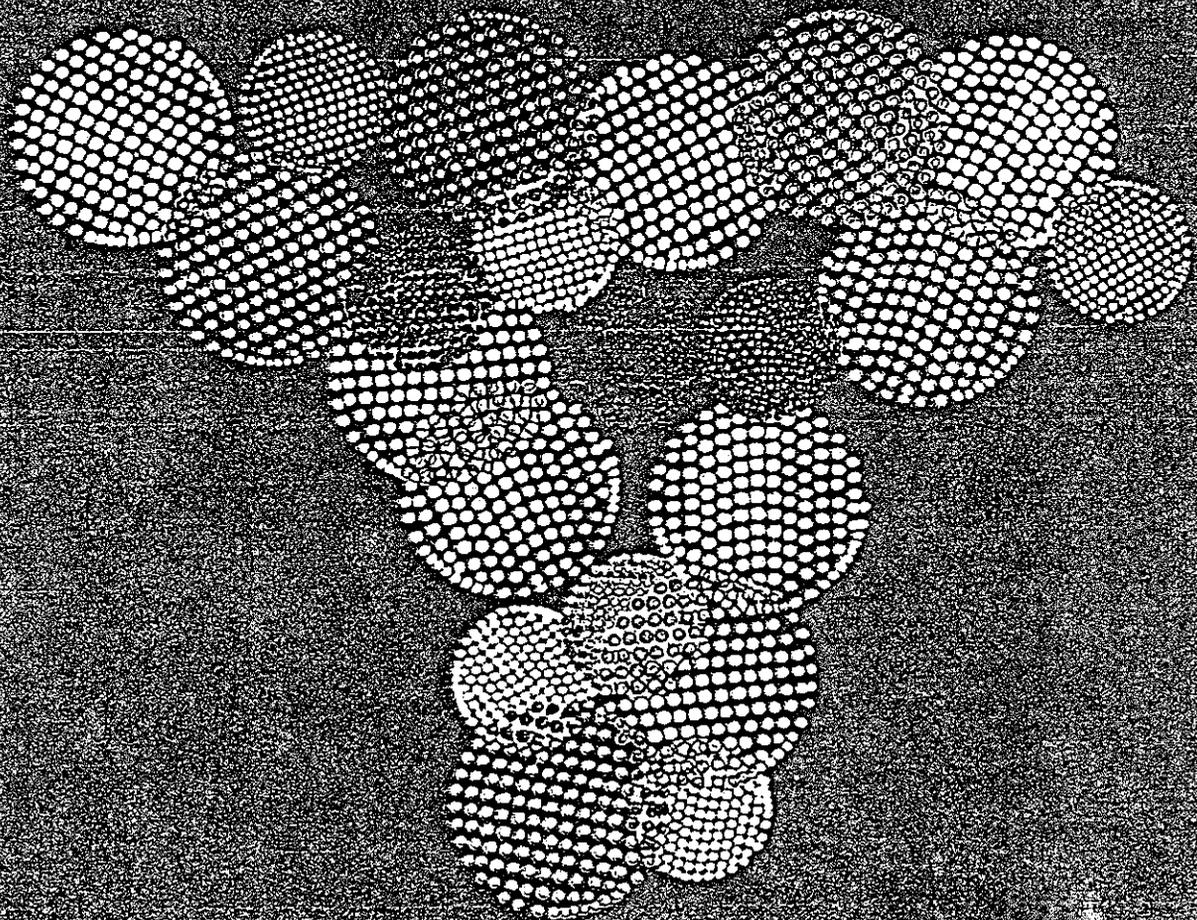
PNC TN8410 91-263

別添資料 2

サクレー公社 セティカンパニイカタログ

# 標識化合物カタログ

1989-1990



製造元 SMM/BD/CEA(フランス原子力庁) 輸入元 セティカンパニーリミテッド

別添-7



COMMISSARIAT  
A L'ÉNERGIE ATOMIQUE

---

## **$^{13}\text{C}$ , $\text{D}$ , $^{15}\text{N}$ , $^{17}\text{O}$ , $^{18}\text{O}$ labelled compounds listing**

Molécules marquées par les  
isotopes stables  $^{13}\text{C}$ ,  $\text{D}$ ,  $^{15}\text{N}$ ,  $^{17}\text{O}$ ,  $^{18}\text{O}$

