

氏名	おかだ とみ お 岡田 富 男
授与学位	博士(工学)
学位授与年月日	平成13年3月14日
学位授与の根拠法規	学位規則第4条第2項
最終学歴	昭和49年3月 群馬大学大学院工学研究科博士前期課程電気工学専攻 修了
学位論文題目	静的アフタグロー法を用いたアルゴンプラズマ中の衝突素過程の研究
論文審査委員	主査 東北大学教授 佐藤徳芳 東北大学教授 犬竹正明 東北大学教授 畠山力三 東北大学助教授 飯塚 哲

## 論文内容要旨

### 第1章 序論

放電プラズマの特性を利用したプラズマプロセッシング、ガスレーザーにおけるポピュレーションの反転現象およびその他の低気圧放電における諸特性等は、プラズマ粒子とガス原子との衝突素過程と深い関連を持つ。低気圧放電を利用した気体電子素子には希ガスや金属蒸気などが用いられている。これらの放電内部に於けるプラズマ粒子の衝突素過程は調査されてはいるが、精度の高いデータが充分には揃っていないのが現状である。例えば、Ar ガスの場合、 $Ar^+$ イオンの両極性拡散係数や $Ar_2^+$ イオンへの変換係数の測定値はあるが、その隔たりは大きい。また、 $Ar_2^+$ イオンの解離再結合係数についても同様である。さらに、Ar 準安定原子に関する衝突素過程は十分には調べられていない。

これらのことから本研究が触発され、精度の高い測定を行うことで信頼性の高いデータを提供するとともに、これまで測られたことのない未知のデータを提供することにした。

アフタグロー (afterglow) 法は、1951年に Phelps と Fundingsland および Brown によってガスと熱平衡にある電子の運動量移行衝突確率の測定に用いられたのが最初のものである。この方法は、活性放電を遮断した後の電離気体の状態を時間の関数として観測する。一方、Fergusont と Fehsenfeld および Schmeltekopf は1963年にイオンの衝突過程を調べるために、流れアフタグロー (flowing afterglow) 法を開発した。この方法は、反応系をバッファガスと共に高速で管内を流し、反応の進行状況を管内の位置又は流量の関数として観測する。流れアフタグロー法と区別するために、アフタグロー法は静的アフタグロー (static afterglow) 法と呼ばれるようになった。

本研究では、気体電子素子に用いられているガスの中で代表的なアルゴンを対象とし、静的アフタグロー法を用いて以下の衝突過程を調べることを目的とした。

- (1)  $Ar^+$ イオンと電子との両極性から自由拡散への移行現象
- (2)  $Ar^+$ イオンと中性原子との衝突過程

- (3)  $\text{Ar}_2^+$ イオンと電子との解離再結合現象
- (4) Ar 準安定原子同士の電離衝突過程

また、これらの衝突過程を調べるために、以下の計測技術の改良と開発を行う。

- (1) 電子密度の絶対値較正法と測定感度の向上
- (2) 電子温度計測のためのラジオメータの組み立てと温度較正
- (3) アフタグローに適用可能な自己吸収法の開発

## 第2章 静的アフタグロー法とその計測法

静的アフタグロー法は以下の特徴を持っているので、その特徴を利用して計測に用いることにした。

- (1) プラズマ粒子の速度分布がマックスウェル分布になりやすい。これは印加電界がゼロなので、電子はイオンおよび中性粒子と熱平衡し易いからである。
- (2) ゼロ電界や熱平衡時での輸送係数などを決定できる。
- (3) アフタグローの時間領域で電子密度が大きく変化しているため、時間を設定することにより、特定の密度領域の現象を観測できる。
- (4) 単一パルスでなく、繰り返しパルス放電を用いるので、精度の高い測定ができる。
- (5) 多種の素過程が同時に起きていても、動作気圧を変化させて特定の衝突素過程だけを分離することができる。
- (6) 活性放電に比べて雑音が少なく、測定誤差も少ない。

静的アフタグロー法を用いて主に以下の値が決定できる。

- (1) 電子に対しては両極性拡散から自由拡散までの拡散過程と実効拡散係数
- (2) 原子イオンに対しては両極性拡散係数と原子イオンから分子イオンへの変換係数
- (3) 分子イオンに対しては両極性拡散係数と解離再結合係数
- (4) 準安定原子に対しては拡散係数と中性原子との衝突による脱励起係数および準安定原子間の電離衝突断面積

これらの衝突素過程を信頼性を高めて調べるために、次の計測技術の改良と開発を行った。まず、マイクロ波空洞共振器の電子密度に対する絶対値較正を行った。また、従来の方法に比べて3桁低い電子密度まで測定できるように測定系を改良し、測定感度の向上を図った。さらに、電子温度の測定のために中心周波数 2.8 GHz、時間分解幅  $5 \mu\text{s}$  の時間分解型ラジオメータを組み立て、温度較正を行った。また、準安定原子密度の計測のために、静的アフタグローに適用可能な自己吸収法を提案した。この方法は、外部光源を用いてアフタグローのある時刻に放電管内を光励起し、再発光した光を光源に用いる。

