

技 術 説 明 資 料

1 9 9 6 年 6 月

動力炉・核燃料開発事業団
東 海 事 業 所

複製又はこの資料の入手については、下記にお問い合わせ下さい。

〒319-11 茨城県那珂郡東海村大字村松 4 - 33

動力炉・核燃料開発事業団 東海事業所

技術開発推進部 技術管理室

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:
Technology Management Section, Tokai Works, Power Reactor and Nuclear Fuel
Development Corporation 4-33, Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken
319-11, Japan)

© 動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development
Corporation)1996

技術説明資料

和田幸男* 他

要旨

本資料は、先端技術開発室で現在実施している各種研究の内容と成果の概要および計画をまとめたものである。

なお、各研究項目については、各々、投稿論文および社内報告資料として詳細に報告がなされているので、本資料はそれをダイジェスト版的にまとめたものである。

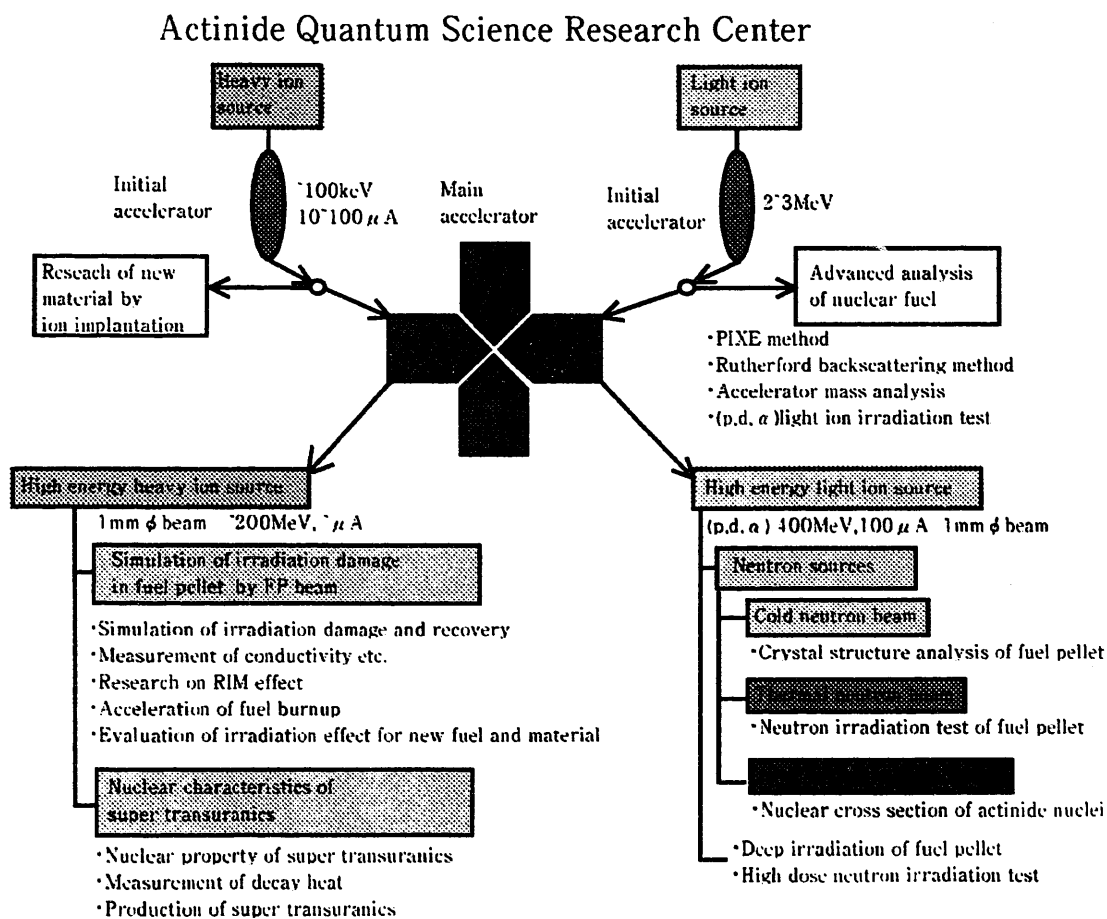
* 先端技術開発室長

アクチニド 量子科学研究センターに関する計画

Plan of Quantum Science Research Center

現在計画されているアクチニド 量子科学研究センターは、21世紀に向けて原子力が科学としても産業としても挑戦するに値する魅力ある分野であることを示す実証の場であります。各種のイオンビームを自由に操作できる施設を建設し、これを核として、アクチニド 研究のCOEをめざすものです。

先端技術開発室



Actinide quantum science research center is now under planning and will supply various ion beams for the research on Actinide science. The center aims to be the nucleus, so-called COE, of actinide research, which gives an opportunity for expanding nuclear science toward 21 century.

Innovative Technology Development Section

消滅処理研究

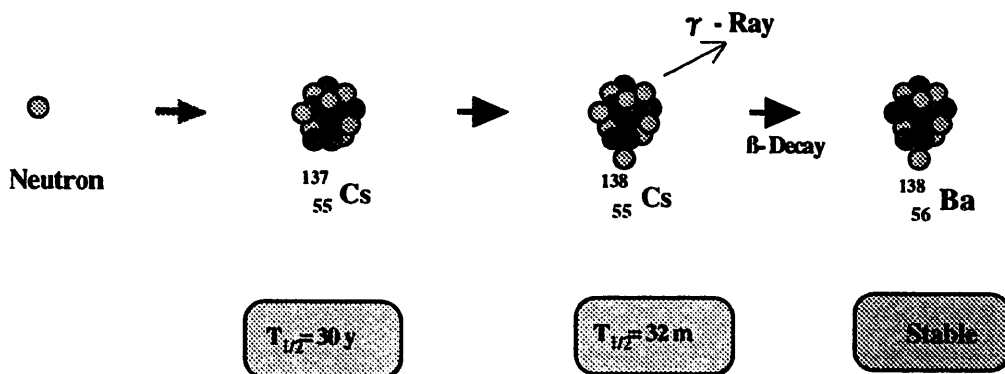
Nuclear Transmutation Research

長寿命高レベル放射性廃棄物を、原子核変換を利用して短寿命核種に変換することを、消滅処理といいます。その一例を下図に示します。消滅処理は現在、軽水炉、高速炉、加速器等を利用することが検討されています。優れた消滅処理方法を検討するために、各々の方法において必要とするエネルギーと時間を評価し、比較する必要があります。この評価において、精度の高い核データ（反応断面積など）が土台となります。当グループでは、核データの精度向上のため、長寿命核分裂生成核種を対象とし、以下の2つの研究を行っています。

- (1) 熱中性子吸収断面積の測定
- (2) 光核反応断面積微細構造の研究

(1) は測定データが古く、また測定が困難であることより、現存の評価値より値が大きく変わる可能性があります。(2) はこれまで見落とされていた反応であり、新たな核データの知見が得られることとなります。

先端技術開発室



An Example of Nuclear Transmutation

Nuclear transmutation is to transmute long-lived nuclides in high level radioactive wastes into short-lived nuclides. An example of transmutation is shown in the above figure. Accelerators, LWRs, FBRs, and etc. are considered as the device of transmutation. In order to investigate a transmutation method, it is necessary to calculate transmutation energy and rate of each methods. In this calculation, nuclear data (such as reaction cross section) in good accuracy establish an indispensable basis. For the purpose of improving the accuracy of nuclear data, following items on long-lived fission product nuclides are being conducted in our group.