# Oxygen 18 labelled compounds

reference	labelled compound	formula and characteristics	isotopic purity atom %	price in yen
OXA-1	Aluminium oxide	$Al_2^{18}O_3$	98	198,000/2g
OXC-1	Carbon dioxide	$C^{18}O_2$	97	62,000/250ml 82,000/500ml 120,000/l
OXC-2	Carbon monoxide	$C^{18}O$	97	54,000/250ml 78,000/500ml 98,000/l
OXH-1	Hydrogen peroxide	$H_2^{18}O_2$	85	on request
OXM-1	Magnesium oxide	$Mg^{18}O$	50 90	160,000/g 180,000/g
OXC-1	Oxygen 18 gas	$^{18}O_2$	50	54,000/500ml 81,000/l
			98	(*) 45,000/100ml 63,000/250ml 93,000/500ml 145,000/l
OXW-1	Normalised water	$H_2^{18}O$	10 20 50 98	120,000/50g on request 68,000/2g (*) 61,000/g
OXZ-1	Zinc oxide	$Zn^{18}O$	90	180,000/2g
OXW-3	Depleted water	$H_2^{16}O$ $^{17}O + ^{18}O < 100ppm$		140,000/100g

\* 他の酸化物についてもお問合せ下さい。

# Oxygen 17 labelled compounds

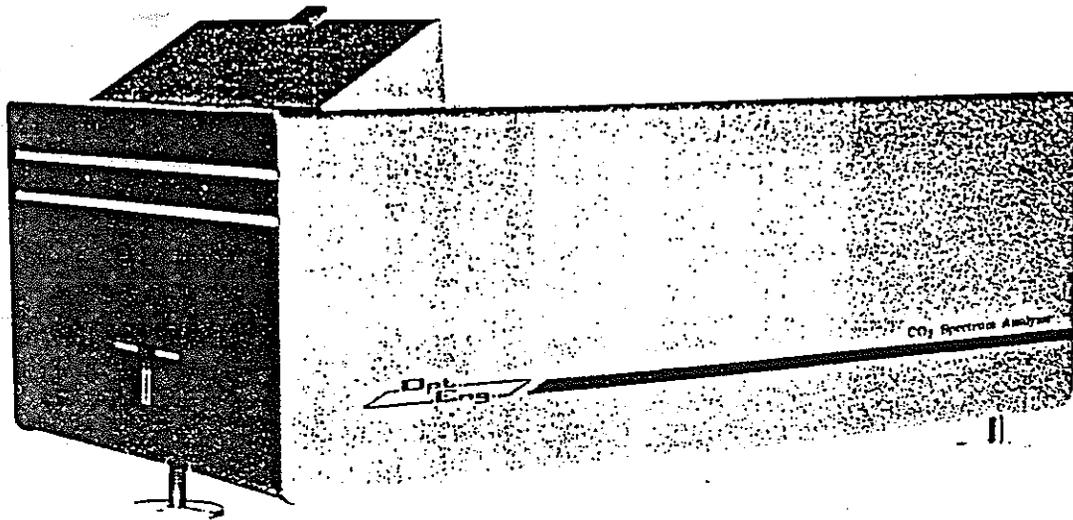
OXC-2	Oxygen 17	$^{17}O_2$	10	on request
			20	on request
			50	on request
			60	on request
OXW-2 (*)	Normalised water (Heavy water も出荷出来ます)	$H_2^{17}O$	10 (*) 20 (*) 40	44,000/g 78,000/2g 70,000/g 115,000/g

(\*) 国内在庫品

## CO<sub>2</sub> Laser Spectrum Analyzer



Optical Engineering A Division of Lasercraft Inc.



