

平成 30 年 5 月 17 日現在

機関番号：15401

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2017

課題番号：16K14538

研究課題名(和文)熱平衡原子法による放射性セシウムの高効率レーザー同位体分離のコールド試験

研究課題名(英文) Cold examination of highly efficient laser isotope separation of radioactive cesium by an atomic method in thermal equilibrium

研究代表者

松岡 雷士 (Matsuoka, Leo)

広島大学・工学研究科・助教

研究者番号：50455276

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：既存手法では分離が不可能とされている放射性セシウムCs-135と安定セシウムCs-133をレーザーを用いて同位体分離する手法を開発するため、熱平衡状態で機能する新しい高効率手法についての理論研究と実験装置開発を行った。理論研究においては、セシウムと希ガスの原子間ポテンシャルのレベルから原子間衝突の解析と光励起レート方程式の理論計算を行い、提案手法を実用化した際の年間処理量の見積もり値を得た。実験装置開発においては、主に提案手法の条件最適化試験に利用するレーザー光源と制御システムの開発を行った。

研究成果の概要(英文)：To develop a laser-based method for isotope separation of Cs-135 (radioactive) and Cs-133 (stable), which is thought to be difficult by current technologies, we performed theoretical studies and development of experimental apparatus for a highly efficient method that works in thermal equilibrium. In the theoretical study, we performed numerical analyses for inter-atomic collisions by using potential curves originally developed, and evaluate rate equation system including excitation by light. We derived annual throughput of the method presented. In the experimental study, we developed a laser system suitable to be used in the experiments for optimization of the method presented.

研究分野：原子分子物理

キーワード：原子・分子物理 核変換 半導体レーザー 原子衝突 量子化学

1. 研究開始当初の背景

放射性廃棄物処理における地層処分の超長期化の問題は、日本においては未だ出口の見えない処分場の選定の問題など、原子力発電の肯定否定に関わらず、原子力エネルギーに関連する社会的な議論の一つの中核をなしている。放射性セシウム的一种である Cs-135 は半減期が 200 万年を超える長寿命核分裂生成物であり、その水溶性との相乗効果によって地層処分の 10 万年後に公衆被曝の支配的な要因となる核種であることが予測されている[引用文献]。Cs-135 を無害化することが出来れば、懸念される実効線量率は 100 分の 1 未満となる。Cs-135 の無害化の手法として、中性子捕獲による核変換を利用する手法が古くから提案されている。しかしながら Cs-135 を実効的に核変換するためには Cs-133 と Cs-135 の同位体分離が必須の前処理となる。Cs-133 と Cs-135 は質量比が軽元素と比較して 1 に近いだけではなく、電子構造も非常に似通っており、レーザー法を含めたあらゆる手段による同位体分離が極めて難しいと考えられている。

レーザー同位体分離はレーザーと量子力学を利用した先端的基礎研究の応用例として比較的多数の研究が報告されている。しかしながら重元素を高効率同位体分離する観点ではほとんど研究が進んでいない。研究代表者は長年レーザー同位体分離の研究に携わり、レーザー同位体分離の高効率化に必要な以下の原理的要素を満たす手法を探求してきた。まず、ターゲットとなる原子・分子の事前冷却が不要であり、ターゲットを熱平衡状態で分離できること(要素 1)。また、レーザーとターゲットの相互作用が出来る限り時間連続に近い形で発生し、分離中にレーザーを経時変化させる必要がないこと(要素 2)。さらに、レーザーの相互作用がターゲットの内部状態の選択的变化だけではなく、空間的な分離までを担うこと(要素 3)。以上の三つの要素を満たすレーザー同位体分離について理論的な考察を進める過程で、光誘起ドリフトを利用して放射性セシウムを同位体分離することを目指す本研究の着想に至った。

世界初の光誘起ドリフトの実験的観測は 1979 年に報告されており、同位体分離の原理実証も 1990 年代から約 10 件が報告されている。しかしながら 2000 年以降はほとんど実験報告がなく、特に他手法では分離が困難であるとされる放射性セシウムの分離に関しては理論研究を含めてこれまでに言及されたことが無い。さらに既往の研究が少ないため、実験に先立って理論・原子データ・装置開発などの様々な観点からの基盤技術構築が必要となる。

