特集 2

原子法レーザーウラン濃縮の現状

山中 龍彦*・山中千代衛*

(1986年 5 月29日 受理)

Current Status of Atomic Vapor Laser Isotope
Separation of Uranium

Tatsuhiko YAMANAKA* and Chiyoe YAMANAKA*

(Received May 29, 1986)

1. はじめに

レーザーウラン濃縮は1974年に米国のローレンス・リバモア国立研究所(LLNL)で濃縮実験に成功¹⁾して以来、米国で活発な研究が行なわれるようになった。米国における研究の中心は上記LLNLとロスアラモス国立研究所(LANL)である。前者は原子レーザー法(AVLIS; Atomic Vapor Laser Isotope Separation)を、後者は分子レーザー法(MLIS; Molecular Laser Isotope Separation)の研究に携わった。その後1982年に AVLIS, MLIS およびプラズマ法[†]の3方式の中から AVLIS が採択されるまでの約10年間にわたって両方式の研究が精力的に行なわれた。

LLNL, LANL での研究成果は、1980年までは所内報や年報に詳しく報告され、入手可能であったが、それ以後は外部に公表されなくなった。特に遠心分離法との選択のための評価が開

始された1984年以後は規制が一段と厳しくなり、レーザー自体に関する論文も出なくなった。

フランスでもレーザーウラン濃縮は早くから注目され地道な研究が続けられている。現在レーザー法を次世代ウラン濃縮法として決定し、年間200万フランの研究開発費を AVLIS に投下している。濃縮の方式やデーターベース収集等の R&D 研究を原子力3研究所(サクレ、グルノーブル、ピエールラト)で実施し、レーザー等のコンポーネントの製品化技術研究を民間会社のシラス(レーザー会社)やゼネラル・ド・エレクトリシテのグループで行なうパラレル方式が採られている。

一方、わが国では、諸外国とほぼ時を同じくして1973年に大阪大学で研究が開始され1977年に2段階電離法による²³⁵Uの濃縮が実験的に示された。また原子力研究所でも1976年より基礎研究が開始され、現在工学基礎試験研究の段階にある。1985年6月の米国での「AVLIS を次

* 大阪大学レーザー核融合研究センター(〒565 吹田市山田丘2-6)

* Institute of Laser Engineering, Osaka University (2-6, Yamada-oka, Suita, Osaka 565)

† レーザー法とは別に TWA で研究が進められた方式で、イオンサイクロトロン共鳴を利用して²³⁵U を分離する。この方式は元名大プラズマ研究所長 高山一男教授により提案された。

世代ウラン濃縮法とする」との決定を受け原子力委員会のウラン濃縮懇談会で我国のレーザーウラン濃縮の研究の進め方がまとめられ、米国、フランスと同様本格的に研究が行われることになった。

本稿では AVLIS の実用化に必要なデータベースの現状ならびに最も進んでいる米国の現状について、1985年の CLEO'85での J. I. Davis と E. I. Moses による招待講演^{2,3)}、LLNL資料^{4,5,6)} および阪大レーザー研加藤教授の見学報告⁷⁾ をもとに述べる。尚 AVLIS 用レーザーおよび我国での濃縮実験の現状については別に記されるので省略する。

2. 米国及びフランスで AVLIS が採択された背景

AVLIS が次期ウラン濃縮法として米国で採択決定されるまでに、AVLIS は 2 回の選択評価の洗礼を受けた。第 1 回目は 1982 年で、MLIS 及びプラズマ法に打ちかった。第 2 回目は 1985 年で、この時は既に大規模なテストプラントの建設が進められていた遠心分離法に打ちかったのである。

2 回の選択過程を通して AVLIS が選ばれたのは科学的な理由からではなく、経済的かつ技術的な理由によるものである。

1982 年に AVLIS が選ばれた理由は

- 1) MLIS では 1 回のプロセスで軽水炉用燃料として必要な 4 倍の濃縮比が得られなかったが、AVLIS では、3.2% 以上の濃縮が示されたこと、
 - 2) AVLIS 用レーザーは MLIS 用レーザーよりも技術的見通しが明確であり、コスト的にも有利であると評価されたこと、
- による。

