

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 5 月 1 日現在

機関番号：13601
 研究種目：基盤研究（C）
 研究期間：2009 ～ 2012
 課題番号：21540508
 研究課題名（和文） 電子温度・密度および分子振動・回転温度計測のための
 水素分子衝突輻射モデルの構築
 研究課題名（英文） Construction of electronically and rovibrationally state-resolved
 collisional-radiative model of molecular hydrogen
 研究代表者
 澤田 圭司（SAWADA KEIJI）
 信州大学・工学部・教授
 研究者番号：40262688

研究成果の概要（和文）：電子・振動・回転状態を考慮した分子衝突輻射モデルを構築した。準位は、 n , v , Λ , N , J で区別し、 $n=6$ 以下の計 4133 の状態を考慮した。A 係数および電子衝突励起速度係数などの素過程データを調査し、モデルに組み込んだ。信州大の RF プラズマで観測される可視域 (380nm-800nm) 水素分子発光線を解析したところ、 $b^3\Sigma_u^+$ に遷移する連続光、および 560 nm から 640 nm の波長域で観測される $d^3\Pi_u - a^3\Sigma_g^+$, $j^3\Delta_g - c^3\Pi_u$, $i^3\Pi_g - c^3\Pi_u$ の発光線の強度は、計算によりよく再現された。これらの発光線強度から、振動・回転温度や電子温度・密度の算出が可能であることが示された。

研究成果の概要（英文）：We have developed a collisional-radiative model of molecular hydrogen in which the electronic, vibrational, and rotational states are resolved. The levels are labeled by n , v and Λ , N , J . The number of 4133 levels for $n < 7$ is considered. Emission intensities of the continuum to $b^3\Sigma_u^+$ and $d^3\Pi_u - a^3\Sigma_g^+$, $j^3\Delta_g - c^3\Pi_u$, $i^3\Pi_g - c^3\Pi_u$ bands in an RF plasma are well reproduced by this model with electron temperature and density determined from mixed helium atom emission intensities, and vibrational and rotational temperatures determined from $d^3\Pi_u - a^3\Sigma_g^+$ emission intensities. This indicates that these parameters can be determined by the model.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009 年度	3,500,000	1,050,000	4,550,000
2010 年度	300,000	90,000	390,000
2011 年度	400,000	120,000	520,000
2012 年度	400,000	120,000	520,000
総計	4,600,000	1,380,000	5,980,000

研究分野：プラズマ分光学

科研費の分科・細目：プラズマ科学

キーワード：水素分子、衝突輻射モデル、プラズマ診断

1. 研究開始当初の背景

核融合プラズマや実験室プラズマで計測される水素分子発光線の解析や EIRENE など

の中性粒子輸送コードで必要となる水素分子の各種反応の（励起状態を経由するものを含む）実効的速度係数や解離原子速度分布を

与えるため、我々は水素分子衝突輻射モデルの開発を行なっている。しかし、これまで構築したモデルでは電子状態、振動状態のみが区別されているため、分光計測で得られる分子スペクトルと直接比較できるようなスペクトルの計算ができない、水素分子に対する電子の解離性付着のように水素分子の回転始状態に速度係数が大きく依存する反応が正確に考慮されていない、などの問題があった。

2. 研究の目的

本研究では、電子状態・振動状態・回転状態を区別した水素分子衝突輻射モデルの開発を行う。これにより、計算で得られる水素分子スペクトルと、実験で得られる水素分子スペクトルとの直接的な比較により、電子温度・電子密度および水素分子の振動・回転温度が決定できるようにする。

3. 研究の方法

水素分子衝突輻射モデルの構築に必要な素過程データ（電子衝突励起などの各種反応の速度係数および自然放出確率）を調査し、水素分子衝突輻射モデルを構築する。次に我々の研究室の高周波水素放電プラズマを用いてモデルの検証を行う。

4. 研究成果

我々は、水素分子の発光線解析や中性粒子輸送コード中の各種の水素分子反応速度係数の算出のため、水素分子衝突輻射モデルの開発を進めている。従来は、電子・振動状態だけを区別していたが、水素分子の電子による解離性付着のように回転状態に大きく依存する反応を扱うため、本研究では、さらに回転状態を考慮したモデルの構築を行った。

