

小特集 原子・分子過程によって支配されるプラズマの複雑性と構造形成

6. 原子・分子過程を含むプラズマの理論・シミュレーションモデル

6.1 放電・雷における原子・分子過程のモデル化

加藤 進, 高橋栄一, 佐々木明¹⁾, 岸本泰明²⁾

産業技術総合研究所, ¹⁾日本原子力研究開発機構, ²⁾京都大学エネルギー科学研究科

(原稿受付: 2008年7月14日)

原子・分子過程をモデル化する目的は、力学系としての巨視的なプラズマ挙動の決定と状態の観測の2つに大別できる。大気圧下での分枝構造を持ったストリーマ放電を中心に巨視的なプラズマ挙動の決定するために用いられている標準的な連続体モデルと巨視的な輸送係数における原子・分子過程のモデル化の役割とその手法を述べる。特に、初期電子生成に重要となる光電離過程について詳しく論じる。最後に分枝構造を取り扱う手法を述べる。

Keywords:

branching structure, nonthermal plasma, electron collisional process, photoionization, chemical reaction, electron distribution function, kinetic model

6.1.1 はじめに

放電・雷は、身近な物理現象であり、素朴な興味が尽きない対象である。また、関与している基礎過程は無数に存在し、重要となる過程はその対象によって異なっている。このため、その数値計算を行うためのモデルは千差万別である[1]。放電・雷は絶縁破壊、すなわち中性粒子が荷電粒子に変化することであり、その始まりに原子・分子過程が強く関与していることは明らかであり、放電・雷の構造の起源を原子・分子過程に求めることは自然な流れである。そのため、原子・分子過程に基づくモデルとそのシミュレーションにより、その起源を探る試みが始められている。

放電プラズマの多くでは、空間的に一様なプラズマあるいは装置レベルでの境界条件に依存した空間変化が十分小さいプラズマが対象であった。特に気体レーザー装置では、励起種を空間的に一様かつ効率良く生成することが主要課題であった[2]。このとき対象は、空間的には局所平衡が成立していると仮定することができる。背景ガス温度およびイオン温度に比べて電子温度が高い、熱緩和が不十分な電離度が低い弱電離プラズマである。流体方程式等の巨視的な方程式とその輸送係数によって、その発展が記述できるとの仮定に基づくモデルを用いた解析が行われている。ここで温度と書いているが、必ずしもそれぞれが個別に熱平衡状態でマクスウェル分布から温度が定義できていくわけではない。むしろ、その分布関数と輸送係数を決定することが重要な課題である[3]。流体理論が適用できるためには、局所的には熱平衡状態（または、それに近い準

平衡状態）でなければならない。そのためには、粒子間の衝突によって状態が平均化され、密度、温度といった巨視的な物理量が定義できなければならない。巨視的な構造の空間的な変化の尺度 L_s と粒子の平均自由行程 ℓ_{mfp} には、 $L_s \geq \ell_{mfp}$ という関係が成り立たなければならない。この比 ($K_n = \ell_{mfp}/L_s$) をクヌーセン数という。大気圧プラズマの平均自由行程を見積もる。温度・圧力を 300 K・1 気圧とすると、粒子密度は 2.5×10^{19} 個 cm^{-3} 程度である。電子の衝突断面積は、原子・分子の種類により違いがあるが、エネルギーが数十 eV までの範囲では、おおよそ $10^{-16} - 10^{-15}$ cm^2 であるので、平均自由行程は、0.5–5 μm 程度となり、通常の装置サイズから比べると十分小さい。

最近、針電極から分枝を伴うストリーマコロナ放電等の大気圧非平衡プラズマは注目を集めている[4]。このようなストリーマでは、その先端部分の電場強度 E と分子数密度 N の比 E/N が数百 Td (1 Td = 10^{-17} V·cm²) タウンゼントにもなると考えられている。ただし、ストリーマの構造やそのパラメータは必ずしもすべてが明らかにされているわけではないので、工学モデルによる説明が多く用いられてきた[5]。一方、原子・分子過程に基づく巨視的モデルからこのような分枝を説明するモデルが望まれている[6]。

放電シミュレーションのための原子・分子過程のモデル化とその手法の位置づけを図1に示す。横軸に放電の時空間構造に関する種電子、なだれ、ストリーマを、縦軸に素過程である原子・分子過程、微視的なボルツマン方程式、巨視的な連続体モデル等の物理階層を配置したが、厳密な境界があるわけではなく複雑に絡み合っている。分枝構造

