

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 5 月 16 日現在

機関番号：17601

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2015

課題番号：26630298

研究課題名(和文) 極端紫外域における金属ナトリウムの光学特性の精密評価

研究課題名(英文) Absorption spectroscopy of metal sodium in the extreme ultraviolet spectral region

研究代表者

窪寺 昌一 (Kubodera, Shoichi)

宮崎大学・工学部・教授

研究者番号：00264359

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,900,000円

研究成果の概要(和文)：真空紫外分光のためにレーザーアブレーションを用いるナトリウム蒸気供給方法について研究を進めた。可視域におけるナトリウム蒸気の吸収分光を行った結果、ナトリウムターゲット表面より1 mmでは、レーザーアブレーション後400 ns付近から中性ナトリウムのD線の吸収が観測され、1000 ns後に吸光がピークとなった。ナトリウム蒸気プラズマの膨張モデルを仮定したところ実験結果とよい一致を示したことから、この膨張モデルの妥当性が示された。これらの結果から、レーザーアブレーションにより生成された中性ナトリウムの数密度はピーク値で $1e17 \text{ cm}^{-3}$ のオーダーと定量的に求めることができた。

研究成果の概要(英文)：Preparation of sodium vapors was investigated for the spectroscopy of sodium vapors in the vacuum ultraviolet (VUV) by use of laser ablation. Delay time behaviors of absorption by sodium D lines in the visible spectral region indicated that the absorption started at approximately 400 ns and it had a peak at 1000 ns of delay time at 1 mm from a sodium target. A model describing the plasma plume expansion of sodium reproduced the experimental delay time behaviors. As a result, the peak value of neutral sodium number density was evaluated on the order of $1e17 \text{ cm}^{-3}$, which may be high enough to carry on the VUV spectroscopy of sodium.

研究分野：複合新領域

キーワード：真空紫外分光 レーザー生成プラズマ レーザーアブレーション 金属ナトリウム

1. 研究開始当初の背景

現在、我々の生活に欠かせない電気エネルギーを得る方法として原子力発電が挙げられる。原子力発電は燃料としてウランやプルトニウムといった核燃料を使用する。わずかな燃料で膨大なエネルギーを得ることができ、発電時に地球温暖化の原因となる温室効果ガスを排出しないといった特徴がある。しかし、核燃料は枯渇性資源であるため、核燃料サイクルの実現はエネルギーを長期にわたり安定供給する意味で常に望まれている課題である。この核燃料サイクル実現のための手段として、高速増殖炉と呼ばれるものがある[1]。高速増殖炉においては種々の理由から冷却材として液体ナトリウムが用いられているが、漏洩等の事故につながる可能性がある危険な物質でもある。実際に日本の高速増殖炉である「もんじゅ」では、1995年にナトリウム漏洩火災事故が発生している。その後、運転再開のための本体工事が2007年に完了し、2010年5月に2年後の本格運転を目指して運転を再開したが、2010年8月の炉内中継装置落下事故により再び稼働ができなくなった。現在も稼働には至っておらず、加えてその管理について重大な問題があるとして再稼働が危ぶまれている。配管等に亀裂が生じた場合、大規模な破断に至る前にナトリウムの微小な漏洩を早期の段階で検知できれば、速やかに原子炉を停止して対策を講じることが可能である。

大阪大学の福田らはこの観点から液体ナトリウムの流れを可視化するという先駆的な研究を行い、真空紫外域で発振するフッ素レーザーのアンチストークス光を用いることで液体ナトリウムが真空紫外域で透過性を持つことを世界で初めて示した[2]。加えて申請者らは日本原子力研究開発機構敦賀本部(原研、当時)の大道らとの共同研究により、空気との反応性を最小限に抑制した環境下で作成された金属ナトリウムサンプルの真空紫外域分光特性を測定し、その透過特性を確認した。さらに図1に示すように微小物体の撮像にも成功した[3]。

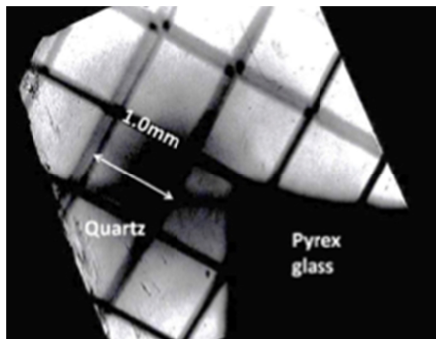


図1 ナトリウム透過真空紫外光によるメッシュ画像 [3]

