

令和 2 年 7 月 10 日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2015～2019

課題番号：15H02345

研究課題名(和文)量子拡散法同位体分離の研究

研究課題名(英文)Study on isotope separation based on quantum diffusion

研究代表者

横山 啓一 (Yokoyama, Keiichi)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 原子力科学研究所 物質科学研究センター・グループリーダー

研究者番号：60354990

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 31,500,000円

研究成果の概要(和文)：セシウムを対象として量子拡散法同位体分離の回収反応と光反応の研究を行った。回収反応の研究では、量子化学計算及び放射光X線光電子分光測定により、回収材の候補としてC60フラーレンが有望であることを見出した。また、回収反応系のデザインに必要な同位体交換反応の速度定数を量子化学計算及びトランジェクトリー計算により半定量的に評価した。光反応の研究では、有機結晶OH1による低波数のテラヘルツ波発生強度を正確に測定し、現状の技術でも実証実験が可能であることを示唆する結果を得た。

研究成果の学術的意義や社会的意義

放射性廃棄物の処理処分やアクチノイド・ランタノイドなど希少金属の利用を考えると、現状では同位体を分別して処理あるいは利用することは想定していない。それはこれら重元素の同位体を分離する実用的手段がないからである。例えば放射性セシウムの核変換では分離係数が現状から3桁以上も飛躍する必要があり、簡単に技術開発が進むものではない。逆にそれが可能になれば核反応を本格的に利用する文明が訪れる可能性がある。本研究により得られた成果は単独でこの大きな出口に結びつくものではないが、量子拡散法が同位体分離技術のパラダイムシフトに繋がるかどうかを見極めるために積み重ねていくべき一つの結果といえる。

研究成果の概要(英文)：As a feasibility study of isotope separation of cesium using quantum diffusion phenomenon, recovery reactions and photo reactions of cesium-containing molecules were investigated. In the recovery-reaction study, C60 was found to be a good candidate of the getter material as a result of quantum chemistry calculation and synchrotron radiation X ray photoelectron spectroscopy. Then, rate constant of the isotope-scrambling reaction, which is important for designing recovery reaction system, was estimated quasi-quantitatively using quantum chemistry calculations and reaction trajectory calculations. In the photo reaction study, spectral intensity of the terahertz wave in the low-wave number region was measured accurately when the terahertz wave was generated with organic crystal OH1. This result indicates that even the present technology demonstration of isotope-selective rotational state distribution displacement is possible.

研究分野：物理化学

キーワード：量子ウォーク 同位体分離 セシウム テラヘルツ波

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

量子拡散法同位体分離は、数理統計の分野で最近注目されている「量子ウォーク」を基にした同位体分離の原理である。我々が発見したこの新しい同位体分離法の将来性を見極めることを目指して本研究をスタートさせた。根幹となる同位体選択的回転分布移動については光と物質(二原子分子)の相互作用に基づく厳密な量子力学的計算によりすでに検証しており、実験的にもラマン散乱による原理の確認を行った。一方、社会実装のためには回収反応の研究が重要であることから、本研究では回収反応の理論的及び実験的研究に重点を置いた。また、光反応関連の研究課題としては、同位体選択的回転分布移動に必要な強度・スペクトルを有するテラヘルツ波の発生と制御の方法論、回転分布移動後の赤外光パルスによる振動励起パルス電場の検討があげられる。

### 2. 研究の目的

原理の実証に向けて研究開発が必要な技術は多いが、回収反応及び光反応それぞれについて、幾つかの要素技術に絞って研究を進めた。

#### (1) 回収反応の研究

ヨウ化セシウムを作業分子とするセシウム同位体分離を対象として、実現可能な回収方法を提示するための基礎データの取得を目指した。回収材の候補を選び、回収材としての有効性を理論的及び実験的に明らかにする。また、回収反応系のデザインに必要なパラメーターとして同位体選択性を低下させる同位体交換反応の速度定数を理論的に取得することを目指した。

#### (2) 光反応の研究

原理実証に必要なテラヘルツ波の発生・制御技術の向上を目的に実験的・理論的研究を進めた。特にテラヘルツ波による同位体選択的回転分布移動の実証に必須の低波数領域におけるテラヘルツ波の強度を如何に確保するかという点に着目して研究を行った。また、回収の前段階として必要になる振動回転励起の最適電場パルスを最適制御理論により予想すべく理論計算に取り組んだ。

