

小特集

プラズマ原子・分子過程の展望

3. 衝突輻射モデル

3.1 水素原子・分子の衝突輻射モデル

澤田 圭司
(信州大学工学部)

Collisional Radiative Model Collisional Radiative Model for Hydrogen Atom and Molecule

SAWADA Keiji
Faculty of Engineering, Shinshu University, Nagano 380-8553, Japan
(Received 26 July 1999)

Abstract

Collisional radiative models for atomic hydrogen and molecular hydrogen are conveniently used to study the boundary plasmas of magnetic confined fusion plasmas. These models help us to analyze the observed emission intensities and provide effective rate coefficients that are indispensable to neutral particle simulations. This paper will review these models and some of results obtained using these models. It will be pointed out that the effective reaction rate coefficients starting from molecules and molecular ions strongly depend on their initial vibrational levels.

Keywords:

collisional-radiative model, atomic hydrogen, molecular hydrogen, molecular hydrogen ion, ionization, recombination, dissociation, plasma spectroscopy, effective rate coefficient

3.1.1 はじめに

磁場閉じ込め核融合における周辺プラズマの振る舞いを理解する上で、その主成分である水素の粒子・エネルギー収支を解明することは最も重要な研究課題である。その代表的な研究方法としては、水素原子発光線の分光計測[1-3]、中性粒子輸送シミュレーション[4,5]があげられるが、いずれにしても衝突輻射モデル[6-8]はそれらを支える礎となっている。

水素はプラズマ中で、 H , H^+ , H_2 , H_2^+ , H^- , H_3^+ などの形で存在し、それらは電離、再結合、解離等の“反応”によりお互いに姿を変えていく。その変化の中で水素原子の励起状態を経由したものの一部は光を放射し、我々

author's e-mail: ksawada@gipwc.shinshu-u.ac.jp

はそれを水素原子からの発光線として観測する。この解析には衝突輻射モデルを必要とする。また輸送シミュレーションで用いられる各種“反応”の速度係数は、水素原子・分子の励起状態を経由する過程を考慮したものでなくてはならないが、これも衝突輻射モデルにより計算される。

本節では、核融合周辺プラズマの粒子・エネルギー収支に重大な役割を果たすことが現在ははっきりと認識されている H , H^+ , H_2 , H_2^+ (Fig. 1) について、これらの種の“反応”が、水素原子および水素分子の衝突輻射モデルによりどのように扱われるかを説明する。

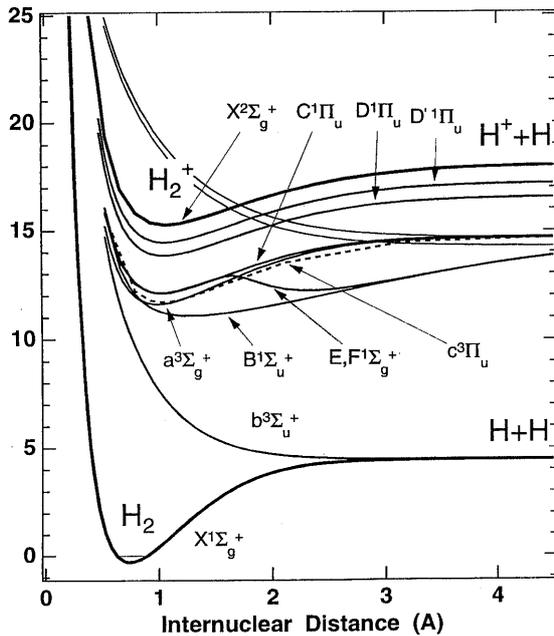


Fig. 1 Some representative potential energy curves for H_2 and H_2^+ .

