

# 理研ニュース

No.162 December 1994

理化学研究所

## 2●研究最前線

分子法レーザーウラン濃縮の  
実用化に道を開く

## 6●SPOT NEWS

メスバウアー分光法による植物体中の鉄  
およびコバルトの状態分析

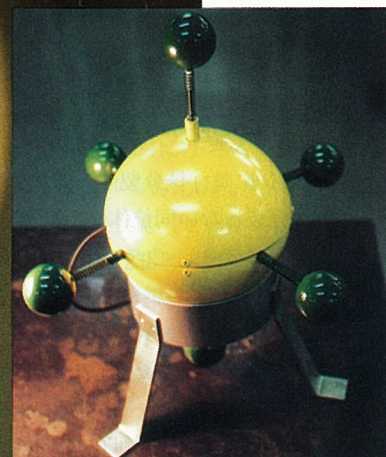
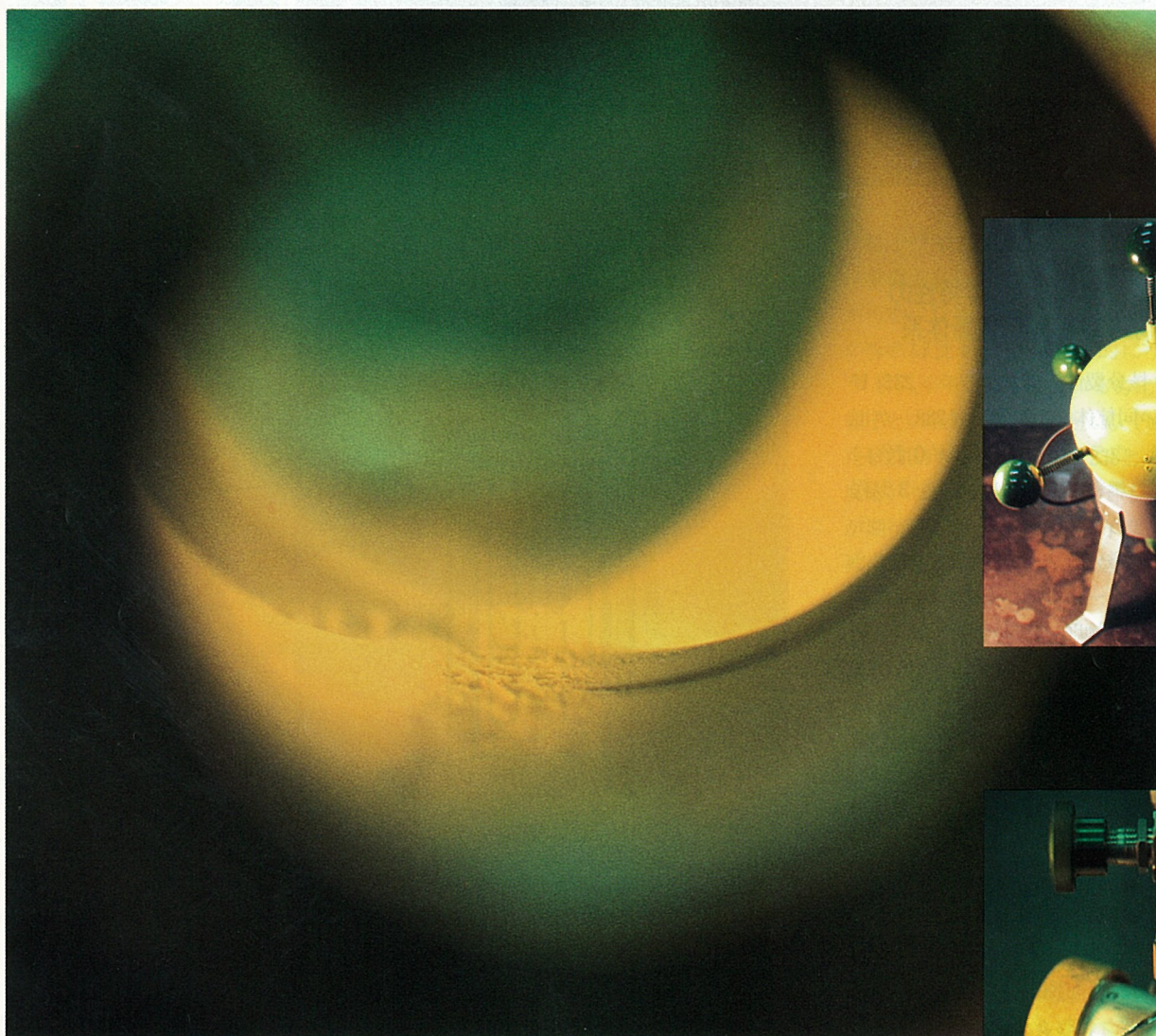
## 6●理研の主な公開特許

## 7●TOPICS

理研のミュオン実験施設、世界最高強度のビーム発生に成功  
タイ国のシリントーン王女、理研をご視察

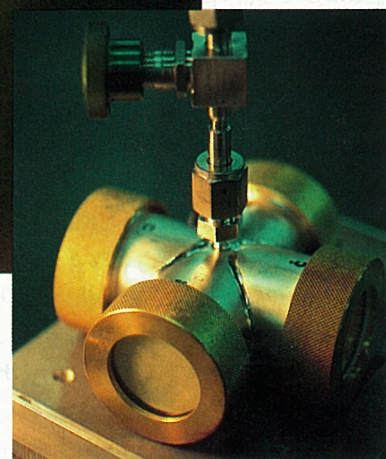
## 8●原酒

米国喫煙体験



UF<sub>6</sub>分子模型

レーザーで生成したUF<sub>6</sub>超微粒子  
(記事は2ページ)



