

炭素13レーザー同位体分離試験報告書(3)

1995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

炭素13レーザー同位体分離試験報告書(3)

実施責任者：須藤 収*

石井克典*, 会沢正則*, 鈴木政浩*

鈴木栄二*, 川上重秋*

要 旨

本試験研究は分子レーザー法ウラン濃縮工学試験設備のTEACO₂レーザーシステムを用いて、炭素13を50%程度まで濃縮した炭素原子をマクロ量分離回収することを目的とする。

マクロ量を分離回収する前段階として、CF₂HClの赤外多光子解離反応における基礎分離特性を把握するために、レーザーフルエンス、レーザーライン、セル圧力をパラメーターとし、短いセル(光路長10cm)を用いたパラメーターサーベイ試験を実施した。その結果、分離特性について以下の知見が得られた。

(1) 分離係数 α は最高で2500が得られた。 α はレーザーフルエンス及び波数に対して単調に減少する。また α はフルエンスと波数によってセル圧力に対して、以下の何れかの依存性を示す。

(1.1) フルエンス又は波数が低い場合、 α は圧力に対して単調に増加する。

(1.2) フルエンス及び波数が高い場合、 α は圧力に対して単調に減少する。

(1.3) 以上の2ケースの境界では、 α は圧力に対して極大値を持つ。

(2) 収量はレーザーフルエンス及び波数に対して単調に増加する。また収量はフルエンスと波数によってセル圧力に対して、以下の何れかの依存性を示す。

(2.1) フルエンス及び波数が低い場合、収量は圧力に対して極大値を持つ。

(2.2) フルエンス及び波数が高い場合、収量は圧力に対して単調に増加する。

目 次

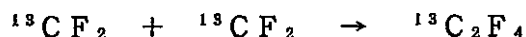
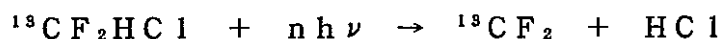
1. はじめに	1
2. 試験	3
3. 試験結果と考察	5
4. 今後の課題	9
参考文献	11
表	12
図	19

1. はじめに

炭素13を赤外多光子解離法により濃縮を試みた研究は多く知られている。これらの研究で用いられた作業物質としては、 CF_2Cl_2 ¹⁾、 CCl_4 ²⁾、 CF_3X (X=C l、Br、I)³⁾、 C_3F_6 ⁴⁾、 $\text{C}_2\text{H}_2\text{BCl}_3$ ⁵⁾、 CF_2HCl ⁶⁾、 CBr_2F_2 ⁷⁾、 COCl ⁸⁾、 C_2HF_5 ⁹⁾、 CF_3COCF_3 ¹⁰⁾等のフロン系のガスが使用されている。

この中でも CF_2HCl (フロン22)は操作圧力が比較的高いこと、高い濃縮度を得られること、作業物質のコストが低いこと、副反応が無いこと等の理由により、実験室規模からプラント規模へのスケールアップが最も容易な作業物質と考えられている。

CF_2HCl は $\nu_3=1115\text{ cm}^{-1}$ 及び $\nu_3=1100\text{ cm}^{-1}$ の振動モードを有しており、 ν_3 モードに関しては同位体シフトが 24 cm^{-1} であることが知られている。したがって炭酸ガスレーザーの $9\text{ }\mu\text{m}$ 帯の発振ラインのうち、適当なラインを用いれば、 $^{13}\text{CF}_2\text{HCl}$ のみを選択的に振動励起することが可能である。反応は以下の式に従って進行する⁶⁾。



すでにこの作業物質を用いて、大型のセルと高繰り返し炭酸ガスレーザー光により、炭素13の大量生産を目指した研究が行われている。カナダのHackettらのグループは繰り返し 10 Hz 、エネルギー 10 J /パルスのTEACO₂レーザーと長さ 1 m ~ 5 m のセルを用いて、 50% の ^{13}C を含んだ C_2F_4 を 220 mg/h で生成したと報告している¹¹⁾。ドイツのFussらのグループは高繰り返しQスイッチCO₂レーザー(7 kHz)と横方向ガスフローを用いて、10日間の照射で 50% の ^{13}C を含んだ C_2F_4 を 1 g 生産している¹²⁾。また国内においては、レーザー共振器内反応セル¹³⁾および導波管型ガスフローセル¹⁴⁾を用いてレーザーのエネルギー利用率を高めることにより、大量生産を目指した研究も行われている。

動力炉・核燃料開発事業団においても、再処理工場のオフガス中に含まれる炭素14の同位体分離技術の開発を目指して、この CF_2HCl を作業物質に用いて基礎研究が行われている¹⁵⁾。この研究成果を基に分子レーザー法ウラン濃縮工学試験設備

の高繰り返し TEACO₂レーザーを用いた量産技術の開発に平成5年度末から着手している。

CF₂HCl の赤外多光子解離反応についての基礎試験研究は過去において盛んに行われており、分離係数と解離量のフルエンス、波長及び作業物質圧力依存等が調べられている^{6, 11)}。したがってこれらの研究は量産のための基礎データにある程度利用できる。しかしこれらの研究で使用されているTEACO₂レーザーの発振モードはマルチモードであり、分子レーザー法工学試験設備のTEACO₂レーザーは縦モードも横モードも基本モードであるので、分離係数や解離量等の分離特性に相違が出てくる可能性がある。またCF₂HCl はレーザーパワー依存性を示すことが知られているので¹⁶⁾、パルス幅の異なった照射条件で行えば結果も異なってくるものと思われる。したがって実際に量産試験を実施するにあたっては、前もって基礎試験を実施し、照射条件の最適化を行う必要がある。

本試験研究ではレーザーフルエンス、作業物質圧力、レーザー波数をパラメータとした基礎試験を行い、分子レーザー法ウラン濃縮工学試験設備のTEACO₂レーザーのビーム条件での分離特性を把握することを目的とする。

2. 試験

本試験では分離係数と解離生成物 C_2F_4 の生成量について、レーザーライン、フルエンス、作業物質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行った。

試験装置の概要を図1に示す。使用したレーザーは分子レーザー法ウラン濃縮工学試験設備のラインチューナブルTEACO₂レーザーであり、エネルギー4 J/パルス、縦モードと横モードは基本モード、繰り返し数100 Hzの運転が可能である。パルス時間幅はレーザーガスの混合比とレーザー発振器の充電電圧を調整することにより変化させることができる。本試験では半値幅を(200 ± 20) nsecとし、ピーク部の後方に1 μsec程度のテイル部を伴うようにした。

炭酸ガスレーザー光は、赤外多光子解離反応の敷居値以上のフルエンスとするために、モリブデン製の凹面鏡(焦点距離2.5 m、照射セルのレーザー光入射側のウィンドーから1.5 mの位置に設置してある。)で絞って照射しており、セルの中心位置で最高12 J/cm²のフルエンスを得ることができる。この照射ジオメトリでは、レーザー光がセル中を伝搬していくにしたがって、レーザー光の収束によるフルエンスの増加と、作業物質のレーザー光吸収によるフルエンスの減少という二種類の効果を受ける。レーザー光の吸収は、吸光係数の測定の結果では、本試験で用いている長さ10 cm程度のセルでは僅かであるので、フルエンスの変化はほとんどレーザー光の収束に起因すると考えられる。したがってセル中でのフルエンスは、中心の値にたいして±10%程度の誤差を含んだものと考えられる。

照射セルに入射及び出射するレーザー光のエネルギーはエネルギーメーター(モレクトロン)で、レーザー光のパルス時間波形はフォトンドラッグ検出器で測定した。またレーザービームの直径はあらかじめピンホールスキャン法により、鉛直及び水平方向に関して測定した。

照射セルは内径41.6 mm、長さ100 mmのステンレス配管の両端に、減反射コーティングを施したZnSeのウィンドーを取り付けたもので、圧力測定用のキャパシタンスマノメーター(MKS社製バラトロン)と試料ガスの供給ライン、サンプリングライン及び真空排気ラインが接続してある。照射セルの体積は約190 ccで、レーザー光による照射体積は約5 ccである。

この照射セルの中に CF_2HCl を所定の圧力(5~70 Torr)だけ封入し、所定のライン(9P(10)~9P(30))、フルエンス(2~12 J/cm²)のレーザー光を照射した。レーザー光のショット数は解離率の大小によって適当に調節した。レーザーの繰り返し数はショット数の大小により適当に調節した。レーザー照射後の試料ガスは、解離生成ガスである C_2F_4 の生成量とこの分子中に濃縮された¹³Cの濃度を測定するために、バルブを開いてサンプリングラインに導いた。

本試験に使用した CF_2HCl は商用グレードであり、若干の不純物を含むと思われるが、ガスクロマトグラフィーによる測定の結果、純度は99.9%以上であることを確認した。またガスクロマトグラフィー上の不純物のピークは、 CF_2HCl や C_2F_4 のピークに重なったりすることは無く、分析に何ら有害な影響を与えないことを確認した。

C_2F_4 の生成量の測定は、ガスクロマトグラフ分析計(島津製GC14B)を用いて行った。検出器はTCD検出器(温度120℃)、カラムはポラパックQ(80~100 mesh、長さ2m、温度120℃)で、キャリアガスはヘリウムガス(流量約40 ml/min)である。ガスクロマトグラフ分析計はあらかじめ標準サンプル($\text{CF}_2\text{HCl}:\text{C}_2\text{F}_4=99:1$)で校正した。この条件で C_2F_4 のピークは保持時間1.1分、 CF_2HCl のピークは3.2分の所に現れる。

C_2F_4 中に濃縮された¹³Cの濃度の測定は、四重極質量分析計(LED A-MASS社製MQ-200D)を用いて行った。測定に用いたマスピークは C_2F_3^+ で、マスナンバー81が¹² C_2F_3^+ 、82が¹² $\text{C}^{13}\text{CF}_3^+$ 、83が¹³ C_2F_3^+ に相当する。質量分析管が設置されているチャンバー内は排気容量150 L/secのターボ分子ポンプで常時排気しており、 10^{-9} Torr台の真空度に保つことができる。レーザー照射後の試料ガスはバリアブルリークバルブを介して、チャンバー内の圧力が 10^{-7} ~ 10^{-6} Torr程度になるように導入した。マスナンバー81~83のバックグラウンドはあらかじめレーザーを照射していない試料ガスを用いて測定しておき、得られた結果から差し引いた。

3. 試験結果と考察

分離係数 α は以下の式より求めた。

$$\alpha = \frac{\frac{X_n}{1-X_n}}{\frac{X_0}{1-X_0}} = \frac{1-X_0}{X_0} \left\{ \frac{I_{82} + 2I_{83}}{I_{82} + 2I_{81}} \right\} \quad (3. 1)$$

ここで X_0 、 X_n はそれぞれ照射前後での ^{13}C 原子の存在比であり、天然では $X_0 = 0.0111$ である。 I_{81} 、 I_{82} 、 I_{83} はそれぞれレーザー照射後の試料気体を四重極質量分析計で分析した場合のマスナンバー 81 ($^{12}\text{C}_2\text{F}_3^+$)、82 ($^{12}\text{C}^{13}\text{C}\text{F}_3^+$)、83 ($^{13}\text{C}_2\text{F}_3^+$) のピーク高さからバックグラウンドを差し引いたものである。

レーザーパルスあたり、照射体積あたりの解離生成物 C_2F_4 の収量 Y ($\text{mol}/\text{shot}/\text{cc}$) は以下の式より求めた。

$$Y = KX \frac{VP_0}{\Delta VP_1} \frac{1}{SV_I} \quad (3. 2)$$

ここで K はガスクロマトグラフ分析計の TCD 検出器の校正係数 (今回の試験では $K = 1.44 \times 10^{-11}$ ($\text{mol}/\text{カウント}$))、 X は TCD 検出器の出力 (カウント)、 V は照射セルの体積 (今回の試験では 192 cc)、 ΔV はガスクロマトグラフ分析計のサンプリング体積 (今回の試験では 0.5 cc)、 P_0 はレーザー照射後のセルの圧力 (Torr)、 P_1 はセルのガスをサンプリング体積に広げたときのサンプリング圧力 (Torr)、 S はレーザーショット数、 V_I はレーザー照射体積 (cc) である。

解離生成物 C_2F_4 を 1 分子生成するのに必要なエネルギー ε (eV) は以下の式より求めた。

$$\varepsilon = C \frac{ES(1 - \exp(-APL))}{KX \frac{VP_0}{\Delta VP_1} N_A} \quad (3. 3)$$

ここで C は J から eV の変換係数 ($C = 6.24 \times 10^{18}$)、 E はレーザーパルスのエネルギー (J)、 A は吸光係数 ($\text{Torr}^{-1}\text{cm}^{-1}$)、 P はレーザー照射前の圧力 (Torr)、 L はセルの長さ (今回の試験では 10 cm)、 N_A はアボガドロ数 (6.02×10^{23}) である。吸光係数については以下の値を用いた。

レーザーライン 9P(10) : $A = 7.6 \times 10^{-5} \text{ (Torr}^{-1} \text{cm}^{-1})$

レーザーライン 9P(16) : $A = 4.2 \times 10^{-5} \text{ (Torr}^{-1} \text{cm}^{-1})$

レーザーライン 9P(20) : $A = 2.8 \times 10^{-5} \text{ (Torr}^{-1} \text{cm}^{-1})$

レーザーライン 9P(24) : $A = 1.8 \times 10^{-5} \text{ (Torr}^{-1} \text{cm}^{-1})$

1時間当たりの生産速度 G (g (炭素原子) / hr) は以下の式より求めた。

$$G = \left(\frac{CE}{\varepsilon} \right) \left(\frac{2M}{N_A} \right) S_{hr} \quad (3.4)$$

ここで M は解離生成物 C_2F_4 中の炭素原子の原子量 (50%濃縮度においては、 $M = 12.5$)、 S_{hr} は1時間に照射するレーザーショット数である。

分離に必要な光路長 L (cm) は以下の式より求めた。

$$L = \frac{1}{AP} \log_e \left(\frac{E}{E_{OUT}} \right) \quad (3.5)$$

ここで E_{OUT} はセルを透過するレーザーパルスのエネルギー (J) である。

図2～6に分離係数 α のフルエンス依存を示す。 α はフルエンスを増加させると単調に減少することがわかる。この結果は CF_2HC1 の赤外多光子解離反応を用いた同位体分離に関する過去の研究例の結果と定性的に一致する^{6, 19)}。圧力が高い場合は低フルエンス領域で高い α が得られるが、フルエンスを増加させると、 α は急激に減少することがわかる。一方圧力が低い場合は低フルエンス領域でもそれほど高い α は得られないが、フルエンスを増加させても α の減少は緩やかである。

図7～11に分離係数 α のセル圧力依存を示す。 α は圧力の増加に伴い

- (1) 単調に増加する。
- (2) ある圧力で極大値を持つ。
- (3) 単調に減少する。

の何れかの振る舞いを示すことがわかる。また圧力を減少させると、 α は一定値に収束することがわかる。これらの圧力依存性は過去の研究例の結果にも見られる¹⁹⁾。

(1)の単調増加する依存性は、主にフルエンスが低い場合及び波数が低い場合に現れる。また(3)の単調減少する依存性は、主にフルエンスが高い場合及び波数が高い場合に現れる。(2)のある圧力で極大値を持つ場合は、(1)と(2)の境界になるような条件の場合に現れる。圧力の増加に伴い α が増加している例については、圧力の増加

が選択励起分子である $^{13}\text{CF}_2\text{HCl}$ から非選択励起分子である $^{12}\text{CF}_2\text{HCl}$ へのエネルギーの移動を促進するため一見物理的に矛盾しているように思われる。この効果についてHackettらは低振動励起準位（離散領域）に励起されている $^{12}\text{CF}_2\text{HCl}$ と $^{13}\text{CF}_2\text{HCl}$ が、非選択励起分子で冷浴として働く $^{12}\text{CF}_2\text{HCl}$ との衝突で緩和する現象と、レーザー光による上準位（準連続領域）への励起が競合した結果であると述べている⁶⁾。

図12～16にレーザーパルス及び照射体積あたりの収量（mol/shot/cc）のフルエンス依存を示す。収量はフルエンスを増加させると単調に増加することがわかる。このフルエンス依存性は過去の研究例にも見られる⁶⁾。低いフルエンス領域では圧力の低い方が収量は大きい、高いフルエンス領域では逆に圧力の高い方が収量は大きくなる。また収量の増加はフルエンスの増加に伴い飽和する傾向がある。

図17～21にレーザーパルス及び照射体積あたりの収量（mol/shot/cc）の圧力依存を示す。収量は圧力の増加に伴い

- (1) 単調に増加する。
- (2) ある圧力で極大値を持つ。

の何れかの振る舞いを示すことがわかる。(1)の単調に増加する場合は、主にフルエンスが高い場合及び波数が高い場合に現れる。(2)のある圧力で極大値を持つ場合は主にフルエンスが低い場合及び波数が低い場合に現れる。

図22～25に分離係数 α の波数依存を示す。 α は波数を増加させると単調に減少する。これは励起波数が赤外線形吸収スペクトルにおける $^{12}\text{CF}_2\text{HCl}$ の吸収ピーク波数に接近するため、 $^{12}\text{CF}_2\text{HCl}$ の励起断面積が増加するためと考えられる。

