特集 9

日本原子力研究所におけるレーザー同位体分離研究

有 沢 孝*・柴 是行*

(1986年5月13日 受理)

Laser Isotope Separation Studies in JAERI

Takashi ARISAWA* and Koreyuki SHIBA*

(Received May 13, 1986)

1. レーザー同位体分離研究の推移

1.1 研究の推移

日本原子力研究所同位体分離研究室においては、同位体分離特にウラン濃縮に関して、ガス拡散によるウラン濃縮法、化学交換法による同位体分離、気体力学的方法による同位体分離などの一連の同位体分離手法の一環として、1976年より原子力レーザー濃縮の研究を行っている。

まず1976年には同位体シフトや超微細構造を測定し、ウラン同位体を選択的に励起できる事を実証するための選択励起実験装置を製作し、1977年には特定のレベル間の遷移についての選択励起の結果を得た。また同年、選択励起された同位体原子を電離するためのいわゆる2段階光電離実験装置を製作し、1978年には連続体を利用した2段階光電離による質量分析計規模のイオン分離・回収に成功した。同年には、光電離された同位体イオンの回収過程についての研究を行うため回収実験装置を製作し、電場・磁場中における回収特性についての研究に着手すると同時に、将来スケールアップが有望である銅蒸気レ

ーザーを購入し、これによる色素レーザーポンピング特性などの測定も開始した。1979年には自動電離を含む4つのレベルを利用する3段階光電離法等を評価するためのレーザー装置の整備、および高い密度での蒸発を可能とする蒸発実験装置を製作した。一連の装置製作はこの年をもって完了したが、これらの装置を用いて1980年から1982年にかけて2段階光電離以外の2光子、3光子、3段階などの光電離スキームを実証し、こうしたデータにもとづいて評価を行った。1982年には蒸発部分からの熱損失を出来るだけ少なくすることにより、高密度のウランを蒸発させることが可能となり、化学分析量いわゆるマクロ量を回収できる数種のレベルの組み合わせを確定し、1983年には幾つかの回収条件下において回収を行った。その結果約100 μg の低濃縮ウランの回収に成功した。

これと並行して1982年からは小規模ながら銅蒸気レーザー (CVL) の開発に着手し、1983年には10 WクラスのCVL試作に成功した。同時にCVLでポンプされる非常に狭帯域な色素レーザー (DL) の試作にも成功した。

* 日本原子力研究所東海研究所 (〒319-11 茨城県那珂郡東海村白方白根 2-4)

* Japan Atomic Energy Research Institute (2-1, Tokaimura, Naka-gun Ibaragi 319-11)

このようにマクロ量を回収しうる概略技術を獲得したこと、およびプラント用としてスケールアップ可能であるCVLおよびCVLポンプのDLの開発に成功したことにより、1984年度から6年計画で小出力ながらCVLやDLを多数結合したレーザーシステムと大量蒸発を開発するためのチェンバーシステムとを製作し、これを結合運転することにより濃縮ウランの生産を行いうる工学試験装置の製作に着手した。この計画の中では、幾つかのコンポーネントの開発も行われるが、こうした機器開発の他にも分離プロセス科学の研究にも鋭意努力が払われる。機器開発、分離プロセス科学以外にもプラントシステムの研究が実施されているが、この中では経済性の研究と並んで保障措置上の研究も重要であり、平和利用のための検討も行われる。

上述したものはいわゆる多段階光電離法によるウラン濃縮の研究であるが、当研究室においては将来ウラン以外の同位体生産も、特に原子力分野において重要課題となることを想定して、種々の同位体元素および種々の分離法に関する研究を進めている。ウラン同位体分離に適用したのと同じ手法、すなわち2段階光電離法を用いることによって、1979年にはLi同位体分離を、また1980年にはTi同位体分離を実証した。さらに1981年には選択的に励起した原子と

他の分子とを反応させることにより、設備投資費が大きくなると予想される電離用レーザー光を用いずに同位体製品を得る方法についての実証をLiを用いて行った。

原子を作業物質とするものばかりでなく、分子を用いるいわゆる分子法についても研究を行なった。1980年には、ジクロロフルオロメタンを用いて多光子解離による重水素の分離を行い、その後分離パラメータの最適化を進める一方、1982年には光子利用効率を上昇させる一手段として赤外多光子励起と紫外光解離を組み合わせた2波長解離法を実証した。この他にも通常の分離法をレーザーにより支援する手法として1977年にはレーザー熱拡散法によるSの同位体分離を、1981年にはレーザー支援ノズル分離法によるDの同位体分離を実証した。

