



解説

電子スウォーム法による水蒸気中の電子衝突断面積の高精度な推定

Higher-Precision Estimation of Electron Collision Cross Sections in Water Vapor by Electron Swarm Method

川口 悟, 佐藤 孝紀

KAWAGUCHI Satoru and SATOH Kohki

室蘭工業大学

(原稿受付: 2016年11月14日)

我々が提案した水蒸気の電子衝突断面積セット[1]について紹介する。提案した電子衝突断面積セットは、弾性衝突、3種類の回転励起、2種類の振動励起、3種類の電子付着、26種類の電子励起および6種類の電離断面積で構成されており、水分子と衝突した電子の散乱方向依存性も考慮されている。ここでは、最初に電子スウォーム法による電子衝突断面積推定の方法および Monte Carlo 法による電子輸送解析について述べ、その後、本研究で推定した水蒸気の電子衝突断面積セットについて解説する。その後、推定した電子衝突断面積セットの妥当性を、電子輸送係数の計算値と実測値の比較によって評価した結果について述べるとともに、超弾性衝突が水蒸気中の電子輸送係数に及ぼす影響ならびに等方散乱を仮定した簡易的な電子衝突断面積セットについて検討を行った結果について紹介する。

Keywords:

water vapour, Monte Carlo simulation, electron swarm method, electron collision cross section, electron transport coefficients, rate coefficients

1. はじめに

近年、液面に接して生成された気体放電プラズマを用いた農作物の生長促進[2]、微生物の殺菌[3-5]、難分解性物質の分解[6,7]が注目されており、これらの応用において、放電プラズマが照射された水中の NO_3^- などの活性窒素種 (Reactive Nitrogen Species: RNS) ならびに H_2O_2 などの活性酸素種 (Reactive Oxygen Species: ROS) の寄与が指摘されている。水中の ROS および RNS は、放電プラズマ中で生成されたプリカーサ (前駆体) が気液界面に輸送されるとともに、水に溶解し、水中での反応を経て生成されると考えられている。このため、放電プラズマ中および放電プラズマが照射された水中の活性な種の生成量の測定[8-10]およびプラズマシミュレーションによる予測[10-12]が行われており、ROS および RNS の生成過程が議論されている。

プラズマシミュレーションによる予測の精度は、モデリングの精度はもとより、化学種のレート方程式や粒子数連続の式に使用される反応レート係数および化学種の輸送係数の精度にも依存する。特に、放電プラズマ中において最も高エネルギーな種である電子は、分子の衝突によってプリカーサや化学種を生成する起点となるため、正確なシミュレーションのためには、放電プラズマ中の電子のふるまいを正確に記述することが必要である。そのために、電子-気体分子間の衝突確率を表す電子衝突断面積にも高精

度なものが求められている。

水蒸気の電子衝突断面積については、Itikawa and Mason [13], Yousfi and Benabdessadok [14], de Urquijo *et al.* [15] などの報告がある。Itikawa and Mason は、これまでに報告された水蒸気の運動量移行断面積、回転励起断面積、振動励起断面積、電子励起断面積、電子付着断面積および電離断面積の実測値および理論計算値を収集するとともに、それらを一組のセットとしてまとめ、水蒸気の電子衝突断面積セットを提案している。しかし、提案された電子衝突断面積セットから計算される電子輸送係数の値は実測値との比較がされておらず、電子衝突断面積セットの妥当性の検証は不十分である。Yousfi and Benabdessadok [14] および de Urquijo *et al.* [15] は、Boltzmann 方程式解析を用いた電子スウォーム法によって、水蒸気の電子衝突断面積セットを推定している。しかし、彼らが推定した電子衝突断面積セットから計算される電子ドリフト速度、実効電離係数、縦方向拡散係数の値は必ずしも広い範囲の換算電界において実測値と一致するとは限らないことも明らかになっている。

本解説では、近年我々が提案した正確かつ高精度な水蒸気の電子衝突断面積セット[1]を紹介する。本解説は全6章で構成され、本章では正確な水蒸気の電子衝突断面積が要求されている背景ならびに従来の水蒸気の電子衝突断面積の問題点について述べる。第2章では電子衝突断面積の

推定に用いた電子スオーム法について説明し、第3章では Monte Carlo 法による電子輸送解析について解説する。第4章では我々が推定した水蒸気の電子衝突断面積および微分断面積について述べ、第5章では推定した電子衝突断面積セットを用いた Monte Carlo simulation によって得られた電子輸送係数の計算値を実測値と比較し、電子衝突断面積の妥当性を検証する。また、電子と水分子の超弾性衝突が電子輸送係数に及ぼす影響および等方散乱を仮定した簡易モデルについて検討した結果について紹介する。最後に、第6章において本解説をまとめる。

2. 電子スオーム法

電子スオーム法は、電子輸送解析によって得られる電子輸送係数の値が実測値に一致するように電子衝突断面積セットを推定する手法である。本来、電子輸送係数は電子衝突断面積によって決定されるため、本手法は一種の逆問題を解くことに相当する。図1は電子スオーム法による電子衝突断面積セット推定の過程を示す。本研究では、次に示す手順に従って、電子衝突断面積セットを推定した。

- ① これまでに報告された電子衝突断面積の実測値、推定値および理論計算値をもとに、電子衝突断面積の初期セットを作成する。水蒸気に関する電子衝突断面積の実測値や理論計算値が多数報告されており、ここではそれらを利用した。
- ② 作成した電子衝突断面積セットを用いて、電子輸送解析によって電子輸送係数を算出する。本研究では、最も定量的に優れた方法である Monte Carlo simulation を電子輸送解析に用いており、電子輸送係数計算における精度を可能な限り高めている。
- ③ 電子輸送係数の計算値を実測値と比較する。
- ④ 実測値と計算値の一致が不十分であるならば、電子衝突断面積セットに修正を加える。

実測値と一致する電子輸送係数が得られるまで、②-④を繰り返すことで、高精度の電子衝突断面積セットが得られる。

3. Monte Carlo simulation

ガスを飛行する電子の運動は、①自由飛行、②ガス分子との衝突、③散乱、の3つの素過程に分けることができる。以下では、各素過程について説明するとともに、水蒸気中を飛行する電子の運動を Monte Carlo 法によってシ