昨年の遠心分離法との比較に於いては

- 1) AVLIS 実用化に必要な経費の方が、遠心分離法を実用化するのに今後必要な経費よりも低く、プラントの建設コスト（設備費）が安い、

- 2) 遠心分離法は、たとえ実用化しても、現在稼働しているガス拡散法に比べてコスト的に大きな差がない、と判断されたためである。

この他、表面的にはあまり強調されなかったが、レーザー法の開発を通して得られるレーザー技術、レーザーと物質との相互作用の物理、ウラン金属のプロセス技術は、レーザー工学や物質科学のブレークスルーとなる点を指摘しておく必要がある。

LLNLを中心に開発が進められている AVLIS は、ウラン原子蒸気を電子ビーム加熱により発生させ、レーザーとして銅蒸気レーザー (CVL) 励起の色素レーザーを用いる方法である。この方法により濃縮を行なった時のコストは \$25 / SWU と推算されている。この \$25 の内訳はレーザーが \$11、ウラン取扱に \$3 ~ 5、ウラン蒸気発生に \$9 ~ 11 とされている。この経費を他の濃縮方法と比較すると Table I のようになる。

12 MSWU/y の AVLIS プラントを 1986 年より 10 年かけて建設する場合の建設コストと運転コストの見積りを Table II に示す。価格は 1986 年をベースとしている。この計画では Fig. 1 に示すように 1991 年より第 1 期で建設した 5 MSWU / y プラントの商業運転に入り、1992 年末にフル稼働に入る。またグレードアップのための第 2 期工事の技術開発を 1990 年より実施し、1995 年に 12 MSWU/y に増強し、1996 年よりフル生産に入るとしている。

この案によると運転費は 1986 年度ベースで \$14 / SWU となる。これに設備に投下された資本にかかる経費を付加すれば生産コストとなる。

米国では現在つぎの 3 つの目標をかかげ開発が進められている。

- 1) 1987 年に生産装置と同一規模の AVLIS プロセス装置 SISL (Special Isotope Separation Laboratory, 実証装置) を LLNL に完成させる。
- 2) ロックウエル・インタナショナルとの共同

Table I Comparison of enrichment costs of uranium(Ref.5).

	設 備 費	運 転 費	消 費 電 力
レーザー法 (AVLIS)	\$ 100—150 / SWU / y	小	~100 kWh / SWU (\$ 3—5 / SWU)
遠心分離法	\$ 400—500 / SWU / y	小	~100 kWh / SWU (\$ 3—5 / SWU)
ガス拡散法	\$ 300—500 / SWU / y	大	2400 kWh / SWU (\$ 40—80 / SWU)

Table II Capital and operational costs of 12 MSWU/y plant in M\$ based on 1986 (Ref. 5).

建設コスト	
建屋	158
設備	
レーザーシステム	237
ウラン分離システム	171
プラント制御	140
ウラン取り扱い施設	137
プラント維持施設	9
プロジェクト調整	140
臨時費	233
トレーニング, 始動費	45
建設期間中のインフレーション	285
全建設コスト	1,555
運転コスト	
濃縮施設	
人件費	24
原料, サービス	19
電力	59
その他	2
ウラン取り扱い施設	
人件費	20
原料, サービス	27
電力	4
その他	2
プラント維持施設	9
運営費	19
全運転コスト	185

でプルトニウム精製用の AVLIS 施設をワシントン州ハンフォードに建設する。

- 3) マーチン・マリエッタとの共同設計を実施し、1990年代の早い時期に \$40 / SWU 以下で濃縮ウランを供給する生産プラントを建設する。

3. AVLIS データベースの現状

AVLIS を実用化するには経済性に優れたレーザーおよびウラン蒸気発生・回収装置を開発すると共にレーザー光の利用効率、ヘッド分離係数およびテイル分離係数と直接関係するウラン原子の分光学的データや、 ^{238}U と $^{235}\text{U}^+$ との衝突による電荷交換反応の断面積等の衝突過程に関するデータベースの確立が重要である。このため両者に関する研究を並行して進める必要がある。

