JAEA-Research
2009-052

アブレーションされたランタノイド原子の共鳴吸収分光(2)酸化セリウムから生成されたプルームの膨張ダイナミクス

(受託研究)

Resonance Absorption Spectroscopy for Laser-Ablated Lanthanide Atom (2) Expansion Dynamics of Laser Ablation on Cerium Oxide

(Contract Research)

宮部 昌文　大場 正規　飯村 秀紀　赤岡 克昭
丸山 庸一郎　若井田 育夫

Masabumi MIYABE, Masaki OBA, Hideki IIMURA, Katsuaki AKAOKA
Yoichiro MARUYAMA and Ikuo WAKAIDA

原子力基礎工学研究部門
環境・放射線工学ユニット

Division of Environment and Radiation Sciences
Nuclear Science and Engineering Directorate

February 2010

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, 2010

アブレーションされたランタノイド原子の共鳴吸収分光
(2)酸化セリウムから生成されたプルームの膨張ダイナミクス
（受託研究）

日本原子力研究開発機構

原子力基礎工学研究部門　環境・放射線工学ユニット

宮部 昌文・大場 正規・飯村 秀紀・赤岡 克昭・丸山 庸一郎・若井田 育夫

（2009年12月1日受理）

低除染 TRU 燃料の非破壊・遠隔分析技術開発における同位体分析条件の最適化を目的として、レーザーアブレーションにより生成したプルームの飛行特性を測定した。酸化セリウム試料をパワー密度 0.1GW/cm^2 の Nd:YAG レーザーの 2 倍高調波（532nm）でアブレーションし、プルームのフロー速度や膨張速度を共鳴吸収分光法により調べた。鉛直速度の測定には光学的 TOF 法、水平速度の測定にはドップラー分裂法をそれぞれ用いた。その結果、i）真空中の原子プルームが鉛直速度 3.5km/s の単一成分から成るのに対し、イオンプルームは原子プルームより早く、4.7km/s と 9.3km/s の 2 成分から成ることや、ii）異なる量子状態の粒子でも、これらの各成分の速度は殆ど変わらないこと、iii）水平速度は鉛直速度より約 20%遅いこと、iv）希ガス中のプルームの膨張はドラッグモデルに従って減速されること、v）同位体識別が可能な実験条件（He 圧力 0.6kPa, 経過時間 4μs）では、膨脹はほぼ停止し電離度も低下すること、などが分かった。

本報告書は、特別会計に関する法律（エネルギー対策特別会計）に基づく文部科学省からの受託事業として、日本原子力研究開発機構が実施した平成 20,21 年度「低除染 TRU 燃料の非破壊・遠隔分析技術開発」の成果です。

原子力科学研究所（駐在）：〒319-1195　茨城県那珂郡東海村白方白根2-4

JAEA-Research 2009-052

Resonance Absorption Spectroscopy for Laser-Ablated Lanthanide Atom (2) Expansion Dynamics of Laser Ablation on Cerium Oxide (Contract Research)

Masabumi MIYABE, Masaki OBA, Hideki IIMURA, Katsuaki AKAOKA, Yoichiro MARUYAMA, and Ikuo WAKAIDA

Division of Environment and Radiation Sciences
Nuclear Science and Engineering Directorate
Japan Atomic Energy Agency
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received December 1, 2009)

We have investigated propagation characteristics of the laser ablation plume in order to optimize experimental conditions for isotope analysis for low-decontaminated TRU fuel. A cerium oxide sample was ablated by 2nd harmonic radiation (532nm) of Nd:YAG laser at a power density of 0.1 GW/cm^2. The velocities of the ablated atomic and ionic species were measured with the resonance absorption spectroscopy. Flow velocity normal to the sample surface and horizontal expansion velocity were evaluated with optical TOF measurement and Doppler splitting measurement respectively. These measurements revealed that i) the ionic ablation plume in vacuum consists of two components having vertical velocities of 4.7 km/s and 9.3 km/s whereas the atomic plume has roughly a single component having velocity of 3.5 km/s, and ii) these velocities for particles in different excited states are almost the same, iii) horizontal velocity in vacuum is about 20% slower than the vertical one, iv) plume expansion in rare gas environment follows with a drag model, v) under an optimum condition for isotope analysis in helium ambient (0.6kPa, 4μs), the horizontal and vertical velocities of cerium atom are one order or more smaller than the initial velocities and also an ionization degree is significantly decreased.

Keywords： Laser Ablation, Atomic Absorption Spectroscopy, Cerium, Expansion Dynamics, Velocity Distribution, Doppler Splitting

---

This work was performed by Japan Atomic Energy Agency under contract with the Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology of Japan (MEXT).

目　次

1. はじめに 1
2. 測定方法と実験装置 3
　2.1　実験装置 3
　2.2　測定に用いた遷移 4
3. 結果と考察 5
　3.1　光学的 TOF 法による真空における鉛直速度分布 5
　3.2　各速度成分の起源に関する考察 12
　　3.2.1 局所電場加速とイオンの2成分分布 12
　　3.2.2 再結合と2成分分布 12
　　3.2.3 フロー速度の文献値との比較 13
　　3.2.4 量子状態による速度の違い 13
　　3.2.5 起源の同定のまとめ 14
　3.3　ドップラー分裂による水平速度分布 15
　3.4　雰囲気ガスによる鉛直速度の減速 21
　3.5　同位体分析の実験条件 26
4. 結論 27
謝　辞 27
参考文献 28

Contents

1. Introduction 1
2. Experimental 3
   2.1 Experimental setup 3
   2.2 Relevant spectroscopic data 4
3. Results and Discussion 5
   3.1 Vertical velocity in vacuum by optical TOF measurement 5
   3.2 Related process for each velocity component 12
      3.2.1 Electric field acceleration 12
      3.2.2 Ion- electron recombination 12
      3.2.3 Validity of flow velocity 13
      3.2.4 Variation of velocity distributions with internal states 13
      3.2.5 Assignment for each velocity component 14
   3.3 Horizontal velocity and its pressure dependency from Doppler splitting 15
   3.4 Deceleration of vertical expansion in gas environment 21
   3.5 Experimental conditions for isotope analysis 26
4. Conclusions 27
Acknowledgement 27
References 28

1. はじめに

使用済み燃料を再処理することで得られるプルトニウムや長半減期の TRU 元素、核分裂生成物等を混合して再加工した低除染 TRU 燃料は、その高い経済性や核拡散抵抗性から、次世代の原子炉燃料として注目されている[1]。一般に、燃料の不純物組成や同位体組成を知ることは、燃焼特性の予測や、核物質の保障措置の観点から重要であるが、低除染 TRU 燃料の場合、強い放射能のため、湿式分析法など既存の分析法の適用が難しいという問題がある。こうした燃料の分析を可能とする新たな遠隔・迅速分析法の開発が必要である。

アブレーションプルームにレーザー光を透過させて、含まれる基底状態や準安定状態の原子・イオン種を共鳴励起し、その透過光強度の時間変化を観測するレーザー共鳴吸収分光法は、低除染 TRU 燃料の遠隔分析に適用可能な方法である。これまでの研究では、TRU 燃料の模擬試料に酸化ガドリニウムや酸化セリウムを用い、プルームを冷却させるガス圧力とスペクトル線幅の関係などから、同位体分析に適した実験条件を調べた[2],[3]。その結果、ガドリニウムとセリウムでは実験条件に殆ど違いが無いことや、より最適な実験条件を探すためには、原子・イオン種の速度分布や空間密度分布の経時変化など、プルームの飛行特性に関する知識が不可欠であることが分かった。

アブレーションプルームの速度分布は、これまで、発光分光法[4]-[9]や発光撮像法[10],[11]、干渉分光法[12]、ラングミュアプローブ法[13]、質量分析法[14]-[17]など、様々な方法で調べられてきた。このうち発光法では、プルームの粒子の中でも発光を伴って緩和する励起状態の粒子種の情報が得られる。また、干渉法では、粒子を加速させる衝撃波の情報が得られ、静電プローブ法や質量分析法では、荷電粒子の情報が得られる。プルームのダイナミクスの全体像を把握するためには、これらの情報を総合的に解釈することが重要となる。

アブレーションプルーム中の粒子は、他の飛散粒子や雰囲気ガス分子との衝突によって、励起や緩和、電離や再結合を繰り返している。このうち、カスケード的な緩和によって生じる基底状態や準安定状態の粒子種は、これらの状態を選択的に励起できる共鳴蛍光法[18]-[22]や共鳴吸収法[23],[24]によって観測される。これまでのところ、これらの粒子の飛行特性が発光分光等から得られる高励起状態の粒子の特性と同じかどうかはよく分かっていない。共鳴蛍光法はシート状のレーザー光をプルームに照射し、蛍光粒子の 2 次元分布を撮像するのに便利であるが、強いプラズマ発光が障害となるアブレーション直後のプルームや、試料表面に近いプルームの測定には、レーザー共鳴吸収法の方が有利である。指向性が高く、強く偏光したプローブレーザー光を用いると、光検出器を試料から遠くに離し、異なる偏光成分を遮断することで、混入するプラズマ発光やアブレーションの散乱光を大幅に減らすことができ、かつ、集光光学系を試料付近に置く必要もないため、TRU 燃料分析で求められる遠隔性にも優れているためである。また吸収法は、光検出器の暗電流が問題にならない範囲でプローブ光を弱くできるので、波長分解能の高い連続発振レーザー光を用いてドップラー効果やシュタルク効果を精密分光することで、プルームの状態を敏感に把握できるからである。

Vega らは、真空中でアブレーションされた Ge イオンの速度が中性原子の数倍であることや、試料表面付近に、イオンより高速な中性原子が局在することを明らかにした[6]。Pietsch らは発光撮像分光法により、Cu 原子の水平速度が鉛直速度より小さいことを報告した[7]。また Harilal らは発光分光により、Sn イオンの真空中の速度が中性原子の約 2 倍であることや、ガスによる減速効果について

調べた[8],[9]。最近では Castano らが Al や Fe, Ni のイオン価数の異なる粒子が、電離や再結合によって別の飛散粒子の速度分布にサイドバンドとして現れることを示した[16],[17]。

一方、Martin らは、共鳴波長から僅かにデチューニングさせたプローブレーザーによる Mg イオンの共鳴蛍光像から、衝撃波によって半球状に広がる薄い層の中に 1 価イオンが偏在することを示した[19]。Pakhal らは、Al の発光の高速撮像により、アブレーション直後のプルーム周縁部に原子や 1 価イオンが偏在し、プルームのコアには 2 価や 3 価のイオンが多いことを明らかにした[11]。また Bushaw らは吸収分光により Sr の基底状態原子の飛行特性を調べ、吸収スペクトルのドップラー分裂から粒子の水平速度が得られることを示した[24]。さらに Matsuo らはフェムト秒レーザーによるアブレーションとシート状のプローブレーザー光を用いた 2 次元蛍光撮像法により、Sm の粒子速度が基板の電気伝導度に依存することを示し、表面の帯電によるイオンの加速機構について報告した[22]。

これらの研究により、真空中の飛行速度の大きさや、イオン価数による速度の違い、その違いを生じさせる加速機構などが明らかにされつつあるが、同位体分析が可能な実験条件付近における、基底状態や準安定状態の飛行特性の情報はまだ十分とはいえない。本研究ではこうした知見を得るために、主要な天然同位体が 2 つしか無く、実験条件の最適化が容易なセリウムを用いて、観測する遷移や試料から観測位置までの高さ、アブレーションから観測までの時間差等を変化させて、原子やイオンの基底状態及び準安定準位の飛行特性を調べた。

2. 測定方法と実験装置

2.1 実験装置

装置の模式図を図 1 に示す。プローブレーザー光源には、青紫レーザーダイオード（396nm 用: Nichia 製 NDHV310、405nm 用: Sharp 製 GH04020A2GE）を組み込んだ Littrow 型外部共振器波長可変レーザーを用いた。これを波長安定化 HeNe レーザー（Sios 製 SL02）を基準光源とするフリンジオフセットロック機構で制御し、発振周波数を安定化した。ロック時の周波数変動は 1MHz 以下である。出力強度はパワースタビライザー（Beoc 製 LPC-VISCX2）で制御した。また発振波長と発振モードはフィゾー干渉型波長計（HighFinesse 製 WS-Ultimate）とフリンジオフセットロックに用いた FSR300MHz、フィネス 100 のエタロン干渉計（CVI）によって常時モニターした。

Nd:YAG レーザー（Continuum 製 Surelite I-10）の 2 倍高調波（532nm）のパルス光は、10:1 ビームスプリッタおよびλ/2 波長板と偏光ビームスプリッタキューブを組み合わせて、約 1000 分の 1 まで減衰させた。この光を真空容器上部に伝送し、焦点距離 20cm の両凸レンズを通して、溶融石英窓から真空容器内に導入した。導入した光は回転・並進ステージに固定した試料に垂直に照射した。レンズホルダーはマイクロメーター付き 3 軸ステージにマウントし、表面から約 1mm の深さで焦点を結ぶようレンズの距離を調整した。試料表面からプローブ光軸までの高さは、試料ステージの並進機構によって最大 15mm までの範囲を 0.5mm 刻みで変化させて調整した。この際、焦点距離が変化しないよう、試料ステージの移動と連動してレンズの高さも変化させた。試料表面の YAG レーザーのビーム径は、照射試料やバーンパターン用紙の照射痕をレーザー顕微鏡（Olynpus 製 LEXT OLS3000）で観測することにより約 200μmφと評価した。また Nd:YAG レーザーのパルスエネルギーは波長板を回転させて調整し、入射窓直前の強度をパイロジュールメーター（Ophir 製 PE-25）を用いて測定した。本研究では、以前報告した同位体識別の最適条件を考慮して、パルスエネルギーを 0.15mJ（0.1 GW/cm^2）に設定した。

試料には酸化セリウムの圧縮ペレットを用いた。真空容器の真空度や雰囲気ガス圧力は、電離真空計、ピラニーゲージ、キャパシタンスマノメーター（MKS 製 Baratron）を用いて測定し、ガス導入用ニードルバルブを用いて調整した。雰囲気ガスには He, Ar の 2 種類の希ガスを用いた。圧力はターボポンプで排気した 10^{-4}Pa 程度の高真空状態から 10torr（1kPa）までの範囲で変化させた。発生させたアブレーションプルームは試料表面から最大 15mm 直上までの範囲で、半導体レーザーのプローブビームと交差させた。プローブビームの光軸は固定し、Nd:YAG レーザーの光軸を入射ミラーで変化させて、吸収信号が最大になるように交差位置を調整した。またプローブの位置分解能を高めるため、プローブ光も焦点距離 20cm の両凸レンズで集光し、プルームの中心で焦点を結ぶようにした。プルームを透過したプローブ光は、焦点距離 10cm の両凸レンズで並行ビームへ戻し、約 3m 伝送させた。この光は直線偏光なので、偏光 BS で反射させ、透過バンド 400nm±20nm の干渉フィルターを通すことで、混入する YAG レーザーの散乱光やプルームの発光を取り除いた後、帯域 200MHz のフォトレシーバー（Femto 製 HCA-S-200M-SI）で検出した。

プローブ光は波長が粒子の共鳴波長に同期されている場合、プルームがプローブビームを横切る瞬間だけ吸収され、透過光強度がパルス的に減少する。この波形をデジタルオシロスコープ（Lecroy 製 9374M）で数ショット積算して観測した。また数台のボックスカー積分器（SRS 製 SR250）を用いてゲートを遅延時間 0.5～50μs の範囲に設定し、信号強度を平均化してコンピュータ（Fujitsu 製

NE7/800）に記録した。プローブ波長をスキャンして波長と信号強度の相関を調べることで、遅延時間の異なる吸収スペクトルを同時に測定した。11GHz の周波数幅のスペクトルは約 1800 ショットを平均して測定した。

