

JAERI-Research
99-064



JP0050125



レーザー共鳴電離プラズマからの
イオン回収における電子温度の効果

1999年12月

田村浩司・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, 1999

編集兼発行 日本原子力研究所

レーザー共鳴電離プラズマからのイオン回収における電子温度の効果

日本原子力研究所東海研究所物質科学研究部

田村 浩司・大場 弘則・柴田 猛順

(1999年11月1日受理)

ジスプロシウムレーザー共鳴イオン化で電子温度が0.024 eV及び0.23 eVと1桁異なるプラズマを作り、プラズマからのイオン回収実験を行った。電子温度が高いプラズマの場合、プラズマ膨張速度が大きいため回収電極へのイオン電流密度が高く、イオン回収時間は短かった。また、プラズマ膨張に伴う電子温度の低下を考慮した簡易1次元モデルで計算した回収時間は、実験で得られた回収時間とほぼ一致した。

Effects of Electron Temperature on Ion Collection from Laser Resonant
Photoionized Plasma

Koji TAMURA, Hironori OHBA and Takamasa SHIBATA

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

(Received November 1, 1999)

Dysprosium plasma with electron temperature of 0.024 eV and 0.233 eV was produced by laser resonant photoionization, and the ion collection properties from the plasma were studied. For the plasma with higher electron temperature, since plasma expansion speed was large, ion current density to the collection electrode was large and ion collection time was short. The collection time calculated based on a simple one-dimensional model considering the decrease of electron temperature by plasma expansion agreed with experimental results.

Keywords: Plasma, Electron Temperature, Dysprosium, Resonant Photoionization, Ion
Collection

目 次

1. はじめに	1
2. 実験方法及び実験装置	1
3. 実験結果	3
4. 考察	3
5. まとめ	4
謝辞	5
参考文献	5

Contents

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

This is a blank page.

1. はじめに

原子法レーザー同位体分離では、目的同位体のみをレーザー光により選択的にイオン化し、これを電場により電極に回収する。このとき、イオンは光イオン化で脱離した電子とともにプラズマを形成し、その電位は正電位にほぼ等しい。イオンは電子温度の0.5乗に比例するボーム速度で膨張するプラズマから引き出されて、負電極に回収される。このときの回収イオン電流は負電極とプラズマ端の距離で決まる空間電荷制限電流である。¹⁻³⁾ プラズマの電子温度が異なるとプラズマの膨張速度が異なるので、プラズマ端と負電極の距離が変わり、回収イオン電流が変化してイオン回収時間も変わる。しかし、これまで電子温度がイオン回収に及ぼす効果を直接実験的に確認した例はない。これは、レーザー共鳴イオン化で放出される電子のエネルギーは通常数10 meV以下と非常に低く^{4,5)}、プラズマ膨張の効果はあまり大きくないためである。⁶⁾ また、共鳴イオン化を行うランタノイドやウランのイオンのエネルギー準位は0.3 eV以下に多くの準位があるため、レーザー光によりイオン化ポテンシャルより非常に高い準位に励起しても、放出される電子のエネルギーは必ずしも高くないため、高い電子温度のプラズマを確実に作る事ができなかった。これに対して、ジスプロシウム原子は $4f^{10} 6s^2$ で、Fig.1(a)⁷⁾に示すように第1励起準位が 4134 cm^{-1} と非常に高い。イオンはFig.1(b)のように6s電子が抜けて原子の各準位が分裂する。レーザー光により $4341 \text{ cm}^{-1}(J=15/2)$ のすぐ下のエネルギーに励起してイオン化すれば、生成イオンが 0 cm^{-1} でも 828 cm^{-1} でも、かなり高エネルギーの電子を放出できるため、高い電子温度のプラズマを生成できる可能性がある。このため、ジスプロシウムを用いて、これまでと同様に非常に電子温度の低いプラズマとともに、電子温度の非常に高いプラズマを作り、イオン回収への電子温度の効果を調べた。

2. 実験方法及び実験装置

Fig.2に実験配置の立面図を示す。銅製水冷るつぼ中のジスプロシウム金属を電子ビーム加熱により蒸発させ、原子ビームを生成した。原子ビームに含まれる蒸発部生成プラズマは、除去電極に負電位(-50 V)を印加することにより除いた。⁸⁾ 原子ビームをスリットにより整形し、回収電極1、2間の高さ421 mmの光反応領域へ導入した。ここで、電極間隔は21 mmである。原子ビームの蒸着速度は高さ676 mmに配置した水晶振動子膜厚計により測定した。

原子のイオン化は、エキシマーレーザー励起で出力約0.4 mJの色素レーザー光を、真空容器内のスリットで10 mm径に絞り原子ビームに垂直に照射することで行った。2波長を用いたイオン化のときは、2系統のレーザー光をダイクロイックミラーにより同軸にして入射した。