- Laser Wavelength Visually Displayed
- 9.1 $\mu$  11.3 $\mu$  Special Range\*
- Identification of over 140 Rotational Lines

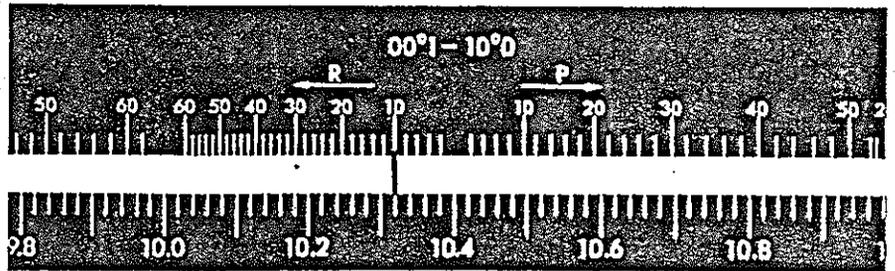
\*other ranges available

### DESCRIPTION

The CO<sub>2</sub> Spectrum Analyzer is a unique grating spectroscope which simultaneously displays all the lasing transitions of a CO<sub>2</sub> laser. It is calibrated both in wavelength and rotational line designation to permit easy identification of 140 possible laser transitions between 9.1 and 11.3 microns. These transitions are visually displayed through the use of a UV excited thermal sensitive screen which darkens in the area struck by the IR laser beam. The screen has a response time of 1/4 seconds and permits the instrument to resolve all the CO<sub>2</sub> rotational lines. The Model 16-A is light, portable and can easily be introduced into laboratory setups.

### Wavelength Scale

This is a portion of the wavelength scale shown at full size. The upper calibrations are CO<sub>2</sub> rotational line designations and the lower scale is the wavelength in microns. The thermal sensitive screen in the center displays the lasing wavelengths as a dark line.



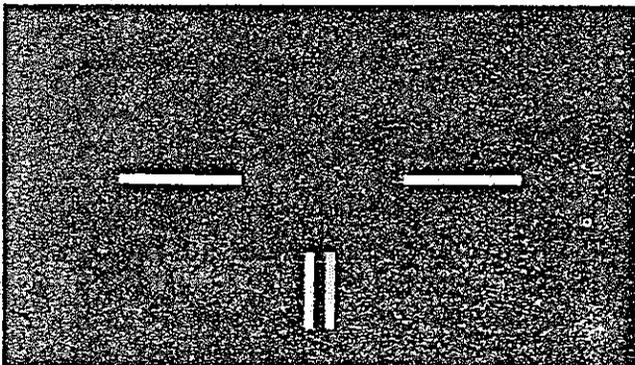
The thermal sensitive screen in the center displays the lasing wavelengths as a dark line. The wide sensitivity range of the screen can simultaneously display lines which differ in power density by a factor of 20. Each instrument is a factory calibrated and should never need adjustment. However, a simple procedure allows the calibration to be checked by the user.