図26～29にレーザーパルス及び照射体積あたりの収量（mol/shot/cc）の波数依存を示す。収量は波数を増加させると単調に増加する傾向があることがわかる。

今回の試験結果の一覧を表1～5に示す。50%程度の濃縮度（ $\alpha \approx 90$ ）の条件に◎印を付けた。これらの条件について、解離生成物 C_2F_4 を1分子生成するのに必要なエネルギー ε （eV）を(3.3)式を用いて計算した結果を表6に示す。これを見ると、レーザーライン9P(24)、フルエンス 11.2 J/cm^2 、セル圧力 30 Torr の条件が $\varepsilon = 8.8\text{ eV}$ で、この中では最小であることがわかる。

この条件を用いて、プラント規模にスケールアップした場合の50%濃縮炭素原子の生産量を予測してみる。分子レーザー法ウラン濃縮工学試験設備のTEACO₂レーザーを、エネルギー4 J/パルス、繰り返し数100 Hzで運転し、そのエネルギーは100%反応に寄与させることができたとすると、1時間あたりの生産速度は(3.4)式より、42 g (炭素原子) / hrとなる。これを日産になおすと1000 g (炭素原子) / dayであり、年産になおすと370 kg (炭素原子) / yearとなる。

またこの条件を用いた場合に、90%、50%、30%のエネルギーを反応に寄与させるのに必要な光路長は(3.5)式を用いれば、それぞれ42 m、13 m、6.5 mとなる。したがってレーザー光のエネルギーを効率的に反応に寄与させるには、かなりの長さのセルが必要になることがわかる。

4. おわりに

本試験研究を進めるにあたっての今後の課題を以下に述べる。

(1) 分離特性のレーザーパルス幅依存データの取得

今回の試験ではパルス幅は200 nsecに固定して試験を行った。諸文献を見ると、比較的短いパルス幅(100 nsec以下)の方がエネルギー効率的に優れているとの報告もある⁶⁾。したがって分離特性のパルス幅依存データを取得する必要がある。

(2) 分離特性のバッファーガス圧力依存データの取得

高繰り返しTEACO₂レーザーを通常のセルに照射すると、ガス温度が上昇し、分離係数が著しく低下すると予測されるため¹⁷⁾、ガスをブローヤやポンプ等で流しながら使用するガスフローセルを使用する必要がある。バッファーガスを混合することにより、ガスフローの流速を小さく押さえることができたり、収率等が改善されたとする報告もある¹²⁾。したがって分離特性のバッファーガス圧力依存データを取得する必要がある。

(3) 高フルエンス領域及び低圧力領域の分離特性データの取得

今までの実験では12 J/cm²以上の高フルエンス領域のデータはセルのウインドーの耐光強度の問題から、またセル圧力5 Torr未満のデータは圧力計の精度の問題から実施されていない。分離特性のより正確な把握のために、試験装置及び照射ジオメトリの改善により、試験を行う必要がある。

(4) 試験データの多変量解析の実施

分離条件のより正確な最適化のために、分離係数 α 、レーザーパルスあたり照射体積あたりの収量 Y (mol/shot/cc)、解離生成物C₂F₄を1分子生成するのに必要なエネルギー ε (eV) について多変量解析の手法を用いてレーザーフルエンス F 、セル圧力 P 、波数 W を変数とする実験式を求める必要がある。

(5) 実規模セルの製作

50%程度の濃縮度で効率良く分離を行うためには、10 m以上の光路を準備して、レーザー光のエネルギーを十分反応に寄与させることが必要である。また11.1 J/cm²という高フルエンスで照射する必要があるが、この程度のフルエンス

ではウインドーは数Hz照射で損傷を受ける。したがって十分な光路長を有し、かつウインドーの損傷を防ぐために特殊な工夫をした実規模セルの設計・製作が必要である。

参考文献

- 1) J. L. Lyman, S. D. Rockwood: J. Appl. Phys., 47(1976)p595.
- 2) R. V. Ambartzumian, Yu. A. Gorokhov, V. S. Letokhov, G. N. Makarov, A. A. Puzoski
:Phys. Lett., 56A(1976)p183.
- 3) M. Drouin, M. Gauthier, R. Pilon, P. A. Hackett, C. Willis: Chem. Phys. Lett., 60
(1978)p16.
- 4) P. H. Hackett, C. Willis, W. S. Nip: J. Amer. Chem. Soc., 103(1981)p682.
- 5) G. I. Abdushelishvili, T. G. Abzianidze, A. S. Egiazarov, G. I. Tkeshelashvili,
T. B. Tsinadze: Kvantovaya Elektron, 13(1986)p443.
- 6) M. Gauthier, C. G. Cureton, P. A. Hackett, C. Willis: Appl. Phys., B28(1982)p43.
- 7) P. H. Ma, K. Sugita, S. Arai: Appl. Phys., B49(1989)p503.
- 8) T. G. Abzianidze, V. Yu. Baranov, et. al.: Kvantovaya Elektron, 13(1986)p206.
- 9) 加藤修司, 市川順一, 石井忠浩, 武内一夫: レーザー科学研究, 10(1988)p69.
- 10) P. A. Hackett, M. Gauthier, W. S. Nip, C. Willis: J. Phys. Chem., 85(1981)p1147.
- 11) A. Outhouse, P. Lawrence, M. Gauthier, P. A. Hackett: Appl. Phys., B36(1985)p63.
- 12) C. D'ambrosio, W. Fuss, K. L. Kompa, W. E. Schmid, S. Trusin: Infrared Phys. 29
(1989)p479.
- 13) 坂井辰彦, 浜田直也, 藤岡裕二: 日本原子力学会1993年春の年会予稿集(1993)p622.
- 14) H. Kojima, K. Uchida, Y. Takagi: Appl. Phys. B41(1986)p43.
- 15) 鈴木政浩, 北谷文人, 高橋武士, 社内資料 PNC PN 8410 92-342.
- 16) J. C. Stephenson, D. S. King: J. Chem. Phys., 78(1983)1867.
- 17) 石井克典, 会沢正則, 山口大美, 川上重秋, 須藤収, 島崎善広:
公開資料 PNC TN8410 94-142.
- 18) 石井克典, 会沢正則, 川上重秋, 須藤収, 島崎善広: 社内資料 PNC PN8410 94-275.
- 19) G. Zhennan, X. Ning: Kexue Tongbao, 33(1988)1794.

レーザーライン: 9P(10) 1055.6250cm⁻¹

フルエンス(J/cm ²)	セル圧力(Torr)	分離係数 α	収量(mol/shot/cc)
2.0	5.0	39	5.4E-12
2.0	10.0	57	5.8E-12
2.0	30.0	120	1.8E-12
2.0	50.0	-	2.8E-13
2.0	70.0	-	1.4E-13
3.0	5.0	28	2.5E-11
3.0	10.0	46	6.8E-11
◎ 3.0	30.0	93	1.8E-11
3.0	50.0	120	3.7E-12
3.0	70.0	-	-
3.9	5.0	-	-
3.9	10.0	37	5.9E-11
3.9	30.0	65	4.9E-11
◎ 3.9	50.0	87	1.7E-11
3.9	70.0	47	9.7E-12
5.1	5.0	30	1.4E-10
5.1	10.0	20	1.9E-10
5.1	30.0	13	6.8E-10
5.1	50.0	2.5	3.5E-9
5.1	70.0	1.3	6.9E-9
7.3	5.0	26	3.2E-10
7.3	10.0	21	7.3E-10
7.3	30.0	3.1	1.1E-8
7.3	50.0	1.4	5.5E-8
7.3	70.0	1.2	7.7E-8
9.3	5.0	25	5.8E-10
9.3	10.0	14	1.9E-9
9.3	30.0	1.5	7.5E-8
9.3	50.0	1.2	1.4E-7

レーザーライン 9P(10) の試験結果
表 1

レーザーライン: 9P(10) 1055.6250cm⁻¹

フルエンス(J/cm ²)	セル圧力(Torr)	分離係数 α	収量(mol/shot/cc)
9.3	70.0	1.3	1.4E-7
11.3	5.0	22	9.1E-10
11.3	10.0	4.2	3.9E-9
11.3	30.0	1.3	1.6E-7
11.3	50.0	1.3	2.2E-7
11.3	70.0	1.4	2.4E-7

レーザーライン9P(10)の試験結果
表1の続き

レーザーライン: 9P(16) 1050.4412cm⁻¹

フルエンス(J/cm ²)	セル圧力(Torr)	分離係数 α	収量(mol/shot/cc)
3.1	5.0	36	1.8E-11
3.1	10.0	49	2.4E-11
3.1	30.0	150	1.7E-11
3.1	50.0	300	7.6E-12
3.1	70.0	510	2.0E-12
5.0	5.0	30	6.3E-11
5.0	10.0	45	1.3E-10
5.0	30.0	74	1.5E-10
5.0	50.0	130	8.5E-11
◎ 5.0	70.0	95	6.2E-11
7.1	5.0	26	1.5E-10
7.1	10.0	35	3.2E-10
7.1	30.0	16	1.3E-9
7.1	50.0	4.5	5.9E-9
7.1	70.0	3.2	2.0E-8
9.1	5.0	30	3.1E-10
9.1	10.0	32	6.4E-10
9.1	30.0	4.2	1.4E-8
9.1	50.0	2.1	4.1E-8
9.1	70.0	1.8	4.4E-8
11.2	5.0	32	3.6E-10
11.2	10.0	35	8.8E-10
11.2	30.0	3.0	2.6E-8
11.2	50.0	2.0	5.6E-8
11.2	70.0	1.7	7.5E-8

レーザーライン 9P (16) の試験結果
表 2

レーザーライン: 9P(20) 1046.8542cm⁻¹

フルエンス(J/cm ²)	セル圧力(Torr)	分離係数 α	収量(mol/shot/cc)
3.0	10.0	49	1.2E-11
3.0	30.0	170	1.2E-11
3.0	50.0	570	4.6E-11
3.0	70.0	980	1.4E-12
4.1	10.0	44	2.5E-11
4.1	30.0	150	3.1E-11
4.1	50.0	320	1.8E-11
4.1	70.0	640	5.5E-12
5.3	10.0	32	5.9E-11
5.3	30.0	75	8.9E-11
5.3	50.0	170	7.3E-11
5.3	70.0	360	4.4E-11
7.2	10.0	48	1.2E-10
7.2	30.0	66	2.8E-10
◎ 7.2	50.0	90	3.3E-10
◎ 7.2	70.0	98	2.7E-10
9.5	10.0	44	2.2E-10
9.5	30.0	59	5.4E-10
9.5	50.0	24	1.3E-9
9.5	70.0	20	1.4E-9
11.8	10.0	43	2.9E-10
11.8	30.0	45	9.3E-10
11.8	50.0	7.7	6.2E-9
11.8	70.0	4.4	1.2E-8

レーザーライン 9P (20) の試験結果
表 3

レーザーライン: 9P(24) 1043.1632cm⁻¹

フルエンス(J/cm ²)	セル圧力(Torr)	分離係数 α	収量(mol/shot/cc)
◎ 3.0	5.0	82	4.3E-12
3.0	10.0	62	9.7E-12
3.0	30.0	280	9.8E-12
3.0	50.0	840	2.8E-12
3.0	70.0	1570	5.8E-13
5.3	5.0	64	1.8E-11
5.3	10.0	61	2.9E-11
5.3	30.0	190	4.0E-11
5.3	50.0	440	2.9E-11
5.3	70.0	890	1.5E-11
7.5	5.0	56	3.3E-11
7.5	10.0	69	6.3E-11
7.5	30.0	160	1.1E-10
7.5	50.0	290	1.1E-10
7.5	70.0	490	8.5E-11
9.1	5.0	48	5.7E-11
9.1	10.0	69	9.7E-11
9.1	30.0	130	2.1E-10
9.1	50.0	170	2.2E-10
9.1	70.0	150	2.1E-10
11.1	5.0	50	9.6E-11
11.1	10.0	64	1.5E-10
◎ 11.1	30.0	95	3.6E-10
11.1	50.0	130	3.9E-10
11.1	70.0	130	3.7E-10

レーザーライン9P(24)の試験結果
表 4

レーザーライン: 9P(30) 1037.4341cm⁻¹

フルエンス(J/cm ²)	セル圧力(Torr)	分離係数 α	収量(mol/shot/cc)
3.1	10.0	205	8.8E-13
3.1	30.0	1070	1.1E-12
3.1	50.0	1920	3.0E-13
3.1	70.0	-	1.2E-13
5.3	10.0	160	7.5E-12
5.3	30.0	650	6.6E-12
5.3	50.0	1100	4.4E-12
5.3	70.0	2500	2.1E-12
7.6	10.0	140	1.5E-11
7.6	30.0	470	2.3E-11
7.6	50.0	990	1.8E-11
7.6	70.0	1400	1.1E-11
9.0	10.0	110	3.3E-11
9.0	30.0	320	5.2E-11
9.0	50.0	650	5.3E-11
9.0	70.0	970	4.0E-11

レーザーライン9P(30)の試験結果
表 5

レーザーライン	フルエンス(J/cm ²)	セル圧力(Torr)	分離に必要なエネルギー-ε(eV)
9 P (10)	3.0	30	195
9 P (10)	3.9	50	453
9 P (16)	5.0	70	139
9 P (20)	7.2	50	13.2
9 P (20)	7.2	70	21.9
9 P (24)	3.0	5	39.3
9 P (24)	11.1	30	8.8

濃縮度約50%の照射条件と解離生成物C₂F₄を1分子生成するのに必要なエネルギー

表 6

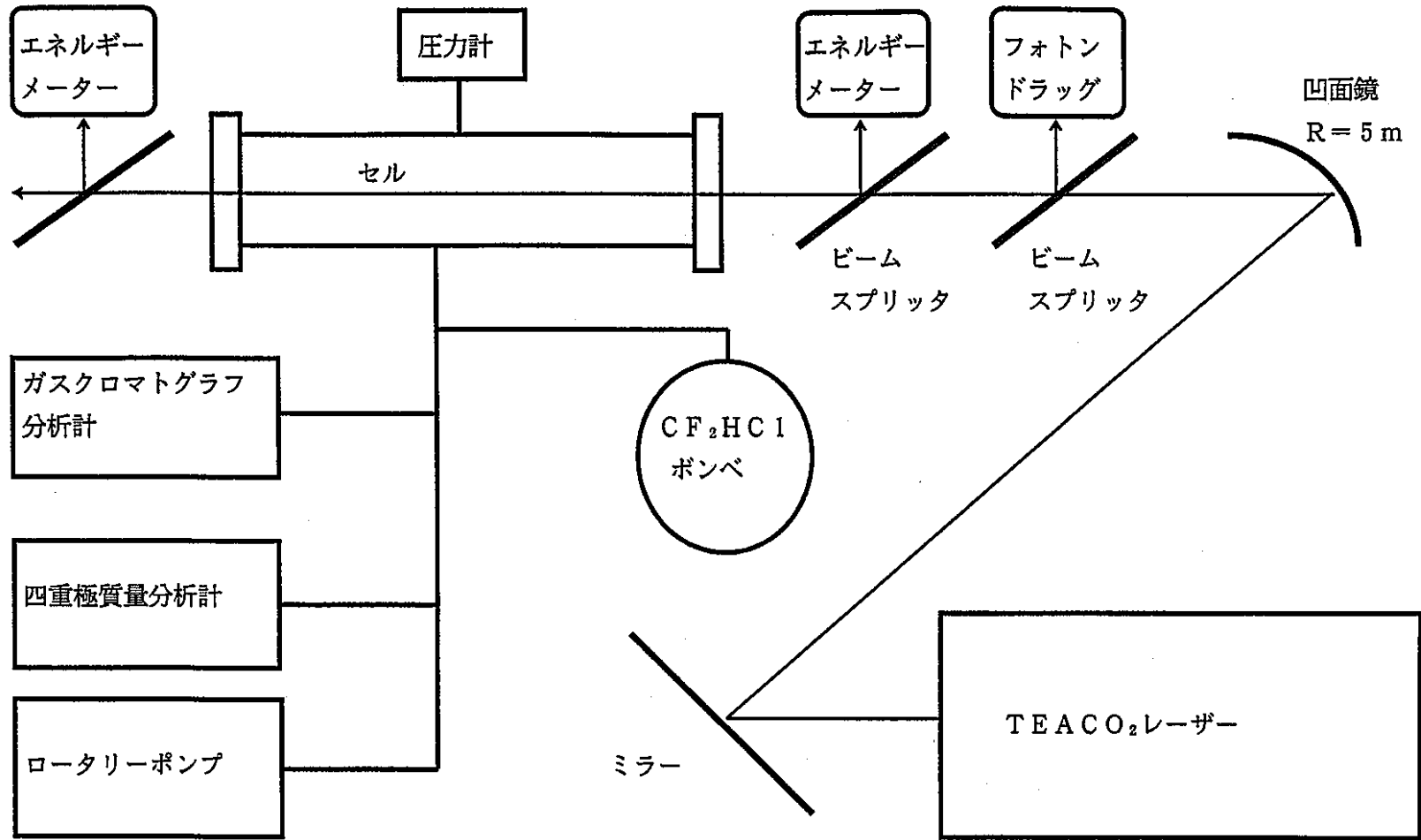


図1. 試験装置の概略図

図2. α のフルエンス依存 レーザーライン9P(10)