低い電子温度のプラズマは、ジスプロシウムを次の2波長2段階イオン化スキームによ

り励起して生成した。

$$Dy : 0 \text{ cm}^{-1} \rightarrow 21839 \text{ cm}^{-1} \rightarrow 48196 \text{ cm}^{-1} \quad (>I.P.=47900 \text{ cm}^{-1})$$

$$J=8 \qquad J=9$$

$$\lambda_1 = 457.9 \text{ nm} \quad \lambda_2 = 379.4 \text{ nm}$$

ここで、I.P.はイオンの基底状態になるイオン化ポテンシャル⁷⁾、Jはレベルの全角運動量、 λ_1 と λ_2 は1段目と2段目の励起波長である。これにより、Fig.3(a)に示すようにイオンの基底状態より 296 cm^{-1} 高い自動電離準位に励起される。これにより、基底状態の Dy^+ イオンと、 296 cm^{-1} (0.0367 eV) のエネルギーを持つ電子が生成される。イオン密度が約 10^9 cm^{-3} のとき電子-電子衝突周波数は $4 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$ 程度なので、プラズマは約 $1 \mu\text{s}$ で熱化すると考えられる。電子温度 kT_e は、

$$\frac{3}{2} kT_e = 0.0367 \text{ eV},$$

から 0.024 eV と推定される。

一方、高い電子温度のプラズマは、Fig.3(b)に示すように次の1波長2段階スキームで生成した。

$$Dy : 0 \text{ cm}^{-1} \rightarrow 25568 \text{ cm}^{-1} \rightarrow 51135 \text{ cm}^{-1} \quad (>I.P.=47900 \text{ cm}^{-1})$$

$$J=8 \qquad J=7$$

$$\lambda_1 = 391.1 \text{ nm} \quad \lambda_2 = 391.1 \text{ nm}$$

これにより、イオン化ポテンシャルより 3235 cm^{-1} (0.401 eV) 高い準位に励起され、2波長2段階イオン化の場合よりも電子温度の高いプラズマが生成できる。このエネルギーは、イオンの基底状態から 828 cm^{-1} (0.103 eV) の準安定準位よりも高い。放出電子のエネルギーは基底状態のイオンが生成するときは 0.401 eV 、準安定準位のイオンが生成するときは 0.298 eV である。両者の分岐比はわからないが、1:1 と仮定すれば放出電子の平均エネルギーは 0.35 eV である。従って、プラズマ生成直後の電子温度は 0.233 eV となり、2波長2段階イオン化で生成したものに比べ非常に高い値が得られる。

なお、2波長2段階イオン化では自動電離準位を経由してイオン化するため電離効率は高いが、1波長2段階イオン化は自動電離準位を経由しないため電離効率は低い。いずれのイオン化方法でも同程度のプラズマ密度を得るため、2波長2段階イオン化ではレーザー光 λ_2 のエネルギーをNDフィルターで $6 \mu\text{J}$ 程度に弱めて照射した。

回収電極2は接地し、回収電極1に正電位を印加し、回収電極2にプラズマから引き出したイオンを回収した。回収イオンの一部を電極2のイオン引き出し孔を通過させ、ファラデーカップで検出した。引き出し孔は $5\text{mm} \times 70\text{mm}$ で、透過率81%のメッシュを張った。検出板に流れるイオン電流は $1\text{k}\Omega$ の抵抗を通して電圧パルスとしてオシロスコープで測定した。

3. 実験結果

2波長2段階で電子温度の低い場合と1波長2段階で電子温度の高い場合の回収イオン電流波形の例をそれぞれ Fig.4(a),(b)に示す。ここで、回収電圧はいずれも70V、生成イオン密度はそれぞれ 1.33×10^9 個/cm³ と 1.45×10^9 個/cm³ であり、電流波形を積分して求めたイオン電荷量から算出した。電流波形の立ち上がりからイオン電流がなくなるまでの回収時間はそれぞれ42.0 μ sと35.5 μ sとなる。電子温度が高い1波長2段階の場合、生成イオン密度が高いにもかかわらず、回収時間は短い。1波長2段階のイオン電流波形では、回収時間が短いことに対応して電流波形の中央部が大きく隆起している。

Fig.5に回収電圧が70V, 100V, 140Vのときの、プラズマ生成時のイオン密度とイオン回収時間との関係を示す。いずれの結果も、回収時間はイオン密度ともに増加し、また同じイオン化方法では回収電圧が高くなると回収時間が短くなっている。これは、空間電荷制限電流が印加電圧の3/2乗に比例するためである。また、同じ回収電圧でイオン密度が同じ領域の回収時間を2波長2段階イオン化と1波長2段階イオン化で比較すると、どの回収電圧でも1波長2段階イオン化の方が回収時間は短くなっている。

4. 考察

2次元の数値シミュレーションでイオンの回収過程はほぼ予測できる⁶⁾が、Fig.6に示す非常に簡単な簡易一次元モデル^{2,3)}を用いることで、イオン電流波形は予測できないがイオン回収時間は正しく計算できる。このモデルではプラズマ形状を矩形で近似し、主に次の点を考慮している。

- 1) プラズマ電位は回収電圧の高電圧側の電極電位とほとんど等しい。
- 2) プラズマは原子ビームとともに上方に移動する。
- 3) プラズマはボーム速度で上下左右に膨張する。
- 4) プラズマから電極に空間電荷制限電流に相当するイオン量が抜ける。このイオン引出しによりプラズマは収縮する。

プラズマが膨張するのは、電子の運動エネルギーがイオンに移動するためであり、その結果電子温度は低下する。これまで、簡易一次元モデルでは電子温度の低下は考慮していなかった。これは、電子温度が非常に低い時の計算であり電子温度低下が計算にあまり影響しなかったからである。しかし、本研究のように電子温度が高い場合、プラズマ膨張により電子温度が急速に低下することが考えられる。ここでは、電子温度の低下も考慮して簡易一次元モデルを改良し、これを用いてイオン回収時間を計算し実験と比較した。

