

衝突緩和を積極的に利用する放射性セシウムの 高効率レーザー同位体分離の研究

広島大学 大学院工学研究院 エネルギー・環境部門

助成対象者：松岡 雷士

概要

放射性セシウム Cs-135 を中性子照射によって安定核種に変換するためには、事前の同位体分離が必須である。本研究では放射性セシウムの同位体分離の問題に対し、高温高圧で分離が達成し得るレーザーを用いた新手法に関する理論研究と実験装置の開発を行った。具体的には Cs 原子の電子状態の違いによるバッファガスとの衝突緩和速度の差によって発生する光誘起ドリフト現象の利用を想定し、まず希ガス原子と Cs 原子のペアについて原子間ポテンシャルの数値計算を行った。得られたポテンシャルを利用し、レート方程式の近似解析解に基づいたドリフト速度の見積もりを行った。さらに理論に基づいて実験に必要な要素技術を開発した。

Abstract

Isotope separation is considered to be necessary for nuclear transmutation of radioactive cesium Cs-135. In this study, we performed theoretical study and development of experimental apparatus for a new method of laser isotope separation for radioactive cesium in high-temperature and high-pressure condition. For utilizing light-induced drift phenomenon, which caused by the difference of the speed of collisional relaxation among electronic states of cesium, we first performed a numerical calculation of interatomic potential between Cs atom and rare gases. We estimated the velocity of light-induced drift by using the approximate analytical solution of rate equation system and interatomic potential obtained. We also developed experimental element technologies based on the theoretical studies.

研究内容

研究の背景

放射性セシウムの一つである Cs-135 は 200 万年を超える長半減期とその水溶性により、原子力発電によって排出される放射性廃棄物を地層処分する際の不安要素の一つとなっている。Cs-135 は中性子照射によってバリウムの安定核種に変換することが可能であるが、安定セシウムである Cs-133 と Cs-135 が混在した条件下で中性子照射を行った場合、逆に Cs-133 から Cs-135 が生成して放射能が増加することが予測されている。Cs-133 と Cs-135 を完全に同位体分離することが出来れば現実的な核変換処理が可能となるが、現在のところ質量比が 1 に極めて近い重元素同位体を効率的に分離できる手法は開発されていない。レーザー同位体分離法は小規模な装置で高い分離効率を達成できる手法であるが、一般的にスループット（処理量）が小さく、また既存のレーザー法を用いたとしても放射性セシウムは極低温でごく微量の分離が見込めるのみである。

研究の目的

本研究は放射性セシウムを高温高圧条件で高効率分離できる新手法の開発を目的とした。具体的には、かつては盛んに研究されていたが現在はほとんど研究がなされていない光誘起ドリフトと呼ばれる現象を放射性セシウムの分離に適用する可能性を検討した。光誘起ドリフトとは、レーザーに共鳴する原子の電子励起状態のみが優先的にバッファガスと衝突し、衝突緩和、すなわち熱分布への速度再分配を起こすことによって発生する原子の大規模な流れのことである。光誘起ドリフトの発生原理を図 1(a)に、想定する手法の概念図を図 1(b)に示す。既存のレ

ーザー同位体分離法において、衝突緩和は分離プロセスをストップさせる邪魔者であった。本手法は衝突緩和を逆に積極的に利用する。このため同位体分離を定常状態で時間連続に行うことが可能となり、小さな同位体シフトを最大限に利用する効果とフロー処理の実装による高いスループットの実現の両方を期待することができる。

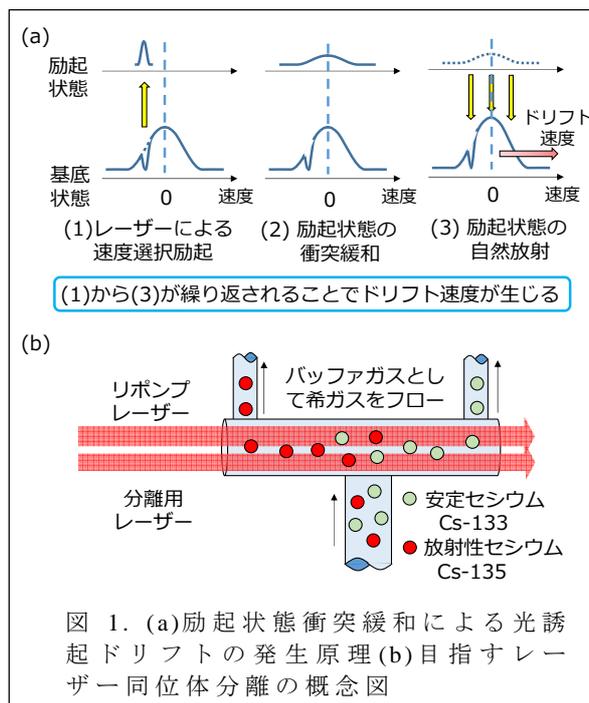


図 1. (a)励起状態衝突緩和による光誘起ドリフトの発生原理 (b)目指すレーザー同位体分離の概念図

結果

まずバッファガスとして想定する希ガス原子とセシウム原子の衝突を詳細に議論するため、量子力学に基づいた原子間ポテンシャルの数値計算を行った。結果の一例を図 2 に示す。計算結果は希ガス全てについて同一の精度で計算されたポテンシャルとしては現在得られる最高精度のものとなった[研究成果 1,6]。

