

JAERI-Tech
99-001

JP9950008



電子ビーム加熱蒸発で生成したウラン原子ビームの組成

1999年1月

柴田猛順・小倉浩一

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の問合せは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-1195 茨城県那珂
郡東海村）あて、お申し越しください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター
(〒319-1195 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内) で複写による実費頒布をおこなっ
ております。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Research
Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy
Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1999

編集兼発行 日本原子力研究所

電子ビーム加熱蒸発で生成したウラン原子ビームの組成

日本原子力研究所東海研究所物質科学部

柴田 猛順・小倉 浩一⁺

(1999年1月5日受理)

電子ビーム加熱蒸発で生成したウラン原子ビームの組成測定を質量分析計を用いて行なった。不純物としてUOのみが検出され、その量はウラン原子ビームの1%程度以下と推定された。 U_2^+ ($M=476$) のピークは検出されず、原子ビーム中に U_2 分子やウランクラスターが原子ビーム中に混在していないことがわかった。また、タンゲステンも検出されず、蒸発効率向上のため液体ウラン内に入れたタンゲステンがウランとともに蒸発することは非常に少ないとわかった。これは蒸着ウランの化学分析で、タンゲステンが検出限界以下であることと一致した。

Composition of Uranium Atomic Beam Produced by Electron Beam Heating Evaporation

Takemasa SHIBATA and Koichi OGURA⁺

Department of Materials Science
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received January 5, 1999)

Composition of uranium atomic beam produced by electron beam heating evaporation was measured with a mass spectrometer. Only UO^+ ($M=254$) was detected as impurity. Concentration of UO was estimated to be lower than 1% of Uranium atoms. Since diatomic molecule ions U_2^+ ($M=476$) were not detected, it is considered that the uranium atomic beam does not contain U_2 molecules or uranium clusters. Tungsten ions W^+ ($M=184$) were not either detected. This result shows that tungsten which is put in uranium metal for improvement of evaporation efficiency does not vaporize with uranium atoms. This is consistent with the fact that concentration of tungsten contained in deposited materials of uranium was less than detection limit in chemical analysis.

Keywords : Uranium, Atomic Beam, Composition, Mass Spectroscopy, Electron Beam Evaporation

⁺ Advanced Photon Research Center, Kansai Research Establishment

目 次

1. はじめに	1
2. 質量分析計による原子ビーム組成測定法	1
3. 質量分析測定結果	2
4. 蒸着試料分析結果	2
5. まとめ	3
謝 辞	3
引用文献	4

Contents

1. Introduction	1
2. Measurement Method of Atomic Beam Composition with Mass Spectrometer	1
3. Results of Mass Spectrometry	2
4. Results of Chemical Analysis of Deposited Materials	2
5. Conclusion	3
Acknowledgement	3
References	4

This is a blank page.

1. はじめに

原子法レーザーウラン濃縮^{(1) (2)}では液体ウラン表面を電子ビームで加熱してウラン蒸気を生成する。このときウラン蒸気を大量にしかも安いコストで蒸発させる必要がある。これまでに水冷銅るつぼ内にタンクスチレンを入れてウラン液体の対流熱伝導を抑制すると効率良くウランを蒸発させることができることを示してきた⁽³⁾。しかしながら液体ウラン内にタンクスチレンを入れるとウランの蒸発とともにタンクスチレンも同時に蒸発している可能性がある。蒸気中にタンクスチレンが混在しているかどうか、混在しているときはどれぐらいかを調べるために質量分析計で原子ビームの組成測定を行なった。また蒸着ウランの組成分析を分析センターに依頼した。

またウラン蒸発を強く行なうと蒸発部でウランの分子やクラスターができる可能性がある。原子法レーザーウラン濃縮ではウラン原子のみが同位体分離の対象となるのでウランの分子やクラスターとして蒸発した²³⁵Uは回収されない。このためウランの分子やクラスターができるとウラン濃縮の効率が低下してしまう。ウラン原子ビームの光吸収から原子密度の測定を行なっているが、原子密度は蒸発量にはほぼ比例して増加している⁽⁴⁾ことからウランの分子やクラスターはほとんどできていないと推定している。また、電子ビーム加熱によりガドリニウムを大量に蒸発させたときも、原子密度は蒸発量に比例するので分子やクラスターはできていないと推定している⁽⁵⁾。銅の二原子分子Cu₂は結合エネルギーが大きくCu₂分子ができやすいにもかかわらず、銅を電子ビーム加熱で大量に蒸発させてもCu₂分子が生成されることを質量分析で確かめている⁽⁶⁾。ここでは質量分析計による原子ビームの組成測定ではU₂分子が原子ビーム中に混在していないかどうかについても調べてみた。

