急激に再結合するプラズマのレート方程式の高速数値計算法

正 員 辻 泰 正 (愛媛大)
 非会員 尾 田 年 充 (広島大)
 非会員 古 金 卯太郎 (愛媛大)

1. ま え が き

再結合プラズマにおける占有密度の反転を、レーザ発振へ応用しようという研究は、最近大きな注目を集めている。当初は励起準位間の反転が主として研究されたが⁽¹⁾⁽²⁾、最近では高密度のプラズマを急冷却することにより、基底準位と第一励起準位との反転が可能であるとの指摘もなされている⁽³⁾⁽⁴⁾。この占有密度の反転に対する理論的研究では、求めるべき励起状態の占有密度を、基底状態だけでなくあらゆる励起状態からの電子衝突、および放射過程により定めるモデル、即ち CR モデル⁽⁵⁾⁽⁶⁾ に基づくレート方程式 (rate equation) の数値解より、各準位の占有密度を検討している。しかし、高励起準位の占有密度に対する緩和時間は、基底準位のそれと比較して非常に短いため、レート方程式を直接数値計算により解く場合は、計算時間が非常に長くなり、積分を行うことが困難である。これらの困難をさけるために、Bates 氏らは、 $n_i \ll n_1$, $n_i \ll n_2$ ($i \geq 2$, n_i : 準位 i の占有密度, n_1 : 電子密度) の条件が成立する再結合プラズマに対して、いわゆる QSS 近似と呼ばれている方法を提案した⁽⁷⁾。また、系の特徴時間より適当な準位 m を決定して、 $i \geq m$ に対する緩和時間を零と近似して QSS 近似と同様の方法により、レート方程式の次数を $m-1$ とする改良も行われている。

従来、行われてきた冷却による占有密度の反転に関する数値解析では、プラズマは冷却前後において電子密度、およびイオン密度がほぼ一定である場合が多く取り扱われている。しかし、再結合が進行して、レーザが発振する状態では、電子密度、およびイオン密度の変化は無視できなくなる。これらの密度は、上述の近似計算では、 n_i ($i \geq m$) の時間変化も考慮した、粒子数保存の関係より計算する必要があるが、そのためには非線形代数方程式を、繰返し法により解かなければならない。

筆者らは、水素様イオンの基底準位と第一励起準位間の占有密度の反転⁽⁴⁾、あるいはヘリウムプラズマのレベル 2, 3 間のレーザ発振を可能にするプラズマのパラメータ、冷却条件に関して今日まで検討してきたが⁽⁸⁾、これらの反転並びに発振が可能となる状態では、電子密度の時間的変動がかなり大きいことがわかった。このように電子密度の時間的変動が大きくなると、繰返し法による数値計算の収束が悪くなり、計算時間が非常に長くなる。

本論文では、電子密度の変動が大きい再結合プラズマを対象にして、計算時間の大幅な短縮を可能にする、レート方程式の数値解法について述べる。レート方程式の積分が短時間に実行できるこの方法は、レーザ発振における反転利得、反転の持続時間の検討に大いに役立つと考えられる。

2. 数値計算法

空間的に一様で、電氣的に中性な水素プラズマの各量子レベルの占有密度 n_i 、および電子密度 $n_e (= n_+ + \text{イオン密度})$ はレート方程式

$$\dot{n}_i = \sum_{j=1}^l a_{ij} n_j + \delta_i \quad \dots\dots\dots (1)$$

High Speed Numerical Calculation Method of Rate Equations for Abruptly Recombining Plasmas. By Yasumasa Tsuji, Member (Faculty of Engineering, Ehime University), Toshitsugu Oda, Non-member (Faculty of Engineering, Hiroshima University), & Utarou Furukane, Non-member (College of General Education, Ehime University).

辻 泰正: 正 員, 愛媛大学工学部電気工学科
 尾田 年充: 非会員, 広島大学工学部応用理化学
 古金卯太郎: 非会員, 愛媛大学教養部物理

$$a_{ij} = \begin{cases} n_e C_{ji} & j < i \\ n_e C_{ji} + A_{ji} A_{ji} & j > i \\ -n_e \sum_{k=1}^l C_{ik} - \sum_{k < i} A_{ik} A_{ik} & j = i \end{cases} \quad (2)$$

