

特集

核燃料サイクル技術の開発動向と将来

ウラン濃縮技術—レーザー法—

Laser Isotope Separation of Uranium

岡田 芳樹*・武内 一夫**

Yoshiki Okada Kazuo Takeuchi

1. はじめに

レーザーによるウラン濃縮の研究は、1974年にアメリカのローレンス・リバモア国立研究所 (LLNL) で濃縮実験に成功して以来、アメリカ、フランス、イギリス、ドイツ、日本などの諸国において活発に研究され始めた。このレーザー法は、濃縮分離したいウランの同位体U-235の原子あるいはU-235を含む分子だけに光を吸収させ、選択的に励起および反応させて分離する方法である。レーザー法は他の方法と比較して分離係数大きい、すなわち1段の過程で高い濃縮度を得られるという特徴を持つ。1980年代に入って、レーザーの出力、効率、経済性、信頼性などの画期的な向上により、ガス拡散法、遠心法に置き代わり得る核燃料用ウラン濃縮技術として、レーザー法が期待されるようになった。

レーザーを用いて、ウラン濃縮に代表される同位体分離を実際に行うための条件としては、

- (i) 同位体による光吸収波長の差異、すなわち同位体シフトを利用して、目的の同位体を選択的に励起できること、
- (ii) 励起された同位体原子、あるいは同位体を含む分子を、選択性を保ったまま光解離できること、
- (iii) 選択性を保持したまま解離した目的の同位体を分離回収できることなどが挙げられる。

レーザーウラン濃縮技術には、金属ウランから発生するウラン蒸気を利用する原子法 (AVLIS) と、六フッ化ウランUF₆ガスを利用する分子法 (MLIS) とがある。以下に、原子法、分子法それぞれのプロセス原理と技術開発の現状について紹介し、レーザー法の将来性を考える。

* 理化学研究所 分離工学研究室研究員

** " " 主任研究員

〒351-01 埼玉県和光市広沢2-1

2. 原子法レーザーウラン濃縮 (AVLIS) の原理と技術の現状

AVLIS装置の概念図を図-1に示す。AVLISでは、ウラン原子蒸気を電子ビーム加熱により発生させ、銅蒸気レーザー (CVL) 励起の色素レーザーを用いて、U-235を選択的にイオン化する。その後、回収用電極板を用いてこのイオンを金属蒸気流の中から引き出し、回収する。米国ではLLNLを中心に、実用化に向けた研究開発が進められている。わが国においても、日本原子力研究所、大阪大学等で基礎研究が以前から行われており、1987年にはレーザー濃縮技術研究組合が設立され、年間1トンSWU規模の実験機レベルの機器開発が進められている。

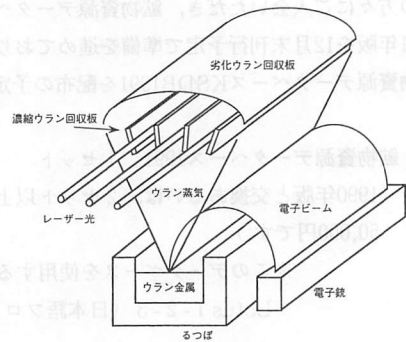


図-1 原子法レーザーウラン濃縮概念図

2.1 ウラン蒸気発生

レーザー照射部へウラン蒸気を供給するために、冷却されたるつぼ内にあるウラン金属を電子銃で加熱し、ウラン原子の蒸気を発生させる。電子ビームを磁界により偏向することにより、電子銃をウラン蒸気から保護している。

ウランの蒸気圧は2000℃で0.01Torr程度であるので、充分な蒸気圧を得るためには、2500℃以上の高温が必要となる。高温の熔融ウランは化学反応性が高い

ため、るつば材料の腐食が大きな問題となる。そこで、電子銃でウラン金属を部分熔融させ、熱伝導度の高い銅などでできたるつばを冷却しながら、るつばの表面温度を下げる方法がとられている。

したがって、るつばにおいて、熱伝導などによる熱損失が存在する。この熱損失を低減するため、るつば材質や形状などの工夫が必要であり、るつば内熔融ウランの熱流動解析をもとに、蒸発部における熱効率の最適化が研究されている¹⁾。