Table I に今までに試みた同位体分離をその手法に基づいてまとめた。

1.2 研究規模の推移

1976年に同位体分離研究のグループ(4名)においてレーザー濃縮の基礎実験が開始され、1984年までこの研究体制がほぼ維持された。予算規模としては、1976年から1979年まで毎年装置費として約5000万円が投入された。1984年度に工学試験が開始され、初年度レーザー試作費

Table I Separation factors obtained for several methods of isotope separation.

Methods	Elements	Working Materials	Typical Separation Factor (Under the restricted experimental condition)
2-Step Photoionization	Uranium	Metal Vapor	40
	Titanium	Metal Vapor	30
	Lithium	Metal Vapor	60
2-Photon Photoionization	Uranium	Metal Vapor	30
3-Step Photoionization	Uranium	Metal Vapor	70
3-Photon Photoionization	Uranium	Metal Vapor	25
Laser Induced Chemical Reaction	Lithium	Metal Vapor/ Halocarbon	6
Multiple Photo-dissociation	Hydrogen	Halocarbon	20
Multiple Photo-excitation and UV dissociation	Hydrogen	Halocarbon	over 200
Laser Induced Thermal Diffusion	Sulfur	Sulfur Hexafluoride	2
Laser Induced Nozzle Separation	Hydrogen	Halocarbon	1.1

用として4000万円程度が、1985年度には3億円程度が投入されている。研究人員は1985年度には約15名となっている。

1.3 使用装置概要

1.3.1 原子多光子電離法

原子多光子電離法の実験においては、2段階法、3段階法を含めた実験および遷移確率等を求めるための実験に高密度蒸発装置とエキシマーレーザーシステム/色素レーザーシステムとの組み合わせを、また同位体シフトや超微細構造等に関するデータを求めるために低密度蒸発装置とYAGレーザーシステム/色素レーザーシステム/リング色素レーザーとの組み合わせを用いている。測定装置には波長・時間分解可能なシステムを用いた蛍光測定装置、QマスやTOFによるイオン計測等を中心とした超精密波長測定装置やその他の光学測定装置が用いられる。またウラン耐食性材料等の研究にはX線マイクロアナライザー等が用いられる。

1.3.2 励起原子選択反応法

YAGポンプ色素レーザーを光源として用い、レーザー光と原子ビームおよび反応分子ビームが直交する真空チェンバーを用いる。反応生成物の測定のために反応面を移動する質量分析プローブが用いられ、また他分子と混合され一定温度に加熱された分子ビーム速度を求めるためにTOFおよびそれに伴う計測装置が設けられている。

1.3.3 分子多光子解離法

高出力のTEAレーザーを光源として用い、光学系により集光して種々の光反応器に入射する。照射中の物質の変化の測定のために赤外分光器を用い、最終的な分解生成物の確定用にクロマトグラフおよび質量分析計を用いる。

1.3.4 レーザー支援分離法

レーザー熱拡散法では光源として単一波長発振の炭酸ガスレーザーを、また分離装置として外筒を冷却した二重円筒管を用いる。レーザー支援ノズル分離法ではレーザー熱拡散法と同様のレーザーを光源とし、希薄同位体混合気体を高

速でノズルより噴出できる装置を分離器として用いる。分離物質のサンプリング分析のためにピトー管形式のプロブが用いられる。

2. 分離研究結果

各分離スキーム別に分離に関する結果の概略を幾つかのトピックスを拾って以下に紹介する。

2.1 原子多光子電離法

この方法はいわゆるレーザーウラン濃縮の場合の原子法として知られている方法である。原子法によるレーザー同位体分離は、原子にレーザー光を照射することによって特定同位体の電子エネルギーレベルを選択的に励起し、これを適当な手段によって回収するものである。このとき用いられるレーザーはもちろん波長が可変であり、同位体によるエネルギーの差すなわち同位体シフトを分別しうる程度の狭いライン幅を有し、高繰り返し数を有する他、出力が高く、またその波長・出力安定性に優れたものでなくてはならない。

