

JAERI-M

9 4 4 4

レーザー法同位体分離基礎過程の解析

1981年4月

有沢 孝・成瀬 雄二・岩本 多実

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

レーザー法同位体分離基礎過程の解析

日本原子力研究所東海研究所燃料工学部

有沢 孝・成瀬雄二⁺・岩本多実⁺⁺

(1981年3月12日受理)

原子法によるレーザー同位体分離は、単色性の良いレーザー光線を中性原子ビームに照射することにより原子の同位体シフトを分別して選択励起を行い、この原子を何らかの方法で固定回収することにより達成される。従って本方法は、原子ビームの発生、選択励起、光電離、回収の各基礎過程に分割することができる。本報告では励起レーザーにより選択励起された原子に電離レーザーを照射して光電離し、静電圧により回収する濃縮モデルを選択し、これらの基礎過程を明確にすると同時に分離特性についても解析を加えた。すなわち、着目原子、非着目原子各々に対する三準位エネルギーモデルを考え、各原子間のエネルギー交換、電荷交換を考慮することによって濃縮に与える各パラメータの影響を解析した。これらパラメータとしては、蒸発温度、励起レーザー出力、電離レーザー出力、電極のレーザー方向および原子ビーム方向長、それに電極間距離を選んだ。

+ 核融合研究部

++ 実用燃料試験室

Analysis of fundamental processes in Laser Isotope Separation

Takashi ARISAWA, Yuji NARUSE⁺ and Kazumi IWAMOTO⁺⁺

Division of Nuclear Fuel Research, Tokai Research Establishment,
JAERI

(Received March 12, 1981)

Laser Isotope Separation based on atomic beam is achieved by selective excitation of neutral atoms with laser beam whose line width is as narrow as might discriminate isotope shift of specified atoms, and by recovering those excited atoms with appropriate method. This separation scheme thus involves fundamental processes of atomic beam generation, selective excitation, photoionization and recover. Enriching model, in which atoms excited with exciter is recovered by applying static electric field after ionized with ionizer, is presented to evaluate each fundamental processes and separation mechanism. That is, energy model having two kinds of 3-level system for specified atoms and nonspecified atoms respectively, which includes energy and charge transfer between two system, is calculated for parameter studies. Hearth temperature, exciter power, ionizer power, electrode length in the direction of both laser and atomic beam, and electrode gap are selected as the parameters.

Keywords; Laser, Atomic Method, Isotope Separation, Selective Excitation, Photoionization, Atomic Beam, Energy Level, Rate Equation, Excitation Cross Section, Photoionization Cross Section, Energy Transfer, Charge Transfer, Enrichment, Depletion

+ Division of Thermonuclear Fusion Research, Tokai Research Establishment, JAERI

++ Division of Reactor Fuel Examination, Tokai Research Establishment, JAERI

目 次

1. はじめに	1
2. 基礎過程	3
2.1 原子ビーム生成過程	3
(1) 原子の蒸発	3
(2) 基底状態	4
(3) 原子ビームの速度分布	4
(4) 熱電離	5
2.2 選択励起過程	6
(1) 光と物質の相互作用	6
(2) 選択性	12
(3) エネルギー交換	13
2.3 光電離過程	14
(1) 光電離断面積	14
(2) レーザー光の減衰	16
2.4 回収過程	17
(1) 電荷交換	18
(2) 回収量	20
3. 計算概要	22
3.1 レート方程式	22
3.2 計算手順	29
3.3 他の計算法との比較	31
3.4 パラメータの選定	34
(1) 物理的条件	34
(2) 工学的条件	34
4. 分離器の特性	36
4.1 計算条件	36
4.2 計算結果	37
5. おわりに	44
謝 辞	44
参考文献	45

CONTENTS

1. Introduction	1
2. General description of fundamental processes	3
2.1 Vaporization process	3
(1) Vaporization	3
(2) Ground state	4
(3) Velocity distribution of atoms	4
(4) Thermal ionization	5
2.2 Selective excitation process	6
(1) Interaction between atom and light	6
(2) Selectivity	12
(3) Energy transfer	13
2.3 Photoionization process	14
(1) Photoionization cross section	14
(2) Attenuation of laser beam	16
2.4 Ion extraction process	17
(1) Charge exchange	18
(2) Yield	20
3. Theoretical calculations	22
3.1 Rate equation	22
3.2 Procedures	29
3.3 Comparison with other methods	31
3.4 Parameters	34
(1) Physical parameters	34
(2) Technological parameters	34
4. Separation characteristics	36
4.1 Conditions for calculation	36
4.2 Results of calculation	37
5. Summary	44
Acknowledgement	44
References	45

1. はじめに

レーザー法による同位体分離は、単色性の良いレーザー光線により分子又は原子の同位体シフトを分別し選択励起を行い、これを何らかの方法で固定回収することにより達成される。従って処理物質は同位体シフトが大きく、かつそのスペクトルがシャープである気体状物質に限られている。このようにして選択励起された物質の回収方法については、物理的方法、化学的方法を含め数多くの方法が考えられる。物理的方法としては、イオン化による電気的回収、蒸気圧の差による蒸留回収などが、また化学的方法としては、解離、前期解離を利用した化学反応回収などが考えられる。

レーザー法による同位体分離により安価な同位体の生産が可能となれば、数多くの利用分野が開拓されるものと思われる。現在トレーサーとして生産されている、 ^{15}N , ^{34}S , ^{37}Cl , ^{13}C , ^{79}Br , ^{18}O などごく少量が利用されているに過ぎないが、 ^{235}U , ^2D などは核燃料や減速材として大量に必要とされる。このほか将来利用しうる同位体は種々考えられる。例えば ^{50}Ti は天然には5.34%しか存在しないがこの核種は中性子吸収断面積が小さく軽量で、高温における特性が良いため、大量に生産されれば、高速増殖炉、核融合炉のような高中性子束下の炉壁材として使用できる。 ^6Li は天然には7.42%存在し、核融合炉におけるD-T反応により放出される中性子をよく吸収するために、ブランケット材として用いられるが、特に磁場とじ込め型の核融合においては、天然のLiを用いる場合よりもT増殖率を高くしうると同時にブランケットを薄くできるため炉設計上有利とされている。 ^3T は天然には存在しない放射性同位元素であるが、D-T反応用の核融合炉における燃料として、大量に必要となる。特にオフガス、ブランケットの処理、環境放出の問題において、レーザー法は ^3T を効率良く濃縮したり有効に回収することができる方法と考えられる。そのほか ^{238}Pu , ^{240}Pu , ^{232}U はRI電池として、あるいは燃料の再処理の分野において大いに役に立つものと思われ、こうした同位体のレーザーによる分離も期待がもたれるところである。

さて、レーザー同位体分離には大別して次のようなステップが考えられる。まず、選択2段階光電離法は現在までにRb, Ca, Uの金属原子に対して研究が行われている。本方法は光電離を利用して固定回収されるために電離電圧の高い分子には適用が困難であり、主として原子のみへの適用に限られる。1段(前期)光解離法はHDCOからのD, C, Oの同位体分離, C_2H_2 , N_4 からのC, Nの同位体分離, Br_2 からのBrの同位体分離などにおいて実証されており、1ヶの光子で解離させることを特徴とするために充分エネルギーの高い(波長の短い)レーザー光を用いる必要がある。2段(前期)光解離法は、 BCl_3 からのB, NH_3 からのN, HCl からのCl, それに UF_6 からのUの同位体分離において用いることが可能であり、1段目の波長の長い赤外レーザーで選択励起し、2段目の波長の短いレーザー光により分子を解離するものである。多光子吸収光解離法は分子を用いる同位体分離法として現在最も注目されている方法であり、 BCl_3 からのB, CF_2Cl_2 からのC, SiF_4 からのSi, SF_6 からのS, WF_6 からのW, OsO_4 からのOs, TiCl_4 からのTi, CCl_4 からのCの各同位体分離に適用しうるも

のである。本方法は、例えば強力な CO_2 レーザーを用いることにより分子の持つ振動レベルの非線型性を利用して、選択励起と解離に到るまでの多段階励起とを一つのレーザー光より放出される多数の光子により同時に行おうとするものである。光化学分離法は、アレニウスの式における反応の活性化エネルギーを1台のレーザー光の光子のエネルギーにより実質的に引下げることにより特定同位体の化学反応を促進し同位体分離を行おうとするものであり、 CDH_2OH からのD、 CO からのC、 O 、 N_2 からのN、 CSCl_2 からのCl、 BCl_3 からのB、 ICl からのCl、 HCl からのCl、 UF_6 からのUの同位体分離に適用することが可能である。選択光圧偏向法は、今までのところBaに対してのみ行われており、レーザー光の光圧による偏向を利用して純粹物理的に分離するものである。

ここでは以上の分離プロセスのなかでウラン濃縮を行う上で最も単純だと考えられている2段階選択光電離法を取り上げ、その物理的プロセスについて計算を行うことによりこの方法を用いた場合の分離特性に検討を加えた。すなわち、先に本プロセスにおけるほぼ全ての素過程を取り上げ定式化すると同時に、これら素過程を組み合わせることによりシステム全体の特性を明らかにするための計算を実施した。

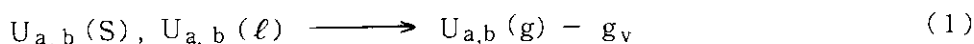
2. 基礎過程

原子または分子ビームを発生させ、それにレーザー光を照射して濃縮するプロセスを、各ステップすなわちビーム発生、選択励起、光電離、回収の各過程に分けて考える。

2.1 原子ビーム生成過程

(1) 金属の蒸発

原料である原子又は分子化合物に熱を加え蒸気を発生させる場合、着目する同位体を U_a 、その他の同位体を U_b とすると、



であるから温度 T における平衡蒸気圧 $P_e(T)$ は、Clausius - Clapeyron の式より、

$$P_e(T) = \int \frac{g_v}{T(v_g - v_e)} dT \quad (2)$$

と示される。ここに

g_v (cal/g) ; 潜熱

v_g, v_e (cm³/g) ; 気体及び液体の比容積

である。またこのときの原子蒸気密度は蒸発部近辺において、 N_{av} をアボガドロ数、 M を分子量、 x を注目同位体含有率とすると、

$$N_0 = \frac{N_{av} R_e(T)}{MRT} \quad (3)$$

$$\begin{cases} N_0(U_a) = N_0 x \\ N_0(U_b) = N_0(1-x) \end{cases}$$

と示される。また蒸発のために費やされるエネルギーは輻射損失、熱伝導による損失等を見捨てるならば、

$$E_v(\text{cal}) = M_w \{ C_p(s)(T_m - T_0) + C_p(\ell)(T_v - T_m) + C_p(g)(T - T_v) \} + q_v + \sigma_B(T^4 - T_w^4)S \quad (4)$$

となる。ただしここに、

$C_p(s), C_p(\ell), C_p(g)$ (cal/g·deg) ; 固体、液体、気体の比熱

T_0, T_m, T_v, T_w (°K) ; 室温、融点、沸点、容器壁面温度

$\sigma_B = 1.3543 \times 10^{-12}$ cal/deg⁴ · cm² · sec ; ステファン-ボルツマン定数

S ; 輻射伝熱面積 (cm²)

M_w ; 処理量 (g)

である。

(2) 基底状態

分子の振動・回転レベルについてはもちろんのこと、原子などでも基底状態近辺にエネルギーの非常に低い準安定状態が存在する場合には、全ての原子が基底状態にあるわけではない。従ってこの場合には少なくとも処理温度に相当するエネルギーレベルと基底状態との間に存在するレベルへの統計的分配を考えねばならない。また同位体分離に当って照射する選択励起レーザー波長は一本でなく各レベルからも励起することをも考え、複数個選ぶ必要が生ずる。いま全原子の密度を N_0 とすれば、各準位 W_j に存在する原子数 N_j は次の式によって与えられるものとする。

$$N_j = N_0 \frac{F_j}{\sum_{i=1}^m F_i} \quad (5)$$

$$F_j = g_j e^{-E_j/\kappa T} \quad (6)$$

但しここに g_j , E_j は準位 j における縮退数およびレベルのエネルギー、また m はおよそ $\kappa T \approx E_m$ となる m の値とする。

(3) 原子ビームの速度分布

蒸気発生の方法より考えると、レーザー光線はビームに対して直角に照射することになる。熱平衡にある原子の速度分布関数は Maxwell-Boltzmann 則より、

$$f(v) = 4\pi \left(\frac{M}{2\pi\kappa T} \right)^{3/2} v^2 e^{-Mv^2/2\kappa T} \quad (7)$$

となるため、扇形に拡大するビームの方向とビーム中心部の蒸発方向とのなす角を θ とすると、ビーム中心部の蒸発方向に対しては、

$$f(v, \theta) = f(v) \cos \theta \quad (8)$$

となる。レーザー光照射方向に対しては

$$f(v, \theta) = f(v) \sin \theta \quad (9)$$

なる速度分布をもつ。ただしここに、 M は $U_{a,b}$ の原子量、 v は原子の熱運動速度である。各平均速度は、

$$\bar{v} = \frac{\int_0^{\infty} f(v) \cdot v dv}{\int_0^{\infty} f(v) dv} = \sqrt{\frac{8\kappa T}{\pi M}} \quad (10)$$

$$\bar{v} = \frac{\int_0^{\theta_0} \int_0^{\infty} f(v) \cdot v \cdot \sin \theta \, dv \, d\theta}{\int_0^{\theta_0} \int_0^{\infty} f(v) \cdot \sin \theta \, dv \, d\theta} = \frac{2}{3} \bar{v} \sin \frac{\theta_0}{2} \quad (11)$$

となる。ここに θ_0 はビームの最大拡がり角である。中性原子間の平均相対速度 v_R は、 U_a と U_b との差均速度の差程度と考えると、式 (10) より、

$$\begin{aligned} v_R &= |\bar{v}(U_a) - \bar{v}(U_b)| \\ &= \frac{8\kappa T}{\pi} \left| \frac{1}{\sqrt{M(U_a)}} - \frac{1}{\sqrt{M(U_b)}} \right| \end{aligned} \quad (12)$$

となる。

(4) 熱電離

高温において原子ビームを作る場合には熱電離を考慮する必要がある。注目同位体比が小さい場合には熱電離イオンのため濃縮が行われなことがあるので注意を要する。気体原子は2つの準位、すなわち熱平衡定常準位と電離準位のみからなると仮定すると、統計力学的計算より次式が得られる。 N_a を平衡状態での中性原子密度、 N_e を電子密度、 N_i をイオン密度 ($\text{ヶ}/\text{cm}^3$) とすると、

$$\frac{N_e \cdot N_i}{N_a} = \frac{g_e \cdot g_i}{g_a} \frac{(2\pi m \kappa T)^{3/2}}{h^3} \exp\left(-\frac{eV_i}{\kappa T}\right) \quad (13)$$

となる。ここに、

g_e ; 電子の統計的重み (= 2)

g_i ; イオンの統計的重み

g_a ; 中性原子の統計的重み

m ; 電子の質量 (g)

V_i ; 電離電圧 (V)

である。電離度 $x_e = N_i / N_0$ で示すと、 $N_i = N_e$ であるため上式左辺は $N_0 x_e^2 / (1 - 2x_e)$ となる。従って

$$\begin{aligned} x_e &= \frac{g_e g_i}{N_0 g_a} \frac{(2\pi m \kappa T)^{3/2}}{h^3} e^{-eV_i/\kappa T} \\ &\times \left[\left\{ 1 + \frac{N_0 g_a}{g_e g_i} \cdot \frac{h^3 e^{-eV_i/\kappa T}}{(2\pi m \kappa T)^{3/2}} \right\}^{-1/2} - 1 \right] \end{aligned} \quad (14)$$

