

JAERI-Research  
95-025



ウランの対称電荷移行断面積

1995年3月

柴田猛順・小倉浩一

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

本レポートは、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。  
入手の間合わせは、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、お申し越してください。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。

This report is 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, 1995

編集兼発行 日本原子力研究所  
印刷 株原子力資料サービス

## ウランの対称電荷移行断面積

日本原子力研究所東海研究所燃料研究部

柴田 猛順・小倉 浩一

(1995年3月3日受理)

ウランの原子・イオン間の対称電荷移行断面積を反応経路の考察を行ない計算した。電荷移行でU原子の $d_{3/2}$ 電子が $U^+$ イオン( $^4I_{9/2}$ )のd電子サイトに入る反応で生成するU原子のJは基底状態の6, 励起状態の5, 4, 3のいずれかであるが衝突エネルギー数10 eV以下では共鳴電荷移行であるJ=6の反応のみが可能である。このため電荷移行断面積は約 $4 \sim 5 \times 10^{-15} \text{ cm}^2$ で、従来考えられていたものより非常に小さくなることをはじめて指摘した。100 eV以上ではU原子のs電子が移行する近共鳴電荷移行反応も起こるため、衝突エネルギーが増すと電荷移行断面積が増大する。第1励起状態( $289 \text{ cm}^{-1}$ )のウランイオンと基底状態の原子の間の電荷移行断面積も求めた。

Symmetric Charge Transfer Cross Section of Uranium

Takemasa SHIBATA and Koichi OGURA

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

(Received March 3, 1995)

Symmetric charge transfer cross section of uranium was calculated under consideration of reaction paths. In the charge transfer reaction a  $d_{3/2}$  electron in the U atom transfers into the d-electron site of  $U^+(^4I_{9/2})$  ion. The J value of the U atom produced after the reaction is 6, 5, 4 or 3. At impact energy below several tens eV, only resonant charge transfer in which the product atom is ground state ( $J=6$ ) takes place. Therefore, the cross section is very small ( $4 \sim 5 \times 10^{-15} \text{ cm}^2$ ) compared with that considered so far. In the energy range of 100–1000 eV the cross section increases with the impact energy because near resonant charge transfer in which an s-electron in the U atom transfers into the d-electron site of  $U^+$  ion. Charge transfer cross section between  $U^+$  in the first excited state ( $289 \text{ cm}^{-1}$ ) and U in the ground state was also obtained.

Keywords: Charge Transfer, Cross Section, Uranium, Resonant Charge Transfer, Near-resonant Charge Transfer

## 目 次

1. はじめに .....	1
2. 可能な反応経路 .....	2
3. 計算方法 .....	3
4. 用いた波動関数 .....	6
5. $\Delta(R)$ の計算と $\Delta(R)$ より求めた電荷移行断面積 .....	6
6. 各反応経路の反応確率とウランの電荷移行断面積 .....	7
7. 考 察 .....	9
8. ま と め .....	10
謝 辞 .....	11
参考文献 .....	12

## Contents

1. Introduction .....	1
2. Possible Reaction Paths .....	2
3. Calculation Method .....	3
4. Used Wavefunctions .....	6
5. Calculation of $\Delta(R)$ and Charge Transfer Cross Sections Obtained from $\Delta(R)$ .....	6
6. Reaction Possibility of Each Reaction Path and Charge Transfer Cross Section of Uranium .....	7
7. Discussion .....	9
8. Conclusion .....	10
Acknowledgement .....	11
References .....	12

## 1. はじめに

電荷移行反応<sup>1)</sup>は反応断面積が大きいのでプラズマプロセスに関係する多くの分野で重要な素過程である。同種原子・イオン間の対称電荷移行反応は衝突エネルギーが低くても反応断面積が大きいので特に重要である。原子・イオン間の対称電荷移行反応は原子法レーザー同位体分離でも重要な過程である。原子法レーザー同位体分離<sup>2)</sup>では原子ビーム中の目的同位体のみをレーザー光でイオン化し、これを電場で回収電極に回収するが、回収される前に目的同位体イオンと非目的同位体原子間で電荷移行反応が起こると目的同位体イオンが減少し効率が低下してしまうためである。原子法レーザー同位体分離の中でもウラン濃縮は実用化を目指した研究が各国で行なわれている<sup>3)4)</sup>。電荷移行による濃縮度低下の評価にはこれまで、SinhaとBardsley<sup>5)</sup>による理論計算値が用いられてきている。

一方、我々はGd、Ndの電荷移行断面積を100~1000 eVの領域で測定<sup>6)7)</sup>し、これを電荷移行時の反応経路を考えて説明<sup>8)</sup>できることを示してきた。このなかでGdやNdなどの遷移金属の対称電荷移行はこれまでよく研究されている希ガス、アルカリ金属、アルカリ土類金属などの電荷移行と次の点で大きい違いがあることに気付いた。アルカリ金属原子・イオン間の電荷移行反応の場合は閉殻構造の外側にある1個のs電子が移行する。移行電子のスピンの向きはどちらでも移行できる。He、Ca、Ba、Sr、Hgなどのように閉殻構造の外側に原子は2個のs電子、イオンは1個のs電子がある場合、原子の2個のs電子のうちイオンのs電子とはスピンの向きが反対方向のもの1個だけが移行できる。電荷移行で原子よりs電子が抜けてできるイオンは移行s電子のスピンの向きがどちらでも<sup>2</sup>Sの基底状態になり共鳴電荷移行である。この場合1個のs電子のホールが移行すると考えればアルカリ金属の場合と同じである<sup>5)9)</sup>。希ガスの場合も閉殻にあいた1個のp電子ホールの移行と考えるとよく共鳴電荷移行のみが起る。これに対しGdやNdなどの遷移金属は閉殻構造になっていないf電子やd電子の外側にイオンは1個のs電子、原子は2個のs電子がある場合が多い。この場合の対称電荷移行でも、Heやアルカリ土類金属と同様にイオンのs電子とはスピンの向きが反対方向のs電子だけが原子からイオンへ移行できる。しかし原子から1個のs電子が抜けてできるイオンはその内部が閉殻構造でなくJ≠0のためJ+1/2またはJ-1/2のいずれかになる。J+1/2またはJ-1/2の状態のどちらかが基底状態でこのとき共鳴電荷移行で他方は近共鳴電荷移行になる。生成イオンがJ+1/2またはJ-1/2になる可能性はその統計重率に比例すると考えられる。従って1個の電子が移行するときどちらの反応経路をとるかの反応確率は(2J+1)/(4J+1)または2J/(4J+1)と推定される。衝突エネルギーが低い場合は近共鳴電荷移行はほとんど起こらないので通常のイオン化ポテンシャルから予想される電荷移行断面積の(2J+1)/(4J+1)または2J/(4J+1)となりJがある程度大きければ1/2になる。

ウランについても電荷移行時の反応経路の考察を行なったところSinhaとBardsleyの計算では反応経路を単純に考えすぎていることがわかった。このためウランの場合についても反応経路を考慮した電荷移行断面積の計算を試みた。

## 2. 可能な反応経路

(1) ウランの原子とイオンの基底状態近傍のエネルギー準位

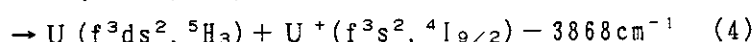
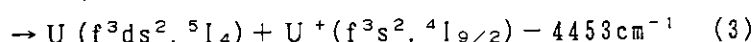
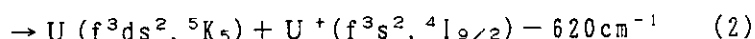
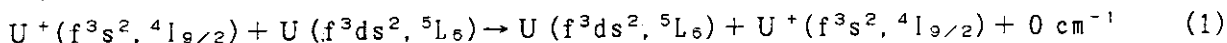
ウランの電荷移行反応経路に関係する原子の基底状態近傍のエネルギー準位<sup>10) 11) 12)</sup>を図1 (a) (b) に示す。図1 (a) は状態をLS結合で表示している。しかしJudd<sup>12)</sup>によれば、基底状態近傍は $5f^3 7s^2 ({}^4 I_{9/2}) 6d_{3/2}$ と $5f^3 7s^2 ({}^4 I_{9/2}) 6d_{5/2}$ のJj結合で考えたほうがよい。図1 (b) はJj結合で表した準位図である。

図2 (a) は基底状態近傍のイオンのエネルギー準位図<sup>13)</sup>でLS結合で表示したものである。イオンの電子配置は $5f^3 7s^2$ または $5f^3 6d 7s$ であるが、図2 (a) に△印をつけた $5f^3 7s^2$ の電子配置はd電子を含まないので非常に単純な準位構造になっている。

図3 (b) の $5f^3 6d 7s$ の電子配置の準位をみると図1 (b) の $5f^3 7s^2 ({}^4 I_{9/2}) 6d_{3/2}$ のエネルギー準位を平行移動した二つのグループがある。これは $5f^3 ({}^4 I_{9/2}) 6d_{3/2}$ 、Jに7s電子が結合していることによると考えることができる。

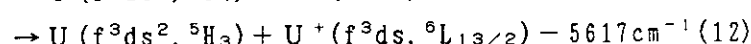
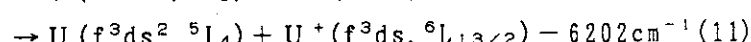
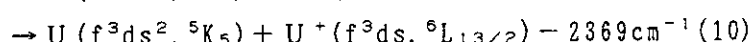
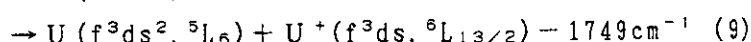
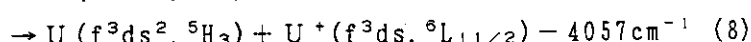
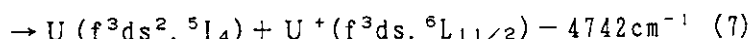
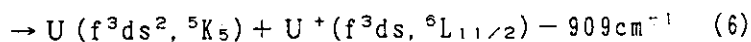
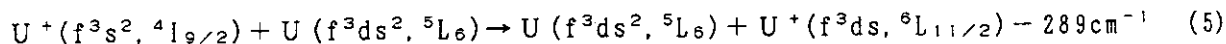
(2) 原子、イオンとも基底状態のときの反応経路

