



Strål
säkerhets
myndigheten

Swedish Radiation Safety Authority

Författare: Per Andersson
Fredrik Nielsen
Daniel Sunhede

Forskning

2016:03

Laseranrikning av uran ur ett
icke-spridningsperspektiv

SSM perspektiv

Bakgrund

Sverige har en exportlagstiftning för kontroll av utförelse av speciellt känslig utrustning som kan användas för bl.a. tillverkning av kärnvapen. Syftet är att förhindra att någon stat eller organisation införskaffar sådana vapen. Utrustningen det är frågan om har ofta en legitim användning i civil industri men kan ha vissa speciella egenskaper som även gör den användbar för kärnvapenframställning. Det är Strålsäkerhetsmyndigheten, SSM, som beslutar om tillstånd för utförelse av kärnämne och kärnteknisk utrustning samt teknik. Det är viktigt att myndigheten har tillräcklig och aktuell kunskap i ämnet för att korrekt kunna bedöma inkomna exportansökningar. Totalförsvarets forskningsinstitut, FOI, fungerar som teknisk rådgivare till SSM i exportkontrollärenden. FOI har tidigare studerat andra områden inom kärnbränslecykeln med fokus på icke-spridning och exportkontroll på uppdrag av SSM, varav de senaste berör en översikt om anrikningsmetoder (SSM2015:13), möjligheten att använda låganrikt uran i forskningsreaktorer (SSM2015:15) och en historisk dokumentation av det svenska civila anrikningsprogrammet (SSM 2015:42).

Det arbete som redovisas i denna rapport rör laseranrikning vilket är en potentiellt effektiv metod för att anrika uran och denna rapport beskriver översiktligt två metoder. Handelsmönstret för en proliferator som nyttjar laseranrikning ser helt annorlunda ut jämfört med en som nyttjar t.ex. gascentrifugering för anrikning, då det räcker med ett fåtal lasrar för en anläggning i mindre skala. Exportkontrollagstiftningen ger en relativt svag handledning i frågan om vilka lasrar som kan vara känsliga ur spridningssynpunkt och som inte bör exporteras till potentiella proliferatorer, varför det är viktigt att öka kunskapen avseende vilka tekniska parametrar som skiljer lasrar som kan nyttjas för urananrikning och civila lasrar i andra tillämpningar.

Syfte

Rapporten beställdes för att öka kunskapen kring vilka krav som ställs för lasersystem som nyttjas för anrikning av uran, vilka komponenter i systemet som är en potentiell spridningsrisk och hur effektiv laseranrikning är i jämförelse med andra anrikningsmetoder.

Resultat

I denna studie har ett antal detaljerade kriterier framkommit avseende vågängder, pulsprofiler och bandbredd hos lasern som kan nyttjas vid bedömning av spridningsrisker.

Vi har valt att låta rapporten endast översiktligt redogöra för konsekvenserna för exportkontrollområdet för att inte sprida information som kan vara känslig. Därmed kan flera intressenter såsom andra myndigheter, berörd industri och intresseorganisationer få tillgång till resultatet. Förutom rapporten har projektet resulterat i att personal på FOI och SSM fått ökad insikt kring laseranrikningsmetoder genom litteraturstudier och föredrag.

Projekt information

Kontaktperson SSM: Camilla Andersson
Referens: SSM 2015-682



Strål
säkerhets
myndigheten

Swedish Radiation Safety Authority

Författare: Per Andersson, Fredrik Nielsen, Daniel Sunhede
Totalförsvarets forskningsinstitut, Stockholm

2016:03

Laseranrikning av uran ur ett icke-spridningsperspektiv

Datum: Februari 2016

Rapportnummer: 2016:03 ISSN: 2000-0456

Tillgänglig på www.stralsakerhetsmyndigheten.se

Denna rapport har tagits fram på uppdrag av Strålsäkerhetsmyndigheten, SSM. De slutsatser och synpunkter som presenteras i rapporten är författarens/författarnas och överensstämmer inte nödvändigtvis med SSM:s.

Laseranrikning av uran ur ett icke-spridningsperspektiv

Innehåll

Sammanfattning	2
Summary	3
1. Inledning	4
2. Laser	7
3. AVLIS	9
3.1. Förångning.....	9
3.1.1. Densitet.....	10
3.1.2. Kollimering	10
3.1.3. Neutralt flöde.....	11
3.1.4. Förångningsmetod.....	11
3.2. Bestrålning.....	12
3.2.1. Isotopskift.....	12
3.2.2. Deexcitation	16
3.2.3. Jonisation.....	17
3.3. Separation.....	18
3.4. Uppsamling.....	18
4. Molekylbaserad laserisotopseparation	19
4.1. Typer av MLIS.....	21
4.1.1. MOLIS.....	21
4.1.2. CRISLA	22
4.1.3. SILARC	22
4.1.4. MLIS-CR	22
4.1.5. SILEX.....	23
4.2. Utrustning för MLIS.....	24
4.3. Slutkommentarer MLIS.....	25
5. Beräkningar, anrikning med AVLIS	26
6. Resultat	30
7. Konsekvenser för svensk exportkontroll	34

Sammanfattning

Anrikning med laserbaserade metoder är ett potentiellt effektivt sätt att anrika uran och kan ske med atom- eller molekylbaserade metoder. Hur effektiva är dessa metoder? Hur spridningssäkra är dessa metoder? Vilka komponenter är särskilt spridningskänsliga? Och vad gäller själva lasern, vilka parametrar är avgörande för huruvida en laser kan användas för urananrikning, och vilka värden på dessa parametrar är viktiga? Detta har bäring på både svensk exportkontroll och det internationella exportkontrollarbetet inom kontrollregimen Nuclear Suppliers Group som sätter upp riktlinjer för export av känslig teknik inom kärnteknikområdet.

Eftersom isotoper av ett ämne praktiskt taget är kemiskt identiska, utnyttjar de flesta anrikningsmetoder masskillnader för att separera isotoper. Den egenskap som utnyttjas av laserbaserade anrikningsmetoder är istället skillnader i förmågan att absorbera ljus för olika isotoper. Vid specifika våglängder absorberas ljuset endast av den ena isotopen vilket leder till en selektiv excitation. I ett efterföljande steg separeras sedan exciterade atomer eller molekyler från icke-exciterade och på så vis fås en anrikning av den önskade uranisotopen. Till skillnad från de flesta isotopseparationsmetoder är alltså det första, karaktäristiska, steget hos laseranrikning inte direkt baserat på skillnaden i massa hos isotoperna utan på skillnader i absorptionspektrumet. Det påföljande steget, själva separationssteget, varierar mellan olika laseranrikningsmetoder.

Laserbaserade separationsmetoder kan delas in i atom- och molekylbaserade metoder. Molekylbaserade metoder utnyttjar skillnader i vibrationsenergin för olika isotoper och de selektivt exciterade molekylerna kan separeras genom att t.ex. få dem att dissociera eller kondensera. Atombaserade metoder utnyttjar istället skillnader i excitationenergin hos elektroner via selektiv jonisation och den laddade isotopen separeras med ett elektromagnetiskt fält. Till följd av att de olika metoderna utnyttjar olika fundamentala principer för att separera isotoperna skiljer sig deras utformning åt på flera avgörande sätt. Gemensamt är att de använder lasrar för att excitera den isotop eller isotopförening som ska separeras.

I likhet med övriga anrikningsmetoder föreligger spridningsrisker även hos laserbaserade metoder. I denna studie har omfattande fysikaliska beräkningar använts för att bedöma vilka krav som ställs på laserutrustningen för en av de två metoderna, AVLIS. Genom att fastställa elektronövergångarna för uran och deras optiska egenskaper har ett snävare parameterområde för laserns användbarhet identifierats. Rapporten beskriver även metoderna och fysiken bakom dessa i viss detalj.

Summary

Enrichment with laser methods is a potentially efficient way to enrich uranium. Laser based enrichment can be done with either atom based or molecule based methods. How efficient are these methods? How proliferation resistant are they? Which components are particularly sensitive for proliferation? And regarding the laser itself, which parameters determine whether a laser can be used for uranium enrichment, and which values for these parameters are important. These are significant concerns for both Swedish export control and international export control efforts within the Nuclear Suppliers Group, the control regime that regulates export of sensitive nuclear technology.

Because the chemical properties of isotopes of an element are practically identical, most enrichment methods utilize the mass difference to separate isotopes. The property used by laser based enrichment methods is instead the different light absorption properties of different isotopes. At certain wavelengths, light is only absorbed by one of the isotopes, which leads to a selective excitation. In a following step, excited atoms or molecules are separated from non-excited, thus an enrichment of the desired isotope is achieved. As opposed to most isotope separation methods, the characteristic process step is not based on the mass difference between the isotopes, but the difference in absorption spectrum. The following step, the actual separation, differs between different laser enrichment methods.

Laser based separation methods can be divided into atom based and molecule based methods. Molecule based methods utilize the differences in vibrational energy for different isotopes, and the selectively excited molecules can be separated, for example by dissociation or condensation. Atom based methods utilize the differences in excitation energy of electrons by selective ionization, and the charged isotope can be separated with an electromagnetic field. As a result of the two methods utilizing different fundamental principles to separate the isotopes, their designs show several vital differences. All the methods use lasers to excite the isotope or isotope compound that is to be separated.

Similar to other enrichment methods, laser based methods are exposed to proliferation. In this study, extensive physical calculations have been used to estimate the requirements for the technical equipment for one of the two methods, i.e. AVLIS. By determining the electron transitions for uranium and their optical properties, a more limited parameter space for the laser's usefulness has been identified. The report also describes the methods and the physical basis for them.

1. Inledning

Isotopanrikning är en process där olika isotoper av ett grundämne separeras från varandra. Isotoprena ämnen har många användningsområden inom medicin, elektronik och grundforskning. Den överlägset största tillämpningen är emellertid anrikning av uran för användning som bränsle i kärnenergiindustrin. Den separationsmetod som sedan lång tid är dominerande för anrikning av uran för tillverkning av kärnbränsle är gascentrifugering. Dessutom finns ett antal anrikningsmetoder som används i mindre utsträckning, eller tidigare använts, exempelvis gasdiffusion.

Gemensamt för alla anrikningsmetoder är att någon egenskap som skiljer mellan isotoperna, i allmänhet masskillnaden, utnyttjas för att separera dem. Vanligtvis är selektiviteten låg och därmed ger ett enskilt anrikningssteg mycket låg anrikning. För de flesta metoder krävs således flera anrikningssteg för att uppnå önskad anrikning. Hur många steg som krävs avgörs dels av hur effektivt varje steg är, dels av hur mycket materialet skall anrikas. Då många anrikningssteg krävs kopplas dessa steg normalt sett i så kallade kaskader. En kaskad är en sammankoppling av ett antal anrikningssteg, gjord på ett sådant sätt att den är optimal eller nästan optimal för ett visst flöde och en viss anrikning. För metoder som kräver många anrikningssteg, exempelvis gascentrifugering, är kaskadteori en grundläggande komponent för en effektiv anläggning.

I anrikningssammanhang används begreppet SWU, *separative work unit*. SWU kan dels användas för att ange hur mycket separationsarbete som krävs för att anrika en viss mängd uran av en given anrikningsgrad till en annan anrikningsgrad, dels för att ange kapaciteten hos en anläggning eller ett anrikningssteg. Enheten kan användas för att ange en specifik centrifugs effektivitet men även för en hel anläggning. SWU är således ett effektivt mått både för att jämföra olika anrikningsmetoder och för att bedöma vad en viss anläggning klarar av under ett år.

Isotopanrikning används huvudsakligen för att anrika uran för fredlig användning i kärnbränsle, men tekniken kan även användas för att tillverka höganrikat uran för kärnladdningar. Därmed finns en risk att komponenter till eller kunskap om dessa anläggningar sprids till proliferatörer. För att motverka spridning av känsliga produkter inom kärnteknikområdet har ett stort antal av de länder som förfogar över kärnteknisk kompetens bildat organisationen Nuclear Suppliers Group, NSG¹. Antalet medlemsstater är för närvarande 48. Organisationen sammanställer riktlinjer för export av kärnteknisk materiel, bland annat i form av kontrollistor över känsliga produkter, både sådana som exklusivt används i kärnbränslecykeln och sådana produkter med dubbla användningsområden som kan användas både i och utanför kärnbränslecykeln, så kallade *dual use*-produkter. Dessa riktlinjer implementeras sedan som en del av respektive medlemsstats lagstiftning. Inom EU sker detta i form av EU-förordningen 428/2009 om upprättandet av en gemenskapsordning för kontroll av export, överföring, förmedling och transitering av produkter med dubbla användningsområden, med uppdateringar, där både exklusiva produkter och *dual use*-produkter listas. För att dessa kontrollistor ska inkludera produkter som är känsliga för spridning och samtidigt exkludera produkter som inte är det måste ibland avgränsningar göras. Dessa avgränsningar kan göras exempelvis genom att en produkt klassas som känslig om värden på vissa parametrar ligger inom ett visst intervall. Var dessa gränser dras är av stor vikt eftersom all känslig material ska omfattas samtidigt som övrig export inte drabbas av onödiga inskränkningar.

¹ <http://www.nuclearsuppliersgroup.org>

Laseranrikning är en metod som flera aktörer började intressera sig för när praktiskt användbara lasrar utvecklades. Trots ett intensivt utvecklingsarbete i flera stater har tekniken än så länge inte visat sig tillräckligt tekniskt och ekonomiskt effektiv för att konkurrera med gascentrifugering. Senare framsteg inom laserteknik har emellertid gjort att det inte går att utesluta att laseranrikning i framtiden blir ett alternativ till gascentrifugering både vad gäller effektivitet och kostnad.

Den teoretiska grunden för laser lades i början av 1900-talet men det dröjde till 1960 innan den första fungerande lasern tillverkades. Under 1970-talet började kraftfulla lasrar framställas och därmed möjliggjordes en stor mängd nya tillämpningar. En av dessa tillämpningar var laserbaserad isotopseparation.

Forskning på isotopseparation genom selektiv jonisation av atomer, (*Atomic Vapor Laser Isotope Separation*, AVLIS), inleddes redan 1972 vid Lawrence Livermore National Laboratory (LLNL)². 1975 hade man nått så långt att man lyckades skapa en anläggning med kapacitet att anrika milligrammängder av uran till ca 3 % anrikningsgrad. Då anläggningen vid LLNL byggdes om och moderniserades i början av 1980-talet hade totalt ca 5 kg anrikat uran framställts. Parallellt med forskningen vid LLNL inleddes ett samarbete med Los Alamos National Laboratory (LANL), *Special Isotope Separation Project*, för att isotopanrika plutonium. Isotopanrikning av plutonium för användning i kärnladdningar betraktades vid den här tidpunkten som ett av de lovande användningsområdena för AVLIS.

USA var först med forskning på urananrikning med laser men forskning inleddes även i andra länder. I Frankrike började COGEMA, under CEA:s översyn, forskning för att utveckla atombaserade laseranrikningsmetoder inom SILVA-programmet (SILVA är den franska förkortningen på AVLIS)³. Under andra hälften av 1990-talet hade man nått så långt att anläggningarna uppvisade isotopseparation vars kvalitet och pris var konkurrenskraftigt med de kommersiella metoder som användes för att förse världsmarknaden med anrikat uran. 1984, samma år som COGEMA i Frankrike inledde AVLIS-forskning, bildades i Japan ett konglomerat mellan industri och forskningsinstitut som resulterade i en försöksanläggning som framgångsrikt lyckades anrika uran. Även i Sovjetunionen bedrevs vid denna tid forskning på AVLIS.