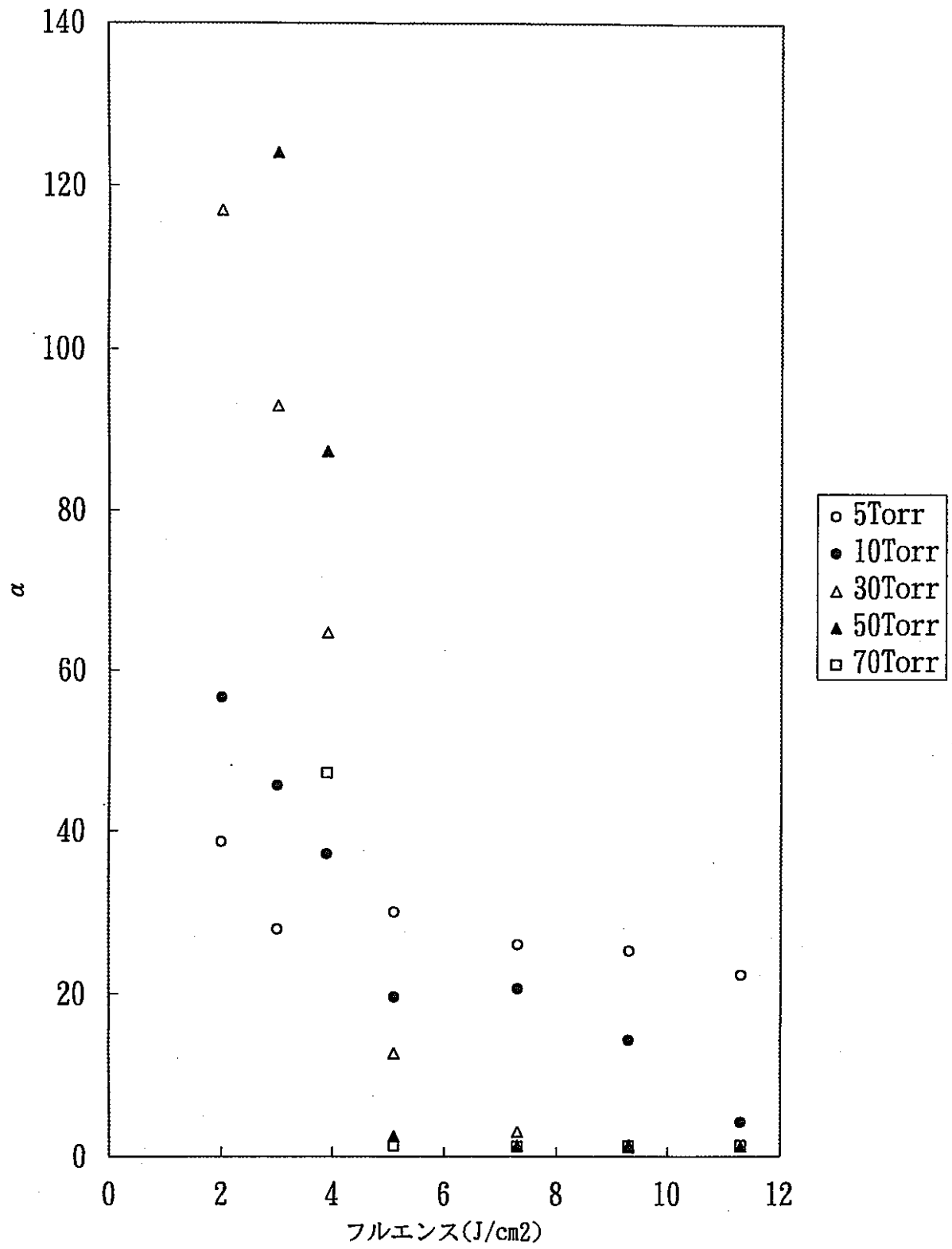


図3. α のフルエンス依存 レーザライン9P(16)

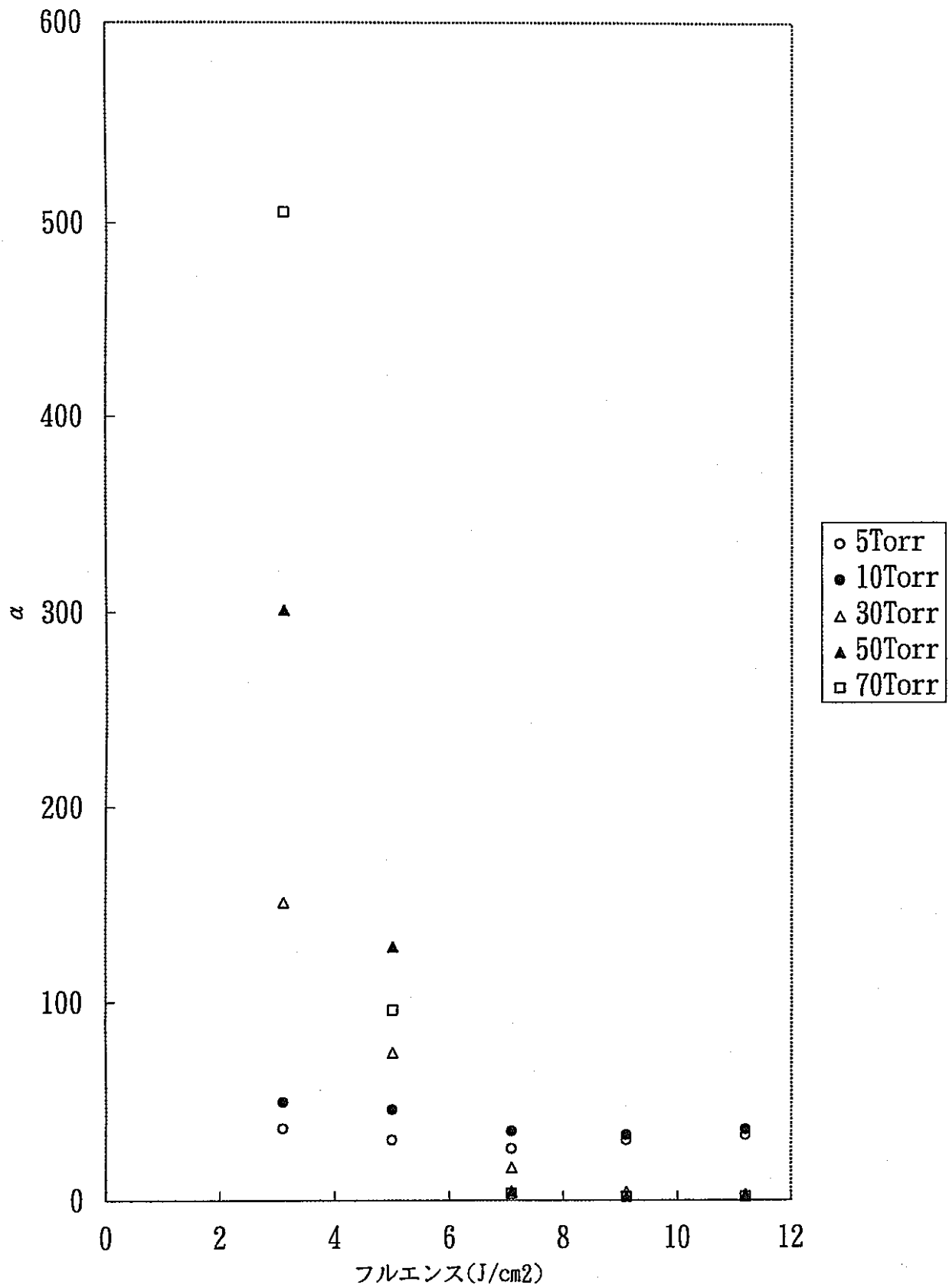


図4. α のフルエンス依存 レーザーライン9P(20)

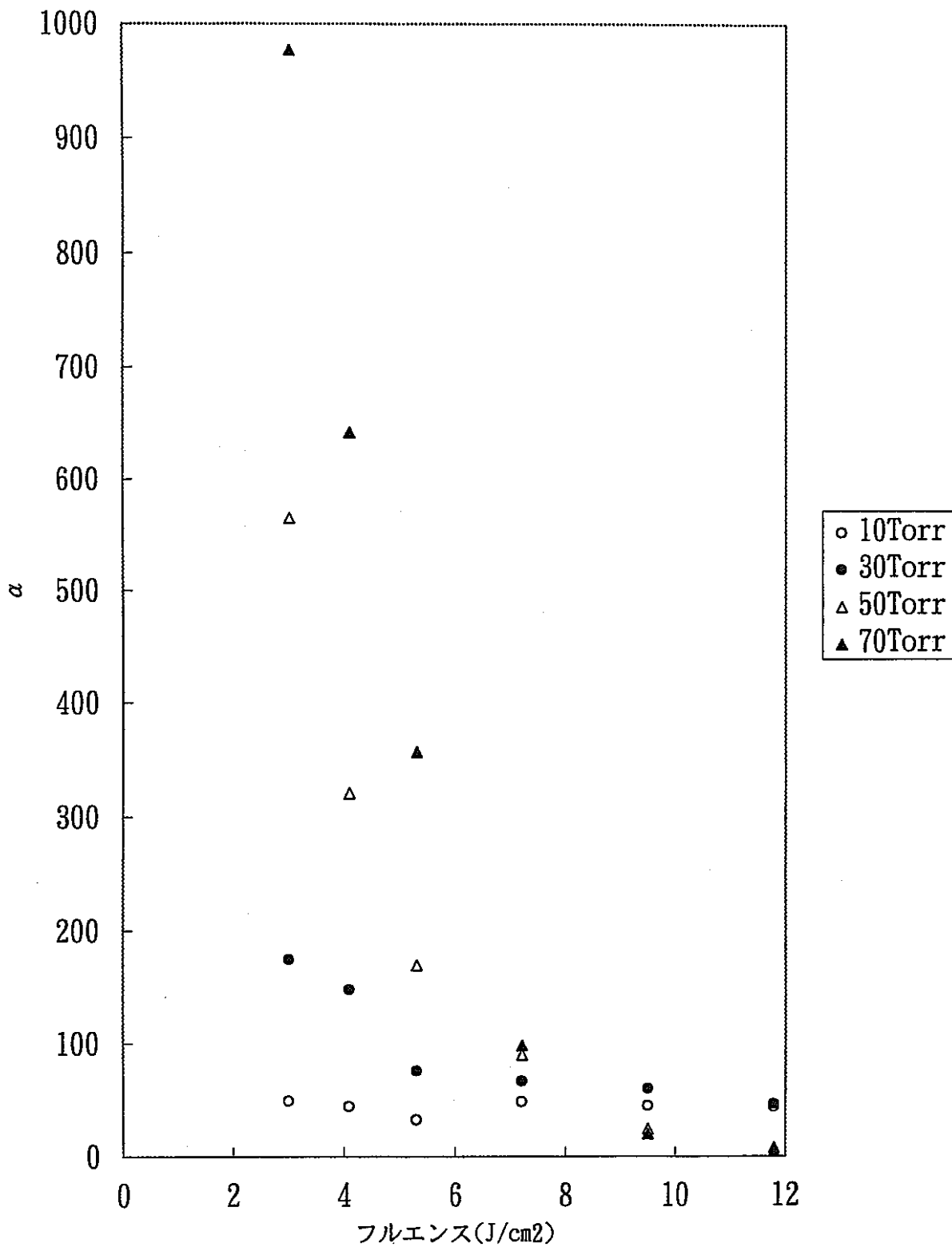


図5. α のフルエンス依存 レーザーライン9P(24)

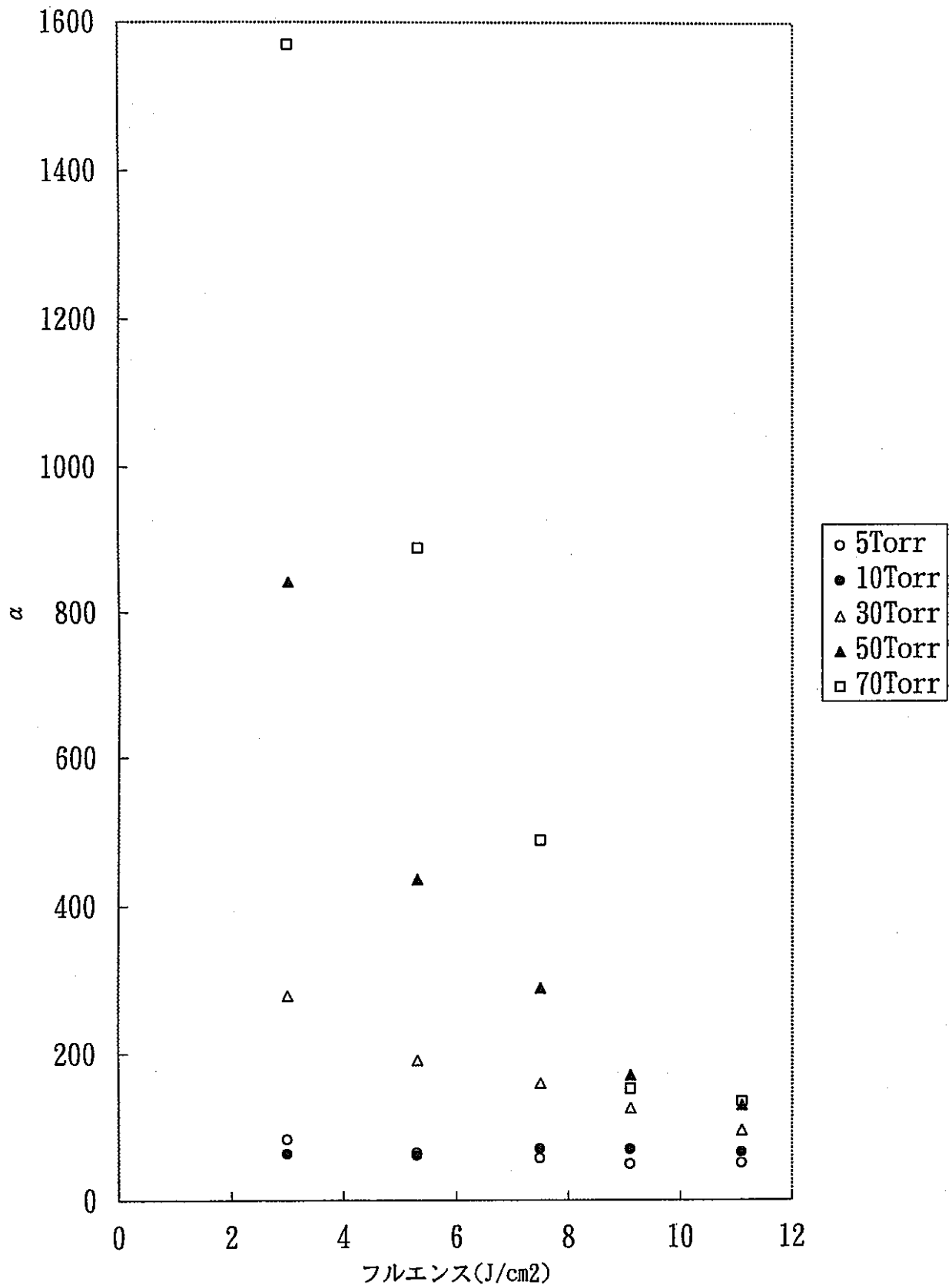


図6. α のフルエンス依存 レーザーライン9P(30)

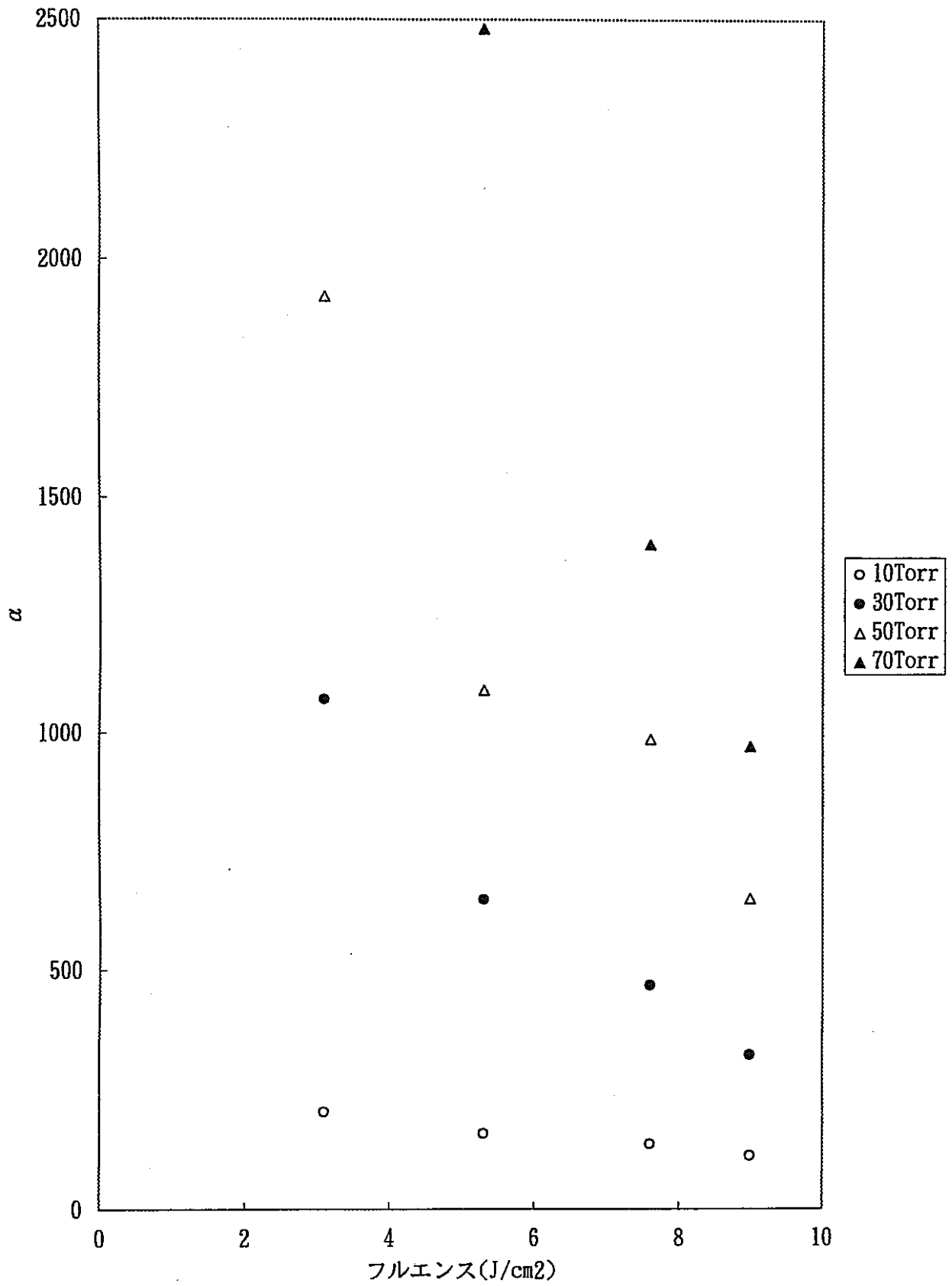


図7. α の圧力依存 レーザーライン9P(10)

