

令和元年6月5日現在

機関番号：63902

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2015～2018

課題番号：15H03759

研究課題名(和文) 重元素多価イオンの極端紫外スペクトルに関する分光データベースの構築

研究課題名(英文) Development of a spectroscopic database of extreme ultraviolet spectra of highly charged heavy ions

研究代表者

鈴木 千尋 (SUZUKI, Chihiro)

核融合科学研究所・ヘリカル研究部・助教

研究者番号：30321615

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,500,000円

研究成果の概要(和文)：いまだ未解明の部分が多い、プラズマ中の重元素多価イオンから放射される極端紫外スペクトルについて、物理的特性が大きく異なる、磁場閉じ込めトーラスプラズマ、レーザー生成プラズマ、電子ビームイオントラップの3種類の光源を用いて、応用上重要なものを含む多くの元素について観測を行った。その結果、スペクトルの原子番号依存性、電子温度依存性、電子密度(光学的厚さ)依存性についての系統的な整理・解析が進んだ。原子構造計算との比較、新たなスペクトル線の同定、衝突・輻射モデルとの比較・検討も進展し、広範囲の原子番号と電子温度を網羅する、極端紫外スペクトルに関する実験・理論のデータベースが構築された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で蓄積された分光データは、多電子相関などの原子物理学的に興味深い現象に関連するだけでなく、短波長光源への産業応用や核融合プラズマ研究に関連する元素も含み、これらの分野でも有用なデータベースである。また、本研究の過程で、一部のランタノイド系元素について、過去に実験的に観測されたことのない新たなスペクトル線が同定されたことは、基礎物理学的に有意義な成果として特筆すべきものであり、この成果に関連した報道発表も行った。さらに、タングステンおよびレニウムの電気八重極子遷移の発光線を世界で初めて観測し、理論的に予測される強い原子番号依存性を確認したことも、学術的意義は大きい。

研究成果の概要(英文)：We have observed a number of extreme ultraviolet spectra from highly charged ions of a variety of heavy elements, some of which are important in plasma applications, in three different types of plasma light sources: magnetically confined torus plasmas, laser-produced plasmas, and electron beam ion traps. Consequently, the dependences of the spectra on atomic number, electron temperature, and plasma opacity have been systematically compiled and analyzed. Also, comparisons with atomic structure calculations, new line identifications, and comparisons with a collisional-radiative modeling have progressed. As a result, an experimental/theoretical database of extreme ultraviolet spectra for wide ranges of atomic number and electron temperature has been developed.

研究分野：プラズマ理工学

キーワード：多価イオン 極端紫外スペクトル プラズマ・核融合 原子・分子物理 光源技術 UTA

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

周期表の第5周期以降に位置する原子番号(Z)の高い重元素多価イオンを含むプラズマからの極端紫外(EUV)発光スペクトルは、多電子相関などの効果が現れやすく、しばしば、多数のスペクトル線が重なり合ったUTA(Unresolved Transition Array)と呼ばれる複雑なバンド状の構造をとることから、原子物理学的に興味深い。それだけでなく、近年では短波長光源への産業応用の可能性や、核融合プラズマ中の不純物挙動の解明に関連して、重元素多価イオンのEUVスペクトルに関する実験や理論の分光データベース整備の要請が高まっている。産業応用面では、波長13.5 nmの次世代半導体EUVリソグラフィー用光源材料であるズズ(Z=50)や、より短波長のリソグラフィー用光源材料候補であるZ=64-65付近のランタノイド系元素、さらに、高コントラスト生体顕微鏡用短波長光源材料候補であるビスマス(Z=83)やジルコニウム(Z=40)といった元素が注目されている。また、国際熱核融合実験炉ITERの構造材としてタングステン(Z=74)が採用され、その発光スペクトルの詳細な解析が求められている。しかし、これらの重元素に関する分光データの蓄積とモデルの構築は未だ十分とはいえない。

磁場閉じ込めトラスプラズマは、光源としてはユニークな特徴を持つだけでなく、各種先進計測器も充実しているため、上記のような重元素多価イオンからのEUVスペクトル実験データの生成に適しており、実際に一部の元素についてはそのような試みが過去にも行われてきた。一方、UTAなどの複雑なスペクトルの物理的理解と、分光モデルの高精度化をさらに進展させるためには、多くの重元素を網羅した分光データを系統的に蓄積し、Z依存性に関するデータベースを構築することが求められる。さらに、光学的厚さなどの物理特性の異なる他の光源で得られた実験データを総合し、装置間比較および分光モデルとの比較を通じて、モデルの高精度化を進めることが特に重要と考えられる。

