



1. はじめに

—原子分子データベースの概要とプラズマ研究への応用—

村上 泉, 長壁正樹, 池田勝則, 西浦正樹, 小田昭紀¹⁾, 菅原広剛²⁾, 浜口智志³⁾
 (核融合科学研究所, ¹⁾千葉工業大学, ²⁾北海道大学, ³⁾大阪大学)

(原稿受付: 2011年11月28日)

プラズマ中の原子分子過程を記述する原子分子データやデータベースにはどのようなものがあるのか, 原子分子データベースの概要, 歴史的経緯と国際情勢を振り返る. 原子分子データを応用したプラズマ研究例として, 荷電交換反応分光計測, ビーム減衰解析, 重イオンビームプローブによるプラズマ計測, プラズマディスプレイパネル放電のモデリング, プロセスプラズマのためのモンテカルロシミュレーション, バイオプラズマを紹介する.

Keywords:

atomic and molecular data, database, plasma diagnostics, spectroscopy, chemical reaction modeling,
 Monte Carlo simulation, ion beam, neutral beam, charge exchange, ionization, plasma display panel, NLD plasma,
 plasma processing

この講座では, プラズマの挙動研究や分光計測診断などにおいて重要な役割を果たしているプラズマ中での原子分子過程を理解・考察する上で必要となる原子分子データとそのデータベースについて, 活用するための基礎知識とその応用例, 原子分子データの研究例を紹介する. この講座で原子分子データベースと原子分子データに興味を持っていただき, それぞれの研究にも役立ててもらえればと思う. まず, 第1章では, 原子分子データベースの概観と応用したプラズマ研究の紹介, 第2章で原子分子データの基礎知識を述べる. 第3章では原子分子データはどのように生産されるのか, 原子分子物理学研究やデータ評価について紹介し, 第4章では主なデータベースの具体的な利用方法を紹介する.

1.1 原子分子データベースとは

プラズマの中の中性原子・分子, イオン, 電子は互いに衝突して, 弾性散乱や非弾性散乱を起こし, 電離や再結合, 励起, 発光など, 様々な過程を起こしている. これらの衝突過程や発光過程を記述するための物理量を数値データとして収集したものが原子分子データベースである. どのような物理量を扱っているかにより様々なデータベースが存在する.

現在公開されている原子分子データベースは, 応用分野ごとに異なった観点からデータが収集されているが, 大雑把に分けると, 原子分子データに関する文献のデータベース[1], 原子や分子の発光線の波長や原子構造など分

光に関する数値データベース, 衝突過程に関する数値データベースがある. プラズマ固体相互作用によるスパッタリング収率などの数値データベースもあるが, この講座では取り扱わない. また, 核反応断面積などは, 物理学上カテゴリが異なり, 原子分子データとは言わない.

分光データベースは, 原子や分子の発光線の波長や遷移確率と遷移の情報が含まれ, 原子は米国標準技術研究所(NIST)のもの[2]が有名である. 分子は, 例えばNISTの分子分光データ[3]があるが, 他にもいろいろなところで作られている. これらは, 分光計測したときの発光線の同定, 元素の特定などに利用できる.

衝突過程のデータベースは, 衝突エネルギーもしくは電子温度に対する電離や励起, 再結合過程, 電子付着や解離, 荷電交換過程などの断面積や速度係数の数値データを持ち, 核融合研の原子分子データベースはこれにあたる[4]. 電離・再結合過程によるイオン価数分布計算や, 発光線強度を評価するためのコロナモデルや衝突輻射モデルなどの分光モデル構築[5]に用いられるほか, 分子などの化学反応モデル構築にも必要である.

これらの原子データは, もととは原子物理学の理論研究や実験によって得られ, 論文などで発表されたもので, 例えば分光モデルや化学反応モデルを構築しようと思ったユーザーは, 原子分子データベースがなければ, 一から文献を調べてデータ収集から始めなければならない. また, いろいろな研究者が同じ原子分子過程のデータを発表していると, どれを使うのが適切か, 判断は難しい. 原子分子

Construction and Use of Atomic and Molecular Databases

1. Introduction — Overview of Atomic and Molecular Databases and their Applications for Plasma Research

MURAKAMI Izumi, OSAKABE Masaki, IKEDA Katsunori, NISHIURA Masaki, ODA Akinori, SUGAWARA Hirotake and HAMAGUCHI Satoshi

corresponding author's e-mail: murakami.izumi@nifs.ac.jp

データベースは、プラズマ研究者などが原子分子データを利用しやすいように、データを収集して提供するものである。

歴史的な経緯を振り返ってみよう。始まりは1960年代で、米国の規格基準局 (NBS, 現在の NIST) において分光計測のためのスペクトル線波長のデータ収集、米国オークリッジ国立研究所において核融合プラズマ研究のための原子分子の電子衝突断面積データ収集など、主要研究拠点での原子分子データの収集が始まり、データ集としての出版が始まった。データベースとしてのコンピュータ化と利用者へのサービスは、70年代~80年代に行われるようになった。

日本においては1973年に名古屋大学プラズマ研究所 (当時) の共同研究として国内の原子物理学研究者やプラズマ研究者によって組織されたスタディグループによって、水素、重水素、トリチウムとヘリウムの衝突断面積の収集と評価作業が行われた [6-8]。その後、原子分子のデータ集は IPPJ-AM レポートや NIFS-DATA レポートとして出版された。コンピュータ化したデータベース作成と提供は、プラズマ研究所で1978年から行われ、検索機能を備えたデータベースとして汎用機で作成・提供された。1997年以降はインターネットでアクセスできる WWW でのデータベース提供や拡充が進められてきた。

1974年、東京で開かれた国際核融合研究評議会 (IFRC) において、核融合プラズマ工学発展のために原子分子データの必要性和国際的な協力体制でのデータサービスの必要性が IAEA へ提言された。1976年に IAEA は諮問委員会を開き、原子分子データセンターネットワークの設置、原子分子データに関する文献および数値データの収集、データ交換のためのフォーマットの策定などが提案された。これを受け、1977年に IAEA は第1回データセンターネットワーク (DCN) 会議を開催した。名古屋大学プラズマ研究所と日本原子力研究所 (当時) が参加し、アメリカ、フランス、ロシアとともにコアグループとして今日まで DCN の一翼を担い、原子分子データの収集とデータベース活動を行なっている。DCN 会議では、核融合プラズマ研究に必要な原子分子過程やプラズマ・壁相互作用の数値データや文献データの収集や研究活動が議論され、参加センターの原子分子データ活動の情報交換とともに国際的なデータ活動の方向性が議論されている。データフォーマットの標準化なども議論されてきている。

データベースは、90年代後半以降、インターネットを利用した WWW での公開が国際的にも行われるようになり、格段に利用しやすくなった。2001年末からは、原子データの検索エンジン GENIE [9] が IAEA によって開発・運用され、ネットワーク上の複数の原子データベースの検索が同時に行えるようになった。国際的な協力体制でのデータ交換フォーマットの策定も80年代後半から進められており、80~90年代は、ALADDIN [10, 11] というフォートランベースのフォーマット、2006年からは XML を用いたフォーマット XSAMS の策定が進められている [12]。ALADDIN はあまり普及せず、現在はほとんど用いられていない。XSAMS は、原子分子データとプラズマ固体相互

作用の数値データを XML で記述するためのルールブックのようなものであり、完成に近づいてきている。

近年はさらにインターネット上の仮想データベース構想が進んでいる。先んじているのは2002年より始まった国際ヴァーチャル天文台連合 [13] で、各国の天文台で観測した天体の観測データのデータベースを、仮想的に統一した巨大データベースとして検索したりデータ解析ができるようにしたものである。そのためのデータフォーマットの統一や、データ検索や表示用のツールの開発などが各国の協力によって進められ、運用が行われている。

原子分子数値データに関しても、XSAMS という XML を用いたデータフォーマットを使い、IAEA の DCN を中心とした仮想データセンター構想が検討されている。EU においては、既に VAMDC という仮想原子分子データセンタープロジェクトが2009年7月から3年半の予定で進められている [14]。VAMDC は、ヨーロッパを中心とした15の大学・研究所における原子分子の研究グループが参加し、核融合に限らず、天体や大気化学、環境、燃焼化学、プラズマ産業応用などの研究のための原子分子データを、統一したフォーマットで提供しデータ交換を可能とするプロジェクトである。まだ開発段階であるが、 β テスト版として分光データを参照するクライアントソフトも作られている。仮想原子分子データセンターに各データベースが参加するには、それぞれにおいて XSAMS に対応した出力を出せるような改造と、そのデータを検索・参照するクライアントソフトの開発が必要となるため、各データセンターにおいてはまだ対応が進んでいない状況である。

原子分子データを積極的に流通させ、原子分子物理学研究者、データを利用する様々な分野の研究者、原子分子データセンターとの交流を図るための国際会議 ICAM-DATA (原子分子データとその応用に関する国際会議) が1997年に設立され [15]、2000年以降2年ごとに開催されている。第8回会議が2012年9月、第1回と同じ NIST で開催予定になっている。日本でも同様の交流コミュニティ形成をめざした NPO 法人原子分子データ応用フォーラムが2010年に設立され、情報交換やセミナーなどを行っている [16]。また、プラズマ・核融合学会の50周年記念事業の一環として、プラズマ研究者を対象とした原子分子過程の基礎と応用例を紹介したハンドブックも2011年に出版された [17]。本講座と合わせて参照してほしい。(村上 泉)

1.2 データベースの活用研究例

原子分子データの詳しい話の前に、ここでは、様々な分野における原子分子データを活用した研究例を紹介する。プラズマ中の原子分子過程を記述する原子分子データは、化学反応モデルや分光計測解析のための分光モデルに用いられ、様々なプラズマの理解に必要となっている。分光計測解析等における原子分子データの詳細な利用方法や、ここでは取り上げていない天体プラズマ、超高層プラズマ、レーザー生成プラズマなどの例が、文献 [17] に詳しく述べられているので、こちらも参照されたい。

a) NBI を用いた高速イオン荷電交換分光計測

高速イオン荷電交換分光計測は、プラズマ中を周回する高速イオンの空間分布を計測する手法で、近年、米国・カリフォルニア大学アーバイン分校の W. W. Heidbrink 氏らのグループによって提唱され、DIII-D トカマクにおいて開発された手法である [18, 19]。この手法は、プラズマ中に存在する高速の重水素イオン ($D_{\text{fast-ion}}^+$) と外部から中性粒子ビーム (Neutral Beam: NB) によって導入された高速の中性粒子 (D_{NB}^0) との間の荷電交換反応の結果生じた高速中性粒子 ($D_{\text{fast-ion}}^0$) がプラズマ中を飛行する際に発するドップラーシフトした Balmer- α ($D\alpha$) 光を用いて高速イオンの計測を行うことから、FIDA (Fast-Ion Deuterium-Alpha) 計測と呼ばれ、現在、多くの環状磁場閉じ込め装置において、高速イオンの閉じ込めを議論する際のツールとして利用されている [20-24]。多くの場合、核融合プラズマ実験装置では、重水素プラズマに重水素ビームを入射する実験を行うので、この名称で問題ないが、重水素を使用せずに軽水素を用いた装置で実験するものにとっては、この名称は使えない。また、対象とするプラズマの種類によって計測手法の名称が変化することは大変紛らわしいので、ここでは高速イオン荷電交換分光計測を英訳した略称である FICXS (Fast-Ion Charge eXchange Spectroscopy) を使わせていただく。

下式に FICXS 計測を行う上での重要な荷電交換反応を示す。(下式では、軽水素を念頭に置いて表記している。重水素の場合は H を D と読み替えていただきたい。)



ここで、 H_{halo} はプラズマ中にいたバルクイオンが NB と荷電交換反応を起こした結果生成した中性粒子のことを表し、通常ハロー中性粒子と呼ばれる。ハロー中性粒子は、NB を入射している時のみ、それが通過する領域およびその周辺に存在し、(2)式中の $H_{\text{bulk-ion}}^0$ と同一のものを表す。ここでは、(3)式に示される反応で生成した H_{halo}^+ と (2)式の $H_{\text{bulk-ion}}^+$ を区別するために、 H_{halo}^+ と記している。前述したが、FICXS 計測では (1)式右辺に示される中性化した高速イオン ($H_{\text{fast-ion}}^0$) の内の $n=3$ の励起状態にあるものから発せられる H α 光 (656.28 nm) を利用する (詳しくは、文献 [19] 参照のこと)。この FICXS 成分による H α 光の強度は非常に小さいので、観測を行うにあたっては、観測視線や観測波長域を注意深く選ぶ必要がある。例えば、通常の H α 光計測は、真空容器壁などからリサイクリングによって発生した水素原子から発せられるプラズマ周辺部での発光が支配的になる。またハロー中性粒子が発する H α 光も無視できない。幸いこのような中性粒子のエネルギーは、観測対象としている高速イオン (10–20 keV 以上) と比べ小さいため (リサイクリング中性粒子の場合は 3–5 eV、ハロー中性粒子はイオン温度程度 (1–10 keV 程度))、そのドップラーシフト量 (ドップラー拡がり) は小さく、観測対象とする波長域を適切に選ぶことによって、それらの

影響を除去する。また、観測データの中には、リサイクリング等によってプラズマ周辺部で発生した中性粒子と高速イオンが観測視線上で荷電交換反応を起こした際に発する H α 光や制動放射による連続スペクトル光に起因する背景光が含まれる。このような成分は観測波長域を変更することで除去することはできないが、この場合は NB を見込まない観測視線や NB のモジュレーション運転によって背景光成分を観測し、観測データから除去する。図 1 に核融合研の大型ヘリカル装置 (LHD) で観測された典型的な FICXS のスペクトルを示す。このデータは図 2 に示される

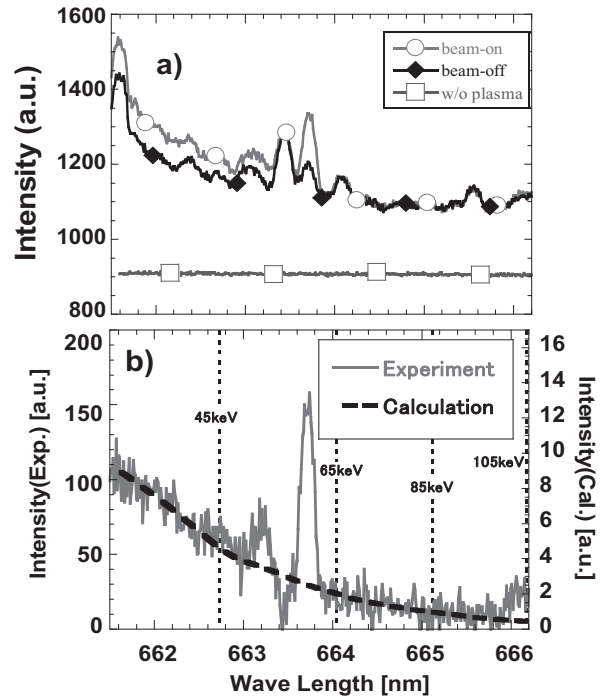


図 1 (a) LHD における高速イオン荷電交換分光素 (FICXS) スペクトル。(○)径方向 NB 入射時のものと (◆) 同 NB 非入射時の受動的な FICXS スペクトル。(□) プラズマがない時に観測された分光器のノイズレベル (b) 実線: 径方向 NB 入射時の観測スペクトルから非入射時のスペクトルを差し引くことによって求めた NB によって導入された能動的な中性粒子源に起因する FICXS スペクトル成分。破線: 高速イオン輸送シミュレーションコード (GNET) の結果をもとに評価した FICXS スペクトル。

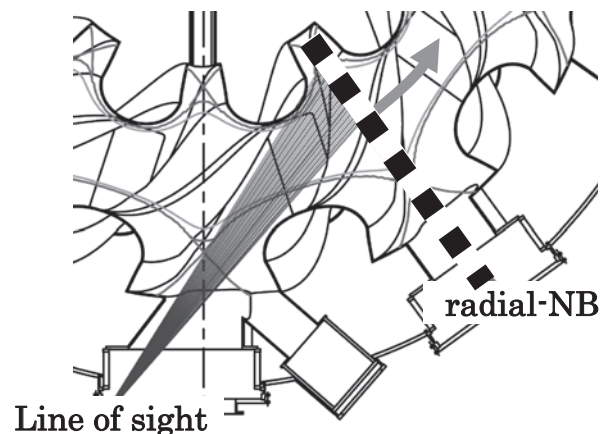


図 2 LHD 接線視野 FICXS 計測の観測視線 (Line Of Sight: LOS)。

ような接線視野を持つ観測視線からの計測によって得られたもので、赤方偏移したH α 光を計測している。接線入射したNBによってプラズマ中に矢印の方向に走る高速イオンが生成されており、それらが観測視線に能動的な中性粒子源として入射されたNBおよびそれに付随するハロー中性粒子と荷電交換反応を起こした際に発する光を観測している。図1(a)には、このNBを入射した時の観測結果(○)としていない時の結果(◆)を表す。前述したように計測NBとプラズマ中の高速イオンとの間の荷電交換反応をおこした成分は両者の差分を用いて評価され、それは図1(b)の実線ようになる。図中の点線の位置に対応する波長は、そこに記されているエネルギーの高速中性粒子(H $_{fast-ion}^0$)が視線に沿って動くときと仮定した時に、その粒子が計測ポートに向かって発するドップラーシフトしたH α 光の波長である。また、663–664 nmの範囲には、線スペクトル成分が見られているが、これはプラズマ中の窒素不純物とNBが荷電交換反応を起こした際に発した光であると思われる。

プラズマ中の高速イオン閉じ込めの評価を行う際には、このようにして得られた実験結果と高速イオンのシミュレーション計算によって得られた結果を比較することによって行われるが、その際には原子分子データベースが必要不可欠である。例えば、この計測手法の空間分解能を評価する上では、NBのプロファイル半値幅や、荷電交換反応によって生成した高速水素中性粒子がH α 光を発する際の平均自由行程などを評価する必要がある。前者を評価する上では、イオン源を出発点とし、適切なビームの発散角、焦点距離を仮定したプロファイル計算と、ビームの経路上での減衰を評価した計算を組み合わせ、FICXS観測視線上でのNBプロファイルを計算して行う。このビーム減衰の評価の際には、プラズマによるビームのイオン化過程(電子との衝突電離、イオンとの衝突電離および荷電交換反応)を考慮するためにADAS[25]などのこれらの反応断面積を原子・分子のデータベースを用いて行う。プラズマによる減衰を含めたNBのプロファイル計算の詳細については、次節で説明されるので、ここでは割愛させていただく。また、中性粒子がH α 光を発する際の平均自由行程については、自然放射遷移確率(いわゆるアインシュタインのA係数)と観測しているビームの速度を用いて行う。A係数とは、原子一個が単位時間あたりに準位*k*から*i*に遷移する確率を表し、NISTのデータベース[26]などで調べることができる。H α 光発生に対するA係数A(3,2)は4.41×10⁷ [s⁻¹]であり、現在観測の対象となっている40–200 keVの水素原子の速度は5×10⁶ [m/s]程度であることから、その平均自由行程は10 cm程度となる。この値はFICXS観測視線に沿ったNBの半値幅(30–40 cm程度)よりも短いので、平均自由行程に起因する誤差の影響は小さい。また、視線が観測位置において磁気面に接するようにとられているので、NBのビーム幅に起因する空間分解能は、規格化小半径上の分解能として考えた場合には10%程度となる。

