

レーザーの偏光特性を利用した同位体分離に関する研究

黒田 昭彦** 時田 茂樹* 町田 卓也* 仁木 秀明* 北嶋 巖*

Research on Laser Isotope Separation Based on Polarization Selection Rules

Akihiko KURODA**, Sigeki TOKITA*, Takuya MACHIDA*,
Hideaki NIKI*, Iwao KITAZIMA*

(Received February 20, 2002)

Laser isotope separation of Zr and Gd was studied. Separation experiment was performed on Zr by the method based on polarization selection rules. We obtained the concentration of ^{91}Zr about eight times higher than its natural abundance by three color excitation via a $J=2\rightarrow 2\rightarrow 1\rightarrow 0$ steps. Effect of a magnetic field on isotopic selectivity was also investigated by numerical calculations. It was found that for a high selectivity the magnetic field should be much less than $2.0\times 10^{-4}\text{T}$ for gadolinium and $4.0\times 10^{-4}\text{T}$ for zirconium.

Key Words : Laser Isotope Separation, Polarization, Magnetic Field, Gadolinium, Zirconium

1. はじめに

原子法レーザー同位体分離 (AVLIS : Atomic Vapor Laser Isotope Separation) は, 原子蒸気に分離対象の同位体のみを選択的に励起・電離する波長のレーザーを照射し, 生成したイオンを電氣的に回収して, 濃縮した同位体のみを得る技術である. レーザー同位体分離は, 大きな分離係数が得られるため, 経済性が高く次世代の濃縮技術として開発されている.

本研究では, 同位体分離の標的要素として, ガドリニウム (Gd) とジルコニウム (Zr) を選択した. これらの元素は, 熱中性子吸収断面積の特異的な大きさから原子力分野で利用されている. Table 1, Table 2 にそれぞれ Gd 同位体と Zr 同位体の天然存在比, 熱中性子吸収断面積, および核スピンを示す. Gd は, 熱中性子吸収断面積が非常に大きいことから, ウラン燃料の高燃焼度化

を目的に可燃性毒物として燃料ペレットに添加されている^[1]. その中でも最も熱中性子吸収断面積が大きい ^{157}Gd のみを濃縮し添加することにより, 核燃料のさらなる長寿命化が期待できる. 一方, Zr は高温においても酸, アルカリの腐食に強いことや熱中性子吸収断面積が非常に小さいことから, 現在, 軽水炉において燃料被覆材や炉心近傍の構造材として使用されている. しかし ^{91}Zr が他の同位体に比べて大きな断面積を持つためこれを分離除去することが望まれている.

原子法レーザー同位体分離を行う場合, その標的要素の吸収スペクトルが問題となる. Gd, Zr はともに同位体シフトが非常に狭く, 核スピンを持つ同位体の吸収線がそのスペクトルが超微細構造広がりを持ち, 偶数同位体の吸収線がその広がりの中に埋もれたような形になっている^{[2]-[6]}. そのため, これらの元素は同位体シフトを利用して効率的かつ選択性の高い分離を行うことは難しく, レーザーの偏光特性を利用する選択励起の方法が有効であると考えられる.

この手法は核スピンの違う同位体が異なる選択則を有することを利用して, 偏光したレーザー光により, 核スピンを有する同位体を選択的に電離するというものであり, 狭帯域レーザーを必要とせず, 偏光度の高いレーザーを用いれば比較的容易に選択性が得られる. し

* 電気・電子工学科

** 大学院工学研究科電子工学専攻

* Dept. of Electrical and Electronics Engineering

** Electrical and Electronics Engineering Course, Graduate School of Engineering

かし、この手法は、レーザーと原子蒸気の相互作用領域に磁場が存在する場合、同位体の選択性が低下する恐れがある。したがって実際、GdやZrのレーザー同位体分離を考えた場合、レーザー照射領域にかかる磁場がどの程度許されるかを検討しておくことは重要なことである。

