

JAERI-Research
98-036



ウラン原子の自動電離準位の
大きな同位体シフトの観測

1998年7月

小倉浩一・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（〒319-1195 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

ウラン原子の自動電離準位の大きな同位体シフトの観測

日本原子力研究所東海研究所物質科学研究部

小倉 浩一⁺・柴田 猛順

(1998年6月17日受理)

ウラン235を高い選択率でイオン化できる二波長二段階共鳴イオン化スキームを見い出した。このイオン化スキームの自動電離準位は大きな同位体シフト、 0.5cm^{-1} 、を持つと同時にスペクトル幅が非常に狭い。ウラン235のイオン化の高い選択性は、中間準位の同位体シフトだけではなく、自動電離準位の大きな同位体シフトと狭い線幅によるものであることがわかった。また、遅延法により、このスキームの中間準位、 23197cm^{-1} 、の寿命は215nsと求まった。

Observation of Isotope Shift in Autoionization Levels of Uranium Atom

Koichi OGURA⁺ and Takemasa SHIBATA

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

(Received June 17, 1998)

The ^{235}U was ionized with high selectivity using the two-wavelength two-step resonance photoionization. The autoionization level of this scheme has a large isotope shift of 0.51cm^{-1} and a narrow spectral line width of 0.08cm^{-1} . It was found that high selectivity of ^{235}U ionization is due to not only an isotope shift of the intermediate level but also large isotope shift and narrow spectral line of the autoionization level. The life time of the intermediate level of this ionization scheme, 23197cm^{-1} , was measured by the delayed coincidence method and was obtained to be 215ns.

Keywords: Isotope Shift, Autoionization Level, Uranium Atom, Life Time

⁺ Advanced Photon Research Center, Kansai Research Establishment

目 次

1. はじめに	1
2. 実験と結果	1
3. まとめ	5
参考文献	5

Contents

1. Introduction	1
2. Experiments and Results	1
3. Conclusion	5
References	5

This is a blank page.

1. はじめに

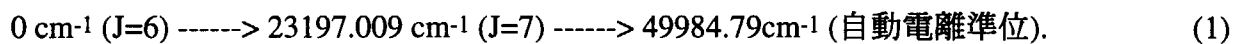
自動電離状態を経由して原子をイオン化する多段階レーザー共鳴イオン化法は原子法レーザー同位体分離などで用いられている^{1,2)}。原子法レーザー同位体分離では、同位体シフトより線幅の狭いレーザーを用いて特定の同位体のみを選択的にイオン化する²⁾。通常、自動電離準位は同位体シフトよりも大きな線幅を持つので、レーザー光の線幅よりも大きな同位体シフトをもった中間準位に励起して選択的に特定の同位体をイオン化している。原子法レーザー同位体分離では通常三波長三段階で²³⁵Uをイオン化する。このため第一段目の励起だけではなく第二段目の励起でも同位体選択性が得られるので非常に高い選択性が得られている¹⁾。著者ら^{3,4,5,6)}は原子法レーザー同位体分離の研究のうち同位体イオンを電場により回収する回収過程についての研究を用いて行ってきた。これらのイオン回収挙動の研究では特に同位体選択性は必要ないので二波長二段階共鳴イオン化法でイオン化した。この二波長二段階共鳴イオン化で²³⁵Uの選択的イオン化を試み、高い選択性を持つイオン化スキームを見いだした。このスキームの自動電離準位の同位体シフトと線幅を測定したところ同位体シフトが線幅より大きいため選択性が非常に高いことがわかった。自動電離準位の同位体シフトに関する報告はほとんどないが、Graaff等がBaのリドベルグ状態の自動電離準位の同位体シフトを測定した例がある⁷⁾。また最近、宮部らもガドリニウムの自動電離準位の同位体シフトの測定を行っている⁸⁾。ここでは、²³⁵U原子を高い選択性でイオン化できる二波長二段階共鳴イオン化スキームの自動電離準位の同位体シフトと線幅の測定結果を報告する。また、この自動電離準位付近の他のいくつかの自動電離準位の同位体シフトの測定結果も報告する。

2. 実験と結果

実験装置の概略をFig.1に示す。本装置については既に報告^{3,4)}しているので簡単に述べる。二波長二段階共鳴イオン化を行うために2台のエキシマレーザー励起の色素レーザー

1 と色素レーザー 2 を用いた。色素レーザー 1 と色素レーザー 2 はそれぞれ一段目の励起レーザー、二段目の電離レーザーとして用いた。2つのレーザー光をダイクロイックミラーで結合し、スリットにより直径 10 mm にしてウラン原子ビームに照射しイオン化した。二段目のレーザー光は一段目のレーザー光の 20 ns 後に入射した。レーザーのパルス幅は約 10 nsec であった。実験装置の真空容器の内部の概略を Fig. 2 に示す。ウラン原子ビームは水冷銅るつぼ中のウラン金属を電子ビーム加熱して生成した。ウラン原子ビームは長さ 100 mm 幅 10 mm のスリットを通過した後、平行平板電極間を通過させた。原子密度はレーザー光を照射する位置で $2 \sim 3 \times 10^{10} \text{cm}^{-3}$ であった。原子密度は水晶振動子膜厚計で測定した原子ビームフラックスから推定した。Fig. 3 にイオン検出部の概略を示す。共鳴イオン化により生成したウランイオンは蛍光分析計の横に取り付けたファラデーカップで測定した。生成イオン電流を測定する場合は、ファラデーカップを設けた蛍光分析計側の電極を接地し、質量分析計側の電極に +250 V のパルス電圧を印加してイオン電流信号を抵抗に流れる電圧として計測した。パルス電圧の幅は $80 \mu \text{sec}$ であり、レーザー照射後約 300 nsec 後に印加した。生成したイオンがすべてファラデーカップに入射するようにファラデーカップの入り口は縦長の長方形 (16 mm \times 46 mm) にした。電離スペクトルの測定はファラデーカップのイオン電流信号を 1 M Ω の抵抗で電圧に変換し、ボックスカー積分器型平均化回路で平均して出力した。