原子法の特徴は、1) 注目する同位体のスペクトル選択性が極めて高い、2) 2段ないし3段の共鳴多段光電離を利用できるため光電離効率が極めて高い、といえるが、一方原子を処理対象としていることから、ウランのように高温で蒸発させねばならない金属においては、熱損失が重要となる。また高い腐食性を有するために、ルツボ材料などに問題が生じることはマイナス要因として考慮しておかなければならない。こうしたマイナス要因を分離性能が極めて良好であるという特徴により帳消しすることによって、エネルギー効率は少なくとも遠心分離法と同等となる。一方、プラントが非常にコンパクトとなることから設備投資費は極めて小さくなり、コストダウン効果が期待される。このような観点から原子法の素過程に関して得られた結果の概要について述べてみる。

2.1.1 蒸発

ウラン原子を蒸発させる場合には3000 K程度の高温が必要となるが、この温度においては

液体ウランは非常に活性であり凡ゆるものを溶解してしまう。そこでルツボ材料の温度を上昇させることなくウランを高温の液体にし蒸発させるために、電子銃加熱が用いられる。この方法では、電子ビームによってウラン金属表面を局部的に加熱しながらルツボとウランとの接触面温度を冷却により出来るだけ低く抑えることができるので、ウラン保持材料との両立性のよい温度領域を選定して用いることが可能である。但しルツボを冷却しすぎると熱損失は膨大なものとなるので、出来るだけ良好な材料を選定して熱損失防止を図ることが重要となる。

このような高温領域において蒸発するウラン蒸気は、蒸発後直ちに原子ビームとなるわけではなく粘性流領域において真空中に向かって亜音速域から超音速域へと加速され、次第に原子ビームが形成されるわけである。この過程は単純ではなく、種々のプロセスを伴うが、その中でも重要なもののひとつはウラン原子の準安定状態密度である。ウラン原子の準安定状態には最も低い 620 cm^{-1} を含む多くの準安定状態が存在する。この最低準安定状態エネルギーは温度的には $1000\text{ }^{\circ}\text{C}$ 以下に相当するため、ウラン金属を $2000\text{ }^{\circ}\text{C}$ 以上に加熱した場合には、原子間

Fig.1 Typical example of measured population in a lower metastable state (Ref.1).

衝突による熱的励起や電子との衝突による電子励起で準安定状態原子が生成される。このため基底状態のみをレーザー照射ターゲットにした場合には、全てを照射することが出来ずに損失が発生することになる。そこでこうした準位の占有密度を明確に求めることが重要となる。Fig.1は電子銃エミッション電流を変化させた場合の電子銃出力と準安定状態との関係を示したものである¹⁾。電子励起は電子ビームフラックスの大きさ、加速電圧、2次電子や熱電子と蒸発ウラン原子との相互作用の程度などにより大きな影響を受ける。

2.1.2 エネルギーレベル

ウランは92個の電子を有しており、基底状態は $5f^3 6d 7s^2$ の配位を有する。考慮しなくてはならない核外電子数は6個にもおよぶので、これらの軌道量子数の多い電子からは多くのレベルが派生する。こうしたレベルのうち 30000 cm^{-1} 以下のエネルギーのものについてはホローカソードランプ等を用いて広範な測定が実施されており、かなりのものについてはJ値も決定されている。また 20000 cm^{-1} 以下のレベルについては正確なTermや同位体シフトも求められている。後に述べるように、3段階光電離においては特に 30000 cm^{-1} 以上のレベルおよびそれに付随するJ値やTermの決定が必要となるが、これには従来のホローカソードランプでの測定は困難である。これらレベル間の遷移については、レベルの数から予想されるようにその組み合わせ遷移数は極めて多い。このため全ての遷移確率を求めることは非常に困難である。こうしたレベル全てについての詳細なデータを求めることは、レーザー濃縮をより詳細に設計しコストダウンを計る上で重要である。我々は高準位のJ値の決定を多段光励起法により実施した。U中性原子について $30000\sim 35000\text{ cm}^{-1}$ の奇準位数百本、 50000 cm^{-1} 近辺の偶準位数10本について測定を実施し、多数本のレベルについてのJ値の確定を行った。また寿命は、Fig.2に示すように光電離レーザービームを励起光から少しずつ遅延させることにより測定を行った²⁾。ウ

Fig. 2 Typical example of measured lifetime of an excited state (Ref. 2).

