JAERI-Research
98-030

ディスプロシウムおよび
セリウムの電荷移行断面積

1998年6月

足立　肇・田村浩司・岡崎哲治・柴田猛順

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。
入手の問合わせは，日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-1195　茨城県那珂郡東海村）あて，お申し越しください。なお，このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-1195　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 Research Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, 319-1195, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1998

編集兼発行　　日本原子力研究所

JAERI-Research 98-030

ディスプロシウムおよびセリウムの電荷移行断面積

日本原子力研究所東海研究所物質科学研究部
足立　　肇・田村　浩司・岡崎　哲治・柴田　猛順

（1998年5月13日受理）

ディスプロシウム（Ｄｙ）およびセリウム（Ｃｅ）について、基底状態のイオンが中性原子と衝突する場合の対称電荷移行断面積を衝突エネルギーが200 eV～2 keVの範囲で測定した。光共鳴電離法によるレーザーイオン源からのイオンビームを原子ビームに直交して照射し、電荷移行生成イオンと主ビームイオンの電流をそれぞれファラデーカップ検出器で測定して、それらの電荷量の比および原子密度から電荷移行断面積を導出した。その結果、両者とも上記エネルギー範囲では断面積はほぼ一定で、Ｄｙでは$(1.82\pm0.14)\times10^{-14}$ cm^2、Ｃｅでは$(0.88\pm0.12)\times10^{-14}$ cm^{2}の値が得られた。これらの断面積の大きさの違いは、それらの原子およびイオンの電子配位を考慮して説明できる。

東海研究所：〒319－1195　茨城県那珂郡東海村白方白根２－４

JAERI-Research 98-030

Charge Transfer Cross Sections for Dysprosium and Cerium

Hajime ADACHI, Koji TAMURA, Tetsuji OKAZAKI and Takemasa SHIBATA

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

(Received May 13, 1998)

Symmetric resonant charge transfer cross sections between singly ionized ions and the parent atoms were measured for dysprosium and cerium in the impact energy of 200~2000eV. The cross sections were determined from the ratio between the number of ions produced by charge transfer and those in primary ion beam. The primary ion beam was produced by a laser ion source in which their atoms were ionized by laser resonant photo-ionization. The slow ions produced by charge transfer and fast primary ions were detected with Faraday cups. The obtained cross sections were $(1.82\pm0.14)\times10^{-14}cm^2$ for dysprosium and $(0.88\pm0.12)\times10^{-14}cm^2$ for cerium in the above energy range. The difference of these values can mostly be explained by considering the electron configurations of these atoms and ions.

Keywords: Charge Transfer Cross Section, Symmetric Resonant Charge Transfer, Resonant Photo-ionization, Dysprosium, Cerium, Laser Ion Source, Impact Energy, Faraday Cup

目　　次

1. はじめに …… 1
2. 実験方法および実験装置 …… 2
3. 実験結果 …… 6
4. 考　察 …… 11
5. まとめ …… 13
参考文献 …… 13
付　録 …… 25

Contents

1. Introduction 1
2. Experimental Method and Apparatus 2
3. Experimental Results 6
4. Discussions 11
5. Conclusion 13
References 13
Appendix 25

This is a blank page.

1．はじめに

イオンと中性原子の衝突において原子からイオンに電子が移行し、イオンは中性原子となり、原子がイオンになる電荷移行反応は、その反応断面積が大きいのでプラズマプロセスを利用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では衝突エネルギーが小さくても大きい反応断面積を持つので特に重要である。

原子法レーザー同位体分離では原子ビーム中の目的同位体原子のみを選択的にイオン化し、これを回収電極に回収する。イオン化されていない非目的同位体原子と目的同位体イオンとが電荷移行を起こすと目的同位体イオンの損失が起こり効率が低下する。電荷移行による損失を正しく評価するために、同種原子・イオン間の対称電荷移行反応の断面積の値が必要である。このため原研では原子レーザー法同位体分離の対象となる希土類元素のガドリニウム（Ｇｄ）、ネオジム（Ｎｄ）の電荷移行断面積の測定を行っている。この測定からＧｄやＮｄは６ｓ^{2}電子の内側に閉殻でないｆ^{n}電子やｆ^{n}ｄ電子があるため、電荷移行断面積がこれまで考えられているものより小さいことを示してきた[1)-5)]。今回、以下のような特徴の電子配位を持ち、電荷移行断面積の測定データがないディスプロシウム（Ｄｙ）およびセリウム（Ｃｅ）についての測定を行った。Ｄｙでは基底状態の原子およびイオンの電子配位はそれぞれ、４ｆ^{10}６ｓ^{2}および４ｆ^{10}６ｓであり、それらが電荷移行反応を起こすためには６ｓ電子１個が移行するだけなので反応断面積はＧｄのそれと同程度と予想される。それに対してＣｅでは基底状態の原子およびイオンの電子配位はそれぞれ、４ｆ５ｄ６ｓ^{2}および４ｆ５ｄ^{2}であり電荷移行反応を起こすためには６ｓ電子２個および５ｄ電子１個が移行する必要があるため、比較的反応が起こり難く断面積が小さいことが予想される。これらの基底状態のイオンが衝突エネルギー２００ｅＶ～２ｋｅＶで中性原子と衝突する場合の電荷移行断面積データを取得した。測定方法は従来[2)-5)]とほぼ同じであるが、今回、平行平板電極の中央で生成された光電離イオンが低電位電極板のイオン引出し孔より引出されるイオンビームの強度分布を測定してその広がりを把握し、その結果をもとに電極孔―イオン検出器間距離および検出器の大きさを新たに設定し装置の改良を加え、さらに、高イオンエネルギー領域用に低電位電極の外側に第３の電極、補助電極を設け、イオンの加速が行えるようにして測定した。

2．実験方法および実験装置

実験装置の概念図をFig.1に示す。 装置は原子ビーム発生部、光電離イオン生成部、電荷移行反応部に大別され、真空容器内に設置した。

原子ビーム発生部では銅製水冷るつぼ内に入れた金属試料を電子ビーム照射により加熱蒸発させて原子ビームを生成した。るつぼの容積は40ccの蒸発源（ULVAC EGL-35M）および最大加速電圧10kV、最大出力5kWの電子銃電源（ULVAC HPS-500）を用いた。

ディスプロシウム（Ｄｙ）の場合は銅製水冷るつぼ上に金属試料を直接入れて蒸発させた。セリウム（Ｃｅ）の場合は銅製水冷るつぼ中にモリブデン製のハースライナー（厚さ2mm）を置き、その中央に多孔質タングステン（気孔率３０％、10mmϕ×22mm）のロッドを入れた。多孔質タングステンロッドの周囲にセリウム金属を置いて溶融しロッド中に含侵させた上に電子ビームを照射してセリウムを蒸発させた[6]。

原子ビームは除去電極間およびスリットを通して光電離イオン生成部と電荷移行反応部に流入する。除去電極には－１００Ｖの負電圧を印加して原子ビーム発生部で混入した荷電粒子を取り除いた[7] [8]。蒸気量は Fig.1に示すように光電離イオン生成部を挟んだ電荷移行反応部と対称位置および光電離イオン生成部上方に設置した２ケの水晶発振式膜厚計（ULVAC CRTS-4U）でモニターした。

光電離イオン生成部および電荷移行反応部の詳細図をFig.2 (a),(b)に示す。(a)が平面図、(b)が立面図である。

光電離イオン生成部では２枚の電極板間で下方から流入する原子ビームに水平方向から２波長のパルス色素レーザービームを同軸にして同時に照射し、２波長２段階共鳴電離法により原子をイオン化させた。

ディスプロシウム（Ｄｙ）原子の場合は457.91nmおよび379.39nmの波長（真空中）のレーザー光により次のように基底状態のイオンが生じるようにイオン化させた。

Ｄｙ ： $0\ cm^{-1} \rightarrow 21838.55\ cm^{-1} \rightarrow 48196\ cm^{-1}$ ($> IP_1 = 47900\ cm^{-1}$)

J=8　　J=9　　($< IP_2 = 59894\ cm^{-1}$)

λ_1=457.91nm　　λ_2=379.39nm

ここで、IP_1 およびIP_2 はイオンの基底状態および第１励起状態になるイオン化ポテンシャルエネルギー、Ｊはレベルの全角運動量（Ｊ値）である。

また、セリウム（Ｃｅ）原子の場合は461.18nmおよび425.77nmの波長（真空中）のレーザー光により次のように基底状態のイオンが生じるようにイオン化させた。

Ｃｅ ： $0\ cm^{-1} \rightarrow 21683.72\ cm^{-1} \rightarrow 45171\ cm^{-1}$ ($> IP_1 = 44672\ cm^{-1}$)

J=4　　J=5　　($< IP_2 = 45659\ cm^{-1}$)

λ_1=461.18nm　　λ_2=425.77nm

レーザーは色素レーザーポンピング用のエキシマレーザー（Lambda Physik LPX100）と波長可変の色素レーザー（Lambda Physik FL3002）を用いた。エキシマレーザーのパルスエネルギーは約130mJ、繰り返し数は1Hzで用いた。色素レーザーはグレーティングモードで用い、色素はＤｙ用にはCoumarin120およびQUIを、また、Ｃｅ用にはCoumarin102とCoumarin120を用いた。

電極板間の間隔は２０mm、レーザービームの直径は１０mmとした。２枚の電極板（電極１，２）には高低の電圧を印加し、低電圧側の電極板（電極２）の外側に近接して補助電極（電極３）を設け、独立の電圧を印加できるようにした。電極２および電極３のほぼ中央にそれぞれ７mm径のイオン引出し孔を設け、電極２のイオン引出し孔には透過率８１％のメッシュを張った。レーザー光のパルス幅は約10nsで、生成したイオンは脱離した電子とともにパルス的にプラズマを生成し、このプラズマの電位は高い方の電極１の電位と等しくなる。低電圧側の電極２に向って回収される光電離イオンを、電極２および電極３のイオン引出し孔を通してビーム状にして水平方向に電荷移行反応部に導いた。

電荷移行反応部で主イオンビームは下方から上方に流れる原子ビームに直交して衝突し、一部のイオンが原子と電荷移行反応を起し、中性原子となると同時に原子が電離して低エネルギーのイオンが生成される。電荷移行反応部周囲を囲む第４の電極を設けイオンビームおよび原子ビームと直角方向の電位勾配が印加されるようにし、電荷移行生成イオンを横方向に設置したファラデーカップ２で回収した。また、同時に電荷移行反応部を通過したイオンはビーム直進方向正面のファラデーカップ１で回収した。

原子ビームは長さ２８mm、幅２０mmの下方のイオン引出し孔を通して電荷移行反応部に入射するが原子ビームは蒸発部を点源として広がるので反応部での形状は３０mm×２２mmとなる。従って電荷移行反応を起す衝突距離は３０mmである。

主イオンビームは空間電荷およびプラズマ発生後の上方への移動の影響で、引出し電極からの距離によって広がる。電極より離れた位置でのイオンビームの強度分布は小型の横５チャンネルのファラデーカップを上下に走査する方法で別途測定を行い、距離、電極印加電圧、電極２の外側に設置したイオン引出し孔付補助電極板（電極３）およびメッシュの有無をパラメータとしてイオンの広がり分布を把握した[9]。

測定結果の例を付録Ａ１，Fig.A1に示す。その結果を用い、主イオンビームの検出を行うファラデーカップの電極板イオン引出し孔からの距離は出来るだけ近く４５mm、入射孔寸法の横幅は２０mm、高さ幅は上方３０mm、下方３５mmとし、反応部に入るすべてのイオンが原子ビームの内部を通過し、ファラデーカップ１で検出されるようビームの広がりが入射面積より小さくなる印加電圧等の条件で電荷移行断面積の測定を行った。電荷移行反応部の周囲の電極３（補助電極）および電極４は同電圧V3 を印加し、横方向に設置したファラデーカップ２の入り口は横幅３０mm、高さ幅７０mmと反応領域に比べて十分大きくし接地して電荷移行反応で生成したイオンが全量ファラ

デーカップ2に入るようにした。なお、ファラデーカップ1，2のイオン検出板は共に銅製で、周囲はステンレス製の箱とし、検出器の入口面には透過率８１％のステンレス製のメッシュを張った。

ファラデーカップイオン検出板からの信号はディジタルオシロスコープに導き、その入口で一定の抵抗を通して接地して、電圧パルス信号として観測した。ファラデーカップ1では１ｋΩ、ファラデーカップ2では１０ｋΩの抵抗を標準として用いた。ディジタルオシロスコープはTektronix社製TDS540C型を用いた。このオシロスコープの周波数帯域は500MHz、最高サンプルレートは2GS/sである。信号ACQUIRE MENU は1パルス毎のS/N比が高いHi Res Mode で使用した。この場合、電子銃による金属試料蒸発時のファラデーカップ信号のノイズは５０μV程度であった。従ってイオン信号はこれより十分大きな値が得られる条件で測定した。得られた電圧パルス波形より抵抗値を考慮して電流値に変換し、時間積分して電荷量を求めた。