### Model 16A Specifications

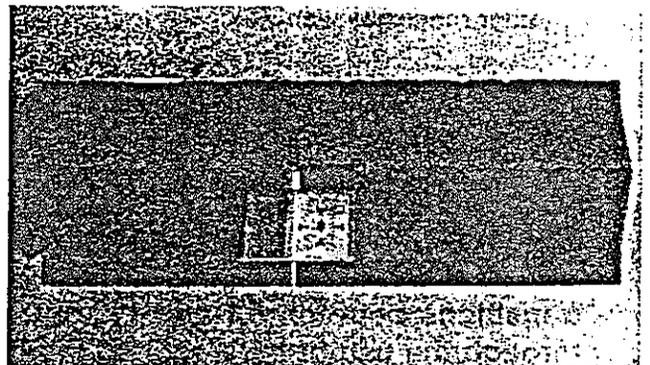
Wavelength Range	9.1 $\mu$ to 11.3 $\mu$	Minimum Height	6.5"
Resolution	0.03 (0.3 cm <sup>-1</sup> )	Elevation of Slit	2.25" to 3.8" (adjustable)
Maximum Power	100 watts	Electrical Power	115 V, 60 Hz, 10 watts
Minimum Power (focused)	0.01 watts	<sup>12</sup> C <sup>16</sup> O <sub>2</sub> Vibrational-Rotational Lines Identified	
Screen Response Time	25 sec	OO <sup>0</sup> 1-02 <sup>0</sup>	P2 to P60 and R2 to R62
Length	18"	OO <sup>0</sup> 1-10 <sup>0</sup>	P2 to P56 and R2 to R60
Width	9.9"	O11-11 <sup>0</sup>	P19 to P45

Screens with other sensitivities and response times available.

Includes an additional display screen for use with Teb Lasers.



During operation, the laser beam is allowed to strike the front of the Spectrum Analyzer so that a portion of the beam passes through a variable slit. Normally the laser beam is intense enough that it is not necessary to focus the light on the slit. The light which does not pass through the slit is absorbed in the matte anodized case.



The internal beam monitor is a Thermal Imaging Plate that displays the CO<sub>2</sub> laser beam which has passed through the slit. During the positioning of the instrument this device is engaged. When the monitor indicates the Analyzer to be properly positioned, it is then disengaged to allow the beam to pass onto the display screen.

DIFFRACTION GRATING EFFICIENCY

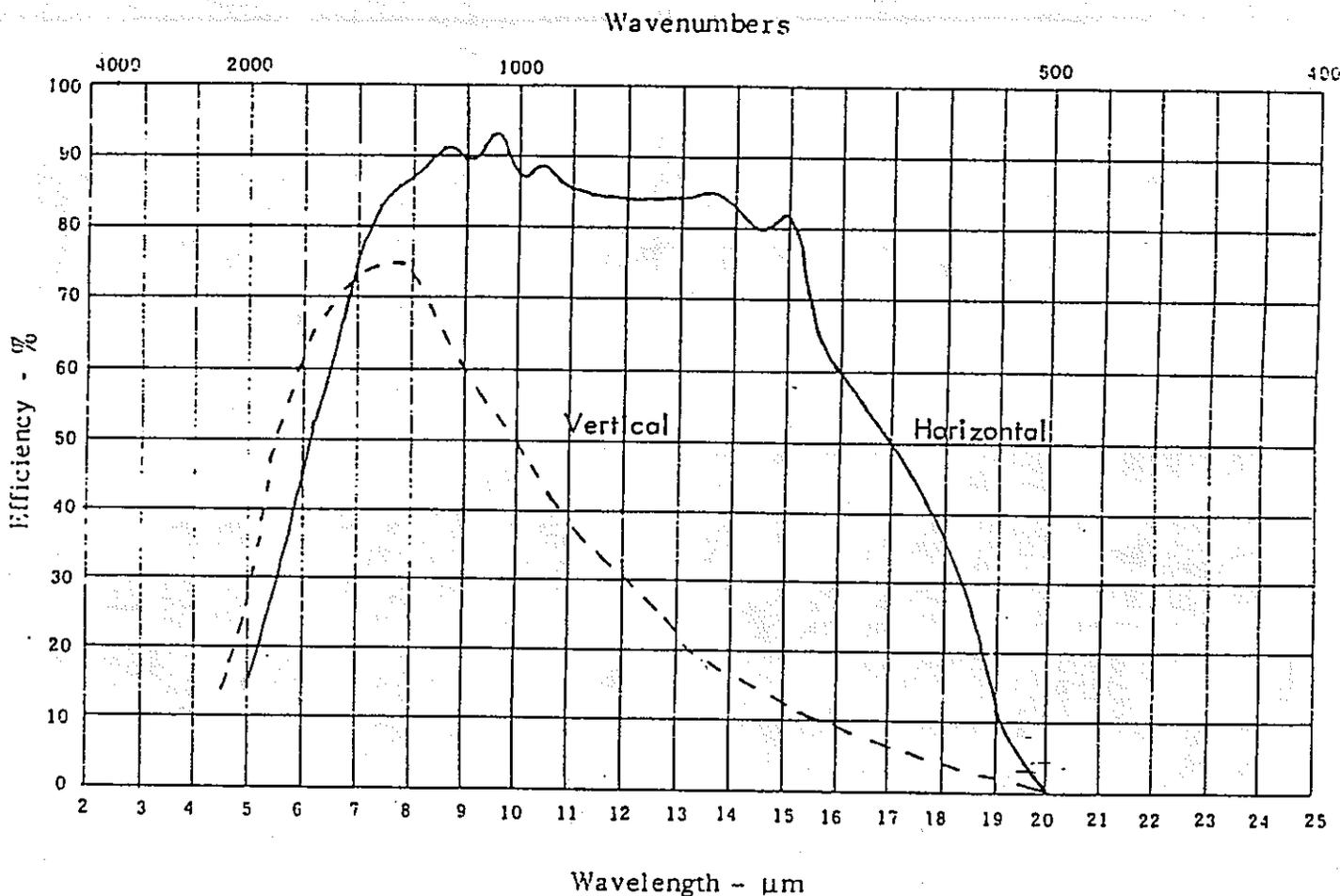
The 16A Spectrum Analyzer uses a 100-groove/mm grating to achieve the high dispersion required to separate the laser rotational lines. Since the groove spacing is approximately equal to the laser wavelength (10 microns), the grating has substantially different efficiency for light polarized parallel and perpendicular to the grooves. The following curves were measured for this grating at the angular orientations present in the Spectrum Analyzer.

