

本資料は 2001. 6. 月 6 日付けで登録区分、  
変更する。

[技術情報室]

## 炭素13レーザー同位体分離試験報告書(II)

1994年7月

動力炉・核燃料開発事業団  
東海事業所

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大字村松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)  
2001

社内資料  
PNC 8410 94-275  
1994年7月



## 炭素 1 3 レーザー同位体分離試式馬糞報告書 (II)

石井 克典、会沢 正則、川上 重秋  
須藤 收、島崎 善広

### 要旨

本試験研究は分子レーザー法工学試験設備の炭酸ガスレーザーシステムの他分野への応用の可能性を調べるために、濃縮度 50% の炭素 1 3 をマクロ量 (1 グラム程度) 分離回収することを目的とする。

マクロ量を回収する前段階として、炭素 1 3 の濃縮度が 50% 程度で、かつ大量に生成する条件を見つけるためにレーザーライン、フルエンス、セル圧力をパラメーターとしたパラメーターサーベイ試験を実施した。前回の試験では 50% 濃縮度の製品を得るのに十分な分離係数が得られたが、解離生成物の生成量が必要とされる値よりも三桁～四桁も少なかった。そこで今回の試験ではレーザーラインを 9 P (20) から 9 P (10) に変更し、凹面鏡の曲率半径を小さくして解離生成物の生成量の改善を試み、以下の成果を得た。

1. 分離係数  $\alpha$  は最高で 460 であった。これを解離生成物  $C_2 F_4$  中の  $^{13}C$  の濃縮度に換算すると 83% に相当する。
2. shotあたりの  $C_2 F_4$  生成量の最高は  $6.7 \times 10^{-7} g / shot$  であり、このときの  $^{13}C$  の濃縮度は 2.6% であった。この条件でセルの長さを 1 m とし、レーザーの繰り返しを 50 Hz まで上げたと仮定すれば、 $C_2 F_4$  の生成速度は  $1200 mg/h$  になる。
3.  $^{13}C$  の濃縮度が約 50% での shotあたりの  $C_2 F_4$  生成量は  $2.9 \times 10^{-8} g / shot$  であった。この条件でセルの長さを 1 m とし、レーザーの繰り返しを 50 Hz まで上げたと仮定すれば、 $C_2 F_4$  の生成速度は  $50 mg/h$  になる。

今回の試験では前回の試験に比べて、同じ濃縮度での  $C_2 F_4$  の生成量が 100 倍以上に向上した。しかし数時間のレーザー照射で 1 g の製品を生成するには、 $C_2 F_4$  の生成量をなお 10 倍～100 倍ほど向上させる必要がある。

目 次

1. 目的	.....	1
2. 試験の経緯と概要	.....	1
3. 試験装置		
3. 1. プロセス試験装置	.....	3
3. 2. 分析装置	.....	3
3. 3. レーザー照射系	.....	3
4. 試験条件	.....	5
5. 試験手順	.....	7
6. 試験結果と考察	.....	9
7. 結論	.....	12
参考文献	.....	13
図表	.....	14

## 1. 目的

本試験研究は分子レーザー法工学試験設備の炭酸ガスレーザーシステムの他分野への応用の可能性を調べることを目的とする。この目的を達成するために、濃縮度 50 % の炭素 13 をマクロ量（1 グラム程度）分離回収することをめざした試験を行う。

## 2. 試験の経緯と概要

本試験研究はカナダ人 A. Outhouse らの研究例を参考に始められたものである。彼らは 10 J / パルス、 10 Hz の TEACO<sub>2</sub> レーザーを用いた CF<sub>2</sub> HC<sub>1</sub><sup>\*)</sup> の多光子解離により、 50 % 濃縮度の炭素 13 原子を 220 mg / h で生産できることを示した<sup>1)</sup>。これは解離生成物の C<sub>2</sub> F<sub>4</sub><sup>\*\*)</sup> に換算すると、約 890 mg / h に相当する。もしこの結果が本当であるとすると、 10 Hz 以上での安定運転が可能な分子レーザー法工学試験設備の炭酸ガスレーザーシステムを用いれば、数時間以内でグラムオーダーの製品の回収が可能になる。

そこで平成 6 年 2 月に我々は A. Outhouse らの追試を試みた<sup>2)</sup>。その結果、分離係数  $\alpha$  は最高で 170 (解離生成物 C<sub>2</sub> F<sub>4</sub> 中の炭素 13 の濃縮度は 66 % に相当) であり、 50 % 濃縮度の炭素 13 を得るのに十分な分離係数が得られた。しかし解離生成物 C<sub>2</sub> F<sub>4</sub> の 10 Hz 照射での生成速度は、最も大量に生成した条件 (分離係数  $\alpha$  は 4.3 程度であり、かなり犠牲にした。) でも 4.0 mg / h であった。したがって A. Outhouse らの 200 分の 1 の解離量しか得られなかったことになる。この条件では 1 g の C<sub>2</sub> F<sub>4</sub> を生成するのに 100 Hz 照射を行っても 25 時間を要することになる。

前回の報告書では解離量が少なかった主な原因是、 A. Outhouse らの使用した凹面鏡 (曲率半径 = 10 m) よりも曲率半径の大きい凹面鏡 (曲率半径 = 20 m) を使用したことであると考えた。セルに入射したレーザー光は作業物質である CF<sub>2</sub> HC<sub>1</sub> に吸収され減衰していくが、凹面鏡で絞ることによりこの減衰を補正し、一定のフルエンスが保てるようになっている。曲率半径がある値より大きいと、吸収による光の減衰を補正できないため急激にフルエンスが減少し、非常に小さい体積でしか解離反応が起らなかったためと考えた。

また解離量を増加させる他の方法として、レーザーラインの変更が考えられた。前回の試験では 9 P (20) を用いたが、 <sup>12</sup>CF<sub>2</sub> HC<sub>1</sub> の吸収ピークにより近い 9 P (10) 等を用いれば、分離係数は下がるが

<sup>\*)</sup> CF<sub>2</sub> HC<sub>1</sub> : 名称 塩化ジフルオロメタン (別名 フロン 22)

<sup>\*\*) C<sub>2</sub> F<sub>4</sub> : 名称 四フッ化エチレン (別名 パーフルオロエチレン)</sup>

解離量は増加すると思われた<sup>3)</sup>。

そこで今回は曲率半径の小さい凹面鏡を用い、かつ9P(20)から9P(10)へライン変更を行うことにより解離量を増加させることを目的とした照射試験を実施した。試験は分離の特性を把握するためのパラメーターサーベイのみを実施し、実際の製品の回収は行わなかった。

### 3. 試験装置

#### 3. 1 プロセス試験装置

プロセス試験装置の概略を図3. 1に示す。

原料ガスは冷媒グレードのCF<sub>2</sub>HC1であり、純度は99.9%程度であった。特に精製等は行わずにそのまま使用した。

セルは内径41.6mm、長さ10cmの円柱状であり、圧力計のセンサー(MKS社バラトロン)とバルブの閉じ切り部分を含んだ体積は175ccである。両端にはZnSe窓板(両面ARコート\*\*\*\*)が取り付けられている。セルには内部の圧力を測定するための圧力センサーが取り付けられており、ガスの導入口及び排気口がある。

試験装置内の真空排気はロータリーポンプで行った。解離生成物としてHC1ガスが発生するので、レーザー照射後の気体を排気するときはハロゲンフィルター(吸着剤SS21)を通して行った。真圧度はピラニゲージ真空計でモニターした。

#### 3. 2 分析装置

分析装置の概略を図3. 2に示す。

分析室は排気速度150L/sのターボ分子ポンプにより常時排気されており、10<sup>-9</sup>Torr台の真圧度に保たれる。真圧度は電離真空計で測定した。

プロセス試験装置から分析室への試料ガスの導入は、バリアブルリークバルブにより行った。分析室および途中の配管はリボンヒーターを巻き、ベーカウトできるようになっている。

分離係数と解離率の測定は四重極質量分析計(LEDAMASS社製MQ-200D)により行った。

#### 3. 3 レーザー照射系

レーザー照射系の概略を図3. 3に示す。

使用したレーザーは分子レーザー法工学試験設備のTEACO<sub>2</sub>レーザー(TEA-2系列)で、発振器とアンプ3～アンプ7までを使用した。繰り返し数は2Hzで行った。

レーザー光はセルの入射端から40cmの位置に置かれた曲率半径2mの凹面鏡により、絞りながら入射

---

\*\*\*) ARコート：光の反射を減少させる薄膜コーティング

させた。セルの前方及び後方には ZnSe のビームスプリッターが置かれており、散乱されたビームの一部をエネルギー計測器（gentec 社 ED-500 又は ED-200）で測定し、入射エネルギー及び出射エネルギーを測定した。

## 4. 試験条件

今回の照射試験の試験条件を以下に述べる。

繰り返し数 : 2 Hz

照射ジオメトリ : セルの前 40 cm の位置に置かれた曲率半径 2 m のミラーで絞りながら照射。

ビームの形状 : バンパターでは長径 1.6 cm、短径 1.3 cm の楕円状

ショット数 : 1200 shot

レーザーライン、フルエンス、セルの圧力の条件は以下のとおりである。

レーザーライン	フルエンス ( $J/cm^2$ )	セル圧力 (Tor r)
9 P (20)	2.5	30
"	"	50
"	"	60
"	3.0	30
"	"	50
"	"	70
"	3.5	30
"	"	50
"	"	70

レーザーライン	フルエンス (J/cm <sup>2</sup> )	セル圧力 (Torr)
9P(10)	2.5	30
"	"	50
"	"	70
"	3.0	30
"	"	50
"	"	70
"	3.5	30
"	"	50
"	"	70

## 5. 試験手順

試験は以下の手順で行った。

1. プロセス試験装置をロータリーポンプで最高到達真圧度 (0. 05 Torr) になるまで真空排気した。分析装置も同様にターボ分子ポンプにより  $10^{-3}$  Torr 台の真圧度までベークしながら排気した。
2. 炭酸ガスレーザーの立ち上げ作業を行った。
3. 分析室の真圧度が  $1 \times 10^{-3}$  Torr 以下であることを確認してから、四重極質量分析計を起動させた。
4. レーザービームの径をパンパターにより求め、エネルギーをエネルギー計で測定して、所定のフルエンスであるかどうかを確認した。セルが真空状態での透過率の測定を行った。
5. セルの中に  $\text{CF}_2\text{HCl}$  ガスを封入する前に、窓板にダメージが入っているかどうかを確認した。ダメージが無いことを確認して、ガスを所定の圧力だけ封入した。
6. 所定のライン、所定のフルエンスで 1200 shot の照射を行った。
7. 照射中はレーザー光の透過率を 1 分間程度の間隔で測定した。
8. 照射が終了後、セル内部のガスをバリアブルリークバルブを開いて分析室に導入し、四重極質量分析計により分析室の全圧、 $\text{C}_2\text{F}_3^+$  (Mass No. 81~83) の分圧、 $\text{C}_2\text{F}_4^+$  (Mass No. 100~102) の分圧を測定した。導入圧力は  $6 \times 10^{-6}$  Torr 程度であった。
9. 分離係数  $\alpha$  は以下の式で算出した。

$$\alpha = \frac{\frac{X_n}{1-X_n}}{\frac{X_0}{1-X_0}} = \frac{1-X_0}{X_0} \left( \frac{^{12}\text{C}^{13}\text{CF}_4 + 2^{13}\text{C}_2\text{F}_4}{^{12}\text{C}^{13}\text{CF}_4 + 2^{12}\text{C}_2\text{F}_4} \right)$$