2.2 原子法用レーザーと選択励起・電離

ウラン原子は92個の電子を持ち、基底状態では最外殻の電子配位が $5f^3 6d^1 7s^2$ の複雑な構造を持った原子である。このため、イオン化に到るまでには数多くのエネルギー準位への励起が可能である。2波長2段階、3波長3段階などのイオン化方式もあるが、準安定状態のウラン原子をもイオン化する4波長3段階方式が一般的である²⁾。U-235とU-238原子との同位体シフトは、波数にして $0.15 \sim 0.3 \text{ cm}^{-1}$ (周波数で $5 \sim 10 \text{ GHz}$)程度である。また、U-235はU-238とは違い、核スピンを持つため ($I=7/2$)、核運動量Jとの相互作用により超微細構造と呼ばれる複雑に分裂したスペクトル構造を持つ^{3, 4)}。図-2にU-235の超微細構造を示すデータの1例を示す⁵⁾。U-235スペクトルは $5 \sim 10 \text{ GHz}$ 程度の周波数幅を持つ。

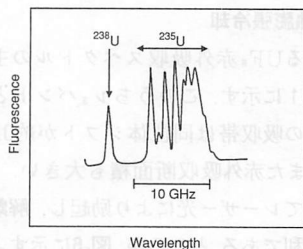


図-2 ²³⁵Uの超微細構造と同位体シフト

また、高温に加熱されたウラン原子では、かなりの割合の原子が熱的に準安定状態に励起される。たとえば、3000K程度では基底状態から 620 cm^{-1} 上の準安定状態には約30%のウラン原子が存在する。蒸発したウラン原子のイオン化率を高めるためには、この準安定状態原子をも励起させる4波長3段階法(図-3)が必要である。この4波長3段階法では、まず選択励起光を用いて選択的にウラン同位体を、 15000 cm^{-1} 程度の準位に励起する。ついで、中間励起光を用いてイオン化するための中間段階として 30000 cm^{-1} 付近の準位に

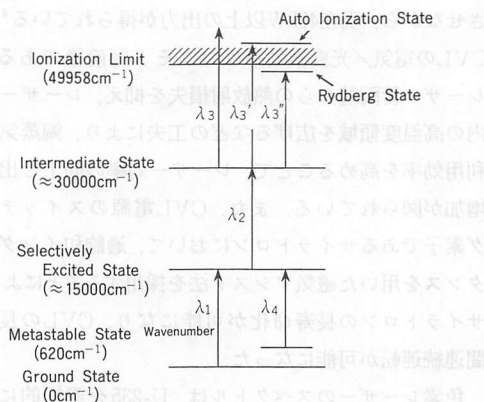


図-3 4波長3段階励起法

励起する。最後に、中間励起されたウラン同位体を、電離光によりイオン化する。一般に、励起の際の吸収断面積に比べて、電離の断面積は著しく小さい。そこで、レーザー光利用効率の低下を避けるため、電離効率の高い、自動電離状態へ励起し電離する方法³⁾や、高リドベルグ状態へ励起し電界により電離する方法など、電離断面積の大きな電離過程が利用される。

このような励起を行うレーザーとしては、可視域で波長が連続的に選択できる色素レーザーとそれを励起する銅蒸気レーザーが用いられる。

銅蒸気レーザー (CVL) は、銅の蒸気をレーザー媒質とし、510nmと578nmで発振する高繰り返し可能な放電型パルスレーザーである。銅蒸気レーザーの構造を図-4に示す。レーザー管内は 1500°C に加熱され、蒸発した銅原子を、レーザー管の両端の電極間のパルス放電により、励起・発振させる。放電部の長尺化と大口径化により高出力が図られ、現在単機出力として、200Wを超える出力が得られている⁶⁾。しかし、単機出力には限界があるので、現状では、数百W以上の出力の達成には、発振器と複数の増幅器を直列に接続した多段増幅システムが有効である。この多段増幅により、多数台のレーザーの発振タイミングを正確に同期

