高繰り返しナノ秒パルスレーザーを用いた
革新的レーザー除染技術の開発

京都大学　エネルギー理工学研究所
准教授　中嶋　隆
（2023 年度 一般研究開発助成 AF-2023204-B2）

キーワード：除染，粉塵，レーザー散乱

１．研究の目的と背景

運転終了後の原子炉廃止措置において、大量に発生する放射性廃棄物を如何に処理するかは喫緊の課題である。これら放射性廃棄物のうち、核燃料等の放射化したごく一部のコア部分を除いては、ほとんどが表面汚染されたものであり、表面の汚染物質を効率的に除去(除染)することができれば、作業者の被ばく量低減、廃棄物量の削減、長期保管コストの低減、の全てに大きく寄与する。一般的な除染手法としては、表面に付着した汚染物質を物理的に削り取る機械除染や電解研磨によって削り取る電気化学除染などがあるが、これらのいずれも除染作業による作業被ばくや多量の二次廃棄物が発生するという問題がある。

レーザー除染とは、表面汚染された部材にレーザーを集光照射することによって、その部分を加熱・飛散させて表面を削り取る除染法であり、作業被ばくや二次廃棄物の発生を大幅に抑制できることが大きな特長である。日本では 2000 年代初頭あたりから、日本原子力研究開発機構や核燃料サイクル機構における研究開発の報告がいくつかある。最近では 2019 年に、東京電力が福島第一原発の処理水施設において高出力連続波レーザー除染を実施したという報告[1)]がウェブでも参照できる。ステンレス製金属配管や隔壁などの除染を行う場合、表面に付着した汚染物を取り除くだけでは完全に除染することはできず、応力腐食割れ等によって発生した金属母材の亀裂の中に入り込んだ汚染物を除去しなくてはならない。そのため、金属母材の表面を深さ 10 μｍ程度まで削り取る必要がある。ところが、上述の高出力連続波レーザー照射だと、金属表面付近が激しく溶融して表面の放射性物質が母材金属内部に潜り込んで拡がる（2 次汚染）ため、除染が逆に難しくなることが問題となっている。これに対し、パルスレーザー照射の場合には、高温溶融状態は約 100 ナノ秒しか持続しないため、効率よく 2 次汚染を抑制できるはず、と予想できる。つまり、照射投入するレーザーエネルギーの熱拡散損失（=除染に使われないエネルギー）は、連続波 >> ナノ秒パルス >> ピコ/フェムト秒パルスの順に減少するので、除染に必要なレーザー出力とレーザー装置自体のコスト、現場に設置する装置サイズ、さらには熱拡散損失に由来する 2 次汚染の抑制を考えると、レーザー除染には、東京電力が福島第一原発において用いた大型の高出力連続波レーザー（最大出力 6 kW）よりむしろ、ここで提案するような、小型の高繰り返しナノ秒パルスレーザーが適しているであろう、という予想になる。また、レーザーが連続波であるかパルスであるかを問わず、レーザー除染時には必ず汚染粉塵が発生するため、この汚染粉塵を効率良く集塵することが重要であるが、そのためには粉塵の粒径、速度、空間分布を知ることが必要である。

粉塵の粒径分布に関しては、レーザー除染現場近くに粒径分析装置を置いて計測した例はあるが、この方法だと、粒径分布は分析装置を置く場所に依存するおそれがある。粉塵の速度と空間分布に関しては、測定報告は皆無である。

本研究では、連続波レーザー除染と比べた場合のナノ秒パルスレーザー除染の優位性の検証を第一の目的に、そして、レーザー除染時に発生する粉塵の速度を明らかにすることを第二の目的とする。

２．実験方法

実験には最大出力 20 W と 100 W のナノ秒 MOPA ファイバーレーザーを用いた。どちらのレーザーも、パルス持続時間、パルス繰り返し数、スキャン速度、ライン間隔は可変であり、レーザービームは焦点距離 160 mm の f-θ レンズでスポットサイズ 40μｍに集光され、ガルバノミラーシステムによってターゲット面(SUS304)を大気中で高速スキャンする。

除染効率を調べる研究では、SUS 基板表面に模擬汚染物質を塗布、または塗布および熱処理して作製したものがしばしば用いられる。このような試料の場合、レーザー照射後に元素分析をして、模擬汚染元素の減少量から除染効率を評価するが、模擬汚染層の作製方法によって除染効率の数値が大きく変わりうるという根本的な問題点がある。そこで本研究では簡便な評価方法として、模擬汚染層を持たない SUS 基板を用いて、レーザー照射前後の重量変化から除去量を評価することとした。重量測定には分析天秤を用い、試料の表面構造の測定には白色干渉計と走査型電子顕微鏡(SEM)を用いた。

