

小特集

プラズマ原子・分子過程の展望

3. 衝突輻射モデル

3.2 多電子系イオンの衝突輻射モデル

佐々木 明

(日本原子力研究所関西研究所光量子科学研究センター)

Collisional Radiative Model Collisional Radiative Model for Complex Ions

SASAKI Akira

*Advanced Photon Research Center, Kansai Research Establishment,
Japan Atomic Energy Research Institute, Neyagawa 572-0019, Japan*

(Received 10 August 1999)

Abstract

The collisional radiative model of multiple-charged ions of high-Z elements is described. Characteristic features of the level structure and atomic processes, and approximate methods to calculate ion abundance and level populations are presented. In the development of an atomic model, a large number of energy levels and collisional radiative rates are calculated using the atomic data codes. The usefulness of the super configuration model in constructing a simpler atomic model is explained using the results of a collisional radiative model for soft x-ray lasers.

Keywords:

collisional radiative model, atomic kinetics, atomic data, multiple-charged ion, x-ray laser

3.2.1 はじめに

核融合、天体プラズマ、X線レーザー、X線源などの基礎、応用研究で、高温、高密度で非局所熱平衡状態(non-LTE)にあるプラズマ原子過程の計算がしばしば重要になる。その結果は、プラズマの吸収・発光スペクトルの評価に用いられるほか、流体コードや粒子コードに組み込んでプラズマのダイナミクスの計算にも用いられる。衝突輻射モデルは、プラズマの組成、温度、密度に対して、平均価数や、価数ごとのイオンが存在する割合(イオンアバundance)、励起状態への分布の状態(レベルポピュレーション)を求めるために用いられる。この

author's e-mail: sasaki@apr.jaeri.go.jp

とき、鉄程度より重いイオンや、軽いイオンでも外殻に複数の電子が存在するイオンは、量子力学に基づく考察や分光計測の結果が示すように複雑な構造を持ち、多数のレベルとその間に起こる原子素過程を取り扱う必要が生じる。本稿では、このような多電子系イオンの衝突輻射モデルについて、筆者が開発しているNi様イオンを用いた電子衝突励起X線レーザーのモデルを例にあげて述べる。

衝突輻射モデルでは、各々のレベルのポピュレーションの時間変化がレート方程式により表される。レベル n のポピュレーション N_n は、

$$\frac{dN_i}{dt} = \sum_{n \neq i} F_{n,i} N_i - \sum_{n \neq j} Q_{j,n} N_n \quad (1)$$

と表される。 $F_{n,i}$ はレベル n が他のレベル i から生成する過程、 $Q_{j,n}$ はレベル n のレベル j への消滅の過程の速度係数である。 主な生成、消滅素過程は、電子衝突および輻射による電離、再結合、励起、脱励起過程であるが、プラズマの温度、密度条件や境界条件により、分子を生成したり解離する過程や、固体表面との相互作用、原子核との相互作用などの多様な過程が含まれる。和は、これを起こり得るすべての過程について足しあげて示す。

多電子系イオンではレベルの数が非常に多くなり、計算が困難になることもあるため、いくつかの近似手法が考えられている。QSS (Quasi Steady State) モデルは、原子過程の時間発展の計算手法のひとつであり、電離・再結合過程によるアバダンスの変化が、励起・脱励起過程によるレベルポピュレーションの変化よりも一般に遅いことに注目し、レベルポピュレーションが各瞬間で平衡状態にあるとみなし、イオン種ごとにポピュレーションの時間変化を計算する方法である。

平均イオンモデル (averaged ion model) は、原子構造の近似手法である。この方法では、原子の構造を擬似水素様イオンで近似し、個々のレベルポピュレーションの代わりに、主量子数 n または n と方位量子数 l で区別される殻に存在する電子の平均的な個数を計算する [1-3]。各々の状態のエネルギーは、これに属する電子の個数と遮蔽係数から求め、素過程の反応速度係数は、遷移エネルギーと水素様イオンの振動子強度を用いる経験式で求める。この方法では個別の原子データが不要で、少ない計算量でプラズマの平均的な価数、オパシティなどが計算でき、プラズマ流体コード、粒子コードに組み込むこともできる [4]。しかし、実験が高度化し X 線のスペクトルの詳細な構造や、X 線レーザーのように特定のスペクトル線の利得が問題にされるようになり、現実の原子構造とそこで起こる素過程をより忠実に再現する原子モデルの必要性が増してきていると考えられる。

