

JAERI-Research
98-073



ウランイオン衝撃による
ウラン表面からの二次電子放出

1998年12月

田村浩司・岡崎哲治・足立 肇・大場弘則・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

ウランイオン衝撃によるウラン表面からの二次電子放出

日本原子力研究所東海研究所物質科学部

田村 浩司・岡崎 哲治・足立 肇

大場 弘則・柴田 猛順

(1998年12月4日受理)

ウランイオン衝撃によるウラン表面からの二次電子放出係数をイオン衝撃エネルギー300～3000 eV の範囲で測定した。ウラン表面はウラン原子の蒸着により作り、ウランイオンビームは共鳴イオン化法を用いたレーザーイオン源から引き出した。衝撃エネルギー約1000 eV 以下では、二次電子の放出はなかった。しきい値1000 eV 以上での二次電子放出係数は、イオン衝撃エネルギーのはば一次関数で増加し3000 eV の時0.12であった。

Secondary Electron Emission from Uranium Surface due to Uranium Ion Bombardment

Koji TAMURA, Tetsuji OKAZAKI, Hajime ADACHI,
Hironori OHBA and Takemasa SHIBATA

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

(Received December 4, 1998)

The secondary electron emission yield from the uranium surface bombarded by the uranium ions was measured in the ion impact energy range of 300-3000 eV. The uranium surface was produced by the deposition of uranium atoms. The uranium ions were produced by laser resonance photonization and the ion beam was extracted from a laser-ion source. The secondary electrons were not emitted in the ion impact energy of under about 1000 eV. Over the threshold energy, the secondary electron emission yield increased almost linearly with the ion impact energy and become 0.12 at the ion impact energy of 3000 eV.

Keywords: Secondary Electron Emission, Uranium Surface, Ion Bombardment,
Ion Impact Energy, Deposition, Uranium Atoms, Uranium Ions,
Laser Resonance Photonization, Ion Beam, Laser-Ion Source

目 次

1.はじめに	1
2.測定方法	1
3.測定結果及び考察	2
4.おわりに	4
参考文献	5

Contents

1. Introduction	1
2. Experimental Procedure	1
3. Results and Discussion	2
4. Conclusion	4
References	5

This is a blank page.

1. はじめに

イオン衝撃による金属表面からの二次電子放出^{1,2)}は、良く知られている現象で多くの分野で重要である。著者らは原子法レーザー同位体分離の実験³⁻⁵⁾や電荷移行断面積の測定^{6,7)}で、ネオジムやガドリニウムのイオンをファラデーカップの平板コレクター電極で計測しているが、二次電子の放出により見かけ上のイオン電流が大きく測定され問題になった。著者らは、二次電子放出分の補正のために、ネオジムイオンやガドリニウムイオンによる銅表面からの二次電子放出係数をレーザーイオン源を用いた新しい方法で測定した。その結果、これまで報告^{1,2)}されているものよりしきい値が低く、大きい二次電子放出係数が得られた^{8,9)}。この測定に用いた銅表面は表面処理は何も行われていない非清浄表面であったために、大きい二次電子放出係数になったものと考えられた。

また、原子法レーザー同位体分離では目的同位体イオンを電場で電極に回収するので、回収電極の表面は同位体分離対象金属の清浄表面となっている。回収イオンの衝撃で回収電極表面から二次電子が放出されると二次電子は電場でイオンとは逆方向に加速されるので、二次電子の発生がエネルギー損失となる。このエネルギー損失の評価にはレーザー同位体分離の対象となるイオン衝撃による同位体分離対象金属表面からの二次電子放出データが必要である。このため、著者らはネオジムイオンによるネオジム表面からの二次電子放出係数を測定し、非清浄表面に比べ二次電子放出係数が非常に小さいこと、しきい値が約 1000 eV であることを示した^{10,11)}。この時、ネオジムの清浄表面は、ネオジム原子の蒸着によって作成した。

原子法レーザー同位体分離の中で、実用化の一歩手前にあるのがレーザーウラン濃縮である。ウランイオンによるウラン表面からの二次電子放出係数は Chen 等¹²⁾によって報告されているが、イオン衝撃エネルギーが 2 keV より低いエネルギーでは十分測定されていないため、これまでネオジムイオンによるネオジム表面からの二次電子放出で確認してきたしきい値が見えていない。ここでは、ネオジムの場合と同様に、レーザーイオン源を用いてウランイオン衝撃によるウラン表面からの二次電子放出係数を測定したので報告する。

