

レーザー除染技術の開発(1)

(レーザー除染に関する調査と基礎試験)

1994年12月

動力炉・核燃料開発事業団
大洗工学センター

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ください。

〒311-13 茨城県東茨城郡大洗町成田町4002

動力炉・核燃料開発事業団

大洗工学センター システム開発推進部・技術管理室

Enquires about copyright and reproduction should be addressed to: Technology Management Section O-arai Engineering Center, Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation 4002 Narita-cho, O-arai-machi, Higashi-Ibaraki, Ibaraki-ken, 311-13, Japan

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

レーザー除染技術の開発 (1)

(レーザー除染に関する調査と基礎試験)

福井 康太*、根本 正信*
谷本 健一*、照沼 誠一*

要 旨

物質表面にレーザー光線を照射すると、表面物質を急速加熱し蒸散させることができる。この現象を用いると、放射性廃棄物の表面汚染層の除去、つまり除染技術への適用が可能である。従って、レーザー光による除染技術の開発を目的に、レーザー除染法に関する調査と、レーザーによる金属表面の除去試験を行い、デコミッショニングへの適用性を検討した。調査及び基礎試験の結果、次の結論を得た。

(1) レーザー除染法に関する調査

YAGレーザーやエキシマレーザーによる金属、コンクリート等の表面層除去に関する研究例がある。レーザー除染の対象物としては、炉内構造物、生体遮蔽壁、廃棄物貯蔵容器等が考えられる。

(2) レーザーによる金属表面の除去試験

ステンレス鋼試験片にパルスYAGレーザービームを線状集光し照射試験を行った。これによりHe雰囲気条件において、平均除去深さは照射レーザーエネルギー密度と照射パルス数の積に対しほぼ線型に増大することが明らかになった。レーザーエネルギー400 mJ、試験片送り速度0.25 mm/sの条件で、1 μ m以上の除去深さが得られた。生成物の回収に関しては、開放型の極く簡便な吸引装置を用いても65 %程度の捕集率が得られた。

(3) 今後の課題

模擬試験片による表面除去特性評価、除去表面の健全性評価、大面積処理技術や生成物回収技術等に関する検討等を行い、除染技術への適用性について評価する必要がある。

Development of Laser Decontamination (Research and Fundamental Experiment)

Y. Fukui*, M. Nemoto*
K. Tanimoto*, S. Terunuma*

Abstract

As the material is irradiated by laser beam, its surface is instantaneously heated and ablation. the contaminant in surface layer of radioactive wastes will be decontaminated, provided that such the physical phenomenon is used of decontamination technique. The applicability with decommissioning of laser decontamination technique are investigated by the research of the associated laser techniques and the removing test with metal surface. The results of the research and the test is as follows.

(1) The research of laser decontamination

On the YAG and the eximer laser beam, there were some study reports of the decontamination, with the metal and the concrete. The structural material, the biological shield, and the waste storage vessel, these objects were regarded as the objects of the laser decontamination.

(2) The removing test of the metal surface by laser beam

The removing performance was examined by irradiating line focused YAG laser beam with the stainless steel surface. The average removal depth rose, in proportion the product of the energy beam density and the number of beam pulse in He atmosphere. The removal depth was obtained more than $1 \mu\text{m}$, in condition of the laser beam energy was 400mJ and the moving velocity of the test piece was 0.25mm/sec. About 65% of the ablation products were collected, by the simple absorbing system of the open type.

(3) Future plan

It is necessary, Examining the removing performance and the variable property of the removal surface, investigating the decontamination technique of the large area and the collecting technique of the ablation products, and so. Thereafter the application to the decontamination will be studied.

* WASTE MANAGEMENT SECTION

目 次

1. 緒 言	1
2. レーザー除染法等に関する調査	2
2.1 調査項目	2
2.2 調査結果	2
2.3 まとめ	3
3. レーザーによる金属表面の除去試験	5
3.1 試験項目	5
3.2 試験装置	5
3.3 試験条件	7
3.4 試験方法	7
3.5 試験結果と考察	9
3.6 まとめ	15
4. 結 言	17
5. 謝 辞	18
図 表	19
付 録	151

図表目次

表3.1	照射ビーム径とエネルギー密度	19
図3.1	試験装置図	20
図3.2	試験装置	21
図3.3	レーザービームモード測定装置図	23
図3.4	レーザービームモード測定装置	25
図3.5	除染深さの定義	27
図3.6	デフォーカス距離の平均除去深さへの影響 (バフ研磨仕上げ試験片、送り速度0.25mm/s)	28
図3.7	デフォーカス距離の最小除去深さへの影響 (バフ研磨仕上げ試験片、送り速度0.25mm/s)	29
図3.8	断面曲線 (バフ研磨試験片、デフォーカス長さ：0mm、送り速度：0.25mm/s)	30
図3.9	断面曲線 (バフ研磨試験片、デフォーカス長さ：5mm、送り速度：0.25mm/s)	31
図3.10	断面曲線 (バフ研磨試験片、デフォーカス長さ：10mm、送り速度：0.25mm/s)	32
図3.11	集光後のレーザービームモード（焦点はずし量：0mm）	33
図3.12	集光後のレーザービームモード（焦点はずし量：5mm）	35
図3.13	集光後のレーザービームモード（焦点はずし量：10mm）	37
図3.14	断面曲線 (酸洗い試験片、デフォーカス長さ：5mm、 送り速度：0.25mm/s、レーザーエネルギー：400mJ)	39
図3.15	照射面へのシールドガスの影響	41
図3.16	SEMによる試験片観察写真（酸洗い試験片、レーザー照射前）	43

図3.17 SEMによる試験片観察写真（酸洗い試験片、Air雰囲気）	45
図3.18 SEMによる試験片観察写真（酸洗い試験片、He雰囲気）	47
図3.19 レーザーエネルギーの平均除去深さへの影響 （バフ研磨仕上げ試験片）	49
図3.20 エネルギー密度とパルス数の積の平均除去深さへの影響 （バフ研磨仕上げ試験片）	50
図3.21 レーザーエネルギーの最大除去深さへの影響 （バフ研磨仕上げ試験片）	51
図3.22 レーザーエネルギーの最小除去深さへの影響 （バフ研磨仕上げ試験片）	52
図3.23 レーザーエネルギーの平均除去深さへの影響 （酸洗い試験片）	53
図3.24 レーザーエネルギーの最大除去深さへの影響 （酸洗い試験片）	54
図3.25 レーザーエネルギーの最小除去深さへの影響 （酸洗い試験片）	55
図3.26 断面曲線 （バフ研磨試験片、ディフォーカス長さ：5mm、送り速度：0.25mm/s）	56
図3.27 断面曲線 （バフ研磨仕上げ試験片、ディフォーカス長さ：5mm、送り速度：0.25mm/s）	57
図3.28 断面曲線 （バフ研磨仕上げ試験片、ディフォーカス長さ：5mm、送り速度：0.5mm/s）	58
図3.29 断面曲線 （バフ研磨仕上げ試験片、ディフォーカス長さ：5mm、送り速度：0.5mm/s）	59
図3.30 断面曲線 （バフ研磨仕上げ試験片、ディフォーカス長さ：5mm、送り速度：1.0mm/s）	60

図3.31 断面曲線	61
(バフ研磨仕上げ試験片、ディフォーカス長さ：5mm、送り速度：1.0mm/s)	
図3.32 断面曲線	62
(酸洗い試験片、ディフォーカス長さ：5mm、送り速度：0.25mm/s)	
図3.33 断面曲線	63
(酸洗い試験片、ディフォーカス長さ：5mm、送り速度：0.5mm/s)	
図3.34 断面曲線	64
(酸洗い試験片、ディフォーカス長さ：5mm、送り速度：1.0mm/s)	
図3.35 レーザー照射後の外観写真 (バフ研磨仕上げ試験片)	65
図3.36 レーザー照射後の外観写真 (酸洗い試験片)	65
図3.37 レーザーエネルギーの試験片重量変化への影響	67
(バフ研磨試験片)	
図3.38 レーザーエネルギーの試験片重量変化への影響	68
(酸洗い試験片)	
図3.39 レーザーエネルギーの重量変化計算値への影響	69
(バフ研磨試験片、平均除去深さ×7mm×120mm×7.93mg/mm ²)	
図3.40 SEMによる試験片観察写真 (酸洗い試験片、レーザー照射前)	71
図3.41 SEMによる試験片観察写真	73
(酸洗い試験片、送り速度：0.25mm/s、エネルギー：50mJ)	
図3.42 SEMによる試験片観察写真	75
(酸洗い試験片、送り速度：0.25mm/s、エネルギー：100mJ)	
図3.43 SEMによる試験片観察写真	77
(酸洗い試験片、送り速度：0.25mm/s、エネルギー：200mJ)	
図3.44 SEMによる試験片観察写真	79
(酸洗い試験片、送り速度：0.25mm/s、エネルギー：400mJ)	
図3.45 SEMによる試験片観察写真	81
(酸洗い試験片、送り速度：0.5mm/s、エネルギー：50mJ)	

図3.46 SEMによる試験片観察写真	83
(酸洗い試験片、送り速度：0.5mm/s、エネルギー：100mJ)	
図3.47 SEMによる試験片観察写真	85
(酸洗い試験片、送り速度：0.5mm/s、エネルギー：200mJ)	
図3.48 SEMによる試験片観察写真	87
(酸洗い試験片、送り速度：0.5mm/s、エネルギー：400mJ)	
図3.49 SEMによる試験片観察写真	89
(酸洗い試験片、送り速度：1.0mm/s、エネルギー：50mJ)	
図3.50 SEMによる試験片観察写真	91
(酸洗い試験片、送り速度：1.0mm/s、エネルギー：100mJ)	
図3.51 SEMによる試験片観察写真	93
(酸洗い試験片、送り速度：1.0mm/s、エネルギー：200mJ)	
図3.52 SEMによる試験片観察写真	95
(酸洗い試験片、送り速度：1.0mm/s、エネルギー：400mJ)	
図3.53 SEMによる試験片観察写真	97
(バフ研磨仕上げ試験片、レーザー照射前)	
図3.54 SEMによる試験片観察写真	99
(バフ研磨仕上げ試験片、送り速度：0.25mm/s、エネルギー：50mJ)	
図3.55 SEMによる試験片観察写真	101
(バフ研磨仕上げ試験片、送り速度：0.25mm/s、エネルギー：100mJ)	
図3.56 SEMによる試験片観察写真	103
(バフ研磨仕上げ試験片、送り速度：0.25mm/s、エネルギー：200mJ)	
図3.57 SEMによる試験片観察写真	105
(バフ研磨仕上げ試験片、送り速度：0.25mm/s、エネルギー：400mJ)	
図3.58 SEMによる試験片観察写真	107
(バフ研磨仕上げ試験片、送り速度：0.5mm/s、エネルギー：50mJ)	

図3.59 SEMによる試験片観察写真	109
(バフ研磨仕上げ試験片、送り速度：0.5mm/s、エネルギー：100mJ)	
図3.60 SEMによる試験片観察写真	111
(バフ研磨仕上げ試験片、送り速度：0.5mm/s、エネルギー：200mJ)	
図3.61 SEMによる試験片観察写真	113
(バフ研磨仕上げ試験片、送り速度：0.5mm/s、エネルギー：400mJ)	
図3.62 SEMによる試験片観察写真	115
(バフ研磨仕上げ試験片、送り速度：1.0mm/s、エネルギー：50mJ)	
図3.63 SEMによる試験片観察写真	117
(バフ研磨仕上げ試験片、送り速度：1.0mm/s、エネルギー：100mJ)	
図3.64 SEMによる試験片観察写真	119
(バフ研磨仕上げ試験片、送り速度：1.0mm/s、エネルギー：200mJ)	
図3.65 SEMによる試験片観察写真	121
(バフ研磨仕上げ試験片、送り速度：1.0mm/s、エネルギー：400mJ)	
図3.66 レーザー照射による試験片表面パターンの発生原因	123
PNC TN9410 95-041	
図3.67 光学顕微鏡による試験片観察写真	125
(酸洗い試験片、レーザー照射前)	
図3.68 光学顕微鏡による試験片観察写真	125
(酸洗い試験片、送り速度：0.25mm/s、エネルギー：100mJ)	
図3.69 光学顕微鏡による試験片観察写真	127
(酸洗い試験片、送り速度：0.25mm/s、エネルギー：400mJ)	
図3.70 光学顕微鏡による試験片観察写真	127
(酸洗い試験片、送り速度：1.0mm/s、エネルギー：400mJ)	
図3.71 光学顕微鏡による試験片観察写真	129
(バフ研磨仕上げ試験片、レーザー照射前)	
図3.72 光学顕微鏡による試験片観察写真	129
(バフ研磨仕上げ試験片、送り速度：0.25mm/s、エネルギー：100mJ)	

図3.73	光学顕微鏡による試験片観察写真	131
	(バフ研磨仕上げ試験片、送り速度：0.25mm/s、エネルギー：400mJ)	
図3.74	光学顕微鏡による試験片観察写真	131
	(バフ研磨仕上げ試験片、送り速度：1.0mm/s、エネルギー：400mJ)	
図3.75	SEMによる生成物観察写真	133
	(レーザー照射前)	
図3.76	SEMによる生成物観察写真	135
	(酸洗い試験片、送り速度：0.25mm/s、エネルギー：100mJ)	
図3.77	SEMによる生成物観察写真	137
	(酸洗い試験片、送り速度：0.25mm/s、エネルギー：200mJ)	
図3.78	SEMによる生成物観察写真	139
	(酸洗い試験片、送り速度：0.25mm/s、エネルギー：400mJ)	
図3.79	SEMによる生成物観察写真	141
	(バフ研磨仕上げ試験片、送り速度：0.25mm/s、エネルギー：100mJ)	
図3.80	SEMによる生成物観察写真	143
	(バフ研磨仕上げ試験片、送り速度：0.25mm/s、エネルギー：200mJ)	
図3.81	SEMによる生成物観察写真	145
	(バフ研磨仕上げ試験片、送り速度：0.25mm/s、エネルギー：400mJ)	
図3.82	レーザーエネルギーのろ紙重量変化への影響	147
	(酸洗い試験片)	
図3.83	レーザーエネルギーのろ紙重量変化への影響	148
	(バフ研磨仕上げ試験片)	
図3.84	レーザーエネルギーの捕集率への影響	149
	(バフ研磨仕上げ試験片、送り速度：0.25mm/s)	

1. 緒 言

物質表面にある程度以上のレーザー光線を照射すると、表面物質を急速加熱し蒸散させることができる。この現象はレーザーアブレーションと呼ばれ、すでにセラミックやポリマーの微細加工、各種薄膜の生成、電子回路の修正（リペアリング）等に応用されつつある。この現象を用いると放射性廃棄物の表面汚染層の除去、つまり除染技術への適用が可能である。この方式は、①化学溶剤等を必要としない気中（乾式）プロセスであるため、2次廃棄物の低減が図れる、②非接触のプロセスで、かつレーザー光は多関節ミラーやファイバー等による伝送が可能であるため、遠隔操作に適している、③金属以外の有機物やペイント等にも適用が可能で汎用性も高い、④局所的除染が可能である等の特徴を有している。

したがって、本方式を核燃料サイクル施設のデコミッショニング作業に必要とする除染技術の確立を目的に、レーザー光と光ファイバーを組み合わせたレーザー除染技術の開発を行う。

本報告は、上記目的を達成するための第一ステップとして、①レーザー除染法に関する調査として、レーザー除染技術及びその関連技術（表面処理技術、計測技術等）に関し、国内外の文献、特許、学会発表等を基にした調査と、②レーザーによる金属表面の除去試験として、ステンレス鋼試験片にパルスレーザー光を照射し、その表面状態、生成物などの測定、観察を行い、放射性廃棄物の除染技術への適用性について検討した。 /

2.レーザー除染法に関する調査

2.1 調査項目

レーザー除染法及びその関連技術に関して、以下の項目に従い調査を行った。

(1) レーザー除染法の一般適用例

工業用レーザー加工に使用されているYAGレーザー、CO₂レーザー、エキシマレーザー、半導体レーザー等に関して国内外の文献を調査し、レーザー光の表面処理技術の一般適用例及び表面クリーニング技術への適用例（原子力分野以外）について調査を行った。調査結果は、①国内外で適用例、②適用範囲（対象材質、使用環境）、③研削精度、除染性能、④二次生成物、⑤消耗品、廃棄物、⑥操作性、⑦問題点、⑧除染法への適用性、⑨その他の項目毎にまとめた。

(2) レーザー除染法の研究開発状況

工業用レーザー加工に使用されているYAGレーザー、CO₂レーザー、エキシマレーザー、半導体レーザー等のレーザー光によるレーザー除染技術の研究開発状況について、国内外の文献や特許等を調査した。調査結果は、①レーザー除染装置、②ビーム伝送系、③除染用ビーム出射方法、④二次生成物回収系、⑤冷却系、⑥その他の項目毎にまとめた。

(3) その他レーザーを用いた技術の調査

レーザーを用いた計測技術に関し、原子力関連分野を中心に調査を行った。

2.2 調査結果

(1)レーザー除染法の一般適用例

表面清浄化 : 付録1-1
表面層除去 : 付録1-2
表面改質 : 付録1-3

(2)レーザー除染法の研究開発状況

レーザー除染 : 付録1-4

(3)その他レーザーを用いた技術の調査

定量分析 : 付録1-5

表面状態計測 : 付録1-6

表面層除去 : 付録1-7

2.3 まとめ

(1) レーザー除染法の一般適用例

- ① 比較的低エネルギーのレーザービームによる光熱反応、光音響反応等を利用したことにより、半導体基板やレーザーミラー表面上の汚染物質を除去し清浄化した技術について精力的な研究が行われている。
- ② 比較的高エネルギーのレーザービームを用いたアブレーション（蒸散）プロセスを、各種材料の精密加工や塗装除去（ペンキ剥がし）に適用したことが可能である。
- ③ 金属材料表面を、高出力レーザービームを用いて熔融、合金化、グレージング（非晶質化）したことにより、耐食性を向上させる技術に関し多くの研究例、特許がある。これらのプロセスは原子力関連構造物への適用も可能である。

(2) レーザー除染法の研究開発状況

- ① 金属またはその酸化物、あるいはコンクリートの表面層をパルス/cw YAGレーザーやエキシマレーザーによるアブレーションを用いることにより、除去する研究が行われており、基礎的な試験データが報告されている。
- ② レーザー除染の対象物としては炉内構造物、配管・ダクト、生体遮へい壁、廃棄物貯蔵容器等が考えられている（特許有り）。
- ③ 除染用レーザービームの伝送法としては、自由空間伝送、ミラー伝送、光ファイバー伝送の3通りが考えられる。
- ④ 2次生成物（微粒子）の回収法としては、ポンプ等で吸引・排気し、フィルタ等で捕獲したのが最も一般的である。
- ⑤ レーザービームをシリンドリカルレンズでラインフォーカスし、ビームまたは対象物を平行移動したことにより、大面積処理も可能である。

(3) その他レーザーを用いた技術の調査

- ① パルス固体レーザーによるアブレーションと気体レーザーによる表面反射率測定を組み合わせることによって、高温や放射能環境下において、鉄の酸化物（マグネタイト）層厚さを計測したシステムが開発されている。また光音響分光法により、表面腐食状態を観測する研究も行われている。

- ② アブレーションにより発生した粒子を質量分析する装置（レーザーマイクロプローブ質量分析計）により同位体分析を行うことが可能である。
- ③ その他、レーザーを用いてガスの流速分布や微粒子の粒系分布等を計測する技術が研究開発されている。

3. レーザー金属表面除去試験

3.1 試験項目

次の3項目の試験を行った。

- (1) ステンレス(SUS304)の表面層除去量とレーザーエネルギーの関係
- (2) レーザー照射した金属表面の観察
- (3) 生成物の観察

3.2 試験装置

図3.1に試験装置概念図を、また図3.2に全体写真を示す。以下に試験に用いた各装置の仕様を示す。

(1) レーザー発振器

種類	: パルスNd:YAGレーザー
メーカー	: Spectra-Physics社
形式	: GCR-14(s)
発振波長	: 1064 nm
最大出力エネルギー	: 425 mJ/pulse
繰り返し	: 2~14 Hz
パルス幅	: 10 nsec
ビーム径	: 7 mm

(2) 集光用レンズ

形式	: 円筒面 (シリンドリカル) レンズ
コーティング	: AR/AR at 1064 nm (AR: 反射防止コーティング)
寸法	: 20 mm × 20 mm
焦点距離	: 100 mm

(3) エアーサンプラー

メーカー	: 柴田科学器械工業
形式	: L-30型
最大吸引流量	: 30 l/min

分粒特性	: 10 μ m以上100%カット(30 l/min)
ろ紙材質	: ガラス繊維
ろ紙有効径	: 43.7 mm
ろ紙捕集能力	: 0.3 μ m以上100%捕集

(4) 移動ステージ

メーカー	: 日本トムソン
形式	: CTN220G
最低送り速度	: 0.25 mm/s

(5) エネルギーメータ

メーカー	: Gentech社
形式	: ED-500

また、レーザー光のビーム径やモードの測定に使用した装置の仕様を以下に示す。

(6) ビームアナライザ

メーカー	: Spiricon社
形式	: 2509 Camera system
有効面積	: 7.14 mm \times 7.14 mm
素子数	: 256 \times 256
素子間隔	: 0.028 mm

(7) NDフィルタ

メーカー	: シグマ光機
形式	: 吸収型NDフィルタ
透過率	: 10, 20, 30 %

(8) 可視カットフィルタ

メーカー	: シグマ光機
形式	: カラーフィルタ
透過率	: 800 nm以上100%カット

(9) ビームスプリッタ

ウエッジ角	: 1度
コーティング	: なし

3.3 試験条件

レーザーによる金属表面の除去に関する基礎試験の条件は以下の通りである。

- (1) レーザーエネルギー : 約50, 100, 200, 400 mJ/パルス
- (2) 繰返し速度 : 10-Hz
- (3) 試験片送り速度 : 0.25, 0.5, 1.0 mm/s
- (4) 試験片と集光レンズ間距離 : 105 mm
- (5) Heガス流量 : 20 l/min (ガスボンベ2次圧4 atm)
- (6) エアサンプラー排気速度 : 60 l/min
- (7) 試験片

材質 : SUS 304

寸法 : 20 mm × 50 mm × 2 mm

表面状態 : 酸洗い、バフ仕上げ

3.4 試験方法

試験片に上記条件でパルスYAGレーザー光を照射した後に、3.4.1項～3.4.3項に示す方法で各種の測定及び観測を行った。また照射エネルギー密度の見積り等のために、レーザービームモードの測定を行った。なおレーザービームの照射方法とビームモードの測定方法は次の通りである。

(1) 照射試験方法

図3.1及び図3.2に示すように、本試験ではパルスのYAGレーザー光（繰返し速度10Hz）をシリンドリカルレンズで線状に集光し、試験片をその線状ビームと直行した方向に移動させながらレーザー照射を行った。また照射部分には常時Heガスを吹きかけた。試験片はあらかじめアセトンにより超音波洗浄を行った。さらに除去した金属微粒子を捕集したために、エアサンプラーによる排気も同時に行った。レーザーの出力エネルギーの測定は、図3.1に示すように集光レンズの手前に全反射鏡を置き、ジュールメータで測定した。

(2) レーザービームモードの測定方法

図3.3にレーザービームモードの測定の概念図を、また図3.4に装置の写真を示す。レーザー光は2枚の表面反射を利用したビームスプリッターとNDフィルターにより十分に減光した後にビームアナライザーに入射した。

試験片上の照射ビーム径を求めるために、焦点距離(f)=100 mmのシリンドリカルレンズをカメラ前に置き、カメラとシリンドリカルレンズ間の距離(l)を試験条件と同じ100, 105, 110 mmにしてビーム径の測定を行った。またビームの発散角の測定 $f=300$ mmの球面凸レンズで集光しそのスポット部にカメラを設置して、その集光径から発散角を求めた。

3.4.1 ステンレス鋼(SUS 304)の表面層除去量とレーザーエネルギーの関係

試験片の表面層除去量の測定は以下の2つの装置で行った。

①表面粗さ計

メーカー : Mitutoyo社
形式 : Surftest 501
測定曲線 : P-曲線 (断面曲線)
レンジ : 80 μ m
基準長さ : 8 mm

②電子天秤

最小単位 : 0.01 mg

(1) 表面粗さ計による除去深さの測定

本試験で用いた試験片は表面のうねりが大きいため、測定長さを8 mmに制限した。このために、レーザー光の照射長さ(試験片の移動長さ)を4 mmに設定した。

表面粗さ(レーザー照射前)も大きく、さらにレーザー照射部の粗さも非常に大きいため、除去深さ(平均、最大、最小)は図3.5のように定義した。つまり、①平均除去深さはできるだけ非照射部に近い箇所の中心線と、照射部に一番近い非照射部の中心線との距離、②最大除去深さは照射前から存在したと見られる傷等を除いた中で中心線から一番深く除去されている部分の中心線からの距離と平均除去深さを足したもの、③最小除去深さは中心線からの距離が一番高い部分のその距離を平均除去深さから引いたもの。

3.5節で述べる図中の除去深さの符号は+ (プラス) が照射前の表面より低いつまり除去されている場合で、- (マイナス) は元の表面よりも高くなっている場合を表す。

(2) 電子天秤による除去量の測定

電子天秤を用いてレーザー照射前と照射後の重量変化から除去重量の見積りを行った。この場合は測定精度を高めるために、レーザー照射長さを120 mm (30 mm \times 4表面) と

した。照射前の重量測定は、アセトンで超音波洗浄を行った後、真空乾燥を行ってから測定した。レーザー照射後の重量測定時は真空乾燥のみを行った。

3.4.2 レーザー照射金属表面の観察

試験片表面の観察は以下の2つの装置と目視により行った。

①SEM (走査電子顕微鏡)

メーカー：日立製作所

形式：S-2100A

②光学顕微鏡

メーカー：オリンパス

形式：BHS

SEM観察は試験片に何の前処理も行わずに、照射前と照射後のそのままの表面状態を撮影した。光学顕微鏡では粒界の変化を見るために、試験片表面をわずかに鏡面研磨した後、稀酸エッチングを行った。

3.4.3 生成物の観察

エアースンプラーによる生成物捕集は、分粒装置部分を取り外し、ろ紙単独で用い、 $0.3\mu\text{m}$ 以上の生成粒子全てを捕集できるようにした。これにより吸引流量も約 60 l/min としたことができた。ろ紙上に捕集した生成物の観察はSEMを用いて行った。ろ紙への捕集量は、電子天秤によって捕集前と後の重量差から算出した。ろ紙は測定前に真空乾燥を行った。レーザー照射条件は次の通りとした。

①SEM観察用：試験片固定で10パルス照射

②捕集量測定用：照射長さ120 mm (30 mm × 4表面)

3.5 試験結果及び考察

3.5.1 基礎試験結果

基礎試験として、試験片と集光レンズ間距離ならびに雰囲気ガスの影響について調べた。基礎試験の結果は次の通りである。

(1) 試験片と集光レンズ間距離の影響

図3.6に試験片と集光レンズ間距離（焦点はずし量）をパラメータとした入射レーザーエネルギーと平均除去深さの関係を、図3.7には入射エネルギーと最小除去深さの関係を示す。また、これらの断面曲線を図3.8～図3.10に示す。図3.6より平均除去深さは、

焦点はずし量5 mm ($l=105$ mm)の場合が一番大きいことが分かる。また図3.7より最小除去深さは全てマイナスつまり元の金属表面よりも逆に高くなっていることが分かるが、その高さが一番小さいのがやはり $l=105$ mmで、デブリつまり再付着の高さが小さいことが分かる。従って、今回行った範囲では $l=105$ mmが最適であると考えられる。この除去深さを決定した因子と考えられるものは、エネルギー密度(J/cm^2)とデブリの大きさがある。表3.1にビーム径とそれぞれのエネルギー密度を、また図3.11～図3.13にビームパターンとその断面形状を示す。焦点はずし量0 mm ($l=100$ mm)つまり焦点位置では、ビーム強度分布が三角状(図3.11)になっているが、発散角(0.63 mrad)から計算される集光径0.63 mmとほぼ同じ大きさの径が得られているので測定上問題は無いと考える。まずデブリを考慮しない場合には、エネルギー密度が高い方が除去深さは大きくなると考えられる。一方、エネルギー密度が高いとデブリも同様に大きくなると考えられ、除去深さに対して最適なエネルギー密度が存在したことが推測される。また $l=105$ mmでデブリが一番小さくなっているのは、デブリの高さはエネルギー密度とともに照射パルス数にも比例すると考えられる。したがって、送り速度が一定の場合、ビーム径が大きいとエネルギー密度は低くなるが、ある一つの場所における照射パルス数は増加するためと考えられる。

以上のことから本試験では全て $l=105$ mmで行うこととした。

(2) 雰囲気ガスの影響

レーザー溶接などでは、シールドガスの影響が大きいと言われており、同じように本試験においても影響があるため、レーザー照射部をHe雰囲気にした場合の影響について調べた。

図3.14にHe雰囲気と空気雰囲気の場合のレーザー照射断面曲線を示す。この図より、空気の場合には金属表面の除去がほとんど起こっていないが、He雰囲気にしたことにより除去が起きており、He雰囲気の方が効率的な除去が達成できることが分かる。図3.15には試験片の写真を、そして図3.16～図3.18にはSEM観察写真を示す。空気の場合、図3.17を見ると粒界がはっきりと観測されることから強い酸化は起きていないものと考えられる。しかし図3.15の外観写真を見ると、空気雰囲気の場合はHe雰囲気の場合よりも照射面全てが濃い青に変色していることから、相対的には空気雰囲気の場合の酸化の度合の方が高いと考えられる。これらの写真は酸洗いの試験片の結果であるが、同様の結果がバフ研磨の試験片においても得られている。

3.5.2 ステンレス鋼(SUS304)表面層除去量とレーザーエネルギーの関係

送り速度をパラメータとした場合の、平均、最大、最小除去深さとレーザーエネルギーの関係を図3.19～図3.25に示す。図3.19～図3.22までがバフ研磨のもので、図3.23～図3.25が酸洗いのものである。バフ研磨の方は各グラフの傾向がはっきりとしているが、酸洗いの方はあまりはっきりしていない。これは酸洗いの方はもともとの粗さが大きいために測定時の誤差が大きいと考えられる。したがって、ここではバフ研磨のものを中心に述べる。

まず、図3.19を見ると、平均除去深さは、送り速度が遅い方が大きくなっているのが分かる。これは送り速度が遅いと、ある点に照射されるパルス数が増加するためである。次にこのグラフの横軸をエネルギー密度とパルス数の積に書き直したものを図3.20に示す。この図より、平均除去深さは、送り速度によらずにほぼエネルギー密度とパルス数の積に比例し、除去のしきい値は $25\text{J} \cdot \text{pulse}/\text{cm}^2$ である。次に最大除去深さは図3.21から、エネルギーが高く送り速度が遅い方が、つまりエネルギー密度とパルス数の積が高い方が大きいことが分かる。最小除去深さは全ての条件でマイナス、つまり元の表面よりも高くなっており、入力の増加とともに小さくなっているのが分かる。図3.26～図3.34に各条件時の断面曲線を示す。また図3.35、図3.36に試験の外観写真を示す。

次に試験片のレーザー照射前後の重量変化について述べる。図3.37と図3.38が実際に試験片の重量を測定して得られたもので、変化量としては 2mg 以下である。またレーザーエネルギーに対してはやや飽和傾向にあることも分かる。図3.39は図3.19の平均除去深さから計算される重量の変化（平均除去深さ × 照射面積 × 試料密度）を示したものである。図3.37と図3.39を比べると実際の重量変化量が計算値の約 $1/3 \sim 1/4$ 程度であることが分かる。しかし、ろ紙によって捕集された量（3.5.3節）は実際の重量変化量（図3.37）よりも多く、計算値（図3.39）の約 $1/2 \sim 1/3$ 程度となっている。従って実際の重量変化量と計算値の差の全てが再付着によるものではないことが分かる。また、ろ紙によって捕集された量よりも実際の重量変化の方が小さい理由は、酸化による酸素の取り込みが考えられるが、その確認のためにはESCAやEPMA等による表面元素分析が必要である。

3.5.3 レーザー照射各種試験片表面の観察

レーザー照射による表面状態の変化はSEM及び光学顕微鏡を用いて観察した。

(1)照射前と照射後の表面状態の観察

図3.40に酸洗い試験片のレーザー照射前のSEMによる表面写真を示す。この写真を見ると、粒界がはっきりと観測され、結晶化しているのが分かる。次にこの酸洗いの試験片にレーザー照射した場合のSEM写真を図3.41～図3.52に示す。図3.41～図3.44が送り速度0.25 mm/sec、図3.45～図3.48が送り速度0.5 mm/sec、図3.49～図3.52が1.0 mm/secのものである。これらの写真を見ると、先の照射前のものとは大きく異なり、粒界は全く見られない。800倍の写真を見ると表面のひどい荒れは見られないことから、レーザー照射後の表面は酸化膜で覆われているかまたはアモルファス化（非晶質化）していることが考えられる。しかし前述したようにHe雰囲気では表面の変色が空気の場合に比べて非常に少ないこと、また変色の著しい空気の場合においてさえ粒界がはっきりと確認できることから、He雰囲気で行った図3.41～図3.52の表面が酸化膜で覆われているとは考えにくい。従って表面状態はアモルファス化している可能性の方が高いと言える。また通常のアモルファス金属を作る方法としては、結晶核が成長した余裕を与えないほど急速に冷却した超急冷法が一般的である。今回のパルスYAGレーザー照射を考えると、そのパルス幅は10 nsecと非常に短く、急激な加熱がなされ、さらに熱伝導性の高いHeガスを吹き付けることによる冷却速度の増加が表面のアモルファス化につながったと推測される。アモルファス金属は一般に原子配列の無秩序性を反映して、張力などの異方性的な外力に強く、耐食性、軟磁性特性に優れている、また放射線損傷を受けにくい等の種々の特長を有する。

次にバフ研磨仕上げ試験片について述べる。図3.53に照射前のSEM写真を、図3.54～図3.65にレーザー照射後のSEM写真を示す。図3.54～図3.57が送り速度0.25mm/sec、図3.58～図3.61が送り速度0.5 mm/sec、図3.62～図3.65が送り速度1.0 mm/secである。レーザー照射前の写真には研磨によると考えられる多数の長い傷が観測される。この傷の方向は試験片の長手方向に沿って走っており、線状のレーザー集光ビームとは直交している向きである。また多数の0.5～20 μ m程度の穴も見られる。一方、レーザー照射後のものを見ると、元々存在していた多数の傷が消え、それらとは直交した方向にレーザービームによる線状のパターンが観測される。また先に述べた穴の周りに同心円上の模様ができているのも観測された。表面は酸洗いの場合と同様に粒界等は見受けられず、アモルファス化している可能性がある。

(2)表面状態とレーザーエネルギーの関係

まず酸洗い試験片について述べる。先に述べたように照射前が図3.40、レーザーエネルギー50 mJのものが図3.41、100 mJのものが図3.42、200 mJのものが図3.43、400 mJのものが図3.44に示されている。これらの図において倍率100倍の方で比較すると、レーザー照射後の横方向に走っている線のパターンが変化していることが分かる。まず照射前はランダムな粒界のパターンがでていますが、50 mJ または100 mJ のレーザー光を照射すると、非常に多くの横線が現れる。次にレーザーエネルギーを200 mJにすると、これらの線がある規則的な並びになっているのが分かる。この規則的なパターンは、後述するようにレーザービームの径と送り速度に依存しており、これらはレーザービームの照射によって発生したデブリであると考えられる。デブリは一度レーザーで蒸発したものが再蒸着したものである。レーザーエネルギーが高いとこのようにデブリがはっきりと現れるが、エネルギー400 mJ の図3.44を見ると逆にこのデブリによるパターンが消えているのが分かる。800倍の方を見てもSEM写真のコントラストが低く凹凸が少ないことが分かる。しかし粗さ計による断面曲線では、他のエネルギーと同様に荒れが存在することが示されている（図3.32）。従って400 mJ の場合デブリによる規則的な荒れはなくなるが、図3.44の100倍の写真を見て分かるように、多数の穴のようなもの（黒い部分）による荒れが粗さ計によって計測されているのではないかと考えられる。これらの400 mJにおけるデブリの消滅や穴状のものの発生の原因は今回の実験からは解明できず、今後より詳細な検討を要する。

次にバフ研磨仕上げのものについて述べる。照射前が図3.53、レーザーエネルギー50 mJが図3.54、100 mJが図3.55、200mJが図3.56、400 mJが図3.57である。表面状態のレーザーエネルギー依存性は酸洗いのものとほとんど同様に、エネルギー増加に従い、デブリによる線が明確になり、400 mJでは消失している。

(3)表面状態と送り速度の関係

まず酸洗い試験片について述べる。送り速度0.25 mm/secのものが図3.41～図3.44、0.5 mm/secのものが図3.45～図3.48、1.0 mm/secのものが図3.49～図3.52である。レーザーエネルギー50, 100, 400 mJ のものについてはあまり大きな差は見られないが、エネルギー200mJの図3.43、図3.47、図3.51を見ると先に述べた規則的なパターンがその送り速度によって変化しているのが分かる。送り速度が遅いと、線と線の間隔が狭く、速いと広がっている。これらの線は先に述べたように、レーザービームのエッジで発生

したデブリであると考えられる。これらのパターンの発生と変化は、ビーム径と送り速度から説明できる。図3.66にこれらのパターンを模式的に書いたものを示す。ビーム径は表3.1に示すように $390\mu\text{m}$ である。図中の実線はビームの左端を示し、破線は右端を表す。また試験片は、図中の矢印で示すように左方向に進むとする。さらに①などの数字は照射パルスの順番を表す。まず 1.0mm/sec の場合を考える。1パルス目が試験片に照射されると、ビームの左右にデブリが発生する(①)。次に試験片が 0.1mm 動く(繰り返し 10Hz 、送り速度 1.0mm/sec より)と2パルス目が照射され②のようになる。試験片が移動し、次々にパルスが照射され、5パルス目が照射されるとビーム径と送り速度の差によって1パルス目の右端と5パルス目の左端がわずかにずれ、幅の狭い部分が発生する。この後次々にパルスが照射され、写真図3.51のようなパターンが発生する。同様に 0.5mm/sec 、 0.25mm/sec を考えると、図3.66のように送りが遅い分、線の間隔が狭くなるようなパターンになる事が分かる。

バフ研磨仕上げについても同様のパターンの変化が現れている(図3.56、図3.60、図3.64)。

(4) 光学顕微鏡による粒界の観察

酸洗いの試験片の光学顕微鏡写真を図3.67～図3.70に示す。図3.67が照射前のもので、図3.68が送り速度 0.25mm/sec 、レーザーエネルギー 200mJ 、図3.69が 0.25mm/sec 、 400mJ 、図3.70が 1.0mm/sec 、 400mJ のものである。レーザー照射前とレーザー照射後を比べると、明らかに粒界の形状が異なっており、レーザー照射後はやや細長く細かいものが増加している。従ってレーザーによる急加熱の影響がでている事が分かる。これらの写真は前処理として極く表層だけを鏡面研磨しており、最表面はアモルファス化し、その下の層はアモルファス化していないものの熱影響が及んでいる事が分かる。またバフ研磨仕上げの写真を図3.71～図3.74に示すが、同様の結果となっている。

2.5.4 生成物の観察

ろ紙上に捕集した生成物の観察をSEMで、また捕集量の測定を電子天秤を用いて行った。

(1) 生成物の粒径とレーザーエネルギーの関係

ろ紙のSEM写真を図3.75～図3.81に示す。図3.75は捕集前の写真である。また図3.76～図3.78は酸洗いの試験片のもので、図3.79～図3.81はバフ研磨仕上げのものである。これの図からは、レーザーエネルギーと生成物の粒径との間にははっきりした相関は認められず、またバフ研磨と酸洗いによる違いも見られない。どの条件においても粒径は

数10nm~10 μ m程度のものが散在しており、さらに数10nm程度のものはろ紙の繊維に付着した後お互いに付着し、写真に見られるように繊維と繊維の間を膜状に埋め尽くしているのが分かる。

(2) 生成物の捕集量

図3.82は酸洗いの試験片を用いた場合の生成物の捕集量で、図3.83がバフ研磨仕上げのものである。これらの図よりレーザーエネルギーを増加させると捕集量も増加したが、飽和した傾向にある。また送り速度を遅くさせると、捕集量は増加したことも分かる。捕集量は最大2.7mg程度である。また図3.84には平均除去深さから計算した除去量（図3.39）に対する捕集量（図3.83）の割合を示したもので、捕集率は最大で65%程度でエネルギーの増加とともに減少している。今回、生成物の捕集は図3.1の試験装置図に示したような非常に簡便な装置で行ったが、最大で65%程度の捕集率が得られた。従って、照射部全体を覆い局所排気したような捕集装置を用いれば、より高い捕集率を得られるものと考えられる。

3.6 まとめ

SUS304試験片に、パルスYAGレーザー光をシリンドリカルレンズを用い線状に集光して照射し、試験片を平行移動させることにより2次元的なレーザー照射面を得た。この試験片に関し、表面粗さ計、SEM等を用いた各種の測定や観察を行った結果、以下のことが明らかとなった。

- (1) 試験片と集光レンズ間距離（ l ）には、エネルギー密度と照射パルス総数さらにデブリの発生によって最適な距離が有ることが分かった。今回の試験では、 $l = 105$ mm（焦点はずし量5mm）が最適な距離であった。
- (2) レーザー照射部の雰囲気は金属表面の除去効率に大きな影響を与えることが分かった。空気の場合には、表面が荒れるだけで除去できず（平均除去深ゼロ）、He雰囲気にしたことによって除去が可能になることが分かった。
- (3) 平均除去深さは、ほぼエネルギー密度と照射レーザーパルス数の積に対し線形的に増大した。また除去しきい値は約25 pulse \cdot J/cm²である。
- (4) 最小除去深さは全ての条件でマイナス、つまり再付着により元の表面よりも高くなっていることがわかった。
- (5) 除去量は、平均除去深さから計算すると最大で8mg（照射面積8.4cm²）程度となる

が、試験片の重量変化は2mg以下であり、8mgの値を下回っている。また、試験片の重量変化量は、ろ紙による捕集量よりも少なく、酸化による重量増加の可能性はある。しかし、原因解明のためには、より詳しい測定や検討を要する。

- (6) SEM等によるレーザー照射面観察より、He雰囲気の場合は、金属表面がアモルファス化している可能性があることがわかった。また照射面にはレーザービーム径と送り速度によって決定される規則的なパターンが観測された。
- (7) 生成物の粒径のレーザーエネルギー依存性はなく、数10nm～10 μ m程度のものが散在していることが分かった。また捕集量は最大で2.7mg、最大捕集率は65%程度であった。
- (8) 今回行った試験の結果、400 mJ程度のパルスYAGレーザーをステンレスに照射したことによって金属母材を1 μ m以上除去したことが可能であり、また試験片の送り速度等を変えることにより除去量をコントロールできることもわかった。
- (9) 酸化被膜の除去量は金属母材の除去量の十倍以上という報告もあることから、パルスYAGレーザーを表面汚染層の除去つまり除染に適用することは十分可能であると考える。
- (10) 今回の試験ではデブリつまり除去物の再付着課題等が残った。これらの問題を解決するために、次の試験を行い、放射性廃棄物の除染技術への適用性について評価する必要がある。
 - ①各種材質に対する表面除去特性のレーザー波長依存性確認試験作業
 - ②シールドガスの最適条件によるデブリ抑制効果確認試験作業
 - ③模擬汚染物による表面除去特性確認試験作業
 - ④レーザー照射面観察による表面性状、改質状態、組成変化確認試験作業
 - ⑤レーザー照射生成物の性状確認試験

4.結 言

レーザー除染法に関する調査及び基礎的な試験を行い次の結論を得た。

(1)レーザー除染法に関する調査

レーザー除染法とその関連技術について文献調査を行った。その結果、YAGレーザー（cwまたはパルス）やエキシマレーザーによる金属（またはその酸化物）、コンクリート等の表面層除去に関する研究例がある。レーザー除染の対象物としては炉内構造物、生体遮へい壁、廃棄物貯蔵容器等が考えられている。さらにレーザーを用い金属酸化物層の厚さを計測する技術も研究開発されている。

(2)レーザー金属表面除去試験

ステンレス鋼試験片にパルスYAGレーザービームを線状集光し照射試験を行った。これによりHe雰囲気条件において、平均除去深さは照射レーザーエネルギー密度（フルエンス）と照射パルス数の積に対し、ほぼ線型に増大することが明らかになった。レーザーエネルギー400 mJ、試験片送り速度0.25 mm/secの条件で、1 μ m以上の除去深さが得られた。レーザー照射面のSEM観察により、照射表面金属がアモルファス化している可能性が示された、また生成物の回収に関しては、開放型のごとく簡便な吸引装置を用いても65%程度の捕集率が得られることが分かった。

(3)今後の課題

実施した試験は極く基礎的な内容であるが、金属表面層の除去にレーザービームの利用が十分有効であることが実証された。今後は、模擬試験片による表面除去特性評価、除去表面の健全性評価、大面積処理技術や生成物回収技術等に関する検討等を行い除染技術への適用性について評価する必要がある。

5.謝 辞

レーザー除染に関する調査と基礎試験を実施するにあたり、多大な御協力を頂いた
(財)産業創造研究所の佐藤主任研究員、谷脇研究員、清水研究員に深甚の意を表する。

表3.1 照射ビーム径とエネルギー密度

defocus distance	beam diameter	energy density		
		laser energy		
		200mJ	300mJ	400mJ
0mm	60 μm	47.6J/cm ²	71.4J/cm ²	95.2J/cm ²
5mm	390 μm	7.3J/cm ²	11.0J/cm ²	14.7J/cm ²
10mm	730 μm	3.9J/cm ²	5.9J/cm ²	7.8J/cm ²

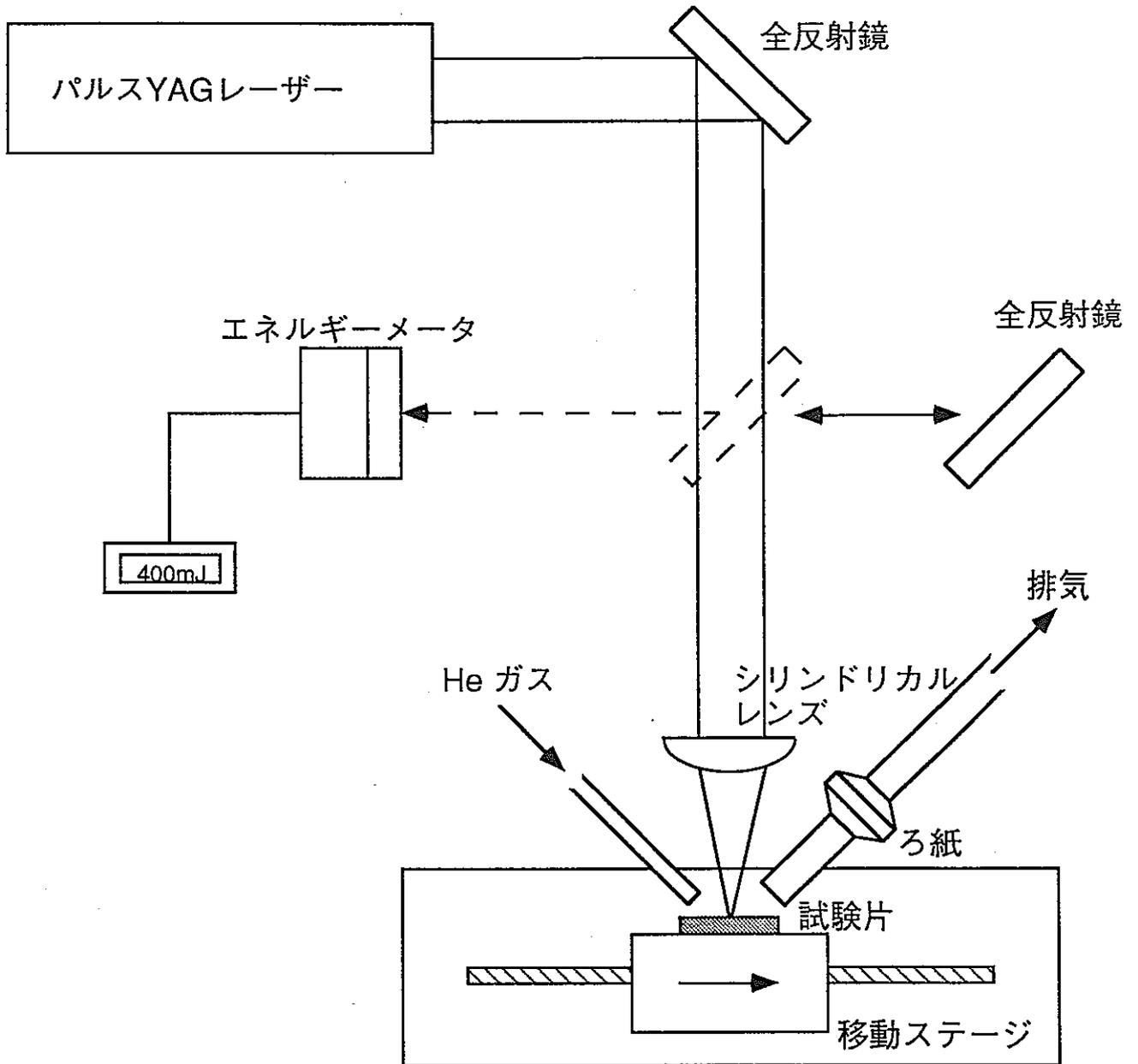


図3.1 試験装置図

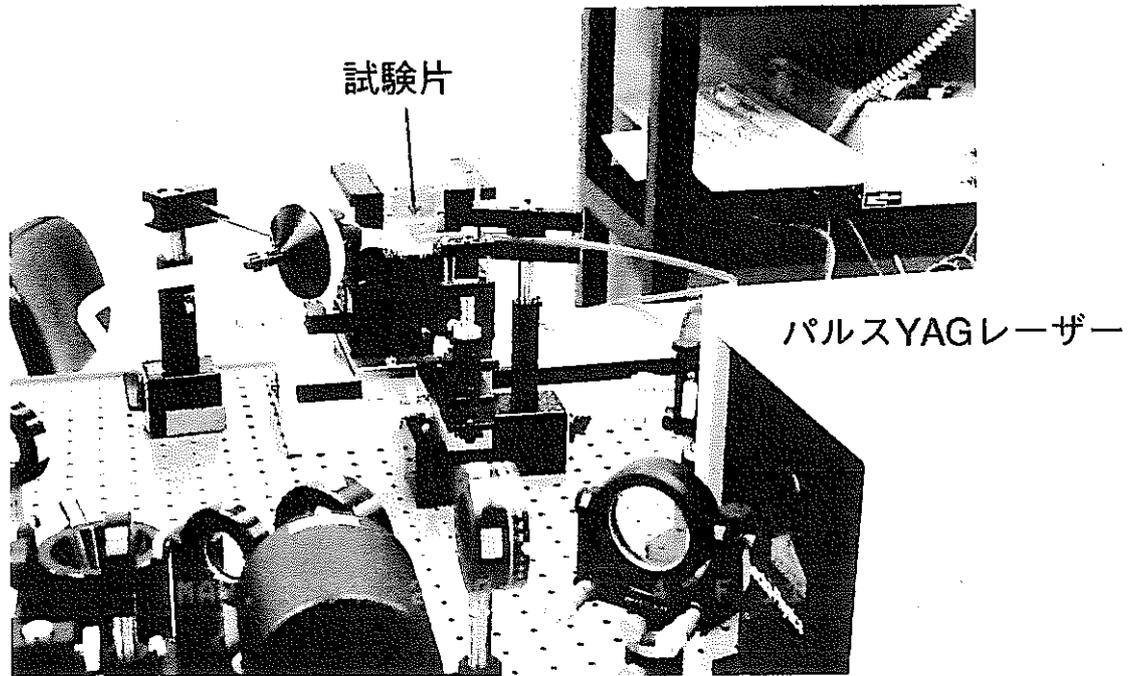


図3.2 試験装置

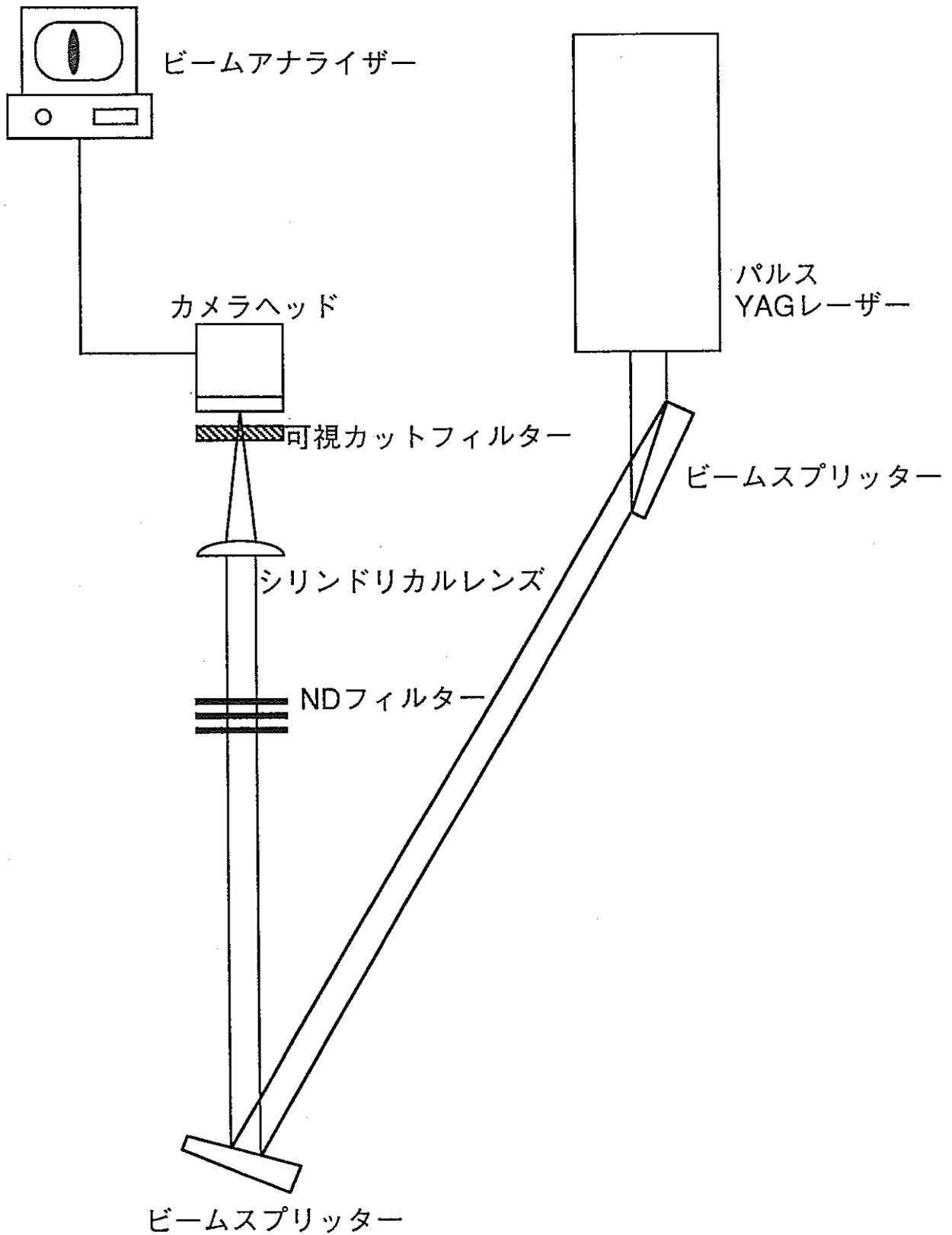


図3.3 レーザービームモード測定装置図

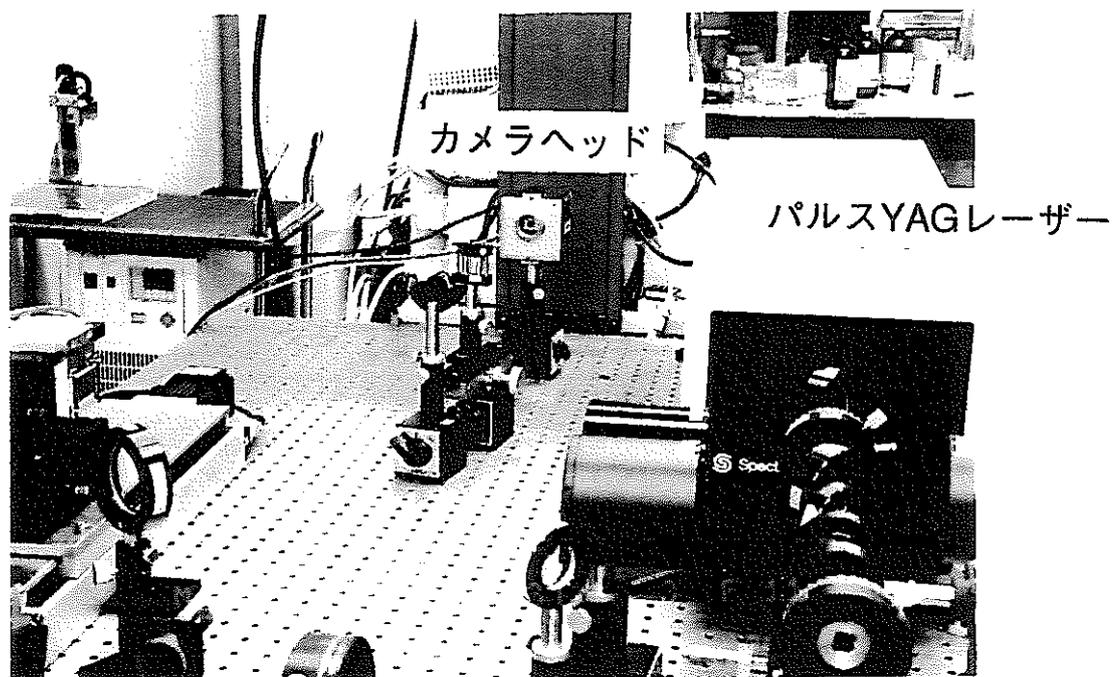
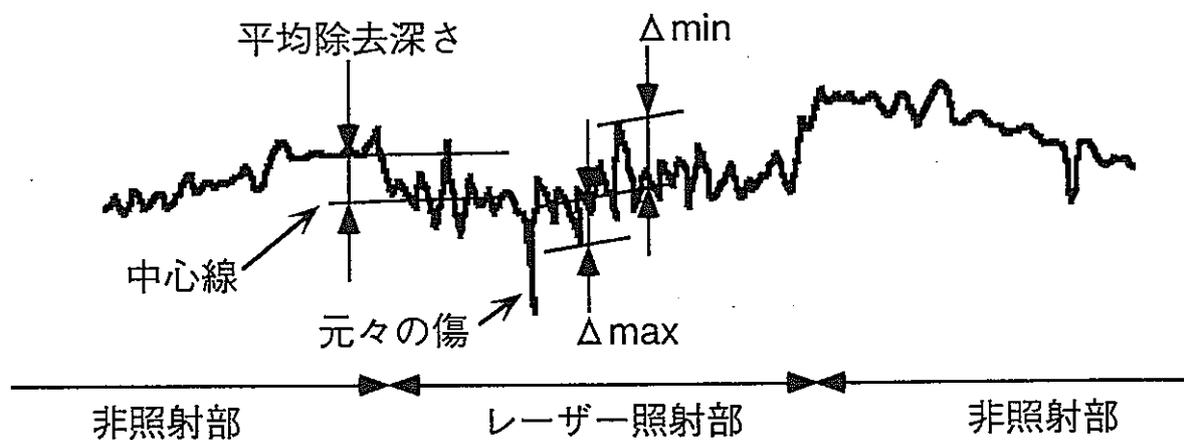


