

## 小特集

プラズマを利用した同位体分離

# 6. ICR プラズマ同位体分離

鈴木 達也, 藤井 靖彦<sup>1)</sup>

(若狭湾エネルギー研究センター, <sup>1)</sup>東京工業大学原子炉工学研究所)

## Plasma Isotope Separation by Means of Ion Cyclotron Resonance Heating

SUZUKI Tatsuya and FUJII Yasuhiko<sup>1)</sup>

*Energy Research Center, Wakasa Bay, Tsuruga 914-0047, Japan*

<sup>1)</sup>*Research Laboratory for Nuclear Reactors, Tokyo Institute of Technology, Tokyo 152-8550, Japan*

(Received 5 January 1998)

### Abstract

Enriched isotopes have been used in industry primarily for nuclear fuel and materials, and it is expected that they will be used in more general fields as the ultimate pure materials in the next century. It has been difficult, however to enrich the middle-mass isotopes mixed with light and heavy isotopes; such isotopes are frequently seen in the middle-heavy elements. The ICR plasma isotope separation method is based on ion cyclotron resonance heating, which can selectively heat the ion because the cyclotron gyration depends on the ion mass. The plasma ICR process is most suitable for selective isotope separation of middle-heavy elements because of its isotope selectivity and its flexibility to deal with many kinds of isotopes. In the present paper, an outline of ICR plasma isotope separation method is briefly described.

### Keywords:

plasma, isotope separation, ion cyclotron resonance heating, clearpage

### 6.1 はじめに

現在, 非常に多くの分野で同位体の需要があり[1], それらの需要に応えるべく同位体分離技術の開発が行われている。同位体分離は種々の分離法があり, それぞれ利点および欠点がある。したがって, 1つの同位体分離法ですべての同位体の分離を行うことは適切ではない。同位体分離法は大きく2つに分類することができる。統計的分離法と個別的分離法である。統計的分離法はイオン交換法や遠心分離法などの方法であるが, これらの方法は個別的分離法と比べるとコストが安く, 大量に分離するのに向いているものが多く, 統計的分離法で同位体の分離ができるものについては統計的分離法を用いるのが有利であることが多い。しかし, 1つの元素で3つ以上の同位体を含むものでその中の中間質量の同位体だけを取り出したい時には統計的分離法はほとんど無力であ

る。原理的に同位体を個別に選択して分離できる(中間質量同位体を分離することができる)分離法が個別的分離法であり, その中にはイオンサイクロトロン共鳴同位体分離法(ICR プラズマ同位体分離法), 原子法レーザー同位体分離法(AVLIS), 電磁法などがある。その中で唯一電磁法のみが確立された同位体分離法であるが, 分離効率が十分ではないため新たな分離法が望まれている。個別的同位体分離法の中ではICRISとAVLISが有望である。AVLISは電子のエネルギー準位が同位体によって異なることを利用し, 分離したい同位体のあるエネルギー準位差に相当する波長のレーザー光をあてることにより, 選択的に同位体の電離を行い分離する方法である。AVLISは大量処理の可能性が高くある特定の同位体をターゲットにして分離するのに適しているが, 幅広い同位体に適応させるためにはレーザー光システムを

変えなければならず柔軟性に欠ける。また、中重領域元素は同位体シフトが小さいかほとんどなく、AVLISで同位体分離をするのは適していないと考えられる。中重領域の元素の中間質量同位体を分離するにはICRプラズマ同位体分離法が適しており、非常に注目されている同位体分離法の1つである。

ICR加熱は核融合プラズマ中のイオンの加熱のために発展してきたが[2]、後に質量分析のために利用されている[3]。たとえば、イオン分子反応の研究[4]で使われており、またプラズマプロセッシングや核融合炉の周辺プラズマ中での磁場が強く四重極質量分析計が使用できないところでの使用が期待されている[5]。このICR加熱を同位体分離に用いようという試みは最初J.M. Dawson等によりなされた[6]。

DawsonはカリウムのQマシンを用いて誘導結合励起による選択加熱による共鳴の確認と減速電場を持つタングステン採集リボンにより同位体分離の確認を行った。さらに、後方拡散型の熱陰極放電キセノンプラズマを平板アンテナを用いた直接励起により同位体を選択的に加熱して共鳴現象を確認している。

## 6.2 ICR プラズマ同位体分離の原理

ICRプラズマ同位体分離の概念図をFig. 1に示す。ICRプラズマ同位体分離装置はプラズマ発生部と同位体加熱部と回収部に大きく分かれている。プラズマ発生部で分離すべき同位体の含まれる元素をプラズマにして、同位体加熱部にプラズマを流し、分離すべき同位体を選択的に加熱して回収部で加熱された同位体のみを回収する。

同位体加熱部において分離したい同位体を選択的に加熱する原理を以下に示す。荷電粒子が磁場中に存在する時、荷電粒子は磁場に巻きつくように回転運動を行い、この回転運動はサイクロトロン運動と呼ばれている。サイクロトロン運動の周波数のことをサイクロトロン周波数と言い、 $\omega_c = qB/m$ で表すことができる。このときの旋回半径をLarmor半径といい、 $r_L = mv_{\perp}/qB$ で表すことができる。 $m$ は荷電粒子の質量、 $v_{\perp}$ は磁場に垂直方向の荷電粒子の速度成分、 $q$ は荷電粒子の電荷、 $B$ は磁束密度である。荷電粒子が電子の時この運動を電子サイクロトロン運動といい、イオンの時イオンサイクロトロン運動という。