ここで  $X_0$ 、 $X_n$  はそれぞれ照射前後での  $^{13}\text{C}$  原子の存在比であり、天然では  $X_0 = 0.0111$  である。 $^{12}\text{C}^{13}\text{CF}_4$  は  $^{12}\text{C}$  原子 1 個と  $^{13}\text{C}$  原子 1 個からなる分子のシグナルで、Mass No. 82 又は 101 を用いればよい。同様に  $^{13}\text{C}_2\text{F}_4$  は  $^{13}\text{C}$  原子 2 個からなる分子のシグナル、Mass No. 83 又は 102、 $^{12}\text{C}_2\text{F}_4$  は  $^{12}\text{C}$  原子 2 個からなる分子のシグナルで Mass No. 81 又は 100 を用いればよい。

10. shotあたりの解離率  $d$  は以下の式で算出した。

$$d = \frac{1}{shot\text{数}} \times \frac{2 \times (\text{照射後の } \text{C}_2\text{F}_4 \text{ のモル数})}{\text{照射前の } \text{CF}_2\text{HCl} \text{ のモル数}}$$

解離率が小さい場合は、照射前の  $\text{CF}_2\text{HCl}$  の分圧は照射後の全圧にはほぼ等しいと考えられるの

で、以下の式で近似できる。

$$d \approx \frac{1}{shot\text{数}} \times \frac{2r(^{12}C_2F_4 + ^{12}C^{13}CF_4 + ^{13}C_2F_4)}{\sigma_{C_2F_4}} / \left\{ \frac{P_{ALL}}{\sigma_{CF_2HCl}} \right\}$$

ここで  $r$  は測定に用いる Mass No. のフラグメントのシグナルから  $C_2 F_4$  の真の分圧を算出するための係数で、事前の予備実験により、 $C_2 F_3^+$  について  $r = 5.92$ 、 $C_2 F_4^+$  について  $23.7$  であることが分かっている。 $\sigma_{C_2F_4}$  及び  $\sigma_{CF_2HCl}$  はそれぞれ  $C_2 F_4$  及び  $CF_2 HCl$  の電離断面積である。しかしそれぞれの分子についての電離断面積のデータが無いため、本試験では  $\sigma_{C_2F_4} \approx \sigma_{CF_2HCl}$  を仮定した。また  $P_{ALL}$  は照射後の分析室の全圧である。

12. shotあたりの  $C_2 F_4$  の生成量  $M$  (g/パルス) は以下の式で算出した。

$$M = \frac{1}{2} \times d \times \frac{PV}{RT} \times \left\{ \frac{100 \times ^{12}C_2F_4 + 101 \times ^{12}C^{13}CF_4 + 102 \times ^{13}C_2F_4}{^{12}C_2F_4 + ^{12}C^{13}CF_4 + ^{13}C_2F_4} \right\}$$

ここで  $P$  はセル内の圧力 (atm)、 $V$  はセルの体積 (L)、 $R$  は気体定数、 $T$  はセル内の温度 (K) である。

## 6. 試験結果と考察

図6. 1と図6. 2はそれぞれ9 P (20) と9 P (10) を用いたときの、分離係数 $\alpha$ のフルエンス依存を示している。9 P (20) でセルの圧力が70 Torrのときを除き、分離係数 $\alpha$ はフルエンスの増加に従って減少する傾向にある。一般にレーザー同位体分離では、フルエンスの増加は分離係数 $\alpha$ の低下を引き起こすので、この結果は理にかなっていると言えよう。また9 P (10) は9 P (20) に比べて分離係数 $\alpha$ は低く、かつ急激に減少する。これは9 P (10) の方が非選択励起分子である<sup>12</sup>CF<sub>2</sub>、HClの吸収ピークに近いためであると思われる。9 P (20) でセルの圧力が70 Torrの場合は、他の場合と異なりフルエンスの増加に従って分離係数 $\alpha$ が増加するが、この理由は不明である。

図6. 3と図6. 4はそれぞれ9 P (20) と9 P (10) を用いたときの、分離係数 $\alpha$ の圧力依存を示している。9 P (20) でフルエンスが2.5 J/cm<sup>2</sup> 及び3.0 J/cm<sup>2</sup> の場合は、分離係数 $\alpha$ はセルの圧力が30 Torrから70 Torrの間で最大値を取るようである。また9 P (20) でフルエンスが3.5 J/cm<sup>2</sup>、9 P (10) でフルエンスが2.5 J/cm<sup>2</sup> 及び3.0 J/cm<sup>2</sup> の場合は、分離係数 $\alpha$ はセルの圧力の増加に従って直線的に増加する。一方9 P (10) でフルエンスが3.5 J/cm<sup>2</sup> の場合は、分離係数 $\alpha$ はセルの圧力の増加に従って減少する。一般にレーザー同位体分離では、セルの圧力の増加は選択励起分子と非選択励起分子の分子間衝突によるエネルギー移動を増加させるので、分離係数 $\alpha$ は減少する傾向がある。したがって本試験研究で用いているCF<sub>2</sub>、HClの場合は普通の分子の場合とはかなり様相が異なり、分子間衝突が分離係数 $\alpha$ の向上に何らかの寄与をしている可能性がある。

図6. 5と6. 6はそれぞれ9 P (20) と9 P (10) を用いたときの、製品C<sub>2</sub>F<sub>4</sub>中の<sup>13</sup>C濃度の圧力依存を示している。製品中の<sup>13</sup>C濃度は圧力の増加に従って、分離係数 $\alpha$ の場合と同じように30 Torrから70 Torrの間で最大値を取るか、増加するか、減少するかのいずれかの振る舞いを示す。製品中の<sup>13</sup>C濃度は最高で8.3%であり、このときの条件はライン9 P (20)、フルエンス3.5 J/cm<sup>2</sup>、セル圧力70 Torrである。また製品中の<sup>13</sup>C濃度が5.1% (5.0%に最も近い) に相当する条件はライン9 P (10)、フルエンス3.0 J/cm<sup>2</sup>、セル圧力50 Torrである。

図6. 7と図6. 8はそれぞれ9 P (20) 及び9 P (10) を用いたときの、shotあたりの解離率dのフルエンス依存を示している。shotあたりの解離率dはフルエンスの増加に従って増加する傾向がある。一般的にレーザー同位体分離では、フルエンスの増加は解離率の増加を引き起こすので、上記の結果は理にかなっていると言えよう。

図6. 9と6. 10はそれぞれ9 P (20) 及び9 P (10) を用いたときの、shotあたりの解離率

$d$ の圧力依存を示している。shotあたりの解離率 $d$ は9P(10)でフルエンスが3.5J/cm<sup>2</sup>の場合を除き、圧力の増加に従って減少する傾向がある。

図6. 11と図6. 12はそれぞれ9P(20)と9P(10)を用いたときの、shotあたりのC<sub>2</sub>F<sub>4</sub>生成量のフルエンス依存を示している。shotあたりのC<sub>2</sub>F<sub>4</sub>生成量はフルエンスの増加に従って増加する傾向がある。一般的にレーザー同位体分離では、フルエンスの増加は解離生成物の生成量の増大を引き起こすので、上記の結果は理にかなっていると言えよう。shotあたりのC<sub>2</sub>F<sub>4</sub>生成量の最大値は $6.7 \times 10^{-7}$ g/shotであり、このときの条件はライン9P(10)、フルエンス3.5J/cm<sup>2</sup>セル圧力70Torrである。また濃縮度51%の条件におけるshotあたりのC<sub>2</sub>F<sub>4</sub>生成量は $2.9 \times 10^{-8}$ g/shotである。

図6. 13と図6. 14はそれぞれ9P(20)及び9P(10)を用いたときのshotあたりのC<sub>2</sub>F<sub>4</sub>生成量の圧力依存を示している。shotあたりのC<sub>2</sub>F<sub>4</sub>生成量は9P(10)でフルエンスが3.5J/cm<sup>2</sup>の場合を除き、圧力の増加に従って減少する傾向がある。圧力の増加は解離する可能性のある分子数の増加と吸光係数の増加を引き起こす。前者はC<sub>2</sub>F<sub>4</sub>生成量を増大させる。後者はセルの入射端からの光の減衰を加速させ、実質的な反応体積を減少させてるので、C<sub>2</sub>F<sub>4</sub>生成量を減少させる。したがって9P(10)でフルエンスが3.5J/cm<sup>2</sup>の場合を除き、吸光係数の増加による反応体積の減少が支配的であると考えられる。

我々の試験結果をA. Outhouseらの研究例と比較してみる。我々の使用したセルの長さは10cmであり、A. Outhouseらの使用したセルは1mである。厳密な比較には同じ長さのセルを用いた試験を行う必要があるが、ここでは単純にC<sub>2</sub>F<sub>4</sub>の生成量が10倍違うと仮定する。10cmのセルを用いた場合の51%濃縮度のC<sub>2</sub>F<sub>4</sub>生成量は $2.9 \times 10^{-8}$ g/shotであるから、1mのセルを用いた場合は $2.9 \times 10^{-7}$ g/shotになったとする。1時間あたりのC<sub>2</sub>F<sub>4</sub>生成量は、レーザーの繰り返し数を10Hzとする

$$2.9 \times 10^{-7}(\text{g}/\text{shot}) \times 10 \times 3600(\text{shot}/\text{h}) = 1.0 \times 10^{-2}(\text{g}/\text{h}) = 10(\text{mg}/\text{h})$$

となる。A. Outhouseらはレーザーの繰り返し10Hzで、50%濃縮度のC<sub>2</sub>F<sub>4</sub>を890mg/hで生成している。したがって我々の結果から得られたC<sub>2</sub>F<sub>4</sub>の生成速度はA. Outhouseらの結果の1/87であり彼らと同じ生成速度を得るには、さらなる工夫を行う必要があると考えられる。

また今回の試験結果を前回の試験結果と比較してみる。濃縮度28%でのC<sub>2</sub>F<sub>4</sub>生成速度を比較すると前回の試験ではライン9P(20)、フルエンス3.0J/cm<sup>2</sup>、セル圧力80Torrの条件で $6.3 \times 10^{-9}$ g/shotであった。今回の試験では9P(10)、フルエンス3.5J/cm<sup>2</sup>、セル圧力30Torrの条件で $1.6 \times 10^{-6}$ (セルの長さを統一するために10倍した。)であった。したがって9

P(20)から9P(10)へのライン変更と曲率半径の短い凹面鏡を使用することにより、A.Outhouseらの試験結果には及ばないにしても、生成速度が100倍以上に向上した。

C<sub>2</sub>F<sub>4</sub>の生成速度を上げるには、さらに凹面鏡の曲率半径を短くする方法が考えられるが、レーザーの繰り返し数を上げた場合にセルの窓板等の光学部品のダメージが起こる可能性が高く、実用的でないと考えられる。また9P(10)よりもさらに波長の短いレーザーラインを用いる方法も考えられるが、これ以上波長を短くすると<sup>12</sup>CF<sub>2</sub>HClの吸収ピークに接近しそぎて、同位体選択性が急速に失われる可能性があり、好ましくない。

他にC<sub>2</sub>F<sub>4</sub>の生成速度を向上させる方法として、レーザーパルスの半値幅を減少させ、レーザーパルスのピーク高さを上昇させる方法が考えられる。A.outhouseらの用いているレーザーパルスの半値幅は72nsecであり、我々が今まで用いてきたレーザーパルスの半値幅は200nsecに近い。したがってこの違いがC<sub>2</sub>F<sub>4</sub>の生成速度の大小に大きく関与している可能性があり、次回の試験では半値幅の小さいレーザーパルス（できれば100nsec以下）を用いる必要がある。

## 7. 結論

本試験研究により、以下の結論が得られた。

1. 分離係数 $\alpha$ は最高で460であった。これをC<sub>2</sub>F<sub>4</sub>中の<sup>13</sup>Cの濃度に換算すると83%であった。
2. shotあたりのC<sub>2</sub>F<sub>4</sub>生成量の最高は $6.7 \times 10^{-7}$ g/shotであり、このときの<sup>13</sup>Cの濃縮度は2.6%であった。この条件でセルの長さを1mとし、レーザーの繰り返しを50Hzまで上げたと仮定すれば、C<sub>2</sub>F<sub>4</sub>の生成速度は1200mg/hになる。
3. <sup>13</sup>Cの濃縮度が約50%（51%）でのshotあたりのC<sub>2</sub>F<sub>4</sub>生成量は $2.9 \times 10^{-8}$ g/shotであった。この条件でセルの長さを1mとし、レーザーの繰り返しを10Hzまで上げたと仮定すればC<sub>2</sub>F<sub>4</sub>生成速度は約10mg/hになる。またセルの長さを1mとし、レーザーの繰り返しを50Hzまで上げたと仮定すれば、C<sub>2</sub>F<sub>4</sub>の生成速度は約50mg/hになる。
4. <sup>13</sup>Cの濃縮度28%でのshotあたりのC<sub>2</sub>F<sub>4</sub>生成量を前回の試験と今回の試験で比較すると、今回の試験結果は前回の試験結果の100倍以上であり、A.Outhouseらの結果には及ばないにしてもライン変更と凹面鏡の曲率半径の縮小により、C<sub>2</sub>F<sub>4</sub>生成量の向上に成功した。しかし数時間で1gの製品を生成するには、C<sub>2</sub>F<sub>4</sub>生成量を10倍～100倍ほど向上させる必要がある。

参考文献

- 1) A. Outhouse, P. Lawrence, M. Gauthier, P. A. Hackett: *Appl. Phys. B* 36, 63(1985).
- 2) 石井克典, 会沢正則, 山口大美, 川上重秋, 須藤收, 島崎善広:  
"炭素13レーザー同位体分離試験報告書", 公開資料として登録中, 新型濃縮技術開発室 (1994)
- 3) 鈴木政浩, 北谷文人, 高橋武士: "レーザーによる炭素同位体分離", 社内資料 PNC PN 8410 92-342  
, 先端技術開発室(1992).

