JAEA-Research 2017-008 DOI:10.11484/jaea-research-2017-008



共鳴吸収法を用いたアブレーションプルーム中の 粒子の膨張挙動

-チタンとハフニウムの中性原子の挙動比較-

Expansion Characteristics of Particles in Ablation Plume Measured with Resonance Absorption Spectroscopy - Comparison of Neutral Atoms of Titanium and Hafnium -

> 鄭 京勲 宮部 昌文 赤岡 克昭 大場 正規 若井田 育夫

Kyunghun JUNG, Masabumi MIYABE, Katsuaki AKAOKA, Masaki OBA and Ikuo WAKAIDA

福島研究開発部門 廃炉国際共同研究センター 遠隔技術ディビジョン

Remote System and Sensing Technology Division Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science Sector of Fukushima Research and Development

August 2017

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

本レポートは国立研究開発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(<u>http://www.jaea.go.jp</u>) より発信されています。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 研究連携成果展開部 研究成果管理課 〒319-1195 茨城県那珂郡東海村大字白方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 Institutional Repository Section,

Intellectual Resources Management and R&D Collaboration Department, Japan Atomic Energy Agency.

2-4 Shirakata, 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, 2017

JAEA-Research 2017-008

共鳴吸収法を用いたアブレーションプルーム中の粒子の膨張挙動 -チタンとハフニウムの中性原子の挙動比較-

日本原子力研究開発機構

福島研究開発部門 廃炉国際共同研究センター

遠隔技術ディビジョン

鄭 京勲*1、宮部 昌文、赤岡 克昭、大場 正規、若井田 育夫*2

(2017年7月20日 受理)

ジルコニウム (Zr) やウラン (U)、核分裂生成物、超ウラン元素などが混在する放射性廃棄物 の遠隔迅速分析を目的として、レーザーアブレーション共鳴吸収分光法に基づく分析手法の開発 を行っている。本手法では、アブレーションプルーム中の分析対象粒子の特性評価が重要である。 そこで本研究では Zr と化学的性質が類似するチタン (Ti) やハフニウム (Hf) を用いて、原子質 量の違いによるプルームの膨張挙動の違いを調べた。396 nm 付近の波長で実験に使用できる遷 移を選定し、その遷移を用いてアブレーション条件や背景ガス圧等のパラメータ依存性を調べた。 原子の吸収波形からアブレーション直後の飛行速度を求め、軽い Ti が重い Hf より速いことを確 認した。プローブビームの高さを変えてプルームに光学的飛行時間法を適用することで、Hf より Ti で背景ガスの影響が大きいことを明らかにした。また、Ti と Hf の同位体識別能力を調べた結 果、同位体シフトの大きい遷移を使えば、どちらの元素も同位体識別の可能性があることを確か めた。本研究により、核燃料物質と原子炉材料が混在する廃棄物試料の共鳴吸収信号の特徴を理 解し、実験条件を最適化するための基礎的知見が得られた。

原子力科学研究所:〒319-1195 茨城県那珂郡東海村大字白方 2-4 ※1 博士研究員 ※2 特任研究員

JAEA-Research 2017-008

Expansion Characteristics of Particles in Ablation Plume Measured with Resonance Absorption Spectroscopy - Comparison of Neutral Atoms of Titanium and Hafnium -

Kyunghun JUNG $^{\pm1}$, Masabumi MIYABE, Katsuaki AKAOKA, Masaki OBA and Ikuo WAKAIDA $^{\pm2}$

Remote System and Sensing Technology Division Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science Sector of Fukushima Research and Development Japan Atomic Energy Agency Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received July 20, 2017)

We are developing an analytical method using laser ablation absorption spectroscopy (LAAS) to analyze radioactive waste mixed with zirconium (Zr), uranium (U), fission-products, transuranium and so on. It is of great importance to evaluate the characteristics of the plume formed by the objective particles for LAAS analysis. In this study, therefore, titanium (Ti) and hafnium (Hf) whose chemical properties are similar to those of Zr were chosen as analytical target. And the difference in expanding behavior of the plume due to the weight of the atoms was investigated. Transitions usable for experiments at wavelengths around 396 nm were selected and experimental parameters such as ablation conditions and background gas pressure were examined using the selected transitions. We determined the initial velocity of the atoms at the time of ablation and confirmed that the light Ti is faster than Hf by the experiment. As a result of changing the height of the probe beam and applying the optical time-of-flight method to the plume, it was found that the influence of the background gas is larger for Ti than Hf. Isotopic identification ability of LAAS method was investigated for Ti and Hf, and it could be possible by using a transition with large isotope shift. The meaning of the resonance absorption signal of the waste sample mixed with nuclear fuel materials and nuclear reactor materials was understood by this study and basic knowledge to optimize experimental conditions was also obtained.

Keywords: Laser Ablation, Atomic Absorption Spectroscopy, Titanium, Hafnium

[※]1 Post-Doctoral Fellow

^{*2} Specially Appointed Researcher

目 次

1.	はし	こめに	.1
2.	実懸	検装置と実験条件の検討	.3
4	2.1.	実験装置	.3
4	2.2.	使用遷移の検討	.4
4	2.3.	アブレーション閾値	.6
4	2.4.	アブレーションされた粒子の滞在時間	.7
3.	結果	長と考察	.8
e e	3.1.	Ti と Hf の密度変化比較	.8
e e	3.2.	吸収の時間変化波形のガス圧依存性	.8
į	3.3.	ドップラー分裂による水平速度分布	.9
į	3.4.	ボルツマンプロットを用いたプラズマ温度測定1	11
į	3.5.	光学的飛行時間法による真空における粒子の鉛直方向速度分布1	13
į	3.6.	同位体スペクトル	20
4.	結論	希	23
謝	辞…		23
参	考文南	犬2	24

Contents

1.	Int	roduction	1
2.	Inv	restigation of experimental apparatus and experimental condition	3
2	2.1.	Experimental apparatus	3
2	2.2.	Transition survey for experiment	4
2	2.3.	Ablation threshold	6
2	2.4.	Persistant time of ablated particles	7
3.	Res	sults and discussion	8
90	8.1.	Comparison of density change between Ti and Hf	8
90	8.2.	Gas pressure dependence of absorption signal	8
90	8.3.	Horizontal velocity distribution by Doppler splitting	9
90	8.4.	Plasma temperature measurement using Boltzmann plot	11
90	8.5.	Vertical velocity distribution of particles in vacuum by Time-of-flight method	13
90	8.6.	Isotope spectrum	20
4.	Coi	nclusion	23
Acl	know	vledgements	23
Ref	ferer	1ces	24

This is a blank page.