3.2.2 多電子系イオンの原子モデルの特徴

我々は、レーザー生成プラズマを用いた X 線レーザー、X 線源などの特性を計算する衝突輻射モデルの開発を行っている [5]。これらの応用では、はじめに固体やクラスタのターゲットを真空中で短パルス高強度のレーザー光で加熱する。生成したプラズマの温度が 100 eV 以上

になると、媒質原子は Ne 様や Ni 様多価電離イオンまで電離され、強い X 線を放出するようになる。通常レーザー生成プラズマは、広がりがたかだか数百 μm 、密度が $10^{18} \sim 10^{22} / \text{cm}^3$ であり、温度、密度が時間、空間的に急激に変化する性質を持っている。我々は、多くの価数のイオン種をモデルに含めて広い範囲のプラズマの温度、密度に対して、イオン占有比、平均価数を計算でき、かつ主要なイオン種については詳細なレベル構造とそれらが関与する素過程を取り入れて、X 線レーザーの発振線の利得の評価を行える衝突輻射モデルを開発している。

Fig. 1 に Ni 様 Xe イオンの準位図を示す。中 Z ~ 高 Z 物質のプラズマにおいて、Ne 様や Ni 様の閉殻イオンは安定であることから大きなポピュレーションを持つ。X 線レーザーでは、Ne 様イオンの 3p-3s 遷移、Ni 様イオンの 4d-4p 遷移が発振線として重要である。Ni 原子の基底状態は $3d^8 4s^2$ 配置であるが、Ni 様多価電離イオンでは原子核の作るポテンシャルがより深くなるため、 $3d^{10}$ 閉殻が基底状態となる。Ni 様 Xe のイオン化エネルギーが約 1,500 eV であるのに対し、 $n=3$ 殻の 1 個の電子を $n=4$ 殻に励起するためのエネルギーは 600 ~ 1,000 eV であることから、 $3d^9 nl$ 配置以外に内殻励起状態 $3p^5 4l$ 、 $3s 4l$ および二電子励起状態の多くがイオン化エネルギー以下に存在する。 $n=5$ 以上の内殻励起状態 ($3p^5 nl$, $3s nl$)、高い二電子励起状態 ($3d^8 4d^2$ 以上) は自動電離状態となる。応用のために X 線発光・吸収スペクトルや、X 線によるプラズマ中でのエネルギー輸送の大きさを見積る際に、Ni 様およびその周辺の価数のイオンの 3-4 遷移、4-4 遷移は、波長が軟 X 線領域にあり重要である。

多電子系イオンでは状態は多数のレベルに分裂する。レベルは jj 結合により一意に表現することができる。各電子配置は、全角運動量 J が

$$J = j_1 + j_2, j_1 + j_2 - 1, \dots, |j_2 - j_1|$$

である微細構造レベルを持ち、例えば $3d^9 4p$ 配置は、Fig. 2 のように 3d 殻と 4p 殻の全角運動量の組み合わせが $(3/2, 1/2)$, $(3/2, 3/2)$, $(5/2, 1/2)$, $(5/2, 3/2)$ の 4 個の相対論的副配置 (relativistic subconfiguration) を構成する。Ni 様イオンの $3d^9 4s$, $3d^9 4p$, $3d^9 4d$, $3d^9 4f$ の各配置はそれぞれ 4, 12, 18, 20 個のレベルから構成される。輻射遷移確率の大きさは、選択規則 ($\Delta l = \pm 1$, $\Delta J = 0, \pm 1$) を満たすか否かに依存する。また電子衝突励起速度係数もレベルによって大きく異なっていて、例えば Ni 様イオンの基底状態からの励起は、 $3d^9 4d$ に属する

