

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 5 月 19 日現在

機関番号：15401

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2014～2015

課題番号：26820407

研究課題名(和文)セシウム固化体のレーザー誘起プラズマ分光：同位体分離工学への応用を目指して

研究課題名(英文)Laser-induced plasma spectroscopy of solidified cesium: toward application for isotope separation engineering

研究代表者

松岡 雷士(MATSUOKA, Leo)

広島大学・工学(系)研究科(研究院)・助教

研究者番号：50455276

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：放射性セシウムを高効率同位体分離する技術が開発できれば、中性子照射核変換によって放射性セシウムを消滅処理することが可能となる。本研究は放射性セシウムのレーザー同位体分離について、回収プロセス開発研究の加速を目指す観点から、プラズマのドップラーフリーレーザー吸収分光を中心とした周辺基盤技術の開発を行った。高圧環境下でのレーザー吸収分光の研究の過程から、既往の研究よりも実用化可能性の高い放射性セシウムの同位体分離法の着想も得られた。

研究成果の概要(英文)：Highly efficient isotope separation technology is required for annihilation disposal of radioactive cesium by nuclear transmutation. From the viewpoint to accelerate researches for laser isotope separation and its irreversible collection processes, we developed fundamental technologies with a focus on Doppler-free laser spectroscopy for plasmas. In the course of the research for laser absorption spectroscopy under high pressure, we also found new isotope separation scheme for radioactive cesium which is superior to previous suggestions for realization.

研究分野：原子分子物理

キーワード：放射性セシウム レーザー同位体分離 飽和吸収分光 LIBS

1. 研究開始当初の背景

放射性廃棄物の超長期地層処分問題は原子力発電の継続の是非に関わらず、原子力エネルギーを利用してきた我々が未来の地球に対して背負ってしまった大きな責務の一つである。放射性セシウムの一つである Cs-135 は半減期が二百万年に及ぶ「消えない放射能」であり、地層処分長期化の原因の一つとなっている。放射性セシウムは核種の同位体分離を行うことによって、中性子照射による核変換消滅処理が可能であることが既に示されている。しかしながら放射性セシウムは安定セシウムと質量や電子構造が似通っているため、既存の同位体分離法はレーザー同位体分離法を含めて実用の域には達していない。結果として放射性セシウムの同位体分離技術開発の可否は長期地層処分の回避を目指すうえで重要な分岐点となっている。

申請者はこれまでレーザー同位体分離技術の基礎研究に携わり、高温熱平衡状態で機能するレーザー同位体分離法に関する研究を理論・実験の両面から進めてきた。これまでの研究において分子回転周期に同期したテラヘルツ領域の光パルス列を照射することにより、特定の同位体分子の全ての初期回転準位にある分子を一斉に回転励起できること、及び、この光パルス列による分子回転励起が非常に高い同位体選択性を示すことに着目した。理論研究の結果、放射性セシウムを高効率で分離できる見通しが得られ、同位体選択的光励起過程に関しては、テラヘルツ光源技術の進展を待つ状況となった。

しかしながら光パルス列による同位体分離プロセスを完成させるためには、同位体選択的な光反応を示した分子（もしくは反応生成物であるセシウム原子）を非可逆に回収するプロセスの開発が必要である。また、密封状態で飛行時間質量分析法を使用せずに放射性セシウムの同位体比を計測する技術が存在しないため、回収プロセスの研究には比較的大型の装置が必要となり、実施環境にも制限が出来てしまう。レーザー同位体分離の事後処理として必要となるセシウム回収プロセスの研究を加速するためには、吸着材や分離膜などの固体表面のセシウムの同位体分析を簡易に行う技術の開発が必要となる。

2. 研究の目的

本研究はセシウム固化体のレーザープラズマ分光を切り口とし、プラズマのドップラーフリーレーザー吸収分光を技術的なツールとすることでレーザー同位体分離に関連する周辺基盤技術の確立を当初の目的とした。ドップラーフリーレーザー吸収分光をプラズマに適用するアプローチの途上で放射性セシウムのレーザー同位体分離法の新たな着想も得ることが出来た。以上を踏まえ、本研究の目的は以下の三つとした。

