

JAERI - M
89-098

保障措置設計のための分子法レーザー同位体分離プロセスの
シミュレーション解析

1989年8月

岡本 毅*・西村 秀夫

JAERI-Mレポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の間合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしてください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division
Department of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-
mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

©Japan Atomic Energy Research Institute, 1989

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 榎高野高速印刷

保障措置設計のための分子法レーザー同位体分離
プロセスのシミュレーション解析

日本原子力研究所東海研究所燃料安全工学部

岡本 毅*・西村 秀夫

(1989年7月10日受理)

近年におけるレーザー技術開発の急速な進展に呼応して、レーザー技術を用いたウラン濃縮法として原子法並びに分子法レーザー同位体分離の開発研究が進められており、近い将来これらの技術による濃縮プラントの建設が予想される。このようなプラントは高度の先端技術を駆使したものとなり、従って、核不拡散上並びに商業上機微な情報の流出を防ぐ必要のあることから、このプラントに対して有効で効率的な保障措置システムを設計することは容易ではないと考えられる。本報告書では、こうしたレーザー濃縮技術のうち、分子法技術を用いたプラントの保障措置について予備的考察を進めたので、その結果について報告する。

本報告では、まず、このようなプラントに対する保障措置設計のためのアプローチについて検討し、既存の理論及びデータのみで立脚するプロセスモデルの開発とこのモデルを用いた保障措置の設計を中心とするアプローチを提言する。次に、このアプローチに沿った研究の第一歩として、当該濃縮プロセスの基本となる赤外多光子解離過程のうち、特に光選択励起反応のダイナミクスを数学モデルを用いて計算機によりシミュレーションを行い、モデルプラントのプロセス設計のための基礎データを得る。すなわち、各エネルギーレベルへの選択励起確率及び準連続領域への遷移確率を調べることにより、選択励起用レーザー光と解離用レーザー光の最適な強度関係、照射パルス幅の大きさ、非同期照射等プロセス運転上重要な操作パラメータについて感度解析を行い、これら操作パラメータの光選択励起プロセス設計上満足すべき要件を明らかにする。

なお、本報告で解析する光選択励起プロセスの最適化は分子法レーザーウラン濃縮プロセスにおける最重要課題であり、その特性を詳細に解析することはプロセス設計の基本となるばかりでなく、保障措置のための濃縮度等の検認手段を設計する上で必須である。

Simulation Analysis of Molecular Laser Isotope Separation Process
for Safeguards Design

Tsuyoshi OKAMOTO* and Hideo NISHIMURA

Department of Fuel Safety Research
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received July 10, 1989)

Corresponding to the recent rapid progress of laser technology development, the research and development work for application of molecular laser isotope separation technique to the uranium enrichment has been extensively carried out and it is expected that a new enrichment plant will be built on a basis of this method in the near future. Since such plant will surely be constructed on a highly advanced technology that requires protection from the non-proliferation viewpoint as well as from the commercial viewpoint, it is not easy to design an effective and efficient system of safeguards for such plant.

In this report, firstly an approach to a satisfactory safeguards concept is studied and proposed, among other things, as such that a process model should be developed only on a basis of published theories and data and that the safeguards should be designed using this process model. Secondly, as the first step of this approach, the photon-molecular reaction dynamics for a uranium-235-selective excitation process which is one of the infrared multi-photon dissociation processes for uranium enrichment was computer-simulated using a mathematical model as follows: through the investigation of a selective excitation probability in each energy level and of the transition probability to quasi-continuum levels from the top discrete level, a sensitivity analysis was carried out on the important parameters for process operations

* University of Tokyo

such as the optimum relative intensities between the laser for selective excitation and the laser for dissociation, the laser pulse widths to be required, and the asynchronous multi-laser irradiation. As a result, the conditions to be satisfied by such operational parameters in the design of photon-excited selective process were made clear.

Although the dissociation process in the quasi-continuum and in the true continuum levels must be investigated in order to have a complete picture of the uranium-235 separation process, the optimization of the photon-excited selective process which was analyzed in this report is the most important theme for the molecular laser uranium enrichment and the detailed analysis of the characteristics of such excitation process not only gives fundamental data for the design of enrichment process but also is necessary for analyzing the diversion possibilities of producing higher enrichment than declared for safeguards design.

Keywords: Safeguards Design, Process Model, Molecular Laser Isotope Separation, Simulation Study, Photon-excited Process, Selective Excitation, Uranium Enrichment, UF_6 Gas, Dynamic Equation, Laser Intensities, Pulse Width, Asynchronous Multi-laser Irradiation

目 次

1. はじめに	1
2. 保障措置設計のためのアプローチの考察	1
3. 離散エネルギー領域での基礎方程式	3
4. 5準位系励起分子のコヒーレント相互作用	5
5. 光励起反応ダイナミックスの解析と討論	6
5.1 緩和速度の遷移確率への影響	6
5.2 最適なレーザー光強度とパルス幅の検討	7
5.3 Broadening と遷移確率の関係	8
5.4 複数レーザー光の非同期照射方式に関する一考察	8
6. まとめ	9
謝辞	10
参考文献	11
付録 3準位系励起分子の光励起反応過程の解析	31

Contents

1.	Introduction	1
2.	Safeguards Design Approach	1
3.	Basic Equations for a photon-molecular reaction in the discrete energy levels	3
4.	Coherent interaction between a laser and a molecule approximated to five-level systems	5
5.	An analysis of the photon-excited reaction dynamics and some discussions	6
5.1	Effect of a relaxation rate on the relative transition probability	6
5.2	Examination of an optimal laser intensity and its pulse width	7
5.3	Relation between a broadening and the relative transition probability	8
5.4	A study of the asynchronous operation of multi-laser irradiation	8
6.	Conclusions	9
	Acknowledgments	10
	References	11
	Appendix Analysis of an optical excitation reaction process of a molecule approximated to three-level systems ..	31

1. はじめに

原子力分野の基盤技術として、量子ビームの装置工学及びその利用に関する開発研究はこれからますます進展するものと考えられる^{1)~3)}。特に、光量子ビームであるレーザー光の同位体分離への応用は早くから注目されている。レーザー法は個別分離であり理論的に無限大の分離係数が得られること、遠心分離法など統計的な分離法では困難な中間に位置する同位体(例えば、 ^{235}U 、 ^{236}U 、 ^{238}U においては ^{236}U)の分離も可能であること、さらに、ウランを含めた多くの重金属同位体分離に適用可能であること等多くの優れた性質がある。新濃縮技術としてのレーザー法ウラン濃縮⁴⁾には原子法と分子法がある。原子法は電子ビームなどで金属ウランを加熱・溶融・蒸発させて、ウラン原子流を発生させ、これに波長の異なる可視または紫外域のレーザー光を照射して ^{235}U を選択的に電離・回収するプロセスである。一方、分子法では超音速ノズルから噴出された UF_6 分子流に強力な赤外レーザー光を照射して、赤外多光子解離を起こさせ、その結果、生成した $^{235}\text{UF}_5$ の微粉末を捕集・回収するプロセスである。本報告では、これら2つの方法のうち、分子法を取り上げることとする。

分子法レーザーウラン濃縮は、その処理ガスである UF_6 がガス拡散法や遠心分離法でも用いられており、従って、既存の核燃料サイクルとの整合性がよいものの、これを商業的に確立するには、次のような課題を解決しなければならないとされている。

- (1) 大型の超音速ノズル装置の開発
- (2) 大出力、高繰り返しの $16\mu\text{m}$ 帯赤外レーザー光の発振及び制御技術の確立
- (3) 解離生成した $^{235}\text{UF}_5$ 粉末の効率的な回収技術の確立
- (4) レーザー法同位体分離プロセスにおける全工程の最適化

このうち、大型装置や機器の開発上の課題は今日の技術開発の加速度的な進展から考えると、早晚、解決されるものと思われる。将来の実用化に向けての課題は、これら装置や機器を有機的に組み合わせたシステム全体としての効率的なプロセス設計の実現であろう。

2. 保障措置設計のためのアプローチの考察

レーザー法ウラン濃縮技術の開発を円滑に進めて行く上で、この新技術が実用化した場合に、これが目的外のことに使用されないことを保証し、かつ、取り扱われる核物質が平和目的のみに用いられることを保証するための「保障措置システムをどのように設計するか」という技術的な問題が存在する。この問題を検討するに際して次の3点が重要であると思われる。すなわち、①新技術の開発は核不拡散上並びに商業上機微な情報を生産するのでこれを保護する必要がある。このことは反面、実際にはどんな開発が行われているかについて、ウラン供給国等の一般公衆の間に漠然とした不安感を残しかねない。これを避けるには、開発の詳細はともかく、どんな機能を持った工程が作られようとしているのかを明らかにする必要がある(Transparencyの提供)。

1. はじめに

原子力分野の基盤技術として、量子ビームの装置工学及びその利用に関する開発研究はこれからますます進展するものと考えられる^{1)~3)}。特に、光量子ビームであるレーザー光の同位体分離への応用は早くから注目されている。レーザー法は個別分離であり理論的に無限大の分離係数が得られること、遠心分離法など統計的な分離法では困難な中間に位置する同位体（例えば、 ^{235}U 、 ^{236}U 、 ^{238}U においては ^{236}U ）の分離も可能であること、さらに、ウランを含めた多くの重金属同位体分離に適用可能であること等多くの優れた性質がある。新濃縮技術としてのレーザー法ウラン濃縮⁴⁾には原子法と分子法がある。原子法は電子ビームなどで金属ウランを加熱・溶融・蒸発させて、ウラン原子流を発生させ、これに波長の異なる可視または紫外域のレーザー光を照射して ^{235}U を選択的に電離・回収するプロセスである。一方、分子法では超音速ノズルから噴出された UF_6 分子流に強力な赤外レーザー光を照射して、赤外多光子解離を起こさせ、その結果、生成した $^{235}\text{UF}_5$ の微粉末を捕集・回収するプロセスである。本報告では、これら2つの方法のうち、分子法を取り上げることとする。

分子法レーザーウラン濃縮は、その処理ガスである UF_6 がガス拡散法や遠心分離法でも用いられており、従って、既存の核燃料サイクルとの整合性がよいものの、これを商業的に確立するには、次のような課題を解決しなければならないとされている。

- (1) 大型の超音速ノズル装置の開発
- (2) 大出力、高繰り返しの $16\mu\text{m}$ 帯赤外レーザー光の発振及び制御技術の確立
- (3) 解離生成した $^{235}\text{UF}_5$ 粉末の効率的な回収技術の確立
- (4) レーザー法同位体分離プロセスにおける全工程の最適化

このうち、大型装置や機器の開発上の課題は今日の技術開発の加速度的な進展から考えると、早晚、解決されるものと思われる。将来の実用化に向けての課題は、これら装置や機器を有機的に組み合わせたシステム全体としての効率的なプロセス設計の実現であろう。

2. 保障措置設計のためのアプローチの考察

レーザー法ウラン濃縮技術の開発を円滑に進めて行く上で、この新技術が実用化した場合に、これが目的外のことに使用されないことを保証し、かつ、取り扱われる核物質が平和目的のみに用いられることを保証するための「保障措置システムをどのように設計するか」という技術的な問題が存在する。この問題を検討するに際して次の3点が重要であると思われる。すなわち、①新技術の開発は核不拡散上並びに商業上機微な情報を生産するのでこれを保護する必要がある。このことは反面、実際にはどんな開発が行われているかについて、ウラン供給国等の一般公衆の間に漠然とした不安感を残しかねない。これを避けるには、開発の詳細はともかく、どんな機能を持った工程が作られようとしているのかを明らかにする必要がある（Transparencyの提供）。

また、②新技術はこれが目的外に使用されないことを十分に保証し得る程度に管理が可能なのかどうかを明らかにする必要がある（Controllabilityの証明，あるいは，有効な保障措置の適用が可能であることの証明）。さらに、③実際問題として、将来、この新技術が実用化した場合には、取り扱われる核物質が平和目的のみに用いられることを保証するために保障措置がかけられるが、この時、濃縮工程をブラック・ボックスとして常時疑惑の眼でこれを監視するのと、工程が概略どのようになっているかを理解した上でこれを効率的に監視するのとでは、保障措置に係る費用対効果は大幅に変わってくるものと考えられる（保障措置の効率的な適用が可能であることの証明）。

本研究ではこれらの点を考慮して、新技術の開発研究と並行して当該技術に対する保障措置の研究を行おうとするものである。この保障措置研究の実施の仕方であるが、新技術開発担当者が保障措置研究も合わせ行うことは、核不拡散上並びに商業上機微な情報を管理する意味から慎重な配慮が必要であり、現実的に困難なことが多い。従って、むしろ独立したグループが既存の理論及びデータのみを用いて保障措置の研究を行った方がよいと考えられる。本研究もこのような立場に立脚している。

保障措置研究では、基本的な工程の特徴を把握し得る数学モデルの構築が必要である。これはTransparencyを提供するという観点からも意義がある。数学モデルは、勿論、正確であればそれに越したことはない。しかし、より正確であるためには実験データが不可欠であり、この場合、機密情報の管理の問題と抵触してくる。保障措置研究のためには、しかしながら、極めて正確なモデルは必ずしも必要ではない。どの程度正確であるかがある程度予測がつけば、その分を安全ファクターとして見込んでおけばよい。また、技術の進歩によって変動するパラメータがあるならば、感度解析（Sensitivity Analysis）により保障措置への影響を評価し、その分を保障措置に組み入れることができる。さらに、必要となれば複数の技術保有国がモデルの正確さの程度を保証するという方法もある。このようにして、機微な情報を保護しつつ、かつ、定量的な保障措置研究を行うことが可能となる。

現在、分子法レーザーウラン濃縮で最も有望視されている分離プロセスは、強力な2波長赤外レーザー光を用いた赤外多光子解離過程^{5)~7)}によるものである。この方法の主工程は、超音波ノズルからのUF₆ガスの噴射過程、赤外レーザー光による選択励起・解離過程及び生成したUF₅微粉末を捕集する化学工学過程からなる。

本報告では、このうち、2番目の工程に関して数学モデルを作成し、その量子工学的特性を電子計算機を用いて解析する。将来、他の工程についても、引き続き開発研究を進める予定である。各工程についての研究の実施手順は、①工程の数学モデルの開発、②パラメトリック・サーベイによるプロセスの最適操作条件（目標濃縮度のウランを効率的に得るための諸条件）の探索、③当該工程における高濃縮ウラン生産のためのシナリオ分析とその評価研究（技術開発による変動要素を含む）、④機微情報を保護することができ、かつ、濃縮施設の目的外使用を効率的に探知することのできる手段・方法の確立等である。

主要3工程のモデル開発が完了した時点で、高濃縮ウラン生産の観点から各種の転用径路分析を行う。次に、各種転用シナリオに対抗し得る保障措置手段及びその適用の態様について研究する。さらに、主要3工程を含む濃縮施設全工程について核物質の流れ及び在庫のモデルを開発し、

低濃縮ウランに関する転用径路分析とそれに対応する保障措置分析を行い、施設側で行うべき計量管理及び査察側が行うべき計量の検認、封じ込め・監視(C/S)手段の適用等について研究し、保障措置システムの全体像を明らかにする。本報告で行う研究は、以上のように、ウラン濃縮新技術への保障措置研究の第一歩として位置付けられる。

3. 離散エネルギー領域での基礎方程式

分子法レーザー・ウラン濃縮工程において、赤外レーザー光による選択励起・解離過程に入ってくるUF₆分子は、超音速ノズルから噴射されたガス状の分子である。このガス状の分子に赤外レーザー光を一定時間照射させて着目分子を選択的に励起させ、解離を起こさせる訳である。この際、赤外レーザー光の諸条件は勿論のこと、分子の速度分布、分子間の衝突、分子による赤外レーザー光の吸収に伴う減衰の効果等が選択励起・解離過程に影響を及ぼすと考えられるが、ここでは、できるだけ簡略化した形で選択励起・解離過程をモデル化し、解析することとする。なお、超音速ノズルからのガス噴出には連続的に行うものとパルス的に行うものとの二方式があるが、いずれの方式も基本的なレーザー光と分子の光化学反応には変わりがない。

多原子分子の振動エネルギー・レベルを離散エネルギー領域、準連続領域及び連続領域の三領域に区分して、赤外多光子解離過程を記述するのが一般的である^{8)~10)}。強力な赤外レーザー光の照射によって光子を吸収した励起分子は、順次、吸収を繰り返すことで高い振動準位へと遷移する。この様子を定性的に説明するのに、三領域分割は便利な考え方である。選択励起用レーザー光は離散エネルギー領域において目的とする同位体(ウラン濃縮の場合、²³⁵U)を含む着目分子を選択的に励起する。これに続く、解離用レーザー光は準連続領域まで励起された着目分子を、さらに、高い振動励起状態まで遷移させ、最終的に、連続領域においてこれを解離に導く。連続領域での解離の速度定数は吸収光子数や振動の自由度などに依存していて、RRKM理論から求められる^{11)~12)}。以下に、多原子分子の赤外多光子解離過程のうち、特に、選択励起用レーザー光が関与する離散エネルギー領域の光励起反応プロセスについて、その動力学モデルを述べる。この領域は強力なレーザー光によってコヒーレント性が強く現れ、その性質を詳しく調べておくことが、効率的な同位体分離の実現に重要である。

これまで解析的に取り扱いが容易な2または3準位系の分子(原子)の性質がよく調べられてきた^{13)~16)}。ところが、多原子分子の赤外多光子解離過程ではその離散エネルギー領域を4準位系以上の多準位系として近似しなければならないだろう¹⁷⁾。Fig.1は全部で4個までの赤外光子を吸収して準連続領域へと遷移する、いわゆる、5準位系(v=0, 1, 2, 3, 4)近似の場合の多光子励起反応プロセスの概念を示している。Rabi周波数 Ω_i (i=1, 2, 3, 4)に対応するレーザー光強度で振動励起された各エネルギー・レベルでの分子数密度を N_j (j=1, 2, 3, 4)とする。また、離散領域から準連続領域へのエネルギー遷移は遷移速度 W_4 で示すが、この逆の過程(同図中の点線)については、準連続領域以上の分子数密度 N_j (j=5, 6, …)を考えていないので無視する。さらに、レーザー光と分子の吸収エネルギー差をDetuning Δ で示す。本数学モデルでは、5準位系の光励起反応ダイナミクスをBloch方程式¹⁸⁾で記述する。この場合、分

低濃縮ウランに関する転用径路分析とそれに対応する保障措置分析を行い、施設側で行うべき計量管理及び査察側が行うべき計量の検認、封じ込め・監視(C/S)手段の適用等について研究し、保障措置システムの全体像を明らかにする。本報告で行う研究は、以上のように、ウラン濃縮新技術への保障措置研究の第一歩として位置付けられる。

3. 離散エネルギー領域での基礎方程式

分子法レーザー・ウラン濃縮工程において、赤外レーザー光による選択励起・解離過程に入ってくるUF₆分子は、超音速ノズルから噴射されたガス状の分子である。このガス状の分子に赤外レーザー光を一定時間照射させて着目分子を選択的に励起させ、解離を起こさせる訳である。この際、赤外レーザー光の諸条件は勿論のこと、分子の速度分布、分子間の衝突、分子による赤外レーザー光の吸収に伴う減衰の効果等が選択励起・解離過程に影響を及ぼすと考えられるが、ここでは、できるだけ簡略化した形で選択励起・解離過程をモデル化し、解析することとする。なお、超音速ノズルからのガス噴出には連続的に行うものとパルス的に行うものとの二方式があるが、いずれの方式も基本的なレーザー光と分子の光化学反応には変わりがない。