イオン化にはウラン原子を効率よくイオン化できる次のスキームを選んだ。



ガドリニウム原子のイオン化スペクトルに関する以前の報告の中で⁹⁾、中間準位の全軌道角運動量 J の値が大きい方が自動電離スペクトルの線幅が狭くレーザー光で効率的にイオン化できることを報告した。ウラン原子の基底準位は $J=6$ なので $J=7$ の中間準位¹⁰⁾ $23197.009 \text{ cm}^{-1}$ を選んだ。色素レーザー光 1 の波長を蛍光分析計で ^{238}U の準位にあわせた後、色素レーザー 2 を掃引して得た電離スペクトルの一部が Fig. 4 である。 49984.79 cm^{-1}

への遷移は他のピークに比べて線幅が狭くしかも電離断面積が大きいのでこの準位を選んだ。なお、中間準位 23197.009cm^{-1} の寿命は報告されていないので色素レーザー1と色素レーザー2の照射の時間差を変えて生成されるイオン量の変化を測定して寿命を求めた。結果をFig.5に示す。Fig.5の結果より寿命は 215ns と求まった。

次にこのスキームを用いて ^{235}U のみを選択的にイオン化することを試みた。色素レーザー1と色素レーザー2のレーザー強度はそれぞれ $14\mu\text{J}/\text{cm}^2$ 、 $100\mu\text{J}/\text{cm}^2$ 、色素レーザー1と色素レーザー2の線幅はそれぞれ 0.04cm^{-1} と 0.29cm^{-1} にした。ここで用いた中間準位の同位体シフト⁴⁾は約 0.170cm^{-1} なので色素レーザー1の線幅は中間準位の同位体シフトよりも狭く一段目のレーザー光によって ^{235}U を選択的に励起できると考えた。一段目のレーザー光は ^{235}U の中間準位に調整した。レーザー照射後 300ns 後に電圧を平行平板電極に印加し四重極質量分析器にイオンを入射する。 ^{238}U も色素レーザー1のスペクトルの裾の部分で励起されイオン化されるが、電離に用いる色素レーザー2の波長を $^{235}\text{U}^+$ のピークが最大になるように合わせると、Fig.6に示すように $^{235}\text{U}^+$ の割合を90%にすることができた。

上記のような高い選択性が得られた理由を調べるためこの自動電離準位の同位体シフトを測定した。色素レーザー1の波長を ^{235}U の遷移の波長に合わせた後、色素レーザー2の波長を $373.27\sim 372.98\text{nm}$ の範囲を掃引した。質量分析器は $^{238}\text{U}^+$ あるいは $^{235}\text{U}^+$ のみを検出するように調整し、 $^{238}\text{U}^+$ または $^{235}\text{U}^+$ のスペクトルを取得した。Fig.7に $373.27\sim 373.17\text{nm}$ の範囲のスペクトルを例として示す。Fig.7で○印を付けた遷移のエネルギーは 49984.79cm^{-1} に対応している。Fig.7より $^{238}\text{U}^+$ と $^{235}\text{U}^+$ のピーク比は60:25なので電離段で選択性がなければ $^{235}\text{U}^+$ の濃縮度は30%程度にしかならないはずである。ところが、図のようにこの電離段の ^{235}U と ^{238}U の同位体シフトは 0.34cm^{-1} であり、電離用レーザー光の線幅 0.29cm^{-1} より大きい。このため、 $^{235}\text{U}^+$ の濃縮度が90%にもなっていることがわかる。このイオン化に用いた中間準位の同位体シフト⁴⁾は約 0.170cm^{-1} であるので自動電離

状態の同位体シフトは 0.51cm^{-1} と求まる。 Δ で示した他の遷移の同位体シフトはそれぞれ 0.29cm^{-1} と 0.11cm^{-1} である。矢印で示した遷移は次の一波長二段階共鳴イオン化に対応している。

$$0\text{ cm}^{-1} (J=6) \text{ -----} \rightarrow 26791.657\text{ cm}^{-1} (J=6) \text{ -----} \rightarrow 53583.3\text{ cm}^{-1} (\text{連続状態}). \quad (2)$$

スペクトルからこの遷移の同位体シフトは 0.22cm^{-1} である。この同位体シフトは報告値⁴⁾の 0.200cm^{-1} に近い。さらに、 $^{238}\text{U}^{+}$ と $^{235}\text{U}^{+}$ の割合は自然同位体存在比に近い。Table Iに、二段目のレーザー光の波長を $373.27\sim 372.98\text{nm}$ まで掃引して得たいくつかの自動電離準位の同位体シフトを示す。同位体シフトの大きさが $0.28\sim 0.53\text{cm}^{-1}$ までの大きな同位体シフトをもった自動電離準位があることがわかる。

Fig.7の自動電離準位のみかけの線幅は 0.2cm^{-1} である。この線幅はレーザーの線幅にほぼ等しいので自動電離準位の線幅は 0.2cm^{-1} よりも狭い。この自動電離準位の線幅を測定するには電離用レーザー光の線幅を 0.2cm^{-1} より狭くする必要がある。このため色素レーザー2を一段目のレーザーとして用い線幅が 0.04cm^{-1} の色素レーザー1を電離用レーザーとして用いた。色素レーザー1と色素レーザー2では波長域が異なるので色素レーザー2を励起用レーザーとして用いると同じイオン化スキームでウラン原子をイオン化することができない。しかし、スキーム(1)の中間準位の全角運動量 $J=7$ と同じく $J=7$ の中間準位 26758.885cm^{-1} を用い次のスキームでFig.7の自動電離に遷移させた。

$$0\text{ cm}^{-1} (J=6) \text{ -----} \rightarrow 26758.885\text{ cm}^{-1} (J=7) \text{ -----} \rightarrow 49984.79\text{ cm}^{-1} (\text{自動電離}). \quad (3)$$