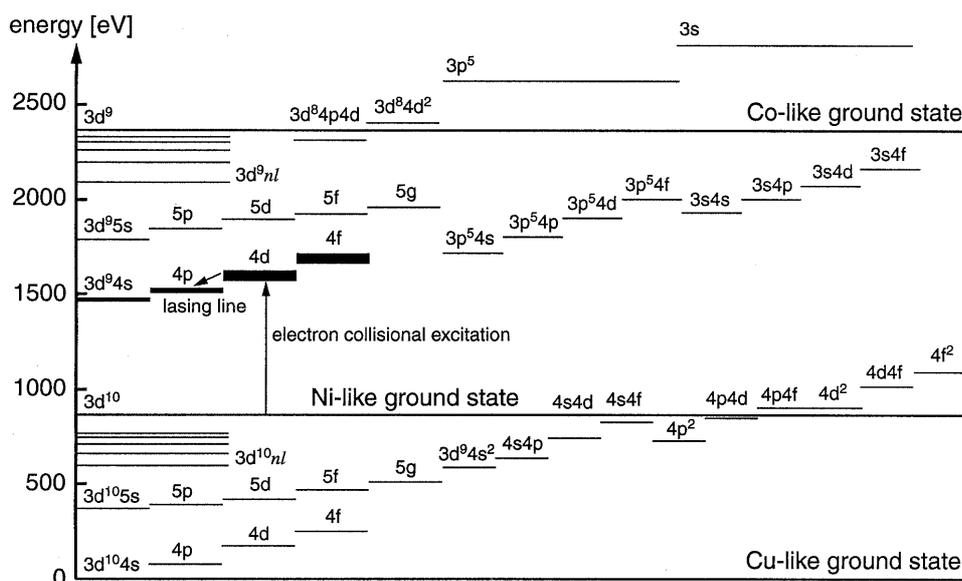


Fig. 1 Level diagram of Ni-like Xe.

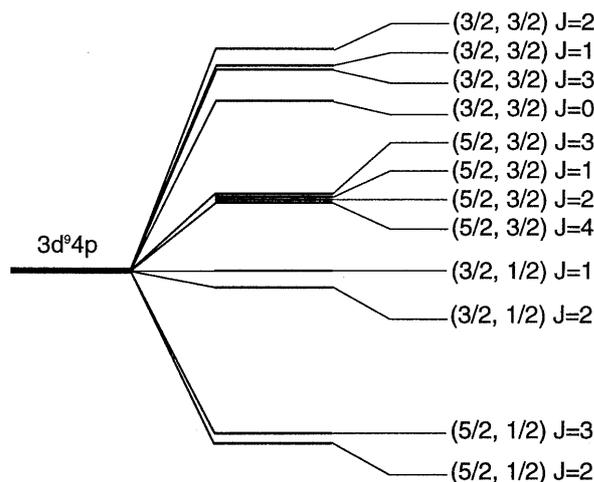


Fig. 2 Fine structure levels of $3d^9 4p$ configuration of a Ni-like ion.

最も高い $(3/2, 3/2)J=0$ レベルへの単極子遷移が特に強いことが知られている。このため、微細構造レベルごとにポピュレーションの振る舞いが異なり、Ni 様イオンでは $3d^9 4d(3/2, 3/2)J=0$ レベルと $3d^9 4p(5/2, 3/2)J=1$ および $3d^9 4p(3/2, 1/2)J=1$ レベルの間で反転分布が生じて X 線レーザー発振が起こる。一方、レベルは多くの開殻を持つ状態ほど大きな統計重率を持っている。プラズマが LTE に近づくともポピュレーションは統計重率に比例するようになることから、これをレベルごとに正しく評価することが重要になる。