ウラン蒸気ビーム発生は電子ビーム加熱装置により行なう方法が現在研究されている。この方法により ^{235}U を 1 原子発生するのに必要なエネルギーを Fig. 2 に示す⁸⁾。このエネルギーは加熱ウラン金属よりの放射損失によるが、遠心分離法で ^{235}U を 1 原子分離するのに必要なエネルギーを下まわるにはオープン温度を 2400 K 以上にする必要がある。この値は基底状態のウランのみを使用するか、または 620 cm^{-1} の準安定状態にある原子をも利用するかにより所要エネルギーは変る。さらに、この原子ビームにレーザーを入射し ^{235}U を電離する時のレーザーの光子利用率は励起や電離に使用するエネルギー準位の吸収断面積及びレーザー光強度に依存する。2 段階電離法で ^{235}U 1 原子を分離するのに必要なエネルギーと電離用レーザー強度の関係を電離断面積をパラメーターにして評価した結果を Fig. 3 に示す⁸⁾。この計算でのオープン温度は 2800 K であるが、温度が下がると Fig. 2 より判るように所要エネルギーは増加する。

Fig. 3 の評価は 2 段階法に対して AVLIS 研

Fig. 1 Schedule of 12 MSWU/y reference plant at LLNL (Ref. 5).

Fig. 2 Radiative energy loss from uranium heated by electron beam. The oven is covered by radiation shield with vapor exit slit. (Ref. 8).

Fig. 3 Oven and laser energy loss at oven temperature of 2800 K. The major assumptions made for calculations were (1) a 0.1% efficiency for all lasers used, (2) an increase by a factor of 10 in ionization-laser intensity as a results of optics in the vapor chamber, and an excitation intensity of 100 W/cm². W_{23} is ionization cross-section (Ref. 8).

究の初期になされたもので、それほど精度の高いものでないが、AVLISの実用化に対してどのような基礎データを収集し、何を研究開発しなければならないかを知る上で価値の高い研究である。すなわち、 ^{235}U の分離に必要なエネルギーは励起や電離の断面積、基底状態の原子のみを利用するのか、熱的に励起された準安定状態の原子をも利用するのかにより変ることを示している。ヘッドおよびテイル分離係数を上げるためにレーザー強度を高くすると励起や電離の飽和が起り、光子の利用効率が低下するばかりでなく、レーザー光の電界によるACシュタルク効果により選択性が悪くなる。特に現在米国を中心に進められている銅蒸気レーザー励起の色素レーザーによる3段階法では系がさらに複雑になるため、ウラン原子の分光学的データやレーザー光との相互作用データの収集が不可欠であることが判る。

ウラン原子のエネルギー準位に関しては以下の測定例がある。C.H. Corliss⁹⁾は銅のアーク放電により観測した549本の線スペクトルの相対強度より遷移確率及び振動子強度を計算すると共に、65の準位に関して寿命の上限値を評価している。J. Blaise ら¹⁰⁾はウランのホローカソードランプ等を用いUI, U IIの92000本の線スペクトルを測定している。またE. Miron ら^{11,12)}やA. Coste ら¹³⁾は色素レーザーによる励起法により、高いエネルギー準位までの準位測定を行っている。C.H. Corliss¹⁴⁾やT.M. Bieniewski¹⁵⁾はそれぞれUI, UIIの振動子強度の測定を、またL. R. Carlson ら¹⁶⁾は ^{238}U の放射寿命及び吸収係数の測定を、L. A. Hackel ら¹⁷⁾は寿命や分岐比および ^{238}U Iの波長6395.42 Åでの遷移確率の測定を行っている。A. Coste ら¹³⁾やR. W. Solarz ら¹⁸⁾はリドベルグ準位や自動電離準位の測定を行なっている。さらに ^{235}U の超微細構造の測定はH. D. V. Böhm ら¹⁹⁾により行なわれている。このように多くのデータベースの報告があるが、これらのデータは主に ^{238}U に関するもので、濃縮を行なう際の最適励起電離準位の決定には十分なものでないため独自のデータ

収集が必要である。

レーザー光とウラン原子の相互作用に関してはACシュタルク効果によるレベルブロードニング、電子ビーム加熱装置の磁界によるゼーマン効果の影響をはじめ、多段階電離過程の電離確率とラビ周波数との関係やビーム伝播時のセルフフォーカスやブレイクアップの問題に関する基礎的な解析がLLNLの年報⁸⁾に報告されている。

さらに分離装置内での残留ガスと励起ウランとの衝突による脱励起の断面積の決定に関する研究の一部がH. L. Chen ら²⁰⁾やR. C. Stern ら²¹⁾により報告されている。また、電離 $^{235}\text{U}^+$ イオンを引きだす際に発生する電子とウラン原子の衝突電離の断面積の測定データや理論計算の結果がJ. C. Halle²²⁾らやA. U. Hazi²³⁾により報告されている。このようなデータはヘッド分離係数を決定するのに重要な基礎データで、今後さらにデータの集積が必要な分野である。

4. 米国の AVLIS 実証装置の現状

AVLIS生産プラントの1モジュールに相当する実証装置 (Full-Scale Demonstration Facility on SISL, 1985~1987) の建設が現在進められている。この装置はTable IIIに示すような構成になっている。

Table III Demonstration system of AVLIS plant at LLNL.