## 第3章 低電子密度陽光柱における電子の実効拡散係数の測定

これまでの実験的研究では、低電子密度陽光柱における電子の実効拡散係数の値は殆ど調べられていない。また、実用的に両極性拡散とみなせる  $A/\lambda_D$  ( $A$ : 特性拡散長,  $\lambda_D$ : デバイ長) の範囲について

ても同様である。そこで、これらのことを明らかにするために、アルゴン熱平衡プラズマ (300 K) における電子の実効拡散係数の  $A/\lambda_D$  依存を実験的に調べた。ガス圧 46.6 Pa と 66.5 Pa において、電子密度に対して絶対値校正したマイクロ波空洞共振器を用いて、 $10^{16} \text{ m}^{-3}$  から  $2.5 \times 10^{11} \text{ m}^{-3}$  までの平均電子密度の時間的振る舞いを測定した。理論との比較のために、平均密度から軸上密度へ変換し、電子密度の時間微分から実効拡散係数を決定した。実験から決定した実効拡散係数を、種々の理論的計算結果に合う経験式と比較した。両者は  $4 \leq A/\lambda_D \leq 500$  の範囲で一致した。 $A/\lambda_D$  の値が 100 より大きい範囲は両極性拡散とみなせることが分かった。これまで He プラズマ中での測定はあるが、Ar ではこの研究が初めてである。

## 第4章 アルゴンイオンの衝突過程

### 4.1 アルゴン原子イオンの両極性拡散係数と分子イオンへの変換係数の測定

アルゴン原子イオンの衝突過程の研究は多いが、その両極性拡散係数と分子イオンへの変換係数の値の隔たりも大きい。そこで本研究では、原理における条件を実験的に確認をして、それらの値を決定することにした。 $A/\lambda_D$  が 100 以上、ガス圧 160 Pa 以下において、アルゴン原子イオンの衝突過程を調べた。まず、アフタグローの時刻 1 ms から 10 ms までの種々の時刻での電子の径方向密度分布を非対称複探針を用いて測定した。その結果、密度分布は零次のベッセル関数であることが分かった。これより、特性拡散長を決定し、両極性拡散係数  $D_{a1}n_g = (2.34 \pm 0.16) \times 10^{20} \text{ m}^{-1} \text{ s}^{-1}$  を得た。更に、2.8 GHz 時間分解型ラジオメータを用いてアフタグローにおける電子温度を測定し、両極性拡散係数が決定された時間範囲で電子は中性ガスと熱平衡になっていることを確認した。この事実に基づき、両極性拡散係数からゼロ電界におけるアルゴン原子イオンの移動度  $\mu_1 = (1.66 \pm 0.11) \times 10^{-4} \text{ m}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$  を決定した。また、種々のガス圧に対する電子の減衰時定数の測定から、原子イオンから分子イオンへの変換係数  $k_{12} = (2.26 \pm 0.19) \times 10^{-43} \text{ m}^6 \text{ s}^{-1}$  を決定した。以上のように、これらの値は原理における条件を実験的に確認した後に得られた結果であり、信頼性の高い値である。

### 4.2 アルゴン分子イオンの解離再結合係数の測定

ガス圧 665 Pa において、300 K におけるアルゴン分子イオンの解離再結合係数  $(8.2 \pm 0.5) \times 10^{-13} \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$  を決定した。この値は準安定原子同士の電離衝突過程を考慮して決定した。また、この電離衝突過程を考慮した場合と無視した場合では電子密度の減衰に大きな差がみられた。これはアルゴン準安定原子同士の電離衝突はイオンペアを生成する一つの重要な反応過程であることを示唆している。

## 第5章 アルゴン励起原子の衝突過程

### 5.1 アフタグローにおけるアルゴン分子イオンの解離再結合に伴う発光現象

ガス圧 665 Pa において、解離再結合に伴う発光現象を定量的に考察した。400 nm から 850 nm までの分光測定の結果、発光は遷移  $4p \rightarrow 4s$ ,  $4p' \rightarrow 4s$ ,  $4p' \rightarrow 4s'$  (697 nm ~ 812 nm) および  $5p \rightarrow 4s$  (416 nm ~ 420 nm) によるものであった。二つのグループからの発光強度の時間的振る舞いは異なったパター

ンを描いた。長波長グループでは単調な減衰を示し、短波長グループでは放電の遮断の後、短時間内で極小値に減衰し、その後急激に極大値に増加した後、緩やかに減衰した。この現象を解析するために単純なモデルをたてた。つまり、ある準位密度は解離再結合による生成と発光による脱励起との競合によって決まるとした。このモデルを用いた解析から、短波長グループの発光強度の時間的增加の原因は、電子温度の減少に伴う解離再結合係数の増加のためであることを定量的に説明した。また、長波長グループにおいて発光強度が単調な減衰を示すのは、生成の割合に比べて Einstein の  $A$  係数が大きいためであることが分かった。アフタグローでの発光現象を定量的に取り扱ったのは本研究が初めてである。