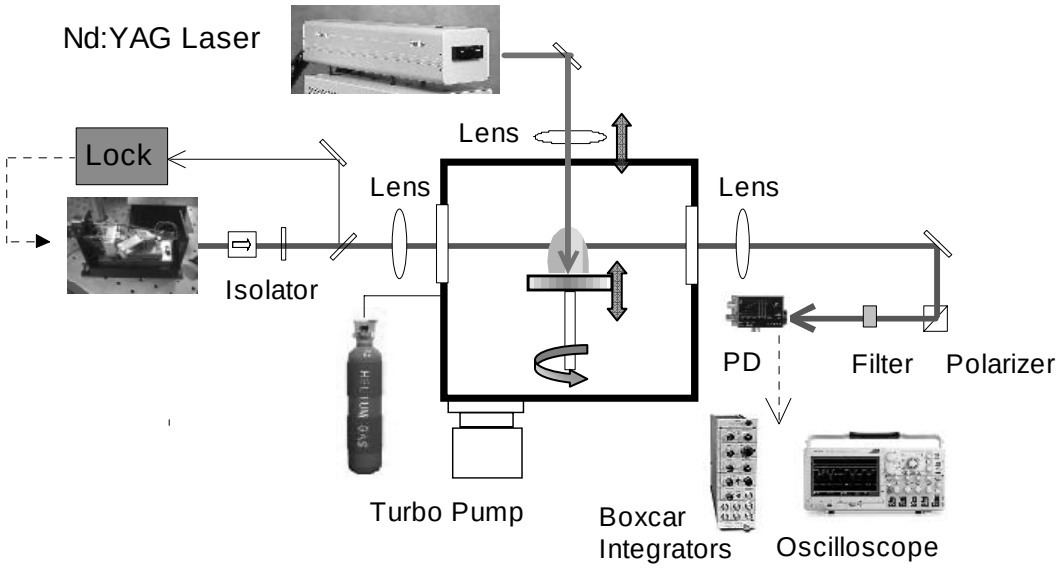

図 1　アブレーション共鳴分光実験装置のブロックダイアグラム

2.2 測定に用いた遷移

測定に用いたセリウムの原子及び 1 価イオンの遷移波長と振動子強度、上下準位のエネルギー、全角運動量 J 値[25]、上準位の励起寿命[26],[27]および遷移の同位体シフト（^{140}Ce-^{142}Ce）[28]を表 1 に示す。これらは、400nm 近傍の遷移のうち主に gf 値が 0.1 より大きいものから選んだ。なおこの波長範囲ではセリウムの 2 価イオンの分光データは報告されていない。

表1　測定に用いたセリウムの共鳴吸収線と分光データ

[1]中性原子

真空波長	gf	始状態	J_1	終状態	J_2	τ_2(ns)	IS(GHz)
406.1861	0.294	0.0	4.0	24619.3	4.0	17.3	2.4
395.8323	0.243	228.8	2.0	25492.1	3.0	14.6	2.4
393.5188	0.499	228.8	2.0	25640.6	3.0	15.7	-
395.7892	0.261	1279.4	4.0	26545.4	4.0	10.9	2.2
405.6982	0.931	1279.4	4.0	25928.3	5.0	18.4	2.7
395.7859	0.177	1663.1	3.0	26929.3	4.0	-	2.6
406.2947	0.537	4199.4	5.0	28812.0	6.0	-	-
395.0940	1.50	4455.8	6.0	29766.2	5.0	-	2.7

[2]1価イオン

真空波長	gf	始状態	J_1	終状態	J_2	τ_2(ns)	IS(GHz)
394.3267	0.660	0.0	3.5	25359.7	2.5	7.0	<0.3
405.4648	0.206	0.0	3.5	24663.1	4.5	7.3	<0.3
405.6132	0.275	2595.6	1.5	27249.7	2.5	8.5	-
395.3651	2.13	2641.6	3.5	27934.6	4.5	5.2	-
404.1895	1.73	3593.9	4.5	28334.8	4.5	6.0	-
404.3723	0.838	3995.5	3.5	28725.1	4.5	5.6	-
395.7398	1.27	4911.0	5.5	30180.1	6.5	5.8	-
394.5000	1.54	6389.9	4.5	31738.5	5.5	4.4	-
394.3861	6.27	6913.4	6.5	32269.3	7.5	5.3	-

3. 結果と考察

3.1 光学的 TOF 法による真空における鉛直速度分布

図 2 に測定した代表的な吸収スペクトルの例を示す。イオンの基底状態の遷移は同位体シフトが小さく ^{140}Ce と ^{142}Ce の吸収線が重なっているが、原子の基底状態の遷移は同位体シフトが大きく、両者が分離して観測できる。本研究ではプローブレーザーの波長は、同位体比が 88.48%と大きい ^{140}Ce の共鳴線に同調してロックした。ロック時の周波数変動は数時間で 1MHz 以下と評価され、吸収スペクトルの線幅（約 1GHz）に比べて十分小さい。

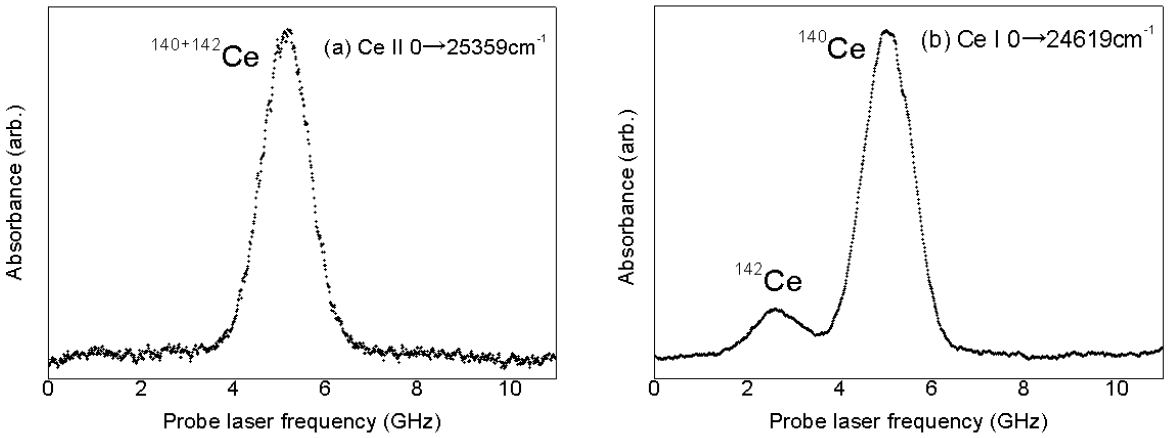

図 2　測定した吸収スペクトル（a）左 CeII 0→25359cm^{-1},（b）右 CeI 0→24619cm^{-1}

試料表面から鉛直方向に飛び出す原子やイオン種の速度分布は光学的 TOF 法によって測定した。これは高さの異なる観測位置でアブレーションプルームの吸収波形を測定し、それらを比較することでプルームの平均移動速度を求める方法である。移動途中の内部状態の変化や荷電状態の変化が小さい場合には、吸収ピークの現れる時刻と高さの関係から容易に速度を求めることができる。図 3 に 1x10^{-4}Pa 以下の真空中で 0.15mJ の YAG レーザー光を照射した場合の、試料表面からの高さが 0.5mm おきの、これらの粒子による透過率の時間変化曲線を示す。図中の数字は観測高さ（mm 単位）を表す。

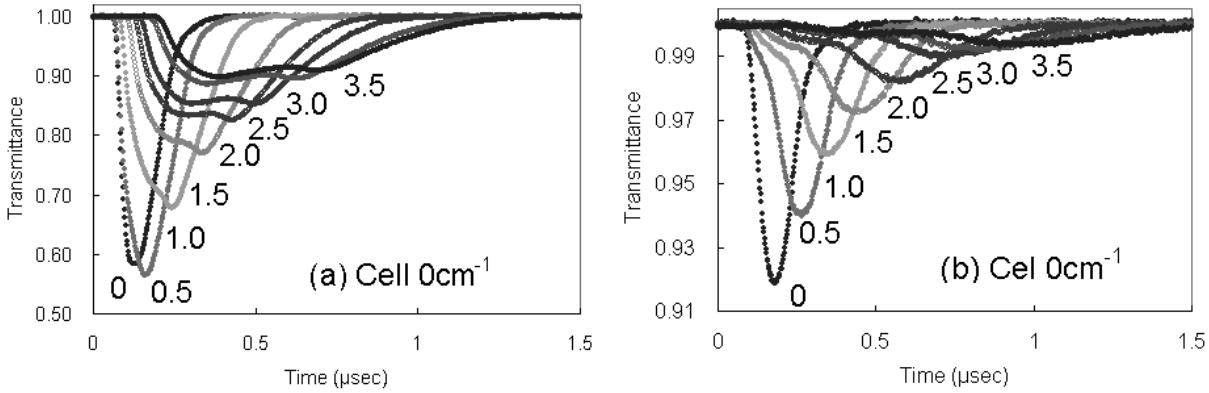

図 3　真空中の吸収パルス波形の高さ依存性（a）CeII 0→25359cm^{-1},（b）CeI 0→24619cm^{-1}

図 3 でイオンと原子の波形を比べると、原子の吸収ピークがイオンより遅いことが分かる。またイオンの波形は少なくとも速度の異なる 2 つのピークから成っており、表面から離れるほど高速成分の

割合が増している。このようなイオンの 2 成分分布は Cheung[23]や Rossa[18]、Hariral[8]らによるイオンの吸収、蛍光、発光分光でも報告されおり、相の爆発（phase explosion）による構造とされている[18]。一方、原子の波形にも小さな高速成分のこぶが認められるが、低速成分のピークに比べて小さいので、以下の基底状態の解析では 1 成分として扱う。

高さの異なる波形の強度変化が大きく、ピーク時刻の変化が小さい場合、最大吸収の起こる時刻にプルームの最密部分が通過するわけではなくなる。この場合、図 3 のピークの時刻と高さの関係から移動速度を算出すると誤差が大きくなるため、吸収量も考慮した解析が必要である。そこで、まず次のランベルトベール則と表 1 の gf 値を用いて、図 3 の吸収波形から高さ毎の粒子密度の相対値（正確には、プローブレーザーの視線方向の粒子数 Nl）の時間変化を求め、さらに、粒子密度の高さ分布を、経過時間毎にまとめ直すことで、プルームの鉛直方向の移動を視覚化した。

$$N\sigma l = \ln\left(\frac{I}{I_0}\right)$$ 但し N: 粒子密度　σ :吸収断面積（$\propto gf$ 振動子強度）　l:光路長

このようにして求めた 0.25 μ sec 毎の粒子密度の高さ分布を図 4（a）に示す。ここで●は基底状態のイオンプルーム、▲は基底状態の原子プルームを表している。表 1 に示した gf 値で割っており、縦軸は原子とイオンの密度比を正しく表している。再現性の確認のため、228cm^{-1} の準安定状態の原子プルームと、基底状態のイオンプルームで再測定した結果も図 4（b）に示す。こちらは 0.1 μ sec 間隔の変化を示している。これらの密度分布は、プローブレーザーの視線方向の吸収の積分値なので、試料面の法線方向だけでなく斜め方向に飛散する粒子も寄与しているが、それでも飛散粒子は比較的薄い層に密集して移動することが分かる。香川ら[29]のようにプルーム形状を球形と仮定してアーベル変換を行えば、さらに薄い層状の法線方向分布が得られると思われる。また、図 4（a）と（b）の分布は良く似ており、プローブレーザーの高さを変えて行った複数の波形測定の感度が一定で、密度分布が正しく再現されていると考えられる。

前述したように、原子プルームの主成分は 1 つであるのに対して、イオンプルームは 2 成分から成っている。また原子プルームはイオンの低速プルームの最密部分より少し後方を、最後尾が一致するように飛行している。このような飛行特性は金属試料や酸化物以外の化合物のそれとは異なるものである[30]。従って飛行特性には、試料の性状や物理特性だけでなく、化学組成や化学的性質も影響していると考えられる。例えば、酸化物試料のアブレーションで表面からスパッタされる初期粒子には、単体よりも、酸化物の分子・クラスターが多いと考えられる。それにも関わらず、金属試料と同程度の量の単体イオンや原子が観測されることは、プラズマ中で分子解離等の気相化学反応が起こっていることを示唆している。観測された速度分布にも、こうした気相化学反応の効果が反映されていると考えられる。これらの可能性については次節で議論する。

次にこれらの密度分布を次の 2 成分分布関数[31]で近似して、プルームの最大密度部分の移動速度（フロー速度）と、プルーム厚みの増加速度（膨張速度）を求めた。近似した密度分布を図 4（a）,（b）に実線で示す。原子については 1 成分、イオンについては 2 成分分布で、測定結果を良く再現できた。