高速イオンシミュレーションの結果を元に、観測視線上

のFICXSスペクトルを評価する際には、下式で示される積分を数値的に実施する。

$$f(\lambda) = \int dL n_{NB}(L) n_f(\vec{r}(L)) \int d\phi \int dv_{\parallel} v_{\perp} \int dv_{\parallel} f_i(v_{\parallel}, v_{\perp}, \vec{r}(L)) \sigma_{cx}^{3-2}(v_r) v_r \delta(\lambda - \lambda_{FICXS}), \quad (4)$$

ここで、*L*は観測視線に沿った距離、 $\rho(L)$ は観測視線上のプラズマの規格化小半径を表し、 $n_{NB}(L)$ および $n_f(\rho)$ は、それぞれ観測視線上のNBの密度および高速イオンの密度を表す。 $n_{NB}(L)$ は、次節で述べられるプラズマによる減衰を考慮にいれたビームの分布計算によって求め、 $n_f(\vec{r}(L))$ はGNET[28]などの高速イオンシミュレーションコードによって、高速イオンの速度分布関数($f_i(v_{\parallel}, v_{\perp}, \vec{r}(L))$)と一緒に計算される。現在は、正確な表現ではないが $f_i(v_{\parallel}, v_{\perp}, \vec{r}(L)) \approx f_i(v_{\parallel}, v_{\perp}, \rho(\vec{r}(L)))$ 、 $n_f(\vec{r}(L)) \approx n_f(\rho(\vec{r}(L)))$ として解析を進めている。 v_{\parallel} 、 v_{\perp} は高速イオンの磁力線に対する並行方向および垂直方向の速度成分、 ϕ はそのジャイロ運動の位相を表す。 $\sigma_{cx}^{3-2}(v)$ は水素イオンと水素原子が荷電交換反応を起こした際にH α 光を発する際の反応断面積で、ADAS・その他の原子分子データベース[25,27]から得ることができる。 v_r はNBと高速イオンとの相対速度($v_r = |\vec{v}_r| = |\vec{v}_{NB} - \vec{v}_f|$)であり、 \vec{v}_{NB} 、 \vec{v}_f はそれぞれNBおよび高速イオンの速度ベクトルである。 δ はデルタ関数であり、 λ_{FICXS} はドップラーシフトしたH α 光の観測波長で、観測視線の向きを表す単位ベクトル(\vec{k}_{LOS})、高速イオンの速度ベクトル、H α 光の中心波長(λ_0)、および光速(*c*)を用いて $\lambda_{FICXS} = \lambda_0(1 - \vec{k}_{LOS} \cdot \vec{v}_f/c)$ と表される。(4)式は、(1)式に示される反応に対する積分であるが、実際には(3)式の反応(ハロー中性粒子と高速イオンとの荷電交換反応)に対しても(4)式同様の積分を実施し、その結果と(4)式の結果から観測視線上のFICXSスペクトルをシミュレーションコードの結果を用いて再構築し、実験結果と比較する。図1(b)に、このようにして再構築したスペクトルを破線で示す。この時、ハロー中性粒子と高速イオンとの荷電交換反応を計算するにあたっては、ハロー中性粒子の空間分布が必要となるが、これは、EIRENE-3D[29]等のプラズマ中の中性粒子輸送を計算するコードを用いて評価するが、このコードの中においても原子・分子の様々な反応に対する反応断面積データベースが利用されている。

このように、プラズマ中の高速イオンの振る舞いを調べる際には、様々な原子・分子データベースが使用されており、より精度の高い解析を行う上では、より多くの原子に対してデータベースが拡充していくことが望ましい。

(長壁正樹)

b) NBIを用いたビーム減衰解析

NBIから供給された水素ビームはプラズマ中でイオン化し、閉じ込め磁場にトラップされることでプラズマを加熱する。この時に重要なのは水素ビームの吸収率で、プラズマを効率よく加熱する重要な知見となる。一方で、プラズマに入射された水素ビームはプラズマとの相互作用による

電子の励起・脱励起により水素のバルマー線 ($H\alpha$: 656.28 nm) を放出する。ビーム放射 $H\alpha$ 線の発光強度は残留水素ビームの密度に比例するため、これを計測することで残留ビーム挙動、すなわちビームの減衰特性を知ることができる。

・ビーム放射 $H\alpha$ 分光計測

LHD の NBI ビーム入射軸に対して 62.4° および 134.7° の角度でドップラー分光計測器を設置し、ビーム放射 $H\alpha$ と背景 $H\alpha$ を分離計測した [30, 31]。計測データの一例として水素放電プラズマに炭素ペレットを入射した場合のビーム放射 $H\alpha$ の時間変化を図 3 (c) に示す。NBI 加熱パワーは 5 台でトータル 25 MW で、そのうち一台は荷電交換分光用にモジュレーション入射をしている。本計測のプローブビームである BL3 は 4.9 MW のビーム入射をしている (図 3 (a))。炭素ペレット ($\phi=1$ mm) は $t=3.85$ s から入射されており、ペレットの溶発によって電子密度が大きく上昇し、時間経過とともに減少していく (図 3 (b))。ビーム放射 $H\alpha$ 強度は炭素ペレット入射のタイミングで減少し、電子密度の減少に従って再び上昇していることがわかる (図 3 (c))。プローブビームのポート通過粒子数一定とみなせば、定性的には炭素イオンによるビーム吸収断面積の増加によって、ビーム粒子のイオン化が促進されていると考えられる。

・ビーム減衰解析への原子分子データベースの適用

イオン源を原点として観測地点 L でのビーム放射 $H\alpha$ の強度 $\Phi(L)$ はビーム粒子の密度 $N_b(L)$ および電子密度 $n_e(L)$ の積に比例する [32]。

$$\Phi(L) \propto n_e(L) \varepsilon_{cr}(L) N_b(L), \quad (5)$$

ここで $\varepsilon_{cr}(L)$ は発光係数 (beam emission coefficient) である。つまり、強い吸収が起きるとビーム粒子が減るが、 $H\alpha$ 強度は電子密度にも依存するので、電子密度を考慮すれば

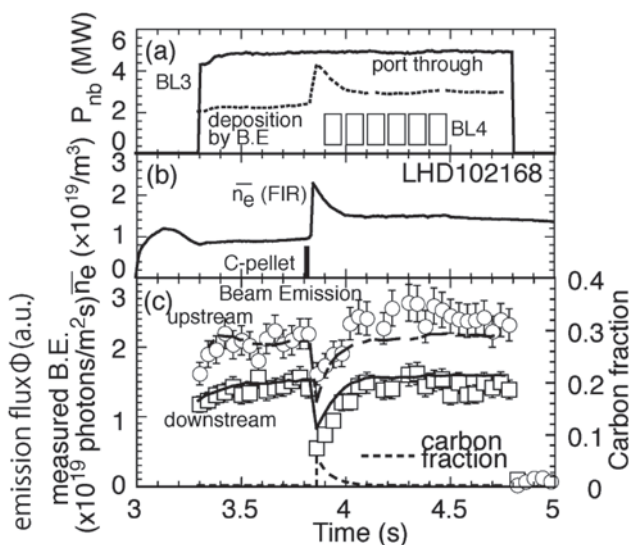


図 3 (a) NBI3 号機からの中性粒子ビームのポート通過パワーおよびビーム減衰解析で推定したビーム吸収パワー、(b) プラズマの線平均密度、(c) 計測した放射 $H\alpha$ の強度、および炭素不純物混合モデルによるビーム減衰解析で求めたビーム放射 $H\alpha$ 量 (相対値) の時間変化。

残留ビームの指標となる。また、残留ビーム密度はビーム入射軸線上における履歴 (電子密度分布、断面積分布、および不純物粒子の混合、等々) に影響されるため、ビーム放射 $H\alpha$ 強度から直接的に断面積は求まらない。そこで、原子分子データベースを用いたビーム減衰解析をする必要がある。

ビームの減衰解析として ADAS データベース [33] の中の ADF21 (Effective beam stopping coefficient: S_{cr}) と ADF22 (Effective beam emission coefficient: ε_{cr}) [34, 35] の 2 つを使用し、ビーム入射軸上の位置 L における電子密度およびイオン温度を用いて $S_{cr}(L)$ と $\varepsilon_{cr}(L)$ を見積る。ここでビーム断面積 $\sigma(L)$ は $S_{cr}(L)$ をビーム速度で割ったもので、ビーム粒子の質量 m とビームエネルギー E から

$$\sigma(L) = S_{cr}(L) \sqrt{m/2E}, \quad (6)$$

となり、位置 P における入射ポート通過ビーム密度を $N_b(P)$ とすると、位置 L における残留ビーム密度 $N_b(L)$ は

$$N_b(L) = N_b(P) \exp\left(-\int_P^L n_e(l) S_{cr}(l) \sqrt{\frac{m}{2E}} dl\right), \quad (7)$$

という減衰方程式で表すことができる。ビームエネルギーが一定のもとでビーム入射パワーはビーム粒子密度に比例するので、実際の計算ではビーム入射パワーを使用して相対的なビーム発光束 $\Phi(L)$ として評価し実験結果と比較した。

ビーム入射軸上の電子密度は図 4 のように炭素ペレットの溶発に伴ってプラズマの周辺部で大きく上昇している。ここで、ターゲットのプラズマとして水素と炭素の混合モデルを使い、炭素不純物の混合比としてペレット入射直後で 5.5% とし、時間とともに減衰するモデルを仮定した。図 3 (c) に示すようにモデル計算の結果は観測されたビーム発光の時間変化を良く再現していることがわかる。図 4 のビーム入射軸上のビームの減衰を見ると、炭素ペレット入射直前の $t=3.8$ s では平坦な密度分布に従いビームは一定の割合で減衰しているのに対し、 $t=3.9$ s の場合にはビームがプラズマに入った直後の $L=15.6$ m の密度のピーク付近から急激にビーム減衰が起きていることがわかる。この

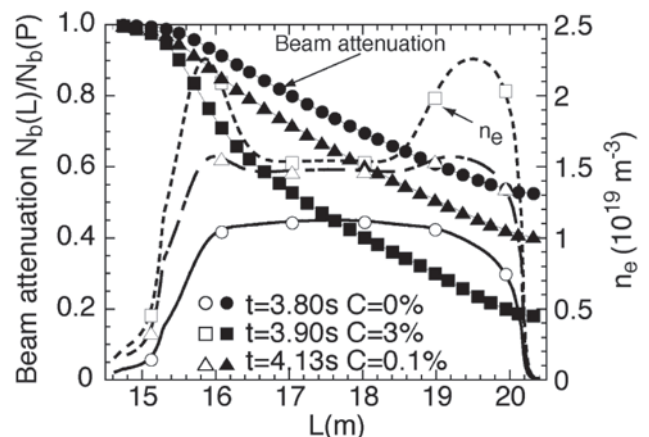


図 4 ビーム入射軸上の電子密度分布とビーム減衰率。

時、トータルのビーム吸収率は49%から88%まで急上昇し、その後、電子密度の減少とともに60%まで減少する。このビーム吸収率から求めた入射ビームの吸収パワーは炭素ペレット入射直後で4.9 MWのポート通過に対して4.3 MWとなる(図3(a))。このように、原子分子データベースを利用したNBIビームの減衰解析はビーム放射Haの発光強度とクロスチェックすることで、時系列のビーム吸収パワー評価に活用でき、計測手段が限定される核融合炉を想定した場合にプラズマ加熱を知る有効な手段になる。(池田勝則)

c) 重イオンビームプローブを用いたプラズマ計測

重イオンビームプローブ(HIBP)法により高温プラズマ中のポテンシャル分布とその揺動などを計測することができる[36]。核融合科学研究所大型ヘリカル装置(LHD)においては、金イオンビームを高エネルギー領域(~6 MeV)まで加速して利用する一方、核融合科学研究所コンパクトヘリカルシステム(CHS)やスペインのTJ-IIではセシウムやルビジウムのイオンビームを数100 keVのエネルギー領域で利用するなど、その装置サイズと閉じ込め磁場強度により、利用するビームの種類やエネルギー領域は異なってくる。ここでは、LHDのHIBPにおいて原子分子データの活用例を紹介する。

HIBPにおける計測原理と原子分子データが必要となる背景を説明する。図5は重イオンビーム生成、プラズマ電位計測の原理、およびHIBPシステム全体を表している。プラズマ中へ入射した1次ビームが観測点においてプラズマ粒子との相互作用を通して電子放出・電離の衝突過程によりイオン化され、そのイオン化された2次ビームがプラズマ中の閉じ込め磁場により軌道を変えながらエネルギー分析器に入射しビーム電流として検出される。計測器の設計を行う際、対象とするプラズマに対して十分なビーム電流量を検出できるかどうか重要になってくる。

LHDのHIBPにおいては、設計段階の検討[37]が1994年頃行われ、必要なビームエネルギーと電流量などが評価された。低エネルギー領域における金正イオンビーム生成の原理検証実験も行われている[38]。これらの結果、金正イオンを検出するためにはプラズマに入射する1次ビームは 10^{20} m^{-3} のプラズマに対し、 $10 \mu\text{A}$ 以上必要であると見積もられた。また電位揺動計測を行うにはさらに電流量を上げる必要がある。そのビームを生成するためにスパッタ型金負イオン源とタンデム加速器が採用されたが、LHD-HIBPは1次ビーム電流量が所期の目標値には達していなかったため、負イオン源の開発と並行して、2次ビーム検出のために必要な金負イオン電流量と1次ビーム生成のための変換効率の最適解を見直した[39]。

MeV領域のエネルギーを持つ1次ビーム生成量を見積もるためには表1にあるようにタンデム加速器内部の高電圧ガスセル内における金負イオン Au^- とガスA(ここではAr)との衝突反応を取り扱う必要がある。そのガスセル内で生じる Au^+ 、 Au^{2+} 、 Au^{3+} 等の多価イオンへの電離断面積($\text{Au}^{q+} + \text{Ar} \rightarrow \text{Au}^{(q+m)+} + m\text{e} + \sum \text{Ar}$, $m \geq 1$, $q = -1 \sim 3$)と価数 $q = 0 \sim 4$ の $\sum \text{Au}^{q+}$ のArガスとの衝突による

表1 HIBPにおいて取り扱った主要な原子過程。

重イオンビーム生成
Au^- の中性ガスAとの衝突による電離断面積, $\text{Au}^- + \text{A} \rightarrow \text{Au}^{(-1+m)+} + m\text{e} + \sum \text{A}$
Au^{q+} の粒子Aとの衝突による電子捕獲断面積, $\text{Au}^{q+} + \text{A} \rightarrow \text{Au}^{(q-1)+} + \text{A}^+$
プラズマ中の1次(2次)ビーム
Au^+ 、 Au^{2+} の電子やプラズマイオンとの衝突による電離断面積, $\text{Au}^+ + \text{e} \rightarrow \text{Au}^{(1+m)+} + m\text{e} + \sum \text{A}$
Au^+ 、 Au^{2+} のプラズマや中性粒子との衝突による電子捕獲断面積, $\text{Au}^{q+} + \text{A} \rightarrow \text{Au}^{(q-1)+} + \text{A}^+$
Au^+ 、 Au^{2+} のイオン A^{a+} による電子捕獲を経由した電離断面積, $\text{Au}^{q+} + \text{A}^{a+} \rightarrow \text{Au}^{(q+1)+} + \text{A}^{(a-1)+}$

注: $\sum \text{A}$ は電離や励起反応後の可能なすべての終状態Aを意味する。

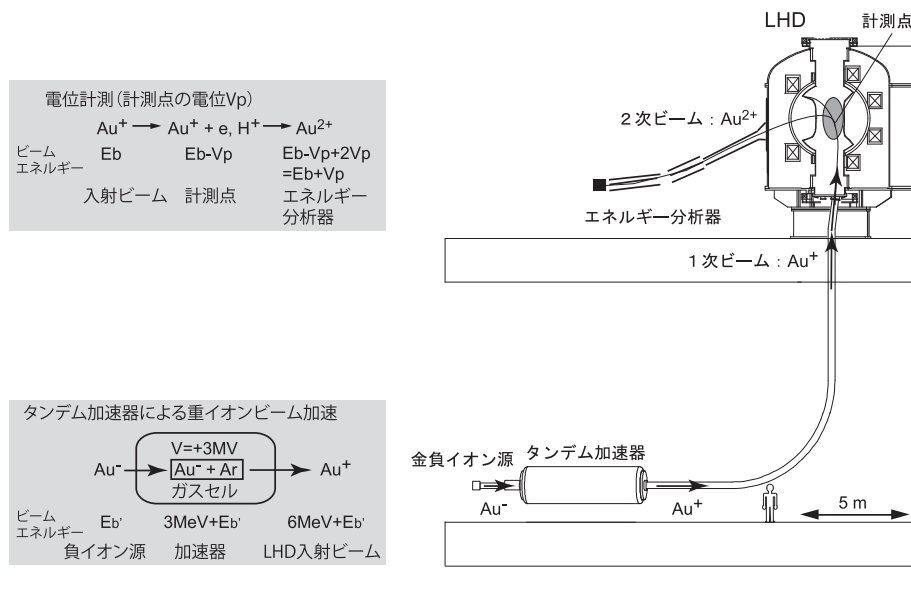


図5 LHD-HIBPのタンデム加速器による重イオンビーム入射系と電位計測のためのエネルギー分析器。

電子捕獲断面積 ($\text{Au}^{q+} + \text{Ar} \rightarrow \text{Au}^{(q-1)+} + \text{Ar}^+$) が必要になる。ここでは $q \sim 4$ 程度とした。また、プラズマ中の1次もしくは2次ビームに関しては、イオン・電子との衝突による電離断面積や電子捕獲断面積が必要になる。核融合科学研究所 (NIFS) や NIST などの原子分子データベースを検索したが登録されていたのはイオンビームの電子衝突による電離断面積のみだった。その他の原子分子過程に関するデータは論文等もなかったため、実験と理論の両面から電離および電子捕獲断面積を求める研究を開始した。

