



研究技術ノート

多価イオンの衝突輻射モデルの構築の自動化支援

佐々木明, 西原功修¹⁾, 村田真樹²⁾

日本原子力研究開発機構量子ビーム応用研究部門, ¹⁾大阪大学レーザーエネルギー学研究中心,

²⁾情報通信機構情報通信部門

(原稿受付: 2007年12月21日 / 原稿受理: 2008年7月3日)

多価イオンの発光を用いた分光解析や, 光源への応用のための, 任意の原子・イオン種を対象とした衝突輻射モデルの構築手法を示す. 従来, 多電子・多価イオンの原子過程の研究では, 10^4 個以上の原子状態を考慮する必要があるとされ, 人手によるモデルの構築は困難であった. 本研究では, 電子配置の文字列による表現を計算機によって解釈し, ポピュレーションや放出される輻射の強度を評価する上で重要な原子状態を, 自動的に選択してモデルを構築できるようにした. さらに, モデルに取り入れる原子状態の数を系統的に増しながら計算を行って, 平均価数や輻射損失を収束させる方法を用いて, Kr プラズマにおける実験および他の計算との比較を行い, 手法の有効性の検証を行った結果を示す.

Keywords:

atomic process, collisional radiative model, multiple-charged ion, plasma spectroscopy, simulation

1. はじめに

実験室や宇宙空間の高温のプラズマ中で生成する原子の多価イオンが放出する光は, 可視光から X 線領域の光源として利用されるほか, 分光診断によるプラズマの物理の研究を通じて広い科学技術分野で利用されている[1]. 多価イオンの発光を解析するために, 衝突輻射モデル (collisional radiative model) がよく用いられ, プラズマ中に存在する原子状態についてのレート方程式を解いて, 電離度, レベルポピュレーションを求める計算が行われている.

水素やヘリウム, あるいはこれらと同じ電子配置を持つ H 様, He 様イオンの衝突輻射モデルの研究は古くから行われ, これらの放出する線スペクトル放射の特性が明らかにされている[2, 3]. 近年では, 多電子・多価電離イオンについても, Grasp[4], Hullac[5], FAC[6] などの原子物理コードでエネルギー準位や電子衝突・輻射による電離・励起過程のレート係数 (反応速度定数) を求めてモデルを構築し, 応用研究が行われるようになってきた.

一般に衝突輻射モデルを構築するには, プラズマ中に存在するであろう原子状態, すなわちプラズマの平均価数や放射損失に重要な寄与をする状態の組を想定し, それらのエネルギー準位や, 各状態の間で起こる電離・励起過程のレート係数を求め, レート方程式を立てる. しかし, 複雑な構造を持つ多電子・多価電離イオンの場合は, H 様, He 様などのイオンの場合とは異なり, どのような原子状態, 原子過程が重要かを予想することが困難である. これらのイオンが放出する発光スペクトルは複雑で, 実験的にはどのような発光線が存在するかさえも判断することが困難な場合が少なくない[7].

本研究では, 計算機処理で衝突輻射モデルを構築する方法の必要性と可能性に着目した. はじめに, 局所熱平衡 (Local Thermodynamic Equilibrium: LTE) にあるプラズマの原子過程の解析から, 平均価数を正しく再現するためには適切な原子状態の組を決定することが最も重要であることを示す. そして, 原子状態がその非相対論的電子配置で決まるという仮定のもとに, 電子配置を表す文字列の処理によって状態の組を計算機で生成して, 衝突輻射モデルを構築する方法を示す.

衝突輻射モデルの計算結果は取り入れる原子状態の組に依存するので, 平均価数や放射損失を正確に求めるために, モデルを変化させた反復計算による検証を行うことは重要と考えられてきた. 従来の人手によるモデル構築ではそれを実行することは困難であったが, 以下では計算機によるモデル構築の自動化によって系統的な収束計算を行えるようになることを示す. その具体的な例として, Kr を対象とし, 原子状態を共通のコア電子配置と一電子励起状態の組ごとにグループ化する方法に基づいて, 平均価数や放射損失の収束計算を行うとともに, 結果を実験や他の計算結果と比較し手法の有効性を検証した結果を示す.

2. 原子モデルの構築

プラズマが LTE にある時, 原子状態のポピュレーションはサハ-ボルツマン分布で決まるので, 価数 i のイオンの励起状態のポピュレーション $N_{i,j}$ は, 基底状態のポピュレーション $N_{i,1}$ を用いて,

$$N_{ij} = \frac{g_{ij}}{g_{i,1}} N_{i,1} \exp\left(-\frac{E_{ij} - E_{i,1}}{kT_e}\right), \quad (1)$$

のように表される。また、価数 i と価数 $i+1$ のイオンの基底状態のポピュレーションの関係は、

$$N_{i+1,1} = \frac{g_{i+1,1}}{g_{i,1}} N_{i,1} \frac{cT_e^{3/2}}{n_e} \exp\left(-\frac{I_i}{kT_e}\right), \quad (2)$$

で表される。ただし、 g および E は各状態の統計重率と、中性原子の基底状態を基準にしたエネルギー、 T_e は電子温度、 I_i は価数 i のイオンの基底状態のイオン化エネルギー ($= E_{i+1,1} - E_{i,1}$)、 c は定数である。価数 i のイオンアバダンスは、すべての励起状態のポピュレーションの和、

$$P_i = N_{i,1} \sum \frac{g_{ij}}{g_{i,1}} \exp\left(-\frac{E_{ij} - E_{i,1}}{kT_e}\right) = \frac{N_{i,1}}{g_{i,1}} \exp\left(\frac{E_{i,1}}{kT_e}\right) Q_i, \quad (3)$$

ただし、 Q_i は価数 i のイオンに関する状態和、

$$Q_i = \sum_j g_{ij} \exp\left(-\frac{E_{ij}}{kT_e}\right), \quad (4)$$

である。すると、価数 $i+1$ のイオンと価数 i のイオンのアバダンスの比 R_i は、

$$R_i = \frac{cT_e^{3/2}}{n_e} \frac{Q_{i+1}}{Q_i}, \quad (5)$$

のように表される。

プラズマのイオンアバダンスを正確に求めるためには、 R_i の値がすべてのイオン種について正確である必要がある。しかしながら、各イオンの持つ非常に多くの原子状態のうち、実際にはその一部だけしか衝突輻射モデルに取り入れることができないので、モデル上の状態和は常に真の値の近似値 Q'_i と考える必要がある。すなわち、アバダンスを正確に求めるためには、良い Q_i の近似値を用いることが重要になる。