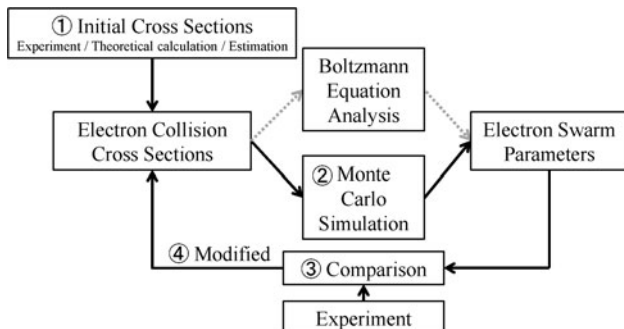


図1 電子スオーム法による電子衝突断面積推定の手順。

ミュレートし、サンプリングによって電子の集団（スオーム）の輸送特性を表す電子ドリフト速度、拡散係数、実効電離係数などの電子輸送係数を導出する方法について説明する。

(1) 自由飛行

電子がガス分子と衝突してから次の衝突までに飛行する時間 τ は、 $[0, 1]$ の区間に分布する一様乱数 ξ_1 および全衝突周波数 $\nu_T(t) = Nq_T(v(t))v(t)$ を用いて(1)式のように表される。ここで、 N は気体分子数密度、 q_T は全衝突断面積および $v_T(t)$ は時刻 t における電子の速さを表す。

$$\xi_1 = 1 - \exp\left[-\int_0^\tau \nu_T(t) dt\right] \quad (1)$$

飛行時間 τ が積分範囲に含まれているとともに、 $\nu_T(t)$ は必ずしも既知の関数となるとは限らないため、(1)式の右辺の積分を解析的に解いて τ を求めることは必ずしも可能ではない。よって、本研究では、Null Collision 法[16]によって電子の飛行時間を決定した。この方法では、(1)式の右辺の $\nu_T(t)$ を、 $C > \max\{\nu(t)\}$ を満たす定数 C に置き換え、(1)式を解いて $\tau = \tau_{\text{null}}$ を求める。

$$\tau_{\text{null}} = -\ln(1 - \xi_1)/C \quad (2)$$

τ_{null} 秒間飛行した後の電子の速度 v' および位置 r' を古典力学と電磁気学に基づいて、(3)および(4)式によって決定する。ここで、 v および r は飛行前の電子の位置および速度、 e および m は電気素量および電子の質量、 $E = (0, 0, E)$ は電界を表す。

$$v' = v + \frac{eE}{m}\tau_{\text{null}} \quad (3)$$

$$r' = r + v\tau_{\text{null}} + \frac{1}{2}\frac{eE}{m}\tau_{\text{null}}^2 \quad (4)$$

τ_{null} 秒間飛行後の電子の全衝突周波数 ν'_T を求め、一様乱数 ξ_2 を用いて、 $\nu'_T/C \geq \xi_2$ ならば電子がガス分子と衝突したと判定し、衝突の種類の判定を行う。 $\nu'_T/C < \xi_2$ ならば、無衝突であると判定し、再び(2)式によって τ_{null} を算出し、自由飛行を継続する。

(2) ガス分子との衝突

電子とガス分子の衝突は、衝突の前後で両者の相対運動エネルギーが変化しない弾性衝突と相対運動エネルギーが変化する、すなわち、電子の運動エネルギーの一部がガス分子の内部状態の変化に使われる非弾性衝突（電子励起、電離など）に分類できる。それぞれの衝突の起こりやすさは、衝突時の電子のエネルギーによって変化し、衝突断面積 q によって記述される。ここで、衝突直前の電子の運動エネルギーが ϵ のとき、各種の衝突が起こる場合を考える。このとき、全衝突断面積 $q_T(\epsilon)$ は、(5)式のように表される。

$$q_T(\epsilon) = q_{\text{el}}(\epsilon) + q_{\text{rot}}(\epsilon) + q_{\text{vib}}(\epsilon) + q_{\text{ex}}(\epsilon) + q_{\text{a}}(\epsilon) + q_{\text{i}}(\epsilon) \quad (5)$$

ここで、

q_{el} : 弾性衝突断面積	q_{rot} : 回転励起断面積
q_{vib} : 振動励起断面積	q_{ex} : 電子励起断面積
q_a : 電子付着断面積	q_i : 電離断面積

である。電子とガス分子の衝突の種類を、電子衝突断面積の内分比と一様乱数 ξ_3 を対応させて判定する。例えば、図2は、振動励起衝突と判定される場合である。電子付着衝突の場合には、電子付着が起こった時点で電子が消滅するので、電子の追跡を終了する。

(3) 散乱

衝突後の電子の速度 $\mathbf{v}' = (v'_x, v'_y, v'_z)$ は次式に基づいて決定される。ここで、 M はガス分子の質量、 $\mathbf{v}$ および $\mathbf{V}$ は衝突前の電子およびガス分子の速度、 $\mathbf{g}'$ は衝突後の電子とガス分子の相対速度であり、 $\mathbf{g}' = \mathbf{v}' - \mathbf{V}'$ である。

$$\mathbf{v}' = \frac{M}{m+M} \mathbf{g}' + \frac{m\mathbf{v} + M\mathbf{V}}{m+M} \quad (6)$$

ガス分子の速度分布がガス温度 T_g の Maxwell-Boltzmann 分布に従うとき、 $\mathbf{V} = (V_x, V_y, V_z)$ は Box-Muller 法[17]および一様乱数 $\xi_4 - \xi_7$ を用いて次のように決定される。ここで、 k_B は Boltzmann 定数である。

$$V_x = \sqrt{-2k_B T_g \log \xi_4 / M} \cos(2\pi\xi_5) \quad (7a)$$

$$V_y = \sqrt{-2k_B T_g \log \xi_4 / M} \sin(2\pi\xi_5) \quad (7b)$$

$$V_z = \sqrt{-2k_B T_g \log \xi_6 / M} \cos(2\pi\xi_7) \quad (7c)$$

衝突後の相対速度 $\mathbf{g}'$ は次のように表される。

$$\mathbf{g}' = |\mathbf{g}'| \begin{bmatrix} \cos \theta \cos \phi & -\sin \phi & \sin \theta \cos \phi \\ \cos \theta \sin \phi & \cos \phi & \sin \theta \sin \phi \\ -\sin \theta & 0 & \cos \theta \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \sin \chi \cos \phi \\ \sin \chi \sin \phi \\ \cos \chi \end{bmatrix} \quad (8)$$

ここで、 θ および ϕ は実験室系における衝突前の相対速度 $\mathbf{g} = \mathbf{v} - \mathbf{V}$ の極角および方位角、 χ および ψ は $\mathbf{g}$ を z 軸に見た座標系 (図3) における極角および方位角を表しており、

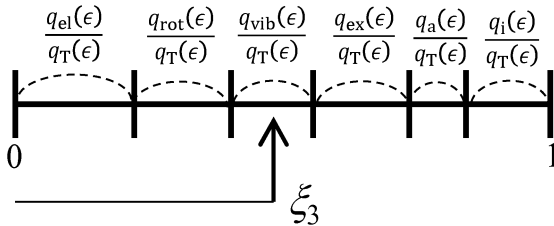


図2 衝突の種類の判定。

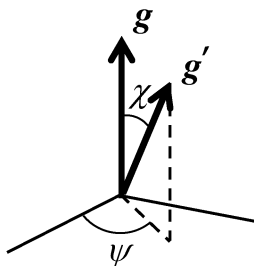


図3 散乱角 χ および ψ の定義[18].

