

197



博士論文

放電現象の分光診断法に関する研究

平成3年12月20日

指導教官 河野照哉教授
日高邦彦助教授

提出者 東京大学大学院工学系研究科電気工学専攻
学籍番号 97077
濱田昌司

目次

第1章 緒言	1
第2章 序論 放電における発光現象	3
2-1 まえがき	3
2-2 N ₂ および希ガスの発光スペクトル	4
2-2-1 N ₂ のスペクトルと分子構造	4
2-2-2 Arのスペクトルと原子構造	7
2-3 電子エネルギー分布と放射レート	8
2-3-1 電子エネルギー分布と断面積	8
2-3-2 ボルツマン方程式による電子エネルギー分布解析	12
2-3-3 スオームパラメータ	14
2-3-4 レート方程式解析	16
2-4 振動・回転温度と放射スペクトル	20
2-4-1 振動温度と放射スペクトル	20
2-4-2 回転温度と放射スペクトル	24
2-5 まとめ	26
参考文献	28
第3章 実験装置	29
3-1 放電管、放電用電源、放電管の駆動系	30
3-2 分光器とフォトンカウンタ	33
3-3 プローブバイアス電源と測定系	35
3-4 排気系	36
3-5 光源	37
第4章 電界強度・電子密度の推定法とその校正法	38
4-1 はじめに	38
4-2 推定法と校正法	39
4-2-1 放射レート解析	39
4-2-2 電界強度・電子密度の分光推定法	43
4-2-3 電界強度および電子密度の推定法の校正法	45
4-2-3-1 校正手法の検討	45
4-2-3-2 放射レートの実測法	46
4-2-3-3 放射レート解析手法の妥当性	46
4-2-3-4 B ³ Πgの脱励起反応係数の校正	46
4-2-3-5 レート方程式解析結果	48
4-2-4 陽光柱理論	50
4-2-4-1 陽光柱理論の必要性	50

4-2-4-2 基本式	50
4-2-4-3 数値計算手法	51
4-2-4-4 陽光柱理論の評価	52
4-3 実験・計算結果および考察	55
4-3-1 グロー放電陽光柱の分光計測	55
4-3-2 グロー放電陽光柱端の分光計測	58
4-3-3 グロー放電陰極近傍の分光計測	61
4-3-4 針-平板電極での分光計測	64
4-4 まとめ	68
参考文献	69
第5章 振動温度の推定法	
5-1 はじめに	71
5-2 振動温度の理論計算	72
5-2-1 振動温度の理論計算法の概要	72
5-2-2 N ₂ (X ¹ Σ _g ⁺) の基本衝突過程	73
5-2-2-1 N ₂ (X ¹ Σ _g ⁺) の構造	73
5-2-2-2 衝突過程	74
5-2-3 支配方程式とその解析方法	75
5-2-4 数値計算結果	76
5-2-4-1 電子密度の影響	76
5-2-4-2 ガス温度の影響	79
5-2-4-3 電子温度の影響	83
5-2-4-4 Onoの実験値との比較	83
5-3 振動温度の分光推定法	88
5-3-1 推定理論	88
5-3-2 実験結果と検討	90
5-4 まとめ	93
参考文献	94
第6章 ガス温度の推定法	
6-1 はじめに	95
6-2 ガス温度の分光推定法	96
6-2-1 ガス温度の分光推定法の原理	96
6-2-2 SP02の計測による推定法	98
6-2-3 FN00の計測による推定法	99
6-2-4 FP20の計測による推定法	100
6-2-4-1 波長、強度公式	100
6-2-4-2 ガス温度推定法	105
6-3 ガス温度の理論計算	110

6-4 実験・計算結果および考察	112
6-5 まとめ	114
参考文献	115
第7章 プローブガスによる分光診断法	116
7-1 はじめに	116
7-2 プローブガスの選定	117
7-3 Arの混入による分光診断法	119
7-3-1 スペクトルの選定	119
7-3-2 Arの混入率の決定	122
7-3-3 分光計測結果とその校正	124
7-4 まとめ	131
参考文献	131
第8章 結言	132
著者発表文献	135
謝辞	136

第1章 緒言

放電空間内の電子密度、電子エネルギー分布、電界強度、振動温度、回転温度といったプラズマパラメータの診断技術は、放電基礎過程の研究に必須なものであることはいうまでもなく、さらに近年ではレーザやプラズマプロセス等のプラズマ応用技術の基盤技術としてもその重要性は高まっている。

プラズマ診断法には単探針法をはじめとして様々な手法が存在し、長い研究の歴史を持つことは周知のことであるが、当然のことながらどの方法にも長所・短所があり、完璧な診断手法なるものは未だ存在しない。

本研究では、数あるプラズマ診断法の中で、分光計測による診断手法を取り扱う。分光診断法は測定装置系がシンプルで計測も容易なうえ、原理的に測定対象に全く擾乱を与えないという長所を持つ反面、間接測定法である故に推定値の精度は一般に低いという短所を持つ。この短所を克服し分光計測によるプラズマ診断法の高精度化を目指すとともに、分光診断法のさらなる可能性を模索することで、プラズマ診断技術の進歩に寄与することが本研究の目的である。

本論文では、実験としては分光計測に加えて単探針による計測も行われている。理論としては分光診断理論に関する計算に加えて、別途プラズマパラメータの理論解析も行っている。これらを総合することで、実験・理論の両面から分光診断手法の改良に取り組んだ。このような方針から、プローブ測定や陽光柱理論によってもプラズマ諸量を決定できる低気圧グロー放電陽光柱を対象として選んだ。供試ガスには、実用上重要で基礎データが充実している窒素を主に取り扱うこととし、プローブガスとしては希ガスを用いることとした。

本論文の構成は以下のようである。第2章・序論では、「放電における発光現象」と題し、放電に見られる発光スペクトルと原子・分子の構造について解説し、さらに、放射強度の理論計算手法についても解説を行う。第3章は実験装置の紹介である。第4章では電界強度・電子密度の分光推定法とその校正法について述べるとともに、この校正に使用する陽光柱理論についても述べる。第5章では、振動温度の分光推定法について述べるとともに、振動温度の理論計算結果についても述べる。第6章では回転温度の分光推定法について述べるとともに、回転温度の理論計算結果についても述べる。第7章では、プローブガスを用いた分光診断法について、得られた成果を述べる。第8章は結言であり、本研究の成果と今後の展望をまとめる。

なお、「プラズマ」という名称は非常に幅の広い電離気体の状態を総称するものであるので、誤解の無いように、本研究で対象としたプラズマとはどのようなものであるかを表1に銘記する。また、本研究の概要を把握するのに便利なように、各研究の位置づけを表2に略記する。

表 1. 本研究の対象とするプラズマ

1. コロナモデルを用いる場合

- ・電子衝突励起は基底準位からの励起が主である弱電離プラズマである。
- ・解離原子が少ない、またはその影響が小さい低エネルギー-プラズマである。

2. ボルツマン方程式の解を電子エネルギー-分布として仮定する場合

- ・電子間のクーロン相互作用が無視できる程度の弱電離プラズマである。
- ・解離原子が少ない、またはその影響が小さい低エネルギー-プラズマである。
- ・流動平衡状態のプラズマである。

3. 本研究での実験条件

- ・電子密度 : $10^8 \sim 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ 程度である。
- ・ガス圧 : 0.2 ~ 10 Torr 程度である。
- ・電子温度 : 数 eV 程度である。

表 2. 各研究の位置づけ

測定対象	計測	分光計測理論	その他の理論
電界強度 (電子温度)	P · S	放射レート解析 強度比法 <u>校正法</u>	陽光柱理論 ボルツマン方程式解析
電子密度	P · S	放射レート解析 <u>校正法</u>	陽光柱理論 ボルツマン方程式解析
振動温度	S	振動系列スペクトル強度	振動準位レート解析
回転温度	S	回転系列スペクトル強度	熱拡散方程式
電子エネルギー-分布	P · S.	プローブガス (可能性有り)	ボルツマン方程式解析

P : プローブ計測、S : 分光計測を意味する。

アンダーバー（実線）：新手法を得た分野

アンダーバー（破線）：改良、修正を行った分野

第2章 序論 放電における発光現象

2-1 まえがき

放電に見られる発光現象は、気体原子・分子が電子衝突励起で得た内部エネルギーを光として放出する現象にほかならない。放出されたスペクトルは、気体原子・分子の構造に応じた特有の波長分布を示すとともに、励起反応を引き起こした電子群の密度・エネルギーおよび気体原子・分子の内部エネルギーに応じた波長強度分布を示すことになる。受動分光測定によるプラズマ診断とは、測定されたスペクトル強度分布から逆に電子群および気体原子・分子の状態を推定することである。

基本思想は以上のように、定性的には極めて単純なものである。しかし当然のことながら、この診断法を定量的に精度の良い測定法にまで高めるためには、多くの困難が伴う。本章では、放電における発光現象に関連する基本事項について簡単に解説を行うとともに、本研究の基礎となる数値データ等を集め、以下の研究の足がかりを構築する。

2-2 節においては、本研究で使用したN₂、Arの分子・原子構造と放射スペクトルについてまとめた。

2-3 節では、電子エネルギー分布と放射強度分布との一般的な関係を示すとともに、N₂の放射強度分布と電子エネルギー分布との関係を、コロナモデルを用いてレート方程式により決定する手法についても解説を行う。また、電子エネルギー分布とスオームパラメータのボルツマン方程式に基づく理論解析結果についても簡単に説明する。

2-4 節では、分子の内部エネルギーである振動・回転温度が放射スペクトル波形に及ぼす効果を解説する。

以上の内容のほとんどは、諸氏の研究の成果であるのは言うまでもないが、本研究の基礎事項として必要不可欠な内容であるので序論としてまとめたものである。

2-2 N₂および希ガスの発光スペクトル

2-2-1 N₂のスペクトルと分子構造

N₂の主要な電子準位の模式図を図2-1に示す。特定の電子準位間の遷移による発光スペクトル群は「システム」と呼ばれるグループを形成しており、この図でも明らかなように非常に多種のシステムが存在する。さらに、詳しい文献(1)によると約40種のシステムが報告されている。しかし、通常の放電による発光で、かつ、可視領域に近い領域で明瞭に観測可能なシステムは、

- N₂ Second Positive System (以下SPと略)

遷移 : N₂C¹Π_u → N₂B¹Π_g 、波長領域 : 268-546nm (図2-2参照)

- N₂ First Positive System (以下FPと略)

遷移 : N₂B¹Π_g → N₂A¹Σ_u⁺ 、波長領域 : 478-2531nm (図2-3参照)

- N₂⁺ First Negative System (以下FNと略)

遷移 : N₂⁺B²Σ_u⁺ → N₂⁺X²Σ_g⁺ 、波長領域 : 286-587nm (図2-4参照)

の3種類のみである。なおこの他に、

- N₂ Gaydon-Herman Singlet System

遷移 : N₂¹Σ_u⁺ → N₂a¹Π_g 、波長領域 : 222-367nm (図2-5参照)

- N₂⁺ Meinel System

遷移 : N₂A²Π_u → N₂X²Σ_g⁺ 、波長領域 : 550-1770nm (図2-6参照)

も極微弱ながら観測可能であることを確認している。

N₂は分子であるから、各システムはバンドスペクトルである。分子がバンドスペクトルを放射するのは、各電子準位が分子の振動・回転による微細な準位を持つためである。つまり、各電子準位はさらに多数の振動準位に分解でき、その振動準位の各々もさらに微細な回転準位に分解できるのである。バンドスペクトルの特徴は、

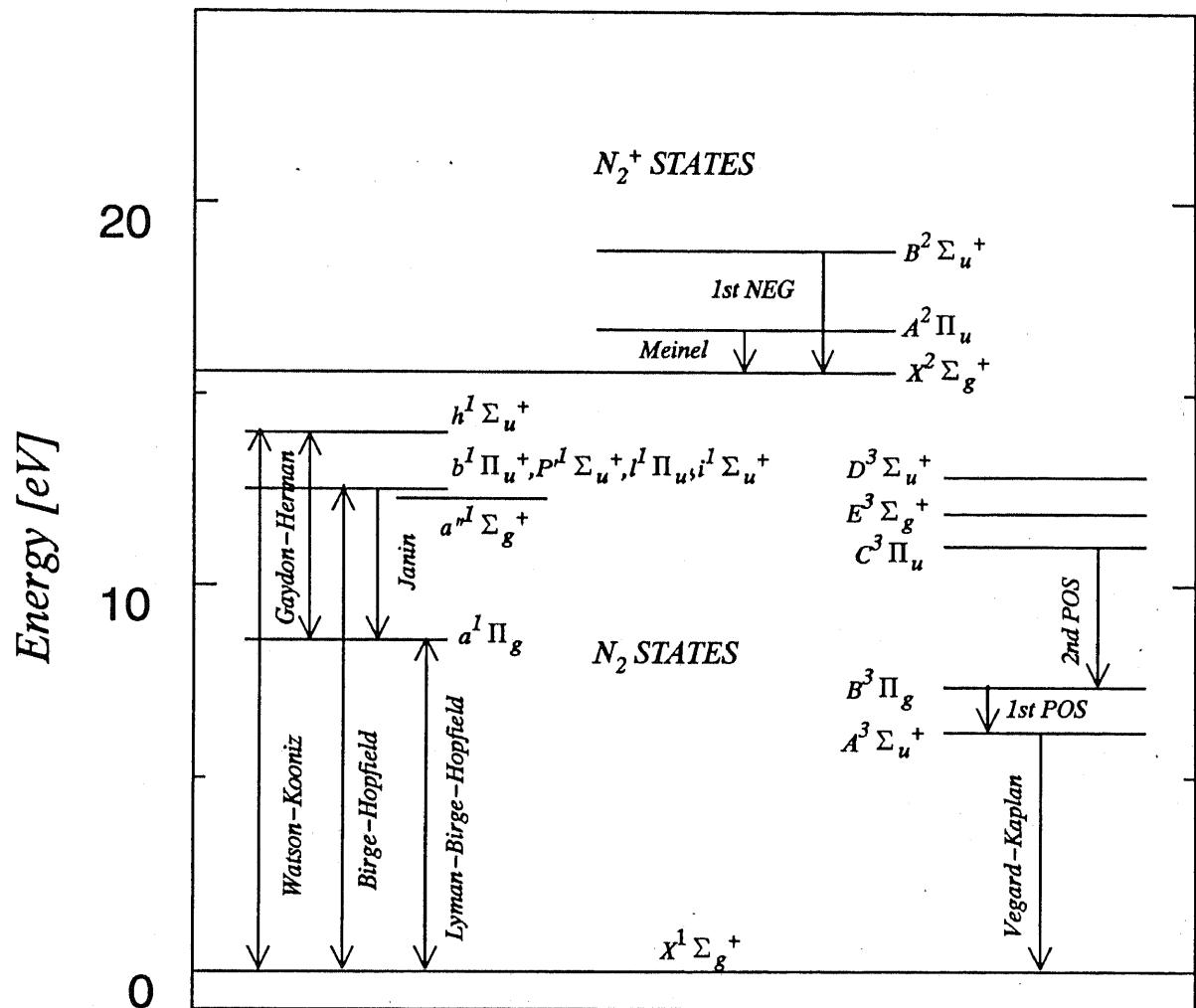
(1) ひとつ(見える)の発光線が広がりをもつ。

(2) 同じ形の発光線が多数見られる。

であるが、(1)は多数の回転準位の存在が、(2)は多数の振動準位の存在がそれぞれ原因である。(1)の広がりをもつ発光線は実は多数のライインスペクトルが密集して存在するため、分解能の低い分光器ではこれを分解できないために、重なり合ってつぶれたスペクトル波形を観測することになるからである。振動・回転準位がスペクトル波形に与える効果については2-4節に詳しく述べる。

なお、(1)で言う一塊の発光を他と区別するため、システム名の後に上位電子準位の振動準位と下位電子準位の振動準位を順に付けて呼ぶのが習慣である。

また、分子の電子準位を表す記号の詳細は文献(2)(3)を参考にされたい。ここでは、ΣΠΔ…という記号が、SPD…のギリシャ文字であり、原子のSPD…軌道に対応するものを、ΣΠΔ…軌道と呼んでいることを指摘しておくにとどめる。



Energy level diagram for N_2

図2-1 窒素の主要な電子状態

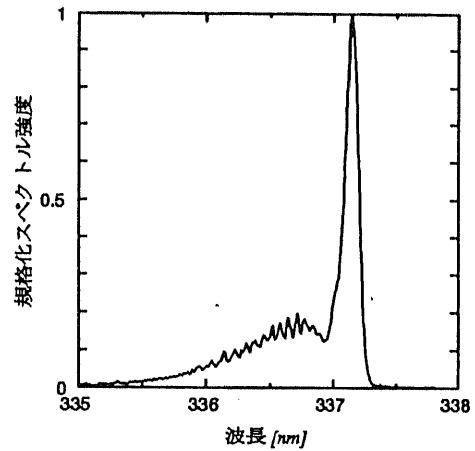


図2-2 SP00の測定例

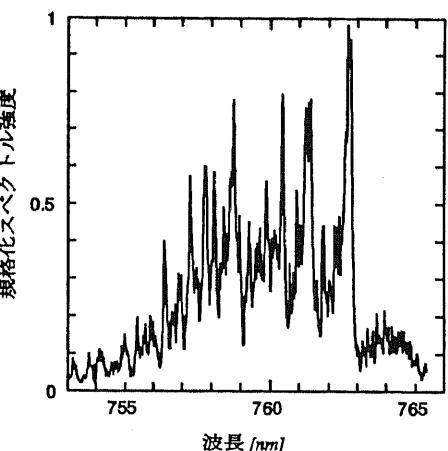


図2-3 FP31の測定例

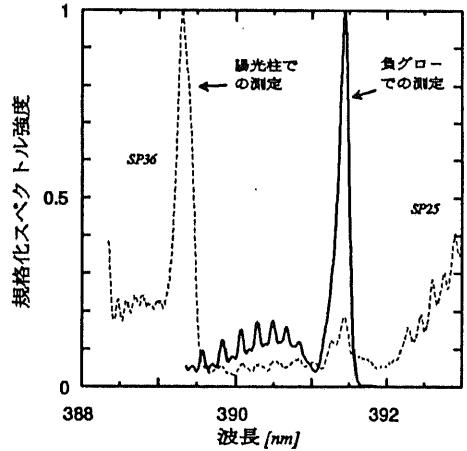


図2-4 FN00の測定例

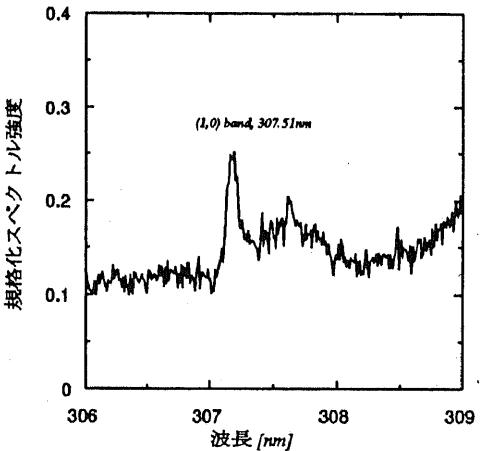


図2-5 Gaydon-Herman system の測定例

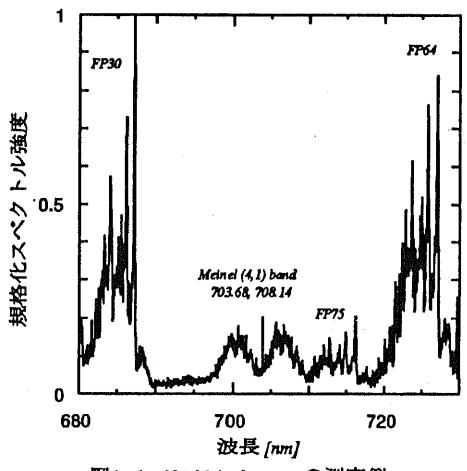


図2-6 N₂⁺ Metinel system の測定例

2 - 2 - 2 Ar のスペクトルと原子構造

Arの主要な電子準位の模式図を図2-7に示す。Arのスペクトルの測定例を図2-8に示す。希ガスのスペクトルについての解説は不要であろう。ラインスペクトルの詳しい解説及び電子準位を表す記号の詳細は文献(4)を参照されたい。

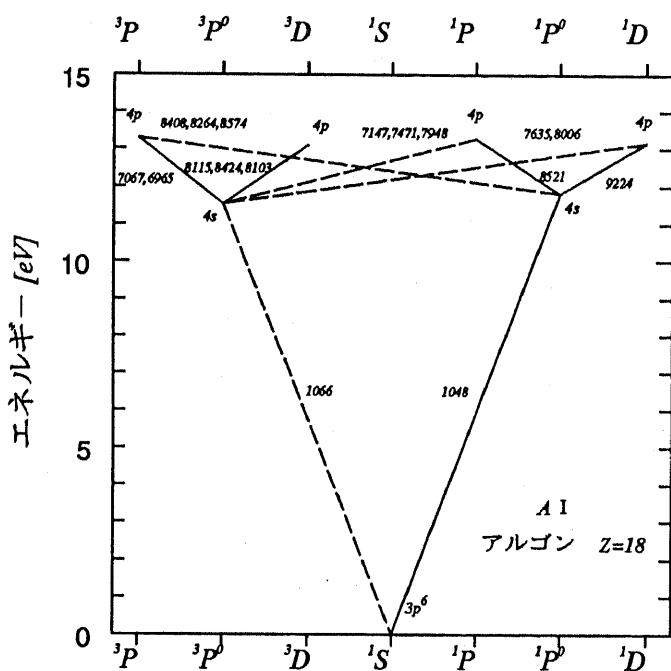


図2-7 Arの主要な電子準位

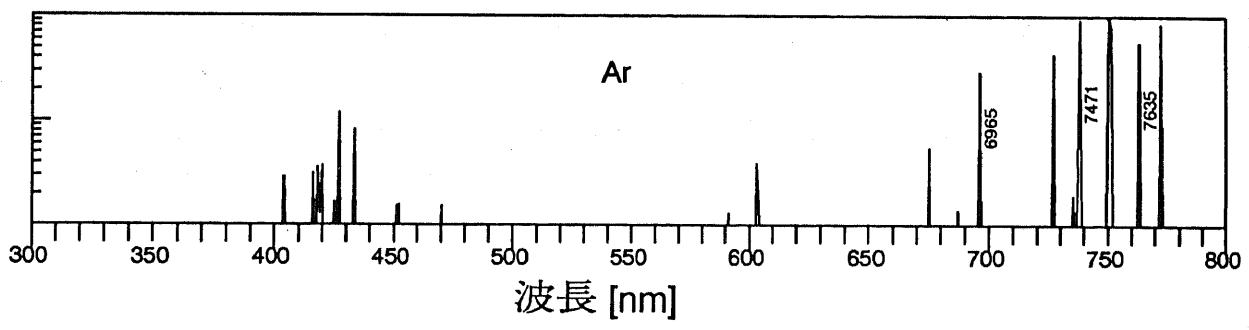


図2-8 Arのスペクトル測定例

2 - 3 電子エネルギー分布と放射レート

2 - 3 - 1 電子エネルギー分布と断面積

電子のエネルギー分布とある反応の断面積とが与えられている場合、単位時間、単位体積あたりのその反応の発生回数 ν [cm⁻³s⁻¹] は次の関係式で求められる。

$$\nu = N_e n_e \int_0^\infty f(\varepsilon) Q(\varepsilon) \sqrt{\frac{2e\varepsilon}{m}} d\varepsilon \quad (\text{式 } 2-1)$$

ここで、 N_e : 気体密度 [cm⁻³]、 n_e : 電子密度 [cm⁻³]、 ε : 電子エネルギー [eV]、 $f(\varepsilon)$: 規格化された電子エネルギー分布関数、 $Q(\varepsilon)$: 断面積 [cm²]、 m : 電子質量 [g]、 e : 1eVのエネルギー = 1.6×10^{-12} [erg] を、 それぞれ意味する。

電離、電子励起、振動励起、回転励起、解離等の断面積が実測されており、これらを利用して各反応の発生回数を数値計算できる。ただし、発表されている断面積の多くは、電子基底準位が電子衝突する場合のものであり、励起状態から他の励起状態への電子衝突断面積はほとんど知られていない。

多数の断面積セットが発表されているが、同一の反応の断面積が発表者毎に微妙に違っているのが普通である(5)。本論文では、ボルツマン方程式解析に必要な N_e の断面積セットとして文献(6) (図 2-9 参照) のデータを利用した。また、レート方程式解析で使用する N_e の各励起断面積について、第4章で詳細に検討を行なっている。Arの励起断面積には文献(7) (図 2-10 参照) のデータを利用している。

さて仮に、放射反応の断面積なるものが厳密に定義できるならば、スペクトルの放射レートは (式 2-1) のみによって決定できる。この考え方は荒い近似としては正しく、放射断面積の報告も存在する (図 2-11 参照) が、残念なことに放射レートはガス分子の内部状態にも強く依存するため、ただ一つの厳密な放射断面積なるものは定義できない。よって、励起断面積を用いて各電子準位への励起レートを計算した上で、2-3-4 節に述べるレート方程式解析を行って放射レートを計算する必要がある。

また電離度の低い放電空間では、電子エネルギー分布そのものが印加電界と供試ガスの断面積とで決定されるものであり、両者には密接な関係がある。断面積セットと印加電界を与えたときに電子エネルギー分布を決定する方法については、

2-3-2 節でボルツマン方程式解析として解説する。

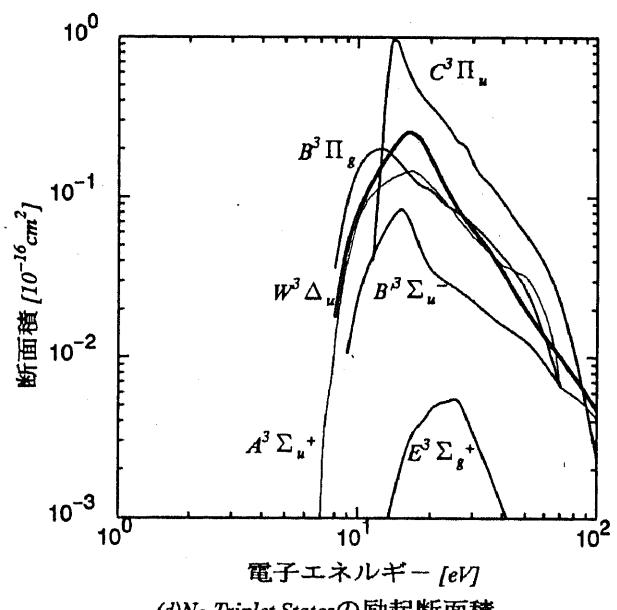
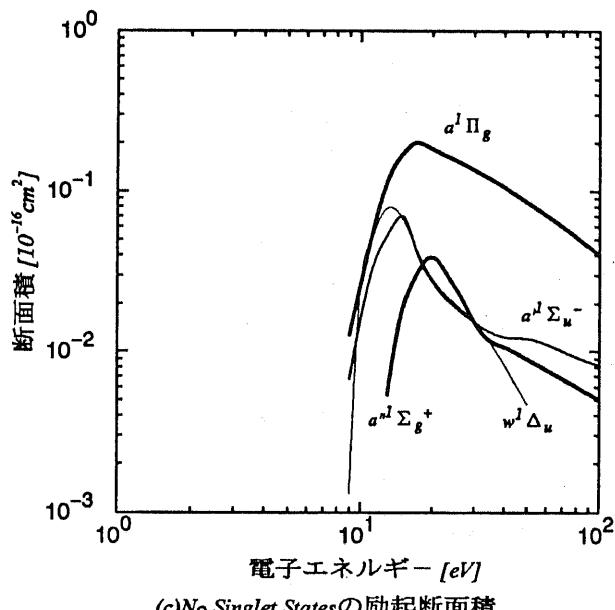
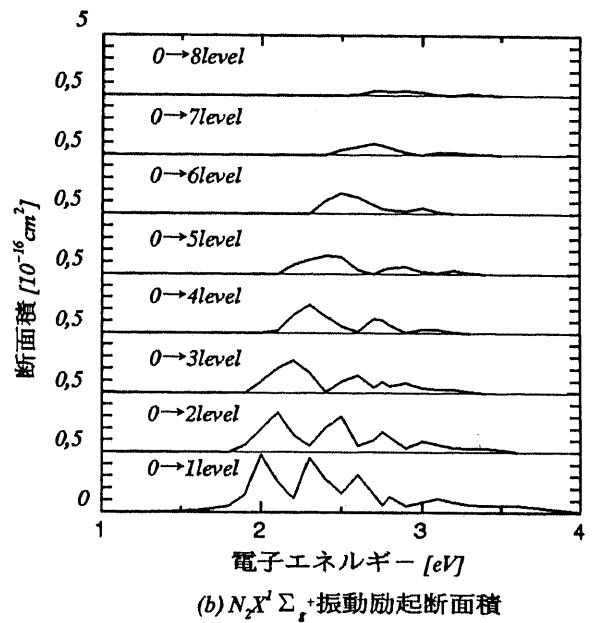
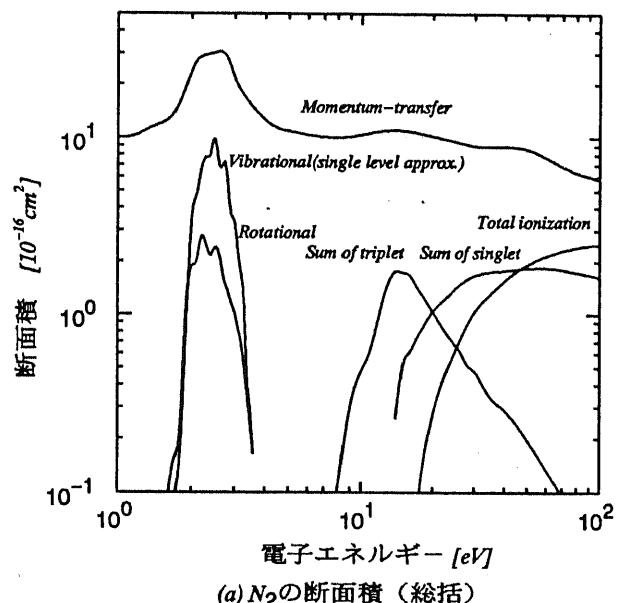
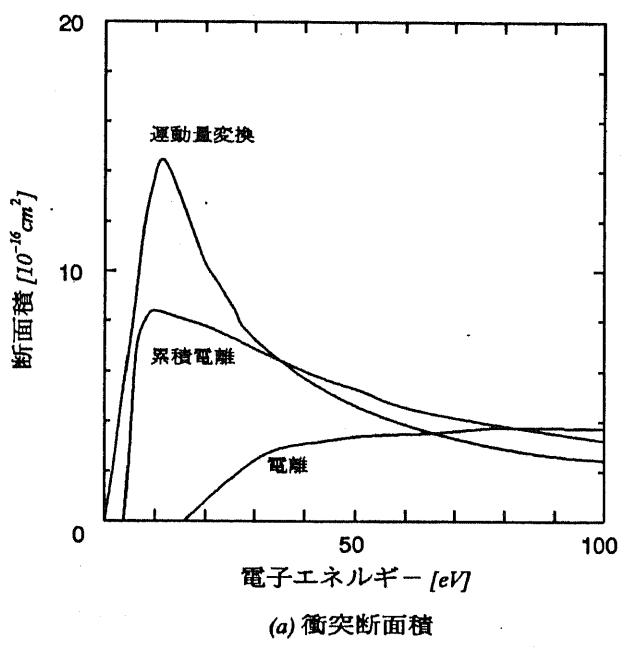
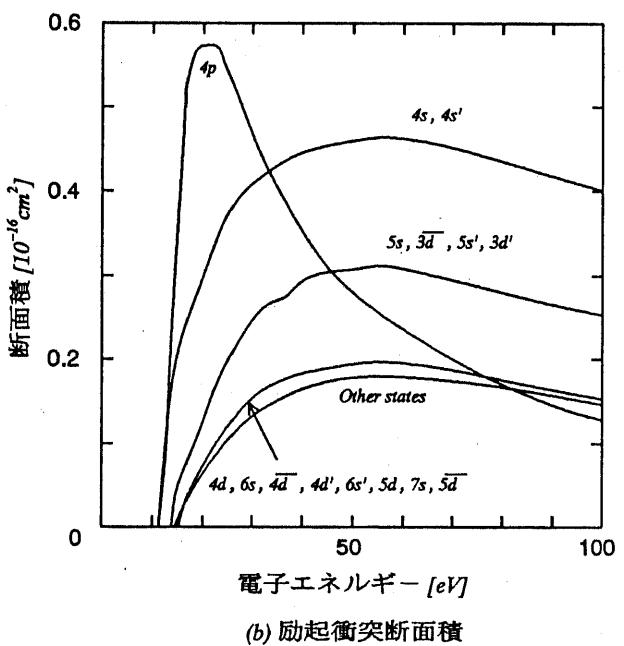


図2-9 窒素の断面積



(a) 衝突断面積



(b) 励起衝突断面積

図2-10 Arの断面積

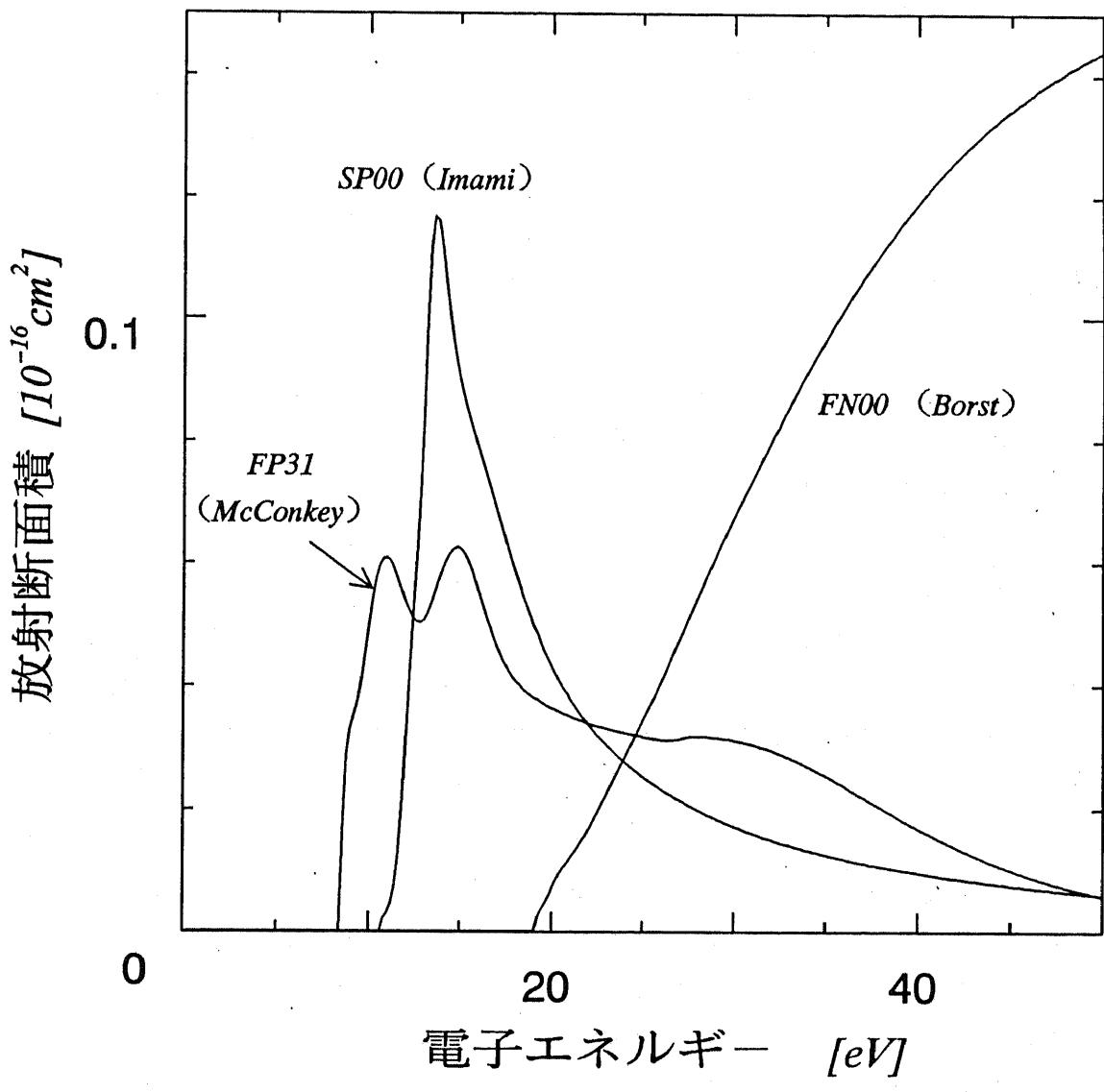


図2-11 放射断面積の例

2-3-2 ボルツマン方程式による電子エネルギー分布解析

電離度が低く電子エネルギー分布が熱平衡分布（マクスウェル分布）では無い場合には、ボルツマンの輸送方程式を解いて分布関数を決定する必要がある。本研究で対象とするプラズマ（表1-1参照）は、まさに、このようなものであり、ボルツマン方程式の解を電子エネルギー分布関数として仮定することが妥当であると考えられる。ボルツマン輸送方程式は、時間1変数、空間3変数、速度空間3変数の電子密度分布関数についての偏微分方程式であり、その解法は一般に簡単ではない。最も簡便かつ広く採用されている解法に、球関数2項近似解法があり、本研究ではこれにより電子エネルギー分布関数を数値計算している。ここで扱う分布関数 $f(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t)$ に関するボルツマン方程式は以下の形式である。

$$\frac{\partial}{\partial t} f + \mathbf{v} \cdot \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}} f + \alpha \cdot \frac{\partial}{\partial \mathbf{v}} f = J(f, g) \quad (\text{式 } 2-2)$$

ただし、 $\alpha = e E / m$ ：電子の加速度、 g ：ガス分子の分布関数、 J ：衝突項、 E ：印加電界である。衝突項は、電子とガスとの衝突による位相空間での密度分布の出入りを記述するもので、具体的には衝突断面積を用いて記述される。速度空間での分布関数 $\epsilon = \frac{1}{2} m v^2$ の関係を用いてエネルギー空間に置き換えれば、エネルギー分布関数 $f(\epsilon)$ が定義できる。本研究では分布関数を、エネルギー分布関数 $f(\epsilon)$ で表している。球関数2項近似解法とは、速度分布関数を球関数で展開し最初の2項のみで分布関数を近似する手法である。この近似によりボルツマン輸送方程式を2階の常微分方程式に帰着でき、簡単な数値計算により分布関数が決定できる。ただし、この近似の性格上、分布関数が等方的なものから大きく逸脱している場合には、得られた解の近似度は低いものとなる。印加電界が低く、非弾性衝突の影響が弾性衝突による影響に比べて小さいものである時は、電子エネルギー分布はほぼ等方的であるとされており、2項近似が適用できる。本研究では、N₂低気圧グロー放電陽光柱を主に対象としているので、2項近似解法を適用することが妥当であると考える。図2-12は、ボルツマン方程式の数値計算結果を、印加換算電界をパラメータにして示したものである。印加電界が大きくなるにつれて、平均電子エネルギーが増加し、高エネルギー部に存在する電子数が指數関数的に増大していくことが分かる。また、マクスウェル分布と比較して複雑な凹凸が見られるのは、断面積の形状に依るものである。この分布関数をもとに、電離係数、ドリフト速度といった、スオームパラメータが数値計算できる。スオームパラメータの計算結果は、実測結果と比較できるので、得られた分布関数が妥当なものであるかどうかを確認できる。スオームパラメータに関しては2-3-3節で解説する。

本研究では、放射レートの理論計算や、陽光柱理論で利用するスオームパラメータに、ボルツマン方程式の解が利用されている。

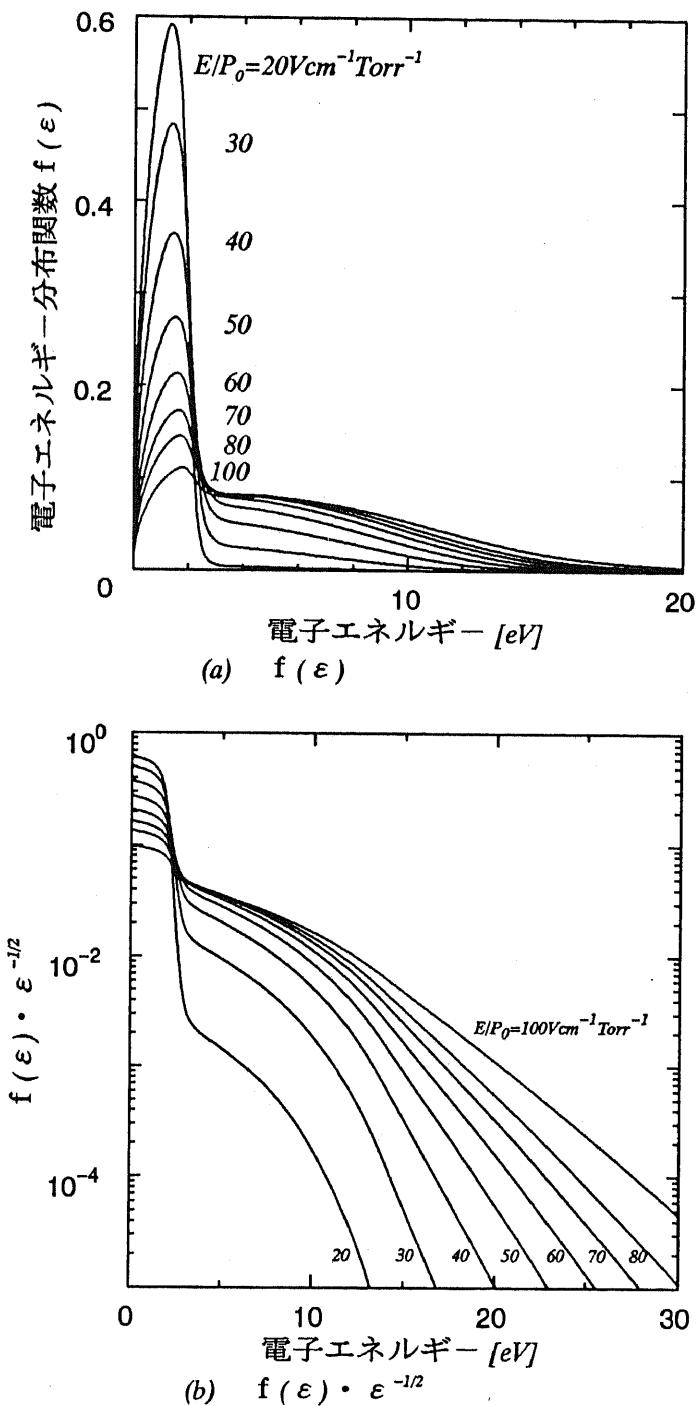


図2-12 ボルツマン方程式解析による電子エネルギー分布

2 - 3 - 3 スオームパラメータ

電離係数、付着係数、ドリフト速度、拡散係数といったスオームパラメータは、電子群の巨視的振る舞いの指標となるもので、実測が可能なこと也有り、実用上非常に重要な意味を持つものである。スオームパラメータも電子エネルギー分布と同様、印加換算電界とガスの断面積とで決定される。あるいは、初期条件境界条件の影響が無くなり、その場の換算電界と断面積とだけでこれらが定まるとき、この状態を流動平衡状態と呼び、スオームパラメータが一意に定まる状態である。

2 - 3 - 2 節で求めたエネルギー分布関数から計算したスオームパラメータを図 2 - 1 3 に示す。一方、スオームパラメータの報告結果を集めた文献として文献(8)があるが、諸氏の発表値にはばらつきがある。電離係数、ドリフト速度に関しては数%程度の不確かさがあり、図 2 - 1 3 (a)(b)の電離係数、ドリフト速度はこの誤差内に納まるものである。一方、拡散係数については、ボルツマン方程式の2項近似解法では縦、横拡散係数を求めることができないので、実験データとの比較はできなかった。また図 2 - 1 3 (e)は、ボルツマン方程式の解を前提にすれば、換算電界強度と平均電子エネルギーとは一対一に対応することを示している。

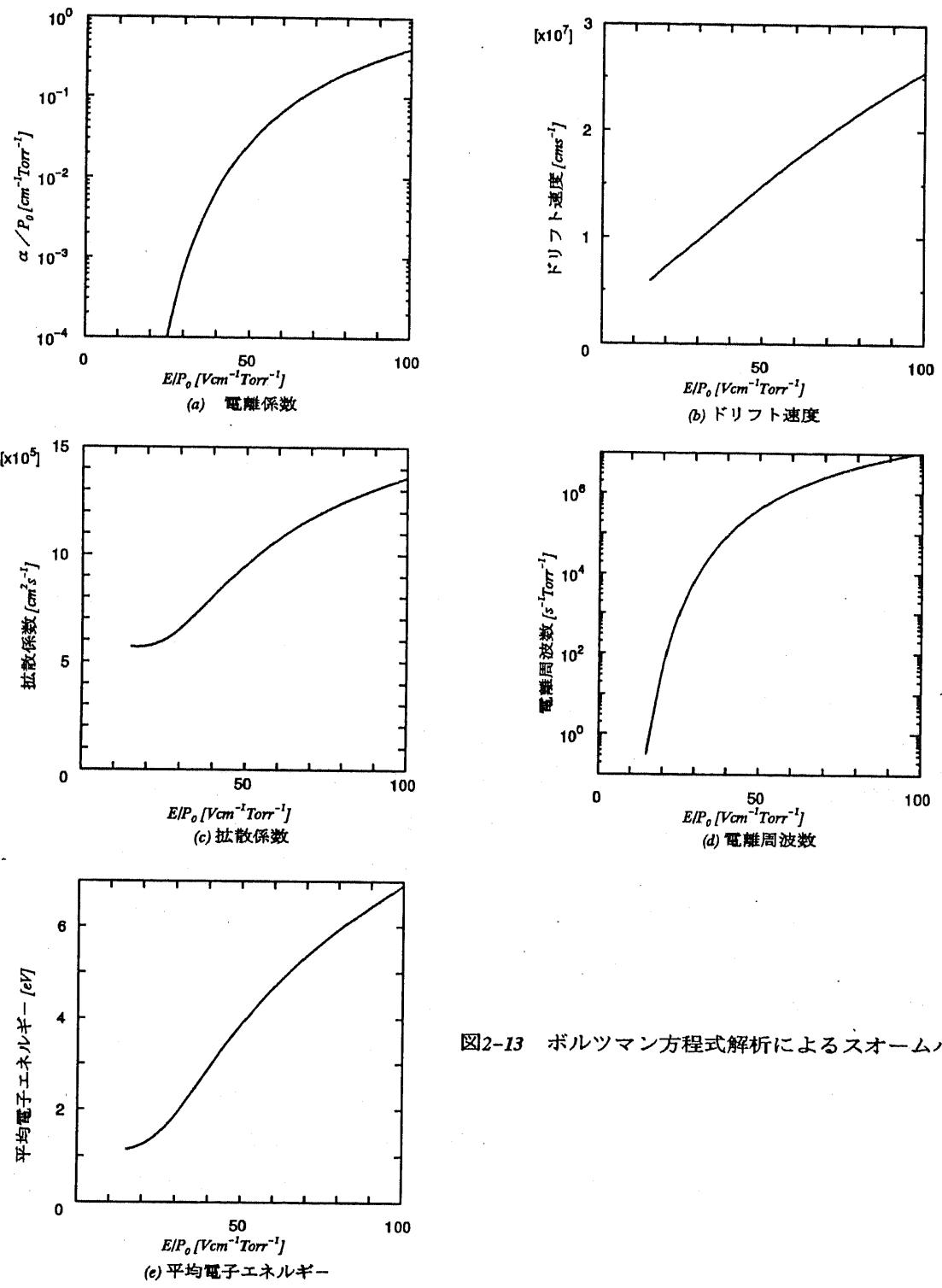


図2-13 ボルツマン方程式解析によるスオームパラメータ

2 - 3 - 4 レート方程式解析

N_2 の主要な3種のスペクトルの放射強度を定めるために、図2-14に示す遷移モデルを考える。このモデルは放射断面積を利用する文献(9)のモデルをベースにしたものであるが、本研究では励起断面積を用いるモデルに改良して数値計算を行っている。SPシステムの中からはSP00バンドを、FPシステムの中からはFP31バンドを、FNシステムの中からはFN00バンドを計算の対象とする。SP00の計算には電子基底準位からの直接励起に加えて振動準位間の振動失活(vibrational deactivation)の効果も考慮する。FP31の計算には電子基底準位からの直接励起に加えてC³II準位からのカスケード効果(放射失活(radiative deactivation)および電子脱励起(electrical quenching))も考慮する。SP00、FP31の直接励起分の計算には、励起断面積を利用するが、FN00の放射レートは関連する励起断面積の報告が見あたらないので、放射断面積を使用する。ただし、FN00の計算にも放射失活と電子脱励起反応の効果は取り入れている。

