

励起状態衝突緩和を利用した 放射性セシウムの高効率レーザー同位体分離

松岡雷士 結城謙太 小林孝徳
園山裕太郎 西谷徳高 難波慎一

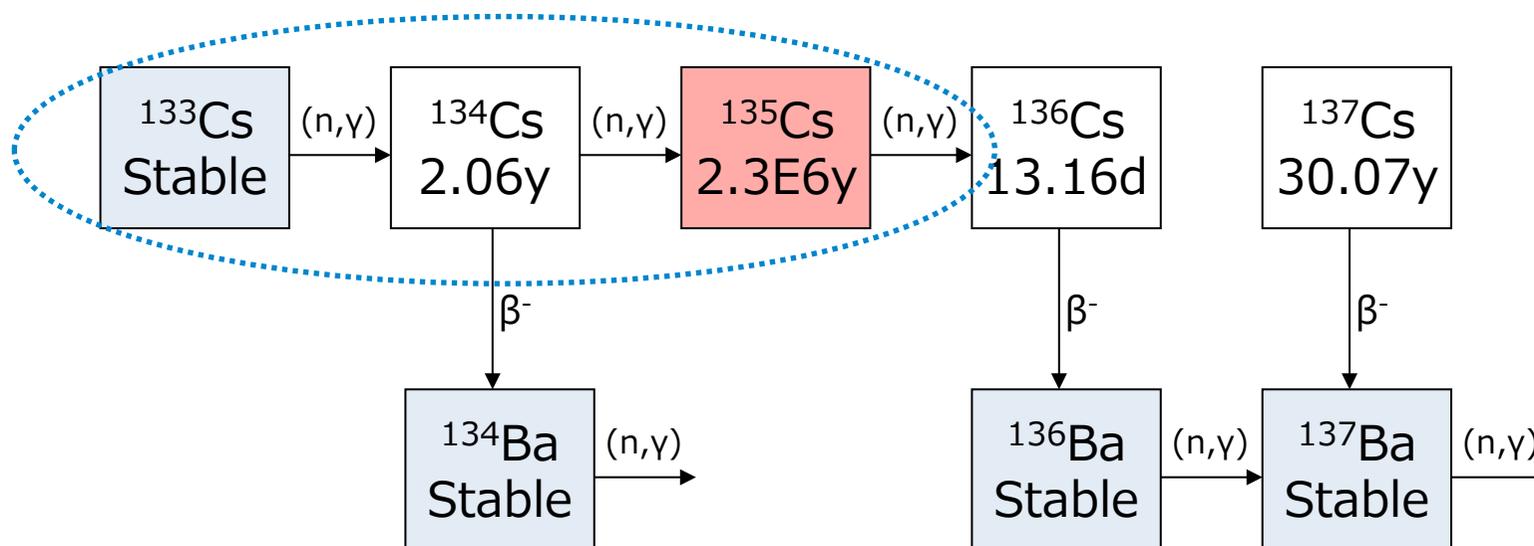
広島大学大学院工学研究科
機械物理工学専攻

背景：放射性セシウム分離の問題

2/15

地層処分で問題になる核種 ^{135}Cs : (半減期: $\sim 2,300,000$ 年)

Generation of ^{135}Cs from ^{133}Cs



Cs同位体の半減期と中性子捕獲による核変換チェーン

レーザー同位体分離ならば

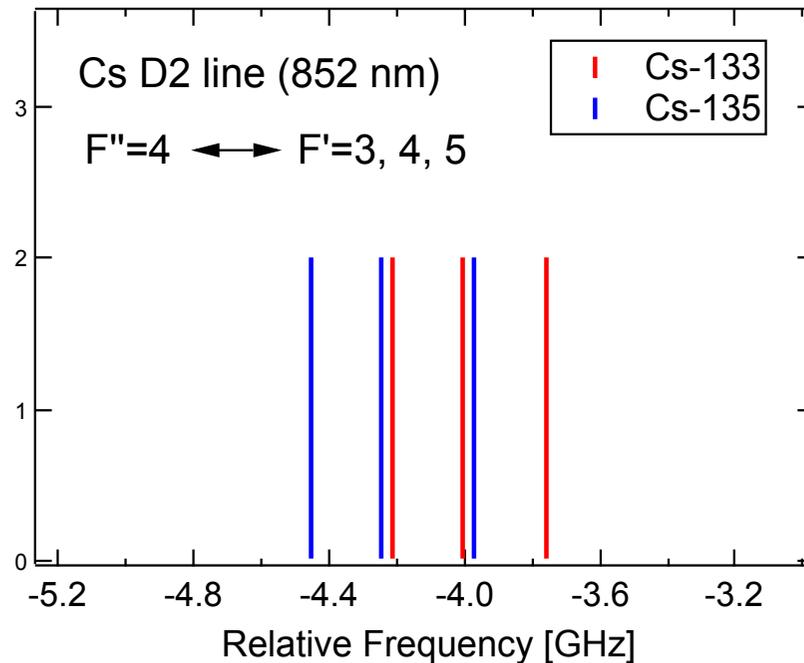
^{133}Cs と ^{135}Cs を分けられるのか??