$$\delta_i = n_e^3 F_i + n_e^2 \lambda_i \beta_i \quad (3)$$

および、粒子数保存則

$$n_e + \sum_{j=1}^l n_j = n_0 = \text{const} \quad (4)$$

より求められる。ここで C_{ij} ; 電離係数, $C_{ij} (i < j)$; 衝突励起係数, $C_{ij} (i > j)$; 衝突逆励起係数, A_{ij} ; 放射逆励起係数, F_i ; 三体再結合係数, β_i ; 放射再結合係数, λ_i ; 逸出係数 (escape factor) であり, l は最高主量子数で水素の場合, 20 程度に設定されている。レート方程式の数値解を求めるとき, 時間きざみ幅 Δt に対して $\Delta t < 1/|a_{ii}|$ の条件が必要となるが, $1/|a_{ii}|$ は i の増加に対して急激に減少する。

(例; $n_e = 10^{16}/\text{cm}^3$, $T_e = 0.5 \text{ eV}$ のとき, $1/|a_{1,1}| = 1.76 \text{ s}$, $1/|a_{20,20}| = 1.15 \times 10^{-14} \text{ s}$)。計算時間の短縮を目的として時間きざみ幅 Δt を大きくするために, 従来よりよく用いられているのが, 以下に述べる近似計算である。

(1)式において, $i \geq m$ に対して左辺の絶対値が, 右辺の各項の絶対値に比較して非常に小さいとき, 即ち,

$$|\dot{n}_i| \ll \max \{ |a_{ij} n_j| (j=1, 2, \dots, l), |\delta_i| \} \quad (i \geq m) \quad (5)$$

が成立するとき, $i \geq m$ に対して, 緩和時間を零と近似して,

$$\sum_{j=1}^l a_{ij} n_j + \delta_i = 0 \quad (i \geq m) \quad (6)$$

とおく。以後本論文では, 上記の単位 m を境界単位 (boundary level) と呼ぶことにする。 $n_i (i \geq m)$ は n_e , $n_i (i < m)$ を既知の変数として (6) 式の連立一次方程式より求めることができ, 次式のように表される。

$$n_i = s_i + \sum_{k=1}^{m-1} r_{ik} n_k \quad (i \geq m) \quad (7)$$

ここで, s_i , r_{ik} は次の連立一次方程式の解である。

$$\sum_{j=m}^l a_{ij} s_j = -\delta_i \quad (i \geq m) \quad (8)$$

$$\sum_{j=m}^l a_{ij} r_{jk} = -C_{ki} \quad (i \geq m, k < m) \quad (9)$$

(7) 式を (1) 式に代入すると, $i < m$ に対して

$$\dot{n}_i = \sum_{j=1}^{m-1} \tilde{a}_{ij} n_j + \tilde{\delta}_i \quad (i < m) \quad (10)$$

が得られる。ここで,

$$\left. \begin{aligned} \tilde{a}_{ij} &= a_{ij} + n_e \sum_{k=m}^l a_{ik} r_{kj} \\ \tilde{\delta}_i &= \delta_i + \sum_{k=m}^l a_{ik} s_k \end{aligned} \right\} \quad (11)$$

であり, $\tilde{a}_{ii}$ は a_{ii} とほぼ同じオーダーである。従って, m が小さいときは時間きざみ幅を大きくすることができるので, この近似により計算時間の大幅な短縮が期待できる。ここで, n_e の時間的変化が小さく一定と近似できる場合には, (10) の微分方程式を解くだけでよい。また $n_i (i \geq m)$ の変化が n_e に比べて無視出来る場合には, $\dot{n}_e = -\sum_{i=1}^{m-1} \dot{n}_i$ と近似でき (10) 式をこの近似式に代入して

$$\dot{n}_e = \sum_{i=1}^{m-1} (\tilde{p}_i n_i - \tilde{\delta}_i) \quad \left(\tilde{p}_i = -\sum_{j=1}^{m-1} \tilde{a}_{ij} \right) \quad (12)$$

が得られる。従って, (10), (12) 式の微分方程式を解けば, レート方程式の解が求められる。しかし $n_i (i \geq m)$ の変化が無視できない場合, (4) の粒子数保存式に (7) 式で与えられる $n_i (i \geq m)$ を代入して, n_e を求めなければならない。このような非線形方程式の数値解を求めるときに, よく用いられるのが繰返し法である。これはまず n_e の推定値を設定して $n_i (i \geq 1)$ を求めて, その n_i を (4) の粒子数保存式に代入して求めた n_e と, 推定値との誤差が許容範囲内であれば推定値を解とする。誤差が大きければ n_e より求めた n_e を新しい推定値として, 誤差が許容範囲内に納まるまで同様の計算を行う。この繰返し法では, n_e の時間的変化が小さいときは, 収束が速く計算時間も短くてすむ。しかし, 近年注目を浴びている低いレベル間での占有密度の反転を目的とした再結合プラズマは過渡的で, $n_1 < n_i (i \geq 2)$ の状態も存在するとともに, n_e の変動もかなり大きい。 n_e の時間的変化が大きくなると, 繰返し法の収束性が悪く, 計算時間も非常に長くなって積分を行うことが実際上困難になる。