$$f(x) = \sum_{i=1}^{2} A_i \exp\left(-\exp(-z) - z + 1\right)$$

但し　$z = \dfrac{x - x_0}{w}$　　x_0: 最大密度の表面からの高さ　w:プルームの厚さ

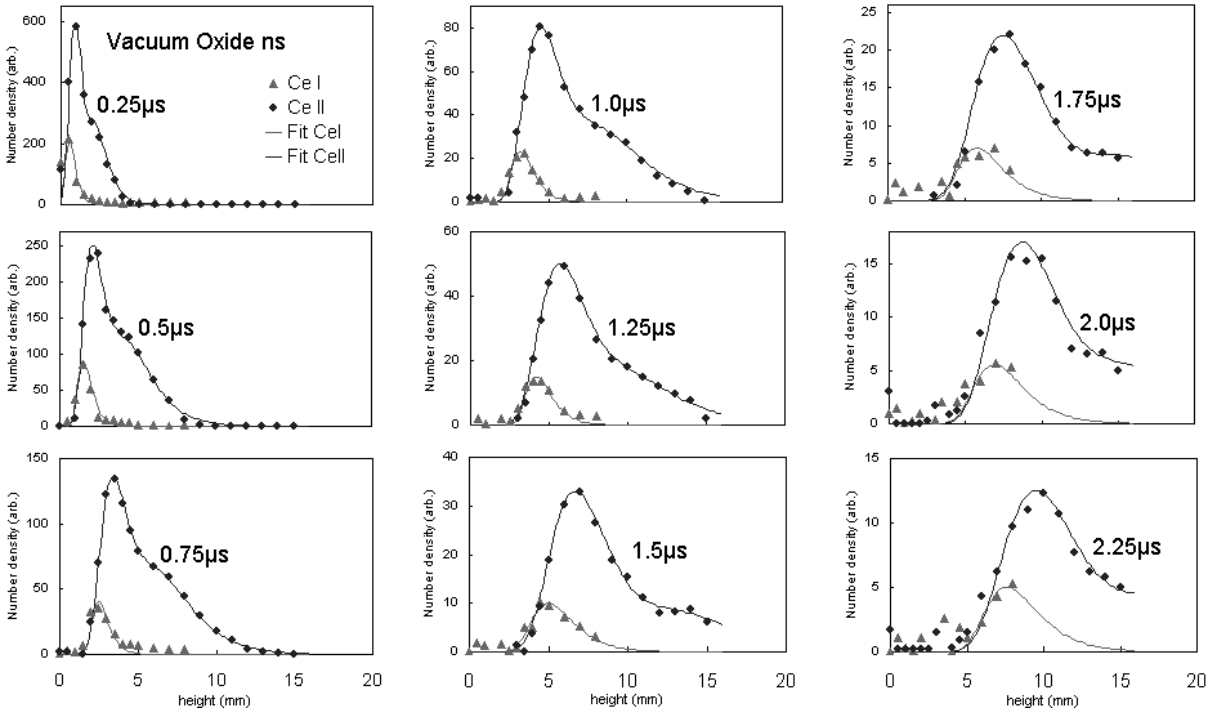

図 4（a） Ce プルームの空間密度分布（真空　原子:0cm^{-1} イオン:0cm^{-1}）

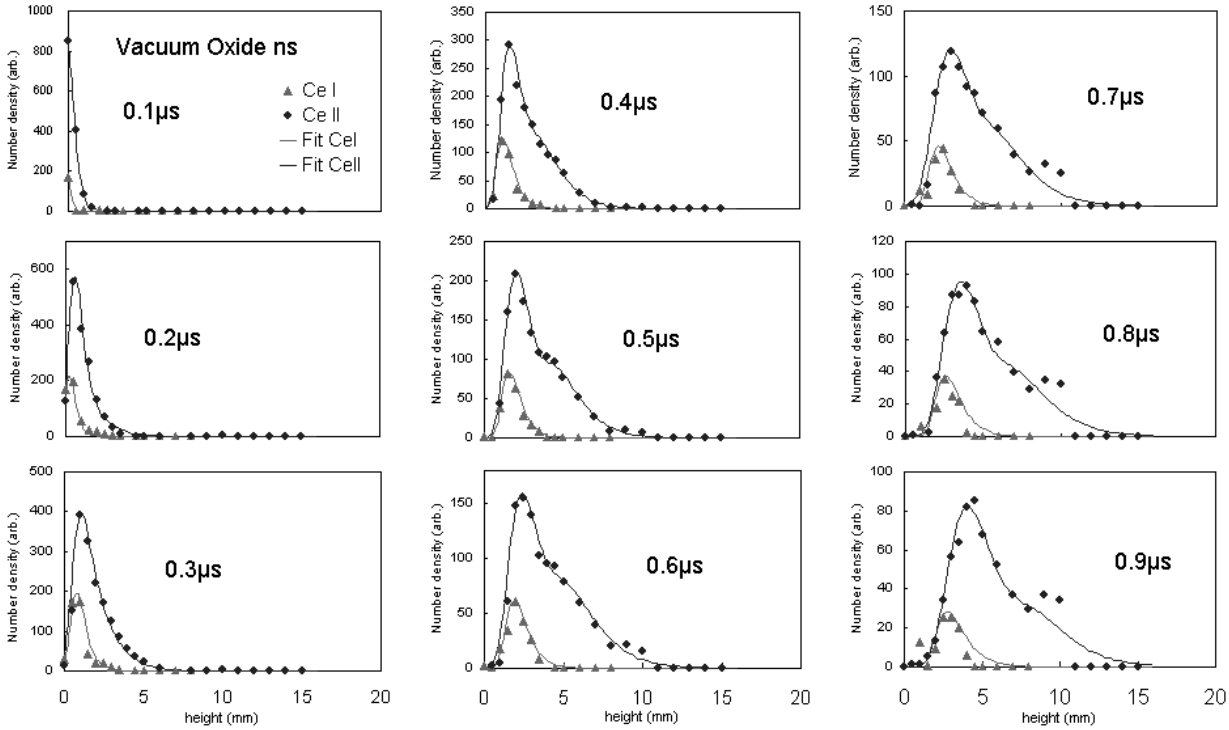

図 4（b） Ce プルームの空間密度分布（真空 原子:228cm^{-1} イオン:0cm^{-1}）

フィティングで得られた図 4（a）と（b）のパラメーターを図 5 と図 6 にそれぞれまとめて示した。(a）は Ce 原子、(b）は Ce イオンで、●はイオンの低速プルーム及び原子プルームの最密部分の高さ、▲はそのそれぞれのプルームの厚さ、◆はイオンの高速プルームの最密部分の高さを表している。それぞれの変化は直線的であり、真空中のプルームは自由膨張している事が分かる。図 5、図 6 でプルームの最密部分の上昇開始時間（release time）がゼロでないのは、アブレーションの初期膨張過程で起こる、①逆制動放射によるアブレーションエネルギーの吸収、②クヌーセン層の形成、③非定常断熱膨張（Unsteady Adiabatic Expansion）による加速の時間が無視できないためと思われる。同様の関係は、Pietsch らによる、希薄空気中での Cu 原子の発光撮像分光でも報告されている[7]。彼等によれば、アブレーションプルームの初期形成過程では、鉛直方向への 1 次元的な膨張（フロー）がまず起こり、その約 0.15 μs 後に 3 次元的な膨張が始まると報告されており、この時間は図 5、図 6 から得られる上昇までの所要時間（~0.1 μsec）に近い。

それぞれの点の直線回帰により、傾きからフロー速度の平均値を算出すると、原子は 3.5km/s（9eV）、イオンの低速成分は 4.7km/s（16eV）、高速成分は 9.3km/s（60eV）となり、2 つのイオン成分に約 2 倍の速度差があることや、原子がイオンの低速成分よりも遅いこと、イオンの低速成分と原子のプルーム厚さの変化速度（膨張速度）はそれぞれのフロー速度の 4 分の 1 程度であることなどが分かった。

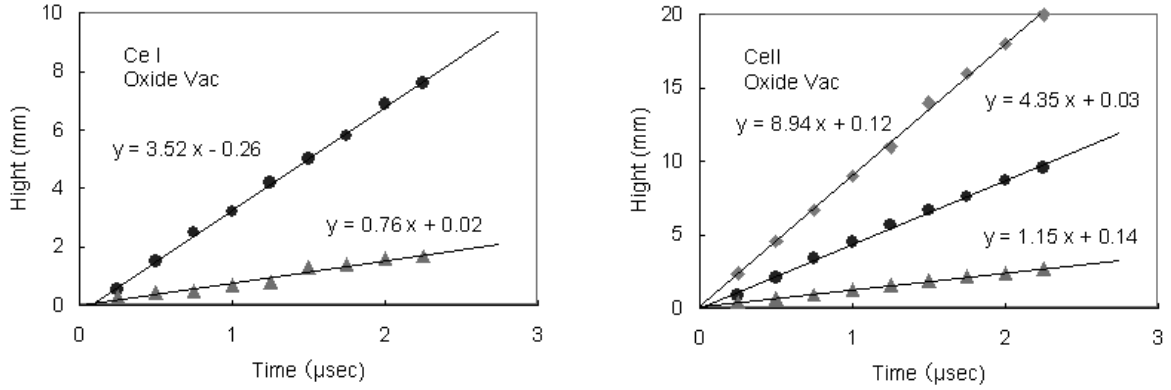

図 5　プルームのフロー速度と膨張速度（a）左:Ce I 0cm^{-1}　(b）右:Ce II 0cm^{-1}

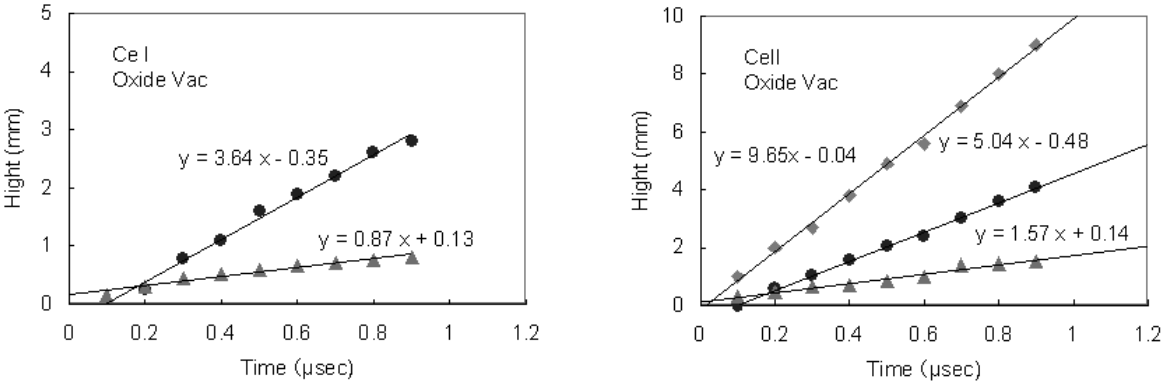

図 6　プルームのフロー速度と膨張速度（a）左: Ce I 228cm^{-1}　(b）右: Ce II 0cm^{-1}

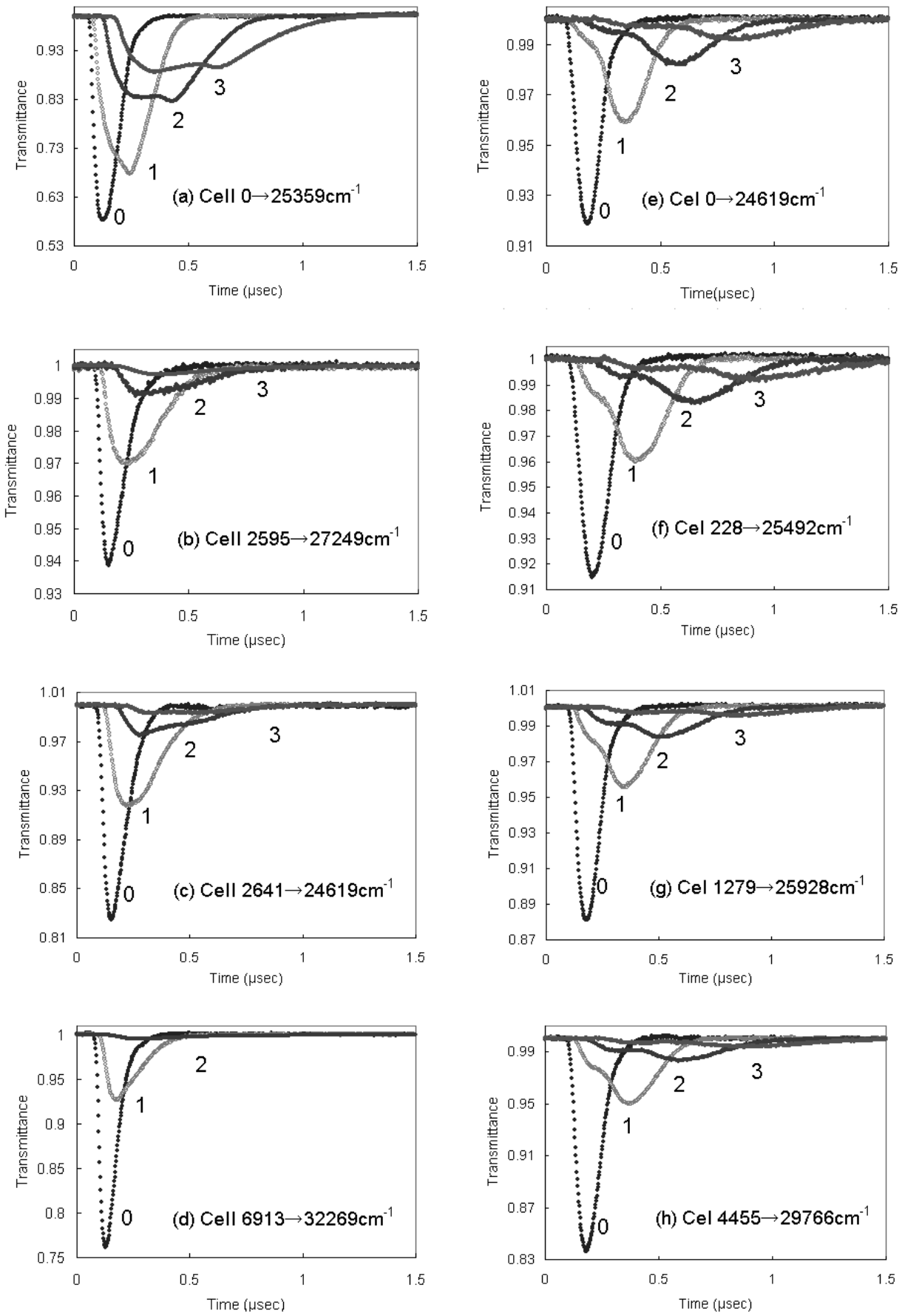

図７　内部状態の異なる粒子による真空中の吸収波形の高さ依存性

図5,6の回帰直線のグラフは基底状態と最低準安定状態の粒子種のみの飛行状態を描いたものであるが、量子状態の異なる粒子では速度が異なることを報告している研究もある[18]。そこで表1の始状態のエネルギー準位が高い遷移でも同様の測定を行った。図7にその測定結果の一例を示す。左側が1価イオン、右側が中性原子で、下側ほど高エネルギー準位の吸収波形である。各波形の数字は観測高さを表しており、見やすくするため1mmおきの波形のみを示してある。原子、イオンとも高エネルギー準位ほど、観測位置が高くなると吸収量が減少している。これは真空中のUAEに伴うカスケード的な緩和・冷却過程を通じて、準安定状態がさらに低いエネルギー状態へと移るためである[3]。また荷電粒子同士の反発もあるため、原子よりイオンの方が減衰が大きく、例えば 6913cm^{-1} のイオンは、表面から3mm程度でほとんど消滅している。またイオンの2成分では低速成分の方が高エネルギー準位での減衰が大きい。一方、原子の吸収波形は、基底状態の解析では小さなこぶとして無視した高速成分が、高い準安定状態では相対的に高くなることが分かった。これもイオンと同様、高エネルギー準位ほど低速成分の減衰が大きいためであると考えられる。

図7のような吸収波形を10個の異なるエネルギー準位の粒子に対し測定し、得られた時刻と高さの関係を図8に示す。ここで□はイオンの高速成分、△はイオンの低速成分、○は中性原子を表している。同じ準位のデータが複数あるのは、観測した遷移が異なるためである。

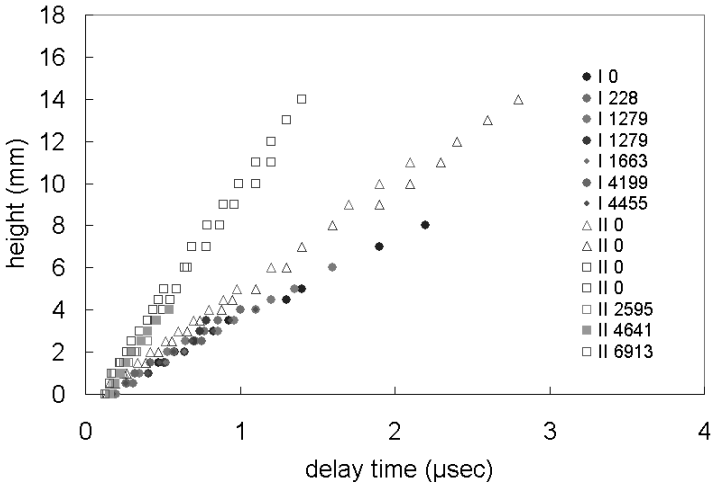

図8　内部状態の異なるプルームの最密部分の変化

（CeI: 0, 228, 1279, 1663, 4199, 4455 cm^{-1}, CeII: 0, 2595, 4641. 6913 cm^{-1}）

原子は原子同士、イオンはイオン同士ほぼ同じ直線上に乗っており、観測した 7000cm^{-1} までの準安定状態の範囲では、内部状態の違いによるフロー速度の差は小さいことがわかる。

図9（a）は図3の吸収波形を基に、プルームのrelease timeを考慮して、Ceイオンの速度分布を算出したものである。実線は、イオンの2成分の速度分布を次のdrift Maxwell-Boltzman分布で近似した曲線である。表面近傍では飛行距離が短く高速成分の速度分布の誤差が大きいので、ここでは高さ4mm以上の結果を示す。この高さでは両成分ともドリフトマクセル分布で良く近似できている。

$$f(v)=\sum_{i=1}^{2} A_i v_{ii}^3 \exp\left(-B_i\left(v_i-v_{0i}\right)^2\right)$$

