

長寿命核分裂生成物の同位体分離技術の予備調査

— ^{135}Cs へのレーザー分離法適用—

Preliminary Review on Isotope Separation of Long Life Fission Products
- Application Research of Laser Isotope Separation to ^{135}Cs -

尾下 博教 小澤 正基 石川 真 小山 真一 赤塚 洋*

Hironori OSHITA, Masaki OZAWA, Makoto ISHIKAWA, Shin'ichi KOYAMA
and Hiroshi AKATSUKA*

次世代原子力システム研究開発部門
炉心解析グループ

Reactor Physics Analysis and Evaluation Group
Advanced Nuclear System Research and Development Directorate

本レポートは日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。
本レポートの入手並びに著作権利用に関するお問い合わせは、下記あてにお問い合わせ下さい。
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ホームページ（<http://www.jaea.go.jp/index.shtml>）
より発信されています。このほか財団法人原子力弘済会資料センター*では実費による複写頒布を行つております。

〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2 番地 4
日本原子力研究開発機構 研究技術情報部 研究技術情報課
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920

* 〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2 番地 4 日本原子力研究開発機構内

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency
Inquiries about availability and/or copyright of this report should be addressed to
Intellectual Resources Section, Intellectual Resources Department,
Japan Atomic Energy Agency
2-4 Shirakata Shirane, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan
Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920

© Japan Atomic Energy Agency, 2007

長寿命核分裂生成物の同位体分離技術の予備調査
—¹³⁵Csへのレーザー分離法適用—

日本原子力研究開発機構 次世代原子力システム研究開発部門
FBR 要素技術ユニット

尾下 博教、小澤 正基、石川 真、小山 真一⁺、赤塚 洋*

(2007年7月12日受理)

昨今、経済性、安全性、環境への負荷低減の観点から整合性の取れた核燃料サイクルの確立が求められている。中でも原子力プラントの使用済燃料に含まれる¹³⁵Csは半減期が3.0 × 10⁶yと非常に長く、水溶性も高いため、地層処分の際、地下水への流出が懸念される核種である。

従来の同位体分離法は、同位体間の質量差を利用したもので、分離係数が小さく、大掛かりな装置で操作を何段階も繰返さなければならないものであった。しかも、核分裂生成物中には、分離対象とする元素の同位体と質量数の接近したものが多く含まれ、質量差だけに準拠した分離法では高い分離係数は期待できなかった。

ところが、近年、色素レーザー、半導体レーザーなどの技術が開発され、特定の同位体に照準を絞って選択的に励起させ、その励起状態に特有な物理的・化学的性質を利用して分離回収することが原理的に可能となってきた。特にセシウムの場合、光の吸収、放出の安定性から、レーザー分離法（LIS）が適していると考えられ、盛んに研究されるようになった。本書は、レーザー分離法の原理と¹³⁵Cs分離への応用、とりわけ低コストで簡便な装置で分離が可能とされ、今後の応用が期待されているレーザー化学法の現状を調査することによって、課題を摘出し、今後の指針として纏めたものである。

調査の結果、次の様な課題が明らかとなった。1)セシウムの励起状態の電子配置、寿命、遷移確率の評価、2)セシウムの同位体シフトに影響を及ぼすと考えられる核の平均自乗半径、電気四重極子モーメント及び核外電子の波動関数の原子核の位置への浸出の評価、3)選択的励起の妨害となる共鳴的励起移乗、電荷移行、近接遷移の存在及びDoppler効果の評価、4)レーザー照射条件の最適化（真空度、温度）、5)セシウムの超微細構造と¹³⁵Csの選択的励起の関係の評価、6)¹³⁵Csの選択的励起及び化学的回収（水素化物の形成とその反応速度）の実証。

今後、これらの課題を解決すべく、上記の事柄を精密に評価し、実験によって確認していくことを考える。なお、LISには試料の形態によって原子レーザー法と分子レーザー法があるが、現時点で主に調査が進んでいるのは原子レーザー法であり、本書では前者を中心にして議論を進めた。

大洗研究開発センター（駐在）：〒311-1393 茨城県東茨城郡大洗町成田町4002

⁺ 大洗研究開発センター 燃料材料試験部

*東京工業大学 原子炉工学研究所

Preliminary Review on Isotope Separation of Long Life Fission Products
—Application Research of Laser Isotope Separation to ^{135}Cs —

Hironori OSHITA, Masaki OZAWA, Makoto ISHIKAWA,
Shin'ichi KOYAMA⁺ and Hiroshi AKATSUKA*

FBR System Technology Development Unit
Advanced Nuclear System Research and Development Directorate
Japan Atomic Energy Agency
Oarai-machi, Higashibaraki-gun, Ibaraki-ken

(Received July 12, 2007)

Recently establishment of self consistent nuclear fuel cycle has been required with respect to economical efficiency, safety and reduction of the load to the environment. Especially ^{135}Cs included in spent fuel of nuclear power plants has extremely long half life (3.0×10^6 y) and its water solubility leads to the anxiety of exudation into ground water for geologic disposal.

The conventional methods for isotope separation based on the mass difference of isotopes could not gain large separation factors, which leads to the requirement of operational repetition and large equipment. Furthermore many elements of which the masses are near to that of the object isotope are included in spent fuel, which makes it difficult to expect high separation factor by the methods merely based on the mass difference.

Recent technology development of laser e.g. dye laser or semi-conductor laser has come to make it possible in principle to excite a specific isotope and separate it from other isotopes making use of its intrinsic physical and chemical properties of the excited state. This laser isotope separation (LIS) technique is believed to be suitable for cesium because of its stable properties on light absorption and emission and many studies have come to be made.

This document reviews the principle, application to the separation of ^{135}Cs and current status of LIS and reports the subjects to be solved and suggestions; especially laser induced chemical reactions expected as a low-cost and simple equipment isotope separation method.

The resulting extracted subjects are 1) the specification of the excited states of cesium i.e. extra-nuclear electron configuration, life (or duration) and transition probability, 2) the factors that may effect on the isotope shift of cesium; the mean square radius of the nucleus, electric quadrupole moment and extra nuclear electron wave function at the nucleus, 3) the factors that may cause the disturbance of the selectivity; resonant energy transference, charge transference, neighboring transition and Doppler effect, 4) the optimization of laser irradiation condition (the degree of vacuum and the temperature), 5) the hyperfine structure of cesium and its relation to selective excitation of ^{135}Cs , 6) confirmation of the feasibility of selective excitation of ^{135}Cs and its chemical collection (the hydride formation and its reaction velocity)

Hereafter we will research and evaluate the subjects mentioned above and confirming the feasibility of isotope separation of ^{135}Cs by experiment. LIS can be roughly classified into two ways according to the sample form; atomic laser method and molecular laser method. It is atomic laser method that is in main progress; therefore this document mainly reports the former.

Keywords: Laser Isotope Separation, Cesium135, Isotope Shift, Long Life Fission Products

⁺Fuels and Materials Department, Oarai Research and Development Center,

*Research Laboratory for Nuclear Reactors, Tokyo Institute of Technology

目 次

1. 緒言-	1
2. レーザー分離法の概要-	3
2.1 2段階光電離	4
2.2 1段階光解離	4
2.3 2段階光解離	4
2.4 光化学反応(レーザー誘起化学反応)	5
2.5 多光子赤外吸収	5
2.6 光異性化	5
2.7 光泳動	5
2.8 光圧偏向	6
3. 原子レーザー法-	7
3.1 Normal mass shift	8
3.2 Specific mass shift	10
3.3 Field shift	11
3.4 超微細構造による同位体シフト	18
4. レーザー化学法-	24
4.1 レーザー化学法の原理	24
4.2 レーザー化学法に関するこれまでの実績	24
5. 選択的励起性向上の研究-	26
5.1 共鳴的励起移乗	26
5.2 近接遷移の除去	26
5.3 Doppler効果	26
6. 今後の課題-	27
7. 結言-	28
謝辞	28
付録1 LLFPの属性	29
1. セレン	29
2. ジルコニウム	30
3. テクネチウム	31
4. パラジウム	32
5. スズ	33
6. ヨウ素	34
7. セシウム	35
付録2 各種同位体分離法	36
1. ガス拡散法	36
2. 遠心分離法	36
3. 蒸留法	36
4. 電磁分離法	37
5. 同位体交換反応法	38
付録3 用語解説	39
参考文献	40

Contents

1. Preface-----	1
2. The outline of laser isotope separation-----	3
2.1 2 step photoionization-----	4
2.2 1 step photoionization-----	4
2.3 2 step photodissociation-----	4
2.4 Photochemical reaction (Laser induced photochemical reaction)-----	5
2.5 Infrared multiphoton absorption-----	5
2.6 Photoisomerization -----	5
2.7 Photophoresis -----	5
2.8 Light pressure deviation -----	6
3. Atomic vapor laser isotope separation-----	7
3.1 Normal mass shift-----	8
3.2 Specific mass shift-----	10
3.3 Field shift -----	11
3.4 Isotope shift caused by hyperfine structure -----	18
4. Laser induced photochemical reaction -----	24
4.1 The principle of laser induced photochemical reaction -----	24
4.2 The achievements of isotope separation by laser induced photochemical reaction -----	24
5. Studies on improving selective excitation -----	26
5.1 Resonant excitation transfer -----	26
5.2 Eliminating neighboring transitions -----	26
5.3 Doppler effect-----	26
6. Future subjects-----	27
7. Summary -----	28
Acknowledgement -----	28
Appendix1 Attributes of LLFP-----	29
1. Selenium-----	29
2. Zirconium-----	30
3. Technetium-----	31
4. Palladium-----	32
5. Tin-----	33
6. Iodine-----	34
7. Cesium-----	35
Appendix2 Isotope separation methods-----	36
1. Gaseous diffusion process -----	36
2. Centrifuge separation method -----	36
3. Distillation method-----	36
4. Electromagnetic mass separation -----	37
5. Isotope exchange reaction-----	38
Appendix3 Terminology -----	39
References-----	40

図表リスト

図1-1 軽水炉 (4.1% ²³⁵ U, 40GWd/t) 使用済燃料再処理後の高レベル放射性廃棄物のガラス 固化体中のFP元素の潜在放射能毒性	-2
図1-2 軽水炉 (4.1% ²³⁵ U, 40GWd/t) 使用済燃料再処理後の高レベル放射性廃棄物のガラス 固化体中のActinide元素の潜在放射能毒性	-2
図3-1 原子核の電気四重極子モーメント	17
図3-2 ⁸⁵ Rbの超微細構造	20
図3-3 ⁸⁷ Rbの超微細構造	21
図3-4 ¹³³ Csの超微細構造	22
図3-5 原子核の磁気双極子モーメント	23
図4-1 レーザー照射による ¹³³ Csの水素化反応	25
 表3-1 セシウムの同位体シフト	-7
表3-2 セシウムのSMS constant	11
表3-3 セシウムのFS constant	12
表3-4 ルビジウムの β_2 (核はいずれも基底状態)	14
表3-5 セシウムの β_2 (核はいずれも基底状態)	15
表3-6 ルビジウムとセシウムの電気四重極子モーメント	16
表3-7 ルビジウムとセシウムの核スピンと磁気双極子モーメント	19
 表A-1 セレンの核分裂収率	29
表A-2 ジルコニウムの核分裂収率	30
表A-3 テクネチウムの核分裂収率	31
表A-4 パラジウムの核分裂収率	32
表A-5 スズの核分裂収率	33
表A-6 ヨウ素の核分裂収率	34
表A-7 セシウムの核分裂収率	35
 表B-1 同位体分子の蒸気圧比	37
表B-2 主な同位体交換反応の平衡定数	38

Figures and tables

Fig.1-1	The underlying radioactivities of fission products included in high level radioactive wastes of a light water reactor (4.1% ²³⁵ U, 40GWd/t) confined in glass solidified bodies after reprocessing the spent fuel -----	2
Fig.1-2	The underlying radioactivities of actinides included in high level radioactive wastes of a light water reactor (4.1% ²³⁵ U, 40GWd/t) confined in glass solidified bodies after reprocessing the spent fuel -----	2
Fig.3-1	Electric quadrupole moments of nuclei -----	17
Fig.3-2	The hyperfine structure of ⁸⁵ Rb-----	20
Fig.3-3	The hyperfine structure of ⁸⁷ Rb-----	21
Fig.3-4	The hyperfine structure of ¹³³ Cs -----	22
Fig.3-5	Magnetic dipole moments of nuclei -----	23
Fig.4-1	Hydrogenation of ¹³³ Cs by laser irradiation -----	25
Table 3-1	The isotope shifts of cesium-----	7
Table 3-2	SMS constants of cesium-----	11
Table 3-3	FS constants of cesium -----	12
Table 3-4	β_2 of rubidium (with the ground state of the nucleus) -----	14
Table 3-5	β_2 of cesium (with the ground state of the nucleus) -----	15
Table 3-6	The electric quadrupole moments of rubidium and cesium -----	16
Table 3-7	The nuclear spins and magnetic dipole moments of rubidium and cesium -----	19
Table A-1	Fission yield of selenium-----	29
Table A-2	Fission yield of zirconium -----	30
Table A-3	Fission yield of technetium -----	31
Table A-4	Fission yield of palladium -----	32
Table A-5	Fission yield of tin -----	33
Table A-6	Fission yield of iodine-----	34
Table A-7	Fission yield of cesium -----	35
Table B-1	Vapour pressure ratio of isotope molecules -----	37
Table B-2	Equilibrium constants of main isotope exchange reactions -----	38

1. 緒言

長寿命核分裂生成物 (Long life fission products : LLFP) は、半減期1万年以上の核分裂生成物を称し、 ^{79}Se , ^{93}Zr , ^{99}Tc , ^{107}Pd , ^{126}Sn , ^{129}I , ^{135}Cs の7核種がそれに相当する。

昨今、経済性、安全性、環境への負荷低減、資源の有効利用の観点から、整合性の取れた核燃料サイクルの確立が求められている。全体的に見た場合、Actinide元素だけを分離した場合と、Actinide元素とLLFPの双方を分離した場合とを比較すると、燃料取出し後 10^3 年を経た時点で、放射能毒性に約4桁（単位はSv/tHM）もの差が現れる（図1-1,1-2参照）。従って、Actinideだけでなく、LLFPも同位体分離を行うことが望ましい。

中でも ^{135}Cs は、半減期が 3.0×10^6 yと非常に長く、水溶性も高いため、地層処分の際、地下水への流出が懸念される核種である。また、中性子吸収により ^{135}Cs を半減期13.16dの ^{136}Cs （ β^- 崩壊により安定核種 ^{136}Ba となる）に核変換しようとしても、 ^{133}Cs が混入していると、同時に ^{135}Cs が生成してしまうため反応処理が進まない。その点からも ^{135}Cs のみを高精度で分離する必要がある。更にセシウムはカリウムに似た性質を持つため、中半減期核種である ^{137}Cs （30.0y）が人体に摂取されると内部被ばくの危険性がある。従って、安全性向上の点からもセシウムは同位体分離の意義があると言える。

^{135}Cs を高精度に分離することが可能となれば、中半減期核種である ^{137}Cs のみを対象とした浅地地層処分が可能となり、コスト低減が期待される。また、 ^{135}Cs の中性子吸収による究極的な処分研究の段階へと進むことが可能となる。更に、他の長寿命核分裂生成物の分離への適用も考えられ、地層処分の大幅な減容（アクチニド元素のみを分離した場合に比べ、64~68%の減容と試算されている¹⁾）と放射能毒性の低減が期待できる。一方、分離した ^{137}Cs を固化素材により固化処理し、熱電素子と結合させれば、ベータ崩壊による熱を有効利用でき、多目的利用への道も開けてくる。

従来の同位体分離法は、遠心分離法、ガス拡散法など、同位体間の質量差に準拠したもので、分離係数¹⁾が小さく、装置が大掛かりであり、何サイクルにも渡って操作を繰返さなければならなかつた²⁾。また、長寿命核分裂生成物は同位体の種類が多く質量数も接近しているため、加速器質量分析法（AMS法）では精度の高い分離は期待できなかつた。そこで簡便かつ高精度の期待される同位体分離法として、原子吸収スペクトルに現れる同位体効果を利用するレーザー分離法が考案された。

本書では、主として ^{135}Cs を対象に同位体分離を考えていく。これは、セシウムの場合、光の吸収・放出の安定性から、レーザー分離法が適していると考えられているためである。しかしながら、セシウムは安定同位体が ^{133}Cs のみであるため、コールドでの同位体分離試験ができず、基礎データに乏しい。そこで本書では、基本に立返って、セシウムの原子構造、レーザー分離法の適用性について、類似元素ルビジウムと対比させながら調査していく。また、レーザー分離法を更に簡便化し、コスト削減を図ったレーザー化学法の現状について言及する。

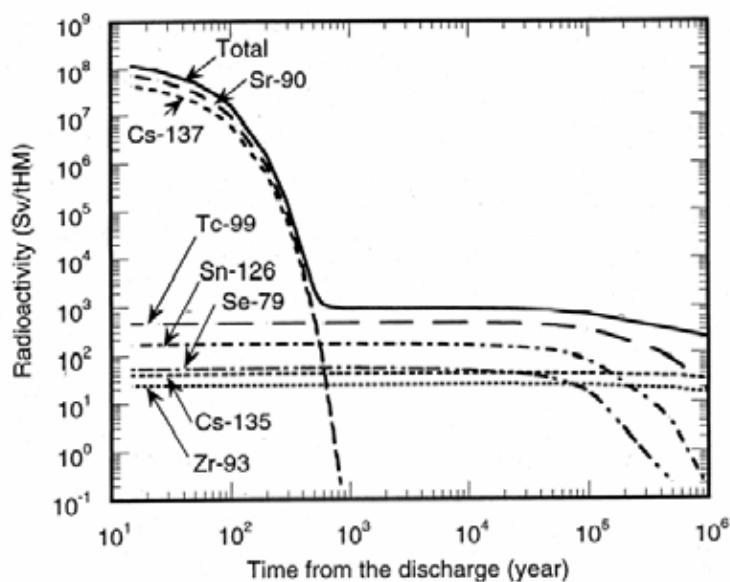


図 1-1 軽水炉 (4.1%²³⁵U, 40GWd/t) 使用済燃料再処理後の高レベル放射性廃棄物のガラス固化体中の FP 元素の潜在放射能毒性³⁾

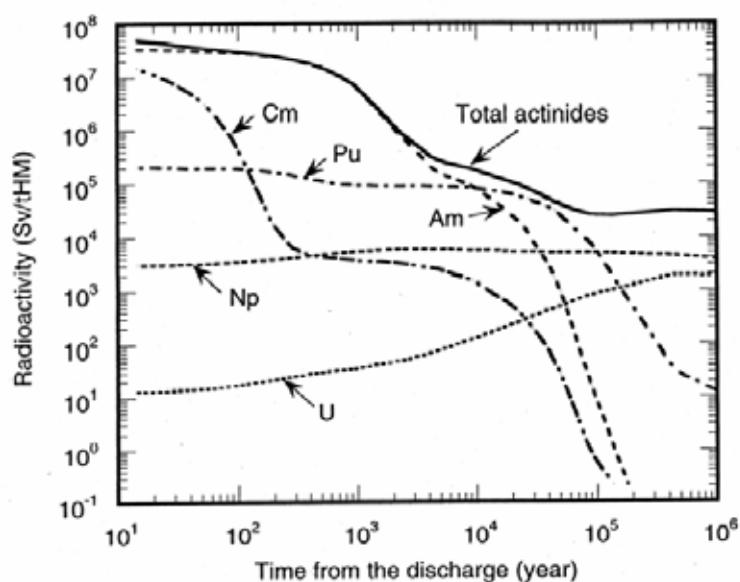


図 1-2 軽水炉 (4.1%²³⁵U, 40GWd/t) 使用済燃料再処理後の高レベル放射性廃棄物のガラス固化体中の Actinide 元素の潜在放射能毒性³⁾