図1では、重水素ランプからの真空紫外光

は厚さ8mmのナトリウムを透過し、ナトリウムの後ろに配置した目の粗さ1mmのメッシュの像が得られている。メッシュの金具部分の太さは0.1mmであり、実験によりその部分が明瞭に撮影されていることが明らかになった。Pyrex glass と書かれた部分は、対照測定として可視光は透過するが真空紫外光は透過しない厚さ1mmのピレックスガラス板で覆われた部分である。この部分が黒いことから実験で得られたメッシュ像はナトリウムを透過した真空紫外光によるものであることが検証されている。

本研究ではこの測定結果をさらに発展させ、よりピーク強度の高いレーザー生成プラズマからの広帯域真空紫外光[4]を分光光源として用いることで金属ナトリウムの真空紫外域での精密な透過特性を検証するものである。

2. 研究の目的

背景で述べた研究成果は、これまで光は一切通さないと考えられてきたナトリウムの中で起こる種々の現象を、光を用いてリアルタイムで透視する新しい技術の可能性を示したと言える。また、真空紫外光を用いた十分な厚みを持つサンプルの透視の成功は、ナトリウムを使用するプラント等産業利用施設における保守管理や、ナトリウムの流動現象の理解に貢献する高精度モニター技術実現に向けた原理的発見と位置付けられる[2,3]。

本研究では、これらの最近の研究により明らかになった金属ナトリウムの真空紫外域での透過特性について、さらに精密な検証を行うものである。申請者が保有する広帯域高性能極端紫外光源などの各種短波長光源を用いて波長が120~200nmの真空紫外域、これより短い波長50~120nmの極端紫外スペクトル域において金属ナトリウムの精密な光学特性を同定することを当初の目的としたものの、研究実施期間中に、原研による金属ナトリウムサンプルの供給が滞る事態となった。これを受けて申請者は真空紫外、極端紫外光源の開発を行うとともに、新たなナトリウム供給法を開発する必要性に迫られた。幸い、レーザーアブレーションを用いて金属蒸気を発生させる方法はある程度確立していることからこの方法を採用した。しかし、同時に多くのパラメータにより金属蒸気の空間的・時間的進展は影響されることも予測されることから、このアブレーション蒸気の進展を調べることは萌芽研究の研究対象となりうると考え、金属ナトリウムを真空中でレーザーアブレーションすることによりプラズマ中の中性ナトリウムの数密度を定量的に測定することを研究の目的とした。本報告書では、真空紫外、極端紫外光源の研究開発の詳細は公表論文に譲り、レーザーアブレーションにより作製された金属ナトリウムの定量的な時間、空間的進展について膨張

モデルと比較検討した結果について述べている。

金属ナトリウムは産業施設にも用いられており、この金属の未知の光学特性を知ることが基礎科学への理論的課題を提供するのみならず、産業開発にもつながる工学的に重要な成果と結びつく可能性を持つ極めて挑戦的な課題である。

3. 研究の方法

図2にナトリウム蒸気の吸収測定装置概要図を示す。アルゴンプラズマ光源用の Nd:YAG レーザーの基本波 ($\lambda = 1064 \text{ nm}$, $E = 450 \text{ mJ}$) を焦点距離 9 cm の集光レンズで集光し、広帯域の可視～真空紫外光源であるアルゴンプラズマを生成した。時間遅延を付けたもう一台の Nd:YAG レーザー ($\lambda = 1064 \text{ nm}$, $E = 50 \text{ mJ}$) を焦点距離 17 cm の集光レンズで真空容器内に設置されたバルク金属ナトリウム上に集光照射し、レーザーアブレーションによりナトリウムの蒸気を生成した。ナトリウムの吸光度はアルゴンプラズマ光の D 線 (589.0 nm ならびに 589.6 nm) による過渡的な吸収を測定することにより求めた。

空間的な観測位置を制限するために直径 3 mm のピンホールをアルゴンプラズマ光源とナトリウム蒸気との間、ナトリウム蒸気とファイバー分光器との間に設置し、観測軸上以外からのレーザー生成アルゴンプラズマの発光を最小化した。ヘリウムネオンレーザーをピンホールに通すことでピンホールで決まる観測軸とナトリウム表面との距離を測定した。

