

# 発光分光による熱陰極グロー放電プラズマ中水素分子基底準位の振動・回転状態占有率分布計測

新濱敦史

2021/1

## 概要

タングステンのフィラメントを熱陰極とする，グロー放電プラズマの水素分子発光スペクトルを，ツェルニ・ターナー型分光器と CCD カメラを用いて計測した．得られたスペクトルから，Fulcher- $\alpha$  帯 Q 枝の発光線を特定し，発光強度を計算した．発光上準位及び基底準位にボルツマン分布を仮定し，振動・回転温度を導入した．上準位のボルツマンプロットを作成して回転温度を求め，またコロナモデルを適用することで振動温度を求めることにより，基底準位の振動・回転状態占有率分布を求めた．

# 目次

第 1 章	緒言	3
第 2 章	原理	4
2.1	水素分子 . . . . .	4
2.1.1	分子の状態 . . . . .	4
2.1.2	選択則 . . . . .	4
2.1.3	分子のエネルギー . . . . .	4
2.2	基底準位の振動・回転占有数 . . . . .	5
2.2.1	発光強度と発光上準位占有数 . . . . .	5
2.2.2	上準位のボルツマンプロットおよび回転温度 . . . . .	5
2.2.3	コロナモデル . . . . .	6
2.2.4	基底準位占有数 . . . . .	7
第 3 章	実験装置	8
3.1	プラズマチャンバ . . . . .	8
3.2	分光器 . . . . .	8
第 4 章	実験データ	9
4.1	実験データ . . . . .	9
4.2	波長校正 . . . . .	9
第 5 章	解析結果	10
5.1	発光強度 . . . . .	10
5.2	上準位ボルツマンプロットおよび回転温度 . . . . .	10
5.3	基底準位占有数 . . . . .	10
第 6 章	考察	11
6.1	発光強度の誤差 . . . . .	11
6.2	モデル化の妥当性 . . . . .	11
第 7 章	結言	12
	謝辞	13

参考文献	14
图目次	15
表目次	27

# 第 1 章

## 緒言

新エネルギーとして核融合発電が注目されている背景から，水素や重水素のプラズマ中の状態や，プラズマと炉壁との関係を調べる研究が，数多く行われている．そのうちの一つに，透過プローブを用いて水素原子の入射流束を測定する研究がある [1]．これは，プラズマから飛来する粒子のうち水素原子のみが PdCu 膜を容易に透過できることを利用し，プラズマ中の水素原子密度を求めるものである．しかし，透過プローブの性能は PdCu 膜表面の状態に影響されることがわかっており，またプラズマ中水素分子の振動・回転状態によっても変化する可能性がある．また別の研究では，プラズマ中に置いた炭素やタングステン等の資料に重水素がどれほど吸収されるかを調べている [2]．この研究においても，水素分子の振動・回転状態が吸収に影響を与える可能性がある．以上 2 つの研究のように，水素分子の振動・回転状態はプラズマ中及びプラズマ周辺における反応についての大きな要素になり得る．

そこで本研究では，タングステンの熱陰極を用いた水素プラズマにおける Fulcher- $\alpha$  帯の発光スペクトルを計測した．またそのスペクトルを解析することで，水素分子基底準位の振動・回転状態占有率分布を求めた．

## 第 2 章

# 原理

### 2.1 水素分子

水素分子の発光分光計測に必要な基本事項を説明する。

#### 2.1.1 分子の状態

Fulcher- $\alpha$  遷移の原理について説明する。まず、基底準位  $X^1\Sigma_g^+$  にある水素分子がプラズマ中の電子が非弾性衝突することで発光上準位  $d^3\Pi_u^-$  へ励起される。その励起された分子が発光下準位  $a^3\Sigma_g^+$  へ自然放出する際に発光するスペクトル帯を Fulcher- $\alpha$  帯と呼ぶ。ここで、記号 X, d, a は分子中の電子のエネルギー準位に対応し、基底状態を X と表し、基底状態と同じスピン多重度を持つ励起状態はエネルギーの低い順に A, B, C, ..., 異なるスピン多重度を持つ励起状態は a, b, c, ... と表す。また  $\Sigma$  や  $\Pi$  といった記号は、軌道角運動量  $L$  の軸方向への射影成分  $M_L$  の大きさ  $\Lambda = |M_L| = 0, 1, 2, \dots$  に対応しており、順に  $\Sigma, \Pi, \Delta, \Phi$  を用いる [3]。その左上の数字はスピン多重度  $2S + 1$  である [3]。分子軸を含む平面についての鏡面反転操作による電子波動関数の符号変化の有無に応じて上付き添え字 + または - を付けており、分子中心についての反転操作による符号変化の有無に応じて下付き添え字 u または g を付けている [3]。

#### 2.1.2 選択則

分子の電子状態間の遷移 ( $n \rightarrow n' \rightarrow n''$ ) には一般的に振動回転状態の遷移 ( $v, N \rightarrow v', N' \rightarrow v'', N''$ ) が伴うが、そこには選択則が存在し、遷移モーメントが零ではない条件から導くことができる [3]。まず、振動量子数は  $\Delta v = v' - v'' = 0$  を満たす。また、回転量子数は  $\Delta N = N' - N'' = -1, 0, 1$  を満たすが、 $N' = N'' = 0$  は禁制遷移である。 $\Delta N$  に対応するスペクトル枝をそれぞれ P 枝, Q 枝, R 枝と呼ぶが、本研究では Q 枝について分析を行うので、 $\Delta N = 0$  である。

#### 2.1.3 分子のエネルギー

原子核は電子に比べて数千倍重いために分子の振動・回転は電子の運動に比べて十分遅くなり、電子は原子核の位置変化に対して瞬時に追従できるとする近似を Born-Oppenheimer 近似という [3]。この近似を用いると、水素分子を構成する全ての粒子に対してシュレディンガー方程式を解くのではなく、分子の電子波動関数と振動・回転の波動関数を分離することで、振動・回転準位エネルギーを求めることが可能になる。回転によ

る遠心力ひずみを考慮した回転準位エネルギーは以下のように近似的に表すことができる。

$$E_{\text{rot}}^v \cong B^v N(N+1) - D_e [N(N+1)]^2 \quad (2.1)$$

ここで  $B^v (= B_e - \alpha_e(v + 1/2))$  は回転定数、 $D_e$  は遠心力ひずみ定数である。また、振動準位エネルギーは以下の近似式で表すことができる。

$$E_{\text{vib}} \cong \bar{\omega}_e \left( v + \frac{1}{2} \right) - \bar{\omega}_e \chi_e \left( v + \frac{1}{2} \right)^2 \quad (2.2)$$

ここで  $\bar{\omega}_e$  は振動定数、 $\chi_e$  は2次の補正項である。表1にまとめたこれらの分子定数はデータベースから得られる [4]。

## 2.2 基底準位の振動・回転占有数

### 2.2.1 発光強度と発光上準位占有数

発光上準位の占有密度  $n_{dv'N'}$  は発光強度  $I_{av''N''}^{dv'N'}$  を用いて下式で表すことができる

$$n_{dv'N'} = \frac{I_{av''N''}^{dv'N'} \lambda_{av''N''}^{dv'N'}}{hc} \frac{1}{A_{av''N''}^{dv'N'}} \quad (2.3)$$

ここで  $\lambda_{av''N''}^{dv'N'}$  は発光線の波長、 $h$  はプランク定数、 $c$  は光速である。 $A_{av''N''}^{dv'N'}$  は自然発光係数であり、Born-Oppenheimer 近似に加えて Franck-Condon 原理 (振動の対角遷移についての誤差は小さい) を仮定すると

$$A_{av''N''}^{dv'N'} = \frac{16\pi^3}{3h\epsilon_0 \lambda_{av''N''}^{dv'N'}} \bar{R}_e^2 q_{av''}^{dv'} S_{aN''}^{dN'} \frac{1}{2N' + 1} \quad (2.4)$$

と表せる [5]。  $\bar{R}_e$  は電気双極子モーメント、 $q_{av''}^{dv'}$  は Franck-Condon 因子、 $2N' + 1$  は上準位の回転量子数の統計重率である。 $S_{aN''}^{dN'}$  は Hönl-London 因子といい、回転構造の相対強度を表す値である。Fulcher- $\alpha$  帯では Hönl-London 因子は

$$S_{N''}^{N'} = \begin{cases} \frac{N'}{2} & (P \text{ 枝}) \\ \frac{2N'+1}{2} & (Q \text{ 枝}) \\ \frac{N'+1}{2} & (R \text{ 枝}) \end{cases} \quad (2.5)$$

である [5]。

### 2.2.2 上準位のボルツマンプロットおよび回転温度

上準位の占有数がボルツマン分布に従うと仮定すると、上準位の占有数  $n_{dv'N'}$  は

$$\begin{aligned} n_{dv'N'} &= C_{dv'} (2N' + 1) g_{\text{as}}^{N'} \exp \left( -\frac{E_{\text{rot}}^{dv'}(N')}{k_B T_{\text{rot}}^{dv'}} \right) \\ &= \frac{n_{dv'} (2N' + 1) g_{\text{as}}^{N'} \exp \left( -\frac{E_{\text{rot}}^{dv'}(N')}{k_B T_{\text{rot}}^{dv'}} \right)}{\sum_{N'} (2N' + 1) g_{\text{as}}^{N'} \exp \left( -\frac{E_{\text{rot}}^{dv'}(N')}{k_B T_{\text{rot}}^{dv'}} \right)} \end{aligned} \quad (2.6)$$