一様乱数 ξ_8, ξ_9 および微分断面積 $q(\epsilon, \chi)$ を用いて、それぞれ次のように決定される。

$$\xi_8 = \int_0^\chi q(\epsilon, \chi') \sin \chi' d\chi' / \int_0^\pi q(\epsilon, \chi') \sin \chi' d\chi' \quad (9)$$

$$\phi = 2\pi\xi_9 \quad (10)$$

電子の散乱方向が等方的であると仮定すると、 χ は次のように求めることができる。

$$\cos \chi = 1 - 2\xi_8 \quad (11)$$

衝突後の相対速度の大きさ $|\mathbf{g}'|$ は、エネルギー保存則より衝突の種類に応じて(12)式のように決める。ここで、 ϵ_{th} は電子衝突断面積のしきい値、 μ は換算質量を表す。電離衝突の場合には、衝突を引き起こした電子 (親電子) と電離によって発生した電子 (子電子) に残存エネルギー $1/2\mu|\mathbf{g}'|^2$ を一様乱数 ξ_{10} を用いて $\xi_{10} : 1 - \xi_{10}$ に分配する。

$$|\mathbf{g}'| = \begin{cases} |\mathbf{g}| & (\text{elastic collision}) \\ \sqrt{|\mathbf{g}|^2 - 2\epsilon_{th}/\mu} & (\text{inelastic collision}) \\ \sqrt{|\mathbf{g}|^2 + 2\epsilon_{th}/\mu} & (\text{superelastic collision}) \end{cases} \quad (12)$$

一定時間ごとに電子の位置、速度、衝突周波数などをサンプリングし、電子ドリフト速度、縦方向拡散係数、実効電離係数などを求める。サンプリング方法の詳細については、文献[19-21]を参照いただきたい。図4は、Monte Carlo simulation のフローチャートを示す。

シミュレーションでは、電子と水分子の衝突のみを考慮し、気体分子数密度 N を $3.535 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ (0°C , 1 Torr) とした。また、初期電子スオームの電子エネルギー分布が平均1 eV の Maxwell-Boltzmann 分布となるように、初期電子に初速度を与えた。

4. 水蒸気の電子衝突断面積

図5は我々が提案した水蒸気の電子衝突断面積を示す。この電子衝突断面積セットは、2種類の振動励起 q_{vib} 、3種類の電子付着 q_a 、26種類の電子励起 q_{ex} 、6種類の電離 q_i 、弾性衝突 q_{el} および3種類の回転励起 q_{rot} 断面積で構成されている。図5の Σq_{ex} は電子励起断面積の総和を表しており、詳細な電子励起断面積を図6に示す。表1は、考慮した電子と水分子の反応をしきい値と併せて示す。振動励起断面積については、Seng and Linder[22]の実測値を通してように形状を推定した。電子付着については、 O^- と H^- および OH^- を生成する断面積を考慮し、それぞれ Rawat *et al.* [23] および Melton[24]の実測値を使用した。電子励起断面積については、Thorn *et al.* [25-29]が測定した25種類の電子励起断面積を使用するとともに、実効電離係数の計算値が実測値と合うように、しきい値が12.5 eVの電子励起断面積 (ex26) を推定している。電離断面積については、Lindsay and Mangan[30]が報告した Straub *et al.* [31]の部分電離断面積の実測値の較正值を通して形状を推定した。また、i1 から i5 のしきい値については、Snow and Thomas[32], Lefavre and Marment[33], Morrision and

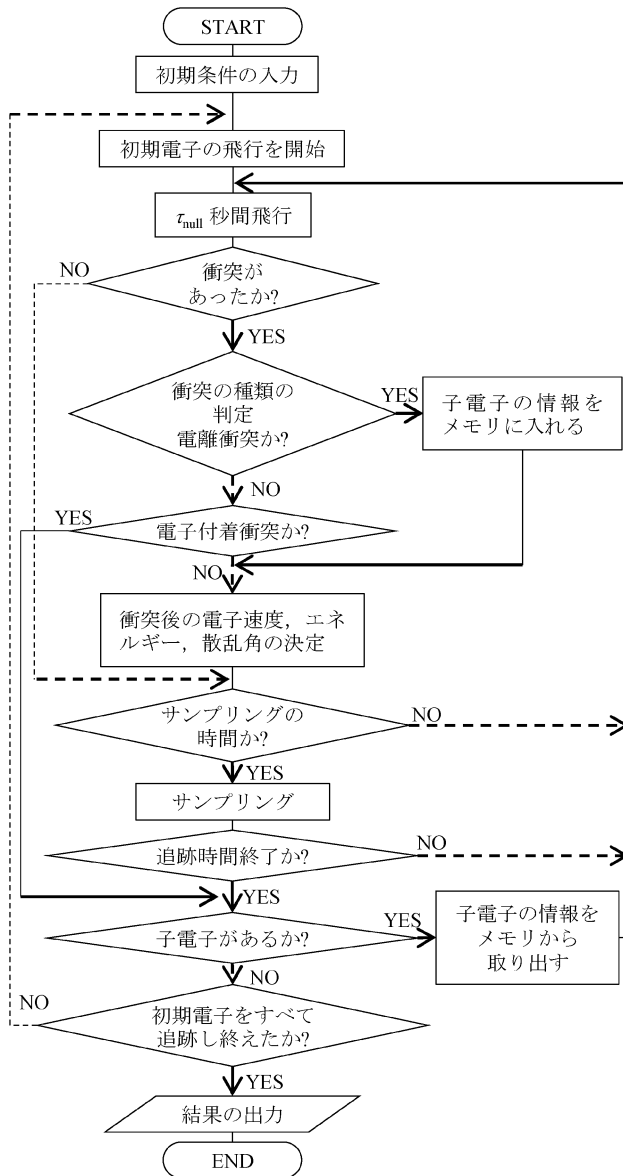


図4 Monte Carlo simulation のフローチャート.