プラズマ中のイオンの原子状態は電子配置によって表すことができると考えられている。原子状態が配置間相互作用の影響を強く受ける場合や、高密度プラズマ中で束縛電子がプラズマ中の自由電子や隣り合うイオンの影響を受ける条件でも、電子配置を用いて原子状態を近似的に扱うことが多い。そして、衝突輻射モデルを構築する際には、取り入れる原子状態の組を、しばしば基準となる状態とそれから一電子が励起された状態の集合で表し、励起状態の電子の軌道を一定の主量子数、方位量子数で打ち切ることが行われている。もし対象となるイオンが同じ閉殻を持つ場合、隣り合う価数のイオンについて、

$$\frac{\sum_{n=1}^{n_{\max}} g_{i,n} \exp\left(-\frac{E_{i,n}}{kT_e}\right)}{\sum_j g_{ij} \exp\left(-\frac{E_{ij}}{kT_e}\right)} \sim \frac{\sum_{n=1}^{n_{\max}} g_{i+1,n} \exp\left(-\frac{E_{i+1,n}}{kT_e}\right)}{\sum_j g_{i+1,j} \exp\left(-\frac{E_{i+1,j}}{kT_e}\right)}, \quad (6)$$

のように、ある一定の主量子数以下の状態の状態和と正し

い状態和の比が等しいことが予想され、

$$\frac{Q'_{i+1}}{Q'_i} = \frac{Q_{i+1}}{Q_i}, \quad (7)$$

の関係が近似的に成り立ち、イオンアバダンスの良い近似値が得られると考えられる。

このように、プラズマのイオンアバダンスを正しく計算するためには、適切な原子状態の組を選択することが重要である。(4)式に示したように、 Q_i の和の要素は、状態のエネルギーが高くなるに従って減少するので、良い衝突輻射モデルを構築するためには、エネルギーの低い状態を漏れなくモデルに取り入れる必要がある。しかし、多電子・多価電離イオンでは、多数の内殻、多重励起状態があり、どのような状態をモデルに取り入れる必要があるか予めわからない。

ここで、あるイオン種の基底状態の電子配置が既知である場合に、重要な励起状態を推定するために2つの方法が考えられる。第一の方法は、基底状態の電子をより高い軌道に移すことによって励起状態を作る方法で、軌道の nl が大きいほど、また励起される電子の個数が多いほど、励起状態のエネルギーは高くなる。第二の方法として、あるイオン種の基底状態および励起状態に一電子を付加することによって、それより価数が1小さいイオンの励起状態を生成することも考えられる。

本研究では後者の方法によって、対象とするイオンにおいて重要となる原子状態の組を、それよりも価数が1大きいイオンの原子状態から推定し、H様イオンから再帰的に価数の低いイオンの衝突輻射モデルを構築することを考えた。

簡単な例を挙げると、He様イオンの衝突輻射モデルを、H様イオンの原子モデルから以下のように構築することができる。H様イオンの原子状態の電子配置はエネルギーの順に $1s, 2s, 2p, 3s, \dots$ である。まず基底状態 $1s$ をイオン化極限とするHe様イオンの原子状態の組 $1snl$ を生成すると、これがHe様イオンの基底状態と一電子励起状態を含むものになる。同様に $2s, 2p, 3s, \dots$ 状態から、それらをイオン化極限とする二電子励起状態の組 $2snl, 2pnl, 3snl, \dots$ が生成される。このようにして生成したHe様イオンの原子状態のエネルギーを調べると、低い順に $1s^2, 1s2s, 1s2p, \dots$ 状態であるから、続いてLi様イオンの原子状態を、 $1s^2nl, 1s2snl, 1s2pnl, \dots$ 状態のように生成することができる。このように電子配置の情報による原子状態の推定と、状態のエネルギーの評価を繰り返して、衝突輻射モデルに取り入れる原子状態の組を決定することができる。

提案手法では、原子状態が共通のコア電子配置を持つ一電子励起状態の組ごとに生成される。LTEに近い条件では一電子励起状態間のはしご状の励起とそれを経た電離が重要になると考えられ[3]、本手順に従ってプラズマ中で重要となる電離、励起過程を考慮したモデルが構築できると考えられる。

3. 電子配置を表す文字列の操作

He 様イオンの基底状態 $1s^2$ と低い励起状態 $1s2s$ および $1s2p$ から Li 様イオンの励起状態 $1s^2nl$, $1s2snl$, $1s2pnl$ を生成する例は、簡単のため励起状態の電子軌道の主量子数 $n \leq 3$ までを考えると、具体的には、

$$1s^22s, 1s^22s, 1s^22p, 1s^23s, 1s^23p, 1s^23d, \quad (8)$$

$$1s2s^2, 1s2s2p, 1s2s3s, 1s2s3p, 1s2s3d, \quad (9)$$

$$1s2p^2, 1s2p3s, 1s2p3p, 1s2p3p, \quad (10)$$

のような電子状態を表す文字列の組を生成することに対応する。

このような電子配置は、与えられたコア電子配置 $1s^2$, $1s2s$, $1s2p$ に対してひとつの励起電子を $n \leq 3$ の範囲で付与すれば生成できると考えられるが、実際には励起電子の範囲は電子軌道と占有電子数の規則に従わなければならない。しかもその範囲が対象、条件によって変化するために単純な数値処理によって生成することは困難である。例えば、 $1s^3$ のようなあり得ない電子配置や、それぞれ $1s2s$ と $1s2p$ 配置から生成される $1s2s2p$ と $1s2p2s$ 配置の重複を排除しなければならない。他方、人間はこのような操作を直観的に行えるものの、多電子・多価電離イオンの複雑なモデルを構築するために、単調な作業を多数回繰り返すことは現実的ではない。

本研究では、このような原子状態の生成を計算機を用いて自動化する手法を開発した。まず、原子状態を表す電子配置は、束縛電子の軌道と占有電子数の組で定義され、科学文献中では固有の規則に従った文字列として書き下されることに注目し、現在のプログラミング言語 (Java) に含まれる正規表現と呼ばれる文字列処理の機能を用い、電子配置を表す文字列から物理量を抽出し [8]、得られた物理量の演算を行い、新しい電子配置を生成するためのクラスライブラリを作成した。