Fig.8に、上記の中間準位を用いたときの電離スペクトルを示す。この図の横軸は電離準位のエネルギーにしている。Fig.7で○印で示したスペクトル 49984.79cm^{-1} は共通に励起されていることがわかる。一段目のレーザー光を ^{238}U に合わせた後、二段目のレーザー光を掃引してFig.9に示すスペクトルが得られた。Fig.9の二つの線スペクトルのエネルギー差と比較して自動電離準位 49984.79cm^{-1} のスペクトル幅は 0.08cm^{-1} と求まる。スペクトルの幅はレーザーの幅 0.04cm^{-1} を含んでいるので真の自動電離スペクトルの幅は 0.08cm^{-1} より

狭いことがわかる。

以上のように49984.79cm⁻¹の自動電離準位は大きな同位体シフトと狭い線幅を持っている。このためFig.6に示したような²³⁵Uのイオン化における高い選択性が得られたことがわかった。

3. まとめ

²³⁵Uを高い選択率でイオン化できる二波長二段階共鳴イオン化スキームを見出した。このイオン化スキームの自動電離準位は大きな同位体シフトを持つと同時にスペクトル幅が非常に狭い。この²³⁵Uのイオン化における高い選択性は、中間準位の同位体シフトだけではなく自動電離準位の大きな同位体シフトと狭い線幅によるものであることがわかった。

なお、本研究は科学技術庁からの受託研究「レーザー法ウラン濃縮技術開発」で得られた研究成果の一部である。

参考文献

- 1) J.A.Paisner: Appl.Phys.B **46** (1988) 253.
- 2) P.T.Greenland: Contemporary Physics **31** (1990) 405.
- 3) 小倉浩一、有澤 孝、小堀 章、柴田猛順：
日本原子力研究所研究報告書 JAERI-M 90-162 (1990).
- 4) 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).
- 5) K.Ogura, T.Arisawa, and T.Shibata: Jpn.J.Appl.Phys.**31** (1992) 1485.
- 6) K.Ogura and T.Shibata: Jpn.J.Appl.Phys.**33** (1994) L131.
- 7) R.J.de Graaff, E.A.J.M.Bente, and W.Hogervorst: Phys.Rev.A **37** (1988) 4532.
- 8) 宮部昌文、大場正規、若井田育夫：
日本原子力研究所研究報告書 JAERI-Research 97-08 (1997).
- 9) 小倉浩一、柴田猛順：日本原子力研究所研究報告書 JAERI-M 91-221 (1992).
- 10) J.Blaise and L.J.Radziemski, Jr.: J.Opt.Soc.Am., **66** (1976) 644.

Table I

Energy and isotope shift of autoionization levels

Energy (cm ⁻¹)	Isotope Shift (cm ⁻¹)
49984.79	0.51
49983.17	0.28
49982.54	0.46
49988.10	0.47
49992.33	0.53
49995.85	0.31
49997.43	0.39

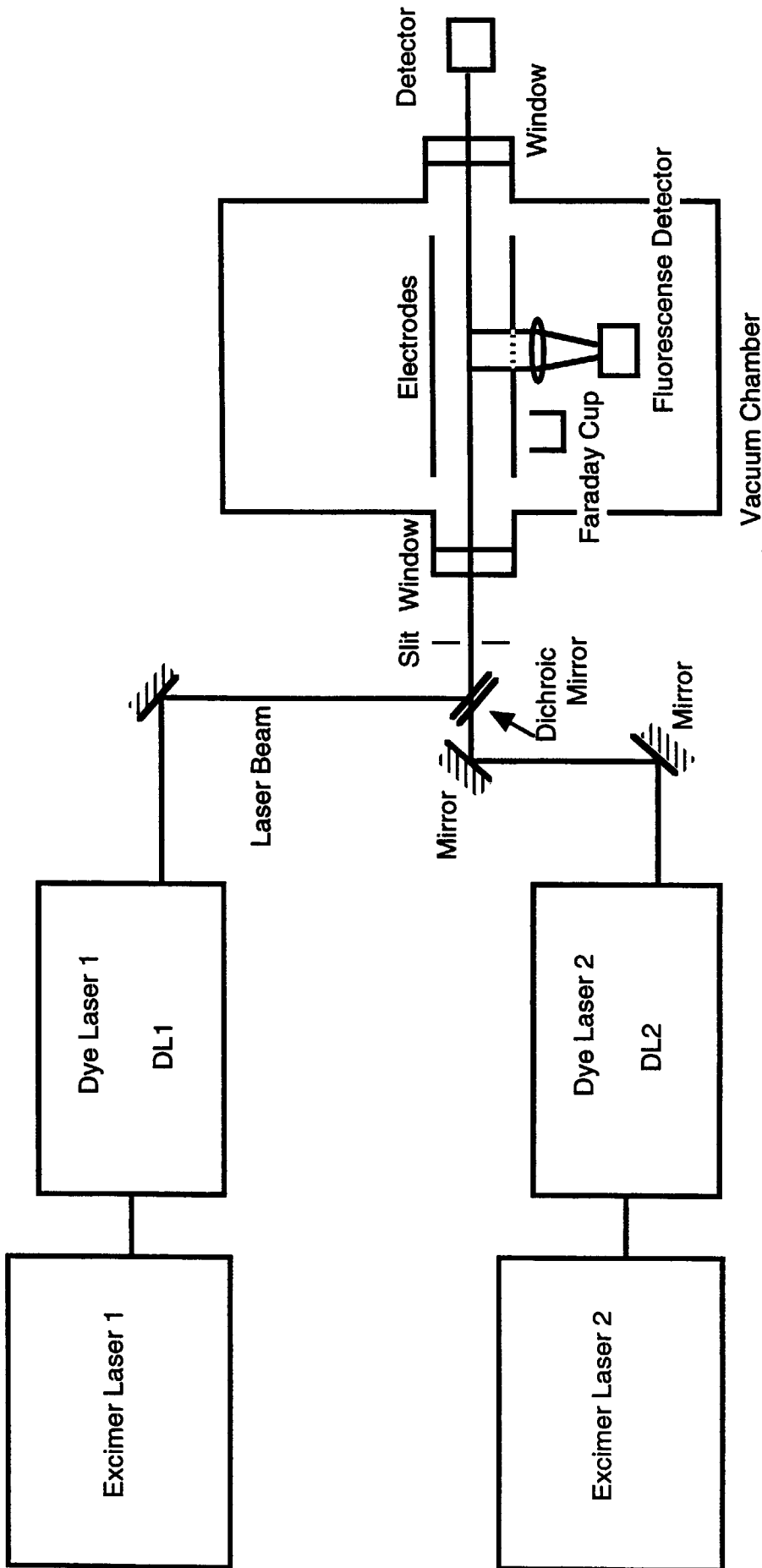


Fig.1. Schematic view of the experimental setup.