- (1) Thermal neutron absorption cross section.
- (2) Fine structure of photonuclear reaction cross section.

Since the measurement of (1) is difficult and the experimental data is old, the existing data have the possibility of containing large error. Therefore, accurate cross section measurements are tried to be made. Concerning (2), the utilization of fine peaks in photonuclear reaction has not yet been examined for nuclear transmutation study. The possibility utilizing the reaction is under investigation.

Innovative Technology Development Section

中性子吸収断面積

Neutron Capture Cross Section

長寿命放射性廃棄物核種の核変換研究のための基礎的な核データを得ることを目的として、対象核種 ^{137}Cs 、 ^{90}Sr 、 ^{99}Tc 、 ^{129}I の熱中性子吸収断面積 (σ_0) 及び共鳴積分 (I_0) の測定実験を行っています。

図1に、一例として、 ^{130}I の崩壊による γ 線スペクトルを示してあります。図2に示すように、 γ 線の減衰を解析する事により半減期の測定も行い、データの信頼性を高めています。表1は、我々が測定した中性子吸収断面積と共鳴積分の測定結果を、他の研究者によって以前に報告されているデータと一緒に示しています。

先端技術開発室

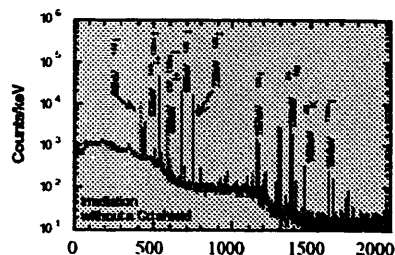


Fig.1 Gamma-ray spectrum from the decay of ^{130}I

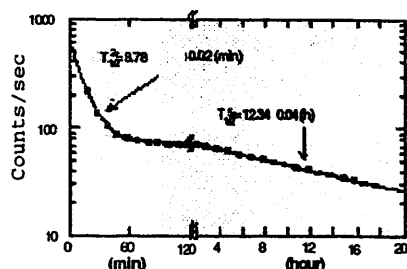


Fig.2 Decay curve of ^{130}I

Table 1 Our results of the neutron capture cross sections and the resonance integrals compared with the previous data

Nuclide	previous data	our results
^{137}Cs	$\sigma_0 = 0.11 \pm 0.03\text{b}$ (Stupegia '60)	$\sigma_0 = 0.25 \pm 0.02\text{b}$ $I_0 = 0.36 \pm 0.07\text{b}$
^{90}Sr	$\sigma_0 = 0.8 \pm 0.5\text{b}$ (Zeisel '66)	$\sigma_0 = 15.3 \pm 1.3\text{mb}$ $I_0 \leq 0.16\text{b}$
^{99}Tc	$\sigma_0 = 20 \pm 2\text{b}$ $I_0 = 186 \pm 16\text{b}$ (Lucas '77)	$\sigma_0 = 22.9 \pm 1.3\text{b}$ $I_0 = 398 \pm 38\text{b}$
^{129}I	$\sigma_0 = 27 \pm 2\text{b}$ $I_0 = 36 \pm 4\text{b}$ (Eastwood '58)	$\sigma_0 = 30.3 \pm 1.2\text{b}$ $I_0 = 33.8 \pm 1.4\text{b}$

To obtain fundamental data for research on the transmutation of nuclear wastes, the thermal neutron capture cross section (σ_0) and the resonance integral (I_0) have been measured for fission products, ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{99}Tc , and ^{129}I .

Figure 1 shows the γ -ray spectrum from the decay of ^{130}I as an example. As shown in Fig.2, the half-life was also determined by analyzing the decay of the γ -ray. Results of the neutron capture cross section and the resonance integral are listed in Table 1 together with the previous data reported.

Innovative Technology Development Section

光核反応微細構造の研究

Fine structure of photonuclear reaction cross section

核分裂生成物の消滅処理方法の一つとして、ガンマ線による光核反応を用いた消滅方法が考えられています。光核反応断面積には、微細構造といわれる吸収ピークが存在することが知られており、この吸収ピークを利用することで、消滅効率が向上します。ところがこれまでの実験手法の制約から、微細構造の真の形はわかっていません。

本研究では、この微細構造を高い精度で求めることを目的とし、大型Ge検出器とBGO検出器からなる高分解能高エネルギーガンマ線スペクトロメータHHSを開発しました。白色ガンマ線をターゲットに入射した際の透過線スペクトルをHHSにより測定することにより、微細構造の測定が可能となります。

先端技術開発室

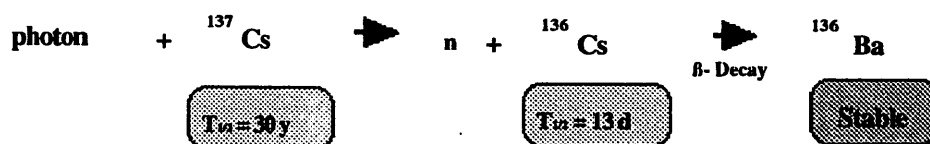


Fig. 1 An Example of Nuclear Transmutation Using Photonuclear Reaction

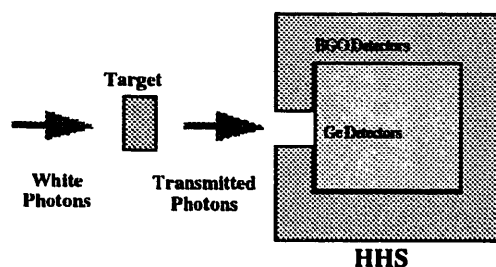


Fig.2 Our Measurement System

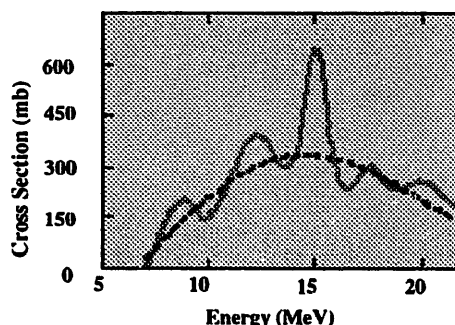


Fig.3 Photonuclear Cross Section
Expected to be Measured (blue line) :
The Existing Data (red line)

Nuclear transmutation using photonuclear reaction is one of the methods to transmute fission products. It is known that there are absorption peaks called 'fine structure' in photonuclear cross section. High transmutation efficiency is achievable by irradiating monochromatic photons at the peak energy. However, the position and the width of the fine structure peak have not been known because of the restriction of the experimental energy resolution.