本研究では実験により、本手法によるZrの同位体分離を試み、主として計算機シミュレーションによって磁場と選択性の関係を定量的に明らかにした。

Table 1 Natural abundance and thermal neutron absorption cross section of Gd

Isotopic component	Natural abundance	Thermal neutron absorption cross section (barn)	Nuclear spin
¹⁵² Gd	0.20	1100	0
¹⁵⁴ Gd	2.18	85	0
¹⁵⁶ Gd	14.90	61000	3/2
¹⁵⁸ Gd	20.47	1.5	0
¹⁶⁰ Gd	15.65	254000	3/2
¹⁶² Gd	24.84	2.5	0
¹⁶⁴ Gd	21.86	0.77	0

Table 2 Natural abundance and thermal neutron absorption cross section of Zr

Isotopic component	Natural abundance	Thermal neutron absorption cross section (barn)	Nuclear spin
⁹⁰ Zr	51.45	0.06	0
⁹¹ Zr	11.22	0.9	5/2
⁹² Zr	17.15	0.2	0
⁹⁴ Zr	17.38	0.05	0
⁹⁶ Zr	2.8	0.022	0

2. Zrの同位体分離実験

2.1 同位体分離の手法

レーザーの偏光特性を用いる方法^{6,10}は偏光による選択則の違いを利用するもので、異なる原子核スピンを持つ同位体の分離が可能となる。また、同位体シフトを利用しないので、原理的にバンド幅の狭いレーザーを必要とせず、同位体シフトの狭い元素への適用も可能となる。Fig. 1に $J=2 \rightarrow 2 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ の3段階励起による電離経路を示す。

磁気副準位まで考慮した遷移の選択則は励起光の偏光特性により異なる。直線偏光に対する遷移則は核スピン $I=0$ の場合 $\Delta m_J=0$ 、(ただし $\Delta J=0$ の場合 $m_J=0$ から 0 への遷移は禁止される) $I \neq 0$ の場合 $\Delta m_F=0$ となる。ここで $F=I+J$ であり、 I は核スピン、 J は電子の全角運動量、 F は核スピンも含めた全角運動量に対する量子数である。

Gd,Zr原子の基底準位角運動量子数は $J=2$ であり、3段階光励起過程において選択則が $J=2 \rightarrow 2 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ あるいは $J=2 \rightarrow 1 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ となるような経路を選び、偏光方向のそろった3本の直線偏光のレーザーを用いると奇数

同位体のみ電離される。偶数同位体は $\Delta J=0$ の場合、 $m_J=0$ から 0 への遷移は禁止されるので、電離に至る経路は存在しない。それに対し奇数同位体は超微細構造を利用して電離に至る経路が存在する。

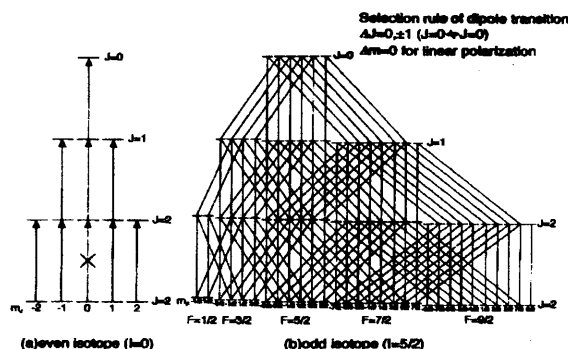


Fig. 1 $J=2 \rightarrow 2 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ excitation steps for even and odd isotopes

2.2 実験方法

レーザーの偏光特性を利用する手法でのZr原子の同位体分離実験をFig. 2で示す実験装置で行った。実験では、真空チャンバー内でZrロッドに、QスイッチNd:YAGレーザー(Continuum社製 Surelite I 繰り返し周波数20Hz 使用出力20mJ)の基本波を、焦点距離40cmのレンズで集光、照射することによりZr蒸気を生成した。Zr原子の励起用レーザーとして、QスイッチNd:YAGレーザー(Spectra Physics社製 Quanta-ray GCR-130 繰り返し周波数10Hz 使用出力120mJ)の第2次高調波ポンプ源とする色素レーザー3台を用い、電離用レーザーとして、QスイッチNd:YAGレーザー(同上 使用出力180mJ)の基本波を用いた。質量分析器の電極の中央部に到達した蒸気に、3台の色素レーザーとNd:YAGレーザーの基本波を同時に照射し、イオン化した。2台のNd:YAGレーザーの照射タイミングを任意に選ぶために、遅延回路により、10HzでQスイッチトリガーした。イオンの質量分析は、検出器にMCPを用いた2段階加速