Den första fungerande separationen med molekylbaserade metoder, (*Molecular Laser Isotope Separation*, MLIS), genomfördes i slutet av 1970-talet, då för andra ämnen än uran. Metoden ansågs då väldigt lovande och det dröjde inte länge innan man började experimentera med uranhexafluorid. I Tyskland⁴ inleddes ett program under URENCO för studier av MLIS och i Sydafrika⁵ valde man att helt fokusera på MLIS och lyckades även med att anrika uran i en pilotanläggning. I Sovjetunionen inleddes forskning, huvudsakligen för att bringa klarhet i de egenskaper hos uranhexafluorids spektrum som är av stor vikt för MLIS, men även framgångsrikt praktiskt arbete med försöksanläggningar har gjorts.

I laseranrikningsteknologins tidiga skede betraktades MLIS som mycket lovande. Fördelarna gentemot AVLIS var dels att uranhexafluorid var en sedan tidigare välkänd substans eftersom den använts i andra anrikningsmetoder, och dess egenskaper var väl utredda. Dessutom undviks hela problematiken med uranånga eftersom just uranhexafluorid används. Vid denna tidpunkt var det dessutom inte helt oviktigt att

² <http://www.osti.gov/scitech/servlets/purl/16710>

³ http://www.iaea.org/inis/collection/NCLCollectionStore/_Public/18/037/18037097.pdf

⁴ http://www.iaea.org/inis/collection/NCLCollectionStore/_Public/27/014/27014297.pdf

⁵ M. van der Linde och L. Feris, *Compendium of South African Environmental Legislation*, Pretoria University Law Press, Pretoria, 2010

det var lättare och billigare att framställa lasrar i IR-området, som används vid MLIS, än det synliga, som används vid AVLIS.

Det skulle emellertid visa sig att MLIS inte var befriad från problem. Inom AVLIS insåg man tidigt vilka steg som var optimala för processen, även om vissa av dessa innebar stora tekniska utmaningar. Hos MLIS finns det tvärtom en uppsjö olika metoder som konkurrerar med varandra. Den kanske mest avgörande skillnaden är att hos AVLIS används laser för att jonisera ^{235}U , vilket innebär att elektromagnetisk separation i princip är självskriven eftersom metoden ger en nästan hundra procentig separation. Hos MLIS är det istället just separationssteget som har inneburit en stor utmaning. När uranhexafluoridmolekylerna är vibrationsexciterade är det inte uppenbart vilken metod som ska användas för att separera de exciterade molekylerna. De flesta lösningarna uppnår i likhet med gascentrifugering endast begränsad separation i varje steg. Dessutom är själva excitation fysiken för molekyler betydligt mer komplicerad än för uranatomer.

Studien av laseranrikning i den här rapporten ger en översikt över både AVLIS och MLIS men fokuserar huvudsakligen på AVLIS. Orsaken till detta är delvis att det är den av de två metoderna som förefaller ha störst kommersiell potential, men framför allt erbjuder fysiken kring AVLIS störst möjligheter till beräkningsbaserade kvantitativa studier. De grundläggande processerna är tämligen väl kända och mycket information om de grundläggande processerna finns publicerad, även om mycket få detaljerade resultat finns publicerade. Huvudsyftet för beräkningarna är att reda ut vilka krav som ställs på en laser som används för selektiv excitation av ^{235}U och samtidigt som excitation av den tyngre isotopen ^{238}U undviks i största möjliga mån.

2. Laser

Termen laser beskriver en teknik som används för att skapa en viss sorts ljus. Tekniken som avses är baserad på fenomenet stimulerad emission. Den underliggande teoretiska beskrivningen av stimulerad emission, som möjliggör laserteknologi, gjordes av Einstein 1917. Under 1950-talet resulterade forskning i praktiskt användbar laser, eller i själva verket så kallad maser⁶ eftersom det inte rörde sig om elektromagnetisk strålning i det synliga spektrumet. Mot slutet av årtiondet, efter introduktionen av en resonanskammare för att generera en koherent ljusstråle, introducerades begreppet LASER, *Light Amplified by Stimulated Emission of Radiation*. Denna förkortning beskriver precis vad laser är; med hjälp av ljus åstadkoms stimulerad emission av strålning. 1960 skapades den första användbara lasern. Dessa tidiga lasrar var förhållandevis primitiva och många av de egenskaper som kännetecknar laser och gör teknologin användbar i många applikationer har tillkommit senare. Exempel på detta är det stora antal laseraktiva ämnen som möjliggör ett stort urval av frekvenser hos det genererade ljuset, högeffektlaser, kontinuerlig laser (de tidiga lasrarna var enbart pulsade). Utöver dessa landvinningar har lasern utvecklats enormt vad gäller energiåtgång, miniaturisering och tillverkningskostnad. Dagens lasrar har många tillämpningsområden men den fysikaliska princip som gör det möjligt är densamma, stimulerad emission.

Då en atom absorberar energi, exempelvis i form av ljus, exciteras elektroner till högre energinivåer. Skillnaden mellan den exciterade nivån och grundtillståndet motsvarar den absorberade energin. Excitation är endast möjlig till diskreta nivåer och därför kan atomerna enbart absorbera fotoner med energi som motsvarar övergångarna mellan dessa nivåer. Den exciterade elektronen har högre energi än grundtillståndet och kan spontant återgå till detta. Vid återgång till grundtillståndet avges en foton med energi motsvarande skillnaden mellan den exciterade nivån och grundtillståndet. Således avges ljus med vissa specifika frekvenser. Detta fenomen kallas spontan emission. Genom att välja material och excitationsskälla så att bara excitation mellan två specifika nivåer erhålls har de fotoner som avges alltid samma energi. Det ljus som avges har alltså en enda våglängd och frekvensen bestäms av energiskillnaden mellan excitationnivåerna:

$$h\nu_0 = E_1 - E_0$$

I laser utnyttjas dessutom stimulerad emission för att få koherent ljus. Processen inleds med att elektroner på något sätt exciteras till den högre liggande nivån. Detta kan till exempel göras med hjälp av en blixtlampa eller en annan laser men det kan också göras på kemisk väg. Det viktiga här är inte att den övre nivån fylls på selektivt utan att tillräckligt många elektroner lyfts från den lägre grundnivån till den högre exciterade nivån så att flera elektroner befinner sig i den högre än den lägre nivån, vilket kallas för att man får en inverterad population. Eftersom den högre nivån inte är stabil kommer en elektron för eller senare⁷ att deexciteras och sända ut en foton. Eftersom våglängden och därmed energin för denna foton exakt matchar gapet mellan den övre och lägre nivån kan den att virtuellt växelverka⁸ med de exciterade elektronerna och stimulera dem till att också deexciteras och utsända fler fotoner. Dessa fotoner kommer att ha samma fas och riktning som den ursprungliga fotonen. Om fotonerna kan fås att passera genom exciterat material kan kedjor av stimulerad emission skapas varpå koherent ljus genereras. Vanligast och enklast är

⁶ MASER, Microwave Amplification by Stimulated Emission of Radiation.

⁷ I frågan om de nivåer och energiskillnader det rör sig om här är medellivslängden för en exciterad nivå oftast bråkdelar av sekunder, från mikrosekunder ner till nanosekunder.

⁸ Se till exempel <http://hyperphysics.phy-astr.gsu.edu/hbase/mod5.html>.

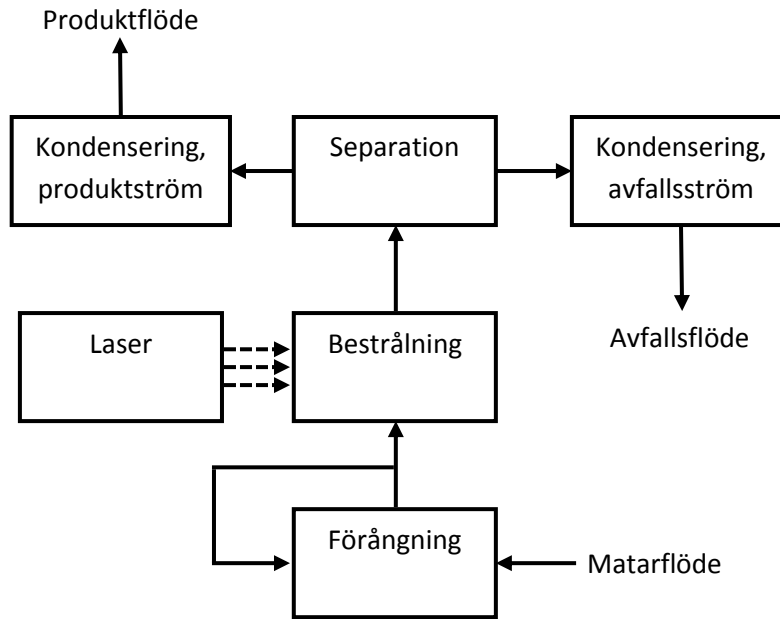
det att den så kallade pumpningen upp till den högre energinivån görs i pulser vilket också ger en pulsad laserstråle, men det finns pumpprocesser som kan ske kontinuerligt och som ständigt fyller på den högre energinivån vilket möjliggör en kontinuerlig laserstråle.

För att skapa den välbekanta laserstrålen används en optisk resonator. Resonatorn utgörs i sin enklaste form av en cylindrisk kammare med två motsatta speglar. Avståndet mellan speglarna anpassas efter våglängden hos de avgivna fotonerna för att åstadkomma konstruktiv interferens. Fotoner som emitteras vinkelrätt mot speglarna kommer alltså att passera genom kammaren upprepade gånger och ge upphov till ytterligare stimulerad emission.

Laserljus har flera egenskaper som gör att det kan användas för att selektivt excitera uranatomer eller uranmolekyler. Eftersom laserljus kan genereras vid i princip en enda frekvens, det vill säga den har smal så kallad bandbredd, kan det användas för att excitera atomer och molekyler mellan väldigt specifika energinivåer. Utöver laserljusets specifika frekvens har lasern fördelen att den kan fokuseras på ett väldigt litet område. Detta ger en möjlighet att på ett kontrollerat sätt styra exakt när och hur mycket atomerna ska belysas i olika steg i processen.

3. AVLIS

Den ena av de två huvudsakliga varianterna av laseranrikning är AVLIS, Atomic Vapor Laser Isotope Separation. Till skillnad från den andra varianten MLIS, Molecular Laser Isotope Separation, är det uranatomer och inte en uranförening som separeras. Kort sammanfattat har AVLIS fyra grundläggande processteg: förångning av uranatomer, excitation och jonisering av uranatomången genom bestrålning, separation av joniserade atomer och uppsamling av separerat material.



Figur 1: Flödesschema för AVLIS.

Den anrikade produkten består efter separationen, till skillnad från matarflödet, av joniserade atomer. Detta innebär att en eventuell flerstegskonfiguration i kaskader kräver att produktströmmen återgår till grundtillståndet för att kunna matas vidare in i nästa anrikningssteg. AVLIS kan emellertid uppnå mycket hög separation i varje steg varför långa kaskadkonfigurationer normalt sett inte är nödvändiga.

3.1. Förångning

För att laser ska kunna användas för att excitera uranatomer krävs det att uranmaterialet föreligger på en form som möjliggör bestrålning på ett effektivt sätt. Den för AVLIS använda metoden är att i en vakuumkammare generera en riktad stråle av uranånga. Uranången propagerar uppåt och färdas in i kammaren där den laserbestrålas. Många krav ställs på ångan för att laserexcitationen ska bli effektiv vilket i sin tur ställer speciella krav på själva förångningsprocessen. De krav som ställs på ångan diskuteras i detalj nedan men de viktigaste egenskaperna är att ångstrålen har hög densitet och är väl kollimerad samt är befriad från joner. För att generera en uranånga finns i huvudsak två möjligheter; förångning med elektroresistiv uppvärmning och förångning med elektronstråle. Den första metoden innebär att en elektrisk ström över ett motstånd genererar värme. I den andra metoden används en riktad elektronstråle för att värma uranmetallen. Varför den senare metoden är att föredra,

trots att den är mer komplicerad, förklaras nedan. Det bör noteras att materialet inte behöver bringas till kokning för att frigöra uranatomer, utan ångtrycket över ytan stiger med stigande temperatur redan från låga temperaturer även om processen går avsevärt mycket snabbare nära kokpunkten, se nedan.

För att maximera bestrålningen formas uranströmmen till en tunn lakansformad yta, liksom ett draperi eller gardin, vars tjocklek anpassas till laserstrålens bredd för att ge en maximal absorption av laserstrålen som passerar genom ångströmmen.

3.1.1. Densitet

Uranången skall ha hög densitet för att kunna ge en hög produktionsrat i anläggningen. Vid låg densitet kan den fulla effekten hos lasern inte utnyttjas eftersom en del av laserljuset kommer passera igenom hela strömmen av uranånga utan att absorberas. För att motverka detta måste strömmen i så fall göras mycket bred. Det finns emellertid nackdelar med för hög densitet i ångströmmen. Är ången för tät ökar antalet kollisioner efter bestrålningen mellan laddade ^{235}U -atomer och oladdade ^{238}U -atomer där laddningen överförs. Därmed får man dels oladdade ^{235}U -atomer, dels laddade ^{238}U -atomer. Eftersom separationssteget skiljer laddade atomer från oladdade atomer är det av stor vikt att den laddade delen av uranången innehåller så låg andel ^{238}U som möjligt men separationen försämras även av att oladdat ^{235}U försvinner med avfallsströmmen. Vid för hög densitet kan dessutom atomer exciteras via kollisioner före bestrålningen. Eftersom laserfrekvensen är vald för att excitera atomer från grundtillståndet till ett specifikt excitationstillstånd går selektiviteten förlorad om atomer föreligger i oönskade excitationstillstånd. Detta går till viss del att ta höjd för genom att excitera med flera lasrar, anpassade även för de vanligaste kollisionsexciterade tillstånden, även om detta gör processen både dyrare och mer komplicerad.

3.1.2. Kollimering

Utöver att ångstrålen ska ha hög densitet krävs det att den är sammanhållen och har en och samma riktning. Detta möjliggör att laserstrålen kan anläggas vinkelrätt mot ångstrålen och därmed undviks den icke-termiska Dopplerförskjutning eftersom ångans flödes hastighet i laserns riktning är försumbar. Dopplerbreddning på grund av slumpmässiga termiska atomrörelser i ången elimineras emellertid inte. Vid förångning kommer den förångade metallen att propagera med en vinkelfördelning som är beroende av förångningshastigheten. Ju högre förångningshastigheten är, desto snabbare rör sig ången och ångströmmen blir smalare och mer kollimerad, det vill säga färre atomer far i väg i andra riktningar än rakt uppåt. Förångningshastigheten beror huvudsakligen på temperaturen och följaktligen ger högre temperatur en bättre ångstråle. De höga temperaturerna ställer emellertid stora krav på förångningskammaren och för höga temperaturer ger upphov till ett antal problem. Till exempel, ju högre temperaturen är, desto mer termisk jonisation blir det i ången vilket påverkar jonisationen i det kommande separationssteget mycket negativt. Dessutom ökar höga temperaturer risken för att materialet som ångkammaren är gjord av ska skadas. Detta medför dels att kammarens livslängd försämras, dels att uran kan reagera med ämnen i kammaren och bilda uranföreningar som förorenar ångstrålen. Exempelvis uranoxider, som kan bildas vid reaktion med kärlet, försämrar dels densiteten i metallången, dels påverkas selektiviteten i jonisationssteget kraftigt negativt. Det är därför av stor vikt att kammaren är gjord av, eller har en ytbeläggning av, ett material som är både kemiskt inert och mycket värmetåligt.