The purpose of this study is to measure the fine structure in good resolution. In order to measure the fine structure, a high resolution and high energy photon spectrometer HHS was developed whose energy resolution is less than 0.1%. The fine structure is observable by measuring transmitted photon spectrum through target using HHS.

Innovative Technology Development Section

微量同位体分析

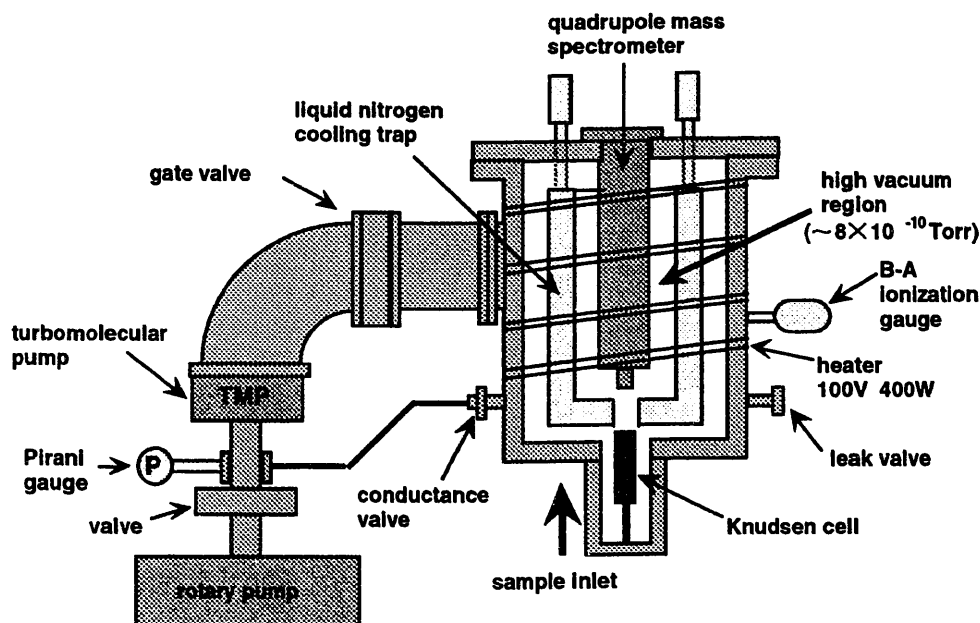
Isotope microanalysis

核反応生成物の分析では、同位体比の測定が、しばしば必要となります。ところが、分析試料が放射性である場合は、分析量が極端に制限されてしまいます。そこで、分析システムを改良することにより微量同位体分析を精度良く行うことができるシステムを開発しています。

これまでに行った我々の分析システムの特徴は、以下の通りです。

- (1) 分子線蒸発源 (Knudsen cell) を用いて試料の加熱温度を調整することにより、目的とする分子を選択してイオン源に導入することができます。
- (2) 分析器の周りに液体窒素冷却トラップを設けることにより、簡単に 10^{-9} Torr オーダーの真空度を達成する事ができ、十分にバックグラウンドを減らすことが可能です。
- (3) 二次電子増倍管の出力を γ 線スペクトロメトリのようにパルス計測することができます。

先端技術開発室



On the analysis of fission products, measurement of the isotopic ratio is important in terms of the treatment of products. However, because of the radioactivity of the analytical sample, its amount is limited. The improvement of the analytical system can make the isotope microanalysis with the high accuracy.

The characteristics of our analytical system are listed as follows:

- (1) By controlling the heat temperature of the sample with the Knudsen cell, the objective molecule can be selected and introduced into the ion chamber.
- (2) By providing the liquid nitrogen cooling trap surrounding the mass filter, the degree of vacuum of 10^{-9} Torr order can be easily obtained, and the background spectrum can be reduced sufficiently.
- (3) The pulse counting such as γ -ray spectrometry is performed by digitalizing the output signals from the electron multiplier.

Innovative Technology Development Section

新炭素系材料研究

New Carbon and Carbonatious Materials

超原子の創造を夢見る人達は、最近発見されたフラーレンという新物質—籠型炭素分子—の生成とその特性評価に大変興味を持っています。材料研究グループでは、電気アーク放電式新材料製造試験装置を使って、このフラーレンの中に金属を閉じ込めた新物質—金属内包フラーレン—を製造しています。金属内包フラーレンでは、金属原子が超原子の原子核の働きをしていて、まさに超原子とすることができます。最近この物質を純粋に取り出す方法が開発され、超原子としてのこの物質の反応性やほかの特性が色々と明らかにされてきています。アクチナイドが内包されると、意外と面白い材料になるかもしれません。

先端技術開発室

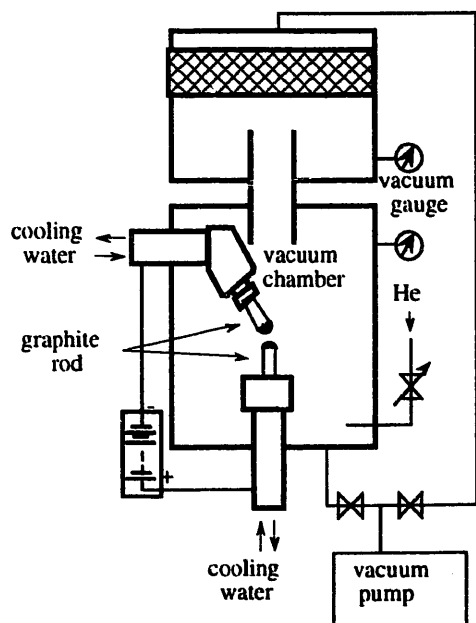
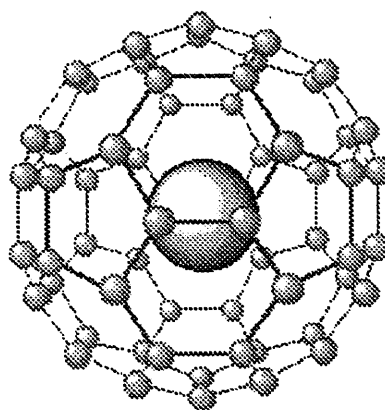


図1 電気アーク放電式新材料製造試験装置



C60 containing Uranium element

図2 ウラン内包フラーレンのモデル

The dream of creating 'superatoms' has lead to renewed interest in the synthesis and characterization of newly discovered carbon-caged materials, fullerenes. Material research group uses an electric arc-discharge apparatus to synthesize endohedral-fullerenes, metal(s) incorporated inside the carbon cage. A metal atom behaves as an atomic nucleus in endohedral metallofullerenes. Recent advances in isolating these endohedral metallofullerenes have greatly increased the opportunities for studying their reactivity and properties. Actinide-encapsulation could give rise to a myriad of novel molecules and materials.