多原子分子の振動エネルギー・レベルを離散エネルギー領域、準連続領域及び連続領域の三領域に区分して、赤外多光子解離過程を記述するのが一般的である^{8)~10)}。強力な赤外レーザー光の照射によって光子を吸収した励起分子は、順次、吸収を繰り返すことで高い振動準位へと遷移する。この様子を定性的に説明するのに、三領域分割は便利な考え方である。選択励起用レーザー光は離散エネルギー領域において目的とする同位体(ウラン濃縮の場合、²³⁵U)を含む着目分子を選択的に励起する。これに続く、解離用レーザー光は準連続領域まで励起された着目分子を、さらに、高い振動励起状態まで遷移させ、最終的に、連続領域においてこれを解離に導く。連続領域での解離の速度定数は吸収光子数や振動の自由度などに依存していて、RRKM理論から求められる^{11)~12)}。以下に、多原子分子の赤外多光子解離過程のうち、特に、選択励起用レーザー光が関与する離散エネルギー領域の光励起反応プロセスについて、その動力学モデルを述べる。この領域は強力なレーザー光によってコヒーレント性が強く現れ、その性質を詳しく調べておくことが、効率的な同位体分離の実現に重要である。

これまでは解析的に取り扱いが容易な2または3準位系の分子(原子)の性質がよく調べられてきた^{13)~16)}。ところが、多原子分子の赤外多光子解離過程ではその離散エネルギー領域を4準位系以上の多準位系として近似しなければならないだろう¹⁷⁾。Fig.1は全部で4個までの赤外光子を吸収して準連続領域へと遷移する、いわゆる、5準位系(v=0, 1, 2, 3, 4)近似の場合の多光子励起反応プロセスの概念を示している。Rabi周波数 Ω_i (i=1, 2, 3, 4)に対応するレーザー光強度で振動励起された各エネルギー・レベルでの分子数密度を N_j (j=1, 2, 3, 4)とする。また、離散領域から準連続領域へのエネルギー遷移は遷移速度 W_4 で示すが、この逆の過程(同図中の点線)については、準連続領域以上の分子数密度 N_j (j=5, 6, ...)を考えていないので無視する。さらに、レーザー光と分子の吸収エネルギー差をDetuning Δ で示す。本数学モデルでは、5準位系の光励起反応ダイナミクスをBloch方程式¹⁸⁾で記述する。この場合、分

子数密度 N_j は振動エネルギー準位 $v=j$ での励起の確率を表す。従って、これ以後は N_j を励起確率と呼ぶことにする。

全ての分子が基底振動状態 $v=0$ にあり、熱的に Boltzmann 分布しているとする。この系に単色性の優れた強力な赤外レーザー光を照射すると、ある特定の回転準位に存在する分子のみが光励起反応を引き起こす(ボトル・ネック効果)。そこで、全体の分子数からみたこの反応分子数の割合を F_p とする。レーザー光の吸収直後は特定の分子のみが減少し、一時的に非平衡状態をつくりだす。しかし、分子間衝突などの回転緩和作用(Rotational hole filling)があると別の新しい平衡状態におちつく^{19)~20)}。この時の緩和速度定数を $1/\tau_R$ とすれば、基底振動状態にある分子の非励起確率 N_0 は次のようになる。

$$\frac{dN_0}{dt} = \frac{1}{2} i \Omega_1 (N_{01} - N_{10}) + \frac{1}{\tau_R} [F_p (N_0 + N_h) - N_0] \quad \dots\dots\dots(1)$$

ここで、上式の右辺第2項中の N_h は、Fig. 1にも示してあるように、基底振動状態にある分子のうちレーザー光と反応しない分子の割合で、初期状態においては $(1-F_p)$ であり、次式にしたがって減少する。

$$\frac{dN_h}{dt} = -\frac{1}{\tau_R} [F_p (N_0 + N_h) - N_0] \quad \dots\dots\dots(2)$$

上位の振動準位 $v=1, 2, 3, 4$ にある分子の励起確率 $N_1 \equiv N_{11}$, $N_2 \equiv N_{22}$, $N_3 \equiv N_{33}$, $N_4 \equiv N_{44}$ については、それぞれ次式で記述される。

$$\frac{dN_1}{dt} = -\frac{1}{2} i \Omega_1 (N_{01} - N_{10}) + \frac{1}{2} i \Omega_2 (N_{12} - N_{21}) \quad \dots\dots\dots(3)$$

$$\frac{dN_2}{dt} = -\frac{1}{2} i \Omega_2 (N_{12} - N_{21}) + \frac{1}{2} i \Omega_3 (N_{23} - N_{32}) \quad \dots\dots\dots(4)$$

$$\frac{dN_3}{dt} = -\frac{1}{2} i \Omega_3 (N_{23} - N_{32}) + \frac{1}{2} i \Omega_4 (N_{34} - N_{43}) \quad \dots\dots\dots(5)$$

$$\frac{dN_4}{dt} = -\frac{1}{2} i \Omega_4 (N_{34} - N_{43}) - W_4 N_4 \quad \dots\dots\dots(6)$$

また、密度行列の非対角成分 N_{ij} ($i \neq j$) に関する運動方程式は以下で記述される。

$$\frac{dN_{01}}{dt} = -\left(i \mathcal{A}_{01} + \frac{1}{2\tau_p} \right) N_{01} + \frac{1}{2} i \Omega_1 N_0 + \frac{1}{2} i \Omega_2 N_{02} - \frac{1}{2} i \Omega_1 N_1 \quad \dots\dots\dots(7)$$

$$\frac{dN_{02}}{dt} = -\left(i \mathcal{A}_{02} + \frac{1}{2\tau_p} \right) N_{02} + \frac{1}{2} i \Omega_2 N_{01} + \frac{1}{2} i \Omega_3 N_{03} - \frac{1}{2} i \Omega_1 N_{12} \quad \dots\dots\dots(8)$$

$$\frac{dN_{03}}{dt} = -\left(i \mathcal{A}_{03} + \frac{1}{2\tau_p} \right) N_{03} + \frac{1}{2} i \Omega_3 N_{02} + \frac{1}{2} i \Omega_4 N_{04} - \frac{1}{2} i \Omega_1 N_{13} \quad \dots\dots\dots(9)$$

$$\frac{dN_{04}}{dt} = -\left[i \mathcal{A}_{04} + \frac{1}{2} \left(W_4 + \frac{1}{\tau_p} \right) \right] N_{04} + \frac{1}{2} i \Omega_4 N_{03} - \frac{1}{2} i \Omega_1 N_{14} \quad \dots\dots\dots(10)$$

$$\frac{dN_{12}}{dt} = -\left(i \mathcal{A}_{12} + \frac{1}{2\tau_p} \right) N_{12} + \frac{1}{2} i \Omega_2 N_1 - \frac{1}{2} i \Omega_1 N_{02} + \frac{1}{2} i \Omega_3 N_{13} - \frac{1}{2} i \Omega_2 N_2 \quad \dots\dots\dots(11)$$

$$\frac{dN_{13}}{dt} = -\left(i \mathcal{A}_{13} + \frac{1}{2\tau_p} \right) N_{13} + \frac{1}{2} i \Omega_3 N_{12} - \frac{1}{2} i \Omega_1 N_{03} + \frac{1}{2} i \Omega_4 N_{14} - \frac{1}{2} i \Omega_2 N_{23} \quad \dots\dots\dots(12)$$

$$\frac{dN_{14}}{dt} = - \left[i \mathcal{A}_{14} + \frac{1}{2} \left(W_4 + \frac{1}{\tau_p} \right) \right] N_{14} + \frac{1}{2} i \Omega_4 N_{13} - \frac{1}{2} i \Omega_1 N_{04} - \frac{1}{2} i \Omega_2 N_{24} \quad \dots(13)$$

$$\frac{dN_{23}}{dt} = - \left(i \mathcal{A}_{23} + \frac{1}{2 \tau_p} \right) N_{23} + \frac{1}{2} i \Omega_3 N_2 - \frac{1}{2} i \Omega_2 N_{13} + \frac{1}{2} i \Omega_4 N_{24} - \frac{1}{2} i \Omega_3 N_3 \quad \dots(14)$$

$$\frac{dN_{24}}{dt} = - \left[i \mathcal{A}_{24} + \frac{1}{2} \left(W_4 + \frac{1}{\tau_p} \right) \right] N_{24} + \frac{1}{2} i \Omega_4 N_{23} - \frac{1}{2} i \Omega_2 N_{14} - \frac{1}{2} i \Omega_3 N_{34} \quad \dots\dots(15)$$

$$\frac{dN_{34}}{dt} = - \left[i \mathcal{A}_{34} + \frac{1}{2} \left(W_4 + \frac{1}{\tau_p} \right) \right] N_{34} + \frac{1}{2} i \Omega_4 N_3 - \frac{1}{2} i \Omega_3 N_{24} - \frac{1}{2} i \Omega_4 N_4 \quad \dots\dots(16)$$

ただし、上式中の $1/\tau_p$ の項はコヒーレント相互作用に関する緩和効果である。さらに、それぞれの複素共役 (* 印で示す) を加えて全体の方程式を完結しなければならない。

$$\begin{aligned} N_{10} &= N_{01}^* & N_{20} &= N_{02}^* \\ N_{30} &= N_{03}^* & N_{40} &= N_{04}^* \\ N_{21} &= N_{12}^* & N_{31} &= N_{13}^* \\ N_{41} &= N_{14}^* & N_{32} &= N_{23}^* \\ N_{42} &= N_{24}^* & N_{43} &= N_{34}^* \end{aligned} \quad \dots\dots(17)$$

ここで、例えば、非対角成分である N_{30} と N_{03} は振動エネルギー準位 $v=0$ と $v=3$ との間の3光子吸収を示している。これら方程式系の中では多原子分子の振動励起寿命の緩和項は、今、考えている物理現象のシミュレーションの時間範囲内では十分に安定であるとして無視している。

4. 5準位系励起分子のコヒーレント相互作用

最初に、準連続領域へのエネルギー遷移はなく ($W_4=0$)、しかも、緩和作用のない場合 ($1/\tau_R=0, 1/\tau_P=0$)、5準位系近似による分子と光のコヒーレント相互作用を計算機でシミュレーションする。ただし、レーザー光は各エネルギー・レベルに精密にチューニングされている ($\Delta=0$) とする。この数値計算では、照射する選択励起用レーザー光は強度一定の Long pulse であり、また、Rabi 周波数についても各準位間で全てが等しい Uniform Rabi frequency $\Omega_1 = \Omega_2 = \Omega_3 = \Omega_4 = \Omega = 1$ を仮定する。この時、計算の時間幅 (Time mesh) Δt を 10^{-9} sec で無次元化して、0.001 の大きさで求めたのが Fig. 2 である。この計算において、時間幅 Δt の与え方は重要である。すなわち、ある程度の精度を得るためには Δt を相当細かくしなければならない。しかしながら、あまり細かくすると計算に要する時間もそれに比例して大きくなるので現実的ではない。例えば、同図の計算機シミュレーションでは M680H の大型計算機でも CPU 時間は約 4 分となる。これ以後、ほぼ妥当な精度の得られる $\Delta t = 0.01$ で計算を行う。

Fig. 2 の曲線上の数字は各エネルギー・レベルでの励起確率を示している。選択励起用レーザー光が照射されると基底振動準位にあった着目分子 N_0 は共鳴的にエネルギーを吸収して、その数

密度を急速に減少させる。その後，コヒーレント相互作用継続時間 t （無次元）と共に各励起確率のピーク値は最初の振動励起準位 $v=1$ から，順次，上位振動励起準位 $v=2, 3, 4$ へと移動して行くのがわかる。ここで，4 準位系以上の多準位系近似の分子になると，2, 3 準位系に現れる規則的な周期性（付録を参照）はなくなり，極めて複雑な挙動を繰り返す事がわかる。任意時刻における各瞬間の励起確率の総和は，常に， $\sum N_j(t)=1$ となるが，最上準位 $j=4$ の励起確率 N_4 の出現時刻とその大きさの現れ方などは留意すべきである。この事は励起確率 N_4 のピーク値の出現時刻とレーザー光の最適な照射タイミングとの関係において第 5.4 節で議論される。

レーザー光による同位体分離は本質的には物理的分離過程であり，制御が可能である。この分離過程には $F_P, 1/\tau_R, 1/\tau_P, W_4 (\neq 0), \Omega$ 及び Δ のパラメーターがあり，いずれも直接的に，あるいは，間接的に操作が可能となる。これら操作パラメーターが準連続領域への遷移確率 $P(t)$ にどのように影響するかを次節以降で詳しく調べてみる。ここで， $P(t)$ を次のように定義する。

$$P(t) \equiv \int N_4(t) \cdot W_4 dt \quad \dots\dots\dots (18)$$

この式で積分時間は励起確率 $N_4(t)$ が無視できるほど小さくなるまで行われる。

5. 光励起反応ダイナミックスの解析と討議

5.1 緩和速度の遷移確率への影響

着目分子のレーザー光との反応割合が $F_P=0.3$ である時，緩和速度 $1/\tau_R = 1/\tau_P = 1/\tau$ に対して遷移確率の依存性を求めたのが Fig. 3(a) である。同図では，選択励起用レーザー光 ($\Omega=1$) と解離用レーザー光 ($W_4=1$) を同時に照射してからの特定時刻 $t=0, 5, 10, 15, \dots, 50$ について，その遷移確率のパターン変化を示している。照射時刻 $t=50$ においては，まだ定常状態に到達していないが次のことが言える。まず，分子間衝突などによる緩和作用が全くない場合，すなわち， $1/\tau=0$ では達成される遷移確率の最大値 $P_{\max}(t)$ は F_P の値に等しい。ところが，緩和作用の効果が顕著になりはじめると遷移確率も急激に増加し， $1/\tau=0.4$ において，最大値 $P_{\max}(50) = 86\%$ に達する。従って，このような $1/\tau$ の値を実現できるような操作条件を設定するのが望ましい。

一方，全ての分子がレーザー光と反応する理想的な場合，すなわち， $F_P=1$ では Fig. 3(b) に示すように，緩和作用は単に遷移確率を低下させる働きをする。しかしながら，緩和速度が $0 \leq 1/\tau \leq 1$ の範囲であればその低下の割合もごく少ないことがわかる。両図の比較から，可能なかぎり F_P の値を大きくするのが望ましい。この F_P の値はレーザー光の周波数や強度に依存しているが，基本的には分子を低温化することで大きな値が得られる。例えば， UF_6 分子の場合，50 K 程度まで冷却すると殆どの分子は基底振動状態に存在する ($F_P \approx 1$)²¹⁾。このような状態になると吸収スペクトルも鋭化し，同位体間の選択性は著しく向上する。

密度を急速に減少させる。その後、コヒーレント相互作用継続時間 t (無次元) と共に各励起確率のピーク値は最初の振動励起準位 $v=1$ から、順次、上位振動励起準位 $v=2, 3, 4$ へと移動して行くのがわかる。ここで、4準位系以上の多準位系近似の分子になると、2, 3準位系に現れる規則的な周期性(付録を参照)はなくなり、極めて複雑な挙動を繰り返す事がわかる。任意時刻における各瞬間の励起確率の総和は、常に、 $\sum N_j(t)=1$ となるが、最上準位 $j=4$ の励起確率 N_4 の出現時刻とその大きさの現れ方などは留意すべきである。この事は励起確率 N_4 のピーク値の出現時刻とレーザー光の最適な照射タイミングとの関係において第5.4節で議論される。

レーザー光による同位体分離は本質的には物理的分離過程であり、制御が可能である。この分離過程には $F_P, 1/\tau_R, 1/\tau_P, W_4 (\neq 0), \Omega$ 及び Δ のパラメーターがあり、いずれも直接的に、あるいは、間接的に操作が可能となる。これら操作パラメーターが準連続領域への遷移確率 $P(t)$ にどのように影響するかを次節以降で詳しく調べてみる。ここで、 $P(t)$ を次のように定義する。

$$P(t) \equiv \int N_4(t) \cdot W_4 dt \quad \dots\dots\dots (18)$$

この式で積分時間は励起確率 $N_4(t)$ が無視できるほど小さくなるまで行われる。

5. 光励起反応ダイナミックスの解析と討議

5.1 緩和速度の遷移確率への影響

着目分子のレーザー光との反応割合が $F_P=0.3$ である時、緩和速度 $1/\tau_R = 1/\tau_P = 1/\tau$ に対して遷移確率の依存性を求めたのが Fig. 3(a) である。同図では、選択励起用レーザー光 ($\Omega=1$) と解離用レーザー光 ($W_4=1$) を同時に照射してからの特定時刻 $t=0, 5, 10, 15, \dots, 50$ について、その遷移確率のパターン変化を示している。照射時刻 $t=50$ においては、まだ定常状態に到達していないが次のことが言える。まず、分子間衝突などによる緩和作用が全くない場合、すなわち、 $1/\tau=0$ では達成される遷移確率の最大値 $P_{\max}(t)$ は F_P の値に等しい。ところが、緩和作用の効果が顕著になりはじめると遷移確率も急激に増加し、 $1/\tau=0.4$ において、最大値 $P_{\max}(50) = 86\%$ に達する。従って、このような $1/\tau$ の値を実現できるような操作条件を設定するのが望ましい。

一方、全ての分子がレーザー光と反応する理想的な場合、すなわち、 $F_P=1$ では Fig. 3(b) に示すように、緩和作用は単に遷移確率を低下させる働きをする。しかしながら、緩和速度が $0 \leq 1/\tau \leq 1$ の範囲であればその低下の割合もごく少ないことがわかる。両図の比較から、可能なかぎり F_P の値を大きくするのが望ましい。この F_P の値はレーザー光の周波数や強度に依存しているが、基本的には分子を低温化することで大きな値が得られる。例えば、 UF_6 分子の場合、50 K 程度まで冷却すると殆どの分子は基底振動状態に存在する ($F_P \approx 1$)²¹⁾。このような状態になると吸収スペクトルも鋭化し、同位体間の選択性は著しく向上する。

5.2 最適なレーザー光強度とパルス幅の検討

(1) 解離用レーザー光の照射要件

準連続領域への遷移速度 W_4 は解離用レーザー光の強度を変えることで、直接、操作できるパラメーターのひとつである。この遷移速度が遷移確率にどのように影響するかを Rabi 周波数 $\Omega=0.2$ で求めたのが Fig. 4(a) である。解離用レーザー光の強度を徐々に増大して遷移速度が $0.3 < W_4 < 0.5$ の範囲内にあると、最大の遷移確率が得られる。さらに増大すると遷移確率は逆に減少しはじめる。もし、Rabi 周波数が $\Omega=1$ と大きくなると、Fig. 4(b) に示すように、非常に広い範囲にわたって一定の高い遷移確率が得られる。このように選択励起用レーザー光の強度が大きい時、解離用レーザー光の強度は比較的自由に設定できると言える。しかしながら、実用的には遷移確率の減少を極端に損なわないかぎり、このレーザー光強度は小さい値、例えば、 $W_4 = 0.5$ 程度がより効率的と考えられる。

次に、解離用レーザー光に必要なパルス幅について検討してみる。計算例として、Fig. 4(b) 中の矢印 ↓ で示してあるような遷移速度 $W_4 = 0.5$ に対応するレーザー光強度を考える。この場合の各エネルギー・レベルでの励起確率を計算機シミュレーションしたのが Fig. 5 である。解離用レーザー光が照射されると励起確率 N_1, N_2, N_3, N_4 は時間と共に減衰振動を繰り返しながら消滅して行くのがわかる。一方、遷移確率 $P(t)$ は、同図 (b) 中の曲線 3 で示すように、時刻 $5 < t < 10$ において、大きく増加する。これは選択励起用レーザー光を照射して、最初に現れる励起確率 N_4 のピーク (Fig. 2(b) の陰影部分) からの寄与による。その後は小刻みに Rabi 振動に従って増加し続ける。解離用レーザー光の照射直後のごく短い時間内で多くの遷移が起こることから、遷移確率に大きく影響しない非効率的なレーザー光照射は避けられる。従って、効果的なパルス幅 t_{II} が存在する。例えば、目標の遷移確率を 90% とした場合、これに必要なパルス幅は $t_{II} = 2.5$ となる。全く同じ条件で計算された 3 準位系近似の場合の遷移確率の時間推移は Fig. 5(b) 中の点線で示されている。この場合、5 準位系近似よりも大きな遷移確率が得られ、同じパルス幅 $t_{II} = 2.5$ であれば 98% になる。しかしながら、赤外多光子解離過程において、解離用レーザー光の最適な強度及びパルス幅に関する厳密な議論は準連続領域及び連続領域での分子数密度分布の動的な挙動に関する解析を待たなければならない²²⁾。