2. 測定方法

Fig.1(a)、(b)に実験装置の概略を示す。真空容器内に設置された水冷銅るっぽにウランを入れ、電子ビーム加熱により蒸発させて原子ビームを生成した。スリット下方の除去電極には -100 V の電圧を印加して、蒸発部で生成されたプラズマが回収電極間とファラデーカップ 1 内に流入しないようにした¹³⁾。スリット 1 (70 mm × 20 mm) を通過した原子ビームは、回収電極 1、2 間 (間隔 20 mm) に入る。また、ファラデーカップ 1 の下方のスリット 2 (35 mm × 20 mm) を通過した原子ビームは、ファラデーカップ 1 の内部に入り、検出板 1 (傾斜角 8°) に蒸着する。このため、検出板 1 の表面は清浄なウラン表面になる。一方 **Fig.1(b)**に示したように、ファラデーカップ 2 の検出板 2 の下部にはスリットが設定されていないのでウラン原子ビームの蒸着がなく、その表面は清浄化のための処理を行なつ

ていないステンレス地のままである。蒸発面から 620 mm 上方に設置した水晶振動子式膜厚計で蒸着速度をモニターした。本測定は、蒸着速度約 1 Å/s で行なった。

2 波長のエキシマレーザー励起色素レーザー光をダイクロイックミラーで結合して原子ビームに照射した。ウラン原子のイオン化には、電離効率の高い次のイオン化スキーム¹⁴⁾を用いた。

$$0 \text{ cm}^{-1} \xrightarrow{\lambda_1 = 431.160 \text{ nm}} 23194 \text{ cm}^{-1} \xrightarrow{\lambda_2 = 373.214 \text{ nm}} \text{イオン化}$$

レーザー光の断面はスリットにより直径 10 mm にして真空装置内部に入れたので、回収電極間にパルス的に円柱状のプラズマができる。

Fig. 2 (a) は、ウラン表面からの二次電子放出係数を測定した時の回収電極と 2 個のファラデーカップの平面図である。回収電極 1、2 に各々 P_1 、 P_2 V を印加する。ファラデーカップ 1、2 ともそのケース、入口はアース電位で、検出板 1 には 1 kΩ の抵抗を介してアースに繋ぎ、検出板 2 には +50 V を印加した。レーザー照射で生成したプラズマの電位は回収電極 1、2 の高いほうの電位と等しく P_1 V になる^{15,16)} ので、プラズマから引き出されたイオンは回収電極 2 に $(P_1 - P_2)$ eV で回収される。本実験での回収電圧 ($P_1 - P_2$) は全て 300 V である。回収電極 2 には透過率 81% のステンレス製メッシュを張った 2 個の縦長のイオン引き出し穴 (5 mm × 65 mm) が設けてあり、この穴を通ったイオンはファラデーカップ 1、2 の入口に進む。入口にステンレス製メッシュを張ったファラデーカップケースはアース電位なので回収電極 2 とケースの間でさらに P_2 eV 加速され、検出板 1 には P_1 eV (イオン衝撃エネルギー) で入射する。ここで、ファラデーカップ 1 の場合はイオン衝撃による二次電子は同じアース電位のケースや入口のメッシュに流れる。これに対し、ファラデーカップ 2 内の検出板 2 には +50 V が印加されているので入口から検出板 2 に進む時に減速され、($P_1 - 50$) eV で入射する。二次電子のエネルギーはほとんど 20 eV 以下¹⁷⁾なので、検出板 2 からの二次電子は +50 V の阻止電位のために再び検出板 2 に戻る。従って、検出板 1、2 に流れるイオン電流を I_1 、 I_2 、検出板 1 (清浄なウラン表面) の二次電子放出係数を γ_1 とすると

$$I_1 / I_2 = 1 + \gamma_1 \quad (1)$$

となり、 γ_1 を求めることができる^{10,11)}。

また同様に、**Fig. 2 (a)** の測定回路を入れ替えて検出板 1 に +50 V を印加した **Fig. 2 (b)** の体系では、検出板 2 (非清浄なステンレス表面) の二次電子放出係数を γ_2 とすると、

$$I_2 / I_1 = 1 + \gamma_2 \quad (2)$$

により γ_2 を求めることができる。

3. 測定結果及び考察

Fig. 3 に、ウラン清浄表面からの二次電子放出係数 γ_1 を測定した時の体系 **Fig. 2**

(a) (検出板2に+50 V 印加)におけるイオン電流の測定例を示す。 $P_1 = 500$ V (Fig. 3 (a))では両シグナルともほとんど同じ波形であり、二次電子がほとんど放出されていない。 $P_1 = 3000$ V (Fig. 3 (b))では二次電子の発生により、検出板1のイオン電流がやや大きく、二次電子放出係数が0でないことがわかる。

Fig. 4 に、非清浄ステンレス表面からの二次電子放出係数 γ_2 を測定した時の体系 Fig. 2 (b) (検出板1に+50 V 印加)でのイオン電流を示す。 $P_1 = 400$ V (Fig. 4 (a))ではほとんど同じ波形であるが、 $P_1 = 3000$ V (Fig. 4 (b))では検出板2のイオン電流が大きくなっていること、二次電子放出係数がウラン清浄表面に比べかなり大きいことがわかる。