問題 1 : 同位体シフトの小ささ

3/15

放射性セシウム分離はなぜ難しいのか？

原子法 Cs原子



Cs原子の同位体シフトの例

分子法 CsI分子

$v = 0 \rightarrow v = 1$ の振動遷移

同位体シフト $\sim 0.44 \text{ cm}^{-1}$
 $= 13.2 \text{ GHz}$

$J = 0 \rightarrow J = 1$ の回転遷移

同位体シフト $\sim 0.00034 \text{ cm}^{-1}$
 $= 10.3 \text{ MHz}$

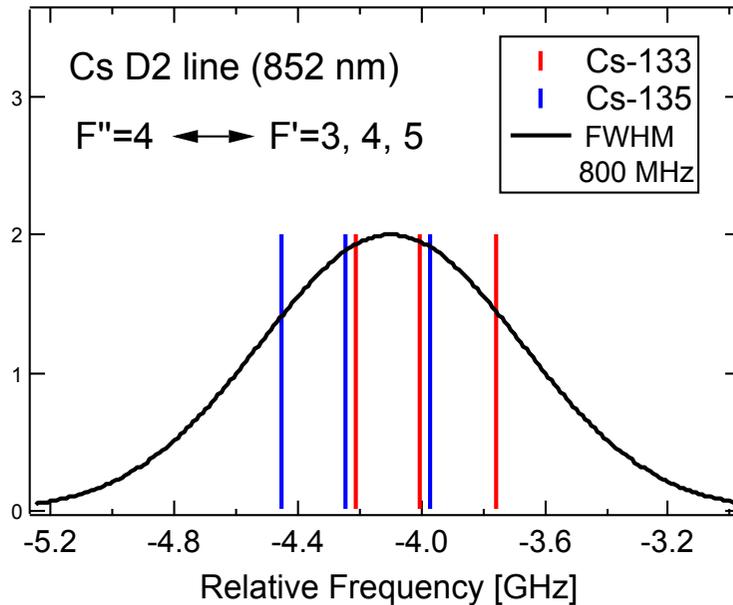
ただし回転のシフトは $J+1$ を
係数として増加

- 重元素のレーザー同位体分離ではシフトの小ささばかりが問題とされる
- CWレーザーを使えば不可能な分離ではない
- 問題の本質はこの先にある

問題 2 : 初期分布と副作用

4/15

原子法 Cs原子



分子法 CsI分子

CsI が気化する 700 K において

ν は 0 - 20 まで分布

J は 0 - 400 まで分布

$(\nu, J) = (0, 0)$ を同位体選択励起するレーザースキームはその他の初期準位で破綻 (副作用)

Cs原子の同位体シフトとドップラー幅

- ターゲットの事前冷却はスループットを著しく減少させる
- Cs や CsI はちょっとした冷却では単一準位にならない
- 物理化学の分野では未だに初期準位を振動回転基底状態に固定して考えるのが主流、中には回転自由度凍結の数値計算なども。
(\rightarrow 副作用を考慮した途端に原理破綻することも)

問題 3 : 高圧における衝突頻度増加

5/15

処理効率の増大を目指すためには高圧条件下での分離が不可欠

原子法 Cs原子

- デコヒーレンス
- 同位体間での励起状態交換
- 偏光利用の効率低下・破綻
- 速度分布の再分配

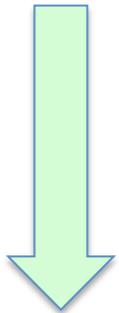
分子法 CsI分子

- デコヒーレンス
- 内部自由度の再分配
- 結合の等価性による
同位体の交換

- 核スピンの有無を利用して偏光で同位体を選択励起する手法はCs-133とCs-135の分離には使えず、高圧では効率低下・破綻の可能性
- 分子法においては衝突が発生する前に処理を終了させるフェムト秒レーザーが流行るが、処理効率の議論には至っていない