Innovative Technology Development Section

アルカリ金属フラーレン超伝導体に関する研究

Alkali-Fulleride Superconductor

C_{60} フラーレンで構成される結晶構造の隙間にアルカリ金属を入れることにより、転移温度が 30 K を越す超伝導体になることが報告されています (図 1 参照)。しかし C_{60} とアルカリ金属との反応機構が複雑であるので、熱処理過程中の超伝導相に関する研究は従来実施されていませんでした。

そこで私たちは、熱処理過程中の磁化率を測定した結果、 Rb_xC_{60} ($x = 4, 5, 6$) の組成において、30 K (Rb_3C_{60} 相) 以外に、12.5 K においても超伝導転移があることを見い出しました (図 2 参照)。

今後も原子力分野への超伝導技術の応用を目指して研究を進めていきます。

先端技術開発室

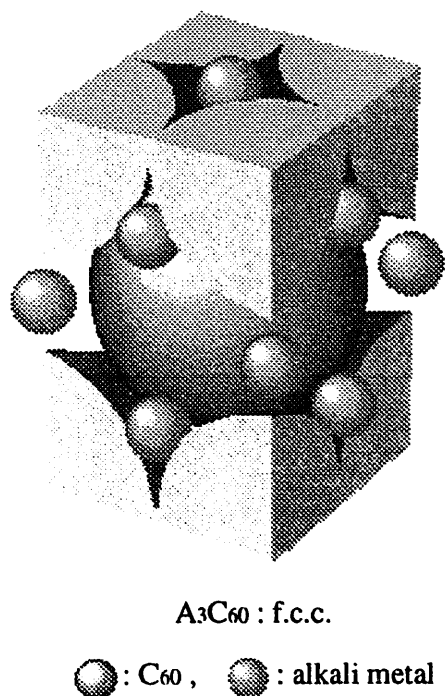


図1 アルカリ金属フラーレン超伝導の構造

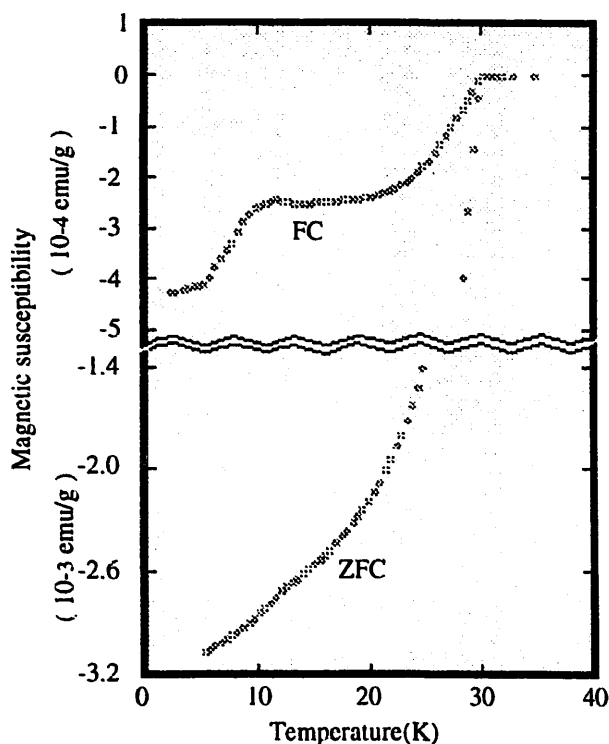


図2 Rb_6C_{60} の磁化率測定結果

The interstitial doping with alkali-metals of crystalline fullerene solids is reported to yielded the superconductor with transition temperature T_c values exceeding 30K.

However, an investigation of the existence of other superconducting phases in A_xC_{60} (A:alkali metal) with heat treatment has not been reported yet, because the kinetics of the reaction of C_{60} with alkali-metal are complex.

It is found by measuring magnetic susceptibility of Rb_xC_{60} ($X=4,5,6$) under heat treatment that for Rb_xC_{60} ($x = 4, 5, 6$), a superconducting transition at 12.5 K appears on prolonged annealing at 400°C , while a clear superconducting transition at 30 K due to the Rb_3C_{60} phase still remained.

We will be pursuing these researches for the purpose of applying the superconducting technology to a nuclear field.

Innovative Technology Development Section

アクチニド 炭化物内包ナノ粒子の合成

Synthesis of Actinide Carbide Encapsulated within Carbon Nanoparticle

私たちは、金属内包ナノ粒子の作製とその特性に関する研究を行っています。金属内包ナノ粒子は、ナノメートルサイズの巨大金属内包フラーレンであり、アーク放電により陰極の堆積物の中に生成しています。最近、私たちは、アクチニド炭化物をナノ粒子の中に内包させることに成功致しました(図1、2)。今後は、このアクチニド炭化物内包ナノ粒子の分離、さらには各種物性を測定することにより、原子力分野への応用を検討していきます。

先端技術開発室

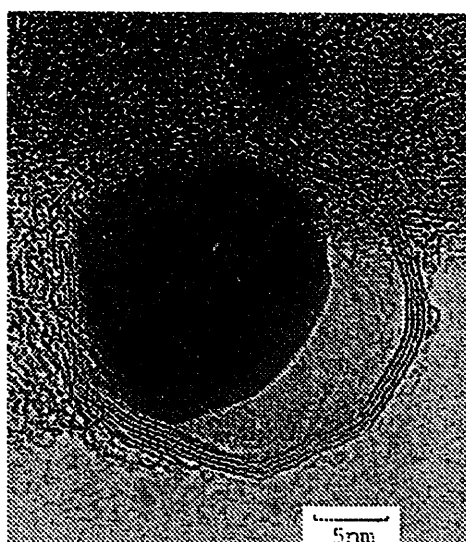


FIG.1. High-resolution TEM image of a carbon particle prepared by evaporating a uranium ore composite anode. A void is also left on the right-hand side of the inner space.

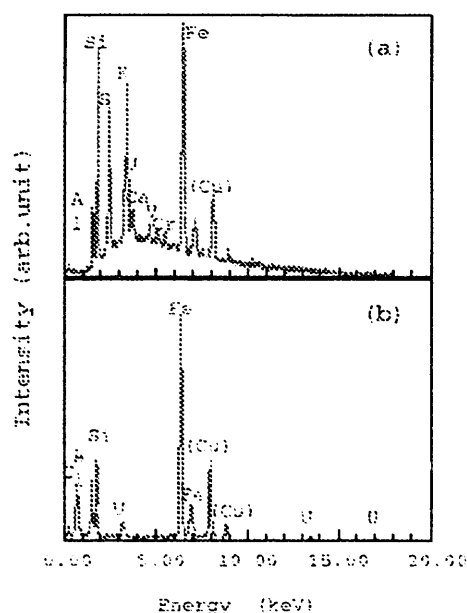


FIG.2. Energy-dispersive X-ray spectra for (a) the uranium ore filled in the composite anode. (b) the core material surrounded by the graphite cage. Peaks of copper are due to the copper grid that supports the specimen.