2. レーザー分離法の概要

レーザーによる同位体分離は、Laser isotope separation の頭文字を取って LIS と呼ばれる。少ない分離係数で操作を何度も繰返して行なう統計的同位体分離法²⁾とは違って、特定の同位体に照準を絞って選択的に分離するので、カスケードを何段も組んだ巨大な施設を必要とせず、簡便な装置で低コスト・高分離係数の同位体分離が期待されている。また、極めて存在率の低い同位体にも適用できる可能性を有している。但し、高真空度を必要とするから、実用化に向けて大量の同位体を分離するには課題も多い。最近、鋭い単色性、鋭い指向性をもつ波長可変レーザーが開発され、0.1～10eV 程度のエネルギーの励起状態に原子または分子を選択的に励起することが可能となってきた。レーザー分離法は、対象物質の形態によって原子レーザー法と分子レーザー法に大別される。原子レーザー法では、同位体間で吸収スペクトルが異なる（同位体シフト）ことをを利用して同位体を分離回収する。原子スペクトルの同位体効果は、原子の質量、核の電荷分布、核磁気双極子モーメント等に起因する。一方、分子スペクトルの同位体シフトは電子の運動、分子の振動及び回転に起因し、その同位体シフトは原子スペクトルのそれよりもはるかに大きいことが知られている⁵⁾。目的とする同位体の回収方法には、電離法、光解離法、光化学反応法、多光子赤外吸収、光異性化、レーザー化学法、光泳動、光圧偏向、などがある。レーザー分離法が成功するためには、次の 4 条件が満たされねばならない⁴⁾。

- 1) 同位体混合物中の分離しようとする同位体 A は、他の同位体と重ならない、少なくとも一つの吸収線 ν_A を持たなければならない（後述の Doppler 効果によって吸収線が重なってしまう可能性がある）。
- 2) ν_A について励起に十分な出力、継続時間、共心光線束（homocentric pencil of rays：一点を通過する光線束）、単色性を有する光源が必要である（レーザーに対する要求事項）。
- 3) 第一励起によって選択的に励起された同位体 A を含む化学種を、選択性を保った状態で混合物から分離できるような化学種に変換できる光物理、光学的过程がなければならない。同位体 A の励起状態の寿命が十分長いこと、分離プロセスに要する時間が十分短いことが要求される。
- 4) 同位体 A を含む粒子に対して得られた選択性は、全体のプロセスを通じて全ての競合する光物理、光化学的过程に対して保たれねばならない。後述する共鳴的励起移乗、電荷移行及び近接遷移による妨害が問題となる。

第 3 の条件は、次の諸性質のいずれかを利用して満たすことができる⁴⁾。

- i) 原子や分子の化学反応性は励起によりしばしば増大する。
- ii) 励起原子や分子のイオン化エネルギーは、基底状態にある原子や分子のそれよりも小さい。
- iii) 励起分子の解離エネルギーは、励起されていない分子のそれよりも小さい。
- iv) 励起分子が自然に解離状態になる前期解離（predissociation）を生じることがある。
- v) 分子が励起されると異性化³⁾を起こすことがある。
- vi) 原子や分子は、光子を吸収する時、僅かではあるが反跳が起こり、極めて小さいが、観察できる程度の粒子の光偏向を受ける。
- vii) 励起状態の原子や分子は、より高い分極率や異なった対称性の電子状態になることがあり、他の粒子による散乱断面積や外場のもとでの運動などに変化が生じる可能性がある。

レーザー分離法には、単色性の良い強力なレーザーを必要とする。1970 年代前半に、広スペクトル領域（約2000Å～20μm）をカバーする波長可変レーザーが開発され、原子レーザー法の同位体分離への適用が可能となった。電子励起に用いられるレーザーは、可視あるいは近紫外領域でいろいろ波長の変えられる色素レーザー、窒素レーザーなどである。

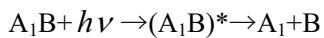
振動励起にはCO₂レーザー（10.6 μm）が用いられるが、より長波長のレーザー光を発するNH₃レーザー（12.6 μm）も開発され、LISの研究に応用されている。このほかHF-DFレーザー（2.7～4 μm）なども研究に導入されている。なお、レーザー化学法には波長域780nm～900nm、半値幅<1MHzのスペックを有するレーザー発振器として、半導体レーザーの適用が可能である。

2.1 2段階光電離^{4),5)}

第1の光で選択的に励起された原子を、第2の光で電離する方法である。励起原子の電離エネルギーは、基底状態にある原子の電離エネルギーよりも小さいから、電離も選択的に行なわれ、電離された同位体の原子、すなわち陽イオンは、電場や磁場をかけて回収することができる。第1の光は特定の同位体を選択的に励起する能力を持ち、第2の光は励起された状態と励起されていない状態を区別する能力を持つ必要がある。なお、原子の励起準位から光電離する吸収断面積は、光励起の断面積より5～6桁も小さく、励起原子の平均寿命内に有効な光電離を起こすには非常に強い光を必要とする。また、選択励起した同位体原子が基底状態にある他の同位体原子と衝突し、共鳴的励起移乗⁴⁾を起こすことがあり、選択性を弱めてしまうという問題がある。従って、真空度を極めて高くする必要があるが、纏まった量のセシウムを工業的に処理するには不利と考えられ、定量的な評価が必要である。具体的にはセシウム蒸気のフルエンス、衝突確率、共鳴的励起移乗の原因となり得る遷移及びその断面積を用いて、モンテカルロ法等を用いて計算する必要がある。共鳴的励起移乗の他に、選択性を弱める要因として、近接遷移の混在、衝突による電荷移行が挙げられる。なお、近接遷移の混在を防ぐため、コヒーレント量子制御法⁵⁾が研究されている。

2.2 1段階光解離^{4),5)}

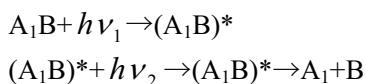
分子はそれぞれ電子状態の異なった多数のポテンシャル曲線を持っている。基底電子状態、あるいは電子励起状態でもポテンシャル曲線はエネルギーの極小値を持っているが、より高次のポテンシャル曲線には極小値がなく、原子間に斥力だけが作用しているものがある。そして極小値のある電子励起ポテンシャルと極小値のないポテンシャル曲線が交差していることがある。いま、分子がレーザー光を吸収して上述のような交差しているポテンシャル曲線に励起されると、通常の解離の閾値よりも低いエネルギーで解離することになる。このような過程を前期過程（Predissoiation）という。ある同位体分子 A₁B だけが振動数 ν のレーザー光を吸収して電子励起された時、その励起分子が前期解離を行うなら、同位体分子は1光子 $h\nu$ による1分子反応で解離し、



によって同位体 A₁ が分離される。

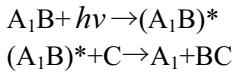
2.3 2段階光解離^{4),5)}

第1の光で励起された分子を、第2の光で解離する方法である。第1の光による選択性を維持するためには、励起分子の第2の光による解離の速さが、共鳴的励起移乗や熱励起の速さよりも圧倒的に速くなければならない。また、励起されていない分子の解離の速さより十分速くなければならない。

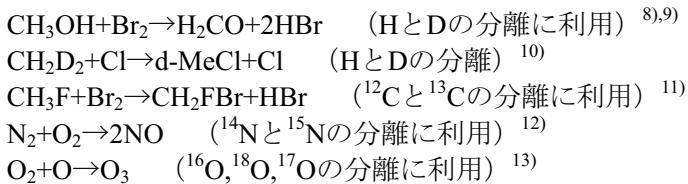


2.4 光化学反応（レーザー誘起化学反応）^{4),5)}

特定の同位体を含む分子がレーザーを選択的に吸収して励起することにより（通常は振動励起）、第2の物質Cとの反応の活性化エネルギーが減少し、その結果、化学反応速度が大幅に増大することを利用して分離する方法である。

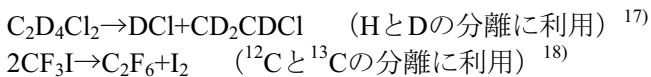


他の同位体分子A₂Bは、 ν という振動数を持つレーザー光を吸収できない。従って基底状態にあるので、Cとの反応速度ははるかに小さいというような反応物質Cを見出せば、A₁とA₂を分離することができる。この方法は2段階励起のような第2の光子を必要とせず、しかも電離法のような高エネルギーの光子を必要としないから、エネルギーの効率は非常に良く、最も優れた同位体分離法になり得る可能性を持っている。但し、(A₁B)^{*}とCの化学反応速度は共鳴的励起移乗速度や熱的励起の速度より圧倒的に速いという条件も満たさねばならない。これまでに次の様なレーザー誘起化学反応が知られている。



2.5 多光子赤外吸収^{4),5),14)}

通常の分子は一度に1個ずつの光子を吸収するに過ぎないが、BCl₃, SF₆, UF₆などのように数個の原子からなる比較的重い分子では、多数の振動状態が密に分布しているため、高強度のレーザーに対しては、多数の赤外光子を次々と速やかに吸収して高次の励起状態に達し、ついには化学結合が切れて解離するまで至る。エネルギーの小さい赤外光子の吸収による振動励起だけで分子が解離するという現象は画期的なことであった。振動量子数3ないし4程度までの振動準位への遷移は、レーザーのパルス幅が励起移乗の衝突時間に比べて短い時、同位体選択性がある。AmbartsumianらはBCl₃に炭酸ガスレーザーを照射して¹⁰Bと¹¹Bを分離することに成功している¹⁵⁾。これまでに次の様な多光子赤外吸収反応が知られている。



2.6 光異性化^{4),40)}

光化学反応による化合物の異性化で、光を吸収した分子自体が異性化する場合と、光を吸収した分子がその励起エネルギーを他の分子に与えて異性化させる場合と、光を吸収した分子が光分解などの反応を起こし、その反応物が他の分子を異性化させる場合がある。1段階光解離と同様の1光子一分子反応による分離過程の一つと考えられる。¹⁴Nと¹⁵Nの分離に、CH₃NCの光異性化が利用された例がある¹⁹⁾。

2.7 光泳動⁴⁾

融点より僅かに低い程度のマトリックス中を、同位体を含む分子が光子を吸収して泳動するもので、BCl₃の例がある²⁰⁾。

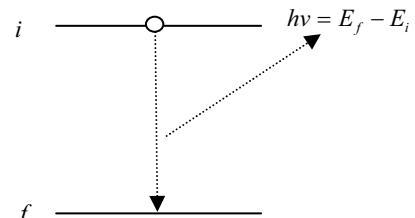
2.8 光圧偏向⁴⁾

高真空のもとで原子または分子ビームに対して直角方向に、ある同位体だけを励起するレーザー光を当てると、光子を吸収した原子または分子は光子から僅かな運動量を受け、ビームの方向から僅かにずれる。この偏向は極めて小さいので、高真空中でビームを絞る必要がある。Ba の実験例がある^{21)~23)}。

3. 原子レーザー法

質量数 A の多電子原子のハミルトニアンを \mathbf{H}_A とすると、シュレディンガ一方程式により、原子の状態を表す固有関数 Ψ_i, Ψ_f とそれに対応するエネルギー固有値 E_i, E_f が次の様に求められる。

$$\begin{cases} \mathbf{H}_A \Psi_i = E_i \Psi_i \\ \mathbf{H}_A \Psi_f = E_f \Psi_f \end{cases} \quad (3.1)$$



原子が状態 i から f に遷移する時、式 (3.1) に従って、遷移エネルギー $E_f - E_i$ の光の吸収または放出が観測される⁴⁰⁾。

同位体間の原子吸収スペクトルの違いは、質量、核電荷分布、核磁気双極子モーメント等の違いに起因する。質量の影響は、主に軽い原子に於いて、リュードベリ定数の差異として現れる。核電荷分布の影響は、主に重い原子に於いて、静電ポテンシャルの差異として現れる。核磁気双極子モーメントの影響は、超微細構造の差異として同位体シフトに現れる³⁴⁾。

ここでは、原子の状態の遷移に於いて観測される電磁波のエネルギーすなわち $h\nu = E_f - E_i$ に於ける振動数 ν のずれ $\delta\nu^{AA'}$ (A, A' は比較の対象とする同位体の質量数) を同位体シフトと定義する。

$$\delta\nu^{AA'} = \frac{\delta(E_f - E_i)}{h} \quad (3.2)$$

表3-1に¹³³Csを基準とした場合のセシウムの同位体シフトの実験データを示す。

原子の状態を表す6,7という数字は主量子数、 s, p は方位量子数 l の分光学的表示 ($l=0$ のとき s 、 $l=1$ のとき p)、右側のサフィックスはスピンを含めた電子の角運動量 $j=l+s$ を表す。

表3-1 セシウムの同位体シフト (¹³³Csを基準とする)²⁴⁾

質量数 A	6s-	IS(MHz)	質量数 A	6s-	IS(MHz)
123	7p _{1/2}	259(12)	131	7p _{1/2}	-9(6)
124	7p _{1/2}	261(6)	131	6p _{3/2}	10.4(1.6)
125	7p _{1/2}	152(11)	132	7p _{1/2}	60(15)
126	7p _{1/2}	208(7)	132	6p _{3/2}	74.3(1.3)
127	7p _{1/2}	94(13)	134	6p _{3/2}	33.1(2.5)
128	7p _{1/2}	155(6)	135	6p _{3/2}	-36.4(2.0)
129	7p _{1/2}	53(9)	137	7p _{1/2}	-104(2.0)
130	7p _{1/2}	56(8)	137	6p _{3/2}	-147.4(2.5)
130	6p _{3/2}	74.0(2.2)			

同位体間で原子吸収スペクトルが異なる時、一方のみを選択的にレーザーで励起させることができる。励起された原子は、励起されない原子と物理的、化学的性質が異なるので、何らかの操作を加えることによって分離することができる⁴⁾。例として、励起した原子に更にレーザーを照射して電離（分子の場合は解離）させ、電場・磁場をかけて回収したり、励起した原子に対し反応性の高い化学反応を起こさせ回収する方法がある。4.1 で述べるルビジウム同位体分離からの類推で、セシウムの場合、 $6^2S_{1/2} \rightarrow 6^2P_{3/2}$ が¹³⁵Cs の選択的励起の候補と考えられる。

ここで、 $^2S_{1/2}, ^2P_{3/2}$ という標記は、多電子系の全軌道角運動量を L 、全スピン角運動量を S 、全角運動量を $J = L + S$ (Russell-Saunders 結合)とした時、左上のサフィックスがスピン多重度 $2S+1$ 、S,P は L の分光学的表示 ($L=0$ のとき S 、 $L=1$ のとき P)、右下のサフィックスは J を表す。纏めると

$$^{2S+1}L_{J=L+S}$$

となる。

表 3-1 に示すように、 $6^2S_{1/2} \rightarrow 6^2P_{3/2}$ 遷移の同位体シフトは ^{133}Cs を基準として -36.4MHz である。現在の半導体レーザーは 1MHz 未満の分解能を有しているから、Doppler 効果や近接遷移の妨害等がなければ、選択的励起は十分可能と考えられる。

では、なぜ同位体シフトが起こるのか、これまでに調べられた知見を以下に述べる。

3.1 Normal mass shift

同位体の質量数の差が直接 $\delta\nu^{AA'}$ に及ぼす効果が mass shift である。ここでは、量子力学の基本に立返って、これらのシフトがどのように表されるか考察する。多電子原子（核外電子の数が Z ）の非相対論的ハミルトニアンは、重心系で一般に次式で表される。

$$\mathbf{H}_A = \frac{\mathbf{P}^2}{2M_A} + \sum_{i=1}^Z \frac{\mathbf{p}_i^2}{2m_e} - \sum_{i=1}^Z \frac{Ze^2}{r_i} + \sum_{i < j} \frac{e^2}{r_{ij}} \quad (3.3)$$

M_A : 核の質量 (A は質量数)

m_e : 電子の質量

\mathbf{P} : 核の運動量演算子

\mathbf{p}_i : i 番目の電子の運動量演算子

Z : 原子番号

e : 電気素量

r_i : i 番目の電子の核からの距離

r_{ij} : i 番目と j 番目の電子間の距離

式 (3.3) の各項は、順に、核の運動エネルギー、核外電子の運動エネルギーの総和、各電子と核との間の静電ポテンシャルの総和、電子間の静電ポテンシャルの総和を表す。

原子は単独で存在し、外力を受けないものとすると、運動量の和は零となるから、

$$\mathbf{P} = -\sum_{i=1}^Z \mathbf{p}_i \quad (3.4)$$

多項定理により

$$\left(-\sum_{i=1}^Z \mathbf{p}_i \right)^2 = \sum_{i=1}^Z \mathbf{p}_i^2 + 2 \sum_{i < j} \mathbf{p}_i \cdot \mathbf{p}_j \quad (3.5)$$

$$\therefore \mathbf{H}_A = \sum_{i=1}^Z \frac{\mathbf{p}_i^2}{2\mu_A} + \frac{1}{M_A} \sum_{i < j} \mathbf{p}_i \cdot \mathbf{p}_j - \sum_{i=1}^Z \frac{Ze^2}{r_i} + \sum_{i < j} \frac{e^2}{r_{ij}} \quad (3.6)$$