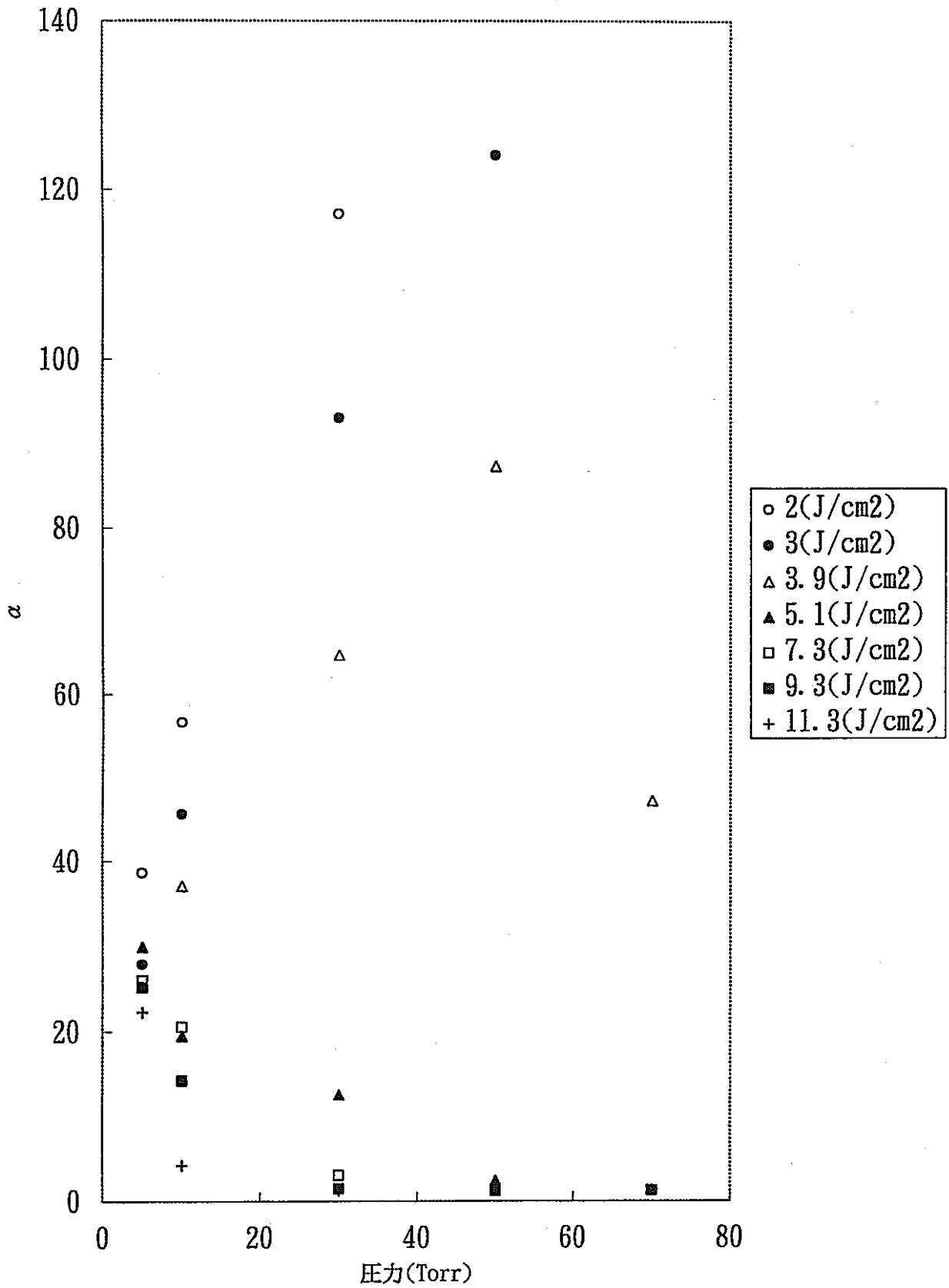


図8. α の圧力依存 レーザーライン9P(16)

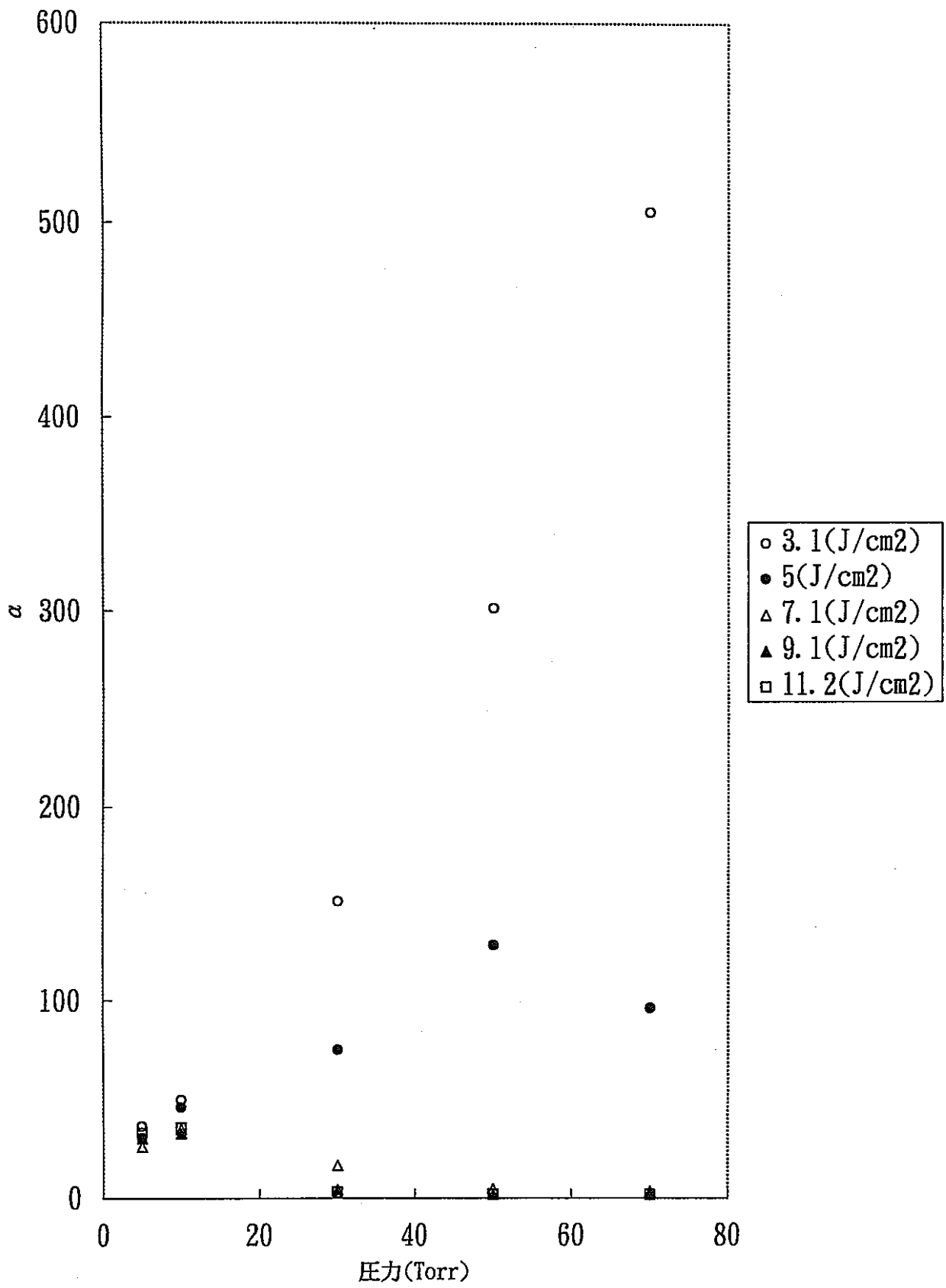


図9. α の圧力依存 レーザーライン9P(20)

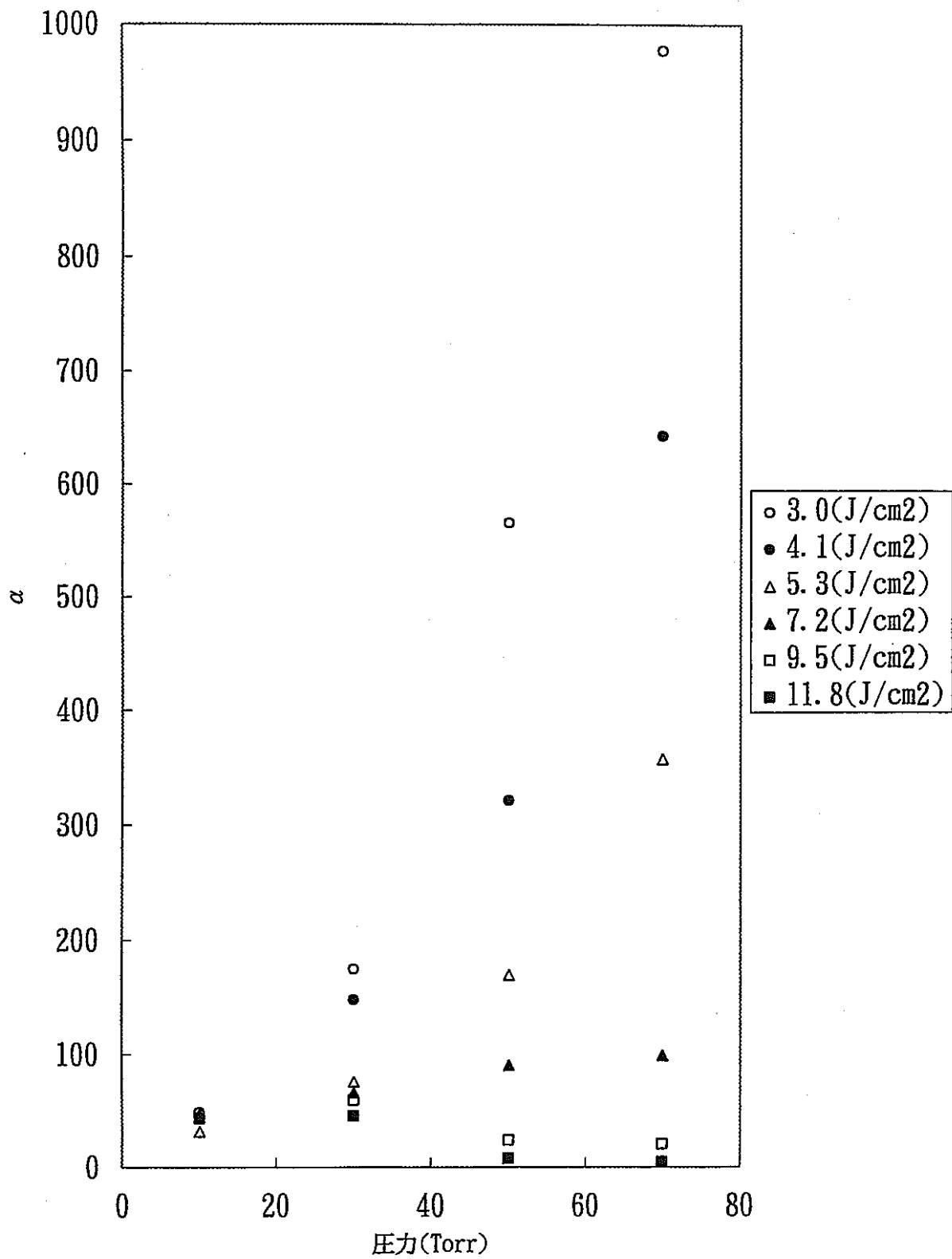


図10. α の圧力依存 レーザーライン9P(24)

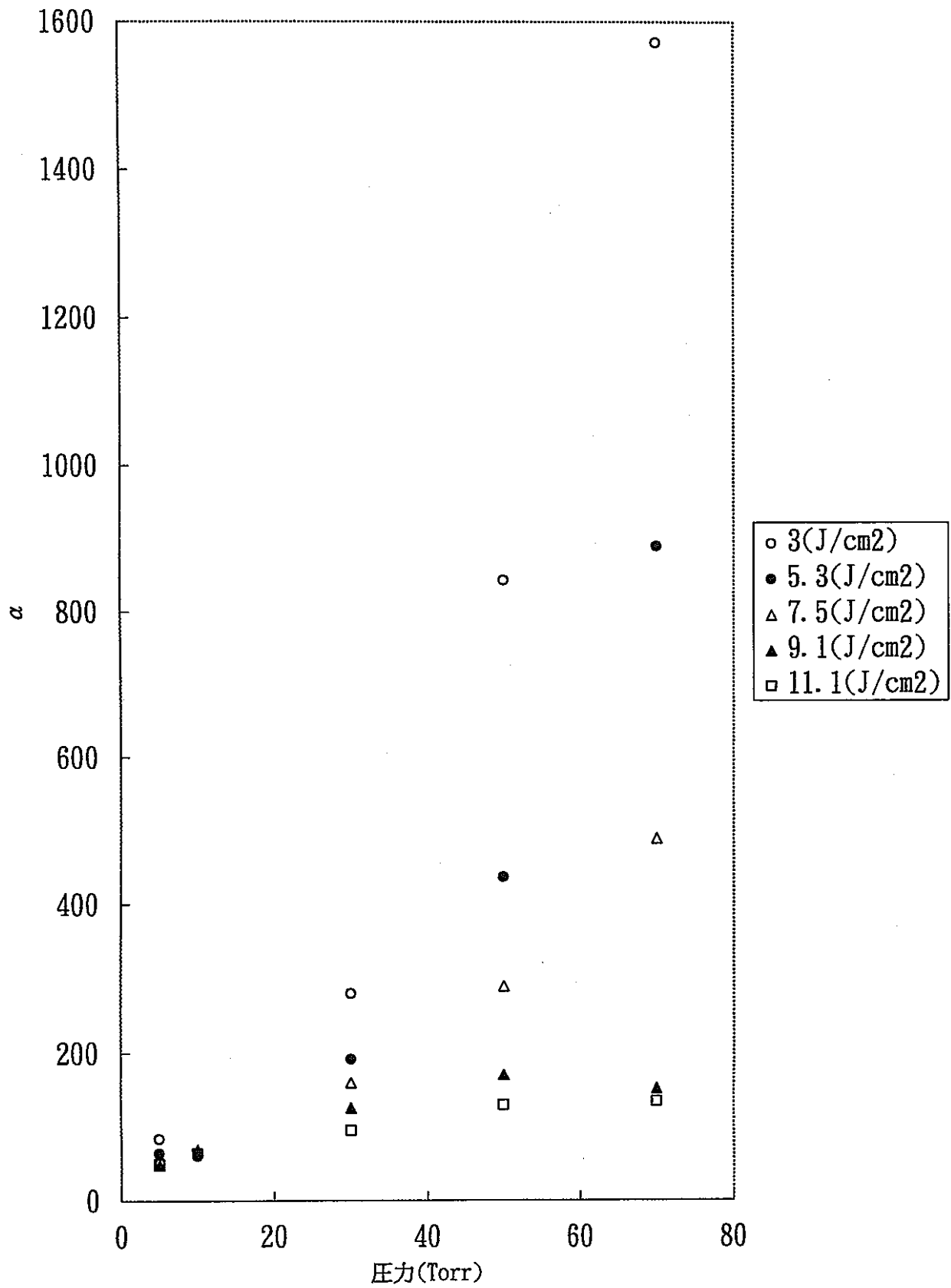


図11. α の圧力依存 レーザーライン9P(30)