ラン原子の寿命は通常数10 ns であるが、100 ns 以上のものもある。こうした高いエネルギーレベルはエネルギー値が高くなるほど密になる。ウラン原子の電気双極子励起による遷移については、ウランが多電子系であり、核との相互作用よりもスピン-軌道間あるいはスピンスピン相互作用が強く、さらには相対論的效果も考慮しなくてはならないため、軽い原子において通常見られる遷移以外のものについても考慮する必要がある。

さて ^{238}U と ^{235}U とを分別して照射する場合

Fig. 3 Typical example of a measured hyperfine structure (HFS) and isotope shift for a transition between an excited state and a ground state. (Thin line: Fluorescence spectrum with 15 MHz linewidth laser, thick line: Photoionization spectrum with 650 MHz linewidth laser. Spectrum width of HFS is about 6 GHz) (Ref. 3).

に必要な同位体シフトや、 ^{235}U のみが有する超微細構造を考慮してレーザー光を精度良くかつ効率良く照射するためには、こうした詳細なスペクトルを明確にすることが必要となる。Fig. 3には約90%の濃縮ウランを用いて超微細構造を強調して観測した結果の一例を示す³⁾。これより超微細構造定数を定めることができる。ウランの場合同位体シフトは、核の質量の違いに基づく質量効果よりは核構造の違いがもたらす電子の分布に与える影響の違いに基づく体積効果の方が大きく、これら2つを合わせてほぼ3~6 GHzとなる。こうしたエネルギーシフトにおいては、一般的に ^{235}U のエネルギーの方が高くなっている。 ^{235}U の核スピン ($I=7/2$) に基づく超微細構造は通常20~30本程度のピークを有し、その広がり同位体シフトと同程度である。

2.1.3 光電離

多光子励起により電離エネルギー以上に励起された原子は連続体にイオン化されるが、電離の効率を増大させるには自動電離レベルもしくは自動電離高リドベルグ状態への励起を利用する必要がある。Fig. 4に示すように自動電離レベルは連続項スペクトルおよび通常の束縛状態間の遷移に基づくスペクトル等と重なり合っており、その中で不連続状態からの無放射遷移の形でピークが観測される⁴⁾。実験では $f^3 d s p$, $f^3 d s f$, $f^3 s^2 p$ あるいは $f^3 f^2 f$ などの電子配位に基づく自動電離レベルの測定を行った。これらの自動電離ピークの高さはその系列に従って変化する。高リドベルグ状態からの電離については $f^3 7s^2 n p$ や $f^3 7s^2 n f$ のエネルギーレベルのものについて遅延パルス電界を用いて測定を行った。このような測定から電離電圧として6.193 eVを得た。電離電圧近辺においては、これら電離スペクトルは電場や磁場の強さに極めて敏感である。

2.1.4 選択性

選択性および収量を決定する操作量はレーザー波長、ライン幅、光強度、それに原子密度である。用いるライン幅は前述したように同位体

Fig.4 Typical example of measured autoionization spectrum (Ref.4).

Fig.5 The influence of exciter linewidth on the selectivity for the light isotope (Ref.5). Isotopic abundance ratio of the sample is natural; exciter linewidth are 1.7($\circ$), 3($\triangle$) and 10.1($\square$) GHz; broken curve denotes calculation.

Fig.6 Relationship between laser intensity and spectrum broadening (Ref.6). Dependence of selectivity (triangle) and line width (open circle) of ion peak on the exciter power density. Solid line is taken from the calculated spectra.