### 3. 研究の方法

#### (1) 回収反応の研究

原子力機構の大型計算機を用いて量子化学計算やトラジェクトリー計算を行った。量子化学計算においては密度汎関数法や混成汎関数法による回収材候補( $C_{60}$ )とセシウム原子などの相互作用について検討した。トラジェクトリー計算では古典的反應トラジェクトリー計算により同位体交換反応  $^{133}\text{CsI} + ^{135}\text{Cs} \rightarrow ^{133}\text{Cs} + \text{I} + ^{135}\text{Cs}$  の速度定数を計算した。その際必要になるポテンシャルエネルギー局面は *ab initio* 分子軌道法計算により作成した。また、高エネルギー加速器研究機構フォトンファクトリーの放射光 X 線光電子分光装置を用いて回収材候補へのセシウム吸蔵特性を評価した。この実験ではシリコン表面に蒸着した  $C_{60}$  薄膜に Cs 原子または CsI 分子を蒸着し、吸着・吸蔵特性を光電子スペクトルの光電子出射角依存性から検討した。

#### (2) 光反応の研究

京大ナノテクノロジーハブ拠点の装置利用でクロムレーザーシステムを基にしたテラヘルツ波発生・計測システムの構築と実証実験に向けた技術的検討、テラヘルツ波波形の計測を行った。具体的には、フェムト秒クロムフォールステライトレーザー出力の 1250nm 付近のフェムト秒レーザーパルスを有機非線形結晶に集光照射し、発生するテラヘルツ波の電場波形を E0 サンプリング法により計測した。低波数テラヘルツ波の回折による減衰を抑えるため発生に用いた結晶によりその場で発生直後の波形計測を行った。また、原子力機構の大型計算機を用いて最適制御理論による電場波形の取得に取り組んだ。さらに、理論の拡張への足がかりとして数理統計分野の専門家を招いて研究会を開催した。

### 4. 研究成果

#### (1) 回収反応の研究

様々な素材や反応形式の検討を経て、 $C_{60}$  が回収材候補として有望であろうとの予測をたてることができた。密度汎関数法に基づく量子化学計算を実施し、その予想を支持する結果を得た [ Kobayashi 16 ]。実験的にも、放射光 X 線光電子分光により  $C_{60}$  薄膜中でのセシウム原子及びヨウ化セシウム分子の挙動を調べた。理論的に予測したとおり、セシウム原子とヨウ化セシウム分子の挙動の違いが実際の固体中で見られることを確認した ( 図 1 )。これらの結果を基に、 $C_{60}$  の回収材としての適性のある程度確認することができた [ Sekiguchi 18 ]。

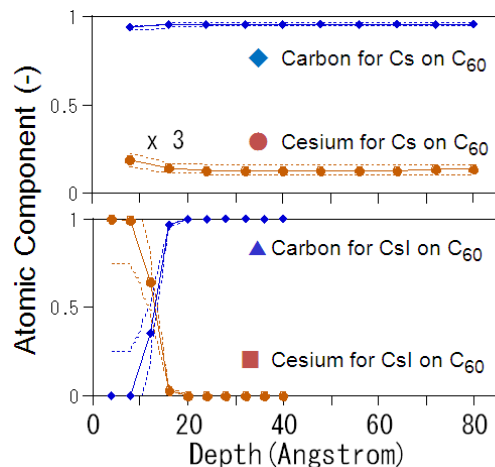


図1. 出射角依存X線光電子分光スペクトルから導かれたセシウム及び炭素の深さ方向分布。 $C_{60}$  薄膜にセシウム原子を吹き付けた場合(上段)及びヨウ化セシウム分子を吹き付けた場合(下段)。セシウム原子は $C_{60}$  内部まで浸透するのにに対し、ヨウ化セシウム分子は $C_{60}$  表面に積層することが分かった。

また、同位体交換反応  $^{133}\text{CsI} + ^{135}\text{Cs} \rightarrow ^{133}\text{Cs} + \text{I}^{135}\text{Cs}$  の速度定数の評価に用いる2体衝突のポテンシャルエネルギー曲面を量子化学計算により構築した [Kobayashi 15]。その一例を図2に示す。このポテンシャルエネルギー曲面を使って準古典的トラジェクトリー計算を実行し反応断面積を算出した [Kobayashi 17]。それに基づいて各温度における反応速度定数を評価した [Kobayashi 19]。これにより回収反応系の設計時に必要不可欠な情報を取得することができた。