- 同位体シフトの小ささの問題
- 広大な初期分布の問題
- 高圧における衝突の問題

放射性セシウムを同位体分離するためにはこれらの問題を全て解決出来るレーザー分離法が必要

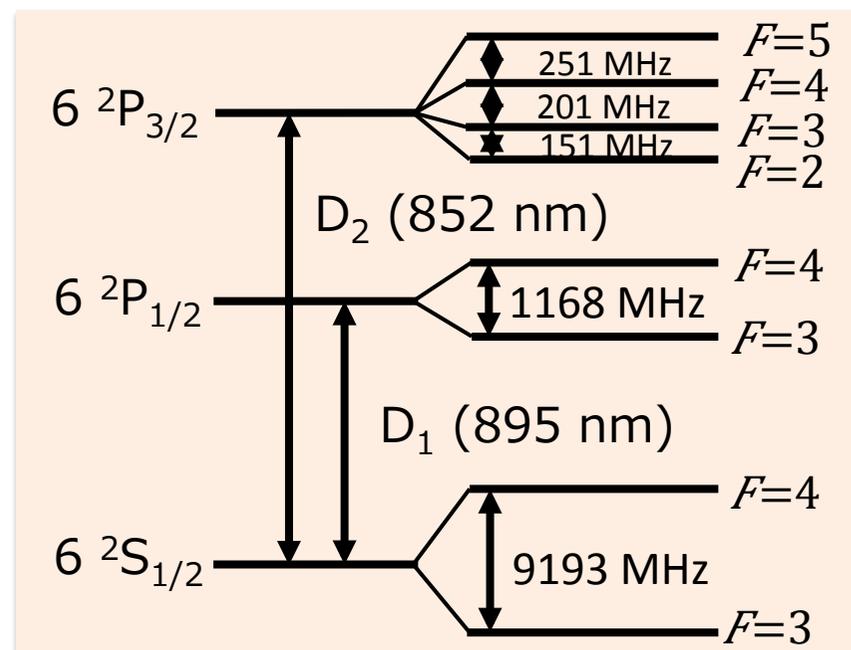
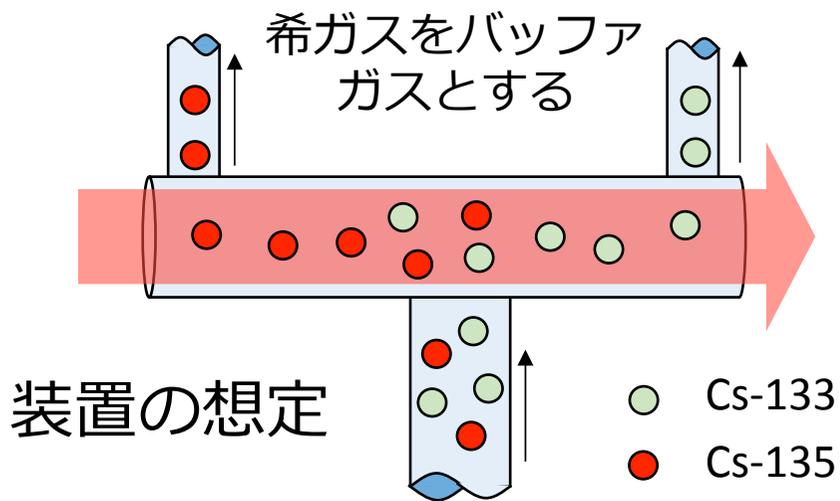
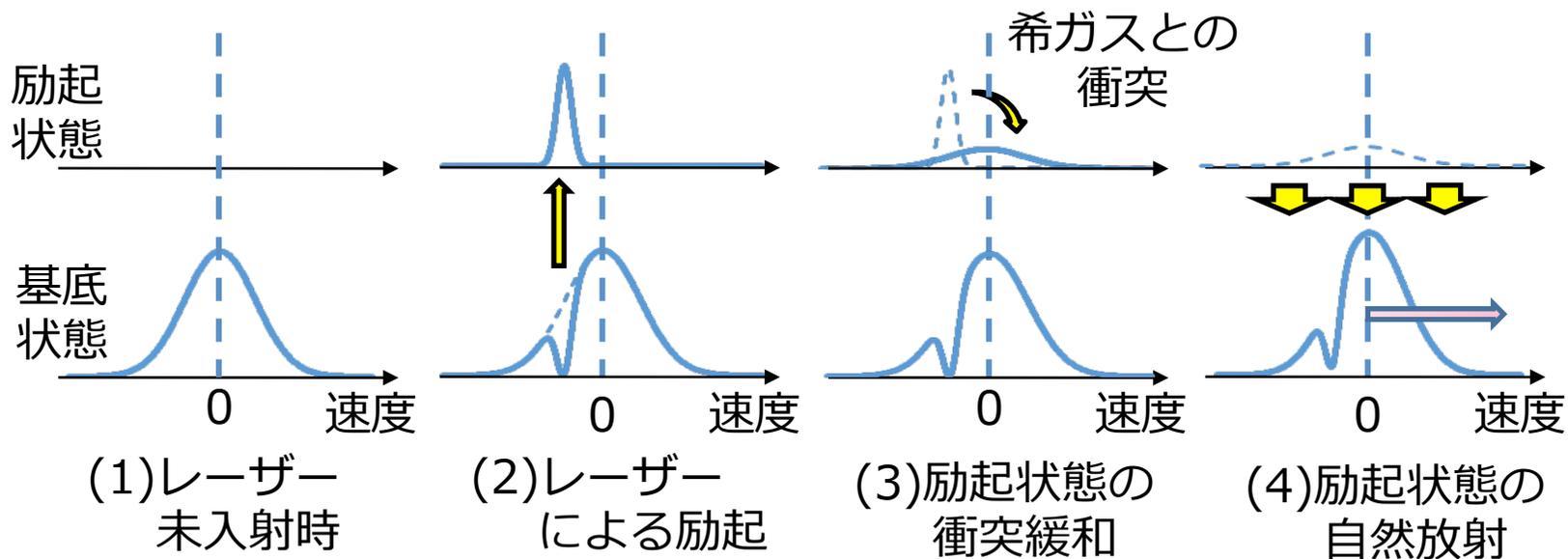