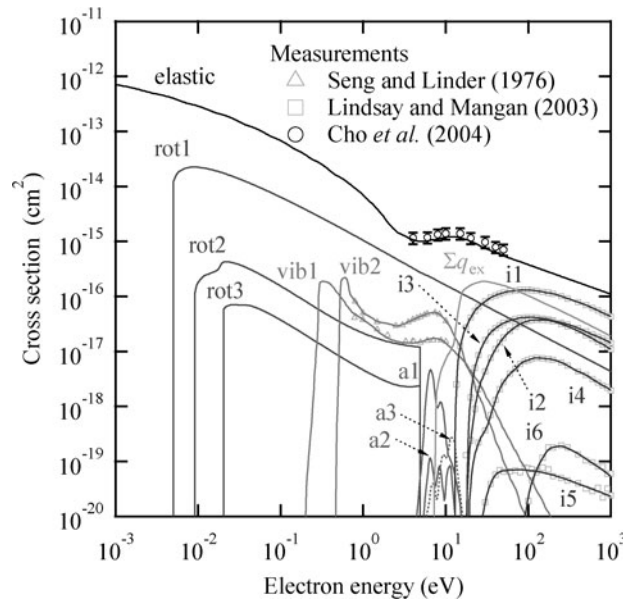


図5 水蒸気の電子衝突断面積セット.

Traeger[34]および Ehrhardt and Kresling[35]の実測値をそれぞれ使用しており, i_6 のしきい値については, 部分電離断面積の外挿により推定している. 回転励起断面積については, Itikawa and Mason[13]が Faure *et al.* [36]の理論計算値をもとに報告した $J=0$ から $J=1, 2$ および 3 への遷移に関する断面積を 0.1 倍して使用した. ここで, J は回転角運動量を示す. 弾性衝突断面積については, 回転励起断面積が含まれた弾性衝突断面積 (vibrationally elastic cross section) が Cho *et al.* [37]によって測定されており, ここでは, q_{el} と q_{rot} の総和が Cho *et al.* の実測値と合うように, q_{el} の形状を推定した.

図7はCho *et al.* [37]の実測値を基に推定した弾性衝突および回転励起衝突に関する微分断面積を示す. この微分断面積を用いて, 弾性衝突および回転励起衝突後の電子の散乱角を計算した.

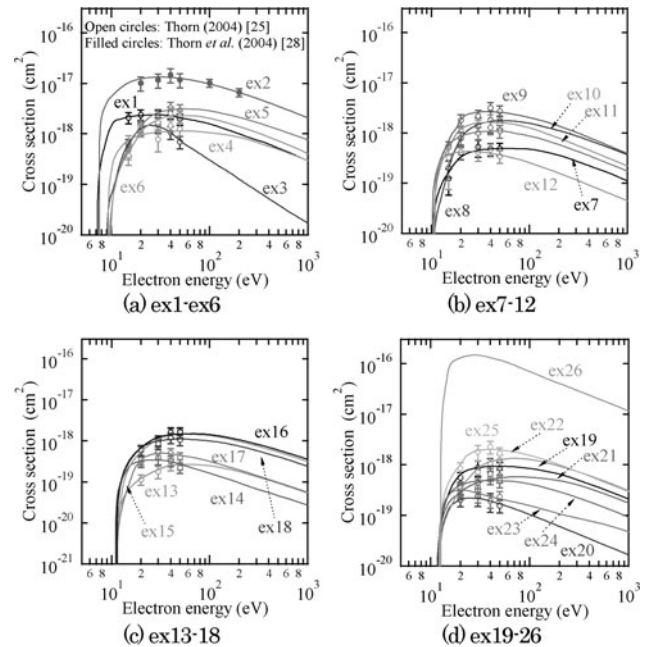


図6 電子励起断面積.

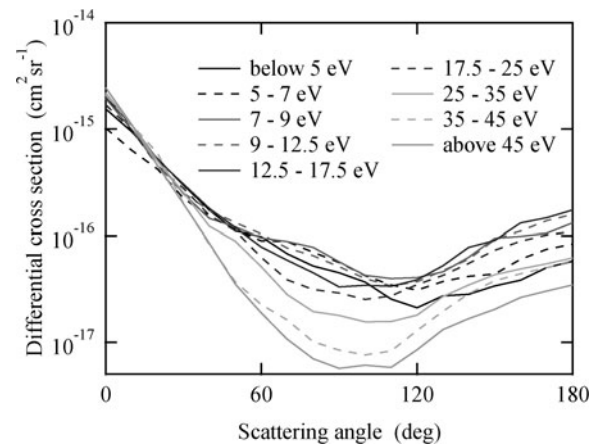


図7 微分断面積.

表 1 電子衝突断面積セットにおいて考慮した電子と水分子の反応.

Label	Type of collision	Reaction	ϵ_{th} (eV)	Ref.
mom (elastic)	Momentum transfer (Elastic)	$H_2O + e \rightarrow H_2O + e$		37
rot1	Rotational excitation	$H_2O (J=0) + e \rightarrow H_2O (J=1) + e$	4.604×10^{-3}	13
rot2	Rotational excitation	$H_2O (J=0) + e \rightarrow H_2O (J=2) + e$	8.690×10^{-3}	13
rot3	Rotational excitation	$H_2O (J=0) + e \rightarrow H_2O (J=3) + e$	1.764×10^{-2}	13
vib1	Vibrational excitation	$H_2O (000) + e \rightarrow H_2O (010) + e$	0.198	22
vib2	Vibrational excitation	$H_2O (000) + e \rightarrow H_2O [(100) + (001)] + e$	0.466	22
a1	Electron attachment	$H_2O + e \rightarrow H^- + OH$	4.000	23
a2	Electron attachment	$H_2O + e \rightarrow OH^- + H$	4.016	24
a3	Electron attachment	$H_2O + e \rightarrow O^- + H_2$	4.300	23
ex1	Electronic excitation	$H_2O + e \rightarrow H_2O(\tilde{a}^3B_1) + e$	7.140	25 - 27
ex2	Electronic excitation	$H_2O + e \rightarrow H_2O(\tilde{A}^1B_1) + e$	7.490	28
ex3	Electronic excitation	$H_2O + e \rightarrow H_2O(^3A_2) + e$	8.900	25, 26
ex4	Electronic excitation	$H_2O + e \rightarrow H_2O(^1A_2) + e$	9.200	25, 26
ex5	Electronic excitation	$H_2O + e \rightarrow H_2O(\tilde{b}^3A_1) + e$	9.460	25 - 27
ex6	Electronic excitation	$H_2O + e \rightarrow H_2O(\tilde{B}^1A_1) + e$	9.730	25 - 27
ex7	Electronic excitation	$H_2O + e \rightarrow H_2O(\tilde{d}^3A_1) + e$	9.820	25, 29
ex8	Electronic excitation	$H_2O + e \rightarrow H_2O(\tilde{c}^3B_1 + \tilde{C}^1B_1) + e$	9.980	25, 29
ex9	Electronic excitation	$H_2O + e \rightarrow H_2O(\tilde{D}^1A_1) + e$	10.12	25, 29
ex10	Electronic excitation	$H_2O + e \rightarrow H_2O[\tilde{C}^1B_1(100) + ^3B_1] + e$	10.35	25, 29
ex11	Electronic excitation	$H_2O + e \rightarrow H_2O(^1B_1 + \tilde{D}^1A_1(100)) + e$	10.55	25, 29
ex12	Electronic excitation	$H_2O + e \rightarrow H_2O(^3A_2) + e$	10.70	25, 29
ex13	Electronic excitation	$H_2O + e \rightarrow H_2O(\tilde{D}^1A_1(110) + \tilde{C}^1B_1(200)) + e$	10.77	25, 29
ex14	Electronic excitation	$H_2O + e \rightarrow H_2O(^1A_2) + e$	10.84	25, 29
ex15	Electronic excitation	$H_2O + e \rightarrow H_2O(\tilde{e}^3B_1 + \tilde{E}^1B_1 + \tilde{D}^1A_1(200)) + e$	10.97	25, 29
ex16	Electronic excitation	$H_2O + e \rightarrow H_2O(^3B_2 + ^1B_2 + ^3B_2) + e$	11.10	25, 29
ex17	Electronic excitation	$H_2O + e \rightarrow H_2O(^3A_1 + ^1A_2 + ^1A_1 + ^3A_2 + ^1B_1 + ^3B_1) + e$	11.23	25, 29
ex18	Electronic excitation	$H_2O + e \rightarrow H_2O(^1B_1 + ^3B_1 + ^3A_1 + ^1A_1) + e$	11.35	25, 29
ex19	Electronic excitation	$H_2O + e \rightarrow H_2O(^1B_2 + ^3B_2 + ^3B_1 + ^1B_1) + e$	11.50	25, 29
ex20	Electronic excitation	$H_2O + e \rightarrow H_2O(^3A_2 + ^1A_2) + e$	11.61	25, 29
ex21	Electronic excitation	$H_2O + e \rightarrow H_2O(^3B_1) + e$	11.68	25, 29
ex22	Electronic excitation	$H_2O + e \rightarrow H_2O(^1B_1) + e$	11.75	25, 29
ex23	Electronic excitation	$H_2O + e \rightarrow H_2O(^3A_1 + ^1A_1) + e$	11.80	25, 29
ex24	Electronic excitation	$H_2O + e \rightarrow H_2O(^1A_1 + ^3B_1 + ^1B_1) + e$	11.90	25, 29
ex25	Electronic excitation	$H_2O + e \rightarrow H_2O(^1A_1) + e$	12.06	25, 29
ex26	Electronic excitation	$H_2O + e \rightarrow H_2O^* + e$	12.50	
i1	Ionization	$H_2O + e \rightarrow H_2O + 2e$	12.65	30, 32
i2	Ionization	$H_2O + e \rightarrow H^+ + OH + 2e$	16.95	30, 33
i3	Ionization	$H_2O + e \rightarrow OH^+ + H + 2e$	18.08	30, 33
i4	Ionization	$H_2O + e \rightarrow O^+ + H_2 + 2e$	19.00	30, 34
i5	Ionization	$H_2O + e \rightarrow H_2^+ + O + 2e$	20.70	30, 35
i6	Ionization	$H_2O + e \rightarrow O^{2+} + H_2 + 3e$	80.00	30

5. 水蒸気中の電子輸送係数とレート係数

5.1 非等方散乱を考慮した電子輸送解析

図 8 は我々が推定した電子衝突断面積セットおよび微分断面積を用いて計算した水蒸気中の平均到着時間ドリフト速度, 実効電離係数および縦方向拡散係数の値を Double-shutter 法[38], Steady-state Townsend (SST) 実験[38] および Pulsed 実験[15, 39]による実測値と併せて示す. また, 従来の電子衝突断面積セットを用いた計算結果も示している. ここでは, 文献[40, 41]の報告に基づき, Double-shutter 法および de Urquijo *et al.* [15]の Pulsed 実験で測定された電子ドリフト速度の実測値を平均到着時間ドリフト速度と比較している. また, Pulsed 実験による縦方向拡散

係数の実測値[39]については, Terashita *et al.* [42]の報告に基づいて補正した値を示している. 我々が推定した電子衝突断面積セットを用いた計算結果は, 計算したすべての換算電界 E/N において実測値と非常に良く一致していることがわかる. 従来の電子衝突断面積セットを用いた計算の結果は, 個々の電子輸送係数についてみると, 実測値と部分的に一致している結果もあるが, すべての電子輸送係数が広い範囲の E/N にわたって一致しているものはない. 以上より, 我々が推定した電子衝突断面積セットは妥当性が高く, 精度も高いことがわかる.

5.2 超弾性衝突の影響

低換算電界においては, 回転励起した水分子と電子の衝

突（超弾性衝突）が水蒸気中の電子輸送係数に影響を及ぼす可能性があるため、その影響について検討した。 $J = J'$

から $J = 0$ への回転脱励起断面積 $q_{J' \rightarrow 0}$ は、詳細釣り合いの原理より得られる(13)式を用いて求めることができる[43]。ここで、 ε_{th} は回転脱励起断面積 $q_{0 \rightarrow J'}$ のしきい値を表す。図9は推定した回転脱励起断面積を用いて(13)式によって求めた回転脱励起断面積を示す。

$$q_{J' \rightarrow 0}(\varepsilon) = \frac{1}{2J' + 1} \frac{\varepsilon + \varepsilon_{th}}{\varepsilon} q_{0 \rightarrow J'}(\varepsilon + \varepsilon_{th}) \quad (13)$$

図10は回転脱励起断面積を図5に取り入れた電子衝突断面積セットを用いた Monte Carlo simulation によって得られた平均到着時間ドリフト速度、実効電離係数、縦方向拡散係数を示す。ここでは、超弾性衝突後の電子の散乱方向も微分断面積を用いて計算している。 $E/N = 100$ Td 以下の電子ドリフト速度および縦方向拡散係数において、超弾性衝突の影響が若干見られた。一方で、実効電離係数に関しては、超弾性衝突の影響は確認されなかった。