と表せる．ここで  $C_{dv'}$  は規格化定数であり， $n_{dv'}$  は振動量子数が  $v'$  である発光上準位の密度である． $(2N' + 1), g_{\text{as}}^{N'}, E_{\text{rot}}^{dv'}, T_{\text{rot}}^{dv'}$  は，それぞれ発光上準位の回転の縮退度，核スピンの縮退度，回転エネルギー，回転温度である．この式と式 2.3 より，発光強度  $I_{av''N''}^{dv'N'}$  と上準位の回転温度  $T_{\text{rot}}^{dv'N'}$  の関係は

$$\frac{I_{av''N''}^{dv'N'} \lambda_{av''N''}^{dv'N'}}{hc} \frac{1}{A_{av''N''}^{dv'N'}} = C_{dv'} (2N' + 1) g_{\text{as}}^{N'} \exp \left( -\frac{E_{\text{rot}}^{dv'}(N')}{k_B T_{\text{rot}}^{dv'}} \right) \quad (2.7)$$

となる．この式を整理して両辺対数をとると，

$$\ln \left[ \frac{I_{av''N''}^{dv'N'} \left( \lambda_{av''N''}^{dv'N'} \right)^4}{(2N' + 1) g_{\text{as}}^{N'}} \right] = \text{const} + \ln \left[ \frac{n_{dv'N'}}{(2N' + 1) g_{\text{as}}^{N'}} \right] = \text{const} - \frac{E_{\text{rot}}^{dv'}(N')}{k_B T_{\text{rot}}^{dv'}} \quad (2.8)$$

となる．ただし， $A_{av''N''}^{dv'N'}$  は式 2.4, 式 2.5 を用いて計算している．この式に発光強度  $I_{av''N''}^{dv'N'}$  を入れてフィッティングすることで，発光上準位の回転温度  $T_{\text{rot}}^{dv'}$  を求めることができる．

### 2.2.3 コロナモデル

電子密度が十分に小さい領域では，発光上準位の占有密度変化を，電子衝突励起による基底準位からの流入量と自然放出脱励起による発光下準位への流出量で表すことができる．これをコロナ平衡といい，以下の式で表される [5]．

$$\frac{\partial n_{dv'N'}}{\partial t} = n_e \sum_{v,N} \left[ n_{XvN} R_{XvN}^{dv'N'} \right] - n_{dv'N'} \sum_{v''N''} A_{av''N''}^{dv'N'} \quad (2.9)$$

ここで  $n_{XvN}$  は基底準位の占有密度である．右辺第 2 項の総和記号は選択則 ( $v' - v'' = 0$  かつ  $N' - N'' = -1, 0, 1$ ) を満たす  $v'', N''$  についての和であることに注意する．左辺を 0 とした定常解から，コロナモデルを得られる．

$$n_e \sum_{v,N} \left[ n_{XvN} R_{XvN}^{dv'N'} \right] = n_{dv'N'} \sum_{v''N''} A_{av''N''}^{dv'N'} \quad (2.10)$$

$n_e$  は電子密度であり，ラングミュアプローブを用いた実験で得た値を用いた [1]． $R_{XvN}^{dv'N'}$  は電子衝突励起係数であり，Born-Oppenheimer 近似を仮定すると

$$R_{XvN}^{dv'N'} = q_{Xv}^{dv'} \langle \sigma_{v' \leftarrow v}^{FC} v_e \rangle a_{0N}^{1N'} \delta_{g_{\text{as}}^{N'}}^{g_{\text{as}}^{N'}} \quad (2.11)$$

と書ける [5]． $q_{Xv}^{dv'}$  は Franck-Condon 因子である． $\sigma_{v' \leftarrow v}^{FC}$  は電子衝突励起断面積であり， $v_e$  はマクスウェル分布を仮定した電子の速度分布である． $a_{0N}^{1N'}$  は回転構造の分岐比， $\delta_{g_{\text{as}}^{N'}}^{g_{\text{as}}^{N'}}$  はクロネッカーのデルタである．電子衝突断面積について，本研究では次式のように Franch-Condon 原理と電子衝突励起確率のボルツマン則 (エネルギー差が小さいほど励起確率が高い) を仮定したスケーリングを用いた [6]．

$$\langle \sigma_{v' \leftarrow v}^{FC} v_e \rangle \propto \langle \sigma_{0 \leftarrow 0}^{FC} v_e \rangle \times \exp \left( -\frac{(E_{\text{vib}}^d(v') - E_{\text{vib}}^d(0)) - (E_{\text{vib}}^X(v) - E_{\text{vib}}^X(0))}{k_B T_e} \right) \quad (2.12)$$

$k_B$  はボルツマン定数である． $E_{\text{vib}}^d(v'), E_{\text{vib}}^X(v)$  はそれぞれ発光上準位と基底準位の振動エネルギーで，式 2.2 を用いて算出した． $T_e$  は電子温度であり，ラングミュアプローブを用いた実験の値 [1] を用いた．回転構造の分岐比は

$$a_{0N}^{1N'} = \sum_r \overline{Q}_r (2N' + 1) \begin{pmatrix} N' & r & N \\ 1 & -1 & 0 \end{pmatrix}^2 \quad (2.13)$$



と表せる [6] が、ここで  $\overline{Q_r'}$  は電子速度で平均化した部分断面積で、実験的に求められた値 [7] を使用した。なお、右辺の行列は Wigner の 3j 記号である。クロネッカーのデルタ  $\delta_{g_{as}^{N'}}^{g_{as}^N}$  は、核スピンの対称性が基底準位と発光上準位で同じなら 1、異なれば 0 となる。

## 2.2.4 基底準位占有数

発光上準位と同様に、基底準位の振動・回転励起分布にもボルツマン分布を仮定する。振動温度を  $T_{\text{vib}}^X$ 、回転温度を  $T_{\text{rot}}^X$  として、 $n_{XvN}$  を

$$\begin{aligned} n_{XvN} &= C_X (2N+1) g_{\text{as}}^N \exp\left(-\frac{E_{\text{rot}}^{Xv}(N)}{k_B T_{\text{rot}}^X}\right) \exp\left(-\frac{E_{\text{vib}}^X(v)}{k_B T_{\text{vib}}^X}\right) \\ &= \frac{n_X (2N+1) g_{\text{as}}^N \exp\left(-\frac{E_{\text{rot}}^{Xv}(N)}{k_B T_{\text{rot}}^X}\right) \exp\left(-\frac{E_{\text{vib}}^X(v)}{k_B T_{\text{vib}}^X}\right)}{\sum_{vN} (2N+1) g_{\text{as}}^N \exp\left(-\frac{E_{\text{rot}}^{Xv}(N)}{k_B T_{\text{rot}}^X}\right) \exp\left(-\frac{E_{\text{vib}}^X(v)}{k_B T_{\text{vib}}^X}\right)} \end{aligned} \quad (2.14)$$

と表す。ここで、 $(2N+1)$  は回転の統計重率である。 $g_{\text{as}}^N$  は核スピンの統計重率であり、回転量子数  $N$  が奇数の時 3、偶数の時 1 となる。また、右辺の  $C_X$  は規格化定数であり  $n_X$  は基底準位の密度を表す。式 2.10 のコロナモデルの式に代入すると、発光上準位の占有数は

$$n_{dv'N'} = \frac{n_e \sum_{v,N} \left[ R_{XvN}^{dv'N'} (2N+1) g_{\text{as}}^N n_X \exp\left(-\frac{E_{\text{rot}}^{Xv}(N)}{k_B T_{\text{rot}}^X}\right) \exp\left(-\frac{E_{\text{vib}}^X(v)}{k_B T_{\text{vib}}^X}\right) \right]}{\sum_{v''N''} A_{av''N''}^{dv'N'}} \quad (2.15)$$

と表せる。式 2.3 によって求めた  $n_{dv'N'}$  を代入し、右辺の  $T_{\text{vib}}^X$  をフィッティングによって求めることができる。右辺の  $T_{\text{rot}}^X$  について、回転温度は回転定数に比例するという関係式 [8]

$$T_{\text{rot}}^{Xv} = \frac{B^{Xv}}{B^{dv'}} T_{\text{rot}}^{dv'} \quad (2.16)$$

を用いて、2.2.2 章で求めた発光上準位から計算できる。

以上の手順で求めた振動・回転温度を式 2.14 に代入することにより、基底準位の占有率分布を求めることができる。

## 第 3 章

# 実験装置

### 3.1 プラズマチャンバ

本研究で用いたプラズマチャンバの外観を図 1 に、チャンバの構造を簡単にした図を図 2 に示す。プラズマチャンバは主に ICF-152 規格のスレンレス製六方クロス管が用いられている。(a) 流量調節バルブは水素ポンベに繋がっており、このバルブでチャンバ内の水素の圧力を調節することができる。実験前には、バルブを閉じ切って圧力が  $10^{-6}$  Torr 程度に下がっていることを確認した後、バルブを少しずつ開いて  $10^{-3}$  Torr 程度になるまで水素を注入した。(b) 圧力計 (PFEIFFER VACUUM PKR251) が取り付けられており、チャンバ内の圧力を調べるができる。(c) の排気口はロータリーポンプとターボ分子ポンプに繋がっている。(d) カソードには直径 0.5 mm のタングステンフィラメントを使用し、(e) アノードとして直径 50 mm の平板電極を使用した。カソードの両端は (f) 直流電源 (菊水電子工業, REGULATED DC POWER SUPPLY) に繋ぎ、電流は 20 A 程度になるように調整することで、フィラメントから熱電子を放出させた。アノードとカソードは別の (g) 直流電源 (高砂製作所, GP 0110-3) に繋がれている。アノード、カソード間の電流は 2.5 A 程度になるように調節した。(h) は石英窓であり、ここに (i) コリメータを取り付けた (j) 光ファイバーを繋ぐことで、プラズマの光を光学系へ取り込んでいる。