得られたポテンシャルと既存研究[引用文献 1]において提示されている光誘起ドリフトのレート方程式の近似解析解を用いて、セシウム同位体間でどれだけのドリフト速度が得られるかを計算した。結果の一例を図 3 に示す。図に示すように光誘起ドリフト速度のレーザー波長依存性は、共鳴吸収波長の近傍で急速な正負反転を示す。また共鳴吸収線が密集している場合、ドリフト速度の依存性を示すカーブは各共鳴吸収線におけるドリフト速度の和として現れるが、この急激な正負反転は必ず出現する。適切な波長にレーザーを設定すれば、安定セシウムと放射性セシウムにそれぞれ逆方向の速度を付与することが可能であることがわかる。

本研究における数値計算で見積もられた単一の分離装置の年間処理量は最大で 600 g であった。原子力発電所から排出される放射性セシウムが年間 10 kg 程度であることを考慮すると、この手法は十分に実用化の可能性がある[研究成果 2-5]。

さらに、理論研究の結果を踏まえて実験に必要な要素技術の開発を行った。実証試験に必要なレーザーのスペックを確定し、ドリフト速度計測に必要なトリガレーザーと計測用レーザーを作成し、セシウム蒸気の分光による運用試験を行った。またセシウム蒸気発生源としてビスマス合金を使用することを想定し、蒸気発生のためのサンプルチャンバーと電流導入端子の制作を行った。

今後

理論研究においては放射性セシウム分離への道筋をある程度示すことが出来たが、今回

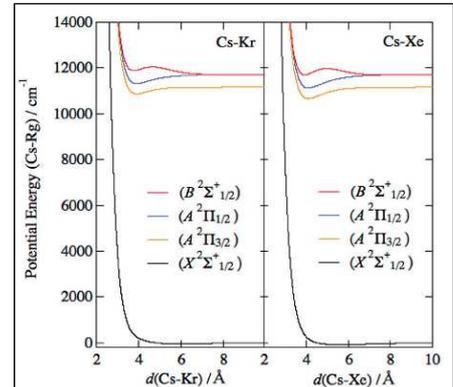


図 2. 計算した原子間ポテンシャルの一例（研究成果[1]のグラフィカルアブストラクトより引用）

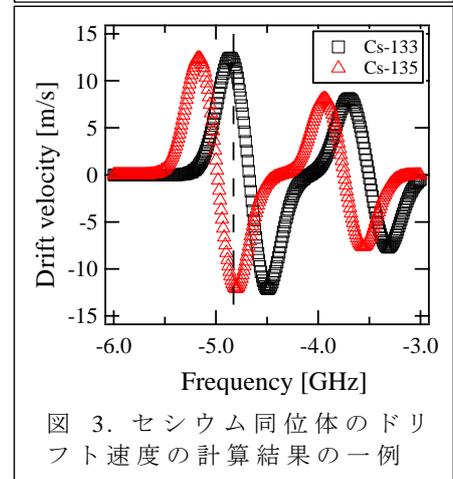


図 3. セシウム同位体のドリフト速度の計算結果の一例

用いた近似解析解では原子の速度分布が衝突によって即座に空間的に対称になるという仮定が含まれている。この仮定は特に軽いバッファガスに対して適切ではなく、今後は原子同士の一回の衝突によって速度分布がどのように変化するかをポテンシャルから見積もり、それを考慮に入れたドリフト速度の計算を行う。実験研究においては高強度な分離レーザーとリポンプレーザーの作成を行っていく。特にリポンプレーザーは速度分布全体を励起するために通常の 100 倍程度への線幅拡張が必要であり、独自の新たな工夫を取り入れることを計画している。

引用文献

- [1] 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**, pp.928-938 (2014).

本助成に関わる成果

[論文発表]

- [1] 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**, pp.1400–1402 (2016).

[口頭発表]

- [2] 結城謙太, 松岡雷士, 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(久留米), 1H20 (9月 7-9 日, 2016 年).
- [3] 結城謙太, 小林孝徳, 松岡雷士「放射性セシウム同位体分離のための光誘起ドリフト現象の数値的解析」日本原子力学会中国四国支部平成 28 年度研究発表会(坂出), (9月 16 日, 2016 年).
- [4] Kenta Yuki, Takanori Kobayashi, Leo Matsuoka, “Numerical study on light-induced drift of atomic rubidium based on ab initio interatomic potentials”, *Joint Conference of Renewable Energy and Nanotechnology 2016(Kuala Lumpur, Malaysia)*, 2C-3 (7-9 December 2016).

[ポスター発表]

- [5] Kenta Yuki, Leo Matsuoka, Shinichi Namba, “Numerical study on isotope separation of

radioactive cesium by light-induced drift”, The 3rd Optical Manipulation Conference (Pacifico Yokohama, Japan), OMCp-17 (18-20 May 2016).

- [6] 小林孝徳, 松岡雷士, 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(神戸), 1P002 (9 月 13-15 日, 2016 年).