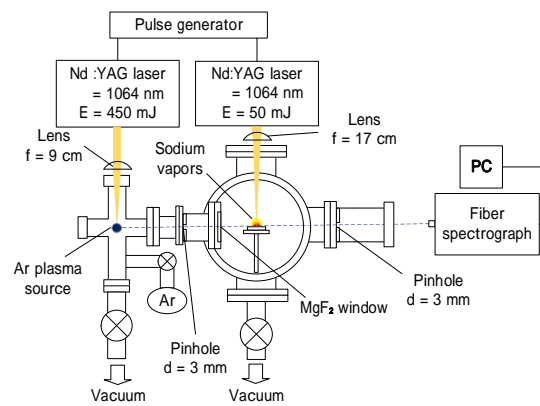


図2 ナトリウム蒸気の吸収測定装置

図3にアブレーションされるナトリウムの模式図を示す。観測軸とナトリウム表面との距離は 0.1 cm とした。 $d(t)$ は観測軸上における吸収長であり遅延時間の関数である。ここでは、ナトリウム蒸気は $\cos \theta$ の分布で膨張すると仮定していることから $d(t)$ は遅延時間に比例して増大する。パルスジェネレーターによって2台の Nd:YAG レーザーに $0 \sim 3000 \text{ ns}$ の遅延時間を設けることで、ナトリ

ウム蒸気の過渡的な吸収分光測定を行った。

図4にナトリウムの D 線の吸収の時間分解特性を示す。横軸は2台のレーザーの遅延時間であり、アブレーションレーザーが先に照射されてブルームを生成し、その後ある遅延時刻で可視光源であるアルゴンプラズマを生成した。縦軸は吸光度 $\sigma n d$ を示している。遅延時間は $0 \sim 3000 \text{ ns}$ とした。吸光度のピークは遅延時刻 1000 ns において 0.35 となった。

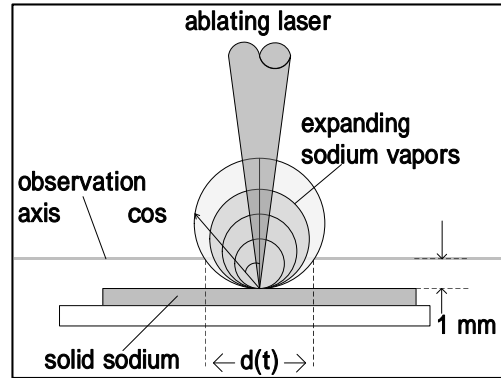


図3 アブレーションにより膨張するナトリウム

時刻 400 ns 付近から吸収が観測されるのはナトリウム表面から観測軸まで 0.1 cm あり、中性ナトリウム蒸気が通過するのに有限の時間がかかるためである。

中性ナトリウム蒸気が 400 ns で 0.1 cm まで膨張すると仮定すると膨張速度は $v \sim 2.5 \times 10^5 \text{ cm/s}$ となり、プラズマのエネルギー平衡式[5]から求められる値、 $0.5 \times 10^5 \text{ cm/s}$ とよい一致を示している。

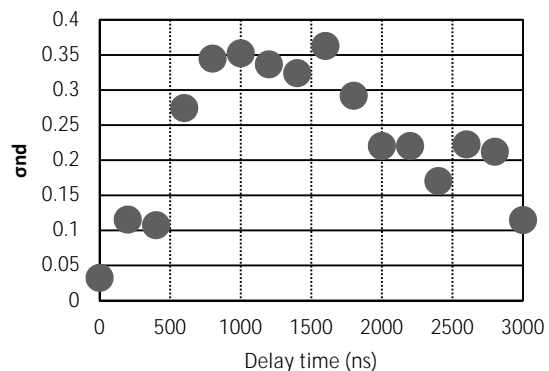


図4 ナトリウム D 線の吸収の遅延時間依存性

ここで図3のように $\cos \theta$ の膨張則に従ってアブレーションブルームが進展すると仮定したときの吸収長 $d(t)$ をもとに吸光度 $\sigma n d(t)$ を計算した結果を図4の実験結果と比較した

ものを図5に示す。

このモデルでは遅延時間0~400 nsまでは中性ナトリウムが観測軸まで到達していないと仮定しており、吸光度はゼロとした。それ以降1000 nsまでは吸光度は線形に増加し、その後減少している実験結果をこの膨張モデルはよく再現している。

