

JAERI-Research  
98-060



ウラン光電離スペクトルのシュタルク効果と  
定常電圧印加回収時の同位体分離

1998年11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。

入手の問い合わせは、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）で複写による実費領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

ウラン光電離スペクトルのシュタルク効果と定常電圧印加回収時の同位体分離

日本原子力研究所東海研究所物質科学研究部

小倉 浩一<sup>+</sup>・柴田 猛順

(1998年10月1日受理)

ウラン 235 を高い選択性でイオン化できる2波長2段階共鳴イオン化スキームの自動電離準位は電場ではその線幅がほとんど広がらずシュタルク効果が非常に小さいことを明らかにした。このイオン化スキームを用いて回収電極に定常電圧を印加したままで同位体分離実験を行った。その結果、イオン量、同位体比とも、レーザー照射直後にパルス電圧を印加した場合とほとんど同じであった。このことからシュタルク効果が小さく線幅が広がらない自動電離準位を用いればパルス電圧を用いず定常電圧でイオンを回収でき装置が簡単になることがわかった。

**Stark Effect on Photoionization Spectra of Uranium and  
Uranium Isotope Separation under DC Voltage**

**Kouichi OGURA<sup>+</sup> and Takemasa SHIBATA**

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

(Received October 1, 1998)

The effect of an electric field on an autoionization level of a resonance photoionization scheme which can ionize uranium 235 with high selectivity was investigated. Broadening of the autoionization level was not observed under the electric field and Stark effect was very small. Pulse voltage or DC voltage was applied to collection electrodes and the isotope separation experiment was carried out using above ionization scheme. Ion yield and isotope abundance did not change. It was shown that one can collect isotope ions using DC voltage which is simpler than pulse voltage if Stark effect on the autoionization level of the photoionization scheme is very small.

**Keywords: Stark Effect, Autoionization Level, Laser, Isotope Separation,  
Uranium**

---

<sup>+</sup>Advanced Photon Research Center, Kansai Research Establishment

## 目 次

1. はじめに .....	1
2. 自動電離準位のシュタルク効果 .....	2
2.1 測定方法 .....	2
2.2 測定結果 .....	3
3. 定常回収電圧下での同位体分離実験 .....	4
3.1 実験方法 .....	4
3.2 実験結果 .....	5
4. おわりに .....	5
参考文献 .....	6

## Contents

1. Introduction .....	1
2. Strak Effect on Autoionization Level .....	2
2.1 Measurement Method .....	2
2.2 Measurement Results .....	3
3. Isotope Separation under DC Voltage .....	4
3.1 Experimental Method .....	4
3.2 Experimental Results .....	5
4. Conclusion .....	5
References .....	6

This is a blank page.

## 1. はじめに

原子法レーザー同位体分離では原子ビーム中の目的とする同位体の原子のみをレーザー光でイオン化してこれを電場で回収電極に回収する<sup>1)</sup>。目的とする同位体の原子の光イオン化は自動電離準位に励起して行なう。これは、自動電離準位を経由する光イオン化の断面積は連続状態への直接光イオン化断面積に比べてけた違いに大きく弱いレーザー光でも効率的にイオン化できるためである。自動電離準位には目的とする同位体の原子の(a) 励起準位に収束する高リドベルグ準位、(b) 2電子励起準位、(c) 内殻励起準位、の3種類がある<sup>2)</sup>。原子法レーザー同位体分離では3波長3段階または2波長2段階の共鳴イオン化で目的とする同位体の原子をイオン化するので(a)または(b)の自動電離準位を用いる。(c)の内殻励起準位はエネルギーがイオン化エネルギーよりかなり高いためレーザーによる共鳴イオン化ではほとんど用いられない。(a)の高リドベルグ準位は水素原子と同様に一次のシュタルク効果を示してその効果は非常に大きい。このため低い電場でもその線幅は広がってしまう<sup>2,3)</sup>。これに対して(b)の2電子励起準位では通常原子と同様に二次のシュタルク効果を示しそのシフト量、広がりはいさいと考えられる。しかし、ウランのような複雑な電子構造を持つ原子では励起準位の準位密度が高い。特にイオン化を越える自動電離準位の準位密度は非常に高いので水素原子と同様に偶然縮退によりシュタルク効果が大きくなってしまう場合も多いと考えられる。Mishin等はGdで非常に線幅の狭い自動電離準位を見出している<sup>4)</sup>。高リドベルグ準位ではないにもかかわらずシュタルク効果が大きく、非常に低い電場でスペクトルが広がってしまう。シュタルク効果の大きい自動電離準位を用いると電場中ではレーザー光で電離される原子の割合は小さくなってしまう。このためレーザーによる電離の時は原子を電場のない状態にしておく必要がありレーザー照射直後に回収電極にパルス電圧を印加するのが一般的である。