5.3 等方散乱を仮定した電子衝突断面積（簡易モデル）

微分断面積を用いて電子の散乱方向依存性を考慮した電子輸送解析は必ずしも容易であるとは限らない。また、電子輸送係数および反応レート係数の算出にしばしば用いられる Boltzmann 方程式ソルバー BOLSIG+ [44]では、非等方散乱を考慮することはできない。そのため、等方散乱を仮定した簡易的な電子衝突断面積セット（簡易モデル）を推定した。図11は、推定した電子衝突断面積セットを示す。この電子衝突断面積セットにおける非弾性衝突断面積は、図5および図6と同じであり、弾性衝突断面積が運動量移行断面積に置き換わっている。

図12は、非等方散乱を考慮した電子衝突断面積セットおよび簡易モデルを用いた Monte Carlo simulation によって得られた電子輸送係数の計算値を実測値と併せて示す。等方散乱を仮定した簡易モデルによる計算結果は、非等方散乱を考慮した正確な計算値および実測値と非常に良く一致していることが確認できる。

図13は、2つの電子衝突断面積セットを用いた Monte Carlo simulation によって得られた反応レート係数を示す。ここで、 Σk_{rot} , Σk_{vib} , Σk_a , Σk_{ex} , Σk_i はそれぞれ、回転励起、振動励起、電子付着、電子励起および電離衝突に関する反応レート係数の総和を表している。図14は、ROS の一種である OH の生成に関わる電子衝突に関する反応レート係数の計算値を示している。2つの電子衝突断面積セットによる反応レート係数の計算結果は非常に良く一致しており、簡易モデルを用いても、正確な電子輸送係数および反応レート係数を計算することが可能であることがわかった。

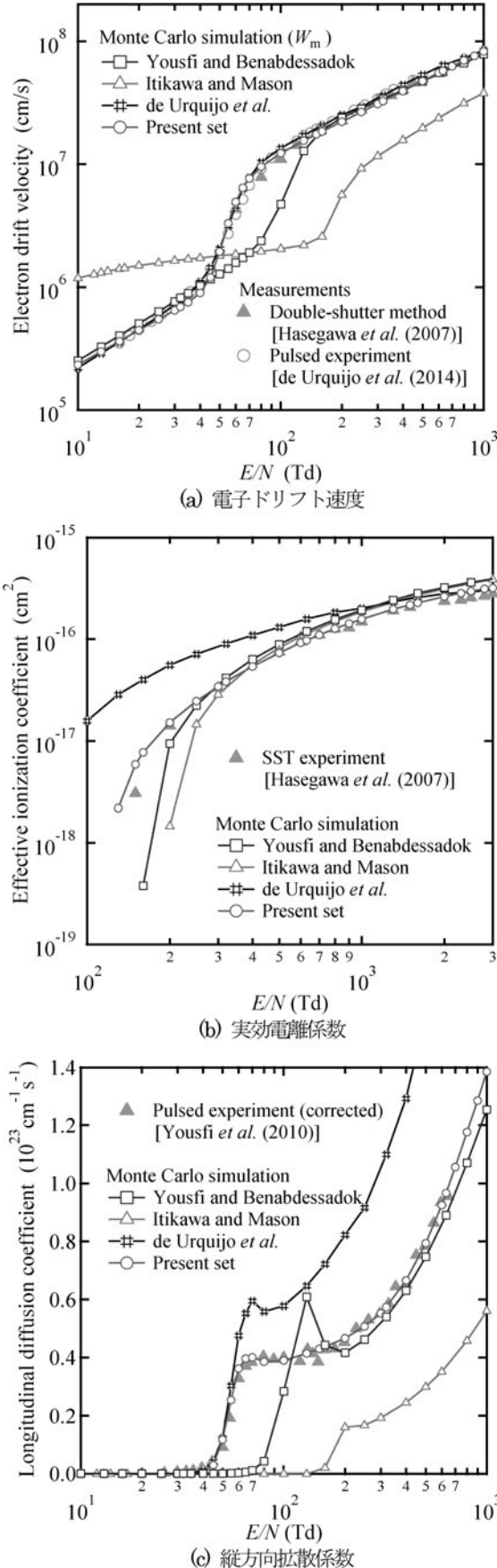


図8 水蒸気中の電子輸送係数.

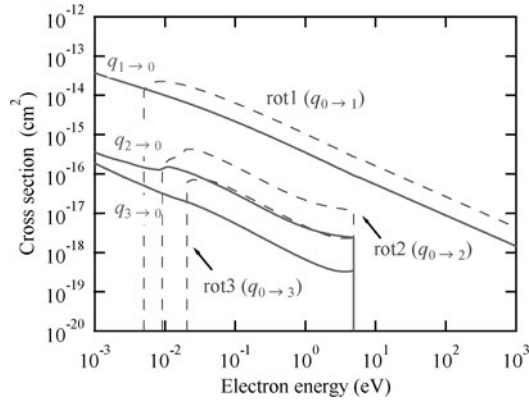
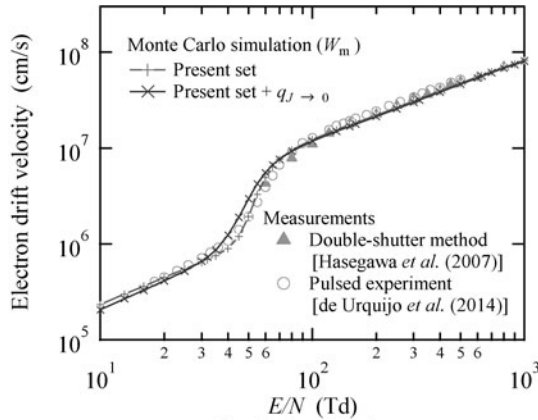
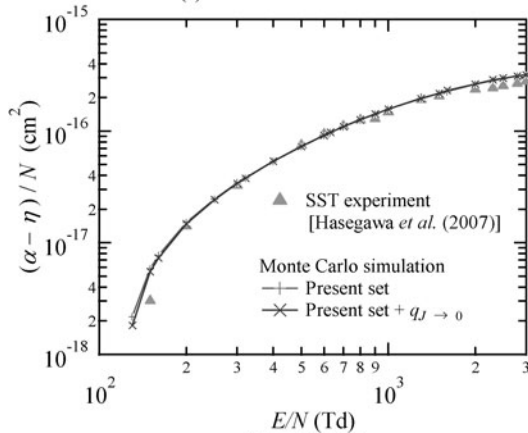


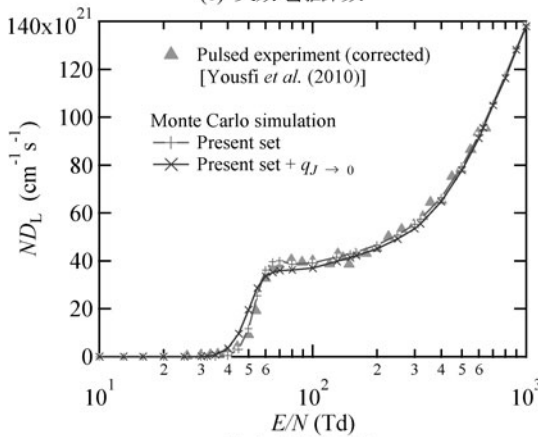
図9 回転励起断面積.