1. はじめに

福島第一原子力発電所の廃炉作業に伴ない、超ウラン元素や核分裂生成物を含み、高い放射能 を有する廃棄物の発生が予想される。この廃棄物には様々な α 核種が含まれ、同重体も多数混在 することから、その核種組成分析に既存の放射化学的な手法や質量分析法を適用することは難し いと考えられる。また高い放射能のため、分析作業者の被爆低減も重要な課題となる。そのよう な廃棄物分析法として、現在、レーザー誘起ブレイクダウン分光法(Laser Induced Breakdown Spectroscopy、LIBS)[1,2]の開発が進められている。

LIBS は試料表面に強いパルスレーザー光を照射して生じるマイクロプラズマ、即ち、アブレー ションプルームから放出される発光から、試料の情報を引き出す方法である。この方法は試料の 化学処理が不要で、多くの元素に適用可能である。また試料へのレーザー光の照射や発生したプ ラズマ発光の計測に際し、光ファイバーを用いて光を伝送すれば、遠隔での試料分析も可能とな る。ただし LIBS は、ウラン等の複雑な原子構造を持つ元素に対しては検出限界が数百 ppm 以 上と高く、比較的感度が低いという弱点がある。さらに、アブレーションされた原子やイオンの 持つエネルギーが大きいことから、同位体の信号識別には向いていない。

我々は、このような放射性廃棄物の分析に適した核種組成の遠隔・迅速分析法として、レーザ ーアブレーション共鳴吸収分光法(Laser Ablation Absorption Spectroscopy、LAAS) [3]に注目 し、その適用性について検討している。この手法では、パルスレーザーの照射で発生させたアブ レーションプルームに、分析核種の共鳴波長に発振波長を同調させたレーザー光を透過させ、透 過光強度の時間変化を計測することで、プルーム中の原子やイオン量を定量する。LAAS はプロ ーブとして指向性の高いレーザー光を用いるので、光検出器等の光学系システムを試料から遠ざ けて配置できる。また、試料の前処理等も不要なことから、廃炉廃棄物の優れた核種分析法とな る可能性がある。本手法を用いて核燃料物質であるウラン同位体の分析が可能であることは文 献 [4,5]でもすでに報告されている。この方法ではレーザーアブレーションという過渡的な現象を 利用し、プルーム中の原子やイオンの運動エネルギーが低下し、荷電粒子が減少するといった、 核種分析に適したプルームの状態を作り出すことが重要で、そのための実験条件を決める上でプ ルームの動的膨張挙動の知識が不可欠となる。

この様なアブレーションプルームの中の原子やイオンの密度、速度、占有率分布などの特性は、 これまで発光分光法[6,7]、干渉分光法[8]、発光撮像法[9]、質量分析法[10,11]、ラングミュア プローブ法[12]等、さまざまな測定法で調べられてきた。中でも共鳴蛍光法と吸収法は、プルー ムの研究で大きな役割を果たしてきた。この蛍光法や吸収法が優れている点は、レーザー光をプ ローブとして用いるため、プルームの一部を高い位置分解能で精密に観測できることである。た だし蛍光法は、アブレーションに伴う強い発光パルスや、アブレーションレーザー自体の散乱光 がノイズとなり、その中から微弱な蛍光を識別しなければならないという技術的な難しさも有し ている。これに対して吸収法は、プルームを透過したレーザー光を測定するため、指向性や波長、 偏光などの違いを利用して、比較的容易にノイズを除去することが可能である。

ー般にアブレーションされた原子や分子、クラスター及びそれらのイオン(以下粒子種と呼ぶ) は、他の粒子種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す。こ のうち、カスケード的な緩和によって生じる準安定状態や基底状態の中性原子(以下原子種と呼ぶ)は、共鳴蛍光法や共鳴吸収法によってエネルギー状態毎に観測することができる。さらに共 鳴蛍光法では、レーザー光をシート状に加工してプルームに照射することで、蛍光を発する特定 の原子状態の原子種の、プルーム断面における分布等も観測することができる[13]。しかし、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、試料表面近傍のプルームでは、 レーザー共鳴吸収法の方が有利である。強く偏光し、指向性の高いプローブレーザー光を用いて、 異なる偏光成分を遮断すれば、プラズマ発光や散乱光の影響を大幅に減らすことができ、蛍光法 では観測が難しい条件でもプルーム吸収像などを測定可能である。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、出力は低いものの波長分解能の高い 連続発振半導体レーザーを利用し、ドップラー効果やシュタルク効果の影響を精密に分光、解析 することで、原子種の状態を高感度で把握できる。

我々はこれまで核燃料物質の模擬物質として酸化ガドリニウムや酸化セリウムを用いて、様々 な実験条件で吸収特性の変化を測定した [14,15]。その結果、プルームの初期膨張速度やイオン価 数による速度の違い、その違いを生じさせる加速機構や、イオンが中性原子化する再結合機構な どに関する様々な知見が得られたが、同位体分析が可能な実験条件下における、基底状態や準安 定状態の原子種の飛行特性の情報はまだ十分とは言えない。また、廃炉作業で生じる廃棄物への 本方法の適用性を知るためには、核燃料物質だけでなく、原子炉材料として広く利用されるジル コニウム (Zr) などが混在する試料を用いた試験もいずれ必要となる。

そこで本研究ではその様な原子炉材料へのLAASの応用の手始めとしてZrに注目する。但し、 本研究では原子質量の違いがプルームの膨張挙動にどの様な影響を及ぼすかを明らかにするため に、Zrと同族で質量差の大きいチタン(Ti)(質量数47.87)とハフニウム(Hf)(質量数178.49) で比較を行うことにした。これらの金属試料を用いて、プルームの吸収信号を測定し、その原子 種の飛行特性や、分析に与える影響について検討する。

2. 実験装置と実験条件の検討

2.1. 実験装置

装置の模式図を図 1 に示す。装置はプルームを発生させる真空チェンバー(内径 300 mm、高 さ 200 mm)と、アブレーション及び信号のプローブのためのレーザーシステムから構成されて いる。Tiと Hfの試料には 10 mm×10 mm大きさの金属チップ(Kojundo Chemical Laboratory、 TIE04CB・HFE01CB)を使用した。真空チェンバーの真空度測定にはクリスタルゲージ(Canon Anelva、M-320XG)を使用し、He 雰囲気ガス(純度 99.99%)を導入するためにバリアブルリ ークバルブ(R-DEC、951-7172)を使用した。真空チェンバーの圧力はロータリーポンプ(Edwards、 RV3)による到達真空度(10⁻² Pa 程度)から雰囲気ガス封入で1 kPa までの範囲で変化させた。