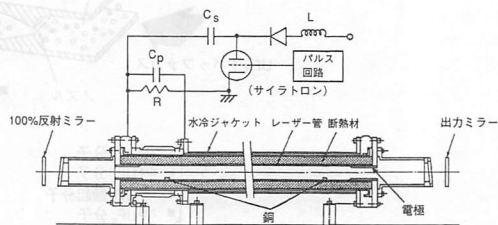


図-4 銅蒸気レーザーの構造

させながら、現在400W以上の出力が得られている⁶⁾。CVLの電気/光変換効率はおよそ1%前後である。レーザー管両端からの熱放射損失を抑え、レーザー管内の高温領域を広げるなどの工夫により、銅蒸気の利用効率を高めることで、レーザー効率の向上と出力増加が図られている。また、CVL電源のスイッチング素子であるサイロロンにおいて、過飽和インダクタンスを用いた磁気アシスト法を採用することにより、サイロロンの長寿命化が可能になり、CVLの長時間連続運転が可能になった。

色素レーザーのスペクトルは、U-235を選択的に励起・電離できるほど単色性にすぐれている一方で、U-235の超微細構造に合致した波長スペクトルを有しなければならない。そのためのスペクトル制御法の最適化が進められている¹⁾。また、色素レーザーの大出力化に関しては、色素レーザー発振器出力を横励起増幅器により多段増幅する方式がとられる。色素レーザーの光変換効率は40%前後と考えられる。

2.3 イオン回収

ウランの回収には、光電離されたU⁺を電界により横方向に引き出し、濃縮ウランを回収電極板に回収する。電離されなかったウラン蒸気は上方に位置する劣化ウラン回収板に回収される。このとき、回収板を金属ウランの融点(1405K)以上に加熱し、付着したウランを液体の状態回収する。したがって、回収板材料として1405K以上の高温での、電気特性、耐熱性、耐溶融ウラン性の観点から、回収板材料の選定、開発が重要である。

また、このイオン回収部において、U-238の電子衝突による解離、および選択電離されたU-235イオンと中性U-238原子間との電荷交換が起こる。特に電荷交換の断面積は大きく、条件によっては濃縮度の低下を

招く。この電荷交換反応の進行は、イオンが中性原子流を横切る時間や原子密度に依存する。電荷交換の影響を避けるためには、電極電位、電極間隔、ウラン蒸気密度などを注意深く設定する必要がある。プラントの処理能力を大きくするためには、ウラン蒸気密度は高いほどよいが、電荷交換などにより性能が低下するので、10¹³個/cm³程度が上限であると考えられている。

3. 分子法レーザーウラン濃縮 (MLIS) の原理と技術の現状

MLIS装置の概念図を図-5に示す。ガス拡散法、遠心分離法などの既存のウラン濃縮法で用いられているUF₆ガスに、16μmラマンレーザー光を照射する。これにより、²³⁵UF₆を選択的に励起し、解離反応を誘起して、固体生成物であるUF₆中にウラン-235を濃縮する。なお、16μmラマンレーザーはパルスCO₂レーザーを励起光源とする。生成したUF₆粉末は減圧インパクターなどの粉体捕集装置で回収する。

ドイツでは、ウラニット社が中心になって2000年を一つの目標に分子法の実用化を目指した開発が行われている。わが国では、理化学研究所において分子法の高度化・高効率化を、動力炉核燃料開発事業団においてその大型化・システム化を目指した研究開発が行われている。

3.1 UF₆断熱膨張冷却

室温におけるUF₆赤外吸収スペクトルの主要な吸収バンドを表1に示す。このうちν₃バンドと呼ばれる16μm付近の吸収帯は同位体シフトが約0.6cm⁻¹程度と大きく、また赤外吸収断面積も大きい。このν₃バンドを用いてレーザー光により励起し、解離させることが最も有利である。ところが、図-6に示すように⁷⁾、