準位は、 n, v, Λ, N, J で区別し、 $n=6$ 以下の計 4133 の状態を考慮した。図 1 は、 $n=4$ 以下の電子状態を示している。

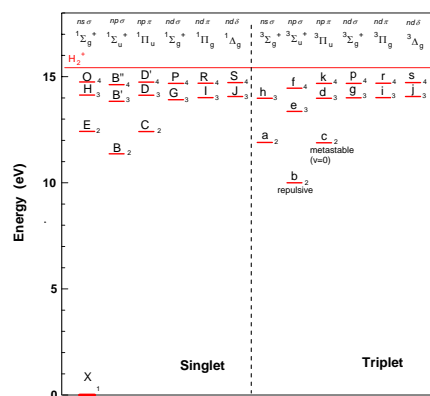


図 1 エネルギー準位図

$EF^1\Sigma_g^+$, $GK^1\Sigma_g^+$, $H^1\Sigma_g^+$, $B^1\Sigma_u^+$, $C^1\Pi_u$, $B^1\Sigma_u^+$, $D^1\Pi_u$, $I^1\Pi_g$, $J^1\Delta_g$ のエネルギー値は D.Bailey et al. (Molecular Physics **108**, 827, 2010) の値を用いた。これら以外で $n<5$ の準位のエネルギー値は H.M.Crosswhite (The Hydrogen Molecule Wavelength Tables of GERHARD HEINRICH DIEKE, John Wiley & Sons Inc, 1972) の値を用いた (Triplet は -149.6 cm^{-1} 補正)。 $n=5, 6$ の各準位のエネルギー値は電子状態のポテンシャルから計算した。

自然放出確率は、 $e^3\Sigma_u^+$ から $a^3\Sigma_g^+$ 、 $d^3\Pi_u$ から $a^3\Sigma_g^+$ 、 $i^3\Pi_g$ から $c^3\Pi_u$ 、 $j^3\Delta_g$ から $c^3\Pi_u$ 、 $I^1\Pi_g$ から $C^1\Pi_u$ 、 $J^1\Delta_g$ から $C^1\Pi_u$ については、S.A.Astashkevich et al. (J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer **56**, 725, 1996) の値を用いた。これら以外の自然放出確率は James K. G. Watson (Journal of Molecular Spectroscopy **252**, 5, 2008) に基づき計算した。 $X^1\Sigma_g^+$ および $b^3\Sigma_u^+$ に遷移する連続光の自然放出確率も計算し、モデルに組み込んだ。

電子基底状態 $X^1\Sigma_g^+$ から $B^1\Sigma_u^+$ 、 $B^1\Sigma_u^+$ 、 $B^1\Sigma_u^+$ 、 $C^1\Pi_u$ 、 $D^1\Pi_u$ 、 $D^1\Pi_u$ への電子衝突励起断面積は R.Celiberto et al. (Atomic Data and Nuclear Data Tables **77**, 161, 2001) の電子・振動状態が区別された値を用いた。 $X^1\Sigma_g^+$ からその他の準位への電子衝突励起断面積は R.Janev et al. (Report Forschungszentrum Jülich JUEL4105, 2003) の値を使い、不足分は

W.T.Miles et al. (J. Appl. Phys. **43**, 678, 1972) の値を用いた。 $X^1\Sigma_g^+$ から $d^3\Pi_u$ への励起には、G.R.Möhlmann et al. (Chem. Phys. Letters **43**, 240, 1976) の値を用いた。振動・回転状態を区別するため、断面積が Franck-Condon 因子に比例すると仮定し、さらに、回転状態の遷移に際し、a, s 対称性が保たれるように、N の変化は0、または ± 1 と仮定した。励起状態間の電子衝突励起断面積はヘリウム原子の断面積から推定した。

その他、水素分子同士の衝突による回転状態励起、プロトンとの電荷交換、解離性電子付着の断面積も組み込んだ。

モデルの検証のため、我々の研究室の高周波プラズマ (図2および図3) の水素分子の発光線解析を行った。ヘリウム原子発光線強度から電子温度・密度を算出するために水素ガス40 sccmにヘリウムガス40 sccmを混合してRFプラズマ(13.56 MHz)を生成し、エシエル分光器を用い、380 nm - 800 nmの分光計測を行った。

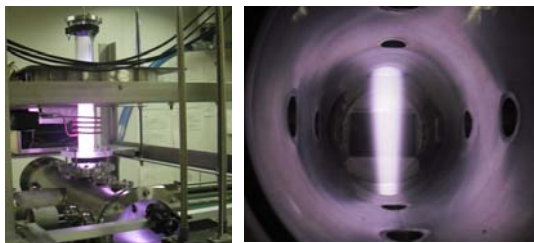


図2 RF放電装置

図3 分光計測窓から見たプラズマ

ヘリウム原子発光線強度から得られた電子温度3.25 eV、電子密度 $5 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ および水素分子Fulcher band ($d^3\Pi_u - a^3\Sigma_g^+$) 発光線強度から水素分子衝突輻射モデルにより算出した電子基底状態の振動温度4500 K、回転温度350 Kを水素分子衝突輻射モデルに与えて水素分子スペクトルを計算した。図4に結果を示す。図5(a)-(g)は、可視域における計算結果と実験結果の比較の例である。赤色は実験結果、青色は計算結果を表している。