3.1 電子配置のデータの格納

文字列として与えられた電子配置の情報を処理し、イオンの励起状態の電子配置を表す文字列を生成するプログラ

ムの内容について述べるにあたり、まず準備として電子配置のデータの格納方法について述べる。処理の概念図を図 1 に示す。電子配置に含まれる各電子軌道と占有電子数のデータを迅速に参照し、また文字列として出力する際に、電子軌道を正しく主量子数と方位量子数の昇順に書き出せるように、データを電子軌道をキー値、占有電子数を値とする TreeMap という連想配列に格納する¹。このように電子配置を扱うのに文字列および連想配列を使う方式を、従来の原子過程プログラムにおける電子配置を主量子数と方位量子数の二次元配列で表現していたものと比較すると、扱える軌道の主量子数と方位量子数の範囲に制限がないこと、軌道の数だけの領域を動的に取得するので特に主量子数や方位量子数の大きな値まで扱う場合に記憶領域が少なくすむこと、相対論的電子配置やスペクトル項の表現にも容易に拡張できる利点がある。

3.2 電子配置のデータの演算

次にこのように格納した電子配置のデータを用いて、衝突輻射モデル構築に必要な、原子状態の生成のための物理的な操作に対応する関数を作成した。その基本的な操作には、電子軌道に対する占有電子数の問い合わせ、ある電子軌道の一電子を他の軌道に励起する処理、一電子を電離する処理、ある電子軌道に一電子を付与する再結合に対応する処理がある。これらの処理を行うには、図 2 に示すように、連想配列から励起、電離、再結合が起こる軌道の占有電子数を取り出し、電子数を増減させる。同時に、電子軌道が正当な範囲 ($l < n$) にあるかどうか、および占有電子数が許される範囲内 ($0 \leq n_e \leq 2(2l+1)$) にあるかどうかの判定を行い、条件が満たされない時は例外 (エラー) を発生させる。また、遷移先の軌道が空であった場合には新たに連想配列の要素を取得し、遷移元の軌道が空になった場合は要素を削除する。

原子物理、原子過程の研究では、しばしば電子が完全に満たされた閉殻軌道は省略して扱われる。そこでこれらの基本機能に加え、閉殻と開殻の合成処理、電子配置中の閉殻をあらかじめ指定するかもしくは占有電子数から判断し

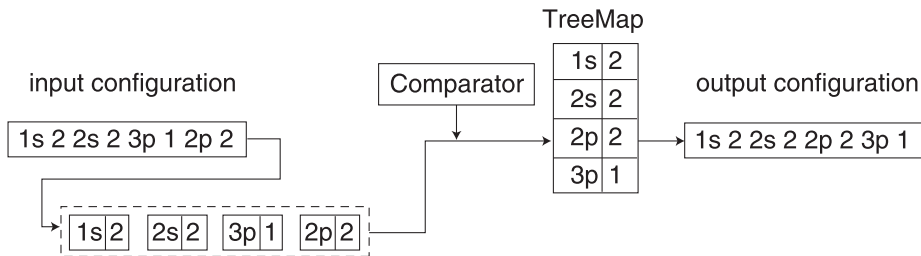


図 1 電子配置を構成する軌道と占有電子数を連想配列 (TreeMap) に格納する手順。デフォルトでは辞書順に格納されるので、主量子数と方位量子数の大小比較を行う Comparator を定義することで、原子物理学で通常用いられる順序で電子軌道を格納し、出力できるようにする。連想配列の要素は動的に取得され、電子が存在する軌道の情報のみが記憶されている。

¹ 連想配列とは、要素をキー値と値の組で記憶し、値を文字列で参照できるデータ構造である。その一つの形式である TreeMap では要素はキー値によってソートして格納される。デフォルトのソートは ASCII コードの大小順に行われるが、任意の 2 つの要素の大小の比較を定義する比較子 Comparator を定義することで、主量子数と方位量子数の組の順にソートすることができる。順序は要素の挿入や削除を行っても正しく保持される。また、連想配列はメモリ上に動的に取得されるので、電子配置を表す文字列のような不定長のデータを効率的に取り扱うことができる。

て取り除く処理を実装した。加えて、2つの電子配置を比較して、H様近似を仮定して励起や電離が起りえるかを調べ、励起が起りえるならば起る一電子遷移を返却する処理などを実装した。処理の概念を図3に示す。

3.3 電子配置の組の生成

このような電子配置のデータの演算の関数を用い、衝突輻射モデルに取り込む電子状態の組を図4に示すような手順で生成した。まずコア電子配置の組と付与される電子の軌道の主量子数と方位量子数の範囲を決め、次に、一電子付与の関数を用い励起状態の組を作成し、結果を文字列として出力し連想配列に格納した。この操作の際に、 $1s^3$ のようなあり得ない電子配置の生成を占有電子数の範囲の検査を行って排除し、重複する電子配置を連想配列のキー値の唯一性より排除した。

4. 衝突輻射モデルの構築と検証の方法

以下では、Krイオンを例として、計算機を活用した衝突輻射モデルの構築と検証の方法について述べる。図5はKrイオンにはどれだけの数の原子状態が存在するかを示し、第2章で示した手順に従って、共通のコアを持つ一電子励起状態の組でグループを定義し、その数を増した時に衝突輻射モデルに取り入れる状態の数がどのように増えるかを示す。取り入れられる電子配置がどのようなものかは、表1に示すとおりで、Ne様イオンの場合は、 $2p^5nl, 2s2p^6nl, 2p^43snl, 2p^43pnl, 2p^43dnl, \dots$ の順である。

従来は、電子軌道の単純な置換で原子状態を生成していたので、正しいと考えられる計算結果を得るために時には 10^4 以上という非常に多くの状態を取り入れる必要があった[9]。これは図5では20以上のグループを取り入れた場合に相当する。以下では、このような多くの状態の中から、プラズマの価数や放射損失の妥当な計算結果を得るために