We have been studying the preparation and characterization of the metal-nanoparticles. The metal-nanoparticles are nanoscale giant metallofullerenes, and are formed in the negative electrode boule that grows in the arc process.

Recently, we have succeeded in the encapsulation of actinide carbide (UC_2 and ThC_2) within the nanoparticles. We will be pursuing the study of isolating the actinide-nanoparticle from the graphite electrode, obtaining the physical properties of these nanoparticles and seeking the way of applying these nanoparticles to the nuclear field.

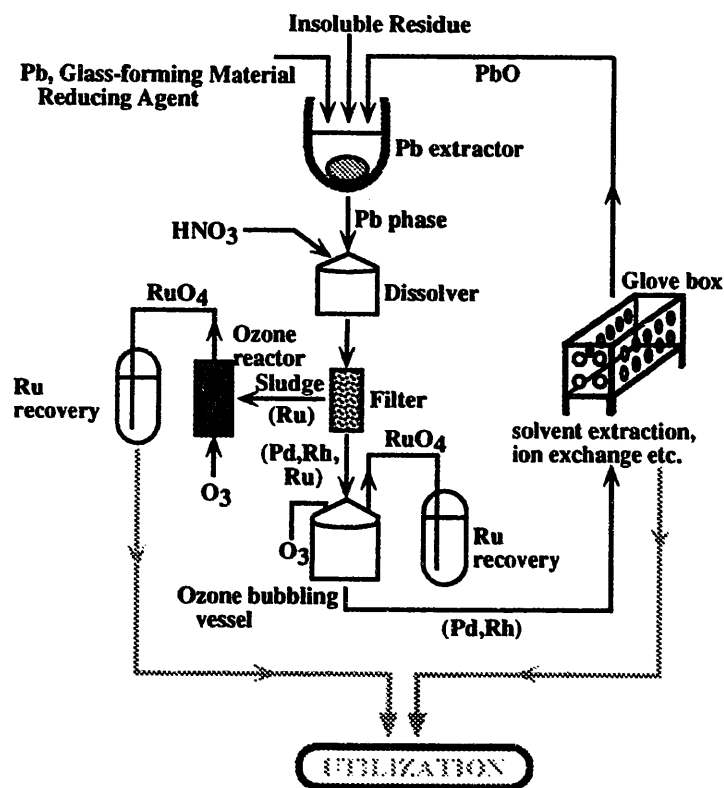
Innovative Technology Development Section

有用金属回収技術開発

Recovery of Valuable Metals from Spent Nuclear Fuel

使用済燃料の再処理溶解工程で分離される高レベル放射性廃棄物を新たな資源として利用するために、その中に含まれる有用元素を回収する技術の開発を実施しています。これまで主として使用済燃料の硝酸溶解工程で生じる不溶解残渣から白金族元素等を回収するための工程について検討を行い、乾式元素分離法の一つである鉛抽出法により白金族元素等が抽出できることを確認しました。また、精製工程についてはオゾン酸化法によるルテニウムの分離・精製及び溶媒抽出法を主体とした湿式分離法によるロジウム／パラジウム相互分離が有効であることを見出しています。下図はこれらの結果より導かれた有用金属回収の概念フローです。

先端技術開発室



有用金属回収概念フロー

Conceptual Flow Sheet for Recovery of
Valuable Metals from Insoluble Residue

Processing steps of the recovery of valuable metals from spent nuclear fuel are studied by means of experiments of lead extraction from high level radioactive waste (HLW) and selective separation of noble metals from simulated waste. Lead extraction is found to be effective to recover valuable metals from the actual insoluble residue in dissolver solution of spent fuel and the calcination of high level liquid waste. As for refining processes of noble metals extracted in lead, selective separation of ruthenium by ozone oxidation method and mutual separation of rhodium and palladium by solvent extraction method are examined. Both methods are found to have high efficiency for refining these three metals. An optimum conceptual flow sheet for recovery of valuable metals from HLW is derived from these experimental studies.

Innovative Technology Development Section

使用済燃料中の白金族元素の分離回収技術開発

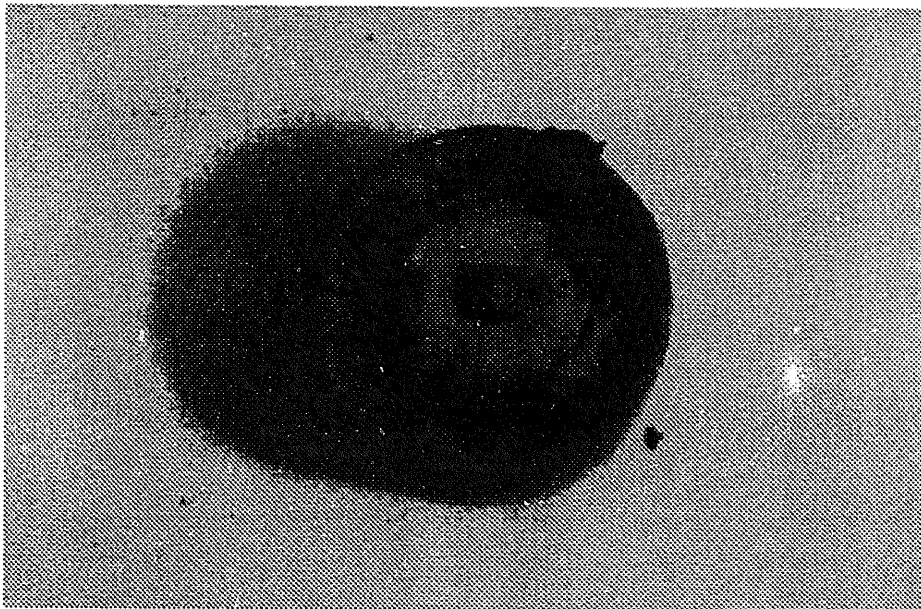
Recovery of Valuable Metals from Spent Nuclear Fuel

使用済燃料を再処理することによって生じる高レベル放射性廃棄物は白金族元素を多く含むことから、このような希少金属の新たな供給源となりうることが期待されます。

動燃では核種分離・消滅処理研究(オメガ計画)での課題のひとつとして本技術開発に取り組んでおり、乾式法及び湿式法を組み合わせた粗分離回収から単離精製に至る一連のプロセスの開発を進めています。

写真は高レベル放射性廃棄物中の不溶解残渣より液体金属を用いる乾式分離法によって回収した白金族元素合金粒です

先端技術開発室



不溶解残渣より回収した白金族合金

Platinum-group Alloy Recovered from Insoluble Residue

Spent nuclear fuels contain significant quantities of valuable metals - the platinum-group metals and technetium. The recovery of the platinum-group metals, palladium, rhodium and ruthenium, leads to a new source of these three metals which have uncertainty in supply because of world's limited producers and are increasing in demand because of the growth of high-technology industry.

PNC began in 1986 to study and has been developing the technologies to recover and utilize three of the platinum-group metals from spent nuclear fuel as a part of the partitioning program of HLW (OMEGA project).

