

# 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，その発光強度を計算した．発光強度から発光上準位の振動・回転状態占有率を計算し，回転エネルギーに対するボルツマンプロットを作成した．発光上準位の占有率にボルツマン分布を仮定しボルツマンプロットを直線でフィッティングすることによって，その傾きから発光上準位の回転温度を求めた．コロナモデルを適用するとともに基底準位の振動・回転状態占有率にもボルツマン分布を仮定することで，基底準位の振動温度を求めた．そして，基底準位の振動・回転状態占有率を求め，回転エネルギーに対する依存性を示した．また，大型ヘリカル装置 (LHD) で計測されたデータとの比較を行った．

# 目次

第 1 章	緒言	3
第 2 章	原理	4
2.1	水素分子	4
2.1.1	分子のエネルギー準位	4
2.1.2	分子の振動・回転エネルギー	4
2.1.3	Fulcher- $\alpha$ 帯遷移の選択則	5
2.2	発光上準位及び基底準位の振動・回転状態占有率	5
2.2.1	発光上準位の振動・回転状態占有率と発光強度の関係	5
2.2.2	発光上準位における振動・回転状態占有率および回転温度	6
2.2.3	コロナモデル	6
2.2.4	基底準位の振動・回転状態占有率	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	発光スペクトルの計測	9
4.1	実験の手順	9
4.2	実験データ	9
4.3	波長校正	9
第 5 章	解析結果	11
5.1	発光強度	11
5.2	発光上準位における振動・回転状態占有率および回転温度	11
5.3	基底準位における振動・回転状態占有率	11
第 6 章	考察	12
6.1	発光上準位に関する LHD でのデータとの比較	12
6.2	基底準位に関する LHD でのデータとの比較	12
第 7 章	結言	13
	謝辞	14

参考文献	15
图目次	16
表目次	29

# 第 1 章

## 緒言

新たな発電方法として、核融合プラズマを用いた発電が注目されている。核融合プラズマは、高温・高密度の水素プラズマを磁場によって閉じ込めたものである。しかし閉じ込め領域の粒子は周辺領域へと拡散する。拡散したイオンや中性粒子が炉壁やプラズマの周辺機器であるダイバータに衝突すると、そこから水素原子分子が放出される。水素原子分子はプラズマの中心領域へと戻り、電離して水素イオンになる。これらの過程は水素リサイクリングと呼ばれ、閉じ込め性能に大きく影響する [1]。この過程は多くの素過程を含み、その中でも分子活性化再結合はダイバータの損耗に影響があるとされる重要な素過程である。そして、分子活性化再結合の反応係数は水素分子基底準位の振動・回転状態に大きく依存することが分かっている [2]。石原らによる先行研究 [2] では、大型ヘリカル装置 (LHD) のプラズマ周辺領域における水素分子基底準位の振動・回転状態占有数分布が 2 温度のボルツマン分布の和でよく近似できることが示された。しかし、このような占有数分布になる理由については炉壁との相互作用であると考えられてはいるが詳しくは解明されていない [3]。そこで本研究では、LHD とは種類の異なるプラズマである、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、水素分子基底準位の振動・回転状態占有率を求めた。またその結果を LHD での研究結果 [2] と比較した。

## 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 分子のエネルギー準位

Fulcher- $\alpha$  遷移に関わる水素分子のエネルギー準位について説明する。図 1 に水素分子のポテンシャル曲線を示す。横軸は分子の核間距離、縦軸はポテンシャルエネルギーである。

図中の記号 X, d, a は分子中の電子のエネルギー準位に対応し、基底準位を X と表し、基底準位と同じスピン多重度を持つ電子励起準位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電子励起準位は 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  $\Lambda = |M_L| = 0, 1, 2, 3, \dots$  に対応しており、順に  $\Sigma, \Pi, \Delta, \Phi, \dots$  を用いる [4]。その左上の数字はスピン多重度  $2S + 1$  である [4]。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 [4]。

それぞれの電子励起準位について振動のエネルギー準位が存在する。図中の  $v, v', v''$  はそれぞれ, X, d, a 準位の振動量子数である。さらに、それぞれの振動励起準位について回転のエネルギー準位が存在し、図中の  $J, J', J''$  はそれぞれ X, d, a 準位の回転量子数である。

プラズマ中では基底準位  $X^1\Sigma_g^+$  にある水素分子が電子と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が本研究の計測対象とする Fulcher- $\alpha$  帯である。

#### 2.1.2 分子の振動・回転エネルギー

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、電子が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 [4]。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同時に解くのではなく、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 [4]。

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

ここで  $B^v$  は回転定数であり、平衡点における回転定数  $B_e$  と回転定数の 1 次の補正項  $\alpha_e$  を用いて  $B^v = B_e - \alpha_e(v + 1/2)$  と近似される [4].  $D_e$  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 [4].

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

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 [5].

### 2.1.3 Fulcher- $\alpha$ 帯遷移の選択則

分子の電子状態間の遷移には一般的に振動回転状態の遷移が伴うが、そこには選択則が存在する [4]. 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  $\Delta J = J' - J'' = -1, 0, 1$  を満たすが、 $J' = J'' = 0$  は禁制遷移である。 $\Delta J$  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、 $\Delta J = 0$  である。

## 2.2 発光上準位及び基底準位の振動・回転状態占有率

### 2.2.1 発光上準位の振動・回転状態占有率と発光強度の関係

発光上準位の振動・回転状態占有率  $n_{dv'J'}$  は発光上準位の振動・回転状態占有数  $N_{dv'J'}$  を用いて下式で表す。

$$n_{dv'J'} = \frac{N_{dv'J'}}{\sum_{v'J'} N_{dv'J'}} \quad (2.3)$$

$N_{dv'J'}$  は発光強度  $I_{av''J''}^{dv'J'}$  を用いて

$$N_{dv'J'} = \frac{I_{av''J''}^{dv'J'} \lambda_{av''J''}^{dv'J'}}{hc} \frac{1}{A_{av''J''}^{dv'J'}} \quad (2.4)$$

と表せるので、

$$n_{dv'J'} = \frac{1}{\sum_{v'J'} \frac{I_{av''J''}^{dv'J'} \lambda_{av''J''}^{dv'J'}}{A_{av''J''}^{dv'J'}}} \frac{I_{av''J''}^{dv'J'} \lambda_{av''J''}^{dv'J'}}{A_{av''J''}^{dv'J'}} \quad (2.5)$$

と書ける。ここで  $\lambda_{av''J''}^{dv'J'}$  は発光線の波長、 $h$  はプランク定数、 $c$  は光速である。 $A_{av''J''}^{dv'J'}$  は自然発光係数であり

$$A_{av''J''}^{dv'J'} = \frac{16\pi^3}{3h\epsilon_0 \lambda_{av''J''}^{dv'J'}{}^3} \bar{R}_e^2 q_{av''}^{dv'} S_{J''}^{J'} \frac{1}{2J' + 1} \quad (2.6)$$

と表せる [6].  $\epsilon_0$  は真空の誘電率、 $\bar{R}_e$  は電気双極子モーメント、 $q_{av''}^{dv'}$  は Franck-Condon 因子 [7]、 $S_{J''}^{J'}$  は Hönl-London 因子、 $2J' + 1$  は回転の縮退度である。Fulcher- $\alpha$  帯では Hönl-London 因子は

$$S_{J''}^{J'} = \begin{cases} \frac{J'}{2} & (P \text{ 枝}) \\ \frac{2J'+1}{2} & (Q \text{ 枝}) \\ \frac{J'+1}{2} & (R \text{ 枝}) \end{cases} \quad (2.7)$$

である [6].

## 2.2.2 発光上準位における振動・回転状態占有率および回転温度

発光上準位の振動・回転状態占有数がボルツマン分布に従うと仮定すると、その占有率は

$$n_{dv'J'} = \frac{(2J' + 1) g_{\text{as}}^{J'} \exp\left(-\frac{E_{\text{rot}}^{dv'}(J')}{k_B T_{\text{rot}}^{dv'}}\right)}{\sum_{J'} (2J' + 1) g_{\text{as}}^{J'} \exp\left(-\frac{E_{\text{rot}}^{dv'}(J')}{k_B T_{\text{rot}}^{dv'}}\right)} \quad (2.8)$$

と表せる． $(2J' + 1)$ ,  $g_{\text{as}}^{J'}$ ,  $E_{\text{rot}}^{dv'}$ ,  $T_{\text{rot}}^{dv'}$  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、回転温度であり、 $k_B$  はボルツマン定数である．両辺対数をとると、

$$\ln \left[ \frac{n_{dv'J'}}{(2J' + 1) g_{\text{as}}^{J'}} \right] = \text{const} - \frac{E_{\text{rot}}^{dv'}(J')}{k_B T_{\text{rot}}^{dv'}} \quad (2.9)$$

となる．横軸を  $E_{\text{rot}}^{dv'}(J')$ 、縦軸を  $n_{dv'J'}$  としてプロットし、縦軸を対数に取った図を作成して直線でフィッティングすると、その傾きから  $T_{\text{rot}}^{dv'}$  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、発光上準位の占有数変化を、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 [6].

$$\frac{\partial N_{dv'J'}}{\partial t} = n_e \sum_{v,J} [N_{XvJ} R_{XvJ}^{dv'J'}] - N_{dv'J'} \sum_{v'',J''} A_{av''J''}^{dv'J'} \quad (2.10)$$

ここで  $n_e$  は電子密度であり、 $N_{XvJ}$  は基底準位の振動・回転状態占有数である．右辺第 2 項の総和記号は選択則 ( $v' - v'' = 0$  かつ  $J' - J'' = -1, 0, 1$ ) を満たす  $v''$ ,  $J''$  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．

$$n_e \sum_{v,J} [N_{XvJ} R_{XvJ}^{dv'J'}] = N_{dv'J'} \sum_{v'',J''} A_{av''J''}^{dv'J'} \quad (2.11)$$

