

体積生成型水素負イオン源の 最適化に関する数値計算

福 政 修

(山口大学工学部電気工学科)

(1988年9月9日受理 / 1988年11月1日改訂原稿受理)

Numerical Studies on Optimization of Volume Produced H^- Ions in a Low-Pressure Negative Ion Source

Osamu Fukumasa

(Received September 9, 1988 / Revised Manuscript Received November 1, 1988)

Abstract

Production of H^- ions in a steady state hydrogen discharge plasma is discussed. According to the numerical calculation of a set of particle balance equations, H^- ions are formed mainly by dissociative attachment of slow plasma electrons (i. e. electron temperature $T_e \cong 1$ eV) to highly vibrationally excited hydrogen molecules H_2^* (optimum vibrational level $v'' = 7-9$), and those H_2^* (v'') are produced mainly by collisional excitation due to fast primary electrons with energies in excess of 40 eV. On enhancement of H^- yield, the effect of other H_2^* (v'') formation process caused by molecular ions or by atomic hydrogen is also discussed.

Although H_2^* (v'') is essential to the H^- formation, the optimum plasma conditions for the H_2^* (v'') production are not compatible with those for the H^- formation. In order to clarify the effectiveness of a tandem two-chamber system, the relative H^- yields for single-chamber and tandem two-chamber systems are compared.

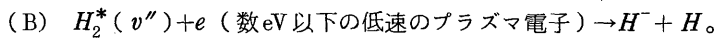
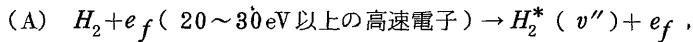
Keywords :

negative ion source, volume production, hydrogen discharge plasma, tandem two chamber system, neutral beam heating,

1. はじめに

高速中性粒子ビーム入射(NBI)加熱装置に用いられる水素負イオン源として、水素放電プラズマ中に生成される H^- イオンを直接引き出す方式である体積生成型負イオン源が有力視されている^{1, 2)}。

水素放電プラズマ中の H^- 生成には振動励起分子 H_2^* (振動準位 v'')と高速電子 e_f が関与し、次の2段階過程が主要な生成機構となる³⁻⁵⁾、



著者は、正・負両イオンを含めたレート方程式を基礎とする負イオン源のモデルを提案し⁵⁾、水素プラズマ中のイオン種組成とプラズマパラメータ（電子密度 n_e 、高速電子密度 n_{fe} 、電子温度 T_e 、高速電子のエネルギー E_{fe} 、水素ガス圧 p 、 H 並びに $H_2^* (v'')$ と容器壁との衝突係数など）との関係をモデル計算によって求め、 H^- 生成や $H_2^* (v'')$ 生成の最適条件について検討してきた^{6, 7)}。その結果、(A) の過程での e_f は 40 eV 以上の高速電子が望ましいこと、(B) の過程で H^- 生成に最も最適な振動準位は $v'' = 7 \sim 9$ であること、 H^- 生成と $H_2^* (v'')$ 生成の最適条件は異なっていることなどが判明した⁸⁾。

実際、体積生成型負イオン源開発（磁気フィルター付のバケット型イオン源やシートプラズマ型イオン源等における開発研究）では、磁場により電子のエネルギー分布を制御し (A) 並びに (B) の過程を空間的に分離する方法で、 H^- 生成の最適化が検討されている⁹⁻¹¹⁾。そして、最近シートプラズマ型イオン源での実験で、(A) の e_f に該当する電子のエネルギーが 20 ~ 40 eV と上昇するに伴い H^- 生成が急激に増大する結果が¹²⁾、またバケット型イオン源の実験で、 H^- 生成は (B) の過程によることを示す結果が¹³⁾、それぞれ報告された。更に、アンペア級の H^- 引き出し電流が得られるイオン源が現実のものとなってきている^{2, 12, 14)}。

さて、 H^- 生成には $H_2^* (v'')$ が不可欠であるが、 $H_2^* (v'')$ 生成過程としては (A) に示すような e_f による衝突励起以外の過程も考えられる。例えば、分子イオン (H_2^+ , H_3^+) の中性化に伴うもの、 H の壁での再結合に伴うものなどである。本報告では、 $H_2^* (v'')$ 生成の (A) 以外の過程も考慮して、それらの $H_2^* (v'')$ 生成に及ぼす影響を調べる。更に、その結果をもとに、 $H_2^* (v'')$ 生成の最適化並びに H^- 生成機構をより詳しく検討する¹⁵⁾。

ところで、著者のこれまでの H^- 生成に関する研究は、(A) 並びに (B) の両過程を同一放電容器内で扱うモデル (Single Chamber System) を用いての検討が主であった。しかし、 H^- 生成の最適化を議論するには (A)、(B) の過程を空間的に分離する方式であるタンデム方式 (Tandem System 又は Two Chamber System) の検討が不可欠である¹⁰⁾。後半では、タンデム方式の有効性についても簡単に議論する¹⁶⁾。

2. 数値計算のモデル

シミュレーションに用いたモデルは各粒子に対するレート方程式（正・負イオン生成過程など水素プラズマ中の主な反応素過程を同時に扱うことにより、各粒子種の生成・消滅に関する釣合を考える）に、プラズマの準中性の条件及び全粒子数保存の条件の2つの条件式を連立させたものである⁵⁾。ここでは前回のモデル⁸⁾と同様に、 $H_2^* (v'')$ としては、 $v'' = 4 \sim 11$ の8種を考慮した。 $H_2^* (v'')$ には $v'' = 1 \sim 14$ までの14種があるが、 H^- 生成への寄与から考えると $v'' = 4 \sim 11$ の8種で95%以上を占めている⁷⁾。

対象とする粒子は中性粒子として H , H_2 及び $v'' = 4 \sim 11$ の8種の $H_2^* (v'')$ を、イオン種として H^+ ,

H_2^+ , H_3^+ 及び H^- を, そして電子として e と e_f を考える。モデルの詳細は文献(6-8)に譲り, ここでは考慮した素過程並びに釣合の式的具体例として後の議論に用いる H , $H_2^*(v'')$, H^- に対する式を示すにとどめる。

反応素過程	反応率 $\langle \sigma v \rangle$	
$H_2 + e \rightarrow H_2^+ + 2e$,	α_1	(1)
$H_2 + e \rightarrow 2H + e$,	α_2	(2)
$H_2^+ + e \rightarrow H^+ + H + e$,	α_3	(3)
$H_2^+ + H_2 \rightarrow H_3^+ + H$,	α_4	(4)
$H + e \rightarrow H^+ + 2e$,	α_5	(5)
$H_3^+ + e \rightarrow H + H_2$,	α_6	(6)
$H_3^+ + e \rightarrow H^+ + 2H + e$,	α_7	(7)
$H_2^+ + e \rightarrow 2H$,	α_9	(8)
$H_2^+ + H_2 \rightarrow H^+ + H + H_2$,	α_{10}	(9)
$H_2 + e_f \rightarrow H_2^+ + e_f + e$,	α_{f1}	(10)
$H_2 + e_f \rightarrow 2H + e_f$,	α_{f2}	(11)
$H_2^+ + e_f \rightarrow H^+ + H + e_f$,	α_{f3}	(12)
$H + e_f \rightarrow H^+ + e_f + e$,	α_{f5}	(13)
$H_3^+ + e_f \rightarrow H_2^+ + H + e_f$,	α_{f8}	(14)
$H_2 + e \rightarrow H^- + H$,	α_{11}	(15)
$H_2^*(v'') + e \rightarrow H^- + H$,	$\alpha_{12}(v'')$	(16)
$H_2^+ + e \rightarrow H^- + H^+$,	α_{13}	(17)
$H^- + e \rightarrow H + 2e$,	α_{14}	(18)
$H^- + e_f \rightarrow H + e_f + e$,	α_{f14}	(19)
$H^- + H^+ \rightarrow 2H$,	α_{15}	(20)
$H^- + H_2^+ \rightarrow H + H_2$,	α_{16}	(21)
$H^- + H_3^+ \rightarrow 2H + H_2$,	α_{17}	(22)
$H^- + H \rightarrow H_2 + e$,	α_{18}	(23)
$H^- + H_2 \rightarrow H + H_2 + e$,	α_{19}	(24)
$H_2 + e_f \rightarrow H_2^*(v'') + e_f$,	$\alpha_{f20}(v'') = \sigma(v'') v_f$	(25)
H_2^+, H_3^+ の中性粒子への変換に伴う $H_2^*(v'')$ の生成, (荷電交換反応 $H_2^+ + H_2 \rightarrow H_2 + H_2^+$ も含める α_{21})	p_2 および p_3	(26)
$H_2^*(v'') + H_2 \rightarrow H_2^*(v''-1) + H_2$,	$P_{v'', v''-1}$	(27)
$H_2^*(v'') + H_2^*(w''-1) \rightarrow H_2^*(v''-1) + H_2^*(w'')$,	$P_{v'', v''-1}^{w'', w''-1}$	(28)