著者等<sup>5,6)</sup>は天然ウランの2波長2段階選択電離で90%の<sup>235</sup>Uイオンを生成できるスキームを見出した。このとき用いた2波長2段階電離スキームは電離段にも $0.34\text{cm}^{-1}$ という大きい同位体シフトがあることを報告している。自動電離準位が高い

ドベルグ準位ならば1段目のレーザーで励起された電子を2段目のレーザーでさらに励起するのでその同位体シフトは小さいと考えられる。これに対し1段目のレーザーでは励起されていないウランのs電子を2段目のレーザーで励起して2電子励起準位の自動電離準位に励起すれば電離段でも大きい同位体シフトを期待できる。著者等が90%の $^{235}\text{U}$ イオン生成に用いた自動電離準位は大きい同位体シフトを持っているので2電子励起準位でシュタルク効果も小さい可能性がある。シュタルク効果の小さい自動電離準位を用いれば回収電極に定常電圧を印加したままで電離及びイオン回収ができ、通常用いているパルス電圧印加方式より装置が簡単になる可能性がある。

ここでは、上記の可能性をみるために90%の $^{235}\text{U}$ イオン生成に用いたスキームの自動電離準位とその近辺の準位のシュタルク効果を調べ、さらに回収電極に定常電圧を印加したまま同位体分離実験を行ないパルス電圧印加の場合と比較した。

## 2. 自動電離準位のシュタルク効果

### 2. 1 測定方法

実験装置の概略をFig. 1 に示す。実験装置は2台のエキシマレーザー励起の色素レーザーと真空装置からなる。Fig. 2 には本装置の真空装置内部の概要を示す。本装置についてはすでに報告<sup>5,7)</sup>してあるので本測定に直接関係する部分についてのみ述べる。間隔が2 cmの回収電極間に電子ビーム加熱で生成したウラン原子ビームを導き、エキシマレーザー励起の色素レーザー光を照射した。測定時の電子ビーム入力は6~7kWであった。このとき水晶振動子膜厚計で測定した蒸着速度は0.7~1.5 Å/sであった。2台の色素レーザーは約20nsずらしてウラン原子ビームを照射した。色素レーザー光は2台ともビームエキスパンダーで広げ、スリットで直径10mmにして真空容器内に入射した。色素レーザー光の線幅はいずれも0.2cm<sup>-1</sup>で実験を行なった。レーザー光により電離したウランイオンの測定にはFig. 3 に示すファラデーカップを用いた。イオンをファラデーカップに入れるための回収電極の穴にも43%透過率のメッシュを張った。ファラデーカップ側の回収電極を接地し、反対側



の回収電極に定常電圧を印加してイオン化時のシュタルク効果を調べた。レーザーによる電離が行われた直後にさらにパルス電圧を印加してイオンをファラデーカップに入れた。このとき定常電圧とパルス電圧の和を一定にしてレーザー生成プラズマに印加されるイオン回収電圧が変化しないようにした。二段目の電離用レーザー光の波長を掃引して電離スペクトルを取得した。電離スペクトルを取得する時はファラデーカップの出力を1M $\Omega$ 入力の直流アンプに接続しその出力をボックスカー平均回路に入れた。ファラデーカップと1M $\Omega$ 入力の直流アンプは積分回路となっているので出力信号波形のピークの値はファラデーカップに入ったイオンの電荷量に比例している。蒸発部生成の荷電粒子を取り除くために除去電極に-200Vを印加した<sup>8)</sup>。

## 2. 2 測定結果

1段目の波長をレーザー誘起蛍光を用いて0  $\rightarrow$  23197cm<sup>-1</sup>の遷移に合あわせた後、二段目の波長を373.5nmより373.0nmまで掃引して電離スペクトルを取得した。結果をFig. 4に示す。いずれのスペクトルもイオン回収に用いた電圧は400Vでシュタルク効果をみるための電圧は0~400Vまで変えてみた。

90%の<sup>235</sup>Uイオン生成に用いた電離準位は図の◎印でレーザー照射時に400Vを回収電極に印加しても線幅も広がらずスペクトルのピークでの電離確率も減少していないことがわかる。○印を付けた準位もシュタルク効果がほとんど見られない。