式 2.3 より

$$n_e \left( \sum_{v,J} N_{XvJ} \right) \sum_{v,J} [n_{XvJ} R_{XvJ}^{dv'J'}] = n_{dv'J'} \left( \sum_{v',J'} N_{dv'J'} \right) \sum_{v'',J''} A_{av''J''}^{dv'J'} \quad (2.12)$$

ここで  $n_{XvJ}$  は基底準位の振動・回転状態占有率であり、 $n_{XvJ} = N_{XvJ} / \sum_{v,J} N_{XvJ}$  である． $R_{XvJ}^{dv'J'}$  は電子衝突励起係数であり、Born-Oppenheimer 近似を仮定すると

$$R_{XvJ}^{dv'J'} = q_{Xv}^{dv'} \langle \sigma_{v' \leftarrow v}^{FC} v_e \rangle a_{0J}^{1J'} \delta_{g_{\text{as}}}^{g_{\text{as}}^{J'}} \quad (2.13)$$

と書ける [6].  $\sigma_{v' \leftarrow v}^{FC}$  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． $a_{0J}^{1J'}$  は回転構造の分岐比、 $\delta_{g_{\text{as}}}^{g_{\text{as}}^{J'}}$  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 Franck-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遷移ほど励起確率が大きい) を仮定したスケーリングを用いた [8].

$$\langle \sigma_{v' \leftarrow v}^{FC} v_e \rangle \propto \langle \sigma_{0 \leftarrow 0}^{FC} v_e \rangle \times \exp \left( -\frac{(E_{\text{vib}}^d(v') - E_{\text{vib}}^d(0)) - (E_{\text{vib}}^X(v) - E_{\text{vib}}^X(0))}{k_B T_e} \right) \quad (2.14)$$



$E_{\text{vib}}^d(v'), E_{\text{vib}}^X(v)$  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。  $T_e$  は電子温度である。回転構造の分岐比は

$$a_{0J}^{1J'} = \sum_r \overline{Q_r'} (2J' + 1) \begin{pmatrix} J' & r & J \\ 1 & -1 & 0 \end{pmatrix}^2 \quad (2.15)$$

と表せる [8] 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 [9] 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  $\delta_{g_{as}^{J'}}^{g_{as}^{J'}}$  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 基底準位の振動・回転状態占有率

発光上準位と同様に、基底準位の振動・回転状態占有率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  $T_{\text{rot}}^{Xv}$  として、 $n_{XvJ}$  は

$$\begin{aligned} n_{XvJ} &= \frac{(2J+1)g_{\text{as}}^J \exp\left(-\frac{E_{\text{rot}}^{Xv}(J)}{k_B T_{\text{rot}}^{Xv}}\right) \exp\left(-\frac{E_{\text{vib}}^X(v)}{k_B T_{\text{vib}}^X}\right)}{\sum_{v,J} (2J+1)g_{\text{as}}^J \exp\left(-\frac{E_{\text{rot}}^{Xv}(J)}{k_B T_{\text{rot}}^{Xv}}\right) \exp\left(-\frac{E_{\text{vib}}^X(v)}{k_B T_{\text{vib}}^X}\right)} \\ &= C(2J+1)g_{\text{as}}^J \exp\left(-\frac{E_{\text{rot}}^{Xv}(J)}{k_B T_{\text{rot}}^{Xv}}\right) \exp\left(-\frac{E_{\text{vib}}^X(v)}{k_B T_{\text{vib}}^X}\right) \end{aligned} \quad (2.16)$$

と書ける。ここで、 $(2J+1)$  は回転の縮退度である。 $g_{\text{as}}^J$  は核スピンの縮退度であり、 $J$  が奇数の時 3, 偶数の時 1 となる。また、 $C = 1/\sum_{v,J} (2J+1)g_{\text{as}}^J \exp\left(-\frac{E_{\text{rot}}^{Xv}(J)}{k_B T_{\text{rot}}^{Xv}}\right) \exp\left(-\frac{E_{\text{vib}}^X(v)}{k_B T_{\text{vib}}^X}\right)$  である。式 2.12 のコロナモデルの式に代入すると、次の式が導ける。

$$\frac{n_{dv'J'}}{(2J'+1)g_{\text{as}}^{J'}} = C' \frac{\sum_{v,J} \left[ R_{XvJ}^{dv'J'} (2J+1)g_{\text{as}}^J \exp\left(-\frac{E_{\text{rot}}^{Xv}(J)}{k_B T_{\text{rot}}^{Xv}}\right) \exp\left(-\frac{E_{\text{vib}}^X(v)}{k_B T_{\text{vib}}^X}\right) \right]}{(2J'+1)g_{\text{as}}^{J'} \sum_{v'',J''} A_{av''J''}^{dv'J'}} \quad (2.17)$$

ただし、 $v', J'$  に依存しない定数を  $C'$  にまとめた。また、右辺の  $T_{\text{rot}}^{Xv}$  について、回転温度は回転定数に比例するという関係式 [10]

$$T_{\text{rot}}^{Xv} = \frac{B^{Xv}}{B^{dv'}} T_{\text{rot}}^{dv'} \quad (2.18)$$

を用いて、2.2.2 章で求めた発光上準位の回転温度から計算できる。式 2.5 によって求めた  $n_{dv'J'}$  を式 2.17 に代入し、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。

以上の手順で求めた基底準位の振動・回転温度を式 2.16 に代入することにより、基底準位の振動・回転状態占有率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 2 に、チャンバの構造を簡単にした図を図 3 に示す。プラズマチャンバは主に ICF-152 規格のスレンス製六方クロス管が用いられている。流量調節バルブは水素ポンペに繋がっており、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。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事ができる。排気口はロータリーポンプ (アネスト岩田, ISP-250B-SV) とターボ分子ポンプ (大阪真空機器製作所, TH162CA) に繋げた。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、アノードとして直径 50 mm の平板電極を使用した。カソードの両端は直流電源 (菊水電子工業, REGULATED DC POWER SUPPLY) に繋ぎ、電流を流すことで、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直流電源 (高砂製作所, GP 0110-3) に繋げた。チャンバには石英窓が取り付けられており、ここにコリメータを付けた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だ。

### 3.2 分光器

分光器の概略図を図 4 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光ファイバーでツェルニ・ターナー型分光器 (堀場製作所, HR640) へ入射させている。分光器入り口には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コリメートミラーで平行光となり、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。回折格子で反射した光は、ミラーで反射した後 CCD カメラ (Finger Lakes Instrumentation, ML1109) で検出される。CCD カメラの仕様 [11] を表 2 に示す。CCD カメラが一度に計測できる波長範囲は 8.8 nm だが、回折格子からの光はこの幅を超えて広がるので、回折格子を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 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

# 発光スペクトルの計測

### 4.1 実験の手順

以下の手順に沿って発光スペクトルを計測した。

1. 流量調節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
2. 流量調節バルブを少しずつ開き、圧力が  $10^{-3}$  Torr 程度になるまで水素を注入した。
3. カソードに電圧を印加し、電流が 20 A 程度になるように調節した。
4. アノード、カソード間に電圧を印加し、プラズマを生成した。プラズマ電流が 2.5 A になるように調節した。
5. CCD カメラでスペクトルの撮影を行った。ステッピングモーターを回して撮影する波長帯を変えながら複数の画像を得た。
6. アノード、カソード間の電源を切ってプラズマを消した後、同様に撮影を行った。

### 4.2 実験データ

図 5 に、上述の手順 5 で撮影した画像の例を示す。図 6 は図 5 の各画素のカウント数を縦に合計したものをプロットしたグラフである。また、手順 6 で得たデータのうち、図 6 と波長範囲が同じものを図 7 に示す。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が、光の強度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状態で得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。図 6 からバックグラウンドのデータを除いたものが図 8 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。

### 4.3 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。まず、光の強度が最大となるピクセルを発光線の中心とし、その中心に対してデータベース [12] から取得した Fulcher- $\alpha$  帯発光線の波長をプロットした。さらに、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 9)。得られた対応関係からピクセルを波長に変換した。波長校正後のスペクトルを図 10 に示す。なお、 $(J', J'') = (1, 1), (2,$

2), ... の発光線を順に  $Q_1, Q_2, \dots$  としている.