励起断面積による励起レートは、下位電子準位から上位電子準位への全励起レートであるから、これを各振動準位への励起レートに配分するために、フランク・コンドン係数を用いる必要がある。

各失活反応の反応係数は、文献(10)(11)から引用する。ただし、これらの反応係数の精度については、諸氏の報告で値に数桁近いばらつきがあることも珍しくない。このために、反応係数を引用する際には、慎重な検討が必要であることは言うまでもなく、第4章では反応係数の一部を分光計測により合理的に定める方法を提案することになる。また、フランク・コンドン係数および必要となる分光定数は文献か(1)から引用した。2章末に表2-1として、引用した係数等をまとめておく。

図2-15には、図2-14のモデルと2-3-2節の電子エネルギー分布とを用いて計算した放射レートを、ガス圧をパラメータにして示す。(式2-1)だけで、放射レートが決定されるならば、放射レートはガス圧の上昇に比例して大きくなるはずであるが、FP31やFN00ではガス圧の上昇に対して放射レートの増大が飽和していることが分かる。これはガス圧の変化が失活反応の回数に直接影響を及ぼすためである。なお、FN00の計算値は放射断面積を用いたものであることから、以下で計算結果はあくまで参考値として取り扱った。

放射レートの具体的な計算式は、第4章で詳しく解説する。

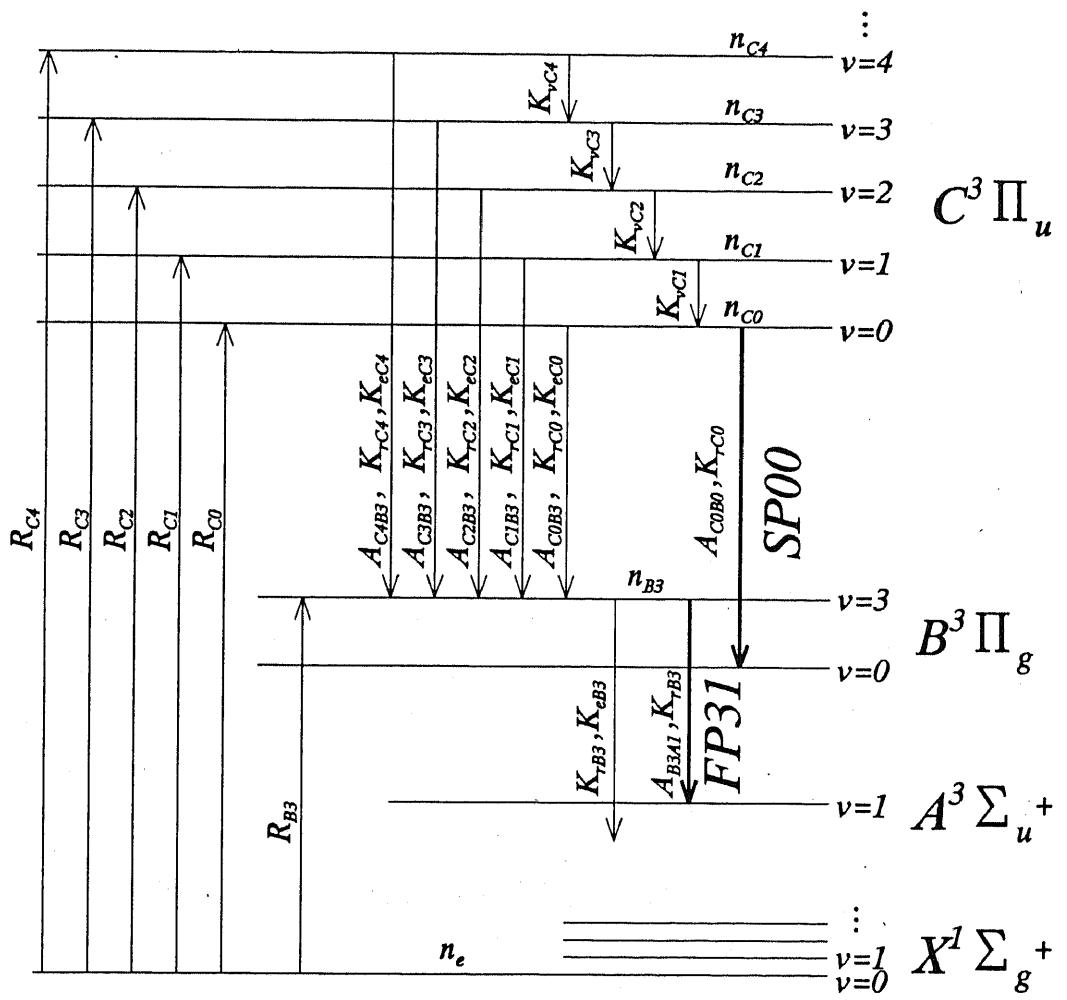


図2-14(a) $SP00, FP31$ に関する遷移モデル

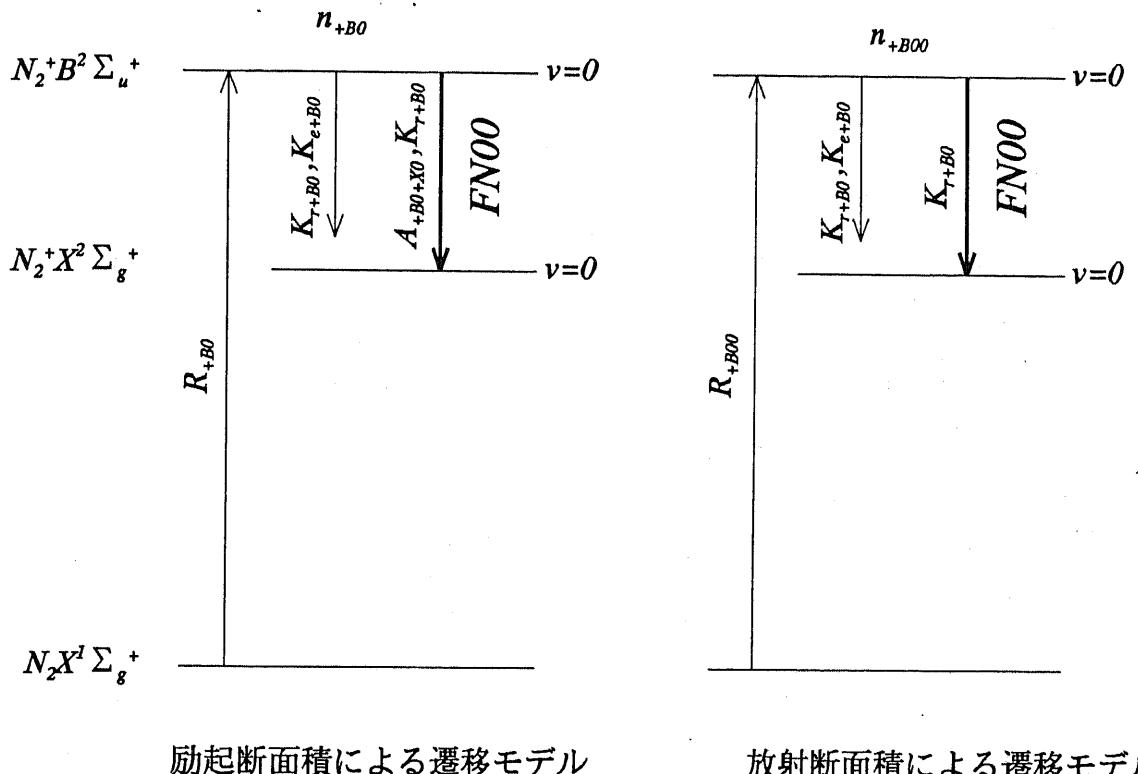


図2-14(b) $FN00$ に関する遷移モデル

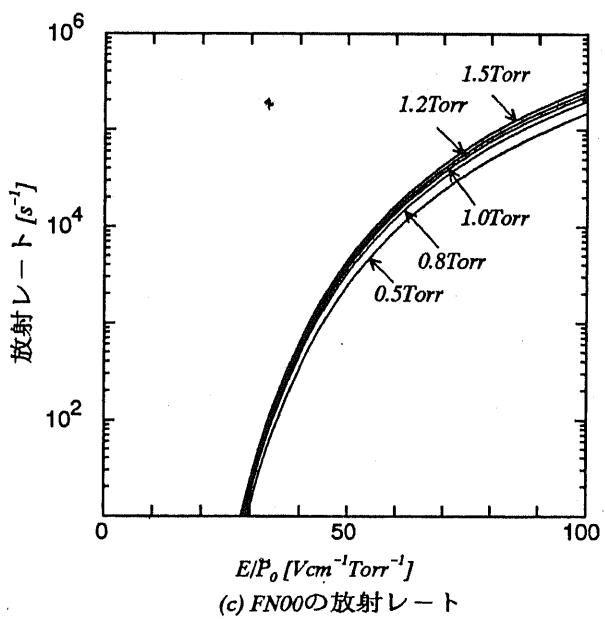
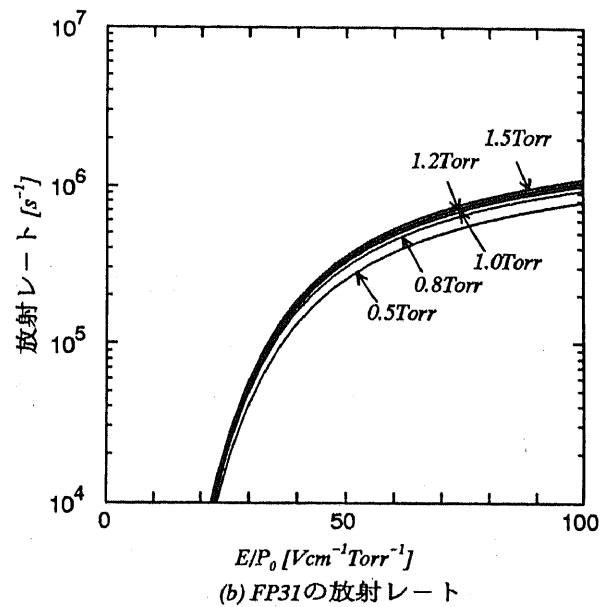
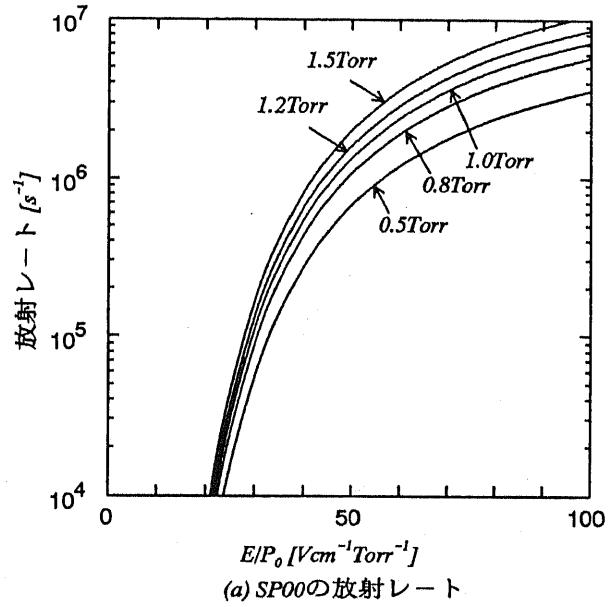


図2-15 放射レート理論値

2 - 4 振動・回転温度と放射スペクトル

2 - 4 - 1 振動温度と放射スペクトル

図 2 - 1 6 に N_2 の振動準位の模式図を示す。横軸は N_2 分子の原子間距離であり、縦軸は準位のエネルギーを意味する。エネルギー $E(v)$ の振動準位 v に存在する分子数 $N(v)$ は、熱平衡状態では振動温度 T_v を用いて次式で表される。

$$N(v) = N \exp\left(-\frac{E(v)}{k T_v}\right) \quad (\text{式 } 2 - 3)$$

ただし、 k : ボルツマン定数、 N : $v=0$ 準位の分子数である。

一般には、振動準位状態数分布は熱平衡状態にはないので、 T_v は厳密には定義できず、各電子準位毎に異なる分布となり、(式 2 - 3) で与えられる分布からは逸脱した分布となる。ただし下位数準位の振動準位状態数分布を用いて(式 2 - 3) を近似的に満たす T_v を決定することは可能で、一般にはこれをもって特性振動温度とする。なお、この分布をレート方程式解析により理論的に数値計算する手法については、第 5 章で解説する。

分光計測により振動温度を推定する方法の原理および測定結果は文献(12)(13)等に詳しい。この方法では、SP システムの 02 系列 (SP02, SP13, SP24, SP34...) を測定する。図 2 - 1 7 に SP02 系列の遷移を説明する図を示すが、この図から、 $C^3\Pi_u$ 準位の振動準位状態数分布が SP02 系列のスペクトル強度を支配することが分かる。よって、逆に SP02 系列のスペクトル強度分布を測定することで $C^3\Pi_u$ 準位の振動準位状態数分布が推定できる。さらに、 $C^3\Pi_u$ 準位の振動準位状態数分布は電子基底準位 $X^1\Sigma_g^+$ の振動準位状態数分布によって決定されることも、この図は示している。結局 SP02 系列のスペクトル強度分布計測により電子基底準位の振動準位状態数分布が推定可能である。さて、一般に振動温度を考えるときに、最も存在確率の高い電子準位である電子基底準位 ($X^1\Sigma_g^+$) の振動準位状態数分布を考えるのが妥当であろうから、分光計測により振動温度を推定することが可能であると言える。

図 2 - 1 8 には SP02 系列の分光計測例を示す。上位振動準位が高位のバンドスペクトルほど、放射強度が小さくなっている様子が分かる。振動温度とスペクトル強度分布との関係の、正確な計算法については、第 5 章で解説する。

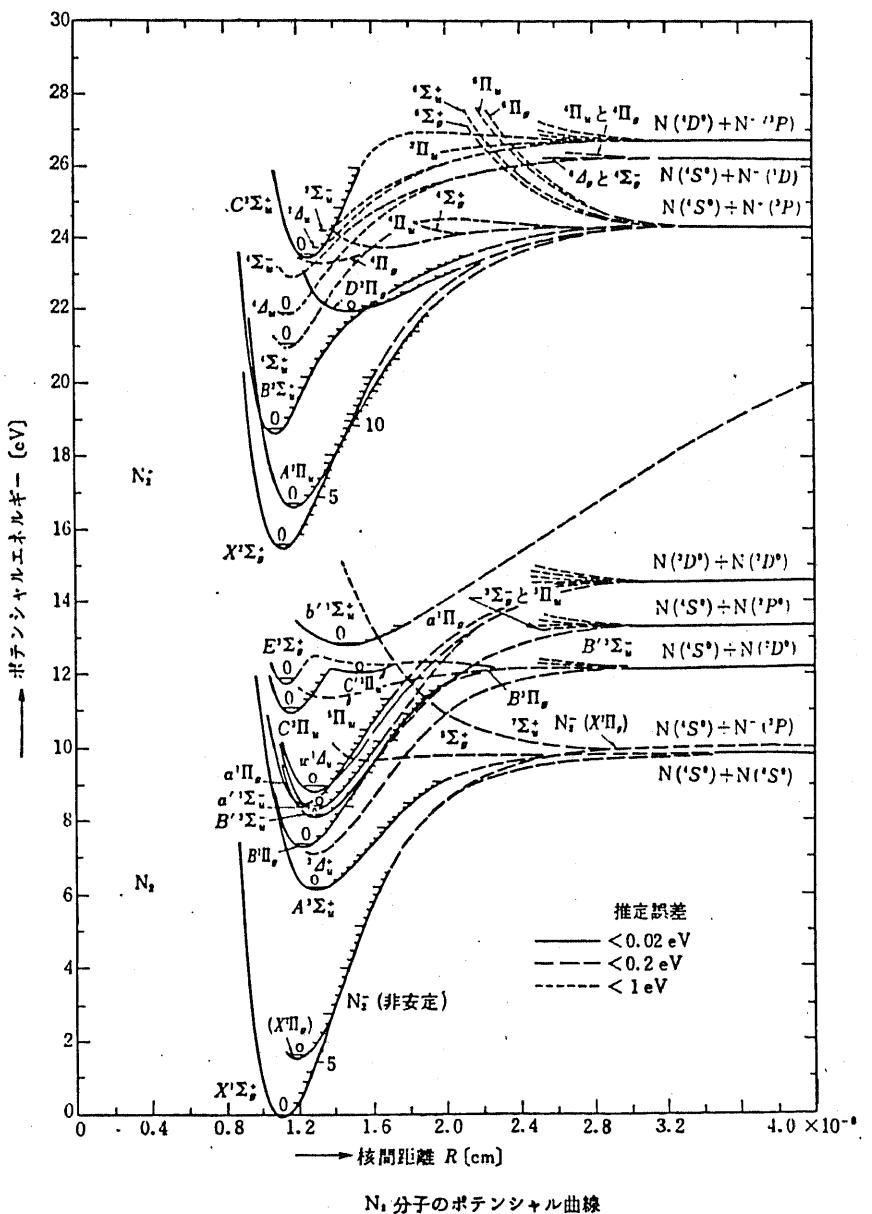


図 2-16 N_2 の振動単位

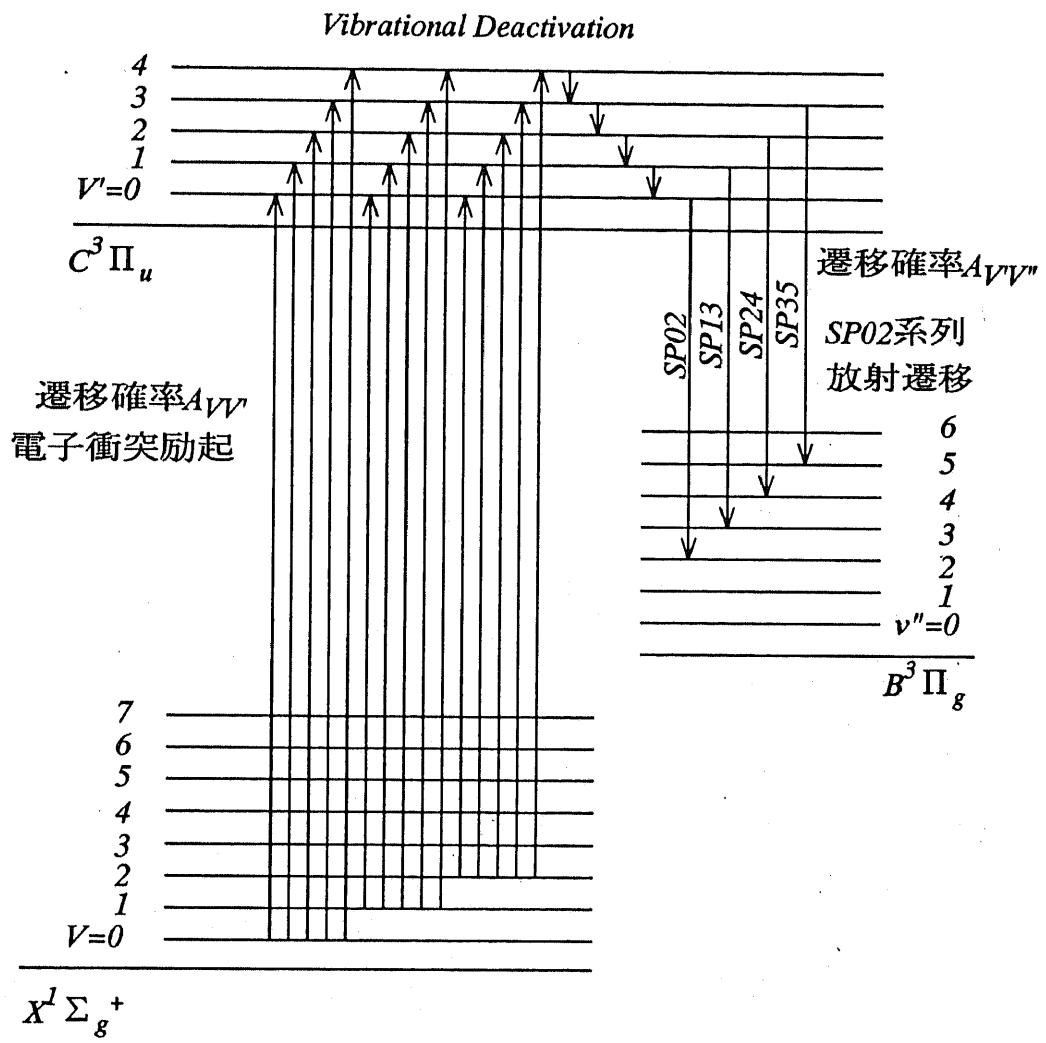


図2-17 SP02系列の遷移模式図

スペクトル強度 [arb. unit]

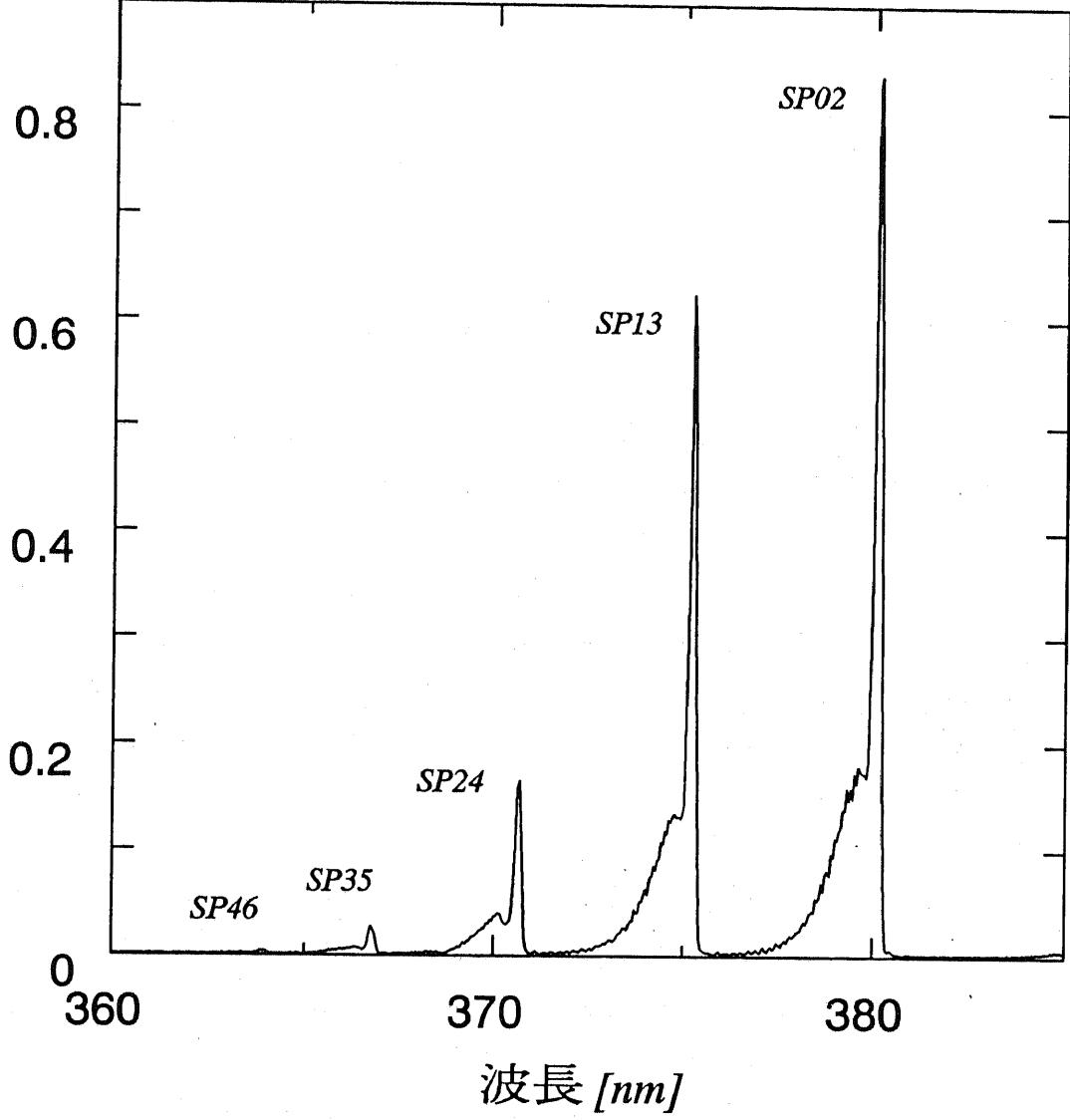


図2-18 SP02系列の測定例

2-4-2 回転温度と放射スペクトル

電子・振動準位の次に、回転準位について考える。回転準位 J に存在する分子数 $N(J)$ は、熱平衡状態では回転温度 T_R を用いて次式で表される。

$$N_J = N \frac{h c B}{k T_R} (2J+1) e^{-\frac{h c B}{k T_R} J(J+1)} \quad (\text{式 } 2-4)$$

ここで、 N : 全分子数、 h : プランク定数、 c : 光速度、 B : 回転準位のエネルギーに関する分光定数である。(式 2-3)との大きな違いは、 $(2J+1)$ の項であり、 J 準位が $(2J+1)$ 重に縮退していることを示している。また、回転準位の間隔は一般に小さいため、準位分布はほぼ熱平衡状態に近いと考えられるので、 T_R は常に定義できると考える。さらに、回転温度とガス分子の並進温度(通常のガス温度)とは、やはりほぼ平衡していると考えられるので、「ガス温度 ≈ 回転温度」という関係が成り立っている。放電空間中のガス温度を熱拡散方程式を解いて求める手法については、第 6 章で解説する。

分光計測により回転温度を推定する方法の原理および測定結果は文献(14)(15)等に詳しい。これらの文献では、FN00およびSP02のスペクトル微細構造を測定する方法が示されている。原理は振動準位の状態数分布を推定した場合とほぼ同様で、各回転準位からの発光スペクトル強度を測定することで、回転準位状態数分布を推定するのである。

さて、回転準位間での遷移では、上位の回転準位 J と下位回転準位 J' との差 ΔJ は 0, ±1 の 3 通りが許されている(遷移規則)。通常、 ΔJ が同じ値であるグループを、それぞれ P, Q, R 枝と呼んで区別する。また、回転準位によるスペクトルの分裂が、電子スピニによる準位の分裂の効果と同程度のものとなるので、精密な回転温度推定には、この効果を考慮する必要がある。本研究で取り扱う SP システムや FP システムでは、電子スピニによって上位準位、下位準位ともに 3 つの状態に分裂している(3重項)。禁制が無ければこの組み合わせの全ての遷移が存在する。さらに、軌道角運動量・原子スピニ等の影響による準位の縮退が、スペクトル強度に直接関連するため、この効果も考慮する必要がある。以上のように、バンドスペクトルの微細構造は、非常に多数のラインスペクトルからなり、振動準位による構造と比較すると非常に複雑なものと言える。なお、回転準位の分裂によるスペクトル線の分裂は、通常 0.1 nm 以下のものであるから、この程度以上の波長分解能が測定系に求められる。

第 6 章では、新たに開発した FP20 のスペクトル測定による回転温度推定法について、原理と実測結果を述べる。図 2-19 は FP20 の回転準位とその遷移に関する模式図である。この図は、一つの回転準位から 27 本の発光線が生じることを示している。

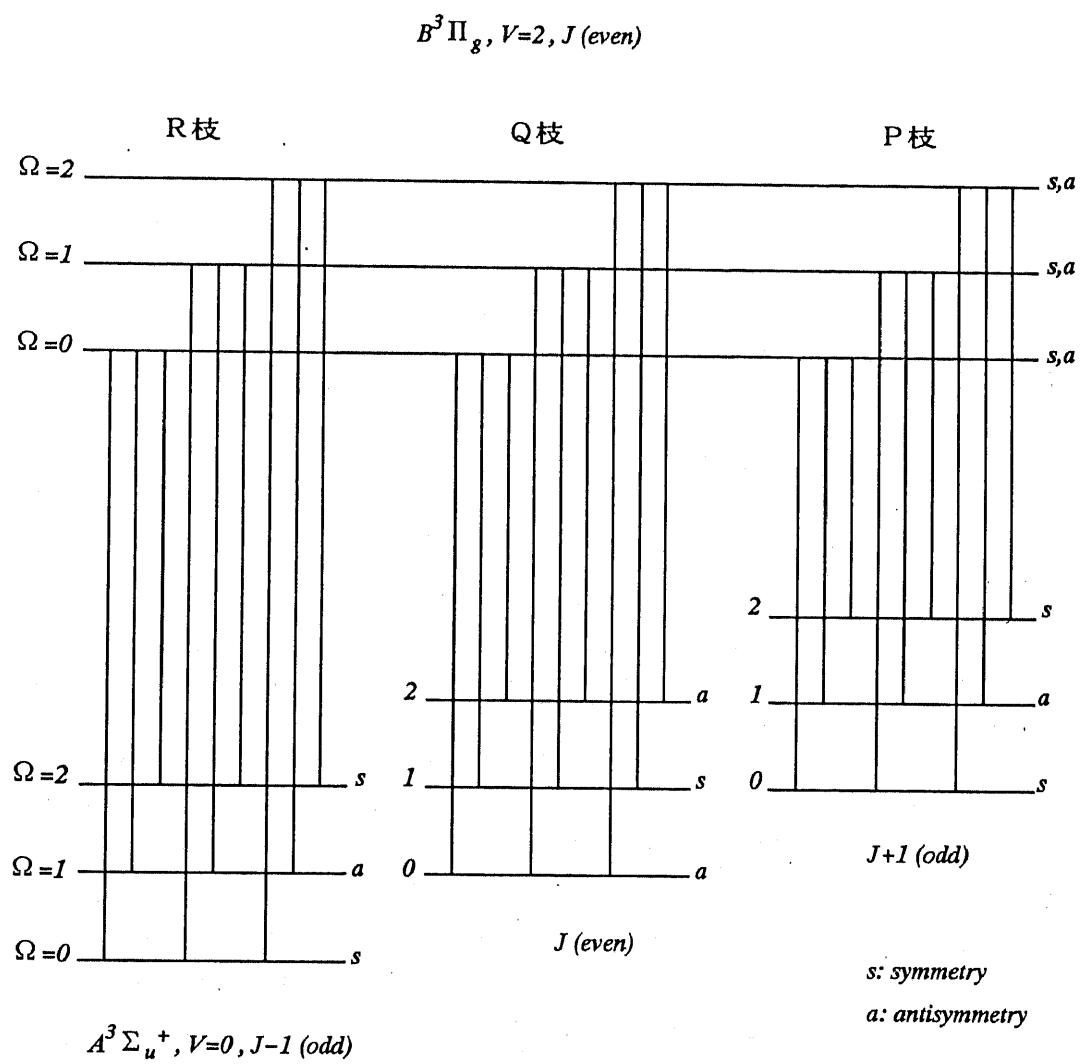


図2-19 FP20の回転準位と遷移の模式図

2 - 5 まとめ

以上、本研究の背景と基礎となるデータを非常に大ざっぱではあるが、まとめてみた。後の章で必要に応じて、本章のデータを参照されたい。

表 2 - 1 分光定数、反応係数、フランク・コンドン係数

(a) 分光定数と反応係数

$X^1\Sigma_g^+$: $\omega_r = 2359.61$, $\omega_{rx} = 14.456$, $\omega_{ry} = 0.00751$

$A^3\Sigma_u^+$: $\omega_r = 1460.37$, $\omega_{rx} = 13.891$, $\omega_{ry} = -0.025$

	B_v	D_v	Y_v	τ
$V=0$	1.4459	6.15×10^{-6}	0.0	1.9

$B^3\Pi_g$: $\omega_r = 1734.11$, $\omega_{rx} = 14.47$, $\omega_{ry} = -0.001$

	B_v	D_v	Y_v	τ	K_r	K_e
$V=0$	1.6285			8.0×10^{-6}	1.25×10^5	
$V=1$	1.6105			7.5×10^{-6}	1.33×10^5	2.66×10^5
$V=2$	1.5922	6.7×10^{-6}	26.4	7.1×10^{-6}	1.41×10^5	3.81×10^5
$V=3$	1.5737	6.8×10^{-6}	26.8	6.8×10^{-6}	1.47×10^5	6.54×10^5
$V=4$	1.5551	6.9×10^{-6}	27.0	6.5×10^{-6}	1.54×10^5	5.85×10^5
$V=5$	1.5368	7.0×10^{-6}	27.3	6.2×10^{-6}	1.61×10^5	5.54×10^5
$V=6$	1.5179	6.7×10^{-6}		6.0×10^{-6}	1.67×10^5	5.38×10^5

$C^3\Pi_u$: $\omega_r = 2035.1$, $\omega_{rx} = 17.08$, $\omega_{ry} = -2.15$

	B_v	D_v	Y_v	τ	K_r	K_e	K_v
$V=0$	1.8149	6.7×10^{-6}	21.5	4.2×10^{-8}	2.4×10^7	4.3×10^5	
$V=1$	1.7933	6.8×10^{-6}	21.5	4.5×10^{-8}	2.2×10^7	3.1×10^5	5.4×10^5
$V=2$	1.7694	7.3×10^{-6}	21.4	4.2×10^{-8}	2.4×10^7	8.5×10^5	3.6×10^5
$V=3$	1.7404	8.5×10^{-6}	21.1	3.8×10^{-8}	2.65×10^7	11.0×10^5	4.0×10^5
$V=4$	1.6999			3.9×10^{-8}	2.54×10^7	13.0×10^5	4.0×10^5

$X^2\Sigma_g^+$: $\omega_r = 2207.19$, $\omega_{rx} = 16.14$, $\omega_{ry} = -0.040$

	B_v	D_v	Y_v
$V=0$	1.9229	5.92×10^{-6}	0.0

$B^2\Sigma_u^+$: $\omega_r = 22419.84$, $\omega_{rx} = 23.19$, $\omega_{ry} = -0.5375$

	B_v	D_v	Y_v	τ	K_r	K_e
$V=0$	2.0733	6.174×10^{-6}	0.0	6.58×10^{-8}	1.52×10^7	1.45×10^7

ここで、 $\omega_r, \omega_{rx}, \omega_{ry} [\text{cm}^{-1}]$: 振動項を記述する分光定数、 $B_v, D_v [\text{cm}^{-1}]$: 回転項を記述する分光定数、 Y : 電子の角運動量が回転項に与える影響を記述する分光定数（無次元数）、 $\tau [\text{s}]$: 放射寿命、 $K_r [\text{s}^{-1}]$: 放射失活反応係数 (τ^{-1})、 $K_e [\text{Torr}^{-1}\text{s}^{-1}]$: 電子脱励起反応係数、 $K_v [\text{Torr}^{-1}\text{s}^{-1}]$: 振動失活反応係数である。

(b) フランク・コンドン係数

$C^3\Pi_u$	$V' = 0$	1	2	3	4
$X^1\Sigma_g^+$	$V=0$	0.5466	0.3050	0.1057	0.2963E-1
	1	0.3470	0.8096E-1	0.2679	0.1807
	2	0.9206E-1	0.3612	0.2416E-2	0.1283
	3	0.1370E-1	0.1979	0.2351	0.7438E-1
	4	0.1290E-2	0.4741E-1	0.2669	0.9156E-1
	5	0.9019E-4	0.6513E-2	0.9899E-1	0.2734
	6	0.6701E-5	0.6425E-3	0.1967E-1	0.1629
	7	0.6867E-6	0.5884E-4	0.2779E-2	0.4738E-1
	8	0.4665E-7	0.7036E-5	0.3807E-3	0.9458E-2
	9	0.2808E-7	0.1007E-5	0.4507E-4	0.1844E-2
	10	0.2449E-7	0.2039E-8	0.1141E-4	0.3140E-3
$C^3\Pi_u$	$V' = 0$	1	2	3	4
$B^3\Pi_g$	$V=0$	0.4527	0.3949	0.1330	0.2038E-1
	1	0.3291	0.2157E-1	0.3413	0.2536
	2	0.1462	0.2033	0.2384E-1	0.2117
	3	0.5172E-1	0.1990	0.6345E-1	0.8817E-1
	4	0.1588E-1	0.1097	0.1605	0.4811E-2
	5	0.4540E-2	0.4663E-1	0.1393	0.9426E-1
	6	0.1224E-2	0.1686E-1	0.7913E-1	0.1292
	7	0.3227E-3	0.5671E-2	0.3622E-1	0.9859E-1
	8	0.8436E-4	0.1780E-2	0.1460E-1	0.5520E-1
	9	0.2139E-4	0.5317E-3	0.5262E-2	0.2569E-1
	10	0.5399E-5	0.1567E-3	0.1784E-2	0.1085E-1
$B^3\Pi_g$	$V' = 0$	1	2	3	4
$X^1\Sigma_g^+$	$V=0$	0.6105E-1	0.1477	0.1954	0.1907
	1	0.1914	0.1941	0.6542E-1	0.6885E-3
	2	0.2751	0.4513E-1	0.2410E-1	0.1055
	3	0.2407	0.1615E-1	0.1300	0.3555E-1
	4	0.1439	0.1427	0.4728E-1	0.3173E-1
	5	0.6204E-1	0.2046	0.1032E-1	0.1111
	6	0.2010E-1	0.1500	0.1263	0.2399E-1
	7	0.4951E-2	0.7020E-1	0.1864	0.2573E-1
	8	0.9357E-3	0.2332E-1	0.1335	0.1433
	9	0.1377E-3	0.5616E-2	0.5913E-1	0.1713
	10	0.1557E-4	0.1028E-2	0.1803E-1	0.1058

(c) バンドオリジン (00遷移の波数)

SPシステム : 29671.05cm^{-1} FPシステム : 10510.04cm^{-1} FNシステム : 25566.0cm^{-1}

参考文献

-
- (1) A. Lofthus & P. H. Krupenie : "The Spectrum of Molecular Nitrogen", J. Phys. Chem. Ref. data, Vol. 6, No. 1 (1977)
 - (2) J. S. Chang 他 : 「電離気体の原子・分子過程」、(1982)東京電機大学出版局
 - (3) G. Herzberg : "Molecular Spectra and Molecular Structure I. Spectra of Diatomic Molecules", (1950), Von Nosbrand Reinhold Company.
 - (4) G. Herzberg著、堀健夫訳 : 「原子スペクトルと原子構造」、(1988)丸善
 - (5) Y. Itikawa, M. Hayashi, A. Ichimura et al.: "Cross sections for collisions of electrons and photons with nitrogen molecules", J. Phys. Chem. Data, Vol. 15, No. 3, 985 (1986)
 - (6) A. V. Phelps & L. C. Pitchford : "Anisotropic scattering of electrons by N₂ and its effects on electron transport: Tabulations of cross section and results", JILA information center report, No. 26(1985)
 - (7) E. Eggarter: "Comprehensive optical and collision data for radiation action. II. Ar", J. Chem. Phys., 62, 833 (1975)
 - (8) J. Dutton: "A survey of electron swarm data", J. Phys. Chem. Ref. Data, 4, 577 (1975)
 - (9) 西嶋 : 「弱電離したN₂-O₂混合気体中の電子輸送係数とN₂, N₂⁺のバンドスペクトル強度の解析」、福岡大学研究所報、第45号、111(昭和55)
 - (10) K. B. Mitchell: "Fluorescence efficiencies and collisional deactivation rates for N₂ and N₂⁺ bands excited by soft X rays", J. Chem. Phys., 53, 1795 (1970)
 - (11) J. M. Calo & R. C. Axtmann: "Vibrational relaxation and electronic quenching of the C³Π_u(v'=1) state of nitrogen", J. Chem. Phys., 54, 1332 (1971)
 - (12) R. Bleekrode: "A study of the spontaneous emission from CO₂-N₂-He-H₂ laser discharges C³Π_u-B³Π_g emission bands of N₂", IEEE, J. Quantum Electronics, QE-5, 2, 57 (1969)
 - (13) 西嶋、美山、常安 : 「N₂ガス直流グロー放電プラズマの精密な振動温度の分光学的診断法とその適用」、電気学会論文誌A、110、767(平成2)
 - (14) D. M. Phillips: "Determination of gas temperature from unresolved bands in the spectrum from a nitrogen discharges", J. Phys. D: Appl. Phys., 8, 507 (1975)
 - (15) 西嶋、常安 : 「N₂ガスの収縮した直流グロー放電の陰極近傍での放電発光の分光学的研究」、電気学会論文誌A、111、221(平成3)

第3章 実験装置

装置系の全体の構成を図3-1に示す。主な構成は、

- I. 放電管と電源、および放電管の駆動系
- II. 分光器とフォトンカウンタ
- III. プローブバイアス電源と測定系
- IV. 排気系
- V. 光源

である。以下、これらについて解説する。

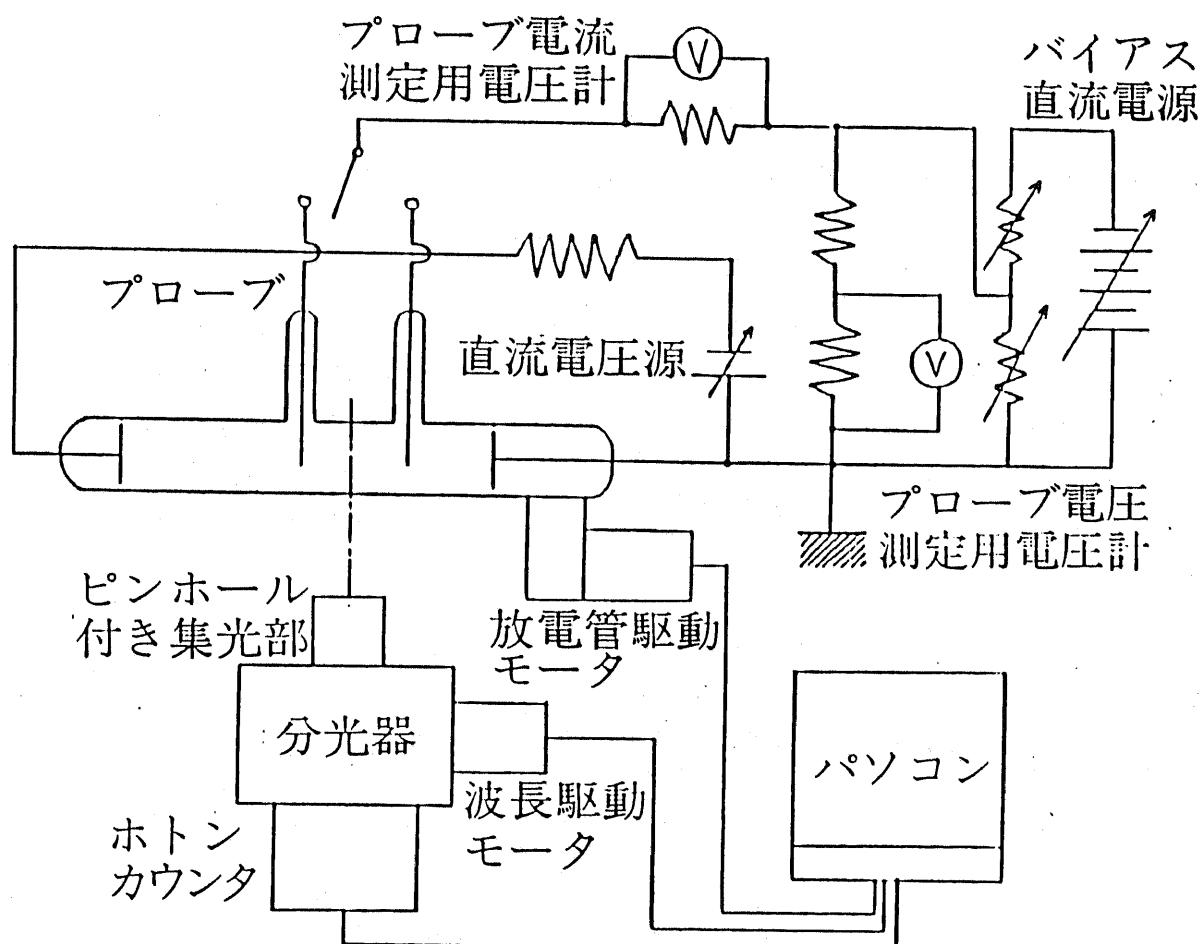


図3-1 装置系の構成

3 - 1 放電管、放電用電源、放電管の駆動系

3 - 1 - 1 放電管

3種類の放電管を使用した。

(A) 放電管 A

放電管 A を図 3 - 2 に示す。管壁が合成石英製であること以外は、通常のガイスラー管である。主な仕様は、

管半径 : 12.5mm 電極間隔 : 200mm

電極材質 : アルミニウム 電極直径 : 20.0mm

合成石英肉厚 : 2mm程度

である。電極間の全域で、合成石英を通して分光測定が可能である。

(B) 放電管 B

放電管 B を図 3 - 3 に示す。単探針が 2 本放電管の横から挿入されており、放電管内の電界計測が可能である。2 本の単探針の間の放電管壁は合成石英製で、分光測定は、この領域で行う。主な仕様は、

管半径 : 9.0mm (電極の周囲のみ 15.0mm) 電極間隔 : 332mm

電極材質 : ステンレス 電極直径 : 24.0mm

合成石英肉厚 : 1mm程度

プローブ材質 : タングステン プローブ先端形状 : 円筒形

プローブ先端サイズ : 直径 1mm、長さ 1mm

2 本のプローブの間隔 : 9.6cm

である。

(C) 放電管 C

放電管 C を図 3 - 4 に示す。針 - 平板電極の放電管である。主な仕様は、

管半径 : 40mm 電極間隔 : 20mm

平板電極材質 : ステンレス 針電極材質 : 白金

平板電極直径 : 50.0mm 針電極直径 : 1mm

針電極先端形状 : 約 30 度の円錐形

管壁材質には合成石英を使用している。



図 3-2

放電管 A

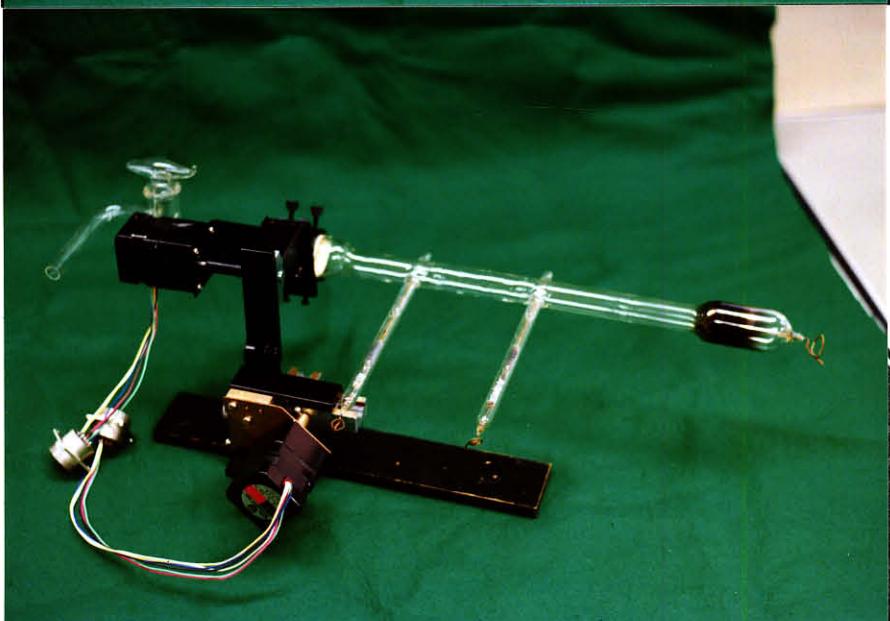


図 3-3

放電管 B

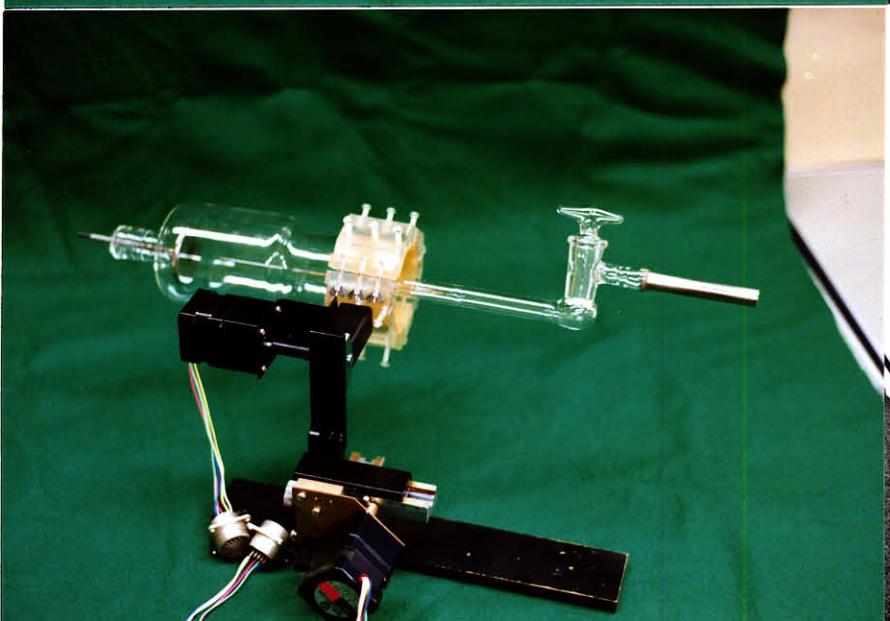


図 3-4

放電管 C

3 - 1 - 2 電源

マクセレック社製負極性直流高圧安定化電源APX-2K50Nを使用した。仕様は、

最大印加電圧 : -2kV 最大電流 : 50mA

出力変動率 : 0.02%以下 リップル : 0.05%以下

放電管には、安定抵抗を経て電圧を印加する。アース側にデジタル電流計を直列に接続して放電電流の計測を行った。

3 - 1 - 3 放電管の支持台

放電管は、XYZ 3軸微動台に固定して使用する。この微動台はステッピングモータにより微動が可能（最小ステップ $2.5\mu\text{m}$ ）で、制御はパソコンで行う。放電管の位置分解分光計測は、全て支持台の微動によって行った。