図3.4 レーザービームモード測定装置



$$\text{最大除去深さ} = \text{平均除去深さ} + \Delta \text{max}$$

$$\text{最小除去深さ} = \text{平均除去深さ} - \Delta \text{min}$$

図3.5 除去深さの定義

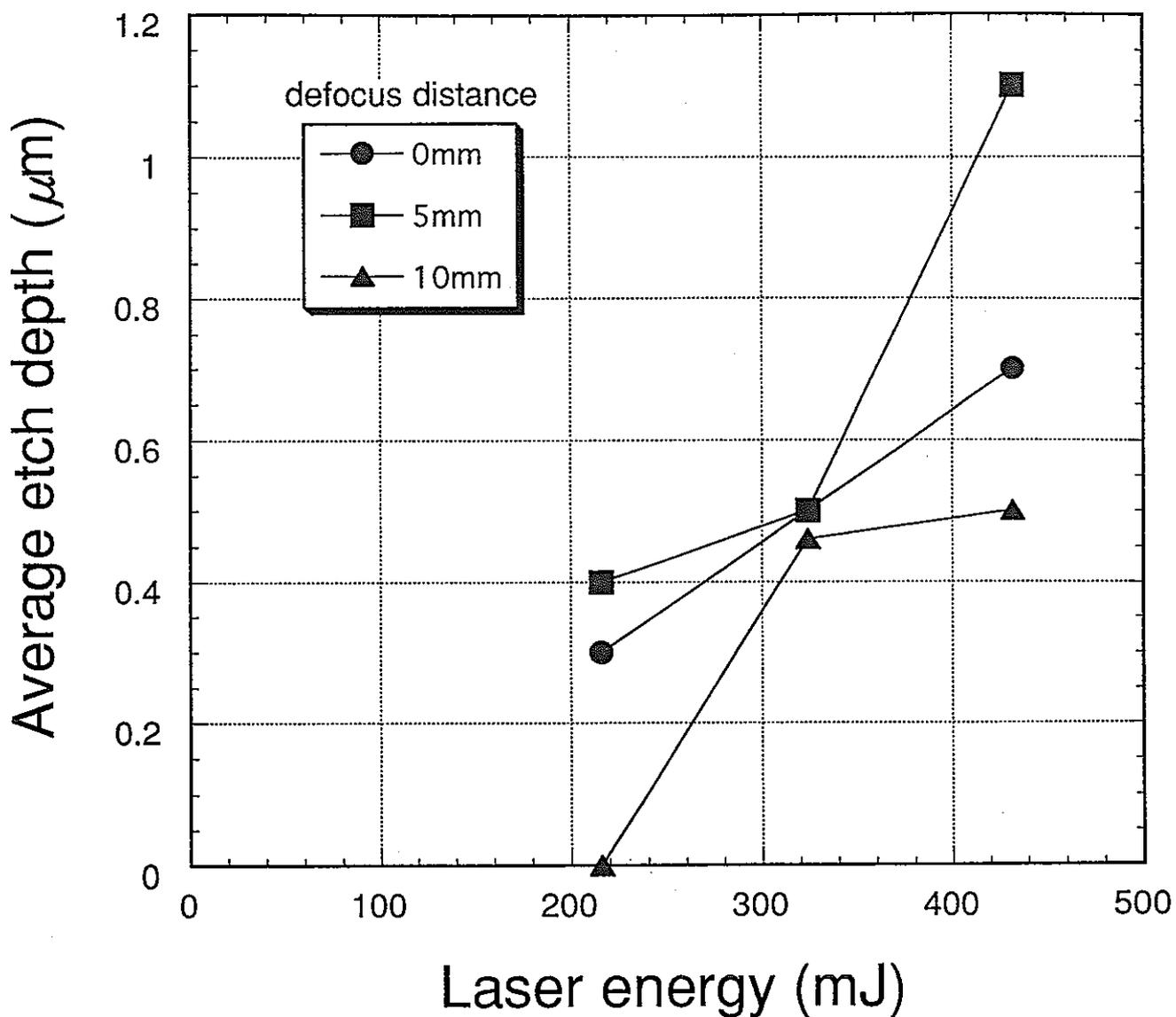


図3.6 デフォーカス距離の平均除去深さへの影響
 バフ研磨仕上げ試験片，送り速度0.25mm/s

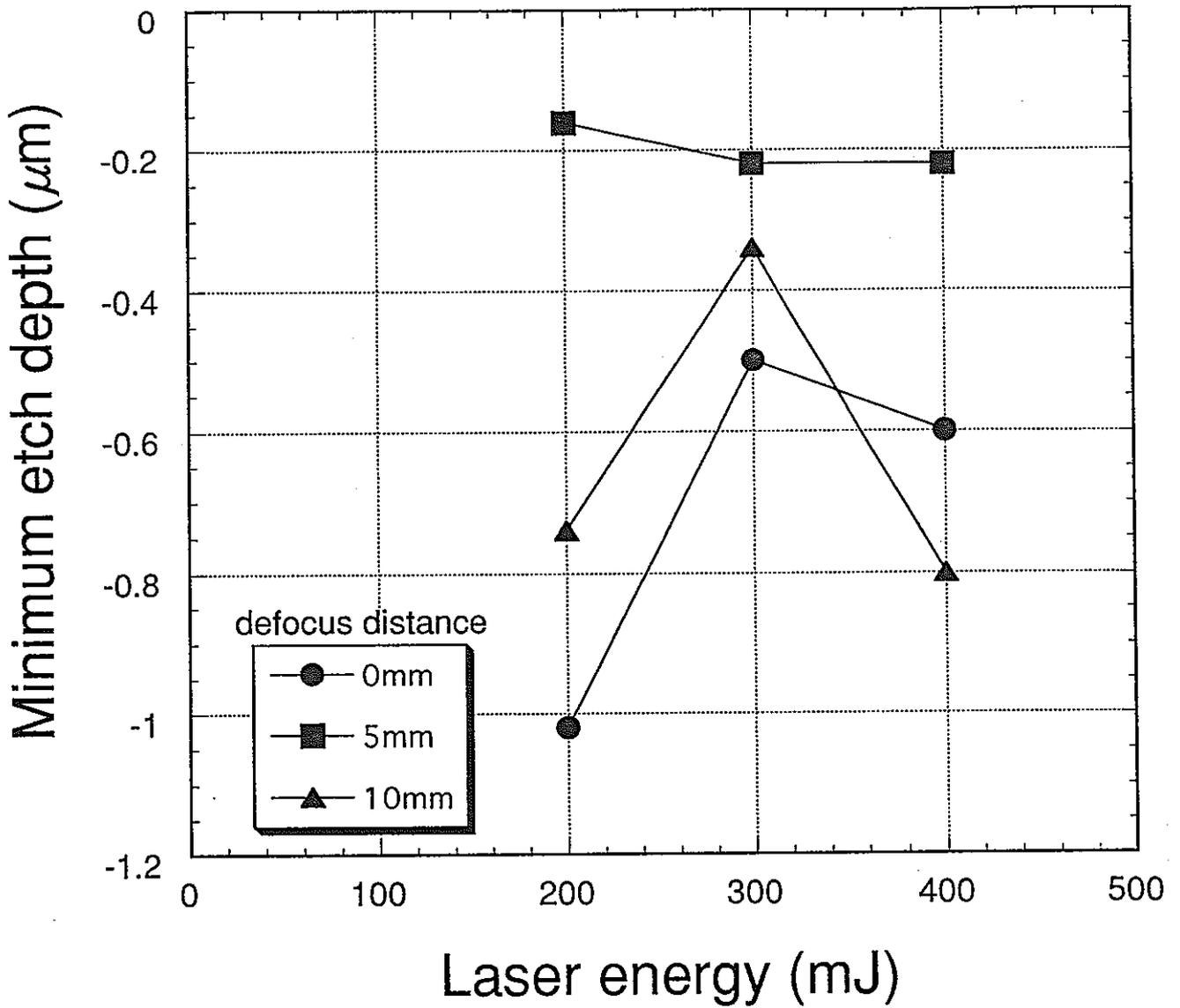
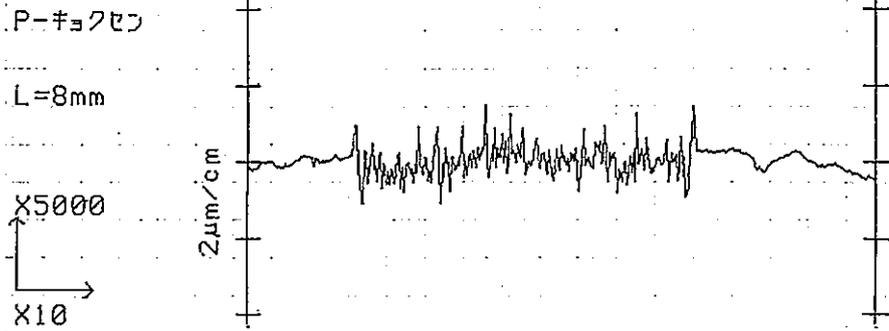
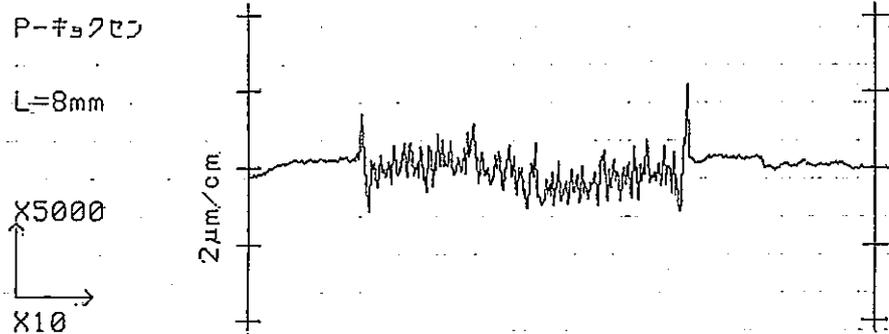


図3.7 デフォーカス距離の最小除去深さへの影響
バフ研磨仕上げ試験片，送り速度0.25mm/s

レーザー
エネルギー
200mJ



300mJ



400mJ

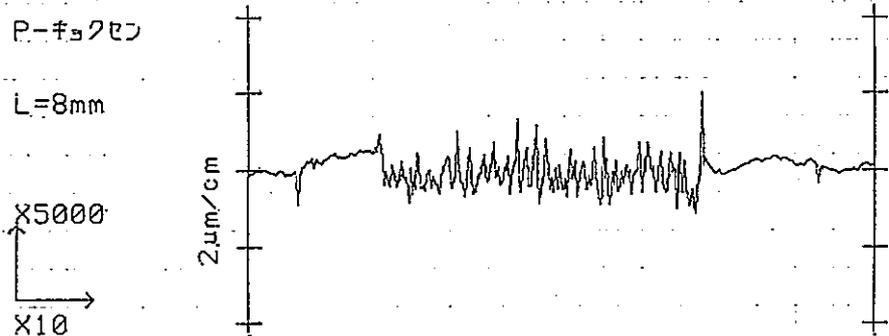
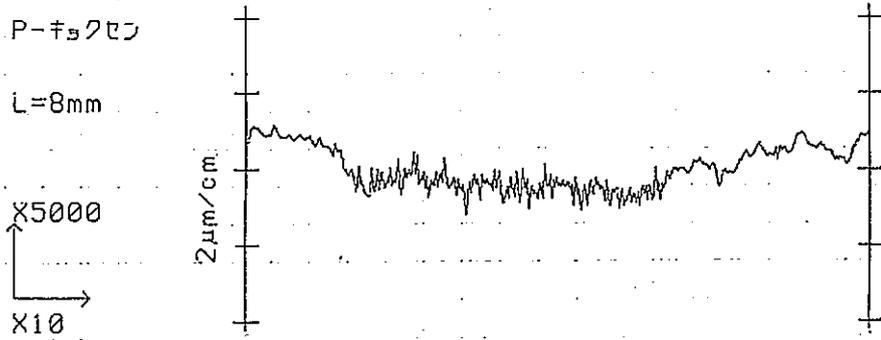
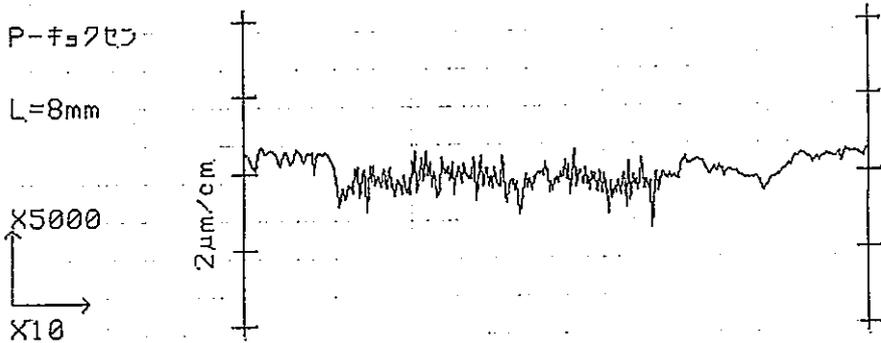


図3.8 断面曲線
バフ研磨試験片
ディフォーカス長さ:0mm, 送り速度:0.25mm/s

レーザー
エネルギー
200mJ



300mJ



400mJ

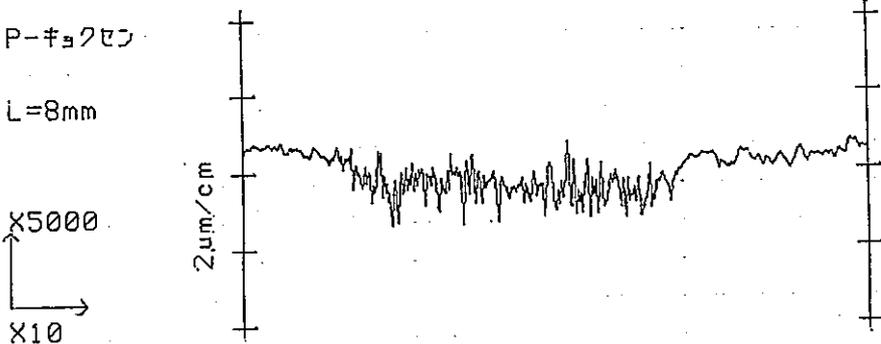


図3.9 断面曲線
バフ研磨試験片
ディフォーカス長さ:5mm, 送り速度:0.25mm/s

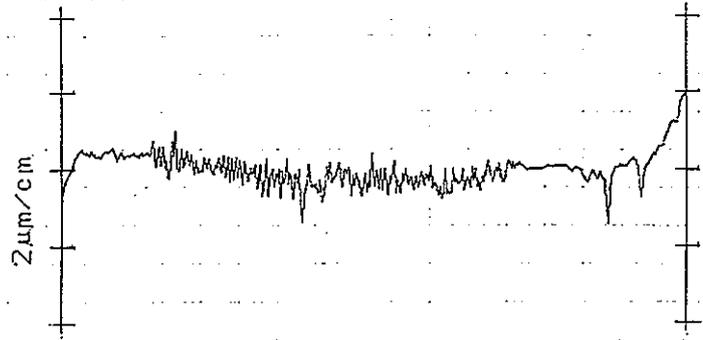
レーザー
エネルギー
200mJ

P=キョクセフ

L=8mm

X5000

X10



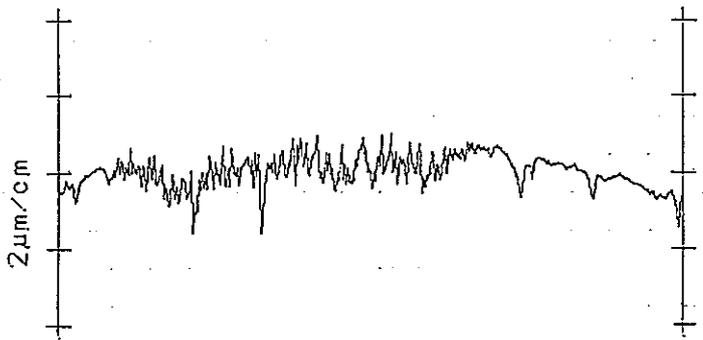
300mJ

P=キョクセフ

L=8mm

X5000

X10



400mJ

P=キョクセフ

L=8mm

X5000

X10

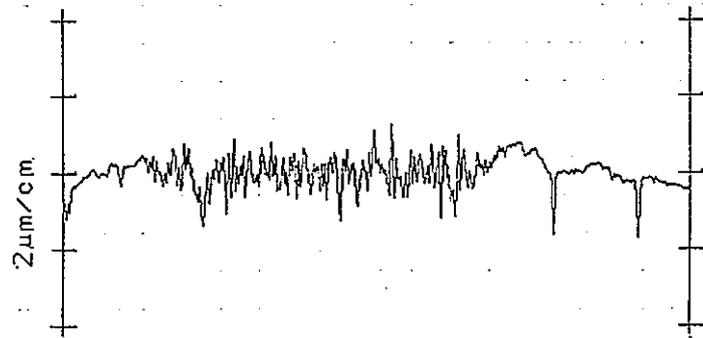


図3.10 断面曲線
バフ研磨試験片

ディフォーカス長さ:10mm, 送り速度:0.25mm/s

010 Highest mode
822
756
672
588

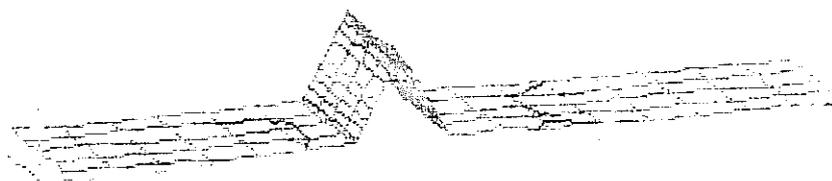
422
336
252
168
84
16



ビーム強度分布

010 Highest mode
822
756
672
588

422
336
252
168
84
16



ビーム断面図

図3.11 集光後のレーザービームモード
焦点はずし量:0mm

729
669
595
520

372
297
223
148
74
14



ビーム強度分布

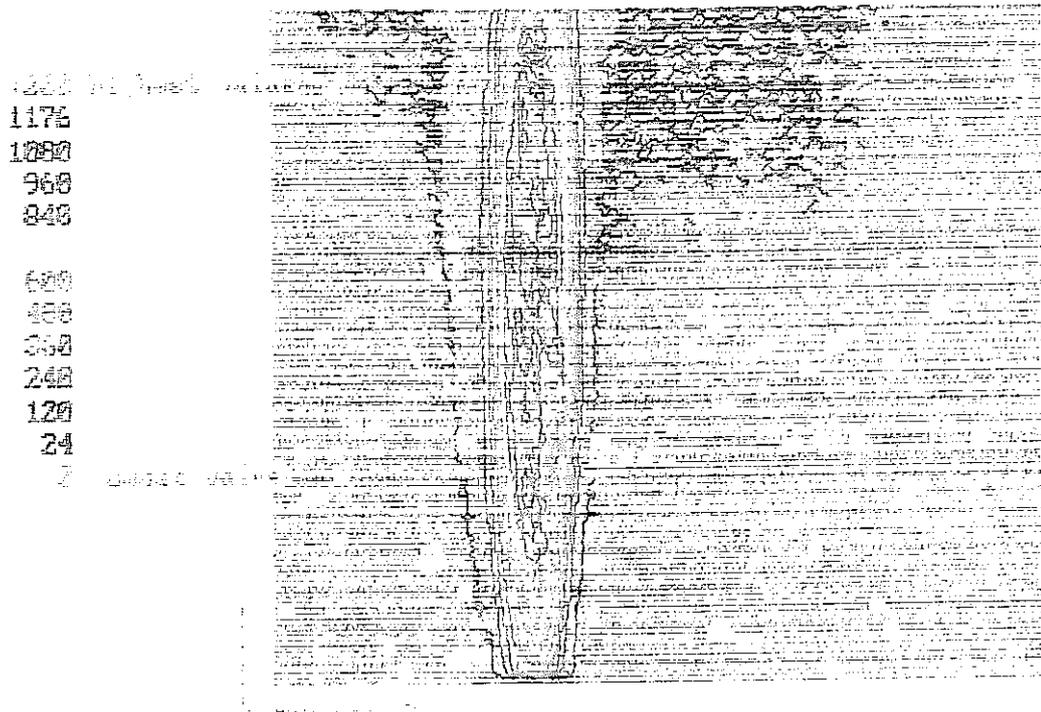
729
669
595
520

372
297
223
148
74
14

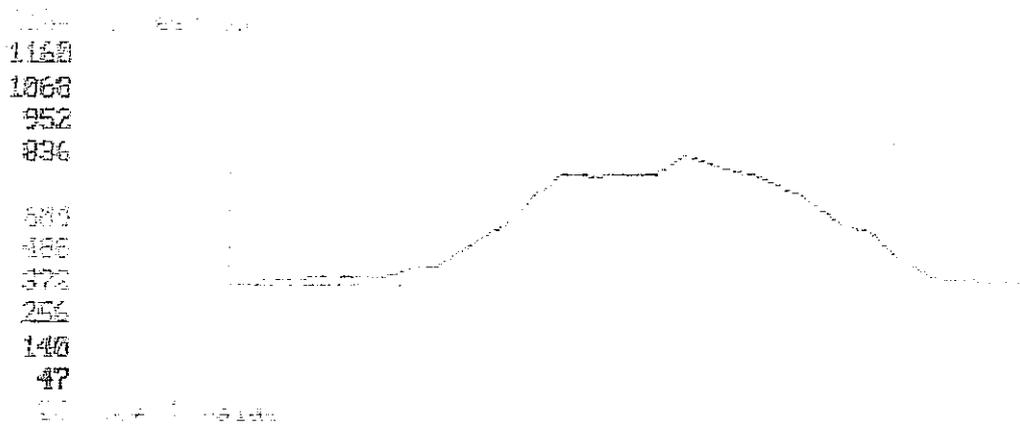


ビーム断面図

図3.12 集光後のレーザービームモード
焦点はずし量:5mm



ビーム強度分布



ビーム断面図

図3.13 集光後のレーザービームモード
焦点はずし量:10mm

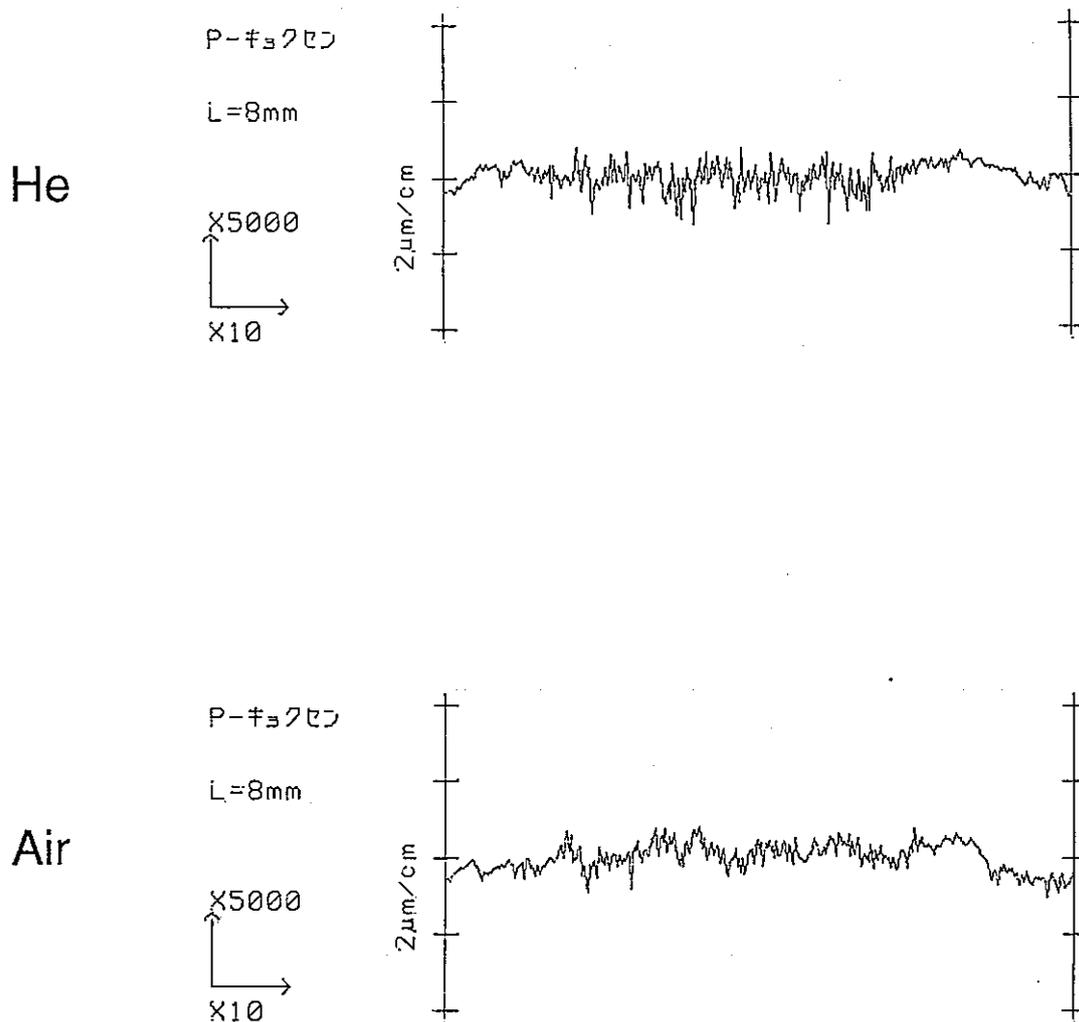


図3.14 断面曲線
酸洗い試験片
ディフォーカス長さ:5mm, 送り速度:0.25mm/s
レーザーエネルギー:400mJ

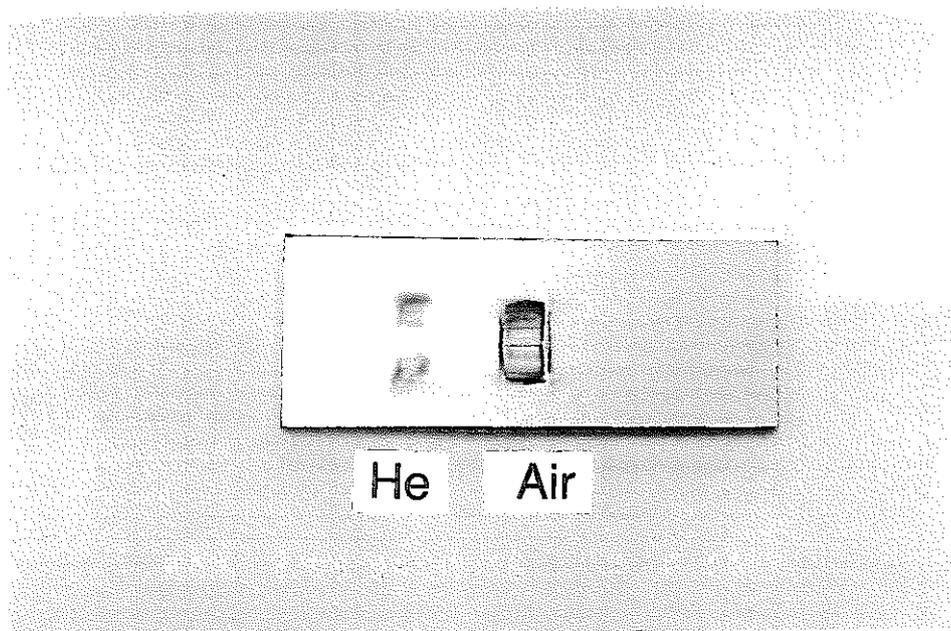


図3.15 照射表面へのシールドガスの影響

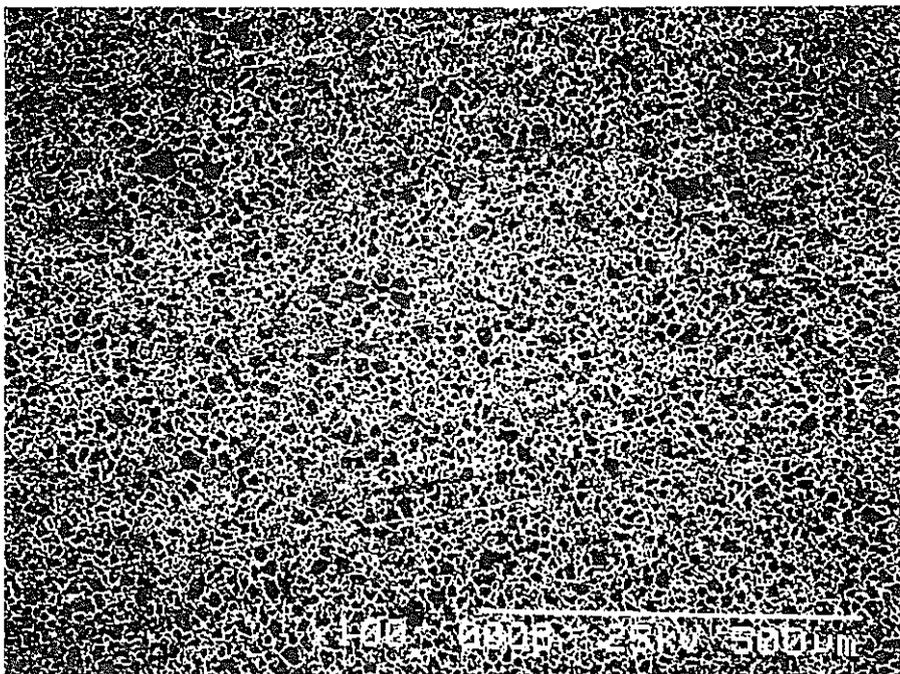
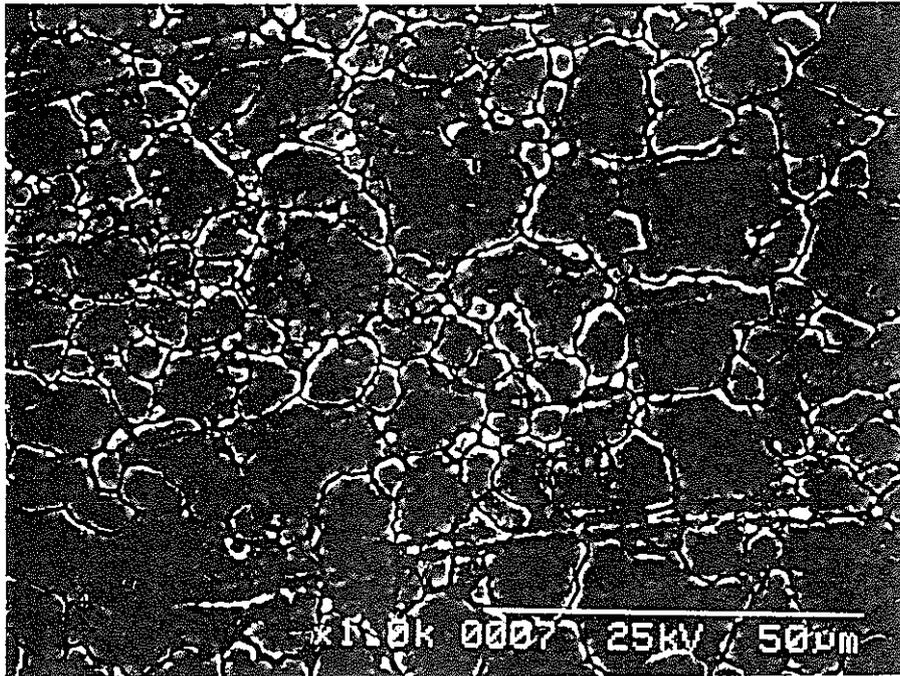


図3.16 SEMによる試験片観察写真
酸洗い試験片
レーザー照射前

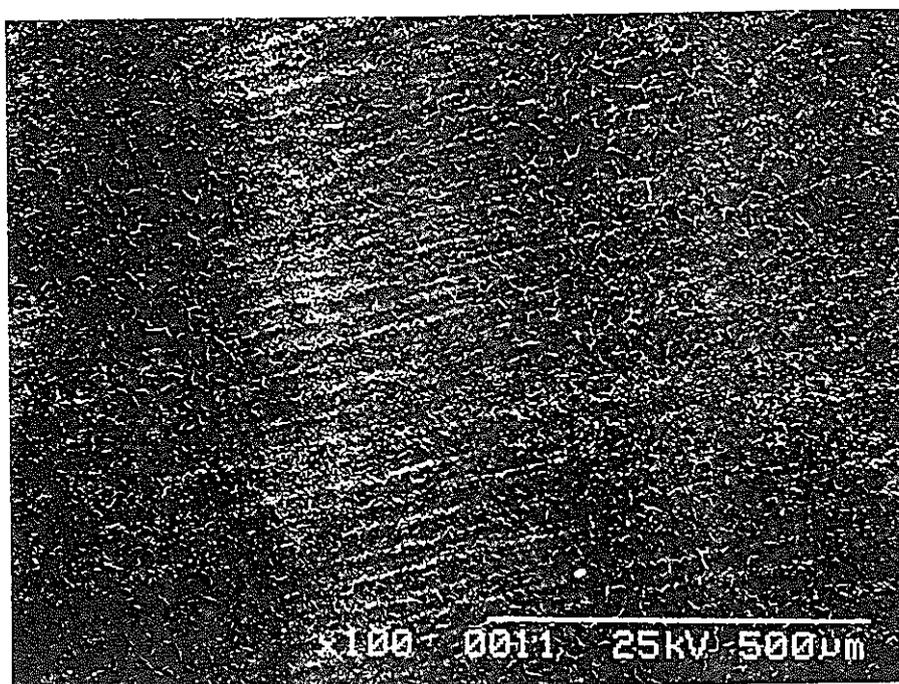
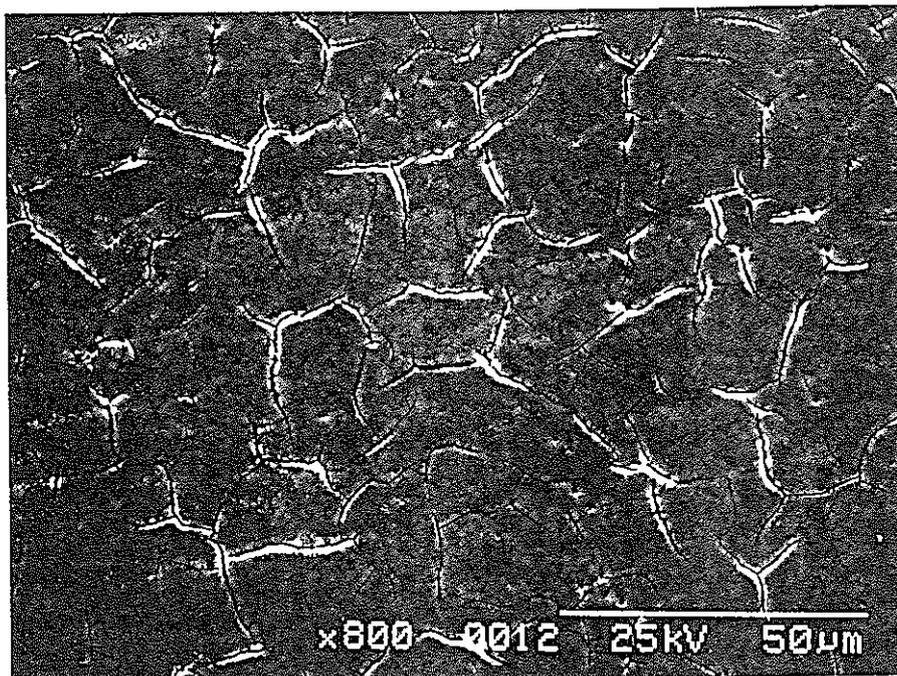