## 第 5 章

# 解析結果

### 5.1 発光強度

発光強度は、発光線スペクトルの面積を計算して求められる。得られた発光線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。例として、Q2(0-0) のフィッティング結果を図 11 に示す。図中の網掛け部分の面積が発光強度である。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 12 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 発光上準位における振動・回転状態占有率および回転温度

式 2.5 を用いて、発光上準位における振動・回転状態占有率を求めた。そしてその占有率を、横軸に  $E_{\text{rot}}^{dv'}$ 、縦軸に  $\frac{n_{dv',J'}}{(2J'+1)g_{\text{as}}^{J'}}$  を取ったグラフにプロットした。それを図 13 に示す。なお、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が大きい部分では形が直線から外れており、完全にはボルツマン分布に従っていないことがわかる。図 13 を直線でフィッティングし、直線の傾きを得ることによって、式 2.9 から回転温度を求めた。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  $J' = 1 \sim 5$  のみを用いた。図 14, 図 15, 図 16 にフィッティング結果、表 3 に得られた回転温度を示す。

### 5.3 基底準位における振動・回転状態占有率

式 2.13 より電子衝突励起係数を求めた。なお、この時に用いた電子温度はラングミュアプローブを用いた実験で得た値である 7 eV[13] を用いた。さらに、式 2.18 より基底準位の回転温度を求め、これらの値を式 2.17 に代入した。式 2.17 の左辺は式 2.5 によって計算できるが右辺の値は  $T_{\text{vib}}^X$  によって変化するので、左辺の値と右辺の値が一番近くなるように  $T_{\text{vib}}^X$  を決定した。このフィッティング結果を図 17 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  $(v', J') = (0, 1) \sim (0, 7), (1, 1) \sim (1, 5), (2, 1) \sim (2, 5)$  となっている。また、振動温度と回転温度を表 4 に示す。求まった振動温度と回転温度を式 2.16 に代入して、基底準位の占有率を求めた。基底準位における占有率の、回転エネルギーに対する依存性を図 18 に示す。

## 第 6 章

# 考察

発光上準位及び基底準位における振動・回転状態について、LHD でのデータとの比較を行う。なお、LHD と本研究で用いたプラズマの違いを表 5 にまとめた [2]。

### 6.1 発光上準位に関する LHD でのデータとの比較

図 14 に関して、発光上準位の振動・回転状態占有率が完全に 1 温度のボルツマン分布に従うならばこのグラフは直線状に並ぶはずだが、実際は  $J' = 6, 7$  の点は大きな値になっている。このことについて LHD でのデータと比較する。図 19 は LHD における発光上準位の振動・回転状態占有数の回転エネルギー依存性を示している [2]。回転エネルギーが本研究と同じ 0.1 eV 前後でフィッティング関数の傾きが大きくなっていることが読み取る。また、高回転量子数帯を含めた占有数が 2 温度のボルツマン分布の和によってよくフィッティングできていることが分かる。今回の実験では  $J' \leq 7$  という低回転量子数帯のデータしか取れなかったため、発光上準位の占有率が 1 温度のボルツマン分布に従うとしたが、より光分解能の分光器を用いて高回転量子数帯までデータを取ると、LHD と同様に 2 温度のボルツマン分布に従うと予想できる。

### 6.2 基底準位に関する LHD でのデータとの比較

表 6 は、本研究で求めた基底準位の振動・回転温度と、LHD での基底準位の振動・回転温度 [2] である。ただし LHD での解析は 2 温度ボルツマン分布を仮定しているが、低回転量子数帯に関係している低い方の温度を記載している。この表から、本研究対象のプラズマと LHD ではプラズマの種類が違っても、回転温度に比べて振動温度がはるかに高いということと、振動量子数が大きくなるにつれて回転温度が高くなるという 2 点は共通するということが分かった。

## 第 7 章

# 結言

熱陰極グロー放電プラズマにおいて、ツェルニ・ターナー型分光器を用いて 600-630 nm の波長域の水素分子の発光スペクトルを計測した。データベースから得た発光線の波長データとスペクトルを比較することによって、波長校正を行い、発光線の特定を行った。Fulcher- $\alpha$  帯 Q 枝スペクトルとして特定できた発光線は 17 本であった。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し、面積を計算することで、発光強度を求めた。さらに、発光強度から発光上準位の振動・回転状態占有率を計算した。計算した占有率の、回転エネルギーに対するボルツマンプロットを作成すると、振動量子数が 5 以下の領域ではデータが直線状に並んだ。発光上準位の占有率がボルツマン分布に従うと仮定し、ボルツマンプロットを直線でフィッティングすることにより、その傾きから発光上準位の回転温度を求めた。回転温度は 265-310 K であった。次に基底準位に関する解析を行った。発光上準位の回転温度と基底準位の回転温度の関係式により、基底準位の回転温度は 532-621 K であると求めた。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した。さらに基底準位の振動・回転状態占有率にボルツマン分布を仮定することで、基底準位の振動温度をフィッティングにより求めた。基底準位の振動温度は 4146 K であった。基底準位の回転温度と振動温度をボルツマン分布の式に代入することで、基底準位の振動・回転状態占有率を求め、回転エネルギーに対する依存性を示した。また、LHD で行われた計測結果との比較を行い、プラズマの種類は異なるが、基底準位の回転温度より振動温度の方がはるかに高いことと、振動準位が大きくなるにつれて回転温度が低くなることの 2 点は共通しているということが分かった。

# 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] 平松友, 卒業論文, 京都大学 (2019).
- [2] 石原啓基, 修士論文, 京都大学 (2020).
- [3] P. Vankan, D. C. Schram, and R. Engeln, *Chem. Phys. Lett.*, **400**, pp.196–200 (2004).
- [4] 菱川明栄, *プラズマ・核融合学会誌* **80**, pp.742–748 (2004).
- [5] Nist chemistry webbook (<https://webbook.nist.gov/cgi/cbook.cgi?ID=C1333740&Units=SI&Mask=1000#Diatomic>).
- [6] 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).
- [7] U. Fantz, and D. Wunderlich, *At. Data Nucl. Data Tables*, **92**, pp. 853-973 (2006).
- [8] 門信一郎, *プラズマ・核融合学会誌* **80**, pp.749–756 (2004).
- [9] D. R. Farley, D. P. Stotler, D. P. Lundberg, and S. A. Cohen, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.* **112**, pp.800-819 (2011).
- [10] S. A. Astashkevich and B. P. Lavrov, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.* **56**, pp.725–751 (1996).
- [11] 田中光化学工業株式会社 HP (<http://www.tanaka-opt.co.jp/fli-ml1109.html>).
- [12] H. M. Crosswhite, *The hydrogen molecule wavelength tables of Gerhard Heinrich Dieke*, (Wiley-Interscience, 1972).
- [13] 尹弘樹, 修士論文, 京都大学 (2021).

# 

1	H <sub>2</sub> のポテンシャル曲線 . . . . .	17
2	プラズマチャンバの外観 . . . . .	18
3	プラズマチャンバの構造の簡略図 . . . . .	19
4	分光器の概略図 . . . . .	20
5	CCD カメラで撮影したスペクトルの例 . . . . .	20
6	図 5 の各画素のカウント数を縦に合計した図 . . . . .	21
7	プラズマを消した状態で得た画像の各画素のカウント数を縦に合計した図 . . . . .	21
8	図 6 のカウント数から図 7 のカウント数を減算した図 . . . . .	22
9	ピクセルと波長の関係の例 . . . . .	22
10	Fulcher- $\alpha$ 帯 Q 枝発光スペクトル . . . . .	23
11	Q2(0-0) 発光線の歪正規分布関数によるフィッティング結果 . . . . .	23
12	Q7(0-0) 発光線の歪正規分布関数フィッティングによる分離 . . . . .	24
13	発光上準位における振動・回転状態占有率の回転エネルギー依存性 . . . . .	24
14	発光上準位における振動・回転状態占有率のボルツマン分布によるフィッティング結果 ( $v' = 0$ ) . . . . .	25
15	発光上準位における振動・回転状態占有率のボルツマン分布によるフィッティング結果 ( $v' = 1$ ) . . . . .	25
16	発光上準位における振動・回転状態占有率のボルツマン分布によるフィッティング結果 ( $v' = 2$ ) . . . . .	26
17	発光上準位における振動・回転状態占有率のコロナモデルによるフィッティング結果 . . . . .	26
18	基底準位における振動・回転状態占有率の回転エネルギー依存性 . . . . .	27
19	LHD での発光上準位における振動・回転状態占有数の回転エネルギー依存性とその 2 温度ボルツマン分布の和によるフィッティング結果 [2] . . . . .	28