— Polarized ⊥ to grooves  
(S - Plane)

- - - Polarized || to grooves  
(P - Plane)

Horizontal Polarization

Vertical Polarization



00<sup>0</sup>1 - 10<sup>0</sup>0 VIBRATIONAL BAND

## R BRANCH

Rotational Line	Wavelength ( $\mu$ ) Measured (l)	Wavelength ( $\mu$ ) Calculated	Wavenumber ( $\text{cm}^{-1}$ ) Calculated
R(0)*	--	10.3978	961.74
R(2)	--	10.3813	963.27
R(4)	10.365	10.3651	964.78
R(6)	10.350	10.3492	966.26
R(8)	10.333	10.3336	967.72
R(10)	10.319	10.3183	969.15
R(12)	10.304	10.3033	970.56
R(14)	10.289	10.2887	971.94
R(16)	10.275	10.2743	973.30
R(18)	10.260	10.2603	974.63
R(20)	10.247	10.2465	975.94
R(22)	10.233	10.2330	977.23
R(24)	10.220	10.2198	978.49
R(26)	10.207	10.2069	979.73
R(28)	10.195	10.1943	980.94
R(30)	10.182	10.1820	982.13
R(32)	10.171	10.1699	983.29
R(34)	10.159	10.1582	984.43
R(36)	10.148	10.1466	985.55
R(38)	10.137	10.1354	986.64
R(40)	10.126	10.1244	987.71
R(42)	10.115	10.1137	988.76
R(44)	10.105	10.1033	989.78
R(46)	10.095	10.0931	990.78
R(48)	10.086	10.0832	991.75
R(50)	10.076	10.0734	992.71
R(52)	10.067	10.0640	993.64
R(54)	10.058	10.0549	994.54
R(56)	--	10.0459	995.43
R(58)	--	10.0372	996.29
R(60)	--	10.0288	997.13

\* Not included on Spectrum Analyzer scale.