ウラン原子の基底状態は $5f^3 6d 7s^2 ({}^5 L_6)$ 、ウランイオンの基底状態は $5f^3 7s^2 ({}^4 I_{9/2})$ であるので、これらの間の電荷移行では原子の6d電子または7s電子がイオンの6d電子サイトに移行できる。j = 3/2の6d電子が原子から抜けてできるイオンは基底状態の $5f^3 7s^2, {}^4 I_{9/2}$ になる。イオンに $6d_{3/2}$ の電子が付加してできる原子は図1 (b) のように基底状態を含む4つの準位の可能性がある。従って次の四つの反応経路



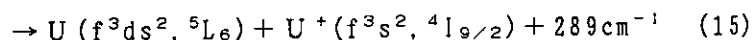
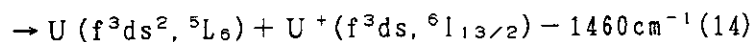
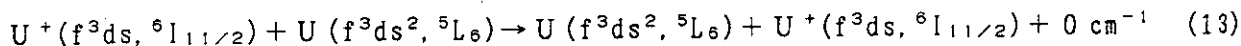
が考えられ、(1)の反応のみが共鳴電荷移行でその他は近共鳴電荷移行である。

原子の7s電子が $U^+$ イオンの $6d_{3/2}$ 電子サイトに入る反応では、生成したイオンは図2 (b) のように $f^3 d s, {}^6 L$ でJは11/2または13/2で、 $6d_{3/2}$ 電子の付加でできる原子は(1)から(4)の反応と同様に四つの準位の可能性がある。従ってこの場合、次の8個の反応経路が考えられ、すべて近共鳴電荷移行である。



(3) 原子が基底状態でイオンが第1励起状態 ( $289 \text{ cm}^{-1}$ ) のときの反応経路

イオンが第1励起状態  $f^3ds, {}^6l_{11/2}$  にある場合、電荷移行では原子からイオンの7sサイトに入る。このため反応で生成する原子は基底状態の  $f^3ds^2, {}^5L_6$  になる。原子から移行する電子は7s電子か6d電子である。原子から7s電子が抜けてできるイオンは  $f^3ds, {}^6L$  でJは11/2または13/2になる。これに対し6d電子が抜けるとイオンの基底状態になる。従ってこの場合次の三つの反応経路が考えられる。



前報で反応経路を考察したガドリニウムやネオジウムは一番外側のs電子の移行のみなので(13)(14)に相当する反応経路を考察するだけでよかった。ウランではd電子のエネルギーがs電子とはほぼ等しいため、d電子の移行も考慮する必要があり、上記のように非常に多くの反応経路がある。

### 3. 計算方法

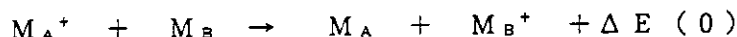
原子法レーザー同位体分離で必要とする数keV以下の低い衝突エネルギーでは電荷移行断面積 $\sigma$ は衝突径数法で計算され、

$$\sigma = 2\pi \int P(b) b db \quad (1)$$

である<sup>14)</sup>。ここでbは衝突径数、P(b)は衝突径数bのときの反応確率である。なお本章より式の単位は原子単位を用い、単位のない物理量も原子単位である。前章で述べたようにウランの電荷移行では共鳴電荷移行だけでなく、反応の前後でエネルギーの出入がある近共鳴電荷移行も重要である。それぞれの場合についてここで行なった計算方法を述べる。

#### (1) 共鳴電荷移行断面積の計算方法

元素Mのイオン $M_A^+$ と原子 $M_B$ のあいだの共鳴電荷移行



では

$$P = \sin^2 Q, \quad Q = \frac{1}{2v} \int_{-\infty}^{\infty} (\epsilon_u - \epsilon_s) dz \quad (2)$$

である。ここで $\epsilon_u, \epsilon_s$ は $M_2^+$ 分子の対称および反対称状態のエネルギーである。 $\epsilon_u - \epsilon_s$ をLCAO分子軌道で計算すると

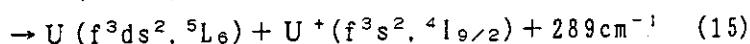
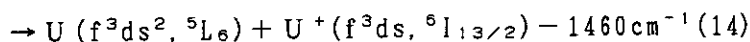
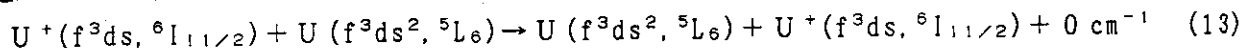
$$\epsilon_u - \epsilon_s = \Delta(R) = \frac{2\{V_{AB}(R) - S(R) V_{AA}(R)\}}{1 - \{S(R)\}^2} \quad (3)$$

である。ここでS(R)、 $V_{AA}(R)$ 、 $V_{AB}(R)$ はそれぞれ重なり積分、クーロン積



(3) 原子が基底状態でイオンが第1励起状態 ( $289 \text{ cm}^{-1}$ ) のときの反応経路

イオンが第1励起状態  $f^3ds, {}^6I_{11/2}$  にある場合、電荷移行では原子からイオンの7s サイトに入る。このため反応で生成する原子は基底状態の  $f^3ds^2, {}^5L_6$  になる。原子から移行する電子は7s電子か6d電子である。原子から7s電子が抜けてできるイオンは  $f^3ds, {}^6L$  でJは11/2または13/2になる。これに対し6d電子が抜けるとイオンの基底状態になる。従ってこの場合次の三つの反応経路が考えられる。



前報で反応経路を考察したガドリニウムやネオジウムは一番外側のs電子の移行のみなので(13)(14)に相当する反応経路を考察するだけでよかった。ウランではd電子のエネルギーがs電子とはほぼ等しいため、d電子の移行も考慮する必要があり、上記のように非常に多くの反応経路がある。

### 3. 計算方法

原子法レーザー同位体分離で必要とする数keV以下の低い衝突エネルギーでは電荷移行断面積 $\sigma$ は衝突径数法で計算され、

$$\sigma = 2\pi \int P(b) b db \quad (1)$$

である<sup>14)</sup>。ここでbは衝突径数、P(b)は衝突径数bのときの反応確率である。なお本章より式の単位は原子単位を用い、単位のない物理量も原子単位である。前章で述べたようにウランの電荷移行では共鳴電荷移行だけでなく、反応の前後でエネルギーの出入がある近共鳴電荷移行も重要である。それぞれの場合についてここで行った計算方法を述べる。

#### (1) 共鳴電荷移行断面積の計算方法

元素Mのイオン $M_A^+$ と原子 $M_B$ のあいだの共鳴電荷移行



では

$$P = \sin^2 Q, \quad Q = \frac{1}{2v} \int_{-\infty}^{\infty} (\epsilon_u - \epsilon_g) dz \quad (2)$$

である。ここで $\epsilon_u$ 、 $\epsilon_g$ は $M_2^+$ 分子の対称および反対称状態のエネルギーである。 $\epsilon_u - \epsilon_g$ をLCAO分子軌道で計算すると

$$\epsilon_u - \epsilon_g = \Delta(R) = \frac{2\{V_{AB}(R) - S(R) V_{AA}(R)\}}{1 - \{S(R)\}^2} \quad (3)$$

である。ここでS(R)、 $V_{AA}(R)$ 、 $V_{AB}(R)$ はそれぞれ重なり積分、クーロン積

分、共鳴積分である。電荷移行断面積はRの大きいところでの寄与が大きい。このとき重なり積分、クーロン積分は共鳴積分に比べ無視できるので

$$Q = \frac{1}{V} \int_{-\infty}^{\infty} V_{AB}(R) dz \quad (4)$$

で近似してよい。

前報のガドリニウム、ネオジムの計算では  $V_{AB}(R)$  を数値積分して求めた。一方、Smirnov<sup>15)</sup>, Bardsley等<sup>16)</sup> は  $\epsilon_u - \epsilon_o = \Delta(R)$  を  $M_2^+$  分子の中心を通る平面での波動関数のみで計算している。s 電子の場合その波動関数を次式

$$\phi(r) = (1/4\pi) u_0(r) \quad (5)$$

$$u_0(r) = q (1 + p/r + \dots) r^{\nu-1} e^{-\zeta r} \quad (6)$$

で近似している。ここでイオン化ポテンシャルが I のとき、 $\zeta = (2I)^{1/2}$ 、 $\nu = 1/\zeta$ 、 $p = (-1/2)\nu^2(\nu-1)$  である。

$$\Delta(R) = \frac{1}{4} R \left(\frac{4}{e}\right)^{\nu} u_0^2\left(\frac{R}{2}\right) \left[1 + \frac{\nu^2}{R} \left(\frac{3}{2} \nu - 1\right)\right] \quad (7)$$

となる。これを用いれば  $\Delta(R)$  を求めるのに数値積分をする必要がなく非常に容易に計算ができる。Duman, Smirnov<sup>17)</sup> は Hartree-Fock の波動関数に適切な r で一致するように q を求めている。Bardsley等<sup>16)</sup> は Hartree-Fock の波動関数に一致させる以外にもいくつかの方法を調べ比較している。

移行する電子の角運動量が一般に  $l m$  のときは

$$\phi(r) = Y_{lm}(\theta, \phi) u_0(r) \quad (8)$$

$$u_0(r) = q (1 + p/r + \dots) r^{\nu-1} e^{-\zeta r} \quad (9)$$

ここで  $p = (1/2)\nu [\ell(\ell+1) - (\nu-1)]$  である。このとき

$$\begin{aligned} \Delta_{\ell m}(R) = & (-1)^{\ell+m} \frac{(2\ell+1)}{4(m!)} \frac{(\ell+m)!}{(\ell-m)!} \left(\frac{\nu}{2R}\right)^m R u_0^2\left(\frac{R}{2}\right) \left(\frac{4}{e}\right)^{\nu} \\ & \times \left[1 + \frac{\nu}{2R} [\nu(3\nu-2) + m(2\nu-3m-3) - 2(\ell+m+1)(\ell-m)]\right] \end{aligned} \quad (10)$$

である。ウランの電荷移行反応で重要な  $j = 3/2$  の d 電子のように微細構造分裂が大きい場合には分子軸方向の角運動量  $\Omega$  毎に

$$\Delta_{\ell\Omega}(R) = \sum_{\mu m} \left(C_{m\mu\Omega}^{\ell\frac{1}{2}j}\right)^2 \Delta_{\ell m}(R) \quad (11)$$