1980年代頃に盛んに研究され、現在はほとんど実験研究が行われていない「Light-induced drift (光誘起ドリフト)」という現象を利用すれば、セシウムが高効率分離できる可能性を着想

研究の目的

光誘起ドリフトを利用した放射性セシウムのレーザー同位体分離の成立性について数値計算によって明らかにする

光誘起ドリフトの原理



レート方程式

$$S_e(\mathbf{v}) + NP(\mathbf{v}) - \Gamma_e \rho_e(\mathbf{v}) = 0$$

$$S_g(\mathbf{v}) - NP(\mathbf{v}) + \Gamma_e \rho_e(\mathbf{v}) = 0$$



衝突による
速度再分配



光遷移



自然放出

強衝突近似

$$S_k(\mathbf{v}) = -\nu_k(\mathbf{v})\rho_k(\mathbf{v}) + S_k^{(2)}(\mathbf{v}), \quad k = e, g$$

衝突頻度がスカラー量の ν にのみ依存して
決まっており、衝突発生と同時に原点に対し
て対称な速度分布へと遷移する

$S_k^{(2)}(\mathbf{v})$ は積分によって消えるため、どんな
形でも良い

衝突断面積比による速度係数

基底状態の超微細構造のみ衝突で混じらない

ドリフト速度 $\mathbf{u}_L(\omega) = 2 \frac{v_g^{\text{tr}} - v_e^{\text{tr}}}{v_g^{\text{tr}} (\Gamma_e + v_e^{\text{tr}})} \sum_j \frac{N_j}{N} \int_0^\infty v W(v) \sum_i B_{ji}$

強衝突定常状態
近似解析解

$$\times \left[\frac{\mathbf{k}_m}{k_m} \frac{I_m}{k_m^2} f_{ij}^m(v, \omega) + \frac{\mathbf{k}_b}{k_b} \frac{I_b}{k_b^2} \int_0^\infty f_{ij}^b(v, \omega) F(\omega) d\omega \right] dv$$

速度選択レーザー リポンプレーザー

Average transport frequency

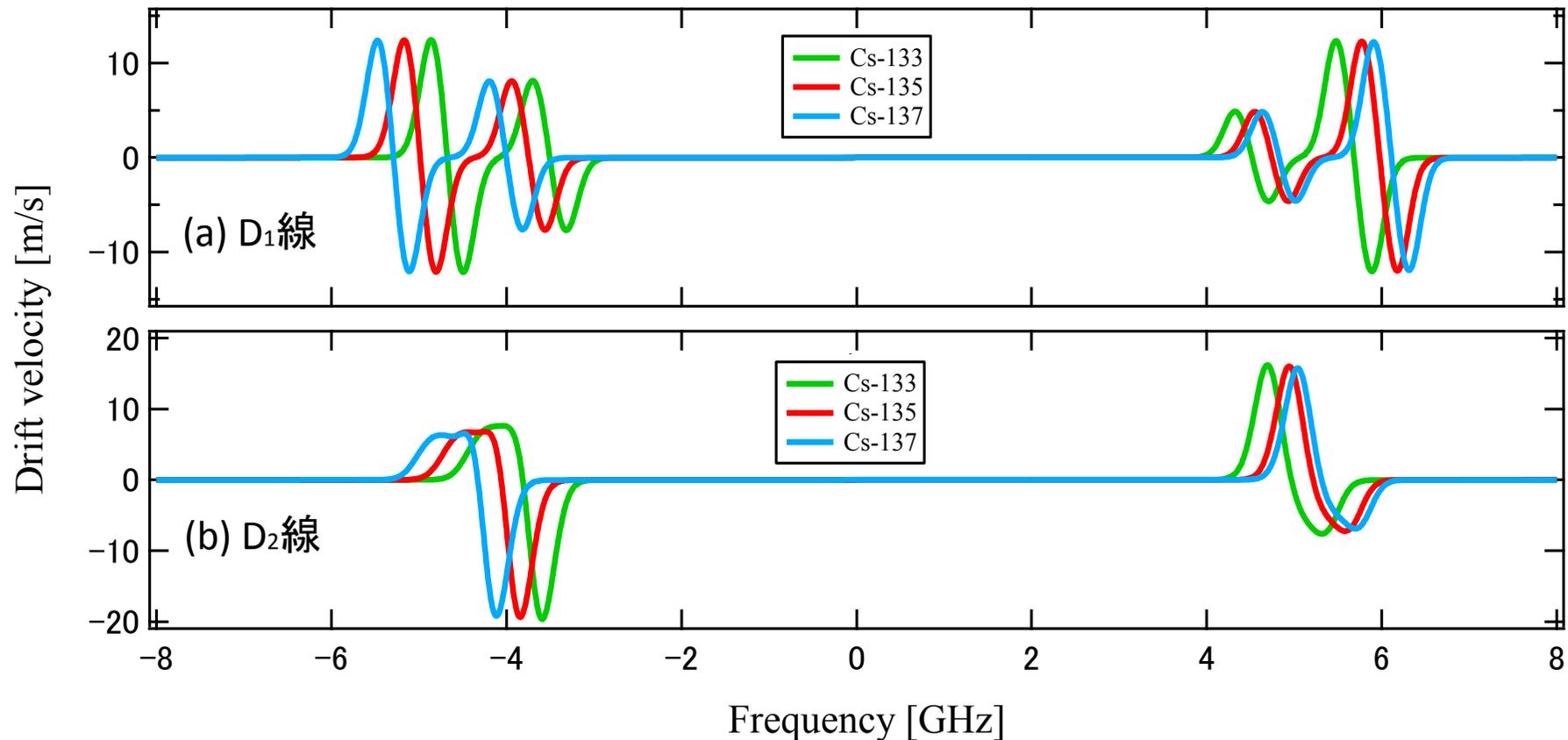
$$v_k^{\text{tr}} = \frac{8}{3\sqrt{\pi}} \frac{\mu}{M_a} \frac{N_b}{u_T^5} \int_0^\infty u^5 \exp\left(-\frac{u^2}{u_T^2}\right) \sigma_k(u) du$$

速度に依存する衝突断面積
第一原理原子間ポテンシャルと
WKB近似によって算出

Cs原子の光誘起ドリフトの計算結果

10/15

Cs-He(温度 350 K)での光誘起ドリフト速度



各同位体における光誘起ドリフト速度の照射レーザー周波数依存性

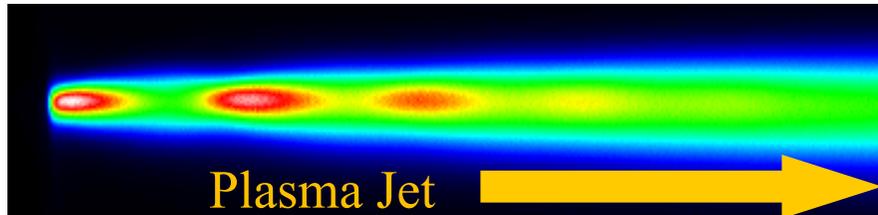
- 遷移線が密集しても分離が可能
- 強衝突、理想的なリポンプ、レーザー減衰無し、以上の仮定で年間 600g

- 1) 結局、よくあるレーザーの放射圧の話ですよね？
 1. 放射圧は速度分布のごく一部をプッシュするのみ
光誘起ドリフトは衝突緩和まで考慮に入れた定常状態

- 2) ドップラー効果や衝突で速度が減衰する効果は入っていますか？
 2. 見せているのは全ての結果として出現する定常状態
光遷移によって結合された状態間での新たな熱平衡状態と
言うこともできると思う

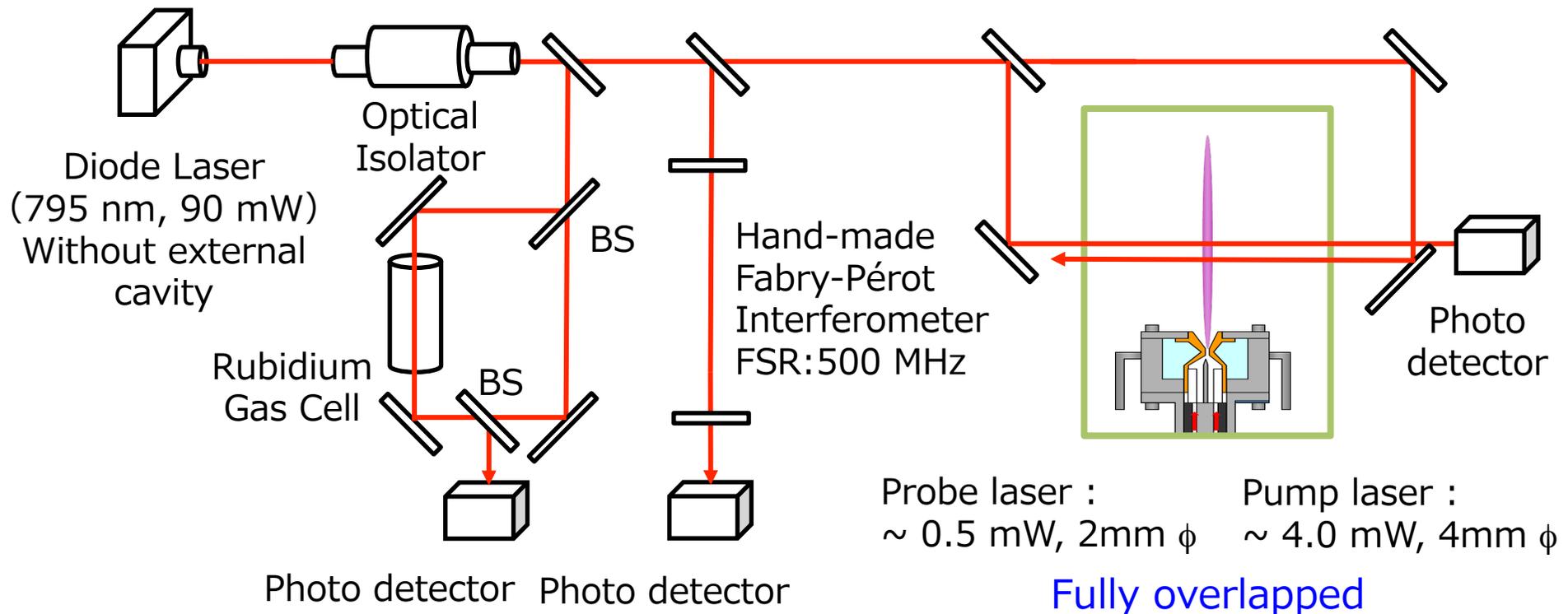
これまでに我々が報告したアークジェットプラズマの
分光結果の中にも関連する現象が

アークジェットプラズマの飽和吸収分光 12/15



セル状発光構造 (スロッシングモード)

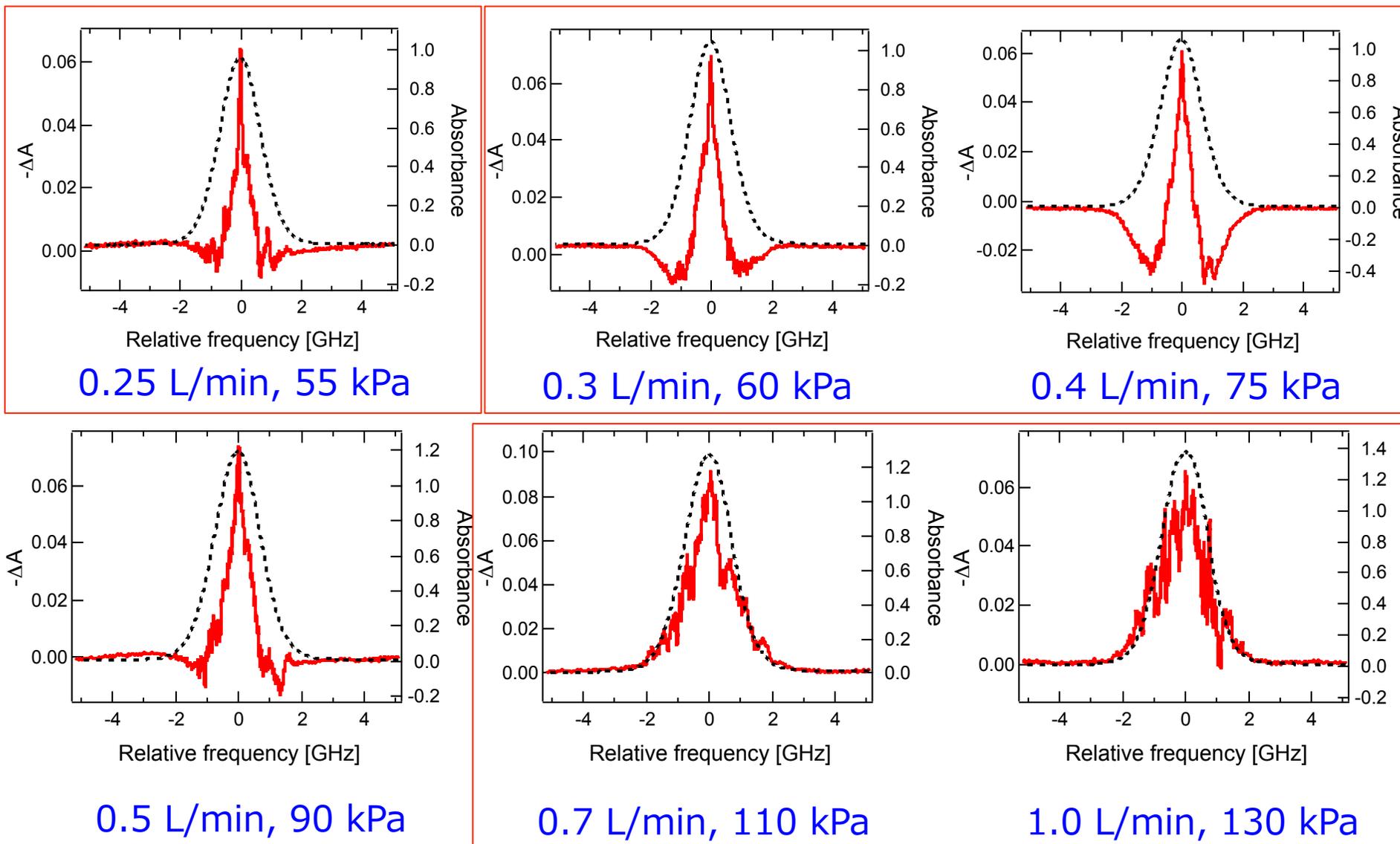
らせん状発光構造 (スパイラルモード)



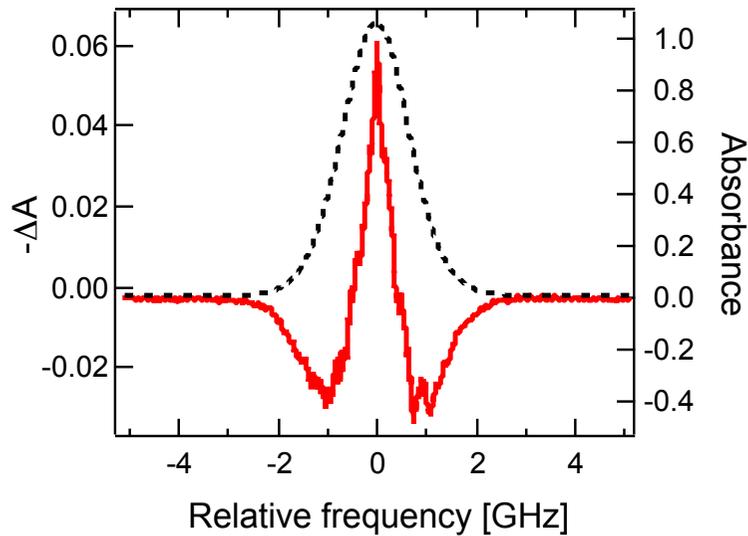
放電部圧力によるスペクトルの変化

13/15

— 飽和吸収スペクトル(実験) - - - 吸収スペクトル(実験)

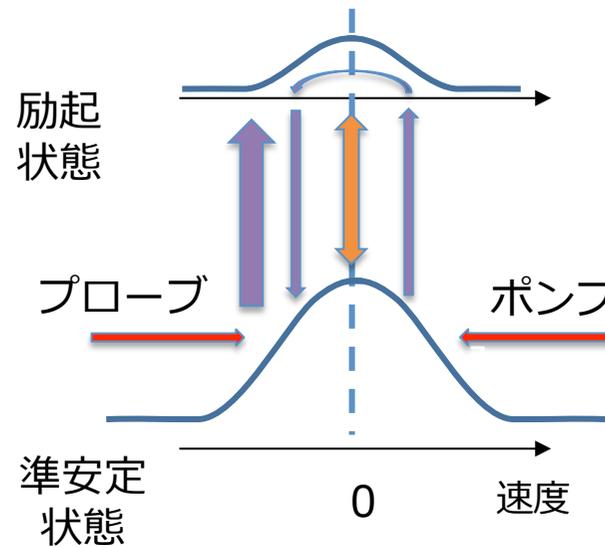


反転スペクトル=光誘起ドリフト？

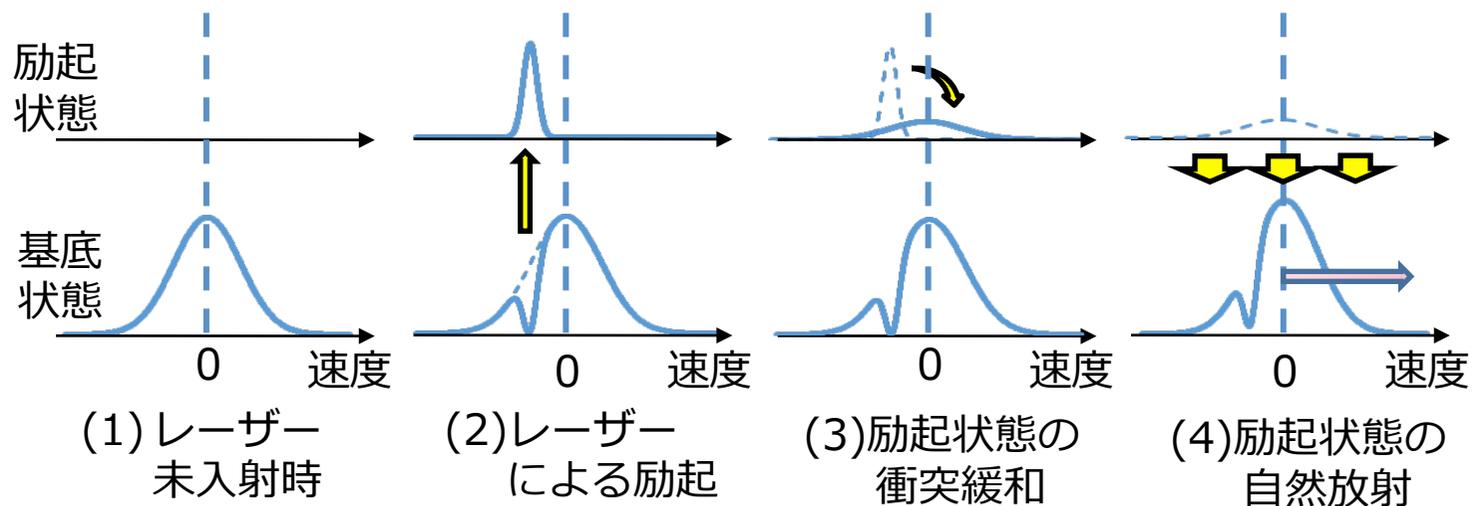


0.4 L/min, 75 kPa

反転成分出現の機構 (予想)



励起状態でのみ衝突による速度再分配 (強衝突) が発生している



- 光誘起ドリフトを利用した放射性セシウムの同位体分離について理論研究を行い、幾つかの仮定のもとで年間 600 g を分離処理できる条件を見出した
- 飽和吸収分光によって、光誘起ドリフトが発生する圧力条件をプローブできる可能性が高いことを示した



- 放射性セシウム分離実験のためのレーザー装置開発
- 飽和吸収分光によるプラズマ・高圧ガスの衝突頻度計測