(2) 選択励起用レーザー光の照射要件

遷移速度を $W_4 = 0.5$ と一定にして選択励起用レーザー光の強度 Ω を連続的に変化させてみる。この時の遷移確率の変化を Fig. 6(a) に示す。準連続領域への遷移は Rabi 周波数 $\Omega > 0.1$ で急速に起こり、 $\Omega > 0.5$ のレーザー光強度では飽和する。このことから、効率的なレーザー光強度としては $\Omega = 0.5$ 程度が考えられる。また、選択励起用レーザー光のパルス幅 t_I については Rabi 周波数にも依存するが、例えば、 $\Omega = 0.5$ の場合では、 $3.0 < t_I < 5.0$ の範囲内であれば遷移確率の大きさは十分に達成されるであろう。

選択励起用レーザー光の周波数を精密に共鳴分子のあるエネルギー・レベルに同調させることは種々の緩和効果のため不可能である。一般に、共鳴分子とレーザー光間にはエネルギー差、すなわち、Detuning Δ が存在すると考えるのがごく自然であろう。例えば、この Detuning の

大きさとして、 $\Delta=0.1$ が存在する場合、Fig. 6(b)に示すような変化をする。この場合、同じ Rabi 周波数 $\Omega=0.5$ でも達成される遷移確率は $\Delta=0$ (on-resonance) の時の約 30% 減少となる。また、緩和速度が $1/\tau=1$ である場合には、さらに減少して、その様子を Fig. 6(c) に示す。

5.3 Broadening と遷移確率の関係

Rabi 周波数が $\Omega=0.2$ 及び 1 である場合の遷移確率の変化を Detuning Δ をパラメーターにして、それぞれ描いたのが Fig. 7(a), (b) である。

同図(a)では、 $\Delta \geq 0.2$ で遷移が起こらなくなる。一方、Rabi 周波数が $\Omega=1$ になると、 $\Delta \leq 1$ まで遷移の起こる範囲が広がって来る。これは、Power broadening の効果である。この事は、選択励起用レーザー光の強度が極めて小さい時、その周波数を精密にチューニングしなければならないことを示唆している。同時に、前節でも述べたように、解離用レーザー光の強度も注意深く設定しなければならない。

Fig. 7(b)において、Detuning が $\Delta > 1$ であれば遷移は全く起こらない。しかし、これに衝突などの Pressure broadening が加わると、この様子は一変する。その一例を緩和速度 $1/\tau=1$ として、Fig. 8 に示す。また、同図中の矢印 \downarrow の示す $\Delta=1$ での励起確率及び遷移確率の挙動をシミュレーションしたのが Fig. 9 である。どの準位からの励起確率も単調に減少するのがわかる。従って、遷移確率 $P(t)$ の方も単調に増加し、時刻 $t=50$ において 57% になる。点線は全く同じ条件で計算した 3 準位系近似した場合の遷移確率の時間推移である。両者で達成される遷移確率に大きな差がある。このことは、多原子分子の離散領域エネルギー準位数をどのように仮定するかによって解離生成量が異なることを示唆している。また、衝突などによる緩和速度 $1/\tau$ がさらに大きくなると、一段と単調化が進み、いわゆる、レート方程式²³⁾で記述された数値解と一致するのがわかる。

上述のような吸収スペクトルを拓げる効果は同位体分離の観点からは望ましいものではない。何故ならば、 UF_6 分子の場合、 $^{235}\text{UF}_6$ の Q 枝は $^{238}\text{UF}_6$ の R(6) 線と最近接であり、この間の同位体シフトはたかだか 0.6 GHz である¹⁾。

5.4 複数レーザー光の非同期照射方式に関する一考察

この節では、選択励起用レーザー光と解離用レーザー光の非同期照射の必要性について述べる。このことは、選択励起用レーザー光の強度が、特に、小さい時に問題となる。その例を $\Omega=0.2$ として、Fig. 10 に示す。これを Rabi 周波数 $\Omega=1$ の時の遷移確率の時間推移 (Fig. 5 (b) を参照) と比較してみれば、きわめてゆっくりした変化であることがわかる。解離用レーザー光と選択励起用レーザー光は同時に照射されているにもかかわらず、実際に、準連続領域へ遷移が始まるまでにある程度の時間遅れがある。この時間遅れを遅延時間 t_d とすれば、同図より、およそ $t_d=15$ であることがわかる。また、点線は 3 準位系近似した場合の遷移確率の時間推移と遅延時間 $t_d=5$ を示している。

解離用レーザー光のエネルギーを有効に利用するためには、この遅延時間分だけ解離用レーザー光の照射時刻をシフトする必要がある。この方式によって、効率的なレーザー同位体分離が達成できる。非同期照射については、特に、短パルスで複数本のレーザー光を照射する場合、検討しなければならない重要な課題となる。

6. ま と め

分子法によるレーザーウラン濃縮では2波長赤外多光子解離が有望な基本プロセスになる。この解離プロセスの特性を理解するために、まず、離解エネルギー領域での光励起反応ダイナミックスを数学モデルを用いて解析した。この領域での操作パラメーターを変化させることで、遷移確率への影響を調べて、次の成果を得た。

1) ボトル・ネック効果を含む5準位系近似の光励起反応ダイナミックスをBloch方程式を用いて計算機シミュレーションした。その結果、離解エネルギー領域の近似準位数により、遷移確率は異なり、その取り扱いには重要な仮定であることが明らかになった。

2) 着目分子のレーザー光との反応割合 F_P が1未満である場合、準連続領域への遷移確率を最大にする緩和速度 $1/\tau$ が存在する。従って、この場合には最適な緩和速度を達成するようにプロセス操作条件を設定しなければならない。

3) 赤外多光子解離プロセスにおいて、選択励起用レーザー光と解離用レーザー光の強度は重要な操作パラメーターである。これらレーザー光間には遷移確率を最大にするような強度の組み合わせが存在する。一般的に言って、選択励起用レーザー光の強度はRabi周波数にして $\Omega > 0.5$ 、解離用レーザー光の強度は遷移速度にして $W_d > 0.5$ となるように設定するのが望ましい。

4) 選択励起用レーザー光に必要なパルス幅は衝突などによる緩和作用がある場合とそれが無視できるほど小さい場合とではその大きさは異なる。同じ遷移確率を得るのに緩和作用が大きい系ではより長いパルス幅が必要になる。一方、解離用レーザー光については、赤外多光子解離過程全体の分子数密度分布のダイナミックスの解析から所要のパルス幅はきめられる。

5) 選択励起用レーザー光の強度が大きい場合はPower broadeningなどにより、非共鳴(near-resonance)状態でも準連続状態への遷移が起こる。しかし、この強度が小さくなると、わずかなDetuning Δ でも急速に遷移確率は減少する。従って、レーザー光周波数の精密なチューニングが必要となる。

6) 2本の赤外レーザー光のうち、特に、選択励起用レーザー光の強度が小さい時、解離用レーザー光の照射タイミングは遷移確率の大きさに強く影響を及ぼす。このように複数のレーザー光を照射する場合、レーザー光間には最適な遅延時間が存在しているので、遷移確率を最大にするような非同期照射方式を検討しなければならない。

以上のように、制御可能な操作パラメーターについて、その満足すべき要件を整理することができた。分子法レーザーウラン濃縮プラントにおいて、保障措置の観点からは、ある特定のデータに異常が観測された場合、それが統計的な変動範囲内にあるものか、事故発生に起因するものか、あるいは、転用を目的として操作された結果によるものかをただちに解析し、評価・判断し

解離用レーザー光のエネルギーを有効に利用するためには、この遅延時間分だけ解離用レーザー光の照射時刻をシフトする必要がある。この方式によって、効率的なレーザー同位体分離が達成できる。非同期照射については、特に、短パルスで複数本のレーザー光を照射する場合、検討しなければならない重要な課題となる。

6. ま と め

分子法によるレーザーウラン濃縮では2波長赤外多光子解離が有望な基本プロセスになる。この解離プロセスの特性を理解するために、まず、離解エネルギー領域での光励起反応ダイナミックスを数学モデルを用いて解析した。この領域での操作パラメーターを変化させることで、遷移確率への影響を調べて、次の成果を得た。

1) ボトル・ネック効果を含む5準位系近似の光励起反応ダイナミックスをBloch方程式を用いて計算機シミュレーションした。その結果、離解エネルギー領域の近似準位数により、遷移確率は異なり、その取り扱いが重要な仮定であることが明らかになった。

2) 着目分子のレーザー光との反応割合 F_P が1未満である場合、準連続領域への遷移確率を最大にする緩和速度 $1/\tau$ が存在する。従って、この場合には最適な緩和速度を達成するようにプロセス操作条件を設定しなければならない。

3) 赤外多光子解離プロセスにおいて、選択励起用レーザー光と解離用レーザー光の強度は重要な操作パラメーターである。これらレーザー光間には遷移確率を最大にするような強度の組み合わせが存在する。一般的に言って、選択励起用レーザー光の強度はRabi周波数にして $\Omega > 0.5$ 、解離用レーザー光の強度は遷移速度にして $W_d > 0.5$ となるように設定するのが望ましい。

4) 選択励起用レーザー光に必要なパルス幅は衝突などによる緩和作用がある場合とそれが無視できるほど小さい場合とではその大きさは異なる。同じ遷移確率を得るのに緩和作用が大きい系ではより長いパルス幅が必要になる。一方、解離用レーザー光については、赤外多光子解離過程全体の分子数密度分布のダイナミックスの解析から所要のパルス幅はきめられる。

5) 選択励起用レーザー光の強度が大きい場合はPower broadeningなどにより、非共鳴(near-resonance)状態でも準連続状態への遷移が起こる。しかし、この強度が小さくなると、わずかなDetuning Δ でも急速に遷移確率は減少する。従って、レーザー光周波数の精密なチューニングが必要となる。

6) 2本の赤外レーザー光のうち、特に、選択励起用レーザー光の強度が小さい時、解離用レーザー光の照射タイミングは遷移確率の大きさに強く影響を及ぼす。このように複数のレーザー光を照射する場合、レーザー光間には最適な遅延時間が存在しているので、遷移確率を最大にするような非同期照射方式を検討しなければならない。

以上のように、制御可能な操作パラメーターについて、その満足すべき要件を整理することができた。分子法レーザーウラン濃縮プラントにおいて、保障措置の観点からは、ある特定のデータに異常が観測された場合、それが統計的な変動範囲内にあるものか、事故発生に起因するものか、あるいは、転用を目的として操作された結果によるものかをただちに解析し、評価・判断し

なければならない。このためには基本的なパラメーターの特性を十分に理解しておくことが必要である。さらに、いくつかある操作パラメーターのうち、どのパラメーターがウラン濃縮度とその生産量を大きく支配するかを知ることは転用経路分析上重要であり、ひいては、有効なC/S手段の開発にも寄与する。

新技術によるウラン濃縮施設の保障措置研究の第一歩として、これまで離散エネルギー領域の光励起反応プロセスの特性について調べてきた。次のステップとして、赤外多光子解離プロセス全体の特性を知ることが必要である。このため、準連続領域及び連続領域でのダイナミックスを解析しなければならない。現在、この方向に向けて一連の数学モデルの作成と計算コードの開発を進めている。

謝 辞

本研究の実施に当り、特別のご高配をいただいた日本原子力研究所保障措置技術研究室の猪川浩次室長に深く感謝致します。また、原稿をまとめるにあたり、貴重なお討議をいただいた同研究室の小田哲三氏にお礼申し上げます。

なければならない。このためには基本的なパラメーターの特性を十分に理解しておくことが必要である。さらに、いくつかある操作パラメーターのうち、どのパラメーターがウラン濃縮度とその生産量を大きく支配するかを知ることは転用経路分析上重要であり、ひいては、有効なC/S手段の開発にも寄与する。

新技術によるウラン濃縮施設の保障措置研究の第一歩として、これまで離散エネルギー領域の光励起反応プロセスの特性について調べてきた。次のステップとして、赤外多光子解離プロセス全体の特性を知ることが必要である。このため、準連続領域及び連続領域でのダイナミックスを解析しなければならない。現在、この方向に向けて一連の数学モデルの作成と計算コードの開発を進めている。

謝 辞

本研究の実施に当り、特別のご高配をいただいた日本原子力研究所保障措置技術研究室の猪川浩次室長に深く感謝致します。また、原稿をまとめるにあたり、貴重なお討議をいただいた同研究室の小田哲三氏にお礼申し上げます。

参 考 文 献

- 1) 日本原子力学会「レーザー」研究専門委員会，“レーザー技術と将来に向けたその応用” (1988)。
- 2) 「加速器の新しい工学的応用」研究専門委員会，“加速器の開発と工学的応用研究の現状”，日本原子力学会誌，Vol. 30, No. 1 (1988)。
- 3) 大野新一，レーザー科学，第10回理研シンポジウム要旨集，p. 25, 1987。
- 4) 武内一夫，“レーザー法同位体分離”，化学工学，第51巻，第7号，1987。
- 5) 武内一夫，他，レーザー科学研究，No. 9, p. 52 (1987)。
- 6) F. S. Becker and K. L. Kompa, Nuclear Technology, Vol. 58, Aug. 1982。
- 7) K. Takeuchi, et al., J. Nucl. Sci. Technol., Vol. 23, No. 3 (1986)。
- 8) Jerry G. Black, Eli Yablonovitch, N. Bloembergen and S. Mukamel, Phys. Rev. Lett., Vol. 38, p. 1131 (1977)。
- 9) Nicolaas Bloembergen and Eli Yablonovitch, Physics Today/May 1978。
- 10) Benny Carmeli and Abraham Nitzan, J. Chem. Phys., Vol. 72, No. 3, 1 Feb. (1980)。
- 11) John R. Barker, J. Chem. Phys., Vol. 72, No. 6, 15 May (1980)。
- 12) R. A. Marcus, J. Chem. Phys., Vol. 20, p. 359 (1952)。
- 13) J. R. Ackerhalt and J. H. Eberly, Phys. Rev. A, Vol. 14, No. 5, p. 1705 (1976)。
- 14) Bruce W. Shore and Jay Ackerhalt, Phys. Rev. A, Vol. 15, No. 4, p. 1640 (1977)。
- 15) J. R. Ackerhalt, J. H. Eberly and B. W. Shore, Phys. Rev. A, Vol. 19, No. 1, p. 248 (1979)。
- 16) Philip E. Coyle, “LASER PROGRAM ANNUAL REPORT-1976” UCRL-50021-76, Lawrence Livermore Laboratory, University of California (1977)。
- 17) D. M. Brenner, M. N. Spencer and J. I. Steinfeld, J. Chem. Phys., Vol. 78, No. 1, 1 Jan. (1983)。
- 18) Jay R. Ackerhalt and Bruce W. Shore, Phys. Rv. A, Vol. 16, No. 1, p. 277 (1977)。
- 19) John C. Stephenson, David S. King, Myron F. Goodman and James Stone, J. Chem. Phys., Vol. 70, No. 10, 15 May (1979)。
- 20) V. S. Letokhov, “Nonlinear Laser Chemistry” Springer-Verlag Berlin Heidelberg (1983)。
- 21) Douglas Jackson, “Statistical Thermodynamics Properties of Hexafluoride Molecules” LA-6025-MS, Los Alamos Scientific Laboratory of the University of California, August 1975。
- 22) 岡本毅，他，“分子法レーザーウラン濃縮施設の保障措置システム基礎研究—光励起プロセスのシミュレーション解析—”第9回核物質管理学会年次大会論文集(1988)。