遅延時刻1000 nsで吸光度が最大となったことからこの膨張モデルではこのときの中性ナトリウムブルームの半径 r は0.125 cmと

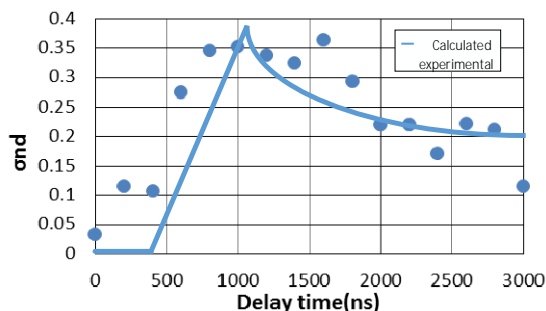


図5 ナトリウムD線の吸収の遅延時間依存性と膨張モデル計算結果

求められた。その際の吸収長は $d(t = 1000 \text{ ns}) = 0.245 \text{ cm}$ となる。このときの吸光度の値0.35, ナトリウムの(見かけ上の)吸収断面積 $\sigma = 3.0 \times 10^{-18} \text{ cm}^2$ [6]を用いると中性ナトリウム蒸気の密度は $4.8 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ と求められた。

今回の研究結果により、ナトリウム蒸気の膨張特性と密度を定量的に同定することができた。真空紫外光での吸収分光測定に応用可能と断定することは難しいが、この結果は通常では作製困難な金属ナトリウムを時間的・空間的に限定して生成できる方法のひとつとして真空紫外光でのナトリウムの吸収分光測定に用いられると考えられる。

4. 研究成果

可視域におけるナトリウム蒸気の吸収分光を行った結果、ナトリウムターゲット表面から0.1 cmでは、レーザーアブレーション後400 ns付近から中性ナトリウムのD線の吸収が観測され、1000 ns後に吸光がピークとなった。ナトリウム表面から観測軸までの距離が0.1 cmであることからナトリウム蒸気の膨張速度を $2.5 \times 10^5 \text{ cm/s}$ とした。この実験で得られた膨張速度を使用し、ナトリウム蒸気ブルームの $\cos\theta$ 膨張モデルを仮定したところ実験結果とよい一致を示したことから、この膨張モデルの妥当性が検証された。これらの結果から、レーザーアブレーションにより生成された中性ナトリウムの数密度はピーク値で $4.8 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ と定量的に求めることができた。

アブレーションによって生成されたナトリウム蒸気は、真空度の高い状態では放出粒子が等速で膨張するような放射型の形状であり、時間経過によって真空度が低下した際はブルーム先端の進展は停止し、安定した球状に近い形状になることが観測された。また、吸収が観測されたナトリウム蒸気は球状に近い状態であったことから、今後はナトリウム容器内の圧力変化によるアブレーションブルーム進展特性に注目する必要があると考えた。今後の研究として、容器内のガス圧やレーザー強度などの変化に応じた新たなナトリウム蒸気の膨張モデルを考慮した上で、アルゴンガスを雰囲気ガスとしてチャンバー内に封入し、このガス圧を定量的に変化させながら吸収分光測定を行う方法も考えられる。この方法により、現在よりも高密度なナトリウム蒸気を生成することも可能であると考えている。

参考文献

- [1] 安成広「高速増殖炉」(同文書院, 1982)
- [2] 大阪大学「ナトリウム流動の可視化による高速炉気液界面・速度場の計測制御に関する研究開発」成果報告書(文部科学省原子力システム研究開発事業, 2008)
- [3] H. Daido, Y. Suzuki, T. Kawachi, T. Fukuda, T. Nakagiri, M. Kaku, and S. Kubodera, "Demonstration of partially transparent thick metallic sodium in the vacuum ultraviolet spectral range", *Optics Express* 21, 28182 (2013).
- [4] M. Kaku, T. Yamaura, T. Higashiguchi, S. Kubodera, and W. Sasaki, "Vacuum ultraviolet spectroscopic system using a laser-produced plasma", *Japanese Journal of Applied Physics* 42, 3458 (2003).
- [5] C. E. Max, "Physics of the coronal plasma in laser fusion targets" in *Laser-Plasma Interaction*, edited by R. Balian and J. C. Adam (North-Holland Publishing, 1982).
- [6] A. A. Radzig and B. M. Smirnov, "Reference Data on Atoms, Molecules, and Ions" (Springer, 1985).