2. 研究の目的

本研究は熱平衡状態での放射性セシウムの原子法レーザー同位体分離の実現を目指し、まずは放射能である Cs-135 を用いない

範囲での実験(コールド試験)を行うための技術基盤を確立することを当初の目的とした。実験に先立つ理論研究や実験装置開発の必要性の状況を踏まえ、目的は以下の四つとした。

(1) 光誘起ドリフト発生の原理となるセシウム・希ガス間の各電子状態における原子間ポテンシャル曲線について、最新の第一原理計算技術に基づいた基準となる数値データの構築。

(2) 光誘起ドリフトによる放射性セシウムの同位体分離の理論計算に基づく、設定圧力等のガス条件に依存した分離速度・年間処理量の見積りの算出。

(3) 光誘起ドリフトのレーザー周波数依存性を実験計測する目的に特化した広域波長調整の可能な波長安定化システムを備えた半導体レーザーシステムの開発。

(4) 飽和吸収分光法を利用した光誘起ドリフト発生条件計測法の理論的・実験的基盤の構築。

3. 研究の方法

(1) Cs 原子と 5 種類の希ガス原子(He, Ne, Ar, Kr, Xe) のペアについて、光誘起ドリフトに関連する 4 つの原子間ポテンシャル曲線を第一原理計算によって構築した。プログラムは MOLPRO パッケージを利用した。まず既往の研究と同じ基底関数セットを使用した He, Ne, Ar の計算を行い、既往の研究結果[引用文献]との比較を行った。比較によって同じ基底関数セットを使用した場合に、計算手法によって計算結果の相違が現れないことを検証した。続いて基底関数セットを拡張し、改善された原子間ポテンシャル曲線を構築した。また、同手法を用いて Rb 原子についてもポテンシャル曲線を同様に構築した。

(2) Cs 原子の三つの同位体(Cs-133, Cs-135, Cs-137)について、5 種類の希ガス中での光誘起ドリフト速度を理論的に計算した。計算モデルとして既往の研究[引用文献]と同様にレート方程式の近似解析式を使用して数値計算を行った。ただし、衝突断面積は独自に構築した第一原理原子間ポテンシャルから WKB 近似によって原子速度に依然した衝突断面積を計算した。ガス種とガス圧を変化させた計算を行い、いくつかの肯定的な仮定を行った上で、小規模な実験装置における年間処理量の具体的な見積もりを行った。

(3) 半導体レーザーの一種である DFB レーザーを二色性原子蒸気分光(DAVS)で得られる参照信号を用いて波長安定化するシステムを構築した。DAVS に用いる磁石の枚数とセルの配置を試行錯誤することによって参照

信号の形状を調整し、広範な波長域にわたって参照信号を生成した。高速サーボコントローラを通して参照信号をレーザー注入電流にフィードバックし、レーザー波長の安定化を行った。

(4) 光誘起ドリフトの発生条件を飽和吸収分光によって定量化する技術の開発を見据え、原子内の電子状態間の衝突断面積の差異による飽和吸収スペクトルの変化について準安定アルゴン原子をモデルとして評価した。レート方程式を数値的に時間発展させ、実験に則した状況での飽和吸収スペクトルを算出した。上準位での速度緩和頻度、下準位での速度緩和頻度、上準位から下準位への脱励起の頻度を入力パラメータとして系統的なデータマップを取得した。

4. 研究成果

(1) Cs 原子と 5 種類の希ガス原子のペアについて、2016 年当時で最高のレベルの基底関数セットを用いたポテンシャル曲線を構築することができた。計算結果の例を図 1 に示す。同様の計算は主にアルカリ蒸気レーザーへの利用の要求から行われていたが、光誘起ドリフトへの要求に応じて 5 種類の希ガスを統一された理論レベルで取り扱ったことも利点の一つとなった。また計算に用いた MRCI 法が既往の研究の SOCI 法と同じ基底関数を用いた場合にほぼ同じ結果を算出したことも量子化学計算の観点から興味深い検証数値実験となった。