2. 質量分析計による原子ビーム組成測定法

図1に実験装置の全体図を示す。原子蒸気発生器の水冷銅るつぼ内には液体ウランの対流熱伝導抑制のため図2に示すように円筒タンクスチレンを入れている。この方法による蒸発は安定しておりしかも繰返して蒸発ができるので、イオン回収実験、ウランの電荷移行断面積の測定、ウラン原子の自動電離準位の大きな同位体シフトの観測^{(7) (8)}など多くの実験で用いてきた。このとき液体ウランの液面より上部にあるタンクスチレンは、るつぼ中心から周囲に向って流れる高温液体ウランに洗われて腐食され液体ウランの中に溶かし出されてしまっている。このためタンクスチレン円筒の上部は常に液体ウランの下にある⁽³⁾。

蒸気組成は真空容器上部に取り付けてある質量分析計で測定した。質量分析計の本体は電子科学(株)製EMD-05型で主な仕様は次のとおりである。

イオン光学系	虚像型2重収束方式 ⁽⁹⁾
質量範囲	M/Z = 1 ~ 500
分解能	500 (スリット 30 μmのとき) 120 (スリット 100 μmのとき)

イオン化方式	電子衝撃型
イオン加速電圧	1200V
偏向磁場	60° 扇形磁場
偏向電場	30° 円筒電場

偏向磁場、偏向電場がある分析計本体はウランで汚染されないようにウラン原子ビームから離した。このためイオン源で生成したイオンを分析計本体に導くため、イオン源と分析計本体の間にAINツェルレンズを取り付けた。蒸気組成を測定するときは同時に水晶振動式膜厚計で蒸着速度を測定した。またイオン回収器の下に置いた荷電粒子除去電極に負電圧を印加して蒸発部から荷電粒子が回収部より上に流れ込むのを防いだ⁽¹⁰⁾。荷電粒子の除去を行なわないとアースに対して1200Vの電位にあるイオン源に蒸発部からの電子が入りこれがイオン化用電子電流を検出する回路に流れる。イオン化用電子電流を一定に制御しているので蒸発部からの電子が流れ込むと本当のイオン化用電子電流は流れなくなり原子ビームのイオン化ができなくなって組成分析が不可能となった。

3. 質量分析測定結果

ウラン原子ビームの質量分析の一例を図3に示す。図3は質量数170～260の質量範囲で100μmのスリット用いている。また図3(b)の感度は(a)の10倍である。 $^{235}\text{U}^+$ は $^{238}\text{U}^+$ の約0.7%で天然同位体比になっている。 $^{235}\text{U}^+$ 、 $^{238}\text{U}^+$ のピーク以外ではM=254のピークがありこれは UO^+ で $^{235}\text{U}^+$ の半分程度の大きさである。 UO^+ と $^{235}\text{U}^+$ のピークの比は実験毎に異なり、図4のように UO^+ のピークが $^{235}\text{U}^+$ のピークよりも大きい場合も観測された。 UO^+ がどれだけ見えてくるかは蒸発試料の脱ガスの程度、真空容器内の真密度などによるものと思われる。ウランと UO の電子によるイオン化効率の比は不明であるが2倍以内と考えられるので UO の量は ^{235}U の量と等しくウラン原子ビームの1%程度以下と推定される。タングステンをウラン液体内に入れているのでタングステンも蒸発していればM=182～186にピークが見えるはずであるが図3のようにノイズより大きいピークはない。ノイズの大きさは $^{235}\text{U}^+$ のピークの1/3ぐらいなのでタンゲステンの原子ビーム全体の0.2%程度以下と推定される。

図5はM=360～500の質量分析の例である。ウラン蒸発部での膨張により U_2 分子やウランクラスターができていれば U_2^+ (M=476)のピークが検出されるはずであるがノイズより大きいピークは見えない。これは U_2 分子やウランクラスターは原子ビーム中に混在していないことを示しており、ウラン原子ビームの光吸収の測定からの推定⁽⁴⁾と一致した。

4. 蒸着試料分析結果

ウラン蒸発試験後、蒸着ウラン試料を採取した。蒸着ウランは厚く蒸着させた場合を除き、通常、真空容器内に空気を導入すると蒸着ウランはその表面から酸化し、粉末や薄片

になって真空容器下部に落ちる。真空容器下部にあったウランの薄片と粉末を採取して分析試料とした。試料の分析は化学部分析センターに依頼して行った。分析結果を表1に示す。