3.1.3. Neutralt flöde

För att separationssteget ska bli effektivt måste uranatomerna i förångningssteget vara elektriskt neutrala. Själva laserjoniseringen görs selektivt på ^{235}U så att denna isotop kan separeras just på grund av sin laddning efter joniseringen. Om laddade partiklar skapas vid förångningen kommer dessa inte att vara selektivt joniserade utan kan vara både ^{235}U och ^{238}U , och därmed kontamineras strömmen av laddade partiklar från laserjoniseringen in i separatorn. Detta kan få en mycket stor effekt som accentueras vid anrikning från naturligt eller utarmat uran där halten ^{238}U är högre. Eftersom vanligtvis endast en mycket liten del av alla atomer utgörs av ^{235}U och det är dessa atomer som joniseras av lasern, räcker det att en liten andel av atomerna joniseras vid förångning för att en stor del av de laddade atomerna efter laserjonisering ska utgöras av ^{238}U . Vid generering av metallånga med elektroresistiv uppvärmning bildas en större andel joner än för andra metoder. Därför bör en annan metod användas. Även med elektronstråle bildas joner i metallångan på grund av termisk jonisering, men i något mindre utsträckning. För att komma till rätta med problemet används en metod där ett elektromagnetiskt fält anläggs efter förångningssteget för att avskilja laddade partiklar innan dessa når laserbestrålningen. De laddade atomerna avskiljs från strömmen av uranmetallånga och samlas upp i en kollektor där de neutraliseras och förs tillbaka till förångningskammaren.

3.1.4. Förångningsmetod

För att förånga uranmetall krävs mycket höga temperaturer eftersom urans kokpunkt vid atmosfärstryck är 4404 K. Den för laserbestrålningen mest gynnsamma tätheten är ungefär 10^{15} atomer/cm³, vilket motsvarar ett tryck på 10^{-4} atmosfärer. Detta ångtryck kan uppnås⁹ redan vid 2400 K. Uranångan är kemiskt mycket aggressiv¹⁰ och ställer mycket höga krav på de material som kommer i kontakt med uranångan. De material som av Nuclear Suppliers Group betraktas som tåliga specifikt för uranånga är yttriumoxid och tantal¹¹. Utöver dessa nämns i *dual use*-listorna ett antal material för flytande aktinider generellt¹². Kylning av de omgivande väggarna är i praktiken inte ett alternativ eftersom den avgjort största energiåtgången hos AVLIS är vid just förångningssteget och kylning skulle öka energiåtgången ytterligare.

Vid förångning med elektroresistiv uppvärmning tas värmen upp från ett omgivande element vilket medför att temperaturen är högst vid gränsskiktet mellan uranmetallen och det omgivande kärlet. Detta utsätter som ovan nämnts kärlet för stora påfrestningar. Vid förångning med elektronstråle är tvärtom temperaturen högst vid ytan och lägst vid gränsskiktet mot kärlet. Problemet försvinner emellertid inte helt ens med elektronstråle på grund av konvektiv uppvärmning av kärlväggarna, men i det optimala fallet kan uranmetallen mot väggarna rentav hållas i fast fas.

För att laserexcitationen i det efterföljande steget ska bli effektiv måste uranmetallen förångas i en riktad stråle med hög densitet vilket i sin tur innebär att metallen ska vara placerad på ett sätt som gör detta möjligt. Förångningen görs effektivast med en elektronstråle men det är mycket svårare att åstadkomma den linjärt utbredda draperilikhande förångningsregionen som krävs för att få rätt form på ångströmmen med denna metod än med elektroresistiv uppvärmning. En linjär bestrålningsregion

⁹ Honig, R.E. (1969), *Vapor pressure data for the solid and liquid elements*, RCA Laboratories, David Sarnoff Research Center.

¹⁰ Hett uran, både i vätske- och gasfas, är mycket korrosivt och många traditionella konstruktionsmaterial klarar inte av dess påfrestningar.

¹¹ INFCIRC/254/Rev.12/Part 1, Annex B, 5.7 Explanatory Note

¹² INFCIRC/254/Rev.9/Part 2, 2A

åstadkoms antingen av en elektronstråle som passerar genom ett magnetfält som ger en linjär utbredning, eller av en svepande punktstråle.

En elektronstråle ger även mer fokuserad uppvärmning och därmed högre densitet hos metallången, samt har dessutom högre verkningsgrad och är därmed mindre energikrävande. På grund av ovan nämnda orsaker är uppvärmning med elektronstråle effektivare än elektroresistiv uppvärmning för att generera uranmetallånga.

3.2. Bestrålning

För både AVLIS och MLIS utnyttjar man det faktum att fotoner, i detta fall laserljus, absorberas lite olika för de två uranisotoperna ^{235}U och ^{238}U till att välja ut atomer av den ena isotopen. I princip finns det ett stort antal olika sätt att göra detta på men i praktiken är det bara ett fåtal som är användbara. Gemensamt för både AVLIS och MLIS är att laserljus används för att excitera atomer respektive molekyler av endast ^{235}U och inte ^{238}U men sedan skiljer sig de två metoderna åt med avseende på hur de exciterade atomerna/molekylerna skiljs från de övriga. Nedan kommer vi att i viss detalj att förklara de fysikaliska principerna bakom AVLIS då de i studien ingående beräkningarna har fokuserat på denna metod.

För att över huvud taget kunna skilja de två isotoperna åt så måste en separationsmetod utnyttja någon egenskap som skiljer sig åt mellan dem. För AVLIS är det isotopskiftet i elektronstrukturen som är nyckeln till anrikningen. I en atom fyller elektronerna upp olika nivåer (skal) på grund av utbytes- och korrelationseffekter som populärt brukar kallas uteslutningsprincipen. Denna princip säger att två fermioner (en typ av partiklar som innefattar elektronen) inte kan befinna sig i exakt samma kvantmekaniska tillstånd. I komplexa atomer med många elektroner blir denna nivåstruktur mycket komplicerad med flera lager av strukturer och understrukturer. Den exakta elektronstrukturen kan i princip beräknas med den så kallade Dirac-ekvationen¹³, men på grund av det otroligt stora antalet frihetsgrader för tyngre atomer, se kapitel 5, så måste vissa approximationer göras med avseende på hur elektronernas kollektiva vågfunktion beskrivs. Görs dessa approximationer på ett lämpligt sätt kan man oftast erhålla mycket exakta numeriska lösningar av ekvationen som väl beskriver elektronstrukturen även för så tunga och komplexa atomer som uran.

3.2.1. Isotopskift

Isotopskiftet, det vill säga skillnaden i energi för motsvarande nivå i två olika isotoper, som förekommer mellan alla olika isotoper¹⁴ och inte bara uran, kan delas upp i två olika bidrag; massbidraget och fältbidraget. Det första, som även kallas det normala bidraget, beror bara på skillnaden i massa för de olika isotopkärnorna och är en följd av den strikta kvantifieringen av systemets rörelsemängdsmoment. I ett kvantmekaniskt system är enbart vissa värden tillåtna för vissa storheter, vilket är själva basen i den nivåstruktur som observeras. Rörelsemängdsmomentet är en sådan storhet och det totala rörelsemängdsmomentet har två bidrag, elektronernas spinnmoment och orbitalmomentet. Orbitalmomentet brukar lite förenklat ses som en egenskap som bara beror på elektronernas rörelse då dessa är flera storleksordningar

¹³ Eller som den mer korrekt borde kallas – Dirac-Coulomb-ekvationen, då den även innehåller en potentialterm som beskriver atomkärnans påverkan på elektronerna. Dirac-ekvationen är en relativistisk rörelseekvation som motsvarar den kanske mer kända icke-relativistiska Schrödinger-ekvationen.

¹⁴ Med isotoper menas i striktaste mening den relation som finns mellan två atomer med samma antal protoner men olika antal neutroner i kärnan. De har alltså samma laddning men olika massa. I vardagligt tal brukar man ofta avse i princip samma sak, men tillämpa termen på enskilda typer av atomer om antalet neutroner påverkar de egenskaper som man avser att beskriva.

lättare än kärnan men en noggrann analys ger vid handen att det är elektronernas och kärnans kollektiva rörelse som bestämmer orbitalmomentet. En mycket förenklad bild av detta skulle vara att kärnan vickar lite när elektronerna roterar runt kärnan¹⁵ eftersom hela systemet rör sig runt det gemensamma masscentrumet, på samma sätt som till exempel stjärnor med mycket tunga planeter i tät omlopps bana vickar lite, och ju tyngre kärnan är, desto mindre vickar den vilket påverkar hur de tillåtna orbitalerna ser ut och därmed även dess energi. Det andra bidraget, fältbidraget, beror på formen på den isotopberoende potentialen som elektronerna rör sig i. Båda bidragen beskrivs i mer detalj nedan.

Beskrivning av orbitalmoment och fältbidrag

Nedan följer en mer detaljerad beskrivning av de fysikaliska processerna bakom anrikning med metoden AVLIS. Texten kan läsas översiktligt utan att förståelsen av de övriga delarna av rapporten påverkas.

Energien för elektronsystemet beräknas enligt

$$E = \langle \Psi(PJM_J) | H_D | \Psi(PJM_J) \rangle,$$

där $\Psi(PJM_J)$ är mångelektronvågfunktionen för den kollektiva kvantalsuppsättningen P (paritet), J (relativistiskt rörelsemängdsmoment) och M_J (projektion av rörelsemängdsmomentet). Dirac-hamiltonianen (i atomära enheter, det vill säga där ljushastigheten, elementarladdningen och elektronens massa dimensionslöst satts till 1) skrivs som

$$H_D = \sum_{i=1}^N (\alpha_i \cdot p_i + (\beta_i - 1) + V(r_i)) + \sum_{i < j}^N \frac{1}{|r_{ij}|},$$

där α_i och β_i är Dirac-matriser, p_i är momentoperatoren, r_i är positionsvektorn för elektron i , r_{ij} är distansvektorn mellan elektronerna i och j och $V(r_i)$ är monopoldraget av Coulombpotentialen (det vill säga det bidrag som erhålls om den utbredda kärnan ersätts av en punktladdning) i positionen r_i . Givet ovanstående så kan störningen från rekyleffekten, till ordningen

$$(\alpha Z)^4 \frac{m_e^2}{M}$$

där α är finstrukturkonstanten, Z kärnans laddning, m_e elektronens massa och M kärnans massa, beräknas utgående från väntevärdet för de egenvektorer som erhålls från variationsminimeringen av uttrycket för energin E , taget med rekylhamiltonianen

$$H_R = \frac{1}{2M} \sum_{i,j}^N \left(p_i \cdot p_j - \frac{\alpha Z}{r_i} \left(\alpha_i + \frac{(\alpha_i \cdot r_i) r_i}{r_i^2} \right) \cdot p_j \right).$$

¹⁵ Elektronerna har ingen bestämd position utan bara en densitetsfördelning som bestäms av vågfunktionen, och kan därför inte heller anses rotera runt kärnan. Trots det går det att både definiera och beräkna vågfunktionens orbitalmoment.

Som framgår av uttrycket ovan beror de störningsberäknade energinivåerna på in-
versen av kärnans massa. Om det bara vore massan i prefaktorn som påverkade alla
nivåer för en given isotop skulle detta bara leda till en rigid förskjutning av alla
nivåer¹⁶ och ingen förändring i energiskillnaden mellan två nivåer skulle ske, vilket
är den för anrikning viktiga parametern. Vad som inte är lika uppenbart är att även
momentoperatoren påverkas varför en förändring även av energiskillnaderna mellan
två nivåer ändras för olika isotoper. Massbidraget till förändringen i energidifferen-
sen och den motsvarande våglängden för en övergång är av storleksordningen

$$\lambda_{mb} \propto \left(1 + \frac{M_{235}}{M_{238}}\right) \lambda.$$

Eftersom skillnaden i massa mellan den lättare och tyngre uranisotopen är mycket
liten blir massbidraget relativt litet, jämfört med till exempel massbidraget i isotop-
skiftet för väte.

Det andra bidraget till isotopskiftet, det så kallade fältbidraget, orsakas av föränd-
ringen i laddningsfördelningen i kärnan. Även om antalet protoner är samma för två
isotoper så kommer det ändrade antalet neutroner göra att protonerna förskjuts en
aning. Återigen har inte protonerna och neutronerna några fixa positioner, utan det
är mer korrekt att tala om densiteter och laddningsfördelningar, och laddningsför-
delningen för den tyngre isotopen är oftast något mer utsträckt än för den lättare
isotopen. Om monopolbidraget från Coulombpotentialen ersätts med en mer realist-
isk fördelning i Dirac-hamiltonianen ovan så ger en detaljerad analys vid handen att
det endast är de elektronorbitaler som har en finit laddningstäthet i $r=0$ som ger ett
direkt bidrag till fältbidraget, det vill säga s -orbitaler. Eftersom atomen är ett mång-
kropparsystem med starka utbytes- och korrelationseffekter kommer dock störning-
en av s -orbitalerna även att påverka övriga orbitaler. Detta innebär ett formidabelt
beräkningstekniskt problem som ligger bortom vad som är möjligt för mer än de
enklaste atomer, men flera goda approximationer kan göras för mer komplexa sys-
tem. Utgående från den ostörda elektroniska laddningsfördelningen för nivå i för
isotop A' som erhålls från lösningen av Dirac-ekvationen ovan, $\rho_{i,A'}^e$, kan energi-
skiftet mellan två isotoper för nivå i beräknas med första ordningens störningsräk-
ning till

$$\delta E_i^{(1)A,A'} = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \iint_{r,r'} \frac{1}{|r-r'|} \rho_{i,A'}^e(r) [\rho_A^N(r') - \rho_{A'}^N(r')].$$

Om den elektroniska laddningsfördelningen antas vara sfäriskt symmetrisk¹⁷ kan den
seriutvecklas som ett polynom och energiskiftet skrivs som

$$\delta E_i^{(1)A,A'} = F_{i,\text{level}} L^{A,A'},$$

där Seltzers nukleära parameter är

$$L^{A,A'} = \delta \langle r^2 \rangle^{A,A'} + C_1 \delta \langle r^4 \rangle^{A,A'} + \dots$$

¹⁶ För denna typ av system är den absoluta energin odefinierad utan en godtyckligt vald referenspunkt. En
förskjutning i energi av nivåerna påverkar inga processer som systemet kan genomgå.

¹⁷ Även om urankärnan är prolata, cigarrformad, så är elektronernas laddningsfördelning nästan sfärisk och
felet i energi jämfört med det exakta värdet som approximationen leder till är i sammanhanget försumbart.

och beskriver variationen i den nukleära laddningsfördelningen mellan de två isotoperna,

$$\delta \langle r^2 \rangle^{A,A'} = \langle r^2 \rangle^A - \langle r^2 \rangle^{A'},$$

o.s.v. Den elektroniska nivåfaktorn beror på den elektroniska laddningstätheten i origo,

$$F_{i,level} = \frac{2\pi}{3} Z \left(\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \right) |\Psi(0)|_i^2.$$

Till slut kan fältbidraget till isotopskiftet i frekvensen för en övergång mellan två nivåer u och l skrivas som

$$\delta\nu^{A,A'} = \frac{\delta E_u^{(1)A,A'} - \delta E_l^{(1)A,A'}}{h} = F_{line} L^{A,A'},$$

där h är Plancks konstant och den elektroniska linjefaktorn är

$$F_{line} = \frac{2\pi}{3h} Z \left(\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \right) \Delta |\Psi(0)|^2,$$

där förändringen av den elektroniska laddningstätheten i origo mellan de två orbitalerna är

$$\Delta |\Psi(0)|^2 = \rho_u^e(0) - \rho_l^e(0).$$

Förändringen av den nukleära laddningsfördelningen ökar med ökande atomnummer så fältbidraget till isotopskiftet ökar för tyngre atomer samtidigt som massbidraget minskar. För uran är fältbidraget mer än två storleksordningar större än massbidraget.

