

平成29年度 共同利用研究報告書

平成 29 年 10 月 31 日

九州大学 マス・フォア・インダストリ研究所長 殿

所属・職名 信州大学工学部・准教授

提案者 氏名 ^(ふりがな) 鈴木 ^{あきと} 章斗

下記の通り共同研究の報告をいたします。 記

	※整理番号		20170012		
1.研究計画題目	レーザー同位体分離の実用化における量子ウォークの数理				
2.種別 (○で囲む)	a. 研究集会 I		b. 研究集会 II		
	c. 短期共同研究		d. 短期研究員		
3.研究代表者	氏名 ^(ふりがな)	鈴木 ^{あきと} 章斗			
	所 属 部局名	信州大学・工学部		職 名 名	准教授
	連絡先				
	e-mail		TEL		
4.研究実施期間	平成 29 年 7 月 24 日 (月曜日) ~ 平成 29 年 7 月 26 日 (水曜日)				

5.参加者数・参加者リスト (*別紙「共同利用研究報告書作成上の注意」参照)

(a,b は参加者数のみ記入し, 集会参加者リストを添付. c. の非公開プログラム参加者と d. は参加者リストに記入. c. は公開プログラムを含めた全参加者数を記入し, 公開プログラム参加者リストを添付.)

参加者数: 13 人

参加者リスト (a,b は記入不要, c. は非公開プログラム参加者, d. は共同研究参加者を記入)

^(ふりがな) 氏名	所属	職名	^(ふりがな) 氏名	所属	職名
今野 紀雄	横浜国立大学	教授	松江 要	マス・フォア・インダストリ	助教
鈴木 章斗	信州大学	准教授	瀬川 悦生	東北大学情報科学研究科	准教授
松澤 泰道	信州大学	助教	横山 啓一	日本原子力研究開発機構	研究員
松岡 雷士	広島大学	助教	井手 勇介	神奈川大学	助教
結城 謙太	広島大学	学生	西郷甲矢人	長浜バイオ大学	准教授

6.本研究で得られた成果の概要

本研究では、レーザー同位体分離の実用化に向けた課題を克服するために、理論的基盤となる量子ウォークの数理的研究が行われた。平成 24 年に開催された IMI 短期共同研究「量子ウォーク数理の新展開：物質制御へのアプローチ」で得られた成果をもとに、最近の研究成果も踏まえつつ、CTQW を用いた解析方法に関する幅広い検討がなされた。これにより、散乱理論や直交多項式、量子確率論などとの関係が指摘され、厳密解を用いる方法なども議論された。また、より分離精度を高めるための新たな手法である交替 π パルスによる分離技術についても、DTQW の観点から検討を行い、Szegő class との関係が指摘された。これらの共同研究を通じ、実用化に向けた技術的課題や今後行うべき実証実験などのロードマップも共有され、それに伴う数学的課題についても議論された。

九州大学マス・フォア・インダストリ研究所平成 27 年度短期共同研究
「レーザー同位体分離の実用化における量子ウォークの数理」
報告書

信州大学工学部 鈴木 章斗

1. はじめに

1-1. 本研究の背景と目的

放射性廃棄物に含まれる核分裂生成物には、長期に渡って人間社会と地球環境に影響を及ぼす長寿命核種が存在する。このような核種を、安定または短寿命核種に変える消滅処理は、環境負荷の低減につながる重要な研究課題である。核種変換を効率的に行うために、廃棄物中の放射性的の ^{135}Cs (半減期 230 万年) と安定同位体の ^{133}Cs を精密に分離する必要がある。しかし、化学的性質や質量差の近いこれらの同位体分離は難しく、従来法より分離性能が高い同位体分離法の開発が望まれている。そのような中で、横山らによって提案された分子内部準位のカスケード励起を利用したレーザー同位体分離を法は、従来法をはるかに上回る分離性能が数値計算で確認され、実用化に向けた研究が進められている。このカスケード励起のダイナミクスを記述する数理モデルは、量子ウォーク (QW) である。この提案法が、高い分離性能を示す定性的根拠は、QW 特有の「分布の線形的広がり」にあると考えられている。これまでは主に数値計算にたよって知見が深められてきたが、実用化に向けた理論設計においては、なお一層の理論的な理解が必要である。そこで、これまでに IMI や統数研などで行ってきた研究会の内容をさらに発展させ、実験パラメータを設計する理論の数学的基盤を構築することを目的として本研究が行われた。この目的を達成するため、スペクトル・散乱理論や直交多項式の専門家とレーザー同位体分離の産業応用を目指す研究者が共同で研究を行った。