UF<sub>6</sub>超微粒子の粒子成長観察用十字型セル

# 分子法レーザーウラン濃縮の実用化に道を開く

## レーザーで生成したUF<sub>5</sub>超微粒子のイオン核生成

原子力発電用のウラン燃料製造においては、天然ウランに含まれる核分裂性のウラン235の濃度を高めるウラン濃縮技術が必要とされる。

現在、実用化されている最も効率のよい濃縮技術は遠心分離法で、従来のガス拡散法に比べて大幅なプラントの小型化、経済性向上が図られている。

この遠心分離法に続く次世代のウラン濃縮技術として世界的に開発が進められているのが「レーザー法」である。

理研では、分子法レーザーウラン濃縮技術の基礎研究を進めているが、このほど、分子法における課題とされてきた、生成される超微粒子（ナノ粒子）の捕集・ハンドリング技術に関して画期的な成果を得た。

### U235とU238のわずかな物理・化学特性の相違を利用して分離する複雑な技術体系

天然ウランには、核分裂性の同位体ウラン235(U235)と核分裂しない同位体ウラン238(U238)が混ざっている。しかし、ウラン235の組成は約0.7%にすぎず、原子力発電の燃料とするには組成を3%程度に濃縮しなければならない。

ウラン濃縮には、電磁分離法、ガス拡散法、遠心分離法、化学法、レーザー法などがある。いずれも、U235とU238のわずかな物理・化学特性の違いを利用して分離・濃縮するのできわめて複雑な技術が必要となる。現在、実用化されているのはガス拡散法と遠心分離法である、ただし、ガス拡散法や遠心分離法にしても、プラントがきわめて大掛かりとなるのが難点である。ちなみに、日本では遠心分離法が採用されている。(図1、図2)

これに対して、理論的に最も効率良く分離、濃縮が行えるのがレーザー法である。

レーザー法には、原子法と分子法がある。原子法ではウラン蒸気にレーザーを照射して、質量の小さいU235を優先的にイオン化し、イオンを電極で捕集する。一方、分子法(分子法レーザーウラン濃縮=RIMLIS)では、遠心分離法同様に、天然ウランを製錬・転換した六フッ化ウラン(UF<sub>6</sub>)ガスを原料とする。超高速のUF<sub>6</sub>のガス流にレーザーを照射して光分解することで、<sup>235</sup>UF<sub>6</sub>を優先的に<sup>235</sup>UF<sub>5</sub>に

図1 ガス拡散法

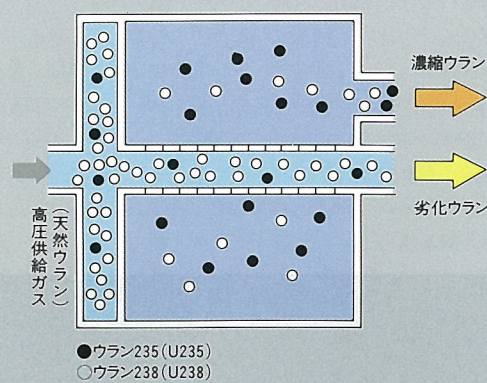
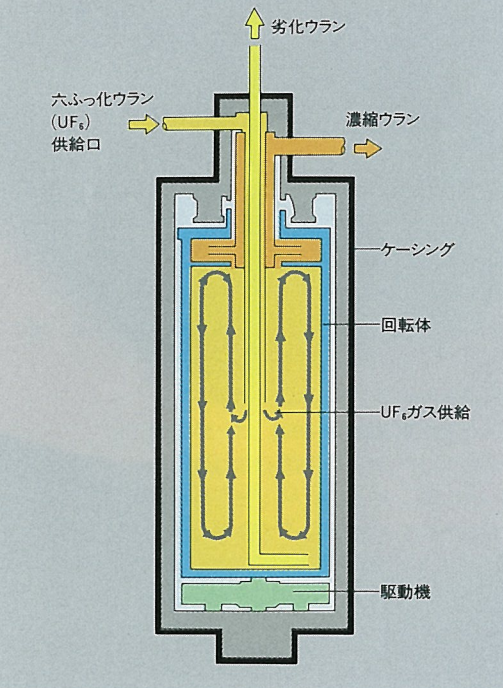


図2 遠心分離法



転換して、微粒子状の<sup>235</sup>UF<sub>5</sub>を捕集する。

こうしたレーザー法は、経済性が高いので、現在、各国で実用化に向けた研究開発がさかんに進められている。(図3 分子法)

### 煙の粒子より細かい「ナノ粒子」を集める

レーザー法の中でも、扱いやすい固体で捕集できる点が分子法の実用化の上で最も有利な点であるが、問題は生成されたUF<sub>5</sub>の一次粒子が直径5~40nm