また、ファラデーカップ電荷量測定時の原子数密度を知るために、水晶膜厚計の蒸着速度に対応する出力電圧信号を同時のレーザートリガーによりオシロスコープで測定し、蒸着速度を求めた。

ファラデーカップ1および2のイオンの電荷量をQ_1，Q_2 [Coulomb]，ファラデーカップ1，2および電極4のメッシュの透過率をη、電荷移行反応部の原子ビームの原子密度をN [cm^{-3}]、イオンと原子の反応部の長さをL [cm]とすると、電荷移行断面積σ_{ex} [cm^2]は次式で与えられる。

$$\sigma_{ex} = \frac{Q_2}{Q_1} \times \frac{\eta}{L \cdot N} \qquad (2.\ 1)$$

ここで

η = 0.81

L = 3.0 cm

である。

また、電荷移行反応部での原子数密度N[cm^{-3}]は、原子蒸着速度J [m/s]、原子ビーム速度v [m/s]より次式で導かれる。

$$N = \frac{\rho \cdot N_A}{M} \cdot \frac{J}{V} \qquad (2.\ 2)$$

ここで

N：原子数密度[cm^{-3}]

J：原子蒸着速度[m/s]、

v：原子ビーム速度 [m/s],

M：原子量 [g/mol]、

ρ：密度[g/cm^3]、

N_A：アボガドロ数 (6.022×10^{23}/mol)

であり、

Dyの場合、v = 600 m/s、 M = 162.50 g/mol、 ρ=8.55 g/cm^3

Ceの場合、v = 1100 m/s、 M = 140.12 g/mol、 ρ=6.75 g/cm^3

である。

原子ビーム速度は電子天秤法による測定結果で電荷移行断面積測定を行った蒸着速度（Dyの場合：約３０Å/s、Ceの場合：約１００Å/s）における値である[10)]。付録A２ Fig.A2 参照。

また、二次電子放出率は３．１（３）で示す各イオンエネルギーに対応する実験値を用いた。

3．実験結果

3．1 実験条件の検討

電荷移行断面積測定条件把握のため、反応生成イオン対主イオンビーム電荷比の（1）イオン引出し電極電圧依存性、（2）蒸気密度依存性、（3）ファラデーカップ中の二次電子放出の影響について、ディスプロシウム（Ｄｙ）を用いて測定した。また、電荷移行反応部での実際の印加電圧を求めるために、二次元のLaplace方程式により電位分布を計算した。

（1）反応生成イオン対主イオンビーム電荷比のイオン引出し電極電圧依存性

レーザー強度およびＤｙの蒸気量はほぼ一定とした。ここでは補助電極（電極３）は用いず、電極１と電極２の電位差（V1-V2）を一定とし、電極２と電極４の電位（V2=V3）を変化させて、反応生成イオン電荷量Q2と主イオン電荷量Q1の比RQ=Q2/Q1を測定した。ここで主イオンおよび反応生成イオンはそれぞれ電荷移行反応部正面および側面のファラデーカップFC1,FC2に回収されるイオンである。

電極１、２の電位差ΔV=V1-V2が４００Ｖおよび１５０Ｖの場合の測定結果例をFig.3(a)およびFig.3(b)に示す。

Fig.3(a)の場合、第２、第４電極電圧（V2=V3）を低い方から高くするに従って、０～５０Ｖの間（領域１）でRQは増加し、５０～４００Ｖの間（領域２）ではほぼ一定であり、４００Ｖ以上（領域３）では再び増加する。同様に、Fig.3(b)の場合、第２、第４電極電圧（V2=V3）を低い方から高くするに従って、０～２０Ｖの間（領域１）でRQは増加し、２０～１３０Ｖの間（領域２）ではほぼ一定であり、１５０Ｖ以上（領域３）では再び増加する。

この現象は次のように考えられる。

電極１、２の電位差が一定なことにより、電荷移行反応領域に入射するイオン量はほぼ一定である。

領域１では電圧Ｖ３の上昇と共に電荷移行生成イオンが徐々にFC2に集められるようになり、RQが増加する。電圧V3を低くすると電荷移行生成イオンをFC2に回収するのに時間がかかり過ぎ、イオン電流パルスとして計測できなくなる。

領域３では電圧V3の上昇と共に主イオンビームが偏向され、FC1に入射するイオンビーム量が減少し、FC２には電荷移行生成イオンの他に電荷移行を起こさない主イオンビームの一部が回収されるようになるためRQが増加する。

領域２では電荷移行反応を起こさない主イオンビームの全量がFC1に回収され、また電荷移行生成イオンの全量がFC2に集められるためRQが一定となる。

RV=V3/V1 (V2=V3)とすると、上記測定結果より、

0≦RV<0.1 が領域1， 0.1≦RV<0.5 が領域2、0.5≦RV が領域3

に相当する。

従って、電荷移行断面積の測定は領域2に対応する

$$0.1 \leq RV = V3/V1 < 0.5 \qquad (3.1)$$

が成り立つ電極電圧設定条件で測定する必要がある。

(2) 反応生成イオン対主イオンビーム電荷比の蒸着速度依存性

電極1，2，4の電圧は上記領域2の一定値とし、副イオンFC2と主イオンFC1の電荷比RQの蒸着速度依存性を測定した。

電極1，2の電位差400V,電極2と電極4の電位V3が100Vの場合の反応生成イオン対主イオンビームの電荷比RQ=Q2/Q1と上方膜厚計蒸着速度 Jとの関係の測定結果例をFig.4に示す。図より電荷比RQは蒸着速度 Jにほぼ比例する。蒸着速度Jは原子密度Nにほぼ比例するので、電荷移行生成イオン量が反応部の蒸気密度Nに比例することが確かめられた。従って、生成イオン対主イオンビームの電荷比RQ=Q2/Q1の電極印加電位差依存性を調べる際に、蒸着速度の異なる測定値から基準の蒸着速度の値を求めるには基準蒸着速度に対する相対値で割って補正すればよいことになる。

(3) ファラデーカップ中二次電子放出の影響

主イオンビームのエネルギーが高くなるとファラデーカップFC1 のイオン検出板（銅製）に衝突する際、二次電子が放出される。その際、イオン検出板とファラデーカップ検出器容器がともにアース電位の場合には二次電子電流は同じアース電位の検出器容器に流れるためオシロスコープでは実際のイオン電流より大きな電流が観測される。検出器容器のアース電位に対してイオン検出板の電位を二次電子エネルギーより大きな正電位にしておけばイオン検出板表面で発生した二次電子は検出板に戻りイオン検出板には入射イオン電流のみが観測される。

別途の実験でネオジムイオンおよびガドリニウムイオン衝撃による銅表面からの二次電子放出率を評価した結果によると、イオン検出板の表面が清浄でない場合、二次電子の放出は0.34keVのイオンエネルギーより起こり、二次電子放出率はエネルギーとともにリニアに増加し,2keVでは約80%に達する[11]。しかし表面が清浄な場合には二次電子放出開始のエネルギーが0.95keVと高くなり,2keVでも二次電子放出率が10%にしかならない[12]。

ここでは、ディスプロシウムイオンに対し、Fig.5 に示す電荷移行断面積測定用の体系でファラデーカップFC1のイオン検出板の電位をアースにした場合と+75Vにした場合についてイオンエネルギーをパラメータとして、FC2 とFC1 の電荷量の比

RQ=Q2/Q1 の変化を求めることにより二次電子放出の影響を評価した。測定結果をFig.6に示す。

ここで、縦軸は二次電子放出率をγとして

$$\frac{(Q2/Q1(75V))}{(Q2/Q1(0V))}=1+\gamma \qquad (3.\ 2)$$

である。電荷移行生成イオンのエネルギーE_2は300eV以下であるので、FC2での二次電子放出は無視した。

この結果より二次電子放出率γとイオンエネルギーE_iとの関係式は次式で近似的に与えられる。

$$\gamma = 2.5\times10^{-4}\cdot(E_i(eV)-465) \quad : \quad E_i > 465eV \qquad (3.\ 3)$$

$$\gamma = 0 \quad : \quad E_i < 465eV$$

FC1の検出板印加電圧が0Vの場合のデータから、この式を用いてFC2とFC1の真のイオン電荷量比を求めた。

(4) 電荷移行反応部の電位

電荷移行反応部を囲む第4電極とファラデーカップ2の入射窓のアース電位のメッシュで形成される電位分布を2次元のLaplace方程式により計算した。Fig.7に示すように電荷移行反応部には第4電極印加電圧V_3の約0.7倍が実際に印加され、電荷移行生成イオンのエネルギーは$0.7V_3$(eV)となり、ファラデーカップ2で回収される。また電荷移行反応部での主イオンビームと原子ビームとの衝突エネルギーE_iは次式で与えられる。

$$E_i(eV)=(V_1-V_3)+0.3V_3 \qquad (3.\ 4)$$

ここで、V_1は電極1の印加電圧で、電極3と電極4との印加電圧は同一とした。

3．2 電荷移行断面積測定結果

(1) ディスプロシウム（Dy）の測定結果

ディスプロシウムについて得られたファラデーカップ1および2の電流波形測定結果例をFig.8(a)～(d)に示す。(a)～(d)の各電極電圧は以下の通りである。

(a) V_1=600V, V_2=300V, V_3=100V, V_{FC1}=0V

(b) V_1=1200V, V_2=900V, V_3=200V, V_{FC1}=0V

(c) V_1=2000V, V_2=1700V, V_3=200V, V_{FC1}=75V

(d) V_1=2000V, V_2=1700V, V_3=200V, V_{FC1}=0V

電荷移行反応部の蒸着速度は約30Å/sで原子密度は約$1.6\times10^{11}/cm^3$に相当する。

これらの電流波形より時間積分してそれぞれのファラデーカップの電荷量を算し、二次電子放出率、原子密度等を考慮して（2．1）式により電荷移行断面積を、（3．4）式によりイオン衝突エネルギーを導出した。図の場合の結果は図の右の欄に記した。

イオン衝突エネルギーが0.1～2keVの範囲の測定で得られたファラデーカップ2と1とのイオン電荷量の比Q2/Q1をFig.9に示す。ここで電荷移行反応部での蒸着速度が30Å/sでの値に規格化してある。図中、黒丸印がファラデーカップ1のイオン検出板印加電圧V_{FC1}は0の場合の測定値で、白丸が（3．3）式により二次電子放出の影響を補正した値である。

また、この測定結果より（2．1）式を用いて導出した電荷移行断面積とイオン衝突エネルギーとの関係をFig.10に示す。この結果からディスプロシウムの基底状態のイオンと原子との電荷移行断面積σ_{ex}は衝突エネルギーが0.1～2keVの範囲でほぼ一定で、

$$\sigma_{ex}=(1.82\pm0.14)\times10^{-14}cm^2$$

が得られた。ここで、上記誤差は全測定値の標本標準偏差σ_{n-1}である。

(2) セリウム（Ce）の測定結果

セリウムについて得られたファラデーカップ1および2の電流波形測定結果例をFig.11(a)(b)に示す。(a)(b)の各電極電圧は以下の通りである。

(a) V_1=1000V, V_2=700V, V_3=200V, V_{FC1}=0V

(b) V_1=1800V, V_2=1500V, V_3=300V, V_{FC1}=75V

電荷移行反応部の蒸着速度は約110Å/sで原子密度は約$3.0\times10^{11}/cm^3$に相当する。

これらの電流波形より時間積分してそれぞれのファラデーカップの電荷量を算出し、二次電子放出率、原子密度等を考慮して（2．1）式により電荷移行断面積を、（3．4）式によりイオン衝突エネルギーを導出した。図の場合の結果は図の右の欄に記した。

イオン衝突エネルギーが0.2～1.8keVの範囲の測定で得られたファラデーカップ2と1とのイオン電荷量の比Q2/Q1をFig.12に示す。ここで電荷移行反応部での蒸着速度が100Å/sでの値に規格化してある。図中、黒丸印がファラデーカップ1のイオン検出板印加電圧V_{FC1}は0の場合の測定値で、白丸が（3．3）式により二次電子放出の影響を補正した値である。