### 2. 研究の目的

上述の背景をふまえて本研究では、いまだ未解明の部分が多い、プラズマ中の重元素多価イオンから放射されるEUVスペクトルについて、短波長光源への応用の可能性がある元素を中心に、Zの範囲を広げて系統的に観測し、分光モデルの検証に必要な実験データを蓄積・拡充する。このため、物理的特性が大きく異なる、磁場閉じ込めトラスプラズマ、レーザー生成プラズマ、電子ビームイオントラップ(EBIT)の3種類の光源を用いて、並行して観測を行う。さらに、分光モデルの構築と検証に必要な指針を得るために、これらの実験や理論に携わる研究者との密接な連携により、実験データの装置間比較を行う。スペクトル線の波長と遷移確率の理論計算、および衝突・輻射モデルに基づいた分光モデルを構築し、観測されたスペクトルについて、モデルとの比較・検討を行う。実験結果と分光モデルの相互フィードバックを通じて、モデルの予測精度を高めるとともに適用範囲を広げ、プラズマ中の重元素多価イオンからのEUVスペクトルとそのZ依存性に関する、基礎研究や産業応用に有用な精度の高い分光データベースを構築することを目的とする。

### 3. 研究の方法

プラズマ実験・原子構造理論に携わる複数の研究者による研究体制を構築し、緊密な連携を取り合いながら研究を推進する。実験研究では、磁場閉じ込めプラズマとして核融合科学研究所の大型ヘリカル装置(LHD)、レーザー生成プラズマとして宇都宮大の装置、EBITとして核融合科学研究所のコンパクトEBIT(CoBIT)装置を用いる。これらの3種類の光源において、応用上の重要性も考慮して選定した重元素について、研究動向をふまえて対象とする元素を追加しながら、各担当者がパラメータ範囲を広げて順次実験を行い、実験データを生産・蓄積する。LHD実験では、粉末状の重元素をトレーサーとして内蔵したペレットを作成し、既存の入射装置を用いて高温水素プラズマ中に入射する。CoBIT装置では、クヌーセンセルを用いて塊や粉末状の重元素を蒸気化し、真空容器のトラップ領域内に導入する。レーザー生成プラズマでは、真空容器内に設置された板状の重元素ターゲットに、Nd:YAGレーザーやCO<sub>2</sub>レーザーを集光照射し、アブレーションプラズマを生成する。いずれの装置においても、既存の斜入射型分光器を用いてEUVスペクトルの観測を行うが、CoBIT装置については、より高分解能の回折格子と検出器を用いた高精度分光系を新たに整備する。

理論研究では、得手・不得手が異なる複数のコードによる計算結果を比較・検討し、モデルの改良に役立てる。原子構造計算コードとして、Cowanコード(擬似相対論的ハートリー・フォック法)、Graspコード(多配置ディラック・フォック法)、Hullacコード(パラメトリックポテンシャル法)を用い、遷移波長と振動子強度分布を求める。衝突・輻射モデルの構築では、主にHullacコードで求めた速度係数を使用する。実験データの装置間比較や、実験とモデルの相互比較・検討を全員で行い、実験データとモデルの相互フィードバックを通じて、研究目的の達成を目指す。

### 4. 研究成果

上述の3種類の光源において、タングステン、ビスマス、ランタノイド系元素を中心とした多くの元素についてEUVスペクトルの観測が行われ、パラメータが大きく異なる、LHDプラズマおよびレーザー生成プラズマで得られたスペクトルの原子番号依存性についても系統的な整理が進んだ。いくつかの重要な元素については、衝突・輻射モデルとの比較・検討も進展した。

LHD 装置においては、各年の実験期間ごとに周期表を埋めるように新たな元素を対象に加え、EUV スペクトルの Z 依存性の観測と解析を行った。原子番号 36 から 83 までの元素のうち、過去の実験データがほぼ皆無な元素も含め、これまでに 20 種以上の元素を LHD プラズマに入射し、実験データが拡充された。一連の実験を通じて、ペレットのトレーサー量とプラズマ加熱パワーの適切な設定により、中心部で温度がゼロとなるような中空型の電子温度分布を意図的に形成することができるようになった。これにより、様々な電子温度のプラズマからのスペクトルを効率的に得られるようになり、広範囲の Z と電子温度を網羅する実験データベースが系統的に整備された。

