レーザー除染におけるアブレーション過程のシミュレーション

古河 裕之, S. I. ANISIMOV^{*,†}, 西原 功修*, 今崎 一夫, 藤田 雅之, 船橋 達**

二村 嘉明**, 坂岸 光二**, 中西 友和**, 本田 茂男**, 山中 千代衛

(財) レーザー技術総合研究所 (〒565-0871 大阪府吹田市山田丘2-6)

* 大阪大学レーザー核融合研究センター (〒565-0871 大阪府吹田市山田丘2-6)

** (株) アトックス (〒277-0861 千葉県柏市高田1408番地)

Simulation of Ablation Process on Laser Cleaning

Hiroyuki FURUKAWA, S. I. ANISIMOV^{*,†}, Katsunobu NISHIHARA*

Kazuo IMASAKI, Masayuki FUJITA, Satoru FUNAHASHI**

Yoshiaki FUTAMURA**, Koji SAKAGISHI**, Tomokazu NAKANISHI**

Shigeo HONDA**, and Chiyo YAMANAKA

Institute for Laser Technology, 2-6 Yamada-oka, Suita, Osaka 565-0871

*Institute of Laser Engineering, 2-6 Yamada-oka, Suita, Osaka 565-0871

**Atox, 1408 Takada, Kashiwa, Chiba 277-0861

(Received October 7, 1997)

Theoretical estimations on laser cleanings have been performed by simulations. Basic equations are the equation of thermal conduction, the absorption of laser energy, boundary conditions of melting and evaporation. Simulations have been performed for the case of 2-layers, basic material is SUS304 and surface pollutant is Fe_3O_4 . Simulation results were in good agreements with experiments at the wide range of irradiated laser energy densities.

Key Words: Simulation, Laser cleaning, Melting, Evaporation, Fe_3O_4

1. 緒 論

近年、原子力施設の高経年化に伴い、施設の更新が切実な問題となっている。これらの施設は放射能で汚染されている可能性があるため、その廃棄処理は非常に入念に行わなければならない。しかし、汚染物表面に付着した放射性物質のみを除去してしまえば、廃棄処理の効率は格段に向上する。よって、汚染物表面に付着した放射性物質を如何にして効率よく除去するかは、原子力施設、ひいては電力の安定な供給に関して非常に重要な課題である。

レーザー除染¹⁻³⁾の場合、遠隔操作が容易であり、作業者にとって極めて安全に除染を行える可能性がある。本研究では、原子力施設内の汚染物表面にレーザーを照射し、レーザーアブレーションにより汚染物表面に付着した放射性物質のみを融解、蒸発し除去する。そのためのレーザーのパルス幅、波長、強度等の最適化をシミュレーションにより行うことを目的とする。

2. 除染率の簡単な式表示

放射性物質の相対減少量を求める。母材の表面に厚さ d の放射性物質が一様に付着している場合を考える。母材の内部は、厚さ L 程度まで放射化されており、その密度は線形的に減少している、とする。一度除去した物質は再付着しない、自己吸収率も0であるとする、除去された放射性物質の量 s は次のように与えられる。

$$s = Az \quad z < d$$

$$= Ad + B(z-d) \left(1 - \frac{z-d}{2L} \right) \quad d \leq z < d+L \quad (1)$$

相対除染率は次のように与えられる。

$$R = \frac{s}{Ad + BL/2} \quad (2)$$

A は、表面に付着した放射性物質層において線源原子数密度と放射率を掛けたもの、 B は、放射性物質と母材との界面において線源原子数密度と放射率を掛けたもの、である。 z は、蒸発した厚さである。 A, B, d, L の値は入力値として与えることができる。ゆえに、どの程度の厚さの部分蒸発したか、を知れば除去された放射性物質の量を求めること

[†] Present address; Landau Institute for Theoret. Phys., 117940 Moscow, Kosyginast.2, Russia

Fig.1 Simple model for laser cleaning ratio.