写真1

十字型セル

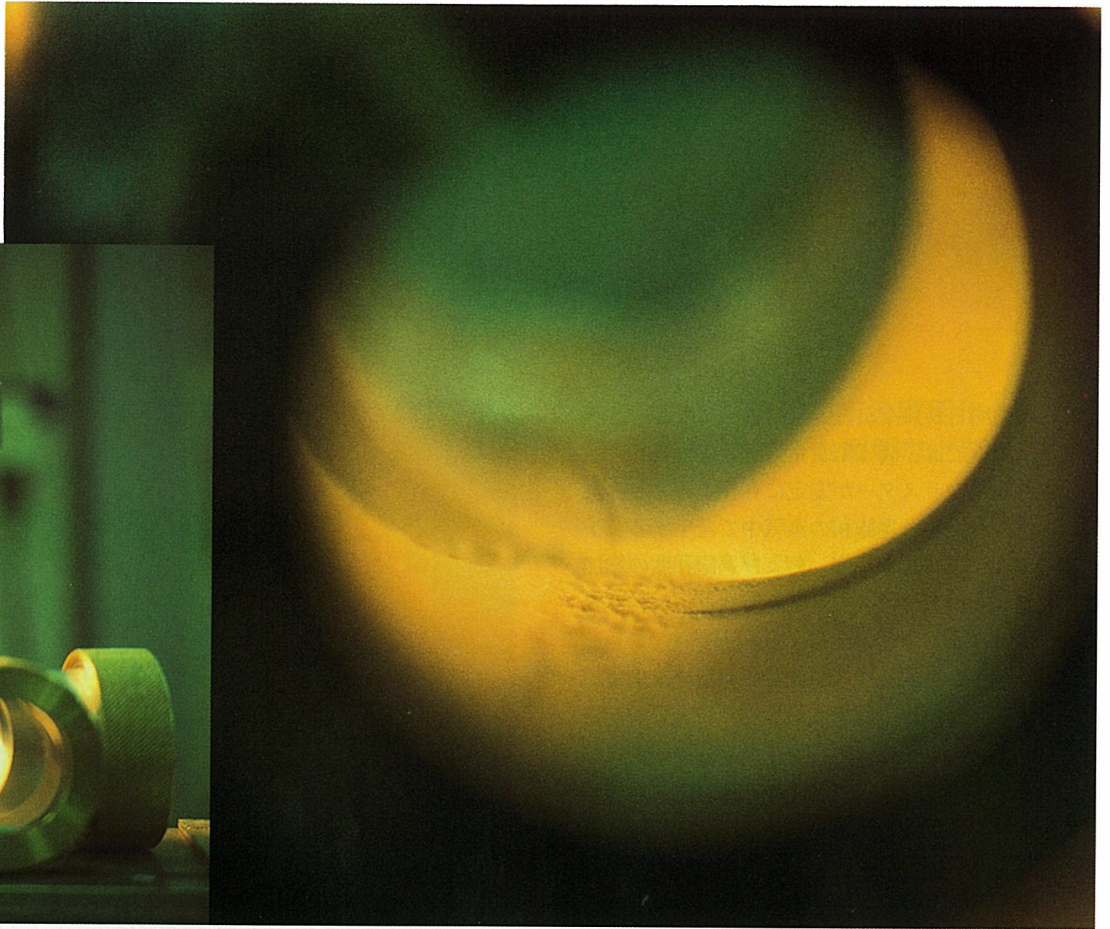
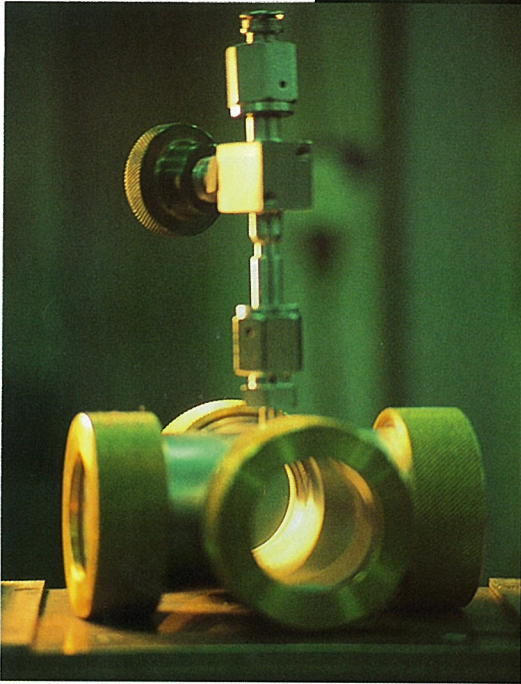
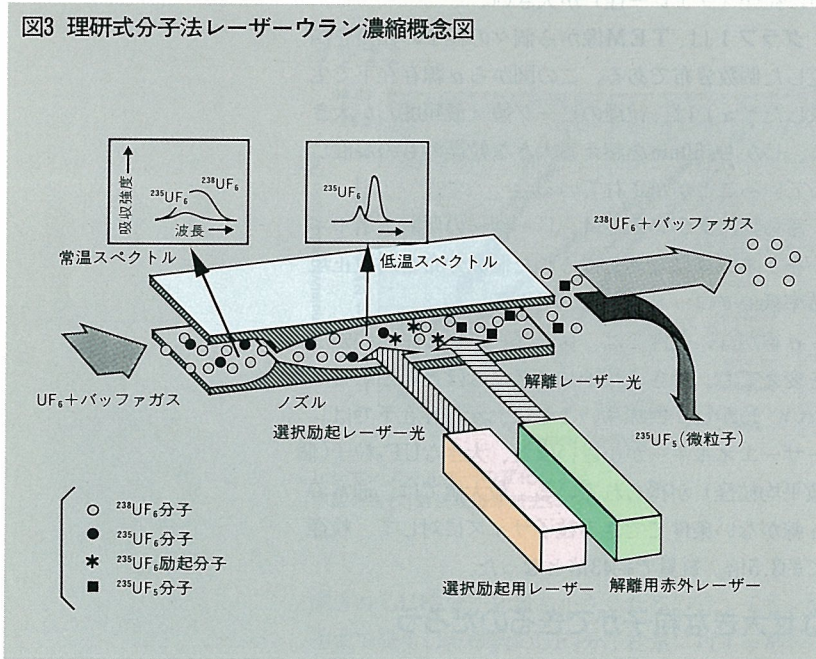