タンクステンについては検出限界の3 ppm以下で全く蒸発していないことが分った。蒸発に用いているウラン金属試料はJRR-3の燃料棒として昭和44年に製造されたものである。この化学分析結果を表2に示す。蒸着試料のCは200~300 ppmであるが、金属ウラン試料内に含まれている400~700 ppmのCからきているものと思われる。Cu、Fe、Cr、Niは金属ウラン試料より蒸着ウラン内に多量に含まれている。特にFe、Cr、Niの量はステンレスの組成比に近い。実験装置内で電極やスリットに銅板やステンレス板を多く使用しているが、これがなんらかの原因で蒸発またはスパッターされて蒸着試料内に入ったものと思われる。しかし、その量は全部で0.1%程度なのでレーザーウラン濃縮に特に悪い影響を与えるとは思えない。蒸着試料内のAl、Co、Mnは金属ウラン試料と同程度含まれているので金属ウラン試料からきたものと思われる。

ウランの粉末と薄片の分析結果を比較すると明らかに粉末試料が多くの金属不純物を含んでいる。薄片は試料採取のとき新しくできていたものであり、試料採取の直前に蒸着したものである。このため蒸発ウラン金属試料内の不純物がかなり減少していたものと思われる。

5. まとめ

電子ビーム加熱蒸発で生成したウラン原子ビームの組成測定を質量分析計を用いて行なったところ、不純物としてUOのみが検出され、その量はウラン原子ビームの1%程度以下と推定された。タンクステンは検出されず、液体ウラン内に対流熱伝導抑制のために入れたタンクステンの蒸発は非常に少ないことがわかった。また U_2^+ (M=476)のピークが検出されなかった。これは U_2 分子やウランクラスターは原子ビーム中に混在していないことを示しており、ウラン原子ビームの光吸収の測定からの推定⁽⁴⁾と一致した。以上の結果から電子ビーム加熱で作ったウラン原子ビームの99%はウラン原子で同位体分離の対象となっていることがわかった。

蒸着ウランの組成分析を行なったが、タンクステンは検出限界の3 ppm以下であった。液体ウラン内に対流熱伝導抑制のために入れたタンクステンがウランの蒸発とともに全く蒸発はしていないことがわかった。これによりタンクステンによる対流熱伝導抑制が有效であることが一層明らかになった。

謝辞

蒸着試料の分析をして頂いた分析センターの磯修一氏(現在、機能性場アクチノイド化学研究グループ)、武石秀世氏(現在、機能性場アクチノイド化学研究グループ)に感謝致します。

なお、本研究は科学技術庁からの受託研究「レーザー法ウラン濃縮技術開発」で得られた成果の一部である。

引用文献

- (1) J. A. Paisner: *Appl. Phys.* B46(1988)253.
- (2) P. T. Greenland: *Contemporary Physics* 31(1990)405.
- (3) 大場弘則、小倉浩一、柴田猛順: JAERI-Tech 投稿予定.
- (4) 大場弘則、雨川和博、柴田猛順: JAERI-Research 98-011(1998).
- (5) A. Nishimura, T. Arisawa, H. Ohba, and T. Shibata: *J. Vac. Sci. Technol.* A11(1993) 1516.
- (6) H. Ohba and T. Shibata: *J. Vac. Sci. Technol.* A16(1998)1247.
- (7) 小倉浩一、柴田猛順: JAERI-Research 98-036(1998).
- (8) K. Ogura and T. Shibata: *Jpn. J. Appl. Phys.* 37(1998)L1403.
- (9) 松田久: 質量分析: 26(1978)287.
- (10) H. Ohba, A. Nishimura, K. Ogura, and T. Shibata: *Rev. Sci. Instrum.* 65(1994)657.

表 1 蒸発したウラン試料の分析結果

単位: C は重量%、他の ppm

定量方法

C : 高周波誘導加熱一クーロメトリ、熱天秤による重量変化

その他: TBP - CHCl₃ 抽出分離 - ICP-AES

試 料	はかりとり量	C*	Al	Co	Cr	Cu	Fe	Mn	Ni	W
粉 末	0.1300g	0.02								
	0.1743g	0.03								
薄 片	0.1810g	0.03								
	0.2895g	0.03								
粉 末	1.0232g	20.3	3.1	72.2	230	565	4.3	46.8	< 3	
	1.0041g	15.1	3.1	66.5	213	461	5.3	57.4	< 3	
薄 片	1.0116g	3.5	2.3	54.0	75.8	278	2.8	27.5	< 3	
	1.0051g	4.6	1.9	50.1	89.0	251	2.7	27.7	< 3	

* 定量値 w/o, 他の ppm

表2 ウラン蒸発に用いたウラン金属試料の分析結果
(JRR-3第2次燃料棒の分析結果で動燃事業団が昭和44年1月に分析した)

