

論文内容の要旨

論文題目 Electronic structure of multi-electron atoms and atomic ions in laser plasma
(レーザープラズマ中の多電子原子・イオンの電子構造)

氏名 奥津 浩史

I. 序

強レーザー光を固体表面やクラスターに集光することによって、レーザープラズマと呼ばれる高温(0.1~1 keV)かつ高密度($10^{22}\sim 10^{25}\text{ cm}^{-3}$)のプラズマが生成することが知られている。近年、このようなレーザープラズマは、レーザー核融合を実現するための媒質として、あるいは、高強度のX線、電子線、イオン線源として注目を集めている。このような高温・高圧の特異なプラズマ環境下においては、荷電粒子間の強い相互作用によって、原子の電子構造は孤立原子の状態から大きく変化する。実際、近年、レーザープラズマ中の多価原子イオンからの発光スペクトルにおいて、遷移エネルギーが低エネルギー側に数 eV シフトする現象が観測され、原子の電子状態がプラズマ環境下において大きな摂動を受けることが認識されるようになり、機構の解明が求められている。

プラズマ中における原子の電子状態は、これまで、多体摂動論、SCF confined atomic model、あるいは、super-configuration method を用いて計算が行われてきた。しかし、これらの方法は一電子近似に基づく方法であるため、複数の電子配置が寄与する、電子相関が大きな状態を記述することは困難である。本研究では、プラズマの効果を有効ポテンシャルとして多電子ハミルトニアンに取り入れることによって、電子相関を適切に取り入れた配置間相互作用(CI)法に基づく量子化学計算を可能にした。そして、このモデルを用いて、レーザープラズマ中における電子構造を明らかにすることを目指した。

II. プラズマ中の原子の電子状態計算: 相対論的 Debye 遮蔽モデル

本研究で用いたハミルトニアンを式 (1) に示す。

$$\hat{H} = -\frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \nabla_i^2 - \sum_{i=1}^N \frac{Z}{r_i} \exp(-\mu r_i) + \sum_{i>j}^N \frac{1}{r_{ij}} \exp(-\mu r_{ij}). \quad (1)$$

N は電子数、 Z は核電荷を表す。式(1)においては、プラズマ中におけるクーロンポテンシャルの遮蔽の効果を表現するために、核 - 電子の引力ポテンシャルおよび電子間の反発ポテンシャルを、遮蔽されたクーロン型ポテンシャル(湯川ポテンシャル)によって置き換えている。 μ は Debye 遮蔽定数と呼ばれ、プラズマの温度 T_e と密度 n_e を用いて、

$$\mu = \sqrt{\frac{e^2 n_e}{\epsilon_0 k T_e}} \quad (2)$$

と表される。すなわち、プラズマのパラメータである T_e と n_e 、原子種を指定する Z と N を与えることによって、プラズマ環境下における原子の電子状態を計算することができる。電子相関効果に加え、相対論効果を考慮するために、2 次の Douglas-Kroll 変換に基づく定式化を式(1)に導入することで新たに開発した「相対論的 Debye 遮蔽モデル」を用いて計算を行った。湯川型ポテンシャルに束縛された「非クーロン場中での電子分布」を適切に表現するために、ユニバーサル基底関数法に基づく自由度の高いガウス型基底関数系を用い、2 電子系については完全 CI 法、3 電子以上の系については多参照 CI 法を用いて計算を行った。

上記のモデルを用いて、実測されているレーザープラズマ中における Ar^{16+} の $(3p) \ ^1P - (1s) \ ^1S$ 遷移の計算を行った。実験条件から見積もられる Debye 遮蔽定数 μ とそれに対応する孤立原子の遷移エネルギーからのシフト量をプロットした結果、本モデルによる計算値が実測値の傾向をよく再現することが明らかとなった。すなわち、本モデルは、プラズマ中における電子状態の変化を適切に表現していることが示された。