Fig. 5 は、2つの検出板のイオン電流比と(1)、(2)式により算出した二次電子放出係数 γ_1 、 γ_2 をイオン衝撃エネルギー E_i (eV) の関数としてまとめたものである。ここで、イオン電流 I_1 、 I_2 はピーク電流の値を用いた。ウランイオン衝撃によるウラン清浄表面からの二次電子放出係数 γ_1 は 1000 eV 以下では I_1 / I_2 がほぼ 1 であることから 0 となり、1000 eV 以上を一次関数で表わせば

$$\gamma_1 = 6.0 \times 10^{-5} (E_i - 1000) \quad (3)$$

であった。この値は、以前に著者らが測定したネオジムイオン衝撃によるネオジム表面からの二次電子放出係数^{10,11)}と同じように小さくかつ類似している。一方、非清浄ステンレス表面からの二次電子放出係数 γ_2 は、しきい値は約 500 eV で、しきい値以上では同様に一次関数で、

$$\gamma_2 = 2.4 \times 10^{-4} (E_i - 500) \quad (4)$$

と表わすことができる。

Fig. 5 には、参考文献 12)のウランイオンによるウラン表面からの二次電子放出係数も示している。この値は、本報告と測定範囲が重なっているイオン衝撃エネルギー 2000~3000 eV の範囲で、本報告の値にほぼ等しい。

二次電子放出^{1,2)}にはポテンシャル放出と運動放出がある。ポテンシャル放出は衝撃エネルギーにほとんど依存せず、金属表面でのオージェ中和で説明されるものである。ウラン原子のイオン化ポテンシャルと仕事関数はそれぞれ 6.11 eV¹⁷⁾ と 3.63 eV¹⁸⁾ である。二次電子のポテンシャル放出にはイオン化ポテンシャルが仕事関数の 2 倍以上必要である^{1,2)}ため、二次電子のポテンシャル放出は考えられない。イオン衝撃エネルギーが低いところで二次電子放出がなくしきい値があることは、予想通りである。Chen 等¹²⁾はウランイオンによるウラン表面からの二次電子放出係数を測定しているが、しきい値が見えていないのは、2000 eV より低エネルギーでの測定を行なわなかったためと思われる。

レーザー同位体分離では、2000~3000 eV のイオンが回収電極に付着する。3000 eV では二次電子放出係数は約 0.12 である。この時、回収イオン 1 個あたりの二次電子放出によるエネルギー損失は、360 eV となる。レーザーウラン濃縮でウラン 235 原子 1 個得るために要するエネルギーは、遠心分離法で要するエネルギー(約 200 keV¹⁹⁾)の数分の 1 の約 50 keV 程度にする必要がある。これに比べ、二次電子放出による損失は無視できるほど小さいことがわかった。

4. おわりに

ウランイオン衝撃によるウラン表面からの二次電子放出係数をイオン衝撃エネルギー300~3000 eVの範囲で測定した。ウラン表面はウラン原子の蒸着により作り、ウランイオンビームは共鳴イオン化法を用いたレーザーイオン源から引き出した。衝撃エネルギー約1000 eV 以下では、二次電子の放出はなかった。しきい値1000 eV 以上での二次電子放出係数は、イオン衝撃エネルギーの一次関数で増加し3000 eVの時 0.12であった。これにより、レーザーウラン濃縮において、二次電子放出によるエネルギー損失は非常に小さいことが明らかになった。

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) Kaminsky M. : "Atomic and Ionic Impact Phenomena on Solid Surfaces", Springer-Verlag, Berlin, (1965).
- 2) Baragiola R.A., Alonso E.V., Ferron J. and Oliva-Florio A. : Surface Science, 90, 240(1979).
- 3) Shibata, T. and Ogura, K. : J. Nucl. Sci. Tech., 33, 834(1996).
- 4) 足立肇、小倉浩一、柴田猛順: JAERI-Tech 97-021(1997).
- 5) 足立肇、田村浩司、小倉浩一、柴田猛順: JAERI-Research 98-014(1998).
- 6) Ogura, K. and Shibata, T. : 質量分析(J. Mass Spectrom. Soc. Jpn.), 41, 37(1993).
- 7) 足立肇、田村浩司、岡崎哲治、柴田猛順: JAERI-Reseach 98-030, (1998)
- 8) 柴田猛順、小倉浩一: JAERI-M 93-092(1993).
- 9) 柴田猛順、小倉浩一: 真空, 37, 132(1994).
- 10) 柴田猛順、田村浩司、小倉浩一: 真空, 40, 668(1997).
- 11) Tamura, K., Ogura, K. and Shibata, T. : Jpn. J. Appl. Phys., 37, 5005(1998).
- 12) Chen H.L., Solarz R. and Erbert G. : Appl. Phys. Lett., 42, 120(1983).
- 13) Ohba, H., Nishimura A., Ogura, K., Shibata, T. : Rev. Sci. Instrum., 65, 657(1994)
- 14) 小倉浩一、柴田猛順: JAERI-Reseach 98-036, (1998)
- 15) 小倉浩一、柴田猛順: JAERI-M 93-099, (1993).
- 16) Ogura, K. and Shibata, T. : Jpn. J. Appl. Phys., 33, L131(1994).
- 17) Coste A., Avril R., Blanckard P., Chatelet J., Lambert D., Legre J., Liberman S. and Pinard J. : J. Opt. Soc. Am., 72, 103(1982).
- 18) Michaelson H.B. : J. Appl. Phys., 48, 4727(1977).
- 19) Greenland P.T. : Contemporary Phys., 31, 405(1990)

