

JAERI-M
93-098

レーザー共鳴イオン化法によるガドリニウム
原子ビームの準安定準位占有率分布の測定

1993年3月

小倉 浩一・柴田 猛順

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。
入手の問い合わせは、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、お申しこしてください。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, Tokai-mura, Naka-gun,
Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1993

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 日立高速印刷株式会社

レーザー共鳴イオン化法によるガドリニウム原子ビームの
準安定準位占有率分布の測定

日本原子力研究所東海研究所燃料・材料工学部

小倉 浩一・柴田 猛順

(1993年3月11日受理)

電子ビーム加熱蒸発により生成したガドリニウム原子ビーム中の原子の準安定準位占有率分布をレーザー共鳴イオン化を用いて測定できた。準安定準位占有率分布はボルツマン分布をしており原子励起温度を決めることができた。原子励起温度は蒸発面温度よりもはるかに低く、原子ビームの並進温度と非常に近かった。これは、蒸発面近傍で蒸発原子が真空中へ膨張冷却するとき原子の運動エネルギーと励起エネルギーのエネルギー交換速度が速いことを示していると考えられる。

Measurement of Metastable Population Distribution
in Gadolinium Atomic Beam
by Laser Resonance Photoionization Method

Koichi OGURA and Takemasa SHIBATA

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

(Received March 11, 1993)

Population distribution of metastable state of gadolinium atoms produced by electron beam heating was able to be measured using resonance photoionization. The population distributions followed the Boltzman distribution and the atomic excitation temperature could be determined. The excitation temperature is far lower than that of evaporation surface and nearly equal to the translational temperature of gadolinium atomic beam. This suggests that the excitation energy and the kinetic energy of atoms exchange each other at high reaction rate in the atomic vapor expanding from the evaporation surface into vacuum.

Keywords : Resonance Photoionization, Electron Beam Heating, Atomic Beam, Population, Metastable, Gadolinium, Atomic Excitation Temperature

目 次

1. はじめに	1
2. 実験方法	1
2.1 測定原理	1
2.2 実験装置	2
2.3 電離準位の決定	3
2.4 第一段レーザー光による準安定準位と励起準位への遷移の飽和	4
2.5 励起準位の寿命がレーザーパルス幅より十分長くないことの補正	4
3. 実験結果	5
3.1 準安定準位占有率分布	5
3.2 各準安定準位の原子密度	6
3.3 原子励起温度	6
4. 考察	7
4.1 副準位間の緩和が無い場合についての考察	7
4.2 光吸収法との比較	7
4.3 原子励起温度と原子ビーム並進温度の比較	7
4.4 各準安定準位の原子密度の絶対値について	8
5. おわりに	8
謝 辞	9
文 献	9
付 録	21

Contents

1. Introduction	1
2. Experimental Method	1
2.1 Principle of Measurements	1
2.2 Experimental Apparatus	2
2.3 Determination of Autoionization Level	3
2.4 Satulation between Matastable and Excited Level using the First Step Laser Beam	4
2.5 Correction due to the Life Time of the Excitation Level	4
3. Experimental Results	5
3.1 Distribution Population of Metastable Levels	5
3.2 Atomic Density of Metastable Levels	6
3.3 Atomic Excitation Temperature	6
4. Discussion	7
4.1 Discussion without a Relaxation between Magnetic Sublevels	7
4.2 Comparison with Absorption Method	7
4.3 Comparison between Atomic Excitation Temperature and translational Temperature of Atomic Beam	7
4.4 Absolute Atomic Density at Each Metastable Levels	8
5. Conclusion	8
Acknowledgment	9
References	9
Appendix	21

1. はじめに

高融点金属元素を対象とした原子法レーザー同位体分離⁽¹⁾では水冷銅るつぼ中の金属を電子ビーム加熱で生成した金属原子ビーム中の特定の同位体原子のみを線幅の狭いレーザー光を用いて選択的にイオン化し回収する。高融点金属の原子には基底状態付近にいくつかの準安定状態があるものが多い。原子法レーザー同位体分離では準安定準位ごとに照射レーザー波長が異なるので準安定状態に分布する原子の占有率分布を知ることが重要である。

西村等⁽²⁾は電子ビーム加熱で生成したガドリニウム原子ビームの準安定準位占有率を連続発振のリング色素レーザー光の吸収量から求めている。彼等は、準安定準位占有率分布からボルツマン分布を仮定して求めた原子励起温度がるつぼ表面温度よりもはるかに低いことを明らかにした。しかしながら、吸収による準安定準位占有率分布を求めるには吸収測定に用いる遷移の振動子強度の分光データ値を必要とし、振動子強度の分光データに含まれる誤差がそのまま準安定準位占有率分布の測定結果の誤差となる。また、吸収の測定は原子密度が低くなると吸収量が少なくて準安定準位占有率分布を測定できない。逆に、原子密度が高くなりすぎても透過光強度が小さくなりすぎ準安定準位占有率分布を求めることが困難である。これに対し、レーザー共鳴イオン化法を用いれば振動子強度などの分光データを原理的には必要とせず、原子密度が低くても高くても準安定状態占有率分布を測定できる可能性がある。

ここでは、この方法で電子ビーム加熱で生成したガドリニウム原子ビームの準安定準位の占有率分布を求めることを試みた。さらに求めた占有率分布を用いて各準位の原子密度を求めた。

2. 実験方法

2.1 測定原理

図1に二波長二段階レーザー共鳴イオン化法による準安定準位の占有率分布の測定原理を示す。レーザー光による電気双極子遷移は選択則 $\Delta J = \pm 1, 0$ に従うので原子は全角運動量 $J = J_0$ の励起準位 d に $J = J_0 - 1, J_0, J_0 + 1$ の3つの準安定準位 a, b, c から遷移できる。波長 λ_1 の一段目のパルスレーザー光を十分な強度で照射して準安定準位から励起準位への遷移を飽和させる。各準位の副準位間の緩和がレーザーパ

1. はじめに

高融点金属元素を対象とした原子法レーザー同位体分離⁽¹⁾では水冷銅るつぼ中の金属を電子ビーム加熱で生成した金属原子ビーム中の特定の同位体原子のみを線幅の狭いレーザー光を用いて選択的にイオン化し回収する。高融点金属の原子には基底状態付近にいくつかの準安定状態があるものが多い。原子法レーザー同位体分離では準安定準位ごとに照射レーザー波長が異なるので準安定状態に分布する原子の占有率分布を知ることが重要である。

西村等⁽²⁾は電子ビーム加熱で生成したガドリニウム原子ビームの準安定準位占有率を連続発振のリング色素レーザー光の吸収量から求めている。彼等は、準安定準位占有率分布からボルツマン分布を仮定して求めた原子励起温度がるつぼ表面温度よりもはるかに低いことを明らかにした。しかしながら、吸収による準安定準位占有率分布を求めるには吸収測定に用いる遷移の振動子強度の分光データ値を必要とし、振動子強度の分光データに含まれる誤差がそのまま準安定準位占有率分布の測定結果の誤差となる。また、吸収の測定は原子密度が低くなると吸収量が少なくて準安定準位占有率分布を測定できない。逆に、原子密度が高くなりすぎても透過光強度が小さくなりすぎ準安定準位占有率分布を求めることが困難である。これに対し、レーザー共鳴イオン化法を用いれば振動子強度などの分光データを原理的には必要とせず、原子密度が低くても高くても準安定状態占有率分布を測定できる可能性がある。

ここでは、この方法で電子ビーム加熱で生成したガドリニウム原子ビームの準安定準位の占有率分布を求めることを試みた。さらに求めた占有率分布を用いて各準位の原子密度を求めた。

2. 実験方法

2. 1 測定原理

図1に二波長二段階レーザー共鳴イオン化法による準安定準位の占有率分布の測定原理を示す。レーザー光による電気双極子遷移は選択則 $\Delta J = \pm 1, 0$ に従うので原子は全角運動量 $J = J_0$ の励起準位 d に $J = J_0 - 1, J_0, J_0 + 1$ の3つの準安定準位 a, b, c から遷移できる。波長 λ_1 の一段目のパルスレーザー光を十分な強度で照射して準安定準位から励起準位への遷移を飽和させる。各準位の副準位間の緩和がレーザーパ

ルス幅よりも十分短い時間で起こり、かつ、励起準位の寿命がレーザーパルス幅よりも十分長ければ、準安定準位 a, b, c と励起準位 d とにある原子の数の比は統計重率の比に等しくなり、準安定準位 a, b, c からの励起準位 d に移っている原子数の割合はそれぞれ $g_a/(g_a+g_d)$, $g_b/(g_b+g_d)$, $g_c/(g_c+g_d)$ である。ここで、 g_a, g_b, g_c は各準安定準位の統計重率である。これに続いて波長 λ_2 の二段目のパルスレーザー光を用いて励起準位 d にある原子を自動電離準位に遷移させイオン化する。第二段目のレーザー光は波長、レーザー光強度とも 3 つの励起スキームに対して同一レーザー光で行なうので準安定準位 a, b, c のいずれから励起準位 d に励起されても励起準位 d から同じ確率でイオン化される。イオン化された原子の個数を測定し、これに $(g_a+g_d)/g_a$, $(g_b+g_d)/g_a$, $(g_c+g_d)/g_a$ を掛ければ準安定準位 a, b, c の原子密度の比を求めることができる。本測定では、各準位の J のみが分かっていたらよく、振動子強度などの分光データを必要としない。また、共鳴イオン化はレーザー照射空間にある 1 個の原子でも検出できるので原子ビームが低密度になっても測定が可能である。逆に原子法レーザー同位体分離のように強いレーザー光を用いれば、高密度原子ビーム中でもレーザー光は透過するので高密度になっても測定ができる。本実験では励起準位の寿命がレーザーパルス幅より十分長いものが無かった。このため励起準位の寿命が短いことによる補正だけは(5)節に述べるように分光データを用いて行なった。

2. 2 実験装置

実験装置の概略図を図 2 に示す。本装置の詳細は別報⁽³⁾に述べてあるので簡単に述べる。水冷銅るつぼ中のガドリニウム金属を電子ビーム加熱で蒸発させガドリニウム原子ビームを生成した。ガドリニウム原子ビームは間隔 20 mm の 2 枚の平行平板の回収電極の間に 14 mm × 80 mm のスリットを通して導く。電子ビーム加熱蒸発部生成ガドリニウムプラズマ⁽⁴⁾が原子ビームとともに回収電極間に流れ込まないように除去電極⁽⁵⁾に -200 V を印加した。るつぼから高さ 543 mm に置いた水晶振動子膜厚計で蒸着速度を測定し、原子ビーム流量をモニターした。レーザー照射位置近くでの原子ビーム流量を知るため、実験開始前に図 2 に示す蛍光分析計をはずして高さ 385 mm のところに水晶振動子膜厚計を置き高さ 543 mm と 385 mm で同時に蒸着速度を測定しておいた。図 3 にその結果を示す。また、これまで本装置のデータがるつぼから 973 mm での蒸着速度で整理されているので 973 mm での蒸着速度も記入してある。本論文で断らない限り蒸着速度はるつぼから高さ 543 mm での測定値である。

回収電極間の原子ビームに2つの波長のパルスレーザー光を照射してイオン化した。レーザー光はエキシマレーザー励起の色素レーザー光で線幅は 0.2 cm^{-1} である。図4 (a) (b) (c) に実験に用いた3組の励起スキームと分光データ^{(6) (7) (8)}を示す。

ガドリニウムには全軌道角運動量 $J = 2$ の基底準位 0 cm^{-1} 付近に $J = 3 \sim 6$ の4個の準安定準位がある⁽⁶⁾。ガドリニウムの場合、 0 、 215 、 533 cm^{-1} の3準位、 215 、 533 、 999 cm^{-1} の3準位、また、 533 、 999 、 1719 cm^{-1} の3準位についてそれぞれ共鳴イオン化法で原子密度の比を求めることができ5個のすべての準位の相対的な準安定準位原子密度を求めることができる。

一段目のレーザー光はガドリニウム原子からレーザー誘起蛍光を用いてその波長を合わせた。自動電離準位は次節に述べるように電離スペクトルを取得し決定した。

図5にレーザー光照射のタイミングを示す。各レーザー光のパルス幅は約 10 nsec であり、一段目のレーザー照射後二段目のレーザー光を照射した。レーザー光の断面は直径 10 mm の円なので回収電極にはイオンと脱離した電子とが円柱状のプラズマを形成する⁽⁹⁾。レーザー照射の 300 nsec 後に回収電極に印加した 400 V の電位により回収電極2にプラズマ中のイオンを回収した。

図6にファラデーカップを用いたイオン検出部の平面図を示す。回収電極2に開けた $5 \text{ mm} \times 80 \text{ mm}$ の縦長のスリット状の穴に回収イオンの一部を通過させ、これを2つのファラデーカップで検出した。イオン引きだし穴は縦方向に長いので穴の幅 5 mm のところでは生成するイオンはすべてファラデーカップに入る。ファラデーカップ1のイオン電流は $1 \text{ k}\Omega$ の抵抗を通してパルス波形として計測し、ファラデーカップ2のイオン電流は $500 \text{ k}\Omega$ の抵抗を通して、ボックスカー積分器に入力した。図7はファラデーカップによる測定例で、蒸着速度が 2.5 nm/s のとき基底準位のガドリニウム原子をイオン化して得られたイオン電流波形である。ファラデーカップ2のイオン電流波形はファラデーカップ1のパルス波形が $500 \text{ k}\Omega$ の抵抗で積分波形となっていることがわかる。イオン生成量はパルスイオン電流を積分して得られる。しかし、本測定ではイオン生成量の相対値のみが必要なのでイオン生成量に比例したボックスカー積分器の出力を常にモニターした。

2.3 電離準位の決定

レーザー誘起蛍光を用いて第一段目のレーザー光の波長 λ_1 を図4に示す遷移に合わ

せた後、第二段目のレーザー光の波長を掃引した。第二段目の波長に比例したレーザー装置からの出力とボックスカー出力をXYレコーダーに入力して、電離スペクトルを取得した。図8は励起準位 $2\ 3\ 6\ 4\ 4\ \text{cm}^{-1}$ からの電離スペクトルである。電離に用いた波長 λ_2 は矢印のピークの位置のもので電離断面積が大きくスペクトル幅はある程度広いものを選んだ。スペクトル幅がある程度広いものを選んだのは測定中にレーザー波長が少しずれてもイオン化率が変動しないようにするためである。同様に $2\ 3\ 3\ 8\ 9\ \text{cm}^{-1}$ 、 $2\ 3\ 9\ 9\ 9\ \text{cm}^{-1}$ からの電離スペクトルを取得して図4に示した各励起準位からの電離準位を決めた。

2. 4 第一段レーザー光による準安定準位と励起準位への遷移の飽和

この測定では波長 λ_1 の第一段目のレーザー光を十分強くして準安定準位と励起準位の原子密度比を飽和させることが重要である。各遷移について準安定準位と励起準位の原子密度比を飽和させるのに必要なレーザー光の強度を図4に示す振動子強度の値を用いて推定した。この値を表Iに示す。なおこの推定法は付録に示している。表Iには実験で用いたレーザー光の強度も示した。電離波長 λ_2 のレーザー光強度一定の条件でイオン生成量の第一段レーザー強度依存性を調べてそれぞれの遷移について準安定準位と励起準位の原子密度比を飽和させるのに必要な強度よりも十分強いことを確かめた。

2. 5 励起準位の寿命がレーザーパルス幅より十分長くないことの補正

図3のようにここで用いた励起準位の寿命は $1\ 2 \sim 1\ 5\ \text{nsec}$ で、レーザーのパルス幅 $1\ 0\ \text{ns}$ と同程度である。一段目の励起に用いた色素レーザーの色素クマリン $1\ 2\ 0$ で発振できる波長では準安定準位から励起できるレーザー光のパルス幅より十分長い寿命の励起準位がなかったためである。励起準位の寿命が短いと準安定準位原子密度を求めたい準位への遷移だけでなく他の準安定準位への自然放出遷移も重要となり、励起準位 d の占有率が統計重率で決まる $g_d/(g_m+g_d)$ 、($m=a, b, c$)より小さくなる。このため、図9に示す3準位系モデルを用いてレート方程式により励起準位2にある原子の占有率 n_2 を求めた。準位3は励起準位2から自然放出で遷移できる準安定準位1以外の準位をひとつに代表している。

$$\frac{d n_1}{d t} = W_{21} \left(n_1 - \frac{g_1}{g_2} n_2 \right) + A_{12} n_2 \quad (1)$$

$$\frac{d n_2}{d t} = -W_{21} \left(n_1 - \frac{g_1}{g_2} n_2 \right) - (A_{12} + A_{32}) n_2 \quad (2)$$

$$\frac{d n_3}{d t} = A_{32} n_2 \quad (3)$$

$$n_1 + n_2 + n_3 = 1 \quad (4)$$

$$W_{21} = \frac{\sigma_a \cdot P}{\pi \omega \cdot \Delta \omega} \quad (5)$$

$$\sigma_a = \frac{\pi e^2 f}{2 \varepsilon_0 c m} = 0.167 f \quad (6)$$

ここで、 f は振動子強度、 e は電子の単位電荷、 ε_0 は真空中の誘電率、 c は光の速度、 m は電子の質量、 σ_a は吸収の断面積、 P は一段目の吸収波長での単位面積当りのレーザーパワー、 π はプランク定数、 ω は光の角振動数、 $\Delta \omega$ はレーザー光の角周波数の半値半幅、 W_{21} は準位 1 から準位 2 への遷移確率、 n_1 、 n_2 、 n_3 は各準位の占有率である。 g_1 、 g_2 は統計重率、 A_{12} 、 A_{32} は自然放出の確率である。レート方程式を解くにあたってレーザーパワーはレーザーパルス波形を三角形と近似して時間的に変化させた。レート方程式から得られた 20 ns 後の占有率を表 II に示す。各準位からの相対的なイオン量を表 II の励起準位占有率 n_2 で割って相対的な準安定準位原子密度を求めた。

3. 実験結果

3. 1 準安定準位占有率分布

2 波長のレーザー波長を図 4 に示す遷移に合わせ、XYレコーダーの X 軸に水晶振動子膜厚計で測定した蒸着速度を、Y 軸にイオン生成量に比例しているボックスカー出力を入力した。図 10 (a) は 0 cm^{-1} からのイオン量で図 4 (a) の遷移を用いて測定したものである。(b) は 999 cm^{-1} からのイオン量で図 4 (c) の遷移を用いて測定したものでそれぞれ 0 cm^{-1} 、 999 cm^{-1} の原子密度に比例している。図 4 に示す他の 7 個の電離スキームについても図 10 (a) (b) と同様にイオン生成量の蒸着速度依存性のデータを取得した。図 4 (a) (b) (c) のそれぞれの 3 準位について表 II に示す n_2 で割って得られた相対的な準安定準位原子密度の蒸着速度依存性を図 11 に示す。図 11 の線は図 10 の測定結果をなめらかにつないだものである。 215 cm^{-1} と 533 cm^{-1} の準位原子密度比は図 4 (a) (b) の両方のスキームで測定でき両者は良く一致した。 999 cm^{-1} については図 4 (b) (c) のスキームで測定し

$$\frac{d n_2}{d t} = -W_{21} \left(n_1 - \frac{g_1}{g_2} n_2 \right) - (A_{12} + A_{32}) n_2 \quad (2)$$

$$\frac{d n_3}{d t} = A_{32} n_2 \quad (3)$$

$$n_1 + n_2 + n_3 = 1 \quad (4)$$

$$W_{21} = \frac{\sigma_a \cdot P}{\pi \omega \cdot \Delta \omega} \quad (5)$$

$$\sigma_a = \frac{\pi e^2 f}{2 \varepsilon_0 c m} = 0.167 f \quad (6)$$

ここで、 f は振動子強度、 e は電子の単位電荷、 ε_0 は真空中の誘電率、 c は光の速度、 m は電子の質量、 σ_a は吸収の断面積、 P は一段目の吸収波長での単位面積当りのレーザーパワー、 π はプランク定数、 ω は光の角振動数、 $\Delta \omega$ はレーザー光の角周波数の半値半幅、 W_{21} は準位 1 から準位 2 への遷移確率、 n_1 、 n_2 、 n_3 は各準位の占有率である。 g_1 、 g_2 は統計重率、 A_{12} 、 A_{32} は自然放出の確率である。レート方程式を解くにあたってレーザーパワーはレーザーパルス波形を三角形と近似して時間的に変化させた。レート方程式から得られた 20 ns 後の占有率を表 II に示す。各準位からの相対的なイオン量を表 II の励起準位占有率 n_2 で割って相対的な準安定準位原子密度を求めた。

3. 実験結果

3. 1 準安定準位占有率分布

2 波長のレーザー波長を図 4 に示す遷移に合わせ、XYレコーダーの X 軸に水晶振動子膜厚計で測定した蒸着速度を、Y 軸にイオン生成量に比例しているボックスカー出力を入力した。図 10 (a) は 0 cm^{-1} からのイオン量で図 4 (a) の遷移を用いて測定したものである。(b) は 999 cm^{-1} からのイオン量で図 4 (c) の遷移を用いて測定したものでそれぞれ 0 cm^{-1} 、 999 cm^{-1} の原子密度に比例している。図 4 に示す他の 7 個の電離スキームについても図 10 (a) (b) と同様にイオン生成量の蒸着速度依存性のデータを取得した。図 4 (a) (b) (c) のそれぞれの 3 準位について表 II に示す n_2 で割って得られた相対的な準安定準位原子密度の蒸着速度依存性を図 11 に示す。図 11 の線は図 10 の測定結果をなめらかにつないだものである。 215 cm^{-1} と 533 cm^{-1} の準位原子密度比は図 4 (a) (b) の両方のスキームで測定でき両者は良く一致した。 999 cm^{-1} については図 4 (b) (c) のスキームで測定し

たデータに30%の差があったが、図4(b)で取得したデータを図11に示した。図4(c)の準安定準位の寿命の分光データがなく、 999 cm^{-1} からのイオン量は寿命に大きく依存するからである。基底準位の原子密度は蒸着速度に比例して増加する以上に増加し、 215 cm^{-1} の原子密度は蒸着速度の増加とともにほぼ比例して増加している。 533 cm^{-1} の原子密度は蒸着速度の増加とともに増加するが蒸着速度が速くなると増加の割合が減少している。これに対し、 999 cm^{-1} の準安定準位原子密度は飽和の傾向を示し、 1719 cm^{-1} の原子密度は蒸着速度の増加に対して減少する傾向を示している。

3.2 各準安定準位の原子密度

蒸着速度 J_0 と原子ビームの原子密度 n 、速度 v とは次の関係にある。

$$J_0 = m n v / \rho \quad (7)$$

ここで m は原子の質量、 ρ は蒸着した金属の密度である。 m 、 ρ は既知なので J_0 と斜入射ドップラー分光⁽⁶⁾や真空天びん⁽¹⁰⁾などで測定した v を用いて n を求めることができる。図12には、この方法で求めた原子密度を示した。図11には各準位の相対原子密度が示されているが、この和を図12にプロットした。ただし、蒸着速度 4.4 nm/s のとき原子密度とこの相対原子密度の和が一致するようにした。両者の線は蒸着速度 4.4 nm/s 以外でもよく一致していることが分かる。また、この図から各準安定準位の原子密度の絶対値を知ることができる。図11の右側のスケールは図12の原子密度の絶対値と各準安定準位の相対原子密度の比からだしたものである。図11の右側のスケールを用いることにより各準安定準位の原子密度の絶対値を知ることができる。

3.3 原子励起温度

蒸着速度 5.0 、 0.5 、 0.1 nm/s のときの各準位の相対的な準安定準位原子密度を統計重率で割ったものをボルツマンプロットしたのが図13である。各蒸着速度のプロットはほぼ直線にのっているので準安定準位間の占有率はボルツマン分布していることが分かる。この傾きから原子励起温度を求めることができ 5 nm/s のとき 530 K 、 0.5 nm/s では 990 K 、 0.1 nm/s では 1460 K である。図14に原子励起温度の蒸着速度依存性を示す。図には蒸着速度から推定される表面温度と原子ビーム

の並進温度を文献(5)から再録している。なお、文献(5)の蒸着速度はるつぽから973 mmの所に置いた水晶振動子膜厚計で測定したものである。文献(5)の蒸着速度を本実験条件で測定した蒸着速度に図3のデータをもとに直して再録してある。光吸収測定結果と同様に蒸着速度が増加すると原子励起温度は表面温度よりもはるかに低くなっていることが確かめられた。蒸着速度が低い場合は原子励起温度は蒸着速度から推定される蒸発面温度に近づいていることがわかる。また、蒸着速度の広い範囲で原子励起温度と原子ビームの並進温度はほとんど同じである。

4. 考察

4.1 副準位間の緩和が無い場合についての考察

本実験では強いレーザー光で準安定準位と励起準位の遷移を飽和させているが、このとき各準位の副準位間の緩和がレーザーパルス幅よりより十分短い時間で起こることを仮定している。この仮定が成立せず各準位の副準位間の緩和が全くないとして各準位の副準位ごとにレート方程式を解いて励起準位の占有率を求めてみた。使用しているレーザーは直線偏光しているので励起確率は偏光を考慮した。表IIの n_2 が変化するが各準位の相対原子密度はこれにより20%変化するだけで図14の結果はほとんど変化しなかった。

4.2 光吸収法との比較

光吸収法では、 0.3 nm/s 以下の蒸着速度では吸収量が少なく占有率分布が測定できなかった⁽²⁾が、本測定では図10のように蒸発が開始する所から測定できた。光吸収法ではボルツマンプロットが直線に良くのらず原子励起温度を決めるのに無理があった。これは、光吸収測定で用いた分光データに誤差が含まれていたためだと思われる。これに対し本測定では分光データを原理的には用いていないので正しい占有率分布が測定できボルツマンプロットが良く直線にのり、原子励起温度を決めることができることがわかった。

4.3 原子励起温度と原子ビーム並進温度の比較

の並進温度を文献(5)から再録している。なお、文献(5)の蒸着速度はるつぽから973 mmの所に置いた水晶振動子膜厚計で測定したものである。文献(5)の蒸着速度を本実験条件で測定した蒸着速度に図3のデータをもとに直して再録してある。光吸収測定結果と同様に蒸着速度が増加すると原子励起温度は表面温度よりもはるかに低くなっていることが確かめられた。蒸着速度が低い場合は原子励起温度は蒸着速度から推定される蒸発面温度に近づいていることがわかる。また、蒸着速度の広い範囲で原子励起温度と原子ビームの並進温度はほとんど同じである。

4. 考察

4. 1 副準位間の緩和が無い場合についての考察

本実験では強いレーザー光で準安定準位と励起準位の遷移を飽和させているが、このとき各準位の副準位間の緩和がレーザーパルス幅よりより十分短い時間で起こることを仮定している。この仮定が成立せず各準位の副準位間の緩和が全くないとして各準位の副準位ごとにレート方程式を解いて励起準位の占有率を求めてみた。使用しているレーザーは直線偏光しているので励起確率は偏光を考慮した。表IIの n_0 が変化するが各準位の相対原子密度はこれにより20%変化するだけで図14の結果はほとんど変化しなかった。

4. 2 光吸収法との比較

光吸収法では、 0.3 nm/s 以下の蒸着速度では吸収量が少なく占有率分布が測定できなかった⁽²⁾が、本測定では図10のように蒸発が開始する所から測定できた。光吸収法ではボルツマンプロットが直線に良くのらず原子励起温度を決めるのに無理があった。これは、光吸収測定で用いた分光データに誤差が含まれていたためだと思われる。これに対し本測定では分光データを原理的には用いていないので正しい占有率分布が測定できボルツマンプロットが良く直線にのり、原子励起温度を決めることができることがわかった。

4. 3 原子励起温度と原子ビーム並進温度の比較

ここで求めた原子励起温度を原子ビームの並進温度が非常に近い。これは次のように考えられる。蒸発部近傍で蒸発原子の真空中への膨張で原子ビーム加速と並進温度の冷却が起こるがこのとき次の原子の励起エネルギーと運動エネルギーのエネルギー交換が非常に速く起こっているため原子励起温度と原子ビームの並進温度がほとんど等しくなると考えられる。

$$G d^{*} + G d^{**} \longrightarrow G d^{*' } + G d^{**' } \pm \Delta E \quad (8)$$

4. 4 各準安定準位の原子密度の絶対値について

本測定により図11に示したように各準安定準位の原子密度の絶対値が得られた。西村等⁽¹¹⁾は光吸収量の測定からこの絶対値を用いてすでに遷移の振動子強度の絶対値を求めることなどを行なっている。電子ビーム加熱で容易に作ることのできる金属原子ビームが同位体分離だけではなく原子衝突実験などの基礎研究にも用いられ始めている。図11のように各準位の原子密度の絶対値もわかるようになったのでさらに広く電子ビーム加熱により生成した原子ビームが多く分野で使用されることが期待される。

5. おわりに

電子ビーム加熱蒸発により生成したガドリニウム原子ビーム中の準安定準位にある原子の占有率分布をレーザー共鳴イオン化を用いて低密度まで測定することができた。準安定準位占有率分布はボルツマン分布をしており原子励起温度を決めることができた。原子励起温度は蒸着速度が高いときは蒸着速度から推定される蒸発面温度よりもはるかに低く蒸着速度が低くなればなるほど原子励起温度は蒸発面温度に近づいていることがわかった。また、原子励起温度が原子ビームの並進温度と非常に近く、これは原子の運動エネルギーと内部エネルギーのエネルギー交換速度が速いことを示していると考えられる。また、ここで求めた準位占有率分布と別に求めた原子密度から各準位の原子密度の絶対値を求めることができた。この原子密度の絶対値のデータは今後多くの分野で利用されるであろう。

ここで求めた原子励起温度を原子ビームの並進温度が非常に近い。これは次のように考えられる。蒸発部近傍で蒸発原子の真空中への膨張で原子ビーム加速と並進温度の冷却が起こるがこのとき次の原子の励起エネルギーと運動エネルギーのエネルギー交換が非常に速く起こっているため原子励起温度と原子ビームの並進温度がほとんど等しくなると考えられる。

$$G d^{*} + G d^{**} \longrightarrow G d^{*'} + G d^{**'} \pm \Delta E \quad (8)$$

4. 4 各準安定準位の原子密度の絶対値について

本測定により図11に示したように各準安定準位の原子密度の絶対値が得られた。西村等⁽¹¹⁾は光吸収量の測定からこの絶対値を用いてすでに遷移の振動子強度の絶対値を求めることなどを行なっている。電子ビーム加熱で容易に作ることのできる金属原子ビームが同位体分離だけではなく原子衝突実験などの基礎研究にも用いられ始めている。図11のように各準位の原子密度の絶対値もわかるようになったのでさらに広く電子ビーム加熱により生成した原子ビームが多くの分野で使用されることが期待される。

5. おわりに

電子ビーム加熱蒸発により生成したガドリニウム原子ビーム中の準安定準位にある原子の占有率分布をレーザー共鳴イオン化を用いて低密度まで測定することができた。準安定準位占有率分布はボルツマン分布をしており原子励起温度を決めることができた。原子励起温度は蒸着速度が高いときは蒸着速度から推定される蒸発面温度よりもはるかに低く蒸着速度が低くなればなるほど原子励起温度は蒸発面温度に近づいていることがわかった。また、原子励起温度が原子ビームの並進温度と非常に近く、これは原子の運動エネルギーと内部エネルギーのエネルギー交換速度が速いことを示していると考えられる。また、ここで求めた準位占有率分布と別に求めた原子密度から各準位の原子密度の絶対値を求めることができた。この原子密度の絶対値のデータは今後多くの分野で利用されるであろう。

謝辞

本論文の原稿を読んで貴重な議論をして頂いた情報システムセンター副主任研究員
蕪木英雄氏に感謝致します。

文献

- (1) D.G.Greenland: Comtemp. Phys. 31 (1990) 405.
- (2) 西村昭彦、有澤 孝、大場弘則、小倉浩一、柴田猛順：真空 34 (1991) 639.
- (3) K.Ogura, T.Arisawa and T.Shibata: Jpn. J. Appl. Pyhs. 31 (1992) 1485.
- (4) 大場弘則、有澤 孝、西村昭彦、小倉浩一、柴田猛順：真空 35 (1992) 286.
- (5) 西村昭彦、有澤 孝、大場弘則、小倉浩一、柴田猛順：真空 35 (1992) 305.
- (6) J.Blaise, J.Chevillard, J.Verges and J.F.Wyart:
Spectrochem. Acta, 26B (1971) 1.
- (7) C.H.Corliss and W.R.Bozman: "Experimental Transition Probabilities
for Spectral Lines of Seventy Elements", P.112 (1962, NBS, Washington).
- (8) E.F.Worden, R.W.Solarz, and J.A.Paisner, J. Opt. Soc. Am. 68 (1978) 52.
- (9) 小倉浩一、有澤 孝、柴田猛順：日本原子力研究所 研究報告書
JAERI-M 91-222 (1992).
- (10) 小倉浩一、柴田猛順：真空 36 (1993).
- (11) A.Nishimura, H.Ohba, K.Ogura and T.Shibata: At. Collision Res. Jpn.
18 (1992) 78.

謝辞

本論文の原稿を読んで貴重な議論をして頂いた情報システムセンター副主任研究員
蕪木英雄氏に感謝致します。

文献

- (1) D.G.Greenland: Comtemp. Phys. 31 (1990) 405.
- (2) 西村昭彦、有澤 孝、大場弘則、小倉浩一、柴田猛順：真空 34 (1991) 639.
- (3) K.Ogura, T.Arisawa and T.Shibata: Jpn. J. Appl. Pyhs. 31 (1992) 1485.
- (4) 大場弘則、有澤 孝、西村昭彦、小倉浩一、柴田猛順：真空 35 (1992) 286.
- (5) 西村昭彦、有澤 孝、大場弘則、小倉浩一、柴田猛順：真空 35 (1992) 305.
- (6) J.Blaise, J.Chevillard, J.Verges and J.F.Wyart:
Spectrochem. Acta, 26B (1971) 1.
- (7) C.H.Corliss and W.R.Bozman: "Experimental Transition Probabilities
for Spectral Lines of Seventy Elements", P.112 (1962, NBS, Washington).
- (8) E.F.Worden, R.W.Solarz, and J.A.Paisner, J.Opt.Soc.Am. 68 (1978) 52.
- (9) 小倉浩一、有澤 孝、柴田猛順：日本原子力研究所 研究報告書
JAERI-M 91-222 (1992).
- (10) 小倉浩一、柴田猛順：真空 36 (1993).
- (11) A.Nishimura, H.Ohba, K.Ogura and T.Shibata: At. Collision Res. Jpn.
18 (1992) 78.

表I 飽和レーザー強度

下準位 (cm^{-1})	励起準位 (cm^{-1})	振動子強度	飽和強度 ($\mu\text{J}/\text{cm}^2$)	レーザー強度 ($\mu\text{J}/\text{cm}^2$)
0	2 3 3 8 9	0. 0 3 6	2. 3	2 5 5
2 1 5	2 3 3 8 9	0. 1 5 7	0. 5	3 9 6
5 3 3	2 3 3 8 9	0. 0 6 8	1. 2	4 2 4
2 1 5	2 3 6 4 4	0. 0 4 3	1. 9	1 5 6
5 3 3	2 3 6 4 4	0. 2 1 1	0. 4	3 2 5
9 9 9	2 3 6 4 4	0. 0 4 5	1. 8	3 2 5
5 3 3	2 3 9 9 9	0. 6 2 2	0. 1 4	1 5 8
9 9 9	2 3 9 9 9	0. 1 4 5	0. 6	4 2 4
1 7 1 9	2 3 9 9 9	0. 0 1 8	4. 4	3 5 4

表II レート方程式から求めた準位占有率

下準位 (cm^{-1})	励起準位 (cm^{-1})	n_1	n_2	n_3
0	2 3 3 8 9	0. 2 0 0	0. 2 5 9	0. 5 4 1
2 1 5	2 3 3 8 9	0. 3 6 8	0. 3 6 3	0. 2 6 9
5 3 3	2 3 3 8 9	0. 3 5 9	0. 2 7 3	0. 3 6 8
2 1 5	2 3 6 4 4	0. 2 1 9	0. 2 5 4	0. 5 2 8
5 3 3	2 3 6 4 4	0. 3 9 9	0. 3 9 2	0. 2 0 9
9 9 9	2 3 6 4 4	0. 3 1 5	0. 2 4 7	0. 4 3 9
5 3 3	2 3 9 9 9	0. 2 6 2	0. 2 9 6	0. 4 4 2
9 9 9	2 3 9 9 9	0. 3 9 3	0. 3 8 7	0. 2 2 1
1 7 1 9	2 3 9 9 9	0. 3 1 1	0. 2 4 4	0. 4 4 4

水晶振動子膜厚計

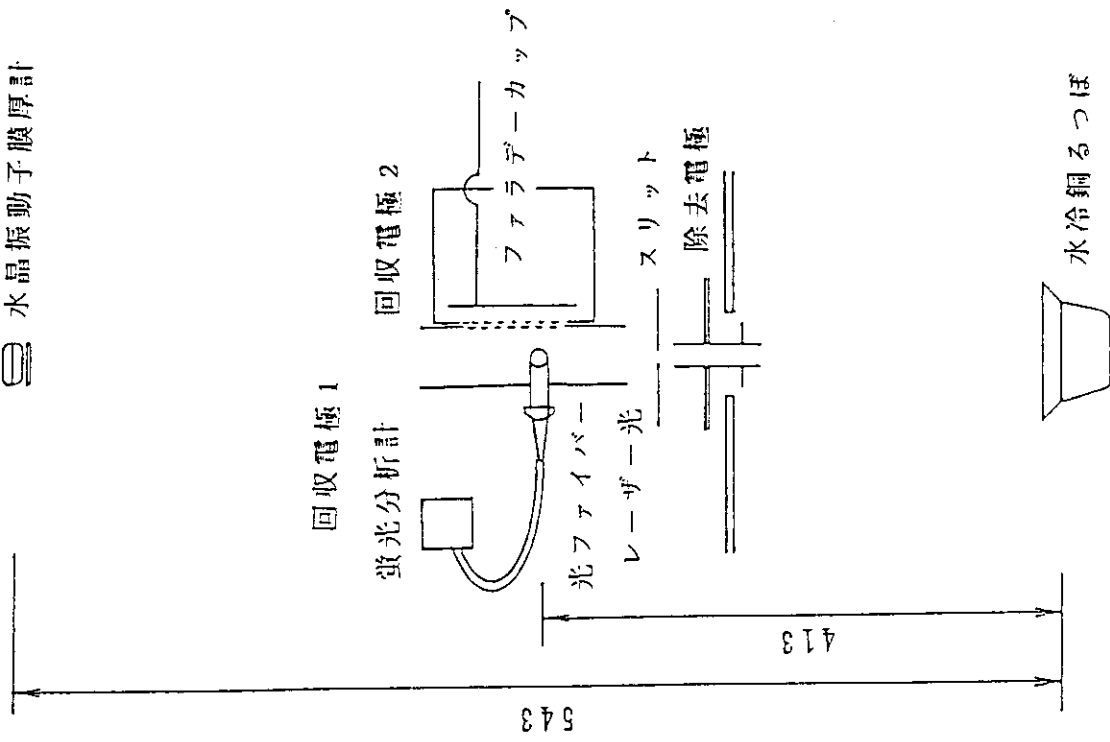


図2 実験装置

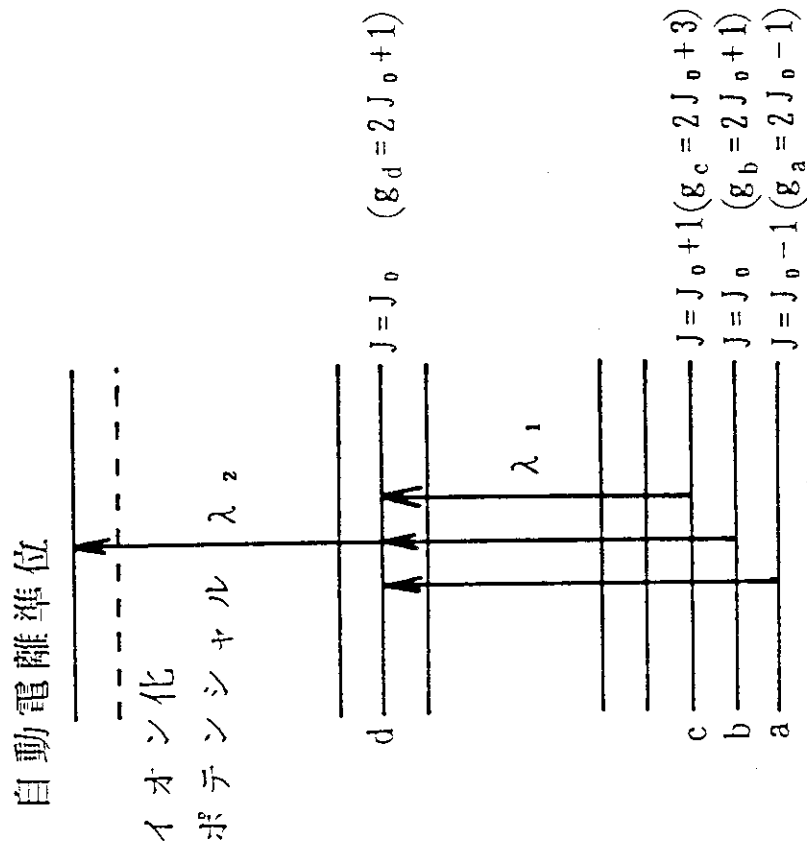


図1 測定原理図

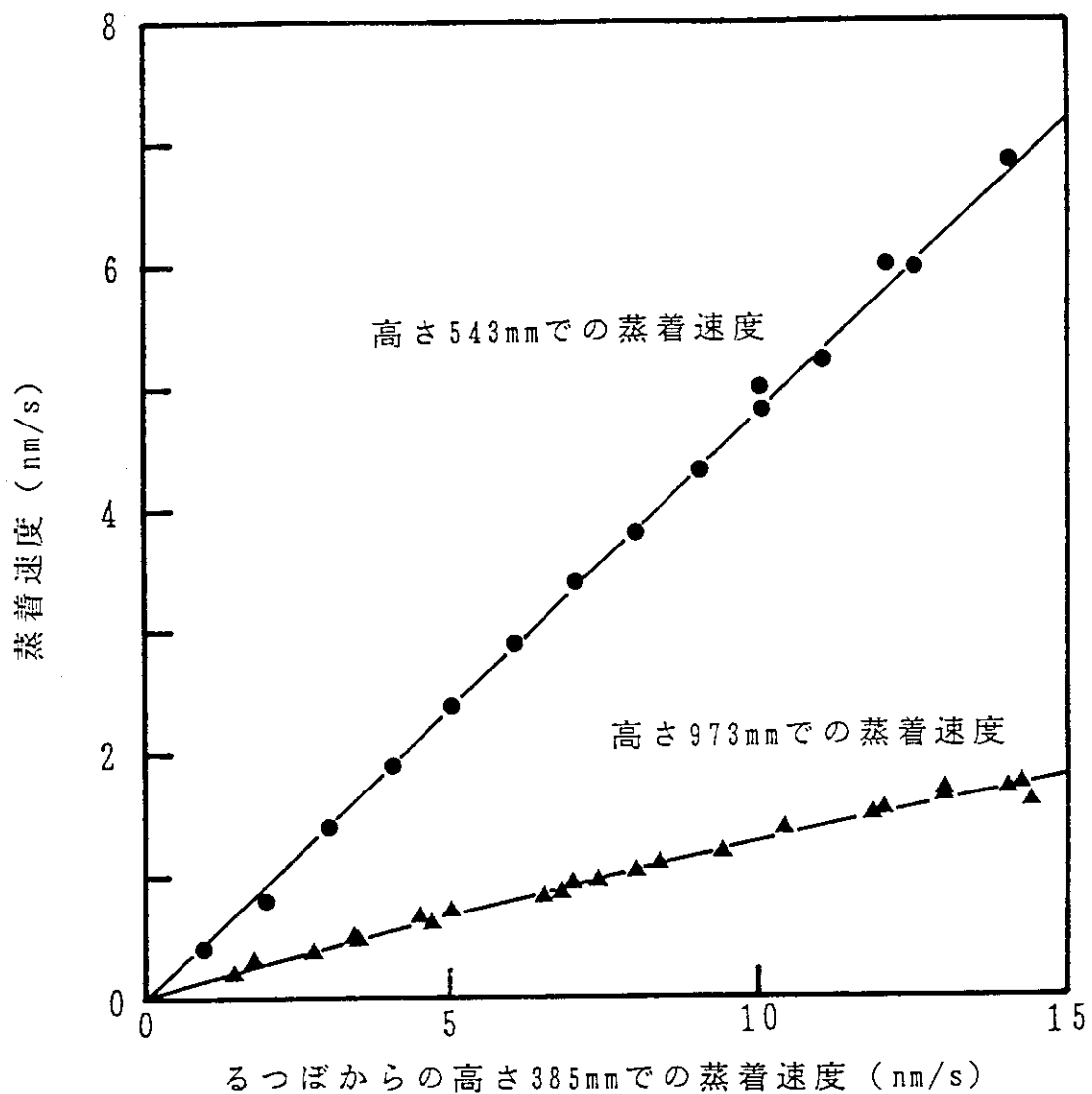


図3 るつぼからの高さ543mmと385mmでの蒸着速度の関係

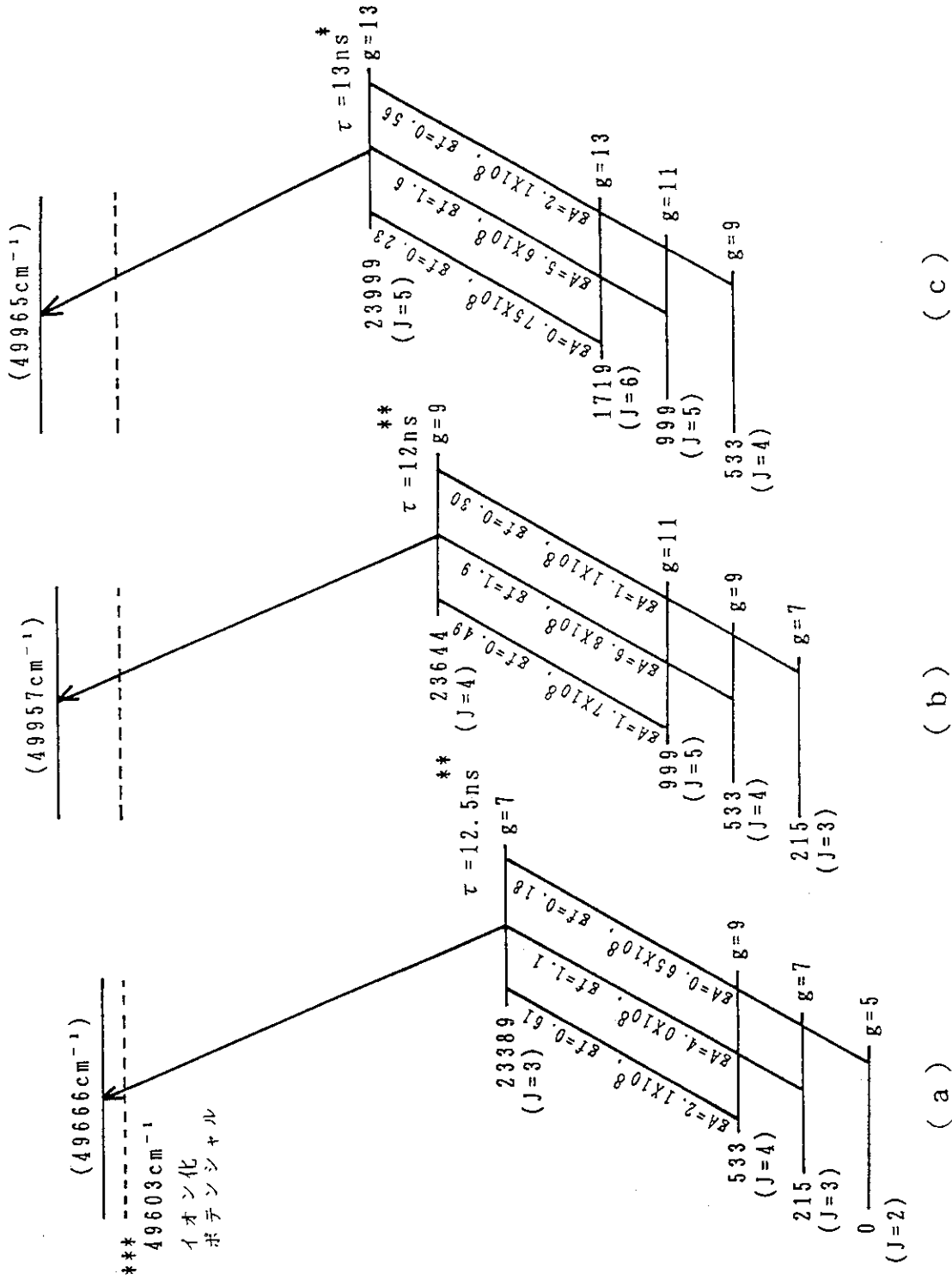


図4 実験に用いたイオン化スキームと分光データ

* gAから求めた寿命, ** ref. (6), *** ref. (8)
その他の分光データは ref. (7).