III. 中性原子の電子構造

遮蔽定数 μ をパラメータとして、典型的なレーザープラズマの条件である $0 \leq \mu \leq 0.16$ の範囲において、He, Li, Be の準位エネルギーおよび振動子強度の計算を行った。図 1 に、Li の励起エネルギーを μ の関数としてプロットした図を示す。図 1 が示すように、基底状態からの励起エネルギーは、全ての準位について減少すること、すなわち、発光スペクトルにおいて低エネルギー側へのシフト(red shift)が観測されることが示された。これは、核電荷の遮蔽によって電子分布が広がり、準位間隔が減少したためであると考えられる。また、 μ の増加とともに、高エネルギーの状態が次々とイオン化限界に収束し、束縛状態の数が減少していく現象が見られた。この結果は、レーザープラズマ中においては、リュドベリ状態からの発光スペクトルが観測されないという実験事実と符合する。He および Be の場合にも同様の準位エネルギー構造の変化が起こることが示された。

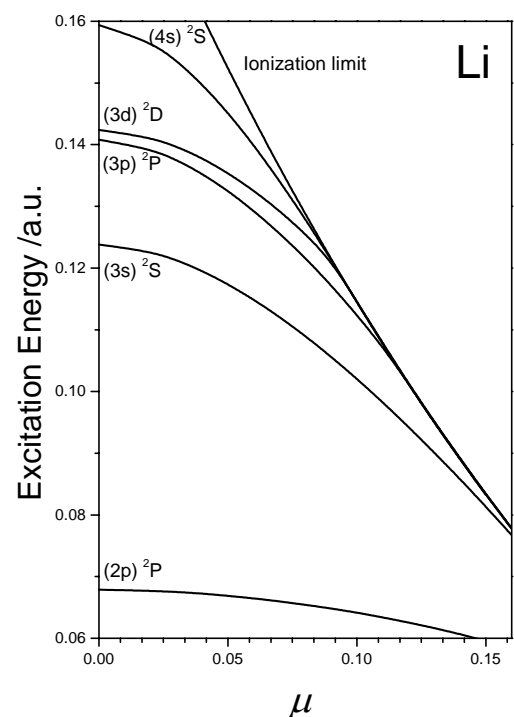


図 1. Li の励起エネルギー

図 2 に、He, Li, Be のそれぞれの場合について、基底状態からの第一許容遷移、すなわち、He の(1s) ¹S - (2p) ¹P 遷移、Li の(2s) ²S - (2p) ²P 遷移、Be の(2s) ¹S - (2p) ¹P 遷移の振動子強度の計算結果を示す。振動子強度は、遷移エネルギーと遷移モーメントの行列要素の自乗を用いて、

$$T^\xi(b, a) = 2(E_b - E_a) \left| \langle \Psi_b | \sum_{i=1}^N \xi_i | \Psi_a \rangle \right|^2 \quad (3)$$

と表される。 ξ_i ($\xi = x, y, z$) は各電子の座標、 Ψ_a, Ψ_b は CI 波動関数を表す。図 2 が示すように、He と Be の遷移の振動子強度は μ の増加とともに減少するのに対し、Li の振動子強度は増加することが示された。振動子強度の遷移エネルギー部分は、全ての原子において共通に減少する傾向を持つため、振動子強度に見られる He, Be と Li の相反する傾向は、式(3)の遷移モーメントの大きさの μ 依存性によって説明される。

この遷移モーメントの μ 依存性を説明するために、 $\mu = 0.0, 0.10, 0.15$ の場合について、各電子状態の動径電子密度分布を図 3 に示した。まず、He の場合には、(1s) ¹S 基底状態の動径電子密度分布は μ の増加に対してほとんど変化を示さないのに対し、(2p) ¹P 励起状態では、動径電子密度分布はより広範囲の r に分布を持ち、 μ の増加とともに広がる傾向を示す。このため、He の場合には、(1s) ¹S 状態と(2p) ¹P 状態の電子分布の重なりが μ の増加とともに減少し、遷移モーメントは減少する傾向を持つ。

一方、Li の場合には、(2s) ²S 基底状態と(2p) ²P 励起状態の最外殻電子はともに同じ主量子数を持つため、電子密度分布は大きな重なりを持つ。図 3(c),(d)に示すように、これらの電子密度分布は μ の増加とともに広がるため、式(3)の遷移モーメント部分の座標の期待値は大きくなり、遷移モーメントは増大する。この遷移モーメントの増加が励起エネルギーの減少よりも大きな寄与をするため、Li の場合は振動子強度が増加する。

