

イッテルビウム、ルテチウム、サマリウムの 対称電荷移行断面積

Symmetric Charge Transfer Cross Section of Ytterbium, Lutetium and Samarium

柴田 猛順 田村 浩司 小倉 浩一

Takemasa SHIBATA, Koji TAMURA and Koichi OGURA

先端基礎研究センター

Advanced Science Research Center

October 2008

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

JAEA-Research

本レポートは独立行政法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。
本レポートの入手並びに著作権利用に関するお問い合わせは、下記あてにお問い合わせ下さい。
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ホームページ (<http://www.jaea.go.jp>)
より発信されています。

独立行政法人日本原子力研究開発機構 研究技術情報部 研究技術情報課
〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根2番地4
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency
Inquiries about availability and/or copyright of this report should be addressed to
Intellectual Resources Section, Intellectual Resources Department,
Japan Atomic Energy Agency
2-4 Shirakata Shirane, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan
Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

© Japan Atomic Energy Agency, 2008

イッテルビウム、ルテチウム、サマリウムの対称電荷移行断面積

日本原子力研究開発機構先端基礎研究センター

柴田 猛順、田村 浩司⁺、小倉 浩一⁺

(2008年7月14日受理)

ランタノイド元素のうち、イッテルビウム、ルテチウム、サマリウムの対称電荷移行断面積を計算した。ランタノイド原子・イオン間の電荷移行反応は多くの場合、電荷移行する6s電子の内側に閉殻でない4fⁿ電子等があるため、共鳴電荷移行だけでなく非共鳴電荷移行の反応経路がある。低エネルギーでは共鳴移行反応のみ起こり、電荷移行断面積が小さい。ここで取り上げたイッテルビウム、ルテチウム、サマリウムは多くのランタノイド元素とは異なり、共鳴電荷移行のみが進行する。イッテルビウムは原子が4f¹⁴6s²、イオンが4f¹⁴6sで4f¹⁴が閉殻なので共鳴電荷移行となる。ルテチウムは原子が4f¹⁴5d6s²、イオンが4f¹⁴6s²で、電荷移行では5d電子が移行する。他の4f¹⁴、6s²はいずれも閉殻のため共鳴電荷移行のみ進行する。サマリウムは原子が4f⁶6s²、イオンが4f⁶6sで、原子の基底状態は⁷F₀でJ=0のため、原子とイオンが基底状態同士の電荷移行は共鳴電荷移行反応のみになる。電荷移行断面積のエネルギー依存性はいずれについても単調減少である。イッテルビウム、サマリウムの断面積は衝突エネルギーが1eV/amuで、それぞれ、203Å²、224Å²で、ジスプロシウム等の多くのランタノイド元素の電荷移行断面積より大きい。一方、ルテチウムではd電子が移行するため電荷移行断面積は衝突エネルギーが1eV/amuで65Å²と小さい。

Symmetric Charge Transfer Cross Section of Ytterbium, Lutetium and Samarium

Takemasa SHIBATA, Koji TAMURA⁺ and Koichi OGURA⁺

Advanced Science Research Center
Japan Atomic Energy Agency
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received July 14, 2008)

Cross sections of symmetric charge transfer are calculated for $\text{Yb}^+ + \text{Yb}$, $\text{Lu}^+ + \text{Lu}$ and $\text{Sm}^+ + \text{Sm}$. Symmetric charge transfer of lanthanoid elements in most cases has two main reaction paths which are resonant and non-resonant paths due to open 4f shell inside 6s electrons. At low impact energy, charge transfer cross sections are small because only resonant path is possible. On the other hand, the charge transfer of ytterbium and lutetium has only resonant path because ytterbium and lutetium atoms have closed 4f¹⁴ shells. Samarium atom has 4f⁶ electrons and total angular momentum of the ground state is 0. Therefore charge transfer of samarium has also only resonant path. The charge transfer cross sections of these atoms decrease monotonically with the increase of impact energy. The cross sections of ytterbium and samarium are 203 Å² and 224 Å² at the impact energy of 1eV/amu, respectively. These values are larger than the cross sections of many lanthanoid elements such as dysprosium. The cross section of lutetium is 65 Å² at the impact energy of 1eV/amu. This value is small due to d-electron transfer.

Keywords: Charge Transfer, Cross Section, Ytterbium, Lutetium, Samarium,
Lanthanoid Elements

⁺Advanced Photon Research Unit, Quantum Beam Science Directorate

目 次

1. はじめに	1
2. イッテルビウムの電荷移行断面積	1
3. ルテチウムの電荷移行断面積	3
4. サマリウムの電荷移行断面積	4
5. 考察	6
6. まとめ	6
参考文献	7
付録 ジスプロシウムの電荷移行断面積	12

Contents

1. Introduction	1
2. Charge Transfer Cross Section of Ytterbium	1
3. Charge Transfer Cross Section of Lutetium	3
4. Charge Transfer Cross Section of Samarium	4
5. Discussion	6
6. Conclusion	6
References	7
Appendix Charge Transfer Cross Section of Dysprosium	12

This is a blank page.

1. はじめに

電荷移行反応¹⁾は反応断面積が大きいのでプラズマプロセスを利用する多くの分野で重要な素過程である。同種原子・イオン間の対称電荷移行反応は衝突エネルギーが小さくても大きい断面積をもつので特に重要である。筆者等^{2~7)}は原子法レーザー同位体分離の研究開発の中で、電荷移行反応による目的同位体イオン減少の評価のため、原子法レーザー同位体分離の対象となるウランやランタノイド元素のガドリニウム、ネオジウム、セリウム、ジスプロシウムの対称電荷移行反応断面積の測定を行い、これらの遷移金属の電荷移行断面積がこれまで考えられてきたものより小さいことを示してきた。そして対称電荷移行反応がよく研究されてきたアルカリ金属、アルカリ土類金属と比較し遷移金属の電荷移行断面積が小さいことを次のように考えて説明してきた^{8~10)}。アルカリ金属原子-イオン間の電荷移行反応では閉殻構造の外側にある1個のs電子が移行する。移行電子のスピンの向きはどちらでも移行でき、生成する原子もイオンも基底状態であり、電荷移行でエネルギー変化がない共鳴電荷移行である。カルシウム、バリウム等のアルカリ土類金属や水銀は、閉殻構造の外側に原子は2個のs電子、イオンは1個のs電子があり、電荷移行時には、原子の2個のs電子のうちイオンのs電子とはスピンの向きが異なるs電子が移行できる。電荷移行で原子よりs電子が抜けてできるイオンはスピンの向きによらず基底状態の 2S であり、この場合も共鳴電荷移行である。これに対し、遷移金属の一例として図1に電子配置が $4f^4s^2$ のネオジウムの電荷移行反応を示す。このとき原子からs電子が抜けてできるイオンはその内部が閉殻構造でなくその角運動量 J_1 が0でないため生成イオンの角運動量は $J_1+1/2$ または $J_1-1/2$ のいずれかになる。 $J_1+1/2$ または $J_1-1/2$ の状態のどちらか基底状態でこのとき共鳴電荷移行で他方は非共鳴電荷移行になる。ネオジウムの場合 $J_1-1/2$ の $7/2$ が基底状態、 $J_1+1/2$ の $9/2$ が励起状態である。衝突エネルギーが十分高い時は、非共鳴経路も近共鳴となり反応が進行するが、数100eV以下の低エネルギーでは共鳴電荷移行反応のみ進行し断面積が小さくなっている。

さらに、他のランタノイド元素の対称電荷移行反応を考察したところ、多くの元素についてはネオジウムと同様に共鳴電荷移行と非共鳴電荷移行の反応経路をもつが、イッテルビウム、ルテチウム、サマリウムは、それぞれ次のようになって共鳴電荷移行反応のみが起こる。