3.1.2 衝突輻射モデル：水素原子の電離とプロトンの再結合

もしもプラズマ中に分子がなかったら、プラズマはぜひぶんシンプルであつたらう。まず最初に、Hの電離と H^+ の再結合について説明する。プラズマはH, H^+ , および電子だけから構成されているとする。ここでは同一の主量子数を持つ状態は、その統計的重率にしたがってポピュレーションが分布すると仮定すると[9], 主量子数 p の準位のポピュレーション $n_H(p)$ の時間発展は次式のように表される。

$$\begin{aligned} \frac{dn_H(p)}{dt} &= \sum_{q < p} C(q, p) n_e n(q) \\ &+ \sum_{q > p} [F(q, p) n_e + A(q, p)] n(q) \\ &+ \alpha(p) n_H + n_e^2 + \beta(p) n_H + n_e \\ &- \left[\sum_{q < p} F(p, q) + \sum_{q > p} C(p, q) + S(p) \right] n_e \\ &+ \sum_{q < p} A(p, q) n(p). \end{aligned} \quad (1)$$

右辺は準位 p への流入と準位 p からの流出の差を表す。C, F, Sはそれぞれ電子衝突による励起、脱励起、電離

の速度係数、 α, β は、三体再結合、輻射再結合の速度係数であり、Aは自然放出確率である。 n_e と n_H は電子密度とプロトン密度を表す。

プラズマの電子温度 T_e 、電子密度 n_e の時間変化に対する励起準位のポピュレーションの応答が十分速く、かつ、励起準位の T_e, n_e の変化に対する応答が基底状態の応答に比べて十分速いとき（これらはたいていの場合成り立っている）、励起準位については準定常近似と呼ばれる

$$\frac{dn_H(p)}{dt} = 0 \quad (2)$$

が成立し[6,10], 励起準位のポピュレーションは、

$$n_H(p) = R_0(p) n_H + n_e + R_1(p) n_H(1) n_e \quad (3)$$

と表すことができる。ここで $R_0(p)$ と $R_1(p)$ は T_e と n_e の関数である。多くのプラズマについてポピュレーションは右辺第1項または第2項だけで表され、第1項、第2項により表されるプラズマはそれぞれ再結合プラズマ、電離プラズマと呼ばれる。プラズマの電子温度、電子密度に応じてそれぞれのポピュレーションがどのように変化するかについては文献[11-15]に詳しく説明されている。特に再結合プラズマについては、最近のプラズマ・核融合学会誌第74巻に基礎的な解説があり[16], また同巻にはプロトンの再結合速度係数の計算結果も示されている[17]。したがってここでは電離プラズマについての計算結果を紹介することにする。Fig. 2は $T_e = 10$ eV, $n_H(1) = 1.0 \text{ cm}^{-3}$ としたときのポピュレーションを表す。また、Fig. 3は $n_e = 1.0 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ のときのポピュレーションの流れの模式図である。Fig. 2の一点鎖線はグリーンムの境界[18]と呼ばれ、Fig. 3に見られるように、その境界より低い準位の主な流入は基底状態からの電子衝突励起、主な流出は基底準位への輻射遷移、またその境界より高い準位の主な流入は1つ下の準位からの電子衝突励起、主な流出は1つ上の準位への電子衝突励起となっている。Fig. 2のように、グリーンムの境界は電子密度の増加とともに低い準位へと移っていく。

グリーンムの境界よりも高い準位での励起の流れは電離へとつながり（梯子様励起・電離と呼ばれる[12]), 水素原子の電離を考えるとき考慮されるべき過程である。Fig. 3の電子温度・密度では、基底状態からの直接電離の速度係数は $6.9 \times 10^{-9} \text{ cm}^3/\text{s}$ であり、励起状態を経由する電離の速度係数は $8.8 \times 10^{-10} \text{ cm}^3/\text{s}$ である。励起状態を経由する電離速度係数は電子密度の増加とともにふ

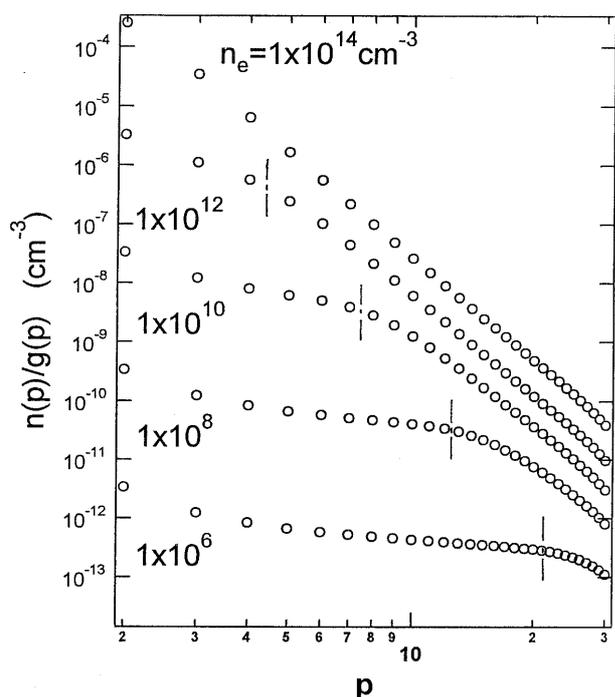


Fig. 2 The population density distribution over the excited levels for several values of n_e . Dash-dotted lines mean Griem's boundary. $T_e = 10$ eV.

え, $n_e = 1.0 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ では $4.6 \times 10^{-9} \text{ cm}^3/\text{s}$ となり基底状態からの直接電離と同程度になる。

以上の計算で用いた断面積データは文献[19,20]に示されている。これまで述べた原子の衝突輻射モデルは、電子温度が 10 eV 以下になると用いた断面積の信頼性が低くなることをのぞき、完成していると言える。

3.1.3 水素分子から出発する過程

H_2 から H_2^+ , H , H^+ が作られるとき、事情はだいぶ複雑になってくる。例として H が生成される場合について取り上げると、以下のような過程がある。

[PATH H1] 電子衝突により基底状態分子 $\text{H}_2(X^1\Sigma_g^+)$ が直接 $\text{H}_2(b^3\Sigma_u^+)$ に励起して解離する過程。

[PATH H2] 電子衝突により基底状態分子 $\text{H}_2(X^1\Sigma_g^+)$ が安定な $B^1\Sigma_u^+$, $C^1\Pi_u$, E , $F^1\Sigma_u^+$, $a^3\Sigma_g^+$, $b^3\Sigma_u^+$, $c^3\Pi_u$ 等の励起状態 H_2^* に励起され、さらに引き続きいくつかの安定な励起状態 H_2^{**} を経由したのち、解離準位 $\text{H}_2(b^3\Sigma_u^+)$ に遷移する過程。

[PATH H3] 電子衝突により基底状態分子 $\text{H}_2(X^1\Sigma_g^+)$ が解離し、励起水素原子 H^* と基底状態水素原子 $\text{H}(1s)$ が生成される過程。

[PATH H4] [PATH H3] により生成された励起水素原

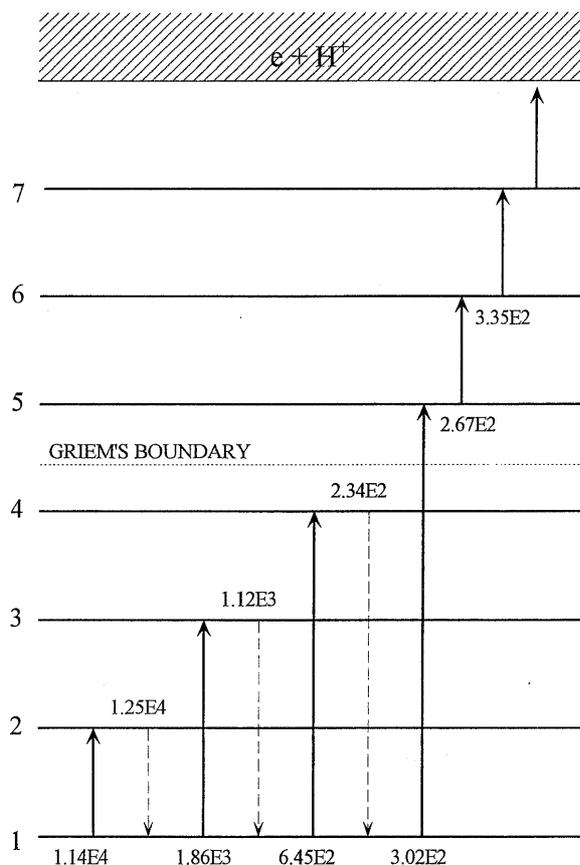


Fig. 3 For each level the largest populating flow to this level and the largest depopulating flow from this level are given. The solid arrow is for the collisional transition, and the dashed one the radiative transition. The number attached to the arrow indicates the magnitude of the flow, where 1.14E4 should read $1.14 \times 10^4 \text{ cm}^{-3} \text{ sec}^{-1}$.

子 H^* が、さらに水素原子のいくつかの安定励起状態を経由したのち、 $\text{H}(1s)$ に遷移する過程。

[PATH H5] 電子衝突により基底状態分子 $\text{H}_2(X^1\Sigma_g^+)$ が解離し、 $\text{H}(1s)$ と H^+ と電子が生成される過程。

[PATH H6] 基底状態 $\text{H}_2(X^1\Sigma_g^+)$ 内で振動準位が電子衝突により高い準位へと移り、ついには解離する過程。

[PATH H7] $B^1\Sigma_u^+$, $C^1\Pi_u$ 等の安定な励起状態 H_2^* から $\text{H}_2(X^1\Sigma_g^+)$ の振動連続状態に遷移したのち解離する過程。

これらの過程のうち、[PATH H1] から [PATH H5] までの過程の速度係数は文献[21]に報告されている (Fig. 4)。そこでは基底状態分子 $\text{H}_2(X^1\Sigma_g^+)$ の振動状態は $v=0$ と仮定されており、[PATH H2] については水素分子の電子準位だけを区別した水素分子衝突輻射モデ

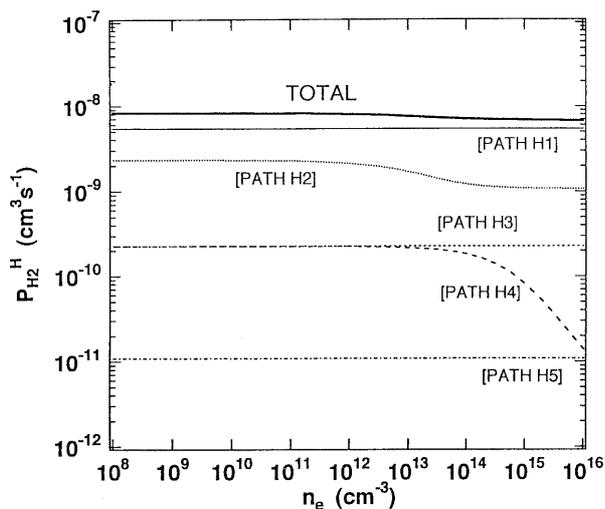


Fig. 4 The production rate coefficients through the various pathways against the electron density. The effective (total) production rate coefficient $P_{H_2^H}$ is shown with the thick curve. $T_e = 5$ eV.

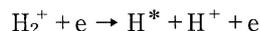
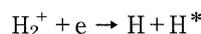
ルにより計算がなされている。Fig. 4は $T_e = 5$ eVでの計算結果であり [PATH H1]が支配的であるが、 $T_e = 100$ eVでは [PATH H1]から [PATH H5]までのすべての過程の速度係数が同程度になることが文献[21]に示されている。なお [PATH H4]の計算では、すでに述べた水素原子衝突輻射モデルが用いられている[22]。[PATH H3]と [PATH H4]が低電子密度で一致するのは、生成された励起原子が輻射遷移によりすべて基底状態原子に戻ってしまうためであり、高電子密度では梯子様励起・電離により励起原子が電離してしまうため両者が一致しなくなる。

[PATH H6], [PATH H7]による速度係数を計算するためには、基底状態 $H_2(X^1\Sigma_g^+)$, および $B^1\Sigma_u^+$, $C^1\Pi_u$ 等の励起状態の振動準位を区別した衝突輻射モデルが必要であり、現在、文献[21]のモデルの改造が著者らによって進められているところである。その分子過程データの整備状況についてここでは述べる余裕がないが、一つだけ問題点を指摘しておく。基底状態 $H_2(X^1\Sigma_g^+)$ の振動準位間の電子衝突による励起断面積が、J.N. Bardsley and J.M. Wadehra[23]によって計算されている。衝突電子のエネルギーが6 eVのとき、 $v=0 \rightarrow v=1$ の励起断面積は 2.6×10^{-17} cm², $v=4 \rightarrow v=5$ では 7.5×10^{-17} cm²であり、それらの値が小さいこと、および、各振動準位の応答時間に大きな差がないことから $v=0$ 以外の準位について前述の準定常近似(式(2))を適用することができない可能性が強い。このため各振動準位につい

てまともに時間発展を考える必要がありそうである。そうすると例えば輸送シミュレーション中では、壁から放出された分子について、その初期振動準位の分布を与えなくてはならない。しかしこれは現在のところよくわかっていない。

3.1.4 水素分子イオンから出発する過程

H_2^+ から出発する過程として、次のような解離性再結合過程および解離性励起過程がある。



これらの断面積は、電子の衝突エネルギーが10 eV以下の場合について、多チャンネル量子欠損理論により信頼性の高い計算がなされている[24]。Fig. 5は、水素分子イオンの初期振動状態 v の違いにより、解離性再結合過程による励起原子生成の速度係数がどのように変化するかを示している。電子温度は2 eVである(この電子温度では解離性励起過程により励起原子は生成されない)。初期振動状態の違いにより、速度係数は2桁ほど違いが見られる。

上記の過程で生じた励起原子はその後、電離する場合もあれば水素原子基底状態に戻る場合もある。それらの

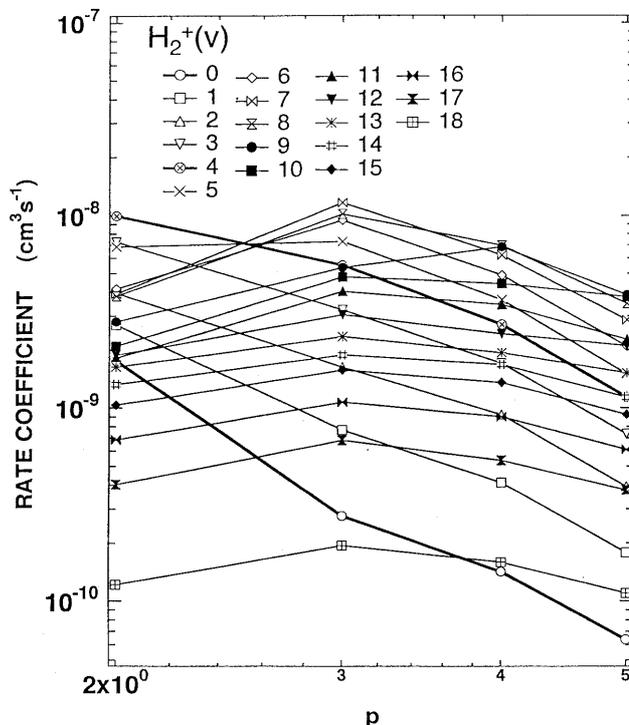


Fig. 5 The production rate coefficients of $H(p)$ by the dissociative recombination of $H_2^+(v)$. $T_e = 2$ eV.