重イオンビーム生成に関してその詳細は参考文献 [40, 41] に譲るが、一例として、3 MeV の Au^- から Au^{q+} への変換効率のガス密度長依存性に関して以下に示す。タンデム加速器により発生する電荷状態 q は多くの衝突過程を取り扱うほど精度は向上するが、ここでは $q = -1 \sim 4$ までを取り扱った。ガスセル内のガス密度長 $x = NL$ として、衝突で生成される粒子の電荷分布割合 $F_q(x)$ を計算するために、計算で得られ、電離および電子捕獲断面積を用いて、以下のバランス方程式を解いた [42]。

$$\frac{dF_q}{dx} = \sum_{q'} F_{q'}(x) \sigma_{q'q} - F_q(x) \sum_{q'} \sigma_{qq'}, \quad (8)$$

$$\sum_q F_q(x) = 1, \quad (9)$$

ここで、 $\sigma_{qq'}$ は初期電荷 q から q' への電荷変換断面積である。電荷平衡状態では、

$$\frac{dF_q}{dx} = 0, \quad (10)$$

となり、その時電荷平衡状態の F_q^∞ となる。ここで、これらを解くために必要な電離断面積 $\sigma_{q'q}$ は Firsov モデル [43] を、電子捕獲断面積 $\sigma_{qq'}$ は CAPTURE コード [44] を用いて新たに計算した。ガスセル内のガス密度に対する電荷割合の計算結果を図 6 に示す。これから HIBP 計測に必要な Au^+ の生成のための最適値はガスセル内のガス密度長 $NL = 0.4 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ において Au^- から Au^+ への電荷分布割合 F_1 、すなわち変換効率が 22% になることがわかる。図 7 は実際に実験で得られた 3 MeV Au^- から Au^+ への変

換効率であり、最適変換効率は約 15% となった。実験から得られる変換効率はビーム軌道や焦点位置の調整により理論値に近づくものと考えられる。

Cu^- から Cu^+ への理論上の変換効率も得られている。さらに、実験的に幅広いエネルギー領域でその妥当性を検証している。しかし、低エネルギーの keV 領域ではその断面積の誤差は大きくなることが予想されるため、実験により

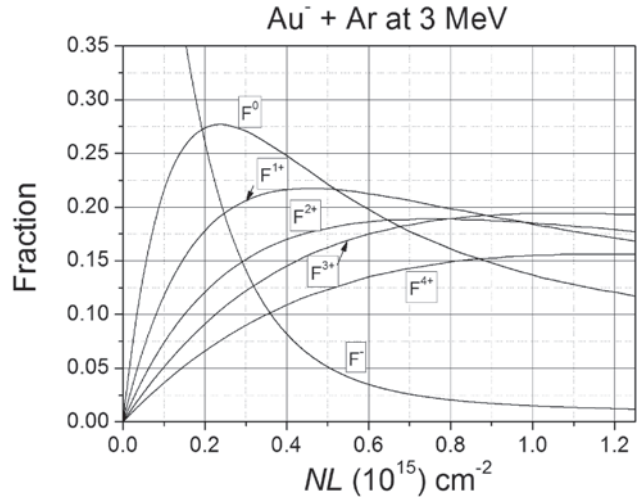


図 6 3 MeV Au^- の Ar ガスとの衝突により生じる Au^{q+} の電荷分布割合 F_q の Ar ガス密度長依存性の計算値 [40]。

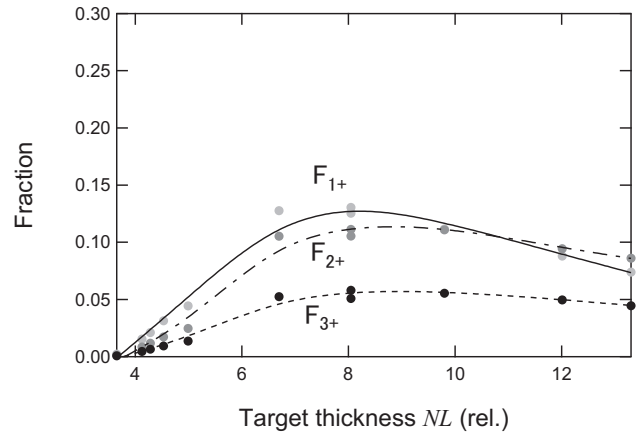
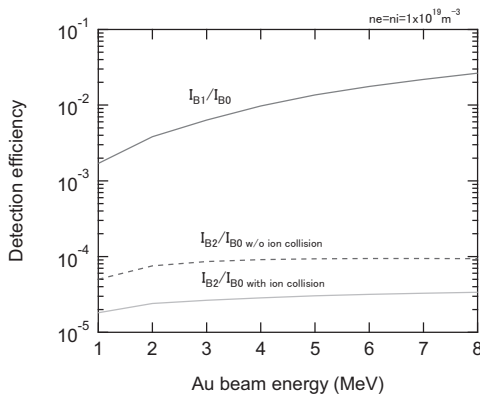
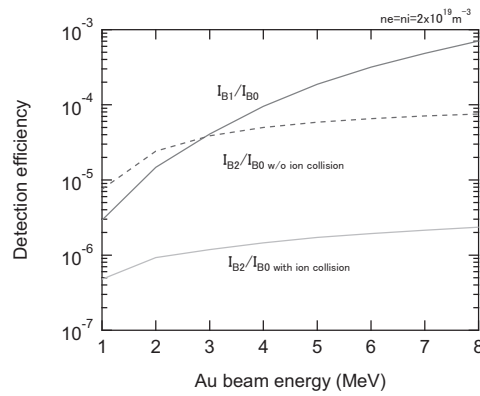


図 7 実験で得られた Au^- から Au^{q+} ビームへの電荷分布割合 F_q の Ar ガス密度長依存性 [40]。



(a) $n_e = n_i = 1 \times 10^{19} \text{ m}^{-3}$ の場合



(b) $n_e = n_i = 2 \times 10^{19} \text{ m}^{-3}$ の場合

図 8 プラズマを通過したビーム検出効率の計算結果。入射ビーム電流 I_{B0} 、プラズマ通過後の 1 次ビーム電流 I_{B1} 、エネルギー分析器に検出される 2 次ビーム電流 I_{B2} とし、それぞれその比を検出効率 I_{B1}/I_{B0} 、 I_{B2}/I_{B0} としてイオン衝突の影響を調べた。

その検証が行われている[45].

次に, LHD-HIBP の負イオン源の信号対雑音比や検出器の検出効率を評価するために, プラズマ中を通過する1次(2次)ビームの反応を模擬した. プラズマ中の Au ビーム減衰の計算例を図8に示す. 計算には電子密度 n_e , 電子の熱運動速度 v_e , イオン密度 n_{H^+} とし, その中をイオンビームが速度 v_B で通過するとして, 以下の式を用いた[39].

$$I_{B1} = I_{B0} \exp\left(-n_e \frac{\langle \sigma_{ei}^{1,2} v_e \rangle}{v_B} l_1 - n_{H^+} \frac{\langle \sigma_{loss}^{1,2} v_B \rangle}{v_B} l_1\right), \quad (11)$$

$$I_{B2} = \frac{\kappa_{mcp} I_{B1} \delta l}{v_B} (n_e \langle \sigma_{ei}^{1,2} v_e \rangle + n_{H^+} \langle \sigma_{loss}^{1,2} v_B \rangle) \times \exp\left(-n_e \frac{\langle \sigma_{ei}^{2,3} v_e \rangle}{v_B} l_2 - n_{H^+} \frac{\langle \sigma_{loss}^{2,3} v_B \rangle}{v_B} l_2\right), \quad (12)$$

ここで, I_{B0} , I_{B1} , I_{B2} はそれぞれ入射ビーム, 1次ビーム, 2次ビーム電流である. l_1 , l_2 , δl はそれぞれ1次ビーム軌道長, 2次ビーム軌道長, 2次ビームが発生する領域の微小長である. さらに, 2次ビームの検出効率は κ_{mcp} とした. プラズマ中に入射した Au^+ ビームは電子との衝突による電離断面積 $\sigma_{ei}^{1,2}$ だけでなく, イオンとの衝突による電離断面積 $\sigma_{loss}^{1,2}$, 電子捕獲断面積 σ_{cap} も考慮した. エネルギーが keV 領域のビームとは異なり, プラズマ密度が $2 \times 10^{19} m^{-3}$ になるとイオン-イオン衝突を考慮しなければ検出効率を一桁以上高く見積もってしまうと考えられる. このこととは別に, LHD のように MeV 領域のビームに対し, ビーム検出に用いている Micro channel plate (MCP) の増幅率が低くなっていることも示唆された.

プラズマ中の1次・2次ビーム量を評価するのに用いた断面積はその応用事例として HIBP による局所密度揺動計測の検討[46]に利用されている.

本研究は, 実験面に関しては LHD-HIBP グループで行った. 理論面では Levedev 研 Viacheslav Sheveloko 博士, 俵博之博士, Macedonian Academy of Sciences の Ratko Janev 博士, 核融合研加藤隆子名誉教授, 神戸大谷池晃准教授の他, 多くの方々に協力いただきました. ここに感謝いたします. (西浦正樹)

d) プラズマディスプレイパネル放電

プラズマディスプレイパネル (Plasma Display Panel; PDP) は, 大気圧に近い高いガス圧力下の Ne や Xe などの混合希ガス放電からの発光を利用した動画質に優れたディスプレイであり, 大画面化が容易な薄型フラットパネルディスプレイとして, 1990年代から2000年代にかけて精力的に研究開発が行われ, 今現在我々にとって身近な放電プラズマ応用機器の一つとして認知を得ている. その際, この PDP 開発における設計・制御指針を得るために, シミュレーションによる PDP 放電の高精度な特性予測が威力を発揮した[47]. それにより, PDP 放電のシミュレーション技術の進展はもとより, 予測の精度(確度)に大きな影響を及ぼす PDP 放電の原料ガスである Ne や Xe などの希ガスに関する原子分子基礎データ(電子衝突断面積, 反応レート係数, イオンの移動度, イオン衝撃による MgO 薄膜から

の二次電子放出係数など)の充実も同時に図られ, その結果原子分子基礎データの重要性が再認識されてきている.

本節では, この PDP 放電シミュレーションの一例として, 流体モデルに基づく Ne/Xe 混合ガス PDP 放電シミュレーションモデルの説明をした後, N_2 ガス添加が PDP 放電特性へ与える影響に関する結果の一例[48]を紹介する.

PDP 放電のシミュレーションモデルを図9に示す. 2枚の平行平板金属電極を $140 \mu m$ の間隔を空けて配置し, 両金属電極に対し MgO 膜で表面を保護された誘電体(厚さ $30 \mu m$, 比誘電率10)を貼り付けることで両誘電体間に $80 \mu m$ の放電ギャップが形成された構成を考える. 本ギャップ間に Ne/Xe (10%) 混合ガス(全ガス圧 600 Torr, ガス温度 300 K)を封入し, そこに両金属電極間に両極性パルス電圧を印加することで本ギャップ間に径方向均一な放電が発生するものとする. このとき, N_2 ガスは 0-1000 ppm の濃度で Ne/Xe 混合ガスに添加されるものとした.

本研究で適用した放電モデルは, 疑似熱平衡近似に基づく空間一次元流体モデル[48]である. 放電内の各粒子種の振る舞いを流体として取り扱い, 粒子数密度連続の式, ポアソンの式, 電子エネルギー保存式, 両誘電体表面への蓄積電荷の式の時間空間発展を空間一次元方向(図9の x 方向)で周期的定常解が得られるまで数値的に解くことで PDP 放電をシミュレートする. N_2 ガス添加された Ne/Xe 混合ガス PDP 放電内に存在する粒子種として, 重要と考えられる6種類の荷電粒子(e^- , Xe^+ , Xe_2^+ , Ne^+ , Ne_2^+ , N_2^+), 6種類の励起原子($Xe^*(1s_5)$, $Xe^*(1s_4)$, Xe^{**} , $Ne^*(1s_5)$, $Ne^*(1s_4)$, Ne^{**}), 3種類の励起分子(エキシマ)($Xe_2^* *$, Xe_2^* , Ne_2^*)を考慮した. また, このシミュレーションを行う上で重要な混合ガス下での電子輸送係数(移動度, 拡散係数, 衝突レート係数)を二項近似ボルツマン方程式解析ソフトウェア Bolsig+ [49]ならびに同梱の電子衝突断面積セットにより事前に求め計算に利用した. PDP 放電内で起こる反応過程として, 電子衝突(運動量移行, 励起, 電離など), ペニング電離, 電子-イオン再結合, 電荷交換, 中性粒子間衝突から構成される計95種類を考慮した[50].

図10に, $[N_2] = 0, 100, 1000 ppm$ 時における正極性時のパルス状 PDP 放電発生期間時の放電電流の時間変化を

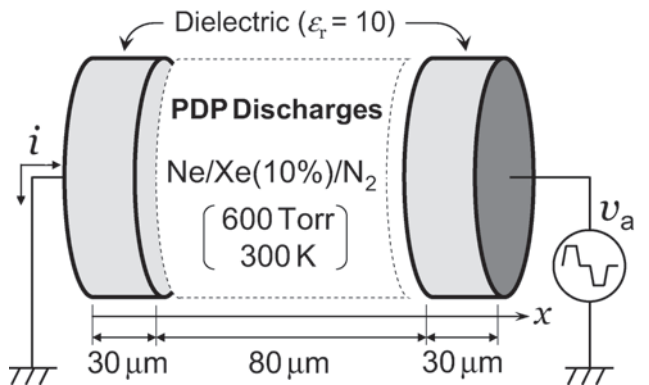


図9 N_2 添加 Xe/Ne 混合ガス PDP 放電のシミュレーション概念図.

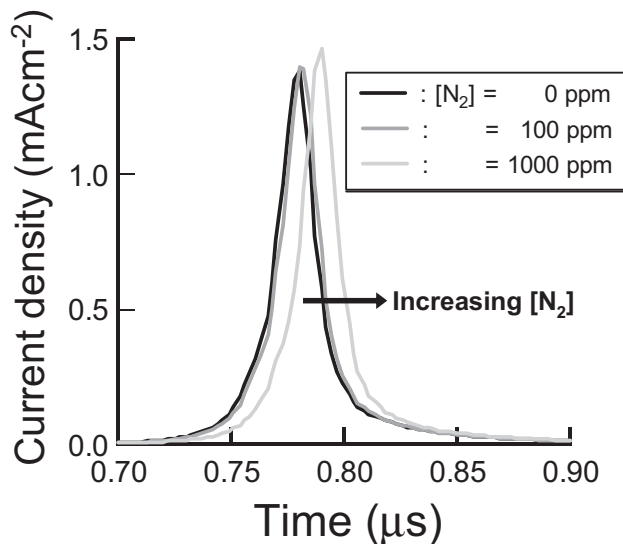


図10 様々な N_2 添加時における Xe/Ne 混合ガス PDP 放電の電流波形。

示す。本図より、 $[N_2] = 0$ ppm 時の結果に対して 100 ppm 添加時から放電電流のピークに遅れが生じ始め、1000 ppm 時でその遅れは 10 ns 程度となった。この放電形成遅れを生ずる理由としては、 N_2 ガス添加により、低電子エネルギー時に頻発する N_2 ガスの運動量移行衝突や回転および振動励起衝突（閾値エネルギー：0.02–2.35 eV）に伴う電子エネルギー損失が放電休止期間中に促進される。そのため、次のパルス放電を起こすために必要な電離衝突に寄与する高エネルギー電子生成のタイミングに遅れを生じ、放電形成遅れを生ずるものと考えられる。（小田昭紀）

e) プロセスプラズマ モンテカルロシミュレーションによる NLD プラズマの解析

NLD プラズマ

NLD (Neutral Loop Discharge) プラズマは RF (ラジオ周波数, 13.56 MHz) アンテナから電力を供給し駆動する誘導結合型プラズマである。低気圧・高密度のプラズマができ、半導体集積回路や MEMS のエッチングなどに用いられる。プラズマ容器を囲む上中下段 3 つの同軸コイルで磁界を印加するが、中段コイルの電流は他と逆向きで、磁界の一部を打ち消し磁界ゼロの環状領域 (Neutral Loop: NL)

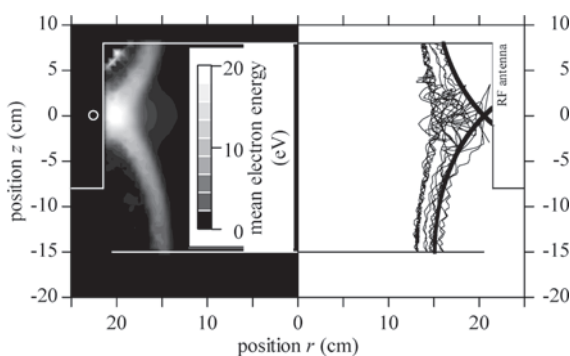


図11 NLD プラズマリアクター内の平均電子エネルギー分布 (左) と電子軌跡 (右) (右図太線の交点が Neutral Loop)。

を作る。プラズマ中の電子は磁界が弱い NL 近傍でエネルギーを得るため環状のプラズマが生成し、その位置はコイル電流で制御できる [51, 52]。プラズマ中でエッチャント (イオン, ラジカル) を生成する高エネルギー電子は磁力線に沿って流れることから (図11), プロセス中もエッチャント生成・照射域を磁界により動的に制御可能である。時間加重による大面積均一処理が提案されているが [53, 54], プラズマ維持機構, 種生成・輸送過程, 磁界制御指針など解明・検討が必要な事柄も多い。

本節ではプラズマ維持機構解明やプラズマへの電力投入の評価のため電子挙動解析を行っており、本節では解析に必要な原子分子データについて述べる。

解析モデルおよび解析に必要なデータ

NLD プラズマは数 Pa 程度の低気圧で駆動されるため、電子挙動解析には粒子モデルを用いている。電子は電磁界下の飛行と気体分子との衝突の両過程を繰り返すが、確率事象である衝突の生起判定と衝突時の反応の選択に乱数を用いるモンテカルロ法を採用している。

解析に必要な原子分子データは、電子衝突断面積と解離生成種 (分子, イオン, ラジカル) の各種反応の定量的情報である。

前者については、弾性, 励起 (回転, 振動, 電子励起), 電離, 解離, 電子付着など主要な過程が揃い、電子エネルギー分布や電子輸送係数を再現できるセットとしての信頼性が望まれる。電子エネルギー分布はエッチャント生成の定量評価となる電離・解離レートの算出に必要な情報で、これらレートは電子エネルギー分布に電子速度, 電子衝突断面積の重みをつけ気体分子と電子の数密度を乗じて積分することにより得られる。電子衝突断面積セット構成要素の一部が未知で電子エネルギー分布が算出できなくても、着目する反応の電子衝突断面積が既知であれば、プローブ測定などで得た電子温度の関数として与えられるマクスウェル分布を代用することで、上述の積分ができるようになる。しかし、多くの気体中で電子は熱的非平衡状態にあり、電子エネルギー分布は高エネルギー側の裾が短い非マクスウェル分布になりがちなため、高エネルギー領域の反応の見積りには慎重さを要する。