となる。ここで  $C_{m\mu\Omega}^{\ell\frac{1}{2}j}$  はクレブシュ=ゴルダン係数である。

(7) または (10) 式を用いて各衝突係数 b 毎に  $P(b)$  を計算して積分すれば反応断面積  $\sigma$  を求めることができるが計算は繁雑である。Smirnov<sup>18)</sup> は  $\sigma$  は  $\Delta(R)$  より次のように簡単に求まることを示した。

$$\sigma = (1/2) \pi R_0^2 - \pi^3 / (24 \zeta^2) \quad (12)$$

で  $R_0$  は次の方程式

$$(\pi R_0 / 2 \zeta)^{1/2} \Delta(R_0) = 0.28v \quad (13)$$

となる  $R_0$  である。本計算では上式を用いて共鳴電荷移行断面積を計算した。

## (2) 近共鳴電荷移行断面積計算方法

これに対し  $\Delta E = 0$  の近共鳴電荷移行



の場合 Demkov<sup>19)</sup> は各衝突係数  $b$  での遷移確率を与える一般的な式を求めている。さらに Olson<sup>20)</sup> は  $V_{AB}(R)$  を  $\exp(-\lambda R)$  で近似して、近共鳴電荷移動断面積を数値計算で求め、Demkovの結果と比較している。さらに一般速度 (reduced velocity)  $\delta^{-1}$

$$\delta^{-1} = \frac{2\lambda v}{\pi \Delta E} \quad (14)$$

の関数として一般断面積 (reduced cross section)  $Q^*$

$$Q^* = Q / (1/2) \pi R_0^2 \quad (15)$$

の値をだしている。ここで  $v$  は相対速度、 $R_0$  は

$$V_{AB}(R) = (1/2) \Delta E \quad (16)$$

となる  $R$  である。Olsonの結果を用いれば各衝突係数  $b$  毎に数値計算をする必要がないので非常に簡便に断面積を計算することができる。 $V_{AB}(R)$  は  $R$  の大きいところでは (7) 式または (10) 式の  $\Delta(R)$  の  $1/2$  になる。(10) 式は原子  $M_B$  の  $l m$  の電子がイオン  $M_A^+$  の  $l m$  電子のサイトに移行する場合である。ウランの場合はウラン原子の  $d$  電子がウランイオンの  $s$  電子サイトに移行する場合、その逆の場合がある。角運動量が  $l_1 m_1$  の電子が  $l_2 m_2$  電子のサイトに移行するときの  $\Delta_{AB}(R)$  は Smirnov<sup>21)</sup> により次のように与えられている。

$$\begin{aligned} \Delta_{l_1, l_2 m}(R) = & \delta_{m_1 m_2} q_1 q_2 R^{\nu_1 + \nu_2 - 1 - |m|} \exp \left[ -\frac{1}{2} R(\zeta_1 + \zeta_2) - \frac{\nu_1}{2} - \frac{\nu_2}{2} \right] \\ & \times \frac{[(2l_1 + 1)(2l_2 + 1)(l_1 + |m|)!(l_2 + |m|)!]^{1/2}}{|m|! [(l_1 - |m|)!(l_2 - |m|)!]^{1/2} (\zeta_1 + \zeta_2)^{|m|}} \end{aligned} \quad (17)$$

さらに Matic 等<sup>22)</sup> は上式への補正項も入れて次の式を与えている。

$$\begin{aligned} \Delta_{l_1, l_2 m}^I &= \Delta_{l_1, l_2 m} [1 - 2(a_1 + a_2)/R] \\ a &= [(-\nu + l + 1)(-\nu - l)] / 2\zeta \end{aligned} \quad (18)$$

ここでは (18) 式を用いた。

## 4. 用いた波動関数

ウラン 6 d 電子を計算するのに Sinha, Bardsley は、Mann による未公表の相対論的波動関数より (6) 式の  $q$  を 0.4 としている。kahn 等<sup>23)</sup> はウラン原子の 5 f、6 d、7 s 電子の波動関数を相対論を考慮した場合と考慮しない場合の両方について計算・比較し、相対論効果により 5 f、6 d 電子の波動関数は広がり、7 s 電子はウラン原子核に近付くことを示している。このため  $r$  の大きいところでも相対論効果を考慮した波動関数を用いる必要がある。図 3 は kahn 等の論文の Fig. 7 から読んだ 6 d 電子と Fig. 1 から読んだ 7 s 電子の相対論的波動関数である。Sinha と Bardsley の用いている  $q = 0.4$  のとき (9) 式で計算した波動関数値を  $\Delta$  印で示した。kahn 等の相対論的波動関数とはほぼ一致している。ここでも  $q = 0.4$  として  $\Delta(R)$  を計算した。7 s 電子については kahn 等の相対論的波動関数に  $r = 10$  で (6) 式が合うように  $q$  を求めると  $q = 1.8$  になる。この値を用いた波動関数を  $\circ$  印で示した。

5.  $\Delta(R)$  の計算と  $\Delta(R)$  より求めた電荷移行断面積

(1) 6 d 電子サイトと 6 d 電子サイト間の移行時 (d-d 移行)

Sinha, Bardsley が述べているように 6 d<sub>3/2</sub> が 2 原子分子を作るので  $\Omega = 3/2$  と 1/2 の二つの状態がある。それぞれは (11) 式より

$$\Delta_{3/2,3/2}(R) = \frac{4}{5} \Delta_{22}(R) + \frac{1}{5} \Delta_{21}(R) \quad (19)$$

$$\Delta_{3/2,1/2}(R) = \frac{3}{5} \Delta_{21}(R) + \frac{2}{5} \Delta_{20}(R) \quad (20)$$

である。(10) 式、(19) 式、(20) 式を用いて計算した  $\Delta_{3/2,3/2}(R)$ 、 $\Delta_{3/2,1/2}(R)$  を図 4 の d-d (3/2) と d-d (1/2) で示す。

図 4 の  $\Delta_{3/2,3/2}(R)$ 、 $\Delta_{3/2,1/2}(R)$ 、(12) 式を用いて計算した共鳴電荷移行断面積を図 5 (a) に示す。(2) の反応は  $620 \text{ cm}^{-1}$  の吸熱反応である。エネルギー差  $620 \text{ cm}^{-1}$  の近共鳴電荷移行断面積は Olson の方法で求めた。 $\Omega = 3/2$  のとき、 $\Delta(R_c) = 620 \text{ cm}^{-1} = 2.82 \times 10^{-3}$  となる  $R_c$  を求めると  $R_c = 8.5$  である。 $R_c$  付近で  $\Delta(R)/2$  を  $\exp(-\lambda R)$  で近似すると  $\lambda = 0.77$  となる。これらの値を用いて (14) (15) 式より反応確率 1 の場合の電荷移行断面積を求めた。これを  $620 \text{ cm}^{-1}$  と書いた線で図 5 (a) に示した。 $\Omega = 1/2$  のときは  $\Delta(R_c) = 2.82 \times 10^{-3}$  となる  $R_c$  が無い。これは  $\Omega = 1/2$  のとき d 電子の  $m=0$  と  $m=1$  の g 状態、u 状態の  $\Delta(R)$  の符号が逆転するためである。近共鳴電荷移行が起こるのは  $\Delta E \sim \Delta(R)$  となる  $R_c$  付近である。このため  $\Omega = 1/2$  の状態の (2) の反応はほとんど起こらないと考えた。

## 4. 用いた波動関数

ウラン 6 d 電子を計算するのに Sinha, Bardsley は、Mann による未公表の相対論的波動関数より (6) 式の  $q$  を 0.4 としている。kahn 等<sup>23)</sup> はウラン原子の 5 f、6 d、7 s 電子の波動関数を相対論を考慮した場合と考慮しない場合の両方について計算・比較し、相対論効果により 5 f、6 d 電子の波動関数は広がり、7 s 電子はウラン原子核に近付くことを示している。このため  $r$  の大きいところでも相対論効果を考慮した波動関数を用いる必要がある。図 3 は kahn 等の論文の Fig. 7 から読んだ 6 d 電子と Fig. 1 から読んだ 7 s 電子の相対論的波動関数である。Sinha と Bardsley の用いている  $q = 0.4$  のとき (9) 式で計算した波動関数値を  $\Delta$  印で示した。kahn 等の相対論的波動関数とはほぼ一致している。ここでも  $q = 0.4$  として  $\Delta(R)$  を計算した。7 s 電子については kahn 等の相対論的波動関数に  $r = 10$  で (6) 式が合うように  $q$  を求めると  $q = 1.8$  になる。この値を用いた波動関数を  $\circ$  印で示した。

5.  $\Delta(R)$  の計算と  $\Delta(R)$  より求めた電荷移行断面積

(1) 6 d 電子サイトと 6 d 電子サイト間の移行時 (d-d 移行)

Sinha, Bardsley が述べているように 6 d<sub>3/2</sub> が 2 原子分子を作るので  $\Omega = 3/2$  と 1/2 の二つの状態がある。それぞれは (11) 式より

$$\Delta_{3/2,3/2}(R) = \frac{4}{5} \Delta_{22}(R) + \frac{1}{5} \Delta_{21}(R) \quad (19)$$

$$\Delta_{3/2,1/2}(R) = \frac{3}{5} \Delta_{21}(R) + \frac{2}{5} \Delta_{20}(R) \quad (20)$$

である。(10) 式、(19) 式、(20) 式を用いて計算した  $\Delta_{3/2,3/2}(R)$ 、 $\Delta_{3/2,1/2}(R)$  を図 4 の d-d (3/2) と d-d (1/2) で示す。

図 4 の  $\Delta_{3/2,3/2}(R)$ 、 $\Delta_{3/2,1/2}(R)$ 、(12) 式を用いて計算した共鳴電荷移行断面積を図 5 (a) に示す。(2) の反応は  $620 \text{ cm}^{-1}$  の吸熱反応である。エネルギー差  $620 \text{ cm}^{-1}$  の近共鳴電荷移行断面積は Olson の方法で求めた。 $\Omega = 3/2$  のとき、 $\Delta(R_c) = 620 \text{ cm}^{-1} = 2.82 \times 10^{-3}$  となる  $R_c$  を求めると  $R_c = 8.5$  である。 $R_c$  付近で  $\Delta(R)/2$  を  $\exp(-\lambda R)$  で近似すると  $\lambda = 0.77$  となる。これらの値を用いて (14) (15) 式より反応確率 1 の場合の電荷移行断面積を求めた。これを  $620 \text{ cm}^{-1}$  と書いた線で図 5 (a) に示した。 $\Omega = 1/2$  のときは  $\Delta(R_c) = 2.82 \times 10^{-3}$  となる  $R_c$  がない。これは  $\Omega = 1/2$  のとき d 電子の  $m = 0$  と  $m = 1$  の g 状態、u 状態の  $\Delta(R)$  の符号が逆転するためである。近共鳴電荷移行が起こるのは  $\Delta E \sim \Delta(R)$  となる  $R_c$  付近である。このため  $\Omega = 1/2$  の状態の (2) の反応はほとんど起こらないと考えた。