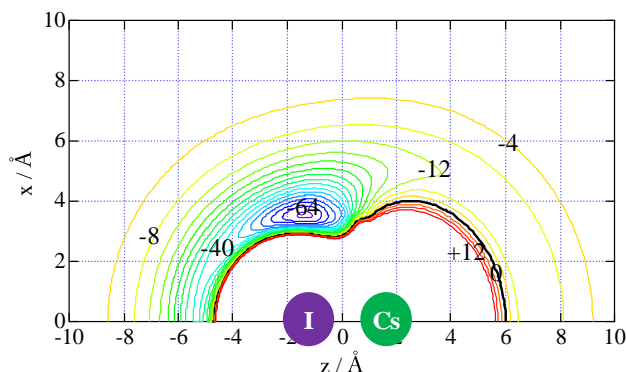


図2. 同位体交換反応  $^{133}\text{CsI} + ^{135}\text{Cs} \rightarrow ^{133}\text{Cs} + \text{I}^{135}\text{Cs}$  の2体衝突ポテンシャルエネルギー曲面。Ab initio 分子軌道法計算により求めた。Cs原子が近づいてくるときにエネルギー障壁がない軌跡が容易に可能であることがわかる。Cs側から強く衝突したときだけエネルギー障壁を感じると予想される。

## (2) 光反応の研究

テラヘルツ波発生方法として有機結晶 OH1 を用いる方法に着目した。この結晶は 0.1-1THz の低波数領域のテラヘルツ波を比較的効率よく発生させようと期待したからである。実際に、1250nm のフェムト秒パルス照射して発生させたテラヘルツ波の測定波形を図3に示す。低波数領域で既往の報告 [F.D.J. Brunner et al. Opt. Express 16, 16496 (2008)] よりも一桁近く大きなスペクトル振幅が得られることが分かった [横山 19]。これは、発生直後のテラヘルツ波を極力伝播させることなく E0 サンプリングを実施したことによると思われる。それにより、伝播時の回折による損失をほぼ無視できると考えられる。この結果は、同位体選択的回転分布移動実証実験の実現性を強力に後押しするものといえる。すなわち、市販の高強度励起レーザーで励起しても、発生直後のテラヘルツ波を利用することができれば実証実験が可能であることを示すことができた。残念ながら本研究期間内にテラヘルツ波を用いた実証実験を行うことはできなかったが装置の概念設計を行い、実験準備を進めた。一方、分子の遠心力歪みを補償するための分散素子の概念設計を試みたが設計原理のさらなる改良が必要ながわかった。最適制御理論による同位体選択的振動回転励起に関しては、塩化リチウム分子を対象に弱電場中と強電場中での最適波形を得ることができた。この取組の意義は同位体分離法の実証の一部としてだけでなく、最適制御理論の分野で特筆すべきものである。これまでの類似の計算では分子の振動と回転の2つの自由度を同時に扱う例がほとんどなく、計算コードを開発するところから始

めた。そのため、開発や検証に時間を要したが、電場強度に依存して回転状態が予想外の挙動を示すなど、これまで知られていなかった現象が見られている。これらの解析と考察が進めば強電場中での分子の挙動に関する新たな知見が得られる可能性がある [ Kurosaki17, 19 ]