シフト, スペクトル自然幅, 超微細構造ばかりではなく, ドップラー広がりやレーザー場自体によるシュタルク広がりあるいは外部の場の影響によって大きく変化する。ライン幅の濃縮度に与える影響をFig. 5に示す⁵⁾。そこではドップラーフリーとなっており, 自然幅は数10 MHzである。実用プラント規模のものでは1 GHz程度のドップラー広がりを有するので, 超微細構造はほぼその広がり幅でブロードに広がることになる。一方, 光強度が強くなると遷移確率に応じてレーザー光によるシュタルク効果が顕著となる。多段階光電離においては各レベルの占有率はデチューニングばかりでなく原子と光との相互作用の目安であるラビ周波数によって影響を受ける。この量が同位体シフトよりも増大すると, いわゆるパワーブロードニング現象により濃縮の損失が発生する訳である。こうしたブロードニング現象により非共鳴遷移が発生する。この様子をFig. 6に示す⁶⁾。従って濃縮損失を防止し, かつ収量の増大を計るためには各遷移確率に応じた適性波長及び強度が存在する。

なおウランと異なり多数の同位体を含む元素

例えばTiの場合, 濃縮度はFig. 7に示すように同位体シフトの大きさばかりではなく, 超微細構造に基づく元素スペクトル幅にも依存することがわかる。

2.1.5 光電離スキーム

以上記述したように, 光反応に関するデータを整備するにはある程度の時間を要するが, これを実施することにより安価に濃縮ウランを生産する道が開けることとなる。逆に言えば, こうしたデータを整備評価し設計データとして役立てることによって, 本システムの非常に精度の高い設計が可能となることを意味している。さて, まずレーザー濃縮を考える場合, 例えばポンプレーザーとして銅蒸気レーザー(CVL)を用いるのか, あるいはエキシマーレーザーを用いるかによって, そのプロセスには種々の制約が生まれる。ウラン原子は波長にして約200 nm近辺において電離するので, この波長近辺において発振波長幅が狭く波長可変なレーザー, 例えばArFレーザーをラマンシフトさせたものを用いることができれば, 1段階で光電離させることも可能である。XeClレーザーでポンプさせたダイレーザーでは

Fig. 7 Selective photoionization of Titanium. Ion current of the titanium isotopes as a function of dye laser frequency.

$$1/\lambda_1 + 1/\lambda_2 = 1/200 \text{ nm}$$

$$(350 < \lambda_1, \lambda_2 < 420 \text{ nm}) \quad (1)$$

となるような2つの紫外レーザー光を用いて2段階で光電離させることができる。また銅蒸気レーザー (CVL) ポンプのダイレーザーを用いれば,

$$1/\lambda_1 + 1/\lambda_2 + 1/\lambda_3 = 1/200 \text{ nm},$$

$$(550 < \lambda_1, \lambda_2, \lambda_3 < 650 \text{ nm}) \quad (2)$$

となるような3つの可視レーザー光を用いて光電離させることができる。同様に波長可変固体レーザーであるアレクサンドライトレーザーの場合にはこの条件は,

$$1/\lambda_1 + 1/\lambda_2 + 1/\lambda_3 + 1/\lambda_4 = 1/200 \text{ nm},$$

$$(650 < \lambda_1, \lambda_2, \lambda_3, \lambda_4 < 750 \text{ nm}) \quad (3)$$

となる。これらの方法においては先に述べたような最低準安定状態を占有している原子は利用していないが、もしこの準位から励起するためにもう1つのレーザー光を追加する必要がある、上に述べた方法はそれぞれ2波長1段階、3波長2段階、4波長3段階および5波長4段階と名付けることができる。これらのスキームのいくつかについてはFig. 8に示されている。ここで n 段階 (n -STEP) は $n+1$ 個の実在レベルの関与する光電離であり、 n 光子 (n -PHOTON) は $n+1$ 個の仮想或いは実在のレベルを含む光電離である。

さてこのような種々のレーザー多光子励起スキームを試験するためにYAGレーザーの第2高調波 (SHG) および第3高調波 (THG) ポンプによるダイレーザー光を用いて種々の励起準位の組み合わせで実験を行い、典型的な値

Fig. 8 Several photoionization scheme.

Fig. 9 An example of 3-photon photoionization spectrum. Ion current and selectivity as a function of the exciter frequency. Sample: natural uranium. Open circle: ionic current of the heavy isotope. Triangle: ionic current of the light isotope. Dotted line: calculated selectivity (Ref. 6).