また、この測定結果より（2．1）式を用いて導出した電荷移行断面積とイオン衝突エネルギーとの関係をFig.13に示す。この結果からセリウムの基底状態のイオンと原子との電荷移行断面積σ_{ex}は衝突エネルギーが0.2～1.8keVの範囲でほぼ一定で、

$$\sigma_{ex}=(0.88\pm0.12)\times10^{-14}\mathrm{cm}^2$$

が得られた。ここで、上記誤差は全測定値の標本標準偏差σ_{n-1}である。

4. 考 察

(1) 電荷移行断面積測定誤差および測定限界について

主イオンビームのイオン衝突エネルギーが高い領域ではファラデーカップのイオン検出板表面での二次電子放出が大きくなり、その除去対策をしていない場合の測定値からの補正の誤差が大きくなる。

光電離イオン生成部の電極間の電位差が大きくなると主イオンビームの時間パル幅が短くなり、積算電流としての電荷量の誤差が大きくなる。イオン時間パルス幅が適当になるように光電離イオン生成部の電極間の電位差を押さえ、かつ、イオン衝突エネルギーを高くするためにはスリット孔を設けた補助電極（電極３）の使用が有効であった。

電荷移行反応部周囲の電極４の印加電圧は電極1と電極４間の電位差に対する割合が約１０～５０％の範囲にする必要がある。主イオンビームの低衝突エネルギー側の測定の際、電極４の印加電圧を低くすると電荷移行生成イオンの時間パルス幅が長くなり、電流値が小さくなるため電荷量の誤差が大きくなった。今回の測定条件では電極４の印加電圧を５０～１００Ｖ以下では電荷生成イオン電荷量の誤差が大きくなり、従って衝突エネルギーが１００～２００ｅＶ程度が測定の下限であった。

電荷移行断面積の測定誤差の主な原因としては（２．１）式および（２．２）式よりファラデーカップの電荷量比（Q2/Q1）の誤差 ΔRQ、二次電子放出率の誤差 Δγ、蒸着速度の誤差 ΔJ、蒸気速度の誤差 ΔＶが考えられる。

二次電子放出率の影響が小さく、電荷量比の誤差が比較的小さな衝突エネルギーが約３００～１０００ｅＶの範囲では、Ｄｙの場合に、ΔRQ～±１０％、ΔJ～±１０％、ΔV～±１０％、合計で10数％の誤差となる。またＣｅの場合はΔRQ～±１５％程度で、合計で±２０％程度の誤差となる。また上記領域の上下ではさらに誤差は大きいと考えられる。

この誤差は測定値のバラツキの標準偏差σの２倍程度となっている。

(2) ディスプロシウムおよびセリウムの電荷移行断面積値について

Ｄｙでは基底状態の原子およびイオンの電子配位はそれぞれ、$4f^{10}6s^{2}$および$4f^{10}6s$であり、それらが電荷移行反応を起こすためには６ｓ電子１個が原子からイオンに移行する。

$4f^{10}$ ($^{5}I_{8}$) は閉殻でないため生成イオンは Ｊ＝１７／２ か Ｊ＝１５／２ のどちらかになり、次の２反応経路がある。

$$Dy\ (4f^{10}\ (J=8)\ 6s^2) + Dy^+\ (4f^{10}\ (J=8)\ 6s,\ J=17/2)$$

$$\rightarrow\ Dy^+\ (4f^{10}\ (J=8)\ 6s,\ J=17/2) + Dy\ (4f^{10}\ (J=8)\ 6s^2) + 0\,cm^{-1} \qquad (1)$$

$$\rightarrow\ Dy^+\ (4f^{10}\ (J=8)\ 6s,\ J=15/2) + Dy\ (4f^{10}\ (J=8)\ 6s^2) - 823\,cm^{-1} \qquad (2)$$

（1）は共鳴電荷移行で、（2）は非共鳴電荷移行である。

この電荷移行断面積の計算結果をFig.10の細線で示す。実験値が計算値の1．5倍程度である。Gd、Ndでも実験値は計算値の1．5倍程度であったがDyでも同様に実験値とほぼ一致していると言える。

それに対してCeでは基底状態の原子およびイオンの電子配位はそれぞれ、$4f5d6s^2$および$4f5d^2$であり電荷移行反応を起こすためには6s電子2個および5d電子1個が移行する必要がある。ただし、基底状態の原子は$4f5d6s^2$だけでなく$4f5d^26s$、$4f5d^3$の配位間相互作用で決まる。また、基底状態のイオンも$4f5d^2$だけでなく、$4f5d6s$、$4f6s^2$の配位間相互作用がある。配位間相互作用まで考えれば、1電子移行で電荷移行が可能と考えられる。ただし、原子からイオンへの飛び移りの確率は小さく、断面積が小さいものと考えられる。今後、Ceについても電荷移行断面積の計算を試みる予定であるが、実験で得られた小さい断面積の値は原子構造からの推測と一致していると言える。

5. まとめ

ディスプロシウム（Ｄｙ）およびセリウム（Ｃｅ）について，基底状態のイオンが中性原子と衝突する場合の対称電荷移行断面積を衝突エネルギーが２００ｅＶ～２０００ｅＶの範囲で測定した。原子のレーザー光共鳴電離法によるレーザーイオン源からのイオンビームを原子ビームに直交して照射し、電荷移行生成イオンと主ビームイオンの電流をそれぞれファラデーカップ検出器で測定して、それらの電荷量の比および原子密度から電荷移行断面積を導出した。その結果、両者とも上記エネルギー範囲では断面積はほぼ一定で、Ｄｙでは$(1.82\pm0.14)\times10^{-14}cm^2$ 、Ｃｅでは$(0.88\pm0.12)\times10^{-14}cm^2$ の値が得られた。Ｄｙの断面積はその原子およびイオンの電子配位を考慮した計算結果とほぼ一致する。Ｃｅの断面積の計算は出来ていないが、その電子配位を考慮すると非常に小さいことが予測される。Ｃｅの断面積がＤｙの場合の約半分と小さく、予測と一致していると言える。

参考文献

1) Shibata T., Ogura K.: JAERI-Research 94-025, (1994).
2) Shibata T., Ogura K.: J.Phys.Soc.Jpn.64, 3136 (1995).
3) Ogura K., Shibata T.: J.Mass.Spectrom.Soc.Jpn.41, 37 (1993).
4) 小倉浩一、有沢　孝、柴田猛順：真空 35, 301 (1992).
5) 小倉浩一、柴田猛順：JAERI-Conf.95-022, 107 (1995).
6) 大場弘則、雨川和博、柴田猛順：真空 40, 296 (1997).
7) Ohba H., Nishimura A., Ogura K., Shibata T.: Rev.Sci.Instrum.65, 657 (1994).
8) 大場弘則、有沢　孝、西村昭彦、小倉浩一、柴田猛順：真空 35, 286 (1992).
9) 足立　肇、田村浩司、柴田猛順：JAERI-Tech (投稿予定).
10) 岡崎哲治、田村浩司、足立　肇、大場弘則、雨川和博、柴田猛順：JAERI-Tech (投稿予定).
11) 柴田猛順、小倉浩一：真空 37, 133 (1994).
12) 柴田猛順、田村浩司、小倉浩一：真空 40, 669 (1997).

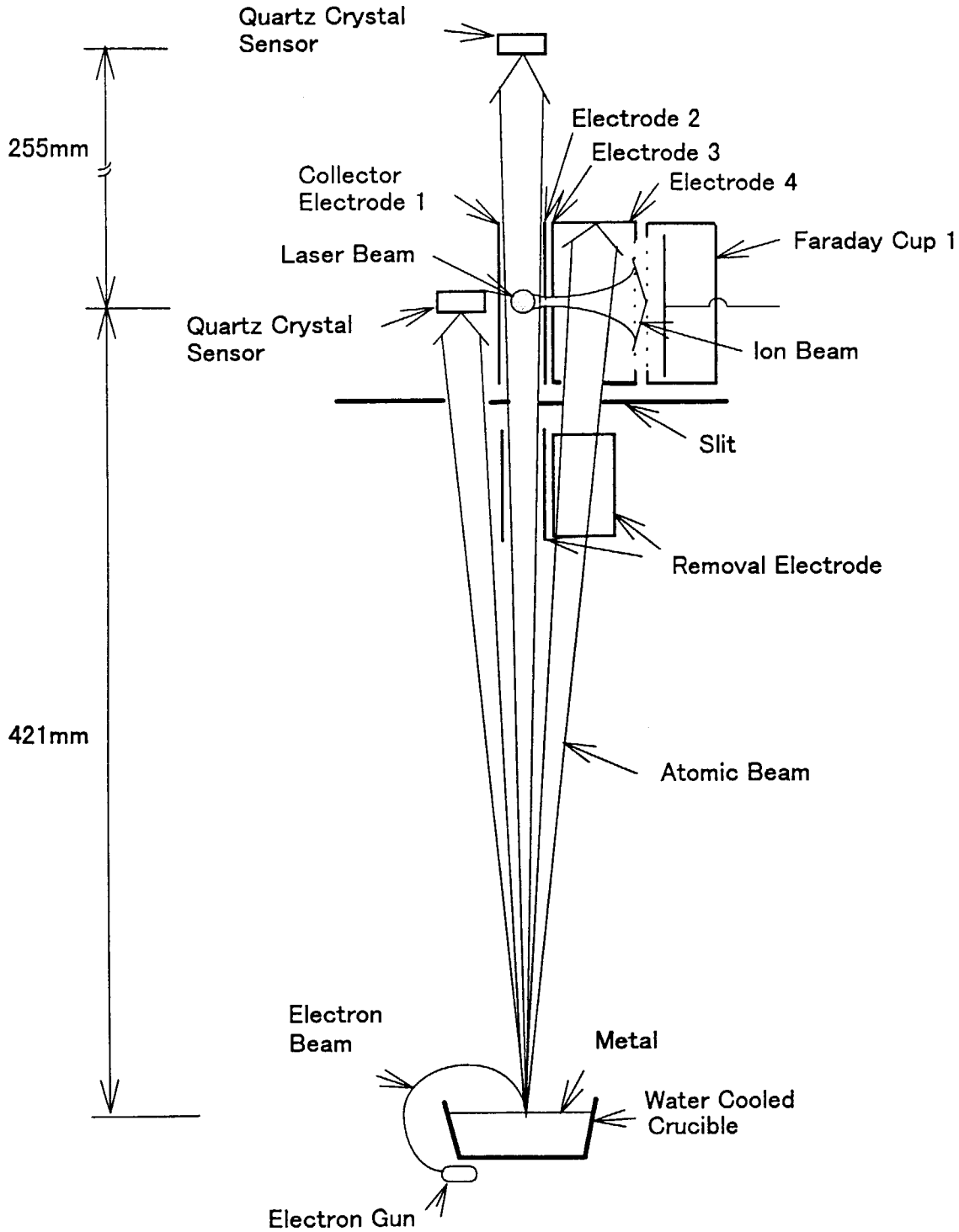


Fig.1 A schematic view of the experimental apparatus.