Above photograph shows platinum-group alloy recovered from the actual insoluble residue in HLLW by mean of liquid metal extraction method.

Innovative Technology Development Section

硝酸溶液中のアクチニド 元素の光化学研究

Photochemical Study of Actinide Elements in Nitric Acid Solution

我々は、アクチニド 元素分離技術の効率化、簡素化および廃棄物発生の低減化等を目的とした高度化技術として、光化学技術の研究を実施しています。この研究の当面の課題として、プルトニウム (Pu) とネプツニウム (Np) を、分離または共抽出するのに最適な原子価に光化学的に調整する技術の実験を行いました。またそれらの光化学反応メカニズムについて解析しました。これらの実験データから、水銀ランプの紫外光により光励起された硝酸イオン種、 NO_3^+ 、が強い酸化力を持ち、Pu (III) および Np (V) を各々 Pu (IV, VI) および Np (VI) に、容易に酸化できることを見出しました。また、少量の還元剤及び亜硝酸分解剤を添加した硝酸溶液中で、これらの元素の原子価を、光化学的に分離または共抽出に必要な原子価状態の Pu (IV, VI) - Np (V) または Pu (IV, VI) - Np (VI) (図1) に調整することができました。更に我々は、光励起硝酸が強い溶解能力を持ち、室温でさえも UO_2 の粉末を容易に溶解することをはじめて発見しました (図2)。

先端技術開発室

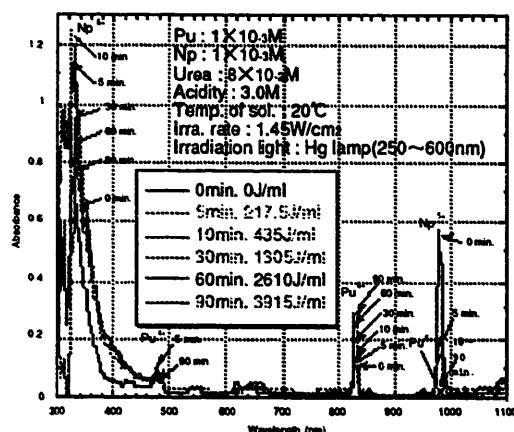


図1 尿素を含むPuとNp混合溶液の光照射時間による吸収スペクトルの変化

Fig.1 Variation in absorption spectra of Pu and Np mixed solution containing urea according to light irradiation time

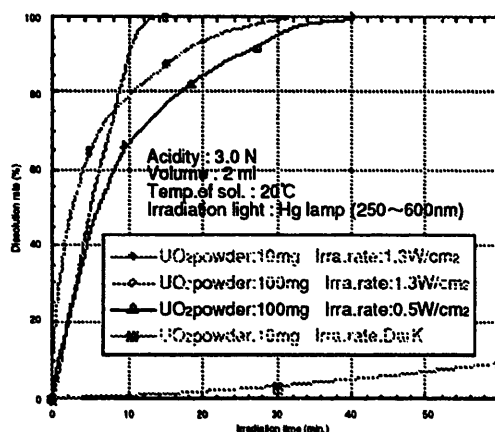


図2 光励起硝酸による UO_2 粉末の溶解曲線の比較

Fig.2 Comparison of dissolution curves of UO_2 powder using photoexcited nitric acid

We have been studying on photochemical technologies as one of high-technologies for the effective and simplified separation of actinide elements and reduction of producing wastes. As the problem before us, the experiments of photochemically adjusting plutonium (Pu) and neptunium (Np) valences for separation or co-extraction were carried out and the mechanism of the photochemical reactions were evaluated. From the experimental data, it was found that photo-excited nitric acid ions, NO_3^+ , by UV light from Hg lamp, have strong oxidative ability and they easily oxidized Pu (III) and Np (V) to Pu (IV, VI) and Np (VI), respectively. Then, we could photochemically adjust Pu and Np valences, in nitric acid solution containing small amounts of reductant and decomposing reagent of HNO_2 , to suitable valence condition for separation or co-extraction, Pu (IV, VI) - Np (V) or Pu (IV, VI) - Np (VI) (Fig.1), respectively. Furthermore, we discovered strong dissolution ability of the photoexcited nitric acid ion for the first time where UO_2 powder was easily dissolved by it even at room temperature (Fig.2).

Innovative Technology Development Section

高勾配磁気分離

High-Gradient Magnetic Separation

私達は、混合コロイド系において超微粒子 (直径 1,000 Å 以下) を連続的に分離する新しい手法として、磁気クロマトグラフィー法を提案しました。同手法は流動分画法に位置づけられます。磁気クロマトグラフィー法は、直径 2 ~ 20 μm の強磁性細線を埋め込んだ、厚さ 5 ~ 50 μm のチャンネル中で複数の粒子の濃度分布に対して流動分画を行うことで分離を行います。超微粒子の分離は、粒子の体積と磁化率の差によって決められます。理論的な解析の結果、直径が 100 ~ 150 Å で磁化率 3.5×10^{-3} の Nd 微粒子の濃度分布が、高勾配磁界中で非常に急速に変化することがわかりました。磁気クロマトグラフィー法の簡単な数値的シミュレーションの結果、一般的な高勾配磁気分離法では扱うことのできなかった、磁化率の非常に小さい常磁性物質 (例えば、Nd や Pu) の分離の可能性が示されました。今後は、シミュレーション結果の検証のための基礎試験を行う予定です。

先端技術開発室

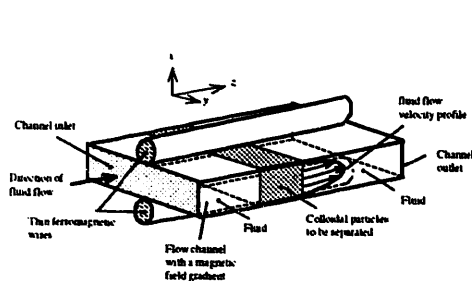


図1 磁気クロマトグラフィー原理図

Fig.1 The principle of magnetic chromatography

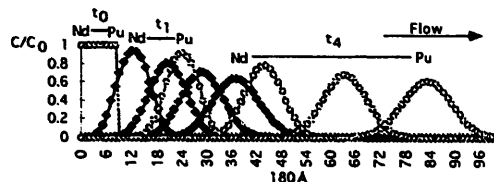
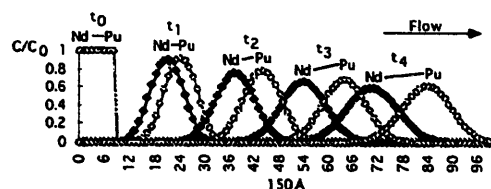


図2 磁気クロマトグラフィーシミュレーション結果

Fig.2 Simulation results for the magnetic chromatography process using nuclear fuel reprocessing.