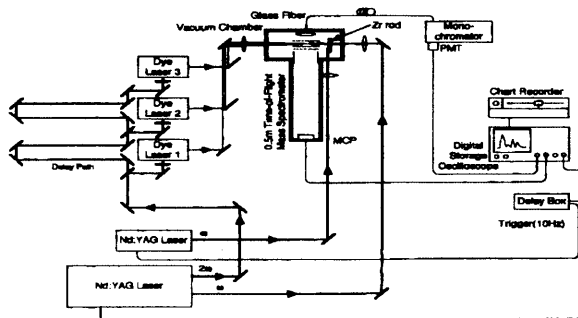


Fig. 2 Block diagram of experimental setup for laser isotope separation

の飛行時間型(TOF)質量分析器で行った。質量分析結果はMCPのイオン電流の時間変化として検出した。また、真空チャンバー上部にはレーザー励起蛍光観測用の窓を設け、光電子増倍管で検知した。それぞれ検出した信号は、デジタルストレージオシロスコープで平均化して、観測し、記録はチャートレコーダーで行った。

2.3 実験結果及び考察

実験で用いたZrの励起経路^[10]をFig.3に、実験により得られた質量スペクトルをFig.4に示す。Fig.4の(a)は、色素レーザービームに偏光フィルターを挿入しておらず、偏光度は0.6程度のものであり、ほぼ天然存在比のZrの質量スペクトルを示している。(b)は、偏光フィルターを使い偏光度を0.9程度にしたものである。同位体の存在比を[Zr]とし、濃縮比⁹¹ α を以下のように定義すると、

$${}^{91}\alpha = \frac{([{}^{91}\text{Zr}]/[{}^{90}\text{Zr}])_{\text{measured}}}{([{}^{91}\text{Zr}]/[{}^{90}\text{Zr}])_{\text{natural}}}$$

(b)の濃縮比は8.1であった。(b)の条件で、イオン化しないはずの偶数同位体がイオン化しているのは、4段目

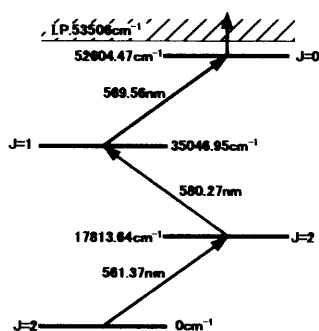


Fig.3 Excitation scheme of Zr based on the $J=2 \rightarrow 2 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ transition

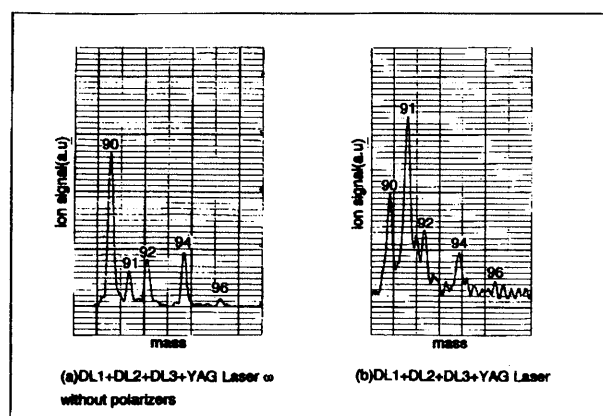


Fig.4 Time-of-flight mass spectrum of Zr photoions

の励起用レーザーを同時照射しているために $J=2 \rightarrow 2 \rightarrow 1 \rightarrow 0$ の経路で共鳴イオン化していない成分が考えられる。これは、各レーザーの照射強度を最適化することによって抑えることができると考えられる。またレーザーの偏光度が0.9程度と悪いいため、 $m_j=0$ の磁気副準位へ分布している可能性もある。これは、消光比が1/10000程度のグランレーザープリズムを使用し、偏光度を ~ 0.99 まで引き上げるにより確認することができる。