後者については、解離生成種間の反応を含む一連の化学反応経路が完結していることや、各段階における種の生成・消滅反応速度や種毎の輸送係数 (拡散係数, 移動度) の情報が求められる。特にエッチャント種とその前駆体, 空間電荷電界を形成しプラズマ構造を決める正負イオンに関するデータはプロセス評価に直結する。イオン, ラジカルは動きが遅く、電子運動追跡の時間ステップと比べ数桁長い時間をかけ蓄積される。そのため、電子以外の種の生成・消滅, 輸送は流体モデルで扱うハイブリッドモデルが採用されることがあるが、低気圧における流体モデルの適用限界, 結果の妥当性については別途吟味が必要である。

他のデータとしては、境界条件がプラズマ状態に大きく作用するため、またプロセス反応を直接評価するため、プラズマ中の種が器壁や基板面上で起こす諸反応 (反射, 吸着, 再放出, 再結合, 二次電子放出) の情報も必要となる。

しかし表面反応の多くは未知であり、表面状態（形状、温度、帯電、吸着など）や粒子の入射角度、エネルギーなどにも依存するものと推測される。モデルに組み込むことが技術的には可能でも実際のデータが希なため、表面反応の定量的扱いは必ずしも確立されていない。例え断片的なデータでもその情報は有用で、こうしたデータの充実も望まれる。（菅原広剛）

f) バイオ応用

近年、医療応用をめざしたプラズマプロセスが大きく注目されている。プラズマを用いた医療応用技術および治療法は、最近、広い意味で、「プラズマ医療」と総称されることが多い。プラズマ医療は、その目的別に、(1)プラズマによる殺菌、滅菌、(2)プラズマによる医療材料・バイオマテリアルプロセス、および(3)プラズマを直接生体に照射することによる治療、の三分野に大きく分けられる[55]。(1)のプラズマ殺菌・滅菌は、通常、高温に耐えられない物質に対する殺菌・滅菌を安価に処理することをめざすため、気体温度の低い大気圧プラズマの応用が期待されている[56-59]が、減圧容器のなかに処理する物体をいれて低圧の反応性プラズマを用いて処理する殺菌法も検討されている。(2)の材料プロセスでは、半導体製造プロセスなどで用いられる材料プロセスと同様、低圧プラズマが主として使われている[60-63]。(3)のプラズマによる生体の直接処理に関しては、通常、生体を減圧や高温の状態に置くことができないので、気体温度の低い大気圧プラズマが使用される[64-66]。特に、プラズマの生体組織への照射の場合は、生体組織が液体と共存することが多く、プラズマと液体の相互作用がきわめて重要である。

図12は、気相、液相、固相におけるプラズマとその生成粒子の分布例を示す。気相でプラズマを発生させると、その電子や光と気体原子・分子の衝突により、各種イオンや励起原子・分子、反応活性種等が生成される。これは、拡散などにより液相に輸送され、液体表面に付着、その後、さらに溶液中に拡散する。これら電子・イオン・反応活性種の大半は、水分子（溶媒分子）とクラスター（水和・溶媒和）を形成する。これらの中には、溶液中に存在する他の分子・反応活性種と反応して、さらに別の粒子種に形を変えるものもある。こうして液相中に輸送された反応活性種は、更に固相表面に輸送され、固体表面に吸着したり、あるいは、表面でなんらかの化学反応をおこしたりする場合もある。

生体の場合は、この固相部分が生体組織や細胞表面に対応し、液相は、例えば、血清等に対応する。血清は、タンパク質等の巨大高分子を含むので、溶液（血清）中に生成された反応活性種は、固相（生体組織や細胞壁）に到達する前にこれらの高分子と反応して、高分子を改質する可能性が高い。プラズマを生体に直接照射する治療においては、おそらく、このように改質された高分子と生体の相互作用が、その治療効果を決めている可能性が高い。

いずれにしても、プラズマの医療応用では、大気中の放電により生成された電子・イオン・反応活性種が、生体組

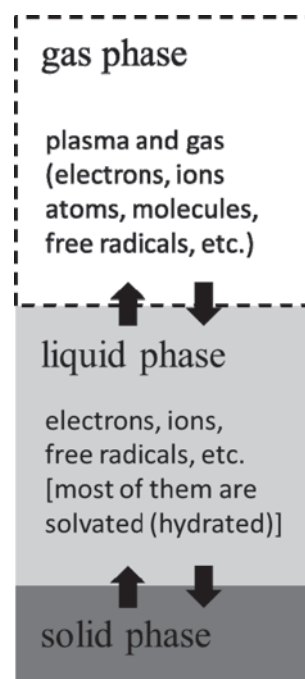


図12 気相、液相、固相におけるプラズマとその生成粒子の分布例。矢印は、相界面を通した、粒子の輸送を表す。

織（固相）に到達するまでに、気相から液相へと輸送される。そこで、本節では、プラズマのバイオ応用の特徴的な系として、図12のような、気相、液相、固相からなる系を想定して、気相と液相における化学反応を記述するためのデータベースについて議論する。輸送および界面反応についての議論は、割愛する。

気相における化学反応の数値計算の歴史は長い。大気圧放電に関して、反応速度方程式[17]を用いた0次元計算が1970年代にはすでに行われている。例えば、文献[67-69]は、オゾン生成に関するものであるが、最近では、大気圧放電への関心の高まりにつれて、各種大気圧放電による反応生成物の計算が精力的に行われている。（例えば、参考文献[70-72]）これらの計算では、0次元ながらも、放電容器への粒子種（荷電粒子および中性粒子）の損失等も考慮に入れた、いわゆる global model が用いられている場合も多い[73]。これらの計算においては、単純な気体の放電の場合でも、放電により生成されるイオンや反応活性種、原子、分子の種類が多く、さらに、それら粒子間の反応を関連づける化学反応式の数が、粒子種の数の二乗程度になるため、計算は、きわめて大規模となる。また、これらの方程式は非常に強い非線形性をもつため、次に指摘するように、微量な量の不純物気体の存在が、最終的な反応生成物を支配することも多い。また、その非線形性のため、放電条件のわずかな変化（放電により生成される電子の数の多寡）により、最終的な反応生成物の分布が大きく変化することもある。

大気圧放電において、例えば、気相中に不純物として微量存在する水（湿度）の影響は、一般に無視できない。例として、ヘリウムの大気圧放電を考える。大気中で気体温度の低いプラズマを生成する際に、Heは放電気体としてよく用いられる。Heのイオン化エネルギーは、24.6 eVと

非常に高いため、通常の大気圧放電では、電子衝突により直接イオン化される確率はきわめて低い。一方、Heの長寿命で励起エネルギーの比較的高い準安定励起状態の励起種 He^* は多数生成されるため、これらが、基底状態にある他の原子・分子と衝突して、イオン化が進行する（ペニングイオン化）。このため、大気圧 He 放電においては、 He^+ イオンよりも、他の不純物イオンが主たるイオンとなる。大気圧下で（空気が存在しない状態で）He のみの放電を行う場合、不純物として H_2O が 1% 以下程度しか含まれていない場合でも、イオン種は、 H_2O 由来のものが大半となる [74]。（文献 [70] の計算では、同様の条件下で、 He^+ が主たるイオン種となるのは、 H_2O の密度が数 ppm 以下の場合であると報告されている。）また、大気圧 He 放電に、わずか（1 ppm 以下）でも N_2 が混入すると、 N_2^+ イオンが放電中の主たるイオンとなるという報告もある [75]。

放電で生成された陽・陰イオンは、一般に、大気中に不純物として存在する少量の H_2O とクラスターを形成して存在する。ただし、気相中の電子は、水分子と気相中で衝突すると、



のような解離性電子付着を行う。このため、気相中では、通常、水和電子は存在できない。例えば、大気圧 He 放電で、わずかな量の水分子が不純物として存在する場合には、 OH^- およびその水和イオン $\text{OH}^-(\text{H}_2\text{O})_x$ が主要な陰イオンとなる例が報告されている [76]。また、この場合、陰イオン密度は、電子密度と同程度となり、準安定励起種も、 He^* 、 He_2^* よりも、（励起エネルギーの低い）一重項酸素原子 $\text{O}(^1\text{D})$ 、一重項酸素分子 $\text{O}_2(^1\Delta_g)$ 、励起状態のヒドロキシラジカル $\text{OH}(^2\Sigma)$ 等が主要な励起種となると報告されている [71]。

これらのシミュレーションを行うためには、反応速度係数が必要であるが、それらを過去の文献から得るためには、様々なデータベースを利用すると便利である。ただし、一つのデータベースで必要な反応係数がすべて揃うことは、まずない。参考までに、気相反応の中性分子・ラジカル間衝突に関する反応速度係数を得るのに役に立ちそうなデータベースを挙げると、次のようなものがある。

GRI-MECH Reaction Rate Database (<http://www.me.berkeley.edu/gri-mech/>)

NIST Chemical Kinetics Database (<http://kinetics.nist.gov/kinetics/index.jsp>)

IUPAC の Evaluated Kinetic Data (<http://www.iupac-kinetic.ch.cam.ac.uk/>)

電子との衝突によるイオン化、励起、解離などの反応速度は、仮定する電子のエネルギー分布に強く依存するため、データベースや過去の文献から得られる反応断面積をもとに計算するほうが望ましい。

液相における荷電粒子と反応生成物の分布については、現在のところ、あまり詳細が知られていない。しかし、液相、特に、水溶液中の水和電子や水和イオンが引き起こす反応については、放射線化学の分野で、詳細に調べられている。例えば、純水にガンマ線が照射されると、水分子が分解され、水和電子 e_{aq} と水イオン H_2O^+ が生成されるが、水イオンは直ちに水分子と反応して、水和プロトン H_3O^+ （あるいは、水溶液中では、単に、 H^+ と記述することも多い）とヒドロキシラジカル OH に分解される。

放射線による水の分解の場合、放射線の強度が強い場合は、液中十分深く放射線が到達して、液中でこれらのイオンが生成されるのに対し、大気圧プラズマの液面への照射の場合、イオン種は液面に到達して付着し、その後、液中に拡散するだけである。プラズマと液面の相互作用については、詳しいことは知られていないが、十分な湿度のある大気中では、イオンの大半が水和していることを考えると、イオン種はそのまま、液体表面に付着すると考えてよさそうである。また、液面に到達した低エネルギー電子は、まずは、液体表面に付着して、水和電子となると考えてよさそうである。ただし、水和電子は、反応すべき溶質があれば、即座に反応する。

電子・イオン・反応活性種が気相から液相に輸送され、液中で液中特有の反応を経て、最終的に生成する反応生成物の数は多い。そのうち、ヒドロキシラジカル OH 、ヒドロペルオキシラジカル HOO 、スーパーオキシドアニオン O_2^- 、ペルオキシナイトライトアニオン ONOO^- などが、生体との反応に重要な役割を果たすと考えられている。これらは、前述したように、生体（細胞）に直接相互作用するばかりでなく、細胞を取り囲む溶液（血清等）中の各種タンパク質・糖質・脂質など反応して、これらを変質させ、これらが生体に接触することで、間接的に、生体へ影響を与える可能性も高い。プラズマ照射とこれらの液中の生化学反応の詳細については、現在、ほとんど知られていない。

液中の反応データベースとしては、NDRL/NIST Solution Kinetics Database (<http://kinetics.nist.gov/solution/>) がよく知られている。しかし、このデータベースにおいても、すべての液相反応を網羅しているわけではないので、必要な反応データを得るために、別途、論文検索を行う必要がある。

以上、プラズマのバイオ応用を考える際に必要な、原子・分子反応データベースについて、簡単に議論した。本来であれば、図 12 中の最も下の相である固相（すなわち、生体組織・細胞等）と液中の水和電子やイオン・反応活性種との相互作用を議論すべきであるが、ページの都合もあり、ここでは割愛する。実際、反応活性種（活性酸素 = ROS や活性窒素 = RNS）と生体の相互作用はきわめて複雑で、未知のことも多い。 (浜口智志)

参考文献

- [1] 例えば、AMBDAS (Atomic and Molecular Bibliographic Data System), <http://www-amdis.iaea.org/AMBDAS/>
- [2] NIST Atomic Spectra Database, <http://www.nist.gov/>

- pml/data/asd.cfm
- [3] Molecular Spectroscopic Data, <http://www.nist.gov/pml/data/molspecdata.cfm>
- [4] NIFS Atomic and Molecular Numerical Database, <http://dbshino.nifs.ac.jp/>
- [5] 後藤基志 他：プラズマ・核融合学会誌 **79**, 1287 (2003); **80**, 45 (2004); **80**, 139 (2004).
- [6] 高柳和夫：IPPJ-DT-44 (1974).
- [7] 高柳和夫, 鈴木洋 編：原子過程断面積データ集第1集, IPPJ-DT-48 (1975).
- [8] 高柳和夫, 鈴木 博, 大谷俊介 編：原子過程断面積データ集第2集, IPPJ-DT-50 (1976).
- [9] A General Internet Search Engine for Atomic Data "GENIE", <http://www-amdis.iaea.org/GENIE/>
- [10] R.A. Hulse, in "Atomic processes in plasmas", eds. Y.-K. Kim and R. C. Elton, AIP Conf. Proc. **206**, 63 (1990).
- [11] ALADDIN (A Labelled Atomic Data Interface), http://www-amdis.iaea.org/ALADDIN/al_functions/general.html;
- [12] XSAMS (XML Schema for Atoms, Molecules, and Solids), <http://www-amdis.iaea.org/xml/>
- [13] International Virtual Observatory Alliance, <http://www.ivoa.net/>
- [14] Virtual Atomic and Molecular Data Centre, <http://www.vamdc.eu/>
- [15] ICAMDATA, <http://physics.nist.gov/Divisions/Div842/Icamdata/Homepage/icamdata.html>
- [16] <http://www.am-data-forum.com/>
- [17] 浜口智志他 編：プラズマ原子分子過程ハンドブック (大阪大学出版会, 2011).
- [18] W.W. Heidbrink *et al.*, Plasma Phys. Controlled Fusion **46**, 1855 (2004).
- [19] Y. Luo *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **78**, 033505 (2007).
- [20] E. Delabie *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **79**, 10E522 (2008).
- [21] M. Podesta *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **79**, 10E521 (2008).
- [22] M. Osakabe *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **79**, 10E519 (2008).
- [23] M. Garcia-Munoz, Nucl. Fusion **50**, 084004 (2010).
- [24] T. Ito *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **81**, 10D327 (2010).
- [25] H.P. Summers, The ADAS User Manual, version 2.6 (<http://www.adas.ac.uk/>)
- [26] NIST Atomic Spectra Database, http://physics.nist.gov/PhysRefData/ASD/lines_form.html
- [27] CHART and AMDIS databases from NIFS atomic and molecular databases (<http://dbshino.nifs.ac.jp/>).
- [28] S. Murakami *et al.*, Fusion Sci. Technol. **46**, 241 (2004)
- [29] D. Reiter *et al.*, Fusion Sci. Technol. **47**, 172 (2005).
- [30] K. Ikeda, M. Osakabe, A. Whiteford *et al.*, J. Plasma Fusion Res. SERIES **8**, 987 (2009).
- [31] K. Ikeda, M. Osakabe, A. Whiteford *et al.*, J. Plasma Fusion Res. SERIES **9**, 88 (2010).
- [32] W. Mandl, R.C. Wolf, M.G. von Hellermann and H.P. Summers, Plasma Phys. Control. Fusion **35**, 1375 (1993).
- [33] ADAS project <http://www.adas.ac.uk/index.php>
- [34] H. Anderson, M.G. von Hellermann *et al.*, Plasma Phys. Control. Fusion **42**, 781 (2000).
- [35] H.P. Summers, H. Anderson, T. Kato and S. Murakami "Hydrogen Beam Stopping and Beam Emission Data for LHD" NIFS-DATA-55 Nov. (1999).
- <http://www.nifs.ac.jp/report/NIFS-DATA-055.pdf>
- [36] 井戸 毅, 清水昭博, 西浦正樹：プラズマ・核融合学会誌 **86**, 507 (2010).
- [37] A. Fujisawa, H. Iguchi, A. Taniike, M. Sasao and Y. Hamada, IEEE Trans. Plasma Sci. **22**, 395 (1994).
- [38] A. Taniike: *Energy Loss Mechanism of a Gold Ion Beam on a Tandem Acceleration System* (NIFS, Nagoya, PhD Thesis), and NIFS Report-352 (1995)
- [39] M. Nishiura, T. Ido, A. Shimizu, R.K. Janev, T. Kato, S. Kato, K. Tsukada, M. Yokota, H. Ogawa, T. Inoue, H. Nakano, Y. Hamada and LHD Experimental Group, Plasma Fusion Res. **2**, S1099 (2007).
- [40] M. Nishiura, H. Tawara, T. Ido, A. Shimizu, V.P. Shevelko and LHD experimental group, NIFS-884, Jan. (2008).
- [41] M. Nishiura, T. Ido, A. Shimizu, H. Nakano, V.P. Shevelko, R.K. Janev, T. Kato, S. Kato, Y. Hamada, M. Wada and LHD experimental group, Rev. Sci. Instrum. **79**, 02C713 (2008).
- [42] H.D. Betz, Rev. Mod. Phys. **44**, 465 (1972).
- [43] J.F. Ziegler, J.P. Biersack and U. Littmark (ed. by J.F. Ziegler), *The Stopping and Range of Ions in Solids* (Pergamon, New York, 1985). Part I, p. 48.
- [44] V.P. Shevelko, O. Rosmej, H. Tawara and I.U. Tolstikhina, J. Phys. **B37**, 201(2004).
- [45] A. Taniike, T. Ido, M. Nishiura, A. Shimizu, Y. Furuyama and A. Kitamura, Plasma Fusion Res. **5**, S2087 (2010).
- [46] H. Nakano, T. Ido, A. Shimizu, M. Nishiura, S. Ohshima and S. Kato, Proc. Int. Toki Conf. 2007 (ITC17).
- [47] J. Meunier, Ph. Belenguer and J.P. Boeuf, J. Appl. Phys. **78**, 731 (1995).
- [48] A. Oda and Y. Hirano, IEEE Trans. Fundamental and Materials **131**, 357 (2011).
- [49] G.J.M. Hagelaar and L.C. Pitchford, J. Phys. D: Appl. Phys. **14**, 722 (2005).
- [50] Y. Hirano *et al.*, Proc. 26th IDRC, 282 (2006).
- [51] T. Uchida, Jpn. J. Appl. Phys. **33**, L43 (1994).
- [52] T. Uchida and S. Hamaguchi, J. Phys. D: Appl. Phys. **41**, 083001 (2008).
- [53] H. Sugawara, T. Osaga, H. Tsuboi, K. Kuwahara and S. Ogata, Jpn. J. Appl. Phys. **49**, 086001 (2010).
- [54] H. Sugawara, Proc. 7th Int. Conf. Reactive Plasmas, DTP.27, 4-8 Oct., 2010, Paris, France.
- [55] 浜口智志：プラズマ・核融合学会誌 **87**, 696 (2011).
- [56] J. Ehlbeck, U. Schnabel, M. Polak, J. Winter, Th. von Woedtke, R. Brandenburg, T. von dem Hagen and K.-D. Weltmann, J. Phys. D: Appl. Phys. **44**, 013002 (2011).
- [57] S. Ikawa, K. Kitano and S. Hamaguchi, Plasma Process. Polym. **7**, 33 (2010).
- [58] 北野勝久, 浜口智志：応用物理 **77**, 383 (2008).
- [59] M. Laroussi, Plasma Process. Polym. **2**, 391 (2005).
- [60] 石原一彦 編：バイオマテリアルの基礎 (日本医学館, 2011).
- [61] B.D. Ratner *et al.* *Biomedical Engineering Desk Reference* (Academic Press, 2009).
- [62] A. Milella, R. Di Mundo, F. Palumbo, P. Favia, F. Fracassi and R. d'Agostino, Plasma Process. Polym. **6**, 460 (2009).
- [63] P.K. Chu, J.Y. Chen, L.P. Wang and N. Huang, Mat. Sci. Eng. **R36**, 143 (2002).
- [64] K.D. Weltmann, E. Kindel, T. von Woedtke, M. Hähnel, M. Stieber and R. Brandenburg, Pure Appl. Chem. **82**,

1223. (2010)
- [65] M.G. Kong, G. Kroesen, G. Morfill, T. Nosenko, T. Shimizu, J. van Dijk and J.L. Zimmermann, *New J. Phys.* **11**, 115012 (2009).
- [66] G. Fridman, G. Friedman, A. Gutsol, A.B. Shekhter, V.N. Vasilets and A. Fridman, *Plasma Process. Polym.* **5**, 503 (2008).
- [67] S. Yagi and M. Tanaka, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **12**, 1509 (1979).
- [68] R. Peyrous, P. Pignolet and B. Held, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **22**, 1658 (1989).
- [69] B. Eliasson and U. Kogelschatz, *IEEE Trans. Plasma Sci.* **19**, 309 (1991).