We have proposed magnetic chromatography : a new technique for continuous separation of ultrafine particle (i.e. $< 1,000 \text{ Å}$ diameter). This technique is using field flow fractionation, and the separation results from differences in the magnetic susceptibility and volume of the ultrafine particles. Magnetic chromatography is done by applying flow fractionation to the concentration distribution in a channel from 5 to 50 μm thick and using embedded ferromagnetic wires from 2 to 20 μm in diameter. Theoretical analysis shows that high-gradient magnetic fields generate very steep distribution of the concentration of Nd fine particles that have a susceptibility 3.5×10^{-3} and a diameter of about 100 to 150 Å. A simplified numerical simulation of magnetic chromatography technique suggests the potential of separating very weak paramagnetic materials (e.g., Pu and Nd) which we have not been able to deal with through the conventional high-gradient magnetic separation techniques.

Innovative Technology Development Section

計算化学

Computational Chemistry

私は、量子化学的手法を用いてアクチニド系化合物の解析を行っています。具体的には、DV-X α 分子軌道法をもとに、アクチニド元素を含む化合物の分子軌道を計算し、それをもとに分子の電子状態や化合物としての特徴等の解析を行っています。一般に物質のミクロな構造や物性・機能そして変化などのほとんどが物質中の電子状態及びその安定性や変化に由来していますので、分子軌道法の適用範囲は非常に広いと考えられます。アクチニド元素のような、重い原子を含む化合物には、相対論的效果が大きく影響します。相対論的效果は結合の強さや電子状態などに影響し、このことが通常の化合物に比べてアクチニド化合物の計算や解析を非常に困難にしています。さらに、量子化学的にみるとアクチニド元素では5f電子軌道に特有な挙動があり、これがランタニド元素との大きな違いとなって現れています。このような点を考慮し、これまで動燃事業団で蓄積されたアクチニド元素の再処理技術及び核燃料製造技術の経験を生かし、それらとDV-X α 法の計算結果を相補的に使用することによって、量子化学的計算手法の高度化を進めています。

先端技術開発室

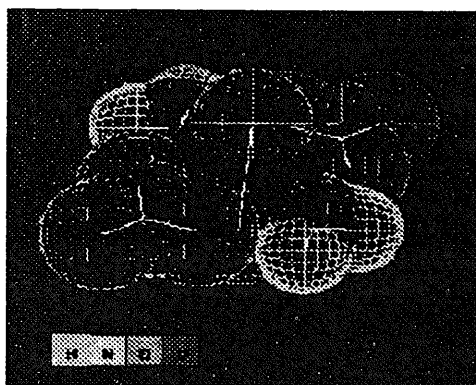


図1 $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2(\text{H}_2\text{O})_2$ の構造図
Fig.1 Structure of $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2(\text{H}_2\text{O})_2$.

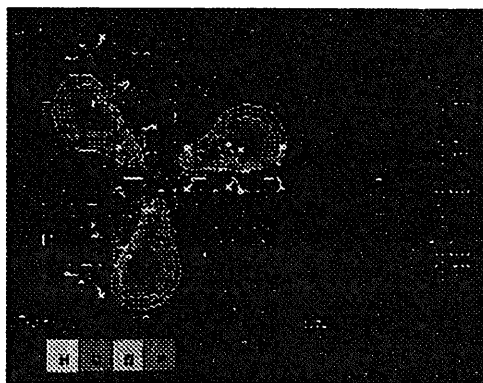


図2 TBP の最高被占軌道
Fig.2 Highest Occupied Molecular Orbital of TBP.

Now, we are investigating electronic structures and chemical bonding of actinide compounds using discrete variational (DV)X α molecular orbital calculations. Generally, it is considered that most of the microscopic structures, functions and changes of materials are due to their electrical states. Therefore molecular orbital methods can be widely applied to all industrial fields. When molecules are composed of heavy atoms such as actinides, relativistic effects are remarkable in electronic structure and chemical bonding. From the viewpoint of quantum chemistry, the significant difference in electronic structure between lanthanide elements and actinide elements is derived from the behavior of 5f-orbital. Taking full advantage of the techniques of reprocessing and producing of nuclear fuel developed in PNC, we have studied the advanced computational method in electronic structures and chemical bonding of actinide compounds, and the properties of actinide compounds using both calculations and experiments.

Innovative Technology Development Section

軽元素同位体分離回収技術の開発

Separation and recovery of light isotope elements

我々は、レーザ応用技術として ^{14}C -放射性同位元素の回収や将来の ^{15}N -窒化物燃料のために軽元素同位体(炭素、窒素など)を対象に分離回収技術の開発を実施しています。レーザによる同位体分離法の特徴は、本質的に高い分離効率が得られることにあり、分離技術の高度化を図れる方法として期待されています。

炭素同位体分離研究に関しては、TEA- CO_2 レーザを使用し作業物質にフロン22を用いて ^{14}C の分離を目的とした実証基礎試験を行いました。その結果、最高で分離係数1700、解離率1.5%を得ました。

窒素同位体分離研究に関しては、 ^{15}N を目的とした分離基礎試験を行っています。現在、 ^{15}N を分離するために高効率なCW- CO_2 レーザを用いた方法の基礎試験を実施しています。これは、アンモニアガスを作業物質に使用し、振動励起による輸送断面積の違いを利用したレーザドリフト法です。

先端技術開発室

表1 解離率および分離係数一覧
(照射フルエンス $3\text{J}/\text{cm}^2$ 初期 ^{14}C フロン22濃度5%)

Table.1 Decomposition rate and separation coefficient

照射レーザ ライン	セル対入圧力 (Torr)	解離率(%) (shot)	分離係数
9P10	38	6.30×10^{-4}	0.532
9P20	77.8	1.48×10^{-4}	311
9P30	78.5	6.91×10^{-5}	417
9P36	69.3	3.86×10^{-5}	1673

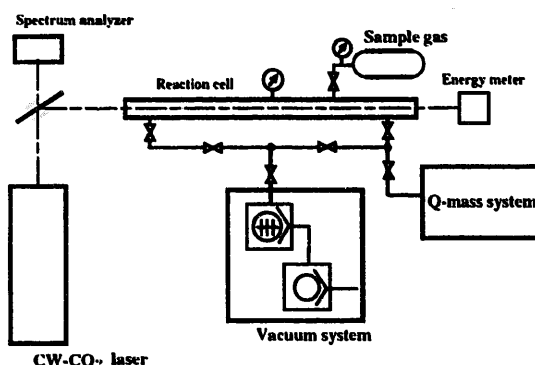


図1 レーザドリフト法試験装置図

Fig.1 Experimental arrangement of light-induced drift

We have been studying on isotopic separation and recovery technologies of light elements (for example, carbon and nitrogen) with use of a laser for the recovery of ^{14}C -radioactive isotope and for future nuclear fuel of ^{15}N -nitrogen compound. The laser isotope separation has the potential of high separation efficiency, and this method is expected to advance in separation technology.

With respect to carbon element, we have experiments on isotope separation using Fron22 doped with ^{14}C by irradiation of the TEA- CO_2 laser. The maximum value of separation coefficient and decomposition rate were obtained to be 1700 and 1.5% were obtained, respectively.