このイオンサイクロトロン周波数と同じ周波数を持つRF電場を導入し、特定の同位体イオンだけを共鳴させて加熱すること(ICR加熱：イオンサイクロトロン共鳴加熱)により、同位体を分離する方法をイオンサイクロトロン共鳴同位体分離法(ICRプラズマ同位体分離法、ICR法)と呼ぶ。

ICR加熱のためのRF電場が次式

$$E = E_0 \sin \omega_{ci} t \quad (1)$$

の様に与えられた時、このRF電場で加熱されるイオンのLarmor半径は他の粒子と衝突することがなければ次式のように増加する[3]。

$$r \approx E_0 t / 2B \quad (2)$$

Larmor半径は $B$ が一定であれば時間に関して単調で一次の増加関数であるので、時間が経過するとICR加熱

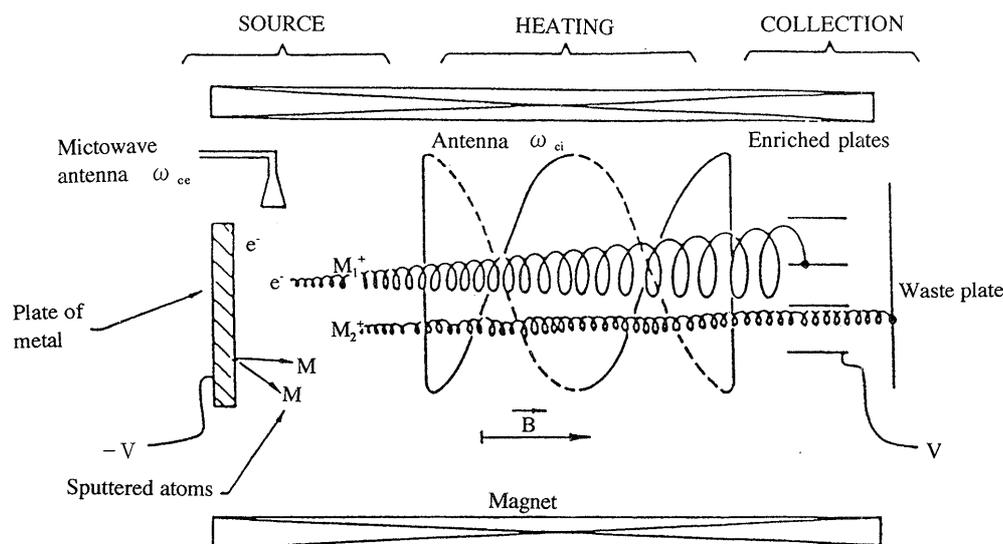


Fig. 1 Schematic diagram of ICR plasma isotope separation method.

された同位体イオンは壁または採集板に衝突してプラズマから取り除かれる。または、ICRによる選択的加熱により、生じたエネルギー差を利用して同位体の分離を行う。ICR加熱による同位体の選択的加熱の例として、フランス CEA の Saclay 研究所の実験装置 ERIC で行われた亜鉛の同位体の実験結果を Fig. 2 に示す[7]。この実験は磁場 1.25 T で実施されており、イオンエネルギー分析器（イオンセンシティブプローブ、勝俣プローブ）で測定した磁場に垂直方向のイオン温度  $T_{iT}$  を縦軸にしてある。

### 6.3 同位体分離装置の構成とその特性

#### 6.3.1 ICR プラズマ同位体分離のためのプラズマ源

ICR プラズマ同位体分離に用いるプラズマには次のような性質が求められる。大量の同位体を処理できるようにするために、プラズマ密度（イオン密度： $\sim 10^{18} \text{ m}^{-3}$ ）が高くなければならない。プラズマの直径が大きくできるようなものが処理量を増やすために必要である。ICR プラズマ同位体分離の分離機構は原理的にイオンにしか作用しないので電離度を高くしなければならない。また、ICR 加熱を効率的に作用させるためには発生させるイオンを多価にしないようにしなければならない。ICR プラズマ同位体分離では特に中重領域の元素の同位体の分離が求められており、中重領域では金属元素が大部分を占める。これら種々の金属元素に対応できる柔軟性をもったプラズマ発生法が求められる。これらの条件が成り立った上で、発生するプラズマ中のイオンエネルギー分布の広がり狭いものが望ましい。当然のことながら、プラズマは安定して存在しなければならない。商業規模の同位体分離装置まで考えた時にはプラズマ発生部のコストが大きく影響するため、できるだけ運転コストを低くできるプラズマ発生部が必要になる。実際には上記の条件をすべて満たすことは困難であり、プラズマ発生法の開発が重要な課題になっている。

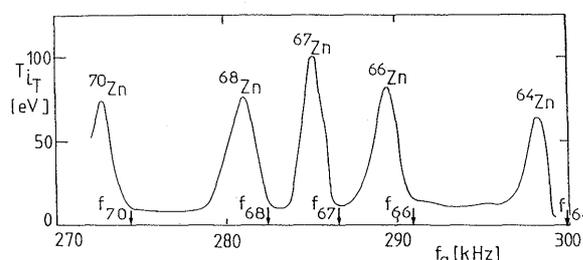


Fig. 2 Transverse ionic temperature of Zn isotopes on ERIC device obtain with an ion energy analyzer [7].