ができる。

3. 実験結果

原子力施設の除染のための予備実験として、SUS304の表面に酸化被膜等を作り、レーザーで除染する実験を行った。試料は次のようにして作成した。試料の温度を600°C、または800°Cに保ちながら、大気中においてガスバーナーで1時間加熱し、SUS304の表面に1μm程度の酸化被膜等を作った。用いたレーザーはNd:YAGレーザー、波長は1064nmである。Fig.2に、レーザーパルスのパラメーターを示す。用いたレーザーはモードロックレーザーで、マイクロパルス幅20ps、マイクロパルス間隔を11.2ns、マクロパルス幅10μsである。Fig.3はレーザーの照射図である。レンズのfナンバーは250mmである。本研究ではレンズと試料の距離を、250、255、260、265、270、275mmと変えてレーザーを照射し、SUS304の表面の除去の様子を調べた。除去した深さは探針法で測定した。

Fig.4は、実験により求めた除去体積とレーザーエネルギー密度の関係である。横軸は照射されたレーザーのエネルギー密度、縦軸は単位エネルギー当たりの除去体積である。Fig.4から、単位エネルギー当たりの除去体積は、レーザーのエネルギー密度に逆比例していることがわかる。本実験では、10μsのマクロパルス1つのことを1shotと数え

Fig.2 Parameters of laser.

Fig.3 Schematic diagram of laser irradiation.

Fig.4 Cleaning volume per unit energy as irradiated laser energy density obtained by experiments.

た。マクロパルスの照射周波数は1Hzであった。

4. シミュレーションによる解析⁴⁾

4.1 基礎方程式

上記の実験結果を理論的に解析するために、厚み方向のみの1次元のシミュレーションを行った。熱伝導方程式を解いて温度分布を決定し、融解、蒸発の効果も取り入れている。Fig.5に、シミュレーションの際のgeometryを表す。Fig.5の上部の黒い部分は、厚さ1μm程度の黒錆、下部は母材であるSUS304を表す。

以下に、基礎方程式⁴⁾を記す。

○熱伝導方程式

$$\rho_s c_s \frac{\partial T}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left(\kappa_s \frac{\partial T}{\partial z} \right) + Q(z, t) \quad (3)$$

$$\rho_l c_l \frac{\partial T}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left(\kappa_l \frac{\partial T}{\partial z} \right) + Q(z, t) \quad (4)$$

ここで、 Q は単位体積、単位時間当たりの発熱量、 c は比熱、 k は熱伝導率である。添字のs, lはそれぞれ固体、液体を表す。 Z_m は固体と液体の境界点、 Z_v は液体と気体の境界点を表す。

○発熱条件(レーザー光の吸収)

$$Q(z, t) = I(t) \frac{1-R}{\delta} \exp\left\{-\frac{(z-Z_v(t))}{\delta}\right\} \quad (5)$$

ここで、 $I(t)$ はレーザー強度、 R は反射率、 δ は表皮厚さである。

Fig.5 Geometry of simulations.

○境界条件

$$L_m \frac{\partial Z_m(t)}{\partial t} = \kappa_s \left. \frac{\partial T}{\partial z} \right|_{z=z_m} - \kappa_l \left. \frac{\partial T}{\partial z} \right|_{z=z_m} \quad (6)$$

$$L_v \frac{\partial Z_v(t)}{\partial t} = \kappa_l \left. \frac{\partial T}{\partial z} \right|_{z=z_v} \quad (7)$$

ここで、 L_m は融解熱、 L_v は気化熱である。

○ Z_m と Z_v の運動方程式

$$\frac{\partial}{\partial t} Z_m(t) = V_m c_s (T_l - T_m) / L_m$$

$$T_l = T(Z_m(t)) \quad (8)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} Z_v(t) = V_0 \exp(-U/T_v)$$

$$T_v = T(Z_v(t)) \quad (9)$$

ここで、 T_m は融点である。 V_m 、 V_0 は音速のオーダーの定数で、物質により決まる⁴⁾。Fig.6に、シミュレーションコードのフローチャートを示す。