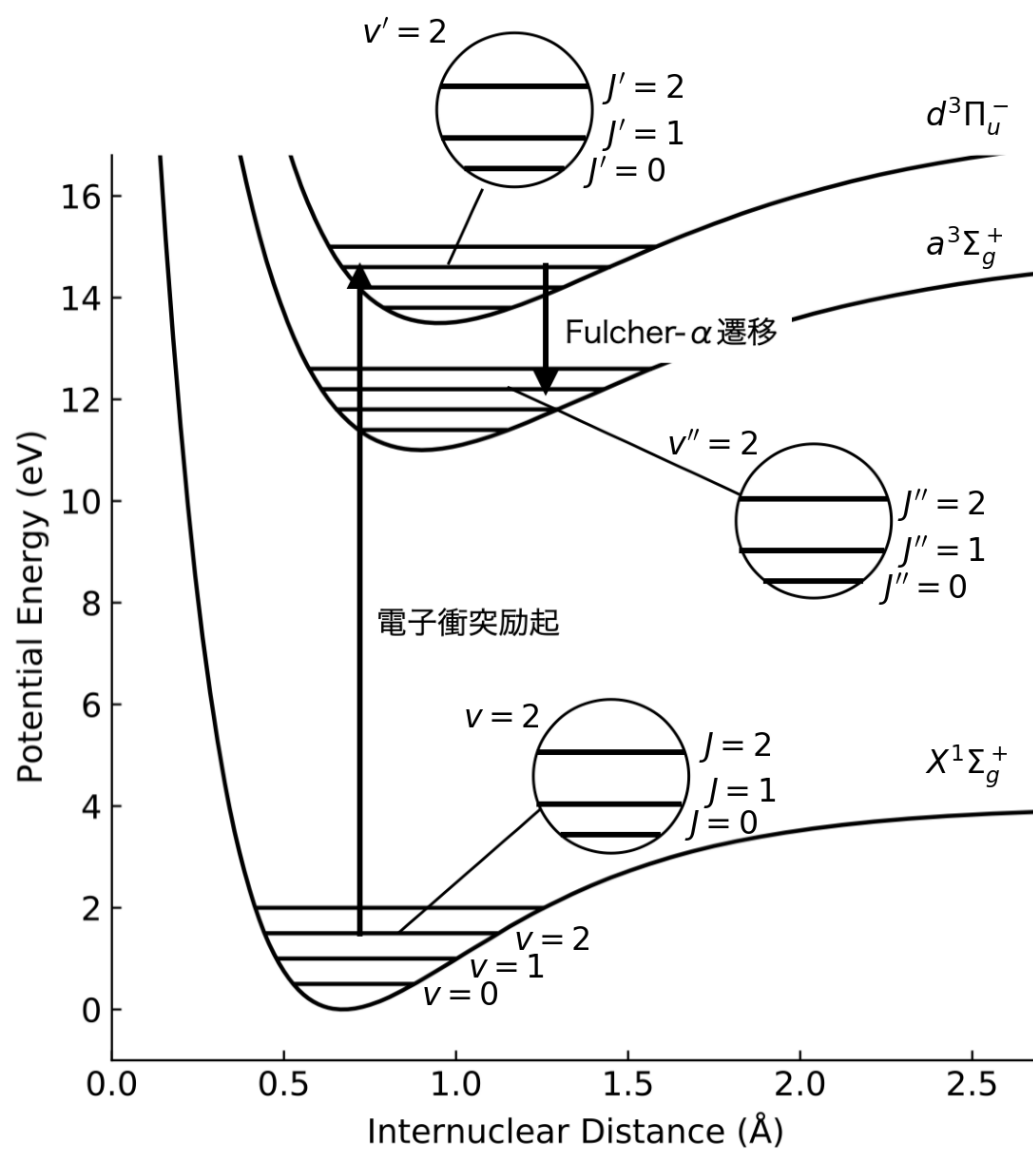


図1  $\text{H}_2$  のポテンシャル曲線

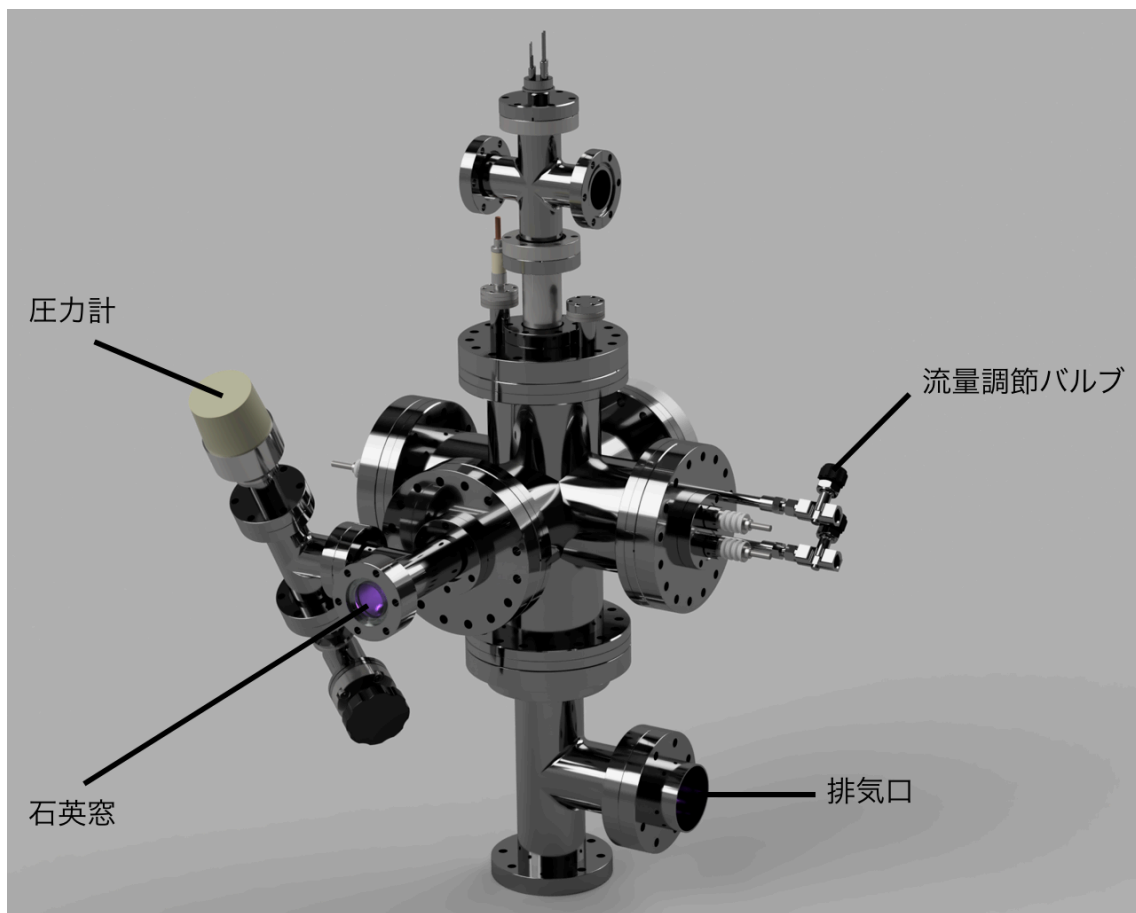


図2 プラズマチャンバの外観

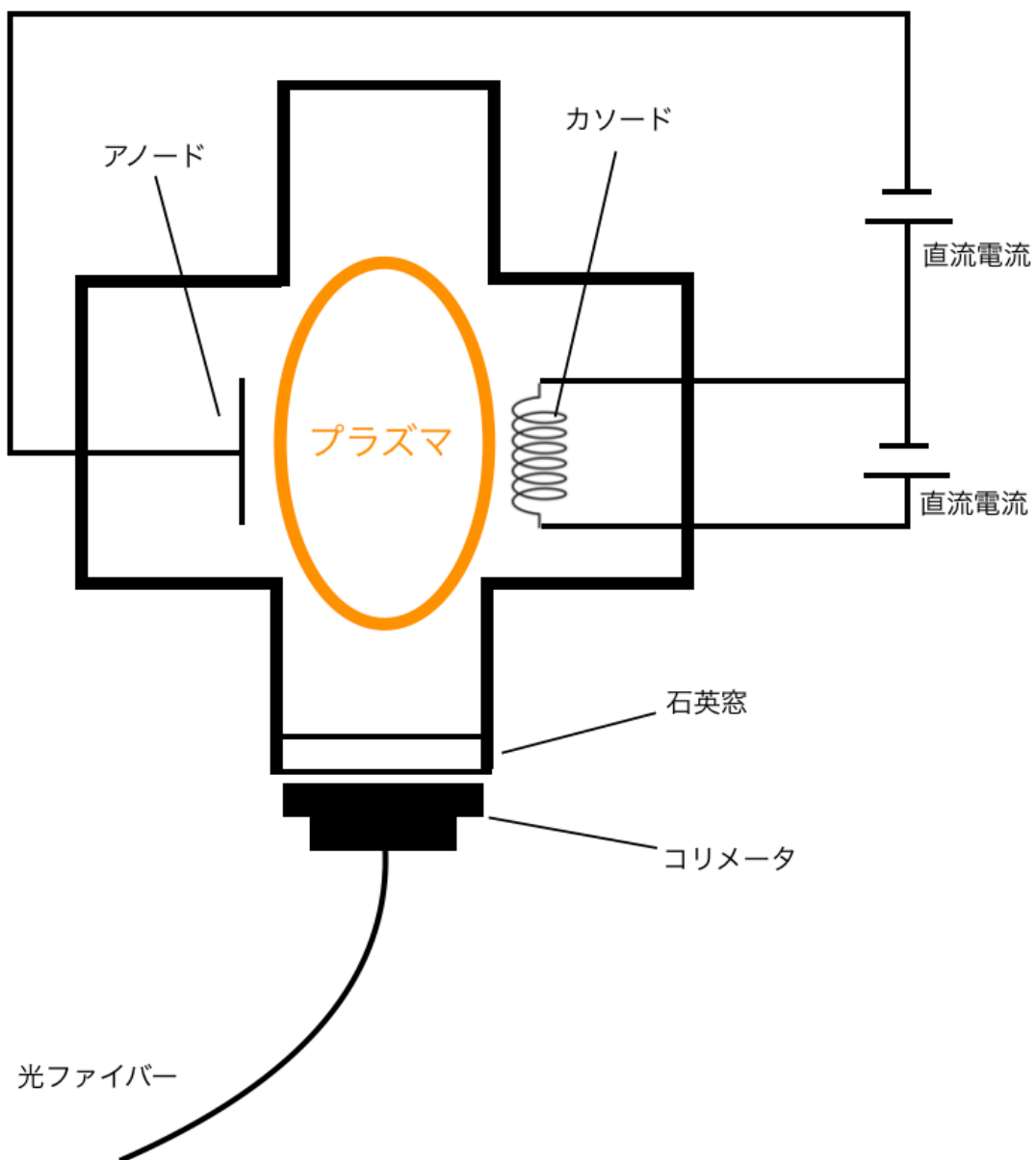


図3 プラズマチャンバの構造の簡略図

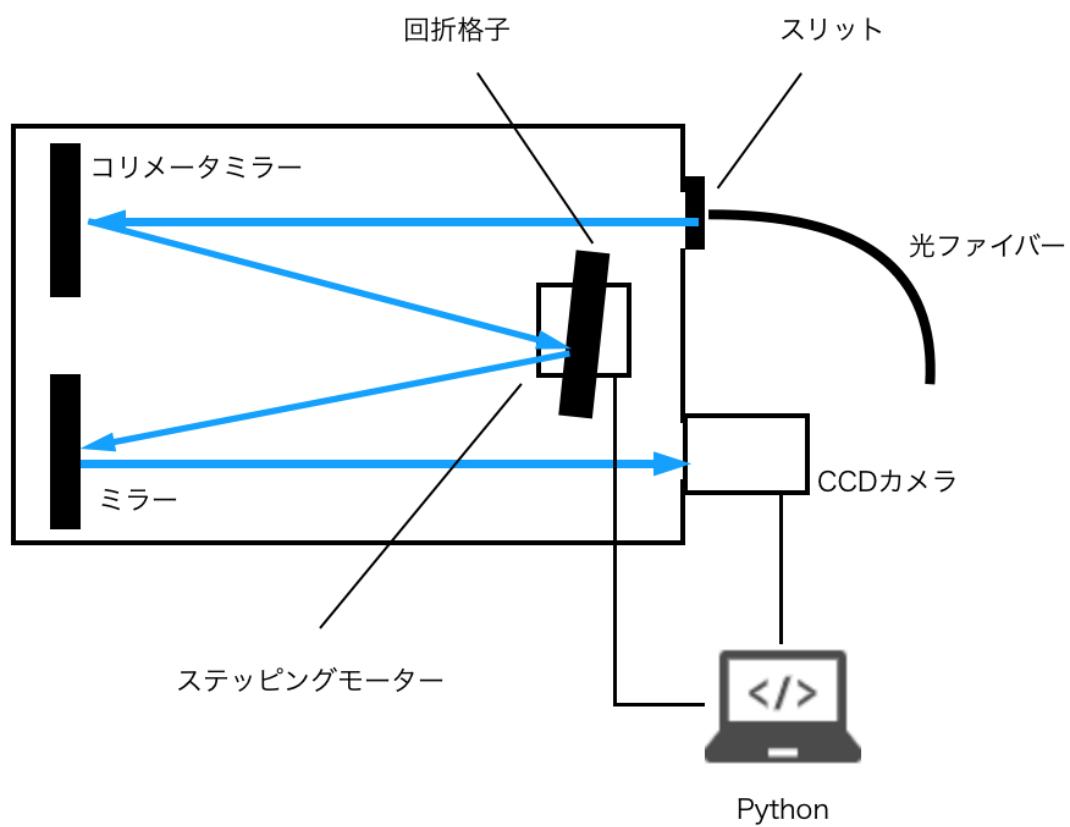


図 4 分光器の概略図

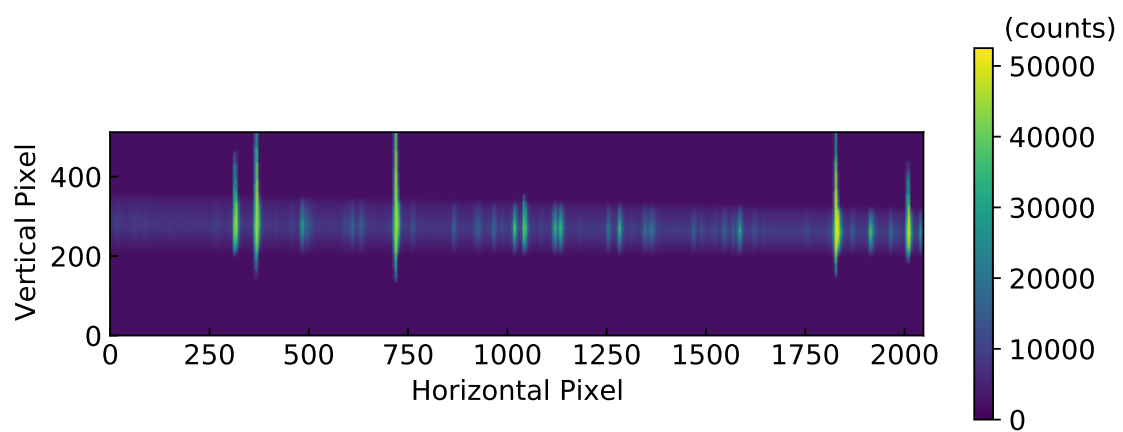


図 5 CCD カメラで撮影したスペクトルの例