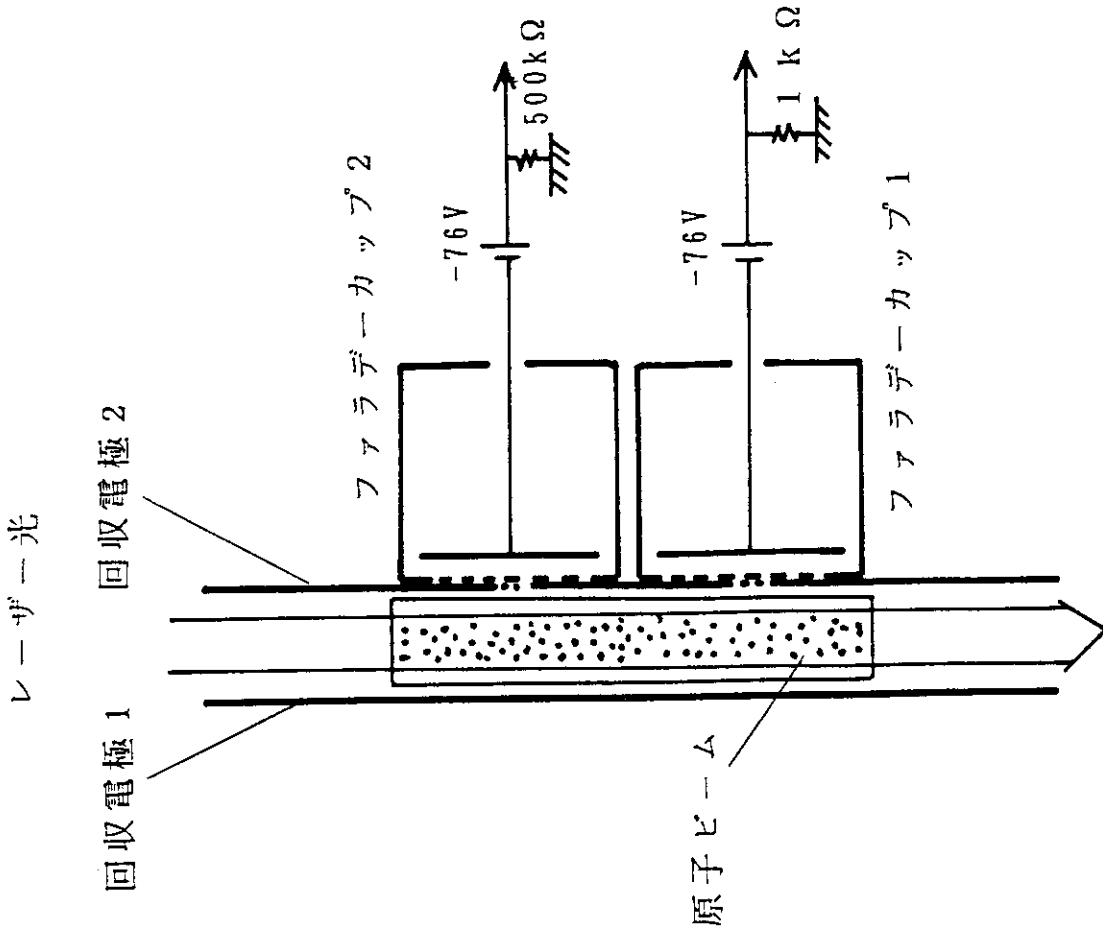


図6 ファラデーカップを用いたイオン検出器

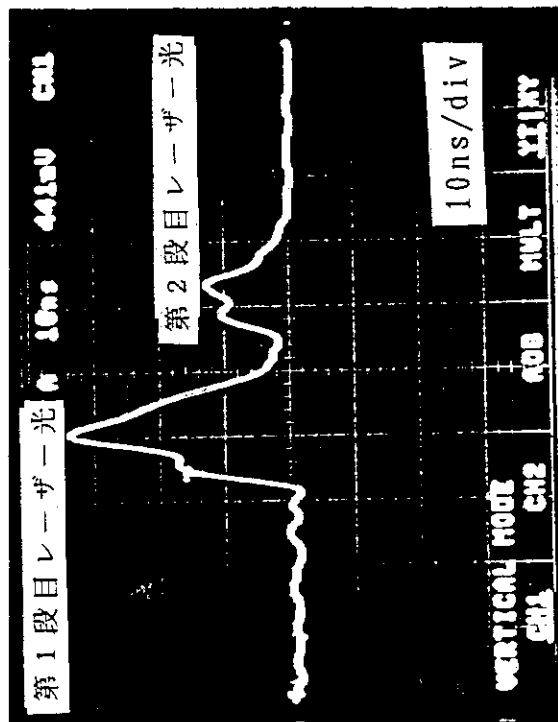


図5 レーザー照射のタイミング

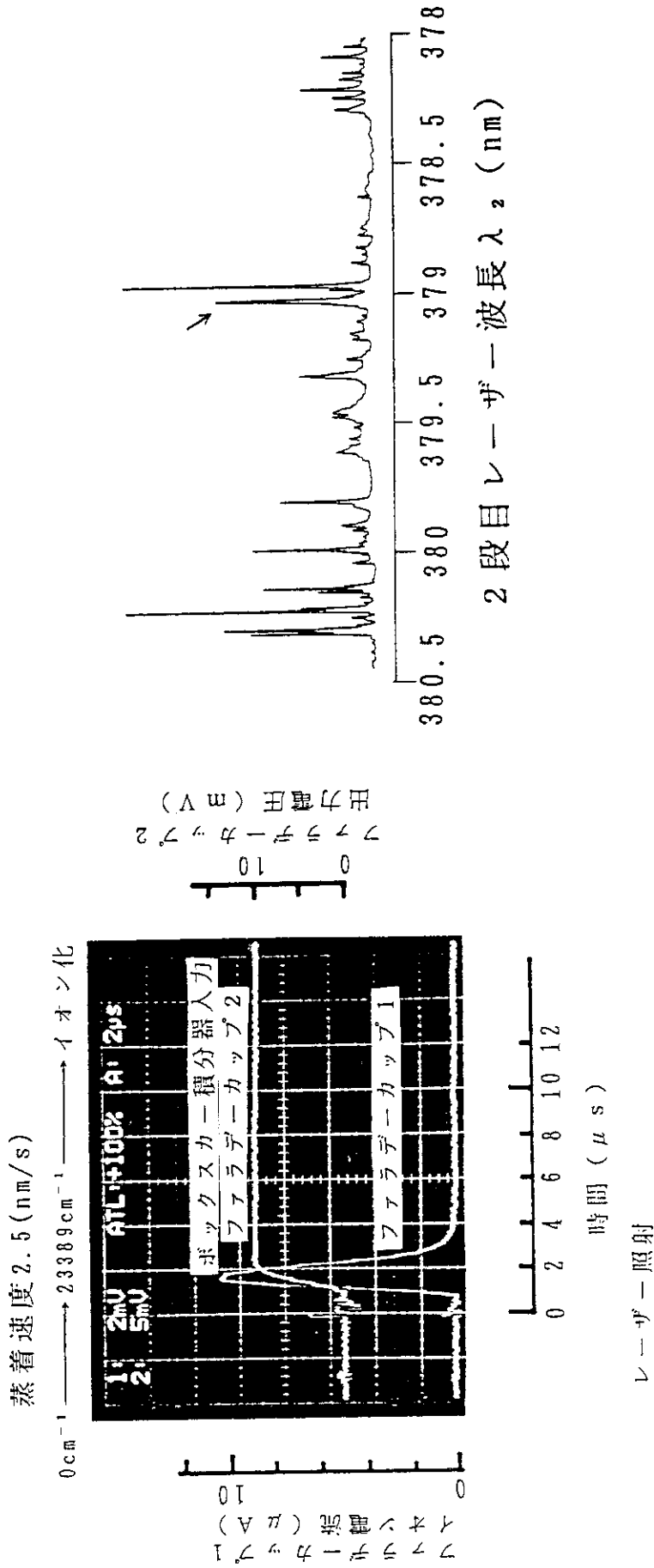


図7 ファラデーカップで検出されたイオン電流波形の一例

図8 励起準位 238644 cm⁻¹からの電離スペクトル

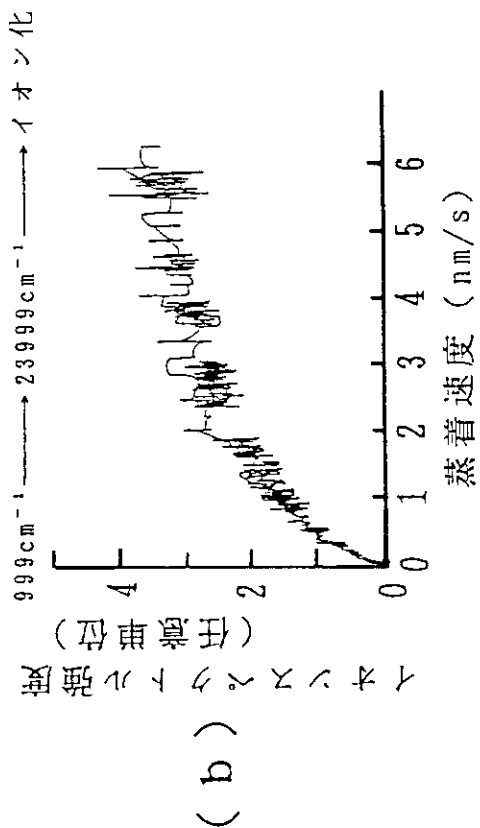
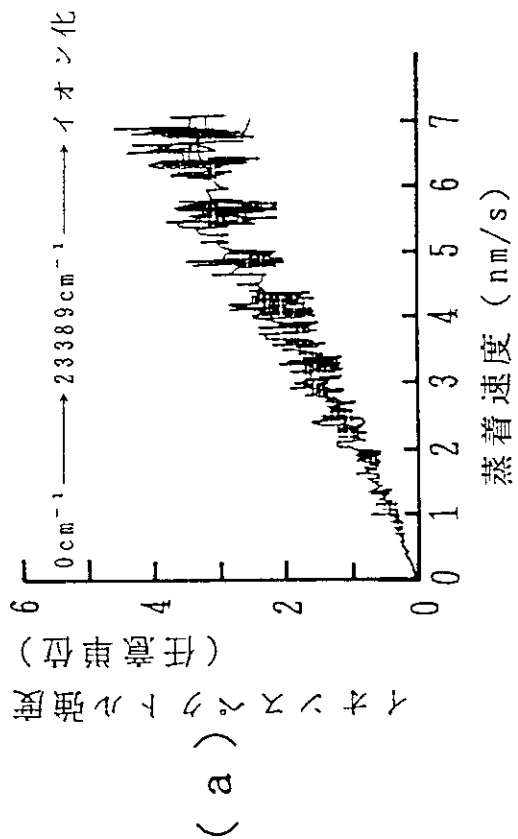