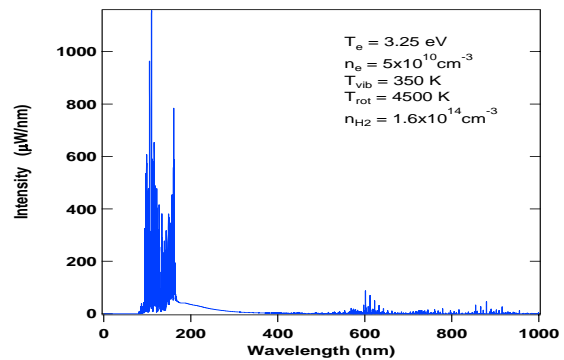


図4 水素分子スペクトルの計算結果

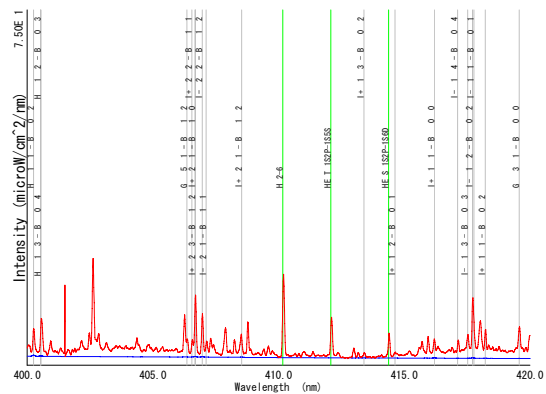


図5 (a) 計算と実験の比較(400nm - 420nm)

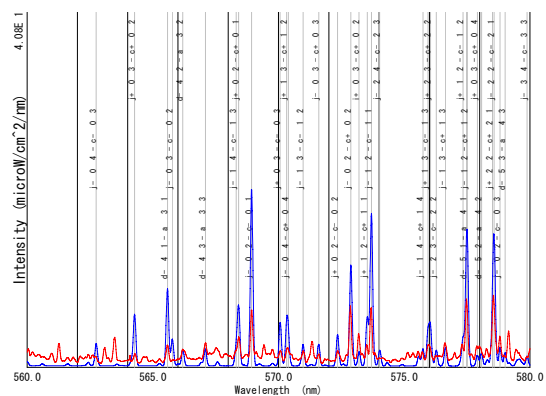


図5 (b) 計算と実験の比較(560nm - 580nm)

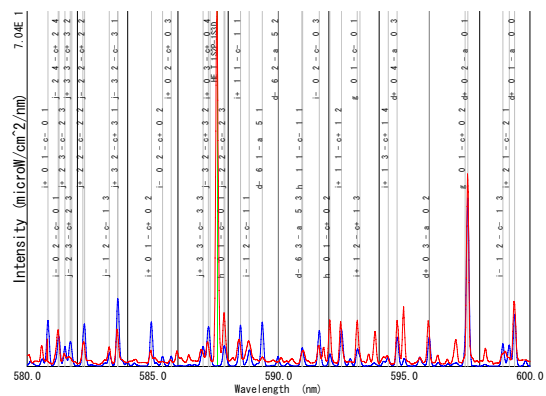


図5 (c) 計算と実験の比較(580nm - 600nm)

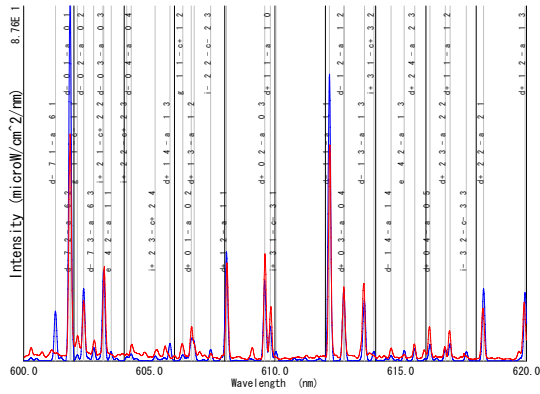


図 5 (d) 計算と実験の比較 (600nm - 620nm)