むす かみ いずみ
村上 泉

核融合科学研究所核融合システム研究系教授。主な研究分野はプラズマ中の原子分子過程。2011年は、1月に教授昇進で始まり、3月にプラズマ原子分子過程ハンドブックが出版、4月から学童保育保護者会とPTA役員を務め、科研費も頂き、その他諸々、いろいろな意味で当たり年に。2012年はどんな年になるでしょう。小学生と幼児の子育てに奮闘中。特定非営利活動法人原子分子データ応用フォーラム理事長。

- [70] D.X. Liu, P. Bruggeman, F. Iza, M.Z. Rong and M.G. Kong, *Plasma Sources Sci. Technol.* **19**, 025018 (2010).
- [71] D.X. Liu, F. Iza, X.H. Wang, M.G. Kong, and M.Z. Rong, *Appl. Phys. Lett.* **98**, 221501 (2011).
- [72] G.Y. Park, Y. J. Hong and H.W. Lee, *Plasma Process. Polym.* **7**, 281 (2010).
- [73] M.A. Lieberman and A.J. Lichtenberg, "*Principles of Plasma Discharges and Materials Processing*" (2nd edn., Wiley, 2005).
- [74] P. Bruggeman, F. Iza, D. Lauwers and Y. A. Gonzalvo, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **43**, 012003 (2010).
- [75] T. Martens, A. Bogaerts, W.J.M. Brok and J. van Dijk, *Appl. Phys. Lett.* **92**, 041504 (2008).



おさ かべ まさ き
長壁 正樹

核融合科学研究所・プラズマ加熱研究系。主な研究分野は、気持ちの上では、プラズマの中の高エネルギー粒子の閉じ込めで、場外乱闘的に、中性粒子ビーム入射装置の開発研究もやってますと言いたいところですが、現実には、逆になっています。10年ほど前に始めた自転車通勤をメゲズに続けています。体重の増加にともない、自転車のサドルの堅さが気になる今日この頃です。



いけ だ かつ のり
池田 勝則

核融合科学研究所のプラズマ加熱物理研究系に所属しています。LHD実験のお仕事はNBI 3号機を担当し、主な研究分野は中性粒子ビーム入射装置を用いたプラズマ加熱物理です。趣味と実益をかねた毎日のウォーキングで瘦身しました。先日、イベントで中山道（御嵩～細久手）を歩きましたが、中山道に比べると土岐を通過する脇往還の下街道の方が歩きやすく、武並～瑞浪付近の旧道がオススメです。



にし うら まさ き
西浦 正樹

1999年総合研究大学院大学数物科学研究科核融合科学専攻博士課程終了（理学）。日本学術振興会特別研究員、理化学研究所基礎科学特別研究員を経て核融合科学研究所助教。大型ヘリカル装置LHDで重イオンビームプローブ計測の高性能化、燃焼プラズマ下の高エネルギー粒子の振舞の理解等に興味がある。



おだ あきのり
小田 昭紀

2001年北海道大学大学院工学研究科電子情報工学専攻博士後期課程修了。博士（工学）。現在は、千葉工業大学工学部電気電子情報工学科准教授。低圧から大気圧下で生成される低温プラズマ（弱電離非平衡プラズマ）のモデリングおよびシミュレーションに関する研究に取り組んでいます。2011年4月から千葉での新生活がスタートしました。今は、研究室の立ち上げと、“魔の2歳”を迎える息子と妻とで奮闘する毎日です。



すが わら ひろ たけ
菅原 広剛

北海道大学大学院情報科学研究科准教授。同大学院工学研究科電気工学専攻修士課程平成4年修了、博士（工学）。主な研究分野は気体中電子輸送の基礎理論、プラズマのモデリングと計算機シミュレーション。現在はプロセス用磁化プラズマの解析に従事。趣味は外国語。国際会議の数ヶ月前から現地語を独習し旅先で使うのが楽しみ。



はま ぐち さとし
浜口 智志

大阪大学工学研究科教授。東京大学理学部物理学科卒、同大学院修士・博士課程を経て、ニューヨーク大学クーラン数理学研究所（大学院数学科）博士課程修了。理学博士、Ph.D. 専門はプラズマおよびプラズマ表面相互作用の理論・シミュレーション。



2. 原子分子データの基礎知識

加藤 太治

(核融合科学研究所 ヘリカル研究部 核融合システム研究系)

(原稿受付：2011年11月28日)

原子分子データは、対象とする“原子・分子固有の物理量”を指しており、それ故に様々な応用研究に“普遍的”に用いることができるデータである。本章は、原子分子データベースで提供されるデータの物理的意味など、本講座を読み進めるにあたって必要となる基礎知識を読者に提供することを目的としている。そこで、原子分子データを構造に関するものと衝突に関するものに分け、それぞれについてごく簡単に解説する。詳しい内容については他の文献[1]等も参照されたい。

Keywords:

atomic and molecular data, structure, cross section, reaction rate coefficient, transport coefficient

2.1 概観

まず、構造に関する主なものは、原子・分子の電子準位エネルギー、分子の振動・回転準位エネルギー、および準位間の光学的遷移確率（アインシュタイン係数）である。また、遷移に関係する準位エネルギーから得られる遷移波長は、プラズマの発光や物質の吸収スペクトルの解析に有用なデータである。準位エネルギーには、通常、対象としている原子・分子の基底状態のもの（最低エネルギー）を基準として測った値が与えられる。なお、エネルギー値は、ハートリー（1 hartree \cong 27.21 eV）やリュードベリ（1 Ry = 1/2 hartree）の単位で表されることもある。各準位は決まった量子数の組で指定される。量子数は、電子や原子核の振動数、角運動量、および配置の幾何学的対称性など、量子力学における運動の保存量に対応する。クーロン3体以上の非可積分な力学系ではエネルギー以外に厳密な運動の保存量は存在しないが、近似的な量子数は系の構造について見通しのよい分類方式を与える。

衝突に関する主なデータは断面積である。断面積の物理的意味は後で解説する。断面積はぶつかり合う粒子の相対速度の関数である。衝突によって生ずる特定の反応に対する断面積と衝突速度の積を、ある与えられた速度分布で平均したものを反応速度係数と呼ぶ。この反応速度係数は、プラズマ中の原子・分子の発光線強度の解析や、弱電離プラズマでの化学反応過程の分析に用いられる速度方程式を解くための基礎データとなる。また、物質中の原子の輸送係数（移動度や拡散係数）も原子衝突データに含まれる。後で解説するが、輸送係数は原子衝突での運動量移行断面積と関係するマクロな物理量である。光吸収も衝突過程に含まれる。光吸収断面積はプラズマの光学的厚み（オパシティ）などに直接関係する基礎データである。尚、一般に原子衝突の断面積といえば、孤立した1個の標的粒子が

入射粒子と衝突する場合を想定していることに注意する必要がある。量子論では、速度 v で運動している質量 m の粒子は、一定のド・ブローイ（de Broglie）波長 $\lambda = h/mv$ を持つ物質波である。ただし、 $h \cong 4.135 \times 10^{-15} \text{ eV} \cdot \text{s}$ はプランク定数である。例えば、1 eV のエネルギーを持つ自由電子のド・ブローイ波長は約 12 Å (1 Å = 10^{-10} m) である。この自由電子が気体状の標的粒子と衝突するとき、極端に密度が高くない気体中の標的粒子同士の距離は、自由電子のド・ブローイ波長よりもずっと長い場合が圧倒的に多い。この講座で取り扱う原子衝突の断面積が意味を持つのはこのような場合に限られる。

2.2 基礎知識

原子・分子の構造

原子の各電子軌道は、主量子数 $n\{1, 2, 3, \dots\}$ と方位量子数 $l\{0, \dots, n-1\}$ の組によって指定される(表1)。特に、同じ主量子数の軌道をひとまとまりして主殻(K殻, L殻, M殻など)と呼び、方位量子数に分けたものを副殻と呼ぶ。また、各副殻には磁気量子数 $m\{0, \dots, \pm l\}$ の数だけ縮退した準位がある。これに電子スピンの自由度が加わり、各副殻にはパウリ(Pauli)の排他律に従い $2 \times (2l+1)$ 個までの電子を配置できる。例えば、Ne原子の基底状態は $1s^2 2s^2 2p^6$

表1 電子軌道の分類と量子数。

主量子数 n	方位量子数 l	磁気量子数 m	電子軌道名
1 (K 殻)	0	0	1s
	0	0	2s
2 (L 殻)	1	$0, \pm 1$	2p
	0	0	3s
	1	$0, \pm 1$	3p
3 (M 殻)	2	$0, \pm 1, \pm 2$	3d

という電子配置をもつ¹。ある電子配置が与えられた場合、スピン-軌道相互作用が無視できるなら、軌道電子の全軌道角運動量 L と全スピン角運動量 S が、それぞれ、運動の保存量となる。その場合、電子準位はそれぞれの角運動量子数の組 (L, S) で指定される。このような電子準位を特に LS 多重項と呼ぶ。例えば、He の $1s$ 軌道電子のひとつが $2p$ 軌道に励起した状態 He($1s2p$) の LS 多重項 (^{2S+1}L のように表記) は、2 電子の全スピンの多重度によって、一重項 (singlet, $S=0$) 1P と三重項 (triplet, $S=1$) 3P に分類される。 L と S を合成した合成角運動量 J も運動の保存量であり、これはスピン-軌道相互作用がある場合にも保存され、He($1s2p$) の一重項準位は $^1P_{J=1}$ 、三重項準位エネルギーは J で指定される 3 つの準位 $^3P_{J=0,1,2}$ に分離する (これを微細構造という)。これらに加え、電子軌道の空間反転対称性 (パリティ) も保存量であり、電子座標を原点について反転させた場合に軌道の波動関数が符号を変えない場合と変える場合で、それぞれ even (e) と odd (o) に分類される。方位量子数が偶数の軌道、つまり s 軌道や d 軌道などのパリティは even、奇数の軌道、つまり p 軌道や f 軌道などのパリティは odd である。軌道電子が複数ある場合には、個々のパリティの積が全体のパリティを与える。つまり、He($1s2p$) のパリティは odd であり、 $^{2S+1}P_J^o$ のように表記される。

原子が電離してイオンになると、イオン価数 (中性状態から剥ぎ取られた電子数) による分類が加わる (例えば、16 個の電子がとれた鉄原子イオンは Fe^{16+})。また、イオン価数に 1 を加えたローマ数字を使った分光学的表記で表す場合もある。その場合、中性の Fe 原子は Fe I, Fe^{16+} は Fe XVII のように表される。異なる元素だが軌道電子の数が同じイオンは等電子系列に属するという。例えば、先の Fe XVII は 10 個の軌道電子をもつので Ne I と等電子系列にあり、Ne 様 Fe イオンとも呼ばれる。さて、He 様 W イオン (W^{72+} , W LXXIII) のような超多価イオンでは、先述の LS 多重項による分類は適当でない。各軌道電子のスピン-軌道相互作用が支配的になり、各電子の軌道角運動量とスピン角運動量の合成角運動量に対する量子数 j に基づく分類 (jj 結合) の方が実際に適している。先の例で挙げた $1s2p$ 配置であれば、4 つの電子準位エネルギーは、 $\left[\frac{1}{2}, \frac{1}{2}\right]_{j=0,1}$ と $\left[\frac{1}{2}, \frac{3}{2}\right]_{j=1,2}$ の 2 つのグループに近似的に分類できる。

分子の内部エネルギーは電子に加え原子核の運動の自由度にも依存するが、両者を独立に取り扱うことが多い。つまり、電子運動は静的な原子核配置において規定され、原子核集団の振動と回転は、様々な原子核配置の電子状態と与えられる断熱的力学ポテンシャル面上の運動として取り扱われる。このような方法はボルン-オッペンハイマー (Born-Oppenheimer) 近似と呼ばれ、電子と原子核の質量比が小さいためしばしば用いられる。さて、与えられた原子核配置での分子の電子準位は、一般に、点群の既約表現

によって分類される (詳しくは群論の参考書[3]等を参照いただきたい)。例えば、 H_2O 分子の対称操作は $\angle HOH$ の 2 等分線を主軸にもつ C_{2v} 点群を成し、主軸周りの 180° 回転操作で波動関数の符号が変わらないもの (A) と変わるもの (B)、また、そのそれぞれに対して、主軸を含む対称面に関する鏡映操作で符号が変わらないもの (A_1, B_1) と符号が変わるもの (A_2, B_2) とに分類される。なお、これらの表記法はマリケン (Mulliken) 記号と呼ばれる。原子核が直線に配列した分子は、原子核を結ぶ分子軸の周りにどのような角度で回転しても形を変えないから、分子軸を主軸にもつ C_∞ 点群に属する。この場合には、電子の全軌道角運動量の分子軸への射影成分 Λ によって電子準位が分類される (表 2)。 Σ 状態の場合は、分子軸を含む対称面に関する鏡映操作で波動関数が符号を変えないもの (Σ^+) と変えるもの (Σ^-) に更に分類される。特に、同種原子から成る等核二原子分子や CO_2 の場合には、分子軸の midpoint に関する電子座標の反転操作によって波動関数が符号を変えないもの (gerade, g) と変えるもの (ungerade, u) とに分類され、 Σ_g^+ , Π_u のように表記される。与えられた対称性の中で、最も低いエネルギーをもつ基底状態の準位には、慣例として X をつけて表記し、励起準位に対しては、基底状態と同じスピン多重度の準位は A, B, C, ..., 異なる多重度の準位は a, b, c, ... をつけて区別して表記する場合が多い。一例を上げると、 O_2 分子の基底状態はスピン三重項であり $X^3\Sigma_g^-$ のように表記され、一重項である第一励起準位は $a^1\Delta_g$ と表される。ボルン-オッペンハイマー近似の枠組みでは、与えられた電子準位ごとに、原子核集団の振動や回転準位が付随し、振動・回転準位を指定する量子数 (v, J) が用いられる。

断面積

でたために動き回る剛体球が衝突する頻度 (1 秒間に起こる衝突回数) を考えてみよう。向かってきた剛体球と標的の剛体球との中心間の距離が 2 つの剛体球の半径の和と等しくなったときに衝突が起こる。ただし、すれすれで通り過ぎるものも衝突に含める。剛体球が数密度 N [m^{-3}] で空間的に一様に分布し、相対速度 v [ms^{-1}] も一様であると仮定すれば、1 秒間に 1 個の標的の衝突範囲の断面積 σ [m^2] に入射する剛体球の数、つまり衝突頻度 f [s^{-1}] は次のように書ける。

$$f = \sigma v N \quad (1)$$

数密度と速度は与えられた条件であるが、断面積はそれらに依存しない剛体球固有の量である。よって、衝突する粒子の断面積を知っていれば、様々な数密度と速度の条件で

表 2 全軌道角運動量子数と記号。

L	0,1,2,3,...
記号	S,P,D,F,...
$\Lambda = M_L $	0,1,2,3,...
記号	$\Sigma, \Pi, \Delta, \Phi, \dots$

1 He 原子の二重励起状態のような多数の電子配置間の相互作用が強い場合には、本稿のような特定の電子配置による表現よりも実際に適した表現方法が提案されている。興味があれば文献[2]等をご覧ください。

衝突の頻度を予測できる。

剛体球の衝突断面積は剛体球の半径だけで決まるが、原子の衝突断面積は衝突速度に依存する。いわば、衝突速度によって標的の見かけの大きさが変化する。例として、図1にいくつかのガス粒子と電子ビームの衝突断面積を示す。Heの断面積はこのエネルギー範囲では変化に乏しいが、他の粒子には多様な変化がみられる。H₂Oは永久双極子モーメントを持つため、ゆっくりとした電子との衝突断面積が極めて大きくなる。N₂の断面積は限られた範囲の衝突エネルギーで局所的に大きくなり、ギザギザとした振動を見せている。これは、N₂分子の振動励起に電子の運動エネルギーが効率的に移譲されるのがちょうどその辺のエネルギーで起こることを示している。このように、衝突によって標的の内部状態に変化を生じやすいエネルギー領域では、断面積の振舞いに対応する変化が現れる。Xeの断面積は1eVあたりに極小値をもつ。これはラムザウアー(Ramsauer)極小と呼ばれ、入射電子の波動性を示す典型的な現象であり、電子の入射波と散乱波の位相のずれがπの整数倍になる衝突エネルギーで現れる。

衝突過程は、2つの粒子の内部状態が衝突の前後で変化せず、相対運動エネルギーも保存される場合(弾性衝突)と、それ以外の場合(非弾性衝突)に分けられる。非弾性衝突は、衝突によって軌道電子が高いエネルギー準位に移る励起、軌道電子が自由になって飛び出す電離、標的粒子が分子の場合の解離、自由電子が標的に捕獲される再結合や電子付着、中性粒子からイオンへ電子が跳び移る電子移行(電子捕獲)、入射粒子と標的粒子の間で構成粒子が組み替わる反応(化学反応)など様々な場合を含む。また、入射粒子が光子の場合には、光吸収による標的の励起・電離・解離等が生じる。励起や電離、解離などには、ある値(しきい値)以上のエネルギーが必要であり、その分のエネルギーが衝突する2つの粒子の相対運動エネルギーから消費される(光吸収の場合は通常光子1個のエネルギーが消費される)。衝突前に粒子が励起状態にあった場合、衝突により脱励起して余分なエネルギーを粒子間の相対運動へ移譲することもある。これは、電子散乱の場合には超弾性