1-2. 本研究の構成

本プログラムは「非公開プログラム (共同研究)」と「公開プログラム (講演)」からなり、7月24日から26日の3日間で行われた。初日は、「問題の共有」を目的とし、公開プログラムでは、横浜国立大学の今野による量子ウォークの数学と原子力機構の横山によるレーザー同位体分離の現状に関する総合講演が行われた。非公開プログラムでは、東北大学の瀬川によって共同研究で解決すべき具体的な問題が提示された。2日目は「問題の解決」と位置づけた共同研究が行われた。午前中は広島大学の松岡と信州大学の鈴木がそれぞれ実験

と数学に関する話題を提供し、午後は瀬川を中心に、ディスカッションが行われた。最終日は「将来の課題」と位置づけ、公開プログラムにおいて、広島大学の結城、長浜バイオ大学の西郷、神奈川大学の井手による最新の研究成果が発表された。共同研究の内容と講演の詳細は、それぞれ2節と3節で述べる。3日間を通じてのプログラムは以下の通りである。

1-3. プログラム

1. 問題を共有（一部公開）

レーザー同位体分離の実用化に向けた課題や量子ウォークの数理の現状についての一般的なレビュー（公開）とレーザー同位体分離の実用化に向けた課題を共有するためのディスカッション（非公開）。

7月24日（月）

公開プログラム C515 中講義室

13:00-14:00 今野 紀雄（横浜国大）

量子ウォーク入門 ーなぜ注目され続けているのかー

14:20-15:20 横山 啓一（日本原子力研究機構）

量子ウォークとレーザー同位体分離

非公開プログラム C514 小講義室

15:30- ディスカッション

話題提供：瀬川 悦生

2. 問題の解決（非公開）

量子ウォークの解析手法に関する発表と課題解決法についてディスカッション。

7月25日（火）C514 小講義室

9:30-10:20 松岡 雷士（広島大）

光パルス列を用いた分子回転励起における4つの局在化とその統合へのアプローチ

10:30-11:20 鈴木 章斗 (信州大)

一般化された離散フーリエ変換と量子ウォークの極限分布

13:00- ディスカッション

話題提供：瀬川 悦生 (東北大)

3. 将来の課題 (公開)

将来の課題解決に向けた量子ウォークに関する研究発表。

7月26日(水) C515 中講義室

9:30-10:00 結城 謙太 (広島大)

遷移行列の対角成分に由来する連続時間量子ウォークの局在化の数理解析

10:10-11:00 西郷 甲矢人 (長浜バイオ大)

量子ウォークと同位体分離の基礎数理—量子確率論の観点から

11:10-11:50 井手 勇介 (神奈川大)

path上の離散時間量子ウォークの固有解析

1-4. 本研究の組織委員と参加者

本プログラムの組織委員は

- ・鈴木章斗 (信州大学工学部・准教授)
- ・今野紀雄 (横浜国立大学大学院工学研究院・教授)
- ・瀬川悦生 (東北大学情報科学研究科・准教授)
- ・横山啓一 (日本原子力研究開発機構・研究主幹)
- ・松江要 (マス・フォア・インダストリ研究所・助教)

である。また、講演者および共同研究への参加者は

- ・松岡雷士（広島大学大学院工学研究科・助教）
- ・井手勇介（神奈川大学工学部・助教）
- ・西郷甲矢人（長浜バイオ大学・准教授）
- ・結城謙太（広島大学・修士課程学生）
- ・松澤泰道（信州大学教育学部・助教）