但し A: 規格化定数　v_{01}:フロー速度　　$B_i=\dfrac{m}{2kT}$

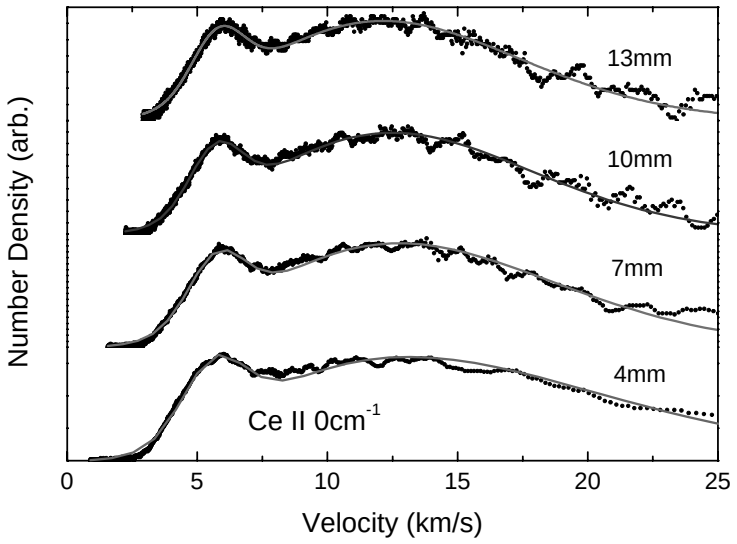

図 9（a） Ce イオンの速度分布とドリフトマクセル分布による近似

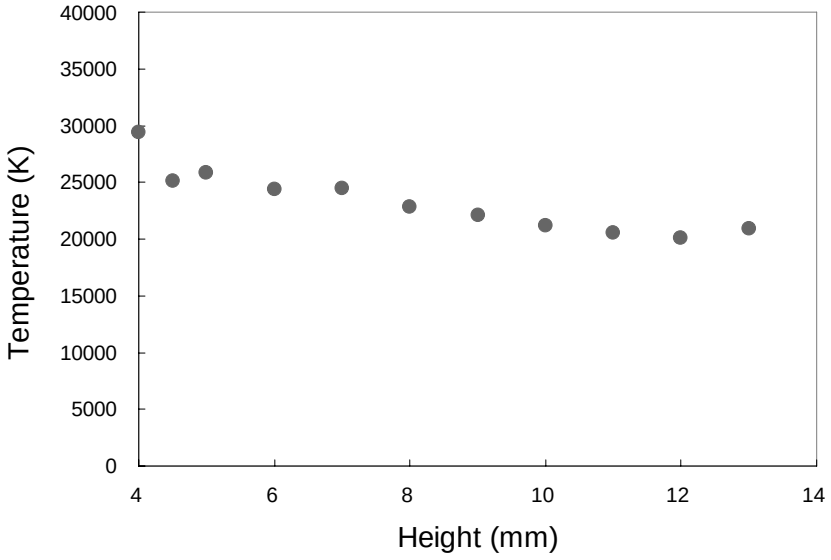

図 9（b） 低速成分の並進温度の高さによる変化

このような近似により低速成分のドリフトマクセル分布の幅から並進温度を求めた結果を図 9（b）に示す。4mm より上方の並進温度は $3x10^4$K から $2x10^4$K へと緩やかに低下している。吸収法で得られる分布幅はレーザーの視線方向の積分値のため、法線方向のみの場合に比べて拡がり、並進温度を高めに評価することになる。しかし、図 9（b）の温度は発光分光で報告されているイオンプルームの並進温度（10^4K 程度）と同程度であり、プルーム発生時の温度を反映していると思われる。従って、本研究の照射条件でも、照射スポットは CeO_2 の臨界点（>3500K）を超えて過加熱状態にあり、相の爆発が起きていると考えられる。一方、高速成分の並進温度を同様に評価すると 10^6K オーダーとなるが、これは高速成分の生成に非熱的な加速機構が介在していることを示唆している。

3.2 各速度成分の起源に関する考察

3.2.1 局所電場加速とイオンの 2 成分分布

アブレーションプルームでイオンが原子より高い運動エネルギーを持つことは、既に多くの研究者によって確かめられている。特に Claeyssens[32]や Castano[16],[17]らが発光 TOF 法や TOF-MS 法で報告しているように、イオンの価数に比例してプルームの速度が変化することは、加速機構にクーロン力が関係していることを強く示唆している。クーロン力が作用する加速機構のモデルとしては Claeyssens らによるプラズマ中の高速電子とイオンの電荷分別による双極子核拡散機構[32]や、Bulgakova らによるレーザープラズマの電気 2 重層効果[33]、Stoian らによる酸化物試料の帯電効果[34]などが提案されている。このうち、本研究で観測されたイオンの 2 成分分布については、Bulgakova が指摘するように、電気 2 重層を超えて加速された成分とそうでない成分と考えることでうまく説明できると思われる。これに対して中性原子は、電気 2 重層や、荷電粒子間のクーロン反発による加速等を受けないため、イオンより遅く、単一成分でプルームの幅も狭いと考えられる。

3.2.2 再結合と 2 成分分布

真空中でのプルームの分離を生じさせる原因としては、上記のクーロン力による加速機構に加えて、Castano らが提唱するような、電離や再結合により、他の粒子の速度分布がサイドバンドとして重畳される効果も候補となる[16],[17]。プルーム内では、共存する粒子同士が衝突を繰り返しながら膨張するので、例えば 1 価イオンと電子が再結合することで、中性原子が生成される反応も起こりうる。再結合で生じる原子は元のイオンの速度を引き継ぐので、原子の速度分布に高速成分が生じることになる。これが僅かに観測される原子の高速成分の起源かも知れない。また、1 価と 2 価のイオンの衝突で電荷移行が起こると、2 価イオン起源の高速イオンが生じ、原子と 1 価イオンで電荷移行が起これば高速原子や低速イオンが生じることが説明できる。但し、図 7 のように原子とイオンの波形を比べると、イオンの方が減衰が早いことや、イオンの低速成分の方が原子よりも密度が高いことから、原子の再電離の寄与は大きくないように思われる。

図 7 の原子の波形を比べると、基底状態では無視できる程度だった高速成分のピークが、高い準安定状態になるほど相対的に高くなっている。このピークが、発光分光や質量分析で報告されている、アブレーション直後にのみ観測される高速成分の構造[9],[15]と思われる。これが先に述べたように 1 価イオンの再結合又は電荷移行により生じた高励起原子起源とすれば、低エネルギー状態ほどピークが小さくなる理由が理解できる。

イオン起源の高励起原子のうち、特に速度の早い成分は、電荷が大きい 2 価イオンのプルームや質量の小さい酸素原子のプルーム等と空間的に重なりながら移動すると思われる。すると Maul らの報告のように[14]、原子と 2 価イオンの衝突頻度が高まり、電荷移行によって 2 個の 1 価イオンに変わったり、セリウム原子と酸素原子が反応して酸化物分子に変わったりすることが予想される。このため、高速成分であるイオン起源の高励起原子は減少し、カスケードを経て基底状態に緩和されるまでに存在比が減る。このため図 7 の様な、準位エネルギーによる原子の低速成分と高速成分の割合の変化が生じると考えられる。

3.2.3 フロー速度の文献値との比較

本研究で得られた真空中のフロー速度の値の妥当性を、他の文献値や理論との比較によって検討する。Pietsch らはエネルギー密度 0.19GW/cm^2 でアブレーションした Cu 原子の鉛直方向の最確速度を発光 TOF 法で測定し 5.5km/s と報告している[7]。Mathew[9]や Vega らも[6]、2GW/cm^2 のエネルギー密度でアブレーションした Sn や Ge の原子・イオンの速度を 9km/s（低速成分）・18km/s（以上 Sn）、6.2km/s・17km/s（以上 Ge）と報告している。また、Buchsbaum らは質量分析法により 0.4J/cm^2 のパルスエネルギーでの Fe 原子の速度を 5.9km/s（低速成分）と評価し[15]、Bushaw らは共鳴吸収法により 11J/cm^2 程度のパルスエネルギーでの Sr 原子の速度を 4km/s と評価している[24]。これらの報告値から、質量に関する m$^{0.5}$ のスケーリングファクタだけを考慮して Ce 粒子の速度を見積もると表 2 のようになる。

表 2　他元素のフロー速度から推定した Ce 粒子の真空中の速度

元素	原子量	原子 (km/s)	イオン (km/s)
Cu	63.55	3.7	
Sn	118.71	8.3	16.6
Ge	72.61	4.5	12.2
Fe	55.85	3.7	
Sr	87.62	3.2	

このように、別の元素の速度から質量比だけを考慮して求めた飛行速度でも、少なくとも原子プルームについては Sn を除いて実測値と比較的良く合っており、本研究の測定値にも大きな誤りはないと思われる。推定値のばらつきは、アブレーションレーザーの照射エネルギーの違いや、試料の性状の違い、真空度の違い、観測した粒子の量子状態の違い等を考慮すれば納得できる。また発光法で観測されているイオンは、その速度から判断して、本研究で観測された高速成分のイオンに対応していると考えられる。発光法でイオンの低速成分が観測されないのは、図 7 から予想されるように、この成分の大部分が、早い段階から基底状態イオンに緩和しているためと考えられる。

次に非熱的影響が大きいと思われるイオンの高速成分を除く粒子のフロー速度を、文献[7]の方法により定量的に評価した。アブレーション光が照射された酸化物試料の表面温度は、図 9（b）に示したイオンの低速成分の並進温度から T=2.5x10^{4}K と仮定した。

$$v_{RMS} = \sqrt{\frac{3kT}{m_{Ce}}}$$

すると上式から求まる表面速度は 2x10^3 m/s となり、非平衡断熱膨張による加速が終わり、自由膨張に移った時点でのプルーム先端の速度は、Kelly らの理論[35]から、単原子では、最大その 4 倍の 8 km/s 程度と見積もられる。プルームの最密部分の速度は先端部分の 2 分の 1 から 3 分の 1 なので、このことから、観測されたイオンの低速成分（4.7km/s）や中性原子（3.5km/s）のフロー速度の大きさが説明できる。

3.2.4 量子状態による速度の違い

図 8 によると原子は原子同士、イオンはイオン同士ほぼ同じ直線上に乗っており、今回観測した

7000cm^{-1}までの準安定状態の範囲では、内部状態が異なっても、フロー速度の差は小さいことがわかった。Rossa らは金属バリウムのアブレーション発光分光および共鳴蛍光分光により、異なる量子状態の速度分布に違いがあることを報告しているが[18]、その原因として 1）イオンの再結合で生じた高リドベルグ原子のカスケード的な崩壊における分岐比の違い、および 2）共存する微粒子との衝突による準安定状態原子の消滅度合いの違いを挙げている。図 8 は成分毎の最確速度に大きな差がないことを示しているが、図 7 のように各成分の比率については、量子状態（おそらく準位エネルギー）により僅かに変化しており、この点で今回の観測結果と矛盾しない。Rossa の結果に比べて本研究の速度分布の差が小さいのは、彼らが調べた量子状態は準位エネルギーの差が大きいこと、またバリウムはセリウムよりも準位数が少なく、量子状態の差が現れやすいためと思われる。

従って、真空中でのアブレーションでは、粒子は初期プルーム内で高く励起された後は、低エネルギー状態へとカスケード的に緩和され、一部は別の荷電状態に移ったり、分子・クラスター化されたりしながらも、異なる量子状態の粒子が一体となって移動していると考えられる。

3.2.5 起源の同定のまとめ

以上をまとめると酸化物試料のアブレーションで生じる単体粒子のうち、イオンの高速成分は、スパッタされた分子・クラスターがレーザープラズマ中で解離・電離して生じたもので、電気 2 重層の外側で加速されたイオン、低速成分は 2 重層の内側に留まって膨張しているイオンと考えられる。また別の可能性として、イオンの高速成分は、加速された 2 価イオンを起源とし、再結合や電荷移行によって 1 価イオンとなったサイドバンドと考えることもできる。また、イオンの高速成分は高励起状態の割合が高いのに対し、低速成分は基底状態のイオンが多く、このため発光分光では低速成分の報告例が殆どない。表面から離れるほど、イオンの高速成分より低速成分の割合が低下するが、これは時間的な減衰によるもので、同時刻で 2 成分の空間分布を比較すると割合はほぼ一定である。

原子の場合も同様で、僅かに観測される高速成分は 1 価イオン起源のプルームと考えられ、高励起状態の割合が高い。低速成分はクーロン力による加速の影響が少なく、断熱膨張過程のみで加速された原子であり、イオンほど内部状態の緩和も早くないため、多くの準安定状態の粒子が混在したまま移動している。

3.3 ドップラー分裂による水平速度分布

ガス中のプルームの膨張の初期段階では、衝撃波を伴って半球状に拡大するプルーム周縁部（コンタクト層）に、ガス分子との衝突によって基底状態や準安定状態の粒子種が生成され、膨張しながら次第に減速される。そこに図 10 のようにプローブレーザーを入射すると、反応する粒子種は、入射方向へ向かって飛行する粒子群と、反対に遠ざかる粒子群の 2 成分に分かれるため、正反対のドップラーシフトによって吸収スペクトルの分裂が生じる。アルゴンやキセノンなどイオン化ポテンシャルの低い希ガスでは、プルーム（プラズマ）の電離度が高いため、シュタルク効果の大きな状態が長く続き、このような分裂の観測は難しい。しかし、イオン化ポテンシャルの高いヘリウムガスでは、初期プラズマの電子密度が低いため[36]、早い段階からシュタルク効果が小さくなり、ドップラー分裂が観測できる。そこで、本研究ではヘリウムガス中の吸収スペクトルのドップラー分裂から、水平方向のプルームのフロー速度を調べた。

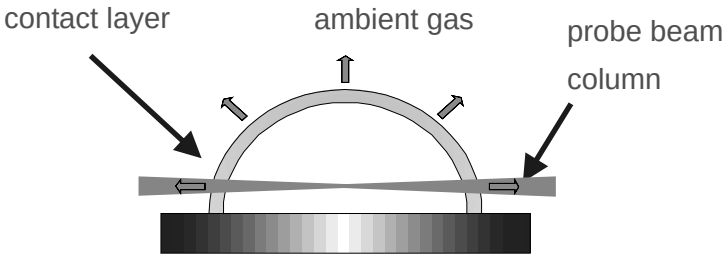

図 10　衝撃波を伴って膨張するプルームとコンタクト層における吸収のモデル

図 11 は CeII 0→25359cm^{-1} の遷移の 0.2～1.3kPa のヘリウム雰囲気下における、表面からの高さ 0.5mm の吸収波形で、半導体レーザーの波長を共鳴波長からそれぞれ 0GHz, -1.2GHz, -2.4GHz, -3.6GHz デチューニングさせた波形である。これらの曲線は、まず 0.15μs 付近で 1 度目のピークが現れ、その後、圧力に応じた時刻で 2 度目のピークが現れる。このようなダブルピーク構造となるのは、最初の成分が通過後、一定時間経ってから、真空中では生じない超低速の原子・イオン種が生成され、プローブレーザーとの交差領域に達するためである。なお 1 度目のピークは前節で述べたイオンの 2 成分のうち、低速成分に対応している。高速成分のピークはガスの影響が小さいと思われる圧力 200Pa のガス中でも消滅している。この 1 度目のピークの吸収量が、デチューニング光に対してもほとんど変わらないことから分かるように、この成分による吸収スペクトルは非常に周波数幅が広い[2][3]。これは、ヘリウムガス中といえども、アブレーションで生じた初期プラズマ中の荷電粒子によって大きなシュタルク効果が生じるためで、このプルーム成分の運動状態を知ることは難しい。一方、2 度目のピークは波長による変化が大きいことから線幅が狭いことが分かる。デチューニングが小さくなると、2 度目のピークの現れる時刻が遅くなり、吸収量も減ることから、飛散粒子は時間とともに減速しながら膨張し、希薄化していることが分かる。これらの図から、各デチューニング光における 2 度目のピークの最大吸収の起こる時刻と、デチューニング量から算出したドップラーシフトを起す速度の関係を図 12 にまとめた。図の縦軸は水平速度を対数目盛で表している。共鳴波長の場合は、水平速度はゼロであるが、ここでは便宜的にスペクトル線幅から得られる速度の誤差幅から 70m/s とした。どの圧力でも、膨張開始時の水平速度を外挿して求めると 3.7km/s 程度となった。