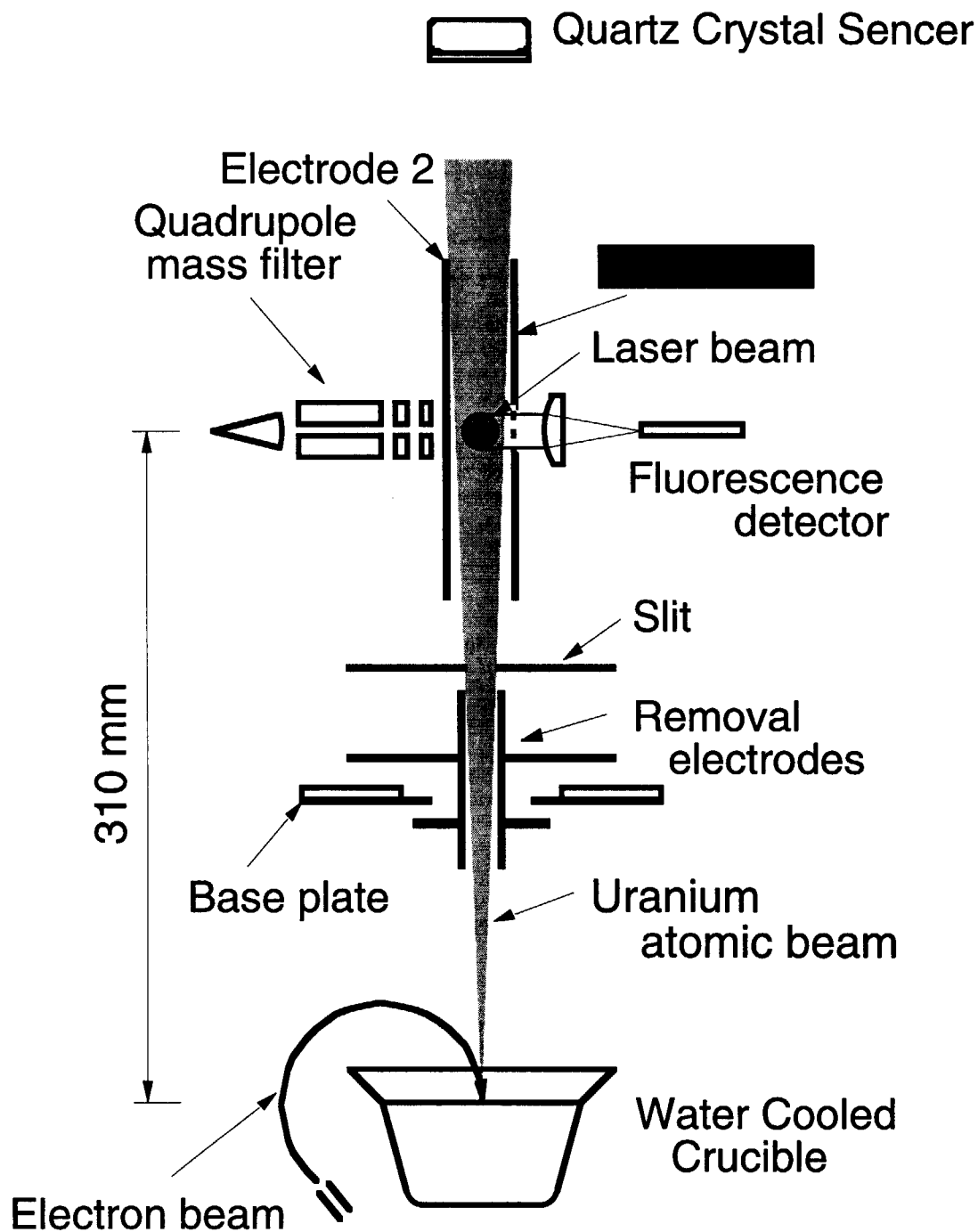


Fig.2. Schematic view of the experimental apparatus in vacuum chamber.

