

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第4150722号

(P4150722)

(45) 発行日 平成20年9月17日(2008.9.17)

(24) 登録日 平成20年7月4日(2008.7.4)

(51) Int.Cl.	F I
B O 1 D 59/34 (2006.01)	B O 1 D 59/34 B
C O 1 G 15/00 (2006.01)	C O 1 G 15/00 C
H O 1 S 3/00 (2006.01)	H O 1 S 3/00 Z

請求項の数 10 (全 9 頁)

(21) 出願番号	特願2004-524333 (P2004-524333)	(73) 特許権者	505031624
(86) (22) 出願日	平成14年9月18日(2002.9.18)		コリア アトミック エナジー リサー
(65) 公表番号	特表2005-534472 (P2005-534472A)		チ インステチュート
(43) 公表日	平成17年11月17日(2005.11.17)		大韓民国ダエジェオン305-353 ユ
(86) 国際出願番号	PCT/KR2002/001749		スングーグ、ツクジンードング150
(87) 国際公開番号	W02004/011129	(73) 特許権者	504369443
(87) 国際公開日	平成16年2月5日(2004.2.5)		コリア ハイδρο アンド メクリア パ
審査請求日	平成17年2月9日(2005.2.9)		ワー カンパニイ リミテッド
(31) 優先権主張番号	2002/44828		大韓民国、ソウル、カンナムーグ、サム
(32) 優先日	平成14年7月30日(2002.7.30)		スングードング167
(33) 優先権主張国	韓国 (KR)	(74) 代理人	100086128
			弁理士 小林 正明

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 タリウムの同位体分離方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

同位体を含む複数のタリウム同位体を含むアトミックベーパー中でタリウム同位体を、下記工程により分離する方法、

- 周波数が約378nmである第1周波数の光子をレーザー系により製造し、
- 周波数が約292nmである第2周波数の光子をレーザー系により製造し、
- 周波数が700nmから1400nmの範囲にある第3周波数の光子をレーザー系により製造し、
- 第1、第2及び第3周波数の光子をタリウム蒸気照射し、ここで該第1周波数の光子は、同位体選択的に、複数の基底状態タリウム原子を励起状態を経て準安定状態にポンプし、そして該第2周波数の光子は複数の準安定状態タリウム原子を中間状態、共鳴(resonant)状態に励起し、そして該第3周波数の光子は中間、共鳴状態にある複数の原子をコンティニウム(continuum)状態を経てイオン化し、そして
- 該同位体イオンを収集する。

【請求項2】

第1周波数の光子が、1個以上の連続(continuous)波長レーザーにより製造される請求項1記載の方法。

【請求項3】

該ポンピングが、第1周波数の光子を照射して、光学的にかつ同位体選択的に、基底状態にあるタリウム同位体を基底状態から基底状態のゼロエネルギーに対し26477.6cm

10

20

$^{-1}$ のエネルギーにある第1の励起状態を経て、基底状態のゼロエネルギーに対し7793 cm^{-1} のエネルギーで準安定状態にポンプすることからなる請求項1記載の方法。

【請求項4】

第2周波数の光子が、1個以上のパルス型レーザーにより生産される請求項1記載の方法。

【請求項5】

第2周波数の光子により中間、共鳴状態に励起する工程が、準安定状態にあるタリウム原子を、基底状態のゼロエネルギーに対し42049.0 cm^{-1} のエネルギーで第2励起状態に励起することにより行われる請求項1又は4記載の方法。

【請求項6】

第2周波数の光子により中間、共鳴状態に励起する工程が、準安定状態にあるタリウム原子を基底状態のゼロエネルギーに対し42011.4 cm^{-1} のエネルギーで第2励起状態に励起しておこなわれる請求項1又は4記載の方法。