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計5件)

- (1) M. Katto, M. Kaku, A. Yokotani, K. Miyazaki, N. Miyanaga, and S. Kubodera, "Development of ultrashort pulsed VUV laser and its applications", *Journal of Laser Micro/ Nanoengineering (JLMN)* 9, 108-112 (2014). 査読有
- (2) M. Kaku, D. Kai, M. Katto, A. Yokotani, S. Kubodera, and W. Sasaki, "Surface analysis by photo-stimulated desorption using tunable VUV radiation", *Applied Physics B* 119,

- 427-433 (2015). 査読有
- (3) 加来昌典, 甲藤正人, 横谷篤至, 窪寺昌二, “光電界電離アルゴンエキシマ増幅器を用いた超短パルス真空紫外レーザー”, レーザー研究 43, 537-541 (2015). 査読有
- (4) 甲藤正人, 杉原隆明, 加来昌典, 横谷篤至, 窪寺昌二, “時間遅延をつけたフェムト秒レーザー・ダブルパルスによる加工特性”, レーザー学会第 480 回研究会報告, RMT-15-31, 31-36 (2015). 査読無
- (5) 甲藤正人, 加来昌典, 横谷篤至, 窪寺昌二, “真空紫外光域における高強度レーザー光源の開発と応用”, レーザー学会第 483 回研究会報告, RMT-15-45-50, 1-5 (2015). 査読無

〔学会発表〕(計 12 件)

- (1) M. Kaku, T. Daikyujii, M. Katto, and S. Kubodera, “Ultrashort pulse VUV laser system with an OFI Ar₂* amplifier”, The 3rd Advanced Lasers and Photon Sources (ALPS '14), Yokohama, Japan, April 22-25, 2014.
- (2) S. Kubodera, “Ultrashort vacuum ultraviolet laser system at 126 nm”, STARS5 (Shanghai-Tokyo Advanced Research Symposium on Ultrafast Intense Laser Science), Seagaia Convention Center, Miyazaki, May 21-24, 2014 (invited talk).
- (3) N. Deshimaru, M. Kaku, M. Katto, and S. Kubodera, “Amplification of VUV fs pulses by using an OFI Ar₂* amplifier”, STARS5 (Shanghai-Tokyo Advanced Research Symposium on Ultrafast Intense Laser Science), Seagaia Convention Center, Miyazaki, May 21-24, 2014.
- (4) 亀山晃弘, 加来昌典, 甲藤正人, 窪寺昌二, 横谷篤至, “超短パルス短波長光源の開発その応用”, レーザー学会第 465 回研究会「レーザー応用」(休暇村指宿(鹿児島), 2014 年 9 月 8 日)
- (5) N. Deshimaru, M. Kaku, M. Katto, and S. Kubodera, “Optical amplification of ultrashort vacuum ultraviolet pulses in an Ar plasma amplifier”, 第 67 回電気・情報関係学会九州支部連合大会(国際セッション, フォトニクス)(鹿児島大学, 2014 年 9 月 18~19 日).
- (6) M. Kaku, N. Deshimaru, M. Katto, and S. Kubodera, “High-intensity VUV laser system with OFI Ar₂* amplifier”, IEEE Photonics Conference 2014, Hyatt Regency La Jolla, San Diego, CA, USA, October 12-16, 2014.
- (7) S. Kubodera, N. Deshimaru, M. Kaku, and M. Katto, “Amplification of 126 nm femtosecond seed pulses in optical-field-induced Ar plasma filamentation”, 56th Annual Meeting of the APS Division of Plasma Physics, New Orleans Marriott, New Orleans, LA, October 27-31, 2014.
- (8) M. Kaku, N. Deshimaru, M. Katto, and S. Kubodera, “High intensity ultrashort VUV pulse generation with OFI Ar₂* amplifier”, The 4th Advanced Lasers and Photon Sources (ALPS '15), Yokohama, Japan, April 22-24, 2015.
- (9) 窪寺昌二, “医学・生物学に展開可能な真空紫外・極端紫外光源開発”, 第 37 回日本光医学・光生物学会(シーガイアコンベンションセンター, 宮崎, 2015 年 7 月 17 日~18 日)
- (10) S. Kubodera, M. Kaku, N. Deshimaru, and M. Katto, “Amplification of 126 nm femtosecond pulses in optical-field-induced Ar plasma filamentation”, IEEE Photonics Conference 2015, Hyatt Regency Reston, VA, USA, October 4-8, 2015.
- (11) 甲藤正人, 加来昌典, 横谷篤至, 窪寺昌二, “真空紫外光域における高強度レーザー光源の開発と応用”, レーザー学会第 483 回研究会「短波長量子ビーム発生と応用」(広島大学東広島キャンパス, 2015 年 12 月 2 日)
- (12) 弟子丸直之, 岩崎達也, 加来昌典, 甲藤正人, 窪寺昌二, “高強度レーザー励起アルゴンエキシマによる真空紫外フェムト秒パルスの増幅”, レーザー学会学術講演会第 36 回年次大会(名城大学, 2016 年 1 月 9 日~11 日)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

窪寺 昌一 (KUBODERA Shoichi)

宮崎大学・工学部・教授

研究者番号: 00264359