図3.17 SEMによる試験片観察写真
酸洗い試験片
Air雰囲気

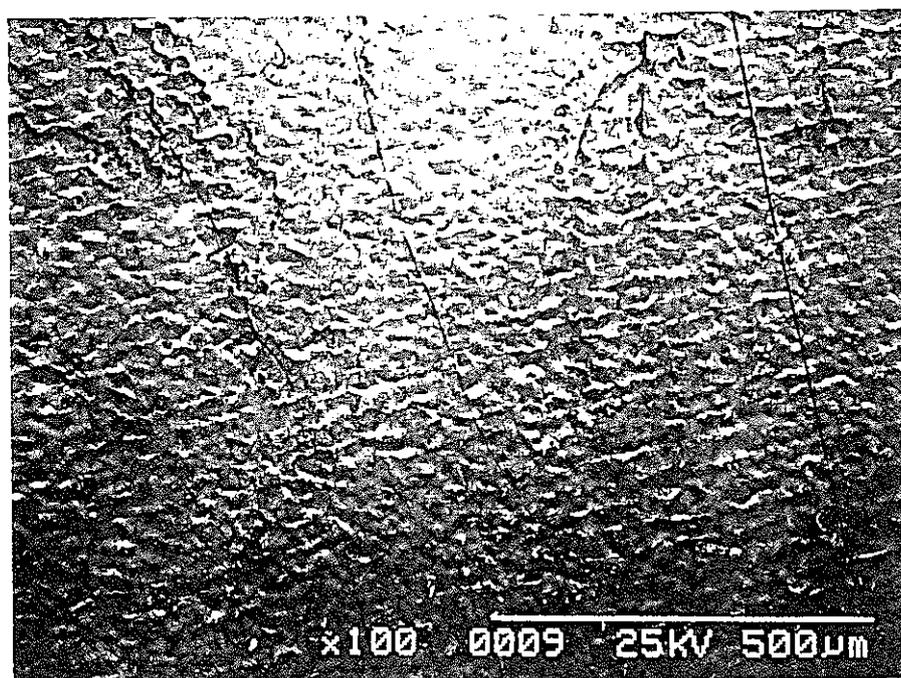


図3.18 SEMによる試験片観察写真
酸洗い試験片
He雰囲気

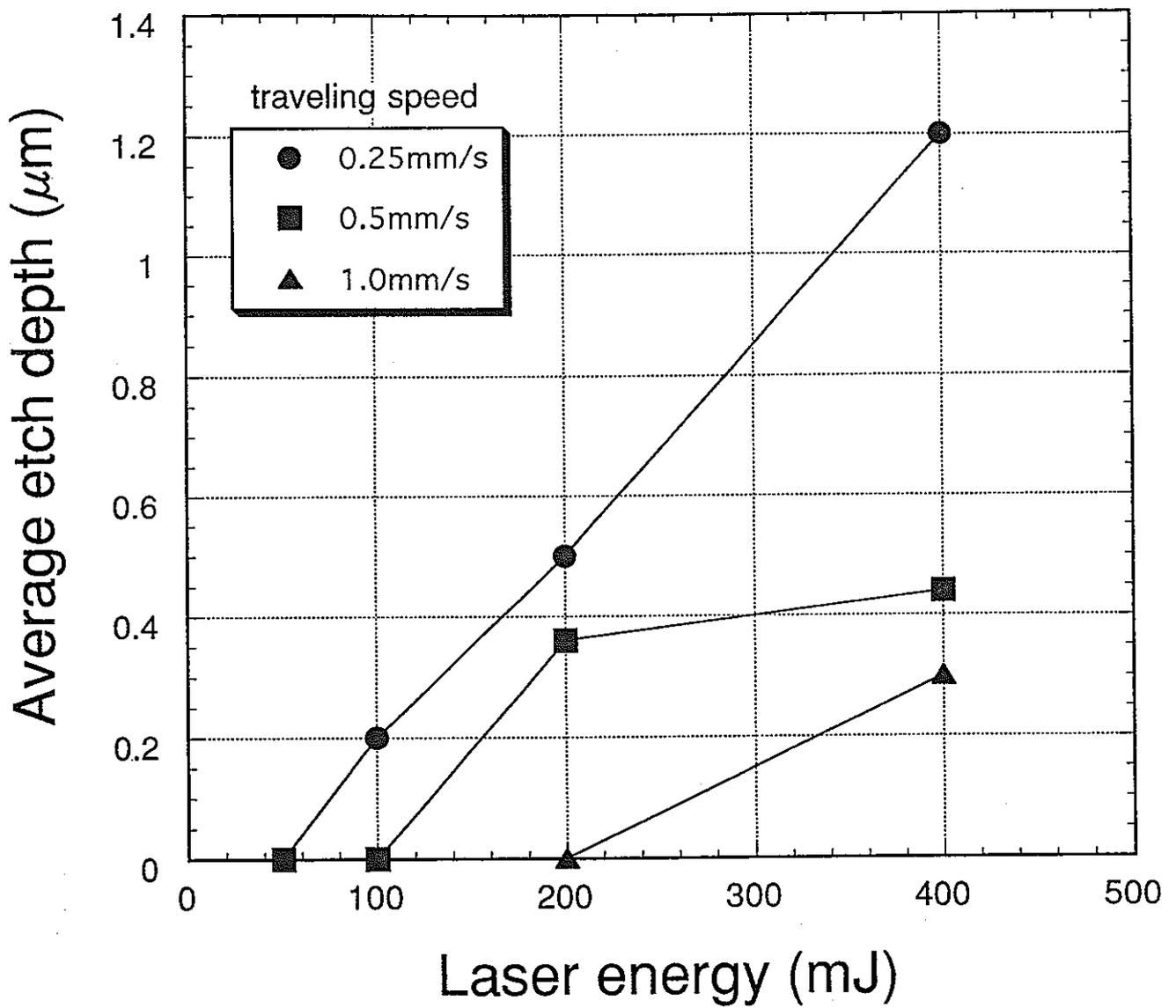


図3.19 レーザーエネルギーの平均除去深さへの影響
バフ研磨仕上げ試験片

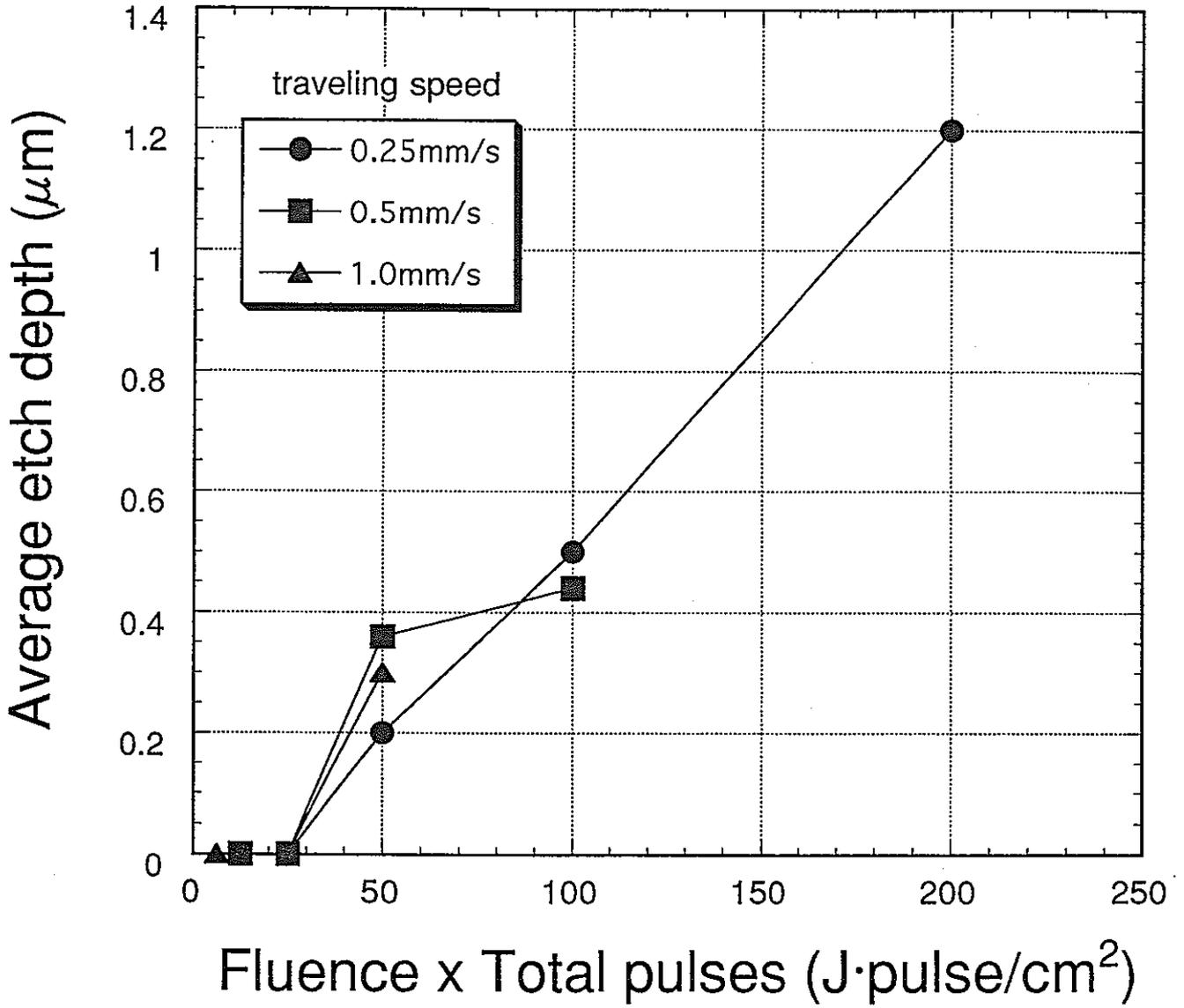


図3.20 エネルギー密度とパルス数の積の
平均除去深さへの影響
バフ研磨仕上げ試験片

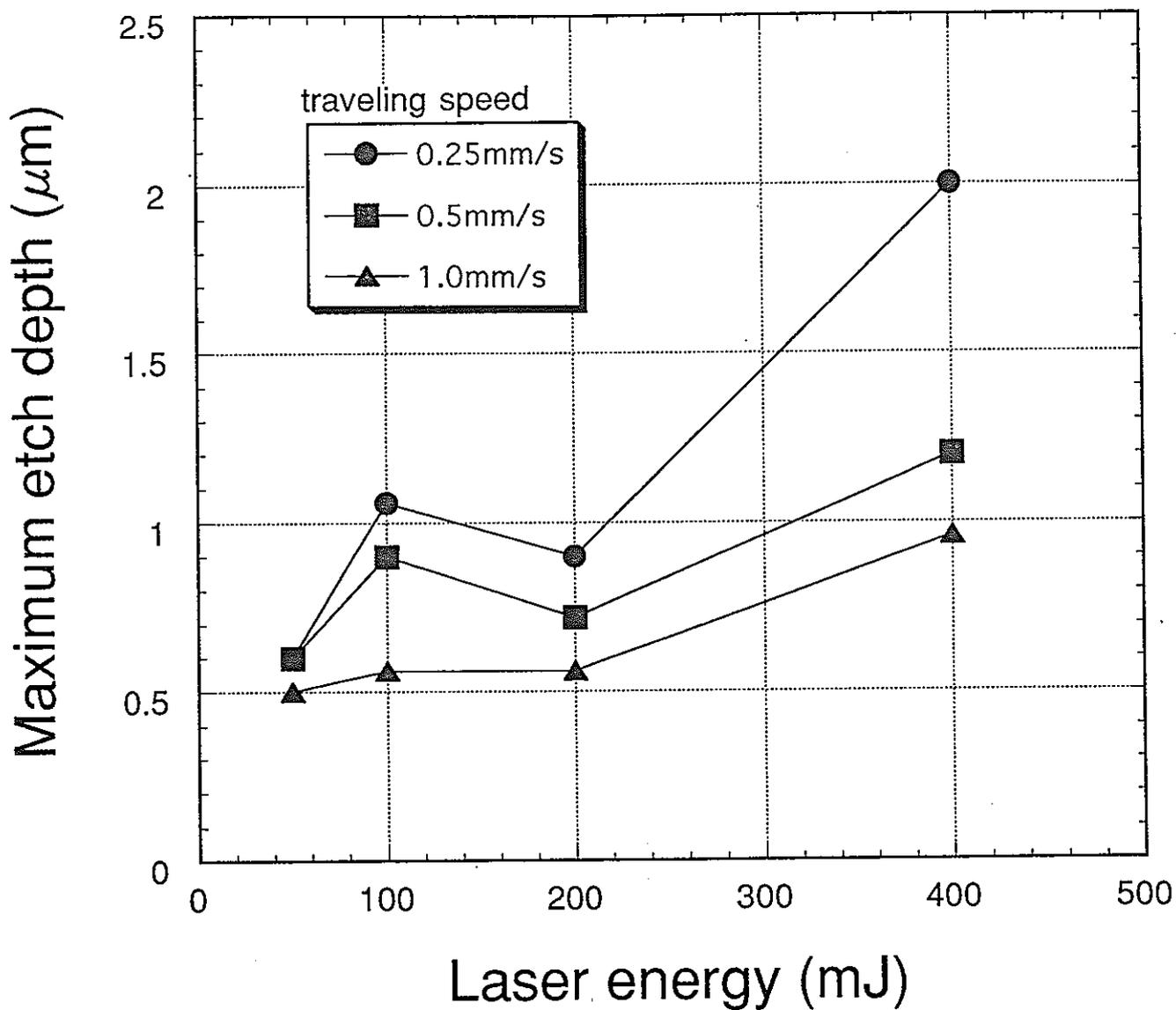


図3.21 レーザーエネルギーの最大除去深さへの影響
バフ研磨仕上げ試験片

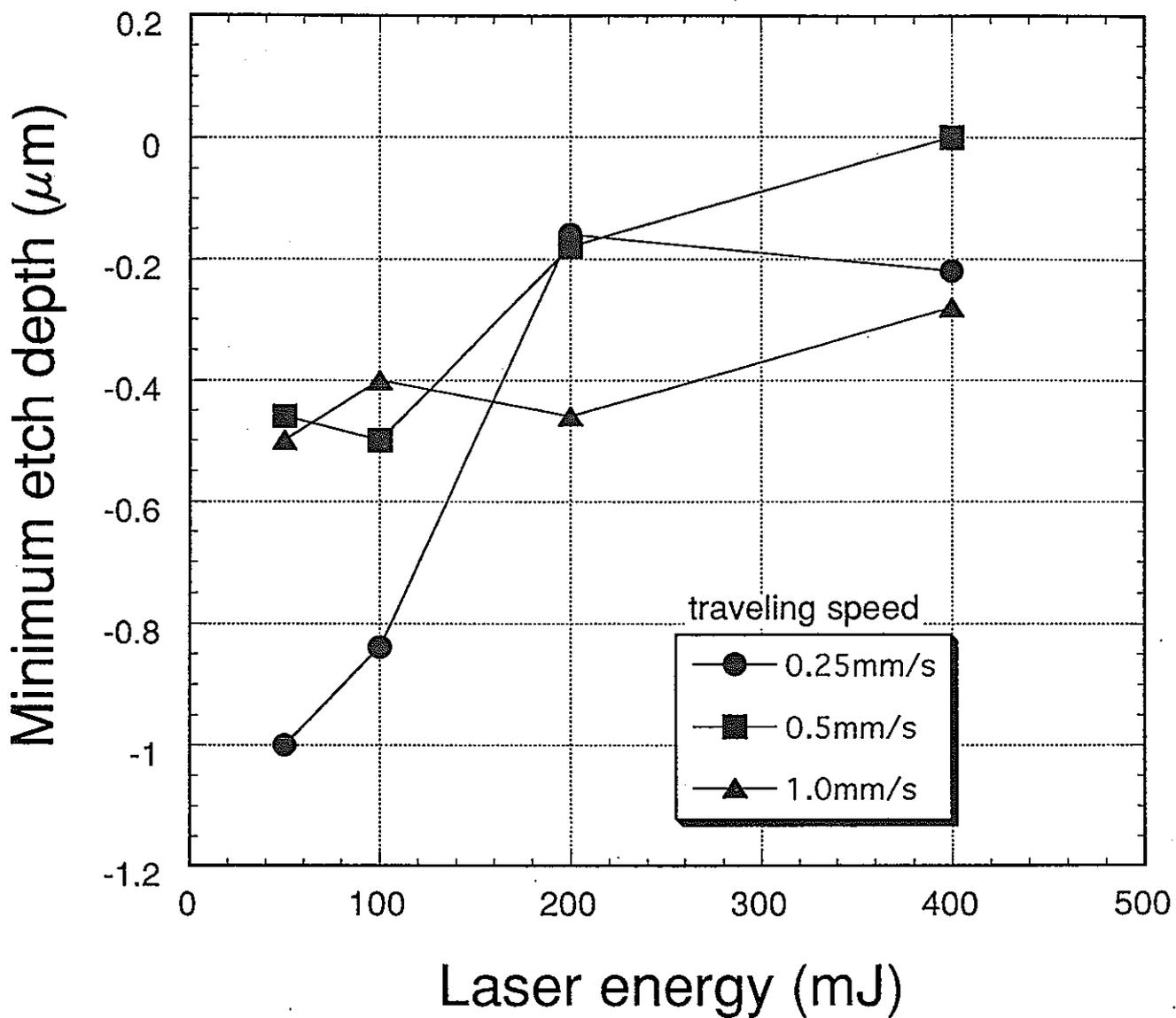


図3.22 レーザーエネルギーの最小除去深さへの影響
 バフ研磨仕上げ試験片

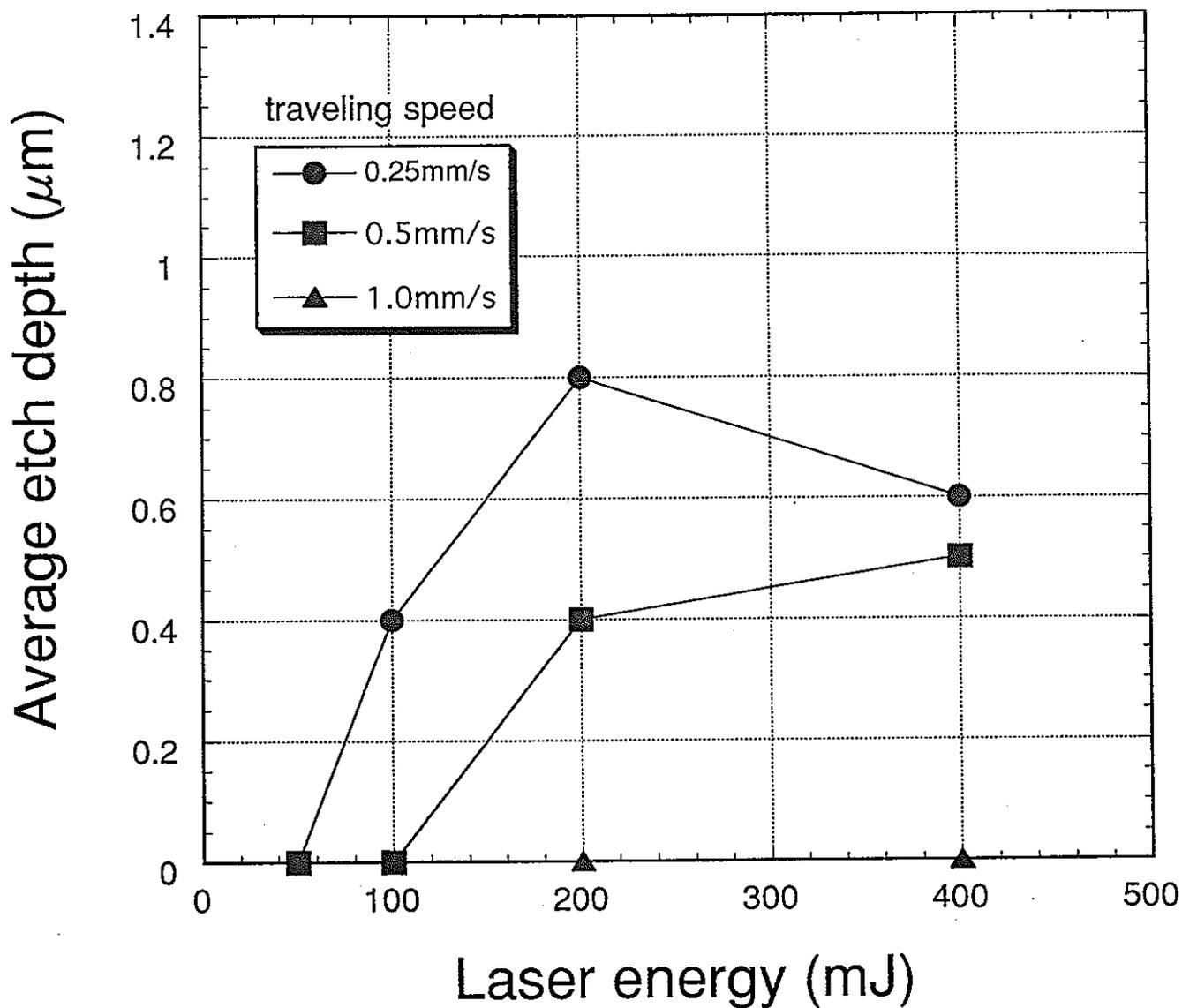


図3.23 レーザーエネルギーの平均除去深さへの影響
酸洗い試験片

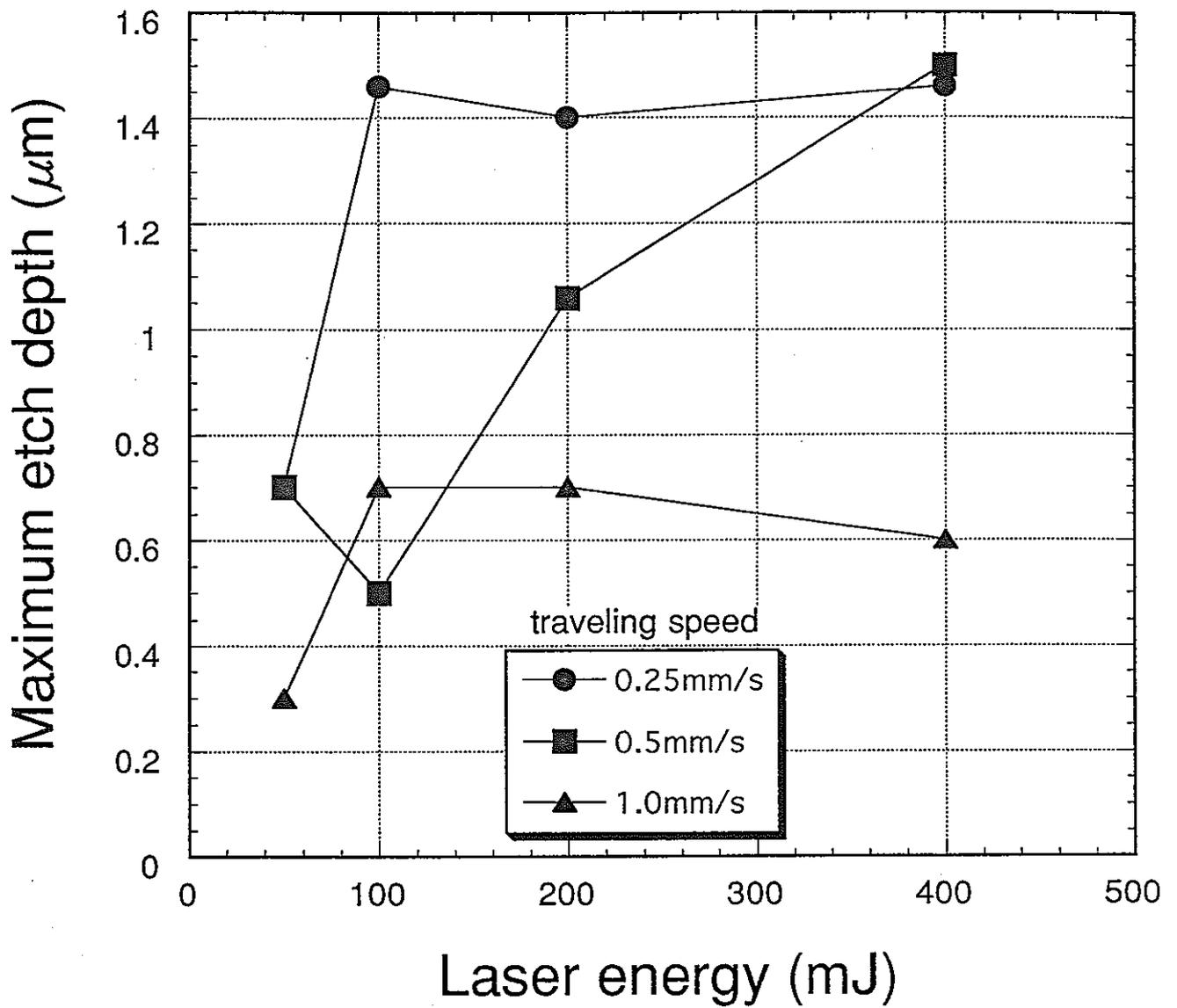


図3.24 レーザーエネルギーの最大除去深さへの影響
酸洗い試験片

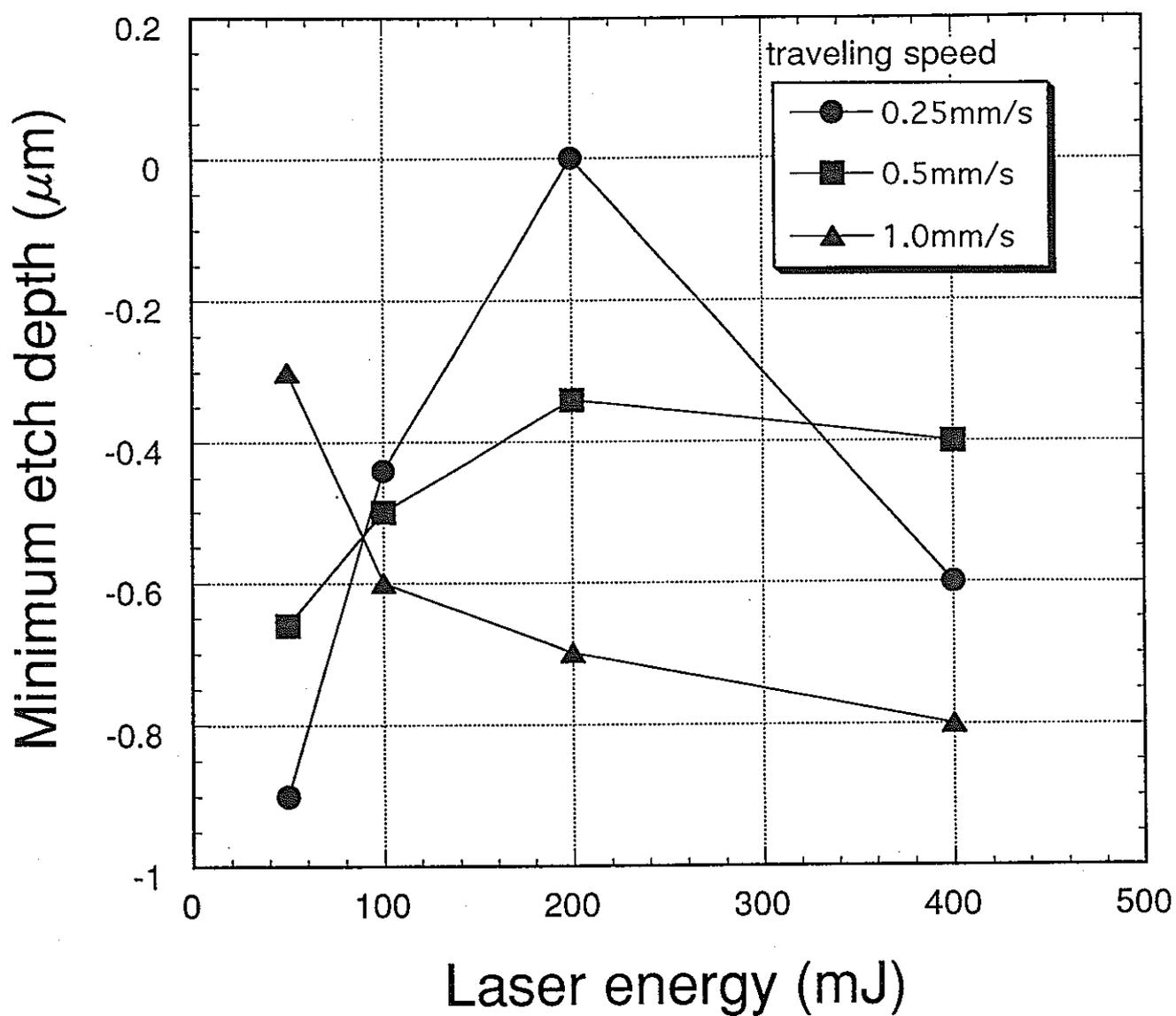
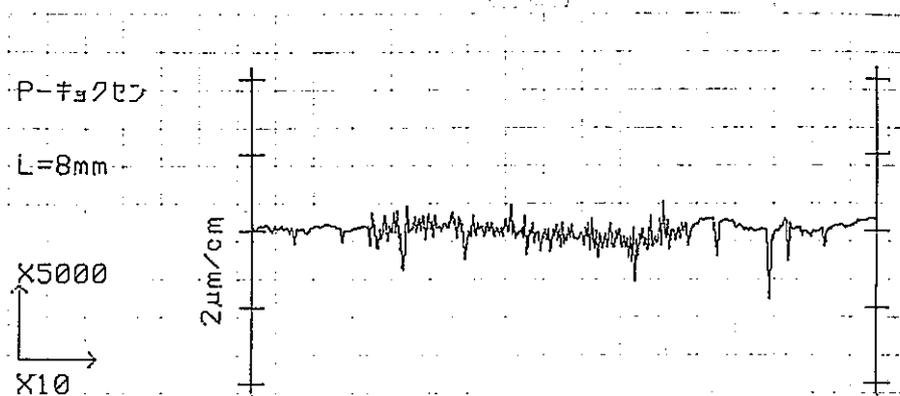


図3.25 レーザーエネルギーの最小除去深さへの影響
酸洗い試験片

レーザー
エネルギー
50mJ



100mJ

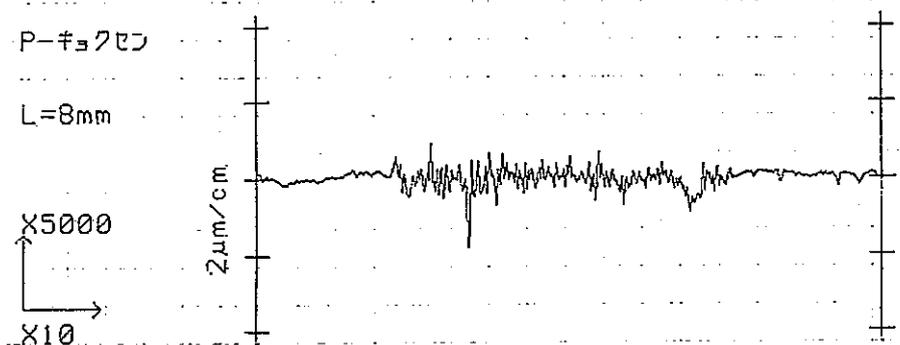


図3.26 断面曲線
バフ研磨試験片
ディフォーカス長さ:5mm, 送り速度:0.25mm/s

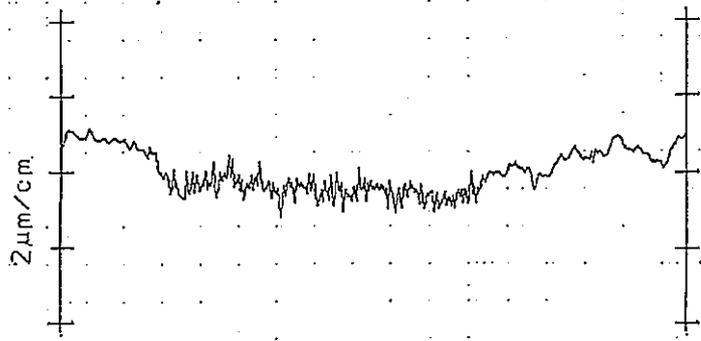
レーザー
エネルギー
200mJ

P-キョクセン

L=8mm

X5000

X10



400mJ

P-キョクセン

L=8mm

X5000

X10

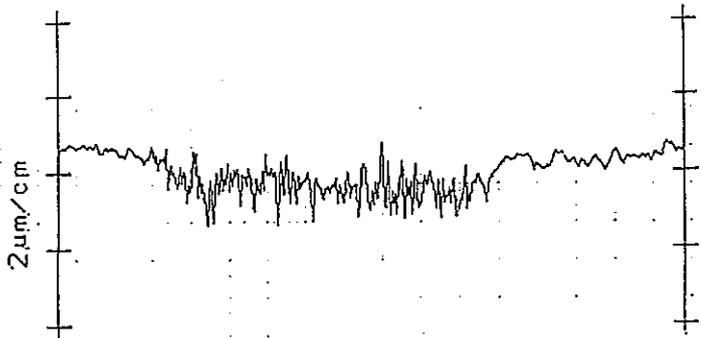
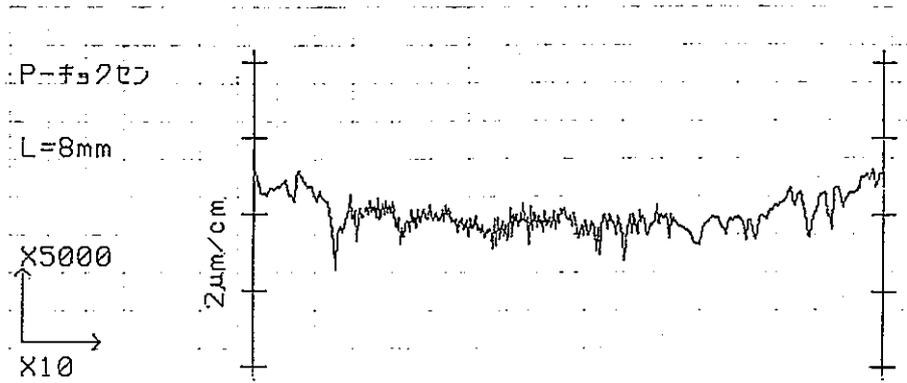


図3.27 断面曲線
バフ研磨仕上げ試験片
ディフォーカス長さ:5mm; 送り速度:0.25mm/s

レーザー
エネルギー
50mJ



100mJ

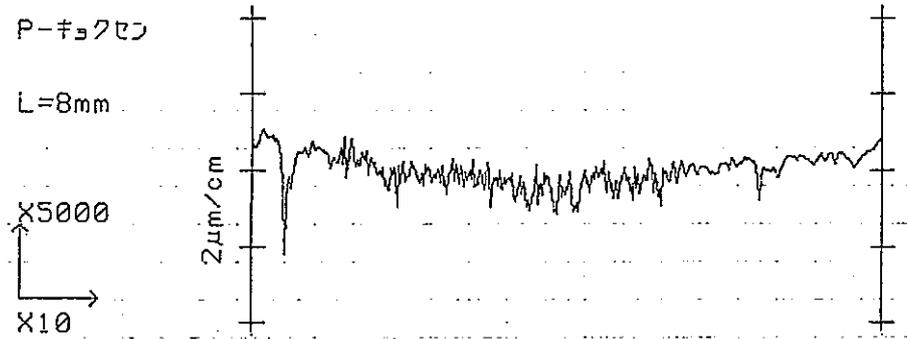
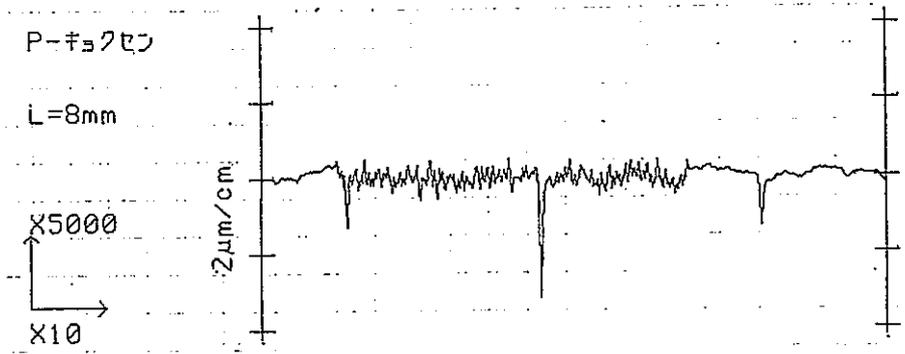


図3.28 断面曲線
バフ研磨仕上げ試験片
ディフォーカス長さ:5mm, 送り速度:0.5mm/s

レーザー
エネルギー
200mJ



400mJ

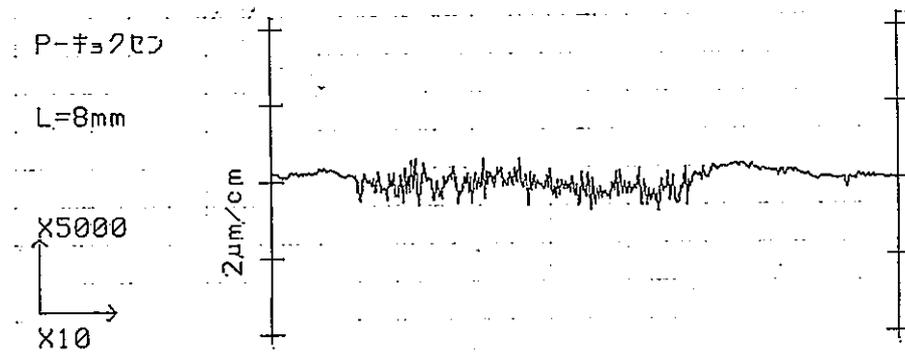


図3.29 断面曲線
バフ研磨仕上げ試験片
ディフォーカス長さ:5mm, 送り速度:0.5mm/s

レーザー
エネルギー
50mJ

P-キョクセン

L=8mm

X5000

X10

2 μ m/cm

P-キョクセン

L=8mm

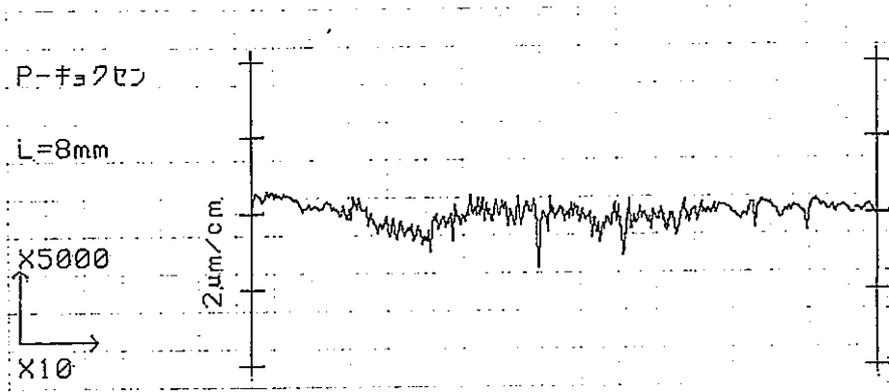
X5000

X10

2 μ m/cm

図3.30 断面曲線
バフ研磨仕上げ試験片
ディフォーカス長さ:5mm, 送り速度:1.0mm/s

レーザー
エネルギー
200mJ



400mJ

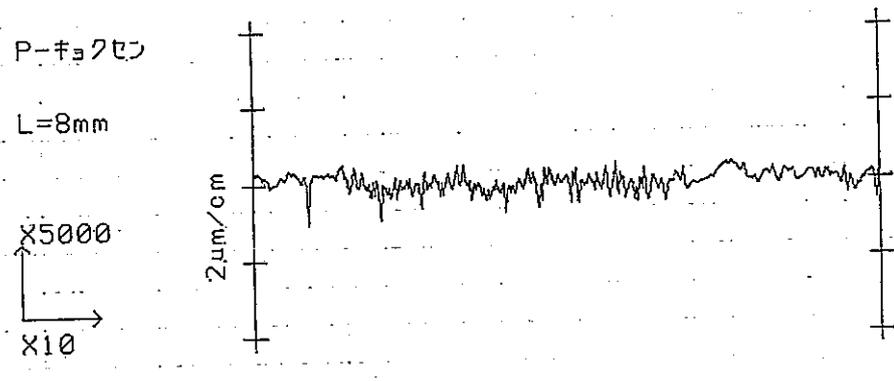


図3.31 断面曲線
バフ研磨仕上げ試験片
ディフォーカス長さ:5mm, 送り速度:1.0mm/s

レーザー
エネルギー
50mJ

P-キョクセン

L=8mm

X5000

X10

2 μ m/cm

P-キョクセン

L=8mm

X5000

X10

2 μ m/cm

100mJ

P-キョクセン

L=8mm

X5000

X10

2 μ m/cm

200mJ

P-キョクセン

L=8mm

X5000

X10

2 μ m/cm

400mJ

図3.32 断面曲線
酸洗い試験片

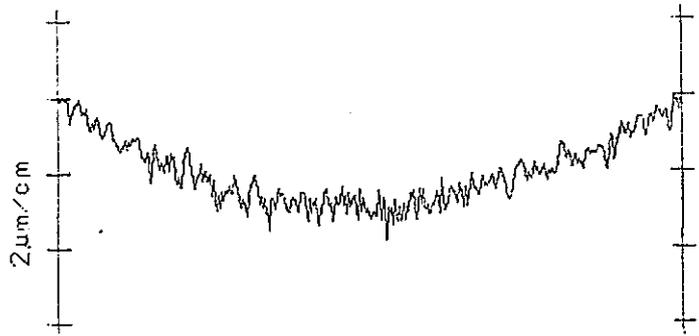
ディフォーカス長さ:5mm, 送り速度:0.25mm/s

レーザー
エネルギー
50mJ

P-キョクセン

L=8mm

X5000
X10

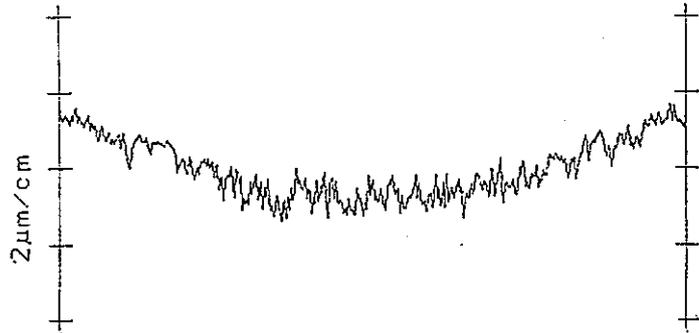


100mJ

P-キョクセン

L=8mm

X5000
X10

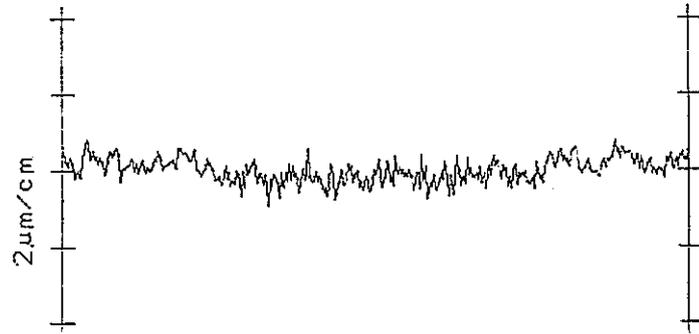


200mJ

P-キョクセン

L=8mm

X5000
X10



400mJ

P-キョクセン

L=8mm

X5000
X10

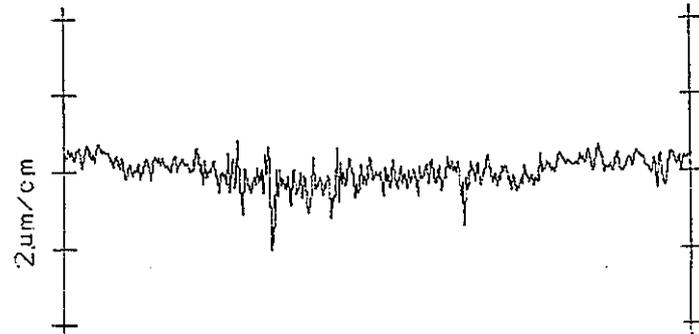
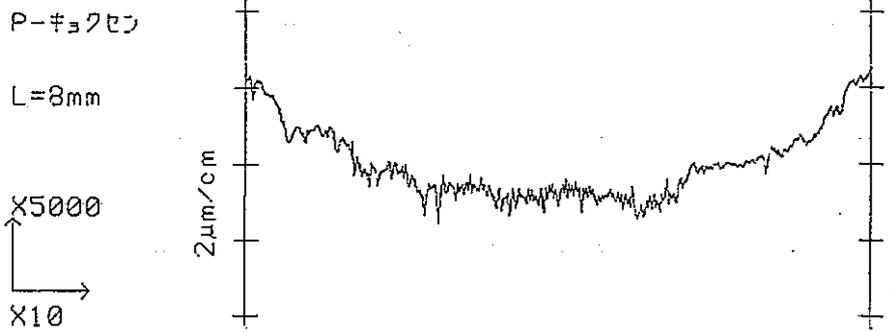


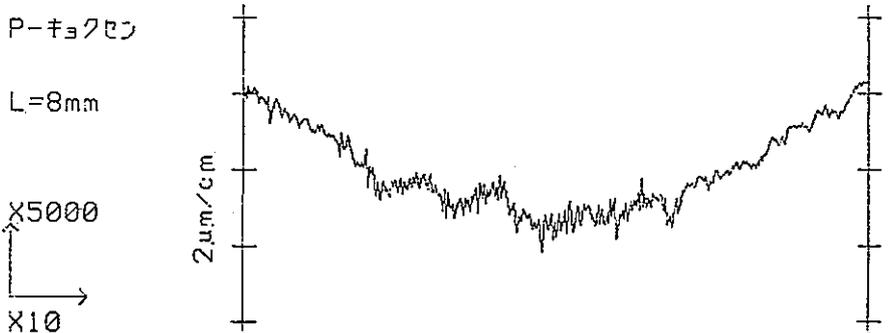
図3.33 断面曲線
酸洗い試験片

ディフォーカス長さ:5mm, 送り速度:0.5mm/s

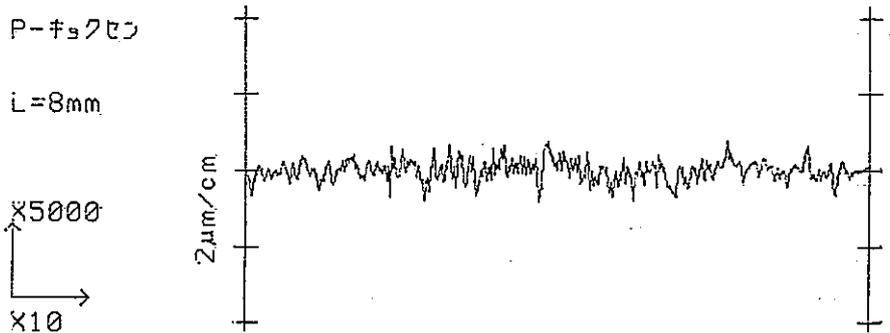
レーザー
エネルギー
50mJ



100mJ



200mJ



400mJ

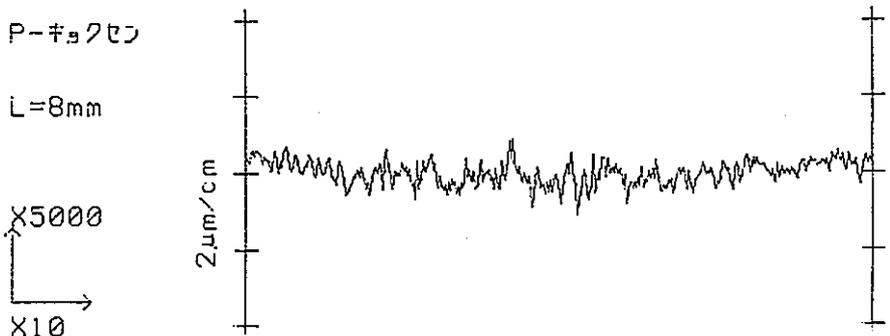
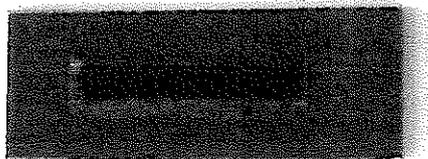
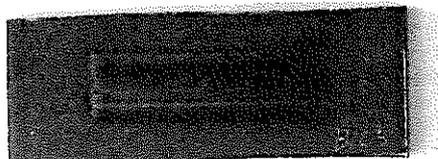


図3.34 断面曲線
酸洗い試験片
ディフォーカス長さ:5mm, 送り速度:1.0mm/s

100mJ



200mJ



400mJ

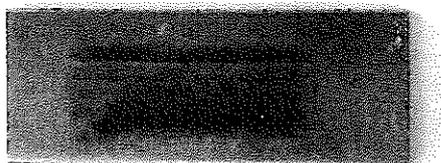
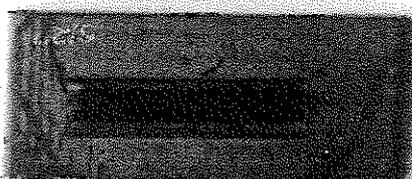
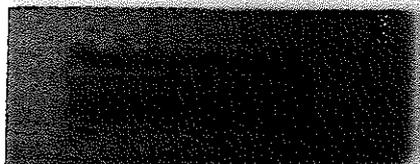


図3.35 レーザー照射後の外観写真
バフ研磨仕上げ試験片

100mJ



200mJ



400mJ

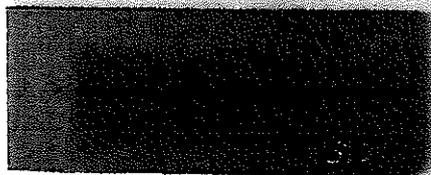


図3.36 レーザー照射後の外観写真
酸洗い試験片

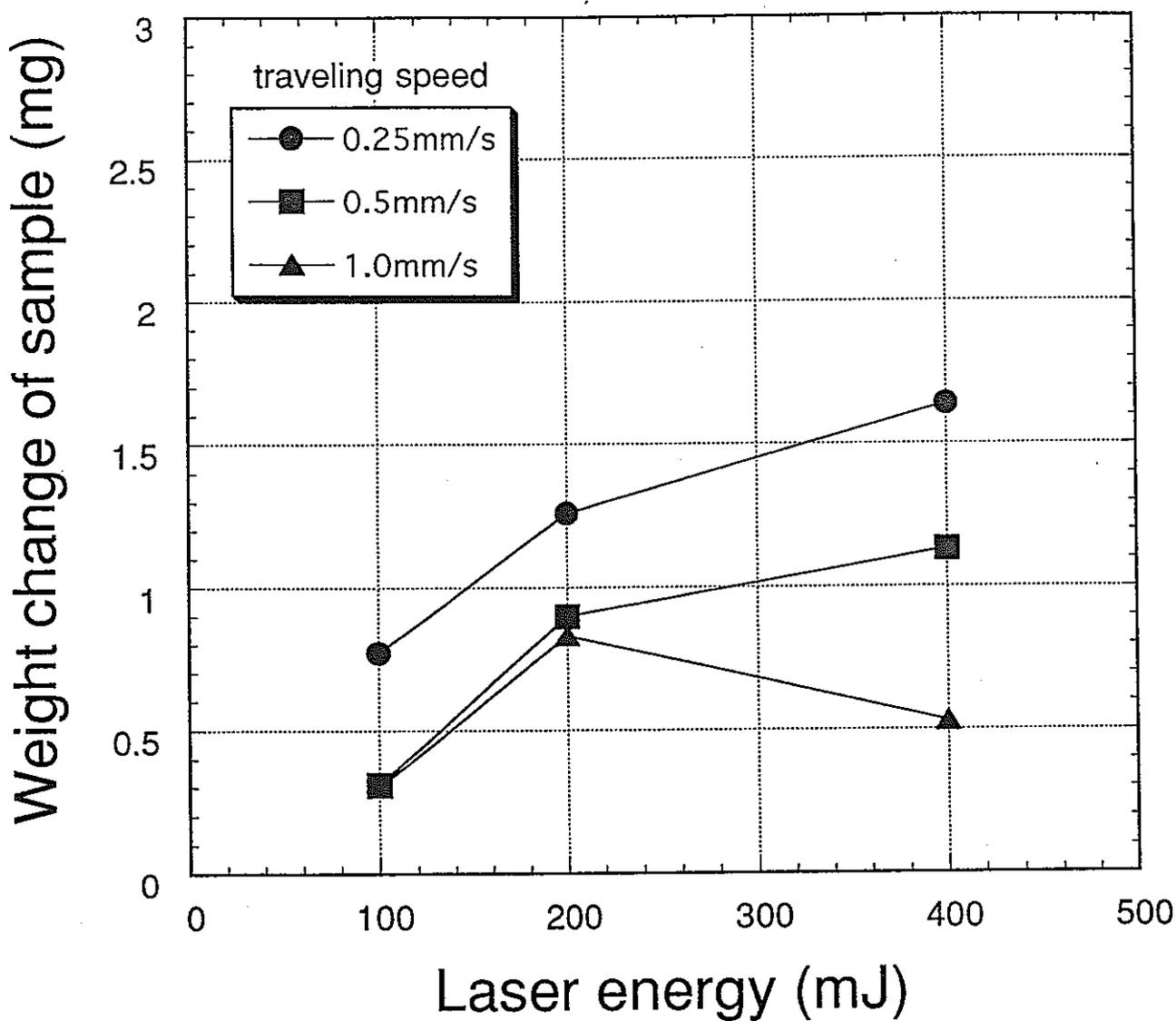


図3.37 レーザーエネルギーの試験片重量変化への影響
バフ研磨仕上げ試験片

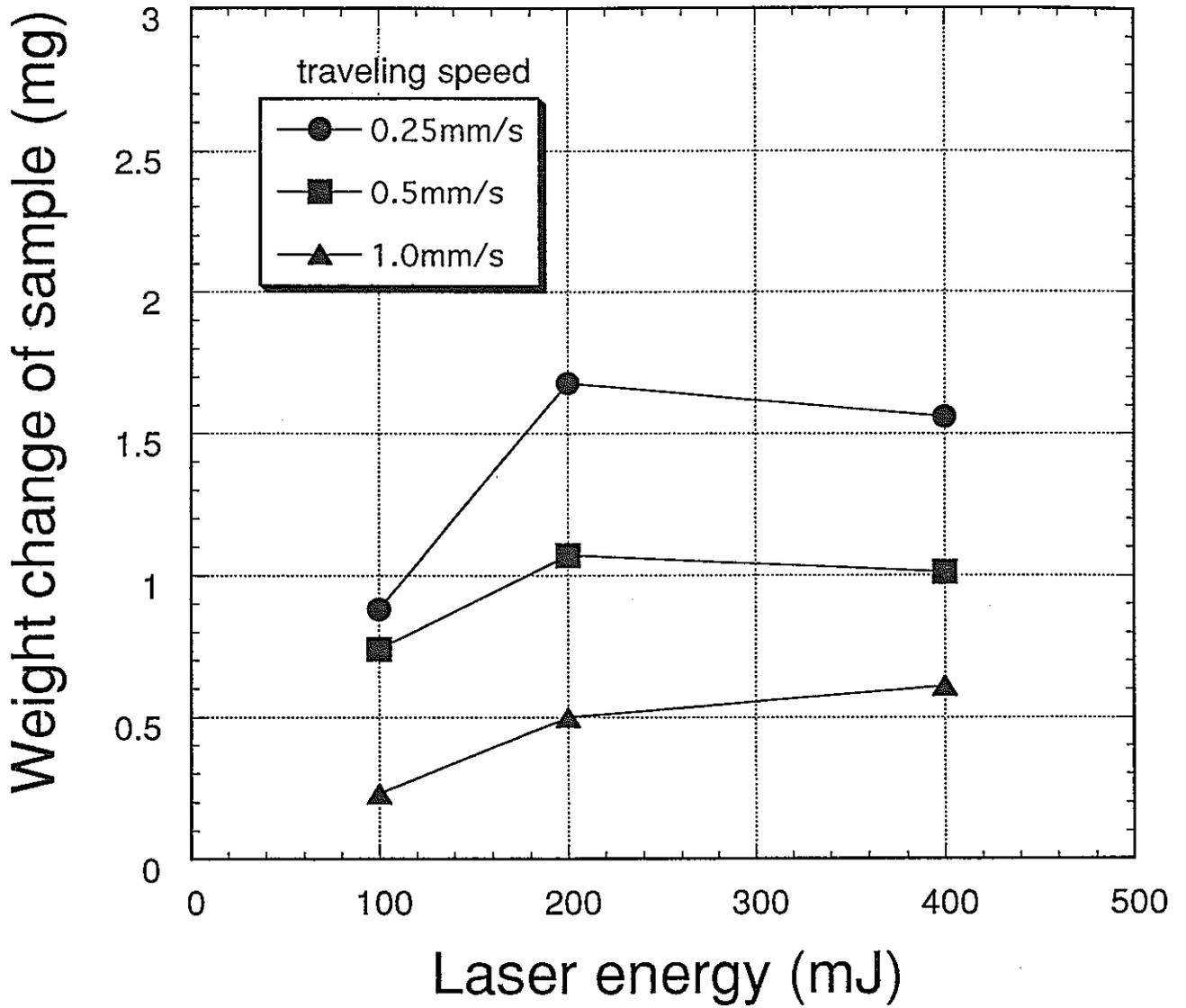


図3.38 レーザーエネルギーの試験片重量変化への影響
酸洗い試験片

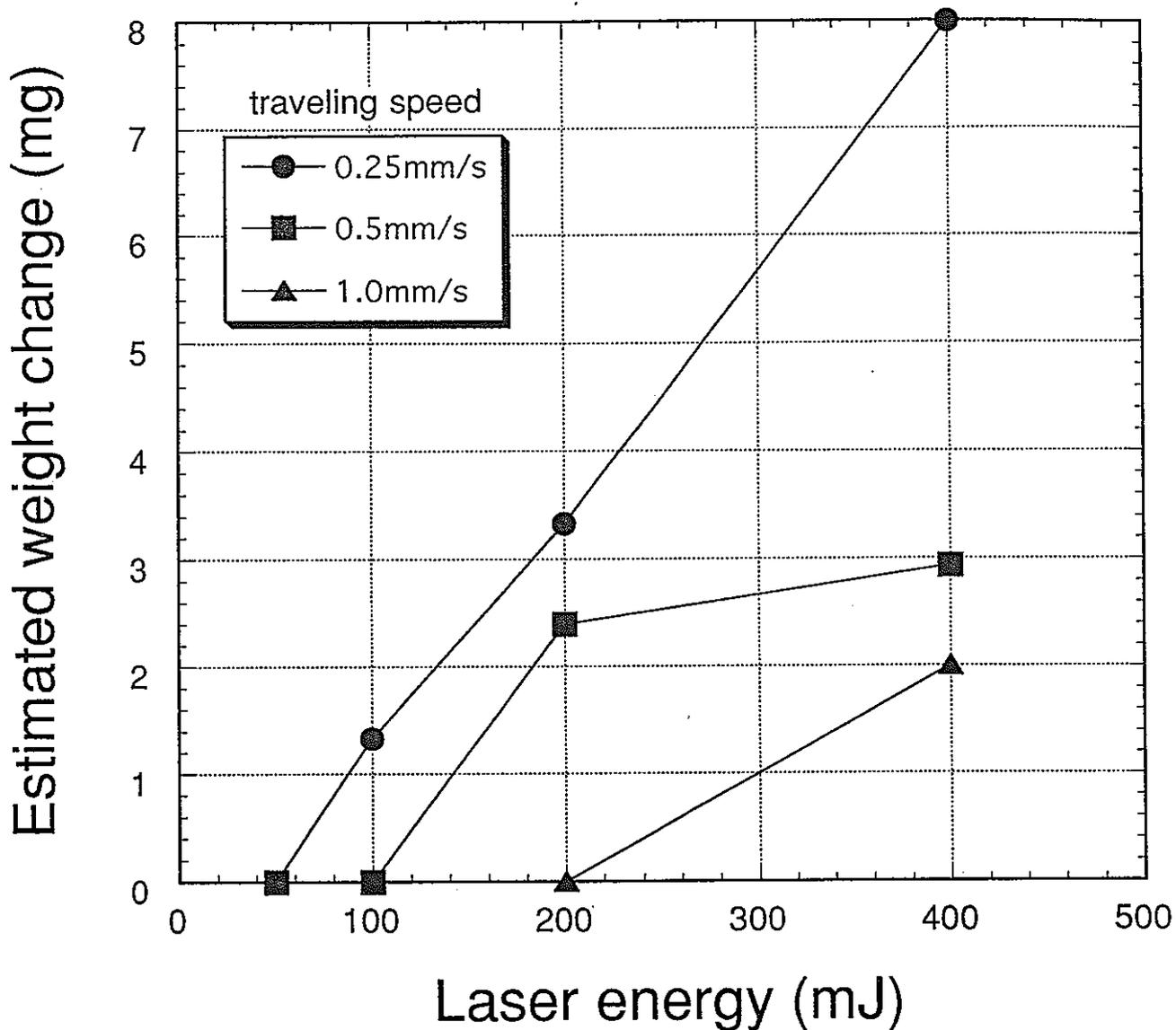


図3.39 レーザーエネルギーの重量変化計算値への影響
バフ研磨仕上げ試験片

平均除去深さx7mmx120mmx7.93mg/mm³

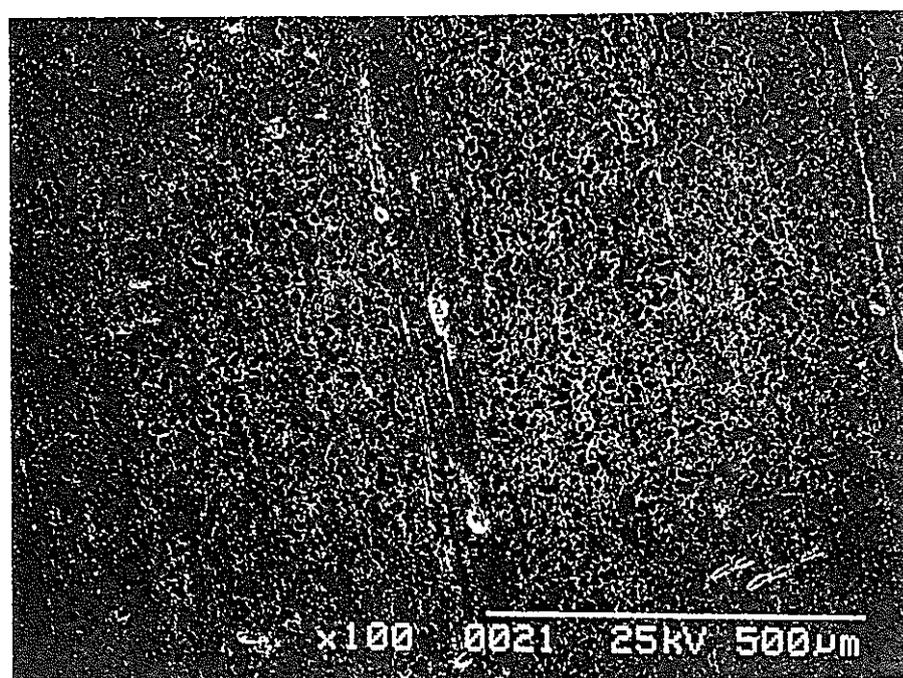
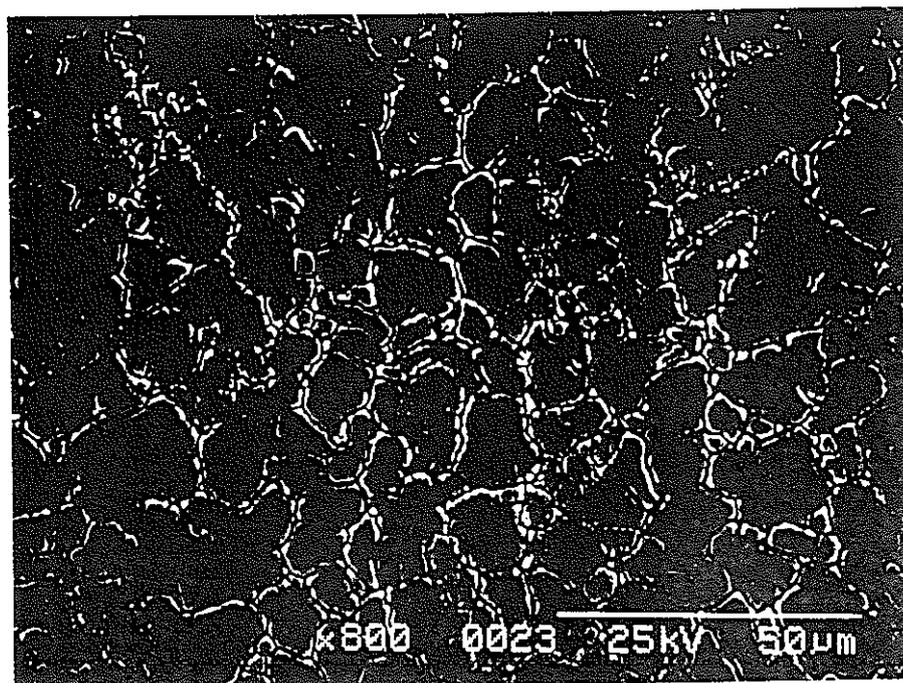


図3.40 SEMによる試験片観察写真
酸洗い試験片
レーザー照射前

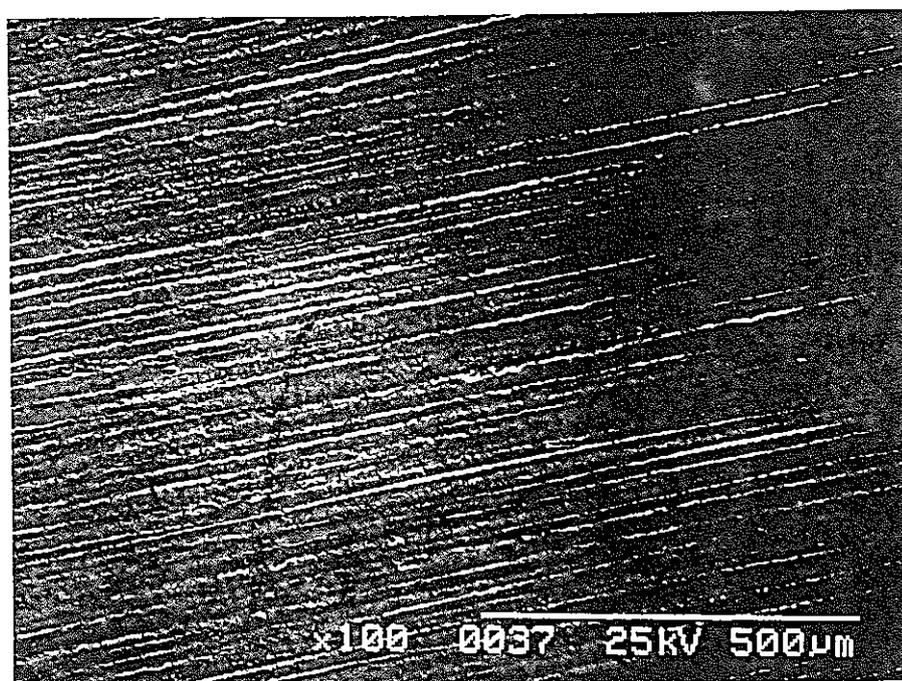
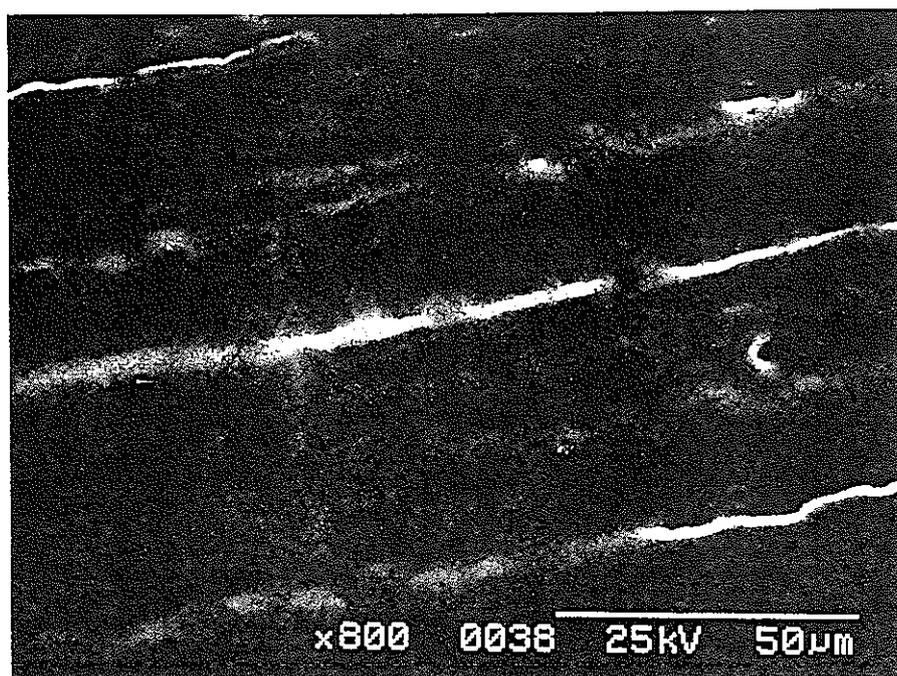


図3.41 SEMによる試験片観察写真
酸洗い試験片
送り速度:0.25mm/s, エネルギー:50mJ

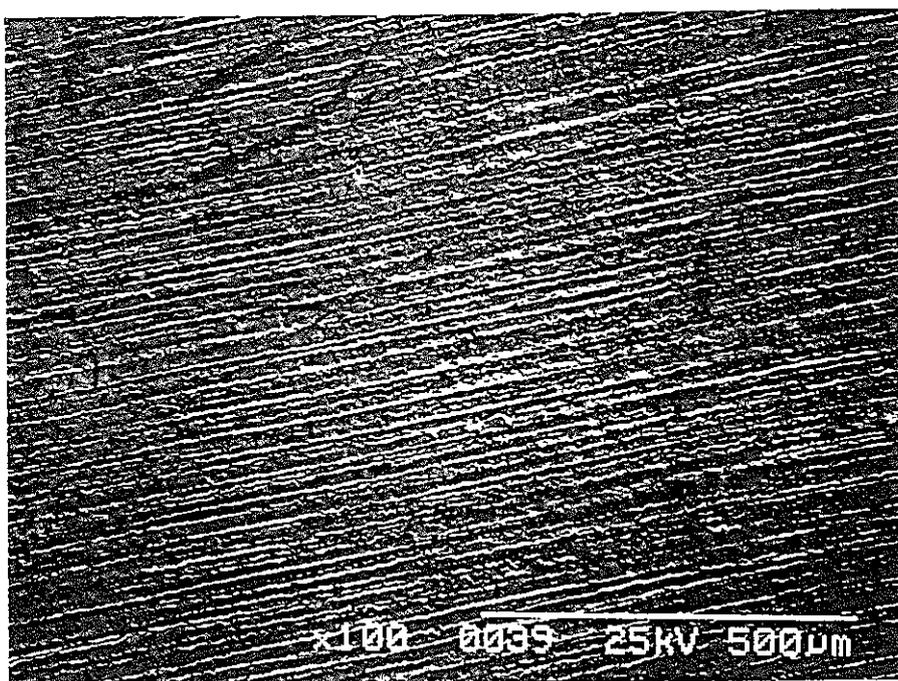
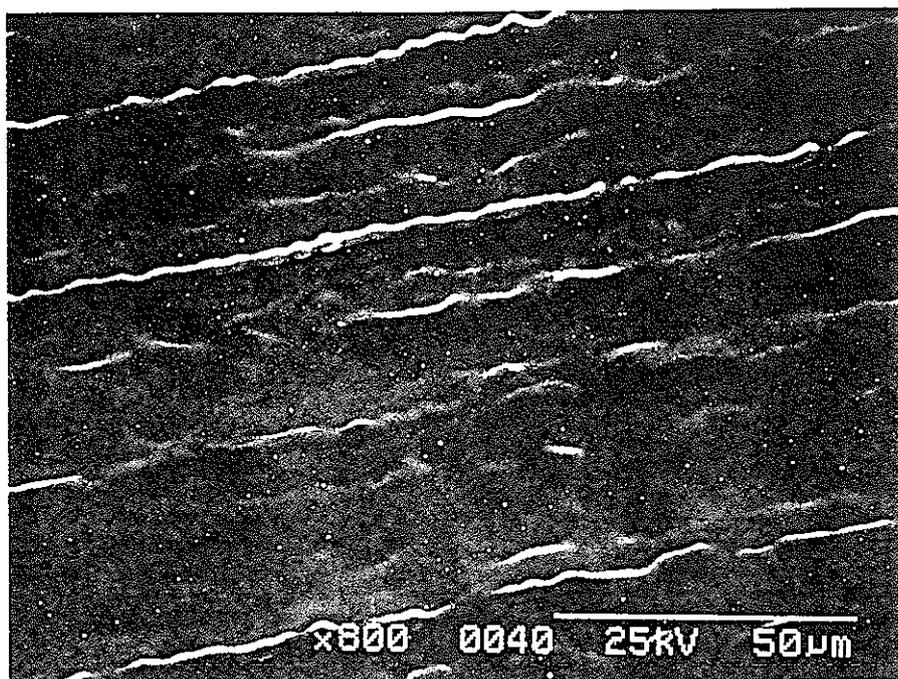


図3.42 SEMによる試験片観察写真
酸洗い試験片
送り速度:0.25mm/s, エネルギー:100mJ

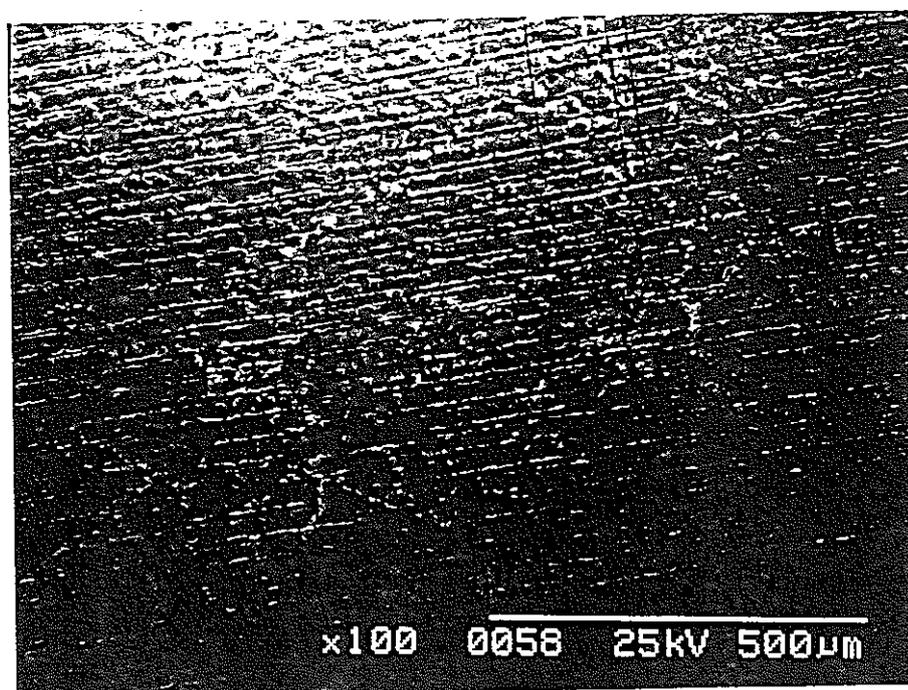
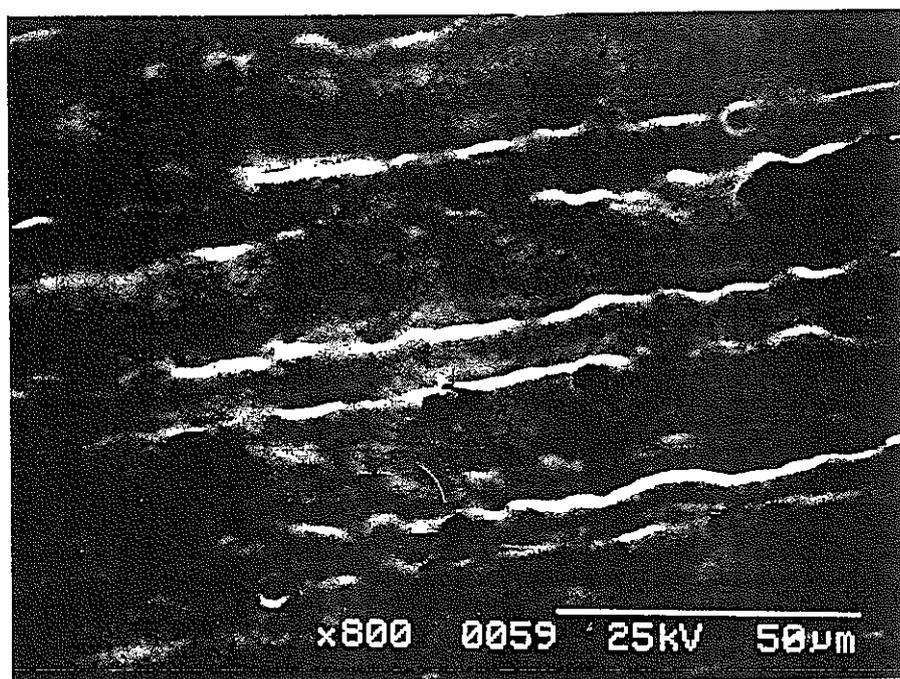