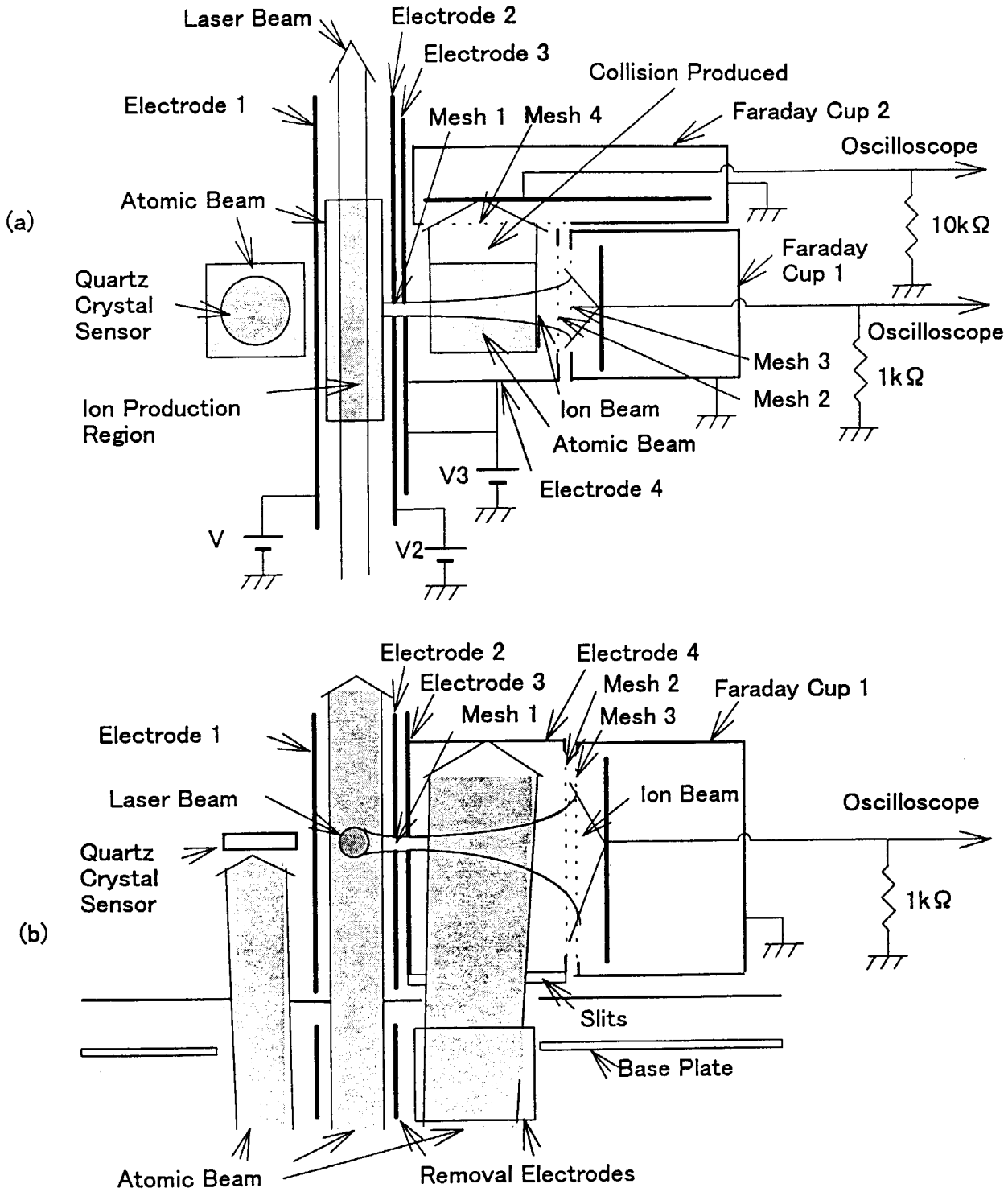
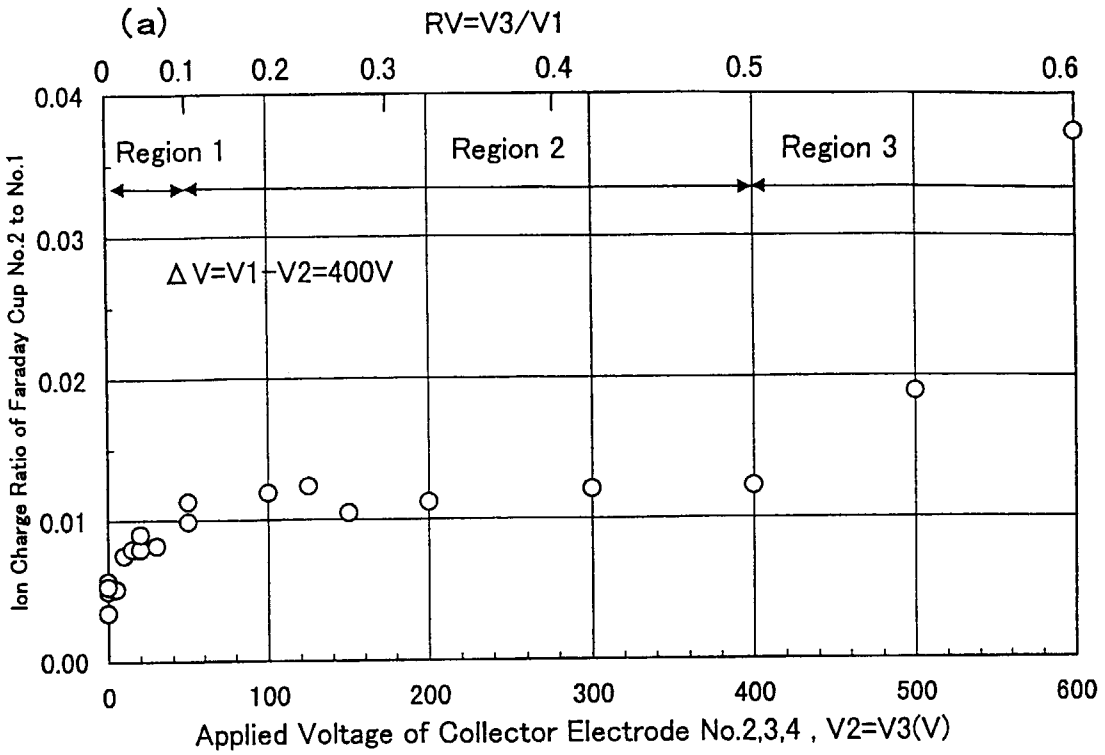


Fig.2 A detailed diagram of the laser ion source and the collision region.
(a) top view, (b) front view



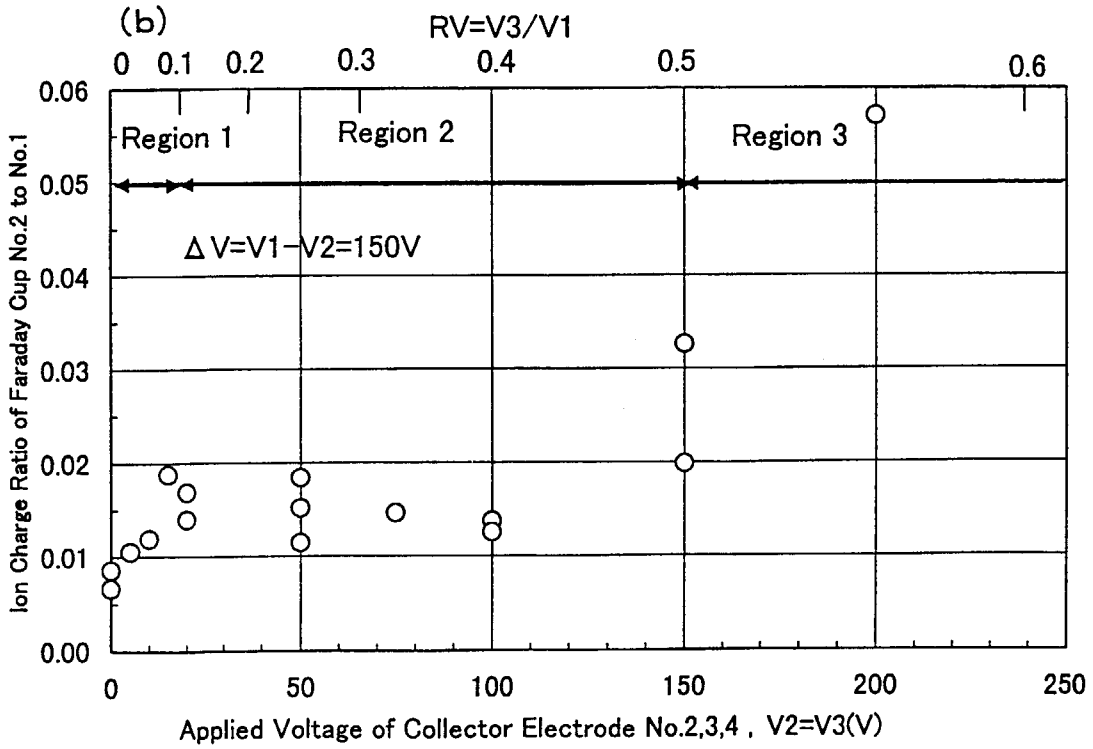


Fig.3 A ratio of a charge detected by Faraday cup 2, Q2, to a charge detected with Faraday cup 1, Q1, as a function of the applied voltage of collector electrode.

Vapor deposition rates are normalized to 10Å/s on the reaction region.

(a) Applied voltage difference on collector electrodes ΔV=V1−V2= 400V

(b) Applied voltage difference on collector electrodes ΔV=V1−V2= 150V

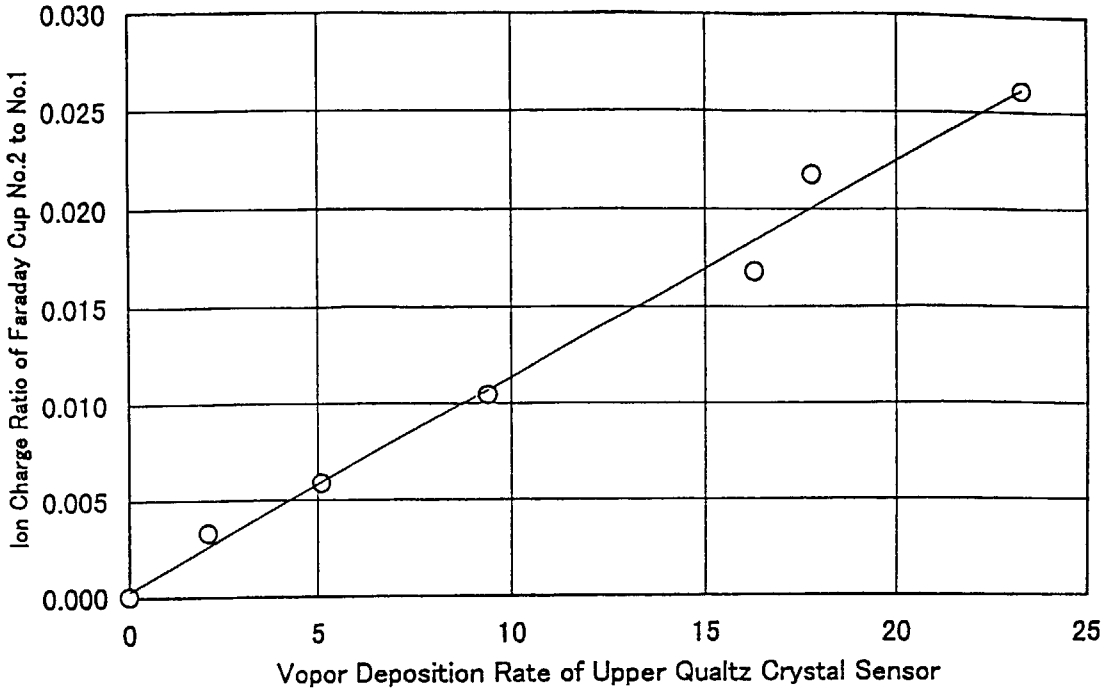


Fig.4 Ratio of a charge detected by Faraday cup 2, Q2, to a charge detected with Faraday cup 1, Q1, as a function of the vapor deposition rate in the collision region in the case of V1=500V, V2=100V,V3=100V.

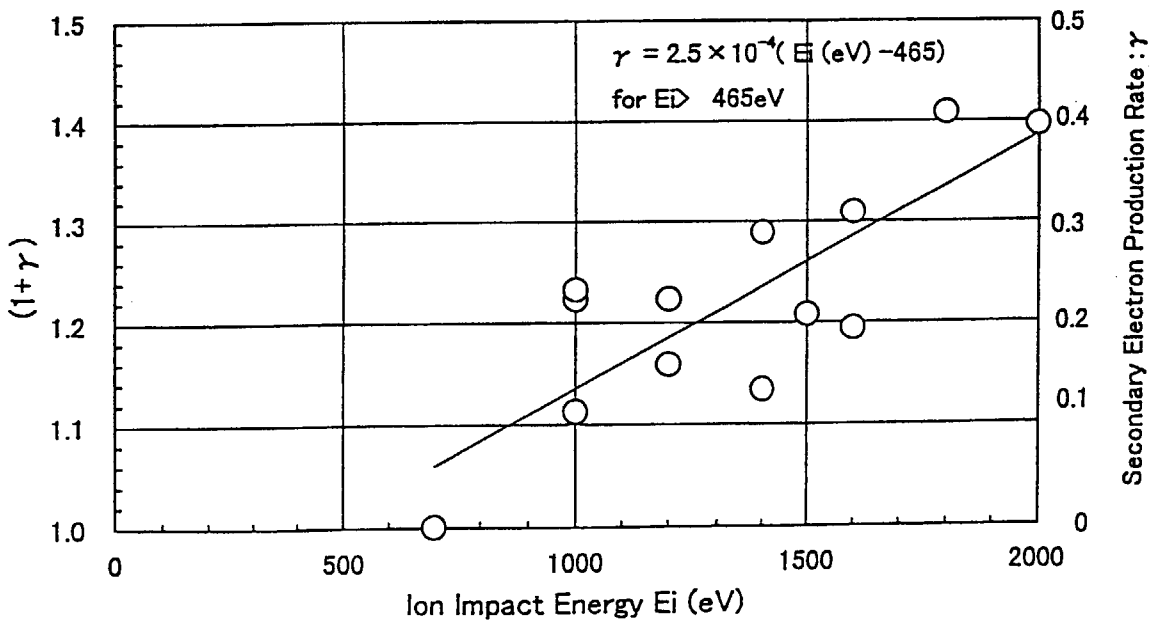


Fig.6 Effect of the secondary electron production on Faraday cups for the dysprosium ion.