【請求項7】

第3周波数の光子が、1個以上のパルス型レーザーにより製造される請求項1記載の方法。

【請求項8】

第3周波数の光子によるイオン化が、第3周波数の光子を42049.0 cm^{-1} のエネルギーで第2励起状態にあるイオン化する原子に照射して、基底状態のゼロエネルギーに対し49266.7 cm^{-1} ～55000 cm^{-1} のエネルギー範囲でコンティニューム状態にすることからなる請求項1記載の方法。

【請求項9】

第3周波数の光子によるイオン化が、第3周波数の光子を42011.4 cm^{-1} のエネルギーにある第2励起状態のイオン化する原子に照射し、基底状態のゼロエネルギーに対し49266.7 cm^{-1} ～55000 cm^{-1} のエネルギー範囲でコンティニューム状態にすることからなる請求項1記載の方法。

【請求項10】

同位体イオンを収集する工程が、該蒸気に電場を掛けることからなる請求項1記載の方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明はタリウムの同位体分離方法に関する。さらに詳しくは、レーザービームを使用したタリウムのレーザー同位体分離方法に関する。

【背景技術】

【0002】

自然界においては、タリウムは2種の同位体即ち ^{203}Tl (29.5%)及び ^{205}Tl (70.5%)を含んでいる。 ^{203}Tl は ^{201}Tl 放射性同位体製造用試料として使用される。 ^{201}Tl はサイクロトロン中で、濃縮(enriched) ^{203}Tl ターゲットに19-31 MeVプロトンビームを照射して $^{203}\text{Tl}(p,3n)^{201}\text{Tl}$ 反応により製造される。 $^{201}\text{TlCl}$ は心臓病及び腫瘍を診断するためのSPECT(single photon emission computerized tomography)用の放射性医薬品である。

【0003】

電磁的方法は、タリウム同位体を分離するための唯一の商品化された方法である。原理的には、その技術は単純である。磁極間を通過するときに、特定の屈曲半径により特徴付けられる各同位体のモーメントに従って、自然に発生するタリウムイオンのモノエネルギービームは2つの流れに分裂する。半円形軌道の端部にある捕集カップは、同種の流れをキャッチする。電磁的分離は分離技術の基礎として経験の多い最も用途の多い技術である。しかしながら、処理量が少なく、操作費用も高い。

【0004】

10

20

30

40

50

原子の同位体選択性光イオン化を使用するレーザー同位体分離 (L I S) 技術は電磁的方法の欠点を克服する方法であると言われてきた。この技術は水銀、ガドリニウム及び他の元素を含む多くの元素で立証されてきた。特許文献 1、2、3 及び 4 は、それぞれ水銀 (Hg)、ガドリニウム (Gd)、ジルコニウム (Zr) 及びエルビウム (Er) 元素のレーザー同位体分離に関する。特許文献 5 は特許文献 1 のそれとは異なる新しい光イオン化とは異なる通路 (pathway) を示唆している。

【0005】

ある種の元素の L I S が実施可能であるか否かの決定は、光イオン化の通路、関係するレーザー、及びアトミックベーパー (atomic vapor) を含む種々の要素の詳細な考慮を必要とする。L I S 適用の評価のためには、同位体シフト、超微細な構造、レベルエネルギー、各レベルでの角モーメント、レベル寿命等の知識が必要である。L I S が技術的に実施可能である場合には、他の技術に対するこの技術のコスト競合性を考慮した経済的評価が実施される。それには、元素の物理的、化学的特性の知識、必要なレーザー出力、同位体選択性及び光イオン化プロセスでのイオン化効率の知識が必要である。

【0006】

タリウムは利用可能な自動イオン化 (autoionization) レベルを有さず、タリウムエネルギーレベルの同位体シフトは、他の元素に比して比較的小さい。それ故、自動イオン化レベルを介したタリウムの光イオン化は可能ではなく、又同位体選択性は、特許文献 1 及び 4 で適用されたような通常の徐々の光イオン化プロセス用には非常に小さい。さらに、特許文献 2 で適用された角モーメント選択基準を使用してタリウム同位体を分離することは可能ではないようである。 ^{203}Tl 及び ^{201}Tl 核磁気モーメントは同じであるからである。