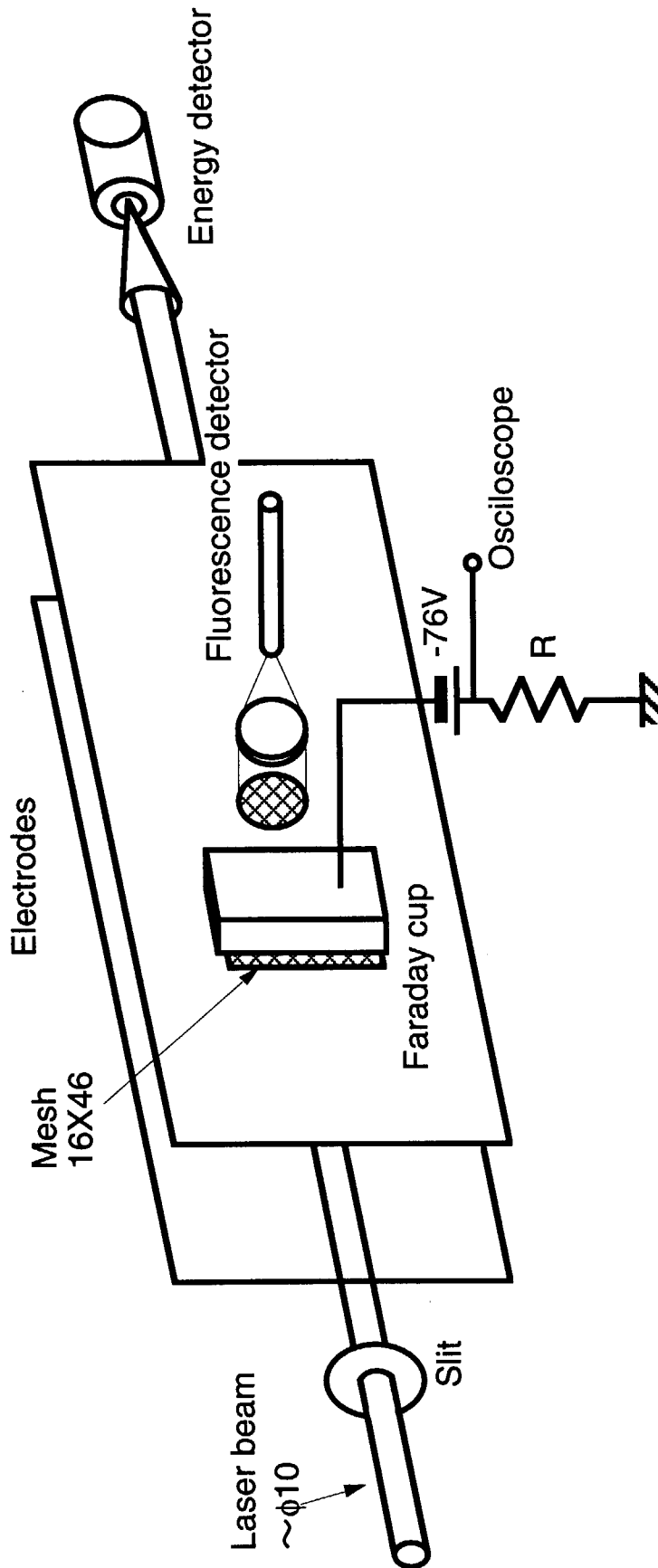


Fig.3. Schematic view of the ion detection region.

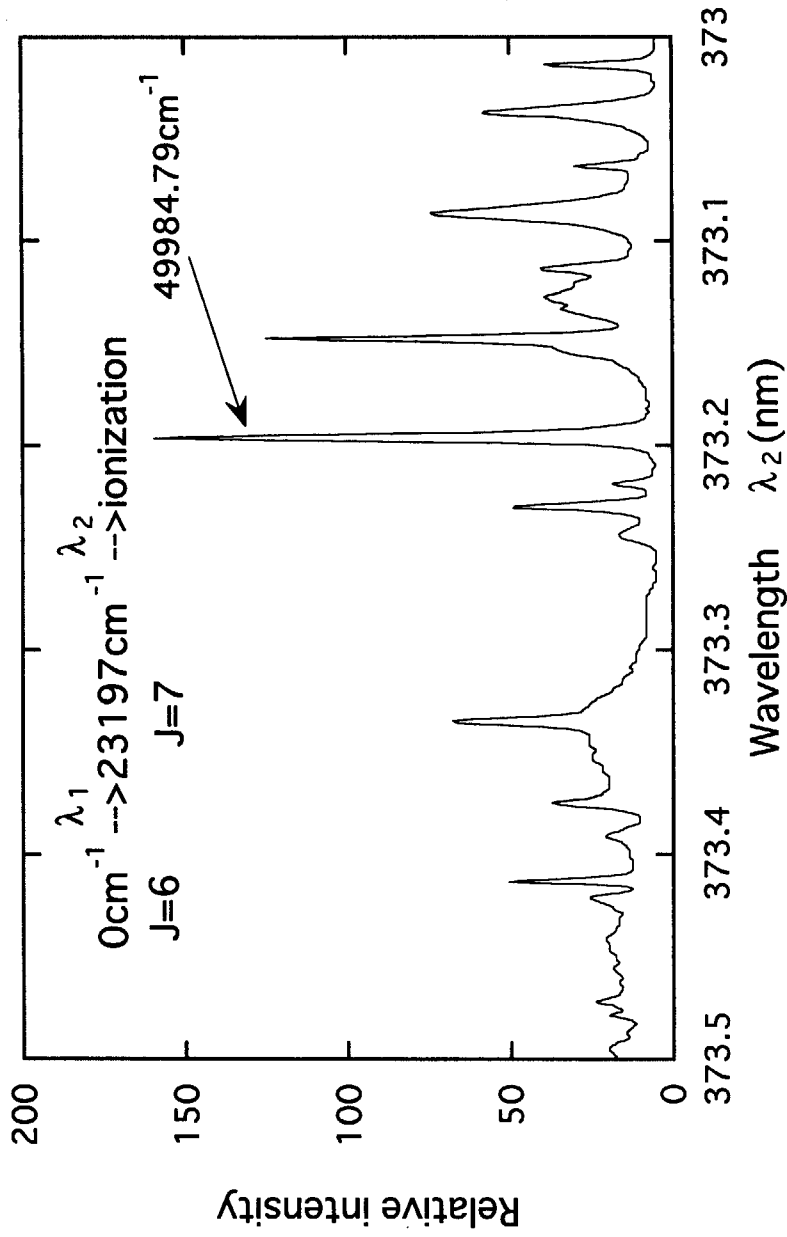


Fig.4. Photoionization spectra of U atom by two step two photon resonance photoionization. The spectra were obtained using the intermediate level of $23197.009 \text{ cm}^{-1}$ ($J=7$).