また、Be の場合は、Li と同様、(2s) ¹S 基底状態と(2p) ¹P 励起状態の最外殻電子は同じ主量子数を持つため、電子分布は大きな重なりを持つ。しかし図 3(e),(f)に示すように、Be の電子分布はより大きな核电荷のために収縮し、 μ の増加に伴う分布の広がりが Li よりも小さい。このため Be の場合には、遷移モーメントが増加する割合が励起エネルギーの減少する割合より小さいために、振動子強度は減少する傾向を示すことになる。

さらに、最外殻電子の主量子数の関与を調べるために、Li (2s) ²S - (3p) ²P 遷移の振動子強度の計算を行ったところ、 μ の増加に伴い急激な減少が見られた。最外殻電子の主量子数の異なる状態間の遷移では同じ状態間の遷移に比べ振動子強度の減少傾向が強まることが示された。

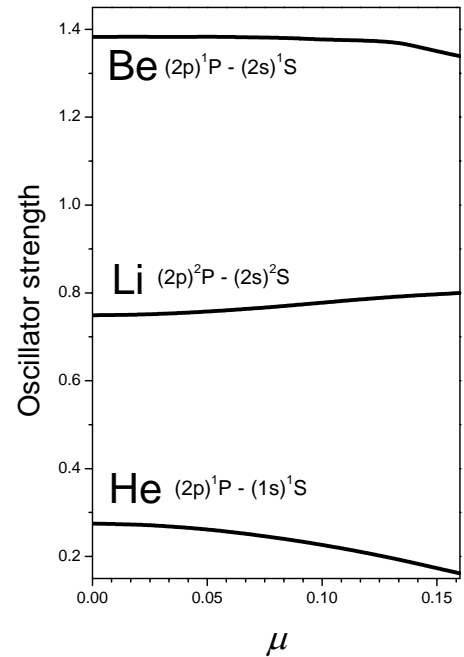


図 2. He, Li, Be の第一許容遷移の振動子強度

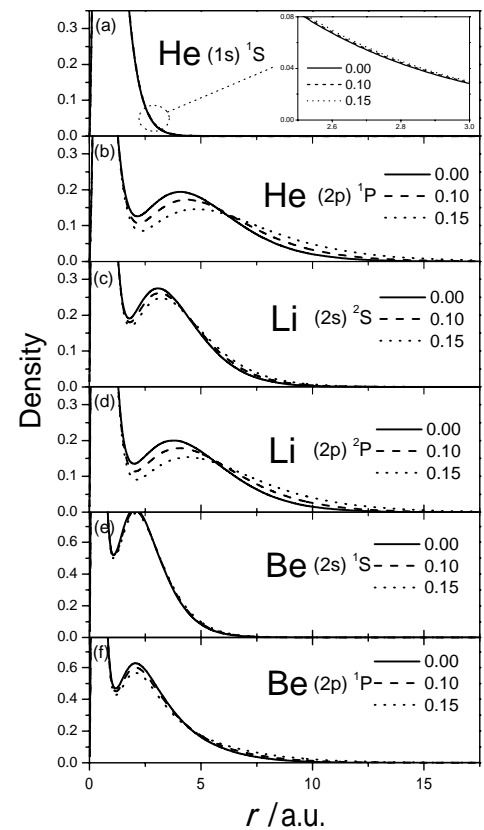


図 3. He, Li, Be の動径電子密度分布

IV. 多価イオンの電子構造

2 電子系 He 様多価イオン ($Z = 2 \sim 10$) の第一許容遷移 ($2p$) $^1P - (1s)$ 1S 及び 3 電子系 Li 様多価イオン ($Z = 3 \sim 10$) の第一許容遷移 ($2p$) $^2P - (2s)$ 2S の励起エネルギーを μ の関数としてプロットしたものをそれぞれ図 4, 図 5 に示す。 μ 依存性を見やすくするため各励起エネルギーは Z^2 でスケールされている。

