

JAERI-M
94-056

レーザー共鳴イオン化生成プラズマからの回収イオン
エネルギーの飛行時間法による測定

1994年3月

相島 幸則*・池畠 隆*・真瀬 寛*・小倉 浩一
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, Tokai-mura, Naka-gun,
Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1994

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生成プラズマからの回収
イオンエネルギーの飛行時間法による測定

日本原子力研究所東海研究所燃料研究部
相島 幸則*・池畠 隆*・真瀬 寛*・小倉 浩一
柴田 猛順

(1994年2月18日受理)

平行平板電極間に共鳴イオン化で生成したネオジムプラズマから、電極に正負の電圧を印加してイオンを回収した。回収イオンのエネルギーを、負電極側にゲート電極を設けて、飛行時間法により、イオン回収の開始時から終了までの任意の時間で測定できるようにした。平行平板電極に V_0 (V) の電圧を印加した場合イオン回収の開始時から終了まで常にイオンのエネルギーが、 V_0 (eV) になっていることが確認された。今後、細線電圧印加や高周波電圧印加等の効率的イオン回収時の回収イオンエネルギー測定に本測定手法を用いる予定である。

Measurement of Kinetic Energy of Ions Collected
from Laser Resonance Photoionized Plasma
by Time-of-Flight Method

Yukinori AISHIMA*, Takashi IKEHATA*, Hiroshi MASE*
Koichi OGURA and Takemasa SHIBATA

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

(Received February 18, 1994)

Neodymium plasma was produced between parallel electrodes by laser resonance photoionization. Ions were extracted and collected on a negative electrode by applying an electric field across the electrodes. Kinetic energy of ions collected at arbitrary time during ion collection was measured by the time-of-flight method using a gate electrode set behind negative electrode. It was confirmed that the kinetic energy of ions collected is equal to V_0 (eV) at any time during ion collection when electric potential V_0 (V) is applied between the parallel electrodes.

This method will be used for measuring the kinetic energy of ions collected by improved methods such as by applying a electric potential to a wire electrode or by applying a radio frequency voltage.

Keywords : Laser, Resonance Ionization, Plasma, Ion Collection,
Kinetic Energy, Neodymium, Time-of-Flight, Laser Isotope
Separation

* Ibaraki University, Faculty of Engineering

目 次

1. はじめに	1
2. イオンエネルギー測定法	1
3. イオンエネルギー測定結果と考察	3
4. おわりに	4
文献	5

Contents

1. Introduction	1
2. Method of Ion Energy Measurement	1
3. Experimental Results and Discussion	3
4. Conclusion	4
References	5

1. はじめに

原子法レーザー同位体分離では、平行平板の回収電極間の目的同位体原子のみをパルスレーザー光で選択的にイオン化し、これを電場で電極に回収する。レーザー照射により生成したイオンは、脱離した電子とともにプラズマを形成する。回収電極に正負の電圧を印加した場合のプラズマの電位は、負電極よりも V_0 (V) 電位の高い正電極の電位と等しくなる。このため、プラズマからイオンが回収されるとき、回収電極へ入射するイオンの運動エネルギーは V_0 (eV) となる¹⁾。小倉等^{2, 3)}は、これを飛行時間法で測定し確認している。しかし、小倉等の測定では、プラズマからのイオン回収が開始された直後のみしか行うことができていない。このため、イオン回収の開始から終了までの間の任意の時間でのイオンエネルギーの測定が求められていた。本報告において、飛行時間法を用いる点は小倉等と同様であるが、負電極側にゲート電極を設置して、イオン回収時の任意の時間でエネルギーを測定することを試みた。

2. イオンエネルギー測定法

実験装置の概略を図1に示す。本装置の詳細は別報^{4, 5, 6)}に述べてあるので簡単に述べる。水冷銅るっぽ内のネオジム金属を電子銃で加熱蒸発させて原子ビームを生成した。原子ビームは $14\text{ mm} \times 80\text{ mm}$ のスリット通過後、電極間隔 20 mm の回収電極の間にに入る。除去電極に -200 V を印加して、電子ビーム加熱蒸発で生成するネオジムプラズマ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した⁷⁾。蒸発面から 703 mm 上に置いた水晶振動式膜厚計で蒸着速度を測定した。本測定では $0.5\text{ }-\text{ }1.5\text{ nm/s}$ 程度で、この時のレーザー照射時の原子密度は $3.0 \times 10^{10}\text{ cm}^{-3}$ 程度である。

2枚の回収電極間に導いた原子ビームに、エキシマレーザー励起のパルス色素レーザー光を照射しネオジム原子をイオン化した。イオン化には次の1波長2段階イオン化スキームを用いた。

$$1128\text{ cm}^{-1} \longrightarrow 23755\text{ cm}^{-1} \longrightarrow 46383\text{ cm}^{-1} \text{ (イオン化)}$$

1. はじめに

原子法レーザー同位体分離では、平行平板の回収電極間の目的同位体原子のみをパルスレーザー光で選択的にイオン化し、これを電場で電極に回収する。レーザー照射により生成したイオンは、脱離した電子とともにプラズマを形成する。回収電極に正負の電圧を印加した場合のプラズマの電位は、負電極よりも V_0 (V) 電位の高い正電極の電位と等しくなる。このため、プラズマからイオンが回収されるとき、回収電極へ入射するイオンの運動エネルギーは V_0 (eV) となる¹⁾。小倉等^{2, 3)}は、これを飛行時間法で測定し確認している。しかし、小倉等の測定では、プラズマからのイオン回収が開始された直後のみしか行うことができていない。このため、イオン回収の開始から終了までの間の任意の時間でのイオンエネルギーの測定が求められていた。本報告において、飛行時間法を用いる点は小倉等と同様であるが、負電極側にゲート電極を設置して、イオン回収時の任意の時間でエネルギーを測定することを試みた。