3. 外部磁場が同位体選択性に与える影響の数値解析

3.1 解析モデル

数値解析には偶数同位体のみを考え、そのイオン化が磁場の影響によってどのように進行するかを解析する。モデルとした偶数同位体の3段階光イオン化スキームをFig.5に示す。

基本となるリューヴィル(Liouville)方程式は、

$$\frac{d}{dt} \rho_{m,m'} = (-i\hbar)^{-1} [H_b, \rho]_{m,m'} + \frac{d^{(1)}}{dt} \rho_{m,m'} + \frac{d^{(2)}}{dt} \rho_{m,m'} \quad (1)$$

で示される^{[11],[12]}。ここで、 m と m' は磁気副準位の磁気量子数、 $\rho_{m,m'}$ は密度行列 ρ の要素である。 $[H_b, \rho]$ は交換可能なため、右辺第一項は無視することができる。第2項はレーザーによる励起を、第3項は磁場による分布移動を表す。量子化軸をレーザーの偏光方向にとった“フレームA”でレーザーによる励起を、量子化軸を磁場の方向にとった“フレームB”で磁気副準位間の分布密度の移動を取り扱う。

“フレームA”において、使用する励起用レーザーに、標的原子の遷移スペクトル幅がりをすべて覆うような広帯域のものを想定しているために、励起ダイナミクスは、レート方程式で導くことができる。そこでレーザー光による原子の励起は式(1)の右辺第2項から、以下のようなになる^[13]。

$$\begin{aligned} \frac{d\rho_{m,m'}^{\Lambda_1}}{dt} &= -W_m^{\Lambda_1}(\rho_{m,m'}^{\Lambda_1} - \rho_{m,m'}^{\Lambda_2}) + W_m^{\Lambda_2}(\rho_{m,m'}^{\Lambda_2} - \rho_{m,m'}^{\Lambda_1}) \\ \frac{d\rho_{0,0}^{\Lambda_4}}{dt} &= -W_0^{\Lambda_4}(\rho_{0,0}^{\Lambda_4} - \rho_{0,0}^{\Lambda_3}) + W_0^{\Lambda_3}(\rho_{0,0}^{\Lambda_3} - \rho_{0,0}^{\Lambda_4}) \\ \frac{d\rho_{0,0}^{\Lambda_2}}{dt} &= -W_0^{\Lambda_2}(\rho_{0,0}^{\Lambda_2} - \rho_{0,0}^{\Lambda_1}) \end{aligned} \quad (2)$$

ここで、

$$W_m^{\Lambda_1} (m=-2,-1,0,1,2), W_m^{\Lambda_2} (m=-2,-1,0,1,2), W_m^{\Lambda_3} (m=-1,0,1), W_m^{\Lambda_4}$$

ここで、 $\rho_{m,m}$ は、それぞれの基底準位($J=2$)、選択励起準位($J=2$)、中間励起準位($J=1$)、自動電離準位($J=0$)およびイオン状態の分布密度である。 W_m^i は磁気副準位 m への励起速度で、

$$W_2^1 : W_1^1 : W_0^1 : W_1^1 : W_2^1 = 4 : 1 : 0 : 1 : 4$$

$$W_1^2 : W_0^2 : W_1^2 = 4 : 3 : 4 \quad (3)$$

はそれぞれ、1 段目、2 段目の励起における値である。

“フレームB”において、磁気副準位での分布密度の移動を示す式は、式(1)から、

$$\frac{d}{dt} \rho_{m,m}^{B,i} = \frac{\alpha^{(1)}}{dt} \rho_{m,m}^{B,i} + i \omega_L (m-m') \rho_{m,m}^{B,i} \quad (4)$$

と書ける。ここで、 $\omega_L = \mu_B g_1 B / \hbar$ は Larmor の歳差運動の回転数、 g_1 は Landé の g 因子、 μ_B は Bohr 磁子、 B は原子とレーザーの相互作用領域での磁束密度である。

