

ウランにおける電子レベル間遷移確率 (Ⅱ)

井 本 正 介

Transition Probability between Electronic Levels of Atomic Uranium (Ⅱ)

Shosuke IMOTO

Transition from levels of f^3dsp to those of four configurations with odd parity, f^3ds^2 , f^3d^2s , f^4sp and f^3ds8s were investigated to examine its availability to laser induced excitation of second stage for atomic uranium. The transition probability from several main f^3dsp levels to all levels belonging to four configurations were computed using eigenfunctions obtained by the intermediate coupling scheme calculation. The result showed that nearly all levels of f^3ds^2 , f^3d^2s and f^4sp with large transition probability lie below f^3dsp levels under consideration. This means that these transitions can not be used to the second stage excitation. On the other hand, transition to f^3ds8s was provided with large transition probability for some low-lying levels at $34000-36000\text{ cm}^{-1}$ above the ground state. The transition from f^3dsp to f^3ds8s is considered to be promising to the second stage excitation for isotope separation of atomic uranium.

1. はじめに

前報告¹⁾では、中性ウラン原子の基底状態 ($J=6$) より f^3dsp に属するすべてのレベルへの遷移についてその確率を量子力学的に計算し、その結果を述べた。本報告では次の段階として、 f^3dsp のレベルからさらに高エネルギーのレベルへの遷移について考察する。一般に多数の電子を含む原子では、一つの電子構造に属するレベルの数は多くそのエネルギーは広い範囲にまたがっている。たとえば、計算によれば f^3ds^2 のエネルギーの最大値は 63500 cm^{-1} (7.87 eV) に達し、これは第一イオン化のエネルギー 6.1 eV を越えている。このためレベルのエネルギーの選び方によっては f^3dsp よりも f^3ds^2 の方が高エネルギーを持つものがあるわけで、 f^3dsp より f^3ds^2 への励起も考えられる。

ところで f^3dsp は偶のパリティを持ち、これから励起されるレベルは奇のパリティを持つ必要がある。今まで同定されているレベルの中で奇のパリティを持つものは次の5個である²⁾。すなわち、 f^3ds^2 , f^3d^2s , f^4sp , f^3ds8s 及び f^4dp である。このうち最後の f^4dp は f^3dsp から遷移するためには $s \rightarrow f$ が起らねばならないが、これは電気双極子輻射の吸収では起らない。したがって本報告では f^4dp を除く四種の電子構造を取上げ、 f^3dsp からこれらの電子構造に属する各レベルへの遷移確率を前報と同様の方法で計算した。

f^3dsp に属するレベルの数は $J \geq 6$ のものだけでも 1400 を越え、そのすべてからの遷移

確率を求めることは徒らに計算時間を浪費するのみなので、ここでは表1に掲げる9個のレベルを採用した。その理由は、(1)実際に使うレーザーの波長からみて $15000 \sim 18000 \text{ cm}^{-1}$ のエネルギーを持つレベルが重要であること。(2)一般的に J の大きい方が遷移確率が大きいこと。(3) $f^3ds^2 \rightarrow f^3dsp$ の遷移確率の大きいレベルであること、である。表1における9個のレベルのうち前半の5個は理由(1)(2)により、後半の4個は理由(2)(3)によっている。

2. 計算結果

2. 1 $f^3dsp \rightarrow f^3ds^2$

これは前報告で行った $f^3ds^2 \rightarrow f^3dsp$ の逆の計算であり、同じレベル間では当然同じ遷移確率が期待されるが、計算結果はこれを実証した。表2は計算結果を示したものである。ただしここでは遷移確率が0.05以上のもののみを記した。表2は第1行に先ず f^3dsp のレベル (J 値, 固有値, これに 57635 cm^{-1} を加えた値) を記し、次に f^3ds^2 のレベルのエネルギー (計算値), J 値及び遷移確率を記している。

表2を通して見て分かることは、 f^3dsp のエネルギーの方が f^3ds^2 のものよりも常に高いということである。すなわち、遷移確率が0.05を越える遷移は、 f^3dsp から見れば低位にある f^3ds^2 のレベルに対してしか存在しないということである。表2は9個の f^3dsp のレベルに対して行われたものであるが、この計算とは別に f^3dsp の低位にある50個のレベルについても同様の計算を行った。結果は同じで、 $f^3dsp \rightarrow f^3ds^2$ の有効な励起は存在しなかった。