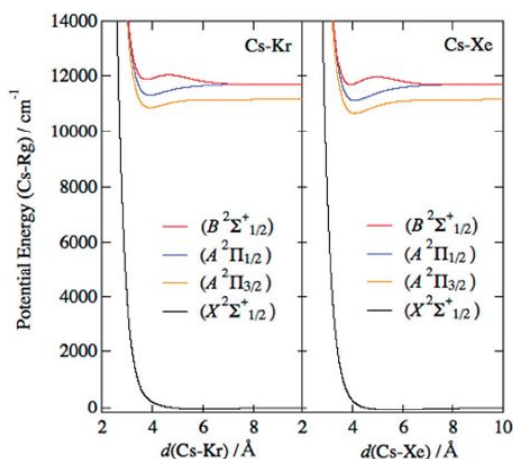


図 1. 計算した原子間ポテンシャル曲線の例 [雑誌論文 要旨より引用]

(2) Cs-133 と Cs-135 のレーザー同位体分離について、レーザーによって D₁ 線と D₂ 線のそれぞれを励起に利用した場合について、分離ターゲットの温度をパラメータとして得られるドリフト速度と年間処理量を提示した。Cs 原子の圧力はそれぞれの温度で得られる蒸気圧とし、希ガスの圧力は蒸気圧の 1000 倍であると仮定した。計算の上で一回の原子間衝突が発生するごとに Cs が対称的な速度

分布に緩和する強衝突の仮定などを行っているが、直径 2cm 弱の小さなガラス管を用いた分離装置に置いて年間処理量が 600 g に達する見積もり結果が得られた(図 2)。

レーザー同位体分離の研究は理論・実験共に多くの報告があるが、ほとんどの研究は基礎研究の域を出ておらず、具体的な年間処理量は議論すらされないことが多い。本研究は実用レベルの放射性セシウムの同位体分離手法について、現状の科学技術で低コストに実現が可能な世界初の手法提案を行った成果となった。

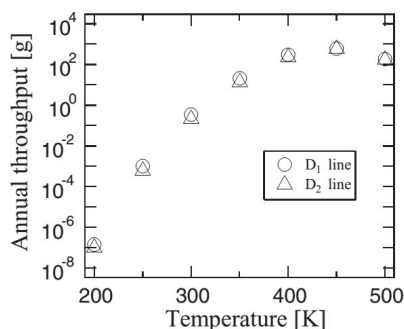


図 2. 提案手法による放射性セシウム同位体分離の年間処理量の見積もり [雑誌論文 より引用]

(3) DAVS を利用することで、Cs の遷移線を絶対波長標準とし、温度変化に強く、高速フィードバックに使用できる参照信号を生成することが出来た。配置の調整により参照信号を 2 GHz という連続発振レーザーとしては広い範囲にわたって生成することが出来た(図 3)。DAVS による波長ロックは既に広く知られた技術であるが、本研究を通じて光誘起ドリフトのような、絶対波長を基準とすつつ広範囲でのチューナビリティと線幅狭窄を両立したい場合に最適な選択肢であることを示すことが出来た。

レーザー線幅は数 MHz まで狭窄されており、光誘起ドリフト実験の分離レーザーとして充分で利用できるレベルとなった。

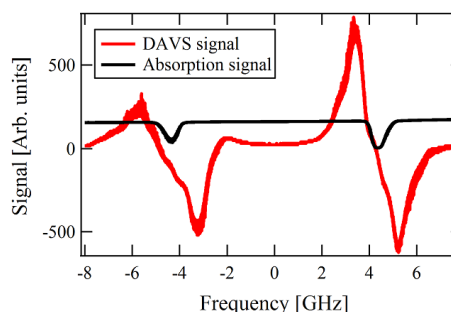


図 3. Cs 原子 D₂ 線付近の吸収信号と DAVS によって取得した参照信号

(4) 飽和吸収分光によって得られるスペクトルに関して系統的な数値計算を行い、電子状態間での衝突断面積の差異とスペクトル形

状の関連を明らかにした。光誘起ドリフトが発生する理想的な条件下では飽和吸収スペクトルに反転したペDESTALが出現することが数値計算で確認できた。逆にドリフトが発生しない条件では純粋なローレンツ型やガウス型に近い形になるため、実際のドリフトを観測せずに簡易なセットアップでドリフト発生条件を計測できる手法を提案することが出来た。

飽和吸収分光に関連した研究は数えきれないほど存在するが、緩和速度とその電子状態依存性までを系統的に考慮した研究はこれまでに無く、また衝突計測への利用という観点で新しい計測手法の提案を行うことが出来た。

<引用文献>

「放射性廃棄物の分離変換」研究専門委員会、分離変換技術総論、日本原子力学会(2016)

L. Blank, D. E. Weeks, G. S. Kedziora, M + Ng potential energy curves including spin-orbit coupling for M = K, Rb, Cs and Ng = He, Ne, Ar, J. Chem. Phys., 136, 124315 (2012).