銅蒸気レーザー	発振器・パルスストレッチャー・増幅器3台構成。ビーム径70mm, 出力150 W/ 5 kHz. 60ビームシステム。
色素レーザー	発振器・増幅器2台構成(バックアップ発振器付)。 色素: ローダミン. 溶媒: エタノール. 4ビームシステム。
分離チャンバー	直径16 f 長さ80 f, 光学部品設置部, バルブ部, セパレーター部よりなる。電子ビーム加熱; 長さ2 mのガン3台. 6台の油拡散ポンプ, 2台のクライオポンプ付。

(a)

(b)

Fig. 4 Layout of laser demonstration facility(a), CVL laser installed(b), and dye laser installed(c) (Ref. 6).

銅蒸気レーザー、色素レーザー、セパレーター等はコンポーネントとしてそれぞれ開発され、実証実験が行なわれるレーザー・セパレーター実証棟に設置される。この装置は1985年5月現在で、銅蒸気レーザー6列、ウラン蒸気発生用電子ビーム装置1台がセットされている。完成時の分離能力は1 MSWU/yである。

Fig. 4に60列の CVLと4列の色素レーザーよりなるレーザー実証装置の構成図(a)、CVL(b)および色素レーザー(c)の様子を示す。

Fig. 5 Separator of separation demonstration facility. Process ability 300 ton, 16 f in diameter, 80 f long (Ref. 6).

Fig.6 Physical model of laser and uranium vapor interaction (Ref. 3).

システムコスト ← エンジニアリング ← 物理, プロセス計画 → パフォーマンス

Fig. 7 Process morphology/structure of integrated process model (Ref. 3).

CVLはサイラトロンスイッチの取り換え等を行なう必要があるので、モジュール化されている。現在スイッチに使用されている水素サイラトロンの寿命は約 1,000 時間であるが、これを固体素子化して 5,000 時間に迄延ばす努力が続けられている。

Fig. 5 にセパレーター実証装置の写真を示す。この装置は300 ton/y の処理能力がある。レーザーは、このセパレーターチャンバー内を多数回往復してウラン蒸気と相互作用する。写真の手前の円筒形の部分に光学系がセットされている。

5. 実証装置の設計指針

4 節で述べた AVLIS 実証装置（ハードウェア）は次のような方針で設計されている。

CVL に関しては次の 5 点を上げることが出来る。

- 1) 発振器をパッケージ化し、色素レーザーの発振器と、CVL 増幅器列に良質のレーザー光を供給する。
- 2) 色素レーザーに高出力のポンプ光を送るのに増幅器列を構成する。
- 3) 発振光のパルス幅を、増幅器の増幅特性にマッチさせるためにヘリオットセルにより長くする。
- 4) 発振器、増幅器パッケージは保守が容易に安全に行なえ、簡単に取換えられるようにする。
- 5) 建物の空間利用率を高くするために積上げ方式とする。

色素レーザーに関しては

- 1) 発振波長の安定化ならびに可変機構を持った発振器を設置し、増幅器に 1 W 程度の低出力光を送る。発振器は精度よく波長を変えることが出来かつ、ビーム伝播特性を良くするために位相歪のない光を発振させる。
- 2) 増幅器では発振器よりの光を効率よくプロセスパワー ($-W$)[†] まで増幅する。また増幅

に際してはスペクトル及びレーザー波形や伝播特性が変わらないようにする。

- 3) レーザービームの位置を正しく保つためにレーザー光計測パッケージを備える。

さらにレーザーの制御システムは、制御機能を分散させ、事故、故障によるリスクを最小限にするよう配慮されている。重要な制御フローは中央で制御する方式を採用し、

- 1) 分散設置した端末にはマイクロコンピュータを付加し、色素レーザー波長の制御、CVL 発振器及び増幅器の制御、レーザー光のポインティング及びセンタリングをそれぞれ分担させる。