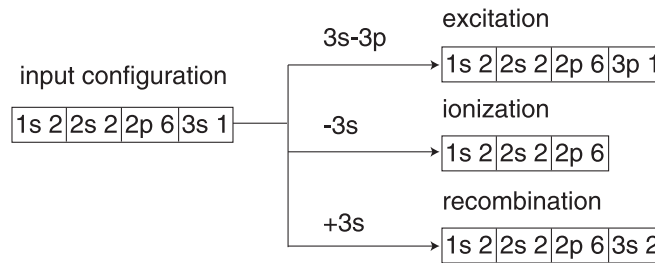


図2 連想配列に格納した電子配置の情報をもとに、励起、電離、再結合過程によって生成する新しい電子配置を生成する処理の例。

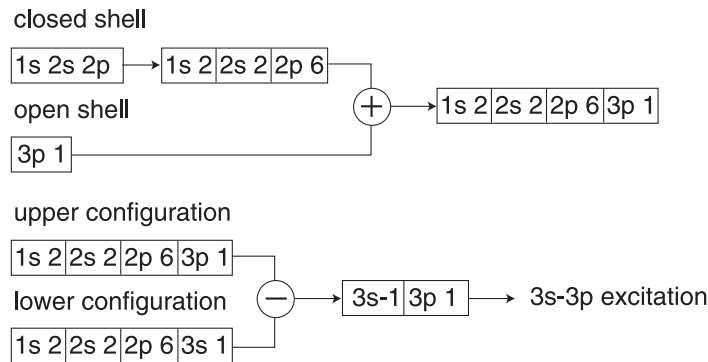


図3 電子配置のデータの一種の加算、減算によって、閉殻と開殻の電子軌道の合成を行ったり、上下準位の電子配置から電子遷移を見出す処理の例。

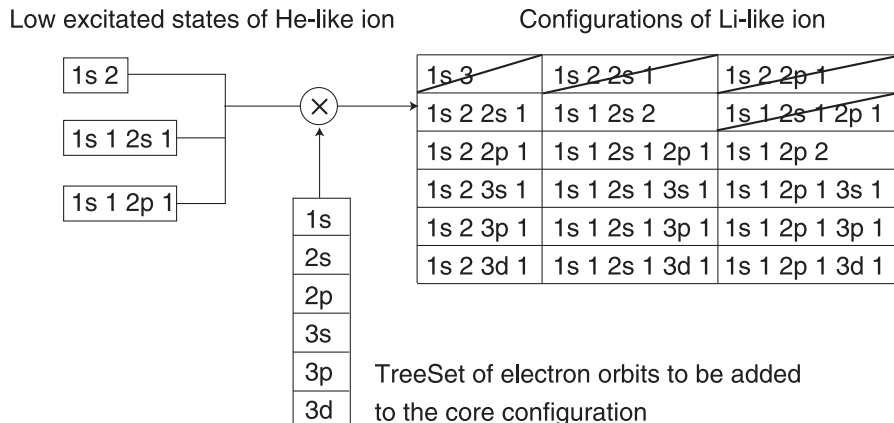


図4 He様イオンの低いエネルギー状態から、Li様イオンの原子状態を表す電子配置の組を生成する例。

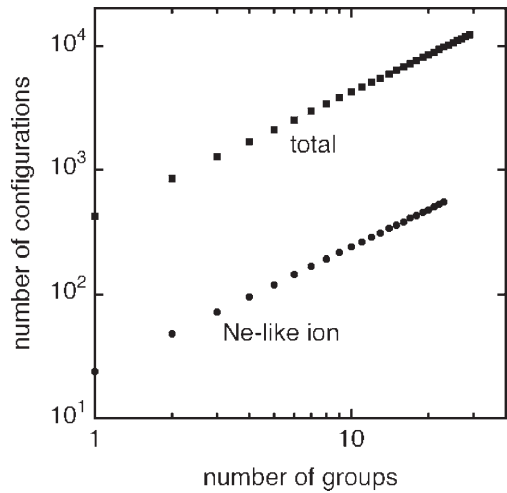


図5 Kr イオンの原子状態の数, Ne 様イオンおよび Ar 様から H 様までのイオンの原子状態の総数の励起状態のグループの数に対する変化を示す. 励起電子の主量子数と方位量子数の最大値はそれぞれ 8 と 3 とした.

重要な状態を選びだす方法を提案する.

図 6 に, 計算処理の流れを示す. 処理は, 原子状態の生成と原子物理の計算からなる衝突輻射モデルの構築と, 衝突輻射モデルの計算本体の大きく分けて 2 つの部分からなる. 図は, 対象の原子種とイオン価数の範囲を指定すると, ほとんど人間が介在することなしにモデルのサイズを徐々に増しながら計算を行い, プラズマの価数や放射損失の妥当な計算結果を得ることができるようになることを示す.

図 7 は, 原子物理コードで計算した原子データ, すなわち電子配置ごとに平均化したエネルギー単位, 輻射遷移確率, 自動電離確率の例を示す. 原子状態を電子配置に対するエネルギー単位等の物理量の形で表し, 電子配置の記述が冗長になるのを避けるために, 各イオン種について共通な閉殻軌道, グループについて共通なコア電子配置と, 励起電子に分けて記述する. このような閉殻, コア, 励起電子の情報を, 第 3 章で述べたライブラリを用いて合成し, さらに電子を付与する処理を行うことによって新しい原子