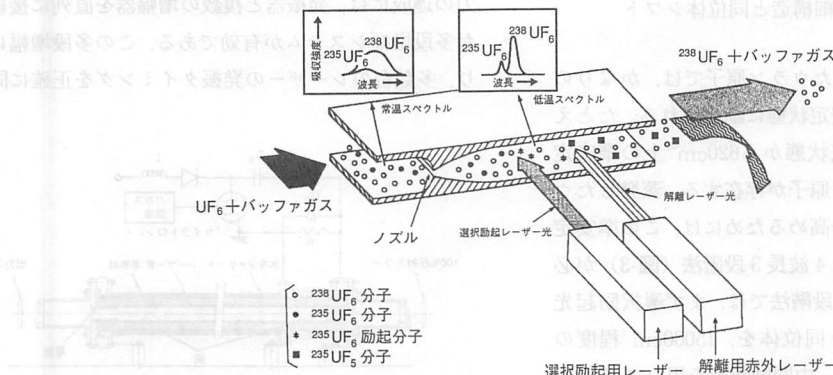


図-5 分子法レーザーウラン濃縮概念図

表1 UF₆の主な赤外吸収バンド

| 帰属 | 波数(波長) (cm ⁻¹)(μm) | 相対的な 吸収断面積 |
|--------------------------------|-----------------------------------|----------------------|
| ν ₁ +ν ₈ | 1291(7.7) | 2.0x10 ³ |
| ν ₂ +ν ₃ | 1157(8.6) | 2.3x10 ³ |
| ν ₃ +ν ₄ | 827(12) | 9.5x10 ⁴ |
| ν ₃ | 625(16) | 1 |
| ν ₄ | 186(54) | 5 x 10 ⁻² |

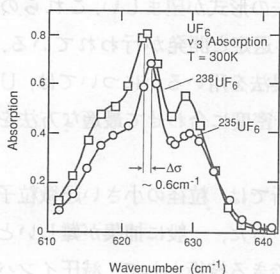


図-6 300KにおけるUF₆赤外吸収スペクトル

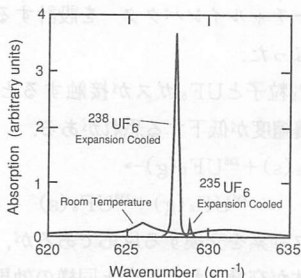


図-7 50KにおけるUF₆赤外吸収スペクトル

室温付近ではUF₆スペクトルのバンド幅が同位体シフトに比べてはるかに広いので、室温状態では、選択的に²³⁸UF₆を光励起することは困難である。²³⁸UF₆を選択的に励起するためには、UF₆ガス温度を下げる必要がある。図-7に50KにおけるUF₆の赤外吸収スペクトルを示す⁸⁾。冷却することにより、熱的に励起して高い準位に分布していたUF₆分子が基底状態に戻るため、スペクトルのバンド幅が同位体シフトより狭まる。²³⁵UF₆の吸収波長にレーザーの波長を同調させることで、効率のよい選択励起が可能となる。

UF₆のガス温度を下げる手段として、単に冷却したのでは、100Kで10⁶Torr程度の蒸気圧しかないことから、実用的なUF₆ガス圧力を得ることはできない。そこで、流体力学の分野で超音速風洞として利用されている超音速ラバルノズルを用いる。超音速ノズルか

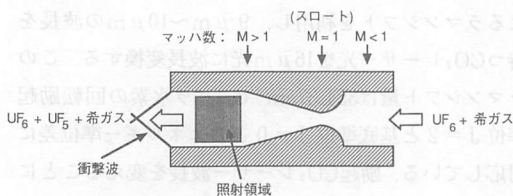


図-8 超音速ラバルノズルの模式図(側面)

らUF₆ガスを噴出させ、断熱膨張によって過冷却状態にする。この方法を用いれば、UF₆をガスのまま密度を高く維持することができる。UF₆は原子数の多い分子であるから比熱比γ(定容比熱と定圧比熱の比)は1に近く、UF₆単独では断熱膨張による冷却が困難である。そこで単原子分子である希ガスなどを混合し、γを増大させることによって効率よく冷却する。

分子法では、レーザー照射部におけるUF₆ガス密度として10¹⁵個/cm³程度かそれ以上で実用的な濃縮が行える。超音速ラバルノズルは、一般に図-8に示すような形状をしており、スロート部で流体速度は音速(マッハ数M=1)、それより下流では超音速(M>1)となる。下流になるとUF₆が凝縮を開始したり、衝撃波が発生するので、この領域より上流で照射する。温度T₀、圧力P₀の混合ガスを圧力Pまで断熱膨張させると、温度Tは次式のようになる。

$$T = T_0 (P/P_0)^{(1-\gamma)/\gamma} \quad (1)$$

3.2 分子法用レーザーと選択励起・解離

²³⁵UF₆を選択的に励起・解離させる励起方法として、2つの方式がある。1つは、赤外レーザーで選択励起された²³⁵UF₆を紫外レーザーで解離させる方式(IR+UV法)である。他方は、赤外レーザーのみで励起と解離を行う赤外多光子解離(IRMPD)を用いる方法である。IR+UV法では、UV光による非選択的な²³⁸UF₆の解離を避けられないため、選択性の低下が起こる。一方、このような低下の起こらないIRMPD法は実用化の目的からは有望な方式であると考えられる。理化学研究所では、超音速ノズル型反応装置を用い、連続波長可変16μm光と高エネルギー16μm光を組み合わせた多波長IRMPD方式を開発し、一段で3%以上の濃縮が可能なることを実証した⁹⁾。

