

J A E R I - M
90-162

レーザー共鳴電離により生成する
ガドリニウムプラズマの電子温度

1990年9月

小倉 浩一・有沢 孝・小塙 章・柴田 猛順

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

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

JAERI-M reports are issued irregularly.

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

©Japan Atomic Energy Research Institute, 1990

編集兼発行 日本原子力研究所
印 刷 いばらき印刷株

レーザー共鳴電離により生成するガドリニウムプラズマの電子温度

日本原子力研究所東海研究所燃料・材料工学部

小倉 浩一・有沢 孝・小塙 章
柴田 猛順

(1990年8月27日受理)

原子法レーザー同位体分離では、レーザー光により目的同位体をイオン化しこれを回収電極に回収するが、脱離した電子とともに形成されるプラズマから目的同位体イオンを効率良く回収することが必要である。目的同位体イオンはプラズマから電子温度程度の電位差で加速されるのでプラズマの電子温度を知ることが重要である。ここではガドリニウム原子をレーザー光により、共鳴イオン化して生成したプラズマの電子温度をラングミュアープローブを用いて測定した。得られた電子温度は0.05～0.08eVでレーザー光で放出した電子エネルギーに比べ非常に低く、しかもその値は原子励起温度にはほぼ等しかった。この結果は電子が基底状態または準安定状態のガドリニウム原子と衝突し励起または脱励起して電子温度が原子励起温度に近くなることを示しているものと思われる。

本報告は電源開発促進対策特別会計法に基づく科学技術庁からの受託によってなされた研究成果の一部である。

東海研究所：〒319-11 茨城県那珂郡東海村白方字白根2-4

Electron Temperature of Gd Plasma Produced by
Laser Resonance Ionization

Koichi OGURA, Takashi ARISAWA, Akira KOBANA and Takemasa SHIBATA

Department of Fuels and Materials Research
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received August 27, 1990)

In Atomic Vapor Laser Isotope Separation (AVLIS), it is necessary to extract ions efficiently from plasma produced by laser resonance ionization. It is important to know electron temperature of the plasma, since the aimed isotope ions are accelerated by electric potential of the order of electron temperature in the plasma. In this paper the electron temperature of Gd plasma produced by laser resonance ionization was measured by a Langmuir probe. This measured electron temperature, 0.05~0.08eV, is much lower than the released electron energy and is close to the atomic excitation temperature of Gd. This result seems to show that electrons collide with Gd atoms with excited or de-excitated ground or metastable Gd atoms, and the electron temperature becomes close to the atomic excitation temperature.

Keywords: Laser, Isotope Separation, Plasma, Atomic Excitation
Temperature, Resonance Ionization, Gadolinium

The work was performed under contract with Atomic Energy Bureau of
Science and Technology Agency of Japan.

目 次

1. はじめに	1
2. 実験装置	1
3. ガドリニウム電離スペクトルの測定	2
4. プローブ測定結果	2
5. 考 察	3
6. おわりに	5
参考文献	5

Contents

1. Introduction	1
2. Experimental Apparatus	1
3. Ionization Spectra of Gadolinium	2
4. Results of Probe Measurements	2
5. Discussion	3
6. Conclusion	5
References	5

1. はじめに

原子法レーザー同位体分離では目的とする同位体をレーザー光共鳴電離し、これを回収電極に回収するが、レーザー光で生成したイオンは脱離した電子とともにプラズマを形成する。目的同位体イオンは生成したプラズマから電子温度程度の電位差で加速され、プラズマから抜け⁽¹⁾⁽²⁾、回収電極に引き出される。従って同位体イオンの回収機構の解明と効率のよい回収部の設計のためには、共鳴電離で生成したプラズマの電子温度 T_e を知ることが重要である。

金属蒸気をレーザー光により共鳴イオン化してプラズマを生成したときの電子温度の測定はこれまで有沢等⁽³⁾によりリチウムプラズマをダブルプローブを用いて行った例がある。レーザー光で共鳴イオン化したリチウムプラズマの場合、電子温度はイオン化に用いたレーザー光のエネルギーからイオン化ポテンシャルを引いたエネルギー、すなわち放出される電子のエネルギーにほぼ等しいという結論を出している。原子法レーザー同位体分離の対象となる元素はウランなどのアクチノド元素やガドリニウム等の希土類元素などの原子構造の複雑なものが多く、励起準位として低いエネルギーに多くの準安定状態が存在するので、レーザー光による共鳴イオン化時に脱離する電子が原子と相互作用して原子を励起または脱励起してそのエネルギーを原子と交換する可能性がある。しかしながら、これらをレーザー光により共鳴電離して生成されるプラズマの電子温度の測定はこれまでになされた例は報告されていない。このためアクチノイド元素や希土類元素を共鳴イオン化して生成したプラズマの電子温度の測定が求められている。

ここでは希土類元素の一つであるガドリニウムを1波長3段階または1波長2段階によるレーザー共鳴電離によりイオン化しプラズマをつくり、そのプラズマの電子温度の測定をラングミュアープローブを用いて行った⁽⁴⁾。

2. 実験装置

実験装置の概略図を図1に示す。原子蒸気発生器は日本電子（株）製 JEBG-203UB の電子銃で水冷銅るっぽ（80cc）内に入れたガドリニウム金属を加熱して原子蒸気を発生させた。この原子蒸気にレーザー光を照射し、1波長3段階または1波長2段階レーザー共鳴電離によりプラズマを生成した。ガドリニウム蒸気はスリットを通して、この2枚の平行な電極（以下、回収電極）の間を抜けていく。電子銃加熱型の水冷銅るっぽによる蒸発を行うと回収電極部に到達する蒸気中に荷電粒子が存在する。これらの荷電粒子がレーザー照射部分に入らないように、2枚の除去電極に負の電圧（約400V）を印加することにより荷電粒子の除去を行った。

回収電極は、目的とする同位体原子イオンを回収するための電極で2枚の回収電極は、縦100mm、長さ150mmの長方形、その間隔は、20mmである。ここでは、両方の回収電極とも接地した。水冷銅るっぽの蒸発面より高さ310mm、2枚の回収電極の間の中央に、電極に平行にレーザー光を照射した。レーザー光は、エキシマレーザー励起の色素レーザー光を用いた。レーザ

1. はじめに

原子法レーザー同位体分離では目的とする同位体をレーザー光共鳴電離し、これを回収電極に回収するが、レーザー光で生成したイオンは脱離した電子とともにプラズマを形成する。目的同位体イオンは生成したプラズマから電子温度程度の電位差で加速され、プラズマから抜け⁽¹⁾⁽²⁾、回収電極に引き出される。従って同位体イオンの回収機構の解明と効率のよい回収部の設計のためには、共鳴電離で生成したプラズマの電子温度 T_e を知ることが重要である。

金属蒸気をレーザー光により共鳴イオン化してプラズマを生成したときの電子温度の測定はこれまで有沢等⁽³⁾によりリチウムプラズマをダブルプローブを用いて行った例がある。レーザー光で共鳴イオン化したリチウムプラズマの場合、電子温度はイオン化に用いたレーザー光のエネルギーからイオン化ポテンシャルを引いたエネルギー、すなわち放出される電子のエネルギーにほぼ等しいという結論を出している。原子法レーザー同位体分離の対象となる元素はウランなどのアクチノド元素やガドリニウム等の希土類元素などの原子構造の複雑なものが多く、励起準位として低いエネルギーに多くの準安定状態が存在するので、レーザー光による共鳴イオン化時に脱離する電子が原子と相互作用して原子を励起または脱励起してそのエネルギーを原子と交換する可能性がある。しかしながら、これらをレーザー光により共鳴電離して生成されるプラズマの電子温度の測定はこれまでになされた例は報告されていない。このためアクチノイド元素や希土類元素を共鳴イオン化して生成したプラズマの電子温度の測定が求められている。

ここでは希土類元素の一つであるガドリニウムを1波長3段階または1波長2段階によるレーザー共鳴電離によりイオン化しプラズマをつくり、そのプラズマの電子温度の測定をラングミュアープローブを用いて行った⁽⁴⁾。

2. 実験装置

実験装置の概略図を図1に示す。原子蒸気発生器は日本電子(株)製 JEBG-203UB の電子銃で水冷銅るっぽ(80cc)内に入れたガドリニウム金属を加熱して原子蒸気を発生させた。この原子蒸気にレーザー光を照射し、1波長3段階または1波長2段階レーザー共鳴電離によりプラズマを生成した。ガドリニウム蒸気はスリットを通して、この2枚の平行な電極(以下、回収電極)の間を抜けていく。電子銃加熱型の水冷銅るっぽによる蒸発を行うと回収電極部に到達する蒸気中に荷電粒子が存在する。これらの荷電粒子がレーザー照射部分に入らないように、2枚の除去電極に負の電圧(約400V)を印加することにより荷電粒子の除去を行った。