現在使われている ICR プラズマ同位体分離用の金属プラズマの発生方法としては ECR によるスパッタリング型プラズマ源が最も成功しており、蒸気圧が高い元素に関しては Joule 加熱によって気化させたものを ECR でプラズマにしている。また、アルカリ金属に関しては表面電離を用いる Q マシン[8,9]がプラズマ発生に使われている。

ECR 放電を利用したスパッタリングプラズマ源の主要な例としてフランスの Saclay 研究所のプラズマ源を Fig. 3 に示す。ICR プラズマ同位体分離法では ICR による選択的加熱のために強磁場（対象とする同位体にもよるが  $\sim 1 \text{ T}$  程度）を必要とするため、プラズマ源の領域でも比較的強い磁場になる。ECR 放電に用いるマイクロ波の周波数も  $\sim 10 \text{ GHz}$  程度の高周波を発生できるジャイロトロン、クライストロンといったマイクロ波発振器が使われている。

Q マシンは種々の金属元素に対応するだけの柔軟性には問題があり、イオン化ポテンシャルの低いアルカリ金属などにしか使えないが、その他の条件については満足できるものである。そのため、Dawson 等を初めとして基礎的な研究で使われ、かつ放射性セシウムの分離への応用など、アルカリ金属などの同位体分離には使える可能性がある。

#### 6.3.2 ICR による選択的加熱部

選択的加熱部では 6.2 で示したように磁場が重要な役割を担っており、ICR 加熱のイオン種の選択性は磁場の均質性に依存する。磁場に  $\Delta B$  だけ不均質性がある時、イオンサイクロトロン周波数の揺らぎの割合はサイクロトロン周波数から考えて

$$\Delta\omega_{ci}/\omega_{ci} = \Delta B/B \quad (3)$$

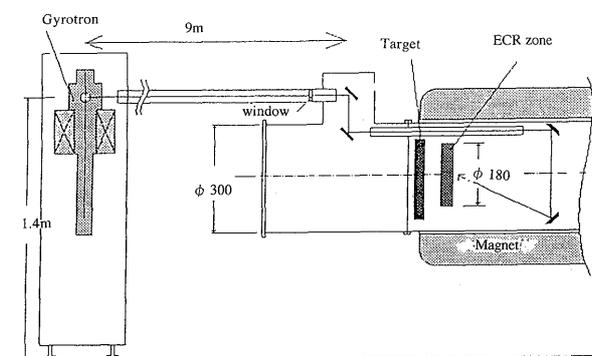


Fig. 3 ECR sputtering plasma source of ERIC at CEA-Saclay [17].

と表される。質量  $m_i$  のイオンがサイクロトロン運動をしている時、周波数  $\omega/2\pi$  の電磁波を導入すると、 $\omega$  に相当するサイクロトロン周波数を持つイオンの質量を  $m$  とすれば、

$$\Delta\omega/\omega_{ci} = \Delta m/m \quad (4)$$

のような関係式が成り立つ。 $\Delta\omega \equiv \omega - \omega_{ci}$ ,  $\Delta m \equiv m_i - m$  である。この質量  $m_i$  のイオンが導入された周波数  $\omega/2\pi$  の電磁波で共鳴が起きない条件は、導入された電磁波とサイクロトロン周波数のずれ  $\Delta\omega$ , が磁場によるサイクロトロン周波数の揺らぎ  $\Delta\omega_{ci}$  よりも大きくなければならない。つまり、(3)式と(4)式とから

$$\Delta m/m > \Delta B/B \quad (5)$$

の関係を満たしていなければならない。すなわち均質な磁場を作ることが重要である。この均質な磁場中にアンテナを設置する。ICR加熱に用いるアンテナには平板アンテナを用いる方法とヘリカルアンテナを用いる方法がある。平板アンテナを用いる方法は直接プラズマ中にICR加熱用のRF電場を容量結合的に導入するので、プラズマ中にRF電場が入りさえすれば6.2で示したような原理で(2)式にしたがってイオンは加熱される。しかし、このタイプの電極ではプラズマの密度が濃くなるとプラズマ中の電子の運動によりRF電場がプラズマ中に入らなくなる問題がある。また、プラズマ中に電位勾配が存在すると周波数がシフトすることが指摘されている[3]。実際に高山等はシートプラズマを用いた研究においてシートプラズマ周辺に「ポテンシャル壁」が生じ、その壁の大きさによる共鳴周波数がずれることを報告している[10]。

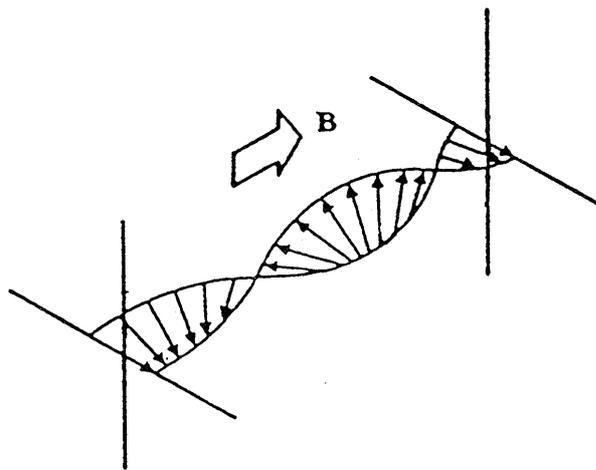


Fig. 4 Magnetic Field produced by helical antenna.

ヘリカルアンテナではプラズマ中に誘導的にRF電場を発生させるため、電場が入らなくなる平板電極の欠点はなくなるが、RF電場がFig.4に示してあるようにねじれる。この時、ICR加熱部を速さ  $v$  で通り抜けるイオンから見ると周波数はDopplerシフトにより  $kv$  だけずれて見える。Fig.2の亜鉛同位体の加熱において亜鉛同位体のピークと加えた周波数がずれていることがわかる。 $k$ は磁場に平行方向の波数でヘリカルアンテナのピッチに依存する。Dopplerシフトはただ単にイオンの共鳴する周波数をずらすだけでなく、イオンは速度分布を持っているため、非共鳴のイオンの一部を加熱したり、一部の共鳴させるべき同位体イオンを加熱できずに、分離係数を下げる方向に働く。

### 6.3.3 回収法

回収系は加熱された同位体イオンを回収する部分とそれ以外のもの(劣化部)を回収する部分に分けることができ、基本的には加熱されたイオンを回収部分があり、その部分を通り抜けたものが劣化部になる。

ICRで選択的に加熱された同位体イオンを回収する方法は共鳴イオンと非共鳴イオンのエネルギー差を利用する方法とLarmor半径の違いを利用する方法がある。エネルギーによる分離回収系は採集板に電圧をかけて減速電場を作り、その減速電場を乗り越えることができるイオンだけを回収する方法である。Larmor半径の違いを利用する方法の一つはICR加熱によりプラズマの外部にでるまで加熱し、壁または壁近傍においた採集板に採集する方法である。もう一つはプラズマの中にスリット状の採集板をいれる方法である。プラズマの外部に加熱した同位体イオンを追い出す方法はプラズマ柱の半径が小さい時にはよいが、プラズマ径が大きなものではプラズマの外に出るだけのエネルギーをイオンに持たすことは現実的ではないこととICR加熱に使うプラズマは強磁場中にあるためプラズマが負に帯電しており、そのポテンシャル障壁を越えてプラズマの外に出なければならず、そのポテンシャル障壁が分離を妨げる作用があるなどの問題がある。プラズマ中にスリットをいれる方法ではこれらの問題はないが、加熱していない同位体も採集板にあたって分離係数を下げる問題点がある。そこで、実際にはエネルギー差とLarmor半径による空間的な差の2種類の方法を組み合わせて、プラズマ中にスリットをいれてLarmor半径の違いを利用するとともに、電圧をかけてエネルギーの低い、つまり選択的に加熱していない粒子は採集板に付着しないようにする方法をとる。

## 6.4 各国の取り組み

アメリカ合衆国では Dawson 等の研究を元に TRW 社がプラズマ分離プロセス (PSP) と名付けて PPM と呼ばれる実験装置を用い次世代のウラン濃縮法として研究を行ってきた。次世代のウラン濃縮法としてはこのプラズマ分離プロセス (PSP) の他に分子法レーザー同位体分離法 (MLIS) と原子法レーザー分離法 (AVLIS) の三種類の同位体分離法の研究が行われてきたが米国エネルギー省はウラン濃縮のための研究を AVLIS に一本化した。そのため、ICR プラズマ同位体分離法はその優れた特徴を生かすためにその他の元素で応用することとし、研究が進められている [11]。同位体分離の対象にした元素は U を初めとして In, Pd, Ni 等20種類にも及ぶ。

ロシアでは Kurchatov 研究所で SIRENA と呼ばれる実験装置を用いて研究が行われており、リチウム同位体をアーク放電によりプラズマ化して常伝導のコイルによってつくられた磁場中に4極ヘリカルアンテナを用いて分離の基礎研究を行っている [12]。また超伝導磁石とジャイロトロンをもちいた ICR プラズマ同位体分離のためのスパッタリング ECR プラズマ源の開発も行っている [13]。

フランスでは Saclay 研究所で Louvet 等が超伝導磁石による強磁場を発生できる ERIC と呼ばれる装置で研究を行っている [14-16]。ERIC の概略図を Fig. 5 に示す。ERIC では ECR プラズマ源を用い、スパッタリングや Joule 加熱により金属プラズマを発生させて多くの

研究を行ってきた。ICR 加熱のためのアンテナは当初2極のヘリカルアンテナを用いていたが、その後4極のヘリカルアンテナを用いて研究。フランスでは Ca, Cr, Zn, Cd, Ba, Yb 等の同位体を対象として研究を行っており、分離係数は  $^{48}\text{Ca}$  の24 (部分的には133まで達している) が最大で、ほとんどの元素で約10程度の値を示している [17]。