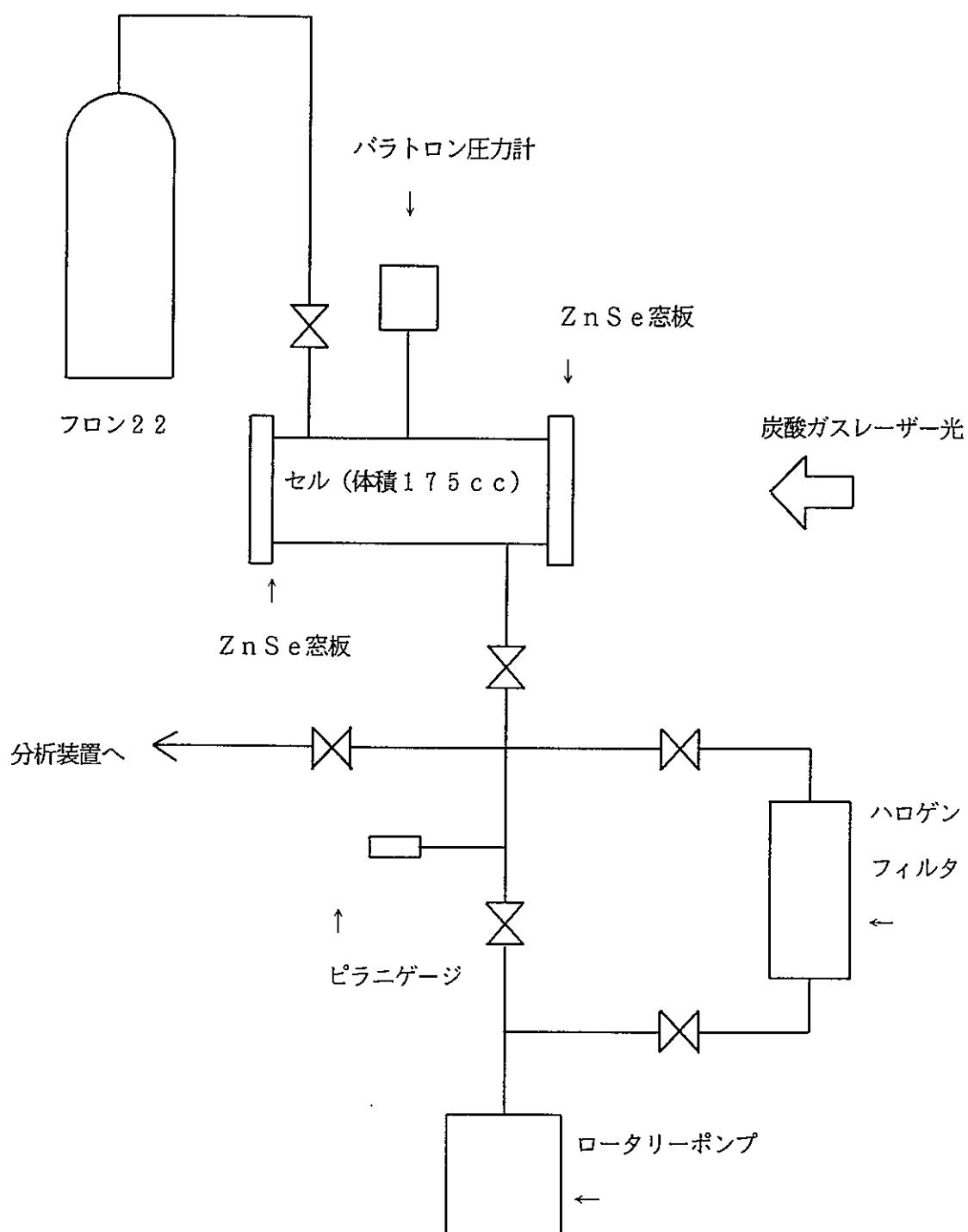


図3.1 プロセス試験装置の概略図

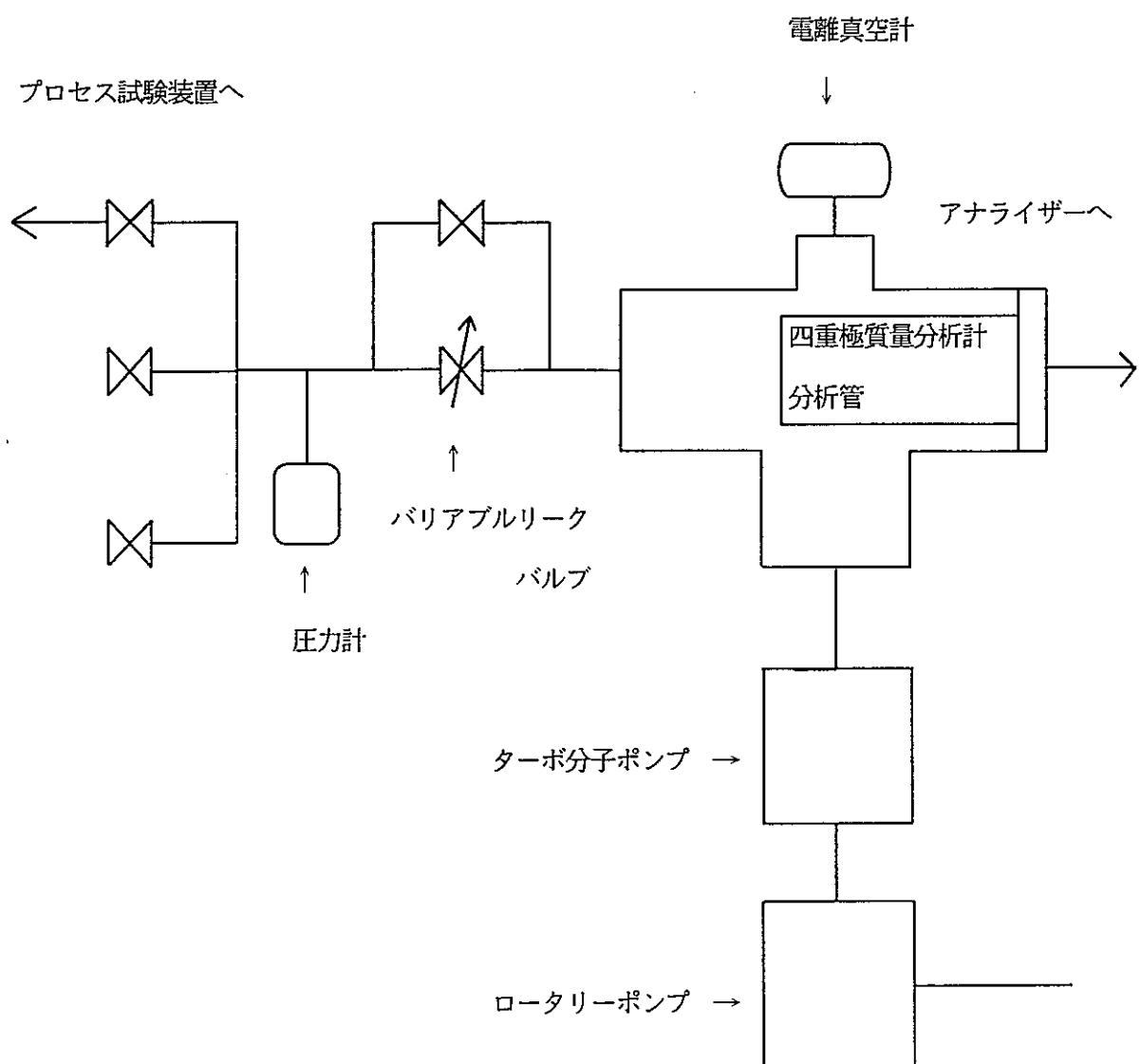


図3.2 分析装置の概略図

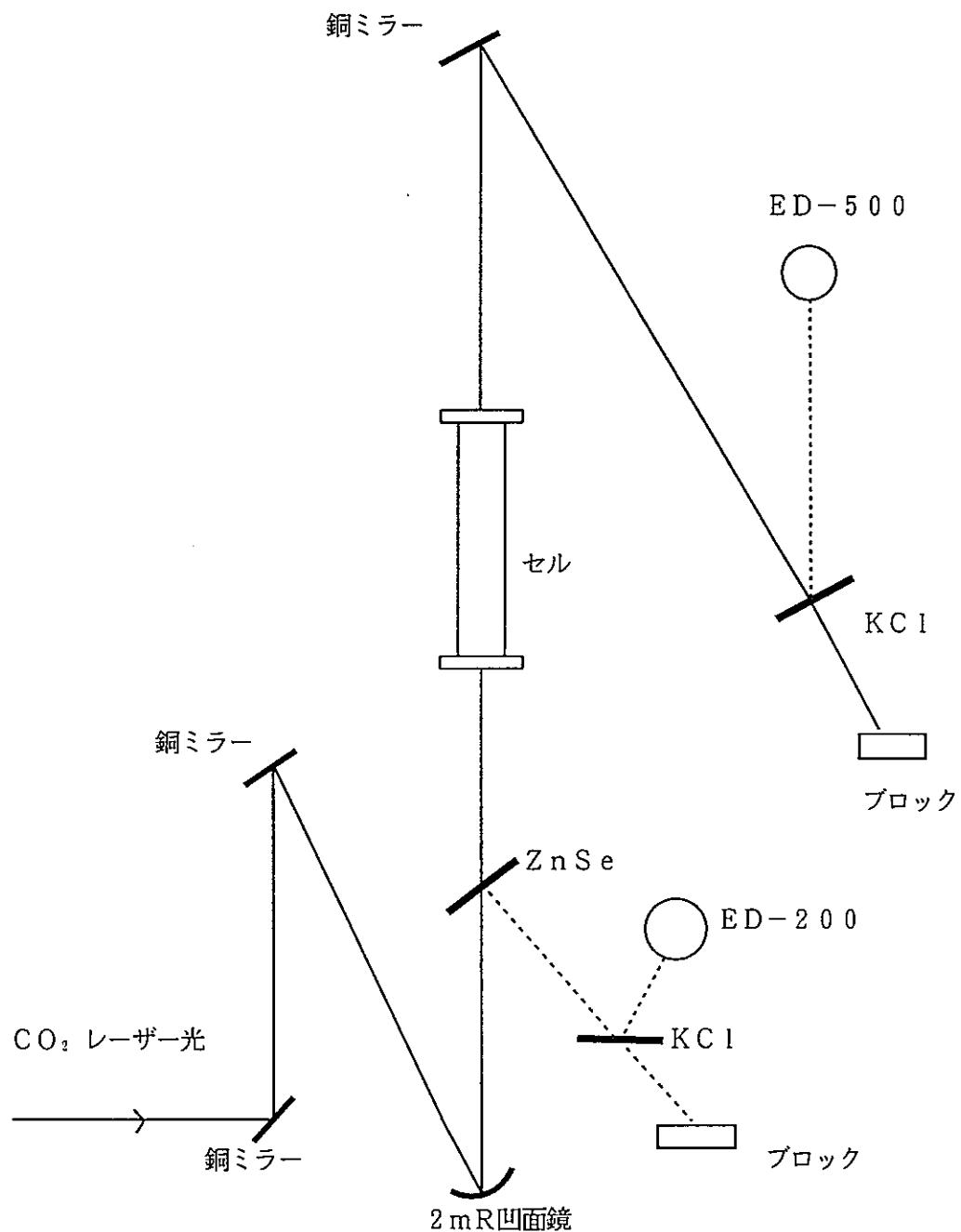


図3.3 レーザー照射系の概略図

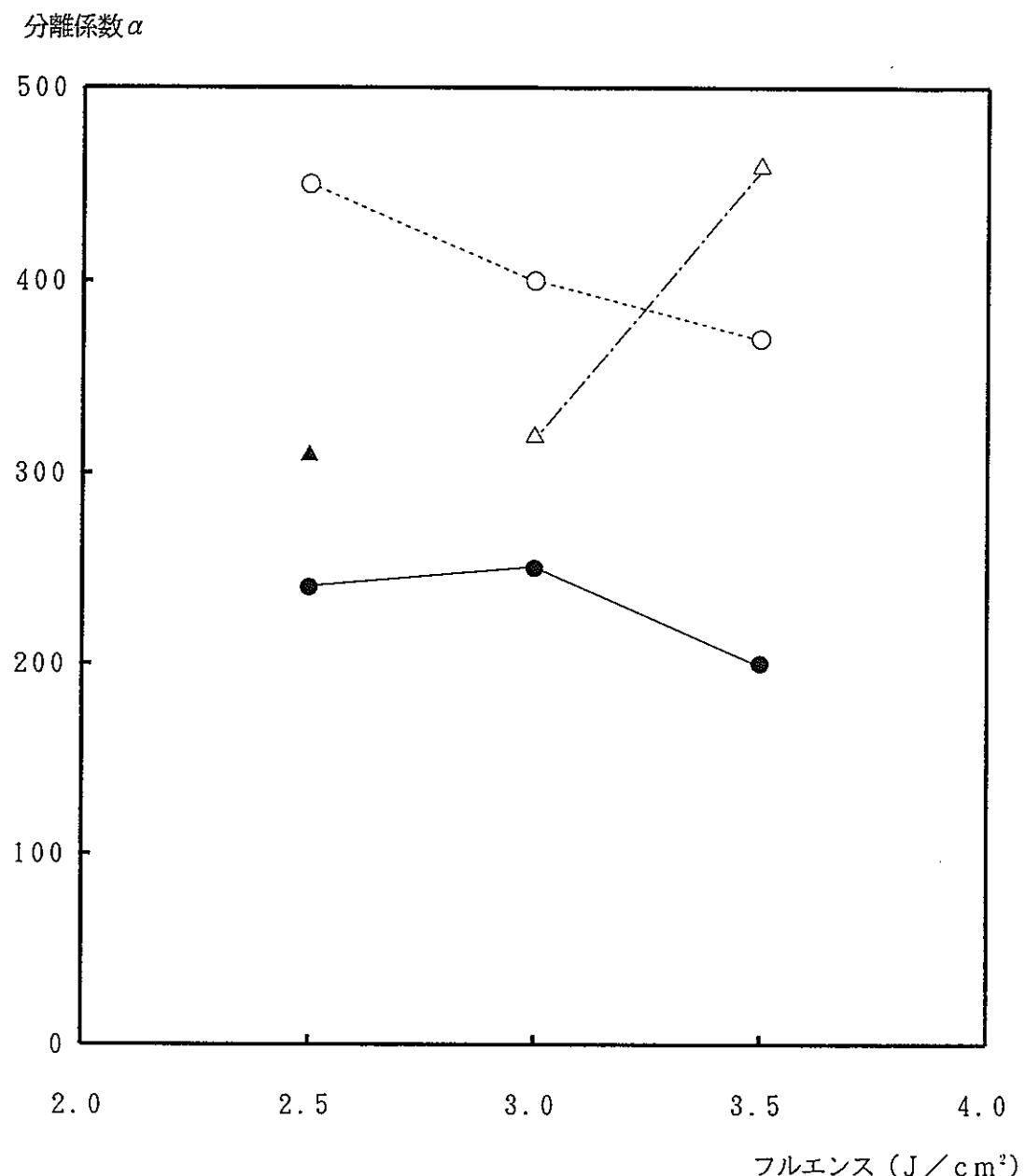


図6.1 分離係数  $\alpha$  のフルエンス依存

レーザーライン 9P(20)

- セル圧力 30 Torr