回収電極は、目的とする同位体原子イオンを回収するための電極で2枚の回収電極は、縦100mm、長さ150mmの長方形、その間隔は、20mmである。ここでは、両方の回収電極とも接地した。水冷銅るっぽの蒸発面より高さ310mm、2枚の回収電極の間の中央に、電極に平行にレーザー光を照射した。レーザー光は、エキシマレーザー励起の色素レーザー光を用いた。レーザ

一光の断面は、直径10mmの円形をしている。レーザー光のパルスエネルギーは、真空容器の出口で測定した。レーザー光のパルス幅は約17nsecである。ラングミュアープローブはタンクステン製、直径0.7mm、長さ約3mmの円筒状でレーザー照射の中心から10mm上に置いた。また、プローブ測定回路を図2に示す。レーザー照射位置でのガドリニウム原子密度は、蒸発面から620mmの所に水晶振動子式の膜厚計を置いて蒸着速度を測定することによって推定した。

3. ガドリニウム電離スペクトルの測定

ガドリニウム原子の基底状態の電子配置は、 $4f^7 5d 6s^2$ であり、電子状態は 9D と表される。基底準位は $J = 2$ で、エネルギーの低い方から $J = 3, 4, 5, 6$ の4つの準安定準位がある。ガドリニウム原子のイオン化ボテンシャンシャルは 49603 cm^{-1} である⁽⁵⁾。このため、1波長3段階でガドリニウムをイオン化するときは、色素レーザーの色素にローダミン6G($\text{C}_{28}\text{H}_{31}\text{N}_2\text{O}_3\text{Cl}$)を用いた。また、1波長2段階でイオン化するにはQUI(3, 5, 3'', 5'' - Tetra-t-butyl-p-quinquephenyl $\text{C}_{46}\text{H}_{54}$)を用いた。ガドリニウムをイオン化するための波長をきめるため、図3に示すように、レーザー光の波長を掃引して、イオン化スペクトルを測定した。本測定は、プローブの電位を正にしてプローブに入る電子電流をボックスカーチ分器でパルスレーザー光に同期して測定した。1波長3段階では、図3に示すように、イオン化量の大きい575.19nmと579.14nmの波長を用いてイオン化を行った。1段目の光については、575.19nmの光では、 $J = 2, 0\text{ cm}^{-1}$ から、 $J = 2, 17381\text{ cm}^{-1}$ への励起が、579.14nmでは、 $J = 4, 533\text{ cm}^{-1}$ から $J = 3, 17795\text{ cm}^{-1}$ への励起が、起こっていることが、これまでのNBS等⁽⁶⁾⁽⁷⁾のデータからわかる。1波長2段階では図4に示すようにイオン化量の大きい370.94nmの光を用いてイオン化を行った。これまでに知られているエネルギー準位⁽⁷⁾から $J = 2, 0\text{ cm}^{-1}$ から $J = 1, 26955\text{ cm}^{-1}$ への遷移と思われる。

4. プローブ測定結果

ガドリニウムの推定原子密度が $3.5 \times 10^{11}\text{ cm}^{-3}$ のときのプローブ測定でのシグナルの例を図5(a), 図5(b)に示す。図5(b)はプローブに正の電圧を印加した場合のプローブ電流とプローブ電位である。パルスレーザー光照射により生成されたプラズマが蒸気の流れと共に流れながら膨張して行くために図のように波形の立ち上がりの傾きに比べて終わりの傾きは緩やかである。また、プローブ電位が変化しているのは、測定回路にプローブ電流が流れ込み、コンデンサーが充放電するためである。図5(b)はプローブに負の電位を印加した場合のプローブ電流とプローブ電位である。ここで、レーザー照射から $10\mu\text{sec}$ 後のプローブ電圧とプローブ電流から図6に示されるような電流電圧曲線をつくった。図の電流電圧曲線は、レーザー光の波長575.19nmでイオン化した場合である。電子温度を求めるには、電子電流が必要である。図6(a)の電流値はイオンと電子の両方の電流の和である。イオン電流はプローブ電位が数V以上のイオン飽和領域の直線を外

一光の断面は、直径10mmの円形をしている。レーザー光のパルスエネルギーは、真空容器の出口で測定した。レーザー光のパルス幅は約17nsecである。ラングミュアープローブはタンクステン製、直径0.7mm、長さ約3mmの円筒状でレーザー照射の中心から10mm上に置いた。また、プローブ測定回路を図2に示す。レーザー照射位置でのガドリニウム原子密度は、蒸発面から620mmの所に水晶振動子式の膜厚計を置いて蒸着速度を測定することによって推定した。

3. ガドリニウム電離スペクトルの測定

ガドリニウム原子の基底状態の電子配置は、 $4f^7 5d 6s^2$ であり、電子状態は 9D と表される。基底準位は $J = 2$ で、エネルギーの低い方から $J = 3, 4, 5, 6$ の4つの準安定準位がある。ガドリニウム原子のイオン化ポテンシャンシャルは 49603 cm^{-1} である⁽⁵⁾。このため、1波長3段階でガドリニウムをイオン化するときは、色素レーザーの色素にローダミン6G($\text{C}_{28}\text{H}_{31}\text{N}_2\text{O}_3\text{Cl}$)を用いた。また、1波長2段階でイオン化するにはQUI(3, 5, 3''', 5''' - Tetra-t-butyl-p-quinquephenyl $\text{C}_{46}\text{H}_{54}$)を用いた。ガドリニウムをイオン化するための波長をきめるため、図3に示すように、レーザー光の波長を掃引して、イオン化スペクトルを測定した。本測定は、プローブの電位を正にしてプローブに入る電子電流をボックスカーチ分器でパルスレーザー光に同期して測定した。1波長3段階では、図3に示すように、イオン化量の大きい575.19nmと579.14nmの波長を用いてイオン化を行った。1段目の光については、575.19nmの光では、 $J = 2, 0\text{ cm}^{-1}$ から、 $J = 2, 17381\text{ cm}^{-1}$ への励起が、579.14nmでは、 $J = 4, 533\text{ cm}^{-1}$ から $J = 3, 17795\text{ cm}^{-1}$ への励起が、起こっていることが、これまでのNBS等⁽⁶⁾⁽⁷⁾のデータからわかる。1波長2段階では図4に示すようにイオン化量の大きい370.94nmの光を用いてイオン化を行った。これまでに知られているエネルギー準位⁽⁷⁾から $J = 2, 0\text{ cm}^{-1}$ から $J = 1, 26955\text{ cm}^{-1}$ への遷移と思われる。

4. プローブ測定結果

ガドリニウムの推定原子密度が $3.5 \times 10^{11}\text{ cm}^{-3}$ のときのプローブ測定でのシグナルの例を図5(a), 図5(b)に示す。図5(b)はプローブに正の電圧を印加した場合のプローブ電流とプローブ電位である。パルスレーザー光照射により生成されたプラズマが蒸気の流れと共に流れながら膨張して行くために図のように波形の立ち上がりの傾きに比べて終わりの傾きは緩やかである。また、プローブ電位が変化しているのは、測定回路にプローブ電流が流れ込み、コンデンサーが充放電するためである。図5(b)はプローブに負の電位を印加した場合のプローブ電流とプローブ電位である。ここで、レーザー照射から $10\mu\text{sec}$ 後のプローブ電圧とプローブ電流から図6に示されるような電流電圧曲線をつくった。図の電流電圧曲線は、レーザー光の波長575.19nmでイオン化した場合である。電子温度を求めるには、電子電流が必要である。図6(a)の電流値はイオンと電子の両方の電流の和である。イオン電流はプローブ電位が数V以上のイオン飽和領域の直線を外

一光の断面は、直径10mmの円形をしている。レーザー光のパルスエネルギーは、真空容器の出口で測定した。レーザー光のパルス幅は約17nsecである。ラングミュアープローブはタンクステン製、直径0.7mm、長さ約3mmの円筒状でレーザー照射の中心から10mm上に置いた。また、プローブ測定回路を図2に示す。レーザー照射位置でのガドリニウム原子密度は、蒸発面から620mmの所に水晶振動子式の膜厚計を置いて蒸着速度を測定することによって推定した。