新規													(ppm)			全所存係数		備考		
B	Cd	Fe	Mn	Ni	Si	Cr	Co	Al	RE	U	Cu	Li	Mo	Ag	V	Mg				
<0.2	<0.2	<2.0	<2.0	<100	<70	<60	<600	<600	RE	<10	RE	Li	Mo	Ag	V	Mg				
0.1	0.2	80	3	20	20	40	600	5	10	8	5	2	0.04		0.2	1	0.2	1.0	5	0.15
0.1	0.2	80	3	40	60	20	600	5	10	8	5	1	0.04		0.2	1	0.2	1.0	5	0.14
0.1	0.2	80	3	30	20	20	400	5	10	8	3	2	0.04		0.2	1	0.2	1.0	5	0.14
0.1	0.2	80	3	30	20	30	600	5	10	8	3	1	0.04		0.2	1	0.2	1.0	5	0.14
0.1	0.2	90	3	40	20	30	500	5	20	8	5	2	0.04		0.2	1	0.2	1.0	5	0.14
0.1	0.2	80	5	30	20	30	600	5	10	8	3	1	0.04		0.2	1	0.2	1.0	5	0.15
0.1	0.2	120	3	30	30	40	500	5	20	10	5	2	0.04		0.2	1	0.2	1.0	5	0.14
0.1	0.2	80	3	30	20	30	400	5	10	8	6	2	0.04		0.2	1	0.2	1.0	5	0.15
0.1	0.2	80	3	30	40	30	600	5	10	8	3	1	0.04		0.2	1	0.2	1.0	5	0.15
0.1	0.2	80	3	30	20	20	400	5	10	8	5	2	0.04		0.2	1	0.2	1.0	5	0.16
0.1	0.2	120	3	30	30	40	500	5	20	10	5	2	0.04		0.2	1	0.2	1.0	5	0.16
0.1	0.2	80	3	20	20	30	600	5	10	8	3	1	0.04		0.2	1	0.2	1.0	5	0.15
0.1	0.2	90	5	40	20	30	500	5	20	8	5	2	0.04		0.2	1	0.2	1.0	5	0.15
0.1	0.2	50	3	30	20	30	600	5	10	8	3	1	0.04		0.2	1	0.2	1.0	5	0.14