- セル圧力 50 Torr
- ▲ セル圧力 60 Torr
- △ セル圧力 70 Torr

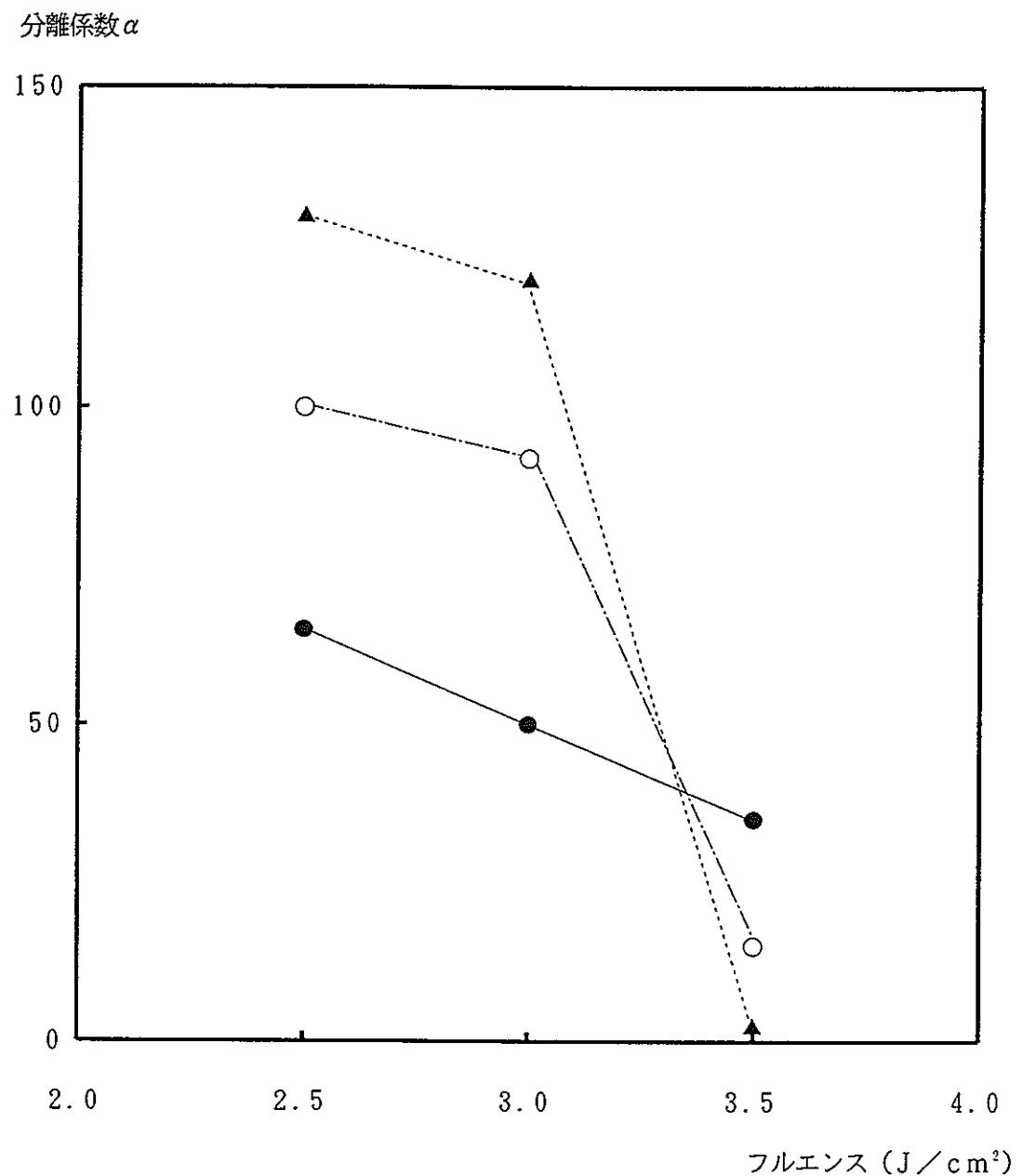


図6.2 分離係数  $\alpha$  のフルエンス依存

レーザーライン 9P(10)

● セル圧力 30 Torr

○ セル圧力 50 Torr

▲ セル圧力 70 Torr

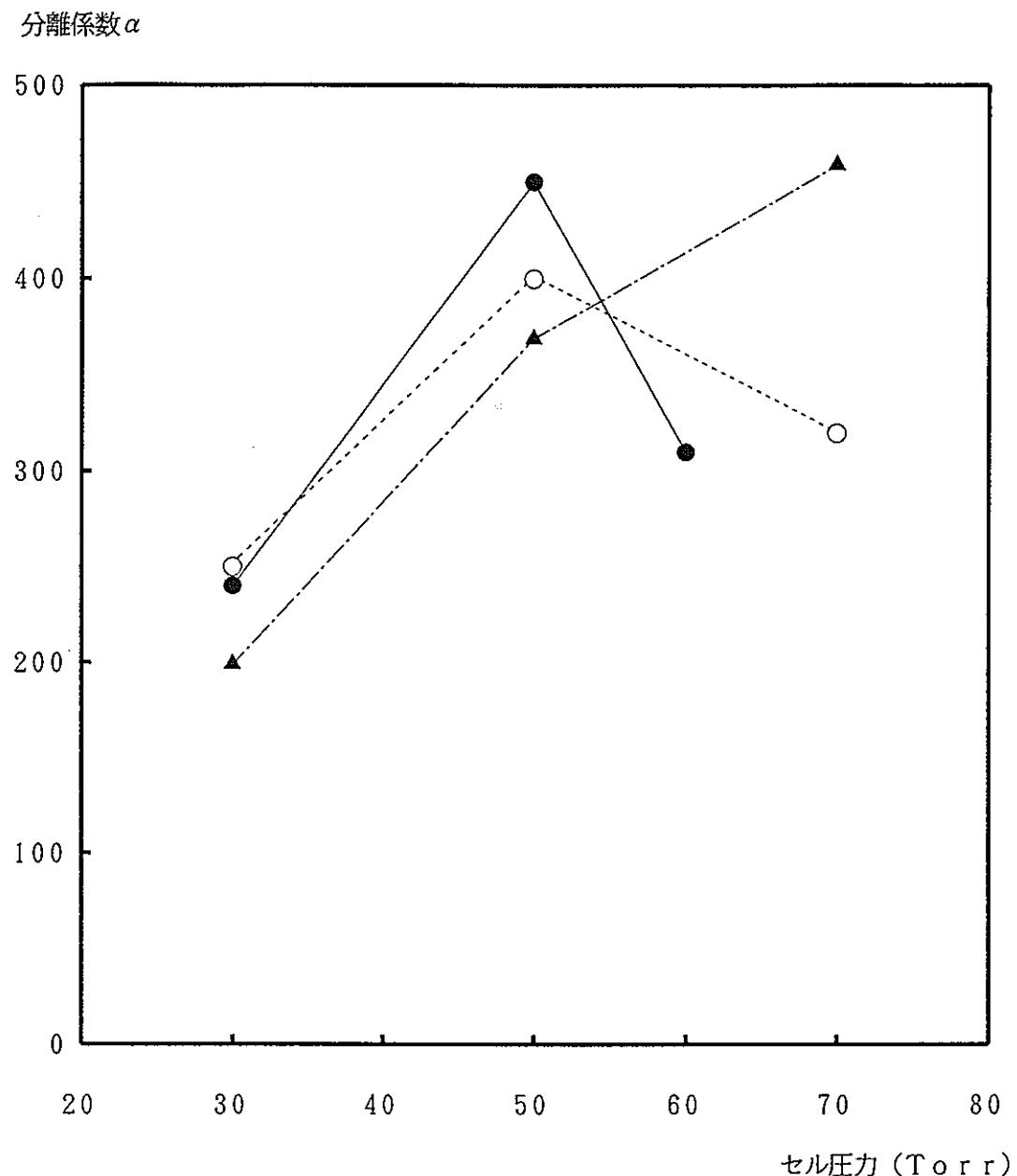


図6.3 分離係数  $\alpha$  の圧力依存

レーザーライン 9P (20)