2. イオンエネルギー測定法

実験装置の概略を図1に示す。本装置の詳細は別報^{4, 5, 6)}に述べてあるので簡単に述べる。水冷銅るっぽ内のネオジム金属を電子銃で加熱蒸発させて原子ビームを生成した。原子ビームは $14\text{ mm} \times 80\text{ mm}$ のスリット通過後、電極間隔 20 mm の回収電極の間にに入る。除去電極に -200 V を印加して、電子ビーム加熱蒸発で生成するネオジムプラズマ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した⁷⁾。蒸発面から 703 mm 上に置いた水晶振動式膜厚計で蒸着速度を測定した。本測定では $0.5\text{ }-\text{ }1.5\text{ nm/s}$ 程度で、この時のレーザー照射時の原子密度は $3.0 \times 10^{10}\text{ cm}^{-3}$ 程度である。

2枚の回収電極間に導いた原子ビームに、エキシマレーザー励起のパルス色素レーザー光を照射しネオジム原子をイオン化した。イオン化には次の1波長2段階イオン化スキームを用いた。

$$1128\text{ cm}^{-1} \longrightarrow 23755\text{ cm}^{-1} \longrightarrow 46383\text{ cm}^{-1} \text{ (イオン化)}$$

レーザー光の断面は直径10mmの円であるので、回収電極間にはパルス的に円柱状にプラズマが生成する。

図2は回収電極、ゲート電極と、イオンを検出したファラデーカップの断面図で、飛行時間法によるイオンエネルギー測定時の各電極への印加電圧も示している。回収電極1に正の電位をレーザー照射の300ns後に印加し、回収電極2はアース電位のままでイオンを回収した。回収電極2、ゲート電極、接地電極のA、B、Cの3個の縦長の穴(5mm×70mm)を通過したイオンをファラデーカップA、B、Cで検出した。ゲート電極は通常回収電極1の印加電圧よりも高くして、回収電極2を通過したイオンがゲート電極を通過できないようにしておく。そして、イオン回収が行われている任意の時間のみパルス的に接地電位にする。ゲート電極が接地電位の時のみイオンは電極を通過し、ファラデーカップで検出される。ただし、ゲート電極の穴Bのみは接地電極からブリッジを渡して接地電位とし、回収イオンを常に通過させ、ファラデーカップBで検出できるようにした。穴は原子ビーム方向に長いので、ファラデーカップBに流れるイオン電流は、回収電極2に流れるイオン電流に比例したものになり、その電流波形によりイオン回収の全過程をモニターできる。ファラデーカップAの入口は接地電極から50mm、ファラデーカップB、Cの入口は接地電極から5mm離して置いた。ゲート電極が接地電位の時接地電極側に流れるイオンは回収電極に入射するエネルギーで回収電極2とファラデーカップA、Cの間を飛行する。ファラデーカップAのイオン電流は、ファラデーカップCのものに比べて、45mm多く飛行するので時間遅れがあり、この時間差からイオンの速度を求めることができる。ゲート電極を接地電位にする時間は、イオン回収時間全体のうちの適当な時間に設定できるので、任意の時間のイオンエネルギーが測定できるはずである。なお、電極の縦長の穴、ファラデーカップ入口には、透過率81%のステンレス製メッシュを張り、回収電極間、及び接地電極とファラデーカップ入口の間の電場が、印加電圧の影響を受けないようにした。また、小倉等^{2,3)}の測定では、図2に示すゲート電極がないため、イオン回収直後の飛行時間差しか求めることができず、イオン回収の任意の時間でのイオンエネルギー測定ができないかった。

3. イオンエネルギー測定結果と考察

回収電極1への印加電圧を150Vとした時の測定例を図3に示す。図3(a)は回収電極、ゲート電極への印加電圧を示す。図3(b)のファラデーカップBの電流波形が、イオン回収の全過程をモニターしている。ファラデーカップBの電流波形を積分し、メッシュの透過率を考慮してイオン生成時のイオン密度を求めるところ $1.3 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$ である。ゲート電極に160Vを印加し、レーザー照射後 $5\mu\text{s}$ 後に $7\mu\text{s}$ の間だけパルス的に接地電位にした。その時ファラデーカップA、Cに流れたイオン電流波形を図3(c)に示す。図3(c)では、パルス接地電位の印加開始の時間を0としている。ファラデーカップAには、パルス接地電位印加後 $4.47\mu\text{s}$ でイオンが到達しているが、ファラデーカップCには $1.29\mu\text{s}$ 後に到達している。イオン電流の立上りの時間差 $3.18\mu\text{s}$ は、イオンが45mm飛行するのに要した時間なので、イオンの速度は $1.41 \times 10^4 \text{ m/s}$ であり、これをイオンエネルギーに換算すると150eVであることが分かる。

ファラデーカップA、Cの電流波形の終端には鋭いピークが見える。これは、ゲート電極電位が接地電位から160Vに上昇した時に、ゲート電極と接地電極との間にあったイオンがこれらの電極間の電場で加速されイオンビームがパンチング作用を受けたためと考えられる。

図4は、回収電極への印加電圧が100Vの時、ゲート電極電位を接地電位にする時間幅を変化させた場合の測定例である。図4(a)は、接地電位時間幅を $10\mu\text{s}$ にした場合の測定例である。イオン電流の立上りの時間差は $3.88\mu\text{s}$ であり、これからイオンエネルギーは100eVと求まる。図4(b)は接地電位時間幅を $3\mu\text{s}$ にした場合の測定例である。イオン電流の立上りの時間差は $3.83\mu\text{s}$ で、これからイオンエネルギーは103eVと求まる。しかし、イオン電流立ち上がり部と、終端ピークがかなり近づいている。図4(c)は、接地電位時間幅が $1\mu\text{s}$ の場合である。ここでは、イオン電流立ち上がり部と終端部のピークが重ってしまっている。このため、立上りの時間差からエネルギーを求めることができない。図4より、回収電極1の印加電圧が100Vの場合にエネルギーを測定するには、ゲート電極の接地電位時間幅を $3\mu\text{s}$ 以上にする必要があることが分かる。