として Table I に示すような結果を得た。一例として3光子光電離法を用いた結果を Fig. 9 に示す⁶⁾。

2.1.6 イオン回収

光電離において得られるイオンのその場での濃縮度はかなり高いものの、実際に電極上に回収してみるとその回収濃縮度は極めて低くなる。これは光電離によって発生したイオンを回収する際に、中性原子と直角方向に抽出するため衝突が生じ近共鳴的に電荷を交換するが、この時²³⁸U 中性原子が圧倒的に多く存在するために、²³⁵U⁺ の電荷が移譲され、それによって回収濃縮度が低下する。またこうした際に電極間に存在するのはイオンばかりではなく電子をも含む光電離プラズマであるため、直接電界を印加してもイオンの移動速度は小さく、定められた時間内 (例えばプラズマが電極を通過してしまう

Fig. 10 An example of measured electron temperature for laser induced plasma. Relation between the electron temperatures and the excess energies (Ref. 7).

までの時間)での回収が困難になってしまう。そこでこうした回収の目安となるようなプラズマの特性を知ることが重要となる。Fig. 10は光電離プラズマ中に発生するプラズマ中の電子温度を測定したものである⁷⁾。その結果放出される電子のエネルギーは励起されたレベル(イオン)と基底状態(イオン)との差となっている。ウランの場合この値は 0.01~0.1 eV程度となり非常に小さくなるが、イオンは中性原子の熱運動速度をそのまま有しているので、放出された電子は直ちにこのイオンにより加速されてしまい、そのエネルギーは実際には上の値よりも高

Fig. 11 Ion Recovery under electro-magnetic field. Charge exchange collision radius for the ${}^6\text{Li}^+-{}^7\text{Li}$ system. ●, 2×10^{-3} T; ○, 1.5×10^{-2} T; □, 3×10^{-2} T (Ref. 7).

い。このようなイオンを回収する場合、シースはかなり薄くなるため単に静電的にイオン回収を行うと回収速度が制限され、電極内において十分な回収が出来ないばかりか電荷交換も生じ易くなる。そこで電場や磁場のかけ方を工夫することにより、特にプラズマ界面から積極的に電磁流体力学的(MHD)効果を利用してイオンを回収する必要がある。Fig. 11にはこうした回収方法により回収効率が上昇することが示されている⁷⁾。

2.1.7 マクロ量の分離

マクロ量濃縮ウランを電極面上に回収する技術は小さいながらも濃縮プラントに通ずるものがある。通常の科学測定用レーザーによるイオン分離実験の場合には数分程度でデータ収録が可能であるが、マクロ量回収を小出力レーザーを用いて実施するには相当長時間の安定した作動が必要となる。また回収の面においても、従来はイオンのみの測定を行っていたため測定されなかった中性原子が長時間に渡る積分値として流入してくるので、回収方法についても工夫が必要である。電極面上に回収されたウラン量は塩酸を用いて溶解させ、ウランを6価から4価にしてキレート試薬と高感度反応させ、吸光法により求めた。また濃縮度は溶液をフィラメント上に蒸発乾固させ熱的处理を行った後に四重極質量分析計を用いてUOイオンの質量スペクトルを計測した。この結果約100 μg の濃縮ウランの回収が確認された。実際に得られたのは原子炉燃料級の濃縮度であるが、回収実験中に観測された濃縮ウランイオンレベルでの濃縮度は10%以上であった。このように非常に小規模の実験装置においては、中性ウラン原子混入の影響は大きいものとなる。

一般に濃縮プロセスには種々のパラメータが含まれそれらを最適化するのは容易ではないが、概算では以下になる。光電離に必要な最低エネルギーを原子の電離電圧である6.2 eV/(濃縮原子)、蒸発に必要なエネルギーを蒸発潜熱、比熱等を考慮して約7 eV/(原料原子)

Fig. 12 Macroscopic recovery of isotopically enriched ion.

としてこれに波長可換レーザー効率, ポンプレーザー効率, 光利用率, それに蒸発の熱損失および電子ビーム反射損失率を考慮した場合, 製品濃度=4%とすると, 1 kg SWUの分離作業量に対して必要となるエネルギーは, レーザーエネルギーとして約6 kWh, 蒸発エネルギーとして約37 kWh, 濃縮ウラン回収エネルギーとして約2 kWh, 劣化ウラン回収エネルギーとして約7 kWh, 即ち合計で52 kWhと見積ることが出来る。

Fig. 12は電極面上にマクロ量を回収した際の回収量と濃縮度の一例を示したものである⁸⁾。この回収実験例における光子のエネルギー消費は上記概略評価に比べて30倍程度大きい値であったが, これは実験規模の装置であるため光子利用効率が良くなかったためである。また蒸発エネルギーに関しては上記見積りの70倍程度の値であった。これはやはり実験室規模の装置であるため蒸気の極く一部しか反応域に到達しなかったこと, および原子密度が最適点よりも低かったためである。こうした点は大型装置によって格段に改善されるものである。

Fig. 13 Typical example for enrichment of uranium isotope from depleted uranium.