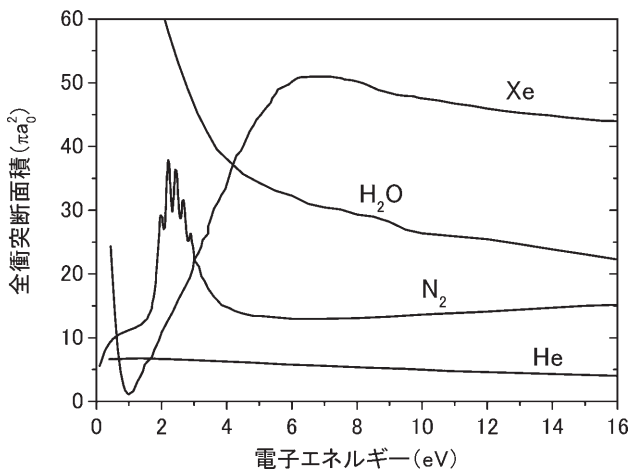


図1 ガス粒子の電子衝突断面積の例。πa₀²≅8.8×10⁻²¹ m²。文献[1]より転載。

散乱、励起した入射粒子により標的粒子が電離される場合にはペニング電離と呼ばれる。以上のような衝突の結果を特定した断面積を部分断面積と呼び、物理的に可能な結果についての部分断面積の総和が全断面積である(ここではこれを、衝突断面積と呼んでいる)。

衝突後にある特定の方向に出てくる粒子だけを観測したものを微分断面積と呼ぶ。特に、入射粒子の散乱方向を特定した断面積は微分散乱断面積と呼ばれる。図2に、散乱の古典的な模式図を示す。入射方向に沿った軸から垂直距離b(これは衝突係数と呼ばれる)だけ離れて、入射方向と平行に引かれた軸上に標的粒子が置かれている。尚、散乱は軸の方位角について等方的である場合を考える。衝突係数を半径とした円環内(面積dσ=2πb db)を通過して入射する粒子束は、散乱中心から張る立体角dΩ=2π sin θ dθに散乱される。よって、微分断面積は次式で表せる。

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{b}{\sin \theta} \left| \frac{db}{d\theta} \right| \quad (2)$$

立体角と衝突係数の具体的な関係は、粒子間に働く相互作用によって決まる。立体角(あるいは衝突係数)について微分断面積を積分したものを積分断面積と呼ぶ。

反応速度係数

気体やプラズマでは熱運動(ランダム運動)している粒子同士の衝突を問題にする場合が多い。単位時間、単位体積あたりに起こるある反応の数は、衝突する粒子Aの数密度n_Aと粒子Bの数密度n_Bを用いると、kn_An_Bのように書ける。ここで、係数k[m³s⁻¹]は反応速度係数と呼ばれ、反応の種類と気体の温度で決まる量である。さて、熱運動する2つの粒子が衝突する場合の反応速度係数と反応に対応する断面積σの関係をみてみよう。(1)式から、単位時間、単位体積あたりに2つの粒子が相対速度vで衝突する頻度はfn_B=σvn_An_Bのように表せる。したがって、マクスウェル-ボルツマン(Maxwell-Boltzmann)則に従って熱運動する2つの粒子の反応速度係数は、換算質量μ=m_Am_B/(m_A+m_B)を用いると次のように書ける。

$$k(T) = 4\pi \left(\frac{\mu}{2\pi k_B T} \right)^{3/2} \int_0^\infty \sigma v^3 e^{-\mu v^2/2k_B T} dv \quad (3)$$

ここで、k_B≅8.617×10⁻⁵ eV/Kはボルツマン定数である。

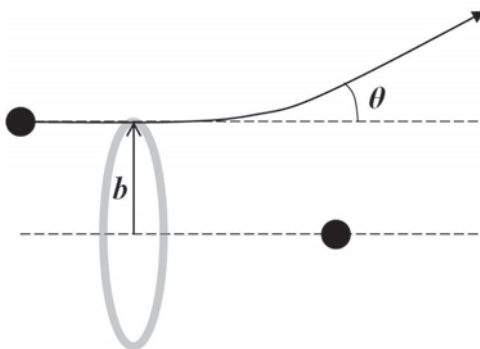


図2 2体衝突散乱の模式図。

運動量移行断面積と輸送係数

気体を封入した容器に荷電粒子 A を導入し、静電場をかけると、気体を構成する粒子 B と衝突を繰り返して熱平衡に達した後、荷電粒子の集団は拡散しながら集団の重心が電場に沿った方向にある一定の速度で移動し始める。このときの移動速度（ドリフト速度） v_d は、電場が弱ければ、ほぼ電場の強さ E に比例し、気体粒子の数密度 n_B に反比例することが知られている。よって、ロシュミット (Loschmidt) 数を $n_0 \cong 2.686 \times 10^{25} \text{ m}^{-3}$ (0°C , 1 気圧, 単位体積の理想気体に含まれる粒子数) として、移動度 $K = v_d \times n_B / (n_0 E)$ がよく用いられる。これは、電場の強さをゼロにした極限での値が古典的な理論で求められる。以下、話を具体的にするために荷電粒子 A が電子の場合を考えよう。定常状態での電子の粒子束を Γ_A , 数密度を n_A , 拡散係数を D とすれば、気体中の電子集団の輸送現象は次の方程式で表せるだろう。

$$\Gamma_A = -n_A K E - D(\nabla n_A) \quad (4)$$

右辺第 1 項は、電子集団の重心の移動、第 2 項は拡散を表している。ここで、気体粒子による電子の微分散乱断面積 $q(\theta)$ を用いて運動量移行断面積を次式のように定義する。

$$\sigma_m = 2\pi \int_0^\pi (1 - \cos \theta) q(\theta) \sin \theta d\theta \quad (5)$$

ただし、 θ は電子の入射方向に対する散乱方向の極角である。よって、この場合の運動量移行断面積は、電子が気体粒子と弾性衝突を 1 回起こすことによって電場に沿った方

向と異なる方向へ散乱される割合を表している。この運動量移行断面積を用いて移動度は次のように書ける。

$$K = \frac{e}{m_A n_0 \langle v \sigma_m \rangle} \quad (6)$$

ここで、 $\langle \dots \rangle$ は気体粒子の熱的な速度分布による平均値を意味する。拡散係数は、電場のない極限で成り立つネルンスト-タウンゼント-アインシュタイン (Nernst-Townsend-Einstein) の関係式から次式で与えられる。

$$D = \frac{k_B T}{e} K = \frac{k_B T}{m_A n_0 \langle v \sigma_m \rangle} \quad (7)$$

このように、巨視的な粒子集団の移動度と拡散係数の式には電場強度や気体粒子の数密度といった外部パラメータが現れず、微視的な粒子固有の量だけを用いて表すことができる。

参考文献

- [1] 浜口智志, 村上 泉, 加藤太治, プラズマ・核融合学会編: プラズマ原子分子過程ハンドブック (大阪大学出版会, 2011) 第 1 部基礎編.
- [2] C.D. Lin 編, Classification and Properties of Doubly Excited States of Atoms in *Review of Fundamental Processes and Applications of Atoms and Ions* (World Scientific, 1993) p. 357.
- [3] 犬井鉄郎, 田辺行人, 小野寺嘉孝: 応用群論 - 群表現と物理学 - (増補版) (裳華房, 2009), 7.4 点群の既約表現.



かとう だいじ
加藤 太治

1997年電気通信大学大学院修了。理学博士。旧科学技術振興事業団「多価冷イオンプロジェクト」研究員、核融合科学研究所 COE 研究員を経て、現在、同研究所助教。研究内容は、プラズマ及びプラズマ-壁相互作用における原子分子過程、原子分子データベース、第一原理分子動力学による炉材料の水素照射効果モデリング等。



3. 原子分子データベースの構築

村上 泉, 加藤 太治, 北島 昌史¹⁾, 坂上 裕之, 今井 誠²⁾

核融合科学研究所, ¹⁾東京工業大学, ²⁾京都大学

(原稿受付: 2011年12月26日)

原子分子データベースを構成する原子分子データが、どのような研究によって生産されているのか原子物理学の理論研究や実験研究の紹介と、理論や実験で得られたデータをどのように評価して、データベースとして構築していくのかについて紹介する。原子分子物理学研究の例として、電子衝突過程断面積と、重粒子衝突過程断面積について述べる。

Keywords:

electron collisions, EBIT, atomic collisions, data evaluation, database system

3.1 概観

本章では、原子分子データベースを構築するにあたり、その元となる原子分子データが、どのような研究によって生産されているのか、原子分子物理学分野での研究方法・研究内容の紹介と、データをどのように評価しているのか、データベースの構築の方法に関して記述する。

原子分子データは、様々な理論計算手法や実験手法を用いた原子分子物理学研究の結果として得られている。用いられる手法はある程度確立したもので、一定の信頼度を持っているといえるが、それぞれの手法に内包された誤差は常に念頭に入れる必要がある。ある程度確立した地味な印象のある研究分野であるが故に、原子分子物理学研究の昨今の流行とはやや一線を画しているが、高Z元素や多原子分子など、まだまだ研究が進んでいないものも多く、原子分子データもすべて網羅・整備されているとはいえない。半導体加工用の次世代極端紫外光源開発のためのスズの原子データ[1]のように、応用側の要請があってからデータ整備が進められることが多いのが現状である。

衝突過程に関しては、3.2, 3.3節で紹介するが、ここでは簡単に原子の構造計算と、関連して波長や遷移確率といった分光に関するデータの研究について紹介する。詳しくは、文献[2]の第2章・第3章を参照されたい。

原子や分子の発光線は、電子が上の励起状態から下の励起状態（基底状態を含む）へ放射遷移することによって起こり、その波長は、状態間のエネルギー差によって決まる。したがって、原子や分子の構造と密接な関係がある。例として多電子原子を考えると、原子構造は、複数ある電子の状態の波動関数を解くことによって得られる。ハミルトニアンは、原子核と電子の相互作用のポテンシャルと電子間のクーロン相互作用ポテンシャルに加え、補正項として

クーロン力の遅延効果、電子スピン同士の相互作用、束縛電子の電磁場との相互作用によるポテンシャルを考慮する必要があり、それらをどのようにどこまで扱うかによって、結果が変わってくる。波動方程式は、電子を独立粒子として扱うハートリー-フォック法や、複数の電子の配置間の相互作用を考慮した多配置ハートリー-フォック法(MCHF法)、多配置摂動法といったような方法で解く。こうして得られた原子構造によって決まる電子のエネルギー準位の差が発光線の波長である。紫外域やX線領域で見られるような、主量子数の異なる準位間の遷移の波長は、主量子数が低いほど精度が高く得られる。一方、可視域に見られるような同じ主量子数の微細構造間の遷移や、高い主量子数の準位間の遷移の波長を、高い精度で得るには、様々な相互作用による補正項などを注意深く考慮する必要がある(たとえば[3])。

(村上 泉)

3.2 電子衝突過程断面積

3.2.1 電子衝突断面積の計算方法

まず、紙面に限りがあるためかなり大雑把な説明になることをお断りしておきたい。より詳しくは他の文献[2, 4, 5]等を参考にさせていただきたい。

さて、量子論では、電子はその運動量に対応する波長(ド・ブロイ波長)をもった物質波であると考え(本講座2章参照)。電子の進行する先に散乱体である標的が置かれると、散乱体の回りに散乱波を生じる(図1)。z方向に伝播する波数 k_i の電子波が標的との相互作用によって散乱された場合の電子波動関数 ψ は、散乱中心から十分に遠方では一般に次式で表せる。

$$\psi(r) \xrightarrow{r \rightarrow \infty} \delta_{if} e^{ik_i z} + f_{if}(\theta, \phi) \frac{e^{ik_i r}}{r}. \quad (1)$$

3. Construction of Atomic and Molecular Databases

MURAKAMI Izumi, KATO Daiji, KITAJIMA Masashi, SAKAUE A. Hiroyuki and IMAI A. Makoto

corresponding author's e-mail: murakami.izumi@nifs.ac.jp

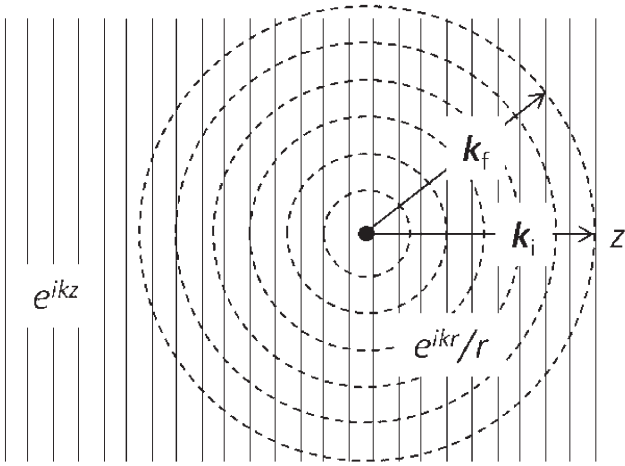


図1 電子散乱の模式図.

右辺第一項は入射波，第二項は散乱中心から (θ, ϕ) の方向への散乱波の成分を表している．弾性散乱の場合は $k_f = k_i$ ($f = i$) である．標的とエネルギーのやり取りがある（非弾性散乱）場合には，入射波と異なる波数 ($k_f \neq k_i$) の散乱波が生じる．第二項の係数 f_{if} は散乱振幅と呼ばれる．なお，本講座2章(1)式の f とは関係ないので注意すること．散乱振幅の絶対値の二乗が遷移 $i \rightarrow f$ の微分断面積であり，それを散乱方向について積分したものが積分断面積あるいは単に断面積と呼ばれる．

$$\frac{d\sigma_{if}}{d\Omega} = \frac{k_f}{k_i} |f_{if}(\theta, \phi)|^2, \quad (2)$$

$$\sigma_{if} = \frac{k_f}{k_i} \iint |f_{if}(\theta, \phi)|^2 \sin\theta d\theta d\phi. \quad (3)$$

標的との“局所的”な相互作用ポテンシャル U による散乱振幅は一般に次のように書ける¹．なお，相互作用ポテンシャルは標的の原子核と電子の影響をすべて含むものとする．標的が分子の場合には，相互作用ポテンシャルは分子配向にも依存することに注意する．

$$f = -\frac{1}{4\pi} \int e^{ik_f \cdot r} U(r) \psi(r) dr \quad (4)$$

このように書くと未知の波動関数 ψ が散乱振幅に入れ子になっていて解きにくい．入射電子が高エネルギーの場合には，波動関数を相互作用ポテンシャルについて摂動展開し，ゼロ次の項（標的との相互作用がない場合の波動関数に相当する）を右辺の波動関数に代入したもので近似する場合が多い．これはボルン近似と呼ばれる．ボルン近似は入射エネルギーが低くなるとよい近似ではなくなるが，Binary-Encounter-Bethe (BEB) 法と呼ばれるスケーリングによって低エネルギーにまで拡張して使える場合がある（文献[2]の第15章）．また，標的がイオンの場合には，入射波と散乱波の波動関数に散乱体とのクーロン相互作用の影響を予め含ませたクーロンボルン近似が用いられる．ま

た，標的電子との静電相互作用の影響を取り入れた歪曲波ボルン近似もしばしば用いられる．標的が分子の場合には，ボルン近似であっても分子の振動・回転の自由度が加わり，散乱振幅の式は相当複雑になる．一般に，振動・回転励起のエネルギーは電子励起のエネルギーに比べて非常に小さい．したがって，電子励起を考えている限り，少なくとも回転状態については平均化してしまっても取り扱う場合が多い．また，電子状態の遷移はほぼ瞬時に起こり，その間に原子核の配置が大きく変化しないと考えるのが妥当である（フランク-コンドンの原理）．

一方，比較的入射電子のエネルギーが低い場合には，散乱振幅を散乱中心に対する方位量子数 l ごとに分解して取り扱うことが多い．これは部分波の方法と呼ばれる．弾性散乱の散乱振幅を部分波に分けると次のようになる．ただし，以下では簡単のために z 軸回りの方位角について散乱が対称に起こることを仮定する．

$$f = \frac{1}{2ik} \sum_{l=0}^{\infty} (2l+1) \{e^{2i\delta_l(k)} - 1\} P_l(\cos\theta), \quad (5)$$

ここで， δ_l は相互作用ポテンシャルによって与えられる部分波の位相のずれ（phase shift）を表す． P_l はルジャンドル多項式である．大きな方位量子数の部分波は，大きな遠心力ポテンシャルのために相互作用ポテンシャルが十分に効果を発する領域内部で振幅が小さくなる．したがって，低エネルギーでは方位量子数の大きな部分波の位相のずれは小さいため，散乱振幅への寄与を無視しても大きな誤差は生じない． s 波 ($l=0$) だけが寄与するような低エネルギーの場合，式から明らかのように，位相のずれが π の整数倍のとき散乱振幅（断面積）がゼロになる．これはラムザウアー極小と呼ばれる（本講座2章参照）．さて，位相のずれを正確に計算するには，相互作用ポテンシャルの影響を受けた波動関数を正確に求める必要がある．高エネルギーの場合にはボルン近似を用いることができたが，低エネルギーの場合には緊密結合法やR行列法と呼ばれる方法が用いられる．ボルン近似では，暗黙のうちに， $i \rightarrow f$ の遷移は途中下車のない片道切符であることを想定している．しかし，衝突エネルギーが低くなると遷移にかかる時間が長くなり，様々な中間状態を経由し，また行ったり来たりしながら終状態に落ち着く．このような物理描像によく合っているのが緊密結合法と呼ばれる方法である．この方法では，始状態と終状態に加え，重要と思われる中間状態も含めた連立微分方程式を数値的に解いて散乱電子の波動関数を求める．R行列法は，緊密結合法の要素を含み，さらに中間状態では散乱電子と標的電子との区別をなくして複合系として取り扱う．よって，一時的に電子が標的につかまった共鳴状態（自働電離状態）の記述に優れている．

最後に，分子の振動・回転励起に用いられる方法について簡単に述べる．比較的簡単なのでボルン近似が用いられる場合もあるが，やはり低エネルギーの場合には心もとな

1 標的の電子と入射電子が衝突により入れ替わる交換相互作用は非局所的なので(4)式のように表すことはできないが，高エネルギー衝突の場合に用いられる，ボルン-オッペンハイマー近似やオチクール-ラッジ (Ochkur-Rudge) 近似が知られている．これらについてももう少し具体的な内容は，文献[4]6-1節などをご覧ください．