2. 2 $f^3dsp \rightarrow f^3d^2s$

f^3d^2s は f^3ds^2 に次ぐ低位の電子配置であり、その基底レベルは 6249.029 cm^{-1} ($J=6$) である。 f^3d^2s のエネルギーの計算の際にはスピン軌道相互作用の値を f^3dsp の場合に比べて小さくとした。 f^3dsp では $\zeta_f = 1704 \text{ cm}^{-1}$, $\zeta_d = 1599 \text{ cm}^{-1}$ としたが、 f^3d^2s では $\zeta_f = 1533.6 \text{ cm}^{-1}$, $\zeta_d = 1363 \text{ cm}^{-1}$ とした。エネルギー値の計算結果を実測値と比較したものを図1に示す。ここでは $J=7$ の最低レベル

表1 計算に用いた f^3dsp のレベル

固有値	J 値	f^3dsp よりの 遷移確率
-42991.124	6	0.207
-41301.358	7	0.306
-40798.714	6	0.044
-38702.384	7	0.071
-37828.228	7	0.013
-32534.775	7	0.627
-32357.156	7	0.733
-31899.883	7	4.061
-31352.136	7	2.816

表2 $f^3dsp \rightarrow f^3ds^2$ の遷移確率

$J=6$	$E= -42991.1$	(14643.9)		
	0.0	6		0.2072
$J=7$	$E= -41301.4$	(16333.6)		
	0.0	6		0.3056
	4128.6	7		0.0661
$J=6$	$E= -40798.7$	(16836.3)		
	740.5	5		0.2049
$J=7$	$E= -38702.4$	(18932.6)		
	0.0	6		0.0710
$J=7$	$E= -37828.2$	(19806.8)		
	4675.2	6		0.0919
$J=7$	$E= -32534.8$	(25100.2)		
	0.0	6		0.6237
	4128.6	7		0.0712
	7755.8	7		0.1546
$J=7$	$E= -32357.2$	(25277.8)		
	0.0	6		0.7417
	4128.6	7		0.3713
	4675.2	6		0.0832
	7755.8	7		0.0856
	10472.2	7		0.0504
$J=7$	$E= -31899.9$	(25735.1)		
	0.0	6		4.0649
$J=7$	$E= -31352.1$	(26282.9)		
	0.0	6		2.8089
	4128.6	7		0.1534

(8118.632 cm^{-1}) を規準にとり, ここで計算値と実測値とを重ね合わせた。図 1 は両者が全体としてかなりよく合っていることを示している。

表 3 は $f^3d^3s \rightarrow f^3d^2s$ の遷移確率を計算した結果である。ただしここでは紙面を節約するため, f^3d^3s の 4 個のレベルからの遷移を記載するに止めた。 f^3d^2s への遷移の場合と同様, 遷移確率が 0.05 を越えるものはすべて f^3d^3s のエネルギーよりも低位に限られている。唯一の例外は 4 番目の f^3d^3s レベルよりの最後のもの (19362.4) であるが, これとても僅か 430 cm^{-1} 上位にあるもので, 第二段励起として使用できるものではない。表 3 には掲げなかったが, 7 番目のレベルからも f^3d^3s より上位の f^3d^2s のレベルへの遷移確率が 0.05 を越えるものが得られている。しかしこの場合もエネルギー差は僅少 (256 cm^{-1}) である。したがって $f^3d^3s \rightarrow f^3d^2s$ においても強い遷移確率を持つ第二段励起を期待することは望みがないように思える。