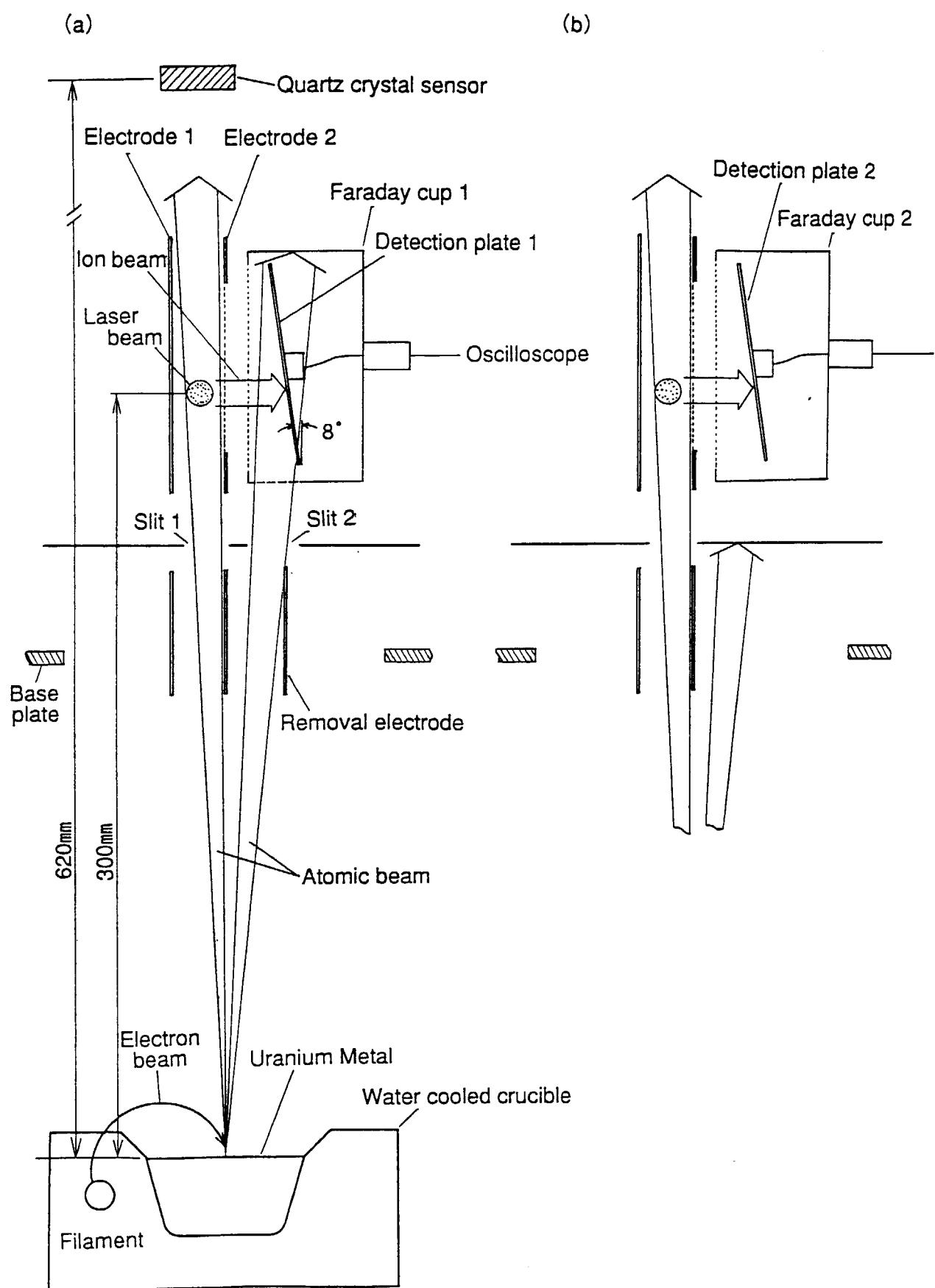


Fig.1 A schematic view of the experimental apparatus