プローブ光源には青紫色レーザーダイオード(Nichia、NDUA116T、center wavelength: 396 nm)を用いた外部共振器型半導体レーザー(External Cavity Diode Laser、ECDL)システムを 使用した。ECDLの周波数制御は波長安定化 He-Ne レーザー(Thorlabs、HRS015)を基準光源 とするフリンジオフセットロック装置で行った。周波数安定化時の変動量は1 MHz 以下である。 発振波長と発振モードはフィゾー干渉型波長計(HighFinesse、WS-7)と、フリンジオフセット ロックに用いたエタロン干渉計(CVI Melles Griot、FSR 300 MHz、Finesse 100)で常時モニ タリングした。また、ECDL のパワーは超低出力光学センサー(Coherent、LM-2)を用いて測 定した。

試料のアブレーションには、Nd:YAG レーザー(LOTIS TII、LS-2134N)からの 12 ns のパル ス幅、10 Hz の繰返し周波数を持つ二倍高調波光(532nm)を使用した。パルス光は 10:1 光スプ リッタおよび λ/2 波長板、そして偏光ビームスプリッタキューブの組み合わせにより 100 分の 1 まで連続可変できるようにした。この光を真空チェンバーの上部に伝送し、焦点距離 200 mm の 両凸レンズを通して溶融石英窓から真空チェンバー内に導入した。導入した光は回転・並進ステ ージに固定された試料へ垂直に照射した。両凸レンズから試料までの距離は、焦点が試料表面か ら約 1 mm の深さになるように調整した。Nd:YAG レーザーのパルスエネルギーは波長板を回転 することで調整し、入射窓直前に置いたパイロジュールメーター(Ophir Optronics、PE-25)で 計測した。

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 8 mm 上方までの範囲で高さを可変 できるプローブ光と交差させた。プローブ光の光軸に対して、Nd:YAG レーザーの光軸を入射ミ ラーで変化させ、吸収信号が最大になるよう交差位置を調整した。プローブの位置分解能を高め るため、プローブ光はアイリスで直径 1 mm の大きさに整形した後、焦点距離 200 mm の両凸レ ンズにより集光し、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 検出感度を高めるため、再度、焦点距離 100 mm の両凸レンズで集光した。プローブに混入する Nd:YAG レーザーの散乱光とプルームの発光をバンドパスフィルタ (Edmund Optics、65131) 及びノッチフィルタ (Semrock、NF03-532E-25) により取り除いた後、帯域 10 MHz の光検出 器 (Thorlabs、PDA36A) で検出した。

プローブ光の波長を原子種の共鳴波長に同調させると、プローブ光はプルームを通り抜ける間 に吸収され、透過光強度がパルス的に減衰する。この透過光の時間変化波形は帯域 200 MHz の デジタルオシロスコープ(Iwatsu Electric、DS-5624A)で観測した。ショットごとのバラつき を減らすため、一枚のデータにつき 128 回のショットを積算した。また、ゲート幅を 50 ns に設 定したボックスカー積分器(Stanford Research Systems、SR250)を用いて、着目するゲート 時刻における信号強度を平均化して A/D ボード(Contec、AD16-16U(PCI)EV)を介してコンピ ュータ(Fujitsu、NE7/800)で記録した。



図 1 アブレーション共鳴分光実験装置の模式図。(Nd:YAG Laser : アブレーションレーザー、 ECDL : External Cavity Diode Laser、OI : Optical Isolator、FPI : Fabry-Perot Interferometer、 BPF : Bandpass Filter、NF : Notch Filter 、PD : 光検出器、TRS : Translation and Rotation Stage、FRV : Flow Regulating Valve)

2.2. 使用遷移の検討

測定に用いた Ti と Hf 原子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 [16]を表 1 に示す。主に 396 nm 近傍で,下準位が 10000 cm⁻¹以下である遷移を選定した。その結果、使用可能と予想される遷移は Ti I で五本、Hf I で二本存在することが分かった。イオン については、Ti と Hf どちらも条件に当てはまる遷移が存在しないため、本研究では中性原子だ けをターゲットとした。

これらの遷移候補が実際に LAAS に使えるかどうかを確認するため、各遷移の吸収を測定した。 式1のようなランベルトベール則を用いれば、透過率曲線からプルーム中の原子種の相対密度の 時間変化を視覚化できる [3,17]。

$$\int n(t,l,h)dl \propto -\frac{1}{f} \ln \frac{I(t,h)}{I_0}$$
(1)

ここでf は振動子強度, $I_0 \ge I(t,h)$ は入射、透過プローブビームの強度、n(t,l,h)は体積密度, hはプローブビームの高さ、lは通過したプルームパスの長さである。図 2 には Ti 原子の遷移 候補の時間に対する原子密度変化を、図 3 には Hf 原子の遷移候補の変化を示す。測定はプ ローブ光の高さ 1 mm、プローブパワー1.0 mW、アブレーションエネルギー0.19 mJ、He ガス圧 200 Pa の実験条件で行った。Ti 原子、Hf 原子ともに、始状態が高くなるほど密度減 少が早く始まることが分かる。特に Hf I の 395.1818 nm の遷移は始状態が 2356.68 cm⁻¹ と 高いため、緩和速度が非常に早くなっている。これは励起エネルギーが高いほど、それより 高い励起状態から緩和して落ちてくる原子よりも、より低い状態へと落ちていく原子の方が 多いためである。またエネルギーが高いほど、緩和によって落ちることのできる下準位数が 多くなることも 1 つの原因である。緩和で落ちる先のない基底状態の場合は、プルーム膨張 に伴う密度低下や、酸化やクラスター化といった気相化学反応による単原子の減少のみによ って密度減少が起こると考えられる[18]。基底状態を始状態とする遷移は Ti 原子には 394.8671 nm、396.2851 nm があり、Hf 原子には 396.8001 nm がある。そこで本研究で使 用する遷移には、緩和の影響が少ない基底状態を始状態とする遷移で、互いの波長差が小さ い二つの遷移(Ti I: 396.2851 nm、Hf I: 396.8001 nm)を選定した。



図 2 時間に対するチタン原子共鳴吸収線候補の粒子密度変化



図 3 時間に対するハフニウム原子共鳴吸収線候補の粒子密度変化

Floment	Wavelength		Lower	\mathbf{J}	Upper	J
Element	(nm)	gı	level (cm ⁻¹)	Lower	level (cm ⁻¹)	Upper
Ti I	394.8671	0.340	0.00	2.0	25317.81	1.0
]]	395.6335	0.352	170.13	3.0	25438.90	2.0
]]	395.8206	0.665	386.87	4.0	25643.70	3.0
]]	396.2851	0.068	0.00	2.0	25227.22	3.0
]]	396.4268	0.065	170.13	3.0	25388.33	4.0
Hf I	395.1818	0.074	2356.68	3.0	27654.33	3.0
11	396.8001	0.028	0.00	2.0	25194.48	1.0

