特 集

レ ー ザ ー 同 位 体 分 離

井 澤 靖 和*

(1987年6月10日 受理)

Laser Isotope Separation

Yasukazu IZAWA*

(Received June 10, 1987)

Laser isotope separation is in the engineering development stage following 10 years of systematic studies of selective excitation process and separation scheme. Recent advances of hydrogen and uranium isotope separation by lasers are reviewed.

Key Words: Selective excitation, Isotope separation, Uranium enrichment, Deuterium enrichment.

1. はじめに

現在、重水の製造やウラン濃縮など、同位体の大量分離に採用されている方法は、気体拡散法、遠心分離法、蒸留法、化学交換法などの、いわゆる統計的分離法である。これらの技術は他の工業分野で用いられている技術に比べると非常に効率が悪く、同位体の相対濃度がわずかに変化するにすぎないため、何回も分離過程を繰り返す、巨大なカスケードが必要となる。

レーザーによる同位体分離では、スペクトル線にあらわれる同位体シフトを利用して、目的とする特定の同位体原子あるいは分子のみに共鳴するレーザー光を照射して、選択的に光励起する。励起された原子あるいは分子だけを別の手

段で回収し、分離を完成する。このような個別的分離法は、統計的分離法に比べて、分離係数が格段に大きく、原理的には1回の操作で同位体を完全に分離できる利点がある。

光を用いて同位体を分離しようとする試みはレーザーの出現ずっと以前から行われてきたが、光の単色性や、強度の点で実用には至らなかった。レーザーの発明とともに再び関心が高まり、可変波長レーザーが使えるようになった1970年代に入って、数多くの実験が報告された。

原子に対するレーザー同位体分離は1971年に Letokhov らにより報告された Rb^{11} にはじまり、Ca, Li, Ba, U 等について実験が行われた。これらの実験では第1のレーザー光により一方の同位体のみを選択励起し、第2の光により励起

* 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)

された原子のみを電離して、電界により回収する 2 段階選択電離法が一般的である。

一方分子に対しては、1970 年 Mayer らがエタノールに H F レーザー光を照射して H と D の分離に成功して以来²⁾、多くの同位体分離が試みられている。分離の方法には、選択励起後第 2 の光で解離に導く 2 段階光解離法(H, N, B, I, Cl, Br, U など)、選択励起された分子の化学反応が促進されることを利用するレーザー誘起化学反応法(H, B, O, Cl, Br など)、強力な赤外レーザー光による赤外多光子解離法(H, O, N, Si, S, Mo, U など)等がある。多光子解離法では H と D、³²S と ³⁴S に対して 1000 を越える濃縮係数が得られた例も報告されている。

このような基礎研究と平行して、水素およびウランについては経済性の評価が行われ、レーザー同位体分離の実用化に向けて、プラントの概念設計や作業物質の選択とその基礎物性データの取得、レーザーをはじめとする装置技術の開発が行われてきた。

2. 水素同位体分離

レーザーによる水素同位体の分離は、重水の製造および三重水素の分離を目標として、紫外レーザー光による前期解離および、赤外多光子解離などが研究され、経済性の評価も行われている。

2.1 前期解離法

前期解離で検討された作業物質はホルムアルデヒド(HDCO)に限られている。330-345nm の紫外光により、選択性よく前期解離が引き起こされる。He-Cd³⁾、Xe III⁴⁾、Ne II⁴⁾等のレーザーを用いた実験結果に基づき、カナダのオンタリオハイドロ社で、年間 1 トンの重水製造プロセスについてシステム評価が行われた⁵⁾。

天然ガス中のメタンを資源とし、これをホルムアルデヒドに接触させて、メタン中の D をホルムアルデヒドへ移す。ホルムアルデヒドを気化して反応槽へ送り、レーザー光を照射して重水素化合物のみを解離させる。未反応ホルムア

ルデヒドと反応生成物(HD)を分離し、HD は O₂ との反応により重水の形で取り出す。未反応物は D が減少した状態でメタンと接触し、再重水素化が行われる。反応槽圧力 100 Torr で濃縮係数 1000 を期待している。光子の利用効率の点から 1 km の光路長が必要で、特殊な多重反射型の反応槽が考えられている。