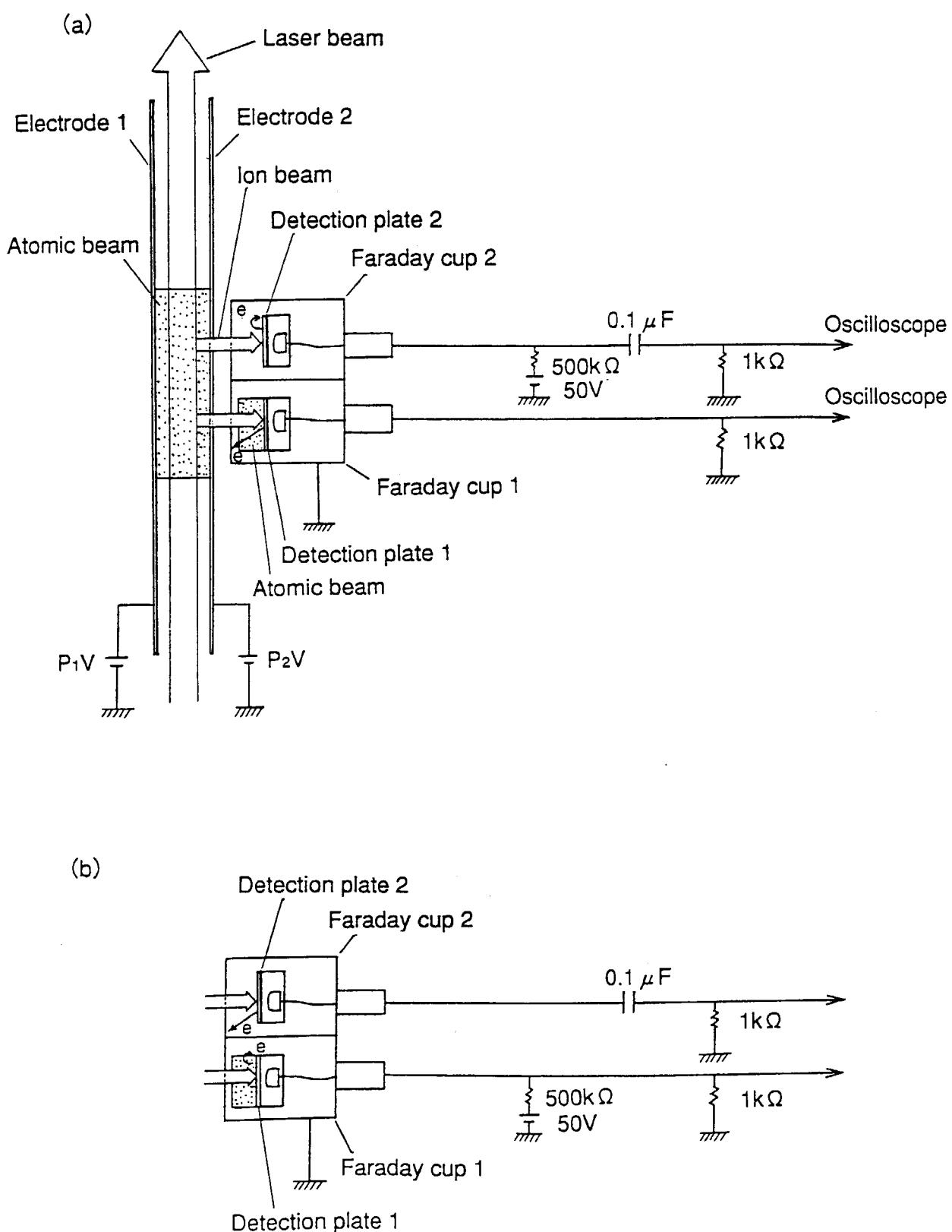
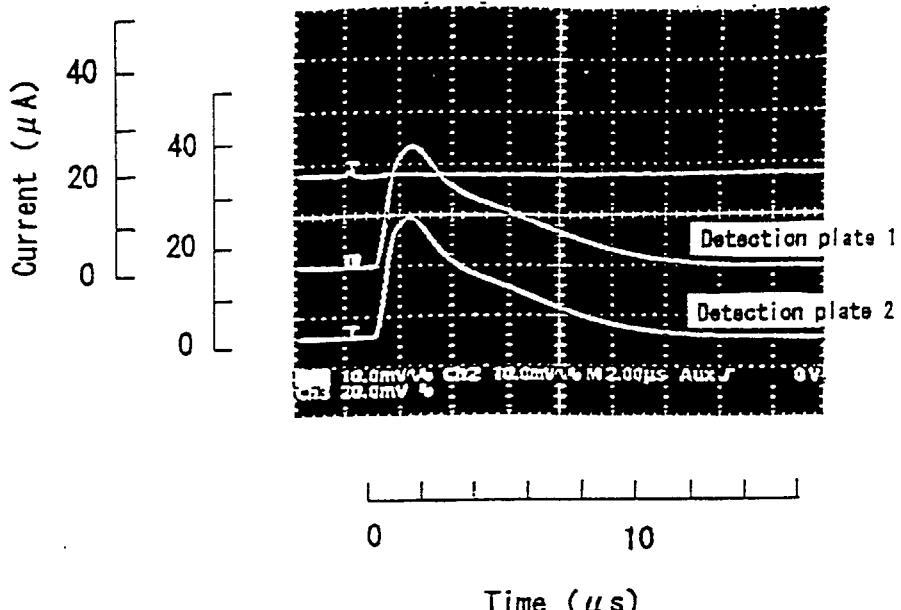