である。その他 3 名が一般公開プログラムに参加した。

2. 共同研究の概要

2-1. 研究の背景

放射性セシウムを同位体分離することができれば、中性子照射による核変換によって地層処分への負担を大幅に軽減することが出来る。日本原子力研究開発機構の横山らは、多準位に分布した分子アンサンブルを一括して処理可能な新しい高効率レーザー同位体分離法として、テラヘルツ領域の光周波数コムを用いた同位体分離法の研究を進めている。松岡らは、これまでの理論研究の中で、光周波数コム中での分子の回転分布の時間発展は理想的な条件下においてある連続時間量子ウォーク（CTQW）と一致することを示した[1]。しかし、実際の分子には遠心力による回転エネルギーシフトや磁気量子数による準位間の回転遷移確率のサイト依存性などが存在し、このクラスの CTQW モデルでは実際の時間発展を予測することができない。そこで、平成 24 年度に行われた IMI 短期共同研究「量子ウォーク数理の新展開：物質制御へのアプローチ」では、これらの問題にアプローチするための数理モデルが構築され、そこから導き出される時間発展の性質に関する研究が行われた。本研究では、最近の理論の発展を踏まえ、前回の研究で未解決だった問題や離散時間量子ウォーク（DTQW）を用いた新たなテーマを取り上げた。

2-2. 準備・モデルについて

光周波数コム中での分子回転分布移動の時間依存シュレーディンガー方程式として以下を考える。

$$i \frac{d}{dt} C_J(t) = -\frac{\varepsilon(t) \cdot \mu_J}{2} \left[\exp\{(E_J - E_{J-1}) \cdot i \cdot t\} \cdot C_{J-1}(t) + \exp\{(E_J - E_{J+1}) \cdot i \cdot t\} \cdot C_{J+1}(t) \right], \quad (1)$$

$$\mu_J = \mu_0 \sqrt{\frac{(J+1)^2 - M^2}{(2J+1)(2J+3)}}, \quad E_J = 2\pi B_M J(J+1) - 2\pi D_v J^2(J+1)^2.$$

ここで、 $C_J(t)$ は回転量子数 J の準位の時間 t における複素振幅であり、 $J < M$ では $C_J(t) = 0$ とする。 E_J は回転準位 J の回転エネルギーであり、分子種によって決まる定数 B_M と D_v を用いて J の 4 乗に起因する遠心力歪みまでを考慮している。なお通常の二原子分子では ($D_v/B_M \cong 10^{-5} \sim 10^{-7}$) である。また、 μ_J は J と磁気量子数 M に依存して決まる遷移モーメントである。また、

$$\varepsilon(t) = \gamma \left[1 + 2 \sum_{j=0}^{J_{\max}-1} \cos\{2\pi \cdot 2B_f(j+1)t\} \right]. \quad (2)$$

は、パルス間隔 $T_r = 1/(2B_f)$ のテラヘルツ帯域の光周波数コムによる電場を表す。式(2)を式(1)に代入し、 $\Delta B = B_M - B_f$ が十分に小さいことを仮定して高次の振動項を無視する近似を行って、次の数理モデルを考える。

$$i \frac{d}{dt} \begin{bmatrix} C_M(t) \\ C_{M+1}(t) \\ C_{M+2}(t) \\ C_{M+3}(t) \\ \vdots \end{bmatrix} = -\gamma \begin{bmatrix} 0 & \mu_M e^{-2\pi\alpha_M t} & & & 0 \\ \mu_M e^{2\pi\alpha_M t} & 0 & \mu_{M+1} e^{-2\pi\alpha_{M+1} t} & & \\ & \mu_{M+1} e^{2\pi\alpha_{M+1} t} & 0 & \mu_{M+2} e^{-2\pi\alpha_{M+2} t} & \\ & & \mu_{M+2} e^{2\pi\alpha_{M+2} t} & 0 & \\ 0 & & & & \ddots \end{bmatrix} \begin{bmatrix} C_M(t) \\ C_{M+1}(t) \\ C_{M+2}(t) \\ C_{M+3}(t) \\ \vdots \end{bmatrix}$$

$$\alpha_J = 2\Delta B(J+1) - 4D_v(J+1)^3 \quad \mu_J = \mu_0 \sqrt{\frac{(J+1)^2 - M^2}{(2J+1)(2J+3)}} \quad (3)$$