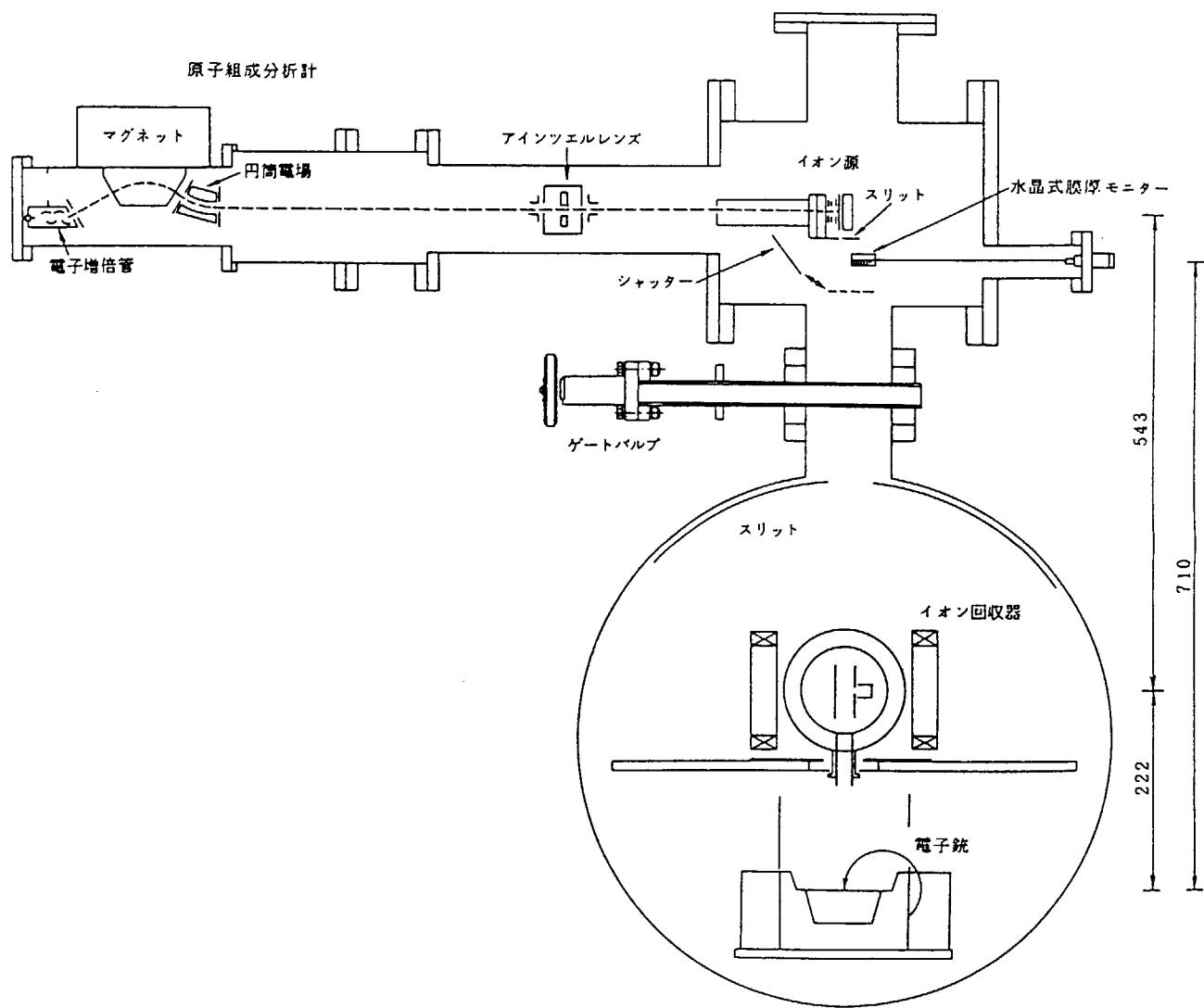


図1 実験装置の全体図

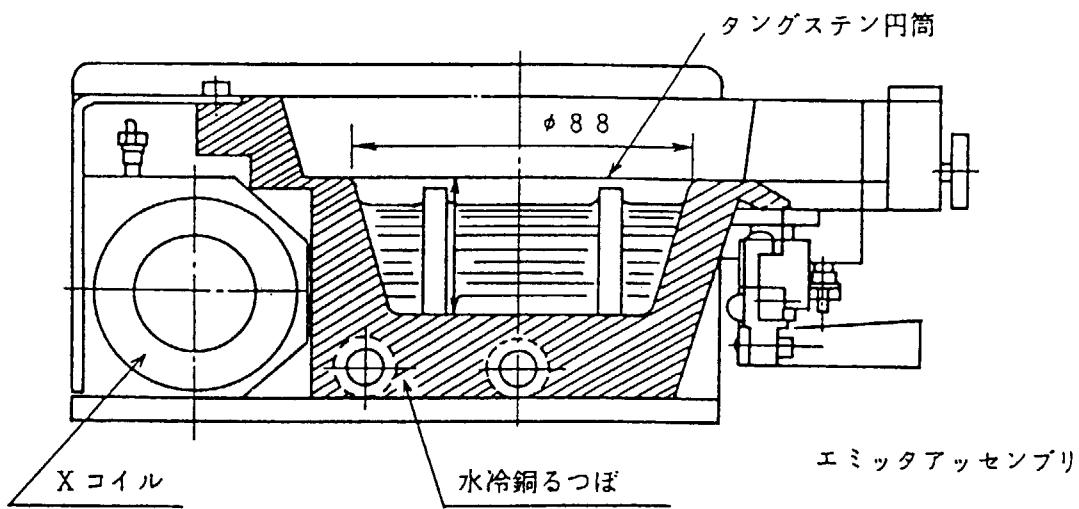


図2 