【0007】

特許文献 6 は同位体選択励起及びタリウム同位体分離用の電界イオン化方法を採用している。この方法は、特許文献 7 に ^{210}Pb の鉛同位体からの除去用として開示されている。この特許では、基底状態でのタリウム原子を同位体選択的に、377.6nm 及び 443.7nm 波長の 2 種のレーザーにより、約 $49,000\text{ cm}^{-1}$ のエネルギーでリユードベリ状態に励起され、そして外部電場により電界イオン化される。励起プロセス中、約 1 GHz のデチューニングを $26,4771\text{ cm}^{-1}$ のエネルギーレベルでレーザー周波数と中間レベルの間で行った。これは 2-カラー 2-光子励起プロセスである。2-光子励起プロセスにより高励起効率と共に高同位体選択性を得るためには、レーザーはフーリエ変換-限定帯域幅であるべきであり、またカウンタープロパゲート (counter-propagate) すべきである。中間レベルからデチューニングすることにより生ずるシュタルクシフトは、2-光子励起効率を減少させる。これを避けるためには、レーザー出力及び周波数を π パルス条件により微細に制御し、且つ又レーザーパルスを正確にオーバーラップすべきである。メディアム (medium) 中での全てのなカウンタープロパゲーション中、レーザーパルスをオーバーラップすることは実際上不可能であり、励起効率の低下は避けられない。さらに、タリウム同位体を大量生産する際に、初期に製造されたプラズマは外部電界を遮蔽し、その結果電界イオン化効率は減少する。これらの理由で、特許文献 6 は技術的に実施可能としているけれども、この方法を商業的に実施可能とするためには克服すべきいくつかの障害が残っている。

【0008】

【特許文献 1】 米国特許明細書 4、793、307 号 (1988)

【特許文献 2】 米国特許明細書 5、202、005 号 (1993)

【特許文献 3】 米国特許明細書 5、376、246 号 (1994)

【特許文献 4】 米国特許明細書 5、443、702 号 (1995)

【特許文献 5】 日本特許公開公報 1999-99320A 号

【特許文献 6】 日本特許公開公報 2000-262866A 号

【特許文献 7】 米国特許明細書 5、945、649 号

【発明の開示】

10

20

30

40

50

【発明が解決しようとする課題】

【0009】

本発明の目的は、上記した問題を解決し、且つ又改良された実的なタリウム同位体分離方法を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

【0010】

本発明によれば、同位体を含む複数のタリウム同位体を含有するアトミックベーパー中でタリウム同位体を分離する方法が提供される。この分離方法は下記工程からなる。

- (a) 周波数が約 378 nm である第 1 周波数の光子をレーザー系により製造し、
- (b) 周波数が約 292 nm である第 2 周波数の光子をレーザー系により製造し、
- (c) 周波数が 700 nm から 1400 nm の範囲にある第 3 周波数の光子をレーザー系により製造し、
- (d) 第 1、第 2 及び第 3 周波数の光子をタリウムベーパーに照射し、ここで第 1 周波数の光子は同位体選択的に複数の基底状態タリウム原子を、励起状態を経て準安定状態にポンプ (pump) し、そして第 2 周波数の光子は複数の準安定状態のタリウム原子を中間状態、共鳴 (resonant) 状態に励起し、そして第 3 周波数の光子は中間、共鳴状態にある複数の原子をコンティニウム (continuum) 状態を経てイオン化し、
- (e) 同位体イオンを収集する。

【発明の効果】

【0011】

^{203}Tl を 1 kg/年生産可能とするためには、必要なレーザー出力は、CW 光ポンピングレーザー、パルス型 UV レーザー、及びパルス型 IR レーザーでそれぞれ 500 mW、4 W、及び 500 W と推定される。パルス型レーザーでは、5 KHz 以上の繰り返し速度及び ns 数 10 のパルス幅が要求される。このようなレーザー系は市販品のレーザーを使用して組み立てることができる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0012】