(2) 7 s 電子サイトと7 s 電子サイト間の移行時 (s - s 移行)

(7) 式を用いて計算した  $\Delta(R)$  を図4の s - s で示す。s s 移行の場合共鳴電荷移行の(13)と近共鳴電荷移行(14)の反応がある。共鳴電荷移行の断面積は(12)式から求めた。(14)の反応は  $1.460 \text{ cm}^{-1}$  の吸熱反応であり、Olsonの方法より求めた値を図5(b)の  $1.460 \text{ cm}^{-1}$  と記して示す。

(3) 6 d 電子サイトと7 s 電子サイト間移行時 (d - s 移行)

6 d  $3/2$  電子は分子軸方向に  $\Omega = 3/2$  または  $2/1$  である。7 s 電子は  $j = 1/2$  なので  $\Omega = 1/2$  である。従って6 d 電子と7 s 電子間移行に関与できる d 電子は  $\Omega = 1/2$  だけである。6 d  $3/2$  電子の  $\Omega = 1/2$  の波動関数は

$$\phi_{3/2, 1/2} = \sqrt{3/5} \phi(d)_{m=1} \beta - \sqrt{2/5} \phi(d)_{m=0} \alpha \quad (21)$$

である。s  $1/2$  電子は  $\phi(s) \alpha$  と考えてよいので

$$\Delta(R) = \sqrt{2/5} \Delta_{200} \quad (22)$$

となり(17)(18)を用いて計算できる。これも図4の d - s で示した。

d s 電子移行の反応は(5)~(12)と(15)の反応である。いずれも共鳴電荷移行ではないが共鳴の場合の断面積を  $0 \text{ cm}^{-1}$  で示した。近共鳴電荷移行で考えている衝突エネルギー領域で反応の起きる可能性のあるエネルギー差が289、909、1749、2362  $\text{cm}^{-1}$  の場合について、Olsonの方法により計算した。これらを図5(C)に示した。

## 6. 各反応経路の反応確率とウランの電荷移行断面積

(1) イオン、原子とも基底状態の場合

(い) 6 d 電子 → 6 d 電子サイト移行の計算

6 d  $3/2$  電子は分子軸方向の量子数  $\Omega$  が  $3/2$  または  $2/1$  で各々の統計重率は  $1/2$  である。各  $\Omega$  について(1)~(4)の反応がある。各反応確率は生成する原子の統計重率に比例すると考えられる。(1)(2)(3)(4)の反応確率はそれぞれ  $13/40$ 、 $11/40$ 、 $9/40$ 、 $7/40$  となる。(1)の反応は共鳴電荷移行なので  $\Omega = 1/2$ 、 $3/2$  のそれぞれについて図5(a)の  $0 \text{ cm}^{-1}$  の値の  $1/2 \times 13/40$  を加え合せたものになる。これを図6(a)の(1)に示す。反応(2)は  $6.20 \text{ cm}^{-1}$  の吸熱反応で  $\Omega = 3/2$  の場合のみ反応する。従って反応(2)の断面積は図6(a)の  $6.20 \text{ cm}^{-1}$  のデータに  $1/2 \times 11/40$  である。これを図6(a)の(2)で示す。(3)(4)の反応は吸熱反応でその吸熱エネルギーが大きいため  $\Omega = 1/2$  だけでなく  $\Omega = 3/2$  の場合も考えている  $1 \sim 2000 \text{ eV}$  の衝突エネルギー領域では反応はほとんど起こらない。

(ろ) 7 s 電子 → 6 d 電子サイト移行の計算

いずれも吸熱反応である(5)~(12)の8反応経路がある。生成する原子が  $J = 6$ 、 $5$ 、

(2) 7 s 電子サイトと7 s 電子サイト間の移行時 (s - s 移行)

(7) 式を用いて計算した  $\Delta(R)$  を図4の s - s で示す。s s 移行の場合共鳴電荷移行の(13)と近共鳴電荷移行(14)の反応がある。共鳴電荷移行の断面積は(12)式から求めた。(14)の反応は  $1460 \text{ cm}^{-1}$  の吸熱反応であり、Olsonの方法より求めた値を図5(b)の  $1460 \text{ cm}^{-1}$  と記して示す。

(3) 6 d 電子サイトと7 s 電子サイト間移行時 (d - s 移行)

6 d  $3/2$  電子は分子軸方向に  $\Omega = 3/2$  または  $2/1$  である。7 s 電子は  $j = 1/2$  なので  $\Omega = 1/2$  である。従って6 d 電子と7 s 電子間移行に関与できる d 電子は  $\Omega = 1/2$  だけである。6 d  $3/2$  電子の  $\Omega = 1/2$  の波動関数は

$$\phi_{3/2, 1/2} = \sqrt{3/5} \phi(d)_{m=1} \beta - \sqrt{2/5} \phi(d)_{m=0} \alpha \quad (21)$$

である。s  $1/2$  電子は  $\phi(s) \alpha$  と考えてよいので

$$\Delta(R) = \sqrt{2/5} \Delta_{200} \quad (22)$$

となり(17)(18)を用いて計算できる。これも図4の d - s で示した。

d s 電子移行の反応は(5)~(12)と(15)の反応である。いずれも共鳴電荷移行ではないが共鳴の場合の断面積を  $0 \text{ cm}^{-1}$  で示した。近共鳴電荷移行で考えている衝突エネルギー領域で反応の起きる可能性のあるエネルギー差が289、909、1749、2362  $\text{cm}^{-1}$  の場合について、Olsonの方法により計算した。これらを図5(C)に示した。

## 6. 各反応経路の反応確率とウランの電荷移行断面積

(1) イオン、原子とも基底状態の場合

(い) 6 d 電子 → 6 d 電子サイト移行の計算

6 d  $3/2$  電子は分子軸方向の量子数  $\Omega$  が  $3/2$  または  $2/1$  で各々の統計重率は  $1/2$  である。各  $\Omega$  について(1)~(4)の反応がある。各反応確率は生成する原子の統計重率に比例すると考えられる。(1)(2)(3)(4)の反応確率はそれぞれ  $13/40$ 、 $11/40$ 、 $9/40$ 、 $7/40$  となる。(1)の反応は共鳴電荷移行なので  $\Omega = 1/2$ 、 $3/2$  のそれぞれについて図5(a)の  $0 \text{ cm}^{-1}$  の値の  $1/2 \times 13/40$  を加え合せたものになる。これを図6(a)の(1)に示す。反応(2)は  $620 \text{ cm}^{-1}$  の吸熱反応で  $\Omega = 3/2$  の場合のみ反応する。従って反応(2)の断面積は図6(a)の  $620 \text{ cm}^{-1}$  のデータに  $1/2 \times 11/40$  である。これを図6(a)の(2)で示す。(3)(4)の反応は吸熱反応でその吸熱エネルギーが大きいため  $\Omega = 1/2$  だけでなく  $\Omega = 3/2$  の場合も考えている  $1 \sim 2000 \text{ eV}$  の衝突エネルギー領域では反応はほとんど起こらない。

(ろ) 7 s 電子 → 6 d 電子サイト移行の計算

いずれも吸熱反応である(5)~(12)の8反応経路がある。生成する原子が  $J = 6$ 、 $5$ 、

4、3の4つのいずれかになる確率は(1)~(4)と同様に13/40、11/40、9/40、7/40である。s電子の移行でできるイオンは ${}^6L_{11/2}$ または ${}^6L_{13/2}$ の二つのいずれかになる確率はそれぞれ6/13、7/13である。(5)の反応の場合、 $J=6$ の原子になる確率が13/40、イオンが ${}^6L_{11/2}$ になる確率は6/13である。また7s電子は2個あり、どちらのs電子も移行できる可能性がある。従って反応確率は $13/40 \times 6/13 \times 2$ となる。(5)の反応は $289 \text{ cm}^{-1}$ の吸熱反応なので図5(C)の $289 \text{ cm}^{-1}$ の値に上記の反応確率をかけて断面積を求めることができる。これを図6(a)の(5)で示した。(5)と同様に(6)の断面積は図5(C)の $909 \text{ cm}^{-1}$ のデータに反応確率 $11/40 \times 6/13 \times 2$ をかけて求めることができこれを図6(a)の(6)で示す。(9)の反応は吸熱エネルギーが大きく衝突エネルギーが $1000 \text{ eV}$ 以上で小さい反応断面積がある。これを図6(a)の(9)で示した。(7)(8)(10)(11)(12)の反応は(9)の反応よりさらに吸熱エネルギーが大きくここで考えている衝突エネルギー領域ではほとんど反応が起こらない。

以上のようにイオンも原子も基底状態のときの電荷移行断面積は(1)(2)(5)(6)(9)を加えたものになる。これを図6(a)太い線で示した。

(2) 第1励起状態( $289 \text{ cm}^{-1}$ )のイオンと基底状態の原子の電荷移行断面積

(い) 7s電子→7s電子サイト移行の計算

7s電子の移行の場合共鳴電荷移行の(13)と近共鳴電荷移行(14)の反応がある。それぞれの反応確率はその統計重率に比例するので(13)は6/13、(14)の反応は7/13である。共鳴電荷移行(13)の断面積は図5(b)の $0 \text{ cm}^{-1}$ の値に反応確率をかけたもので図6(b)の(13)で示した。(14)の反応は $1460 \text{ cm}^{-1}$ の吸熱反応である。図5(b)の $1460 \text{ cm}^{-1}$ の値に反応確率をかけたものを図6(b)の(14)に示した。なおここでも移行可能な7s電子は2個あるが、イオンにあいている7sサイトは1個のみであるので7s電子→6d電子移行時のように2倍する必要はない。