この赤外多光子解離を行うレーザーとしては、パラ水素ラマンレーザーとそれを励起するCO₂レーザーが用いられる。

パラ水素ラマンレーザーは、パラ水素の回転散乱によるラマンシフトを利用し、 $9\mu\text{m}\sim 10\mu\text{m}$ の波長を持つ CO_2 レーザー光を $16\mu\text{m}$ 光に波長変換する。このラマンシフト量は 354.37cm^{-1} で、パラ水素の回転励起単位 $J=2$ と基底単位 $J=0$ とのエネルギー準位差に対応している。励起 CO_2 レーザー波長を変えることにより、出力ラマンレーザー波長を変えることができるが、励起レーザーとして発振波長が離散的であるTEA（横放電型大気圧） CO_2 レーザーを用いた場合、ラマンレーザー出力は連続同調性を持たない。そこで、 $^{235}\text{UF}_6$ の吸収波長に同調させる選択励起用 $16\mu\text{m}$ レーザー光を得るために、TEMA（横放電型高気圧） CO_2 レーザーを用いる。TEMA CO_2 レーザーは、レーザー媒質の圧力を10気圧に高め、スペクトルを広げることで、出力波長を連続的に変化させることを可能にしたものである。

パラ水素ラマンレーザーにおいては、単一パルス入力に対するラマン変換効率が高く、エネルギー効率で30%以上、量子効率で80%に達する。

分子法の実用化には、高出力・高繰り返し回の CO_2 レーザーシステムを開発する必要がある。レーザー照射部である超音速ノズル内のガス線速度を考えると、10kHzオーダーの繰り返しが必要である。そのために、1~2kHzの CO_2 レーザー励起のラマンレーザーを5~10系列用い、マルチプレキシングにより10kHzの繰り返しパルスを作る。現在、パルスあたり数Jの出力で繰り返し速度1kHz、平均パワー数kW級のTEA CO_2 レーザーの開発研究が盛んに行われている。このような高繰り返しTEA CO_2 レーザーの開発にとって、重要な要素技術としては、レーザーを放電励起するための高繰り返しパルス電源技術、放電部のレーザーガスを安定に供給するためのレーザーガス技術等があげられる。現在、高繰り返しレーザー用励起電源のスイッチ素子として、動作寿命や信頼性、操作性などの点において問題のあるサイラトロン管にかわり、信頼性、操作性に優れた半導体素子をメインスイッチとして用い、パルストランスと磁気パルス圧縮回路を組み合わせた全固体素子化電源が開発され、注目されている。理化学研究所では、この全固体素子化電源を用い、長時間動作が可能な1kHz仕様のTEA CO_2 レーザー発振器の開発に成功した¹⁰⁾。また、短時間動作ではあるが、繰り返し速度600Hz、平均パワー3kWの発振にも成功している¹¹⁾。レーザーガス再生技術等の改良により、長時間の安定動作が可能な1kHz、数kW級

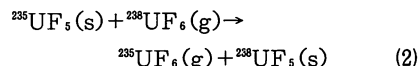
のTEA CO_2 レーザーシステムの開発が期待される。

3.3 生成 UF_6 固体の捕集

UF_6 の同位体選択的な赤外多光子解離反応により生成される濃縮 UF_6 微粒子は、未反応の UF_6 ガスから分離されることが必要である。微粒子の捕集法としては、全圧として数Torr以下の圧力で反応が進行すること、耐フッ素性を有する材料を用いる必要があること、連続流反応装置の処理能力を考慮して、できるだけ低圧力損失の形式が望ましい、これらの点を考慮して、捕集法の選定と開発が行われている。ただし、どのような捕集法を用いるかについては、 UF_6 固体の粒子形状、粒子密度に合わせて最適な方法をとらねばならない。