- 23) 岡本毅, 他, "2段階光解離法によるレーザー同位体分離プロセスの特性解析" 日本原子力学会誌, Vol.23, No.8 (1981)。

Vibrational Quasi - Continuum

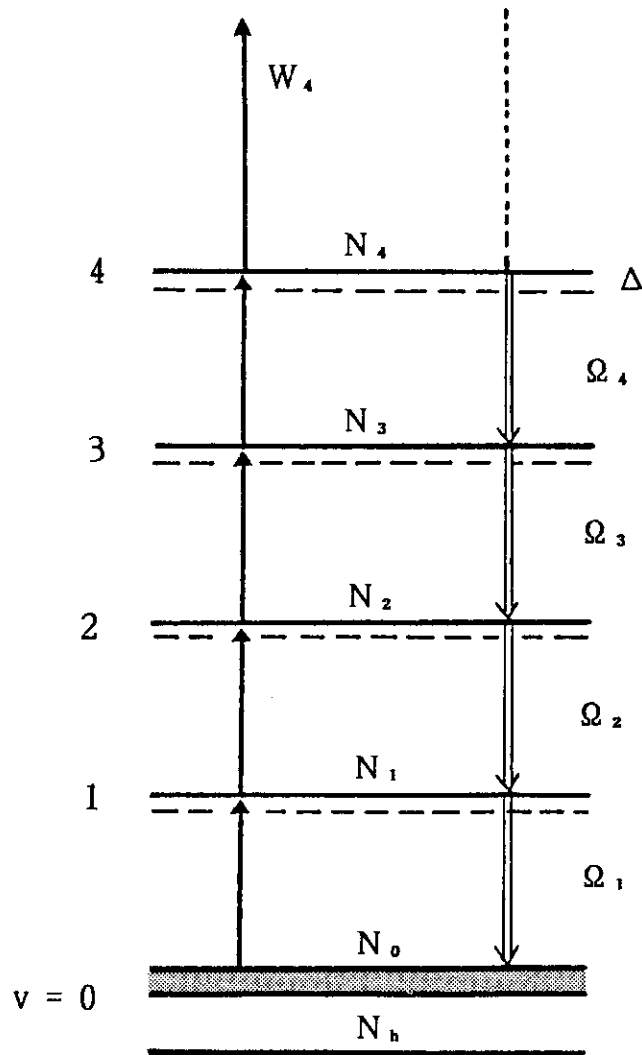
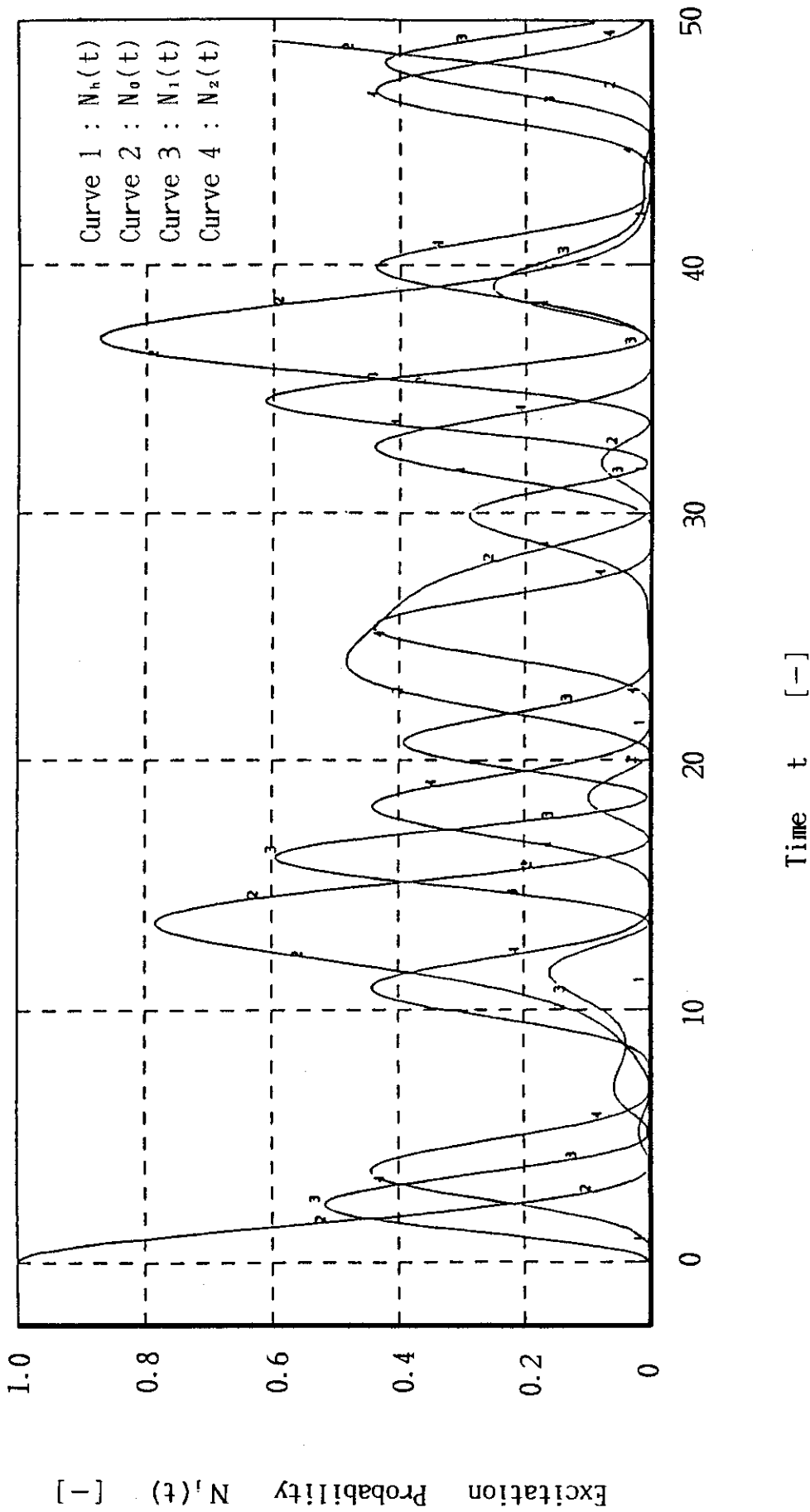
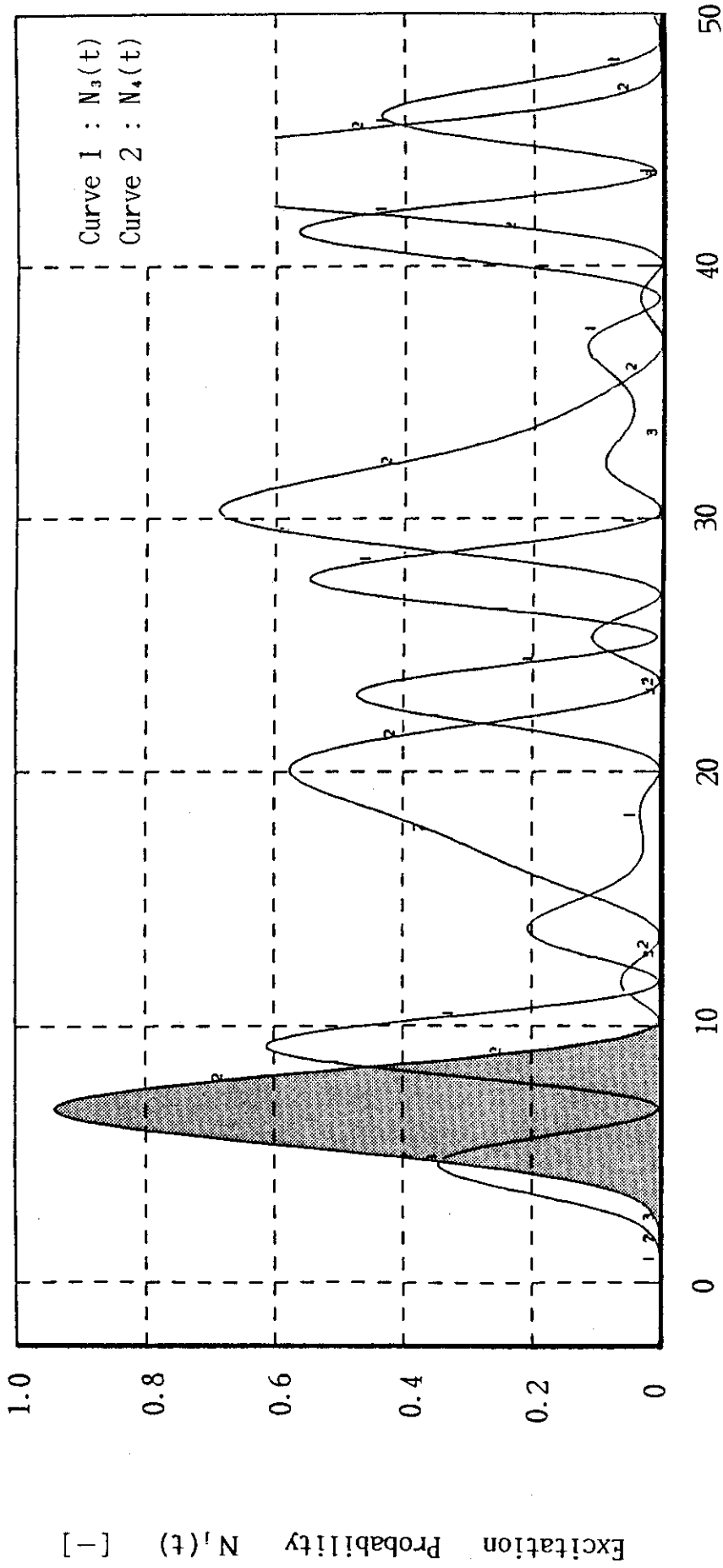


Fig. 1 A Bloch equation model for a photoexcitation molecule with the five-level systems with a detuning, Δ , in each level.



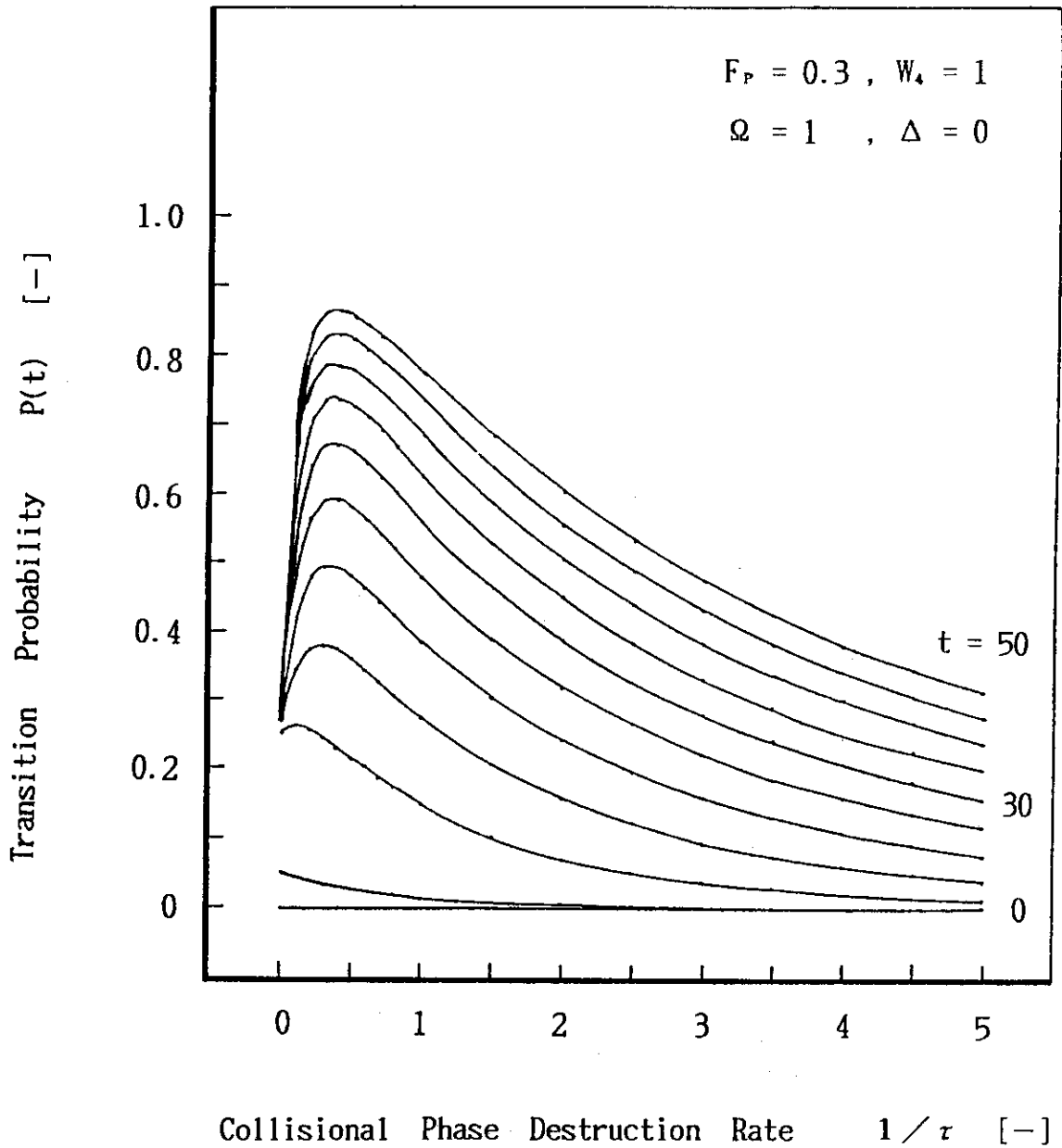
(a): Curve 1: $N_h(t)$, Curve 2: $N_0(t)$, Curve 3: $N_1(t)$, Curve 4: $N_2(t)$

Fig. 2 Relative excitation probabilities, $N_j(t)$, in the levels, $j=0,1,2,3,4$, for a molecule with the five-level systems with a uniform Rabi frequency, $\Omega=1$, and with a detuning, $\Delta=0$. There is no collisional phase destruction, i.e. $1/\tau=0$, and the transition loss rate from the top energy level, $j=4$, is also zero, i.e. $W_4=0$.



(b): Curve 1: $N_3(t)$, Curve 2: $N_4(t)$

Fig. 2 (Continued)



(a): The reaction rate, F_p , is 0.3 at which a part of molecules in the level, $j=0$, is excited by an excitation laser

Fig. 3 Relative transition probabilities, $P(t)$, at various elapsed times as a function of the collisional phase destruction rate, $1/\tau$. The times, t , cover up to 50 in time scale with an increment of $\Delta t=5$.

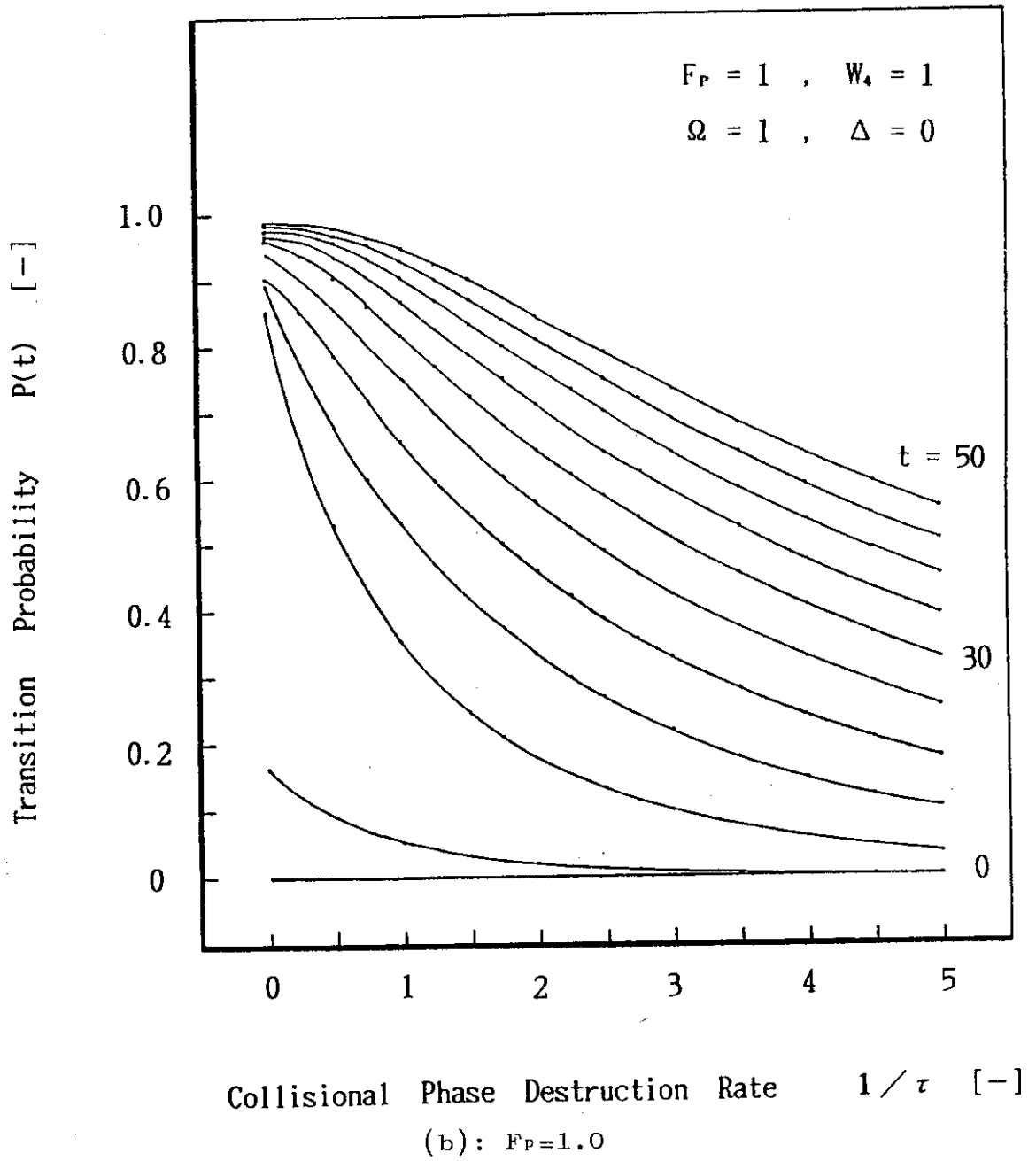
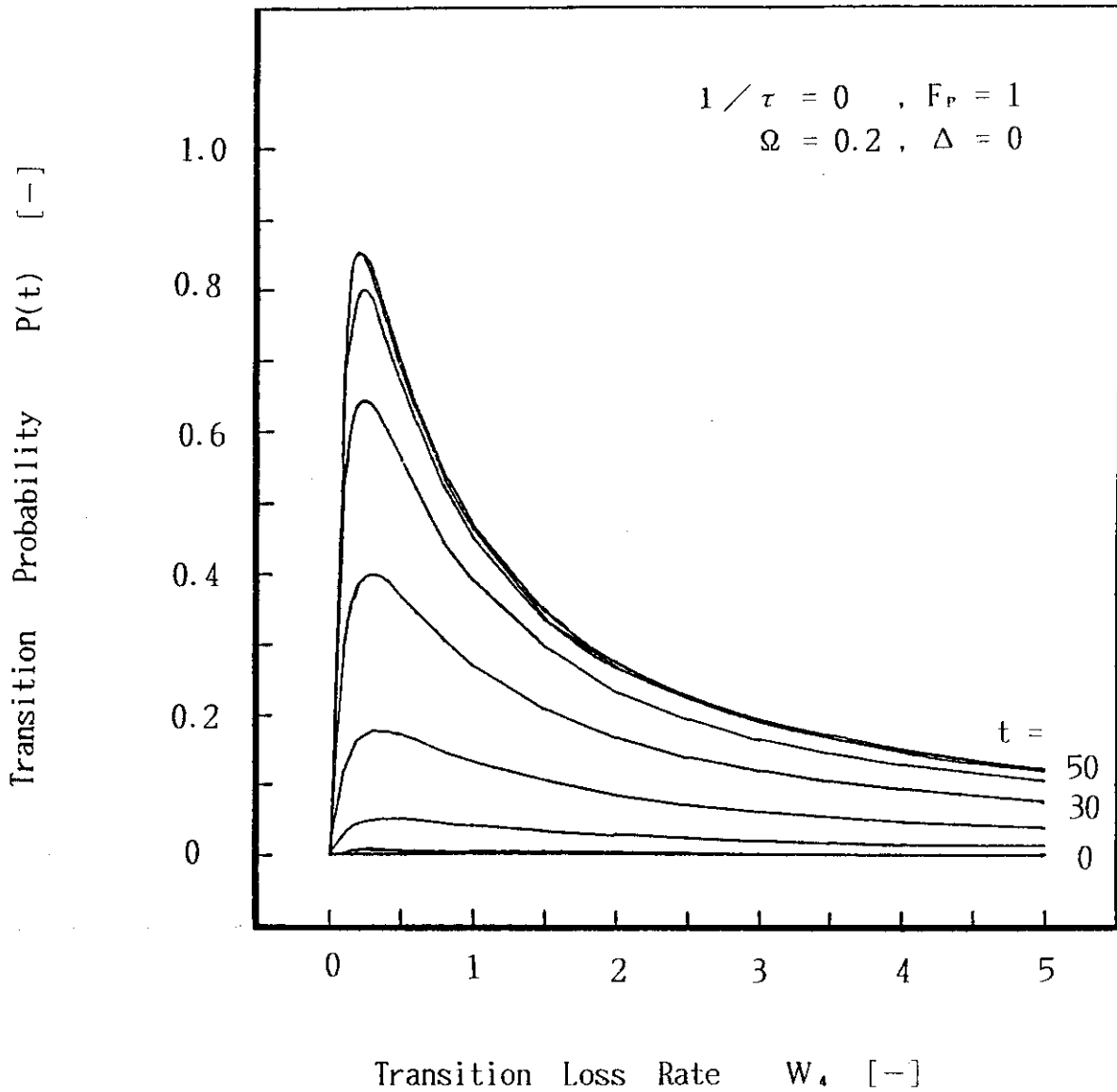
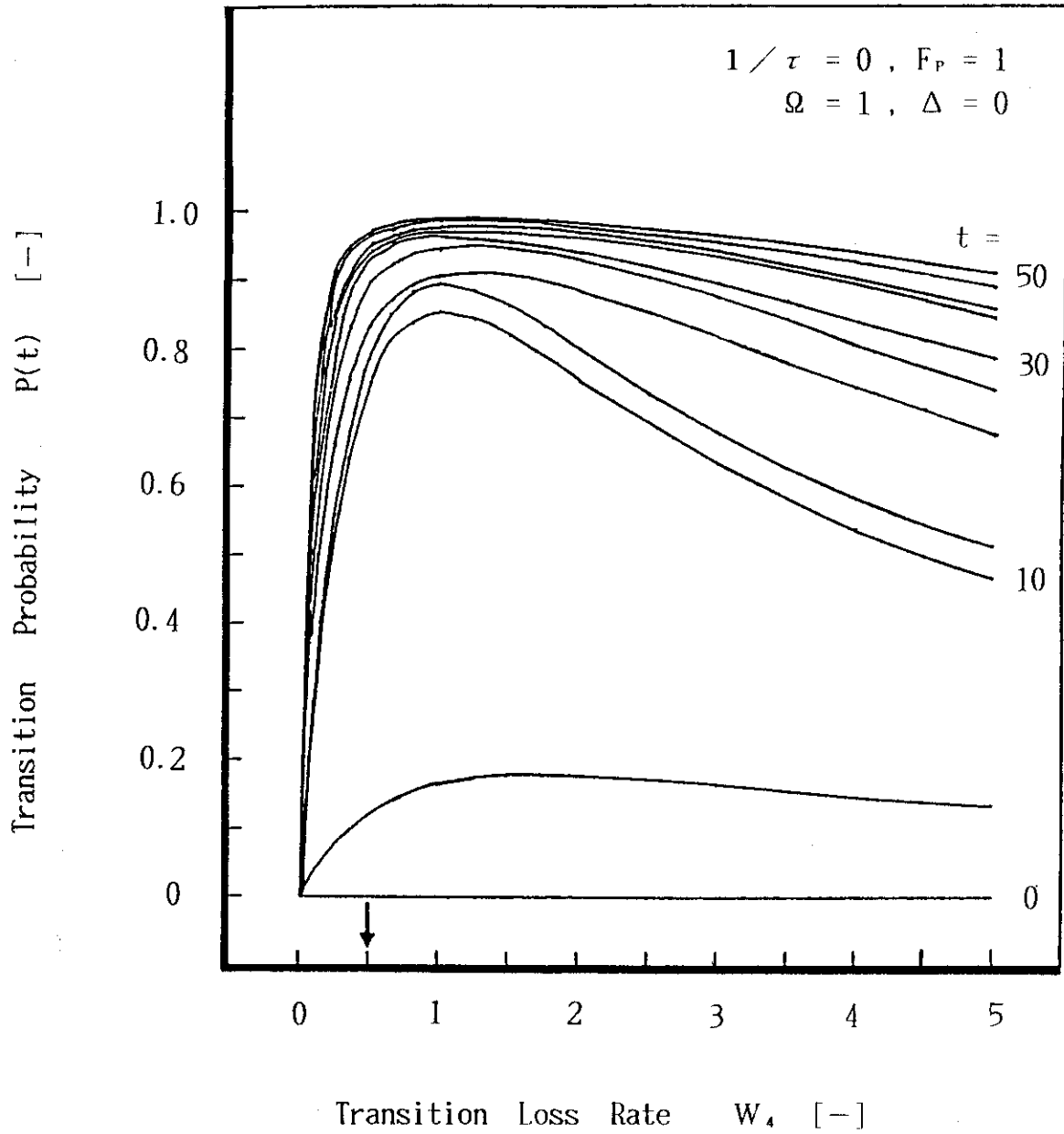


Fig. 3 (Continued)



(a): A weak transition case, $\Omega=0.2$

Fig. 4 Relative transition probabilities, $P(t)$, as a function of the transition loss rate, W_4 .



(b): A strong transition case, $\Omega=1$

Fig. 4 (Continued)

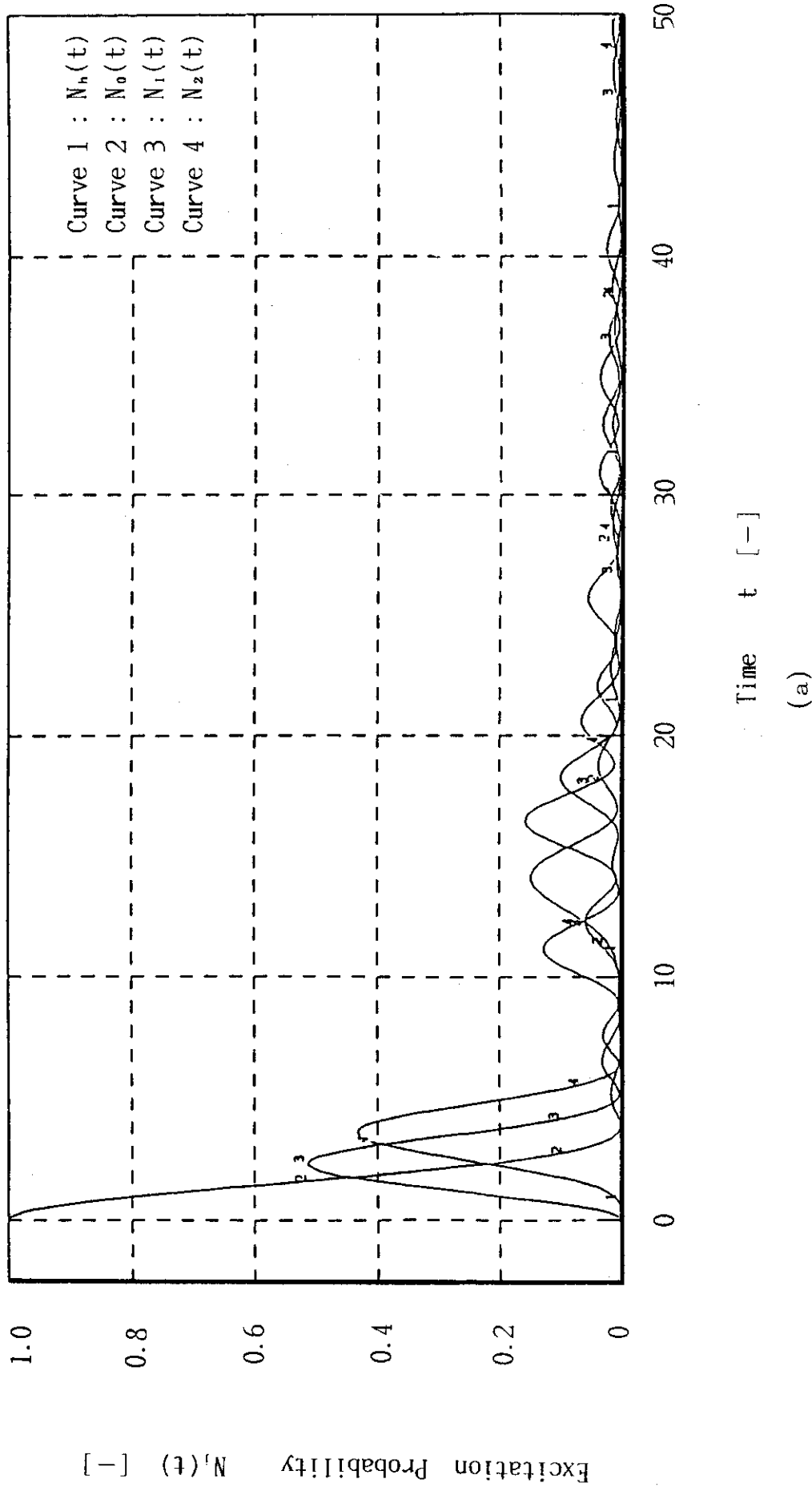
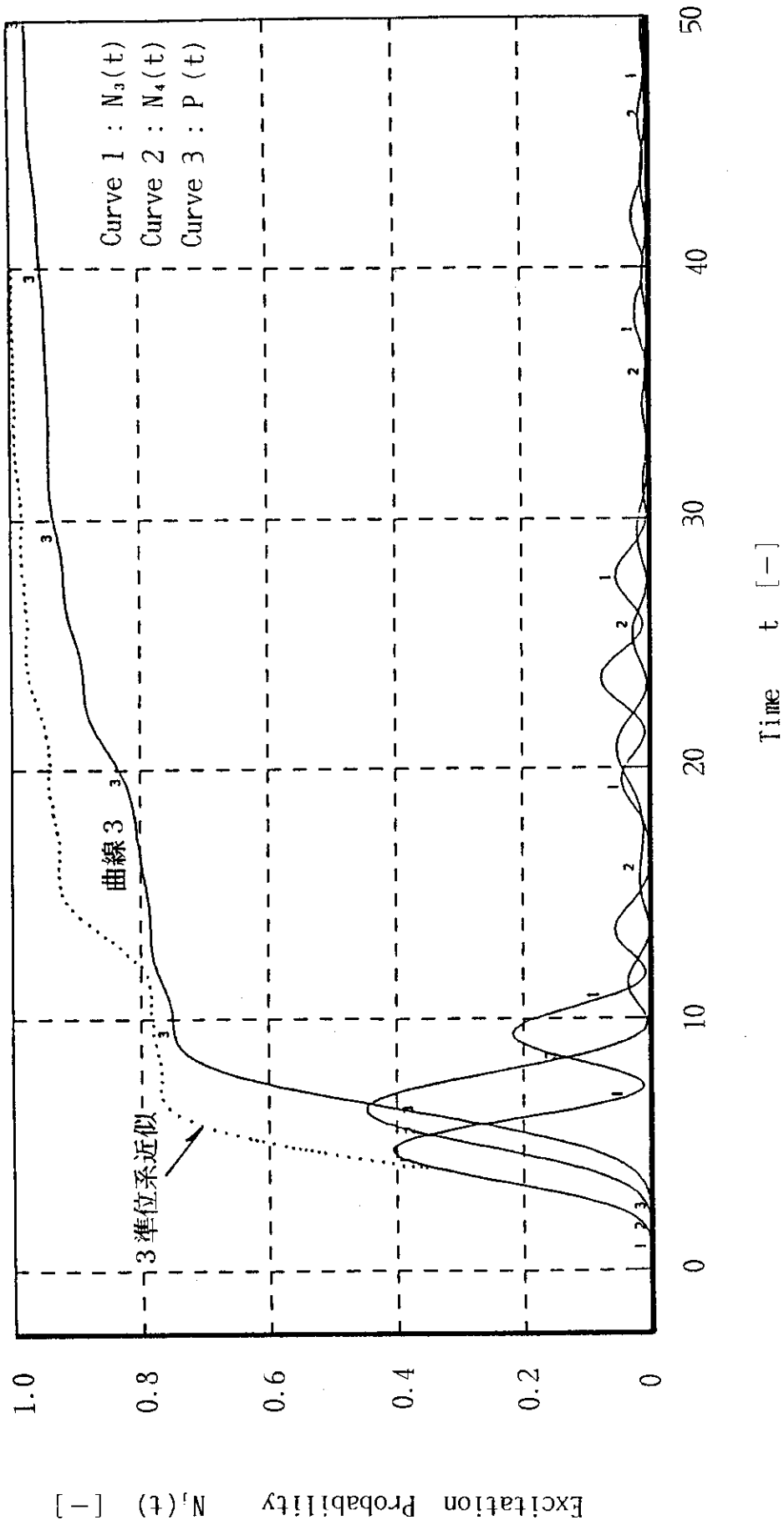
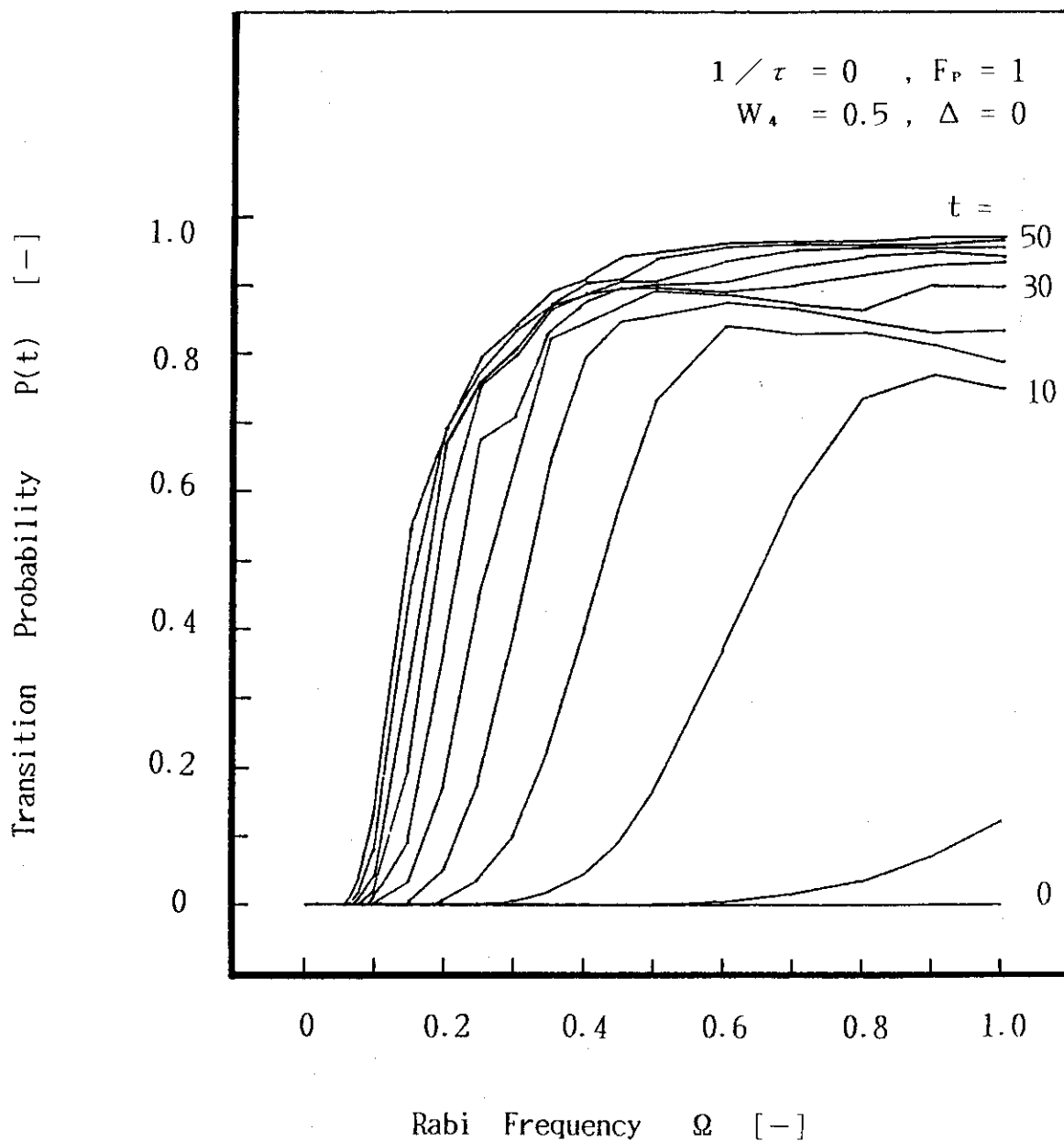


Fig. 5 Time dependent behavior of the relative excitation probabilities, $N_j(t)$, and of the relative transition probability, $P(t)$, for a molecule with the five-level systems in the on-resonant excitation process, irradiated by two lasers. Calculation conditions are as follows: $F_p=1$, $\Omega=1$, $A=0$, $1/\tau=0$, $W_4=0.5$. The dotted line in the frame (b) shows a relative transition probability for a molecule with the three-level systems in the same conditions.



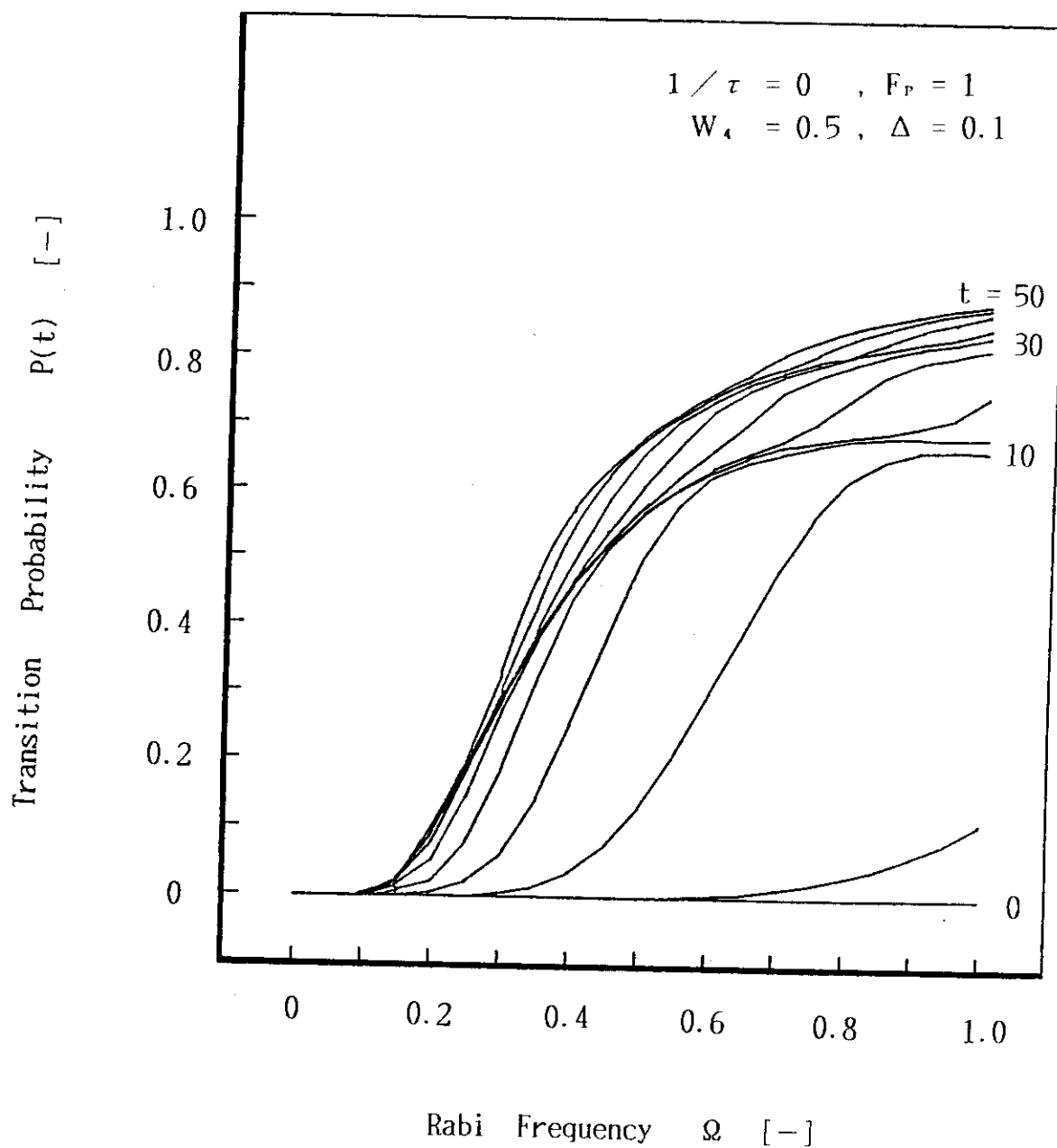
(b)

Fig. 5 (Continued)



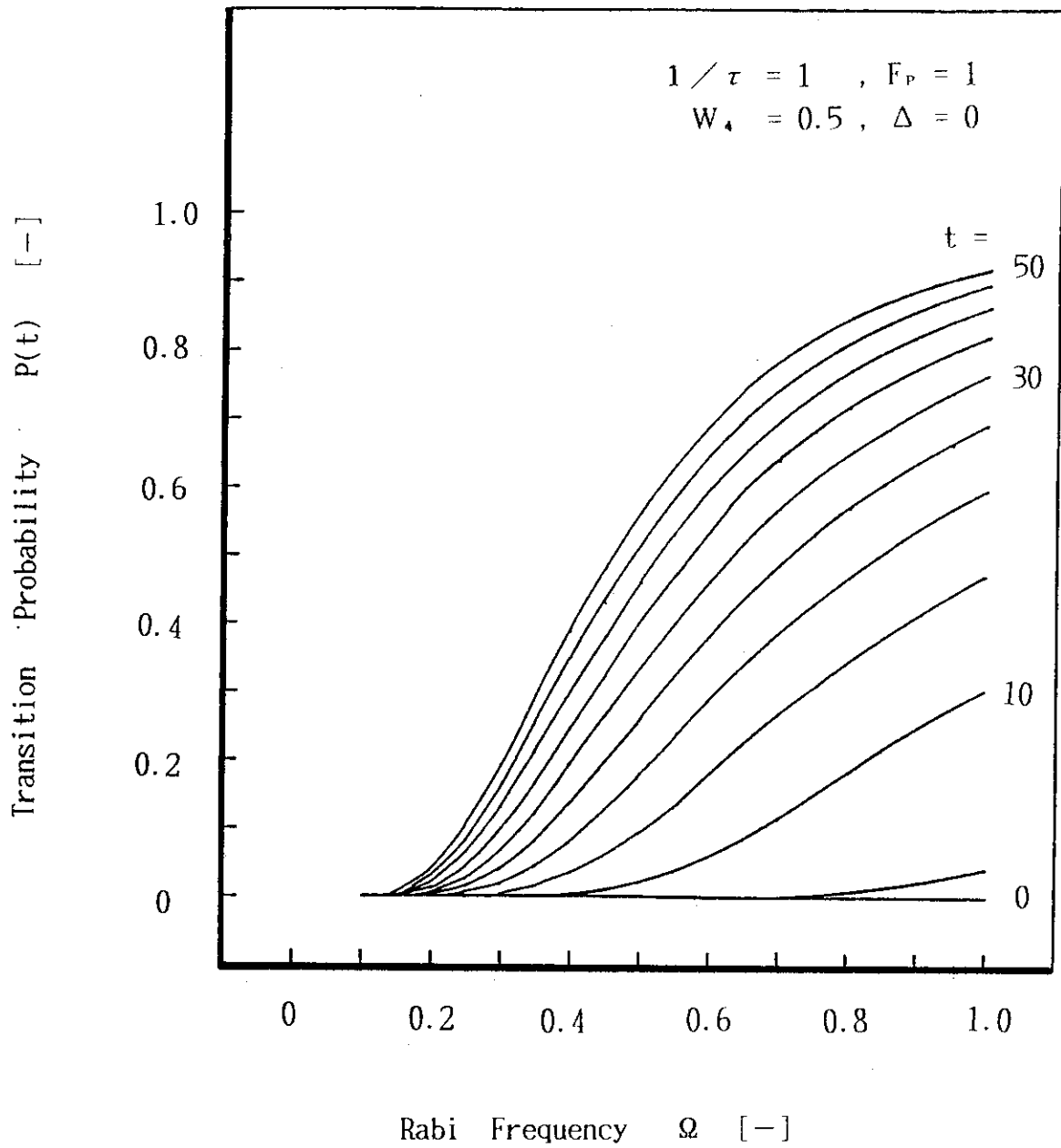
(a): Detuning $\Delta=0$

Fig. 6 Relative transition probabilities, $P(t)$, at various elapsed times as a function of the Rabi frequency, Ω .



