

JAERI-Research

99-029



JP9950177



ウランの電荷移行断面積

1999年3月

足立 肇・田村浩司・岡崎哲治・小倉浩一・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。
入手の間合わせは、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、お申し越し下さい。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行っております。

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, 1999

編集兼発行 日本原子力研究所

ウランの電荷移行断面積

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

小倉 浩一⁺・大場 弘則・柴田 猛順

(1999年 3月 3日受理)

基底状態のウランイオンがウラン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 100~1200 eVの範囲で測定した。共鳴光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させて入射し、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、衝突エネルギーが 100 eVでは電荷移行断面積は $(1.3 \pm 0.3) \times 10^{-14} \text{ cm}^2$ であり、衝突エネルギーの増加とともに増加し、1200 eVでは $(2.7 \pm 0.3) \times 10^{-14} \text{ cm}^2$ の値が得られた。100 eV以上の衝突エネルギーで断面積が増加する傾向は原子およびイオンの電子配位を考慮した理論計算結果とほぼ一致した。

Charge Transfer Cross Section for Uranium

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

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

(Received March 3, 1999)

Symmetric resonance charge transfer cross section between singly ionized uranium ions and their parent atoms were measured in the impact energy range of 100~1200 eV. The cross section was determined from the ratio between the number of ions produced by the charge transfer reaction and that of primary ion beam. The primary ion beam was produced by a laser ion source in which the atoms were ionized by laser resonant photoionization. The slow ions produced by the charge transfer reaction and the fast primary ions were detected with Faraday cups. The obtained cross section was $(1.3 \pm 0.3) \times 10^{-14}$ cm² at 100 eV and $(2.7 \pm 0.3) \times 10^{-14}$ cm² at 1200 eV. The tendency of the increment of the cross section with an impact energy above 100 eV agrees with the calculated results obtained considering the electronic configurations of uranium atom and ion.

Keywords: Charge Transfer Cross Section, Symmetric Resonance Charge Transfer,
Resonant Photoionization, Uranium, Laser Ion Source,
Impact Energy, Faraday Cup

⁺ Advanced Photon Research Center, Kansai Research Establishment

目 次

1. はじめに	1
2. 測定方法および測定装置	2
3. 測定結果	5
4. 考察	8
5. まとめ	9
参考文献	10

Contents

1. Introduction	1
2. Experimental Method and Apparatus	2
3. Measured Results	5
4. Discussion	8
5. Conclusion	9
References	10

This is a blank page.

1. はじめに

原子法レーザーウラン濃縮では ^{235}U 原子を選択的にイオン化しこれを回収電極により回収する。^{1) 2)} 回収の過程で ^{235}U イオンが ^{238}U 原子と電荷移行反応を起こすと濃縮効率が低下する。電荷移行反応による効率の低下を評価するためにはウランの電荷移行断面積の値を知る必要がある。電荷移行断面積については希ガス、アルカリ金属やアルカリ土類金属に関する測定値が主に報告され、これらの原子の断面積値はイオン化ポテンシャルにほぼ反比例する傾向があることが知られている。³⁾ ウランの電荷移行断面積の推定としては Sinha & Bardsley⁴⁾ による $1 \times 10^{-14} \text{ cm}^2$ 程度という理論計算値がよく用いられてきた。しかし、ウランの電荷移行断面積の測定は仁木等によりなされており、衝突エネルギー 90 eV で約 $1 \times 10^{-13} \text{ cm}^2$ という値が報告されている。⁵⁾ この値は知られているウラン以外の元素の電荷移行断面積より非常に大きく、レーザー法ウラン濃縮でウラン原子密度を十分高く出来ないのではないかと心配されていた。

原研では電荷移行断面積測定手法の確立および断面積値の原子の電子配位や電離ポテンシャル等の依存性を把握するため原子法レーザー同位体分離の対象と成り得る希土類元素のガドリニウム (Gd)、ネオジム (Nd)、ジスプロシウム (Dy) およびセリウム (Ce) についての電荷移行断面積の測定を行ってきた。⁶⁻¹¹⁾ 測定手法は原子ビームにほぼ直交させて光共鳴電離を用いたレーザーイオン源からのイオンビームを中性原子に衝突させて電荷移行反応を起こさせ、イオンビームと反応生成イオンをそれぞれファラデーカップのイオン検出板で検出し、その電荷量の比から反応断面積を導出する方法で、これらの測定により手法の妥当性を確認してきた。また、希土類元素の電荷移行断面積値は必ずしもイオン化ポテンシャルには反比例せず、次のような結果が得られた。Gd や Nd は $6s^2$ 電子の内側に閉殻でない f^n 電子や $f^{n-1}d$ 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。⁶⁻¹⁰⁾ 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 のそれと同程度である。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 $4f^5 5d 6s^2$ および $4f^5 5d^2$ 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。¹¹⁾

これらの傾向は電荷移行時の反応経路を考えた理論計算で説明できることを示した。ウランについても同様な反応経路を考えた理論計算計算を行い、100 eV 以上ではウラン原子の 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予測が得られている。¹²⁾

ここでは基底状態のウランイオンが衝突エネルギー 100~1200 eV でウラン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⁶⁻¹¹⁾ とほぼ同じであるが、測定精度向上のため下記の改良を行って測定した。

- ① レーザーイオン源イオン引出し孔からのイオンビーム強度分布測定結果に基づく検出器配置とした。
- ② 低電位電極の外側に第3の電極、補助電極を設けてイオン加速を行い、イオンビーム広がりを低減させた。
- ③ 電荷移行反応部での迷光による電離イオン生成を除去するため、真空容器内のレーザー入、出射部にレーザー遮光スリット板を設けた。

2. 測定方法および測定装置

ウランの電荷移行断面積の測定に用いた装置の概念図を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ば内にタンゲステン製の円筒と金属ウランを入れた金属ウラン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。るつばの容積が 80cc の蒸発源 (日本電子 (株) 製 JEBG-163MB) および最大加速電圧 10kV、最大出力 16kW の電子銃電源 (日本電子 (株) 製 JEBG-203UB) を用いた。

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 -300 V 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。^{13) 14)} 蒸気量は Fig.1に示すように光電離イオン生成部上方に設置した水晶発振式膜厚計 (ULVAC CRTS-4U) でモニターした。蒸発面からの電荷移行反応部の高さは 310 mm、水晶発振式膜厚計の高さは 620 mm である。

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枚の電極板間へ下方から流入する原子ビームに 431.09 nm および 373.20 nm (真空中) の2波長のパルス色素レーザービームを同軸にして水平方向から同時に照射し、下記に示す2波長2段階共鳴電離法により原子を自動電離レベルを通して基底状態のイオンが生じるようにイオン化させた。^{15) 16)}

$$\begin{array}{l}
 0\text{ cm}^{-1} \rightarrow 23197.01\text{ cm}^{-1} \rightarrow 49992\text{ cm}^{-1} \left(> IP_1 = 49954\text{ cm}^{-1} \right) \\
 J=6 \qquad J=7 \qquad \qquad \qquad \left(< IP_2 = 50243\text{ cm}^{-1} \right) \\
 \lambda_1=431.09\text{nm} \qquad \lambda_2=373.20\text{nm}
 \end{array}$$

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。

レーザーは色素レーザー励起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 130 mJ、繰り返し数は 30 Hz で用いた。色素レーザーはグレーティングモードで用い、色素はクマリン120 と QUI を用いた。レーザービームの直径は 10 mmで、間隔 20 mmの電極板間の中央を水平にビームが通るようにした。真空容器内の電極のレーザービーム進行方向前後にスリットを開けた遮光板を設け迷光が電荷移行反応部に混入するのを極力防止した。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 5 mm × 20 mmのイオン引出し孔を設け、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 10 ns 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に向か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ほぼ直角方向の電場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 30 mm、幅 20 mm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 36 mm × 24 mmとなる。従って電荷移行反応を起す衝突距離は 36 mm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多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Ndを用いて測定を行い、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。¹⁷⁾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イオン検出板と電極3のイオン引出し孔との距離は 50 mm、入射孔寸法の横幅は 30 mm、高さ幅は 90 mmとした。