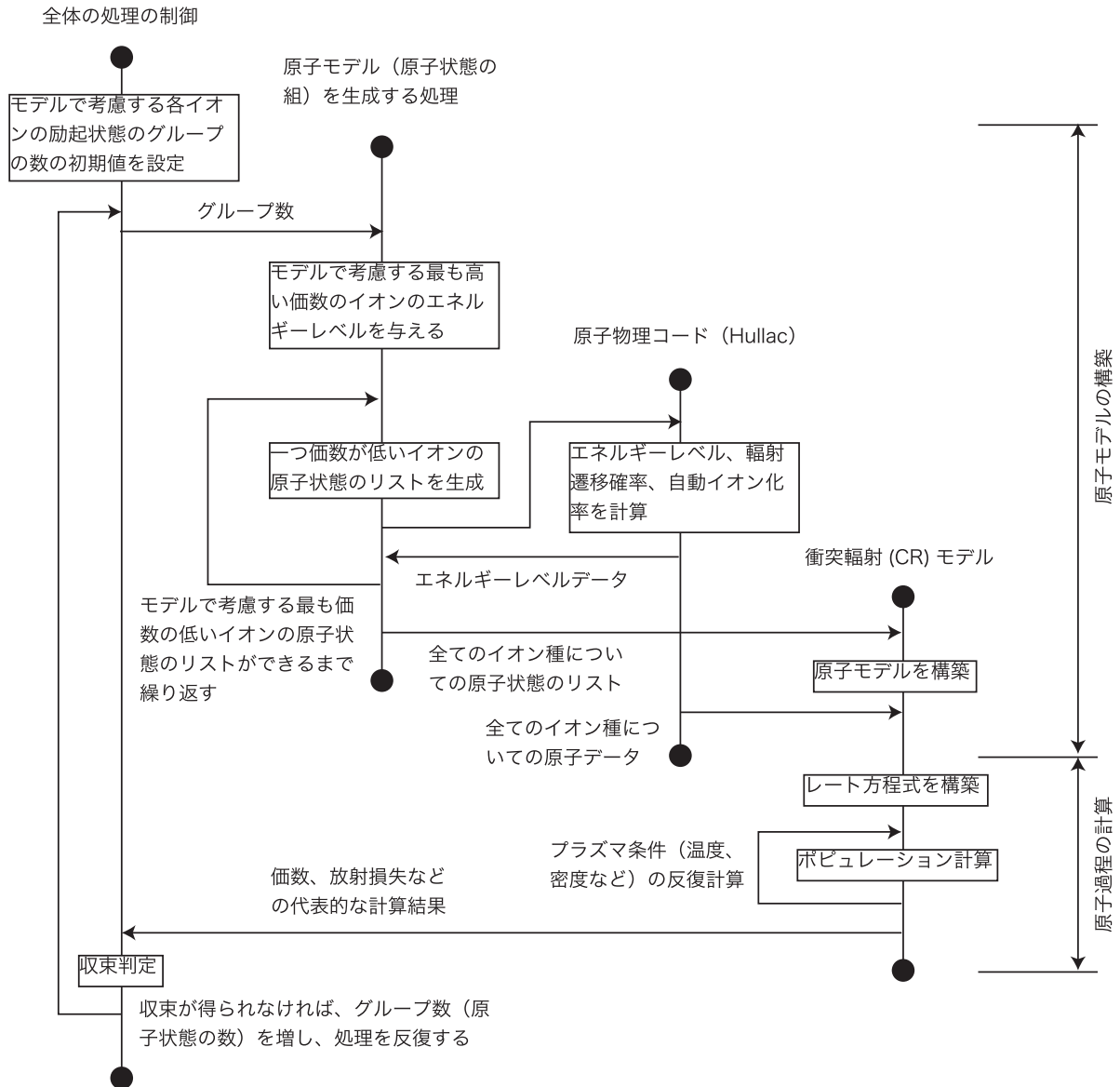


図 6 Kr イオンの衝突輻射モデルの構築と, プラズマの価数, 放射損失計算のためのシーケンス図. 一度求めた原子状態のリストおよび原子データは保存され, プラズマ条件だけを変えて再計算を行う時は, 原子物理の計算は省略される.

```

<?xml version="1.0" encoding="UTF-8"?>
<!-- averaged energy levels, radiative and autoionization rates calculated by Hullac v94 -->
<!-- ionization energy (ionpot) [eV] -->
considered -->
<data>
  <atom name="Kr">
    <ion name="Ne" ionpot=" 2914.720" closed="1s">
      <!-- energy levels, energy [eV] -->
      <configurations name="0" core="2s 2 2p 5">
        <conf name="002p" orbs="2p 1" energy=" 0.000" de=" 0.000" gval="1.0"/>
        <conf name="003s" orbs="3s 1" energy=" 1658.813" de=" 0.000" gval="12.0"/>
        <conf name="003p" orbs="3p 1" energy=" 1721.841" de=" 0.000" gval="36.0"/>
        <conf name="003d" orbs="3d 1" energy=" 1796.620" de=" 0.000" gval="60.0"/>
        <conf name="004s" orbs="4s 1" energy=" 2243.988" de=" 0.000" gval="12.0"/>
        <conf name="004p" orbs="4p 1" energy=" 2269.643" de=" 0.000" gval="36.0"/>
        <conf name="004d" orbs="4d 1" energy=" 2297.975" de=" 0.000" gval="60.0"/>
        <conf name="004f" orbs="4f 1" energy=" 2311.497" de=" 0.000" gval="84.0"/>
        ....
      </configurations>
      ....
      <!-- radiative rates, A coeff [/s], average energy and width [eV] -->
      <rad_rate>
        <rad trans="002p-003s" energy=" 1657.600" dE=" 25.378" A=" 1.0650E+12"/>
        <rad trans="003s-003p" energy=" 64.881" dE=" 5.490" A=" 1.6092E+10"/>
        <rad trans="003p-003d" energy=" 75.932" dE=" 5.542" A=" 2.3250E+10"/>
        <rad trans="002p-003d" energy=" 1797.800" dE=" 25.421" A=" 7.5067E+12"/>
        ....
      </rad_rate>
      ....
    </ion>
  </atom>
</data>

```

図7 Ne様Krイオンの電子配置とエネルギーレベルを保存するデータファイルの例。データを構造化するとともに、既存のライブラリによって要素ごとに簡単に取り出しができるようするためデータのフォーマットとしてXMLを用いた。

表1 Kr^{14-26+} の衝突輻射モデルに用いたエネルギー準位のグループ。各イオンについて、上から下へ向かって励起エネルギーが増加する。衝突輻射モデルを決定するには、すべてのイオン種についてある決まった数のグループに属する状態をモデルに取り入れて計算を行い、グループの数を変えて平均価数や放射損失を収束させる。自明な閉殻は除いて表記している。