(ろ) 6d電子→7s電子サイト移行の計算

この反応で生成する原子、イオンとも基底状態のみの反応しかないので(15)の反応のみである。イオンの $f^3 d s$ にあいている7s電子サイトは $j=1/2$ なので分子軸方向の量子数は $\Omega=1/2$ または $-1/2$ である。これに対し移行する $d_{3/2}$ 電子の分子軸方向の量子数 $\Omega$ は $3/2$ 、 $1/2$ 、 $-1/2$ 、 $-3/2$ の4通りある。このうち移行できるのは7s電子サイトの量子数 $1/2$ または $-1/2$ に等しいときだけである。従って反応できる確率は $1/4$ と考えられる。図5(C)で計算した $289 \text{ cm}^{-1}$ の値に $1/4$ かけたものになる。これを図6(b)の(15)で示した。

以上のように第1励起状態のイオンと基底状態の原子の電荷移行断面積は(13)(14)(15)を加えたものになる。これを図6(b)の太線で示した。



## 7. 考 察

## (1) Sinha, Bardsley の計算値との比較

Sinha and Bardsleyはウランの基底状態間の共鳴電荷移行断面積を衝突エネルギーが  $0.04 \sim 400 \text{ eV}$  (重心系で  $0.02 \sim 200 \text{ eV}$ ) の領域で計算している。図5(a)と図7に点線で示した。彼等は  $5f^3$  電子の軌道半径が小さいため  $5f^3 7s^2$  電子でできている  $^4I_{9/2}$  であるイオンと  $d_{3/2}$  電子の結合による準位分裂が無視できると考えたため(2)(3)(4)の反応経路も共鳴電荷移行と考えている。 $^4I_{9/2}$  であるイオンと  $d_{3/2}$  電子の結合による準位分裂を考慮すれば衝突エネルギーが  $400 \text{ eV}$  以下では(2)(3)(4)の近共鳴電荷移行は図5(a)のようにほとんど起きない。このため図7のように Sinha and Bardsley の計算結果は非常に大きくなっている。

次に(1)(2)(3)(4)の反応確率を考慮する前の計算結果について比較する。彼等の計算は  $\Omega = 3/2$  と  $\Omega = 1/2$  について反応確率が  $1/2$  として計算しているので  $\Omega = 3/2$  と  $\Omega = 1/2$  の共鳴電荷移行断面積の平均である。図5(a)に示すように我々の  $\Omega = 3/2$  と  $\Omega = 1/2$  の平均断面積と Sinha and Bardsley の結果はほぼ一致していることがわかる。しかし数  $10 \text{ eV}$  以上で約  $5 \times 10^{-16} \text{ cm}^2$  の差がある。計算に用いた  $d$  電子の波動関数、 $\Delta(R)$  を計算した(10)式(20)式は彼等の論文の式なので同じはずである。 $\Delta(R)$  より本報告では Smirnov が軌道を直線として近似的に求めた(13)式を用い非常に簡便に計算して図5(a)の結果を得た。これに対し Sinha, Bardsley は各衝突係数毎に(2)式を用いて計算している。さらに軌道は直線近似ではなくウランのイオン・原子間の分極力による偏向も考慮している。数  $10 \text{ eV}$  以上では軌道を直線と考えて良いので  $5 \times 10^{-16} \text{ cm}^2$  の差は Smirnov の近似の誤差のためと思われる。本報告で  $1 \text{ eV}$  で計算したのは分極力を無視できると思ったからであったが、数  $\text{eV}$  でも分極力による偏向の効果がありみかけの上で数  $\text{eV}$  では両者の計算結果が近くなっていると考えられる。

## (2) 各反応経路の断面積の和をとっていることについて

(1)(2)(3)(4)の反応は原子の  $d_{3/2}$  電子とウランイオンの  $^4I_{9/2}$  の角運動量の向きの違いで決まっており、独立に考えてよいので各反応経路の断面積の和を取ることは正しい。これに対し(1)と(5)の反応は独立ではない。(1)の反応が起これば(5)の反応は起きない。従って図7のように単純に(1)と(5)の反応断面積を加え合わせることは過大評価になる可能性がある。ここで行なった断面積の計算は衝突している  $U_2^+$  分子の準位を2状態としている。例えば(1)と(5)の反応を独立でなく扱えばさらに(13)の反応も引続き起こることの考慮も必要で多くの状態間の遷移を考える必要がある。今後独立でない反応経路を含んだ場合の電荷移行断面積の計算も行なっていきたい。

## (3) 実験結果との比較

我々<sup>24)</sup>はガドリニウムやネオジムの場合と同様な方法で基底状態のウランイオンとウラン原子の電荷移行断面積を衝突エネルギー  $200 \sim 1500 \text{ eV}$  の範囲で測定して

いる。衝突断面積の絶対値はSinha、Bardsleyの値と同程度であったので、彼等の計算の正しさを確認したものと考えた。ところが衝突エネルギーが増加するほど断面積が増加し、彼等の計算と異なり、その原因はわからなかった。図6(a)の計算値と比較すると(1)の共鳴電荷移行だけでなく(5)の近共鳴電荷移行も起こっているため、測定エネルギーが増加すると断面積が増大したと思われる。

#### (4) ウランイオンが基底状態または第1励起状態にあるときの比較

衝突エネルギーが100 eV以下では近共鳴電荷移行の寄与が小さく共鳴電荷移行だけで断面積が決まり、イオンが基底状態のほうが断面積が小さい。基底状態のイオンの場合はd電子が、第1励起状態のイオンの場合はs電子が移行する。基底状態イオンの場合の断面積が小さいのは次の二つの理由による。図3、図4のようにd電子の軌道半径はs電子より小さいのでd-d電子の $\Delta(R)$ がs-s電子の $\Delta(R)$ より小さくなる。さらにd電子の移行で(1)の共鳴電荷移行の反応確率は13/40であるのに対し、s電子移行での共鳴反応経路(13)の反応確率が6/13で大きい。近共鳴電荷移行が起こる200 eV以上でもこの傾向は図7のように変化しない。レーザーウラン濃縮では電荷移行断面積が小さいほうがよい。電荷移行による濃縮度損失を抑える立場からは、レーザー共鳴イオン化で生成する $^{235}\text{U}^+$ が基底状態になるようにするのが望ましいことがわかった。

#### (5) イオン化ポテンシャルが同程度のCa、Gdの対称電荷移行断面積との比較

同種原子・イオン間の対称電荷移行反応では通常、共鳴電荷移行のみ考えてよく、その反応断面積は原子のイオン化ポテンシャルにほぼ反比例する。これはこれまでによく調べられているアルカリ金属、アルカリ土類金属、希ガス等の場合については成立する。ここではイオン化ポテンシャルがウラン(6.19 eV)同程度のCa(6.1 eV)、Gd(6.15 eV)の対称電荷移行断面積と比較してみる。衝突エネルギーが50 eVのウランの場合、図7のように基底状態同志では $40 \times 10^{-16} \text{cm}^2$ 、イオンが第1励起状態では $100 \times 10^{-16} \text{cm}^2$ である。これに対しと同じ速さの衝突エネルギーはCaの場合8.4 eVでその電荷移行断面積の計算値は約 $200 \times 10^{-16} \text{cm}^2$ である<sup>5)</sup>。Gdは同じ速さになる33 eVでの電荷移行断面積は約 $100 \times 10^{-16} \text{cm}^2$ である<sup>8)</sup>。ウランの電荷移行断面積はイオン化ポテンシャルが同程度のアルカリ土類金属などの原子に比べて小さく特に基底準位のウランイオンの場合非常に小さくレーザー同位体分離に好都合であることがわかった。

## 8. ま と め

ウランの原子・イオン間の対称電荷移行反応の電荷移行断面積を反応経路の考察を行ない計算した。ウラン原子・イオンとも基底状態の場合、電荷移行でU原子の $d_{3/2}$ 電子が $\text{U}^+$ イオン( $4f_{7/2}$ )のd電子サイトに入る反応では生成するU原子のJは基底状態の6、励起状態の5、4、3のいずれかであるが衝突エネルギー数10 eV以下では共鳴電荷移行であるJ=6の反応のみ可能で断面積は約 $4 \sim 5 \times 10^{-15} \text{cm}^2$ と推定された。

いる。衝突断面積の絶対値はSinha、Bardsleyの値と同程度であったので、彼等の計算の正しさを確認したものと考えた。ところが衝突エネルギーが増加するほど断面積が増加し、彼等の計算と異なり、その原因はわからなかった。図6(a)の計算値と比較すると(1)の共鳴電荷移行だけでなく(5)の近共鳴電荷移行も起きているため、測定エネルギーが増加すると断面積が増大したと思われる。

#### (4) ウランイオンが基底状態または第1励起状態にあるときの比較

衝突エネルギーが100 eV以下では近共鳴電荷移行の寄与が小さく共鳴電荷移行だけで断面積が決まり、イオンが基底状態のほうが断面積が小さい。基底状態のイオンの場合はd電子が、第1励起状態のイオンの場合はs電子が移行する。基底状態イオンの場合の断面積が小さいのは次の二つの理由による。図3、図4のようにd電子の軌道半径はs電子より小さいのでd-d電子の $\Delta(R)$ がs-s電子の $\Delta(R)$ より小さくなる。さらにd電子の移行で(1)の共鳴電荷移行の反応確率は13/40であるのに対し、s電子移行での共鳴反応経路(13)の反応確率が6/13で大きい。近共鳴電荷移行が起こる200 eV以上でもこの傾向は図7のように変化しない。レーザーウラン濃縮では電荷移行断面積が小さいほうがよい。電荷移行による濃縮度損失を抑える立場からは、レーザー共鳴イオン化で生成する $^{235}\text{U}^+$ が基底状態になるようにするのが望ましいことがわかった。

#### (5) イオン化ポテンシャルが同程度のCa、Gdの対称電荷移行断面積との比較

同種原子・イオン間の対称電荷移行反応では通常、共鳴電荷移行のみ考えてよく、その反応断面積は原子のイオン化ポテンシャルにほぼ反比例する。これはこれまでによく調べられているアルカリ金属、アルカリ土類金属、希ガス等の場合については成立する。ここではイオン化ポテンシャルがウラン(6.19 eV)同程度のCa(6.1 eV)、Gd(6.15 eV)の対称電荷移行断面積と比較してみる。衝突エネルギーが50 eVのウランの場合、図7のように基底状態同志では $40 \times 10^{-16} \text{ cm}^2$ 、イオンが第1励起状態では $100 \times 10^{-16} \text{ cm}^2$ である。これに対しと同じ速さの衝突エネルギーはCaの場合8.4 eVでその電荷移行断面積の計算値は約 $200 \times 10^{-16} \text{ cm}^2$ である<sup>5)</sup>。Gdは同じ速さになる33 eVでの電荷移行断面積は約 $100 \times 10^{-16} \text{ cm}^2$ である<sup>8)</sup>。ウランの電荷移行断面積はイオン化ポテンシャルが同程度のアルカリ土類金属などの原子に比べて小さく特に基底準位のウランイオンの場合非常に小さくレーザー同位体分離に好都合であることがわかった。