Fig.2 A top view of the laser-ion source and Faraday cups

- (a) +50V is applied to the detection plate 2.
- (b) +50V is applied to the detection plate 1.

(a)

$$\begin{aligned} P_1 &= 500V \\ P_2 &= 200V \end{aligned}$$



(b)

$$\begin{aligned} P_1 &= 3000V \\ P_2 &= 2700V \end{aligned}$$

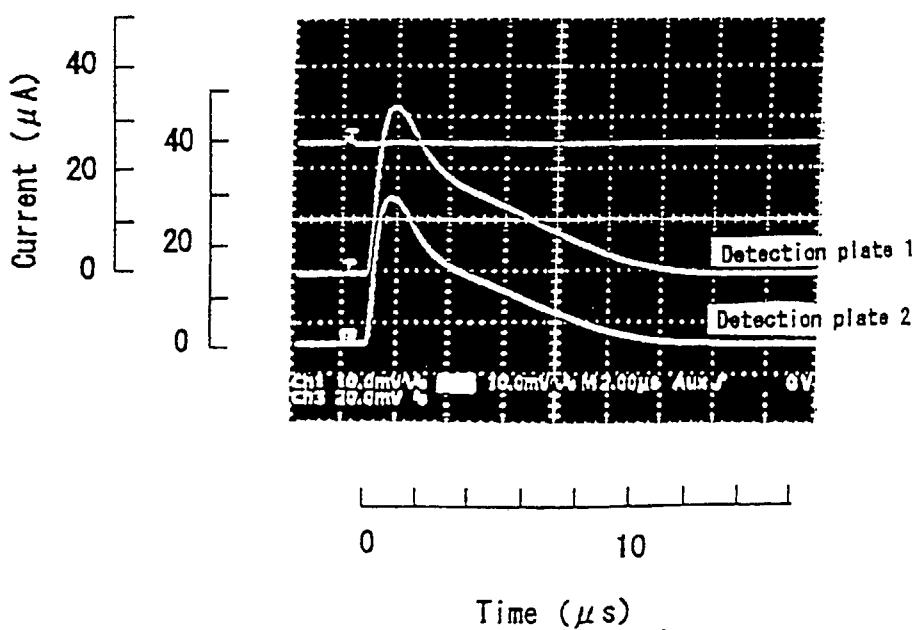
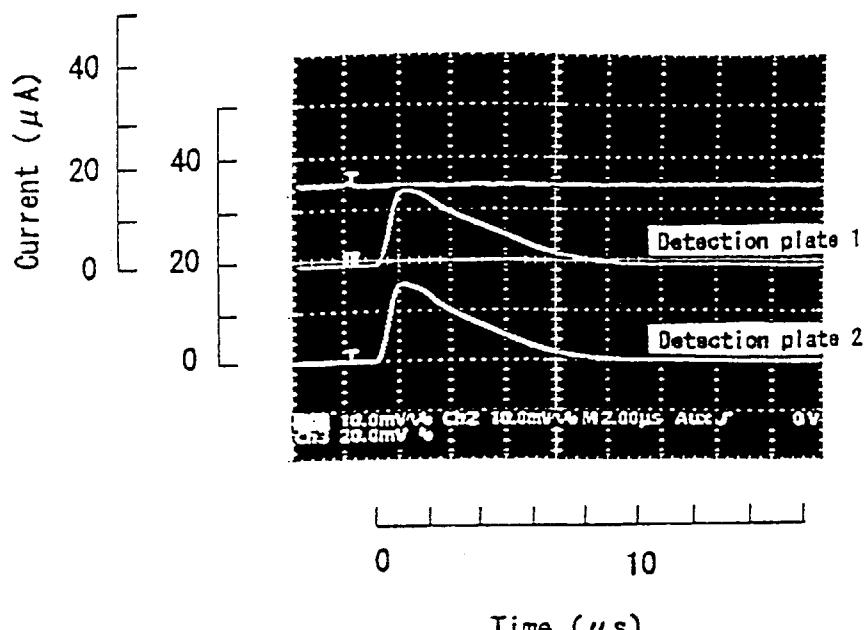


Fig.3 Examples of ion signals from uranium covered surface(detection plate 1) and non-treated stainless steel surface(detection plate 2) by uranium ion bombardment in the case of Fig.2(a)
+50V is applied to the detection plate 2.