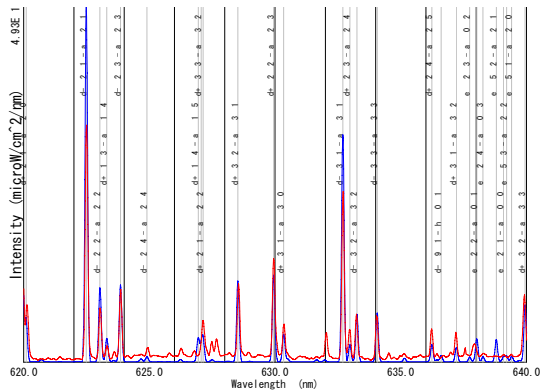


図 5 (e) 計算と実験の比較 (620nm - 640nm)

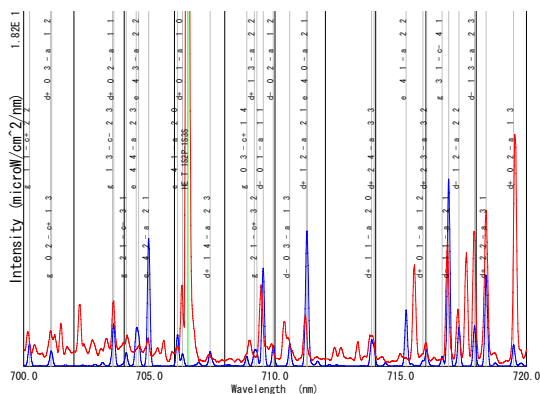


図 5 (f) 計算と実験の比較 (700nm - 720nm)

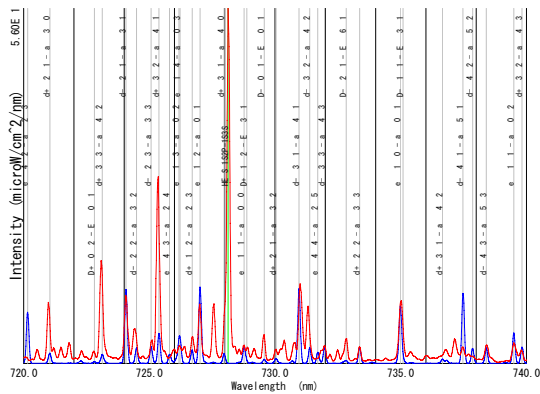


図 5 (g) 計算と実験の比較 (720nm - 740nm)

400 nmから420 nmまでの図 5 (a)に示される $b^3\Sigma_u^+$ 状態に遷移する連続光、および560 nmから640 nmまでの図 5 (b)-(e)に示される $d^3\Pi_u - a^3\Sigma_g^+$ 、 $j^3\Delta_g - c^3\Pi_u$ 、 $i^3\Pi_g - c^3\Pi_u$ の強度は、計算は概ね実験を再現した。これらの相対的な強度分布を、電子温度を変えて計算したところ、図6(a)および図6(b)のように、相対的な強度分布は、実験でも識別できる程度、変化することがわかった。分子発光線強度から電子温度を算出できることが示された。

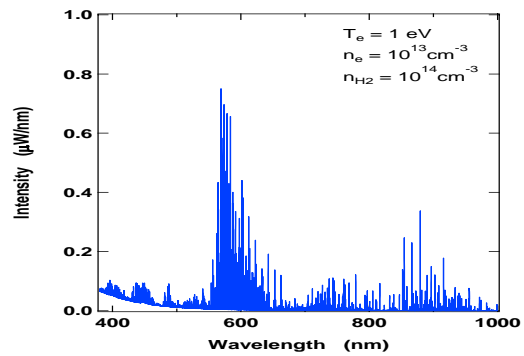


図 6 (a) スペクトル計算：電子温度1 eV

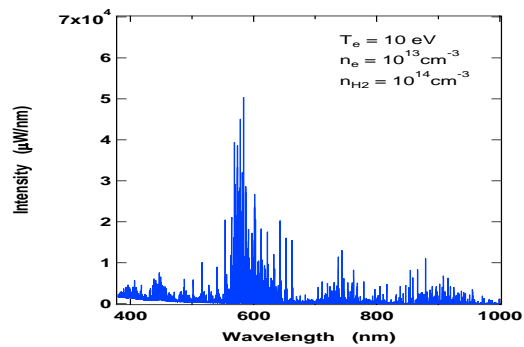


図 6 (b) スペクトル計算：電子温度10 eV

これら以外の分子発光線の強度は、525 nm付近より長波長側では、計算は実験をまずまず再現しているが、これより短波長側では、400 nmから420 nmまでの図 5 (a)のように、連続光を除いて、計算は実験よりあきらかに小さな値になっている。励起断面積の信頼性、輻射輸送の影響、準安定状態の準定常近似の成立、などの検討を今後進めていく。