図10 測定結果の一例

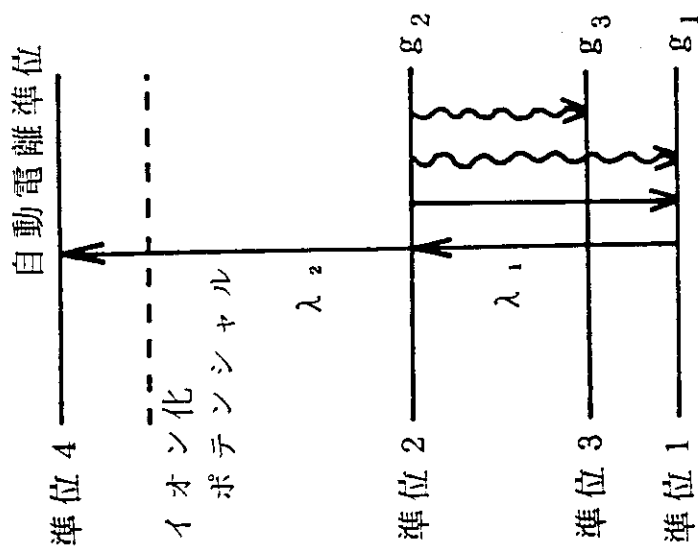


図9 レート方程式に用いた3準位モデル

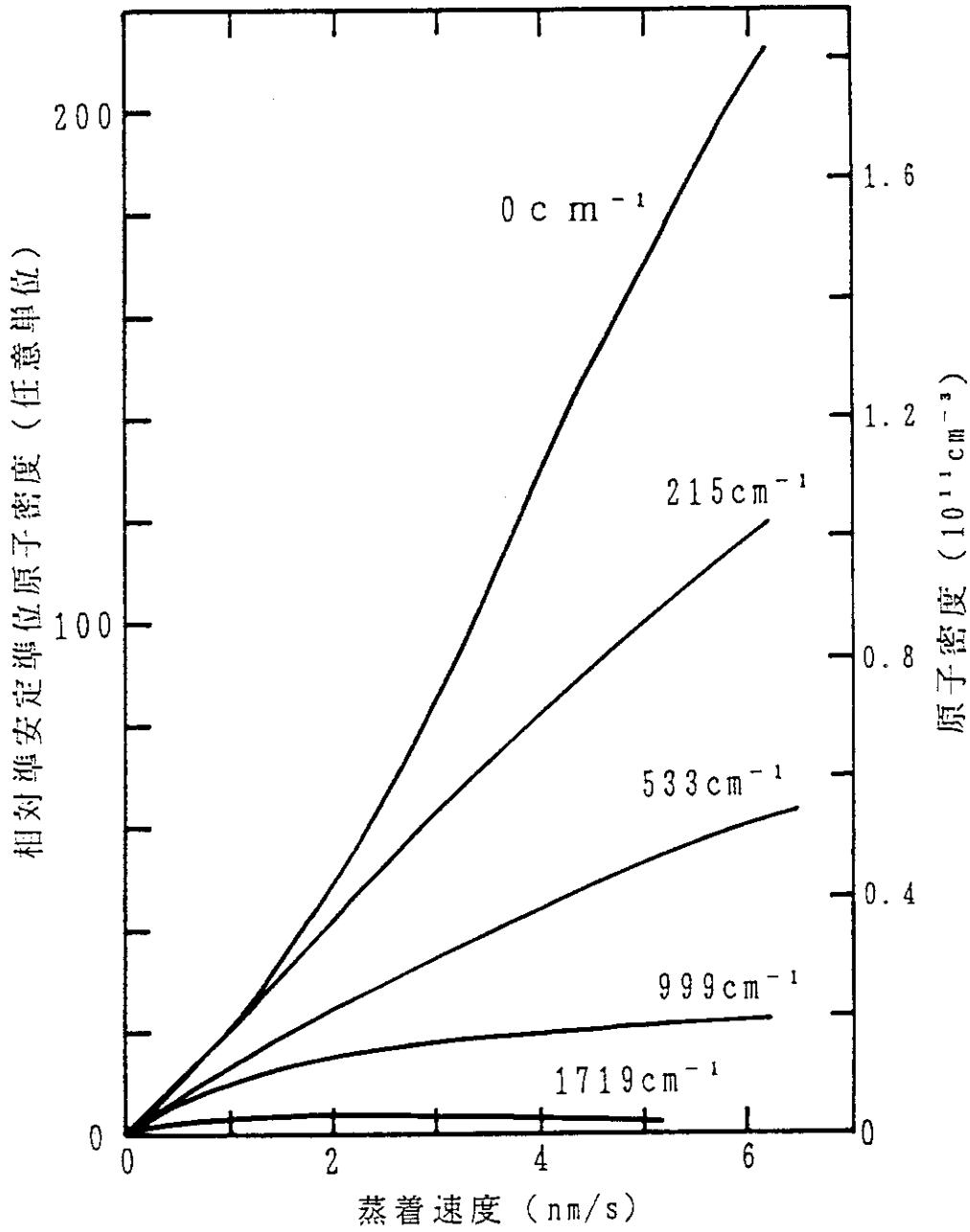


図11 準安定準位原子密度の蒸着速度依存性

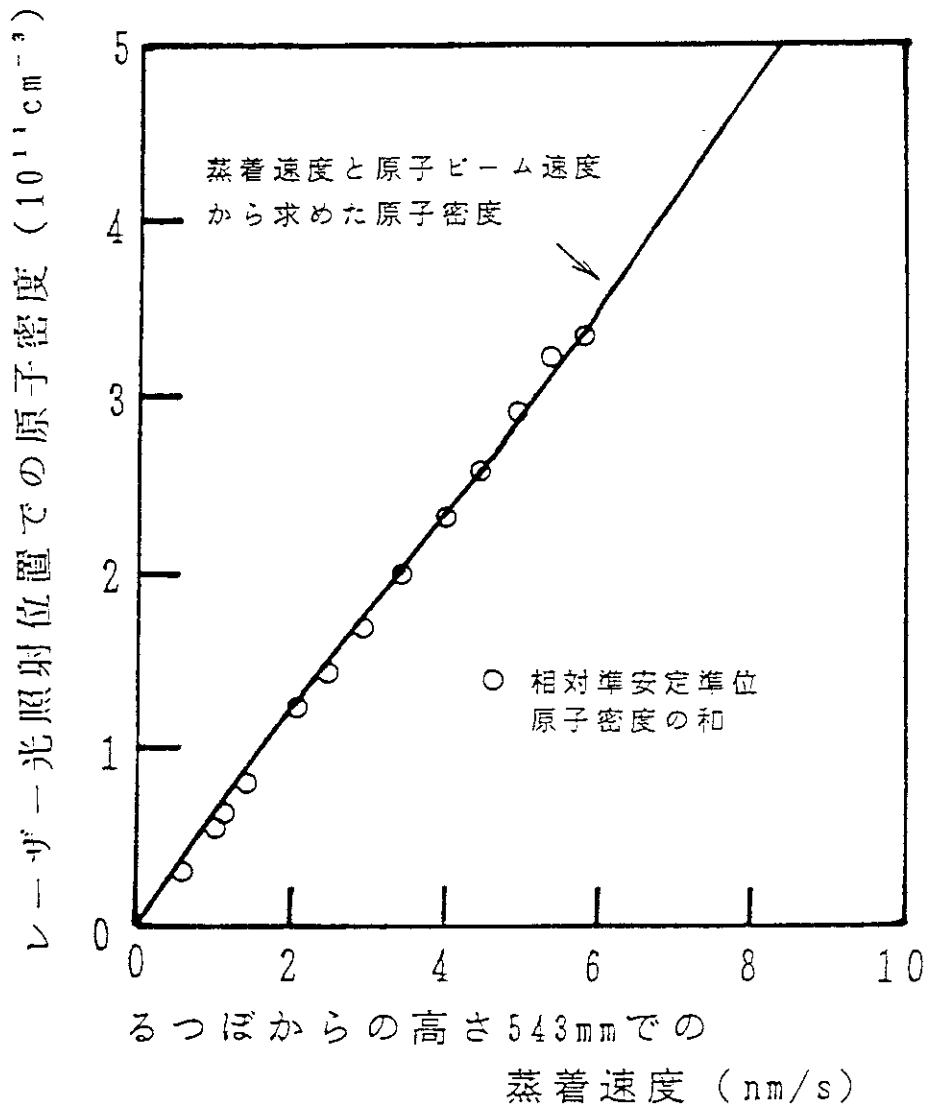


図12 蒸着速度とレーザー光照射位置での原子密度

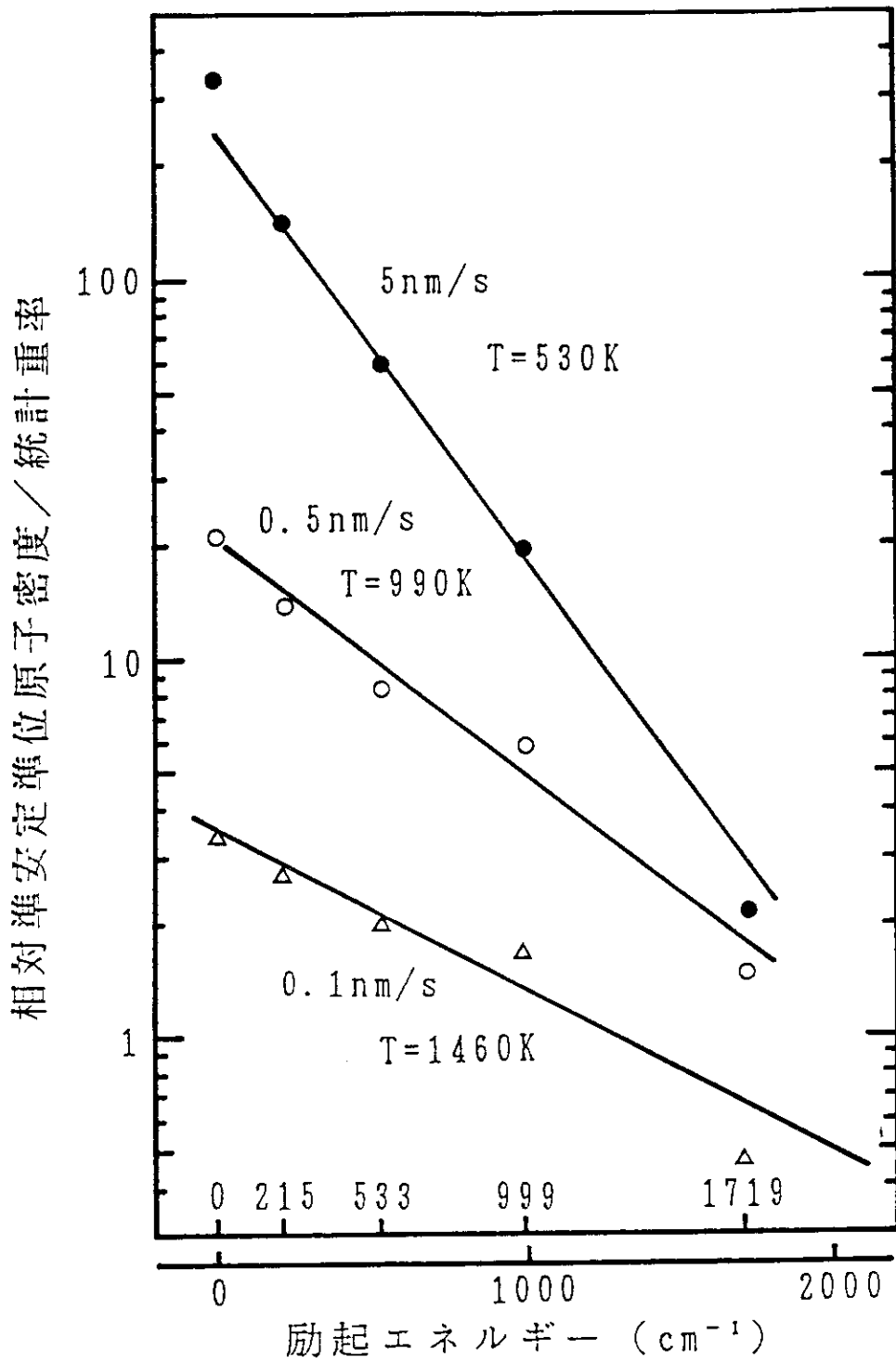


図13 相対準安定準位原子密度を統計重率で割ったもののボルツマンプロット

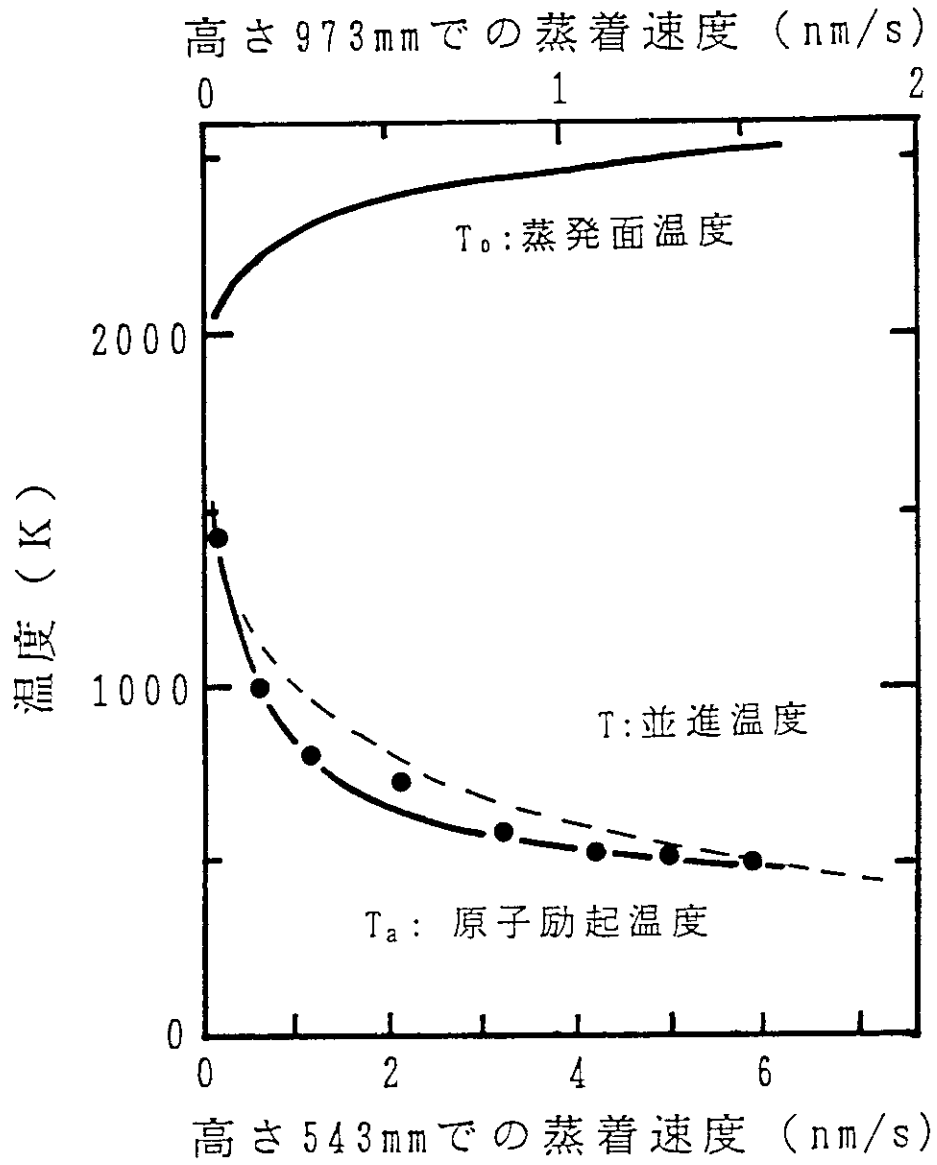


図14 原子励起温度の蒸着速度依存性

付録

1. レート方程式の遷移確率

吸収形状 $g_s(\omega)$ に依存した吸収の断面積 $\sigma(\omega)$ は次のように表される⁽¹²⁾。

$$\sigma(\omega) = \frac{\pi e^2 f}{2 \epsilon_0 c m} \cdot g_s(\omega)$$

これを、周波数で積分して得られる吸収断面積は $\int_{-\infty}^{+\infty} g(\omega) d\omega = 1$ としているので次のようになる。

$$\sigma_s = \int_{-\infty}^{+\infty} \sigma(\omega) d\omega = \frac{\pi e^2 f}{2 \epsilon_0 c m} = 0.167 f \text{ (cm}^2 \text{s}^{-1}\text{)}$$

レーザー光の単位面積あたりのパルスエネルギーを I_0 (J/cm²)、レーザー光の単位面積に入射する光のパワーを P (W/cm²) とすれば、

$$I_0 = \int_0^{\tau_1} P dt$$

である。ここで、 τ_1 はレーザーパルスの長さである。 I_0 がわかれば図4に示すレーザーパルス波形を用いて P の時間変化がわかる。レーザー光のスペクトルを形状を $g_L(\omega)$ とすれば単位面積当り単位角周波数当りのレーザーパワー $P(\omega)$ は、

$$P(\omega) = P \cdot g_L(\omega)$$

である。ここで、 $\int g_L(\omega) d\omega = 1$ に規格化しておく。レーザー光の単位面積当り、単位角周波数当りのレーザーの光子数は、

$$\frac{P(\omega)}{\hbar \omega_0}$$

である。ここで、 ω_0 は中心周波数である。

従って、1個の原子が光を単位時間当りに吸収する確率 W_{21} は、

$$\begin{aligned} W_{21} &= \int_{-\infty}^{+\infty} \sigma(\omega) \frac{P(\omega)}{\hbar \omega_0} d\omega \\ &= \frac{1}{\hbar \omega_0} \int_{-\infty}^{+\infty} \sigma_s \cdot P \cdot g_s(\omega) \cdot g_L(\omega) d\omega \end{aligned}$$

となる。吸収形状 $g_s(\omega)$ はローレンツ型で、励起準位の寿命 τ のとき幅 γ は

$$\gamma = \frac{1}{\tau}$$

$\tau \sim 10 \text{ ns}$ なので $\gamma \sim 10^8 \text{ s}^{-1}$ 程度である。これに対し用いたレーザーの線幅は半値全幅で 0.2 cm^{-1} で原子の吸収幅に比べ非常に広い。従って、 $g_s(\omega)$ が変化する所で $g_L(\omega)$ は一定の $g_L(\omega_0)$ としてよい。