(a)

 $P_1 = 400V$ $P_z = 100V$ 

(b)

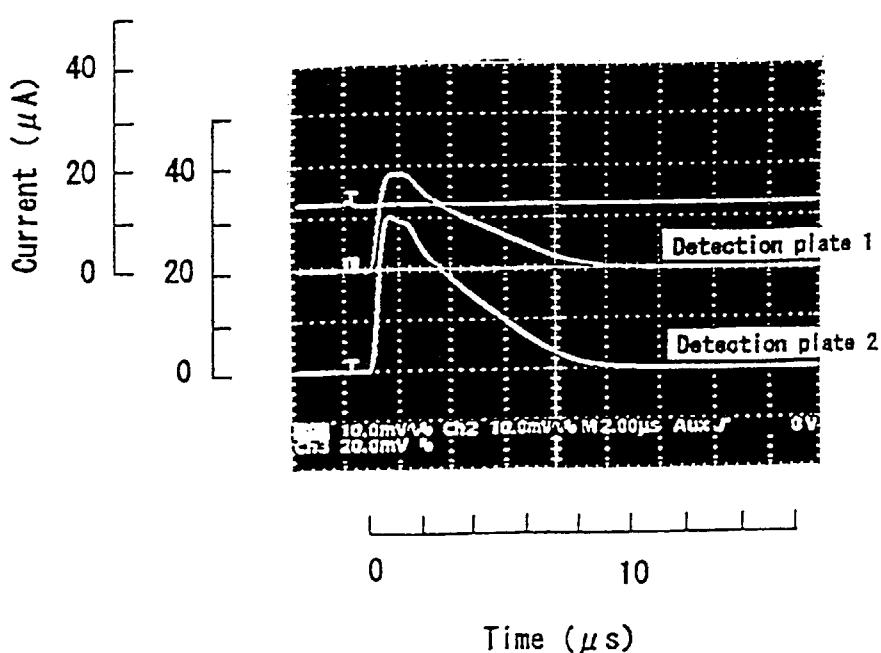
 $P_1 = 3000V$ $P_z = 2700V$ 

Fig.4 Examples of ion signals from uranium covered surface(detection plate 1) and non-treated stainless steel surface(detection plate 2) by uranium ion bombardment in the case of Fig.2(b)
+50V is applied to the detection plate 1.