With respect to nitrogen element, the basic experiments for separating ^{15}N isotope are carrying out by the light-induced drift (LID) method of the CW- CO_2 laser using ammonia molecules as a functional material. This LID was induced as a result of the variation in the transport cross section after excitation of the vibrational states by absorbing laser.

Innovative Technology Development Section

自由電子レーザー (Free Electron Laser : FEL) 用 高性能光学素子の研究開発

High Performance Optics for FEL

原子力用の新しい高出力波長可変レーザーとして、FEL 研究開発がクロスオーバー研究の一環として実施されています。動燃もこの研究に参加していて、担当は、FEL 実用化に必要な高性能光学素子です。現状で一般的に用いられている膜材料および製膜法では、FEL で使用できる光学系を製作することは不可能です。このために以下の研究開発を行っています。

(1) 新しい膜材である短波長用硬質炭素膜の生成

イオン化蒸着法で光学用の硬質炭素膜の生成し、以下のような結果を得ています。

(a) 厚さ約 100nm、屈折率 1.92 ~ 1.95 の膜を、種々の基板 (SiO_2 , CaF_2 e.t.c.) に生成できました。

(b) SiO_2 上生成した膜の光破壊強度を測定し、 $1 \sim 2 \text{ J/cm}^2$ の強度があることを確認しました。

(2) 新しい製膜法であるイオンスパッタ法、気相化学反応法の研究開発

光学膜製造法で、現状で最も良い膜を生成できる IBS 法について研究開発を行います。また、優れた膜材であるフッ化物の膜を生成するために気相化学反応法について研究開発を行います。

先端技術開発室

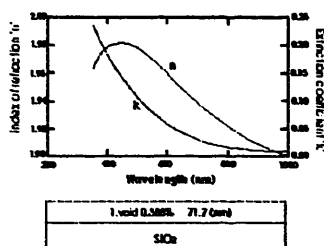


Fig.1 硬質炭素膜の特性
Fig.1 Characteristic of DLC film

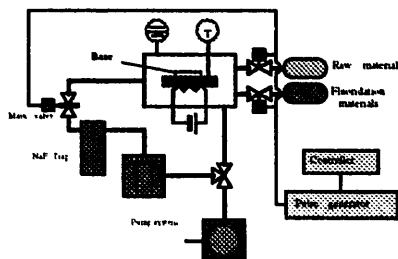


Fig.2 化学反応生成装置
Fig.2 System for producing fluoride thin film

The new high power and variable wavelength laser, FEL has been expected to be applied in the field of nuclear power, studied as a part of Cross-Over Research on Underlying Technology of Nuclear Power. PNC takes part in this study, and takes charge of R&D in the high performance optics for FEL. No optics is available now for practical use. It is impossible to produce the optics for FEL using the standard methods and materials. Therefore, we are carrying out following R&D.

(1) Creation of Diamond Like Carbon(DLC) film as new film for short wavelength

Experiments of the creation of DLC film was carried out using ion-deposition method. Then, following results was obtained.

(a) The DLC film, thickness: 100nm and index: 1.92 - 1.95, was created on various substrates (SiO_2 , CaF_2 e.t.c.).

(b) The damage threshold of DLC film created on SiO_2 substrate was $1 \sim 2 \text{ J/cm}^2$.

(2) R&D of new method for thin film production: ion beam sputtering (IBS) method and chemical vapor deposition (CVD) method

The IBS is possible to produce the lowest loss thin film among industrial method of producing optical thin film. And, the CVD can produce fluoride thin film which has superior optical characteristic. It is difficult to produce using IBS.

Innovative Technology Development Section

フーリエ変換式イオンサイクロトロン 共鳴型質量分析装置

Fourier Transform Ion Cycrotron Resonance Mass Spectrometer

フーリエ変換式イオンサイクロトロン共鳴型質量分析法とは、イオンの質量電荷比 (m/e) を、実験的に測定可能な静磁場中のイオンサイクロトロン軌道周波数 (ν) に変換して、効果的に測定を行う手法です。この手法は超高分解能を基本性能として有しており、正確で精密な分析が可能な質量分析法として知られています。例えば、 N_2^+ を 28.006 a.m.u. (原子質量単位)、 CO^+ を 27.994 a.m.u. と測定するように、イオンの質量を正確かつ精密に測定できるならば、イオンの化学式はその質量数のみから直接決めることができます。そのためこの装置は、先端技術開発室の材料研究開発活動を支える必要不可欠な装置のひとつとなっています。また、気相イオンの性質と反応性の研究などにも広く応用が可能です。

先端技術開発室

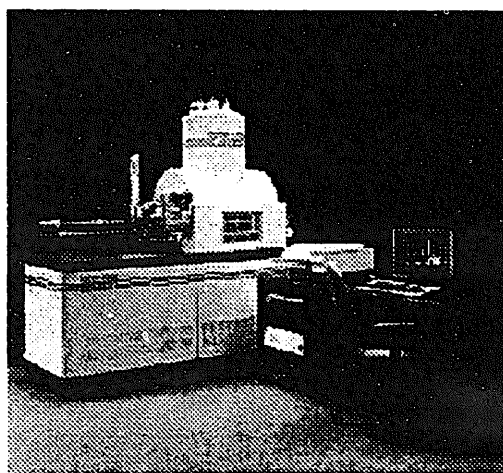


図1 イオンサイクロトロン共鳴型質量分析装置

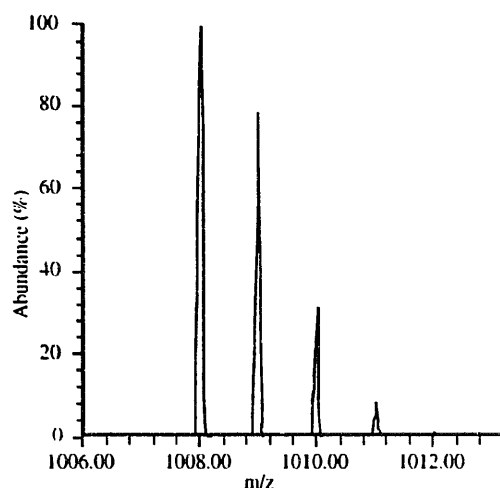


図2 C_{81} 分子の質量分析結果

Fourier transform ion cyclotron resonance mass spectrometry (FT-ICRMS) is a technique that effectively converts ionic mass-to-charge ratio, m/e , to an experimentally measurable ion cyclotron orbital frequency in a static magnetic field. FT-ICRMS offers potentially ultrahigh mass measurement accuracy as well as precision. If the mass is measured accurately and precisely: for example, N_2^+ at 28.006 a.m.u. versus CO^+ at 27.994 a.m.u., the chemical formula of an ion may be determined directly from its mass alone. Therefore FT-ICRMS is one of the indispensable tools that support our material research activity. It is also applicable to connect the gas-phase properties and reactivity of ions.

Innovative Technology Development Section