これに対し△印の準位は50V印加でスペクトルの線幅が広がり始め、400V印加ではピークが認められない。リドベルグ準位のエネルギーは次の式で与えられる。

$$E_n = I - R/(n^*)^2$$

ここでn\*は有効主量子数、Iはこのリドベルグ系列が収束するイオン化ポテンシャル、Rはリドベルグ定数(109737.31534cm<sup>-1</sup>)である。△印の準位は高リドベルグ準位と考えられるので、たとえば、ウランイオンの第1励起準位<sup>9)</sup>289cm<sup>-1</sup>または第2励起準位<sup>9)</sup>914cm<sup>-1</sup>に収束すると仮定して有効主量子数を求めることができる。計算した有効主量子数をいくつかの準位について図中に記入した。上段が289cm<sup>-1</sup>に下段の括弧の中が914cm<sup>-1</sup>に収束したと仮定したときの有効主量子数である。水素様原子の

エネルギー準位の一次のシュタルク効果は次の式

$$E^{(1)} = (3/2) n (n_1 - n_2) \mathcal{E}$$

で与えられる<sup>10)</sup>。ここで $E^{(1)}$ は一次のシュタルク効果による各準位のシフト量、 $n$ は主量子数、 $n_1$ 、 $n_2$ は水素原子を放物座標で解いたときの量子数であり

$n = n_1 + n_2 + |m| + 1$ の関係がある。ここで $m$ は磁気量子数である。 $\mathcal{E}$ は電場で、この式の単位は原子単位である。主量子数 $n$ の準位は $n^2$ 個の状態がある。また主量子数 $n$ の準位がシュタルク効果で広がったときの両端の準位の間隔 $\Delta E$ は

$$\Delta E = 3 n (n - 1) \mathcal{E}$$

である。 $n^*$ が約20または約10のとき100V印加時すなわち50V/cmでの両端の準位の間隔を上式を用いて見積もると2.4cm<sup>-1</sup>、0.7cm<sup>-1</sup>となる。Fig. 4には各定常電圧での $n^*$ が約20または約10の両端準位の間隔を矢印で示した。 $n^*=10$ とすれば、定常電圧100V ( $\mathcal{E} = 50\text{V/cm}$ )での広がり の推定値は0.7cm<sup>-1</sup>でレーザーの半値幅0.2cm<sup>-1</sup>と同程度なので高リドベルグ準位は少し広がるだけであるが、200V印加では大きく広がりピークも小さくなっている。また、Fig.4の右端のスペクトルも100V印加ではまだピークが認められるが、200V印加では大きく広がりピークがほとんど認められない。このため、これらの自動電離準位の $n^*$ も10程度と思われる。

### 3. 定常回収電圧下での同位体分離実験

#### 3. 1 実験方法

前節で述べたように天然ウランの2波長2段階選択電離で90%の<sup>235</sup>Uイオンを生成するのに用いた自動電離準位はシュタルク効果が非常に小さいことが明らかになった。そこで回収電極に定常電圧を印加したままで同位体分離実験を行ないパルス回収電圧印加の場合との比較を行った。この実験では90%の<sup>235</sup>Uイオンを生成するイオン化スキームの1段目の色素レーザーはエタロンを用いて線幅を0.04cm<sup>-1</sup>にして行なった。Fig.3に示したイオン回収部に設置した質量分析側の回収電極をアース

電位にし、反対側の回収電極には定常電圧またはレーザー光照射後パルス電圧を印加して生成イオンを四重極質量分析計に導いた。64Hzの繰り返しでレーザーパルスをウラン原子ビームに照射しながら四重極質量分析計の質量数を掃引してレーザーイオン化で生成されるイオンの同位体比を測定した。

### 3. 2 実験結果

Fig. 5 は天然ウランの2波長2段階選択電離で得られたウランイオンの質量分析結果で(a)はパルス電圧印加で(b)は定常電圧印加で得たものである。いずれの場合も回収電極には130Vの電圧を印加して生成イオンを質量分析計に導いた。(a)(b)を比較すると $^{235}\text{U}$ と $^{238}\text{U}$ のイオン量、同位体比ともパルス電圧印加方式でほとんど変化していない。これは電圧で線幅が広がらない自動電離準位を用いれば回収電極への印加電圧を定常電圧にできることを示している。

### 4. おわりに

天然ウランから2波長2段階選択電離で90%の $^{235}\text{U}$ イオンを生成できる自動電離準位のシュタルク効果が非常に小さく、電場で線幅がほとんど広がらないことを明らかにした。

90%の $^{235}\text{U}$ イオンを生成できる自動電離準位のシュタルク効果が非常に小さいことが明らかになったので回収電極に定常電圧を印加したままで同位体分離実験を行ないパルス電圧印加の場合と比較してみた。 $^{235}\text{U}$ と $^{238}\text{U}$ のイオン量、同位体比とも電圧印加方式でほとんど変化しなかった。これはシュタルク効果の小さい自動電離準位を用いれば回収電極に定常電圧を印加したままで電離及びイオン回収ができ、通常用いているパルス電圧印加方式より装置を簡単にできることを示している。