これにより電荷移行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で検出されるようにした。電荷移行反応部の周囲の電極3（補助電極）および電極4（中央電極）は同電位（ $V_3 = V_4$ ）とした。横方向に設置したファラデーカップ2の入り口は横幅 40 mm、高さ幅 90 mmと反応領域に比べて十分大きくし、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。主イオンビームの中心とファラデーカップ2のイオン検出板までの距離は 24 mmとした。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、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1 k Ω 、ファラデーカップ2では10 k Ω の抵抗を標準として用いた。ファラデーカップ1のイオン検出板での高エネルギーイオンによる二次電子発生に伴う電流変化を防止するため、電極1印加電圧が400 V以上の場合にはイオン検出板に+75 Vの電圧を印加した。¹⁸⁾ 電極1電圧が400 V以下の場合にはイオン検出板1はアース電位とした。電極4の電圧は300 V以下の設定とし、電荷移行生成イオンのエネルギーはそれ以下であるのでファラデーカップ2のイオン検出板では二次電子発生の可能性がないためアース電位とした。イオン電流信号はデジタルオシロスコープで100パルスの平均を測定した。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50 μ V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オシロスコープで同時に測定し、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数密度を 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。

$$\sigma_{ex} = \frac{Q_2}{Q_1} \times \frac{\eta}{L \cdot N} \quad (2.1)$$

ここで

$$\eta = 0.81$$

$$L = 3.6 \text{ cm}$$

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。

$$N = \frac{\rho \cdot N_A}{M} \cdot \frac{J}{v} \quad (2.2)$$

ここで

N : 原子数密度 [cm^{-3}]

J : 原子蒸着速度 [m/s]、

v : 原子速度 [m/s],

M : 原子量 [g/mol],

ρ : 密度 [g/cm³],

N_A : アボガドロ数 (6.022×10^{23} /mol)

であり、ウランの場合、 $M = 238.0$ [g/mol]、 $\rho = 18.7$ [g/cm³] である。

原子速度 v は蒸気量依存性が大きく、ドップラーシフト蛍光法により別途測定して得られた、るつぼ上方 620 mm に設置した膜厚計の蒸着速度と原子速度との関係¹⁹⁾を用いて導出した。なお、電荷移行反応部の蒸着速度 J は膜厚計の蒸着速度 J_c よりるつぼ表面からの距離の依存性を考慮して

$$J = J_c \times (620/310)^2 \quad (2.3)$$

として求めた。

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。電極 3、4 およびファラデーカップ 1、2 で囲まれた電荷移行反応部の電位分布の計算結果を Fig.3 に示す。電荷移行反応部には電極 3、4 の印加電圧 V_3 の約 0.75 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約 $0.75 \cdot V_3$ [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。

$$E_i \text{ [eV]} = V_1 - 0.75 \cdot V_3 \quad (2.4)$$

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 ($V_3 = V_4$) とした。

3. 測定結果

3. 1 測定条件の検討

(1) ファラデーカップのイオン電流波形

測定で得られたファラデーカップ 1 (主ビームイオン) およびファラデーカップ 2 (電荷移行生成イオン) の電流波形の例を Fig.4 に示す。(a) は衝突エネルギーが比較的低い場合 ($E_i = 310$ eV)、(b) は高い場合 ($E_i = 1235$ eV) である。図よりファラデーカップ 2 の信号にはファラデーカップ 1 の信号の立ち上がりと同時にピークが観測され、続いてやや遅れて少し時間的に長いピーク信号が観測される。前者のピークは誘導電流または電荷移行反応部での迷光による電離イオンの電流と考えられる。後者のピークが電荷移行生成イオンの電流である。ファラデーカップ 2 のイオン電荷量は前者のピークを除き、後者の電流波形を時間積分して求めた。

(2) 反応生成イオン対主ビームイオン電荷比のイオン引出し電極電圧依存性

電荷移行反応生成イオンがファラデーカップ2により全数正常に計測される条件を確認するために測定した反応生成イオン対主ビームイオン電荷比の電極電圧依存性の測定結果を Fig.5 に示す。レーザー強度およびウランの蒸気量はほぼ一定とした。電極1と電極2および電極3（補助電極）間の電位差はそれぞれ一定とし、電極3（補助電極）と電極4（中央電極）は同電位（ $V_3=V_4$ ）とし、電極3, 4の電位を変化させて、反応生成イオン電荷量 Q_2 と主イオン電荷量 Q_1 の比 $RQ = Q_2/Q_1$ 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1および2に回収されるイオンである。

(a) ケース1は $\Delta V=V_1-V_3=300$ V, $V_2=V_3=V_4$ の場合、

(b) ケース2は $\Delta V=V_1-V_3=1000$ V, $V_1-V_2=300$ V, $V_3=V_4$ の場合である。

(a) ケース1の場合、電極4（中央電極）の電圧（ $V_4=V_3=V_2$ ）を低い方から高くするに従って、0～35 Vの間（領域1）で RQ は増加し、35～55 Vの間（領域2）ではほぼ一定であり、55 V以上（領域3）では再び増加する。(b) ケース2の場合、電極4（中央電極）の電圧（ $V_4=V_3$ ）を低い方から高くするに従って、0～50 Vの間（領域1）で RQ は増加し、50～280 Vの間（領域2）ではほぼ一定であり、280 V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と電極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 V_3 の上昇と共に電荷移行生成イオンが徐々にファラデーカップ2に集められるようになり、 RQ が増加する。電圧 V_3 を低くすると電荷移行生成イオンをファラデーカップ2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 V_3 の上昇と共に主イオンビームが偏向され、ファラデーカップ1に入射するイオンビーム量が減少し、ファラデーカップ2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ファラデーカップ2に集められるため RQ が一定となる。

$RV = V_3/V_1$ （ $V_3=V_4$ ）とすると、上記測定結果より、

ケース1の場合は

$0 \leq RV < 0.11$ が領域1, $0.10 \leq RV < 0.16$ が領域2, $0.16 \leq RV$ が領域3に相当する。

また、ケース2の場合は

$0 \leq RV < 0.05$ が領域1, $0.05 \leq RV < 0.22$ が領域2, $0.22 \leq RV$ が領域3に相当する。

従って、ウランの電荷移行断面積の測定は領域2に対応する

$$0.10 \leq RV < 0.16 \quad (3.1)$$

が成り立つ電極電圧設定条件で測定を行う必要がある。

(3) ファラデーカップ1検出イオン量の電極印加電圧依存性

高い衝突エネルギーの電荷移行断面積の測定の際、主ビームイオンの電荷量がファラデーカップ1で正常に測定されていることを確認するために調べたファラデーカップ1のイオン電荷量と衝突エネルギーとの関係の測定結果を Fig.6 に示す。ここでイオン電荷量は一定蒸気量（膜厚計蒸着速度 1 Å）で規格化してある。各電極 1、2、3、4 の電圧 V_1, V_2, V_3, V_4 はそれぞれ、 $V_3=V_4=300$ V、 $V_1-V_2=300$ V とし、 V_1 を 300 V から 3000 V まで変化させて、衝突エネルギー $E_i=V_1-0.75 \cdot V_3$ を変化させた。 V_1-V_2 が一定なことから電極 2 から引き出されるイオン量は電荷制限電流で V_1 を変化させてもほぼ一定と考えられる。約 500 eV 以上の高エネルギーの主イオンビームがファラデーカップに入射する際、イオン検出板の表面で二次電子が発生する¹⁸⁾が、本測定ではその二次電子の放出による電流量の変化を押さえるためにイオン検出板には +75 V の電圧を印加した。Fig.6 よりファラデーカップ1の測定イオン電荷量はイオン衝突エネルギーによらずほぼ一定であり、測定条件および測定が正しいことが確認できた。