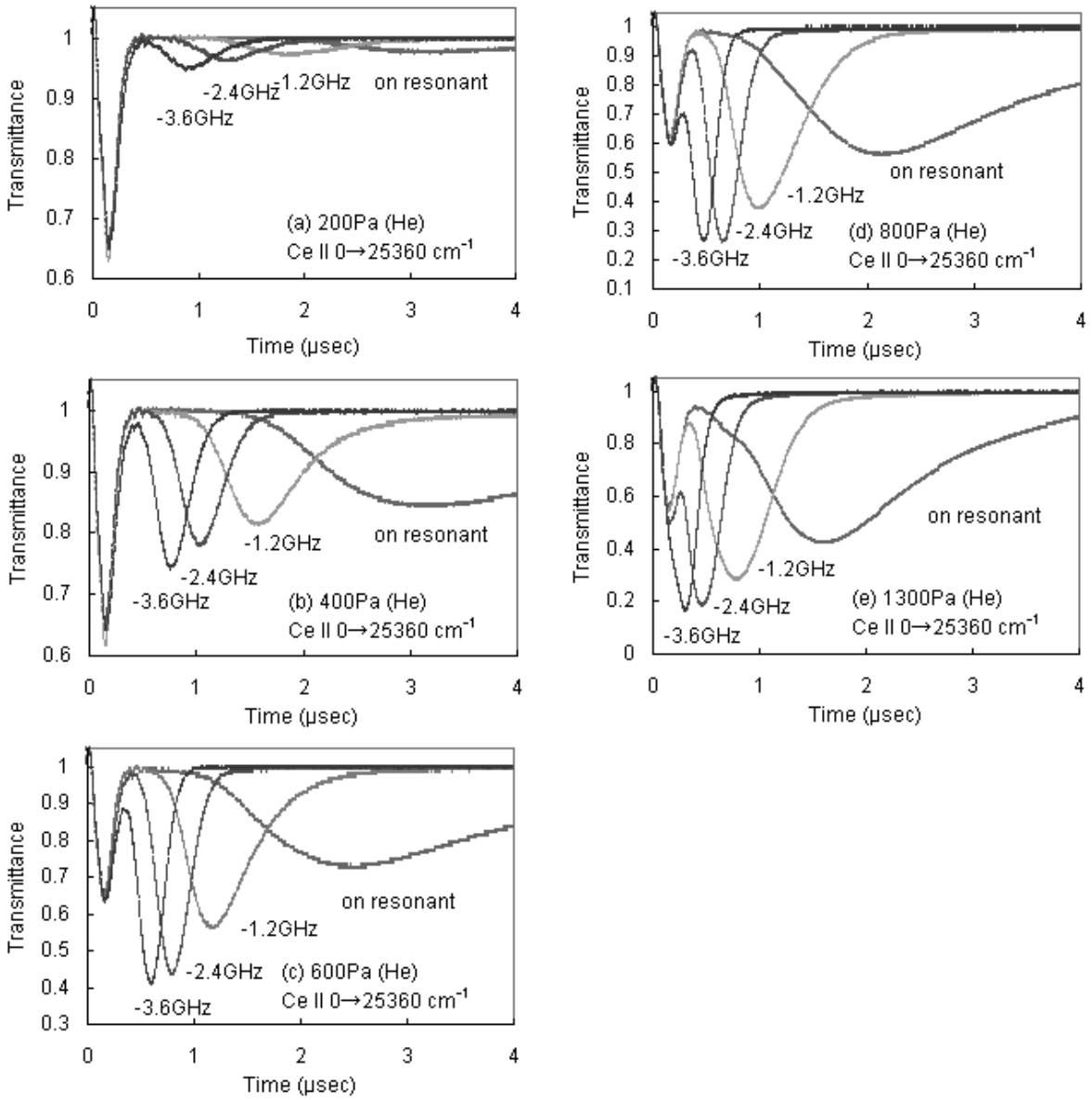

図 11　ドップラーシフトによる吸収波形の波長依存性（CeII 0cm^{-1}, 0.5mm）

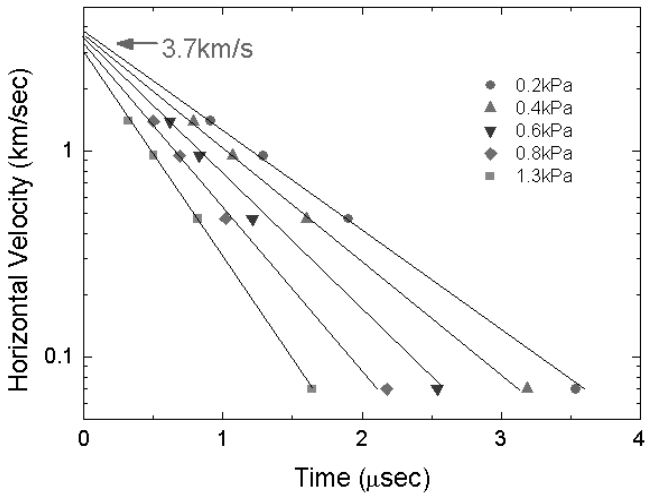

図 12　ヘリウムガス中の Ce イオンの水平速度の経時変化（高さ 0.5mm）

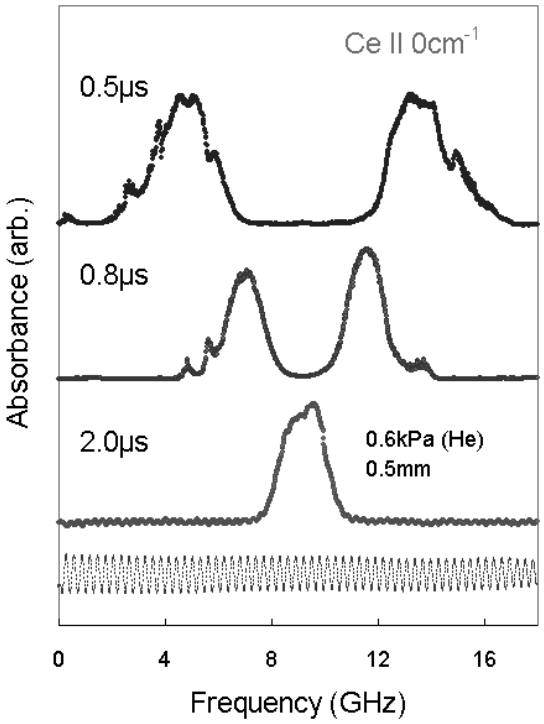

図 13　Ce イオンの吸収スペクトルのドップラー分裂と経時変化

このような粒子の水平運動は本節のはじめに述べたように吸収スペクトルの形状を大きく変化させる。図 13 はヘリウム 0.6kPa 中、高さ 0.5mm、アブレーションからの経過時間 0.5, 0.8, 2.0μs における Ce イオンの 0→25359cm^{-1} の遷移の吸収スペクトルを 3 台のボックスカー積分器で 1 回のスキャンで測定したものである。一番下の曲線は FSR が 300MHz のエタロン干渉計による波長マーカーである。プローブレーザーの入射方向に向かってくる粒子によるブルーシフトと、遠ざかろうとする粒子によるレッドシフトによって、共鳴波長を中心とする対称的なピークの分裂が現れている。経過時刻 0.5μs や 0.8μs での共鳴中心の吸収量がほぼゼロであることは、この時刻に、レーザー光軸内のプルームに速度ゼロの基底状態イオンが存在しないことを意味している。またガス雰囲気中の膨張に伴って、時間とともに粒子が減速していく様子が、ドップラー分裂幅の減少として観測できる。

図 14 は観測時刻を 0.5μs に固定し、ヘリウムガスの圧力を変化させた場合のドップラー分裂を比較したものである。圧力が低いほど減速効果が小さく、分裂幅が広がることが分かる。

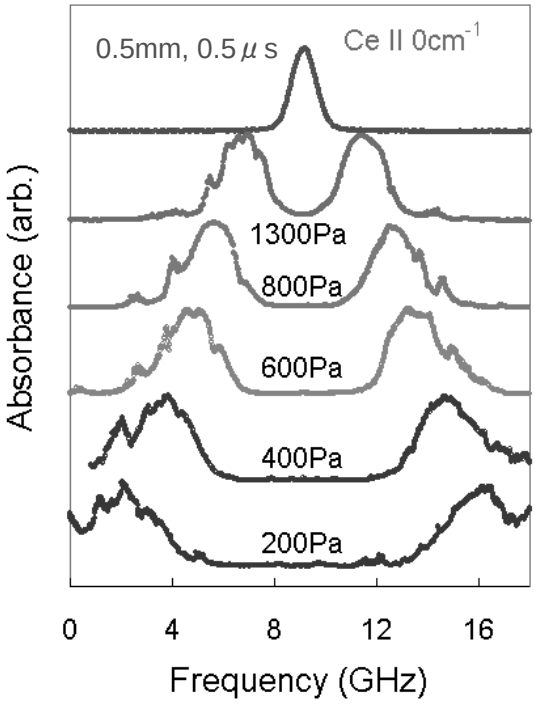

図 14　吸収スペクトルのドップラー分裂の圧力依存性

図 10 の様なモデルが成り立つとすると、水平方向のフロー速度は次の関係によって分裂幅 $S_{Doppler}$ から計算できる[24]。

$$2v_H = \frac{S_{Doppler}}{v_0} c$$

v_H: Horizontal velocity　$S_{Doppler}$: Splitting width

そこで図 14 の圧力依存性からプルームの高さ 0.5mm における水平速度と圧力の関係をイオンと原子の基底状態について調べた結果を図 15 に示す。縦軸が分裂幅から求めた水平速度、横軸がヘリウムのガス圧力である。この関係を圧力ゼロまで外挿することで、イオンと原子の真空中の水平速度を求めるとそれぞれ 3.7km/s、2.8km/s となった。このイオンの速度は、図 12 で吸収波形から求めた時刻ゼロにおける水平速度と一致している。また同じ測定条件で求めた鉛直速度と比べると、イオン（低速）と原子、どちらの場合も、水平速度の方が約 20%遅いことが分かった。これは Pietsch[7]や Bushaw[24]らが、Cu と Sr 原子で報告している鉛直速度（5.5km/s, 4.0km/s）と水平速度（5.0km/s, 3.0km/s）の関係と一致している。従って吸収ピークの分裂は、確かに 2 つの反対方向に進む原子群のドップラーシフト、すなわち水平速度を表していると考えられる。

3.1 節で示したようにイオンの鉛直方向の速度分布では、低速成分に加えて、その約 2 倍の早さの高速成分が同程度の吸収量で観測された。しかし、図 13 や図 14 のスペクトルでは、この高速成分に対応する 2 倍の分裂幅を持った吸収ピークはほとんど現れていない。これには次の 2 つの理由が考えられる。1 つは 3.2 節で議論したようにイオンの高速成分が鉛直方向に鋭い角度分布を持っており、水平方向には飛んでいない可能性、もう 1 つはイオンの高速成分がガス分子と衝突し、スペクトルを観測したアブレーションからの経過時間 0.5μs ではほとんど消滅（減速されて低速成分に移るかあ

るいは励起されて基底状態では無くなる）している可能性である。いずれの場合でも、イオンの高速成分と低速成分ではその特性に大きな違いがあると考えられる。

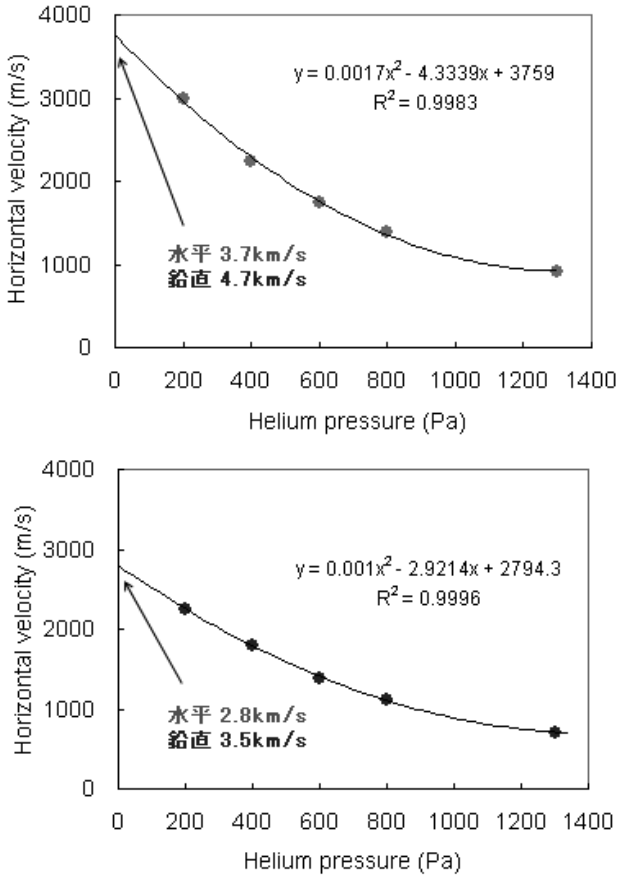

図 15　水平速度の圧力依存性と真空中の水平速度（上）CeII　（下）CeI

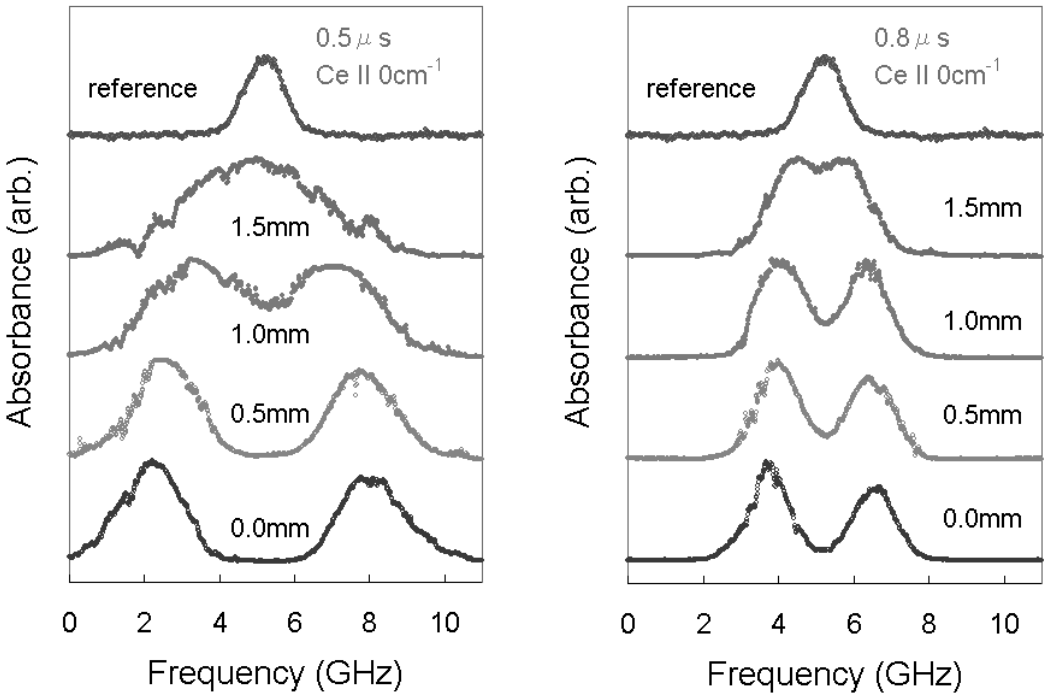

図 16　ドップラー分裂の観測した高さによる変化（左）0.5μs（右）0.8μs

図 16 はプローブレーザーの高さが異なり観測時刻が同じ吸収スペクトルを比べたものである。0.5μs では高さ 1mm や 1.5mm の速度ゼロの成分（共鳴周波数の成分）が多いのに対して、0.8μs になるとこの高さでも速度ゼロの成分が減少している。これは 0.5μs では 1mm～1.5mm にプルームの上端があり、鉛直方向に比べ水平方向の速度成分を持つ粒子が少ないのに対し、0.8μs では、0.5μs の時に表面付近にいた成分が 1.5mm の高さまで上昇し、水平方向の速度成分を持った粒子に入れ替わるためと考えられる。これは 3.1 節で求めたイオンの低速成分の鉛直速度とも矛盾しない。またこの様に高さの違いによる分裂幅の差は急速に縮まるため、アブレーション後 1μs 程度経過すれば、この高さの範囲では、同時刻の水平速度は高さに依らずほぼ一定になると考えられる。