図3 理研式分子法レーザーウラン濃縮概念図



(ナノ・メートル=100万分の1ミリ)の超微粒子であることだ。煙草の煙の粒径でも200nm程度だから、UF<sub>6</sub>の粒子の細かさが想像できよう。

このくらい細かくなると、その捕集やハンドリングは容易ではない。現在考えられている捕集方法は、圧縮機でUF<sub>6</sub>の粉体を捕集板に吹き付けて、捕集板に付着したUF<sub>6</sub>の粉を回収しようというものだが、粒子があまり細かいのでガスに同伴されるばかりで効率が上がらない。

粒子サイズが大きくなれば、捕集は容易となり、圧縮機の負担も軽減され、装置全体のコンパクト化が可能になる。それだけでなく、粒子サイズが大きくなれば比表面積が必然的に小さくなるので、<sup>238</sup>UF<sub>6</sub>が多く残されている劣化UF<sub>6</sub>ガスと<sup>235</sup>UF<sub>6</sub>粒子との接触による交換反応(せつかくUF<sub>6</sub>に移ったU235が劣化UF<sub>6</sub>中のU238と入れ換わってしまう反応)も低減されて、いっそう効率が向上することが期待できる。しかし、粒子サイズの大型化は現状技術の延長では難しく、大きな技術的ブレークスルーが必要とされてきた。

より大きな粒子をつくる試み

ところで、UF<sub>6</sub>の一次粒子が小さい原因としては、超微粒子をつくる芯となる核の発生速度とその後の粒子(クラスター)成長速度が十分でないことが考えられる。

超微粒子の核発生を促進する実例としては、「ウィルソンの霧箱」で知られるWilsonが、過飽和状態の蒸気中にイオンが存在する場合、イオンが無い場合と比較して、低い過飽和度で核の発生が起きる現象(イオン核生成)を発見している。この報告以来、同様の装置を用いて、ガスを膨張させて過飽和状態をつくり、核生成を検討する実験や、混合ガスに放射線を照射して化学反応によって粒子を発生させる実験が、2、3件報告されている。

これらの実験から、種々の形でイオン核生成が起

ることが明らかになった。

また、最近では、高圧型質量分析計を用いてイオン化された小クラスターが安定に存在することを実験的に示した例や、過飽和の蒸気中で発生する粒子の個数濃度が、イオン濃度、および過飽和度の増加につれて高くなることの実験的証明などが報告されている。

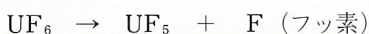
理研分子レーザー法ウラン濃縮研究開発推進室では、このようなイオン核生成がレーザー光分解反応で生成した $UF_5$ 分子からの核発生の促進や、さらに核から粒子への成長を促進することに有効であるかどうかを検討することを目的として、空閑先任研究員を中心に放射線源( $\alpha$ 線)によるイオン化実験を行った。

## 通常の43倍の巨大粒子ができた

実験は、容量 $220\text{cm}^3$ の十字型セル(写真1)を各実験ごとに2個用意し、それぞれにSEM(低倍率観察を行う走査型電子顕微鏡)用、TEM(高倍率観察を行う透過型電子顕微鏡)用のサンプル板、を数個ずつセットした。

一方の十字型セルには、 $\alpha$ 線源としてAm 241(アメリカシウム)を装着した。セル内に $UF_6$ 、メタン、アルゴンを仕込み、波長 $248\text{nm}$ のエキシマ・レーザー光(KrFレーザー)をフッ化カルシウム窓から1パルス照射した。

この光誘起分解反応は、

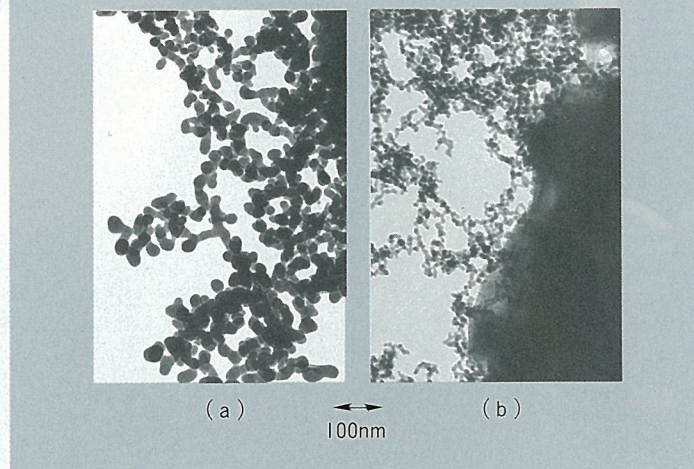


となるが、Fは、セル内に封入したメタンと反応してフッ化水素(HF)として固定され、逆戻りの反応を防止している。レーザー照射後、一夜おいてから、セル内のガスを徐々に排気したのち、再びアルゴンガスを封入し、グローブボックス( $UF_5$ と空気中の水分との反応を防ぐ)中で生成物サンプリング板を取り出した。