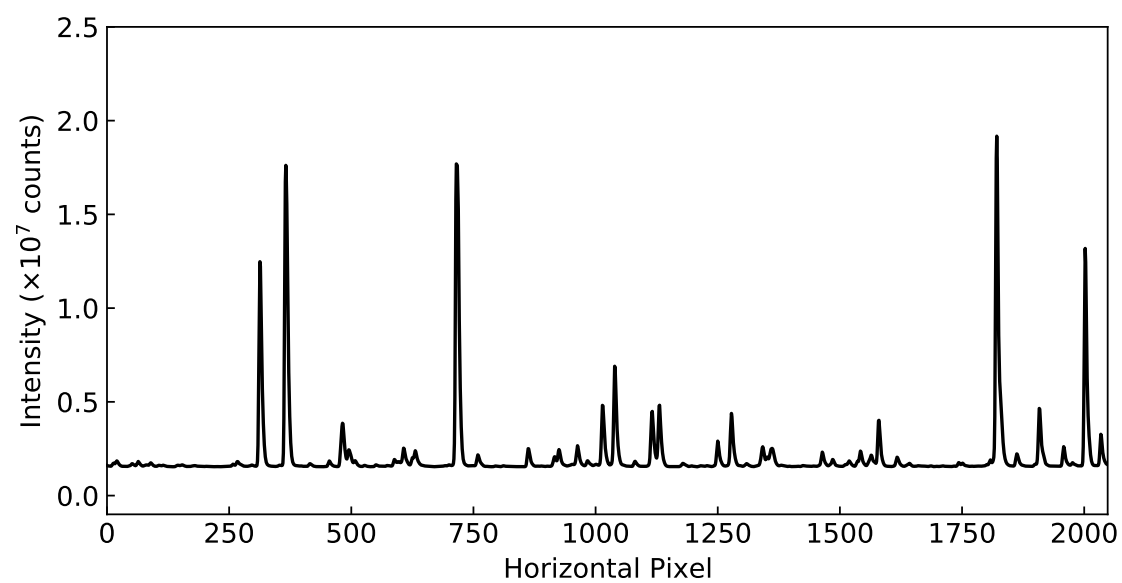


図6 図5の各画素のカウント数を縦に合計した図

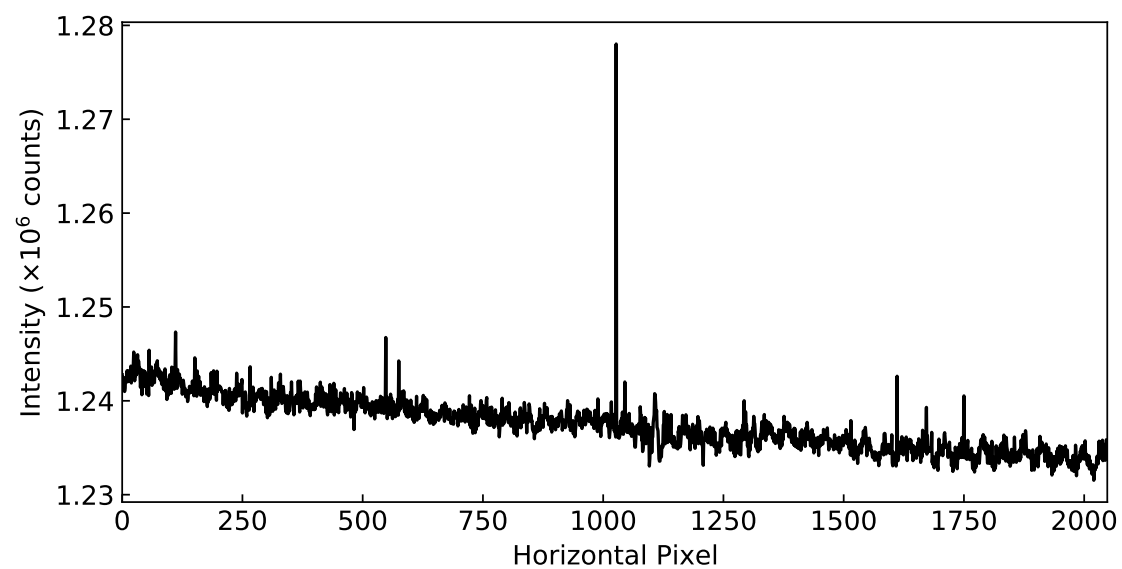


図7 プラズマを消した状態で得た画像の各画素のカウント数を縦に合計した図

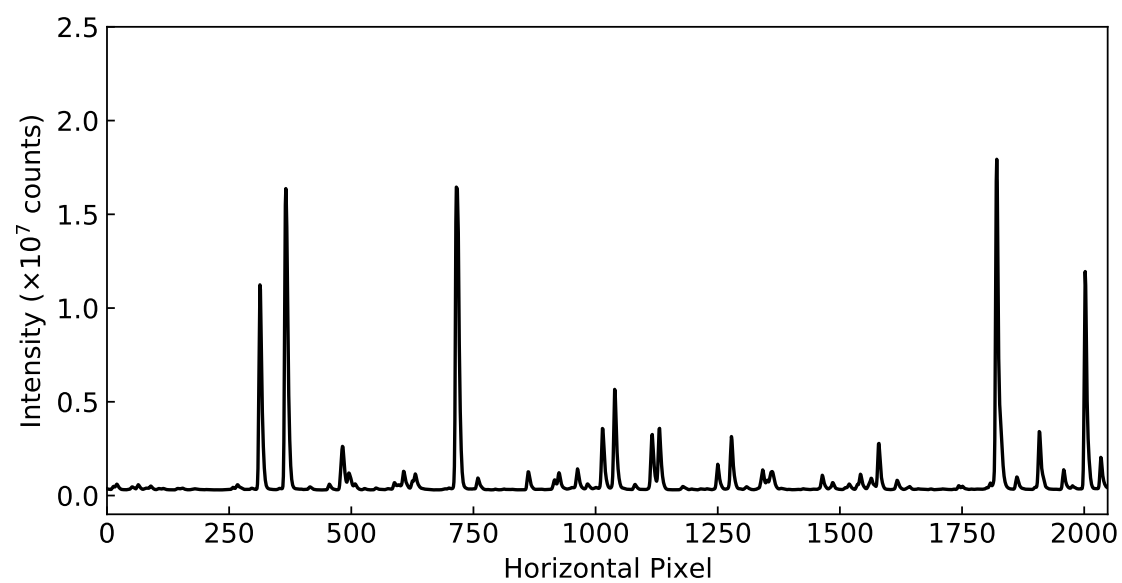


図8 図6のカウント数から図7のカウント数を減算した図

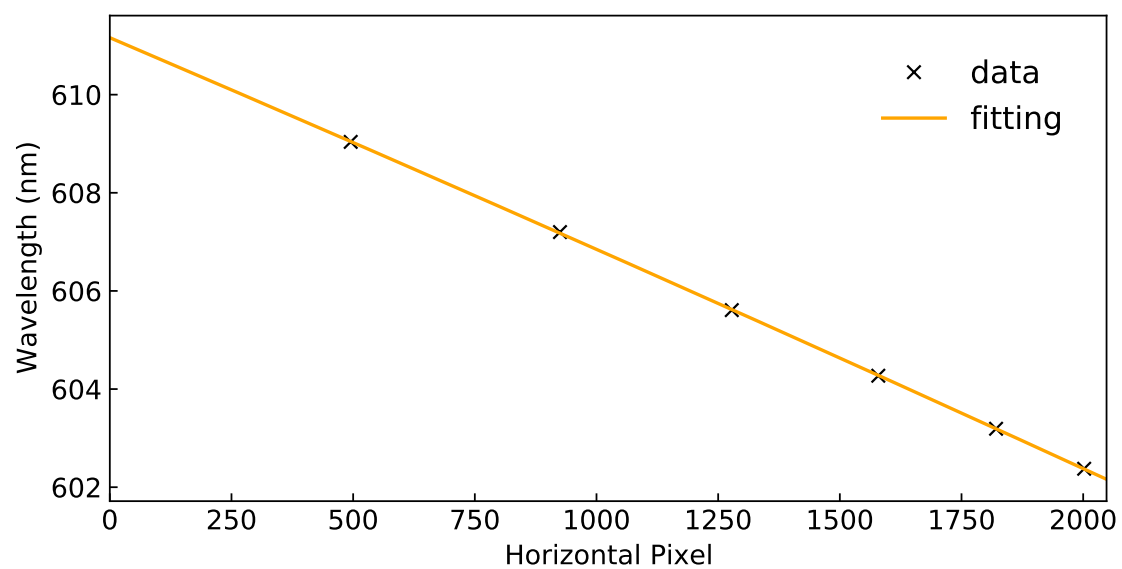


図9 ピクセルと波長の関係の例



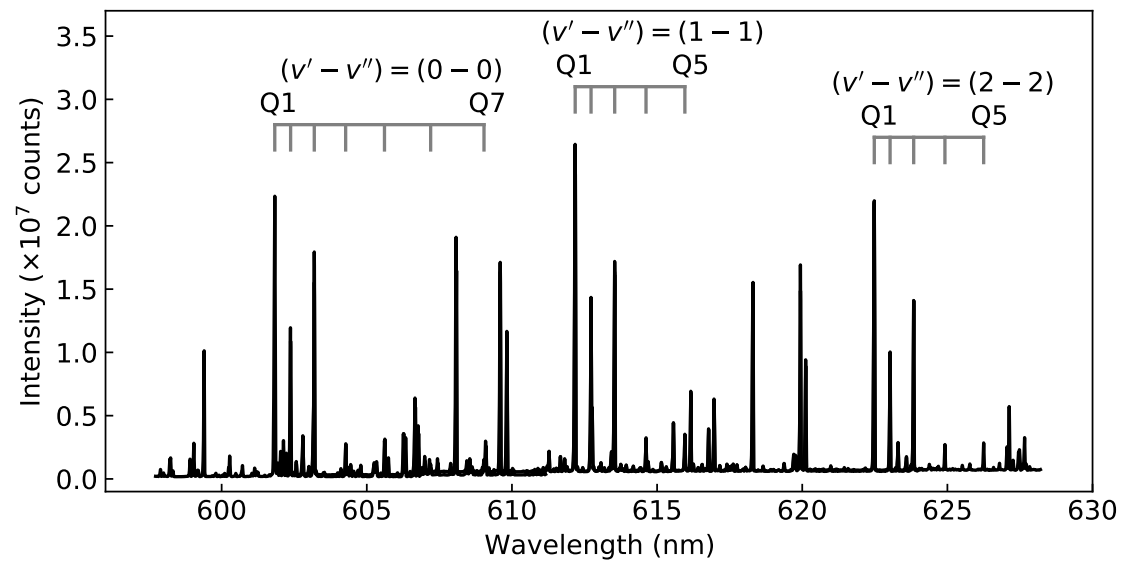