3. ガドリニウム電離スペクトルの測定

ガドリニウム原子の基底状態の電子配置は、 $4f^7 5d 6s^2$ であり、電子状態は 9D と表される。基底準位は $J = 2$ で、エネルギーの低い方から $J = 3, 4, 5, 6$ の4つの準安定準位がある。ガドリニウム原子のイオン化ボテンシャンシャルは 49603 cm^{-1} である⁽⁵⁾。このため、1波長3段階でガドリニウムをイオン化するときは、色素レーザーの色素にローダミン6G($\text{C}_{28}\text{H}_{31}\text{N}_2\text{O}_3\text{Cl}$)を用いた。また、1波長2段階でイオン化するにはQUI(3, 5, 3''', 5''' - Tetra-t-butyl-p-quinquephenyl $\text{C}_{46}\text{H}_{54}$)を用いた。ガドリニウムをイオン化するための波長をきめるため、図3に示すように、レーザー光の波長を掃引して、イオン化スペクトルを測定した。本測定は、プローブの電位を正にしてプローブに入る電子電流をボックスカーチ分器でパルスレーザー光に同期して測定した。1波長3段階では、図3に示すように、イオン化量の大きい575.19nmと579.14nmの波長を用いてイオン化を行った。1段目の光については、575.19nmの光では、 $J = 2, 0\text{ cm}^{-1}$ から、 $J = 2, 17381\text{ cm}^{-1}$ への励起が、579.14nmでは、 $J = 4, 533\text{ cm}^{-1}$ から $J = 3, 17795\text{ cm}^{-1}$ への励起が、起こっていることが、これまでのNBS等⁽⁶⁾⁽⁷⁾のデータからわかる。1波長2段階では図4に示すようにイオン化量の大きい370.94nmの光を用いてイオン化を行った。これまでに知られているエネルギー準位⁽⁷⁾から $J = 2, 0\text{ cm}^{-1}$ から $J = 1, 26955\text{ cm}^{-1}$ への遷移と思われる。

4. プローブ測定結果

ガドリニウムの推定原子密度が $3.5 \times 10^{11}\text{ cm}^{-3}$ のときのプローブ測定でのシグナルの例を図5(a), 図5(b)に示す。図5(b)はプローブに正の電圧を印加した場合のプローブ電流とプローブ電位である。パルスレーザー光照射により生成されたプラズマが蒸気の流れと共に流れながら膨張して行くために図のように波形の立ち上がりの傾きに比べて終わりの傾きは緩やかである。また、プローブ電位が変化しているのは、測定回路にプローブ電流が流れ込み、コンデンサーが充放電するためである。図5(b)はプローブに負の電位を印加した場合のプローブ電流とプローブ電位である。ここで、レーザー照射から $10\mu\text{sec}$ 後のプローブ電圧とプローブ電流から図6に示されるような電流電圧曲線をつくった。図の電流電圧曲線は、レーザー光の波長575.19nmでイオン化した場合である。電子温度を求めるには、電子電流が必要である。図6(a)の電流値はイオンと電子の両方の電流の和である。イオン電流はプローブ電位が数V以上のイオン飽和領域の直線を外

挿して求めた。電子電流はプローブ電流からイオン電流を差し引いて求めた。その結果を対数プロットしたのが図6(b)である。傾きから電子温度は0.08eVと求まった。また、イオン飽和電流 J_+ は、

$$J_+ = n_i e S (kTe/M)^{0.5} \exp(-0.5)$$

と書ける。ここで、 n_i はイオン密度、 e はイオンの電荷、 S はプローブの表面積、 k はボルツマン定数、 M はイオンの質量である。この式より、イオン密度は $n_i = 1.4 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$ となった。同様に、レーザー光の波長に579.42nmを用いて共鳴電離をした場合の電流電圧曲線を図7(a)に、プローブ電位に対する電子電流を図7(b)に示す。この傾きから電子温度は0.07eVとなる。また、イオン密度は $6.6 \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$ であった。また、レーザー光の波長は370.94nmで1波長2段階で共鳴電離をした場合の測定結果を図8(a), 図8(b)に示す。図より電子温度は0.05eV、イオン密度は $1.3 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$ であった。

5. 考察

(1) プラズマと呼べるかどうかの考察

本実験で作った電離気体が本当にプラズマと呼べるかどうかについて考察する。プラズマの満たす3つの条件は次の通りである⁽⁸⁾。

- ① $\lambda_D \ll L$
- ② $N_D = n_i 4 / 3\pi \lambda_D^3 \gg 1$
- ③ $\omega_P \tau > 1$

ここで、 λ_D はデバイ長、 L は系の代表長さで、ここでは1cm程度である。 N_D はプラズマパラメーターで、デバイ球の中にある粒子数である。また、 n_i はイオン密度である。 ω_P はプラズマ振動数、 τ は中性子との衝突から次の衝突までの平均時間である。波長575.19nmを用いた1波長3段階の場合は、デバイ長 $\lambda_D = 3.8 \times 10^{-3} \text{ cm}$ 、プラズマパラメータ $N_D = 3.2 \times 10^2$ である。中性原子密度を n_0 、電子の速さを v 、衝突断面積を σ とすれば、 $\tau = 1/n_0 \sigma v$ である。 v として0.1eVの電子速度 $5 \times 10^7 \text{ cm/sec}$ 、 n_0 として本実験での原子密度 $3.5 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ とし、 $\sigma = 10^{-13} \text{ cm}^2$ と仮定して τ を計算すると $\tau = 5 \times 10^7 \text{ sec}$ となる。上記の条件について ω_P 、 $\tau \omega_P$ を計算すると波長575.19nmを用いた1波長3段階の場合は、プラズマ振動数 $\omega_P = 2.1 \times 10^9 \text{ sec}^{-1}$ 、 $\omega_P \tau = 1.2 \times 10^3$ であり、したがって上記の条件(1)~(2)をすべてみたす。

(2) 電子温度についての考察

1波長3段階共鳴イオン化では、図9に示すような電離スキームによりGdプラズマを生成したが、波長575.19nmでイオン化した場合、電離後イオンはその基底状態にあるとすると電離後の光電子のエネルギー E_e は、 $E_e = 3h\nu - IP = 0.32 \text{ eV}$ (IP はイオン化ポテンシャル、 h はプランク定数、 ν は光の周波数)となる。得られたプラズマ密度から電子電子衝突周波数は 10^6 sec^{-1} 程度で非常に速く、光電子放出後、数 μsec 後には、マックスウェル分布の熱平衡になるとすれば、 $E = 1.5kT_e$ となるので、電子温度は0.21eVとなるはずである。これは実験により得られた電子温度の0.08eVの値よりも大きい。同様に、波長579.14nmでイオン化し

挿して求めた。電子電流はプローブ電流からイオン電流を差し引いて求めた。その結果を対数プロットしたのが図 6(b)である。傾きから電子温度は0.08eVと求まった。また、イオン飽和電流 J_+ は、

$$J_+ = n_i e S (kTe/M)^{0.5} \exp(-0.5)$$

と書ける。ここで、 n_i はイオン密度、 e はイオンの電荷、 S はプローブの表面積、 k はボルツマン定数、 M はイオンの質量である。この式より、イオン密度は $n_i = 1.4 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$ となった。同様に、レーザー光の波長に579.42nmを用いて共鳴電離をした場合の電流電圧曲線を図7(a)に、プローブ電位に対する電子電流を図7(b)に示す。この傾きから電子温度は0.07eVとなる。また、イオン密度は $6.6 \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$ であった。また、レーザー光の波長は370.94nmで1波長2段階で共鳴電離をした場合の測定結果を図8(a), 図8(b)に示す。図より電子温度は0.05eV、イオン密度は $1.3 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$ であった。

5. 考察

(1) プラズマと呼べるかどうかの考察

本実験で作った電離気体が本当にプラズマと呼べるかどうかについて考察する。プラズマの満たす3つの条件は次の通りである⁽⁸⁾。

- ① $\lambda_D \ll L$
- ② $N_D = n_i 4 / 3\pi \lambda_D^3 \gg 1$
- ③ $\omega_P \tau > 1$

ここで、 λ_D はデバイ長、 L は系の代表長さで、ここでは1cm程度である。 N_D はプラズマパラメーターで、デバイ球の中にある粒子数である。また、 n_i はイオン密度である。 ω_P はプラズマ振動数、 τ は中性子との衝突から次の衝突までの平均時間である。波長575.19nmを用いた1波長3段階の場合は、デバイ長 $\lambda_D = 3.8 \times 10^{-3} \text{ cm}$ 、プラズマパラメータ $N_D = 3.2 \times 10^2$ である。中性原子密度を n_0 、電子の速さを v 、衝突断面積を σ とすれば、 $\tau = 1/n_0 \sigma v$ である。 v として0.1eVの電子速度 $5 \times 10^7 \text{ cm/sec}$ 、 n_0 として本実験での原子密度 $3.5 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ とし、 $\sigma = 10^{-13} \text{ cm}^2$ と仮定して τ を計算すると $\tau = 5 \times 10^7 \text{ sec}$ となる。上記の条件について ω_P 、 $\tau \omega_P$ を計算すると波長575.19nmを用いた1波長3段階の場合は、プラズマ振動数 $\omega_P = 2.1 \times 10^9 \text{ sec}^{-1}$ 、 $\omega_P \tau = 1.2 \times 10^3$ であり、したがって上記の条件(1)~(2)をすべてみたす。

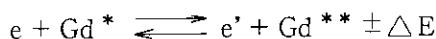
(2) 電子温度についての考察

1波長3段階共鳴イオン化では、図9に示すような電離スキームによりGdプラズマを生成したが、波長575.19nmでイオン化した場合、電離後イオンはその基底状態にあるとすると電離後の光電子のエネルギー E_e は、 $E_e = 3h\nu - IP = 0.32 \text{ eV}$ (IP はイオン化ポテンシャル、 h はプランク定数、 ν は光の周波数)となる。得られたプラズマ密度から電子電子衝突周波数は 10^6 sec^{-1} 程度で非常に速く、光電子放出後、数 μsec 後には、マックスウェル分布の熱平衡になるとすれば、 $E = 1.5kTe$ となるので、電子温度は0.21eVとなるはずである。これは実験により得られた電子温度の0.08eVの値よりも大きい。同様に、波長579.14nmでイオン化し