ここで

$$\mu_A = \frac{M_A m_e}{M_A + m_e} \quad (3.7)$$

は換算質量と呼ばれる。固有方程式は、

$$\mathbf{H}_A \Psi_A(\mathbf{r}) = E_A \Psi_A(\mathbf{r}) \quad (3.8)$$

と表される。

式 (3.6) に於いて、第 2 項($1/M_A$) $\sum_{i<j} \mathbf{p}_i \cdot \mathbf{p}_j$ は質量分極項と呼ばれ、これを除いたハミルトニアン

$$\mathbf{H}_A^B = \sum_{i=1}^Z \frac{p_i^2}{2\mu_A} - \sum_{i=1}^Z \frac{Ze^2}{r_i} + \sum_{i<j} \frac{e^2}{r_{ij}} \quad (3.9)$$

を、ボーア・ハミルトニアンと称する。これによる同位体シフトを Bohr mass shift (BMS) または Normal mass shift (NMS) と呼ぶ。

ボーア・ハミルトニアンの固有波動関数を $\Psi_A^B(\mathbf{r})$ 、エネルギー固有値を E_A^B とすると、

$$\mathbf{H}_A^B \Psi_A^B(\mathbf{r}) = E_A^B \Psi_A^B(\mathbf{r}) \quad (3.10)$$

という方程式が成り立つ。

ここで、核の質量が無限大の原子を仮想すると

$$\mu_A = \frac{M_A m_e}{M_A + m_e} = \frac{m_e}{1 + m_e / M_A} \rightarrow m_e \quad (3.11)$$

となるから、ボーア・ハミルトニアンは次の様に質量数 A に依存しなくなる。

$$\mathbf{H}_\infty^B = \sum_{i=1}^Z \frac{p_i^2}{2m_e} - \sum_{i=1}^Z \frac{Ze^2}{r'_i} + \sum_{i<j} \frac{e^2}{r'_{ij}} \quad (3.12)$$

ここで、NMS を評価するための準備として、次のように変数変換を行う。

$$\mathbf{r}'_i = \frac{\mu_A}{m} \mathbf{r}_i \quad (3.13)$$

$$\mathbf{p}'_i = -i\hbar \mathbf{grad} = \frac{m}{\mu} \mathbf{p}_i \quad (3.14)$$

これより、ボーア・ハミルトニアンは、

$$\mathbf{H}_A^B = \frac{\mu_A}{m_e} \left(\sum_{i=1}^Z \frac{p'_i{}^2}{2m_e} - \sum_{i=1}^Z \frac{Ze^2}{r'_i} + \sum_{i<j} \frac{e^2}{r'_{ij}} \right) \quad (3.15)$$

と表される。式 (3.15) の右辺の括弧内は、式 (3.12) と同形である。多くの文献は、式 (3.15) から

$$E_A^B = \frac{\mu_A}{m_e} E_\infty^B \quad (3.16)$$

と結論しているが、これは厳密には正しくない。 E_A^B は、 \mathbf{H}_A^B の固有波動関数 $\Psi_A^B(\mathbf{r})$ に付随して得られるエネルギー固有値であるのに対し、 $(\mu_A / m_e) E_\infty^B$ は式 (3.15) の右辺から、 $\Psi_\infty^B(\mathbf{r}')$ に付随して得られるエネルギー固有値だからである。つまり波動関数の関数系が異なる。厳密なエネルギー固有値 E_A^B は次式で求めなければならない。

$$\begin{aligned} E_A^B &= \int \Psi_A^{B\dagger}(\mathbf{r}) \mathbf{H}_A^B \Psi_A^B(\mathbf{r}) d^3 r \\ &= \left(\frac{m_e}{\mu_A} \right)^2 \int \Psi_A^{B\dagger}(m_e \mathbf{r}' / \mu_A) \left(\sum_{i=1}^Z \frac{p'_i{}^2}{2m_e} - \sum_{i=1}^Z \frac{Ze^2}{r'_i} + \sum_{i<j} \frac{e^2}{r'_{ij}} \right) \Psi_A^B(m_e \mathbf{r}' / \mu_A) d^3 r' \end{aligned} \quad (3.17)$$

$$\frac{\mu_A}{m_e} E_A^B = \frac{\mu_A}{m_e} \int \Psi_\infty^{B\dagger}(\mathbf{r}') \left(\sum_{i=1}^Z \frac{p'_i{}^2}{2m_e} - \sum_{i=1}^Z \frac{Ze^2}{r'_i} + \sum_{i<j} \frac{e^2}{r'_{ij}} \right) \Psi_\infty^B(\mathbf{r}') d^3 r' \quad (3.18)$$

従って、式 (3.17) と (3.18) が十分な近似で接近し合うことを確認する必要がある。

もし (3.16) が近似式として採用できるなら、質量数 A 及び A' の同位体間に於ける NMS は次のようにして求められる。

$$\begin{aligned}
h\delta\nu_{NMS}^{AA'} &= \frac{M_{A'}}{M_{A'} + m_e} E_\infty^B - \frac{M_A}{M_A + m_e} E_\infty^B \\
&= \frac{m_e E_\infty^B (M_{A'} - M_A)}{(M_A + m_e)(M_{A'} + m_e)} \\
\frac{\nu_{A'} - \nu_A}{\nu_A} &= \frac{h(M_A + m_e)(M_{A'} + m_e)}{\mu_A \frac{E_\infty^B}{m_e h}} = \frac{m_e (M_{A'} - M_A)}{M_A (M_{A'} + m_e)} \\
\therefore \delta\nu_{NMS}^{AA'} &= \frac{m_e (M_{A'} - M_A)}{M_A (M_{A'} + m_e)} \nu_A \quad (3.19)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\frac{\nu_{A'} - \nu_A}{\nu_{A'}} &= \frac{m_e E_\infty^B (M_{A'} - M_A)}{h(M_A + m_e)(M_{A'} + m_e)} = \frac{m_e (M_{A'} - M_A)}{M_{A'} (M_A + m_e)} \\
\therefore \delta\nu_{NMS}^{AA'} &= \frac{m_e (M_{A'} - M_A)}{M_{A'} (M_A + m_e)} \nu_{A'} \quad (3.20)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\frac{\nu_{A'} - \nu_A}{\nu_A} &= \frac{-\delta\lambda_{NMS}^{AA'}}{\lambda_{A'}} = \frac{m_e (M_{A'} - M_A)}{M_A (M_{A'} + m_e)} \\
\therefore \delta\lambda_{NMS}^{AA'} &= \frac{m_e (M_A - M_{A'})}{M_A (M_{A'} + m_e)} \lambda_{A'} \quad (3.21) \\
\frac{\nu_{A'} - \nu_A}{\nu_{A'}} &= -\frac{\delta\lambda_{NMS}^{AA'}}{\lambda_A} = \frac{m_e (M_{A'} - M_A)}{M_{A'} (M_A + m_e)} \\
\therefore \delta\lambda_{NMS}^{AA'} &= \frac{m_e (M_A - M_{A'})}{M_{A'} (M_A + m_e)} \lambda_A \quad (3.22)
\end{aligned}$$

式 (3.19) から、例えば⁸⁵Rb の D₂線 (780nm) に対し、⁸⁵Rb と⁸⁷Rb の間の NMS は前者を基準として、約+57.1MHz (-1.16×10⁻⁴nm)、¹³³Cs の D₂線 (852.1nm) に対し、¹³³Cs と¹³⁵Cs の間の NMS は前者を基準として、約 21.5MHz (-5.21×10⁻⁵nm) と試算される。但し、これらは式 (3.16) が使えるという前提の下での結果である。しかし、式 (3.19) は NMS の公式として広く用いられているようである。

また、式 (3.4) は、対象とする原子が外力を受けないということを前提としている。従ってセシウム等が真空中で蒸気状態にあるという理想的な条件の下で成り立つ式である。蒸気圧にもよるが、レーザー原子法はほぼこの条件下にある。しかし、金属状態、化合物状態、あるいは溶液中にイオンとして存在しているような場合には成り立たない。

3.2 Specific mass shift

$$\begin{aligned}
\text{NMSの計算では無視した質量分極項} (1/M_A) \sum_{i<j} \mathbf{p}_i \cdot \mathbf{p}_j \text{ の固有値} \\
\frac{1}{M_A} \int \Psi_A^\dagger(\mathbf{r}) \sum_{i<j} \mathbf{p}_i \cdot \mathbf{p}_j \Psi_A(\mathbf{r}) d^3r \quad (3.23)
\end{aligned}$$

の同位体間の差 $\delta\nu_{SMS}^{AA'}$ を Specific mass shift (SMS) と呼ぶ。多電子原子についてこの計算を行うのは容易ではない。

$$\delta\nu_{SMS}^{AA'} = K_{SMS}^{AA'} \frac{AA'}{A' - A} \quad (3.24)$$

で定義される $K_{SMS}^{AA'}$ をSMS constantと呼ぶ。表3-2にセシウムの遷移 $6^2S_{1/2}, 6^2P_{3/2}$ の $K_{SMS}^{AA'}$ について、幾つかの手法で計算された例を示す。

表3-2 セシウムのSMS constant²⁴⁾

	$6^2S_{1/2}$ に於ける $K_{SMS}^{AA'}$ (MHz amu)	$6^2P_{3/2}$ に於ける $K_{SMS}^{AA'}$ (MHz amu)
HF	-773.18	-170.4
RPA	-355.55	-40.31
$\Sigma^{(2)}$	-133.19	20.66
Brueckner	6.75	47.33
Interp	-99.84	29.38
Fit	-89.31	30.17
PT	-314.2	-5.0
その他	-23.5	9.2

表3-2を見て分るように、手法により値にかなりのばらつきがあり、一定の値に収束しない。従って、SMSの適格な評価は今後の課題である。

3.3 Field shift

Field shift (FS)とは、核の電荷分布状況が同位体によって異なることに起因する同位体シフトで、核の平均自乗半径による因子と核外電子の波動関数が核の位置に於いて零でないことによる因子とに分けられる。Heilig, Steudel (1974) らの理論によると、原子番号 Z の元素に於いて、質量数 A と A' の同位体間のFSは近似的に次式で与えられる²⁵⁾。

$$\delta\nu^{AA'} = \pi|\psi(0)|^2 \frac{a_0^3}{Z} f(Z) \delta\langle r^2 \rangle^{AA'} \quad (3.25)$$

ここで a_0 はBohr半径、 $|\psi(0)|^2$ は非相対論的量子力学をベースとした原子の中心に於ける核外電子の存在確率、 $\delta\langle r^2 \rangle^{AA'}$ は核の平均自乗半径の同位体間の差、 $f(Z)$ は相対論的補正を表す。

$f(Z)$ はDirac方程式に基づいて計算されるが、核の電荷分布は一定と仮定している。この場合、FSが核の電荷分布状況から受ける影響は主として $\delta\langle r^2 \rangle^{AA'}$ に反映されるので、核の電荷分布一定という仮定が $f(Z)$ に及ぼす影響は大きくないとされている (Zimmermann 1985, Blundell et al 1985, Bodmer 1953)。

以上を総合して、FS constant $K_{FS}^{AA'}$ は次式のように定義される。

$$\delta\nu_{FS}^{AA'} = K_{FS}^{AA'} \delta\langle r^2 \rangle^{AA'} \quad (3.26)$$

セシウムの $K_{FS}^{AA'}$ は、これまでの計算で表3-3のような値が得られている。

表3-3 セシウムのFS constant²⁴⁾

	$6^2S_{1/2}$ に於ける $K_{FS}^{AA'}$ (MHz amu)	$6^2P_{3/2}$ に於ける $K_{FS}^{AA'}$ (MHz amu)
HF	-1270	0.0
RPA	-1405	54.9
$\langle \Sigma^{(2)} \rangle$	-2050	45.4
BO $\langle \Sigma^{(2)} \rangle$	-2119	46.7
BO(Σ^∞)	-1914	51.2
SD+E3	-1894	52.2
その他	-2069	70.53

$K_{SMS}^{AA'}$ ほどではないが、 $K_{FS}^{AA'}$ も手法によってばらつきがあり、FSに関する定説には至っていないのが現状であり、今後の課題である。

ところで、質量数の大きい原子では、核の電荷分布の同位体間の差は $\delta\langle r^2 \rangle^{AA'}$ では不十分となってくることが指摘されている。そこで、Seltzer (1969) は $\delta\langle r^2 \rangle^{AA'}$ の代わりに Selter moment と呼ばれる次式で表される展開式を導入した²⁵⁾。

$$\lambda^{AA'} = \delta\langle r^2 \rangle^{AA'} + \frac{C_2}{C_1} \delta\langle r^4 \rangle^{AA'} + \dots \quad (3.27)$$

更に Aufmuth (1982, 1985) は次式で表される因子を導入した²⁵⁾。

$$N = \frac{D}{4Z} a_0^3, \quad D = 4\pi |\psi(0)|^2 \quad (3.28)$$

これを用いて (2.20) は次の様に書き換えられる。

$$\delta V^{AA'} = N f(Z) \lambda^{AA'} \quad (3.29)$$

式(3.25)から分るように、 $f(Z), |\psi(0)|^2, \delta\langle r^2 \rangle^{AA'}$ (または $\lambda^{AA'}$) は FS を求めるのに必要なパラメータである。現在、これらについて有力な数値は見当たらないが、セシウムとルビジウムの $|\psi(0)|^2, \delta\langle r^2 \rangle^{AA'}$ について、これまでの知見を以下に記しておく。

(1) セシウムとルビジウムに於ける $|\psi(0)|^2$ の影響

セシウムの基底状態は

$${}^2S_{1/2} (L=0, S=1/2, J=1/2) : \\ (1s)^2 (2s)^2 (2p)^6 (3s)^2 (3p)^6 (3d)^{10} (4s)^2 (4p)^6 (4d)^{10} (5s)^2 (5p)^6 (6s)^1$$

である。励起状態

$$(1s)^2 (2s)^2 (2p)^6 (3s)^2 (3p)^6 (3d)^{10} (4s)^2 (4p)^6 (4d)^{10} (5s)^2 (5p)^6 (6p)^1$$

を考えたとき、 $(5p)^6$ まではキセノンの電子配置と同じで、 ${}^1S_0 (L=0, S=0, J=0)$ であり、これに $l=1, s=\pm 1/2$ の電子が加わるから、上記励起状態は ${}^2P_{3/2,1/2} (L=1, S=\pm 1/2, J=3/2, 1/2)$ と表される。よってこれらの状態間に於ける遷移を次のように簡潔に表す。

$$6s^1 {}^2S_{1/2} \rightarrow 6p^1 {}^2P_{3/2,1/2}$$

ところで、FS の表式 (3.25) で、セシウムに於いて、p 電子が核内に見出される確率の s 電子のそれに対する割合は Fradkin (1962) によると

$$\frac{|\psi(0)|_p^2}{|\psi(0)|_s^2} = 0.044$$

と見積られており²⁶⁾、数値から分るように、s 電子の波動関数の核への進入は p 電子よりも桁違いに大きく、FS は主として s 電子の寄与によるものといえる。

一方、ルビジウムの基底状態は

$${}^2S_{1/2} (L=0, S=1/2, J=1/2) :$$

$(1s)^2(2s)^2(2p)^6(3s)^2(3p)^6(3d)^{10}(4s)^2(4p)^6(5s)^1$
である。励起状態

$(1s)^2(2s)^2(2p)^6(3s)^2(3p)^6(3d)^{10}(4s)^2(4p)^6(5p)^1$
を考えたとき、 $(4p)^6$ まではクリプトンの電子配置と同じで、 $^1S_0(L=0, S=0, J=0)$ であり、これに $l=1, s=\pm 1/2$ の電子が加わるから、上記励起状態は $^2P_{3/2,1/2}(L=1, S=\pm 1/2, J=3/2, 1/2)$ と表される。よってこれらの状態間に於ける遷移を次のように簡潔に表す。

$$5s^1 {}^2S_{1/2} \rightarrow 5p^1 {}^2P_{3/2,1/2}$$

ルビジウムに於いて、p 電子が核内に見出される確率の s 電子のそれに対する割合は Fradkin (1962)によると

$$\frac{|\psi(0)|_p^2}{|\psi(0)|_s^2} = 0.019$$

と見積もられている²⁶⁾。

(2) 核の電荷密度の影響

核の電荷密度は式 (3.25) に於いて $\delta\langle r^2 \rangle^{AA'}$ に関係する。現在、核の電荷密度 $\rho(r)$ は、数百MeVの電子散乱によって最も精確に測定されており、

$$\left. \begin{array}{l} \rho(r) = \frac{\rho(0)}{1 + e^{(r-R)/b}} \\ R = 1.07A^{1/3} \text{ fm} \\ b = 0.55 \text{ fm} \end{array} \right\} \quad (3.30)$$

という結果が得られている²⁷⁾。これから言えることは、

- ・核の電荷密度は、核の内部では大体一定で、表面近くで急激に減少する。
- ・核の中心部の電荷密度の約半分になる位置で以って核半径 R を定義すると R は $A^{1/3}$ に比例する。
- ・表面の厚さ b は核によらず大体一定である。
- ・核の中心部での電荷密度 $\rho(0)$ は質量数 A が大きくなるにつれて、僅かではあるが減少する。
- ・核の内部で、陽子と中性子の分布が同じであるとすると、核物質密度 $\rho_M(r)$ と $\rho(r)$ の間には

$$\rho(r) \propto \frac{Z}{A} \rho_M(r) \quad (3.31)$$

という関係が成り立つ。

^{76}Rb から ^{87}Rb までは、 $\langle r^2 \rangle$ が順に小さくなることが実験で知られている。特に ^{87}Rb は中性子数が 50 で magic number であり、そのため核物質がより稠密で $\langle r^2 \rangle$ は特に小さくなり、また原子核の核外電子に対する束縛力も強くなっている。 ν^{87} は近隣の核種より著しく大きくなるであろう。実際、 ^{85}Rb と ^{87}Rb について、 $5s^1 {}^2S_{1/2} \rightarrow 5p^1 {}^2P_{3/2,1/2}$ に於ける $\delta\nu^{AA'}$ が、何人かの研究者によって測定されており、 $\delta\nu^{AA'}$ が A に対して正の側へ（つまり A が大きくなるに従って、 ν も大きくなる方向へ）、 $\delta\nu_{NMS}^{AA'}$ の計算値をかなり大きく上回る値で観測されたとの報告がある。

逆に ^{87}Rb から ^{98}Rb までは $\langle r^2 \rangle$ が急速に大きくなることが実験で知られている。 $\delta\nu^{AA'}$ は ^{96}Rb と ^{97}Rb の間で特に大きく、 A に対して負の側に（つまり A が大きくなるに従って、 ν は小さくなる方向へ） -350MHz と報告されている。 $\delta\nu_{NMS}^{AA'}$ は 22MHz で、 $\delta\nu_{SMS}^{AA'}$ もそれくらいだとすると、 $\delta\nu_{FS}^{AA'}$ の A に対する負の側への寄与は非常に大きい。これには ^{97}Rb の核