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) P.T.Greenland:Contemporary Physics **31** (1990) 405.
- 2) V.S.Letokhov: *Laser Photoionization Spectroscopy* (Academic Press, New York, 1987) p.63.
- 3) A. Coste, R. Avril, P. Blancard, J. Chatelet, D. Lambert, and J. Lerge:  
J. Opt. Soc.Am., **72** (1982) 103.
- 4) V.I.Mishin, G.G.Lambardi, and J.W.Cooper: Phys.Rev.**A35** (1987) 664.
- 5) 小倉浩一、柴田猛順:JAERI-Research 98-036 (1998).
- 6) 小倉浩一、有沢孝、柴田猛順:JAERI-M 91-222 (1992).
- 7) 小倉浩一、有沢孝、柴田猛順:JAERI-M 91-221 (1992).
- 8) H.Ohba, A.Nishimura, K.Ogura, and T.Shibata: Rev.Sci.Ins. **65** (1994) 657.
- 9) J.Blaise and L.J.Radziemski,Jr.:J.Opt.Soc.Am.,**66** (1976) 644.
- 10) ランダウ、リフシツ (佐々木健、好村滋洋 訳) :”量子力学1”、  
(東京図書、1985) p.336.

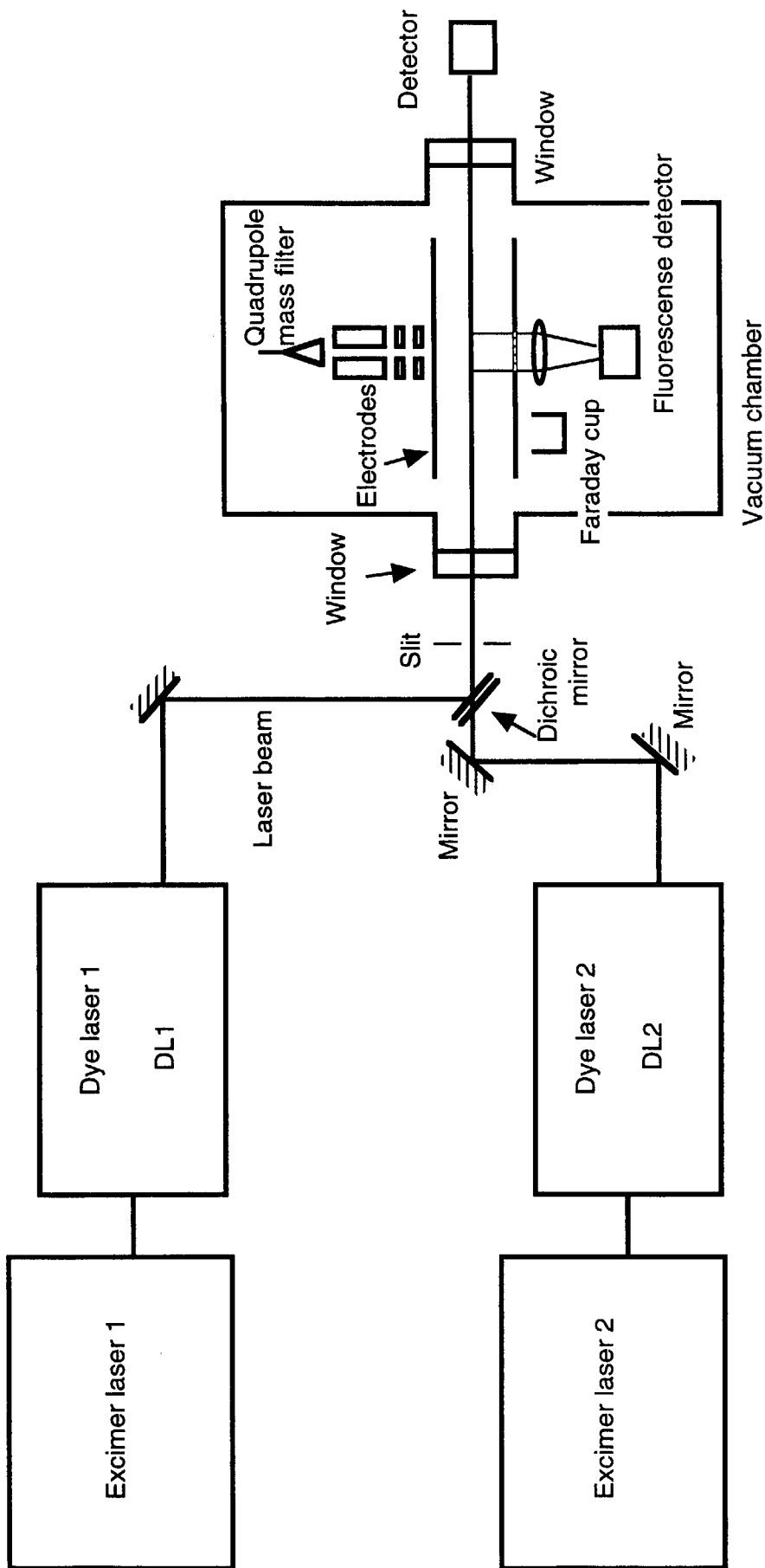


Fig.1. A schematic diagram of an experimental apparatus.

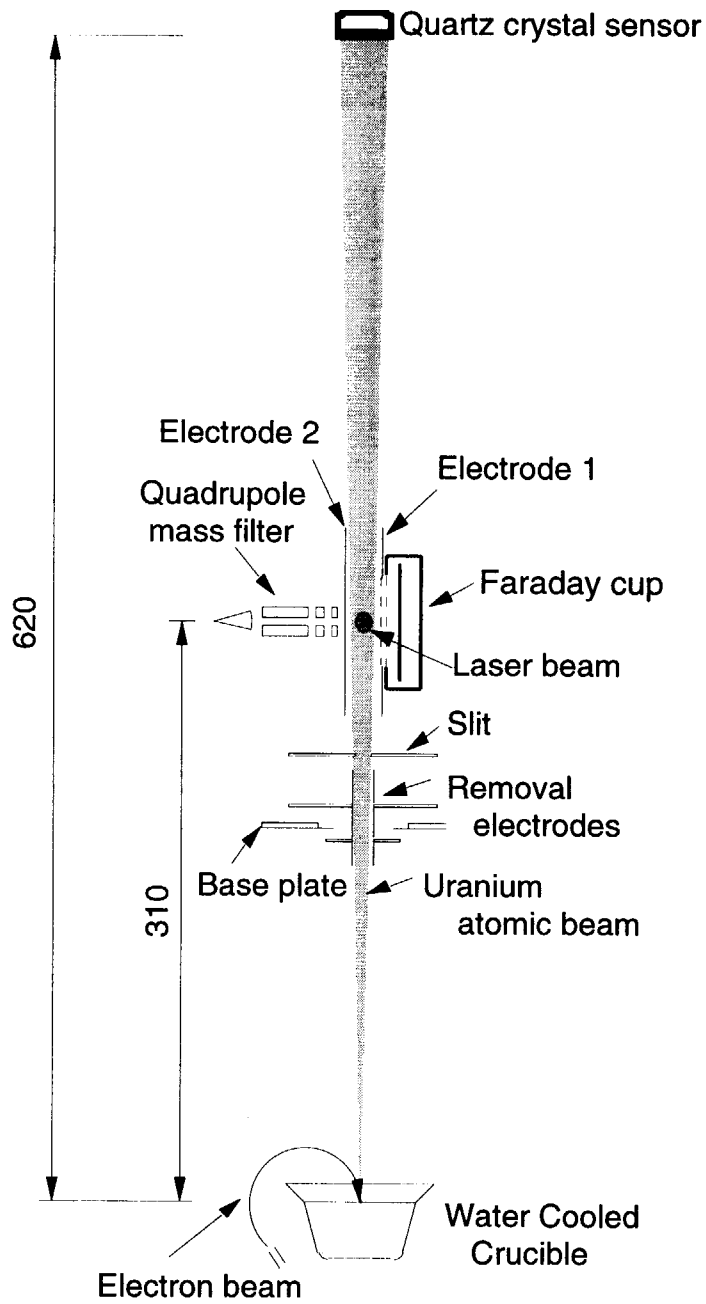


Fig.2. A schematic drawing of an experimental setup in the vacuum chamber.