プラズマ内の電子は、電子のガスと考えることができる。電子はイオンがあるところから抜け出せないで、イオンの境界が電子にとって壁となる。プラズマの圧力のうち電子によるもの P および電子のエネルギー E はそれぞれ、

$$P = n_e k T_e,$$

$$E = \frac{3}{2} n_e k T_e V = \frac{3}{2} N k T_e,$$

である。ここで n_e は電子の密度、 V はプラズマの体積、 N はプラズマ内の電子数である。また、イオンの膨張、すなわち壁を動かすのに必要な仕事は $P\Delta V$ である。ここで、 ΔV は体積の変化量である。次のステップでの電子エネルギー E' はこのエネルギー分だけ減少して、

$$E' = \frac{3}{2} N k T_e - P\Delta V,$$

となると考え、電子温度 T_e' は、

$$E' = \frac{3}{2} N k T_e',$$

から求めた。この新しい電子温度を用いて、プラズマの膨張速度を計算した。

2 波長 2 段階および 1 波長 2 段階イオン化で生成直後のプラズマの電子温度はそれぞれ 0.024 eV と 0.233 eV とした。このときのボーム速度 $V_B (= 0.6\sqrt{kT_e/m_i})$ はそれぞれ 72 m/s と 223 m/s と求まる。ここで、 k はボルツマン定数 (1.38×10^{-23} J/K)、 T_e は電子温度、 m_i はジスプロシウム原子の質量である。初期プラズマ形状は 13 mm × 6 mm とした。これは直径 10 mm のプラズマの断面と同じ面積になるようにした。

イオンはプラズマから空間電荷制限電流分が負電極に引き出され、負電極側のプラズマが収縮する。計算では、各時間ステップでプラズマの膨張、イオン回収量とプラズマ収缩量、電子温度の低下を計算し、プラズマが消滅しイオン電流がなくなるまで計算を繰り返した。プラズマ生成からイオン電流消滅までの時間を回収時間と考え、実験と対応した印加電圧での回収時間を求めた。なお、回収時間はプラズマの原子ビーム方向の流れは寄与しないので計算では考慮しなかった。

Fig.7 に回収電圧 70V で、2 波長 2 段階イオン化で電子温度が低い場合 (実線) と 1 波長 2 段階イオン化で電子温度が高い場合 (破線) の回収時間の計算結果を実験結果とともに示す。計算でも電子温度が高いときにはイオン回収時間が短く、また電子温度の高低にかかわらず回収時間は実験結果とほぼ一致した。

5 まとめ

ジスプロシウムのレーザー共鳴イオン化で電子温度が 0.024 eV と 0.23 eV と 1 桁異なるプラズマを作り、電極電圧 70V ~ 140V でプラズマからのイオン回収実験を行った。1 波長 2 段階共鳴電離スキームにより生成した電子温度の高いプラズマの場合、2 波長 2 段階イオン化で生成した電子温度の低いプラズマの場合に比べ、プラズマ膨張速度が大きいため回収電極へのイオン電流密度が高くイオン回収時間は短かった。また、プラズマ膨張に伴

う電子温度の低下を考慮した簡易1次元モデルで計算した回収時間は、実験で得られた結果とほぼ一致した。

謝辞

夏期実習生として来所され、実験及びデータ解析を手伝っていただいた名古屋大学大学院工学系研究科の恒川裕輔氏に感謝いたします。

参考文献

- 1) Chen F.F.: Phys. Fluids, 25, 2385 (1982).
- 2) 小倉浩一、有澤孝、柴田猛順: JAERI-M 91-222 (1992).
- 3) Ogura K., Arisawa T., and Shibata T.: Jpn. J. Appl. Phys. 31, 1485 (1992).
- 4) 小倉浩一、柴田猛順: JAERI-Research 95-020 (1995).
- 5) Ogura K, Shibata T.: Jpn. J. Appl. Phys. 37, L1403 (1998).
- 6) Ogura K., Kaburaki H., and Shibata T.: J. Nucl. Sci. Technol., 30, 1248 (1993).
- 7) Martin W. C., Zalubas R. and Hagan H.: "Atomic Energy Levels-the Rare-earth Elements", NBS, Washington D.C., 1978.
- 8) Ohba H., Nishimura A., Ogura K. and Shibata T.: Rev. Sci. Instrum., 65, 657 (1994).
- 9) Shibata T. and Ogura K.: J. Nucl. Sci. Technol., 33, 834 (1996).