液体ウラン対流熱伝導抑制のため円筒タングステンを入れた電子銃るつぼ

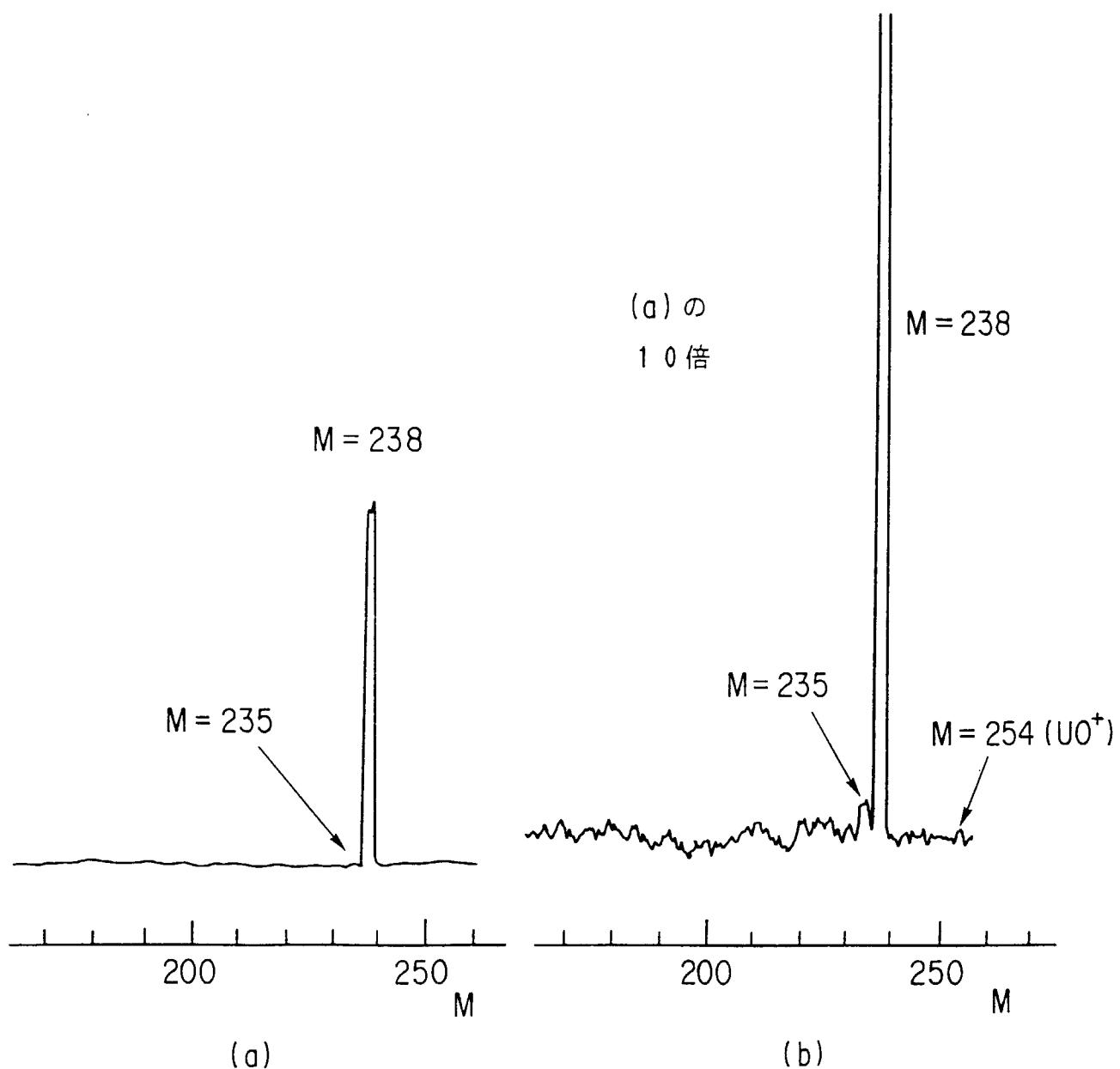


図 3 ウラン原子ビームの質量分析の一例('88.10)
(電子銃入力 10 kW, 蒸着速度 8 Å/s)