これまでの測定結果から、基底状態の粒子はガス中のアブレーションの直後、ある一定期間、図 10 のようにプルームのコンタクト層に偏在し、その動きに伴ってドップラー分裂が生じると考えられるが、そのような偏りのある粒子密度分布を報告している例はあまり無い[11],[37],[38]。Chu らの撮影した Ti の共鳴蛍光像[20]のように、プルームの密度は中心付近ほど高い場合も多い。このことは、このような速度分布の偏りがヘリウムガスに特徴的な現象で、真空中やイオン化ポテンシャルの低い他の希ガス中では観測しにくいことを示唆している。実際、ヘリウムの圧力を 200Pa 以下にしたり、アルゴンやキセノンガス雰囲気中では、分裂の観測は難しい。このように観測に適したガスの種類や圧力範囲が限られることや、観測手段が吸収分光法などに限られることが、速度分布の偏りを調べにくくしてきた理由と思われる。

3.4 雰囲気ガスによる鉛直速度の減速

ガス中のアブレーションでは、緩和や再結合等により飛行途中で粒子の種類が変わる割合が高くなるため、真空中に比べて速度の評価誤差が大きくなる可能性がある。しかしそうした課題はあるものの、光学的 TOF 法はガス中のプルームの減速効果を評価し、分光分析に適した実験条件を探る手段として有効と考えられる。

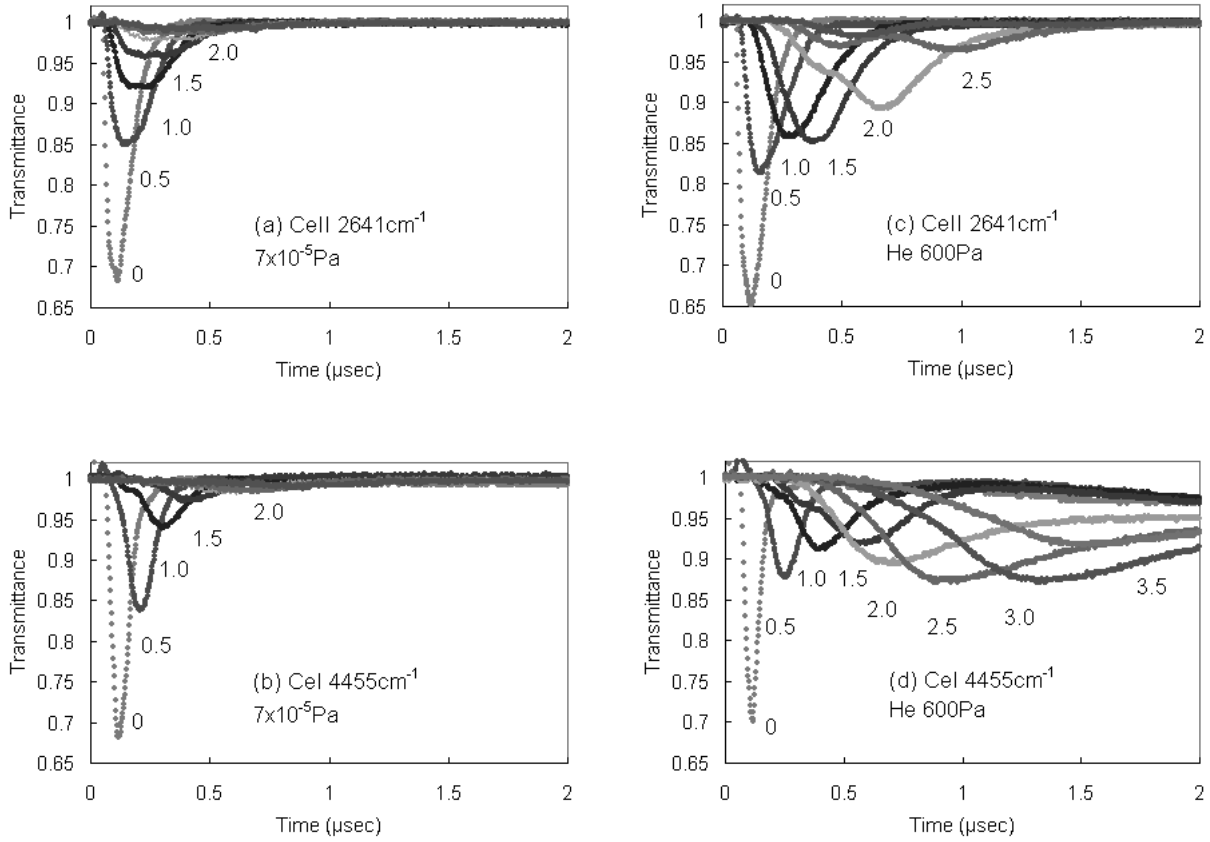

図 17　真空中とガス中の準安定状態粒子の吸収パルス波形

図 17 に準安定状態のイオン（上図: 2641cm^{-1}）と中性原子（下図: 4455cm^{-1}）の、真空中及び減圧ヘリウム雰囲気（600Pa）中の吸収波形を 0.5mm おきに示す。励起エネルギーが高いためどちらの場合も真空中（左）では減衰が早いが、ガス中（右）では粒子の存在時間が長くなり、イオンより中性原子で、真空中とガス中の挙動の違いが顕著になっている。原子では、高さ 2.5mm 付近、時刻 1μs 付近で吸収量が極大となっており、中性原子の超低速成分がポスト中性化によって、上方で生成されていることが分かる。またイオンの減少に合わせて中性原子が増加し、1.5μs 程度でイオンが枯渇とほぼ同時期に中性原子の増加も止まり、減少へと転じている。これは、1 価イオンが再結合によって原子に変わることを強く示唆している。

ガス中のプルームの膨張では、プルームサイズの時間変化が重要である。図 17 の吸収波形を基に、ヘリウムガス圧 600Pa で観測された最大吸収点の高さと時刻の関係をプロットした結果を図 18 に示す。▲で示したイオンの高速成分は直線的な変化を示しており、雰囲気ガスによる減速効果が小さいが、これは高さ 3mm、時刻 0.5μs 程度でほぼ消滅している。一方、■で示したイオンの低速成分と●で示した中性原子の挙動は比較的よく似ており、ガス分子との衝突により次第に減速されている。

図 17 のようなガス雰囲気での低速成分の増加や、図 18 のプルームサイズの飽和傾向は、プルームの膨張がもはや自由膨張ではないことを示している。このような減速状態にあるプルームのダイナミクスは、ドラッグモデルと衝撃波モデルの 2 つの方法で調べられている。

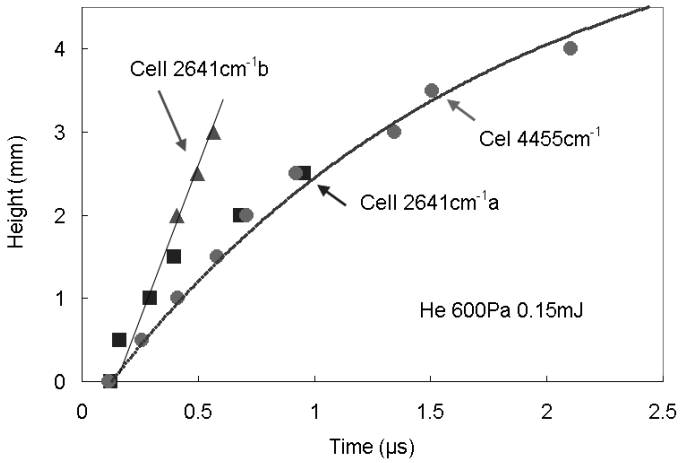

図 18　ヘリウムガス中のプルームの最密部分の変化

ドラッグモデルはアブレーションされた粒子種がその速度に比例する粘性力を受けながら散乱、膨張するというモデルであり、プルームサイズ d（t）の時間変化は次式で表される。

$$d = d_f\left[1 - e^{-\beta t}\right] - d_0$$

ここで、d_f=v_0/β はプルームの膨張停止サイズ、v_0 は初期速度、β は減速係数、d_0 はプルームの膨張開始に要する時間を考慮した境界条件である。

図 18 に原子の測定値をドラッグモデルで最小自乗近似した結果を実線で示す。ここでプルームの停止サイズは 6mm、減速係数は 0.6μs^{-1} である。この値から初期速度を算出すると v_0=3.6km/s となり、図 5,6 で求めた真空中の原子の鉛直速度（3.5km/s）と良く合う。一般に、ドラッグモデルは膨張の初期段階や、薄いガス雰囲気中の膨張を記述するのに適しているとされており、図 18 のような実験条件でも、このモデルが良い近似を与えることは納得できる。同様の理由で水平方向のプルーム膨張の経時変化も、図 11 のデータを基に、次のようなドラッグモデルの微分形で解析し、初速度 v_0 と減速係数 β として表 3 のような値を得た。

$$v = v_0 e^{-\beta t}$$

ここで 600Pa の減速係数は、図 18 の鉛直方向の値より 3 倍大きいことが分かる。これはセリウムイオンの減速係数であるが、分裂幅の経時変化から判断して、中性原子でも同程度の減速係数になると予想される。従って、ガス中のプルームの膨張では、水平方向が先に減速し、鉛直方向はゆっくり減速する。このような角度による違いは、鉛直方向と水平方向に飛行する粒子数の違いによるものと思われる。粒子数が多く、雰囲気ガスとの衝突で激しい圧縮が起こる鉛直方向の先端では強い発光が起こり、水平方向の周辺部では発光が弱いことは、発光撮像法等でも報告されており[8]、今回の結果はこれと矛盾しない。また He 600Pa 中のプルームの停止サイズは、高さ約 6mm、直径約 5mm と

求められ、半球をやや縦に伸ばした形で、目視で観測される 2 次プラズマの発光領域の形状と一致する[39],[40]。

また前に述べたようにヘリウムガス中の最適な観測時刻はアブレーション後 4μs 程度であるが、以上のような鉛直及び水平速度の解析から、この観測時刻ではプルームの膨張は初期速度の 10 の 1 以下となり、ほぼ停止した状態であることが分かった。

表 3　Ce イオンの水平速度分布のフィッティングパラメータ

Pressure (Pa)	200	400	600	800	1300
v_0 (km/s)	3.8	4.0	4.3	3.9	2.8
β (μs^{-1})	1.1	1.3	1.8	2.1	2.2
d_f (mm)	3.5	3.0	2.4	1.9	1.3

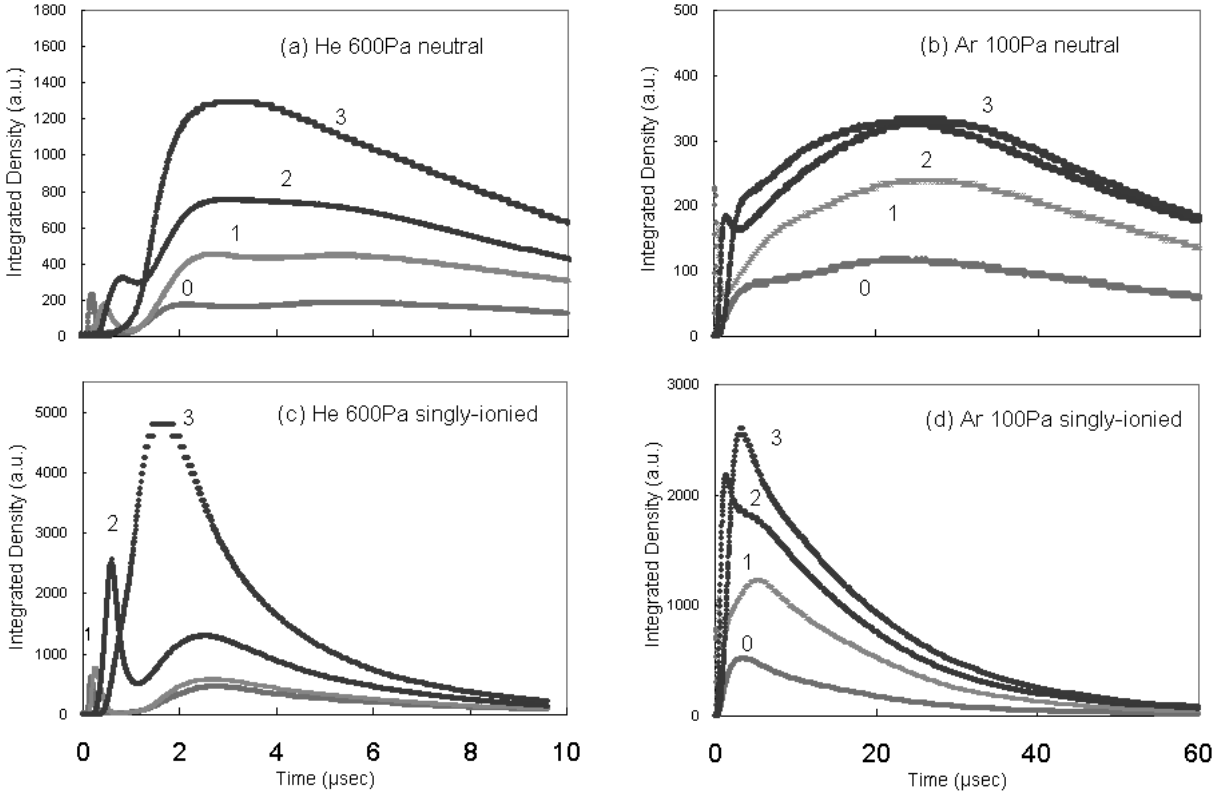

図 19　He と Ar ガス中の基底状態粒子の密度変化曲線（上）CeI　（下）CeII

一方、イオンや中性原子の基底状態のプルームはさらに長時間存在するため、その挙動も同様に調べた。図 19 に基底状態の中性原子（上）とイオン（下）の、減圧ヘリウム雰囲気中（左）と減圧アルゴン雰囲気中（右）の密度変化曲線を比較したものを示す。粒子の閉じこめ能力の違いから、アルゴンの横軸のスケールはヘリウムの 6 倍としている。図 17 の準安定状態の波形とは異なり、経過時間の大きい所でも密度が高く、テールが長いことが分かる。密度が最大となる時刻は、ヘリウムでは、原子が 3.5μs、イオンが 2μs、一方アルゴンでは、原子が 25μs、イオンが 3μs 程度である。またガス中のプルームは、先端ほど強く圧縮されるため、粒子密度は試料から 2.5～3.0mm の高さでいずれも最大となっている。このような知見は、アブレーション共鳴吸収分析法の検出感度を向上させる