写真2(a)は、上記のサンプリング板をTEMで観察・撮影した $UF_5$ の超微粒子像である。写真2(b)は、(a)と比較するため、 $\alpha$ 線無しで生成した $UF_5$ のTEM像である。

両方とも一次粒子としての $UF_5$ がチェーンのように連なって凝集している様子がよく分かる。しかし、 $\alpha$ 線存在下で生成した(a)は(b)に対して明らか

写真2



かに粒径(フェレー径)が大きい。

グラフ1は、TEM像から個々の粒子の粒径を測定した個数分布である。この図から $\alpha$ 線存在下で生成した(a)は、粒径のピーク値(最頻度)が大きく、しかも、 $50\text{nm}$ を超える大きな粒径のものが混じっていることが示されている。

さらに、グラフ2では、レーザーの照射エネルギーをさまざまに変えて得られた個数分布を対数正規確率紙にプロットしたものである。

$\alpha$ 線がない条件では、レーザーエネルギーの強度を変えても、できる粒子サイズにはほとんど影響がない。しかし、興味深いことに、 $\alpha$ 線存在下ではレーザーエネルギーが小さいほど、大きな $UF_5$ 粒子(個数平均粒径)が得られている。最大値では、通常の $\alpha$ 線がない条件でできる粒子サイズに対して、粒径で約3.5倍、質量で約43倍となった。

## なぜ大きな粒子ができるのだろう

$\alpha$ 線存在下で、レーザーエネルギーが小さい場合ほど、より大きな粒子サイズが得られたのは何故だろうか。

十字セル内の反応としては、セル内の98%を充たすアルゴンガスの分子が、まず $\alpha$ 線によってイオン化される。つぎに $Ar^+$ が $UF_5$ 分子と衝突して、 $UF_5^+$ を生成すると考えられる。この仮説をもとにイオン核生成量を計算すると、レーザーエネルギーに依らずほぼ一定の値を示す。

ところが、レーザーエネルギーが小さい場合は生

## 新しいウラン濃縮技術の実用化と、酸性雨のメカニズム解明など新たな応用発展を

今回の基礎実験では、放射線源によるイオン化法を利用して、分子レーザーウラン濃縮のネックとなっているUF<sub>6</sub>微粒子の粒子サイズの拡大をめざしたのだが、結果は所期の予測以上に明晰に有効性を実証できた。

しかし、最終的には、現在の遠心分離法に替わる次世代の分離・濃縮システムとして、分子レーザー法のプラントレベルでの実用化が求められる。もちろん、この方法の本格的な実用化は原子燃料開発を担当する動力炉・核燃料開発事業団（動燃）の仕事となるが、理研としては、動燃との協力関係のもとに、実験的、理論的検討をさらに進めていく方針である。

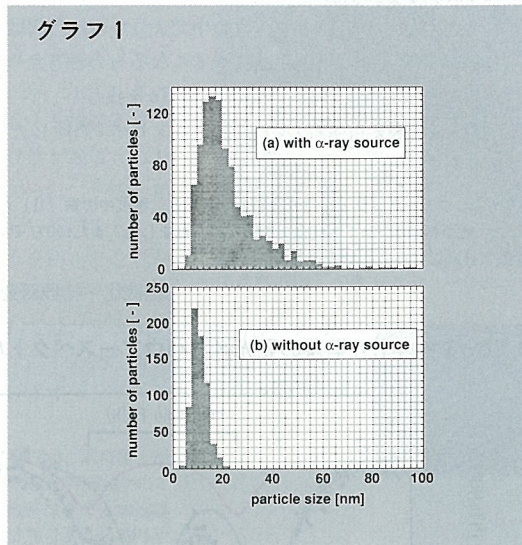
なお、本研究においても、TEM写真の撮影について動燃東海事業所新型濃縮開発部より多大の協力があったことを付記しておきたい。

また、本研究におけるイオン核反応による微粒子の拡大化の研究は、例えば酸性雨が生じるメカニズムの解明などにも有力な手段を提供すると考えており、理研としては、さらに幅広い視野に立って研究を深化させていく方針である。

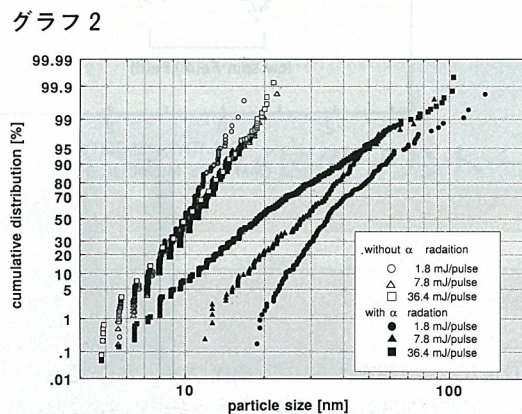
文責：開発調査室

監修：分子レーザー法ウラン濃縮研究開発推進室長

武内一夫

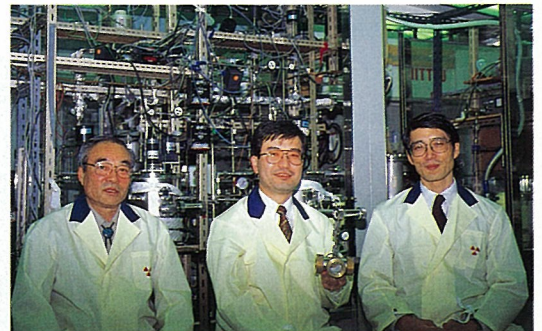


TEM写真による粒子径の個数分布



レーザーエネルギーの変化による個数分布(対数正規確率紙上にプロット)