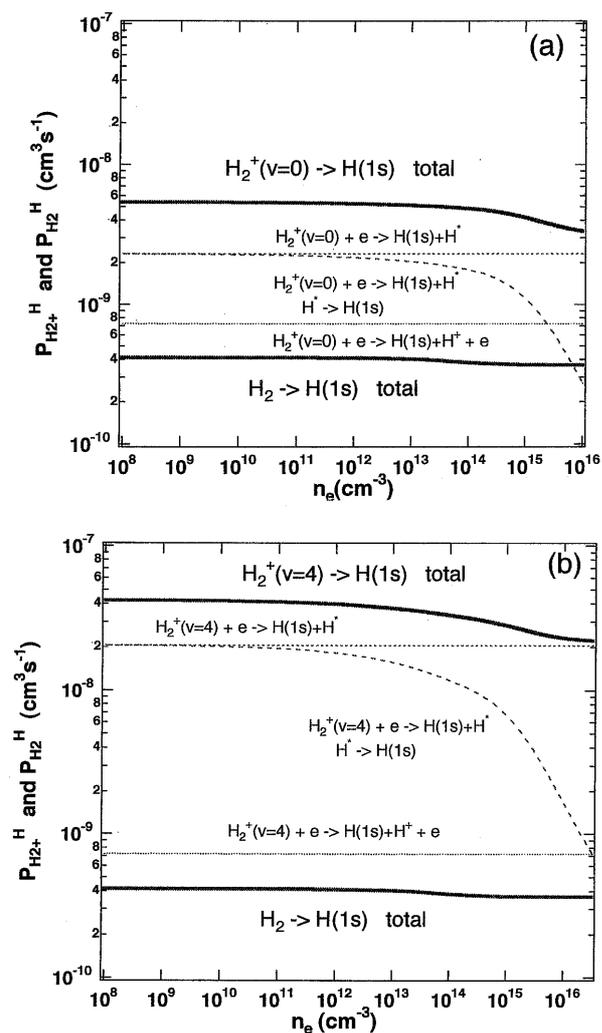


Fig. 6 The production rate coefficients through the various pathways against the electron density. The effective (total) production rate coefficient $P_{H_2^+}^H$ is shown with the thick curve. (a) $H_2^+(v=0) \rightarrow$, (b) $H_2^+(v=4) \rightarrow$. $P_{H_2}^H$ is also shown for ready comparison. $T_e = 2eV$.

割合は水素原子の衝突輻射モデルにより計算することができる。Fig. 6は初期振動状態が $v=0$ と $v=4$ の場合について、基底状態原子が作られるときの実効的速度係数を示している。Fig. 5の違いに応じて、解離性再結合の実効的速度係数は1桁程度異なっている。

3.1.5 水素原子からの放射

すでに述べたように、励起状態の水素原子は水素分子および水素分子イオンからも生成され、その場合、励起準位のポピュレーションを表す式(3)には水素分子密度に比例する項 $R_2(p)n_{H_2}n_e$ と水素分子密度に比例する項

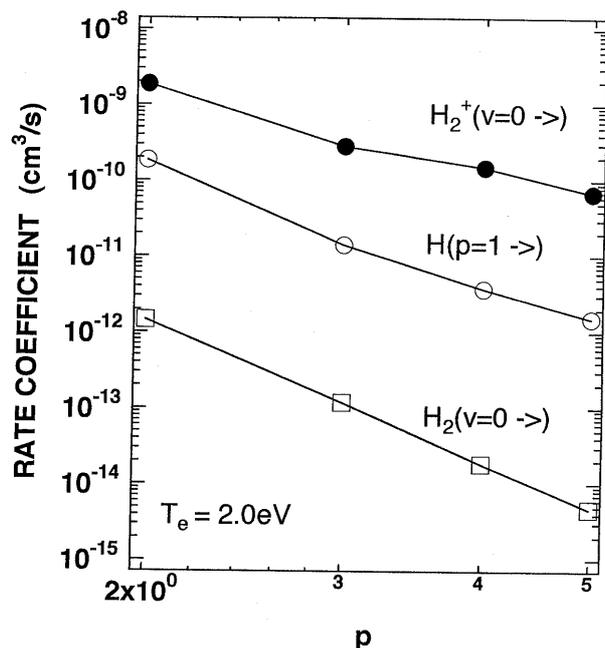


Fig. 7 Dependence of the excitation rate coefficients from the atomic hydrogen, the molecular hydrogen, and the molecular hydrogen ion on the principal quantum number.

$R_3(p)n_{H_2^+}n_e$ の2項が追加される。

第3項の $R_2(p)$ については文献[20,22]に計算結果が示されている。そこでは、水素分子の初期振動状態は $H_2(X^1\Sigma_g^+, v=0)$ と仮定されている。しかしこれと異なる初期振動状態から励起原子が生成される場合は、その断面積データがきわめて乏しく評価が難しい。第4項はFig. 5からもわかるように、水素分子イオンの初期振動状態により大きく異なる値を持つ。 $v=0$ から出発する場合は水素原子から出発する場合と比べて1桁程度大きな値である (Fig. 7)。