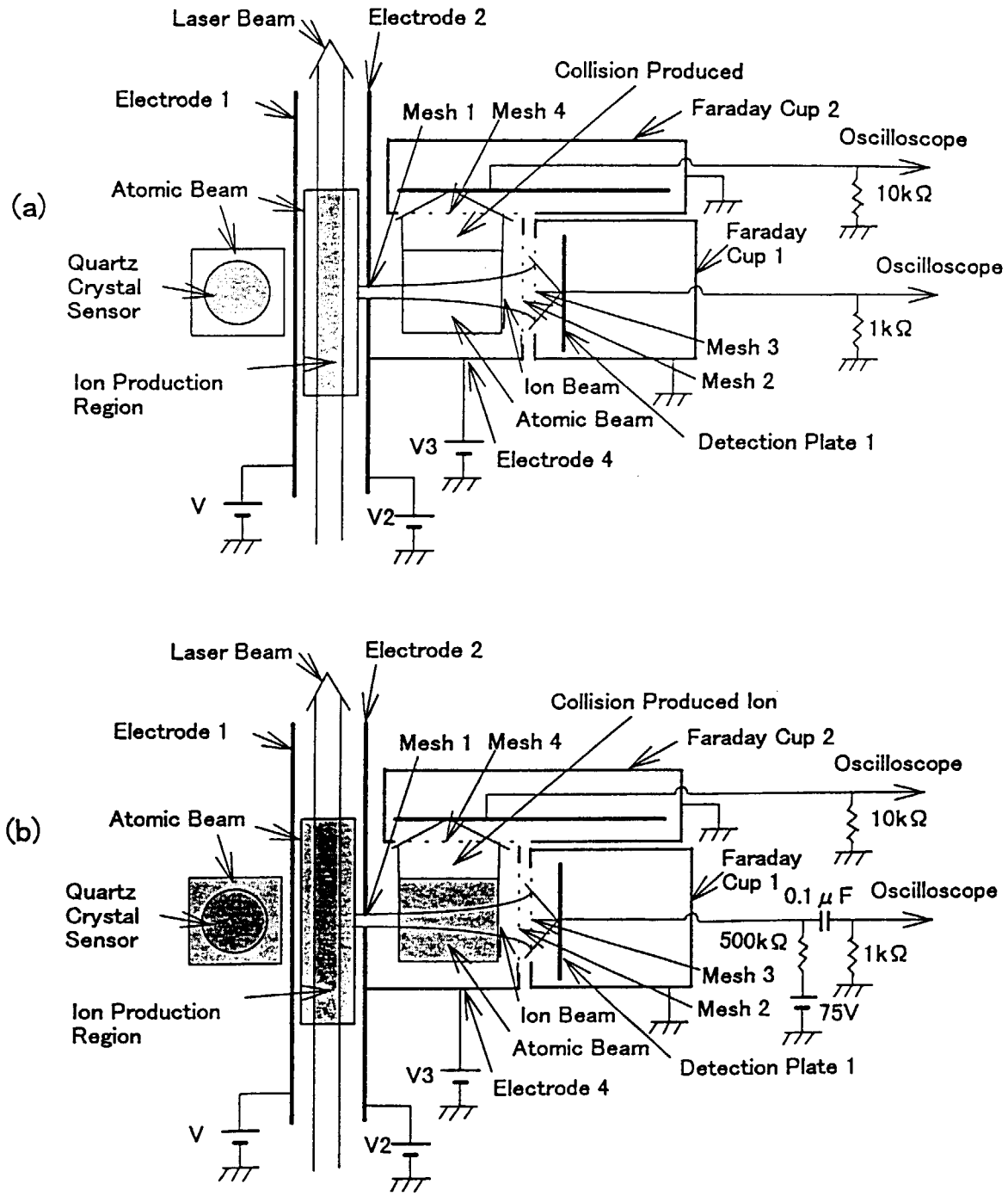


Fig.5 Schematic drawing of the measurement system of the secondary electron production rate on ion detection plate in Faraday cup. Top view.

(a) Applied voltage on the detection plate 1 is 0V

(b) Applied voltage on the detection plate 1 is +75V

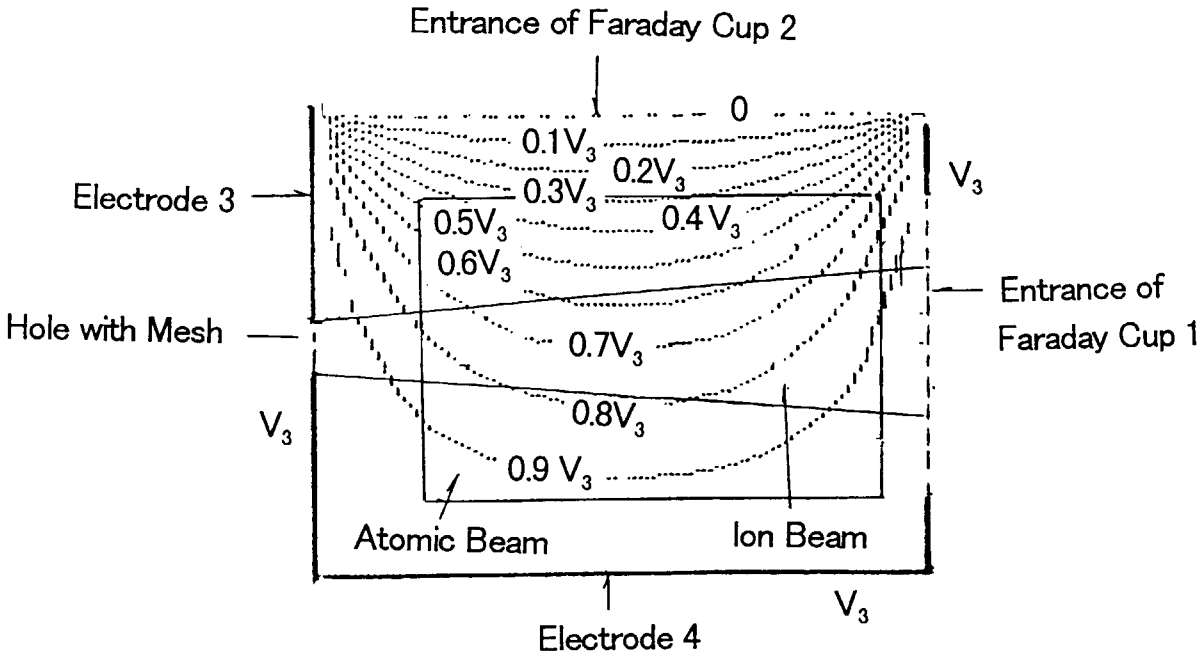
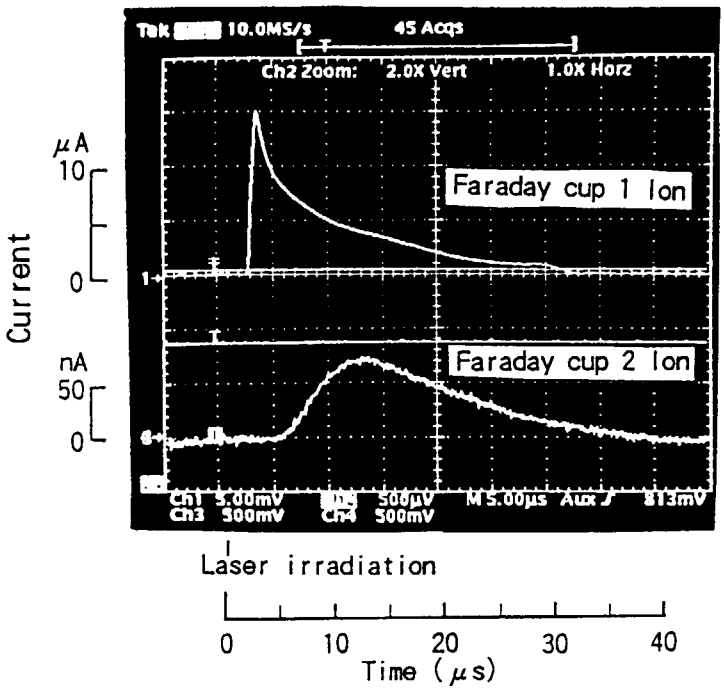
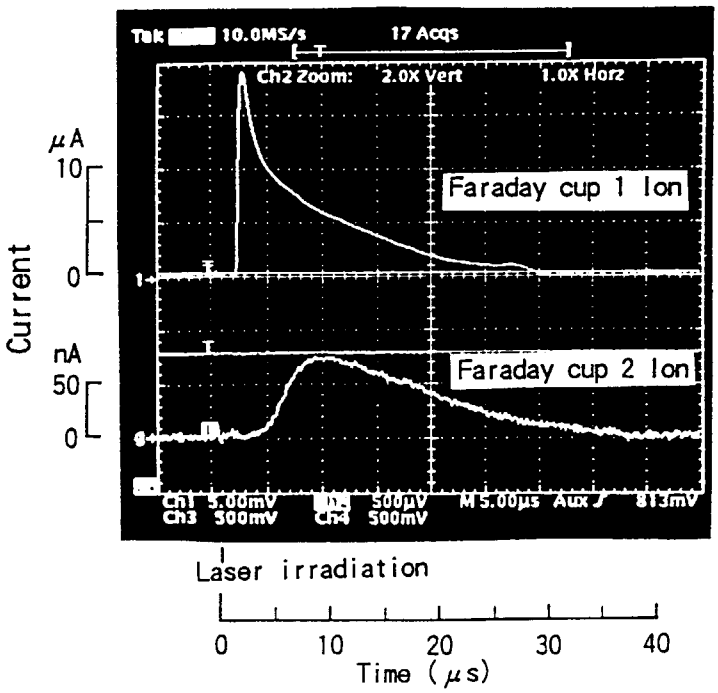


Fig.7 Distribution of electric potential in the charge transfer interaction region. The potential distribution was calculated using two-dimensional Laplace equation. The Laplace equation was numerically solved by Gauss-Seidel method with spatial grids of 40 × 30 .The curves are contour lines with constant potential plotted at every potential $0.1V_3$, where V_3 is the potential applied on the electrode 3 and 4.



(a)

Dy
V_1=600V
V_2=300V
V_3=100V
V_{FC1}=0V
E_i=530eV
J=30.6Å/s
(N=1.62×10^{11}/cm^3)
Q_1=108pC
Q_2=1.11pC
σ_{ex}=1.7×10^{-14}cm^2

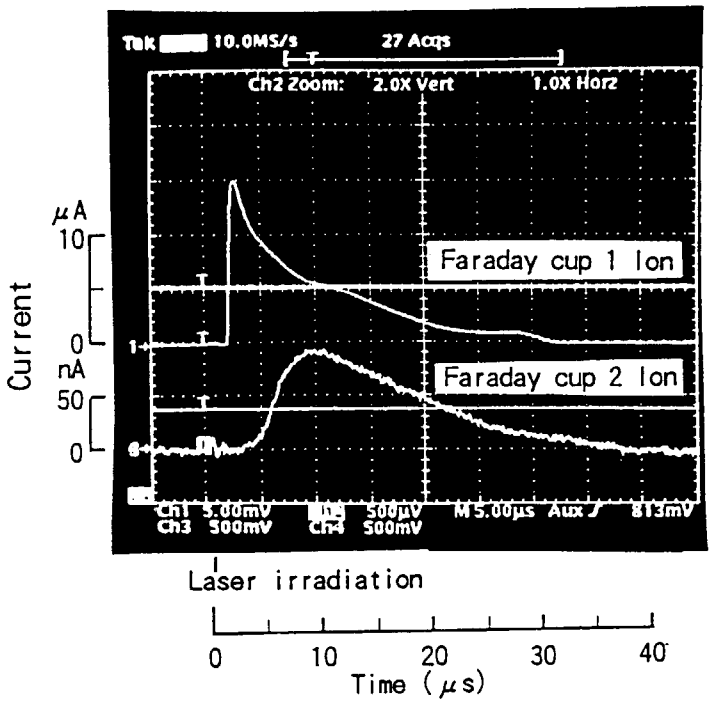


(b)

Dy
V_1=1200V
V_2=900V
V_3=200V
V_{FC1}=0V
E_i=1060eV
J=30.4Å/s
(N=1.61×10^{11}/cm^3)
Q_1=124pC
Q_2=1.15pC
σ_{ex}=1.8×10^{-14}cm^2

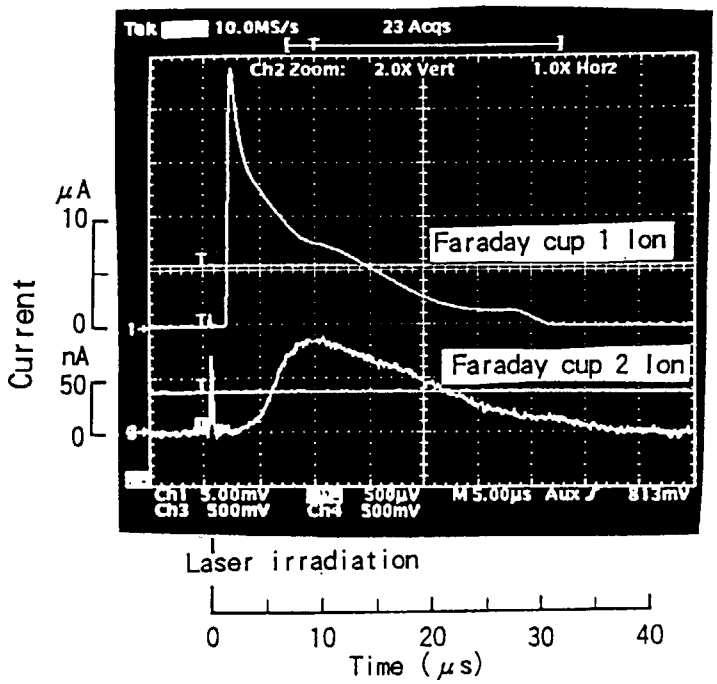
Fig.8 (1/2) Typical waveforms of the dysprosium ion currents detected with Faraday cups 1 and 2. Signal of primary beam ions and slow ions produced with charge transfer interaction are shown on the upper and the lower side in each photo, respectively.