(1) 最も扱いやすいセシウム固化体の一つであるヨウ化セシウム結晶のレーザーアブレーションを行うことによる、効率的なセシウムプラズマの生成条件の解明。

(2) ドップラーフリーレーザー吸収分光の一種である飽和吸収分光法による高圧ガス・プラズマのパラメータ計測法の開発。

(3) 電子励起状態と電子基底状態の衝突断面積差を利用した光誘起ドリフト同位体分離法の放射性セシウム分離への適用の検討。

3. 研究の方法

(1) 大気圧環境においてヨウ化セシウム結晶について Nd:YAG レーザーによるレーザーアブレーション実験を行い、効率的なセシウムプラズマの生成法についての検討を行った。Nd:YAG レーザーの波長は基本波(1064 nm)、第二高調波(532 nm)、第三高調波(355 nm)の三つの波長を使用した。セシウムプラズマの発光は分光器、及び、852 nm のバンドパスフィルタを装着した高速フォトダイオードで計測した。

(2) セシウム原子の D2 線(852 nm)とルビジウム原子の D1 線(795 nm)のそれぞれの吸収線について半導体レーザーによる安価なレーザー吸収分光システムを構築した。波長較正システムとしてファブリペロー干渉計を自作し、両原子の超微細構造で干渉計のピーク間隔を較正することによって安価な波長較正システムを実現した。また、795 nm のレーザーを用いて、プラズマ源として比較的安定なアルゴンアークジェットプラズマの飽和吸収分光を行い、高圧環境下での飽和吸収分光シグナルを取得した。同時に原子の速度緩和過程をレート方程式でシミュレーションすることにより、飽和吸収シグナルの変化の原理を考察した。

(3) 光誘起ドリフト発生の原理について理論的な考察を行い、放射性セシウム分離へと適用する際の利点をまずは定性的に考察した。定量的な分離速度予測のために、既往の原子間ポテンシャルを使用して WKB 近似によって各準位の衝突断面積の速度依存性を計算し、レーザー周波数に依存するドリフト速度を計算することによって同位体分離の年間処理量予測を計算した。計算は原子間ポテンシャルデータを入手できた He, Ne, Ar をバッファガスとした場合について行った。

4. 研究成果

(1) 図 1 に Nd:YAG レーザー第三高調波によるヨウ化セシウム結晶の発光スペクトルを示す。発光スペクトルにはセシウム原子の D2 線に対応する 852 nm のピークを始めとし、多数のセシウム原子由来のピークが観測されている。第三高調波を用いることで、比

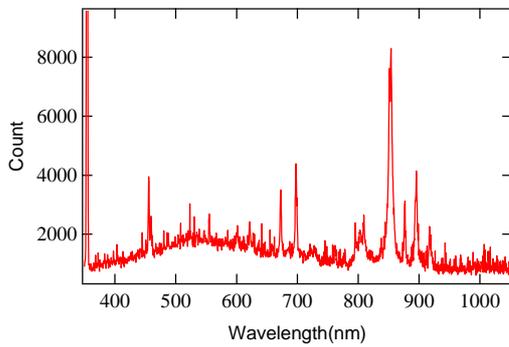


図 1. Nd:YAG 三倍高調波によるヨウ化セシウム結晶のアブレーション発光スペクトル

較的低いレーザーエネルギー(10 mJ 程度)でもセシウムプラズマが発生することが明らかになった。一方で基本波の照射では高エネルギーの照射(100 mJ 以上)によってわずかなセシウム発光が見られるものの、基板表面に大きなダメージが入ることがわかった。また第二高調波では使用可能なレーザーエネルギーの範囲(およそ 20 mJ 以下)においてセシウムの発光を確認することはできなかった。

また図 1 では、広い波長域にわたってシンチレーション発光の連続スペクトルがオーバーラップしている。シンチレーション発光は第三高調波の照射のみで観測された。結晶内部を視野に入れる観測配置ではシンチレーション発光が強くオーバーラップして離散スペクトルが見えなくなったため、結晶が観測軸に入らないように計測器の配置を工夫した。