- フルエンス2.  $5 \text{ J/cm}^2$
- フルエンス3.  $0 \text{ J/cm}^2$
- ▲ フルエンス3.  $5 \text{ J/cm}^2$

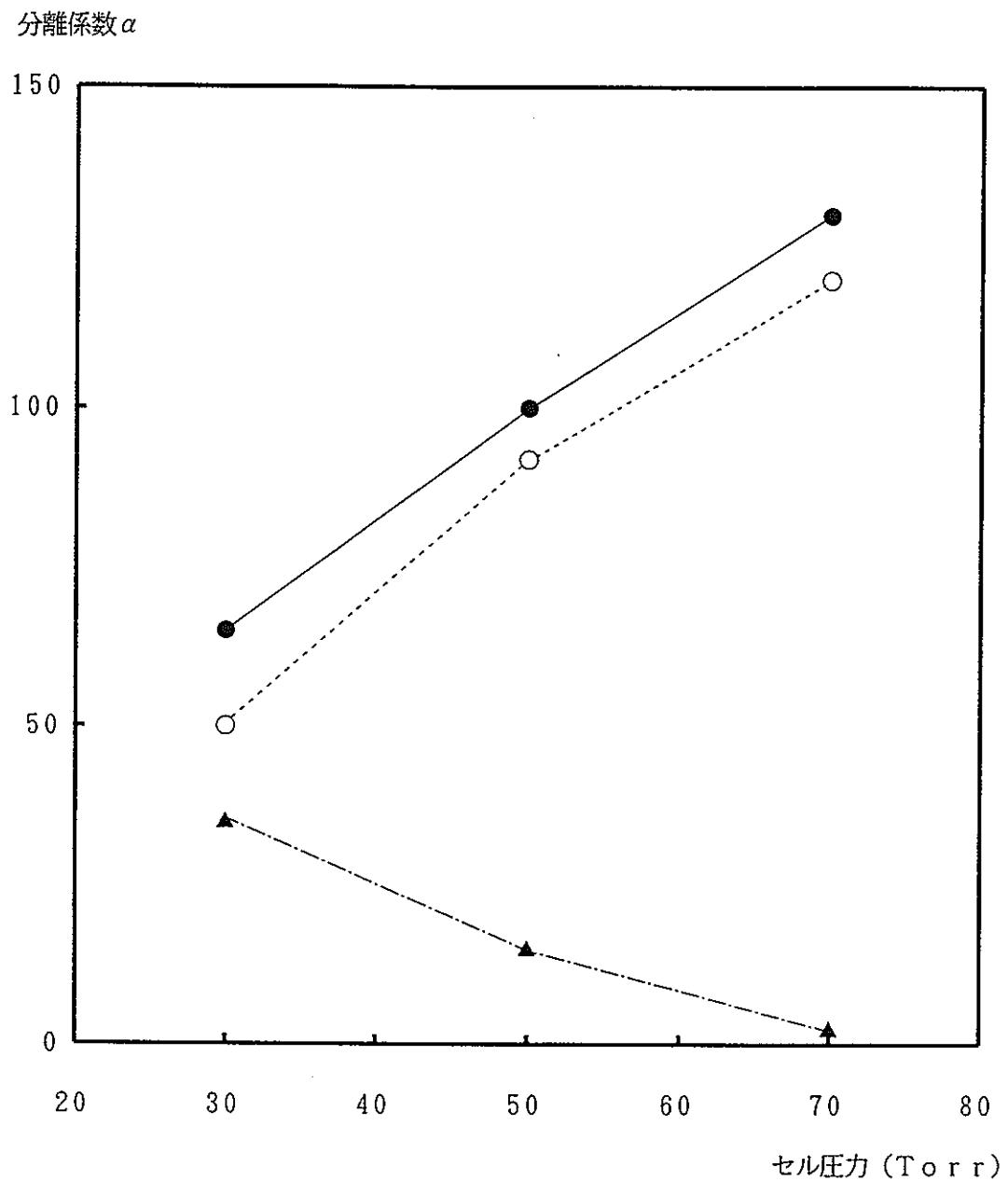


図6.4 分離係数  $\alpha$  の圧力依存

レーザーライン 9P(10)

- フルエンス2. 5 J/cm<sup>2</sup>
- フルエンス3. 0 J/cm<sup>2</sup>
- ▲ フルエンス3. 5 J/cm<sup>2</sup>

製品中の $^{13}\text{C}$ 濃度 (%)

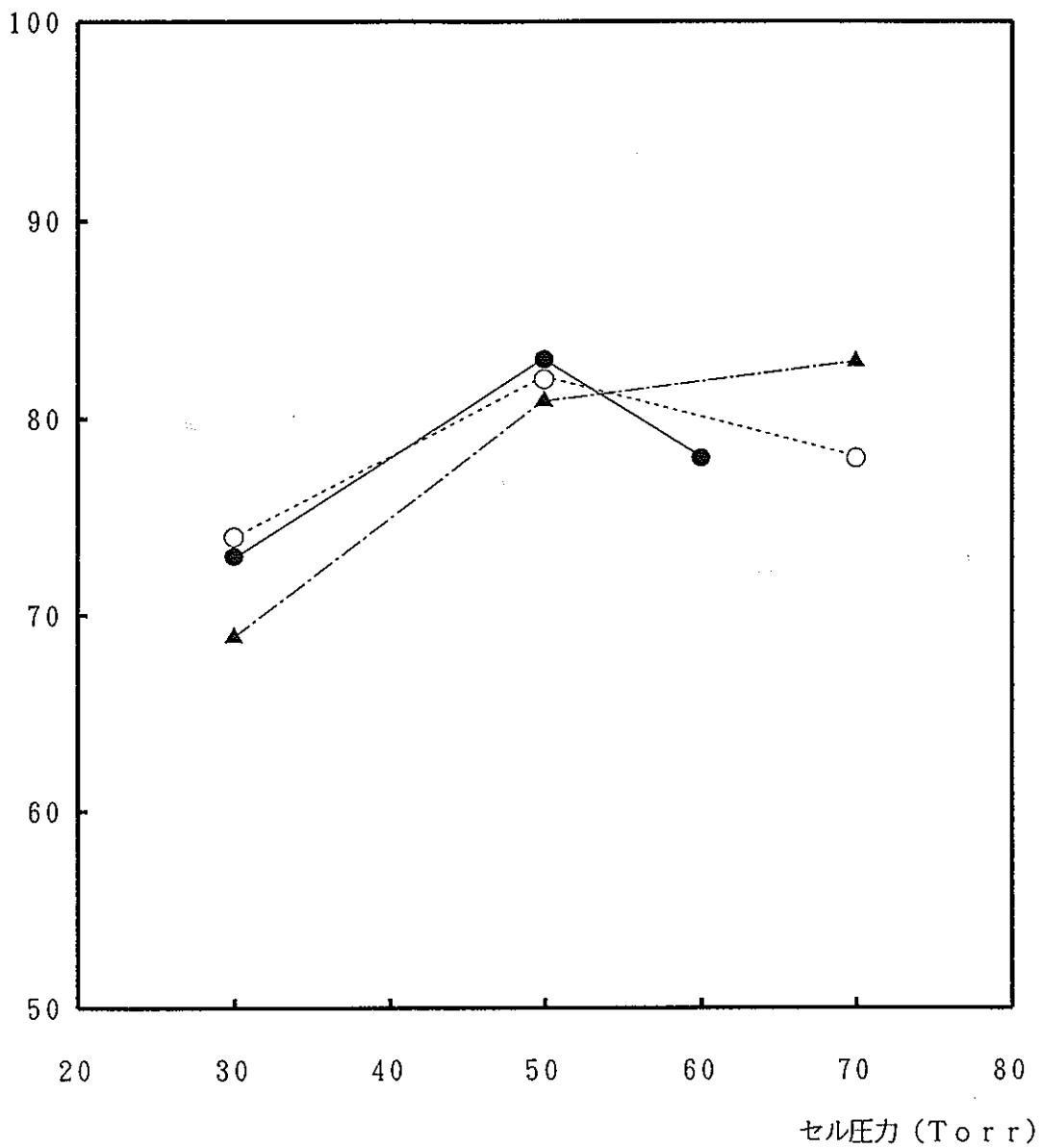


図6.5 製品中の $^{13}\text{C}$ 濃度の圧力依存

レーザーライン 9P(20)

- フルエンス2. 5 J/ $\text{cm}^2$
- フルエンス3. 0 J/ $\text{cm}^2$
- ▲ フルエンス3. 5 J/ $\text{cm}^2$

製品中の<sup>13</sup>C濃度 (%)