3 - 2 分光器とフォトンカウンタ

3 - 2 - 1 分光器

日本分光社製CT-25CP回折格子分光器を使用した。仕様は以下の通りである。

マウント：変形ツェルニーターナ式、 焦点距離：250mm、 明るさ：f4.3

グレーティング：1200本/mm、 500nmブレーズ、 有効面52×52mm

分散：約3nm/mm（波長500nm付近で）、 分解能：半値幅0.1nm（公称）

スリット：横幅 0~4mm 最小目盛り10μm

縦幅 1~20mm V型しづきで可変

波長ステップ（モータ駆動）：最小0.01nm

波長範囲：200~1400nm

フィルタ：スライド式ホルダにより2種のフィルタを使用

なお、波長駆動はパソコンによるステッピングモータ制御で行った。

3 - 2 - 2 フォトンカウンタ

フォトンカウンタとして、浜松ホトニクス社製C-1230を使用した。光電子増倍管には浜松ホトニクス製R649を、ペルティエ効果式の冷却器で約-30度に冷却して使用した。フォトンカウンタは GPIBインターフェースでパソコン制御される。R649の主な仕様を以下に示す。

構造：ヘッドオン型 、 波長範囲：300~850nm

応答速度：立ち上がり時間13ns、走行時間70ns

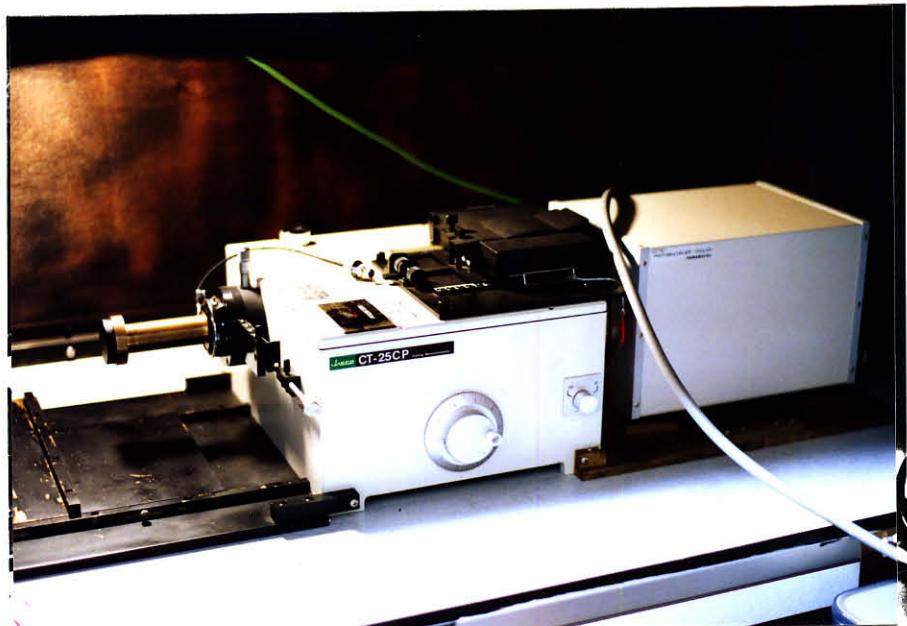
3 - 2 - 3 集光部

分光器への集光部には、直径1mmのピンホールを用いた。ピンホールは分光器入射スリットの約13.7cm前方に固定した。なお、13.7cmという値には意味はなく、工作上の都合で決定されたものである。全ての測定はこのピンホールがあるか、または、なにも無い状態で行った。レンズによる集光は行っていない。1mmのピンホールを使用した時の空間分解能は、やはり、1mm程度である。

3 - 2 - 4 ステージと暗箱

分光器、光電子増倍管、放電管は一体のステージ上に固定され、全体を65×80×185cmの暗箱で覆って測定を行った。

全体の外観を図3-5に示す。



(a)



(b)

図3-5 分光器とフォトンカウンタ

3-3 プローブバイアス電源と測定系

単探針のバイアス電源は、電池の電圧を抵抗分圧して印加するものである。単探針の電流電圧測定には、2器のデジタル電圧計を用いた。回路構成を図3-6に示す。2本の単探針によりそれぞれの位置の空間電位を測定し、その間の電界強度を測定している。実際には、2点の空間電位差だけが重要なので、プローブ電流が零になる電位（浮動電位）を計測した。なお本研究では、電子密度や電子温度のプローブ測定は行っていない。これは、電子密度や電子温度の測定と比較して、電位の測定は極めて簡単で、かつ測定値の精度もはるかによいと考えたためである。

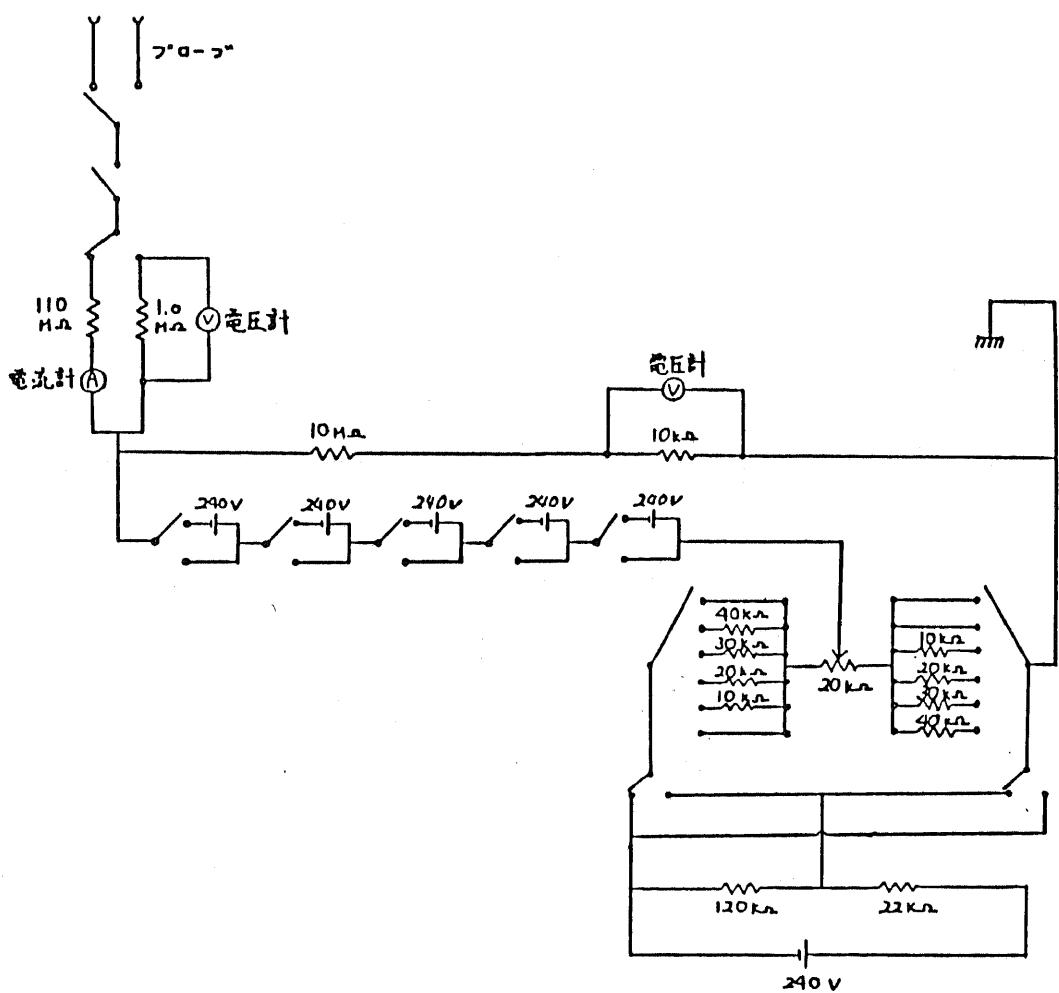


図3-6 プローブバイアス電源と測定系

3-4 排気系

排気系の構成を図3-7に示す。排気はコールドトラップ付きの油拡散ポンプ（徳田製作所製ESV-2AC）で行い、 2×10^{-6} Torr程度まで排気可能である。ガス圧の測定には、 10^{-3} ～ 13 Torrの領域で可変キャパシタンス方式の圧力計（日本エム・ケー・エス社製MK Sバラトロン タイプ122A）を使用し、 10^{-3} Torr以下の領域では熱陰極電離真空計（徳田製作所製MODEL HFT-4）を使用した。窒素は公称純度99.999%のものを、Arは99.995%のものを使用した。

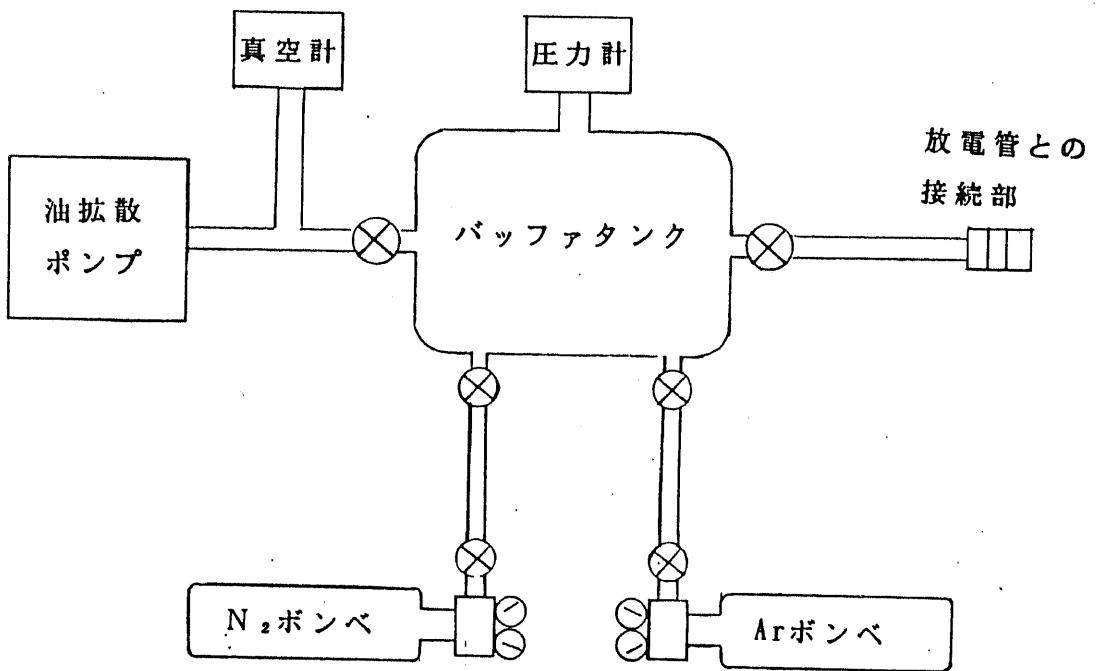


図3-7 排気系

3 - 5 光源

4種類の光源を用意した。

(A) Hg ペンレイランプ

ラインスペクトルの光源として、分光器の波長校正や装置関数の決定に使用した。

(B) Wランプ

連続光の光源として、スリット幅の零点チェックに使用した。

(C) D₂ランプ

紫外領域の連続光光源であるが、特に使用しなかった。

(D) 分光放射照度標準電球

ウシオ電機株式会社製の標準電球で、日本電気計器検定所の試験を受けた、タンクステンハロゲン電球である。本研究では、標準電球を使用しないで測定装置の効率を求める手法を開発したので、この電球も特に使用しなかった。

第4章 電界強度・電子密度の推定法とその校正法

4-1 はじめに

放電空間からのN₂の発光を受動分光測定し、強度比法による解析で平均電子エネルギーおよび電界強度を調査した例に、Gallimberti(1)、Spyrou(2)、西嶋(3)らの報告がある。GallimbertiおよびSpyrouの手法には、

- ① 2nd Positive band と 1st Negative bandとを使用する。
- ② 電子エネルギー分布関数に、Maxwell分布（熱平衡時のエネルギー分布）およびDruyvesteyn分布（弹性衝突のみのときのエネルギー分布）を仮定する。
- ③ 失活反応の効果をクエンチングファクターで表現する。

という共通点がある。一方、西嶋は、

- ①' 2nd Positive band と 1st Positive bandとを使用する。
- ②' 電子エネルギー分布関数にボルツマン方程式の解を使用する。
- ③' 失活反応の効果をレート方程式解析で求める。

という手法を提案し、理論計算を行なった。しかし、実験による検証は報告されていない。そこで、西嶋の手法を実験的に検証することを目的として研究を始めた。

最初に、実際に推定を行う上で最も重要なと考えられる、推定手法の校正手法を提案した。この校正手法の基本方針は、電子密度および電界強度が既知の放電空間を用いて、分光学的手法により、

- (1) レート方程式解析に必要な失活反応係数を決定する
- (2) 測定系の効率を決定する

というものである。分光推定法の校正手法そのものをテーマとして大きな努力をはらったという文献は、調査した範囲では見かけられなかったから、方向性としては他に類の無い研究であると考える。さらに、電子密度・電界強度が決定可能な放電空間として、低気圧グロー放電陽光柱を利用することとしたうえで、この校正の手続きを簡略化するために、校正法に適応した簡便な陽光柱理論を提案した。

これらの手法を結び付けて、信頼性の高い電界強度・電子密度の分光推定法を実現した。陽光柱内では両者ともに、1割程度の誤差内で、分光推定が可能であると結論した。

この手法により、陽光柱、陽光柱端、陰極近傍、針-平板ギャップの放電の分光計測を行い、手法の有効性と限界を調査した。

以上の内容について述べる。

4 - 2 推定法と校正法

4 - 2 - 1 放射レート解析

低気圧窒素グロー放電からの発光は、SP, FP, FNシステムが主である。これらの中から、それぞれ、SP00 (337.1nm), FP31 (762.6nm), FN00 (391.4nm) を測定対象とする。ただし陽光柱内では電界強度が低いため、FN00の発光は微弱である。さらに、FN00の波長近傍に存在するSP25の発光がFN00と重なるために、FN00のみの放射光子数を計測することはできない（図2-4参照）。以下においてFN00の測定データは、SP25の発光を分離したものではない。

レート方程式解析の基本構成は文献(3)に従った。ただし、 $B^3\Pi g$ 、 $C^3\Pi u$ の励起レートの計算には放射断面積ではなく励起断面積を使用した。電子衝突励起レートは励起断面積とボルツマン方程式数値解の電子エネルギー分布関数とで（式2-1）により決定する。SP00のレート方程式解析では直接励起分に加えて $C^3\Pi u$ の上位振動準位からの間接遷移による励起分も考慮する。また、FP31のレート方程式解析では、直接励起分に加えて $C^3\Pi u$ 準位からの間接遷移による励起分も考慮する。

(A) S P 0 0

モデル図4-1（図2-14を再掲）を前提にして議論を進める。振動準位 $v=4$ までを考慮する場合には、 $C^3\Pi u$ の振動準位 v に励起される分子数 n_{cv} は、

$$n_{c4} = \frac{R_{c4}}{K_{rc4} + K_{ec4}P + K_{vc4}P} \quad (\text{式4-1})$$

$$n_{c3} = \frac{R_{c3} + K_{uc3}P n_{c4}}{K_{rc3} + K_{ec3}P + K_{vc3}P} \quad (\text{式4-2})$$

$$n_{c2} = \frac{R_{c2} + K_{uc2}P n_{c3}}{K_{rc2} + K_{ec2}P + K_{vc2}P} \quad (\text{式4-3})$$

$$n_{c1} = \frac{R_{c1} + K_{uc1}P n_{c2}}{K_{rc1} + K_{ec1}P + K_{vc1}P} \quad (\text{式4-4})$$

$$n_{c0} = \frac{R_{c0} + K_{uc0}P n_{c1}}{K_{rc0} + K_{ec0}P} \quad (\text{式4-5})$$

として、求められる。SP00の放射レート I_{SP00} は、次式で与えられる。

$$I_{SP00} = A_{C0B0} K_{rc0} n_{c0} \quad (\text{式4-6})$$

ここに、 n は電子数、 R は励起レート、 K_r は放射失活反応係数、 K_e は電子脱励起反応係数、 K_v は振動失活反応係数、 P は0°C換算ガス圧である。添え字Cは $C^3\Pi u$ 準位に関するこことを、添え数字は振動準位をそれぞれ表わす。また、 A_{C0B0} は $C^3\Pi u(v=0)$ から $B^3\Pi g(v=0)$ への相対遷移確率（Frank-Condon factor）である。以下同様の記号を用いる。

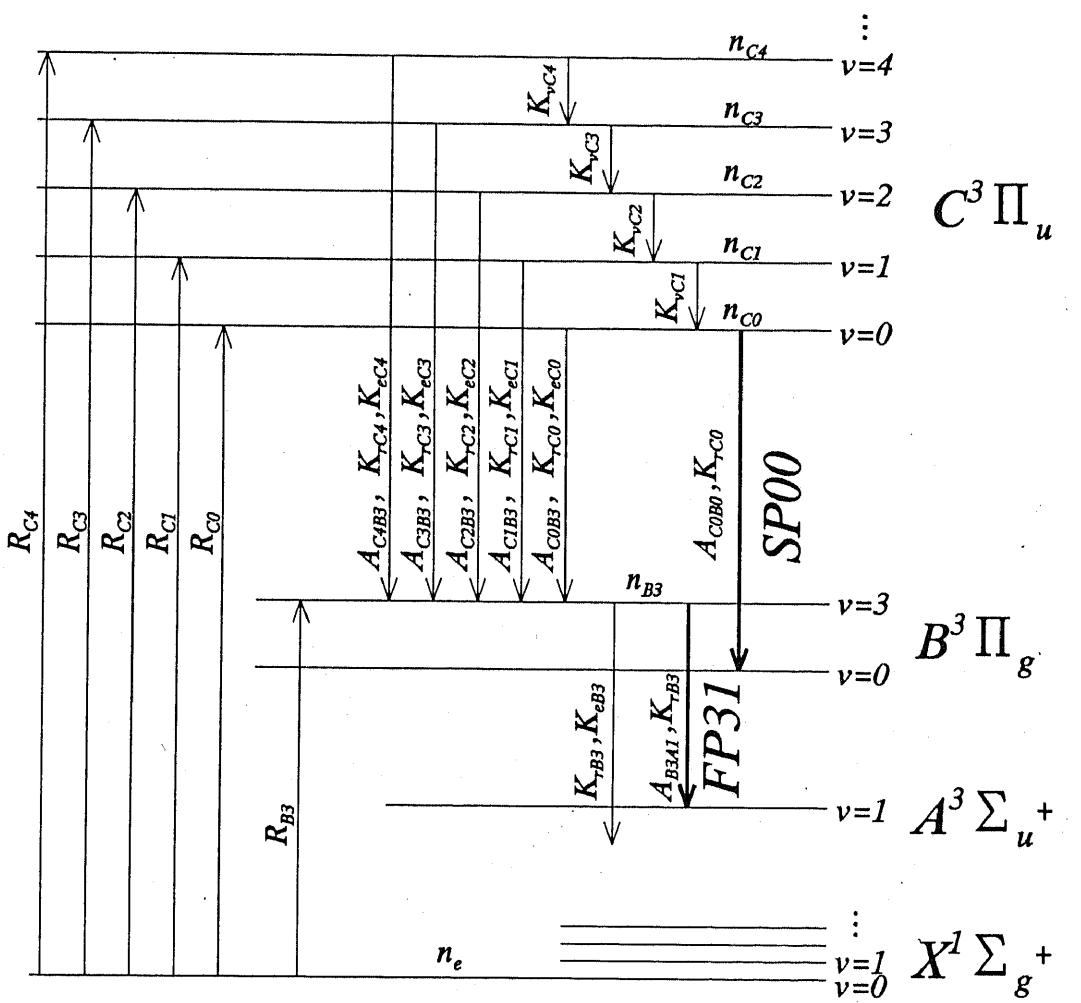


図4-1 $SP00, FP31$ に関する遷移モデル

(B) F P 3 1

$B^3\Pi g$ の振動準位 $v=3$ に励起される分子数 n_{B3} は、次式で求められる。

$$n_{B3} = \frac{R_{B3} + \sum_{v=0}^4 A_{cv} \cdot B_3 (K_{rcv} + K_{ecv} P) n_{cv}}{K_{rB3} + K_{eB3} P} \quad (\text{式 4-7})$$

よって、FP31の放射レート I_{FP31} は次式で求められる。

$$I_{FP31} = A_{B3A1} K_{rB3} n_{B3} \quad (\text{式 4-8})$$

ここに、 A_{B3A1} は $B^3\Pi g (V=3)$ から $A^3\Sigma u^+ (V=1)$ への相対遷移確率である。なお、 R_{cv} および R_{bv} は、振動温度を 1000K として、5-3節の手法で決定している。

(C) F N 0 0

FN00の放射レート I_{FN00} を求めるために、放射断面積を使用することを前提に、次のような計算を行なう。 $N_2^+ B^2\Sigma^+_u$ の $V'=0$ から $N_2^+ X^2\Sigma^+_e$ の $V''=0$ への遷移に関連する $B^2\Sigma^+_u$ の $V'=0$ 準位への励起分子数 n_{+B00} は、次式で与えられる。

$$n_{+B00} = \frac{R_{+B00}}{K_{r+B0} + K_{e+B0} P} \quad (\text{式 4-9})$$

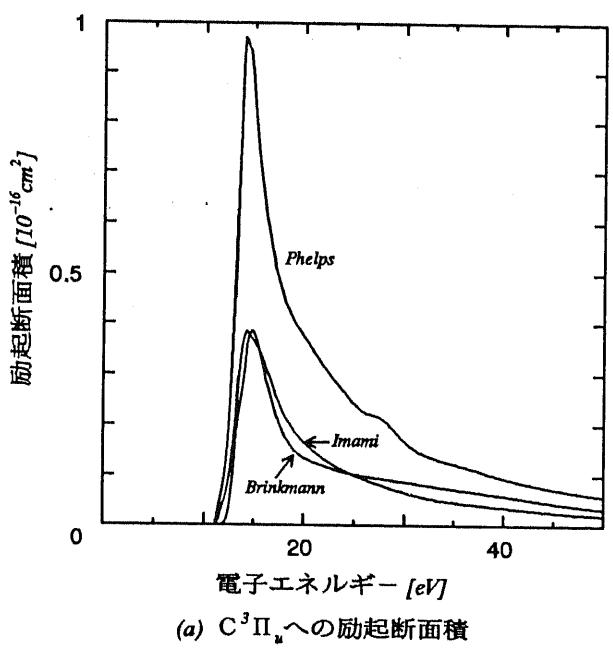
ここで、 R_{+B00} は $N_2^+ B^2\Sigma^+_u$ の $V'=0$ への励起分子の内で $N_2^+ X^2\Sigma^+_e$ の $V''=0$ へ遷移可能な励起分子の励起レートである。FN00の上位準位の励起分子に関するカスケード効果は、報告が見あたらないので省略する。この場合は、相対遷移確率を用いる必要はなく、FN00の放射レート I_{FN00} は次式で与えられる。

$$I_{FN00} = K_{r+B0} n_{+B00} \quad (\text{式 4-10})$$

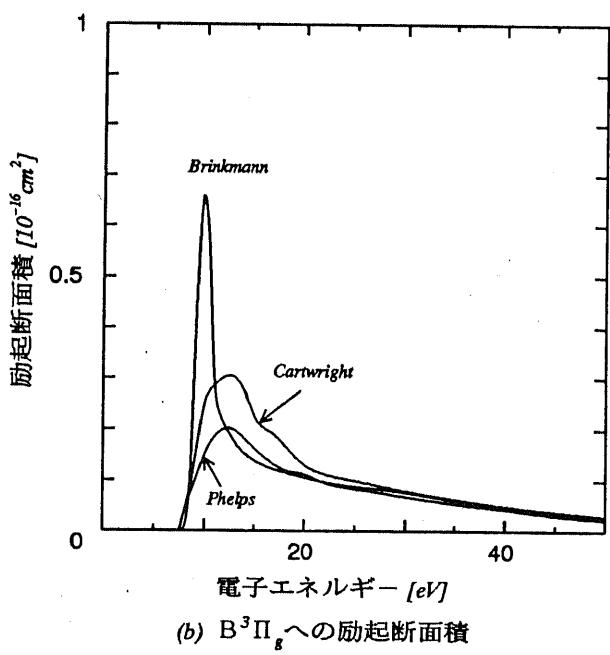
さて、レート方程式解析を行なうためには、励起断面積と各準位の反応係数が既知である必要がある。残念なことに、利用できる断面積・反応係数のデータは報告者毎に値が異なっており、どれが真値であるかは容易に判断できない。断面積については、まず利用可能なデータを複数集め比較検討を行なうこととした。

SP00のレート方程式解析に必要な $C^3\Pi u$ への励起断面積として、Phelps(4)、Brinkmann(5)、Imami(6)のデータを参照した。ただし、Imamiのデータは Itikawaら(7)が修正を行ったものを使用した。FP31のレート解析に必要な $B^3\Pi g$ への励起断面積には、Phelps、Brinkmann、Cartwright(8)の励起断面積を参照した(図 4-2 参照)。FN00については $N_2^+ B^2\Sigma^+_u$ への励起断面積の報告が無いので、Borst(9)の発光断面積を用いた(図 2-11 参照)。

$C^3\Pi u$ の放射・振動失活、電子脱励起の反応係数および、 $B^3\Pi g$ 、 $N_2^+ B^2\Sigma^+_u$ の放射失活、電子脱励起の反応係数は、文献(10)(11)から引用した(表 2-1 参照)。なお、この反応係数は西嶋が文献(3)のモデル計算で使用した値である。



(a) $C^3\Pi_u$ への励起断面積



(b) $B^3\Pi_g$ への励起断面積

図4-2 諸氏の励起断面積

4 - 2 - 2 電界強度・電子密度の分光推定法

ボルツマン解析による電子エネルギー分布を基礎としているので、換算電界強度 E/P に対して電子のエネルギー分布は一対一に対応する。当然、電子の平均エネルギーも換算電界に対して一意に定まる（図 2-13 参照）。圧力 P を定めれば、前記のレート方程式解析により、換算電界対放射レートの曲線が得られる。FP31の放射レートとSP00の放射レートとの比もまた、換算電界に対してプロットできる。よって、FP31とSP00の放射光子数の実測値から、 $FP31/SP00$ の比をとり、換算電界を決定できる。このように 2 つのスペクトル強度の比から、電界強度または電子エネルギーを推定する手法は、強度比法と呼ぶのが普通である。

さらに、換算電界が決定されれば放射レートが定まるので、放射光子数の絶対値とこの放射レートとにより電子数密度を決定できる(12)。以上の説明は、図 4-3 を参照されたい。

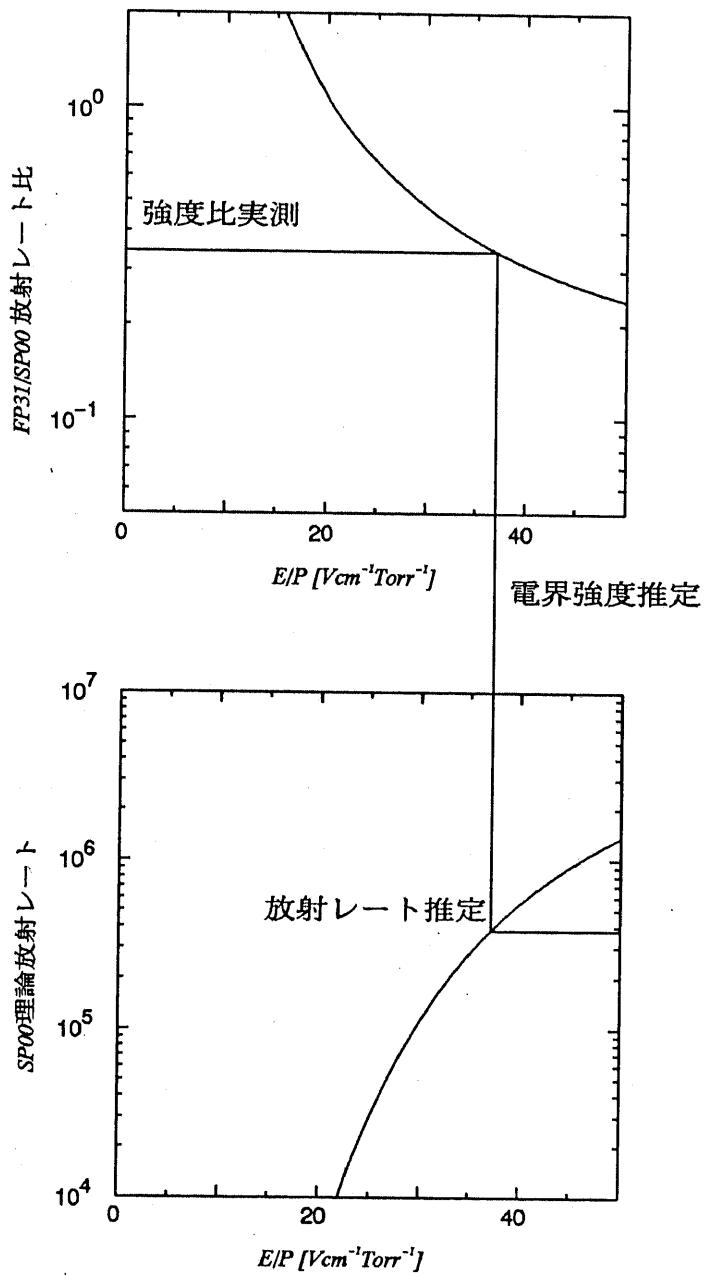


図4-3 電界強度、電子密度の分光推定法

4-2-3 電界強度および電子密度の推定法の校正法

4-2-3-1 校正手法の検討

前節で述べた電界強度・電子密度の推定法で使用した放射レートの理論曲線は、断面積・反応係数の選択により複数のものが作成できる。どの計算値が真値に近いものであるかは、実測値と比較することによってのみ明らかとなるが、まず、各データの変動が放射レート計算値に与える効果の大小を見積もる必要がある。

レート方程式解析に基づく理論計算時に、選択の必要があるパラメータは、

(1)断面積の形状、(2)断面積の絶対値、(3)各失活過程の反応係数
である。それについて検討した結果、(1)(2)については次のことが分かった。

(1)断面積の形状

S P 0 0 ・ F P 3 1 とともに各 3 種の断面積（図 4-2 参照）を使用して数値計算を行なった結果、 E/P が $30 \sim 55 \text{ Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ の領域で、断面積形状の違いは放射レートの E/P 依存性に、ほとんど影響を与えない。

(2)断面積の絶対値

断面積の絶対値を単独で校正できるほどに、分光絶対感度を正確に決定する事は困難である。断面積絶対値の不確かさと分光絶対感度の不確かさとを合わせた係数を考えるべきである。

以上より、3 氏の断面積のどれを用いても以下の解析に差し仕えないと結論した。Itikawa らの文献(7)によれば、 $C^{\circ}\Pi u$ には Imami らの励起断面積が、 $B^{\circ}\Pi g$ には Cartwright らの励起断面積が推奨されているので、これらを使用する事とした。ただし断面積形状の一部については、Phelps の励起断面積を用いて修正を行なった。一方(3)については、以下のようなことが分かった。

(3) $C^{\circ}\Pi u$ の反応係数

放射の反応係数 $K_{rc} [\text{s}^{-1}]$ に対して、放射以外の反応係数 $K_{rc}, K_{vc} [\text{Torr}^{-1}\text{s}^{-1}]$ は、二桁程度小さい値である。よってガス圧数 Torr の条件では、放射以外の反応確率は放射確率に対して無視できる。西嶋の用いた反応係数をそのまま使用しても計算結果に問題はない。

(3') $B^{\circ}\Pi g$ の反応係数

放射の反応係数 K_{rc} と放射以外の反応係数 K_{rc} は、ほぼ同程度の値であるので、数 Torr の実験条件でもレート計算結果に顕著な影響が現われる。 K_{rc} は放射寿命の逆数であり、一般に値の信頼性は高いと考えられるが、 K_{rc} は、Mitchell の文献(10)にもあるように、諸氏の発表値が大きく異なる。よって、分光測定データと理論計算結果とを比較して、反応係数 K_{rc} の校正を行う必要がある。

なお、FN00については、4-2-1 節で述べた理由より、校正が行えなかったので、理論レートを計算し、結果は参考として扱うこととした。

4-2-3-2 放射レートの実測法

分光測定で得られる、フォトンカウンタの出力は、

$$(カウント数) = \eta_1 \times I_0 \times (\text{光軸上平均電子密度}) \quad (\text{式4-11})$$

$$\eta_1 = (\text{集光系効率}) \times (\text{測定系効率}) \quad (\text{式4-12})$$

であると考えられる。ただし、 I_0 は真の放射レート、 η_1 は総合測定効率である。
(集光系効率)とは放電形状と測定系の入射スリットとの幾何学的配置で決まる効率
であり、(測定系効率)とは分光器、フォトンカウンタ等の効率を合わせたものとする。
(集光系効率)と(測定系効率)とは測定系を変化させない限り定数である。よって、電子密度空間分布を実験あるいは陽光柱理論により決定できれば、

$$I_{ex} = (\text{カウント数}) / (\text{光軸上平均電子密度}) = \eta_1 I_0 \quad (\text{式4-13})$$

の関係から、真の放射レート I_0 に比例する値 I_{ex} を決定可能である。本論文では、
 I_{ex} を「実測放射レート」と呼ぶことにする。以下の計算では、陽光柱内電子密度
空間分布は 4-2-4 節の陽光柱理論で決定した。

4-2-3-3 放射レート解析手法の妥当性

4-2-3-1 節(3)の結果より、 $C^3\Pi u$ の反応係数については校正の必要はない。
従って、SP00の放射レートについては、レート解析手法が正しければ、理論値
と実測値とは比例係数を除いて一致するはずである。このことを確認するために、
放電管Bを用いて、電流は2.0mAに固定し、ガス圧Pを0.2Torrから1.5Torrまで変化
させ、放電管中心軸上のSP00放射光子数を測定した。分光器の射出スリット幅はバ
ンドの幅に応じて開き、SP00の全放射光が測定できるようにした。理論放射レート
と、絶対値に適当なスケーリングを施したSP00の実測放射レートとの比較を
図4-4に示す。なお、理論放射レートを定めるのに必要なE/Pはプローブ測定
により決定した。放電管の工作精度による歪とプローブ挿入による擾乱とを考慮す
ると両者の一致は、ほぼ良好であると考えられる。よって、理論放射レートを解析
する手法として本手法は有用であると結論できる。

4-2-3-4 $B^3\Pi g$ の脱励起反応係数の校正

結局、4-2-1 節の遷移モデル(図4-1)を前提とすれば、校正すべき値は、
 $B^3\Pi g$ 準位の電子脱励起反応係数 K_{eB3} のみである。(式4-7),(式4-8)より理論放射
レート $I_{th}(P)$ と I_0 には、次の関係がある。

$$I_{th}(P) = \frac{A_{B3A1} K_{rB3} R(P)}{K_{rB3} + K_{eB3} P} = \eta_2 I_0(P) \quad (\text{式4-14})$$

ただし、R(P) : $C^3\Pi g$ からのカスケード分を含む $B^3\Pi u$ への理論励起レート、
P : ガス圧、 K_{rB3} : 放射反応係数、 η_2 : 断面積の絶対値の不確かさを表わす係数、

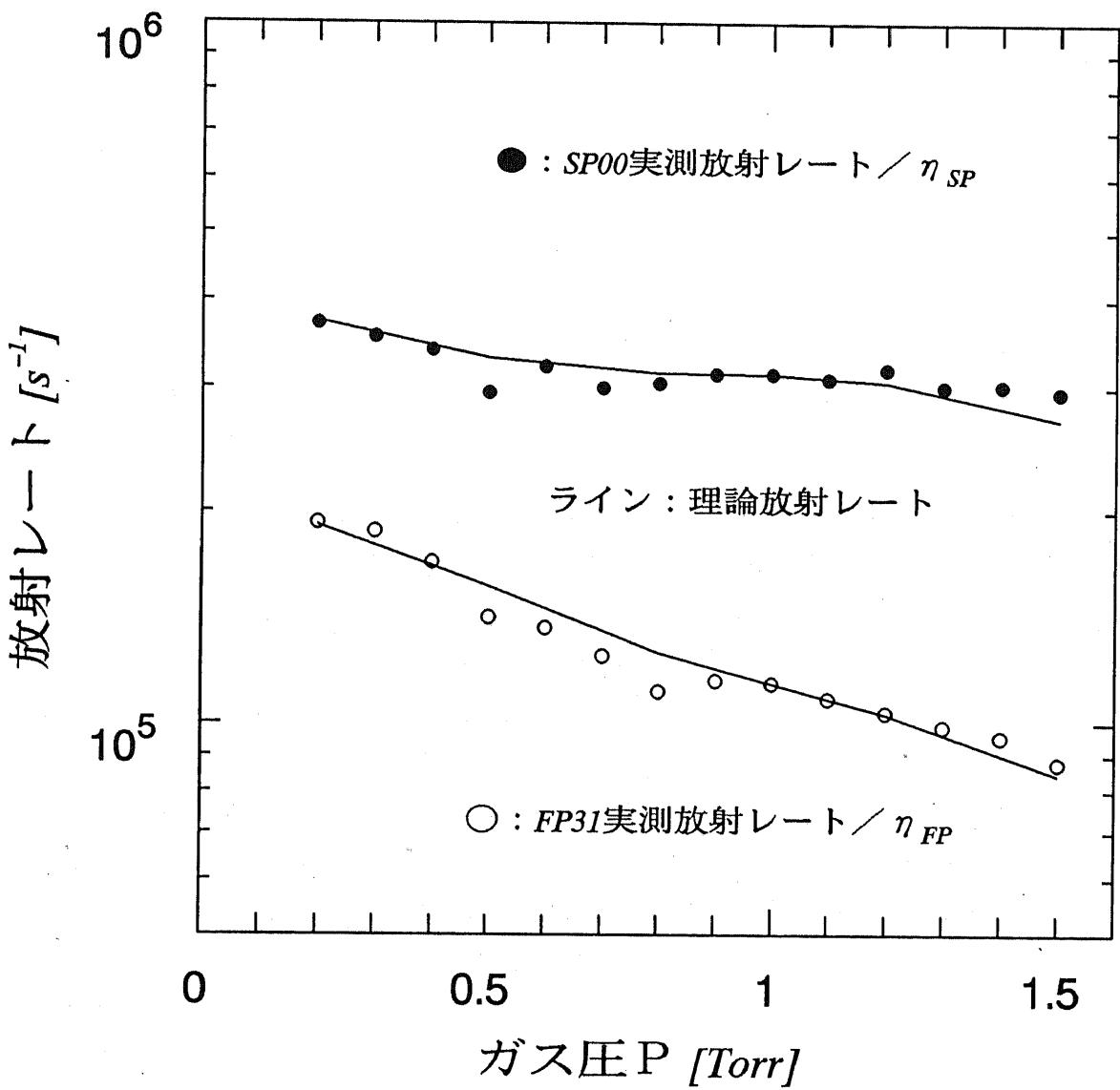


図4-4 放射レートの理論値と実測値との比較

(P) : 圧力 P での値を意味するものとする。よって、(式4-13), (式4-14)より、実測放射レート $I_{ex}(P)$ と理論放射レート $I_{th}(P)$ には次の関係がある。

$$\eta I_{th}(P) = I_{ex}(P) \quad (\text{式4-15})$$

ただし、 $\eta = \eta_1 / \eta_2$ であり、 η は断面積絶対値の不確かさと、総合測定効率とを合わせた係数である。ここで、校正係数 A を $A = K_{eB3} / K_{rB3}$ と定義すれば、2 種類の圧力 P_1, P_2 に対して、次式が導かれる。

$$A = \frac{I_{ex}(P_1)R(P_2) - I_{ex}(P_2)R(P_1)}{P_1 I_{ex}(P_2)R(P_1) - P_2 I_{ex}(P_1)R(P_2)} \quad (\text{式4-16})$$

(式4-16)には、 η が含まれておらず全ての値を決定できるので、圧力 P を変化させて実験を行なうことで、校正係数 A の最適値が求められる。ただし、C³Πu励起断面積の絶対値と B³Πg励起断面積の絶対値との相対比が正確なものでなければ、(式4-14)の断面積の不確かさを η_2 だけで表現できない。Itikawaの文献の中で、Imamiの C³Πuの励起断面積と Cartwright の C³Πuの励起断面積とがよく一致するという報告があるので、このことを根拠に、使用した Imami の C³Πuの励起断面積と Cartwright らの B³Πgの励起断面積とは、絶対値に良い整合がとれているものと考えた。分光測定結果を(式4-16)式で解析する事で、次の結果を得た。

$$A = \frac{K_{eB3}}{K_{rB3}} \approx 2.6 \quad (\text{式4-17})$$

なお、A [Torr⁻¹]の逆数は、電子衝突で励起された分子の内で放射に寄与するものと寄与しないものとが等数になるガス圧を意味する。A = 2.6とした時の FP31 の理論放射レートと実測放射レートも図 4-4 に示す。これより校正係数が確定できた。

4-2-3-5 レート方程式解析結果

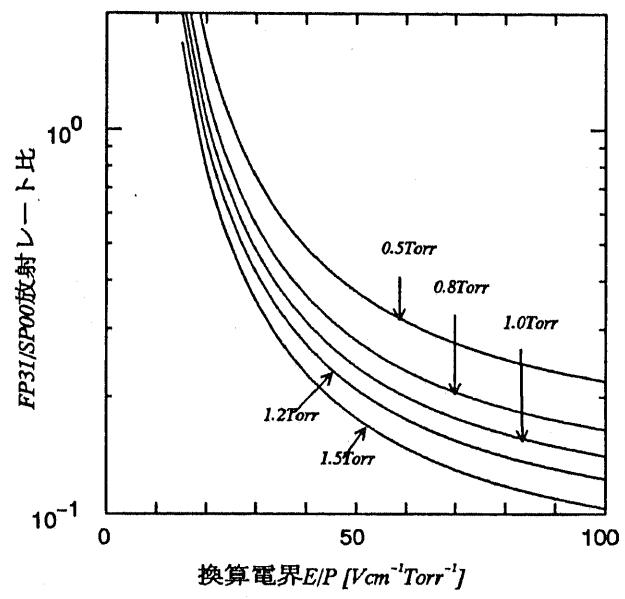
前節の結果を用い、レート方程式解析を行った(図2-15参照)。強度比法で電界強度推定に必要な理論放射レートの比を、図4-5に示す。この結果を用いて、受動分光強度比法で電界強度を推定すれば、プローブによる電界強度測定精度の程度で正確な推定が可能である。(式4-15)の η は、図4-4のスケーリングの係数として定められるので、A = 2.6を用いることで、

$$\text{SP00の波長で: } \eta_{SP00} \approx 2.05 \times 10^{-11} \text{ cm}^3$$

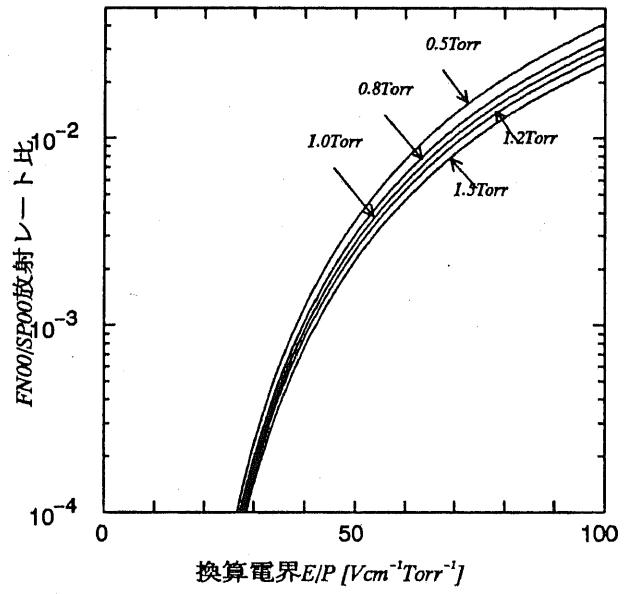
$$\text{FP31の波長で: } \eta_{FP31} \approx 0.27 \times 10^{-11} \text{ cm}^3$$

$$\eta_{SP00} / \eta_{FP31} \approx 7.6$$

となった。これらより、現在の装置系での、断面積の絶対値の不確かさを含んだ総合測定効率を決定できた。分光測定系の総合効率を決定することは、重要かつ非常に困難な事柄であるが、陽光柱を標準としたことで、この様な校正が行えるという点は重要である。



(a) FP3I/SP00理論放射レート比



(b) FN00/SP00理論放射レート比

図4-5 換算電界対理論放射レート比

4 - 2 - 4 陽光柱理論

4 - 2 - 4 - 1 陽光柱理論の必要性

ここまで、分光測定手法の校正手法について述べてきたが、そこでは、

- (1) 放電管軸方向電界強度
- (2) 放電管径方向電子数密度分布

が、既知である必要がある。

(1)はプローブ測定により容易に決定できる。一方(2)は、放射光子数径方向特性の実測値と電界強度測定値および放電電流の測定値を用いても決定できる。しかし、放射光子数の径方向特性を実測するのは、一般に装置構成を複雑に、測定時間もかかることから、陽光柱理論による解析も有用である。あるいは、(2)もプローブ測定によって決定可能ではあるが、測定に手間がかかる上、決定精度も必ずしも高くない。以上より、陽光柱理論で(2)を決定できれば実用上有利である。

また、グロー放電陽光柱を用いて実験的に校正を行うという立場からは、放電電流を定めたときに、(1)(2)が求められる陽光柱理論が望ましい。特に(2)の決定が問題であるから、放電電流に対して(2)が実用に耐える精度で求められる陽光柱理論を使用すれば、先の校正手法が実現できる。

今回の実験では、使用した単探針付き放電管Bの半径が0.9cmであり、シース領域は半径の1割以上におよんだ。この様な陽光柱を理論計算で取り扱う際には、シースの取り扱いが重要と考えられる。そこで、Allisらの準中性条件の無い陽光柱理論(13)を、円筒陽光柱に適用した。