Kr^{14+}	Kr^{15+}	Kr^{16+}	Kr^{17+}	Kr^{18+}	Kr^{19+}	
$3s^23p^63d^3nl$	$3s^23p^63d^2nl$	$3s^23p^63dnl$	$3s^23p^6nl$	$3s^23p^5nl$	$3s^23p^4nl$	
$3s^23p^53d^4nl$	$3s^23p^53d^3nl$	$3s^23p^53d^2nl$	$3s^23p^53dnl$	$3s3p^6nl$	$3s3p^5nl$	
$3s3p^63d^4nl$	$3s3p^63d^3nl$	$3s3p^63d^2nl$	$3s3p^63dnl$	$3s^23p^43dnl$	$3s^23p^33dnl$	
$3s^23p^63d^24snl$	$3s^23p^43d^4nl$	$3s^23p^43d^3nl$	$3s^23p^43d^2nl$	$3s3p^53dnl$	$3p^6nl$	
$3s^23p^43d^5nl$	$3s^23p^63d4snl$	$3s^23p^64snl$	$3s3p^53d^2nl$	$3s^23p^33d^2nl$	$3s3p^43dnl$	
$3s^23p^63d^24pnl$	$3s^23p^63d4pnl$	$3s^23p^64pnl$	$3s^23p^33d^3nl$	$3p^63dnl$	$3s^23p^23d^2nl$	
$3s^23p^63d^24dnl$	$3s^23p^63d4dnl$	$3s3p^53d^3nl$	$3p^63d^2nl$	$3s3p^43d^2nl$	$3p^53dnl$	
$3s3p^53d^5nl$	$3s3p^53d^4nl$	$3s^23p^64dnl$	$3s^23p^54snl$	$3s^23p^23d^3nl$	$3s3p^33d^2nl$	
$3s^23p^63d^24fnl$	$3s^23p^63d4fnl$	$3s^23p^33d^4nl$	$3s3p^43d^3nl$	$3p^53d^2nl$	$3s^23p^33d^3nl$	
$3s^23p^53d^34snl$	$3s^23p^53d^24snl$	$3s^23p^64fnl$	$3s^23p^54pnl$	$3s3p^33d^3nl$	$3p^43d^2nl$	
Kr^{20+}	Kr^{21+}	Kr^{22+}	Kr^{23+}	Kr^{24+}	Kr^{25+}	Kr^{26+}
$2p^63s^23p^3nl$	$2p^63s^23p^2nl$	$2p^63s^23pnl$	$2p^63s^2nl$	$2p^63snl$	$2p^6nl$	$2s^22p^5nl$
$2p^63s3p^4nl$	$2p^63s3p^3nl$	$2p^63s3p^2nl$	$2p^63s3pnl$	$2p^63pnl$	$2s^22p^53snl$	$2s2p^6nl$
$2p^63s^23p^23dnl$	$2p^63s^23p3dnl$	$2p^63s^23dnl$	$2p^63p^2nl$	$2p^63dnl$	$2s^22p^53pnl$	$2s^22p^43snl$
$2p^63p^5nl$	$2p^63p^4nl$	$2p^63p^3nl$	$2p^63s3dnl$	$2p^64snl$	$2s^22p^53dnl$	$2s^22p^43pnl$
$2p^63s3p^33dnl$	$2p^63s3p^23dnl$	$2p^63s3p3dnl$	$2p^63p3dnl$	$2p^64pnl$	$2s2p^63snl$	$2s^22p^43dnl$
$2p^63s^23p3d^2nl$	$2p^63s^23d^2nl$	$2p^63p^23dnl$	$2p^63d^2nl$	$2p^64dnl$	$2s2p^63pnl$	$2s2p^53snl$
$2p^63p^43dnl$	$2p^63p^33dnl$	$2p^63s3d^2nl$	$2p^63s4snl$	$2p^64fnl$	$2s2p^63dnl$	$2s2p^53pnl$
$2p^63s3p^23d^2nl$	$2p^63s3p3d^2nl$	$2p^63p3d^2nl$	$2p^63s4pnl$		$2s^22p^54snl$	$2s2p^53dnl$
$2p^63s^23d^3nl$	$2p^63p^23d^2nl$	$2p^63d^3nl$	$2p^63s4dnl$		$2s^22p^54pnl$	$2p^63snl$
$2p^63p^33d^2nl$	$2p^63s3d^3nl$	$2p^63s^24snl$	$2p^63p4snl$		$2s^22p^54dnl$	$2p^63pnl$

状態を生成する。原子過程について本研究では、電子衝突励起、電子衝突電離、放射再結合の速度定数は振動子強度と遷移エネルギー（電離エネルギー）の関数の形で表されている経験式を用いて求め、それぞれの逆過程の速度定数は、詳細釣り合いの原理から求めたものを用いた[10]。

表1は、14から26価までの範囲のKrイオンについて生成した原子状態のグループを示す。Kr²⁵⁺イオンの状態の例にあげると、原子物理コードの計算でまずKr²⁶⁺の原子状態のエネルギーを計算し、低い励起状態として2p⁶, 2p⁵3s, 2p⁵3s, 2p⁵3p, 2p⁵3d, 2s2p⁶3sを見出し、これに一電子を付与して、Kr²⁵⁺イオンの原子状態のグループ、2p⁶nl, 2p⁵3snl, 2p⁵3snl, 2p⁵3pnl, 2p⁵3dnl, 2s2p⁶3snlを生成することを示す。

このようにして構築した衝突放射モデルの重要な用途は、プラズマからの発光スペクトルやライン強度比を求めることである[2,3]が、計算結果をプラズマの解析に利用するためには、実験結果と照らし合わせて結果の精度を確認することが必要である。そこで本研究では、Krプラズマの放射損失の電子温度依存性に関する、FTUトカマク装置

およびEBIT装置における測定結果との比較を行った[11]。一般に、多電子・多価イオンの衝突放射モデルは、原子状態の組や原子データの値の選択に対して大きな自由度を持っているので、限られた物理量についての実験と計算から、モデルの問題を特定することは困難であることから、以下のように理論的、実験的にモデルを検証する方法について検討した。

第2章において、LTE状態ではモデルに十分多くの状態を取り入れれば、平均価数の値は正しい値に収束すると考えられることを示した。図8は、平均価数を計算した結果を示し、その値の原子状態のグループ数、すなわち共通のコア電子配置を持つ電子励起状態の組の数に対する依存性を示す。平均価数はより多くの励起状態を考慮するほど低下するが、変化の量は予想どおり次第に減少しある値に収束するように振る舞う。LTEに近いと考えられる高密度では平均価数は速やかに収束し、低密度の場合も5以上のグループを考慮すれば平均価数は収束することを示す。

図9に放射損失の計算結果を示す。図は、一電子励起状態だけしか考慮しないモデルは放射損失をおよそ1桁過小

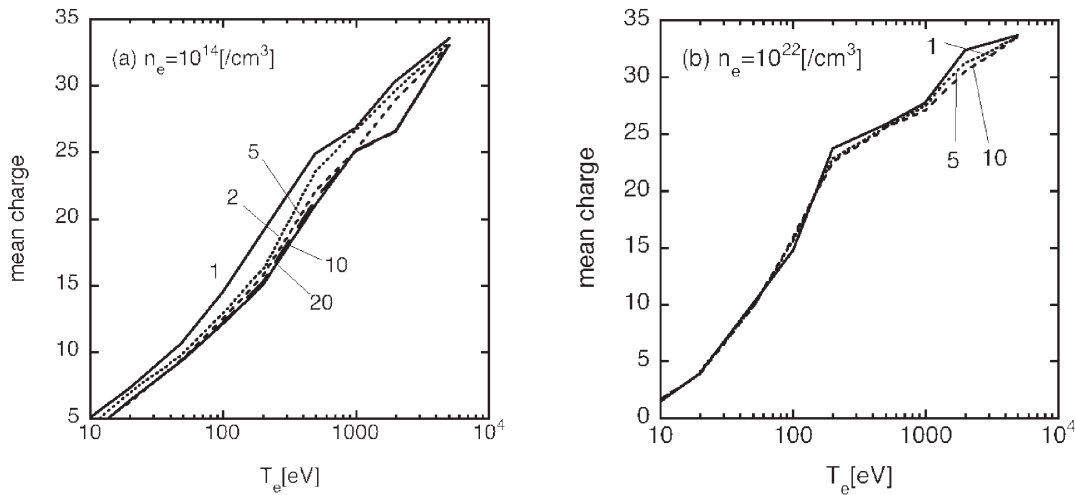


図8 Krの平均価数のモデル依存性。電子密度(a)10¹⁴/cm³, (b)10²²/cm³の場合について、モデルで考慮する励起状態の組の数を1から20まで変化させた場合の振る舞いを示す。以降に示す図を含めて計算はCRE(Collisional Radiative Equilibrium)を仮定して行った。