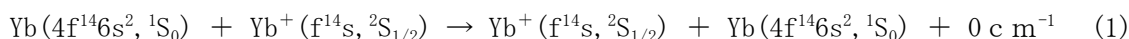
- (1) イッテルビウム：原子が $4f^{14}6s^2$ 、イオンが $4f^{14}6s$ で $4f^{14}$ が閉殻である。このため移行する電子のs電子の向きによらず共鳴電荷移行となり、アルカリ土類金属と同じである。
- (2) ルテチウム：原子が $4f^{14}5d6s^2$ 、イオンが $4f^{14}6s^2$ で、電荷移行では5d電子が移行する。 $4f^{14}$ 、 $6s^2$ はいずれも閉殻のため共鳴電荷移行のみ進行する。
- (3) サマリウム：原子が $4f^66s^2$ 、イオンが $4f^66s$ である。原子の基底状態は 7F_0 で $L=3$ 、 $S=3$ 、 $J=0$ で原子、イオンが基底状態同士の電荷移行は共鳴電荷移行反応のみになる。

ここでは、イッテルビウム、ルテチウム、サマリウムの対称電荷移行反応の反応経路を考察し、その断面積を求めてみた。また、イッテルビウム、ルテチウム、サマリウムと他の多くのランタノイドと比較のため、付録にジスプロシウムの対称電荷移行断面積の計算結果も示した。

2. イッテルビウムの電荷移行断面積

イッテルビウムは原子が $4f^{14}6s^2$ 、イオンが $4f^{14}6s$ で $4f^{14}$ が閉殻である。このためイッテルビウ

△の電荷移行は



で、移行する電子の s 電子の向きによらず共鳴電荷移行となり、アルカリ土類金属と同じである。

共鳴電荷移行は



で ΔE が 0 のときである。 M_A^+ 、 M_B 、 M_A 、 M_B^+ がすべて基底状態にあれば ΔE は 0 で共鳴電荷移行である。同じ元素の原子・イオン間の電荷移行の多くの場合が共鳴電荷移行反応である。

共鳴電荷移行断面積の計算には、衝突しているときの原子 M とイオン M^+ がつくる M_2^+ 分子の反対称状態および対称状態のエネルギー ϵ_u と ϵ_g の差 $\Delta(R)$ が電子の飛び移り確率に相当するので重要である。ここで R は原子 M とイオン M^+ の核間距離である。 $\Delta(R)$ の計算には、Smirnov¹¹⁾ や Bardsley 等¹²⁾ により行われている漸近法を用いた。電荷移行で移行する電子が s 電子の場合、その波動関数を、

$$\varphi(r) = \frac{1}{4\pi} u_0(r) \quad (3)$$

$$u_0(r) = q \left(1 + \frac{p}{r} + \dots \right) r^{\nu-1} e^{-\zeta r} \quad (4)$$

で近似する。ここでイオン化ポテンシャルが I のとき、 $\zeta = (2I)^{1/2}$ 、 $\nu = 1/\zeta$ 、

$p = -(1/2)\nu^2(\nu-1)$ 、 q は漸近規格化定数である。このとき、

$$\Delta(R) = \frac{1}{4} R \left(\frac{4}{e} \right)^\nu u_0^2 \left(\frac{R}{2} \right) \left[1 + \frac{\nu^2}{R} \left(\frac{3}{2} \nu - 1 \right) \right] \quad (5)$$

となる。イッテルビウムのイオン化ポテンシャル¹⁴⁾ 6.25394eV より $\zeta = 0.6780$ 、 $\nu = 1.475$ で漸近規格化定数の q は Fischer¹³⁾ が計算したハートレーフオック波動関数に r の大きいところで合わせるが、イッテルビウムの 6 s 電子の q は $r = 10$ (原子単位) であわせ $q = 0.755$ として、 $\Delta(R)$ を計算した。

電荷移行断面積 σ は $\Delta(R)$ から Smirnov¹⁵⁾ が与えた次の式

$$\sigma = (1/2) \pi R_0^2 - \pi^3 / (24\zeta^2) \quad (6)$$

を用いて簡単に求めた。ここで R_0 は次の方程式

$$\left(\pi R_0 / 2\zeta \right)^{1/2} \Delta(R_0) = 0.28\nu \quad (7)$$

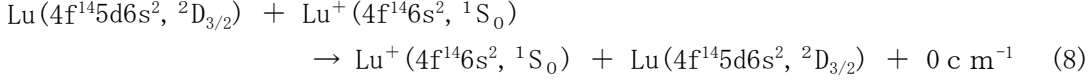
となる R_0 で、また ν は衝突する原子、イオン間の相対速度である。

計算結果を図 2 に示す。反応経路は共鳴電荷移行のみなので断面積のエネルギー依存性は単調

減少である。また、衝突エネルギーが 1eV/amu である 173eV では 203 \AA^2 でアルカリ土類金属のストロンチウムの電荷移行断面積¹⁶⁾と同程度である。

3. ルテチウムの電荷移行断面積

図 3 にルテチウム原子とイオンの基底状態近傍のエネルギー準位¹⁴⁾を示す。原子が $4f^{14}5d6s^2$ 、イオンが $4f^{14}6s^2$ である。ルテチウム原子とイオンの基底状態同士の電荷移行反応は、5d 電子の移行であり、その内側の $4f^{14}$ も外側の $6s^2$ も閉殻であり、反応経路は共鳴電荷移行のみである。



Sinha と Bardsley¹⁷⁾ はウランの電荷移行断面積を計算している。ウランの原子とイオンの電子構造は $5f^46d7s^2$ 、 $5f^47s^2$ で電荷移行では 6d 電子が移行する。Sinha と Bardsley は $5f^4$ の電子半径が小さく 6d 電子の移行に影響しないとして計算している。著者⁽¹¹⁾は $5f^4({}^4I_{9/2})$ と $6d_{3/2}$ 電子の結合による準位分裂があるので、非共鳴電荷移行も起こることを考慮して断面積を計算した。ルテチウムでは d 電子の共鳴電荷移行反応のみを考慮すればよく、Sinha と Bardsley¹⁷⁾ がウランの d 電子について計算したのと同じように行った。

(3)～(5)式は s 電子が移行するときの $\Delta(R)$ の計算を示したが、s 電子以外も含めた $\Delta_{lm}(R)$ の求め方も書いておく。電荷移行する角運動量が $l m$ の電子の波動関数を

$$\varphi(r) = Y_{lm}(\theta, \phi) u_0(r) \quad (9)$$

$$u_0(r) = q \left(1 + \frac{p}{r} + \dots \right) r^{\nu-1} e^{-\zeta r} \quad (10)$$

で近似する。ここで $p = (1/2)\nu[l(l+1) - \nu(\nu-1)]$ である。このとき $\Delta_{lm}(R)$ は

$$\Delta_{lm}(R) = (-1)^{l+m} \frac{(2l+1)(l+m)!}{4(m!)(l-m)!} \left(\frac{\nu}{2R} \right)^m R u_0^2 \left(\frac{R}{2} \right) \left(\frac{4}{e} \right)^\nu \times \left[1 + \frac{\nu}{2R} (\nu(3\nu-2) + m(2\nu-3m-3) - 2(l+m+1)(l-m)) \right] \quad (11)$$

となる。ルテチウムの電荷移行では $5d_{3/2}$ の電子が移行するが、 $5d_{3/2}$ 電子のように微細構造分裂が重要な場合分子軸方向の角運動量 Ω ごとに

$$\Delta_{j\Omega}(R) = \sum_{\mu m} \left(C_{m\mu\Omega}^{l\frac{1}{2}j} \right)^2 \Delta_{lm}(R) \quad (12)$$

となる。ここで $C_{m\mu\Omega}^{l\frac{1}{2}j}$ はクレブシューゴルダン係数である。

ルテチウムの電荷移行時に移行する 5d 電子の波動関数は、イオン化ポテンシャル¹⁴⁾ 5.42589eV より $\zeta = 0.6315$ 、 $\nu = 1.584$ で Fischer¹³⁾ の表の Lu の 5d 電子の数値に $r = 8$ (原子単

位) であわせ $q = 0.153$ とした。

電荷移行する $5d_{3/2}$ 電子は $j = 3/2$ で、 $5d_{3/2}$ 電子が 2 原子分子を作るので $\Omega = 3/2$ と $\Omega = 1/2$ の二つの状態がある。それぞれの $\Delta_{lm}(R)$ は(9)式より

$$\Delta_{3/2,3/2}(R) = \frac{4}{5}\Delta_{22}(R) + \frac{1}{5}\Delta_{21}(R) \quad (13)$$