成されるUF<sub>6</sub>分子総量も小さくなるので、イオン核生成で発生した核数のUF<sub>6</sub>分子総量に対する割合が大きくなり、イオン核にUF<sub>6</sub>分子が凝縮する粒子成長のメカニズムが起きやすい。これに対して、レーザーエネルギーが大きい場合は、できるUF<sub>6</sub>分子総量に対してイオン核が足りなくなるので、その場合は、UF<sub>6</sub>分子の多くがイオン核に集まらない通常の凝縮を行うので、相対的に粒子サイズが小さくなると考えられる。したがって、**グラフ2**のように、レーザーエネルギーが大きい場合には、大きな粒子サイズから微細な粒子サイズまで、粒子サイズのばらつきの幅が広がっている。



研究スタッフ：

左から磯村昌平研究協力員、空閑良壽先任研究員、武内一夫推進室長。

## メスbauer分光法による植物体中の鉄およびコバルトの状態分析

メスbauer分光法は非破壊状態分析法の一つであり、植物中の鉄の化学状態の研究に極めて有効です。これまでに大豆、トマト等について測定を行い、多くの場合、鉄は三価として存在していることが明らかになっています。

成熟した大豆種子の鉄は三価ですが、希塩酸を加えると還元されて二価になることを見出しました。これは、\*希塩酸により鉄に配位した有機物が解離し、種子中に存在するアスコルビン酸等によって還元されるものと考えられます。二価の鉄は消化吸収しやすいことが知られています。胃の中で大豆中の鉄は胃酸によって誘発された還元反応により鉄の二価となり、消化されやすくなるものと考えられ、栄養学的にも興味のある結果が得られました。また、らん藻に<sup>57</sup>Coを投与し、メスbauer発光スペクトルを測定した結果(図2)、コバルトはビタミンB<sub>12</sub>に類似した配位構造をとっていると推定されました。

\*図1のメスbauer分光スペクトルは希塩酸を加えると、種皮中の鉄(II)が時間と共に増加することを表しています。大豆子葉についても同様の結果が得られました。また150°Cで加熱した種子でも鉄(III)が還元されて鉄(II)になることが観測されています。

無機化学物理研究室 前任研究員 安部静子

図1 大豆種皮の<sup>57</sup>Feメスbauer分光スペクトル

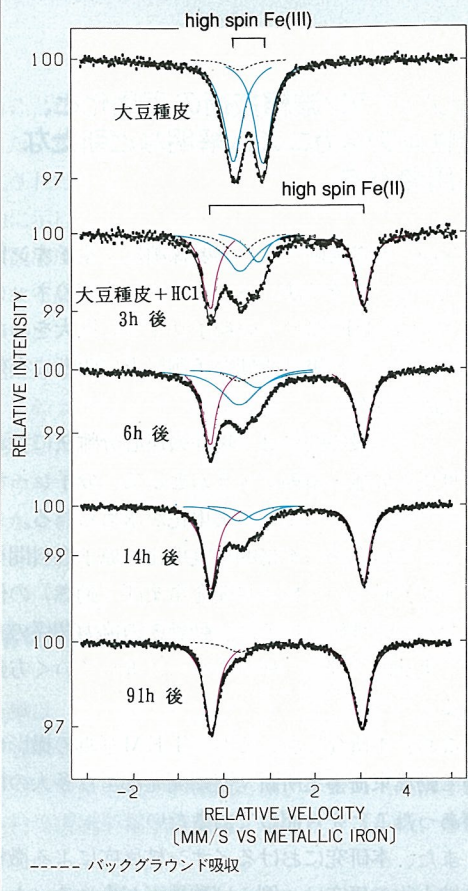
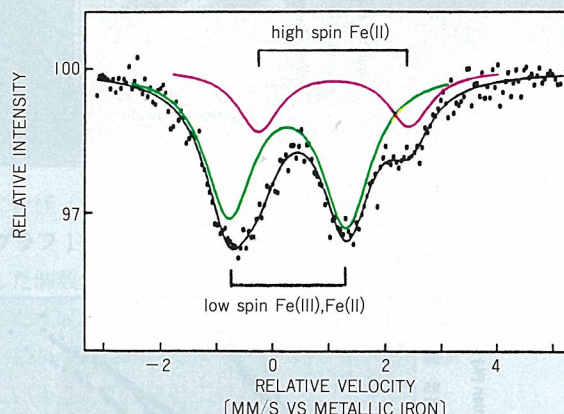


図2 <sup>57</sup>Coを投与した藍藻の発光メスbauer分光スペクトル



### 理研の主な公開特許

■H6-97539 レーザービームの伝搬特性測定装置

レーザー科学研究グループ 田代 英夫 常見 明良

広い周波数帯域および広範なエネルギーレベルにおいて、高速かつ高精度でレーザービームの伝搬特性を測定することができ、かつ小型で取り扱いの容易なレーザービームの伝搬特性測定装置。

■H6-97559 波長可変レーザー発振器へのレーザー光導入方法および波長可変レーザー発振器

レーザー科学研究グループ 田代 英夫 須田 亮

2色ミラーや誘導体薄膜ポライザー等の光学機器を用いることなく波長可変レーザー発振器の共振器内に外部からレーザー光を導入することができ、光学的破壊の発生可能性の低減、レーザー発振効率の向上、共振器の光学的調製の簡易化を図る。