上記3ヶ国の実験装置の特徴は ICR 加熱用のアンテナをヘリカルアンテナにし、誘導的に RF 電場を作り加熱している点とプラズマ発生部を高出力のマイクロ波発生装置を用いている点である。ただし、ロシアは高出力のマイクロ波発生装置は SIRENA 本体には取り付けられていない。また、同位体の回収系はプラズマ中に負に帯電させたスリットを入れ、Larmor 半径とエネルギー差を利用した分離系を取り付けてある。ここで、上記3ヶ国の実験装置について Table にまとめる。

日本では分離実験ができる規模の大きな実験装置は作られておらず、基礎的な研究がいくつかのグループで進められている状態である。

名古屋大学プラズマ研究所 (現在の核融合科学研究所) の足立等はリチウム金属を Q マシンでプラズマを生成し、オリフィスによりプラズマを板状にしたものに平板電極でリチウム-7 イオンを ICR 加熱し、リチウム-7 イオンの Larmor 半径を増加させ、リチウム-7 イオンを平行平板に衝突させることにより分離を試みた。リチウム-7 イオンとリチウム-6 イオンを四重極質量分析計

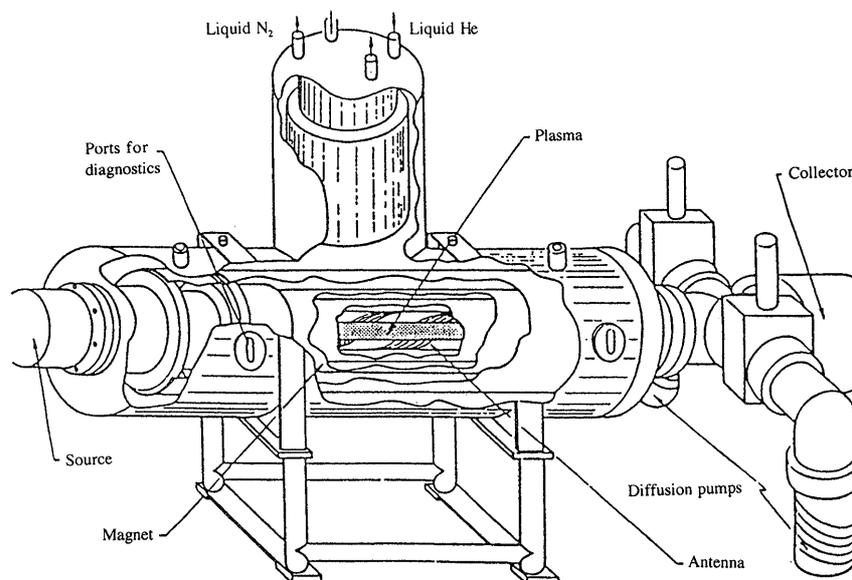


Fig. 5 ERIC: experimental apparatus for isotope separation of CEA-Saclay [14].

Table 1 Comparison of ICR plasma separation devices.

	PPM [15]	SIRENA [7, 12, 13]	ERIC [7, 15]
$B(T)$	2	0.25	3
$\Delta B/B$	$10^{-3}$	$10^{-2}$	$5 \times 10^{-3}$
Homogeneous Region (m)	5	0.8	2
Plasma Diameter (cm)	60	6	12
Plasma Source	ECR	arc discharge	ECR
$f_{ce}$ (GHz)	28	—	10, 18, 29, 37.5
$P_{f_{ce}}$ (kW)	~100	—	~1

により測定した結果リチウム-6イオンが濃縮されていることを観察した[18]. 東海大学の高山等は矩形コイルによるカスプ磁場と浮動電極を用いてシートプラズマと言うイオンの Larmor 半径の 2 倍程度の厚さしか持たない板状の特殊なプラズマを作り, 同位体分離の研究を行っている[10-21]. 高山等の実験装置を Fig. 6 に示す. 足立, 高山等はプラズマをイオンのサイクロトロン運動の直径程度の厚さの板状のプラズマにすることによって共鳴同位体イオンが高密度のプラズマ中を通過する時間を短くし, 共鳴同位体イオンが非共鳴の同位体イオンと衝突することによって分離係数が下がる問題を克服しようとしたものである. 同位体の回収方法は選択的にある同位体を加熱して Larmor 半径を大きくし, 非共鳴の同位体との空間的な差異による系を用いている.

東京工業大学においても小型の実験装置を用いてリチウムなどのアルカリ金属を対象にして基礎的な研究を行っている[22,23]. 現在, 東京工業大学と若狭湾エネルギー研究センターと共同で新たな実験装置を計画している.

## 6.5 イオンサイクロトロン共鳴同位体分離の応用

本論の「はじめに」で述べたように, 同位体分離法にはガス拡散, 遠心分離, 化学交換法等, 大量生産に向けた統計的分離法とレーザー, 電磁, イオンサイクロトロン共鳴 (ICRIS) 等個別的分離法がある. 後者は高濃縮少量生産に向いており, 実際 g~kg オーダの生産には電磁法が現在も用いられている. しかし, kg~ton オーダの生産には電磁法は余りにコストが高く, ICRIS 法が適当である. レーザー法の例えば原子蒸気レーザー法はウラン等対象元素を決めれば有効な分離法であるが, 中重領域元素の場合吸収スペクトルの同位体差が小さく, また奇数同位体のスペクトルが分裂し対象元素, 同位体が限られる. このようにそれぞれ同位体分離法には特徴があり, 目的によって最も経済性の高い分離法が選ばれる. 核燃料や重水製造には上記統計的分離法が利用され, 研究用少量高純度各種金属同位体の製造には電磁法が用いられてきた. 中重量域金属同位体のニーズが高まれば, ICRIS が最適分離法として実用化することが期待される.