3.2.3 多電子系イオンの原子データ

X 線レーザーや X 線源の特性の評価に用いる Ni 様イオンの衝突輻射モデルは数百以上のレベルと数千以上の多数の励起、電離過程を含む。理想的にはその各々について理論、実験によって検証を経た評価済みデータを用いることが望ましい。しかし、信頼性の高い実験値が知られているのはごく一部のエネルギー準位に限られていて、どのようにして原子構造、素過程データを入手するかが問題である。最近、計算手法の進歩と計算機の能力の向上により、原子データコードと呼ぶプログラムによって、量子力学的に理論計算でデータを求めることが現実的になってきた[6,7]。

Fig. 3 は原子データコードのひとつの HULLAC コードのブロック図である。HULLAC コードはパラメトリックポテンシャル法による波動関数の計算、歪み波近似法による電子衝突励起速度係数の計算を中心とするプログラム群からなり、計算の対象とするイオン種と非相対論的電子配置を入力データとして与えて、詳細なエネルギー準位と、高温プラズマ中で重要となる電子衝突電離、励起、放射再結合、自然放出、自動電離の各過程の反応速度係数を計算することができる[8]。

衝突輻射モデルを構築するためには、モデルに含めるイオン種、レベルを決め、原子データコードの計算で得られたエネルギーレベルや反応速度係数のデータの中から、必要なデータを抽出することが必要になる。HULLAC の原子データはイオン種ごとに計算されるので、

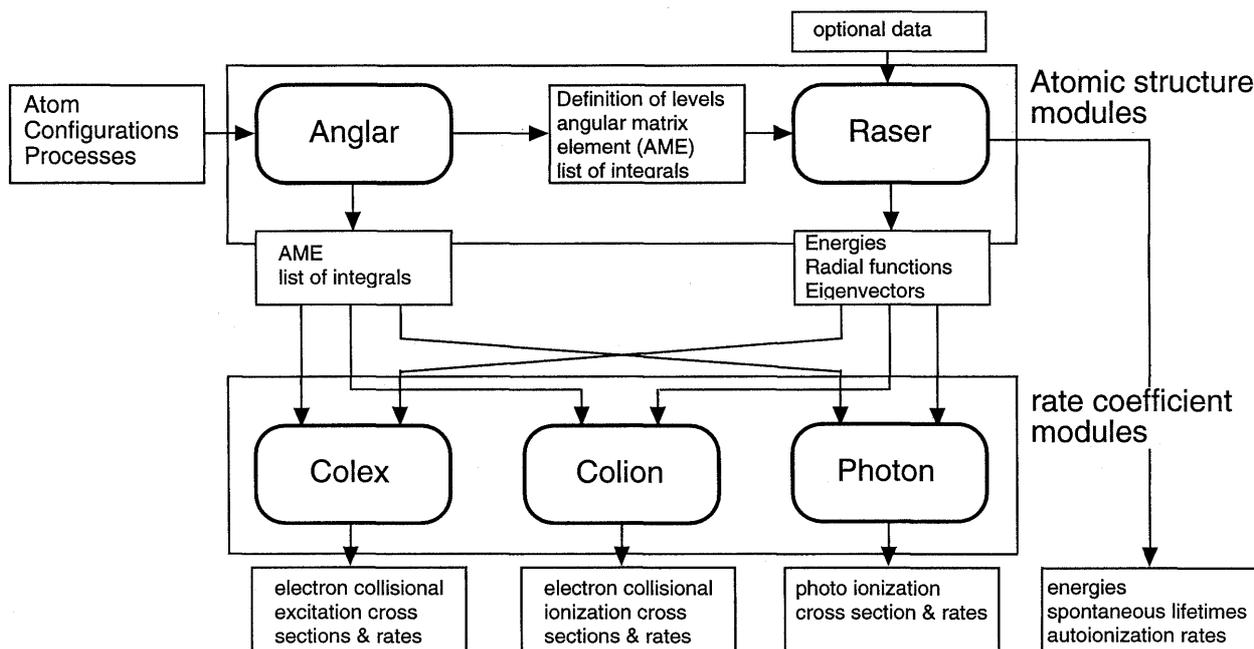


Fig. 3 Block diagram of HULLAC atomic data code.