図 1 f^3d^2s のエネルギー値の実測値と計算値との比較, $J = 7$ の最低レベルを一致させている。

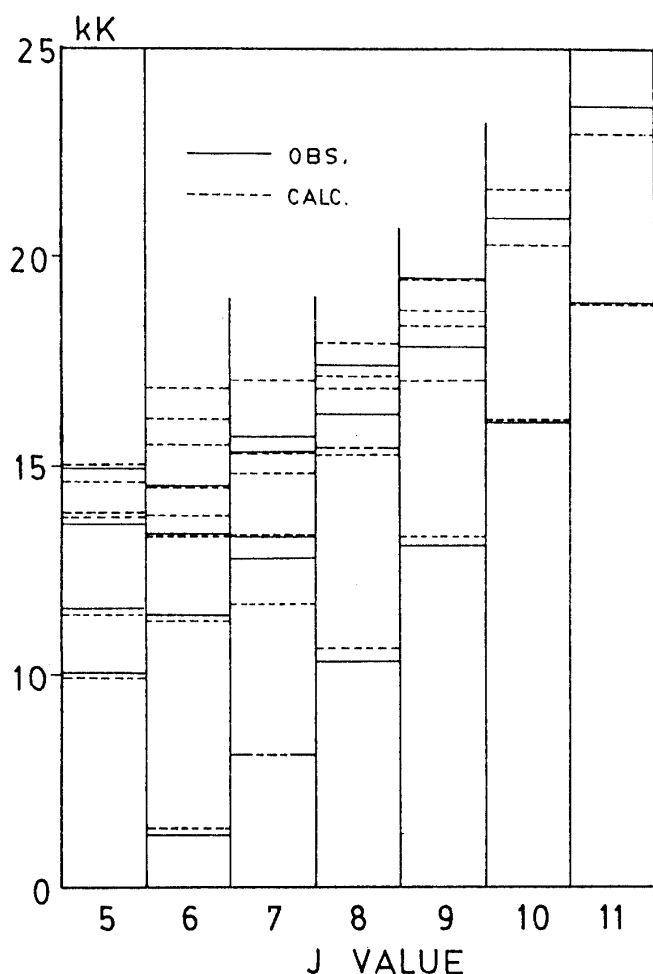


表 3 $f^3d^3s \rightarrow f^3d^2s$ の遷移確率

J= 6 E= -42991.1 (14643.9)			
6409.3	6	1.4751	
9906.4	5	0.3927	
J= 7 E= -41301.4 (16333.6)			
6409.3	6	0.0761	
8118.6	7	1.6376	
11309.7	6	0.4495	
11726.6	7	0.0693	
14504.4	6	0.0534	
J= 6 E= -40798.7 (16836.3)			
6409.3	6	0.0610	
8118.6	7	0.2042	
9906.4	5	0.0536	
11309.7	6	0.8028	
11466.1	5	0.7058	
13818.4	5	0.0586	
J= 7 E= -38702.4 (18932.6)			
10675.4	8	1.1259	
11726.6	7	0.6064	
13373.2	7	0.7390	
13379.1	6	0.1565	
14504.4	6	0.3091	
14843.0	7	0.1574	
15313.8	7	0.0518	
15453.6	8	0.2887	
16152.3	6	0.1193	
17176.4	8	0.0551	
17964.1	8	0.0661	
19362.4	8	0.1263	

2. 3 $f^3dsp \rightarrow f^4sp$

f^4sp の電子配置に属すると同定されているものは11個に過ぎない。その基底レベルは $22792.372 \text{ cm}^{-1}$ ($J = 4$) であり、同定されている最高のエネルギーレベルは $29187.799 \text{ cm}^{-1}$ ($J = 7$) である。 f^4sp のエネルギーの計算には f^3d^2s と同じパラメーター値を用い、 $\zeta_p = 1500 \text{ cm}^{-1}$ とした。計算結果 ($J \geq 4$) と同じ範囲での実測値との比較を図2に示す。ここでは 26911.987 ($J = 6$) を規準とし、ここで計算値と実測値とを合わせている。これより低エネルギーの $J = 4, 5$ の所では両者間に幾分の差が見られるが、レベルの順序は同じである。また $J = 7$ での値は両者間でよく一致し、 $J = 6$ と $J = 7$ との間に $J = 5$ のレベルを3個はさんでいる点でも一致が見られる。