この困難を避け, 繰返し計算を行わない高速のレート方程式の積分法を次に述べる。基礎方程式は今までの近似法で用いた (1) ~ (10) 式である。従来の繰返し法では n_e を粒子数保存則 (4) より直接求めている。しかし (4) 式を微分した次式

$$\dot{n}_e + \sum_{j=1}^l \dot{n}_j = 0 \quad (13)$$

を積分することにより得られる解も, 数値計算誤差を無視すれば, 繰返し法による解と同一のものとなる。本論文で提案する高速数値計算法の特徴は, n_e を (4) 式より直接求めるのではなく, (13) 式の積分解

として得ることにある。(13)式において $i < m$ に対する $\dot{n}_i$ は、(1)式あるいは(10)式より与えられる。 $i \geq m$ に対する $\dot{n}_i$ は、その緩和時間を零と近似しているため、(1)式より求めることはできない。そこで(6)式を時間微分した次式より求める。

$$\sum_{j=1}^l \dot{a}_{ij} n_j + \sum_{j=1}^l a_{ij} \dot{n}_j + \dot{\delta}_i = 0 \quad (i \geq m) \dots (14)$$

ここで、 a_{ij} , δ_i を n_e , T_e の関数とすると、 $\dot{a}_{ij}$, $\dot{\delta}_i$ は次式のようにになる。

$$\dot{a}_{ij} = \frac{\partial a_{ij}}{\partial T_e} \dot{T}_e + \frac{\partial a_{ij}}{\partial n_e} \dot{n}_e \dots (15)$$

$$\dot{\delta}_i = \frac{\partial \delta_i}{\partial T_e} \dot{T}_e + \frac{\partial \delta_i}{\partial n_e} \dot{n}_e \dots (16)$$

(14)~(16)より $\dot{n}_i (i \geq m)$ は次式のように表すことができる。

$$\dot{n}_i = u_i \dot{T}_e + v_i \dot{n}_e + \sum_{j=1}^{m-1} r_{ij} \dot{n}_j \quad (i \geq m) \dots (17)$$

ここで、 $u_i, v_i (i \geq m)$ は次の連立一次方程式の解である。

$$\sum_{j=m}^l a_{ij} u_j = - \sum_{j=1}^l \frac{\partial a_{ij}}{\partial T_e} n_j - \frac{\partial \delta_i}{\partial T_e} \quad (i \geq m) \dots (18)$$

$$\sum_{j=m}^l a_{ij} v_j = - \sum_{j=1}^l \frac{\partial a_{ij}}{\partial n_e} n_j - \frac{\partial \delta_i}{\partial n_e} \quad (i \geq m) \dots (19)$$

更に、この結果を(13)式に代入することにより $\dot{n}_e$ は

$$\dot{n}_e = \frac{\sum_{i=1}^{m-1} \left(1 + \sum_{j=m}^l r_{ji} \right) \dot{n}_i + \dot{T}_e \sum_{i=m}^l u_i}{1 + \sum_{i=m}^l v_i} \dots (20)$$

となる。電子温度 T_e が変化する場合 $\dot{a}_{ij}$, $\dot{\delta}_i$ は T_e の複雑な関数となるが、ここでは電子温度が一定の場合、つまりある温度より瞬間的に冷却して、その後は一定であると仮定した場合を考える。電子温度が一定の場合 C_{ij} などのレート係数は一定となるため、 $\dot{a}_{ij}$, $\dot{\delta}_i$ は

$$\dot{a}_{ij} = \begin{cases} \dot{n}_e C_{ji} & j \neq i \\ -\dot{n}_e \sum_{k=1}^l C_{ik} & j = i \end{cases} \dots (21)$$

$$\dot{\delta}_i = (3n_e^2 F_i + 2n_e \lambda_i \beta_i) \dot{n}_e \dots (22)$$

となり、(19)式も次式のように表される。

$$\sum_{j=m}^l a_{ij} v_j = - \sum_{j=1}^l C_{ji} n_j + \left(C_{ii} + \sum_{j=1}^l C_{ij} \right) n_i - (3n_e^2 F_i + \lambda_i \beta_i) \dots (23)$$

これらの結果を用いて、 $n_i (i=1 \sim l)$, n_e は(10)式および(20)式を $\dot{T}_e = 0$ として積分することにより求め

ることができる。

3. 数値計算例

従来の繰り返し法を用いた数値解と前章(10), (20)式より得られる数値解を比較して、計算時間が大幅に短縮されることを示す。以後前者を(i)の方法、後者を(ii)の方法と呼ぶ。これらの数値計算を実行するとき、(5)の不等式において、レベル $i \geq m$ に対して左辺の値が右辺の $1/100$ より小さい場合、その条件が満足されたとして m を境界単位とした。

図1(a), (b)は $n_e = 10^{16}/\text{cm}^3$ で電子温度 50 eV の水素プラズマを 0.2 eV に瞬間的に冷却したときの n_e および統計的荷重で換算した占有密度 n_1/ω_1 , n_2/ω_2 (ω_1 , ω_2 : レベル 1, 2 の統計的荷重)の時間的変化を、また、図2は各時刻における境界単位 m , および(i), (ii)の方法を用いたときの計算時間 T を示す(FACOM M180 II-AD を使用)。なおレート係数は Johnson の結果を用いている⁽⁹⁾。 $9 \times 10^{-12} \sim 9 \times 10^{-10}$ s でレベル 1, 2 間で占有密度の反転が生じているが、 9×10^{-10} s までの計算時間は(i)で約 73 秒、(ii)では約 40 秒で 2 倍近い計算速度の上昇となっている。この時刻では n_e は初期値の $1/2$ 程度となっているが、

実験: n_1/ω_1 , 点線: n_2/ω_2

図1 再結合水素プラズマの(a)電子密度 n_e および(b)統計的荷重で換算した占有密度 $n_i/\omega_i (i=1, 2)$ の時間的変化

Fig. 1. Time variation of (a) the electron density n_e and (b) the reduced population densities $n_i/\omega_i (i=1, 2)$ of a recombining hydrogen plasma.

点線: (i) 繰り返し法による計算時間,
実線: (ii) 本論文で提案する数値計算法による計算時間

図 2 再結合水素プラズマの境界準位 m の変化, および計算時間 T

Fig. 2. The variation of the boundary level m and the calculation time T for a recombining hydrogen plasma.

以後 n_e の減少とともに両者の計算時間の比は大きくなり, $10^{-7} \sim 10^{-6}$ s 間の計算に要する時間はそれぞれ, 302.4 秒, 79.6 秒であり, 本報告で述べた方法により計算時間は約 1/4 に短縮されている。また, 両者の数値計算結果の差は $10^{-3}\%$ 以下である。更に (6) の近似を用いないで, 全てのレベルに対して (1) 式の積分解を求めた結果と比較した時の誤差も 4% 以下と非常に小さく, 本報告で述べた方法が計算精度の点でも問題はないことが確かめられた。

水素プラズマでは, イオンの種類は一種であるためレート方程式, および粒子数保存式も簡単であるが, 筆者らが行っている He^+ のレベル 2, 3 間のレーザ発振⁽⁸⁾を検討する場合には, イオンとして He^{++} , He^+ , 中性粒子として He を考慮しなければならない。この場合 (i) では水素プラズマのときと比較して数値計算の収束性は更に悪くなる。図 3 (a), (b) は, $n_e = 1.28 \times 10^{16} / \text{cm}^3$, $T_e = 200$ eV の定常状態にあるヘリウムプラズマを瞬間的に 0.5 eV に冷却したときのレート方程式の数値解を同様の方法で求めた結果であり, (a) は n_e , He^{++} , He^+ を, また (b) は He^+ のレベル 2, 3 間の反転量 $\Delta_{32} = n_3^+ / \omega_3^+ - n_2^+ / \omega_2^+$ を示す (n_i^+ , ω_i^+ ; He^+ のレベル i の占有密度, および統計的荷重)。なお He^+ , He の最高主量子数はそれぞれ 20, 49 として, He^+ のレート係数は前述の Johnson 氏の結果⁽⁹⁾を, また He のレート係数は藤本氏の結果を用いた⁽¹⁰⁾。図 4 は各時刻における境界準位 m および (i), (ii) の方法を用いたときの計算時間 T を示す (FACOM M 200 を使用)。反転初期 10^{-10} s

実線: n_e , 点線: He^{++} , 一点鎖線: He^+

図 3 再結合ヘリウムプラズマの (a) 電子密度 n_e , ヘリウム一価イオン密度 He^+ , ヘリウム二価イオン密度 He^{++} , および (b) 反転量 Δ_{32} の時間的变化

Fig. 3. Time variation of (a) n_e , He^+ , He^{++} and (b) over population density Δ_{32} of a recombining helium plasma.