の変形が関与していると考えられている²⁶⁾。

(3) 核の電気四重極変形の効果

電気四重極子モーメント Q の定義式は、

$$Q = \frac{1}{e} \int r^2 (3 \cos^2 \theta - 1) \rho(r, \theta, \varphi) dV \quad (3.32)$$

である。F.Buchinger, P.Dabkiewicz, H.J.Kluge, A.C.Mueller, E.W.Otten (1986) らの理論によると、 $\langle r^2 \rangle$ は、核の体積変化による寄与項と電気四重極変形による寄与項とに分けられる。

$$\langle r^2 \rangle = \langle r^2 \rangle_{sph}^A + \langle r^2 \rangle_{quad}^A = \langle r^2 \rangle_{sph}^A \left(1 + \frac{5}{4\pi} \langle \beta_2^2 \rangle^A \right) \quad (3.33)$$

ここで、 β_2 とは核の電気四重極変形を表すパラメータである。一般には核の変形は

$$R(\theta, \varphi) = R_0 \left(1 + \sum_{\lambda=0}^{\infty} \sum_{\mu=-\lambda}^{\lambda} \alpha_{\lambda\mu}^* Y_{\lambda\mu}(\theta, \varphi) \right) \quad (3.34)$$

と表される⁴⁰⁾。ここで、 $\alpha_{\lambda\mu}^*$ は、核の球形からの変形を球面調和関数 $Y_{\lambda\mu}(\theta, \varphi)$ で展開したときの係数で

$$\alpha_{\lambda\mu} = (-1)^{\mu} \alpha_{\lambda,-\mu}^* \quad (3.35)$$

を満たす。基底状態や低い励起状態では、核の変形は殆どが軸対称で φ 依存性がない。この場合 $\mu = 0$ 以外では $\alpha = 0$ となる。またこの時 $\alpha_{\lambda 0}^* = \alpha_{\lambda 0}$ なので、

$$R(\theta) = R_0 \left(1 + \sum_{\lambda=0}^{\infty} \alpha_{\lambda 0} Y_{\lambda 0}(\theta) \right) \quad (3.36)$$

となる。この $\alpha_{\lambda 0}$ は通常 β_{λ} と書かれ、 $\lambda = 2$ が電気四重極変形を表す²⁸⁾。表3-4,3-5にルビジウムとセシウムの β_2 を示す。

表3-4 ルビジウムの β_2 (核はいずれも基底状態)⁴⁸⁾

^A Rb	β_2			
76	-0.241 ± 0.107	$+0.482 \pm 0.214$		
77	$+0.441 \pm 0.047$			
79	$+0.035 \pm 0.009$			
80	-0.216 ± 0.023	$+0.432 \pm 0.046$		
81	$+0.245 \pm 0.025$			
82	0.116 ± 0.048	-0.609 ± 0.091	$+1.218 \pm 0.183$	$+0.231 \pm 0.097$
83	$+0.068 \pm 0.01$			
84	$+0.002 \pm 0.006$	-0.008 ± 0.017		
85	$+0.091 \pm 0.005$	$+0.092 \pm 0.005$	$+0.077 \pm 0.017$	$+0.096 \pm 0.005$
86	$+0.079 \pm 0.016$	$+0.083 \pm 0.017$		$+0.093 \pm 0.005$
87	$+0.077 \pm 0.016$	$+0.075 \pm 0.004$	$+0.079 \pm 0.005$	$+0.081 \pm 0.005$
88	-0.004 ± 0.041			$+0.078 \pm 0.004$
89	0.093 ± 0.022	$+0.082 \pm 0.022$		
91	0.081 ± 0.021	$+0.086 \pm 0.022$		
93	0.086 ± 0.023	$+0.057 \pm 0.016$		
94	$+0.043 \pm 0.016$			
95	$+0.066 \pm 0.025$			
96	$+0.098 \pm 0.028$			
97	$+0.323 \pm 0.038$			

表3-5 セシウムの β_2 (核はいずれも基底状態)⁴⁸⁾

^A Cs	β_2			
118	+0.321 ± 0.061			
119	+0.108 ± 0.017	+0.335 ± 0.029		
120	+0.329 ± 0.021			
121	+0.868 ± 0.06	+0.27 ± 0.016		
122	-1.055 ± 0.078	+0.061 ± 0.006	+2.111 ± 0.157	-0.122 ± 0.013
124	-0.47 ± 0.043	+0.235 ± 0.021		
126	-0.427 ± 0.034	+0.214 ± 0.017		
128	+0.177 ± 0.011	-0.354 ± 0.023		
130	-0.036 ± 0.006	+0.018 ± 0.003		
131	-0.115 ± 0.013	-0.099 ± 0.006		
132	+0.104 ± 0.009	+0.108 ± 0.007		
133	-0 ± 0	-0 ± 0	-0.001 ± 0.001	
134	+0.045 ± 0.007	+0.046 ± 0.003		
135	+0.006 ± 0.001	+0.004 ± 0.003		
136	+0.018 ± 0.007	+0.023 ± 0.002		
137	+0.004 ± 0.005	+0.008 ± 0.003	+0.006 ± 0	
138	+0.017 ± 0.004	+0.018 ± 0.004		
139	-0.008 ± 0.004	-0.009 ± 0.002		
140	+0.029 ± 0.007	+0.033 ± 0.004	-0.059 ± 0.015	-0.066 ± 0.007
141	-0.056 ± 0.012	-0.045 ± 0.007		
143	+0.136 ± 0.015			
144	-0.086 ± 0.007	+0.172 ± 0.014		
145	+0.177 ± 0.026			
146	-0.063 ± 0.011	+0.125 ± 0.023		

核子数がmagic number (2,8,20,28,50,82。中性子にあっては126も含む)の場合、電気四重極変形はないとされる。陽子数すなわち原子番号がmagic numberの元素はヘリウム、酸素、カルシウム、ニッケル、スズ、鉛である。陽子数がmagic numberであっても中性子数がmagic numberからある程度離れていれば電気四重極変形が観測される。magic numberと次のmagic numberの中間に位置する元素の四重極変形が大きく、陽子数でいうとホウ素、ケイ素、イットリウム、ジスプロシウムがこれに当たる。なお、原子核は核子数がmagic numberを離れてもなかなか四重極変形を起こさない。これは核子間に對相関と呼ばれる原子核を球形に保とうとする相互作用が働いているからと考えられている²⁸⁾。そのため、核子数がmagic number付近の元素は、なかなか電気四重極変形を起こさず、核子数がある数に達してから突然電気四重極変形を起こすことが知られている。これは原子核という少数多体系に見られる相転移現象である。電気四重極子モーメントに差異のない同位体はFSにあまり差がないと考えられるが、核を励起状態にすると電気四重極子モーメントに差が現れる。従って、同位体シフトの小さい遷移があり、その小ささがFSに起因するものであるとすれば、核を励起状態にしてFSを大きくし、人工的に同位体効果を作り出すことも可能と考えられる。

ルビジウムとセシウムの電気四重極子モーメントの実験値を表3-6に示す。核が基底状態のルビジウムにはいざれも電気四重極子モーメントに差異が見られ、これがFSに寄与すると考えられる。セシウムについては¹³³Csだけが他の2つの同位体と違った値を示している。¹³⁵Csと¹³⁷Csの間に大きな電気四重極子モーメントの差は見られない。

表3-6 ルビジウムとセシウムの電気四重極子モーメント²⁹⁾

核種	Q (barn)	測定状態	測定方法・報告時期
⁸¹ Rb	+0.40(2)	基底状態 (3/2-)	ABLS(1981)
	-0.74(6)	励起状態 (86keV,9/2+)	ABLS(1981)
⁸⁵ Rb	+0.23(4)	基底状態 (5/2-)	ABLS(1981)
	+0.274(2)	基底状態 (5/2-)	OD(1973)
	+0.273(2)	基底状態 (5/2-)	MB(1971)
	-0.7(2)	励起状態 (514keV,9/2+)	OP/RD(1991)
⁸⁷ Rb	+0.132(1)	基底状態 (3/2-)	OD(1973)
	+0.127(1)	基底状態 (3/2-)	OD/R(1971)
	+0.13(2)	基底状態 (3/2-)	ABLS(1981)
		励起状態のデータはない	
¹³³ Cs	-0.00371(14)	基底状態 (7/2+)	OL(1981)
	-0.009(4)	基底状態 (7/2+)	ABLS(1981)
	-0.33(2)	励起状態 (81keV,5/2+)	ME(1977)
¹³⁵ Cs	+0.050(2)	基底状態 (7/2+)	OL,OD,R(1975)
	+0.03(2)	基底状態 (7/2+)	ABLS(1981)
	+0.89(7)	励起状態 (1633keV,19/2-)	ABLS(1981)
¹³⁷ Cs	+0.051(1)	基底状態 (7/2+)	OL,OD,R(1975)
	+0.06(2)	基底状態 (7/2+)	CFBLS(1978)
	+0.03(4)	基底状態 (7/2+)	ABLS(1981)
		励起状態のデータはない	

ABLS : Atomic beam laser spectroscopy

CFBLS : Collinear fast beam laser spectroscopy

MB : Molecular Beam Magnetic Resonance

ME : Mössbauer effect

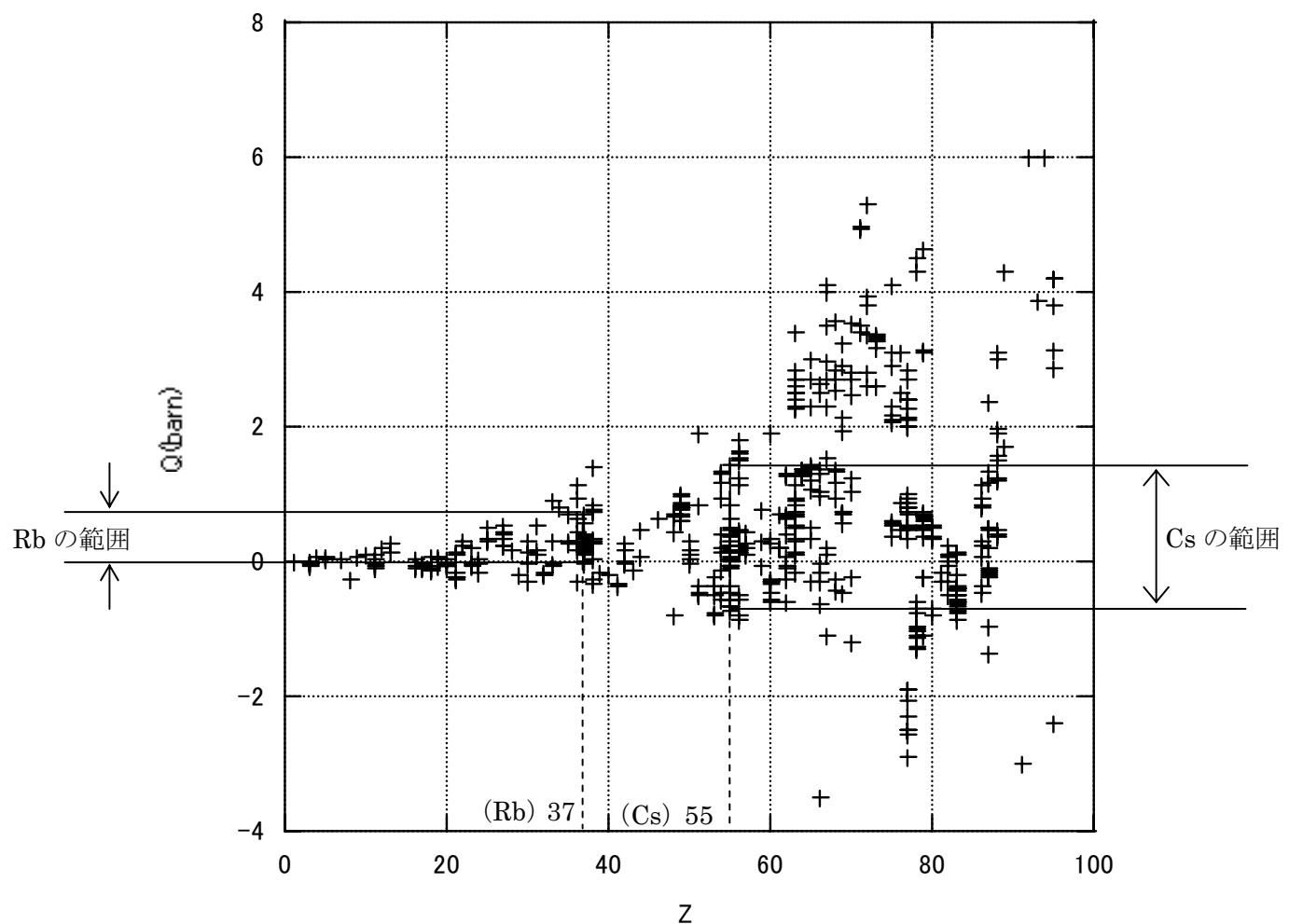
OL : Optical level crossing

OD : Optical double resonance

OP/RD : Optical Pumping with Radiative Detection

R : Re-evaluated by tabulator, usually because of change in reference standard

また、各元素の電気四重極子モーメント（基底状態に限る）を図3-1に示す。同位体シフトは軽元素では質量効果が支配的であるのに対し、重元素では電気四重極変形による電荷分布の効果が増大してくることが分る。ルビジウムは-0.02barn～0.58barn、セシウムは-0.68barn～1.45barnの範囲で電気四重極子モーメントがシフトしている。

図3-1 原子核の電気四重極子モーメント²⁹⁾

3.4 超微細構造による同位体シフト

多電子原子は電子のスピンによってエネルギー準位が細かく分裂し、これを超微細構造という。レーザー化学法で有力候補とされるセシウムとルビジウムの超微細構造による遷移波長は次の通りである⁴⁹⁾。

$$\begin{aligned} \text{Rb} ; & 5^2\text{S}_{1/2} \rightarrow 5^2\text{P}_{1/2} \text{ の吸収波長 } (794.7\text{nm}) \\ \text{Rb} ; & 5^2\text{S}_{1/2} \rightarrow 5^2\text{P}_{3/2} \text{ の吸収波長 } (780.0\text{nm}) \\ \text{Cs} ; & 6^2\text{S}_{1/2} \rightarrow 6^2\text{P}_{1/2} \text{ の吸収波長 } (894.3\text{nm}) \\ \text{Cs} ; & 6^2\text{S}_{1/2} \rightarrow 6^2\text{P}_{3/2} \text{ の吸収波長 } (852.1\text{nm}) \end{aligned}$$

原子スペクトルを高分解能の分光器で観察すると、電子スピンに起因する数Åの多重線が、更に0.4Å以下に細かく分裂することが知られている。これを超微細構造という。この分裂は核スピンとそれに伴う磁気双極子モーメントに起因するもので、核外電子が核の位置に作る場（超微細場）と核の持つ磁気双極子モーメントとの相互作用（超微細相互作用）によるものと考えられている。

結果として、原子の全角運動量 \mathbf{J} に、核スピン \mathbf{I} が加わって、全原子系の角運動量 \mathbf{F} を生じ、

$$J + I \ J + I - 1 \ J + I - 2 \cdots |J - I|$$

に分裂する²¹⁾。

核スピンは

- $A = \text{偶数}$ ならば $I = \text{整数または} 0$
- $A = \text{偶数}, Z = \text{偶数}$ ならば $I = 0$
- $A = \text{奇数}$ ならば $I = \text{半整数}$

である。 $\mathbf{I} = 0$ なら超微細構造は生じない²⁷⁾。

ルビジウムとセシウムの核スピン及び磁気双極子モーメントの実験値を表3-7に示す（核スピンは「測定状態」の欄にパリティとともに記されている）。

また、図3-2,3-3,3-4に⁸⁵Rb, ⁸⁷Rb及び¹³³Csの超微細構造を示す。

図3-5に各元素の核磁気双極子モーメントを示す（基底状態に限る）。これを見ると、核磁気双極子モーメントは軽元素から重元素に渡って広く同位体間でシフトしていることが分かる。換言すれば、超微細構造を利用した同位体の選択的励起は広範囲の元素に対して有効といえる。ルビジウムについては−1.70～3.36nm、セシウムに対しては−0.51～3.92nmの範囲で核磁気双極子モーメントがシフトしている。

核スピンは超微細構造の分裂線の数に影響し、核磁気双極子モーメントは超微細構造に於ける同位体シフトに影響する。分離しようとする同位体のスピンが同じで、しかも核磁気双極子モーメントにあまり差異のない場合は、分離に不利であるが、核を励起状態にすると、スピン、磁気双極子モーメントが変化する。従って、核を励起状態にすることによって人工的に同位体効果を作り出すことも原理的に可能である。

表3-7 ルビジウムとセシウムの核スピンと磁気双極子モーメント²⁹⁾

核種	μ (nm)	測定状態	測定方法・報告時期
⁸¹ Rb	+2.0595(14)	基底状態 (3/2-)	ABLS(1981)
	+5.598(2)	励起状態 (86keV,9/2+)	ABLS(1981)
⁸⁵ Rb	+1.35298(10)	基底状態 (5/2-)	ABLS (1993)
	+1.3533515(8)	基底状態 (5/2-)	N (1954)
	+1.353028(3)	基底状態 (5/2-)	AB/D (1968)
	+1.35302(2)	基底状態 (5/2-)	OP (1968)
	+1.357(1)	基底状態 (5/2-)	ABLS (1981)
	+6.043(5)	励起状態 (514keV,9/2+)	OP/RD(1991)
	+6.046(10)	励起状態 (514keV,9/2+)	OP/RD(1984)
	+6.16(5)	励起状態 (514keV,9/2+)	TDPAD,SOPAD(1970)
	+1.3(4)	励起状態 (2826keV,19/2-)	TDPAD(1990)
⁸⁷ Rb	+2.75131(12)	基底状態 (3/2-)	ABLS(1993)
	+2.751818(2)	基底状態 (3/2-)	N(1968)
	+2.751235(3)	基底状態 (3/2-)	OP(1968)
¹³³ Cs	+2.582025(3)	基底状態 (7/2+)	OP(1973)
	+2.5829128(15)	基底状態 (7/2+)	N(1967)
	+3.45(2)	励起状態 (81keV,5/2+)	ME(1968)
	+2.0(2)	励起状態 (161keV,5/2+)	IPAC(1979)
¹³⁵ Cs	+2.7324(2)	基底状態 (7/2+)	AB/D(1957)
	+2.73(1)	基底状態 (7/2+)	ABLS(1981)
	+2.18(1)	励起状態 (19/2-, 1633keV)	ABLS(1981)
¹³⁷ Cs	+2.8513(7)	基底状態 (7/2+)	AB/D(1957)
	+2.838(7)	基底状態 (7/2+)	CFBLS(1978)
	+2.84(1)	基底状態 (7/2+)	ABLS(1981)