表 1 測定に用いる Ti I、Hf I の共鳴吸収線候補と分光データ

2.3. アブレーション閾値

アブレーション光のパルスエネルギーが高いと、プルーム中の粒子種は強い逆制動放射により 大きな運動エネルギーを獲得し、発光・吸収スペクトルに大きなドップラー効果が現れる。また、 プルームの電離度も高くなるためシュタルク効果も大きくなる。逆にパルスエネルギーが弱すぎ ると、アブレーション自体が起こらなくなる。そこでアブレーションの起こる閾値を探る実験を 行った。He のガス圧を 700 Pa、プローブ光の高さを試料表面から 0.5 mm にした状態でアブレ ーション光のエネルギーを変化させ、透過率の変化を観測した。この透過率から Ti, Hf の原子密 度の相対値を求めてパルスエネルギーとの関係を示したのが図 4 である。閾値は低エネルギー測 定点を直線フィットすることにより求め、Ti で 0.06 mJ、Hf で 0.07 mJ という値を得た。



図 4 TiとHfのアブレーション原子密度とパルスエネルギーの関係

一般に閾値付近のパルスエネルギーではアブレーションが弱すぎてプラズマが不安定になり、 ショットごとの信号のばらつきが大きくなる。また、閾値よりパルスエネルギーが高すぎると、 試料に大きな穴が発生するので信号は再び不安定になる。経験的に閾値の 2~5 倍のエネルギーで 信号が最もが安定しやすいので、本研究では特に言及しない限り、パルスエネルギーを 0.3 mJ として測定を行った。

2.4. アブレーションされた粒子の滞在時間

図 2、図 3 に示す実験結果から、Ti や Hf 原子は数 100 us オーダーという、比較的長い時間 試料の直上に滞在することが分かった。 しかしアブレーション吸収法等の論文で報告されている 他の元素 (Y・Ba [19]、Li [20]、Sr [21]、Hg・Cd [22])の場合、異なる実験条件にもかかわら ず、ほとんどの場合、数十 us で吸収信号が消えている。これらの実験は酸化物試料で行われて いる例が多いため、本研究のような金属試料に比べて酸化物試料の方が滞在時間が短い可能性が あるとすれば、次のような理由が考えられる。誘電体表面では激しい爆発が起きて表面に電荷が 集まり、荷電粒子が高い運動エネルギーを得る [23]。フェムト秒レーザーによるアブレーション の例では、誘電体試料から飛び出す原子速度は、金属試料よりも10倍以上速いと報告されており、 プルームが早く膨張し、その分吸収の減少も早いことが想定される。金属試料では放出電子数が 多く、再結合によって中性原子の割合が増えるためこのような現象が起こりにくい。そこで Tiの 酸化物ペレット(Kojundo Chemical Laboratory、TI014PB、TiO2純度 99.99%の粉経 2 µm の 粉を5MPaの圧力で圧縮成形したもの)と金属試料で透過率の時間変化を比較する実験を行った。 その結果を図 5 に示す。実験条件は He ガス圧 200 Pa、プローブ光の強度 500 µW、アブレーシ ョンのパルスエネルギー0.3 mJとし、Ti Iの遷移には 396.2851 nm を用いた。これらの条件で はプルームの滞在時間は試料の化学形態に依存しないことが分かった。Ti や Hf などのアブレー ション粒子の滞在時間がランタノイドやアクチノイド元素に比べて長い理由については、更なる 研究が必要と思われる。



図 5 金属及び酸化物ペレットを用いた Ti I の透過率曲線

3. 結果と考察

3.1. Ti と Hf の密度変化比較

He ガス圧を 700 Pa、プローブパワーを 500 µW、アブレーションエネルギーを 0.12 mJ とし て Ti I と Hf I の原子密度変化を調べた結果を図 6 に示す。Hf の原子密度は Ti よりも初期の上昇 速度も後半の減少速度も早くなっている。これは Ti より Hf の方が緩和や酸化反応が進み易いた めかも知れない。そこで時間に対する変化を見るため、Ti と Hf 原子密度の比率を図 7 に示した。 その比率は 0~100 µs の範囲では急激に減少するが、100 µs 以降はほぼ一定値に達している。こ のような変化については 3.4 節で考察する。



図 6 同じアブレーション条件で測定した TiIと HfIの原子密度変化



図7時間に対するTiIとHfIの原子密度比率の変化

TiIとHfIのHeガス圧による吸収波形の変化を図8、図9に示す。プローブビームの高さは

^{3.2.} 吸収の時間変化波形のガス圧依存性

表面から 0.5 mm である。ガス圧が高いほどプルームは膨張しにくくなり、同じ数の粒子種がよ り狭い空間に集約されることになる。したがってレーザーと光反応するプルームパス上の原子密 度が高くなり、ガス圧が高くなるほど吸収量が増加する現象が TiIと HfI両方で確認できる。TiI では背景ガスを導入しない状態(25 Pa)でも僅かに吸収が確認されたが、HfIでは 190 Pa以下 では吸収がほとんど観測されないため、190 Pa からの信号を示している。また吸収が一旦最大に 達してから回復するまでの時間も TiIより、HfIのほうが早いことも分かる。







図 9 ガス圧変化による HfIの透過率曲線

3.3. ドップラー分裂による水平速度分布

これまでの研究によりセリウムやガドリニウムの場合、ガス雰囲気中で膨張するプルームはガ ス分子との衝突によって図 10 のような薄皮状のコンタクト層を形成する事が分かっている [13]。 この状態でプローブレーザーの周波数をその共鳴周波数から少しずつデチューニングして透過率 を計測すると、入射方向に向かう原子種と、反対方向に向かう原子種によって透過率曲線の分裂 が観測される。図 11 は 670 Pa の He ガス環境下で ECDL の周波数を離調しながら Ce イオンの 透過率の変化を測定した結果である。二つの吸収ピーク(透過率曲線ではディップ)が現れるの はアブレーション直後に最初の成分が試料上方へと通過した後、真空中では生じない、プローブ レーザーの視線方向を低速で飛行する成分が大量に生成されるためである。離調周波数の変化に 対して 0.3 µs 付近の早い成分は殆ど変化しないが、この遅い成分は粒子の減速に伴ってピークの 時刻や強さが大きく変化する。そこで、Ti でも同様の現象が起きるかどうかを確認する実験を行 った。ECDLの周波数を Ti I の共鳴周波数から少しずつ離調させて測定した吸収の変化を図 12 に示す。Ce II とは異なり、遅い成分が動く様子は明瞭には見えない。Ti の緩和には長い時間が かかるためアブレーション直後の変化が観測しにくいためと思われる。このデータを用いて、吸 収が最大になる時間を Appearance time とすれば、式(2)からプルームの速度を計算できる[21]。