Hyperfinspliftring

I samband med isotopseparation med AVLIS av uran talas det ofta om hyperfinnivåer. Elektronernas spinnfrihetsgrader kan växelverka med spinnfrihetsgrader i kärnan vilket gör att de tidigare degenererade nivåerna kan splittras upp på flera undernivåer, med en energiskillnad mellan den lägsta och högsta hyperfinnivån som är ungefär av samma storleksordning som isotopskiftet. ^{238}U har inget nettokärnsppinn, $I = 0$, samtidigt som ^{235}U har ett kärnsppinn på $I = 7/2$. Sålunda uppvisar ^{235}U hyperfinnivåer som den tyngre isotopen inte har. Detta framhålls mycket ofta i litteraturen, men har mycket lite med den selektiva isotopeffekten att göra. Det är snarare så att denna splittring försvårar anrikningen då de översta hyperfinnivåerna i ^{235}U skiftas uppåt i energi, närmare motsvarande osplittrade nivå i ^{238}U , så att den nödvändiga våglängden för en övergång till det eftertraktade exciterade tillståndet närmar sig våglängden för motsvarande övergång i ^{238}U .

För att undvika att kontaminera strömmen av anrikat uran måste delar av utbytet offras och de översta hyperfinnivåerna utnyttjas inte för anrikning. Hyperfinspliftr-

ringen är olika stor för olika nivåer så effekten för olika övergångar varierar och i vissa fall sker ingen splittring alls, beroende på kombinationen av kvanttal. Till exempel är grundtillståndet $5f^3 6d^1 7s^2$ i ^{235}U inte hyperfinsplittrat samtidigt som det exciterade tillståndet $5f^3 6d^1 7s^1 7p^1$ uppvisar en relativt stor splittring. Slutsatsen är att det går att välja övergångar både från och till nivåer både med och utan hyperfinsplittring¹⁸ så länge de uppvisar en isotopberoende skillnad i energidifferens och därmed våglängd. Hyperfinsplittringen är inget krav för AVLIS utan snarare något man måste acceptera och hantera.

3.2.2. Deexcitation

Samtliga elektronprocesser är reversibla och kan därmed gå åt båda hållen. Likväl som laserljus kan excitera en elektron från ett lägre liggande tillstånd till ett högre kan elektronen även deexciteras, d.v.s. övergå från det högre till det lägre liggande tillståndet och sända ut en foton. Detta kommer också att ske förr eller senare, och varje tillstånd över grundtillståndet har en viss genomsnittlig livstid för spontan deexcitation. Utöver detta kan övergången från ett högre exciterat tillstånd till ett lägre även stimuleras om elektronen växelverkar¹⁹ med en foton med samma energi som övergångsenergin mellan nivåerna, precis på samma sätt som i en laser. Om de exciterade atomerna skulle fortsätta befinna sig i laserljuset, som har rätt våglängd för att både excitera och stimulera till deexcitation, skulle atomerna mycket snabbt återgå till grundtillståndet.

För att undvika detta finns det två åtgärder. Dels kan atomerna transporteras genom och ut ur laserljuset så snabbt att de i genomsnitt hinner exciteras men inte sedan stimuleras till att deexcitera, vilket dock skulle kräva orealistiskt höga hastigheter på ångflödet. Dels kan laserljuset pulsas med en sådan frekvens och pulslängd att ett stort antal atomer hinner exciteras under en puls men att pulsen inte är längre än att atomerna inte hinner stimuleras till att deexciteras tillbaka till grundtillståndet. Samtidigt måste dödtiden mellan två pulser vara tillräckligt lång för att atomerna ska hinna passera ut ur strålen innan nästa puls kommer. Det laserljus som sedan joniserar de selektivt exciterade atomerna måste sitta så pass nära att atomerna inte hinner spontant deexciteras innan de belyses igen. Olika energiövergångar har olika livstider så valet av övergång påverkar systemets geometri och vice versa. En för kort livstid ställer mycket höga krav på geometrin i systemet, samtidigt som livstiden är kopplad till sannolikheten för att en laserfoton överhuvudtaget ska absorberas, så en för lång livstid är inte heller lämplig.

I denna studie har vi inte analyserat dessa effekter men det kan konstateras att korta pulser och långa dödtider minskar utbytet. En laser med en pulslängd på 100 ns och en repetitionsfrekvens på 1 kHz²⁰ kommer bara att belysa 1 atom av 10 000 som passerar, resten av tiden kommer lasern att vara släckt. Detta påverkar inte renheten i produktströmmen som bara beror på laserljusets kvalitet, men mängden produkt minskar och mängden material som krävs för att producera en viss mängd ^{235}U ökar. Hur mycket det går att öka repetitionsfrekvensen beror på ångflödets hastighet och exakt vilken energiövergång som har valts.

¹⁸ Det går i princip utmärkt att excitera från djupare liggande nivåer som kan vara både splittrade och osplittrade, men detta skulle kräva högre fotonenergi och mer komplicerade laserarrangemang.

¹⁹ Processen i fråga är relativt komplicerad men bygger på att de två nivåerna, den exciterade och grundtillståndet, bildar en virtuell dipol som kan växelverka med fotoner vars energi passar med dipolens resonansenergi som motsvarar energiskillnaden mellan nivåerna.

²⁰ Detta motsvarar minimikraven för att lasern ska vara under exportkontroll.

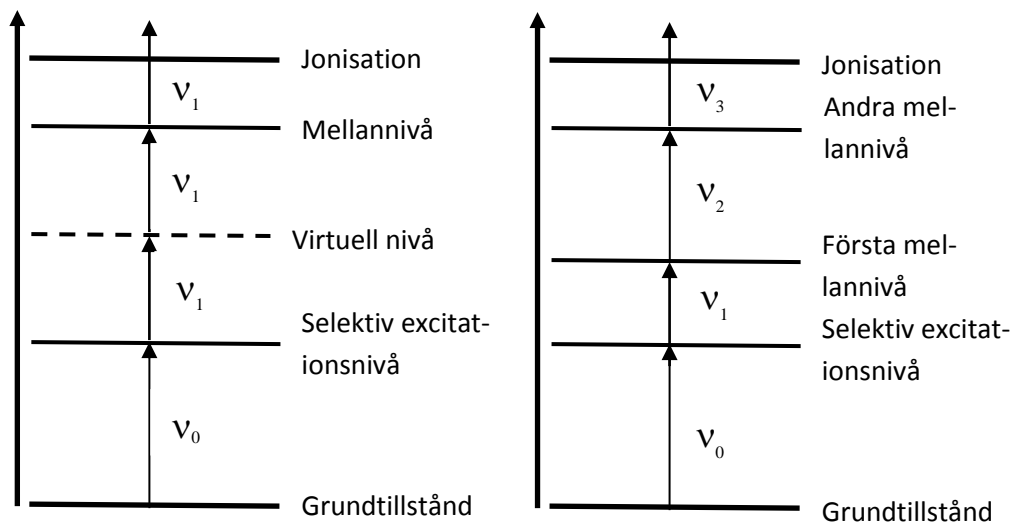
3.2.3. Jonisation

För själva jonisationen finns två huvudsakliga principer: *multicolor* och *single-color multi-photon*²¹. Gemensamt för båda är att man efter det att ²³⁵U selektivt har exciterats till ett högre liggande tillstånd belyser uranströmmen med en eller flera ytterligare lasrar som joniserar de exciterade atomerna men inte de som befinner sig i grundtillståndet. För multicolor har man ytterligare excitationsteg efter det första selektiva steget och för vart och ett av dessa steg en laser med rätt frekvens. Dessa frekvenser måste vara sådana att de inte kan excitera atomer från grundtillståndet. Från det högsta exciterade tillståndet har man sedan en jonisationslaser som joniserar atomerna.

För single-color utnyttjar man enbart en laser för att jonisera de exciterade atomerna. Detta sker genom att fotoner så att säga samarbetar och två fotoner lyfter elektronen från det selektivt exciterade tillståndet via ett virtuellt tillstånd till ett högre liggande tillstånd varifrån ytterligare en foton med samma våglängd joniserar atomen. Det virtuella tillståndet har en mycket kort livstid som beror på dess energi enligt Heisenbergs osäkerhetsrelation,

$$\Delta E \Delta t \leq \frac{\hbar}{2},$$

där ΔE är osäkerheten i energi, det vill i det här fallet säga skillnaden i energi mellan grundtillståndet och det virtuella tillståndet, Δt är osäkerheten i tid, vilket i det här fallet innebär det virtuella tillståndets livslängd, så intensiteten hos laserljuset måste vara mycket hög för att sannolikheten för att tvåfotonsprocessen ska ske ska bli acceptabelt hög,



Figur 2: Jonisation med single-color multiphoton (vänster) och multi-color multiphoton (höger).

²¹ I princip skulle det gå att jonisera i ett steg från det exciterade tillståndet men sannolikheten för att en foton ska absorberas är omvänt proportionell mot energiskillnaden mellan initial- och sluttillståndet så en enstegsprocess blir ändå mindre effektiv än en flerstegsprocess med mindre skillnader mellan de två tillstånden. Se sektion 5 för detaljer.

Används flera virtuella excitationsteg kan ΔE minskas och därmed ökas Δt . Problemet här blir att man förvisso får längre tid men man får ytterligare ett virtuellt steg så trots den längre tiden kan sannolikheten att lyckas bli mindre. Oavsett metod används lasrar med minst två olika frekvenser, den selektiva excitationslasern och en eller flera jonisationslasrar. Dessa lasrar är separerade så att de geometriskt bestrålar olika regioner av uranången.

3.3. Separation

Eftersom laserbestrålningen genererar en stråle med joniserade och icke-joniserade atomer som ska separeras från varandra är en lämplig separationsmetod att låta strålen passera ett elektriskt fält. Även om ångstrålen har ett väldefinierat flöde är den inte perfekt kollimerad vilket innebär att elektrodernas utformning och placering relativt strålen är av stor vikt. Dessutom har ångstrålen plasmaliknande egenskaper vilket gör att då den passerar ett yttre elektriskt fält genererar ett inre elektriskt fält som motverkar det yttre elektriska fältet, samtidigt som de laddade jonerna i strålen repellerar varandra vilket sprider ut strålen. I praktiken är detta ett geometriproblem som kan lösas genom att man för en stråle med en given densitetsfördelning, hastighetsfördelning, kollimeringsgrad och jonisationsgrad kan bestämma den optimala utbredningen av det yttre elektriska fältet, och därmed utformningen och placeringen av elektroderna och uppsamlingskanalerna.

3.4. Uppsamling

Vid mindre anläggning, som till exempel vid försök eller i pilotskala, kan det vara lämpligt med satsvis produktion där produkten, det anrikade uranet, samlas upp tills man avbryter och uranet förs ut ur kammaren. Vid storskalig anrikning ger de återkommande avbrotten troligen oacceptabla produktionsbortfall. I en kontinuerlig process undviker man avbrott, men istället måste uranet på något sätt föras bort från uppsamlingsutrustningen och ut ur kammaren under drift. En möjlig lösning är att samla upp det gasformiga joniserade uranet (formellt ett uranplasma) på en kollektor som håller en temperatur som är anpassad för att uranet ska kondenseras till flytande form, samtidigt som atomerna neutraliseras genom att fånga upp en elektron. Det flytande uranet kan sedan föras ut ur kammaren och antingen samlas upp för vidare bearbetning eller föras in i ytterligare en anrikningskammare i en kaskad för anrikning till högre renhetsgrader.

4. Molekylbaserad laserisotopseparation

I likhet med energitillstånden för en elektron så är även energitillstånden kopplade till en molekyls vibrationer och rörelsemängdsmoment kvantiserade, med en uppdelning i fin- och hyperfinstruktur. Medan AVLIS nyttjar isotopskift i elektronernas energinivåer för att selektivt jonisera en viss isotop, nyttjar molekylbaserad laserisotopseparation, MLIS (*Molecular Laser Isotope Separation*), isotopskift i molekylvibrationernas energinivåer. Själva separationsmekanismen skiljer sig åt mellan olika typer av MLIS, men samtliga varianter bygger på en selektiv excitation av vibrationsabsorberingsbanden hos gasformiga molekyler. Beroende på molekyl exciteras vibrationstillstånden av fotoner från nära infrarött ned till mitten på det infraröda området²².

Vibrationerna hos en diatomär molekyl kan förenklat beskrivas som en harmonisk oscillation med frekvenserna

$$\nu = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{k}{\mu}},$$

där k är styrkan på bindningen mellan atomerna och

$$\mu = \frac{m_1 m_2}{m_1 + m_2}$$

är den reducerade massan. Eftersom μ beror av massorna m_1 och m_2 för de två atomerna, kommer oscillationsfrekvenserna och därmed även vibrationsenerginivåerna variera mellan olika isotoper av samma ämne. Detta är den grundläggande fysikaliska mekanismen som möjliggör selektiv excitation av vibrationsenergi vid MLIS. Principen är densamma för fleratomiga molekyler som dock har ett mer komplext vibrationspektrum eftersom varje möjlig parbildning ger upphov till ytterligare energinivåer²³. Energispektrumet för en perfekt kvantharmonisk oscillator har formen

$$E_n = h\nu(n + 1/2),$$

Där h är Plancks konstant, $n = 0$ motsvarar grundtillståndet och $n = 1, 2, 3, \dots$ motsvarar det första, andra respektive tredje exciterade energitillståndet, o.s.v. Eftersom kopplingen mellan atomerna i en molekyl ändras något då vibrationstillståndet exciteras är avstånden mellan energinivåerna i praktiken inte helt konstanta, men formen med högre och högre excitationnivåer kvarstår.

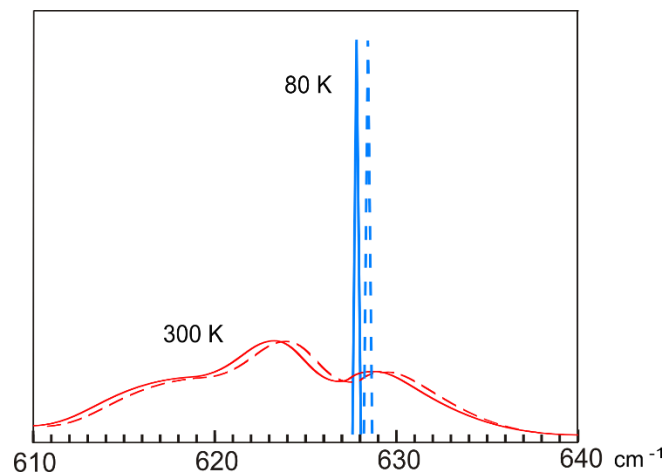
Isotopseparation av uran med MLIS utgår från uranhexafluorid, UF_6 , som relativt enkelt kan hållas i gasform vid de låga temperaturer som är aktuella för processen. En förutsättning för att isotopseparation med molekyLföreningar ska vara möjlig är att de ämnen som utgör molekylen inte introducerar egenskaper som försämrar selektiviteten hos den process som används för separationen. Uranhexafluorid uppfyller detta villkor eftersom naturligt fluor är helt isotoprent (100 % ^{19}F), vilket gör att isotopskiftningen i vibrationsenergi hos UF_6 -molekylen endast är beroende av egenskap-

²² Det infraröda området kan delas in i Near Infrared (NIR) motsvarande våglängder från 780 nm till 3000 nm (1,6 eV till 0,41 eV), Mid Infra-red (MIR) motsvarande våglängder från 3000 nm till 50 μm (410 till 25 meV) och Far Infrared (FIR) motsvarande våglängder från 50 μm till 1 mm (25 till 1,2 meV).