た場合、電子温度 0.23eV と予想されるが、測定値は 0.07eV である。1 波長 2 段階では前述したように 0cm^{-1} の準位から遷移したものとすると放出電子のエネルギーは 0.53eV、電子温度は 0.35eV と予想されるが測定値は 0.05eV である。

一方、著者と西村、大場⁽⁹⁾は本装置でのガドリニウム原子の準安定準位密度をリングダイレーザー光の吸収により測定している。これらによれば、本実験と同じ蒸発量で準安定準位の励起温度は 702K、0.06eV である。この値はラングミュアープローブで測定されたレーザー誘起プラズマの電子温度に非常に近い。この原因としてプラズマ内の電子が準安定準位にあるガドリニウム原子とエネルギー交換してガドリニウム原子の励起温度に近くなっていると考えると、レーザー誘起プラズマの電子温度が原子励起温度に近いことを説明できる。

本仮説が正しいためには、次の励起または脱励起反応が



十分速く起こっている必要がある。この反応断面積のデータはないので Gryzinski の古典論より導かれた次の励起断面積 σ_{ex} の式⁽¹⁰⁾,

$$\begin{aligned} \sigma_{ex}(E) = & \pi e / (E - 2U_I) \\ & \times \left[\left(1/U_n - 1/U_{n+1} \right) + \left(2U_I/3 \right) \left(1/U_{n+1}^2 - 1/U_n^2 \right) \right. \\ & + \left(1/B_{n+1} - 1/B_n \right) + \left(2U_I/3 \right) \left(1/B_{n+1}^2 - 1/B_n^2 \right) \\ & - 1/(E + U_I) \cos \left\{ (R/(E + U_I))^{1/2} \ln(B_n/U_n) \right\} \\ & \times \ln(U_{n+1} B_n / U_n B_{n+1}) \end{aligned}$$

ここで $R = 13.58\text{eV} = 1 \text{Rydberg}$

E : 入射電子の運動エネルギー

$U_I = 6.15\text{eV}$: Gd 原子のイオン化ポテンシャル

U_n : n 番目の状態への励起エネルギー

U_{n+1} : $n + 1$ 番目の状態への励起エネルギー

ただし $U_n \leq E \leq U_{n+1}$ のときは $U_{n+1} = E$ とする。

$$B_n = E + U_I - U_n$$

$$B_{n+1} = E + U_I - U_{n+1}$$

によりその励起断面積 σ_{ex} を求めてみた。その結果の一例を表 1 に示すが Gd のように遷移エネルギーが小さいとき、その断面積は非常に大きく、 $10^{-13} \sim 10^{-11}\text{cm}^2$ となる。このように電子エネルギーが小さいところで Gryzinski の古典論が成り立つかどうか疑問であり結果が正しいかどうかは今後の研究の進展を待たなければならないが励起または脱励起段面積が計算では小さい値である 10^{-13}cm^2 として緩和の速度を推定してみる。 n を原子密度、 σ_{ex} を励起または脱励起断面積、 v を衝突速度とすれば、反応速度 k は、

$$k = n \sigma_{ex} v$$

と書ける。いま、原子密度 $n = 3.5 \times 10^{11}\text{cm}^{-3}$ 、衝突速度 v は、電子の速度に等しいとして $v \sim 5 \times 10^7\text{cm/sec}$ とし、励起または脱励起断面積 $\sigma_{ex} \sim 10^{-13}\text{cm}^2$ とすれば、衝突時間 $\tau = 1/k = 5.7 \times 10^{-7}\text{sec}$ となる。したがって、レーザーによる電離後、電子温度を測定した時刻 $10\mu\text{sec}$ では、十分電子温度の緩和が起こることになり、電子温度が原子の励起温度に近くなっていると推定される。またこのときのプラズマの電子密度は 10^9cm^{-3} 程度であり原子密度

$3.5 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ にくらべて非常に小さい。このため、電子のエネルギーが原子の励起エネルギーに移っても原子の励起温度はほとんど変化しないものと思われる。

6. おわりに

ガドリニウムをレーザー光で 1 波長 3 段階または 1 波長 2 段階共鳴イオン化によりイオン化しプラズマをつくり、そのプラズマの電子温度の測定をラングミュアープローブを用いておこなった。その結果、測定された電子温度は $0.05 \sim 0.08 \text{ eV}$ という非常に低いものであることを初めて明らかにした。この結果は、原子法レーザー同位体分離でイオン回収機構の解明と効率のよい回収部の設計に今後生かされるであろう。また、別に測定した原子励起温度にはほぼ近かった。これは、電子が準安定状態にあるガドリニウム原子とエネルギー交換して、ガドリニウムの原子励起温度に近くなっている可能性を初めて示した。これについては今後二波長に段階のレーザー光でイオン化し、このとき脱励起する電子のエネルギーがここでの実験より正確にわかる場合についても実験し、電子温度が原子励起温度に近いかどうかを調べたい。

参考文献

- (1) F. F. Chen 著 (内田岱二郎訳) : プラズマ物理入門 P. 215 (1977, 丸善, 東京)
- (2) D. Bohm : The Characteristics of Electrical Discharges in Magnetic Field, ed. A. Guthrie and R. K. Wakering (1949, McGraw-Hill, New York) Chap. 3. P. 82
- (3) T. Arisawa, Y. Suzuki, Y. Maruyama, K. Shiba, J. Phys. D : Appl. Phys., 15 (1982) 1955
- (4) 柴田猛順, 小塙 章, 小倉浩一, 吉原清次, 有沢 孝
原子力学会 1989 年秋の大会 予稿集 G27
- (5) E. F. Worden, R. W. Solarz, J. A. Paisner, J. Opt. Soc. Am. 68 52 (1978)
- (6) C. H. Corliss, W. R. Bozman : Experimental Transition Probabilities for Spectral Lines of Seventy Elements P. 112 (1962, NBS, Washington)
- (7) J. Blaise, J. Chevillard, J. Verges, J. F. Wyart and T. A. M. van kleef, Spectro Chimica Acta, 26B 1 (1971)
- (8) F. F. Chen 著 (内田岱二郎訳) : プラズマ物理入門 P. 10 (1977, 丸善, 東京)
- (9) 西村昭彦, 大場弘則, 柴田猛順, 小倉浩一, 有沢 孝, 原子力学会
1989 年秋の大会 予稿集 G23
- (10) E. L. Maceda, G. H. Miley, Nucl. Sci. and Eng. 70 82 (1979)

$3.5 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ にくらべて非常に小さい。このため、電子のエネルギーが原子の励起エネルギーに移っても原子の励起温度はほとんど変化しないものと思われる。

6. おわりに

ガドリニウムをレーザー光で 1 波長 3 段階または 1 波長 2 段階共鳴イオン化によりイオン化しプラズマをつくり、そのプラズマの電子温度の測定をラングミュアープローブを用いておこなった。その結果、測定された電子温度は $0.05 \sim 0.08 \text{ eV}$ という非常に低いものであることを初めて明らかにした。この結果は、原子法レーザー同位体分離でイオン回収機構の解明と効率のよい回収部の設計に今後生かされるであろう。また、別に測定した原子励起温度にはほぼ近かった。これは、電子が準安定状態にあるガドリニウム原子とエネルギー交換して、ガドリニウムの原子励起温度に近くなっている可能性を初めて示した。これについては今後二波長に段階のレーザー光でイオン化し、このとき脱励起する電子のエネルギーがここでの実験より正確にわかる場合についても実験し、電子温度が原子励起温度に近いかどうかを調べたい。

参考文献

- (1) F. F. Chen 著 (内田岱二郎訳) : プラズマ物理入門 P. 215 (1977, 丸善, 東京)
- (2) D. Bohm : The Characteristics of Electrical Discharges in Magnetic Field, ed. A. Guthrie and R. K. Wakering (1949, McGraw-Hill, New York) Chap. 3. P. 82
- (3) T. Arisawa, Y. Suzuki, Y. Maruyama, K. Shiba, J. Phys. D : Appl. Phys., 15 (1982) 1955
- (4) 柴田猛順, 小塙 章, 小倉浩一, 吉原清次, 有沢 孝
原子力学会 : 1989 年秋の大会 予稿集 G27
- (5) E. F. Worden, R. W. Solarz, J. A. Paisner, J. Opt. Soc. Am. 68 52 (1978)
- (6) C. H. Corliss, W. R. Bozman : Experimental Transition Probabilities for Spectral Lines of Seventy Elements P. 112 (1962, NBS, Washington)
- (7) J. Blaise, J. Chevillard, J. Verges, J. F. Wyart and T. A. M. van kleef, Spectro Chimica Acta, 26B 1 (1971)
- (8) F. F. Chen 著 (内田岱二郎訳) : プラズマ物理入門 P. 10 (1977, 丸善, 東京)
- (9) 西村昭彦, 大場弘則, 柴田猛順, 小倉浩一, 有沢 孝, 原子力学会
1989 年秋の大会 予稿集 G23
- (10) E. L. Maceda, G. H. Miley, Nucl. Sci. and Eng. 70 82 (1979)