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

ここで v_H は Horizontal velocity、 $S_{Doppler}$ はピークの分裂幅を示す。図 13 に計算したプルームの lateral 方向速度と、そこから外挿した初期速度を示す。Ti I のアブレーション直後の初期速度は 約 2.5 km/s と計算された。粒子の速度スケールは質量に反比例するので [22,24]、文献の関係式 「 $u \propto 1/\sqrt{m}$ 」を用いると Hf の初期速度は 1.3 km/s 程度と評価される。



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 プローブレーザーの周波数離調による Ce II の透過率曲線の変化



図 12 プローブレーザーの周波数離調による Ti I の透過率曲線の変化



図 13 ドップラー分裂結果から計算した Ti I の水平方向速度

3.4. ボルツマンプロットを用いたプラズマ温度測定

プラズマ中の粒子種がエネルギー準位 i,j (i:下準位, j:上準位)の間を遷移すると波長λ_{ji}の発光 スペクトルが発生する。このスペクトル線の絶対強度I_{ji}は j 準位にいる粒子種の密度N_jと、j 準位 に外殻電子を持つ一個の粒子種が単位時間当たり j 準位から i 準位に遷移する確率A_{ji}に比例する。 遷移1回あたりの強度はhc/λ_{ji}であるので、絶対強度の総計は次のように書くことができる。

$$I_{ji} = N_j \cdot \frac{hc}{\lambda_{ji}} A_{ji}$$
(3)

プラズマ中のある観測点で各粒子種の温度がすべて同一な局所熱平衡状態(Local Thermodynamic Equilibrium、LTE)の時、粒子密度N_iは次のようなボルツマン分布に従う。

$$N_{j} = N_{0} \cdot \frac{g_{j}}{Z(T)} \exp\left(-\frac{E_{j}}{k_{B}T}\right)$$
(4)

ここで N_0 は当該粒子種の全密度、 g_j はj準位の縮退度、Z(T)は粒子種の内部分配関数、 E_j はj準 位のエネルギー、 k_B はボルツマン定数である。LTE 状態のプラズマは気体状態方程式と、サハの 電離平均式が成立してプラズマ全体としては電気的中性になるので、この式から粒子密度と温度 の関係を求められるようになる。分光学的測定法を用いてプラズマの温度を求める方法としては スペクトル線の絶対強度を利用する方法、Fowler-Milner 法、最適化法、シュタルク効果法など があるが、これらの方法は計算に利用される遷移確率や係数値をただ1個しか使用しないので、 利用する値の精度に大きく影響を受ける上に、スペクトルの絶対強度も必要とする短所がある。 これに対してボルツマンプロット [25,26]を用いる方法は測定が容易なスペクトル線の相対強度 を用いながらも、多くの遷移確率を利用することで精度を高くできる。(4)式を(3)式に代入すると スペクトル線の絶対強度 I_{ii} に測定系の吸収率 β を適用した相対強度 I'_{ii} は次のように得られる。

$$I_{ji}' = \frac{hcg_j A_{ji}}{\beta \lambda_{ji}} \frac{N_0}{Z(T)} \exp\left(-\frac{E_j}{k_B T}\right)$$
(5)

この式を次のように変形する。

$$\ln\left(\frac{I_{nm}\lambda_{nm}}{g_{n}A_{nm}}\right) = -\frac{E_{n}}{k_{B}T} + \ln\left(\frac{N_{0}hc}{Z(T)6}\right)$$
(6)

ある粒子種の温度Tが一定であれば、この粒子種が発するすべてのスペクトル線において分配関数 Z(T)および、密度N₀は一定である。この時吸収率 β が波長に依存しない範囲においてスペクトル 線の測定強度から得られるln($I'_{nm}\lambda_{nm}/g_nA_{nm}$)を、 E_n に対してプロットすれば直線関係が得られ、 この直線の傾きからプラズマ温度 T が求まる。

発光法の場合、上のような関係式からプラズマ温度が求められるが、吸光法の場合には、下準 位iの確率密度からボルツマンプロットを描くことができる。

$$P = (2J+1) \cdot \exp\left(-\frac{E_i}{k_B T}\right) \tag{7}$$

したがって上式を利用すれば遷移が三個以上存在する Ti I に対してボルツマンプロットが描ける。 図 2 から下準位が 0.00, 170.13, 386.87 cm⁻¹である三つの遷移から計算したプラズマ温度を、観 測時間に対して整理した結果を図 14 に示す。アブレーション直後は高かったプラズマ温度が時 間に対して指数関数的に低下し、約 100 µs 以降は定常状態に達していることが分かる。図 7 で示 した Ti/Hf の原子密度比が約 100 µs 以降一定なのもプラズマ温度が定常状態に入った影響と考え られる。プラズマの温度は約 220 K で安定している。室温より若干低い温度までプラズマが冷え るのは、He ガスが 200Pa の減圧環境下にあるため、ガスによる弱い冷却効果が現れた可能性が あると考えられる。



図 14 下準位が 0.00, 170.13, 386.87 cm⁻¹である Ti I 遷移の粒子密度変化(図 2)から計算した プラズマ温度の時間変化

3.5. 光学的飛行時間法による真空における粒子の鉛直方向速度分布

アブレーションプルームの膨張の様子を調べるため、光学的飛行時間法(Time of flight: TOF) による実験を行った。プローブビームの高さを試料表面から 0.5 mm 上方から 7.5 mm まで変化 させ、He ガスの圧力を 60 Pa から 500Pa に変化させて吸収率の変化を測定した。測定結果から 計算した Ti I の原子密度を図 15 に、Hf I の原子密度を図 16 に示す。プルームの持続時間が長 い Ti や Hf の元素の特性から、図 15、16 のいずれの実験結果からも短い時間での変化は見られ なかった。また、長い時間に対してはプローブ光の高さが変わっても、原子密度の最大値が観測 される時間はほどんど変化がないことが確認された。高さによるピーク値の変化は、プルームの 形状そのものに従っていることが分かる。