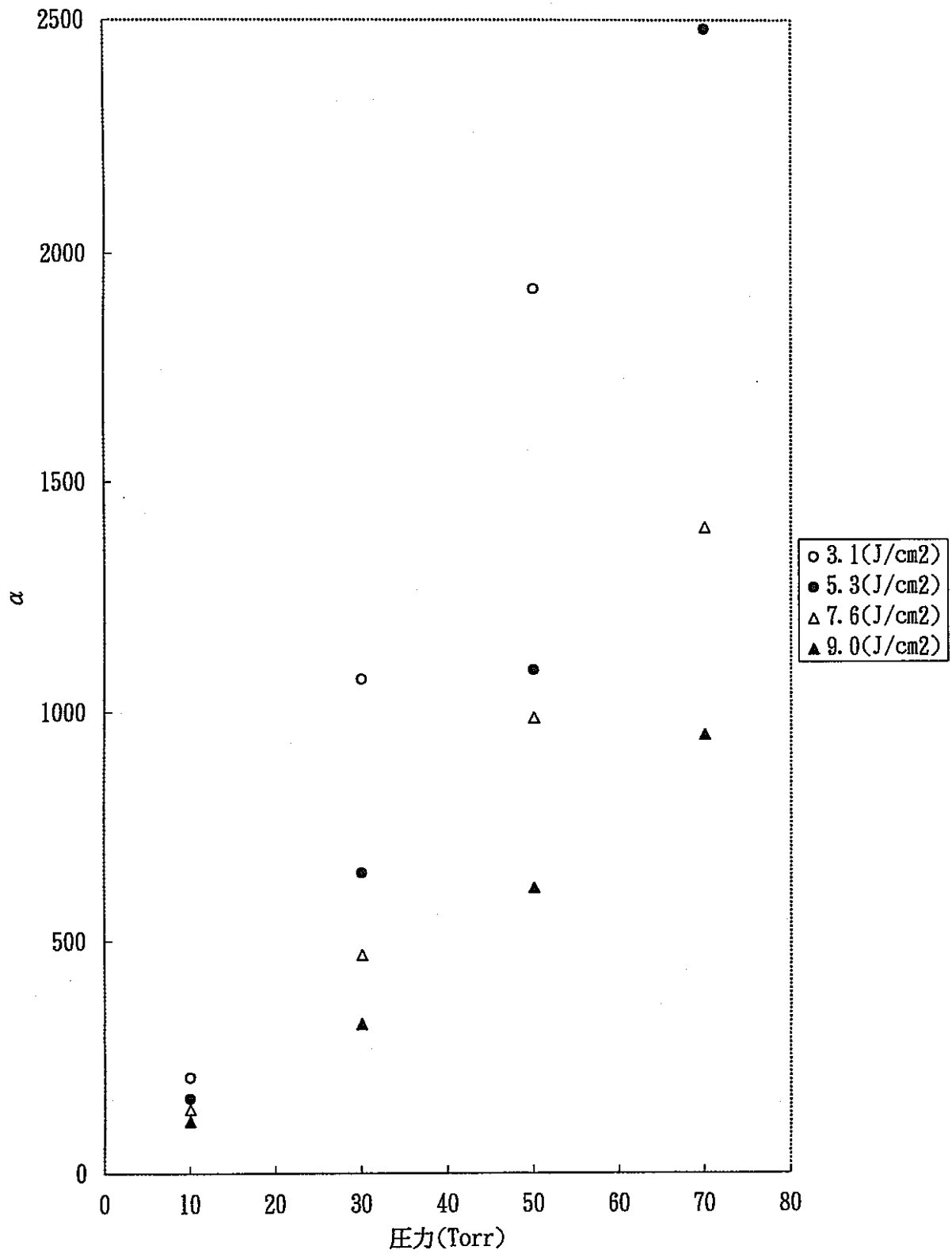


図12. 収量のフルエンス依存 レーザーライン9P(10)

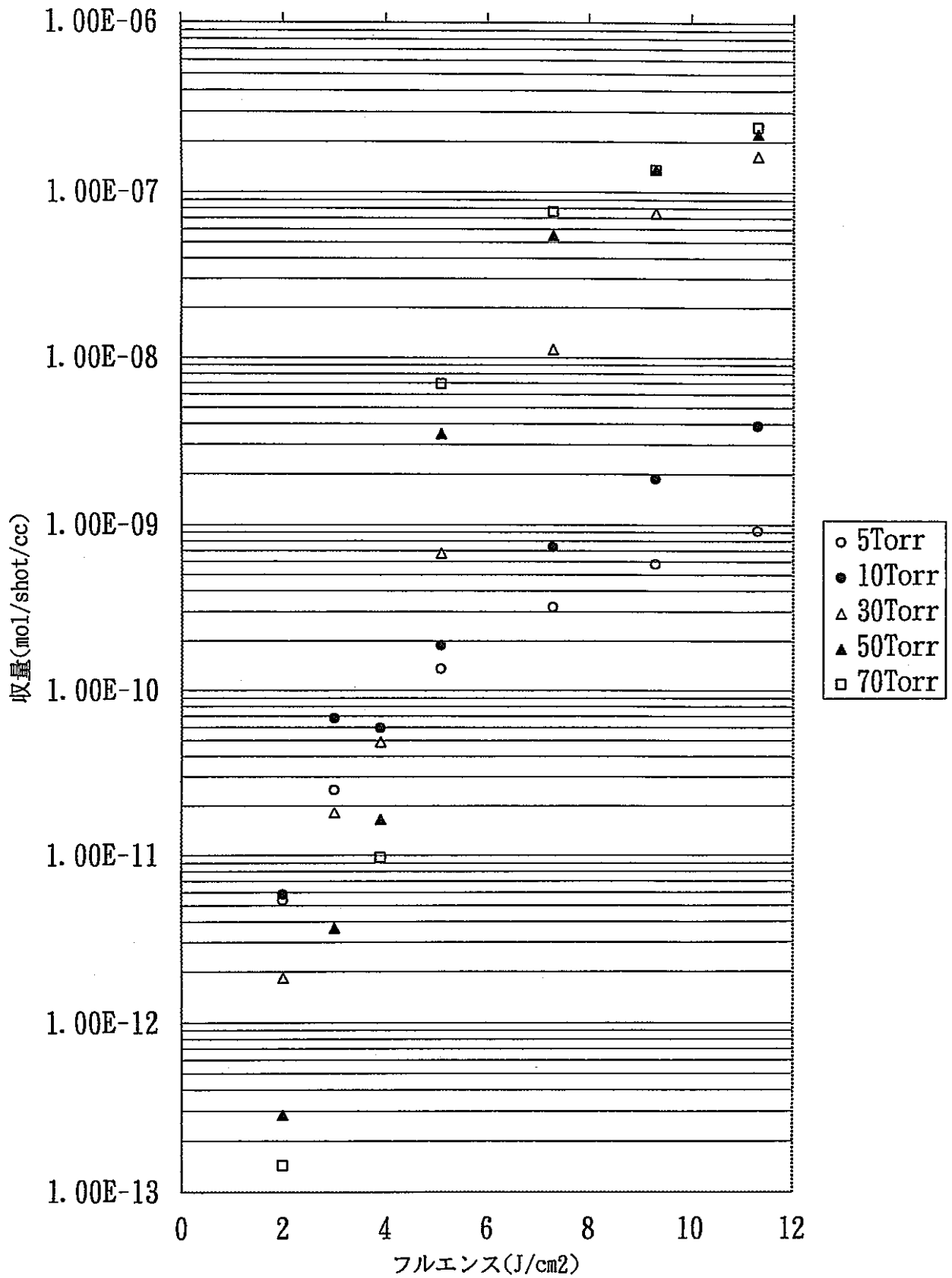


図13. 収量のフルエンス依存 レーザーライン9P(16)

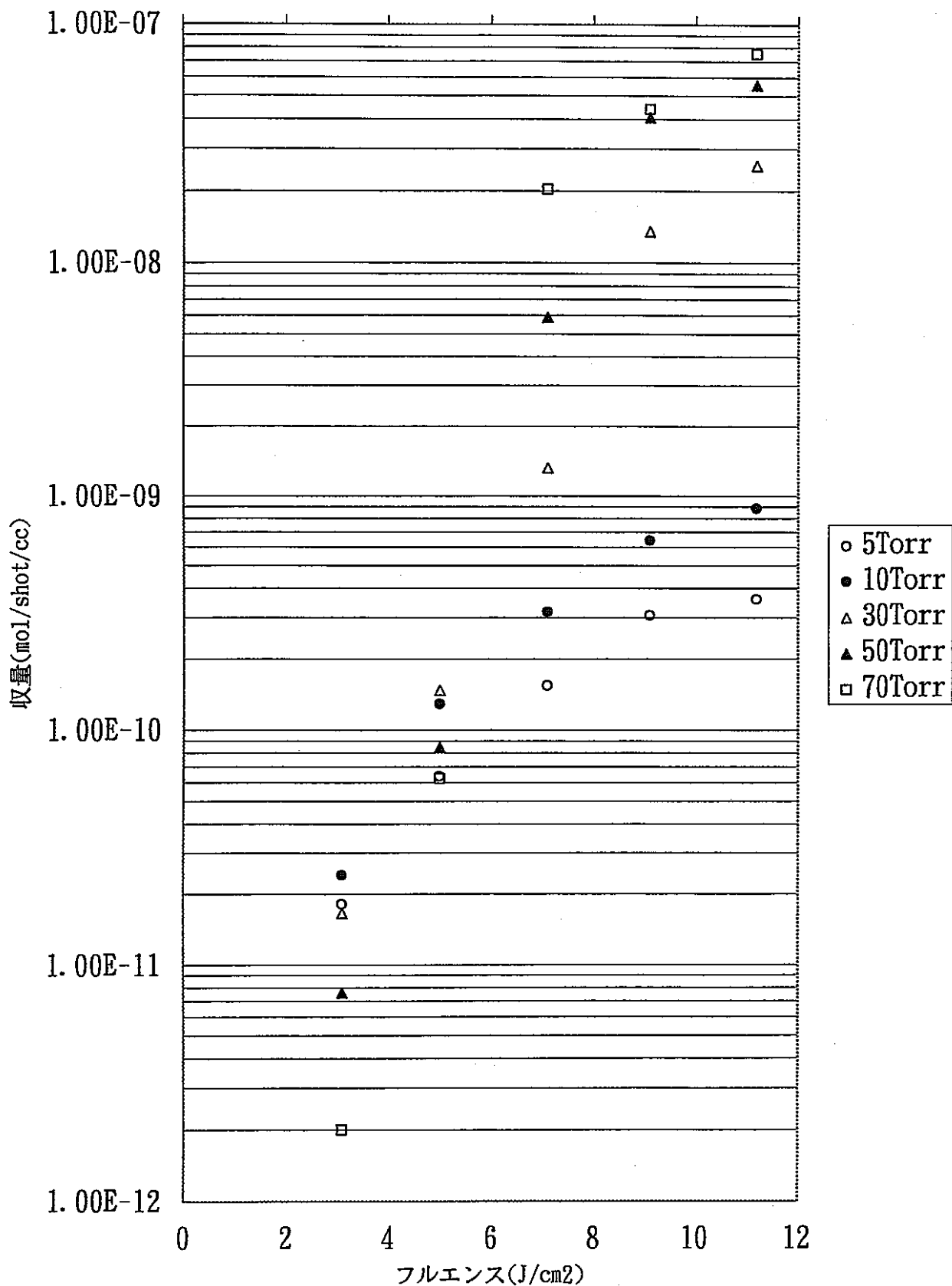


図14. 収量のフルエンス依存 レーザーライン9P(20)

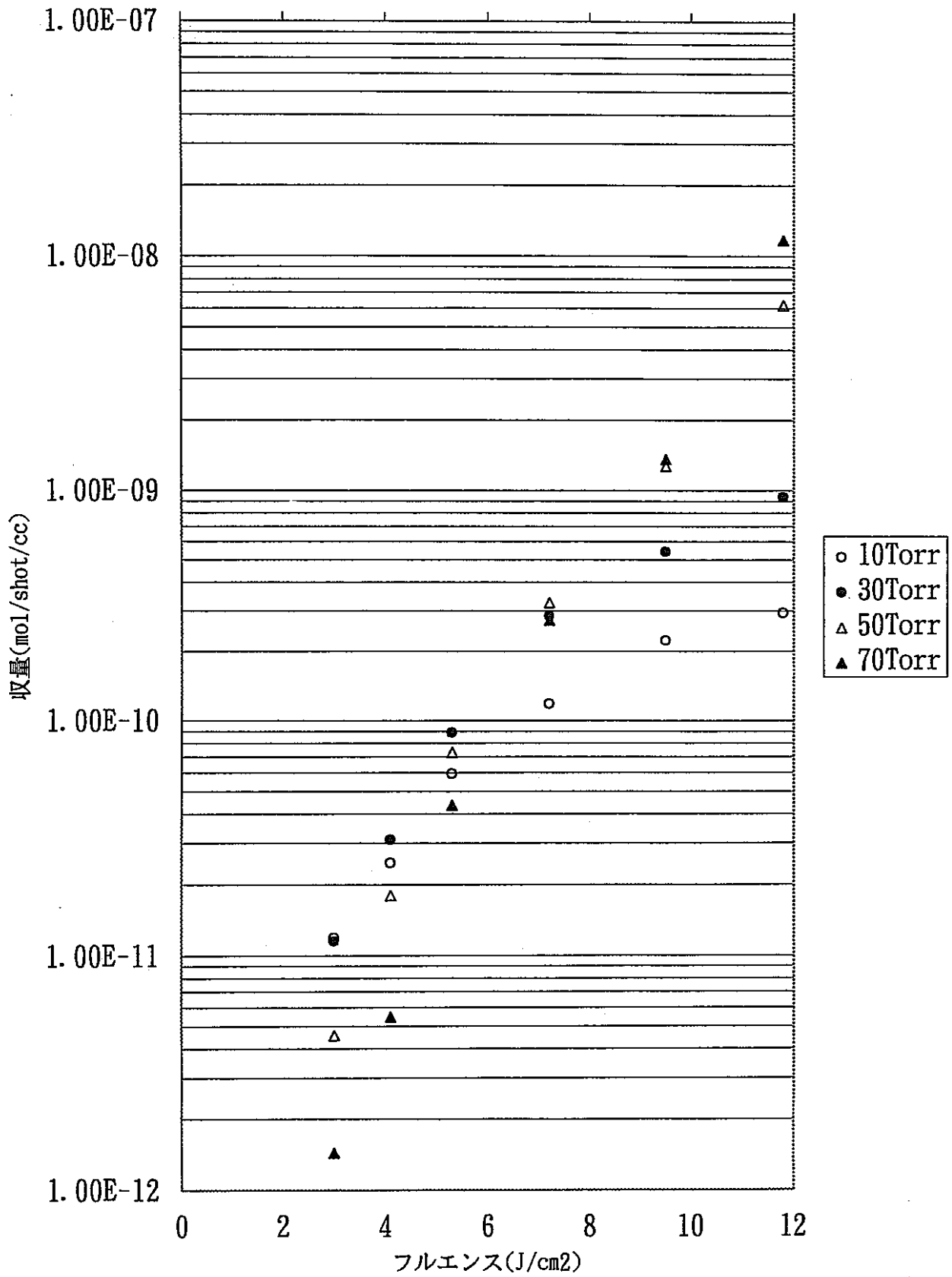


図15. 収量のフルエンス依存 レーザーライン9P(24)