Applied voltage on electrodes and detection plate on FC1, and atomic density at the collision region for the cases (a),(b),(c),(d) are shown on the right side of each photo.



(c)

Dy
V_1=2000V
V_2=1700V
V_3=200V
V_{FC1}=75V
E_i=1860eV
J=30.4Å/s
(N=1.61×10^{11}/cm^3)
Q_1=124pC
Q_2=1.40pC
σ_{ex}=1.9×10^{-14}cm^2



(d)

Dy
V_1=2000V
V_2=1700V
V_3=200V
V_{FC1}=0V
E_i=1860eV
J=30.6Å/s
(N=1.62×10^{11}/cm^3)
Q_1=167pC
Q_2=1.34pC
σ_{ex}=1.8×10^{-14}cm^2

Fig.8 (2/2) Typical waveforms of the dysprosium ion currents detected with Faraday cups 1 and 2. Signal of primary beam ions and slow ions produced with charge transfer interaction are shown on the upper and the lower side in each photo, respectively.

Applied voltage on electrodes and detection plate on FC1, and atomic density at the collision region for the cases (a),(b),(c),(d) are shown on the right side of each photo.

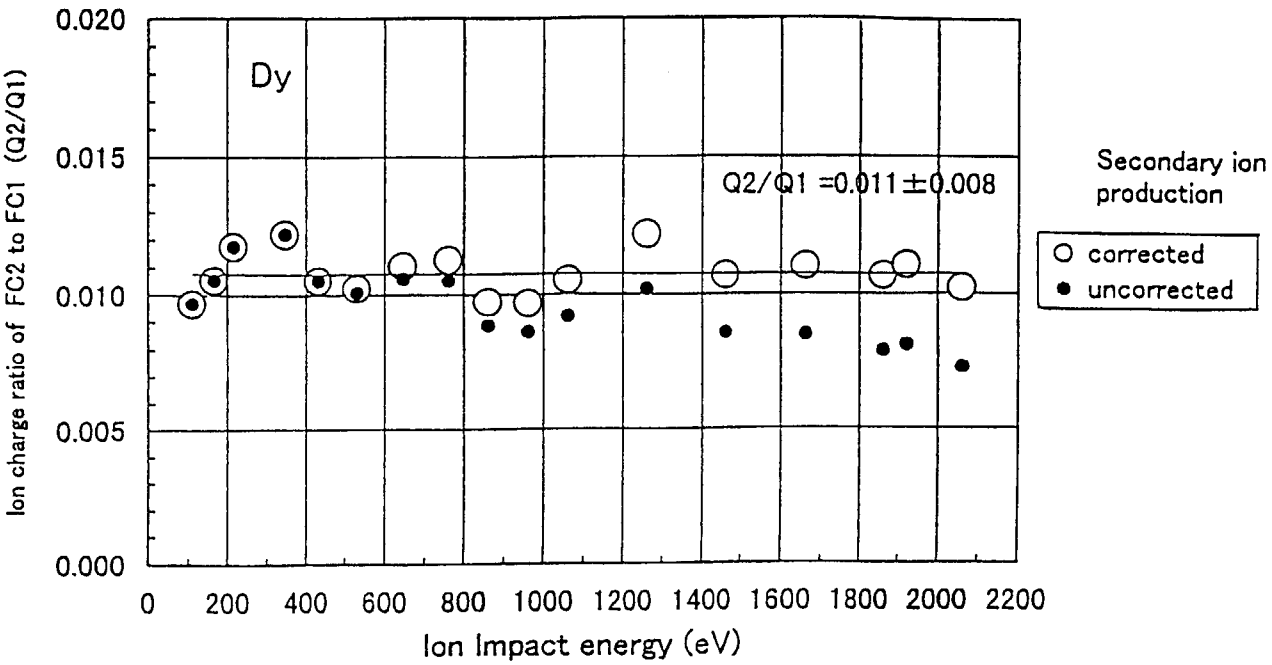


Fig.9 A ratio of a charge detected by Faraday cup 2, Q2, to a charge detected by Faraday cup 1, Q1, as a function of the ion impact energy for dysprosium ,normalized to vapor deposition rate of 30 Å/s at the collision region.

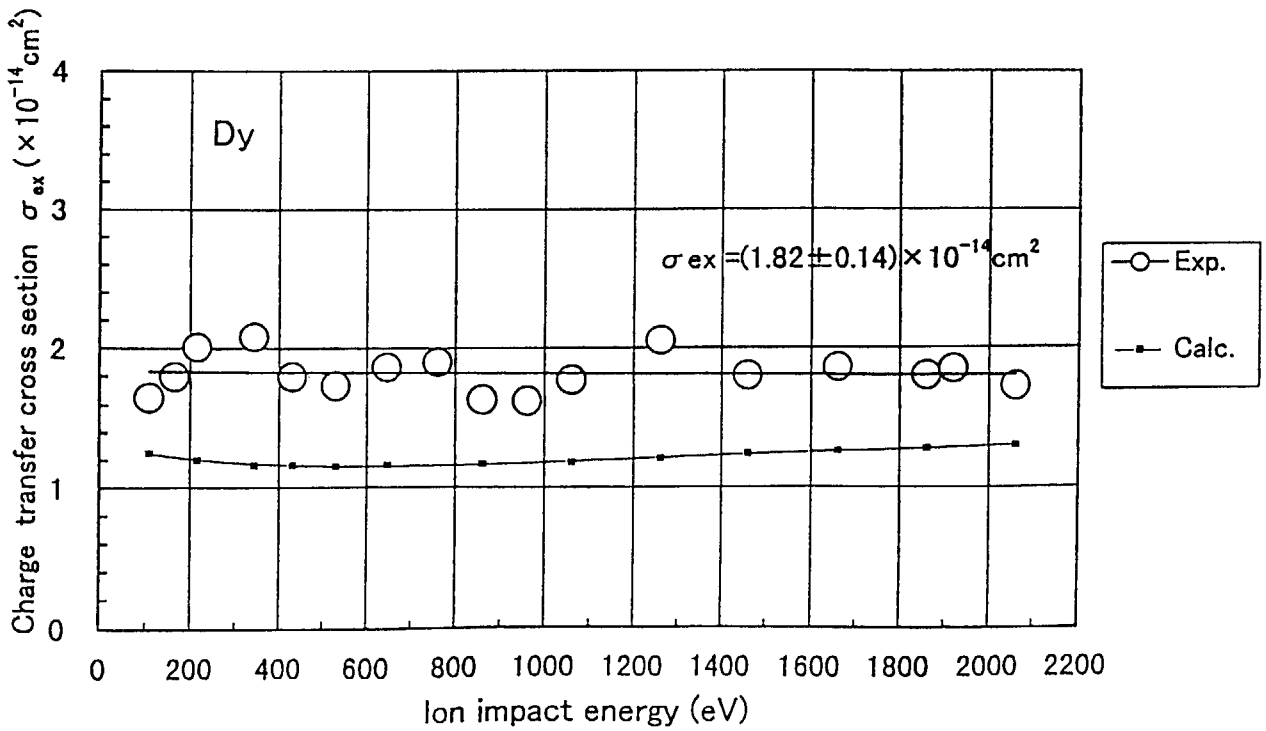
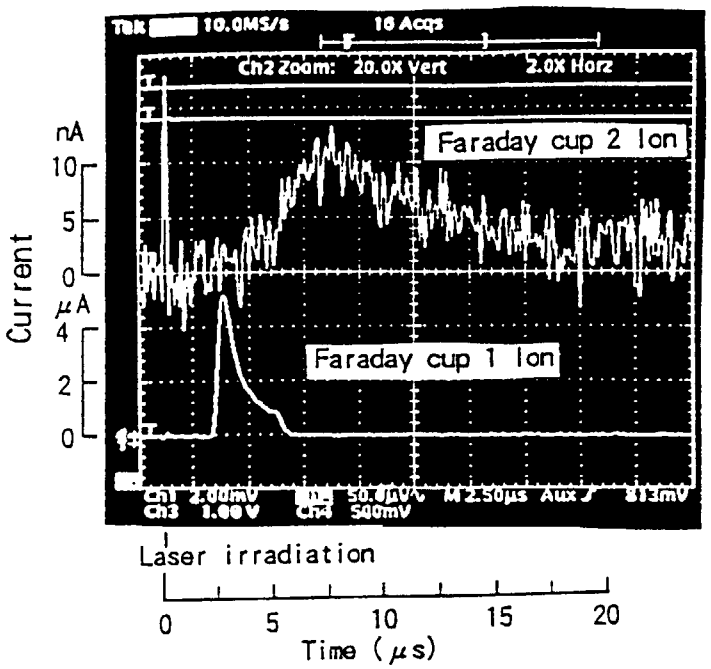


Fig.10 Charge transfer cross section of dysprosium , as a function of the ion impact energy, corrected for secondary electron emission rate.



(a)

Ce

V_1=1000V

V_2=700V

V_3=200V

V_{FC1}=0V

E_i=860eV

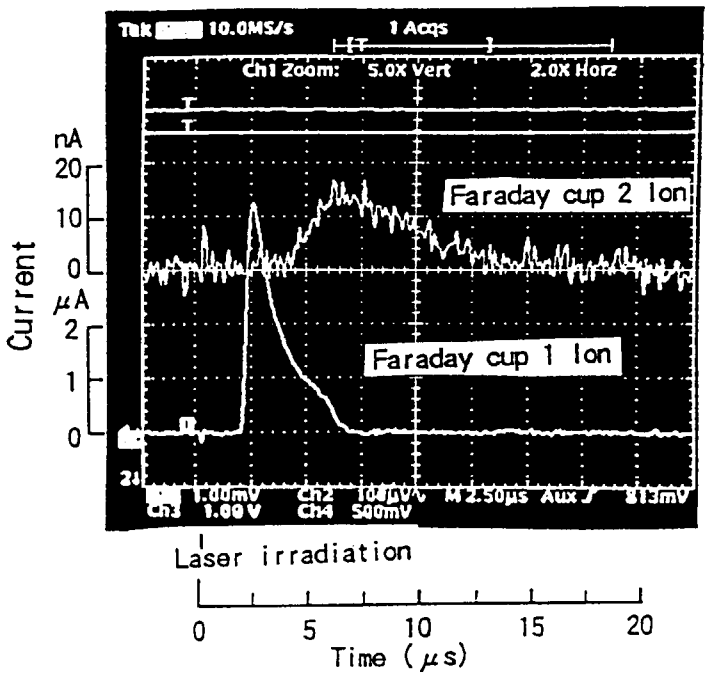
J=116Å/s

(N=3.1×10^{11}/cm^3)

Q_1=6.43pC

Q_2=0.073pC

σ_{ex}=1.1×10^{-14}cm^2



(b)

Ce

V_1=1800V

V_2=1500V

V_3=300V

V_{FC1}=75V

E_i=1590eV

J=111Å/s

(N=3.0×10^{11}/cm^3)

Q_1=7.53pC

Q_2=0.076pC

σ_{ex}=9.3×10^{-15}cm^2

Fig.11 Typical waveform of the cerium ion currents detected with Faraday cups 1 and 2. Signal of primary beam ions and slow ions produced with charge transfer interaction are shown on the lower and the upper side in each photo, respectively.

Applied voltage on electrodes and detection plate on FC1, and atomic density at the collision region for the cases (a),(b) are shown on the right side of each photo.