さらに第三高調波によるレーザーアブレーション発光の時間分解計測も行った。実験で観測されたセシウムプラズマの発光寿命は 1 マイクロ秒程度であり、シンチレーション発光の 0.3 マイクロ秒と時間的にオーバーラップしやすいことがわかった。両者の照射フルエンス依存性は共に 1 乗比例に近く、発光寿命からの詳細なプラズマパラメータの導出を行うためには、シンチレーション発光を正確に分離する必要があることがわかった。

(2) セシウム原子の D2 線(852 nm)とルビジウム原子の D1 線(795 nm)について共振器による線幅狭窄を用いない半導体レーザーを使った分光システムの構築を試みた。10 mW 程度の低出力半導体レーザーを用いた場合はレーザーの線幅が広すぎて原子の吸収が明確に取得できなかったが、100 mW 程度の半導体レーザーを用いた場合は充分解析に堪える信号を取得することが出来た。飽和吸収ディップ等から見積もられたレーザー線幅は 10-30 MHz 程度であった。発振モードの制限が少ないために波長スキャン性能に優れ、30 GHz 程度のモードホップフリー連

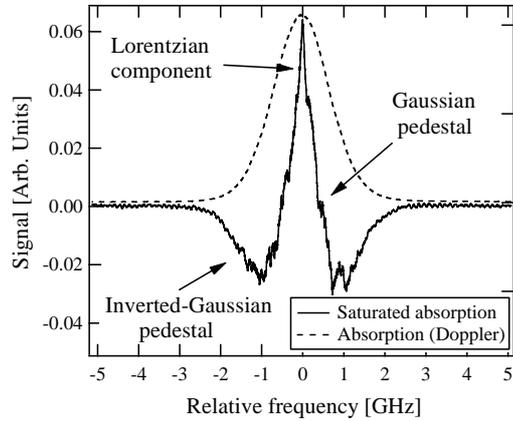


図 2. 放電部圧力 75 kPa, 膨張部圧力 0.5 kPa で放電させたアークジェットプラズマの飽和吸収スペクトル [学会発表 要旨より引用]

続スキャンが可能な扱いやすいシステムとなった。一方で縦モードは真に単一ではないため、位相変調を利用した Modulation transfer spectroscopy (MTS) を行うことは出来なかった。MTS を用いれば密封環境においてセシウムの同位体比を光のみで計測する技術の足掛かりになると考えられたが、結果を得るには至らず、今後さらに高性能なレーザーを用いて取り組むべき課題となった。

飽和吸収分光によるプラズマのパラメータ計測法の確立のため、レーザー誘起プラズマよりも安定してプラズマが得られるアルゴンアークジェットプラズマを利用した。放電部圧力を調整して飽和吸収分光を行った結果、シャープなディップは高圧では観測されず、代わりに局所的な熱分布そのものが観測されることがわかった。これは飽和吸収のポンププローブ相互作用と同時に速度交換衝突が発生しているためであると考えられる。また、スペクトルの特徴が低圧から高圧へと移り変わっていく過程で、既往の研究では言及されていない図 2 のような反転スペクトルが得られた。数値計算との比較を含めた検討の結果、このスペクトルは共鳴の上準位の衝突断面積が下準位の断面積よりも大きいことによって、上準位のみで速度緩和が発生していることに起因している可能性が高いことがわかった。この結果から、飽和吸収分光が高圧での衝突ダイナミクス計測に有効であることが見出された。また飽和吸収分光をトモグラフィーとして考えることにより、プラズマ・高圧ガスの三次元的な構造計測への応用が見出された。

(3) プラズマの飽和吸収分光シグナルについての考察を進める過程で、高圧環境では励起状態の速度緩和が光励起・脱励起と同等のスケールで実効的に出現することが明らかになった。このことを念頭において連続発振レーザーによる原子法レーザー同位体分離を