原子モデルを構築するためには、それらを統合する必要がある。多数のエネルギーレベルと反応速度係数を効率的に扱うためにはデータ項目のソート、検索、抽出、比較などのデータベース的機能を持つプログラムにより自動的に行うことが必要になる。また、原子素過程データの精度を高めるためには、他の実験や計算の結果と比較することが重要だが、検証も手作業ではもはや困難でありコンピュータプログラムによりシステムティックに行う必要がある。

原子データを衝突輻射モデルでの使用に適した書式で記述することも必要である。HULLACコードでは、温度依存性を持つ電子衝突電離、励起の速度係数を5個のパラメータを持つ fitting formula で記述している。使いやすく、かつ考慮の対象とするプラズマの温度、密度条件において精度の良い反応速度係数を与える fitting formula を選ぶことが重要になる。

3.2.4 スーパーコンフィギュレーションモデル

Fig.1 に示したように、Ni 様をはじめとする多価イオンには多数の励起状態があり、それぞれは多数のレベルに分裂している。原子データコードを用いると詳細なレベル間の反応速度係数を計算できるが、あまりにも多くのレベル含む衝突輻射モデルの計算を行うことは非効率的である上、応用上も詳細な情報が必要な微細構造レベ

ルはむしろ限られている。物理的にも、電子衝突励起・電離速度が大きくなるにしたがって、接近したレベル群のポピュレーションは平衡状態になり、高い励起状態(リドベルグ状態)は次の電離状態と局所熱平衡になると考えられる。すなわち、効率的に計算を行うため、レベル群を平均化して扱う方法が重要になる。

そこで我々は Ni 様 Xe イオンのレベルのうち、X 線レーザーの利得の大きさに直接関係のある $3d^9 4l$ 配置を詳細に扱い、他は非相対論的電子配置、すなわち主量子数 n 、方位量子数 l で区別される状態ごとにエネルギーレベルとレート係数を平均化することにした。さらに高い励起状態は、水素様近似に基づいて、主量子数 n または主量子数 n と方位量子数 l で平均化したレベルを定義した。

このように配置の主量子数 n と方位量子数 l を用いてレベルを平均化した原子モデルは、Ni 様イオンのようにレベル構造が水素様イオンに近いイオンについては比較的良い近似になっている。しかし、部分的に満たされた M, N 殻を持つイオンのモデリングにはさらに工夫が必要である。例をあげると、Ga 様イオンの基底状態は $3d^{10}$ 閉殻に加えて $4s^2 4p$ であり、最外殻電子が励起された状態の電子配置は $3d^{10} 4s^2 n l$ であるが、イオン化エネルギーが 750 eV であるのに対し、 $n=4$ 殻の中で $\Delta l=1$ の励起を行うエネルギーは 100 eV 程度であるか

ら、 $n=4$ 殻内で 1 個から 3 個までの電子が励起された状態が $4s4p^2$, $4s4p4d$, ..., $4f^3$ まで 19 通り存在する. Fig. 4 に示すようにこれらのレベルは大きな統計重率を持ち、レベルポピュレーションを決定するために重要になる. この場合、主量子数 n と方位量子数 l で平均化したレベルを定義したとしても組み合わせの数が多くなるので、Bar-Shalom らは複数の電子配置に属するレベル群を平均化したスーパーコンフィギュレーションを用いる STA (Super Transition Array) モデルを提案している. STA モデルの特徴はレベル群の持つ大きな統計重率をもれなく考慮すること、電子の波動関数が動径成分と角度成分に分けられることに基づいて、角運動量の係数の高度な計算 (angular momentum algebra) の手法を活用してスーパーコンフィギュレーション間の衝突や輻射による遷移確率を求めることにある. 多くの線スペクトルが重畳して形成するバンドスペクトルの平均エネルギーと幅を定義する UTA (Unresolved Transition Array) モデルを併用することで、彼らは少ないレベル数でイオンアバUNDANCEや実験的な X 線スペクトルをよく再現している [9].

Fig. 5 に Cu 様, Ni 様イオンの統計重率で正規化したポピュレーションを示す. $n=4$ 以上のレベルが局所熱平衡状態になるためには $2.5 \times 10^{22} / \text{cm}^3$ の電子密度が必

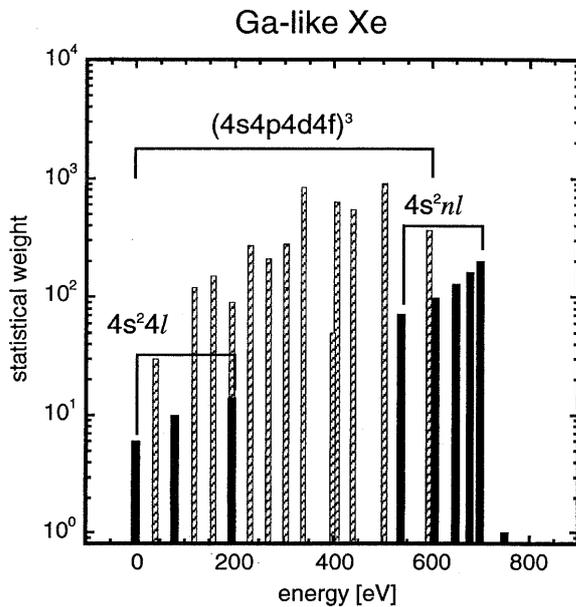


Fig. 4 Distribution of excited configuration of a Ga-like ion. ■ corresponds to single electron excited states from $3d^9 4s^2$ core ($3d^9 4s^2 nl$). ▨ corresponds to multiple excited states within $n=4$ shell $3d^9(4l)3$.

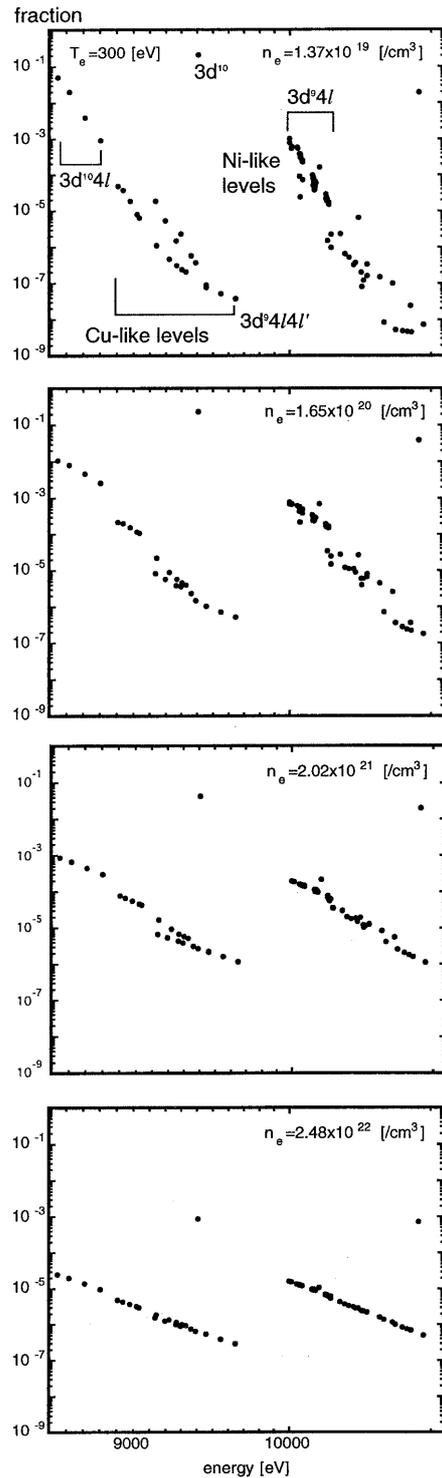


Fig. 5 Calculated population of Ni-like and Cu-like Xe for different electron densities, showing the population of the levels inside a configuration converges to thermal equilibrium at lower density than the population of the configuration becomes LTE with respect to the ground state of the next ion stage.