$H, H_2, H_2^*(v''), H^+, H_2^+, H_3^+, H^-, e, e_f$ の粒子数密度をそれぞれ $N_1, N_2, N_2^*(v''), n_1, n_2, n_3, n_-, n_e, n_{fe}$ とすると、定常状態における $H, H_2^*(v'')$ および H^- に対する釣合の式は次のように書ける。なお、上には列挙してはいないが $H_2^*(v'')$ の釣合の式を導く場合には消滅過程として電離、解離過程等も含まれている。ただし、反応率は H_2 に対するものと同じ値を用いた。

$$\begin{aligned}
 H : \{ & N_2 + \Sigma N_2^*(v'') \} (2 n_e \alpha_2 + 2 n_{fe} \alpha_{f2} + n_2 \alpha_4 + n_2 \alpha_{10}) + N_2 n_e \alpha_{11} \\
 & + n_e N_2^*(v'') \alpha_{12}(v'') + n_2 (n_e \alpha_3 + n_{fe} \alpha_{f3} + 2 n_e \alpha_9) \\
 & + n_3 (n_e \alpha_6 + 2 n_e \alpha_7 + n_{fe} \alpha_{f8}) + n_- (n_e \alpha_{14} + n_{fe} \alpha_{f14}) \\
 & + n_- (2 n_1 \alpha_{15} + n_2 \alpha_{16} + 2 n_3 \alpha_{17} + N_2 \alpha_{19}) \\
 & - N_1 (n_e \alpha_5 + n_{fe} \alpha_{f5} + n_- \alpha_{18}) - r_1 N_1 / T_1 = 0, \quad (29)
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 H_2^*(v'') : & N_2 n_{fe} \alpha_{f20}(v'') + \frac{1}{8} \{ p_2 (n_2 n_- \alpha_{16} + N_2 n_2 \alpha_{21} + n_2 / \tau_2) \\
 & + p_3 (n_3 n_e \alpha_6 + n_3 n_- \alpha_{17} + n_3 / \tau_3) \} + N_2^*(v''+1) \times \\
 & \{ N_2 P_{v''+1, v''} + \Sigma_{w''(\neq v'')} N_2^*(w'') P_{v''+1, v''}^{w'', w''+1} \} + N_2^*(v''-1) \{ N_2 P_{v''-1, v''} \\
 & + \Sigma_{w''(\neq v'')} N_2^*(w'') P_{w'', w''-1}^{v''-1, v''} \} - N_2^*(v'') n_e \alpha_{12}(v'') - N_2^*(v'') \{ n_e (\alpha_1 + \alpha_2) \\
 & + n_{fe} (\alpha_{f1} + \alpha_{f2}) + n_2 (\alpha_4 + \alpha_{10}) \} - N_2^*(v'') N_2 (P_{v'', v''-1} \\
 & + P_{v'', v''+1}) - N_2^*(v'') \{ \Sigma_{w''(\neq v''-1)} N_2^*(w'') P_{v'', v''-1}^{w'', w''+1} + \Sigma_{w''(\neq v''+1)} N_2^*(w'') P_{w'', w''-1}^{v'', v''+1} \} \\
 & - r_2 N_2^*(v'') / T_2 = 0, \quad (30)
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 H^- : & N_2 n_e \alpha_{11} + \Sigma N_2^*(v'') n_e \alpha_{12}(v'') + n_2 n_e \alpha_{13} - n_- (n_e \alpha_{14} + n_{fe} \alpha_{f14} \\
 & + n_1 \alpha_{15} + n_2 \alpha_{16} + n_3 \alpha_{17} + N_1 \alpha_{18} + N_2 \alpha_{19}) - n_- / \tau_- = 0. \quad (31)
 \end{aligned}$$

ここで、 T_1, T_2 は $H, H_2^*(v'')$ の容器内走行時間、 τ_2, τ_3, τ_- はそれぞれ H_2^+, H_3^+, H^- の閉じ込め時間を表す。発生した $H, H_2^*(v'')$ はそのまま壁に飛び込むと考えると、容器体積 V と容器表面積 A (即ち容器サイズ V/A) を用いて T_1, T_2 をそれぞれ $4(V/A)/v_0, 4(V/A)/v_0^*$ で評価する。 v_0 と v_0^* は H と $H_2^*(v'')$ の平均速度である。

上式中の Σ は $v''=4 \sim 11$ までの総和を表し、 $\Sigma_{w''}$ は $w''=4 \sim 11$ (但し w'' の一部を除く) までの総和を意味する。(30) 式で係数 $1/8$ がかかっている項が分子イオンの中性化に伴う $H_2^*(v'')$ の生成を表す。過程(26)により生成された $H_2^*(v'')$ は各 v'' に対して均等に分布すると仮定している。本モデルでは $v''=4 \sim 11$ の8準位を含めているから中性化された H_2 のうちある確率 (H_2^+ に対して p_2, H_3^+ に対して p_3) で $H_2^*(v'')$ の状態を維持するとすれば、ある準位 v'' の $H_2^*(v'')$ 生成の実効的な反応率の表示には係数 $p_2/8$ あるいは $p_3/8$ がかかる。また、その表式中で $p_2 n_2 / \tau_2, p_3 n_3 / \tau_3$ はそれぞれ H_2^+, H_3^+ が壁を介した中性化により $H_2^*(v'')$ に変換される過程に対応している。

$H, H_2^*(v'')$ と壁との相互作用が H^- 生成に及ぼす影響を検討する目的で、パラメータ r_1 を(29) 式に、

r_2 を(30)式に導入している。 r_1 は H の壁面での再結合係数であるが、 $r_1 = 1 - f_{out}/f_{in}$ ($f_{out} \cdot f_{in}$ は H の壁から流出束, 流入束) で定義される。壁に衝突した H の一部が H のままで反射される場合には ($f_{out} \neq 0$), $r_1 < 1$ となる。 T_1 は H の容器内走行時間であるが、(30)式からわかるように H の実効的な生存時間は T_1 / r_1 となるので、 $r_1 < 1$ となることは H の閉じ込めが良くなることを意味している。一方、 r_2 は $H_2^*(v'')$ の壁との衝突による脱励起係数であり、 H に対する r_1 と同様の定義が可能である。従って、 $r_2 < 1$ となれば $H_2^*(v'')$ の閉じ込めが良くなり、その密度が実効的に増すことになる。 r_1, r_2 は容器材質の違い(表面状態の違いも含む)によって変化するため¹⁷⁻²⁰⁾、容器材料の選択により水素プラズマ中の粒子組成が大きく変化する可能性がある²¹⁻²⁵⁾。

各粒子種 $H, H_2^*(v'' = 4 \sim 11), H^+, H_2^+, H_3^+, H^-$ に対する連続の式、2つの条件式からなる15の連立方程式系ができる。これを数値計算することにより $H_2^*(v''), H^-$ 生成の n_e, T_e, p 等のプラズマパラメータに対する依存性を求め負イオン源の最適化について検討する。

3. 計算結果および考察

3.1 H^- 生成, $H_2^*(v'')$ 生成のプラズマパラメータ依存性

H^- 生成は(A), (B)の2段階過程、即ち、過程(25)と(16)が主要な生成機構であると述べたが、そのことを示す結果を図1並びに図2に示す。図1には H^- 密度の n_e 依存性を、図2にはこれに対応した $H_2^*(v'' = 7)$ 密度の n_e 依存性を示す。パラメータは e_f と e の密度比 n_{fe}/n_e であり、 H^- 生成における e_f の役割を示す結果でもある。 H^- 生成に最適な振動準位は $v'' = 7 \sim 9$ であることがわかっている⁸⁾、ここでは $v'' = 7$ の H_2^* 密度を具体例として示した。

e_f の存在により $H_2^*(v'' = 7)$ 密度は大幅に増大するが、それに対応して H^- 生成も異常に高くなるのがわかる(特に n_e の高い領域)。この計算では分子イオン (H_2^+, H_3^+) の中性化に伴う $H_2^*(v'')$ 生成も考慮されているが、 e_f の有無により $H_2^*(v'')$ が大きく変化しており、過程(25)による $H_2^*(v'')$ 生成が主要であることを示している。しかし、 n_e

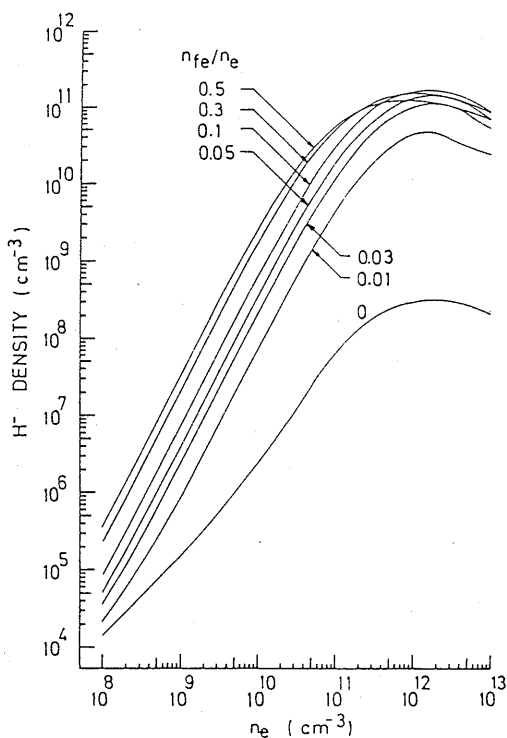


図1. H^- 生成の電子密度依存性: H^- 密度と n_e の関係を示す。パラメータは高速電子のプラズマ電子に対する密度比 n_{fe}/n_e 。

数値計算のためのプラズマパラメータの条件は、 $T_e = 2 \text{ eV}$, $p = 5 \times 10^{-3} \text{ Torr}$, $V/A = 5 \text{ cm}$, $E_{fe} = 40 \text{ eV}$, $\tau_-/T_1 = 10$, $p_2 = p_3 = 0.1$, $r_1 = 1.0$ そして $r_2 = 0.1$ 。

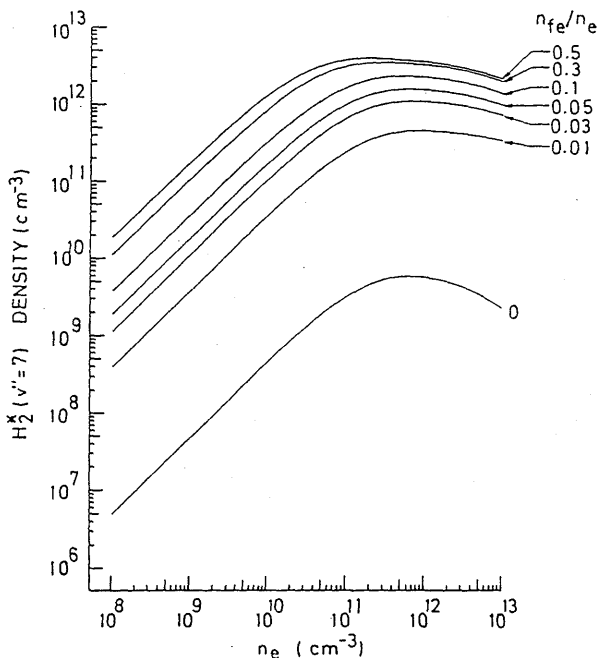


図2. H_2^* 生成の電子密度依存性。図1に対応した結果であるが、 H^- 生成が効率よく行われる $v'' = 7$ の H_2^* 密度を例にとった。

$< 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ の低密度領域になると H^- 生成に対する e_f の影響は小さくなる。これは、ある n_{fe}/n_e において、 n_e が低くなると相対的に n_{fe} も低くなり e_f によって励起される $H_2^*(v'')$ 密度も少なくなる。従って、 n_e が低くなると $H_2^*(v'')$ 密度も低くなるため、過程 (16) の反応率は高くてもこの過程による H^- 生成量が減少し、反応率は低い大量の H_2 が関与する過程 (15) 等の $H_2^*(v'')$ 以外の H^- 生成過程の寄与との差が相対的に小さくなるためである。また、ここで最も注目すべき点は、 H^- 生成にとって e_f は是非とも必要であるが、その量にはある最適値が存在することで、 $n_{fe}/n_e \approx 0.1$ 付近で H^- 密度が最大となっている。後で H^- 生成の T_e 依存性のところでも述べるが、電子との衝突による H^- の消滅過程 (18) は電子のエネルギーが大きくなるに伴って急激に増大する。それに対応して H^- の e_f との消滅過程 (19) の反応率は高いので、 e_f の量が増すことは H^- の消滅が増すことにもなる。従って、 e_f の増大による $H_2^*(v'')$ 生成の増加、即ち H^- 生成の増加、と e_f の増大に伴う過程 (19) による H^- の消滅とは互いに競合関係にあり、 e_f にはある最適値が存在する。これに対して、 e_f により生成される $H_2^*(v'')$ 密度は $n_{fe}/n_e = 0.1$ 以上でも e_f の量と共に単調に増加し、 n_{fe}/n_e を 0.5 としても $H_2^*(v'')$ 生成はまだ飽和していない。

ところで、図1, 2からわかるように、 H^- 並びに $H_2^*(v'')$ 密度ともある n_e の値で最大となっている。つまり、既に報告したことであるが⁵⁻⁸⁾、 H^- 生成に対して n_e にはある最適値が存在する。 H^- は n_e にほぼ比例して増加するため、 n_e が高くなるにつれて H_2 の減少が始まり $H_2^*(v'')$ 励起の割合も相対的に減少す

る。従って、 n_e の高密度領域で H^- 生成は飽和する傾向にある。また、分子イオンの H と H^+ への解離も進み、更に H と H^+ が増す。これに続き、増大した H^+ は H^- と高い反応率で再結合して H^- を消滅させる。このような経過をたどるため、高密度領域での H^- 密度は減少するようになりちょうどある最適な n_e (ここでは $n_e = (1 \sim 2) \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$) のところで H^- 密度は最大となる。ただ、本モデルでは H^- と正イオン種との再結合消滅過程 (20)–(22) の内で H^+ との反応率 α_{15} を一番大きいと見積っているため、 H^- 密度の飽和それに続く減少の傾向が強調されすぎていることも考えられる^{28, 36)}。 α_{15} を分子イオンのそれと同程度とすると、 n_e の最適値はより高密度側にずれていく。これらの点については、今後更に検討を進めたい。しかしながら、いずれにせよ n_e が高くなるにつれて (実験的には放電のアーク電流を増大させることに対応する) H^- 密度が飽和することは実験的にも確認されている^{2, 39)}。

図3に H^- 比率 (H^- 密度の全正イオン密度に対する割合) の T_e 依存性を、また図4には各粒子密度の T_e

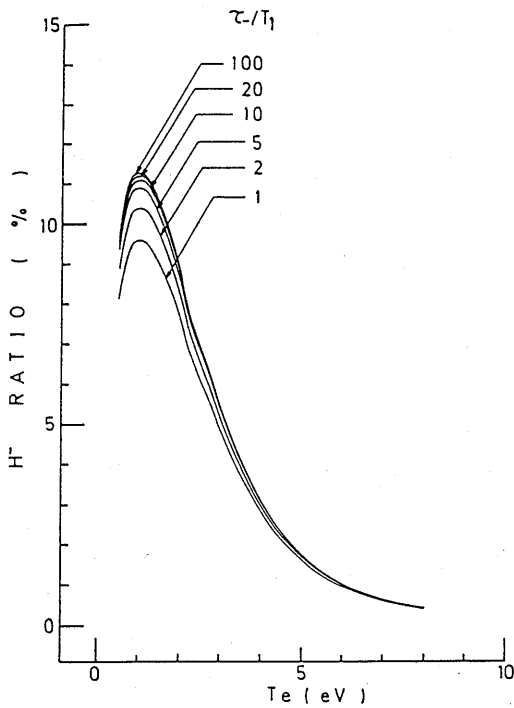


図3. H^- 生成の電子温度依存性: H^- 比率, $H^- / (H^+ + H_2^+ + H_3^+)$, と T_e の関係を示す。パラメータは H^- の閉じ込め時間と T_1 との比率, τ_- / T_1 。