Allisらの陽光柱理論は、武田(14)、土手(15)が陽光柱の統一理論構築に適用した例があるが、ここでは陽光柱の特性を幅広く統一的に把握するためではなく、本論文で対象としている陽光柱についての詳細情報を得るために使用した。

4 - 2 - 4 - 2 基本式

Allisらの手法の特徴は、プラズマの準中性条件を仮定する必要が無いことと、シース領域を特別あつかいすることなく、ただ一組の方程式群を解けばよい、という所にある。端的には両極性拡散係数を使用しないのが特徴である。基本方程式は、以下のものである。

$$\text{径方向電子流の方程式} : \Gamma = -D_{\perp} \nabla n_{-} - \mu_{-} E_r n_{-} \quad (\text{式 } 4-18)$$

$$\text{径方向イオン流の方程式} : \Gamma = -D_{\perp} \nabla n_{+} + \mu_{+} E_r n_{+} \quad (\text{式 } 4-19)$$

$$\text{荷電粒子の生成方程式} : \nabla \cdot \Gamma = n_{-} \nu_{-} \quad (\text{式 } 4-20)$$

$$\text{ポアソン方程式} : \nabla \cdot E_r = e(n_{+} - n_{-}) / \epsilon_0 \quad (\text{式 } 4-21)$$

ただし、 Γ ：径方向荷電粒子流、 E_r ：径方向電界、 n_{+} ：イオン密度、 D ：拡散係数、 μ ：移動度で、 $+$ の添え字はそれぞれイオン・電子に関する事を示す。 r

: 放電管径方向に取った座標、R : 放電管半径として、境界条件は、

$$\Gamma(r=0) = 0$$

$$E_r(r=0) = 0$$

$$n_-(r=R) = 0$$

(式 4-22)

$$(e\mu_+/\epsilon_0\nu_i)n_{+0}(n_{+0}-n_{-0})=n_{-0}$$

で与えられる。ただし、 $n_{-0} = n_-(r=0)$ 、 $n_{+0} = n_+(r=0)$ とした。

さらにここでは、新たに次のような修正を行った。

(I) 電子の移動度は、 E/P に対する電子のドリフト速度の測定データを基に、
径方向電界 E_r/P の関数として取り扱った。

(II) 電子の拡散係数は、(I)で定めた移動度と、軸方向電界 E_z/P で定まる
電子温度とを用いて、AINシュタインの関係式で定めた。

(III) 電離レートは、軸方向電界 E_z/P に依存した電離レートとする。

(IV) 軸方向電界は放電管内で一様であると仮定する。

(V) 電界と電子温度の関係および電界と電離レートとの関係は、ボルツマン方
程式解析で得た電子エネルギー分布関数を用いて求める。

この修正理論によって、シースが存在する放電条件下での、軸方向電界と電子密
度の径方向分布とが放電電流に対して計算できる。

4 - 2 - 4 - 3 数値計算手法

プログラムの仕様は、放電管中心の電子密度を与えたときに、管中心の電子エネ
ルギー（あるいは軸方向電界強度）を求めるものとした。ルンゲクッタスキームで
放電管中心から管壁に向かって諸量を数値計算し、境界条件を満たすまで軸方向電
界強度を変化させる反復演算を行なった。

数値計算を実行すると、放電管中心付近で大きな数値不安定性が見られた。これ
を抑えるため、

$$E_r > 0, \quad \Gamma > 0, \quad n_+ \geq \frac{n_{+0}}{n_{-0}} n_- \quad (\text{式 } 4-23)$$

の条件をつけ加え不安定性を抑制した。ただし、これらの条件は物理的に妥当なも
のであろう。電子密度分布が得られれば、軸方向電界によるドリフト速度を用いて
放電電流が計算できる。

4 - 2 - 4 - 4 陽光柱理論の評価

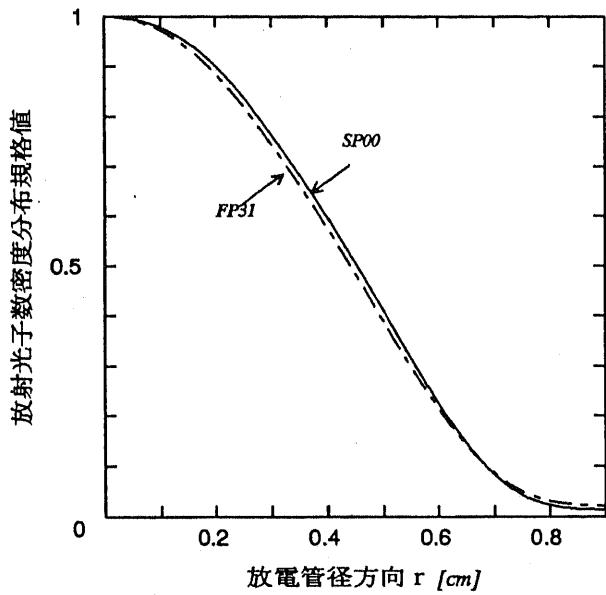
提案した陽光柱理論が、妥当なものであるかどうかを検証するために、まず、電子密度の径方向分布理論値と、放射スペクトル強度の径方向分布測定値との比較を行った。図4-6に、ガス圧1Torr、放電電流2mAでの結果を示す。スペクトル強度分布の測定は放電管Bを用いて行った。直接測定できるのは、測定系光軸上の全スペクトル強度であるが、図4-6には測定値を処理して得た、径方向の放射光子数密度分布が示されている。放射光子数は基本的に電子密度に比例すると考えられるので、両者の一致は陽光柱理論値の妥当性を示すものである。図4-6の理論分布には両極性音速度の条件(16)から求めたシース開始点も示したが、定性的に妥当な位置を示している。

次に、軸方向電界強度について、放電電流を変化させて測定と計算を行った。結果を図4-7に示す。放電管にはやはり放電管Bを用いた。電界強度理論値はプローブ測定値に対しておよそ10%程度の誤差内に納まっている。軸方向電界強度の誤差は、比例的にドリフト速度の誤差を生じさせるから、電流値を固定した場合に、電子密度の絶対値に同程度の誤差を生じさせると考えられる。

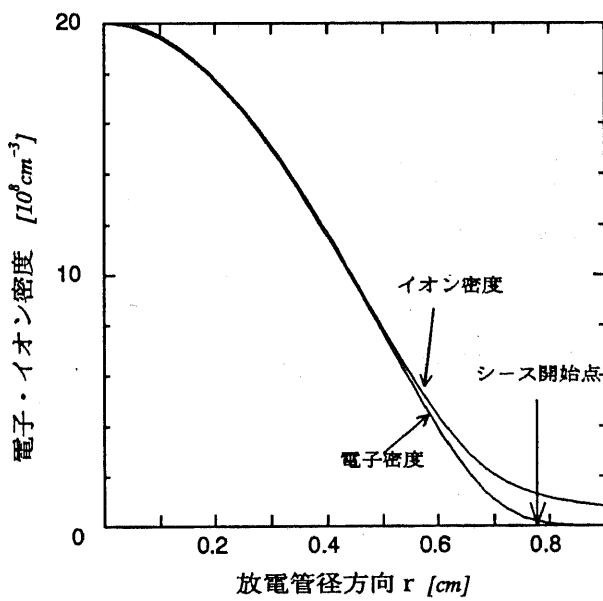
結局、提案した陽光柱理論は、10%程度の誤差で電子密度を決定できるものと考えられる。1割程度の誤差で電子密度を決定できるということは、「2倍程度」と呼ばれる単探針での電子密度決定誤差(17)と比較して、遜色のないものである。

分光計測による電界強度、電子密度推定法の校正に、本節の陽光柱理論による数値計算結果を使用した場合にも、校正結果にやはり1割程度の誤差が含まれることになると結論できる。

なお、本節の陽光柱理論は、ボルツマン方程式解析の結果を使用すると同時に、4-2-4-2 節の仮定(II)ではAINシュタインの関係式を使用しているなど、完全に自己無撞着とはいえない部分もある。また、陽光柱一般の統一的理論の構築を目指したものではないから、どのような陽光柱にも適用可能であるかについては、実験的に明らかにしていない。このような問題点もあるが、本研究の目的である分光診断法の校正には、十分に適用可能なものであると考える。分光診断法の校正法に、この陽光柱理論がどのように使用されたかについては4-2-3-2 節を再読していただきたい。



(a) 実測値から得た放射光子数密度分布



(b) 電子・イオン密度分布理論計算値

$$P=1.0 \text{ Torr}, I=2 \text{ mA}, R=0.9 \text{ cm}$$

図4-6 径方向放射密度・電子・イオン密度分布

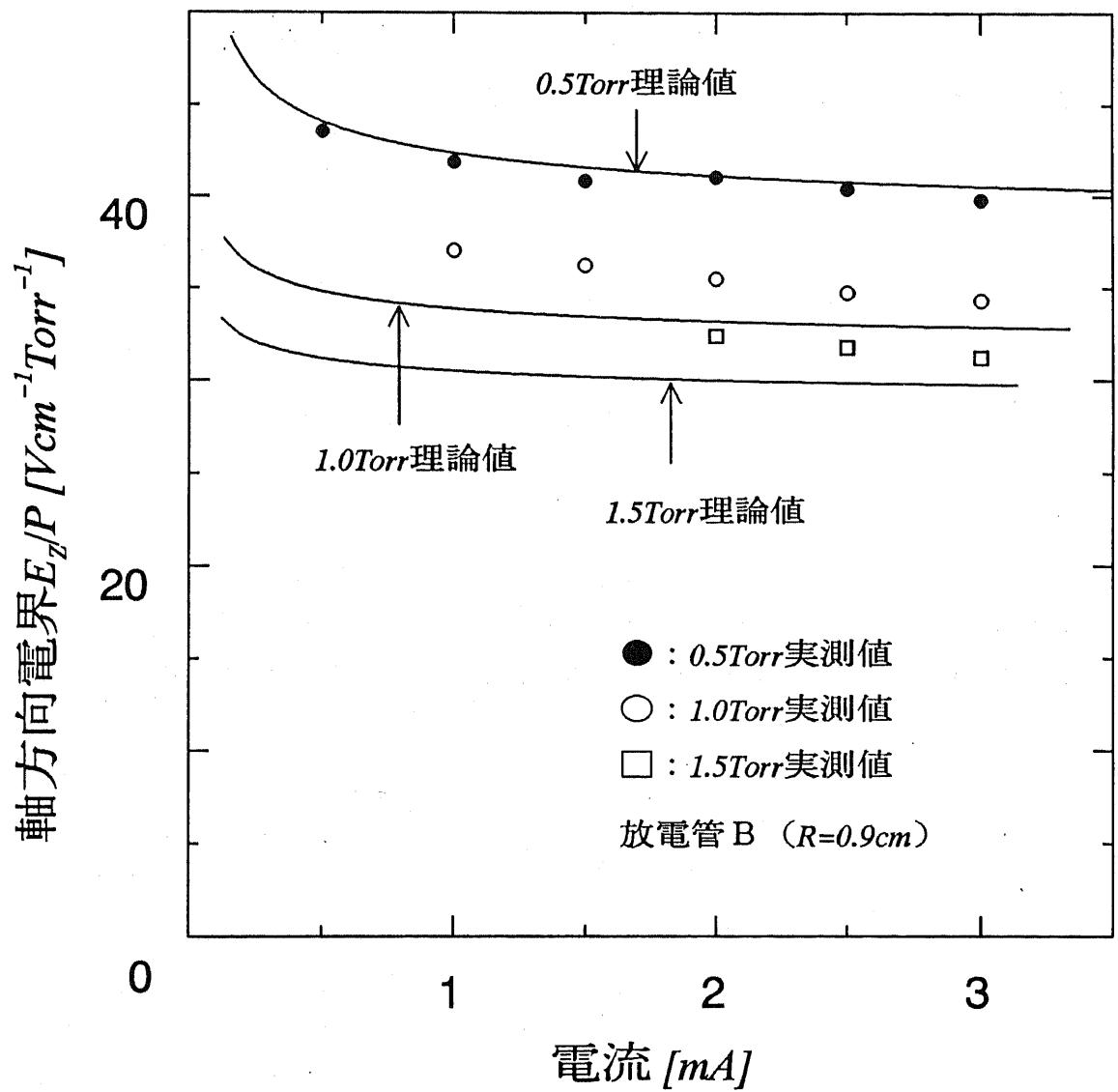


図4-7 電流対軸方向電界

4 - 3 実験・計算結果および考察

4 - 3 - 1 グロー放電陽光柱の分光計測

4 - 2 節で述べた、放電管Bで校正した電界強度・電子密度の分光推定法で、実際に診断を行う。先に述べた効率 η を用いて、実際に電界強度の推定を行うには、次式を用いる。

$$\frac{I_{0FP31}}{I_{0SP00}} = \frac{\eta_{1SP00}}{\eta_{1FP31}} \frac{C_{FP31}}{C_{SP00}} = \frac{\eta_{SP00}}{\eta_{FP31}} \frac{C_{FP31}}{C_{SP00}} = 7.6 \frac{C_{FP31}}{C_{SP00}} \quad (\text{式4-24})$$

ここで、Cはフォトンカウンタの出力 [s^{-1}]を示すものとする。これより、フォトンカウンタの出力比から、真の放射レート比が定められる。よって、強度比法で電界強度が求められる。電界強度が求まれば、SP00の理論放射レート I_{thSP00} が定まる。そこで、校正に用いた放電管Bでは光軸上平均電子密度 N_L を次式で推定できる。

$$N_L = \frac{C_{SP00}}{\eta_{SP00} I_{thSP00}} = \frac{C_{SP00}}{2.05 \times 10^{-11} I_{thSP00}} \quad (\text{式4-25})$$

一方、用いる放電管の半径 R' [cm]が放電管Bの半径 ($R=0.9\text{cm}$) と異なる場合には、(集光系の効率) が R' に比例して変化し、 η_1 および η_2 も R' に比例して変化するから、次式を用いる必要がある。

$$N_L = \frac{C_{SP00}}{\frac{R'}{R} \eta_{SP00} I_{thSP00}} = \frac{0.9 C_{SP00}}{2.05 \times 10^{-11} I_{thSP00} R'} \quad (\text{式4-26})$$

最初に、放電管Bでの軸方向電界強度のプローブ測定値と分光推定値とを比較した(図4-8)。2mAでの分光推定値は校正に用いた点であるから、この部分で両者がよく一致するのは言うまでもない。1mA近辺の他の分光推定値も、良好な一致を示している。

次に図4-9に、放電管Aにおける圧力1Torrのグロー放電陽光柱の分光測定結果を示す。同図には比較のために、4-2-4節の陽光柱理論による理論値も示した。放電管Aには単探針は付いていないので、電界強度のプローブ測定値はない。電界強度、光軸上平均電子密度とともに、両者それぞれ1割程度の誤差を含むものと考えられるので、両者の一致は良好なものと考えられる。

以上より、グロー放電陽光柱内の電界強度・電子密度を、1割程度の誤差内で分光推定可能であることが示された。

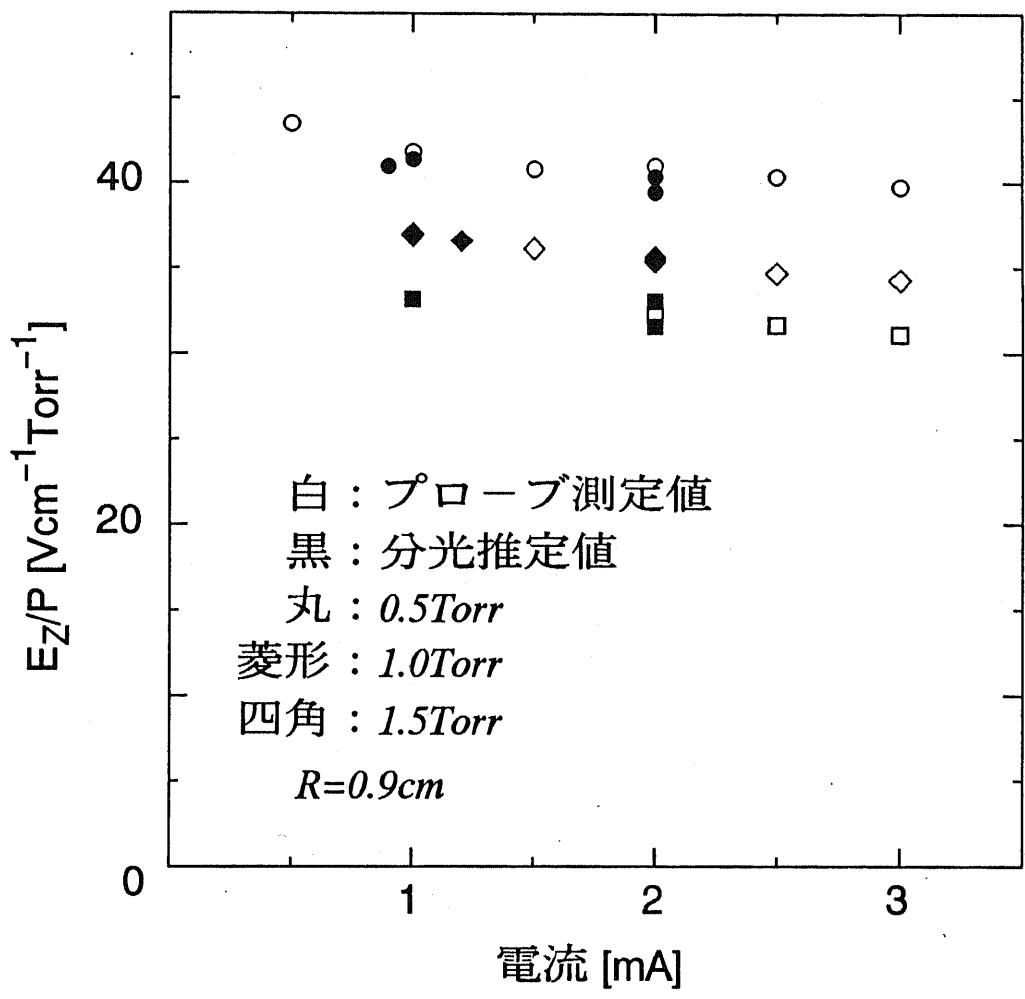
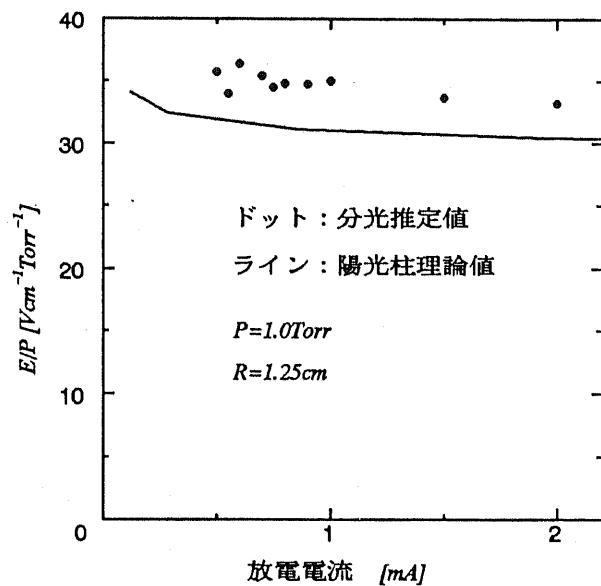
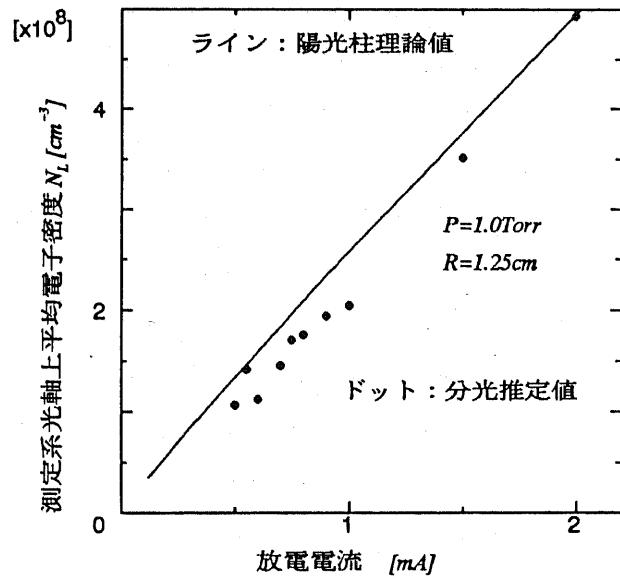


図4-8 放電管Bの陽光柱内電界強度



(a) 放電管Aの陽光柱内電界強度推定



(b) 放電管Aの陽光柱内電子密度推定

図4-9 陽光柱内電界強度、電子密度の推定

4-3-2 グロー放電陽光柱端の分光計測

本手法を適用して、さらにグロー放電陽光柱端部（ファラデー暗部との境界領域）の分光計測を実行した。実験条件は、放電管Aで圧力1Torr、電流0.55mAである。また、分光器の集光部には直径1mmのピンホールを使用しているので、位置分解能もおよそ1mm程度である。

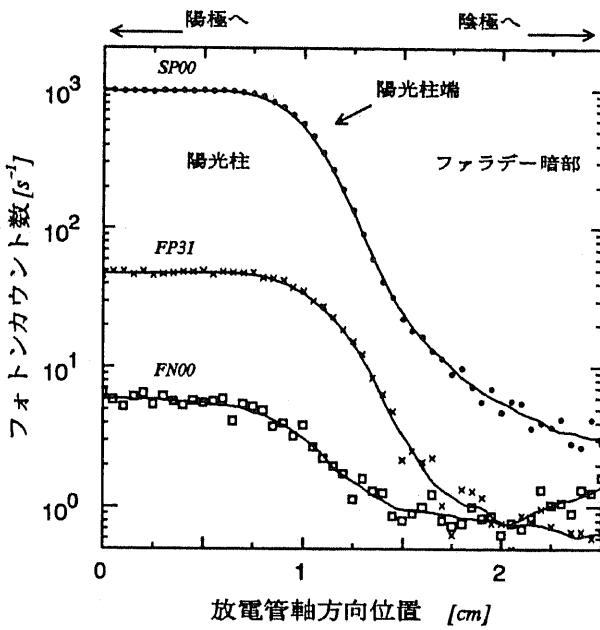
放電管中央部の発光を、放電管軸方向に移動して測定した結果を図4-10(a)に示す。当然のことながら、ファラデー暗部から陽光柱に向けて発光強度が強くなっている。また、FP31, SP00, FN00の順に発光のピークが現れるのも、それぞれの遷移もとの準位の励起しきいエネルギーの順序に対応している。陽光柱は縞がたつこともなく、端部から一様な発光分布を示している。FN00は陽光柱においても発光が微弱であり、全域で測定データのはらつきがみられる。SP00, FP31はファラデー暗部において測定データのはらつきがみられる。特に単位秒当たり数発以下の測定データは、極めて誤差が大きいと考えられる。なおこのデータは、一点当たり約30~40秒間の測定を行い平均値を求めたものである。

図4-10(b)に、SP00とFP31の測定データをもとに推定した、電界強度と電子密度とを示す。電界強度は、陽光柱端からファラデー暗部に向かってほぼ単調に減少している。ただし、暗部内ではFP31の測定値の精度が低いために、推定値に数割以上のばらつきが見られる。平均電子密度は、陽光柱端から暗部に向けていったん増加し再び減少しているようにみられる。しかし暗部内での電子密度推定値のはらつきは一桁以上であり、暗部での推定結果は極めて不確かなものである。(a)図と比較を行うと、FP31のカウント数が数発以下であり、もはや正しい推定結果は望めない領域といえる。一般には、ファラデー暗部の電子密度は陽光柱内の電子密度よりも高いと説明されているので、最初の電子密度増大傾向を示す領域が（定性的に）正しい推定結果の得られた領域であると考えられる。

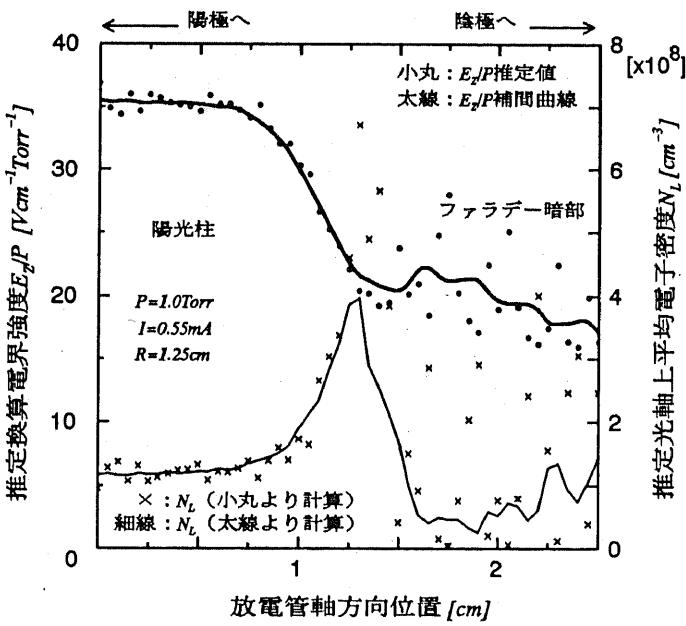
分光計測による診断法の欠点として、発光を伴わない、あるいは非常に微弱な発光しかない領域では推定困難という、当然の結論が得られた。

特に電子密度の推定で大きな誤差が現れた原因は以下のようである。電子密度の推定では、まず電界強度を決定してその電界強度に対応する放射レートを求めておく必要がある。ところが、図2-15等からも明らかのように、放射レートは電界強度の変化に対し指数関数的な変化をするから、電界強度の決定精度が放射レートの決定精度に非常に大きく影響する。電界強度の決定精度が有効数字1桁程度では、もはや電子密度の正確な推定は不可能と言って良い。

なお、陽光柱端付近の径方向の位置分解測定も行った（図4-11）。結果としては、陽光柱から暗部にかけて、径方向分布の変化には特徴的なものはみられなかった。

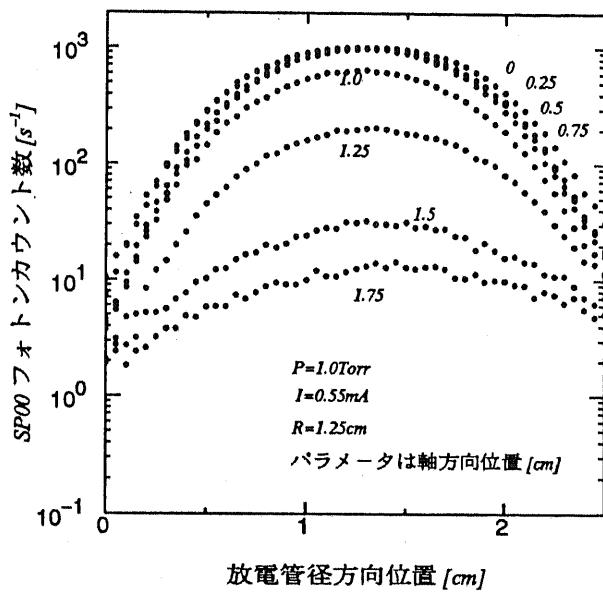


(a) SP00, FP31, FN00 フォトンカウント数

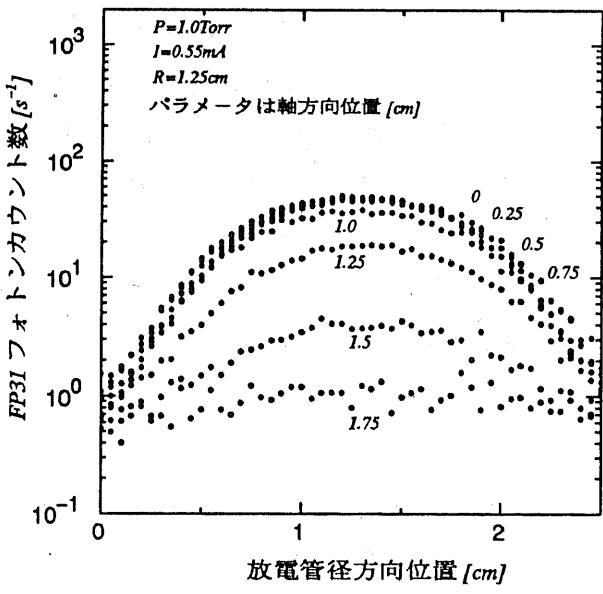


(b) 電界強度・電子密度の推定

図4-10 陽光柱端の分光測定（放電管A）



(a) SP00の径方向測定



(b) FP31の径方向測定

図4-11 陽光柱端の分光測定（放電管A）

4-3-3 グロー放電陰極近傍の分光計測

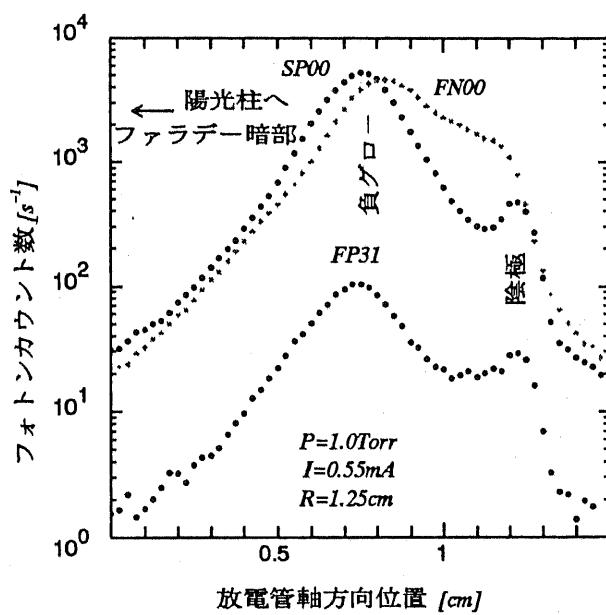
4-3-2 節の実験条件で、続けて陰極近傍の分光計測を行った。

放電管中央部の発光を、放電管軸方向に移動して測定した結果を図4-12(a)に示す。左側からファラデー暗部、負グロー、陰極暗部(陰極降下部)がみられる。図中の「陰極」と示した部分の分布の盛り上がりは、電極による負グローの発光の反射光であり、興味の対象とならない。負グローで放射強度は最大で、単一のピークを持つ。陽光柱端とは逆に、FN00, SP00, FP31の順に発光のピークが現れるのは、陰極降下部における高電界により電子エネルギー分布が高エネルギー側にかたよったものとなっているためだと説明されている。FN00の発光も陽光柱内とは異なり、極めて明瞭に観測される。これも、電界強度が高いことが原因であるが、FN00の放射もとの N_2^+ イオン密度が高いことも一因であろう。なお、放電管の半径よりも電極の半径の方が小さいために、電極の横側にも発光部が回り込んでいるので、陰極降下部付近の測定値にはこの発光が重なっている。また、図からは陰極降下部の厚みは3~4mm程度であることが分かる。

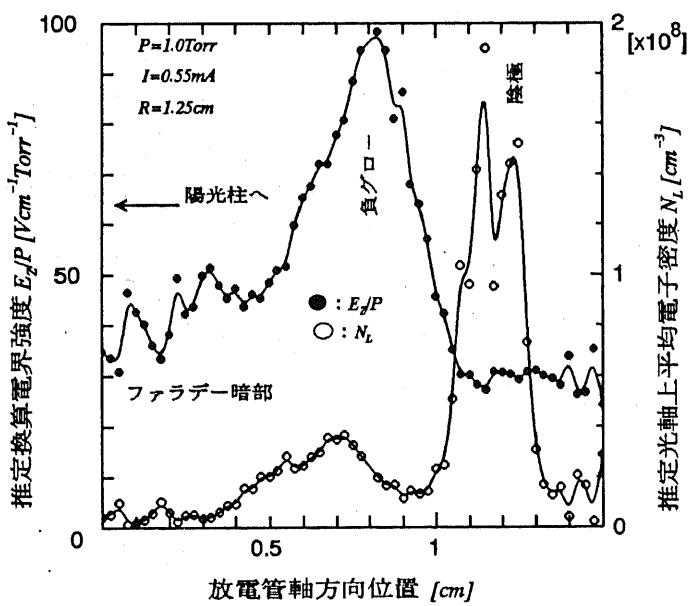
図4-12(b)に、SP00とFP31の測定データをもとに推定した、電界強度と電子密度とを示す。得られた電界強度分布は、陰極前面から負グロー部にかけて増大しファラデー暗部に向けて減少しており、おおむね発光強度分布と類似の分布となった。また、電子密度は陰極近傍にピークをもち負グロー部に向かって減少する分布となった。しかし、陰極降下部の理論から知られている両者の分布は、この推定結果とは全くくいちがうものである。電界強度は、陰極前面から負グローにかけて直線的に減少し、負グロー部ではほぼ零になるとされている。また、電子密度は陰極前面から負グロー部に向かって電離増倍によって増加するはずである。

推定値が真値と全く異なる結果となるのは、陰極近傍の電子エネルギーが、その場の電界強度ではなく、その場に到るまでの電界強度によって決定されるためである。例えば、負グロー部の電子エネルギー分布は、主に陰極降下部の電界により決定されているのである。端的に表現すれば、流動平衡状態では無いことが原因である。本手法では、電子エネルギー分布として、ボルツマン方程式解析の解を仮定しているので、流動平衡状態でない放電空間は対象外となっているのである。このようなことは、当然予想される結果ではあるが、強度比法の限界を確認するための、よい計測例であると考える。また、位置がずれはするものの、強度比法により高電界部が観測されれば近傍には必ず高電界部があるといえるから、定性的にはなお意味を持ち得ると考える。

なお、陰極近傍の径方向の位置分解測定も行った(図4-13)。陰極部で計測される発光が陰極材質(アルミニウム)による反射光であることは、この計測によって確認したものである。

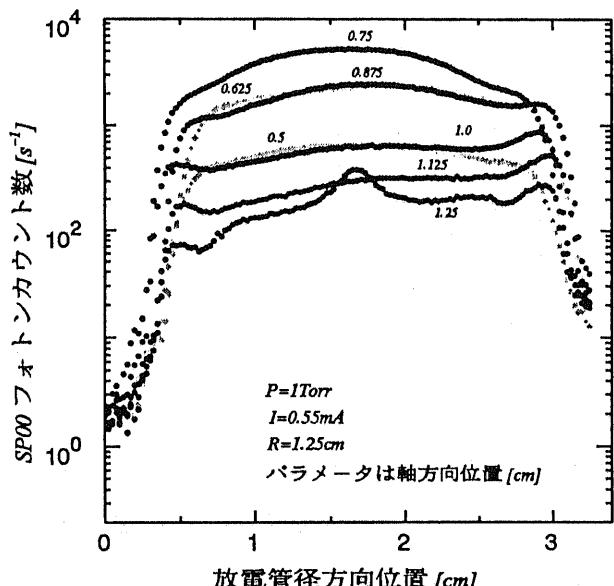


(a) SP00, FP31, FN00 フォトンカウント数

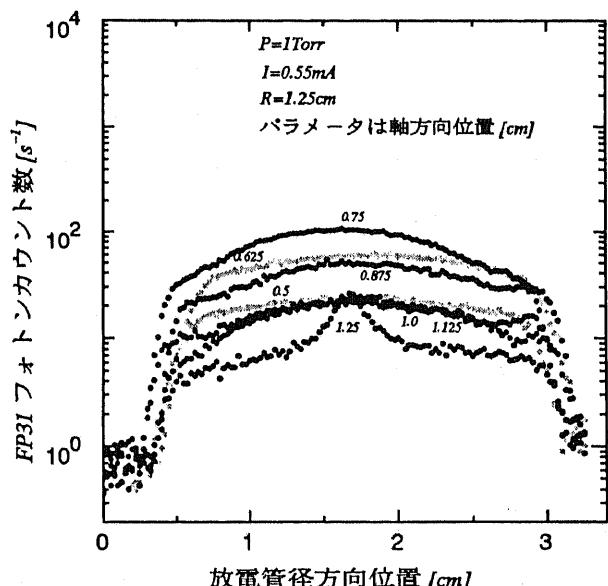


(b) 電界強度・電子密度の推定

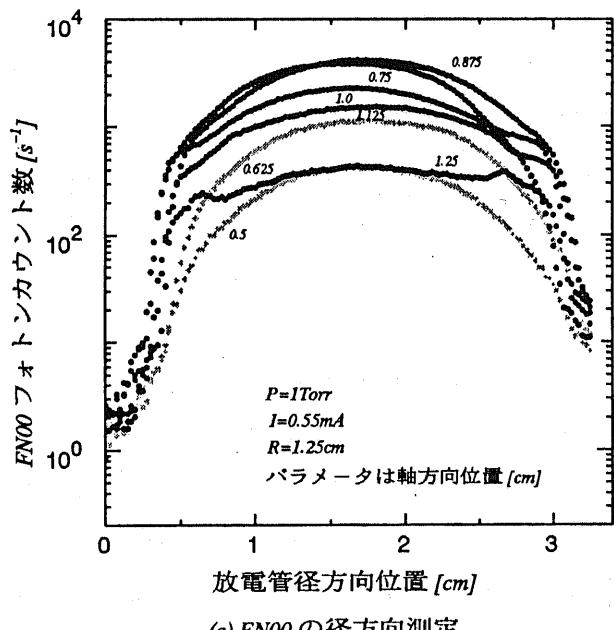
図4-12 陰極近傍の分光測定（放電管A）



(a) SP00 の径方向測定



(b) FP31 の径方向測定



(c) FN00 の径方向測定

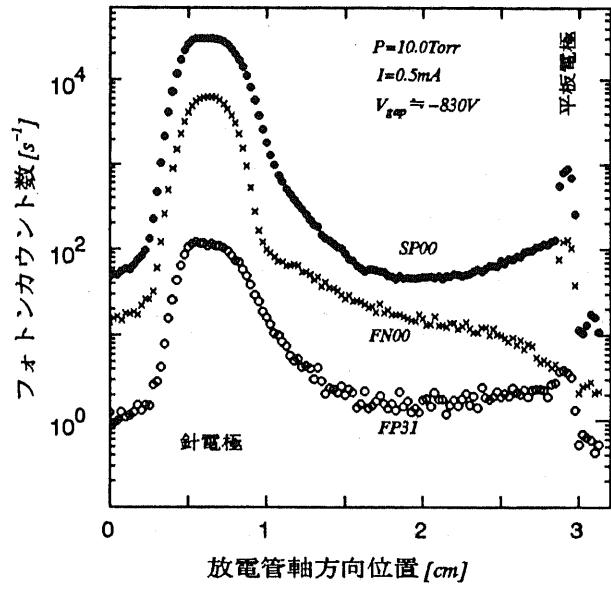
図4-13
 陰極近傍の分光測定
 (放電管A)

4 - 3 - 4 針 - 平板電極での分光計測

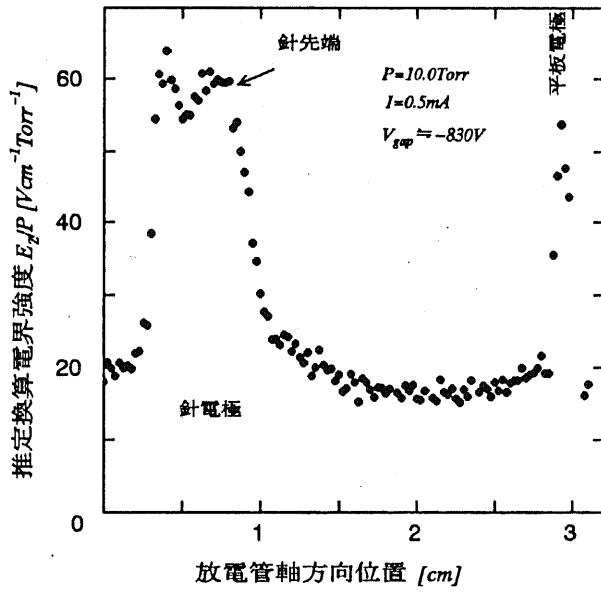
さらに、ギャップ2cmの針 - 平板電極を持つ放電管Cで、分光計測を行った。実験条件はガス圧10.0Torr、電流0.5mA、ギャップ間印加電圧約-830Vで、負極性のグロー放電である。針先の発光の様子は、針電極の側面に沿って針先から2~3mmにわたる部分が強く発光しているが、針先端部が尖りすぎているため、針先端よりも針先端近傍の側面部が最も強く発光している。ギャップ間は全体が薄く発光している状態である。前節の1.0Torrのグロー放電の陰極降下部の厚みが約3~4mmで、この厚みはガス圧に反比例することを考慮すると、単純には陰極降下部の厚みは0.3~0.4mmということになる。平板電極での前節の場合と、本節の針先近傍の様子を単純には比較はできないが、目視によっても陰極暗部と呼ぶべきものを確認できなかったことからも、陰極降下部の厚みは、少なくとも1mmを大きく下まわるもののはずである。また、針先近傍の強い発光を示す負グロー部に対応する領域の厚みも約1mm程度である。つまり、流動平衡からはずれる領域は、針近傍1mm程度の領域であると考えられ、この領域以外の発光領域は強度比法で診断可能である。また、針先端付近の強い発光領域の大きさが測定系の位置分解能とほぼ同じ大きさであるから、もとより非平衡領域内の分光診断は本測定系では実現できない。

放電管中央部の発光を、放電管軸方向に移動して測定した結果を図4-1-4(a)に示す。図では、左側に針電極が右側に平板電極が配置されている。針先近傍の領域でFN00がFP31よりも強く発光しているのは前節の場合と同じであるが、針先から離れたギャップ間でもFN00がFP31よりも強く発光している。これは、放射失活反応係数と放射以外の失活反応係数の比Aが、FP31の方が大きいため、ガス圧を10Torrに増やした影響で放射が起こりにくくなっているためである。および、N₂⁺密度が高いことも一因であろう。また、平板部ではやはり平板電極による反射光が強度のピークとなって現れているが、これも物理的には意味の無いものである。ただ、このピークによって平板電極の位置を確定できるので便利である。針先端の位置は、ここから約2cm左側である。

図4-1-4(b)に、SP00とFP31の測定データをもとに推定した電界強度分布を示す。電界強度分布は、針先近傍で最大($60\text{Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$)で、ギャップ中央部に向けて低下し、ギャップ中央部ではほぼ一定値($15\sim20\text{Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$)で、陽極近傍ではわずかに上昇している。ギャップ中央付近ではFP31の放射強度が小さいことによる測定誤差があり、電界強度推定値にもこの乱れが現れている。針先端付近の電界強度推定値は意味を持たないと考えられるので、印加電圧と針先以外の領域の電界強度推定値を用いて、針先の電界強度を荒く見積もってみる。針先から1mm以上離れた領域で、分光推定値が正確であるとすれば、ギャップ先端から1mmで約450V程度の電圧降下があることになる。白金の正規陰極降下が窒素中で233Vであるから、異常グロー



(a) $SP00, FP31, FN00$ フォトンカウント数



(b) 電界強度の推定

図4-14 針一平板電極（放電管C）での分光測定

放電ではこれ以上の陰極降下があると考えられ、必要条件はみたしている。この時、陰極降下部の電界強度は針先から直線的に減少しているとするならば、針先表面で約 $900\text{Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ の電界強度ということになる。陰極降下の厚みがさらに薄いものであれば、針先表面の電界強度はさらに高いものになると考えられる。

一方、電子密度分布に関しては、放電管の直径が8cmなのに対して、発光領域は平板電極の直径5cmよりもさらに狭い領域であるので、放電管内の光軸上平均電子密度を(式4-26)で求めてあまり意味がない。そこで、発光の径方向分布を測定し

(図4-15)、発光領域の広がりを半値幅で評価することとして、この広がり内での光軸上平均電子密度を求めることとした。結果を図4-16に示す。得られた分布は、針先近傍とギャップ間中央部付近でピークを持つものとなった。ただし、針先近傍の推定値は、先の議論から意味を持たないと考えられる。推定結果の妥当性を検証するため、平板電極近傍の電界強度と電子密度から放電電流を見積もってみる。電界強度 $20\text{Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ に対してドリフト速度は $7 \times 10^6 \text{cm s}^{-1}$ 。電子密度を $2 \times 10^8 \text{cm}^{-3}$ 、半値幅2cm(半径1cm)とすれば、放電電流は $I = e n S v$ の関係から0.7mAと見積もられる。実験値の0.5mAとは40%の違いで一致する。分光推定結果は、少なくとも、桁違いに誤ったものではないことが確認できたと考える。

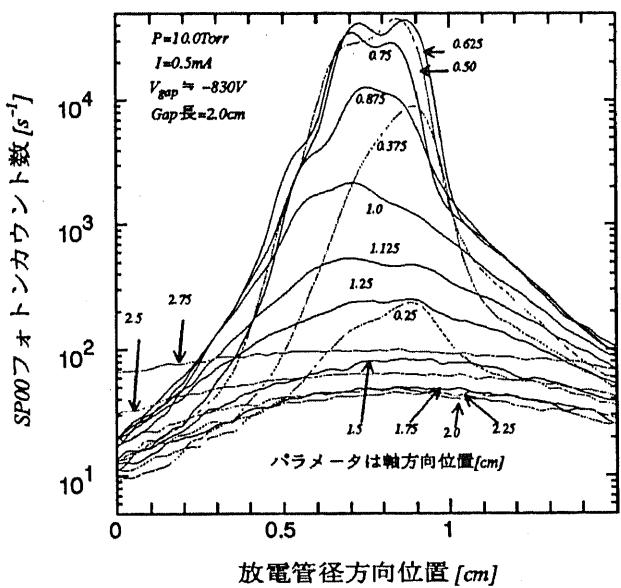


図4-15 放電の広がりの評価

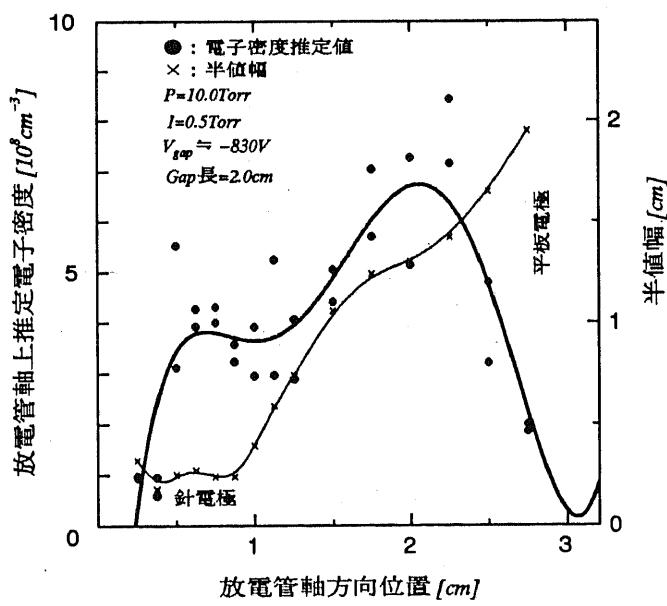


図4-16 放電管軸上電子密度の推定

4 - 4 まとめ

西嶋の理論モデルに基づく、強度比法による電界強度・電子密度の分光推定法を、その校正手法を独自に提案することで、信頼性の高い推定法として実現した。また、本手法により複数の放電空間内の分光診断を実行し、手法の有効性と問題点を確認した。本章の成果は、以下のようにまとめられる。

- (1) 西嶋の N_2 の遷移モデルのレート方程式解析手法を、励起断面積を用いる方法に改良した。
- (2) 放射レートの理論計算値と実測値とを比較することにより、SP00の放射レートが(1)の手法で適切に求められることを確認した。
- (3) 放射レートの理論計算値と実測値とを比較することにより、FP31の放射レートの理論計算時に必要となる失活反応の反応係数を決定し、理論放射レートの校正を行った。得られた結果の、 $K_{eB3} = 2.6 K_{rB3}$ は、その物理的意味あいから、常に成立するものである。
- (4) 放射レートの理論計算値と実測値とを比較することにより、SP00およびFP31の波長での測定系の効率を決定した。
- (5) (4)で決定した効率は、理論計算に使用する断面積データの絶対値の不確かさを含むものであり、現状では決定不可能な因子を、実験的に定めることができない係数の中に押し込めることができた。
- (6) (3), (4)の校正の手続きを簡略化するために、Allisらの陽光柱理論を修正して新たな陽光柱理論を開発し、その有用性を確認した。
- (7) 本手法により、ガス圧 1 Torr程度、電流数 mA程度のグロー放電陽光柱内の電界強度・電子密度を、約 1 割の誤差で推定できることを確認した。
- (8) 本手法は、電子エネルギー分布としてボルツマン方程式の解を仮定するために、流動平衡状態でないグロー放電陰極近傍では、正しい推定値を与えないことを確認した。
- (9) ギャップ長 2cm の針-平板電極におけるガス圧 10 Torr の負極性グロー放電を分光計測し、針先から約 1mm 以上離れた領域では分光推定法が有効であることを確認した。また、針先近傍での電圧降下を、印加電圧とギャップ間の電界強度推定値から、間接的に決定できることを示した。