自然のタリウムからタリウム同位体を分離するための同位体選択性光イオン化プロセス及び装置を開示する。これは同位体選択性光ポンピング、タリウム原子の光イオン化及びイオンの静電抽出からなる。このスキームは、大規模な光イオン化クロスセクションと同じ程度に大規模な光ポンピングクロスセクションの利点がある。またその結果、単に適度のレーザーフルエンス (fluence) が要求される。このスキームによれば、ターゲット同位体の選択的光ポンピング (ISOP) により同位体を準安定状態とし、そして準安定状態のタリウム同位体を共鳴光イオン化 (RPI) することによりターゲット同位体を選択的かつ効率的に光イオン化することができる。後者のプロセスでは、準安定タリウム原子は共鳴励起状態を経てコンティニウム (continuum) 状態に光イオン化される。タリウム同位体の効率的な ISOP は単一周波数連続 (continuous) 波長 (CW) レーザーにより達成することができる。パルス型 UV レーザー及び高出力パルス型 IR レーザーが RPI プロセスで使用される。

【0013】

本発明に基づく ^{203}Tl レーザー同位体分離は従来の電磁的分離よりも経済的により効率的である。また、この発明は、特許文献 6 の限定された範囲を克服することができる。結論として、本発明は ^{203}Tl の分離を比較的小規模の設備及び市販品として入手できるレーザーを用いて大量生産をも可能ならしめるものである。

【0014】

本発明の実施例、即ちタリウムレーザー同位体分離方法をより詳細に、図面及びデータを基に説明する。この説明は本発明のより良き理解に有用であり、かつ本発明を限定するものではない。

【0015】

図 1 は、タリウムレーザー同位体分離方法の概念図を示す。タリウム原子のビーム 2 は

10

20

30

40

50

加熱器 1 を使用して $800 \sim 1000^\circ\text{C}$ の範囲の温度にタリウムを加熱することにより発生される。そして原子ビームコリメーター 3 により平行化され、ついで光学的にかつ同位体選択的に CW レーザー 4 により準安定状態に励起 (pump) される。光学的に励起されたタリウム同位体はパルス型 UV レーザー 5 及びパルス型 IR レーザー 6 により光イオン化される。光イオン化中に発生した光イオン化されたタリウムイオン 8 及び電子 9 は、外部電場によりバイアスされた抽出器 7 により原子ビームから分離される。

【0016】

図 2 は、本発明によりタリウムイオンが分離されたときのタリウム原子の部分的 (partial) なエネルギーレベルの概略図を示す。基底状態 $|1\rangle$ のターゲット同位体は光学的にかつ同位体選択的に CW レーザーによりレベル $|2\rangle$ に励起される。レベル $|2\rangle$ に励起された同位体は自然の減衰プロセス (図 2 の a) により基底レベル $|1\rangle$ に下方遷移されるか、或いは準安定状態レベル $|3\rangle$ (図 2 の b) に励起されるかのいずれかである。ターゲット同位体は準安定状態レベル $|3\rangle$ に止まる一方、基底状態レベル $|1\rangle$ に下方遷移された同位体はレベル $|2\rangle$ に再び励起される。準安定状態の寿命は約 $250 \mu\text{sec}$ と十分に長く、大部分のターゲット同位体は繰り返される励起及び下方遷移プロセスにより準安定状態レベル $|3\rangle$ に励起されることができからである。他方、非ターゲット同位体は励起されず、基底状態に止まる。その結果、高いターゲット同位体選択性と共に高い光ポンピング効率が達成される。準安定状態レベル $|3\rangle$ に励起されたターゲット同位体はパルス型レーザーによる共鳴励起状態レベル $|4\rangle$ を経てコンティニウム状態レベル $|5\rangle$ に光イオン化される。