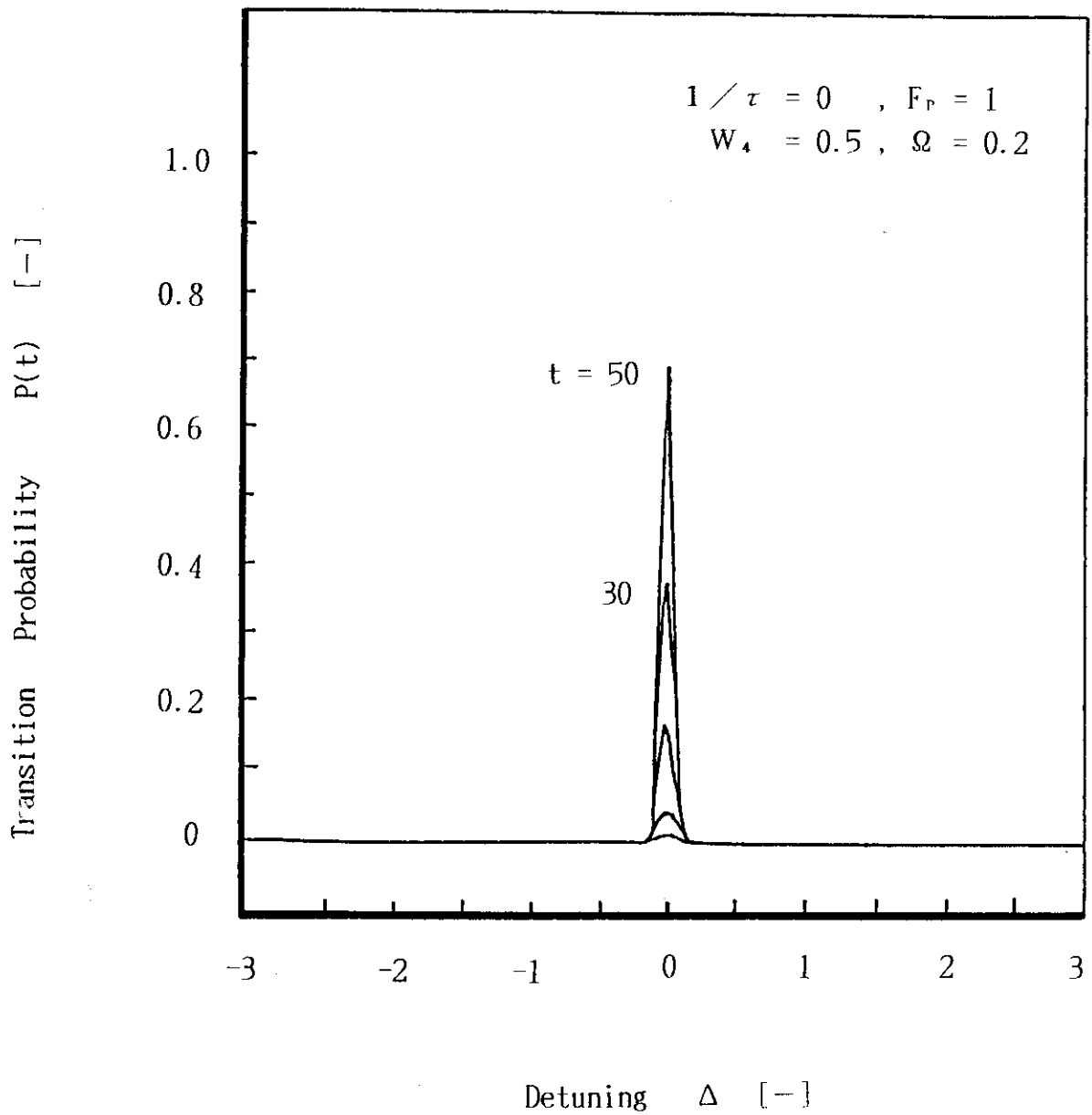
(b): Detuning $\Delta=0.1$

Fig. 6 (Continued)



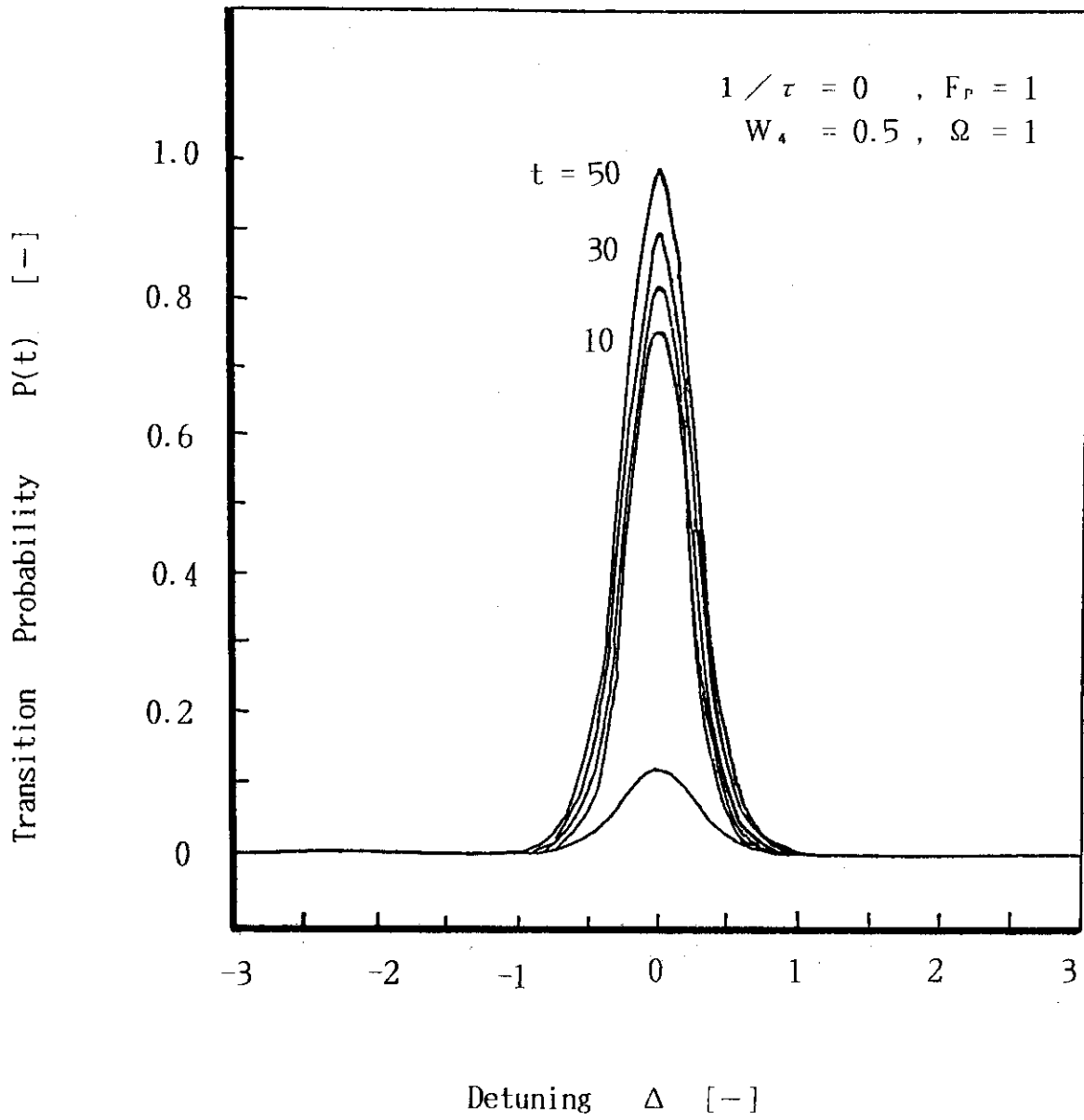
(c): Detuning $\Delta=0$. In this case, the collisional phase destruction was set at a rate, $1/\tau=1$

Fig. 6 (Continued)



(a): Rabi frequency $\Omega=0.2$

Fig. 7 Relative transition probabilities, $P(t)$, as a function of the detuning, Δ , at a succession of five elapsed times up to 50 in time scale with the time interval of $\Delta t=10$.



(b): Rabi frequency $\Omega=1$

Fig. 7 (Continued)

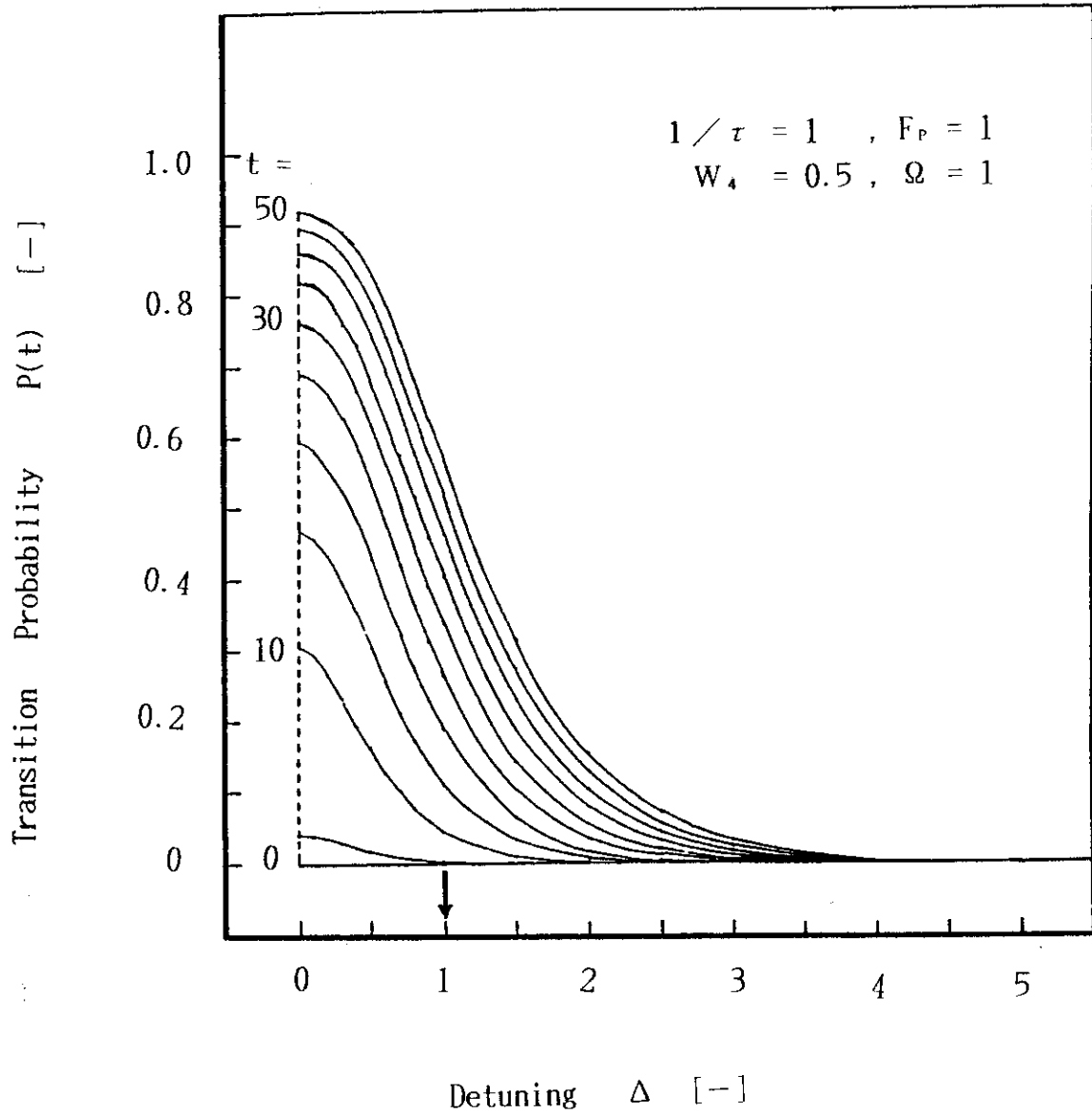


Fig. 8 Relative transition probabilities, $P(t)$, as a function of the detuning, Δ , with a collisional destruction rate, $1/\tau=1$, at a succession of ten elapsed times up to 50 in time scale with the time interval of $\Delta t=5$.

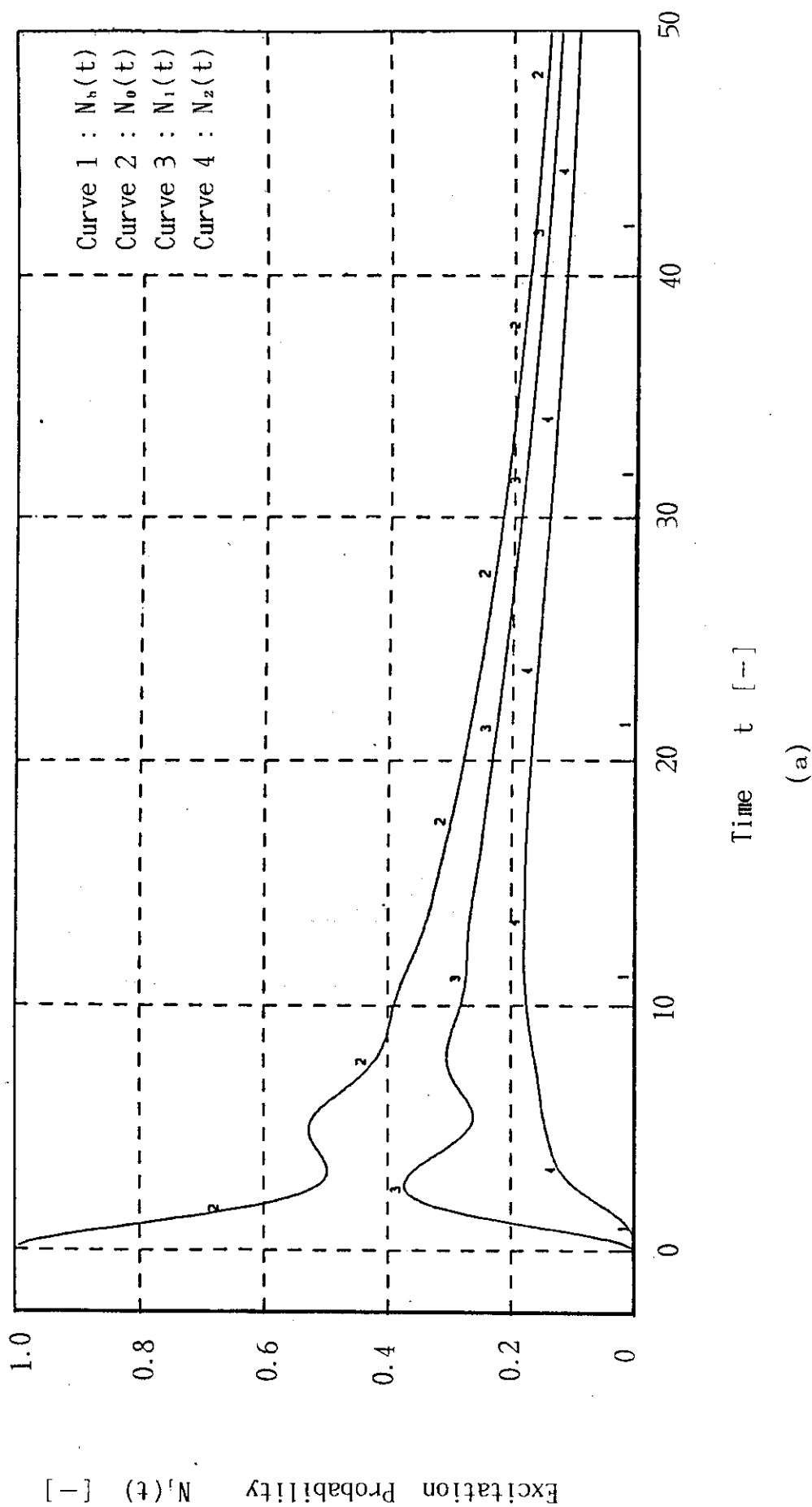
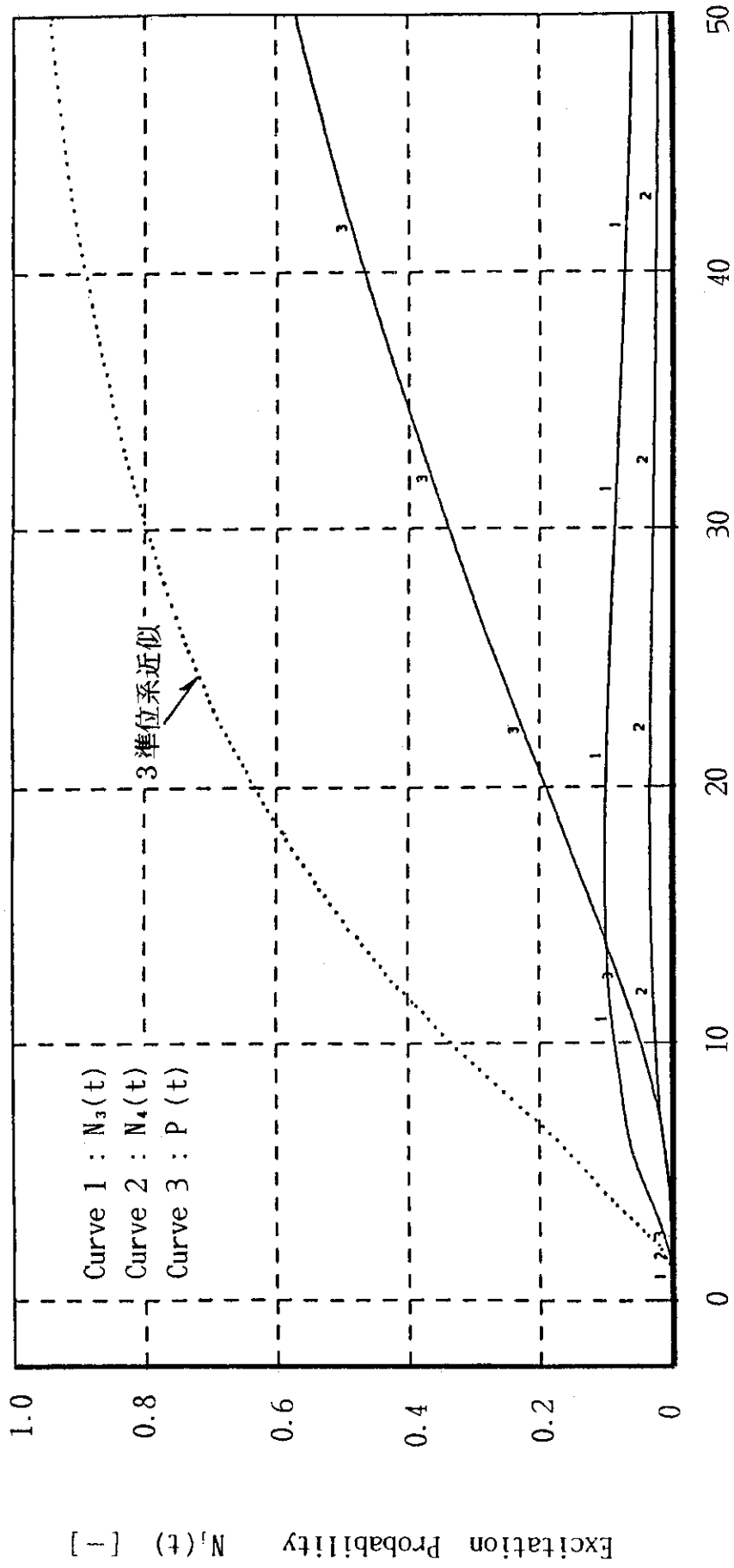


Fig. 9 Time dependent behavior of the relative excitation probabilities, $N_j(t)$, and of the relative transition probability, $P(t)$, for a molecule with the five-level systems with a collisional destruction rate, $1/\tau=1$. The dotted line in the frame (b) shows a relative transition probability for a molecule with the three-level systems in the same conditions.