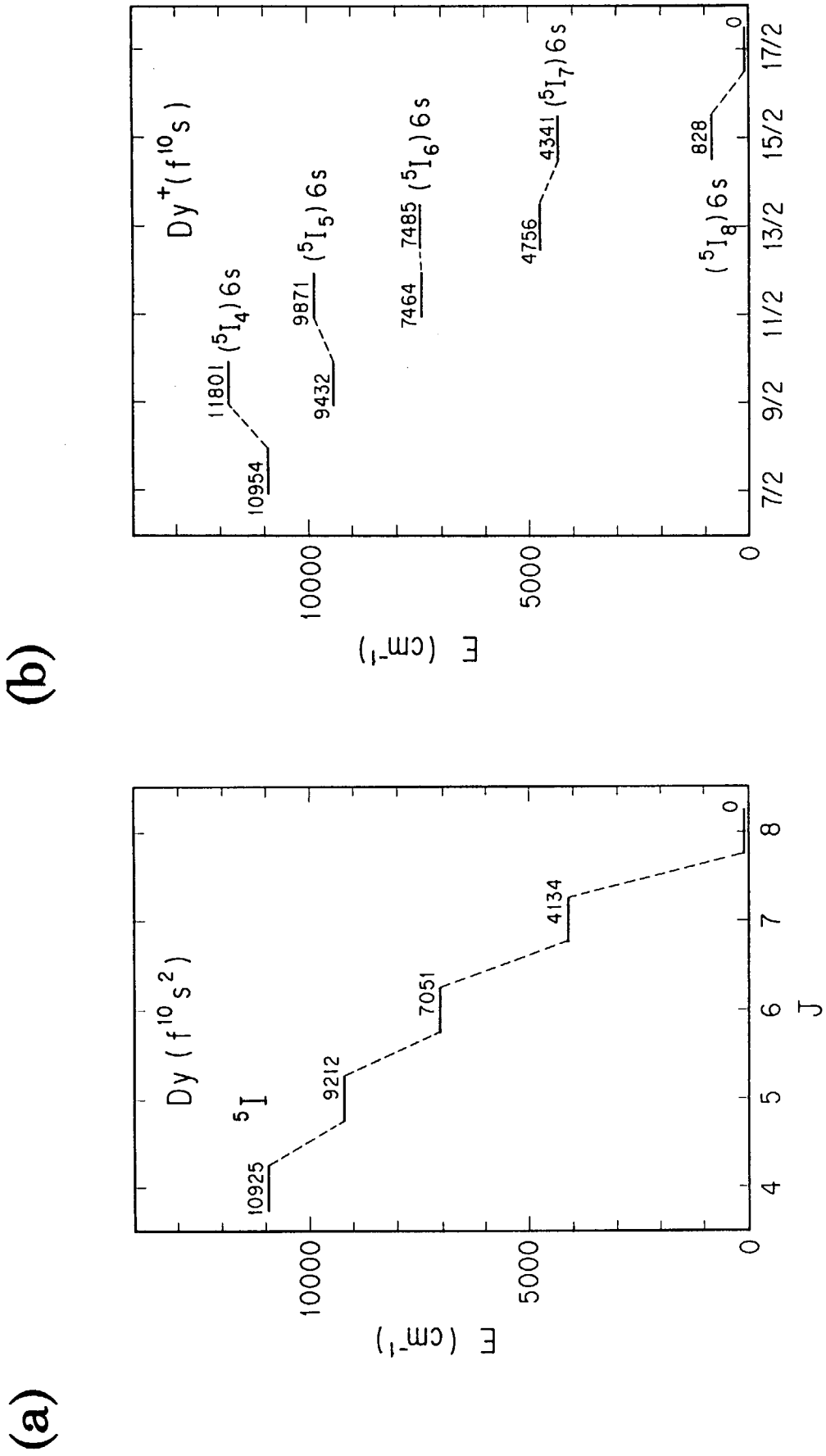


Fig.1 Energy diagram of dysprosium atom (a) and ion (b) near ground level.