図 10 Fulcher- $\alpha$  帯 Q 枝発光スペクトル

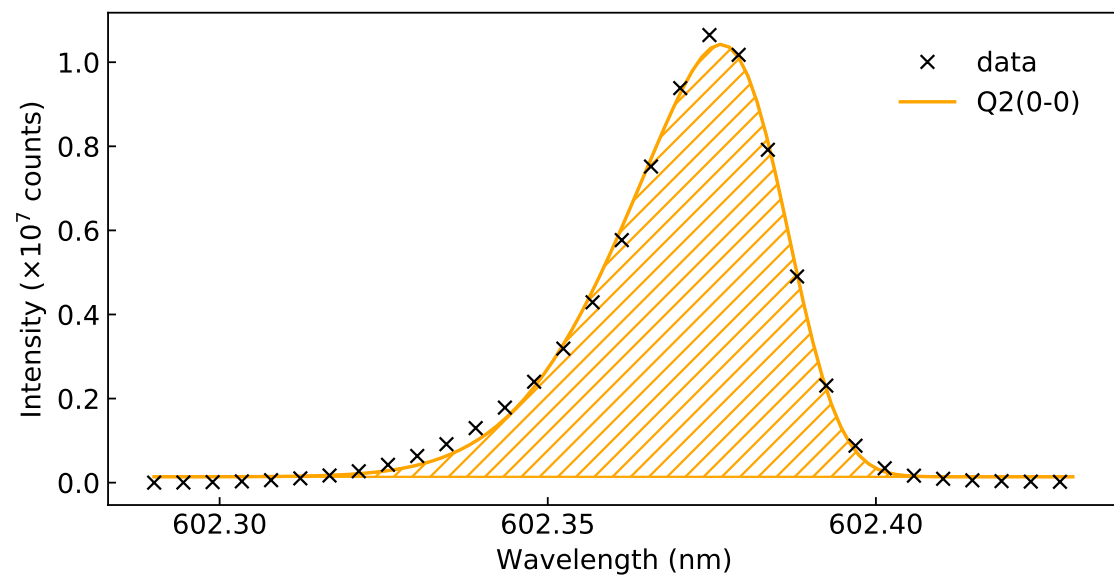


図 11 Q2(0-0) 発光線の歪正規分布関数によるフィッティング結果

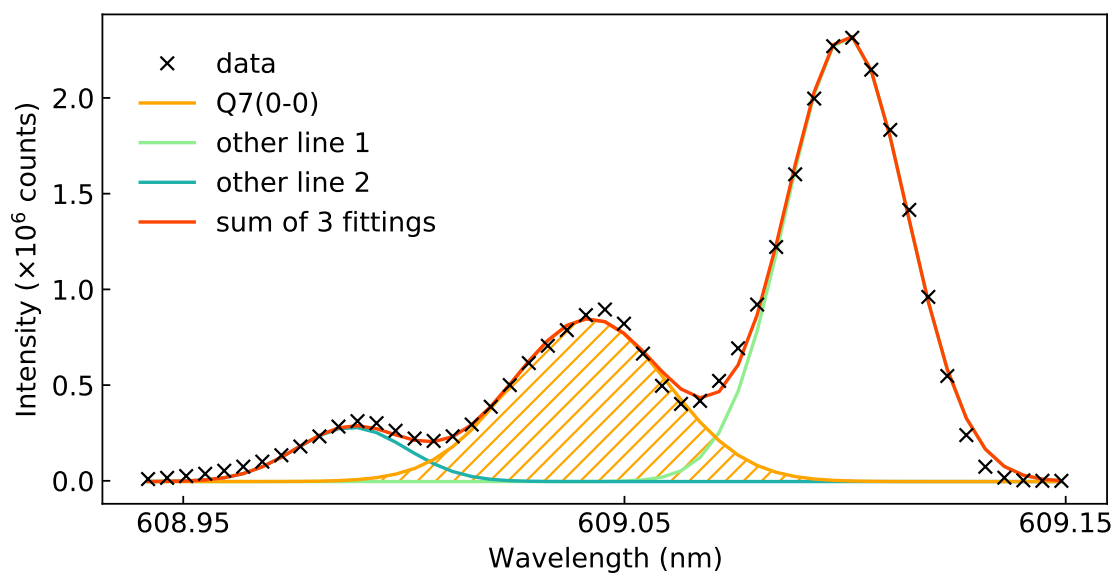


図 12 Q7(0-0) 発光線の歪正規分布関数フィッティングによる分離

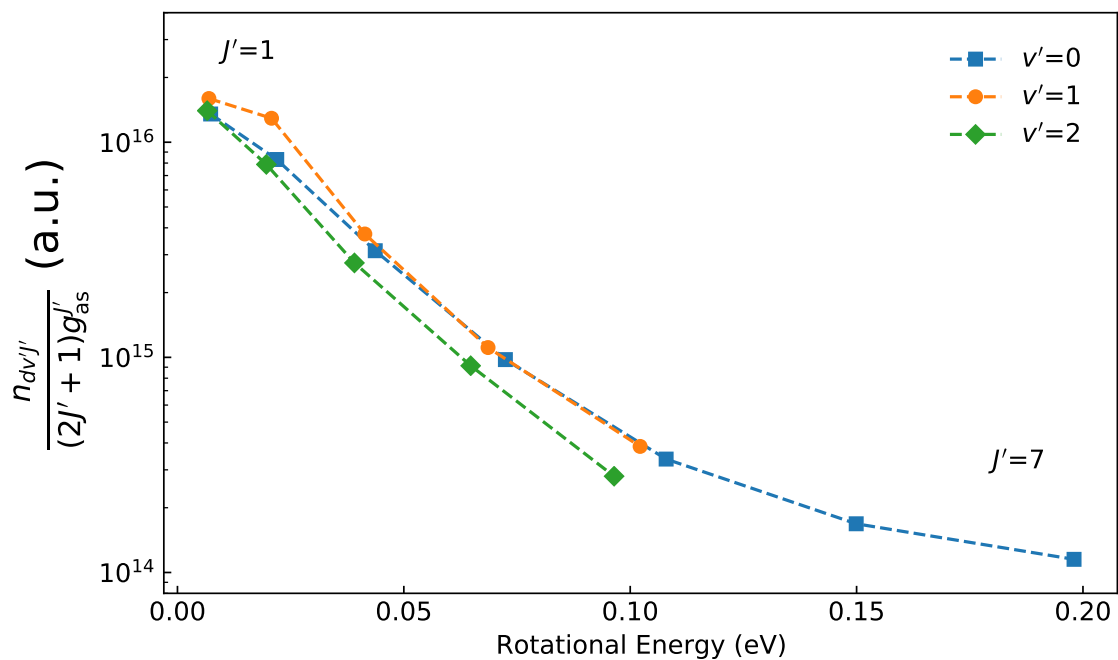


図 13 発光上準位における振動・回転状態占有率の回転エネルギー依存性

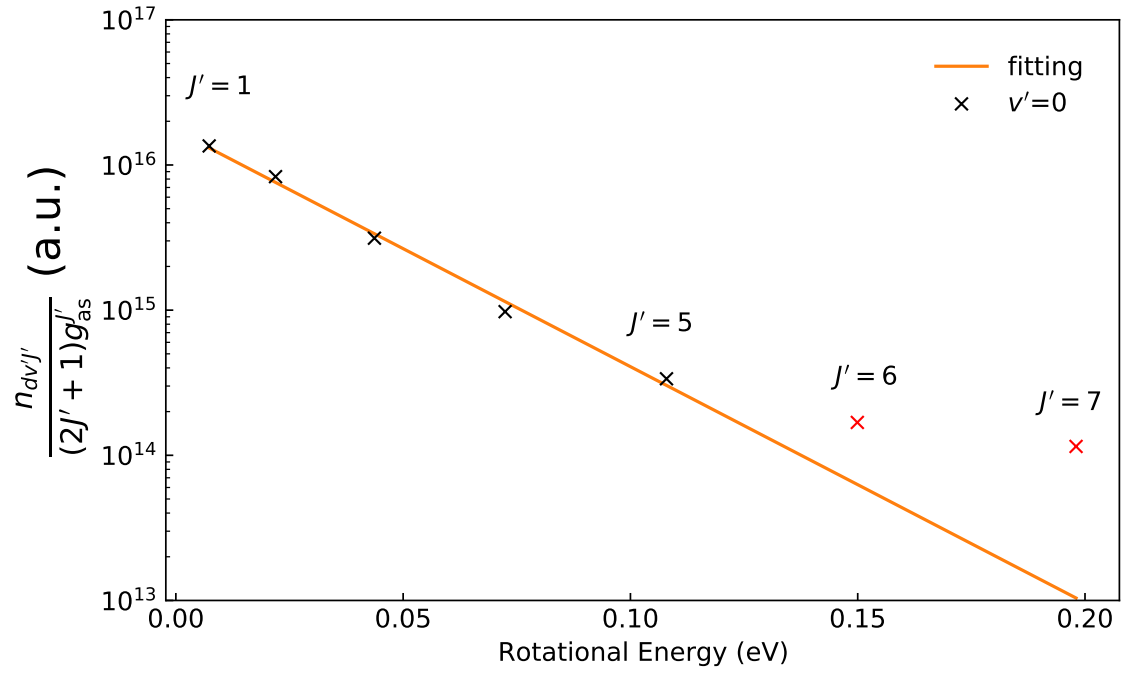