文献

-
- (1) I. Gallimberti, J. K. Hepworth & R. C. Klewe: "Spectroscopic investigation of impulse corona discharge", *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 7, 880 (1974)
 - (2) N. Spyrou & C. Manassis: "Spectroscopic study of a positive streamer in a point-to-plane discharge in air: evaluation of the electric field distribution", *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 22, 120 (1989)
 - (3) 西島：「弱電離したN₂-O₂混合気体中の電子輸送係数とN₂, N₂⁺のバンドスペクトル強度の解析」，昭和55福岡大学研究所報，No.48, 111
 - (4) A. V. Phelps & L. C. Pitchford: "Anisotropic scattering of electron by N₂ and its effects on electron transport: Tabulations of cross section and results", JILA Information Center Report, No. 26 (1985)
 - (5) R. T. Brinkmann & S. T. Trajmar: "Electron impact excitation of N₂", *Ann. Geophys.*, 26, 201 (1970)
 - (6) M. Imami & W. L. Borst: "Electron excitation of the (0,0) second positive band of nitrogen from threshold to 1000 eV", *J. Chem. Phys.*, 61, 1115 (1974)
 - (7) Y. Itikawa, M. Hayashi, A. Ichimura, et al.: "Cross sections for collisions of electrons and photons with Nitrogen molecules", *J. Phys. Chem. Ref. Data*, 15, 985 (1986)
 - (8) D. C. Cartwright & S. Trajmar et al. : "Electron impact excitation of the electronic states of N₂. II. Integral cross sections at incident energies from 10 to 50 eV", *Phys. Rev. A*, 16, 1041(1977)
 - (9) W. L. Borst & E. C. Zipf: "Cross section for electron impact excitation of the first negative (0,0) band of N₂⁺ from threshold to 3keV", *Phys. Rev. A*, 1, 834 (1970)
 - (10) K. B. Mitchell: "Fluorescence efficiencies and collisional deactivation rates for N₂ and N₂⁺ band excited by soft X rays", *J. Chem. Phys.*, 53, 1795 (1975)
 - (11) J. M. Calo & R. C. Axtmann: "Vibrational relaxation and electronic quenching of the C³Π_u(V'=1) state of nitrogen", *J. Chem. Phys.*, 54, 1332 (1971)
 - (12) 神永：「分光学的手法を用いた放電空間中の電界及び電子エネルギーの測定」，昭62東京工業大学修士論文
 - (13) W. P. Allis & D. J. Rose: "The transition from free to ambipolar

-
- diffusion", Phys. Rev., 93, 84 (1954)
- (14) 武田：「低電子密度電離気体の電子温度」，平2電気学会全大，No.73
- (15) T. Dote & M. Shimada: "Transition from free to ambipolar diffusion of electrons", J. Phys. Soc. Japan, 54, 556 (1985)
- (16) H. W. Friedman & E. Levi: "Plasma shielding", Phys. Fluids, 13, 1049 (1970)
- (17) 堤井信力：「プラズマ基礎工学」，内田老鶴画，P. 132(1986)

第5章 振動温度の推定法

5-1 はじめに

多原子分子気体の放電空間中では、電子衝突による気体温度および振動温度の上昇が放電特性に大きな影響を与える。振動状態分布の変化は全振動断面積を変化させるうえ第二種の衝突の頻度も変化させ、電子エネルギー分布と相互に影響する。また、ガスレーザ放電では振動状態分布がレーザの効率に直接影響を与える。さらに、気体加熱による放電路の熱収縮はグローからアークへの移行やストリーマからリーダへの転換と関係し、放電加熱のメカニズムの解明は重要である。

分光計測により、N₂の振動温度を推定する方法として、SP02系列のスペクトル強度を用いる方法(1)(2)が知られている。また、理論解析により振動温度を計算する手法についても既に報告がある(3)(4)(5)。特に、文献(3)では、理論計算結果と実験結果との比較も行われている。しかし、両者は必ずしも十分に一致しているとはいひ難い。

本研究でも、理論と実験の両面から振動温度について調査したが、特に理論計算に重点を置く内容になった。振動温度の理論計算についてはほぼ文献(4)の手法に従ったが、文献(4)では調査が不十分な、各プラズマパラメータが振動温度に与える影響を、広範囲なパラメータ領域で明らかにした。特に、ガス温度が振動温度に与える影響が大きいことを確認した。そして、このモデル計算値が、文献(3)の振動温度分光推定値とよく一致することを確認した。

次に、ガス圧1Torrのグロー放電を対象に、振動温度の分光推定を実行した。分光推定値には、約±500Kの推定誤差があることが分かった。また、分光推定値とモデル計算値との間にも1000K以上の違いが見られた。

以上の内容について述べる。

5 - 2 振動温度の理論計算

5 - 2 - 1 振動温度の理論計算法の概要

N_2 の電子準位の振動状態密度分布の理論計算については、Onoら⁽³⁾（以下、文献I）、J. Loureiroら⁽⁴⁾（以下、文献II）、西嶋ら⁽⁵⁾（以下、文献III）の報告等がある。文献I II IIIは共通して、エネルギー交換過程として、

- (a)電子－振動励起分子エネルギー交換過程（e-V過程）、
- (b)振動励起分子－振動励起分子エネルギー交換過程（V-V過程）、
- (c)振動励起分子－中性気体分子並進運動エネルギー交換過程（V-T過程）

の3種の過程を考慮している。これらの過程による各振動準位状態数の収支を定式化し、定常状態のレート方程式として解析すれば、振動準位状態数分布が計算できる。振動準位の状態数分布が求まれば、特性振動温度を下位数準位の状態数分布から決定できる。以上が、振動温度の理論計算法の原理である。

ただし、文献I IIIでは振動準位として0~8準位までを考慮しているのに対し、文献IIでは振動準位として0~45準位までを考慮している。また反応係数の導出法に、文献I IIIと文献IIとでは違いがある。ここでは一部の変更を除き文献IIの計算手法を用いた。

本研究の目的は、文献I II IIIでは十分に実行されているとは言えないパラメータスキャンを広い領域で行い、十分に議論されていないパラメータの振動温度に与える影響を明らかにする事と、文献I IIIで行われている高位振動準位を無視したモデル化が計算結果に与える影響を明らかにする事である。パラメータは電離度、電子温度、ガス温度の3つで、それぞれ、 $3 \times 10^{-14} \sim 10^{-2}$ 、0.35~5.0eV、300~1500Kの領域で計算を行った。ただし、電離度については実際にそのようなパラメータ領域で放電が持続するかという点や、モデルが現実性を持つかという点は問題にせず、モデルが必要条件を満足しているかをチェックするためと、数値計算上の収束を良くする目的で、明らかに広すぎる領域で計算を行った。

5 - 2 - 2 $N_2 (X^1\Sigma_g^+)$ の基本衝突過程

5 - 2 - 2 - 1 $N_2 (X^1\Sigma_g^+)$ の構造

$N_2 (X^1\Sigma_g^+)$ は N_2 の電子基底状態であり、第 v 振動準位のエネルギー $E(v)$ [eV] は、

$$E(v) = \frac{hc}{k} \{ \omega_e v - \omega_e \chi_e (v^2 + v) \}, \quad (v=0 \sim 45) \quad (\text{式 5-1})$$

で記述される。ここに、 h : プランク定数、 c : 真空中の光速度、 k : ボルツマン定数、 ω_e 、 $\omega_e \chi_e$ は振動項を記述する分光定数である（表2-1参照）。 $v=45$ は解離直前のエネルギー最大の安定振動準位である。

振動状態分布が熱平衡状態にある時、各振動準位を占める分子数 $N(v)$ は、

$$N(v) = N e^{-\frac{E(v)}{kT_v}} \quad (\text{式 5-2})$$

で表される。ただし、 N : 分子の総数、 T_v : 振動温度[K]である。振動温度が厳密に定義できるのは熱平衡時に限られるが、一般に最も状態数の多い下位の数準位の状態数分布に(式5-2)式を当てはめることで、特性振動温度として T_v を定義することができる。ここでは、 $N(0)$ と $N(1)$ の 2 準位のみを用いて特性振動温度 T_v を定義し、以下の計算結果を表現した。また、振動準位の平均エネルギー $\bar{\epsilon}_v$ を次式で定義し、一部の計算結果を検討した。

$$\bar{\epsilon}_v = \sum_{v=0}^{45} \frac{N(v)}{N} \{ E(v) - E(0) \} \quad (\text{式 5-3})$$

シミュレーションモデルとしては、文献Ⅱに準じて振動準位を 45 準位まで考慮した。ただし、再結合のモデル化が困難なので文献Ⅱでは考慮されている解離過程をここでは考慮しないこととした。

5 - 2 - 2 - 2 衝突過程

(1) 電子 - 振動励起分子間衝突 (e-V過程)

e - V過程による v 準位状態数の時間変化は、

$$\frac{dN(v)}{dt} = n_e \left\{ \sum_{u=0}^{45} C_{u,v} N(u) - \sum_{v=0}^{45} C_{v,u} N(v) \right\} \quad (\text{式 5-4})$$

で表される。ここに n_e は電子密度、 $C_{v,v'}$ は v 準位から v' 準位への e - V過程の反応係数である。励起過程の反応係数は文献 II に従って、電子エネルギー分布関数と振動励起断面積を用いて導出した。一方、脱励起過程の反応係数は、文献 II で手法が詳しく述べられていないため、文献 I III の手法に従って詳細平衡の原理を用いて励起反応係数から導出した。

(2) 振動励起分子同志間衝突 (V-V過程)

V - V過程による v 準位状態数の時間変化は、

$$\frac{dN(v)}{dt} = N(v-1) \sum_{w=0}^{44} N(w+1) Q_v^{w+1; w} + N(v+1) \sum_{w=0}^{45} N(w) Q_v^{w+1; w} \\ - N(v) \left(\sum_{w=0}^{44} N(w+1) Q_v^{w+1; w+1} + \sum_{w=0}^{45} N(w) Q_v^{w; w+1} \right) \quad (\text{式 5-5})$$

で表される。ここに $Q_v^{w; w'}$ は v 準位と w 準位の衝突で前者が v' に後者が w' に遷移する V - V過程の反応係数で、 $v' = v \pm 1$ に対して $w' = w \mp 1$ である。反応係数の導出は文献 II に従った。

(3) 振動励起分子 - 中性粒子間衝突 (V-T過程)

V - T過程による v 準位状態数の時間変化は、

$$\frac{dN(v)}{dt} = N \{ P_{v-1, v} N(v-1) + P_{v+1, v} N(v+1) - P_{v, v-1} N(v) - P_{v, v+1} N(v) \} \quad (\text{式 5-6})$$

で表される。ここに $P_{v,v'}$ は v 準位から v' 準位に遷移する V - T過程の反応係数であり、 $v' = v \pm 1$ である。反応係数の導出は文献 II に従った。

なお、 V - V および V - T過程の反応係数の数値例は文献 II を参照されたい。また、 e - V過程の反応係数については、文献 III に計算値が丁寧に紹介されているので、参考されたい。

5 - 2 - 3 支配方程式とその解析方法

(式5-4)(式5-5)(式5-6)を一つにまとめ、 $\frac{dN(v)}{dt}$ を0とすれば、定常状態の振動準位分布を記述する支配方程式となる。さらに両辺を N^2 で割り、 $\delta_e = \frac{n_e}{N}$ (電離度) と $\delta_v = \frac{N(v)}{N}$ を用いれば、第v準位の支配方程式は、

$$\delta_e \sum_{w=0}^{45} \delta_w C_{w,v} - \delta_e \delta_v \sum_{w=0}^{45} C_{v,w} + \delta_{v-1} P_{v-1,v} + \delta_{v+1} P_{v+1,v} - \delta_v (P_{v,v-1} + P_{v,v+1}) \quad (\text{式5-7})$$

$$+ \delta_{v-1} \sum_{w=0}^{44} \delta_{w+1} Q_{v-1,v}^{w+1} + \delta_{v+1} \sum_{w=0}^{45} \delta_w Q_{v+1,v}^{w+1} - \delta_v \left(\sum_{w=0}^{44} \delta_{w+1} Q_{v,v+1}^{w+1} + \sum_{w=0}^{45} \delta_w Q_{v,v+1}^w \right) = 0$$

となる。ただし、

$$\sum_{v=0}^{45} \delta_v = 1 \quad (\text{式5-8})$$

である。(式5-7)は電離度、ガス温度、電子温度(電子エネルギー分布)がパラメータとなっており、これら3つの値を仮定すれば定係数の方程式となる。(式5-7)のv=1~45の方程式を(式5-8)と組み合わせることで、46元連立非線形代数方程式が得られるので、全ての δ_v が求まる。この方程式の数値解法には、BROYDEN法を用いた(6)。また、 δ_v の初期値の選定法については、十分に電子密度の低い領域では δ_v はガス温度で定まるボルツマン分布に近いことを利用し、低電子密度領域で得られた δ_v を次のステップでの δ_v の初期値として徐々に電子密度を増加させて計算を実行した。なお、電子エネルギー分布関数にはボルツマン方程式の数値解を用いた。また一部の計算では、比較のためにマクスウェル分布も使用した。

5-2-4 数値計算結果

5-2-4-1 電子密度の影響

ガス圧 $P = 1\text{Torr}$ 、ガス温度 $T_g = 600\text{K}$ 、 $E/P = 35\text{Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ での計算例を示す。図5-1は振動準位密度分布を準位数に対して描いたものである。図5-1から、電子密度の上昇が高位の振動状態数密度を急激に増大させることと、振動状態数分布が熱平衡状態から大きくずれていることが分かる。この図からは反転準位分布が生じていることも読みとられるが、現実にこのようなことが起こるのか、それともモデルの不備なのは不明である。また、下位の10準位程度だけを考慮したモデルでは、振動温度の高い領域で仮定が不適当になる可能性が大きい事が分かる。

図5-2は振動温度を電子密度に対して描いたものである。振動温度 T_v は、図5-1で δ_0 と δ_1 とがつくる傾きに対応する。図5-2は、横軸に電子密度をとってはいるが、本来は電離度をとるべきものであるので、横軸を電離度に置き換えるれば他の圧力での計算結果も読み取れる。なお一般性を失わないので、便宜上以下の計算は全てガス圧 $P = 1\text{Torr}$ で実行した。文献I II IIIにある通り電子密度の増大は振動温度を急激に増大させることが分かる。注目すべきは $n_e = 10^7$ 付近でみられる曲線の折れ曲がりで、図5-1との比較から振動準位分布が熱平衡的な分布から非熱平衡的な分布に変化することに伴う現象であると考えられる。図5-2には、参考のために $v=0 \sim 8$ だけを考慮した場合の計算結果も示した。低電子密度領域では両者は全く同じ振動温度を与えており、8準位までの考慮では先の屈曲点付近でも振動温度が飽和せずに増大を続ける事が分かる。また、電子密度が非常に高い場合と低い場合とで、振動温度がそれぞれ電子温度とガス温度とに収束する様子が示されており、計算結果が必要条件を満たしている事が分かる。なお文献IIでは、ガス温度400Kで電離度が 10^{-11} から 10^{-5} に（圧力 $P = 1\text{Torr}$ で換算して $n_e \approx 3.5 \times 10^5 \sim 3.5 \times 10^{11} \text{cm}^{-3}$ ）変化すると2000Kから6000Kに振動温度が上昇するとあるが、当然ながら同一の結果を示している（図5-4参照）。図5-3は図5-2を平均振動エネルギー $\bar{\epsilon}_v$ で表現したものである。図5-3から、8準位までを考慮した場合では $\bar{\epsilon}_v$ が飽和する事が分かる。これは、高位の振動準位の打ち切りによると考えられるので、 $\bar{\epsilon}_v$ が飽和した以後の計算結果は疑わしいと考える。図5-2で電子密度 $10^1 \text{[cm}^{-3}\text{]}$ 付近にある8準位までを考慮した場合の振動温度の飽和傾向は $\bar{\epsilon}_v$ の飽和によるもので、45準位までを考慮した場合の飽和傾向とは別の現象である。また図5-3で、45準位を考慮したものでは $\bar{\epsilon}_v$ の極大が存在する事が分かる。現実的にはこの計算結果に意味はないと考えるが、この場合でも $\bar{\epsilon}_v$ は平均電子エネルギー（電子温度の $\frac{3}{2}$ 倍）を越えていないので、起こり得ない現象ではない。

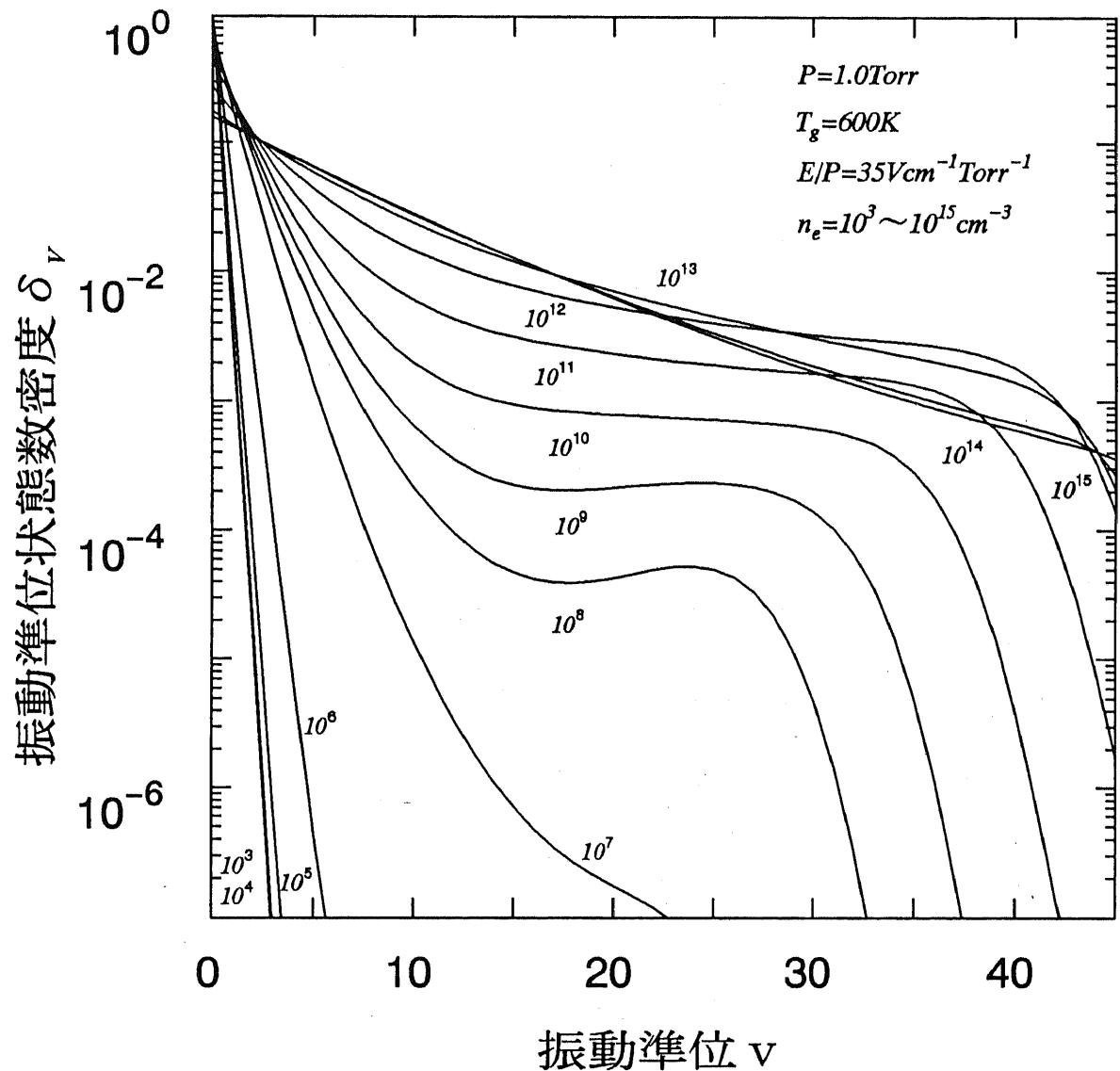


図5-1 振動準位状態数密度分布の電子密度による変化

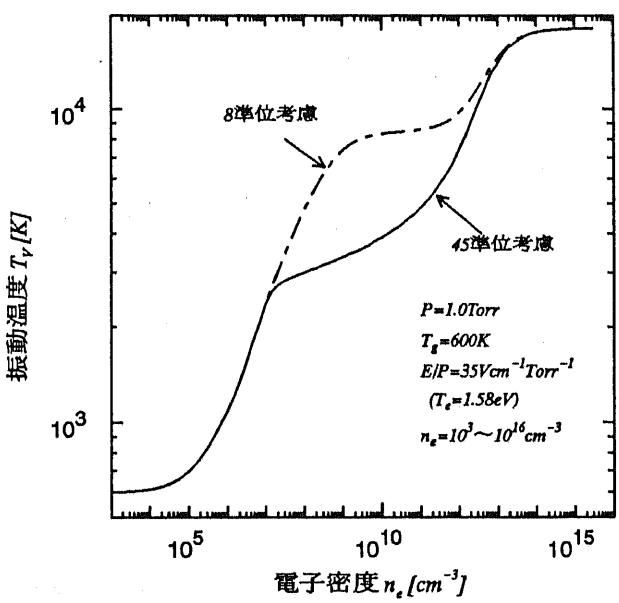


図5-2 振動温度の電子密度による変化

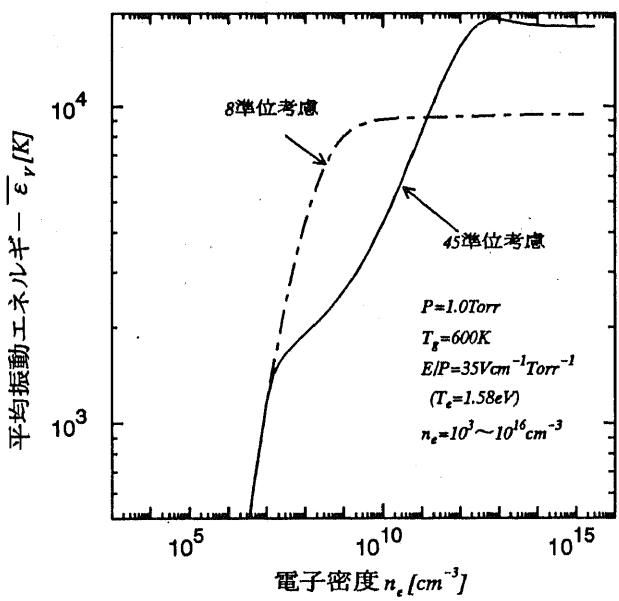


図5-3 平均振動エネルギーの電子密度による変化

5-2-4-2 ガス温度の影響

図5-4は、 $P = 1\text{Torr}$ 、 $E / P_0 = 35 \text{Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ でガス温度 T_g を変化させた時の振動温度の電子密度依存性である。なお、文献Ⅱにはガス温度を変化させた計算結果は示されていない。この図から、かなり複雑な T_g 依存性があることが分かる。図5-5は電子密度をパラメータとして、ガス温度 T_g に対して振動温度 T_v をプロットしたもので、図5-4と同じ内容である。電子密度が $10^{11} \sim 10^{12} \text{cm}^{-3}$ の領域を除いてガス温度の影響は極めて大きい。ガス温度の上昇によって、振動温度が上昇する領域と減少する領域の両者が存在することが分かる。一般に、振動温度があまり高くないときはガス温度の上昇により振動温度は減少する。また、電子密度の低い領域では、ガス温度の上昇とともにガス温度と振動温度との結合が強くなるようである。図5-6は、図5-4、図5-5と同一条件で、8準位までを考慮した場合の T_g 対 T_v 特性を示したものである。図5-5と比較すると、 $T_v < T_g \times (3 \sim 4)$ の全領域で両図は完全に一致する。この領域では、8準位までを考慮したモデルが十分適用可能である。文献ⅠⅢの計算結果の評価は、反応係数の求め方が異なるため困難だが、振動温度がガス温度よりも極めて大きい場合には、正しい計算結果とは言えない可能性が高い。

図5-7は $P = 1\text{Torr}$ 、 $E / P = 35 \text{Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ 、 $n_e = 10^9 \text{cm}^{-3}$ での振動状態数分布の T_g 依存性を表わしたものであり、ガス温度の上昇が高位振動準位状態数を激減させている事が分かる。この高位振動準位状態数の減少は、振動温度が上昇しているときでも見られる現象であることが読み取られる。 $T_g = 300\text{K}$ で $V=45$ 付近に密度分布の盛り上がりが見られるが、この原因として解離を無視したことが考えられる。

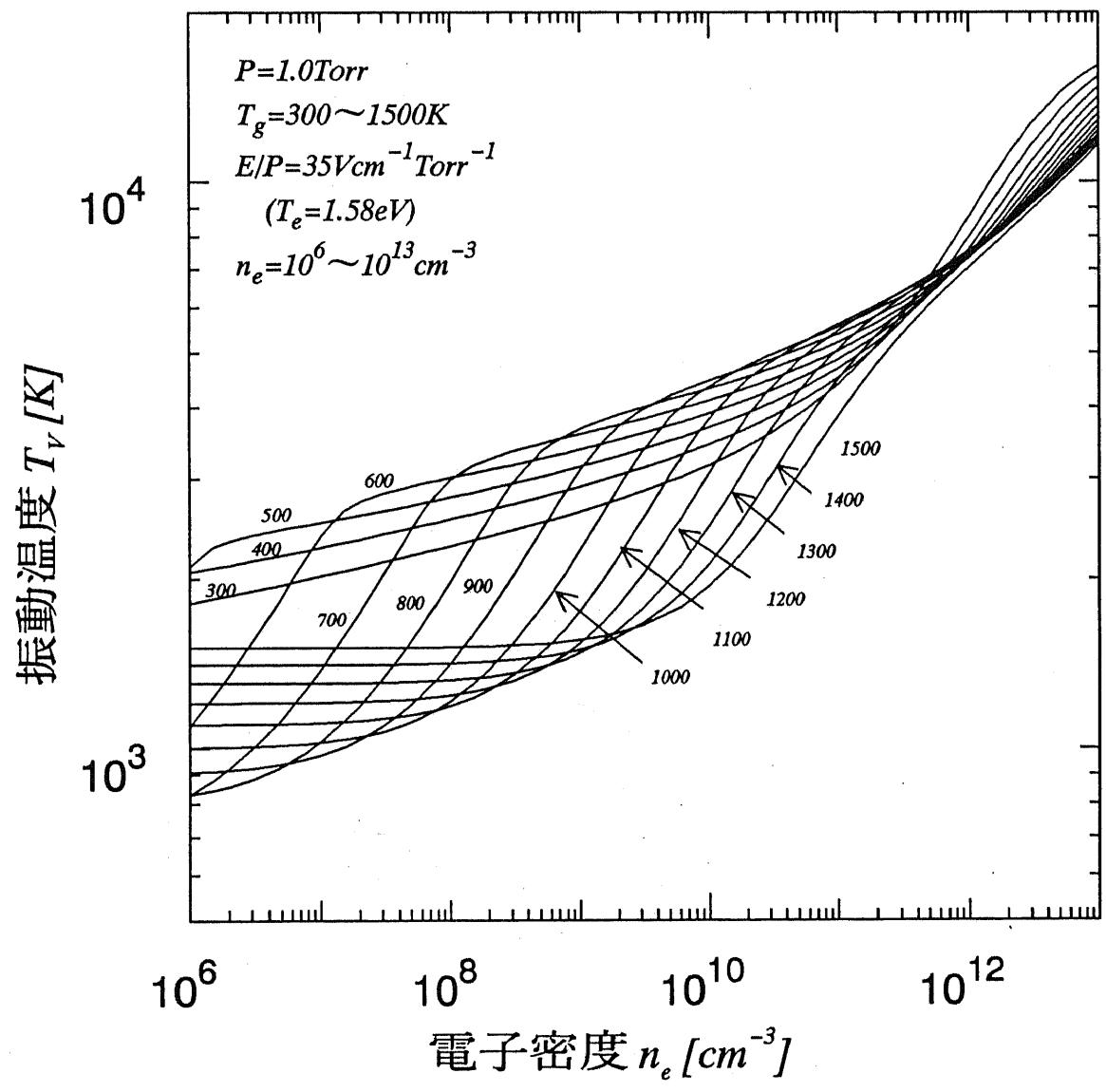


図5-4 振動温度のガス温度による変化

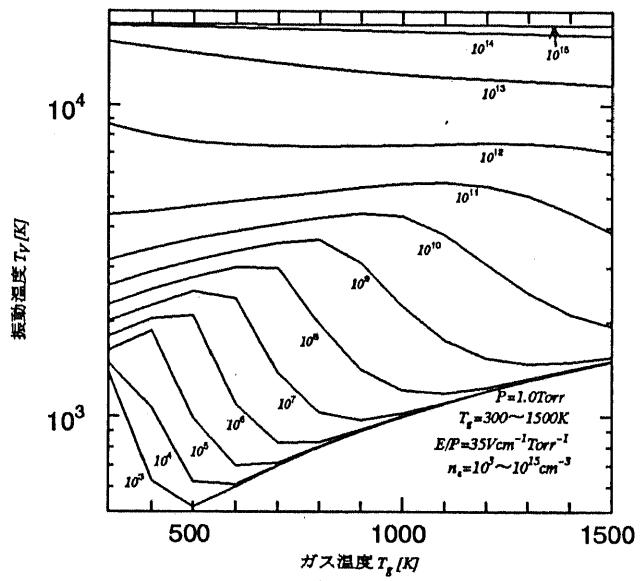


図5-5 振動温度のガス温度による変化
(45単位モデル)

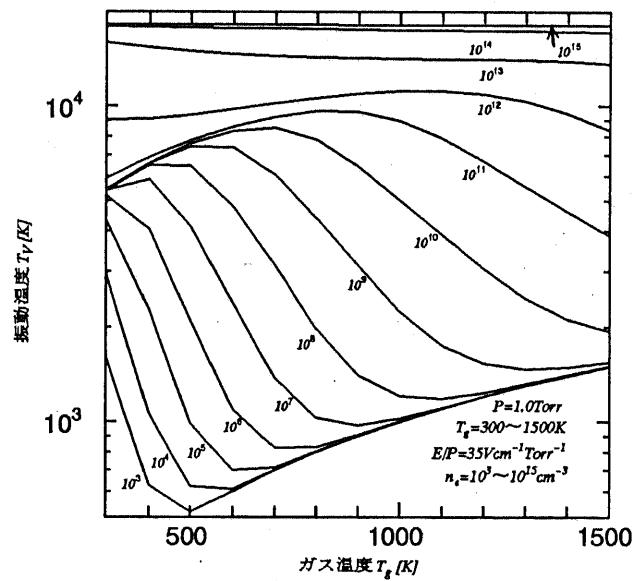


図5-6 振動温度のガス温度による変化
(8単位モデル)

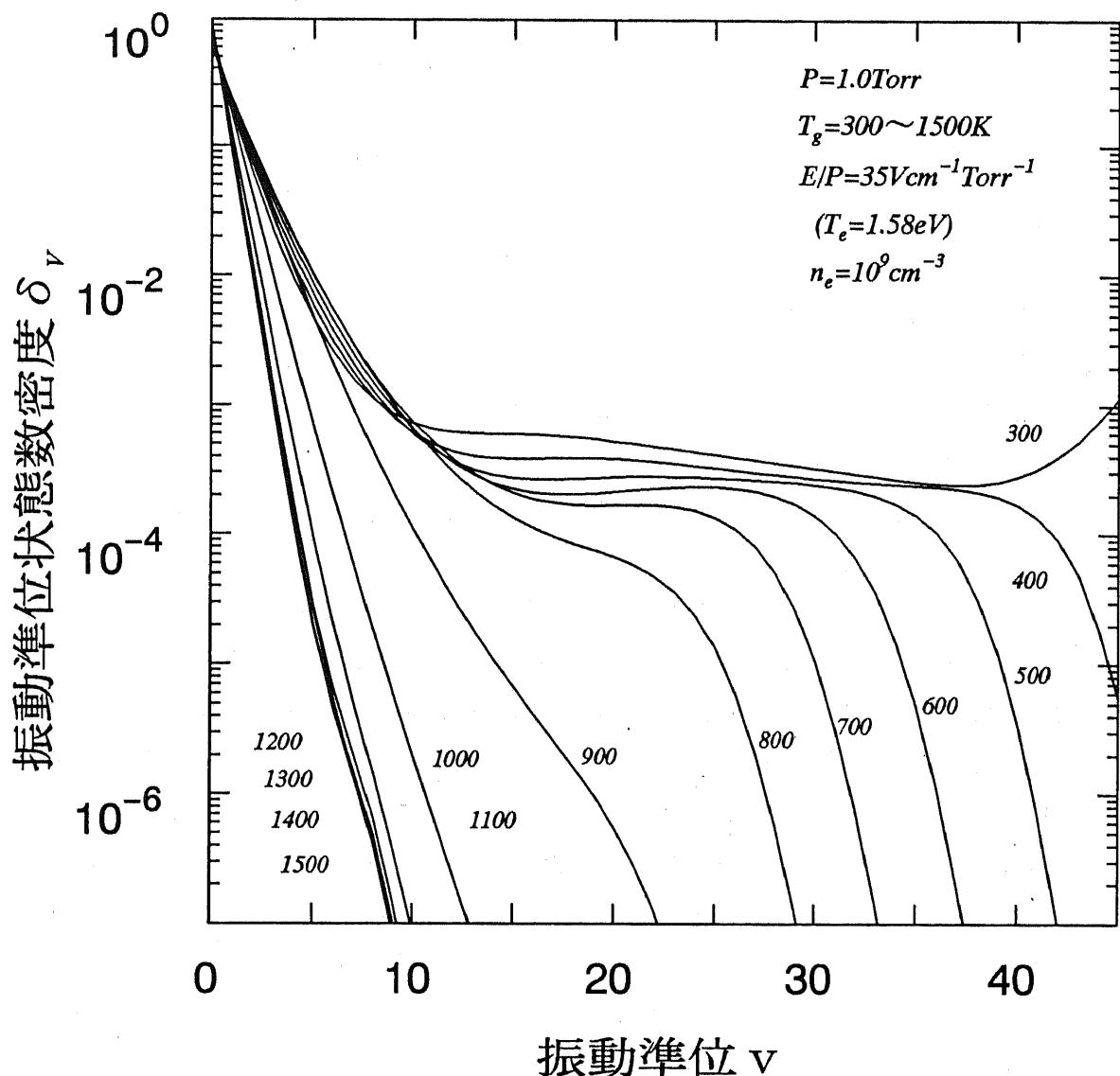


図5-7 振動準位状態数密度分布のガス温度による変化

5 - 2 - 4 - 3 電子温度の影響

図 5 - 8 はガス圧 $P = 1\text{Torr}$ 、ガス温度 $T_g = 600\text{K}$ で、電界強度 E / P （あるいは電子温度 T_e ）を変化させた際の振動温度の電子温度依存性である。電子密度が非常に小さい場合と非常に大きい場合とを除いて、電界強度依存性はほとんどなく、前節の T_g 依存性と比較すると比較的単純な変化しか示さない。図 5 - 9 は電子密度をパラメータとして、電界強度 E / P に対して振動温度 T_v をプロットしたもので、図 5 - 8 と同じ内容を示している。図 5 - 10 は図 5 - 9 の電界強度 E / P を対応する電子温度 T_e （平均電子エネルギーの $\frac{2}{3}$ ）に改めたものである。 $T_e < 1\text{eV}$ の領域では電子温度の上昇により振動温度が急激に上昇する。電子密度が 10^{12}cm^{-3} 以下の時は、 $T_e > 1\text{eV}$ の領域では振動温度はほとんど T_e に依存しない。また $T_e \sim 3\text{eV}$ 付近にわずかに振動温度の極大値が現れる。図 5 - 11 はガス圧 $P = 1\text{Torr}$ 、ガス温度 $T_g = 600\text{K}$ 、電子密度 $n_e = 10^9\text{cm}^{-3}$ での振動状態数分布の電界強度による変化を表したものであるが、これも単純な変化しか示さない。

図 5 - 12 は、電子エネルギー分布にボルツマン方程式の解の代わりに同じ平均電子エネルギーをもつマクスウェル分布を用いて、図 5 - 10 と同様の計算結果を表示したものである。図 5 - 10 と比較して全体にわずかに高い振動温度を示しているが、顕著な相違はみられない。このことは、図 5 - 10 に示されている電子温度の影響が小さいことを別の表現で、確認したことになると考える。

5 - 2 - 4 - 4 Onoの実験値（文献 I）との比較

図 5 - 13 は文献 I の実験値および理論値と、本計算結果とを示したものである。Onoらの実験は内半径 4mm の放電管を使用し、放電管壁を水冷し管壁の温度を 334K に保って測定を行っている。電子密度はプローブ測定により、振動温度は分光測定によりそれぞれ決定している。ただし、放電管内のガス温度と電子温度は測定されていない。また、ガス圧は 1Torr である。文献 I の理論値と今回の理論値（ともに $T_g = 334\text{K}$ ）とは、モデリングの仕様に違いがあるにもかかわらず、このような形で比較するとよく一致している。文献 I では振動温度の計算結果にガス温度はほとんど影響を与えるないとあるが、本計算ではガス温度の影響が大きいことを 5 - 2 - 4 - 2 節に示した。そこで、ガス温度が放電管内で上昇していた可能性を考え、 $T_g = 400, 600, 800, 1000\text{K}$ での計算値も示した。ガス温度が十分に上昇していたとするならば、今回の計算結果で文献 I の測定結果は説明できる。しかし、測定データそのものの精度も不明であるから、十分な議論は行えない。

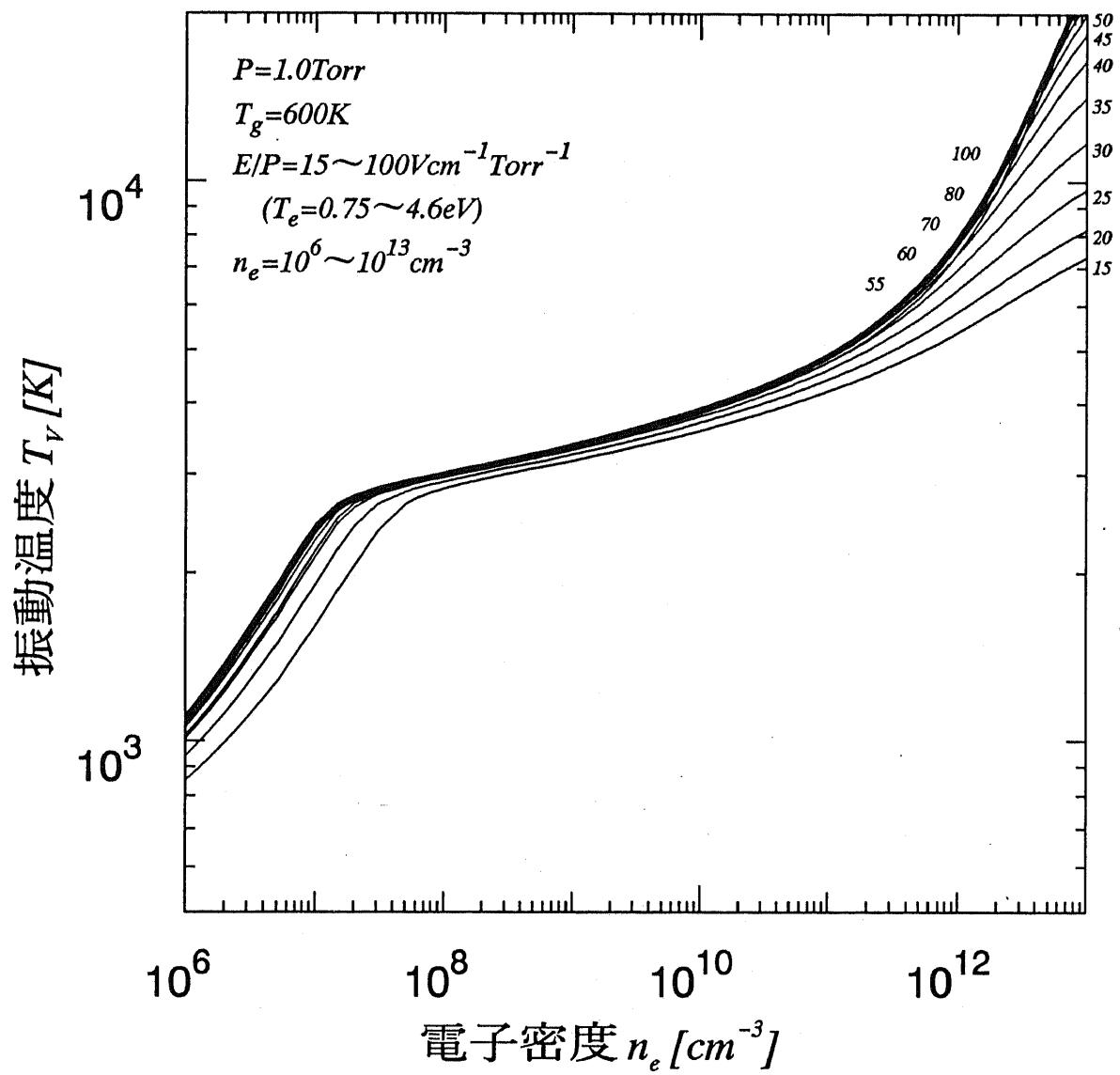


図5-8 振動温度の電界強度による変化

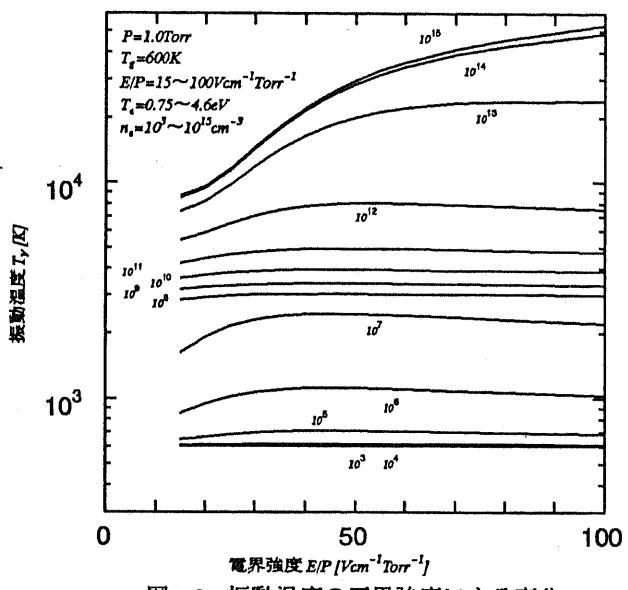


図5-9 振動温度の電界強度による変化

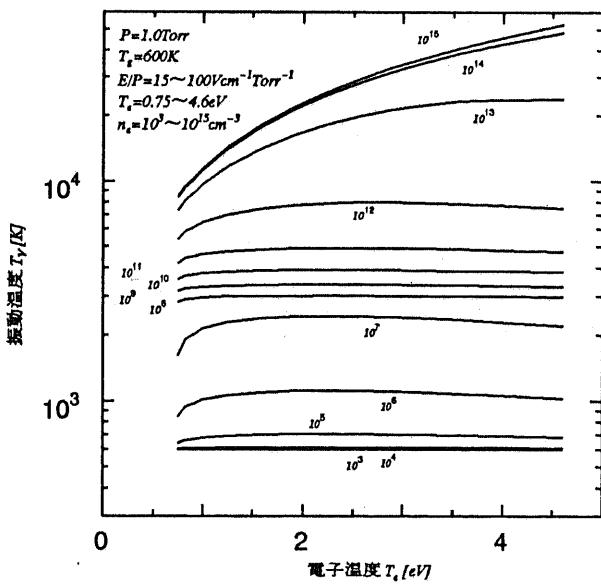


図5-10 振動温度の電子温度による変化

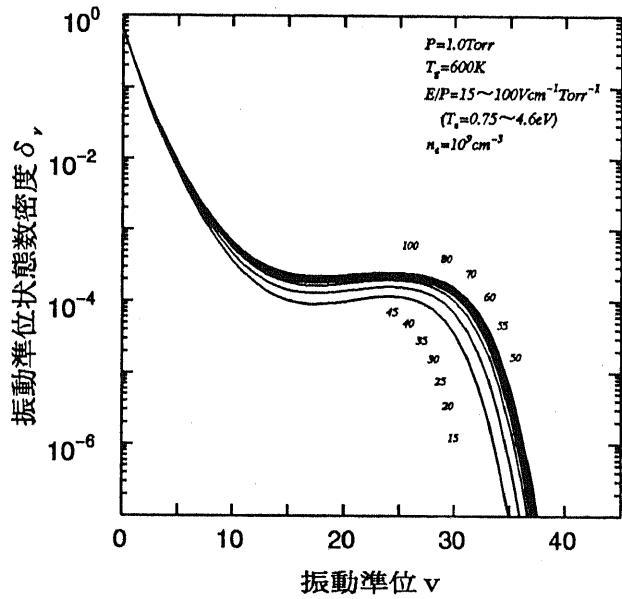


図5-11 振動準位状態数密度分布の電界強度による変化

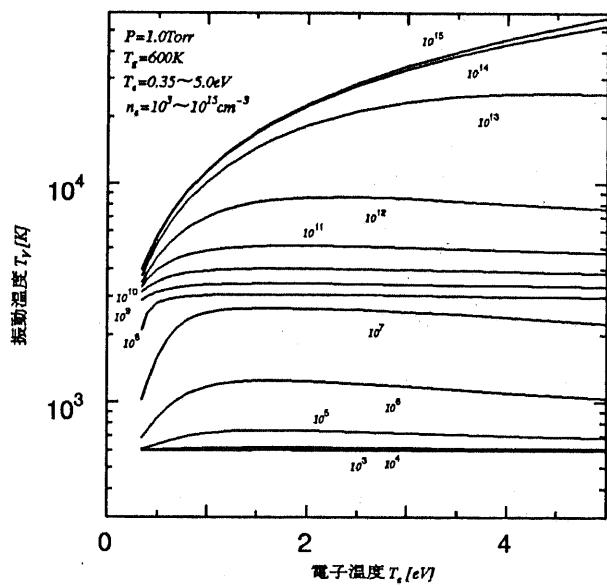


図5-12 振動温度の電子温度による変化
電子エネルギー分布にマクスウェル分布を使用

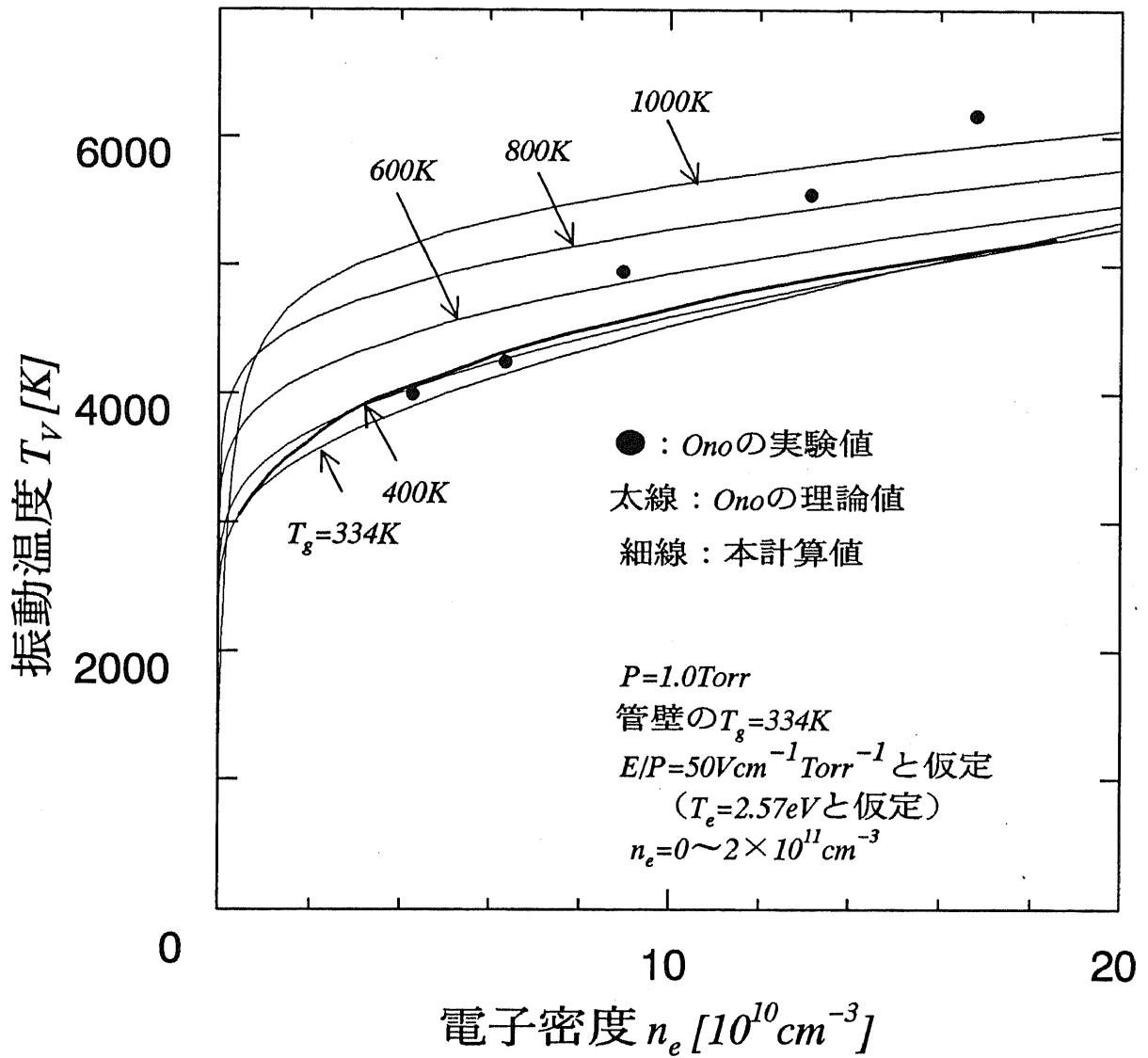


図5-13 Onoの実験値および理論値との比較

5 - 3 振動温度の分光推定法

5 - 3 - 1 推定理論

SP02系列の分光計測により振動温度を推定する手法の概要は、2-4-1節で既に述べた。ここでは簡単に、必要な仮定と式をまとめておく。

(1) 電子基底準位の振動状態数分布

$C^3\Pi_u$ 準位のレート解析で高位の振動準位までは考慮しないので、 $X^1\Sigma_g^+$ の低位準位の状態数分布だけが必要である。よって、(式5-2)で振動温度 T_v をパラメータとして振動状態数分布を定めてもよいと考える。