### 3.2 分光器

分光器の概略図を図 3 に示す。プラズマからの光は、コリメータを用いて集光したものを (j) 光ファイバーでツェルニ・ターナー型分光器へ入射させている。分光器入り口には (k) スリットを設置して、その幅は 50  $\mu\text{m}$  である。スリットを通過した光は (l) コリメートミラーで平行光となり、(m) 回折格子に入射する。この回折格子は有効幅が 10 cm, 刻線数は 2400 本/mm である。回折格子で反射された光は波長ごとに広がり、(n) ミラーで反射した後 (o) CCD カメラで検出される。CCD カメラの仕様 [9] を表 2 に示す。回折格子からの光は CCD カメラで一度に計測できる幅を超えて広がるので、回折格子を (p) ステッピングモーターで回転させることで、広い波長範囲の計測を行えるようになっている。また、ステッピングモーターおよび CCD カメラを (q) Python のプログラムで制御することで、複数の波長範囲に対応する画像を自動的に撮影することができる。

## 第 4 章

# 実験データ

### 4.1 実験データ

図 4 に、CCD カメラで撮影した画像の例を示す。図 5 は画像の各ピクセルの値を縦に合計したものをプロットしたグラフである。また、アノードに電流を流したまま電極間の電流を止めてプラズマを消した状態で同様にデータを取ったものが図 6 である。横方向のピクセルが 1027 のデータが不自然なことが見て分かるが、これは CCD カメラのある一つのピクセルに異常があり、光の大きさに関わらず異常な値を出力していることが原因である。プラズマをつけて得たデータからプラズマを消したバックグラウンドのデータを減算することで、このようなノイズを打ち消すことができる。バックグラウンドのデータを除いたものが図 7 である。以降の解析では、全ての画像に対してこの処理を施したものを使用した。

### 4.2 波長校正

横方向のピクセルを波長に変換するために、波長校正を行った。データベース [10] から Fulcher- $\alpha$  帯発光線の波長を取得した。そのデータを、発光線の中心となるピクセルに対してプロットし、二次関数でフィッティングすることで、ピクセルと波長の対応関係を得た (図 8)。波長校正後のスペクトルを図 9 に示す。なお、 $(N', N'') = (1, 1), (2, 2), \dots$  の発光線を順に Q1, Q2, ... としている。

## 第 5 章

# 解析結果

### 5.1 発光強度

発光強度  $I_{av''N'}^{dv'}$  は、スペクトルの面積を計算して求められる。得られたスペクトルを歪正規分布関数でフィッティングすることで面積を求めた。フィッティングの例を図 10 に示す。図中の網掛け部分の面積を使用した。また、複数の発光線が重なった形をしているものは、歪正規分布関数を足し合わせたものを使いフィッティングすることで分離した。例として、Q7(0-0) のフィッティング結果を図 11 に示す。はっきりと発光線が区別できるものは、 $(v' - v'') = (0 - 0)$  では Q7,  $(v' - v'') = (1 - 1), (2 - 2)$  では Q5 までだったので、それら計 17 本の発光線を解析の対象とした。

### 5.2 上準位ボルツマンプロットおよび回転温度

式 2.8 に従って、発光上準位のボルツマンプロットを作成した。図 12 は、横軸に  $E_{\text{rot}}^{dv'}$ 、縦軸に  $\frac{n_{dv'N'}}{(2N'+1)g_{\text{as}}^{N'}}$  を取ったものである。縦軸は対数にとり、ボルツマンプロットとした。 $v' = 1, 2$  のグラフの形はほぼ直線であり、発光上準位の占有数がボルツマン分布に従うことがわかる。一方、 $v' = 0$  のグラフは回転量子数  $N'$  が大きい部分では形が直線から外れており、ボルツマン分布に従っていないことがわかる。式 2.8 を用いてフィッティングすることによって、回転温度  $T_{\text{rot}}^{dv'}$  を求めた。図 13, 図 14, 図 15 にフィッティング結果、表 3 に得られた回転温度を示す。ただし、 $v' = 0$  のデータのフィッティングには、グラフが直線とみなせる  $N' = 1 \sim 5$  のみを用いた。

### 5.3 基底準位占有数

式 2.11 より電子衝突励起係数  $R_{XvN}^{dv'N'}$  を求めた。さらに、式 2.16 より基底準位の回転温度  $T_{\text{rot}}^{Xv}$  を求めた。そして式 2.15 に従いフィッティングを実行し、基底準位の振動温度  $T_{\text{vib}}^X$  を求めた。フィッティング結果を図 16 に示す。図の横軸は解析に使用したデータの順番を表し、1~17 まで順に  $(v', N') = (0, 1) \sim (0, 7), (1, 1) \sim (1, 5), (2, 1) \sim (2, 5)$  となっている。また、振動温度と回転温度を表 4 に示す。求めた振動温度と回転温度を式 2.14 に代入して、基底準位の占有数分布を求めた。これを図 17 に示す。

## 第 6 章

# 考察

### 6.1 発光強度の誤差

本研究で求めた占有率分布の誤差について、スペクトルから発光強度を出す際に求めた面積の誤差が考えられる。例えば図 10 に示す Q2(0-0) 発光線のように、発光線データは波長に対して左右非対称な形をしていた。この原因を特定し、影響を補正したスペクトルから面積を求めればより正確な発光強度が得られたと思われる。また、発光線の分離ができなかったデータがあることも面積の誤差に含まれる。図 18 は Q3(0-0) の発光線をフィッティングした図だが、発光線の左側に誤差があることが分かる。Q3(0-0) の波長は 603.1909nm であるが、この左側には 5 分の 1 程度の強度を持つ P2(2-2) 発光線が 603.1465nm にあり乗畳している [6]。このような誤差をなくすには、より高い分解能を持つ分光器を用い、発光線を正確に分離することが必要となる。

### 6.2 モデル化の妥当性

図 16 のフィッティングのずれの原因には、発光強度の誤差の他に、発光上準位と基底準位のモデル化にもあると思われる。図 13 に関して、上準位の占有数がボルツマンプロットに従うとするとこのグラフは直線になるはずだが、実際は  $v' = 0$  の  $N' = 6, 7$  の点は大きな値になっている。このグラフを説明する考え方として、発光上準位の占有数は 2 温度のボルツマン分布に従うというものがある。これは、二つの異なる温度のボルツマン分布に従う分子が視線上に存在するということである。図 19 は、岐阜県土岐市の核融合科学研究所にある大型ヘリカル装置 (LHD) でのプラズマにおける、発光上準位のボルツマンプロットである [11]。図中の点線は高低 2 温度のボルツマン分布のフィッティング結果であり、良く近似できていることが分かる。また、発光上準位の占有数分布が 2 温度のボルツマン分布で良く近似できることは、放電の種類に関わらず複数計測されている [11, 12, 13]。本研究の対称としたプラズマでも、より光分解能の分光器を用いて高回転量子数域までデータを取り、2 温度のボルツマン分布を仮定することで、正確な占有数を計算することができると予想できる。

## 第 7 章

### 結言

熱陰極グロー放電プラズマにおいて、分光計測することで水素分子の Fulcher- $\alpha$  帯発光線を計測した。得られたスペクトルのうち、Q 枝発光スペクトルの面積から発光強度を計算した。発光上準位と基底準位の占有数をボルツマン分布に従うと仮定した上で、発光上準位の占有数に関する方程式から導出されるコロナモデルを適用することで、基底準位の振動・回転温度を求め、基底準位の振動・回転状態占有率分布を計算した。

# 謝辞

本論文を作成するにあたり，蓮尾昌裕教授，四竈泰一准教授，ArseniyKuzmin 講師，藤井恵介助教には研究会等で多くのご指導をしていただきました．特に ArseniyKuzmin 講師には研究方針の他，実験装置のセッティングから解析手法についてまで相談に乗ってくださり，的確な指摘をして下さりました．光工学研究室の先輩方にも，多くの助言を頂きお世話になりました．また，同期の皆様と楽しく研究をすることができました．お世話になった全ての方々に，この場をかりて心から感謝いたします．

## 参考文献

- [1] 尹弘樹, 修士論文, 京都大学 (2021).
- [2] L. Begrambekov, A. Ayrapetov, V. Ermakov, A. Kaplevsky, Ya. Sadovsky, and P. Shigin, Nucl. instrum. methods phys. res., B, Beam interact. mater. atoms, **315**, pp.110-116 (2013).
- [3] 菱川明栄, プラズマ・核融合学会誌 **80**, pp.742-748 (2004).
- [4] Nist chemistry webbook (<https://webbook.nist.gov/cgi/cbook.cgi?ID=C1333740&Units=SI&Mask=1000#Diatomic>).
- [5] 門信一郎, 山崎大輔, 飯田洋平, 肖炳甲, プラズマ・核融合学会誌 **80**, pp.783-792 (2004).
- [6] 門信一郎, プラズマ・核融合学会誌 **80**, pp.749-756 (2004).
- [7] D. R. Farley, D. P. Stotler, D. P. Lundberg, and S. A. Cohen, J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf. **112**, pp.800-819 (2011).
- [8] S. A. Astashkevich and B. P. Lavrov, J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf. **56**, pp.725-51 (1996).
- [9] 田中光化学工業株式会社 HP (<http://www.tanaka-opt.co.jp/fli-ml1109.html>).
- [10] H. M. Crosswhite, The hydrogen molecule wavelength tables of Gerhard Heinrich Dieke, (Wiley-Interscience, 1972).
- [11] 石原啓基, 修士論文, 京都大学 (2020).
- [12] S. Briefi, D. Rauner, and U. Fantz, J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf. **187**, pp.135-144 (2017).
- [13] P. Vankan, D. C. Schram, and R. Engeln, Chemical physics letters, **400**, pp.196-200 (2004).