数値計算の条件は、 $n_e = 10^{12} \text{ cm}^{-3}$,
 $p = 5 \times 10^{-3} \text{ Torr}$, $V/A = 5 \text{ cm}$,
 $E_{fe} = 40 \text{ eV}$, $n_{fe}/n_e = 0.03$,
 $p_2 = p_3 = 0.1$, $\gamma_1 = 1.0$ そして
 $\gamma_2 = 0.1$ 。

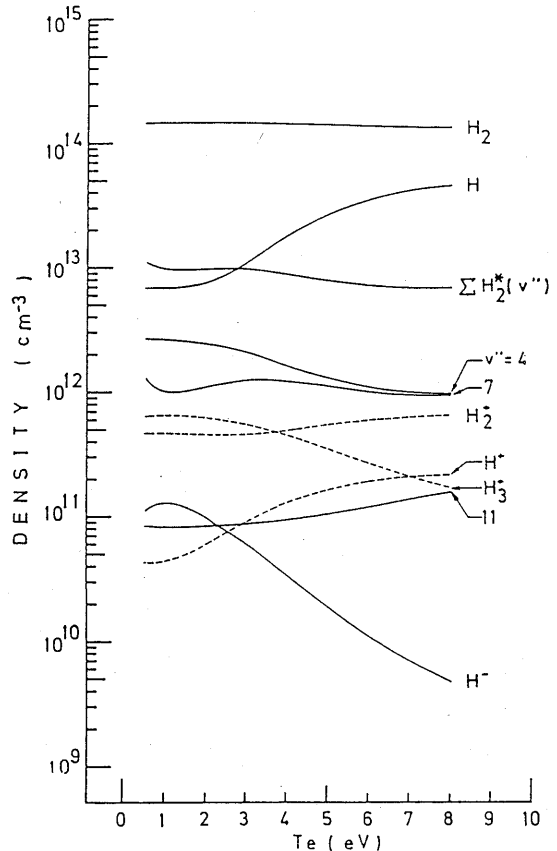


図4. 各粒子種密度の T_e 依存性。正イオン種の組成比や中性粒子種の密度等は τ_- / T_1 を変えてもその影響を殆ど受けないため、代表例として $\tau_- / T_1 = 10$ の結果を示す。なお、他の数値計算の条件は図3と同じである。

依存性を示す。これより、 H^- は $T_e \approx 1$ eV付近で最も効率よく生成され、 T_e の上昇と共に H^- 密度は単調に減少している。これは、 H^- 生成過程(16)の反応率 α_{12} ($v'' = 6 \sim 9$)が $T_e = 0.5 \sim 1$ eVあたりで最大になること²⁶⁾、並びに、 H^- の消滅過程(18)の反応率 α_{14} が T_e と共に急激に増大することに起因している。一方、 $H_2^*(v'')$ はあまり T_e には依存せず、 $H_2^*(v'')$ 生成には e_f の有無が一番強く影響する。

パラメータ依存性の最後として、 H^- 生成、 $H_2^*(v'')$ 生成の p 依存性を図5に示す。(a),(b)より明らかなように H^- 生成に対して p にはある最適値が存在する。この例では $p = (1 \sim 2) \times 10^{-2}$ Torrが最適値となっている。図(b)によれば $H_2^*(v'')$ は p とともに増大しており、このような結果になるのは一見矛盾しているようにも思えるが、以下のように説明できる。図(c)に示すように、各準位の $H_2^*(v'')$ 密度と H_2 密度との比

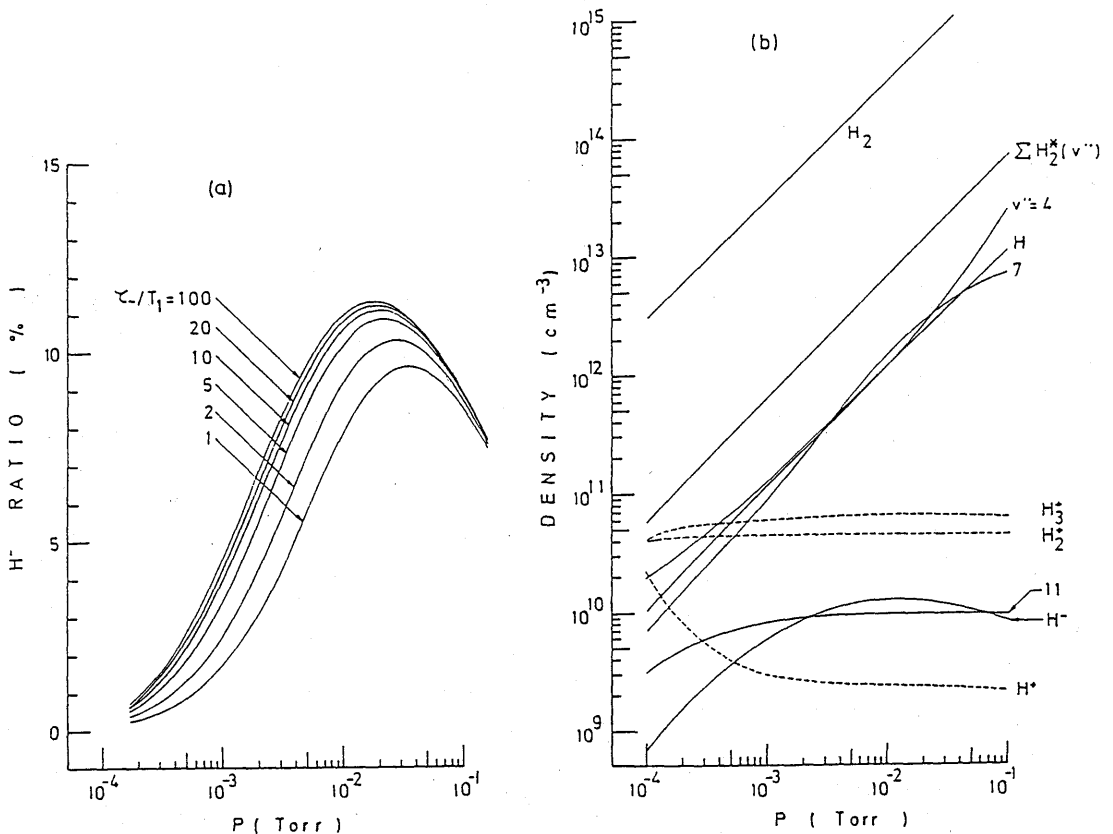


図5. H^- 生成の水素ガス圧依存性:

- (a) H^- 比率の p 依存性、パラメータは H^- の閉じ込め時間 τ_-/T_1 ,
- (b) 各粒子種密度の p 依存性、但し $\tau_-/T_1 = 10$,
- (c) 密度比 $H_2^*(v'')/H_2$ の p 依存性、但し $\tau_-/T_1 = 10$ 。

数値計算の条件は $n_e = 10^{11} \text{ cm}^{-3}$, $T_e = 2 \text{ eV}$, $V/A = 5 \text{ cm}$, $E_{fe} = 40 \text{ eV}$, $n_{fe}/n_e = 0.03$, $p_2 = p_3 = 0.1$, $\gamma_1 = 1.0$ そして $\gamma_2 = 0.1$ 。

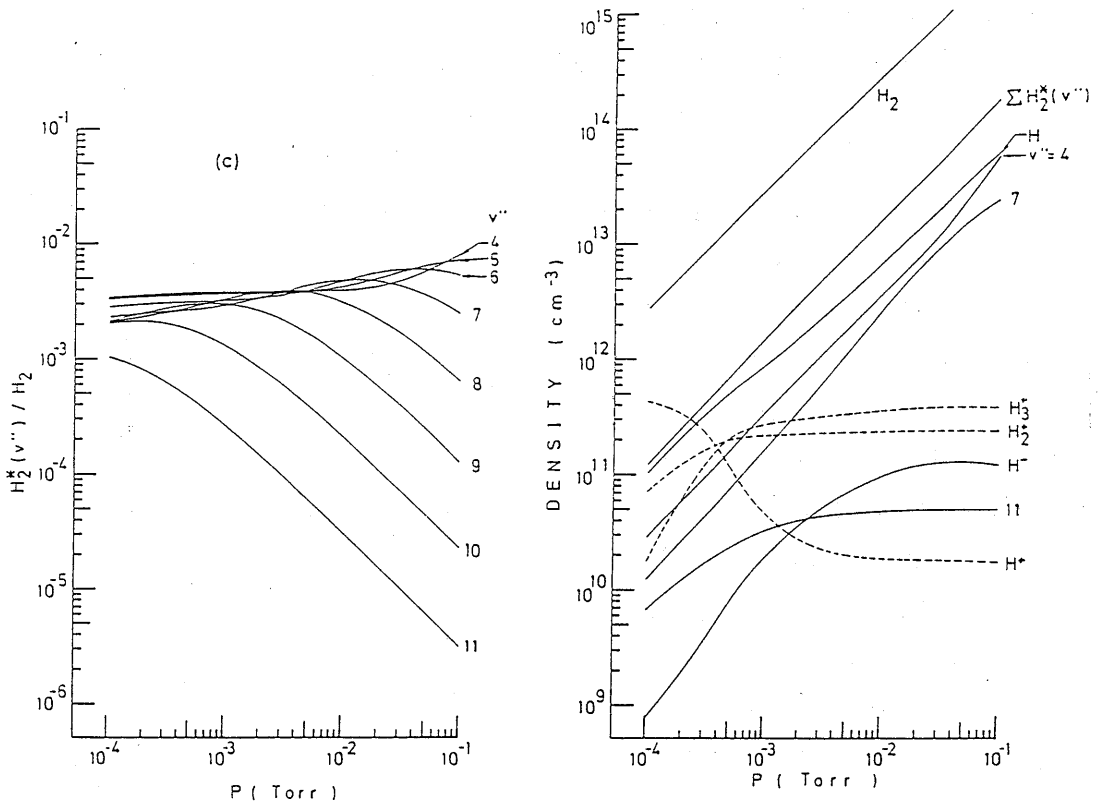


図6. H^- 生成の水素ガス圧依存性, 各粒子種密度の p 依存性を示す。ただし, $\tau_- / T_1 = 10$ 。数値計算の条件は $n_e = 5 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ を除いて図5の場合と同じ。

は p が高くなるに従って急激に低下している。しかも, H^- への付着確率 $\alpha_{12}(v'')$ の大きいもの, 即ち v'' の大きいものほどその傾向が強い。従って, p が低い領域では p とともに $H_2^*(v'')$ が増大することにより, H^- 密度は上昇する。しかし, p があまり高くなりすぎると $H_2^*(v'')$ の H_2 に対する比率は急激に減少し, 過程(24)の H_2 との衝突による H^- の消滅, 更に過程(27)の H_2 との衝突による $H_2^*(v'')$ の消滅などが $H_2^*(v'')$ による H^- 生成よりも優勢となり H^- 生成にとっての条件が悪くなる。そのため p のある領域で H^- 密度は最大となる。

図5の計算では $n_e = 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ としているが, n_e の違いが p 依存性にどのように影響するかを示す例として, $n_e = 5 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ とした場合の結果を図6に示す。 H^- が最適化される p の値は高くなり(4~5) $\times 10^{-2} \text{ Torr}$ となっている。 n_e が高くなるに伴って, H^- 生成に対する p の最適値が上昇する傾向は, バケツ型イオン源での実験で, アーク電流の増大に伴って H^- 電流に対する p の最適値が増大する傾向²⁾ と定性的にはよく一致している。

3. 2 高速電子の関与しない $H_2^*(v'')$ 生成過程の効果

図1, 2の結果から明らかなように, H^- 生成には $H_2^*(v'')$ が必要である。 $H_2^*(v'')$ 生成には過程(25)の e_f による衝突励起以外に, 分子イオンの中性化に伴って生成される場合や, H の再結合過程に伴って生成される場合が考えられる。

分子イオンの中性化とは, 過程(6), (22)及び壁にて H_3^+ から H_2 が生じる場合や, 過程(21), (26)の電荷交換反応, 及び壁にて H_2^+ から H_2 が生じる場合である。これら過程で発生した H_2 の中には, ある確率 (H_2^+ に対して p_2 , H_3^+ に対して p_3) で $H_2^*(v'')$ が見い出され, それが H^- 生成に寄与する。図6までの計算結果には, $p_2 = p_3 = 0.1$ として分子イオンの中性化に伴う効果を含めている。なお, この確率は0.3以上に達する場合もある^{27, 28)}。

分子イオンの中性化に伴う効果を調べるため, p_2 , p_3 を0.5まで変化させた場合の $H_2^*(v''=7)$, H^- 密度の n_e 依存性の変化の様子を図7に示す ($p_2 = p_3 = 0.1$ の場合の結果は, 図1, 2の $n_{fe}/n_e = 0.1$ の場合と同じものである)。 $n_e \approx 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ 付近で中性化に伴う効果を含めない場合の結果と比較すると, $p_2 = p_3 = 0.1$ で約35%, $p_2 = p_3 = 0.3$ では約100%, それぞれ H_2^* 生成, H^- 生成とも増大することがわかる。従って, この分子イオンの中性化の影響は無視できない。

ところで, ごく最近, 壁を介しての H から $H_2^*(v'')$ への変換が注目されている^{29, 30)}。報告によればフィラメント上での H_2 の熱解離による H 生成, H の壁への吸着, そこに新たに飛来した H と吸着された H との壁面での再結合という過程により $H_2^*(v'')$ が生成されるとしている。これは, Eley-Rideal 反応の一種である³¹⁾。イオン源に H_2 ガスを導入する際に, 放電容器への導入直前で熱解離させる工夫をすることにより, その H^- 生成量への影響を検討する試みもなされている^{32, 33)}。

このような H からの $H_2^*(v'')$ 生成の効果調べるため, 過程(23)による H_2 生成も含めた形で $\frac{1}{8} p_0$ ($\gamma_1 N_1 / T_1 + \alpha_{18} n_{-} N_1$) を $H_2^*(v'')$ の生成項として

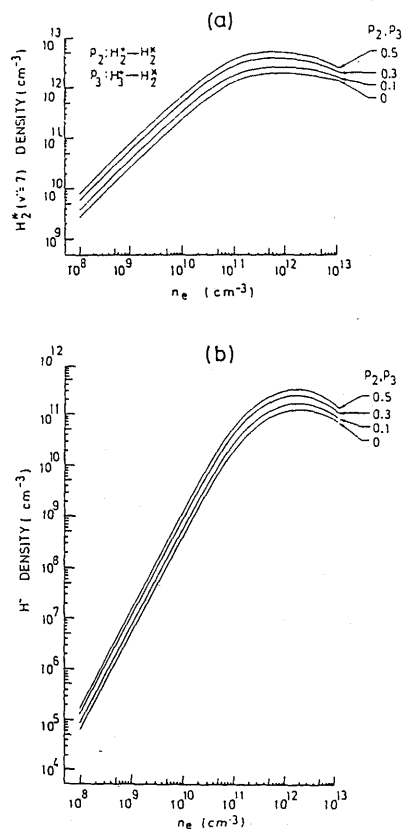


図7. 分子イオンの中性化に伴う H_2^* 生成の効果:
 (a) $H_2^*(v''=7)$ 密度の n_e 依存性,
 (b) H^- 密度の n_e 依存性。パラメータは H_2^* への変換の確率 p_2 並びに p_3 。
 数値計算の条件は $T_e = 2 \text{ eV}$, $p = 5 \times 10^{-3} \text{ Torr}$, $V/A = 5 \text{ cm}$, $E_{fe} = 40 \text{ eV}$, $n_{fe}/n_e = 0.1$, $\tau_- / T_1 = 10$, $\gamma_1 = 1.0$ として $\gamma_2 = 0.1$ 。

(30)式に加えた。 p_0 を0.5まで変化させた場合の $H_2^*(v''=7)$, H^- 密度の n_e 依存性の変化の様子を図8に示す。なお, 分子イオンの中性化による効果は, $p_2=p_3=0.1$ として含まれている。 $n_e \approx 10^{12} \text{cm}^{-3}$ 付近で, H による $H_2^*(v'')$ 生成の効果を含めない場合の結果と比較すると, $p_0=0.1$ で約35%, $p_0=0.3$ とすれば約115%, H_2^* 生成, H^- 生成とも増大することがわかる。従って, この H からの寄与も図7に示した分子イオンからの寄与と同様に無視できない。しかし, これら分子イオン, H からの $H_2^*(v'')$ 生成の効果は, e_f による $H_2^*(v'')$ 生成と競合するものではなく, e_f の存在は $H_2^*(v'')$ 生成にとって不可欠のものである。また, e_f の存在は分子イオン生成にとっても好都合であり³⁴⁾, e_f の衝突励起による $H_2^*(v'')$ 生成と分子イオンからの $H_2^*(v'')$ 生成はこの点からも互いに共存できる関係にある。

以上ここで述べた内容は e_f による衝突励起以外の $H_2^*(v'')$ 生成の効果についての議論であった。次節で述べるように磁気フィルター付のバケット型イオン源やシートプラズマ型イオン源などのように H^- 生成領域から e_f を除こうとする方式では, H^- 生成領域への $H_2^*(v'')$ の補給過程として重要と思われる。しかし, ここで議論した内容と関連すると思われる実験結果は, 壁の作用も含めて, 比較的低密度の範囲での報告が多い。本計算によると分子イオンの中性化に伴う $H_2^*(v'')$ 生成, H の再結合による $H_2^*(v'')$ 生成は n_e の低密度領域では壁を介して, また高密度領域では体積内での過程が主になっている。実機イオン源で対象となる高密度領域でこのような作用が期待できるかどうか, また如何に利用するか等については今後更に検討が必要である。また理論モデルもそれらの結果をもとにもっと精密化する必要がある。

3.3 H^- 生成の最適化

3.1に示した結果より, n_e の高密度領域における($n_e \sim 10^{12} \text{cm}^{-3}$) H^- 生成は, (25)と(16)の2段階過程によることがわかる。しかし, H^- 生成と $H_2^*(v'')$ 生成の最適条件は同じではない。 $H_2^*(v'')$ 生成

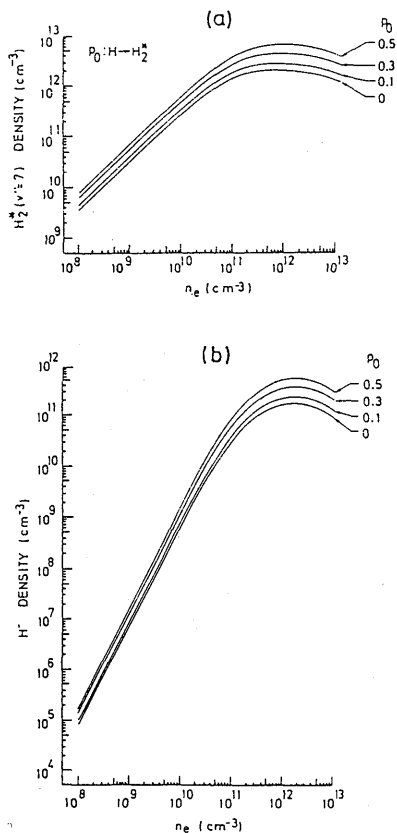


図8. H の再結合に伴う H_2^* 生成の効果:
(a) $H_2^*(v''=7)$ 密度の n_e 依存性,
(b) H^- 密度の n_e 依存性。パラメータは H_2^* への変換の確率 p_0 。
数値計算の条件は $p_2=p_3=0.1$ を除いて図7の場合と同じ。

過程である(25)の e_f のエネルギーは40eV以上が望ましいが⁸⁾, H^- 生成に関与する(16)の e は $T_e \sim 1$ eVのプラズマ電子が最も最適である。従って、(25)と(16)に最適な電子のエネルギー分布が大きく異なっている。現在、NBI用の負イオン源の開発では(25)と(16)の過程を空間的に分離して(Two Chamber System 又は Tandem System), それぞれの過程を最適化することにより H^- 生成効率を高める方針で研究が進められている。

また、 H^- 生成や正イオン種組成に大きく影響する $H_2^*(v^*)$ 並びに H の壁での反射係数が材質の違いによって異なるが、 H^- 生成に及ぼす壁材質の影響についても研究されている^{7, 8, 21-25)}。電子のエネルギー分布が上述のごとくに最適化されたとすれば、次に H^- 生成の高効率化を進めるうえで重要な検討課題と思う。

ところで、タンデム方式の妥当性や磁気フィルターの役割について理論的に研究されているが^{10, 35)}、この方式の有効性の解明はまだ十分ではない。ここでは、前節までのSingle Chamber System (単一容器方式)でのシミュレーション結果を参考にしながら、別の観点からタンデム方式による H^- 生成の最適化について考察する¹⁶⁾。

3.3.1. $H_2^*(v^*)$ から H^- への変換効率

簡単のため $H_2^*(v^*)$ として $v^*=7$ の一種のみが存在するものとすれば、(31)式より水素プラズマ中での H^- 生成に関する釣合いの式は次式となる(左辺が H^- 生成項, 右辺が H^- 損失項, N 並びに n は粒子密度)。

$$\begin{aligned} N_2 n_e \alpha_{11} + N_2^* n_e \alpha_{12}(v^*) + n_2 n_e \alpha_{13} \\ = n_- (n_e \alpha_{14} + n_{fe} \alpha_{f14} + n_1 \alpha_{15} + n_2 \alpha_{16} + n_3 \alpha_{17} + N_1 \alpha_{18} + N_2 \alpha_{19} + 1/\tau_-). \end{aligned} \quad (32)$$

左辺は順に H_2 , $H_2^*(v^*)$, H_2^+ と e の衝突による H^- 生成項を表す。右辺は順に e , e_f , H^+ , H_2^+ , H_3^+ , H , H_2 と H^- の衝突による H^- 消滅項, 右辺最後の項は H^- の壁での損失を表す。ここで反応率の大きな項のみを考慮して n_-/N_2^* について解くと次式が得られる。

$$\begin{aligned} \frac{n_-}{N_2^*} &= \frac{n_e \alpha_{12}(v^*)}{n_e \alpha_{14} + n_{fe} \alpha_{f14} + n_1 \alpha_{15} + n_2 \alpha_{16} + n_3 \alpha_{17} + N_1 \alpha_{18} + N_2 \alpha_{19} + 1/\tau_-} \\ &= \frac{\alpha_{12}(v^*)}{\alpha_{14} + \frac{n_{fe}}{n_e} \alpha_{f14} + \frac{n_1}{n_e} \alpha_{15} + \frac{n_2}{n_e} \alpha_{16} + \frac{n_3}{n_e} \alpha_{17} + \frac{N_1}{n_e} \alpha_{18} + \frac{N_2}{n_e} \alpha_{19} + 1/(n_e \tau_-)} \end{aligned} \quad (33)$$

これは H^- と $H_2^*(v^*)$ の密度比であるが、 $H_2^*(v^*)$ から H^- への変換効率とみなすことも出来る。(33)式から明らかなように、この比率は反応率 α (従って T_e), n_{fe}/n_e , 正イオン種組成比, H の閉じ込め時間 τ_- の関数となっている。

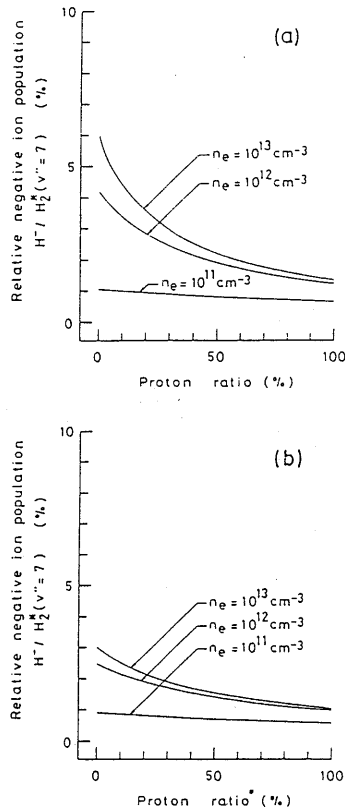


図9. 密度比 $H^- / H_2^* (v^n = 7)$ とプロトン比との関係: (a) $n_{fe} / n_e = 0$, (b) $n_{fe} / n_e = 0.1$. パラメータは n_e であり, (33) 式を計算するための他の条件は $T_e = 1 \text{ eV}, N_1 = 0, N_2 = 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ として $\tau_- / T_1 = 10$.

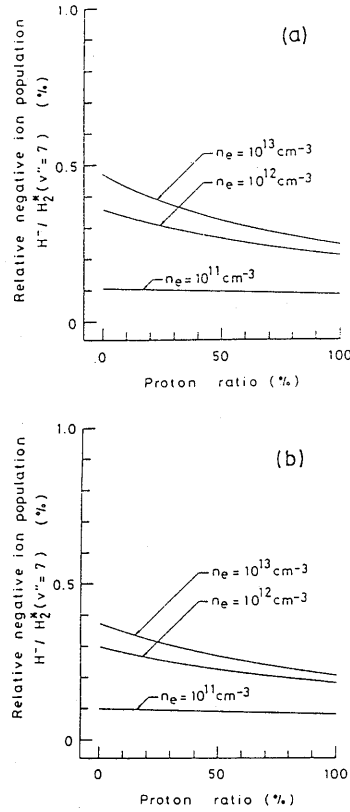


図10. 密度比 $H^- / H_2^* (v^n = 7)$ とプロトン比との関係: (a) $n_{fe} / n_e = 0$, (b) $n_{fe} / n_e = 0.1$. $T_e = 5 \text{ eV}$ を除き条件は図9の場合と同じ。

具体例として図9に $T_e = 1 \text{ eV}$ の場合, 図10に $T_e = 5 \text{ eV}$ の場合の n_- / N_2^* をプロトン比の関数として示す。但し, これらは数値計算の結果ではなく, 与えられた数値(プラズマパラメータ)を(33)式に代入して得たものである。図9, 10の結果を総合すると, $T_e = 1 \text{ eV}, n_{fe} / n_e = 0$, プロトン比=0の場合が最大で $n_- / N_2^* \approx 6\%$ となる(但し, $n_e = 10^{13} \text{ cm}^{-3}$)。この条件設定には e_f が零であると同時に H^+ も零という一見矛盾した点もあるが, とにかく $H_2^*(v^n)$ から H^- への変換効率が最大6%程度である, とこの結果を解釈することが出来る。

プロトン比の上昇と共に効率が低下するのは3.1節でも述べたが H^- と正イオン種との再結合消滅過程(20)-(22)の内, 過程(20)の α_{15} が一番大きいと見積ったためである。 α_{15} は α_{16} や α_{17} と同等という評価があるが^{28, 36, 37)}, その場合には効率はイオン種組成にはあまり強く依存せず, その値はプロトン比が

零の場合の値とはほぼ一致する。更に、タンデム方式にして第2チャンバーでの e_f を零に近付けると同時に T_e を1 eV程度にまで下げることが出来れば変換効率が最大となる条件設定は十分可能である。

なお、 n_e が低くなると効率が下がるのは H^- の壁への損失が相対的に大きくなることに起因している。

3. 3. 2 タンデム方式による H^- 生成の最適化

前節までに示した単一容器方式でのシミュレーション結果によれば^{8, 15)}、 $E_{fe} \geq 40$ eV, $n_{fe}/n_e \approx 0.1$, $T_e \approx 1$ eV, $n_e \approx 2 \times 10^{12}$ cm⁻³ (n_e の最適値は α_{15} の値に依存する) 付近で H^- 生成は最適化される。理論的に H^- 生成の最適化条件を見出すのが目的であれば、これで議論は尽されている。しかし、同一放電容器内で e_f を大量に含み、かつ $T_e \approx 1$ eV となるプラズマの生成は実際にはそう簡単なことではない。そこで、磁気フィルターを装備して放電空間を二分し(タンデム方式)、 H^- 生成を最適化することが常識となっている。ここでは、このようなタンデム方式による H^- 生成と単一容器方式による H^- 生成とを比較してみる。

図11にシミュレーションモデルの概略図を示す。一辺が $L = 30$ cm の立方体を考え、それを二分してタンデム化する。単一容器方式の場合の計算は $L = 30$ cm の立方体で行う。第2チャンバーでの H^- 生成の最適化を検討することになるが、考え方として第1チャンバーで求めた $H_2^*(v^*)$ を第2チャンバー入口での初期値境界値とする方法¹⁰⁾、第1チャンバーと第2チャンバー間での粒子の移動を考慮したレート方程式を連立させる方法³⁵⁾の2つがある。前者では H^- 生成の第2チャンバー入口からの距離依存性を手際よく求められるという利点はあるが、 H^- 以外の粒子種はある値に固定されたままであり、self-consistent な解にはなっていない。一方、後者では第1チャンバー、第2チャンバー内の各粒子種を self-consistent に求められる。ただ、 H^- 密度は第2チャンバー内の平均値として求まるので、 H^- 生成の距離依存性を直接得ることは出来ない。この点は改善の余地があるが、タンデム方式の有効性を議論するには十分と思う。ここでは、前節まで用いていたモデルの直接的拡張である後者の方法をとる。

引き出し電流の大きさを決める第2チャンバーの H^- 密度、 $H^-(2)$ 、を左右するパラメータには密度比 $n_e(2)/n_e(1)$ 、 $n_{fe}(1)/n_e(1)$ 、 $n_{fe}(2)/n_e(2)$ 、磁気フィルターの位置 ($L_1:L_2$)、 $T_e(1)$ 、 $T_e(2)$ 等がある(数字の1, 2はそれぞれ第1チャンバー、第2チャンバーの量であることを示す)。

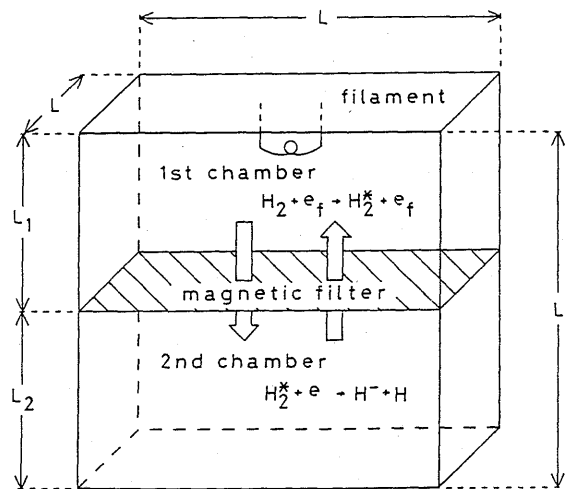


図11. タンデム方式のシミュレーションのためのモデル図。

$H^-(2)$ の各パラメータ依存性の詳細は別稿に譲り^{16, 38)}、ここではタンデム方式の有効性を表していると思われる結果の1例を図12に示す。タンデム方式での $H^-(2)$ と単一容器方式での H^- の比率を n_e の関数として示したものであるが、比が1以上であればタンデム方式の方が有効とみなせる。なお、パラメータは単一容器方式での T_e である。現実のバケット型イオン源で高密度領域を考えると第1チャンバーの T_e は3~5 eV程度になっている³³⁾。このことを参考にすると、実用的なパラメータ範囲のイオン源を単一容器方式で構成すれば $T_e(S) = 3 \sim 5$ eVを想定する必要がある。その場合の H^- 生成は

図から明らかなように、 n_e の全域にわたってタンデム方式がはるかに有効であることがわかる。

上記結果は正イオン種として H^+ 、 H_2^+ 、 H_3^+ のすべてを考慮したモデルによる計算結果である。高密度領域($n_e \geq 10^{12} \text{ cm}^{-3}$)では、正イオン種組成は H^+ が主要となるので、 H^+ のみを考慮したモデルでも比較的良い近似となることも予想される³⁵⁾。しかし、 H^+ のみを考慮したモデルでも比較計算を行ってみたが、ある種のパラメータに関しては分子イオンの有無により $H^-(2)$ のパラメータ依存性が大きく変わる。また、数値計算に用いる方程式系には準中性の条件並びに粒子数保存の条件を含めることが是非とも必要である。

4. おわりに

定常状態の水素プラズマ中の粒子組成をレート方程式の数値計算によって求め、 $H_2^*(v^*)$ と H^- との関係について検討した。以下に結果を要約する。

(1) $H_2^*(v^*)$ 生成、 H^- 生成の n_e 依存性を n_e の広い範囲($10^8 \leq n_e \leq 10^{13} \text{ cm}^{-3}$)にわたって求めた。そ

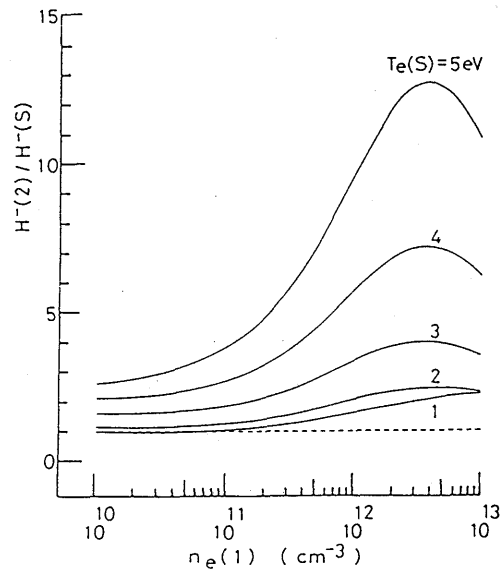


図12. タンデム方式と単一容器方式との比較、密度比 $H^-(2)/H^-(S)$ の n_e 依存性。 $H^-(2)$ 並びに $H^-(S)$ はそれぞれタンデム方式、単一容器方式での H^- 密度を示す。パラメータは単一容器方式における T_e 。