３．実験結果と考察

まず初めに、最大出力 20 W のレーザーを用いパルス幅を 15-200 ns、パルス繰り返し数を 200-400 kHz、スキャン速度を 200 および 1000 mm/s で SUS 基板(20×30×1 mm^3)の 16×26 mm^2 の範囲を照射した。レーザー照射後の除去

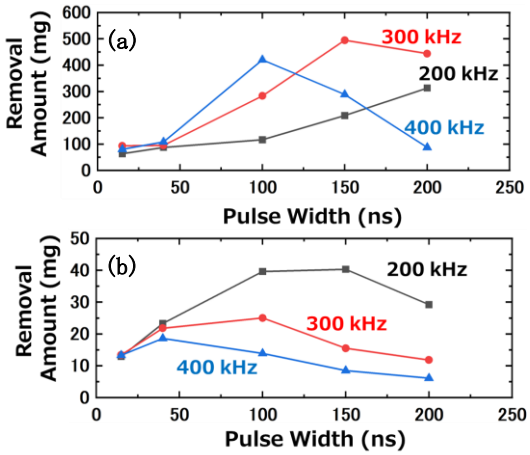


図 1　スキャン速度が(a) 200 および(b) 1000 mm/s の時の除去量とパルス時間幅の関係。いずれの結果も、レーザー出力は 17 W でスキャン回数は 5 回。

量を図 1 に示す。全般的な結果として、スキャン速度が遅い(200 mm/s)方が除去量は多いが、これは予想通りの結果である。面白いのは、パルスエネルギーが同一の場合、パルス時間幅が長いほどアブレーション強度は弱くなるので、パルス時間幅が長くなると除去量も単調減少するだろうと予想していたが、あるパルス時間幅の時に除去量は最大値を取るという実験結果となった。(200 kHz の時には最大値は現れないが、パルス時間幅が 200 ns よりさらに長いパルス幅の時に最大値を取ると推測できる。)これは、パルス時間幅が短いほどアブレーションは強いが、パルス照射時間中にターゲット内で熱拡散する時間が十分にないため、少ししか除去できない一方、パルス時間幅が長くなると、アブレーション自体は弱まるが、パルス照射時間中にターゲット内で熱拡散が起こり、溶融部分の体積が増加して吹き飛ばされやすくなるために除去量が増えると考えれば説明がつく。もちろん、パルス時間幅が長くなると、アブレーションはさらに弱くなって、除去量は減少する。つまり、アブレーションの強度と熱拡散の程度のバランスが取れたパルス時間幅で除去量の最大値が現れるという解釈である。この解釈は、パルス繰り返し数が 300 kHz から 200 kHz に減少（400 kHz に増加）すると、パルスエネルギーが増大するため、最大除去量を示すパルス時間幅が長く（短く）なるため、ピーク位置が右に（左に）シフトするという実験事実と整合する。次に、スキャン速度が 1000 mm/s の結果（図 1(b)）を見てみると、どのパルス繰り返し数でも、スキャン速度が 200 mm/s の結果よりもピーク位置がパルス時間幅が短い方向にシフトしていることが確認できる。これも、上に述べたような解釈と整合している。図 1 に関してもうひとつ面白いのは、スキャン速度が 200 mm/s から 1000 mm/s になって、単位長さあたりの投入レーザーエネルギーが 1/5 になった場合、除去量は単純に 1/5 になるのではなく、もっと減少しているということである。これは、スキャン速度が速くなると熱蓄積効果が小さくなって、除去量が大きく減少したことを示している[2)]。

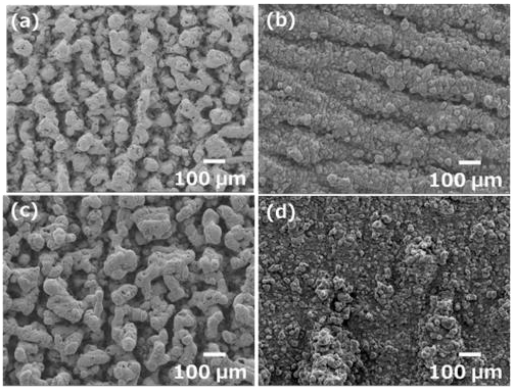


図 2　スキャン速度が 200 mm/s の時のレーザー照射後のターゲットの SEM 画像。パルス時間幅およびパルス繰り返し数は、(a) 15 ns と 200 kHz、(b) 200 ns と 200 kHz、(c) 15 ns と 300 kHz、(d) 200 ns と 300 kHz。