■H6-97606 狭帯域レーザー光の発生方法および発生装置

レーザー科学研究グループ 田代 英夫 須田 亮

従来に較べてより多くの波長あるいは連続波長において、単一縦モード化した狭帯域レーザー光を発生させることのできる狭帯域レーザー光の発生方法および発生装置。

■H6-120120 X線リソグラフィー装置

レーザー科学研究グループ 原 民夫 半導体工学研究室 青柳 克信 原子物理研究室 安藤 剛三  
従来に較べて小型で低出力の励起レーザー装置を使用して実用的なX線強度を得ることができ、小型で実用性の高いX線リソグラフィー装置。

英国のラザフォード・アップルトン研究所 (RAL) に建設中の理研のミュオン科学研究実験施設のうち、基幹部分であるミュオン発生用ビームチャンネルが完成。11月9日にファーストビームの発生に成功しました。

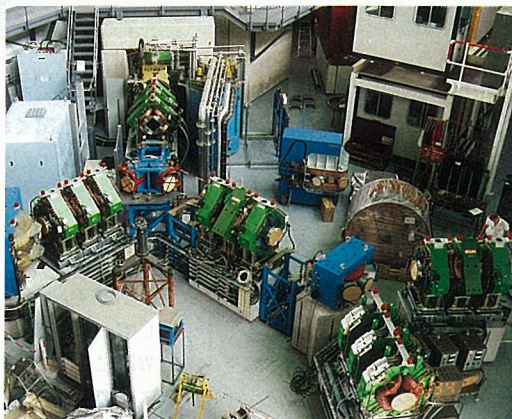
チャンネルは設計通りの性能を有することが確認され、最終的なミュオン強度は世界最高の瞬時強度 (パルス当たり10,000個以上。従来の最高強度はパルス当たり1,000個程度) に達することが期待されています。

このプロジェクトは、理研と英国の工学・自然科学研究会議との協定に基づいて、RALの陽子シンクロトロンISIS加速器にミュオン発生のための設備を理研が設置するもので、平成3年4月より進められ、平成7年度に全研究設備の完成を予定しています。

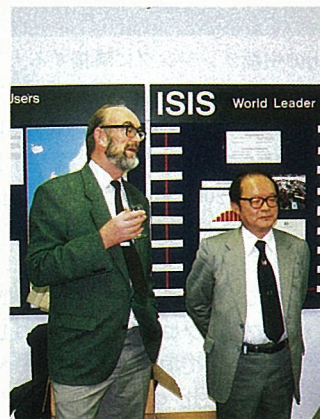
世界最高のパルス状ビームを用いてこれから開始されるミュオン科学実験では、大きな成果が期待され、その例としては、ミュオン触媒核融合、ミュオンスピによる物性研究や非破壊元素分析などがあります。

\*ミュオン粒子について——わが国では、湯川博士が中間子の存在を予言し、理研の仁科博士が宇宙線中にミュオンを発見しました。これらの粒子は今では加速器によって人工的に発生できるようになりました。陽子や重イオンを加速して原子核に衝突させて発生した中間子が崩壊したものがミュオンです。ミュオンは、プラスまたはマイナスの電荷を有する不安定な素粒子で、質量は電子の207倍、寿命は約100万分の2秒です。

## 理研のミュオン実験施設、世界最高強度のビーム発生に成功

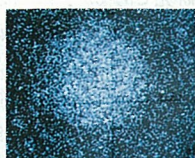


完成間近のミュオンビームチャンネル全景



ファーストビームを祝う会にて。RAL 所長 (左) とミュオン科学研究室永嶺主任研究員

CCDカメラに写し出されたファーストビームのスポット



ファーストビームに沸く理研と現地のスタッフ



植物機能研究室、吉田主任研究員より説明を受ける。

## タイ国のシリントーン王女、理研をご視察

11月24日、タイ国王の次女、マハーチャクリー シリントーン王女が和光本所をご視察されました。

植物機能研究室においてイネの対環境ストレス等の研究、またフロンティア思考機能研究グループからは、記憶および学習のメカニズム等の研究について説明を受けました。

シリントーン王女は国際稲研究所日本交流

会にご出席、特別講演を行うため訪日されましたが、土屋埼玉県知事が同交流会の名誉実行委員長を務めているご縁で当所への訪問が実現しました。



フロンティア思考機能研究グループのスタッフより説明を受ける。



科学技術庁関根政務次官、有馬理事長より歓迎を受けるシリントーン王女



# 米国喫煙体験



筆者近影

筆者は、1992年9月から1994年3月末まで、米国ミシガン州立大学(MSU)の国立超伝導サイクロトロン研究所(NSCL)に客員研究員として滞在した。MSUは、デトロイトの西北西約80マイル、ミシガン州の州都ランシングに隣接する大学町イーストランシングにある。NSCLはMSUによって運営されているが、名称に国立を冠している通り、その研究予算の大部分が連邦政府によって賄われている。古くからサイクロトロンを用いた原子核研究で世界的に有名で、現在、K500、K1200と呼ばれる二つの超伝導サイクロトロンがあり、それによって加速される重イオンビームを用いた実験が活発に行われている。超伝導サイクロトロンの開発は、NSCLにおいて1980年代、世界に先駆けて行われた。その最大の特徴は大きさで、K1200の場合、理研のリングサイクロトロンの3分の1程度ながら、理研と同程度以上のエネルギーまで加速することができる。これは、超伝導技術の導入により、以前に比べ数倍も高い磁場の発生が可能になったことによる。NSCLでのメインテーマの一つは、理研リングサイクロトロンでも最も力が注がれている、RIビームを用いた不安定原子核の研究である。実際、超伝導サイクロトロンの運転時間の半分以上がRIビームを用いた実験に割り当てられている。この傾向は理研でも全く同様で、実験内容も競合するものが多い。筆者は、渡米前数年間、RIビーム生成装置の開発とそれを用いた実験に従事していた。当時、NSCLでも同様な装置の開発が進行中で、国際会議でその担当者とは知り合ったことが渡米のきっかけとなった。