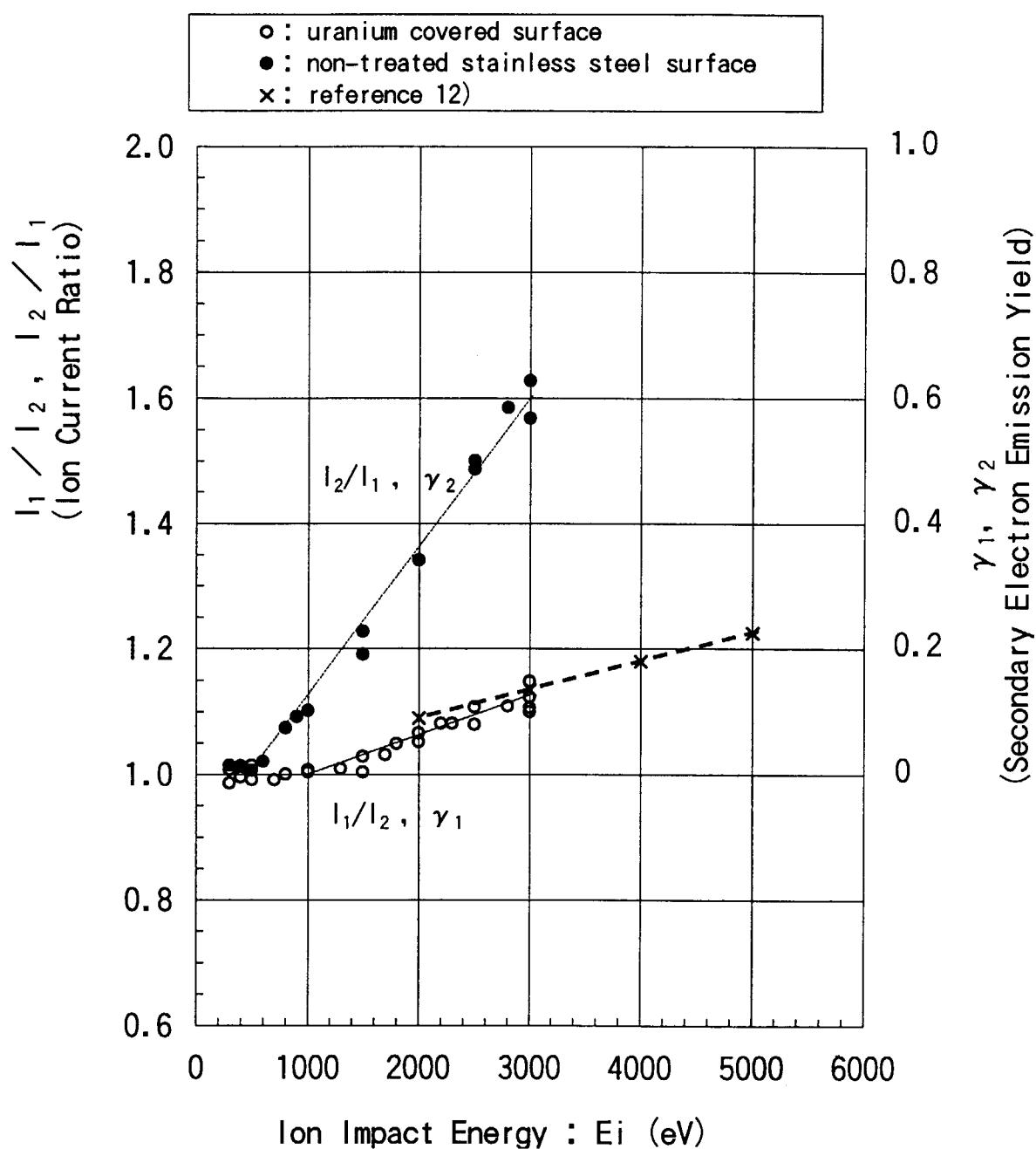


Fig.5 Ion current ratio detected by detection plate 1(I_1),2(I_2) and secondary electron emission yield from uranium surface (γ_1) and non-treated stainless steel surface(γ_2) bombarded by uranium ion as a function of the ion impact energy

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
光强度	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
功率、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	ファラード	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。
- 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。
- ECE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。

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	b
バル	bar
ガル	Gal
キュリ	Ci
レンントゲン	R
ラド	rad
レム	rem

$$1 \text{ Å} = 0.1 \text{ nm} = 10^{-10} \text{ m}$$

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

$$1 \text{ bar} = 0.1 \text{ MPa} = 10^5 \text{ Pa}$$

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

$$1 \text{ Ci} = 3.7 \times 10^{10} \text{ Bq}$$

$$1 \text{ R} = 2.58 \times 10^{-4} \text{ C/kg}$$

$$1 \text{ rad} = 1 \text{ cGy} = 10^{-2} \text{ Gy}$$

$$1 \text{ rem} = 1 \text{ cSv} = 10^{-2} \text{ Sv}$$

換 算 表

力	N(=10 ³ 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 1m²/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 ³	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 cal= 4.18605J (計量法)
	1	0.101972	2.77778×10 ⁻⁷	0.238889	9.47813×10 ⁻⁴	0.737562	6.24150×10 ¹⁸	= 4.184J (熱化学)
	9.80665	1	2.72407×10 ⁻⁶	2.34270	9.29487×10 ⁻³	7.23301	6.42082×10 ¹⁹	= 4.1855J (15°C)
	3.6×10 ⁶	3.67098×10 ⁵	1	8.59999×10 ⁵	3412.13	2.65522×10 ¹⁶	2.24694×10 ²⁵	= 4.1868J (国際蒸気表)
	4.18605	0.426858	1.16279×10 ⁻⁶	1	3.96759×10 ⁻³	3.08747	2.61272×10 ¹⁹	仕事率 1 PS(仮馬力)
	1055.06	107.586	2.93072×10 ⁻¹	252.042	1	778.172	6.58515×10 ²¹	= 75 kgf·m/s
	1.35582	0.138255	3.76616×10 ⁻⁷	0.323890	1.28506×10 ⁻³	1	8.46233×10 ¹⁸	= 735.499W
	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	

放射能	Bq	Ci	吸収線量	Gy	rad
	1	2.70270×10 ⁻¹¹		1	100
	3.7×10 ¹⁰	1		0.01	1

照射線量	C/kg	R
	1	3876
	2.58×10 ⁻¹	1

線量率	Sv	rem
	1	100
	0.01	1

(86年12月26日現在)

ウランイオン衝撃によるウラン表面からの一次電子放出