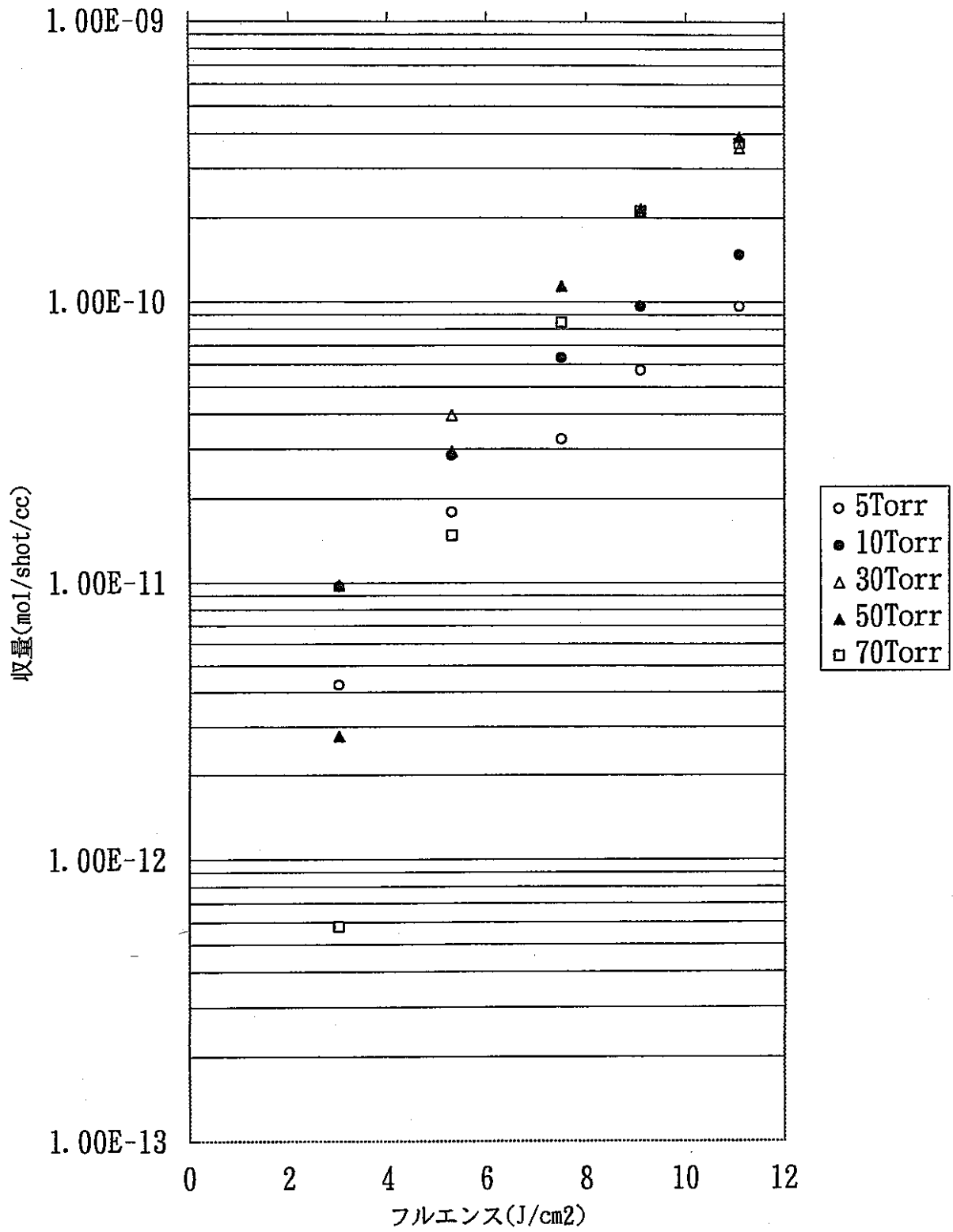


図16. 収量のフルエンス依存 レーザーライン9P(30)

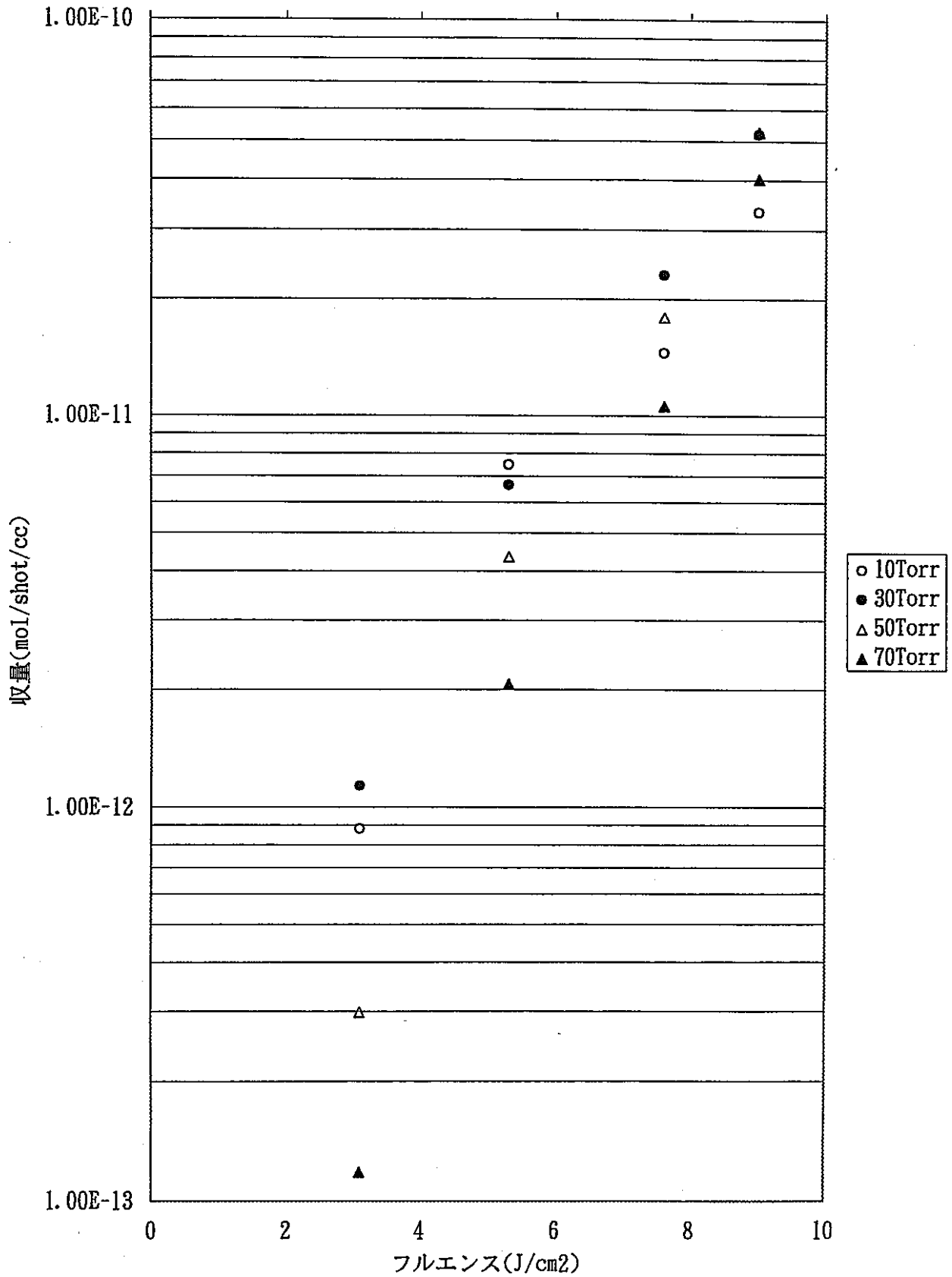


図17. 収量の圧力依存 レーザーライン9P(10)

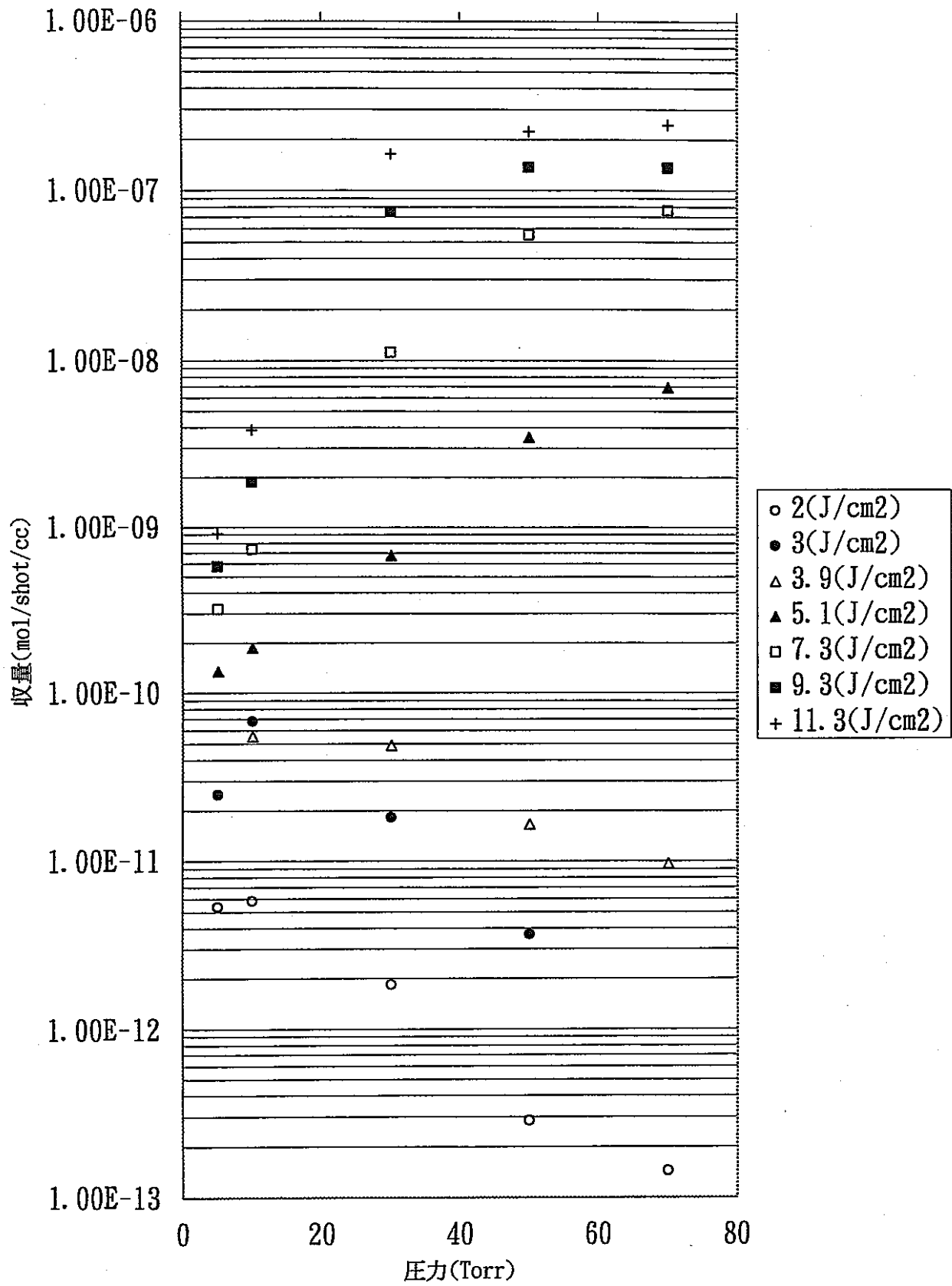


図18. 収量の圧力依存 レーザーライン9P(16)

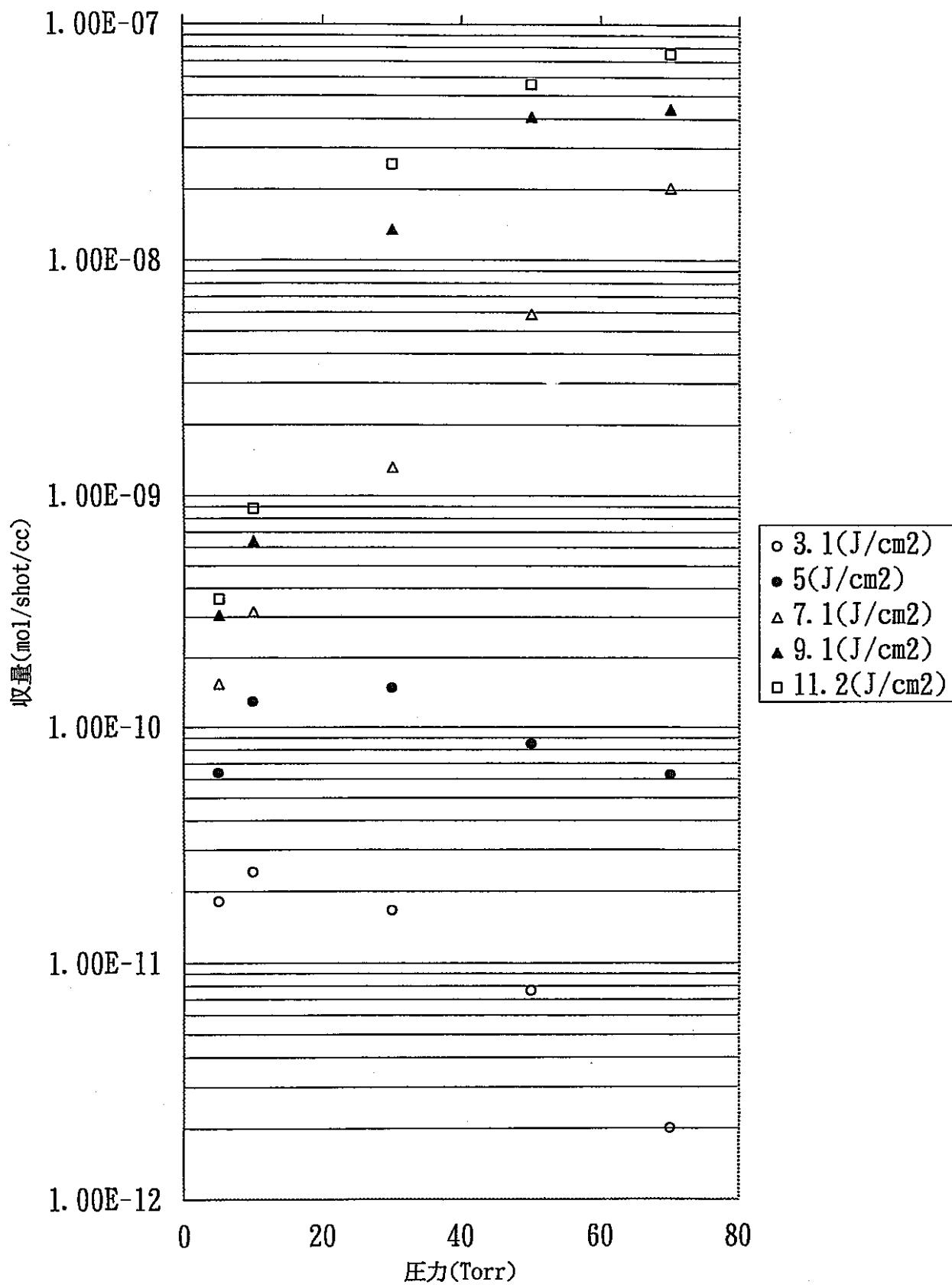


図19. 収量の圧力依存 レーザーライン9P(20)

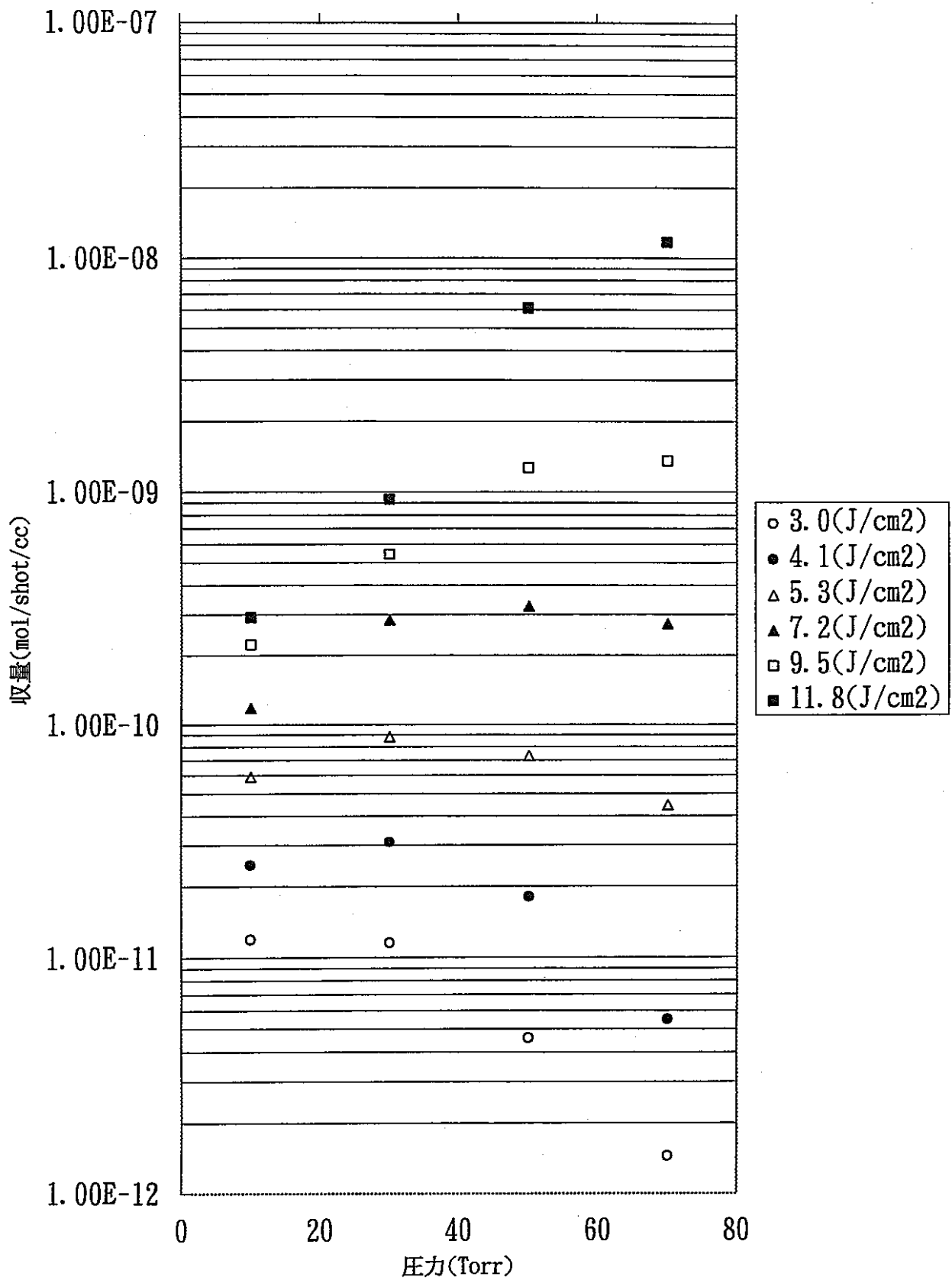


図20. 収量の圧力依存 レーザーライン9P(24)