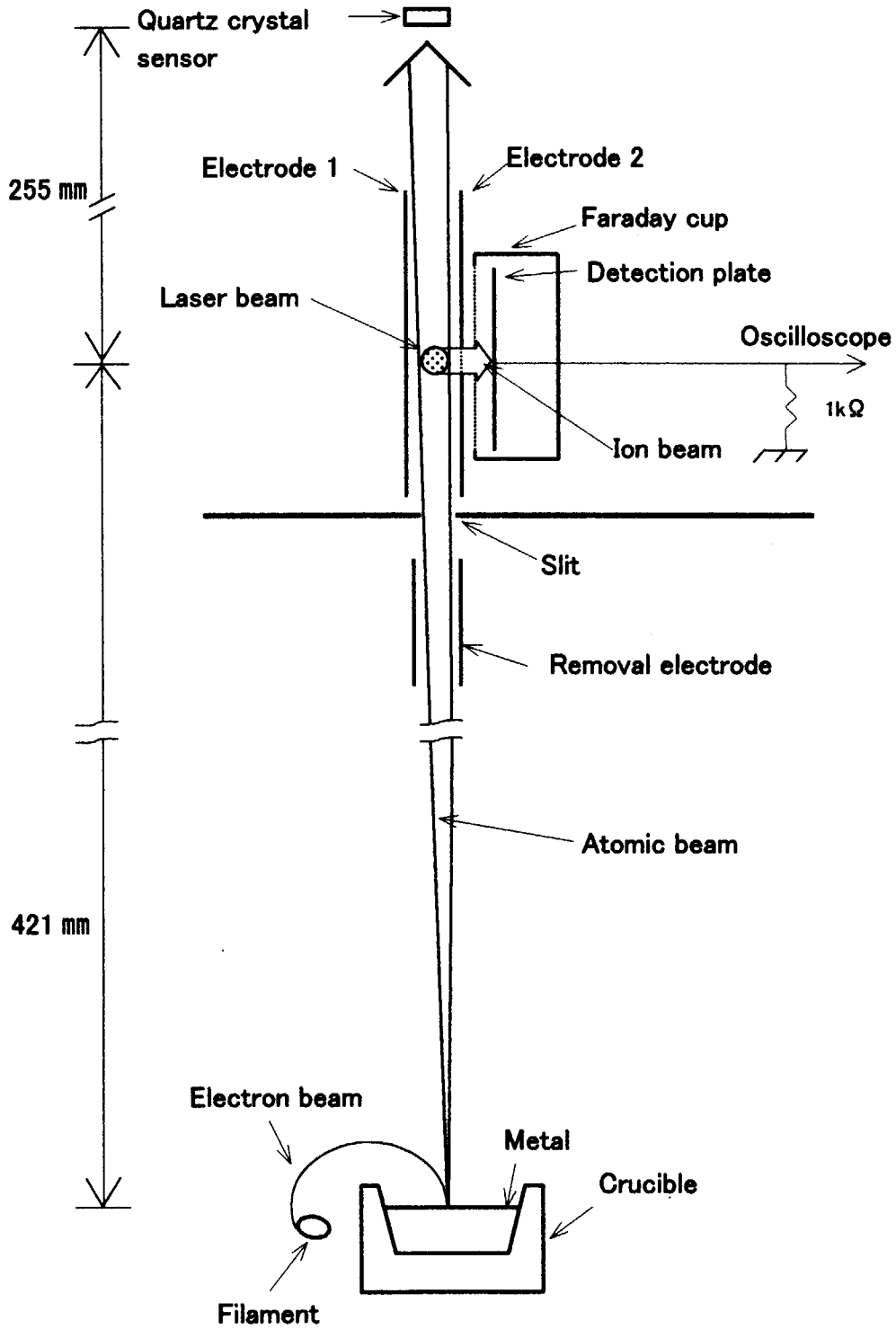


Fig.2 A schematic view of the experimental apparatus.

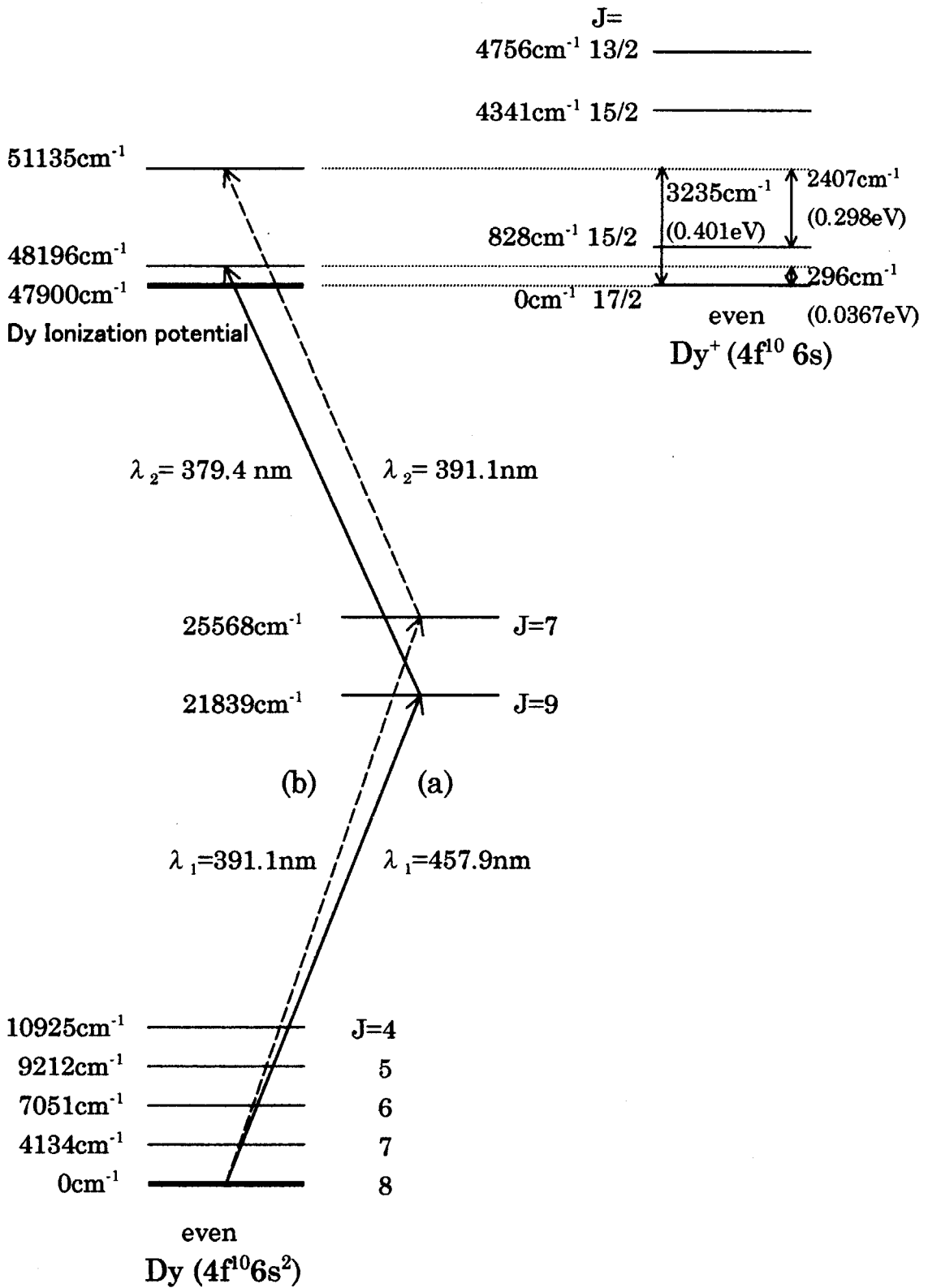
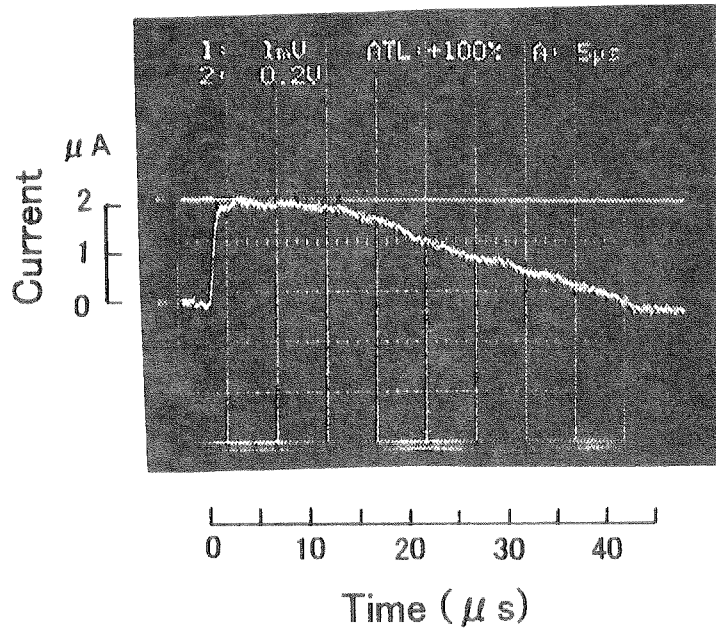