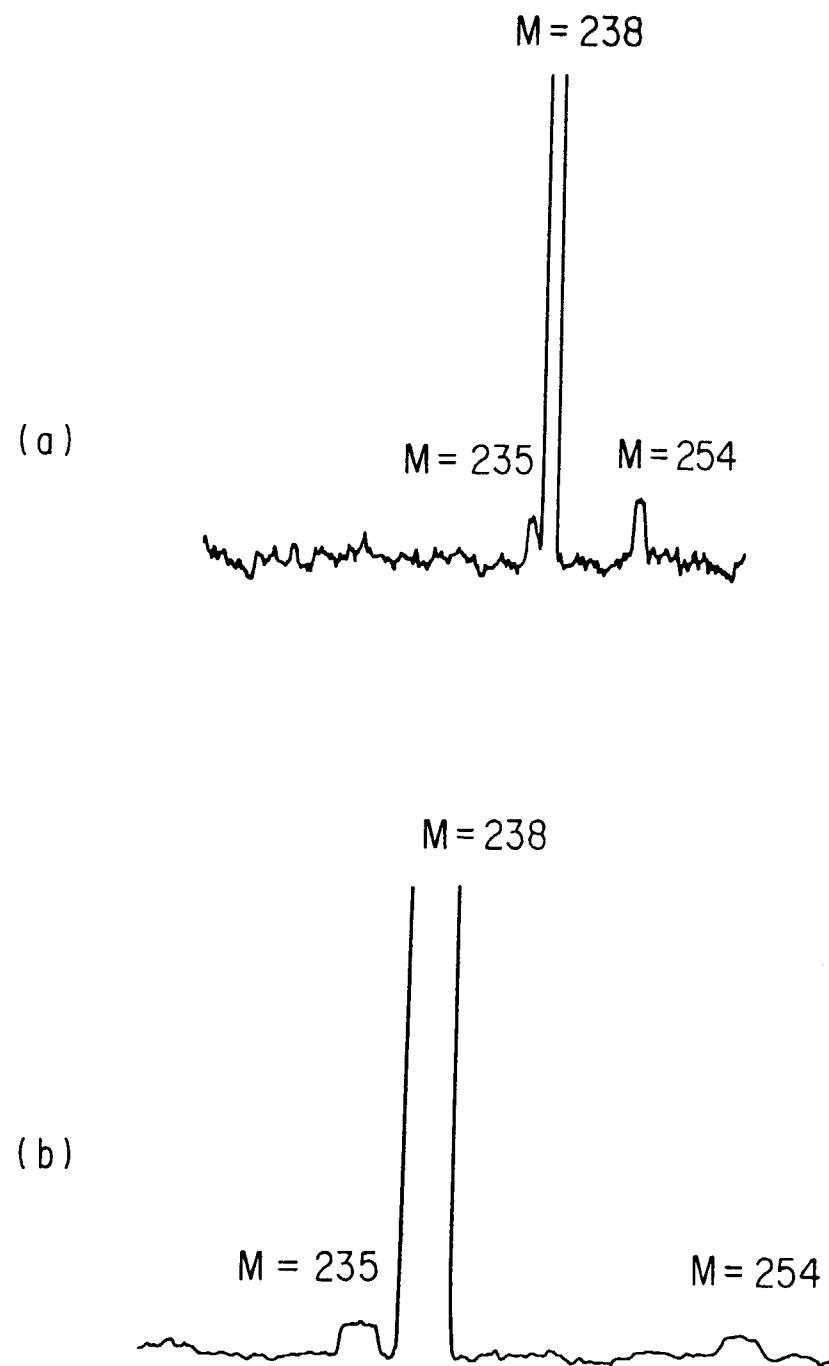


図4 ウラン原子ビーム中の $^{235}\text{U}^+$ ($M = 235$) と $^{238}\text{UO}^+$ ($M = 254$)
 (a) 電子銃入力 7 kW, 蒸着速度 7.5 Å/s ('89.4)
 (b) 電子銃入力 8 kW, 蒸着速度 4 Å/s ('88.7)

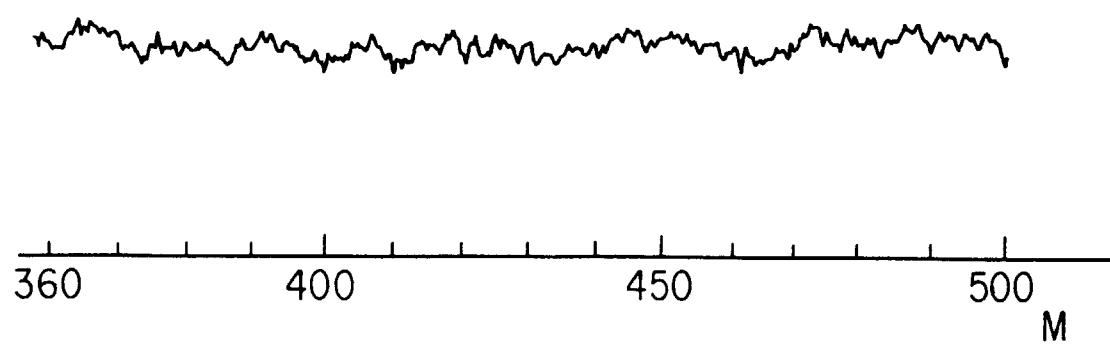


図5 $M = 360 \sim 500$ でのウラン原子ビームの質量分析の一例
(実験条件は図3と同じで電子銃入力 10 kW, 蒸着速度 8 Å/s)

This is a blank page.

国際単位系(SI)と換算表

表1 SI基本単位および補助単位

量	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
平面角	ラジアン	rad
立体角	ステラジアン	sr

表3 固有の名称をもつSI組立単位

量	名称	記号	他のSI単位による表現
周波数	ヘルツ	Hz	s ⁻¹
力	ニュートン	N	m·kg/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·m
工率、放射束	ワット	W	J/s
電気量、電荷	クーロン	C	A·s
電位、電圧、起電力	ボルト	V	W/A
静電容量	ファラード	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジークマンス	S	A/V
磁束	ウェーバ	Wb	V·s
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ²
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A
セルシウス温度	セルシウス度	°C	
光強度	ルーメン	lm	cd·sr
放熱能	ベクレル	Bq	s ⁻¹
吸収線量	グレイ	Gy	J/kg
線量当量	シーベルト	Sv	J/kg