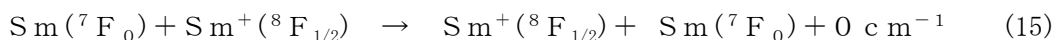
$$\Delta_{3/2,1/2}(R) = \frac{3}{5}\Delta_{21}(R) + \frac{2}{5}\Delta_{20}(R) \quad (14)$$

となる。 $\Delta_{3/2,3/2}(R)$ 、 $\Delta_{3/2,1/2}(R)$ を図 4 に示す。 $\Delta_{3/2,1/2}(R)$ をは $\Delta_{21}(R)$ と $\Delta_{20}(R)$ が(8)式の $(-1)^{l+m}$ のため正負が逆になっていることにより R が大きいところでは正であるが、 $R = 9$ (原子単位) より小さくなると負になる。 $\Delta_{3/2,3/2}(R)$ 、 $\Delta_{3/2,1/2}(R)$ より、(6)式と(7)式を用いて計算した共鳴電荷移行断面積を $\Omega = 3/2$ と $\Omega = 1/2$ それぞれについて図 5 に示す。(6)式と(7)式は $\Delta_{lm}(R)$ が R が増大すると指数関数的に減少するとして成り立っている。このため衝突エネルギーが数 100eV までしか計算できていない。 $\Omega = 3/2$ と $\Omega = 1/2$ にある確率の比は 1 : 1 なので、これらの平均値をとればよい。反応経路が共鳴電荷移行反応のみなので電荷移行断面積のエネルギー依存性は単調減少である。また、衝突エネルギーが 1eV/amu である 175eV で、断面積は 88 \AA^2 でイッテルビウム断面積の 1/2 より小さい。イッテルビウムでは移行電子が 6s 電子であるのに対し、ルテチウムでは移行電子が 5d 電子でその軌道半径が 6s 電子にくらべ小さいことのためである。なお、衝突エネルギーが数 100eV 以上は(6)式と(7)式を用いては計算できないが、衝突径数法などを用いれば計算できるであろう。

4. サマリウムの電荷移行断面積

サマリウムの電子配置は原子が $4f^6 6s^2$ 、イオンが $4f^6 6s$ で、ネオジウム、ジスプロシウム等の多くのランタノイド原子と同じである。図 6 に原子とイオンの基底状態近傍のエネルギー準位¹⁴⁾を示す。サマリウム原子は $L = 3$ 、 $S = 3$ で ${}^7F_{0, 1, 2, 3, 4, 5, 6}$ 、サマリウムイオンは $L = 3$ 、 $S = 7/2$ で ${}^8F_{1/2 \sim 13/2}$ と $L = 3$ 、 $S = 5/2$ で ${}^6F_{1/2 \sim 11/2}$ の二系列ある。イオンの ${}^8F_{1/2 \sim 13/2}$ のエネルギー準位は原子の ${}^7F_{0 \sim 6}$ とほぼ等しい。一方、イオンの ${}^6F_{1/2 \sim 11/2}$ のエネルギー準位は原子の ${}^7F_{1 \sim 6}$ に $1200 \sim 1300 \text{ cm}^{-1}$ 加えたものになっている。原子の $4f^6 6s^2$ から 6s 電子が抜けてイオンになるとき、6s 電子の内側にある $4f^6 ({}^7F_J)$ が保存されると考えられる。原子の基底状態 7F_0 は軌道角運動量 $L = 3$ とスピン角運動量 $S = 3$ が逆向きで $J = 0$ となっている。基底状態 7F_0 から 6s 電子が抜けると $J = 1/2$ のイオンが生成するが基底状態イオン ${}^8F_{1/2}$ イオンのみ生成されやすい。 $J = 1/2$ のイオンには ${}^6F_{1/2}$ と ${}^8F_{1/2}$ があるが、 ${}^6F_{1/2}$ は 7F_1 から生成されると考えられるためである。一方、 J が 1 以上の励起状態の原子 7F_J からは ${}^8F_{J+1/2}$ または ${}^6F_{J-J/2}$ ができ、ネオジウム等と同様である。

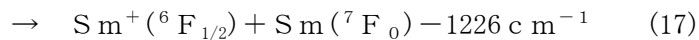
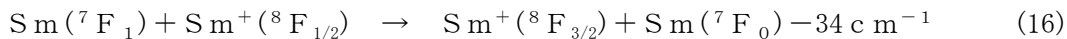
従って、サマリウムの原子とイオンの基底状態同士の電荷移行反応は



の共鳴電荷移行反応のみ起こり、イッテルビウムやアルカリ土類金属と同様になる。これは、たまたま軌道角運動量Lとスピン角運動量Sがともに3で全角運動量Jが0になったためである。

電荷移行断面積はイッテルビウムと同様に計算できる。イオン化ポテンシャル¹⁴⁾は5.6437eVなので $\zeta=0.644$ 、 $\nu=1.552$ 、 $r=10$ (原子単位)でFisher¹³⁾の波動関数に合わせ、 $q=1.85$ とした。この波動関数を用い、共鳴反応経路の断面積を計算した。計算結果を図7に示す。共鳴反応経路のみなのでイッテルビウムの場合と同様に断面積は大きくエネルギー依存性は単調減少である。またイッテルビウムよりイオン化ポテンシャルが小さいため、断面積の値はイッテルビウムよりも大きく、衝突エネルギーが1eV/amuである150eVでは 224 \AA^2 である。

一方、 $J=1$ の励起状態(292 cm^{-1})のサマリウム原子と基底状態のイオンとの電荷移行では



の二つの反応経路がある。いずれも近共鳴であり、ネオジム等の近共鳴の電荷移行断面積計算と同じようOlson¹⁵⁾が与えた一般断面積値を用いて計算した。

近共鳴電荷移行は



で ΔE が0でないときである。Olsonは $H_{12}(R) = (1/2) \Delta(E)$ となるRを R_c としRが R_c 近傍の

$$R_c - \Delta R_c \sim R_c + \Delta R_c$$

の領域で $H_{12}(R)$ を $\exp(-\lambda R)$ で近似して、近共鳴電荷移行断面積を数値計算で求めている。ここで $H_{12}(R)$ は(18)式の反応系と生成系間の電子系ハミルトニアン行列要素でほぼ $(1/2) \Delta(R)$ に等しい。結果を一般速度(reduced velocity) δ^{-1}

$$\delta^{-1} = \frac{2\lambda\nu}{\pi\Delta E} \quad (19)$$

の関数として一般断面積(reduced cross section) Q^*

$$Q^* = \frac{Q}{(1/2)\pi R_c^2} \quad (20)$$

の値を出している。ここで ν は相対速度、Olsonの結果を用いれば相対速度 ν より δ^{-1} 、 Q^* が求まり、これに $\Delta(E)$ から求まる R_c を用いて簡便に断面積 Q を得ることができる。

図2のネオジムの場合や、(16)(17)のようにいくつかの反応経路がある場合の計算法が確立されているとはいえない。ここでは、ネオジムやガドリニウムの断面積を計算したときと同じように、それぞれの反応経路の断面積を上記の(19)、(20)式を用いて求めた。これらにそれぞれの統計重率に比例した割合をかけて加えて全断面積を得た。

$\Delta(R)$ が $\Delta E=34 \text{ cm}^{-1}$ となる R_c は24.2(原子単位)、このとき $\lambda=0.170$ 、 $\Delta(R)$ が $\Delta E=1226 \text{ cm}^{-1}$ となる R_c は16.5(原子単位)、このとき $\lambda=0.153$ であった。これらの値を用いて $\Delta E=34 \text{ cm}^{-1}$ と $\Delta E=1226 \text{ cm}^{-1}$ の場合の近共鳴電荷移行断面積 σ_{34} と σ_{1226} を求めた。 $J=3/2$ のイオンが生成する場合と $J=1/2$ のイオンが生成する場合の割合は統計重率に比例して $4/(4+2)$ 、

2/(4+2)として、加え合わせた。結果を基底状態の同士の場合とともに図7に示す。サマリウムの原子とイオンが基底状態同士であるときと比較し、原子が励起状態にあると電荷移行断面積が大きく異なる。

5. 考察

ランタノイド原子・イオン間の電荷移行反応は多くの場合、電荷移行する6s電子の内側に閉殻でない4fⁿ電子等があるため、共鳴電荷移行だけでなく非共鳴電荷移行の反応経路があり、低エネルギーでは共鳴移行反応のみ起こり、電荷移行断面積が小さい。ここでは、イッテルビウムなどが共鳴電荷移行のみの反応経路しか持たないことを示し断面積を計算した。ランタノイド原子の化学的性質が最も外側にある6s電子が外れた状態、5d電子がある場合は5d電子も外れた状態で決められるのに対し、電荷移行反応は6s電子の移行であり、6s電子と内側にある4f電子との相互作用が4f電子の数により変わってくること、また5d電子の有無により変わってくるため、ランタノイド元素の間でも電荷移行反応に違いがある。

これまで、ランタノイドの電荷移行断面積の測定を衝突エネルギーが100~2000 eVでガドリニウム、ネオジウム、ジスプロシウム、セリウムについて行ってきた。電荷移行断面積を計算したガドリニウム、ネオジウム、ジスプロシウムについてはいずれも測定値は計算値の約1.5倍であった。共鳴電荷移行のみ起きるイッテルビウムは断面積が大きくまたそのエネルギー依存性もアルカリ金属やアルカリ土類金属と同じなので衝突エネルギーの増大で単調に減少するはずである。Ybの電荷移行断面積の測定はまだなされていないが、測定を行えばこれまでの計算手法の確証、実験手法の確認にもなると思われる。サマリウムの基底状態同士の原子・イオン間の電荷移行断面積が大きいこと示した。基底状態のイオンビームを作ることはレーザーによる共鳴イオン化で容易であるが、サマリウム原子は図6のようにエネルギーの低い励起状態が多いので、基底状態の原子ビームをつくることは難しい。このためサマリウムの基底状態同士の原子・イオン間電荷移行の実験を行うのは難しいであろう。

また、セリウムは原子が4f5d²、イオンが4f5d²である。セリウムの電荷移行は単純に一電子が移行するだけでは進行しない。セリウムの電荷移行断面積を衝突エネルギー100~2000 eVで測定し、約90 Å²と非常に小さい値が得られたのは単純な一電子移行ではないためと考えられる。測定値と比較するためには、2電子移行または配置間相互作用を考慮した原子波動関数を考慮した1電子移行で計算する必要があると思われる。

6. まとめ

ランタノイド元素のうち、イッテルビウム、ルテチウム、サマリウムの対称電荷移行断面積を計算した。ランタノイド原子・イオン間の電荷移行反応は多くの場合、共鳴電荷移行だけでなく非共鳴電荷移行の反応経路があり、低エネルギーでは共鳴移行反応のみ起こり、電荷移行断面積が小さい。ここで取り上げたイッテルビウム、ルテチウム、サマリウムは多くの他のランタノイド元素とは異なり、共鳴電荷移行のみが進行する。このため、電荷移行断面積のエネルギー依存性は単調減少である。また、イッテルビウム、サマリウムの断面積は衝突エネルギーが1eV/amuで、それぞれ、203 Å²、224 Å²で、アルカリ土類金属のバリウムの電荷移行断面積と同程度で、

ジスプロシウム等の多くのランタノイド元素の電荷移行断面積より大きい。一方、ルテチウムではd電子が移行するため電荷移行断面積は衝突エネルギーが1eV/amuで 65 \AA^2 と小さい。

本報告について貴重な議論をしていただいた北里大学医学部の小池文博准教授に感謝いたします。

参考文献

- (1) A. von Engel, 山本賢三監訳：“プラズマ工学の基礎”（オーム社, 東京, 1985）.
- (2) 小倉浩一、有沢孝、柴田猛順：真空 **35**, 301(1992).
- (3) K. Ogura and T. Shibata：質量分析 **41**, 37(1993).
- (4) 小倉浩一、柴田猛順：JAERI-Conf 95-022, 107(1995).
- (5) 足立肇、田村浩司、岡崎哲治、柴田猛順：JAERI-Research 98-030 (1998).
- (6) K. Tamura, H. Adachi, and T. Shibata：Jpn. J. Appl. Phys. **38**, 2973(1999).
- (7) 柴田猛順、小倉浩一：JAERI-Research 94-025 (1994).
- (8) T. Shibata and K. Ogura：J. Phys. Soc. Jpn. **64**, 3136(1995).
- (9) 柴田猛順、小倉浩一：JAERI-Research 95-025(1995).
- (10) 足立肇、田村浩司、岡崎哲治、小倉浩一、大場弘則、柴田猛順：JAERI-Research 99-029 (1999).
- (11) B. M. Smirnov: Soviet Phys. JETP **20**, 345(1965).
- (12) J. N. Bardsley, T. Holstein, B. R. Junker and S. Sinha: Phys. Rev. **A11**, 1911(1975).
- (13) C. F. Fischer: Atomic Data and Nuclear Data Tables **12**, 87(1973).
- (14) W. C. Martin, R. Zalubas and L. Hagan: “Atomic Energy Levels-The Rare-Earth Elements” U. S. Department of Commerce National Technical information Service PB-282 067(1978).
- (15) B. M. Smirnov: Soviet Phys. JETP **19**, 692(1964).
- (16) G. S. Panev, A. N. Zamilopulo, I. P. Zapesochnyi and O. B. Shpenik: Sov. Phys. JETP **40**, 23(1975).
- (17) S. Sinha and J. N. Bardsley: Phys. Rev. **A14**, 104(1976).
- (18) R. E. Olson: Phys. Rev. **A6**, 1822(1972).