2.1.8 微量同位体成分の分離

天然ウランは0.72 %の ^{235}U を含んでおり、これを原料とした場合の基本的な分離特性については限定された範囲であるとはいえかなり明確となった。次に ^{235}U 濃度がさらに低い、例えば0.2%の劣化ウランからの濃縮実験を行った。これはイオン回収時の電荷交換量が非常に大きくなることや相対的にパワーストロードニングの影響が大きくなるので分離技術を向上させる面からも興味があるし、また世界に放置されている大量の劣化ウランを将来資源と考え、これからの効率的な濃縮ウラン生産の開発という面からの興味もある。Fig. 13の測定結果に示すように分離係数としては数10のものが得られた。

2.2 励起原子選択反応法

Liを用いた実験例を Fig. 14に示す。実験では幾つかの励起状態をレーザー光によって選定し、これにハロゲンを含む分子ジクロロフルオロメタンを衝撃させて、その生成物各種の空間依

Fig. 14 Isotope separation by laser induced chemical reaction method. Angular distribution of the isotopically selective reaction products LiF produced by the reaction with CHClF_2 . The molecular isotopes detected ^6LiF and ^7LiF ; the atomic isotope excited is ^6Li ; the state used is the excited $2P_{3/2}$ state.

存性を求めた。各励起状態との反応についてレーザー照射時の反応量の増大を観測した。特に $2S_{1/2} \rightarrow 2P_{3/2}$ に励起した場合において、特定の空間に放出される反応生成物 LiF 中の Li 同位体濃度の上昇が測定された。しかし LiCl 中の Li 同位体濃度の変化は微小であった。これは実験時のビーム条件から光励起原子と分子とが直接反応するばかりでなく、さらに二次、三次反応が発生するためである。このような分離において、特定の微小角内に射出される反応生成物は高い濃縮度を有するが、製品量は極めて少なくなる。注目同位体全てを回収する場合にはこの実験の場合 Li 同位体は7 %程度から25%程度に濃縮されたことになる⁹⁾。この方法は原子励起状態と反応分子パートナーの選定を適当に行うことによって種々の同位体分離に適用しうる可能性を有している。

Fig. 15 Hydrogen isotope separation by infrared multiple photo-dissociation. Influence of chlorine isotopes contained in the molecule on the separation factors for hydrogen isotopes. The full curve shows the separation factors for hydrogen calculated from the residual $\text{CD}^{35}\text{Cl}^{35}\text{ClF}$ and the broken line shows those calculated from $\text{CD}^{37}\text{Cl}^{37}\text{ClF}$. The absorption spectrum of CDCl_2F with the natural abundance of the chlorine isotopes is also depicted by the hatched section. Conditions; pressure 0.5 Torr, laser energy 0.5 J/pulse, 6000 laser pulses, focal length 100 cm, deuterium concentration 60% (Ref. 10).

2.3 分子多光子解離法

2.3.1 多光子解離法

多光子解離法 (MPD) は D, C, S などの同位体を分離するのに用いられた。例えば D の場合にはジクロロフルオロメタン, アセチレンなど幾つかの物質をスクリーニングし $H \rightleftharpoons D$ 交換反応が大きいものとしてジクロロフルオロメタンを採用した。この物質を用いて照射波長, フルエンス, 密度, 照射温度, バッファガスあるいはこのガス分子中に含有される塩素同位体等の解離速度や分離係数に与える影響を求めた。Fig. 15 には塩素同位体の解離速度に与える効果を示した¹⁰⁾。解離に関係するパラメータは数多くあるのでこれらを最適化することも重要である。一つ一つのパラメータに対する半実験式を求めこれに基づいて最適化を行なった。

2.3.2 赤外多光子励起・紫外解離法

赤外多光子励起分子を UV 光を用いて解離させるという方法 (MPEUVD) を採用した場合,

Fig. 16 Increment of dissociation rate by Infrared multiple photo-excitation with UV photo-dissociation.