$3.5 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ にくらべて非常に小さい。このため、電子のエネルギーが原子の励起エネルギーに移っても原子の励起温度はほとんど変化しないものと思われる。

6. おわりに

ガドリニウムをレーザー光で 1 波長 3 段階または 1 波長 2 段階共鳴イオン化によりイオン化しプラズマをつくり、そのプラズマの電子温度の測定をラングミュアープローブを用いておこなった。その結果、測定された電子温度は $0.05 \sim 0.08 \text{ eV}$ という非常に低いものであることを初めて明らかにした。この結果は、原子法レーザー同位体分離でイオン回収機構の解明と効率のよい回収部の設計に今後生かされるであろう。また、別に測定した原子励起温度にはほぼ近かった。これは、電子が準安定状態にあるガドリニウム原子とエネルギー交換して、ガドリニウムの原子励起温度に近くなっている可能性を初めて示した。これについては今後二波長に段階のレーザー光でイオン化し、このとき脱励起する電子のエネルギーがここで実験より正確にわかる場合についても実験し、電子温度が原子励起温度に近いかどうかを調べたい。

参考文献

- (1) F. F. Chen 著 (内田岱二郎訳) : プラズマ物理入門 P. 215 (1977, 丸善, 東京)
- (2) D. Bohm : The Characteristics of Electrical Discharges in Magnetic Field, ed. A. Guthrie and R. K. Wakering (1949, McGraw-Hill, New York) Chap. 3. P. 82
- (3) T. Arisawa, Y. Suzuki, Y. Maruyama, K. Shiba,
J. Phys. D : Appl. Phys., 15 (1982) 1955
- (4) 柴田猛順, 小塙 章, 小倉浩一, 吉原清次, 有沢 孝
原子力学会 : 1989 年秋の大会 予稿集 G27
- (5) E. F. Worden, R. W. Solarz, J. A. Paisner, J. Opt. Soc. Am. 68 52 (1978)
- (6) C. H. Corliss, W. R. Bozman : Experimental Transition Probabilities for Spectral Lines of Seventy Elements P. 112 (1962, NBS, Washington)
- (7) J. Blaise, J. Chevillard, J. Verges, J. F. Wyart and T. A. M. van kleef,
Spectro Chimica Acta, 26B 1 (1971)
- (8) F. F. Chen 著 (内田岱二郎訳) : プラズマ物理入門 P. 10 (1977, 丸善, 東京)
- (9) 西村昭彦, 大場弘則, 柴田猛順, 小倉浩一, 有沢 孝, 原子力学会
1989 年秋の大会 予稿集 G23
- (10) E. L. Maceda, G. H. Miley, Nucl. Sci. and Eng. 70 82 (1979)

表1 Gd 原子の励起断面積 σ_{ex} (cm²)

E _l (eV) [*]	0.0267	0.0661	0.1239	0.2131
E _e (eV) ^{**}				
0.05	2.56×10^{-11}			
0.10	2.55×10^{-11}	3.56×10^{-12}		
0.15	2.54×10^{-11}	3.55×10^{-12}	9.44×10^{-13}	
0.20	2.53×10^{-11}	3.54×10^{-12}	9.40×10^{-13}	
0.25	2.52×10^{-11}	3.52×10^{-12}	9.36×10^{-13}	4.53×10^{-13}