# 図目次

1	プラズマチャンバの外観 . . . . .	16
2	プラズマチャンバの構造の簡略図 . . . . .	17
3	分光器の概略図 . . . . .	18
4	CCD カメラで撮影した画像の例 . . . . .	18
5	画像のピクセル値を縦に合計したグラフの例 . . . . .	19
6	バックグラウンドデータの例 . . . . .	19
7	バックグラウンドを除いたスペクトルの例 . . . . .	20
8	ピクセルと波長の関係の例 . . . . .	20
9	Fulcher- $\alpha$ 帯 Q 枝発光スペクトル . . . . .	21
10	歪正規分布関数によるフィッティングの例 . . . . .	21
11	歪正規分布関数フィッティングによる分離の例 . . . . .	22
12	上準位占有数のボルツマンプロット . . . . .	22
13	発光上準位回転温度のフィッティング ( $v' = 0$ ) . . . . .	23
14	発光上準位回転温度のフィッティング ( $v' = 1$ ) . . . . .	23
15	発光上準位回転温度のフィッティング ( $v' = 2$ ) . . . . .	24
16	基底準位振動温度のフィッティング結果 . . . . .	24
17	基底準位の占有数分布 . . . . .	25
18	Q3(0-0) スペクトル . . . . .	25
19	LHD での上準位占有数のボルツマンプロット . . . . .	26