一例として、ランタノイド系元素の一つであるテルビウム ( $Z=65$ ) について、ピーク電子温度を 1.5 keV から 0.4 keV まで変化させた時のスペクトルの変化を図 1 に示す。高温の場合の離散的なスペクトルから、低温の場合の UTA スペクトルへと様相が劇的に変化する様子が観測された。これらの発光はいずれも最外殻電子の主量子数が 4 のイオン (N 殻イオン) によるものであるが、高温の場合は支配的な多価イオンの最外殻が 4s, 4p 副殻であるのに対し、低温の場合は 4d, 4f 副殻である。前者の 4s, 4p 副殻イオンではエネルギー準位の数比較的少ないのに対し、後者の 4d, 4f 副殻イオンでは桁違いに多くなることで、このようなスペクトルの変化が生じると考えられる。実際、図 1 の矢印に示すように、高温の場合は銅様イオンである 36 価のスペクトル線が、低温の場合は銀様イオンである 18 価のスペクトル線が同定されている。他のランタノイド系元素についても同様の温度依存性が観測されているが、Z が大きくなるにつれてスペクトルの構造が短波長側に移動していく様子が明瞭に観測された (図 2 参照)。この一連の実験により、テルビウム、ホルミウム、ツリウムについて、過去に実験的に観測されたことのない新たなスペクトル線が同定された。本研究の基礎物理学的に有意義な成果として特筆すべきものである。スペクトル線の波長について理論計算との比較を行ったところ、理論値と実験値がよく一致する遷移と、系統的に若干ずれている遷移があることがわかった。この波長のずれは、内側の副殻電子励起による電子配置を含む遷移の場合に見られ、原子構造計算の実験的検証に有用なデータといえる。

CoBIT 装置においては、新しい軟エックス線 CCD カメラシステムと高分解能回折格子を組み合わせた高精度分光光学系を構築し、分解能が従来の光学系に比べておよそ 10 倍向上した。その結果、多価イオンの未同定スペクトル線の同定が可能となった。この新たな光学系も活用し、タングステン、ピスマス、ガドリニウム、テルビウム等の元素について、電子ビームエネルギーを変化させて価数分離された EUV スペクトルデータの取得を進めた。一連の過程で特筆すべき成果としては、タングステンおよびレニウムの電気八重極子遷移の発光線を世界で初めて観測し、理論的に予測される強い Z 依存性を確認されたことがあげられる。