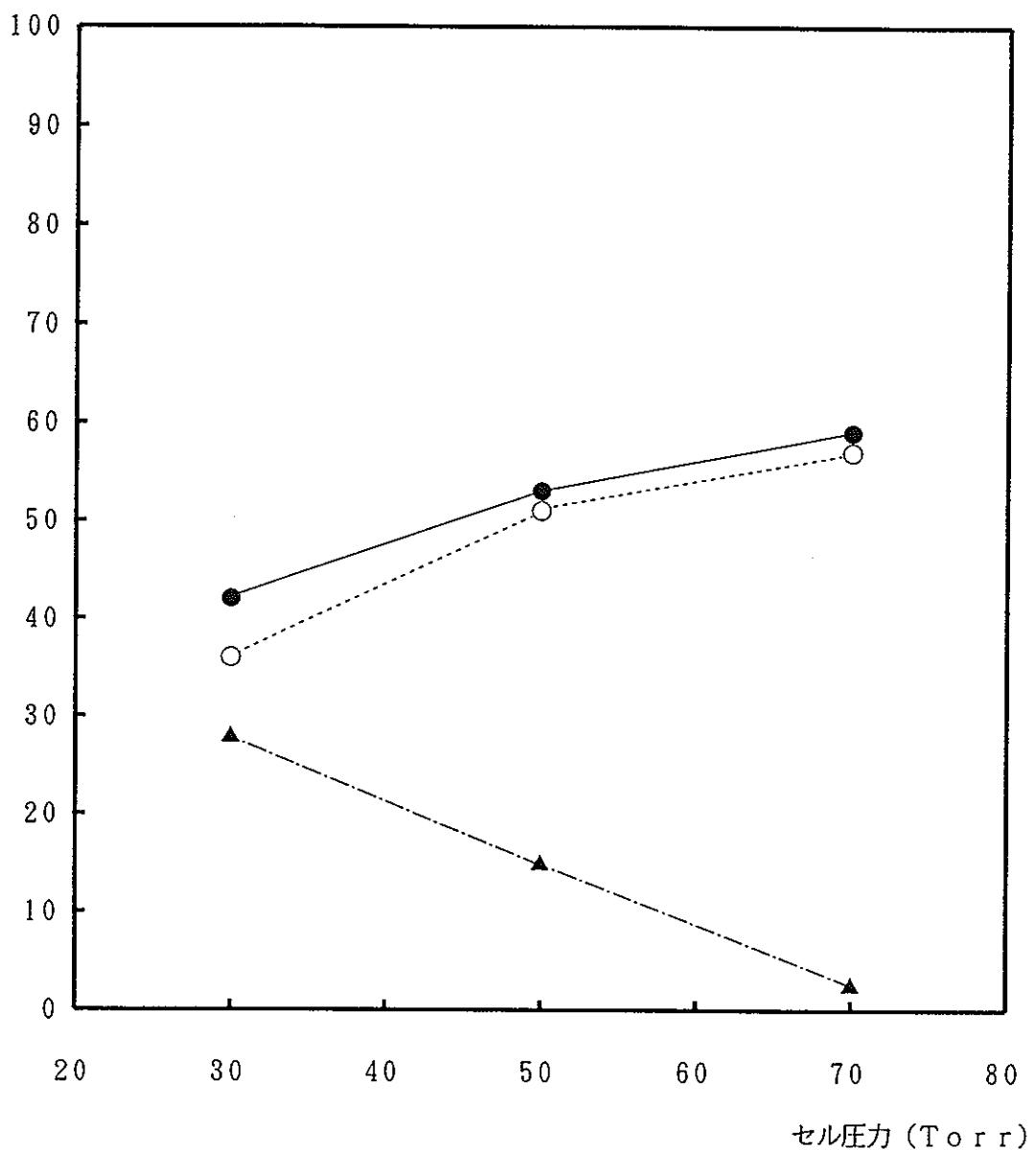


図6.6 製品中の<sup>13</sup>C濃度の圧力依存

- レーザーライン 9P (10)
- フルエンス 2. 5 J / cm<sup>2</sup>
  - フルエンス 3. 0 J / cm<sup>2</sup>
  - ▲ フルエンス 3. 5 J / cm<sup>2</sup>

s h o t当たりの解離率d

( $\times 10^{-7}$ )

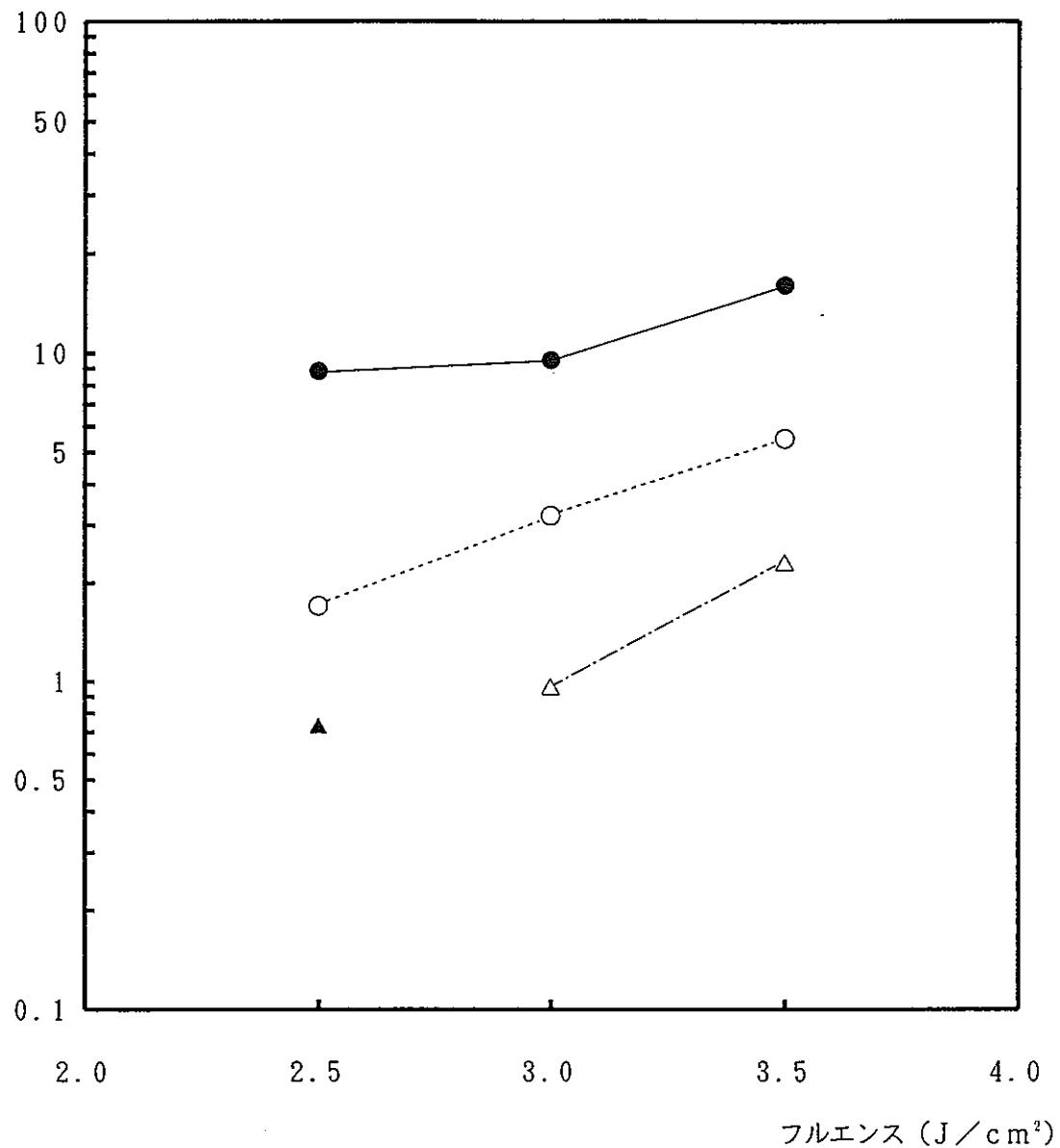


図6.7 解離率d のフルエンス依存

レーザーライン 9P(20)

- セル圧力 30 Torr
- セル圧力 50 Torr
- ▲ セル圧力 60 Torr
- △ セル圧力 70 Torr

shot当たりの解離率d

( $\times 10^{-6}$ )

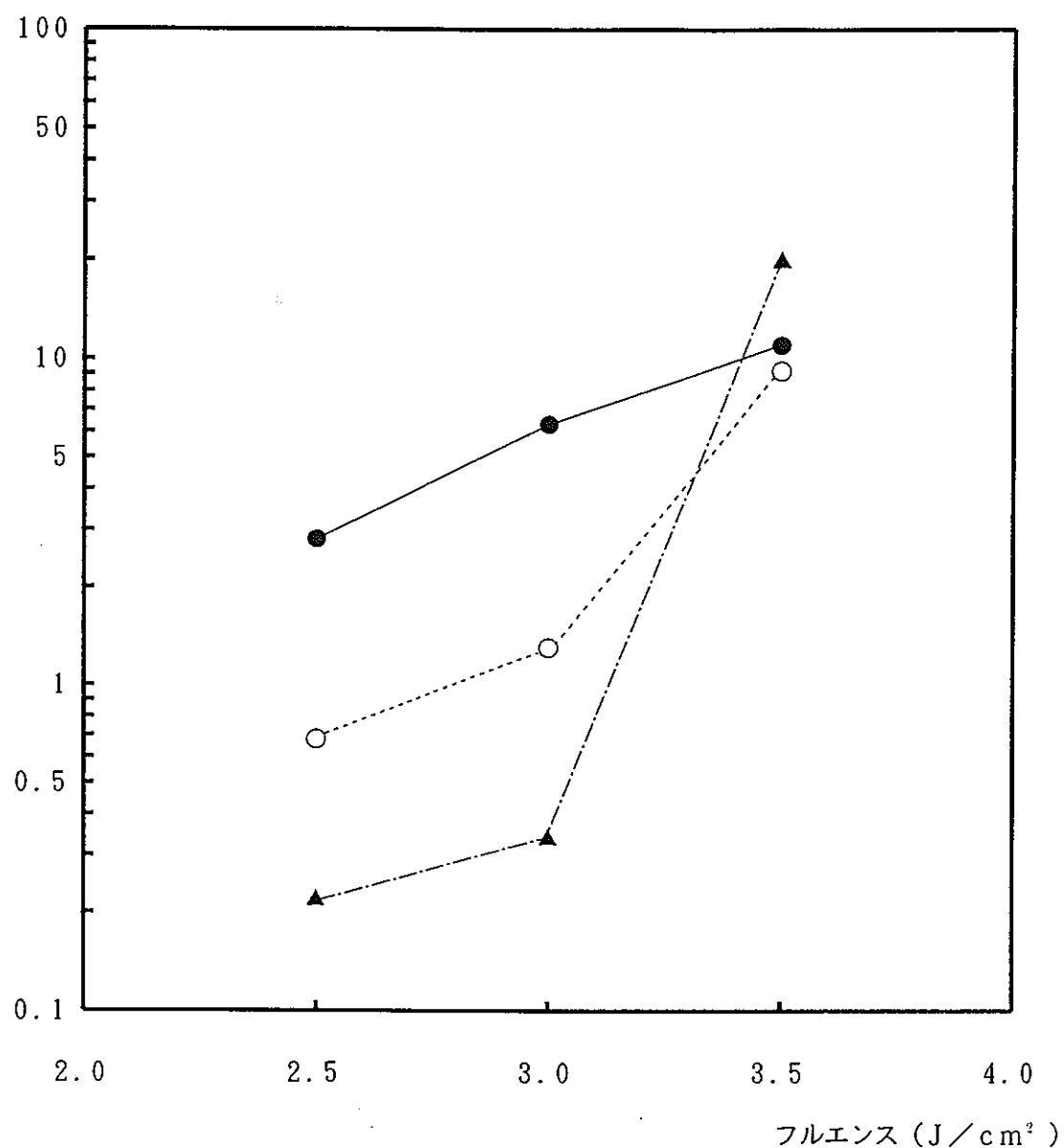


図6.8 解離率d のフルエンス依存

レーザーライン 9P(10)

● セル圧力 30 Torr

○ セル圧力 50 Torr

▲ セル圧力 70 Torr

shot当たりの解離率d

( $\times 10^{-7}$ )