これをより分かりやすくするため、各プローブビーム高さでの原子密度を時間に対して区別したものを図式化して図 17~20 に示した。データは 2、10、20、30、50、70、80、100、150、200、400、800 µs の時間のものを抽出した。y 軸はプローブ光の高さ(0.5~7.5 mm)であり、x 軸は各実験で得られた原子密度の最大値を基準にして規格化し、中心線をゼロとして左右対称に描いたものである。図 17、図 18 は He ガスが 200 Pa の場合の Ti I と Hf I の原子密度変化であり、図 19,図 20 は He ガスが 500 Pa の場合の変化である。取得時間は各図の右上に示した。Ti は200 Pa では高密度部分の上昇が認められるが(図 17)、500 Pa では表面付近にとどまっている(図 19)。一方、Hf は 500 Pa でも高密度部分の上昇が認められる(図 20)。

この結果から、ガス圧が低い場合は Ti も Hf もプルームが遠くまで膨張できるが、ガス圧力が 高いと、プルームは圧縮されていることが分かる。また、その高さに注目すると、He ガスが 200 Pa と 500 Pa の両方の場合とも、軽い Ti I の方が Hf I よりも低い位置にとどまっている。各実験 は同じアブレーションエネルギーなので Ti I の方が Hf I より速度が早いと考えられるが、より重 い原子ほど背景ガスの圧縮力に打ち勝って、プルームがより遠くまで膨張できると考えられる。 この結果はアブレーションプルームを利用する LIBS や LAAS 等の元素組成分析値を考える上で 今後重要な知見となる可能性がある。



図 15 He ガス圧に対したプローブ光の高さによる Ti I の粒子密度変化 (a) 60 Pa、(b) 100 Pa、(c) 200 Pa、(d) 300 Pa、(e) 500 Pa



図 16 He ガス圧に対したプローブ光の高さによる Hf I の粒子密度変化 (a) 60 Pa、(b) 100 Pa、(c) 200 Pa、(d) 300 Pa、(e) 500 Pa



図 17 He ガス圧 200 Pa のとき、時間に対して変化するプローブ光の高さによる Ti I の粒子密度 変化。x 軸は Number density [arb. unit]、y 軸は Probe beam height [mm]となっている。



図 18 He ガス圧 200 Pa のとき、時間に対して変化するプローブ光の高さによる Hf I の粒子密度 変化。x 軸は Number density [arb. unit]、y 軸は Probe beam height [mm]となっている。



図 19 He ガス圧 500 Pa のとき、時間に対して変化するプローブ光の高さによる Ti I の粒子密度 変化。x 軸は Number density [arb. unit]、y 軸は Probe beam height [mm]となっている。



図 20 He ガス圧 500 Pa のとき、時間に対して変化するプローブ光の高さによる Hf I の粒子密度 変化。x 軸は Number density [arb. unit]、y 軸は Probe beam height [mm]となっている。

3.6. 同位体スペクトル

図 21 に Ce I の同位体シフトの測定結果を示す。実験に利用した遷移は 0 → 24619 cm⁻¹であ り、フィッティングにより得られた ¹⁴²Ce と ¹⁴⁰Ce スペクトル幅は 1.36 GHz、1.53 GHz である。 また同位体シフトは 2.39 GHz と計測された。このように LAAS 手法だと適切な実験条件の下で 同位体毎のスペクトルのシフト量を求めることが可能である。廃棄物分析では、原子炉材料の同 位体存在比が必要となる場合は少ないためシフト量の情報も重要ではないものの、同じように Ti や Hf の同位体シフトが測定できるかどうかを知っておくことは必要である。

Ti と Hf の天然同位体組成 (NA) を表 2 にまとめる。室温 (300 K) でのドップラー拡がりは Ti (396.2851nm) の場合 1356 MHz、Hf (396.8001 nm) の場合 701 MHz であり、約二倍の差 がある。図 22 に実験で得られた Ti I のスペクトルを示す。使用した遷移は 396.2851nm (0 → 25227 cm⁻¹) であり、He ガス圧は 210 Pa、ゲートディレイは 50 µs とした。このスペクトルの 半値幅は 2.26 GHz と計測された。Ti I の 396 nm 付近の遷移の同位体シフトは表 3 のように報 告 [27]されているが、ほとんどのシフトが室温のドップラー拡がりの中に埋もれてしまうので、 これらの遷移で LAAS 手法による Ti I の遷移同位体シフトの測定は容易ではないと考えられる。 一方、図 23 には LAAS 手法により得られた Hf I のスペクトルを示す。実験に利用した遷移は 396.8001nm (0 → 25194 cm⁻¹) であり、He ガス圧は 800 Pa、ゲートディレイは 200 µs、プロ ーブレーザーパワーは 500 µW、アブレーションエネルギーは 0.15 mJ である。Hf は Ti と比べ るとドップラー拡がりが半分程度であるため、スペクトルの分離識別が容易になっている。実験 結果では天然同位体比の小さい同位体についてはピークの識別が難しかったが、¹⁸⁰Hf, ¹⁷⁸Hf と考 えられるピークを見分けることができ、それぞれの半値幅を 1.17 GHz、0.77 GHz と求めること ができた。遷移の選択によっては他の同位体に関しても計測できる可能性があると考えられる。



図 21 参考のために取得した Ce 原子の同位体シフト。天然同位体が少なく、シフト量も大きいので綺麗に分離できる。

Isotope (Z=22)	NA	Isotope (Z=72)	NA
⁴⁶ Ti	8.00%	$^{174}\mathrm{Hf}$	0.16%
47Ti	7.30%	$^{176}\mathrm{Hf}$	5.21%
⁴⁸ Ti	73.80%	$^{177}\mathrm{Hf}$	18.61%
⁴⁹ Ti	5.50%	$^{178}\mathrm{Hf}$	27.30%
⁵⁰ Ti	5.40%	$^{179}\mathrm{Hf}$	13.63%
		$^{180}\mathrm{Hf}$	35.10%

表 2 Ti と Hf の同位体組成とその天然存在比



図 22 Ti I の周波数スキャンスペクトル。スペクトルのピークを 48Ti と仮定して、文献値を参考 にした同位体の位置を点線で表示した。

	衣 5 111 の向位体シノ下計例他					
Transition		Isotope sh	ift (MHz)			
(nm)	50 - 48	49-48	48-47	48-46		
394.867	1631.4(28)	860.4(25)	837.2(27)	1745.0(26)		
395.634	1403.3(24)	747.8(21)	710.8(20)	1487.4(20)		
395.821	1667.2(27)	878.3(21)	857.1(21)	1780.4(20)		
398.176	1172.2(20)	619.8(21)	595.3(21)	1241.7(20)		
396.285	1216.8(24)	640.4(21)	628.2(24)	1303.3(18)		
398.976	1215.6(19)	638.5(21)	627.6(22)	1305.2(18)		
398.427	1190.7(29)	625(50)	612(25)	1265.9(20)		