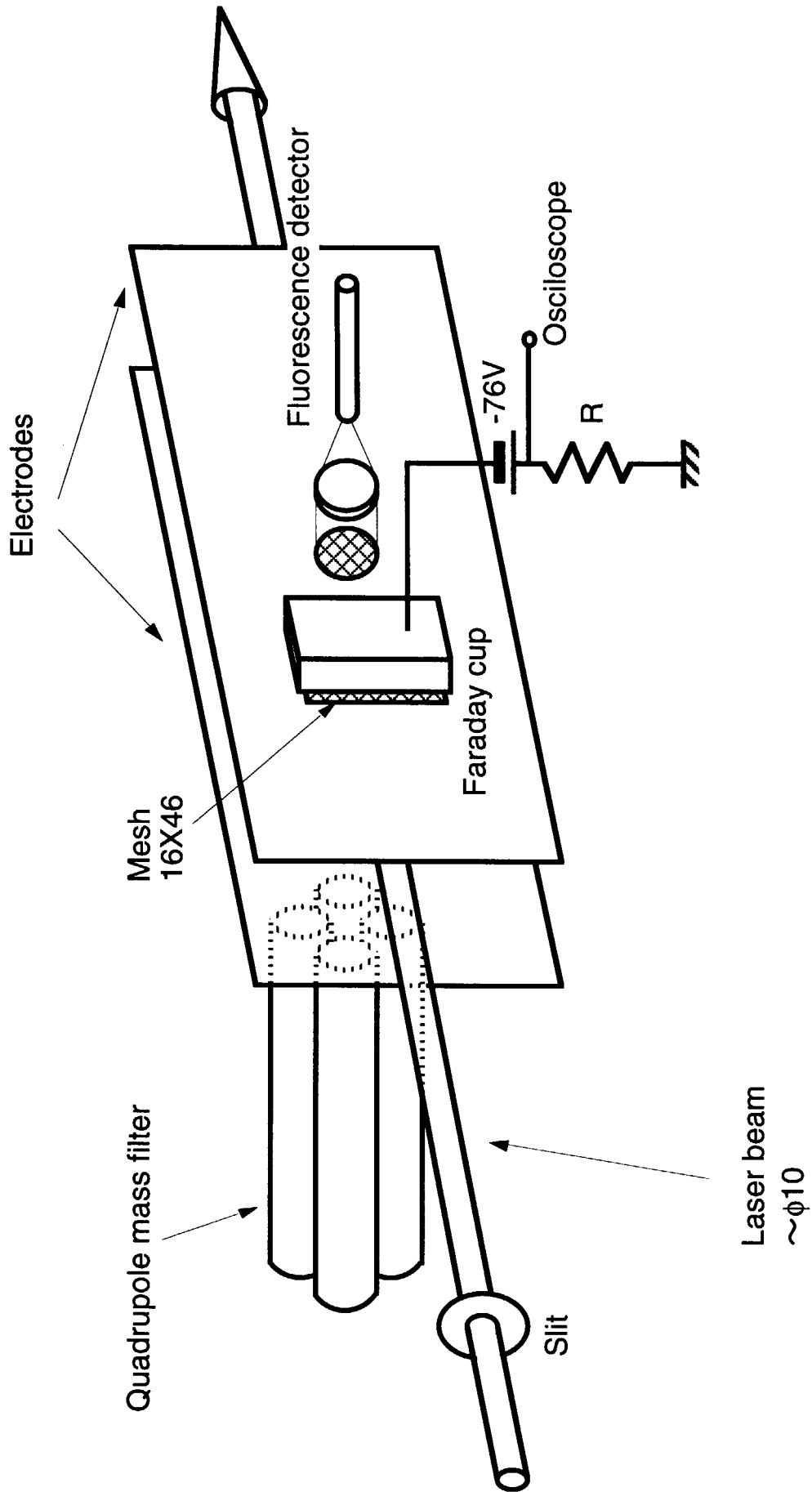


Fig.3. A detail diagram of an laser irradiation region.