今後の科学技術の研究や高度な工業技術, より安全かつ効率的エネルギー開発, さらには高度な医療技術や, 環境解析など多方面に種々の安定同位体が必要となると予測されている[1]. 現在でも  $^{114}\text{Cd}$  がレーザー発振器に使われており,  $^{70}\text{Ge}$  と  $^{74}\text{Ge}$  の核反応を利用した GaAs 半導体製造の夢もある. 江尻等[24]の二重  $\beta$  崩壊の研究には  $^{100}\text{Mo}$  が使われ, この分野の研究にはその他,  $^{48}\text{Ca}$ ,  $^{76}\text{Ge}$ ,  $^{150}\text{Nd}$ ,  $^{130}\text{Te}$ , 等多数の安定同位体が使われる. 医療分野では核医学が進歩しており, 陽電子消滅の際の  $\gamma$  線を測定する PET (Positron Emission

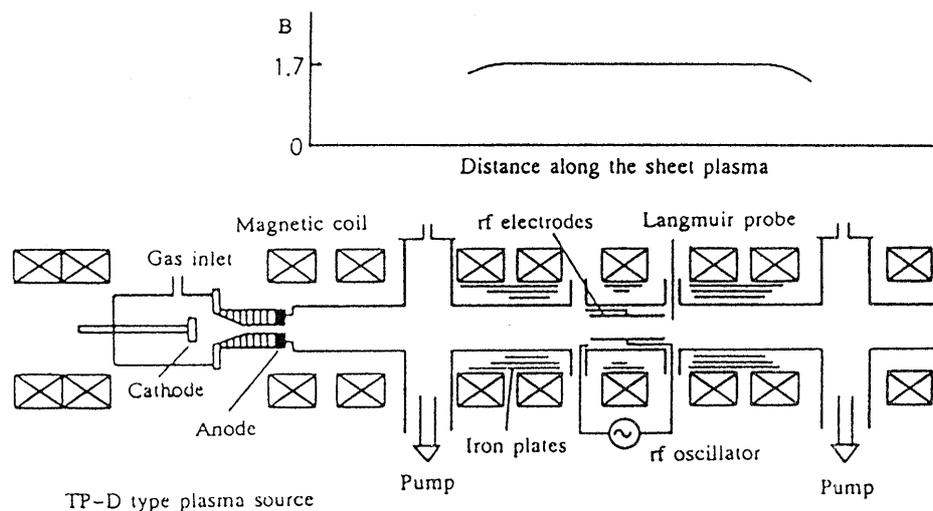


Fig. 6 Experimental apparatus for ICR plasma separation method with sheet plasma [19].

Tomography) や  $\gamma$ 線放出核種を検査薬に埋め込んでその  $\gamma$ 線を分析する SPECT (Single Photon Emission Tomography) が開発されている。これら検査法で使われる放射性同位体を加速器や原子炉で効率的に製造するため、その原料となる安定同位体もまた濃縮される必要がある。 $^{58}\text{Fe}$ ,  $^{68}\text{Zn}$ ,  $^{98}\text{Mo}$ ,  $^{123}\text{Te}$ ,  $^{152}\text{Gd}$ ,  $^{172}\text{Ge}$ ,  $^{201}\text{Pb}$ ,  $^{202}\text{Hg}$ ,  $^{203}\text{Tl}$  等がこの用途に使われる。水文分析や環境分析などでも kg オーダの金属元素同位体をトレーサに使う可能性がある[25]。

エネルギー分野ではやはり原子力が中重量域金属元素安定同位体のマーケットになりそうである。ICRIS 法の応用が最も期待される分野が  $^{157}\text{Gd}$  の濃縮である[1,26]。天然ガドリニウムは質量数152, 154, 155, 156, 157, 158, 160と7個の同位体から成り、この中で  $^{157}\text{Gd}$  の熱中性子吸収断面積が 254,000 バーン ( $10^{-24}\text{cm}^2$ ) と大きく、天然ガドリニウムが軽水型原子炉燃料内で反応度調整のための中性子吸収材として使われている。ガドリニウムは沸騰水型 (BWR) 原子炉では可燃性毒物として以前から使われていたが、加圧水炉 (PWR) でも使われるようになってきている。しかしガドリニウムをウラン燃料に添加すると燃料の熱伝導性や、融点が低下し燃料設計上余り多くを入れることができない。また天然ガドリニウムを使う場合、燃焼が進んだ時点で中性子吸の必要はなくなるが、残っている他のガドリニウム同位体が中性子を吸収し、核反応度を低下させるという問題が生じる。 $^{157}\text{Gd}$  は天然に12.7%含まれているが、これを80%に濃縮して用いると、ガドリニウム添加絶対量が減るだけでなく、燃焼進行後期の被毒作用が少なくなり、燃料の経済性を改善する。これで現れるウラン濃縮コスト節約を経済性の目安とすると、ガドリニウム濃縮費は3,500円/g 80%  $^{157}\text{Gd}$  となる。この価格以下に  $^{157}\text{Gd}$  濃縮コストが低下すれば実用化が可能であろう。