図 14 発光上準位における振動・回転状態占有率のボルツマン分布によるフィッティング結果 ( $v' = 0$ ). 直線状に並んでいるとみなせる  $J'=1-5$  のデータのみをフィッティングに使用した。

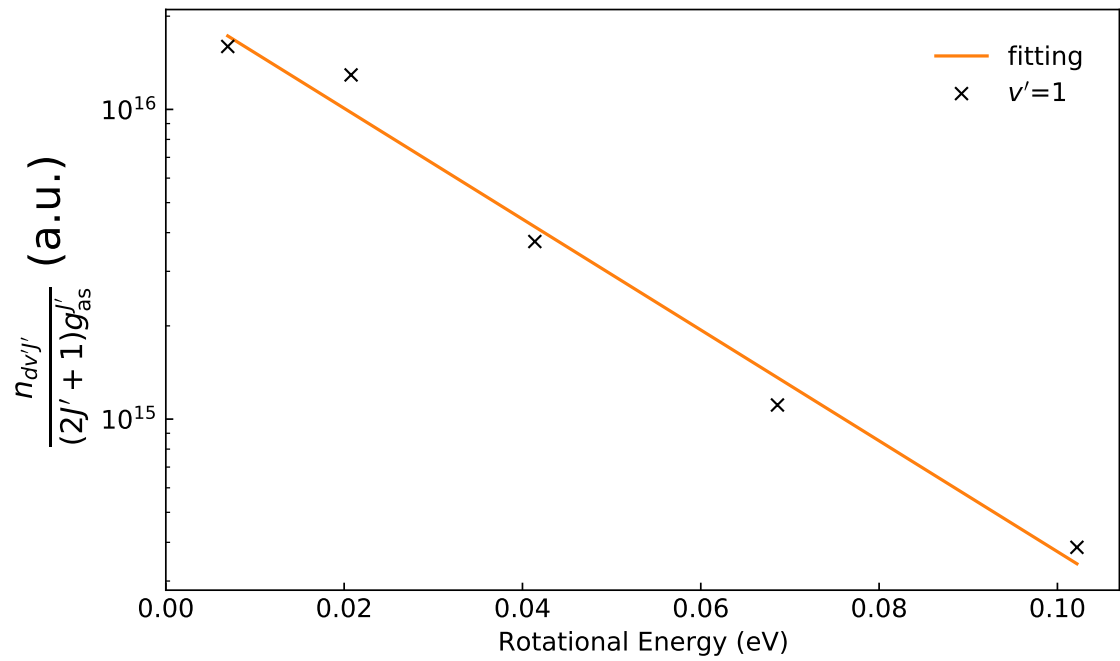


図 15 発光上準位における振動・回転状態占有率のボルツマン分布によるフィッティング結果 ( $v' = 1$ )

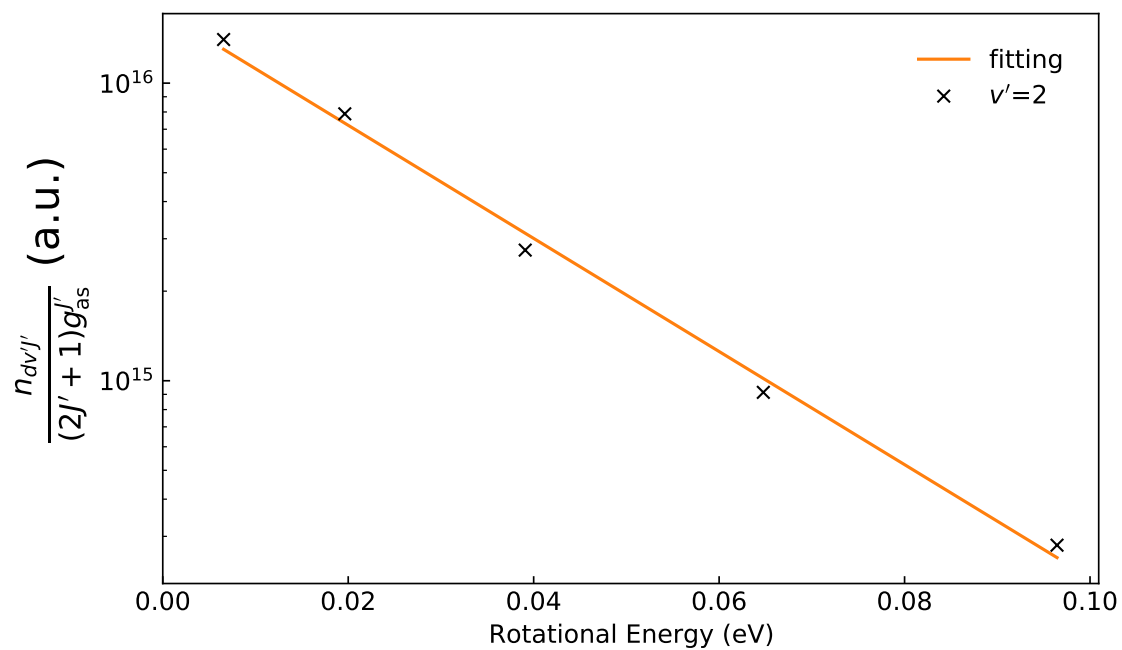


図 16 発光上準位における振動・回転状態占有率のボルツマン分布によるフィッティング結果 ( $v' = 2$ )