点線: (i) 繰り返し法による計算時間,
実線: (ii) 本論文で提案する数値計算法による計算時間

図 4 再結合ヘリウムプラズマの境界準位 $m(\text{He})$, $m(\text{He}^+)$ の変化, および計算時間 T

Fig. 4. The variation of the boundary level $m(\text{He})$, $m(\text{He}^+)$ and the calculation time T for a recombining helium plasma.

までの計算時間は (i), (ii) の場合それぞれ 175 秒, 76 秒であるが, $n_i = 0$ ($i \geq m$) と近似するときの境界準位 m の低下, および n_e , He^{++} の減少とともに両者の計算時間の差は大きくなる。例えば, (ii) の方法で

は、(i)の方法と比較して、 $5 \times 10^{-8} \sim 10^{-7}$ s 間の計算時間で 1/13、 $10^{-7} \sim 5 \times 10^{-6}$ s 間では 1/70 となっている。先に述べた水素プラズマの例では、反転が終了した後計算時間の差が大きくなっているのに対して、このヘリウムプラズマの場合反転が持続している間においても、計算時間の顕著な差がある。

4. ま と め

n_e の変動が大きい再結合プラズマを対象にして、計算時間の大幅な短縮を可能にする、レート方程式の数値解法について述べた。本報告で述べた数値解法によると、水素再結合プラズマの場合、従来の数値解法と比較して計算時間の短縮は数分の 1 程度であるが、ヘリウムプラズマのように二種類のイオンが存在すると 1~2 けた程度の計算時間の短縮が可能となることが判った。従ってこの数値計算法は多価イオン再結合プラズマ、あるいは混合気体プラズマによる、レーザ発振における反転利得、反転の持続時間の検討に大いに役立つと考えられる。

最後に、本研究は名古屋大学プラズマ研究所の共同研究として行われたことを付記します。なお、数値計算は、名古屋大学プラズマ研究所計算機センター、および愛媛大学情報処理センターの計算機を使用して行いました。(昭和 62 年 3 月 20 日受付)

文 献

- (1) L.I. Gudzenko, L.A. Shelepin & S.I. Yakovlenko: "Amplification in Recombining Plasma (Plasma Lasers)", *Sov. Phys.-Usp* 17, 848 (1975)
- (2) U. Furukane, T. Yokota & T. Oda: "Population Inversion in Recombining Hydrogen Plasma", *JQSRT* 22, 239 (1979)
- (3) G.J. Tallents: "Population Inversion for Soft X-Ray Transitions Computed for Rapid Cooling Plasmas", *J. Phys. B* 10, 1769 (1977)
- (4) U. Furukane, Y. Tsuji & T. Oda: "Population Inversion between the Ground and First Excited States in a Recombining Hydrogen Plasma", *JQSRT* 27, 557 (1982)
- (5) 福田:「応用分光学ハンドブック」873 (昭 48) (吉永 弘編集, 朝倉書店)
- (6) R.W.P. McWhirter: "Plasma Diagnostic Techniques", 202 (1965) (edited by R.H. Huddleston & S.L. Leonard, Academic Press)
- (7) D.R. Bates, F.R.S., A.E. Kingston & R.W.P. McWhirter: "Recombination Between Electrons and Atomic Ions I. Optically Thin Plasmas", *Proc. Roy. Soc. A* 267, 297 (1962)
- (8) U. Furukane, Y. Tsuji & T. Oda: "The Optimum Condition of TPD-I Recombining Helium Plasma for VUV Coherent Lasing Action", *Institute of Plasma Physics, Nagoya University, Research Report IPPJ-798* (1986)
- (9) L.C. Johnson: "Approximations for Collisional and Radiative Transition Rates in Atomic Hydrogen", *Astrophys. J.*, 174, 227 (1972)
- (10) T. Fujimoto: "A Collisional Radiative Model for Helium and Its Application to a Discharge Plasma", *JQSRT* 21, 439 (1979)