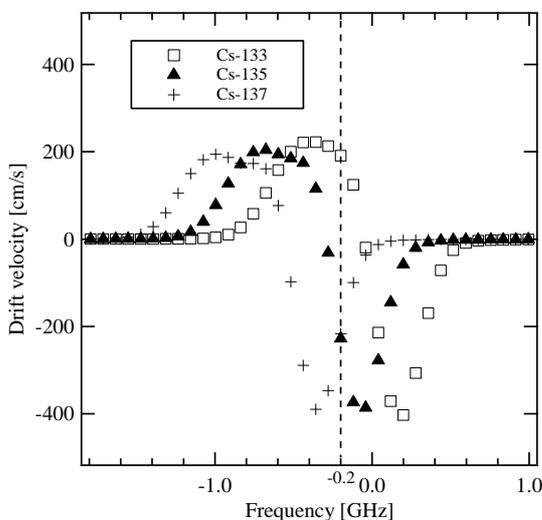


図3. ヘリウムガス中でのセシウム原子のドリフト速度のレーザー周波数依存性 横軸は Cs-133 のサイクル遷移 ($F''=4$, $F'=5$) を基準とした相対周波数．
[学会発表 要旨より引用]

再調査したところ、過去に光誘起ドリフトと呼ばれる現象が盛んに研究され、同位体分離にも適用例があることが見出された。既往の研究に光誘起ドリフトが放射性セシウムの同位体分離手段として検討されたことを裏付ける記述はなかったが、放射性セシウムをターゲットとした場合、他手法では追従できない高効率レーザー同位体分離が実現する可能性がある。

まず定性的に重要なことは、光誘起ドリフトはある意味で熱平衡状態に近い形で進行するとみなせることである。ドリフト状態は光によって本来なら行き来できなかった状態間をポピュレーションが行き来することによって形成される定常状態であり、全ての緩和プロセスが既に織り込まれている。一方で既往のレーザー同位体分離法は緩和が発生する前にプロセスを終了させなければ分離効率が著しく低下する手法ばかりであった。また光誘起ドリフトが比較的安価な半導体レーザーのみで実装可能であることも産業的な実用化の可能性を後押しする。

今回行った理論研究において得られた最良の条件は、バッファガスとしてヘリウムを使った場合であった。図3に各セシウム同位体のドリフト速度の周波数依存性を示す。本来であればこの波長域では核スピン分裂による超微細構造が出現するが、高圧ガス中では衝突緩和によってその平均的な構造だけが出現している。適切な位置にレーザー周波数を設定すれば、Cs-133 と Cs-135 の間に逆方向に 200 cm/s のドリフト速度を発生させることが出来る見通しが得られている。年間処理量は簡単な実証実験レベルの装置においても 100 g のオーダーに達する。今回の計算では衝突緩和を全て強衝突で扱う近似を用いているという制限はあるが、十分に今後

実験的な検証を行う価値のある成果が得られた。

5. 主な発表論文等

[学会発表] (計 5 件)

Kenta Yuki, Leo Matsuoka, Shinichi Namba, “Numerical study on isotope separation of radioactive cesium by light-induced drift”, Optical Manipulation Conference’16, 2016年5月18日 - 20日, パシフィコ横浜(神奈川県横浜市)。

松岡雷土, “らせん状発光分布を有するアルゴンアークジェットプラズマのレーザー吸収分光”, 日本物理学会第71回年次大会, 2016年3月19日 - 22日, 東北学院大学(宮城県仙台市)。

Leo Matsuoka, Kenta Yuki, Yutaro Sonoyama, Wataru Sasano, Shinichi Namba, “Collisional effects in saturated absorption spectroscopy of argon arcjet plasma”, APSPT-9/SPSM-28, 2015年12月12日 - 15日, 長崎大学(長崎県長崎市)。

松岡雷土, 梢和樹, 溝口亮, 難波慎一, “アルゴンアークジェットプラズマの衝撃波構造測定のためのレーザー吸収分光システムの開発”, 電気学会・プラズマ放電パルスパワー合同研究会, 2015年6月4日 - 6日, 北海道大学(北海道札幌市)。

溝口亮, 松岡雷土, 難波慎一, “アルゴンアークジェットプラズマの速度分布計測のためのレーザー吸収分光システムの開発”, Plasma Conference 2014, 2014年11月18日 - 21日, 朱鷺メッセ(新潟県新潟市)。

6. 研究組織

(1) 研究代表者

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