(4) 反応生成イオン対主イオンビーム電荷比の蒸着速度、原子速度依存性

(2.1)式および(2.2)式より次の関係が導かれる。

$$\sigma_{\alpha} \propto RQ \times v/J \quad (3.2)$$

ここで、 σ_{α} は電荷移行断面積、 RQ はファラデーカップ1、2の電荷量（それぞれ Q_1, Q_2 ）の比 $RQ = Q_2/Q_1$ 、 v は原子速度、 J は蒸着速度である。

電荷移行断面積 σ_{α} は蒸着速度 J に依存しないはずであるので、それを仮定すると上式より次の関係が導かれる。

$$v \propto J/RQ \quad (3.3)$$

これを確認するために各電極電圧値を (3.1) 式が成り立つ条件、 $V_1=340$ V、 $V_2=V_3=V_4=40$ V、 $E_i=310$ eV とし、蒸着速度 J を変化させて RQ を測定した。

Fig.7 に J/RQ (相対値) (縦軸) と J (横軸) の関係の測定結果を示す。

一方、別途レーザードップラーシフト蛍光測定法を用い本蒸発装置で測定したウランの原子速度 v (縦軸) と蒸着速度 J (横軸) との関係¹⁹⁾を太い実線で同図に合わせて示す。

Fig.7より (3.3) の関係がよく成り立つことが分かる。また、膜厚計蒸着速度 J_c および原子速度 v (J_c) の測定値から $4 J_c / v = N$ で導いた電荷移行反応部の原子密度 N (横軸) と RQ 測定値 (縦軸) との関係を示す。図より RQ は N と良く比例することがわかり、このことから (2.1) 式の妥当性が確認できた。

3. 2 電荷移行断面積測定結果

衝突エネルギーが 100 eV から 1200 eV の範囲の測定で得られた電荷移行断面積の測定結果を Fig.9 に示す。測定時の蒸着速度は測定点毎で異なるが、それぞれの蒸着速度に対応する原子速度を用いて原子密度を導出し、(2.1)式により導出した電荷移行断面積値をプロットしてある。測定結果より衝突エネルギーが 100 eV では電荷移行断面積は $(1.3 \pm 0.3) \times 10^{-14} \text{ cm}^2$ 、500 eV では $(2.3 \pm 0.3) \times 10^{-14} \text{ cm}^2$ 、1200 eV では $(2.7 \pm 0.3) \times 10^{-14} \text{ cm}^2$ と衝突エネルギーの増加と共に断面積値が増加している傾向がみられる。また、衝突エネルギーが約 200~500 eV の範囲で衝突エネルギーの増加に伴う断面積の増加の傾斜がやや急で、500~1200 eV の範囲では傾斜がゆるやかであることがわかる。

4. 考 察

(1) 電荷移行断面積測定誤差および測定限界

電荷移行断面積の測定値は (2.1), (2.2) 式から導出している。定数部分を除くと次式となる。

$$\sigma_{ex} = (Q2/Q1) \times v/J/L \times \text{const.} \quad (4.1)$$

誤差の要因としてはファラデーカップ 1、2 の電荷量 $Q1$ 、 $Q2$ 、原子速度 v 、蒸着速度 J 、電荷移行反応長 L がある。 v および J の誤差はそれぞれ $\pm 10\%$ 程度と考えられる。 L は主イオンビームの電荷移行反応部での原子ビームとの交差距離で、計算ではビーム中心部の幾何学的直線距離 $L=3.6 \text{ cm}$ としている。実際にはイオンビーム軌道分布により、それは電極電圧にも依存し、特に低い衝突エネルギー測定時の低電極電圧では軌道分布の広がりがやや大きく L は上記値より $10\sim 20\%$ 程度増加することも考えられる。 $Q1$ は値も大きく電流波形も単純なため誤差は比較的小さく、高々 $\pm 5\%$ 程度と考えられるが、 $Q2$ は低エネルギー測定時の低電極電圧では絶対値も小さく、電流波形から電荷移行反応生成イオン以外の電流を除去した電荷量導出時に $\pm 20\%$ 程度の誤差も考えられる。これらを総合すると、電荷移行断面積の測定誤差としては 1200 eV の高エネルギー測定時には $\pm 15\%$ 程度、100-200 eV 以下の低エネルギー測定時には $\pm 30\%$ 程度の誤差が考えられる。

Fig.9 の測定結果より同一の衝突エネルギーに対する複数回の測定値のバラツキはそれぞれの衝突エネルギーに対して上記の誤差程度になっていることがわかる。

衝突エネルギーが 100 eV 近傍の測定では各電極電圧は例えば $V1=120 \text{ V}$, $V2=V3=V4=20 \text{ V}$ と非常に低いためイオン電流量が小さく変動も大きい。この時、 $RV=V3/V1=0.166$ であり、電荷移行生成イオンがファラデーカップ 2 により正常に計測される条件 (3.1) 式

の限界に近い。さらに低いエネルギーでの測定を行うためには V1 と同時に V2, V3 も下げる必要があり、信号の変動やノイズ信号の影響により測定精度が急に低下し、精度の良い測定は困難であった。

(2) 理論計算との比較

Shinba & Bardsley による理論計算結果⁴⁾ および柴田&小倉による反応経路を考慮した理論計算結果¹²⁾ と測定結果との比較を Fig. 10 に示す。柴田&小倉による理論計算結果では断面積の絶対値は 100~1200 eV の範囲で測定値に比べて 1/3 程度と小さいが、U 原子の s 電子が U⁺ イオンの d 電子サイトに入る吸熱エネルギー 289 cm⁻¹ の近共鳴電荷移行反応が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傾向は測定結果とよく一致している。Gd、Nd、Dy 原子での電荷移行断面積の測定値は柴田らの計算値の約 1.5 倍であった。^{5) 11)} Gd、Nd、Dy では s 電子の移行のみを考えれば良かったのに対し、ウランでは共鳴電荷移行では d₂₃ 電子の移行があり、さらに s 電子が d 電子サイトに入る過程もあるなど原子構造がより複雑なことに起因して反応経路が多くなっている。このためにウランの場合、測定値と計算値の差が大きくなっていることが考えられる。

5. まとめ

基底状態のウランイオンがウラン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 100~1200 eV 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、衝突エネルギーが 100 eV では電荷移行断面積は $(1.3 \pm 0.3) \times 10^{-14} \text{ cm}^2$ であり、従来の測定値⁵⁾ よりも非常に小さく、Sinha & Bardsley の理論値⁴⁾ と同程度で、レーザー法ウラン濃縮でウラン原子密度を非常に低くするする必要はないことがわかった。また、電荷移行断面積は衝突エネルギーの増加とともに増加し、1200 eV では $(2.7 \pm 0.3) \times 10^{-14} \text{ cm}^2$ の値が得られた。断面積の衝突エネルギー依存性の傾向はウランの原子およびイオンの電子配位を考慮した計算結果¹²⁾ とほぼ一致する。