表	3	Ti	T	\mathcal{O}	同位	体シ	17	ト言	十泪	俌
1	•	T T	-	~ _				1 1	1 1 2 1	



図 23 Hf I の周波数スキャンスペクトル。¹⁸⁰Hf, ¹⁷⁸Hf と思われる二個の強いピークが観測された。

4. 結論

核燃料で汚染された放射性廃棄物の分析にレーザーアブレーション共鳴吸収分光法を用いるため、アブレーション原子種の飛行特性や吸収特性を測定した。化学的性質が類似し、原子質量の違いが大きい Ti と Hf を分析対象とし、使用可能な遷移や実験のための条件を調べた。プルーム中の原子種の質量の違いによる飛行特性の定性的な違いを調べた結果、重い Hf の方が、軽い Ti より遠くまで飛ぶことを確認した。初期速度は Hf の方が遅いものの、軽い Ti よりもガス分子を押す力が強いことがその原因と考えられる。本研究の結果から、重さの異なる原子種の飛行特性の違いが、LIBS 等の組成分析に影響を及ぼす可能性があることが分かった。また本研究によって、 Zr や U などが混在する試料の分析に LAAS を適用するための基礎的知見を得ることができた。

謝 辞

原子力センシング研究グループの大図章研究主幹には報告書の査読において非常に的確な意見 および有用な助言を頂きました。深く感謝致します。

参考文献

- D. W. Hahn and N. Omenetto, "Laser-Induced Breakdown Spectroscopy (LIBS), Part I: Review of Basic Diagnostics and Plasma–Particle Interactions: Still-Challenging Issues Within the Analytical Plasma Community," Appl. Spectrosc., 64, 12, 335A–366A (2010).
- D. W. Hahn and N. Omenetto, "Laser-Induced Breakdown Spectroscopy (LIBS), Part II: Review of Instrumental and Methodological Approaches to Material Analysis and Applications to Different Fields," Appl. Spectrosc., 66, 4, pp. 347–419 (2012).
- L. V. Berzins, T. M. Anklam, F. Chambers, S. Galanti, C. A. Haynam, and E. F. Worden, "Diode laser absorption spectroscopy for process control—sensor system design methodology," Surf. Coat. Technol., 76-77, pp. 675–680 (1995).
- B. W. Smith, A. Quentmeier, M. Bolshov, and K. Niemax, "Measurement of uranium isotope ratios in solid samples using laser ablation and diode laser-excited atomic fluorescence spectrometry," Spectrochim. Acta Part B At. Spectrosc., 54, 6, pp. 943–958 (1999).
- A. Quentmeier, M. Bolshov, and K. Niemax, "Measurement of uranium isotope ratios in solid samples using laser ablation and diode laser-atomic absorption spectrometry," Spectrochim. Acta Part B At. Spectrosc., 56, pp. 45–55 (2001).
- S. Amoruso, R. Bruzzese, N. Spinelli, and R. Velotta, "Characterization of laser-ablation plasmas," J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys., 32, R131–R172 (1999).
- 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, 083303-1-083303-10 (2006).
- 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, 1, pp. 92–97 (2001).
- 9) 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).
- 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. Instrum., 79, 043301-1-043301-8 (2008).
- P. Écija, M. N. S. Rayo, R. Martínez, B. Sierra, C. Redondo, F. J. Basterretxea, and F. Castaño, "Fundamental processes in nanosecond pulsed laser ablation of metals in vacuum," Phys. Rev., A 77, 032904-1-032904-8 (2008).
- 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).
- 13) M. Miyabe, M. Oba, H. Iimura, K. Akaoka, A. Khumaeni, M. Kato, and I. Wakaida,

"Ablation plume structure and dynamics in ambient gas observed by laser-induced fluorescence imaging spectroscopy," Spectrochim. Acta Part B At. Spectrosc., 110, pp. 101–117 (2015).

- 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," American Institute of Physics Conference Proceedings, Vol. 1104, pp. 30–35. (2009).
- 15) M. Miyabe, M. Oba, H. Iimura, K. Akaoka, Y. Maruyama, H. Ohba, M. Tampo, and I. Wakaida, "Doppler-shifted optical absorption characterization of plume-lateral expansion in laser ablation of a cerium target," J. Appl. Phys., 112, 123303-1-123303-10 (2012).
- 16) 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
- 17) 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 YBa₂Cu₃O₇ targets," J. Appl. Phys., 69, pp. 6349–6354 (1991).
- 18) 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、渡部 和男、"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・(受託研究)"、JAEA-Research 2008-056, (2008), 24p.
- D. B. Geohegan and D. N. Mashburn, "Characterization of ground-state neutral and ion transport during laser ablation of Y₁Ba₂Cu₃O_{7-x} using transient optical absorption spectroscopy," Appl. Phys. Lett., 55, 22, pp. 2345–2347 (1989).
- 20) M. Harnafi and B. Dubreuil, "Characterization and analysis of the CO₂ laser-induced ablation of lithium target via laser-induced fluorescence and absorption spectroscopy of emitted atoms," J. Appl. Phys., 69, 11, pp. 7565–7571 (1991).
- 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).
- 22) B. Y. Man, X. T. Wang, and A. H. Liu, "Transport of plasmas produced by pulsed laser ablation of HgCdTe," J. Appl. Phys., 83, pp. 3509–3513 (1998).
- 23) M. Kurata-Nishimura, Y. Matsuo, T. Kobayashi, T. Kato, Y. Hayashizaki, and 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).
- 24) S. Küper and J. Brannon, "Ambient gas effects on debris formed during KrF laser ablation of polyimide," Appl. Phys. Lett., 60, 13, pp. 1633–1635 (1992).
- 25) 何国偉、石井邦宣、柏谷悦章、粥川尚之、"金属溶解用アルゴンアークプラズマの Ar 原子の 遷移確率"、鐵と鋼 日本鐡鋼協會々誌 82, pp. 279–284 (1996).

- 26) 赤岡克昭、大場正規、宮部昌文、音部治幹、若井田育夫、"レーザー誘起ブレークダウン発 光分光法によるウランスペクトルの測定-高分解能分光スペクトル (470-670nm)-"、 JAEA-Research 2016-005, (2016), 40p.
- 27) W.-G. Jin, Y. Nemoto, and T. Minowa, "Hyperfine Structure and Isotope Shift in Ti I by UV Laser Spectroscopy," J. Phys. Soc. Jpn., 78, 9, 094301-1-094301-5 (2009).