Time t [-]

(b)

Fig. 9 (Continued)

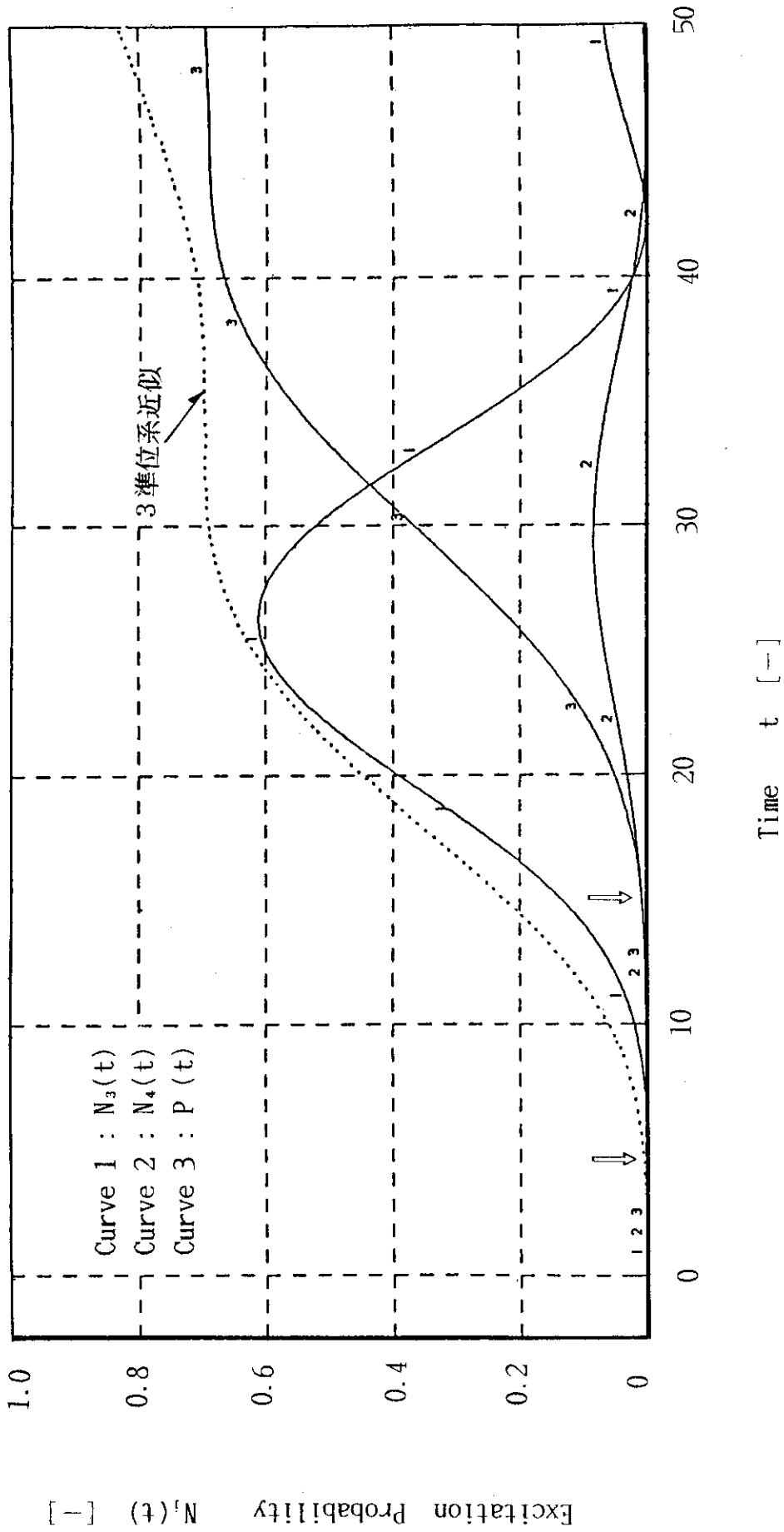


Fig. 10 Time dependent behavior of the relative excitation probabilities, $N_3(t)$, $N_4(t)$, and of the relative transition probability, $P(t)$, at a time when the power of excitation laser is very weak, showing a necessity of a delayed irradiation by a dissociating laser.

付録 3 準位系励起分子の光励起反応過程の解析

本文中で述べたように、光励起反応ダイナミクスとしては3準位系近似がこれまで多くの研究者によって調べられてきた。これはひとつには3準位系の解析が基本的で、かつ、容易であるからである。著者達は5準位系を取り扱う前に、まず、3準位系について計算プログラムを作成し、ダイナミクスをシミュレーションしてみた。ここに、その時に得られた代表的な計算結果をまとめておく。

A.1 3準位系近似による動力学モデル

簡単のため、ボトル・ネック効果や自発放出に関する緩和項は含まないことにする。この場合、光励起反応プロセスを記述する Bloch 方程式は次のようになる。

$$\frac{dN_0}{dt} = \frac{1}{2} i \Omega_1 (N_{01} - N_{10}) \quad \dots\dots\dots (1A)$$

$$\frac{dN_1}{dt} = -\frac{1}{2} i \Omega_1 (N_{01} - N_{10}) + \frac{1}{2} i \Omega_2 (N_{12} - N_{21}) \quad \dots\dots\dots (2A)$$

$$\frac{dN_2}{dt} = -\frac{1}{2} i \Omega_2 (N_{12} - N_{21}) - W_2 N_2 \quad \dots\dots\dots (3A)$$

$$\frac{dN_{01}}{dt} = -\left(i A_{01} + \frac{1}{2\tau} \right) N_{01} + \frac{1}{2} i \Omega_1 N_0 + \frac{1}{2} i \Omega_2 N_{02} - \frac{1}{2} i \Omega_1 N_1 \quad \dots\dots\dots (4A)$$

$$\frac{dN_{02}}{dt} = -\left(i A_{02} + \frac{1}{2} W_2 + \frac{1}{2\tau} \right) N_{02} + \frac{1}{2} i \Omega_2 N_{01} - \frac{1}{2} i \Omega_1 N_{12} \quad \dots\dots\dots (5A)$$

$$\frac{dN_{12}}{dt} = -\left(i A_{12} + \frac{1}{2} W_2 + \frac{1}{2\tau} \right) N_{12} + \frac{1}{2} i \Omega_2 N_1 - \frac{1}{2} i \Omega_1 N_{02} - \frac{1}{2} i \Omega_2 N_2 \quad \dots\dots\dots (6A)$$

$$\begin{aligned} N_{10} &= N_{01}^* \\ N_{20} &= N_{02}^* \quad \dots\dots\dots (7A) \\ N_{21} &= N_{12}^* \end{aligned}$$

$$P \equiv \int N_2 W_2 dt \quad \dots\dots\dots (8A)$$

上式の定常解は非常に煩雑になるが解析的に求めることも可能である。しかし、この場合でも、計算機で数値解を求めるのが一般的であろう。

A.2 光励起分子の反応ダイナミクスの特性

全部で9ケースについて、シミュレーション計算を行った。Table A1にそれらをまとめてお

く。表中には衝突などによる緩和速度 $1/\tau$ ，遷移速度 W_2 ，Rabi 周波数 Ω_1 ， Ω_2 及び Detuning Δ のパラメーターがある。各ケースのパラメーターの変化には斜線の枠で区別してある。また，「Comparison」の項は本文中のそれぞれの図に対応した3準位系近似の場合のシミュレーション結果である。両図を比較・検討することで3準位系と5準位系の特性の違いを理解できる。

Table A1 Dynamic analysis of strongly excited three-level systems

Parameter \ CASE	1	2	3	4	5	6	7	8	9
$1/\tau$	0	0.5	0	0	1	1	0	0	0
W_2	0	0	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
Ω_1	1	1	1	0.2	1	1	1	1	0.3
Ω_2	1	1	1	0.2	1	1	1	0.3	1
Δ_{12}	0	0	0	0	0	1	1	0	0
Δ_{21}	0	0	0	0	0	1	1	0	0
Δ_{13}	0	0	0	0	0	1	2	0	0
Δ_{31}	0	0	0	0	0	1	2	0	0
Δ_{23}	0	0	0	0	0	1	1	0	0
Δ_{32}	0	0	0	0	0	1	1	0	0
Δt	0.001	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01
Iterations	50000	5000	5000	5000	5000	5000	5000	5000	5000
Comparison	Fig.2 (a), (b)	—	Fig.5 (a), (b)	Fig.10	—	Fig.9 (a), (b)	—	—	—

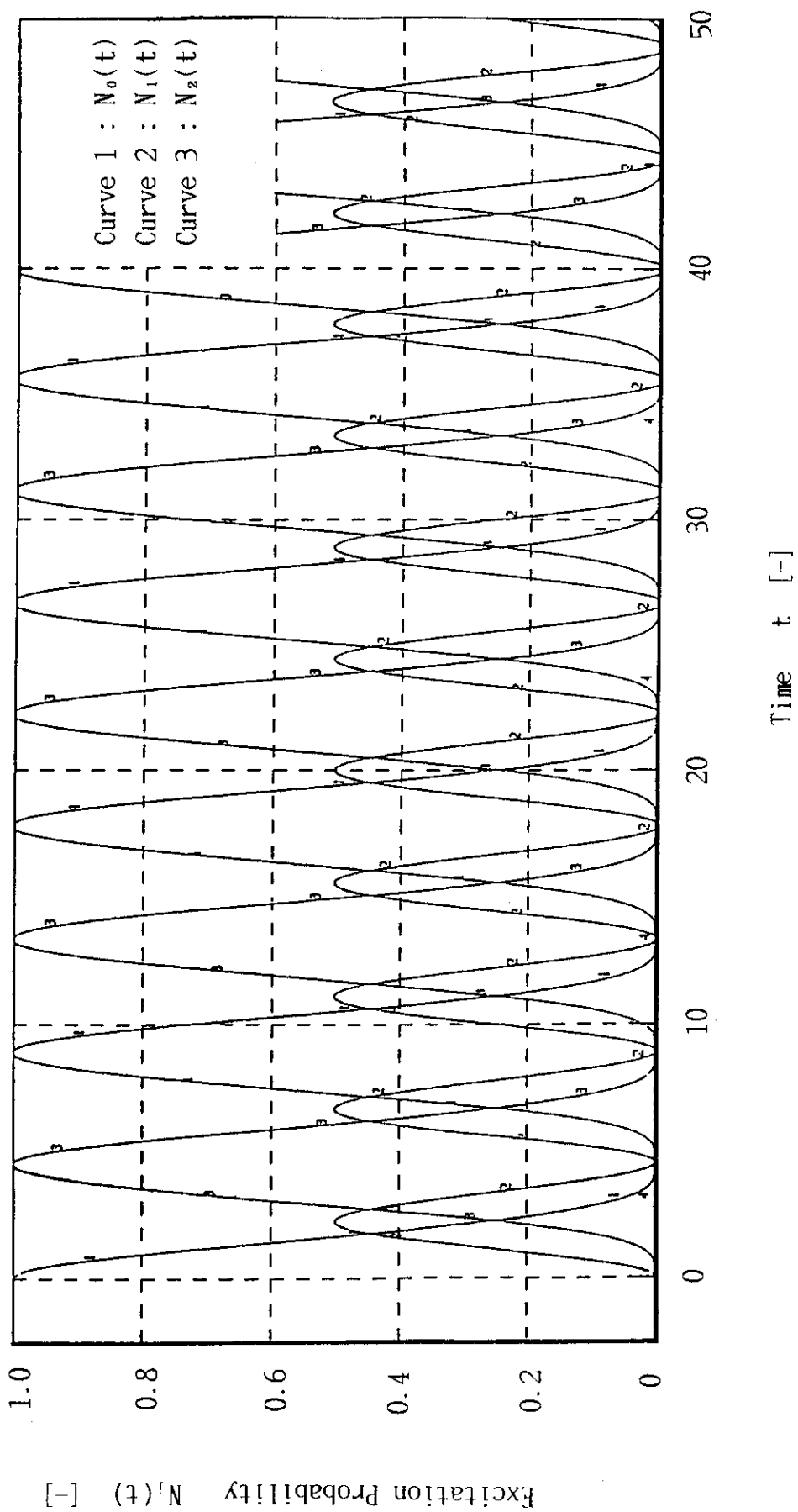


Fig. A.1 3準位系に近似されたコヒーレント相互作用の基本的特性 (CASE 1)

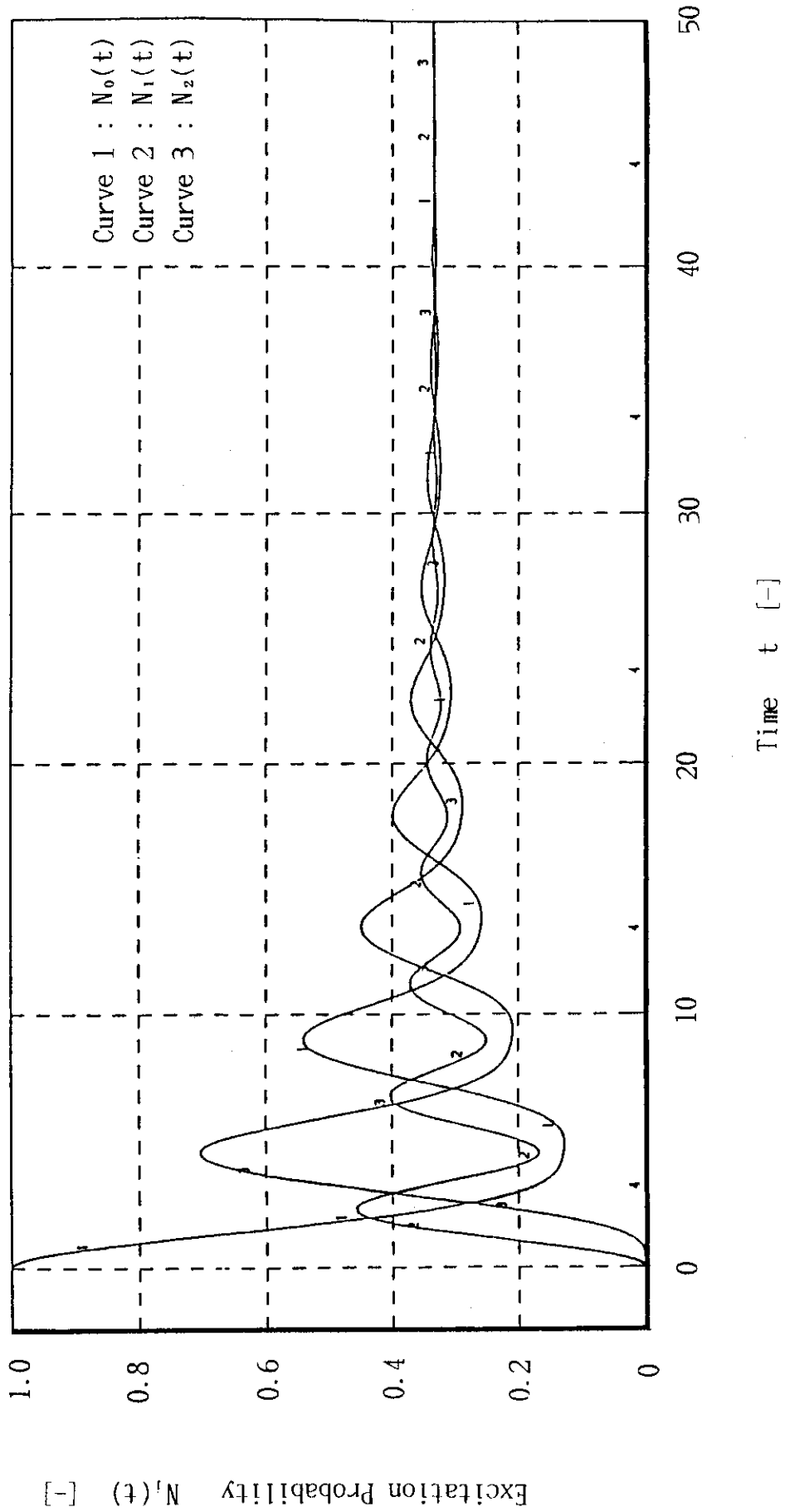


Fig. A. 2 コヒーレント相互作用が乱された場合の励起確率の変化 (CASE 2)

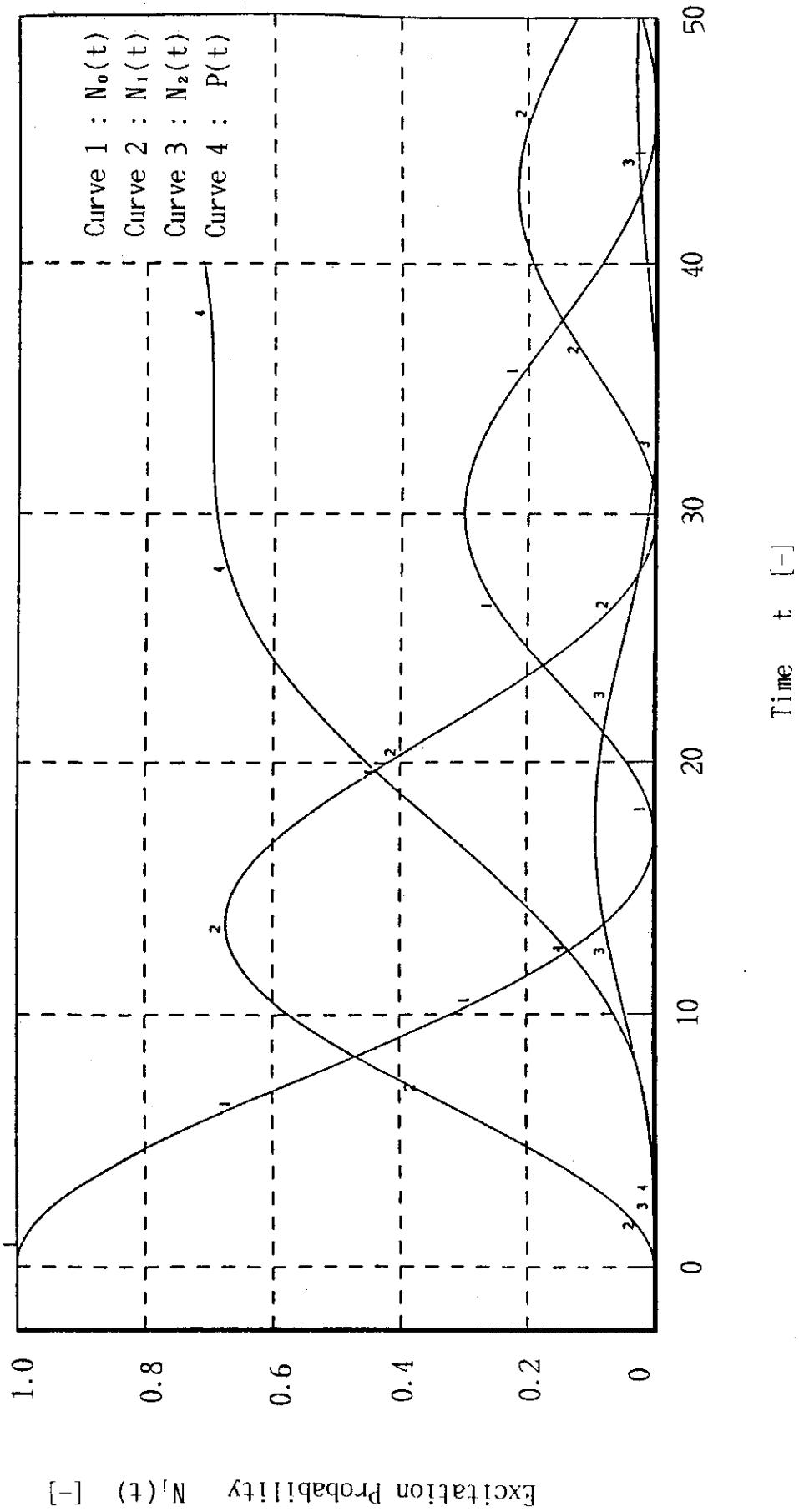


Fig. A.4 Rabi 周波数が小さい場合の遷移確率への影響 (CASE 4)