Fig.3 Resonant photoionization scheme of dysprosium atom for 2-wavelength 2-step ionization (a) and 1-wavelength 2-step ionization (b) scheme.

(a)



(b)

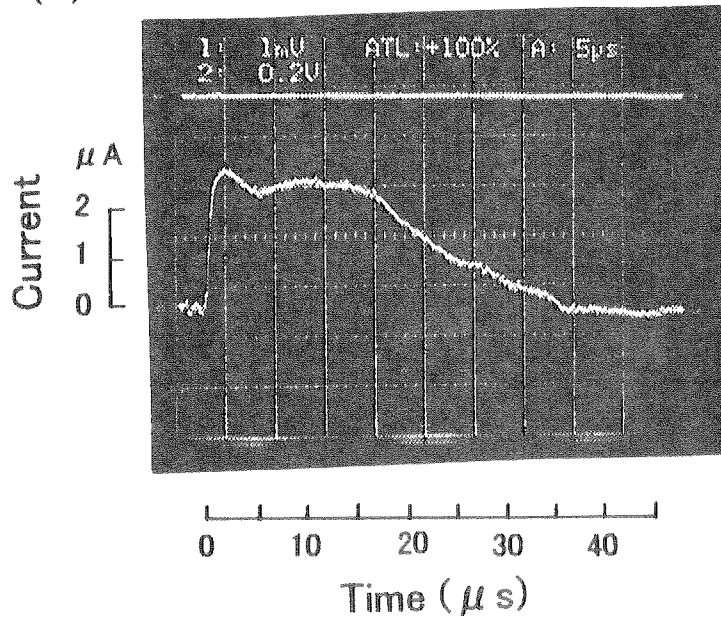


Fig.4 Typical waveform of ion currents detected with a Faraday cup for low electron temperature plasma produced by 2-wavelength 2-step ionization (a) and high temperature plasma produced by 1-wavelength 2-step ionization (b) scheme. Ion collection voltage was 70 V.