目標値を重水 1 kg あたり 130 ドルとしたとき、レーザーのコスト 1 W あたり 1 ドル、レーザー効率 1 %、濃縮係数 3000 が必要とされている。この方法の問題点は使用するレーザーにあり、大出力、高効率のエキシマレーザーの開発が進めば、現実的なものとなる可能性はある。

2.2 赤外多光子解離法

多光子解離法では TEA CO₂ レーザーを用いて、ホルムアルデヒド⁶⁾をはじめとする多くの分子について基礎実験が行われた。前期解離では作業物質がホルムアルデヒドに限られるのに対し、多光子解離ではほとんどすべての有機物が対象となる。このため、i) 9-11 μ m の CO₂ レーザー発振域に重水素化物の強い選択吸収があること、ii) 操作圧 10 Torr 以上で解離の選択性が 1000 程度あること、iii) 天然水から重水素を作業物質に容易に移行させること、iv) 反応生成物の分離過程で同位体交換反応がおこらないことなどの観点から、作業物質の詳細な研究が行われ⁷⁾、フレオン 123 (CF₃CHCl₂) およびフレオン 23 (CF₃H) が最も有望とされている。

米国リバモア研などの試算によれば、年間 100 トンの原子炉級重水製造に必要なレーザーの平均出力は 1.5 MW で⁷⁾、レーザーのコスト 1 W あたり 30 ドル程度になれば、1990 年代には実用化の見込みがあるとしている。

三重水素に関しては、理化学研究所のグループが CHF₃ を用いて初めて T の分離に成功し⁸⁾、ペンタフルオロエタン(C₂HF₅)についても良好な結果を得ている⁹⁾。核燃料再処理工場からの排水に含まれる低濃度(10 ppm 程度)三重水素の除去への応用が期待されており、重水の製造にくらべて、小規模な設備でよく、低レベルか

らの分離である点からレーザー法が適していると考えられている。

3. ウラン濃縮

レーザー同位体分離の中で、現在最も重要と考えられている応用はウラン濃縮であろう。

1974年、リバモア研究所が2段階電離法によるウラン濃縮を発表して¹⁰⁾以来、米国では気体拡散法や遠心分離法に代る新しいウラン濃縮法として、金属ウランを用いる原子レーザー法、六弗化ウラン(UF_6)を用いる分子レーザー法、およびプラズマ法を平行して開発してきたが、1982年三者の中から原子レーザー法を選択し、1985年6月「遠心分離法の開発計画を廃止し、次期ウラン濃縮法として原子レーザー法を採用する」ことを決定した。

わが国では、1975年大阪大学で研究が開始され^{11,12)}、その後日本原子力研究所で原子法の基礎プロセス試験¹³⁾と工学試験が、理化学研究所で分子法の科学実証研究¹⁴⁾が行われてきた。米国の決定はわが国にも大きな影響を与え、原子力委員会ウラン濃縮懇談会は「レーザー法技術ワーキンググループ」を設置し、わが国の広範囲の技術力を結集して対処することが不可欠で、産官学の協力の下に長期にわたる研究努力が必要である旨の研究目標と方策をとりまとめた。

3.1 原子法

レーザー法ウラン濃縮の原理実証は2段階電離による原子法で行われた。十分なウラン蒸気密度を得るには、金属ウランを2500K程度の高温まで加熱する必要はあるが、可視域に多くの吸収スペクトルを有しており、同位体シフトも比較的大きいので、色素レーザーを用いて ^{235}U を容易に選択励起できる。

原子法によるウラン濃縮装置の概念図をFig. 1に示す¹⁵⁾。金属ウランを長尺のルツボに入れ電子ビームを線状に収束して加熱し、ウラン蒸気を生じさせる。スリットを通してウラン蒸気ビームとし、これに選択励起、電離用のレーザー光を照射して ^{235}U を電離する。生成した ^{235}U

Fig.1 Atomic vapor laser isotope separation system. (Ref. 15)

イオンは電界や磁界により電極上に回収する。未反応のウラン蒸気も回収板上に凝集させて回収する。

選択励起、電離用に開発が進められているのは銅蒸気レーザー励起の色素レーザーである。銅蒸気レーザーが最も有力とされているのは、可視域で発振し、高くり返し動作が可能であり、効率が高いことによる。商業プラントでは5-10 kHzのくり返しが必要とされている。

銅蒸気レーザーは発振波長が510, 578 nmであるため、色素レーザーの波長は600 nm付近となる。ウラン原子の電離エネルギーは6.2 eVであり、第1のレーザーで選択励起し、第2、第3のレーザーで電離に導く、3段階電離法が用いられることになる。

米国ではリバモア研(LLNL)を中心に、1970年代より濃縮用レーザーの開発とウラン原子の基礎データの蓄積を行い、現在商業プラントの1モジュールに相当する工業実証装置(Full Scale Engineering Demonstration Facility, FSEDF)の建設を進めている¹⁶⁾。この装置は1000t SWU/年の規模で、1991年までにこれを5000t SWU/年のプラントに増設、1995年には12,000t SWU/年に増強し、1996年よりフル稼働に入る計画である。

Table I Full-scale engineering demonstration facility at LLNL (Ref. 16).

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150W/5kHz, 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.
分離チェンバー	直径16f 長さ80f, 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2m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.

Table II Estimated costs of uranium enrichment system. (Ref. 15)

	設 備 費	運 転 費	消 費 電 力
レーザー法 (原子法)	\$ 100— 150/SWU/y	小	~100kWh/SWU (\$ 3~5/SWU)
遠心分離法	\$ 400— 500/SWU/y	小	~100kWh/SWU (\$ 3~5/SWU)
ガス拡散法	\$ 300— 500/SWU/y	大	2,400kWh/SWU (\$ 40~80/SWU)

FSEDF の構成を Table I に示す。レーザー部は出力 150 W の 3 段増幅銅蒸気レーザーと 2 段増幅、3 波長色素レーザーより構成されている。分離チェンバーは、Fig. 2 に示すように、直径 16 フィート、長さ 60 フィートの大きさで、中央部に長さ 2 m、3 列の蒸気発生部があり、両端はレーザー光をウラン蒸気中で往復させるための光学系設置部になっている。

原子レーザー法のコスト評価の一例を Table II に示す¹⁵⁾。レーザー法の特徴は設備費が低いこ

とである。統計的方法が多段のカスケードを必要とするのに対し、レーザー法では 1 段で所要の濃縮ウランが得られる。ウラン蒸気の発生と回収に大電力が必要なため、消費電力は遠心分離法とほぼ同じである。レーザー部と蒸気発生、回収部の消費電力の比率は 1:10 程度であり、電子ビーム加熱法に代る低消費電力のウラン蒸気発生法が開発されれば、更に経済性は向上する。

米国以外では仏国サクレ研究所で、出力 10~30W、くり返し 5~20kHz、寿命 1000 時間の銅蒸気レーザーが既に開発され、100W 級の開発が進められている。またこれと併行してウラン原子の分光学的研究や、ウラン蒸気中のレーザー光長距離伝播特性の研究など基礎研究が進行中である。中国上海光機所ではすでに出力 100W の銅蒸気レーザーが開発され、ソ連においても相当規模の研究が行われている模様である。

わが国では原子力研究所で 100 μ g の低濃縮ウランの回収が行われたが、レーザー技術、ウ

Fig. 2 Separation chamber of demonstration facility (Ref. 16)

ラン原子に関する基礎データとも他国に比べて遅れている。本年4月電力会社を中心として研究組合が設立され、レーザーおよびウラン蒸気発生技術の開発を行うとともに、年間1tSWU程度の実験規模システム試験開発を行うことになっている。このような要素技術開発とならんで、レーザー光とウラン原子の相互作用や原子ビーム中での衝突過程等、濃縮システムのパラメータを決定する基礎となるデータベースの整備が重要で、大阪大学¹⁷⁾や原子力研究所¹⁸⁾で基礎研究が進められている。

3.3 分子法

分子法では作業物質として UF_6 を用いる。 UF_6 はウラン化合物の中で最も蒸気圧が高く、化学的に安定であり、工業規模での取り扱いについても充分の実績がある。

UF_6 は赤外域に何本かの吸収バンドを有しているが、吸収断面積の点からも、同位体シフトの点からも、 $16\mu\text{m}$ 付近の ν_3 バンドを利用して選択励起する方法が最も妥当である。室温での ν_3 バンドの吸収スペクトルは、ホットバンドの影響が大きく、バンド幅にくらべて同位体シフトははるかに小さい。このため、超音速ノズルを用いて断熱膨張により50K程度まで冷却する方法がとられる。冷却によりバンド幅が同位体シフトより狭くなり、 $^{235}\text{UF}_6$ と $^{238}\text{UF}_6$ のスペクトルが完全に分離する状態で選択励起を行う。

UF_6 を用いた ^{235}U の分離は、最初、赤外光で選択励起し、紫外光で解離する2段階光解離方式が研究された¹⁹⁾ が、紫外域での UF_6 の吸収スペクトルが長波長側にテイルを持つため、赤外レーザー光で励起されない $^{238}\text{UF}_6$ も紫外レーザー光のみで解離し、濃縮係数は1より少し大きな値しか得られなかった。低温の極限においても、たかだか2程度であると言われている。

その後 $16\mu\text{m}$ 帯での高出力レーザーが出現し、赤外多光子解離法の研究が進行している。多光子解離法によるウラン濃縮装置の概念図をFig. 3に示す。 UF_6 をバッファガスと混合し、超音速ノズルを通して真空中へ噴出させ50-100Kま

Fig. 3 Molecular laser isotope separation system.

で冷却する。ここに赤外レーザー光を照射して $^{235}\text{UF}_6$ を解離させ、粉末状に析出する $^{235}\text{UF}_5$ を回収する。

$16\mu\text{m}$ レーザーとしては、 CO_2 レーザー励起のパラ水素ラマンレーザー²⁰⁾ が用いられる。ただ、通常の CO_2 レーザーは発振波長が連続可変ではないため、ラマンレーザーの波長を $^{235}\text{UF}_6$ の ν_3 モードに完全に一致させることはできない。この欠点を解消するため、圧力5-10気圧の高気圧 CO_2 レーザーをラマンレーザーの励起源として用いる。 CO_2 の圧力を増大すると、衝突の効果によりスペクトル幅が広がり、振動回転準位に基づくレーザー発振線間の穴がうめられ、広いスペクトル範囲で発振波長が連続可変となる。このようにして得られた CO_2 レーザーは出力が小さく、高出力化が困難であるので、通常の方法で得られる高出力 CO_2 レーザー光とともに水素ラマンセルに入射して4光波混合法²¹⁾ により所要の $16\mu\text{m}$ 光を得る方法が研究されている²²⁾。

上の方法でラマンレーザーの波長を $^{235}\text{UF}_6$ の ν_3 バンドに同調できるが、このレーザーのみで UF_6 を解離に導く程の出力を得るにはレーザーのコストが高くなるため、通常の方法で得られるラマンレーザーを併用して、Fig. 3に示すように2波長で多光子解離させる方法が採用されることになろう。

米国ではエクソン社で基礎研究が行われたが原子炉燃料として必要な4以上の濃縮係数が得られず、研究は中止された。その後の赤外レー

レーザー技術の進歩や超音速ノズルの採用により、4 を越える濃縮係数が可能との評価もある。わが国では理化学研究所が科学実証研究を実施中で、本年5月、世界で初めて2を越える濃縮係数を実現し、科学実証に向けて大きく前進した。西独でも分子法の研究が行われており、高い濃縮係数を得たともいわれているが、正式の報告はない。

4. むすび

レーザーによる同位体分離の研究は1970年代の基礎研究の段階を終え、1980年代になって実用化のための実証段階に入った。特にウラン濃縮に関しては、米国が1996年からの大規模商業プラントの稼動をめざして勢力的に開発を進め、仏国などもこれを追っている。重水の製造に関しても、レーザー技術の進展によっては1990年代にはレーザー法が実用化する可能性もある。

原子炉の使用済燃料からのPuの分離や有用金属の回収もレーザー法による計画がある。Puに関してはUと同様に原子法を用い、銅蒸気レーザー励起の色素レーザーによる選択電離法の研究が、Uと同程度の規模でリバモア研究所において進行している。高レベル廃棄物中に含まれるRu, Rh, Pdなどの白金族元素や各種希小金属の分離について各国で基礎的研究が行われている。わが国でも高レベル廃棄物の有効活用をめざしたフェニックスプロジェクトが本年よりスタートし、その一環としてレーザー法が検討される。

これ以外にも原子炉燃料棒の被覆材として、中性子吸収断面積の小さい ^{90}Zr や ^{50}Ti 、核融合炉材料として中性子放射化断面積の小さい ^{97}Mo 等が注目されており、高純度の同位体が分離可能という点でレーザー法の果す役割は大きい。

今後高効率、長寿命のレーザーの実現とともに、レーザー同位体分離技術はますます発展し

21世紀には水素やウランの同位体に限らず、種々の同位体がレーザーで分離されることになるであろう。

参 考 文 献

- 1) R.V. Ambartumlan, V.P. Kalin and V.S. Letokhov; JETP Lett. **13** (1971) 217.
- 2) S.W. Mayer, M.A. Kwok, R.W. Gross, and D.J. Spencer; Appl. Phys. Lett. **17** (1970) 516.
- 3) J.B. Marling; Chem. Phys. Lett. **34** (1975) 34.
- 4) J.B. Marling; J. Chem. Phys. **66** (1977) 4200.
- 5) J.C. Vanderleeden; Laser Focus, pp51~56, June (1977).
- 6) G. Koren et al; Appl. Phys. Lett. **29** (1976) 40.
- 7) J.B. Marling, I.P. Herman and S.J. Thomas; J. Chem. Phys. **72** (1986) 5603.
- 8) Y. Makide, S. Hagiwara, O. Kurihara, K. Takeuchi, Y. Ishikawa, S. Arai, T. Tominaga, I. Inoue, and R. Nakane; J. Nucl. Sci. Technol. (1970) 275.
- 9) Y. Makide, S. Kato, T. Tominaga and K. Takeuchi; Appl. Phys. **28** (1982) 341.
- 10) S.A. Tuccio, J.W. Dubrin, O.G. Peterson, and B.B. Snavely, IEEE J. Quantum Electron, **QE-10** (1974) 790.
- 11) H. Niki, Y. Izawa and C. Yamanaka; Technol. Repts. Osaka Univ. **28** (1978) 465.
- 12) 井澤, 仁木, 山中: 電気学会論文誌, **102-C** (1982) 45.
- 13) 有澤, 成瀬, 岩本: JAERI-M 9442 (1981).
- 14) K. Takeuchi, H. Tashiro, S. Isomura, T. Oyama, S. Satooka, K. Midorikawa, and S. Namba, J. Nucl. Sci. Technol. **23** (1986) 282.
- 15) Business Development Opportunities in Laser Application in Isotope Separation; LLNL-TB-068.
- 16) Atomic Vapor Laser Isotope Separation, LLNL brieflet.
- 17) 山中, 仁木, 藤原, 井澤, 望月, 山中: レーザー研究, **14** (1986) 474.
- 18) 有沢, 柴: レーザー研究, **14** (1986) 495.
- 19) M. Alexandre, M. Clerc, R. Gagnon, M. Gilbert, P. Isnard, P. THMectoux, D. Rigny and J. THWeulersse; J. Chim. Phys. **20** (1983) 331.
- 20) 田代, 緑川, 長友, 豊田, 難波: レーザー研究, **13** (1985) 292.
- 21) P. Rabinowitz, B. Perry and A. Gnauck; Appl. Phys. Lett. **39** (1981) 362.
- 22) 田代: レーザー研究, **14** (1986) 442.
- 23) P. Rabinowitz, A. Kaldor, A. Gnauck, R.L. Woodin and J.S. Gethner; Opt. Lett. **7** (1982) 212.