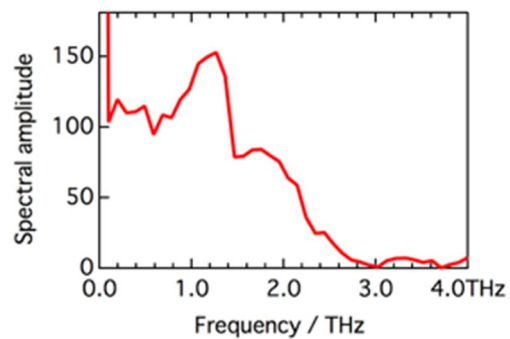


図 3. 有機結晶 OH1 内で発生したテラヘルツ波のスペクトル振幅。既往の報告と比べると 0.1-1THz の低波数領域で振幅が維持されていることが分かった。発生と測定が同じ結晶中のため回折による損失の影響がないことが原因と思われる。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計10件（うち査読付論文 9件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Sekiguchi Tetsuhiro, Yokoyama Keiichi, Uozumi Yuki, Yano Masahiro, Asaoka Hidehito, Suzuki Shinichi, Yaita Tsuyoshi	4. 巻 5
2. 論文標題 Absorbent property of fullerene for cesium isotope separation investigated using X-ray photoelectron spectroscopy	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Progress in Nuclear Science and Technology	6. 最初と最後の頁 161 ~ 164
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) <a href="https://doi.org/10.15669/pnst.5.161">https://doi.org/10.15669/pnst.5.161</a>	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Kobayashi Takanori, Matsuoka Leo, Yokoyama Keiichi	4. 巻 1150
2. 論文標題 A quasiclassical trajectory calculation to compute the reaction cross section and thermal rate constant for the cesium exchange reaction $133\text{CsI}+135\text{Cs}$ $133\text{Cs}+1135\text{Cs}$	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Computational and Theoretical Chemistry	6. 最初と最後の頁 40 ~ 48
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) <a href="https://doi.org/10.1016/j.comptc.2019.01.008">https://doi.org/10.1016/j.comptc.2019.01.008</a>	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Kurosaki Yuzuru, Yokoyama Keiichi	4. 巻 5
2. 論文標題 Quantum Optimal Control of Rovibrational Excitations of a Diatomic Alkali Halide: One-Photon vs. Two-Photon Processes	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Universe	6. 最初と最後の頁 109 ~ 109
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) <a href="https://doi.org/10.3390/universe5050109">https://doi.org/10.3390/universe5050109</a>	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Kobayashi Takanori, Matsuoka Leo, Yokoyama Keiichi	4. 巻 96
2. 論文標題 A quasi-classical trajectory calculation for the cesium exchange reaction of $\text{CsI}(v=0, j=0)$ + Cs $\text{Cs}+\text{ICs}$	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Journal of Japan Institute of Energy	6. 最初と最後の頁 441 ~ 444
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kurosaki Yuzuru, Yokoyama Keiichi	4. 巻 493
2. 論文標題 Quantum optimal control of the isotope-selective rovibrational excitation of diatomic molecules	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 183 ~ 193
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) <a href="http://dx.doi.org/10.1016/j.chemphys.2017.07.003">http://dx.doi.org/10.1016/j.chemphys.2017.07.003</a>	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Sekiguchi Tetsuhiro, Yokoyama Keiichi, Uozumi Yuki, Yano Masahiro, Asaoka Hidehito, Suzuki Shinichi, Yaita Tsuyoshi	4. 巻 5
2. 論文標題 Absorbent property of fullerene for cesium isotope separation investigated using X-ray photoelectron spectroscopy	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Progress in Nuclear Science and Technology	6. 最初と最後の頁 161 ~ 164
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.15669/pnst.5.161	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kobayashi Takanori, Yokoyama Keiichi	4. 巻 53
2. 論文標題 Theoretical study of the adsorption of Cs, Cs+, I, I-, and CsI on C60 fullerene	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Journal of Nuclear Science and Technology	6. 最初と最後の頁 1489 ~ 1493
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/00223131.2015.1126206	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 T. Kobayashi, M. Hashimoto, K. Yokoyama	4. 巻 2015-014
2. 論文標題 Theoretical study of the Cs isotope exchange reaction of CsI + Cs' --> Cs + Cs'I	5. 発行年 2015年
3. 雑誌名 JAEA-Research	6. 最初と最後の頁 1-7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.11484/jaea-research-2015-014	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Ichihara Akira, Matsuoka Leo, Segawa Etsuo, Yokoyama Keiichi	4. 巻 91
2. 論文標題 Isotope-selective dissociation of diatomic molecules by terahertz optical pulses	5. 発行年 2015年
3. 雑誌名 Physical Review A	6. 最初と最後の頁 43404
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) DOI:10.1103/PhysRevA.91.043404	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計21件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 8件)

1. 発表者名 Kurosaki Yuzuru, Yokoyama Keiichi
2. 発表標題 Quantum Optimal Control of Isotope-Selective Rovibrational Transitions
3. 学会等名 16th International Conference of Computational Methods in Sciences and Engineering (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 黒崎譲、横山啓一
2. 発表標題 二光子過程を含む同位体選択的振動回転励起の量子制御
3. 学会等名 第12回分子科学討論会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 横山啓一、松田晶平
2. 発表標題 OH1を用いたテラヘルツ波発生直後の波形計測
3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 横山啓一
2. 発表標題 同位体分離実証用光源の開発状況について
3. 学会等名 Workshop on quantum walks at SPring-8
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Sekiguchi Tetsuhiro, Yokoyama Keiichi, Uozumi Yuki, Yano Masahiro, Asaoka Hidehito, Suzuki Shinichi, Yaita Tsuyoshi
2. 発表標題 Depth Concentration Profile of Cesium in Fullerene Absorbent Studied by Synchrotron X-Ray Photoelectron Spectroscopy
3. 学会等名 The 8-th international symposium on surface science (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 横山啓一
2. 発表標題 量子ウォークとレーザー同位体分離
3. 学会等名 九州大学マス・フォア・インダストリ研究所公開講演会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 黒崎譲、横山啓一
2. 発表標題 二原子分子の同位体選択的振動回転励起の量子最適制御
3. 学会等名 レーザー学会学術講演会第 38 回年次大会
4. 発表年 2018年