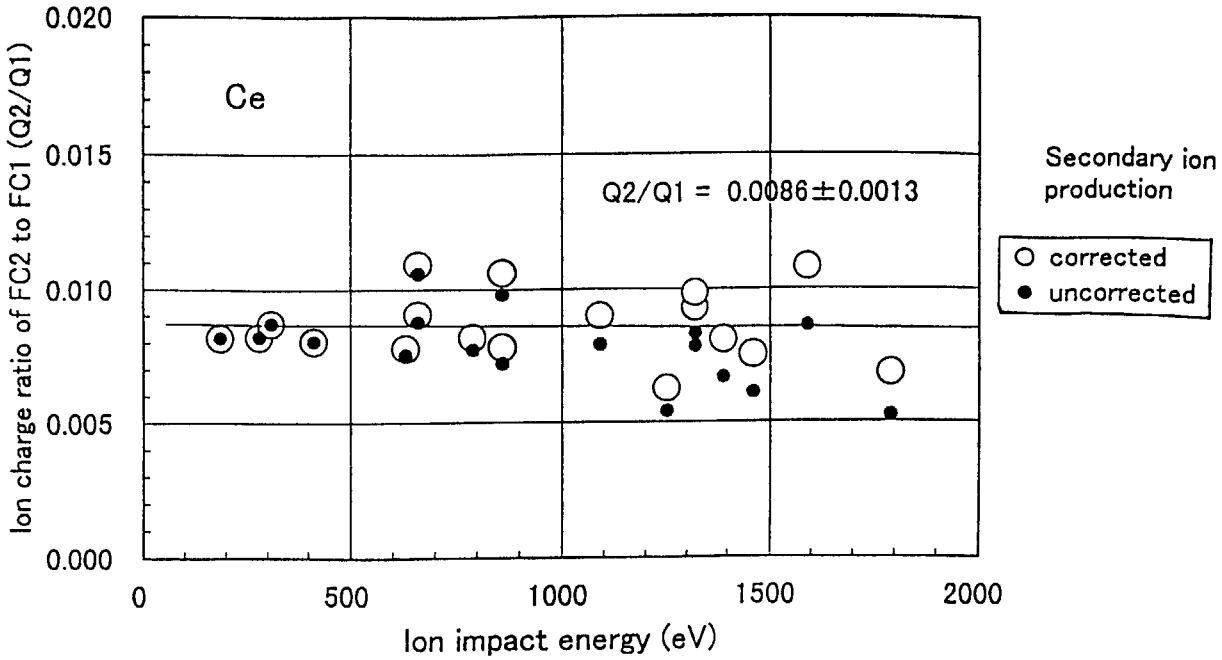


Fig.12 A ratio of a charge detected by Faraday cup 2, Q2, to a charge detected with Faraday cup 1, Q1, as a function of the ion impact energy for cerium, normalized to vapor deposition rate of 100 Å/s at the collision region.

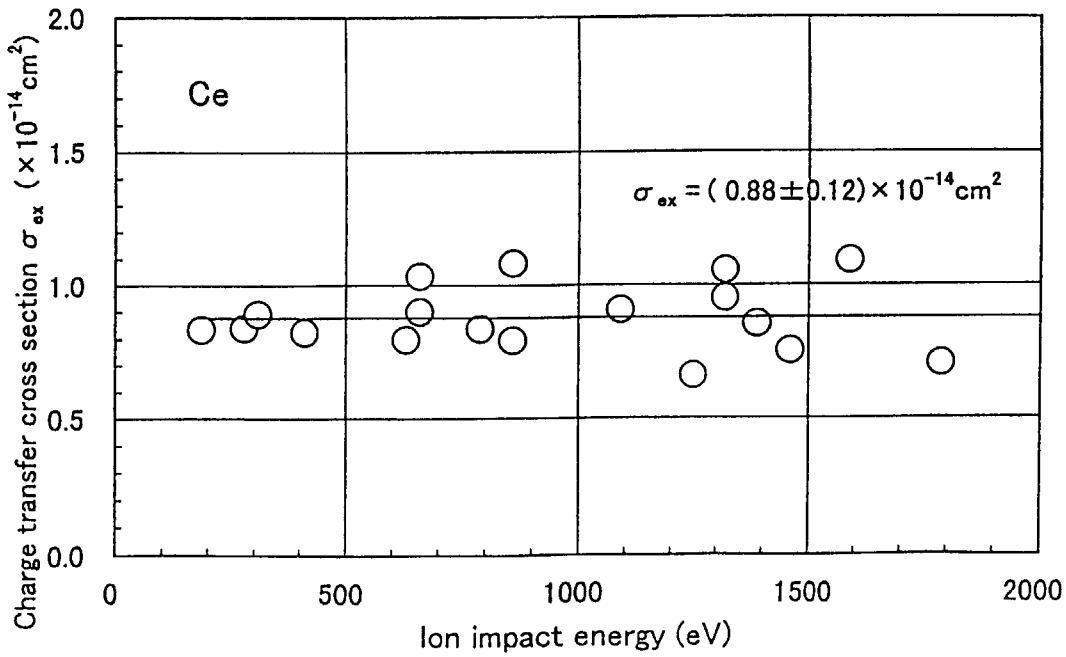


Fig.13 Charge transfer cross section of cerium, as a function of the ion impact energy, corrected for the secondary electron emission rate.

付録A１　レーザーイオン源からのイオンビームの広がり分布

高低電圧を印加した平行平板電極間で金属原子にパルスレーザー光を照射して生成させた光共鳴電離イオンを低電圧側電極板に開けたスリット孔を通して引出しイオンビームを得るレーザーイオン源において引出し電極から離れた距離におけるイオンビームの広がり分布を測定により把握した。このデータは電荷移行断面積測定用のファラデーカップ検出器の配置および寸法の設計に反映させた。

測定装置の概念図をFig. A1-1示す。

イオンビームに対して対称に水平方向に等間隔に５ケの小型のイオン検出板を並べたファラデーカップを用い、その高さ位置を遠隔操作により変化させて、上下左右の二次元各位置におけるイオン量を測定した。各検出板のイオン信号はディジタルオシロスコープに導き、固定の抵抗を通して流れるイオン電流により生じる電圧波形を測定し、記録後、パルス電流を積算して電荷量を求めた。各位置におけるイオンの電荷量より二次元の広がり分布を求めた。

各検出板の間隔、５mm、検出板へのスリット孔の直径、３mmのファラデーカップを用い、イオンの引出しスリット孔径７mmの電極から５０mm離れた位置でのイオンの強度分布の測定結果例をFig. A1-2に示す。

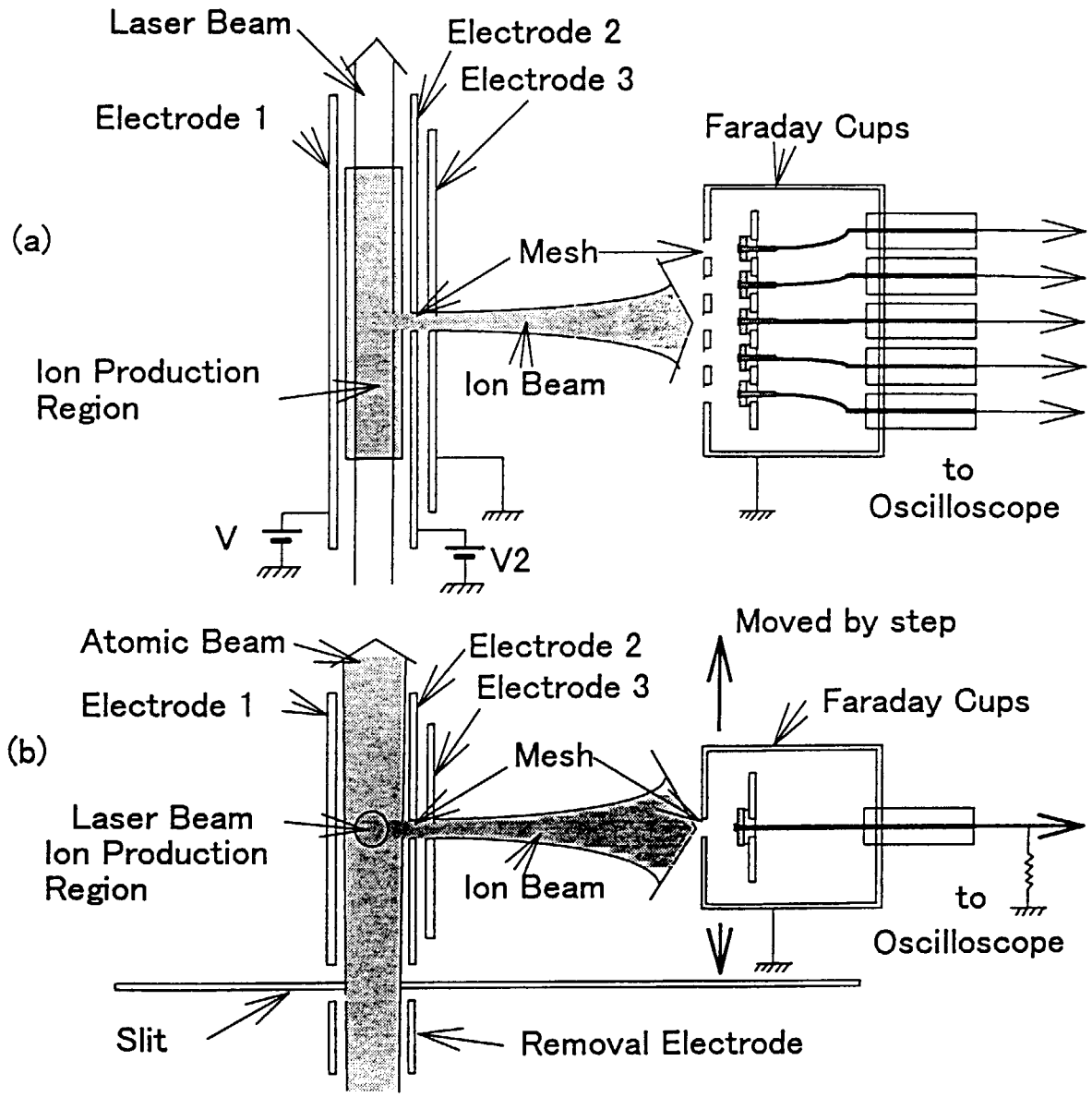
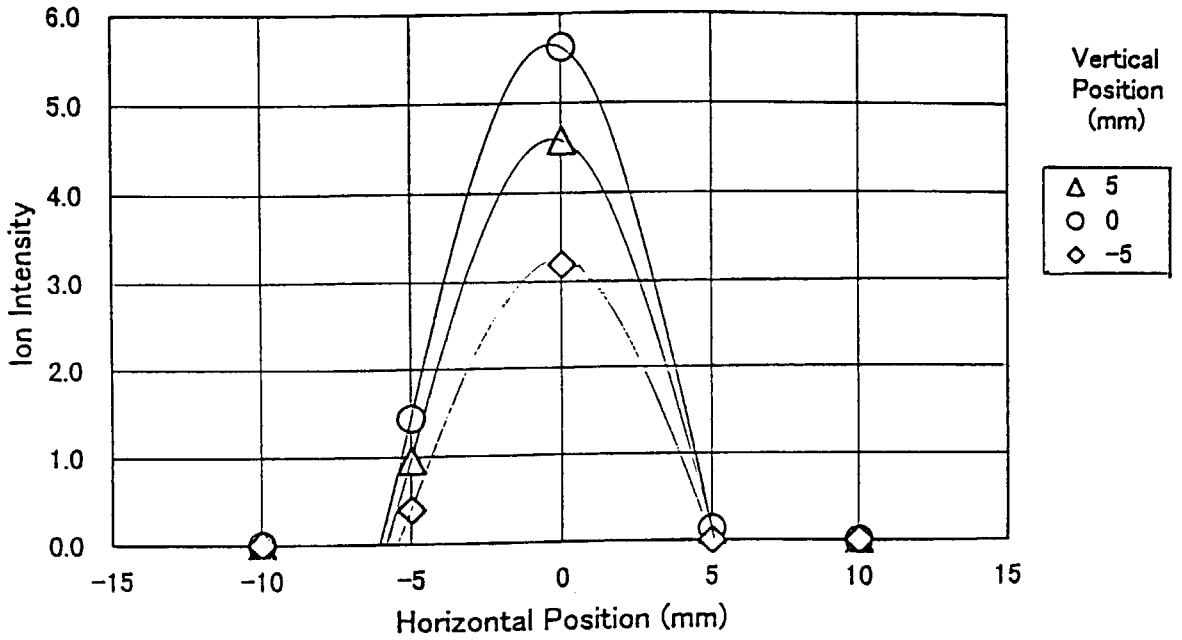
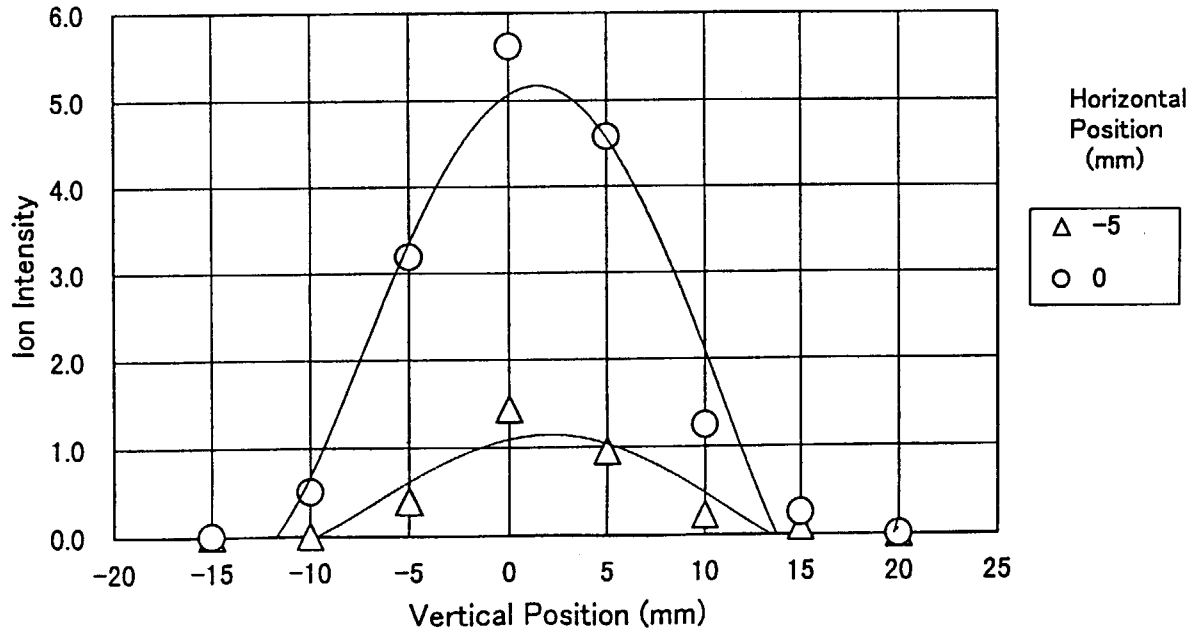