要であるが、エネルギーが接近した同一の電子配置を持つレベル群のポピュレーションの比はそれよりも低い電子密度でボルツマン分布に従うようになり、このようなレベル群をスーパーコンフィギュレーションとして平均化することが妥当な近似であることを示す。

このように、衝突輻射モデルを構築するには、計算に用いるレベルを定義し、反応速度係数を計算するために、対象とする原子やプラズマ中のどのような過程に注目するかに依存して、イオン、電子配置あるいはレベルごとに異なるモデルを用いる必要がある。我々はユーザー

からの指示により自動的にモデルを構築するプログラムの開発を目指している。プログラムはその名前によって電子配置を区別し、各々について詳細な取り扱いが指示された場合は HULLAC で計算されたデータを読み込み、そうでない場合は遮蔽水素近似に基づいて計算して、エネルギーレベルやレート係数を生成する。さらに、主量子数 n または主量子数 n と方位量子数 l により平均化したスーパーコンフィギュレーションの使用が指示された場合は、エネルギーレベルと反応速度係数の平均化を行う。

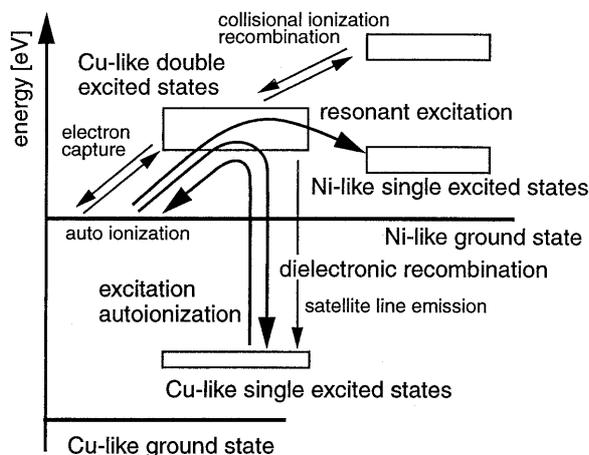


Fig. 6 Schematic diagram of energy level structure and corresponding processes between Ni-like levels and Cu-like double excited states.

3.2.5 多電子励起, 内殻励起状態の効果

多電子励起, 内殻励起状態のうちの自動電離状態は, Fig. 6 に示すように二電子性再結合 (dielectronic recombination), excitation autoionization 過程を通してイオンアバンドランスに影響を与え, 共鳴励起 (resonant excitation) 過程は, イオンの電子衝突励起速度係数を実効的に増加させてレベルポピュレーションに影響を与える。

Fig. 7 は, Ni 様イオンを用いる X 線レーザーにおいて自動電離状態が与える影響を調べるため $3d^9 4d (3/2, 3/2) J=0$ レベルと $3d^9 4p (5/2, 3/2) J=1$ の間の X 線利得を, 4 通りの原子モデルで計算した結果を示す。レーザー発振に直接関係する $3d^9 4p$ および $3d^9 4d$ 状態のみ詳細に取り扱ったモデルでは利得の最大値は約 $150 / \text{cm}$ であるが, より多くのレベルを考慮することにより $1/5$ に