AB/D : Atomic beam magnetic resonance (direct moment measurement)

ABLS : Atomic beam laser spectroscopy

CFBLS : Collinear fast beam laser spectroscopy

IPAC : Integral perturbed angular correlation

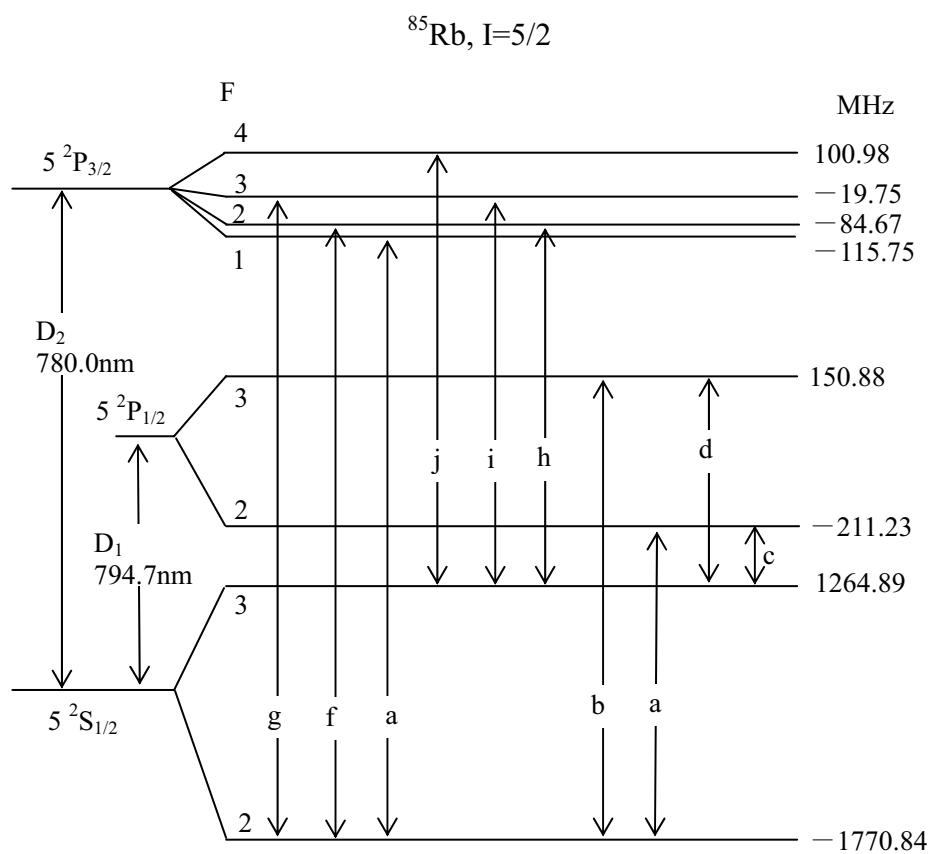
ME : Mössbauer effect

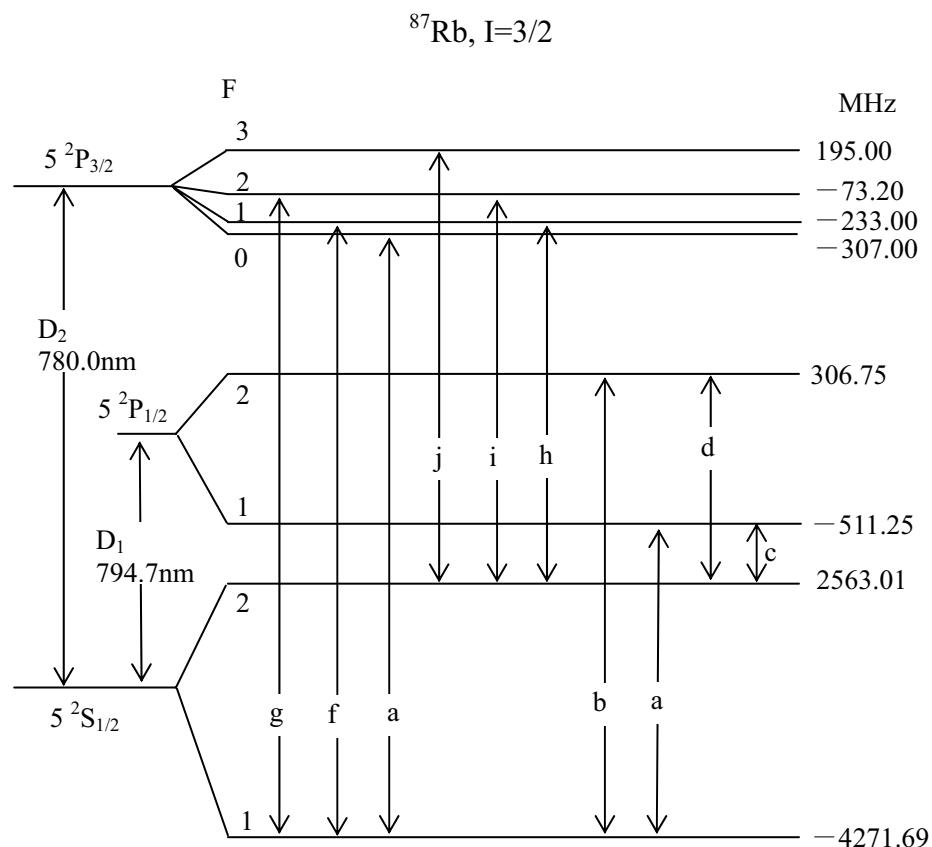
N : Nuclear magnetic resonance

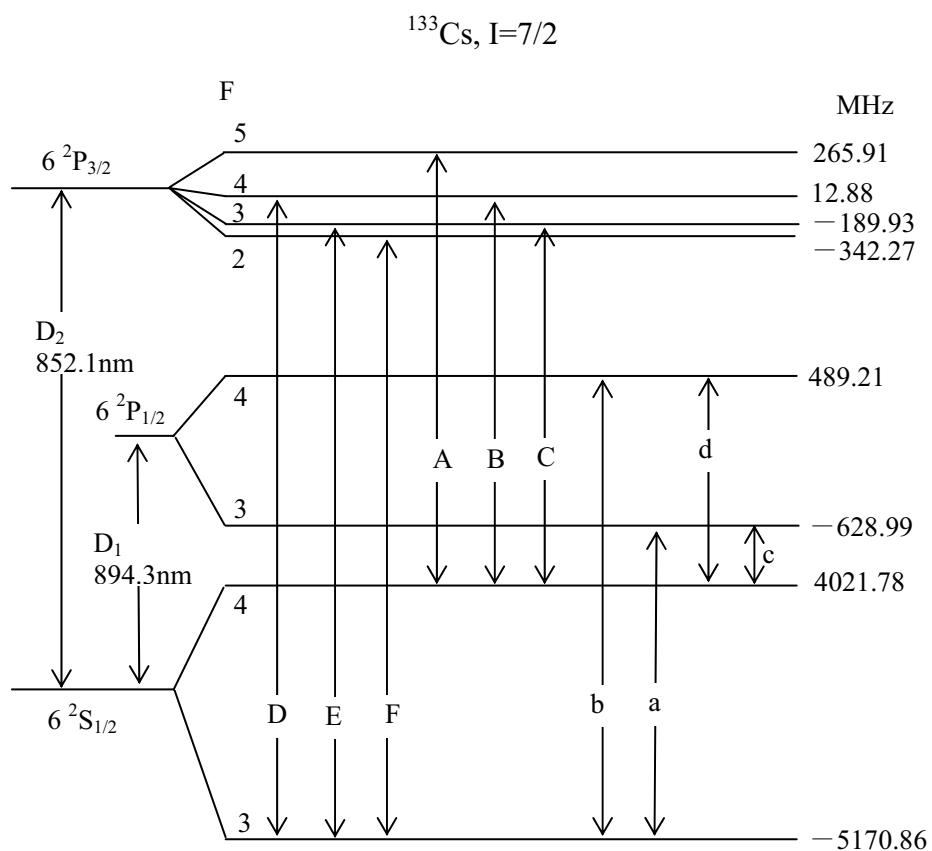
OP/RD : Optical pumping with radiative detection

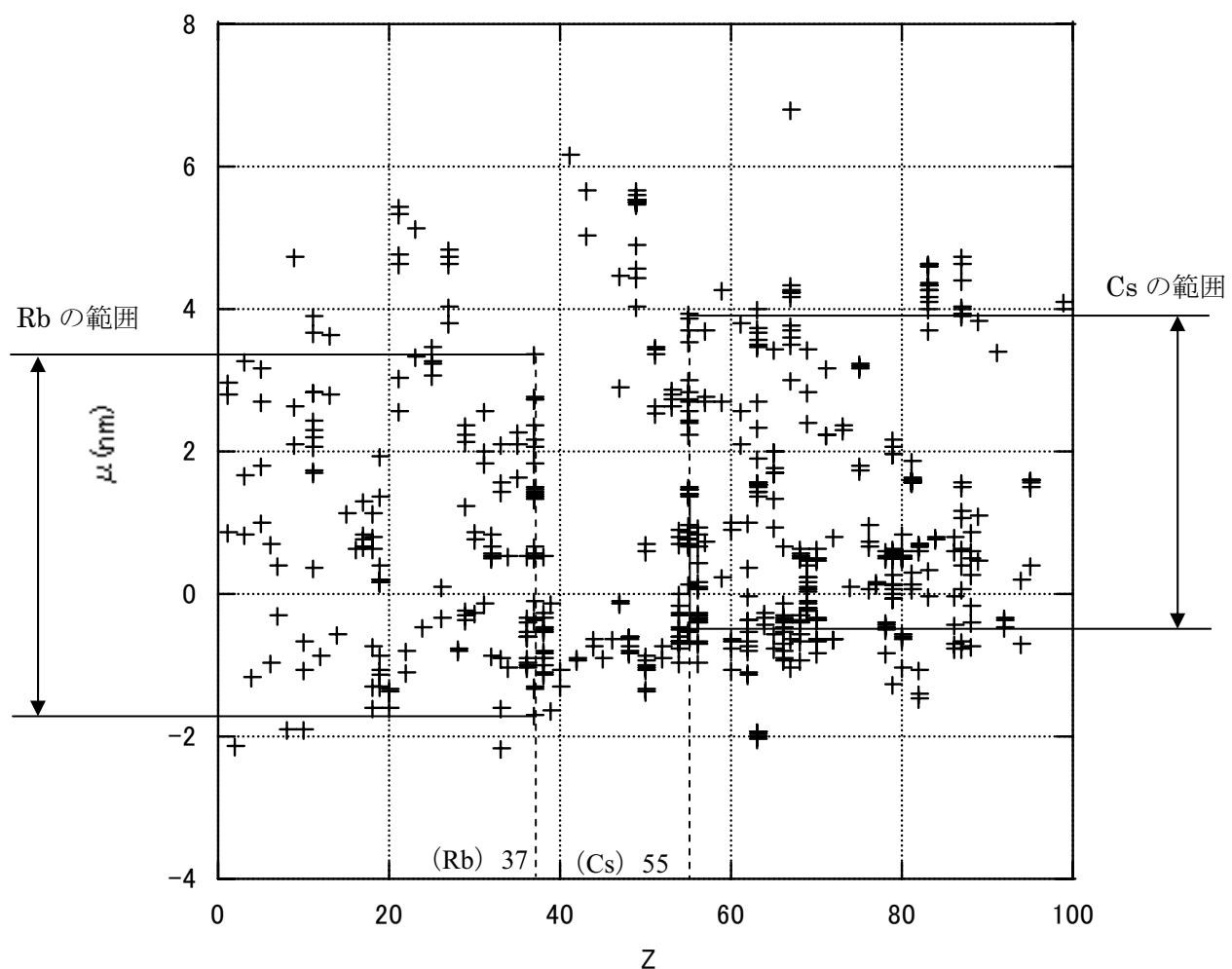
SOPAD : Stroboscopic observation of perturbed angular distribution

TDPAD : Time dependent perturbed angular distribution

図3-2 ^{85}Rb の超微細構造⁴⁹⁾

図3-3 ^{87}Rb の超微細構造⁴⁹⁾

図 3-4 ^{133}Cs の超微細構造⁴⁹⁾

図 3-5 原子核の磁気双極子モーメント²⁹⁾

4. レーザー化学法

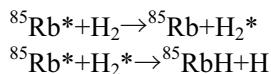
ここで述べるレーザー化学法は、2.3で述べたレーザー誘起化学反応法の一種と考えられる。初期のレーザー原子法による同位体分離では、反応セル内で蒸気化させた金属に、特定の同位体のみが吸収する波長のレーザー光を多段階照射し、選択的に励起・イオン化し、これに電場をかけて回収板に付着分離回収するものであった。この方法を採用した場合、次の様な問題が起こる。

- ・ 基底状態から励起状態への遷移に関する原子のレーザー光吸収断面積と、励起状態から電離状態への移行に関する原子のレーザー光吸収断面積を比較すると、後者の方が5~6桁も小さく、励起原子の寿命内に電離させるには非常に強いレーザー光が必要である⁴⁾。
- ・ 選択励起した同位体が衝突・散乱の過程で下位の状態に戻り、励起原子と非励起原子が混じり合い、分離率が低下してしまう。従って反応セル内の真空度を極めて高くし、金属蒸気の圧力を極めて低くしなければならない。そのため、ある程度纏まった量の同位体を分離回収するのは困難である。

これに対し、励起した原子に選択的に化学反応を起こさせる方法は、レーザー化学法と呼ばれ、高強度のレーザー光を必要とせず、1ステップの励起で回収が可能という特長がある。

4.1 レーザー化学法の原理

レーザー化学法とは、上述の様に、レーザー原子法で選択的に励起した同位体に、選択的に化学反応を起こさせて回収するもので、例えばセシウムの類似元素であるルビジウムに対し、次のような反応が起こることが知られている。



すなわち、選択的に励起された⁸⁵Rb*の消光により、水素分子が励起する。この励起水素分子は、励起したRbとだけ反応して水素化物を形成する。結局、特定の同位体しか化学反応しないことになって、分離できたことになる。

この方法の魅力的な点は、 $5^2\text{S}_{1/2} \rightarrow 5^2\text{P}_{3/2}$ (D_2 線) という遷移を利用しておらず、ルビジウムの価電子がs軌道からp軌道に移っただけの低励起状態であるため、レーザーに高出力を必要としないことと、目的の同位体の回収に化学的手法を用いるため、2度目のレーザー照射を必要としないことである。

4.2 レーザー化学法に関するこれまでの実績

ロシア支援ISTC #A-635プロジェクト（「レーザー化学法によるアルカリ金属元素の同位体分離」、2002-2004）によると、アルメニア科学アカデミー物理学研究所に於いて、ルビジウムに関し、⁸⁵Rbを選択的に励起させ、水素化物として⁸⁷Rbからの分離が確認されている。実験では、ルビジウム金属蒸気に対しレーザー照射 (780nm; D₂線) を行い、エネルギーレベルを第一励起レベル ($5^2\text{P}_{3/2}$; 図3-2,3-3参照) に励起し、充填した水素分子により励起原子の水素化物を生成させた。これにより、セル窓に数ミクロンの⁸⁵RbH析出層が確認された。反応終了後、水素ガスと未反応の金属蒸気を排出し、レーザー照射を止め、セルを冷却した。次いで析出層の付着した窓を約300°Cまで加熱し、水素化物を解離させた。分析の結果、最初の天然ルビジウム（原子量 ⁸⁵Rb: ⁸⁷Rb (β⁻核種) = 3:1）の組成に対し、水

素化物中の⁸⁵Rbは約6倍と報告されており、単段階の分離としては高い分離度であった。また、¹³³Csについては、光励起と水素化反応が確認されている（図4-1）。

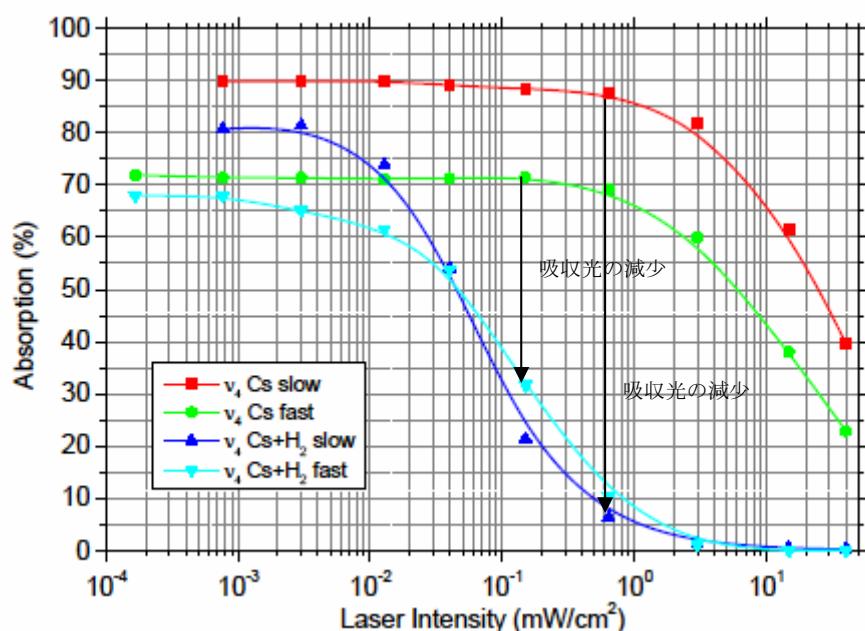


図4-1 レーザー照射による¹³³Csの水素化反応²⁾
(水素化するとレーザー光が吸収されなくなり、CsHが生成したことを示す。)

5. 選択的励起性向上の研究

LISによる同位体分離の選択性を低下させる要因として、共鳴的励起移乗、電荷移行、近接遷移の存在、Doppler効果がある。電荷移行についての知見は見当たらなかつたので、ここでは残り三者について述べる。

5.1 共鳴的励起移乗

共鳴的励起移乗は、一旦選択的に励起したセシウム原子が、他の原子との衝突過程で、選択励起準位に近い他の遷移が存在すると、エネルギーを失う現象である。共鳴的励起移乗の評価には、チャンバー内の原子（ルビジウム、セシウム）のフルエンスと真空度の関係、平均自由行程、共鳴的励起移乗の原因となる遷移の特定及びその断面積を知る必要がある。これらの効果を防止するには真空度を極めて高くする必要があるが、工業的にある程度纏まった量のセシウムを処理することとはジレンマの関係にあり、今後の課題である。なお、原子をビームにすると共鳴的励起移乗の効果を緩和できるとの説がある⁴⁾。