Parkhomenko AI, Shalagin AM., Spectral anomalies of the effect of light-induced drift of caesium atoms caused by the velocity dependence of transport collision frequencies, Quantum Electron., 44, 928-938 (2014).

5 . 主な発表論文等

[雑誌論文](計5件)

Matsuoka L., Nishiya N., Yuki K., Sonoyama Y., Numerical study of collisional effects in saturated absorption spectrum of argon arcjet plasma, Journal of Instrumentation, 12, C11023 (2017). 査読有 DOI: 10.1088/1748-0221/12/11/C11023

Matsuoka L., Lavička H., The continuous-time quantum walk with transition moments of the Gaussian distribution as a mathematical model of rotational excitation in molecules by an optical pulse, Journal of Physics: Conference Series, 936, 012075 (2017). 査読無

DOI: 10.1088/1742-6596/936/1/012075

Yuki Kenta, Kobayashi Takanori, Matsuoka Leo, Numerical analysis of highly efficient laser-based method of radioactive Cs isotope separation utilizing light-induced drift in D₁ and D₂ transitions in rare gases, Journal of Nuclear Science and Technology, 54, 1240-1250 (2017). 査読有

DOI: 10.1080/00223131.2017.1359119

Takanori KOBAYASHI, Leo MATSUOKA, Keiichi YOKOYAMA, A Quasi-classical

Trajectory Calculation for the Cesium Exchange Reaction of ¹³³CsI (v = 0, j = 0) + ¹³⁵Cs → ¹³³Cs + I¹³⁵Cs, Journal of the Japan Institute of Energy, 91, 441-444 (2017). 査読有 DOI: 10.3775/jie.96.441

Takanori Kobayashi, Kenta Yuki, Leo Matsuoka, An Ab Initio Study on Four Low-lying Electronic Potential Energy Curves for Atomic Cesium and Rare Gas Pairs, Chemistry Letters, 45, 1400-1402 (2016). 査読有 DOI: 10.1246/cl.160730

[学会発表](計14件)

Yuya Kusano, Noritaka Nishiya, Kenta Yuki, Leo Matsuoka, Development of a laser system stabilized with dichroic atomic vapor spectroscopy toward isotope separation of radioactive cesium utilizing light-induced drift, The 6th Joint Conference on Renewable Energy and Nanotechnology - JCREN 2017 (2017).

西谷徳高, 松岡雷土, 光誘起ドリフト発生条件における飽和吸収スペクトルの数値シミュレーション, 日本原子力学会中国・四国支部 第11回研究発表会 (2017).

草野雄也, 西谷徳高, 松岡雷土, 光誘起ドリフト実験に向けた二色性原子蒸気分光法によるレーザー波長の広範囲安定化, 日本原子力学会中国・四国支部 第11回研究発表会 (2017).

松岡雷土, 放射性セシウムの高効率レーザー同位体分離: 原子法の新展開, 日本原子力学会中国・四国支部 第7回通常支部大会・講演会 (2017).

Kenta Yuki, Takanori Kobayashi, Leo Matsuoka, Numerical study on light-induced drift of atomic rubidium based on ab initio interatomic potentials, The 5th Joint Conference on Renewable Energy and Nanotechnology (JCREN2016) (2016).

小林孝徳, 松岡雷土, 結城謙太, 難波慎一, セシウム-希ガス間のポテンシャルエネルギーカーブについての ab initio 計算, 第10回分子科学討論会 (2016).

結城謙太, 松岡雷土, 小林孝徳, 難波慎一, 光誘起ドリフトによる放射性セシウムの高効率同位体分離の数値解析, 日本原子力学会 2016年秋の大会 (2016).

6 . 研究組織

(1)研究代表者

松岡 雷土 (MATSUOKA, Leo)
広島大学・大学院工学研究科・助教
研究者番号: 50455276

(4)研究協力者

小林 孝徳 (KOBAYASHI, Takanori)
結城 謙太 (YUKI, Kenta)

難波 慎一 (NAMBA, Shinichi)
西谷 徳高 (NISHIYA, Noritaka)
草野 雄也 (KUSANO, Yuya)
Hynek Lavička (LAVIČKA, Hynek)