(a) 電子ドリフト速度



(b) 実効電離係数



(c) 縦方向拡散係数

図10 超弾性衝突が水蒸気中の電子輸送係数に及ぼす影響.

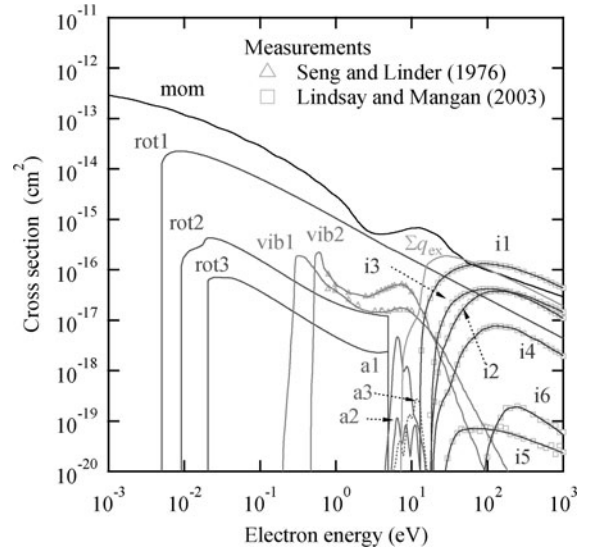


図11 等方散乱を仮定した簡易的な水蒸気の電子衝突断面積セット.

6. おわりに

本解説では、電子スーム法によって推定した正確かつ高精度な水蒸気の電子衝突断面積セットについて紹介した。推定した電子衝突断面積セットおよび微分断面積を用いた Monte Carlo simulation によって得られる平均到着時間ドリフト速度、実効電離係数および縦方向拡散係数の計算値は、計算したすべての E/N において実測値と非常に良く一致しており、推定した電子衝突断面積の妥当性を確認することができた。また、超弾性衝突が水蒸気中の電子輸送特性に及ぼす影響について検討を行い、今回計算した範囲の E/N ($10 - 3,000$ Td) においては、超弾性衝突の影響はわずかであることがわかった。さらに、等方散乱を仮定した簡易的な電子衝突断面積セットの推定を行い、この電子衝突断面積セットから計算される電子輸送係数および反応レート係数の値は、非等方散乱を考慮した電子衝突断面積セットによる正確な計算値と良く一致することが確認された。

参考文献

- [1] S. Kawaguchi *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **55**, 07LD03 (2016).
- [2] J. Takahata *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **54**, 01AG07 (2015).
- [3] C.A.J. van Gils *et al.*, J. Phys. D **46**, 175203 (2013).
- [4] H. Kuwahata *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **54**, 01AG08 (2015).
- [5] E. Usui *et al.*, Nihon Shika Hozongaku Zasshi **58**, 101 (2015).
- [6] Y. Miyazaki *et al.*, Electr. Eng. Jpn. **174** (2), 1 (2011).
- [7] H. Shiota *et al.*, Electr. Eng. Jpn. **184** (1), 1 (2013).
- [8] K. Takahashi *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **55**, 07LF01 (2016).
- [9] P. Lukes *et al.*, Plasma Sources Sci. Technol. **23**, 015019 (2014).
- [10] F. Tochikubo *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **43**, 315 (2004).
- [11] T. Shirafuji and T. Murakami, Jpn. J. Appl. Phys. **54**, 01AC03 (2015).
- [12] D. X. Liu *et al.*, Plasma Sources Sci. Technol. **19**, 025018 (2010).
- [13] Y. Itikawa and N. Mason, J. Phys. Chem. Ref. Data **34**, 1 (2005).

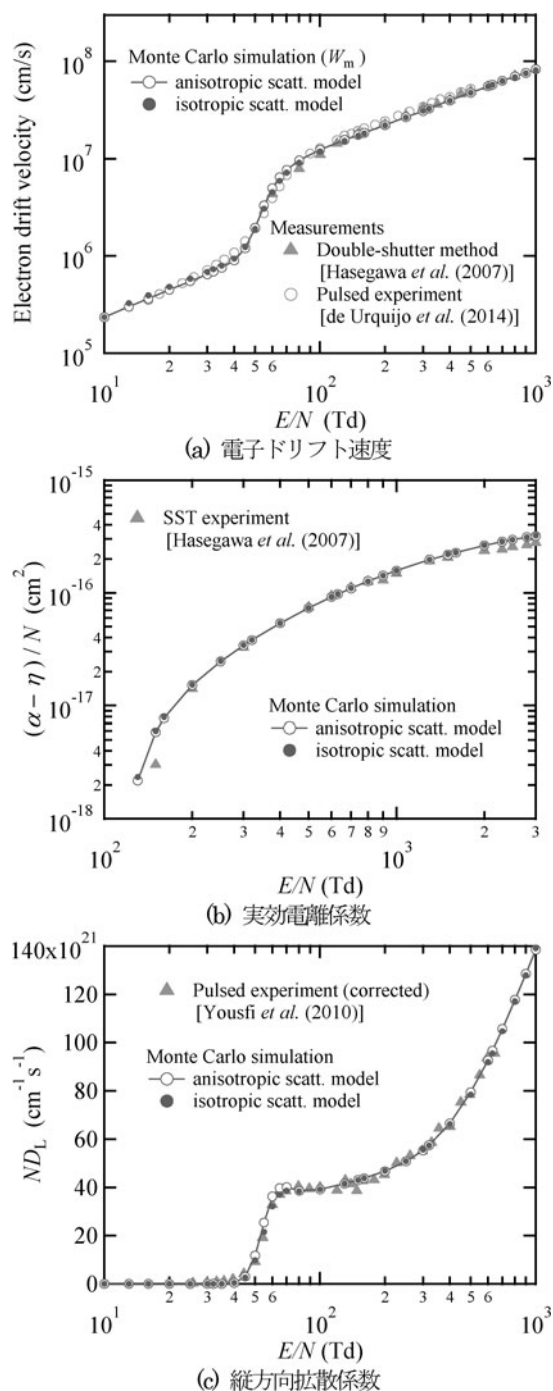


図12 2つの電子衝突断面積セットより得られる電子輸送係数.