3.1.6 まとめ

H_2 から出発する過程において振動準位を区別した議論がまだ十分なされていないこと、また H_2^+ から出発する過程では水素原子生成の速度係数、水素原子発光強度が H_2^+ の初期振動状態に強く依存することを述べた。プラズマ中において、 H_2 から生成される H_2^+ の初期振動状態は、元の H_2 の振動状態に依存するため、前者の問題は非常に重要である。

これまで述べた以外で、水素分子衝突輻射モデルの応用として考えられるものは、分子から生成される原子の運動量の評価である。久保らにより、JT-60Uのダイバー

タ部から放射される $D\alpha$ のスペクトル形状が高分解能分光器で測定されており、分子から生成された原子の寄与が大きいとされている [25]。このような発光線形状の詳細な解析にも、振動準位を区別したモデルは、強力な道具になると思われる。

謝辞

北里大学の高木秀一博士に、水素分子イオンからの解離性再結合および解離性励起過程についての貴重な情報を提供いただきましたことを深く感謝いたします。

参考文献

- [1] S.A. Cohen, *Physics of Plasma-Wall Interactions in Controlled Fusion* (Plenum New York, 1986) p.777.
- [2] D.H. McNeal, *J. Nucl. Mater.* **162-164**, 476 (1989).
- [3] T. Fujimoto, K. Sawada, K. Takahata, K. Eriguchi, H. Suemitsu, K. Ishii, R. Okasaka, H. Tanaka, T. Maekawa, Y. Terumichi, and S. Tanaka, *Nucl. Fusion* **29**, 1519 (1989).
- [4] D. Heifetz *et al.*, *J. Comp. Phys.* **46**, 309 (1982).
- [5] D. Reiter *et al.*, *J. Nucl. Mater.* **128-129**, 458 (1984).
- [6] D.R. Bates, A.E. Kingston and R.W.P. McWhirter, *Proc. R. Soc.* **267**, 297 (1962).
- [7] R.W.P. McWhirter and A.G. Hearn, *Proc. Phys. Soc.* **82**, 641 (1963).
- [8] D.R. Bates and A.E. Kingston, *Planet. Space Sci.* **11**, 1 (1963).
- [9] D.H. Sampson, *J. Phys. B* **10**, 749 (1977).
- [10] K. Sawada and T. Fujimoto, *Phys. Rev. E* **49**, 5565 (1994).
- [11] T. Fujimoto, *J. Phys. Soc. Jpn.* **47**, 265 (1979).
- [12] T. Fujimoto, *J. Phys. Soc. Jpn.* **47**, 273 (1979).
- [13] T. Fujimoto, *J. Phys. Soc. Jpn.* **49**, 1561 (1980).
- [14] T. Fujimoto, *J. Phys. Soc. Jpn.* **49**, 1569 (1980).
- [15] T. Fujimoto, *J. Phys. Soc. Jpn.* **54**, 2905 (1985).
- [16] 藤本 孝：プラズマ・核融合学会誌 **74**, 536 (1998).
- [17] 久保博孝, 澤田圭司：プラズマ・核融合学会誌 **74**, 532 (1998).
- [18] H.R. Griem, *Plasma Spectroscopy* (McGraw-Hill, New York, 1964).
- [19] T. Fujimoto, S. Miyachi and K. Sawada, *Nucl. Fusion* **28**, 1255 (1988).
- [20] K. Sawada, K. Eriguchi and T. Fujimoto, *J. Appl. Phys.* **73**, 8122 (1993).
- [21] K. Sawada and T. Fujimoto, *J. Appl. Phys.* **78**, 2913 (1995).
- [22] T. Fujimoto, K. Sawada and K. Takahata, *J. Appl. Phys.* **66**, 2315 (1989).
- [23] J.N. Bardsley and J.M. Wadehra, *Phys. Rev. A* **20**, 1398 (1979).
- [24] H. Takagi, *Disociative Recombination, Theory, Experiment, and Applications III*, ed. D. Zajfman *et al.*, (World Scientific, Singapore, 1996) p.174.
- [25] H. Kubo, H. Takenaga, T. Sugie, S. Higashijima, S. Suzuki, A. Sakasai and N. Hosogane, *Plasma Phys. Control. Fusion* **40**, 1115 (1998).