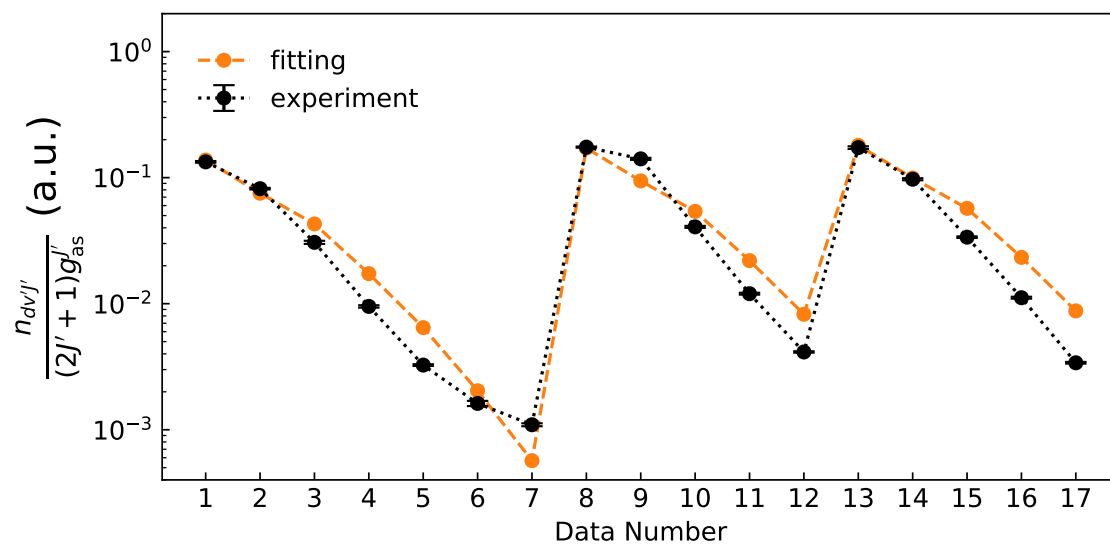


図 17 発光上準位における振動・回転状態占有率のコロナモデルによるフィッティング結果

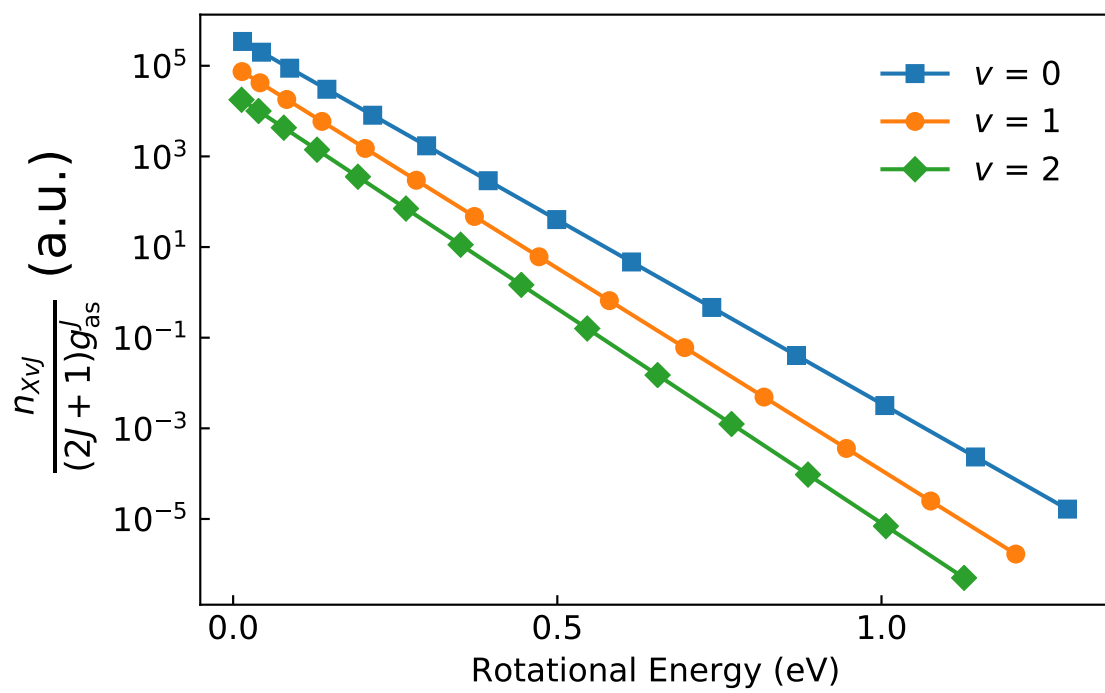


図 18 基底準位における振動・回転状態占有率の回転エネルギー依存性

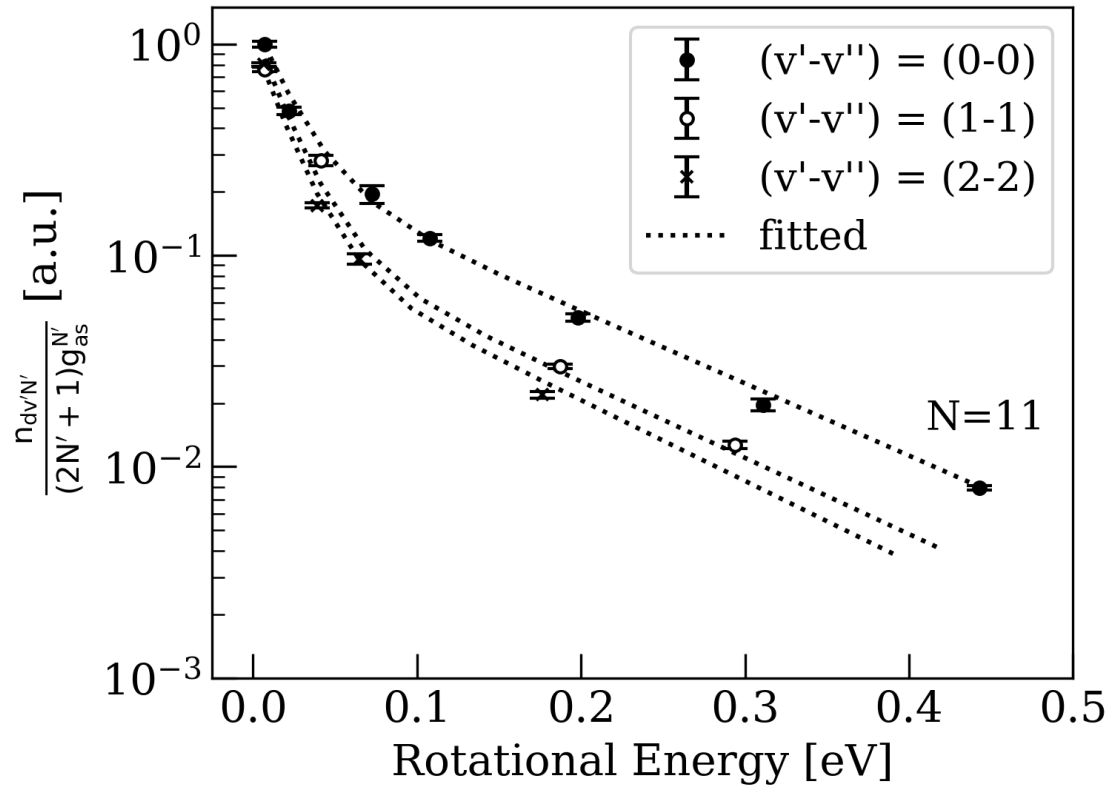


図 19 LHD での発光上準位における振動・回転状態占有数の回転エネルギー依存性とその 2 温度ボルツマン分布の和によるフィッティング結果 [2]. 図中の  $N'$ ,  $N$  はそれぞれ発光上準位及び基底準位の回転量子数であり, 本論文の  $J'$ ,  $J$  に対応する.

# 表目次

1	水素分子の分子定数 [5] . . . . .	29
2	CCD カメラの仕様一覧 [11] . . . . .	29
3	発光上準位の回転温度 . . . . .	29
4	基底準位の振動・回転温度 . . . . .	30
5	本研究対象のプラズマと LHD 周辺領域のプラズマ [2] との違い . . . . .	30
6	本研究対象のプラズマと LHD 周辺領域のプラズマ [2] における基底準位の振動・回転温度 . . . . .	30

表 1 水素分子の分子定数 [5]

準位	$D_e$ (cm <sup>-1</sup> )	$B_e$ (cm <sup>-1</sup> )	$\alpha_e$ (cm <sup>-1</sup> )	$\bar{\omega}_e$ (cm <sup>-1</sup> )	$\bar{\omega}_e\chi_e$ (cm <sup>-1</sup> )
$X^1\Sigma_g^+$ (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 [11]

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 $\mu$ 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

表 5 本研究対象のプラズマと LHD 周辺領域のプラズマ [2] との違い

	本研究対象のプラズマ	LHD 周辺領域のプラズマ
電子温度	7 eV	15 eV
電子密度	$10^{16} \text{ m}^{-3}$	$10^{18} \text{ m}^{-3}$

表 6 本研究対象のプラズマと LHD 周辺領域のプラズマ [2] における基底準位の振動・回転温度

	本研究対象のプラズマ	LHD 周辺領域のプラズマ
$T_{\text{vib}}^X$ (K)	4146	9200
$T_{\text{rot}}^{Xv}(v=0)$ (K)	621	480
$T_{\text{rot}}^{Xv}(v=1)$ (K)	565	450
$T_{\text{rot}}^{Xv}(v=2)$ (K)	532	430