5.2 近接遷移の除去

同位体分離に採用した遷移の周波数が、他の遷移の周波数に非常に近い時、セシウム原子は異なった励起状態が混じり合っている可能性がある。これは分離率を下げる原因となる。これに関しては、選択性を良くする研究が機構で為されている。研究対象とされた遷移はセシウムの $6^2S_{1/2} \rightarrow 7^2D_{5/2}, 7^2D_{3/2}$ であり、これらの遷移波長はそれぞれ 767.2nm, 767.82nm で極めて接近している。レーザーの波長範囲がこれらの遷移波長の差よりも大きいと双方の遷移が起こる。そこで、励起状態を表す波動関数の干渉効果を利用して、どちらか一方を消去することが考えられてきたが、従来の方法では、ある程度時間を要し、選択性も 6 度程にしかならなかつた。そこで、レーザーの波長と強度を制御することにより、選択比のコントラストを 1600 以上、所要時間は 400fs 以下にすることに成功している^{6),7)}。

5.3 Doppler 効果

「同位体シフトは大抵の元素に対して Doppler 幅よりも数倍大きいが、アルカリ金属、アルカリ土類金属の同位体シフトは Doppler 幅よりも小さい」と報告されている⁴⁾。従って、ルビジウム、セシウムのようなアルカリ金属に対しては、Doppler 効果の悪影響の評価が必要である。また、複数の吸収線が Doppler 効果による線幅の拡がりのために重なり合い、あたかも一本の吸収線のように観測される場合は、その吸収線は選択的励起に利用できなくなる。また、吸収線が 1 本でも、線幅が広いと励起の際の感受性が悪くなると考えられる。冷却剤を使うと Doppler 幅を狭くすることができるが、冷却に掛かるコスト評価が必要である。また、共鳴的励起移乗と同様に、原子をビームとすると Doppler 効果を緩和できるという説もある⁴⁾。なお、同じ振動数の光子を逆方向から照射すると、いわゆる Doppler free 二光子遷移が起こることが理論的に検討されている^{31)~35)}。

6. 今後の課題

以上の調査結果から、 ^{135}Cs の分離にLISを適用する上で今後取組むべき課題をここに纏めておく。

- i) セシウムの励起状態の電子配置、寿命、遷移確率の評価を行い、 ^{135}Cs の分離に有利な遷移は何かを特定する。現時点では、アルメニア科学アカデミー物理学研究所で、 ^{85}Rb と ^{87}Rb を分離した際に用いられた遷移が $5^2\text{S}_{1/2} \rightarrow 5^2\text{P}_{3/2}$ であったことから、セシウムの場合 $6^2\text{S}_{1/2} \rightarrow 6^2\text{P}_{3/2}$ 遷移が候補に挙げられている。
- ii) セシウムのような質量数の比較的大きい元素に於いては、同位体シフトは、Mass shiftよりもField shiftが支配的と考えられる。従って、平均自乗半径の差異 $\delta\langle r^2 \rangle$ （更に細かく言えば、核の電荷分布状況に関する核体積及び β_2 の差異）及び核外電子が核の位置に見出される確率 $|\psi(0)|^2$ が重要な役割を果たすと考えられ、これらの精密な計算及び測定が必要である。電気四重極子モーメントが非常に小さい場合には、核を励起状態にして同位体シフトを生み出すことも原理的には可能である。
- iii) 選択性の低下をもたらす要因の特定、評価及び対策を考える必要がある。要因として、共鳴的励起移乗、電荷移行、Doppler効果、近接遷移の存在が挙げられる。これらを定量的に評価するためには、セシウムの原子の蒸気フルエンスならびに選択性低下の原因となる事象の断面積に関するデータが必要である。なお、近接遷移については、コヒーレント量子制御による除去が有力視されている。
- iv) iii)の評価結果から、レーザー照射条件の最適化（真密度、温度）を図る。勿論安全性の評価も必要である。
- v) セシウムの同位体ごとの核スピン、核磁気双極子モーメント及び原子吸収スペクトルのデータから、超微細構造について解析し、同位体分離に利用できないか考察する。核スピン、核磁気双極子モーメントは核の状態によって変化するので、核を励起状態にして超微細構造を生み出すことも原理的には可能である。
- vi) ^{135}Cs が ^{85}Rb と同様に選択的励起及び水素化物としての回収が可能か実証する必要がある。 ^{135}Cs の選択的励起の候補とされている $6^2\text{S}_{1/2} \rightarrow 6^2\text{P}_{3/2}$ 遷移の同位体シフトは ^{133}Cs を基準として-36.4MHzで、現在の半導体レーザーは1MHz未満の分解能を有しているから、Doppler効果や近接遷移の妨害がなければ、選択的励起は十分可能と考えられるが、実験による確認と持続時間の測定が必要である。また、 ^{135}Cs の励起状態の寿命、水素化反応との時間差を評価し、水素化反応の速さが選択的励起時間に比べて十分速いことを実証する必要がある。

7. 結言

以上述べてきたように、レーザー同位体分離法は、簡便な装置で高い分離係数の期待できる手法である。中でもレーザー化学法は、同位体回収法の特性から、高出力を必要としたため、低コストで目的の同位体を分離できる可能性を有しており、核燃料サイクルに於けるバックエンド対策に整合性を与えるものと言える。しかしながら、同位体シフトの理論的解明は不十分で、定説や有力な仮説は見出されていない。また、レーザーによる選択性を妨げる現象の評価及びその対策もまだ十分には検討されていない。更に、目的の同位体を分離回収するための光物理、光化学的プロセスも可能性は示唆されているが実証はまだ為されていない。従って、これらのこととを逐次解決し、総合的に組み立ててレーザー同位体分離法として確立して行く必要がある。

謝辞

本書を刊行するに当たり、(株)東芝の桑子彰氏からレーザー技術に関して多大な御指導と情報提供を頂きました。この場を借りて感謝申し上げます。

付録1 LLFPの属性

1. Se (セレン、Selenium)

セレンには幾つかの同素体が存在する。金属セレンに光を当てると電子を放出するので、光電池に利用されている。セレン化水素 H_2Se 及びセレン酸 H_2SeO_4 は猛毒で取扱いには十分な注意を要する。セレン酸イオン SeO_4^{2-} は正塩及び水素塩を形成する。酸化セレンには、 SeO_2 と SeO_3 のほか、 SeO , Se_2O_3 , Se_3O_4 も存在すると言われている。 SeO_2 は有毒である。セレンの化学的性質は硫黄に類似している^{42),43)}。

セレンの属性を下記に示す。

原子番号 : 34

原子量⁴⁴⁾ : 78.96(3)

酸化数⁴⁴⁾ : -2, +4, +6

密度⁴⁴⁾ : 金属セレン 4.79g/cm³ (20°C)、結晶セレン 4.4 (25°C)

沸点⁴⁵⁾ : 685°C

融点⁴⁵⁾ : 220.2°C

クラーク数⁴⁵⁾ : 1×10^{-5}

基底状態に於ける核外電子配置

3P_2 (L=1, S=1, J=2) : (1s)²(2s)²(2p)⁶(3s)²(3p)⁶(3d)¹⁰(4s)²(4p)⁴

安定同位体⁴⁴⁾: ^{74}Se (0.89%), ^{76}Se (9.37%), ^{77}Se (7.63%), ^{78}Se (23.77%), ^{80}Se (49.61%), ^{82}Se (8.73%)

LLFP である ^{79}Se の属性を下記に示す。

半減期⁴⁴⁾ : more than 6.5×10^4 years

質量過剰⁴⁴⁾ : -75.917MeV

核スピン・パリティ⁴⁴⁾ : 7/2+

崩壊型式⁴⁴⁾ : β^- (max0.16MeV, no γ)

磁気双極子モーメント²⁹⁾ : -1.018(15) nm

電気四重極子モーメント²⁹⁾ : +0.8(2) b

表 A-1 セレンの核分裂収率 (熱中性子)³⁹⁾

	^{74}Se	^{76}Se	^{77}Se	^{78}Se	^{79}Se	^{80}Se
^{233}U	8.4251E-10	5.1800E-06	2.6151E-02	5.5162E-02	1.5116E-01	2.3938E-01
^{235}U	8.9185E-12	1.9097E-07	8.4327E-03	2.1823E-02	4.5321E-02	1.3129E-01
^{239}Pu	1.0921E-10	7.1743E-07	7.3361E-03	2.8532E-02	4.7042E-02	1.1358E-01
^{241}Pu	6.1030E-13	1.3203E-08	1.9323E-03	9.4652E-03	1.5261E-02	2.9984E-02
	^{82}Se					
^{233}U	5.5112E-01					
^{235}U	3.2724E-01					
^{239}Pu	2.0233E-01					
^{241}Pu	1.3158E-01					

2. Zr(ジルコニウム、Zirconium)

ジルコニウムは大気中で酸化被膜を形成し腐食に耐える。粉末は発火しやすい。熱中性子吸収断面積が金属中最小であるため、原子炉材料に用いられる。但し、ハフニウムを完全に分離することが必要である^{42),43)}。

ジルコニウムの属性を下記に示す。

原子番号：40

原子量⁴⁴⁾： 91.224(2)

酸化数⁴⁴⁾： +2, +3, +4

密度⁴⁴⁾： 6.506 g/cm³ (20°C)

沸点⁴⁵⁾： ≥2900°C

融点⁴⁵⁾： 1857°C

クラーク数⁴⁵⁾： 0.02

基底状態における核外電子の配置

³F₂ (L=3, S=-1, J=2) : (1s)²(2s)²(2p)⁶(3s)²(3p)⁶(3d)¹⁰(4s)²(4p)⁶(4d)²(5s)²

安定同位体⁴⁴⁾：⁹⁰Zr(51.45%), ⁹¹Zr(11.22%), ⁹²Zr(17.15%), ⁹⁴Zr(17.38%), ⁹⁶Zr(2.80%)

LLFP である⁹³Zr の属性を下記に示す。

半減期⁴⁴⁾： more than 1.53×10⁶ years

質量過剰⁴⁴⁾： -87.117MeV

核スピン・パリティ⁴⁴⁾： 5/2+

崩壊型式⁴⁴⁾： β⁻ (max0.06MeV>95%)

磁気双極子モーメント及び電気四重極子モーメントのデータはない。

表 A-2 ジルコニウムの核分裂収率(熱中性子)³⁹⁾

	⁹⁰ Zr	⁹¹ Zr	⁹² Zr	⁹³ Zr	⁹⁴ Zr	⁹⁶ Zr
²³³ U	6.8925E+00	6.5340E+00	6.5924E+00	7.0151E+00	6.8160E+00	5.6500E+00
²³⁵ U	5.9045E+00	5.9187E+00	5.9738E+00	6.3902E+00	6.4395E+00	6.2641E+00
²³⁹ Pu	2.1012E+00	2.5021E+00	3.0069E+00	3.8963E+00	4.4298E+00	5.0665E+00
²⁴¹ Pu	1.5713E+00	1.8866E+00	2.3660E+00	3.0940E+00	3.5417E+00	4.5935E+00

3. Tc (テクネチウム、Technetium)

テクネチウムの安定同位体は確認されていない。核分裂収率は約 6.2%である。 ^{99}Tc はウランの自発核分裂によって天然にも存在する。化学的性質はレニウムに類似している。弱い常磁性を示す^{43), 45)}。

テクネチウムの属性を下記に示す。

原子番号 : 43

原子量⁴⁴⁾ : 98

安定同位体の存在は確認されていない。

酸化数⁴⁴⁾ : +2, +3, +4, +5, +6, +7

密度⁴⁴⁾ : 11.5 g/cm³ (20°C) ※計算値

沸点⁴⁴⁾ : 4877°C

融点⁴⁵⁾ : 2140±20°C

核分裂収率⁴⁵⁾ : 約 6.2%

基底状態に於ける核外電子配置 :

$^6\text{S}_{1/2}$ (L=0, S=5/2, J=5/2): $(1s)^2(2s)^2(2p)^6(3s)^2(3p)^6(3d)^{10}(4s)^2(4p)^6(4d)^5(5s)^2$

安定同位体 : これまでのところ、確認されていない。

LLFP である ^{99}Tc の属性を下記に示す。

半減期⁴⁴⁾ : 2.13×10^5 years

質量過剰⁴⁴⁾ : -87.323 MeV

核スピン・パリティ⁴⁴⁾ : 9/2+

崩壊型式⁴⁴⁾ : β^- (max 0.29 MeV, γ 0.0897 MeV)

磁気双極子モーメント²⁹⁾ :

+5.6847(4) nm (基底状態で測定)

+4.48(15) or 3.6(9) or +4.4(9) nm (エネルギー 141 keV、スピン・パリティ 7/2+、

半減期 0.205 ns の励起状態で測定)

3.48(4) or +3.62(5) or +3.29(6) nm (エネルギー 181 keV、スピン・パリティ 5/2+、

半減期 3.44 ns の励起状態で測定)

電気四重極子モーメント²⁹⁾ :

-0.129(6) b (基底状態で測定)

表 A-3 テクネチウムの核分裂収率 (熱中性子)³⁹⁾

	^{99}Tc
^{233}U	4.8663E+00
^{235}U	6.1105E+00
^{239}Pu	6.1403E+00
^{241}Pu	6.2334E+00

4. Pd (パラジウム、Palladium)

パラジウムには水素吸収性があり、吸収水素の体積はパラジウムの350～850倍に達する。水素を吸収したパラジウムは、極めて還元性の強い水素を放出する。王水に容易に溶け、希硫酸にはゆっくりと溶ける。パラジウム合金は触媒、歯科医療、装飾品などに用いられる^{42),43)}。

パラジウムの属性を下記に示す。

原子番号：46

原子量⁴⁴⁾：106.42(1)

酸化数⁴⁴⁾：+2, +3, +4

密度⁴⁴⁾：12.02 g/cm³ (20°C)

沸点⁴⁵⁾：2200

融点⁴⁵⁾：1555

クラーク数⁴⁵⁾：1×10⁻⁶

基底状態に於ける核外電子配置

¹S₀(L=0, S=0, J=0)：(1s)²(2s)²(2p)⁶(3s)²(3p)⁶(3d)¹⁰(4s)²(4p)⁶(4d)¹⁰

安定同位体⁴⁴⁾：¹⁰²Pd(1.02% 試料によって異なる), ¹⁰⁴Pd(11.14%), ¹⁰⁵Pd(22.33%),

¹⁰⁶Pd(27.33%), ¹⁰⁸Pd(26.46%), ¹¹⁰Pd(11.72%)

LLFP である ¹⁰⁷Pd の属性を下記に示す。

半減期⁴⁴⁾：6.5×10⁶ years

質量過剰⁴⁴⁾：-88.373MeV

核スピン・パリティ⁴⁴⁾：5/2+

崩壊型式⁴⁴⁾：β⁻ (max0.04MeV, no γ)

磁気双極子モーメント及び電気四重極子モーメントのデータはない。

表 A-4 パラジウムの核分裂収率（熱中性子）³⁹⁾

	¹⁰² Pd	¹⁰⁴ Pd	¹⁰⁵ Pd	¹⁰⁶ Pd	¹⁰⁷ Pd	¹⁰⁸ Pd
²³³ U	6.8755E-11	5.3066E-07	4.8220E-01	2.5881E-01	1.1734E-01	6.3107E-02
²³⁵ U	1.6252E-08	7.3690E-08	9.6384E-01	4.0232E-01	1.4028E-01	6.3938E-02
²³⁹ Pu	9.5821E-11	1.8333E-06	5.3514E+00	4.2856E+00	3.3610E+00	2.1685E+00
²⁴¹ Pu	8.3183E-13	5.1010E-08	6.1074E+00	6.2505E+00	5.2011E+00	3.9253E+00
	¹¹⁰ Pd					
²³³ U	2.6150E-02					
²³⁵ U	3.0432E-02					
²³⁹ Pu	5.9972E-01					
²⁴¹ Pu	1.1777E+00					

5. Sn (スズ、Tin)

スズは両性元素で、強アルカリとも強酸とも反応する。 α (灰色)、 β (白色)、 γ (白色) の3通りの状態が存在する。ブリキとは鉄板をスズでメッキしたものである。スズ箔、ハンダ (スズと鉛の合金) 等の用途がある。安定同位体が多いので、コールドの同位体分離試験には都合が良い⁴⁵⁾。

スズの属性を下記に示す。

原子番号 : 50

原子量⁴⁴⁾ : 118.710(7)

酸化数⁴⁴⁾ : +2, +4

密度⁴⁴⁾ : α Tin 5.75 g/cm³ (20°C), β Tin 7.31 g/cm³ (20°C)

沸点⁴⁵⁾ : 2275°C

融点⁴⁵⁾ : 231.84°C

基底状態に於ける核外電子の配置

3P_0 (L=1, S=-1, J=0):

$(1s)^2(2s)^2(2p)^6(3s)^2(3p)^6(3d)^{10}(4s)^2(4p)^6(4d)^{10}(5s)^2(5p)^2$

安定同位体⁴⁴⁾ : ^{112}Sn (0.97%), ^{114}Sn (0.66%), ^{115}Sn (0.34%), ^{116}Sn (14.54%), ^{117}Sn (7.68%), ^{118}Sn (24.22%), ^{119}Sn (8.59%), ^{120}Sn (32.58%), ^{122}Sn (4.63%), ^{124}Sn (5.79%)

LLFP である ^{126}Sn の属性を下記に示す。

半減期⁴⁴⁾ : 約 1×10^5 years

質量過剰⁴⁴⁾ : -86.020MeV

スピノ・パリティ⁴⁴⁾ : 0+

崩壊型式⁴⁴⁾ : β^- (max0.25MeV;almost100%, γ 0.0886MeV;37%and others)

磁気双極子モーメント、電気四重極子モーメントのデータはない。

表 A-5 スズの核分裂収率 (熱中性子)³⁹⁾

	^{112}Sn	^{114}Sn	^{115}Sn	^{116}Sn	^{117}Sn	^{118}Sn
^{233}U	no data	2.4242E-09	1.2210E-02	8.2589E-07	1.1404E-03	1.2239E-02
^{235}U	no data	1.1200E-10	1.1142E-02	7.3991E-08	1.0834E-02	1.0935E-02
^{239}Pu	no data	9.6655E-09	3.6893E-02	2.5414E-06	5.6314E-02	3.6417E-02
^{241}Pu	no data	1.3496E-10	4.3624E-02	3.9013E-08	2.5349E-02	2.3826E-02
	^{119}Sn	^{120}Sn	^{122}Sn	^{124}Sn	^{126}Sn	
^{233}U	1.2585E-05	1.3845E-02	1.4750E-02	2.4321E-02	2.4011E-01	
^{235}U	1.2161E-02	1.2105E-02	1.5299E-02	2.5913E-02	5.4932E-02	
^{239}Pu	3.9076E-02	3.6576E-02	5.0176E-02	8.7732E-02	2.6570E-01	
^{241}Pu	2.3827E-02	2.3953E-02	2.3487E-02	2.9149E-02	7.5549E-02	