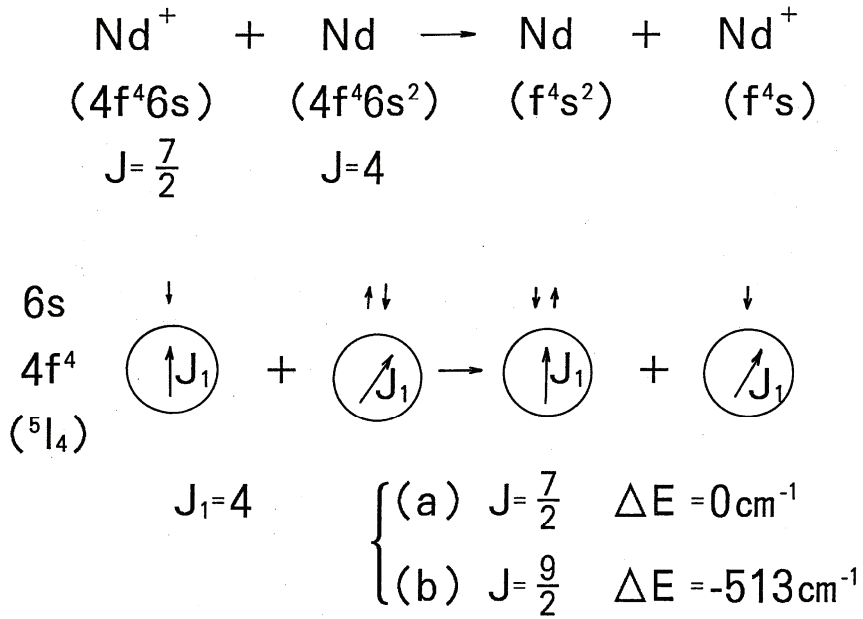


図1 ネオジムの電荷移行反応

(a) (b) 二つの反応経路があり、(a)は共鳴反応経路であり(b)は非共鳴電荷移行反応経路である。

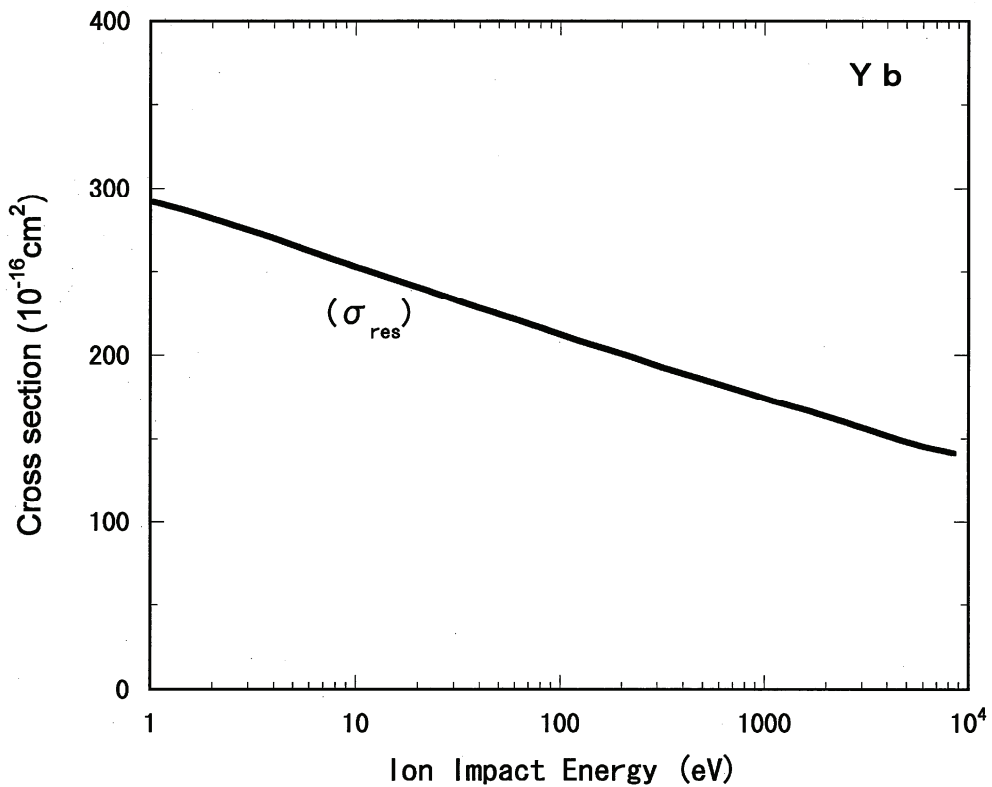


図2 イッテルビウムの電荷移行断面積

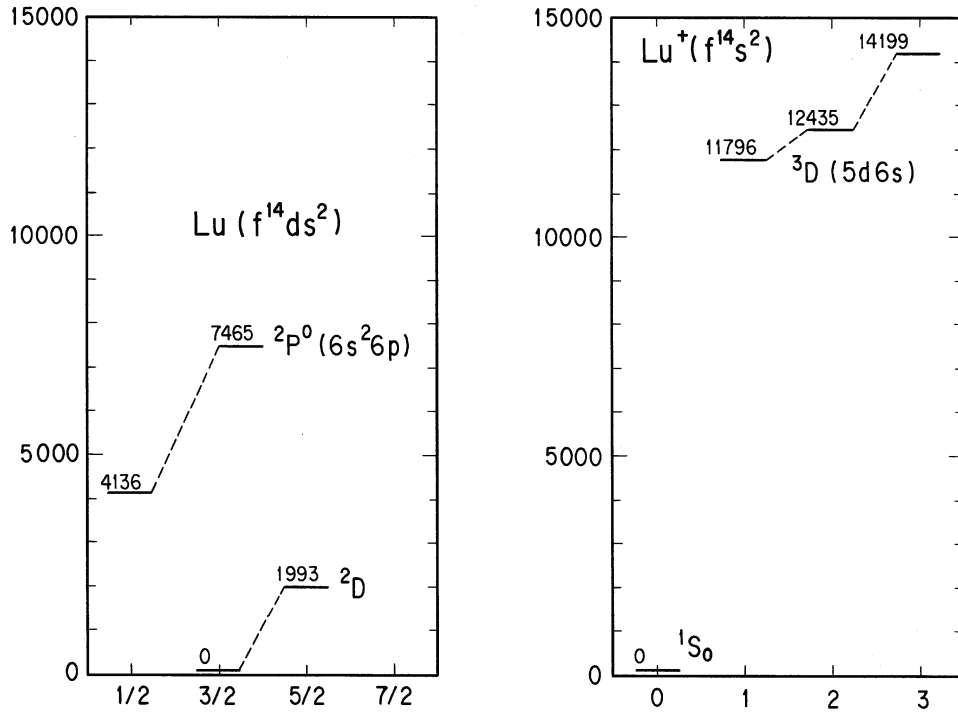


図3 ルテチウムの原子とイオンの基底状態近傍のエネルギー準位図

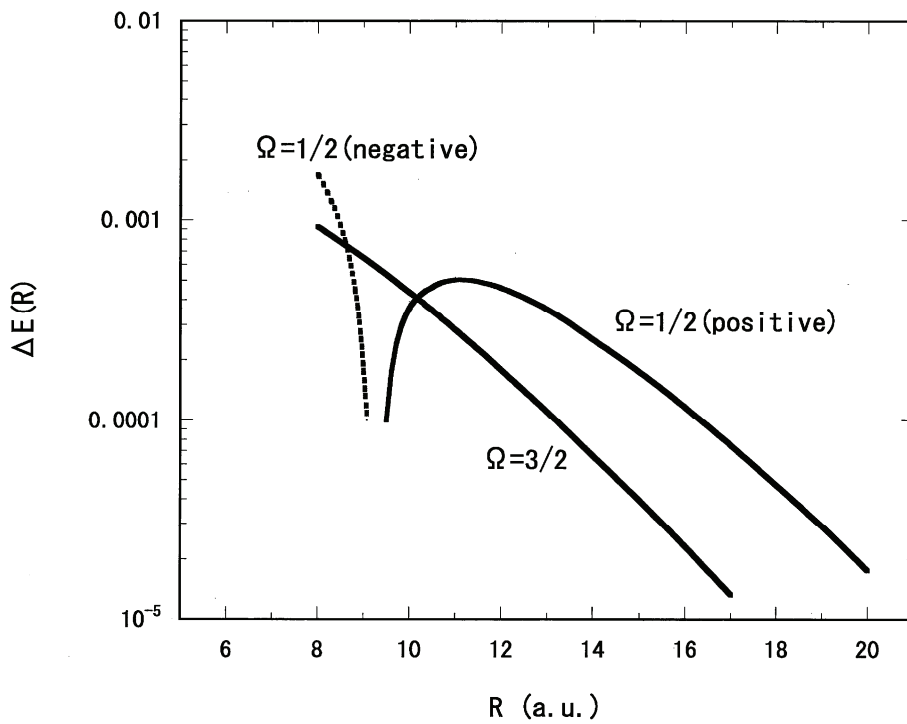


図4 ルテチウムの $d_{3/2}$ 電子による対称状態と反対称状態のエネルギー差

$$\Delta_{3/2,3/2}(R) \text{ と } \Delta_{3/2,1/2}(R)$$

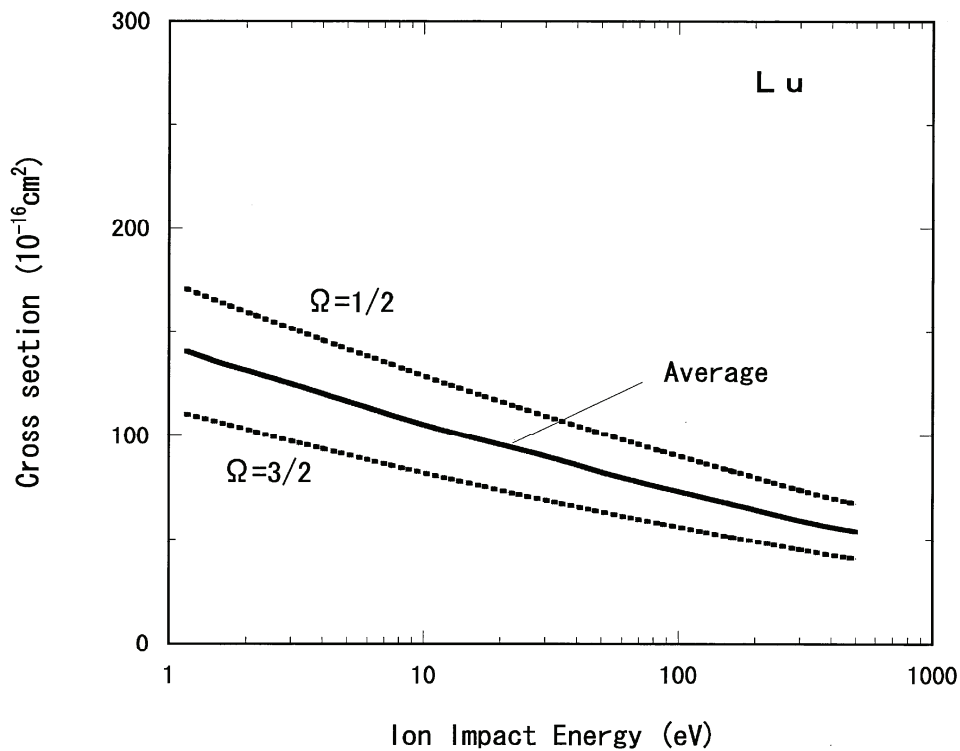


図5 ルテチウムの電荷移行断面積

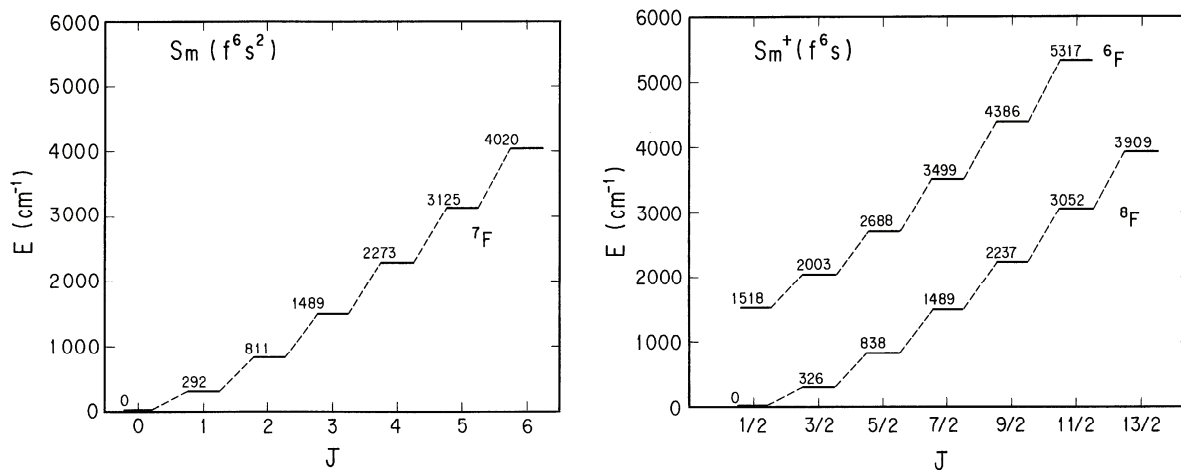


図6 サマリウムの原子とイオンの基底状態近傍のエネルギー準位図

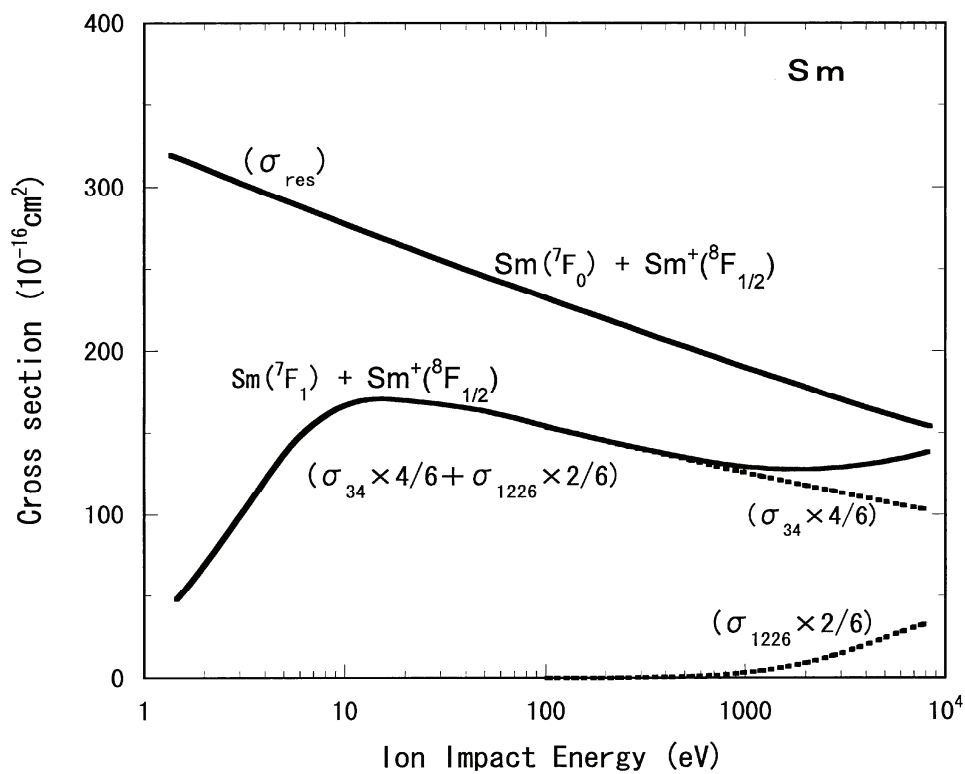
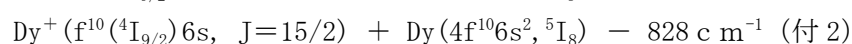