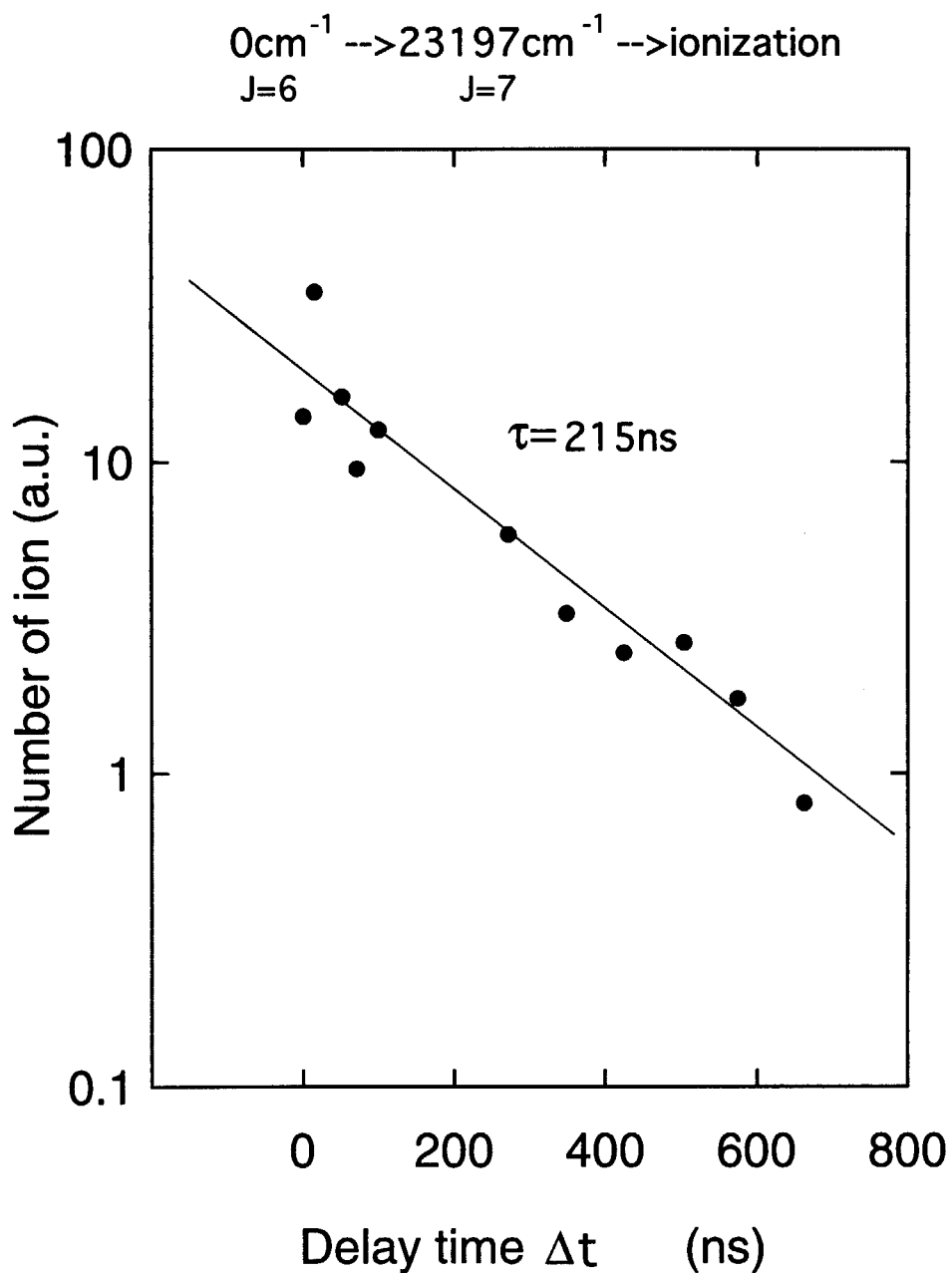


Fig.5. The life time of the level of 23197cm^{-1} ($J=7$) was measured by delayed coincidence method. The x-axis indicates the delay-time Δt between the first step laser and the second step laser. The life time of the level is obtained to be 215ns.

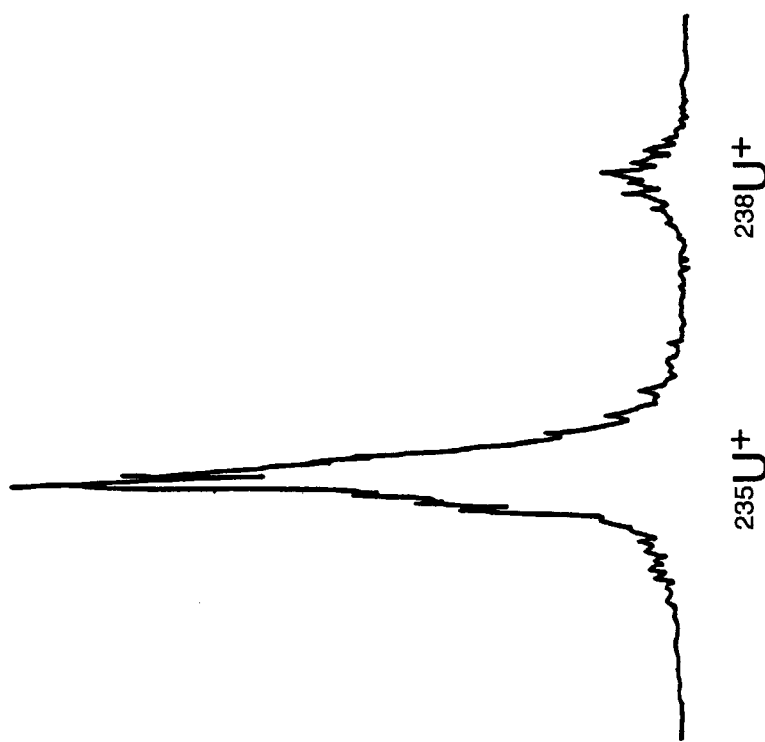


Fig.6. Mass spectrum of $^{235}\text{U}^+$ and $^{238}\text{U}^+$ produced by two step two photon resonance photoionization with the intermediate level of 23197.009cm^{-1} and the autoionization level 49984.79cm^{-1} .