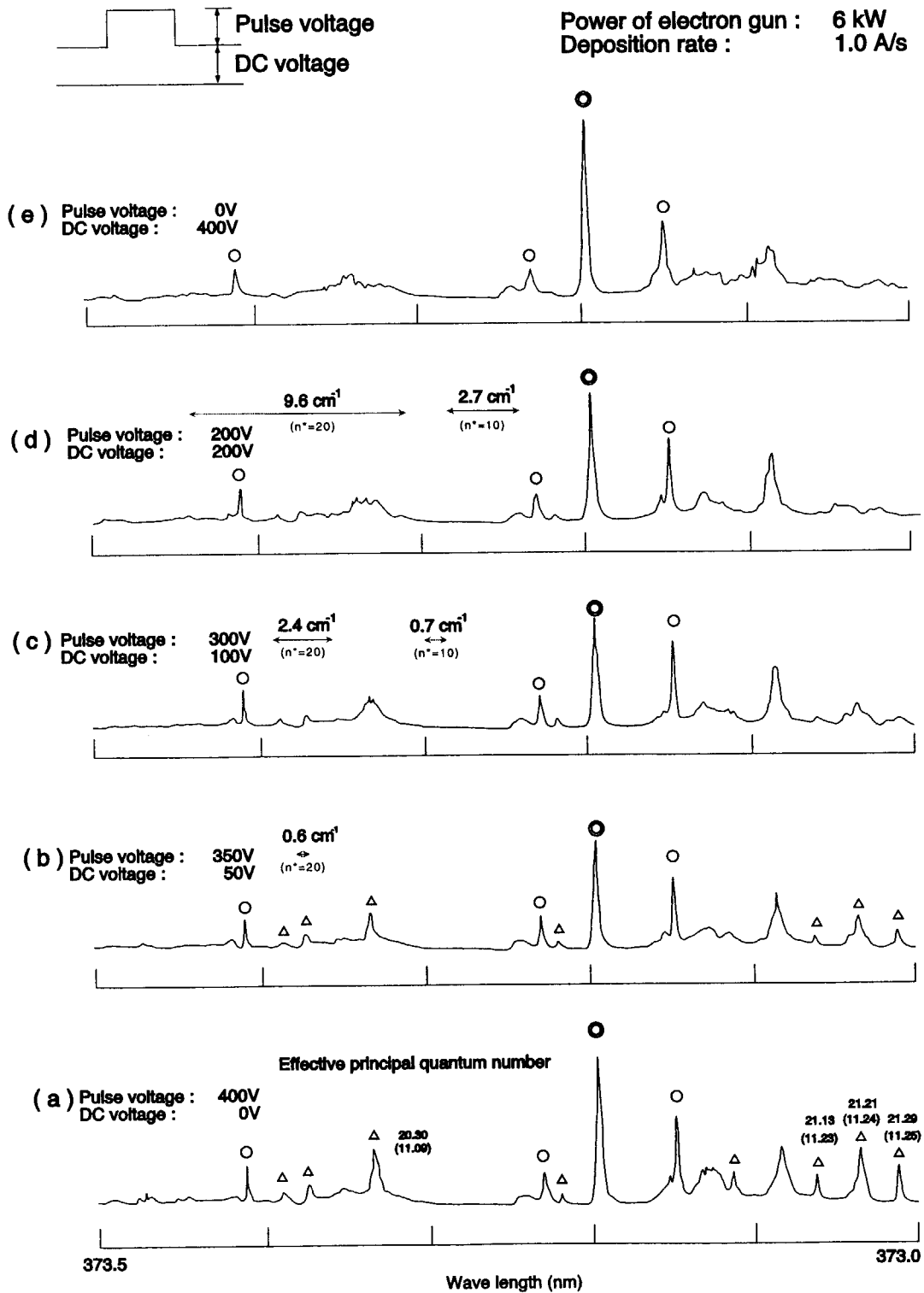


Fig.4. The Stark effect on laser photoionization spectra produced by two-wave length two-step photoionization. The double open circles show the autoionization level which can ionize <sup>235</sup>U with high selectivity. The open circles and triangles show the levels of small and large Stark effect, respectively.