い。電子は軽いので比較的低エネルギーでもかなり大きな速度を持っており、標的の分子を構成している原子の位置は衝突の間大きく変化しないと考えてよい。その場合には、衝突の間完全に原子核の配置を平衡位置で固定し、分子の向きも固定して取り扱うことにする。この方法は核固定近似(断熱近似)と呼ばれる。この近似法では、分子の振動・回転励起の散乱振幅が、様々な原子核配置での弾性散乱の振幅を原子核の振動と回転の波動関数で平均化して表される。(加藤太治)

3.2.2 電子衝突断面積の測定手法

電子衝突断面積を測定する手法は主にビーム法とスウォーム法に大別される。ビーム法は、電子と標的原子・分子が多重衝突を起こさないような実験条件、すなわち標的原子・分子の数密度が十分に低い必要であり、入射電子ビームの強度がある程度大きくできる衝突エネルギーが数 eV 以上において用いられてきた。一方、衝突エネルギーが数 eV 以下になると一回衝突条件で十分な測定ができる程度の電子ビームの強度を得ることが難しくなる。このような低エネルギー領域の電子衝突断面積を得る手法として、スウォーム法が知られている。

1) ビーム法

・透過減衰法(図2)

ビーム法のなかで、もっとも簡単に衝突断面積を得る手法として、透過減衰法が知られている。標的に満たされた衝突セルに電子ビームを入射し、標的分子と衝突せずにセルを透過する電子の強度を測定するものである。入射電子ビームの強度を I_0 、衝突セル中の標的粒子の数密度を n 、セルの長さを L 、標的と衝突せずにセルを透過する電子ビームの強度を I とすると、弾性散乱およびすべての励起過程による非弾性散乱の断面積の和である電子衝突全断面積 Q は、光吸収測定の Lambert-Beer の法則で知られる次式で与えられる。

$$I = I_0 \exp(-nQL). \quad (6)$$

この手法では、セルの長さ L について電子ビームの入射、出射オリフィスからの標的分子の漏れに起因する実効長補正を行い、セル内の真空度の絶対値 n を一回衝突条件が保証される様に精密に制御し、 I_0 、 I を精密に測定できれば、 Q が精度よく求まる。なお、透過減衰法では、衝突セル内で散乱された電子のうちセルの出口スリットを通過す

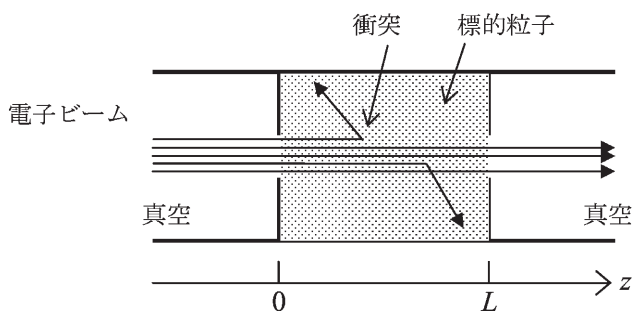


図2 透過減衰法の概略図。標的に満たされた衝突セルに電子ビームを入射し、標的分子と衝突せずにセルを透過する電子の強度を測定する。

るような散乱角の非常に小さい前方散乱によるものを、散乱されずに透過した電子と区別することができない。このため、この手法による全断面積値は真の全断面積値よりも幾分か小さくなる。

・交差ビーム法(図3)

ビーム法は、エネルギーと運動方向の揃った電子(電子ビーム)を原子・分子に衝突させ、散乱された電子の強度を散乱角ごとに測定するものである。電子の入射方向を極軸に選んだ極座標系で θ 、 ϕ 方向の微小立体角 $d\Omega = \sin\theta d\theta d\phi$ に散乱される衝突断面積(微分断面積、 $\frac{d\sigma(\theta, \phi)}{d\Omega}$)を得ることができる。ビーム法のうちでも、標的

原子・分子を方向の揃ったビームとした方法を交差ビーム法と呼び、電子衝突断面積の定量測定では最もよく用いられている。図3に交差ビーム法による電子衝突実験装置の概略図を示す。標的粒子ビームに、既知のエネルギーの電子ビームを垂直に交差させ、電子と標的粒子を衝突させる。衝突により散乱された電子の強度を、そのエネルギーごとに散乱角度 θ の関数として測定する。装置は、入射電子のエネルギーを選別して単色化するエネルギー選別器、電子と標的原子・分子が衝突する衝突領域、散乱電子のエネルギーを分析するエネルギー分析器の3つに大別できる。電子源としては、熱フィラメントを用いる場合が多く、エネルギー広がりがあるのでエネルギー選別器により単色化する。衝突領域において標的粒子により散乱された電子はアナライザーによりエネルギー分析された後に、2次電子増倍管で増幅されパルス信号として検出される。得られる散乱電子の計数率は、アナライザーの透過効率 $\eta(\theta, \phi; x, y, z)$ 、入射電子ビームの強度 $J_e(x, y, z)$ 、標的原子・分子の数密度 $n_b(x, y, z)$ を用いて、

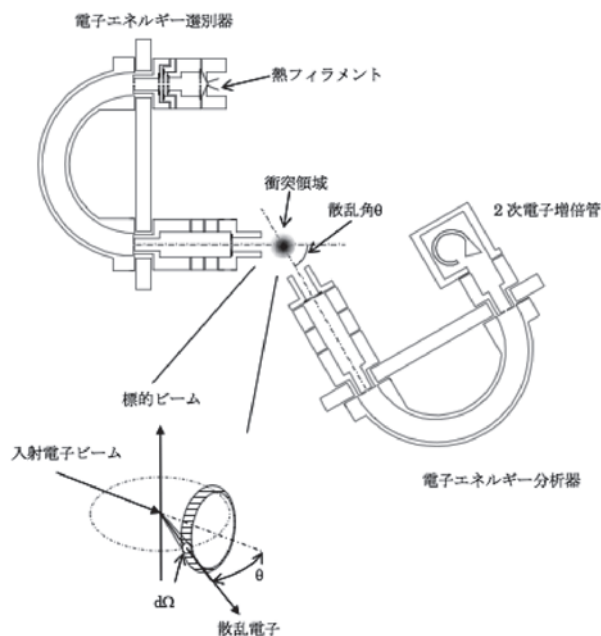


図3 交差ビーム法の概略図を示す。標的粒子は紙面の裏面より表面に向かって噴出させる。

$$I_e(\theta, \phi) d\Omega = \frac{d\sigma}{d\Omega} d\Omega \int_V \eta(\theta, \phi; x, y, z) J_e(x, y, z) n_b(x, y, z) dV, \quad (7)$$

与えられる[6]. V は入射電子ビームと標的原子・分子との衝突の起きる衝突体積である. 残念ながら, $\eta(\theta, \phi; x, y, z)$, $J_e(x, y, z)$, $n_b(x, y, z)$ を厳密に知ることは非常に難しいため, 電子衝突微分断面積の絶対値を散乱電子の計数率から直接的に得ることは一般に困難である. しかし, 標的原子・分子の種類が異なっても, 標的ガスを吹き出すガス・ノズル内の標的の平均自由行程を同一にすることで, 衝突領域での標的ガスの分布, すなわち気体ビームの形状を同じにすることができる. このことを利用して, 微分断面積の絶対値を得る方法が relative flow 法[7]である. これは, 微分断面積の絶対値が既知の標的 1 (一般に He を用いる) の測定と未知試料 2 の測定を同じ装置条件で行い, 散乱電子計数率の比 I_1/I_2 および標的ガスの圧力の比 P_1/P_2 を用いて, 次式の関係から未知試料の微分断面積の絶対値を求めるものである.

$$\frac{d\sigma_1/d\Omega}{d\sigma_2/d\Omega} = \frac{I_1 P_2}{I_2 P_1}, \quad (8)$$

He の微分断面積の絶対値としては Nesbet のまとめた報告[8]や Boesten and Tanaka の推奨値[9]などが知られている.

交差ビーム法では, 散乱電子のエネルギーをアナライザーで分析する. 計数する散乱電子のエネルギーと入射電子エネルギーを等しくすれば, 弾性散乱の微分断面積を得ることができ, 計数する散乱電子のエネルギーを入射電子エネルギーから ΔE だけ低くすることで, 励起エネルギーが ΔE の励起状態を生成する非弾性散乱の微分断面積が得られる.

得られた微分断面積から(9)式により(積分)断面積を求めることができるが, 実験可能な散乱角 θ には限界があり, $\theta = 0^\circ$ 近傍の前方散乱角および $\theta = 180^\circ$ 近傍での後方散乱角での測定はできない. このため, 前方散乱および後方散乱における微分断面積を何らかの方法で補外し, これを用いて積分断面積を求めることが多い. なお, 近年, 衝突領域に Magnetic angle changer を設置することで, $\theta = 180^\circ$ までの測定を可能にする技術が開発され, より正確な積分断面積が得られるようになってきた[10].

$$\sigma = \int_0^{2\pi} \int_0^\pi \frac{d\sigma}{d\Omega} \sin\theta d\theta d\phi. \quad (9)$$

2) スウォーム法

数 eV 以下になると一回衝突条件で十分な測定ができる程度の電子ビームの強度を得ることが難しくなる. このような低エネルギー領域の電子衝突断面積を得る手法として, スウォーム法が知られている. 多重衝突が起こる条件下では, 電子源より気体中に放出された電子は, 電子の入射方向に印加された電界の下で, 原子・分子と多数回衝突を繰り返しながら運動すると, 電子は熱エネルギーよりも

やや大きい拡がりのエネルギー分布を持った群 (スウォーム) となる. スウォーム実験では, 電子スウォームの電場中での移動・拡散をドリフト速度, 拡散係数等の輸送係数, 並びに回転・振動・電子励起や電離, 電子付着等の速度定数といったマクロな物理量を測定する. これらのマクロな物理量を電界強度と気体密度の比の関数として調べ, ボルツマン方程式を介することで衝突断面積というミクロな物理量に関係づける.

電子スウォームの確率分布関数 $F \equiv F(\vec{r}, \vec{v}, t)$ は次式のボルツマン方程式を満たす[11, 12].

$$\frac{\partial F}{\partial t} + \vec{v} \cdot \nabla_r F + \vec{a} \cdot \nabla_v F = C(F), \quad (10)$$

加速度 \vec{a} は印加された電場 \vec{E} を用いて $\vec{a} = -e\vec{E}/m_e$ で与えられ, 演算子 $C(F)$ に衝突断面積等の情報が内包されている. 例えば $F(\vec{r}, \vec{v}, t)$ を電子の数密度 $n_e(\vec{r}, t)$ と ∇_r について, 電子の速度分布関数 $f^k(\vec{v})$ を用いて展開すると

$$F(\vec{r}, \vec{v}, t) = \sum_{k=0} f^k(\vec{v}) \otimes (-\nabla)^k n_e(\vec{r}, t) \quad (11)$$

となる[11]. ここで, 速度分布関数 $f^k(\vec{v})$ が等方的であれば k の第二項までで展開を打ち切ることができ, 電子エネルギー T を用いて分布関数を $f(T)$ と書き直して次式のように運動量移行断面積 σ_m と関係づけることができる[13].

$$f(T) = A \exp \left\{ -\int_0^T \left(\frac{ME^2}{6m_e N^2 \sigma_m^2(T) T} + \frac{k_B T_g}{e} \right)^{-1} dT \right\}, \quad (12)$$

ここで, A は規格化定数, M は標的原子・分子の質量, N は標的ガスの数密度, E は電場強度, k_B はボルツマン定数, T_g は標的ガスの温度である. スウォーム実験で直接得られるドリフト速度 v_d や (横) 拡散係数 D_T については以下のようになり, 実験で得られた v_d や D_T を矛盾なく再現する様な, σ_m のセットを決めることになる.

$$v_d = -\frac{eE}{3N} \left(\frac{2}{m_e} \right)^{1/2} \int_0^\infty \frac{T}{\sigma_m(T)} \frac{d}{dT} f(T) dT, \quad (13)$$

$$D_T = \frac{1}{3N} \left(\frac{2}{m_e} \right)^{1/2} \int_0^\infty \frac{T}{\sigma_m(T)} f(T) dT. \quad (14)$$

ここで明らかなように, スウォーム法はビーム法では測定できない, 非常に低いエネルギー領域での電子衝突断面積に関する知見が得られる反面, 電子と標的粒子との多重衝突の末に得られたマクロな物理量を測定するため, 断面積を一意に決めることができない.

スウォーム法には, その他, 気体の電離または励起に必要な入力エネルギーを遮断 (例えばパルス的に) して, 発生したプラズマ中の電子やイオンの減衰を計測してエネルギー緩和過程を反応定数という物理量で調べるアフターグローイング法, パルス・ラジオリシス法等がある[14]. これらの実験方法でも, 実験によって得られる輸送係数や反応速度などのマクロな物理量に基づいて, ボルツマン分布を仮定し統計的に処理することでミクロな物理量である電子と標的粒子との衝突断面積を求める.

3) その他の手法

・クーラーリングを用いた実験

電子冷却法により高速イオンの貯蔵リング (storage ring) の中を周回するイオンビームの速度の広がりを狭め、ビームの性質を改善する「ビーム冷却」を目的としたクーラーリングは、今日では単にビーム冷却のためだけでなく、電子衝突実験装置としても活用されている[15]。クーラーリングは、ビーム貯蔵リングの中を周回する高温のイオンビームに、その平均速度とほぼ等しい速度の電子ビームをリングの直線部で合流させ、その際に行われる熱交換によってイオンビームを冷却するものである。この合流部分を用いることで、電子・イオン合流法による電子-イオン衝突実験が行われている。電子冷却で用いられる電子は約1000℃程度に熱せられたカソードから出る熱電子で、この熱電子のエネルギー幅が約 100 meV あり、従来はこのエネルギーが実験精度の限界を決めていたが、最近ではビームライン中のビーム制御用磁石の磁場を用いた電子ビームの断熱膨張によって衝突エネルギーを実効的に熱エネルギー以下にし、エネルギー精度を大幅に上げることが可能になっている。

(北島昌史)

3.2.3 電子ビームイオントラップを用いた多価イオンの電子衝突実験

電子衝突過程の研究において、その標的密度の低さから実験的に難しいのが電子-イオン衝突過程である。特に多価イオンの場合、イオン密度が著しく低下し現在の実験技術において、交差ビーム法での実験はほとんど不可能とあってよい。そのような状況下で、この困難を克服することを可能にしたのが、電子ビームイオントラップ (EBIT) 装置[16]である。EBIT は強磁場 (多くの場合超伝導磁石を用いる) 中で圧縮された大電流密度電子ビームの空間電荷ポテンシャルと、その軸上にもうけたドリフトチューブによる井戸型の静電ポテンシャルによって、イオンを閉じ込めながら電子衝突を繰り返し、逐次電離を進め多価イオンを生成する仕組みになっている。

閉じ込められたイオンは短い時間の後 (価数にもよるがマイクロからミリ秒のオーダー) 電離平衡状態となり、電子エネルギーに対応する多価イオンが生成されトラップされる。ドリフトチューブに開けられた観測用スリットからトラップされた多価イオンと電子の衝突過程を分光学的に研究することが可能である。

一般的にプラズマ中の電荷分布は電子-イオン衝突における再結合過程と電離過程のバランスで決まっている。よってその断面積の測定はプラズマ計測において非常に重要な要素の一つである。

1) 電子-イオン衝突における再結合過程

電子と多価イオンの再結合過程を具体的な例を挙げて説明する。図4にEBITで観測されたタングステン多価イオンの二次元スペクトルを示す[17]。タングステンは次期核融合装置のプラズマ対向壁やダイバータ材料の有力な候補として挙げられている金属であり、その基礎データは周辺プラズマの正確な診断のために欠くことのできないものとなっている。

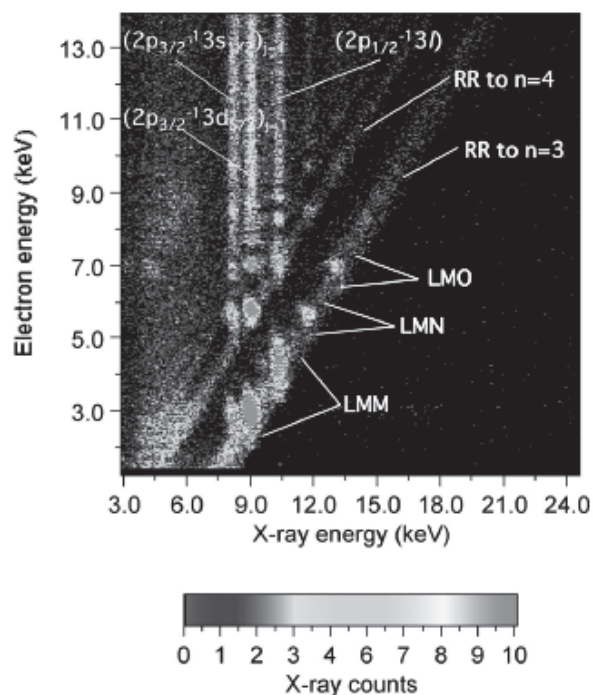


図4 ネオン様タングステン多価イオンと電子との衝突により放出されるX線の二次元スペクトル。

このスペクトルは、EBITでNe様タングステン多価イオン(64+)を生成し、相互作用する電子エネルギーを1.5 keVから14 keVまで走査しながら、X線領域の発光スペクトルを観測したものである。軸に対して斜めに帯状に現れている構造は放射性再結合過程 (Radiative Recombination Processes: RR) によるX線である。Ne様タングステン多価イオンは最もエネルギー的に低い空孔は $n=3$ であり、図4には $n=3$ へのRRが強く現れ $n=4, 5, \dots$ も次第に弱くなるが同様に確認できる。またスペクトルにはいくつかのピーク状の構造が現れている (LMM, LMN, LMOなど)。このピークは二電子性再結合過程 (Dielectronic Recombination Processes: DR) によるX線である。DRは二電子励起状態を経て光の放出を伴う電子捕獲過程であり、入射電子が多価イオンの励起準位 (M, N, O殻) に束縛されたときの余剰エネルギーと、多価イオンの束縛電子の励起 (LM励起) に要するエネルギーが一致するときに起きる強い共鳴過程である。そのためスペクトルからもわかるように特定の電子エネルギーで強く現れている。

このような強い共鳴過程は、プラズマ発光強度に非常に大きな影響を与えるため、プラズマ診断において重要な発光過程となり、その基礎データは必要不可欠である。

2) 電子衝撃によるイオンの電離過程

電子衝撃による電離過程は、プラズマ中で最も主要な衝突過程の一つである。重元素多価イオンの電離断面積測定は唯一EBITで測定可能であり、重要な役割を担っている。EBITを用いる方法の利点は、多価イオンの生成に用いられる電子ビームを断面積測定のプロブとして利用できること、電子ビームの電流密度がきわめて大きく、多価イオンの再結合による放射が、断面積測定に利用するに十分な強度で得られることである。EBITによる電離断面積の測

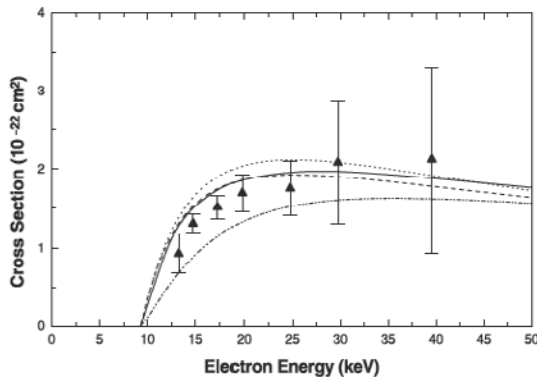


図5 水素様鉄多価イオンの電子衝撃電離断面積の測定値と理論値 ([18]参照).