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) Greenland P. T. : Contemporary Phys. **31**, 405 (1990)
- 2) Paisner J. A. : Appl. Phys. **B46**, 253 (1988)
- 3) Dewangan D. P. : J. Phys. B, Atom. Molec. Phys. **6**, L20 (1973)
- 4) Sinha S. and Bardsley J.N. : Phys. Rev. **A14**, 104 (1976)
- 5) 仁木秀明、井沢靖和、大谷博康、山中千代衛 : 電気学会論文誌, **102-C**, 45 (1982)
- 6) 柴田猛順、小倉浩一 : JAERI-Research 94-025 (1994)
- 7) Shibata T., Ogura K. : J. Phys. Soc. Japan, **64**, 3136 (1995)
- 8) Ogura K., Shibata T. : J. Mass. Spectrom. Soc. Japan, **41**, 37 (1993)
- 9) 小倉浩一、有沢 孝、柴田猛順 : 真空 **35**, 301 (1992)
- 10) 小倉浩一、柴田猛順 : JAERI-Conf.95-022, 107 (1995)
- 11) 足立 肇、田村浩司、岡崎哲治、柴田猛順 : JAERI-Research 98-030 (1998)
- 12) 柴田猛順、小倉浩一 : JAERI-Research 95-025 (1995)
- 13) 大場弘則、有沢 孝、西村昭彦、小倉浩一、柴田猛順 : 真空 **35**, 286 (1992)
- 14) Ohba H., Nishimura A., Ogura K., Shibata T. : Rev. Sci. Instrum., **65**, 657 (1994)
- 15) 小倉浩一、柴田猛順 : JAERI-Research 98-036 (1998)
- 16) Ogura K. and Shibata T. : Jpn J. Appl. Phys. **37**, L1403 (1998)
- 17) 足立 肇、田村浩司、柴田猛順 : JAERI-Tech 98-029 (1998)
- 18) 田村浩司、岡崎哲治、足立 肇、大場弘則、柴田猛順 ; JAERI-Research 98-073 (1998)
- 19) 大場弘則、岡崎哲治、田村浩司、足立 肇、柴田猛順 : JAERI-Research 99-(1999)投稿予定