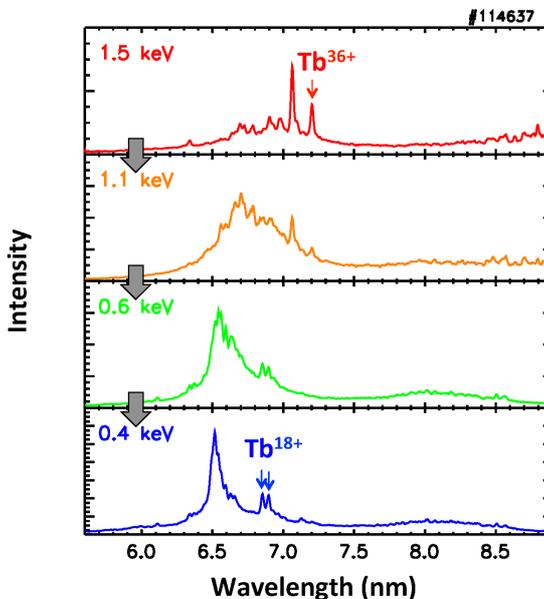


図 1 LHD で観測されたテルビウムイオンからのスペクトルの電子温度依存性

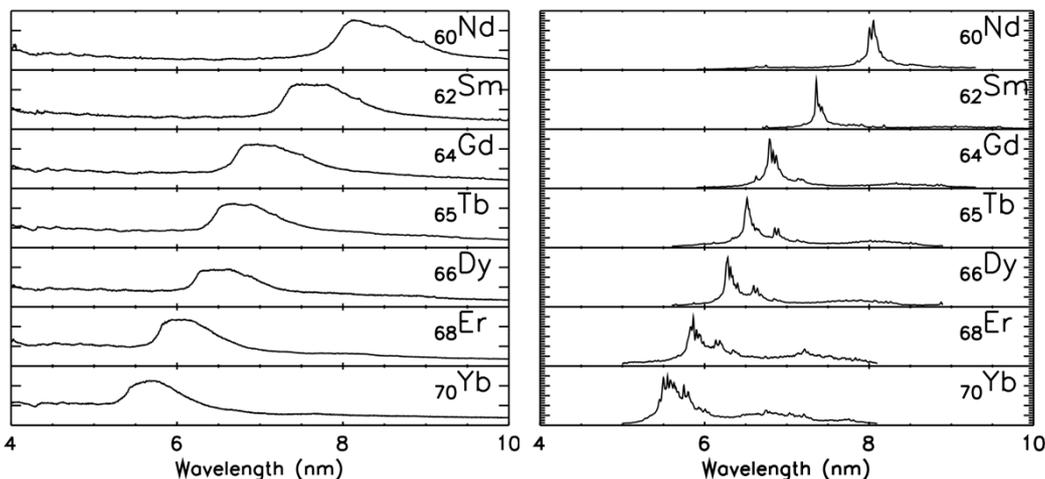


図 2 Nd:YAG レーザー生成プラズマ (左図) と LHD プラズマ (右図) で観測されたランタノイド系元素からの EUV スペクトルの比較

宇都宮大のレーザー生成プラズマ装置では、ビスマスやランタノイド系元素を中心としたスペクトルの観測や理論計算との比較によるデータ解析を進め、レーザー波長依存性、視野角依存性、二重パルス照射による遅延時間依存性などを明らかにした。Nd:YAG レーザー（波長 1064 nm）と CO<sub>2</sub> レーザー（波長 10.6 μm）によって生成されるプラズマでは、レーザー光のカットオフ密度の違いにより、プラズマ密度が大きく異なるため、前者では光学的に厚いプラズマが、後者では光学的に薄いプラズマが生成される。特にランタノイド系元素について、両者による EUV スペクトルの系統的な比較を行った。その結果、前者では非常に広帯域に広がった滑らかな UTA スペクトルが観測されるのに対し、後者では比較的帯域の狭い UTA スペクトルが観測された。

装置間比較の一例として、原子番号 60-70 のランタノイド系元素について、プラズマ密度が 10<sup>26</sup> m<sup>-3</sup> 程度と高く光学的に厚い Nd:YAG レーザー生成プラズマと、10<sup>19</sup> m<sup>-3</sup> 程度の低密度で光学的に薄い LHD プラズマ（低温の場合）で観測されたスペクトルの比較を図 2 に示す。いずれの場合も原子番号の増加とともに短波長側に移動する UTA 構造が観測されているが、両者の光学的厚さの違いを反映して、UTA の広がりが大きく異なっていることがわかる。また、LHD プラズマに比べて、Nd:YAG レーザー生成プラズマでは UTA 内部のスペクトル線の微細構造が不明瞭で滑らかなスペクトルとなっていることがわかる。各発光線が、光学的に厚いプラズマ中で自己吸収を受けることによる影響であると考えられる。

上記を含む多くの成果は、多価イオン物理国際会議、欧州物理学会プラズマ物理学会議、原子分子データとその応用に関する国際会議など多数の国際会議や国内学会において発表された（招待講演数件を含む）。また、プラズマ物理や原子物理分野で権威のある学術誌にて多くの査読付き論文として発表した。

## 5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 3 3 件)

C. Suzuki, I. Murakami, F. Koike, T. Higashiguchi, H. A. Sakaue, N. Tamura, S. Sudo, G. O'Sullivan: "Development of an experimental database of EUV spectra from highly charged ions of medium to high Z elements in the Large Helical Device plasmas", X-Ray Spectrometry, Vol.48 (2019) 印刷中 (査読有)

C. Suzuki, F. Koike, I. Murakami, N. Tamura, S. Sudo: "Systematic Observation of EUV Spectra from Highly Charged Lanthanide Ions in the Large Helical Device", Atoms, Vol.6 (2018) 24 (査読有)