図3.43 SEMによる試験片観察写真
酸洗い試験片
送り速度:0.25mm/s, エネルギー:200mJ

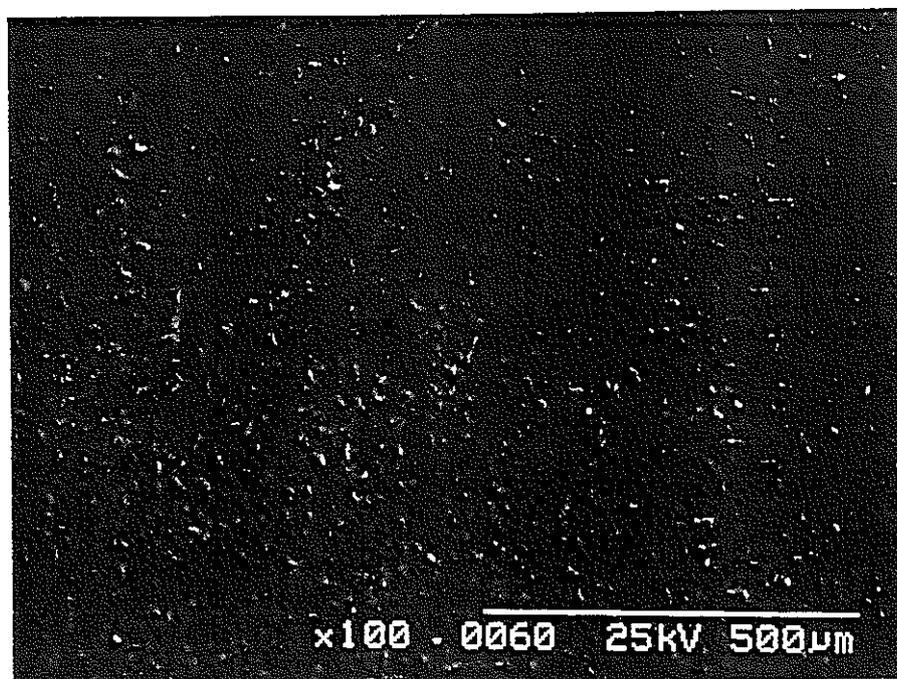
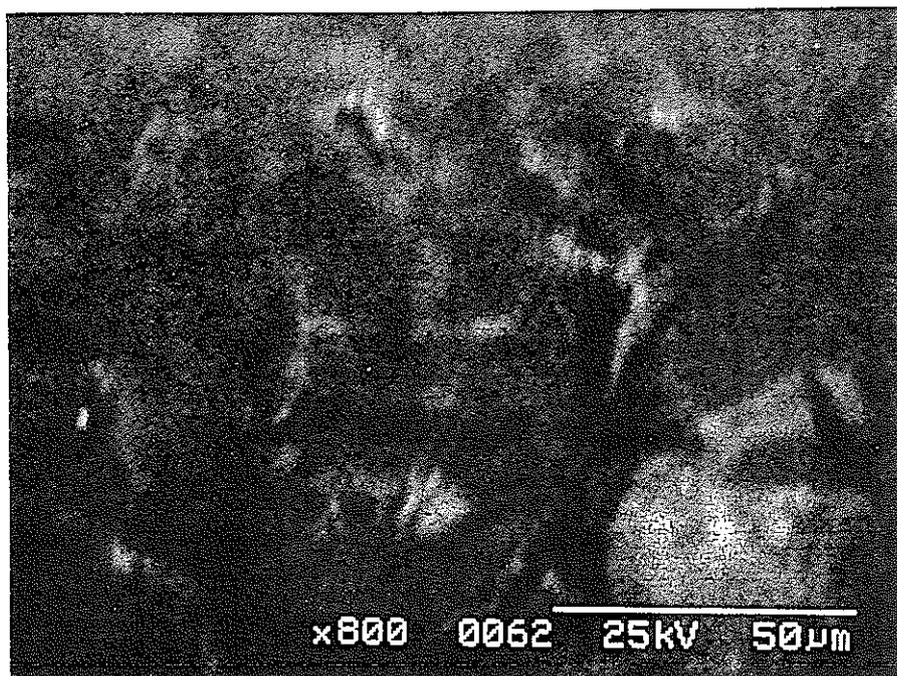


図3.44 SEMによる試験片観察写真
酸洗い試験片
送り速度:0.25mm/s, エネルギー:400mJ

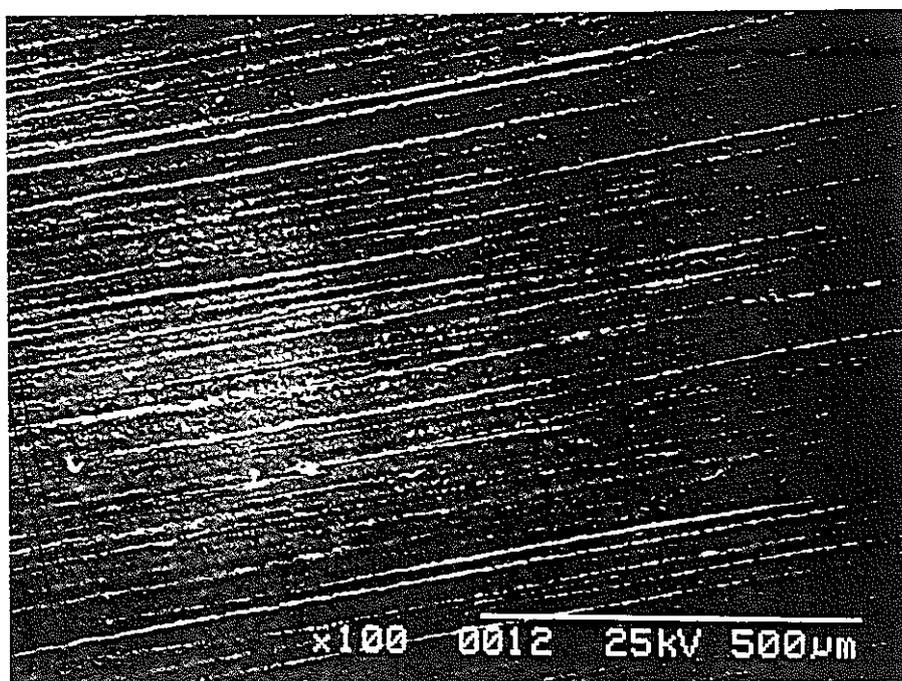
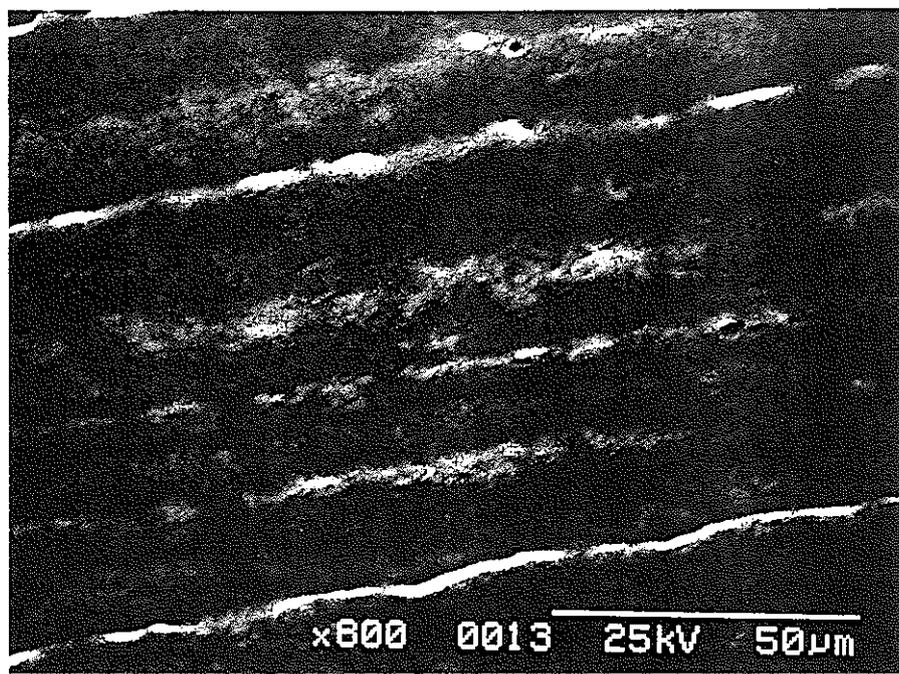


図3.45 SEMによる試験片観察写真
酸洗い試験片
送り速度:0.5mm/s, エネルギー:50mJ

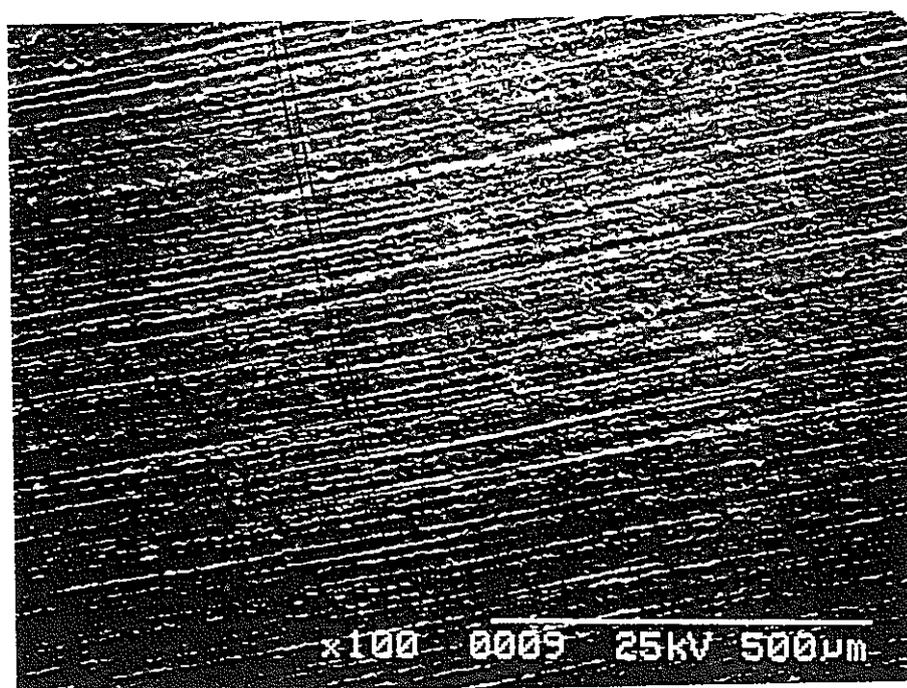
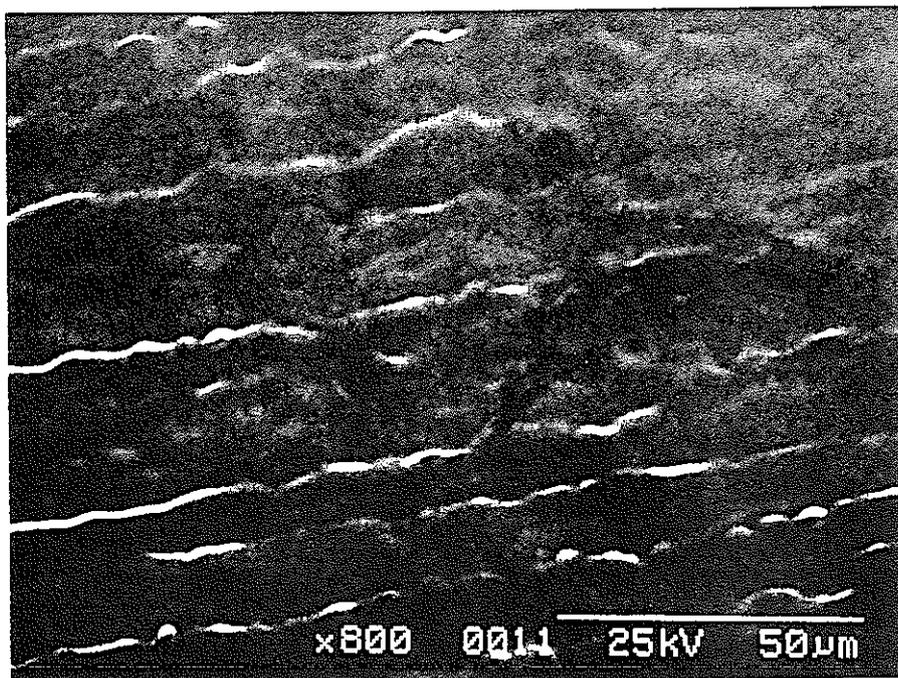


図3.46 SEMによる試験片観察写真
酸洗い試験片
送り速度:0.5mm/s, エネルギー:100mJ

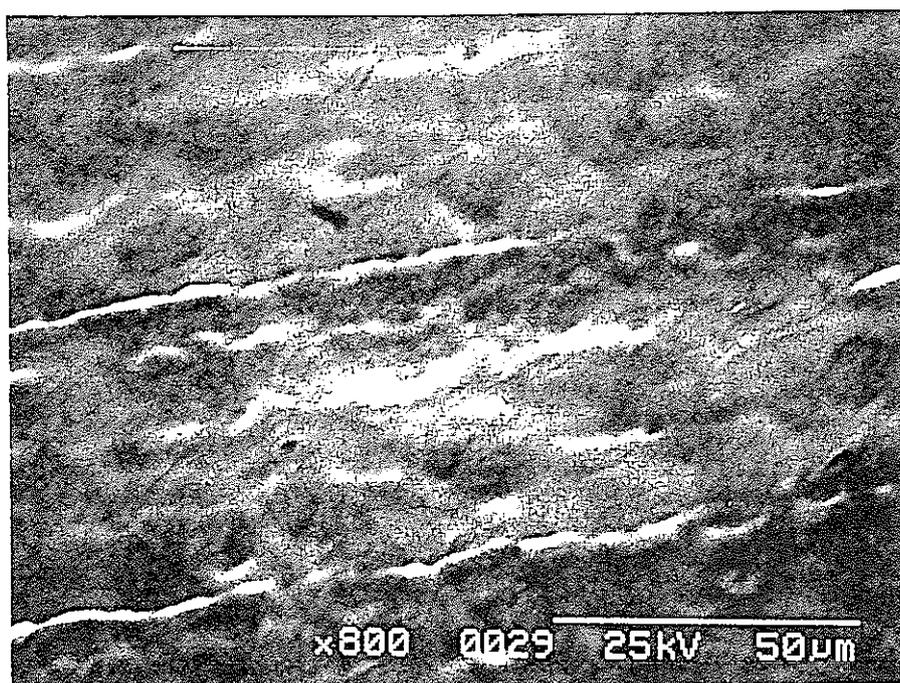


図3.47 SEMによる試験片観察写真
酸洗い試験片
送り速度:0.5mm/s, エネルギー:200mJ

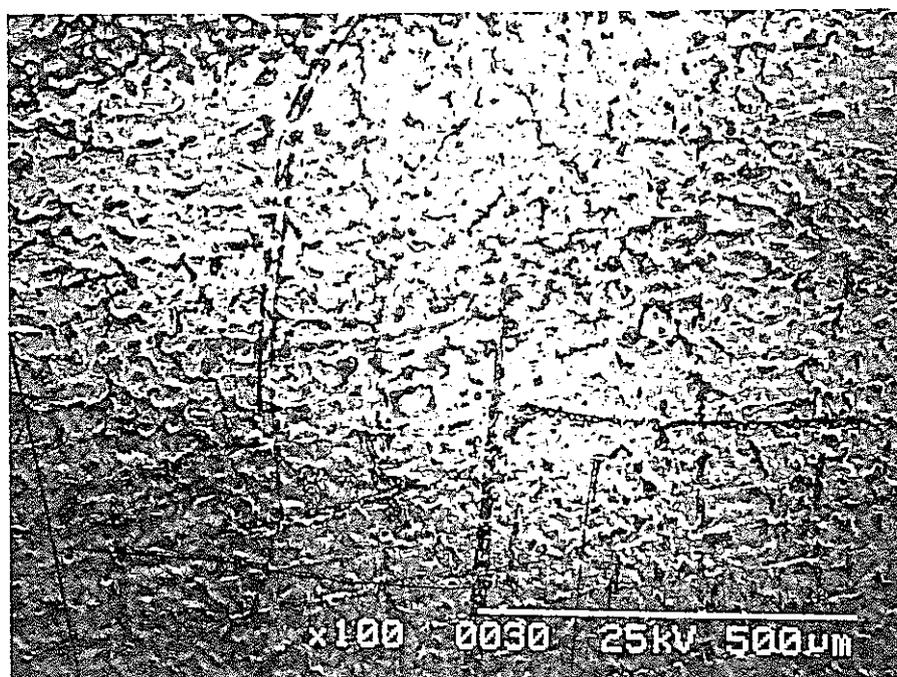
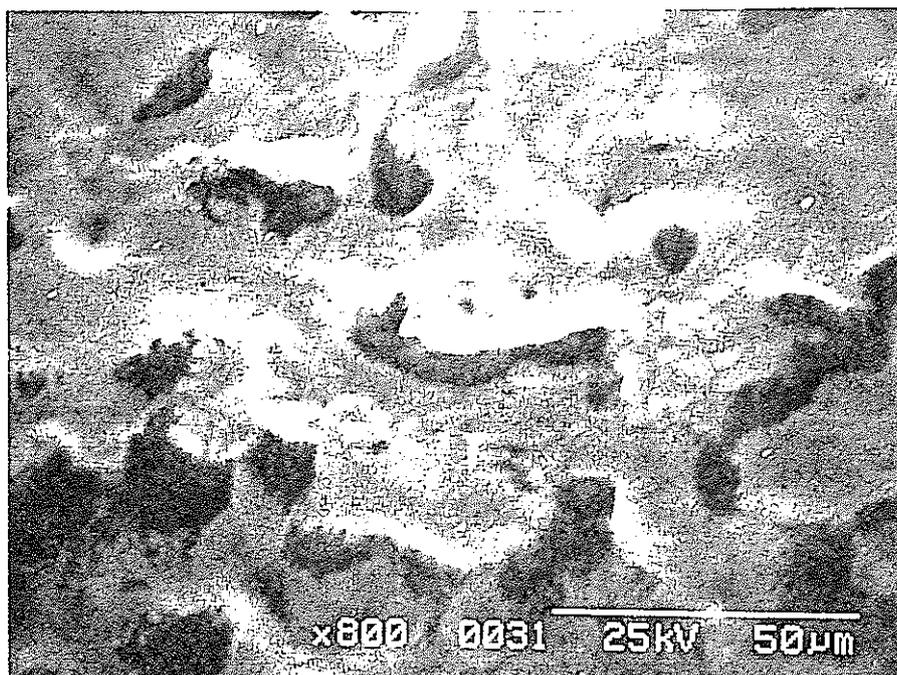


図3.48 SEMによる試験片観察写真
酸洗い試験片
送り速度:0.5mm/s, エネルギー:400mJ

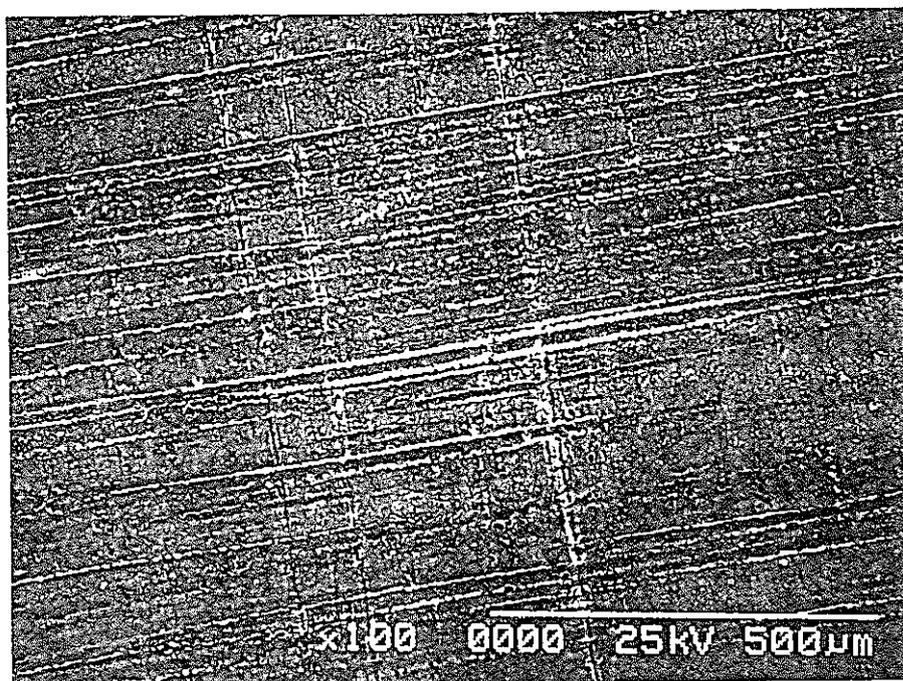
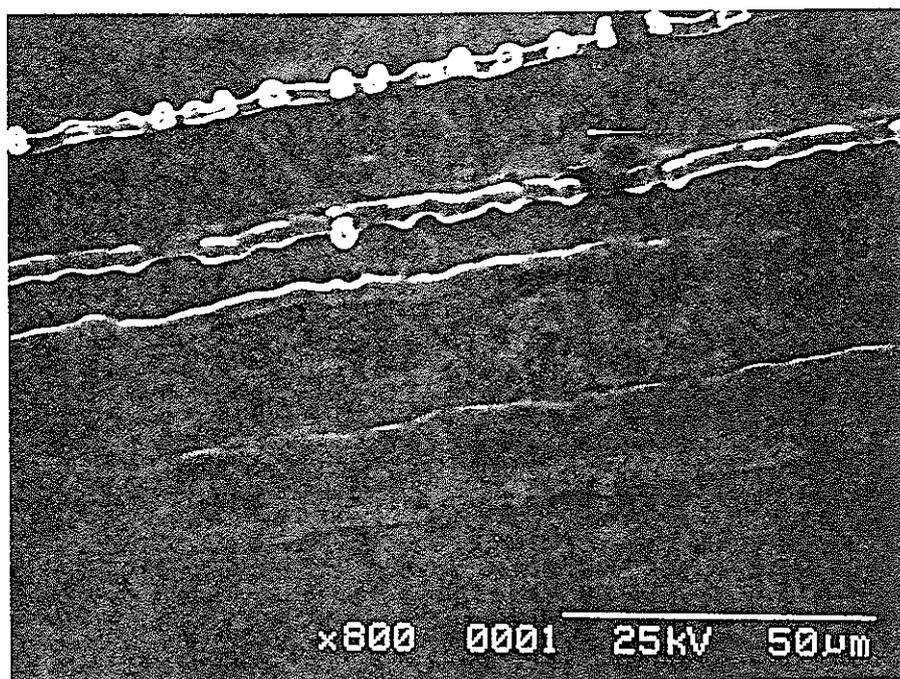


図3.49 SEMによる試験片観察写真
酸洗い試験片
送り速度:1.0mm/s, エネルギー:50mJ

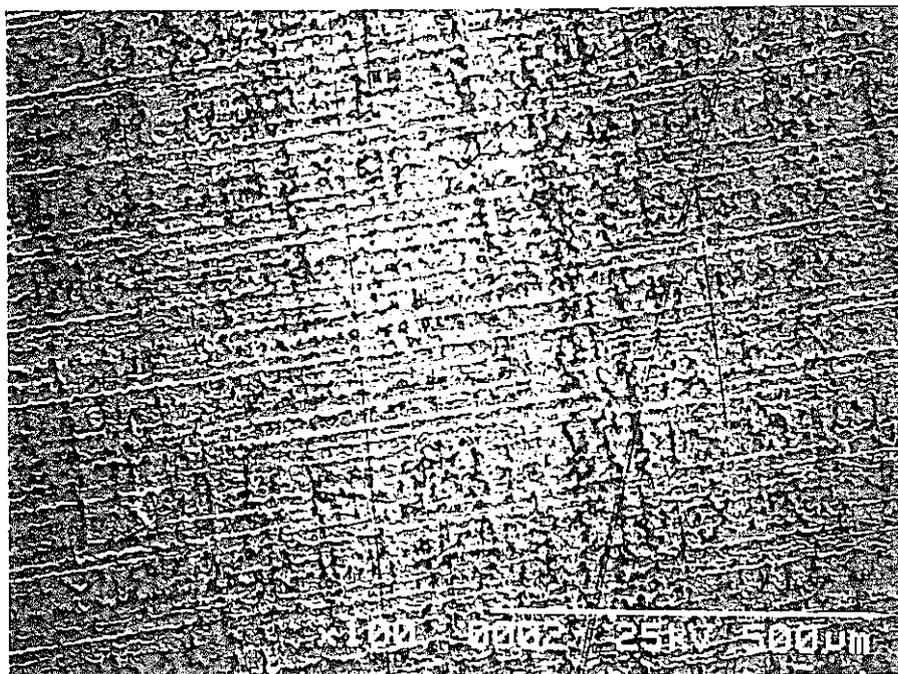
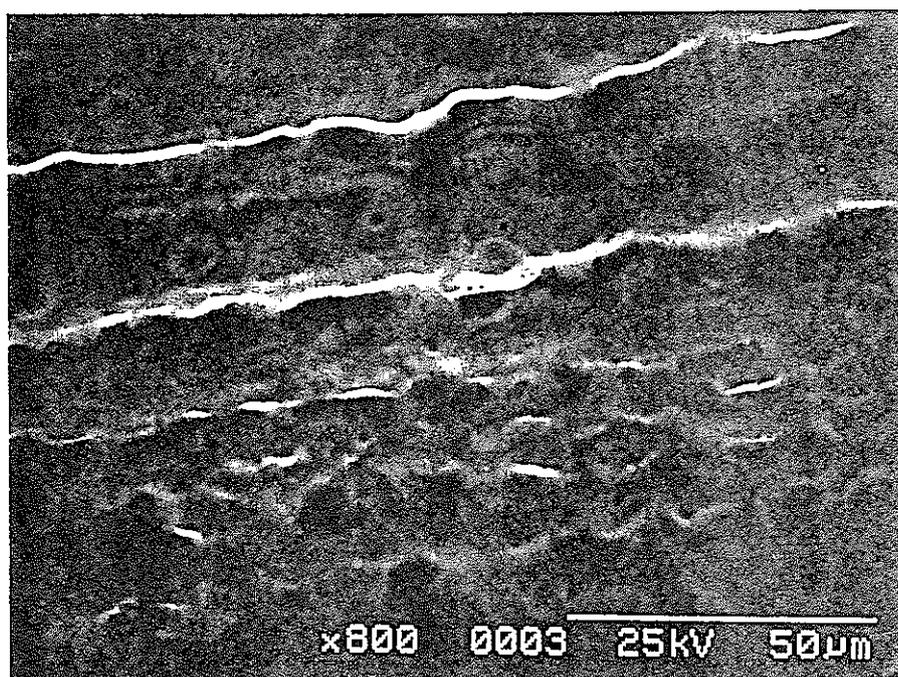


図3.50 SEMによる試験片観察写真
酸洗い試験片
送り速度:1.0mm/s, エネルギー:100mJ

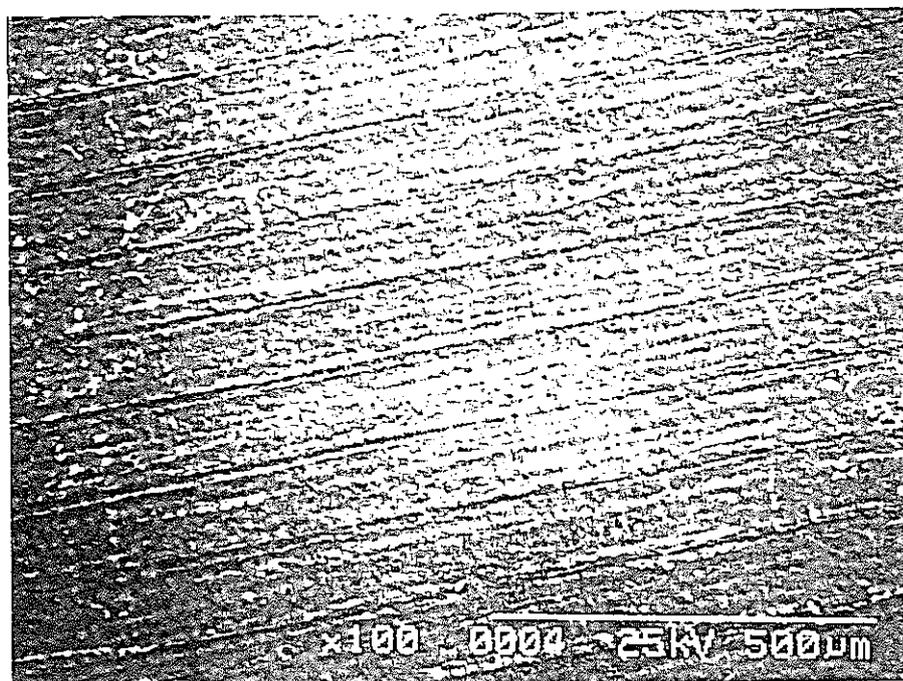
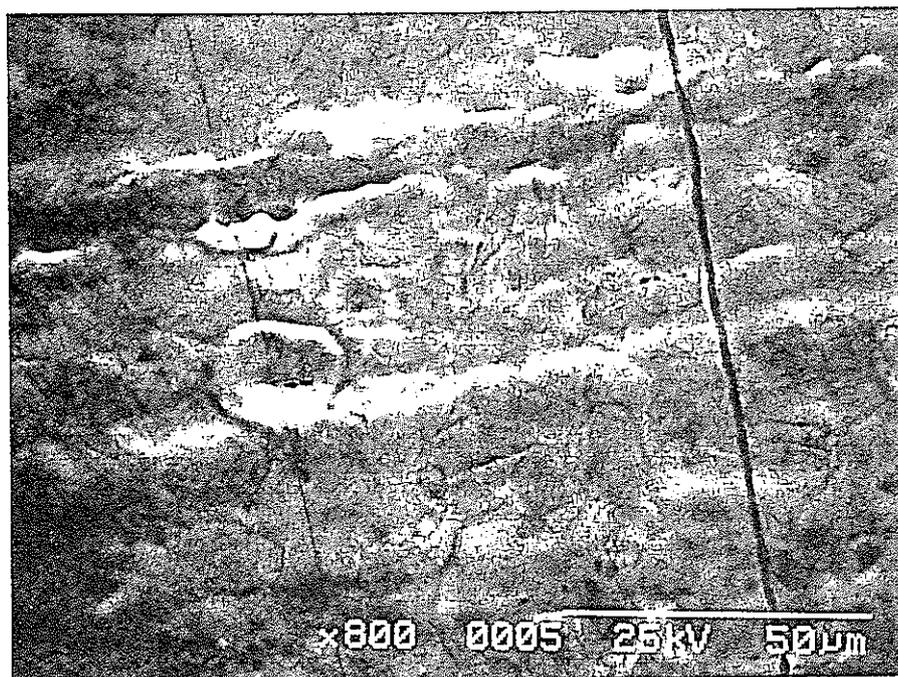


図3.51 SEMによる試験片観察写真
酸洗い試験片
送り速度:1.0mm/s, エネルギー:200mJ

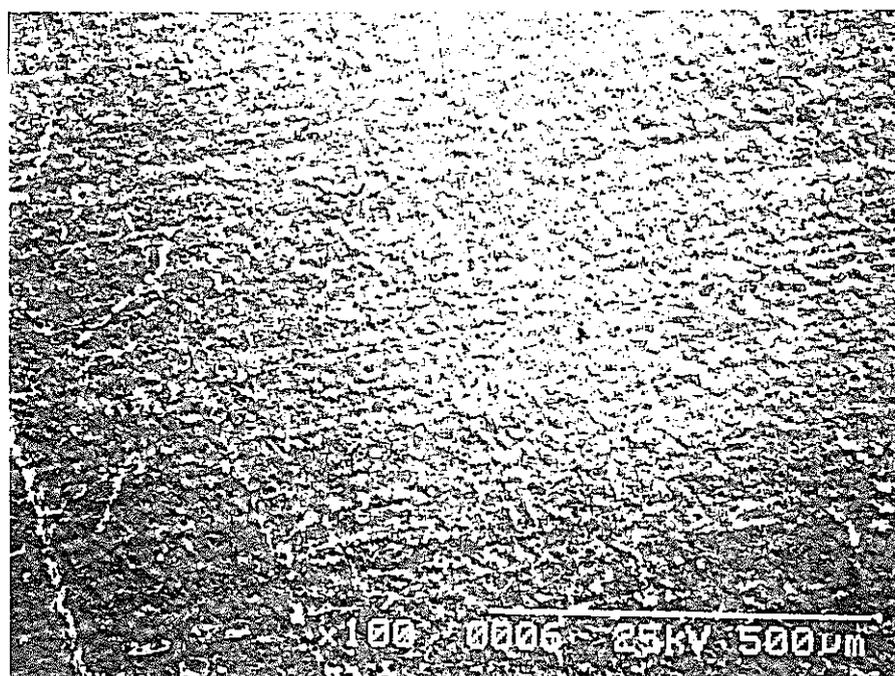
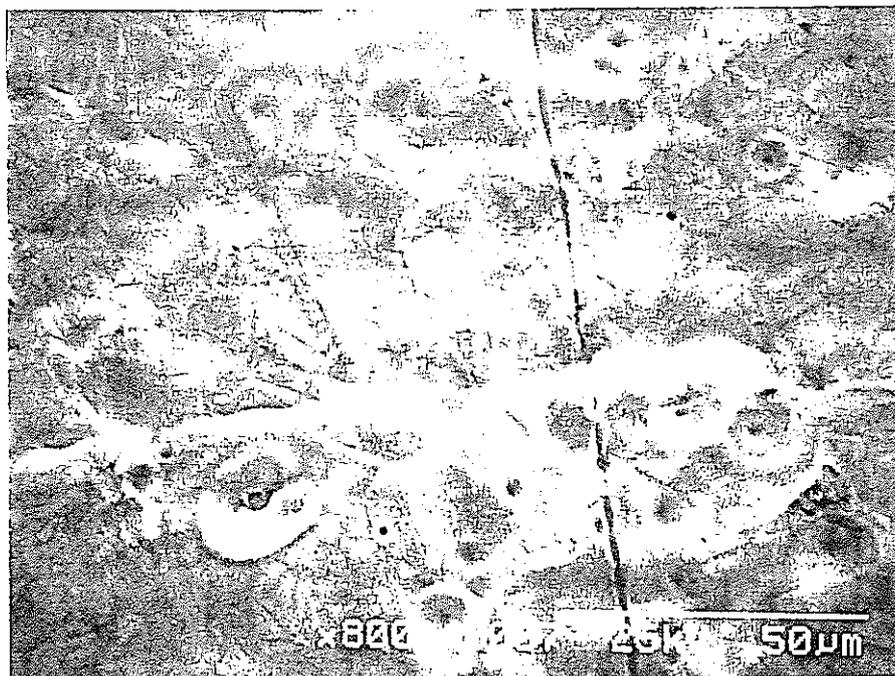


図3.52 SEMによる試験片観察写真
酸洗い試験片
送り速度:1.0mm/s, エネルギー:400mJ

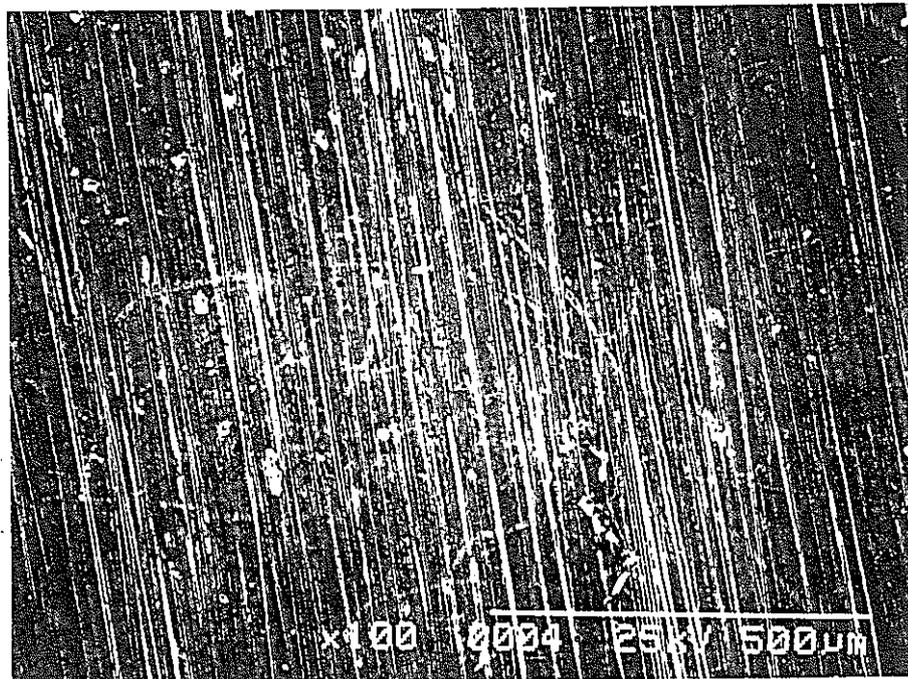


図3.53 SEMによる試験片観察写真
バフ研磨仕上げ試験片
レーザー照射前

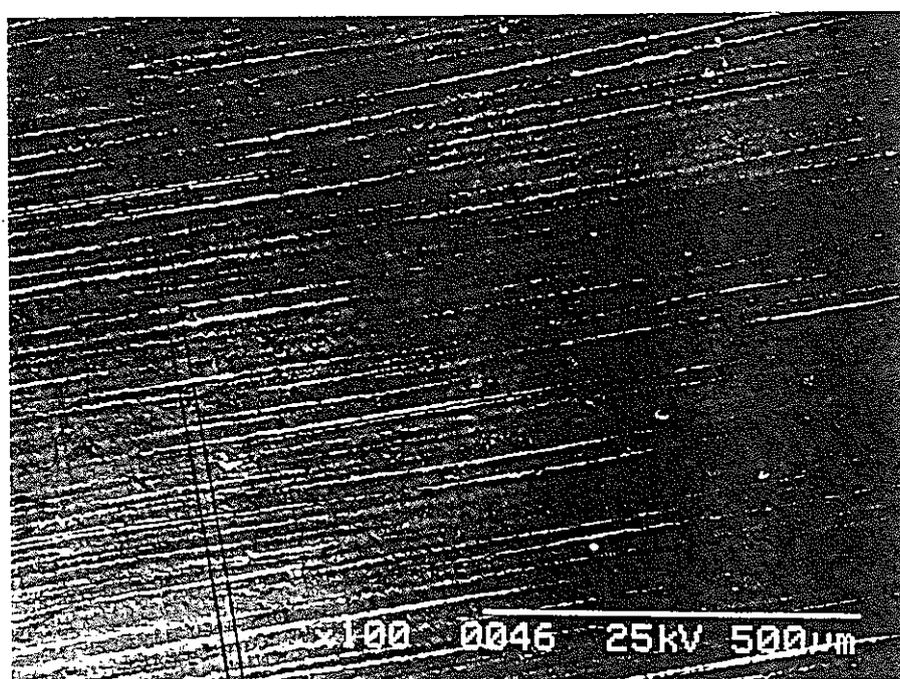
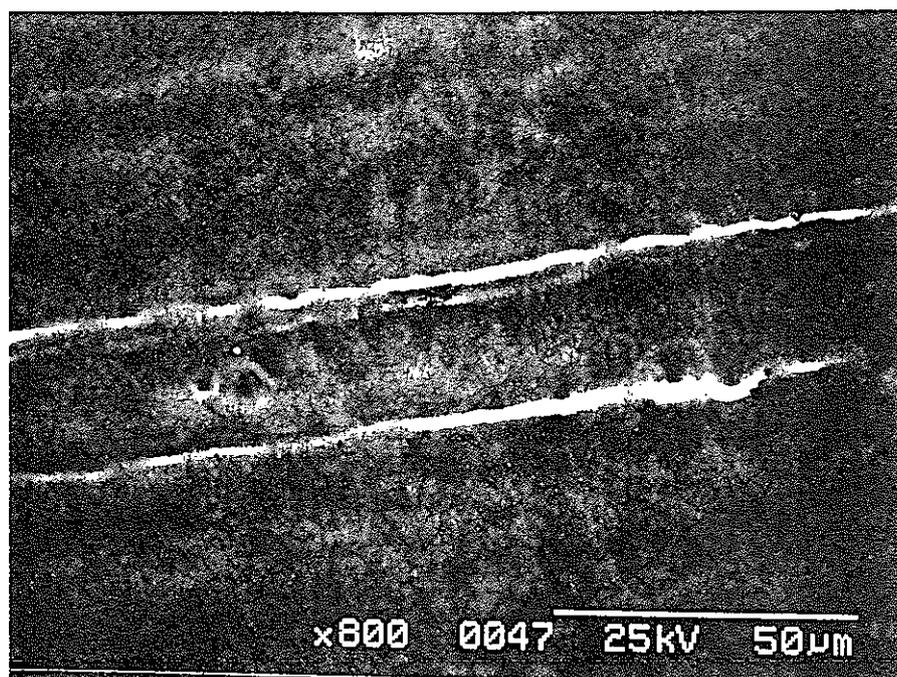


図3.54 SEMによる試験片観察写真
バフ研磨仕上げ試験片
送り速度:0.25mm/s, エネルギー:50mJ

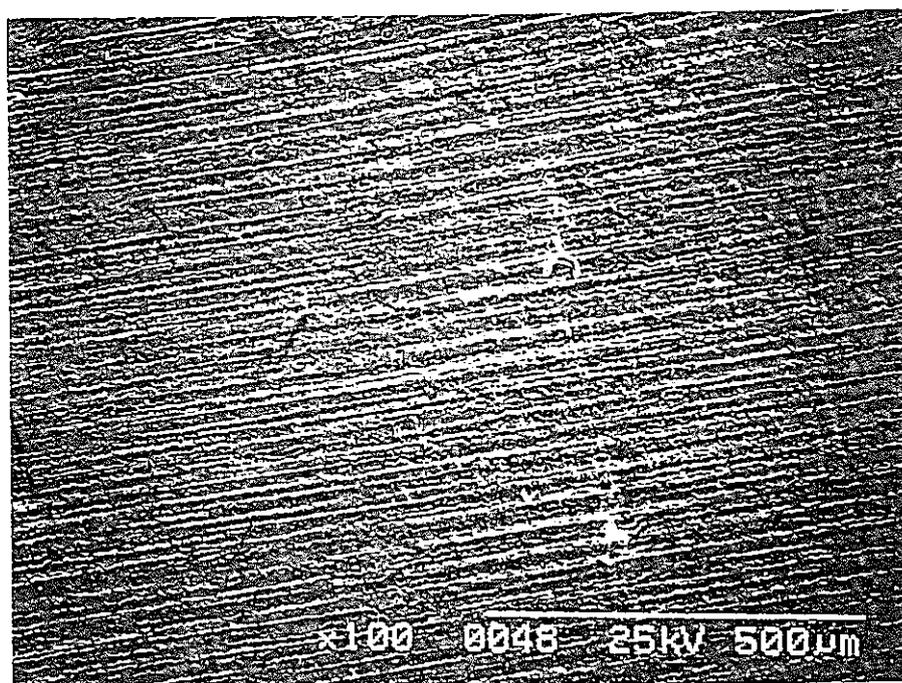
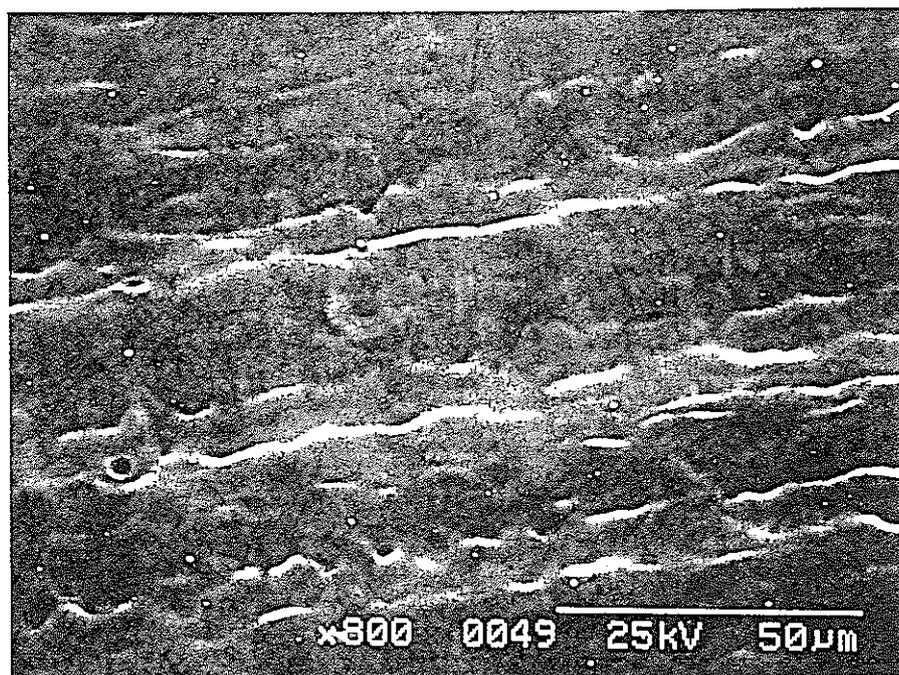


図3.55 SEMによる試験片観察写真
バフ研磨仕上げ試験片
送り速度:0.25mm/s, エネルギー:100mJ

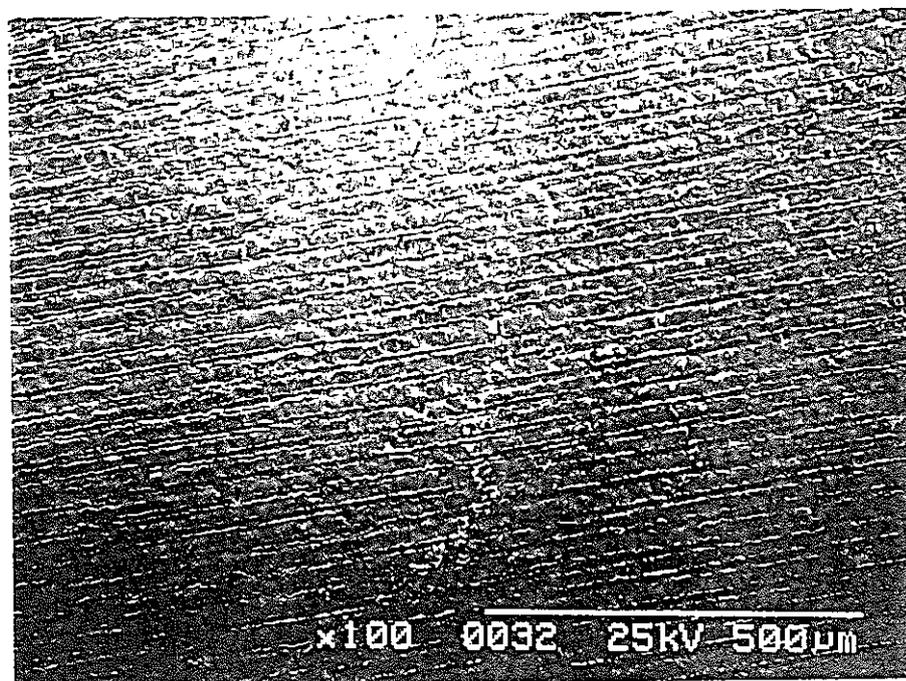
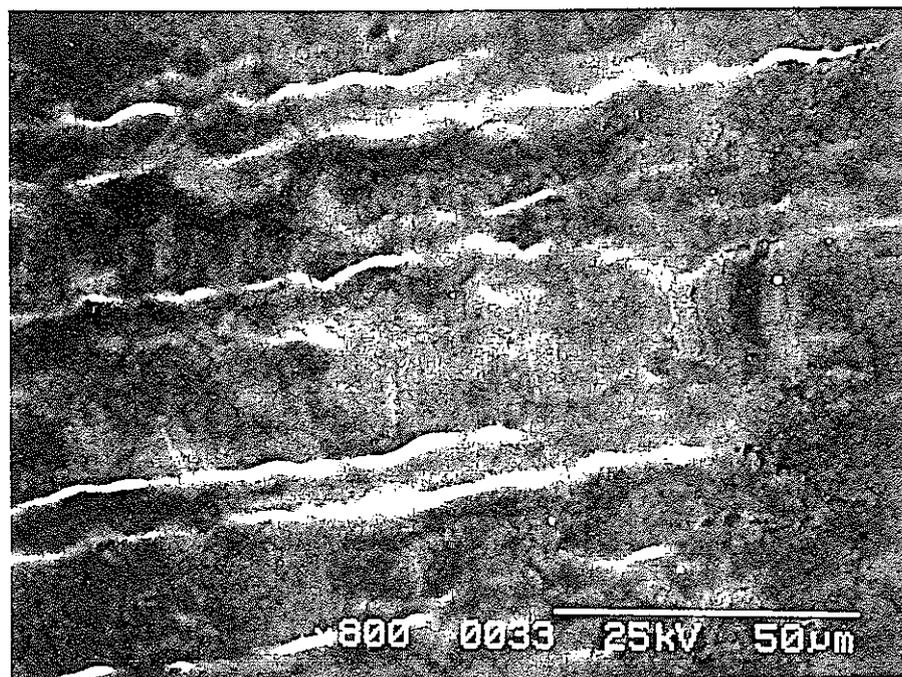


図3.56 SEMによる試験片観察写真
バフ研磨仕上げ試験片
送り速度:0.25mm/s, エネルギー:200mJ

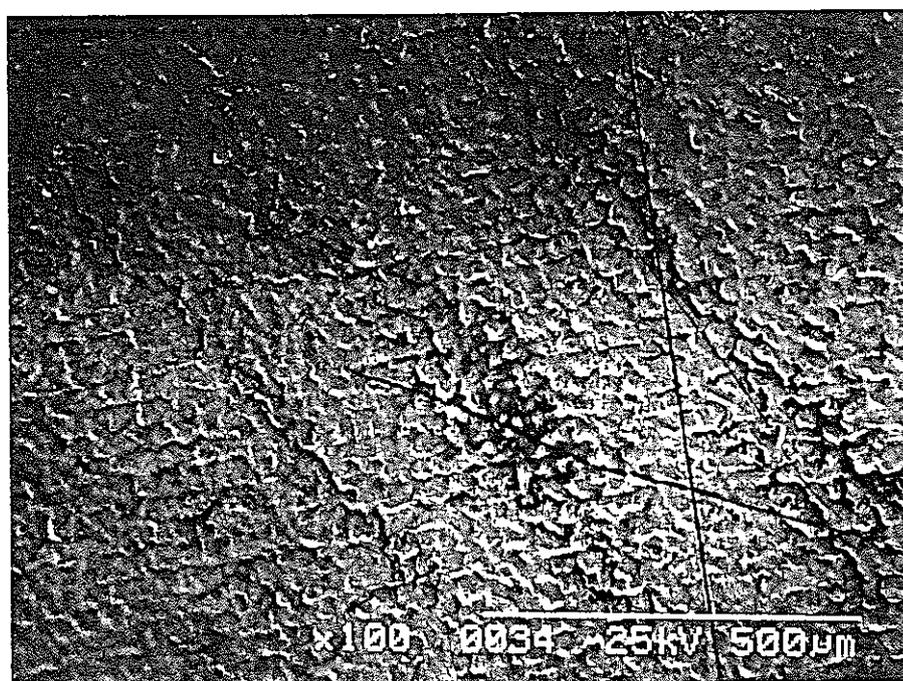
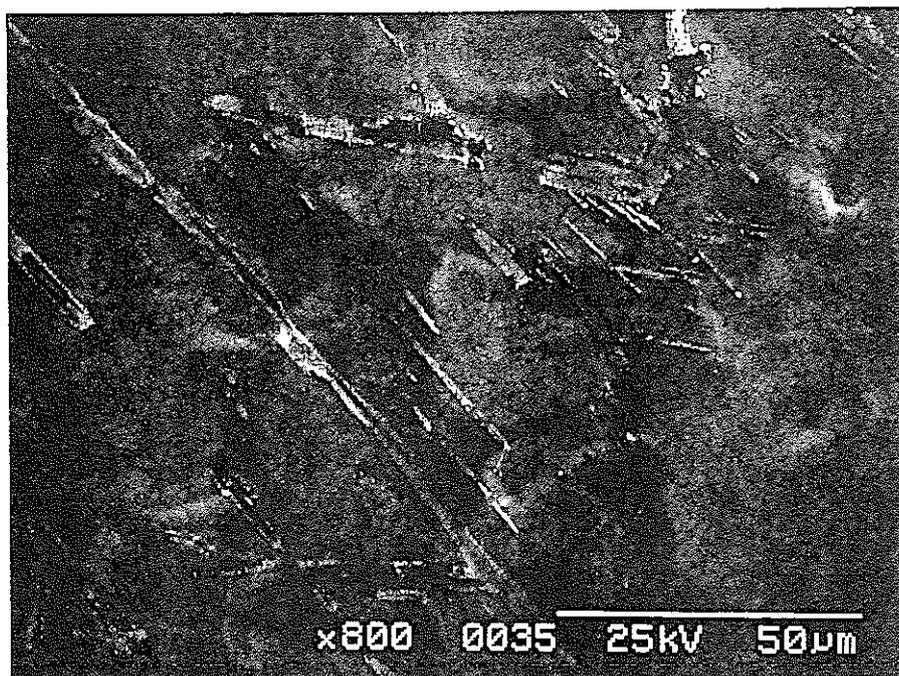


図3.57 SEMによる試験片観察写真
バフ研磨仕上げ試験片
送り速度:0.25mm/s, エネルギー:400mJ

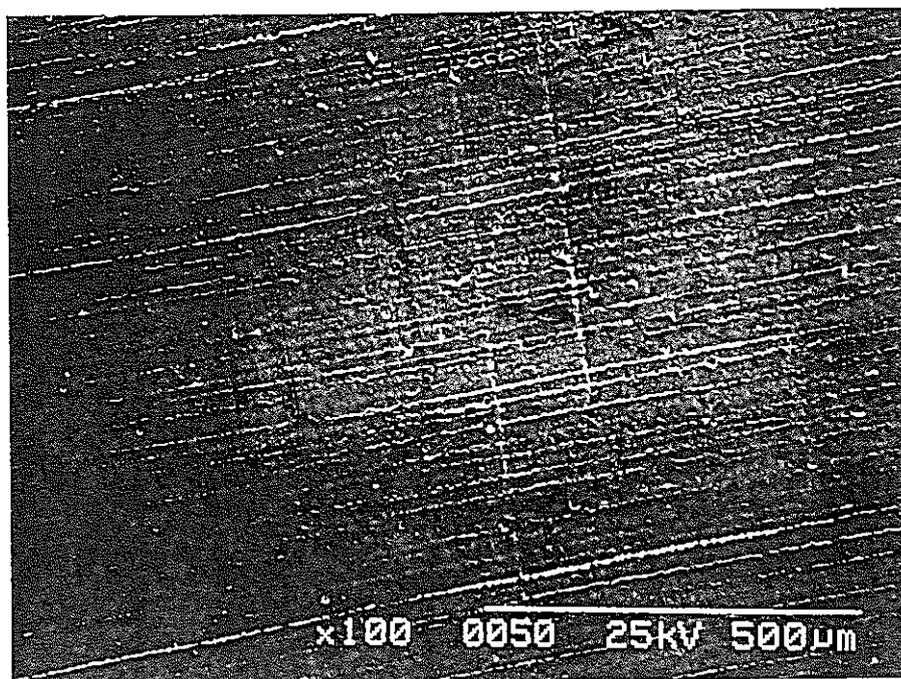
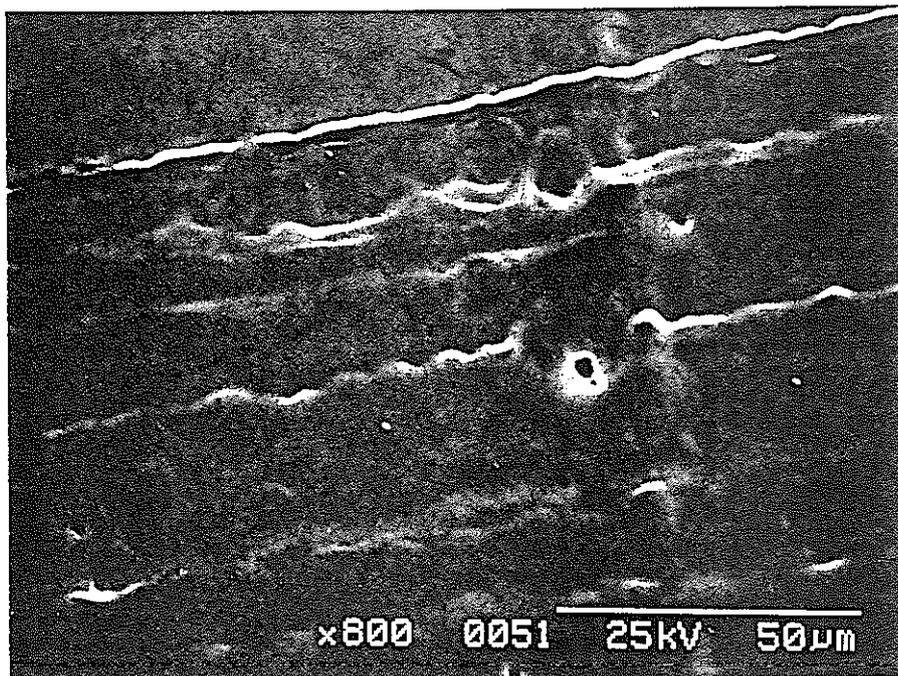


図3.58 SEMによる試験片観察写真
バフ研磨仕上げ試験片
送り速度:0.5mm/s, エネルギー:50mJ

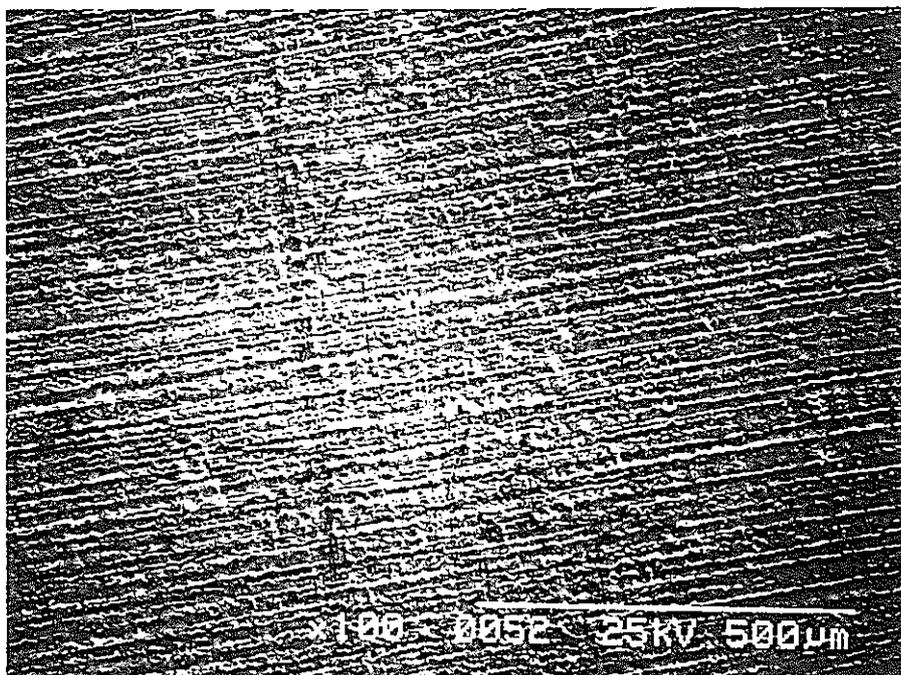
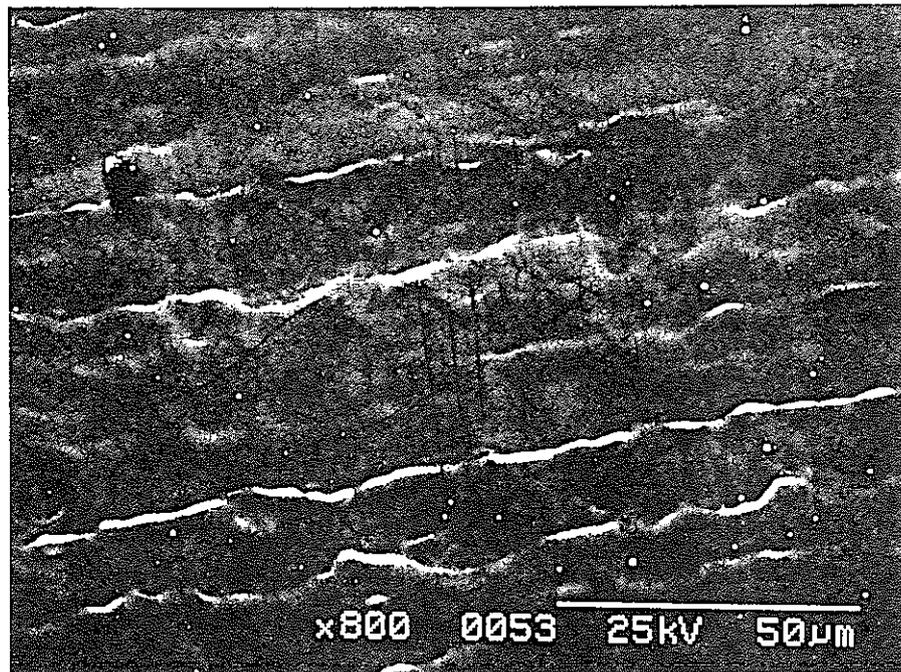


図3.59 SEMによる試験片観察写真
バブ研磨仕上げ試験片
送り速度:0.5mm/s, エネルギー:100mJ

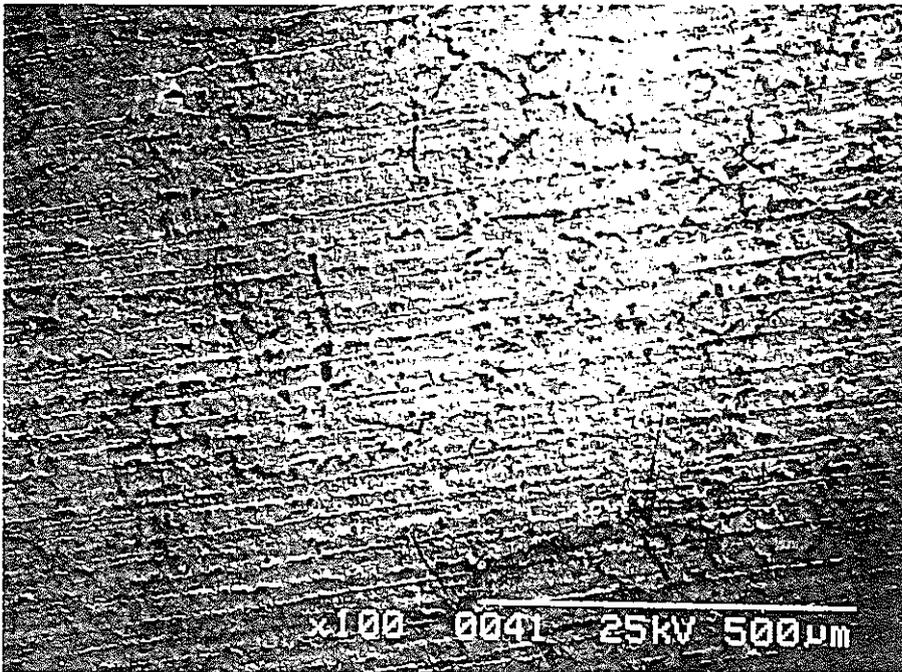


図3.60 SEMによる試験片観察写真
バブ研磨仕上げ試験片
送り速度:0.5mm/s, エネルギー:200mJ

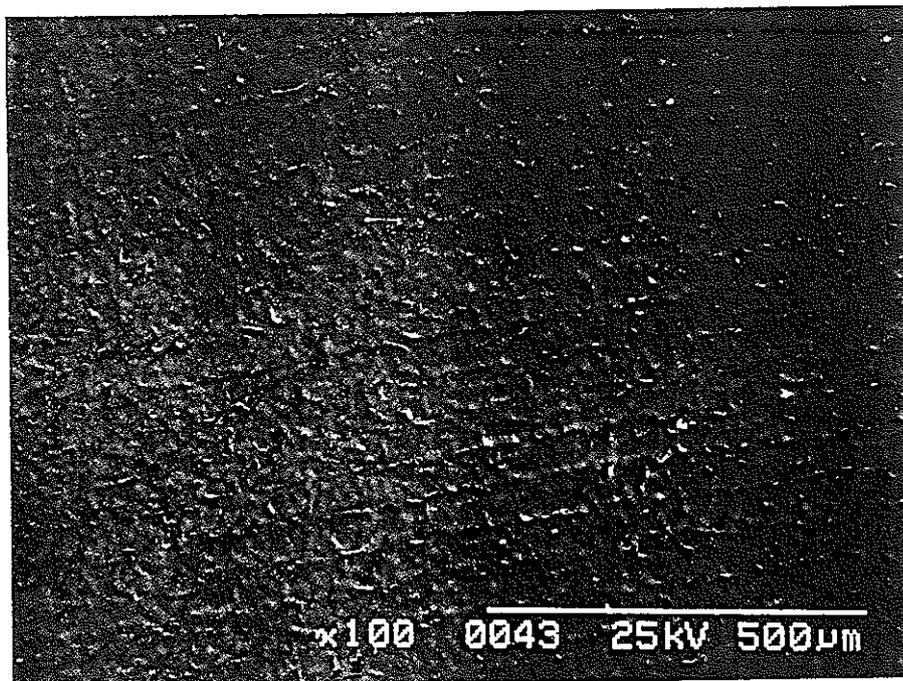
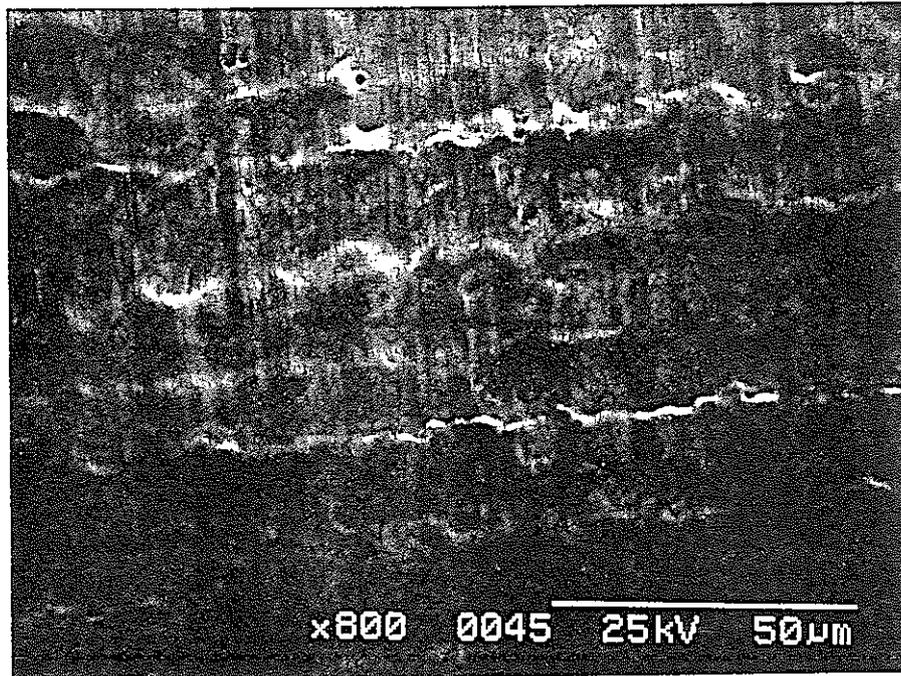


図3.61 SEMによる試験片観察写真
バフ研磨仕上げ試験片
送り速度:0.5mm/s, エネルギー:400mJ

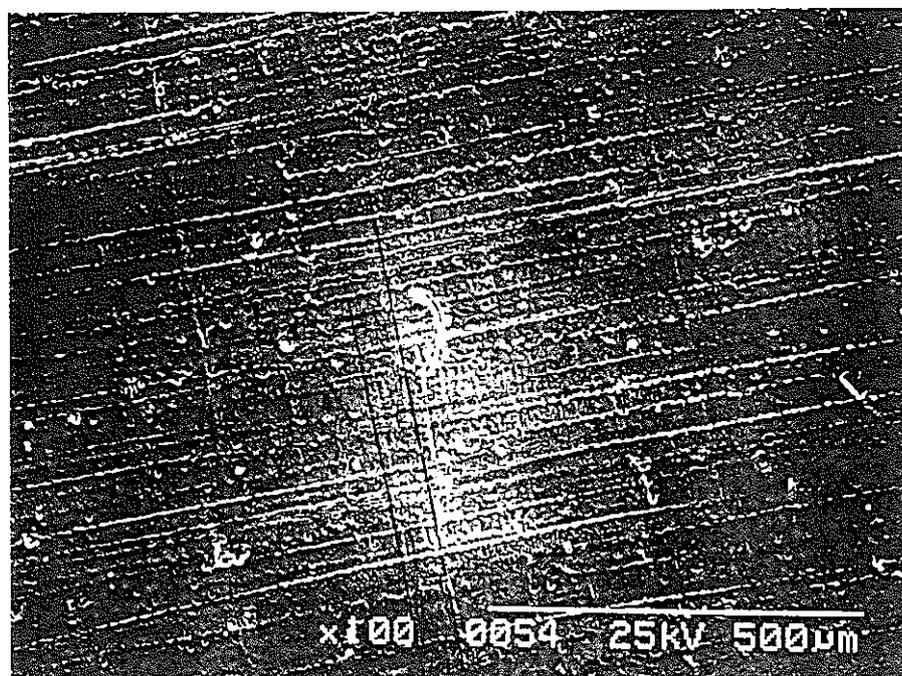


図3.62 SEMによる試験片観察写真
バブ研磨仕上げ試験片
送り速度:1.0mm/s, エネルギー:50mJ

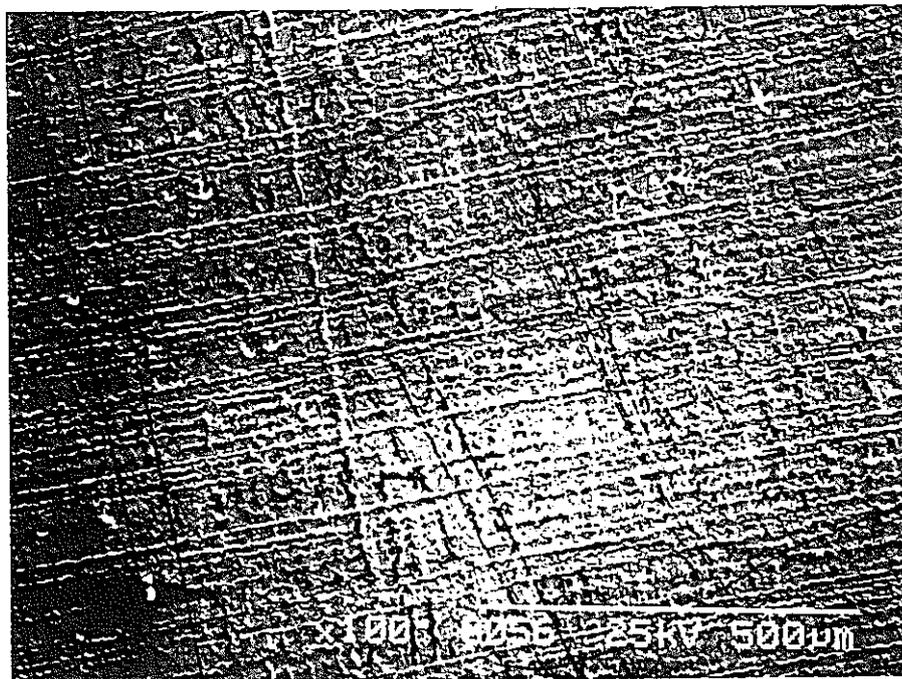
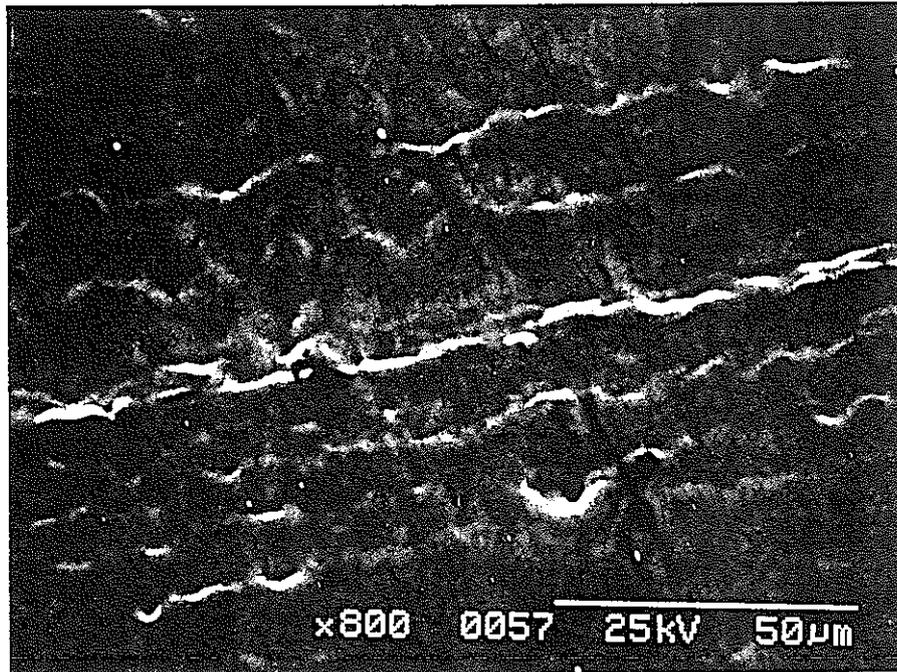


図3.63 SEMによる試験片観察写真
バフ研磨仕上げ試験片
送り速度:1.0mm/s, エネルギー:100mJ

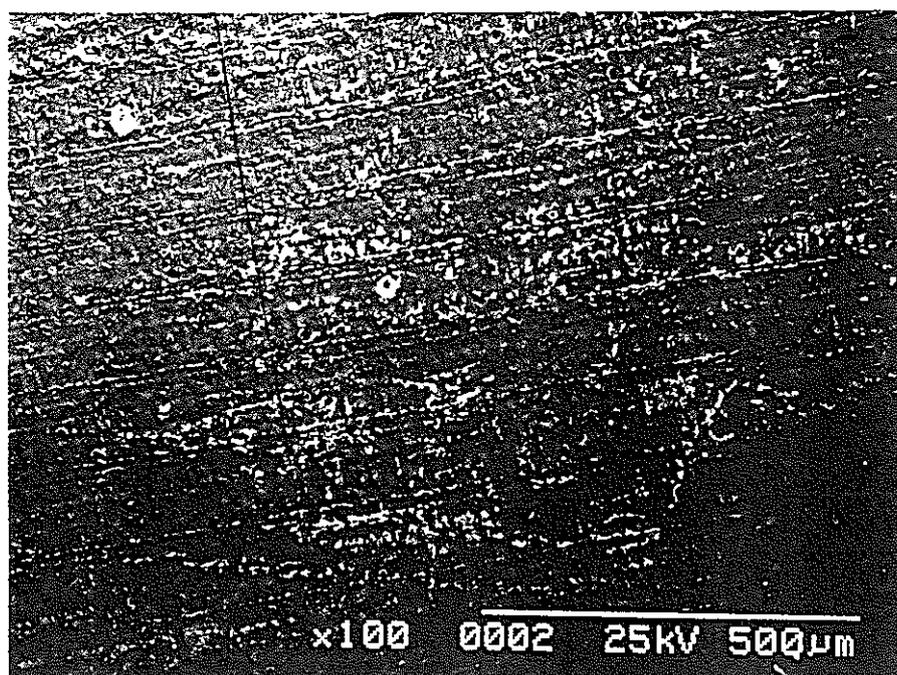
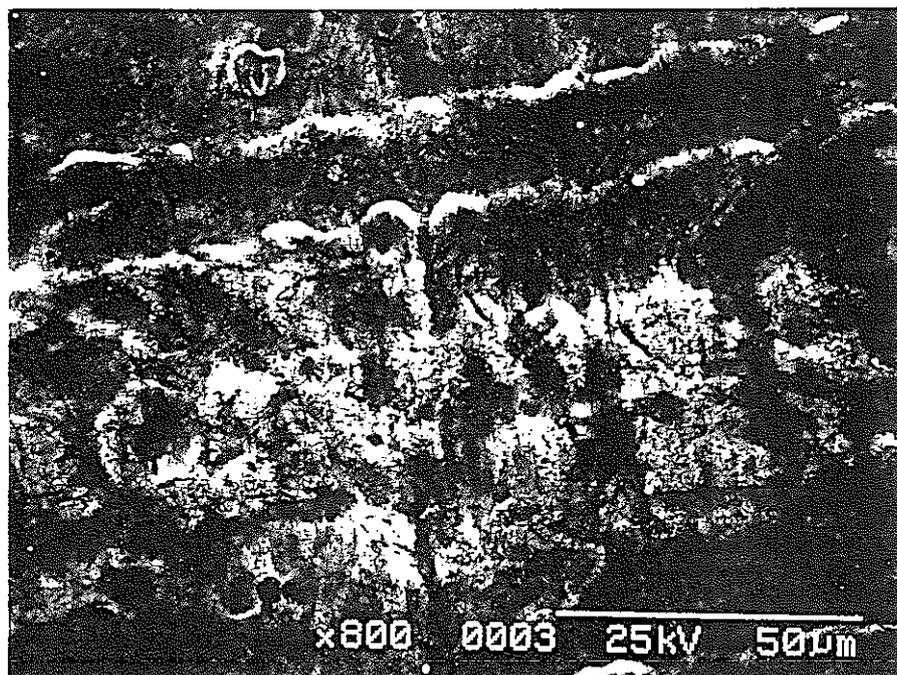


図3.64 SEMによる試験片観察写真
バフ研磨仕上げ試験片
送り速度:1.0mm/s, エネルギー:200mJ

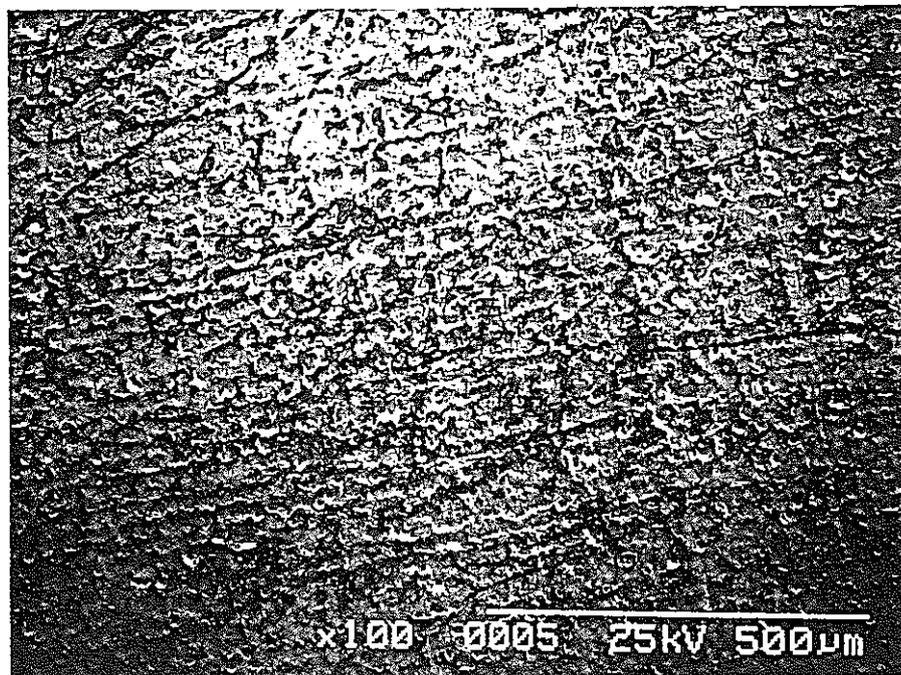
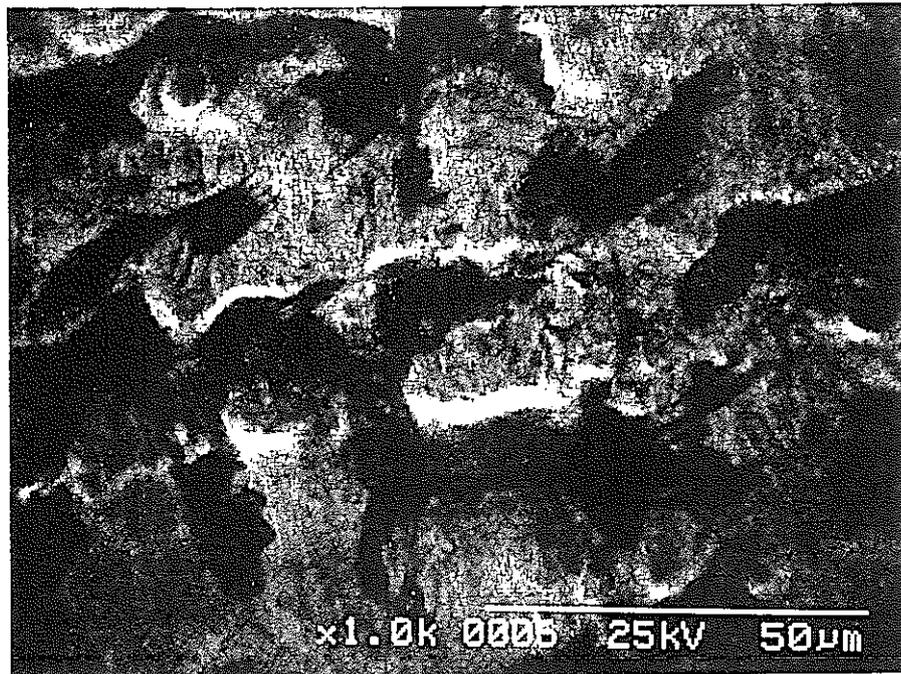


図3.65 SEMによる試験片観察写真
バフ研磨仕上げ試験片
送り速度:1.0mm/s, エネルギー:400mJ

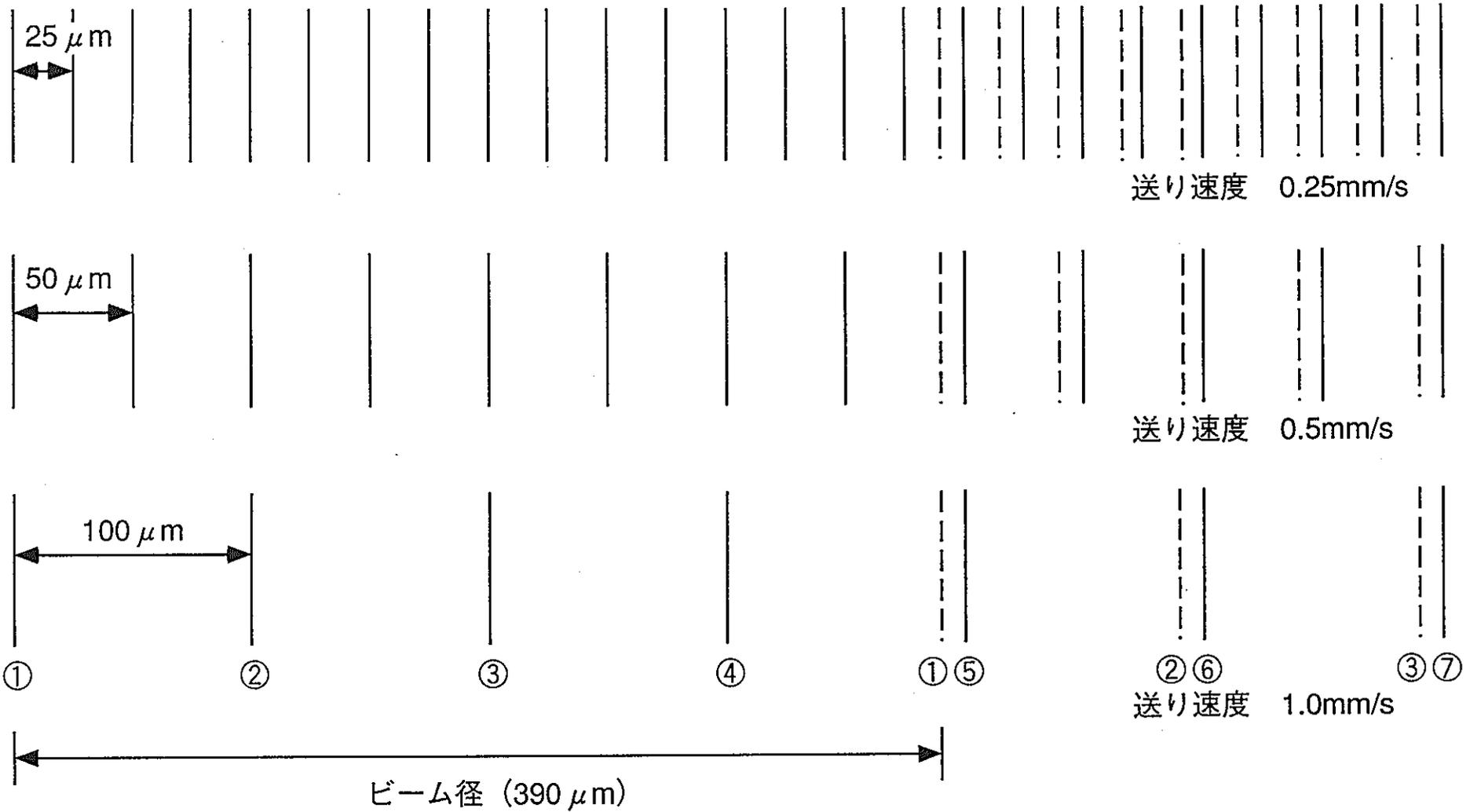


図3.66 レーザー照射による試験片表面パターンの発生原因

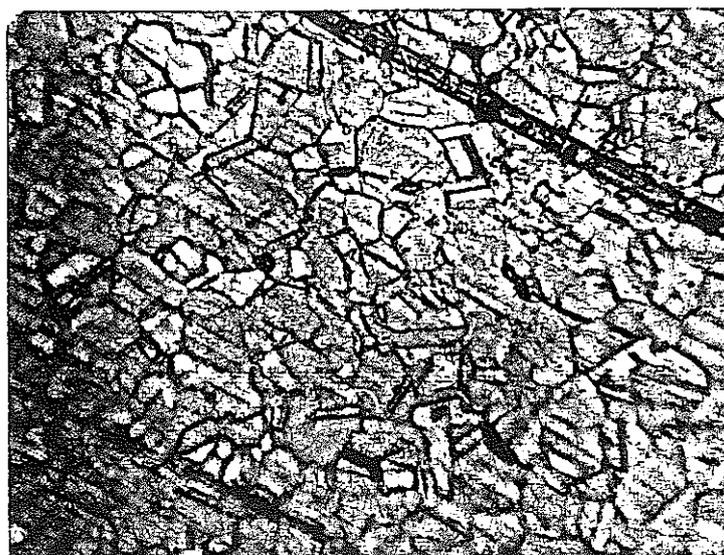


図3.67 光学顕微鏡による試験片観察写真
酸洗い試験片
レーザー照射前



図3.68 光学顕微鏡による試験片観察写真
酸洗い試験片
送り速度:0.25mm/s, エネルギー:100mJ

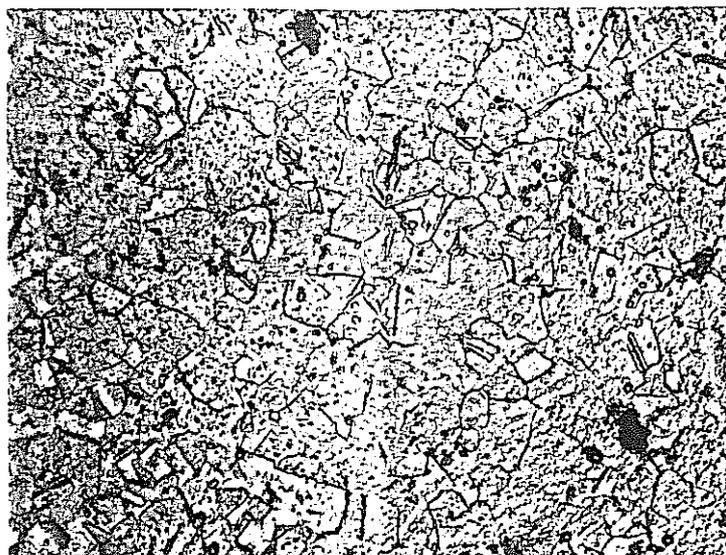


図3.69 光学顕微鏡による試験片観察写真
酸洗い試験片
送り速度:0.25mm/s, エネルギー:400mJ

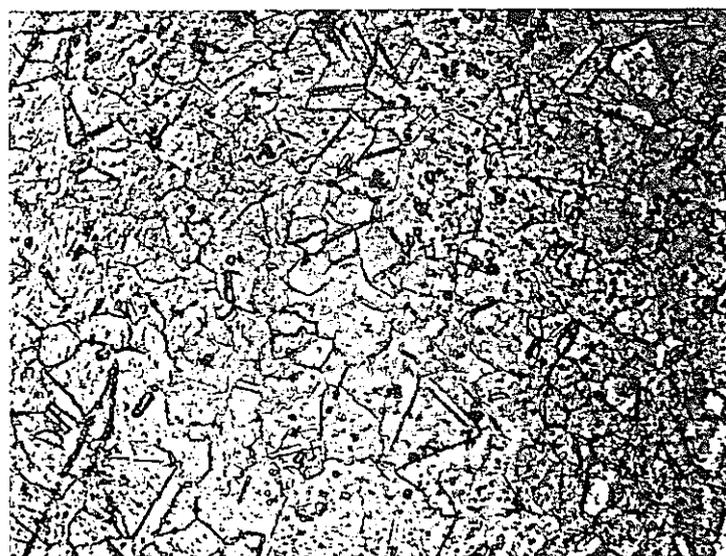


図3.70 光学顕微鏡による試験片観察写真
酸洗い試験片
送り速度:1.0mm/s, エネルギー:400mJ

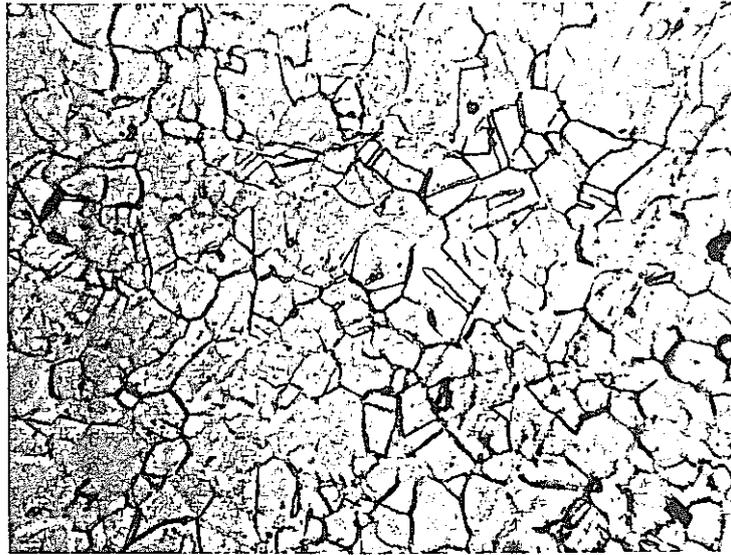


図3.71 光学顕微鏡による試験片観察写真
バフ研磨仕上げ試験片
レーザー照射前



図3.72 光学顕微鏡による試験片観察写真
バフ研磨仕上げ試験片
送り速度:0.25mm/s, エネルギー:100mJ

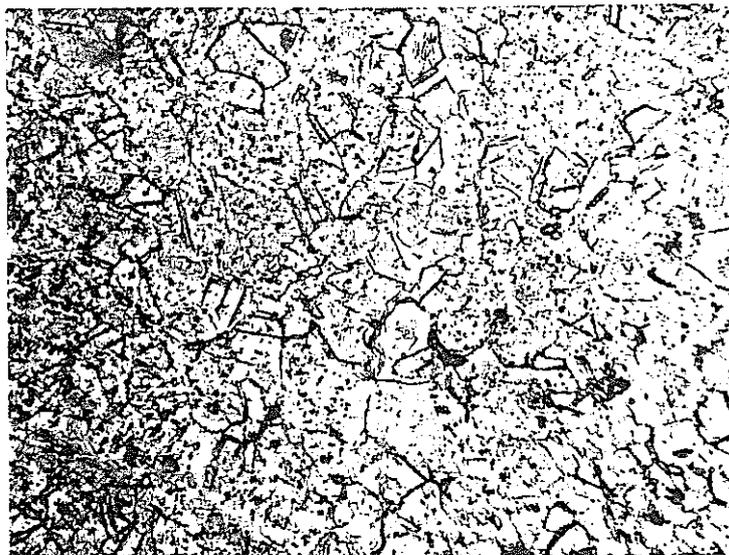


図3.73 光学顕微鏡による試験片観察写真
バブ研磨仕上げ試験片
送り速度:0.25mm/s, エネルギー:400mJ

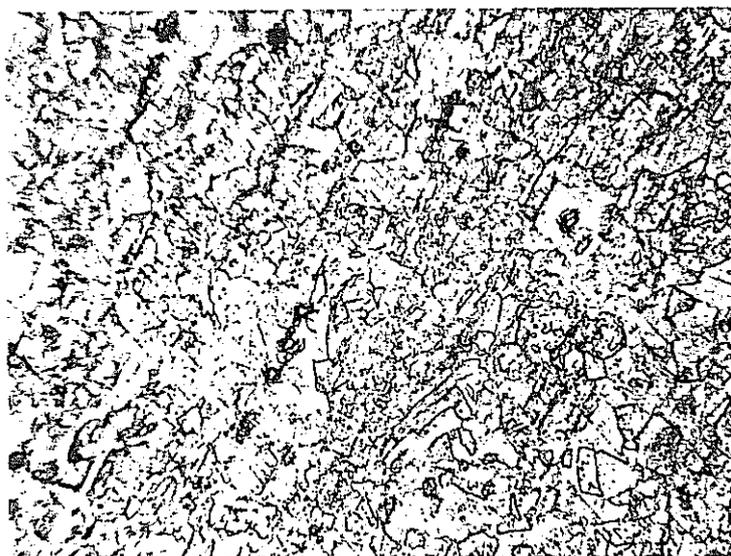


図3.74 光学顕微鏡による試験片観察写真
バブ研磨仕上げ試験片
送り速度:1.0mm/s, エネルギー:400mJ

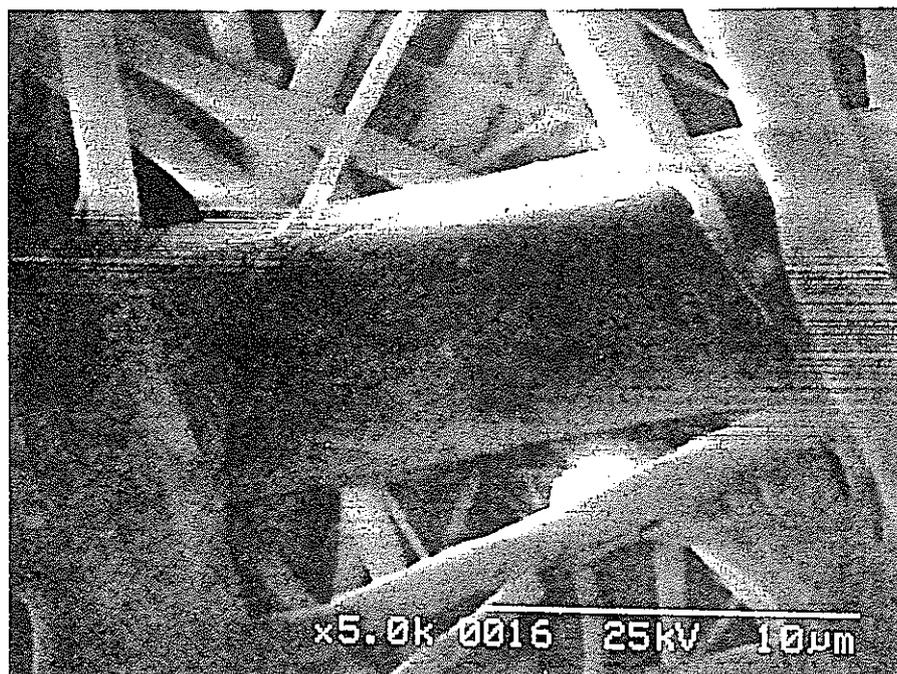


図3.75 SEMによる生成物観察写真
レーザー照射前

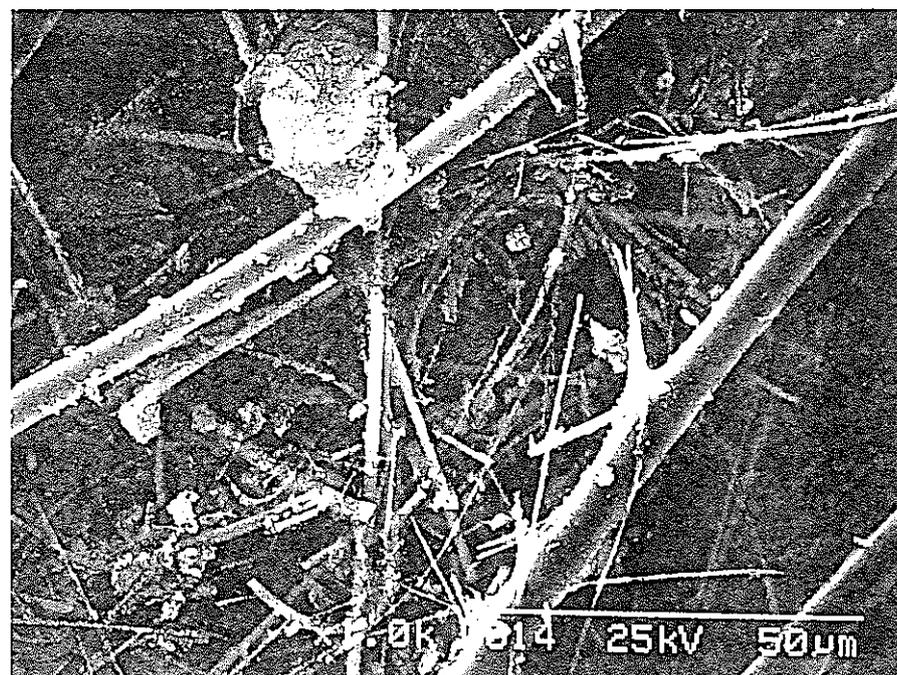
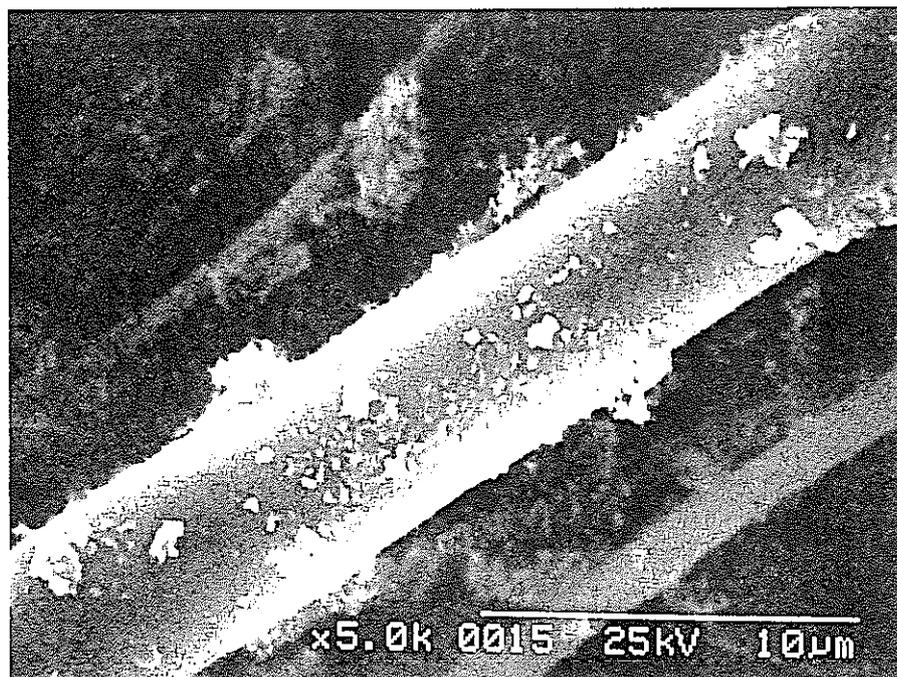


図3.76 SEMによる生成物観察写真
酸洗い試験片
送り速度:0.25mm/s, エネルギー:100mJ

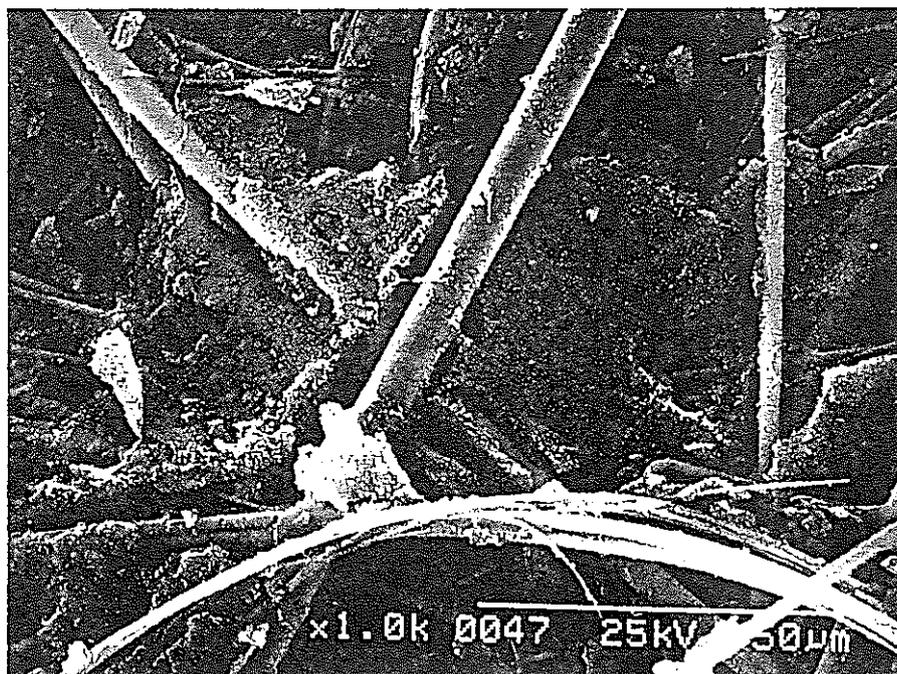
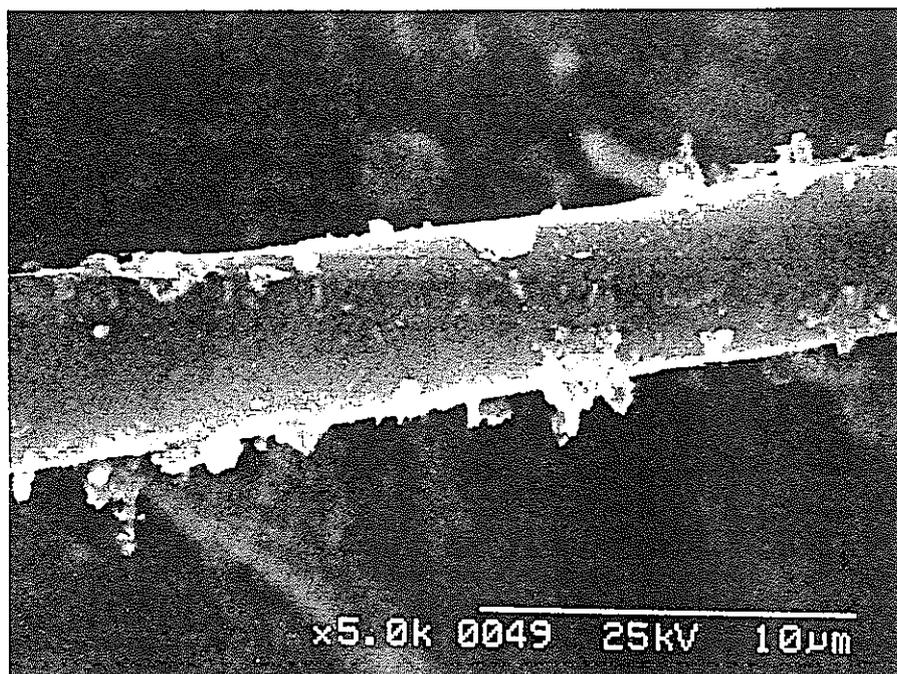


図3.77 SEMによる生成物観察写真
酸洗い試験片
送り速度:0.25mm/s, エネルギー:200mJ



図3.78 SEMによる生成物観察写真
酸洗い試験片
送り速度:0.25mm/s, エネルギー:400mJ

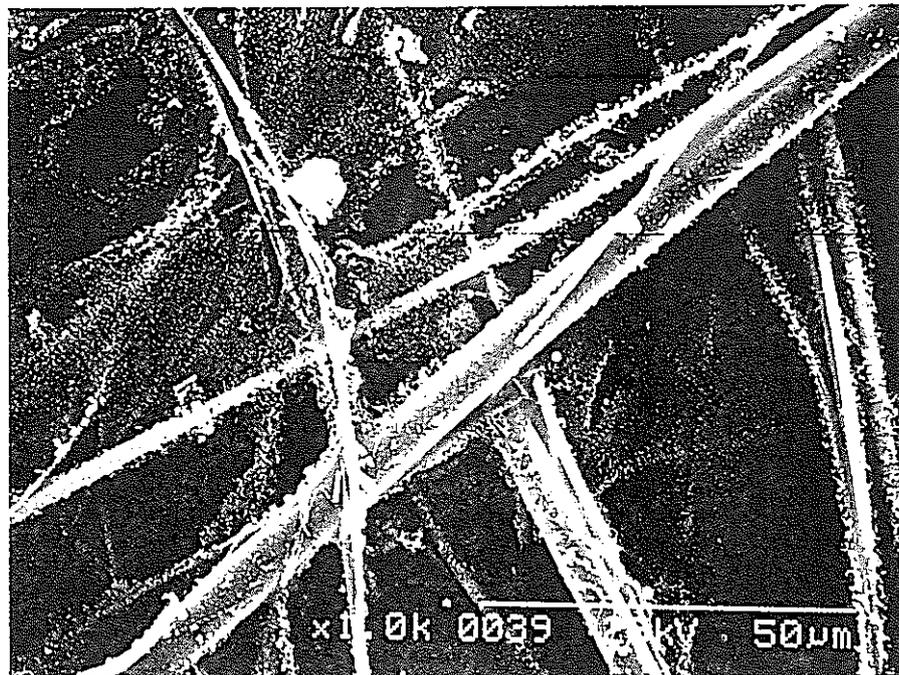
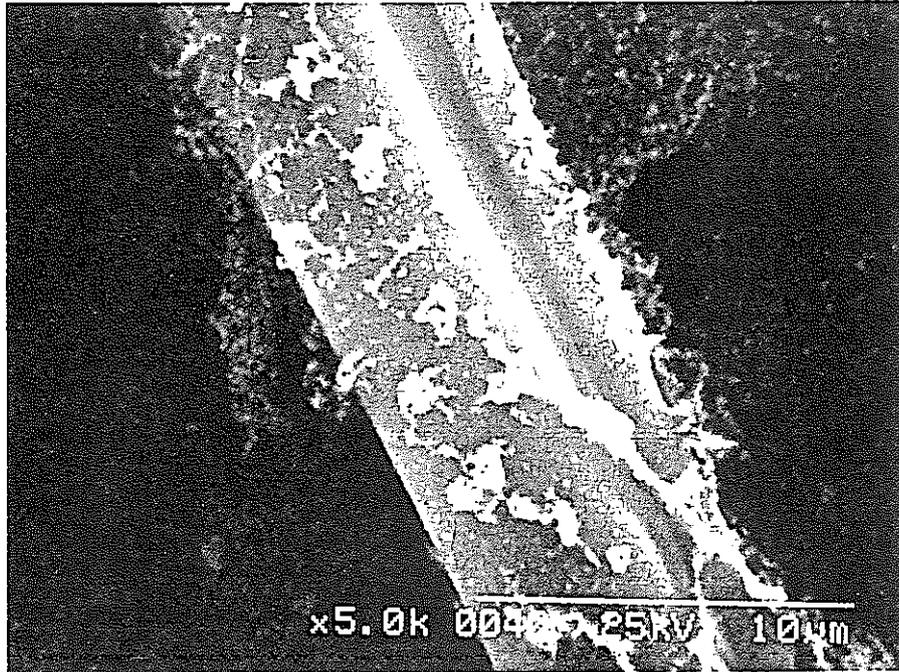


図3.79 SEMによる生成物観察写真
バブ研磨仕上げ試験片
送り速度:0.25mm/s, エネルギー:100mJ

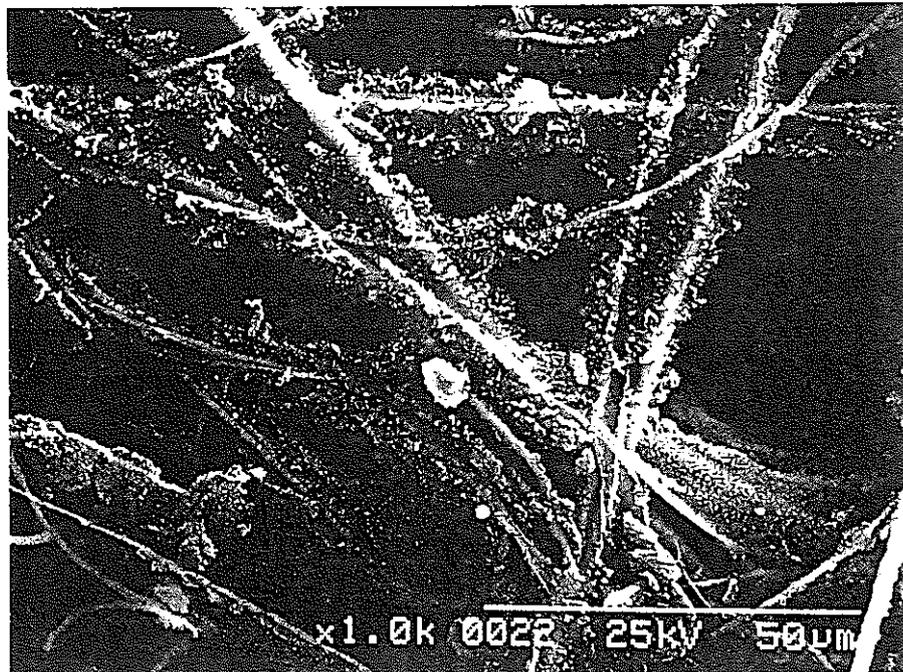
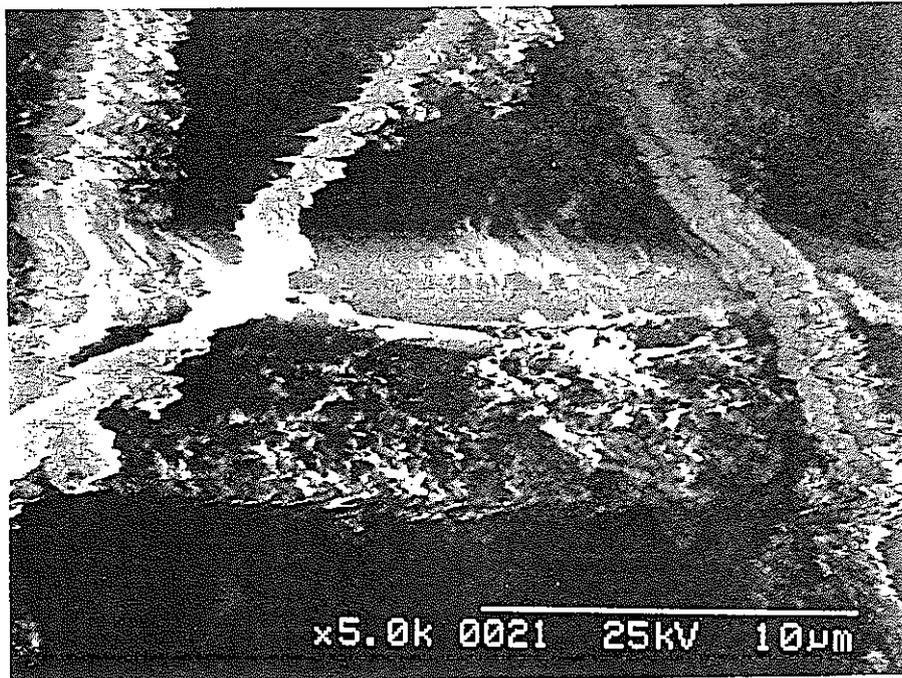


図3.80 SEMによる生成物観察写真
バフ研磨仕上げ試験片
送り速度:0.25mm/s, エネルギー:200mJ

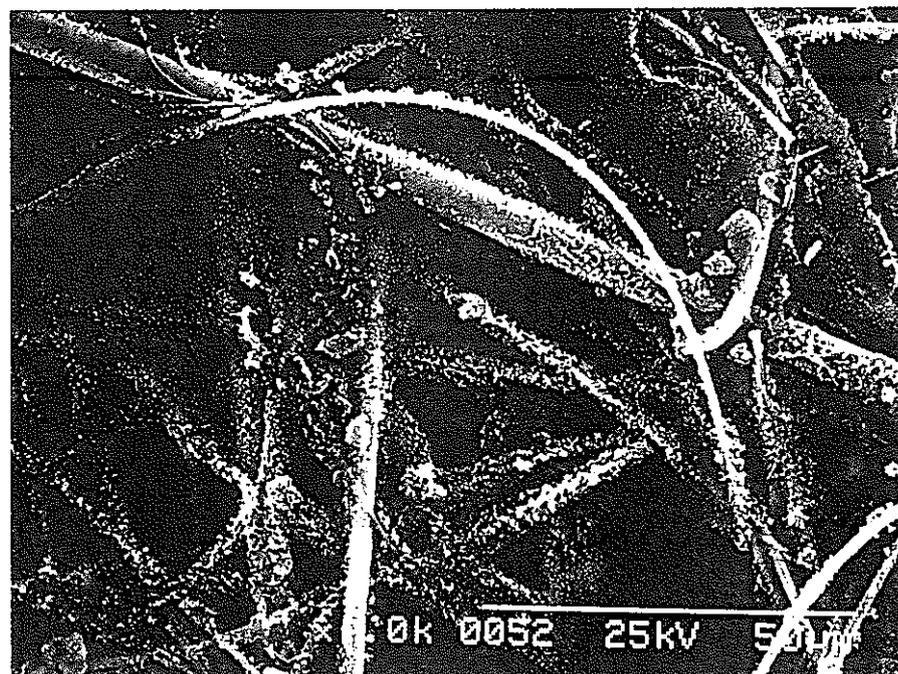
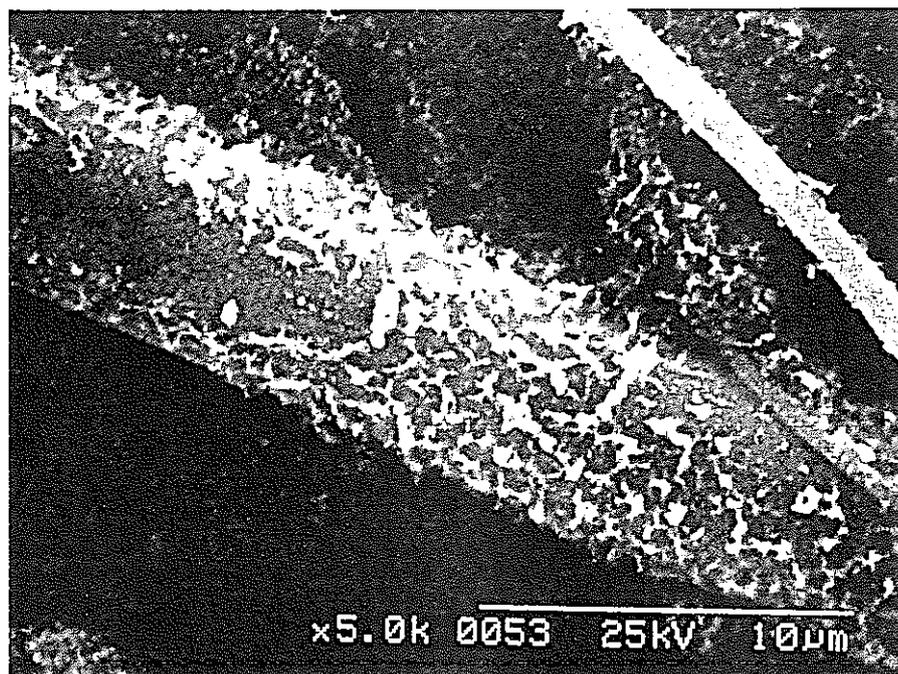


図3.81 SEMによる生成物観察写真
バフ研磨仕上げ試験片
送り速度:0.25mm/s, エネルギー:400mJ

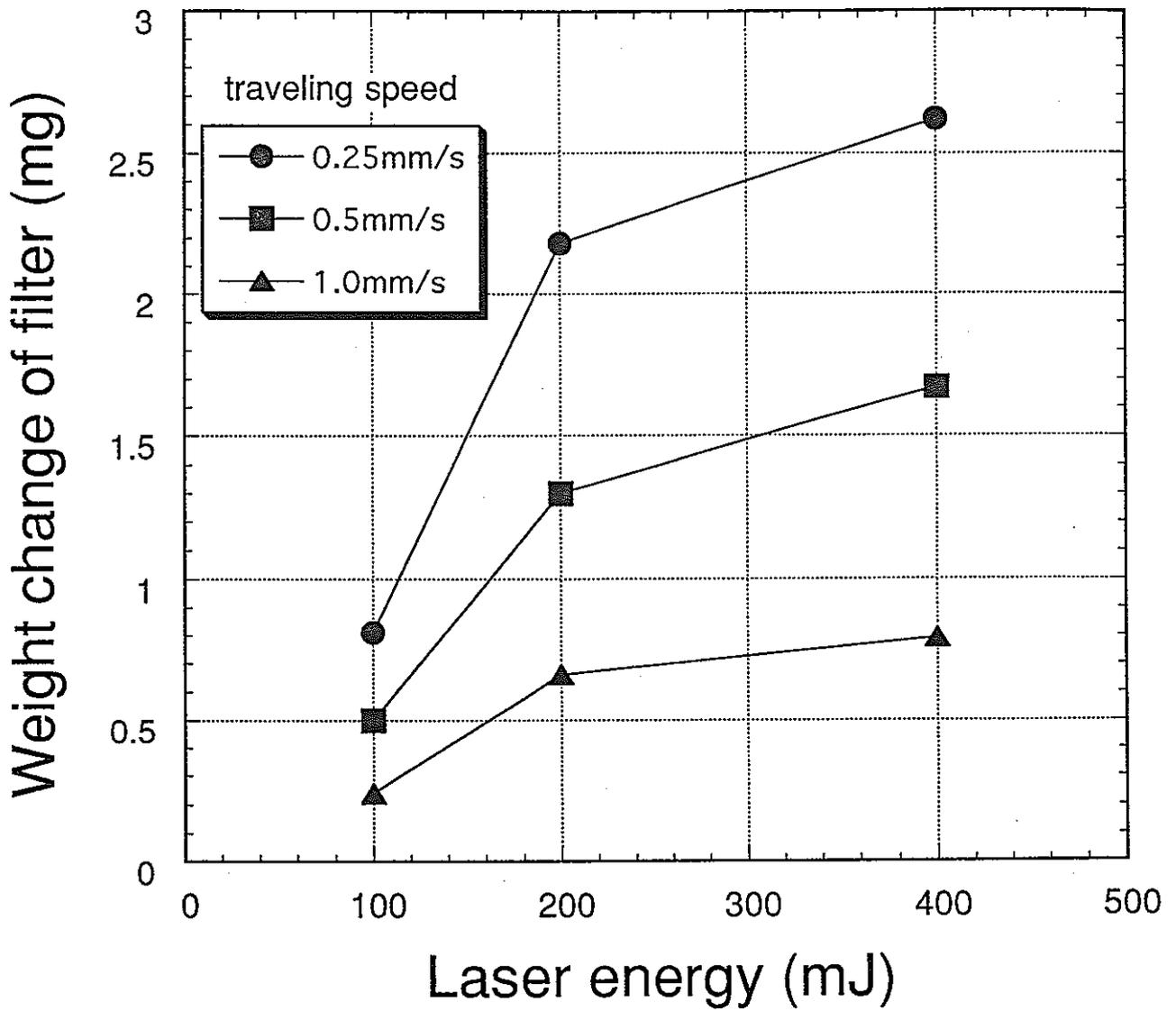


図3.82 レーザーエネルギーのろ紙重量変化への影響
酸洗い試験片

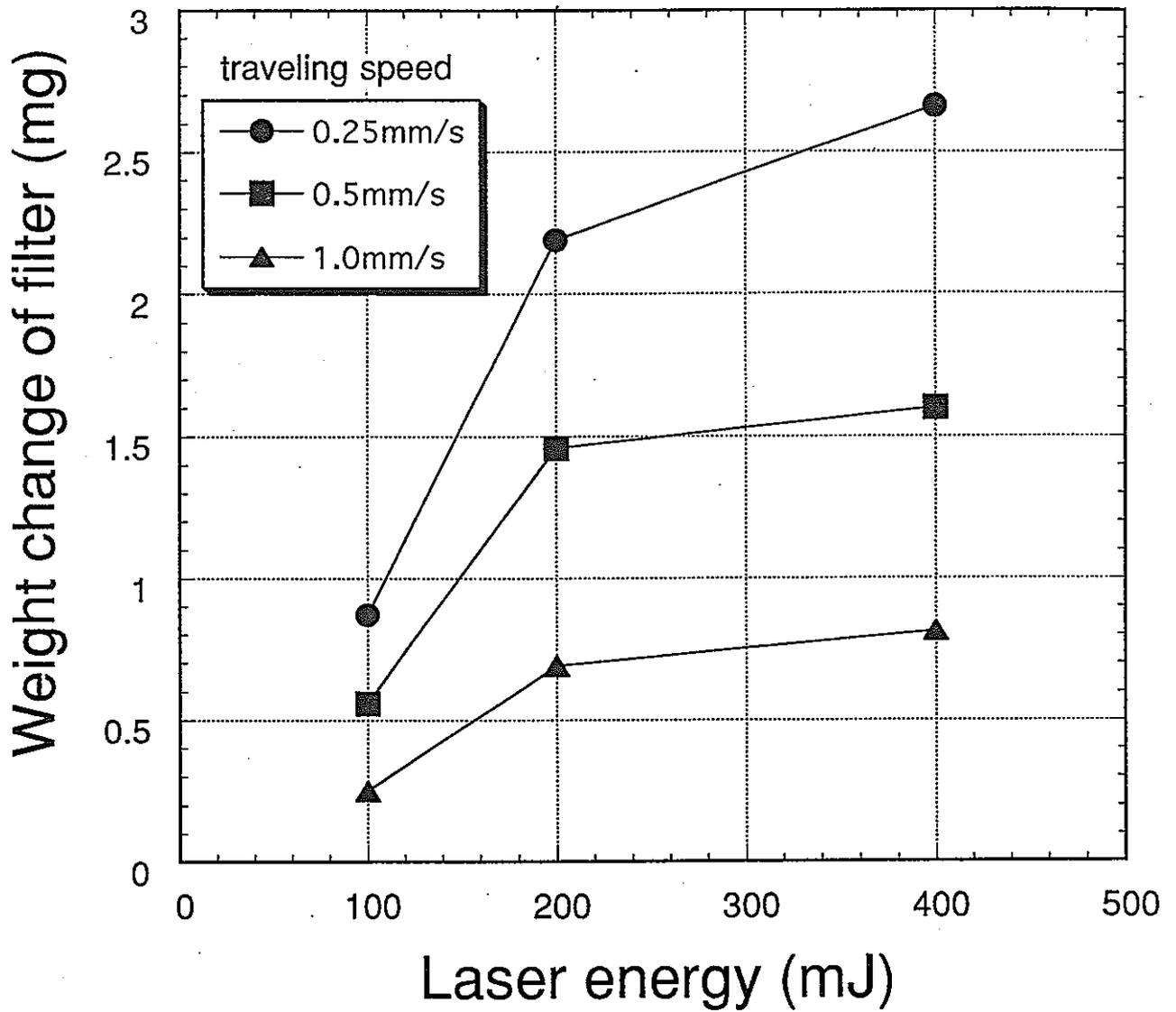


図3.83 レーザーエネルギーのろ紙重量変化への影響
バフ研磨仕上げ試験片

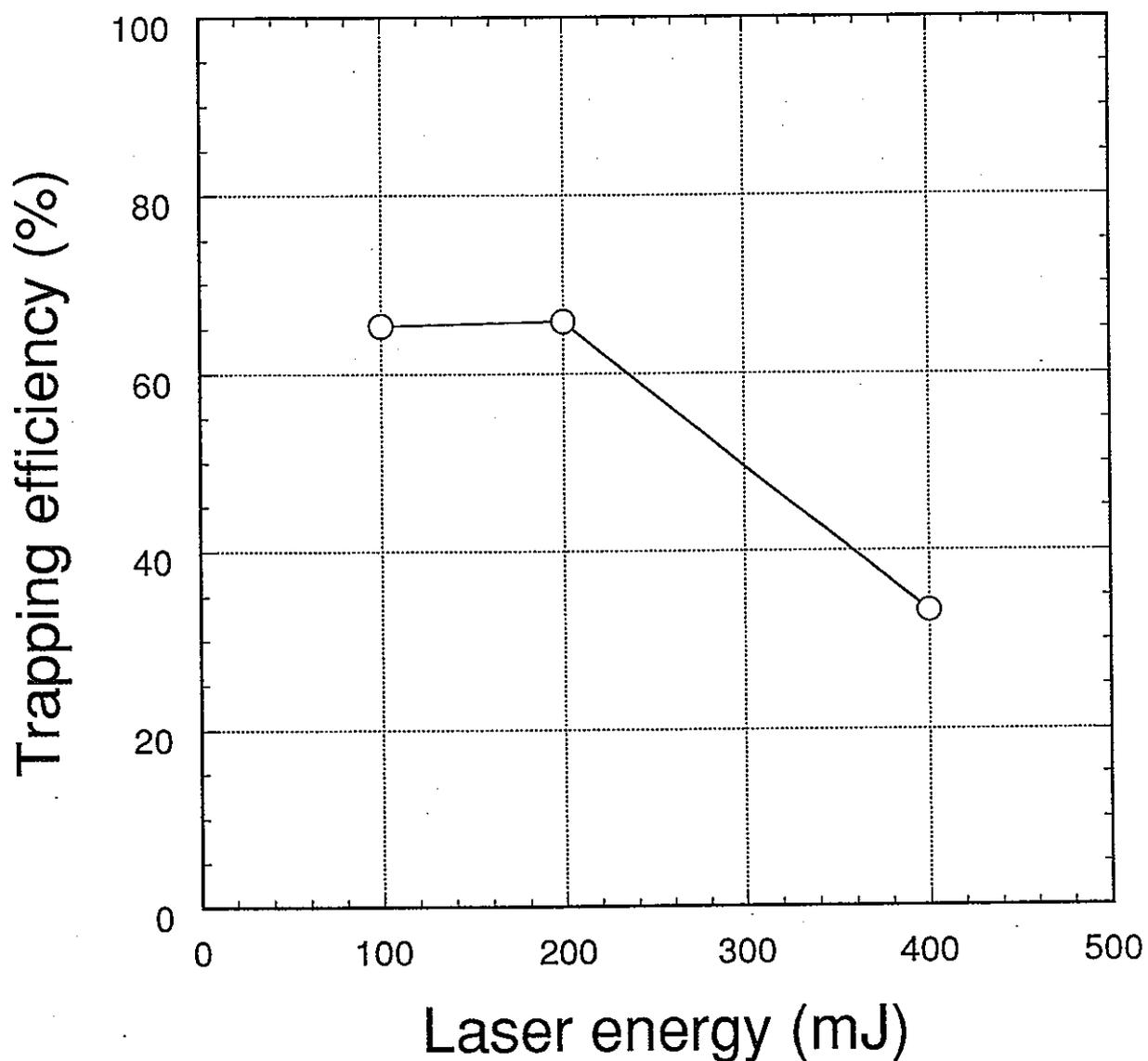


図3.84 レーザーエネルギーの捕集率への影響
バフ研磨仕上げ試験片, 送り速度0.25mm/s

付録1. レーザー除染法等に関する調査

付録1-1 表面清浄化

付録1-2 表面層除去

付録1-3 表面改質

付録1-4 レーザー除染

付録1-5 定量分析

付録1-6 表面状態計測

付録1-7 流体・粉体特性

付録1-1 表面清浄化

1. 技術名称

表面清浄化

2. 概要

比較的低エネルギーのレーザー光を清浄化したい物質表面に照射し、表面に付着した汚染物質粒子、被膜を取り除く技術。レーザー光は、清浄化の高効率化、制御性向上の観点よりホモジナイザーによりビーム整形して用いるのが一般的である。清浄化に利用されるレーザーはパルスCO₂レーザー、エキシマレーザーなどである。半導体産業ではエキシマレーザーを用いた半導体表面の清浄化に多くの研究がみられる。

3. 原理

比較的低エネルギーのパルスレーザー光を清浄化したい物質表面に照射し、付着汚染物質の除去を行う。清浄化の機構については以下のようなプロセスが考えられ、実際にはこれらの反応の組み合わせにより清浄化が行われているものと考えられている。

・光熱反応

レーザーエネルギーの直接吸収により不純物粒子が蒸発、飛散する。

・光化学反応

・汚染物質構成分子の結合を光化学的に切断し除去する。

・光音響反応

汚染物質粒子または表面物質がレーザーエネルギーを非常に速く吸収し、その結果生じる衝撃波により汚染物質粒子を除去する。

4. 国内外の適用例

(1) 紫外レーザーによるミラー表面の清浄化¹⁻¹⁾

XeCl (308nm) エキシマレーザーを用いて鏡面仕上げされた表面の清浄化（作業工程中に発生する物質の除去）を行っている。レーザー光の強度分布は清浄化面の制御性改善のためにホモジナイザーを用いて均一化されている。強度分布整形前後のビーム強度分布を図1-1に示す。

(2) エキシマレーザーによるSi基板の清浄化とプロセッシング¹⁻²⁾

超高真空状態または圧力制御された反応ガス中で、発振波長248 nm、パルス幅20～25 nmのKrFエキシマレーザーをSi (100) 基板に照射し、その照射効果について研究を行って

いる。表面状態の観察にはXPSを用いた。ピークパワー、パルスエネルギー、ハロカーボン (CF₄)、一酸化炭素圧力をパラメーターとし、酸素および炭素の除去効果について詳しく実験が行われている。

(3) KrFレーザーによる液体フィルムを用いたSi基板清浄化¹⁻³⁾

KrFレーザー照射の直前に水蒸気をSi基板表面に吹き付け被膜を作り、水蒸気の圧力を利用して微粒子を取り除く技術。装置の構成を図1-2に示す。

(4) 模擬宇宙環境下におけるレーザーミラーのクリーニング¹⁻⁴⁾

パルスCO₂レーザーを用いてレーザーミラー (ニッケルメッキ、金コーティングアルミミラー) の清浄化が行われている。特に、宇宙環境を模擬した図1-3のような実験装置を用いて、低温条件 (34 Kまたは90 K)における試験を行った。CO₂レーザーはエキシマレーザー用の装置が代用されており、パルスエネルギー1.5 Jが得られる。

5. 国内外での特許

(A) 金属のレーザークリーニング [Jeff C. Wuらによる特許 US Pat. 4898650] ¹⁻⁵⁾

貴金属コーティングの前処理としてレーザー処理を行い、表面の清浄化を行う。レーザーの照射に際し基板には損傷を与えないことを特徴とする。

(B) レーザーによる固体表面粒子の除去 [IBM GMBH. による特許 EURO. PAT 0297506] ¹⁻⁶⁾

電子ビームリソグラフィ用のマスクに付着した微粒子を、エキシマレーザーを利用して取り除く方法に関する特許。装置の概念図を図1-4に示す。マスクを垂直に立て、21, 22の窓からエキシマレーザーを照射してクリーニングを行う。

(C) ガラス表面に付着する異物の除去方法 [特開平5-15474] ¹⁻⁷⁾

ガラス表面に付着する異物を非接触で、しかも異物の付着するガラス表面の反対面である室内側より簡単に効率よく除去させる。

(D) [三菱電機 (株) 特開平1-138716] ¹⁻⁸⁾

半導体装置を処理する雰囲気を保持するための容器の内部を洗浄する方法。

(E) [新日本製鉄 (株) 特開昭55-119181] ¹⁻⁹⁾

レーザー照射により表面の有機物を蒸発させ、鋼板の表面を清浄化する。

6. 性能

(1) 紫外レーザーによるミラー表面の清浄化¹⁻¹⁾

清浄化の対象となる汚染物質または基板材料の種類は非常に多く、表1-1と表1-2に適用可能な物質の一部を示した。

・ベリリウム表面の清浄化

大気中において、約10 μm の SiO_2 粒子で汚染された表面にレーザーを照射し清浄化を行った。レーザーエネルギー密度は 0.9 J/cm^2 と若干高い値において清浄化可能であった。

図1-5に清浄化した面と不純物が堆積している面の写真を示し、図1-6にBRDF(Bi-directional reflectance distribution function)による反射分布を示す。清浄化された面はオリジナル表面の反射率とほぼ同じ値を示している。

・石英（誘電体/金属被膜）表面の清浄化

石英基板上的アルミニウム被膜と MgF_2 被膜の清浄化を大気中で行った。清浄化に必要なエネルギー密度は 0.2 J/cm^2 であった。

・金表面の清浄化

金表面上の微粒子（水蒸気、炭素粒子など）を大気中、真空中、低温真空中において清浄化を行った。清浄化に必要なエネルギー密度は 0.2 J/cm^2 であった。

(2) エキシマレーザーによるSi基板の清浄化とプロセッシング¹⁻²⁾

試験の結果、炭素不純物の場合、 500 mJ/cm^2 のエネルギー密度があれば十分除去可能であることがわかった。また、酸素の場合にはこれ以上のエネルギーが必要であることも示された。あらかじめHFでエッチングしたシリコン基板をCOまたは CF_4 の反応ガス雰囲気中においてレーザー照射を行うとクリーニングに必要なパルス数を少なくすることができ、基板の損傷も小さくすることが可能である。

(3) KrFレーザーによる液体フィルムを用いたSi基板清浄化¹⁻³⁾

一例として、レーザーエネルギー 120 mJ/cm^2 、パルス幅16 nsで $0.1 \mu\text{m}$ のサイズのアルミナ微粒子の除去が可能であった。

(4) 模擬宇宙環境下におけるレーザーミラーのクリーニング¹⁻⁴⁾

液体窒素温度付近90 Kにおけるミラー表面の主な不純物層は CO_2 と H_2O であり、液体ヘリウム温度34 Kでは酸素および窒素の不純物層も関与してくると考えられる。これら不純物をレーザー照射により除去したところ、ミラー表面の損傷は全く無く、表面状態

も汚染される前と同等の状態になることが確認された。また、X-Yスキャナーを用いてミラー表面を走査させ25 cm²もの大きな領域の清浄化が可能となった。

7. 問題点

(1) 紫外レーザーによるミラー表面の清浄化¹⁻¹⁾

この清浄化技術は、半導体工場の実際のラインでは一般的に見受けられない程大きな微粒子 (100 μm以上) の除去に対して効果が大きい。従って、あらゆる状態の微粒子全てにおいて適用可能な技術ではない。他の応用に際しては最適化の実験が再び必要となる。

(2) エキシマレーザーによるSi基板の清浄化とプロセッシング¹⁻²⁾

反応ガス雰囲気中で清浄化を行うこの方法は、現在、まだ詳細な機構の解明には至っていない。

(3) KrFレーザーによる液体フィルムを用いたSi基板清浄化¹⁻³⁾

文献中に問題点は指摘されていないが、水蒸気を使用することから、適用可能な基板材料の制約は受けると思われる。

(4) 模擬宇宙環境下におけるレーザーミラーのクリーニング¹⁻⁴⁾

文献中に問題点は指摘されていない。

文献

- 1-1) R. A. Osiecki et al., Proc. SPIE Vol. 1329 (1990) 127.
- 1-2) J. K. Watanabe et al., J. Vac. Sci. Tech. A 10(4), (1992) 823.
- 1-3) W. Zapka et al., Microelectronic Eng. 17 (1992) 473.
- 1-4) V. G. Pierce et al., Proc. SPIE Vol. 1329 (1990) 134.
- 1-5) J. C. Wu et al., US Pat. No.4898650 (Feb. 6,1990).
- 1-6) A. Karl et al., EURO Pat. No. 0297506 (Jun. 28, 1988).
- 1-7) 西山, 特開平5-15474.
- 1-8) 金岡, 藤井, 特開平1-138716.
- 1-9) 井内, 特開昭55-119181.

図 表

表1-1 UVレーザー清浄化により除去可能な物質リスト¹⁻¹⁾

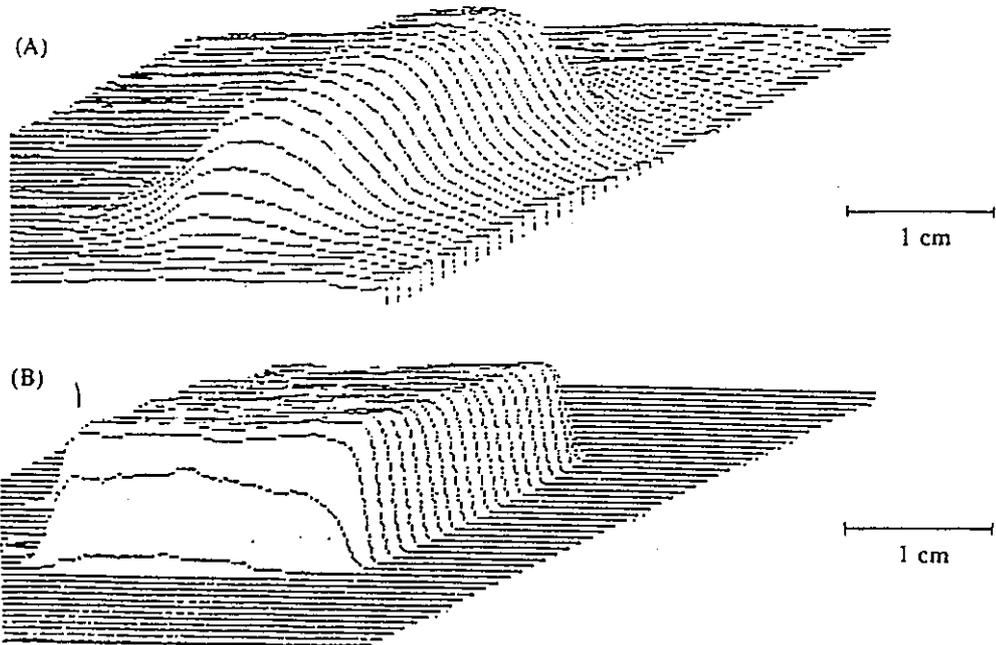
PARTIAL LIST OF CONTAMINANTS REMOVED BY UV LASER CLEANING

Water (liquid and frozen)
Fingerprints
Diffusion Pump Oil
Diocetyl Phthalate
Carbon Particles
Silicon Dioxide Particles and Other Silicates
Tri-chloroethane and Other Solvent Residues
Tricosane
"Hydrocarbons"
Aluminum Oxide Particles
Nonoxide Particles
Photoresist

表1-2 UVレーザー清浄化に適用可能な基板材質リスト¹⁻¹⁾

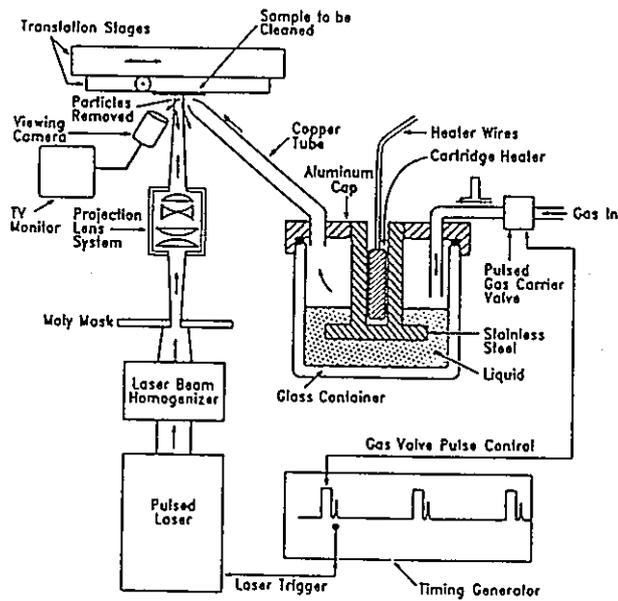
PARTIAL LIST OF SURFACES CLEANED BY UV LASER

Silicon
Gallium Arsenide
Quartz (bare and anti-reflection coated)
Nickel
Gold
Beryllium
Aluminum
Black Anodized Aluminum
Black Polyurethane Paint
Indium Antimonide
Cadmium Telluride
Magnesium Fluoride Coatings
Polymers
Chromium



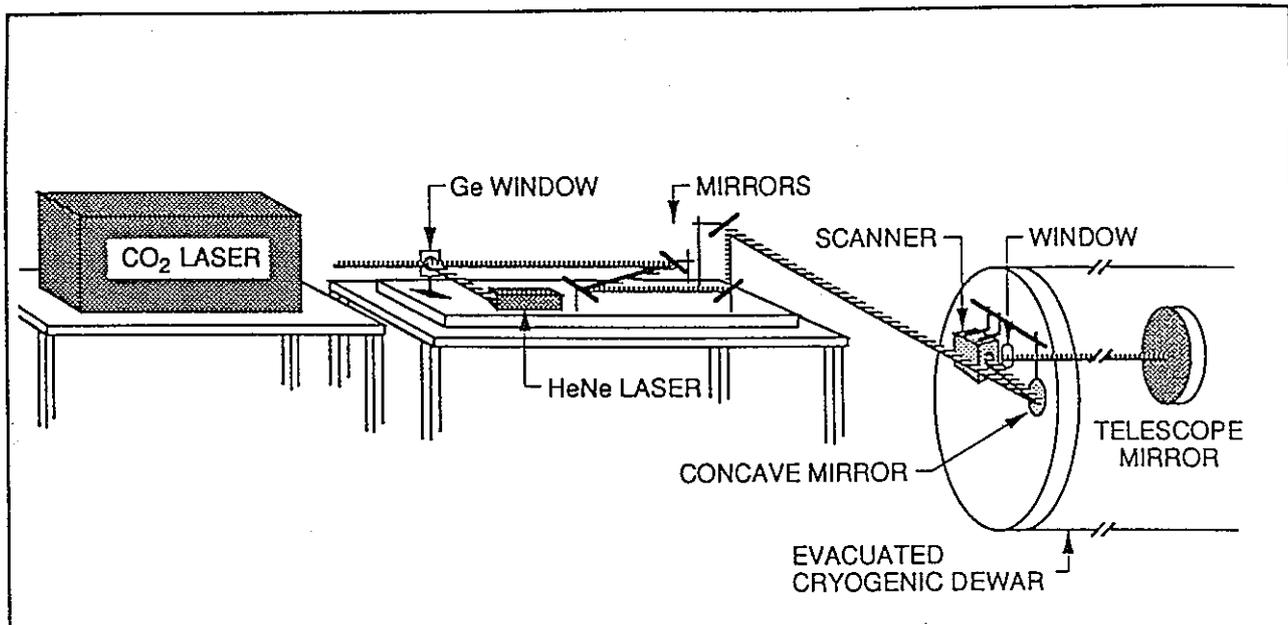
Intensity profile of an excimer laser beam before (A) and after (B) homogenization

図1-1 均一化されたビーム強度分布¹⁻¹⁾



Experimental arrangement for liquid-film enhanced pulsed-laser cleaning to remove particulates on a surface

図1-2 IBMにおけるSi基板の清浄化方法¹⁻³⁾



Apparatus for Ground-Based Mirror-Cleaning Demonstration

図1-3 宇宙環境を模擬した清浄化試験装置¹⁻⁴⁾

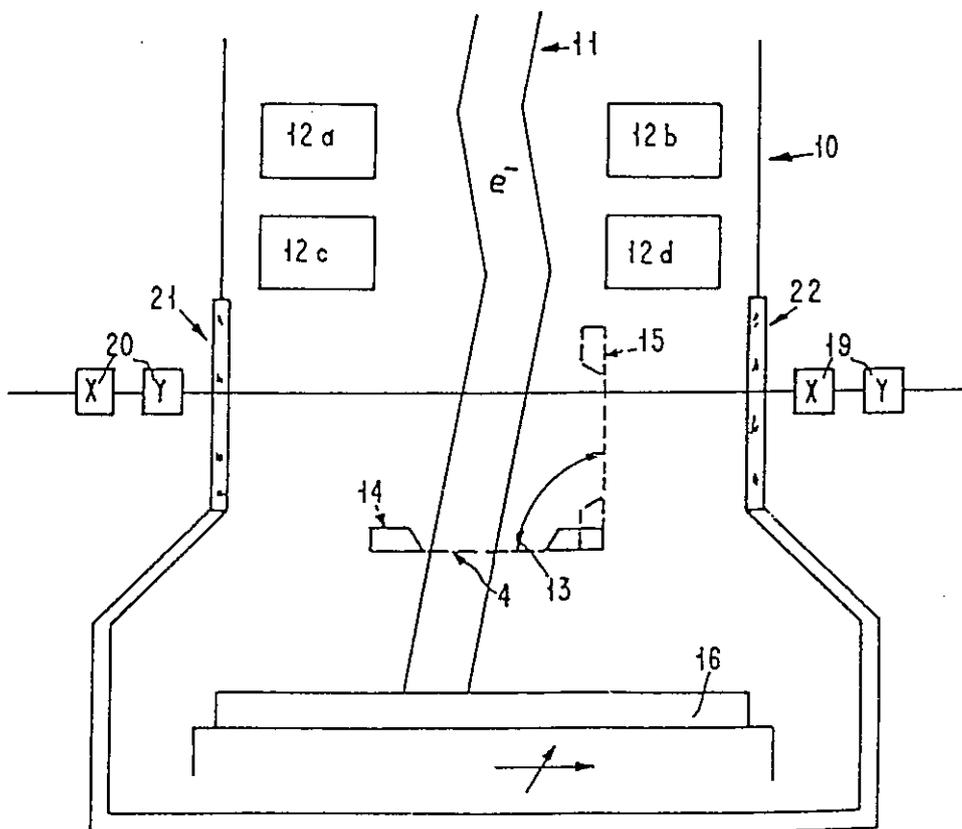
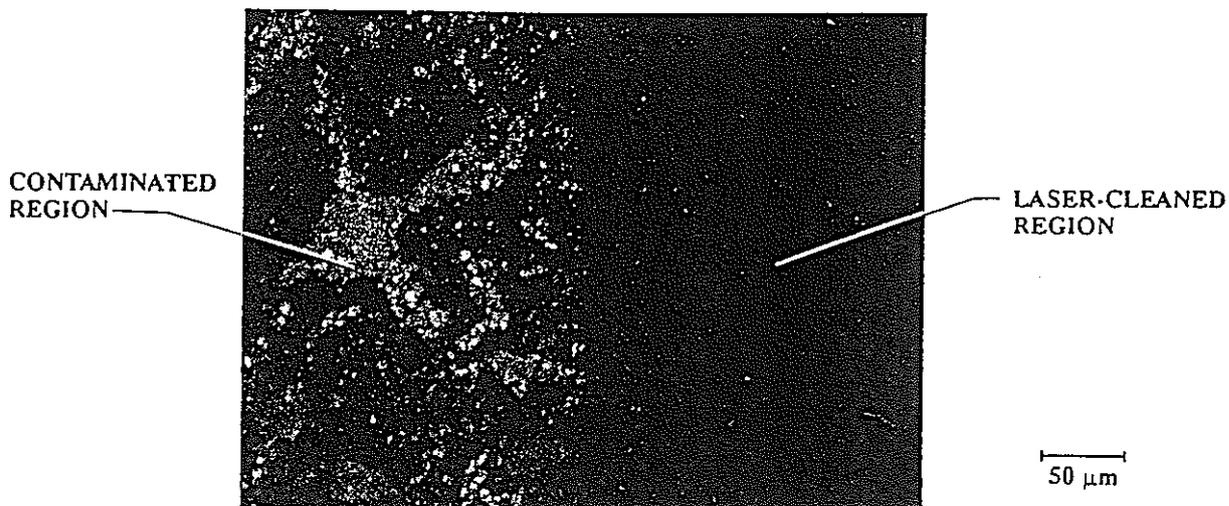
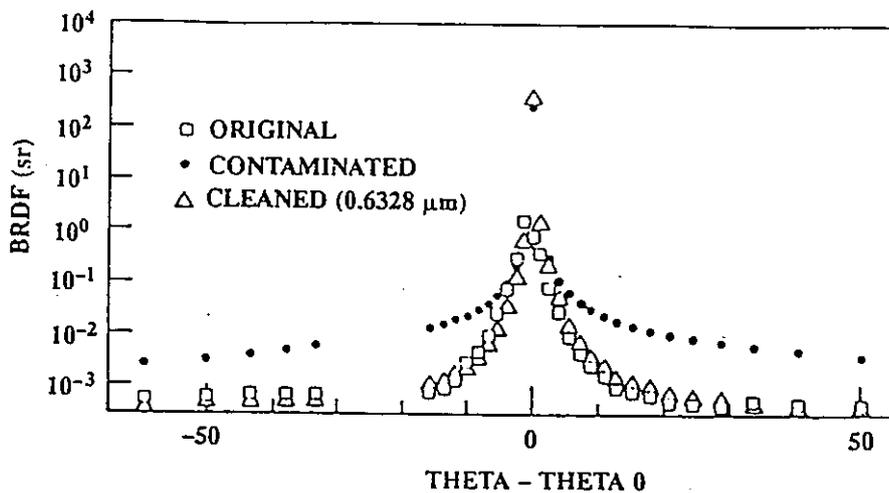


図1-4 電子ビームリソグラフィー用マスククリーニング機構¹⁻⁶⁾



Beryllium surface contaminated with SiO₂ particles and after UV laser cleaning

図1-5 ベリリウム表面の清浄化の様子¹⁻¹⁾



BRDF spectra obtained at 0.6328 μm on the Be sample after SiO₂ contamination and laser cleaning

図1-6 清浄化の前後でのBRDFスペクトルの比較¹⁻¹⁾

付録1-2 表面層除去

<p>1. 技術名称</p> <p>表面層除去技術</p>
<p>2. 概要</p> <p>パルス幅が短く輝度の高いレーザーを金属や有機物被覆された材料表面に照射し、被膜を取り除く技術。表面の清浄化の技術と比較すると表面被膜の除去は比較的高いエネルギー密度が必要となっている。応用技術には航空機のペイント剥がし、電子部品の微細加工などがある。</p>
<p>3. 原理</p> <p>パルス動作、高輝度のCO₂レーザー、YAGレーザー、エキシマレーザーを材料表面に照射し蒸発、除去する技術。紫外領域で発振するレーザーを用いた有機物材料の加工では、図1-7¹⁻¹⁰)のように表面の極薄い層のみが蒸発除去されるため、デブリーの形成も少なくシャープな加工面となる。一方CO₂レーザーのような赤外レーザーを用いた加工では光線の到達距離が長くなるため単パルスにおいても除去が大きく進行する。このため、広範囲に渡り材料の溶融、溶融物の飛散が発生し荒れた加工面となる。</p>
<p>4. 国内外の適用例</p> <p>(1) レーザーペンキ剥がし¹⁻¹¹)</p> <p>航空機の塗装を剥がす作業は有機溶剤を用いた化学的な方法や、研磨材を吹き付けることによって機械的に被膜を剥がす方法がとられてきた。化学的方法では航空機材料として広く利用されるようになってきた有機複合材料に適用することができない。また、研磨材を吹き付ける方法は下地に影響を与える危険性があるため完全な方法とはいえない。LTIではCO₂レーザーを利用した航空機材料の塗装除去および再塗装性、再塗装後の耐候性の研究を詳細に行っている。</p> <p>(2) 自動レーザーペンキ剥がし¹⁻¹²)</p> <p>アメリカ海軍が航空機用の2台の自動塗装除去装置の製作を技術会社と契約した。適用航空機はF-14戦闘機、H-3,H-46,H-53ヘリコプターである。清浄化用のレーザーとしてはCO₂レーザーが用いられる。</p> <p>(3) エキシマレーザーによるアモルファス金属の加工¹⁻¹³)</p> <p>エキシマレーザーを用いたアモルファス金属のレーザーアブレーション加工について</p>

研究が行われている。入熱の少ないレーザー加工法によりアモルファス金属の加工が可能となった。ビームの各種パラメーターと除去プロセスにおける熱の効果について調べられた。

(4) エキシマレーザーによる金属のパターニングとエッチング¹⁻¹⁴⁾

電子部品の金属配線は湿式方法でエッチングされるのが一般的である。湿式方法は工程が多く、不良品の発生率も高くなる。金属にエキシマレーザーを照射して直接配線を描画する方法は、工程の短縮、欠陥の減少につながる。

5. 国内外での特許

(A) 配線基板および封止構造に関する特許，[特開平4-35051 (株) 日立製作所]¹⁻¹⁵⁾

特に、配線基板における高分子材料や有機物などの選択的な除去や清浄化処理に適用して有効な技術。特許の範囲として、レーザー波長150 nm～400 nm，エネルギー密度0.5 J/cm²～5.0 J/cm²，パルス幅を1 μs以下としている。図1-8に装置概要を示す。

6. 性能

(1) レーザーペンキ剥がし¹⁻¹¹⁾

使用したレーザーは試験内容により異なり、アルミニウム合金、複合材料に塗装された試料について、30-50 J (0.3-2.0 μs) のシングルパルスCO₂レーザー、10 Hz、1.2 Jおよび40-250 Hz、1.2 Jの繰返しパルスCO₂レーザーが用いられた。レーザーにより塗装の除去が行われた面に再び塗装する試験などが行われ、耐候性の試験の結果、塗装を剥がした面には何も処理しない方が強い塗装が得られることが判明した。図1-9には航空機に適用した場合の概念図と、図1-10に処理に適した光学系の概念図を示す。

(2) 自動レーザーペンキ剥がし¹⁻¹²⁾

このシステムでは少なくとも4 ft²/minの塗装除去能力を持つと予想される。また、256色識別可能なカメラシステムを装備しており、表面色の変化をリアルタイムで識別し、フィードバック制御しながら塗装の除去を行うことが可能となる。4 ft²/minの塗装除去を行うためにはレーザー平均出力6 kW，パルスエネルギー6 J，繰返し速度1 kHzが要求される。UTILではパルス化したCW CO₂レーザーとUV予備電離TEA CO₂レーザーの技術を融合させた。現在までに得られたデータを表1-3に示す。このシステムの完成により塗装除去作業のコストの大幅な削減が可能であることを予測している。

(3) エキシマレーザーによるアモルファス金属の加工¹⁻¹³⁾

XeClエキシマレーザーを用いた場合、アモルファス金属のアブレーションしきい値は 7 J/cm^2 であった。レーザーフルエンスを変化させたときの表面状態を図1-11に示す。

(4) エキシマレーザーによる金属のパターニングとエッチング¹⁻¹⁴⁾

銅フィルムのエッチングに必要なエネルギー密度は 1 J/cm^2 程度と低い値となった。エッチング時の雰囲気 Cl_2 にして同様に実験を行うと、エッチング速度が速くなることが示された。図1-12、図1-13に銅フィルムのエッチングパターンとフルエンスに対するエッチング速度のグラフを示す。

7. 問題点

(2) 自動レーザーペンキ剥がし¹⁻¹²⁾

レーザーの性能が十分ではない。現状のパルスの繰返し速度は 1 Hz (目標値 1000 Hz)。

(3) エキシマレーザーによるアモルファス金属の加工¹⁻¹³⁾

プラズマによる入射レーザー光の吸収のため入力密度が高すぎても効率的な材料の除去は行われぬ。効率的なエネルギー密度において除去を行う必要がある。

(4) エキシマレーザーによる金属のパターニングとエッチング¹⁻¹⁴⁾

複数のパルスで連続的にエッチングを行うと、エッチングパターンが台形となる。

文献

- 1-10) Y. Kathuria, 第2回名古屋レーザーフォーラム (Dec1993) .
- 1-11) J. . Head et al., AD-A249 233,WR-TR-91-4026 (Jun. ,1991).
- 1-12) J.S.Foley, Metal Finishing 90, 48 (1992).
- 1-13) R.Butje, Proc. SPIE Vol. 1023 (1988)187.
- 1-14) P.H.Key et al., Emerging Technologies for In Situ Processing (1988) 105.
- 1-15) 片山, 志儀, 特開4-35051.

図 表

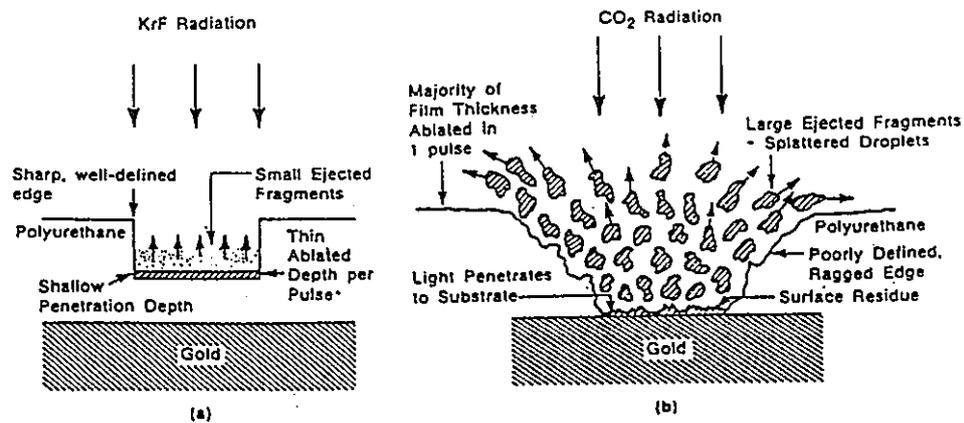
表1-3 ペイントストリッピングに必要なレーザーの使用と現状¹⁻¹²⁾

ALPS Laser Performance Requirements		
Parameter	Specification	Current Measured Performance
Output power	6 kW	—
Pulse repetition frequency	1000 Hz	1 Hz ^a
Pulse energy	6 Joules	6.1 Joules
Pulse width	<30 μ sec (FWHM)	<20 μ sec (FWHM)
Pulse power (averaged over pulse)	<300 kW	300 kW
Initial spike power	<1M	0.7 MW
Beam quality	See note ^b	See note ^c
Pulse energy repeatability	±5%	±2%
Pulse timing repeatability	<200 nsec	<50 nsec

^a Under Phase I of the ALPS program, the UV-preionized pulser discharge head was developed to demonstrate required stable discharge, pulse profile, and energy extraction. The pulse tests were performed at no flow and low pulse repetition frequency (<1 Hz). Under Phase II, the pulser head will be installed in a laser with a command charge power supply of sufficient capacity to drive the discharge at one kilohertz repetition rate.

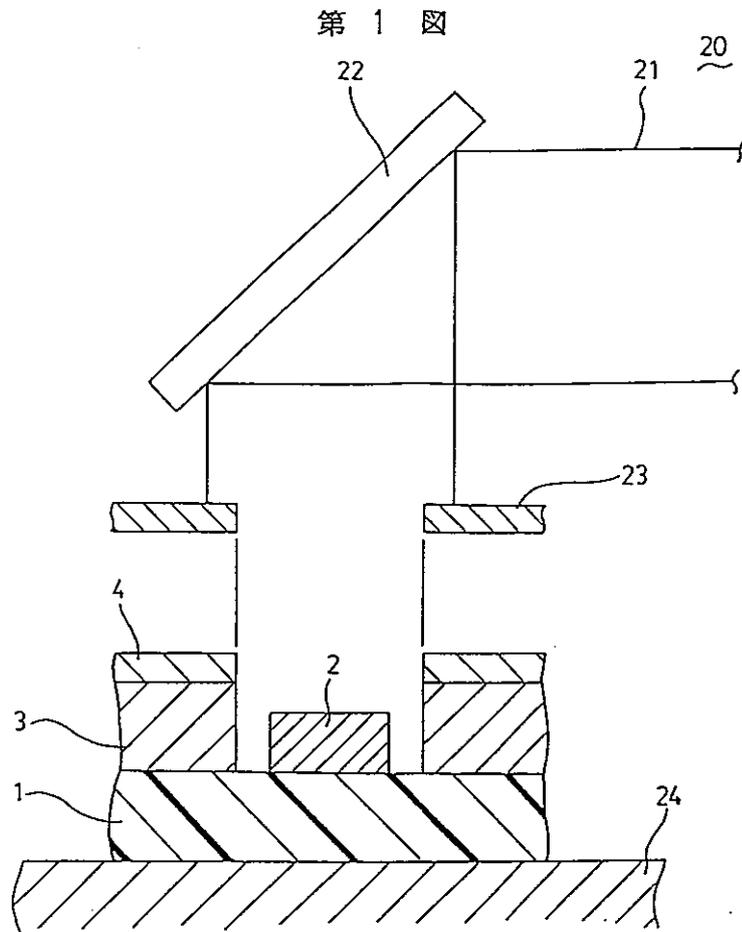
^b The output from the laser must be of sufficient quality to transport the beam through the beam delivery system to the end effector.

^c The laser is presently being operated with an optical cavity that gives a quasi-uniform "top-hat" output beam profile, which has been used successfully for bench-top paint-stripping tests. Further work is required to develop an optical cavity design (e.g., an unstable resonator) that is optimized for the average power and for the optical train that are envisioned for the ALPS prototype laser.



Schematic drawing showing the difference between excimer and CO₂ ablation of polyurethane. As the excimer radiation interacts with the plastic, the light only penetrates a short distance due to strong ultraviolet absorption. The shallow penetration depth causes only a thin layer to be ablated per pulse. The accompanying debris is comparatively small. In (b), the CO₂ radiation is very weakly absorbed and penetrates through the entire thickness of polymer to the substrate. This results in the removal of virtually all of the irradiated polymer in one pulse. Since the high CO₂ intensity causes extensive melting, ejection of large liquid fragments and droplets occurs.

図1-7 表面除去技術の概念図¹⁻¹⁰⁾



- | | |
|--------------|-----------|
| 1 : セラミックス基板 | 21 : レーザ |
| 2 : 金属パターン | 22 : 反射板 |
| 3 : 高分子材料膜 | 23 : マスク |
| 4 : レジスト膜 | 24 : ステージ |

図1-8 配線基板および封止構造に関する特許概念図(1-15)

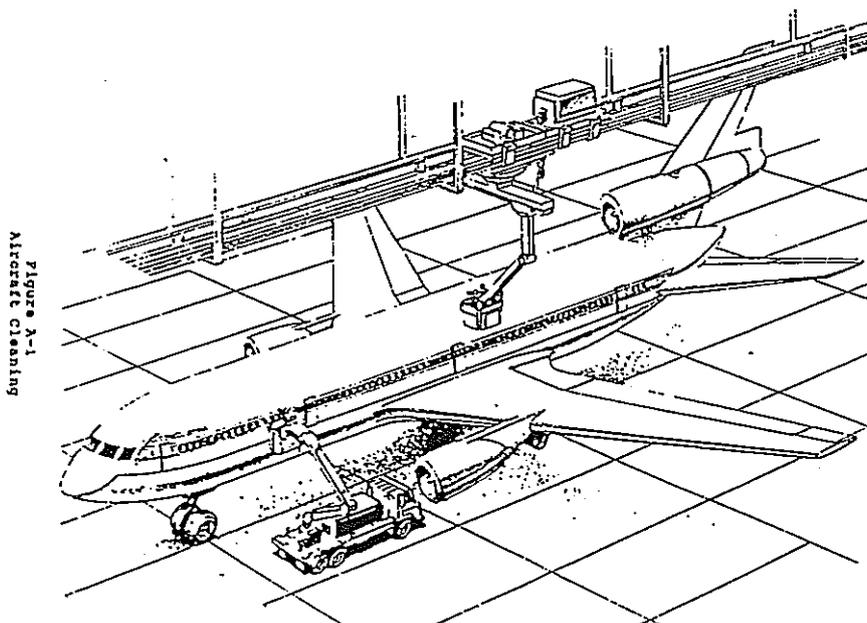


図1-9 レーザーペイントストリッピングの適用例(1-11)

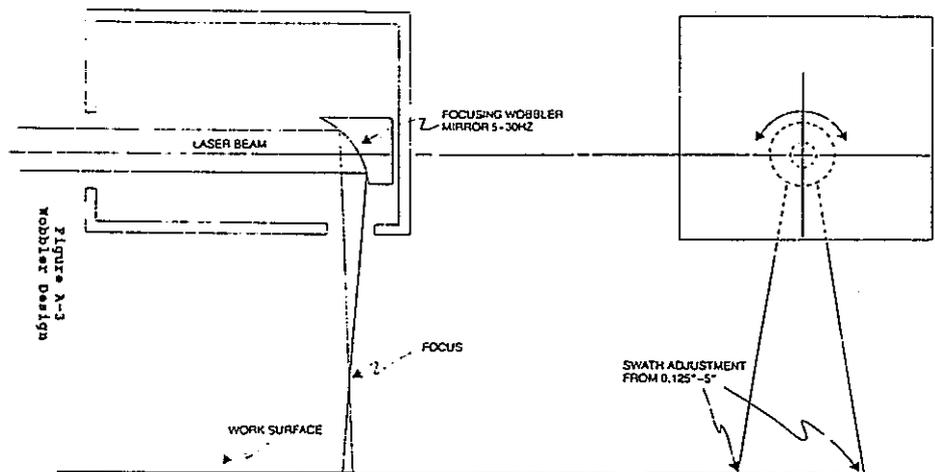
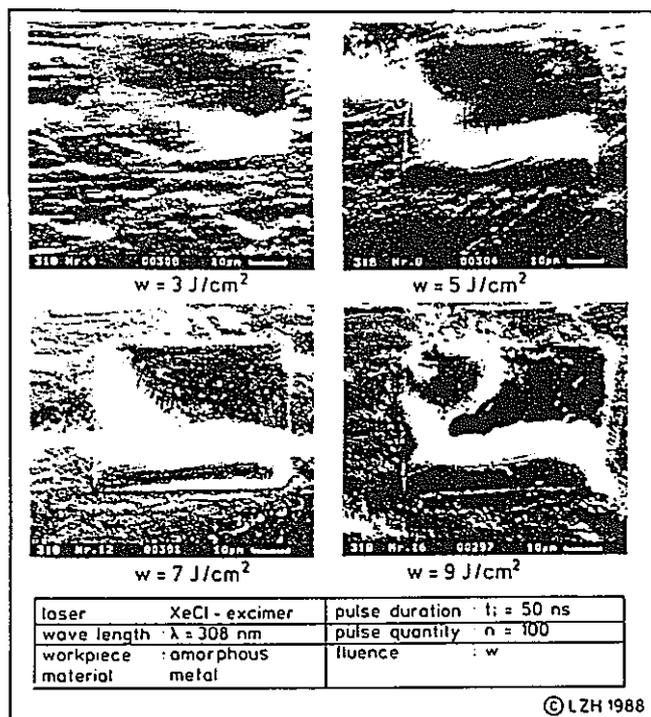


図1-10 レーザーペイントストリッピングの光学系例(1-11)



Threshold fluence for removal of amorphous metal foils.

図1-11 アモルファス表面のレーザーアブレーションの様子(1-13)

Etched pattern in 25 μ m
free standing Cu foil.

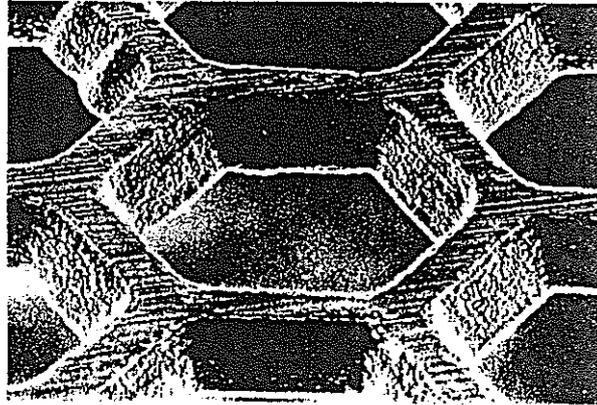


図1-12 銅フィルムのエッチング状況¹⁻¹⁴⁾

Etch Rate vs. Fluence
for Cu in 1 torr Cl₂,
308 nm, 1Hz.

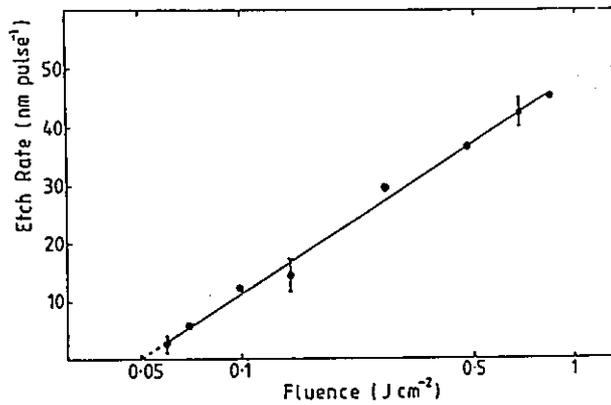


図1-13 銅フィルムのエッチング速度グラフ¹⁻¹⁴⁾

<p>1. 技術名称</p> <p>表面改質</p>
<p>2. 概要</p> <p>レーザーを材料表面に照射し、照射条件を適当に選ぶことにより、表面焼入れ、アニーリング、合金化、グレージングなどの表面改質を行う技術。従来技術と比較して改質領域を局限できるようになり、また、反応時間を制限できることから、特殊な表面状態が形成可能となった。</p>
<p>3. 原理</p> <ul style="list-style-type: none"> ・表面焼入れ <p>レーザー照射により加熱温度を変態点以上にし表面に焼入れ層を形成する。</p> ・アニーリング <p>欠陥の生じた固体の極く表面、あるいは基板表面上に形成した皮膜だけを局所的に加熱し、欠陥の補修を行う技術。（図1-14¹⁻¹⁶）</p> ・表面合金化 <p>レーザーの照射により基板表面にあらかじめ塗布してある材料、または、粉末散布により供給された材料と、基板材料を同時に熔融し、合金化層を形成する技術。（図1-15¹⁻¹⁶）</p> ・グレージング <p>表面焼入れよりも高いパワー密度のレーザー光を材料表面に照射し、表面に急速凝固層を形成させる。材料の自己冷却のみで$10^4 \sim 10^8$ °C/sの速い冷却速度を得ることができ、合金元素を多量に固溶した過飽和固溶体や従来の熱処理では形成不可能な非平衡の相あるいはアモルファス相などを形成することが可能である。（図1-16¹⁻¹⁶）</p> ・衝撃硬化 <p>レーザーを材料に照射して生じる衝撃波の力を利用した表面処理方法。（図1-17¹⁻¹⁷）</p>
<p>4. 国内外での適用例</p> <p>(1) レーザーによるアルミニウム合金の表面硬化¹⁻¹⁸)</p> <p>アルミ合金に高出力レーザー（15 kW CO₂レーザー）を照射し、表面焼入れを行った。</p>

表面焼入れの深さは0.1～1.0 mm程度である。焼入れには2通りの方法を用いた。一つはAl-Siを形成するためにSiパウダー加えながら焼入れを行い、他は、TiN、TiC粉末を表面にクラディングし、表面の強度を増加させた。

(2) グレージングによる $\text{Fe}_{12}\text{Ni}_{38}\text{Mo}_4\text{B}_{18}$ 、 $\text{Nd}_{15}\text{Fe}_{77}\text{B}_8$ の耐食性の改善¹⁻¹⁹⁾

結晶化した $\text{Fe}_{12}\text{Ni}_{38}\text{Mo}_4\text{B}_{18}$ 、および永久磁石材料である $\text{Nd}_{15}\text{Fe}_{77}\text{B}_8$ について、耐食性を改善するためにエキシマレーザー (248 nm, 22 ns)を照射しグレージングを行った。

(3) 合金化による低炭素鋼の耐食性の改善¹⁻²⁰⁾

高出力CO₂レーザー(TEM01*モード)を用いた炭素鋼の耐食性向上のための表面合金化技術。添加物としてクロム粉末を用いている。厚さは約1 mmの合金化表面の形成が可能である。(図1-18)

(4) 衝撃波によるアルミニウム等の表面処理¹⁻²¹⁾

アルミニウム試料にレーザーを照射することによって発生する衝撃波の作用により、表面改質を行った。レーザーはパルス幅25 ns, 30 JのNd:YAGレーザーを使用し、試験材料として、アルミニウム、チタニウム、軟鋼を用いた。レーザー照射による衝撃波の圧力測定系を図1-19に示す。

(5) レーザービームを利用した炭素鋼へのTiコーティングとその耐食性¹⁻²²⁾

炭素鋼にレーザー表面改質の技術により耐食性の極めて優れたTiをコーティングする技術。炭素鋼は厚さ6 mmのSM41Bを用いており、レーザー照射前に表面に有機溶剤バインダーをもちいてペースト状にしたTi粉末を塗布した。レーザーは3 kWのCO₂レーザーを用いている。照射方法は、図1-20に示すような、高速ビームスキャニング法を採用している。

4. 国内外での特許

(A) 表面処理材料，材料の表面処理方法およびその表面処理装置[日本原子力事業(株)特開平1-242787] ¹⁻²³⁾

ステンレス鋼，ステライト等のコバルト基合金やインコネル等のニッケル基合金に，クロム等の防食性を有する金属をコーティングして複合金属材料を形成し，この複合金属材料の金属表面に，酸素を含む雰囲気中でレーザー光を照射し防食性の高い酸化物を生成することを特徴とする。

(B) 管内表面処理方法 [三菱重工業(株) 特開昭64-39360] ¹⁻²⁴⁾

管内面をプラズマ溶射により被覆した後、被覆層の表面をレーザー光線を用いて再溶融し、耐食性を向上させる技術。

(C) 原子炉内構造物及び機器の表面処理方法 [(株) 東芝 特開平2-161397] 1-25)

原子炉内圧力容器内の炉水中に設置されたオーステナイトステンレス鋼の原子炉内構造物及び溶接部の炉水に接する表面をレーザーにより溶融することを特徴とする技術。溶融により耐食性の向上を計っている。(図1-21)

(D) レーザー照射によるゼオライト含有セメント系硬化体の表面処理方法 [大成建設(株) 特開平4-160080] 1-26)

セメント類に対し、二酸化ケイ素含有率50%以上(重量基準で10~80%)のゼオライトを含有しているセメント系硬化体に、レーザー照射を行い、硬化体の表面を溶融固化することを特徴とする。表面は硬度が高くなり、耐久性が向上する。建設資材として有用。

(E) Fe-Ni-Cr合金の耐応力腐食割れ性向上表面処理構造体 [(株) 日立製作所 特開平4-116180] 1-27)

Fe-Ni-Cr合金構造体の表面にTi, Ni, Taの何れか1つあるいは2つ以上の成分を含むベース金属よりも耐応力腐食割れ性の高いデンドライト組織を有する表面合金層が形成されていることを特徴とする構造体に関する特許。表面形成にレーザー光を用いる場合もある(図1-22)。

(F) 装飾品の表面処理方法 [セイコー電子工業(株) 特開平1-108357] 1-28)

レーザーにより反応ガス(NH₃, CH₄)を励起分解させ、表面を窒化処理することを特徴とするチタン製時計ケース等装飾品の表面処理方法。

(G) 金属コーティングのためのレーザー表面処理方法 [FIAT AUTO S.p.A EURO. Pat. 0543784A1] 1-29)

レーザーを用いて、金属表面に1~4μmの厚さのチタンナイトライドやチタニウムカーボナイトライドのコーティングを行う。レーザーにはYAGレーザーとCO₂レーザーの2種類のレーザーを用いている。(図1-23)

5. 性能

(1) レーザーによるアルミニウム合金の表面硬化¹⁻¹⁸⁾

レーザー照射後の表面の特性はシールドガスとレーザービームの均一性に依存するこ

とがわかった。また、疲労試験の結果、はっきりとした強度の増加を確認した。

(2) グレージングによる $\text{Fe}_{12}\text{Ni}_{38}\text{Mo}_4\text{B}_{18}$, $\text{Nd}_{15}\text{Fe}_{77}\text{B}_8$ の耐食性の改善¹⁻¹⁹⁾

レーザー照射 (パルス幅22 ns) により, $\text{Fe}_{12}\text{Ni}_{38}\text{Mo}_4\text{B}_{18}$ の場合, 約 $1\mu\text{m}$ のアモルファス層を形成することができた。アモルファス層の厚さはレーザーフルエンス増加により増大する。耐食性については, 表面改質前の材料より, アモルファス化した材料の方が強くなっていることがわかった。 $\text{Nd}_{15}\text{Fe}_{77}\text{B}_8$ の表面グレージングについても同様の結果が得られている。

(3) 合金化による低炭素鋼の耐食性の改善¹⁻²⁰⁾

10 kW CO_2 レーザーを用いている。レーザーの照射方式には光学系でデフォーカスしたビームを照射する方式と, 強度分布を均一化処理したビームを直接照射する方式が用いられた。レーザー照射試験の結果, 均一な合金化表面は, いずれの照射方法でも得ることが可能であった。腐食試験の結果, 表面改質された表面は, 基板材料より腐食の速度が遅くなることが示された。

(4) 衝撃波によるアルミニウム等の表面処理¹⁻²¹⁾

衝撃力を高めるために, 表面にペイント層を設け, プラズマが広がらないようにガラス窓の設置などの工夫を行っている。この結果, レーザーにより発生する衝撃波の圧力は1.7 GPaに達した。照射試験の結果, 厚さ1 mmのアルミニウムでは, レーザーの照射領域 (0.6 cm^2) にわたり, 50 %の強度増加が認められた (図1-24)。

(5) レーザービームを利用した炭素鋼へのTiコーティングとその耐食性¹⁻²²⁾

レーザー照射により形成された表面は欠陥がなく緻密であった。Tiを主成分とするレーザー照射コーティング層は, 腐食試験の結果, 工業用試験Ti並の結果を示した。また, 硬度測定の結果, Ti含有量が30 %の場合ビッカース硬度が最も高く, ビッカース硬度~1000を達成した (図1-25)。

7. 問題点

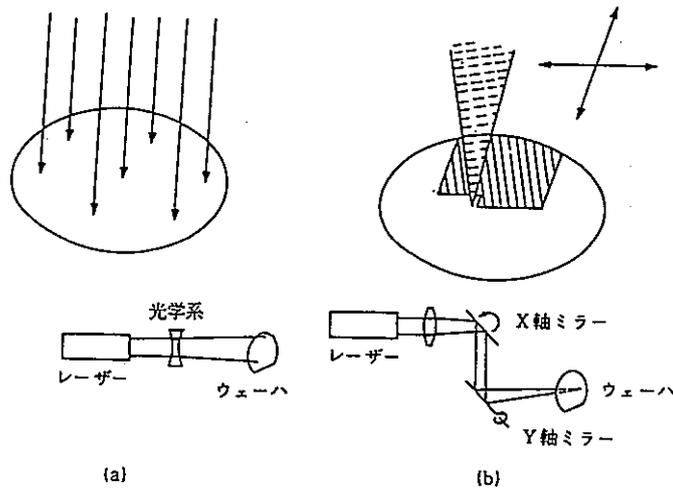
(4) 衝撃波によるアルミニウム等の表面処理¹⁻²¹⁾

反応領域が狭いため大きな構造物などには適用することができない。窓材の汚染が考えられる。

文献

- 1-16) 通産省工業技術院編, レーザー応用工学 (1989) 105.
- 1-17) J. L. Dulaney, Ohio State Univ., Colloquium text, Laser shock processing for metals.
- 1-18) A.Senin et al., Proc. LIM 3 (1986) 233.
- 1-19) J. G. Lunney et al., Proc. SPIE Vol.1023 (1988) 216.
- 1-20) J. C. Ion et al., Proc. LIM 5 (1988) 127.
- 1-21) Ph. Bournot, Proc. SPIE Vol. 801 (1987) 308.
- 1-22) 森重 他, 圧力技術 27 (1989) 26.
- 1-23) 逸見, 特開平1-242787.
- 1-24) 松本他, 特開昭64-39360.
- 1-25) 中城, 特開平2-161397.
- 1-26) 松本他, 特開平4-160080.
- 1-27) 安斎他, 特開平4-116180.
- 1-28) 平野, 特開平1-108357.
- 1-29) Da. Re, Mario, EURO Pat. No.0543784A1(1992).

図 表



アニール法の種類. (a) パルスアニール法
(b) 走査アニール法

図1-14 アニールリング概念図¹⁻¹⁶⁾

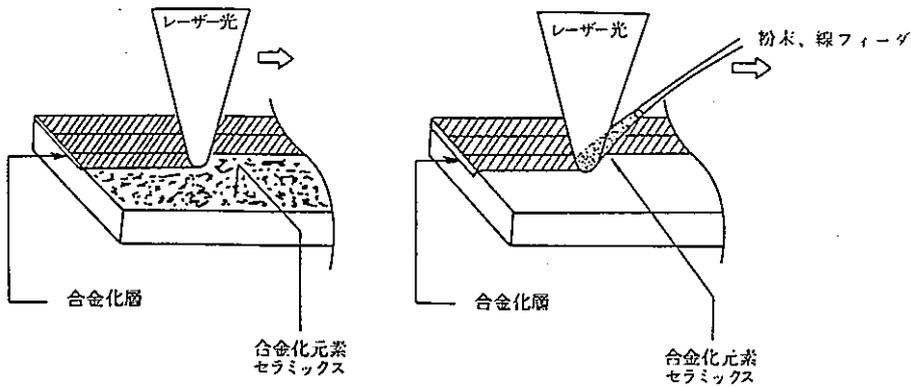


図1-15 レーザー合金化概念図(1-16)

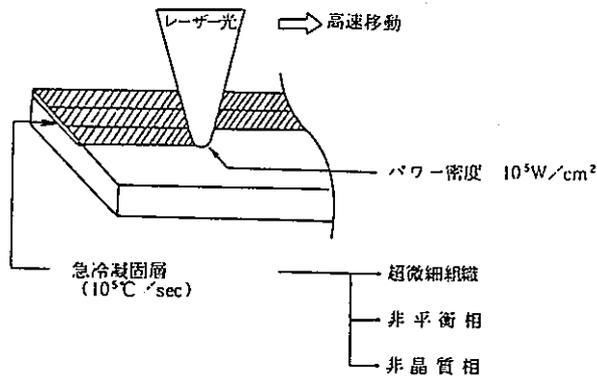
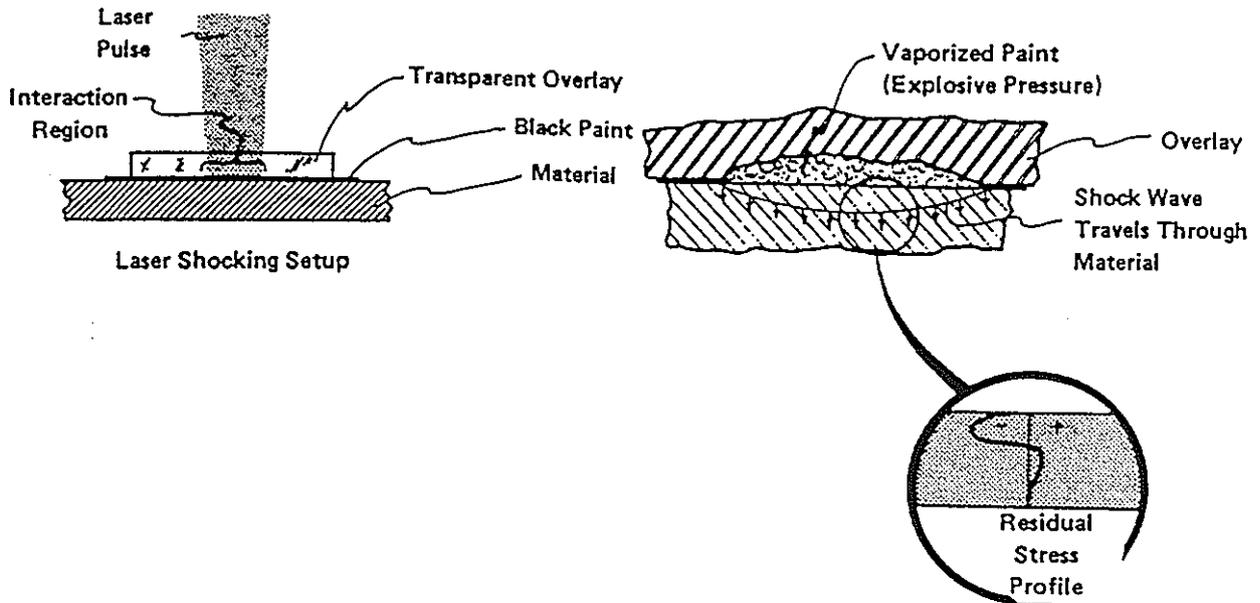
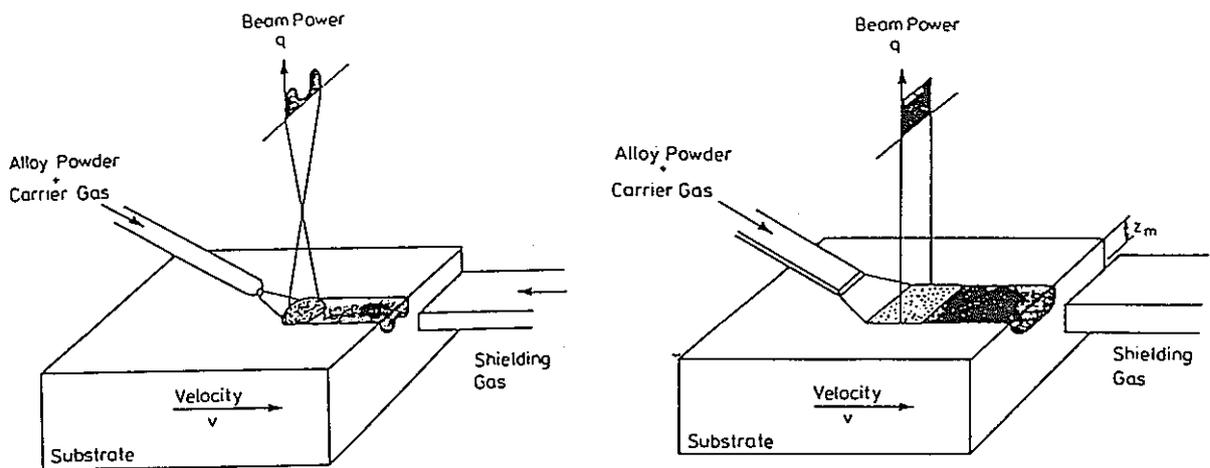


図1-16 レーザーグレージング概念図(1-16)



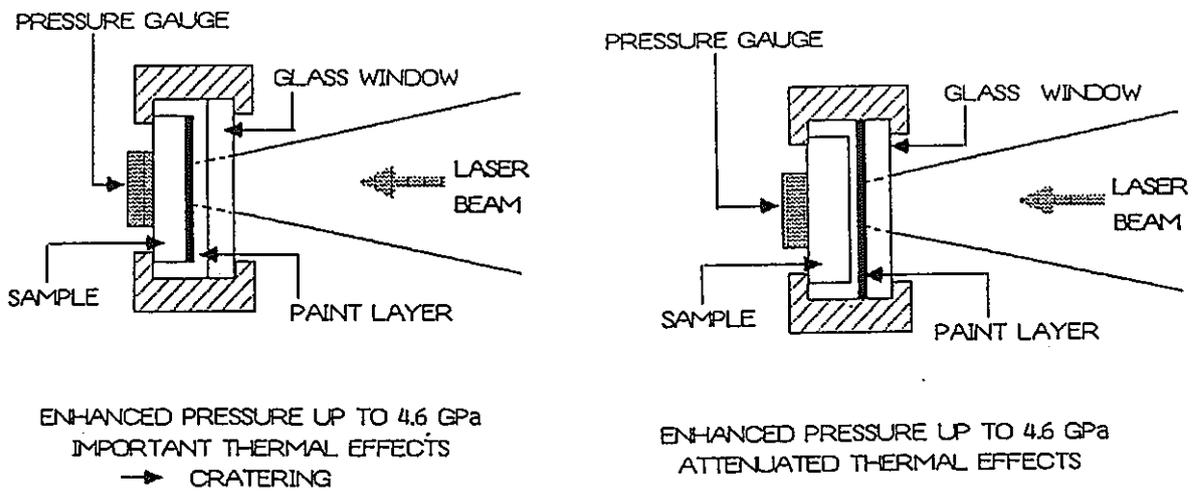
SCHMATIC OF THE VAPORIZATION AND PRESSURE REACTIONS AT THE METAL SURFACE DURING LASER IRRADIATION

図1-17 レーザー衝撃硬化概念図(1-17)



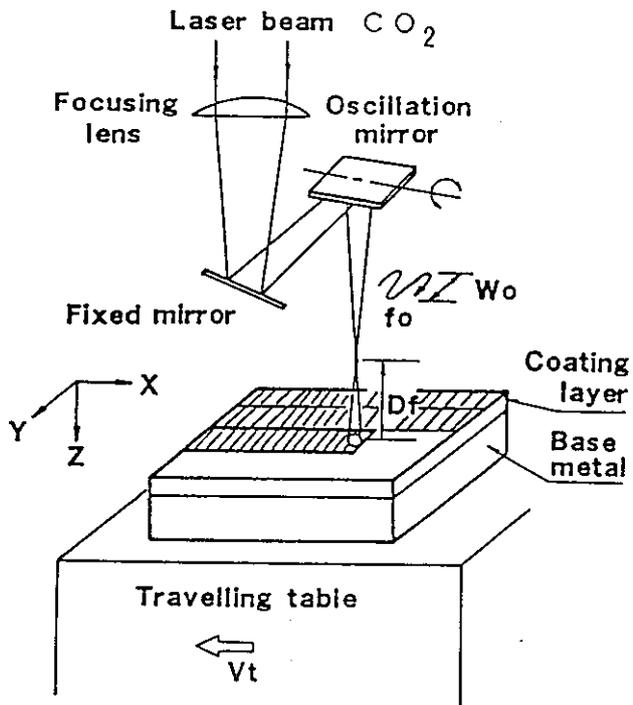
(a) Surface alloying geometries employed.
 a) Defocussed beam.
 b) Integrated beam.

図1-18 レーザー合金化の2種類の方法¹⁻²⁰⁾



Mounting and interaction diagram

図1-19 衝撃波の測定系¹⁻²¹⁾



Laser irradiation method

図1-20 高速ビームスキヤニング方式を用いたTiのコーティング(1-22)

第5回

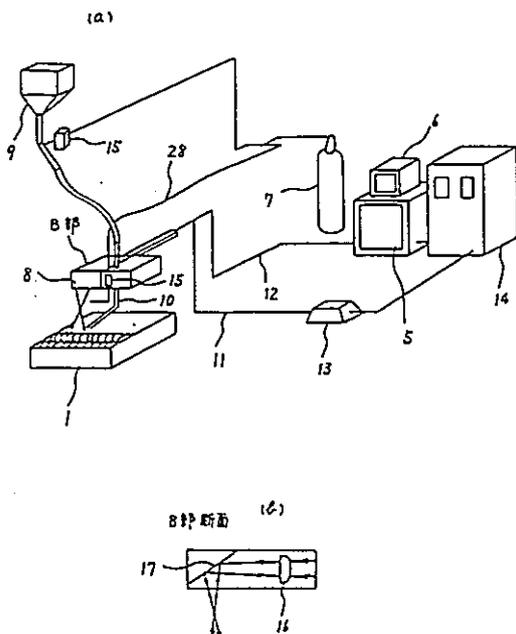
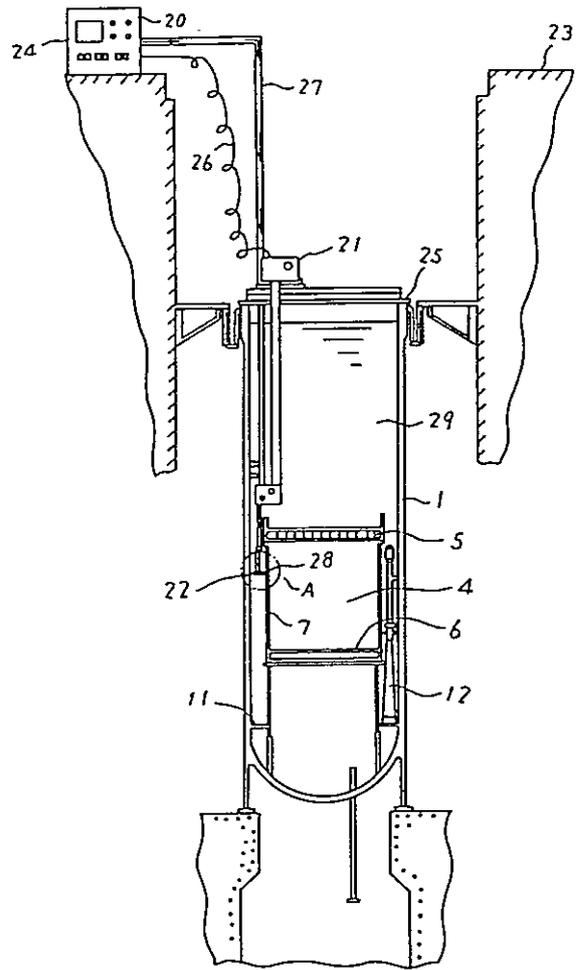
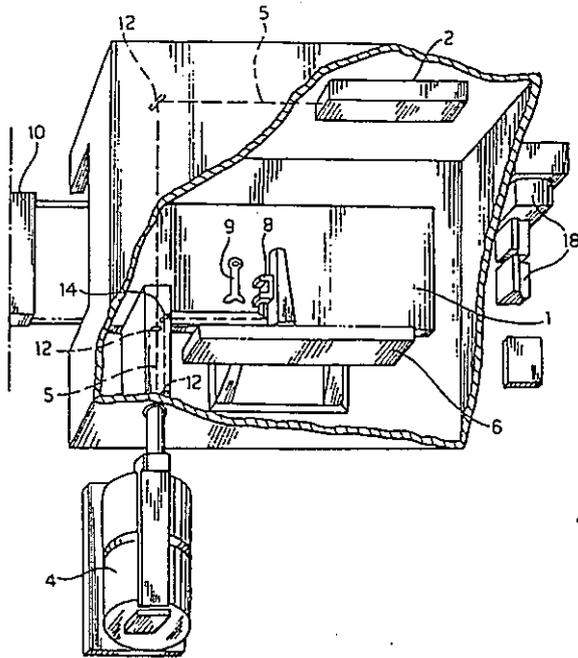


図1-22 耐応力腐食割れ性向上表面処理にレーザーを用いた例(1-27)



第1図

図1-21 原子炉内容器耐食性向上に用いた例(1-25)



⑤ The method consists of irradiating the metal surface of the parts (9) to be coated with a layer of material having characteristics of hardness and resistance to wear by means of laser radiation. Preferably the irradiation is carried out first with a neodymium-YAG laser (2) and then with a CO₂ laser (4).

図1-23 2台のレーザーを用いた耐食性向上薄膜の製作¹⁻²⁹⁾

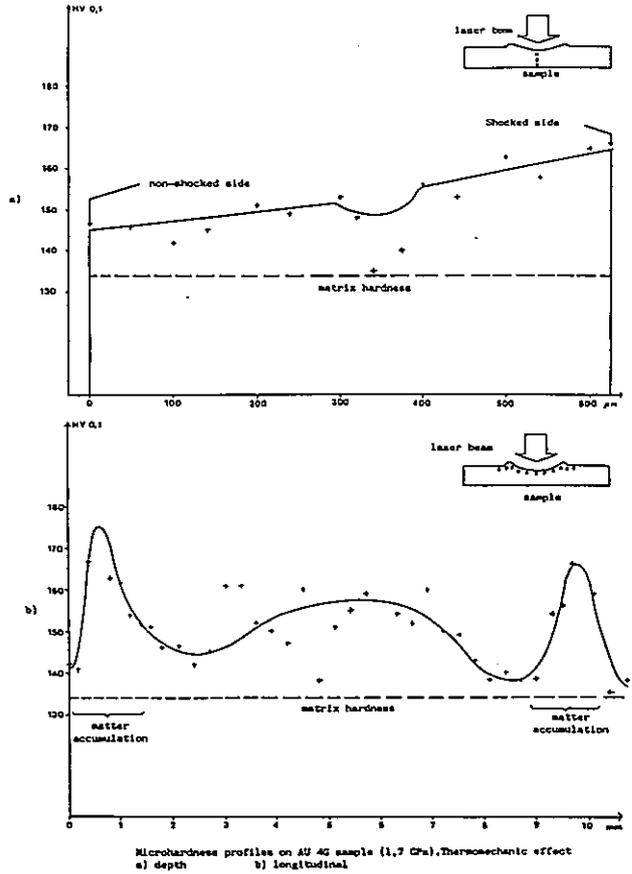
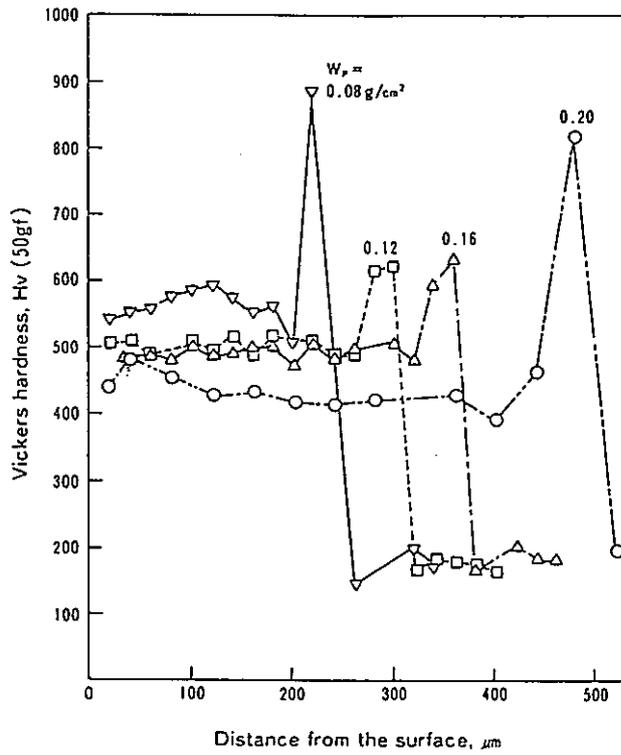


図1-24 レーザー衝撃硬化による強度の増加¹⁻²¹⁾



Relationship between hardness distributions in Ti coating layer and Ti powder content

図1-25 Tiコーティング層の強度¹⁻²²⁾

付録1-4 レーザー除染

1. 技術名称

レーザー除染

2. 概要

(1) 目的

- ① 作業者の被曝低減化（供用中除染）。
- ② 機器，材料（資源）の再利用または安全な廃棄・貯蔵。

(2) 方式

レーザー光（または強力なフラッシュランプ等の光）を除染対象物に照射することにより汚染層を除去する。原理については“3. 原理”参照。

(3) 適用範囲

適用範囲は極めて広いと考えられるが，次のような報告例（文献・特許）がある。

① 対象材質

- i) 金属またはその酸化物
- ii) コンクリート
- iii) ペイント（塗装）
- iv) オイル等有機物，他

② 対象機器・設備

- i) 炉内構造物（ステンレス鋼）
- ii) 配管・ダクト（ステンレス鋼，アルミニウム）
- iii) 生体遮へい壁（コンクリート）
- iv) 廃棄物貯蔵容器（コンクリート，金属塗装面）

③ 適用レーザー

- i) CW/パルス YAGレーザー
- ii) パルスCO₂レーザー
- iii) エキシマレーザー

(4) 特 長

- ① 溶剤等を必要としない気中（乾式）プロセス。→ 2次廃棄物低減。
- ② 非接触プロセスのため自動化に適している。また遠隔操作可能。
- ③ 適用範囲が広く汎用性が高い。(3)参照)。
- ④ 局所除染が可能。

3. 原 理

除染対象物表面にレーザー光（または強力な光）を照射すると、光は表面により反射や散乱を受けるが、一部は吸収され熱に変換される。発生した熱は熱伝導または放射により拡散するが、この拡散速度より入熱の速度が十分に速いと、材料表面層が局所的に加熱され、溶融、蒸発が発生し、表面層を除去することができる。レーザー光が十分に強い場合は一部プラズマが発生する場合も有る。

発生する生成物の処理法としては、溶融プロセスを利用する場合は溶滴をガスジェット等で吹き飛ばし、また蒸発プロセスを利用する場合は、蒸気（微粉末となる）を吸引する（図2-1参照）。

4. レーザー除染装置機器構成

(1) ビーム伝送系

レーザー発振器から除染対象物へのレーザービームの伝送法としては、①自由空間伝送、②ミラー伝送、③ファイバー伝送に大別される。これらの複合方式も考えられる。

① 自由空間伝送

図2-2に、ウエスチングハウス社特許による蒸気発生器のプレナム内表面を除染するためのシステム構成図を示す²⁻¹⁾。レーザービーム（図中一点鎖線で表示）はレーザー発振器46より、管板28に支持された可動反射機構36に向け出射される。可動反射機構36は、遠隔操作可能なミラー、プリズム等より成り、反射ビームがプレナム28の内面の任意の場所に到達するように制御する。レーザー発振器46はプラットフォーム50上を移動することができる。なお使用するレーザーの種類としてはパルスCO₂レーザー（横方向励起型）、QスイッチYAGレーザーなどとしている。

② ミラー伝送

図2-3に中部電力／東芝特許によるミラー伝送方式の適用構成例を示す²⁻²⁾。図は対象物20を加工室6内で除染するためのシステム構成を示しており、レーザー発振器1から出射されたレーザービーム2は、光路管内に設けられた3枚のミラー3,8,9により伝送される。加工室6とその外部は、光路10中に設けられた透過窓5により遮へいされる。使用するレーザーに関しては特定していない。

Iowa 州立大のAmes研究所においてはエキシマレーザー等を用いた除染の実験を行っている²⁻³⁾。ここでは、固定ミラーによりビーム伝送を行い、対象物をXYテーブル等で移動している。

③ ファイバー伝送

図2-4に住友重機特許によるファイバー伝送方式の適用構成例を示す²⁻⁴⁾。図は壁10を除染するためのシステム構成を示しており、レーザー発振器20より出射されたレーザービームは光ファイバー30により伝送され、光学装置（除染ヘッド）50に至る。除染ヘッド50は可動アーム41を具備したロボット装置40により支持され、任意の場所を除染することができる。

関連技術として図2-5に示すようなパイプクリーニング装置の特許が出されている²⁻⁵⁾。これは一般の水道管、下水管内の付着物を対象としたクリーニング装置であるが、原子力関連設備への適用も可能であると考えられる。レーザービームはファイバー11により伝送され、プリズム5により放射状に反射されてテーパ面41に設けられた透光部42より出射される。ヘッド4はモータ3により回転する機構を有しており管内壁が均一にレーザー照射されるようになっている。

図2-6は複数の光ファイバーを束ねてバンドルとし、その先端にハンドピースを設けそのハンドピースを人間が持ってクリーニング作業を行う構成を示している²⁻⁶⁾。対象物としては石、ガラス、鋼、セラミック、木など各種材料を挙げており、特に原子力関連とはしていない。使用する典型的なレーザーはCO₂レーザー、YAGレーザーとしている。

以上より、フレキシビリティ（柔軟性）の観点からはファイバー伝送方式が優れていると考えられるが、レーザーの伝送容量の増大やファイバー材料の耐放射

線性の向上が技術課題として挙げられる。ミラー伝送方式はフレキシビリティ向上のため多関節ミラー型伝送路の利用が望まれる。図2-2の自由空間伝送方式（一部ミラー使用）は、汎用性は劣るものの可動反射機構部を除き構成が極めて単純であるという利点がある。

(2) 除染用ビーム出射方法

レーザービームの出射（照射）方法としては、ビームを集光せずそのまま用いる①非集光方式と、レンズ、凹面ミラー等によりビームを集光する②集光方式の2通りに大別される。②においては、焦点はずし量を変えることによりレーザーのエネルギー密度（フルエンス）を制御することができる。

① 非集光方式

Sandia 国立研究所では、パルス YAG レーザー（出力エネルギー 100 mJ/pulse、パルス幅 10 ns）を用い、304 L ステンレス鋼のクロム酸化膜と鉄酸化膜の除去試験を行っている²⁻⁷⁾。実験装置構成を図2-7に示す。ここでは、アパーチャにより裾をカットした非集光ビームを用いている。クロム酸化膜の場合、単レーザーパルス当たり（平均パワー密度 240 MW/cm^2 ）の除去深さは 6.8 nm 程度であるが、図2-8に示したようにパルス数（ショット数）に対し除去深さはほぼ線形に増大している。

前出の特許（文献2-6）におけるビーム出射部の構成図を図2-9に示す。複数ファイバーからの出射ビームを3枚の組み合わせレンズによりコリメートしているが、基本的にビームの集光は行っていない。

② 集光方式

球面レンズを用いる集光法と円筒面（シリンダリカル）レンズを用いる集光法の概念図を図2-10に示す。球面レンズを用いた方が高いフルエンスを得られるが小面積（点状）の処理しかできない。大面積を処理するためには円筒面レンズで線状集光（ラインフォーカス）し、ビームまたは対象物を平行移動させる方式が適している。前出の住友重機特許においては、ファイバーを用いることと、この円筒面レンズを用いることを主要な請求内容としている²⁻⁴⁾。

また前出の Ames 研究所においては実験的に球面レンズと円筒面レンズの比較を行っており、後者の方が処理面積速度が速いばかりでなく、生成物再付着の問題も少ないとしている²⁻³⁾。

ウエスチングハウス ハンフォード社ではコンクリートの除染試験を行っており、ここではパルスまたはCWのYAGレーザービームを球面レンズにより集光し、試験材をXYテーブルで移動し2次元的な照射面を得ている^{2-8),2-9)}。

ビームの出射（照射）方法は、目的とする除染の形態（例えば局所除染か大面積除染か等）により決定する必要がある。大面積処理のためには大口径ビーム（必要に応じビームエキスパンダ等により拡大する）をラインフォーカスする方式が適していると考えられる。

(3) 2次生成物回収系

溶融、蒸発の何れのプロセスを用いる場合でも、生成物は最終的に粒子また微粒子の形態をとる。その回収法としては、加工室内に沈降・堆積させる方法と吸引しフィルタ等により捕獲する方法が考えられる。

前出の中部電力/東芝特許（図2-3）においては、溶融層をガス噴射管13により供給されるガスジェットにより飛散させ除去する。飛散した溶滴は固化しその大部分は加工室底部に落下し、一部は加工室内空間を浮遊する。浮遊粒子は排気ポンプ14aで吸収し、吸収塔15内の充てん材16により捕獲する。図2-11に示したように、水中でプロセスを行うことにより浮遊粒子を著しく低減することができる。また図2-12は、ガス（溶融用アシストガス及び除去用ジェットガス）を循環させ再利用するシステム構成を示している。

前出のウエスチングハウス社及び住友重機の特許においては、生成物は吸引装置を用いHEPAフィルタ等で捕獲する方式をとっている^{2-1),2-4)}。図2-13に前出のAmes研究所の実験で使用しているヘッド部の概念図を示す²⁻³⁾。ここでは吸引するだけでなくシールドガスを用いている。シールドガス種類として、He, Ar, Airを試験したが、Heを用いた場合最も効率良いアブレーションが得られたとしている。

レーザー除染法の実用化に当たってはこの回収技術の確立が極めて重要であると考えられる。実際の報告例は少ないが、従来の廃棄物処理技術の転用も有効であると考えられる。

(4) 冷却系

レーザー除染装置に関連する冷却系としては、レーザー発振器自体の冷却（レーザーガスやレーザー結晶、共振器ミラー等）を除けば、ビーム伝送系、ビーム集光系等が重要となる。しかし今回の調査文献においては、これら冷却系に関する記述はみられなかった。

しかし高出力の連続発振（CW）ビーム、またはパルス出力でも繰り返し速度が速い場合は、伝送系のミラーまたはファイバー、および集光光学系の冷却が不可欠になると考えられる。

5. その他

(1) 母材（バルク）の除染

以上は全て物体の表面層を対象とした除染であるが、前出のAmes研究所においては母材（バルク）を対象とした除染に関する研究も行っている²⁻¹⁰。これは原子レーザー法同位体分離（AVLIS）の技術を応用したもので、⁹⁴Nb, ⁵⁹Ni, ⁹³Mo, ⁹⁹Tc, ²³⁵U等の長寿命放射性物質の除去を目的としている。母材物質を電子ビームにより蒸発させ、高分解能レーザーを用い蒸発元素を選択的に多段階電離し磁場により分離除去する。具体的なデータは報告されていないが、Gdを用いた予備実験を行っている。

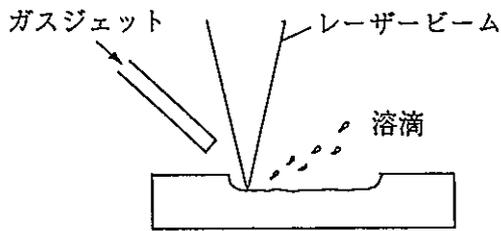
(2) レーザーの除染対象面検査への応用

放射性廃棄物焼却炉の除染装置において、炉壁検査用にレーザー測距器を用いるシステムにつき日本硝子より特許が出されている（図2-14）²⁻¹¹。ここでは除染自体は従来の研削方式が採用されているが、炉壁の損傷及び研削状況をモニタするためにレーザー測距器を用いている。同様のモニタはレーザー除染装置にも適用できると考えられる。

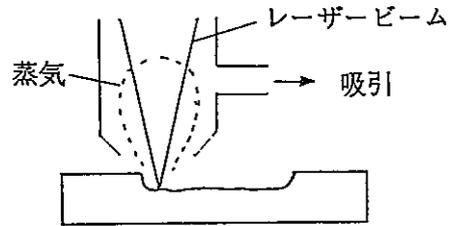
文 献

- 2-1) サデウス・アンソニー・ウオジシック 他 (ウエスチングハウス エレクトリック コーポレーション) , 特開昭58-187898.
- 2-2) 山崎, 杉山 他 (中部電力, 東芝) , 特開平4-109200.
- 2-3) H. M. Pang et al., Proc. LEOS'92 (Boston,1992), 150. 及び発表用OHPコピー.
- 2-4) 伊藤 (住友重機) , 特開平4-168400.
- 2-5) 高島, 飯原, 特開平1-203090.
- 2-6) J. Boguillon et al., US Pat. No.5151134 (Sept.1992).
- 2-7) H. C. Peebles et al., Proc. Annual. Int'l Workshop on Solvent Substitution, 1 (1990).
- 2-8) D. J. Flesher, to be published in Proc. LASERS'93 (Lake Tahoe, 1993).
- 2-9) N. S. Cannon, ibid.
- 2-10) H. M. Pang et al., 私信.
- 2-11) 柳瀬, 平木 (日本碍子) , 特開平5-256997.

図 表



(a)溶融プロセス



(b)蒸発 (アブレーション) プロセス

図2-1 レーザー除染の原理図。

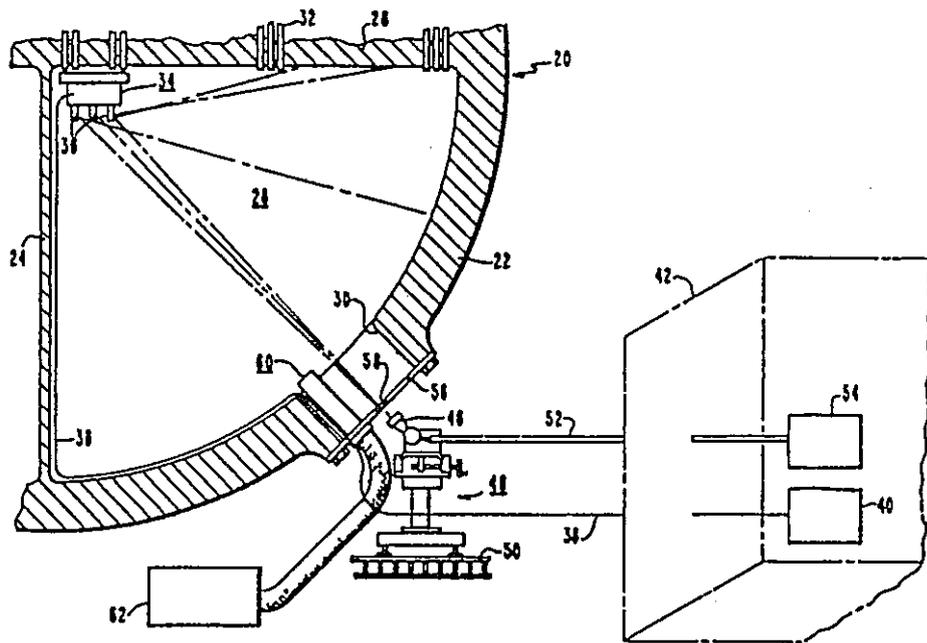
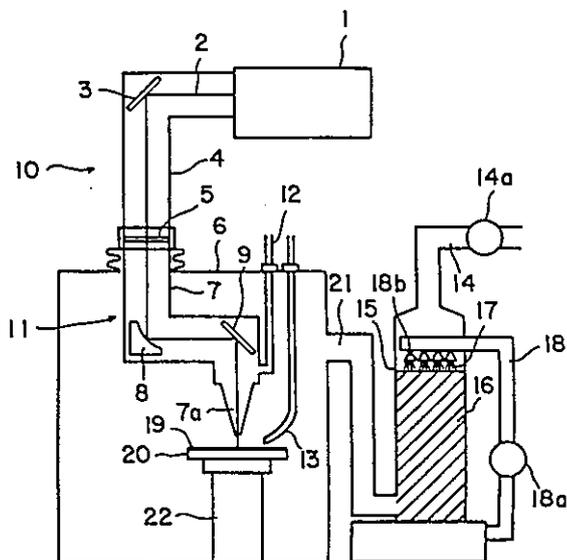
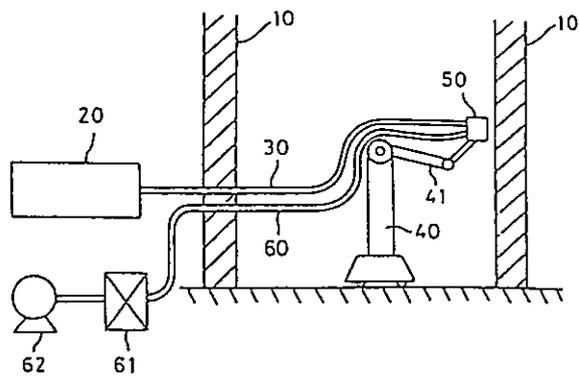


図2-2 蒸気発生器除染システム2-1).

図2-3 ミラー伝送方式による除染システム2-2).



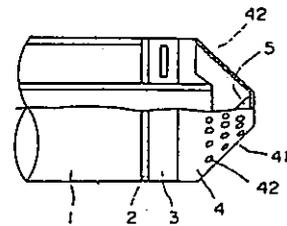


20:レーザー装置
30:光ファイバ
40:ロボット装置
50:光学装置

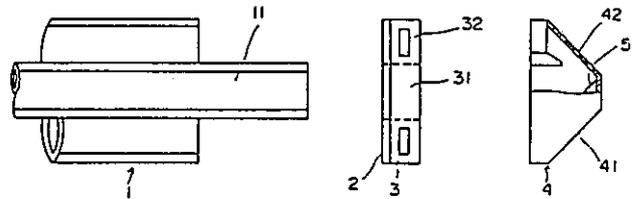
第 1 図

図2-4 ファイバー伝送方式による除染システム2-4).

第 1 図



第 2 図



第 3 図

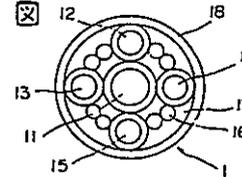


図2-5 パイプクリーニング装置2-5).

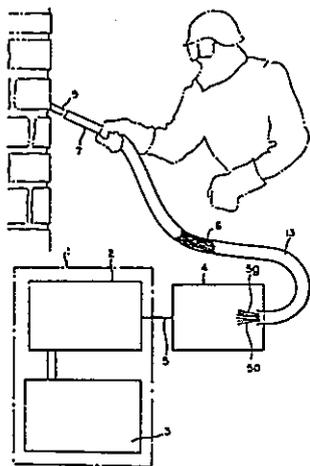
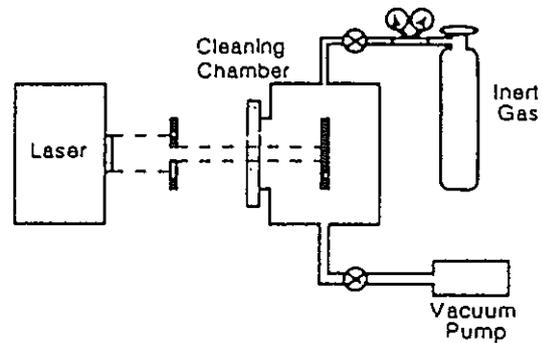
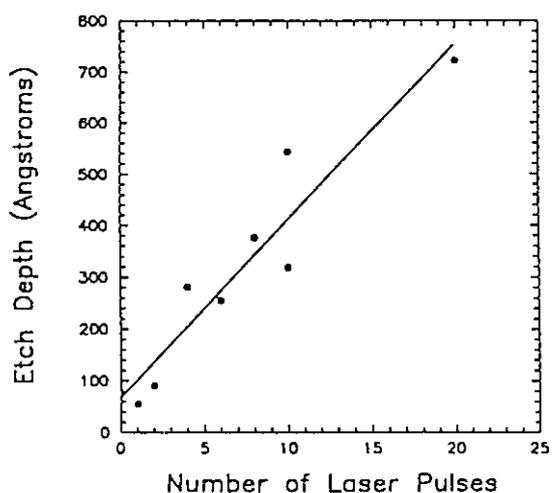


図2-6 ハンドピース付ファイバー方式によるクリーニングシステム2-6).



Experimental apparatus used to characterize laser etching of iron and chromium oxides on 304L stainless steel surfaces.

図2-7 Sandia 国立研究所の実験装置2-7).



Etch depth versus pulse number for laser etching of chromium oxide covered 304L stainless steel substrates using 100 mJ laser pulses. The slope of the line indicates an etch rate of 6.8 nm per laser pulse in the stainless steel substrate.

図2-8 レーザーパルス数と除去深さの関係²⁻⁷⁾.

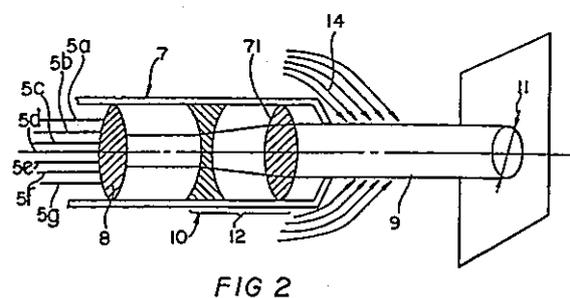


図2-9 ファイバー伝送方式のビーム出射部の構成²⁻⁶⁾.

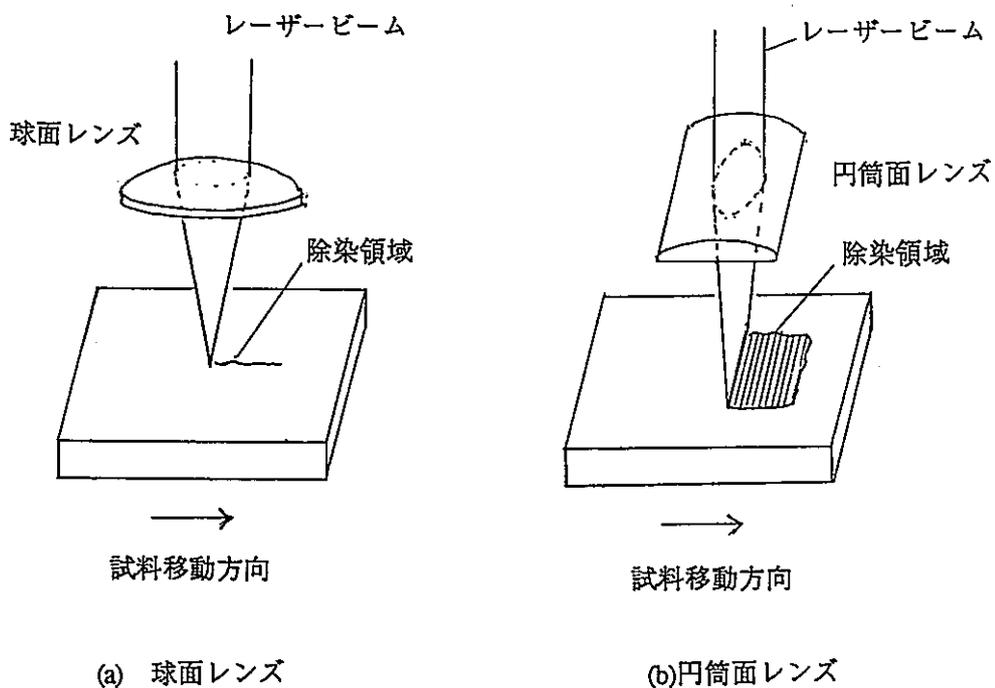
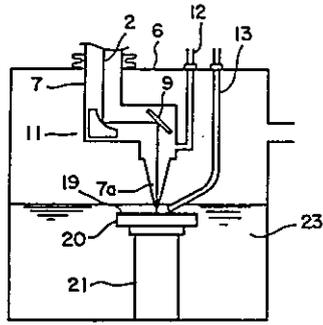
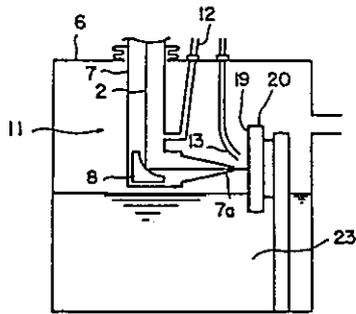


図2-10 ビーム集光法概念図



第 2 図



第 3 図

図2-11 水中除染システム2-2).

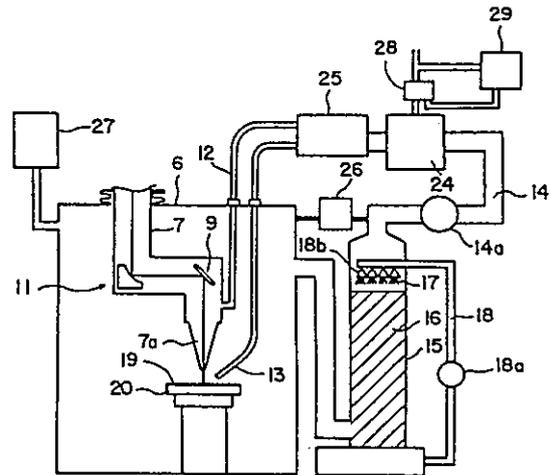


図2-12 ガス循環型生成物回収システム2-2).

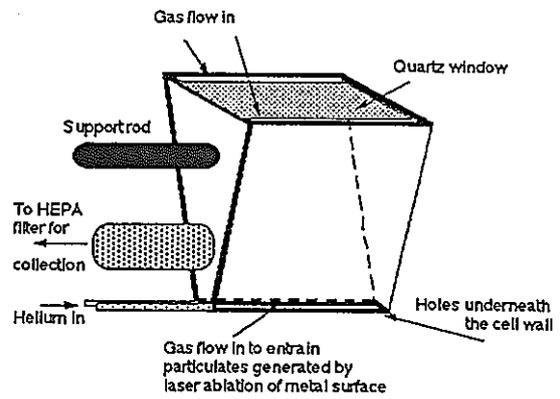


図2-13 Ames 研究所の除染ヘッド部2-3).

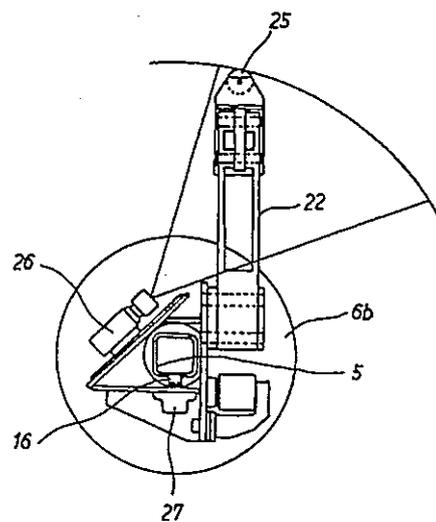
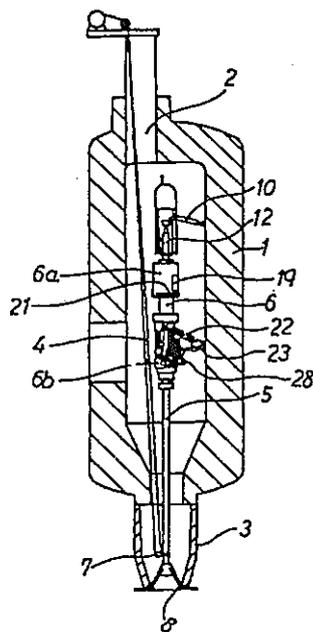


図2-14 放射性廃棄物焼却炉除染装置2-11).

付録1-5 定量分析

1. 技術名称
定量分析
(1) 放射線量 (2) 組成比 (同位体を含む) および, 諸係数
2. 概要
(1) 放射線量 放射性同位体は, 近年, 臨床診断や医療研究など, また, 化合物などのトレーサーとして化学工業など, 多くの分野で使われている. この放射性同位体の放射線量を検出する方法の一つとして, オートラジオグラフィーがあり, 近年, この方法においてレーザーを用いるようになってきた.
(2) 組成比 (同位体を含む) および, 諸係数 同位体を含む物質の組成分析を行う場合, 質量分析や分光法を用いるのが一般的である. レーザーを組成分析に用いる方法は, 分析方法との組合せにより多種多様にある. 大きく分けて, 分析対象物を分析可能な状態に変換するのに用いる場合と, 分光法の光源として使用する場合とに分けられる. また, レーザーの高密度エネルギーを利用する方法と光の波長などを利用する方法とにも分類することができる.
3. 原理
(1) 放射線量 放射性同位体から放出される放射線が物質中を通過するさいに, 電離, 励起および反跳等を引き起こし, 蛍光を発したり, 化学反応を進行させたりする. この化学反応を利用した検出方法の代表例が, 写真乳剤などである. 放射線の飛跡を観測したり, 放射線量を感光の度合で示すことができる. オートラジオグラフィーもこの方法の一つであり, X線感光フィルムなどを利用している. この感光された資料の濃淡を観測する手段の一つとしてレーザーが用いられてる. これは, レーザーが単色光でかつ安定した輝度の高い光源であるため, 定量的に資料の濃淡を観測することが容易に可能であるためである. 具体的な原理は, 感光されたフィルムにレーザー光を当て, その反射光または透過光をディテクターで検知し, イメージ化もしくは濃淡の濃度の数値化をする方法である.

(2) 組成比 (同位体を含む) および, 諸係数

①アブレーションを利用し, 固体または液体から分子, 原子, イオンなどを弾き飛ばして, それを質量分析器や分光器などに送る方法

アブレーションにより, 固体または液体の表面物質のクラスターや分子, 原子, イオン, また, それらと雰囲気ガスとの化合物を発生させ, これらの粒子群を更にレーザーや電子ビームなどによりイオン化して, またはイオンの場合はそのまま, 質量分析器のような装置で質量やエネルギーの分析を行う。また, 励起された粒子群も放出されるので, そのルミネッセンスを分光したり, 基底状態の粒子群は光源を使用した分光を行う。

②既に質量分析器などで, ある種のふるい分けを行った粒子群から特定の粒子群 (同位体など) をレーザーにより選択し (選択励起, イオン化など), 最終的に質量分析器と同様にイオン化して採取または除去する方法

粒子群の中から特定の粒子群 (同位体など) をレーザーにより選択的に励起やイオン化を行い, 質量分析器や分光器などに移送する。選択したい粒子の吸収波長での発振が可能なレーザーが必要になる。しかし, この吸収過程の段階もいろいろあるので, 前述のように, レーザーや電子ビーム, 紫外線などによる前処理段階を組み合わせた方法もある。

③分光法の光源として使用する方法

代表的な分光法は, ラマン過程による光を分光するラマン分光や, 蛍光を分光する蛍光分光, 赤外線領域における吸収スペクトルを観測する赤外吸収分光, また, これらの分光法の光源としてレーザーを使用した総称的なレーザー分光などがある。これらの分光法を前述の (2) -①のアブレーションと組合せたり, 特に対象物が気体の場合は直接レーザーを用いて分光を行う。

4. 国内外での適用例

(1) 放射線量

①蛋白質中の ^{14}C の放射線量³⁻¹⁾

蛋白質中の ^{14}C の時間的な放射線量の変化をレーザーを用いたオートラジオグラフィーで観測を行っている。血液中の各蛋白質を電気泳動で分類し, オートラジオグラフィーで放射線量による濃淡をレーザーでスキャンし, 蛋白質中の線量を計測している。(図3-1)

②放射性物質の微量分析³⁻²⁾

放射性物質の微量分析に使われる外挿法（放射線による電離電流を観測する方法）と、前述の写真感板のような感光乳液の塗ってあるラジオクロミックフィルムを組み合わせた方法で、放射線の飛跡や線量を測定している。外挿法チャンバー（図3-2）と何層かに重ねたラジオクロミックフィルム（図3-3）を用いて、ラジオクロミックフィルムに感光された放射線の2次元的な飛跡やその濃淡をレーザーでスキャンさせて、吸収線量を算出している。

(2) 組成比（同位体を含む）および、諸係数

①溶液中のUの濃度分析³⁻³⁾

HNO₃水溶液中のUの濃度分析をレーザーによる蛍光分光法を用いて行っている。N₂レーザー励起の色素レーザー（360～760nm）を水溶液中に照射し、蛍光（450～650nm）を観測して、溶液中のUO₂²⁺の濃度やHNO₃の濃度による蛍光スペクトルの変化を計測している。（図3-4～5）

②UやOs, Reなどの同位体分析³⁻⁴⁾

レーザーアブレーションと質量分析器を組み合わせた市販装置（レーザーマイクロプローブ質量分析器）を用いて、UやOs, Reなどの同位体分析を行っている。（図3-6）計測結果の例として、Osの同位体比を表3-1に示す。

③CやOの同位体分析³⁻⁵⁾

CO₂レーザーによる赤外吸収分光法を用いて、CO₂やC₂H₄ガス中のCやOの同位体分析を行っている。図3-7に¹³Cを含んだC₂H₄の濃度をパラメーターとしたサンプルの圧力に対するCO₂レーザー（10.57 μm）の吸収係数を示す。また、表3-2にCO₂の同位体別の吸収係数の一例を示す。

5. 国内外での特許

6. 性能

(1) 放射線量

文献3-1)のオートラジオグラフィーの場合、14日間の露光時間で、10mm×2mmの領域、18～25 μ mの浸透膜中の放射能10～40cpmを計測することができる。これは、感光材料(X線フィルム)や露光環境により制限されており、これらを改善すれば、感度を向上させられる。

(2) 組成比(同位体を含む)および、諸係数

質量分析法は既に確立された手法であり、それ自体かなり高い精度で原子や分子の定量分析が可能な方法である。また、分光法も既に確立された手法であり、広い分野に応用されている技術である。特にレーザー分光法は、分光測定における感度、分解能、精度が格段に改善されているので、高い性能を持つ。

7. 問題点・課題

(1) 放射線量

放射線感光材料の感度や線形性、放射線種や放射線強度などが、線量計測に大きく関わってくる。また、放射線種や放射線強度などに適合した感光材料のキャリアレーションが必要である。

(2) 組成比(同位体を含む)および、諸係数

質量分析法は基本的に観測する対象物を真空中に取り込む必要があり、高真空中における微量分析が主となり、大気圧下では差動排気が必要になる。分光法も対象物の基本物性(吸収スペクトルや吸収係数、蛍光スペクトルなど)を把握していなければならない。

レーザーによるアブレーションは、対象物の種類や状態、レーザー種やその特性などに大きく依存する現象である。よって、生成物は雰囲気依存しやすいので、定量分析などに利用する場合は、アブレーション自体の解析や較正が不可欠である。

9. その他

(1) 同位体シフト

①概要

放射性同位体の研究において、同位体シフトの計測は、重要な測定項目の一つである。特に、半減期が短く、同位体種の多い放射性同位体の場合の測定は、一般に困難である。同位体シフトの計測において、波長可変のレーザーを用いることが一般的である。

②原理

ある程度質量選択された同位体の分子または原子、イオンビームに何種かの励起光を照射させて、吸収スペクトルや蛍光スペクトル、また、それによる選択的なイオン化などにより、同位体シフトを観測する。スペクトルの場合は、同位体シフトによるスペクトルのずれの観測、選択的イオン化の場合は、そのイオンの検出を行うことにより、同位体シフトを計測する。

③国内外での適用例

i) 放射性同位体シフト³⁻⁶⁾

半減期が短い放射性同位体、特にEuについての原子線の同位体シフトの研究で、波長可変の色素レーザー3台を用いて、Euの多光子吸収で選択的にイオン化し、同位体シフトを計測している。(図3-8, 表3-3)

④性能

励起レーザーの反応パスの長さを1.5倍にすることにより、検出効率が 3×10^{-4} から最大で 2×10^{-3} にまで向上した。

⑤問題点・課題

まだ、検出効率が低い。励起させるレーザー光の反応パスをより長くし、被測定同位体ビームとの反応効率をより向上させなければならない。また、分光するスペクトル強度の確保のため、計測方法の工夫も必要であろう。

(2) 分子構造

①概要

いくつかの微細構造のグラファイトなどの構造を、レーザーによる光音響効果などにより、リモートモニタリングをする。

②原理

レーザーによる光音響効果を用いて、グラファイトなどの等方性を観測する。結晶構造や結合状態などにより、散乱、反射される光の強度分布や偏光性などが変化することを、レーザー光音響効果によって検出する。

③国内外での適用例

i) グラファイトの構造解析³⁻⁷⁾

原子炉内で利用するグラファイトの3種類の構造 (a)ポロシテイの無い多結晶的なもの、b)微少なポロシテイの有る中程度の粒塊のもの、c)きめが粗くポロシテイの有るもの) についての等方性や、それらを製造するときの押し固める圧力方向の光音響効果による音波の伝達方向や速さを計測している。原子炉内でのグラファイトの状態を計測するために、非接触、非破壊の計測方法が望まれており、ファブリーペロー干渉計を使用したレーザー光音響効果の非接触法の有望性が示されている。しかし、c)のサンプルについては、良い結果が得られていない。粗いポロシテイによる極端な散乱により、入射のレーザーパルスが歪んでしまうためである。

④性能

⑤問題点・課題

粗いポロシテイの有るグラファイトに関しては、良い結果が得られていない。

文献

- 3-1) R. A. Zeineh, American Lab.,9,71-82 (1977)
- 3-2) C. G. Soares,et al., Radiation Protection Dosimetry,39,55-59 (1991)
- 3-3) H. Fujimori,et al., J. Nucl. Sci. Technol.,25,798-804 (1988)
- 3-4) D. S. Simons,et al., Int. J. Mass Spectrom. Ion Phys.,55,15-30 (1983)
- 3-5) B. Lehmann,et al., Appl. Phys.,13,153-158 (1977)
- 3-6) V. N. Fedoseyev, et al., Optics Comm.,52,24-28 (1984)
- 3-7) M. H. O'brien,et al., J. Nucl. Sci. Technol.,29,378-387 (1992)

図表

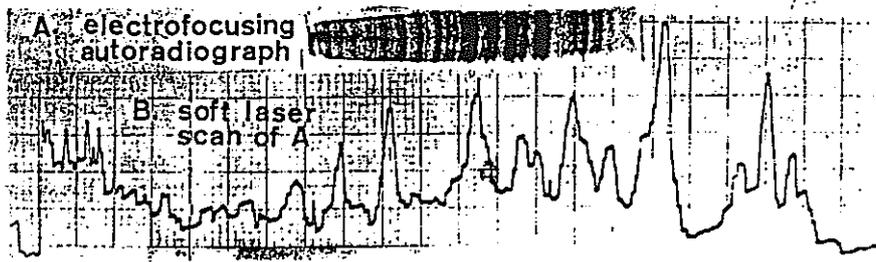


図3-1 オートラジオグラフィーとそのレーザースキャン強度分布

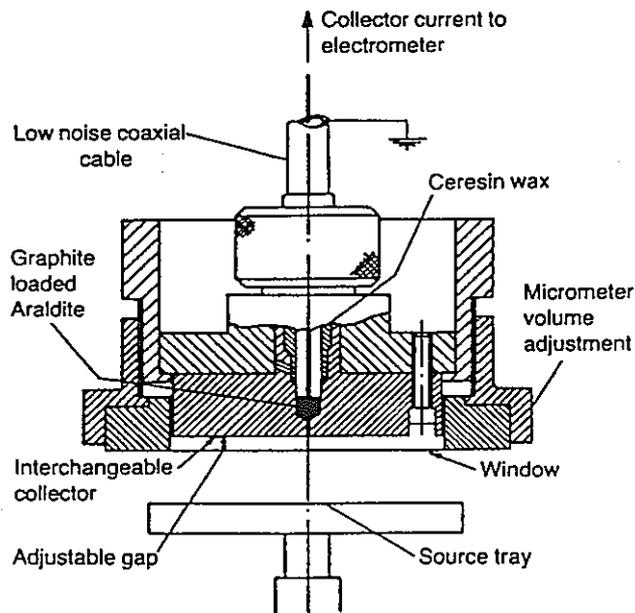


図3-2 外挿法チャンバーの外観図

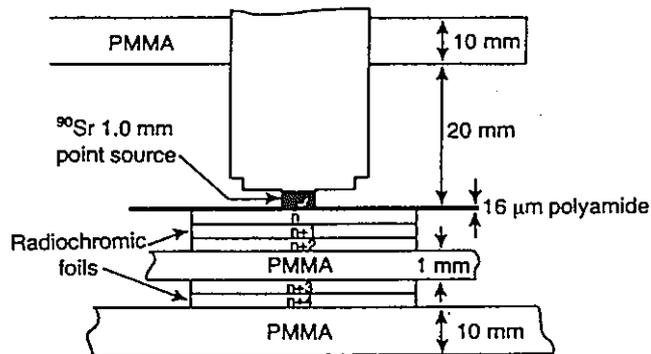


図3-3 ラジオクロミックフォイルの構造図

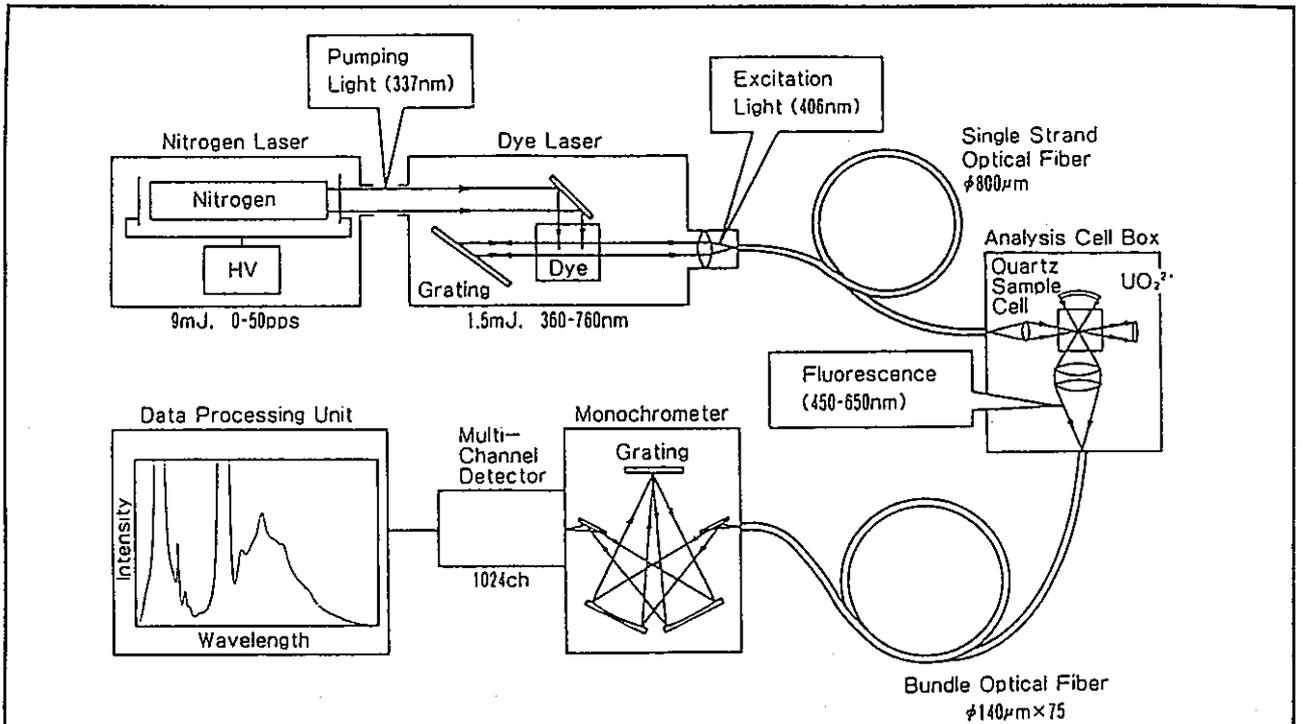


図3-4 レーザー誘起蛍光分光器の構成図

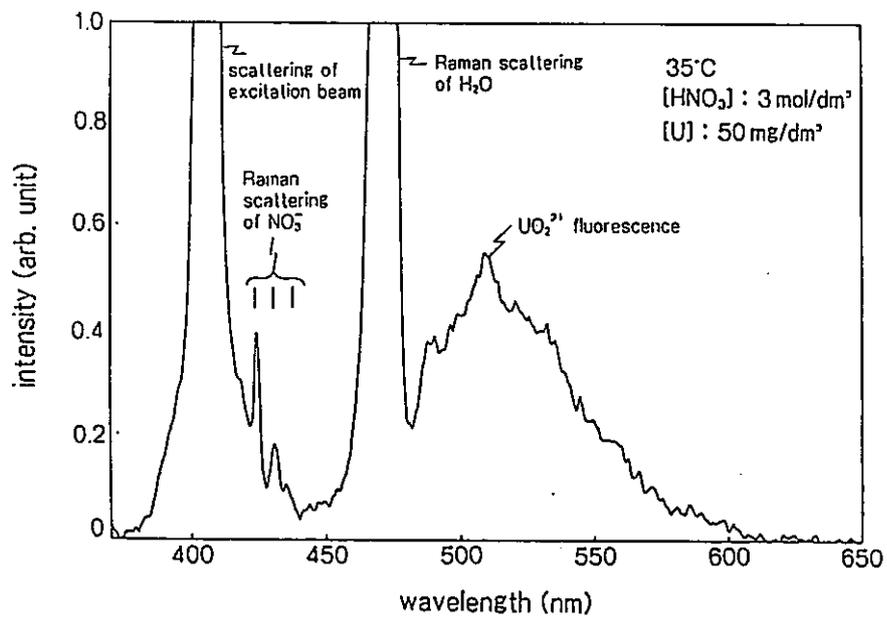


図3-5 10秒計測の UO_2^{2+} の蛍光スペクトル

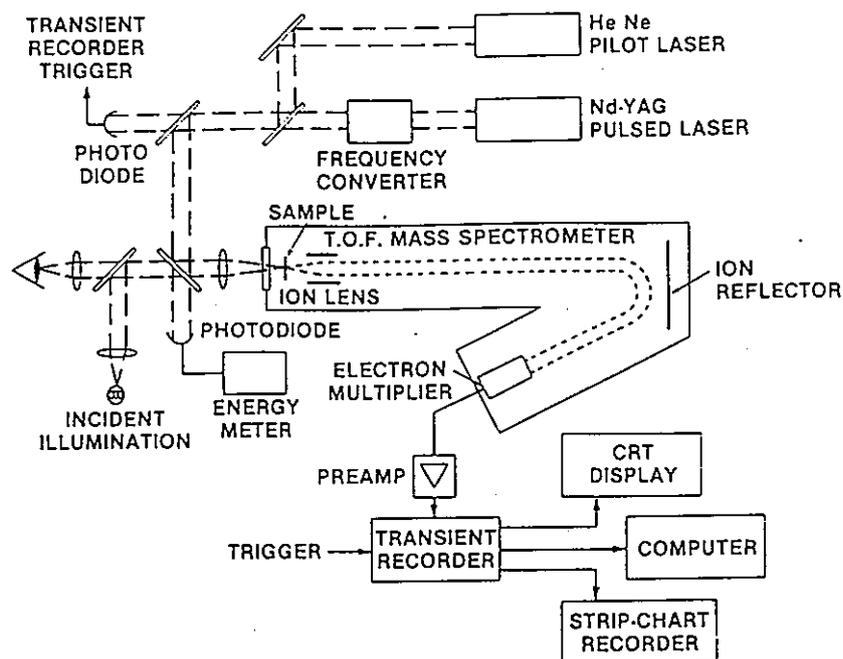


図3-6 レーザーマイクロプローブ質量分析器の構成図

Isotope ratios of osmium ^a

Isotopes compared	Ratio determined by LAMMA	True ratio
189/188	0.037 ± 0.002 ^b	0.031
190/188	0.233 ± 0.008	0.232
192/188	0.263 ± 0.007	0.256

^a Non-natural mixture; average of 10 spectra.

^b One standard deviation of the mean.

表3-1 Osの同位体比の計測結果

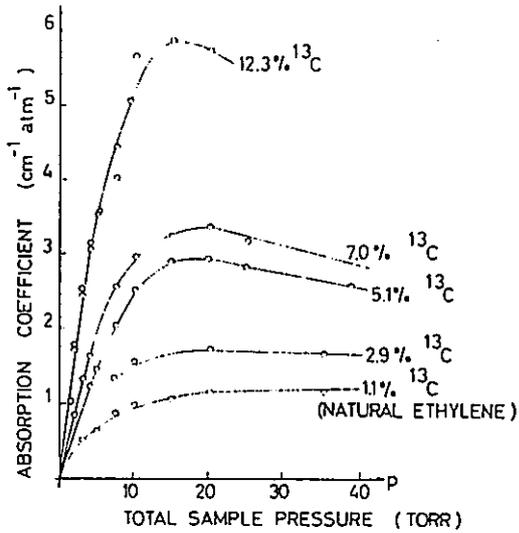


図3-7 サンプルの圧力に対するCO₂レーザー (10.57 μm) の吸収係数

Line	Isotopic species	Absorption coefficient at $p=2.7$ Torr [$\text{cm}^{-1} \text{atm}^{-1}$]	Absorption coefficient at $p=1$ atm [$\text{cm}^{-1} \text{atm}^{-1}$]
1	$^{12}\text{C}^{16}\text{O}^{16}\text{O}$	16.3	0.47
2	$^{13}\text{C}^{16}\text{O}^{16}\text{O}$	675	19.5
3	$^{12}\text{C}^{16}\text{O}^{18}\text{O}$	6650	193
4	$^{12}\text{C}^{16}\text{O}^{17}\text{O}$	3540	102

表3-2 CO₂の同位体別の吸収係数

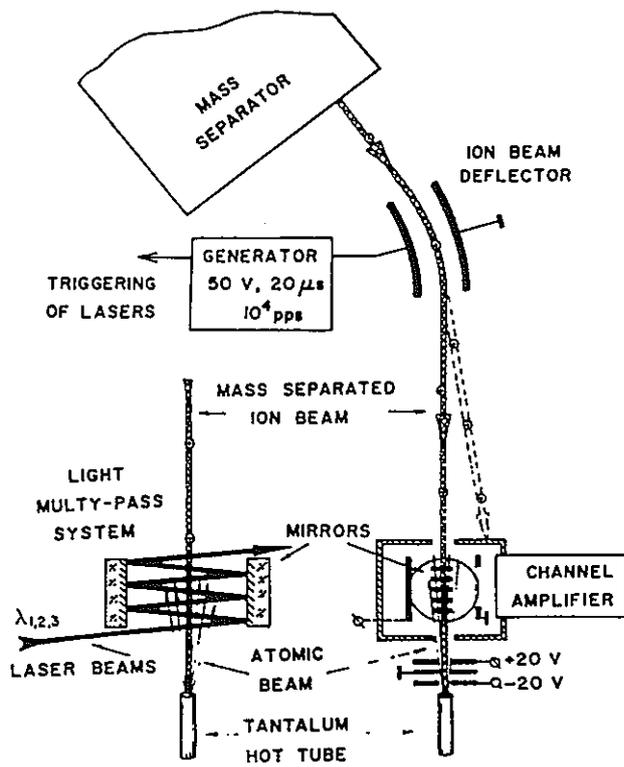


図3-8 同位体シフト計測装置の概略図

Relative isotope shifts in the transition $4f^7 6s^2 8s_{7/2} - 4f^7 6s 6p^6 P_{7/2}$ (5675 Å) of Eu ($\Delta\nu$, measurement accuracy ($\delta\nu$), half-life period ($T_{1/2}$) and the yield of Eu isotopes from tantalum target (N)

A	$\Delta\nu(151-A)$ (GHz)	$\pm\delta\nu$ (GHz)	$T_{1/2}$	$N \times 10^5$ (s^{-1})
154 d)	4.34	0.03	16 y	
153 a)	3.622	0.007	—	
152 d)	3.34	0.02	12.7 y	
151	0	—	—	
150 b)	-1.48	0.08	34.2 y	16
149 b)	-1.85	0.08	93 d	10
148 b)	-2.98	0.08	54 d	30
147 b)	-3.39	0.08	22 d	30
146 b)	-4.19	0.1	4.6 d	30
145 b)	-4.9	0.1	5.9 d	20
144 c)	-5.3	0.2	10 s	8
143 c)	-5.05	0.25	2.6 m	7
142 c)	-5.0	0.2	1.2 m	2
141 c)	-5.2	0.3	40 s	1

a) [15], b) [14], c) Present paper, d) [16].

表3-3 同位体シフトの測定結果

付録1-6 表面状態計測

<p>1. 技術名称</p> <p>表面状態計測</p> <p>(1) 劣化（亀裂，ほこりを含む）</p> <p>(2) 膜厚</p>
<p>2. 概要</p> <p>(1) 劣化（亀裂，ほこりを含む）</p> <p>近年，対象物の表面状態の劣化及び亀裂やほこりなどを観測する方法に，レーザーが利用されるようになってきた．レーザーを用いることで，感度や分解能，精度が向上し，かつリモートセンシングがオンラインで行えるようになった．</p> <p>特に，光音響分光法などを利用した固体表面の劣化を検出する手法が次節の膜厚観測と共に広い分野で応用されている．</p> <p>(2) 膜厚</p> <p>金属表面などの塗料や酸化物被膜の膜厚計測及び除去をレーザーを用いて行っている．特に，膜厚を非接触・非破壊で計測する方法は，生産ラインにも利用できるもので，工業上の利用価値も高い．</p>
<p>3. 原理</p> <p>(1) 劣化（亀裂，ほこりを含む）</p> <p>①光音響分光法</p> <p>分光された光を対象物質に照射し，その吸収されたエネルギーの一部が局所的な温度上昇による圧力変化を引き起こし，音波を生じさせる．これらの温度や音を観測することにより，対象物質の表面状態の劣化や亀裂などを計測する．</p> <p>②レーザー顕微鏡</p> <p>光源にレーザー光を利用した顕微鏡がレーザー顕微鏡であり，単色光であるので，コントラストの良い映像が得られる．また，レーザーの強度や波長により照射された対象物質の蛍光などを観測できるので，対象物質の局所的な濃度分布などをイメージとして測定できる．</p>

③散乱計測

レーザー光の散乱（や反射など）を利用して、サンプリングプレートなどの上のほこりや微粒子の密度や粒径を計測することができる。ミー散乱は、レーザー光の波長とほぼ同程度のサイズの粒子（半径 $a \geq \lambda/2\pi$ ）に対して散乱断面積が著しく増大する過程で、レーザー光と散乱光の波長が等しい弾性散乱過程である。雲や霧、風向や風速、大気汚染状態などの観測に応用されるレーザーレーダーの原理の一つでもある。

④反射率計測

固体物質表面の劣化（錆など）により、その箇所は他の場所に比べてレーザー光に対する吸収率が変化している。このことを利用し、劣化場所の検出や、除去を行うことができる。多くの場合、劣化箇所の吸収率が増大しているので、レーザー光の強度を上げることによって、アブレーションにより除去も可能になる。また、キャリブレーションにより、錆の膜厚も計測が可能である。

(2) 膜厚

- ①レーザーを集光させて塗付直後の被測定面に照射し、その散乱光をCCDカメラで観測し、膜厚によるスポット径の拡がり（膜厚に対してスポット径が変化すること）から、膜厚を計測する（非破壊）。
- ②フィルム状の被測物を計測位置でローラーにより反らせて、横からレーザー光を照射し、そのレーザー光の透過光の変化量により、被膜の膜厚を計測する（非破壊）。
- ③1回のアブレーションによる除去量を把握し（キャリブレーション）、表面の被膜による反射率の変化を計測しながら、アブレーション回数により除去した膜厚を計測する（被膜のみ破壊）。

4. 国内外での適用例

(1) 劣化（亀裂、ほこりを含む）

①表面のサイクル腐食状態の観測³⁻⁸⁾

光音響分光法によって、亜鉛メッキ塗装鋼板の傷のサイクル腐食試験による表面の腐食状態を観測している。（図3-9～11）

②亀裂の3次元的なイメージ化³⁻⁹⁾

共焦点型走査レーザー顕微鏡により、固体物質の内部の詳細な3次元イメージを得ることができる。表面付近内部にできた亀裂部付近にUの核分裂による熱的微粒子によって、多数の微少ホールを開け（図3-12）、そこにレーザーを走査し、微少ホールからの反射光をコンピューター画像処理することにより、その亀裂の3次元的なイメージを検出している。（図3-13）

③クリーニング装置のほこり検出器³⁻¹⁰⁾

床や絨毯のクリーニング装置の検出器として、レーザー光の散乱や反射などを利用したほこりの密度計測器をクリーニング装置とともに紹介している。床や絨毯のほこりを叩き出し、それをゼラチンフォイルに付着させ、そのフォイルをレーザーを用いた検出器で測定している。

④鍍部の吸収率の変化を利用した検出³⁻¹¹⁾

原子炉と同じような環境の高温、高放射能下での金属の鍍を、鍍部の吸収率の変化を利用して鍍部を検出し、またその膜厚を除去しながら測定している。素材の金属よりも、鍍部の吸収率が上がるので、アブレーションを起こさせない程度のレーザー強度で、鍍部での反射光の強度が変化することを検出し、その位置や広さを計測している。また、レーザー（0.2J, 500 μ sのルビーレーザー）の強度を上げることによって、鍍部のみアブレーションを起こし、キャリブレーションにより、その深さも計測することが可能である。（図3-14, 表3-4）

(2) 膜厚

①スポット径の拡がりによる膜厚計測³⁻¹²⁾

He-Neレーザーを使用し、3. (2) -①の方法で、金属（Al蒸着ミラーと研磨金属板）プレートの表面上の塗料膜の計測に適用されている。（図3-15, 16）

②フィルムシート上の塗料膜厚計測³⁻¹³⁾

3. (2) -②の方法で、フィルムシート上の塗料膜に適用し、生産ラインで制御可能な計測器として製品化されている。（図3-17）

③被膜を除去しながらの膜厚計測³⁻¹⁴⁾

高温、高放射能の環境下における軟鋼（炭素鋼）表面のマグネタイト（酸化鉄）を除去しながら膜厚を計測している。被膜と母材とのレーザー光に対する吸収率が異なっていることを利用し、反射率を測定しながら膜厚計測を行っている。

アブレーションによる除去量をキャリブレーションしなければならないが、レーザーショット数に対する膜厚は、ほぼ線形的に計測できている。(図3-18, 19)

5. 国内外での特許

(1) 劣化 (亀裂, ほこりを含む)

(2) 膜厚

①特 昭 61-161492

6. 性能

(1) 劣化 (亀裂, ほこりを含む)

上述例3. (1) -③の性能として, 検出できる粒径は, $2\mu\text{m}$ 以上である。また, 光音響分光法やレーザー顕微鏡では, 微小空間の走査が可能で, 他の方法 (SEM など) と併用することにより, 精度の高い表面分析が可能である。また, レーザーレーダーのような散乱計測の広域空間の走査も, 3次元計測で, 大気中のppbレベルの濃度の SO_2 などを高精度で計測を行っている。

鍍部の吸収率の変化を利用した計測では, レーザー強度などに依存するが, $500\text{MW}/\text{m}^2$ の強度で, アブレーション深さの誤差が $\pm 20\mu\text{m}$ であった。

(2) 膜厚

①膜厚計測結果が基板の表面状態に大きく依存されるが, 図3-15のように, 平坦度の良い基板であれば, かなり良い線形的な結果が得られている。

②計測範囲 $10\sim 500\mu\text{m}$ (膜+シート厚), 分解能 $0.1\mu\text{m}$, 被測定材料を問わない。既に, 生産ラインで制御可能な計測器製品となっている。

③図3-18のように, ほぼ線形的に膜厚を計測できる。また, ほぼ $\pm 10\%$ の精度得られている。

7. 問題点・課題

(1) 劣化 (亀裂, ほこりを含む)

光音響分光法やレーザー顕微鏡, ミー散乱などレーザー光の波長に依存する現象を利用するため, 対象物に合わせたレーザー光源を選択する必要がある。光音響分光法やレーザー顕微鏡では, ミクロ的な空間の分析に適しているが, マクロ的な ($\sim\text{m}$ 以上) 空間の解析には適していない。また, 上記の方法の何れもが波

長依存性の強い方法であるため、使用する波長選択が重要である。

(2) 膜厚

- ①基板の表面状態が計測結果に大きく影響する。
- ②フィルム状の被測定物で、測定箇所では反らせなければならない。
- ③被膜を除去しなければ、膜厚を測定できない。

8. 除染法への適用性

(1) 劣化（亀裂，ほこりを含む）

3. (1) -④の錆部の吸収率を用いた検出方法は、除染法を行う場合の劣化部（錆部）の検出に適用させる方法として、かなり高い可能性を持っているといえる。

(2) 膜厚

3. (2) -③のレーザーアブレーションは、3. (1) -④と同様に、除染法に応用できる技術である。

文献

- 3-8) 水流 徹, 他, 鉄と鋼,7,1146-1153 (1991)
- 3-9) N. Petford, et al., American Mineralogist.,77,529-533 (1992)
- 3-10) T. Schneider, et al., Spec. Publ. R. Soc. Chem.,108,284-286 (1992)
- 3-11) R. C. Klewe, et al., J. Phys. E,5,203-205 (1972)
- 3-12) 長谷川 公平, 他, 自動制御連合講演会,29th,645-646 (1986)
- 3-13) 三菱電機 (株) 伊丹製作所, 電機計算,55,70-71 (1987)
- 3-14) B. A. Tozer, Optics Laser Technol.,8,57-64 (1976)

図表

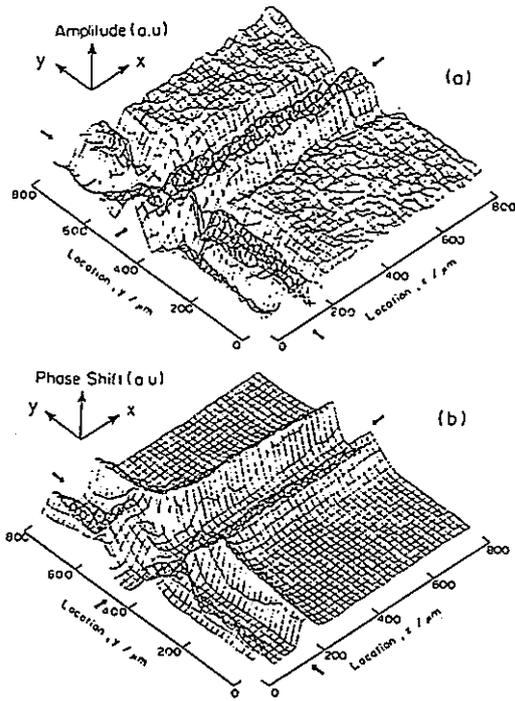


図3-9 塗装鋼板の腐食試験前の
ナイフカットの超音響イメージ
(強度と位相差)

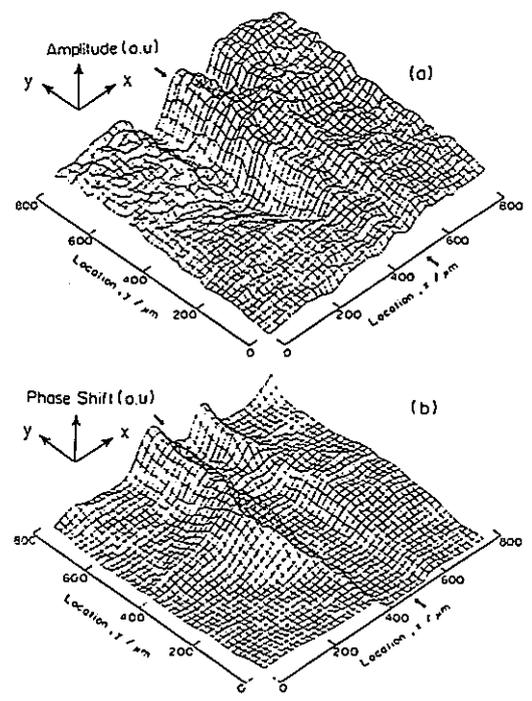


図3-10 塗装鋼板の腐食試験1週間後の
ナイフカットの超音響イメージ
(強度と位相差)

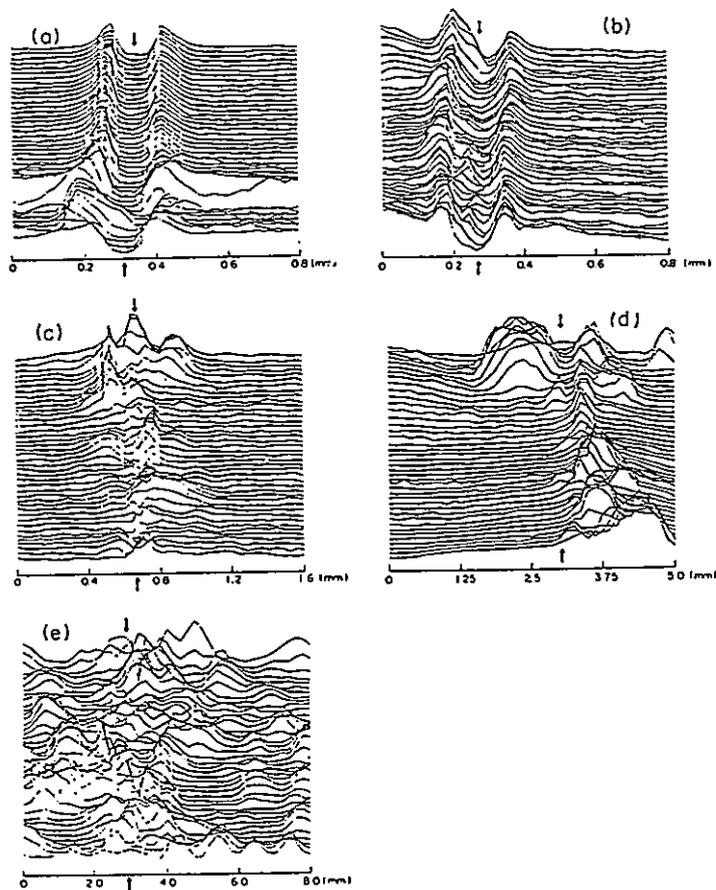


図3-11 塗装鋼板の腐食試験時間経過に伴う超音響イメージ (位相差)



図3-12 亀裂部付近のレーザー顕微鏡写真

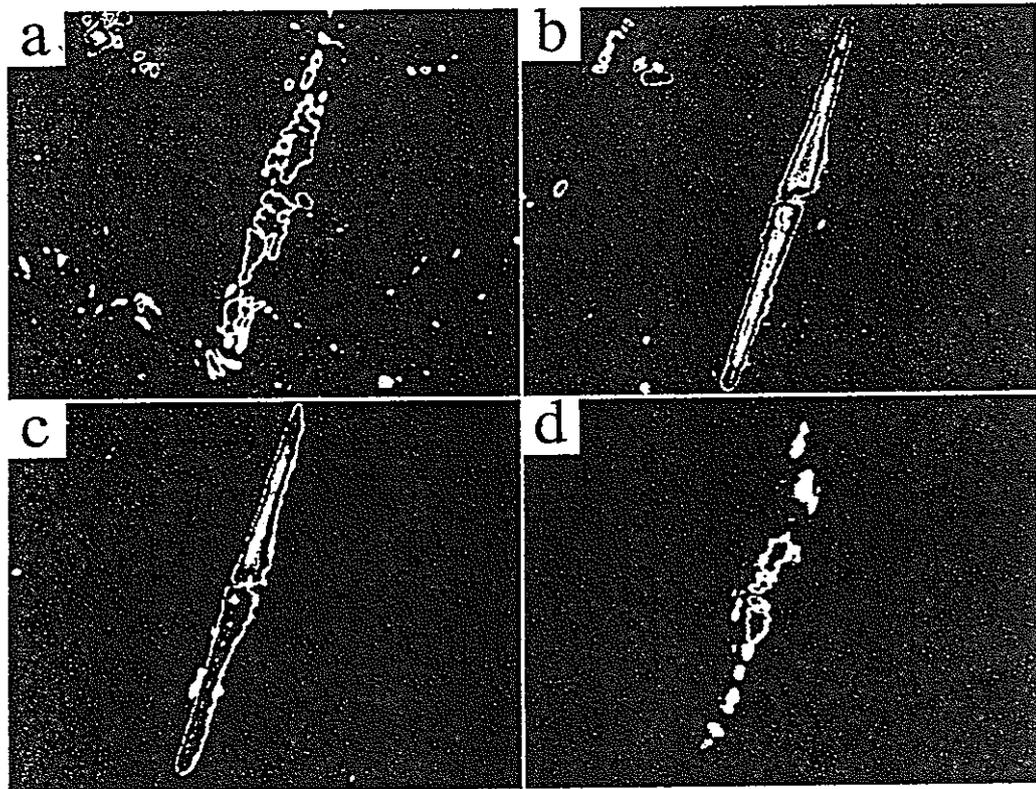


図3-13 亀裂部の共焦点型レーザー顕微鏡写真の画像処理結果

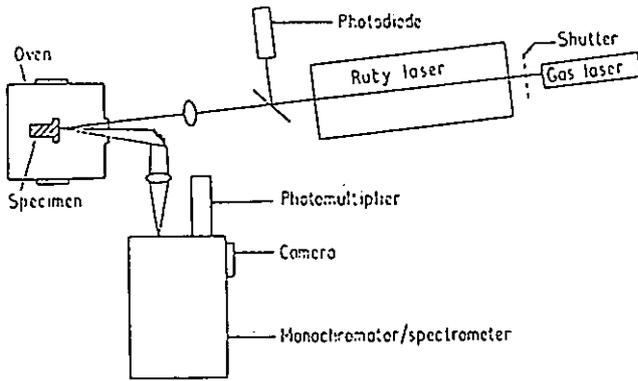


図3-14 鋅部の吸収率の変化を利用した計測器の概略図

Table 1

Sample	Corrosion depth (μm)	
	Laser meas.	Microscope meas.
A	160	150
B	340	350
C	80	60

表3-4 レーザーアブレーション法と顕微鏡観測による鋅部の膜厚計測結果

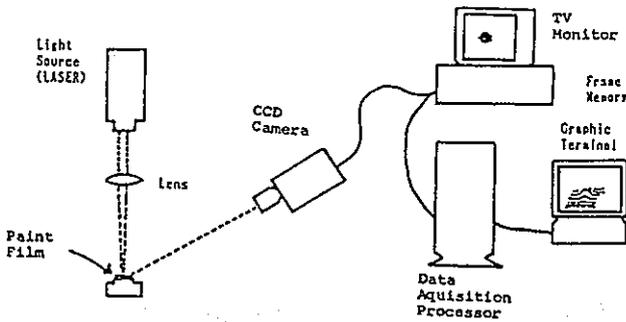


図3-15 スポット径の拡がりによる膜厚計測装置概略図

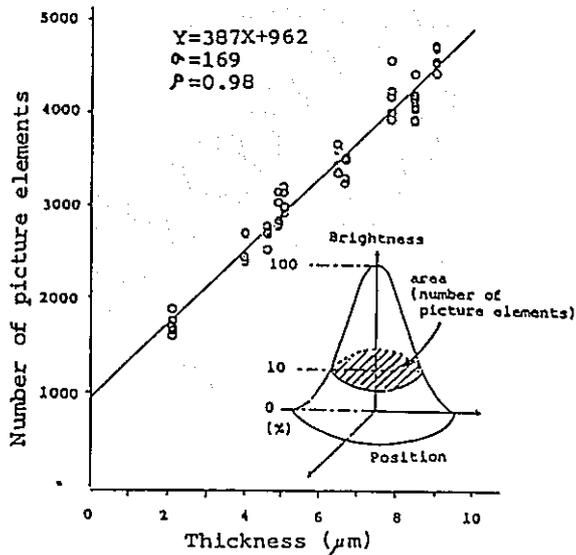


図3-16 スポット径の拡がりによる膜厚計測結果

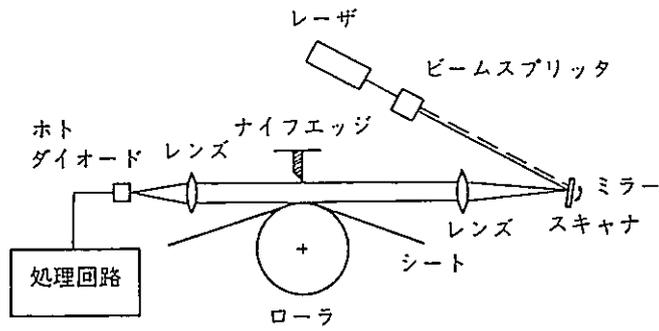


図3-17 フィルムシート上の塗料膜厚計測構成図

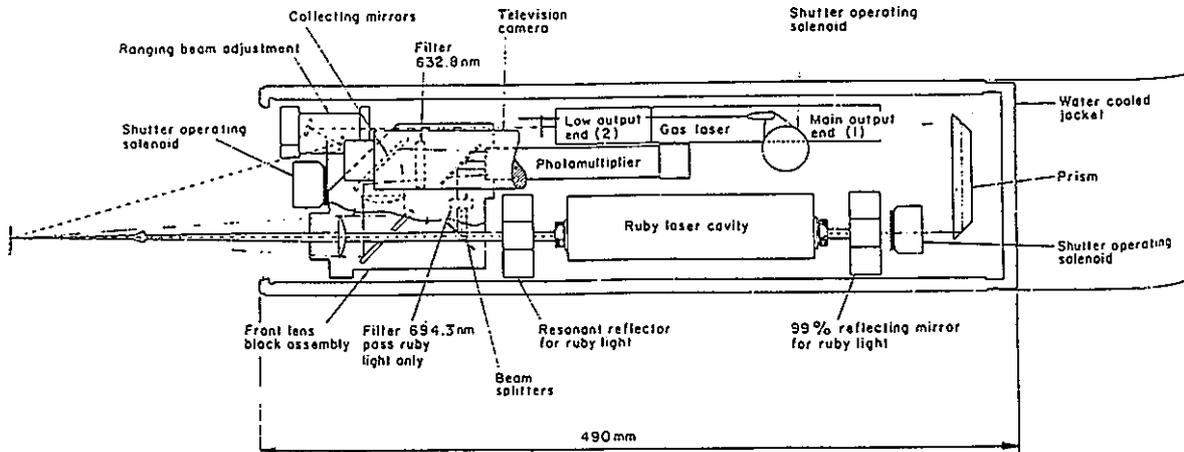


図3-18 被膜を除去しながらの膜厚計測装置の構成図

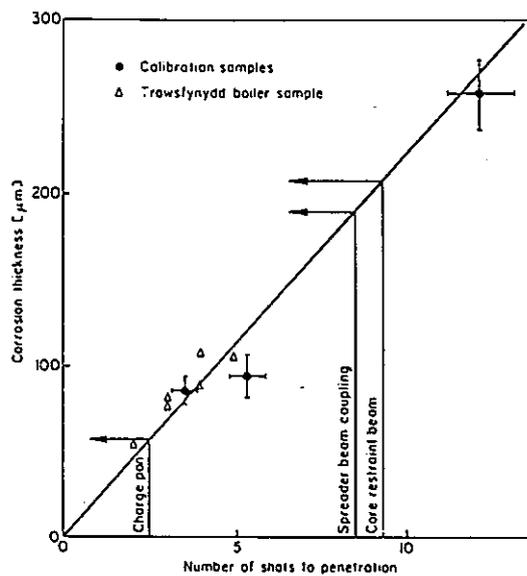


図3-19 被膜を除去しながらの膜厚計測結果

<p>1. 技術名称</p> <p>流体・粉体特性</p> <p>(1) 流速分布</p> <p>(2) 粒径分布</p>
<p>2. 概要</p> <p>(1) 流速分布</p> <p>流体特性のレーザー計測は、航空宇宙工業分野をはじめ、自動車業界や建設産業から環境産業まで幅広い分野に利用されている。指向性や干渉性、散乱や波長特性などがおもに利用されている。流速分布計測はこれらの中でも最も重要な応用の一つである。</p> <p>(2) 粒径分布</p> <p>粉体は、試料や塗料の原料、研磨材などとして、各種いろいろな分野で利用されている材質の一つである。この粉体の粒度分布を計測することは、粉体を管理する上で、重要な役割を果たす。</p>
<p>3. 原理</p> <p>(1) 流速分布</p> <p>①流体の密度変化による屈折率変化によって、レーザー光の干渉強度変化による計測。</p> <p>②流体中の散乱微粒子による散乱光の観測によるドップラー効果。</p> <p>③同上の散乱光の観測による単位時間での移動距離。</p> <p>などから、流体の流速分布を計測、またはイメージ化することができる。</p> <p>(2) 粒径分布</p> <p>走査レーザー顕微鏡の原理を応用し、粒子一つ一つのレーザー光の反射光を検出して、塗工液などの高濃度液中の粒度分布を観測する。反射光の時間変化によって、微小領域における単位時間当たりの粒子の数量や大きさを計測する。</p> <p>また、顕微鏡写真として、単位体積当たりの粒子のイメージを計測し、コンピューター画像処理によって、粒の形や粒度分布を算出する方法もある。</p>

4. 国内外での適用例

(1) 流速分布

①流速分布の計測³⁻¹⁵⁾

図3-20のような装置により，流体中の $6\mu\text{m}$ 程度の散乱微粒子に 532nm のパルスレーザー光を照射し，散乱光をカメラで観測し，単位時間当たり（ 0.15s ）の散乱微粒子の移動をコンピューターで追尾し，流速分布を散乱微粒子の移動ベクトルでイメージ化している。（図3-21）

(2) 粒径分布

①粒度分布の計測³⁻¹⁶⁾

直径 $1\mu\text{m}$ に集光された半導体レーザー光を円周状にスキャンさせ，横切る粒子の反射光により，大きさ（反射時間）や個数を計測する装置を市販化している。（図3-22）

5. 国内外での特許

?

6. 性能

(1) 流速分布

図3-21のように，流速分布のベクトル表示が可能である。

(2) 粒径分布

測定濃度範囲 $0\sim 50\%$ ，測定粒径範囲 $1\sim 1000\mu\text{m}$ の仕様で，コンピューター処理により，球形換算データや体積換算データ，度数分布や粒径別累積度数分布などを算出できる。（図3-23）

7. 問題点・課題

(1) 流速分布

高解像度の画像処理を高速で行わなければならないので，VAXのようなミニコンを使用する。また，追尾する散乱微粒子の個数が多くなれば，処理時間が長くなってしまう。

(2) 粒径分布

前述の例では，測定感度が $10\mu\text{m}$ 程度以下で段々悪くなる傾向がある。他の粒度計との相関をとる必要がある。また，原理的に，一定条件で運動している粒子の粒度分布を統計的に計測するので，液中に混ぜて攪拌しながら測定しなければ

ならない。

顕微鏡写真の画像処理では、リアルタイム化が困難で、高速に運動している粒子に対しては写真の取込みに関して、不向きである。

8. 除染法への適用性

(1) 流速分布

除染する空間の空気の移動などの計測に応用することも可能である。ただし、空気などの気体に応用する場合は、前述のレーザーレーダーのような方式で、空気中のほこりや人為的な霧などによる散乱計測との組合せが重要である。

(2) 粒径分布

除染の際に発生する微粒子の計測に応用することが可能な計測方法であるが、微粒子の回収方法や計測状態を考慮する必要がある。

9. その他

(1) 熱物性

①概要

レーザー光音響効果の熱を観測することにより、その対象物の熱拡散定数、熱容量、熱伝導率を計測することが可能である。

②原理

光音響効果と同様で、吸収したレーザー光のエネルギーにより局所的な熱上昇が起こり、その熱や照射エネルギーなどを計算し、対象物の熱拡散定数、熱容量、熱伝導率を算出する。

③国内外での適用例

i) 熱的定数の計測³⁻¹⁷⁾

光音響効果を用いて、硼砂アルミナ系低融ガラスにケイ素を添加したガラスの熱拡散定数、熱容量、熱伝導率を算出している。

ii) 層状試料の熱拡散率の計測³⁻¹⁸⁾

光音響効果を用いて、SiCやAlN基板に、黒鉛微粒子やZrO₂-LaSrMnO₃を層状に塗布した試料の熱拡散率を算出している。

④性能

計測方法や定数の内容にもよるが、 $\sim \pm 1\%$ の高精度が得られている。

⑤問題点・課題

定数を求めるのに、計測データを非線型フィッティングしなければならない。

文献

- 3-15) Y. Hassan, et al., Trans. America Nucl. Soc., 62, 692-694 (1990)
- 3-16) 室 直行, 他, 紙パルプ技術タイム, 33, 27-31 (1990)
- 3-17) 寺井 良平, 他, 窯業協会誌, 85, 140-144 (1977)
- 3-18) 有井 忠, 他, 日本セラミックス協会年回講演予稿集, 1990, 13 (1990)

図表

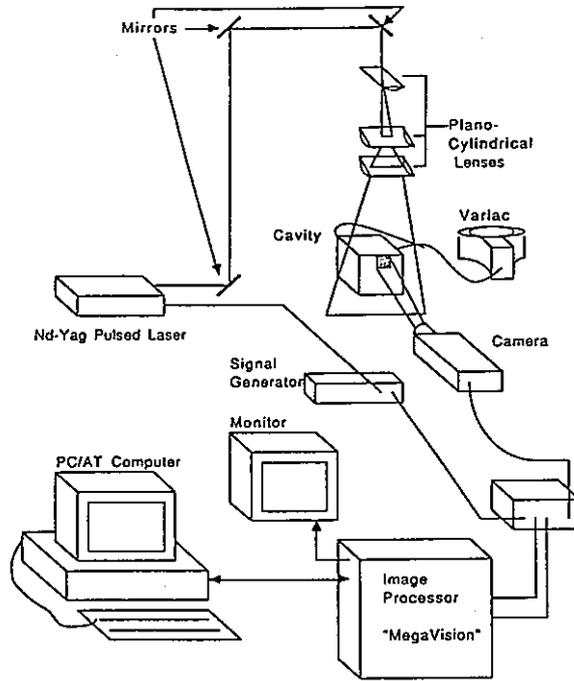


図3-20 パルスレーザーを用いた流速分布計測構成図

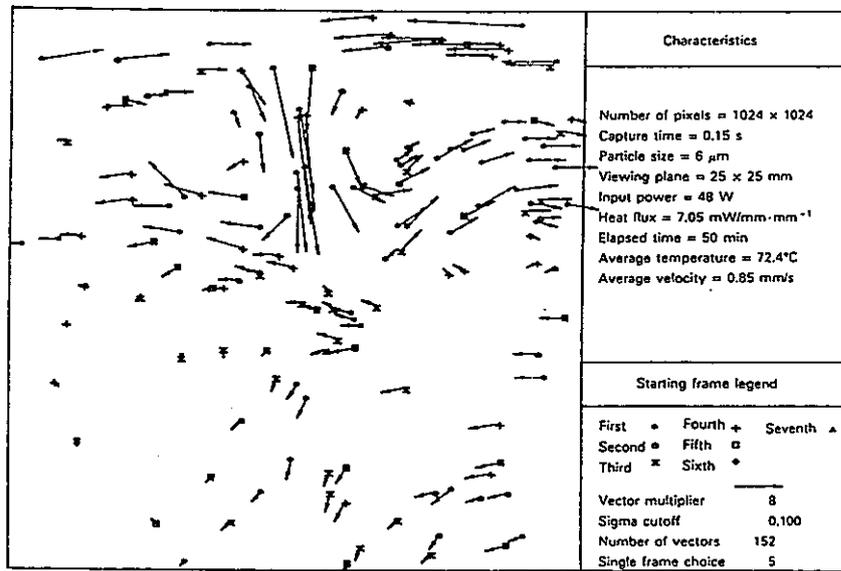


図3-21 パルスレーザーを用いた流速分布計測結果

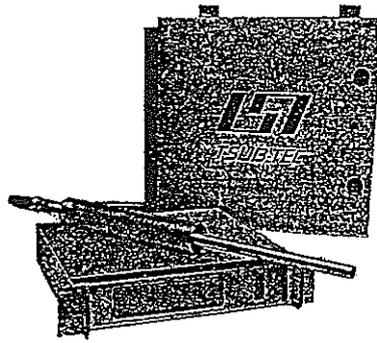


写真1 TSUB-TEC 200
の外観

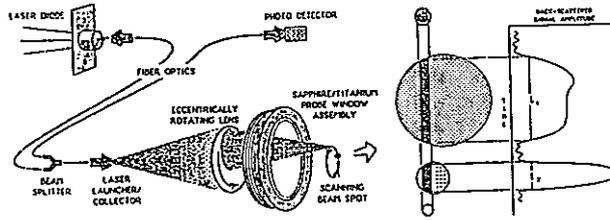


図1 TSUB-TEC の動作原理

図3-22 粒度分布計測システムの外観写真と動作原理図

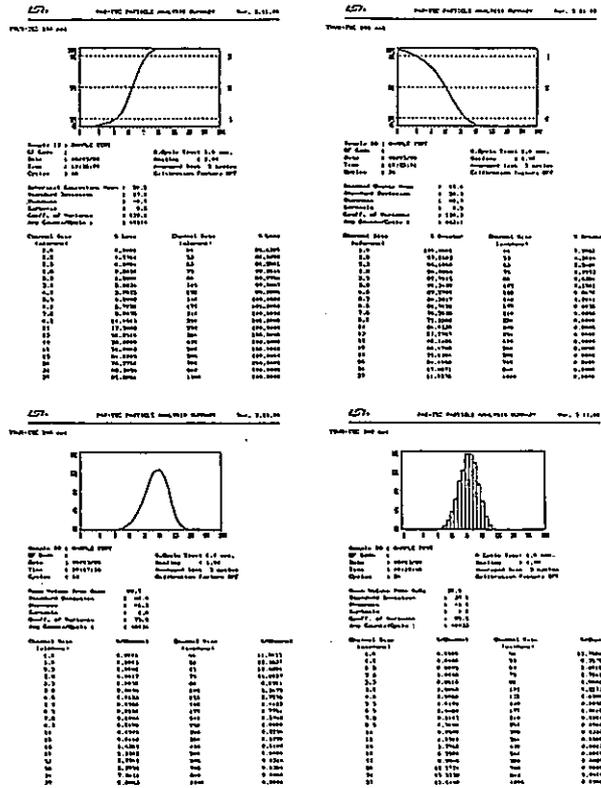


図3-23 粒度分布計測システムによる計測結果出力例