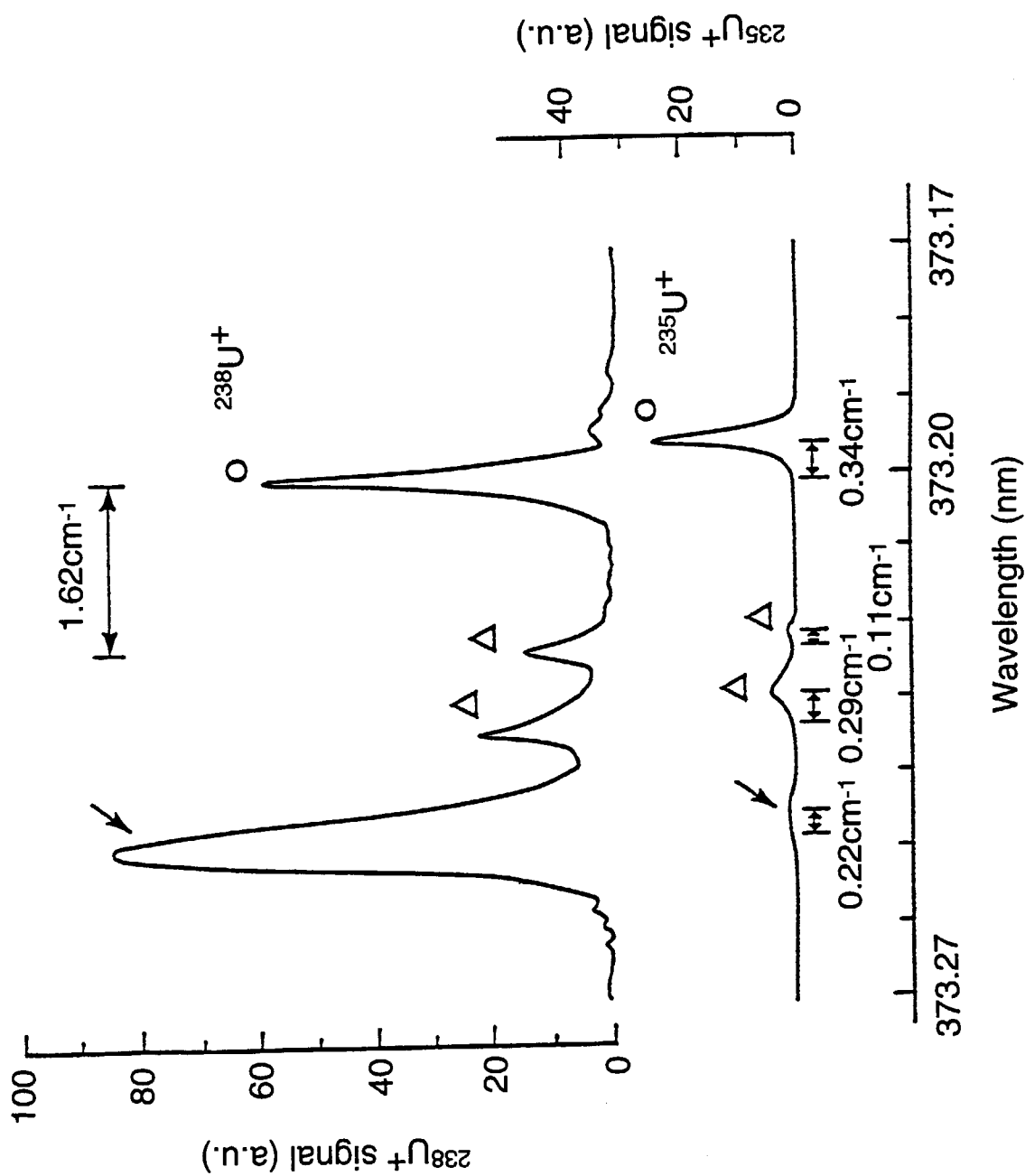


Fig.7. Photoionization spectra of ^{235}U and ^{238}U . The spectrum lines shown with the open circle correspond to the level of 49984.79cm^{-1} . The isotope shifts of the spectra are also shown.