- 2) コンパクトで高度の機能を持ったカラーグラフィックで中央制御する。

以上がハードウェアの具体的設計に際して採られた基本的指針であるが、個々のハードウェアに要求される性能はレーザーとウラン原子ビームとの相互作用の物理や工学的課題と経済性の関連より決定される。これに用いられた物理モデル及びエンジニアリングモデルを Fig. 6 及び 7 に示す。

レーザー光とウラン原子との相互作用に関しては

- 1) Maxwell の方程式を用いてウラン蒸気中のビーム伝播を解析すると共に
- 2) Schrödinger 方程式により光と原子との相互作用を解析し、光電離の確率を決定し、プラント設計に反映させる。
- 3) また解析にあたっては測定すべきデータベースを整えると共に設計者が決定すべき事項を明確にしている。

これと同様にプラズマ及び励起に関する物理やウラン蒸気の物理に関して必要なデータベースを集積し、それらのデータベースを基にハードウェアを設計、構築するためにキーとなるエンジニアリングを整理し、それらの技術的課題との関係でコスト評価を行なっている。

[†] クラシファイで公表されていない。

5. むすび

現在、米国、フランスでは過去10数年間の研究成果をベースに AVLIS を次期ウラン濃縮法として実用化すべく大規模な研究が進められている。我国においても米仏に右へならえて本格的研究が開始されつつある。

この我国での AVLIS 研究の推進決定の過程を見てみると、外国で開発され、集積された技術データーを輸入して実用化して来た従来のパターンと同じ経過をたどっている。

AVLIS は MLIS に比べてレーザー自体に関しては開発、改良点が明確であるため、従来と同様の手法で対処出来る部分があるが、それはほんの一部である。我国の AVLIS に関する知見や技術水準を現在の米国のレベルに迄引上げるには、直接エンジニアリングのみに走るのではなく、基礎データーを積み上げてゆくべきである。我々もフランス人のように他人のことをあまり気にせず、新しい目で、使用するレーザーやウラン蒸気発生法を見直すと共にデーターベースを蓄積しながら開発を進めるべきであろう。

参 考 文 献

- 1) S.A.Tuccio, J.W.Dubin, O.G.Peterson and B.B. Snively: IEEE J. Quantum Electron. **QE-10** (1974) 790.

- 2) J.I.Davis: CLEO '85, WC5, Baltimore USA (1985).
- 3) E.I.Moses: CLEO '85, ThJ2, Baltimore USA (1985).
- 4) Laser Applications in Isotope Sepalation: LLNL-TB-067.
- 5) Business Development Opportunities in Laser Applications in Isotope Separation: LLNL-TB-068.
- 6) Atomic Vapor Laser Isotope Separation (AVLIS): LLNL brieflet undated.
- 7) 加藤: 私信
- 8) Laser Program Annual Report LLL (1974)~(1980).
- 9) C.H.Corliss⁸⁾: J. Research, NBS, A. Physics and Chemistry **80A** No. 1 (1976) 1.
- 10) J.Blaise et al.: J. Opt. Soc. Am. **66** (1976) 644.
- 11) E.Miron et al.: Opt. Commun. **18** (1976) 536.
- 12) E.Miron et al.: J. Opt. Soc. Am. **69** (1979) 256.
- 13) A.Coste et al.: J. Opt. Soc. Am. **72** (1982) 103.
- 14) C.H.Corliss: J. Research, NBS, A. Physics and Chemistry **80A** No. 3 (1976) 429.
- 15) T.M.Bieniewski: J. Opt. Soc. Am. **B1** (1984) 300.
- 16) L.R.Carlson et al.: J. Opt. Soc. Am. **66** (1976) 846.
- 17) L.A.Hacket et al.: J. Opt. Soc. Am. **68** (1978) 1084.
- 18) R.W.Solarz et al.: Phys. Rev. **A14** (1976) 1129.
- 19) H.D.V.Böhm et al.: Opt. Commun. **26** (1978) 177.
- 20) H.L.Chen et al.: J. Chem. Phys. **72** (1980) 853, 858.
- 21) R.C.Stern et al.: J. Chem. Phys. **70** (1979) 1802.
- 22) J.C.Halle et al.: Phys. Rev. **A23** (1981) 1708.
- 23) A.U.Hazi: Phys. Rev. **A23** (1981) 2232.