## 5.2 アルゴン準安定原子同士の電離衝突断過程

準安定原子同士の電離衝突はイオンペアと高エネルギー電子を生成するので、超弾性衝突と同様に電子の加熱に寄与する。電子の加熱機構がある場合は無い場合に比べて電子温度の減衰は緩やかになるはずである。そこでガス圧 133 Pa において、電子温度の減衰レートから電子のエネルギー・ロス・レートを差し引き、電子のエネルギー・ゲイン・レートを分離した。それを超弾性衝突とアルゴン準安定原子同士の電離衝突によるものとみなした。このエネルギー・ゲイン・レートから超弾性衝突による加熱分を差し引き、アルゴン準安定原子同士の電離衝突のエネルギー・ゲイン・レートを分離した。その結果、アルゴン準安定原子同士の電離衝突断面積を  $(1.30 \pm 0.11) \times 10^{-17} \text{ m}^2$  と  $(1.40 \pm 0.12) \times 10^{-17} \text{ m}^2$  の間にあると見積もった。この値はアルゴン準安定原子と基底状態のアルゴン原子との衝突断面積に比べて大きい。アルゴン準安定原子同士の電離衝突断面積は本研究が初めて明らかにした。

## 第6章 結論

第2章から第5章までで得られた結果のまとめを述べた。

### 付録 水銀準安定原子の衝突過程

#### A.1 外部光源と吸収管のスペクトル線幅が異なる場合の減衰時定数の測定とその検討

準安定原子の測定の為に光吸収法を用いる場合、光源の放電電力の違いにより水銀準安定原子の減衰時定数が変化する原因を検討した。その結果、光源と吸収管の線幅の違いが減衰時定数に影響することを実験的に明らかにした。更に、正しい減衰の時定数を決定するためには、光源と吸収管の線幅を測定するか、あるいは両者の線幅を一致させる必要があることを実験的に確認した。

#### A.2 自己吸収法を用いた水銀準安定原子 ( $6^3P_2$ ) の拡散係数と二体衝突脱励起断面積の測定

第2章で提案した静的アフタグローに適用できる自己吸収法を用いて、蒸気圧 0.133 Pa ~ 13.3 Pa, 蒸気温度  $(100 \pm 1) \text{ }^\circ\text{C}$  における、水銀準安定原子  $6^3P_2$  の拡散係数  $D_m n_g = (0.34 \pm 0.084) \times 10^{20} \text{ m}^{-1} \text{ s}^{-1}$  と二体衝突脱励起断面積  $\sigma_i = (1.09 \pm 0.064) \times 10^{-20} \text{ m}^2$  を決定した。拡散係数はこれまで得られた中で最も小さな値である。二体衝突脱励起断面積はマイクロ波空洞共振器法で得た値にほぼ近い値である。

# 論文審査結果の要旨

低気圧放電を利用した気体電子素子には希ガスや金属蒸気などが用いられている。これらの放電内部におけるプラズマ粒子の衝突素過程の研究は多いが、信頼性の高いデータが充分には揃っておらず、また未計測の衝突過程も少なくない。本論文は、静的アフタグロー法を用いて気体電子素子に用いられている代表的なガスであるアルゴン中の衝突素過程を研究した成果をまとめたもので、全編6章よりなる。

第1章は序論であり、研究目的を明確にしている。

第2章では、静的アフタグロー法の特徴と、この方法によって計測可能な衝突過程について述べている。マイクロ波空洞共振器法による電子密度の絶対値計測のための較正法を確立して、その感度を3桁高めるとともに、アフタグローにおける電子温度の計測のために時間分解型ラジオメータを組み立てて温度較正を行っている。

第3章では、低電子密度陽光柱における電子の拡散モードが両極性拡散から自由拡散に移行する過程を特性拡散長対デバイ長の比の関数として示し、両極性拡散領域の下限を明らかにしている。これらの結果はアルゴンプラズマにおいては初めて得られたものである。

第4章では、アルゴンイオンの衝突素過程について述べている。ガス圧が低い範囲において、アルゴン原子イオンの両極性拡散係数と移動度およびアルゴン原子イオンから分子イオンへの変換係数を決定しているが、これらの値は従来得られた値に比べて信頼性が高く、高いガス圧において得られたアルゴン分子イオンの解離再結合係数も信頼性が高いものである。

第5章では、励起原子の衝突素過程について、アフタグローにおけるアルゴン分子イオンの解離再結合過程に伴う可視光の発光強度の時間的变化に二種類のパターンがあることを見出し、単純なモデルを用いてこれらの違いを定量的に明らかにしている。このような発光現象を定量的に考察したのは本論文が初めてである。また、アルゴン準安定原子同士の衝突断面積の値が初めて得られていることは注目に値する

第6章は結論である。

以上要するに本論文は、静的アフタグロー法を用いてアルゴンプラズマ中の衝突素過程を計測して信頼性の高いデータを得たばかりでなく、重要な衝突過程や未計測の断面積の値を明らかにしたもので、放電工学、プラズマエレクトロニクス、およびスウォーム研究の発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は博士（工学）の学位論文として合格と認める。