図2 f^4sp のエネルギー値の実測値と計算値との比較、 $J = 6$ の最低レベルを一致させている。

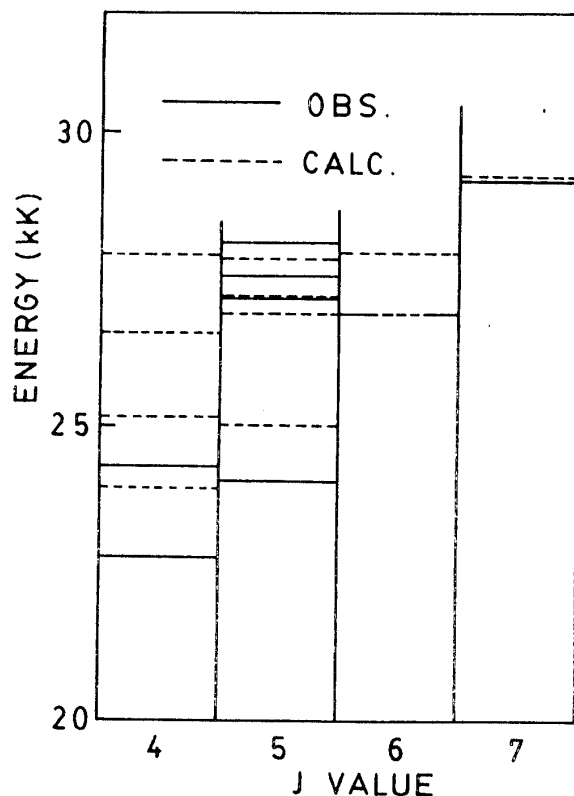


表4 $f^3dsp \rightarrow f^4sp$ の遷移確率

J= 7 E= -32534.8 (25100.2)			
30321.6	7	0.1236	
30503.2	6	0.1522	
31472.6	8	0.0552	
32351.1	8	0.0789	
39118.9	8	0.0723	
J= 7 E= -32357.2 (25277.8)			
30503.2	6	0.0868	
J= 7 E= -31899.9 (25735.1)			
29778.5	6	0.0840	
37080.5	7	0.0613	
38804.9	8	0.0785	
J= 7 E= -31352.1 (26282.9)			
29254.6	7	0.0788	
30321.6	7	0.0818	
30503.2	6	0.0636	

遷移確率の計算結果を表4に示す。ここでも遷移確率が0.05を越すもののみを取上げた。表に見る通り、 f^3dsp の低位の5レベルからは遷移確率が0.05を越すものは見られなかった。5レベルからのもので最も大きい遷移確率は $E = -38702.4 \text{ cm}^{-1}$ からのもので、その値も0.030に過ぎなかった。これに反し、高位の4レベルからはいくつかの比較的大きい遷移確率を持つものが見られた。それらはいずれももとの f^3dsp のエネルギーよりは高い。しかしその差は最大 14000 cm^{-1} 程度であり、遷移確率そのものの値も0.1以下であって、第二段階励起として取上げるべきものとは思われない。なお、 f^4sp の基底レベルは K_4 と同定されており、 L_5 と同定されている f^3dsp の $15720.682 \text{ cm}^{-1}$ からは強い遷移が期待されるが、 K_4 との差は 7071.7 cm^{-1} であり、実用

には適さない。前2例, すなわち $f^3dsp \rightarrow f^3ds^2$ 及び $f^3dsp \rightarrow f^3d^2s$ の場合には基底状態に近いエネルギーの間で概して大きい遷移確率が見られたが, $f^3dsp \rightarrow f^4sp$ ではそれが見られなかった。その理由はたぶん f^3dsp と f^4sp との間で L の大きさに2だけの違いがあることで, これが遷移を妨げていると考えられる。前報告では $f^3ds^2 \rightarrow f^3dsp$ の遷移において $26000 \sim 27000 \text{ cm}^{-1}$ 付近に遷移確率の大きい f^3dsp のレベルが集中していることを見出し, これが二段階励起でイオン化を行う場合に有効ではないかと考えた。これらのレベルからは f^4sp への遷移に比較的確率の大きいものが見られたが, 表4に見るようにそれもイオン化エネルギー (49000 cm^{-1}) に達するものではなく, f^4sp への励起は二段階励起イオン化に対しても有望とは思われない。

2. 4 $f^3dsp \rightarrow f^3ds8s$

f^3ds8s のエネルギー及び f^3dsp からの遷移確率を計算するためには $f-8s$ 及び $d-8s$ の相互作用に関するスレーター積分を求めねばならない。ここではこれを求める方法の詳細は省略し, 結果のみを記す。