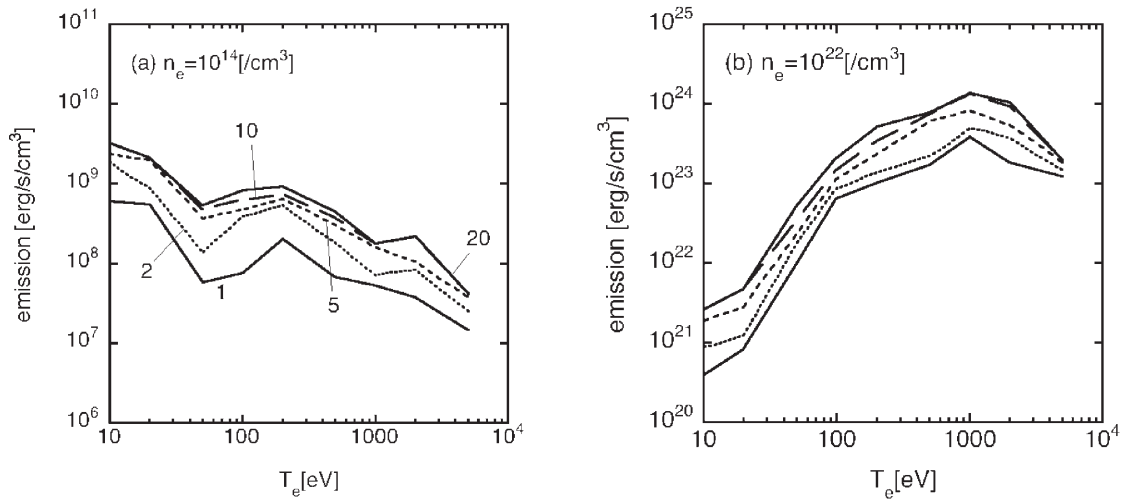


図9 Krの放射損失のモデル依存性。電子密度(a)10¹⁴/cm³, (b)10²²/cm³の場合。エネルギー準位の選び方は図8と同じ。

評価すること、放射損失は原子状態の数に対して平均価数より緩やかに収束する傾向があって、平均価数よりも顕著なモデル依存性を持つことを示す。にもかかわらず、図は、モデルに組み込む原子状態のグループの数を10以上に増せば、平均価数と放射損失の両方ともに値がほぼ収束することを示す。

このような Kr の放射損失の計算結果を、FTU トカマク装置および EBIT 装置を用いた実験結果と比較した結果を図10に示す。図では文献に従い放射損失の大きさを、

$$L_{\text{Kr}}^{\text{tot}}(T_e) = \frac{P_{\text{rad}}}{n_e n_{\text{Kr}}} \tag{11}$$

より、Kr 原子、電子各1個あたりのレートとして表した。今回の計算結果は、比較を行った温度範囲で、実験結果とほぼエラーバーの範囲で一致した。すなわち、100 eV から 10 keV の範囲で放射損失をほぼ正しく予測できる点で、本提案手法を用いると非LTE状態を含め妥当な衝突輻射モデルの構築が行えると言え、またモデルに取り入れる原子状態の数を系統的に増して結果を収束させる手法も有効であると言える。

次に、実験結果や以前の計算結果との一致が良好な $T_e = 200$ eV の条件について、計算の収束の振る舞いから、どのような原子状態、原子過程が重要か検討した。図11(a)は、いくつかの原子状態のグループが平均価数と放射損失に大きな寄与をしていることを示し、この条件で平均価数が約15であることから表1を参照すると、基底状態からの一電子励起状態 $3s^2 3p^6 3d^2 nl$ の他、 $3s^2 3p^5 3d^3 nl$ 、 $3s 3p^6 3d^3 nl$ 、 $3s^2 3p^6 3d 4f nl$ などのレベルとそれらの間の輻射遷移が重要であることがわかる。図11(b)はまたこの状態で存在する、14価から16価のイオンについての状態和と、その比を示し、式(7)で予想したように、状態和はモデルに取り入れる状態の数を増すに従って単調増加するが、その比は収束する傾向を持つことを示す。

しかしながら、今回の結果を実験およびより詳細な Fournier[11]らのより詳細な計算結果と比べると、電子温度 500 eV の場合は差異が大きいため、計算に用いた原子モデルの問題について検討した。この条件でプラズマの平均

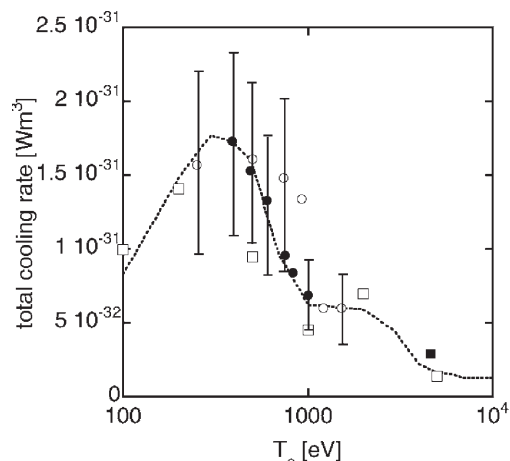


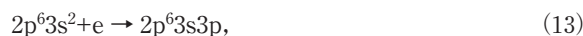
図10 Krの放射損失の他の結果との比較。○●はFTUトカマクにおける実験、■はEBITによる実験、破線はFournierらによる計算値、□が今回の計算値。電子密度は $10^{14}/\text{cm}^3$ 。

価数に対応する14価から26価までのイオンのエネルギー準位は表1のとおりであり、提案手法では、原子状態をエネルギーの順に取り込むので、 $2p^6 3l^i 3l^j$ のような M 殻の多重励起状態は生成されるが、 $2p^5 3l^{i+1}$ のような内殻励起状態は生成されない。