$$W_{21} = \int_{-\infty}^{\infty} \sigma(\omega) \frac{P(\omega)}{\pi \omega_0} d\omega$$

$$= \frac{\sigma_0 P}{\pi \omega_0} \cdot g_L(\omega_0)$$

レーザー光のスペクトルをローレンツ型とすると

$$g_L(\omega_0) = \frac{1}{\pi \Delta \omega}$$

ここで $\Delta \omega$ (rad/s) はローレンツ分布の半値半幅である。本実験ではレーザーの線幅 (半値全幅) は 0.2 cm^{-1} であるので

$$\Delta \omega = 0.1 (\text{cm}^{-1}) \times c \times 2\pi$$

$$= 18.85 \times 10^9 (\text{rad/s})$$

である。

$$W_{21} = \frac{\sigma_0 P}{\pi \omega_0 \Delta \omega}$$

2. 飽和強度の求め方

2準位系を仮定する。自然放出の確率はレーザー光による遷移確率にくらべ十分小さいとすると本文中の式(1)、式(2)で

$$A_{12} = A_{32} = 0 \quad \text{とおいて}$$

$$\frac{d n_1}{d t} = -W_{21} \left(n_1 - \frac{g_1}{g_2} n_2 \right)$$

$$\frac{d n_2}{d t} = +W_{21} \left(n_1 - \frac{g_1}{g_2} n_2 \right)$$

W_{21} は時間的に変化する。これを解くと

$$n_1 = \frac{g_1}{g_1 + g_2} n_{10} \exp \left(- \frac{g_1 + g_2}{g_1} \int_0^t W_{21} d t \right)$$

$$n_2 = \frac{g_2}{g_1 + g_2} n_{10} \left(1 - \exp \left(- \frac{g_1 + g_2}{g_2} \int_0^t W_{21} d t \right) \right)$$

$$n_1 = n_{10} - n_2$$

$$= n_{10} \left(\frac{g_1}{g_1 + g_2} + \frac{g_2}{g_1 + g_2} \exp \left(- \frac{g_1 + g_2}{g_2} \int_0^t W_{21} d t \right) \right)$$

$$W_{21} = \frac{\sigma_0 P}{\pi \omega_0 \Delta \omega}$$

ここで、 n_{10} は最初に準位1に原子がある確率。

$$\int_0^{\infty} W_{12} dt = \frac{\sigma_s}{\pi \hbar \omega_0 \Delta \omega} \int_0^{\infty} P dt = \frac{\sigma_s I_0}{\pi \hbar \omega_0 \Delta \omega}$$

σ_s は振動子強度から計算できる。指数の肩の部分が 1 になるところすなわち

$$\frac{g_1 + g_2}{g_2} \cdot \frac{\sigma_s I_0}{\pi \hbar \omega_0 \Delta \omega} = 1$$

となる I_0 を求めた。

付録の文献

- (1) 霜田光一：“レーザー物理入門”、P.85（1986、岩波書店、東京）。