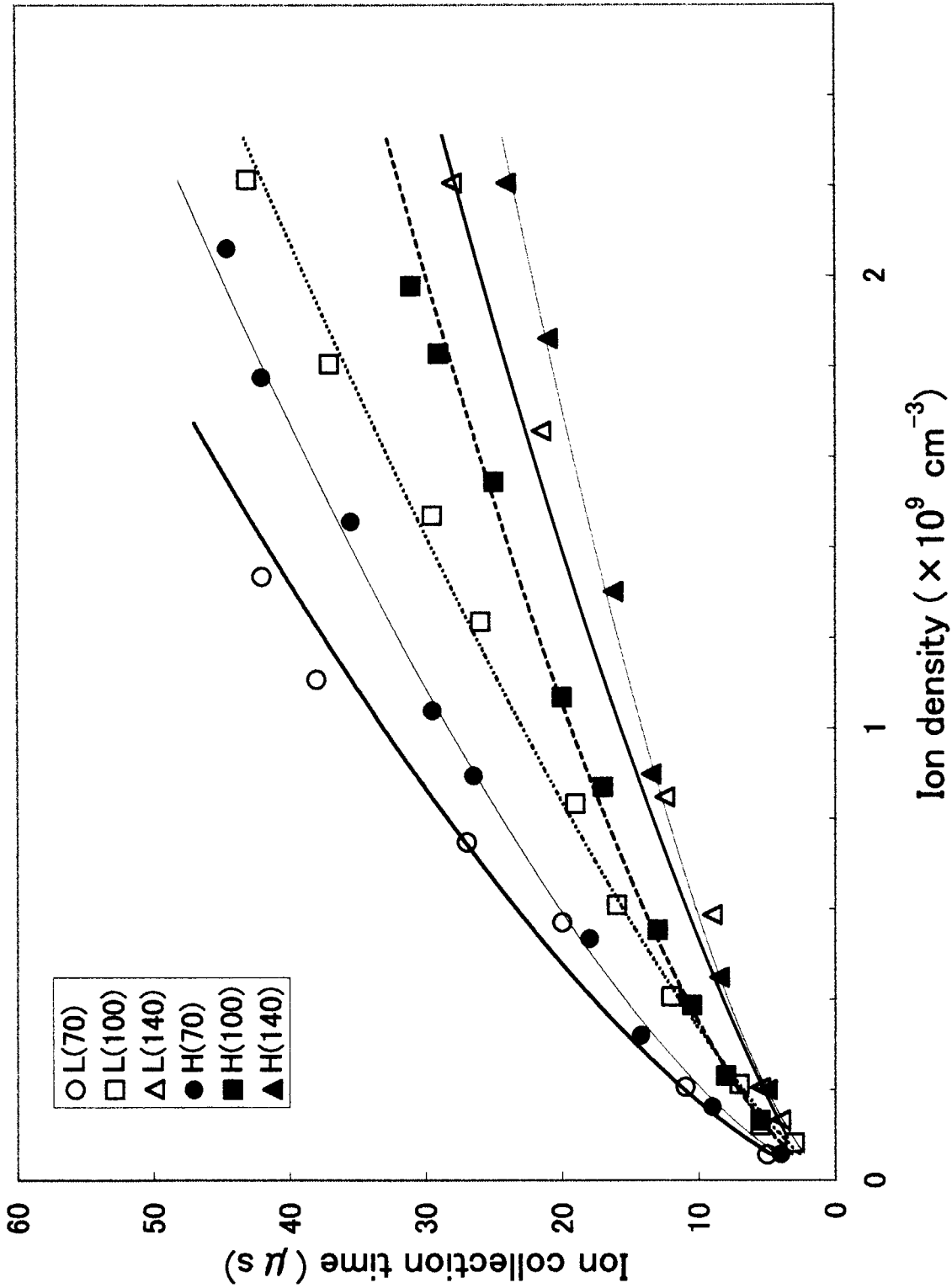


Fig.5 Experimental ion collection time as a function of ion density. L and H denote low and high electron temperature produced by 2-wavelength 2-step ionization and 1-wavelength 2-step ionization, respectively. 70, 100, 140 in parentheses denote ion collection voltage of 70V, 100V and 140V, respectively.

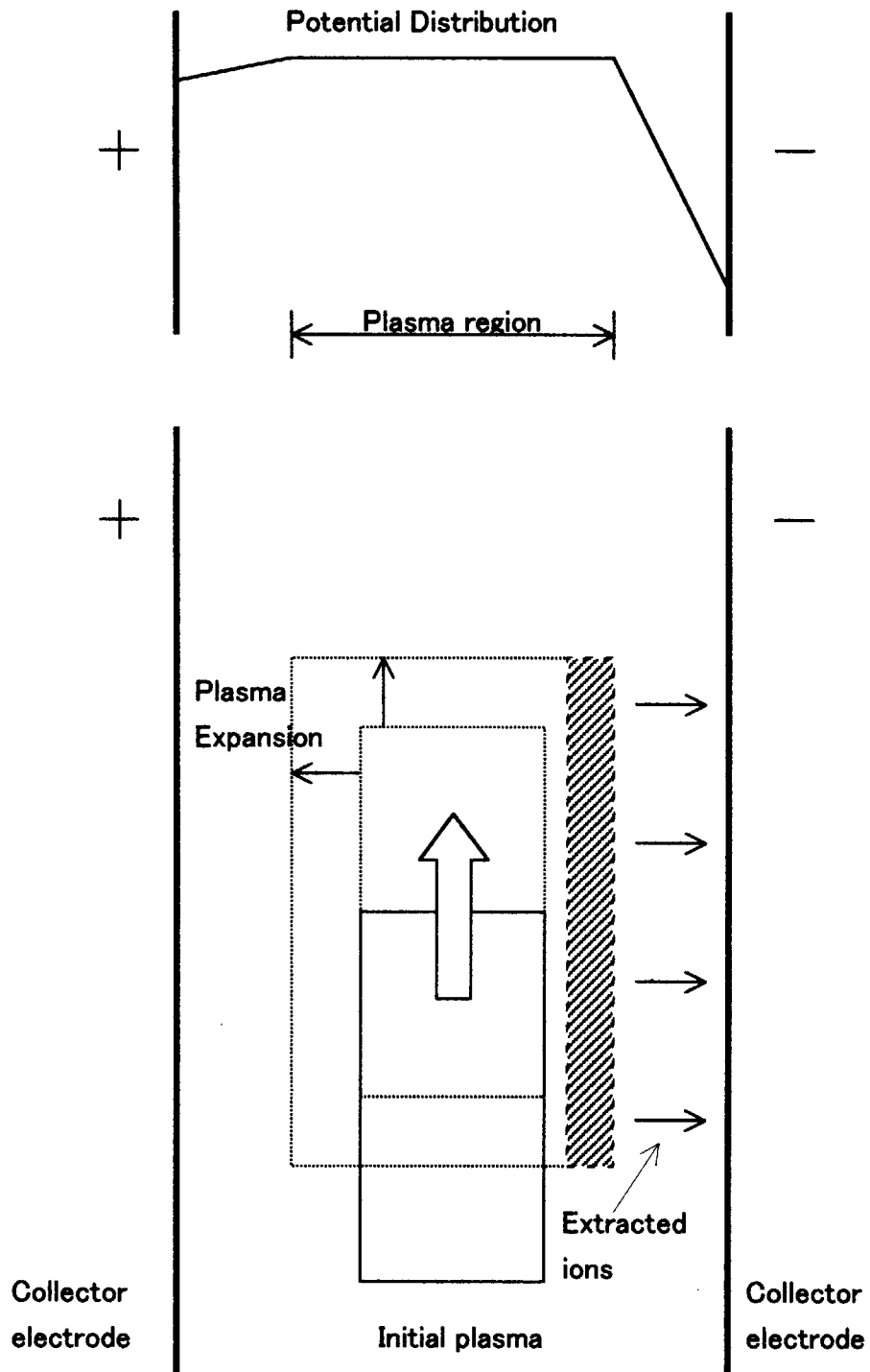


Fig.6 One-dimensional model for plasma expansion and ion collection.