【0017】

タリウム原子は、エネルギー $30,000 \text{ cm}^{-1}$ の下に 3 個のみのエネルギーレベルが存在するという簡単な電子構造を有している。それは、基底状態 ($6^2 P_{1/2}; 0 \text{ cm}^{-1}$)、準安定状態 ($6^2 P_{3/2}; 7,793 \text{ cm}^{-1}$) 及び励起状態 ($7^2 S_{1/2}; 26,477.6 \text{ cm}^{-1}$) から成っている。タリウム原子は効率的な光ポンピング用としていくつかの利点を有している。

これらの利点は次の通りである：

- (a) $6^2 P_{1/2}$ 及び $6^2 S_{1/2}$ 間遷移の大きな電気双極子モーメント
- (b) $6^2 S_{1/2}$ (7.5 nsec) の非常に短い寿命
- (c) $6^2 S_{1/2}$ 及び準安定状態間遷移の分岐比 (branching ratio) は $6^2 S_{1/2}$ 及び基底状態間遷移の分岐比よりも大きい。

それ故、CW レーザー周波数 (波長約 378 nm) が $6^2 P_{1/2}$ 及び $6^2 S_{1/2}$ 間遷移ラインに共鳴するならば、タリウム原子の準安定状態への非常に効率的なポンピングは容易に達成できる。タリウム原子の準安定状態母集団 (population) は、タリウムが原子ビームを発生する温度まで加熱されたときに 10^{-3} よりも低く、最初の母集団はこの温度範囲では同位体選択性に影響しないからである。

【0018】

図 3 は光ポンピング遷移に関するタリウム同位体の同位体シフト及び超微細構造を示す。 $6^2 P_{1/2}$ 及び $7^2 S_{1/2}$ 間遷移の同位体シフトは、それぞれ $F_g=1 \rightarrow F_e=1$ 及び $F_g=0 \rightarrow F_e=1$ に対して約 1.6 GHz , 約 1.5 GHz である。それ故、原子ビームのドップラー幅が数百 MHz (例えば約 100 MHz) よりも小さく、かつ単一周波数の CW レーザーが光ポンピングレーザーとして使用されるならば、ターゲット同位体の準安定状態への高選択性光ポンピングが可能である。

【0019】

図 4 は、ガウス強度分布 (最大半値幅: 10 mm) 及び出力 20 mW である CW レーザーを使用して $F_g=1 \rightarrow F_e=1$ の遷移の実験的に測定した光ポンピングスペクトルを示す。図 5 は CW レーザーがガウス強度分布 (最大半値幅: 10 mm) 及び出力 200 mW と推定した同遷移の計算された光ポンピングスペクトルを示す。この光ポンピングプロセスにおいては、同位体選択性が非常に高いことを示している。

【0020】

基底状態の超微細分裂 (splitting) が約 2.1 GHz であるとき、準安定レベルでのそれは約

10

20

30

40

50

500GHzである。それ故、準安定状態原子の効率的な光イオン化は超微細構造の干渉なしに期待される。比較的低出力のレーザーでさえも、その大きい電気双極子モーメントにより、効率的に準安定タリウム原子を $7^2D_{3/2}$ ($42,011.4\text{ cm}^{-1}$) 状態或いは $7^2D_{5/2}$ ($42,049.0\text{ cm}^{-1}$) 状態へ励起することができる。励起用遷移波長は、約292nmである。図6はNd:YAGレーザーの波長1064nmでのタリウム原子の $7^2D_{5/2}$ レベルでの測定された光イオン化クロスセクションを示す。 $2.7 \times 10^{-17}\text{ cm}^2$ の光イオン化クロスセクションは、 $7^2D_{5/2}$ の励起状態にあるタリウム原子の80%より多くをパルスエネルギー密度 40 mJ/pulse/cm^2 のNd:YAGレーザーでイオン化するに十分な大きさである。タリウム原子のイオン化ポテンシャル (IP) は約 49266.7 cm^{-1} であるから、適度の出力をもつIRレーザーが、エネルギー範囲 $49266.7\text{ cm}^{-1} \sim 55000\text{ cm}^{-1}$ に対応する700~1400nmの範囲の波長を有するならば、効率的な光イオン化を期待できる。