2 電子系 He 様多価イオンの場合、 μ の増加に伴い励起エネルギーは全て減少傾向を示している。これは、核電荷の遮蔽に伴い、電子分布が広がり、準位間隔が減少するためと考えられる。また、3 電子系 Li 様多価イオンの場合、 μ の増加に伴い、中性原子 ($Z = 3$) および一価イオン ($Z = 4$) の励起エネルギーは減少を示すのに対し、 $Z \geq 5$ の多価イオンにおいては、増加する傾向が見出された。すなわちこの結果は、プラズマ中の Li 様多価イオン原子からの発光スペクトルにおいては blue shift が観測され得ることを示している。

この blue shift を起こす原因は、次のように説明される。多価イオンにおいては、電子密度分布が核付近に収縮しているために、中性原子に見られるような、電子分布の広がりに伴う準位間隔の減少は小さい。一方、最外殻電子である $2p$ 電子と $2s$ 電子では、式(1)の湯川ポテンシャルによって表される核電荷の遮蔽効果の影響が異なる。すなわち、 $2s$ 電子は原子核付近に分布を持つために遮蔽効果を受けにくいのに対し、核の位置に節がある $2p$ 電子は遮蔽効果を受けやすい。そのために、 $2s$ と $2p$ 状態の準位間隔が、 μ の増加と共に増加すると考えられる。

さらに、4 電子系 Be 様多価イオンの ($2p$) $^1P - (2s)$ 1S 遷移についても計算を進めた結果、3 電子系の場合と同様に Z の増加に伴い red shift から blue shift へ変化する傾向があることが示された。このことは、プラズマ中の N^{3+} が red shift を示し、 O^{4+} が blue shift を示すという近年の観測結果と関連するものと考えられる。

本研究で導入された相対論的 Debye 遮蔽モデルによって、電子相関および相対論効果を取り入れたレーザープラズマ中の原子・原子イオンの電子状態計算が初めて可能となった。

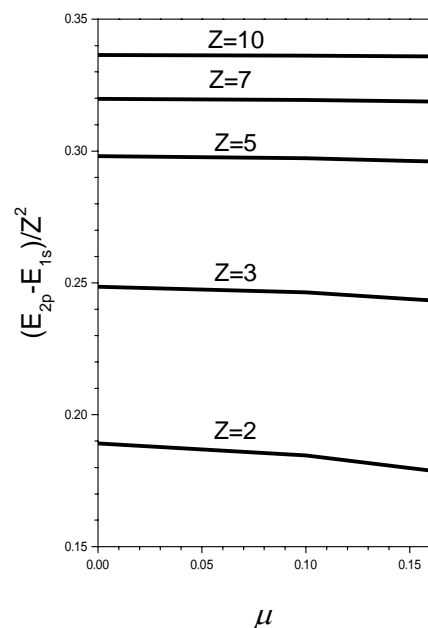


図 4. He 様多価イオンの ($2p$) $^2P - (1s)$ 1S 遷移の励起エネルギー

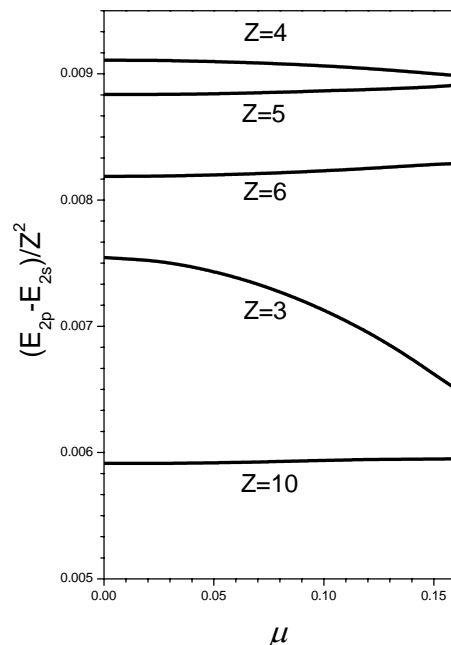


図 5. Li 様多価イオンの ($2p$) $^2P - (2s)$ 2S 遷移の励起エネルギー