$G^3(f, s) : 1005 \text{ cm}^{-1} (2288 \text{ cm}^{-1})$

$G^2(d, s) : 1867 \text{ cm}^{-1} (5052 \text{ cm}^{-1})$

() 内は $7s$ の場合の値である。 f^3ds8s のレベルに同定されているものは僅か5本に過ぎない。計算外の $J=4$ のものを除くと4本となる。実測値と計算値 (最低の $J=6$ のレベルで一致させている) とを比較したものを表5に示す。

表5 f^3ds8s のレベル比較

J	実測値 (cm^{-1})	計算値 (cm^{-1})
5	32857.449	32839.276
6	33421.069	33421.069
7	34659.215	34655.652
6	35223.304	35267.729

なお, 計算では $34200.883 (J=6)$ があらわれているが, それに対応する実測値はない。この点を除けば, 表5は計算値がよく実測値と一致していることを示している。

遷移確率の計算結果を表6に示す。ここでは値が0.5以上のもののみを記した。いずれのレベルからも大きい遷移確率を持つ f^3ds8s のレベルが見出され, その中には現在のレーザーで使われる 17000 cm^{-1} 前後のエネルギー差を持つものが多い。特に低位の f^3dsp からは第二段励起

表6 $f^3dsp \rightarrow f^3ds8s$ の遷移確率

J= 6	E= -42991.1 (14643.9)		
	32839.3	5	3.1201
	33421.1	6	1.0629
J= 7	E= -41301.4 (16333.6)		
	33421.1	6	1.3641
	34200.9	6	1.4816
	34655.6	7	2.0306
J= 6	E= -40798.7 (16836.3)		
	34189.2	5	0.8084
	34655.6	7	0.7422
	34891.2	5	0.8394
	35267.7	6	1.2923
J= 7	E= -38702.4 (18932.6)		
	33421.1	6	1.6056
	34655.6	7	2.2791
J= 7	E= -37828.2 (19806.8)		
	35267.7	6	2.4137
	38324.5	7	0.9314
	38338.4	6	0.6820
J= 7	E= -32534.8 (25100.2)		
	40103.8	6	1.2039
	40983.7	8	0.8245
J= 7	E= -32357.2 (25277.8)		
	42414.7	7	1.8993
J= 7	E= -31899.9 (25735.1)		
	33421.1	6	0.7204
	34200.9	6	1.2788
	44025.2	6	0.5433
J= 7	E= -31352.1 (26282.9)		
	34200.9	6	0.9125
	41171.4	7	0.9153

レベルとして適当な 34000cm^{-1} 前後のレベルに大きな遷移確率のものが見られ, $f^3dsp \rightarrow f^3ds8s$ 遷移が三段階励起イオン化において第二段励起として有効であることが分る。一方、高位の f^3dsp から強い遷移が見られるものの, それらの f^3ds8s レベルのエネルギーはまだイオン化のエネルギーには届かず, 二段階励起イオンには適していない。

3. 結 論

中性ウラン原子の基底状態から見て第一段励起状態にある f^3dsp の中から 9 このレベルを選び, これらからさらに高エネルギーにあるレベルの励起について考察した。この第二段励起状態にある電子配置として, f^3ds^2 , f^3d^2s , f^4sp , f^3ds8s の四つを選び, それぞれのレベルへの遷移確率を計算した結果, f^3ds8s への遷移のみが第二段励起として有効なものであることが分った。 $f^3dsp \rightarrow f^3ds8s$ において遷移確率の大きい f^3ds8s のレベルは 34000cm^{-1} 前後のエネルギーを持ち, 三段階励起イオン化における第二段励起として利用し得るものと考ええる。

今後の問題としては, 上記の四つの電子配置以外に有効なものがあるかどうかを探ること, 及び第三段励起 —— これはイオン化に通ずるものであるが —— の遷移確率を計算することである。

参 考 文 献

- 1) 井本正介, 福井工大研究紀要 21 (1991) 231
- 2) J. Blaise and L. J. Radziemski, Jr., J. Opt. Soc. Am. 66 (1976) 644

(平成 3 年 10 月 24 日受理)