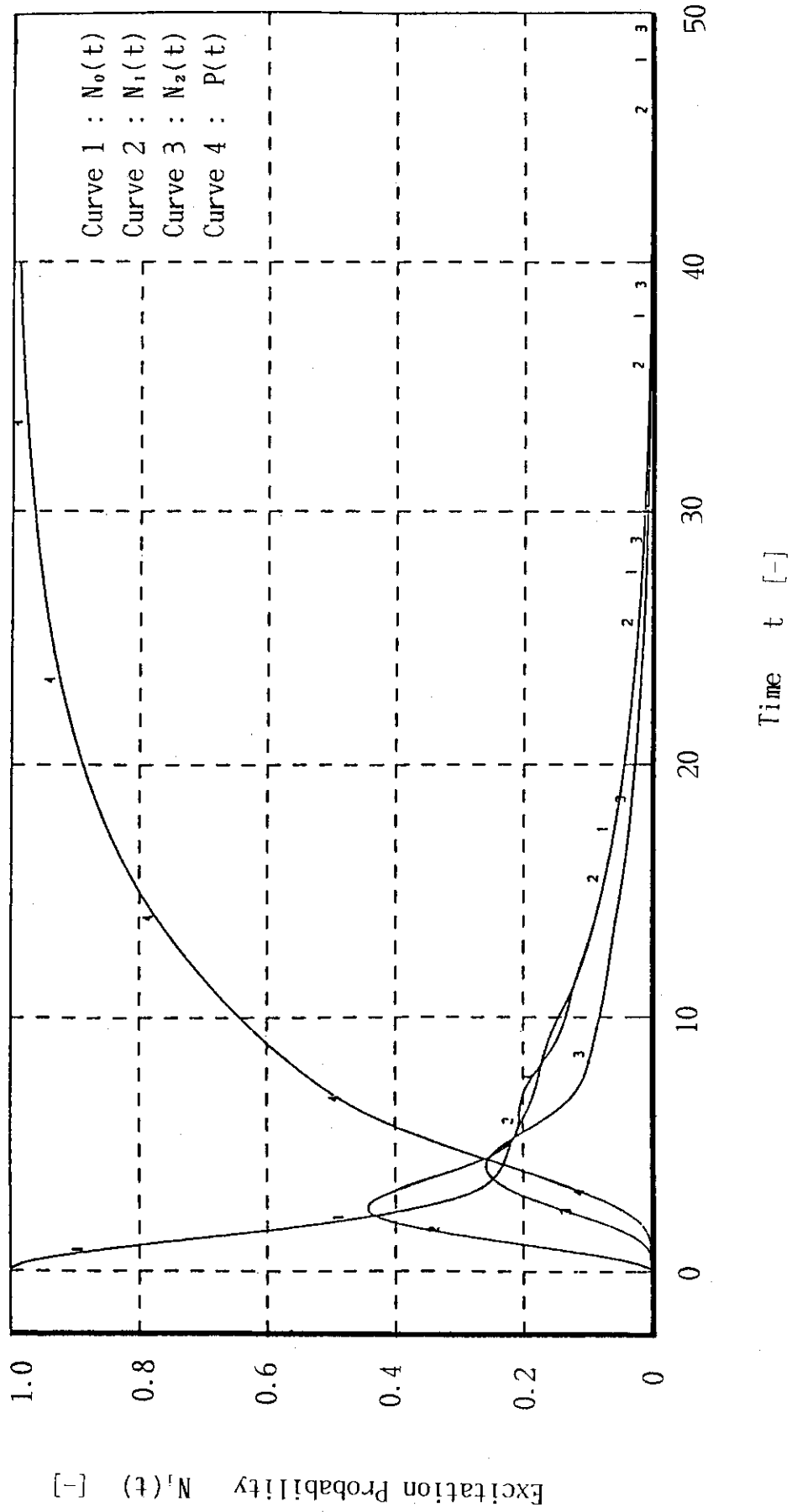


Fig. A. 5 衝突緩和の遷移確率への影響 (CASE 5)

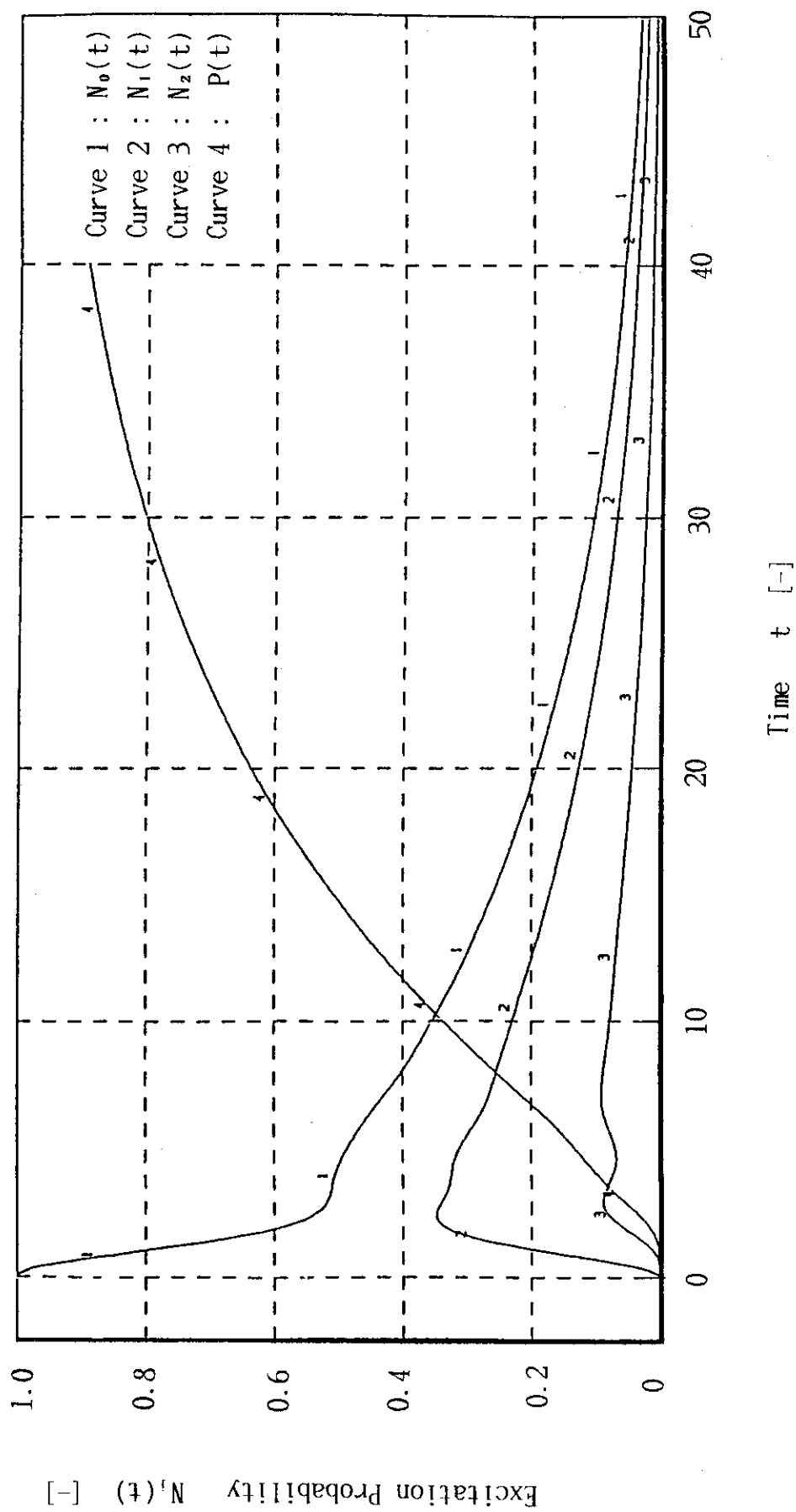


Fig. A. 6 衝突緩和とDetuningの両方が存在する場合の遷移確率への影響 (CASE 6)

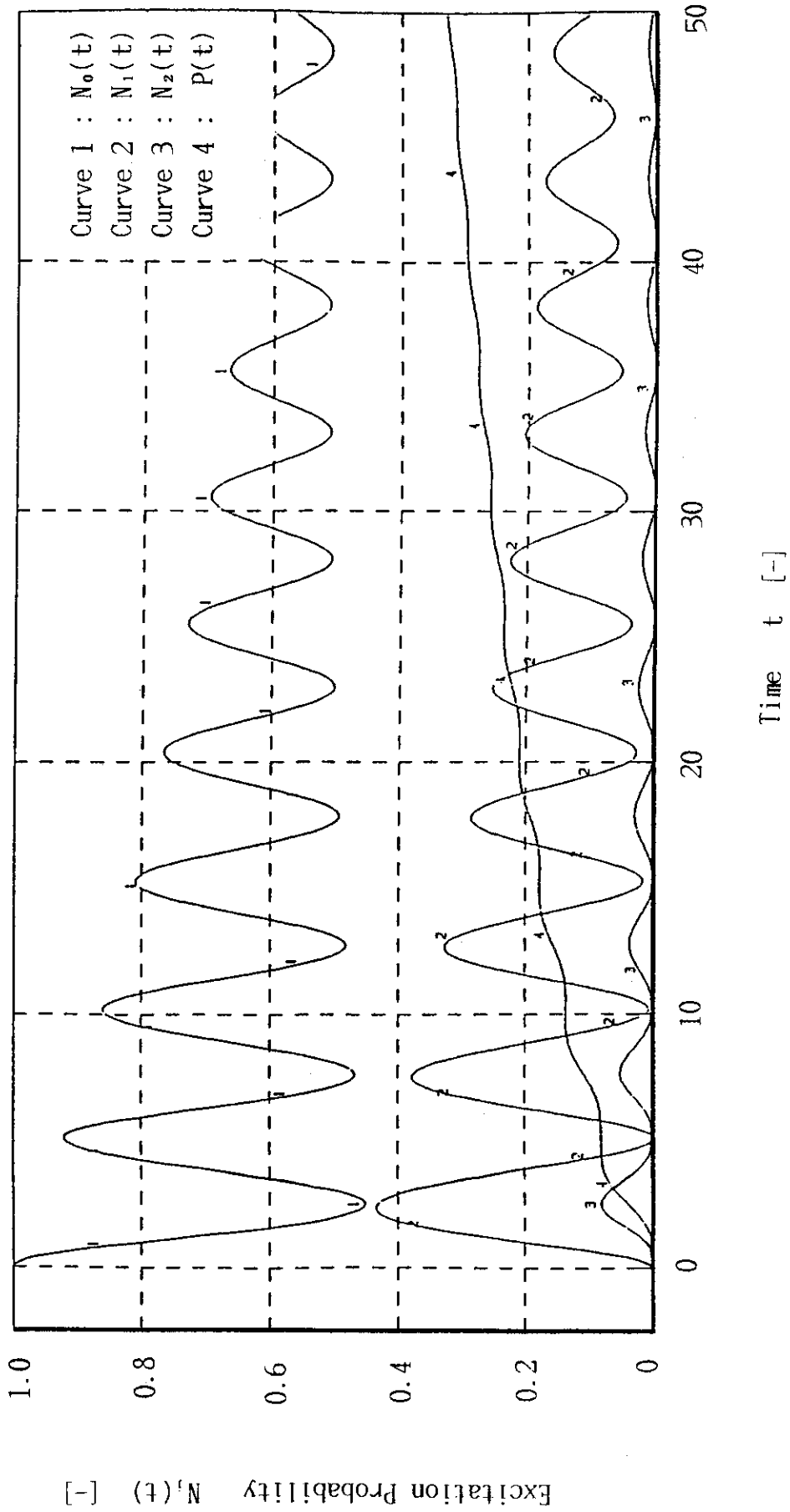


Fig. A. 7 基底準位と最上準位間の Detuning の遷移確率に及ぼす影響 (CASE 7)

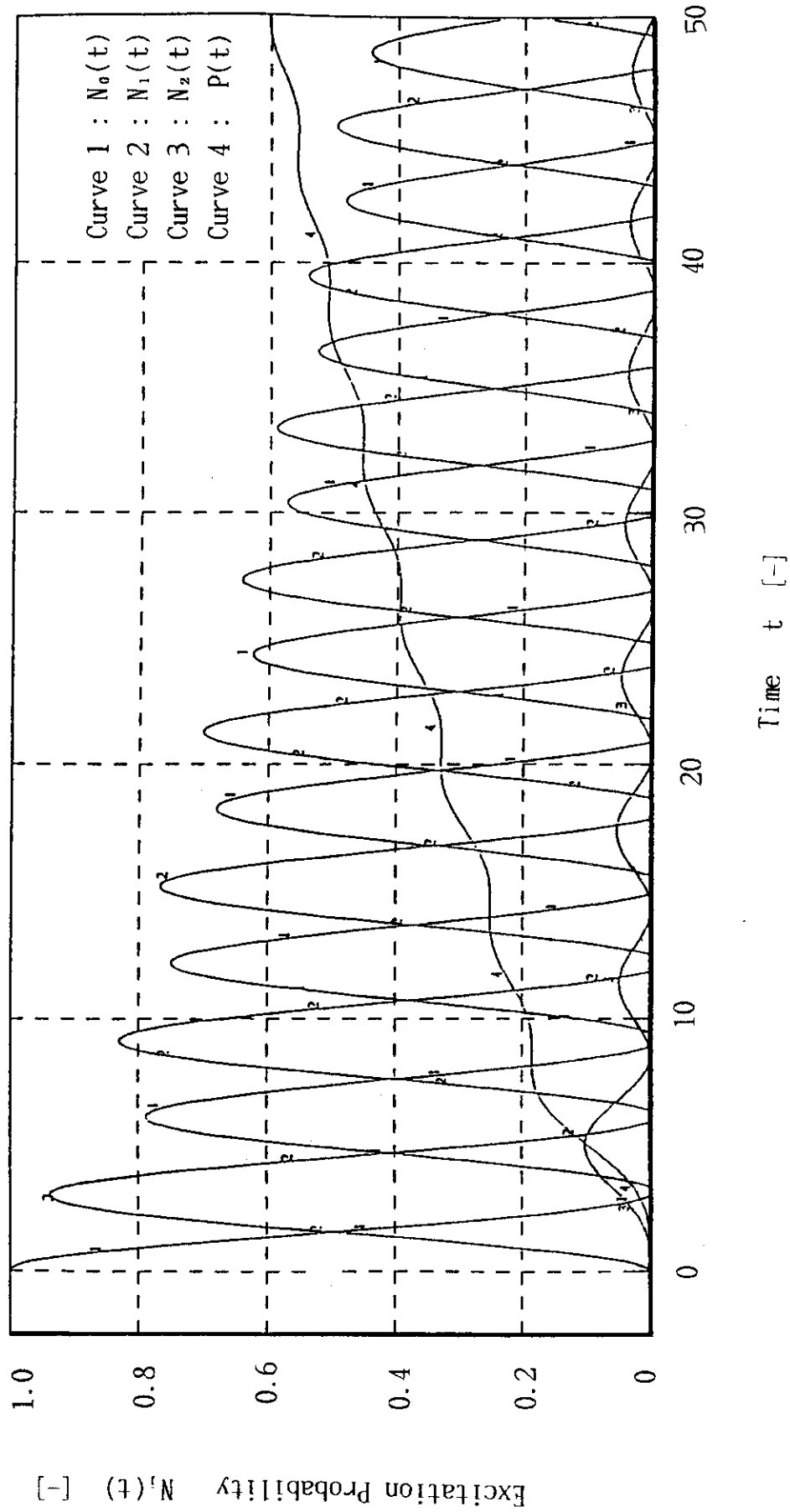


Fig. A. 8 Rabi 周波数 Ω_2 による遷移確率への影響 (CASE 8)

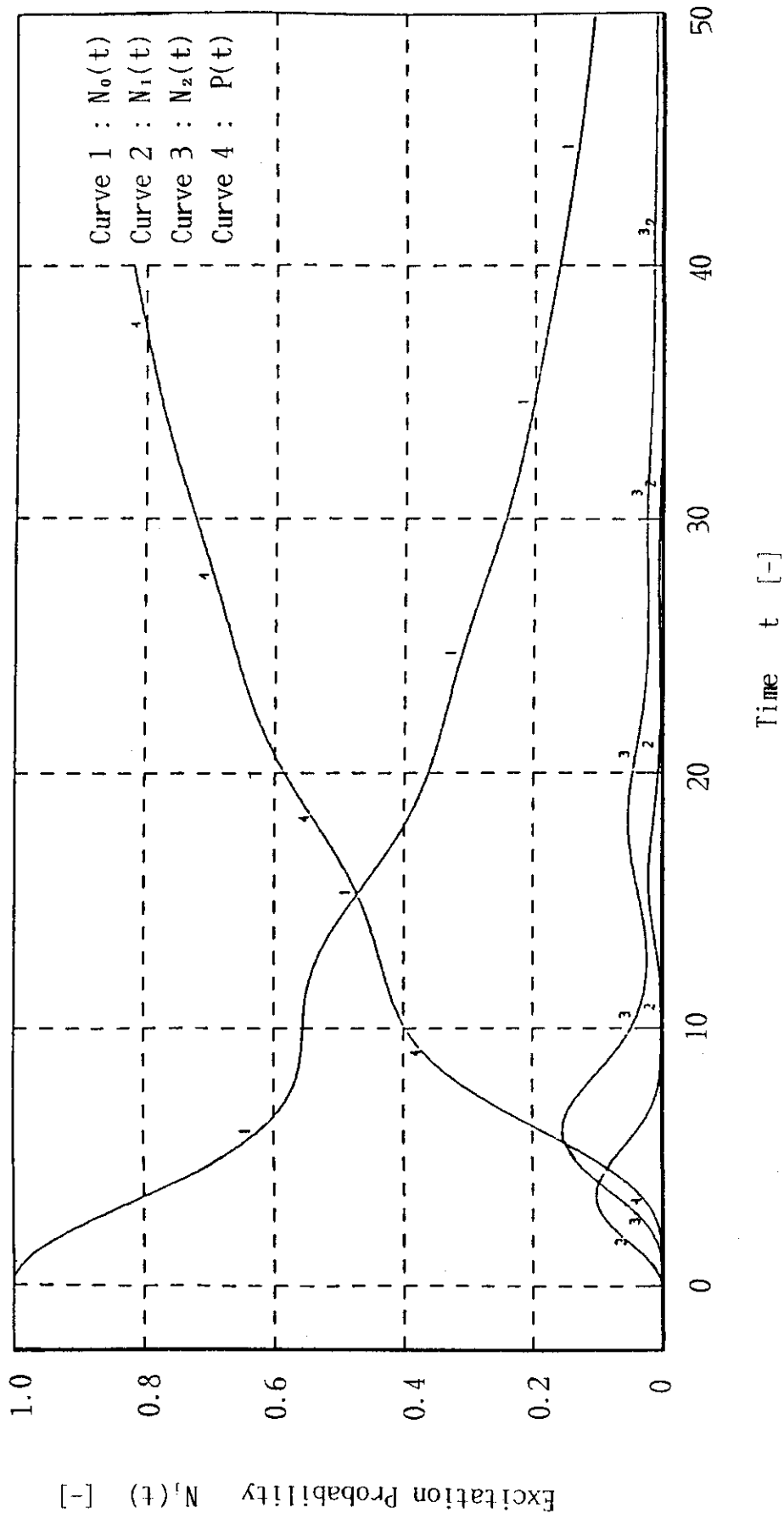


Fig. A. 9 Rabi 周波数 Ω_1 による遷移確率への影響 (CASE 9)