(2) $C^3\Pi_u$ 準位の各振動準位への励起レート

電子エネルギー分布と断面積を用いて計算される励起レート R_{xc} は、 $X^1\Sigma_g^+$ のすべての振動準位から、 $C^3\Pi_u$ 準位のすべての振動準位への遷移の総励起数を意味するものと考える。また $X^1\Sigma_g^+$ の各振動準位からの励起数 R_{xv} は、各振動準位の状態数に比例していると考える。さらに、 $X^1\Sigma_g^+$ の V 準位からの励起は、 $C^3\Pi_u$ の各振動準位 V' へフランク・コンドン係数 $A_{vv'}$ で振り分けられると考える。以上の仮定により、 $C^3\Pi_u$ の V' 準位への励起レート $R_{cv'}$ は、

$$R_{cv'} = \sum_v A_{vv'} R_{xv} = \sum_v A_{vv'} R_{xc} \delta(v) = R_{xc} \sum_v A_{vv'} \exp(-E(v)/kT_v) \quad (\text{式5-9})$$

で与えられることになる（文献(1)参照）。この式より $X^1\Sigma_g^+$ の V 準位から $C^3\Pi_u$ の V' 準位への配分は、全励起レート R_{xc} には無関係で、振動温度 T_v のみに依存することになる。電界強度あるいは平均電子エネルギーにも無関係ということになる。

(3) $C^3\Pi_u$ 準位の振動準位状態数分布

4-2-1節のレート方程式解析により定める。同時に、各準位からの放射失活反応レートも定まる。

(4) $B^3\Pi_g$ 準位への放射遷移

$C^3\Pi_u$ の V' 準位から遷移する電子は、 $B^3\Pi_g$ の各準位 V'' へフランク・コンドン係数 $A_{vv''}$ で振り分けられると考える。

以上の仮定のもとにSP02系列の放射レートを計算し、強度比を求めたのが図5-14である。SP02系列のスペクトルの組み合わせで、複数の強度比が計算できる。この図をもとに、強度比実測値から振動温度を推定できる。

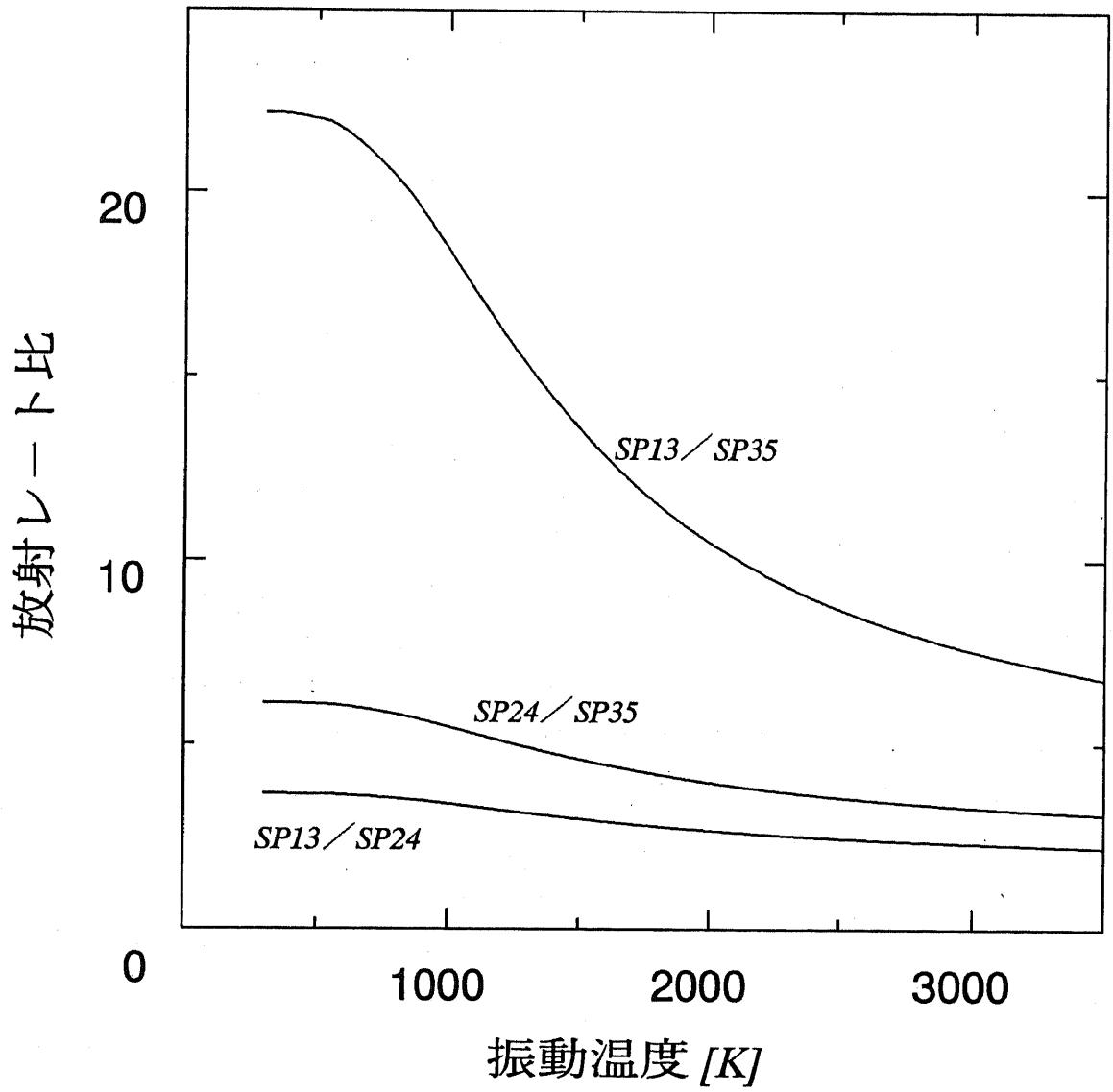


図5-14 SP02系列の理論放射レート比

5 - 3 - 2 実験結果と検討

放電管A($R=1.25\text{cm}$)を用いて、ガス圧 1Torr の条件で放電電流を変化させて、振動温度の分光推定を行った結果を図5-15に示す。電流の増加により、推定振動温度が上昇していく様子が分かる。一般に振動温度は数千Kであると言われているが、確かにそのような値が推定されている。しかし、SP02系列のどの組み合わせの強度比を用いるかで、推定温度に $\pm 500\text{K}$ 以上の違いが見られる。さらに、SP12/SP24の低電流での測定強度比は、理論強度比の曲線上に載らないために、温度推定が不可能であった。このことは、分光推定理論が不完全であるためだと考えられる。各推定値の信頼性は評価し難いが、平均的な値を示すSP13/SP35による推定温度を代表値と考えてよいだろう。なお、 $4\text{mA}, 5\text{mA}$ の推定値は、放電自体が不安定であったために測定誤差が大きく、推定値に動搖がみられる。

一方、理論計算値も図5-15に示した。放電管内のガス温度は $300\sim 400\text{K}$ 程度であるので(第6章参照)、ここでは $T_e = 300\text{K}$ とした。ただし、 $T_g = 400\text{K}$ としても振動温度は数 100K 程度高めの値となるだけである。電子密度は、第2章の陽光柱理論によって定めた。電流 2mA に対して放電管中心の電子密度は約 $10^9[\text{cm}^{-3}]$ であり、放電電流にはほぼ比例して増加する。電界強度も第2章の結果を利用し、 $E/P = 35\text{Vcm}^{-1}\text{Torr}^{-1}$ とした。得られた振動温度理論値はおよそ 2500K 程度の値で、放電電流の増加に対して、わずかに上昇している。分光推定値とはおよそ 1000K 程度の違いがみられる。ただし理論値は放電管の中心での値であり、分光推定値は測定系光軸上の平均的な振動温度であるから、分光推定値は理論値よりも若干低い値となるはずである。なお、8準位までを考慮したモデルで振動温度を計算すると約 5500K 程度となり、分光推定値との開きは大きくなる。

図5-16は図5-15の横軸を放電管中心の電子密度に置き換えたものである。Onoの実験値は電子密度で $5 \times 10^{10} \sim 2 \times 10^{11}[\text{mc}^{-3}]$ の領域であるのに対して、この実験は $10^8 \sim 2 \times 10^9[\text{mc}^{-3}]$ の領域のものであり、低電子密度領域では理論値と実験値とに 1000K 以上の違いがみられるという結果になった。

現状では、理論値、分光推定値ともに十分に信頼できる値であるとは言えないでの、第2章の様な両者の比較校正は行えない。今後の、さらに詳細な実験結果を待つところである。

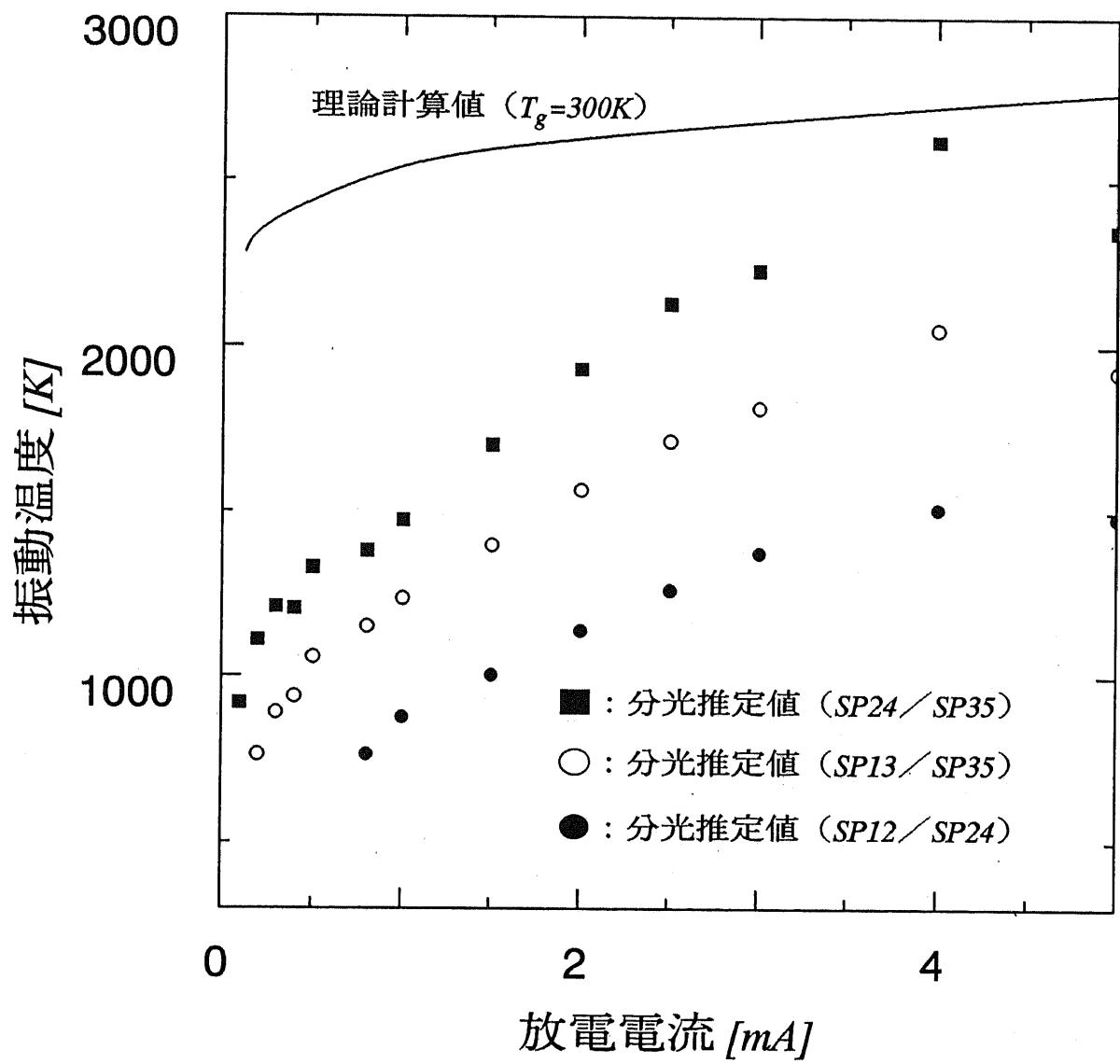


図5-15 振動温度の分光推定値と理論値

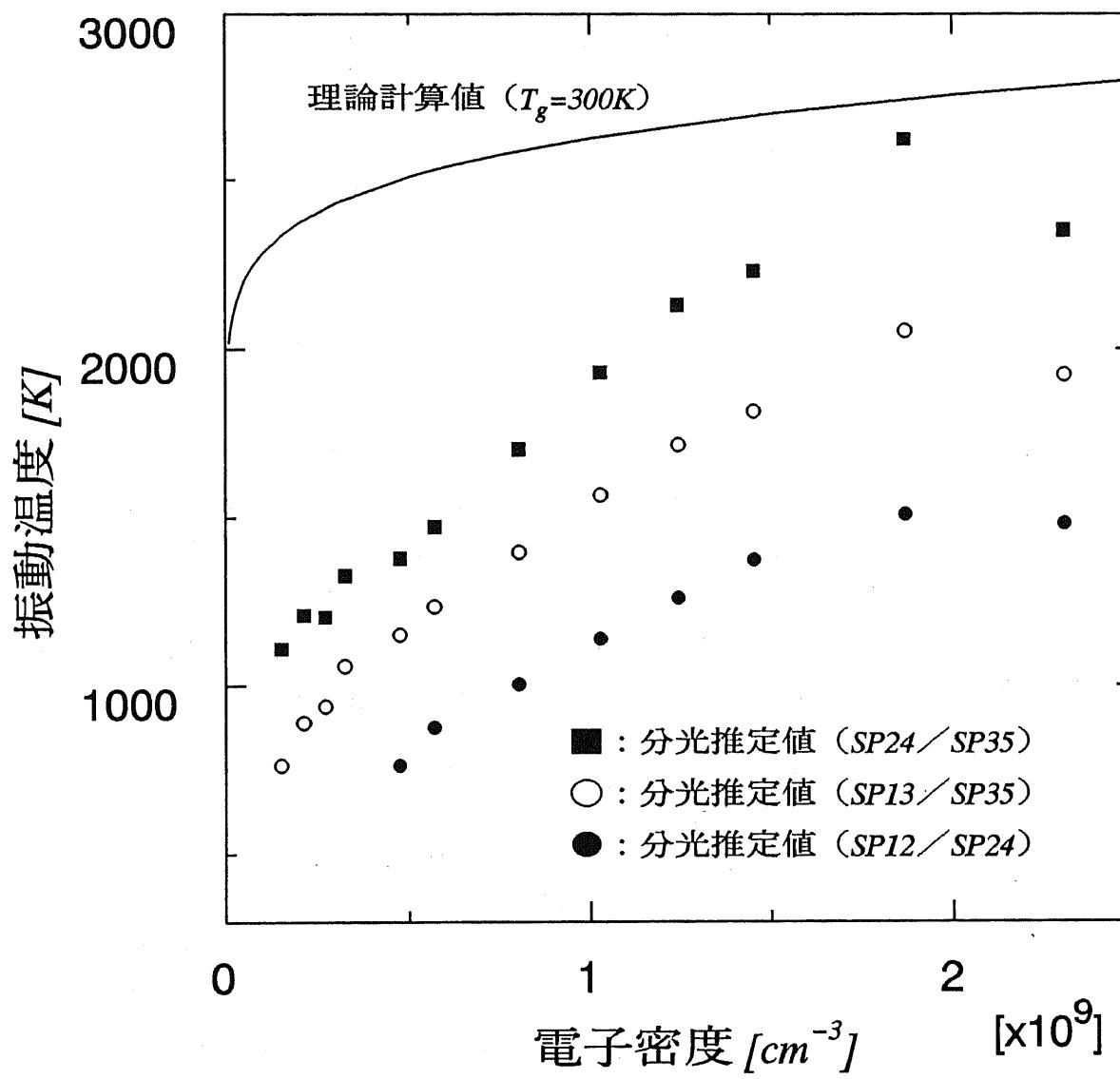


図5-16 振動温度の分光推定値と理論値

5 - 4 まとめ

振動温度の理論計算を、これまでに報告の無い広いパラメータ領域で実行し、各パラメータが振動温度に与える影響を明らかにした。また、振動温度の理論値と分光推定値との比較を行い、電子密度 $5 \times 10^{10} \sim 2 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ の領域で両者がよく一致することを確認した。本研究の内容は次のように要約される

(1) 振動温度の理論計算結果

(1-1) 電子密度の影響

- n_e の増加は T_v を急激に上昇させる。
- n_e の増加は振動状態数分布の高位準位数を増大させる。
- 振動状態数分布が非熱平衡的なものになると、 T_v の上昇が抑制される。
- 8準位までを考慮したモデルでは上記の現象を記述できない。
- 8準位までを考慮したモデルでは \bar{e}_v が飽和している時に計算結果が疑わしい。

(1-2) ガス温度の影響

- T_e が T_v に与える影響は一般に大きい。
- T_e の上昇は高位振動準位状態数を減少させる。
- T_e の上昇により T_v が低下する領域と上昇する領域とが存在する。
- T_e があまり高くない時は T_e の上昇により T_v は低下する。
- n_e の低い領域では T_e の上昇とともに T_e と T_v の結合が強くなる。
- 8準位までを考慮したモデルは、 T_e が T_v の数倍以内の領域で、45準位を考慮したモデルと同じ T_v を与える。

(1-3) 電子温度の影響

- n_e が非常に小さい場合と非常に大きい場合とを除いて、 T_e が T_v に与える影響は一般に小さい。
- $T_e < 1 \text{ eV}$ の領域では、 T_e の上昇により T_v が急激に増大する。
- $n_e < 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ 、かつ $T_e > 1 \text{ eV}$ の領域では T_v はほとんど T_e に依存しない。

(2) 実測値と理論値との比較

(2-1) Onoの理論値および実験値と、本計算値との比較

- Onoの理論値と本理論値とは、モデリングの仕様の違いがあるにもかかわらず、 $n_e = 5 \times 10^{10} \sim 2 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ の領域で良く一致する。
- T_e の上昇があったと仮定すれば、Onoの実測値を全域で説明できる。

(2-2) 実験値と理論値との比較

- 各分光推定値は、分光推定値間で $\pm 500 \text{ K}$ 程度の相違がみられる。
- $n_e = 10^8 \sim 2 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$ の領域で、分光推定値と理論計算値とは約 1000 K の違いが見られ、放電電流の増加による温度上昇傾向も異なっている。

参考文献

-
- (1) R. Bleekrode: "A study of the spontaneous emission from CO₂-N₂-He-H₂ laser discharges C³Π_u-B³Π_g emission bands of N₂", IEEE, J. Quantum Electronics, QE-5, 2, 57 (1969)
 - (2) 西嶋、美山、常安: 「N₂ガス直流グロー放電プラズマの精密な振動温度の分光学的診断法とその適用」、電気学会論文誌A、110、767 (平成2)
 - (3) S. Ono, S. Teii: "Vibrational temperature in a weakly ionised steady-state nitrogen discharge plasma", J. Phys. D: Appl. Phys., 16, 163(1983)
 - (4) J. Loureiro, C. M. Ferreira: "Coupled electron energy and vibrational distribution functions in stationary N₂ discharges", J. Phys. D: Appl. Phys., 19, 17 (1986)
 - (5) 西嶋、水田、常安: 「N₂ガス直流グロー放電での振動温度に与えるプラズマパラメータの効果」、福岡大学工学集報、第43号、33 (平成元)
 - (6) 泰野: "Solution of nonlinear equations by Broyden's method"、東大型計算機センター センターニュース, Vol.18, Supplement 1, 1 (1986)

第6章 ガス温度の推定法

6-1 はじめに

気体加熱による放電路の熱収縮はグローからアーカーへの移行やストリーマからリーダへの転換と関連し、放電加熱のメカニズムの解明は重要である。N₂ガスを含む放電空間中の回転温度（≒ガス温度）の分光測定診断法として、SPシステムを用いる方法と、FNシステムを用いる方法とが既に確立されている(1)(2)(3)。この手法により、収縮したN₂ガスDCグロー放電(4)や、雷インパルス針平板放電(5)等のメカニズムの検討などが行われている。

本研究は、分光計測による放電空間の診断技術の可能性を追求することを目的としているので、ガス温度の分光推定手法についても調査を開始した。ただし、本研究の主眼は第4章に述べた電界強度・電子密度の推定法であったので、第4章の実験条件（ガス圧数Torr程度、電流数mA程度、DCグロー放電）でガス温度推定を行いたいと考えた。まず、SP02およびFN00によるガス温度推定を実行したが、SP02を用いた診断法は、分光器の波長分解能（半値幅分解能約0.1nm弱）が不十分で精密な推定が行えないことが分かった。また、FN00を用いた診断法は、陽光柱内ではFN00の放射がSP25の放射と重なり推定不能であることが分かった。ただし、負グロー付近ではFN00の放射強度は十分に強く、ガス温度の推定が可能であった。

結局、本測定系では、従来手法を用いていては陽光柱内のガス温度推定を精度よく行えないことが分かった。そこで、新手法としてFPシステムの分光計測によるガス温度の推定法を開発し、実測を行った。本手法は、FP20スペクトルの内で比較的に疎な構造を持つ枝に注目するもので、陽光柱内でもガス温度の推定が可能である。さらに実用上は、FN00およびSP02は紫外領域に存在するのに対し、FP20は赤外領域に存在するので、紫外領域の分光測定が困難な場合や分光感度が赤外領域にピークを持つような装置系では本手法が有用だと考える。

一方、陽光柱内のガス温度を別途理論計算することで、分光推定結果の評価を行いたいと考え、電子のエネルギー損失を熱源とした熱拡散方程式解析も行った。

本章では、FP20の分光計測によるガス温度診断法の原理と、他の手法で得たガス温度と本手法による推定ガス温度との比較結果について述べる。

6 - 2 ガス温度の分光推定法

6 - 2 - 1 ガス温度の分光推定法の原理

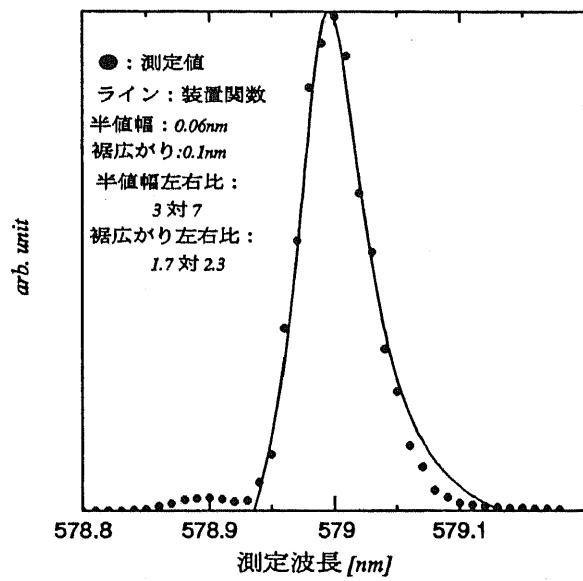
SP, FN, FPシステムの放射スペクトルを用いるガス温度推定法は、それぞれの分子構造に起因する放射スペクトル波形の違いを除けば、全て基本的には同じ手法であるから、まず概要を解説する。

N_2 のバンドスペクトルの分光測定例として図2-2から図2-6を参照されたい。2-2-1節で解説したように、ひとかたまりに見える山は、実は密集した線スペクトルの集まりである。分光器の分解能に応じて、線スペクトルが重なりあい、線の群れが帶として観測されることになる。線スペクトルの密集が生じるのは、電子準位がわずかにエネルギーの異なる多数の回転準位に分裂しているためである。

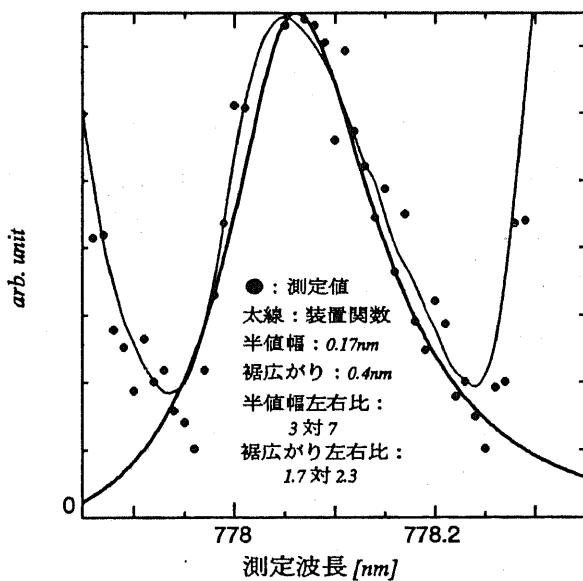
今、各回転準位からの線スペクトルの波長と放射強度が、理論的に求められるとする。さらに、測定系の分解能に応じた線スペクトルのつぶれを、簡単な関数として表現可能であるならば、測定スペクトル波形と直接比較が可能なスペクトル波形のシミュレーション波形が計算できるはずである。さて、各線スペクトルの放射強度は、各回転準位に存在するガス分子数に応じて変化するはずであるから、(式2-4)より回転温度に応じて、各線スペクトル強度の分布も変化する。あらかじめ、各回転温度に応じたシミュレーション波形を作成しておけば、実測スペクトルをこれと比較することで回転温度が推定可能である。あるいは、特定の線スペクトルの放射強度比をあらかじめシミュレートしておけば、強度比の実測から回転温度が推定可能である。以上が、回転温度の分光推定手法の原理である。

バンドスペクトル波形をシミュレートするために必要となるのは、(1)各線スペクトルの波長、(2)各線スペクトルの強度(ガス温度に依存)、(3)分光測定系の装置関数(線スペクトルのつぶれを表現する関数)である。(1)(2)は対象とする発光の遷移元と遷移先の分子構造に応じて定まるものであり、分子構造の研究者によって丁寧な調査が行われているから、必要な文献を検索できればそれでよい。(3)については、線スペクトルのつぶれは、自然の広がり・ドップラー広がりその他の物理的に意味のある広がりではなく、分光器のスリット幅が有限であること等が主な原因であるから、1本の線スペクトルのつぶれを実測しておけば装置固有の実験式として装置関数を定義できる。装置関数に関しては、Phillipsの装置関数などが提案されていて、ラインスペクトルの実測値から2パラメータ(裾の広がりと半値幅)の関数を定義できる。あるいは、さらに丁寧には、プログラム上の装置関数を実測ラインスペクトル波形そのもので定義しておけばよい。本研究では、Phillipsの装置関数を左右非対称なものに改良して、装置関数を定義した。装置関数は、測定波長、スリット幅ごとに異なるので、実験条件ごとに定義するに必要がある。

図6-1に装置関数の例を示す。



(a) $Hg5790$ のライインスペクトルと装置関数



(b) $FP20$ のライインスペクトルと装置関数

図6-1 装置関数の例

6 - 2 - 2 SP02 の計測による推定法

SPシステムの各線スペクトル波長は、振動項 V' , V'' 、回転項 J' , J'' および三重項($\Omega=0, 1, 2$)によって決定される。ただし「」は遷移元の、「」は遷移先の準位に関する事を示すものとする。波数 $K_0 \text{ cm}^{-1}$ と波長 $\lambda \text{ nm}$ との関係は $\lambda = 10^7 / K_0$ [nm]であり、各遷移の波長は、次式から計算される。

$$K_0 = \nu_{00} + (G_V - G_{V'}) + (F_{0J'} - F_{0J''}) \quad (\text{式 } 6-1)$$

$$G_V = \omega_e V - \omega_e x_e (V^2 + V) + \omega_e y_e \left(V^3 + \frac{3}{2} V^2 + \frac{3}{4} V \right) \quad (\text{式 } 6-2)$$

$$F_{0J'} = B_V \{ J(J+1) - \sqrt{Z_1} - 2Z_2 \} - D_V (J-0.5)^4 \quad (\text{式 } 6-3)$$

$$F_{1J'} = B_V \{ J(J+1) + 4Z_2 \} - D_V (J+0.5)^4 \quad (\text{式 } 6-4)$$

$$F_{2J'} = B_V \{ J(J+1) + \sqrt{Z_1} - 2Z_2 \} - D_V (J+1.5)^4 \quad (\text{式 } 6-5)$$

$$Z_1 = Y_V (Y_V - 4) + \frac{4}{3} + 4J(J+1) \quad (\text{式 } 6-6)$$

$$Z_2 = \left\{ Y_V (Y_V - 1) - \frac{4}{9} - 2J(J+1) \right\} / 3Z_1 \quad (\text{式 } 6-7)$$

ここで、 $\nu_{00} = 29671.05 [\text{cm}^{-1}]$ 、 G ：振動項、 F ：回転項、 ω_e , $\omega_e x_e$, $\omega_e y_e$ ：振動項を与える分光定数、 B_V , D_V は：回転項を与える分光定数、 Y_V ：電子の角運動量が回転項に与える影響を記述する分光定数である（表2-1、文献(6)参照）。

SPシステムでは遷移規則により次の遷移が可能である。

$$\text{P 枝 } J' - J'' = -1 \quad (\Omega = 0, 1, 2) \quad \cdots \quad J' = 0 \sim 40$$

$$\text{Q 枝 } J' - J'' = 0 \quad (\Omega = 1, 2) \quad \cdots \quad J' = 0 \sim 40$$

$$\text{R 枝 } J' - J'' = 1 \quad (\Omega = 0, 1, 2) \quad \cdots \quad J' = 1 \sim 40$$

一方、各回転励起状態の状態数は、回転温度 T_r (=ガス温度)に従うボルツマン分布をなすと考えられる(式2-4参照)。つまり回転準位は熱平衡状態にあり、回転温度が高くなればなるほど上位の回転励起状態数が増加していくことになる。回転状態分布が回転温度で定まるので、各線スペクトルの放射強度も回転温度に依存する。SPシステムの各スペクトル強度は次式で与えられる。

$$\text{P 枝 } I_{P, J', \Omega} = R_\Omega \frac{(J'+1+\Omega)(J'+1-\Omega)}{J'+1} \frac{h c B_{V'}}{k T_r} \exp \left\{ -J'(J'+1) \frac{h c B_{V'}}{k T_r} \right\} \quad (\text{式 } 6-8)$$

$$\text{Q 枝 } I_{Q, J', \Omega} = R_\Omega \frac{(2J'+1)\Omega^2}{J'(J'+1)} \frac{h c B_{V'}}{k T_r} \exp \left\{ -J'(J'+1) \frac{h c B_{V'}}{k T_r} \right\} \quad (\text{式 } 6-9)$$

$$\text{R 枝 } I_{R, J', \Omega} = R_\Omega \frac{(J'+\Omega)(J'-\Omega)}{J'} \frac{h c B_{V'}}{k T_r} \exp \left\{ -J'(J'+1) \frac{h c B_{V'}}{k T_r} \right\} \quad (\text{式 } 6-10)$$

ここで、SP02では $V'=0$ より $h c B_{V'}/k = 2.8623 [\text{K}]$ 、 T_r ：回転温度[K]、 R_Ω は統計的重率を与える因子で、 $\Omega=0, 1, 2$ に対して $R_\Omega = 3, 2, 1.667$ である。なお、ここでいう統計的重率とは、原子核スピニによる準位の縮退度のことである。上式で値が0あるいは負になるような遷移は遷移が禁止されていると解釈する。

6-2-3 FN00の計測による推定法

FNシステムでは多重項 Ω が存在しないので、各線スペクトルの波長は、振動項 V' 、 V'' 、回転項 J', J'' によって決定される。各遷移の波長は、次式から計算される。

$$K_0 = \nu_{00} + (G_{V'} - G_{V''}) + (F_{J'} - F_{J''}) \quad (\text{式 6-11})$$

$$G_V = \omega_e V - \omega_e x_e (V^2 + V) + \omega_e y_e \left(V^3 + \frac{3}{2} V^2 + \frac{3}{4} V \right) \quad (\text{式 6-12})$$

$$F_J = B_V J (J+1) - D_V J^2 (J+1)^2 \quad (\text{式 6-13})$$

ここで、 $\nu_{00} = 25566.0 [\text{cm}^{-1}]$ である。

FNシステムでは遷移規則により次の遷移が可能である。

$$\text{P 枝 } J' - J'' = -1 \quad \dots \quad J' = 0 \sim 40$$

$$\text{R 枝 } J' - J'' = 1 \quad \dots \quad J' = 1 \sim 40$$

一方、FNシステムの各スペクトル強度は次式で与えられる。

$$\text{P 枝 } I_{P, J'} = S_w (J' + 1) \frac{h c B_{V'}}{k T_r} \exp \left\{ -J' (J' + 1) \frac{h c B_{V'}}{k T_r} \right\} \quad (\text{式 6-14})$$

$$\text{R 枝 } I_{R, J'} = S_w \frac{h c B_{V'}}{k T_r} \exp \left\{ -J' (J' + 1) \frac{h c B_{V'}}{k T_r} \right\} \quad (\text{式 6-15})$$

ここで、FN00では $V' = 0$ より $h c B_{V'}/k = 2.9848 [\text{K}]$ 、 S_w は統計的重率を与える因子で J' が奇数の時に1、偶数の時に0.5である。なお、ここでいう統計的重率も、原子核スピンによる準位の縮退度のことである。

SP02、FN00の理論式から分かることは、回転準位 J はさらに、

- (1) 電子スピン角運動量 : S
- (2) 電子の軌道角運動量 : Λ
- (3) 原子核スピン角運動量 : I

の影響で、細分されていると言ふことである。実は厳密には、分子の回転角運動量 N と電子スピン角運動量 S と電子軌道角運動量 Λ とをベクトル合成した全角運動量のみが量子数として意味を持ち、これを J と呼んでいるのである。（なお、これでも原子核スピンは、完全には考慮されていない）また、 Ω とは電子の全角運動量で、 S と Λ をベクトル合成したものである。これらの超微細構造が、スペクトル波長と強度の式を複雑なものとしている。

また、放射強度の式（式 6-8, 9, 10, 14, 15）は全て、

$$(式 2-4) \times \text{遷移確率} \quad (\text{式 6-16})$$

の形式になっている。（式 2-4）の $2J + 1$ という因子が、一見すると欠落しているようだが、これはFN、SPシステムの遷移確率の分母にも $2J + 1$ という因子があるためである。

6 - 2 - 4 FP 2 0 の計測による推定法

6 - 2 - 4 - 1 波長、強度公式

FPシステムも3重項間の遷移であり、次のように遷移波長が求められる。

振動項 G の公式 : SP, FNシステムと共通

回転項 F の公式 : SPシステムと共通

ただし、 $\nu_0 = 15133.21 [\text{cm}^{-1}]$ である。

一方、FPシステムでは遷移の禁制はなく次の遷移が可能である。

$$P_{\Omega' \Omega''} \text{ 枝 } J' - J'' = -1 \quad (\Omega' = 0, 1, 2, \Omega'' = 0, 1, 2) \quad \dots \quad J' = 0 \sim 40$$

$$Q_{\Omega' \Omega''} \text{ 枝 } J' - J'' = 0 \quad (\Omega' = 0, 1, 2, \Omega'' = 0, 1, 2) \quad \dots \quad J' = 0 \sim 40$$

$$R_{\Omega' \Omega''} \text{ 枝 } J' - J'' = 1 \quad (\Omega' = 0, 1, 2, \Omega'' = 0, 1, 2) \quad \dots \quad J' = 1 \sim 40$$

ただし、文献(7)の記法に従って、例えば $\Omega' = 0, \Omega'' = 0$ の P 枝は P_{11} 枝、 $\Omega' = 2, \Omega'' = 1$ の R 枝は R_{32} 枝という風に、 $\Omega + 1$ の値を添字とする事にする。上下の Ω のとりかたと P Q R 枝の存在により、計 27 本の枝が存在することになる。

次に、FPシステムの遷移確率は、次の公式で与えられる。

$$R_{11}(J-1) = \frac{(J^2-1)\{(J+1)u_1 - Y + 2J^2\}^2}{(2J-1)C_1(J)} \quad (\text{式 6-17})$$

$$Q_{11}(J) = \frac{\{(J^2+J-1)u_1 - (Y-2) + 2J(J^2-1)\}^2}{JC_1(J)} \quad (\text{式 6-18})$$

$$P_{11}(J+1) = \frac{J\{J(J+2)u_1 + (J+2)(Y-2) + 2(J-1)(J+1)^2\}^2}{(J+1)(2J+3)C_1(J)} \quad (\text{式 6-19})$$

$$R_{12}(J-1) = \frac{(J^2-1)\{(J+1)(Y-2) - u_1\}^2}{JC_1(J)} \quad (\text{式 6-20})$$

$$Q_{12}(J) = \frac{(2J+1)\{(J^2+J-1)(Y-2) + u_1\}^2}{J(J+1)C_1(J)} \quad (\text{式 6-21})$$

$$P_{12}(J+1) = \frac{J(J+2)\{J(Y-2) + u_1\}^2}{(J+1)C_1(J)} \quad (\text{式 6-22})$$

$$R_{13}(J-1) = \frac{(J-1)^2(J+1)\{(J+1)u_1 - (Y-2) - 2J(J+1)\}^2}{J(2J-1)C_1(J)} \quad (\text{式 6-23})$$

$$Q_{13}(J) = \frac{\{(J^2+J-1)u_1 + (Y-2) - 2(J-1)(J+1)^2\}^2}{(J+1)C_1(J)} \quad (\text{式 6-24})$$

$$P_{13}(J+1) = \frac{J(J+2)\{Ju_1 + Y - 2J^2\}^2}{(2J+3)C_1(J)} \quad (\text{式 6-25})$$

$$R_{21}(J-1) = \frac{2(J^2-1)Y^2}{(2J-1)C_2(J)} \quad (\text{式 6-26})$$

$$Q_{21}(J) = \frac{2\{J(Y-2) - 2\}^2}{JC_2(J)} \quad (\text{式 6-27})$$

$$P_{21}(J+1) = \frac{2J\{(J+1)Y - 2(2J+3)\}^2}{(J+1)(2J+3)C_2(J)} \quad (\text{式 6-28})$$

$$R_{22}(J-1) = \frac{8(J-1)(J+1)^3}{JC_2(J)} \quad (\text{式 6-29})$$

$$Q_{22}(J) = \frac{8(2J+1)(J^2+J-1)^2}{J(J+1)C_2(J)} \quad (\text{式 6-30})$$

$$P_{22}(J+1) = \frac{8J^3(J+2)}{(J+1)C_2(J)} \quad (\text{式 6-31})$$

$$R_{23}(J-1) = \frac{2(J+1)\{J(Y-4)+2\}^2}{J(2J-1)C_2(J)} \quad (\text{式 6-32})$$

$$Q_{23}(J) = \frac{2\{(J+1)Y-2J\}^2}{(J+1)C_2(J)} \quad (\text{式 6-33})$$

$$P_{23}(J+1) = \frac{2J(J+2)Y^2}{(2J+3)C_2(J)} \quad (\text{式 6-34})$$

$$R_{31}(J-1) = \frac{(J^2-1)\{(J+1)u_3+(Y-2)-2J(J+2)\}^2}{(2J-1)C_3(J)} \quad (\text{式 6-35})$$

$$Q_{31}(J) = \frac{\{(J^2+J-1)u_3-(Y-2)-2J^2(J+2)\}^2}{JC_3(J)} \quad (\text{式 6-36})$$

$$P_{31}(J+1) = \frac{J(J+2)^2\{Ju_3-(Y-2)-2J(J+1)\}^2}{(J+1)(2J+3)C_3(J)} \quad (\text{式 6-37})$$

$$R_{32}(J-1) = \frac{(J^2-1)\{u_3+(J+1)(Y-2)\}^2}{JC_3(J)} \quad (\text{式 6-38})$$

$$Q_{32}(J) = \frac{(2J+1)\{(J^2+J-1)(Y-2)-u_3\}^2}{J(J+1)C_3(J)} \quad (\text{式 6-39})$$

$$P_{32}(J+1) = \frac{J(J+2)\{J(Y-2)-u_3\}^2}{(J+1)C_3(J)} \quad (\text{式 6-40})$$

$$R_{33}(J-1) = \frac{(J+1)\{(J^2-1)u_3+(J-1)(Y-2)+2J^2(J+2)\}^2}{J(2J-1)C_3(J)} \quad (\text{式 6-41})$$

$$Q_{33}(J) = \frac{\{(J^2+J-1)u_3-(Y-2)+2J(J+1)(J+2)\}^2}{(J+1)C_3(J)} \quad (\text{式 6-42})$$

$$P_{33}(J+1) = \frac{J(J+2)\{Ju_3-(Y-2)+2J(J+2)\}^2}{(2J+3)C_3(J)} \quad (\text{式 6-43})$$

ただし、

$$u_1 = \sqrt{Y(Y-4)+4J^2} \quad (\text{式 6-44})$$

$$u_2 = \sqrt{Y(Y-4)+4(J+1)^2} \quad (\text{式 6-45})$$

$$C_1(J) = J(J+1)Y(Y-4)+2(2J+1)(J-1)J(J+1) \quad (\text{式 6-46})$$

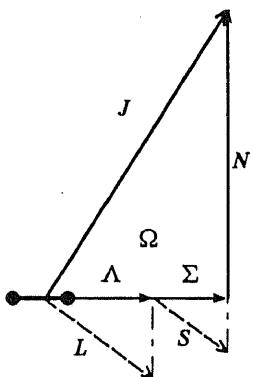
$$C_2(J) = Y(Y-4)+4J(J+1) \quad (\text{式 6-47})$$

$$C_3(J) = (J-1)(J+2)Y(Y-4)+2(2J+1)J(J+1)(J+2) \quad (\text{式 6-48})$$

この遷移確率を用いて、放射強度は次式で与えられる。

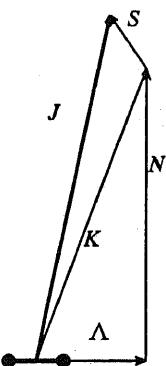
$$S_w \times \text{遷移確率} \times (\text{式 2-4}) \quad (\text{式 6-49})$$

ここで、統計的重率 S_w は下位準位 $A^3\Sigma^+_u$ の Hund's Case (b) の量子数 K ($= N$) の偶奇に対して、理論上は 1, 2 の値である。ただし、実際には実測スペクトル波形と一致させるために 1, 1.5 としている。Hund's Case (b) の量子数 K とは、 Σ 軌道では $\Lambda = 0$ だから分子回転の角運動量ベクトル N に対応する。図 6-2 にベクトル和のとり



*Interaction of the nuclear rotation with the electronic motion is very weak.
 Electronic motion is coupled very strongly to the line joining the nuclei.
 Λ is orbital angular momentum of electrons.
 S is spin angular momentum of electrons.
 Ω is electronic angular momentum.
 N is angular momentum of nuclear rotation.
 J is total angular momentum.*

(a) Vector diagram for Hund's case (a).



*S is not coupled to the internuclear axis.
 Ω is not defined.
 K is total angular momentum apart from spin.
 J is total angular momentum including spin.*

(b) Vector diagram for Hund's case (b).