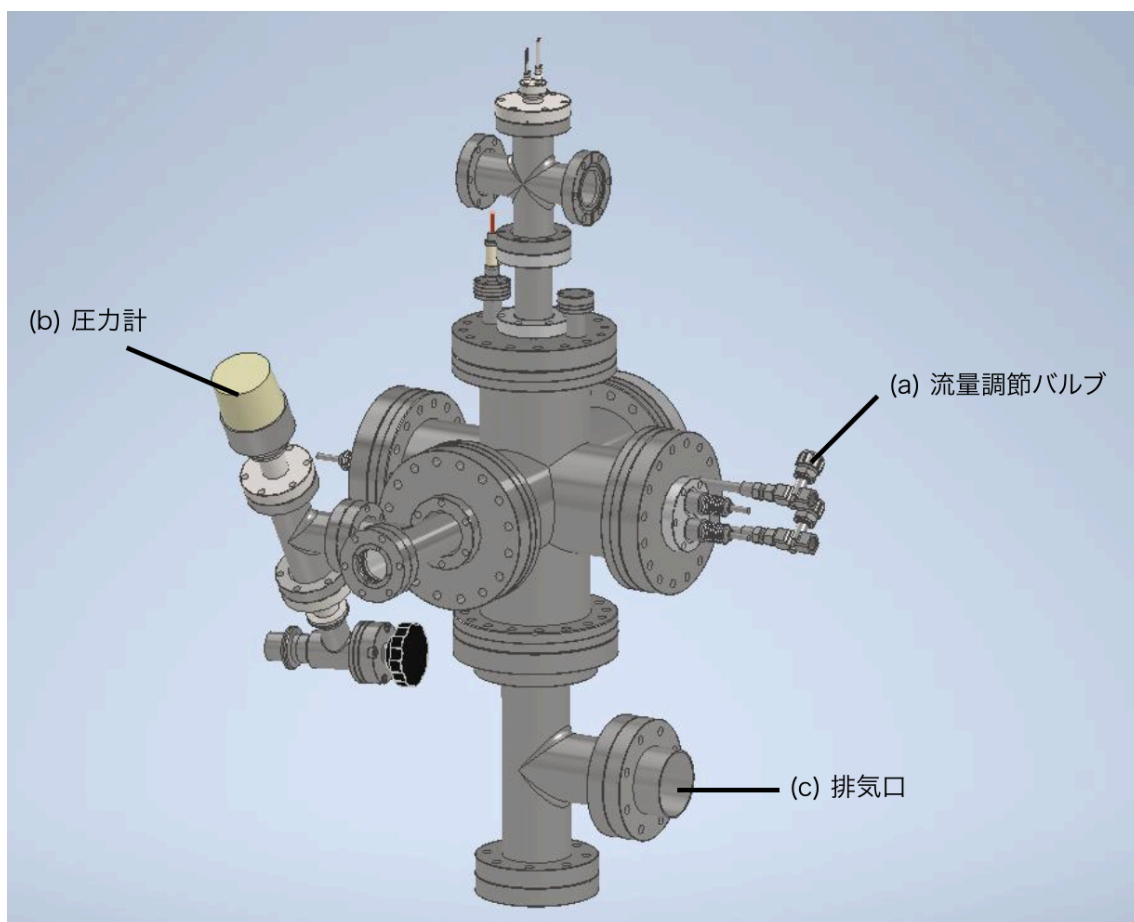


図1 プラズマチャンバの外観

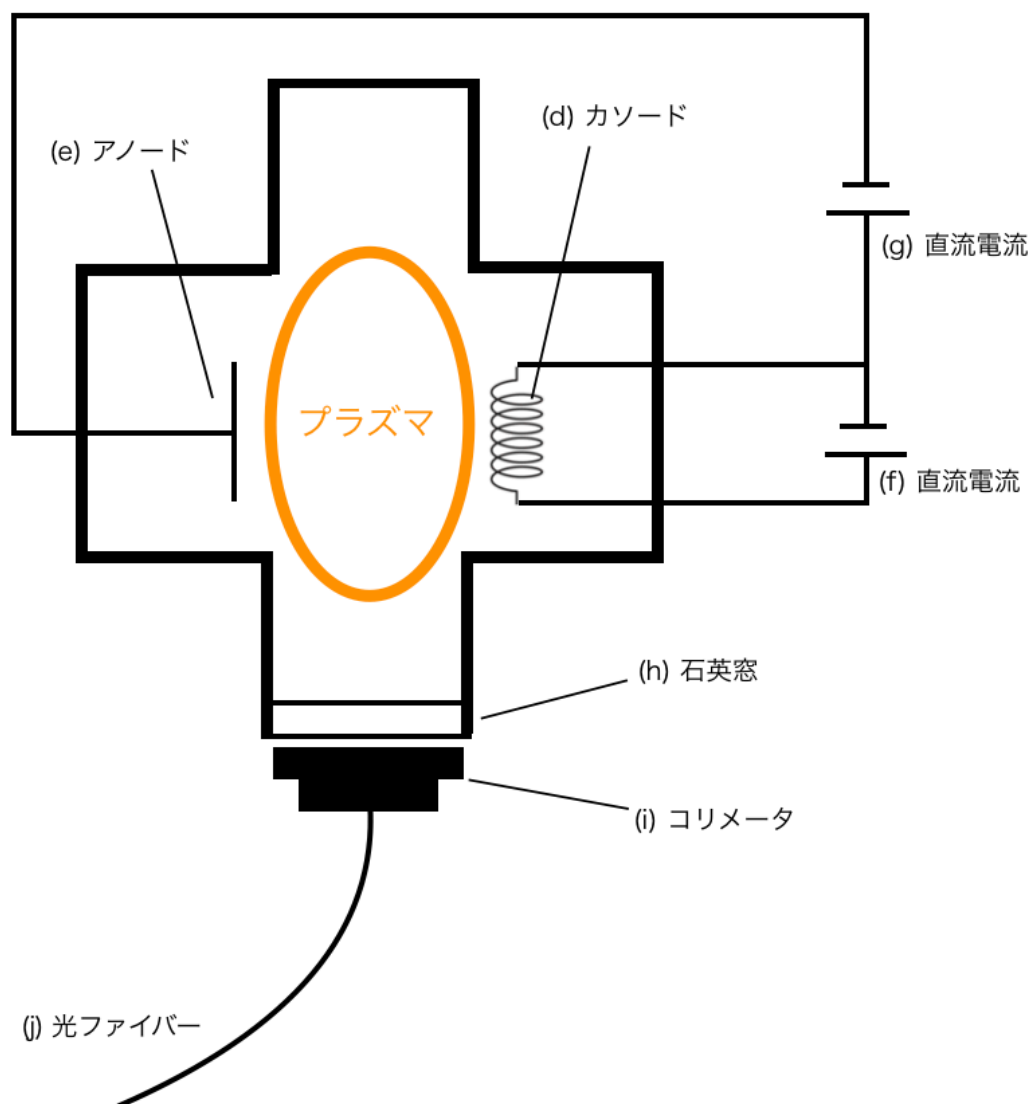


図 2 プラズマチャンバの構造の簡略図

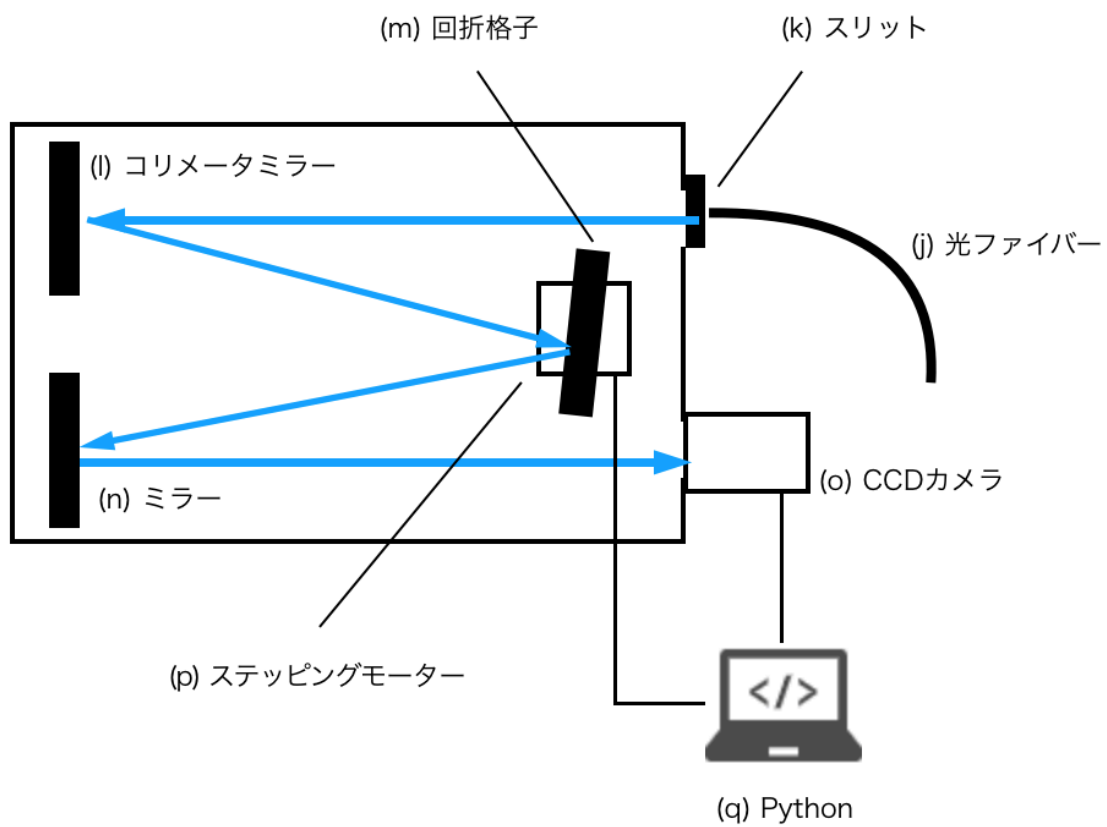


図 3 分光器の概略図

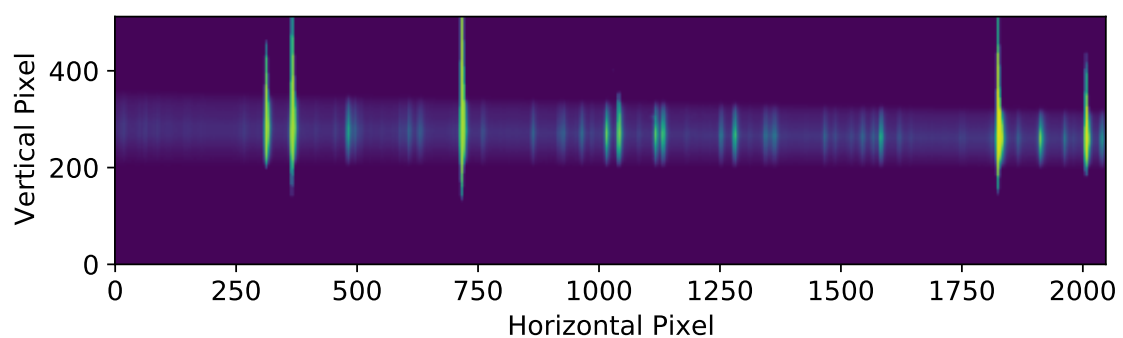


図 4 CCD カメラで撮影した画像の例

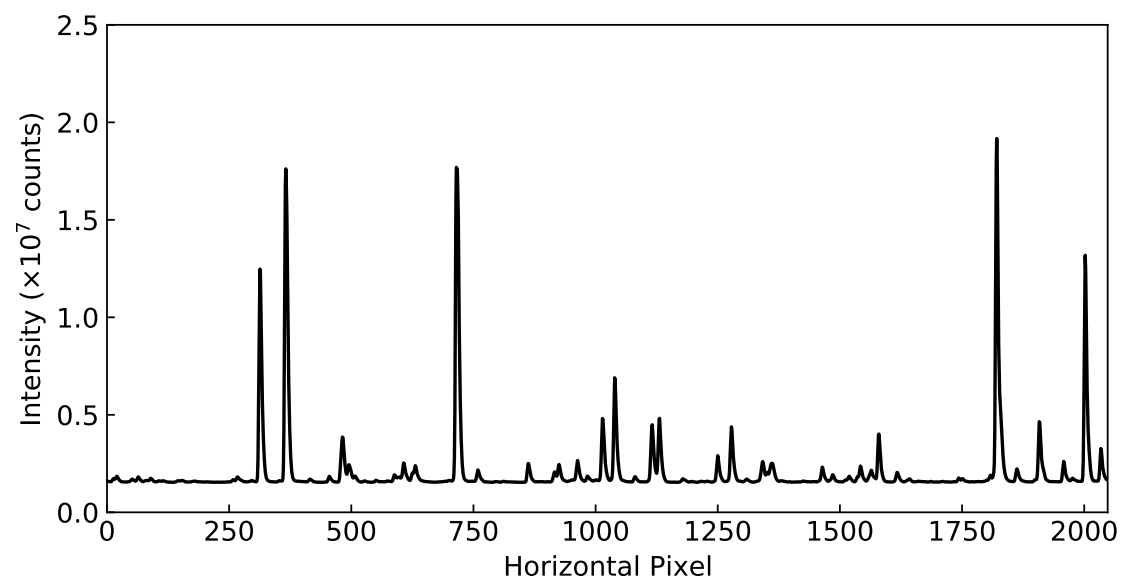


図5 画像のピクセル値を縦に合計したグラフの例

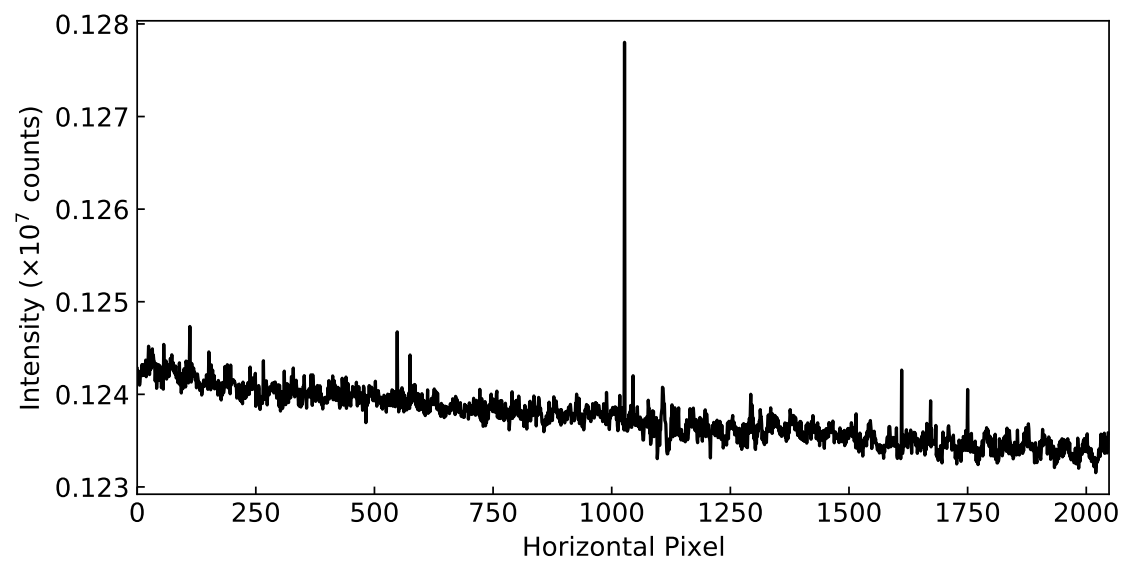