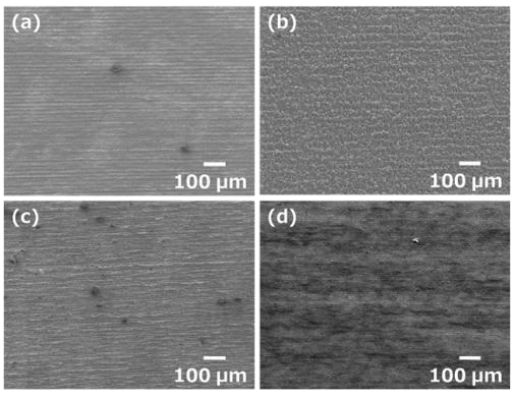


図 3　スキャン速度が 1000 mm/s の時のレーザー照射後のターゲットの SEM 画像。パルス時間幅およびパルス繰り返し数は、(a) 15 ns と 200 kHz、(b) 200 ns と 200 kHz、(c) 15 ns と 300 kHz、(d) 200 ns と 300 kHz。

レーザー照射後のターゲット表面の SEM 画像を図 2 および図 3 に示す。スキャン速度はそれぞれ 200、1000 mm/s である。スキャン速度が 200 mm/s の場合には、溶融と再凝固によって生成した大きな構造が見え、構造も深いのに対し、スキャン速度が 1000 mm/s の場合には、表面構造はかなりなだらかである。この違いからも、スキャン速度が 200 mm/s の場合には、熱蓄積効果の影響が大きいことが推察できる。

レーザー出力がもっと大きくなると、除去量はどうなるかを調べるため、最大出力が 100 W のレーザーを用いて同様の実験を行った。用いた試料はサイズが 30×50×5 mm^3 の SUS304 基板で、照射範囲は 20×30 mm^2 である。スキャン速度が 2000 mm/s の場合の結果を図 4(a)に示す。このレーザーは、ナノ秒パルスだけでなく、連続波(CW)も出せるので、CW レーザーの場合の結果も示してある。出力 17 W

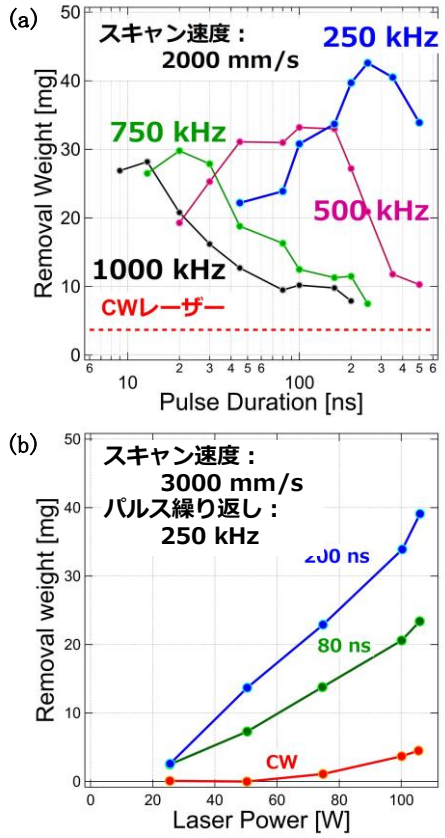


図 4　(a) 除去量のパルス幅依存性（レーザー出力 100 W、スキャン速度 2000 mm/s）と (b) レーザー出力依存性（スキャン速度 3000 mm/s でパルス繰り返し数 250 kHz）。(a)、(b) ともスキャン回数は 1 回。

のレーザー照射の場合（図 1）と同様、それぞれのパルス繰り返し数について、除去量を最大にするパルス時間幅が現れることが確認できる。パルス繰り返し数が大きくなると、ピークの位置がパルス時間幅の短い方（左）にシフトするというところも図 1 と同じ傾向であり、先に述べた解釈が正しいことを裏付けている。CW レーザー照射の結果を見ると、除去量はわずか 4 mg 程度であり、これはパルス繰り返し数が 250 kHz の場合の最大値 42 mg の 1/10 以下である。つまり、出力 100 W のナノ秒パルスレーザーは、同じ出力 100 W の CW レーザーより 10 倍以上も効率良く SUS 表面を削ることができることを示している。次に、スキャン速度が 3000 mm/s、パルス繰り返し数が 250 kHz の場合について、除去量のレーザー出力依存性を図 4(b) に示す。レーザー出力の増大とともに、除去量はほぼ線形からやや非線形に増大していることが分かるが、パルスの優位性は変わらない。つまり、最大出力 6 kW の CW レーザーで可能な除染は、ナノ秒パルスならその 1/10 程度、つまり、600 W 程度のナノ秒パルスレーザーでできるであろうと言える。単にレーザー除染効率だけでなく、レーザー本体や電源も含めた装置の取り回しという意味でも、ナノ秒パルスレーザーの優位性は明らかである。