図6-2 ベクトル和の概念図

かたの概念図を示すので参照されたい。また、必要な分光定数は文献(8)等から引用した（表2-1参照）

さて、この重率は次のような理由による。 $B^3\Pi_g$ のJ準位から $A^3\Sigma^+_u$ へのJ'準位への放射遷移の様子は図6-3（図2-19再掲載）に示すものである。上位準位 $B^3\Pi_g$ は各準位がさらにΛ-TYPE DOUBLING（電子の軌道角運動量Λによる分裂： Π 軌道は $\Lambda=1$ に対応する）により2つに分裂しており、sym.とantisym.の準位とを形成している。ただし、ここでいう対称性とは、準位の波動関数がreflection at origin($X_k, Y_k, Z_k \rightarrow -X_k, -Y_k, -Z_k$)で符号を変えるか変えないかというものである。原子核スピンの影響により、sym.の準位はantisym.の準位の2倍の縮退度を（理論上は）持つから存在確率が2倍である。さらに、選択規則としてsym. \rightarrow sym.およびantisym. \rightarrow antisym.の遷移は許されない。

一方、下位準位 $A^3\Sigma^+_u$ はΣ軌道が $\Lambda=0$ に対応することからΛ-TYPE DOUBLINGは無い。このため、各準位はsym.であるかantisym.であるかのどちらかでなければならない。例えば図6-3（図中でJは偶数）では P_{1s} は $A^3\Sigma^+_u$ のsym.への遷移であり、 $B^3\Pi_g$ のantisym.が遷移に関与できる。よって、この放射は相対的に弱いものとなる。一方、 Q_{1s}, P_{12} 枝は $A^3\Sigma^+_u$ のantisym.への遷移であり、 $B^3\Pi_g$ のsym.が遷移に関与できる。よってこの放射は相対的に強いものとなる。こうして、同じ $B^3\Pi_g$ のΩ=1からの遷移であっても、 P_{1s} 枝の放射強度と Q_{1s}, P_{12} 枝の放射強度とは異なる重率を持つことになる。

図6-3では、例えば $A^3\Sigma^+_u$ のJ-1($\Omega=2$)、J($\Omega=1$)、J+1($\Omega=0$)が1つの量子数N(=J(even))で表される状態で、これらの準位はすべてsym.である。よって、偶数のNに遷移する放射は相対的に弱いものとなり、逆に奇数のNに遷移する放射は相対的に強いものになると表現できるわけである。

$B^3\Pi_g, V=2, J(\text{even})$

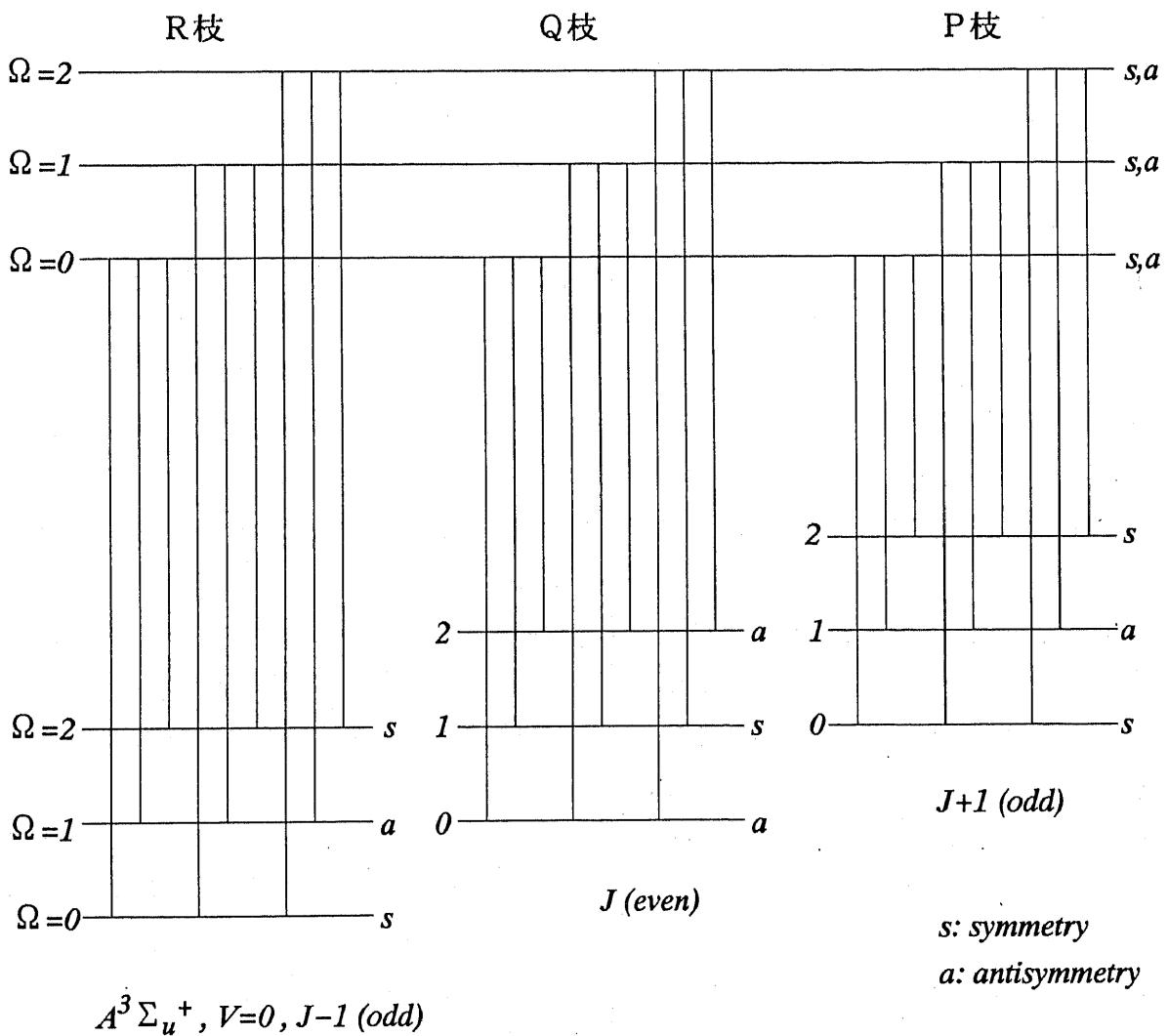


図6-3 FP20の回転準位と遷移の模式図

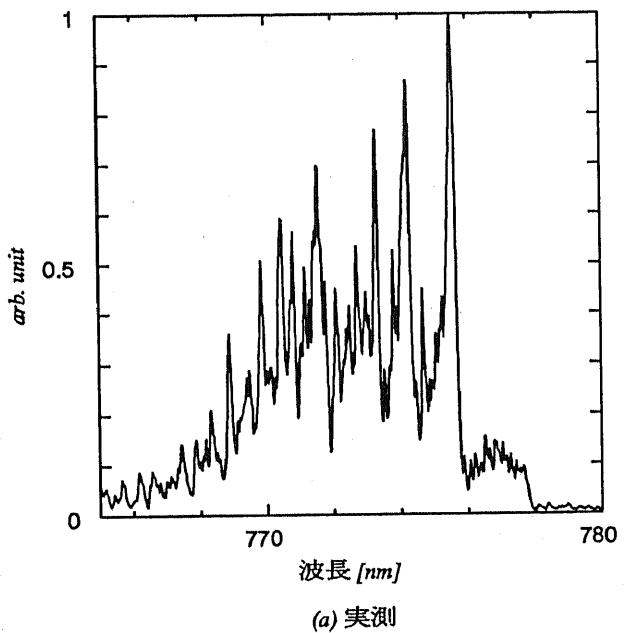
6-2-4-2 ガス温度推定法

全節のBudóの遷移確率の式を用いて波長と強度を計算し、装置関数によって線スペクトルのつぶれをシミュレートした結果を図6-4に示す。実はこの公式には、一部の式で $J=0, 1, 2$ 付近の遷移確率が定まらないという不備がある。このため、シミュレーション結果と実測スペクトルとは、全域では完全に一致しなかった。また、27本の枝が存在するために、スペクトル波形はSP, FNシステムよりもはるかに複雑である。さらに、SP, FNスペクトルが数nm程度の広がりであるのに対してFPスペクトルは10nm以上の広がりを持っていて、測定に要する時間も単純に数倍になってしまう。これらのことから、全波形の比較で温度推定を行うのは不利であると考えた。

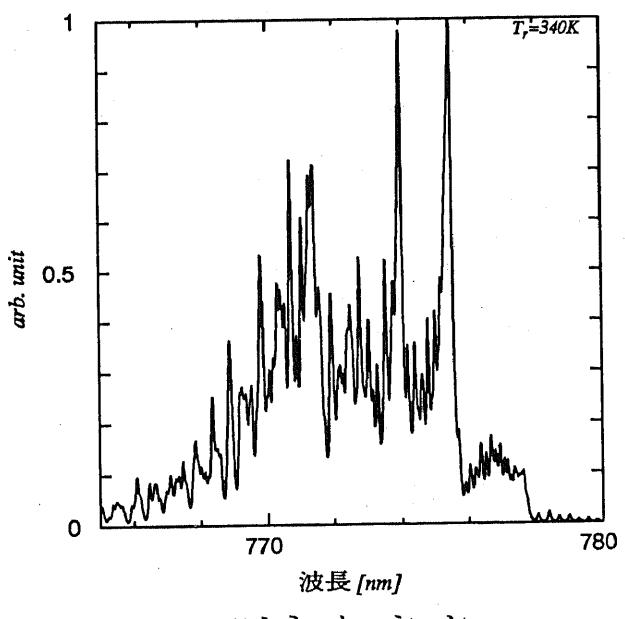
そこで、 $N_2 B^3 \Pi_u$ の回転準位 J からの発光と波長の対応を示す図6-5を用いて、さらに検討を行った。図6-5を観察すると、 P_{13}, P_{12}, Q_{13} 枝は長波長側に伸びる数少ない枝であり、比較的簡単なスペクトル構造を示すことが分かる。また、遷移確率公式の $J=0, 1, 2$ での不備も、この領域では関係がない。よって、測定スペクトルとシミュレーション結果とを容易に比較し得ると考えた。ところが一般に、あるバンドスペクトルの左右の波長領域には、同系列の他のFPバンドスペクトルが存在するので、どのFPバンドスペクトルでも P_{13}, P_{12}, Q_{13} 枝を、明瞭に観測できるわけではない。その長波長領域に他の強いスペクトルを持たないようなFPスペクトルが必要である。実測の結果、FP20バンドはこの条件を満たしていた。よって、測定対象をFP20に決定した。なお、図6-5では、27本の枝が15本に見える。これは、 $A^3 \Sigma^+_u$ の J によるエネルギーの増減が、 Ω によるエネルギーの増減とほぼ同じで、準位が縮退しているためである。この様子は図6-3に、模式的に示されている。幸いなことに、これらの枝の間隔は、測定系の分解能よりも一桁以上狭いものであるので分離測定は不可能であり、本実験では一本の枝であるとして取り扱って良い。 P_{12} 枝と Q_{13} 枝もこのような意味において1本の枝になっている。

FP20の P_{13}, P_{12}, Q_{13} 枝のシミュレーション結果と実測結果の例を図6-6に示す。装置関数は、半値幅1nm（左右比3対7）、裾広がり3.5nm（左右比1.7対2.3）のものを使用した。両者の一致は良好であると考える。図6-7は、ガス温度の変化によるスペクトル波形の変化をシミュレートしたものである。図中、“head”と示した部分は図6-5で“head-forming”と記した部分に対応し、 $J=15 \sim 20$ 付近の多数の準位からのスペクトルが密集した部分である。この部分の温度変化は、特に著しく、この部分に着目すれば、感度の高いガス温度推定が可能である。

さらに簡便には、図6-7で見られるスペクトルのピーク値の比のみから回転温度が推定できる。図6-8には P_{12}, Q_{13} 枝の $J=9$ と “head”的比と、 $J=12$ と “head”的比のシミュレート値を示しておく。ただし、図6-8は後述の実験で使用した装置関数での計算値を示したものである。



(a) 実測



(b) シミュレーション

図6-4 FP20の実測およびシミュレーション結果

上位電子準位の回転量子数 J

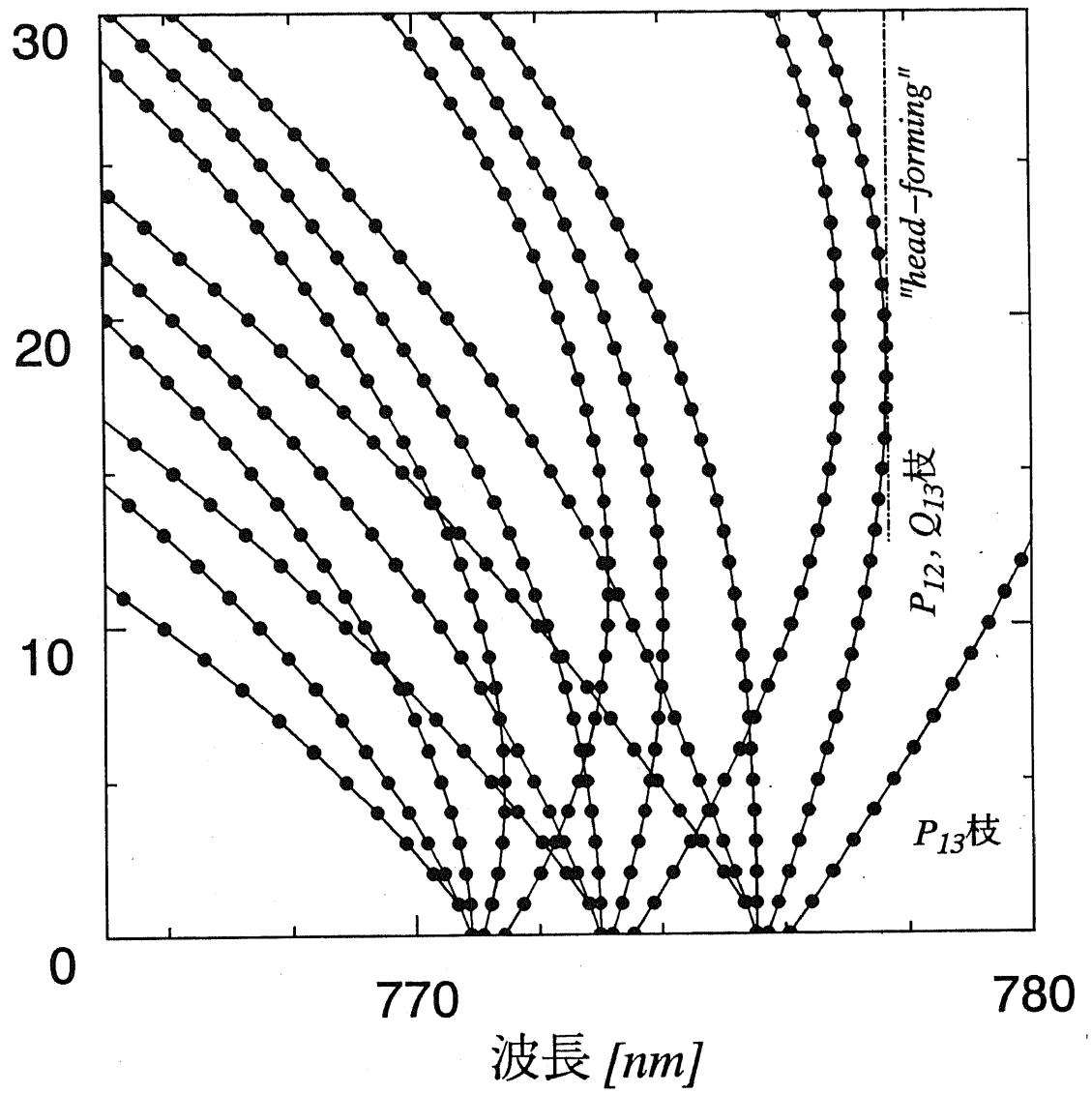
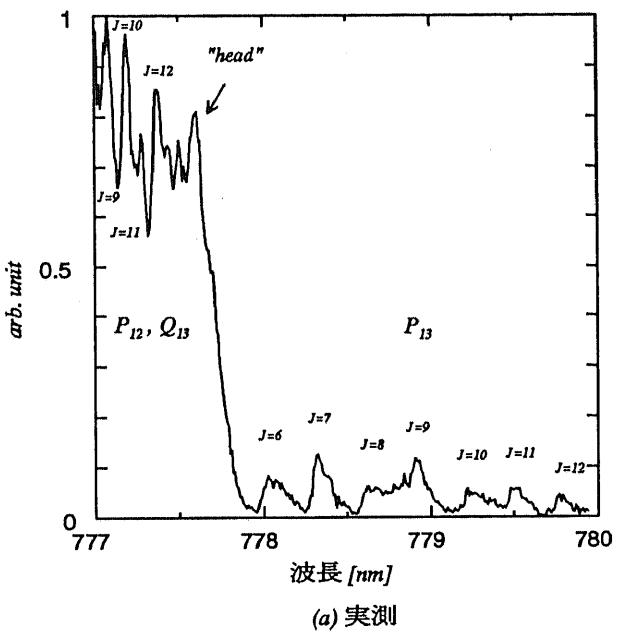
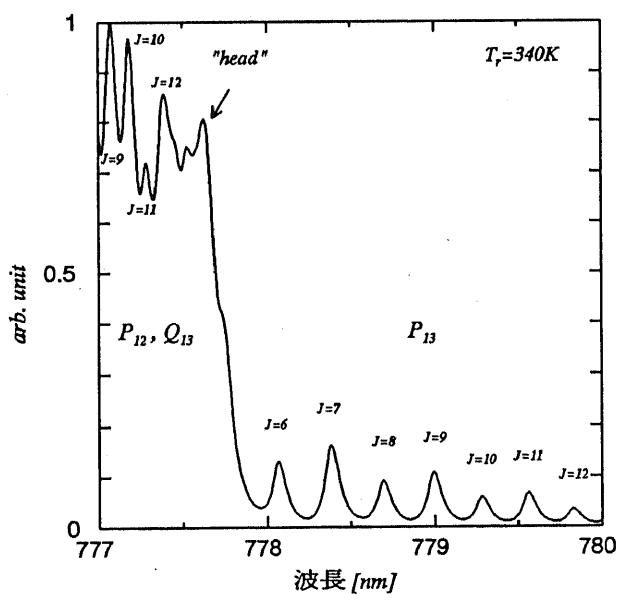


図6-5 回転量子数 J と波長との関係



(a) 実測



(b) シミュレーション

図6-6 FP20 P₁₃, P₁₂, Q₁₃枝

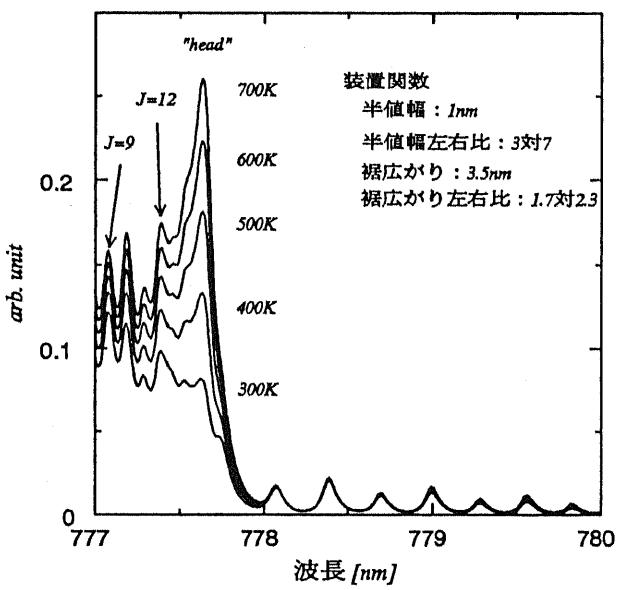


図6-7 ガス温度の変化によるスペクトルの変化

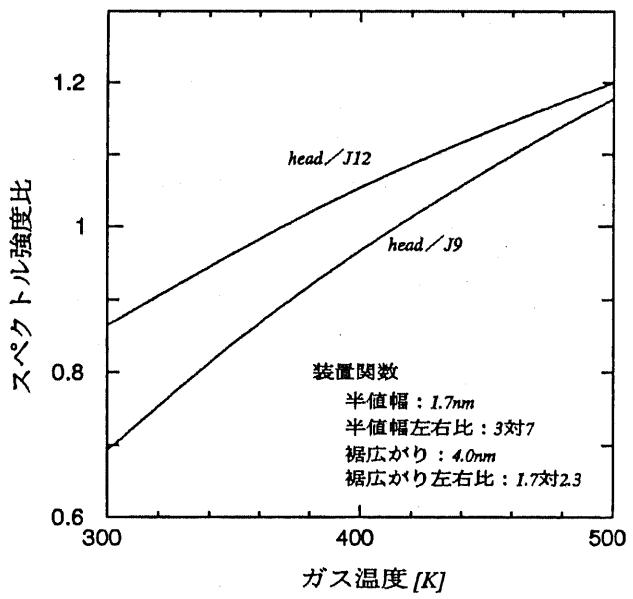


図6-8 強度比の温度依存性

6-3 ガス温度の理論計算

陽光柱内のガス温度を、簡単なモデルで理論計算する。陽光柱内のガス温度は、ガス分子との衝突で電子が失うエネルギーを熱源として上昇していると考えられる。電子のエネルギー損失は、電子エネルギー分布と衝突断面積とを用いて簡単に計算できるので、放電管の座標での熱拡散方程式を解けばガス温度が見積もられる。定常状態の熱拡散方程式は、 T ：ガス温度、 κ ：熱伝導率、 ξ ：発生する熱量として、

$$-div(\kappa grad T) = \xi \quad (式 6-50)$$

であり、発生した熱量が拡散によって失われる熱量と等量であるというよく知られた関係式である。円筒放電管内の一様な陽光柱では、円筒座標系で径方向成分だけを考えれば良いから、

$$\frac{\partial^2 T}{\partial r^2} + \frac{1}{\kappa} \frac{\partial \kappa}{\partial T} \left(\frac{\partial T}{\partial r} \right)^2 + \frac{1}{r} \frac{\partial T}{\partial r} = -\frac{\xi}{\kappa} \quad (式 6-51)$$

を得る。上式第2項は熱伝導率の温度変化の効果を記述するものであるが、近似的にはなくても良い。本研究では、熱伝導率は数表から引用し、近似関数を作成した上で、この項も削除せずに計算を行っている。

熱の発生項 ξ は、

$$\xi = n_e N_e \left\{ \delta \int F(\varepsilon) Q_m(\varepsilon) \varepsilon \sqrt{2\varepsilon/m} d\varepsilon + \sum \varepsilon_{inel} \int F(\varepsilon) Q(\varepsilon) \sqrt{2\varepsilon/m} d\varepsilon \right\} \quad (式 6-52)$$

で与えられる。ここに、 $\delta = 2m_e/M_e$ で弾性衝突損失係数、 ε_{inel} は各非弾性衝突のしきいエネルギーである。上式第1項は弾性衝突による電子のエネルギー損失、第2項は非弾性衝突による電子のエネルギー損失を意味している。電子がガスに与えたエネルギーは、熱以外に発光としても失われるが、ここでは発光による損失は無視し、全て熱拡散で失われるものと仮定した。

以上より、陽光柱内の径方向の電子密度分布と、電子エネルギー分布とが分かれれば、管壁での温度を境界条件として、ガス温度分布を数値計算できる。電子密度分布は第4章で開発した陽光柱理論を用いて計算でき、電子エネルギー分布関数にはボルツマン方程式の数値解を用いればよい。また、断面積もボルツマン方程式解析で使用した断面積セットを用いればよい。管壁の温度には、室温を用いるか、300K程度の値を仮定しておけばよい。図6-9に、数値計算例を示す。

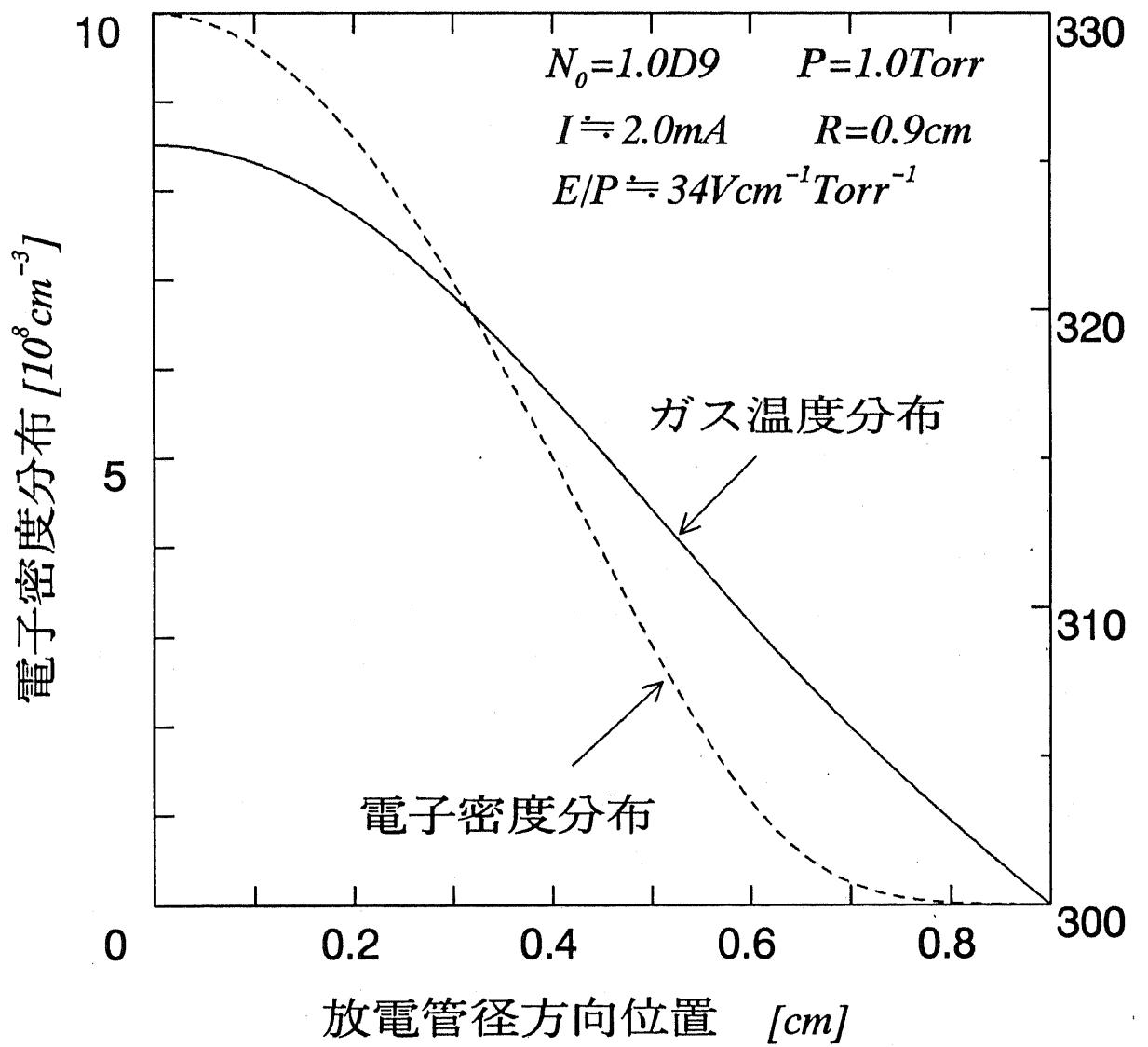


図6-9 ガス温度の理論計算例

6 - 4 実験・計算結果および考察

提案したFP20の分光計測による回転温度推定を実行した。FP20の推定値を示すだけでは推定結果を評価できないので、他の手法によってもガス温度を推定した。

(1) グロー放電負グロー部でのガス温度推定

放電管Aを用いて、ガス圧1TorrのN₂直流グロー放電の負グロー部を対象に分光計測を行った。図6-10に放電電流を変化させた時の、FP20による推定回転温度と、FN00による推定回転温度とを示す。両者には50K程度の食い違いが見られるが、両者の温度上昇傾向は良く一致している。なお、SP02によるガス温度の推定は6-1節で述べた理由から実行できなかった。

(2) グロー放電陽光柱でのガス温度推定

放電管Aを用いてガス圧1TorrのN₂直流グロー放電陽光柱の分光計測を行った。6-1節で述べた通りSP02, FN00を用いた手法では、残念ながら陽光柱内ガス温度の推定はできなかったので、比較のために、6-3節の拡散方程式による理論計算を実行した。放電電流を変化させた時の、FP20による推定回転温度と拡散方程式の数値計算結果も図6-10にあわせて示した。理論計算値は、放電管中心での値をプロットした。分光計測値は測定光軸上の平均的温度を推定することになるから、理論計算値よりもやや低めの値になると考えられる。両者は絶対値はほぼ同程度であるが、低電流領域で分光推定値が高めになっている。一方、実験(1)の結果と比較すると陽光柱の温度は負グローの温度よりも低いという結果で、これは妥当な結果である。

図6-10より、FP20によるガス温度推定手法は、±50K程度の誤差内でガス温度を推定できるものと考える。この程度の測定誤差であるならば、ガス温度の推定手法としては、十分に実用的であると考えられる。

FP20は赤外光であり、赤外領域で感度ピークを持つ測定系に適したガス温度推定法であるが、本装置系は可視領域のやや紫外よりの領域で感度ピークを持っている。また、放電管や電源も低電流のグロー放電を対象とするのに適した構成で、高温の放電空間を測定対象とする事ができなかった。将来の課題として、本手法に適した測定系と実験対象で検証実験を行いたいと考える。

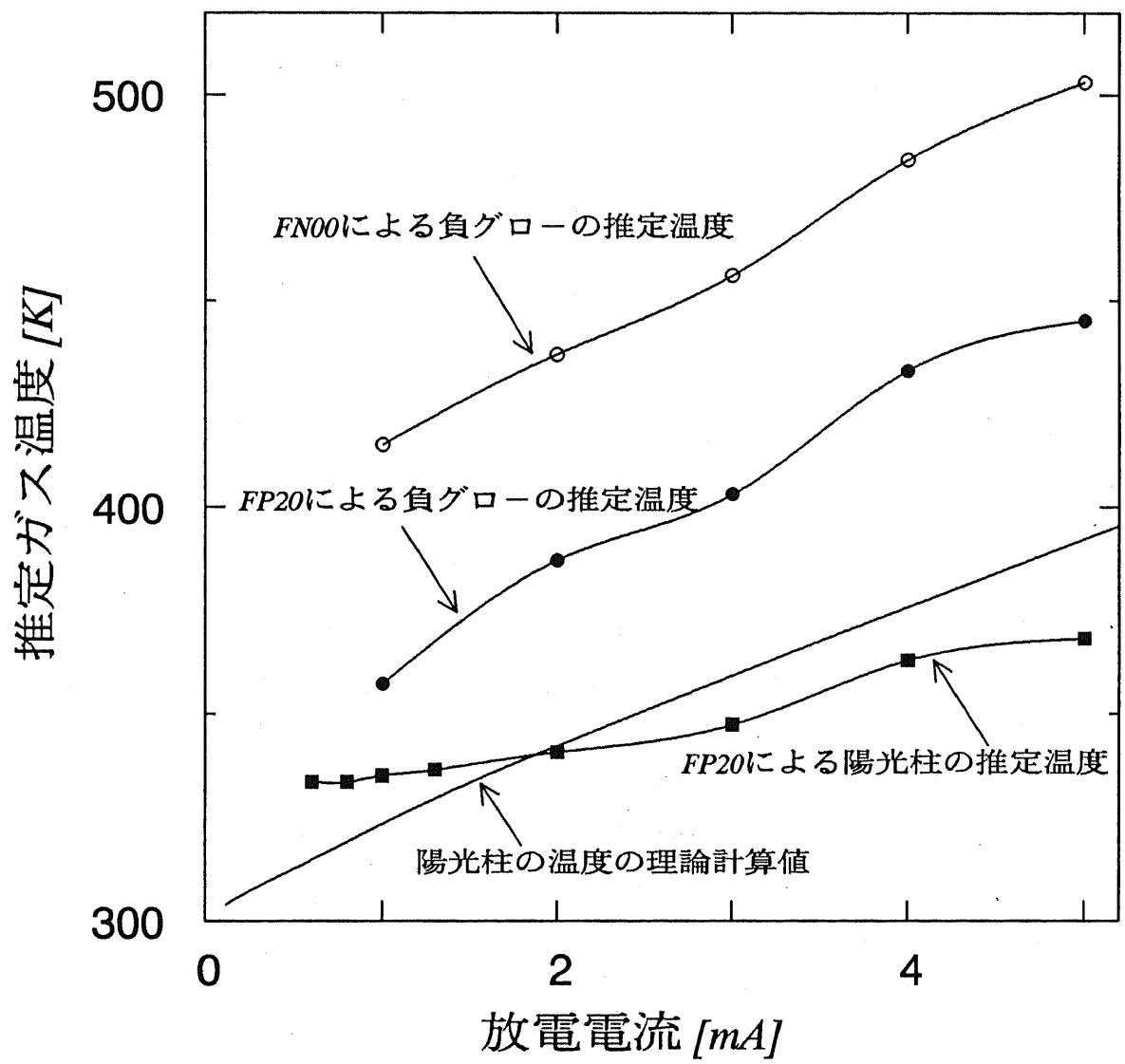


図6-10 ガス温度の推定

6 - 5 まとめ

分光計測によるガス温度推定法として、新しく、N₂FP20の放射スペクトルを用いる方法を考案し、必要となる理論式を整備した。低気圧窒素グロー放電のガス温度推定を実行し、他の手法による推定ガス温度との比較を行った。

本章の成果は、以下のようにまとめられる。

- (1) Budóの公式とPhillipsの装置関数を用いた数値シミュレーションで、実測スペクトル波形と直接比較が可能なFP20のスペクトル波形が求められることを示した。
- (2) FPシステムの統計的重率が、A³Σ_u⁺の量子数K (= N) の偶奇によって定まることを示し、その理由を示した。この事実は、既に知られていたものであるかも知れないが、本研究では、実測スペクトルの特徴を説明するために、独自に理由を明らかにしたものである。
- (3) FPシステムのP₁₈, P₁₂, Q₁₈枝を測定対象とする事を提案した。これにより、シミュレーション結果と実測結果の比較が、容易にかつ精度よく行えることを示した。
- (4) FPシステムの中でFP20バンドがP₁₈, P₁₂, Q₁₈枝の測定に適していることを、実験により明らかにし、FP20バンドを用いたガス温度推定法を提案した。
- (5) P₁₂, Q₁₈枝の"head"を用いることで、感度の高いガス温度推定が行えることを示し、この"head"を利用することを提案した。
- (6) ガス分子との衝突で電子が失ったエネルギーを熱源として、熱拡散方程式によりグロー放電陽光柱内のガス温度を解析する手法を示した。この手法では、電子エネルギー分布にはボルツマン方程式の数値解を使用し、電子密度分布には第4章で開発した陽光柱理論による数値計算結果を利用した。
- (7) ガス圧1Torrのグロー放電負グロー部の分光計測を行い、FN00、FP20のスペクトルよりガス温度を推定した。両推定値には50K程度の違いがあるが、電流の増加に対する温度の上昇傾向は、よく一致していることを確認した。
- (8) ガス圧1Torrのグロー放電陽光柱の分光計測を行い、FP20のスペクトルよりガス温度を推定した。また、(6)の手法により陽光柱内のガス温度を計算し、分光推定結果と比較した。両者は、絶対値で1割以内の誤差で一致することを確認した。

参考文献

-
- (1) D. M. Phillips: "Determination of gas temperature from unresolved bands in the spectrum from a nitrogen discharge", J. Phys. D: Appl. Phys., 8, 507 (1975)
 - (2) 西嶋、行徳、常安: 「N₂ガス放電に関する回転温度とバンドスペクトル強度分布との関係」、福岡大学工学集報、第27号、41、(昭和56)
 - (3) 西嶋、加峰、常安: 「N₂直流グロー放電プラズマに関する気体温度の分光学的診断法」、福岡大学工学集報、第41号、33、(昭和63)
 - (4) 西嶋、常安: 「N₂ガスの収縮した直流グロー放電の陰極近傍での放電発光の分光学的研究」、電気学会論文誌A, 111, 3, 221 (1991)
 - (5) 大坪、松根他: 「低気圧空気中の雷インパルスフラッシュオーバ過程における気体温度」、電気学会論文誌A, 107, 8, 387 (1987)
 - (6) G. Herzberg: "Molecular spectra and molecular structure", Von Nostrand Reinhold Company (1950)
 - (7) A. Budó: "Intensitätsformeln für die Tripletbanden", Z. Physik, 105, 579 (1937)
 - (8) A. Budó: "Über die Triplet-Bandentermformel für den allgemeinen intermediären Fall und Anwendung derselben auf die B³Π-, C³Π-Terme des N₂-Moleküls", Z. Physik, 96, 219 (1935)

第7章 プローブガスによる分光診断法

7-1 はじめに

現在の分光計測による電界強度の推定法（第4章参照）では、電子エネルギー分布をボルツマン方程式の解やマクスウェル分布等で仮定する必要がある。この仮定を除き、分光計測により任意の電子エネルギー分布を推定するには、原理的には2つ以上の多数の発光スペクトルの強度比を用いれば良い。しかし、電子エネルギー分布について独立した情報を持ち、しかも測定が簡単な強い発光スペクトルは、都合よく存在しない。 N_2 についてはせいぜいSP, FP, FNシステムの3種類のスペクトルが利用できるにとどまり、電子エネルギー分布を直接推定するには情報不足である。また、振動・回転スペクトルにも電子エネルギー分布の状況が反映されるので、これらを利用することも考えられる。第5, 6章の振動・回転温度についての研究は、このような目的で調査を始めたものであるが、理論値と分光推定値とが必ずしも十分に一致しない現状では、振動・回転スペクトルの利用は望めないと考えられる。あるいは、両者がある程度一致したとしても、例えば振動温度は電子エネルギー分布よりも電子密度に大きく依存することが分かっており、電子エネルギー分布の推定には感度の点で適していないと考えられる。

そこで、 N_2 に微量のプローブガスを混入し、プローブガスの発光を利用して、情報量を増やそうと考えた。本研究ではプローブガスとしてArを用い、その有効性を確認することを目的に基礎的な実験と検討を行った。

本章では、プローブガスとしてArが利用可能であることを明らかにし、電界強度・電子密度の分光推定が可能であることを示す。電子エネルギー分布の直接推定法の足がかりとして、本研究が活用できると考える。

7-2 プローブガスの選定

プローブガスの選定にあたり次のような条件がある。

① ガスの混入による擾乱が少ない事

- 化学反応を起こし易いガスは望ましくない
- 振動励起あるいは解離するガスは望ましくない
- 負イオンを形成し易いガスは望ましくない
- 多量の混入は望ましくない

② ノイズに埋もれずにスペクトル強度測定が可能である事

- N_2 のスペクトルは当然大きいので、発光波長が重ならない事
- 発光強度が大きい事

③ 「プローブ」としての意味を持つ事

- 放射レートを数値計算可能であるか実測可能である事

①に加えて入手しやすさも考慮して、希ガスを混入する事とした。また、②については実際に混入して発光スペクトルをとることで、チェックする事とした。多量のプローブガスの混入が望ましくない事と、発光強度が大きい事とは相反する条件であるので、混入量の適量を調べる事も必要である。また、③については理論値と実測値を比較する事が望ましい。そこで、第4章の放射レートの推定法を用いて放射レートを実測する事とした。このためには単探針による電界強度の決定が簡単なグロー放電陽光柱を用いたいが、陽光柱内の電界強度は一般に低いので、低電子エネルギーの放電条件下でも発光の大きい希ガス、つまり質量数が大きく第一励起エネルギーの低いガスが望ましい。ここで、再び入手のしやすさを考えてXeやKrはとりあえず除外し、結局Arが最も適している事が分かった。HeおよびNeについても混入して測定を行ったが、陽光柱内では発光を識別できなかった。

参考のために、グロー放電陽光柱での荒いスペクトル測定結果を図7-1に示す。縦軸は対数であり、図が煩雑にならないようにピーク値の1%以下のデータは除外した。この図から、 N_2 のスペクトルと重ならないラインスペクトルは数少ないとが分かる。また、図では N_2 のスペクトルが観測されないとと思われる領域でも、詳細に観測を行うと N_2 のスペクトルが存在する場合が多い。

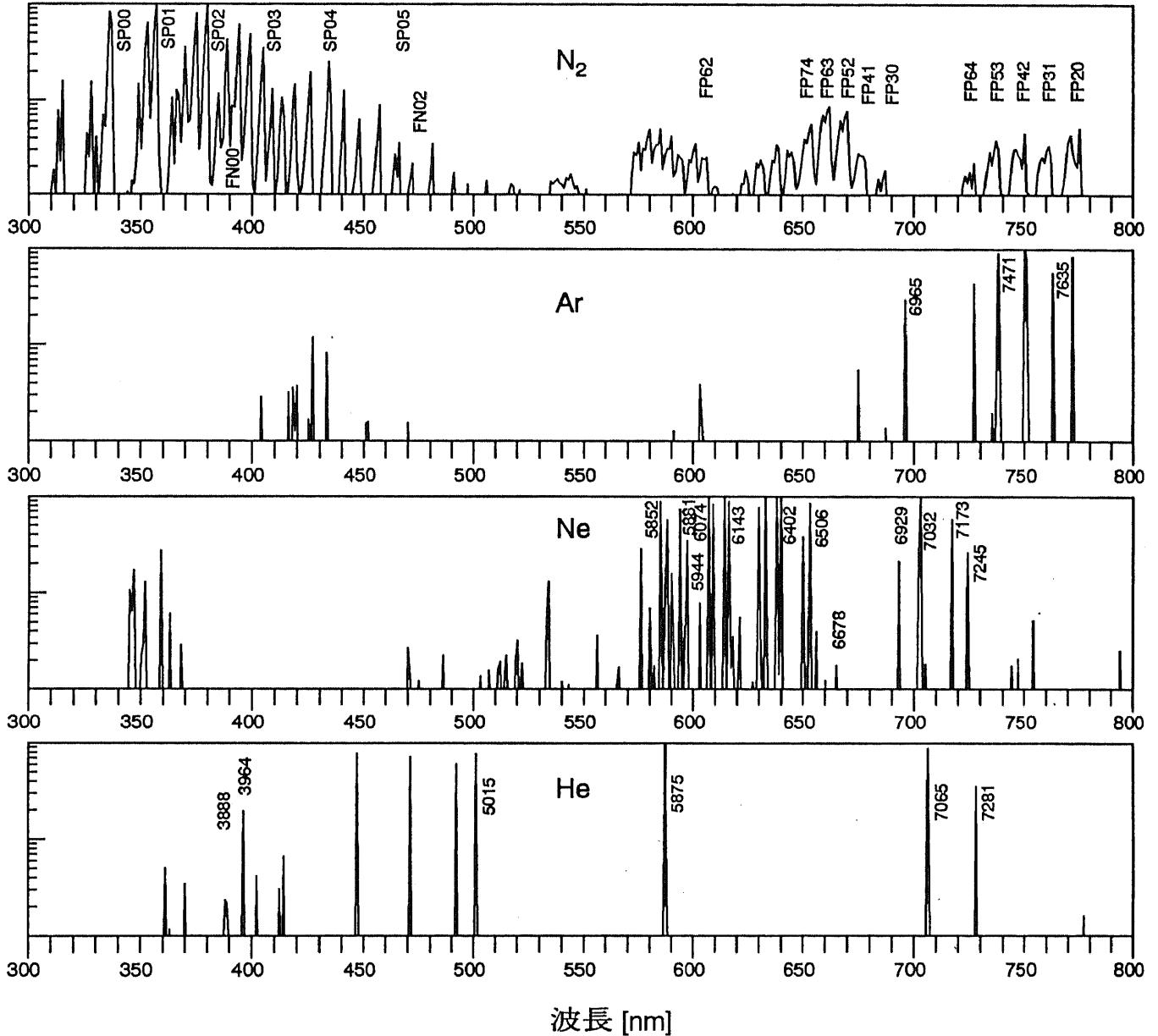
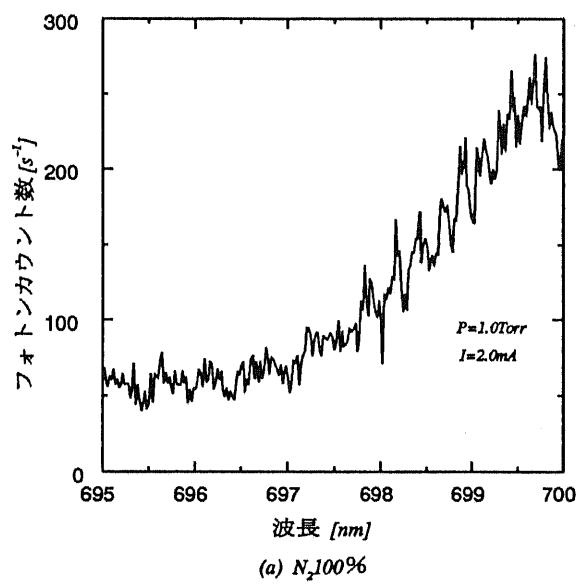


図7-1 スペクトルの測定例

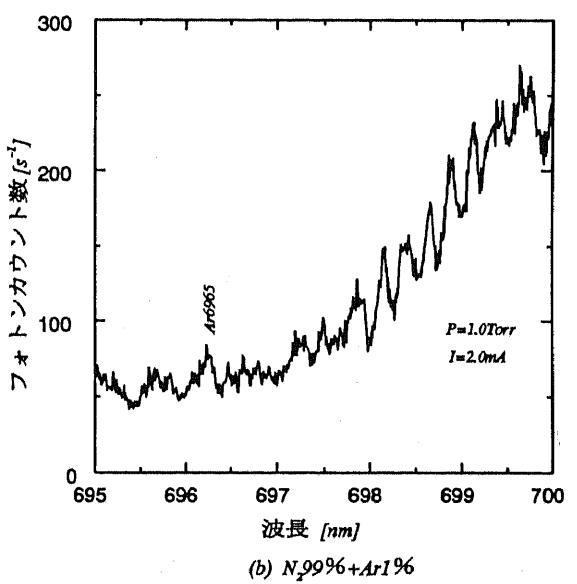
7 - 3 Arの混入による分光診断法

7 - 3 - 1 スペクトルの選定

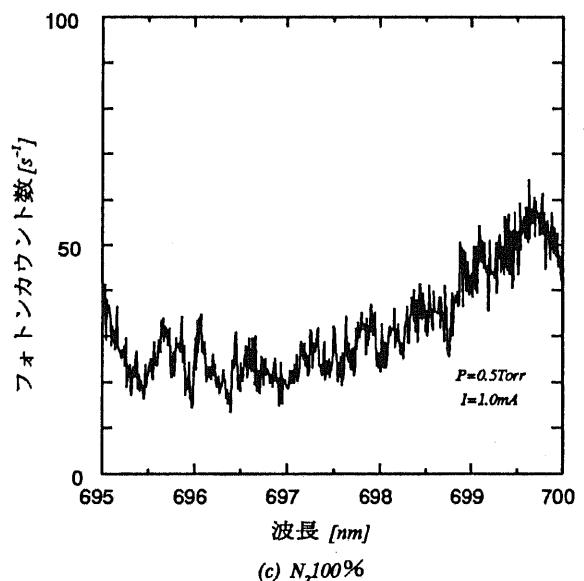
N_2 にArを1%混入して、Arの696.5nmと811.5nmのライインスペクトルの分光測定を行った。放電管Bに全圧1Torrおよび0.5Torrの混合ガスを封入し、陽光柱からの発光を測定する。結果を図7-2と図7-3に示す。図には比較のために N_2 100%の時の同じ条件でのスペクトルも示した。図より、ガス圧が低いときほどArのスペクトルが強く現れることが分かる。これは、換算電界E/Pの変化によって、Arと N_2 とのスペクトル強度比が変化することを示している。 N_2 のスペクトルは完全に存在しないわけではないので、ライインスペクトルの強度は、ピーク値と N_2 の発光によるベース分との差として定義することにした。Ar1%混入の条件で、Ar8115、6965スペクトルが測定可能である事が分かった。両スペクトルとともに、Arの4p軌道から4s軌道への遷移に伴う発光である(図2-7参照)が、6965と比較して8115の放射の方が強く、 N_2 の放射によるノイズも小さいので、8115ライインスペクトルの方が測定対象として適している。