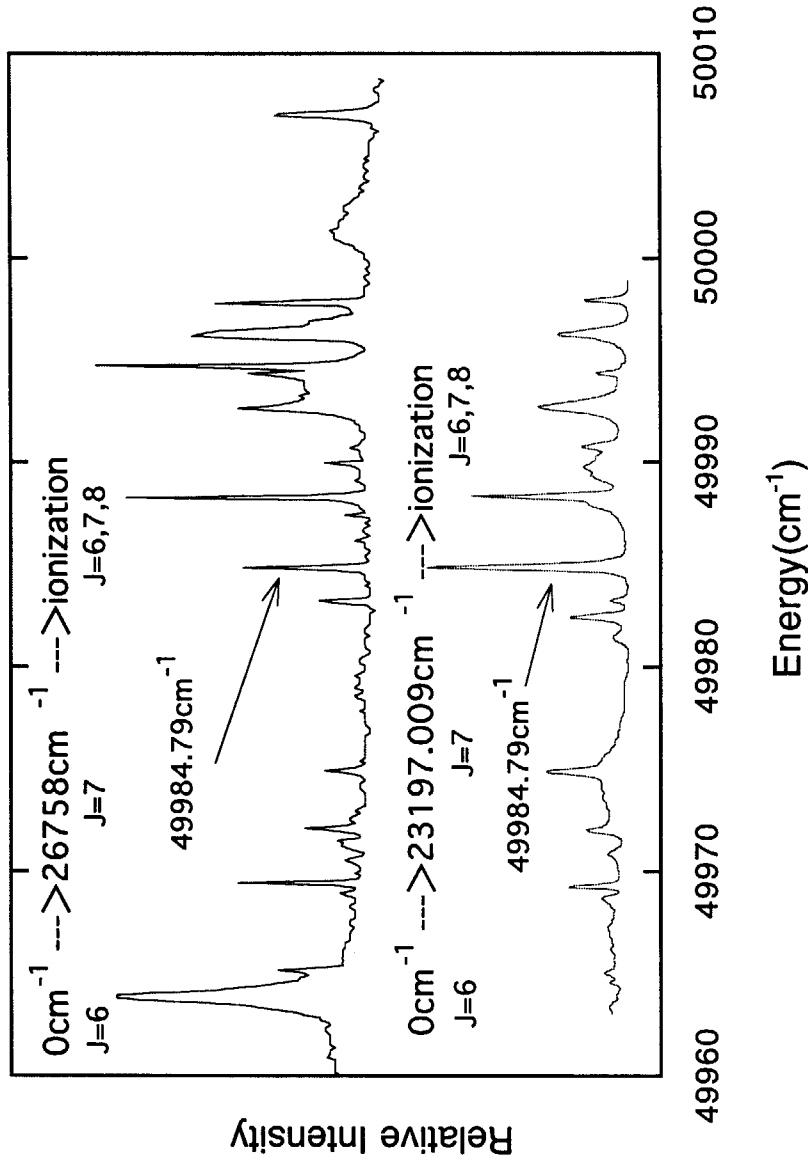


Fig.8. Photoionization spectra of ²³⁸U obtained. The spectra were obtained using the intermediate level of 26758.885cm⁻¹ (J=7) and 23197.009cm⁻¹ (J=7). The autoionization level of 49984.79cm⁻¹ was excited from the intermediate level of 26758.885cm⁻¹ (J=7) and 23197.009cm⁻¹ (J=7) in common.

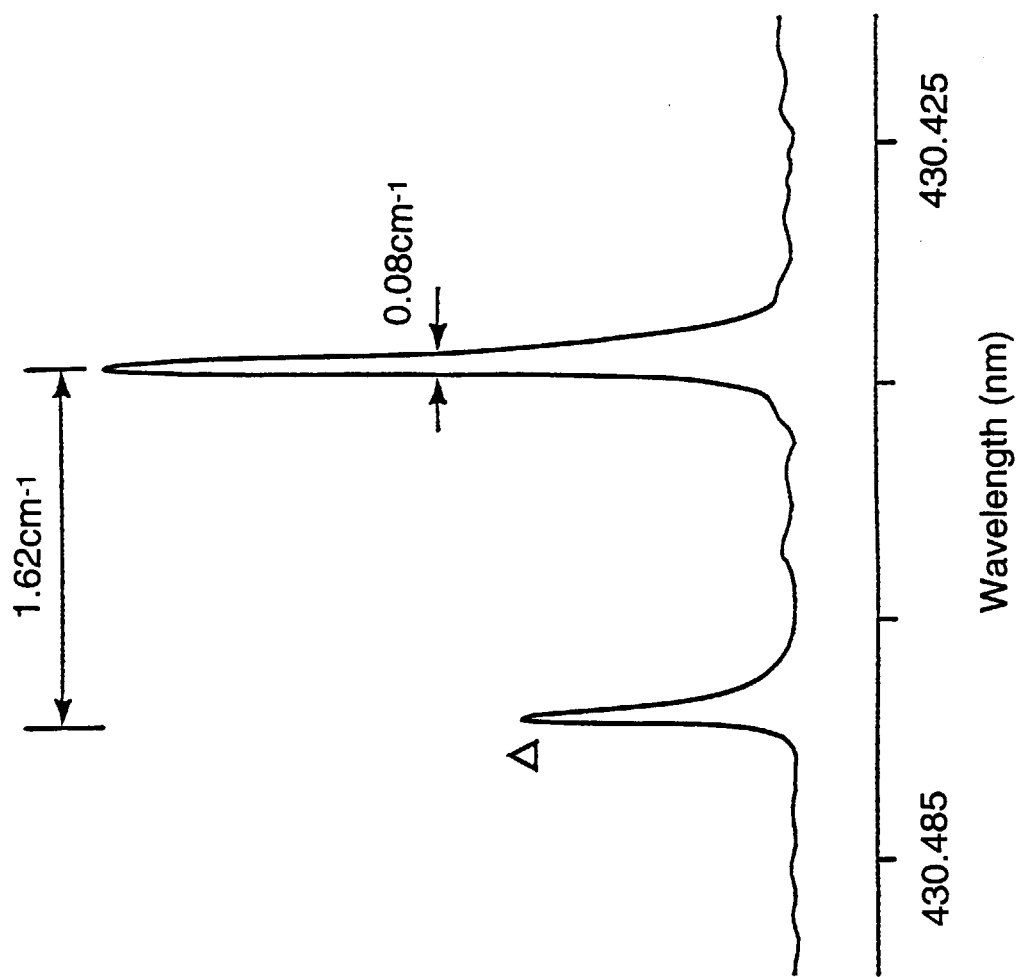


Fig.9. The autoionization spectrum in the case of scanning the wavelength of second step laser with line width of 0.04cm^{-1} . The right line is an ion signal from the autoionization state of 49984.79cm^{-1} indicated in Fig.2.

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·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	°C	
光束度	ルーメン	lm	cd·sr
照射度	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=1.60218×10⁻¹⁹J
1 u=1.66054×10⁻²⁷kg

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
バル	bar
ガリ	Gal
キュリー	Ci
レントゲン	R
ラド	rad
レム	rem

1 Å=0.1nm=10⁻¹⁰m
1 b=100fm²=10⁻²⁸m²
1 bar=0.1MPa=10⁵Pa
1 Gal=1cm/s²=10⁻²m/s²
1 Ci=3.7×10¹⁰Bq
1 R=2.58×10⁻⁴C/kg
1 rad=1cGy=10⁻²Gy
1 rem=1cSv=10⁻²Sv

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

(注)

- 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, 1eVおよび1uの値はCODATAの1986年推奨値によった。
- 表4には海里, ノット, アール, ヘクト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。
- 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。
- 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 ⁵ dyn)	kgf	lbf
	1	0.101972	0.224809
	9.80665	1	2.20462
	4.44822	0.453592	1

粘 度 1 Pa·s(N·s/m²)=10 P(ポアズ)(g/(cm·s))

動粘度 1 m²/s=10⁴St(ストークス)(cm²/s)

圧	MPa (=10bar)	kgf/cm ²	atm	mmHg(Torr)	lbf/in ² (psi)
	1	10.1972	9.86923	7.50062×10 ⁴	145.038
力	0.0980665	1	0.967841	735.559	14.2233
	0.101325	1.03323	1	760	14.6959
	1.33322×10 ⁻¹	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 ³	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°C)
= 4.1868J (国際蒸気表)
仕事率 1 PS(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

ウラン原子の自動電離準位の大きな同位体シフトの観測