DOI: 10.3390/atoms6020024

C. Suzuki, T. Higashiguchi, A. Sasanuma, G. Arai, Y. Fujii, Y. Kondo, T.-H. Dinh, F. Koike, I. Murakami, G. O'Sullivan: "Opacity effects on soft X-ray spectra from highly charged lanthanide ions in laser-produced plasmas", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B, Vol.408 (2017) 253-256 (査読有)

DOI: 10.1016/j.nimb.2017.03.094

C. Suzuki, I. Murakami, F. Koike, N. Tamura, H. A. Sakaue, S. Morita, M. Goto, D. Kato, H. Ohashi, T. Higashiguchi, S. Sudo, G. O'Sullivan: "Extreme ultraviolet spectroscopy and atomic models of highly charged heavy ions in the Large Helical Device", Plasma Physics and Controlled Fusion, Vol.59 (2017) 014009 (査読有)

DOI: 10.1088/0741-3335/59/1/014009

C. Suzuki, F. Koike, I. Murakami, N. Tamura, S. Sudo: "Temperature dependent EUV spectra of Gd, Tb and Dy ions observed in the Large Helical Device", Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics, Vol.48 (2015) 144012 (査読有)

DOI: 10.1088/0953-4075/48/14/144012

〔学会発表〕(計 6 0 件)

C. Suzuki, F. Koike, I. Murakami, N. Tamura, S. Sudo, G. O'Sullivan: "Soft X-ray Spectroscopy of Rare-Earth Elements in LHD Plasmas", 20th International Conference on Atomic Processes in Plasmas (2019) (招待講演)

C. Suzuki, I. Murakami, F. Koike, H. A. Sakaue, N. Tamura, H. Ohashi, T. Higashiguchi, S. Sudo, G. O'Sullivan: "Systematic studies on Z dependence of extreme ultraviolet and soft X-ray spectra using high-temperature fusion plasmas", 23rd Australian Institute of Physics Congress (2018) (招待講演)

H. A. Sakaue, D. Kato, I. Murakami, H. Ohashi, N. Nakamura: "Observation of electric octupole (E3) transitions in the EUV spectra of tungsten ions", 19th International Conference on the Physics of Highly Charged Ions (2018) (招待講演)

C. Suzuki, I. Murakami, F. Koike, N. Tamura, H. A. Sakaue, S. Morita, M. Goto, D. Kato, H. Ohashi, T. Higashiguchi, S. Sudo, G. O'Sullivan: "Extreme ultraviolet spectroscopy and atomic models of highly charged heavy ions in the Large Helical Device", 43rd European Physical Society Conference on Plasma Physics (2016) (招待講演)

T. Higashiguchi: "Efficient EUV and soft x-ray sources with unresolved transition

array from highly charged ions in high-Z plasmas", 23rd International Conference on Spectral Line Shapes (2016) (招待講演)

〔その他〕

報道発表「重い元素の多価イオンが発する新しい波長の光の発見」(平成28年7月)

## 6. 研究組織

### (1) 研究分担者

研究分担者氏名：村上 泉

ローマ字氏名：(MURAKAMI, izumi)

所属研究機関名：核融合科学研究所

部局名：ヘリカル研究部

職名：教授

研究者番号(8桁)：30290919

研究分担者氏名：坂上 裕之

ローマ字氏名：(SAKAUE, hiroyuki)

所属研究機関名：核融合科学研究所

部局名：ヘリカル研究部

職名：助教

研究者番号(8桁)：40250112

研究分担者氏名：東口 武史

ローマ字氏名：(HIGASHIGUCHI, takeshi)

所属研究機関名：宇都宮大学

部局名：工学部

職名：教授

研究者番号(8桁)：80336289

研究分担者氏名：田村 直樹

ローマ字氏名：(TAMURA, naoki)

所属研究機関名：核融合科学研究所

部局名：ヘリカル研究部

職名：准教授

研究者番号(8桁)：80390631

### (2) 研究協力者

研究協力者氏名：小池 文博

ローマ字氏名：(KOIKE, fumihiro)

研究協力者氏名：オサリバン ジェラルド

ローマ字氏名：(O'SULLIVAN, gerard)

研究協力者氏名：ラルチェンコ ユーリ

ローマ字氏名：(RALCHENKO, yuri)

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。