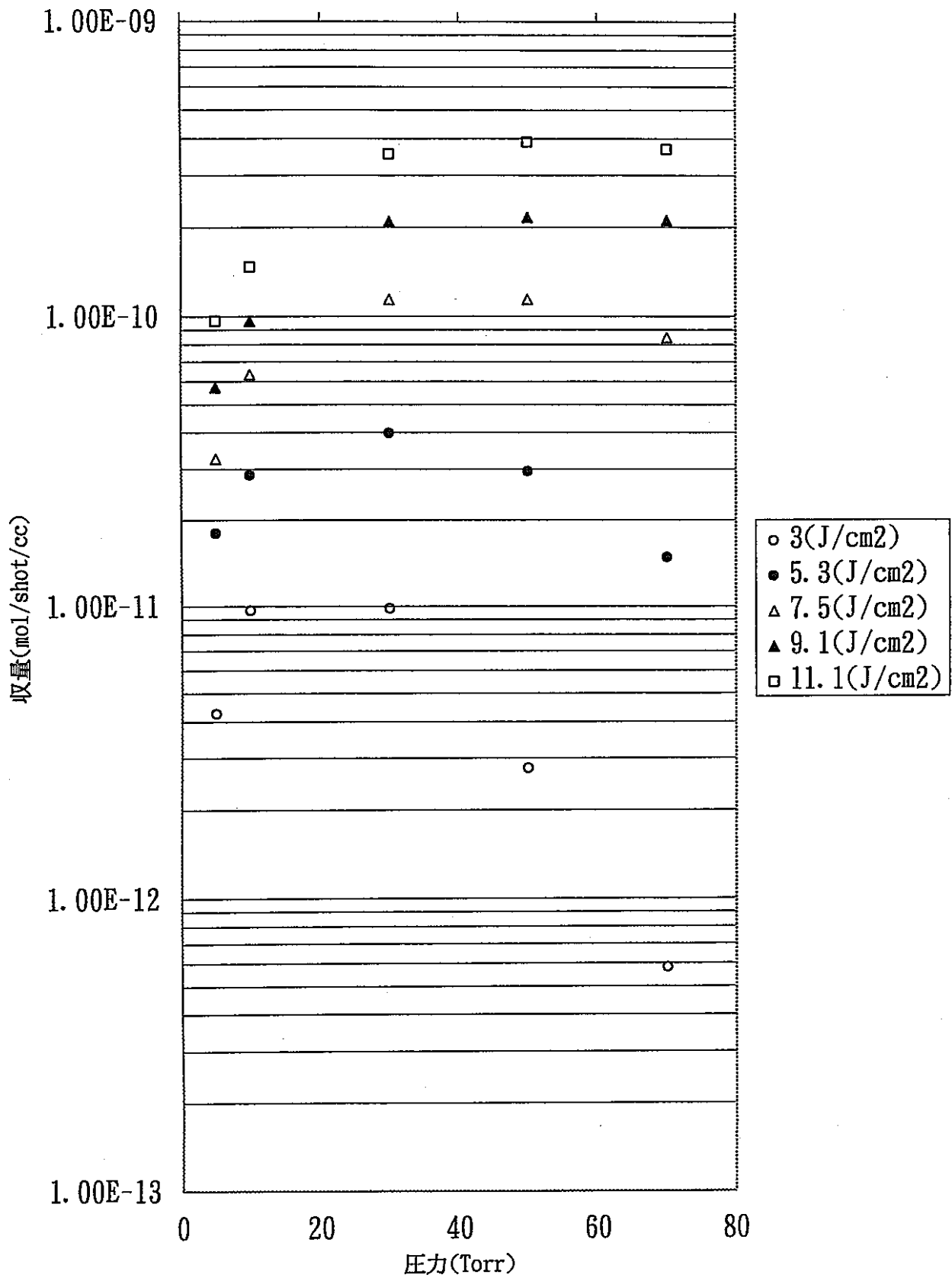


図 2 1. 収量の圧力依存 レーザーライン 9P(30)