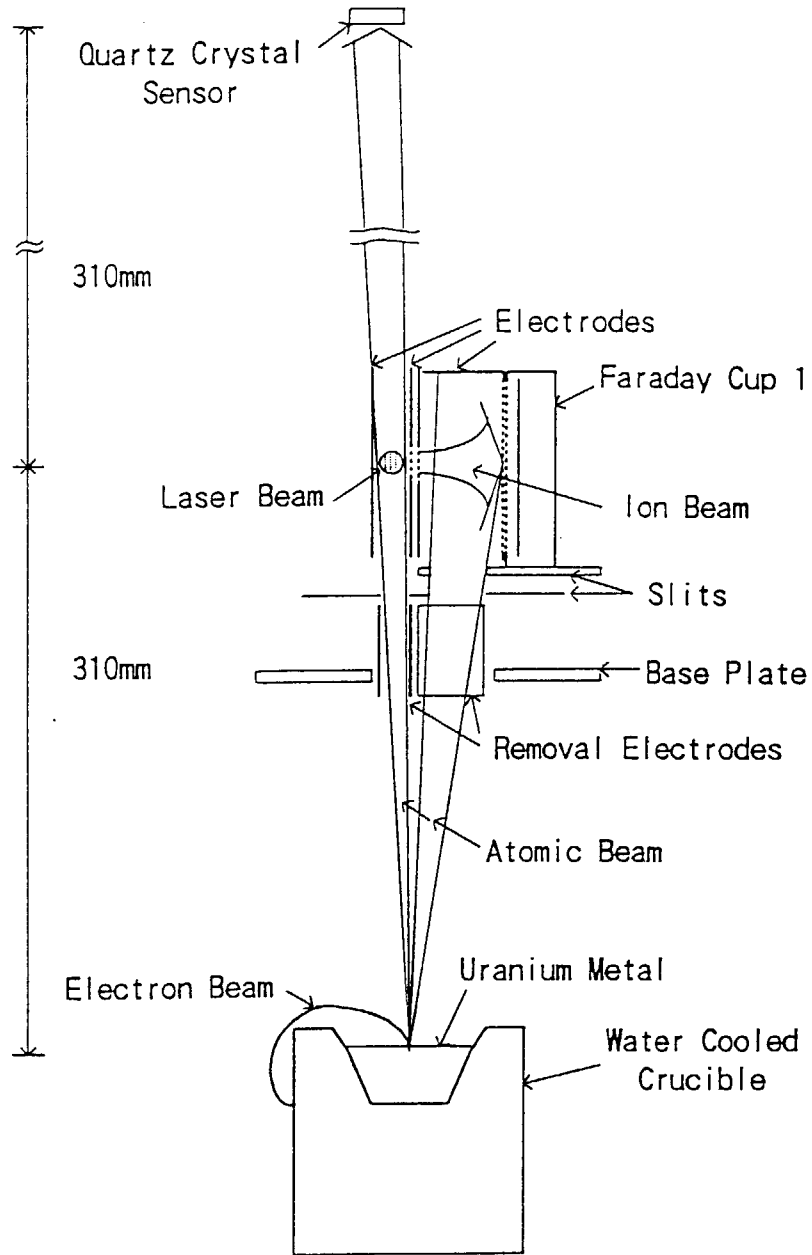


Fig.1 A schematic view of the experimental apparatus

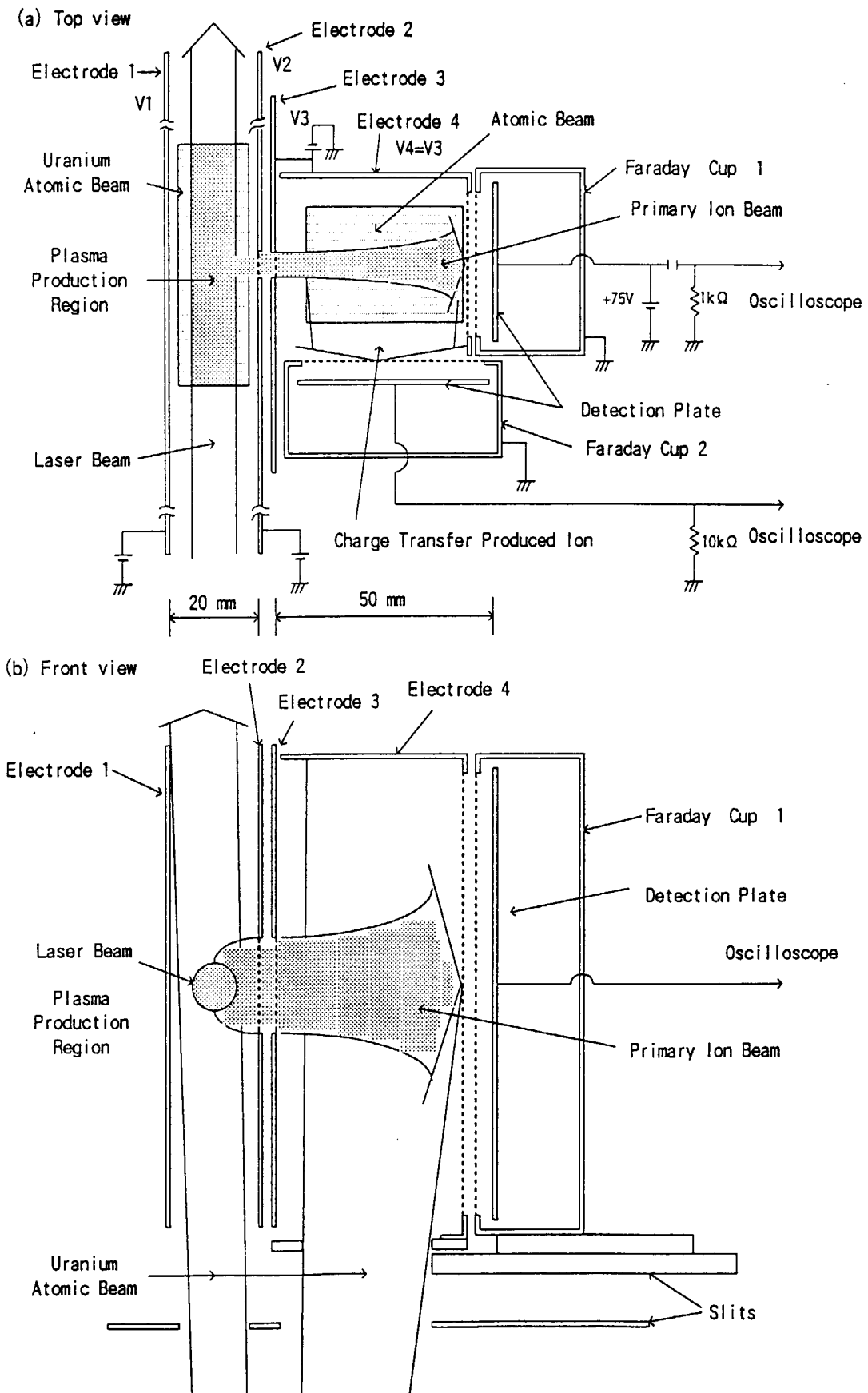


Fig.2 A detailed diagram of the laser ion source and the collision region

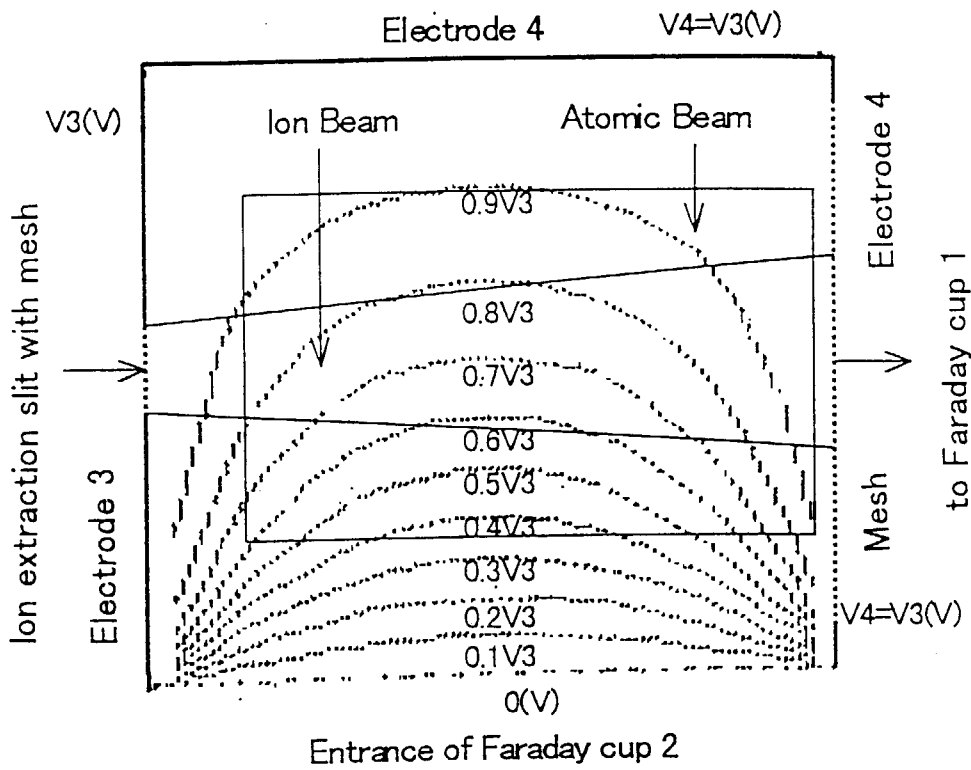


Fig.3 Electric potential distribution in the charge transfer reaction region

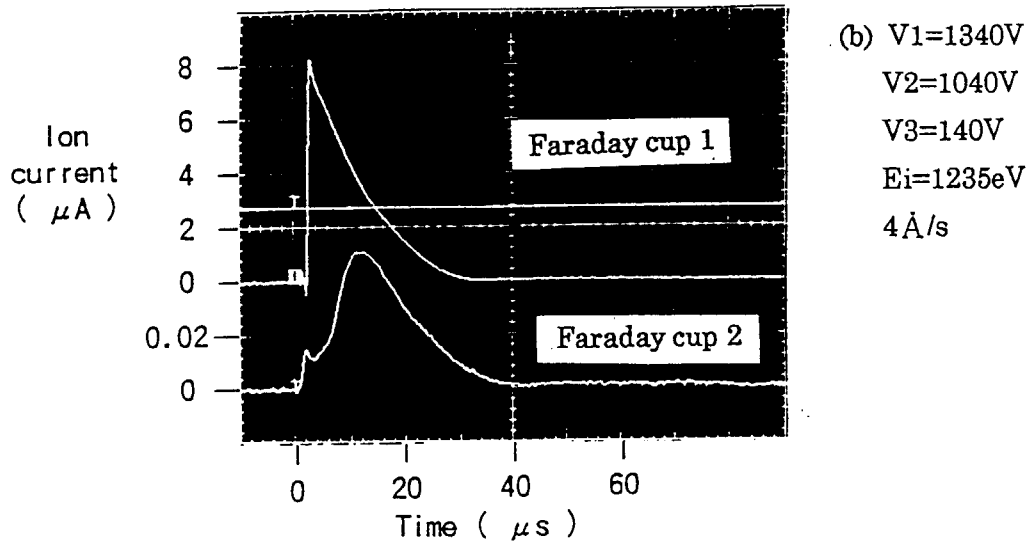
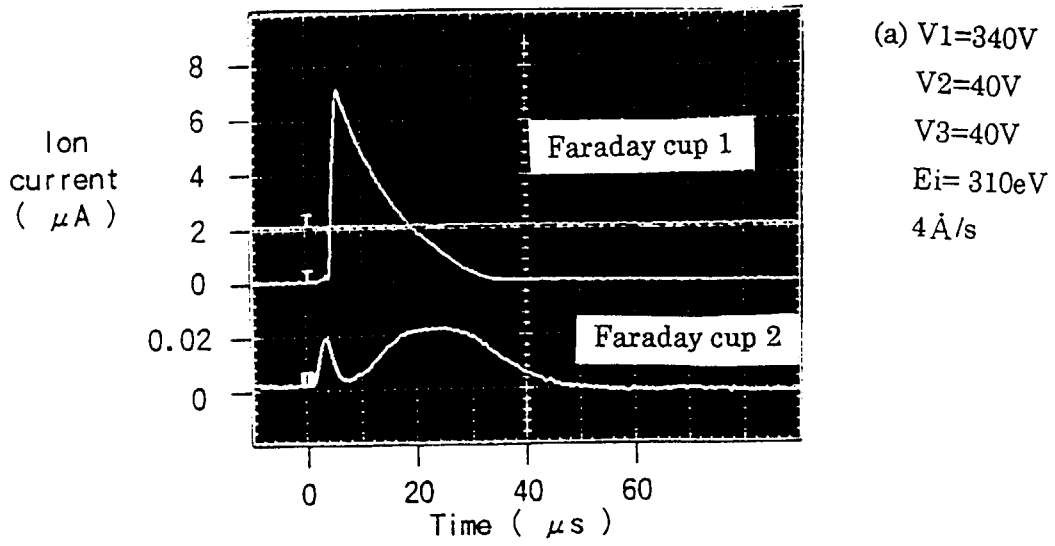


Fig.4 Ion current measured with Faraday cups 1 and 2

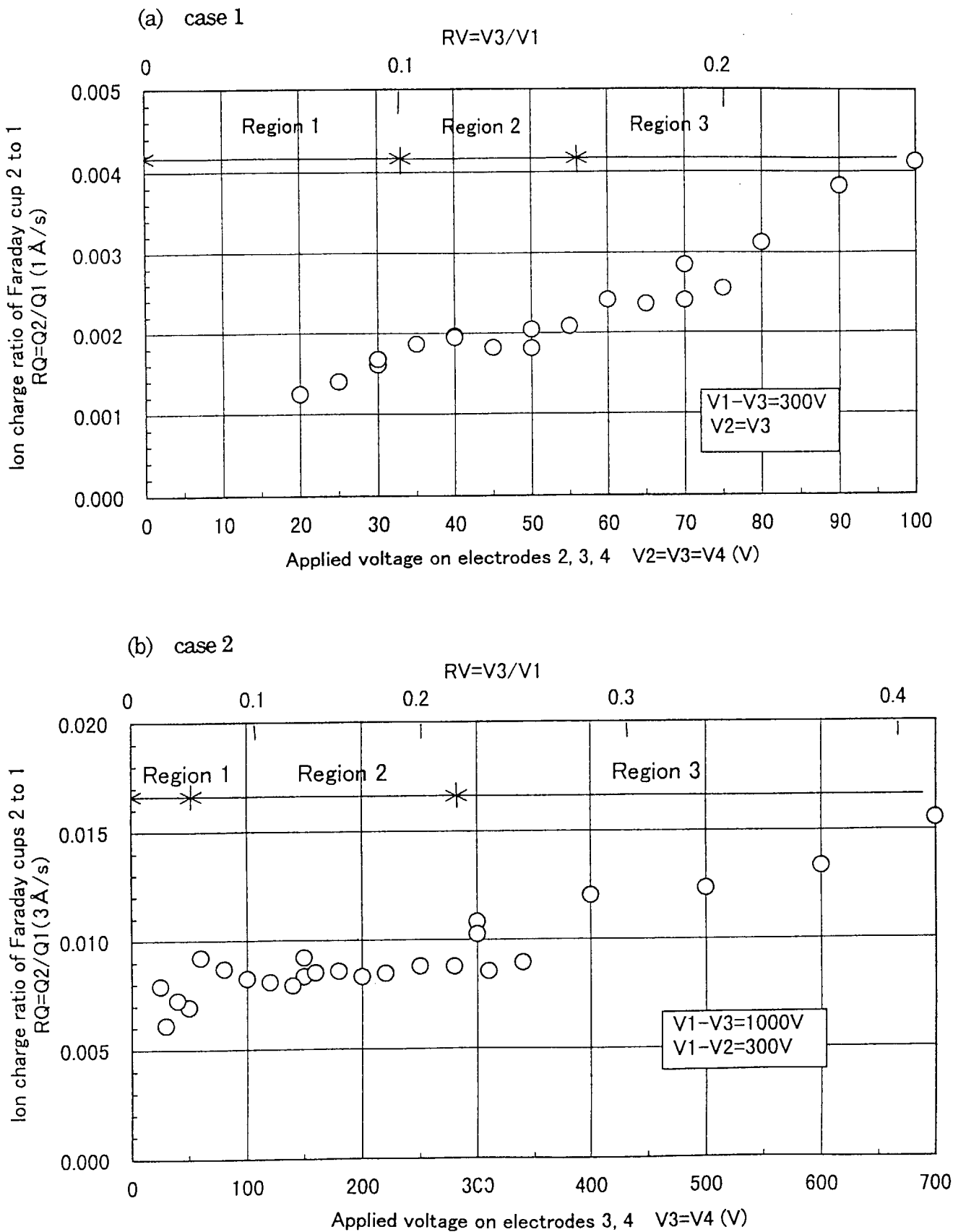


Fig.5 Dependence of ion charge ratio of Faraday cup 2 to 1 on the applied voltage on the electrodes 3 and 4

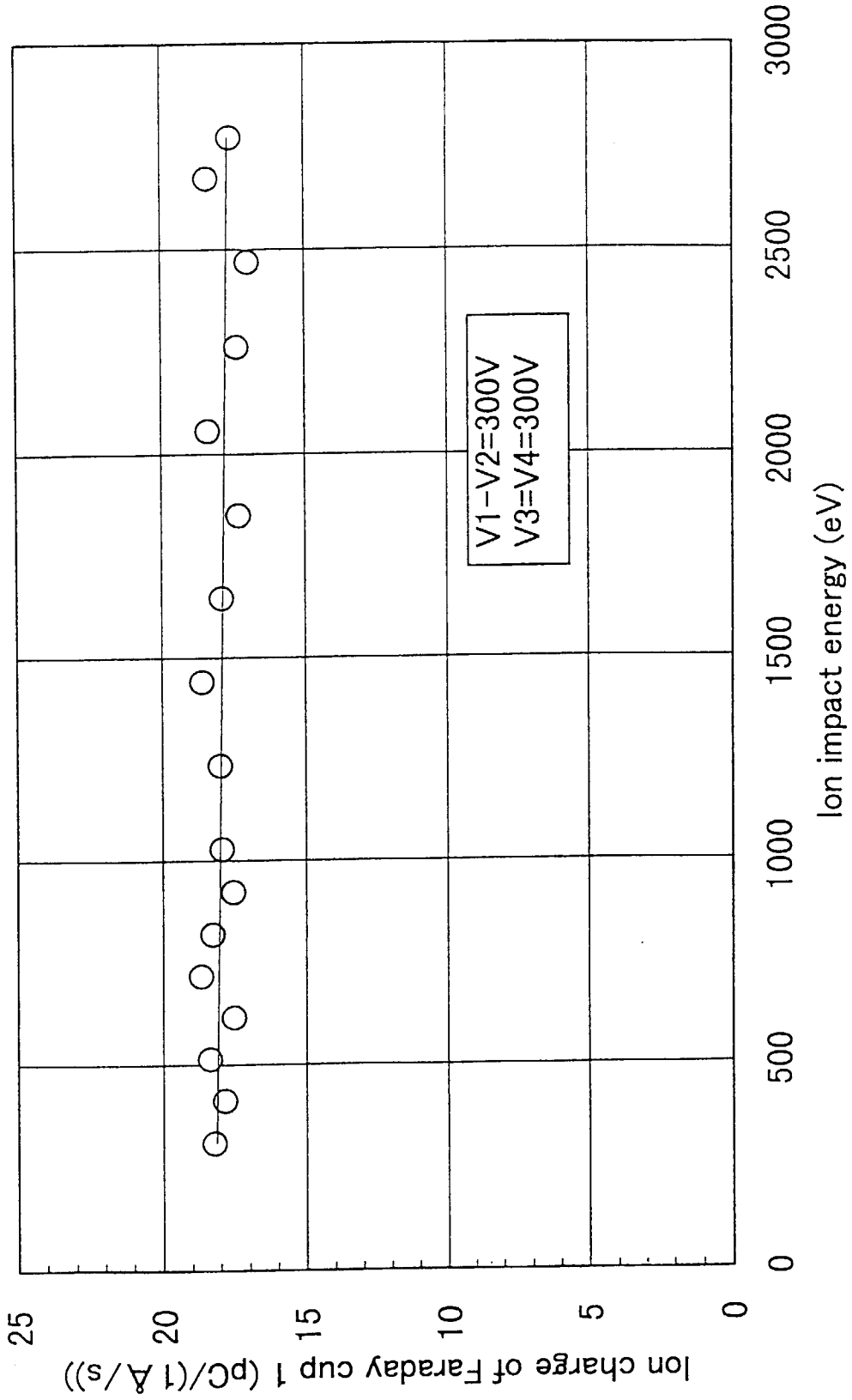


Fig.6 Dependence of ion charge of Faraday cup 1 on the applied voltage on the electrodes