上で重要な情報となる。

真空中のプルーム解析と同じ様に、図 19 の粒子密度曲線から、0.5~30.0μs 間の原子とイオンの粒子密度の高さ分布を求め、それぞれのプルームの移動を視覚化した結果を図 20 に示す。アブレーション直後は、真空の場合と同様、原子プルーム（▲）はイオンプルーム（●）より表面に近くにあって密度も低いが、次第にイオンプルームに追いついている。また、密度も、イオンの方が早く減衰するため、ヘリウムの場合、5μs 以上で逆転している。イオン、原子とも 1.5～3μs、高さ 3mm 付近でプルームが最も強く圧縮されるとともに動きが停止しており、その後はほぼ同じ分布形状を保ったまま減衰する。一方、アルゴンでは、イオンは 2～3μs、高さ 2.5～3mm で最も強く圧縮され、その後は、やはり分布形状の変化は小さくなって減衰する。またアルゴンはイオン化ポテンシャルが低いため、プラズマの電離度が高く、イオンに対する原子の割合が低い。このため、原子の密度は希ガスによるイオンの再結合が進む 20～30μs も後になって最大となる。ヘリウム、アルゴンとも、原子の粒子密度が最大となるような時間、空間条件では、プルームの膨張がほぼ停止するだけでなく、シュタルク効果の原因となるプラズマの電離度も低下している。このため、原子密度が最大になる時間空間条件は、分析感度だけでなく、分解能の点でも同位体分析に適した状態になっていると考えられる。さらに、ヘリウムとアルゴンでイオンや原子の密度を比べると、いずれもヘリウムの方が高いことから、分析感度はヘリウム雰囲気の方がアルゴン雰囲気よりも高いと考えられる。

アブレーション直後の 0.5～1.5μsec の表面付近 0～1mm の粒子密度に着目すると、アルゴンでは粒子の存在が認められるが、ヘリウムでは密度がほぼゼロになっている。これは水平速度ゼロのセリウムイオンや原子がこの時刻に 2～2.5mm 付近に集中し、表面付近には存在しないことを表している。このようなドップラー分裂の影響を補正し、水平速度の大小に依らない粒子密度分布を描けば、ヘリウムの分布の形状はアルゴンの分布形状に近づくものと思われる。

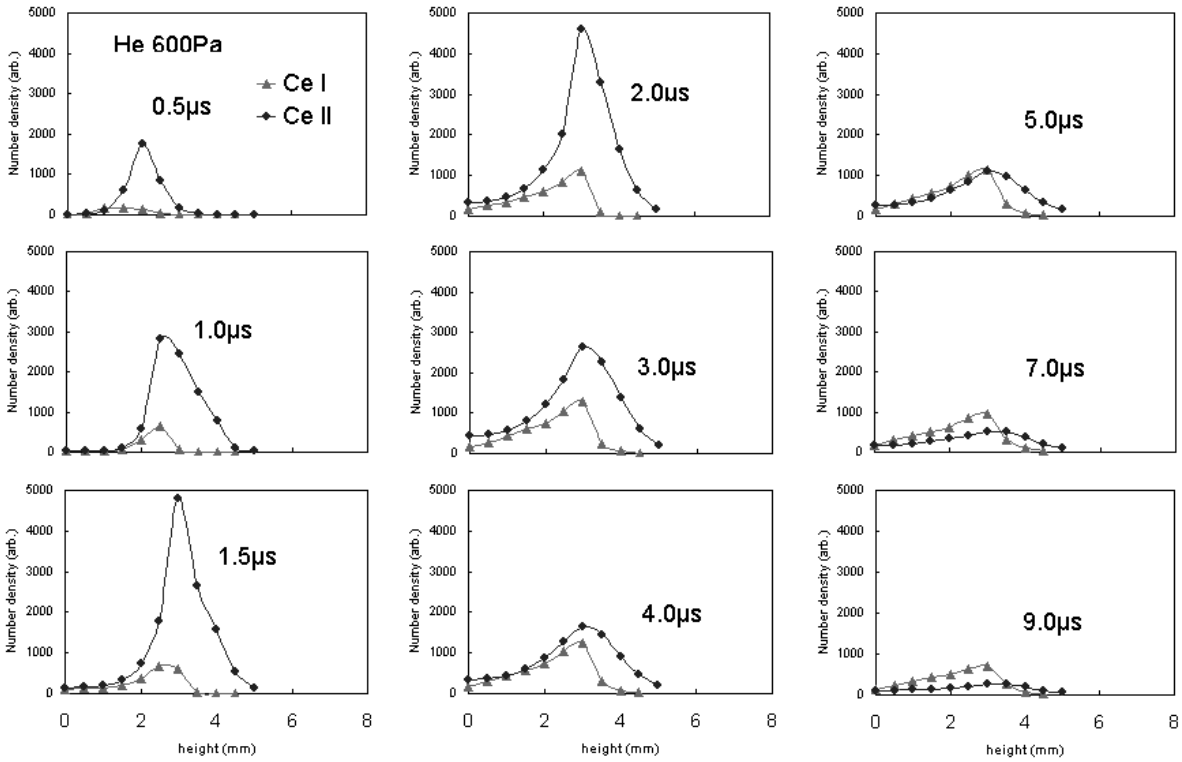

図 20（a） Ce プルームの空間密度分布（He: 600Pa, 原子:0cm^{-1}, イオン:0cm^{-1}）

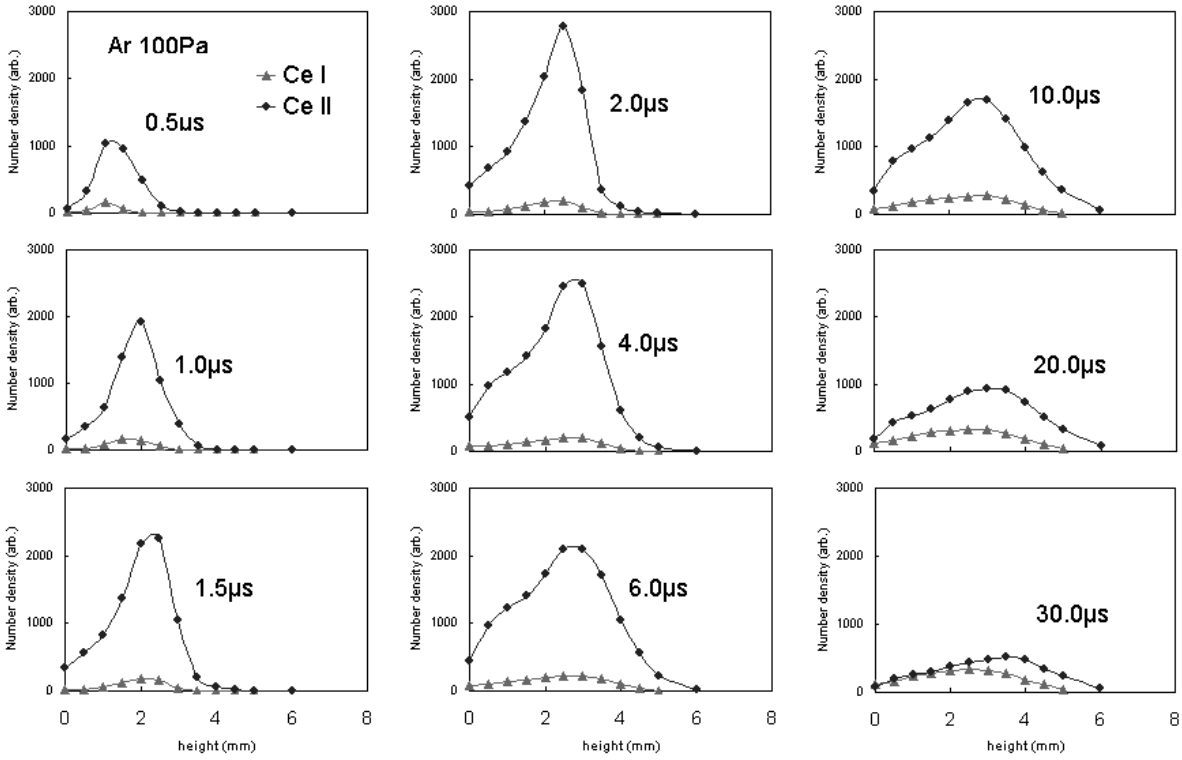

図 20（b） Ce プルームの空間密度分布（Ar: 100Pa, 原子:0cm^{-1}, イオン:0cm^{-1}）

3.5 同位体分析の実験条件

これまでのガドリニウムやセリウムを用いた試験から得られた同位体識別のための実験条件は以下の通りである[2],[3]。

a） He　ガス圧:600～1000Pa,　観測時刻:2～3μs

b） Ar　ガス圧:100Pa,　観測時刻:15～30μs

c） Xe　ガス圧:40Pa,　観測時刻:30μs

本研究では、スペクトル線幅への影響が大きいガス圧は固定し、He と Ar ガス中のプルームの飛行特性を調べた。以下では、3.3 節と 3.4 節の実験結果に基づいて、感度と分解能の観点から、より最適な実験条件を決定する。まず、分析感度の点では、図 20 のプルームの密度分布で、最大密度となる時刻と高さが重要である。これはイオンと原子の基底状態のプルームで、それぞれ次のようになっている。

a'） He　ガス圧:600Pa　イオン: 1.5μs, 3mm　原子: 3～4μs, 3mm

b'） Ar　ガス圧:100Pa　イオン: 2μs, 2.5mm　原子: 20～30μs, 2.5mm

一方、分解能に関しては、本研究ではスペクトルのドップラー分裂を調べた。この分裂幅が大きいと、分裂したピークが近接する他の同位体のピークと干渉するために同位体分解能が低下する。図 13 の吸収スペクトルでも、上記 a)の条件に当てはまる He ガス圧 600Pa、時刻 2μs、高さ 0.5mm のピークが、ドップラー分裂の影響でわずかに拡がっている。これを無視できる程度に抑えるには、図 12 において、ガス圧 600Pa の直線が 70m/s 以下となるよう、観測までの経過時間を 2.5μs 以上にすればよい。また観測する高さは、観測時刻が 2.5μs 以上であれば、図 16 から 1.5mm 以上で十分と思われる。そこで、ヘリウムガス中で感度と分解能を両立させる条件は次のようになる。

a''） He　ガス圧:600Pa,　イオン: 2.5μs, 3mm　原子：3～4μs, 3mm

Ar や Xe ガスでも観測時刻が早く、表面に近い観測位置では、ドップラー分裂の影響を受けるが、上記の観測時刻では影響は小さいと思われる。

なお、図 20 の密度分布の形状は、最大密度よりプルームの内側で密度勾配が緩やかなのに対し、外側は急峻になっている。そこで、YAG レーザーの出力変動や試料表面の凹凸等のためにショット毎のプルームの大きさが変動する場合、最密部分より少し低い位置で観測するか、分布勾配が緩やかになるのを待ってから観測した方が、吸収量の変動を小さくできると考えられる。密度分布の形状は、分析値のばらつきを抑える上でも有益な情報であると考えられる。

4. 結論

酸化セリウムのアブレーション共鳴吸収分光法により、同位体分析に適した実験条件で発生させたセリウムの原子及びイオンのプルームについて、その密度分布やフロー速度を2つの方法で調べた。試料に対して鉛直方向の速度分布は光学的 TOF 法で、水平方向の速度はドップラー分裂法を用いて測定した。これらの測定の結果、アブレーションのフルエンス 0.5 J/cm^2 で以下のような知見が得られた。

① 真空中のアブレーションで生成されるイオンには約2倍の速度差がある2つの成分がある。その鉛直方向のフロー速度は 4.7m/s（低速成分）と 9.3km/s（高速成分）であり、いずれも原子の鉛直速度 3.5km/s より早い。

② 表面からの高さ 0.5mm における真空中の水平速度は、原子で 2.8km/s、1 価イオンで 3.7km/s であり、真空中の鉛直速度より 2 割程度遅い。

③ 粒子の内部状態が異なると各速度成分の比率や緩和速度が変化するが、各成分のフロー速度は殆ど変わらず、内部状態の異なる粒子が一体となって移動している。

④ ガス中でのプルームのフロー速度はドラッグモデルに従っており、ヘリウム 800Pa 中のプルームのサイズは高さが約 6mm、幅が約 5mm と推定される。

⑤ ヘリウム雰囲気で同位体分析を行う場合の試料表面からの高さは、ドップラー分裂を避けるため 1.5mm 程度にすべきである。

⑥ 同位体分析に適した実験条件では、プルームの膨張は初期速度の 10 分の 1 以下に減速されており、プルームの電離度も低下している。

⑦ 分析感度はアルゴン雰囲気よりヘリウム雰囲気の方が高い。

謝辞

本研究を進めるにあたって多くの助言を頂きましたレーザー物質制御研究グループ、大場弘則氏に深く感謝します。本研究は、特別会計に関する法律（エネルギー対策特別会計）に基づく文部科学省からの受託事業として、日本原子力研究開発機構が実施した平成 20、21 年度「低除染 TRU 燃料の非破壊・遠隔分析技術開発」の成果です。

参考文献

[1] S. Kotake, Y. Sakamoto, M. Ando and T. Tanaka : “Feasibility study on commercialized fast reactor cycle systems current status of the FR system design”, Proceeding of Global2005, Tsukuba, Japan, Oct. 9-13 pp. 435-1-435-7 (2005).

[2] M. Miyabe, M. Oba, H. Iimura, K. Akaoka, Y. Maruyama, I. Wakaida and K. Watanabe: “Ablation initiated isotope selective atomic absorption spectroscopy of lanthanide elements”, AIP Conference Proceedings Volume 1104 pp. 30-35 (2009).

[3] 宮部、大場、飯村、赤岡、丸山、若井田、渡部　「アブレーションされたランタノイド原子の共鳴吸収分光　(1)Gdを用いた同位体識別のための最適条件の確立」JAEA-Research 2008-056 (2008).

[4] J. C. Miller and R. F. Haglund: “Laser ablation and desorption”, Academic Press (1998).

[5] S. Amoruso, R. Bruzzese, N. Spinelli and R. Velotta: “Characterization of laser-ablation plasmas”, J. Phys. B 32 pp. R131-R172 (1999).

[6] F. Vega, C. N. Afonso and J. Solis: “Real time optical diagnostics of the plume dynamics during laser ablation of germanium in an oxygen environment”, J. Appl. Phys. 73 pp. 2472-2476 (1993).

[7] W. Pietsch, B. Dubreuil and A. Briand: “A study of laser-produced copper plasma at reduced pressure for spectroscopic applications”, Appl. Phys. B 61 pp. 267-275 (1995).

[8] S. S. Harilal, B. O’Shay, Y. Tao and M. S. Tillack: “Ambient gas effects on the dynamics of laser-produced tin plume expansion”, J. Appl. Phys. 99 pp. 083303-1-083303-10 (2006).

[9] M. V. Mathew, S. S. Harilal and M. S. Tillack: “Emission characteristics and dynamics of neutral species in a laser-produced tin plasma”, J. Phys. D 40 pp. 447-452 (2007).

[10] S. S. Harilal, C. V. Bindhu, M. S. Tillack, F. Najmabadi and A. C. Gaeris: “Internal structure and expansion dynamics of laser ablation plumes into ambient gases”, J. Appl. Phys. 93 pp. 2380-2388 (2003).

[11] H. R. Pakhal, R. P. Lucht and N. M. Laurendeau: “Spectral measurements of incipient plasma temperature and electron number density during laser ablation of aluminum in air”, Appl. Phys. B 90 pp.15-27 (2008).

[12] H. Kurniawan, K. Lahna, T. J. Lie, K. Kagawa and M. O. Tjia: “Detection of density jump in laser-induced shock wave plasma using a rainbow refractometer”, Appl. Spectrosc. 55 pp. 92-97 (2001).

[13] H. Wang, H. Ohba, M. Saeki, M. Miyabe, T. Shibata, H. Miyatake and H. Iimura: “Velocity and metastable state population distributions of neodymium atoms produced by laser ablation”, Appl. Phys. B 81 pp. 1127-1133 (2005).

[14] J. Maul, S. Karpuk and G. Huber: “Bimodal velocity distribution of atoms released from nanosecond ultraviolet laser ablation”, Phys. Rev. B 71 pp. 045428-1-045428-5 (2005).

[15] A. Buchsbaum, G. Rauchbauer, P. Varga and M. Schmid: “Time-of-flight spectroscopy of the energy distribution of laser-ablated atoms and ions”, Rev. Sci. Instr. 79 pp. 043301-1-043301-8 (2008).

