

研究成果報告書

研 究 題 目		放射性セシウム同位体分離のための 先進的レーザー計測法の開発	実 施 年 度
			平成 27 年度
代 表 研 究 者	所 属	広島大学 大学院工学研究院 エネルギー・環境部門 助教	
	氏 名	松岡 雷士 印	
1. 研究の目的・背景 放射性セシウムを同位体分離することが出来れば，中性子照射による効率的な核変換消滅処理が可能となり，長寿命核分裂生成物の地層処分の超長期化を回避するための技術的ネックを一つ解消することができる．しかしながら，セシウムの同位体は物理的性質が非常に似通っており，レーザー法を含めた既存の同位体分離法では現実的な分離が不可能であるとされている．近年，申請者は放射性セシウムを分離可能なレーザー同位体分離法に関する理論研究を進めており，原理的には放射性セシウムの高効率同位体分離の実現が視野に入り始めた． 放射性セシウムの同位体分離研究を実証実験へとつなげるための課題の一つに，セシウム同位体比の簡易な計測法が確立されていないことが挙げられる．現在，セシウム同位体比の計測は ICP-MS に代表される飛行時間質量分析に限定されており，計測装置の放射能汚染や実験装置の大型化の問題は同位体分離実証実験の難易度を高めている．一方でレーザーによってセシウム同位体比を密封計測できる技術が開発できれば，レーザー同位体分離の利点を最大限に引き出した実験装置の提案が可能となる．ところが，放射性セシウムは同位体シフトが極めて小さいため，ルビジウム原子やその他の軽元素で容易に適用できていた単純なレーザー吸収分光法による定量分析が適用出来ない．そこで本研究では未だ研究報告が限られている Modulation Transfer Spectroscopy (MTS : 変調伝搬分光法) という手法に着目した．MTS を用いれば，特定のサイクル遷移のシグナルのみを増幅できるため，同位体シフトが小さく超微細構造が密集している放射性セシウムにおいても，同位体比を定量的に遠隔測定できる可能性が見出される． 以上の背景から，本研究は以下を目的として実施した． 1. 変調伝搬分光法のシグナル形状の理論研究と定量分析への適用可能性の検討 2. 半導体レーザーによるセシウムの変調伝搬分光システムの開発 3. CsI 結晶のレーザーアブレーション発光分光実験によるセシウム蒸気発生法の検討 以上の研究を通して，分子・液体・固体まで視野に入れつつ，セシウムサンプルのレーザーによる同位体比測定のための基盤技術の開発を行った．			

2. 研究成果及び考察（申請時の計画に対する達成度合を織込む）

まず変調伝搬分光のシグナル形状の理論的な再検討と、将来的な定量分析に有用となる計測法の検討について述べる。変調伝搬分光によって得られる信号形状はレーザー周波数に対して釣鐘型の分布を微分した形状になることが知られている。この微分型の分布は中心において信号強度がゼロとなること、及び、積分値がほぼゼロになることから、定量分析に対しては扱いにくい。そこで本研究ではレーザーの位相変調に対して、従来の同一周波数ロックインではなく、二倍の周波数でロックイン増幅した場合にどのようなシグナルが得られるかを検討した。量子力学に基づいた密度行列計算と計算結果のフーリエ解析を行った結果、二倍の周波数成分は中心においてゼロではない値を持つこと、及び、積分値がゼロとならないシグナルを計測できることが明らかになった。また、セシウム原子と背景ガスの衝突断面積の見積もりのため、セシウム原子と希ガス原子の原子間ポテンシャルの第一原理計算も行った。現時点では原子同士の衝突や熱分布が観測されるシグナルに与える影響が解析できておらず、理論研究における達成度合はおおよそ 50 %である。

続いて半導体レーザーを用いた変調伝搬分光システムの開発について述べる。まず半導体レーザーを用いたセシウム原子の基本的な吸収分光システムを構築した。周波数基準となる干渉計を自作し、ガスセル中のセシウム原子の D2 線（852 nm）の吸収信号を得ることができた。ここで位相変調器を導入し、セシウム原子の変調伝搬分光を試みた。しかしながら現時点ではまだ位相変調によって形成されるシグナルを検出できていない。検討の結果、これは現在使用している半導体レーザーのスペクトル幅が変調幅よりも大きいことにより、変調による信号増幅がノイズに埋もれてしまうことが原因であると考えられる。この問題の解決のため、スペクトルが原理的にシングルピークで形成される安価な VCSEL（垂直共振器面発光レーザー）による実験も試みた。しかしながら VCSEL は通常の半導体レーザーと比較して電流ノイズの影響がおおよそ 1000 倍大きく出てしまうため、こちらでも電流ノイズを抑えることが出来ず、変調伝搬シグナルを得ることは出来なかった。この問題を解決するためには高価な狭線幅レーザー素子の購入が必要となる。レーザー素子以外のシステムは既に完成したため、現時点での実験システム開発の達成度合はおおよそ 50%である。