滞米中、異国の習慣、文化、自然などに接し、例にもれず感銘を受けたり戸惑ったりした。また、しばしば苦笑してしまうような体験もした。多少気恥ずかしく思うが、この『原酒』の場で、その中の一つ、喫煙体験について記してみたいと思う。筆者は、自分でも時々吸いすぎであると思うほどの喫煙家である。米国の人は喫煙に対して厳しく、吸える場所も少ないと聞いていたので、禁煙に挑戦する良い機会だと思いつつ渡米した。

ランシング到着後すぐ、出迎えてくれたNSCLの友人に連れられ、これから住む郊外の住宅に直行した。家主はMSUの先生で、一家がフランスへ行っている間、借り受ける住宅である。家自体は思っていたより小さくがっかりしたが、畑のような広い芝生の庭があり、娘二人



滞米中の住宅



NSCL外観

のいい遊び場になると納得した。到着した翌朝、家主の奥さんが来て家の説明してくれた。驚いたことに、彼女は喫煙家であった。しかも、妊娠中にもかかわらず。家具、電気製品、暖房設備、庭の手入れ、自動車、賃貸契約と説明が進む間、煙草を離さない。最初、彼女はマナーを守り、我々に喫煙していか尋ねた後、煙草に火をつけた。そして、こちらが喫煙するかどうかを聞いた。呆気にとられていたせいか「イエス」と答えてしまい、勧められた煙草も受けてしまった。かくして、渡米最初の朝で、禁煙計画は取えずに挫折してしまった。

異国における喫煙での最初の問題は、自分にあった煙草の銘柄を探すことであった。これには意外と苦労した。銘柄によって様々な癖があり、良いというものなかなか見つからない。いろいろと研究した後、日本でも試したことのある輸入銘柄を見つけたので、それに落ち着いた。煙草は、スーパーマーケット、ガソリンスタンドなど限定された場所では買えず、日本の何処にでもあるような自動販売機は見当たらない。値段は、店によって若干異なったが、ほぼ日本の煙草と同程度である。物価の水準から比較すると、かなり高い印象を受けた。また、カナダで煙草を買った時、米国の二倍すると知って驚いた。喫煙者には厳しい環境である。

MSUは、聞いていた通り、非喫煙者保護のため喫煙制限が進んでいるらしく、喫煙場所はきわめて限られていた。また、煙草を買える場所もキャンパス内には全くない。NSCLの場合、その居室部分は理研の仁科記念棟以上の広さを持つが、喫煙場所は建屋中央にある屋根付中庭の片隅一箇所のみであった。喫煙行為は非知的な印象を与えるらしく、NSCLの喫煙者数は少なく、研究者にはほとんどいなかった。喫煙者は、時折その場所まで出向き喫煙する。これはかなり目立つ行為で、さすがに恥ずかしく肩身の狭い思いをした。建物外での喫煙制限はないが、冬は氷点下20度位まで気温が下がり、屋外での喫煙は健康を害する恐れがある。おかげで喫煙数は格段に減少した。

一年を過ぎると喫煙制限はさらに進んだ。建物内での喫煙は、1994年1月から全面禁止となった。NSCLの片隅も廃止された。また、屋外での喫煙も制限され、建物の出入り口から15フィート以上離れた場所となった。1993年の秋に配布された規定には、罰則の記述があったと記憶しているが、内容については失念した。建物内禁煙が実施された後は、さすがに難渋した。吸いたい場合は、屋外に出るほかない。当時は厳寒期で、風が吹くと体感温度は実際の気温よりかなり下がる。試してみて、こういう条件下での煙草は、全く美味しくないと知った。こうして職場での喫煙機会はほとんど無くなった。

MSUは、喫煙者の排除ばかりではなく、禁煙を勧奨したり、それを志す人を手助けする活動をしていると聞いた。カウンセリングや医療の手助けにより禁煙に成功した人も多いという。

帰国後半年余りたち、筆者の喫煙は渡米前の状態に戻りつつある。最近、理研でも喫煙制限をしようとする動きがあると聞く。この頃、米国での体験を懐かしく思い始めている。

サイクロトロン研究室 前任研究員 久保敏幸

## 編集後記

英国で建設中のミュオン実験施設のファーストビーム発生に成功！本年の締めくくり、理研が積極的に進めている国際交流活動の中で生まれた明るいニュースをお届けすることができました。これからも世界に開かれた研究所として進展していく理研にご期待下さい。

理研ニュース No.162 December 1994 発行日:平成6年12月15日

編集発行:理化学研究所開発調査室

〒351-01 埼玉県和光市広沢2番1号 電話(048)462-1111(代表)

制作協力:株式会社エフピーアイ・コミュニケーションズ