6. I (ヨウ素、Iodine)

現在確認されているヨウ素の安定同位体は ^{127}I のみである。ヨウ素はハロゲン元素の一つで、常温で暗紫色の金属光沢を持つ結晶である。揮発性があり、常温で昇華する。気体は2原子分子である。化学的性質は塩素、臭素に類似するが、反応性は弱い。ヨウ素は酸化還元滴定の試薬として重要で、例として水中の酸素及び鉱石中の砒素の定量分析が挙げられる。また、甲状腺にチロキシンとして存在し、生体にとっても欠くことのできない重要な元素である⁴⁵⁾。

ヨウ素の属性を下記に示す。

原子番号 : 53

原子量⁴⁴⁾ : 126.90447(3)

酸化数⁴⁴⁾ : -1, +1, +3, +5, +7

密度⁴⁴⁾ : 4.93 g/cm³ (20°C)

沸点⁴⁵⁾ : 184.5°C

融点⁴⁵⁾ : 113.7°C

クラーク数⁴⁵⁾ : 3×10^{-5}

基底状態に於ける核外電子の配置

$^2\text{P}_{3/2}$ (L=1, S=1/2, J=3/2): (1s)²(2s)²(2p)⁶(3s)²(3p)⁶(3d)¹⁰(4s)²(4p)⁶(4d)¹⁰(5s)²(5p)⁵

安定同位体³⁸⁾ : ^{127}I (100%)

LLFP である ^{129}I の属性を下記に示す。

半減期⁴⁴⁾ : 1.57×10^7 years

質量過剰⁴⁴⁾ : -88.504 MeV

スピン・パリティ⁴⁴⁾ : 7/2+

崩壊型式⁴⁴⁾ : β^- (max 0.15 MeV, γ 0.0376 MeV; 7.5%)

磁気双極子モーメント²⁹⁾ : +2.6210(3) nm (基底状態)

+2.805(3) nm (エネルギー 28 keV、スピン・パリティ 5/2+, 半減期 16.8 ns の励起状態)

電気四重極子モーメント²⁹⁾ : -0.482(10) b (基底状態)

-0.42(2)b or -0.598(13)b (エネルギー 28 keV、スピン・パリティ 5/2+, 半減期 16.8 ns の励起状態)

表 A-6 ヨウ素の核分裂収率 (熱中性子)³⁹⁾

	^{127}I	^{129}I
^{233}U	5.6175E-01	1.5071E+00
^{235}U	1.2466E-01	7.1785E-01
^{239}Pu	4.8955E-01	1.3934E+00
^{241}Pu	2.2853E-01	7.3582E-02

7. Cs (Cesium)

セシウムはアルカリ金属の一つで、現在確認されている安定同位体は¹³³Csのみであるため、同位体分離試験が困難である。金属セシウムは、空气中では速やかに酸化し、水とは激しく反応して水素を発生しながら水酸化セシウムとなる。他のアルカリ金属と同様に自然界に広く存在する。工学的用途としては光電管の製造が挙げられる⁴⁵⁾。

セシウムの属性を下記に示す。

原子番号：55

原子量⁴⁴⁾： 132.90545(2)

酸化数⁴⁴⁾： +1

密度⁴⁴⁾： 1.873 g/cm³ (20°C)

沸点⁴⁵⁾： 760°C

融点⁴⁵⁾： 28.5°C

クラーク数⁴⁵⁾： 7×10^{-4}

基底状態に於ける核外電子の配置

²S_{1/2}(L=0, S=1/2, J=1/2): (1s)²(2s)²(2p)⁶(3s)²(3p)⁶(3d)¹⁰(4s)²(4p)⁶(4d)¹⁰(5s)²(5p)⁶(6s)¹

安定同位体⁴⁴⁾：¹³³Cs(100%)

LLFP である¹³⁵Cs の属性を下記に示す。

半減期⁴⁴⁾： 3.0×10^6 years

質量過剰⁴⁴⁾： -87.587 MeV

スピン・パリティ⁴⁴⁾： 7/2+

崩壊型式⁴⁴⁾： β^- (max0.21MeV, no γ)

磁気双極子モーメント²⁹⁾： +2.7324(2) nm or +2.73(1) nm (基底状態)

+2.18(1)nm (エネルギー1633 keV、スピン・パリティ 19/2-、半減期 53m の励起状態)

電気四重極子モーメント²⁹⁾： +0.050(2) b or +0.03(2)b (基底状態)

+0.89(7) b (エネルギー1633 keV、スピン・パリティ 19/2-、半減期 53m の励起状態)

表 A-7 セシウムの核分裂収率 (熱中性子)³⁹⁾

	¹³³ Cs	¹³⁵ Cs	¹³⁷ Cs
²³³ U	6.0224E+00	6.2140E+00	6.8194E+00
²³⁵ U	6.7019E+00	6.5337E+00	6.2685E+00
²³⁹ Pu	6.9756E+00	7.6151E+00	6.7274E+00
²⁴¹ Pu	6.7696E+00	7.2865E+00	6.9346E+00

※¹³⁷Cs は中半減期核種 (30.0 y) なので分離しなくてもよいのではないかという説もあるが、分離固化すれば、放射線源、熱電発電等の用途が考えられるため、ここに記した。

付録2 各種同位体分離法

同位体分離法は大別して、物理的方法と化学的方法がある。物理的方法は同位体に於ける沸点、融点、蒸気圧、並びに本書で取上げた光の吸収・放出などの僅かな差を利用して分離する方法である。化学的方法は、二つの分子間に於いて、重い同位体元素は電気陰性度の大きな原子が分子内にある、結合分子数が多いなど分子力が安定していることなどを利用して分離する方法である。

1. ガス拡散法^{38),41),46),47)}

第二次世界大戦中、遠心分離法に先駆けてアメリカで開発された方法で、質量の異なる原子または分子の混合気体を隔膜と呼ばれる多孔質膜を通過させる時、軽成分の方が速度が大きいため、重成分よりも透過しやすい性質を利用して分離するというものである。ウラン濃縮の場合、細孔（80～100Å）を有する隔膜を使い、細孔を通すことによって濃縮度を上げる。原料としては六フッ化ウランを使用して、隔膜の前後の圧力差で透過させ、透過するガスと透過しないガスとに分け、透過するガスは僅かに²³⁵Uの割合が高くなる。細孔径は気体の平均自由行程と同程度とする必要があり、このような細孔を有する隔膜を作るには高度なノウハウを必要とする。1回の操作で得られる分離係数は高々1.0043に過ぎず、原子炉用の3%濃縮ウランを作る場合でも約1200段のカスケードが必要なほか、圧縮、膨張を繰返す必要があり、効率の良いポンプ、圧縮、膨張の際に発生する熱を除去するための冷却設備が必要となる。これらの消費電力が非常に大きく、設備の償却費より運転による電気代が大きくなり、濃縮コストの大部分を占める。

2. 遠心分離法^{38),46),47)}

ウラン濃縮のために開発された遠心分離機が最もよく知られている。他に硫黄やキセノンの同位体分離にも用いられている。この分離法は同位体元素の質量差にのみ依存し、重い同位体が分離機の外側、軽い同位体が分離機の中心に濃縮されるというものである。ウラン濃縮に於いては、気化した六フッ化ウランを遠心分離装置内で高速回転させ、質量の大きい²³⁸Uを壁側に、質量の小さい²³⁵Uを軸側に集めることで、軸側出口より濃縮流を得る。遠心分離法はガス拡散法と比較して分離係数が高いので、反復回数は30分の1以下、カスケードの段数は数百分の一でよく、濃縮に要するエネルギーは10分の1以下で、消費エネルギーが低く、また冷却水を必要としないという利点がある。

3. 蒸留法^{4),5),36),37),38)}

同位体によって分子の飽和蒸気圧が異なることをを利用して、蒸留塔により分離する方法で、原理が簡単で熱効率が良いという特徴を持つ。中でも液体水素の飽和蒸気圧は液体重水素の飽和蒸気圧よりはるかに大きく、低温に於いてその差が著しい。1931年に Ureyらが低温下で液体水素を蒸留法で分離、重水素を濃縮した研究が有名である。低温で分離する方法を特に深冷蒸留法と呼ぶ。Raoultの法則によると、希薄溶液に於いて、液相と気相が平衡状態にある時、気相に於ける溶質の分圧 p_1 は、溶質が単独の液体として存在する時の飽和蒸気圧 p_1^0 と、溶液中に存在する時のモル分率 X の積で表される⁴⁷⁾。

$$p_1 = p_1^0 X$$

一方、溶媒の飽和蒸気圧 p_2^0 と溶液の飽和蒸気圧 p の間には次の関係があり、希薄溶液の蒸気圧降下と呼ばれる⁴⁵⁾。

$$\frac{p_2^0 - p}{p_2^0} = X$$

ここで、ある液体物質に2種類の同位体1,2が混在し、液相と気相で平衡状態にある時、モル分率の少ない物質を溶質、モル分率の多い物質を溶媒とみなせば、気相中の溶質の溶媒に対する割合すなわち $Y/(1-Y)$ が、液相中のそれ $X/(1-X)$ よりも大きければ分離できたことになる。分圧の法則から

$$p = p_1 + p_2$$

気相に於ける溶質のモル分率を Y と置くと、やはり分圧の法則から

$$p_1 = pY, \quad p_2 = p(1-Y)$$

これらの式から、溶質と溶媒が互いに独立に存在する時の飽和蒸気圧 p_1^0 と p_2^0 の比を求めると次の様になる。

$$\frac{p_1^0}{p_2^0} = \frac{Y}{X/(1-X)}$$

分離係数の式とは一致しないが、 $Y/(1-Y)$ は Y に対して単調増加であるから、右辺は確かに p_1^0/p_2^0 が大きい程、分離係数が高くなることを意味している。軽元素は蒸気圧比が大きいため、水素意外にも、炭素、窒素、酸素などの同位体分離で用いられる。商業的に有名なのが メタンの深冷蒸留で ^{13}C の分離に全長 100m ものカラムを用いて行うものであり、理論段数は 1000 段以上にもなる。深冷蒸留法の不利な点は、低温で行う必要があるためコストが高くなることである。また、高温領域に於ける蒸留法では、分離係数が小さくなるため設備が大きくなり、熱還流にコストがかかる。また、金属は沸点が高く気化し難いことや気体化合物を形成しない事から金属同位体元素の分離には応用できないなどの不利な点がある。表B-1に、主な軽元素の同位体分子の蒸気圧比を示す。これを見ると、NOは別の化学形態の分子に対して比較的蒸気圧比が高い。これはNOが液体になると2分子会合するため、液相と気相の間で同位体交換反応が行なわれ、蒸気圧差と複合するためと考えられている。このような過程は錯体の解離に於いても見られる。

表B-1 同位体分子の蒸気圧比⁵⁾

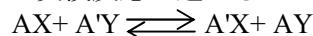
同位体分子	蒸気圧比 (p_1^0/p_2^0)	温度 (K)
$^3\text{He}/^4\text{He}$	70.37	1.0
	3.402	3.0
$^{36}\text{Ar}/^{40}\text{Ar}$	1.0060	87.4
H_2/HD	1.079	20.0
H_2/D_2	3.07	20.0
$^{14}\text{N}_2/^{\text{14}}\text{N}^{15}\text{N}$	1.0040	77.0
$^{16}\text{O}_2/^{\text{16}}\text{O}^{18}\text{O}$	1.0052	90.0
$^{12}\text{C}^{16}\text{O}/^{\text{13}}\text{C}^{16}\text{O}$	1.0070	81.1
$^{12}\text{C}^{16}\text{O}/^{\text{13}}\text{C}^{18}\text{O}$	1.0059	77.0
$^{14}\text{NH}_3/^{\text{15}}\text{NH}_3$	1.002	240.0
$^{14}\text{N}^{16}\text{O}/^{\text{15}}\text{N}^{16}\text{O}$	1.032	109.5
$^{14}\text{N}^{16}\text{O}/^{\text{14}}\text{N}^{18}\text{O}$	1.0465	109.6
$\text{H}_2^{16}\text{O}/\text{H}_2^{18}\text{O}$	1.0088	293.1
$\text{H}_2^{16}\text{O}/\text{D}_2^{16}\text{O}$	1.154	293.1

4. 電磁分離法^{4),5),36),37),38)}

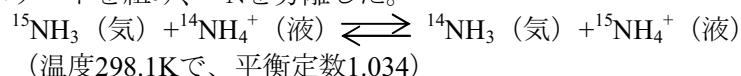
電磁分離法はアメリカのマンハッタン計画で純粋な ^{235}U を得るために用いられた方法である。この方法の原理は質量分析器と同じで、気化させた物質をイオン化して磁場を通過させ、質量の違いによる飛跡の相違を利用して分離するというものである。高真空中を必要とするため、大量分離には適さないが、多くの元素に適用できるという利点がある。核反応の研究に於いて、同位体の副反応を除くための試料の精製に用いられる。なお、巨大な電磁分離機はカルトロンと呼ばれ、第二次世界大戦後オークリッジ国立研究所において金属元素の安定同位体をグラム量ではあるが純度99.9%もしくはそれ以上で製造するのに用いられた。

5. 同位体交換反応法^{4),5)}

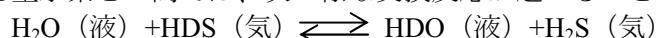
元素Aとその同位体A'を2種類の化合物AXとA'Yにして両者を接触させると、化合物間で同位体の交換反応が起こることがある。



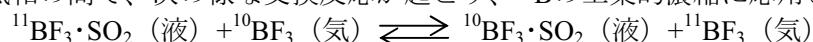
化合物には、同位体の質量差に起因した結合エネルギーの相違が存在するため、交換反応後、平衡に達した時、Aとその同位体A'はどちらかの化合物に僅かに偏在する。換言すれば、平衡定数が1にならない。この交換反応を多段に組合せて行なう分離法を同位体交換反応法という（文献によってはこれを「化学交換法」と呼んでいる）。Ureyはこの原理に基づいて多段カスケードを組み、¹⁵Nを分離した。



水素と重水素との間では、次の様な交換反応が起こることが知られている。



この交換反応は重水の製造に用いられる（二重温度交換法）。また、¹⁰Bと¹¹Bの間では、液相と気相の間で、次の様な交換反応が起り、¹⁰Bの工業的濃縮に応用されている。



なお、化合物の分析に同位体交換反応を利用することがあり、同位体希釈分析という。表B-2に主な同位体交換反応の平衡定数を示す。

表B-2 主な同位体交換反応の平衡定数⁵⁾

同位体交換反応	平衡定数	温度 (K)
$\frac{1}{2}\text{C}^{16}\text{O}_2 \text{ (気)} + \text{H}_2^{18}\text{O} \text{ (液)} \rightleftharpoons \frac{1}{2}\text{C}^{18}\text{O}_2 \text{ (気)} + \text{H}_2^{16}\text{O} \text{ (液)}$	1.046	273.1
$^{15}\text{NH}_3 \text{ (気)} + ^{14}\text{NH}_4^+ \text{ (溶液)} \rightleftharpoons ^{14}\text{NH}_3 \text{ (気)} + ^{15}\text{NH}_4^+ \text{ (溶液)}$	1.034	298.1
$^{15}\text{NO} \text{ (気)} + ^{14}\text{HNO}_3 \text{ (溶液)} \rightleftharpoons ^{14}\text{NO} \text{ (気)} + \text{H}^{15}\text{NO}_3 \text{ (溶液)}$	1.065	298.1
$\text{H}^{12}\text{CN} \text{ (気)} + ^{13}\text{CN}^- \text{ (溶液)} \rightleftharpoons \text{H}^{13}\text{CN} \text{ (気)} + ^{12}\text{CN}^- \text{ (溶液)}$	~1.029	295
$^{13}\text{CO}_2 \text{ (気)} + ^{12}\text{CO}_3^{2-} \text{ (溶液)} \rightleftharpoons ^{12}\text{CO}_2 \text{ (気)} + ^{13}\text{CO}_3^{2-} \text{ (溶液)}$	1.017	273.1
$\frac{1}{3}\text{C}^{16}\text{O}_3^{2-} \text{ (溶液)} + \text{H}_2^{18}\text{O} \text{ (液)} \rightleftharpoons \frac{1}{3}\text{C}^{18}\text{O}_3^{2-} \text{ (溶液)} + \text{H}_2^{16}\text{O} \text{ (液)}$	1.036	273.1
$^{34}\text{SO}_3 \text{ (気)} + \text{H}^{32}\text{SO}_3^- \text{ (溶液)} \rightleftharpoons ^{32}\text{SO}_3 \text{ (気)} + \text{H}^{34}\text{SO}_3^- \text{ (溶液)}$	1.019	298.1
$\text{HD} \text{ (気)} + \text{H}_2\text{O} \text{ (液)} \rightleftharpoons \text{H}_2 \text{ (気)} + \text{HDO} \text{ (液)}$	3.694 2.256	298.1 423.1

付録3 用語解説

***1. 分離係数⁴¹⁾**

分離前の対象同位体のモル分率を X 、分離後のそれを Y とした時、次式で表される量を頭部分離係数という。

$$\frac{Y/(1-Y)}{X/(1-X)}$$

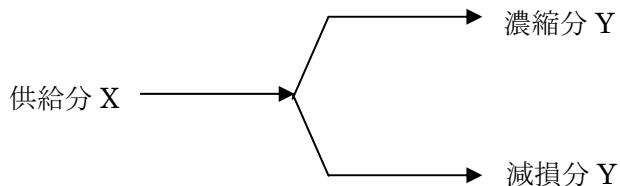
また、分離操作後、対象同位体の減損した試料中になおも残存している対象同位体のモル分率 Z とした時、次式で表される量を全分離係数という。

$$\frac{Y/(1-Y)}{Z/(1-Z)}$$

更に、次式で表される量を尾部分離係数という。

$$\frac{X/(1-X)}{Z/(1-Z)}$$

従って、単に分離係数と言った場合には、どれを指しているのか注意しなければならない。

***2. 統計的同位体分離法^{5),41)}**

分離係数のあまり大きくない操作を繰返すことによって目的の同位体を抽出する方法。可逆過程と不可逆過程があり、前者には蒸留法、化学交換法、後者には熱拡散法、気体拡散法、掃引拡散法、遠心分離法、電気泳動法、電気分解などがある。これに対し、目的とする同位体に照準を絞って分離する方法を個別的同位体分離法といい、電位分離法やレーザー分離法が該当する。