- [14] M. Yousfi and M.D. Benabdessadok, J. Appl. Phys. **80**, 6619 (1996).
- [15] J. de Urquijo *et al.*, J. Chem. Phys. **141**, 014308 (2014).
- [16] H.R. Skullerud, J. Phys. D **1**, 1567 (1968).
- [17] W.H. Press *et al.*, *Numerical Recipes* (Cambridge University Press, Cambridge, 2007) 3rd ed., p. 364.
- [18] R.E. Robson, *Introductory Transport Theory for Charged Particles in Gases* (World Scientific, Singapore, 2006) p. 26.
- [19] 佐藤孝紀: プラズマエレクトロニクス分科会会報, No.60, 26 (2014).
- [20] S. Kawaguchi *et al.*, Eur. Phys. J. D **68**, 100 (2014).
- [21] S. Kawaguchi *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **54**, 01AC01 (2015).
- [22] G. Seng and F. Linder, J. Phys. B **9**, 2539 (1976).

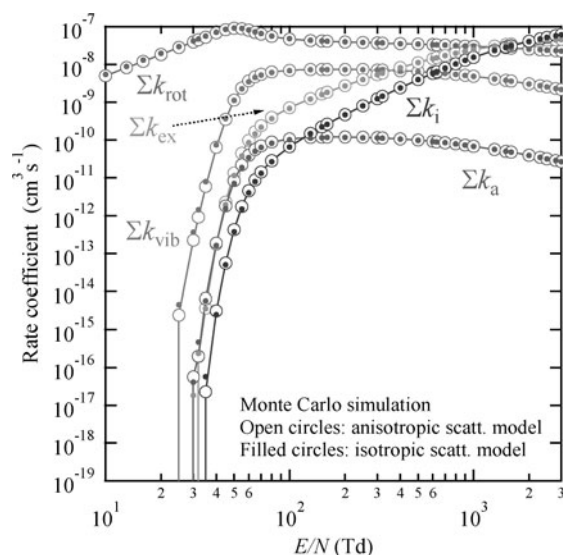


図13 水分子と電子の非弾性衝突に関する反応レート係数.

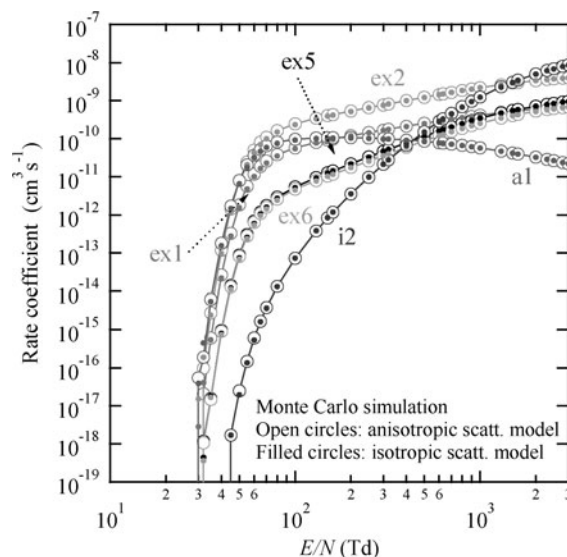


図14 OHの生成に関する反応レート係数.

- [23] P. Rawat *et al.*, J. Phys. B **40**, 4625 (2007).
- [24] C.E. Melton, J. Chem. Phys. **57**, 4218 (1972).
- [25] P.A. Thorn, PhD Thesis, School of Chemistry, Physics and Earth Sciences, Flinders University, Adelaide (2008).
- [26] M.J. Brunger *et al.*, Int. J. Mass Spectrom. **271**, 80 (2008).
- [27] P.A. Thorn *et al.*, J. Phys. B **40**, 697 (2007).
- [28] P.A. Thorn *et al.*, J. Chem. Phys. **126**, 064306 (2007).
- [29] P. Thorn *et al.*, PMC Phys. B **2**, 1 (2009).
- [30] B.G. Lindsay and M.A. Mangan, in *Photon and Electron Interactions with Atoms, Molecules and Ions*, ed. Y. Itikawa (Springer, New York, 2003) Vol. I/17C, Chap. 5.
- [31] H.C. Straub *et al.*, J. Chem. Phys. **108**, 109 (1998).
- [32] K.B. Snow and T.F. Thomas, Int. J. Mass Spectrom. Ion Processes **96**, 49 (1990).
- [33] D. Lefavre and P. Marmet, Can. J. Phys. **56**, 1549 (1978).
- [34] J.D. Morrison and J.C. Traeger, Int. J. Mass Spectrom. Ion Phys. **11**, 77 (1973).
- [35] H. Ehrhardt *et al.*, A **22**, 2036 (1967).

- [36] A. Faure *et al.*, Mon. Not. R. Astron. Soc. **347**, 323 (2004).
- [37] H. Cho *et al.*, J. Phys. B **37**, 625 (2004).
- [38] H. Hasegawa *et al.*, J. Phys. D **40**, 2495 (2007).
- [39] M. Yousfi *et al.*, Proc. 17th Int. Conf. Gas Discharges and Their Applications, 2010, p. 574.
- [40] K. Kondo and H. Tagashira, J. Phys. D **23**, 1175 (1990).
- [41] K. Satoh *et al.*, J. Phys. D **27**, 1480 (1994).
- [42] Y. Terashita *et al.*, Electr. Commun. Jpn. **99** (11), 13 (2016).
- [43] M. Yousfi *et al.*, Phys. Rev. E **49**, 3264 (1994).
- [44] G.J.M. Hagelaar and L.C. Pitchford, Plasma Source. Sci. Technol. **14**, 722 (2005).



かわ ぐち さとる
川 口 悟

1990年11月3日生。2013年室蘭工業大学工学部情報電子工学系学科卒業。2015年同大学大学院工学研究科博士前期課程情報電子工学系専攻修了。同年同大学大学院工学研究科博士後期課程工学専攻入学。現在に至る。放電基礎過程に関する研究に従事。2017年4月より日本学術振興会特別研究員 (DC2)。



さ と う こ う き
佐 藤 孝 紀

室蘭工業大学大学院・教授。1963年北海道生まれ。1986年室蘭工業大学工学部電気工学科卒業。1991年北海道大学大学院工学研究科博士後期課程電気工学専攻修了。室蘭工業大学助手、講師、助教授を経て2010年より現職。電界下の気体中の電子輸送解析および気体放電プラズマの環境・エネルギー分野への応用に関する研究に従事しています。