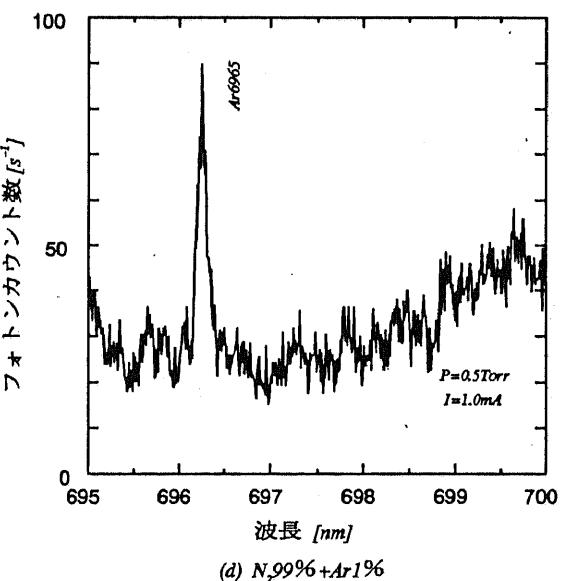
(a) $N_2 100\%$



(b) $N_2 99\% + Ar 1\%$

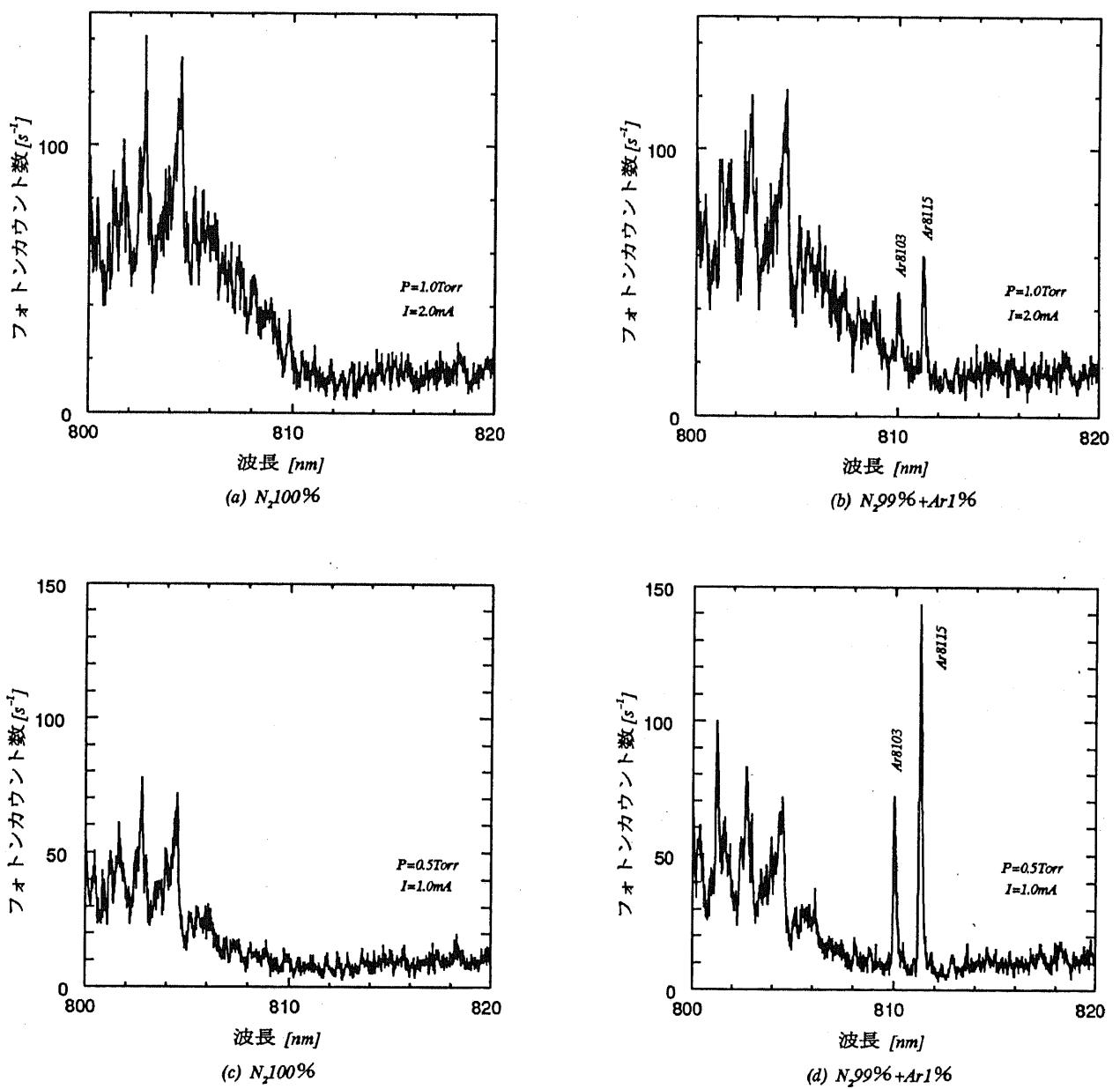


(c) $N_2 100\%$



(d) $N_2 99\% + Ar 1\%$

図7-2 $Ar6965$ スペクトルの測定



7-3-2 Arの混入率の決定

Arの過剰な混入は避けたいが、混入率が低いと、N₂のスペクトルとの分離が困難である（図7-2参照）。最適な混入率を調べるために、混入率を0.25%から2%まで変化させ、E/Pと放射強度の変化を測定した。放電管Bで全圧0.5Torrとして実験を行った。

(1) E/P

プローブによる電界計測結果を、図7-4に示す。Arの混入率が増加するとともに、電界強度が低下していくことが分かる。この図から、Arの混入による電界強度の変化を1%以下に抑えるためには、Arの混入率を0.5%以下にする必要があることが分かる。

(2) 放射強度

Arのスペクトル強度の変化を、図7-5に示す。電流は1mAと2mAの2種類で実験を行った。混入率1%以下では、スペクトル強度はほぼ混入率に比例して増加している。一方、2%の混入ではスペクトル強度がやや飽和する様子が見られる。これは、図7-4に見た電界強度の減少が主な原因であろうと考えられる。

また、電流-電圧特性も測定したが、電界強度の減少に伴う印加電圧の多少の減少が見られるものの大きな変動は見られなかった。

以上の実験から混入率0.25%なら、Arの混入が電子エネルギー分布に与える影響は小さいと考えた。これ以下の混入率では、スペクトル強度の計測が困難になることに加えて、本装置系ではガス封入時の混入率の制御も困難になる。よって、以下の実験では、0.25%の混入率で測定を行う事とした。

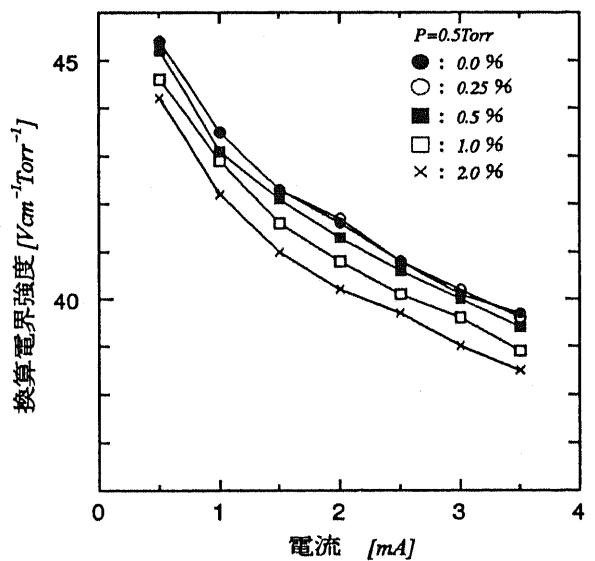


図7-4 Arの混入による電界強度の変化

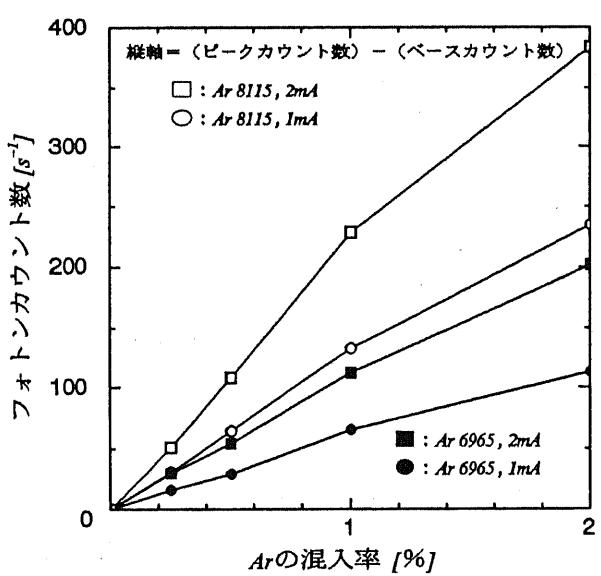


図7-5 Arの混入による放射強度の変化

7-3-3 分光計測結果とその校正

ガス圧と放電電流を変化させることで、陽光柱内の換算電界強度を変化させて、放射強度の変化を計測する。基本的には第4章で用いた手法を、N₂・Ar混合ガスにそのまま適用する。ただし、Arの放射強度をピーク値とベース値との差で求めるところから、便宜上N₂の放射強度もバンドヘッドのピーク値として求めた。よって、本章のN₂の放射強度は第4章での値とは絶対値が異なっている。実験には、電界強度をプローブで測定する必要から、放電管Bを用いる。

放電電流に対する、放射強度の変化を測定した例を、図7-6に示す。Arの混入率は0.25%で、全圧は0.7Torrの測定値である。電流の増加は電子密度の増加を意味するので、電流の増加に応じて放射強度も増加するが、完全な比例関係にはならない。この比例関係からのずれが、電界強度の変化による放射レートの変化に対応している。同様の計測を、0.4, 0.5, 1.0Torrでも行った。

ここでは、(式4-25)をさらに簡略化した次式で、測定結果を検討した。

$$C = \eta I_{th} N_L \approx \eta I_{th} \frac{I}{e S V_d} = \eta A \nu q \frac{I}{e S V_d} = \eta A \nu' N_s q \frac{I}{e S V_d}$$

$$= \eta A \nu' \frac{P}{k T} q \frac{I}{e S V_d} = \eta' \frac{\nu' P q I}{V_d} \quad (\text{式7-1})$$

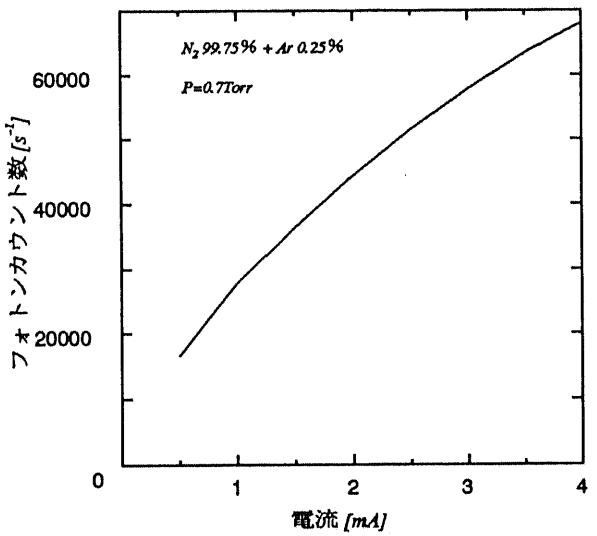
$$\nu' (E/P) q (P) = \frac{1}{\eta'} \frac{C V_d (E/P)}{I P} \quad (\text{式7-2})$$

ここに、C：フォトンカウント数[s⁻¹]、 η ：断面積の不確かさも含めた測定系の効率[cm³]、 I_{th} ：理論放射レート[s⁻¹]、 N_L ：測定光軸上平均電子密度[cm⁻³]、I：放電電流[A]、e：素電荷量[C]、S：放電管の断面積[cm²]、 $V_d (E/P)$ ：ドリフト速度[cm s⁻¹]、A：相対遷移確率、 ν ：励起レート[s⁻¹]、 ν' ：励起レートをガス密度で割ったもの[s⁻¹ cm³]、q(P)：失活因子(quenching factor)、P：ガス圧[Torr]、k：ボルツマン定数、T：ガス温度[K]、 η' ：新たに定義した効率である。測定データを(式7-2)右辺で処理すれば η' が求まる。ここで ν は、

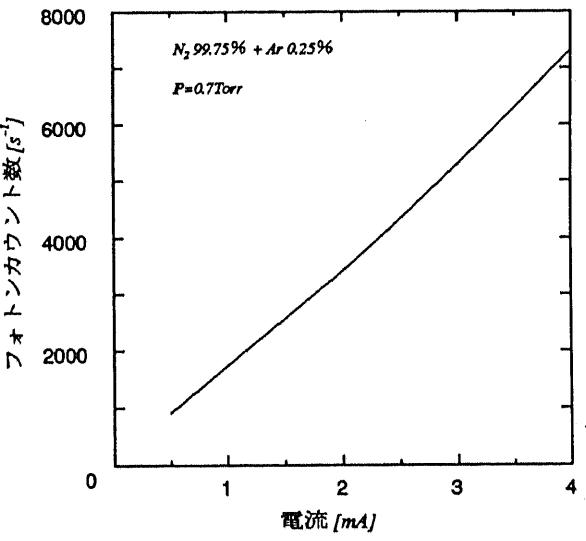
$$\nu = N_s \int_0^\infty f(\varepsilon) Q(\varepsilon) \sqrt{\frac{2e\varepsilon}{m}} d\varepsilon \quad (\text{式7-3})$$

であり、 ν' は電子エネルギー分布関数と断面積との積分である。励起断面積とボルツマン方程式による電子エネルギー分布関数を用いて ν' を数値計算できるので、失活因子のガス圧依存性が小さい場合は、(式7-2)より η' を決定できる。

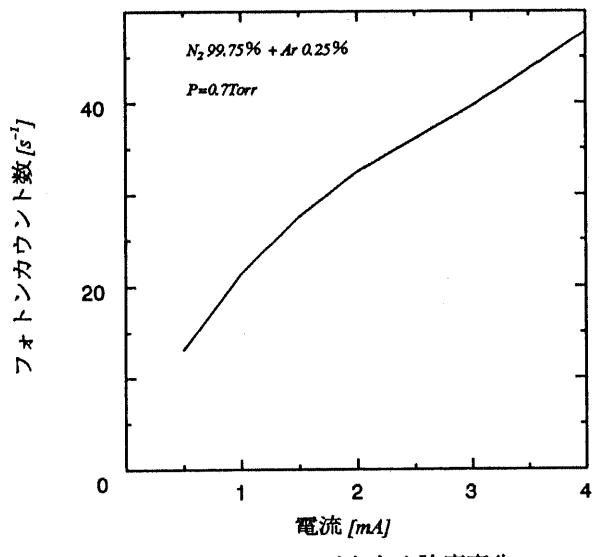
$C V_d / I P$ を求めた結果が図7-7である。本章ではこれを実測放射レートと呼ぶ。第4章の議論通り、SP00は失活因子の影響はほとんどなくデータは一本の曲線になるが、FP31は失活因子の影響で一本の曲線にはならない。一方、Arの8115については、わずかに失活因子の影響が現れていて、やはり一本の曲線とはいがたい。



(a) SP00のスペクトル強度変化

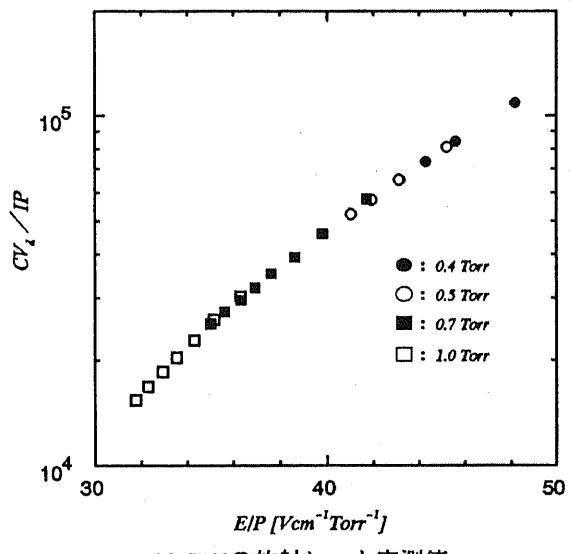


(b) FP31のスペクトル強度変化

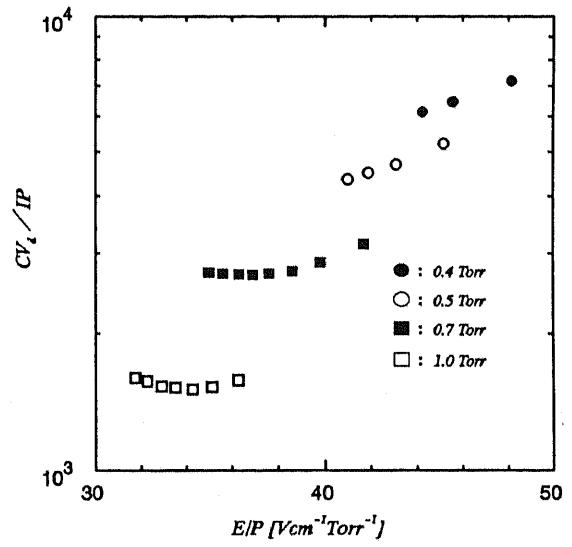


(b) Ar8115のスペクトル強度変化

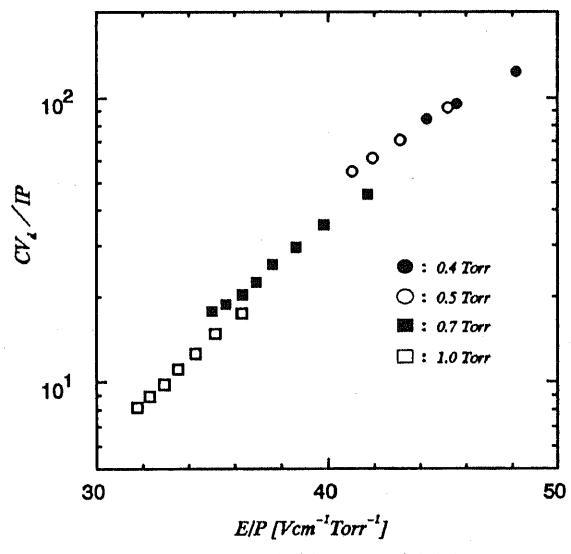
図7-6 放電電流に対する
放射強度の変化



(a) SP00の放射レート実測値



(b) FP3Iの放射レート実測値



(c) Ar8115の放射レート実測値

図7-7 放射レート実測値

$N_2 99.75\% + Ar 0.25\%$

$C [s^{-1}]$

$V_d [10^7 cms^{-1}]$

$I [mA]$

$P [Torr]$

次に、N₂・Ar混合ガス中のArの失活因子について、さらに、検討を行う。失活因子qは、ガス圧の関数で、N₂のC³Π_u、B³Π_g準位についての関数形は第4章で示したものである。一方ArとN₂の混合ガス中の失活因子を、2体衝突を仮定して、次式で表せるとする。

$$q_{Ar}(P) = \frac{1}{1+K_{AA}P_{Ar}+K_{AN}P_{N2}} \approx \frac{1}{1+K_{AN}P_{N2}} \approx \frac{1}{1+K_{AN}P} \quad (式7-4)$$

ここで、K_{AA}: Ar同士の衝突による失活定数（quenching constantという呼称は文献(1)による）、K_{AN}: ArとN₂の衝突による失活定数、P_{Ar}: Arの圧力、P_{N2}: N₂の圧力である。N₂100%の場合のB³Π_gの失活定数はK_{B8}/K_{rB8}であった。ここでは、ArとN₂との衝突失活過程そのものが不明であるが、同様の意味を持つ定数だと考える。結局、

$$\eta' = \frac{1+K_{AN}P}{\eta} \frac{CV_d(E/P)}{IP} \quad (式7-5)$$

の形式で、理論値と実測値との比較を行えば、K_{AN}とη'を決定できる。

図7-8は、Ar8115の放射レートの理論値と実測値を(式7-5)で比較した結果である。図7-9は、SP00の理論値と実測値を(式7-2)で比較したものである。失活定数と効率は、

$$K_{AN} = 1 [\text{Torr}^{-1}]、\eta'_{Ar} = 2.9 \times 10^{12}、\eta'_{SP00} = 3.2 \times 10^{15}$$

となった。ただし、利用したArの4p状態への励起断面積(2)は、全ての4p状態への総励起断面積である。8115ラインに関与する4p状態への励起断面積が総断面積に比例していると仮定すれば、第4章の議論よりこの問題点は、断面積絶対値の不確かさとして効率η'に含まれることになるから、すでに解決済みである。また、4p状態からの相対遷移確率も、同様にη'に含まれている。なお、η'の単位は、ここでは、C[s⁻¹]、V_d[10⁷cm/s]、I[mA]、P[Torr]として定めた単位になる。

図7-10は、図7-8図7-9の結果を放射レートの比として表したものであり、測定フォトンカウント数の比に対応する。この図より、N₂SP00とAr8115の分光計測によって、電界強度を推定できる。電子密度についても、効率η'を用いて第4章と同様の手法で推定が可能である。

ただし、Arの失活因子は基礎過程そのものが不明であり、例えば三体衝突が原因であるならば(式7-4)の分母は圧力Pの2次式とするべきである。あくまで(式7-4)の形式が正しいとした場合の失活定数が、実験値として1[Torr⁻¹]だという結果なのである。よって、本実験での圧力領域外への補外が可能かどうかは保証できない。また、N₂99.75%・Ar0.25%の混合ガスでの実験に限定しているので、これ以外の混合比での失活定数も不明である。

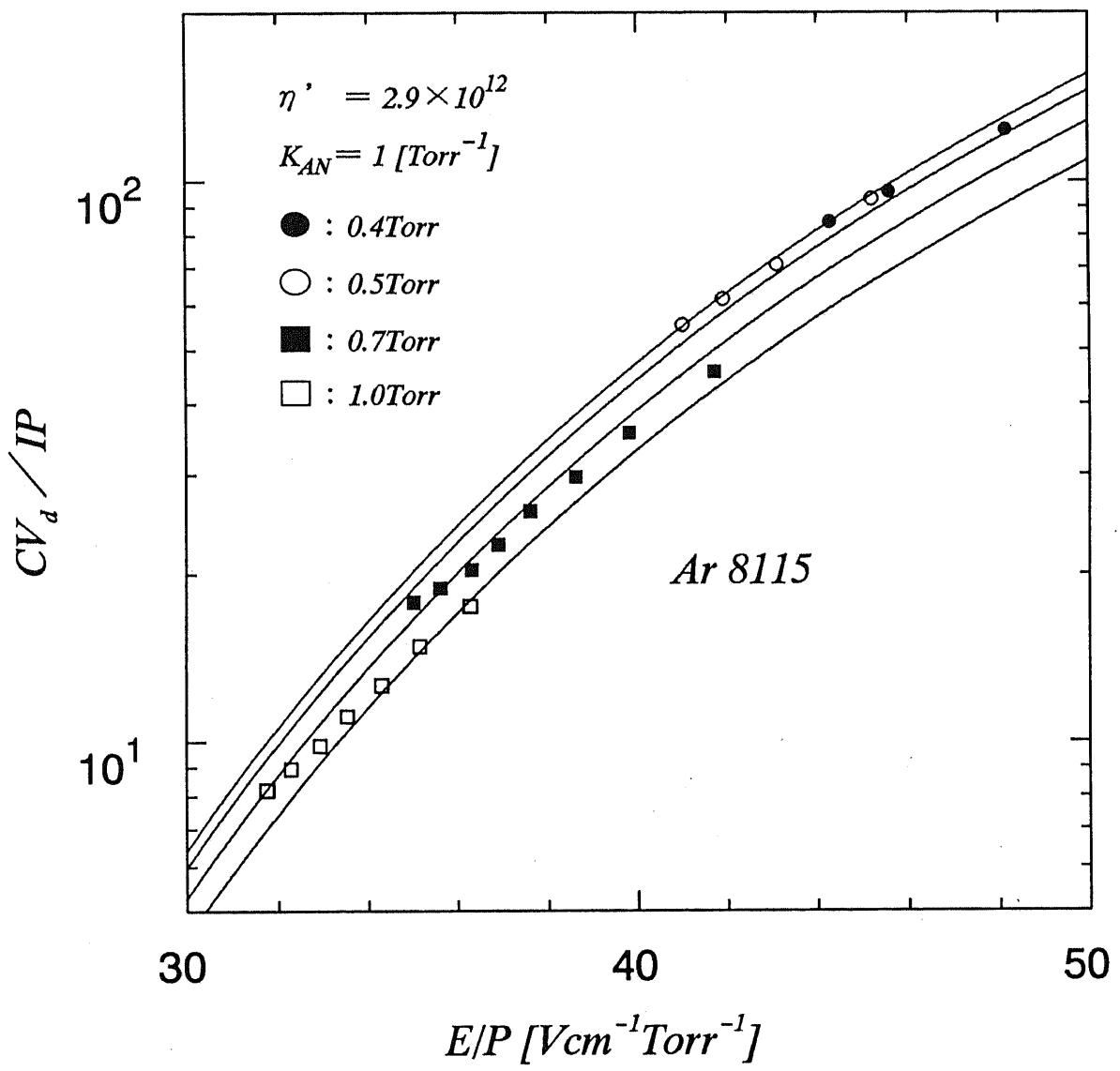


図7-8 放射レート理論値と実測値との比較

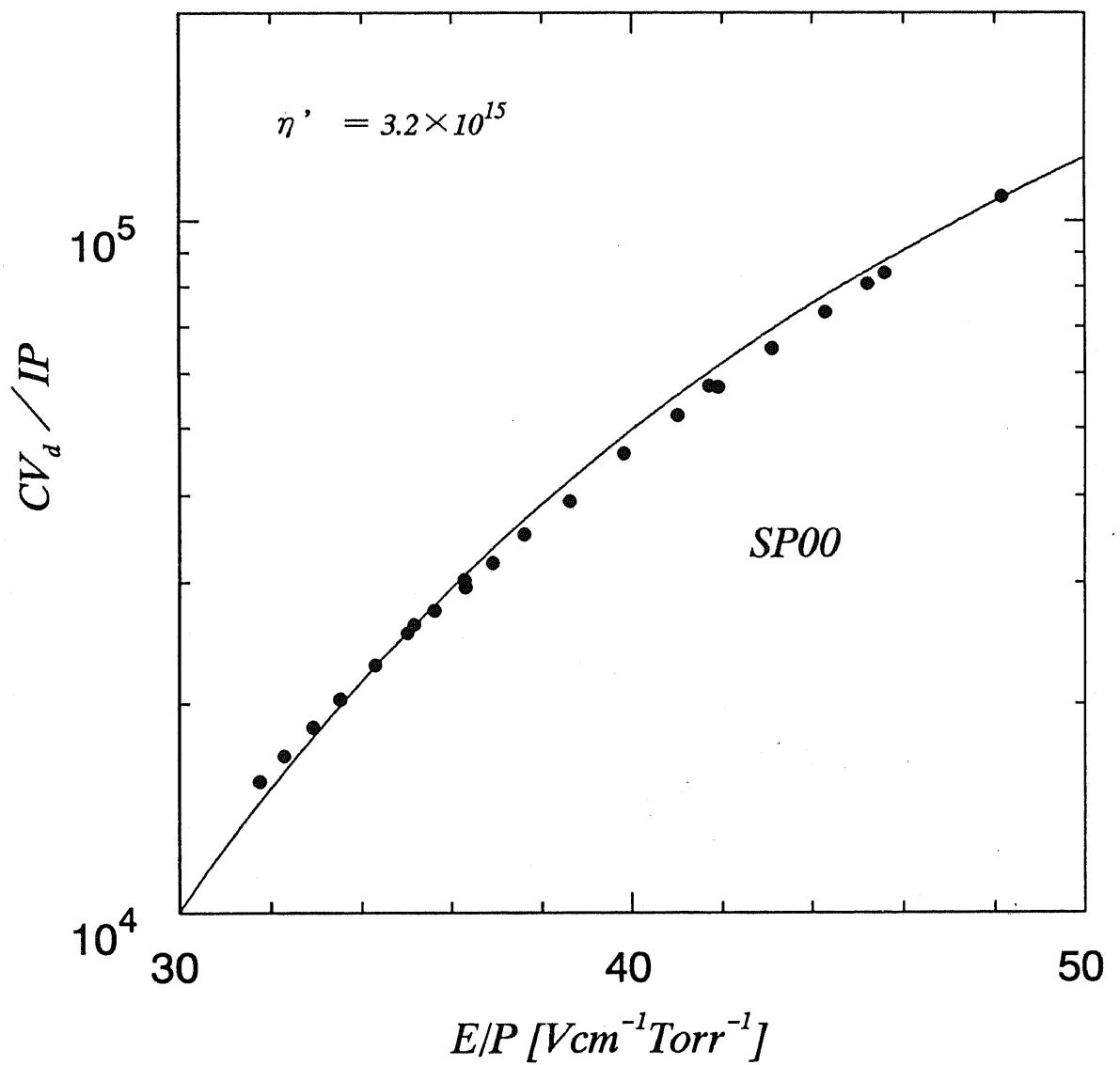


図7-9 放射レート理論値と実測値との比較

実測放射レートの理論比

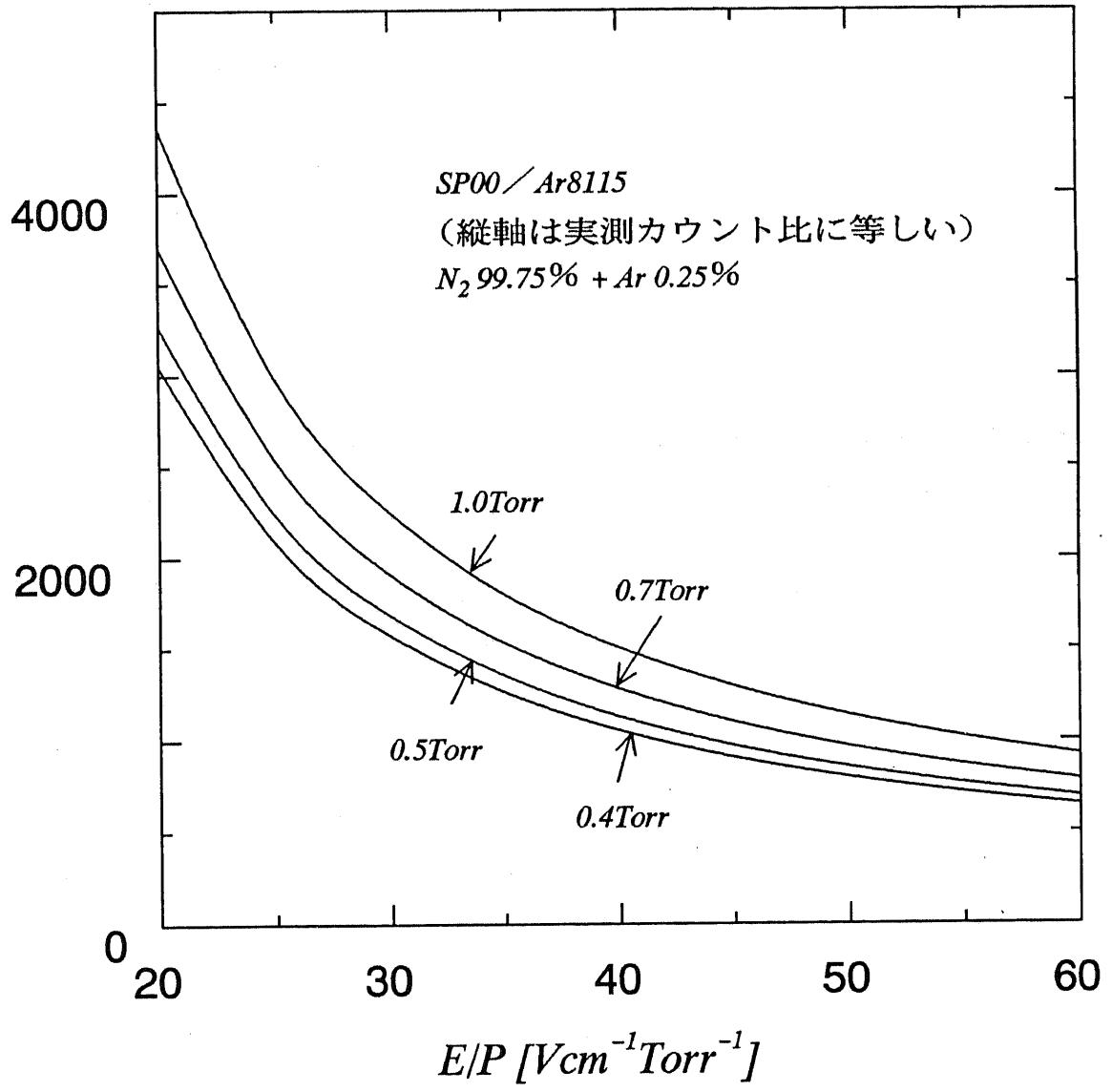


図7-10 実測放射レートの理論比

7 - 4 まとめ

N_2 に微量(0.25%)のArをプローブガスとして混入した場合、Ar8115と N_2 SP00の強度比から、電界強度と電子密度を推定できる事が分かった。この際、第4章の放射レートと実測放射レートとの校正手法が、プローブガスの放射レートの校正にも適用できることを示した。これより純 N_2 で分光計測を行ったときよりも、さらに一つ独立な情報を得る事が可能になった。

電子エネルギー分布の直接推定は残念ながら実現できなかったが、複数のプローブガスを利用することで、実現の可能性があると考える。

参考文献

-
- (1) K. B. Mitchell: "Fluorescence efficiencies and collisional deactivation rates for N_2 and N_2^+ bands excited by soft X rays", J. Chem. Phys., 53, 1795 (1970)
 - (2) E. Eggarter: "Comprehensive optical and collision data for radiation action. II. Ar", J. Chem. Phys., 62, 833 (1975)

第8章 結言

本論文は、放電空間中の電界強度、電子温度、電子密度、振動温度、回転温度を分光学的手法により推定する手法の改良を目指したものであり、N₂およびArを対象に実験的検討ならびにモデル計算を行った結果について述べたものである。

第1章においては、本研究の概要、目的について記述を行った。

第2章では、本研究の背景として重要な基礎事項について簡単に解説を行い、以下の内容の理解を容易にすることを意図した。また、本研究で利用した分光定数、反応係数、断面積、その他のデータを集積し、読者の便を図った。

第3章は、本研究で使用した実験装置の説明である。

第4章は、放電空間中の電界強度（電子温度）、電子密度の推定法に関する研究成果の報告である。電子エネルギー分布がボルツマン方程式の解で仮定することが妥当な放電空間を対象として、電子状態遷移モデルに基づく理論計算により、電界強度に対するスペクトル放射レートが決定できる。これより異種スペクトルの理論スペクトル強度比が、放電空間内の電界強度に依存する形で定まることから、スペクトル強度比の実測により電界強度を推定できる。また、電界強度が推定できれば、理論放射レートと対応するスペクトルの実測強度を用いて電子密度が推定できる。以上の分光推定手法の理論そのものは、既に報告の有る内容であるが、実際に精度の良い推定技術としてこの手法を実現するには、多くの問題が残されていた。本研究では、N₂のSP00バンドとFP31バンドの強度比を用いて、電界強度および放射レートを実測することで、モデル計算時に必要な反応係数と、装置系の測定効率とを決定する手法を開発した。この校正手法により、N₂グロー放電陽光柱内の電界強度と電子密度を、1割程度の推定誤差内で決定できることを示した。本校正手法は、現状では一桁程度の精度でしか決定できない、断面積絶対値および測定系の効率等を、実験的に決定可能な一つの定数に押し込めるものである。数倍の誤差を覚悟する必要があると考えられていた分光推定手法で、1割程度の誤差で推定を可能にしたことは、本研究の大きな成果である。また、実験対象として利用したグロー放電陽光柱を簡単に取り扱える陽光柱理論を開発し、校正手法の簡略化も実現した。本手法で校正した分光推定法を、グロー放電負グロー近傍や針平板電極の放電に対しても適用し、放電空間内の電界強度、電子密度の推定を行った。グロー放電負グロー部および針電極先端近傍では、ボルツマン方程式解析の解を電子エネルギー分布として仮定することが妥当ではなく、分光推定値は妥当な結果を示さないことを確認した。しかし、針電極近傍の降下電圧は、針先以外の放電空間内の電位差を分光計測により決定し、印加電圧からこの電位差を差し引くことで決定できることを示した。

第5章は、放電空間中の振動温度の推定法に関する研究成果の報告である。振動温度の分光推定手法は、N₂SP02系列のスペクトル強度が振動温度に依存して変化することを利用するものであり、この手法も既に報告のあるものである。しかし、この手法による振動温度の決定精度については、必ずしも十分に検討が行われていない。一方、N₂の電子基底準位の振動状態数分布をモデル計算する手法についてもいくつかの報告があるが、これらのモデル計算は、十分に広いパラメータ領域で行われているとはいえないかった。本研究では振動温度のモデル計算を、これまでに報告の無い広いパラメータ領域で実行し、電子密度、ガス温度、電子温度が振動温度に与える影響を、明らかにした。このモデル計算によれば、従来振動温度に与える影響はそれほど大きくないと報告されていたガス温度の変化が、振動温度計算結果に非常に大きな影響を与えることが分かった。また、簡略モデルとして提案されている8準位までの振動準位を考慮したモデルの問題点も、明らかにした。以上のモデル計算による振動温度理論値は、Onoの振動温度分光推定値をよく説明できることを示した。一方、独自に振動温度の分光推定も実行し、モデル計算値と比較を行った。この結果、分光推定値そのものに±500K程度の誤差が存在することを明らかにし、モデル計算値とのくい違いが約1000Kであることを示した。モデル計算値と分光推定値との一致は十分なものとはいえないでの、両者を比較校正するには到らなかった。さらに、理論と実験の両面から検討を行う必要があると結論された。

第6章は、放電空間中のガス温度（回転温度）の推定法に関する研究成果の報告である。回転温度の分光推定手法は、N₂のバンドスペクトルの微細構造が回転温度によって変化することを利用するもので、FNシステムとSPシステムを利用する方法が報告されていた。本研究では、新たにFPシステムを利用する方法を開発し、推定理論を完成するとともに、実測を行った。まず、グロー放電負グロー部を対象とした測定により、FN00を用いたガス温度分光推定値とFP20を用いた推定値とは、50K程度の誤差内で一致することを示した。次いで、グロー放電陽光柱部のFP20による推定ガス温度が、電子のエネルギー損失による加熱を考慮した熱拡散方程式解析によるガス温度理論計算値と、絶対値で1割以内の誤差で一致することを示した。これらの事実より、FP20を用いたガス温度の分光推定手法が実用に耐えるものであることが示された。FP20を用いる手法は従来のSP02、FN00を用いる手法と異なり測定スペクトルが赤外領域に存在し、この領域に感度ピークの有る測定系ではFP20を用いる手法が有利であり、実用的にも有用な手法であると考えられる。

第7章は、プローブガスを用いた電界強度・電子密度の分光推定手法に関する研究成果の報告である。本研究ではN₂にArを微量に混合する事で、Arの発光スペクトル強度情報がN₂の発光スペクトル強度情報と同様に、分光推定手法に利用できることを示した。プローブガスの条件として、プローブガスの混入による擾乱が少ない

ことと、スペクトル強度測定が可能であることが挙げられるが、Arの811.5nmのラインスペクトルがこの条件を満たしていることを明らかにした。また、測定したArのスペクトル強度を理論解析する際に、第4章に示した、電界強度と放射レートの実測による理論放射レートと測定系効率の決定手法が、同様の議論により適用可能であることを示した。これより、校正した放射レートの理論比と、同じく校正した測定系の効率を用いることで、ArとN₂のスペクトル強度の計測により電界強度と電子密度の推定が可能であることを示した。プローブガスの混入によって、N₂100%の時とは独立して、電子エネルギー分布に依存する情報が得られることが明らかになった。一方、本研究では実現できなかったテーマとして、電子エネルギー分布を分光計測によって直接推定するという課題がある。この電子エネルギー分布の直接推定の為には、電子エネルギー分布の形状に対して独立した情報を持つ放射スペクトルを、多数計測する必要がある。N₂100%の放電空間からの発光スペクトルを対象とした場合は、現在のところ測定可能でかつ独立な情報を持つスペクトルは、わずかに3種類である。複数のプローブガスの混入によって、独立な情報量を増やすことができれば、電子エネルギー分布の直接推定も、実現する可能性があり、本研究はこのような研究の基礎研究として大きな意義を持つと考えられる。

今後の研究の方向性の一つとして、振動温度、回転温度、電子温度、電子密度の推定に関する分光計測を、統合して実行することが挙げられる。これらのパラメータは互いに密接に関連するものであり、全てのパラメータを同時に矛盾無く推定できることが望ましい。こうした実験に適した測定装置系を完成させる必要があると考える。また、電子エネルギー分布の直接推定手法は、負グロー部や針電極近傍と言った非流動平衡状態の放電空間内の分光推定技術として、非常に価値の高いものであり、複数のプローブガスの混入という方向性に期待がもたれる。あるいは、微量のプローブガス混入という概念にとらわれず、通常の混合ガスの分光計測と計測結果の校正を積極的に行っていくことも、実用上は有効であると考える。

放電空間中のプラズマパラメータの精度の良い決定法は、放電基礎過程の解明に必須であることはもとより、レーザやプラズマプロセスといった実用技術の支援技術としても不可欠なものである。分光計測による診断技術は、比較的手軽な装置系で実験が可能であり、今後ともプラズマ診断技術の重要な部分を占めるものだと考えられる。

著者発表文献

(1) 学会誌論文

- ・濱田、日高、河野：「窒素グロー放電陽光柱を用いた分光診断法の校正と評価」、電気学会論文誌A、111巻5号、P. 417-425（平成3年）
- ・濱田、日高、河野：「N₂ first positive (2,0) band の分光測定による回転温度推定法の提案」、電気学会論文誌A（掲載決定）

(2) 国内大会

- ・濱田、小林、清水、日高、河野：「各種励起および発光断面積から計算される窒素ガス中の発光強度の比較」、平成元年電気学会全国大会、2-135
- ・濱田、重松、日高、河野：「受動分光学的手法および単探針法の併用によるプラズマ診断」、平成2年電気学会全国大会、2-5
- ・濱田、小舞、日高、河野：「N₂ first positive (2,0) band の分光測定による回転温度の診断法」、平成3年電気学会全国大会、2-180
- ・濱田、日高、河野：「Arプローブガスの混合によるN₂中放電の分光診断」、平成4年電気学会全国大会（発表予定）

(3) 学会研究会

- ・松岡、千葉、濱田、日高、河野：「極低温における窒素-酸素混合気体の正針フラッシュオーバ特性」、電気学会放電研究会資料ED-88-61（昭和63年）
- ・濱田、日高、河野：「分光分析による電子数密度の推定手法」、電気学会放電研究会資料 ED-89-37（平成元年）
- ・濱田、日高、河野：「N₂プラズマの振動温度の数値解析」、電気学会放電研究会資料 ED-91-64（平成3年）

(4) 國際会議

- ・S. Hamada, K. Hidaka, T. Kouno: "Modified spectroscopic method for measuring electric field and electron density in DC-glow discharge", 10th International Conference on Gas Discharges and their Applications, Swansea, 1992 (発表予定)

(5) その他

- ・濱田、日高、河野：「分光測定による弱電離プラズマ内のプラズマパラメータの診断法」、プラズマ産業応用ラボ第1回研究会資料、P.10（平成3年）

謝 辞

本論文は、私が昭和62年4月から平成3年12月までの5年間、東京大学大学院工学系研究科電気工学専攻修士課程および博士課程に在学中、河野照哉教授、日高邦彦助教授の御指導によって行った研究をまとめたものです。この研究は、ひとえに皆様方のあたたかい御指導、御鞭撻によって進めることができたものであり、ここに、心より感謝の辞を述べさせて頂きたいと存じます。

本研究は、河野照哉先生の寛大かつ深遠なるお人柄と、指導者としての卓越した能力により、存在するものあります。先生に出会えたことそのものが、私にとりましては無上の幸せであり、有り難き好運に深く感謝致しております。

本研究は、日高邦彦先生が東京工業大学で御指導にあたられていた研究を引き継ぐ形で始まったものであり、先生には直接に御指導を頂きました。先生の優れた知力、広い見識、大胆な着想、前向きな行動力、そしてなにより暖かく人情味あふれたお人柄が、研究の糧となり励みになりました。気までマイペースな私を、最後まで暖かく見守って下さった先生に、深く感謝致しております。

本学助手、千葉政邦氏は、私をはじめ河野・日高研の学生が研究生活を送る上で必要不可欠な人物であります。氏を抜きにしては本研究室はなりゆきません。実験、工作、経理、ソフトウェアの進行、支援はもとより、氏のアイデア、見識、経験に助けて頂くことばかりでした。氏への絶大なる信頼が、研究室の絆がありました。ここに、深く感謝致します。

本学技官、松岡成居氏には、公私ともにお世話になりました。実験装置の相談はもとより、研究に関する貴重な御助言も頂きました。氏の実験装置を使用して、放電条件の決定なども行わせて頂きました。また、氏は研究室のムードメーカーとしても欠かせぬ存在であり、ことに音楽に付いては、様々な点で御教授を頂きました。氏とともに研究生活を送れたことに感謝いたします。

福岡大学助教授、西嶋喜代人先生には、本研究のあらゆる面で御教授頂きました。若輩で未熟な私に幾度も直接にお会い下さり、貴重な御助言、データを惜しみなくお与え頂けたことが、どれほど研究を進展させ、また、励みになったことか、筆舌に尽くし難いものがあります。本研究は、西嶋先生の研究を土台とし、先生の研究と平行しながら、先生の御援助のもとではじめて成し得たものであります。本当に、感謝の言葉も見つからないほど、深く感謝致しております。

研究室の大先輩にあたる、高橋雄造東京農工大学助教授、加藤正平東洋大学助教授の今日先生には、相談会などを通じて貴重な御助言、御教授を頂きました。感謝の念にたえません。

私が京都大学工学部電子工学科の学生として卒業研究でお世話になった、板谷良平教授、阿部宏尹講師には、研究の苦労と喜びを最初に御教授頂きました。深く感

謝し続けております。

本学工作室の渋谷武夫氏には、実験装置の工作をはじめ懇和会のスポーツ大会でも、お世話になりました。深く感謝しております。

修士1年の時の、先輩である田中秀郎氏（現、古河電工）、柳田全俊氏（現、郵政省）には、本当にかわいがって頂きました。このころからの付き合いである松原玄宗氏（本学博士課程）には、今もかわらぬお付き合いを頂いております。当時の卒論生の佐藤正氏、佐伯稔氏、境秀樹氏と知り合えたことは好運でした。

修士2年の時の修士1年、佐々木敏明氏、工藤智広氏（本学博士課程）とは、ともに生死の狭間をくぐり抜けた仲間であります。当時の卒論生の小林武則氏、小林直樹氏、小林真人氏、清水仁志氏、鈴木裕氏、堀口勝人氏、武者智宏氏、松本康氏との生活も楽しいものでした。ことに、小林真人氏は卒論のテーマが私の研究と同じであり、当時まだまだ不十分な実験設備で、苦しい実験を行ってくれました。

博士1年の時の修士1年、中沢洋介氏（現、東芝）は、本当にいい仲間でした。当時の卒論生の開原万里女史（現、重松夫人）、重松宏志氏、白井由浩氏、本多正樹氏とは、ことに遊びにいく機会も多く、楽しい生活でした。中でも重松宏志氏は、卒論で分光計測をテーマとされ、ともに研究を行いました。重松氏の作成したプローブ計測の回路は、本研究での重要な装置のひとつであります。

博士2年の時の修士1年、萩原庸暢氏、山崎公之氏とは、現在研究生活を送る上で、欠かせない存在です。当時の卒論生の、日下康氏、小舞正文氏、近藤幹郎氏、高橋紹大氏、藤田和重氏、宮川家導氏、山田順弘氏も味のある方々でした。小舞正文氏は分光の卒論生でした。

現在の修士1年は先の高橋紹大氏と余川学氏で、両者の御助力にはひとかたならぬものがあります。卒論生の、相原陽一郎氏、郷津智信氏、土志田雅啓氏、平澤隆行氏は現在研究室を賑わせて下さっております。

本研究室の学生諸氏に、深く感謝いたしております。

本学技官の内田氏には、多くの研究用のソフトの件でお世話になりました。高機能無線の富沢氏にも、様々な形でお世話になりました。深く感謝致しております。

京都大学の板谷研究室の仲間の、八田章光氏（京都大学博士課程）は、今もかわらぬ遊び友達であり、ライバルであります。同じく、重田一樹氏（現、NEC）も相変わらずいい仲間です。氏にはグラフィックソフトの件で、特にお世話になりました。京都大学の学友であった山内智夫氏（現、郵政省）も、今も気の会う友人です。同志社大学の友人の永田政貴氏（現、日本酸素）とも相変わらずの仲であり、氏には数式作成ソフトの件で、特にお世話になりました。京都大学の先輩の村上弘記氏（現、IHI）にも、常にひとかたならぬお世話を頂いております。京都大学の友人で、東京大学大学院にも在籍していた小國昌宏氏（現、東レ）とも、ともに

楽しく遊んだものです。京都大学の友人久田真氏（現、東京工業大学）、良本正樹氏（現、戸田建設）、細田直文氏（現、京都大学博士課程）、先輩の北原昭宏氏（現、住友銀行）、大重雅弘氏（現、山一証券）、大阪大学の友人長坂英明氏（現、神戸製鋼）、森鑑二氏（現、阪大病院）はじめ、名前を挙げるときりのないほど、得難い仲間に恵まれて、私は幸せものであります。

研究室には常に、F. Chopin氏、W. A. Mozart氏、L. Beethoven氏、R. Wagner氏、J. Strauss氏、P. Tchaikovsky氏らの音楽が流れ、素晴らしい環境の中で研究生活を送りました。諸氏に感謝致します。

最後に、長い学生生活を送らせて頂いた両親、姉、義兄、そして甥に深く感謝しております。

皆様、本当に有り難うございました。

1991 12月 濱田昌司