図6 バックグラウンドデータの例

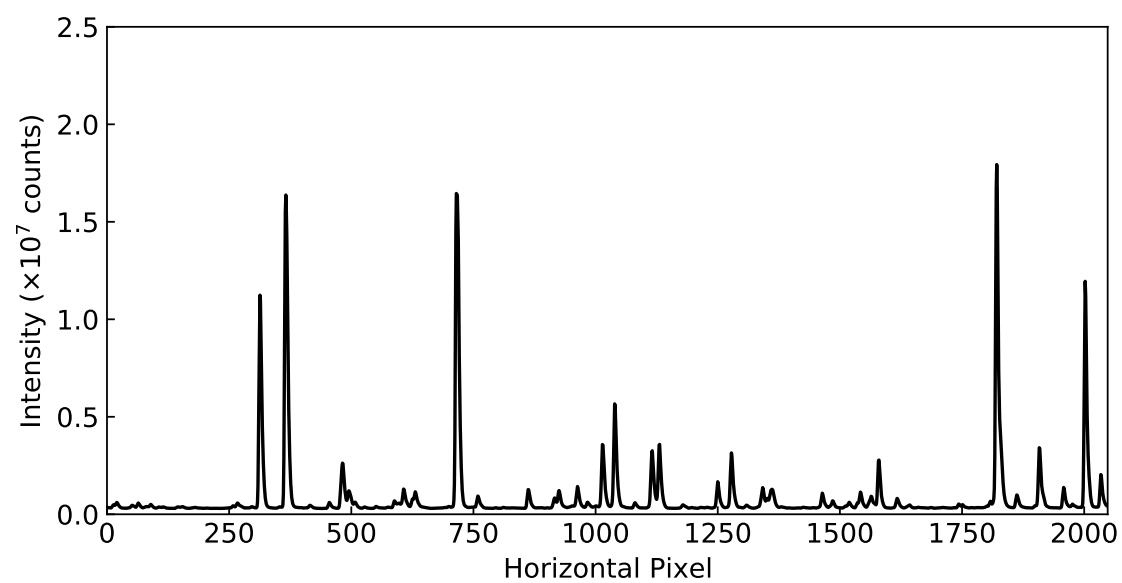


図7 バックグラウンドを除いたスペクトルの例

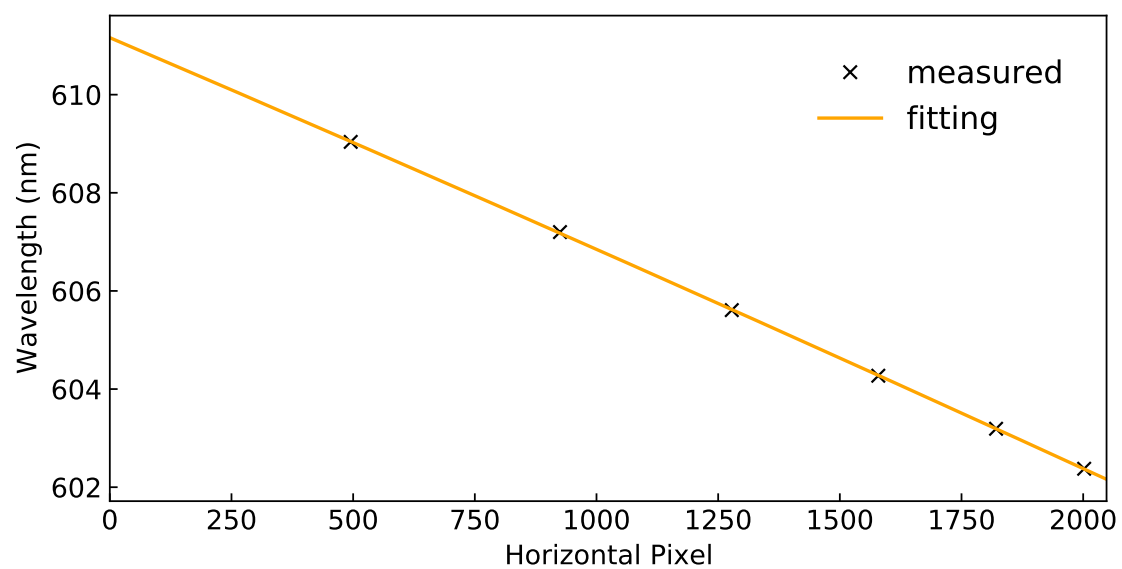


図8 ピクセルと波長の関係の例

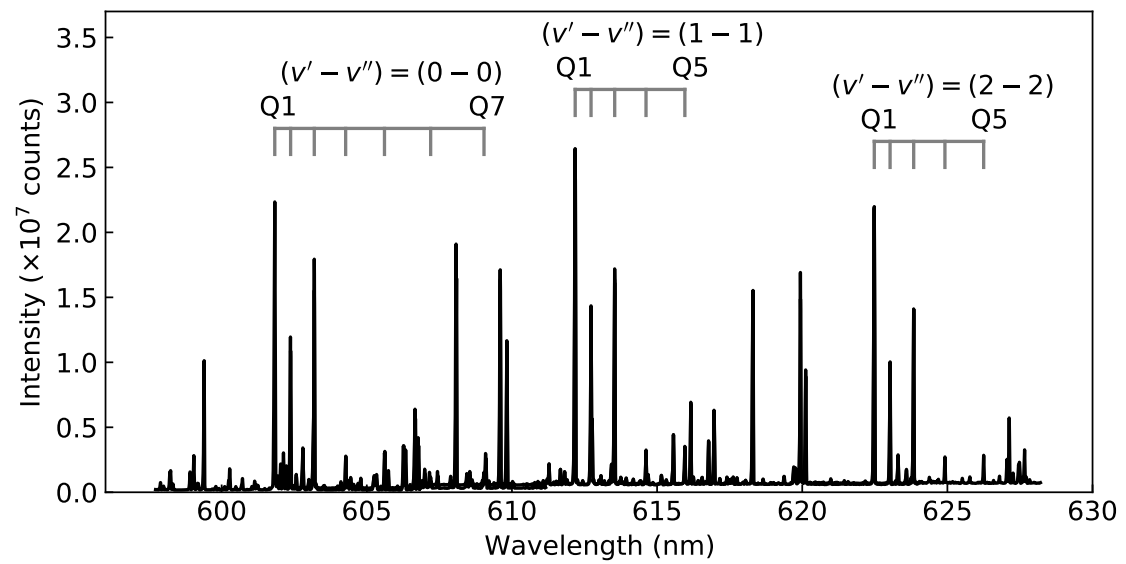


図9 Fulcher- $\alpha$  帯 Q 枝発光スペクトル

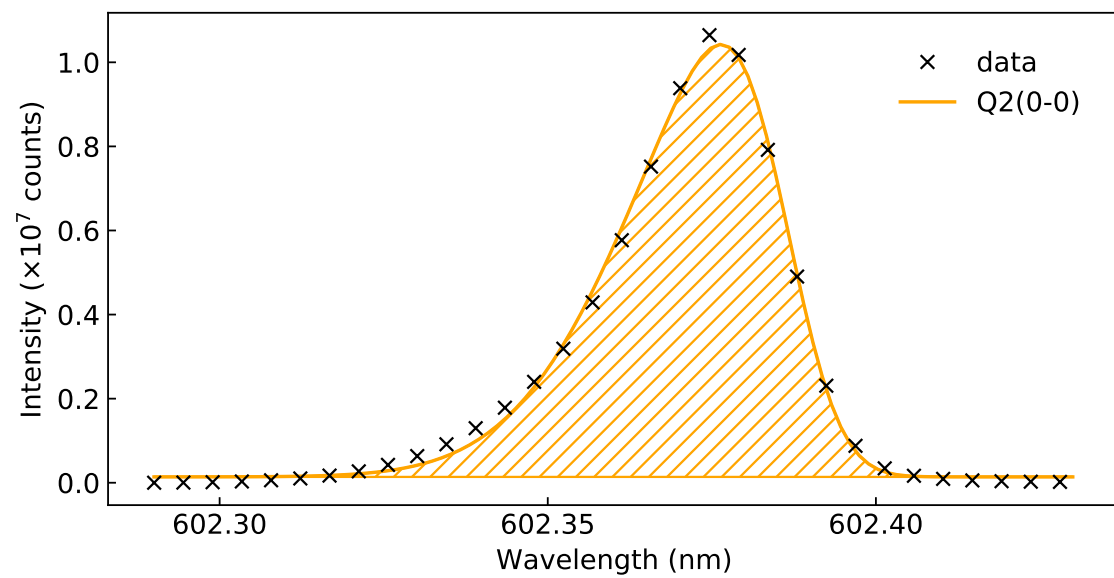


図10 歪正規分布関数によるフィッティングの例

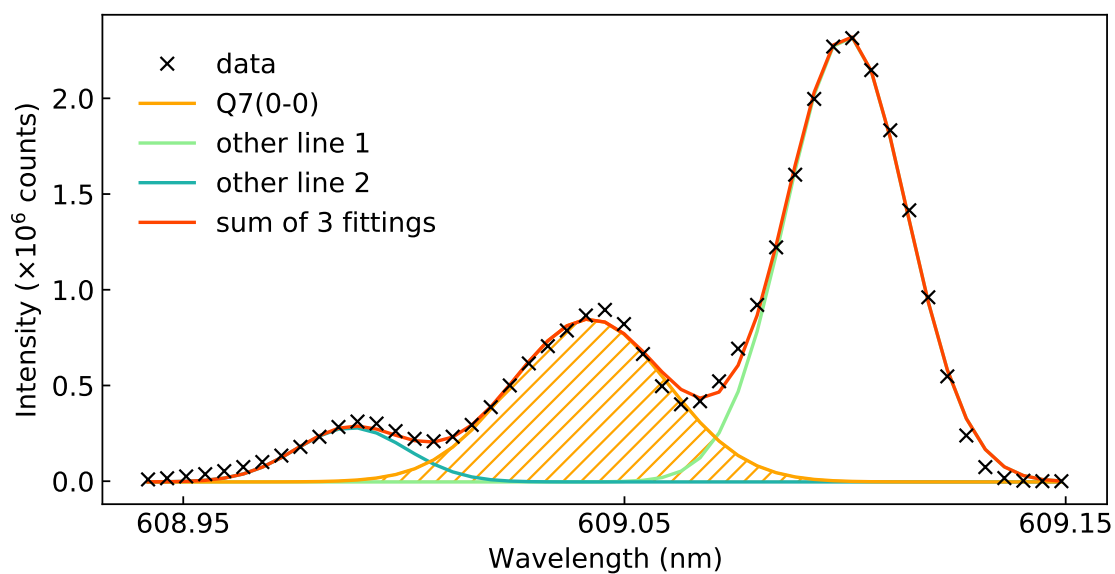