## 8. ま と め

ウランの原子・イオン間の対称電荷移行反応の電荷移行断面積を反応経路の考察を行ない計算した。ウラン原子・イオンとも基底状態の場合、電荷移行でU原子の $d_{3/2}$ 電子が $\text{U}^+$ イオン( $4f_{7/2}$ )のd電子サイトに入る反応では生成するU原子のJは基底状態の6、励起状態の5、4、3のいずれかであるが衝突エネルギー数10 eV以下では共鳴電荷移行であるJ=6の反応のみ可能で断面積は約 $4 \sim 5 \times 10^{-15} \text{ cm}^2$ と推定された。

100 eV以上ではU原子のs電子がU<sup>+</sup>イオンのd電子サイトに入る吸熱エネルギー289 cm<sup>-1</sup>の近共鳴電荷移行反応も起こるため、衝突エネルギーが増すと電荷移行断面積が増大する。Sinha、Bardsleyもd電子の移行で断面積を計算しているが<sup>4</sup>1<sub>g/2</sub>であるイオンとd<sub>2/3</sub>電子の結合による準位分裂を考慮していないためJ = 5、4、3が生成する反応も共鳴電荷移行としているため衝突エネルギーが100 eV以下では本報告の値の約3倍の断面積を与えている。

第1励起状態(289 cm<sup>-1</sup>)のウランイオンと基底状態の原子の電荷移行ではU<sup>+</sup>イオンのs電子サイトにU原子のs電子が入る共鳴電荷移行反応とウラン原子のd電子が入る近共鳴電荷移行反応が可能で衝突エネルギーが1~1000 eVで約1×10<sup>-14</sup> cm<sup>2</sup>と推定された。

ウランの電荷移行断面積はイオン化ポテンシャルが同程度の他の原子に比べて小さく特に基底状態のウランイオンの場合非常に小さくレーザー同位体分離に好都合であることがわかった。

## 謝 辞

本報告の原稿を読み、有益な議論をしていただいた北里大学医学部の小池文博助教授に感謝致します。

100 eV以上ではU原子のs電子がU<sup>+</sup>イオンのd電子サイトに入る吸熱エネルギー289 cm<sup>-1</sup>の近共鳴電荷移行反応も起こるため、衝突エネルギーが増すと電荷移行断面積が増大する。Sinha、Bardsleyもd電子の移行で断面積を計算しているが<sup>4</sup>I<sub>9/2</sub>であるイオンとd<sub>2/3</sub>電子の結合による準位分裂を考慮していないためJ = 5、4、3が生成する反応も共鳴電荷移行としているため衝突エネルギーが100 eV以下では本報告の値の約3倍の断面積を与えている。

第1励起状態(289 cm<sup>-1</sup>)のウランイオンと基底状態の原子の電荷移行ではU<sup>+</sup>イオンのs電子サイトにU原子のs電子が入る共鳴電荷移行反応とウラン原子のd電子が入る近共鳴電荷移行反応が可能で衝突エネルギーが1~1000 eVで約1×10<sup>-14</sup> cm<sup>2</sup>と推定された。

ウランの電荷移行断面積はイオン化ポテンシャルが同程度の他の原子に比べて小さく特に基底状態のウランイオンの場合非常に小さくレーザー同位体分離に好都合であることがわかった。

## 謝 辞

本報告の原稿を読み、有益な議論をしていただいた北里大学医学部の小池文博助教授に感謝致します。

## 参 考 文 献

- (1) A. von Engel, 山本賢三監訳、「プラズマ工学の基礎」(オーム社、1985)
- (2) P. T. Greenland, *Contemporary Phys.* 31(1990)405.
- (3) 中井洋太他、日本原子力学会誌 35(1993)280.
- (4) J. A. Paisner, *Appl. Phys.* B46(1988)253.
- (5) S. Sinha and J. N. Bardsley, *Phys. Rev. A*14(1976)104.
- (6) K. Ogura and T. Shibata, 質量分析 (*J. Mass Spectrom. Soc. Jpn.*) 41(1993)37.
- (7) 小倉浩一、柴田猛順、日本原子力学会「1993年春の大会」(1993年予稿集L46)。
- (8) 柴田猛順、小倉浩一、日本原子力研究所研究報告書 JAERI-Research 94-025 (1994).
- (9) E. L. Duman and B. M. Smirnov, *Soviet Phys. Tech. Phys.* 15(1970)61.
- (10) J. Blaise, L. J. Radziemski, Jr, *J. Opt. Soc. Am.* 66(1976)644.
- (11) B. G. Wybourne, "Spectroscopic properties of Rare Earths", (John Wiley and Sons, Ins., New York, 1965).
- (12) B. R. Judd, *Phys. Rev.* 125, 613(1962).
- (13) H. M. Crosswhite, "Gmelin Handbook of Inorganic chemistry, U Uranium" Supplement volume A5(springer-Verlag, New York 1982).
- (14) 高柳和夫、「電子・原子・分子の衝突」(培風館、1972、東京)。
- (15) B. M. Smirnov, *Soviet Phys. JETP* 20(1965)345.
- (16) J. N. Bardsley, T. Holstein, B. R. Junker and S. Sinha, *Phys. Rev. A*11(1975)1911.
- (17) E. L. Duman and B. M. Smirnov, *Teplfiz. Vys. Temp.* 12(1974)502 [High Temp. 12(1975)431]
- (18) B. M. Smirnov, *Soviet Phys. JETP* 19(1964)692.
- (19) Yu. N. Demkov, *Zh. Ekperim. i Teor. Fiz.* 45(1963)195. (*Sov. Phys. JETP* 18(1964)138)
- (20) R. E. Olson, *Phys. Rev.* A6(1972)1822.
- (21) B. M. Smirnov, *Asymptotic Methods in the Theory of Atomic Collisions* (Atomizdat, 1973, Moscow)
- (22) M. Matic, V. Sidis, M. Vujovic, and B. Cobic, *J. Phys. B: Atom. Mole. phys.* 4(1980)3665.
- (23) L. R. Kahn, P. J. Hay, and R. D. Cowan, *J. Chem. Phys.* 68, 2386(1978).
- (24) 小倉浩一、柴田猛順、未公表。

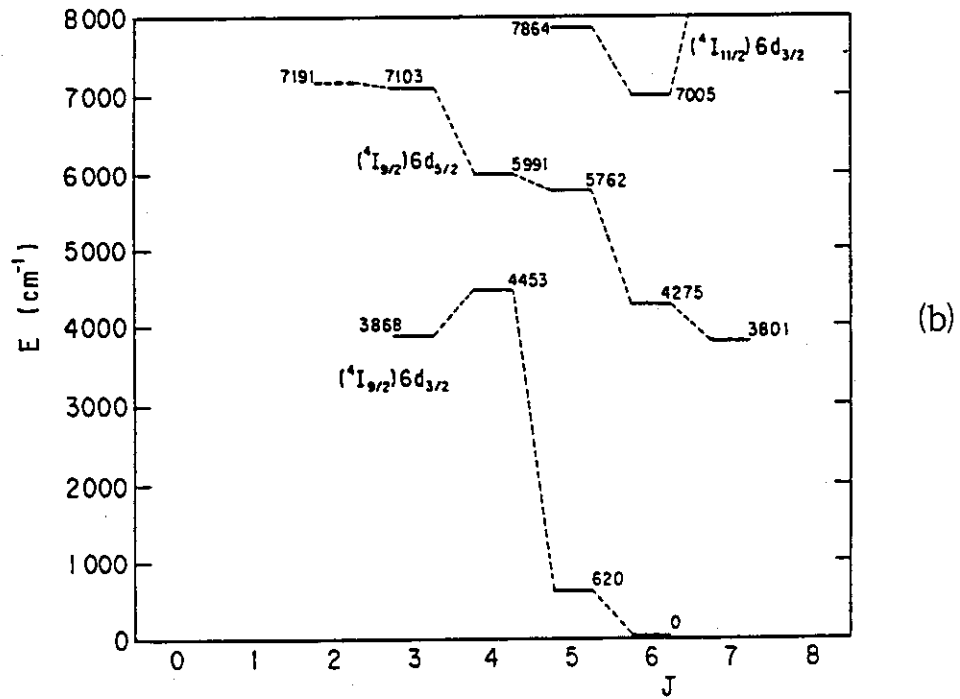
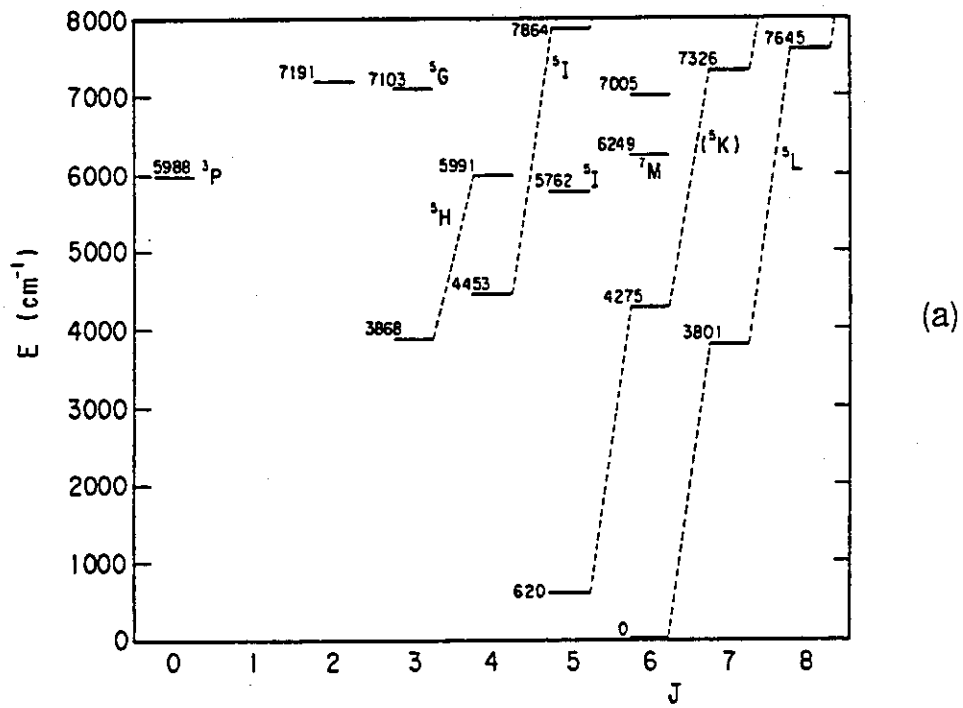