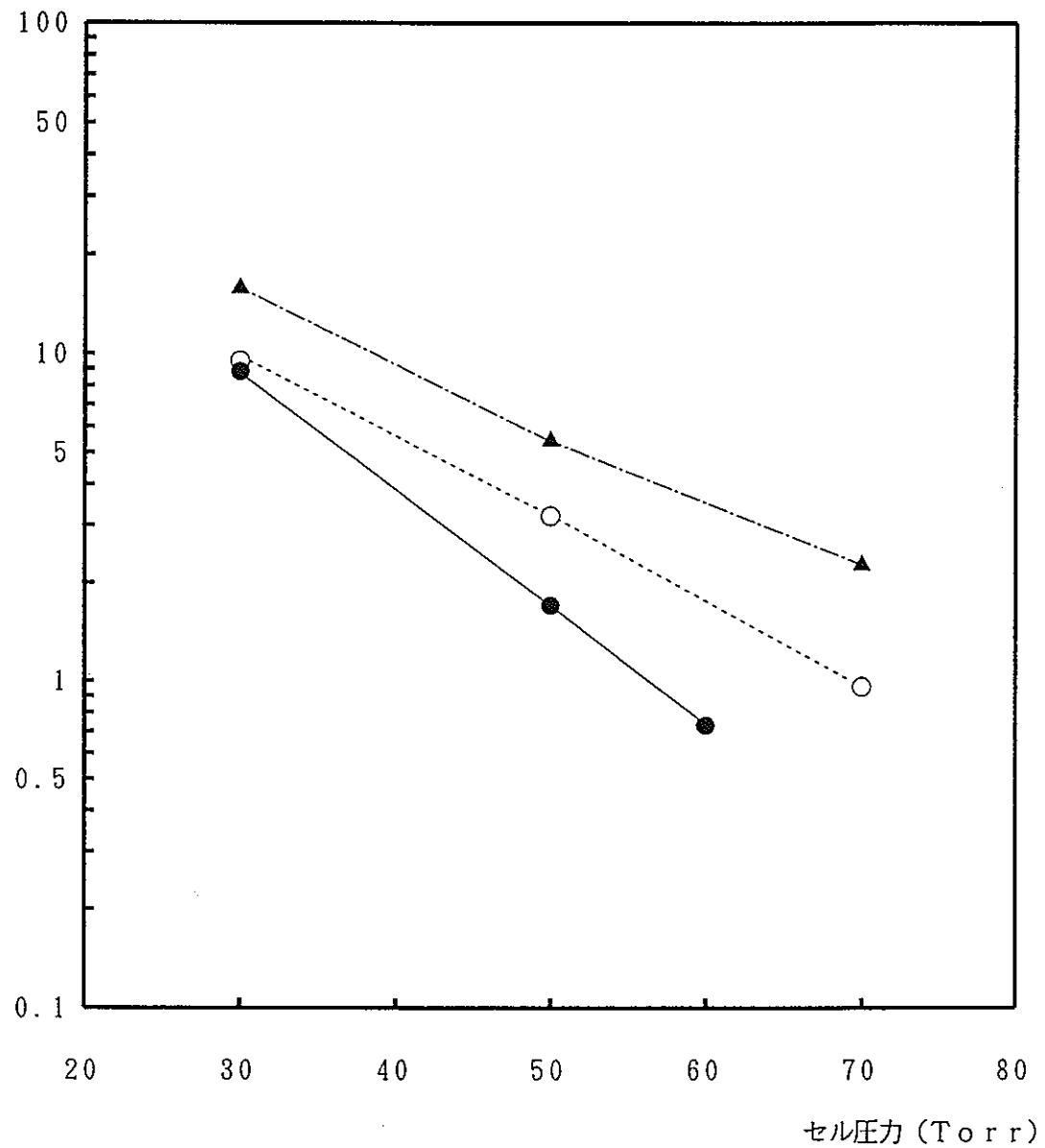


図6.9 解離率d の圧力依存

レーザーライン 9P(20)

- フルエンス 2. 5 J/cm<sup>2</sup>
- フルエンス 3. 0 J/cm<sup>2</sup>
- ▲ フルエンス 3. 5 J/cm<sup>2</sup>

shotあたりの解離率d

( $\times 10^{-5}$ )

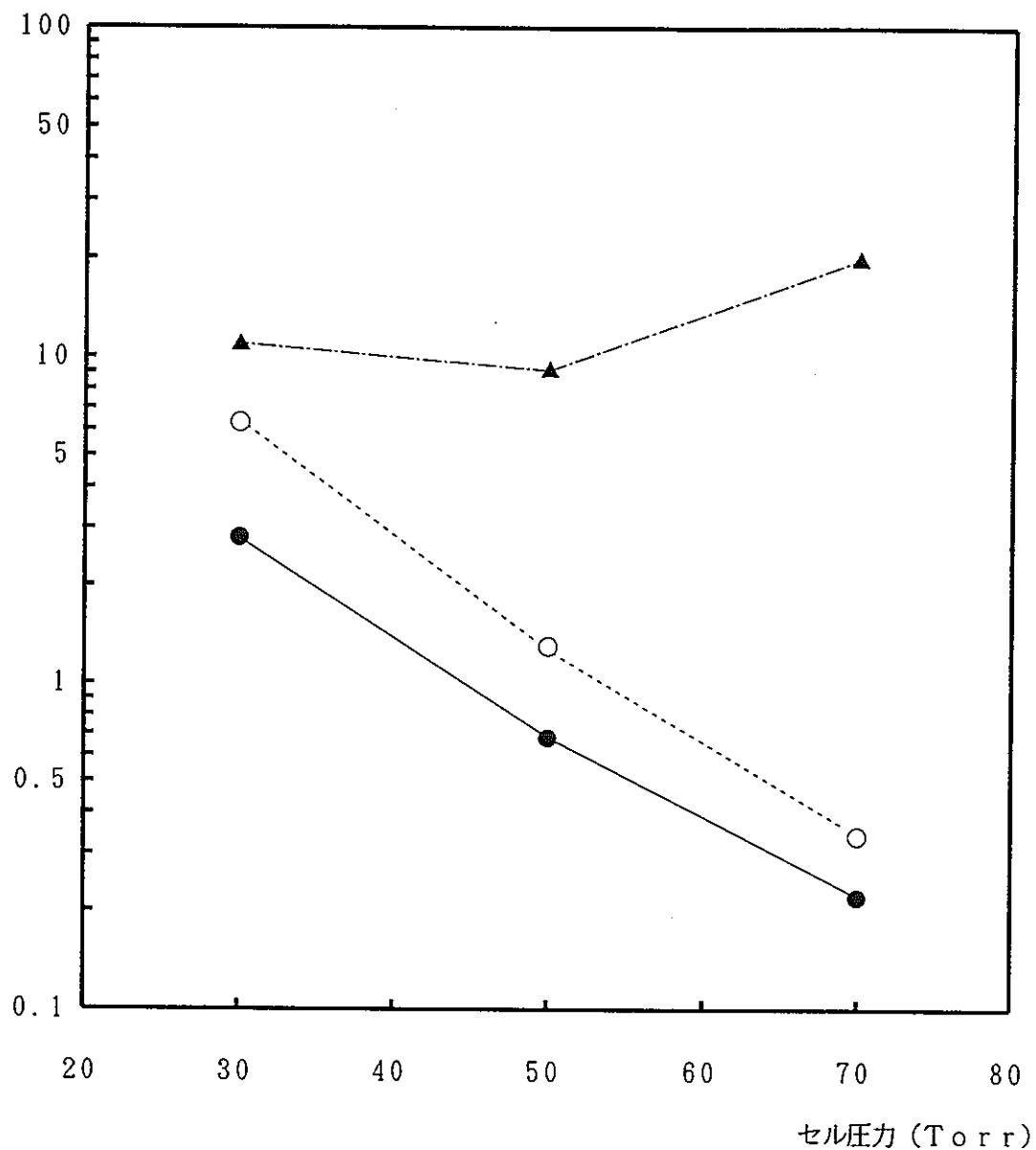
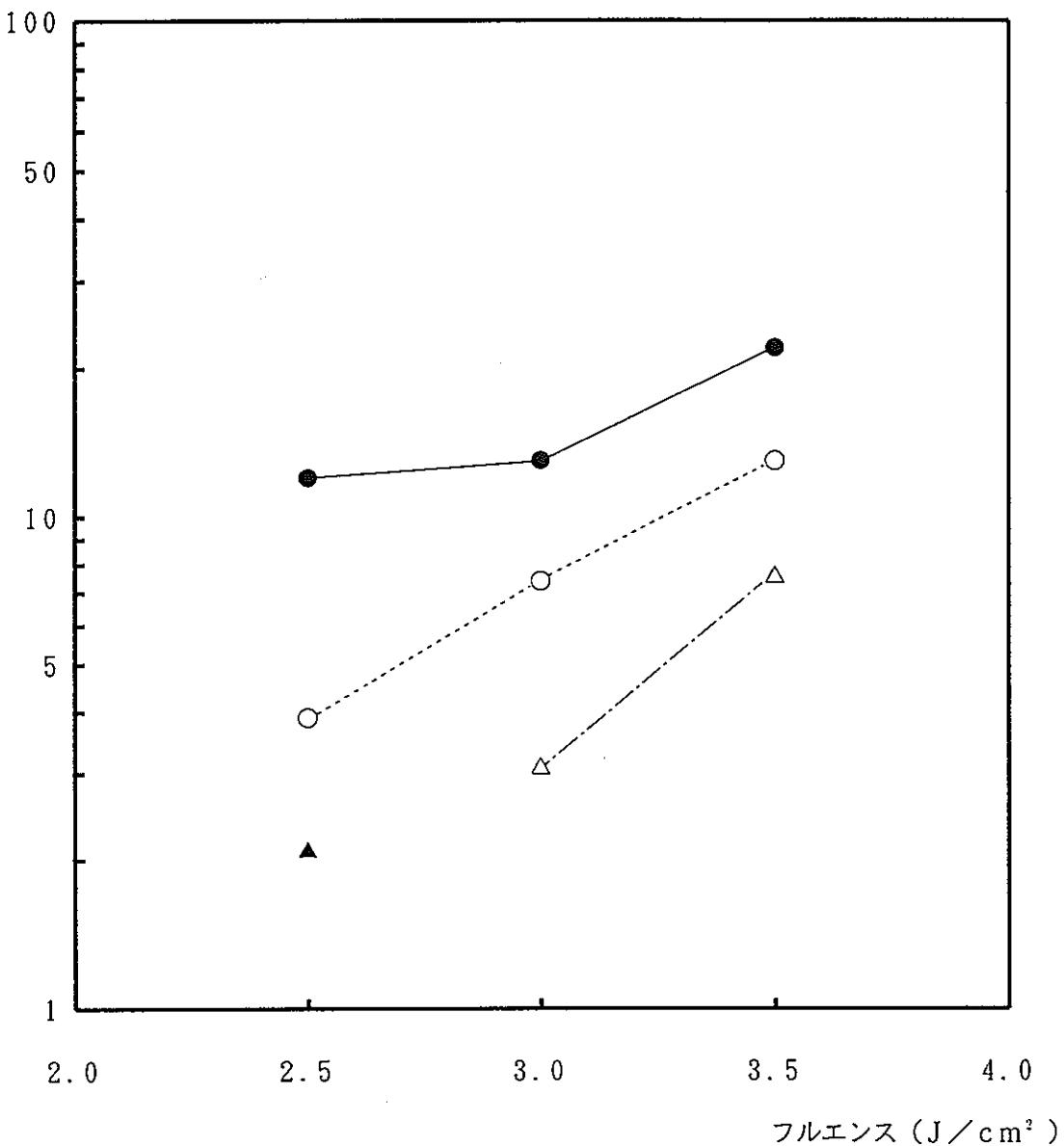


図6.10 解離率d の圧力依存

レーザーライン 9P(1 0)

- フルエンス2. 5 J/cm<sup>2</sup>
- フルエンス3. 0 J/cm<sup>2</sup>
- ▲ フルエンス3. 5 J/cm<sup>2</sup>

shotあたりの $C_2\ F_4$  の生成量 $(\times 10^{-9} \text{ g})$ 図6.11  $C_2\ F_4$  生成量のフルエンス依存

レーザーライン 9P(20)

● セル圧力 30 Torr

△ セル圧力 70 Torr

○ セル圧力 50 Torr

▲ セル圧力 60 Torr

shotあたりの $C_2 F_4$ の生成量

( $\times 10^{-3} g$ )