***3. 異性化⁴⁵⁾**

ある化合物がその異性体に変化する反応。化学的処理あるいは物理的影響（光・熱など）で起こる。例えばマレイン酸を約200°Cに加熱するとフマル酸に変化する反応、オイゲノールにアルカリを作用させると二重結合の移動が起こってイソイオゲノールになる反応がある。

***4. 共鳴的励起移乗⁴⁰⁾**

励起状態にある原子または分子が、衝突の過程で他の粒子にエネルギーを受け渡すことがある。特に、衝突する双方の粒子の遷移エネルギーがほぼ等しい時、大きな確率でこの現象が起こり、これを共鳴的励起移乗という。

***5. コヒーレント量子制御^{6),7)}**

時間的、空間的に長きに渡って位相が保持される光をコヒーレントであるという。レーザー光はコヒーレントな光であり、この特性を利用して極めて精密に物質の量子状態を制御することをコヒーレント量子制御という。

参考文献

- 1) 日本原子力学会誌 Vol 48, No.5, pp19-24, (2006)
- 2) A.Badalyan, V.Chaltykyan, Y.Fujii, Y.Malakyan, M.Ozawa, A.Papoyan, S.Shamavonyan, 'Studies of laser induced cesium and rubidium hydride formation in vapor cells and their application for isotope separation', Progress in Nuclear Energy, Vol.47, No.1-4. pp.389-396,(2005)
- 3) Actinide and Fission Product Partitioning and Transmutation - Status and assessment Report, pp.196, OECD 1999.
- 4) 「同位体の化学」、日本化学会 (1979)
- 5) 三井進午、吉川春寿、中根良平、熊沢喜久雄「重窒素利用研究法」、学会出版センター(1979)
- 6) 横山啓一「レーザーパルス波形整形によるコヒーレント量子制御」、原子力 eye2006 年 11 月号、Vol.52 No.11
- 7) H.Yamada, K.Yokoyama, Y.Teranishi, A.Sugita, T.Shirai, M.Aoyama, Y.Akahane, N.Inoue, H.Ueda, K.Yamakawa, A.Yokoyama, M.Kawasaki, H.Nakamura, 'Selective transition to the closely-lying states Cs(7D_{3/2}) and Cs(7D_{5/2}) by femtosecond laser pulses', Physical Review A 72, 063404(2005)
- 8) S.W.Mayer, M.A.Kwok, R.W.F.Gross, D.J.Spencer, 'Appl.Physa.Lett, 15' P27(1978)
- 9) C.Willis, R.A.Back, R.Corkum, R.D.Mcalpine, F.K.Mcclusty, 'Chem.Phys.Lett 38', P336(1976)
- 10) D.S.Y.Hsu,T.J.Manuccia, 'Appl.Phys.Lett 33', P915(1978)
- 11) Yu.N.Molin, V.N.Panfilov, V.P.Strunin, 'Chem. Phys. Lett 56', P557(1978)
- 12) N.G.Basov, É.M.Belenov, L.K.Gavrilina, V.A.Isakov, E.P.Markin, A.N.Oraevskii, V.I.Romanenko, N.B.Ferapontov, 'J.ETP Lett 20', P277(1974)
- 13) R.K.Sander, T.R.Loree, S.D.Rookwood, S.M.Freund, Appl.Phys.Lett.,30,150 (1977)
- 14) 橋田昌樹「赤外レーザー光照射による多光子解離法」 (1999)
- 15) R.V.Ambartsumian, V.S.Letrokhov, E.A.Ryabov, N.V.Chekalin, Pis'ma Zh. Eksp. Teor. Fiz, 20,597(1974)
- 16) Eng.trans., Sov.Phys.JETP Lett.,20,273(1974)
- 17) S.Benson, 'Nucleonics week, Aug.3', (1978)
- 18) S.Bitenson, P.L.Houston, 'J.Chem. Phys 67', P4819(1977)
- 19) A.Hartford Jr., S.A.Tuccio, 'Chem Phys.Lett',60 P431(1979)
- 20) 和田一洋、松津伸彦「日本原子力学会秋の分科会、化学・化学工学要旨集」 P79(1976)
- 21) A.F.Bernhardt, D.E.Duerre, J.R.Simpson, L.L.Wood, IEEE, J.Quantum Electron, QE-10,789(1974)
- 22) A.F.Bernhardt, Appl.Phys.,9,19(1976)
- 23) A.F.Bernhardt,D.E.Duerre, J.R.Simpson, L.L.Wood, Opt. Commun.,16,169(1976)
- 24) PHYSICAL REVIEW A72 022503(2005)
- 25) A.Aspect, J.Bauche, M.Godefroid, P.Grangier, J.E.Hansen, N.Vaeck, 'Experimental and MC HF isotope shifts of strongly perturbed levels in Ca I and Sr I', J.Phys.B:At Mol.Opt.Phys.24(1991)4077-4099
- 26) W.H.King, 'Isotope shifts in atomic spectra', pp30-54(1984), (Plenum Press)
- 27) 菊池健「原子物理学 (増補版)」、共立出版 (1994)
- 28) Peter RING, Peter Schuck, 'The nuclear many-body problem'
- 29) N.J. Stone, Table of Nuclear Magnetic Dipole and Electric Quadrupole Moments, Oxford Physics Clarendon Laboratory, U.K.
- 30) 久武和夫、岡田利弘「原子物理概論」、朝倉書店 (1987)
- 31) L.S.Vasilenko, V.P.Chebotayev, A.V.Shihaev, Pis'ma Zh.Eksp. Teor.Fiz.,12,161 (1970)
- 32) Eng.trans.,Sov.Phys.JETP Lett.,12,113(1970)
- 33) P.L.Kelley, H.Kildal, H.P.Schlossberg, Chem.Phys.27, 62(1974)
- 34) V.P.Chebotayev, A.L.Golger, V.S.Letokhov, Chem. Phys., 7,316(1975)
- 35) K.Shimoda, Appl. Phys., 9, 239(1976)
- 36) J.F.Duncan, G.B.Cook, 'Isotopes in chemistry'(1968)
- 37) 池田長生、吉原賢二共訳「アイソトープ化学の基礎と応用」、共立出版 (1975)
- 38) 有馬昌邦「イオン交換法による窒素同位体高濃縮に関する研究」 (2006)
- 39) JNDC Nuclear data library of fission products-Second version- 日本原子力研究所 (1990)
- 40) 「物理学辞典 (改訂版)」、培風館 (1998)

- 41) 「原子力辞典」、日刊工業新聞社（1995）
- 42) 「理化学辞典第3版」、岩波(1979)
- 43) 「理化学辞典第4版」、岩波(1987)
- 44) 「化学便覧改訂5版」、丸善（2003）
- 45) 「化学小辞典」、三省堂（1976）
- 46) 原子力百科事典 ATOMICA/原子力図書館げんしろう
- 47) フリー百科事典「ウィキペディア（Wikipedia）」
- 48) <http://cdfe.sinp.msu.ru/>(LOMONOSOV MOSCOW STATE UNIVERSITY, SKOBELTSYN INSTITUTE OF NUCLEAR PHYSICS, HOME PAGE)
- 49) <http://www5b.biglobe.ne.jp/~isaosan/aonMouse.htm>

This is a blank page.

国際単位系 (SI)

表1. SI 基本単位

基本量	SI 基本単位	
	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質量	モル	mol
光度	カンデラ	cd

表2. 基本単位を用いて表されるSI組立単位の例

組立量	SI 基本単位	
	名称	記号
面積	平方メートル	m^2
体積	立方メートル	m^3
速度	メートル毎秒	m/s
加速度	メートル毎秒毎秒	m/s^2
密度(質量密度)	キログラム毎立方メートル	kg/m^3
質量体積(比体積)	立法メートル毎キログラム	m^3/kg
電流密度	アンペア毎平方メートル	A/m^2
磁界の強さ	アンペア毎メートル	A/m
(物質量の)濃度	モル毎立方メートル	mol/m^3
輝度	カンデラ毎平方メートル	cd/m^2
屈折率	(数の)1	1

表3. 固有の名称とその独自の記号で表されるSI組立単位

組立量	SI 組立単位		
	名称	記号	他のSI単位による表し方
平面角	ラジアン ^(a)	rad	$m \cdot m^{-1}=1^{(b)}$
立体角	ステラジアン ^(a)	sr ^(c)	$m^2 \cdot m^{-2}=1^{(b)}$
周波数	ヘルツ	Hz	s^{-1}
力	ニュートン	N	$m \cdot kg \cdot s^{-2}$
圧力、応力	パスカル	Pa	N/m^2
エネルギー、仕事、熱量	ジュール	J	$N \cdot m$
功率、放射束	ワット	W	J/s
電荷、電気量	クーロン	C	$s \cdot A$
電位差(電圧)、起電力	ボルト	V	W/A
静電容量	フアラード	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	$m^2 \cdot kg \cdot s^4 \cdot A^2$
コンダクタンス	ジemens	S	V/A
磁束密度	テスラ	T	A/V
インダクタンス	ヘンリー	H	$m^2 \cdot kg \cdot s^{-3} \cdot A^2$
セルシウス温度	セルシウス度 ^(d)	°C	Wb/m^2
光束度	ルーメン	lm	Wb/A
(放射性核種の)放射能吸収線量、質量エネルギー分与、カーマ線量当量、周辺線量当量、方向性線量当量、個々人線量当量、組織線量当量	ベクレル	Bq	$cd \cdot sr^{(c)}$
	グレイ	Gy	lm/m^2
			$m^2 \cdot m^{-4} \cdot cd=m^{-2} \cdot cd$
			s^{-1}
			J/kg
			$m^2 \cdot s^{-2}$
			J/kg
			$m^2 \cdot s^{-2}$

(a) ラジアン及びステラジアンの使用は、同じ次元であっても異なる性質をもつた量を区別するときの組立単位の表し方として利点がある。組立単位を形作るときのいくつかの用例は表4に示されている。

(b) 実際には、使用する時には記号rad及びsrが用いられるが、習慣として組立単位としての記号“1”は明示されない。

(c) 測光学では、ステラジアンの名称と記号srを単位の表し方の中にそのまま維持している。

(d) この単位は、例としてミリセルシウス度m°CのようにSI接頭語を伴って用いても良い。

表4. 単位の中に固有の名称とその独自の記号を含むSI組立単位の例

組立量	SI 組立単位		
	名称	記号	SI 基本単位による表し方
粘度	パスカル秒	Pa·s	$m^{-1} \cdot kg \cdot s^{-1}$
力のモーメント	ニュートンメートル	N·m	$m^2 \cdot kg \cdot s^{-2}$
表面張力	ニュートン每メートル	N/m	$kg \cdot s^{-2}$
角速度	ラジアン毎秒	rad/s	$m \cdot m^{-1} \cdot s^{-1}=s^{-1}$
角加速度	ラジアン毎平方秒	rad/s ²	$m \cdot m^{-1} \cdot s^{-2}=s^{-2}$
熱流密度、放射照度	ワット每平方メートル	W/m^2	$kg \cdot s^{-3}$
熱容量、エントロピー	ジユール毎ケルビン	J/K	$m^2 \cdot kg \cdot s^{-2} \cdot K^{-1}$
質量熱容量(比熱容量)	ジユール毎キログラム	J/(kg·K)	$m^2 \cdot s^{-2} \cdot K^{-1}$
質量エントロピー	モル毎ケルビン	J/(mol·K)	$m^2 \cdot s^{-2} \cdot K^{-1}$
質量エネルギー(比エネルギー)	ジユール毎キログラム	J/kg	$m^2 \cdot s^{-2} \cdot K^{-1}$
熱伝導率	ワット每メートル毎ケルビン	$W/(m \cdot K)$	$m \cdot kg \cdot s^{-3} \cdot K^{-1}$
体積エネルギー	ジユール毎立方メートル	J/m^3	$m^{-1} \cdot kg \cdot s^{-2}$
電界の強さ	ボルト毎メートル	V/m	$m \cdot kg \cdot s^{-3} \cdot A^{-1}$
体積電荷	クーロン毎立方メートル	C/m^3	$m^{-3} \cdot s \cdot A$
電気変位	クーロン毎平方メートル	C/m^2	$m^{-2} \cdot s \cdot A$
誘電率	ファラード毎メートル	F/m	$m^{-3} \cdot kg^{-1} \cdot s^4 \cdot A^2$
透磁率	ヘンリー毎メートル	H/m	$m \cdot kg \cdot s^{-2} \cdot A^{-2}$
モルエネルギー	ジユール毎モル	J/mol	$m^2 \cdot kg \cdot s^{-2} \cdot mol^{-1}$
モルエントロピー	ジユール毎モル毎ケルモル	J/(mol·K)	$m^2 \cdot kg \cdot s^{-2} \cdot K^{-1} \cdot mol^{-1}$
モル熱容量	クーロン毎キログラム	C/kg	$kg^{-1} \cdot s \cdot A$
照射線量(X線及びγ線)	クーロン毎キログラム	Gy	$m^2 \cdot s^{-3}$
吸収線量率	グレイ毎秒	Gy/s	$m^2 \cdot s^{-3}$
放射強度	ワット每平方メートル	W/sr	$m^4 \cdot m^{-2} \cdot kg \cdot s^{-3} \cdot m^2 \cdot kg \cdot s^{-3}$
放射輝度	ワット每平方メートル每ステラジアン	$W/(m^2 \cdot sr)$	$m^2 \cdot m^{-2} \cdot kg \cdot s^{-3} = kg \cdot s^{-3}$

表5. SI 接頭語

乗数	接頭語	記号	乗数	接頭語	記号
10^{24}	ヨーダ	Y	10^{-1}	デシ	d
10^{21}	ゼタ	Z	10^{-2}	センチ	c
10^{18}	エクサ	E	10^{-3}	ミリ	m
10^{15}	ペタ	P	10^{-6}	マイクロ	μ
10^{12}	テラ	T	10^{-9}	ナノ	n
10^9	ギガ	G	10^{-12}	ピコ	p
10^6	メガ	M	10^{-15}	フェムト	f
10^3	キロ	k	10^{-18}	アト	a
10^2	ヘク	h	10^{-21}	ゼット	z
10^1	デカ	da	10^{-24}	ヨクト	y

表6. 国際単位系と併用されるが国際単位系に属さない単位

名称	記号	SI 単位による値
分	min	1 min=60s
時	h	1h=60 min=3600 s
日	d	1 d=24 h=86400 s
度	°	$1^\circ=(\pi/180) \text{ rad}$
分	'	$1'=(1/60)^\circ=(\pi/10800) \text{ rad}$
秒	"	$1''=(1/60)'=(\pi/648000) \text{ rad}$
リットル	L	$1L=1 \text{ dm}^3=10^{-3} \text{ m}^3$
トン	t	$1t=10^3 \text{ kg}$
ネーベル	Np	$1Np=1$
ベル	B	$1B=(1/2) \ln 10 (Np)$

表7. 国際単位系と併用されこれに属さない単位でSI単位で表される数値が実験的に得られるもの

名称	記号	SI 単位であらわされる数値
電子ポルト	eV	$1eV=1.60217733(49) \times 10^{-19} \text{ J}$
統一原子質量単位	u	$1u=1.6605402(10) \times 10^{-27} \text{ kg}$
天文単位	ua	$1ua=1.49597870691(30) \times 10^{11} \text{ m}$

表8. 国際単位系に属さないが国際単位系と併用されるその他の単位

名称	記号	SI 単位であらわされる数値
海里	里	1 海里=1852m
ノット	ト	1 ノット=1 海里每時=(1852/3600)m/s
アード	ル	$1a=1 \text{ dam}^2=10^2 \text{ m}^2$
ヘクタール	ha	$1ha=1 \text{ hm}^2=10^4 \text{ m}^2$
バルス	bar	$1 \text{ bar}=0.1 \text{ MPa}=100 \text{ kPa}=1000 \text{ hPa}=10^5 \text{ Pa}$
オンストローム	Å	$1 \text{ Å}=0.1 \text{ nm}=10^{-10} \text{ m}$
ペニン	b	$1b=100 \text{ fm}^2=10^{-28} \text{ m}^2$

表9. 固有の名称を含むCGS組立単位

名称	記号	SI 単位であらわされる数値
エルグ	erg	$1 \text{ erg}=10^{-7} \text{ J}$
ダイナ	dyn	$1 \text{ dyn}=10^{-5} \text{ N}$
ボアズ	P	$1 P=1 \text{ dyn} \cdot s/cm^2=0.1 \text{ Pa} \cdot s$
ストークス	St	$1 St=1cm^2/s=10^4 \text{ m}^2/s$
ガウス	G	$1 G=10^{-4} \text{ T}$
エルステッド	Oe	$1 Oe=(1000/4\pi) \text{ A/m}$
マクスウェル	Mx	$1 Mx=10^{-8} \text{ Wb}$
スチール	sb	$1 sb=1cd/cm^2=10^4 \text{ cd/m}^2$
ホタル	ph	$1 ph=10^4 \text{ lx}$
ガル	Gal	$1 Gal=1 \text{ cm/s}=10^{-2} \text{ m/s}$

表10. 国際単位に属さないその他の単位の例

名称	記号	SI 単位であらわされる数値
キュリ	Ci	$1 Ci=3.7 \times 10^{10} \text{ Bq}$
レントゲン	R	$1 R=2.58 \times 10^{-4} \text{ C/kg}$
ラド	rad	$1 rad=1 \text{ cGy}=10^{-2} \text{ Gy}$
レム	rem	$1 rem=1 \text{ cSv}=10^{-2} \text{ Sv}$
X線単位	X unit	$1 X unit=1.002 \times 10^{-4} \text{ nm}$
ガンマ	γ	$1 \gamma=1 \text{ nT}=10^{-9} \text{ T}$
ジャンスキ	Jy	$1 Jy=10^{-26} \text{ W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{Hz}^{-1}$
フェルミ	fermi	$1 fermi=1 \text{ fm}=10^{-15} \text{ m}$
メートル系カラット	metric carat	$1 metric carat=200 \text{ mg}=2 \times 10^{-4} \text{ kg}$
トル	Torr	$1 Torr=(101325/760) \text{ Pa}$
標準大気圧	atm	$1 atm=101325 \text{ Pa}$
力口リ	cal	$1 cal=4.184 \text{ J}$
ミクロ	μ	$1 \mu \text{m}=10^{-6} \text{ m}$

R100

古紙配合率100%
白色度70%の再生紙を使用しています