6. Theory and Simulation Models Including Atomic and Molecular Process

6.1 Numerical Modeling of Atomic-Molecule Processes for Discharge and Lighting

KATO Susumu, TAKAHASHI Eiichi, SASAKI Akira and KISHIMOTO Yasuaki

corresponding author's e-mail: s.kato@aist.go.jp

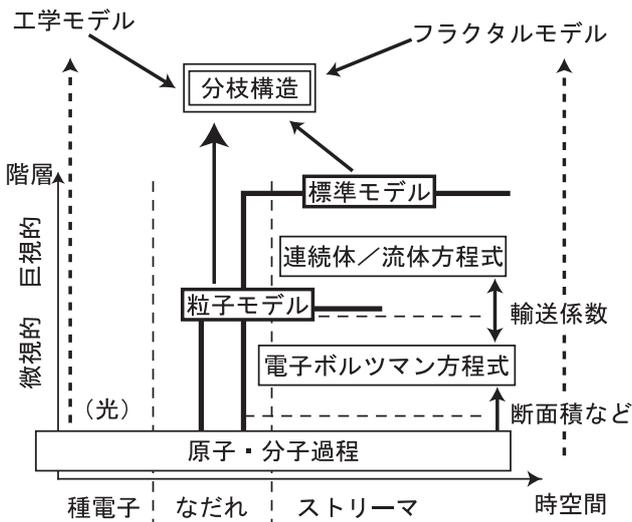


図1 放電モデルの概念図.

ヘアアプローチする手法には工学的モデル、標準モデル、粒子モデル、フラクタルモデル等が考えられている。原子・分子過程、電子ボルツマンモデル、連続体/流体モデルで構成される手法をここでは標準モデルと呼ぶ。この標準モデルは、ストリーマのシミュレーションで広く使われている[4]。標準モデルにおける巨視的な輸送係数と微視的な電子分布および原子・分子過程の関係を示し、放電における原子・分子過程のモデル化の現状を述べる。

本節は、以下で構成される。6.1.2節では、モデルに共通する大気圧非平衡プラズマに関する原子・分子過程を列挙する。6.1.3節では、輸送過程の方程式である電子ボルツマンモデル、連続体モデルおよび原子・分子過程のモデル化について述べる。特に、ストリーマ進展および分枝構造の形成で重要となると考えられる初期電子の形成機構としての光電離過程について6.1.4節で詳しく議論する。まとめにおいて、構造等のシミュレーションについて、現状を簡単に述べる。

6.1.2 原子・分子過程

原子・分子過程は、相互作用に関する粒子の始状態の種類によって、電子衝突、原子・分子衝突、光過程の3つに大別される。プラズマの特性の多くは、電子の密度および速度分布によって決定される。微視的なボルツマン方程式との関係が明確になるように、電子の生成・消滅及び運動量変化に関する過程を中心に記述する[7, 8]。

これ以降、原子と分子を区別する必要がない場合は、原子・分子を原子(X)で代表し、分子特有の場合は分子(AB)で表す。それぞれの励起状態を X^{exc} , AB^{exc} , 電離状態を X^+ , AB^+ で表す。原子の励起状態は電子状態のみを考えれば十分であるが、分子には電子状態に加えて、振動状態、回転状態の3つの励起状態が存在する。水素原子以外には多価(電離)イオンが存在するが、弱電離非平衡プラズマでは、多価イオンが系の振る舞いに影響を与えることは少ないので、ここでは議論しない。

(1) 電子衝突

自由電子と原子・分子あるいはそのイオンとの衝突は、衝突の前後で粒子の相対運動のエネルギーが変化しない弾性衝突と内部状態の変化に使用される非弾性衝突に大別される。非弾性衝突は、相対運動のエネルギーが内部エネルギーに変換される衝突を第一種の衝突、反対に内部エネルギーが相対運動のエネルギーに変換される衝突を第二種の衝突(超弾性衝突(superelastic collision)とも呼ばれる)に大別される。非弾性衝突は、自由電子数が変化しない励起、脱励起(分子では、解離、イオン対生成が加わる)と自由電子数が変化する電離、付着および再結合に分類することもできる。

(i) 弾性衝突

低エネルギー領域では、弾性衝突の断面積は非弾性衝突の断面積に比べて大きいので、電子の平均自由行程を決定している。反応式で書くと以下のように書ける。



電子同士の衝突では、エネルギーの移行が効率よく起こり、電子を平衡分布(マクスウェル分布)へ近づける効果として働く。電子同士の弾性衝突はモデル化では別に扱われることが多い。

(ii) 非弾性衝突

(ii)-1 自由電子数が変化しない衝突

原子を基底状態(あるいは励起状態)から内部エネルギーが高い励起状態へ励起する衝突で、その反応式は、



と書ける。ここで、 $e^-(high)$ と $e^-(low)$ は電子のエネルギーが反応の前後での相対的な値を表し、そのエネルギー差は励起エネルギーを表す。分子の場合はこれらに加えて、解離およびイオン対生成がある。



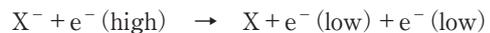
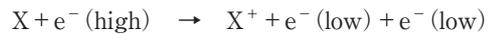
第2種の衝突では、内部エネルギーが電子に移行するため、電子のエネルギーは増加する。



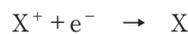
原子状態の変化からみると、第2種の衝突は脱励起過程に対応している。

(ii)-2 自由電子数が変化する衝突

電子数が増加する生成過程には、電離過程と負イオンからの脱離過程の2つがある。

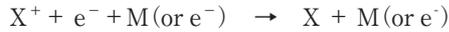


電子数が減少する消滅過程には、空間的な電荷が消滅する再結合と負イオンが生成される付着過程の2つがある。





再結合には、放射性再結合、2電子性再結合、3体再結合、分子イオンでは、解離性再結合がある。

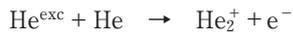


X^{**} は2重励起状態、Mは背景原子等を表す。

(2) 原子・分子衝突

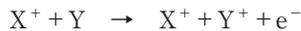
ケミ・イオン化、イオン衝突電離、電荷交換、正イオン・負イオン再結合、化学反応等がある。その中で、電子の生成消滅に関与する過程は、ケミ・イオン化、イオン衝突電離である。

ケミ・イオン化とは、原子・分子の励起状態（準安定状態であることが多い）のエネルギーが他の原子・分子へ移行することによる電離過程で、励起原子が持っている励起エネルギーが電離エネルギーより大きい場合に起こる。例えば、以下のような反応が考えられる。



分子イオンを生成する2番目の反応は結合性電離と呼ばれる。3番目の反応のように異種粒子間場合をペニング(Penning)電離と呼ぶ。放電開始電圧は準安定原子による電離過程によって著しく低下する。

その他の電子数が増加する生成過程には、負イオンからの脱離過程とイオン衝突電離の2つがある。

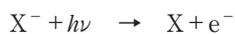


(3) 光

原子・分子は状態間の遷移に伴い光を放出または吸収する。高温プラズマでは、自由電子による制動輻射も重要な放射源となる場合があり、自由電子はエネルギーを失う。自由電子を生成する過程として、光電離と光離脱がある。



n は光子数。光電離は、波長 λ [nm] $<1240/(\text{イオン化エネルギー}[\text{eV}])$ を満足するような光子で起こり、紫外光から極端紫外光では重要となる。レーザー光のように光強度が強い場合は、多光子過程あるいはトンネル電離が重要となる。光離脱は負イオンの電子親和力よりも光子のエネルギーが高い場合に起こる。



酸素分子の電子親和力は0.44 eVで、可視光で電子は離脱する。

(4) 微粒子（塵、クラスター、霰など）、壁

大気中に存在する大気イオンは、分子がイオン化した小イオン（正・負イオン）と、小イオンが塵などの微粒子に付着した中イオン（分子2000個程度）、大イオン（分子数万個程度）に分類される。実在の雷を原子分子過程からモデル化するためには、中イオン、大イオンのような大気イオンを含む形で行う必要があるが、以降では大気イオンについては述べない。プラズマと物質表面の反応も広い意味では原子・分子過程であり、プロセスプラズマでは重要な反応である。

6.1.3 輸送過程と原子・分子過程のモデル化

速度空間と実空間における輸送過程を巨視的な連続体の方程式と微視的なボルツマン方程式で記述できるものとす。

(1) 連続体の方程式

標準モデルでは、電磁場や粒子密度等の巨視的な量の発展は、連続体方程式で記述できると仮定する。ここでは、簡単のため、連続の式とポアソン方程式

$$\frac{\partial n_j(\mathbf{x}, t)}{\partial t} + \nabla \cdot \Gamma_j(\mathbf{x}, t) = S_j(\mathbf{x}, t) \quad (1)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{E}(\mathbf{x}, t) = 4\pi\rho(\mathbf{x}, t) \quad (2)$$

を考える[4]。ここで、 $n_j(\mathbf{x}, t)$ は電子、イオン等の粒子数密度、 $\Gamma_j(\mathbf{x}, t)$ は粒子流密度、 $S_j(\mathbf{x}, t)$ は粒子の生成消滅項、 $\mathbf{E}(\mathbf{x}, t)$ は電場強度、 $\rho(\mathbf{x}, t)$ は電荷密度を表す。通常 $\Gamma_j(\mathbf{x}, t)$ は電場によるドリフト速度 v_{dj} と拡散係数 D_j を用いて表される。

$$\Gamma_j(\mathbf{x}, t) = v_{dj}(\mathbf{x}, t)n_j(\mathbf{x}, t) - \nabla[D_j(\mathbf{x}, t)n_j(\mathbf{x}, t)]. \quad (3)$$

巨視的な方程式は、ドリフト速度、拡散係数および生成消滅項が与えられれば、解くことができ、巨視的な放電プラズマの時間・空間発展を決定できる。これらの輸送係数は、一般には、原子・分子種などに依存し、電場などの巨視的な量の関数でもあり、原子・分子過程と電子分布のモデルや実験から求められる。

次に、原子・分子過程のモデル化と電子の微視的な運動論モデルであるボルツマン方程式と輸送係数の関係について述べる。

(2) 原子・分子過程のモデル化

ボルツマン方程式では衝突項の中で原子・分子過程をモデル化するため、第一原理より与えられる断面積等の基礎データが必要となる。原子・分子衝突は、量子力学における散乱理論の中心的課題であり、要素分解された個別過程に関する基礎データは、原理的には、理論計算やシミュレーションから決定できるはずである。実際には、ビーム法やスオーム法などの実験と解析モデルから求めた値を利用することが多く、その値には大小の差はあるが不確定性を含んでいる。

ある原子に対する電子の衝突を考えた場合、全断面積がわかっているならば、電子の衝突後の運動は決定される。非弾性衝突の場合は、前節で述べたように衝突の種類によって

原子の内部状態が変化する。このため、放電中の原子の状態を特定するためには衝突の種類を特定した部分断面積が必要となる。衝突では、入射粒子の散乱方向によって異なる微分断面積が与えられるが、微分断面積を全立体角で積分した断面積が多くの場合利用されている。基底状態にある原子に対する全断面積は、比較的多くの場合について調べられている。部分断面積については、比較的詳しく調べられている原子や分子もあるが、キセノンなどの数多くの準位が複雑に存在する原子や分子などについては、モデル化が必要となる場合も多くある。衝突過程の詳細については述べないが、例として、アルゴン原子と窒素分子の電子に対する衝突断面積を図2に示す[9,10]。一方、励起状態との衝突断面積については、詳しく調べられていないものが多い。通常、励起状態はナノ秒程度の寿命で、光を放出して下準位へ遷移する。励起状態への個別の部分断面積や励起状態との衝突断面積が重要でない場合も多いが、すべての場合でそうであるとは限らない。特に、光学的遷移が非常に小さい確率でしか起こらない準位にある原子(分子)を準安定原子(分子)と呼び、多くの場合は基底状態にある原子(分子)と区別してモデル化する必要がある。

電離過程の場合、エネルギー分布や角度分布を持った二次電子が発生する[11]。通常は、簡単化のためのモデル化を行うことが多い。

脱励起過程などの励起過程の逆過程の断面積は、詳細釣り合いの原理を仮定することにより求めることが多い。ただし、実験的に基底状態から準安定状態への断面積が求まっている場合などは、その断面積には他の状態を経由した値も加えられている場合があるため、基底状態から準安定状態への直接に遷移する部分断面積を用いる必要がある。

(3) 電子ボルツマン方程式

電子の微視的な運動は、電子分布関数の位相空間でのボルツマン方程式

$$\frac{\partial f}{\partial t} + \mathbf{v} \cdot \frac{\partial f}{\partial \mathbf{x}} + \frac{\mathbf{F}}{m} \cdot \frac{\partial f}{\partial \mathbf{v}} = \left(\frac{\partial f}{\partial t} \right)_{\text{coll}} \quad (4)$$

で記述されると仮定する。ここで、 $(\partial f / \partial t)_{\text{coll}}$ は衝突項を表し、電子の原子・分子との衝突過程によって決定される。完全電離高温プラズマでは、衝突を無視することが可能($(\partial f / \partial t)_{\text{coll}} = 0$)で、上式はブラソフ(Vlasov)方程式と呼ばれる。ブラソフ方程式とマクスウェル方程式を連立して解くことにより、レーザープラズマ相互作用のシミュレーションが行われている[12]。PIC(Particle-in-Cell)法は、原理的にはブラソフ方程式と同じ物理を含んでおり、運動論的効果が重要となる場合に両手法ともよく用いられる。

原理的には、(4)式を全位相空間の関数として解くことにより、電子分布の時間発展は求まる。巨視的な物理量との関係を決定するためには、(4)式を力 \mathbf{F} となす角度 θ でルジャンドル多項式

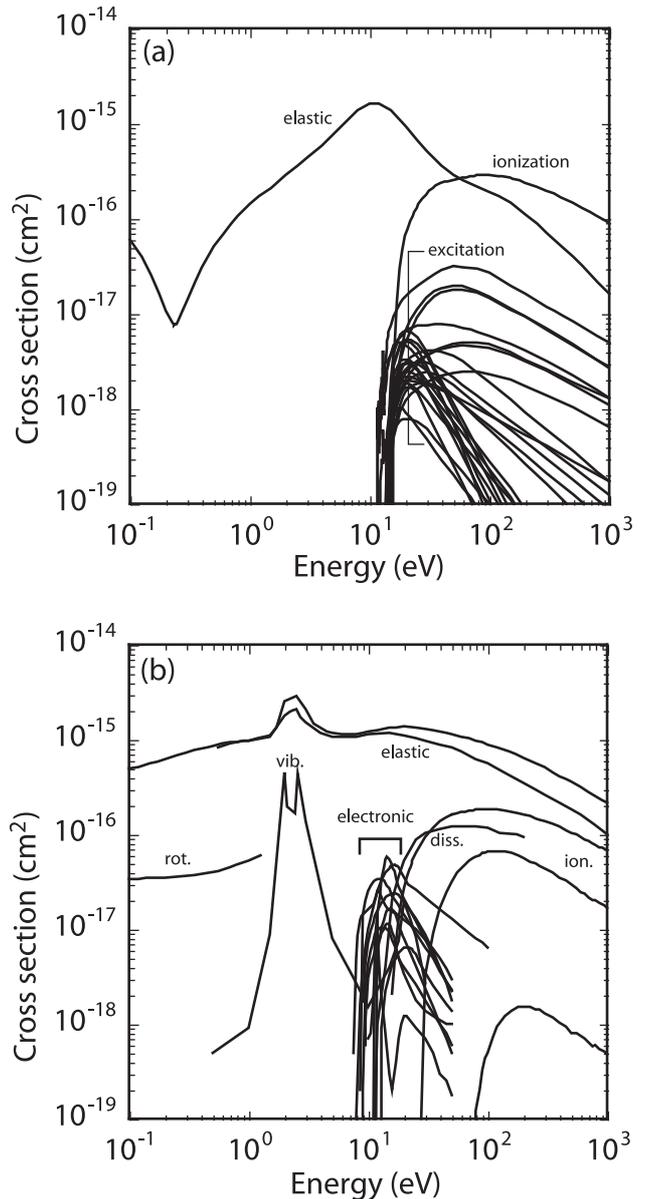


図2 電子衝突による断面積。(a)アルゴン原子[9]。(b)窒素分子[10]。

$$f(\epsilon, \theta, t) = \sum_n P_n(\cos \theta) F_n(\epsilon, t) \approx F_0(\epsilon, t) + F_1(\epsilon, t) \cos \theta \quad (5)$$

で展開し、最初の2項による近似がよく用いられる。ここでは、平均自由行程が空間変化に比べて十分短いと仮定して、分布関数の空間依存性は無視する局所近似を用いている。速度の大きさ v をエネルギー ϵ で表している。

電子の分布関数 F_0 は、

$$-\frac{\gamma}{3} \frac{\partial}{\partial \epsilon} \left[\left(\frac{E}{N} \right)^2 \frac{\epsilon}{\sigma_m} \frac{\partial F_0}{\partial \epsilon} \right] = \sum_k (C_k^{\text{el}} + C_k^{\text{exc}} + C_k^{\text{de-exc}} + C_k^{\text{ion}} + C_k^{\text{attach}}) + C^{e-e} + R \quad (6)$$

で決定される。ここで、 N は全原子・分子数密度、 σ_m は全

運動量移行断面積, C_k^{el} , C_k^{exc} , C_k^{de-exc} , C_k^{ion} , C_k^{attach} は, 弾性衝突, 励起, 脱励起, 電離, 付着 (再結合) の衝突項, C^{e-e} は電子-電子衝突, R は光電離等の電子が関与しない過程からの寄与を表す. k は構成している原子・分子のすべての状態についての和を意味する. 状態によってはすべての衝突過程は存在しない. また, 電子生成消滅過程の確率はその他の過程より小さいと仮定した. それぞれの衝突断面積を $\sigma_k(\epsilon)$ で表すと, 係数は以下の形式で記述できる.

$$\sigma_m = \sum_k x_k \sigma_k(\epsilon)$$

$$C_k^{el} = \gamma x_k \frac{2m}{M_k} \frac{\partial}{\partial \epsilon} \left[\epsilon^2 \sigma_k^{el}(\epsilon) \left(V_0 + \frac{k_B T}{e} \frac{\partial F_0}{\partial \epsilon} \right) \right]$$

$$C_k^{exc} = -\gamma x_k \left[\epsilon \sigma_k(\epsilon) F_0(\epsilon) - (\epsilon + u_k) \sigma_k(\epsilon + u_k) F_0(\epsilon + u_k) \right]$$

$$C_k^{de-exc} = -\gamma x_k \left[\epsilon \sigma_k(\epsilon) F_0(\epsilon) - (\epsilon - u_k) \sigma_k(\epsilon - u_k) F_0(\epsilon - u_k) \right]$$

$$C_k^{ion} = -\gamma x_k \left[\epsilon \sigma_k(\epsilon) F_0(\epsilon) - 2(2\epsilon + u_k) \sigma_k(2\epsilon + u_k) F_0(2\epsilon + u_k) \right]$$

$$C_k^{attach} = -\gamma x_k \epsilon \sigma_k(\epsilon) F_0(\epsilon)$$

$$C^{e-e} = a \frac{n}{N} \frac{\partial}{\partial \epsilon} \left[3A_1 F_0 + 2(A_2 + \epsilon^{3/2} A_3) \frac{\partial F_0}{\partial \epsilon} \right]$$

係数や仮定等の詳細は Hagelaar の論文[3]を参考にされたい. ただし, 2体反応の断面積は粒子密度に依存しないが, 3体反応の断面積は粒子密度に依存する点に注意が必要となる.

電子分布関数は, 例えば BOLSIG+¹[3]を用いることにより簡易に求めることできる. 窒素とアルゴンについて, E/N を 10, 100, 500, 1000 Td と変化させた場合について 図 3 に示す. 大気圧ガスに, おおよそ 30 kV/cm の電圧 ($E/N=100$ Td)がかかるまでは, アルゴンと窒素で電子分布関数に大きな違いがみられるが, 500 Td を超えると違いは小さくなる. 通常の放電では, 原子・分子による違いが顕著に現れる.

巨視的な輸送係数である電子のドリフト速度 v_d と拡散係数 D は, 電子分布関数から求まる.

$$v_d = \frac{\gamma}{3} \frac{E}{N} \int_0^\infty \frac{\epsilon}{\sigma(\epsilon)} \frac{\partial F_0}{\partial \epsilon} d\epsilon \quad (7)$$

$$D = \frac{\gamma}{3} \frac{1}{N} \int_0^\infty \frac{\epsilon}{\sigma(\epsilon)} F_0 d\epsilon \quad (8)$$

イオンについても, ドリフト速度と拡散係数を決定する必要があるが, ストリーマ放電では無視されることが多い.

6.1.4 光電離過程のモデル化

光電離による初期電子の生成がストリーマの進展に重要

1 <http://www.codiciel.fr/plateforme/plasma/bolsig/bolsig.php>
 2 大気中地上では宇宙線によりおおよそ $10/(\text{cm}^3\text{s})$ のレートでイオン化が生じている[16]. 生じた電子は酸素分子により付着されて酸素分子負イオンが形成される.
 3 大気中には $0.1 \mu\text{m}$ 以上の微粒子が $10^4/\text{cm}^3$ 以上存在する[17].

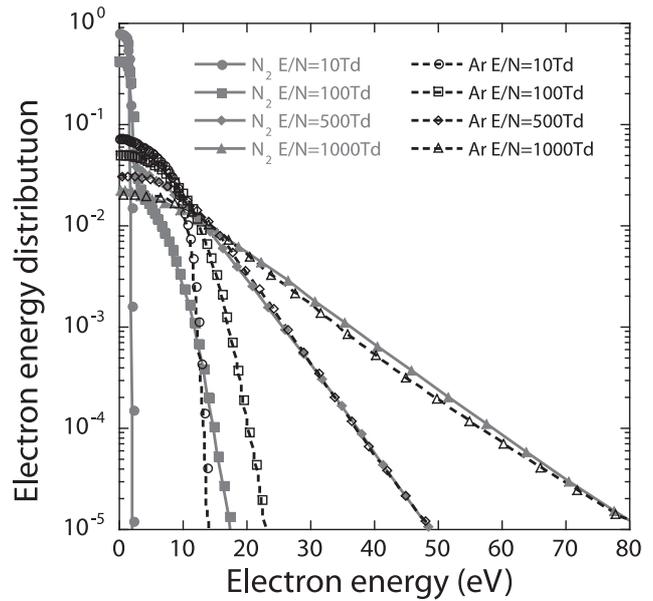


図 3 電子エネルギー分布関数.

な役割を果たしていると考えられている[13-15]. ここでは, 光による電子放出・吸収機構を原子・分子過程の観点から検討する. この機構は, 1) 電子放出源となる被イオン化原子・分子の光電離過程, 2) 光源となる原子・分子過程, 3) 光の伝播の3要素で構成される. この3要素はそれぞれが複雑なだけでなくお互いが密接に関連しており, 適切なモデル化が不可欠である. 放電プラズマからの放射強度では, 多光子電離は生じず, 被イオン化原子・分子は1光子で電離すると考える. また, 負イオンの光脱離²[16]や, 微粒子³[17]による電子供給に関してはそれらの密度が小さいため, ここでは議論しない.

被イオン化原子・分子に応じて必要となる光源のエネルギーや伝播における吸収係数が異なるため, その候補から光源に要求される性質等を議論していくことにする.

被イオン化原子・分子の候補は, 1) 媒質を構成する主たる分子や原子 (空気の場合は酸素分子, 窒素分子, アルゴン原子), 2) 不純物として極微量含まれる炭化水素系物質の2つが考えられる.

1) 空気中の主たる構成分子の窒素分子, 酸素分子, アルゴンのイオン化エネルギーは 15.58 eV, 12.07 eV, 15.8 eV であり, イオン化エネルギーの一番低い酸素分子の光電離では, 窒素分子の遷移 $N_2(b^1\Pi_u \rightarrow X^1\Sigma_g^+)$ からの 12.5 eV 以上のフォトンエネルギーを有する VUV 光 (99.2 nm) が必要となる[15]. 一方, 純窒素ガスを用いたストリーマ実験でも構造が観測されており[18], この場合は窒素を光源とする酸素分子の光電離モデルは適用できない.

2) 炭化水素系物質のイオン化しきい値エネルギーは比較的低い. 例えば, キシレンは 8.44 eV, トルエンは 8.5 eV,

ベンゼンやNOは9.25 eVであり、100 nmよりも長波長のVUV光で電離が可能である。炭化水素系物質は大気中だけではなく研究室の実験装置内部にも不純物として極微量に存在すると考えられるが、たとえ1 ppm以下であっても大気圧下では 10^{13} cm^{-3} 以上も存在することになり影響は無視できない。実際、エキシマレーザーで用いられるスパークVUV予備電離では、炭化水素系物質由来の不純物からのVUV発光とイオン化によって必要な予備電離電子密度を実現していると考えられている[19]。

被イオン化原子・分子の種類によって、波長100 nmより短波長と長波長のVUV光源の2種類が想定され、それぞれ、媒質のバルクと不純物の光電離に対応する。可能な光放出源として、1)窒素分子等からの100 nmより短波長の放射、2)不純物等に起因する100 nmよりも長波長の放射、3)高速電子による制動放射の3つが考えられる。

100 nmよりも短波長のフォトンエネルギーの放出源は、 $\text{N}_2 (b^1\Pi_u \rightarrow X^1\Sigma_g^+)$ などの非常に高い電子励起状態からの遷移が考えられる。

100 nmより長波長のVUV光の放出源は、スパークからのVUV放出スペクトルにも観測された、原子状水素、炭素、窒素、酸素からの線放射等が候補となり、水素原子のH Ly- α (121.6 nm)や炭素原子のC I (128 nm)放射が考えられる。

高速電子による制動放射は、単位時間に単位体積から $\nu \sim \nu + d\nu$ の幅に放射されるエネルギーとして以下のように表される[20]。

$$w(\nu)d\nu = 6.3 \times 10^{-47} Z^2 (e/T_e)^{1/2} n_e n_i \exp(-h\nu/T_e) d\nu$$

単位は電子温度 T_e/e が[eV]、 n が $[\text{m}^{-3}]$ 、 $w(\nu)d\nu$ が $[\text{W}/\text{cm}^3]$ 。この光放出量はプラズマの温度、密度に強く依存する。電子温度を10 eV、電子密度、イオン密度を 10^{15} cm^{-3} 、 $h\nu = 14 \text{ eV}$ 、 $Z = 1$ 、放射体積 10^{-6} cm^3 とすれば1 nsの時間幅では数個程度の光子が放出される。

光の吸収を伴う伝播は、それぞれ光子エネルギーに対応した吸収断面積 σ と吸収種の数密度 N の積で表される。100 nmより短波長のVUV光に対しては、例えば酸素分子の吸収断面積は $10^{-18} \text{ cm}^2 \sim 10^{-17} \text{ cm}^2$ 程度である[21]。大気中の酸素分子密度を $5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ とすると、減衰長 $1/(\sigma N)$ は200 $\mu\text{m} \sim 2 \text{ mm}$ 程度となる。

一方、100 nmよりも長波長のVUV光に対しては、例えば、酸素分子のSchumann-Runge連続吸収では



断面積は $10^{-18} \sim 10^{-17} \text{ cm}^2$ 程度である。この場合、減衰長は200 $\mu\text{m} \sim 2 \text{ mm}$ 程度となるが、水素のLy- α (121.6 nm)に対しては酸素分子の吸収断面積は 10^{-20} cm^2 と小さいため、減衰長も2 cm程度と極めて長くなる。炭化水素系物質の影響に関しても、その光イオン化断面積をおおよそ 10^{-17} cm^2 として、その濃度を1 ppmの $2.7 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ とすれば減衰長は37 mにもなる。したがって、光の波長と対応する被イオン化原子・分子によって伝播のスケールが異なり、光電離の“程度”、“範囲”が大きく異なる可能性がある。

以上のように、原子・分子過程に基づく光電離過程のモデル化による定量的な評価は、その候補の特定等に困難さを伴う。

6.1.5 まとめ

放電をモデル化する上での、標準的な原子・分子過程の取り扱い方とそこから導かれる連続体モデルにおける輸送係数との関係を述べた。特に、分枝構造の形成で重要となると考えられる初期電子の形成機構としての光電離を原子・分子過程の観点から詳しく議論した。