_

表 1. SI 基本単位				
甘大昌	SI 基本ì	単位		
本平里	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	Α		
熱力学温度	ケルビン	Κ		
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					
AI 立 是 SI 組 立 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 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 ⁸				
質量濃度 キログラム毎立方メートル	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	t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

	SI 祖立単位				
組立量	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	
立体鱼	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	Ν		m kg s ⁻²	
E 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	С		s A	
電位差(電圧),起電力	ボルト	V	W/A	$m^2 kg s^{\cdot 3} A^{\cdot 1}$	
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	$m^{2} kg^{1} s^{3} A^{2}$	
磁東	ウエーバ	Wb	Vs	$m^2 kg s^2 A^{-1}$	
磁束密度	テスラ	Т	Wb/m ²	$kg s^{-2} A^{-1}$	
インダクタンス	ヘンリー	Н	Wb/A	$m^2 kg s^2 A^2$	
セルシウス温度	セルシウス度 ^(e)	°C		K	
光東	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	

酸素活性(1) ダール kat [s¹ mol]
 (w)SH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。
 (h)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。
 (a)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)へルツは周期現象についてのみ、ペラ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。 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。それシウス度とケルビンの
 (a)やレシウス度はケルビンの特別な名称で、温度器や温度開隔を表す整備はどもらの単位で表しても同じである。
 (b)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物告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

	SI 組立単位			
組立量	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	
カのモーメント	ニュートンメートル	N m	m ² kg s ⁻²	
表 面 張 九	リ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 s A	
表面電荷	「クーロン毎平方メートル	C/m ²	m ⁻² s A	
電東密度, 電気変位	クーロン毎平方メートル	C/m ²	m ² s A	
誘 電 辛	コアラド毎メートル	F/m	$m^{-3} kg^{-1} s^4 A^2$	
透 磁 率	ペンリー毎メートル	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 s A	
吸収線量率	ダレイ毎秒	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	名称	記号	乗数	名称	記号	
10^{24}	э 9	Y	10 ⁻¹	デシ	d	
10^{21}	ゼタ	Z	10^{-2}	センチ	с	
10^{18}	エクサ	Е	10^{-3}	ミリ	m	
10^{15}	ペタ	Р	10^{-6}	マイクロ	μ	
10^{12}	テラ	Т	10^{-9}	ナノ	n	
10^{9}	ギガ	G	10^{-12}	ピコ	р	
10^{6}	メガ	М	10^{-15}	フェムト	f	
10^3	+ 1	k	10^{-18}	アト	а	
10^{2}	ヘクト	h	10^{-21}	ゼプト	z	
10^{1}	デカ	da	10^{-24}	ヨクト	v	

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=60 s			
時	h	1 h =60 min=3600 s			
日	d	1 d=24 h=86 400 s			
度	۰	1°=(π/180) rad			
分	,	1'=(1/60)°=(π/10 800) rad			
秒	"	1"=(1/60)'=(π/648 000) rad			
ヘクタール	ha	1 ha=1 hm ² =10 ⁴ m ²			
リットル	L, 1	1 L=1 l=1 dm ³ =10 ³ cm ³ =10 ⁻³ m ³			
トン	t	$1 t=10^3 kg$			

表7. SIに属さないが、SIと併用される単位で、SI単位で

名称	記号	SI 単位で表される数値						
電子ボルト	eV	1 eV=1.602 176 53(14)×10 ⁻¹⁹ J						
ダルトン	Da	1 Da=1.660 538 86(28)×10 ^{·27} kg						
統一原子質量単位	u	1 u=1 Da						
天 文 単 位	ua	1 ua=1.495 978 706 91(6)×10 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=100 kPa=10 ⁵ Pa	
水銀柱ミリメートル	mmHg	1 mmHg≈133.322Pa	
オングストローム	Å	1 Å=0.1nm=100pm=10 ⁻¹⁰ m	
海 里	М	1 M=1852m	
バーン	b	$1 \text{ b}=100 \text{ fm}^2=(10^{-12} \text{ cm})^2=10^{-28} \text{ m}^2$	
ノット	kn	1 kn=(1852/3600)m/s	
ネーパ	Np	ci単位しの粉結的な間接け	
ベル	В	対数量の定義に依存。	
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	Р	1 P=1 dyn s cm ⁻² =0.1Pa s		
ストークス	St	$1 \text{ St} = 1 \text{ cm}^2 \text{ s}^{\cdot 1} = 10^{\cdot 4} \text{ m}^2 \text{ s}^{\cdot 1}$		
スチルブ	$^{\mathrm{sb}}$	$1 \text{ sb} = 1 \text{ cd cm}^{-2} = 10^4 \text{ cd m}^{-2}$		
フォト	ph	1 ph=1cd sr cm ⁻² =10 ⁴ lx		
ガ ル	Gal	1 Gal =1cm s ⁻² =10 ⁻² ms ⁻²		
マクスウエル	Mx	$1 \text{ Mx} = 1 \text{G cm}^2 = 10^{-8} \text{Wb}$		
ガウス	G	1 G =1Mx cm ⁻² =10 ⁻⁴ T		
エルステッド ^(a)	Oe	1 Oe ≙ (10 ³ /4 π)A m ⁻¹		
(a) 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	ユ		IJ	ſ	Ci	1 Ci=3.7×10 ¹⁰ Bq	
$\scriptstyle u$	\sim	ŀ	ゲ	\sim	R	$1 \text{ R} = 2.58 \times 10^{-4} \text{C/kg}$	
ラ				k	rad	1 rad=1cGy=10 ⁻² Gy	
$\scriptstyle u$				Д	rem	1 rem=1 cSv=10 ⁻² Sv	
ガ		$\boldsymbol{\mathcal{V}}$		7	γ	$1 \gamma = 1 \text{ nT} = 10^{-9} \text{T}$	
フ	T.		N	"		1フェルミ=1 fm=10 ⁻¹⁵ m	
メー	ートル	/系	カラゞ	ット		1 メートル系カラット= 0.2 g = 2×10 ⁻⁴ kg	
ŀ				ル	Torr	1 Torr = (101 325/760) Pa	
標	準	大	気	圧	atm	1 atm = 101 325 Pa	
+1	ы		11	_		1 cal=4.1858J(「15℃」カロリー), 4.1868J	
15	Ц		9		car	(「IT」カロリー), 4.184J(「熱化学」カロリー)	
3	ク			~	u	$1 \mu = 1 \mu m = 10^{-6} m$	