²³ Molekylens eventuella symmetrier påverkar också energitillstånden.

erna hos ^{235}U och ^{238}U ²⁴. MLIS nyttjar den första exciterade nivån av UF_6 -molekylens vibration som ligger 78 meV över grundtillståndet. Detta motsvarar en laservåglängd på 16 μm (630 cm^{-1}), d.v.s. infrarött ljus utanför det synliga området. Isotopskiftet mellan ^{235}U och ^{238}U för denna nivå är 0,125 meV vilket motsvarar en våglängdsskillnad på 0,025 μm och därmed ställs höga krav på laserns noggrannhet och stabilitet.

Absorptionsspektrumet hos en molekyl påverkas även av gasens temperatur via så kallad termisk Dopplerbreddning. I takt med att temperaturen hos gasen ökar, breddas absorptionslinjerna och motsvarande resonanser "smetas ut" för att till slut överlappa varandra. Den låga energidifferensen 0,125 meV för isotopskiftet hos UF_6 gör att fotonabsorptionsfrekvenserna för ^{235}U och ^{238}U överlappar redan vid rumstemperatur. Detta innebär att temperaturen hos UF_6 -gasen måste hållas mycket låg, åtminstone under 200 K²⁵, för att en selektiv excitation av $^{235}\text{UF}_6$ -molekyler skall vara möjlig. En låg temperatur är också nödvändig för att maximera andelen molekyler som befinner sig i grundtillståndet. Andelen UF_6 -molekyler i grundtillståndet överskrider 50 % först när temperaturen är lägre än 95 K²⁶. Se figur 3 för en schematisk bild av absorptionens temperaturberoende i det infraröda området hos uranhexafluorid.



Figur 3. Schematisk bild av temperaturberoendet för absorptionen hos $^{238}\text{UF}_6$ (helldragna linjer) och $^{235}\text{UF}_6$ (streckade linjer), som funktion av invers våglängd, kayser [cm^{-1}]. Vid 300 K överlappar absorptionslinjerna varandra så mycket att en selektiv excitation i praktiken blir omöjlig. Notera att figuren inte är skalenlig, absorptionstvärnsnittet vid 300 K är egentligen mycket lägre. Absorptionen vid 80 K har också förenklat och visar endast den så kallade Q-grenen av spektrumet.

Utöver att kyla uranhexafluoriden till en mycket låg temperatur, måste gasflödet ha låg täthet och hög hastighet. Den höga hastigheten krävs för att laserljuset inte skall hinna stimulera en redan exciterad molekyl, medan den låga tätheten krävs för att minska antalet kollisioner, då båda dessa processer leder till deexcitation av molekylerna. De specifika kraven på gasflödet vid MLIS uppnås genom att uranhexafluori-

²⁴ Naturligt uran innehåller även en liten andel ^{234}U (0,005 %) samt spårmängder av ^{233}U och ^{236}U . Förekomsten av dessa isotoper är dock helt försumbara i sammanhanget, både MLIS och AVLIS.

²⁵ Schwab et al, Laser techniques applied to isotope separation of uranium, Progress in Nuclear Energy, 33(1), 217–264, 1998.

²⁶ Rockwood, Uranium Isotope Separation and Its Demand on Laser Development, Tunable Lasers and Applications, Springer Series in Optical Sciences, Volume 3, 140-149, 1976.

den pumpas tillsammans med en bärgas, genom ett så kallat lavalmunstycke, vilket isentropiskt²⁷ både kyler ned gasen och accelererar den till hög hastighet. Utblandningen med en bärgas är nödvändig för att uppnå önskad hastighet och temperatur hos flödet samtidigt som uranhexafluoriden förblir gasformig efter att den expanderat i lavalmunstycket. Vanliga bärgaser är kväve, ädelgaser och svavelhexafluorid, där valet av bärgas varierar mellan olika typer av MLIS.

4.1. Typer av MLIS

Kort sammanfattat bygger samtliga metoder för uranseparation med MLIS på en selektiv excitation av vibrationstillstånden hos ²³⁵UF₆-molekyler i ett flöde av uranhexafluorid med mycket låg temperatur, låg täthet och hög hastighet. När denna första selektion mellan isotoperna har skett, måste ²³⁵UF₆-molekylerna skiljas åt med någon typ av separationsmekanism. Den specifika separationsmekanismen skiljer sig åt mellan olika MLIS-varianter och en rad olika metoder har undersökt sedan forskningen kring molekylbaserad laserisotopseparation tog fart i början på 1970-talet. De flesta nationella forskningsprogrammen kring MLIS är dock inte aktiva i dagsläget och SILEX är den enda MLIS-metod som har tagit klivet från laborieförsök till kommersialisering.

4.1.1. MOLIS

Vid MOLIS (Molecular Obliteration Laser Induced isotope Separation) tillförs ytterligare energi till den exciterade ²³⁵UF₆-molekylen så att den till slut bryts ner, dissocierar, till ²³⁵UF₅ och fritt fluor. UF₅ kondenserar vid lägre temperaturer än UF₆ vilket gör att föreningen sublimerar i det kalla gasflödet och faller ut som ett fint pulver som relativt enkelt kan separeras med filter eller cyklonrening²⁸. För att ta hand om det extremt reaktiva fluoret och förhindra att det återigen binder med uranpentafluoriden kan en reaktant som metan tillföras gasflödet. Typiska bärgaser för MOLIS är inerta gaser som argon och kvävgas med en utblandning motsvarande koncentrationer kring 5 % uranhexafluorid²⁹.

Energien 2,7 eV som behöver tillföras för att uranhexafluoriden skall dissociera motsvarar laserljus i det ultraviolette området och en möjlig lösning är att belysa det vibrationsexciterade gasflödet med en XeCl-laser. Dissociationen sker dock relativt långsamt i detta fall vilket gör att en betydande andel av de UV-exciterade molekylerna förlorar energi via kollisioner och därmed aldrig bryts sönder. Ett mer fördelaktigt tillvägagångssätt är att nyttja en effekt i vibrationsspektrumet som gör att energinivåerna breddas av den initiala vibrationsexcitationen. Breddningen gör att en exciterad molekyl kan absorbera många fotoner med låg energi och därmed kan höjas till ett tillstånd där den dissocierar, så kallad *multiphoton dissociation* (MPD). Effekten gör det möjligt att använda en pulsad koldioxidlaser som frekvensskiftats till 16 μm för dissociation av uranhexafluoriden, givet att laserns effekt är tillräckligt hög, i storleksordningen tiotals megawatt³⁰. En betydande utmaning för MOLIS har också varit kravet på hög intensitet hos laserljuset som behövs för en effektiv disso-

²⁷ Gasens entropi är konstant under flödet genom ett lavalmunstycke, vilket även resulterar i att processen är reversibel och adiabatisk (ingen värme överförs till eller från gasen). Att processen är adiabatisk är viktigt för att bevara molekylerna grundtillstånd under expansion.

²⁸ Vid cyklonrening pumpas gasen tangentiellt in i en vertikal cylinder där centrifugalkraften pressar de fasta partiklarna mot cylinderns väggar. Gravitationen drar sedan de fasta partiklarna mot cylinderns botten medan den renade gasen pumpas ut i cylinderns topp.

²⁹ Eerkens & Kim, Isotope Separation by Selective Laser-Assisted Repression of Condensation in Supersonic Free Jets, American Institute of Chemical Engineers (AIChE) Journal, 56(9), 2331-2337, 2010.

³⁰ Horsley *et al.*, Laser Chemistry Experiments with UF₆, IEEE Journal of Quantum Electronics 16, 412-419, 1980.

ciation. En annan nackdel är att dissociationen även leder till att en mängd olika UF_x -molekyler bildas, som därmed kontaminerar produktflödet och försvårar utvinningen av det anrikade uranet.

4.1.2. CRISLA

CRISLA (Chemical Reaction by Isotope Selective Laser Activation)³¹ är en fotoke-misk separationsmetod besläktad med MOLIS. Fotokemiska separationsmetoder har undersökts av ett flertal länder inklusive USA, Japan, Sydafrika, Australien samt Kina, och varianter av metoden går även under namnet CHEMLIS (Chemically Enhanced Molecular Laser Isotope Separation). Efter den initiala vibrationsexcitati-onen av $^{235}UF_6$, ökas energin hos molekylerna genom ytterliggare excitationer, dock nödvändigtvis inte ända upp till dissociation. Den ökade energin hos $^{235}UF_6$ nyttjas för att trigga kemisk reaktion med en reaktant som tillförs gasflödet. Anrikningsfak-torn ges av kvoten mellan reaktionsraterna för exciterade molekyler och molekyler i grundtillståndet, där möjliga reaktanter är olika blandningar av HCl, HBr, SiH₄, BrF₃, ClFr₃, SF₄, N₂F₂ och diklorfluoretylen. Jämfört med andra MLIS-metoder ställer CRISLA höga krav på system för gasfyllning och annan vakuumteknologi.

4.1.3. SILARC

SILARC (Separation of Isotopes by Laser Assisted Retardation of Condensation) nyttjar skillnaden i kondensationsraten mellan exciterade molekyler och molekyler i grundtillståndet. Den lägre energin hos $^{238}UF_6$ -molekyler i grundtillståndet gör att de kan bilda små van der Waals-bundna kluster och därmed kondenserar snabbare än exciterade $^{235}UF_6$ -molekyler³². Genom att låta gasflödet passera en köldfälla³³ fångas $^{238}UF_6$ -molekylerna in och det genomsläppta flödet blir således anrikat i ^{235}U . Meto-den kräver dock ett gasflöde med både lågt tryck och en hastighet under ljudhastig-heten, vilket leder till låga massflöden och därmed en låg produktionsrat³⁴.

4.1.4. MLIS-CR

MLIS-CR (Molecular Laser Isotope Separation using Condensation Repression) är en vidareutveckling av SILARC i den meningen att metoden nyttjar de van der Waals-bundna kluster som bildas av molekyler i grundtillståndet. Hastigheten hos gasflödet i MLIS-CR är dock högre än ljudhastigheten och separationsmekanismen bygger på diffusion av molekyler i gasstrålen. Vid den kondensation som uppstår nedströms i gasstrålen från lavalmunstycket, binds molekyler i grundtillståndet³⁵ i

³¹ Ett flertal publikationer rörande molekylbaserad laserisotopseparation baseras på forskning vid CRISLA Research Laboratory, University of Missouri, Columbia, Missouri (USA), se t.ex. Eerkens, Laser-Induced Migration and Isotope Separation of Epi-Thermal Monomers and Dimers in Super-cooled Free Jets, *Laser and Particle Beams*, 23, 225-253, 2005, med referenser. För att undvika begreppsförvirring bör det dock poängte-ras att forskning kopplad till CRISLA Research Laboratory innefattar flera varianter av MLIS, inklusive sepa-rationsmetoder baserade på skillnader i kondensationsrater, så kallad SILARC. Se vidare kommentarer rörande förkortningen CRISLA i Eerkens & Kim, Isotope Separation by Selective Laser-Assisted Repression of Condensation in Supersonic Free Jets, *American Institute of Chemical Engineers (AIChE) Journal*, 56(9), 2331-2337, 2010.

³² Notera att bildningen av van der Waals-bundna kluster påverkar energinivåerna hos de ingående molekyl-erna, vilket t.ex. innebär att effekten stör dissociationsprocessen vid MOLIS. I detta fall justeras istället flödet så att klusterbildningen inte hinner sätta in innan molekylerna exciteras för dissociation.

³³ Ett annat alternativ är att skjuta in uppsamlade partiklar i gasflödet som sedan kan föras bort via ett filter.

³⁴ Eerkens & Kim, Isotope Separation by Selective Laser-Assisted Repression of Condensation in Supersonic Free Jets, *American Institute of Chemical Engineers (AIChE) Journal*, 56(9), 2331-2337, 2010.

³⁵ Van der Waals-kraften som binder en dimer motsvarar bindningsenergierna på i storleksordningen 0,01 eV. Vibrationsenergin hos en exciterad $^{235}UF_6$ -molekyl motsvarar 0,1 eV vilket både förhindrar att de bildar di-merer samt bryter upp eventuella dimerer som har bildas av $^{235}UF_6$ -molekyler i grundtillståndet.

dimerer³⁶ på formen $^{238}\text{UF}_5$: $^{238}\text{UF}_5$ och $^{238}\text{UF}_5\text{:G}$, där G är bärgasen. De tunga dimererna tenderar att stanna i gasstrålens inre delar medan de exciterade molekylerna migrerar mot gasstrålens rand där flödet inte längre överstiger ljudhastigheten. Anrikningsfaktorn beror på masskillnaden mellan dimererna och de exciterade $^{235}\text{UF}_5$ -molekylerna, $\Delta M = M_G + 3$, och ökar därmed med ökad molmassa på bärgasen. Möjliga bärgaser är svavelhexafluorid ($M_G=146$ g/mol) och xenon ($M_G=131$ g/mol) som även har tillräckligt höga adiabatiska index för att tillåta adiabatisk expansion i munstycket. Den ^{235}U -anrikade ytterdelen av gasstrålen separeras med hjälp av en enkel flödesdelare, där överljudshastigheten i centrum av gasstrålen förhindrar att delaren påverkar separationsprocessen bakåt i strålen. Den exakta mekanismen för bildning och fördelning av dimerer i en jetstråle är mycket komplex och har varit en teoretisk utmaning för MLIS-CR. En utförlig genomgång av separationsmetoden finns i Eerkens³⁷.

Typiska tryck vid isotopseparation med MLIS-CR är 1,5 kPa för matarflödet vilket drastiskt minskar ned till runt 10^{-3} kPa efter att gasen har expanderats av lavalmunstycket. Till skillnad från MOLIS och CRISLA har produktflödet i MLIS-CR samma kemiska form som matarflödet vilket underlättar anrikning i kaskad. Med en anrikningsfaktor $\alpha \sim 2$ för MLIS-CR³⁸ behövs endast tre anrikningssteg för att gå från naturligt uran till en anrikning lämplig för kraftproducerande reaktorer kring 5 %, vilket kan jämföras med elva anrikningssteg för en centrifug med anrikningsfaktorn $\alpha = 1,2$.

4.1.5. SILEX

SILEX är ett varumärke för en process utvecklad i Australien och metoden kan användas för isotopseparation av både uran och andra grundämnen. Även om metoden är kommersialiserad i officiell mening finns ingen fullskalig produktionsanläggning som nyttjar processen. Den exakta separationsmekanismen för SILEX är inte känd i den öppna litteraturen p.g.a. både spridningsrisker och kommersiella skäl, men flera faktorer tyder på att metoden liknar MLIS-CR. Matar-, produkt och avfallsflödet (*tail*) hos SILEX består av uranhexafluorid och en bärargas³⁹. Gasblandningen kyls ned via adiabatisk expansion i ett munstycke för att sedan belysas med en eller flera våglängder vid 16 μm , där laserljuset produceras av en pulsad koldioxidlaser som frekvensskiftats med Ramanspridning i väte⁴⁰. Den exakta anrikningsfaktorn för uran är okänd men ligger någonstans i intervallet mellan 2 och 20 och separationsmekanismen är troligen baserad på bildningen av van der Waals-bundna kluster i gasflödet. En mer spekulativ uppgift är att processen även nyttjar centrifugaleffekten genom att låta gasstrålen böjas av mot en krökt yta, i likhet med aerodynamisk separation i ett strålmunstycke⁴¹.

³⁶ Dimer är en generell benämning på en kemisk struktur uppbyggd av två identiska eller liknande enheter. I fallet ovan binds två tunga gasmolekyler med van der Waals-bindning.

³⁷ Eerkens, Laser-Induced Migration and Isotope Separation of Epi-Thermal Monomers and Dimers in Supercooled Free Jets, *Laser and Particle Beams*, 23, 225-253, 2005. Se även Eerkens, Improved Relations for Vibrational Excitation in Gases, *Chemical Physics Letters*, 430, 272-276, 2006.

³⁸ Eerkens & Kim, Isotope Separation by Selective Laser-Assisted Repression of Condensation in Supersonic Free Jets, *American Institute of Chemical Engineers (AIChE) Journal*, 56(9), 2331-2337, 2010.

³⁹ Rousseau & Lepingwell, Isotopic Separation by Laser Based Technologies: Safeguard Related Aspects, IAEA-CN-184/262, International Atomic Energy Agency, 2010.

⁴⁰ Lyman, Enrichment Separative Capacity for SILEX, LA-UR-05-3786, Los Alamos National Laboratory, 2005.

⁴¹ Fuß, Laser Isotope Separation and Proliferation Risks, MPQ 346, Max-Planck-Institut für Quantenoptik, 2015.

4.2. Utrustning för MLIS

Till skillnad från AVLIS, som kräver en pulsad laser för att undvika stimulerad deexcitation, är hastigheten på gasflödet i MLIS så pass hög att metoden kan nyttja en kontinuerlig laser⁴². Den lasertyp som bäst uppfyller kraven för MLIS är koldioxidlasern som har en våglängd på 10,6 μm och kan ge en kontinuerligt hög effekt. Vid isotopseparation av uran krävs en våglängd på 16 μm , vilket kan uppnås genom att frekvensskifta laserljuset i en Ramancell.

När ett material belyses med fokuserat laserljus med hög effekt sprids ljuset till våglängder skiftade i förhållande till det inkommande laserljuset, via så kallad resonant Ramanspridning. Våglängdsskiftet motsvarar energinivåerna hos det belysta materialets molekyler, där vätgas är det medium som används i Ramancellen för MLIS. Mer specifikt nyttjas para-väte, d.v.s. H_2 där protonerna hos de två väteatomerna har motsatt spin, i en så kallad *multipass*-cell av Herriott-typ. För att behålla spinkonfigurationen hos para-väte och minimera förluster vid spridningen hålls vätet vid tryck under 1 bar och en temperatur nära 70 K. Herriott-cellen består av två motsatta, sfäriska speglar där avståndet mellan speglarna justeras för att uppnå önskat antal reflektioner och därmed antalet passager för laserljuset genom vätet, i storleksordningen 20 st. För tillräckligt högt utbyte måste koldioxidlasern ha en effekt på över 30 MW⁴³. Våglängden hos det resulterande laserljuset vid 16 μm kan sedan finjusteras med en elektro-optisk modulator (EOM) där vibrationsexcitationen kräver en frekvensnoggrannhet på $\sim 10^{-5}$. Även andra lasertyper kan användas för MLIS och de vanligaste varianterna sammanfattas i tabell 1.

Tabell 1. Lasertyper vid isotopseparation av uran med MLIS. Till skillnad från de andra lasertyperna producerar frielektronlasern en relativt bred spektrallinje, i storleksordningen $\Delta\nu/\nu \sim 10^{-2}$.⁴⁴

Typ	Våglängd [μm]	Pulsad / Medeleffekt [W]	Pulsrat [Hz]	Kommentar
para- H_2	15-16	$> 10^6$ / > 100	50	Ramanspridning av CO_2 -laser
CF_4	16,26	$> 10^5$ / 6	50	Pumpning med CO_2 -laser
NH_3	10,5-14,5	$> 10^6$ / 150	100	Pumpning med CO_2 -laser
FEL	UV-IR	$> 10^7$ / $\geq 10^5$	105	Frielektronlaser

Samtliga komponenter som är i kontakt med uranhexafluoriden måste uppfylla kraven på korrosionsbeständighet. Detta innebär att viss optik måste anpassas för korrosiva förhållanden och att samtliga komponenter i rostfritt stål måste motsvara kvaliteten 316L eller bättre. Det kan noteras att vakuumsystem ofta har en mycket hög stålqualität oavsett applikation eftersom dessa ståltyper även är lätta att rengöra och uppfyller kraven på låg utgasning vid låga tryck.

En central komponent vid isotopseparation med MLIS är expansionsmunstycket som används för att kyla gasblandningen. För att klara den korrosiva miljön kan

⁴² Ett undantag är SILEX som nyttjar en pulsad laser.

⁴³ Fuß, Laser Isotope Separation and Proliferation Risks, MPQ 346, Max-Planck-Institut für Quantenoptik, 2015.

⁴⁴ Baranov *et al.*, Laser Methods of Isotope Separation, Proc. International Conference on Lasers '97, 15-19 dec, New Orleans 1997, SPIE, 1998.

munstycket t.ex. vara tillverkat i koppar. Beroende på den specifika tekniska lösningen för MLIS-processen kan dysan även vara försedd med ett fönster för laserljuset, tillverkat av ZnSe eller RbCl för att tillåta transmission av laserljus med våglängden 16 μm .

En stor del av utrustningen för MLIS, såsom in- och utmatningssystem för uranhexafluorid, kompressor och axeltätningar, liknar de komponenter som används vid isotopseparation med gasdiffusion eller gascentrifugering, men är betydligt mindre. Komponenter som tillkommer för hantering av gasen är kompressorer för blandning av uranhexafluoriden med en bärargas, samt gasseparationssystem för att i slutänden skilja gaserna åt. Denna separation kan antingen ske i kylfällor där uranhexafluoriden desublimerar eller i mer avancerade kryogena separatorer, beroende på typ av bärargas.

4.3. Slutkommentarer MLIS

Energiåtgången för isotopseparation i MLIS varierar mellan de olika metoderna och beror även på detaljer i den tekniska lösningen. Uppskattade värden för MOLIS och CRISLA är 30 kWh/SWU respektive 10 kWh/SWU, vilket kan jämföras med 40 kWh/SWU för AVLIS och 50 kWh/SWU för isotopseparation med gascentrifuger⁴⁵. Det bör dock poängteras att dessa uppskattningar baseras på massproduktion och inte är realiserade i dagsläget. En fördel med MLIS jämfört med AVLIS är just att energiåtgången för infraröd laser potentiellt är lägre än för laser i det synliga området, men två generella utmaningar för MLIS har varit att uppnå tillräckligt hög selektivitet och produktionsrat.

Hos de MLIS-varianter där produktflödet fortfarande är blandat med bärgasen måste uranhexafluoriden separeras vilket ökar energiåtgången för metoden. En viss nackdel med MLIS jämfört med AVLIS är även att uranet måste utvinnas från uranhexafluoriden, vilket kräver ytterligare processteg även om processen i sig är mycket väletablerad. Det kan slutligen nämnas att de krav som ställs på laserns noggrannhet och stabilitet vid MLIS är något lägre än de krav som ställs vid AVLIS, men det är snarare andra faktorer som t.ex. korrosiviteten hos förångat uran som utgör en mer markant skillnad i utmaning mellan de två metoderna.

Enligt uppgifter från företaget bakom SILEX kan processen sättas upp under kort tid i förhållandevis små anläggningar till relativt låg kostnad. Ur ett icke-spridningsperspektiv skulle detta göra metoden mycket attraktiv för en proliferator som vill uppföra en dold anriktningsanläggning. En mer noggrann granskning pekar dock på att spridningsrisken för SILEX är jämförbar med den för gascentrifuger⁴⁶. Att upptäcka dolda anriktningsanläggningar via t.ex. satellitbilder är också generellt sett svårt oavsett anläggningarnas faktiska storlek och utförande. Istället utgör inköp av t.ex. koldioxidlasrar, Ramanceller, optik för infrarött laserljus och utrustning för kryogena gaser, viktiga indikatorer för att upptäcka MLIS-baserad isotopanrikning.

⁴⁵ Baranov et al., Laser Methods of Isotope Separation, Proc. International Conference on Lasers '97, 15-19 Dec, New Orleans 1997, SPIE, 1998.

⁴⁶ Se Fuß, Laser Isotope Separation and Proliferation Risks, MPQ 346, Max-Planck-Institut für Quantenoptik, 2015, med referenser.

5. Beräkningar, anrikning med AVLIS

Själva kärnan i en exakt beskrivning av laserljusets växelverkan med uranatomerna är kunskapen om de atomära tillstånden och hur de kopplar till elektromagnetisk strålning med olika energier. Det är också denna del som är den mest tekniskt komplicerade och kräver mycket omfattande numeriska beräkningar. När väl den mikroskopiska atomära beskrivningen är komplett så måste den makroskopiska växelverkan mellan urangasen och laserljuset beräknas, där både det kollektiva beteendet, både termodynamiskt och optiskt, hos uranatomerna kopplas till laserljusets profil. Nedan följer en kortfattad beskrivning av beräkningsgången.

Som nämnt i tidigare kapitel utnyttjar man vid anrikning med AVLIS de mycket små energiskillnader som finns i elektrontillstånden i ^{235}U jämfört med ^{238}U för att selektivt excitera ^{235}U . Skillnaden kallas isotopskift och orsakas dels av skillnaden i massa mellan de två isotoperna och dels på skillnaden i den geometriska utsträckningen av den laddade kärnan. Skiftet är av storleksordningen $\Delta E/E = 10^{-6}$ så den beräkningsmetod som väljs måste ge korrekta energinivåer med minst denna upplösning. Den metod som valdes för denna studie är en så kallad multikonfigurations-Dirac-Hartree-Fock-metod så som den är implementerad i programpaketet GRASP2K⁴⁷. Den sista delen av namnet på metoden kommer från det sätt som atomernas mångkropparsvågfunktion är uppbyggd, nämligen i form av Slater-determinanter konstruerade från enelektrontillstånd. Uranatomen är så pass tung och har så många elektroner och följaktligen höga kvanttal att en relativistisk hantering krävs för en tillräckligt noggrann beskrivning av elektrontillstånden. Därför löses den relativistiska Diracekvationen istället för den icke-relativistiska Schrödingerekvationen. Till slut byggs det bas-set som lösningen baseras på, även kallad multi-referens, upp av ett stort antal möjliga tillstånd, så kallade *atomic state functions*, ASF. Detta gör man för att på ett bra sätt ta hänsyn till de tillståndsfluktuationer som ständigt sker i atomen. Det grundtillstånd som uranatomen har, $5f^3 6d^1 7s^2$, har en inblandning av ett stort antal andra tillstånd, till exempel $5f^3 6d^1 7p^2$. Man kan mycket förenklat se det som att en elektron som i huvudsak befinner sig i en $7s$ -orbital mycket snabbt hoppar till en $7p$ -orbital och sedan tillbaka. Den skulle också kunna hoppa till en $7d$ -orbital eller $8s$ -orbital.

Den mest dominerande typen av växelverkan mellan atomer och elektromagnetisk strålning i det energiintervall som är av intresse för denna studie exciterar en elektron från en orbital till en annan orbital, en så kallad bunden-bunden övergång, där orbitalmomentet l skiljer en enhet⁴⁸ mellan orbitalerna, $\Delta l = 0, \pm 1$. Den mest troliga slutkonfigurationen är sålunda $5f^3 6d^1 7s 7p$ men även här måste ett stort antal möjliga konfigurationer vägas in, bland annat $5f^3 6d^1 7p 7d$.

Alla dessa olika möjligheter måste tas i beaktande varför den möjliga rymden av lösningar växer oerhört snabbt. Man måste också hantera alla de möjliga sätt som de sex valenselektronerna kan placeras i de $14 \times 10 \times 2$ valensorbitalerna ($14 \times 10 \times 2 + 14 \times 10 \times 6$ om även $7p$ vägs in). Bara denna enkla konfiguration ger 109 200 möjliga lösningar som alla måste beräknas och viktas in. Om även excitationer till $7d$ tas med ökar antalet möjliga lösningar till ca 500 000 och siffrorna blir snabbt astronomiska om excitationer till högre liggande orbitaler tas med. Som tur är går det att

⁴⁷ Grasp2K Relativistic Atomic Structure Package, version 1.1, P. Jönsson, G. Gaigalas, J. Bieroń, C. Froese Fischer, and I.P. Grant, Comput. Phys. Commun. 184, 2197 – 2203 (2013).

⁴⁸ Orbitalmomentet för elektroner och andra kvantmekaniska partiklar mäts i enheter av Plancks reducerade konstant \hbar . En foton har orbitalmomentet $1 \hbar$ med "riktningen" parallell eller antiparallell med elektronens orbitalmoment.

a-priori göra en approximativ uppskattning hur mycket de olika orbitalerna bidrar till den slutliga lösningen och detta gav vid handen att den nödvändiga multireferensen som behövdes för att på ett korrekt sätt beskriva övergångarna från initialtillståndet till sluttillståndet var, med den notation som används i GRASP2K,

$$5f(3,*)6d(1,*)7s(2,*) , 5f(3,*)6d(1,*)7p(2,*) \rightarrow$$

$$5f(3,*)6d(1,*)7s(1,*)7p(1,*) , 5f(3,*)6d(1,*)7p(1,*)7d(1,*)$$

där antalet möjliga tillåtna excitationer valdes till 2.

Efter det att de atomära initial- och sluttillstånden har beräknats med de relativistiska vågfunktionerna som resultat, kan både energin för de olika tillstånden och sannolikheten samt livstiden för en spontan övergång mellan de olika tillstånden beräknas. Eftersom det är frågan om en dipol-tillåten övergång så är den helt dominerande processen den elektriska dipolövergången E1 med sannolikheten

$$P_{E1} = \left| \frac{ih}{\pi(E_f - E_i)} \langle \Psi_i | \hat{p} | \Psi_f \rangle \right|^2 ,$$

där \hat{p} är momentoperatören. För ett tidsberoende elektromagnetiskt fält polariserat i z-riktningen med vinkelfrekvensen ω , $\mathbf{E} = E_0 \hat{z} \cos \omega t$, blir sannolikheten

$$P_{E1}(\omega) = \frac{|W_{DE}|^2 \pi^2 \sin^2\left(\frac{1}{2}(\omega_{fi} - \omega)t\right)}{4h^2 \left(\frac{1}{2}(\omega_{fi} - \omega)\right)^2} ,$$

där

$$|W_{DE}|^2 = q^2 E_0^2 \left(\frac{\omega_{fi}}{\omega}\right)^2 \left| \langle \Psi_i | z | \Psi_f \rangle \right|^2$$

och ω_{fi} är vinkelfrekvensen för övergången från initial- till sluttillståndet. Vinkelfrekvensen är proportionell mot energiskillnaden mellan nivåerna. När fotonens energi exakt matchar energiskillnaden mellan nivåerna, det vill säga vid resonansen, så blir sannolikheten konstant och det exakta värdet beror på vågfunktionernas överlapp.

Den eftersökta storheten är den inversa livstiden, också kallad Einsteins A-koefficient för emission,

$$A_{fi} = \frac{2}{3} \frac{\omega_{fi}^3}{\epsilon_0 c^3 h} \frac{P_{E1}}{2J_i + 1} ,$$

ϵ_0 är dielektricitetskonstanten för vakuum, c ljushastigheten och h Plancks konstant. Sannolikheten för en övergång är viktad med multipliciteten för det initiala tillståndet, $2J_i + 1$, vilket beror på att det finns fler möjliga tillstånd, suborbitaler, som kan bidra till övergången ju högre värde på det totala orbitalmomentet J som den aktuella nivån har.