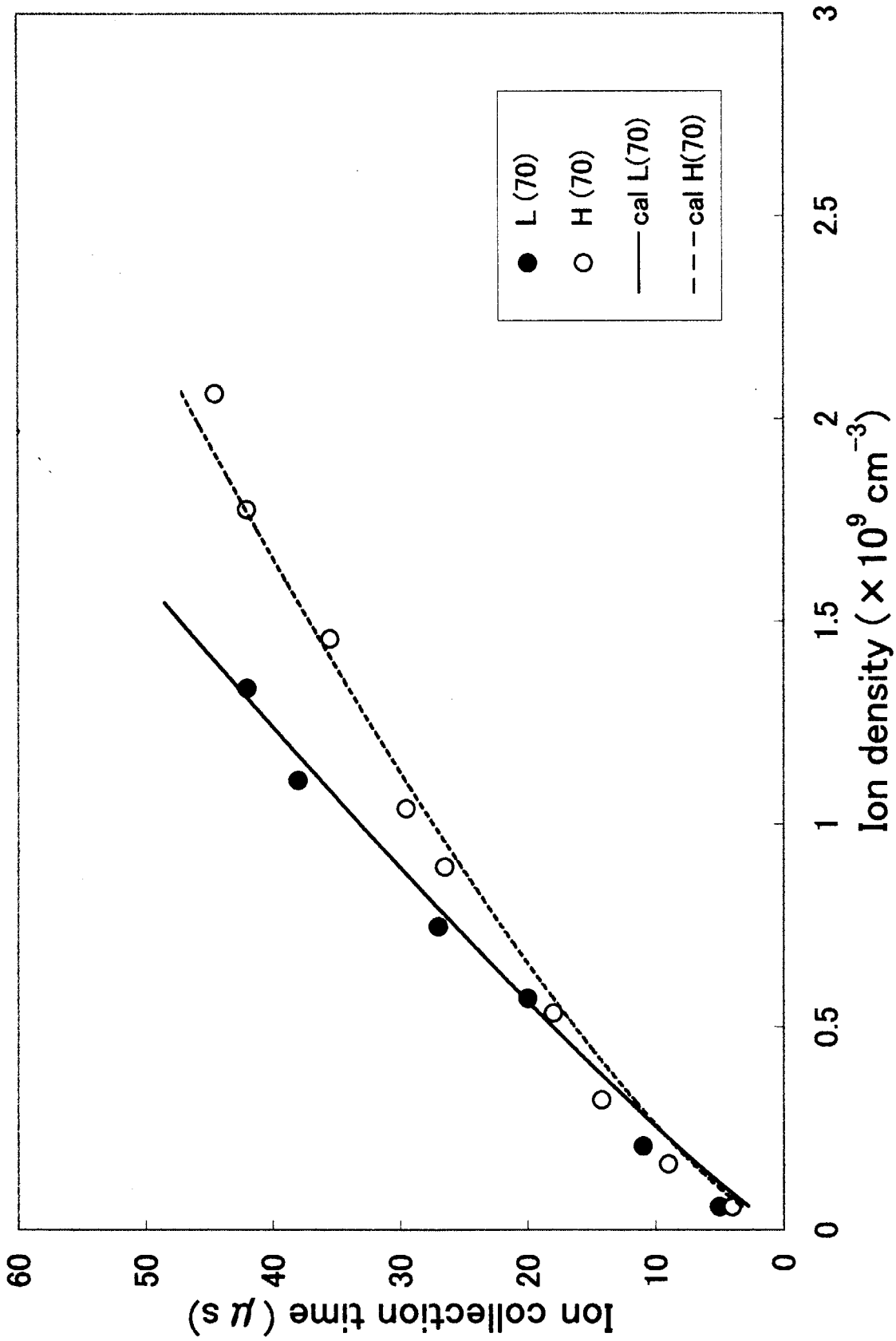


Fig.7 Ion collection time as a function of ion density for the ion collection voltage of 70V. L and H denote low electron temperature plasma produced by 2-wavelength 2-step ionization (closed circle) and high temperature plasma produced by 1-wavelength 2-step ionization (open circle) scheme, respectively. Cal denotes the results of calculations based on one-dimensional model.

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

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	ジーメンズ	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	
光度	ルーメン	lm	cd·sr
照射度	ルクス	lx	lm/m ²
放射線量	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	bar
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=0.1nm=10⁻¹⁰m
1 bar=100kPa=10⁵Pa
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

(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。
- E C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 ⁷ dyn)	kgf	lbf
	1	0.101972	0.224809
	9.80665	1	2.20462
	4.44822	0.453592	1

粘度 1 Pa·s (=1 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 ⁻³	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 ⁷	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 ²⁰	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

レーザー共鳴電離プラズマからのイオン回収における電子温度の効果