最後にセシウム蒸気生成のための CsI 結晶のレーザーアブレーション実験について述べる。CsI 結晶に Nd:YAG レーザーを大気中で照射し、アブレーション時の発光スペクトルを観測した。Nd:YAG の基本波、二倍波を用いた場合はセシウムの発光はほとんど見られなかったが、三倍波を用いた場合はセシウム原子蒸気の発生に起因する励起状態発光スペクトルを観測することが出来た。レーザーアブレーション実験は本研究の中では補助的な位置づけであるが、達成度合はおおよそ 80%となっている。

3. 経費の使用状況（申請時の計画に対する実績を記述）

設備備品費として総額 941,220 円を使用した。半導体レーザーモジュールとファンクションジェネレータについては当初計画通りに購入した。電気光学位相変調器と光アイソレータについては別予算により先行して購入することが出来たため、代わりにレーザーシステム開発に必要なビームプロファイラカメラと CCD ラインカメラを購入した。また、数値計算を高速に実行するためのパソコンも購入した。

消耗品費については総額 458,780 円を使用した。セシウム用のオプトガルバニックセルの購入を計画していたが、より安定度が高く短納期の長光路 Cs 封入ガラスセルの購入へと切り替えた。レーザーダイオードについては当初購入を計画していた出力 30 mW の素子では不十分であることが途中で判明したため、一素子当たり一万円以下で購入できる範囲のレーザー素子として、100 mW の素子と 20 mW の VCSEL の購入へと切り替えた。半導体レーザー素子には出力可能波長範囲に個体差があるため、それぞれ 4 個と 6 個の素子を購入した。レーザーマウント類等のその他の消耗品の購入については当初の計画の範囲であった。

旅費については限られた予算での物品購入を優先する観点から、今回の助成金からは支出しなかった。

4. 将来展望（今後の発展性、実用化の見込み等について記述）

まず実験システムの開発において、位相変調に同期したシグナルを計測できるようにすることが直近の課題となっている。このためには単一縦モードで発振する狭線幅の半導体レーザーが必要であり、現在選定作業を進めている。半導体レーザー産業は現在も目まぐるしい発展を続けており、この一年間だけでも高価であったレーザー素子の低価格化や、逆に安価な素子の高性能化などの報告がメーカーから相次いでいる。現在では申請書執筆時には想像にも及ばなかった比較的安価で高性能なレーザーシステムの開発が可能となっており、発展した技術を取り込むことによって今年度中には当初の研究計画は達成可能であると考えている。

一方で本研究を通して、レーザーによる同位体の測定法のみならず、新しい分離法についても着想を得ることができた。申請書執筆の時点では分離法に関してはテラヘルツ波や高強度レーザーなどが必須であると考えていたが、申請者の着想した新しいスキームを用いれば半導体レーザーのみでセシウム同位体の分離が可能な見通しが得られている。本研究で開発してきた同位体比測定法が新しい分離法と同じ環境において機能するかどうかは未だ検討課題であるが、我々の研究室においてレーザー同位体分離から分析までを一貫して実施できる可能性が見出された意義は大きい。今後は両研究を統合し、放射性セシウムの世界最初の分離成功例の創出を目指していく。

5. 成果の発表（学会での発表、学術誌への投稿等を記載。予定を含む）

- ・変調伝搬分光の理論研究について

長尾遼平「セシウム同位体分析のための位相変調分光法の数値解析」

平成 27 年度 広島大学工学部卒業論文

- ・セシウムと希ガスの第一原理原子間ポテンシャルについて

Takanori Kobayashi, Leo Matsuoka, Kenta Yuki and Shinichi Namba, “An *ab initio* Study for the Four Low-Lying Electronic Potential Energy Curves between Atomic Cesium and Rare Gases”, Computational and Theoretical Chemistry [査読中]

- ・レーザーアブレーションによる Cs 蒸気発生について

Hitoshi Goto, Takanori Kobayashi, Leo Matsuoka “A study on laser ablation of solid-state cesium iodide by Nd:YAG laser for simple generation of atomic Cs vapor”, Joint Conference in Renewable Energy and Nanotechnology (JCREN 2016) [投稿中]