レーザー照射時に発生する粉塵については、従来法では、粒径分析装置をターゲットの近傍に置いて、分析装置に入ってきた粉塵の粒径を分析する[3]か、粉塵を基板で採取して AFM または SEM で粒径分析する[4]というのが主流である。ターゲットからの粉塵の飛散距離は、粉塵粒径に強く依存するため、このような計測で得られた粉塵のデータは、現実の粒径分布を正確に反映していない可能性が高い。そこで我々は、粉塵粒子を「その場で」分析する方法として、レーザー散乱を応用することを考えた。レーザー散乱を用いた粉塵の速度を計測する実験配置を図 5 に示す[5]。除染に用いたレーザーは前述の最大出力 20 W の MOPA ファイバーレーザーで、これを出力 17 W、パルス繰り返し数 200 kHz、パルス時間幅 15、100、150、200 ns で用いた。プローブレーザーは CW レーザー（波長 532 nm、出力 1 W）で、これをビーム径 1 mm にコリメートして、ターゲットの真上 18.5、33.5、58.5、118.5 mm の高さを水平に通過させ、ターゲットから飛散した粉塵からのレーザー散乱光を斜め前方約 20 度の位置に設置した CMOS カメラで検出する。斜め前方散乱を検出することによって、側方散乱を検出するよりも散乱光強度が 30 倍程度向上することが図 6 から分かる。粉塵からのレーザー散乱光の結像には倍率 1x の対物レンズを用い、CMOS カメラのフレームレートは 400 fps、露光時間は 1 ms である。プローブ光の光路上に 5 kHz の光チョッパを入れているのは、粉塵には速度が速いものと遅いものがあり、速い粉塵は、カメラのフレームレートで追従できないので、1 コマの画像内に時間スケールを断

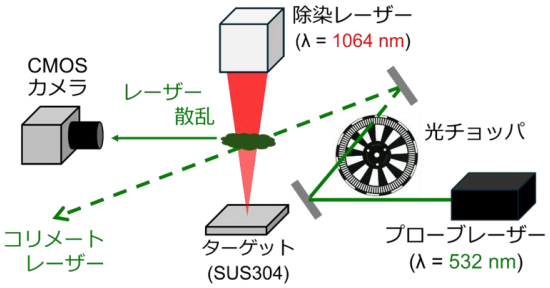


図 5　レーザー散乱を用いた粉塵の速度計測

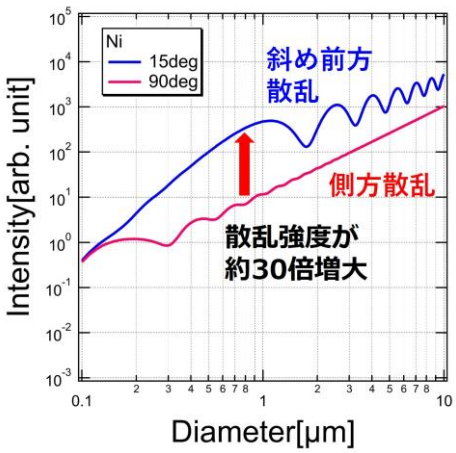


図 6　レーザー散乱強度の粒径依存性

続線として刻むためである。レーザー散乱の画像の例を図7(a)、(b)に示す。速い粉塵は、断続的な飛跡として写っている。光チョッパの周期は5 kHzなので、断続的な飛跡は100 μs毎の時間間隔になっている。対物レンズの倍率(1)、CMOSカメラのピクセルサイズ(6.9 μm)、画像中の飛跡の長さと光チョッパによって速い粉塵毎の断続線に刻まれた時間スケールから、速い粉塵の速度を見積もることができる。また、速い粉塵の速度と飛散方向の散布図を図7(c)、(d)に示す。飛散方向は、垂線からの角度として定義している。ターゲット近傍(18.5 mm)では、速度も飛散方向もバラつきが大きいことが分かる。遅い粉塵については、露光時間1 msだと飛跡にはならず、点として写っているが、個々の粉塵は空間分解できておらず、図7(a)、(b)ではクラウド状に見えている。遅い粉塵の速度評価については、個々の粉塵を空間分解できないので、クラウドの中の特徴的な構造に着目し、連続するフレーム間における特徴的な構造の位置変化から速度を評価した。また、同様の粉塵速度分布の解析は、パルス時間幅が100および150 nsの時に得られたレーザー散乱画像についても行った。粉塵速度とターゲットからの距離の関係のまとめを図8に示す。まず、遅い粉塵の速度については、図8中でピンク色の帯で示したように、ターゲットからの高さやパルス時間幅には依存せず一定である。これは、遅い粉塵は、非常に早い段階で緩和している、ということがわかる。一方、速い粉塵については、明確に高さ依存性があり、ターゲットから離れるにしたがって速度は大きく減少する。これは、ターゲットから飛散する間に極めて多くの空気分子と衝突して減速するからだと解釈できる。また、照射するパルス時間幅が長くなると、速い粉塵の速度は減少する。これは、パルスエネルギーが同じでも、パルス時間幅が長くなると、アブレーション強度が低下するからだと解釈できる。