“フレームA”と“フレームB”間の相互変換には回転行列^[14] $R(\theta)$ を使う。

$$\rho^B = R(\theta) \rho^A R^\dagger(\theta)$$

$$\rho^A = R(-\theta) \rho^B R^\dagger(-\theta) \quad (5)$$

ここで、 θ は2つの量子化軸のなす角である。各磁気副準位の磁場による分布の進展は、レート方程式(2)を式(4)とカップルさせることによって解いた。

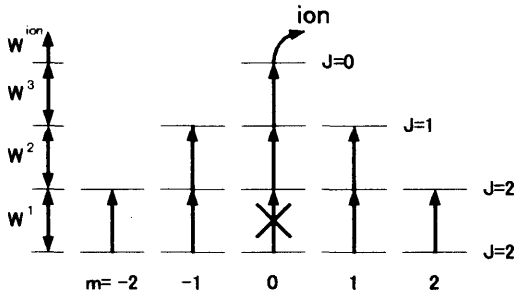


Fig.5 Three-step photoionization scheme by threelasers polarized in the same direction

3.2 基礎解析

本解析では、特に触れない限り、以下の値を既定値として用いた。

- ・レーザーの半値幅 τ_p は 50 [ns]
- ・レーザーの偏光面と磁場のなす角 θ は 90 [deg]
- ・外部磁場 B は 5×10^{-4} [T] (5 Gauss)
- ・励起割合 $R_{1 \sim 4}$ は 10
- ・Landé の g 因子
 (Gd) は $g_1 = 2.65, g_2 = 2.11, g_3 = 2.81$
 (Zr) は $g_1 = 0.66, g_2 = 1.09, g_3 = 0$
- ・ $t=0$ での分布初期値は基底準位の5つ $\rho_{m,m}^1$ は 0.2, その他の準位は 0

解析に用いたレーザー波形は、ステップ (矩形) 型ではなく、ガウス (Gaussian, 正規分布型) を仮定して解析を

行った。

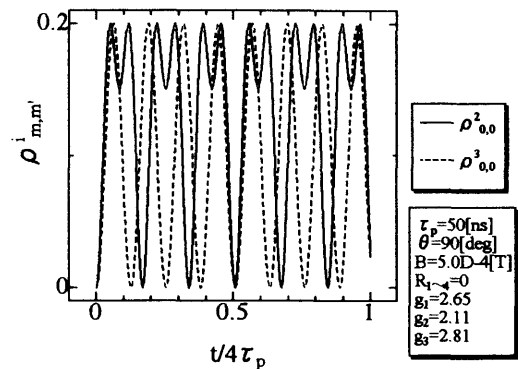


Fig.6 Time evolution of the $m=0$ substate population by Larmor precession

Fig.6は、レーザーによる励起を止めた場合 ($R_{1 \sim 4} = 0$) の、 $m=0$ の磁気副準位における分布密度の時間変化を示している。実線は2段目、破線は3段目の励起準位である。 $t=0$ の初期条件として $m \neq 0$ の準位に対し $\rho_{m,m}^A = 0.2$, $m=0$ の準位に対し $\rho_{0,0}^A = 0$ とした。このようにレーザーの励起がない場合でも、Larmor の歳差運動により、 $m=0$ の磁気副準位への分布移動が生じる。 5×10^{-4} [T] (5 Gauss) の磁場強度では、磁気副準位間の遷移は十分に起こっていると考えられる。

Fig.7は、 5×10^{-4} [T] (5 Gauss) の磁場が存在する中でレーザーを照射した場合の基底準位とイオンの分布密度の時間変化を示している。 $m=0$ の磁気副準位も他の準位と同じように分布の移動が起こり、時間の経過とともにイオン量が増加していることが分かる。この結果からも、レーザーと原子との相互作用領域に磁場が存在すると、イオンが発生することが分かる。

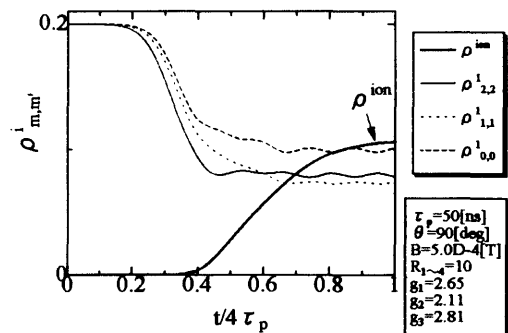


Fig.7 Time evolution of population for three substates in the ground states and ionstate