鳥羽[27]は日本のウラン燃料用に80%  $^{157}\text{Gd}$  を年間570 kg 生産する ICRIS 法プラントをカリフォルニアに建設することを想定したコスト分析を行っている。それによると、資本費は3,300万ドル、運転費は年間660万ドルであり、濃縮  $^{157}\text{Gd}$  1 g のコストは25ドルとなり \$1 = ¥130 で計算すると3250円/g となる。計算の変動幅や、為替レートの変動を勘案すると経済性がどうか微妙なところであるが、今後の技術の進歩によって超伝導磁場等が安く供給される可能性があり、将来経済的に成立することが期待される。

また軽水炉分野で  $^{64}\text{Zn}$  を除去した亜鉛の需要が今後増えるであろうと予想されている。近年亜鉛を BWR 冷

却水に注入すると構造材金属からの  $^{60}\text{Co}$  溶出が減り、プラント周り作業空間での放射線被曝量が低下することが分かった。Fig. 2 に示したように、亜鉛には質量数64, 66, 67, 68, 70の5個の同位体が含まれており、原子炉内では天然亜鉛の49%を占める  $^{64}\text{Zn}$  から中性子吸収により  $\gamma$ 線を出す放射性同位体  $^{65}\text{Zn}$  が発生する。したがって  $^{64}\text{Zn}$  を除去した亜鉛を使用するとさらにプラント周り放射線量が低下することがわかり、米国の GE が  $^{64}\text{Zn}$  除去亜鉛を注入する水管理法を提案している。この方法は PWR にも適用され、やはり作業時の放射線被曝を低下させることが期待されている。世界中でのこの目的での亜鉛の需要は年間1,000 kg 程度と見積もられている。

Louvet らの研究によると ICRIS による Zn 同位体分離では亜鉛の融点が比較的低いため、スパッタ法ではなく、電気炉で十分な蒸気を発生できる。Zn の第1イオン化ポテンシャルは9.39 V と高くイオン化には ECR が適当である。彼らの実験では電気炉 800 °C で亜鉛蒸気圧  $4 \times 10^{-2}$  mbar, 蒸発速度 10 g/h となり、これにマイクロ波を照射しイオン化し、分離部では高周波 1 kW (アンテナ電流 71 A) を印加し分離している。その結果では分離係数  $\alpha(64)=0.27$  (劣化) と  $\alpha(68)=4.46$  であった。

原子炉使用済み燃料には多種類の核分裂生成物が入っており、その中のいくつかの元素は利用できる。たとえばパラジウムは中でも有望な物質である。しかしパラジウムには長半減期放射性同位体  $^{107}\text{Pd}$  が入っており、使用済み燃料から回収されるパラジウムを工業用などに使うためには、 $^{107}\text{Pd}$  を分離しておく必要がある。同様に使用済み核燃料に含まれるセシウムは安定な同位体133から137まで分布する。このうち  $^{135}\text{Cs}$  は半減期300万年の長寿命核種であり、 $^{137}\text{Cs}$  は半減期30年の放射性同位体である。 $^{137}\text{Cs}$  は  $\beta$ 放射体であるがその娘核種である  $^{137m}\text{Ba}$  が 0.6 MeV の  $\gamma$ 線を放出するため  $\gamma$ 放射体とも取り扱われる。 $^{135}\text{Cs}$  さえ取り除けば、 $^{137}\text{Cs}$  は放射線源として使える。 $^{137}\text{Cs}$  は半減期の長さから300年経過すると1,000分の1に少なくなる。 $^{135}\text{Cs}$  の方は原子炉等で中性子を照射し短寿命の  $^{136}\text{Cs}$  に転換し消滅させる。このような目的にも ICRIS が最適である。セシウムはイオン化ポテンシャルの最も低い元素であり、2,000 K に熱したプレートでイオン化することができる。この手法はかつてプラズマ研究用 Q マシンに使われた。プラズマ直径 1 m の大型 ICRIS 装置を用いると年間5,000 kg のセシウムが処理されると試算されている。

安定同位体は核融合炉構造材としても有用である。構

造材の放射化は核融合炉の実用化を考えたとき深刻な問題であり、放射化を少なくする同位体テーリングが検討されている。構造材には Fe, Ni, Zr, Mo, W 等が用いられるがこれらの元素はそれぞれいくつかの同位体からなり、核融合炉環境での放射化の程度が高い同位体と、低い同位体がある。もちろんその低い同位体が望ましい物であり、ニッケルでは天然にわずか1.1%含まれる<sup>61</sup>Niが最適である。その他<sup>57</sup>Fe, <sup>53</sup>Cr, <sup>97</sup>Mo, <sup>183</sup>Wが放射化の少ない同位体でありその濃縮法の開発が望まれる。構造材となるほど大量の材料に対してICRIS法を適用するとするとさらに大型プラントが必要であり、高出力ECRイオン源用マイクロ波発振器、大口径超伝導磁場など開発課題も多い。