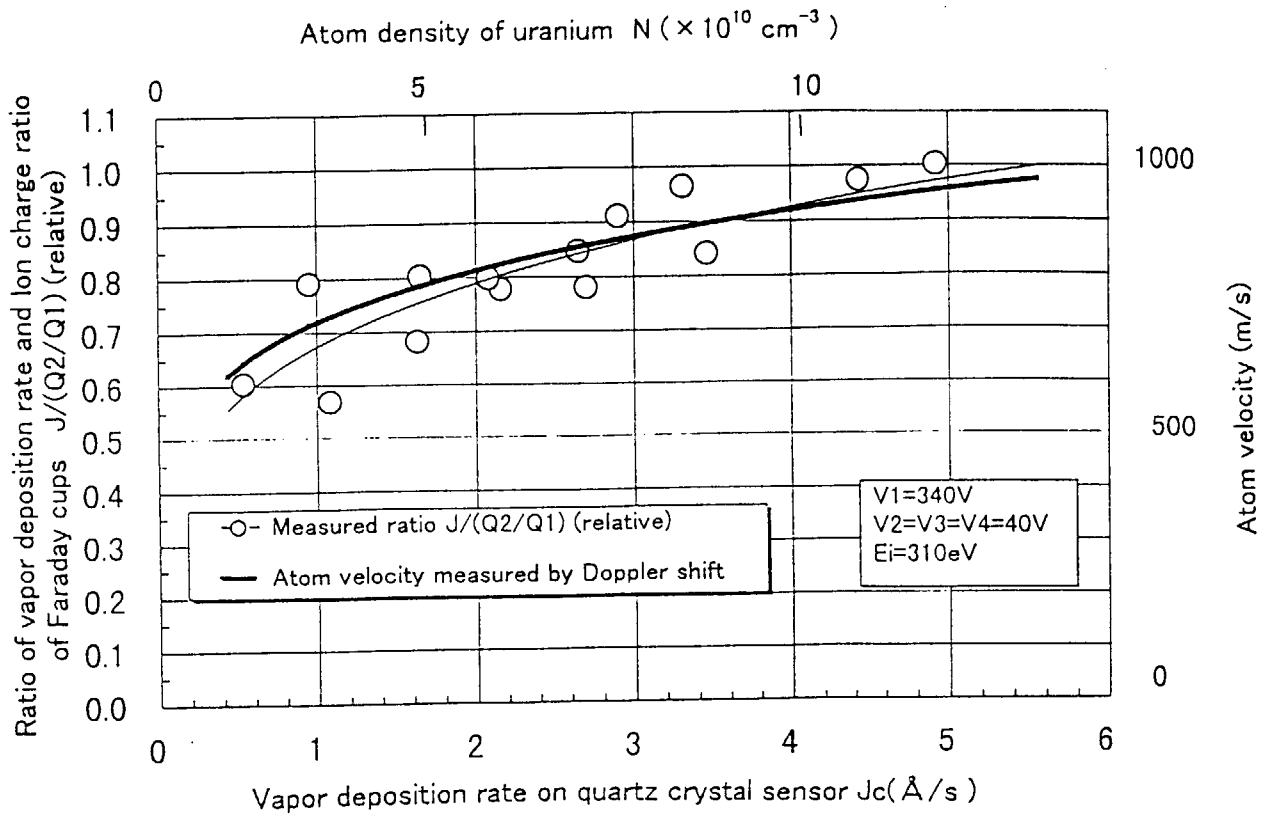


Fig.7 Ion charge ratio of Faraday cup 2 to 1 divided by vapor deposition rate and atom velocity as a function of vapor deposition rate