De övriga processer som sker i urangasen när den belyses med laserljus, absorption och stimulerad emission, kan beräknas utgående ifrån Einstein-koefficienten för spontan emission förutsatt att systemet befinner sig i lokal termisk jämvikt vilket torde vara en god approximation då densiteten är så pass hög, ca 10^{15} atomer/cm³, att kollisionerna mellan atomerna snabbt termaliserar systemet och fördelar energin. Förutsatt termodynamisk jämvikt kan den frekvensberoende opacitetskoefficienten skrivas som

$$\kappa_\nu = \frac{c^2}{8\pi\nu_0^2} \frac{2J_f + 1}{2J_i + 1} N_i A_{fi} \left(1 - e^{-\frac{h\nu_0}{kT}} \right) \phi(\nu)$$

där ν_0 är frekvensen motsvarande energiskillnaden mellan nivåerna, N_i är nummerdensiteten, k Boltzmanns konstant, T temperaturen och $\phi(\nu)$ linjeprofilen som beskriver hur atomernas relativa slumpmässiga rörelse och den finita livstiden på de exciterade tillstånden sprider ut övergångsenergin över ett ändligt intervall. Kombinationen av dessa två effekter ger en så kallad Voigt-fördelning,

$$\phi(\nu) = \frac{1}{\Delta\nu_D \sqrt{\pi}} H(a, u)$$

där Hjerting-funktionen ges av

$$H(a, u) = \frac{a}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{e^{-y^2}}{a^2 - (u - y)^2} dy, \quad a = \frac{\sum_f A_{fi}}{4\pi\Delta\nu_D}, \quad u = \frac{\nu - \nu_0}{\Delta\nu_D}$$

med Dopplerbreddningen

$$\Delta\nu_D = \frac{\nu_0}{c} \sqrt{\frac{2kT}{m_U}}$$

Den totala opaciteten ges till slut av en summering över alla tillåtna övergångar. I en så pass komplicerad atom som uran med ett stort antal möjliga tillstånd blir antalet övergångar och därmed linjer i spektrumet så stort att de breddade linjerna i det närmaste bildar ett kontinuum. Vikningen mellan de olika övergångarna beror på hur initialtillstånden är termiskt populerade vilket ges av Boltzmann-fördelningen

$$p_i = \frac{e^{-\varepsilon_i kT}}{\sum_{j=1}^M e^{-\varepsilon_j kT}},$$

där p_i är sannolikheten för att systemet ska befinna sig i tillstånd i , ε_i energin för tillstånd i och M antalet tillstånd. Fördelningen ger vid handen att ju högre energin för ett tillstånd är över det tillstånd med lägst energi, desto mindre sannolikt är det att systemet befinner sig i det tillståndet.

För att kunna avgöra hur mycket laserljus som absorberas av urangasen, och därmed hur effektiv en viss laser är för anrikning, måste transportekvationen för strålning lösas⁴⁹,

⁴⁹ Se till exempel Radiation Hydrodynamics, G. C. Parnianing, Pergamon Press, Oxford (1973)

$$\frac{dI_\nu}{dr} = -\kappa_\nu I_\nu + S_\nu$$

där I_ν är den specifika frekvensberoende intensiteten, det vill säga flödet av ljus per tidsenhet och frekvens genom ett ytelement $d\sigma$ i riktningen Ω i vinkeln θ från ytelementet $d\sigma$ normal, genom rymdvinkelelementet $d\Omega$. r är sträckan längs ljusets färdväg och S_ν är den spontana emissionen i motsvarande rymdelement och frekvens. Det totala frekvensberoende flödet fås genom att transportekvationen löses för alla vinklar och för alla frekvenser för den sträcka som är aktuell. I praktiken delas r in i ett antal delsträckor r_1, r_2, \dots, r_n i vilka opaciteten och emissionen antas vara konstant, samt i ett antal strålar med olika riktningar. Då kan transportekvationen lätt integreras från punkt till punkt⁵⁰ och resultatet från de olika riktningarna viktas samman, lämpligen med en Gauss-kvadratur, till ett slutresultat.

I denna studie har programpaketet RADMC-3D⁵¹ använts för lösningen av transportekvationen. Programmet använder en så kallad lösare med kort karaktäristik. Om hjälpvariabeln

$$\tau = \int_0^r \sigma_\nu dr$$

som beskriver det optiska djupet införs så kan förändringen av intensiteten över en beräkningscell beskrivas som

$$I_\nu(\tau_{i+1}) = e^{-(\tau_{i+1}-\tau_i)} I_\nu(\tau_i) + S_\nu(1 - e^{-(\tau_{i+1}-\tau_i)})$$

föreläggas att källan S_ν är konstant genom hela cellen.

Programmet löser transportekvationen för ett godtyckligt antal linjer med en fysikaliskt korrekt beräknad breddning som tar hänsyn till gastemperaturen och övergångens livstid, samt den initiala populationen. Resultatet är ett absorptionsspektrum där växelverkan mellan urangasen och ljus med olika våglängder kan jämföras mellan ²³⁵U och ²³⁸U.

Det sista steget som måste tas innan det slutgiltiga resultatet kan erhållas är att väga in laserljusets kvalitet. En laser är aldrig strikt monokromatisk utan ljuset är alltid utspredt över ett större eller mindre våglängdsintervall med en viss fördelning eller profil som det ofta kallas. Utspridningen orsakas av flera olika effekter, men den kan oftast beskrivas matematiskt med antingen en gaussiansk profil eller en livstids-(Lorentz-) profil. I vissa fall är ingen av de fysikaliska effekter som orsakar breddningen mer dominerande än någon annan och då måste en kombination av de två profilerna användas. De viktiga parametrarna i båda fallen är frekvenscentrum och profilbredden där den senare brukas anges som hela bredden vid halva höjden, *full width half maximum* (FWHM). Anrikningsutbytet är proportionellt mot kvoten av faltningen mellan absorptionsspektrumet och laserprofilen för de två isotoperna.

⁵⁰ Flödet över randen ut ur en beräkningscell får utgöra inflödet in i nästa cell. Vid den yttersta randen får laserljuset med sin givna frekvensprofil och intensitet utgöra det första startvärdet.

⁵¹ <http://www.ita.uni-heidelberg.de/~dullemond/software/radmc-3d/>

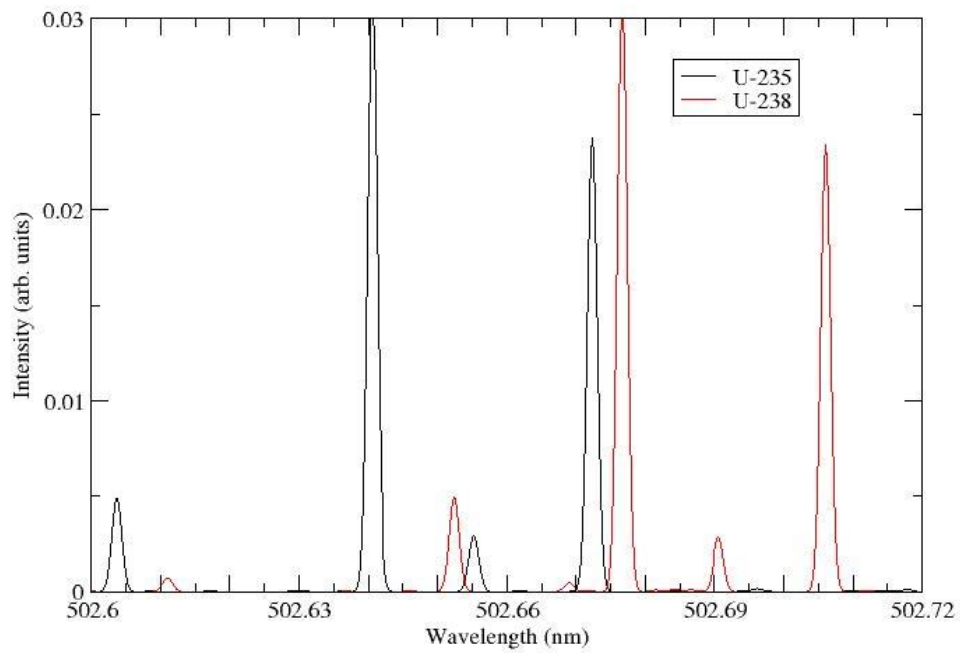
6. Resultat

Huvudfrågan som denna rapport försöker besvara är vilka krav det ställs på den laser som används för att i det första steget selektivt excitera atomer av isotopen ^{235}U och inte atomer av den tyngre isotopen ^{238}U . Som det framgick av kapitel 3 och 4 så utnyttjas isotopskiftet i elektronstrukturen mellan de två isotoperna för att skilja dem åt. Där konstaterades också att nivåerna för de två isotoperna inte fick överlappa och att det krävdes en separation mellan nivåerna som var större än laserns bandbredd. Lämpliga nivåer ska även ha en så pass stark koppling till laserljuset att utbytet blir meningsfullt samtidigt som livslängden ska vara optimal för att minimera stimulerad emission. Nivån bör ligga tillräckligt långt över grundtillståndet i energi så att dels det blir enklare att selektivt jonisera de exciterade atomerna i nästa steg i processen, dels så få atomer som möjligt blir exciterade till denna nivå genom andra processer, till exempel kollisioner.

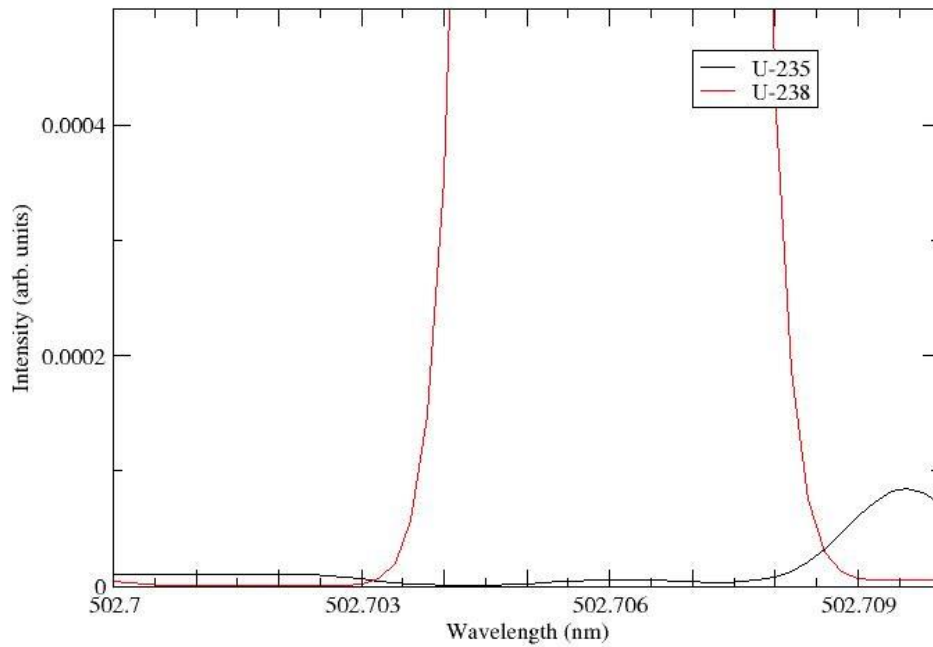
Vi har i denna studie identifierat ett stort antal sådana möjliga nivåer och övergångar från grundtillståndet till olika exciterade tillstånd men nedan har vi koncentrerat oss på en nivå för att illustrera ett typiskt resultat. Den övergång vi har valt är tämligen välkänd i litteraturen och motsvarar en laserljusvåglängd på 502,7 nm (2,468 eV, 19892 cm^{-1}). Figurerna 4 och 5 visar intensiteten för en laserstråle som passerar genom uranången som funktion av laserljusvåglängd för ^{235}U och ^{238}U . Figur 5 visar intensiteten precis vid den aktuella våglängden.

Som det framgår av figur 4 så är isotopskiftet av storleksordningen 0,035 nm (0,17 meV, 41,5 GHz). Det framgår också att linjetätheten för uran är så stor i det aktuella våglängdsintervallet att de Doppler- och livstidsbreddade linjerna bildar ett kontinuum med enstaka delintervall där linjetätheten är så låg att uranången blir mer transparent och intensiteten ökar. Det är dessa områden som representeras av toppar i figur 4. För en optimal separation önskas alltså en våglängd där så mycket laserljus som möjligt absorberas av ^{235}U , det vill säga där den kvarvarande intensiteten är mycket låg, samtidigt som bara en liten del av ljuset absorberas av ^{238}U och en stor del av intensiteten kvarstår efter passagen genom strålen.

Figur 5 visar en uppförstorad del av våglängdsintervallet som visas i figur 4. Figuren visar att runt våglängden 502,706 nm är intensiteten för ^{235}U nära noll samtidigt som ^{238}U är oerhört mycket mer transparent utan några andra närliggande transparenta våglängdsfönster, vilket uppfyller de kriterier som diskuterats ovan. Figuren visar även att våglängden måste vara stabil på picometernivå, det vill säga bättre än 1 del per 1 000 000, över lång tid. Detta motsvarar en frekvensstabilitet på ca 1 GHz. Om laserljuset skulle avvika från den optimala våglängden med mer än den tolererade avvikelserna så skulle den exciterade och sedan joniserade produktströmmen mycket snabbt fyllas med den oönskade ^{238}U -isotopen då transparensen och därmed intensiteten mycket snabbt sjunker och absorptionen ökar utanför det transparenta fönstret.



Figur 4: Laserstrålens intensitet som funktion av våglängd för ^{235}U och ^{238}U . Ett högt värde motsvarar en låg absorption och därmed en låg excitationsgrad.



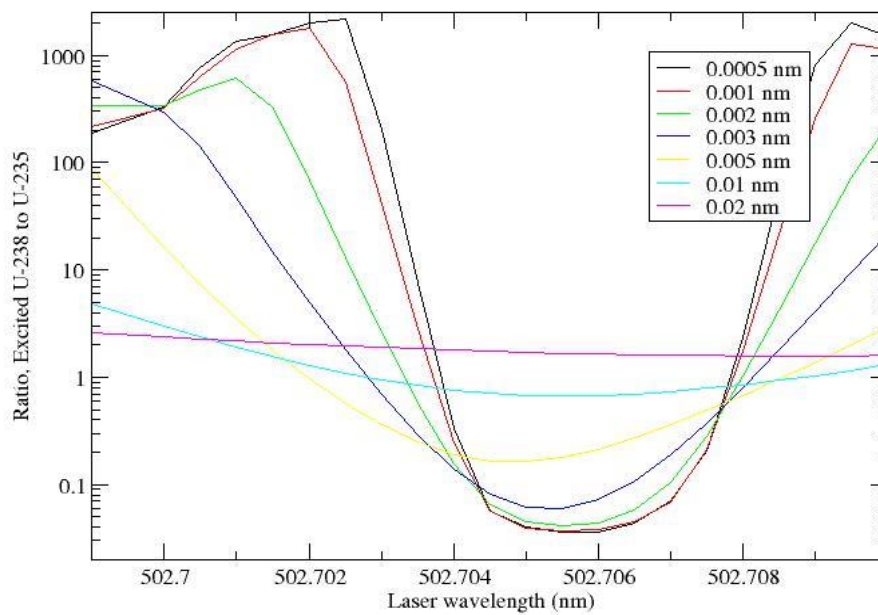
Figur 5: Laserstrålens intensitet som funktion av våglängd för ^{235}U och ^{238}U . Figur 5 är en uppförstoring av en del av figur 4.