## 6.6 あとがき

核融合炉の研究から大型強磁場技術、プラズマ加熱のためのジャイロトロンやマイクロ波技術など機器の開発が進んだ。大口径プラズマ柱を分離媒体とするイオンサイクロトロン共鳴同位体分離法(ICRIS)は構造的に核融合炉研究成果の恩恵にあずかることのできる技術である。これまでICRISの原理はよく知られているが分離装置のコストが高く、経済性は困難視されていた。しかし超伝導磁場発生装置やマイクロ波関連機器の開発が進んでおり、近い将来ICRISもこれらの成果を受けて分離装置のコストが下がり、実用プラントとして完成することが期待される。

## 参考文献

- [1] 藤井靖彦, 西沢嘉寿成, 佐久間洋一, 甲斐荘正恒, 梶原正宏, 大原裕康, 湯浅龍彦, 塚田裕三, 金松知幸, 平野修助, 米山忠克, 山口大美, 須藤収, 米川茂, 矢戸弓雄, 和田一洋, 松本弘一, 和田英太郎, 山本一良: 日本原子力学会誌 **35**, 952 (1993).
- [2] 高村秀一: プラズマ加熱基礎論 (名古屋大学出版会, 1986) .
- [3] H. Sommer, H.A. Thomas and J.A. Hipple, Phys. Rev. **82**, 697 (1951).
- [4] 片倉久雄, 井上雅夫: 質量分析 **39**, 193 (1991).
- [5] T. Mieno, H. Kobayashi and T. Shoji, Means. Sci. Technol. **4**, 193 (1993).
- [6] J.M. Dawson, H.C. Kim, D. Arnush, B.D. Fried, R.W. Gould, L.O. Heflinger, C.F. Kennel, T.E. Romesser, R.L. Stenzel, A.Y. Wong and R.F. Wuerker, Phys. Rev. Lett. **37**, 1547 (1976).
- [7] A. Compant la Fontaine and V. G. Pashkovsky, Phys. Plasmas **2**, 4641 (1995).
- [8] R.W. Motley, *Q-Machines*, (Academic Press, New York, 1975).
- [9] N. Rynn, Rev. Sci. Instrum. **35**, 40 (1963).
- [10] T. Noguchi, T. Tanikawa, K. Yamauchi, T. Nihei, H. Watanabe, K. Sunako and K. Takayama, Nucl. Instrum. & Methods **B37/38**, 632 (1989).
- [11] J.G. Tracy, Nucl. Instrum. & Methods **A282**, 261 (1989).
- [12] A.I. Karchvskii, V.S. Laz'ko, Yu.A. Muromkin, A.I. Myachikov, V.G. Pashkovskii, A.L. Ustinov and A.V. Chepkasov, US DOE Report, ORNL/tr-92/7 (1992).
- [13] Yu.A. Muromkin, Russian Annuals in Plasma Physics, (1991) 83 (*Brieftranslation from Russian*).
- [14] P. Louvet, *Proc. Workshop Separation Phenomena in Liquids and Gases*, Darmstadt, Germany, 1987.
- [15] P. Louvet, *Proc. 2nd Workshop Separation Phenomena in Liquids and Gases*, Versailles, France, 1989, Vol. 1, p. 5.
- [16] P. Louvet and A. Compant la Fontaine, *Proc. Int. Symp. Isotope Separation and Chemical Exchange Uranium Enrichment*, Tokyo, 1990 (Tokyo Institute of Technology, Tokyo, 1992) Bull. Res. Lab. Nucl. Reactors Special Issue Vol. 1, p. 289.
- [17] P. Louvet, A. Compant la Fontaine, B. Larousse and M. Patris, *Proc. 4th Workshop Separation Phenomena in Liquids and Gases*, Beijing, China, 1994.
- [18] 足立圭三: 高周波封じ込め機構を利用したリシウム同位体分離, 昭和62年度科学研究費補助金(試験研究(2)) 研究成果報告書 (1988).
- [19] K. Nanri, K. Arai, A. Matsubara, K. Sunako, T. Tanikawa, E. Yabe, K. Kawamura, K. Takayama and K. Yamauchi, Nucl. Instrum. & Methods **B70**, 37 (1992).
- [20] K. Nanri, M. Matsumura, M. Homma, N. Kinoshita, E. Yabe, K. Kawamura and K. Takayama, Rev. Sci. Instrum. **65**, 1359 (1994).
- [21] K. Nanri, M. Matsumura, T. Yoshida, M. Homma, E. Yabe, K. Kawamura and K. Takayama, *Proc. 2nd Asia-Pacific Conf. Plasma Science & Technology*, Daejeon, Korea, 1994, p 341.
- [22] T. Suzuki, M. Nomura, M. Okamoto and Y. Fujii, *Proc. 2nd Asia-Pacific Conf. Plasma Science & Technology*, Daejeon, Korea, 1994, p 333.
- [23] T. Suzuki, M. Nomura, M. Okamoto and Y. Fujii, Vacuum **47**, 671 (1996).
- [24] 江尻宏泰 岡田憲志: 日本物理学会 **42**, 453 (1987).
- [25] R.D. Witt, US DOE report MLM-2487 (1978).
- [26] R.D. Witt, US DOE report MLM-2391 (1977).
- [27] 井上 伸, 鳥羽正男, 吉国正明: 原子力工業 **40**, 67 (1994).