^{*} E_l:Gdのエネルギー準位^{**} E_e:電子のエネルギー

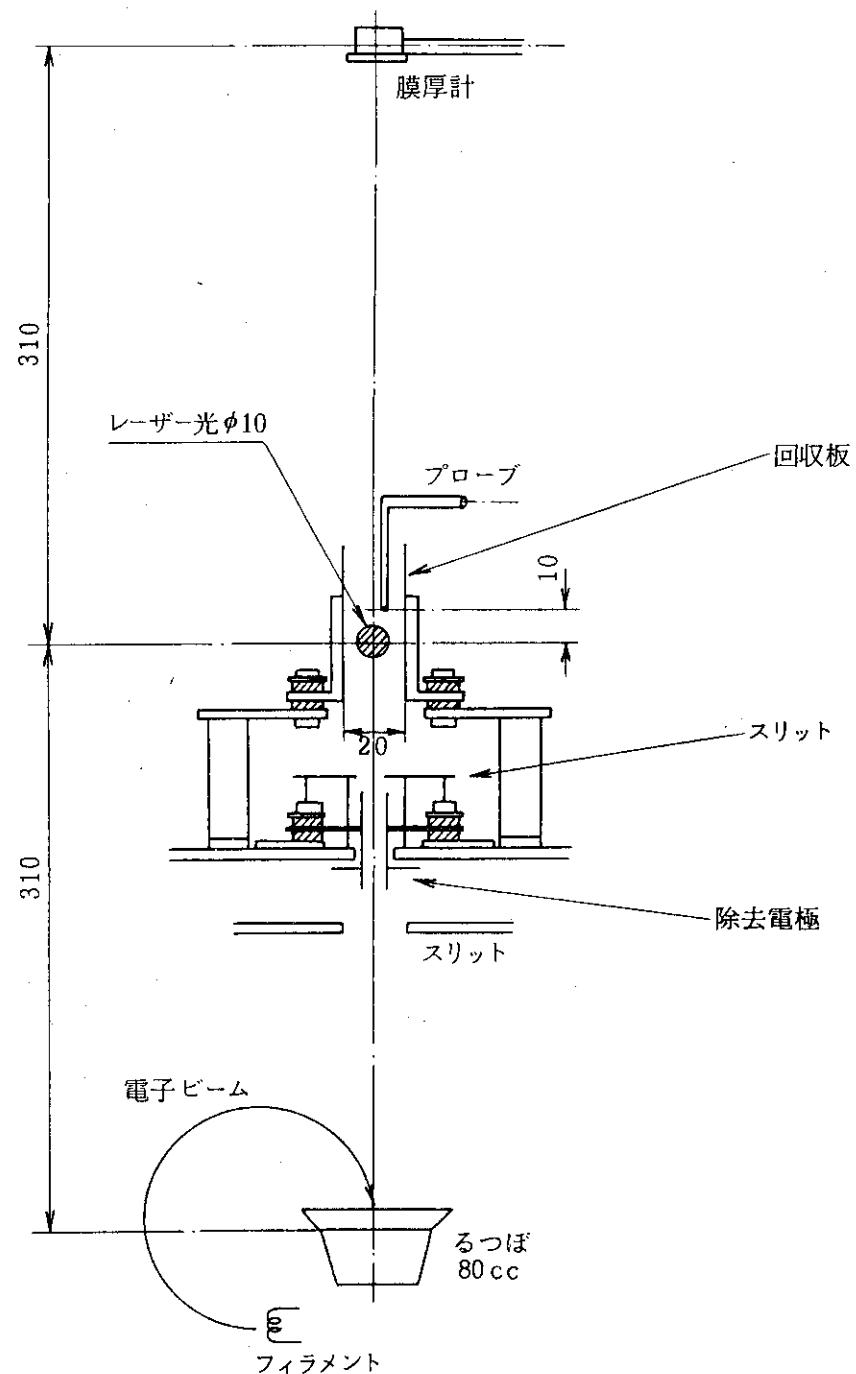


図1 プローブ測定を行った装置概略図

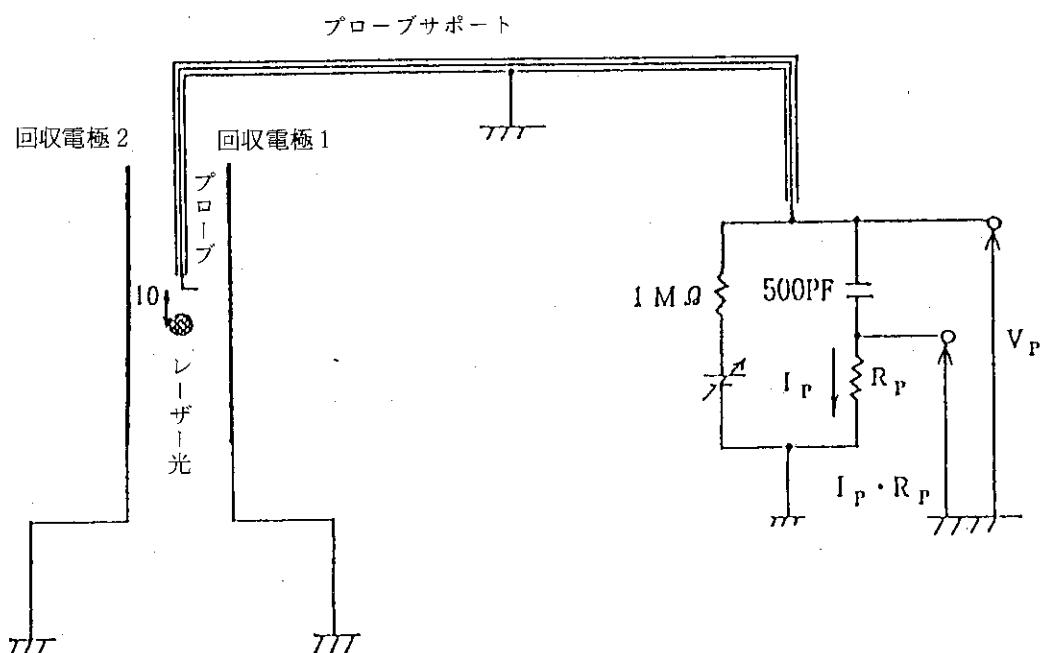


図2 プローブ測定回路

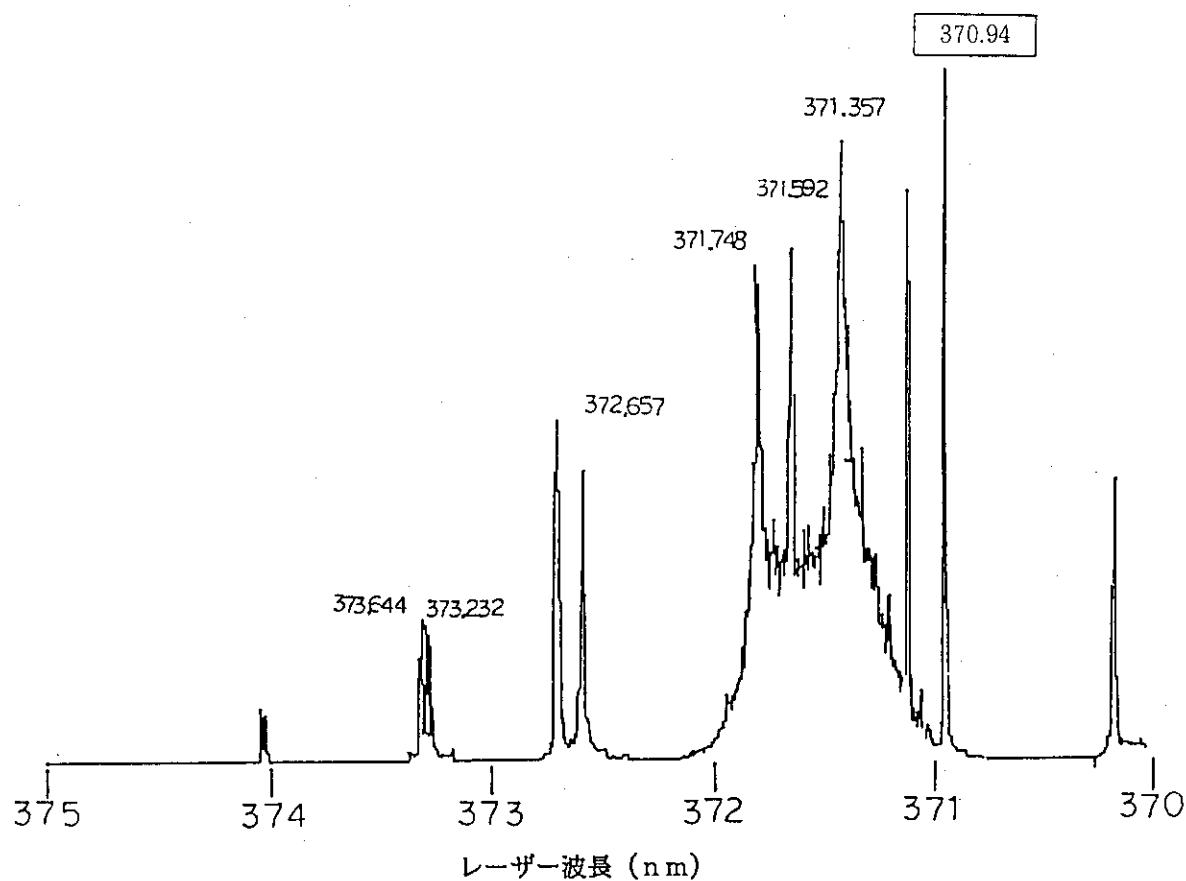


図4 プローブで測定した1波長2段階共鳴イオン化スペクトル

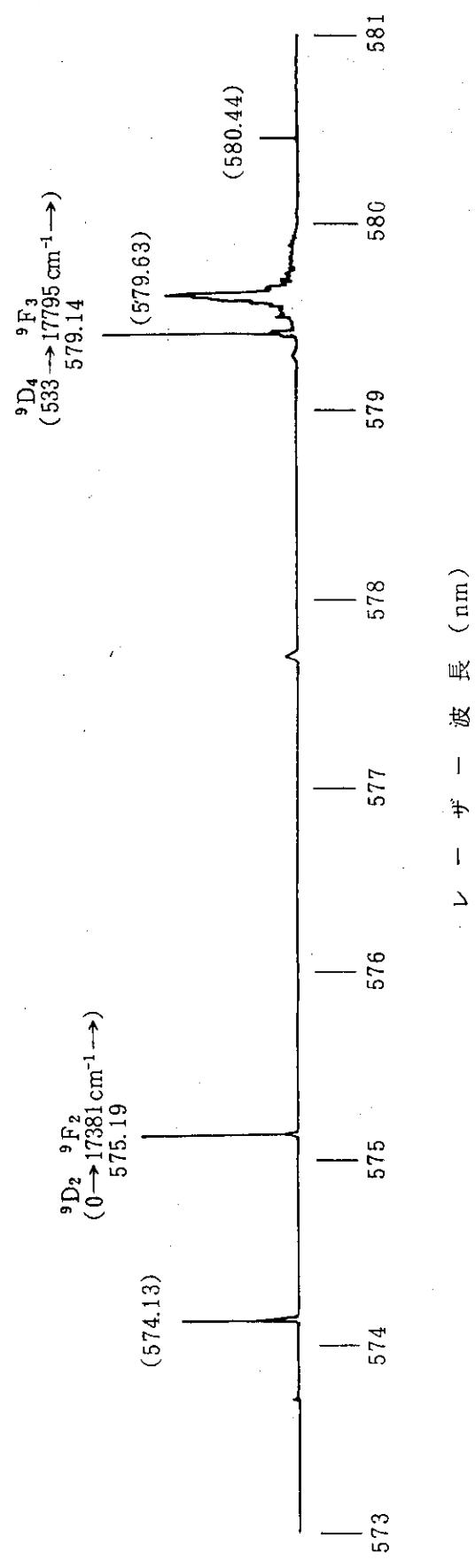


図3 プローブで測定した一波長三光子共鳴イオン化スペクトル

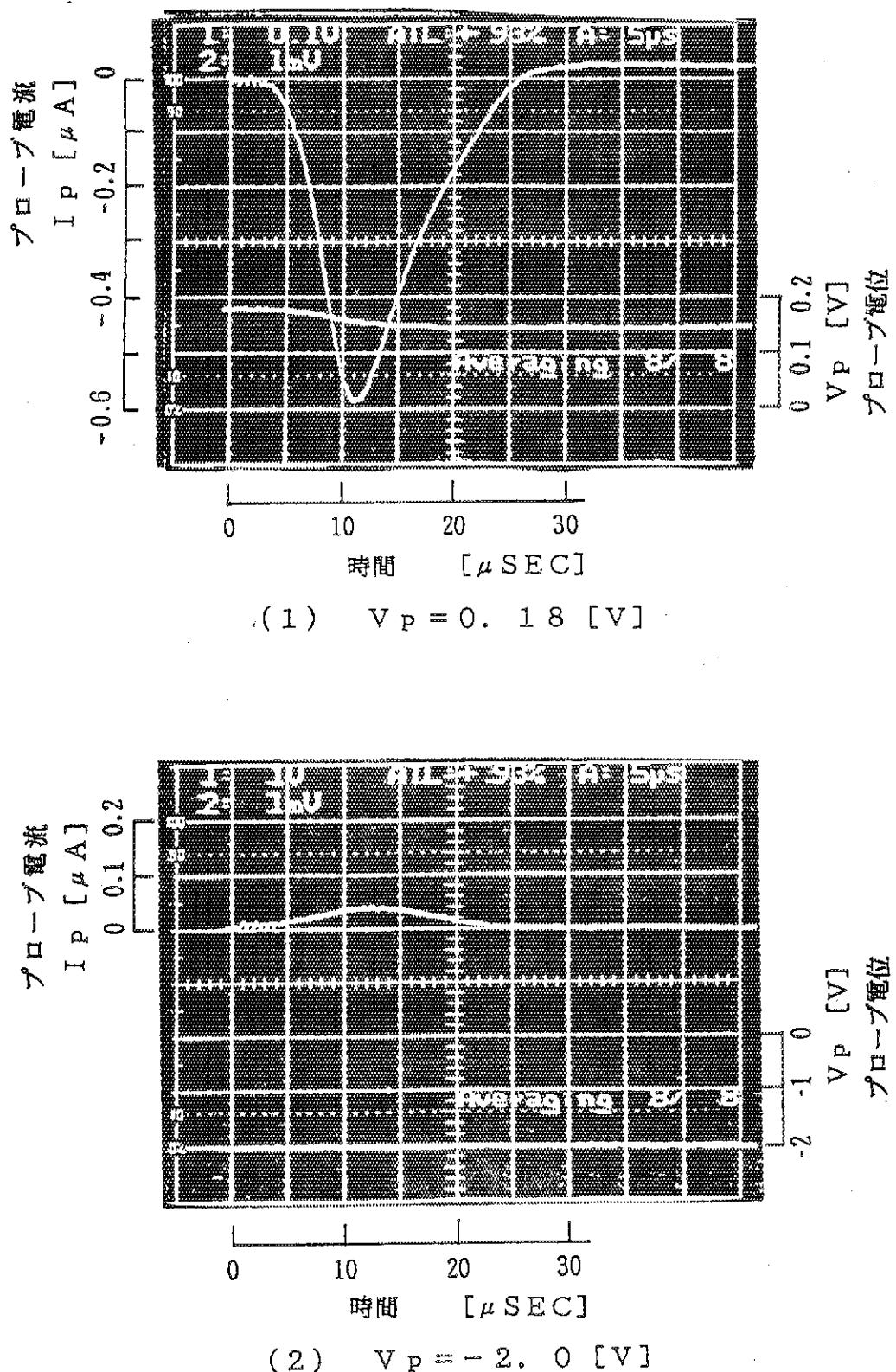
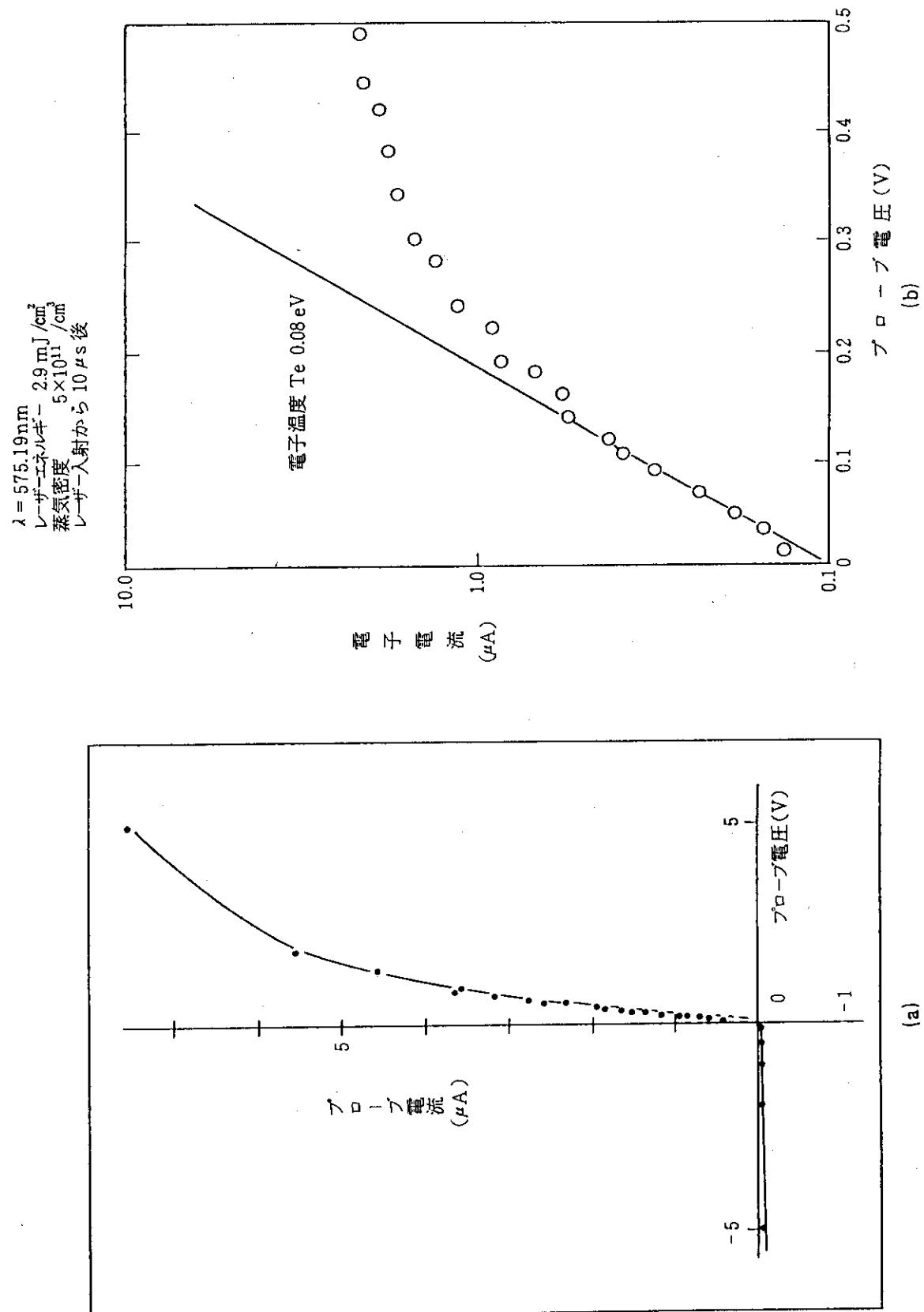


図 5 プローブ電流測定例

図 6 1 波長 3 段階共鳴イオン化により生成した Gd プラズマのプローブ測定結果 ($\lambda = 575.19 \text{ nm}$)

$\lambda = 579.14 \text{ nm}$
蒸気密度 $4.7 \times 10^{11} / \text{cm}^3$
レーザー入射から $10 \mu\text{s}$

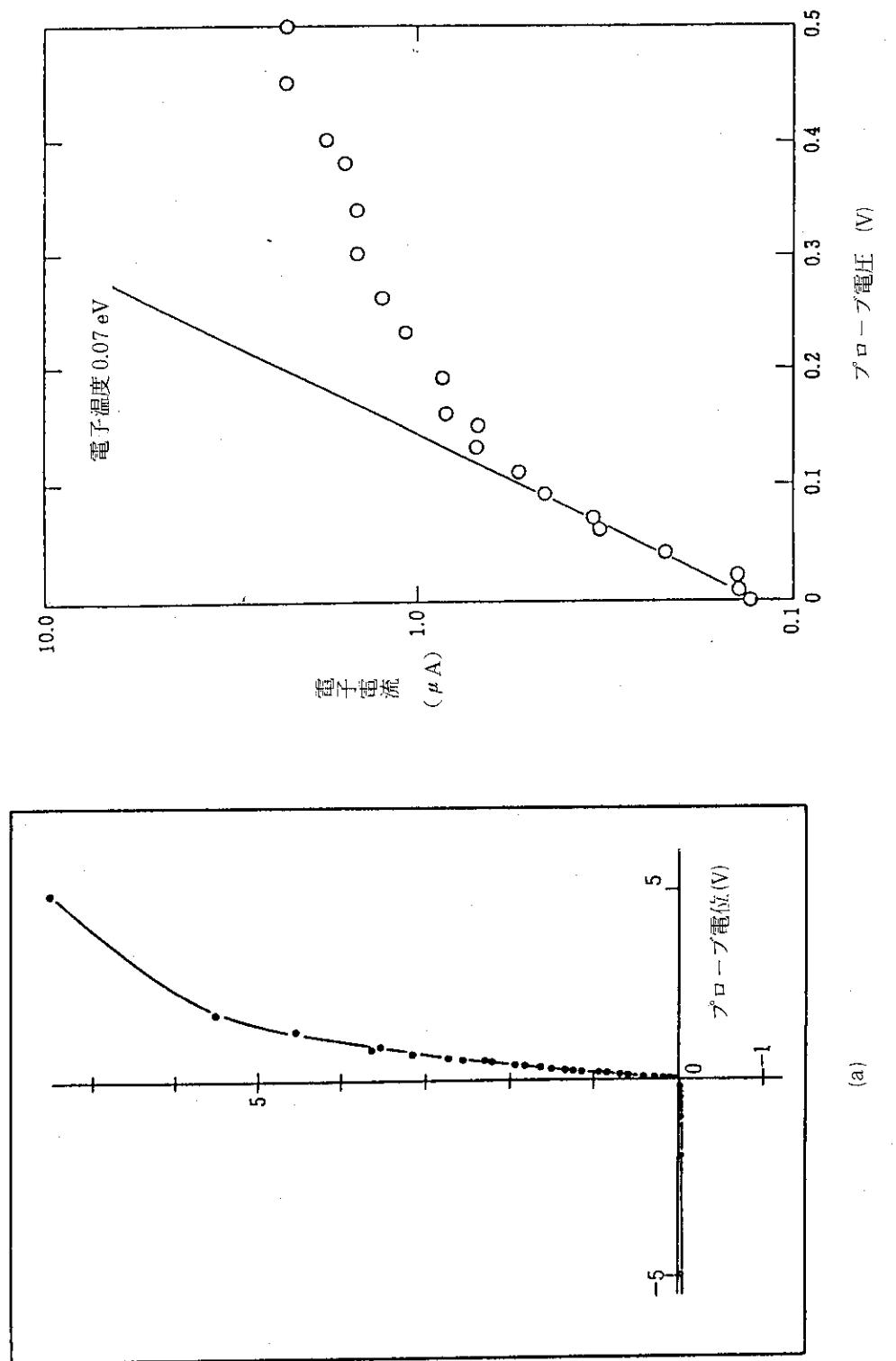


図7 1波長3段階共鳴イオン化により生成したGdプラズマのプローブ測定結果 ($\lambda = 579.14 \text{ nm}$)

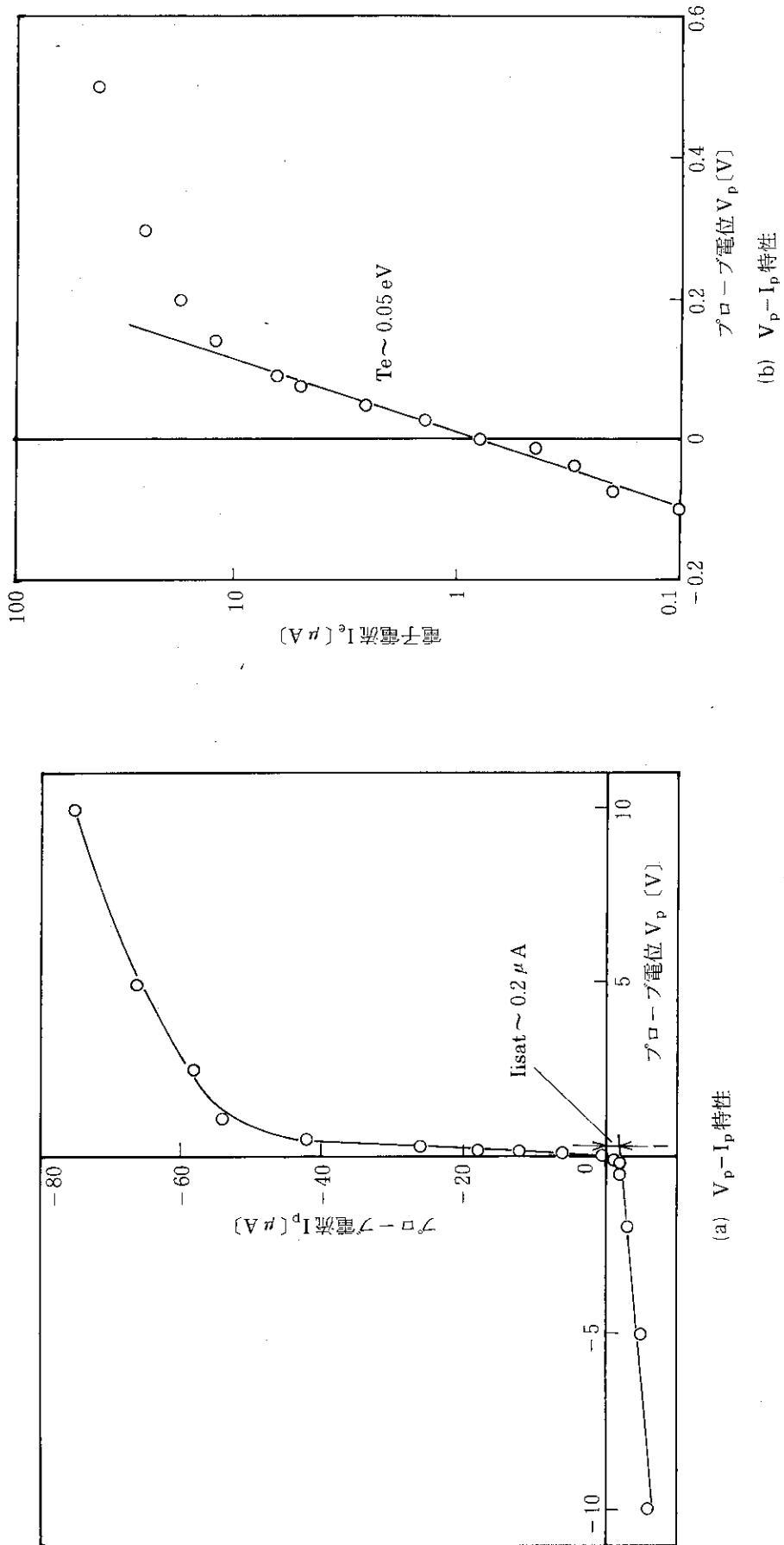


図 8 1 波長 2 段階共鳴イオン化により生成した Gd プラズマの
プローブ測定結果 ($\lambda = 370.94 \text{ nm}$)

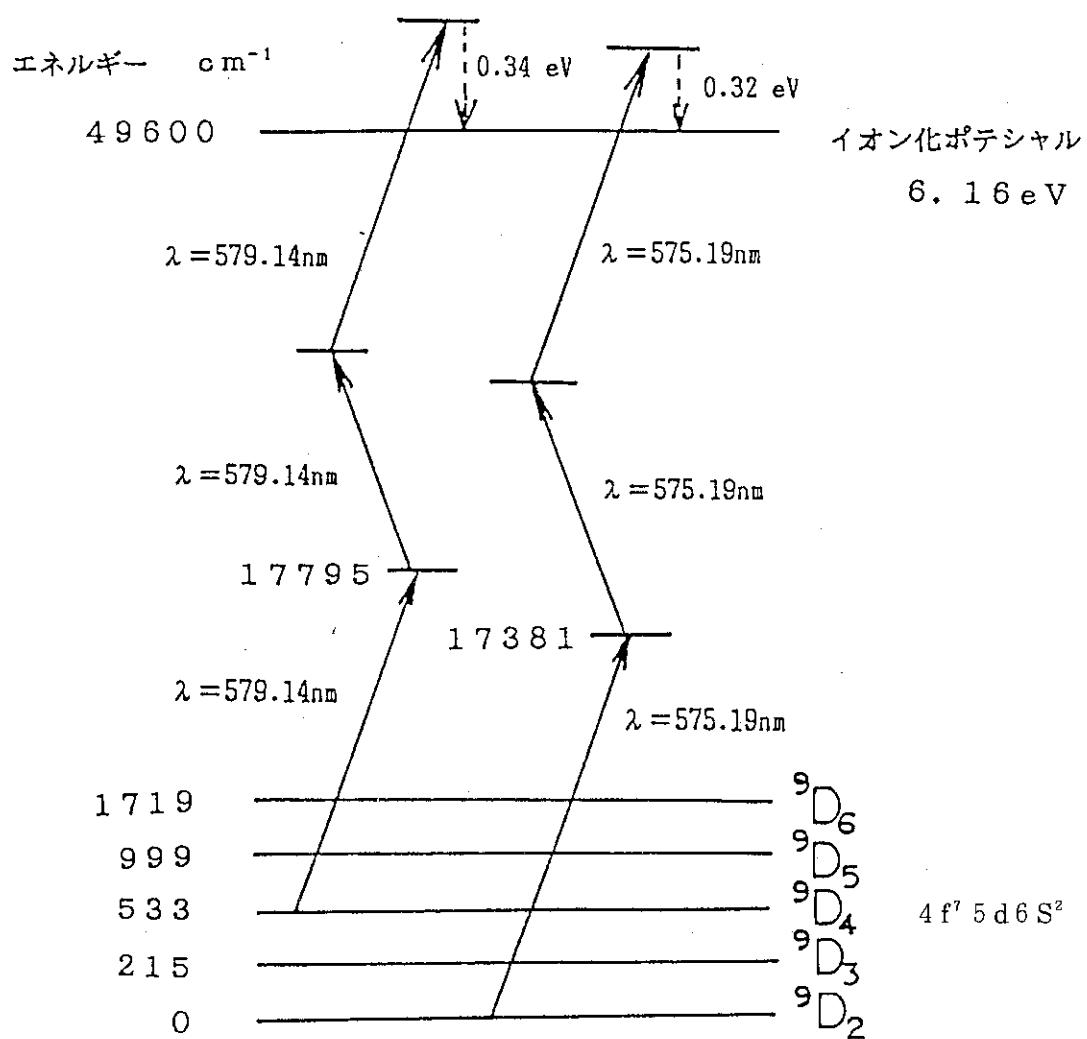


図9 ガドリニウム原子のエネルギー準位と1波長3段階共鳴イオン化によるGdプラズマ生成のための励起スキーム