10

【0021】

図7は、本発明によるタリウム原子の同位体選択性光イオン化の観測されたタイムオブフライト (Time-of-Flight) (TOF) のマススペクトルを示す。パルス型レーザー周波数を固定し、CWレーザー周波数をスキャンしたときに、各同位体の光イオン化が可能である。

【図面の簡単な説明】

【0022】

【図1】本発明によるタリウムのレーザー分離方法の概念図を示す。(a)は正面図であり(b)は側面図である。

20

【図2】タリウム原子の部分的なエネルギーレベルを示す略図である。

【図3】タリウム同位体の同位体シフト及び超微細構造を示す。

【図4】ガウス強度分布 (最大半値幅: 10mm) 及び出力20mWのCWレーザーを使用してタリウム同位体の光ポンピングスペクトルの測定結果を示す。

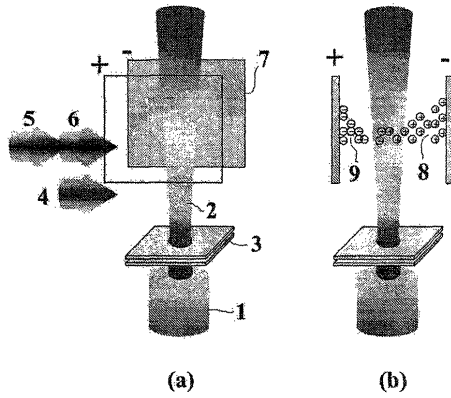
【図5】ガウス強度分布 (最大半値幅: 10mm) 及び出力200mWのCWレーザーを使用してタリウム同位体の光ポンピングスペクトルの推計(calculated)結果を示す。

【図6】Nd:YAGレーザーの波長1064nmでのタリウム原子の $7^2D_{5/2}$ レベルの光イオン化クロスセクションの測定結果を示す。

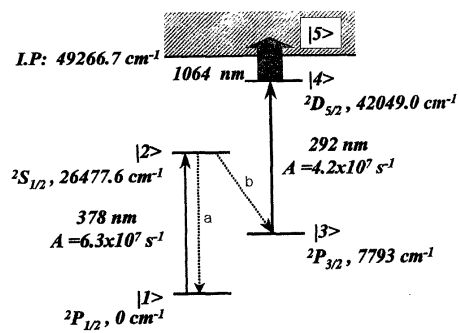
【図7】タリウム原子の同位体選択的光イオン化のマススペクトルを示す。(a) 非選択性光イオン化タリウム原子のマススペクトルを示す。(b) 光ポンピングレーザーの周波数が ^{205}Tl 同位体で共鳴するときのマススペクトルを示す。(c) 光ポンピングの周波数が ^{203}Tl 同位体で共鳴するときのマススペクトルを示す。