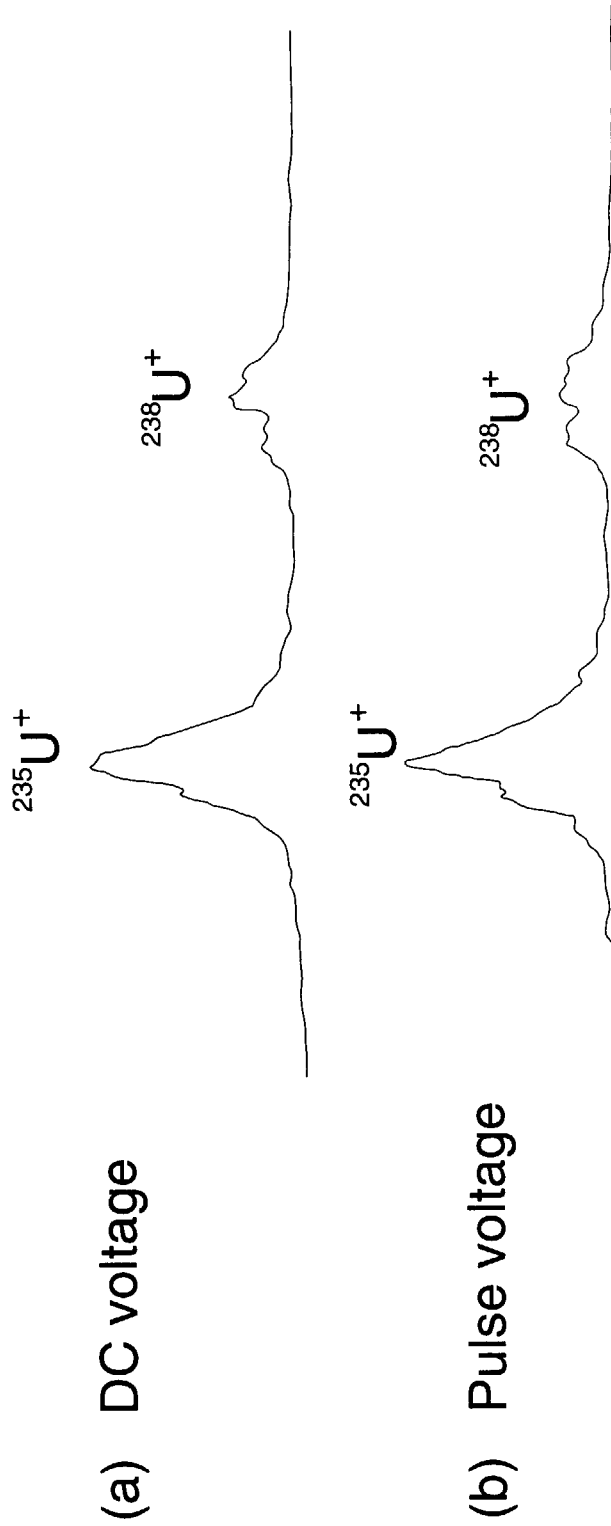


Fig.5. Mass spectra of uranium ions produced by two-wavelength two-step resonance photoionization from natural uranium atoms.

- (a) A pulse voltage of 130 V was applied to the collection electrode at 300 ns after laser irradiation.
- (b) A DC voltage of 130 V was applied to the collection electrode.

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 <sup>-1</sup>
力	ニュートン	N	m·kg/s <sup>2</sup>
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m <sup>2</sup>
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 <sup>2</sup>
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	
光線束度	ルーメン	lm	cd·sr
照射線量	ルクス	lx	lm/m <sup>2</sup>
放射能	ベクレル	Bq	s <sup>-1</sup>
吸収線量	グレイ	Gy	J/kg
線量当量	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<sup>-19</sup> J  
1 u = 1.66054 × 10<sup>-27</sup> 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	b
バール	bar
ガリ	Gal
キュリー	Ci
レントゲン	R
ラド	rad
レム	rem

1 Å = 0.1 nm = 10<sup>-10</sup> m  
1 b = 100 fm = 10<sup>-28</sup> m<sup>2</sup>  
1 bar = 0.1 MPa = 10<sup>5</sup> Pa  
1 Gal = 1 cm/s<sup>2</sup> = 10<sup>-2</sup> m/s<sup>2</sup>  
1 Ci = 3.7 × 10<sup>10</sup> Bq  
1 R = 2.58 × 10<sup>-4</sup> C/kg  
1 rad = 1 cGy = 10<sup>-2</sup> Gy  
1 rem = 1 cSv = 10<sup>-2</sup> Sv

表5 SI接頭語

倍数	接頭語	記号
10 <sup>18</sup>	エクサ	E
10 <sup>15</sup>	ペタ	P
10 <sup>12</sup>	テラ	T
10 <sup>9</sup>	ギガ	G
10 <sup>6</sup>	メガ	M
10 <sup>3</sup>	キロ	k
10 <sup>2</sup>	ヘクト	h
10 <sup>1</sup>	デカ	da
10 <sup>-1</sup>	デシ	d
10 <sup>-2</sup>	センチ	c
10 <sup>-3</sup>	ミリ	m
10 <sup>-6</sup>	マイクロ	μ
10 <sup>-9</sup>	ナノ	n
10 <sup>-12</sup>	ピコ	p
10 <sup>-15</sup>	フェムト	f
10 <sup>-18</sup>	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、1 eVおよび1 u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 <sup>5</sup> 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/m<sup>2</sup>) = 10 P (ポアズ) (g/(cm·s))  
動粘度 1 m<sup>2</sup>/s = 10<sup>4</sup> St (ストークス) (cm<sup>2</sup>/s)

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

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

1 cal = 4.18605 J (計量法)  
= 4.184 J (熱化学)  
= 4.1855 J (15 °C)  
= 4.1868 J (国際蒸気表)  
仕事率 1 PS (仏馬力)  
= 75 kgf·m/s  
= 735.499 W

放射能	Bq	Ci
	1	2.70270 × 10 <sup>-11</sup>
	3.7 × 10 <sup>10</sup>	1

吸収線量	Gy	rad
	1	100
	0.01	1

照射線量	C/kg	R
	1	3876
	2.58 × 10 <sup>-4</sup>	1

線量当量	Sv	rem
	1	100
	0.01	1

ウラン光電子スペクトルのシユタルク効果と定常電圧印加回収時の同位体分離