Den laser som används för att excitera ^{235}U -atomerna måste inte bara ha rätt våglängd, utan bandbredden, det vill säga det våglängdsintervall som ljuset utbreder sig över, får inte vara större än att endast en liten del av intensiteten i laserljuset faller utanför det transparenta fönstret. Figur 6 visar hur utbytet, här representerat av kvoten mellan antalet exciterade atomer av isotopen ^{238}U mot antalet exciterade atomer av isotopen ^{235}U , är viktat mot förekomsten av respektive isotop i naturligt uran, som funktion av laservåglängd för ett antal bandbredder eller profiler, vilket är ett relativt mått på hur bra en laser är på att anrika uran där ett lågt värde betyder att många atomer ^{235}U exciteras samtidigt som få atomer ^{238}U exciteras vilket ger en renare ström av den eftertraktade isotopen ^{235}U . Ett högt värde betyder tvärt om att det är ^{238}U som exciteras och ett värde över ca 140 betyder att ^{238}U istället anrikas. Figur 7 visar samma information över ett kortare våglängdsintervall.

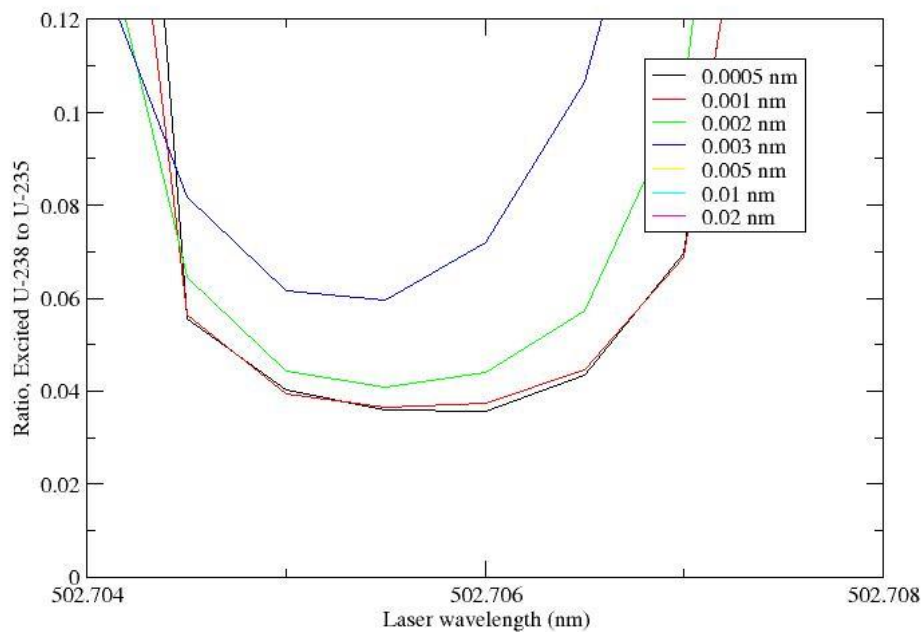
Från figurerna 6 och 7 går det att utläsa att en laser med en profil bredare än det transparenta fönstret aldrig kommer ge en bra anrikning, oavsett hur rätt våglängden än ligger i förhållande till det transparenta fönstret. Det är först när bandbredden FWHM motsvarar fönstrets bredd, ca 0,004 nm (ca 4 GHz) som utbytet blir acceptabelt, och bredden bör helst understiga 0,002 nm för att vara optimal. För de riktigt smala profilerna minskar behovet av exakt rätt våglängd något, vilket faller sig naturligt eftersom en smal laserprofil ger en större marginal innan en icke försumbar del av intensiteten faller utanför det transparenta fönstret.

Exakt vilka värden på kvoten mellan antalet exciterade atomer av ^{238}U och ^{235}U som kan anses vara tillräckliga beror givetvis på omständigheterna och användarens behov men förutsatt en hundra procentig effektivitet i de övriga stegen i processen skulle en laser med en perfekt optimerad våglängd och en bandbredd på 1 pm (0,001 nm) i ett steg kunna anrika från det naturliga uranets halt av ^{235}U på ca 0,7 % till 96 %. Om bandbredden ökar till 3 pm skulle den maximala halten ^{235}U efter ett steg sjunka till 93 % vilket fortfarande räknas som höganrikat uran av vapenkvalitet. En perfekt separation i de efterföljande stegen är dock orealistisk så den totala separationsfaktorn kommer med all sannolikhet att vara betydligt lägre i verkligheten och flera anrikningssteg kommer troligen att behövas, beroende på vilken anrikningsgrad som efterfrågas. Litteraturen nämner ofta "ett fåtal", upp till ca 10 steg⁵².

⁵² Se till exempel AVLIS-U Research and Development in the World, G. Väsaru, presenterad på 9th SPLG, Sept. 18-21, 2006, Peking, Kina



Figur 6. Kvoten mellan antalet exciterade atomer ^{238}U och antalet exciterade atomer ^{235}U som funktion av laservåglängd för ett antal olika bandbredder (FWHM). En låg kvot motsvarar ett renare flöde av den eftertraktade isotopen ^{235}U . Logaritmisk skala på y-axeln.



Figur 7. Kvoten mellan antalet exciterade atomer ^{238}U och antalet exciterade atomer ^{235}U som funktion av laservåglängd. Figur 7 är en uppförstoring av en del av figur 6.

7. Konsekvenser för svensk exportkontroll

Lasrar och olika former av laserutrustning är enligt studier av den svenska exportmarknaden inga större exportprodukter sett till volymer eller antalet exporterade system. I snitt sker det ca 10 exporter per år ut ur EU med Tullverkets varukod för laser och lasersystem, 90132000, men där räknas även filter och liknande tillbehör in. Exportmarknaden domineras av ett fåtal företag som samtliga är återförsäljare av lasersystem från andra tillverkare.

Exportvolymerna är en fråga som komplicerar icke-spridningsarbetet vad det gäller lasrar. Till skillnad från till exempel centrifuganläggningar där det krävs tusentals av de flesta komponenter även för en mindre militär produktionsanläggning, vilket gör ett införskaaffningsförsök mer synligt, räcker det i frågan om lasrar för anrikning med en eller på sin höjd ett fåtal lasrar för en anläggning av mindre skala. En sådan export kan vara betydligt svårare att identifiera eller genomskåda för en licensgivande myndighet eller Tullverket. Här krävs det en relativt djup produkt- och teknikkännedom för att kunna identifiera de känsliga lasrar som finns bland de otaliga andra, från ett spridningsperspektiv ofarliga, lasrar som förekommer i olika delar av industrin och forskningen.

Den för EU gemensamma exportkontrollagstiftningen⁵³ ger en relativt svag handledning i frågan om vilka lasrar som kan vara känsliga och inte bör exporteras till potentiella proliferatorer. Samtidigt som detta försvårar myndigheternas arbete så undviker man på detta sätt att ge ett recept till den som avser att bygga en anläggning för anrikning av uran. Som nämnts tidigare så förekommer det en viss självcensur bland forskare och andra aktörer vad det gäller publiceringen av detaljer på detta område, just av den anledningen.

I bilaga 1, kategori 0 i EU-förordningen (motsvarande NSG Part 1) kontrolleras i 0B001.g respektive 0B001.h utrustning särskilt konstruerade eller iordningställd för anrikning för AVLIS respektive MLIS⁵⁴: ”Lasrar” eller ”laser”-system som är särskilt konstruerade eller iordningställda för separation av uranisotoper med en spektrumfrekvensstabilisering för drift över långa tidsperioder.” Även övriga delsystem så som utrustning för förångning eller motsvarande och uppsamlingsystem, återfinns i den aktuella delen av förordningen. Kravet på att lasern ska vara ”särskilt konstruerade eller iordningställd” för att falla under kontroll enligt de strängare villkor som gäller för kategori 0 gör att den strikt tekniska bedömningen till viss mån blir av mindre vikt. En laser av mer generell design men med rätt funktion och laseregenskaper faller i stället under en kategori med lägre kontrollnivå även om den på grund av laserseparationens speciella villkor kan användas direkt för anrikning utan anpassning. Det bör noteras att det inte är laserns konstruktion eller innehåll som i sig avgör huruvida den är användbar, utan det är enbart laserljusets egenskaper som avgör, till exempel dess våglängd, profil och pulsegenskaper. Om detta åstadkoms med en laser av den ena eller andra typen är egalt. Därför bör myndigheter och andra aktörer som arbetar med icke-spridning och exportkontroll noga följa den tekniska utvecklingen av lasrar och dess egenskaper. Det bör också noteras att bara för att vissa lasertyper eventuellt väljs bort att kommersiella skäl så är de inte per nödvändighet oanvändbara för en proliferator som kan drivas av andra motivationer än de strikt ekonomiska.

⁵³ EU-förordningen 428/2009 om upprättande av en gemenskapsordning för kontroll av export, överföring, förmedling och transitering av produkter med dubbla användningsområden, senast uppdaterad genom EU-förordningen 1382/2014.

⁵⁴ Den exakta formuleringen i den svenska översättningen av förordningstexten är olyckligtvis tämligen klumpigt formulerad och använder vaga eller till och med missvisande termer för att beskriva metoderna.

Det finns ett antal olika punkter i EU-förordningen under vilka lasrar och lasersystem kontrolleras där huvuddelen härstammar från Wassenaar-regimens kontrollistor (dessa rör produkter med användning i konventionella vapen). Under kategori 6A005.b återfinns de kopparångelasrar som ofta används som pumplasar i AVLIS och för att stå under kontroll ska de ha en våglängd mellan 150 nm och 510 nm och antingen en energi per puls överstigande 1,5 joule och en toppeffekt som överstiger 30 W eller en genomsnittlig effekt överstigande 30 W.

I de delar av förordningen som rör lasrar och som härstammar från NSG, 6A205, återfinns ett antal olika lasertyper, både för AVLIS och för MLIS. För AVLIS kontrolleras argon-jon-lasrar (våglängd mellan 400 nm och 515 nm, medeleffekt⁵⁵ överstigande 40 W), pulsade singel-mod-lasrar av färgämnestyp med reglerbar våglängd (våglängd mellan 300 nm och 800 nm, medeleffekt över 1 W, pulsrepetitionsfrekvens över 1kHz och en pulsbredd mindre än 100 ns), vanliga pulsade lasrar av färgämnestyp med reglerbar våglängd (våglängd mellan 300 nm och 800 nm, medeleffekt över 30 W, pulsrepetitionsfrekvens över 1kHz och en pulsbredd mindre än 100 ns) samt neodymdopade lasrar med annat lasermedium än glas med en våglängd mellan 1000 nm och 1100 nm samt ett antal övriga parametervillkor uppfyllda. Den senare lasertypen är kontrollerad eftersom det är relativt lätt⁵⁶ att dubbla frekvensen och därmed halvera våglängden vilket gör att våglängden faller inom det intressanta intervallet strax ovanför 500 nm.

För MLIS dominerar koldioxidlasrarna även om andra lasertyper förekommer. Koldioxidlasrar är kontrollerade om de är pulsade och är verksamma i ett våglängdsområde mellan 9 000 nm (9 μm) och 11 000 nm (11 μm), har en medeleffekt överstigande 500 W, en pulsrepetitionsfrekvens högre än 250 Hz och en pulslängd kortare än 200 ns. Även de Ramanceller som är helt nödvändiga för att skifta laserljuset till de aktuella 16 μm faller under exportkontroll. Utöver koldioxidlasrarna är även kolmonoxidlasrar kontrollerade om de verkar inom våglängdsområdet 5 000 nm och 6 000 nm eftersom det relativt enkelt går att fylla dem med koldioxid istället och använda dem för MLIS. Villkoren är de samma som för koldioxidlasrar förutom effektkravet som är sänkt till 200 W.

Lasrar har ett otal legitima användningsområden inom ett stort antal industri- och forskningsområden och kontrolltexterna i EU-förordningen täcker ett stort antal av dessa varför ett beslut om huruvida en licens ska delas ut eller inte baserat på enbart laserns användbarhet för anrikning av uran kräver en djup teknisk kunskap. I denna studie har ett antal mer detaljerade kriterier framkommit. Det stora antalet mycket exakta våglängder låter sig av uppenbara skäl inte publiceras men det går att konstatera att laserns pulsprofil eller bandbredd för AVLIS bör understiga ca 3–4 pm. En inte på något sätt fullständig genomsökning av marknaden ger vid handen att de flesta färgämneslasrar, som är den dominerande lasertypen för AVLIS, faller i en av två kategorier. De enklare och därmed billigare typerna har en bandbredd på i storleksordningen 1 nm. De mer avancerade och betydligt dyrare har en bandbredd i det intressanta intervallet 1–3 pm. Det går att minska bandbredden med olika former av filter och annan optik, och denna utrustning är inte exportkontrollerad.

⁵⁵ Notera att 6A005 och 6A205 använder olika definitioner på vad som avses med medeleffekt.

⁵⁶ Frekvensdubbling, eller *Second Harmonic Generation* (SHG) som det också kallas, är ett icke-linjärt optiskt fenomen och som åstadkoms genom att laserljuset får passera en kristall av lämpligt material. I det aktuella våglängdsområdet kan till exempel mononatriumfosfat, litiumtriborat eller β -bariumborat användas.

För MLIS är kraven på smal bandbredd lägre då isotopskiftet är något större och antalet omkringliggande vibrationella tillstånd lägre. Då det inom denna studie inte har genomförts någon detaljerad analys av de fysikaliska processerna kan vi här inte ge något exakt svar, men en uppskattning utgående ifrån isotopskiftets storlek ger vid handen att bandbredden bör understiga ca 2,5 nm (ca 5 GHz). De frekvensstabiliserade mer avancerade koldioxidlasrar som finns tillgängliga på marknaden understiger denna nivå med flera storleksordningar, men de lasrar som optimerats för till exempel borrning eller kapning tycks ha en sämre upplösning, både vad det gäller frekvensstabilitet och precision samt bandbredd.



2016:03

Strålsäkerhetsmyndigheten har ett samlat ansvar för att samhället är strålsäkert. Vi arbetar för att uppnå strålsäkerhet inom en rad områden: kärnkraft, sjukvård samt kommersiella produkter och tjänster. Dessutom arbetar vi med skydd mot naturlig strålning och för att höja strålsäkerheten internationellt.

Myndigheten verkar pådrivande och förebyggande för att skydda människor och miljö från oönskade effekter av strålning, nu och i framtiden. Vi ger ut föreskrifter och kontrollerar genom tillsyn att de efterlevs, vi stödjer forskning, utbildar, informerar och ger råd. Verksamheter med strålning kräver i många fall tillstånd från myndigheten. Vi har krisberedskap dygnet runt för att kunna begränsa effekterna av olyckor med strålning och av avsiktlig spridning av radioaktiva ämnen. Vi deltar i internationella samarbeten för att öka strålsäkerheten och finansierar projekt som syftar till att höja strålsäkerheten i vissa östeuropeiska länder.

Strålsäkerhetsmyndigheten sorterar under Miljödepartementet. Hos oss arbetar drygt 300 personer med kompetens inom teknik, naturvetenskap, beteendevetenskap, juridik, ekonomi och kommunikation. Myndigheten är certifierad inom kvalitet, miljö och arbetsmiljö.

Strålsäkerhetsmyndigheten
Swedish Radiation Safety Authority

SE-17116 Stockholm
Solna strandväg 96

Tel: +46 8 799 40 00
Fax: +46 8 799 40 10

E-mail: registrator@ssm.se
Web: stralsakerhetsmyndigheten.se