30

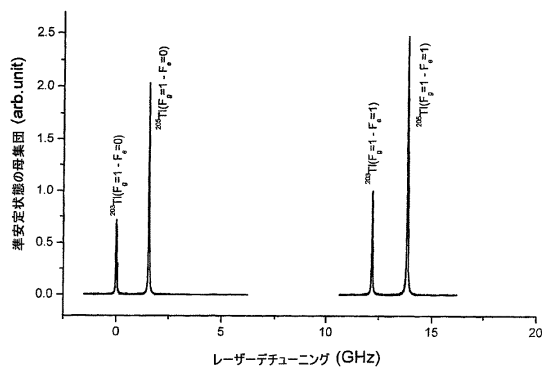
【図 1】



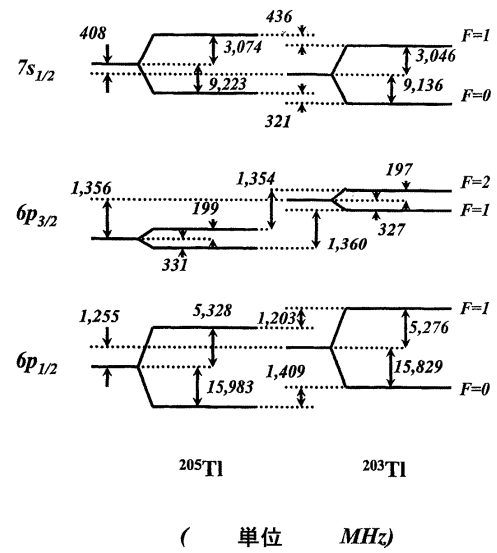
【図 2】



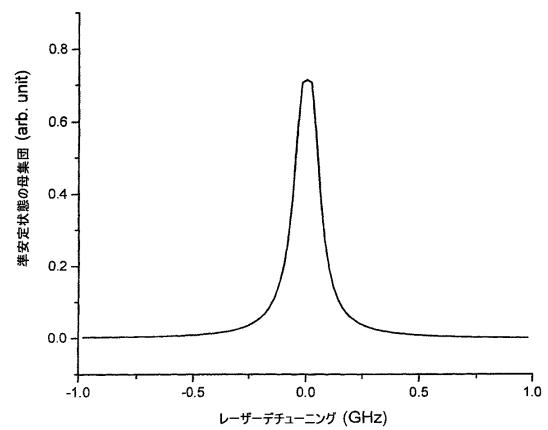
【図 4】



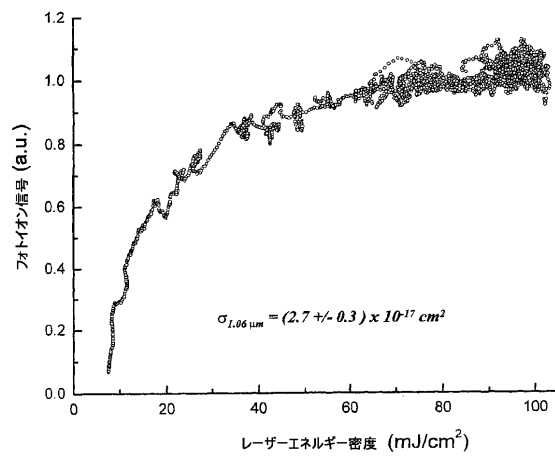
【図 3】



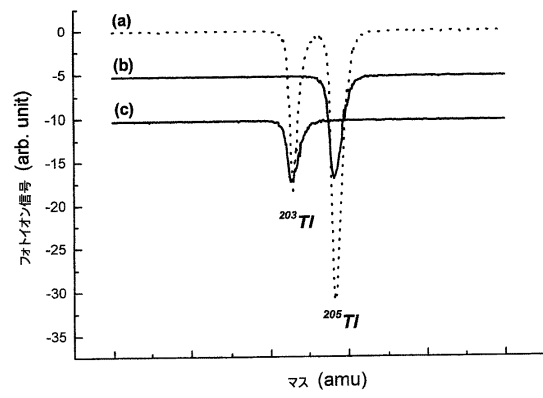
【図 5】



【図 6】



【図 7】



フロントページの続き

- (72)発明者 ジェオング、ドーヨウング
大韓民国ダエジェオン 305-761 ユセオンググ、ジェオンミンードング、エキスポアパートメント 106-1006
- (72)発明者 コ、クワングーフーン
大韓民国ダエジェオン 305-752 ユセオンググ、ソングカングードング、チェオングソルアパートメント 308-501
- (72)発明者 リム、グウォン
大韓民国ダエジェオン 301-774 ジュンググ、タエピュング 2ードング、サンブアパートメント 25-91
- (72)発明者 キム、チェオルージュング
大韓民国ダエジェオン 305-755 ユセオンググ、ウヘウンードング、ハンビトアパートメント 101-1803

審査官 中澤 登

- (56)参考文献 特開 2000-262866 (JP, A)
特開平 11-070323 (JP, A)

- (58)調査した分野(Int.Cl., DB名)
- | | |
|------|-------|
| B01D | 59/34 |
| C01G | 15/00 |
| H01S | 3/00 |