3.3 解析結果及び考察

Fig.8にGd, Fig.9にZrのレーザーパルス終了時におけるイオン生成の割合と磁場強度の関係を示す。縦軸はレーザー照射後におけるイオン化割合、横軸は磁場強度である。 R は励起割合であり、レーザー強度に比例

する。

Gdの場合、イオン量は約 2×10^4 [T] (2Gauss) までは磁場に伴い増大し、それ以上のより強い磁場強度では、ほぼ一定となる。この領域では、レーザーパルスの照射時間に対して磁気副準位の分布の進展が十分早く、磁気副準位の分布が等方的になっていると考えられる。それは、核スピン I と電子の全軌道角運動量 J とのカップリングが強い奇数同位体と同じ状態になっていると考えられるため、偶数同位体と奇数同位体とのイオン量に差がなくなり、奇数同位体の選択的なイオン化は出来なくなる。

また、Fig.9よりZrはGdと比べて、幾分条件が緩和され、約 4×10^4 [T] (4Gauss) 程度の磁場で選択性がなくなるのが分かる。これは、各準位の磁場による $m=0$ の磁気副準位の分布密度の進展の周期、すなわち、Larmor回転数の大きさはLandéの g 因子に比例するため、これが大きい準位は、磁気副準位間の分布が早く等方的になるからであると考えられる。

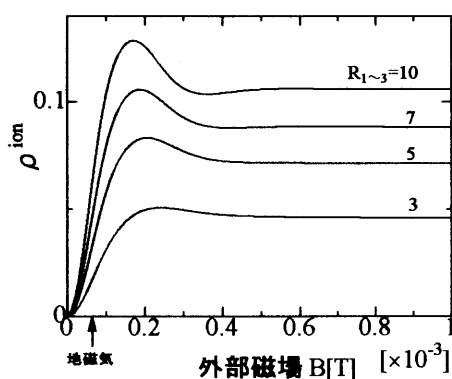


Fig.8 Final ion state population of Gd as a function of B for various transition rates

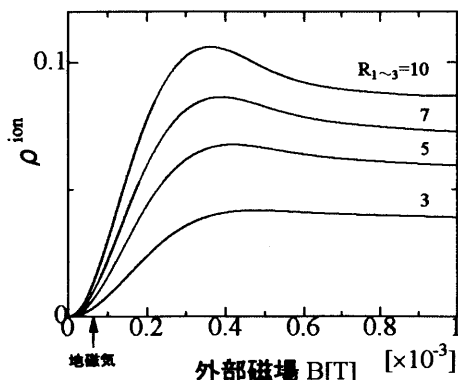


Fig.9 Final ion state population of Zr as a function of B for various transition rates

Fig.10にGd, Fig.11にZrのレーザーパルス終了時におけるイオン生成の割合と、レーザーの偏光面と磁場

のなす角度との関係を示す。縦軸はレーザー照射後におけるイオン化割合、横軸は偏光面と磁場のなす角 θ である。

これらの図より、高い選択性を得るためには θ を小さくする必要があり、レーザーの偏光方向を磁場の方向と同じ向きにとることができれば全く磁場の影響を受けず、奇数同位体のみイオン化できることが分かる。

今回の条件では、両元素ともイオン量が最大となる角度は 60° 付近となっているが、励起準位の $m=0$ の磁気副準位の分布は、磁場強度と角度 θ に依存するためこれらの値が変化すれば、イオン量が最大となる θ も変化する。

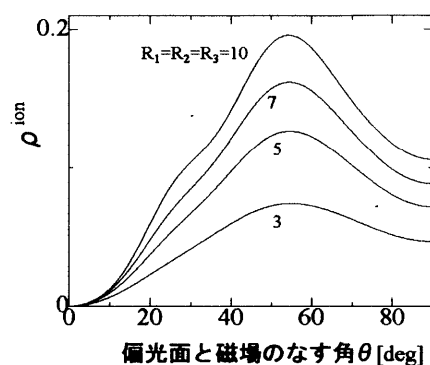


Fig.10 Final ion state population of Gd as a function of θ for various transition rates