図1 ウラン原子の基底状態近傍のエネルギー準位図  
 (a) LS結合表示 (b) Jj結合表示

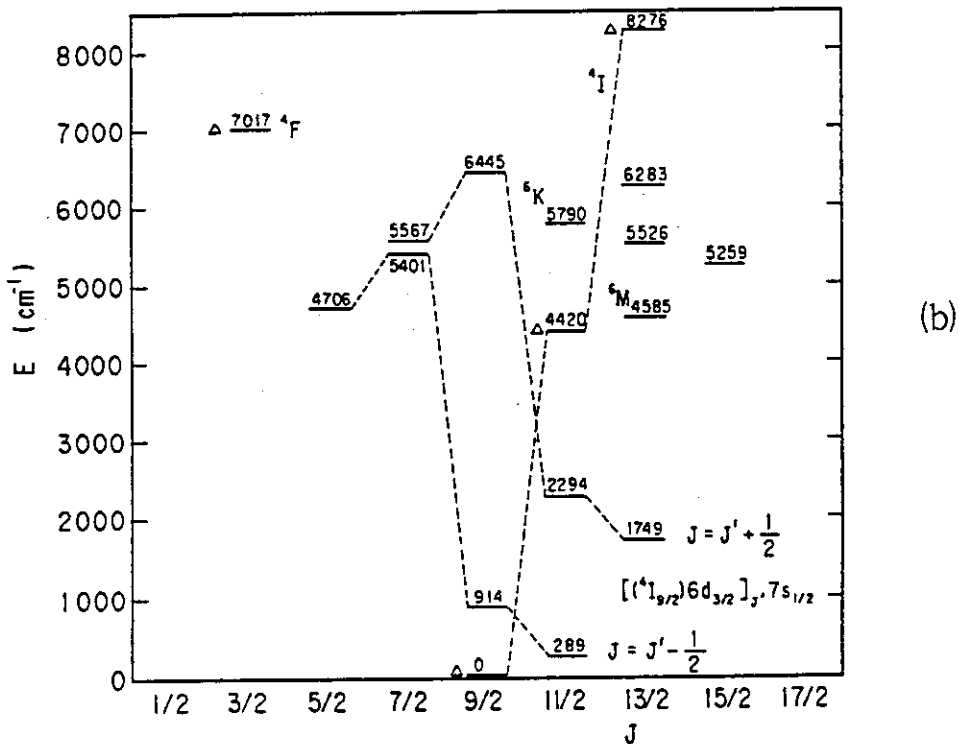
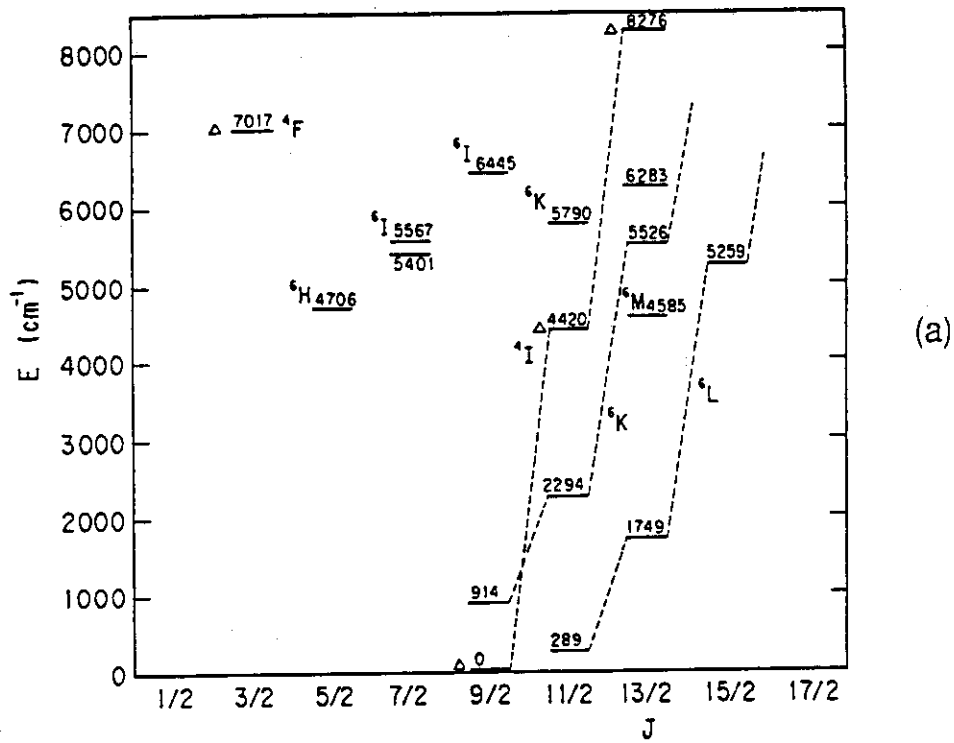


図2 ウランイオンの基底状態近傍のエネルギー準位図  
 (a) LS結合表示 (b) JJ結合表示



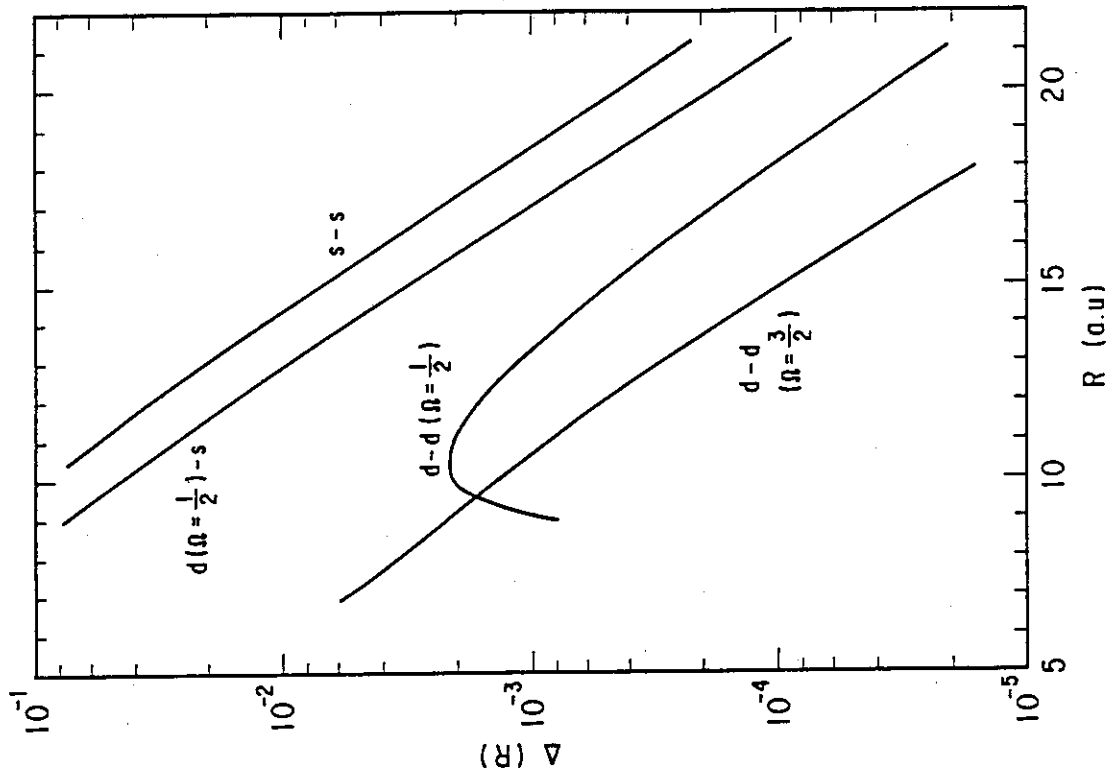


図4 結合項 $\Delta(R)$ の依存性

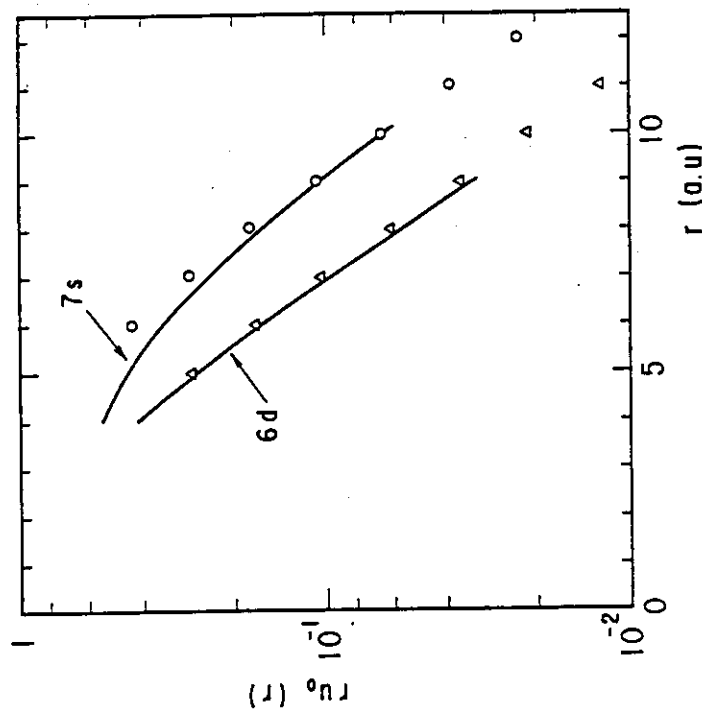
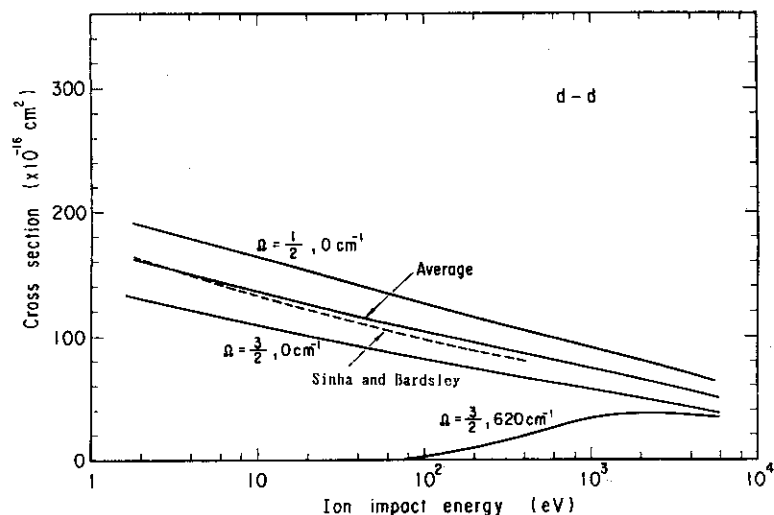