レーザー光のエネルギーにより解離効率が増大するが, これを Fig. 16 に示す。これはジクロロフルオロメタンを用いた場合の結果である。レーザー入力 $0.3 \sim 2$ J の領域全体において解離速度は MPEUVD の方が MPD よりも大きい, レーザーエネルギーの低い領域においてこの傾向は顕著である。これはエネルギーの高い領域においては紫外光で前期解離状態への遷移が生じにくくなること, さらに直接炭酸ガスレーザにより解離される割合が増大することなどがその原因である。

2.4 レーザー支援分離法

ここに示す方法は, 従来から存在する分離法にレーザー光を併用することにより, さらに分離効果を増強させようとするものである。

2.4.1 レーザー熱拡散法

熱拡散法において, 中心部分の加熱部分を熱線とする場合にはその直線性や外部円筒に対する厳密な同心性が必要であるが, レーザー光を用いるとこれは容易である。また入射レーザー光を選択的に吸収する同位体分子が存在すれば, 励起された特定同位体の振動エネルギーが緩和過程によって並進エネルギーに変換され, 特定同位体の拡散をより選択的に増大させることができる。Fig. 17 に分離特性を示す。この方法

Fig. 17 Isotope separation by laser induced thermal diffusion. Dependence of the separation factor of $^{34}\text{SF}_6$ on laser wavelength (SF_6 concentration is 1000 ppm).

Fig.18 Laser induced nozzle separation.

による分離特性としては分離係数を最大にする圧力が存在しそのピークは入射レーザー光強度が大きくなるほど高くなるが、レーザー入力が高過大となるとドップラーによる同位体スペクトルの広がりが増大となるため分離能力はかえって低下すること、最適加熱条件はAr/六フッ化硫黄混合ガスの場合約30 W/mであることなどが挙げられる¹¹⁾。

2.4.2 レーザー遠心分離法

ノズルより屈曲して放出される高速ガスは遠心力を受けるので、同位体混合ガスは発生する遠心力の場における圧力拡散の違いにより、空間的に分離される。同位体ではこの差は一般には非常に小さく、従って分離係数は低い。そこで特定同位体にレーザー光を吸収させ、振動エネルギーが並進エネルギーに変換される過程を利用すると、分子温度により圧力場への拘束条件が変化するために、この違いが分離に有効に作用する条件を選定して分離を増大させることができる。ハロゲン化合物であるジクロロフルオロメタンはその条件を満たす物質の一つであり、実験によると Fig. 18 に示すような結果が得られた¹²⁾。

参 考 文 献

- 1) 有沢, 丸山, 鈴木, 加藤, 柴: 昭和55年 日本原子力学会分科会 K-24.
- 2) 丸山, 有沢, 鈴木, 加藤, 柴: 昭和59年 日本原子力学会年会 H-3.
- 3) T.Arisawa, Y.Maruyama and K.Shiba: JAERI-M83-124
- 4) 丸山, 有沢, 柴: 昭和58年 第6回理研シンポジウム A-2.
- 5) T.Arisawa, Y.Maruyama, Y.Suzuki and Y.Naruse: J. Phys. D. **16** (1983) 2415.
- 6) T.Arisawa, Y.Maruyama, Y.Suzuki and K.Shiba: Physica. **115C** (1983) 266.
- 7) T.Arisawa, Y.Suzuki Y.Maruyama, and K.Shiba: J. Phys. D. **15** (1982) 19.
- 8) 丸山, 有沢, 鈴木, 加藤, 柴: 昭和60年度 日本原子力学会年会 H-30.
- 9) T.Arisawa, Y.Suzuki Y.Maruyama, and K.Shiba: Chem. Phys. **81** (1983) 473.
- 10) T.Arisawa, M.Kato, Y.Maruyama and K.Shiba: J. Phys. B. **15** (1982) 1671.
- 11) T.Arisawa, M.Kato and Y.Naruse: Chem. Phys. Lett. **86** (1982) 91.
- 12) 有沢, 沼田, 加藤, 丸山, 柴: 特許昭58-170526.