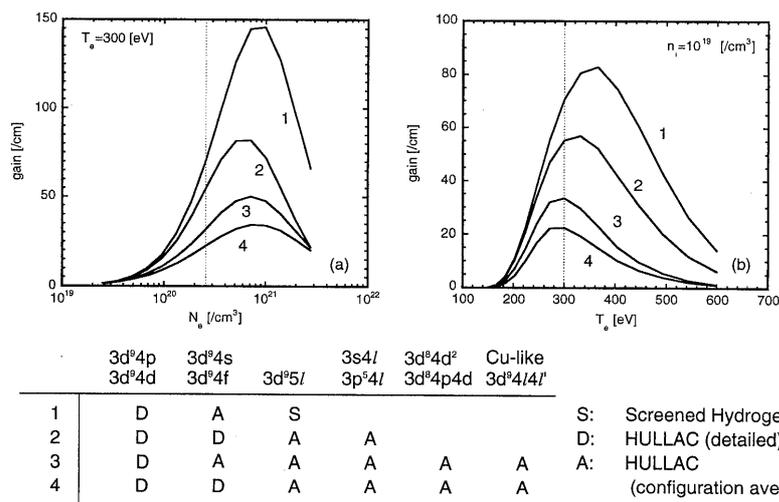


Fig. 7 Electron density and temperature dependence of soft x-ray gain in $3d^9 4d (3/2, 3/2) J=0$ to $3d^9 4p (5/2, 3/2) J=1$ of Ni-like Xe. The gain decreases 50% by the mixing between $3d^9 4l$ configurations. Another 50% decrease is caused by the dielectronic recombination of Ni-like ground state through doubly excited states of Cu-like Xe.

減少することを示す。

反転分布とX線レーザー利得の大きさに大きな影響を与えている過程は、 $3d^94d$ と $3d^94f$ 配置に属する詳細なレベルの間の混合、Cu 様イオンの二電子励起状態を経た二電子再結合過程である。後者の効果は、Ni 様イオンの基底状態のポピュレーションを減少させ、これからの電子衝突励起によって主に生成するレーザー上準位である $3d^94d (3/2, 3/2)J=0$ レベルのポピュレーションをも減少させるために、利得の低下が引き起こされると考えられる。

3.2.6 まとめ

多電子系イオンの衝突輻射モデルにより、これまでよりも広い温度、密度条件、媒質イオン種からなるプラズマ中の原子過程のふるまいが明らかになり、今後、核融合、天体物理研究、X線源開発などへの応用が広がり成果が得られると期待される。

このような応用のためには、原子素過程データの計算、原子モデル構築において、スーパーコンフィギュレーションモデルのような新しいアイデアが有用である。レベルや反応速度係数をすべて詳細に取り扱うのではなく、対象とするイオン種やプラズマ条件に基づく近似法を用いること、素過程データを簡単な形で与えるスケールング則を見出すことは重要である。

一方、極端な高温、高密度にあるプラズマ中や、強い外場の作用しているプラズマ、強い非平衡状態にあるプラズマ中の原子過程についてはさらに理論的考察が必要

である。

大量の原子構造や原子素過程データを生産し、評価を行うためには、コンピュータを駆使したデータベースとの連携が必要と考えられる。また、モデルの信頼性を上げるためには、結果の相互比較、いろいろな条件下にあるプラズマにおける実験結果との比較が重要になると考えられる。実験への応用のためには、スペクトル形状計算コードやプラズマの状態を計算するプラズマ流体コードと衝突輻射モデルの統合が課題になると考えられる。

参考文献

- [1] W.A. Lokke and W.H. Grasberger, Lawrence Livermore Laboratory Report No. UCRL-52276, 1977 (unpublished).
- [2] D.E. Post, R.V. Jensen, C.B. Tarter, W.H. Grasberger and W.A. Lokke, *At. Data Nucl. Data Tables* **20**, 397 (1977).
- [3] M. Itoh, T. Yabe and S. Kiyokawa, *Phys. Rev. A* **35**, 233 (1987).
- [4] H. Takabe and T. Nishikawa, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.* **51**, 379 (1994).
- [5] 佐々木 明, 内海隆行, 森林健悟, 田島俊樹, 宅間宏: *レーザー研究* **27**, 185 (1999).
- [6] R.D. Cowan, *Theory of Atomic Structure and Spectra* (University of California Press, Berkeley, 1981).
- [7] I.P. Grant, *Comput. Phys. Commun.* **5**, 263 (1973).
- [8] M. Klapisch and A. Bar-Shalom, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.* **58**, 687 (1997).
- [9] A. Bar-Shalom, J. Oreg and M. Klapisch, *Phys. Rev. E* **56**, R70 (1997).