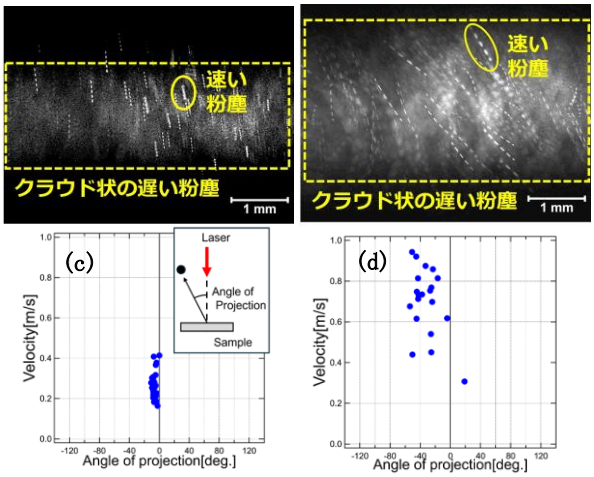


図7　レーザー散乱画像と速度の方向依存性の例。(a), (c) 高さ118.5 および(b), (d) 18.5 mm。パルス時間幅はいずれも15 ns。

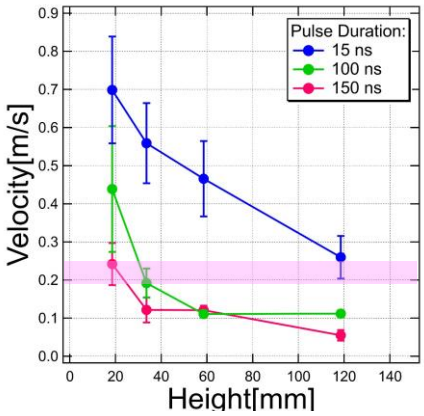


図8　粉塵速度とターゲットからの距離の関係

4．まとめと今後の展望

同一のパルスエネルギーおよびパルス繰り返し数でレーザー照射した場合、短パルスほど強いアブレーションが起こるので、パルス時間幅が長くなると除去量は単調減少すると予想していたが、実際には、パルス時間幅には最適値があることが分かった。これは、照射部の熱拡散が適度に起こるとターゲット除去量（～除染効率）が向上するということを示唆している。また、同一のパルスレーザーとCWレーザーを比較した場合には、パルスレーザーの方が10倍以上も除去効率が良いことも確認できた。粉塵については、レーザー散乱によって個別の粉塵速度を計測するシステムを開発し、大きく分けて速い粉塵と遅い粉塵の2種類あることもわかった。今後は、粉塵粒径のパルス幅依存性についても系統的に計測し、その結果を効率的な集塵に活かしたいと考えている。

謝　辞

本研究は、公益財団法人天田財団の一般研究開発助成による支援のもと実施されました。ここに深く感謝いたします。本報告はJAEA小菅淳博士、JASRI安東航太博士、本学大学院生の山本恵輔氏との共同研究の成果です。

参考文献

1) 東京電力ホールディングス株式会社，福島第一原子力発電所における新技術「レーザー除染」によるフランジタンク解体時のダスト飛散抑制対策について(2019年), https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/decommissioning/committee/osensuitaisakuteam/2019/07/3-1-3.pdf

2) K. Yamamoto, A. Kosuge, and T. Nakajima, Opt. Laser Technol. **203**, 115852 (2026).

3) I. Horn and D. Günther, Appl. Surf. Sci. **207**, 144 (2003).

4) H. Wu, N. Zhang, X. Zhu, Appl. Surf. Sci. **317**, 167 (2014).

5) A. Kosuge, K. Ando, K. Yamamoto, and T. Nakajima, Opt. Laser Technol. **201**, 115269 (2026).