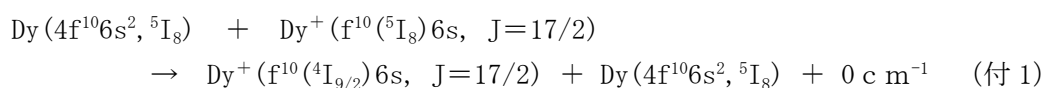


図7 サマリウムの電荷移行断面積

付録 ジスプロシウムの電荷移行断面積

ランタノイド元素の多くが原子は $4f^N 6s^2$ 、イオンは $4f^N 6s$ の電子配置を持ち、対称電荷移行では $6s$ 電子が移行する。電荷移行する $6s$ 電子の内側に閉殻でない $4f^N$ 電子があるため、共鳴電荷移行だけでなく非共鳴電荷移行の反応経路がある。本報告では非共鳴反応経路がないイッテルビウム、ルテチウム、サマリウムの対称電荷移行断面積の計算結果を示したが、他の多くのランタノイドと比較のため、本付録ではジスプロシウムの対称電荷移行断面積の計算結果を示す。この計算結果はすでにジスプロシウムの電荷移行断面積測定結果とともにすでに簡単に報告^{5,6)}しているが、未報告の計算方法、用いた波動関数なども含めて本付録で述べる。

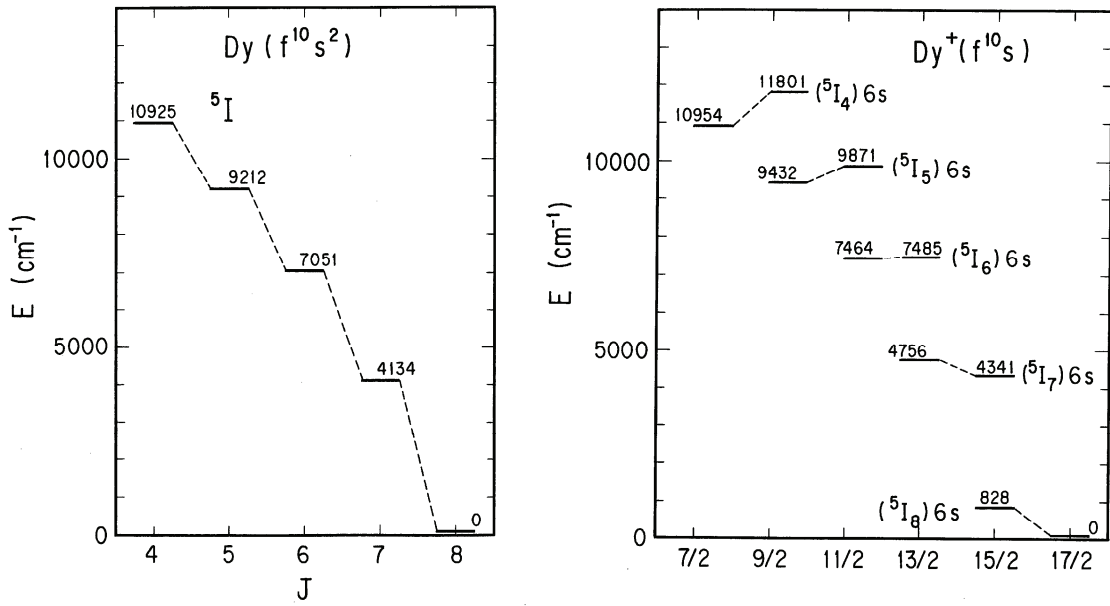
付録図1にジスプロシウムの原子とイオンの基底状態近傍のエネルギー準位¹⁴⁾を示す。基底状態の原子から $6s$ 電子が基底準位のイオンに移行すると、原子は基底状態の $Dy^+(f^{10}(^5I_8)6s, J=17/2)$ または励起エネルギーが 828 cm^{-1} の $Dy^+(f^{10}(^5I_8)6s, J=15/2)$ になる。このため図1のネオジウムと同様に、



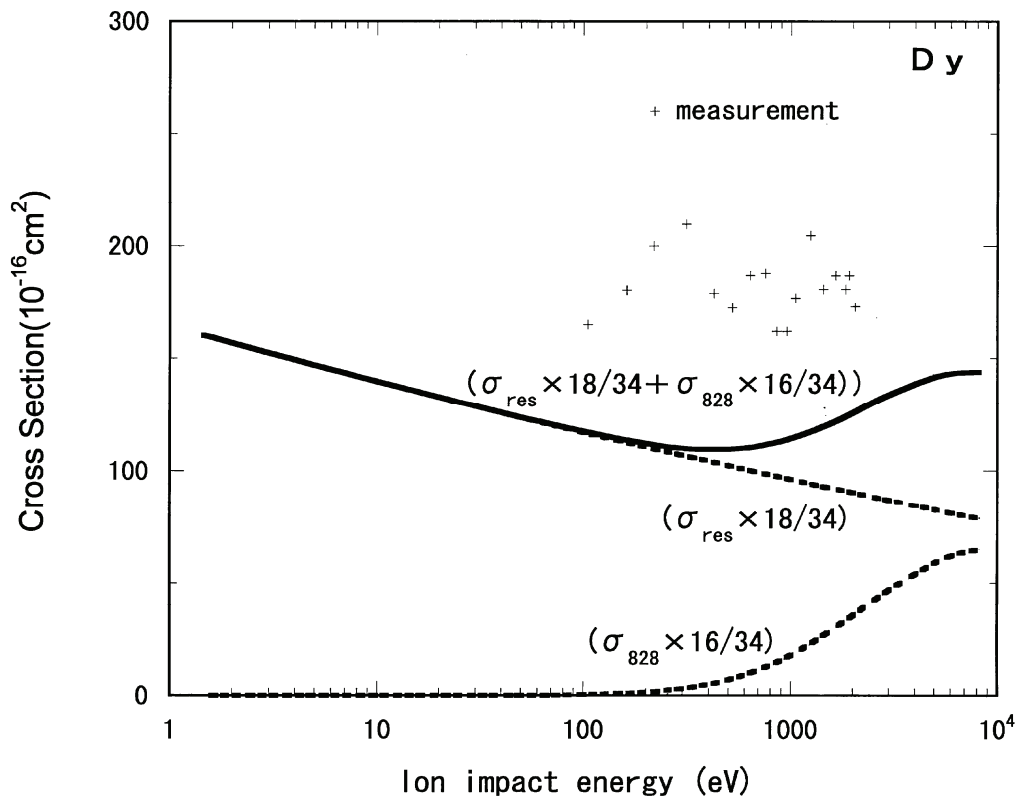
の二つの反応経路が考えられる。

ジスプロシウムの $6s$ 波動関数はイオン化ポテンシャル¹⁴⁾ 5.9389 eV より $\zeta = 0.661$ 、 $\nu = 1.514$ で、Fisher¹³⁾の波動関数に合わせ、 $q = 2.11$ とした。(5)式により $\Delta(R)$ を求め、これを用いて(6)、(7)式により共鳴のときの電荷移行断面積 σ_{res} を計算した。また、非共鳴のときの電荷移行断面積は Olson の求め方に従って計算した。ここで、 $\Delta E = 828 \text{ cm}^{-1} = 3.77 \times 10^{-3} \text{ eV}$ で $V_{AB}(R) = (1/2) \Delta E$ となる R より R_c を求めると $R_c = 17$ (原子単位) となる。この付近の $V_{AB}(R)$ を $\exp(-\lambda R)$ で近似すると $\lambda = 0.37$ となる。これらの値を用いて(19)式、(20)式より非共鳴の電荷移行断面積 σ_{828} を計算した。共鳴反応経路と非共鳴反応経路をとる割合は統計重率に比例させ、共鳴反応経路が $18/(18+16)$ 、非共鳴反応経路が $16/(18+16)$ として加え合わせて全体の電荷移行断面積とした。付録図2に計算結果を示す。衝突エネルギーが 1 eV/amu で、断面積は 112 \AA^2 で、イッテルビウムやサマリウムと比較し非常に小さい。

付録図2には、衝突エネルギー $100 \sim 2000 \text{ eV}$ での測定結果^{5,6)}も載せてある。測定値は $100 \sim 2000 \text{ eV}$ の全領域で $182 \pm 14 \text{ \AA}^2$ で計算値の $1.5 \sim 1.6$ 倍でばらつきも大きい。衝突エネルギーが増大しても減少していない。これは数 100 eV 以上では共鳴の(付1)の反応だけでなく非共鳴の(付2)の反応も起こっているためと考えられる。



付録図1 ジスプロシウムの原子とイオンの基底状態近傍のエネルギー準位図



付録図2 ジスプロシウムの電荷移行断面積

This is a blank page.

国際単位系 (SI)

表1. SI 基本単位

基本量	SI 基本単位	
	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質質量	モル	mol
光度	カンデラ	cd

表2. 基本単位を用いて表されるSI組立単位の例

組立量	SI 基本単位	
	名称	記号
面積	平方メートル	m ²
体積	立方メートル	m ³
速度	メートル毎秒	m/s
加速度	メートル毎秒毎秒	m/s ²
波数	毎メートル	m ⁻¹
密度 (質量密度)	キログラム毎立方メートル	kg/m ³
質量体積 (比体積)	立方メートル毎キログラム	m ³ /kg
電流密度	アンペア毎平方メートル	A/m ²
電界の強さ	アンペア毎メートル	A/m
(物質質量)の濃度	モル毎立方メートル	mol/m ³
輝度	カンデラ毎平方メートル	cd/m ²
屈折率	(数の) 1	1

表5. SI 接頭語

乗数	接頭語	記号	乗数	接頭語	記号
10 ²⁴	ヨタ	Y	10 ⁻¹	デシ	d
10 ²¹	ゼタ	Z	10 ⁻²	センチ	c
10 ¹⁸	エクサ	E	10 ⁻³	ミリ	m
10 ¹⁵	ペタ	P	10 ⁻⁶	マイクロ	μ
10 ¹²	テラ	T	10 ⁻⁹	ナノ	n
10 ⁹	ギガ	G	10 ⁻¹²	ピコ	p
10 ⁶	メガ	M	10 ⁻¹⁵	フェムト	f
10 ³	キロ	k	10 ⁻¹⁸	アト	a
10 ²	ヘクト	h	10 ⁻²¹	ゼプト	z
10 ¹	デカ	da	10 ⁻²⁴	ヨクト	y

表3. 固有の名称とその独自の記号で表されるSI組立単位

組立量	SI 組立単位			
	名称	記号	他のSI単位による表し方	SI基本単位による表し方
平面角	ラジアン ^(a)	rad		m ² ・m ⁻² =1 ^(b)
立体角	ステラジアン ^(a)	sr ^(c)		m ² ・m ⁻² =1 ^(b)
周波数	ヘルツ	Hz		s ⁻¹
力	ニュートン	N		m ² ・kg ⁻¹ ・s ⁻²
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m ²	m ⁻¹ ・kg ⁻¹ ・s ⁻²
エネルギー, 仕事, 熱量	ジュール	J	N・m	m ² ・kg ⁻¹ ・s ⁻²
工率, 放射束	ワット	W	J/s	m ² ・kg ⁻¹ ・s ⁻³
電荷, 電気量	クーロン	C		s ² ・A
電位差 (電圧), 起電力	ボルト	V	W/A	m ² ・kg ⁻¹ ・s ⁻³ ・A ⁻¹
静電容量	ファラド	F	C/V	m ⁻² ・kg ⁻¹ ・s ⁴ ・A ²
電気抵抗	オーム	Ω	V/A	m ² ・kg ⁻¹ ・s ⁻³ ・A ⁻²
コンダクタンス	ジーメン	S	A/V	m ⁻² ・kg ⁻¹ ・s ³ ・A ²
磁束	ウェーバ	Wb	V・s	m ² ・kg ⁻¹ ・s ⁻² ・A ⁻¹
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ²	kg ⁻¹ ・s ⁻² ・A ⁻¹
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A	m ² ・kg ⁻¹ ・s ⁻² ・A ⁻²
セルシウス温度	セルシウス度 ^(d)	°C		K
光照射度	ルーメン	lm	cd・sr ^(c)	m ² ・m ⁻² ・cd=cd
(放射性核種の)放射能	ベクレル	Bq	lm/m ²	m ² ・m ⁻⁴ ・cd=m ⁻² ・cd
吸収線量, 質量エネルギー分与, カーマ線量当量, 周辺線量当量, 方向性線量当量, 個人線量当量, 組織線量当量	グレイ	Gy	J/kg	m ² ・s ⁻²
	シーベルト	Sv	J/kg	m ² ・s ⁻²

- (a) ラジアン及びステラジアンの使用は、同じ次元であっても異なる性質をもった量を区別するときの組立単位の表し方として利点がある。組立単位を形作る際のいくつかの用例は表4に示されている。
 (b) 実際には、使用する際には記号rad及びsrが用いられるが、習慣として組立単位としての記号“1”は明示されない。
 (c) 測光学では、ステラジアンの名称と記号srを単位の表し方の中にそのまま維持している。
 (d) この単位は、例としてミリセルシウス度m°CのようにSI接頭語を併せて用いても良い。

表4. 単位の中に固有の名称とその独自の記号を含むSI組立単位の例

組立量	SI 組立単位		
	名称	記号	SI 基本単位による表し方
粘力のモーメント	パスカル秒	Pa・s	m ⁻¹ ・kg ⁻¹ ・s ⁻¹
表面張力	ニュートンメートル	N・m	m ² ・kg ⁻¹ ・s ⁻²
角速度	ニュートン毎メートル	N/m	kg ⁻¹ ・s ⁻²
角加速度	ラジアン毎秒	rad/s	m ² ・m ⁻¹ ・s ⁻¹ =s ⁻¹
熱流密度, 放射照度	ラジアン毎平方秒	rad/s ²	m ² ・m ⁻¹ ・s ⁻² =s ⁻²
熱容量, エントロピー	ワット毎平方メートル	W/m ²	kg ⁻¹ ・s ⁻³
質量熱容量 (比熱容量), 質量エントロピー (比エネルギー)	ジュール毎キログラム	J/K	m ² ・kg ⁻¹ ・s ⁻² ・K ⁻¹
熱伝導率	ジュール毎キログラム	J/(kg・K)	m ² ・s ⁻² ・K ⁻¹
体積エネルギー	ジュール毎メートル	J/m	m ² ・s ⁻² ・K ⁻¹
電界の強さ	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m・K)	m ² ・kg ⁻¹ ・s ⁻³ ・K ⁻¹
体積電荷	ジュール毎立方メートル	J/m ³	m ⁻¹ ・kg ⁻¹ ・s ⁻²
電気変位	ボルト毎メートル	V/m	m ² ・kg ⁻¹ ・s ⁻³ ・A ⁻¹
誘電率	クーロン毎立方メートル	C/m ³	m ⁻³ ・s ² ・A
透磁率	クーロン毎平方メートル	C/m ²	m ⁻² ・s ² ・A
モルエネルギー	ファラド毎メートル	F/m	m ⁻³ ・kg ⁻¹ ・s ⁴ ・A ²
モルエントロピー	ヘンリー毎メートル	H/m	m ² ・kg ⁻¹ ・s ⁻² ・A ⁻²
モル熱容量	ジュール毎モル	J/mol	m ² ・kg ⁻¹ ・s ⁻² ・mol ⁻¹
照射線量 (X線及びγ線)	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol・K)	m ² ・kg ⁻¹ ・s ⁻² ・K ⁻¹ ・mol ⁻¹
吸収線量	クーロン毎キログラム	C/kg	kg ⁻¹ ・s ² ・A
放射強度	グレイ毎秒	Gy/s	m ² ・s ⁻³
放射輝度	ワット毎ステラジアン	W/sr	m ² ・m ⁻² ・kg ⁻¹ ・s ⁻³ =m ² ・kg ⁻¹ ・s ⁻³
	ワット毎平方メートル毎ステラジアン	W/(m ² ・sr)	m ² ・m ⁻² ・kg ⁻¹ ・s ⁻³ =kg ⁻¹ ・s ⁻³

表6. 国際単位系と併用されるが国際単位系に属さない単位

名称	記号	SI 単位による値
分	min	1 min=60s
時	h	1h=60 min=3600 s
日	d	1 d=24 h=86400 s
度	°	1°=(π/180) rad
分	′	1′=(1/60)°=(π/10800) rad
秒	″	1″=(1/60)′=(π/648000) rad
リットル	l, L	1l=1 dm ³ =10 ⁻³ m ³
トン	t	1t=10 ³ kg
ネーパ	Np	1Np=1
ベル	B	1B=(1/2) ln10 (Np)

表7. 国際単位系と併用されこれに属さない単位でSI単位で表される数値が実験的に得られるもの

名称	記号	SI 単位であらわされる数値
電子ボルト	eV	1eV=1.60217733(49)×10 ⁻¹⁹ J
統一原子質量単位	u	1u=1.6605402(10)×10 ⁻²⁷ kg
天文単位	ua	1ua=1.49597870691(30)×10 ¹¹ m

表8. 国際単位系に属さないが国際単位系と併用されるその他の単位

名称	記号	SI 単位であらわされる数値
海里		1海里=1852m
ノット		1ノット=1海里毎時=(1852/3600)m/s
アール	a	1a=1 dam ² =10 ² m ²
ヘクタール	ha	1ha=1 hm ² =10 ⁴ m ²
バール	bar	1bar=0.1MPa=100kPa=1000hPa=10 ⁵ Pa
オングストローム	Å	1Å=0.1nm=10 ⁻¹⁰ m
バイン	b	1b=100fm ² =10 ⁻²⁸ m ²

表9. 固有の名称を含むCGS組立単位

名称	記号	SI 単位であらわされる数値
エルグ	erg	1 erg=10 ⁻⁷ J
ダイン	dyn	1 dyn=10 ⁻⁵ N
ポアズ	P	1 P=1 dyn・s/cm ² =0.1Pa・s
ストークス	St	1 St=1cm ² /s=10 ⁻⁴ m ² /s
ガウス	G	1 G ≡ 10 ⁴ T
エルステッド	Oe	1 Oe ≡ (1000/4π) A/m
マクスウェル	Mx	1 Mx ≡ 10 ⁻⁸ Wb
スチルブ	sb	1 sb =1cd/cm ² =10 ⁴ cd/m ²
ホト	ph	1 ph=10 ⁴ lx
ガリ	Gal	1 Gal =1cm/s ² =10 ⁻² m/s ²

表10. 国際単位に属さないその他の単位の例

名称	記号	SI 単位であらわされる数値
キュリー	Ci	1 Ci=3.7×10 ¹⁰ Bq
レントゲン	R	1 R = 2.58×10 ⁻⁴ C/kg
ラド	rad	1 rad=1cGy=10 ⁻² Gy
レム	rem	1 rem=1 cSv=10 ⁻² Sv
X線単位	X unit	1 X unit=1.002×10 ⁻⁴ nm
ガンマ	γ	1γ=1 nT=10 ⁻⁹ T
ジャンスキー	Jy	1 Jy=10 ⁻²⁶ W・m ⁻² ・Hz ⁻¹
フェルミ	f	1 fermi=1 fm=10 ⁻¹⁵ m
メートル系カラット		1 metric carat = 200 mg = 2×10 ⁻⁴ kg
トル	Torr	1 Torr = (101 325/760) Pa
標準大気圧	atm	1 atm = 101 325 Pa
カロリ	cal	
マイクロン	μ	1 μ = 1μm=10 ⁻⁶ m