原子・分子過程を輸送係数として取り入れた連続体モデルを用いて、分枝構造が議論され始めている[6]。一方、理想プラズマでのシミュレーションで広く利用されている超粒子法での粒子の運動方程式に、原子・分子過程による衝突を確率的に取り入れてミクロな立場から構造を説明する試みがなされている[22]。加えて「フラクタル的解析手法を用いた簡略化された物理モデル」とでも呼ぶことができる手法も注目されている[23-25]。フラクタル構造を持つと暗黙に仮定して、放電の形状を理解する試みは古くから行われている[23]。最近もフラクタル的な手法で放電や雷の構造を説明する試みは多くあるが、原子・分子過程などの素過程とのつながりが明らかになっていない。また、分枝構造の形成機構についても諸説が存在している状況であり、今後、原子・分子過程から初期電子の形成機構、雪崩からストリーマの分枝構造の説明がなされることが望まれる。

謝辞

本研究の一部は、原子力委員会の評価に基づき文部科学省原子力試験研究費によって実施されたものであり、自然科学研究機構・核融合科学研究所における「国際共同研究拠点ネットワークの形成」プロジェクトによって支援されています。

参考文献

- [1] 宅間 董：放電研究 50, 2 (2007).
- [2] T.H. Johnson, L.J. Palumbo and A.M. Hunter, II, IEEE J. Quantum Electron. QE-15, 289 (1979).
- [3] G.J.M. Hagelaar and L.C. Pitchford, Plasma Sources Sci. Technol. 14, 722 (2005).
- [4] 金澤誠司：プラズマ・核融合学会誌 84, 348 (2008).
- [5] 放電ハンドブック, 電気学会 (オーム社, 1998).
- [6] U. Ebert, C. Montijn, T.M.P. Briels, W. Hundsdoerfer, B. Meulenbroek, A. Rocco and E.M. van Veldhuizen, Plasma Sources Sci. Technol. 15, S118 (2006).
- [7] J.S. Chang, R.M. Hobson, 市川幸美, 金田輝男：電離気体の原子・分子過程 (東京電機大学出版局, 1982).
- [8] 真壁利明：プラズマエレクトロニクス (培風館, 1998).
- [9] M. Hayashi, Bibliography of electron and photon cross sections with atoms and molecules published in the 20th century - argon -, NIFS-DATA-72 (2003).
- [10] Y. Itikawa, J. Phys. Chem. Ref. Data 35, 31 (2006).
- [11] C.B. Opal, W.K. Peterson and E.C. Beaty, J. Chem. Phys. 55, 4100 (1971).

- [12] P. Bertrand, A. Ghizzo, T.W. Johnston, M. Shoucri, E. Fijalkow and M.R. Feix, *Phys. Fluids B* **2**, 1028 (1990).
- [13] J.M. Meek, *Phys. Rev.* **57**, 722 (1940).
- [14] I. Gallimberti, *J. Phys. D* **5**, 2179 (1972).
- [15] M.B. Zheleznyak and A.Kh. Mnatsakanyan, *High Temperature* **20**, 357362 (1982).
- [16] B.A. Tozer, *Phys. Rev.* **137**, A1665 (1965).
- [17] L.J. Radziemski and D.A. Cremer, Eds., *Laser-Induced Plasmas and Applications* (Marcel Dekker, inc., New York, 1989), p.4.
- [18] W.J. Yi and P.F. Williams, *J. Phys. D* **35**, 205 (2002).
- [19] R. Scheps and F.M. Ryan, *Chem. Phys. Lett.* **58**, 417 (1978).
- [20] 宮本健郎：核融合のためのプラズマ物理，改訂版（岩波書店，1987）。
- [21] 永田 武，等松隆夫：超高層大気の物理学（裳華房，1973）。
- [22] 岸本泰明：プラズマ・核融合学会誌 **84**, 484 (2008).
- [23] L. Niemeyer, L. Pietronero and H.J. Wiesmann, *Phys. Rev. Lett.* **52**, 1033 (1984).
- [24] V.P. Pasko, U.S. Inan and T.F. Bell, *Geophys. Res. Lett.* **27**, 497 (2000).
- [25] T. Ficker, *J. Phys. D* **40**, 7720 (2007).

小特集執筆者紹介



かとう すずむ
加藤 進

1993年大阪大学工学研究科電磁エネルギー工学研究科博士課程修了。博士(工学)。現在、独立行政法人産業技術総合研究所エネルギー技術研究部門パワーレーザーグループ主任研究員。主な研究分野は、大気圧プラズマ、レーザープラズマ相互作用のシミュレーション。



たか はし えい いち
高橋 栄一

1994年筑波大学博士課程物理学研究科修了，同年工業技術院電子技術総合研究所に入所，現在は独立行政法人産業技術総合研究所エネルギー技術研究部門主任研究員。主な研究分野は，レーザープラズマ相互作用，エキシマレーザーから近年は放電現象そのものに興味を持っている。趣味はバドミントン



ささき あきら
佐々木 明

工学博士(東京工業大学)，所属は，日本原子力研究開発機構量子ビーム応用研究部門。EUV～X線領域の光源を対象とした，レーザー生成プラズマのシミュレーション研究を行ってきたが，最近，ますます高速化されるコンピュータの性能を生かして，複雑な放電プラズマの構造を解明することに関心を持っている。