が得られる。ここに N_0 は全ての粒子数である。なお電離度が低い場合上式は、

$$\begin{aligned}
x_e &= 4.81 \times 10^{15} \frac{g_i T^{1/2}}{N_0 g_a} e^{-1.16 \times 10^4 V_i / T} \\
&\times \left[\left\{ 1 + 2.08 \times 10^{-16} \frac{N_0 g_a}{g_i T^{1/2}} e^{1.16 \times 10^4 V_i / T} \right\}^{1/2} - 1 \right] \\
&\approx 6.94 \times 10^7 T^{3/4} \sqrt{\frac{g_i}{N_0 g_a}} e^{-5.8 \times 10^3 V_i / T} \quad (15)
\end{aligned}$$

となる。

2.2 選択励起過程

(1) 光と物質の相互作用

選択励起を行う場合、物質の持つスペクトル構造とレーザー光線の持つ単色性の関係を考える必要があるがこれには電磁波との相互作用を考慮しておかなければならない。1ケの光子が増減する遷移では、エネルギー保存則により原子の2準位のエネルギー W_1 , W_2 と電磁場の周波数 ν との間に Bohr の振動条件

$$h \nu_{12} = W_2 - W_1 \quad (16)$$

が成立する。しかし実際にはスペクトルは中心周波数 ν_{12} の周囲で変動しておりある半値巾をもっている。スペクトル線が広がる要因としては、不均一な広がり及び均一な広がりが考えられる。前者はドップラー効果とその代表的なものであり、各粒子に対する共鳴周波数が分解できないような狭い間隔で少しずつずれているために、多数のスペクトル線が一本の線として見えるわけである。質量 M の気体分子の速度がマスクウエル分布に従うとき、ドップラー効果によるスペクトル線の広がりには下記の式で与えられる。

$$g(\nu) = \exp \left[-(\ln 2) \frac{(\nu - \nu_{12})^2}{\Delta \nu_D^2} \right] \quad (17)$$

式 (11) からドップラー巾は次のようになる。

$$\Delta \nu_D = 2 \nu_{12} \frac{\bar{v}_1}{C} \quad (18)$$

但しここに、 $\int_0^\infty g(\nu) d\nu = 1$ となるように規格化されている。 $g(\nu)$ のスペクトル形はガウス型であるが、一般に不均一な広がりには多数のランダムな要素の重なり合いから生ずるためにこのような形となる。これに対して、原子が周囲より擾乱を受けそれが有限の寿命をもって他の定常状態へ絶えず遷移するような場合には、均一な広がりを生じる。この代表的なものが自然放出による自然巾であり、電磁波と原子の量子論的な相互作用により導くことができる。 W_1 ,

W_2 遷移準位間の電气的多極子モーメント $\vec{\mu}$, 光電場を \vec{E} とすれば相互作用のハミルトニアンは $\mathcal{H} = \vec{\mu} \cdot \vec{E}$ と示される。 W_2 の状態から遷移することにより光子数が1ヶ放出されるのでその数は n から $n+1$ に変わる。逆に光子を一ヶ吸収して W_1 から W_2 に遷移する。前者の確率 w_{21} 及び後者の確率 w_{12} は、摂動論より各々

$$w_{21} = \frac{8\pi^3}{h^2} |\mathcal{H}_{21}|^2 \quad (19)$$

$$w_{12} = \frac{8\pi^3}{h^2} |\mathcal{H}_{12}|^2 \quad (20)$$

と示される。モード体積を V とすると光電場の強さの最大値 E と光子数 n との間には

$$nh\nu = \frac{1}{2} \epsilon_0 E^2 V \quad \text{なる関係があるため, これより } |\mathcal{H}|^2 = |\mu|^2 \cdot |E|^2 = nh\nu |\mu_{21}|^2 / 2 \epsilon_0 V \quad \text{となる。従って上記確率は,}$$

$$w_{21} = \frac{\pi\nu |\mu_{21}|^2}{\epsilon_0 hV} (n+1) \quad (21)$$

$$w_{12} = \frac{\pi\nu |\mu_{12}|^2}{\epsilon_0 hV} n \quad (22)$$

となる。ここで2つの準位に縮退がないものとすれば, $\vec{\mu}_{12} = \vec{\mu}_{21}^*$ であるから $|\mu_{12}|^2 = |\mu_{21}|^2$ である。但し $|\mu_{12}| = |\langle \psi_2 | r | \psi_1 \rangle|$ である。この式より w_{21} は $n=0$ (光子のないとき) でも値を持つことが分る。これが自然放出であり, n に比例して生ずる放出が誘導放出である。もしもモードが幾つか存在する場合には角周波数が ω と $\omega+d\omega$ の間にあるモード数 $m(\omega)d\omega$ は,

$$m(\omega) d\omega = \frac{\omega^2}{\pi^2 C^3} d\omega \quad (23)$$

で与えられる。従ってモード密度を ν の関数として示すならば,

$$m(\nu) d\nu = \frac{8\pi\nu^2}{C^3} d\nu \quad (24)$$

となる。従ってスペクトルの拡がり $g(\omega)$ とすると ω と $\omega+d\omega$ の周波数帯で吸収, 放出が生ずる確率は, n_0 を $\nu=\nu_{12}$ における光子数 n とすると,

$$\begin{aligned} w_{12} &= \frac{2\pi^2 |\mu_{12}|^2}{\epsilon_0 h^2 V} \int_0^\infty h\nu n m(\nu) g(\nu) d\nu \\ &= A n_0 \end{aligned} \quad (25)$$

$$w_{21} = \frac{2\pi^2 |\mu_{21}|^2}{\epsilon_0 h^2 V} \int_0^\infty h\nu (n+1) m(\nu) g(\nu) d\nu$$

$$= A (n_0 + 1) \quad (26)$$

$$A = \frac{16\pi^3 \nu_D^3 |\mu_{12}|^2}{\epsilon_0 C^3 h} \quad (27)$$

となる。但し原子のスペクトル幅が $g(\nu)$ に比べて電磁波の幅が $m(\nu)$ が十分広い場合を仮定して、 $g(\nu)$ だけを積分の外に出すことにより求めたものである。従って W_2 の状態に有限時間しかとどまらない原因として生ずる自然放出は、その寿命を t_s 、スペクトル線の半値巾を $\Delta\nu_s$ とすると、

$$\Delta\nu_s = \frac{1}{2\pi\tau_s} = \frac{A}{2\pi} = \frac{16\pi^3 \nu_D^3}{\epsilon_0 h C^3} |\mu_{21}|^2 \quad (28)$$

と求まる。なおこの場合のスペクトルの形は、そのパワースペクトルを求めることにより、

$$g(\nu) = \frac{\Delta\nu_s}{\pi \{ (\nu - \nu_{12})^2 + \Delta\nu_s^2 \}} \quad (29)$$

となる。その他のスペクトルの幅として重要なものに、Lorentz 幅や Holzmark 幅がある。前者は、注目している原子が他の原子や分子と衝突することにより、幅が、シフト、プロフィールの変形等が生ずるものでその大きさは、

$$\Delta\nu_L = \sigma_L^2 N \sqrt{2RT \left(\frac{1}{M_1} + \frac{1}{M_2} \right) / \pi} \quad (30)$$

で示される。又同種の原子と衝突することによる幅は後者に相当し、上式と同様の表示となるが、励起原子が同種の基底状態原子と共鳴的に衝突することにより生ずるためその断面積 σ_R は σ_L に比べ数 100 倍も大きくなる。

$$\Delta\nu_H = 2\sigma_R^2 N \sqrt{RT / \pi M} \quad (31)$$

ここに、 N は気体の密度、 M 、 M_1 、 M_2 は原子又は分子の質量である。

ところでレーザー光は通常単色性が良いために、先に自然放出に関して述べたように、原子のスペクトル巾が電磁波のスペクトル分布巾に比べて十分狭いという仮定が成立しなくなる。即ち前式において単色光源による電磁波の放出分布 $\rho(\nu) = h\nu n m(\nu)$ がスペクトル分布 $g(\nu)$ に比べて鋭い巾をもつため式 (24)、(25) において $\rho(\nu)$ を積分の外に出すことができ

$$w_{12} = \frac{2\pi^2 |\mu_D|^2 g(\nu_r) I_1}{\epsilon_0 h^2 C} \quad (32)$$

但しここに ν_r はレーザー光スペクトル $\rho(\nu)$ の中心周波数であり、 I_1 は電磁波のパワーで、

$$I_1 = C \int \rho(\nu) d\nu \quad (33)$$

の関係がある。

一方気体の場合，吸収断面積 (σ_a) は， x を透過距離， I_1 を照射強度， $I(\nu)$ を透過光強度とすると，

$$\begin{aligned} I(\nu) &= I_1 \exp\{-\sigma_a(\nu)(N_1 - N_2)x\} \\ &= I_1 \exp(-\alpha(\nu)x) \end{aligned} \quad (34)$$

と示される。ここに吸収係数 α は W_1 , W_2 の密度を N_1 , N_2 とすると，

$$\alpha(\nu) = \sigma_a(\nu)(N_1 - N_2) \quad (35)$$

により定義されている。一方入射光 I_1 と吸収との比をとれば，

$$\alpha(\nu) = (N_1 - N_2) h\nu w_{12} / I_1 \quad (36)$$

$g(\nu)$ を式 (26) と仮定し式 (22) を用いると

$$\alpha(\nu) = (N_1 - N_2) \frac{2\pi\nu |\mu_{12}|^2}{\epsilon_0 h C} \times \frac{\Delta\nu_s}{(\nu - \nu_{12})^2 + \Delta\nu_s^2} \quad (37)$$

従って ν に対する吸収断面積は，

$$\sigma_a(\nu) = \frac{2\pi\nu |\mu_{12}|^2}{\epsilon_0 h C} \frac{\Delta\nu_s}{(\nu - \nu_{12})^2 + \Delta\nu_s^2} \quad (38)$$

と示される。全吸収線に対して積分すると

$$\sigma_{12} = \int_0^{\infty} \sigma_a(\nu) d\nu = \frac{8\pi^3 e^2 \nu_{12} |\mu_{12}|^2}{3 h C^2} \quad (39)$$

となり，全吸収断面積が求まる。

さてここで W_2 から W_1 への誘導放出を $B_{21} \rho(\nu)$ ， W_1 から W_2 への吸収を $B_{12} \rho(\nu)$ で示すと，

$$w_{12} = \rho(\nu) B_{12} \quad (41)$$

$$w_{21} = A + B_{21} \rho(\nu) \quad (41)$$

となる。これを式 (25)，(26) と比較し，式 (24) より導かれる関係式

$$\rho(\nu) = h\nu n m(\nu) = \frac{8\pi h \nu^3 n}{C^3} \quad (42)$$

を利用すれば，

$$B_{12} = B_{21} \quad (43)$$

$$A = B_{12} \frac{8 \pi h \nu^3}{C^3} \quad (44)$$

となる。さらに式 (23) を代入して、

$$B_{12} = \frac{2 \pi^2 |\mu_{12}|^2}{\epsilon_0 h^2} \quad (45)$$

が得られる。次に両準位の単位体積当りの原子数を N_1 , N_2 とすれば $I(\nu)$ で入射する平行光線の吸収を上記係数により示すことができる。

$$\begin{aligned} dI(\nu) d\nu &= \frac{A_{21}}{4\pi} h \nu_{21} N_2 dx + \\ &\quad \frac{I(\nu)}{C} h \nu_{12} dx (B_{21} N_2 - B_{12} N_1) \end{aligned} \quad (46)$$

衝突が十分に生じて Boltzmann 則に従う平衡状態に達していれば式 (43), (44) を用い、さらに Boltzmann の平衡関係

$$\frac{N_2}{N_1} = \frac{g_1}{g_2} \exp(-h \nu_{12} / \kappa T) \quad (47)$$

を用いると、

$$\begin{aligned} \frac{dI(\nu)}{dx} d\nu &= \frac{A_{21}}{4\pi} N_2 h \nu_{12} - \frac{B_{12} N_1}{C} I(\nu) h \nu_{12} (1 - e^{-h \nu_{12} / \kappa T}) \\ &= A^* - B^* I(\nu) \end{aligned} \quad (48)$$

となり、自然放出に関する項 (A^*) と有効吸収を示す項 (B^*) により示されることが分る。 A^* の項は小さいので無視すれば、式 (34) を用いることにより、 $dI(\nu) d\nu = -(\int \alpha(\nu) d\nu) I(\nu) dx$ なる関係が得られるので、 $\alpha(\nu)$ を全波長に亘って積分すれば、全有効吸収係数は

$$\alpha_{12} = \int \alpha(\nu) d\nu = \frac{B_{12} N_1}{C} h \nu_{12} \{1 - e^{-h \nu_{12} / \kappa T}\} \quad (49)$$

となる。レーザー同位体分離においては $h \nu_{12} \gg \kappa T$ であるため、

$$\alpha_{12} = \frac{B_{12} N_1 h \nu_{12}}{C} \quad (50)$$

と省略できる。ここで式(44)を代入すれば、

$$\alpha_{12} \equiv \sigma_{12} N_1 = \frac{8 \pi^3 \nu_{12} e^2 N_1}{3 c h} |\mu_{12}|^2 \quad (51)$$

となる。原子一ヶ当りの古典的な振動子の数である振動子強度 f_{12} と $|\mu_{12}|^2$ との関係は、

$$f_{12} = \frac{8 \pi^2 m \nu_{12}}{3 h} |\mu_{12}|^2 \quad (52)$$

であるためこれより断面積を求めることができる。またこの関係を用いれば

$$A_{12} = \frac{8 \pi^2 e^2 f_{12} \nu^2}{m c^3} = 0.6670 \times 10^{14} f_{12} / \lambda^2 \quad (53)$$

となる。ここに e , m は電子の電荷及び質量であり、 A_{12} は 1/sec, λ は nm の単位である。式(52)または(53)を式(36)又は(47)に代入することにより

$$\sigma_{12} = \frac{\pi e^2}{m c^2} f_{12} \quad (54)$$

または、

$$\sigma_{12} = \frac{c}{8 \pi \nu^2} A_{12} \quad (55)$$

が得られる。従って f_{12} や A_{12} が測定されていれば励起断面積を求めることができる。式(32)と(39)より、単色光 ν_r で照射する場合の遷移確率を照射強度と吸収断面積で示せば、

$$w_{12} = \frac{3 c}{4 \pi \epsilon_0 e^2} \frac{\sigma_{12} I_1 g(\nu_r)}{h \nu_{12}} \quad (56)$$

となる。単色光でない場合には、式(42)より、単位中の ν に対して得られる式 $I_1 = \rho(\nu)c = 8 \pi h \nu^3 n / c^2$ を用いれば、式(25)と(39)より、

$$w_{12} = \frac{3 c}{4 \pi \epsilon_0 e^2} \frac{\sigma_{12} I_1}{h \nu_{12}} \quad (57)$$

となる。即ち極めて単色性のよい光源を用いて励起する場合には、照射周波数 ν_r におけるスペクトル分布値 $g(\nu_r)$ を通常の遷移確率にかけたものとなる。

このようにして単位時間、単位体積当りに選択励起される速度は

$$\frac{d N_{\text{absorb}}}{dt} = w_{12} N_1 (U_a) \quad (58)$$

同様に誘導放出される速度は、

$$\frac{d N_{\text{induced}}}{d t} = w_{21} N_2 (U_a) \quad (59)$$

自然放出速度は,

$$\frac{d N_{\text{spontaneous}}}{d t} = A N_2 (U_a) \quad (60)$$

となる。

(2) 選択性

単色性の非常に優れた光源を用いれば, 必要としない同位体は全く励起することなく, 注目している同位体のみを選択的に励起させることが可能である。しかし単色性の劣る場合には他の同位体をも励起することとなるため結果的には分離濃縮度を下げるることとなる。