Fig.A1-1 A schematic drawing of the intensity distribution measurement on ion beam

(a) top view, (b) front view



(a) Horizontal distribution



(b) Vertical distribution

Fig.A1-2 A typical intensity distribution on ion beam at a distance of 45mm from the electrode of laser ion source.
Applied voltage on the electrodes: V1=600V, V2=300V, V3=0V
Diameter of the ion outlet hole on the collector electrode: D=7mm ϕ
The hole is covered with mesh with transparency of 81%.

付録Ａ２　ＤｙおよびＣｅの原子ビーム速度

電子天秤法により測定したＤｙおよびＣｅの蒸着速度（蒸気量）と原子ビーム速度との関係のグラフをFig. A2(a), (b)に示す。

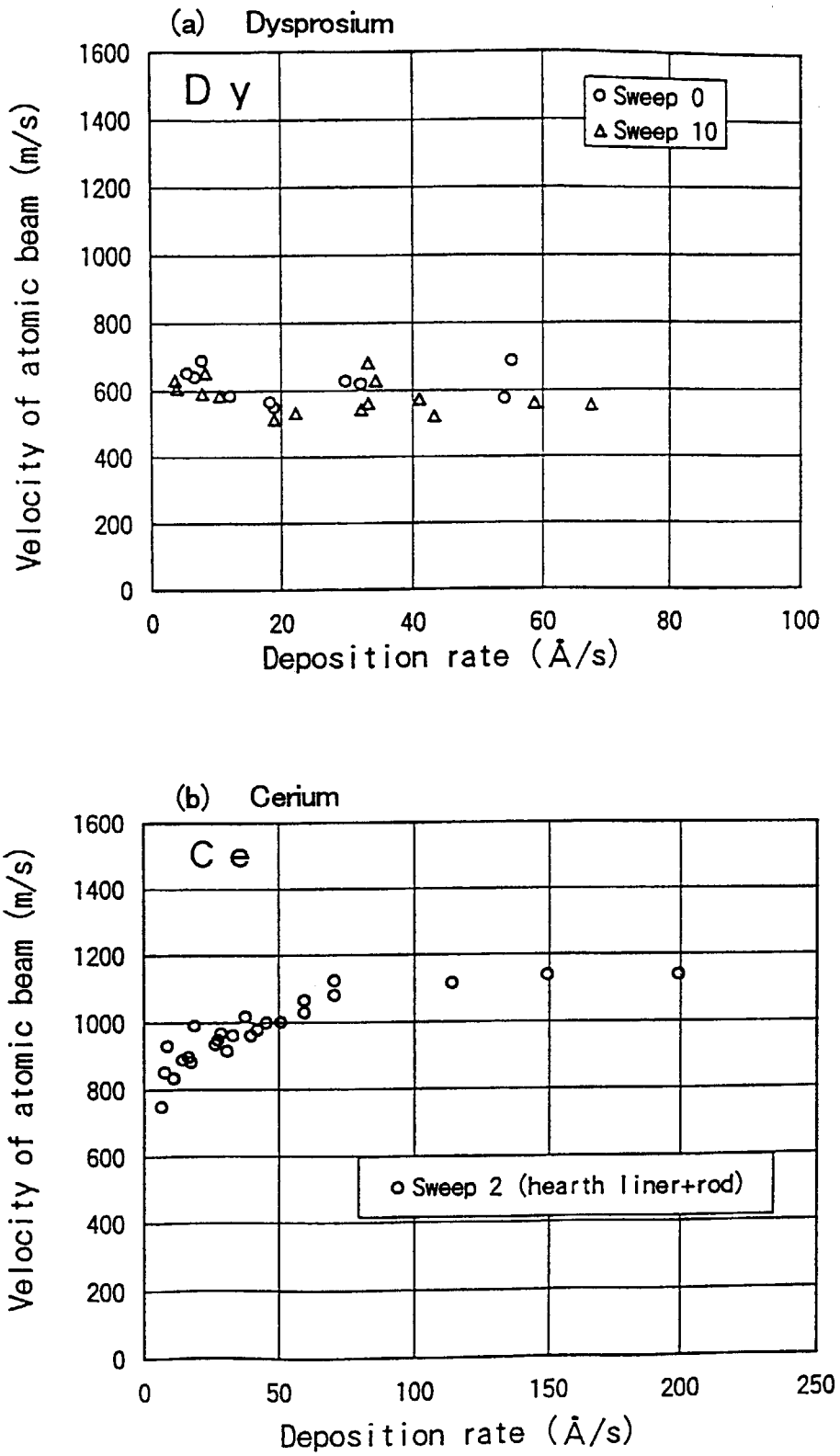


Fig.A2 Velocity of atomic beam vaporized with electron beam bombardment, as a function of deposition rate at a stand off distance of 382mm from the metal surface in a water cooled copper crucible.

This is a blank page.

国際単位系（SI）と換算表

表1　SI基本単位および補助単位

量	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質量	モル	mol
光度	カンデラ	cd
平面角	ラジアン	rad
立体角	ステラジアン	sr

表2　SIと併用される単位

名称	記号
分，時，日	min，h，d
度，分，秒	°，′，″
リットル	l，L
トン	t
電子ボルト	eV
原子質量単位	u

1 eV=1.60218×10^{-19}J

1 u=1.66054×10^{-27}kg

表5　SI接頭語

倍数	接頭語	記号
10^{18}	エクサ	E
10^{15}	ペタ	P
10^{12}	テラ	T
10^{9}	ギガ	G
10^{6}	メガ	M
10^{3}	キロ	k
10^{2}	ヘクト	h
10^{1}	デカ	da
10^{-1}	デシ	d
10^{-2}	センチ	c
10^{-3}	ミリ	m
10^{-6}	マイクロ	μ
10^{-9}	ナノ	n
10^{-12}	ピコ	p
10^{-15}	フェムト	f
10^{-18}	アト	a

表3　固有の名称をもつSI組立単位

量	名称	記号	他のSI単位による表現
周波数	ヘルツ	Hz	s^{-1}
力	ニュートン	N	$m\cdot kg/s^2$
圧力，応力	パスカル	Pa	N/m^2
エネルギー,仕事,熱量	ジュール	J	N·m
工率，放射束	ワット	W	J/s
電気量，電荷	クーロン	C	A·s
電位，電圧，起電力	ボルト	V	W/A
静電容量	ファラド	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジーメンス	S	A/V
磁束	ウェーバ	Wb	V·s
磁束密度	テスラ	T	Wb/m^2
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A
セルシウス温度	セルシウス度	℃	
光束	ルーメン	lm	cd·sr
照度	ルクス	lx	lm/m^2
放射能	ベクレル	Bq	s^{-1}
吸収線量	グレイ	Gy	J/kg
線量等量	シーベルト	Sv	J/kg

表4　SIと共に暫定的に維持される単位

名称	記号
オングストローム	Å
バーン	b
バール	bar
ガル	Gal
キュリー	Ci
レントゲン	R
ラド	rad
レム	rem

1 Å=0.1nm=10^{-10}m

1 b=100fm^2=10^{-28}m^2

1 bar=0.1MPa=10^5Pa

1 Gal=1cm/s^2=10^{-2}m/s^2

1 Ci=3.7×10^{10}Bq

1 R=2.58×10^{-4}C/kg

1 rad=1cGy=10^{-2}Gy

1 rem=1cSv=10^{-2}Sv

(注)

1．表1　5は「国際単位系」第5版，国際度量衡局1985年刊行による。ただし,1 eVおよび1 uの値はCODATAの1986年推奨値によった。

2．表4には海里，ノット，アール，ヘクタールも含まれているが日常の単位なのでここでは省略した。

3．barは，JISでは流体の圧力を表わす場合に限り表2のカテゴリーに分類されている。

4．EC閣僚理事会指令ではbar，barnおよび「血圧の単位」mmHgを表2のカテゴリーに入れている。

換　算　表

力	N(=10^5dyn)	kgf	lbf
	1	0.101972	0.224809
	9.80665	1	2.20462
	4.44822	0.453592	1

粘　度　1 Pa·s(N·s/m^2)=10 P(ポアズ)(g/(cm·s))

動粘度　1m^2/s=10^4St(ストークス)(cm^2/s)

圧力	MPa(=10bar)	kgf/cm^2	atm	mmHg(Torr)	lbf/in^2(psi)
	1	10.1972	9.86923	7.50062×10^3	145.038
	0.0980665	1	0.967841	735.559	14.2233
	0.101325	1.03323	1	760	14.6959
	1.33322×10^{-4}	1.35951×10^{-3}	1.31579×10^{-3}	1	1.93368×10^{-2}
	6.89476×10^{-3}	7.03070×10^{-2}	6.80460×10^{-2}	51.7149	1

エネルギー・仕事・熱量	J(=10^7 erg)	kgf·m	kW·h	cal(計量法)	Btu	ft·lbf	eV
	1	0.101972	2.77778×10^{-7}	0.238889	9.47813×10^{-4}	0.737562	6.24150×10^{18}
	9.80665	1	2.72407×10^{-6}	2.34270	9.29487×10^{-3}	7.23301	6.12082×10^{19}
	3.6×10^6	3.67098×10^5	1	8.59999×10^5	3412.13	2.65522×10^6	2.24694×10^{25}
	4.18605	0.426858	1.16279×10^{-6}	1	3.96759×10^{-3}	3.08747	2.61272×10^{19}
	1055.06	107.586	2.93072×10^{-4}	252.042	1	778.172	6.58515×10^{21}
	1.35582	0.138255	3.76616×10^{-7}	0.323890	1.28506×10^{-3}	1	8.46233×10^{18}
	1.60218×10^{-19}	1.63377×10^{-20}	4.45050×10^{-26}	3.82743×10^{-20}	1.51857×10^{-22}	1.18171×10^{-19}	1

1 cal= 4.18605J（計量法）

= 4.184J（熱化学）

= 4.1855J（15℃）

= 4.1868J（国際蒸気表）

仕事率　1 PS(仏馬力)

= 75 kgf·m/s

= 735.499W

放射能	Bq	Ci
	1	2.70270×10^{-11}
	3.7×10^{10}	1

吸収線量	Gy	rad
	1	100
	0.01	1

照射線量	C/kg	R
	1	3876
	2.58×10^{-4}	1

線量当量	Sv	rem
	1	100
	0.01	1

(86年12月26日現在)

ディスプロシウムおよびセリウムの電荷移行断面積