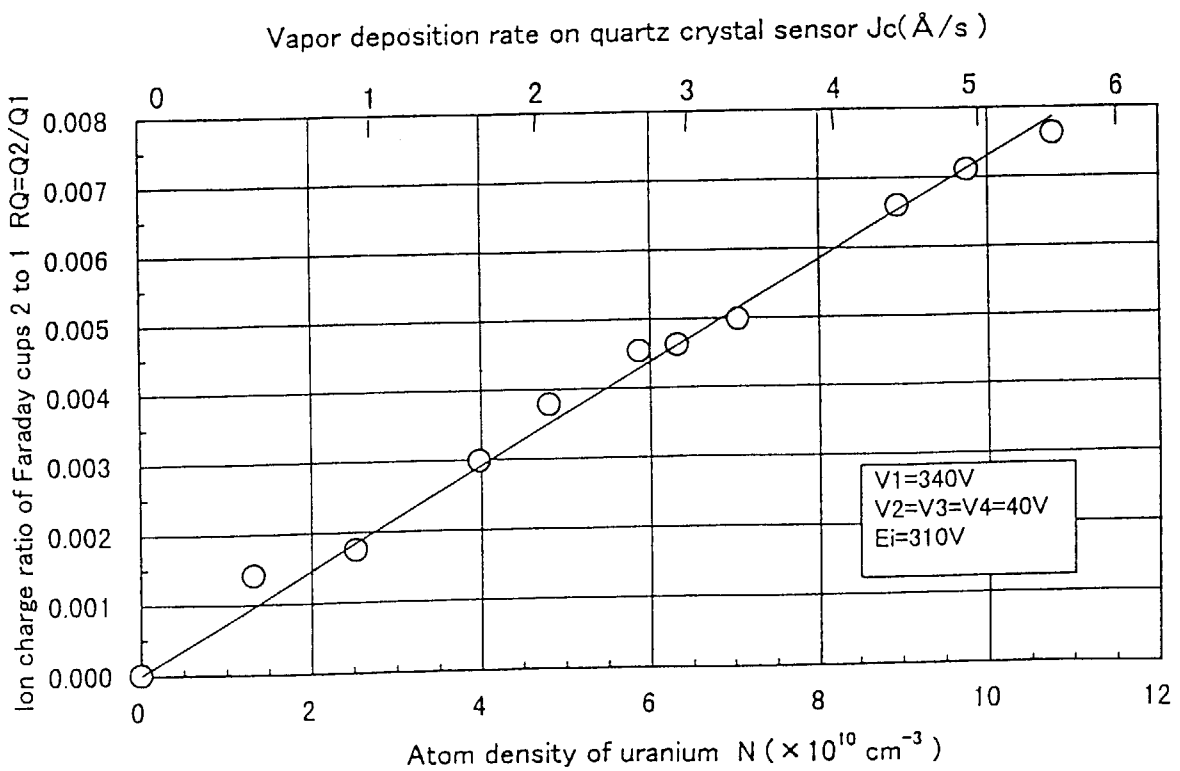


Fig.8 Relation between ion charge ratio of Faraday cup 2 to 1 and atom density

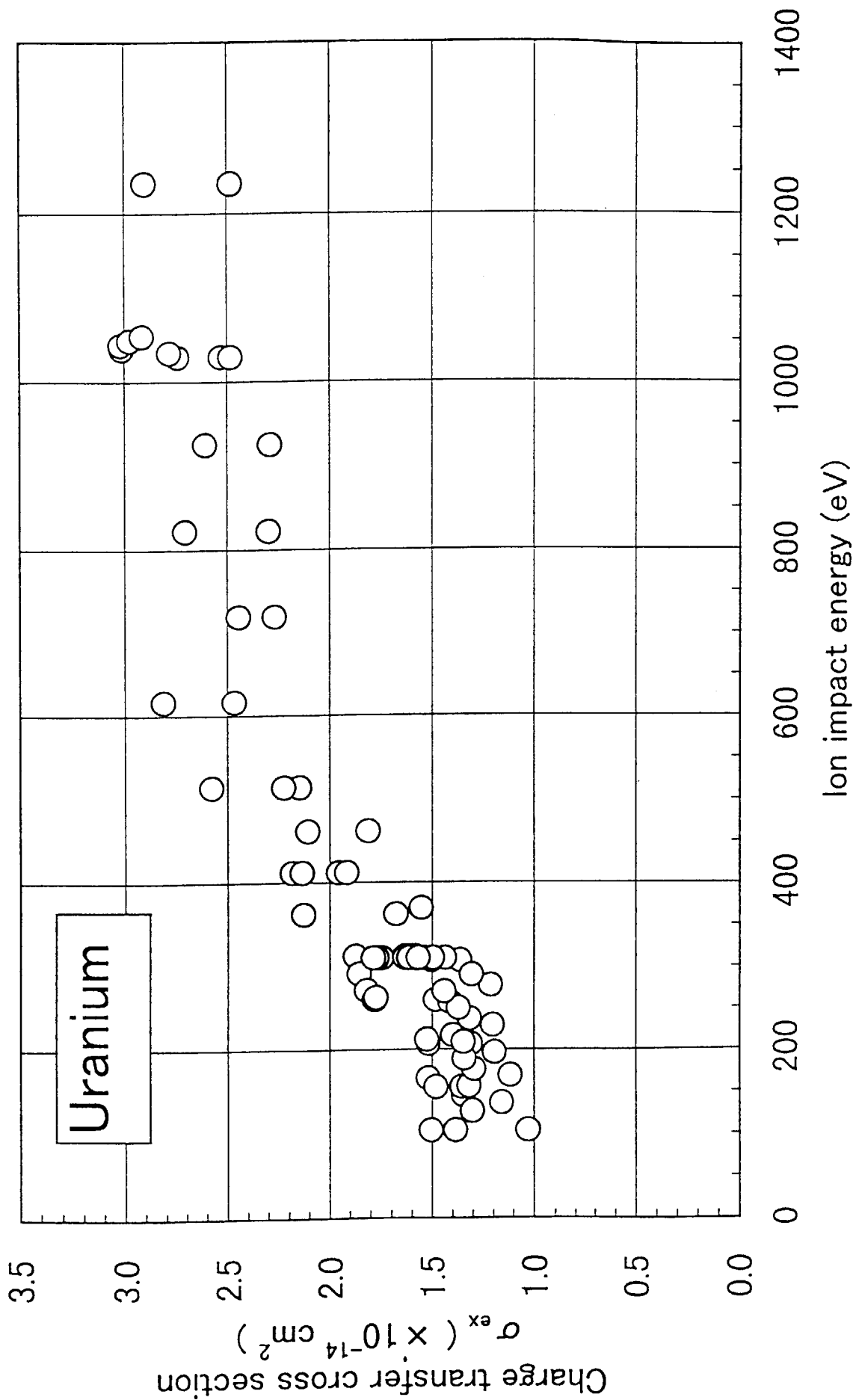


Fig.9 Measured results of charge transfer cross section of uranium.

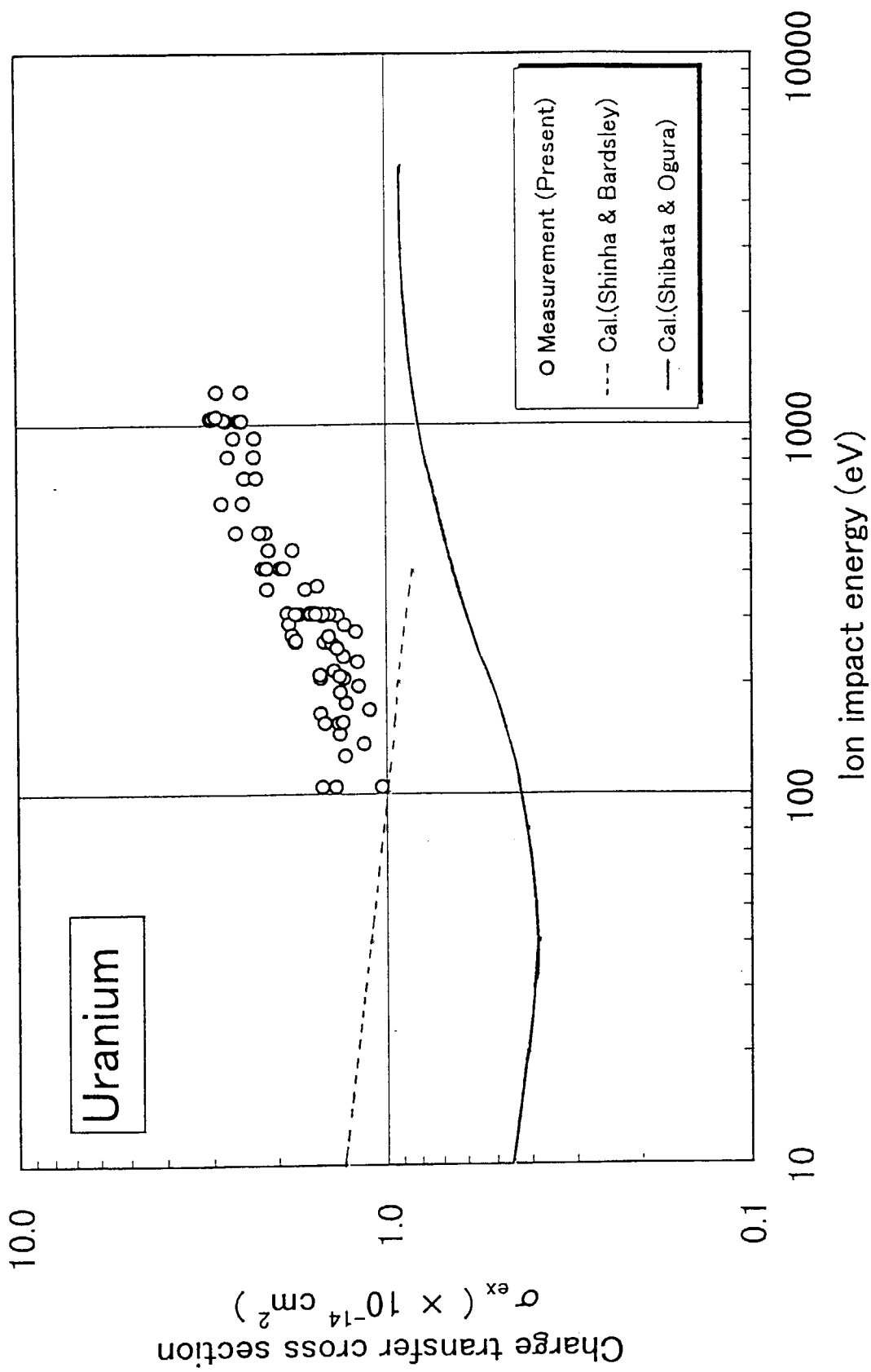


Fig.10 Charge transfer cross section of uranium
Comparison of measured results with calculated results

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	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	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 × 10⁻¹⁹ J
 1 u = 1.66054 × 10⁻²⁷ 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	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 = 0.1 nm = 10⁻¹⁰ m
 1 b = 100 fm = 10⁻²⁸ m²
 1 bar = 0.1 MPa = 10⁵ Pa
 1 Gal = 1 cm/s² = 10⁻² m/s²
 1 Ci = 3.7 × 10¹⁰ Bq
 1 R = 2.58 × 10⁻⁴ C/kg
 1 rad = 1 cGy = 10⁻² Gy
 1 rem = 1 cSv = 10⁻² Sv

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, 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。
- 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 = 10⁴ St (ストークス) (cm²/s)

圧	MPa (=10 bar)	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 ⁻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 = 4.18605 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 ⁻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

ウランの電荷移行断面積