まずスペクトル構造としてローレンツ型の拡がりを仮定する。 ^{238}U と ^{235}U のスペクトルは, 同位体シフト量だけ離れており, また ^{235}U は HFS (Hyperfine Structure) のため, J 値によって幾つかにスプリットしている。このようなスペクトル構造を精密に模擬することは困難であるため, ここでは ^{235}U の HFS が等ピーク間隔で並んでいるものと仮定しよう。

この場合の励起確率は, ^{235}U に対しては,

$$w_1 = \frac{\sigma_1 I}{h \nu_1} \phi \quad (61)$$

^{235}U に対しては,

$$w_2 = \frac{\sigma_1 I}{h \nu_1} \phi' \quad (62)$$

と示される。ここに,

$$\phi_1 = \int d\omega' \int d\omega \int g_D(\omega' - \omega_A) g_A(\omega' - \omega) g_L(\omega - \omega_L) \quad (63)$$

$$\phi_1' = \int d\omega' \int d\omega \int g_D'(\omega' - \omega_A') g_A'(\omega' - \omega) g_L(\omega - \omega_L) \quad (64)$$

$$\omega_A = 2\pi \nu_1 \quad ; \quad ^{235}\text{U} \text{ の共鳴周波数} \quad (65)$$

$$\omega_A' = 2\pi \nu_1' \quad ; \quad ^{238}\text{U} \text{ の共鳴周波数} \quad (66)$$

$$\omega_L = 2\pi \nu_L \quad ; \quad \text{レーザー角周波数} \quad (67)$$

$$g_D(\omega) = \frac{1}{\pi} \frac{\Delta\omega_D}{(\omega - \omega_A)^2 + \Delta\omega_D^2} \quad ; \quad \text{ドップラー-拡がり} (^{235}\text{U}) \quad (68)$$

$$g_D'(\omega) = \frac{1}{\pi} \frac{\Delta\omega_D}{(\omega - \omega_A')^2 + \Delta\omega_D^2} \quad ; \quad \text{ドップラー-拡がり} (^{238}\text{U}) \quad (69)$$

$$g_L(\omega) = \frac{1}{\pi} \frac{\Delta\omega_L}{(\omega - \omega_L)^2 + \Delta\omega_L^2}; \quad \text{レーザー発振ラインの広がり} \quad (70)$$

$$g_A(\omega) = \frac{1}{N} \sum_{r=1}^N \frac{1}{\pi} \frac{\Delta\omega_A}{(\omega - \omega_A - \Delta\omega_{is} + j\Delta\omega_{HFS})^2 + \Delta\omega_A^2} \quad (71)$$

; ^{235}U のスペクトル

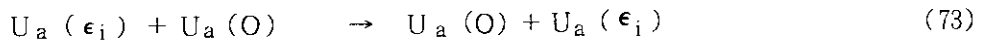
$$g'_A(\omega) = \frac{\Delta\omega_A}{(\omega - \omega'_A)^2 + \Delta\omega_A^2}; \quad ^{238}\text{U} \text{ のスペクトル} \quad (72)$$

- N ; ^{235}U の超微細構造数
- $\Delta\omega_{HFS}$; 超微細構造の間隔 (等間隔で分布しているものとする。)
- $\Delta\omega_{is}$; 同位体シフト
- $\Delta\omega_D$; ドップラー巾
- $\Delta\omega_A$; 原子スペクトルの自然巾
- j ; レーザーの照射された超微細構造のピーク位置

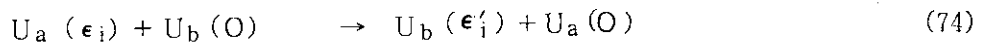
である。

(3) エネルギー交換

エネルギー E_i を得て基底状態より励起された原子は、基底状態にある同種の同位元素と衝突することにより共鳴的にエネルギーを交換する。



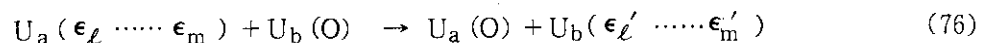
このようなエネルギー交換は同位体分離にとってマイナスとはならないが、一般には必要とする同位体よりも必要でない同位体の方の密度が高いため、 $U_a(E_i)$ は $U_b(O)$ と衝突する確率が高い。この場合 U_b のエネルギーレベル E'_i はほぼ E_i に等しいため $U_a(E_i)$ と $U_b(O)$ とのエネルギー交換はほぼ共鳴的に生じると考えられる。



このようなエネルギー交換は、注目同位体の濃縮度を下げることとなるので望ましくない。これと似たようなプロセスで、



も生ずるが、 $U_b(\epsilon'_i)$ の密度が低い場合にはその影響はかなり小さくなるものと予想される。また複数のレーザー照射により多数の基底状態近くの準安定レベルより選択励起を行う場合には幾つかのエネルギー交換が生じ、



などが生ずる。但しここでは、 $E_l \sim E_m$ までの間のレベルの選択励起を考えている。

このようなエネルギー交換の断面積は単純な $S \rightarrow P$ 型の衝突励起の場合には、

$$\sigma_{tr} = 2.26 \pi e^2 |\mu_{12}|^2 / h v_R \quad (77)$$

と示される¹⁾。ここに v_R は衝突中性原子の相対速度 M は U_a, U_b の換算質量である。式 (51) を利用すると、

$$\sigma_{tr} = 1.695 \frac{e^2 f_{12}}{M \nu_{12} v_R} \quad (78)$$

となる。このようにして式 (57) に従い単位時間、単位体積に対して交換される U_a の減少する速度は、 ϵ_i 準位の密度を N_2 、基底準位の U_b の密度を N_1 とすると、

$$\frac{dN_{\downarrow}}{dt} = \sigma_{tr} v_R N_2 (U_a) N_1 (U_b) \quad (79)$$

と示される。同様に式 (75) に従い U_a の増加する速度は、

$$\frac{dN_{\uparrow}}{dt} = \sigma_{tr} v_R N_2 (U_b) N_1 (U_a) \quad (80)$$

となる。但し N は、下位準位に許容遷移準位が多くある場合には複雑な Branching を示すものと思われる。先に考えたように上記過程は近共鳴衝突過程であるため衝突失活の場合、丁度各準安定レベルへと失活してくるものと思われる。しかし総失活量については、

$$\frac{dN_{\downarrow}}{dt} = N_2 (U_a) \sum_{i=1}^m \sigma_{tr} (E_i) v_R (E_i) N_1 (U_b) f_i \quad (81)$$

となり、これはほぼ式 (79) と等しくなる。同様に U_a の各レベル (ϵ_i) に失活してくる量は、 $N_2 (U_a) \sigma_{tr} (E_i) \cdot v_R (E_i) N_1 (U_b) f_i$ と考えることができる。

2.3 光電離過程

(1) 光電離断面積

W_1 の状態より W_2 の状態へと選択励起したものをさらに W_3 への光電離させることを考える。この場合にもその遷移確率はやはり式 (78), (79) で示される。

$$W_{23} = \frac{3c}{4\pi\epsilon_0 e^2} \cdot \frac{\sigma_{23} I_2 g(\nu_{\ell})}{h\nu_{23}} \quad \left(\begin{array}{l} \text{原子スペクトル巾よりもレー} \\ \text{ザーライン巾が狭い時} \end{array} \right) \quad (82)$$

$$W_{23} = \frac{3c}{4\pi\epsilon_0 e^2} \cdot \frac{\sigma_{23} I_2}{h\nu_{23}} \quad \left(\begin{array}{l} \text{原子スペクトルとレーザースペ} \\ \text{クトル分布が一致している時} \end{array} \right) \quad (83)$$

ここに I_2 は電離レーザーの強さ, $h\nu_{23}$ は W_3 と W_2 のエネルギー差, σ_{23} は断面積である。
 σ_{23} についてはリドベルク状態への電離 (連続体) の場合, H原子の近似を行うことにより,

$$\sigma_{23}(\nu) = \Gamma \cdot \frac{64 \pi^4 e^{10} m z^4}{3 \sqrt{3} c h^6 \nu^3 g_n n^3} \quad (84)$$

と得られる。 Γ は Gaunt 因子と呼ばれるもので Peach によると,

$$\Gamma = \left\{ 1 + 0.1728 b^{1/3} - 0.0496 b^{2/3} \right\} + \frac{1}{n^2} \left\{ \frac{0.3456}{b^{2/3}} + \frac{0.0333}{b^{1/3}} \right\} - \frac{0.0333}{n^4 b^{4/3}} \quad (85)$$

$$b = \nu / \nu_H \quad (86)$$

で示される。ここに, z は核の電荷, n は原子の初期の Bohr 状態, $h\nu_H$ は水素原子のイオン化エネルギーを示している。 $\Gamma = 1$ の場合には, Kramers の式と一致するが実際問題としては $\Gamma \approx 1$ としてよい。これは, n が大きくなれば 1 に近づくこと, またイオン化ポテンシャル直上での電離の場合には 1 からのずれはせいぜい 10~20% と見積れるからである。式 (84) は原則として基底状態から電離する場合について求めたものであるが, 励起状態より電離する場合には, 1ヶ当りの原子について

$$\sigma(\nu) = 1.8 \times 10^{-24} \frac{z'^2 \theta T}{N h^3 \nu^3} \left\{ e^{-h\nu_0/\kappa T} \right\} \left\{ e^u - 1 \right\} \quad (87)$$

$$u = h\nu/\kappa T \quad (\nu < \nu_g) \quad (88)$$

$$= h\nu_g/\kappa T \quad (\nu > \nu_g) \quad (89)$$

となる。ここに,

$h\nu_0$; イオン化エネルギー

$h\nu_g$; 励起状態からイオン化レベルまでのエネルギー

z' ; 有効電荷で $z'^2 \approx 4 \sim 7$ の値となる。

θ ; Hとの違いによる補正值で N で 1 又は 4.5 程度である。

N ; 励起状態密度

通常の LIS の目的においては, 式 (86) は

$$\sigma_{23}(\nu) \cong 1.8 \times 10^{-24} \frac{z'^2 \theta T}{N h^3 \nu^3} e^{-h(\nu_0 - \nu_g)/\kappa T} \quad (90)$$

となる。従って電離レベルの原子密度を N_3 とすると, 注目する同位体のイオン化される割合 dN_{ionize}/dt , 自然寿命で中性化される割合 dN_{spont}/dt , 誘導放出される割合 dN_{induced}/dt は各々,

$$\frac{d N_{\text{ionize}}}{d t} = w_{23} (U_a) \cdot N_2 (U_a) \quad (91)$$

$$\frac{d N_{\text{spont}}}{d t} = N_3 (U_a) / \tau_3 \quad (92)$$

$$\frac{d N_{\text{induced}}}{d t} = w_{23} (U_a) \cdot N_3 (U_a) \quad (93)$$

となる。ここに τ_3 はイオンの自然寿命である。なお式 (92) によって N_3 によって N_3 のイオンは全て基底状態近辺のレベルに遷移するものとする。なおリドベルク状態ではなく自動電離レベルを利用して実質的に光電断面積を大きくする場合には σ_{23} は複雑に変化し、いわゆる Shore パラメーターを導入することによって、

$$\sigma_{23}^{(\text{Auto})} (\nu) = \sigma_{23}^{(\text{Ryd})} + \frac{A (\nu_g/2) (\nu - \nu_0) + B (\nu_g/2)^2}{(\nu - \nu_0)^2 + (\nu_g/2)^2} \quad (94)$$

となる。ここに $\sigma_{23}^{(\text{Ryd})}$ は今までに求めたりドベルク状態への電離断面積、 ν_0 、 ν_g は Shore のパラメーター値である²⁾。このほか、単色性の良い電子ビームにより電離させることによりその効率を上昇させることも考えられるが、この場合の電子電離断面積は、

$$\sigma_{23}^{(\text{ion})} (E) = \frac{\pi r_c^2 \ell n (E / V_i - V_e)}{\frac{E}{V_H} \times \frac{V_i - V_e}{V_H}} \quad (95)$$

と示される。ここに、

V_H ; H原子の電離電圧 (13.5 V)

E ; 電子のエネルギー (V)

r_c ; Bohr 半径 ($= \frac{n^2 h^2}{4 \pi^2 m e^2 Z}$) (96)

V_i ; 電離電圧 (V)

V_e ; 励起状態 (V)

である。

(2) レーザー光の減衰

励起断面積は電離断面積に比べて $10^3 \sim 10^4$ 大きく、従って単純に考えれば励起レーザー 1 台に対し、数千台の電離レーザーが必要となる。これと同時に励起レーザー光の減衰は電離レーザー光に比べ著しい。通常はレーザー光を有効に利用するために鏡等により何回か反射を繰り返すなどの方法が採用される。鏡間の距離を ℓ 、鏡の反射率を α とすると、レーザー光強度は、

$$I(t) \cong I_0 \alpha^{ct/\ell} \quad (97)$$

で示される。光の進行方向 (Z) への吸収による減衰は、 U_a , U_b の光の吸収によるものであるが、一方同様に誘導放出も生じるため実際の光の強度は、 I_1 を励起レーザー光の強度、 I_2 を電離レーザー光の強度として、

$$\frac{d I_1 (Z, \nu)}{d z} = -I_1 (Z, \nu) \{ \sigma_{12} (U_a) N_1 (U_a) + \sigma_{12} (U_b) N_1 (U_b) \} + \{ w_{12} (U_a) N_2 (U_a) + w_{12} (U_b) N_2 (U_b) \} h \nu_{12} \quad (98)$$

$$\frac{d I_2 (z, \nu)}{d z} = -I_2 (z, \nu) \{ \sigma_{23} (U_a) N_2 (U_a) + \sigma_{23} (U_b) N_2 (U_b) \} + \{ w_{23} (U_a) N_3 (U_a) + w_{23} (U_b) N_3 (U_b) \} h \nu_{23} \quad (99)$$

で示される。ここに N_3 は電離状態の原子密度である。なお実際は式 (98), (99) と (97) を同時に、即ち、 I_1, I_2 を場所と時間の関数として扱うべきであるがビームの速度は、レーザー光に比べれば極めて遅いので時間と空間とは分離できるものと仮定した。

2.4 回収過程

イオンとなった U_a^+ の回収は、電磁加速器によって行われる。この過程では光電離によって生じたイオンと電子の作用が問題となる。まず電離したイオンと電子との再結合



が生じることをないように、 U_a^+ と e^- の衝突をできるだけ防止しなければならない。また生じた電子またはイオンと中性原子との衝突による電離をも考えなければならない。すなわち、



を考慮する必要がある。これ等は回収方法が明確になってのみ始めて解析が可能となる。従って現段階においては式 (100) における効果を

$$\frac{d N_{rec}}{d t} = \sigma_{rec} v_{EI} N_3 (U_a) N_e \quad (102)$$

式 (101) における効果を

$$\frac{d N_{eionize}}{d t} = \sigma_e v_{EI} \{ N_1 (U_a) + N_2 (U_a) \} N_e \quad (103)$$

としておく。ただしここに、

N_e ; 電子密度

$$v_{EI} ; \text{イオンと電子の相対速度} = \sqrt{\frac{2eE}{m}} \quad (\text{イオンがほぼ静止している場合}) \quad (104)$$

$$v_{RI} ; \text{イオンと中性原子の相対速度} = \sqrt{\frac{2eE}{M}} \quad (105)$$

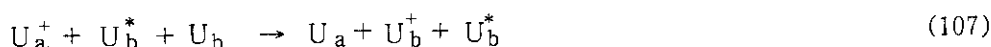
σ_{rec} ; 再結合の断面積

σ_e ; 式(95)で示される断面積 $\sigma_{23}^{(ion)}$ と同じ

である。

(1) 電荷交換

注目している同位体 U_a が電離しても再結合や電荷交換が生ずれば、 U_a の収量が減少したり或は濃縮度が低下する。再結合は、イオンと電子が衝突することにより中性原子に戻る現象である。 U_a^+ の電荷交換としては、



の如きものが考えられる。 U_b^+ に対しても同様である。式(106), (107)とは本質的には同一であるため、ここでは式(106), (108)を考えれば良い。 U_a のみについて考えると式(106)については、 U_a^+ の減少割合 $dN_{exchange}/dt$ は、

$$\frac{dN_{exchange}}{dt} = v_{RI} \sigma_{ex} (\Delta W_{31}) N_1(U_b) N_3(U_a) \quad (109)$$

と示される。同様に式(107)については

$$\frac{dN_{exchange}}{dt} = v_{RI} \sigma_{ex} (\Delta W_{32}) N_2(U_b) N_3(U_a) \quad (110)$$

となる。ここに v_{RI} はイオン中性原子との相対速度であり回収方法により左右される。 $\sigma_{ex}(\Delta W)$ はエネルギー差 ΔW の場合の電荷交換断面積であり、 ΔW_{32} , ΔW_{31} は各々電離状態又は基底状態とのエネルギーの差である。 v_{RI} 一定の場合には $\sigma_{ex}(\Delta W_{32}) > \sigma_{ex}(\Delta W_{31})$ であるが、密度は逆に $N_2, N_3 \ll N_1$ であるため上2式の過程を考える必要がある。 U_b^+ に対しても同様であるが、エネルギー交換の項で述べたように、基底状態にまでエネルギーの失われるイオンに対しては基底近辺の準安定準位間での統計的再配分を知る必要がある。一般に、



の電荷交換における交換断面積は、

$$\sigma_{ex} = n_c \{ Q(\Delta E_u) - Q(\Delta E_l) \} \quad (112)$$

で示される³⁾。ここに、

$$Q(\Delta E) = \frac{\pi j^2 e^4}{3 v_1^2 v_2} \left\{ -\frac{2 v_2^3}{(\Delta E)^2} - \frac{6 v_2}{m_2 \Delta E} \right\} \quad (0 < \Delta E < b) \quad (113)$$

$$= \frac{\pi r^2 e^4}{3 v_1^2 v_2} \left\{ \frac{3}{\Delta E} \left(\frac{v_1}{m_1} - \frac{v_2}{m_2} \right) + \frac{v_2'^3 - v_2^3 - v_1'^3 - v_1^3}{(\Delta E)^2} \right\}$$

$$(b < \Delta E < a) \quad (114)$$

$$= 0 \quad (\Delta E > a, m_2 v_2 < (m_1 - m_2) v_1) \quad (115)$$

$$v_2'^2 = v_1^2 - \frac{2 \Delta E}{m_1} \quad (116)$$

$$v_2'^2 = v_2^2 + \frac{2 \Delta E}{m_2} \quad (117)$$

$$\Delta E_u = \frac{1}{2} m_2 v_1^2 + U_B + U_A \quad (118)$$

$$\Delta E_\ell = \frac{1}{2} m_2 v_1^2 + U_B \quad (119)$$

$$a = \frac{4 m_1 m_2}{(m_1 + m_2)^2} \left\{ \frac{m_1 v_1^2}{2} - \frac{m_2 v_2^2}{2} + \frac{m_1 v_1 v_2}{2} \right\} \quad (120)$$

$$b = \frac{4 m_1 m_2}{(m_1 + m_2)^2} \left\{ \frac{m_1 v_1^2}{2} - \frac{m_2 v_2^2}{2} - \frac{m_1 v_1 v_2}{2} \right\} \quad (121)$$

U_B ; B 原子の電子結合エネルギー

U_A ; A 原子 ($A^{(j-1)+}$) の電離エネルギー

$\Delta E_u, \Delta E_\ell$; 電子による高い準位及び低い準位のエネルギー

n_c ; B 原子の外部サブシェル中の等価電子数

であり、添字 1, 2 は各々 A 原子イオン及び、束縛電子に関するものである。回収の方法にもよるが、非常に低速で共鳴電荷交換を起こす場合には、

$$\sigma_{ex} = \sigma_{nem}^{(1)} + \sigma_{nem}^{(2)} \quad (122)$$

で示される⁴⁾

ここに、

$$\{\sigma_{n\ell m}^{(1)}\}^{1/2} = \frac{\pi}{2 r^2} \left\{ \ell n \left(\frac{2 C_{n\ell m} \pi^{3/2}}{v} \right) + \left(2n - m - \frac{1}{2} \right) \ell n (r \tilde{b}_1) \right\}$$

$$(m \geq 0) \quad (123)$$

$$r = 1/n \quad (124)$$

$$C_{n\ell m} = \frac{(2\ell+1)(\ell+m)!}{m!(\ell-m)!} \frac{(-1)^{\ell+m+1}}{2^{m+1}} \left(\frac{4}{e} \right)^n A^2 \quad (125)$$

$$A = \{ n^2 \Gamma(n+\ell+1) \Gamma(n-\ell) \}^{-1/2} \quad (n \geq \ell+1) \quad (126)$$

$$= \{ n^2 \Gamma(2n) \}^{-1/2} \quad (n < \ell+1) \quad (127)$$

$$\Gamma(j+1) = j! \quad (j > 0) \quad (128)$$

$n = 0, 1, 2, \dots$ 量子数

$\ell = 0, 1, 2, \dots$ 方位量子数

$m = 0, \pm 1, \pm 2, \dots$ 磁気量子数

v ; 衝突速度

\tilde{b}_1 ; 衝突パラメーター b_1 の v に対する平均値

$$\sigma_{n\ell m}^{(2)} = - \frac{\pi^{3/2} b_2}{|\Gamma''(b_2)|^{1/2}} \cdot \cos(2|\Gamma(b_2)| - \frac{\pi}{4}) \quad (129)$$

$$b_2 = (2n - m - \frac{1}{2}) / r \quad (130)$$

$$\Gamma(b_2) = \frac{1}{v} \sqrt{2\pi} C_{n\ell m} \cdot (rb_2)^{rb_2} e^{-rb_2} \quad (131)$$

$$\Gamma''(b_2) = -\Gamma(b_2) \cdot \frac{r}{b_2} \quad (132)$$

である。 \tilde{b}_1 については Lenard-Jones ポテンシャルを仮定して

$$\tilde{b}_1 = \frac{r_0}{\left\{ \frac{1}{2} \left(\sqrt{1 + \frac{E_c}{\epsilon}} + 1 \right) \right\}^{1/6}} \quad (133)$$

$$E_c = \frac{1}{2} M v^2 \quad (134)$$

と示される。ここに r_0, E は $V = 4\epsilon \{ (r_0/r)^{12} - (r_0/r)^6 \}$ におけるパラメーター値である。

(2) 回収量

レーザー光の進行方向を z , ビーム進行方向を y としイオンが回収されるまでに移動する平均距離を L (電極間距離にはほぼ等しい), 回収電極の中 (y 方向) を B とすると, U_a^+ が回収の際に減少するのを考慮すれば, 単位時間, 電極面積 당りに回収される量 S_a は,

$$S_a(U_a) = N_3(U_a) \{ 1 - \exp\{-\sigma_{ex}(W_{31}) N_3(U_a) \varphi_1(U_a) - \sigma_{ex}(W_{32}) N_3(U_a) \varphi_2(U_b)\} L \} \quad (135)$$

となりさらに電荷交換により増大する量

$$S_b(U_a) = N_3(U_b) \cdot \exp \left[\left\{ -\sigma_{ex}(W_{31}) N_3(U_b) \varphi_1(U_a) - \sigma_{ex}(W_{32}) N_3(U_b) \varphi_2(U_a) \right\} L \right] \quad (136)$$

を加えて体積 $L dy dz$ に対して積分すれば、全イオン量は、

$$\Sigma(U_a) = \iint \{ S_a(U_a) + S_b(U_a) \} L \cdot dy \cdot dz \quad (137)$$

となる。ここに、

$$\varphi_1(U_{a,b}) = \frac{N_1(U_{a,b})}{N_1(U_b) + N_2(U_b)} \quad (138)$$

$$\varphi_2(U_{a,b}) = \frac{N_2(U_{a,b})}{N_1(U_a) + N_2(U_a)} \quad (139)$$

である。なおレーザー照射光が連続的であれば、 $dy = v dt$ (v はビームの速度) の関係を用いることも可能である。従って回収された同位体の存在比は、

$$\rho = \frac{\Sigma(U_a)}{\Sigma(U_a) + \Sigma(U_b)} \quad (140)$$

と求められる。

ウランに関する光電離断面積としては実験的に求められた次式を適用することもできる⁵⁾

$$\sigma_i = (12.6 - 1.55 \log_{10} E)^2 + 1.153 E^{-1.12} \quad (141)$$

ここに σ_i 及び E の単位は各々 \AA^2 , eV である。

但しここに,

$$w_{12}^{(k)} = \frac{\sigma_{12} I_1}{h \nu_{12}} \phi^{(k)} \quad \dots\dots\dots W_1 \text{ から } W_3 \text{ への遷移確率}$$

$$\phi^{(k)} = \int d\nu' \int d\nu f g_D(\nu' - \nu_A) g_A^{(k)}(\nu' - \nu) g_L(\nu - \nu_L)$$

$$g_D(\nu) = \frac{1}{\pi} \frac{\Delta \nu_D}{(\nu - \nu_A)^2 + \Delta \nu_D^2} \quad \dots\dots \text{ドップラー拡がり}$$

$$g_L(\nu) = \frac{1}{\pi} \frac{\Delta \nu_L}{(\nu - \nu_L)^2 + \Delta \nu_L^2} \quad \dots\dots \text{レーザーラインの拡がり}$$

$$g_A^{(k)}(\nu) = \frac{1}{N} \sum_{j=1}^N \frac{1}{\pi} \frac{\Delta \nu_A}{(\nu - \nu_A^{(k)} - \Delta \nu_{is} + j \Delta \nu_{HFS})^2 + \Delta \nu_A^2} \quad \dots\dots \text{{}^{235}\text{U} \text{ スペクトルの拡がり}}$$

$$g_A^{(\bar{k})}(\nu) = \frac{\Delta \nu_A}{(\nu - \nu_A^{(\bar{k})})^2 + \Delta \nu_A^2} \quad \dots\dots \text{{}^{238}\text{U} \text{ スペクトルの拡がり}}$$

$$\Delta \nu_D = 2 \nu_{12} \frac{\bar{v}_\perp}{c} \quad \dots\dots \text{ドップラー巾}$$

$$\bar{v}_\perp = \frac{2}{3} \left(\sin \frac{\theta_0}{2} \right) \sqrt{\frac{8 \kappa T}{\pi M}} \quad \dots\dots \text{レーザー光方向原子平均速度}$$

$$\sigma_{12} = \frac{\pi e^2}{m c^2} f_{12} \left(= \frac{c}{8 \pi \nu^2} A_{12} \right) \quad \dots\dots \text{全励起断面積}$$

$$\tau_2 = 1 / A_{12} \quad \dots\dots \text{励起寿命}$$

$$N_e = N_3^{(k)} + N_3^{(\bar{k})} + N_0 x_e \quad \dots\dots \text{熱電離も含めた全電子数}$$

$$x_e = \rho_e \{ 1 + 1 / \rho_e - 1 \} \quad \dots\dots \text{熱電離度}$$

$$\rho_e = 4.81 \times 10^{15} \frac{g_i T^{3/2}}{N_0 g_a} e^{-1.16 \times 10^4 V_i / T}$$

$$f_j = \frac{F_j}{\sum_{i=1}^m F_i} \quad \dots\dots \text{準安定レベル } j \text{ が占有される割合}$$

$$F_j = g_j e^{-E_j / \kappa T}$$

$$k_{rec} = \sigma_{rec} v_{IE}$$

$$k_e = \sigma_e v_{RI} \quad \dots\dots\dots \text{電子による衝撃電離速度定数}$$

$$\sigma_e = \frac{\pi r_c^2 \ell n(E/V_i - V_e)}{\frac{E}{V_H} \cdot \frac{V_i - V_e}{V_H}} \quad \dots\dots \text{電子の衝撃電離断面積}$$

$$r_c = \frac{n^2 h^2}{4 \pi^2 m e^2 z} \quad \dots\dots\dots \text{Bohr 半径}$$

$$v_{IE} = \sqrt{\frac{2 e E}{m}} \quad \dots\dots\dots \text{電子とイオンの相対速度}$$

$$k_{12} = \sigma_{tr}^{(12)} \cdot v_R \quad \dots\dots\dots \text{エネルギー交換速度定数}$$

$$\sigma_{tr}^{(12)} = 1.695 \frac{e^2 f_{12}}{M \nu_{12} v_R} \quad \dots\dots\dots \text{エネルギー交換断面積}$$

$$M = \frac{M^{(k)} M^{(\bar{k})}}{M^{(k)} + M^{(\bar{k})}} \quad \dots\dots\dots U_a, U_b \text{ の換算質量}$$

$$k_{13} = \sigma_{tr}^{(13)} \cdot v_R$$

$$\sigma_{tr}^{(13)} = 1.695 \frac{e^2 f_{13}}{M \nu_{13} v_R}$$

$$v_R = \sqrt{\frac{8 \kappa T}{\pi}} \left| \frac{1}{M^{(k)}} - \frac{1}{M^{(\bar{k})}} \right| \quad \dots\dots\dots \text{原子の相対速度}$$

などである。次に W_2 レベルの密度変化については、

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} + v \frac{\partial}{\partial y} \right) N_2^{(k)} = w_{12}^{(k)} (N_1^{(k)} - N_2^{(k)}) + w_{23}^{(k)} (N_3^{(k)} - N_2^{(k)}) \quad \dots\dots \text{誘導放出及び吸収}$$

$$- \frac{N_2^{(k)}}{\tau_2} \quad \dots\dots\dots \text{自然寿命による失活}$$

$$+ k_{12} \left\{ N_2^{(\bar{k})} \sum_{j=1}^m N_{1j}^{(k)} - N_2^{(k)} \sum_{j=1}^m N_{1j}^{(\bar{k})} \right\} \quad \dots\dots \text{基底状態近辺のレベルと励起状態との間で生ずるエネルギー交換}$$

$$+ k_{23} (N_3^{(k)} N_2^{(\bar{k})} - N_2^{(k)} N_3^{(\bar{k})}) \dots\dots\dots \text{電荷交換による項} \quad (143)$$

但しここに,

$$w_{23}^{(k)} = \frac{\sigma_{23} I_2}{h \nu_{23}} \phi^{(k)}$$

$$\Delta \nu_D = 2 \nu_{23} \frac{\bar{v}}{c}$$

$$\sigma_{23}^{(k)} = 1.8 \times 10^{-24} \frac{Z^2 \theta T}{N_2^{(k)} h^3 \nu_{23}^3} e^{-h\nu_{23} / \kappa T} \dots\dots\dots \text{光電離断面積}$$

または,

$$\sigma_{23}^{(k)} = \Gamma \frac{64 \pi^4 e^{10} m Z^4}{3 \sqrt{3} c h^6 \nu_{23}^3 g_n n^3}$$

$$\Gamma = \{ 1 + 0.1728 b^{1/3} - 0.0496 b^{2/3} \}$$

$$+ \frac{1}{n^2} \left\{ \frac{0.3456}{b^{2/3}} + \frac{0.0333}{b^{1/3}} \right\} - \frac{0.0333}{n^4 b^{4/3}} \dots\dots\dots \text{Gaunt 因子}$$

$$N_{1j} = N_1^{(k)} f_j$$

$$k_{23} = \sigma_{ex} \cdot v_{RI} \dots\dots\dots \text{電荷交換速度係数}$$

$$v_{RI} = \frac{2 e E}{M} \dots\dots\dots \text{イオンと原子の相対速度}$$

$$\sigma_{ex} = \sigma_{nem}^{(1)} + \sigma_{nem}^{(2)} \dots\dots\dots \text{電荷交換断面積}$$

($W_3 \approx W_2$ の場合にはここに示すように共鳴電荷交換となる)

$$\sigma_{nem}^{(1)} = \frac{\pi}{2 r^2} \left\{ \ell n \left(\frac{2 C_{nem} \pi^{3/2}}{v} \right) + \left(2n - m - \frac{1}{2} \right) \ell n (r \tilde{b}_1) \right\}^2$$

$$r = \frac{1}{n}$$

$$C_{nem} = \frac{(2\ell + 1)(\ell + m)!}{m!(\ell - m)!} \cdot \frac{(-1)^{\ell + m + 1}}{2^{m+1}} \left(\frac{4}{e} \right)^n A^2$$

$$A = \{ n^2 \Gamma(n+\ell+1) \Gamma(n-\ell) \}^{-1/2} \quad (n \geq \ell + 1)$$

$$= \{ n^2 \Gamma(2n) \}^{-1/2} \quad (n < \ell + 1)$$

$$\Gamma(j+1) = j!$$

$$\sigma_{n\ell m}^{(2)} = - \frac{\pi^{3/2} b_2}{|\Gamma''(b_2)|^{1/2}} \cos(2|\Gamma(b_2)| - \frac{\pi}{4})$$

$$b_2 = (2n - m - \frac{1}{2}) / r$$

$$\Gamma(b_2) = \frac{1}{v} \sqrt{2\pi} C_{n\ell m} \cdot (r b_2)^{r b_2} e^{-r b_2}$$

$$\Gamma''(b_2) = -\Gamma(b_2) \frac{r}{b_2}$$

$$\tilde{b}_1 = \frac{r_0}{\{ \frac{1}{2} (1 + \frac{E_c}{\epsilon}) + 1 \}^{1/6}}$$

$$E_c = \frac{1}{2} M v^2$$

である。

W_3 レベルについては、

$$\begin{aligned} \left(\frac{\partial}{\partial t} + v \frac{\partial}{\partial y} \right) N_3^{(k)} &= w_{23}^{(k)} (N_2^{(k)} - N_3^{(k)}) \dots\dots\dots \text{誘導放出及び吸収} \\ + k_{13} \{ N_3^{(k)} \sum_{j=1}^m N_{1j}^{(k)} - N_3^{(k)} \sum_{j=1}^m N_{1j}^{(\bar{k})} \} &\dots\dots\dots \text{電荷交換} \\ + k_{23} (N_2^{(k)} N_3^{(\bar{k})} - N_3^{(k)} N_2^{(\bar{k})}) &\dots\dots\dots \text{電荷交換} \\ + k_e N_c \sum_{j=1}^m N_{1j}^{(k)} &\dots\dots\dots \text{電子衝撃電離} \end{aligned}$$

(144)

となる。ここに $W_3 \approx W_2$ の場合には k_{23} は共鳴電荷交換となるがそれ以外の場合及び k_{13} に対しては共鳴効果は考えない。この場合には、

$$k_{13} = \sigma_{ex} \cdot v_{RI}$$

$$\sigma_{ex} = n_c \{ Q(\Delta E_u) - Q(\Delta E_e) \}$$

$$\begin{aligned}
 Q(\Delta E) &= \frac{-2\pi e^4}{3v_1^2} \left\{ \frac{v_2^2}{(\Delta E)^2} + \frac{6}{m\Delta E} \right\} \quad (0 < \Delta E < b) \\
 &= \frac{\pi e^4}{3v_1^2 v_2} \left\{ \frac{3}{\Delta E} \left(\frac{v_1}{M} - \frac{v_2}{m} \right) + \frac{v_2'^3 - v_2^3 - v_1'^3 - v_1^3}{(\Delta E)^2} \right\} \quad (b < \Delta E < a) \\
 &= 0 \quad (\Delta E > a)
 \end{aligned}$$

$$v_1'^2 = v_1^2 - \frac{2\Delta E}{M}$$

$$v_2'^2 = v_2^2 + \frac{2\Delta E}{m}$$

$$\Delta E_u = \frac{1}{2} m v_1'^2 + U_B + U_A$$

$$\Delta E_\ell = \frac{1}{2} m v_1'^2 + U_B$$

$$a = \frac{4Mm}{(M+m)^2} \left\{ \frac{Mv_1^2}{2} - \frac{mv_2^2}{2} + \frac{Mv_1v_2}{2} \right\}$$

$$b = \frac{4Mm}{(M+m)^2} \left\{ \frac{Mv_1^2}{2} - \frac{mv_2^2}{2} + \frac{Mv_1v_2}{2} \right\}$$

となる。rate 方程式中における I_1, I_2 の減衰については、

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial I_1}{\partial z} &\cong -I_1 \alpha^{ct/\ell} \{ \alpha_{12}^{(1)} N_1^{(1)} + \alpha_{12}^{(2)} N_1^{(2)} \} \\
 &\quad + \{ w_{12}^{(1)} N_2^{(1)} + w_{12}^{(2)} N_2^{(2)} \} h \nu_{12}
 \end{aligned} \tag{145}$$

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial I_2}{\partial z} &\cong -I_2 \alpha^{ct/\ell} \{ \sigma_{23}^{(1)} N_2^{(1)} + \sigma_{23}^{(2)} N_2^{(2)} \} \\
 &\quad + \{ w_{23}^{(1)} N_3^{(1)} + w_{23}^{(2)} N_3^{(2)} \} h \nu_{23}
 \end{aligned} \tag{146}$$

となる。なお以上の式における座標は、

- x 電極面方向
- y ビーム進行方向
- z レーザー光進行方向

としている。上式を初期条件、

$$N_1^{(k)} = N_0^{(k)} = \frac{N_{av} \cdot P_e (T)}{MRT} \times F$$

$$N_2^{(k)} = 0$$

$$N_3^{(k)} = 0$$

および境界条件

$$N_1^{(k)} \Big|_{y=0} = N_0$$

$$N_2^{(k)} \Big|_{y=0} = 0$$

$$N_3^{(k)} \Big|_{y=0} = N_0^{(k)} \times e \quad \dots\dots\dots \text{熱電離イオンが既に存在している。}$$

$$I_1 \Big|_{z=0} = I_{10}$$

$$I_2 \Big|_{z=0} = I_{20}$$

の下に解くことにより回収量

$$\Sigma^{(k)} = L \bar{v} \iint (S_1^{(k)} + S_2^{(k)}) dt dz \quad (147)$$

が求まる。ここに、

$$S_1^{(k)} = N_3^{(k)} \left[1 - \exp \left\{ - \frac{\sigma_{ex} N_3^{(k)} N_1^{(\bar{k})}}{N_1^{(\bar{k})} + N_2^{(\bar{k})}} - \frac{\sigma_{ex} N_3^{(k)} N_2^{(\bar{k})}}{N_1^{(k)} + N_2^{(k)}} \right\} L \right] \quad (148)$$

$$S_2^{(k)} = N_3^{(\bar{k})} \exp \left\{ \left[- \frac{\sigma_{ex} N_3^{(\bar{k})} N_1^{(k)}}{N_1^{(k)} + N_2^{(k)}} - \frac{\sigma_{ex} N_3^{(\bar{k})} N_2^{(k)}}{N_1^{(\bar{k})} + N_2^{(\bar{k})}} \right] L \right\} \quad (149)$$

$$\bar{v} = \sqrt{\frac{8 \pi T}{\pi M}}$$

である。従って回収されたイオンの同位体含有率は、

$$x_p = \frac{\Sigma^{(k)}}{\Sigma^{(k)} + \Sigma^{(\bar{k})}} \quad (150)$$

となる。 $N_0 = N_0^{(k)} + N_0^{(\bar{k})}$ を発生するために必要なエネルギーは、

$$E_v = \frac{(N_0^{(k)} + N_0^{(\bar{k})})}{N_{av}} \{ C_p (s) (T_m - T_0) + C_p (\ell) (T_v - T_m) + C_p (g) (T - T_v) \} + q_v + \sigma_B (T^4 - T_w^4) S \quad (151)$$

となり、またレーザーによる消費エネルギーは

$$E_L = \frac{I_1 S_1}{\eta_1} + \frac{I_2 S_2}{\eta_2} \quad (152)$$

となる。ここに

S_1, S_2 ; レーザー光断面積

η_1, η_2 ; レーザーの効率

従って回収イオン1ヶ当りに必要とされるエネルギーは単位時間当りの収量で全消費エネルギーを割ることにより、

$$\rho_E = \frac{(E_V + E_L) T_H}{\Sigma^{(k)}} \quad (153)$$

となる。ここに T_H は回収時間である。次に廃棄材中の U_a の割合は、

$$x_W = \frac{N_0^{(k)} - \frac{\Sigma^{(k)}}{T_H}}{N_0^{(k)} + N_0^{(\bar{k})} - \frac{\Sigma^{(k)} + \Sigma^{(\bar{k})}}{T_H}} \quad (154)$$

であり、頭部分離係数 α 、尾部分離係数 β は、

$$\alpha = \frac{(1 - x_F) x_p}{x_F (1 - x_p)} \quad (155)$$

$$\beta = \frac{(1 - x_W) x_F}{x_W (1 - x_F)} \quad (156)$$

となる。

3.2 計算手順

先に述べた rate 方程式を次の関係を用いて無次元化する。

$$\tilde{N}_i^{(k)} = \frac{N_i^{(k)}}{N_0^{(k)}} \quad \tilde{w}_{ij}^{(k)} = \frac{w_{ij}^{(k)}}{w_{12}^{(1)}}$$

$$\tilde{N}_e = \frac{N_e}{N_0} \quad \tilde{\tau}_i = \tau_i \cdot w_{12}^{(1)}$$

$$\begin{aligned} \tilde{v} &= \frac{v}{L \cdot w_{12}^{(1)}} & \tilde{z} &= z \sigma_{12}^{(2)} N_0^{(2)} \\ \tilde{t} &= t \cdot w_{12}^{(1)} & \tilde{\sigma}_{12} &= \frac{\sigma_{12}^{(1)}}{\sigma_{12}^{(2)}} \\ \tilde{k}_{ij} &= \frac{N_0^{(k)} \cdot k_{ij}}{w_{12}^{(1)}} & \tilde{\sigma}_{23} &= \frac{\sigma_{23}^{(1)}}{\sigma_{23}^{(2)}} \\ \tilde{k}_{rec} &= \frac{N_0 \cdot k_{rec}^{(k)}}{w_{12}^{(1)}} & \tilde{\sigma}_{31} &= \frac{\sigma_{23}^{(2)}}{\sigma_{12}^{(2)}} \\ \tilde{k}_e &= \frac{N_0 \cdot k_e^{(k)}}{w_{12}^{(1)}} & \tilde{H}_1 &= \frac{h \nu_{12} w_{12}^{(1)}}{I_{10} \sigma_{12}^{(2)}} \\ \tilde{I}_i &= \frac{I_i}{I_{i0}} & \tilde{H}_2 &= \frac{h \nu_{23} w_{12}^{(1)}}{I_{20} \sigma_{12}^{(2)}} \end{aligned}$$

上式により, $\partial / \partial y_i = 0$ (y 一定の点にて観測) の場合には,

$$\begin{aligned} \frac{\partial \tilde{N}_1^{(k)}}{\partial \tilde{t}} &= \tilde{w}_{12}^{(k)} (\tilde{N}_2^{(k)} - \tilde{N}_1^{(k)}) + \frac{\tilde{N}_2^{(k)}}{\tilde{\tau}_2} f_j + (\tilde{k}_{rec} \tilde{N}_3^{(k)} \\ &\quad - \tilde{k}_e \tilde{N}_1^{(k)}) \tilde{N}_e + \tilde{k}_z (\tilde{N}_2^{(k)} \tilde{N}_1^{(k)} - \tilde{N}_2^{(k)} \tilde{N}_1^{(k)}) \frac{N_0^{(k)}}{N_0^{(k)}} \\ &\quad + \tilde{k}_B (\tilde{N}_1^{(k)} \tilde{N}_3^{(k)} - \tilde{N}_3^{(k)} \tilde{N}_1^{(k)}) \frac{N_0^{(k)}}{N_0^{(k)}} \end{aligned} \quad (157)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial \tilde{N}_2^{(k)}}{\partial \tilde{t}} &= \tilde{w}_{12}^{(k)} (\tilde{N}_1^{(k)} - \tilde{N}_2^{(k)}) + \tilde{w}_{23}^{(k)} (\tilde{N}_3^{(k)} - \tilde{N}_2^{(k)}) \frac{N_0^{(k)}}{N_0^{(k)}} \\ &\quad - \frac{\tilde{N}_2^{(k)}}{\tilde{\tau}_2} + \tilde{k}_{12}^{(k)} \left\{ \tilde{N}_2^{(k)} \sum_{j=1}^m \tilde{N}_{1j}^{(k)} - \tilde{N}_2^{(k)} \sum_{j=1}^m \tilde{N}_{1j}^{(k)} \right\} \\ &\quad + \tilde{k}_{23} \left\{ \tilde{N}_3^{(k)} \tilde{N}_2^{(k)} - \tilde{N}_2^{(k)} \tilde{N}_3^{(k)} \right\} \frac{N_0^{(k)}}{N_0^{(k)}} \end{aligned} \quad (158)$$

$$\begin{aligned}
\frac{\partial \tilde{N}_3^{(k)}}{\partial \tilde{t}} &= \tilde{w}_{23}^{(k)} (\tilde{N}_2^{(k)} - \tilde{N}_3^{(k)}) + \\
&+ \tilde{k}_{13} \left\{ \tilde{N}_3^{(k)} \sum_{j=1}^m \tilde{N}_{1j}^{(k)} - \tilde{N}_3^{(k)} \sum_{j=1}^m \tilde{N}_{1j}^{(k)} \right\} \frac{N_0^{(k)}}{N_0^{(k)}} \\
&+ k_{23} (\tilde{N}_2^{(k)} \tilde{N}_3^{(k)} - \tilde{N}_3^{(k)} \tilde{N}_2^{(k)}) \frac{N_0^{(k)}}{N_0^{(k)}} + \tilde{k}_e \tilde{N}_e \sum_{j=1}^m \tilde{N}_{1j}^{(k)} \quad (159)
\end{aligned}$$

となる。

またレーザー光の減衰は

$$\begin{aligned}
\frac{d \tilde{I}_1}{d \tilde{z}} &= -\tilde{I}_1 \alpha^{ct/l} \left\{ \tilde{\sigma}_{12} \tilde{N}_1^{(1)} \frac{N_0^{(1)}}{N_0^{(2)}} + \tilde{N}_1^{(2)} \right\} \\
&+ \tilde{H}_1 \left\{ \tilde{w}_{12}^{(1)} \tilde{N}_2^{(1)} \frac{N_0^{(1)}}{N_0^{(2)}} + \tilde{w}_{12}^{(2)} \tilde{N}_2^{(2)} \right\} \quad (160)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\frac{d \tilde{I}_2}{d \tilde{z}} &= -\tilde{I}_2 \alpha^{ct/l} \left\{ \tilde{\sigma}_{23} \tilde{N}_2^{(1)} \frac{N_0^{(1)}}{N_0^{(2)}} + \tilde{N}_2^{(2)} \right\} \tilde{\sigma}_{31} \\
&+ \tilde{H}_2 \left\{ \tilde{w}_{23}^{(1)} \tilde{N}_3^{(1)} \frac{N_0^{(1)}}{N_0^{(2)}} + \tilde{w}_{23}^{(2)} \tilde{N}_3^{(2)} \right\} \quad (161)
\end{aligned}$$

となる。したがって式 (157) ~ (161) を連立させて解くことにより解が得られる。

3.3 他の計算法との比較

選択 2 段階高電離法に関し現在までに提唱されている rate 方程式と本レート方程式を比較してみる。

Liu によるもの⁶⁾

$$\begin{aligned}
\frac{\partial N_1}{\partial t} &= w_{12} (N_2 - N_1) \\
\frac{\partial N_2}{\partial t} &= w_{12} (N_1 - N_2) - w_{23} N_2 - \frac{N_2}{\tau_2} \\
\frac{\partial N_3}{\partial t} &= w_{23} N_2 - \frac{N_3}{\tau_3}
\end{aligned}$$

この式は、 W_2, W_3 レベルからの崩壊原子は基底状態に戻らないとしているし、エネルギー交換、電荷交換は考慮していない。また

$$\frac{\partial (N_1 + N_2 + N_3)}{\partial t} = -\frac{N_2}{\tau_2} - \frac{N_3}{\tau_3} \neq 0$$

であり考えているレベルの外に遷移していることになる。

Karlov によるもの,⁷⁾

$$\frac{\partial N_1}{\partial t} + v \frac{\partial N_1}{\partial x} = w_{12} (N_2 - N_1) + \frac{N_2}{\tau_2}$$

$$\frac{\partial N_2}{\partial t} + v \frac{\partial N_2}{\partial x} = w_{12} (N_1 - N_2) - w_{23} N_2 - \frac{N_2}{\tau_2}$$

$$\frac{\partial N_2}{\partial t} + v \frac{\partial N_3}{\partial x} = w_{23} N_2$$

この式では電離イオンが直ちに取り去られるとしており τ_2 は考えていない。またエネルギー、電荷交換も考えていないが、時間と場所の関数としてとらえている。また、全体の収支は、

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} + v \frac{\partial}{\partial x} \right) (N_1 + N_2 + N_3) = 0$$

となっている。

尾崎によるもの,⁸⁾

$$\frac{d N_1^{(k)}}{d t} = w_{12} (N_2^{(k)} - N_1^{(k)}) + \frac{N_2^{(k)}}{\tau_2} + \frac{N_2^{(k)} \bar{N}_1^{(k)}}{\tau_{12}} + \frac{N_3^{(k)} \bar{N}_1^{(k)}}{\tau_{23}}$$

$$\frac{d N_2^{(k)}}{d t} = w_{12} (N_1^{(k)} - N_2^{(k)}) - w_{23} N_2^{(k)} - \frac{N_2^{(k)}}{\tau_3} - \frac{N_1^{(k)} \bar{N}_2^{(k)}}{\tau_{12}}$$

$$\frac{d N_3^{(k)}}{d t} = w_{23} N_2^{(k)} - \frac{N_1^{(k)} \bar{N}_3^{(k)}}{\tau_{23}}$$

この式ではエネルギー交換、電荷交換を考えているがビーム中で U_a と U_b の衝突はほとんど起きず、従って $\bar{N}_1^{(k)}$ は常に一定であるとして線型化している。

宅間によるもの,⁹⁾

$$\frac{\partial N_1^{(k)}}{\partial t} = w_{12} (N_2^{(k)} - N_1^{(k)}) + \frac{N_2^{(k)}}{\tau_2} + \frac{N_3^{(k)}}{\tau_3}$$

$$\frac{\partial N_2^{(k)}}{\partial t} = w_{12} (N_1^{(k)} - N_2^{(k)}) - w_{23} N_2^{(k)} - \frac{N_2^{(k)}}{\tau_2}$$

$$\frac{\partial N_3^{(k)}}{\partial t} = w_{23} N_2^{(k)} - \frac{N_3^{(k)}}{\tau_3}$$

$$\frac{\partial N_1^{(\bar{k})}}{\partial t} = -\frac{N_2^{(k)}}{\tau_{12}^{(k)}} - \frac{N_3^{(k)}}{\tau_3^{(k)}} + \frac{N_2^{(\bar{k})}}{\tau_{12}^{(\bar{k})}}$$

$$\frac{\partial N_2^{(\bar{k})}}{\partial t} = \frac{N_2^{(k)}}{\tau_{12}^{(k)}} - w_{23} N_2^{(\bar{k})} - \frac{N_2^{(\bar{k})}}{\tau_{12}^{(\bar{k})}}$$

$$\frac{\partial N_3^{(\bar{k})}}{\partial t} = \frac{N_3^{(k)}}{\tau_{12}^{(k)}} + w_{23} N_2^{(\bar{k})} - \frac{N_3^{(\bar{k})}}{\tau_3^{(\bar{k})}}$$

U_a, U_b の両者に対する連立式となっているがこれも U_b が U_a に比べて極めて多いという仮定に立っている。収支については

$$\frac{\partial}{\partial t} (N_1^{(k)} + N_2^{(k)} + N_3^{(k)}) = 0$$

$$\frac{\partial}{\partial t} (N_1^{(\bar{k})} + N_2^{(\bar{k})} + N_3^{(\bar{k})}) = -\frac{N_3^{(\bar{k})}}{\tau_3^{(\bar{k})}}$$

となっているが、残った項については、 $N_3^{(\bar{k})}$ と $N_1^{(\bar{k})}$ の衝突が支配的であるため、実質上の $\tau_2^{(\bar{k})}$ は著しく大きくなると仮定している。

Brinkmann によるもの¹⁰⁾

$$\frac{d N_1}{d y} v = w_{12} (N_2 - N_1) + \frac{N_2}{\tau_2}$$

$$\frac{d N_2}{d y} v = w_{12} (N_1 - N_2) - w_{23} N_2 - \frac{N_2}{\tau_2} - \frac{N_2}{\tau_{24}}$$

$$\frac{d N_4}{d y} v = \frac{N_2}{\tau_{24}}$$

$$\frac{d N_3}{d t} = w_{23} N_2 - \text{div} \cdot j(y)$$

この式は実験解析用として得られたものであるが、 N_3 のイオン引出し速度 $\text{div. } j(y)$ を考慮して計算している。なお、上式は Ca に対して用いられるもので W_1 の直上に W_4 なる準位が挿入されている。全体の収支は、

$$\frac{d}{dt} (N_1 + N_2 + N_3 + N_4) = - \text{div. } j(y)$$

となり引出されるイオン数だけ毎時間減少している。

以上述べた式においてはレーザーライン巾とスペクトルとの関係、エネルギー、電荷交換に対する考慮などに欠けており実用上の間間をも含めて考えるとさらに綿密な考察が必要となる。

3.4 パラメーターの選定

選択2段階光電離法による LIS として、ここでは現在有用とされている、 ^{235}U , ^{50}Ti , ^6Li の分離のほか、同方法の利用できるものとして ^{44}Ca , ^{41}K , ^{137}Ba などの分離などが考えられる。これらについての計算を行う場合特に重要となるパラメーターは一般に次のようなものである。

(1) 物理的条件

- ① 基底レベル……基底状態近辺に幾つかの準安定状態を持つものについてはどのレベルから励起するかを決定する必要がある。もちろん複数のレベルからの励起も考えられる。
- ② 励起レベル……励起断面積、励起状態寿命によって効率は大きく変わることとなる。また励起レベルのエネルギー、1段励起のみでなく2段以上の励起を行うことによる影響も考えなくてはならない。
- ③ 電離レベル……リドベルク状態の電離とするか、自動電離状態を利用するかによって電離断面積は大きく変化する。但し後者において電離レーザーの波長は著しく制限を受ける。
- ④ レーザーライン巾とスペクトル構造……スペクトルが超微細構造を持つかどうか、レーザーライン巾がスペクトル巾に比べて充分狭いか或は充分広いかどうかによって遷移確率は変化する（特に選択励起過程において重要）。
- ⑤ レーザー出力……励起レーザー、電離レーザーの照射光子速密度は遷移確率を直接決定する重要な因子である。
- ⑥ 同位体比……注目する同位体の同位体比がどの程度であるかによって電荷交換、エネルギー交換による効果は変化する。特にウラン濃縮については減損ウランからの濃縮を考える場合において重要である。
- ⑦ 炉温度 ……直接処理密度や原子速度に関係するばかりでなく温度は全ゆるパラメーター、及び消費動力に影響を与える。

(2) 工学的条件

- ① ビーム方向長さ……これはレーザーで照射すべきビーム方向長さのことであり、尾部分離係数が充分高くなりかつ励起状態密度が飽和に達することのないような適当な長さを選ぶべきである。

- ② ビーム巾……………回収電極間方向のビームの巾であり，処理量が充分大きくかつ電荷交換が小さいような巾にすべきである。
- ③ レーザー照射方向長さ……………レーザー光の指向性によって，ビーム巾と関連して決まる最大長さが存在するがその他工作性能なども重要な因子である。
- ④ 鏡反射率……………レーザー光を有効に用いるために何回も反射させて再利用する為に反射鏡を使用するが，鏡の汚染による反射率の低下をも考えなければならない。
- ⑤ レーザーパルス巾……………励起レーザー，電離レーザーのいずれか，又は両方がパルス発振の場合にはパルス巾とパルス繰返し数を適正としなければならない。
- ⑥ パルスディレイ……………励起レーザーと電離レーザーの発振遅延は全体効率に影響を与える。
- ⑦ 回収電圧……………回収方法にもよるが，イオンと電子，電子と原子の相対速度は再結合，衝撃電離に大きな影響を与える。

4. 分離器の特性

4.1 計算条件

実際的な分離器をここで設計することは困難ではあるが、パラメーターサーベイを行うためにごく簡単な分離器を想定してみる。この場合、考え方の基礎となる設定として次の事項を設ける。

- ① 分離は2段階選択励起光電離法とする。レーザーによる同位体分離においてはレーザーにより選択励起準位にまで励起する必要があるが、これを回収する。方法としては種々考えられる。ここでは、現時点においてそのプロセスが比較的明白である光電離法を用いて回収するものとする。さらにイオンの回収方法としても種々な方法が提案されるが、最も明確である単純な静電圧印加による回収を行うものとする。
- ② 分離器の構造としては、ルツボ内のウランより蒸発するウラン金属原子ビームに直角方向より選択励起のレーザーを照射し、それと同軸に電離レーザー光を照射し、生ずる光電離イオンを原子ビーム及びレーザー光で作られる平面に平行な電極板を設けて静電圧によりイオンを回収しようようになっている。
- ③ 励起レーザー光、電離レーザー光共に連続した出力とする。計算においては全て励起および電離の2つのレーザー出力は固定されている。

このような仮定を行うと分離器に大きな影響を与える物性値パラメータとしては、供給ウランの同位体比、基底状態にある準安定状態準位、選択励起レベル、同位体シフト、微細構造、光励起断面積、励起状態寿命、励起した原子の光電離断面積、励起した原子のエネルギー交換、電離した光電離イオンの電荷交換断面積など、また制御可能なパラメータとしては、レーザー発振巾、ルツボ内温度、原子ビーム方向長さ、レーザー光方向長さ、電極間距離、レーザー出力などがあげられる。ここでは設計時に特に問題となるパラメーターとして、ルツボ内温度、励起レーザー出力、電離レーザー出力、レーザー方向長さ、電極間距離長さ、原子ビーム方向長さを選びそれらが分離性能にどのような影響を与えるかについて考える。基準計算点として次の値を選び上記パラメーター1ケのみを変化させた場合の特性を見る。

。選択励起レベル	5915.4 Å
。同位体シフト	-8.179×10^9 Hz
。微細構造数	8 個
。励起状態寿命	300 nsec
。供給ウラン 235 濃度	0.711 %
。レーザー発振巾	500 MHz
。ルツボ内温度	2400 K
。原子ビーム方向長さ	3 cm
。レーザー光方向長さ	10 cm
。電極間距離	2 cm

なお本方法は先に述べたように Table 1 に示す原子についても適用できる。

4.2 計算結果

Fig. 1 に温度を変化させた場合の基底状態密度比 \tilde{n}_1 (基底状態密度と全蒸気密度との比)、励起状態密度比 \tilde{n}_2 (励起状態密度と全蒸気密度との比) が原子ビーム方向長に変化していく様子を示した。

温度変化の計算のみについてはレーザー光方向長さを 0.5 cm とした場合の計算値を示す。この計算例では励起レーザー、電離レーザー出力が比較的弱いため、高温で蒸気密度が高くなればなるほど励起状態密度比、電離状態密度比は低下する。しかも温度が高くなると励起すべき基底状態密度比が小さくなるため、この傾向は一層大きくなる。Fig. 2 には温度を変化させた場合のイオン回収効率 (1 eV 当り得られるイオン数) の変化を示す。温度の低い範囲ではウラン金属蒸発に要するエネルギーよりもレーザーに要するエネルギーが大きく、温度の高い範囲では U 金属蒸発エネルギーが大きくなるため効率が最大となる温度が存在する。本条件の場合には約 2500 K である。次に Fig. 3 に示した製品濃度と廃棄材濃度を見ると特に製品濃度の温度による低下が大きい。温度が 2400 K 以上となると急激に密度が増大し回収時に電荷交換が生ずるようになるため製品濃度が低下する。一方廃棄材濃度は同じ理由により同様に 2200 K 以上で急激に上昇し、供給ウラン同位体濃度に近づいてゆく。Fig. 4 には励起レーザー出力を変化させた場合の各状態密度比の原子ビーム方向への変化を示した。レーザー出力が高くなればなるほど励起状態密度比のピークは高くなるが、原子ビームが進行するに従い減少に向う。しかし、電離イオン密度比は単調に増加してゆく。このため Fig. 5 に示すようにこの程度の出力範囲内であれば回収量及び効率も単調増加を続ける。Fig. 6 は電離レーザー出力に対する各密度比の原子ビーム方向変化を示したものである。本条件では電離レーザーを 2000 W にしても電離状態密度比は励起状態密度比の 1/6 以下でしかないため、Fig. 7 に示すように効率の減少はこの範囲では見られない。Fig. 8 にはレーザービーム方向長さの効率に与える影響を示す。この長さが短かいとレーザー光が有効に利用されないし、また長いと原子の蒸発にエネルギーを要するため効率は悪くなる。従って本条件ではその中間 0.5 cm で最大となる。但し得られるイオン量は Fig. 9 から分かるように長さが長くなるにつれて増大する。なお電荷交換により廃棄材濃度は長さが長くなると共に減少する。Fig. 10 には電極間距離と効率の関係を示した。距離を狭くすればイオン回収距離は減少し電荷交換が少くなると同時にレーザー照射密度が増加する為に効率は増大する。このことは Fig. 11 の製品濃度及び廃棄材濃度を見ても分る。最後に原子ビーム方向長さの影響を見ると、Fig. 12 より長さを短くすればレーザー照射密度が増大するために効率も上昇することが、また Fig. 13 より長くすればするほど光による処理を受ける時間が長くなるため廃棄材中のウラン 235 濃度は下がりそれだけ資源の有効利用が可能となる。

Table 1 Atoms to which atomic isotope separation method may be applied

Item	U	Ti	Li	Ca	K	Ba
Isotopes(%)	238(99.274)	48(73.94)	7(92.58)	40(96.97)	39(93.1)	138(71.66)
	235(0.721)	46(7.93)	6(7.42)	44(2.06)	41(6.88)	137(11.32)
	234(0.006)	47(7.28)		42(0.64)	40(0.012)	136(7.81)
		49(5.51)		48(0.185)		135(6.59)
		50(5.34)		43(0.145)		134(2.42)
	46(0.0033)		46(0.0033)			130(0.101)
Ionization(Å)	2008	1815	2313	3191	2863	2379
Potential(eV)	6.02	6.83	5.39	6.11	4.34	5.19
Structure	[Au] 5f ³ 6s ² 6p ⁶ 6d ¹	[Ar] 3d ² 4s ²	1s ² 2s ¹	[Ar] 4s ²	[Ar] 4s ¹	[Pd] 5s ² 5p ⁶ 6s ²
Ground State	⁵ L ₆	³ F ₂	² Sy ₂	¹ S ₀	² Sy ₂	¹ S ₀
Melting Point(K)	1406	1940	454	1123	336	983
Density(g/cm ³)	18.7	4.5	0.534	1.55	0.87	3.5

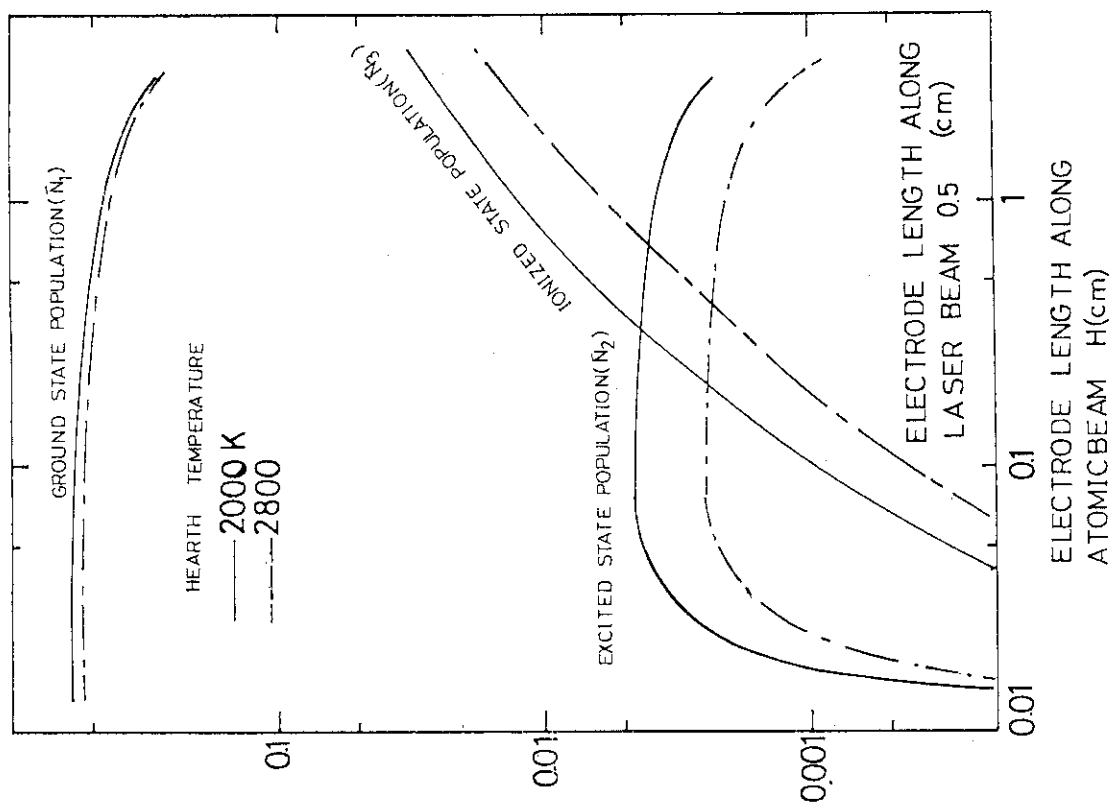


Fig. 1 Level population change along electrode length in the direction of laser beam

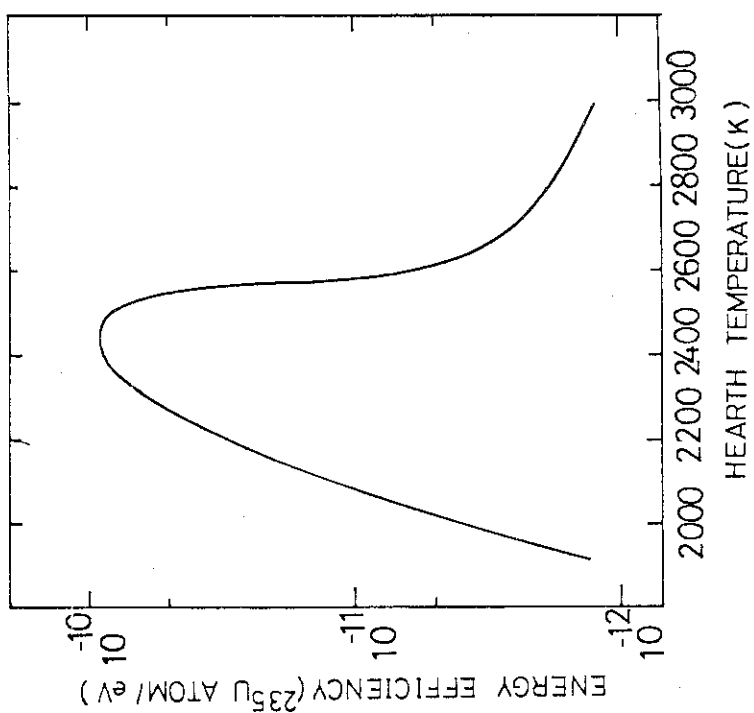


Fig. 2 Temperature dependence of energy efficiency

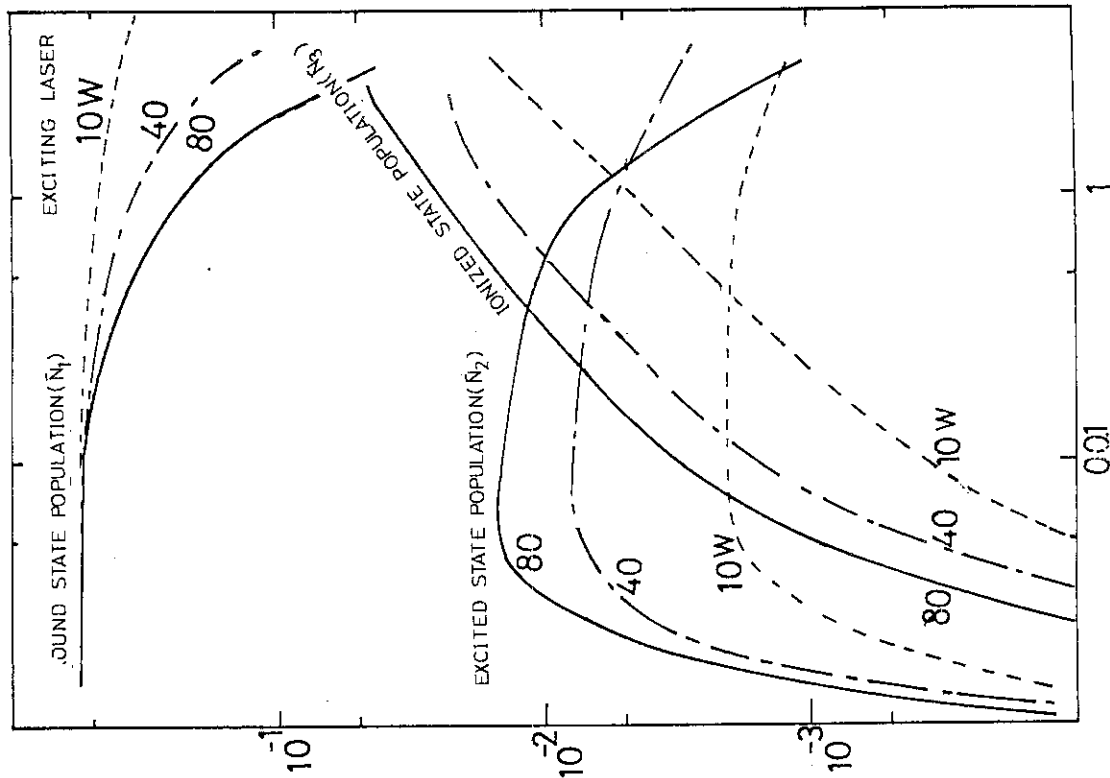


Fig. 4 Level population change along electrode length in the direction of atomic beam (exciting laser power)

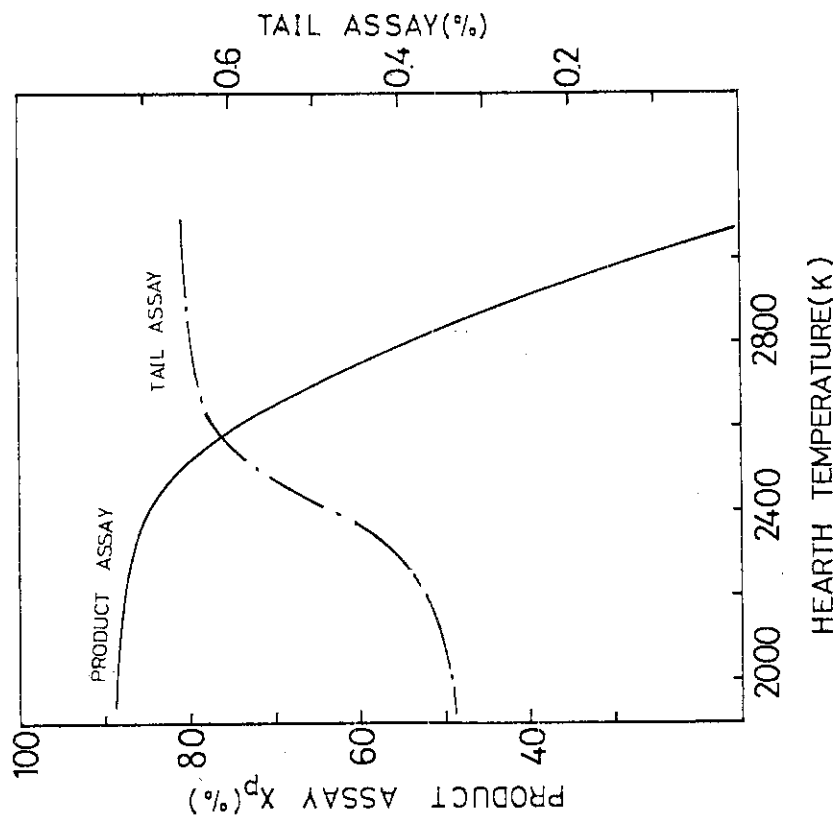


Fig. 3 Dependence of enrichment and depletion on hearth temperature

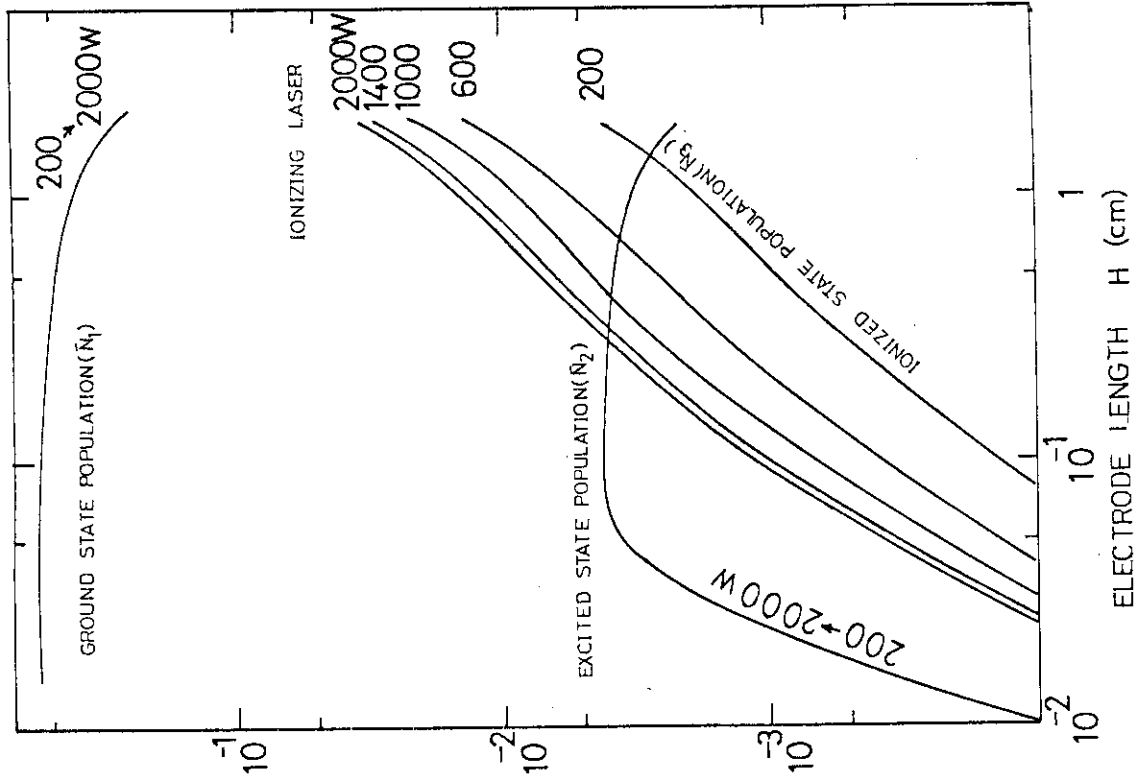


Fig. 6 Each level population change along electrode length in the direction of atomic beam (ionizing laser)

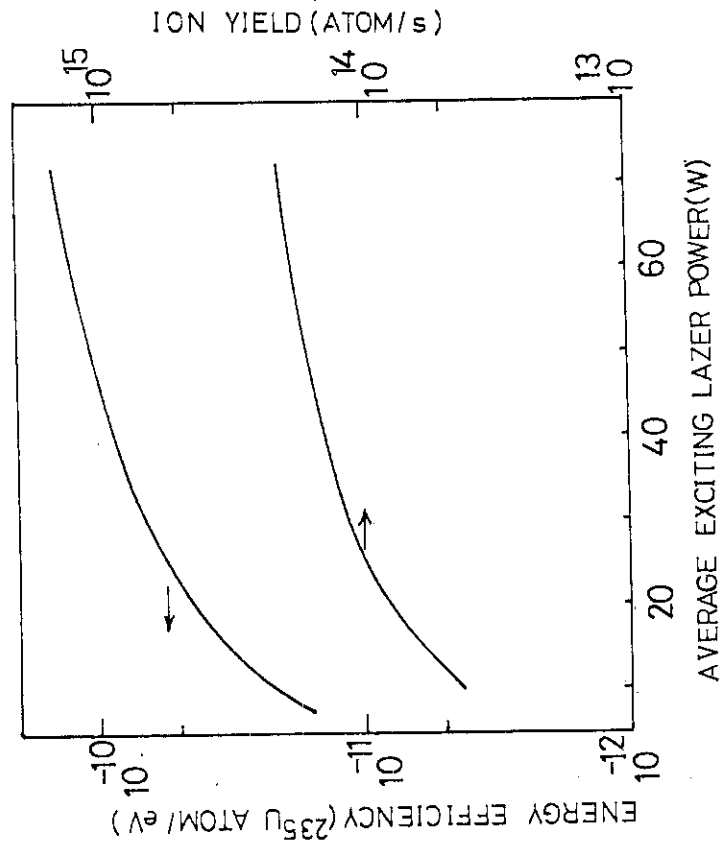


Fig. 5 Energy efficiency vs. average exciting laser power

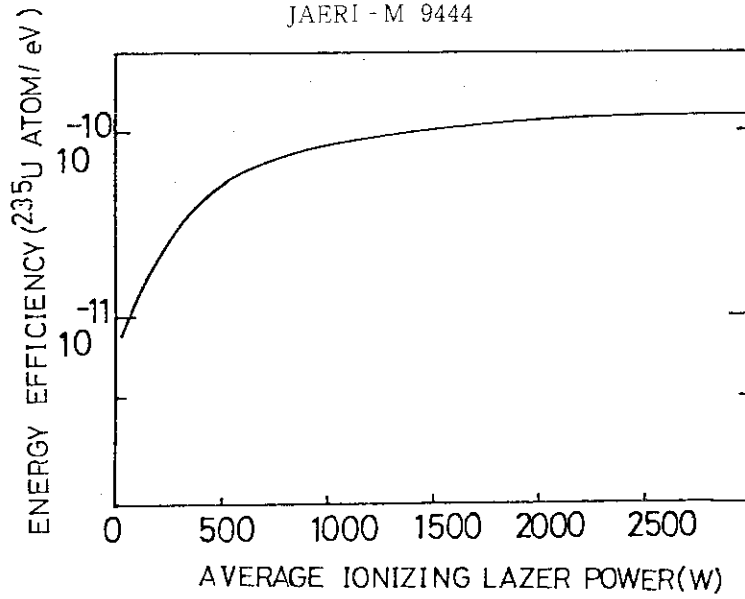


Fig. 7 Energy efficiency vs. average exciting laser power

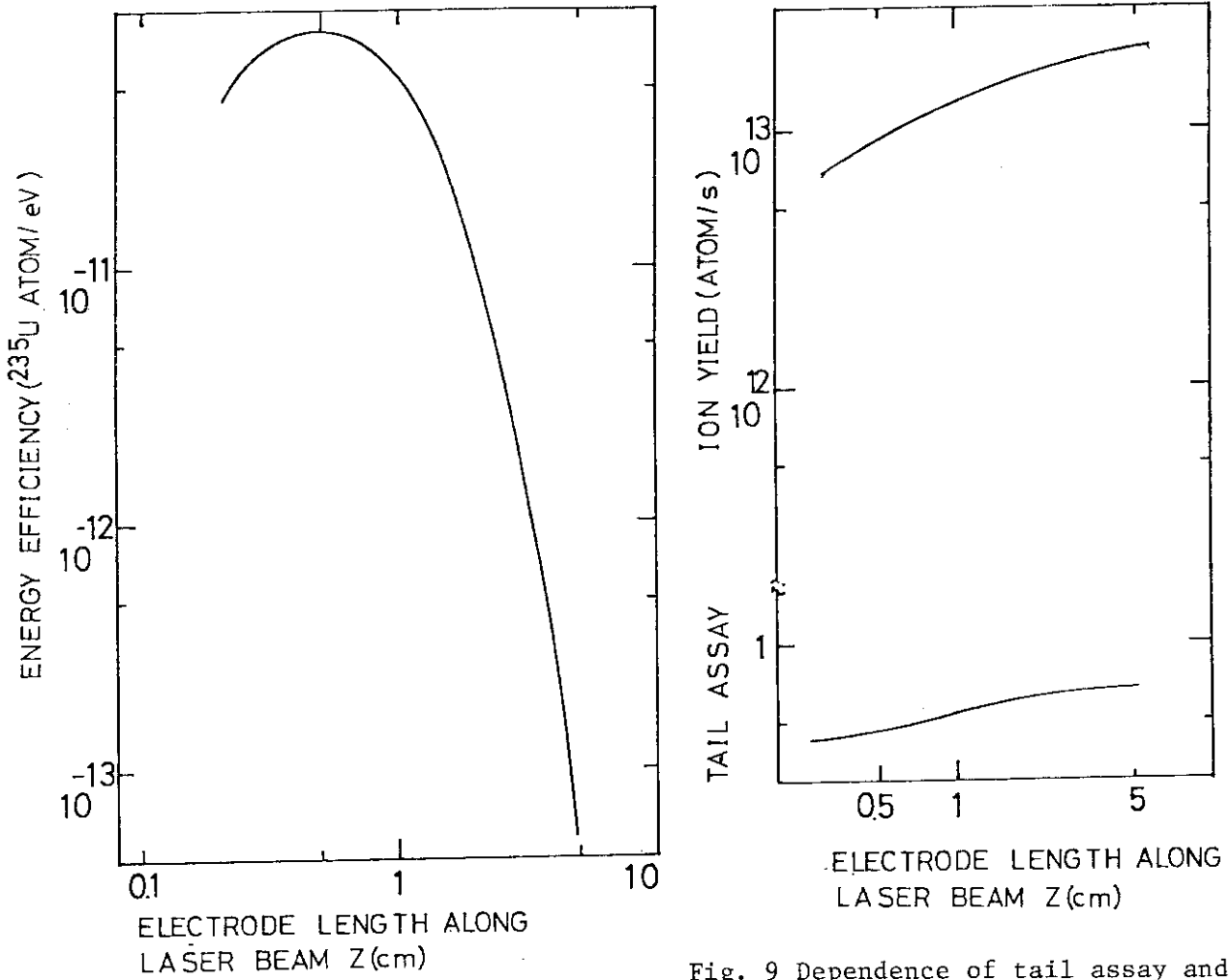


Fig. 8 Energy efficiency vs. electrode length along laser beam

Fig. 9 Dependence of tail assay and ion yield on electrode length along laser beam

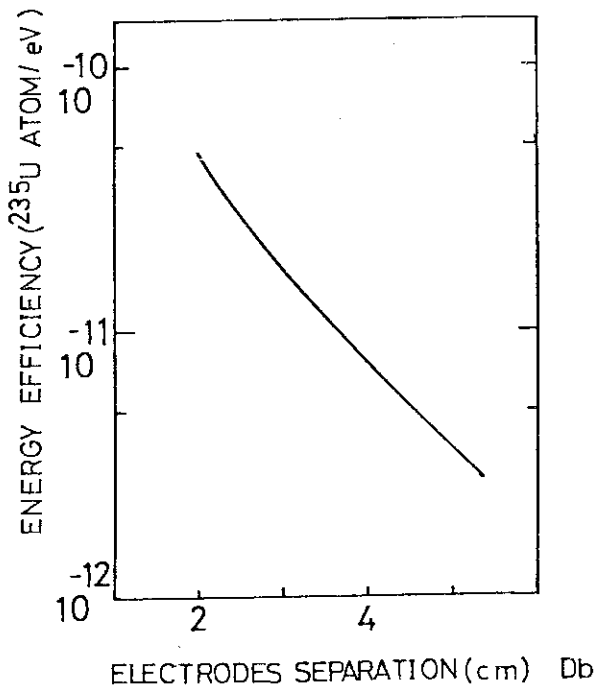


Fig. 10 Energy efficiency vs. electrode gap

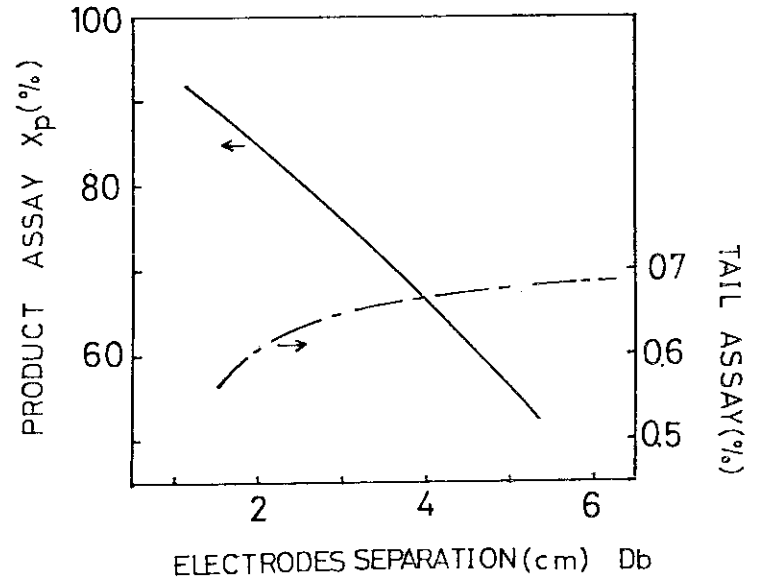


Fig. 11 Dependence of product assay on electrode gap

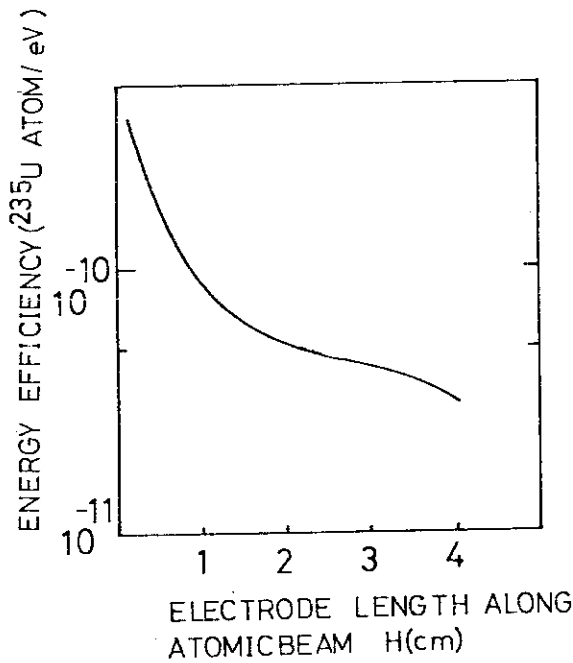


Fig. 12 Energy efficiency vs. electrode length along atomic beam

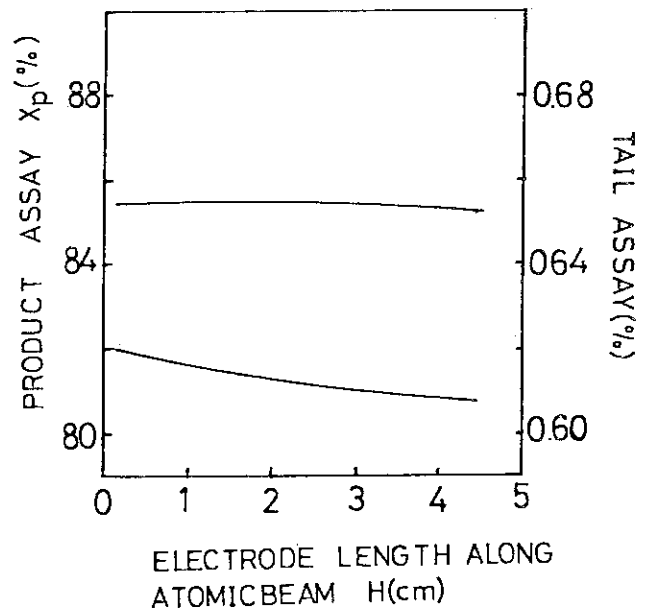


Fig. 13 Product and tail assay vs. electrode length along atomic beam

5. お わ り に

以上の結果をまとめると以下のようになる。

- (1) レーザー法によるウラン濃縮を評価するための第1段階として、種々の基礎過程について考察した後励起レーザーにより選択励起されたウラン原子に電離レーザーを照射し光電離し静電圧による回収を行う方法(2段階選択電離法)に対する計算モデルを提示した。本モデルではレーザー光とウラン原子スペクトルの拡がり、およびウラン235、ウラン238各々に対する三つのエネルギー準位および両者の間のエネルギー交換、電荷交換などを考慮した。
- (2) 本モデルを用いて単純な分離特性に与える各パラメータの影響を計算した。パラメータとしては温度、励起レーザー出力、電離レーザー出力、レーザー方向長、電極間距離、原子ビーム方向長を選び、効率(単位エネルギー当りに得られる製品量)、製品濃度、廃棄材濃度に与える影響を考察した。
- (3) 計算の結果、温度が上昇すると製品濃度は急激に低下し、廃棄材濃度は徐々に上昇する過程が明らかとなった。また電極のレーザー方向長さには効率を最大とする点があるが、電極間距離や電極の原子ビーム方向長さに対しては単調な変化を示すことなどが分った。
- (4) 今後の課題としては、本計算コードの各物理常数を求めるサブルーチンの整備、各パラメータの最適化、他の回収方法への適用などが残されている。

謝 辞

本研究の遂行と報告書の作成にあたり御激励を賜った下川純一燃料工学部長に深く感謝の意を表します。

5. お わ り に

以上の結果をまとめると以下のようになる。

- (1) レーザー法によるウラン濃縮を評価するための第1段階として、種々の基礎過程について考察した後励起レーザーにより選択励起されたウラン原子に電離レーザーを照射し光電離し静電圧による回収を行う方法(2段階選択電離法)に対する計算モデルを提示した。本モデルではレーザー光とウラン原子スペクトルの広がり、およびウラン235、ウラン238各々に対する三つのエネルギー準位および両者の間のエネルギー交換、電荷交換などを考慮した。
- (2) 本モデルを用いて単純な分離特性に与える各パラメータの影響を計算した。パラメータとしては温度、励起レーザー出力、電離レーザー出力、レーザー方向長、電極間距離、原子ビーム方向長を選び、効率(単位エネルギー当りに得られる製品量)、製品濃度、廃棄材濃度に与える影響を考察した。
- (3) 計算の結果、温度が上昇すると製品濃度は急激に低下し、廃棄材濃度は徐々に上昇する過程が明らかとなった。また電極のレーザー方向長さには効率を最大とする点があるが、電極間距離や電極の原子ビーム方向長さに対しては単調な変化を示すことなどが分った。
- (4) 今後の課題としては、本計算コードの各物理常数を求めるサブルーチンの整備、各パラメータの最適化、他の回収方法への適用などが残されている。

謝 辞

本研究の遂行と報告書の作成にあたり御激励を賜った下川純一燃料工学部長に深く感謝の意を表します。

参 考 文 献

- (1) Watanabe T., "Collisional excitation between identical atoms",
Phys.Rev., 138 A1573(1965)
- (2) Driver, R.D., Wheaton, J.E.G., ; "Photoionization cross
sections of metal vapor below 50 nm: An apparatus for
their measurement", Appl.Opt., 15 700(1976)
- (3) Moriette, P.; "Ionization and charge exchange cross sections
between heavy ions and natural atoms", CEA-CONF-2816(1974)
- (4) Hodgkinson, D.P., Briggs, J.S.; "Resonant charge exchange at
low velocities", J.Phys.B; Atom Molec.Phys., 9 255(1976)
- (5) Bardsley, J.N.; "Theoretical research on charge exchange of
uranium ions at thermal energies", COO-1106-1(1975)
- (6) Liu, U.S.; "Laser isotope separation using two photon selective
excitation: Its quantum efficiency and separation factor",
Appl.Opt., 13 2505(1974)
- (7) Karlov, N.V., Prokhorov, A.M.; "Efficiency of selective two
step laser action in an atomic beam", UCRL-Trans-19919
- (8) Ozaki, N., Yamada, K., Yamamoto, G.; "Some economic considerations
of laser uranium enrichment plant", J. of Atomic Energy
of Japan, 18 150(1976)
- (9) Takuma, H.; "Some considerations on enrichment factors in
laser isotope separation", J.of Appl.Phys. of Japan,
44 1119(1975)
- (10) Brinkmann, U. et al; "Isotope selective photoionization of
calcium using two step laser excitation", Appl.Phys.,
5 109(1974)