しかし実際には、例えば Kr^{24+} (Mg 様イオン) を考えると、



のような励起 (励起エネルギーが 1800 eV) は、



に比べて無視できない大きさになり、電子捕獲によって $2p^5 3s 3d nl$ のような状態も生成すると考えられる。これらの状態が、サテライト線、



を放出して緩和することは、再結合速度を増すことによってプラズマの価数を下げることと、放射損失の増大に寄与すると考えられる。Fournierらはより多くの二電子性再結合チャネルを考慮したモデルを用い、実験により近い放射損失の値を得ている。温度がより高くあるいは低く、L 殻

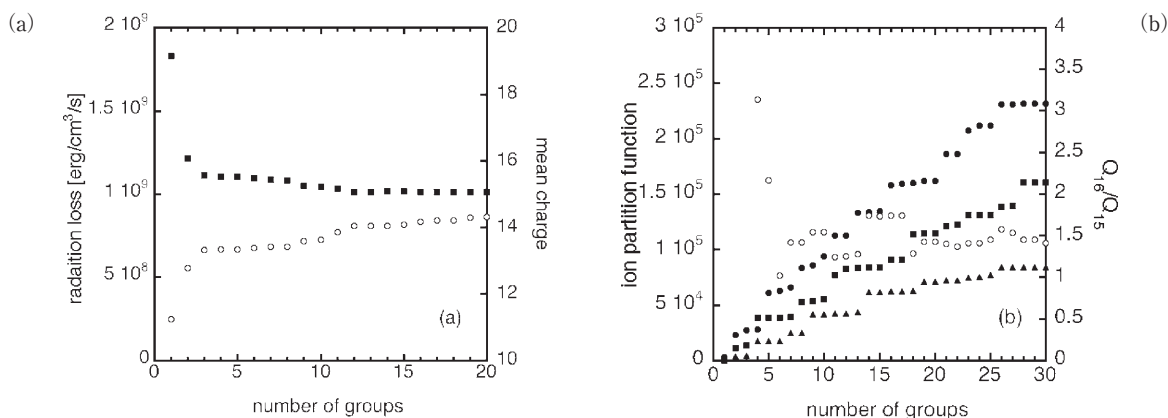


図11 (a) Krの平均価数(■)と放射損失(○)の原子状態のグループ数に対する収束の振る舞い、(b) 14(●)、15(■)、16(▲)価のイオンの状態和 Q_i と、15価と16価のイオンの状態和の比(○)の、原子モデルで考慮する励起状態の組の数に対する依存性。電子密度 $10^{14}/\text{cm}^3$ 、電子温度 200 eV の場合。

の内殻励起状態の寄与が減る条件では、今回の計算結果と Fournier らの結果との差異は減少する。計算の精度をさらに高めるためには、エネルギー単位を選択する際に用いる、状態の生成されやすさの尺度を改良することが必要と考えられる。

5. まとめ

本報告では、従来手作業で行っていた衝突輻射モデルの構築を自動化する手法を示した。原子物理コード (Hullac) と組み合わせることによって、任意の原子、イオン種のモデルを速やかに構築できるようになった。電子配置を表現する文字列が、原子状態のメタデータとして、そのエネルギー状態や遷移確率を推定するために用いられることを示し、また正規表現による文字列処理を用いる Java クラスライブラリを作成して具体的な物理量の計算に利用する方法を示した。

計算機による原子状態の生成の利点を生かし、多価イオンの原子状態を共通のイオン化極限に収束する一電子励起状態の組ごとにグループ化し、モデルに含める原子状態の数をグループの数を尺度として増して反復計算を行った結果、LTE 状態を仮定した予想に従って平均価数や放射損失が収束し、また Kr について FTU トカマクにおける実験および Fournier らの計算とも概ね一致した。

このように本研究では、複雑な構造を持つ多電子多価イオンの衝突輻射モデルの構築において、従来困難であった 10^4 個もの原子状態の中から必要なものを選択しなければならないという問題を、10 個程度以下の少数の原子状態のグループを選択する問題に帰着させることができた。そして、グループの数に対する平均価数や放射損失の収束を得ることを以て適切なモデルが構築できたことの尺度とするという考え方が妥当であることを示した。

それでもなお、複雑な衝突輻射モデルの一般的な検証は困難であり、分野の専門家によるコードの相互比較による問題点の発見や改善の試みが提案され進められている [12]。

謝 辞

本報告をまとめるにあたり、文部科学省リーディングプロジェクト「極端紫外光源開発等の先進半導体製造技術の実用化」の支援、同プロジェクト理論グループのレーザー総合技術研究所砂原淳研究員、岡山大学工学部西川亘助教、北里大学医学部小池文博准教授、首都大学東京理学部田沼肇准教授をはじめとする各位のご協力に感謝いたします。日本原子力研究開発機構 田島俊樹量子ビーム応用研究部門副部門長、木村豊秋光量子ビーム利用ユニット長、山極満光量子シミュレーショングループリーダーに感謝いたします。

参考文献

- [1] 小特集「多価イオン原子過程の基礎と広がる応用研究」プラズマ・核融合学会誌 83, 658 (2007).
- [2] H. Griem, *Principle of plasma spectroscopy* (Cambridge University Press, 1997).
- [3] T. Fujimoto, *Plasma spectroscopy* (Clarendon Press, 2004).
- [4] F.A. Parpia, C.F. Fischer and I.P. Grant, *Comp. Phys. Commun.* 94, 249 (1996).
- [5] A. Bar-Shalom, M. Klapisch and J. Oreg *et al.*, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* 71, 169 (2001).
- [6] M.F. Gu, *Atrophys. J.* 582 1241(2003).
- [7] A. Sasaki, K. Nishihara, M. Murakami, T. Kagawa, T. Nishikawa, K. Fujima, T. Kawamura and H. Furukawa, *Appl. Phys. Lett.* 85, 5857 (2004).
- [8] A. Sasaki, M. Murata, T. Kanamaru, T. Shirado, H. Isahara, Y. Ueshima and M. Yamagiwa, *J. Plasma Fusion Res.* 81, 717 (2005).
- [9] K.B. Fournier, D. Apcella, M.J. May, M. Finkenthal and W.H. Goldstein, *Nucl. Fusion* 37, 825 (1997).
- [10] D.E. Post, *ADNDT* 20 397 (1977).
- [11] K.B. Fournier, M.J. Jay, D. Pacella, M. Finkenthal, B.C. Gregory and W.H. Goldstein, *Nucl. Fusion* 40, 847 (2000).
- [12] J.G. Rubiano, R. Florido, C. Bowen, R.W. Lee, and Y. Ralchenko, *HEDP* 3, 225 (2007).