図 11 歪正規分布関数フィッティングによる分離の例

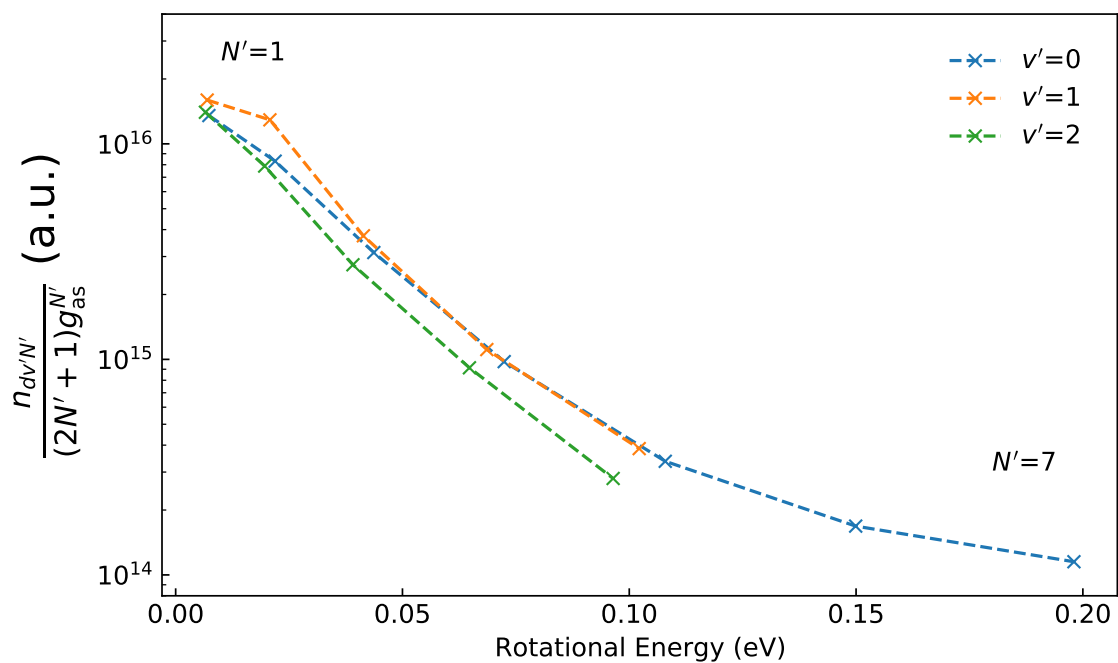


図 12 上準位占有数のボルツマンプロット



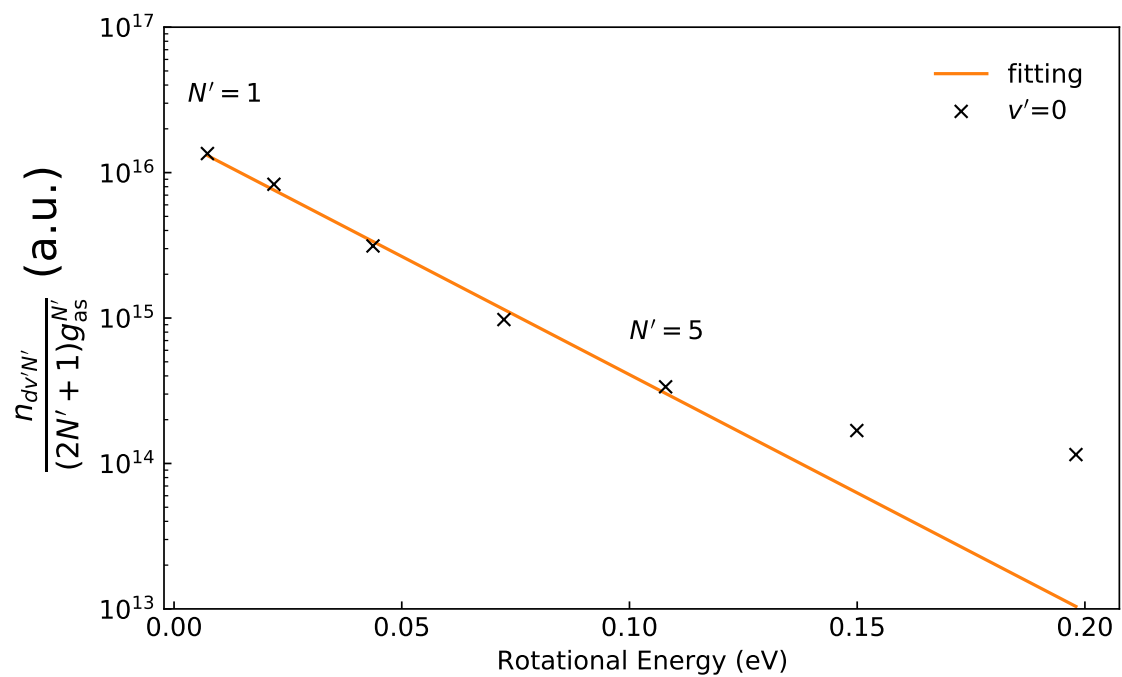


図 13 発光上準位回転温度のフィッティング ( $v' = 0$ )

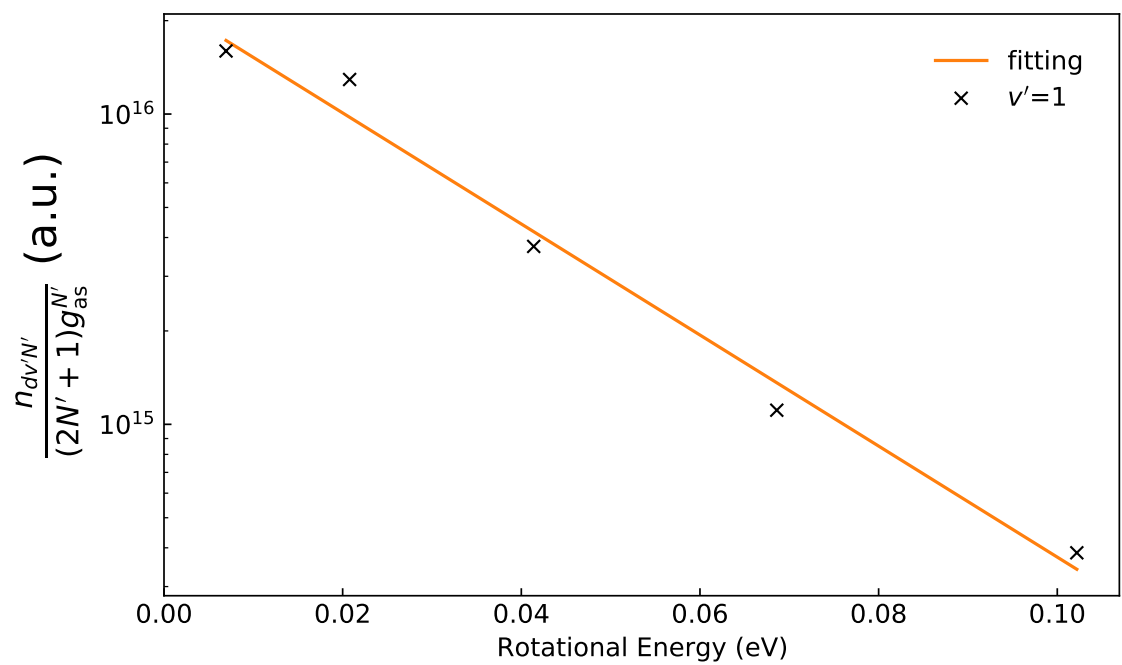


図 14 発光上準位回転温度のフィッティング ( $v' = 1$ )

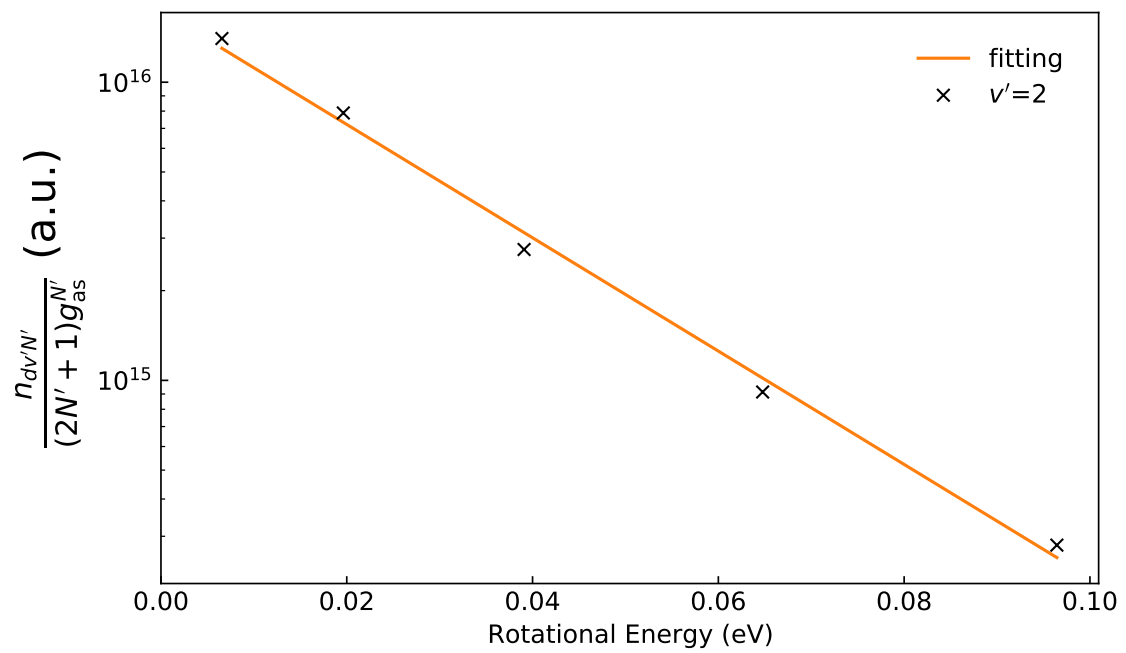


図 15 発光上準位回転温度のフィッティング ( $v' = 2$ )

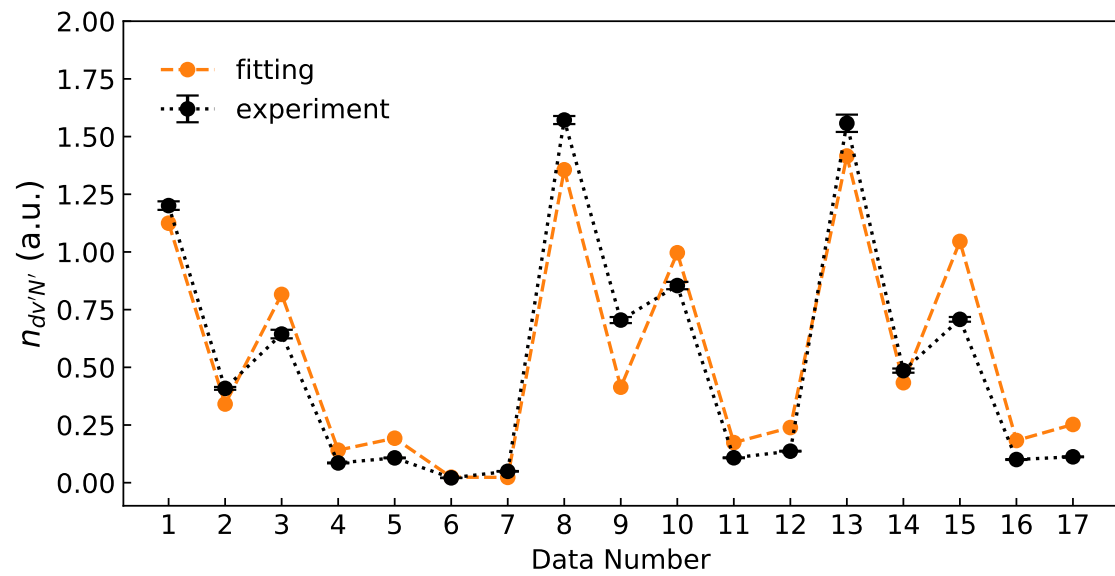


図 16 基底準位振動温度のフィッティング結果

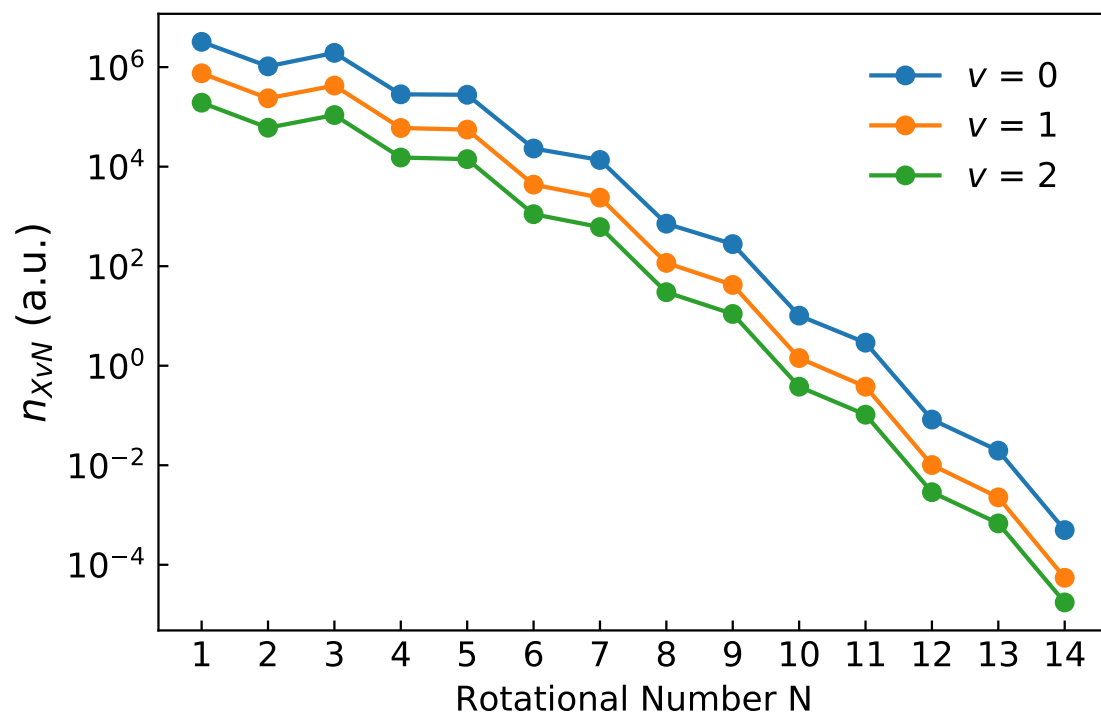


図 17 基底準位の占有数分布

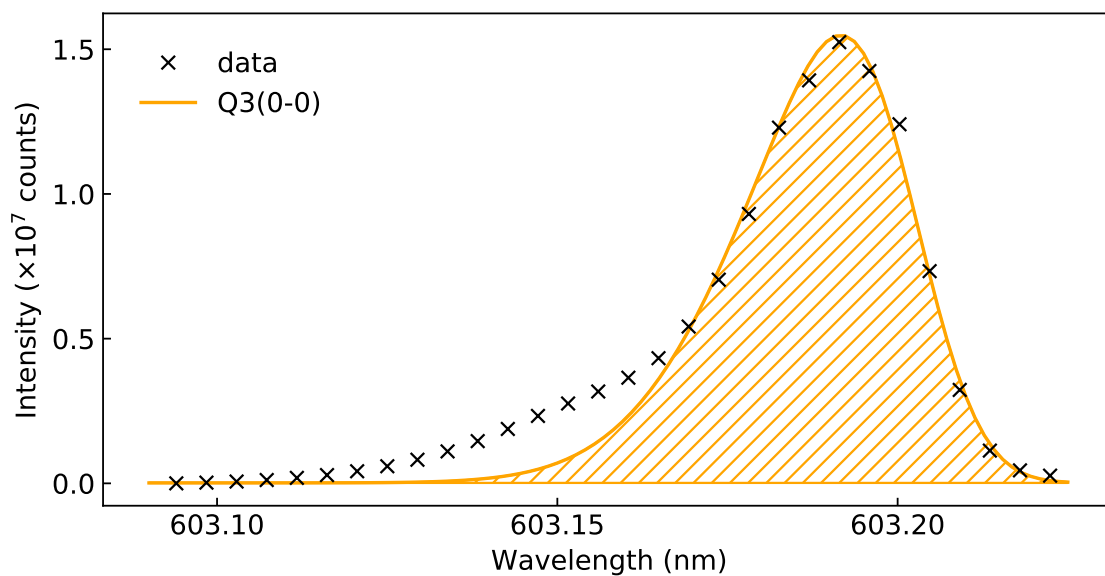


図 18 Q3(0-0) スペクトル

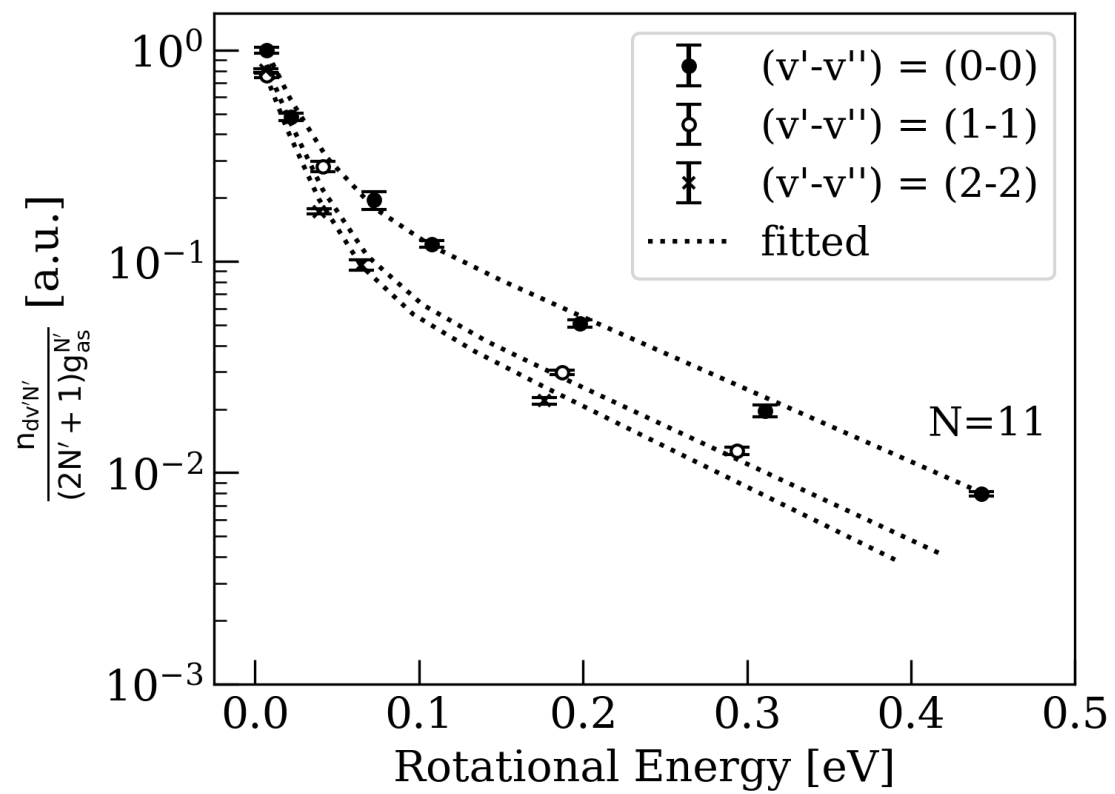


図 19 LHD での上準位占有数のボルツマンプロット

# 表目次

1	水素分子の分子定数 [4] . . . . .	27
2	CCD カメラの仕様一覧 [9] . . . . .	27
3	発光上準位の回転温度 . . . . .	27
4	基底準位の振動・回転温度 . . . . .	28

表 1 水素分子の分子定数 [4]

準位	$D_e$ [ $\text{cm}^{-1}$ ]	$B_e$ [ $\text{cm}^{-1}$ ]	$\alpha_e$ [ $\text{cm}^{-1}$ ]	$\bar{\omega}_e$ [ $\text{cm}^{-1}$ ]	$\bar{\omega}_e x_e$ [ $\text{cm}^{-1}$ ]
$X^1\Sigma_g^+$ (基底準位)	0.0471	60.853	3.062	4401.21	121.33
$d^3\Pi_u^-$ (発光上準位)	0.0191	30.364	1.545	2371.57	66.27
$a^3\Sigma_g^+$ (発光下準位)	0.0216	34.216	1.671	2664.83	71.65

表 2 CCD カメラの仕様一覧 [9]

型番	ML1109
CCD イメージセンサ	浜松ホトニクス S10140-1109
イメージセンサのサイズ	24.6 x 6.07 mm
解像度	2048 x 506 pixel
画素サイズ	12 x 12 $\mu\text{m}$
インターフェイス	USB2.0
シャッター	45 mm
重量	1.3 kg
サイズ	94 x 94 x 121.3 mm

表 3 発光上準位の回転温度

振動準位	$T_{\text{rot}}^{dv'}$ [K]
$v=0$	310
$v=1$	282
$v=2$	265

表 4 基底準位の振動・回転温度

振動準位	$T_{\text{rot}}^{Xv}$ [K]	$T_{\text{vib}}^X$ [K]
$v=0$	621	4146
$v=1$	565	4146
$v=2$	532	4146