これまで述べた以外では、水素分子衝突幅

射モデルの構築および分子発光線解析の予備的・関連研究として、水素分子と同様の電子状態をもつヘリウム原子の発光線解析の研究を行い、また、分子励起状態間の電子衝突励起断面積の推定を目的として、水素原子電子衝突励起断面積の計算コード開発に着手した。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 3 件)

① K. Sawada, M. Goto, N. Ezumi, Spectroscopic diagnostic of helium-hydrogen rf plasma under the influence of radiation trapping, Plasma and Fusion Res. 6, 1401010-1-9, 2011. 6, 査読有
DOI: 10.1585/pfr.6.1401010

② M. Goto, K. Sawada, K. Fujii, M. Hasuo, S. Morita, Evaluation of hydrogen atom density in the plasma core region based on the Balmer- α line profile, Nucl. Fusion. 51, 023005-1-7, 2011. 2, 査読有
DOI: 10.1088/0029-5515/51/2/023005

③ K. Sawada, Y. Yamada, T. Miyachika, N. Ezumi, A. Iwamae, M. Goto, Collisional-radiative model for spectroscopic diagnostic of optically thick helium plasma, Plasma and Fusion Res., 5, 001(1-7), 2010, 査読有
DOI: <http://dx.doi.org/10.1585/pfr.5.001>

[学会発表] (計 10 件)

① K. Nakane, K. Sawada, Time-dependent calculation for electron impact excitation of atomic hydrogen, ISPlasma2013, 2013. 1. 30, 名古屋大学

② 中根啓太, 澤田圭司, 鈴木敬弘, 服部 賢, 出井 諒, 時間依存シュレディンガー方程式による水素原子電子衝突励起断面積の計算, プラズマ・核融合学会第 29 回年会, 2012. 1. 30, クローバープラザ (福岡県春日市)

③ 谷口和成, 澤田圭司, 田平基樹, 八代崇憲, 電子・振動・回転状態を考慮した水素分子衝突輻射モデルの構築, プラズマ・核融合学会第 29 回年会, 2012. 1. 30, クローバー

プラザ (福岡県春日市)

④ 出井諒, 澤田圭司, 後藤基志, 中性粒子輸送コードを用いた LHD プラズマの水素原子・分子発光線解析, プラズマ・核融合学会第 29 回年会, 2012. 1. 30, クローバープラザ (福岡県春日市)

⑤ 八代崇憲, 大野哲靖, 梶田信, 澤田圭司, ダイバータプラズマ模擬実験装置における水素分子発光線解析, プラズマ・核融合学会第 29 回年会, 2012. 1. 30, クローバープラザ (福岡県春日市)

⑥ 加蔵新之輔, 澤田圭司, 中根啓太, 竹内研人, 出井諒, 江角直道, 後藤基志, 水素分子衝突輻射モデルの構築, PLASMA2011, 2011. 11. 22, 石川県立音楽堂

⑦ 小田敏充, 澤田圭司, 小島宗太, 八代博崇, 八代崇憲, 谷口和成, 鶴田裕人, 江角直道, 後藤基志, 水素・ヘリウム衝突輻射モデルによる発光線解析, PLASMA2011, 2011. 11. 22, 石川県立音楽堂

⑧ K. Sawada
Revision of Collisional-Radiative Models and Neutral-Transport Code for Hydrogen and Helium Species, IAEA first Research Coordination Meeting on Atomic and Molecular Data for State-Resolved Modelling of Hydrogen and Helium and Their Isotopes in Fusion Plasma, 2011. 8. 10, IAEA Headquarters, Vienna, Austria

⑨ 神戸優, 澤田圭司, 加蔵新之輔, 八代博崇, 中根啓太, 後藤基志, 江角直道, 水素分子衝突輻射モデルの構築, プラズマ・核融合学会第 27 回年会, 2010. 12. 1, 北海道大学

⑩ 福富健太, 栗山大, 山口望, 小田敏充, 横山文哉, 榊孝也, 小島宗太, 澤田圭司, 後藤基志, 江角直道, 水素・ヘリウム混合プラズマの分光診断, プラズマ・核融合学会第 27 回年会, 2010. 12. 1, 北海道大学

6. 研究組織

(1) 研究代表者

澤田 圭司 (SAWADA KEIJI)
信州大学・工学部・教授
研究者番号: 40262688

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし