

レーザー分子法によるウラン濃縮

高見 道生

理化学研究所 〒351-01 和光市広沢 2-1

天然ウランには ^{238}U , ^{235}U , ^{234}U の同位体がそれぞれ 99.3%, 0.7%, 0.006% ずつ存在するが, 原子力発電の主流である軽水炉の核燃料として使用するためには, ^{235}U を約 3% に濃縮する必要がある. レーザーによるウラン濃縮は, 従来のガス拡散法や現在開発が進められている遠心法と比較して分離係数が桁違いに大きいため次世代の低コスト濃縮技術として脚光をあび, 先進諸国で精力的な研究開発が進められてきた. レーザーウラン濃縮には UF_6 気体をレーザーで同位体選択的に解離して濃縮をおこなう分子法と, 金属ウランの蒸気をレーザーで同位体選択的にイオン化して濃縮をおこなう原子法とがあるが, 本稿ではレーザー分子法によるウラン濃縮研究の現状について簡単に述べたい.

UF_6 は 628 cm^{-1} に ν_3 バンドの強い赤外吸収があり, $^{235}\text{UF}_6$ の吸収は $^{238}\text{UF}_6$ の吸収に対して約 0.6 cm^{-1} 短波長側にある. レーザー分子法によるウラン濃縮では, この赤外吸収波長の差(同位体シフト)を利用して, 強い赤外光あるいは赤外光と紫外光とで $^{235}\text{UF}_6$ を選択的に解離し, 生成した $^{235}\text{UF}_6$ を回収することにより濃縮をおこなう. UF_6 が UF_5 と F とに解離するためには少なくとも 3 eV のエネルギーが必要であるが, UF_6 の気体を強い $16\text{ }\mu\text{m}$ 光で照射すると赤外多光子吸収が起こり, UF_6 は 50 個程度の光子を同時に吸収して解離を起こす. 紫外光を併用する場合には数個の赤外光子を吸収した UF_6 を紫外光で選択的に解離する. いずれの場合も赤外光の波長を適当な値にとることにより同位体選択的な解離が起こる. 赤外および赤外/紫外レーザーによる励起方式を図 1 に示す.

ところで, このような方法による同位体分離は軽元素の場合にはかなりの成功をおさめているが¹⁾, ウランの場合には, 1) 強い赤外吸収が $16\text{ }\mu\text{m}$ という遠赤外にあること, 2) 同位体シフトが小さいこと, 3) UF_6 は低エネルギー状態に多数の振動準位が存在するため室温気体では大部分の分子が振動励起状態に分布し, 吸収バンドの幅が見かけ上大きくなって同位体選択的な励起がむずかしいこと, 等の理由により, 軽元素の場合とはかなり

異なる濃縮技術が必要となる. 以下この濃縮技術に関連して, a) $16\text{ }\mu\text{m}$ レーザーの開発, b) 分光計測, c) 過冷却 UF_6 の照射技術, 等について紹介する.

a) $16\text{ }\mu\text{m}$ レーザーの開発

UF_6 の強い赤外吸収が $16\text{ }\mu\text{m}$ にあるため, 多光子励起用 $16\text{ }\mu\text{m}$ レーザーがいくつか開発された. ウラン濃縮用レーザーとしては, パルス当りの出力が 100 mJ 以上あること, エネルギー変換効率が高いこと, 628 cm^{-1} 付近である程度波長可変であること, 大型化が容易であることなどの性能をもつことが望ましいが, これらの観点から現在パラ水素ラマンレーザー²⁾ が有望とされている. このレーザーは $9\sim 10\text{ }\mu\text{m}$ 帯で強いパルス赤外光を発生する TEA CO_2 レーザーの出力を水素分子の誘導回転ラマン散乱によって $16\text{ }\mu\text{m}$ 帯へ波長変換するもので, $J=2\leftarrow 0$ の 1 次ストークス光の場合には入射光の波数に対してつねに 354 cm^{-1} だけ小さい波数の出力光が得られる. このラマン変換に寄与するのは最低回転準位 ($J=0$) の分子だけなので, J が偶数の状態のみをもつパラ水素を用い, さらに水素分子の温度を下げることにより変換効率を向上させることができる. 理研で開発したパラ水素ラマンレーザーは³⁾, このような方法により最大出力 1.7 J/pulse , 光子変換効率 80%, エネルギー変換効率 36% という結果が得られ, また室温パラ水素を用いても 1 J 近い出力が得られるなど, すぐれた性能をもつことが示された. TEA CO_2 レーザーは $9\sim 10\text{ }\mu\text{m}$ 帯に多数の発振線をもつので, ラマンレーザーもそれに伴って $14\sim 17\text{ }\mu\text{m}$ 帯で発振し, また励起光源として高気圧 TE CO_2 レーザーを用いることにより, 波長連続可変とすることも可能である.

b) 分光計測

赤外レーザーで $^{235}\text{UF}_6$ を効率よく選択励起するためには, 赤外分光法により UF_6 の振動回転準位の構造を知る必要がある. このため, 断熱膨張を利用して UF_6 を過冷却し, ホットバンドの影響が少ない状態で分光測定をおこなう技術が開発された⁴⁾. 図 2 に理研で測定した UF_6 ν_3 バンドの一部を示す⁵⁾. 図の上部は室温の

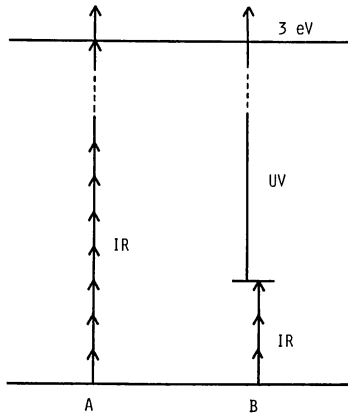


図 1 レーザーによる UF_6 の励起方式
A: 赤外多光子励起, B: 赤外および紫外レーザーによる励起.

UF_6 による吸収スペクトルを示す. この装置は Ar と混合した UF_6 を真空中に噴出させ, 過冷却状態の UF_6 を長波長半導体レーザーを光源として分光するもので, 図に見られるようにホットバンドの吸収がほとんどないスペクトルの観測が可能である. 分光計測としてはこのほかに低温セルによる ν_3 バンドの測定結果が報告されており⁶⁾, $\nu_3=10$ 程度までのエネルギー単位を計算するために必要なデータが得られている. また多光子励起に関しては SF_6 をモデル物質とした詳細なモデル計算の結果も報告されている⁷⁾.

c) 過冷却 UF_6 の照射技術

赤外レーザーによる励起の同位体選択性を向上させるため, 断熱膨張により過冷却した UF_6 をレーザーで照射する技術が開発された. キャリアガスと混合した UF_6 を, スリット状の開口部から断面積が連続的に増大する管の中へ噴出させることにより, 50~100 K の温度を保ちながら UF_6 を連続的に流すことができる⁸⁾. レーザー照射により生成した UF_5 は会合して微粒子となり, キャリアガスによって下流へ運ばれるので, $(\text{UF}_5)_m$ の微粉を回収することにより濃縮ウランが得られる. また同位体選択性を向上させる励起方式として, 異なる波長の赤外レーザー光で UF_6 を同時に照射する多波長励起方式も試みられている⁹⁾. 解離生成物である UF_5 の化学的性質など基礎的な研究結果については多少の報告があるが, レーザーウラン濃縮の工学段階の研究については各国とも詳細を公開していないため, 内容については不明な点が多い.

以上断片的ではあるが, レーザー分子法によるウラン濃縮について要素技術を中心に紹介した. レーザーによ

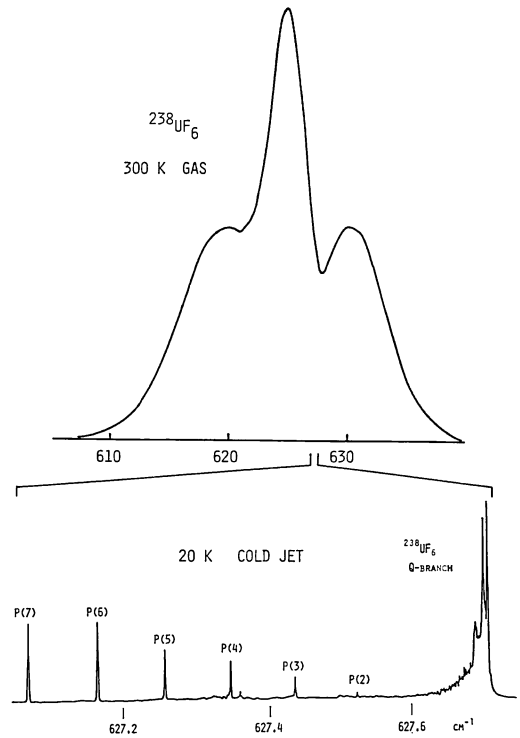


図 2 UF_6 ν_3 バンドの赤外吸収スペクトル
上図は室温気体による吸収, 下図は 20 K に過冷却した UF_6 による吸収を示す.

る同位体分離は, ウランに限らず各種原子力関連材料及核医学用トレーサの材料として有用な重元素同位体分離への応用も可能であり, 今後の研究の発展が期待される.

文 献

- 1) たとえば, 大山俊之, 荒井重義: レーザー研究, 10 (1982) 27, 参照.
- 2) R. L. Byer: IEEE J. Quantum Electron., **QE-6** (1976) 732.
- 3) 田代英夫, 緑川克美, 長坂啓吾, 豊田浩一, 難波 進: レーザー研究, 13 (1985) 292.
- 4) R. J. Jensen, J. G. Marinuzzi, C. P. Robinson and S. D. Rockwood: Laser Focus (May 1976) 51.
- 5) M. Takami, T. Oyama, T. Watanabe, S. Namba and R. Nakane: Jpn. J. Appl. Phys., **23** (1984) L88.
- 6) G. A. Laguna, K. C. Kim, C. W. Patterson, M. J. Reissfeld and D. M. Seitz: Chem. Phys. Lett., **75** (1980) 357.
- 7) H. W. Galbraith and J. R. Ackerhalt: *Laser-Induced Chemical Processes*, ed. J. I. Steinfeld (Plenum, New York, 1981) p. 1.
- 8) M. Alexandre, M. Clerc, R. Gagnon, M. Gilbert, P. Isnard, P. Nectoux, D. Rigny and J.-M. Weulersse: J. Chim. Phys., **80** (1983) 331.
- 9) P. Rabinowitz, A. Kaldor, A. Gnauck, R. L. Woodin and J. S. Gethner: Opt. Lett., **7** (1982) 212.

(1985 年 5 月 1 日受理)