この近似は $\Delta B=0, D_v=0$ の理想的な条件下において、時間発展が周期的に(1)式と(2)式の厳密解と一致することが松岡、市原らによって数値的に検証されている[1,2]。今回対象としている $\Delta B, D_v \neq 0$ の条件下においても、現実の分子で存在し得るいくつかのパラメータを用いて松岡が数値計算による妥当性の検証を事前に行われている。この近似は光周波数コムの各周波数ピークが、それと最も近接する周波数の回転遷移線のみに影響を及ぼすことを仮定することに対応する。平成 24 年度に行われた IMI 短期共同研究「量子ウォーク数理の新展開：物質制御へのアプローチ」では、数理モデル(3)について、【1】 $\alpha_J = 0$ 、すなわち $\Delta B=0, D_v=0$ の場合と【2】 $\mu_J = 1/2$ の場合の二つの理想的なケースについて、CTQW を用いた解析が行われた。

^{133}Cs と ^{135}Cs の同位体分離では、光周波数コムを用いて 2 原子分子であるヨウ化セシウム ^{133}CsI と ^{135}CsI を励起させ、その回転量子数 J の分布の違いを利用する。 J を量子ウォーカーの位置と考えると、 J が十分小のままで居続けることが、量子ウォーカーの局在化に対応し、励起が進んで、 J が次第に大き

くなることが量子ウォーカーの線形的な広がりに対応する。同位体分離は、 ^{135}CsI が局在化し、 ^{133}CsI が線形的に広がる（励起する）ことを利用して行われる。局在化と線形的広がりとは、量子ウォーカーの位置を表す確率変数に関する弱収束定理で得られる弱極限分布によって得られる。

2-3. 本研究の成果 1: CTQW による解析

本研究では、より詳しい解析を行うため、新たな関数 $b_J(t)$ を

$$b_J(t) = \exp(-i\beta_J t) C_J(t), \quad \beta_J = 2\pi\{\Delta B(J+1) - D_v J^2(J+1)^2\} \quad (4)$$

で導入する。この関数を用いて、(1)を書き直した方程式を CTQW として考えて解析を行った。(4)で定義される関数 $b_J(t)$ が満たす方程式はヤコビ行列を用いて表現できるので、直交多項式の理論を応用して弱極限分布が求まることが瀬川によって報告された。また、最近発見された散乱理論を用いる方法[2]でも証明可能であることが鈴木によって指摘され、西郷らによる量子確率論を用いた直交多項式の極限分布の導出法[3]との関係も議論された。さらに、極限分布の形状については、停留位相法の応用や数値計算の結果との適合性などが幅広く議論された。局在化については、結城らによる厳密解を用いた解析法が議論された。

2-4. 本研究の成果 2: DTQW による解析

上述の方法は、少なくとも数値計算上はロバストであることが確認されているが、交替 π パルス列を用いることで同位体分離がより高い精度で行えることが指摘されている。この場合に対応する電場 $\varepsilon(t)$ の場合は、DTQW を用いた近似が有効であることが松岡らによって報告されている[4]。本研究では、弱収束定理と弱極限分布の性質に関する検討が行われた。この場合も、弱収束定理は鈴木による散乱理論が有効であることが確認された。また、弱極限分布については、線形的広がりより「速い」弾道的な広がりをもつための必要十分条件が Szegő class によって与えられることが瀬川によって指摘された。弾道的広がりを呈することは、高い同位体分離が行えることを示唆する。

参考文献

- [1] L. Matsuoka, T. Kasajima, M. Hashimoto, and K. Yokoyama, Numerical Study on Quantum Walks Implemented on Cascade Rotational Transitions in a Diatomic Molecule, *J. Kor. Phys. Soc.*, 59, 2897 (2011).
- [2] A. Suzuki, Asymptotic velocity of a position-dependent quantum walk, *Quantum Inf. Process.*, 15, 103 (2016).

- [3] H. Saigo, H. Sako, The arcsine law and an asymptotic behavior of orthogonal polynomials, *Annales de l'Institut Henri Poincaré D*, 3, 405 (2016).
- [4] L. Matsuoka and K. Yokoyama, Physical Implementation of Quantum Cellular Automata in a Diatomic Molecule, *J. Comput. Theor. Nanosci.*, 10, 1617 (2013).

3. 講演の概要

3-1. 2017年7月24日 「問題を共有」

13:00-14:00 今野 紀雄 (横浜国大)

量子ウォーク入門 ーなぜ注目され続けているのかー

アブストラクト：量子ウォーク (quantum walk) は、ランダムウォークの量子版として導入されたモデルであるが、線形的な広がり、局在化、逆釣鐘型の極限分布など非常に異なる性質を有する。量子ウォークの本格的な研究が始まったのは、2000年前後であり、その後、組合せ論的手法、フーリエ解析、停留位相法、母関数法など様々な手法で理論的側面は明らかになりつつある。一方、量子ウォークの実現方法の種々の提案や応用、例えば、強相関電子系、トポロジカル絶縁体、放射性廃棄物低減、光合成、量子探索、グラフ同型問題、場の理論なども盛んに研究されている。本講演では、量子ウォークについて、数理的構造を主にその魅力を概説し、他の講演の入門編としたい。 参考文献：『量子ウォーク』今野紀雄 (森北出版, 2014)

14:20-15:20 横山 啓一 (日本原子力研究機構)

量子ウォークとレーザー同位体分離

アブストラクト：放射性廃棄物の処理に関連した技術課題として重元素の精密同位体分離がある。量子ウォークの特徴を利用することで精密かつ高効率な重元素のレーザー同位体分離が実現するかもしれない。その実現性・拡張性を検証していくために原理の洗練と拡張が望まれている。例えば、実装は比較的容易だが選択性に限界がある「連続時間量子ウォーク型」のレーザーパルス波形と、実装は難しいが完全な選択が可能で「離散時間量子ウォーク型」のレーザーパルス波形が見出されている。これらの中間的なレーザーパルス波形の探索や多次元

化の研究が今後重要になると思われる。講演では、関連する研究の背景と現状、今後の展開について紹介したい。

3-2. 2017年7月25日 「問題の解決」

9:30-10:20 松岡 雷士 (広島大)

光パルス列を用いた分子回転励起における4つの局在化とその統合へのアプローチ

アブストラクト：二原子分子はその回転周期と同期する光パルス列を照射されることにより、回転ポピュレーション分布全体の大規模な励起「量子共鳴」が誘起されることが知られている。回転周期には同位体依存性があるため、光パルス列の照射間隔を制御することにより、特定の同位体のみを回転励起させるプロセスを起点とする同位体分離法の開発が期待できる。この手法が既存のレーザー法よりも優れている点は、エネルギー的に混じり合った多数の量子準位に分布する分子集団を一斉に高効率選択できることにある。レーザー同位体分離の効率化という具体的な工学的問題を考えることは、理想的な事後分布から実装すべき光相互作用を設計する逆問題を解くことに相当する。しかしながら光パルス列による二原子分子の回転励起については実際の実験条件を模擬した数値計算が行われているだけであり、理想的な分離を設計するための理論的基盤は当初全く整備されていなかった。我々は光パルス列による回転励起が相互作用方程式の単純化を経て基本的な連続時間量子ウォークに帰着できることを示して以来、量子ウォークに関する性質や定理を応用する形で分子回転励起とそれを妨げる局在化にアプローチしてきた。現在、分子回転励起において発生する局在化の原因は物理的に4つであることがわかっている。パルス間隔不整合（局在化1）と遠心力歪み（局在化2）は遷移行列の対角項に起因する局在化であり、パルスの強度に応じて局在化の範囲が変化する。一方で遷移強度の漸近的なゼロへの減少（局在化3）と遷移強度の急激な変化（局在化4）は非対角項に起因する局在化であり、パルス強度に局在化の範囲が依存しない。我々はそれぞれの局在化に対して独立した数理解析を行うことで性質を明らかにし、究極的には全ての効果を統一して取り扱う理論の構築を目指している。本講演ではまず分子回転励起の理論を量子ウォーク数理解析の立場から再構築し、これまでの横山、市原、瀬川、西郷、今野、尾畑、小栗栖らとの共同研究の流れを概観しつつ、量子共鳴と4つの局在化に関する数理解析の進捗と課題について文字通り地図を示しつつ議論する。

10:30-11:20 鈴木 章斗 (信州大)

一般化された離散フーリエ変換と量子ウォークの極限分布

アブストラクト：並進対称（空間一様）な量子ウォークの時間発展は、フーリエ変換を用いて対角化されるので、極限分布が容易に計算できる。並進対称性をもたない量子ウォークでも、空間遠方で並進対称性な量子ウォークに十分よく近似されるような場合は、一般化フーリエ変換を用いて極限分布が計算可能である。本講演では、一般化フーリエ変換の構成法をスペクトル・散乱理論の観点から外観し、一般化フーリエ変換を用いた極限分布の計算方法を解説する。

3-3. 2017年7月26日 「将来の課題」

9:30-10:00 結城 謙太 (広島大)

遷移行列の対角成分に由来する連続時間量子ウォークの局在化の数理解析

アブストラクト：光パルス列による二原子分子回転励起におけるパルス間隔不整合と遠心力歪みの効果は、相互作用を連続時間量子ウォークとして捉えた際の遷移行列の対角成分の効果に帰着することが出来る。これらの局在化の効果は松岡の統一パラメータによって正確に評価できることが既に示されているが、現在のところ経験的・数値的なパラメータでしかなく、理論的な根拠が不十分な状況となっている。本講演では対角成分に由来する局在化に関するより厳密な数理解析についての現状と課題について報告する。

10:10-11:00 西郷 甲矢人 (長浜バイオ大)

量子ウォークと同位体分離の基礎数理—量子確率論の観点から

アブストラクト：同位体分離の数理を考えるためには、比較的高励起の状態における量子系の普遍的な振る舞いを考えることが欠かせない。そのための第一歩として、「一般化された量子調和振動子系」（「相互作用フォック空間」という概念で表現される系）における「量子古典対応」の数理を考えてみよう。講演者は数年来、量子確率論（古典的な確率論を非可換化して量子論を包含できるように一般化したもの）の立場からこの「量子古典対応」を研究し、直交多項式の普遍的な振る舞いや（主として整数格子上・連続時間）量子ウォークとの数理との関連を研究してきたが、ごく最近この研究と同位体分離というきわめて現実的な問題との関連が明らかとなってきた。本講演においては、量子確率論の基礎概念

の説明からはじめて、現在進行中の共同研究の入り口まで皆さんをお招きしようと思う。

11:10-11:50 井手 勇介 (神奈川大)

path 上の離散時間量子ウォークの固有解析

アブストラクト : path グラフ上の離散時間 2 状態量子ウォークについて、各頂点の量子コインの固有値が等しい場合の時間発展作用素の固有解析を紹介したい。この場合、対応する離散時間ランダムウォーク (出生死亡連鎖) を構成し、その推移確率行列の固有解析を用いて、量子ウォークの時間発展作用素の固有解析が可能である [1].

[1] C.-L. Ho, Y. Ide, N. Konno, E. Segawa, K. Takumi, A spectral analysis of discrete-time quantum walks with related to birth and death chains, arXiv:1706.01005

4. まとめ

本研究では、レーザー同位体分離の実用化に向けた課題を克服するために、理論的基盤となる量子ウォークの数理的研究が行われた。平成 24 年に開催された IMI 短期共同研究「量子ウォーク数理の新展開：物質制御へのアプローチ」で得られた成果をもとに、最近の研究成果も踏まえつつ、CTQW を用いた解析方法に関する幅広い検討がなされた。これにより、散乱理論や直交多項式、量子確率論などの関係が指摘され、厳密解を用いる方法なども議論された。また、より分離精度を高めるための新たな手法である交替 π パルスによる分離技術についても、DTQW の観点から検討を行い、Szego class との関係も議論された。公開プログラムでは、今後の新たな共同研究に繋がるシーズの探索も行われ、量子ウォークにまつわるさまざまな研究テーマが多方面から検討された。これらの共同研究を通じ、実用化に向けた技術的課題や今後行うべき実証実験などのロードマップも共有され、それに伴う数学的課題についても議論された。また、今後も実験と数学の両輪で実用化に向けた共同研究を継続していくことが確認された。