4.2 シミュレーション結果及び考察

以上の基礎方程式を用いてシミュレーションを行った。シミュレーションでは、レーザーの波長を1 μ m、マイクロパルス波形はガウシアン、マイクロパルス幅は20ps、マイクロパルス間隔を10ns、マクロパルス幅を10 μ sとした。また、黒錆の厚さを1 μ m、母材のSUS304の厚さを99 μ mとし、2層の場合のシミュレーションを行った。黒錆の厳密な気化熱は、未だ測定されていない。本研究では、黒錆の実効的な気化熱として、83.9kJ/mol、28.0kJ/molの2通りの場合についてシミュレーションした。83.9kJ/molというのは、鉄の気化熱である⁵⁾。黒錆及びSUS304が融解、蒸発する厚さを時間の関数として求め、単位エネルギー当たりの除去体積を入射したレーザーのエネルギーの関数として評価した。10 μ sまでシミュレーションを行った。シミュレーションにより求めた、単位エネルギー当たりの除去体積をFig.7に示す。

Fig.6 Flow chart of simulation code.

Fig.7からわかるように、83.9kJ/mol、28.0kJ/molの2通りの場合で、大きく異なった結果を示している。28.0kJ/molの場合のシミュレーション結果は、レーザーの照射エネルギー密度が $2 \times 10^4 \text{ J/m}^2 \sim 10^6 \text{ J/m}^2$ 辺りの領域で、実験結果と非常に良い一致を示している。以降本論文では、黒錆の実効的な気化熱を28.0kJ/molとした場合について、議論を行う。

Fig.8は、黒錆及びSUS304が融解、蒸発する厚さを、入射したレーザーのエネルギーの関数として示したものである。Fig.からわかるように、レーザーのエネルギーが $2 \times 10^4 \text{ J/m}^2$ を超えたあたりから、急激に融解、蒸発が起こっている。また $2 \times 10^4 \text{ J/m}^2 \sim 10^6 \text{ J/m}^2$ 辺りの領域では、黒錆のみが蒸発しており、融解現象はSUS304内部まで進んでいる。10⁶J/m²を超えたあたりからSUS304も蒸発し始めており、 $2 \times 10^6 \text{ J/m}^2$ を超えたあたりからは、液体部分は殆ど存在しなくなっている。またFig.8から、蒸発現象は融解現象に比べ、より閾値依存性の強い現象であることが示唆される。

幾つかの典型的なエネルギー密度の場合を例にとり、融解と蒸発の時間発展を議論する。Fig.8 (a)はエネルギー密度が $2 \times 10^4 \text{ J/m}^2$ の場合、(b)はエネルギー密度が10⁶J/m²の場合である。 $2 \times 10^4 \text{ J/m}^2$ は蒸発が起こり始める閾値付近のエネルギー密度で、単位エネルギー当たりの除去体積が最も大きいところである。 $2 \times 10^4 \text{ J/m}^2$ の場合、8.7 μ s程度までは融解も蒸発も起こらず、その後急激に融解と蒸発が起こり、黒錆の蒸発が終了してからも、融解は継続している。また9 μ s程度の時に、一度液体になった部分が、再び一部固体化している様子が示されている。10⁶J/m²の場合、0.2 μ s程度までに黒錆の蒸発が終了しており、その後蒸発は見られ

Fig.7 Cleaning volume per unit energy as irradiated laser energy density for the case $L_v = 28.0 \text{ kJ/mol}$ and $L_v = 83.9 \text{ kJ/mol}$.

Fig.8 Depth of melting and evaporation of Fe₃O₄ (1 μ m thickness) and SUS304.

なかった。黒錆の蒸発が終了してからも融解は継続しており、母材の部分まで融解が進んでいる。

Fig.9は、エネルギー密度が $2 \times 10^6 \text{ J/m}^2$ の場合の融解と蒸発の時間発展である。Fig.8の場合と異なり、母材も蒸発していることがわかる。しかも蒸発の仕方が4段階ほどに分かれており、 $6 \mu\text{s}$ 以降殆ど液体部分は存在していない。エネルギー密度を $2 \times 10^6 \text{ J/m}^2$ に保ち、マクロパルス幅を $20 \mu\text{s}$ にした場合の、融解と蒸発の時間発展をFig.11に示す。つまり照射強度は、Fig.10の場合の1/2であり、Fig.9 (b)の場合と同じである。単位エネルギー当たりの除去体積は、 $5.006 \times 10^{-13} \text{ m}^3/\text{J}$ である。Fig.11の結果は、Fig.8 (b)の場合の結果をそのまま $20 \mu\text{s}$ まで延長したものとはほぼ等しい。母材の蒸発は見られない。このように閾値付近では、エネルギー密度だけでなく、照射強度に対する依存性も非常に強くなる。また照射強度をFig.10の場合と同じにして、マクロパルス幅 $5 \mu\text{s}$ 時の単位エネルギー当たりの除去体積を求めると、 $3.972 \times 10^{-12} \text{ m}^3/\text{J}$ となる。この場合、エネルギー密度は 10^6 J/m^2 である。Fig.7の気化熱を 28.0 kJ/mol とした場合のデータに、上記の結果を重ねると、Fig.12のようになる。実験は、エネルギー密度が $10^6 \text{ J/m}^2 \sim 2 \times 10^6 \text{ J/m}^2$ あたりになると、5～10shot以上エネルギーを重ね合わせた結果であり、その時のレーザーの強度は、エネルギー密度が $2 \times 10^4 \text{ J/m}^2$ の場合のレーザーの強度の100倍あるのではない。エネルギー密度が $2 \times 10^6 \text{ J/m}^2$ の場合のシミュレーションでのレーザー強度は、マクロパルス幅を $10 \mu\text{s}$ にした場合ではなく、 $20 \mu\text{s}$ にした場合の方が、より実験でのレーザーの強度に近い、と考えられる。エネルギー密度が $2 \times 10^6 \text{ J/m}^2$ の場合のシミュレーション結果と実験結果を比較する場合、シミュレーションでのマクロパルス幅を $20 \mu\text{s}$ にした場合の結果を採用する方が、より妥当であろう。よって、照射エネルギー密度が $2 \times 10^4 \text{ J/m}^2 \sim 2 \times 10^6 \text{ J/m}^2$ あたりまで、シミュレーション結果と実験結果は、非常に良い一致を示している、と結

Fig.9 Time evolution of depth of melting and evaporation of Fe_3O_4 ($1 \mu\text{m}$ thickness) and SUS304. a) Irradiation energy density is $2 \times 10^4 \text{ J/m}^2$; b) Irradiation energy density is 10^6 J/m^2 .

Fig.10 Time evolution of depth of melting and evaporation of Fe_3O_4 ($1 \mu\text{m}$ thickness) and SUS304 for the case of irradiation energy density is $2 \times 10^6 \text{ J/m}^2$.

Fig.11 The same as Fig.10 except that macro pulse width is $20 \mu\text{s}$.

Fig.12 Cleaning volume per unit energy as irradiated laser energy density.

論できる。

5. 結 論

以上のことより、本シミュレーションコードは、除染現象の解析にあたり、その指針となり得ることが示された。今後シミュレーションにより、レーザーの波形、パルス幅等の最適化を行う予定である。

参考文献

- 1) レーザー学会編：レーザープロセッシング（日経技術図書，1990）。
- 2) レーザー学会学術講演会第15回年次大会 20aV6（1995）p.191。
- 3) 日本原子力学会 春の年会 N27（1996）p.691。
- 4) S. I. Anisimov and V. A. Khoklov: *Instabilities in Laser-Matter Interaction* CRC Press（1995）。
- 5) 日本化学会編：化学便覧基礎編II（丸善，1975）。