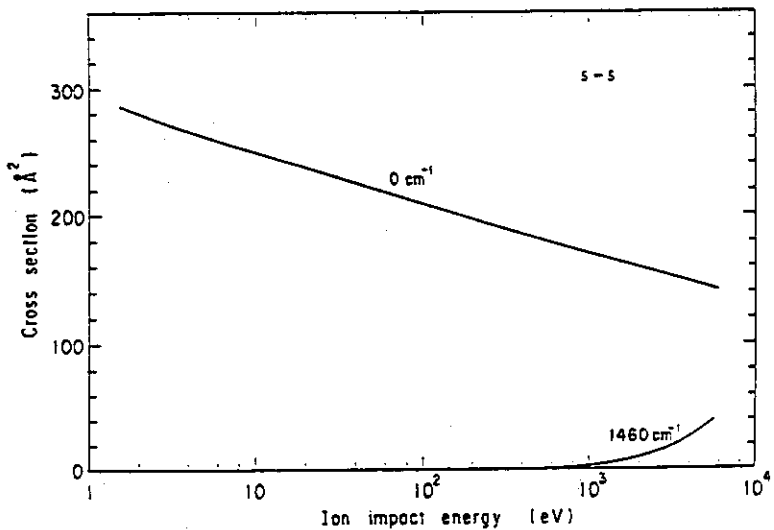
図3 ウラン原子の相対論的波動関数<sup>(23)</sup>

$\Delta$ :  $q = 0.4$ とした6d波動関数

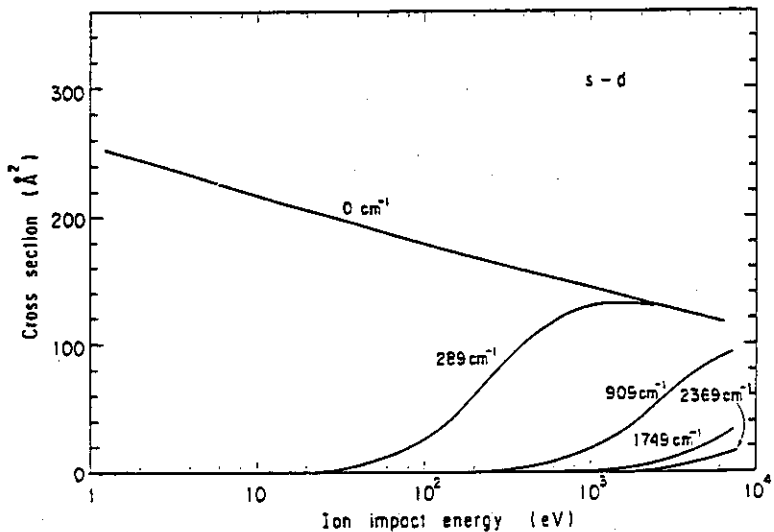
$\circ$ :  $q = 1.8$ とした7s波動関数



(a)



(b)



(c)

図5  $\Delta(R)$  を用いて計算した共鳴及び近共鳴電荷移行断面積  
 (反応確率1の場合)  
 (a) 6d電子-6d電子移行 (b) 7s電子-7s電子移行  
 (c) 6d電子-7s電子移行

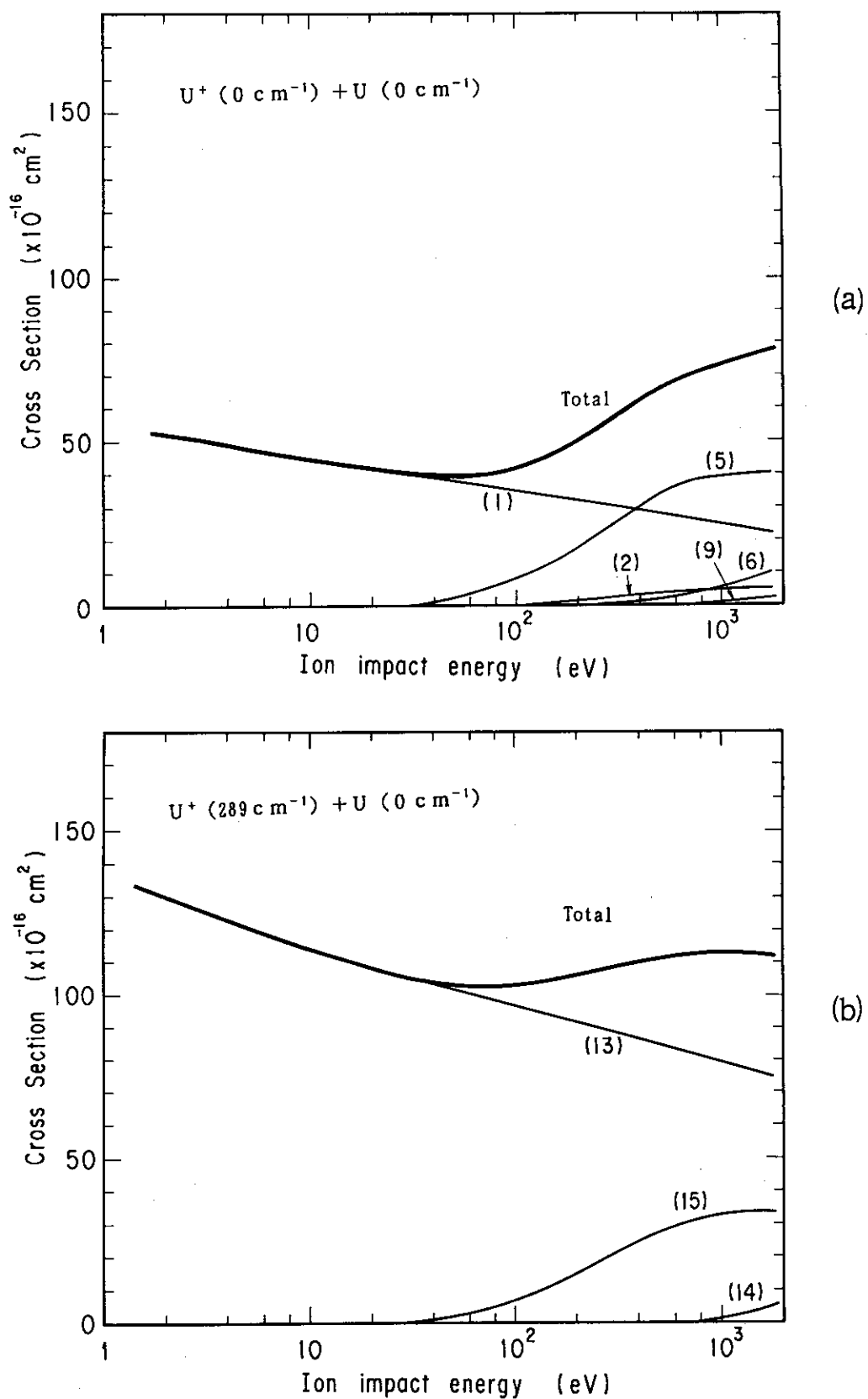


図6 ウランの電荷移行断面積の計算値  
 (a) イオン・原子とも基底状態の場合  
 (b) 第1励起状態(289cm<sup>-1</sup>)のイオンと基底状態の原子の場合

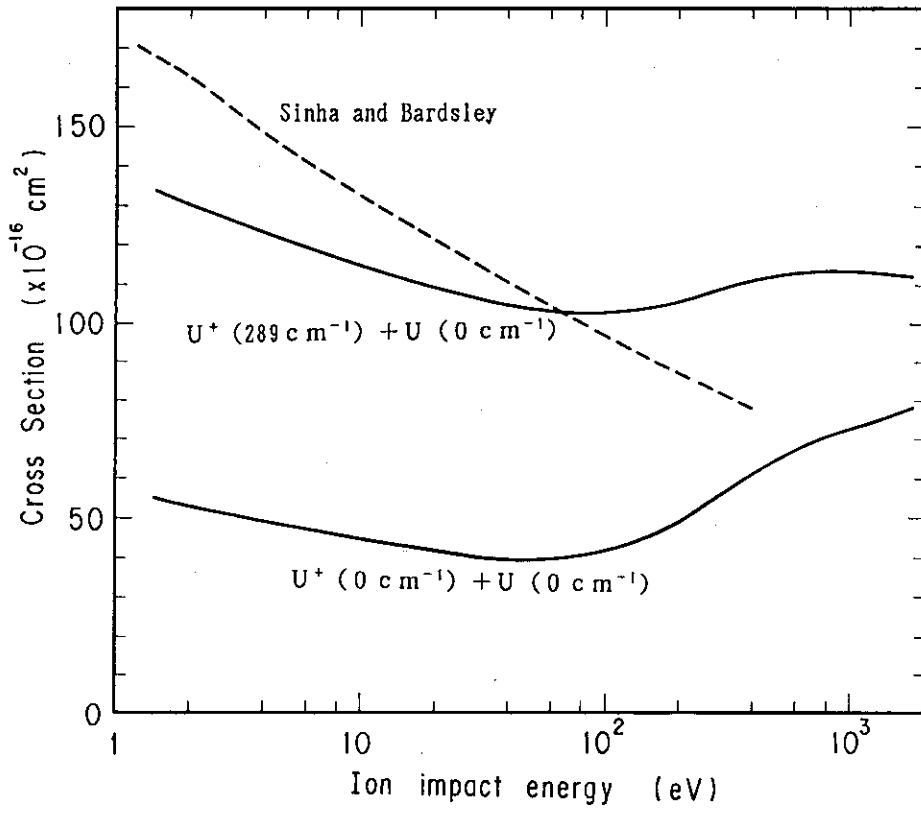


図7 ウランの電荷移行断面積