図5は、回収電極1への印加電圧が100V、ゲート電極の接地電位印加をレーザー照射の(a) $2\mu\text{s}$ 、(b) $7\mu\text{s}$ 、(c) $17\mu\text{s}$ 後にした場合のイオン電流波

形である。ファラデーカップA、Cのイオン電流の立上りの時間差は、それぞれ(a) $3.95\mu\text{s}$ 、(b) $3.74\mu\text{s}$ 、(c) $3.88\mu\text{s}$ であり、これに対応するイオンエネルギーは(a) 97eV 、(b) 103eV 、(c) 100eV となる。図6に回収電極1の印加電圧が 75V 、 100V 、 150V の時、ゲート電極への接地電位印加の、レーザー照射からの遅れ時間を関数としたイオンエネルギー測定値を示す。この時の初期イオン密度は、回収電極への印加電圧 75V 、 100V 、 150V の時それぞれ $1.9 \times 10^9 \text{cm}^{-3}$ 、 $2.1 \times 10^9 \text{cm}^{-3}$ 、 $1.3 \times 10^9 \text{cm}^{-3}$ である。いずれの場合も、電極1の印加電圧 $V_0\text{V}$ で決まるエネルギー $V_0\text{(eV)}$ になっており、イオン回収時常に、プラズマ電位が回収電極1の電位に等しくなっていることが確認された。

小倉等^{2, 3)}は、イオン回収直後のイオンエネルギー測定から、生成イオン密度がある値 n_{i0} より高いときプラズマ電位が、正電極電位と等しくなり、そのエネルギーが $V_0\text{(eV)}$ になることを明らかにしている。 n_{i0} は、簡単な1次元モデルを用いた次の式.

$$n_{i0} = 8 \epsilon_0 V_0 / (e (2bd - b^2))$$

で推定できる。ここで ϵ_0 は真空の誘電率、 e は電気素量、 d は回収電極間隔、 b は生成プラズマの幅である。本測定では、 $V_0=75\text{V}$ 、 100V 、 150V 、 $d=20\text{mm}$ である。また、小倉等と同様に、直径 10mm の円柱状プラズマを、 $b=6\text{mm}$ の平板状プラズマとして n_{i0} を計算してみる。 $V_0=75\text{V}$ 、 100V 、 150V の時の n_{i0} は、それぞれ $1.6 \times 10^8 \text{cm}^{-3}$ 、 $2.2 \times 10^8 \text{cm}^{-3}$ 、 $3.3 \times 10^8 \text{cm}^{-3}$ となる。図6の測定時の初期イオン密度は、 n_{i0} よりかなり高いので、イオンエネルギーは $V_0\text{(eV)}$ であると推定され、本測定結果と一致する。

4. おわりに

以上のように、イオン回収の任意の時間で回収イオンエネルギーの測定ができるようになった。しかし、3節で述べたように、ゲート電極を接地電位にした後再び

形である。ファラデーカップA、Cのイオン電流の立上りの時間差は、それぞれ(a) $3.95\mu\text{s}$ 、(b) $3.74\mu\text{s}$ 、(c) $3.88\mu\text{s}$ であり、これに対応するイオンエネルギーは(a) 97eV 、(b) 103eV 、(c) 100eV となる。図6に回収電極1の印加電圧が 75V 、 100V 、 150V の時、ゲート電極への接地電位印加の、レーザー照射からの遅れ時間を閾数としたイオンエネルギー測定値を示す。この時の初期イオン密度は、回収電極への印加電圧 75V 、 100V 、 150V の時それぞれ $1.9 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$ 、 $2.1 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$ 、 $1.3 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$ である。いずれの場合も、電極1の印加電圧 $V_0\text{V}$ で決まるエネルギー $V_0\text{(eV)}$ になっており、イオン回収時常に、プラズマ電位が回収電極1の電位に等しくなっていることが確認された。

小倉等^{2, 3)}は、イオン回収直後のイオンエネルギー測定から、生成イオン密度がある値 n_{i0} より高いときプラズマ電位が、正電極電位と等しくなり、そのエネルギーが $V_0\text{(eV)}$ になることを明らかにしている。 n_{i0} は、簡単な1次元モデルを用いた次の式

$$n_{i0} = 8 \epsilon_0 V_0 / (e (2bd - b^2))$$

で推定できる。ここで ϵ_0 は真空の誘電率、 e は電気素量、 d は回収電極間隔、 b は生成プラズマの幅である。本測定では、 $V_0=75\text{V}$ 、 100V 、 150V 、 $d=20\text{mm}$ である。また、小倉等と同様に、直径 10mm の円柱状プラズマを、 $b=6\text{mm}$ の平板状プラズマとして n_{i0} を計算してみる。 $V_0=75\text{V}$ 、 100V 、 150V の時の n_{i0} は、それぞれ $1.6 \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$ 、 $2.2 \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$ 、 $3.3 \times 10^8 \text{ cm}^{-3}$ となる。図6の測定時の初期イオン密度は、 n_{i0} よりかなり高いので、イオンエネルギーは $V_0\text{(eV)}$ であると推定され、本測定結果と一致する。

4. おわりに

以上のように、イオン回収の任意の時間で回収イオンエネルギーの測定ができるようになった。しかし、3節で述べたように、ゲート電極を接地電位にした後再び

電圧印加した時、この電極と接地電極の間にあるイオンが再加速されてしまい、イオン電流終端部でピークが観測されてしまう。このため、ゲート電極を接地電位にする時間幅を $3 \mu\text{ s}$ 以上にしないと測定不可能であった。本測定では、ゲート電極と接地電極の間隔が5mmであったが、今後これをもっと狭くし、ゲート電極の接地電位時間幅をもっと短くすることで、より分解能の高い測定も試みたい。

原子法レーザー同位体分離では、回収イオンのエネルギーをできるだけ低くして、イオン回収に要する時間を短くする必要がある。このため柴田等^{4, 8)}は、平行平板の回収電極の間に、正電位印加の細線電極を置く方法を考案し、これが有効なことを確かめている。プラズマが細線電極と接しているときのイオンエネルギーは飛行時間法で測定し、そのエネルギーは、細線電極に印加した電圧が V_0 (V) の時、 V_0 (eV) であることを確認している。しかし、プラズマが細線電極に接する前のイオンエネルギーは未測定のままである。今後、本測定法によりイオン回収の任意の時間でエネルギーを測定する予定である。

柴田等⁹⁾は、回収電極に高周波電圧を印加しても回収イオンのエネルギーを上げずにイオン回収時間を短くできることも報告している。しかし、回収イオンのエネルギーは、シミュレーションで高周波ピーク電圧が V_p (V) の時、 $V_p/2.8\text{ eV}$ と推定したのみで未測定であった。このため、ゲート電極を用いたイオンエネルギー測定を、高周波電圧印加時についても行いたい。

文献

- 1) 小倉浩一、有沢孝、柴田猛順、日本原子力研究所報告書 JAERI-M 92-222 (1992).
- 2) 小倉浩一、柴田猛順、JAERI-M93-099(1993).
- 3) K.Ogura and T.Shibata,Jpn.J.Appl.Phys 33 (1994) to be published.
- 4) K.Ogura,T.Arisawa and T.Shibata,Jpn.J.Appl.Phys 31 (1992)1485.
- 5) 小倉浩一、蕪木英雄、柴田猛順、日本原子力研究所報告書 JAERI-M91-141 (1992.)
- 6) K.Ogura,H.Kaburaki and T.Shibata ,J.Nucl.Sci.Technol,30(1993)1248.
- 7) H.Ohba,A.Nishimura,KOgura and T.Shibata, Rev.Sci.Instrum 65(1994) to be published.
- 8) 柴田猛順、有沢孝、小倉浩一、公開特許公報 (A) 平4-156923 (1992).
- 9) 柴田猛順、小倉浩一、日本原子力研究所報告書 JAERI-M93-247 (1993) .

電圧印加した時、この電極と接地電極の間にあるイオンが再加速されてしまい、イオン電流終端部でピークが観測されてしまう。このため、ゲート電極を接地電位にする時間幅を $3 \mu s$ 以上にしないと測定不可能であった。本測定では、ゲート電極と接地電極の間隔が5mmであったが、今後これをもっと狭くし、ゲート電極の接地電位時間幅をもっと短くすることで、より分解能の高い測定も試みたい。

原子法レーザー同位体分離では、回収イオンのエネルギーをできるだけ低くして、イオン回収に要する時間を短くする必要がある。このため柴田等^{4, 8)}は、平行平板の回収電極の間に、正電位印加の細線電極を置く方法を考案し、これが有効なことを確かめている。プラズマが細線電極と接しているときのイオンエネルギーは飛行時間法で測定し、そのエネルギーは、細線電極に印加した電圧が V_0 (V)の時、 V_0 (eV)であることを確認している。しかし、プラズマが細線電極に接する前のイオンエネルギーは未測定のままである。今後、本測定法によりイオン回収の任意の時間でエネルギーを測定する予定である。

柴田等⁹⁾は、回収電極に高周波電圧を印加しても回収イオンのエネルギーを上げずにイオン回収時間を短くできることも報告している。しかし、回収イオンのエネルギーは、シミュレーションで高周波ピーク電圧が V_p (V)の時、 $V_p/2.8\text{eV}$ と推定したのみで未測定であった。このため、ゲート電極を用いたイオンエネルギー測定を、高周波電圧印加時についても行いたい。

文献

- 1) 小倉浩一、有沢孝、柴田猛順、日本原子力研究所報告書 JAERI-M 92-222 (1992).
- 2) 小倉浩一、柴田猛順、JAERI-M93-099(1993).
- 3) K.Ogura and T.Shibata,Jpn.J.Appl.Phys 33 (1994) to be published.
- 4) K.Ogura,T.Arisawa and T.Shibata,Jpn.J.Appl.Phys 31 (1992)1485.
- 5) 小倉浩一、斎木英雄、柴田猛順、日本原子力研究所報告書 JAERI-M91-141 (1992.)
- 6) K.Ogura,H.Kaburaki and T.Shibata ,J.Nucl.Sci.Technol,30(1993)1248.
- 7) H.Ohba,A.Nishimura,KOgura and T.Shibata, Rev.Sci.Instrum 65(1994) to be published.
- 8) 柴田猛順、有沢孝、小倉浩一、公開特許公報 (A) 平4-156923 (1992).
- 9) 柴田猛順、小倉浩一、日本原子力研究所報告書 JAERI-M93-247 (1993) .

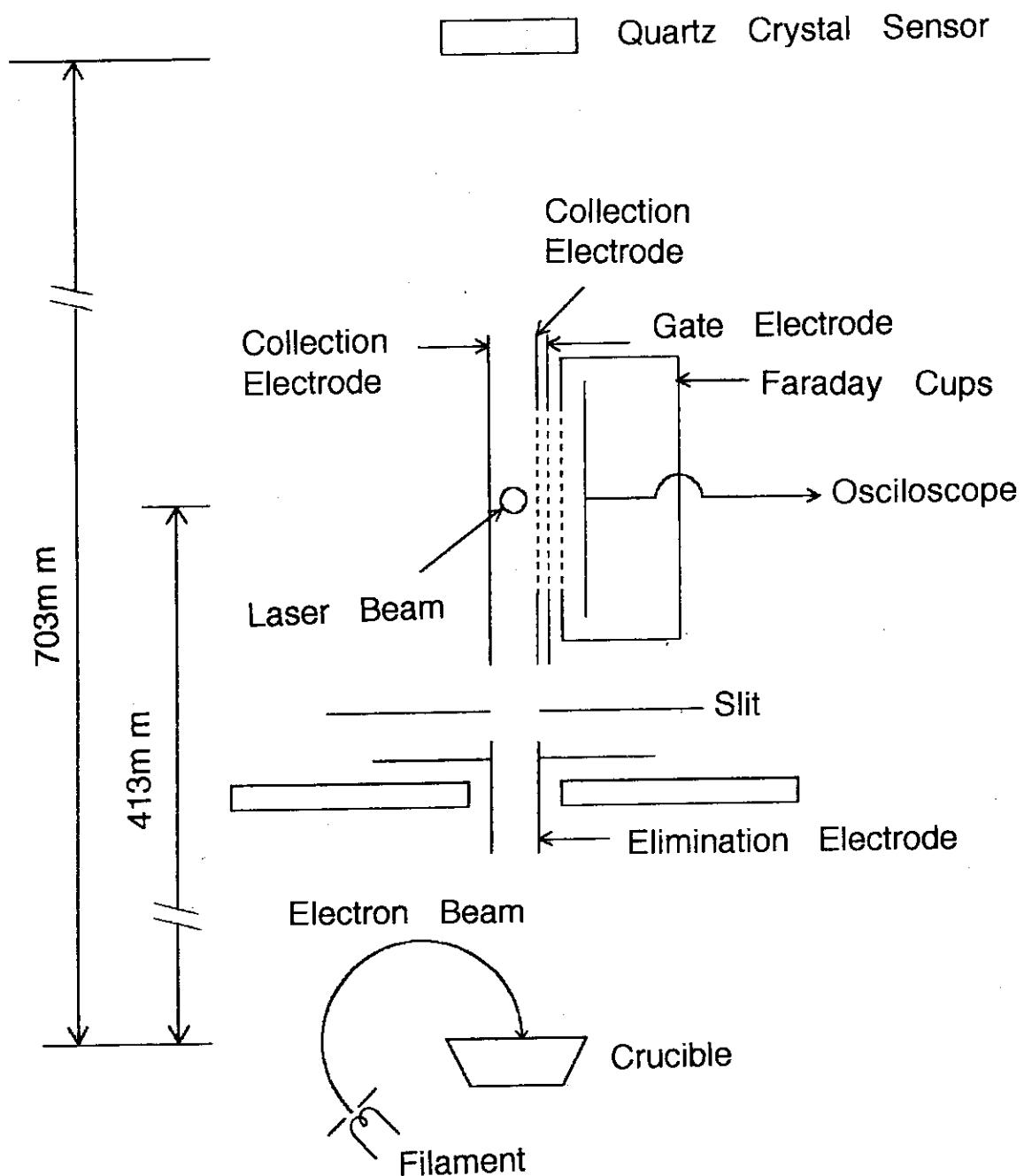


図1 実験装置の概略

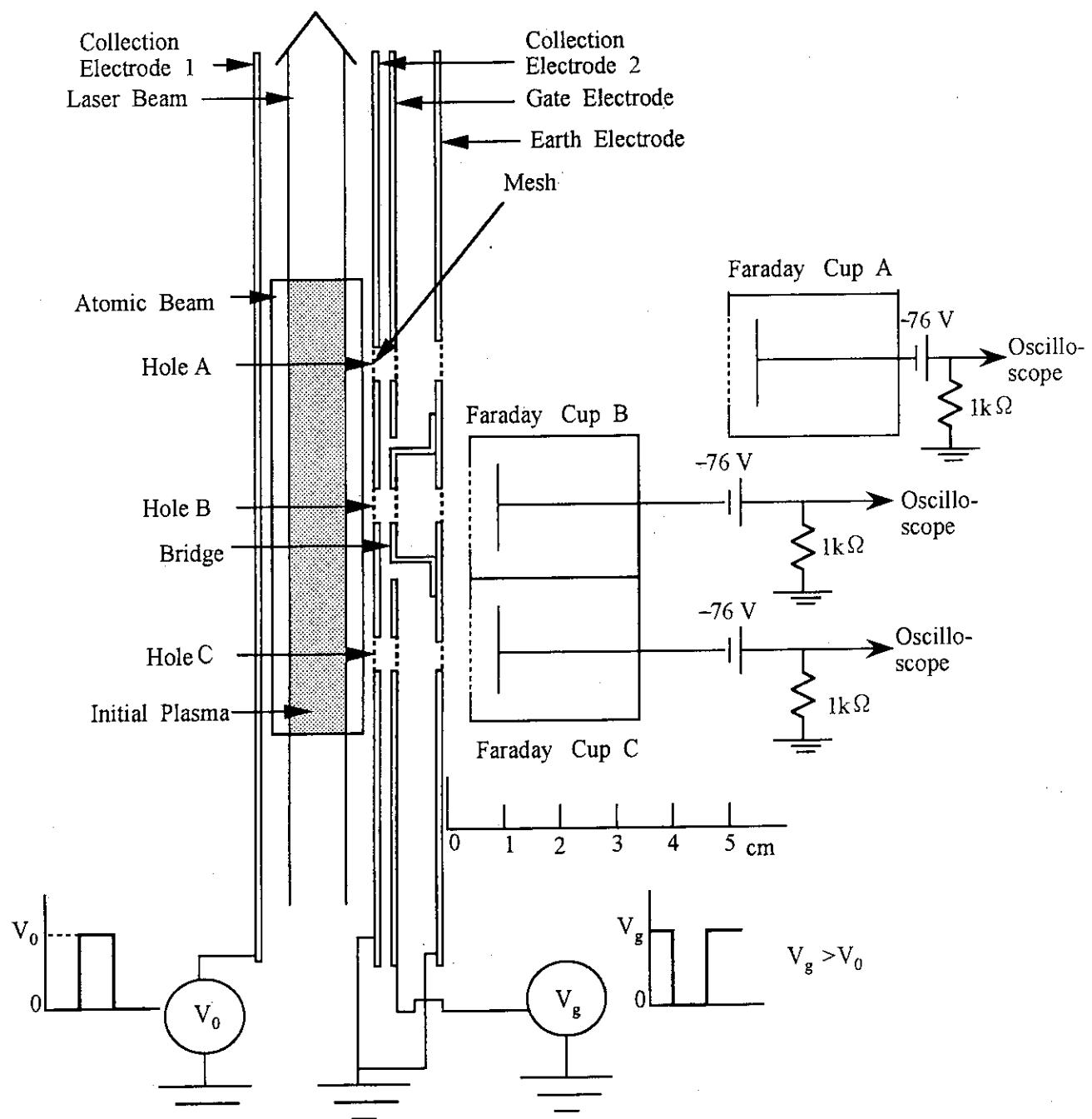


図2 イオン生成部とエネルギー測定部

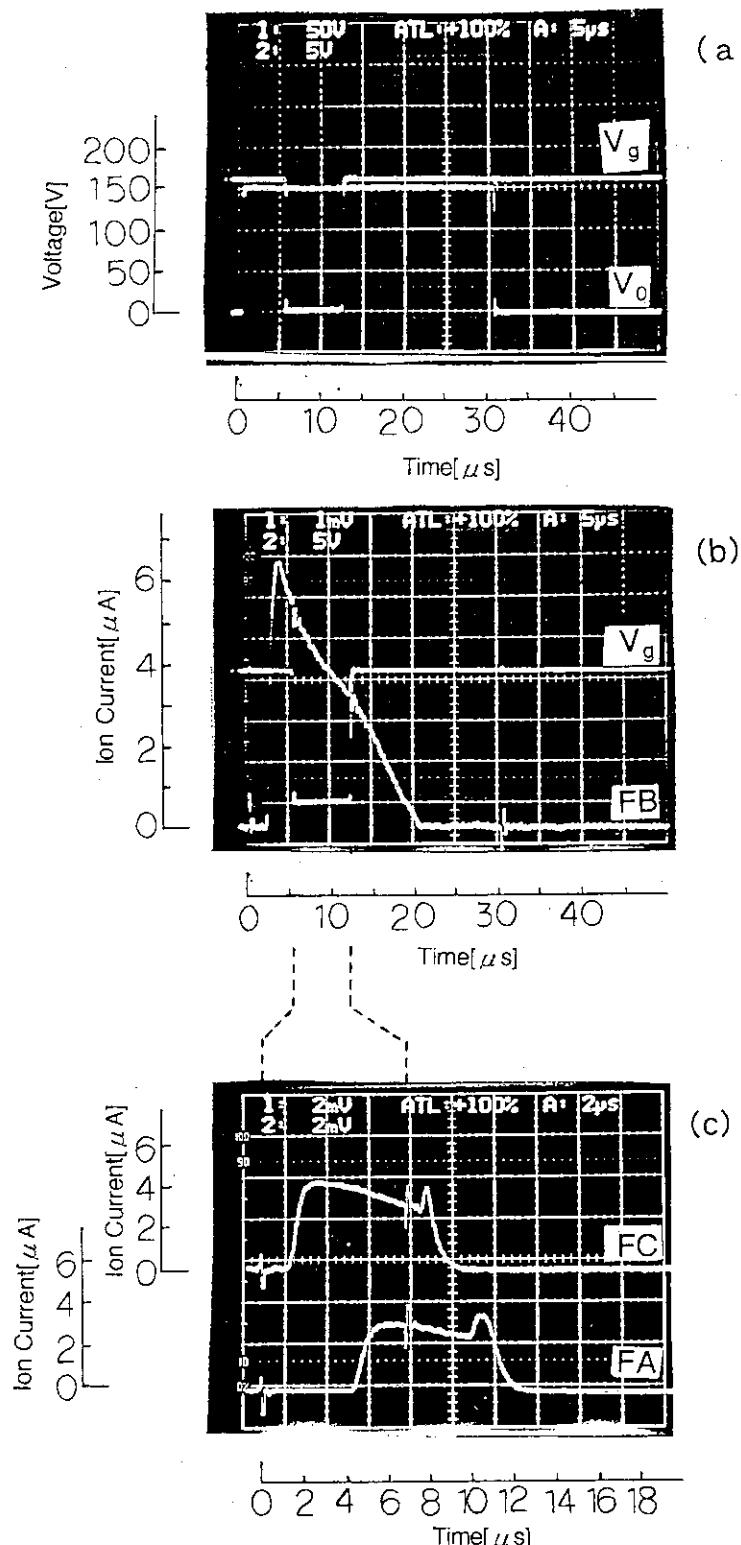
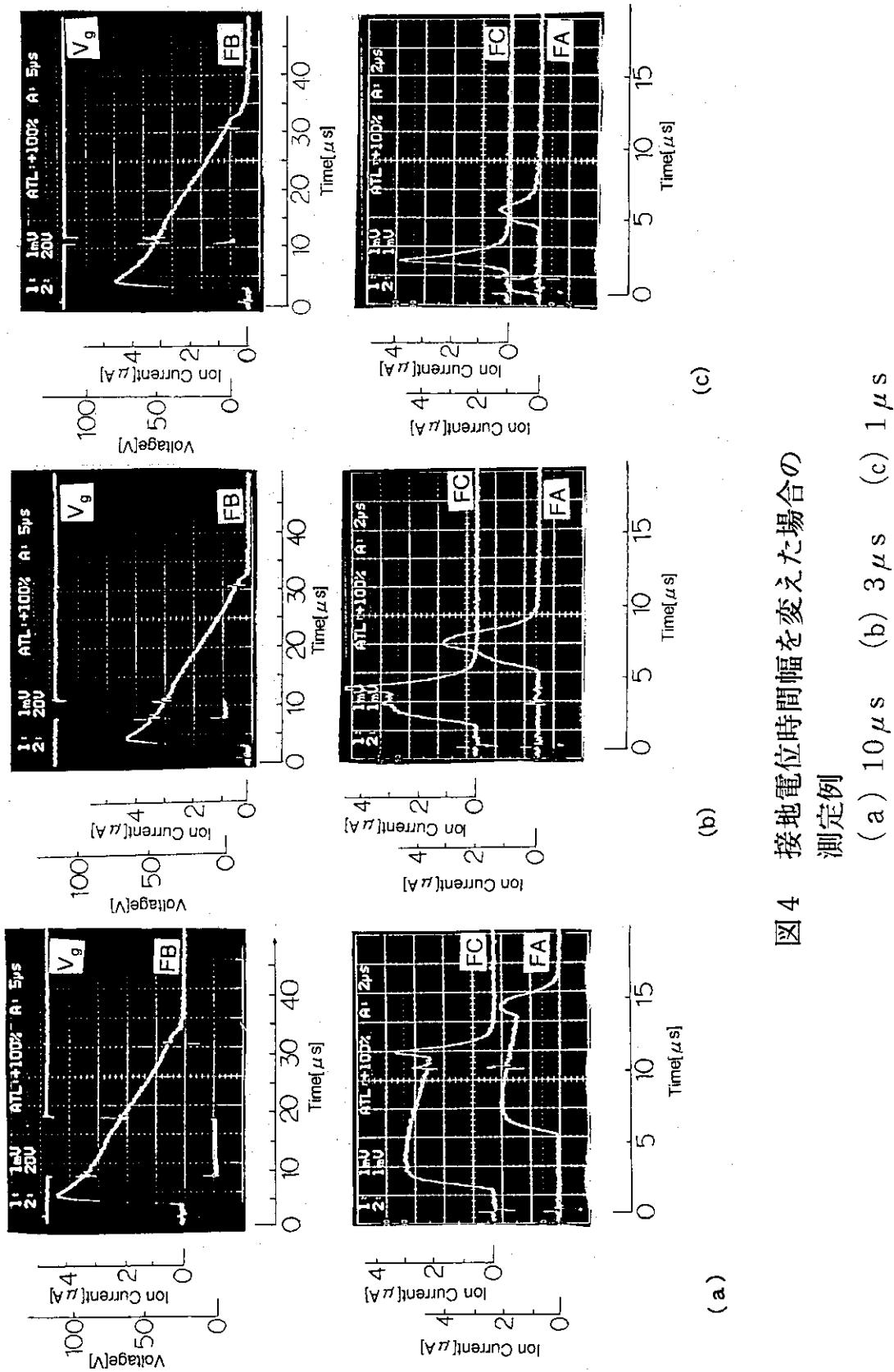


図3 回収電極1への印加電圧150Vの時の測定例
(V_0 :回収電極電圧, V_g :ゲート電極電圧, FA,FC:ファラデーカップA,C)



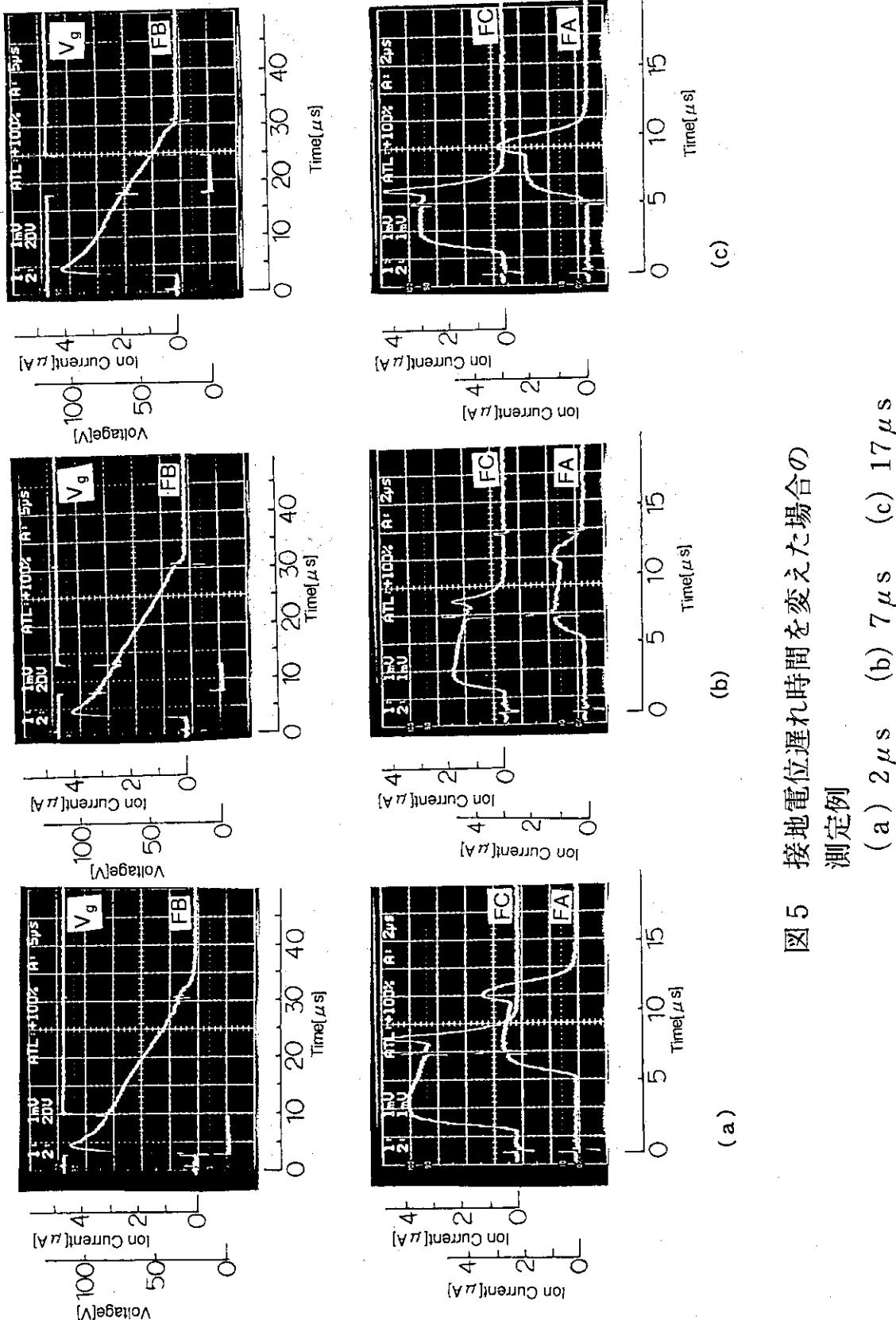


図5 接地電位遅れ時間をえた場合の
測定例

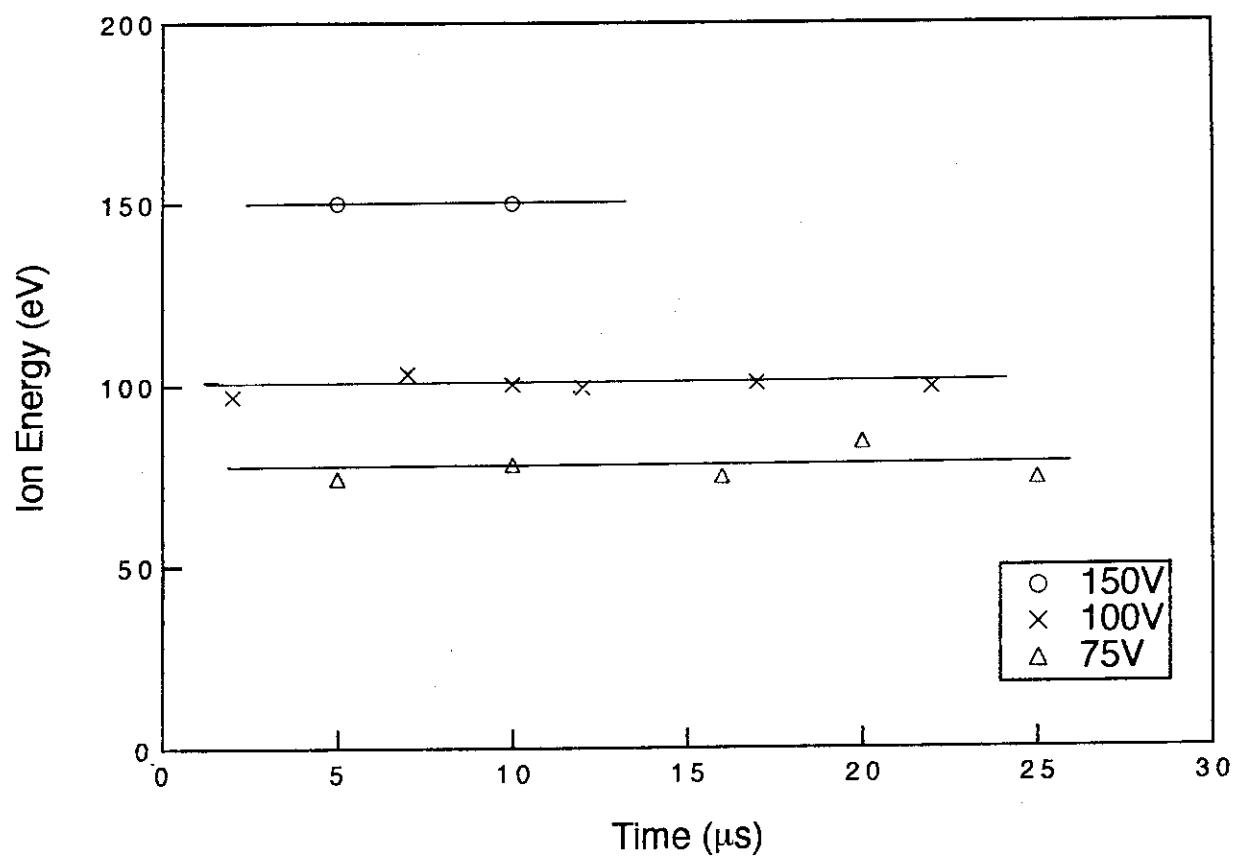


図6 接地電位遅れ時間に対するイオンエネルギー