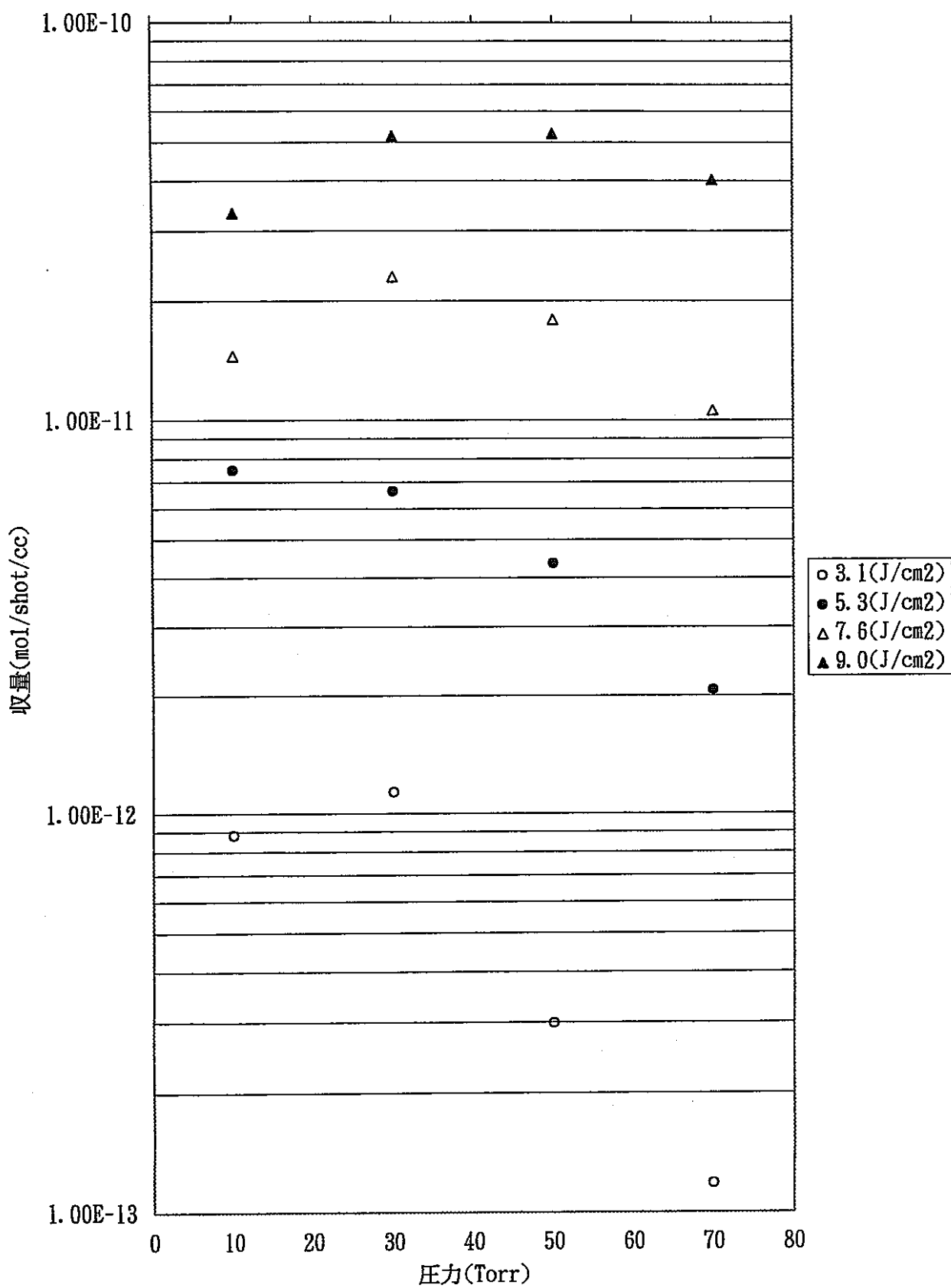


図 2 2. α の波数依存 圧力 10 Torr

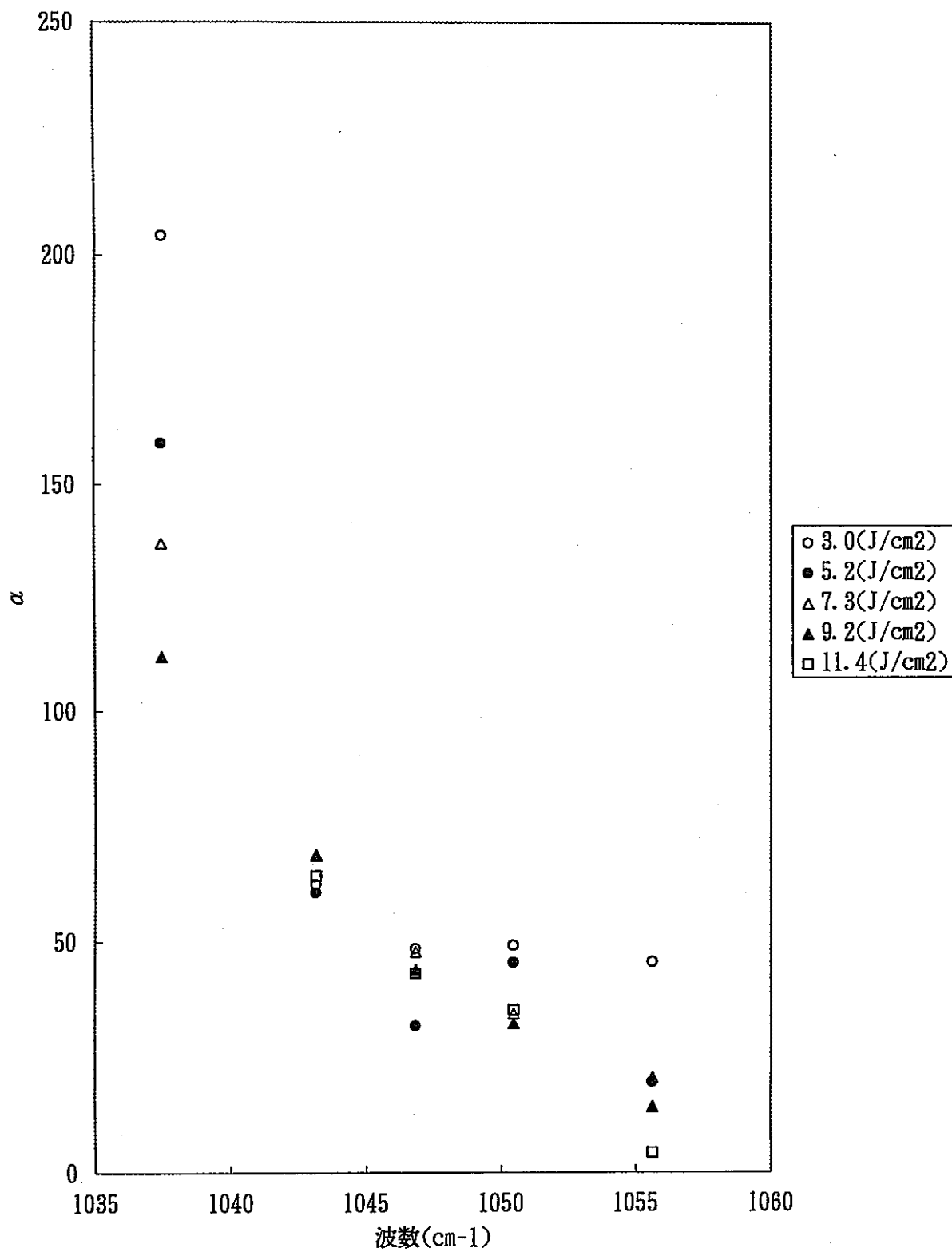


図 2 3. α の波数依存 圧力 30Torr

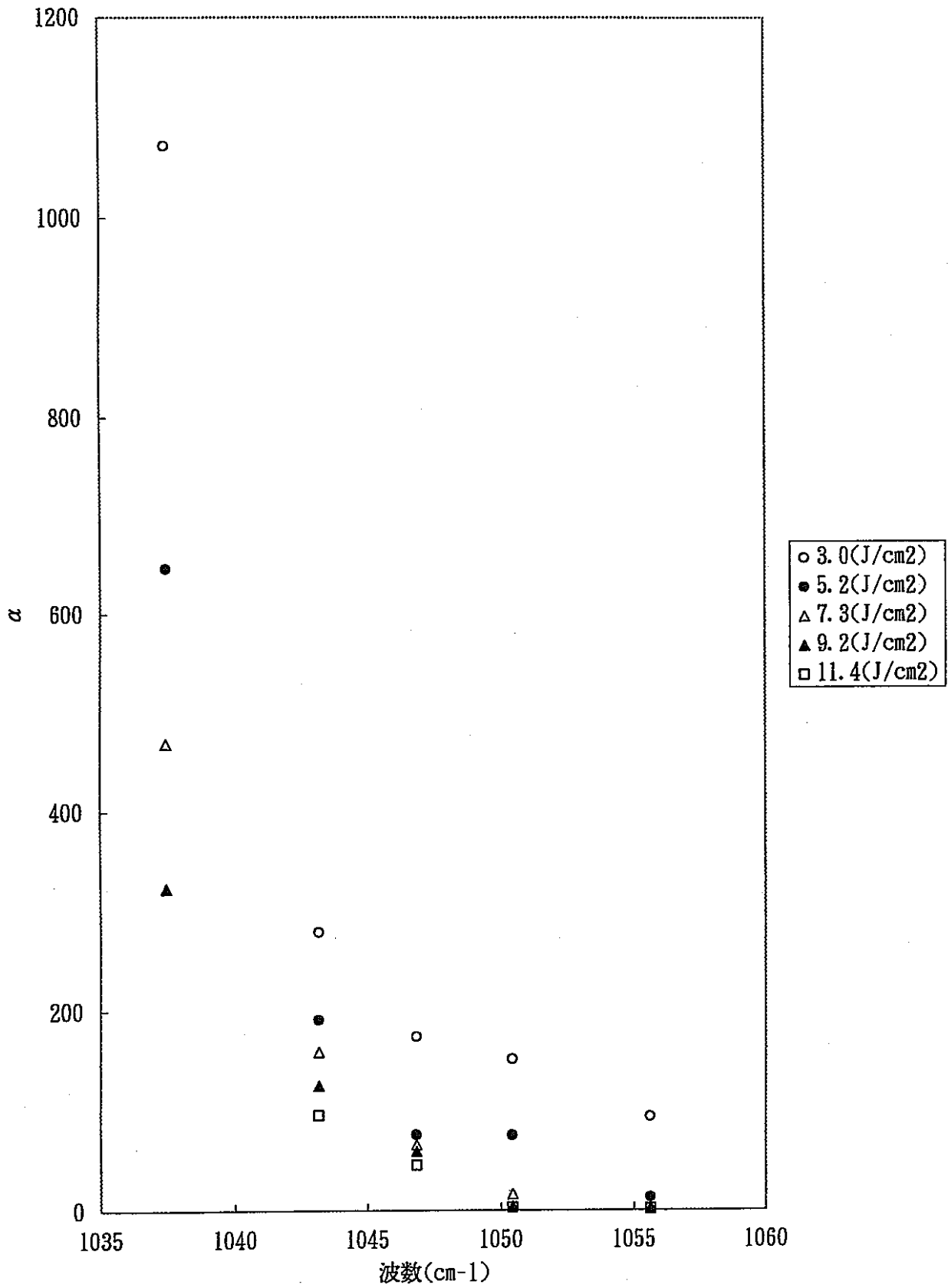


図24. α の波数依存 圧力50Torr

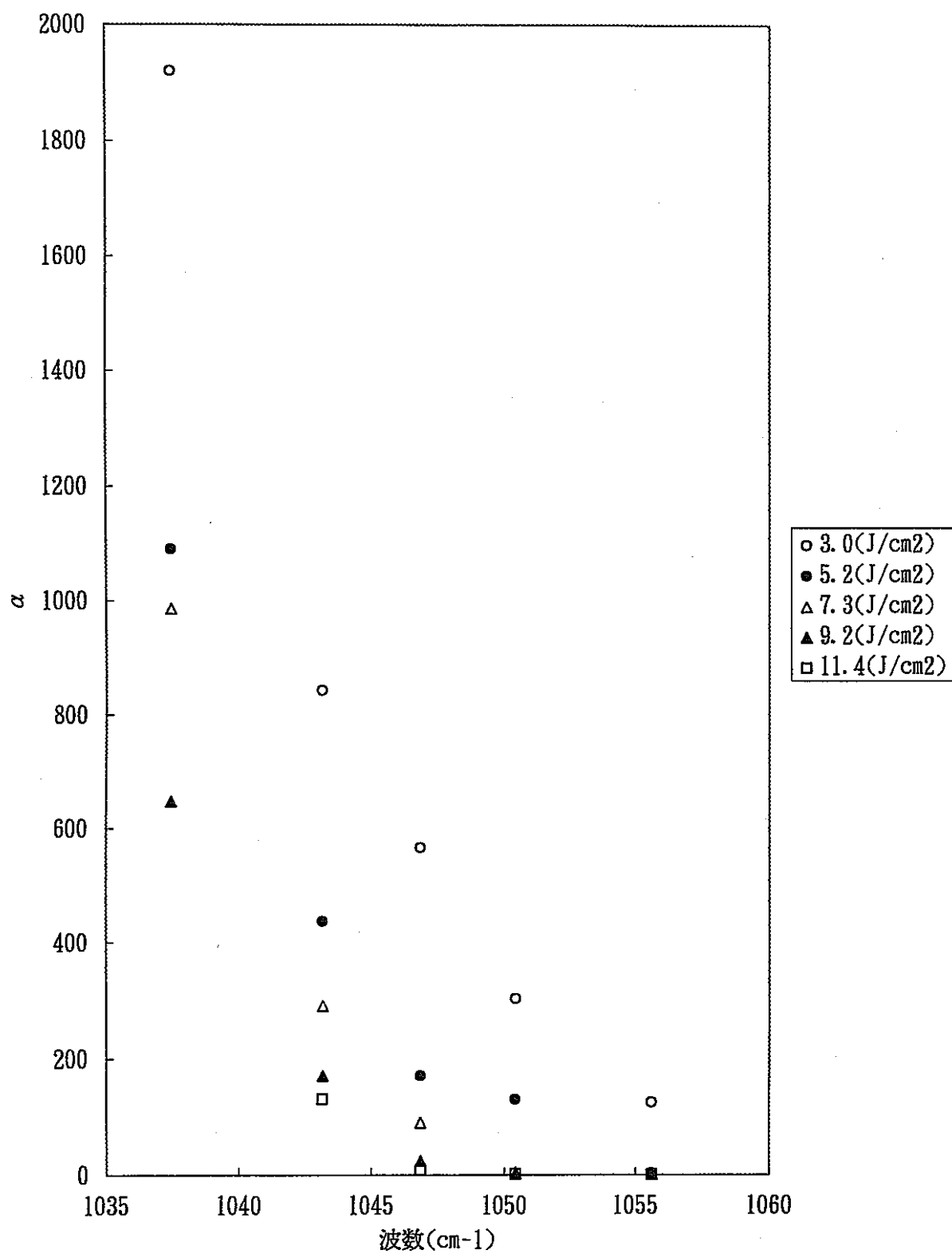


図 25. α の波数依存 圧力70Torr

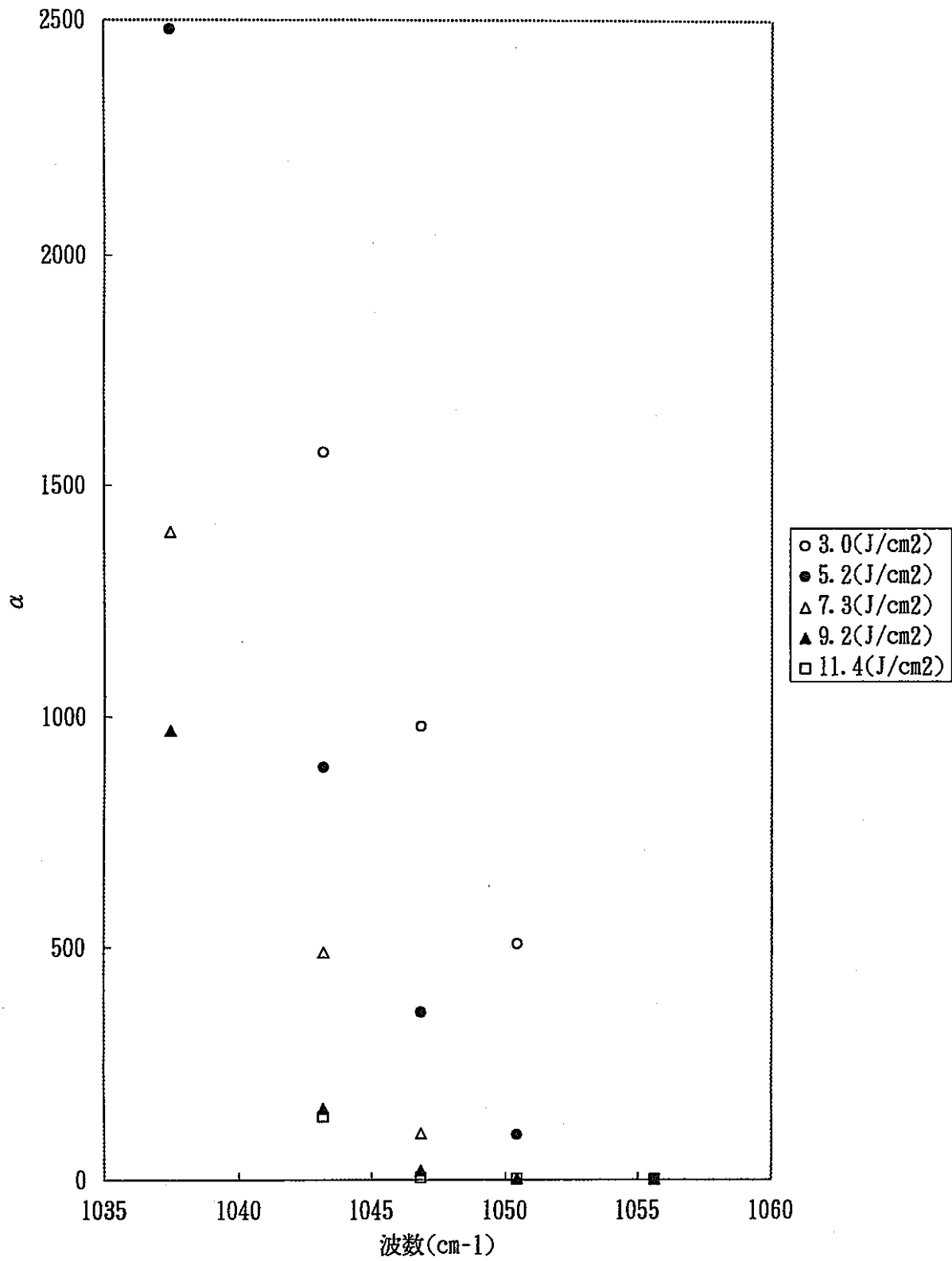


図26. 収量の波数依存 圧力10Torr

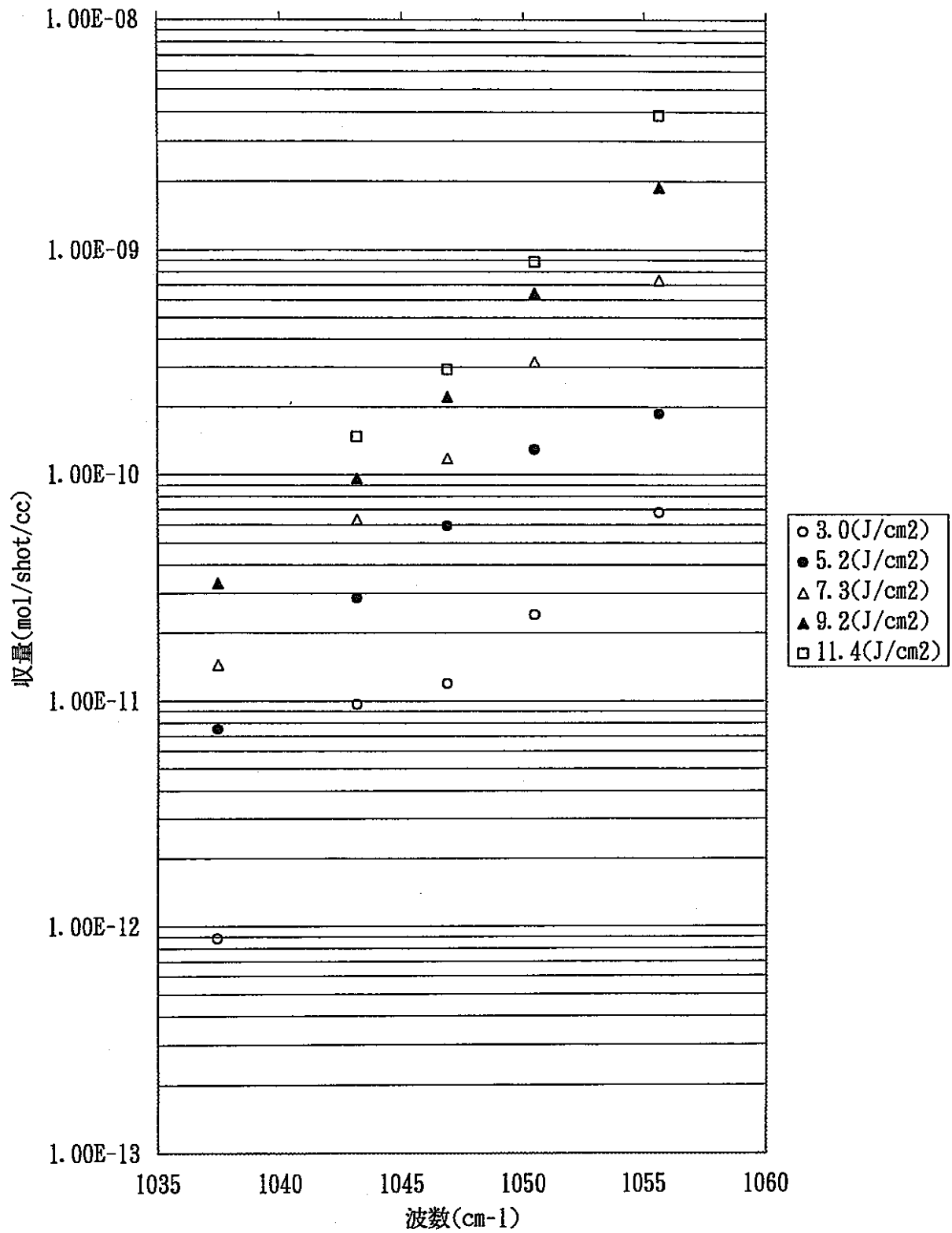


図 27. 収量の波数依存 圧力30Torr

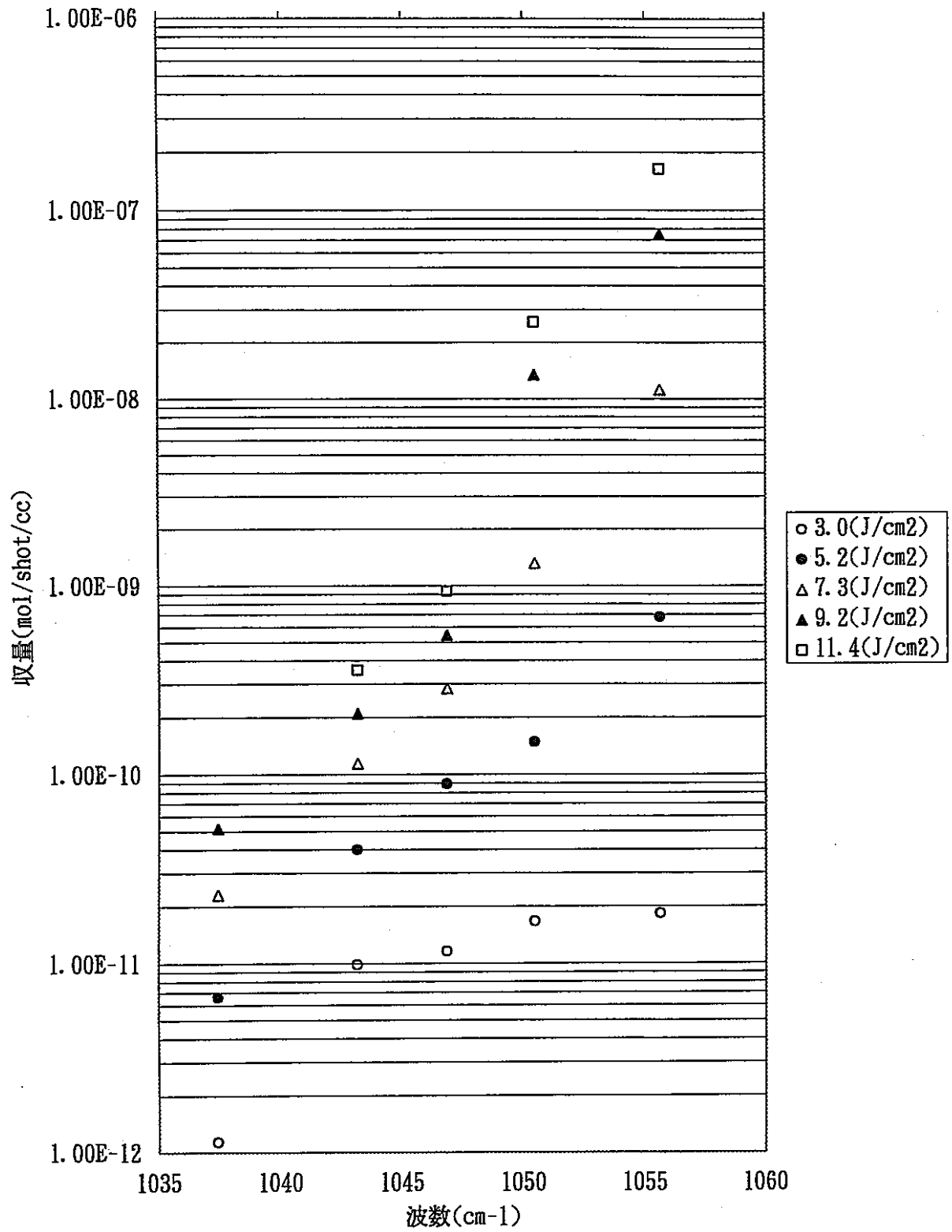


図 2 8. 収量の波数依存 圧力50Torr

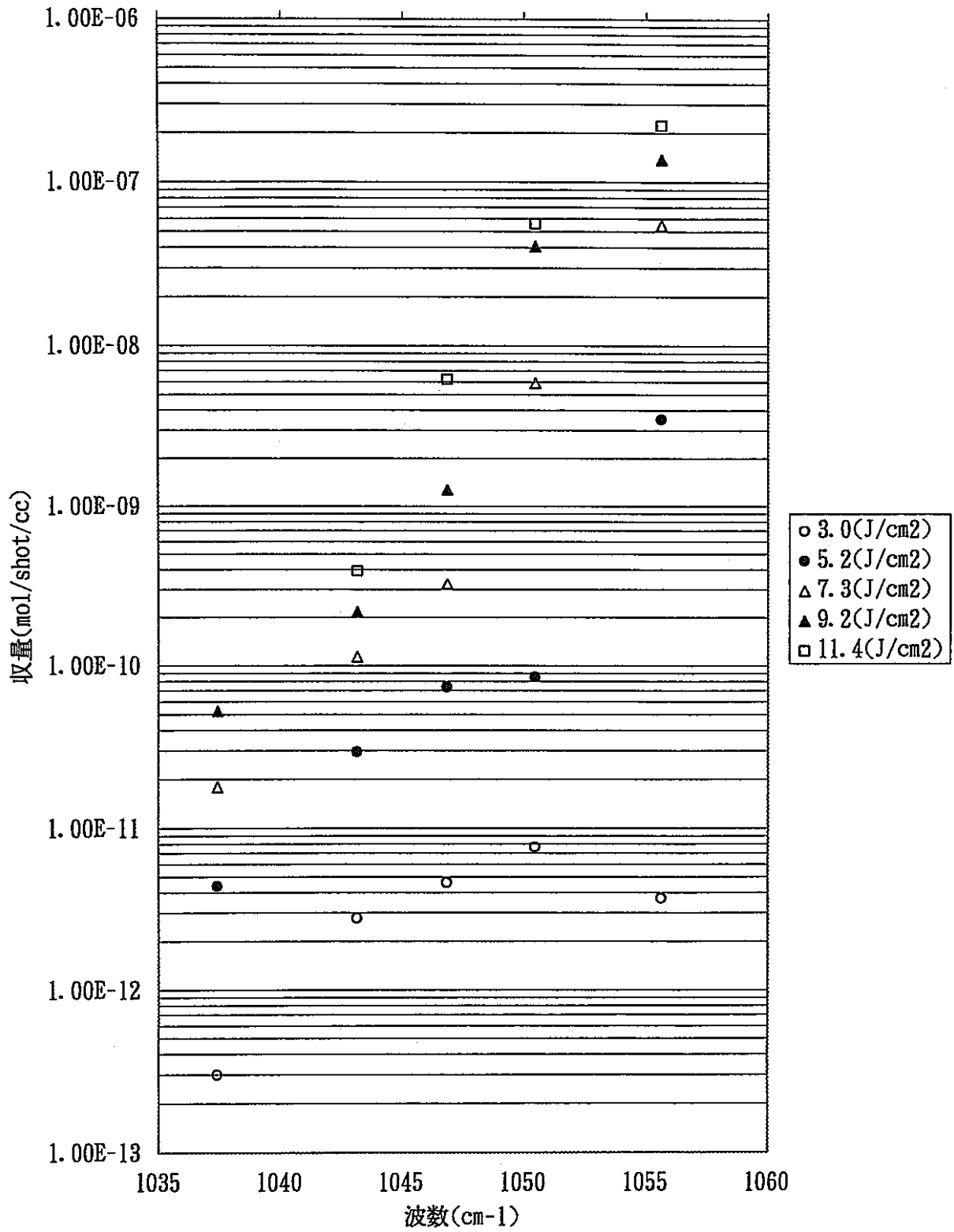


図 2 9. 収量の波数依存 圧力70Torr