1. 発表者名 関口哲弘, 横山啓一, 魚住雄輝, 矢野雅大, 朝岡秀人, 鈴木伸一, 矢板毅
2. 発表標題 光電子分光法によるCs-135同位体分離回収のためのC60フラレン吸蔵材料の評価
3. 学会等名 第31回日本放射光学会年会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Kurosaki Yuzuru, Yokoyama Keiichi
2. 発表標題 Quantum optimal control of isotope-selective rovibrational excitation of diatomic molecules
3. 学会等名 第11回分子科学討論会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Sekiguchi Tetsuhiro, Yokoyama Keiichi, Uozumi Yuki, Yano Masahiro, Asaoka Hidehito, Suzuki Shinichi, Yaita Tsuyoshi
2. 発表標題 Absorbent Property of Fullerene for Cesium Isotope Separation revealed using X-ray Photoelectron Spectroscopy
3. 学会等名 Actinide2017 (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Yokoyama Keiichi, Nakashima Nobuaki, Yaita Tsuyoshi
2. 発表標題 Concept of Laser-assisted Separation and Recovery for f-electron elements
3. 学会等名 Actinide2017 (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Kobayashi Takanori, Matsuoka Leo, Yokoyama Keiichi
2. 発表標題 A quasi-classical trajectory calculation for the cesium exchange reaction of $\text{CsI}(v = 0, j = 0) + \text{Cs} \rightarrow \text{Cs} + \text{ICs}$
3. 学会等名 The 5th Joint Conference on Renewable Energy and Nanotechnology (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 Sekiguchi Tetsuhiro, Yokoyama Keiichi, Uozumi Yuki, Asaoka Hidehito, Yano Masahiro, Yaita Tsuyoshi
2. 発表標題 Evaluation of C60 Thin Film as Selective Absorbent for Cesium Isotope Separation using X-ray Photoelectron Spectroscopy
3. 学会等名 Symposium on Surface Science and Nanotechnology (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 横山啓一
2. 発表標題 分子回転の光励起と量子ウォーク
3. 学会等名 数学協働プログラム ワークショップ「量子系の数理と物質制御への展開II」
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 Yokoyama Keiichi, Kobayashi Takanori
2. 発表標題 Nonlinear optical response of molecules rotationally excited by impulsive Raman scattering
3. 学会等名 32nd Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 黒崎謙, Tak-San Ho, Herschel Rabitz
2. 発表標題 異性化反応の量子制御における分子回転の効果
3. 学会等名 第10回分子科学討論会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 小林孝徳、横山啓一
2. 発表標題 C60フラレンのセシウム吸着材としての可能性の理論計算
3. 学会等名 第18回理論化学討論会
4. 発表年 2015年

1. 発表者名 黒崎謙、横山啓一
2. 発表標題 同位体選択的振動回転励起の量子制御
3. 学会等名 第9回分子科学討論会
4. 発表年 2015年

1. 発表者名 Yokoyama Keiichi
2. 発表標題 An Industrial application of quantum walk; Isotope separation of radioactive waste
3. 学会等名 Workshop of Quantum Simulation and Quantum Walks 2015 (国際学会)
4. 発表年 2015年

〔図書〕 計2件

1. 著者名 横山啓一	4. 発行年 2016年
2. 出版社 原子カシステム研究懇話会	5. 総ページ数 12
3. 書名 NSAコメンタリーシリーズNo.22 「放射性廃棄物減容化・有害度低減の技術開発 -- 核種分離・転換」 第5章第2節	

1. 著者名 横山啓一、松岡雷士	4. 発行年 2019年
2. 出版社 培風館	5. 総ページ数 15
3. 書名 量子ウォークの新展開 第12章量子ウォーク同位体分離	

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	関口 哲弘  (Sekiguchi Tetsuhiro)  (20373235)	国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 原子力科学研究所 物質科学研究センター・研究主幹   (82110)	
研究分担者	黒崎 譲  (Kurosaki Yuzuru)  (60370392)	国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構・高崎量子応用研究所 東海量子ビーム応用研究センター・上席研究員(定常)   (82502)	
研究分担者	永島 圭介  (Nagashima Keisuke)  (60344438)	国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構・関西光科学研究部 光子科学研究部・上席研究員(定常)   (82502)	

## 6. 研究組織（つづき）

	氏名 (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	橋本 雅史 (Hashimoto Masashi)  (80354819)	研究開発法人量子科学技術研究開発機構・関西光科学研究所 光量子科学研究部・研究員  (82502)	
研究分担者	矢板 毅 (Yaita Tsuyoshi)  (40370481)	国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門・物質科学研究センター・ディビジョン長  (82110)	