[16] P. Ecija, M. N. Sanchez Rayo, R. Martinez, B. Sierra, C. Redondo, F. J. Basterretxea and F. Castano: “Fundamental process in nanosecond pulsed laser ablation of metals in vacuum”, Phys. Rev. A 77 pp. 032904-1-032904-8 (2008).

[17] J. I. Apinaniz, B. Sierra, R. Martinez, A. Longarte, C. Redondo and F. Castano: “Energy distributions and mechanisms of pulsed laser ablation of Al”, J. Phys. Chem. C 112 pp. 16556-16560 (2008).

[18] M. Rossa, C. A. Rinaldi and J. C. Ferrero: “Velocity distributions of Ba ($^1S_0$, ^3D_J, $^1D_2$, $^3P_1$ and $^1P_1$) and Ba^+($^2P_{3/2}$) produced by 1064nm pulsed laser ablation of barium in vacuum”, J. Appl. Phys. 100 pp. 063305-1-063305-6 (2006).

M. Rossa, C. A. Rinaldi and J. C. Ferrero: “Internal state populations and velocity distributions of monatomic species ejected after the 1064nm laser irradiation of barium”, J. Appl. Phys. 105 pp. 063306-1-063306-13 (2009).

[19] G. W. Martin, L. A. Doyle, A. Al-Khateeb, I. Weaver, D. Riley, M. J. Lamb, T. Morrow and C. L. S. Lewis: “Three-dimensional number density mapping in the plume of a low-temperature laser-ablated magnesium plasma”, Appl. Surf. Sci. 127-129 pp. 710-715 (1998).

[20] S. S. Chu and C. P. Grigoropoulos: “Determination of kinetic energy distribution in a laser-ablated titanium plume by emission and laser-induced fluorescence spectroscopy”, J. Heat Trans. 122 pp. 771-775 (2000).

[21] J. Chang, K. Chen, C. Sung, T. Chung, K. Lee and Y. T. Chen: “A new sub-Doppler fluorescence imaging method in studying laser ablation of B atoms at 248nm”, J. Phys. Chem. B 105 pp. 5079-5082 (2001).

[22] Y. Matsuo, M. Kurata-Nishimura, T. Kobayashi, T. Kato, Y. Okamura-Oho, T. Sano, Y. Hayashizaki, J. Kawai: “Substrate dependence of ion motion in femtosecond laser ablation cloud observed by planar laser-induced fluorescence”, Appl. Phys. A 92 pp. 993-997 (2008).

[23] N. H. Cheung, Q. Y. Ying, J. P. Zheng and H. S. Kwok: “Time-resolved resonant absorption study of 532-nm laser-generated plumes over $YBa_2Cu_3O_7$ targets”, J. Appl. Phys. 69 pp. 6349-6354 (1991).

[24] B. A. Bushaw and M. L. Alexander: “Investigation of laser ablation plume dynamics by high-resolution time-resolved atomic absorption spectroscopy”, Appl. Surf. Sci. 127-129 pp. 935-940 (1998).

[25] Smithsonian Astrophysical Observatory: Atomic Line Data (R. L. Kurucz and B. Bell) Kurucz CD-ROM No.23, (online) available from http://www.cfa.harvard.edu/amp/ampdata/kurucz23/sekur.html

[26] E. A. Den Hartog and J. E. Lawler: “Radiative lifetimes of singly ionized cerium”, J. Phys. B 41 pp. 045701-1-045701-6 (2008).

[27] E. A. Den Hartog, K. P. Buettner and J. E. Lawler: “Radiative lifetimes of neutral cerium”, J. Phys. B 42 pp. 085006-1-085006-7 (2009).

[28] M. Miyabe　to be published.

[29] K. Kagawa and I. Nasrullah: 「レーザープラズマ分光による元素分析」 J. Plasma Fusion Res. 83 pp. 401-412 (2007).

[30] 宮部、大場、飯村、赤岡、丸山、若井田 「アブレーションされたランタノイド原子の共鳴吸収分光 (3) 短パルスレーザーアブレーションによるセリウム粒子の飛行特性」JAEA-Research 投稿準備中

[31] M. Kurata-Nishimura, Y. Matsuo, T. Kobayashi, T. Kato, Y. Hayashizaki, J. Kawai: “Comparison of plume expansion in femtosecond laser ablation on oxidized and non-oxidized Sm surfaces”, Appl. Phys. A 92 pp. 1047-1050 (2008).

[32] F. Claeyssens, S. J. Henley and M. N. R. Ashfold: “Comparison of ablation plumes arising from ArF laser ablation of graphite, silicon, copper and aluminum in vacuum”, J. Appl. Phys. 94 pp. 2203-2211 (2003).

[33] N. M. Bulgakova, A. V. Bulgakov and O. F. Bobrenok: “Double layer effects in laser-ablation plasma plume”, Phys. Rev. E 62 pp. 5624-5635 (2000).

[34] R. Stoian, A. Rosenfeld, D. Ashkenasi, I. V. Hertel, N. M. Bulgakova and E. E. B. Campbell: “Surface charging and impulsive ion ejection during ultrafast pulsed laser ablation”, Phys. Rev. Let. 88 pp. 097603-1-097603-4 (2002).

[35] R. Kelly and B. Braren: “On the direct observation of the gas-dynamics of laser-pulse sputtering of polymers”, Appl. Phys. B 53 pp. 160-169 (1991).

[36] H. P. Gu, Q. H. Lou, N. H. Cheung, S. C. Chen, Z. Y. Wang and P. K. Lin: “Experimental study of enhanced emission of the laser-ablated plume in backing gas”, Appl. Phys. B 58 pp. 143-148 (1994).

[37] C. Dutouquet and J. Hermann: “Laser-induced fluorescence probing during pulsed-laser ablation for three-dimensional number density mapping of plasma species”, J. Phys. D 34 pp. 3356-3363 (2001).

[38] C. Aragon, F. Penalba and J. A. Aguilera: “Spatial characterization of laser-induced plasmas: distributions of neutral atom and ion densities”, Appl. Phys. A 79 pp. 1145-1148 (2004).

[39] 電気学会 レーザーアブレーションとその産業応用調査専門委員会編「レーザーアブレーションとその応用」コロナ社、(1999).

[40] 香川：「衝撃波ハンドブック」高山和喜編、Springer Tokyo、4.8節 衝撃波による元素分析、pp.1060-1066 (1995).

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	立法メートル	m^3
速さ，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
面積密度	キログラム毎平方メートル	kg/m^2
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
磁界の強さ	アンペア毎メートル	A/m
量濃度[a]，濃度	モル毎立方メートル	mol/m^3
質量濃度	キログラム毎立法メートル	kg/m^3
輝度	カンデラ毎平方メートル	cd/m^2
屈折率[b]	（数字の） 1	1
比透磁率[b]	（数字の） 1	1

(a) 量濃度（amount concentration）は臨床化学の分野では物質濃度（substance concentration）ともよばれる。
(b) これらは無次元量あるいは次元１をもつ量であるが、そのことを表す単位記号である数字の１は通常は表記しない。

表３．固有の名称と記号で表される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[b]	rad	1 [b]	m/m
立体角	ステラジアン[b]	sr[c]	1 [b]	m^2/m^2
周波数	ヘルツ[d]	Hz		s^{-1}
力	ニュートン	N		$m\ kg\ s^{-2}$
圧力，応力	パスカル	Pa	N/m^2	$m^{-1}\ kg\ s^{-2}$
エネルギー，仕事，熱量	ジュール	J	N m	$m^2\ kg\ s^{-2}$
仕事率，工率，放射束	ワット	W	J/s	$m^2\ kg\ s^{-3}$
電荷，電気量	クーロン	C		s A
電位差（電圧），起電力	ボルト	V	W/A	$m^2\ kg\ s^{-3}\ A^{-1}$
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	$m^2\ kg\ s^{-3}\ A^{-2}$
コンダクタンス	ジーメンス	S	A/V	$m^{-2}\ kg^{-1}\ s^3\ A^2$
磁束	ウエーバ	Wb	Vs	$m^2\ kg\ s^{-2}\ A^{-1}$
磁束密度	テスラ	T	Wb/m^2	$kg\ s^{-2}\ A^{-1}$
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A	$m^2\ kg\ s^{-2}\ A^{-2}$
セルシウス温度	セルシウス度[e]	℃		K
光束	ルーメン	lm	cd sr[c]	cd
照度	ルクス	lx	lm/m^2	$m^{-2}\ cd$
放射性核種の放射能[f]	ベクレル[d]	Bq		s^{-1}
吸収線量, 比エネルギー分与, カーマ	グレイ	Gy	J/kg	$m^2\ s^{-2}$
線量当量, 周辺線量当量, 方向性線量当量, 個人線量当量	シーベルト[g]	Sv	J/kg	$m^2\ s^{-2}$
酸素活性	カタール	kat		$s^{-1}\ mol$

(a)SI接頭語は固有の名称と記号を持つ組立単位と組み合わせても使用できる。しかし接頭語を付した単位はもはやコヒーレントではない。
(b)ラジアンとステラジアンは数字の１に対する単位の特別な名称で、量についての情報をつたえるために使われる。実際には、使用する時には記号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である数字の１は明示されない。
(c)測光学ではステラジアンという名称と記号srを単位の表し方の中に、そのまま維持している。
(d)ヘルツは周期現象についてのみ、ベクレルは放射性核種の統計的過程についてのみ使用される。
(e)セルシウス度はケルビンの特別な名称で、セルシウス温度を表すために使用される。セルシウス度とケルビンの単位の大きさは同一である。したがって、温度差や温度間隔を表す数値はどちらの単位で表しても同じである。
(f)放射性核種の放射能（activity referred to a radionuclide）は、しばしば誤った用語で"radioactivity"と記される。
(g)単位シーベルト（PV,2002,70,205）についてはCIPM勧告2（CI-2002）を参照。

表４．単位の中に固有の名称と記号を含む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
粘度	パスカル秒	Pa s	$m^{-1}\ kg\ s^{-1}$
力のモーメント	ニュートンメートル	N m	$m^2\ kg\ s^{-2}$
表面張力	ニュートン毎メートル	N/m	$kg\ s^{-2}$
角速度	ラジアン毎秒	rad/s	$m\ m^{-1}\ s^{-1}=s^{-1}$
角加速度	ラジアン毎秒毎秒	rad/s^2	$m\ m^{-1}\ s^{-2}=s^{-2}$
熱流密度，放射照度	ワット毎平方メートル	W/m^2	$kg\ s^{-3}$
熱容量，エントロピー	ジュール毎ケルビン	J/K	$m^2\ kg\ s^{-2}\ K^{-1}$
比熱容量，比エントロピー	ジュール毎キログラム毎ケルビン	J/(kg K)	$m^2\ s^{-2}\ K^{-1}$
比エネルギー	ジュール毎キログラム	J/kg	$m^2\ s^{-2}$
熱伝導率	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m K)	$m\ kg\ s^{-3}\ K^{-1}$
体積エネルギー	ジュール毎立方メートル	J/m^3	$m^{-1}\ kg\ s^{-2}$
電界の強さ	ボルト毎メートル	V/m	$m\ kg\ s^{-3}\ A^{-1}$
電荷密度	クーロン毎立方メートル	C/m^3	$m^{-3}\ sA$
表面電荷	クーロン毎平方メートル	C/m^2	$m^{-2}\ sA$
電束密度，電気変位	クーロン毎平方メートル	C/m^2	$m^{-2}\ sA$
誘電率	ファラド毎メートル	F/m	$m^{-3}\ kg^{-1}\ s^4\ A^2$
透磁率	ヘンリー毎メートル	H/m	$m\ kg\ s^{-2}\ A^{-2}$
モルエネルギー	ジュール毎モル	J/mol	$m^2\ kg\ s^{-2}\ mol^{-1}$
モルエントロピー, モル熱容量	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol K)	$m^2\ kg\ s^{-2}\ K^{-1}\ mol^{-1}$
照射線量（Ｘ線及びγ線）	クーロン毎キログラム	C/kg	$kg^{-1}\ sA$
吸収線量率	グレイ毎秒	Gy/s	$m^2\ s^{-3}$
放射強度	ワット毎ステラジアン	W/sr	$m^4\ m^{-2}\ kg\ s^{-3}=m^2\ kg\ s^{-3}$
放射輝度	ワット毎平方メートル毎ステラジアン	$W/(m^2\ sr)$	$m^2\ m^{-2}\ kg\ s^{-3}=kg\ s^{-3}$
酵素活性濃度	カタール毎立方メートル	kat/m^3	$m^{-3}\ s^{-1}\ mol$

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６．SIに属さないが、SIと併用される単位

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=86 400 s
度	°	1°=(π/180) rad
分	’	1’=(1/60)°=(π/10800) rad
秒	”	1”=(1/60)’=(π/648000) rad
ヘクタール	ha	$1ha=1hm^2=10^4m^2$
リットル	L，l	$1L=1l=1dm^3=10^3cm^3=10^{-3}m^3$
トン	t	$1t=10^3$ kg

表７．SIに属さないが、SIと併用される単位で、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 単位で表される数値
電子ボルト	eV	$1eV=1.602\ 176\ 53(14)\times10^{-19}J$
ダルトン	Da	$1Da=1.660\ 538\ 86(28)\times10^{-27}kg$
統一原子質量単位	u	1u=1 Da
天文単位	ua	$1ua=1.495\ 978\ 706\ 91(6)\times10^{11}m$

表８．SIに属さないが、SIと併用されるその他の単位

名称	記号	SI 単位で表される数値
バール	bar	$1\ bar=0.1MPa=100kPa=10^5Pa$
水銀柱ミリメートル	mmHg	1mmHg=133.322Pa
オングストローム	Å	$1\ Å=0.1nm=100pm=10^{-10}m$
海里	M	1 M=1852m
バーン	b	$1\ b=100fm^2=(10^{-12}cm)2=10^{-28}m^2$
ノット	kn	1 kn=(1852/3600)m/s
ネーパ	Np	SI単位との数値的な関係は、対数量の定義に依存。
ベル	B	
デシベル	dB	

表９．固有の名称をもつCGS組立単位

名称	記号	SI 単位で表される数値
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	$1\ St\ =1cm^2\ s^{-1}=10^{-4}m^2\ s^{-1}$
スチルブ	sb	$1\ sb\ =1cd\ cm^{-2}=10^4cd\ m^{-2}$
フォト	ph	$1\ ph=1cd\ sr\ cm^{-2}\ 10^4lx$
ガル	Gal	$1\ Gal\ =1cm\ s^{-2}=10^{-2}ms^{-2}$
マクスウェル	Mx	$1\ Mx = 1G\ cm^2=10^{-8}Wb$
ガウス	G	$1\ G =1Mx\ cm^{-2}\ =10^{-4}T$
エルステッド[c]	Oe	$1\ Oe \triangleq (10^3/4\pi)A\ m^{-1}$

(c) ３元系のCGS単位系とSIでは直接比較できないため、等号「 ≙ 」は対応関係を示すものである。

表10．SIに属さないその他の単位の例

名称	記号	SI 単位で表される数値
キュリー	Ci	$1\ Ci=3.7\times10^{10}Bq$
レントゲン	R	$1\ R = 2.58\times10^{-4}C/kg$
ラド	rad	$1\ rad=1cGy=10^{-2}Gy$
レム	rem	$1\ rem=1\ cSv=10^{-2}Sv$
ガンマ	γ	1 γ =1 nT=10-9T
フェルミ		1フェルミ=1 fm=10-15m
メートル系カラット		1メートル系カラット = 200 mg = 2×10-4kg
トル	Torr	1 Torr = (101 325/760) Pa
標準大気圧	atm	1 atm = 101 325 Pa
カロリー	cal	1cal=4.1858J（「15℃」カロリー），4.1868J（「IT」カロリー）4.184J（「熱化学」カロリー）
ミクロン	μ	1 μ =1μm=10^{-6}m

（第8版，2006年改訂）

この印刷物は再生紙を使用しています