理化学研究所では、粒径の小さい超微粒子が低密度で存在するといった、一般に捕集が難しいとされる条件下でも捕集できる技術として、減圧インパクターの研究を行い、効率よく UF_6 超微粒子を捕集できる見通しを得ている。また、この結果に基づいて、大量処理のためにバーチャルインパクターを設計することができるようになった。

長時間 UF_6 粒子と UF_6 ガスが接触すると次の反応が起こり、濃縮度が低下する恐れがある。



この反応はフッ素を交換する反応であるが、あたかもウラン同位体が交換された場合と同様の効果を持つので、 UF_6 粒子を連続的に取り出し、未反応の UF_6 ガスとの接触を絶つことが実用規模では必要となるかもしれない。

4. おわりに

レーザー法ウラン濃縮技術は、原子法にせよ分子法にせよ未だ完成された技術ではない。いくつかの技術課題が残されている。

原子法では金属ウランを用いることから、核燃料サイクル内に金属ウランへの変換工程を新たに加える必要がある。また高温の金属ウランに対して耐食性の高い材料の開発、熔融金属の連続処理など今後の課題がある。分子法では、遠心法などの在来法で使用を熟知した UF_6 ガスを用いるため、材料開発の課題はほとんどないが、これまで基礎物性データの集積が少ない固体 UF_6 について、 UF_6 との交換反応や再フッ素化速度等を含めて知見をさらに増す必要がある。

経済性の観点からエネルギーの利用効率の向上を図る必要がある。原子法では、ウラン蒸気発生部における蒸発効率の向上と、レーザーシステムにおけるレーザー効率のさらなる向上が期待される。分子法では、その必要分離エネルギーに対するレーザー運転費の占める割合が高いと予想されることから、レーザー付帯設備をも含めた総合効率の高い高繰り返しラマンレーザーシステムの構築が、経済面で大変重要であると考えられる。

いずれの方法も、将来のウラン濃縮法として、大きな魅力を持つ方法であるうえ、開発されたレーザーの利用や、光反応の解明、超微粒子技術の進展など大きな波及効果が期待できるので、拙速は避けて長期的視点に立った開発努力が望まれている。

参 考 文 献

- 1) 森岡 昇 ほか5名; 原子法レーザーウラン濃縮, 応用物理, 58巻, 2号 (1989), 249-257.
- 2) Travis, D. N., Wort, D. J. H.; Some Aspects of the U. K. Laser Isotope Separation Programme, Proc. Second Workshop on Separation Phenomena in Liquids and Gases, Vol. 2 (1989), 637-650.
- 3) Bohm, H. D. V., Michaelis, W., Weitkamp, C.;

Hyperfine Structure and Isotope Shift Measurements on ²³⁵U and Laser Separation of Uranium Isotopes by Two-step Photoionization, Opt. Commun., Vol. 26, No. 2 (1978), 177-182.

- 4) Demers, Y., Gagne, J. M., Dreze, C., Pianarosa, P.; Hyperfine Structure Measurements on Some ²³⁵U Levels by Laser Fluorescence Spectroscopy, J. Opt. Soc. Am. B, Vol. 3, No.12(1986), 1678-1680.
- 5) Greenland, P. T.; Laser Isotope Separation, Contemporary Physics, Vol.31, No. 6 (1990), 405-424.
- 6) Hamada, H; Current Status of the Development of AVLIS Test Plant, Abstracts of the Int. Sympo. on Isotope Separation and Chemical Exchange Enrichment, Tokyo(1991), 73-74.
- 7) Snavelly, B. B.; Separation of Uranium Isotopes by Laser Photochemistry, Proc. Int. Conf. Quantum Electronics, San Francisco, California(1974).
- 8) Jensen, R. J. et al.; Prospects for Uranium Enrichment, Laser Focus, (1976), 51.
- 9) Takeuchi, K. et al.; Infrared Multiphoton Dissociation of UF₆ in Supersonic Nozzle Reactor, J. Nucl. Sci. Technol., Vol.26, No. 2 (1989), 301-303.
- 10) 緑川克美 ほか3名; 平成3年春季第38回応用物理学関係連合講演会講演予稿集, 29a-E- 6 (1991), 896.
- 11) 小林直樹 ほか4名; 平成3年秋季第52回応用物理学学会 学術講演会講演予稿集, 12a-L- 7 (1991), 958.