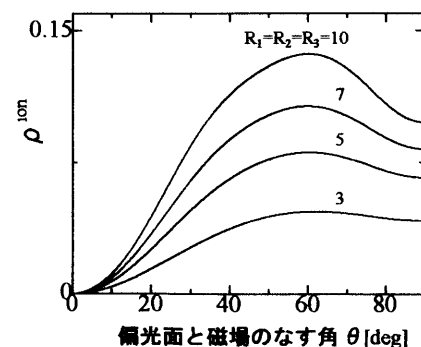


Fig.11 Final ion state population of Zr as a function of θ for various transition rates

4. 総括

本研究ではレーザーの偏光特性を利用した同位体分離の手法を、原子力分野で重要な元素であるGdやZrに適用することを検討した。実験により、本手法によるZrの同位体分離を試み、実用化の上で問題になるであろう磁場による同位体選択性の低下を数値計算で解析した。

Zrの同位体分離実験においては、条件が最適ではな

いものの約8倍の濃縮比が得られ、同位体分離の手法として有望であることを示した。また、励起用色素レーザーの照射パワーの最適化、偏光度の改善を行うことでさらに選択性の高い分離が期待できる。

磁場が同位体選択性に及ぼす影響の数値解析においては、レーザーのパルス幅 50ns、磁場とレーザーの偏光面が直交している場合、Gd は約 2×10^{-4} [T] (2Gauss) 程度の磁場強度で選択性がなくなることが分かった。また、Zr の場合は Gd と比べ選択性がなくなる条件が幾分緩和され、約 4×10^{-4} [T] (4Gauss) 程度の磁場強度で同位体の選択性が失われることが分かった。しかし、Landé の g 因子が小さい準位を遷移経路に選ぶことやレーザーの偏光方向と磁場の方向を平行にすること、Larmor の回転数に比べ早い励起電離を行うことによって、Gd 原子、Zr 原子とも磁場中でも高い選択性を得ることができると考えられる。

今後、これらの数値解析結果の妥当性を確認するために実験的検証を進めていく必要がある。

参考文献

- [1] 浅田忠一；(新版 原子力ハンドブック) オーム社 (1989) 1253.
- [2] H.Niki, T.Miyaoto, Y.Izawa, S.Nakai; *Optics Comm.* 70(1989) 16.
- [3] P.A.Hackett, H.D.Morrison, O.L.Bourne, B.Simard and D.M.Rayner; *J.Opt.soc. Am. B5* (1988) 2409.
- [4] M.R.Humphries, O.Lbourne and P.A.Hackett; *Chem.Phys. Lett.* 118 (1985) 134.
- [5] W.Berres, D.Rusbult, E.Hintz and H.L.Bay; *Appl. Phys. Lett.* B35 (1984) 83.
- [6] L.C.Balling and J.J.Wright; *Appl.Phys.Lett.* 29 (1976) 411.
- [7] G.Ibekov, A.N.Zherikin, V.S.Letokhov, V.I.Mishin and V.N.Fedseev; *JETP Lett.* 33 (1981) 450.
- [8] E.LeGuyadec, Jravoire, R.Botter, F.Lambert and petit ; *Opt. Commun.* 76 (1990) 34.
- [9] H.Niki, N.Aly, K.Koh, K.nomaru, Y.Izawa, S.Nakai, Y.W.Chen and C.Yamanaka; *Proc. 6th Int. Symposium on Advanced Nuclear Energy Reseach, Mito, 1994* (Japan Atomic Energy Institute, 1995) p.970.
- [10] L. W.Green, G.A.McRae and P.A.Rochefort; *Phys. Rev.* A47 (1993) 4946.
- [11] A.Corney; *Atomic and Laser Spectroscopy* (Clarendon, Oxfrpd, 1977) Chap.15.
- [12] W.Gawlik, D.Gawlik and H.Walter; *The Hanle Effect and Level-Crossing Spectroscopy*, eds. G.Moruzzi and F.Strumia (Plenum, New York, 1991) Chap.2.

[13] H.Niki, I.Kitazima and Y.Izawa; *Jpn.J.Appl. phys.* 37(1998) 3343

[14] A.Messiah; *メシア量子力学* (東京図書, 1971) Chap.13