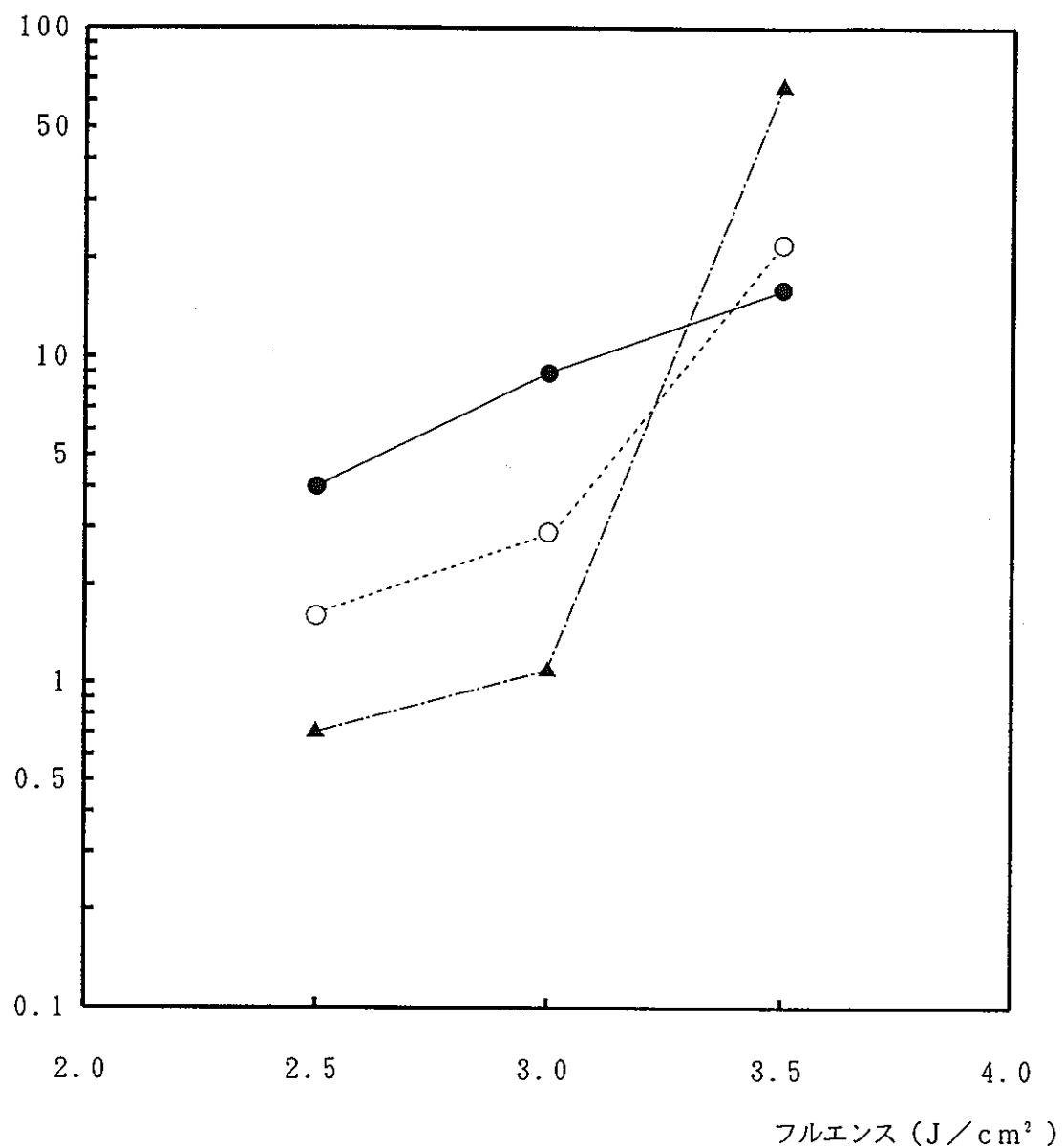


図6.12  $C_2 F_4$  生成量のフルエンス依存

レーザーライン 9P(10)

● セル圧力 30 Torr

○ セル圧力 50 Torr

▲ セル圧力 70 Torr

shotあたりのC<sub>2</sub>, F<sub>4</sub>の生成量

( $\times 10^{-9}$  g)

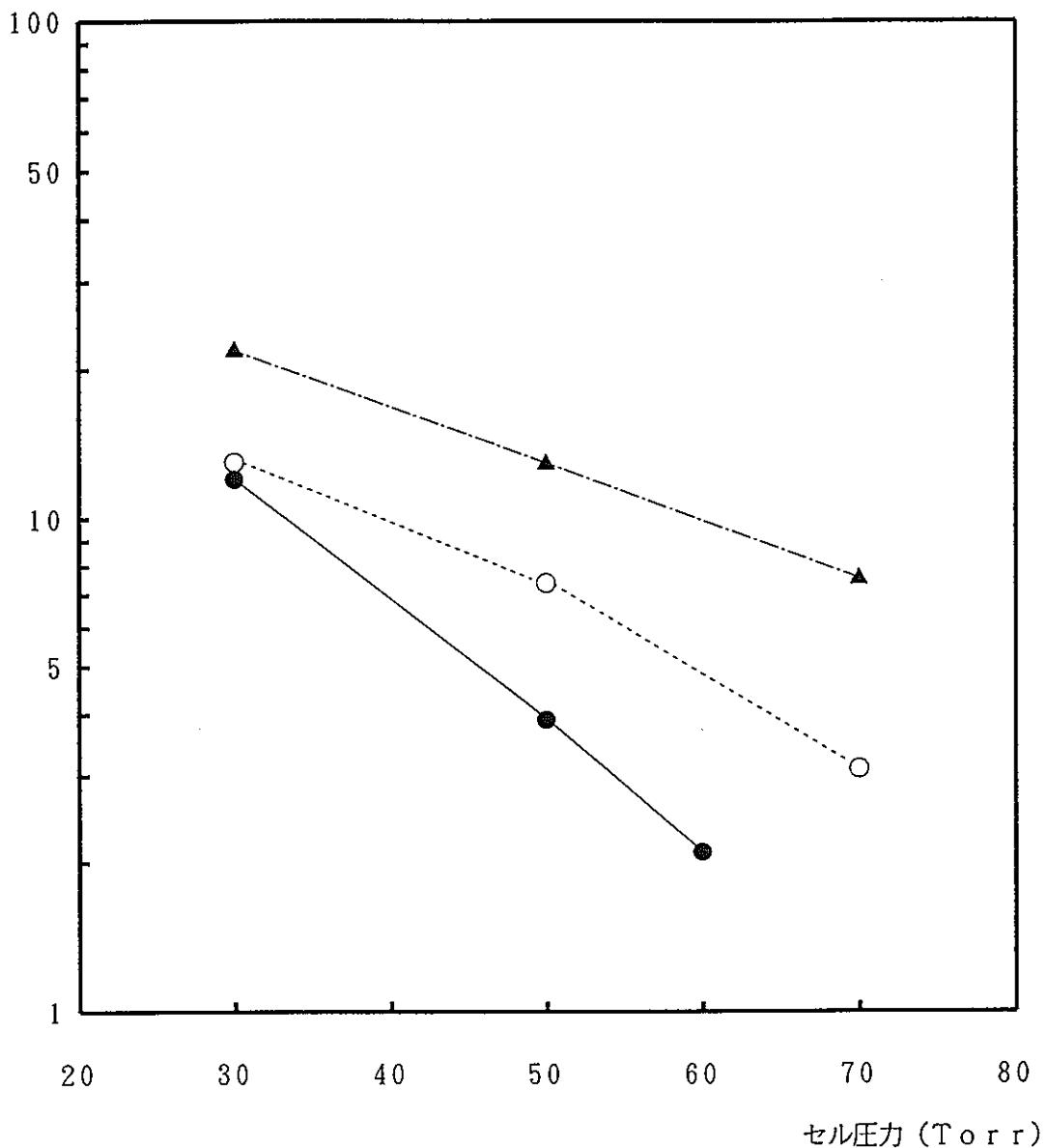


図6.13 C<sub>2</sub>, F<sub>4</sub> 生成量の圧力依存

レーザーライン 9P(20)

● フルエンス2. 5 J/cm<sup>2</sup>

○ フルエンス3. 0 J/cm<sup>2</sup>

▲ フルエンス3. 5 J/cm<sup>2</sup>

shotあたりの $C_2$ ,  $F_4$  の生成量

( $\times 10^{-8}$  g)

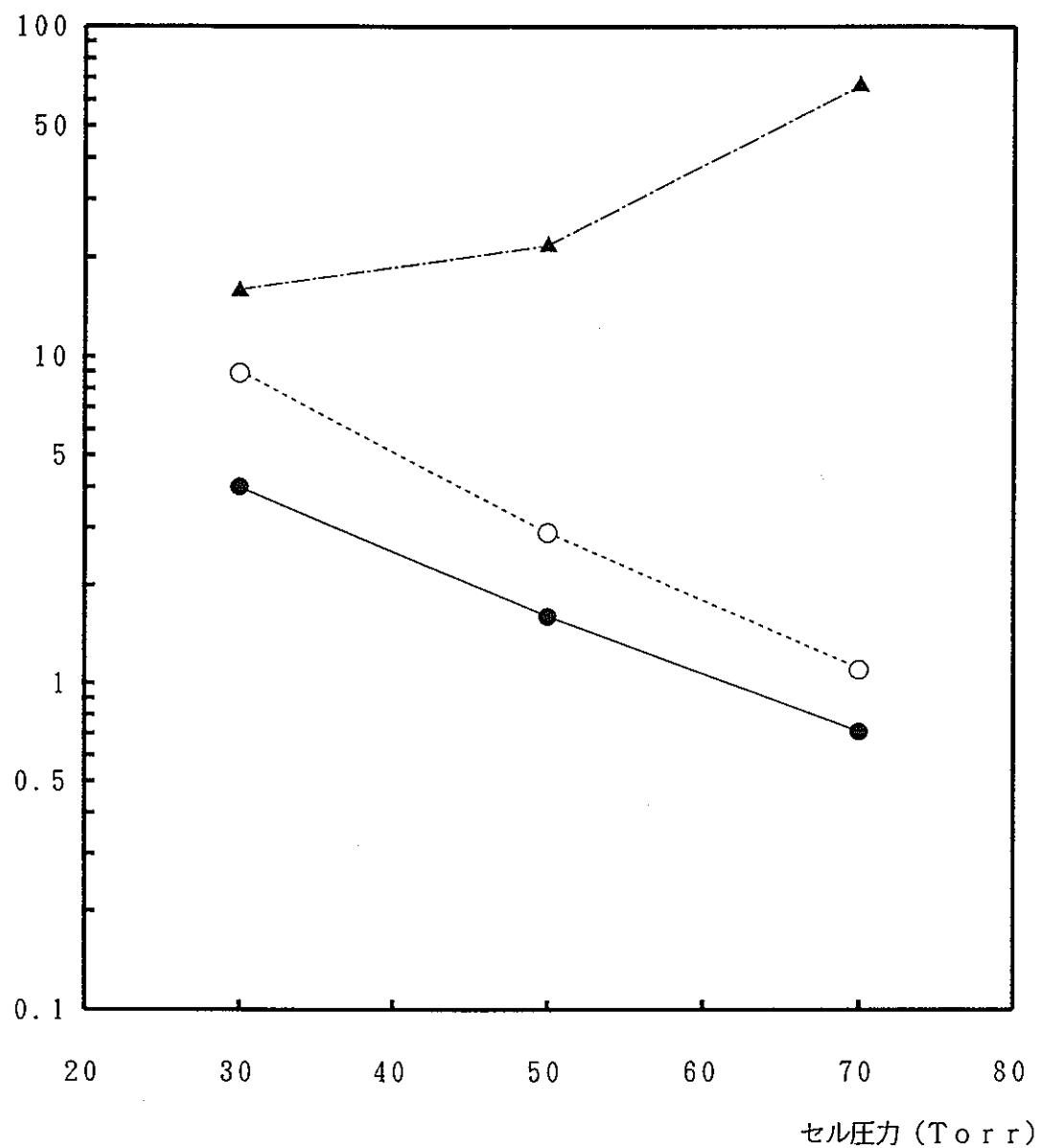


図6.14  $C_2$ ,  $F_4$  生成量の圧力依存

レーザーライン 9P(10)

● フルエンス2. 5 J/cm<sup>2</sup>

○ フルエンス3. 0 J/cm<sup>2</sup>

▲ フルエンス3. 5 J/cm<sup>2</sup>