数値計算の条件はタンデム方式の場合：
 $p = 5 \times 10^{-3} \text{ Torr}$, $L_1:L_2 = 28:2 \text{ cm}$,
 $E_{fe} = 40 \text{ eV}$, $T_e(1) = 5 \text{ eV}$, $T_e(2) = 1 \text{ eV}$, $n_e(2)/n_e(1) = 1.0$, $n_{fe}(1)/n_e(1) = 0.1$ そして $n_{fe}(2)/n_e(2) = 0$ 。
 一方、単一容器方式の場合は、 $p = 5 \times 10^{-3} \text{ Torr}$, $E_{fe} = 40 \text{ eV}$ そして $n_{fe}/n_e = 0.1$ 。

その結果, n_e の高密度領域 ($n_e \geq 10^{11} \text{ cm}^{-3}$) における H^- 生成は $H_2 + e_f$ (40 eV 以上) $\rightarrow H_2^*(v'')$ + e_f : $H_2^*(v'')$ (最適な $v'' = 7 \sim 9$) + $e \rightarrow H^- + H$ の 2 段階過程によって殆ど決まる。

- (2) $H_2^*(v'') + e \rightarrow H^- + H$ の過程に必要となる e は $T_e \simeq 1 \text{ eV}$ 程度のプラズマ電子が最適である。
- (3) 分子イオンの中性化, H の再結合過程に伴う $H_2^*(v'')$ 生成は, H^- 生成にかなり影響する。これらの過程による $H_2^*(v'')$ 生成の確率を 0.3 とすると, e_f による $H_2^*(v'')$ 生成のみの場合に比較して $H_2^*(v'')$ 密度は約 2 倍となり, H^- 密度も同程度増大する (影響が最も強く現われる $n_e \simeq 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ 付近で比較)。
- (4) H^- に対する生成・消滅の釣合の式を用いて, $H_2^*(v'')$ から H^- への変換効率について検討した。その結果, $n_e = 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ とすると $T_e \simeq 1 \text{ eV}$, $n_{fe}/n_e = 0$, プロトン比 = 0 の場合に $n_{H^-}/N_{H_2}(v'')$ は最大となり約 6% であった。
- (5) H^- 生成の最適条件, $E_{fe} \geq 40 \text{ eV}$, $n_{fe}/n_e \simeq 0.1$, $T_e \simeq 1 \text{ eV}$ を満たすプラズマの生成がタンデム化することにより容易であることを議論した。更に, タンデム方式での H^- 生成についてもシミュレーションを行い, H^- 生成効率が単一容器方式に比較して高くなり得ることを示した。

なお, タンデム方式による H^- 生成最適化と電子密度比や磁気フィルター位置との関係については稿を改めて議論する予定である³⁸⁾。

謝 辞

本研究に対して御激励いただいた山口大学名誉教授の佐伯節夫先生 (現九州共立大学) に深謝の意を表わす。また, 白竹 茂氏 (現三菱電機) には数値計算, 図の作成等本研究に対して御協力いただいた。更に, J. R. Hiskes 博士 (米国, カリフォルニア大学, LLNL) と M. Bacal 博士 (仏国, エコールポリテク) にはモデリング並びに反応過程 (20)–(22) の反応率について有益なコメントをいただいた。ここにこれらの方々に深く感謝する。

本研究の数値計算は山口大学情報処理センターの ACOS-850 により行った。なお, 本研究の一部は文部省科学研究費の援助を受け, 名古屋大学プラズマ研究所との共同研究の一環としても行われた。

参 考 文 献

- 1) K. Jimbo: *Kakuyugo Kenkyu* 55 (1986) 311.
- 2) Y. Okumura: *Proc. 11th Symp. on ISIA T'87* (1987), P. 267.
- 3) J. R. Hiskes and A. M. Karo: *J. Appl. Phys.* 56 (1984) 1927.
- 4) C. Gorse, M. Capitelli, J. Bretagne and M. Bacal: *Chem. Phys.* 93 (1985) 1.
- 5) O. Fukumasa and S. Saeki: *J. Phys. D: Appl. Phys.* 18 (1985) L21.
- 6) 福政 修, 佐伯節夫: *核融合研究* 55 (1986) 189.
- 7) 福政 修, 佐伯節夫: *核融合研究* 56 (1986) 409.
- 8) O. Fukumasa, S. Saeki and S. Shiratake: *Research Report IPPJ-853* (1987), Institute of Plasma Physics, Nagoya University.

- 9) K. N. Leung, K. W. Ehlers and R. V. Pyle : *Rev. Sci. Instrum.* **56** (1985) 364.
- 10) J. R. Hiskes, A. M. Karo and P. A. Willmann : *J. Appl. Phys.* **18** (1985) 2433.
- 11) J. Uramoto : Research Report IPPJ-760 (1986), Institute of Plasma Physics, Nagoya University.
- 12) J. Uramoto : Research Report IPPJ-835 (1987), Institute of Plasma Physics, Nagoya University.
- 13) K. N. Leung and W. B. Kunkel : *Phys. Rev. Lett.* **59** (1987) 787.
- 14) T. Inoue, M. Araki, M. Hanada, T. Kurashima, S. Matsuda, Y. Matsuda, Y. Ohana, Y. Okumura, S. Tanaka, and K. Watanabe : *7th Int'l. Conf. Ion Implantation Technology-II T'88* (June 7-10, 1988, Kyoto), ap-2.
- 15) 福政 修, 佐伯節夫, 白竹 茂, 水野仁志 : 電気学会プラズマ研究会資料 EP-87-74 (1987).
- 16) O. Fukumasa, S. Saeki and S. Shiratake : *7th Int'l. Conf. Ion Implantation Technology-II T'88* (June 7-10, 1988, Kyoto), ap-22.
- 17) B. J. Wood and H. Wise : *J. Phys. Chem.* **65** (1961) 1976.
- 18) O. Fukumasa, R. Itatani, S. Saeki, K. Osaki, and S. Sakiyama : *Phys. Lett.* **100 A** (1984) 186.
- 19) G. Black, H. Wise, S. Schechter and R. L. Sharpless : *J. Chem. Phys.* **60** (1974) 3526.
- 20) A. M. Karo, J. R. Hiskes and R. J. Hardy : *J. Vac. Sci. Technol.* **A3** (1985) 1222.
- 21) W. G. Graham : *J. Phys. D : Appl. Phys.* **16** (1983) 1907.
- 22) K. N. Leung, K. W. Ehlers and R. V. Pyle : *Appl. Phys. Lett.* **47** (1985) 227.
- 23) O. Fukumasa, R. Itatani and S. Saeki : *J. Phys. D : Appl. Phys.* **18** (1985) 2433.
- 24) O. Fukumasa and S. Saeki : *J. Phys. D : Appl. Phys.* **20** (1987) 237.
- 25) O. Fukumasa, S. Saeki and S. Shiratake : *7th Int'l. Conf. Ion Implantation Technology-IIT'88* (June 7-10, 1988, Kyoto), ap-21.
- 26) J. M. Wadehra : *Appl. Phys. Lett.* **35** (1979) 917.
- 27) J. R. Hiskes and A. M. Karo : *Proc. 3rd Int'l. Symp. Production and Neutralization of Negative Ions and Beams* (Brookhaven, 1983), P.125.
- 28) J. R. Hiskes : private communication.
- 29) R. I. Hall, I. Cadez, M. Landau, F. Pichou and C. Schermann : *Phys. Rev. Lett.* **60** (1988) 337.
- 30) P. J. Eenshuistra, J. H. M. Bonnie, J. Los and H. J. Hopman : *Phys. Rev. Lett.* **60** (1988) 341.
- 31) B. Kasimo and B. I. Lundquist : *Comments At. Mol. Phys.* **14** (1984) 229.
- 32) K. N. Leung : private communication.
- 33) Y. Okumura : private communication.
- 34) O. Fukumasa : in preparation.
- 35) M. Ohmatsu, K. Shimura and M. Ogasawara : *Proc. 11th Symp. on ISIA T'87* (1987), P.183.
- 36) M. Bacal : private communication.
- 37) D. Fussen and C. Kubach : *J. Phys. B : At. Mol. Phys.* **19** (1986) L31.
- 38) O. Fukumasa : in preparation.
- 39) M. P. S. Nightingale, A. J. T. Holmes and J. D. Johnson : *Rev. Sci. Instrum.* **57** (1986) 2396.