表2 SIと併用される単位

名 称	記 号
分、時、日	min, h, d
度、分、秒	°, ', "
リットル	l, L
トントン	t
電子ボルト	eV
原子質量単位	u

$$1 \text{ eV} = 1.60218 \times 10^{-19} \text{ J}$$

$$1 \text{ u} = 1.66054 \times 10^{-27} \text{ kg}$$

表5 SI接頭語

倍数	接頭語	記号
10 ¹⁸	エクサ	E
10 ¹⁵	ペタ	P
10 ¹²	テラ	T
10 ⁹	ギガ	G
10 ⁶	メガ	M
10 ³	キロ	k
10 ²	ヘクト	h
10 ¹	デカ	da
10 ⁻¹	デシ	d
10 ⁻²	センチ	c
10 ⁻³	ミリ	m
10 ⁻⁶	マイクロ	μ
10 ⁻⁹	ナノ	n
10 ⁻¹²	ピコ	p
10 ⁻¹⁵	フェムト	f
10 ⁻¹⁸	アト	a

(注)

- 表1～5は「国際単位系」第5版、国際度量衡局1985年刊行による。ただし、1eVおよび1uの値はCODATAの1986年推奨値によった。
- 表4には海里、ノット、アール、ヘクタールも含まれているが日常の単位なのでここでは省略した。
- barは、JISでは流体の圧力を表わす場合に限り表2のカテゴリーに分類されている。
- EC閣僚理事会指令ではbar、barnおよび「血圧の単位」mmHgを表2のカテゴリーに入れている。

換算表

力	N(=10 ⁵ dyn)	kgf	lbf
	1	0.101972	0.224809
9.80665		1	2.20462
4.44822		0.453592	1

$$\text{粘度 } 1 \text{ Pa}\cdot\text{s}(\text{N}\cdot\text{s}/\text{m}^2) = 10 \text{ P(ボアズ)} (\text{g}/(\text{cm}\cdot\text{s}))$$

$$\text{動粘度 } 1 \text{ m}^2/\text{s} = 10^4 \text{ St(ストークス)} (\text{cm}^2/\text{s})$$

圧力	MPa(=10 bar)	kgf/cm ²	atm	mmHg(Torr)	lbf/in ² (psi)
	1	10.1972	9.86923	7.50062 × 10 ³	145.038
力	0.0980665	1	0.967841	735.559	14.2233
	0.101325	1.03323	1	760	14.6959
	1.33322 × 10 ⁻⁴	1.35951 × 10 ⁻³	1.31579 × 10 ⁻³	1	1.93368 × 10 ⁻²
	6.89476 × 10 ⁻³	7.03070 × 10 ⁻²	6.80460 × 10 ⁻²	51.7149	1

エネルギー・仕事・熱量	J(=10 ⁷ erg)	kgf·m	kW·h	cal(計量法)	Btu	ft · lbf	eV	1 cal = 4.18605 J(計量法) = 4.184 J(熱化学) = 4.1855 J(15 °C) = 4.1868 J(国際蒸気表)
	1	0.101972	2.77778 × 10 ⁻⁷	0.238889	9.47813 × 10 ⁻⁴	0.737562	6.24150 × 10 ¹⁸	
	9.80665	1	2.72407 × 10 ⁻⁶	2.34270	9.29487 × 10 ⁻³	7.23301	6.12082 × 10 ¹⁹	
	3.6 × 10 ⁶	3.67098 × 10 ⁵	1	8.59999 × 10 ⁵	3412.13	2.65522 × 10 ⁶	2.24694 × 10 ²⁵	
	4.18605	0.426858	1.16279 × 10 ⁻⁶	1	3.96759 × 10 ⁻³	3.08747	2.61272 × 10 ¹⁹	仕事率 1 PS(仏馬力)
	1055.06	107.586	2.93072 × 10 ⁻⁴	252.042	1	778.172	6.58515 × 10 ²¹	= 75 kgf·m/s
	1.35582	0.138255	3.76616 × 10 ⁻⁷	0.323890	1.28506 × 10 ⁻³	1	8.46233 × 10 ¹⁸	= 735.499 W
	1.60218 × 10 ⁻¹⁹	1.63377 × 10 ⁻²⁰	4.45050 × 10 ⁻²⁶	3.82743 × 10 ⁻²⁰	1.51857 × 10 ⁻²²	1.18171 × 10 ⁻¹⁹	1	

放射能	Bq	Ci	吸収線量	Gy	rad	照射線量	C/kg	R	線量当量	Sv	rem
	1	2.70270 × 10 ⁻¹¹		1	100		1	3876		1	100
	3.7 × 10 ¹⁰	1		0.01	1		2.58 × 10 ⁻⁴	1		0.01	1

電子ビーム加熱蒸発で生成したウラン原子ビームの組成