定では、注目する多価イオンが効率的に生成、蓄積される電子ビーム条件で電離平衡状態を達成させた上で、直ちに電子ビーム条件をプローブとしての設定に変えて放射を測定した後、価数分布が平衡状態から大きく外れる前に最初の電子ビーム条件に戻す。この一連のサイクルを繰り返してデータを蓄積する方法が取られる。図5にEBITで測定された水素様の鉄多価イオン (Fe^{25+}) の電離断面積を示す[18]。高Z水素様イオンは、核融合や天体プラズマのような高温プラズマ中に存在し、特に鉄多価イオンは太陽観測において最も重要な観測対象の一つであり、このような基礎データは研究者から強く求められている。(坂上裕之)

3.3 重粒子衝突過程断面積

本節では、原子分子衝突分野の研究者[19]が、重粒子衝突過程の断面積を実験的・理論的に測定・計算する手法を紹介するが、詳細な記述は参考文献[2]に譲り、実験的手法について参考文献[2]第7章で触れなかった(電子衝突につき前節にも記述された)スウォーム法につき解説し、あわせて理論的手法の概要をまとめる。実験的手法については、他の文献[20, 21]も参照されたい。

第2章にあるように、衝突断面積は入射粒子と標的粒子が衝突するとき、ある過程が起こる頻度を表す尺度で、2体衝突、すなわち十分希薄な標的に十分希薄なビーム中の粒子が入射して1対1の衝突を起こす過程を前提とする。このときビーム内の入射粒子は、他の入射粒子と十分な空間的間隔を保ってその間に相互作用はなく、標的への入射は衝突過程の時間スケールに比して十分長い時間間隔で発生する。標的粒子も、他の標的粒子との相互作用がない十分な間隔で存在し、入射粒子が衝突領域内で孤立した標的粒子に衝突するイベントが、十分な間隔で繰り返し発生する。ビーム固体相互作用を論ずる場合など、標的粒子が高密度に存在し、それゆえ真空中の孤立原子(分子)とは異なる状態にある場合も、断面積は入射粒子1つと標的粒子1つの衝突に対して定義される。2体衝突においては、ある(弾性・非弾性)散乱イベントの総発生数 N_f は、入射粒子数 N_i 、標的密度 n 、衝突領域の長さ(衝突長) l に比例するはずであるから、比例定数を σ_{if} として

$$N_f = \sigma_{if} N_i n l \quad (15)$$

となり、この σ_{if} が第2章の(1)式で定義された断面積(衝突断面積、散乱断面積)と一致する。したがって、断面積を実験的に求めるためには、(十分希薄な)粒子ビームを局在させた標的ガスやビーム状にした標的粒子に衝突させ、求める特定の過程の発生数 N_f を計数して、入射ビーム量 N_i と標的粒子面密度 nl から求めることが基本的手法となる。入射ビームと標的粒子を十分希薄にするのは、両者が重なる衝突領域内で、ある入射粒子が高々一回の衝突しか起こさない単回衝突条件を保証するためであり、このような手法をビーム法と呼ぶ。ビーム法では、散乱角を計測することもできるので、微分散乱断面積の測定も可能である。これに対し、第2章にあるように(電離)気体やプラズマの運動を扱う場合、(マックスウェル-ボルツマン分布に限らず)とある速度分布を持つ粒子集団の衝突現象を扱うことになり、その頻度を表す反応速度係数や、気体中を荷電粒子が静電場により運動するときの移動度などは、衝突断面積(一般に衝突エネルギーに依存する)がわかっているならば、第2章の(3)、(5)、(6)式のように求められる。逆に、このような実験により反応速度係数や移動度が求められれば、ある条件の下に衝突断面積を求めることも可能であり、このように比較的高密度の気体を利用した断面積測定法は、スウォーム法と呼ばれる。後述のように、スウォーム法では、室温と10 eV程度の中の衝突エネルギーでの反応速度係数(断面積)測定が可能で、ビーム法による実験では測定が困難になる数 eV 以下の低エネルギー領域での測定に適用される[22-24]。

ビーム法、スウォーム法とも電子衝突、重粒子衝突に適用できるが、重粒子衝突においては、入射粒子と標的として中性の原子あるいは分子とそれらのイオンを組み合わせた衝突系を対象とする。スウォーム法では入射粒子は1価イオンである必要があるのに対し、ビーム法では、中性粒子ビームを用いれば、中性-中性衝突の断面積も測定可能であるが、実際には(特に高速の、あるいはエネルギー分布巾の小さい)中性粒子ビームを作ることは簡単ではなく、イオンビームを入射ビームとすることが多い。

ビーム法は、多様な衝突過程の断面積を広範な衝突エネルギーで計測できる点で優れており、断面積測定の手法的な標準的手法である。が、衝突系(入射粒子と標的粒子の組合せ)と衝突エネルギー毎に測定が必要で、入射粒子一つとってみても、何らかの標的との衝突断面積が実測されている元素より未測定のものの方がはるかに多い。どのような衝突過程の断面積を測定するかに応じ、衝突後の入射粒子の価数(電荷変換)や電子状態(励起、励起準位への電子捕獲)、散乱角(微分断面積)、衝突前後の入射粒子のエネルギー差(励起、励起準位への電子捕獲)あるいは標的粒子の価数(電離、電荷変換)や運動量(励起、電離、電荷変換)、反跳角(微分断面積)さらに衝突により放出された電子の個数や運動量、放出角などを、単独あるいはいくつか同時に計測する。具体的にどのような手法で何を検出すればどの過程の衝突断面積が得られるかについては、文献[2]の第7章に解説されているので、そちらを参照されたい。ビーム法では式(15)より衝突断面積を求めるが、式の前提

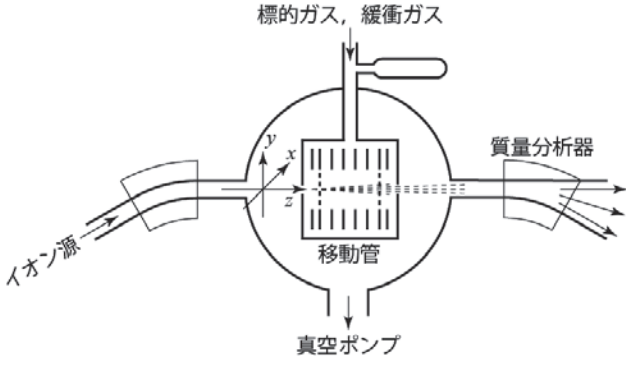


図6 移動管によるスウォーム法実験装置の例。

となる単回衝突条件を確認するため、標的圧力を変えて標的密度 n を変化させ、イベント数比 N_f/N_i の標的ガス厚 nl に対する成長曲線が線形となることを確認する成長率法を用いる。同法とその裏返しでもある減衰法については文献[2]第8章に詳細な記述がある。

本稿では、ハンドブックでは省略したスウォーム法につき解説する。図6に示されるように、スウォーム法によるイオン-中性粒子衝突実験では、移動管に比較的高い圧力(例えば1 Torr = $3.54 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$)の気体を充填し、移動管内の電極により z 軸方向に一様電場を印加する。管入口より導入されたイオンは、電場による加速と気体分子との衝突を繰り返し、 x, y 軸方向に拡散しながら z 軸方向に平均移動速度 v_d で移動する(第2章)。個々のイオンの移動速度の分布を解析的に求めることは困難であるが、このような低エネルギーでは弾性散乱が最頻となることを前提に、Wannier が以下の関係を示している[25]。熱運動が無視できるほど外部電場が強く、外部電場による加速の影響が無視できない場合、イオン速度の z 軸方向平均 $\langle c_z \rangle$ と2乗平均 $\langle c^2 \rangle$ は、

$$\begin{aligned} \langle c_z \rangle &= \frac{M+m}{M} \left\langle \frac{1-\cos\chi}{a\tau} \right\rangle, \\ \langle c^2 \rangle &= \frac{(M+m)^3}{M^2 m} \left\langle \frac{1-\cos\chi}{a\tau} \right\rangle^2, \end{aligned} \quad (16)$$

となり、これよりイオン群の平均運動エネルギー $\langle e \rangle$ は第2章の移動速度 $v_d (= \langle c_z \rangle)$ により

$$\langle e \rangle = \frac{1}{2} m \langle c^2 \rangle = \frac{1}{2} (m+M) \langle c_z \rangle^2 = \frac{1}{2} (m+M) v_d^2, \quad (17)$$

と表される。このとき、イオンの運動エネルギー e は x, y, z 軸方向に

$$\begin{aligned} e_x : e_y : e_z &= \left\langle \frac{M \sin^2 \chi}{\tau} \right\rangle : \left\langle \frac{M \sin^2 \chi}{\tau} \right\rangle : \left\langle \frac{M \sin^2 \chi + 4m(1-\cos\chi)}{\tau} \right\rangle, \end{aligned} \quad (18)$$

と分配され、そのうち z 軸方向電場による加速の影響を除いたランダム運動分の寄与は

$$e_x : e_y : e_z^* = \left\langle \frac{(M+m) \sin^2 \chi}{\tau} \right\rangle : \left\langle \frac{(M+m) \sin^2 \chi}{\tau} \right\rangle$$

$$: \left\langle \frac{M \sin^2 \chi + 2m(1-\cos\chi)^2}{\tau} \right\rangle, \quad (19)$$

となる。ここで m, M はそれぞれイオン、気体分子の質量、 χ は重心系での散乱角、 a は電場によるイオン加速度、 $\tau = \lambda/\gamma = 1/N\sigma\gamma$ はイオンと気体分子の衝突間隔である平均自由時間 (mean free time) を表し、 λ は平均自由行程 (mean free path)、 γ はイオンと気体分子の相対速度、 N は気体分子の数密度、 σ は弾性散乱衝突断面積、 $\langle \rangle$ は群全体での平均の意である。気体の熱運動が無視できない場合、平均自由時間 τ が一定であるとの仮定の下、移動管内のイオン群の平均運動エネルギー $\langle e \rangle$ は、イオン、気体分子それぞれの速度 c, C と気体分子温度 T 、ボルツマン定数 k を用いて、

$$\begin{aligned} \langle e \rangle &= \frac{1}{2} m \langle c^2 \rangle = \frac{1}{2} \{ (m+M) \langle c_z \rangle^2 + M \langle C^2 \rangle \} \\ &= \frac{1}{2} (m+M) v_d^2 + \frac{3}{2} kT, \end{aligned} \quad (20)$$

と表される。後にボルツマン方程式の数値解析やモンテカルロシミュレーションにより得られた速度分布関数は、イオンと気体分子の散乱がほぼ等方的である場合で10%以下、そうではない場合でも20%以下の誤差で Wannier の解析式が成立することを示しており[26-29]、第2章にあるように移動速度 v_d は外部電場と気体粒子数密度の比により制御可能であることから、移動度 K や拡散係数 D を測定し、第2章の(6)、(7)式より室温から~10 eV 程度の衝突エネルギーで運動量移行断面積が測定できる。

スウォーム法で非弾性散乱断面積(反応速度係数)を測定するには、移動管中の比較的高圧力の気体を緩衝気体として入射イオンのエネルギー制御に使い、緩衝気体に少量の標的ガスを混入する(図6)。緩衝気体は入射イオン・標的ガスの双方と(弾性散乱以外の)反応をせず、入射イオンと標的ガスの非弾性散乱に影響を与えないことが必要で、質量が小さいことから衝突エネルギーを広範に制御できることもあって、Heが多用される。入射イオンの実験室系エネルギーは(20)式となるが、標的ガス分子の質量と速度を m_T, v_T ($m_T \langle v_T^2 \rangle = 3kT$) として標的ガスの熱運動を考慮すると、相対衝突速度 v_r は衝突角を α として、 $v_r^2 = c^2 + v_T^2 - 2cv_T \cos\alpha$ と $\langle \cos\alpha \rangle = 0$ より $\langle v_r^2 \rangle = \langle c^2 \rangle + \langle v_T^2 \rangle$ となり、重心系での衝突エネルギーの平均 $\langle \epsilon_{CM} \rangle$ が、

$$\begin{aligned} \langle \epsilon_{CM} \rangle &= \frac{1}{2} \mu \langle v_r^2 \rangle = \frac{mm_T}{2(m+m_T)} (\langle c^2 \rangle + \langle v_T^2 \rangle) \\ &= \frac{(m+M)m_T}{2(m+m_T)} v_d^2 + \frac{3}{2} kT, \end{aligned} \quad (21)$$

となる。ただし $\mu = mm_T/(m+m_T)$ は衝突系の換算質量である。例えば入射イオン A^+ と標的 B の電荷移行過程 $A^+ + B \rightarrow A + B^+$ の断面積を測定する場合、 A^+ は緩衝気体により(20)式のエネルギーまで減速され、標的ガス分子と(21)式の重心系衝突エネルギーで電荷移行反応を起こす。生成した B^+ は外部電場により移動管内を移動しながら、緩衝

気体と弾性散乱のみ起こし、(20)式に相当するエネルギーで移動管出口より取り出される。標的ガスBの混入量を少量としたのは、生成したB⁺が別のA⁺入射イオンや別の標的ガス分子Bと反応しないようにするためである。ここで、移動管軸にそった1次元座標系を考え、ビーム法にも登場する減衰法、成長率法により反応速度係数を求める方法を導く。座標と時間を変数 z, t で表し、反応速度係数を κ 、標的ガス密度を n_B とすると、 z におけるA⁺イオン密度 n_A は、

$$\frac{dn_A}{dt} = -\kappa n_A n_B, \quad \frac{dz}{dt} = v_d, \quad (22)$$

を満たす。移動管入口($z=0$)における入射イオン密度を n_A^0 としてこれを解くと、

$$n_A = n_A^0 \exp\left(-\kappa n_B \frac{z}{v_d}\right), \quad (23)$$

となり、全長 L の移動管出口でのA⁺イオン密度 n_A^L を測定すると、反応前後のA⁺イオン強度比 n_A^L/n_A^0 より、

$$\kappa = -\frac{v_d}{n_B L} \ln \frac{n_A^L}{n_A^0}, \quad (24)$$

と反応速度係数が求まる(減衰法)。この場合、移動管出口でのB⁺イオン密度 n_B^L が、 $n_B^L = n_A^0 - n_A^L$ となることより、反応速度係数を

$$\kappa = \frac{v_d}{n_B L} \ln \left(1 + \frac{n_A^L}{n_B^L}\right) \quad (25)$$

と求めることもできる(成長率法)。ただし、移動管出口でのA⁺、B⁺強度を分離して測定するため、質量分析が必要である。(22)式の適用には、移動管内部でのA⁺イオンと標的ガス分子Bとの単回衝突条件成立が前提となり、 n_B を変化させたときの n_A^L/n_A^0 比あるいは $1+n_A^L/n_B^L$ の変化を片対数グラフにプロットして(23)式の成立を確認する。反応速度係数から断面積を求めるには、第2章の(3)式を解かなければならないが実際は困難であり、室温付近で衝突断面積がほぼ一定であるとの条件の下、

$$\kappa = \langle \sigma v_r \rangle = \langle v_r^2 \rangle^{1/2} \quad (26)$$

より求めたり、平均反応断面積 $\langle \sigma \rangle \equiv \kappa \langle v_r^2 \rangle^{1/2}$ を求めることが行われる。

重粒子衝突断面積の理論的導出にあたっては、光子入射や電子入射の場合と異なり、入射粒子の構造、すなわち原子核とその周囲を巡る電子の結合を考慮する必要がある。衝突エネルギーは入射粒子と標的粒子の原子核間相対速度で表されるが、非弾性散乱は入射粒子と標的粒子の電子状態変化によりもたらされるので、軌道電子の原子核周回速度を同時に意識しなければならない。衝突エネルギーが低く、二つの原子核が近接してやがて離れていくまでの時間が電子の軌道周回時間より長くなる場合には、入射粒子A^{q+}と標的Bからなる準分子(擬分子)(AB)^{q+}の電子軌道(ポテンシャル曲線)を考え、A-B核間距離の変化により

刻々と変化する(準分子の)電子軌道に入射・標的粒子の電子が存在するという扱いが必要である。衝突エネルギーが高く、原子核の相対速度に比して電子の軌道速度が無視できる場合は、衝突時間すなわち標的電子と入射粒子の間に有効な作用が及ぶ時間が短いため、入射粒子と標的電子のクーロン相互作用を摂動と見なすことが可能で、これに基づく様々な近似法が用いられる。本節では理論的手法の大まかな分類のみ記すので、理論や近似の詳細については参考文献[4, 30-32]を参照されたい。

重粒子衝突の理論的取り扱い、量子力学的なものとは古典力学的なものに大別される。量子力学的には、粒子は波動関数に従って空間的、時間的に“ほんやり”存在しており、入射粒子の散乱軌道を古典力学のように“決定”することは本来できず、衝突に関わるすべての原子核と電子の運動を量子力学的に扱う方法と、原子核同士の近接と散乱のみ古典的に扱う半古典近似が存在する。この分類とは別に、量子力学的手法は衝突径数法と部分波による方法に分けられる。衝突径数法は入射粒子の軌道すなわち衝突径数を定義できる半古典近似に限って適用可能で、この点で量子力学的衝突径数法は半古典近似と同義である。量子力学的手法では反応前後の系の波動関数とその間の遷移確率を計算するが、衝突径数法では、ある衝突径数 b で入射したときの波動関数 $\Psi(\mathbf{r}, t)$ を始状態 Ψ_i と終状態 Ψ_f を含む適当な基底関数系で $\Psi(\mathbf{r}, t) = \sum_k c_k(t) \Psi_k(\mathbf{r}, t)$ と展開し、散乱前すなわち $t \rightarrow -\infty$ において始状態を示すよう複素係数 c_i の絶対値を1、他の係数を0と決定して、散乱後すなわち $t \rightarrow +\infty$ における係数 c_f より遷移確率 $P(b) = |c_f|^2$ を求め、積分 $\sigma = 2\pi \int_0^\infty P(b) b db$ より反応断面積を求める。この方法は衝突エネルギーがおおむね100 eV/u以上であれば有効であり、波動関数と遷移確率の計算にボルン近似、アイコナル近似や“ゆがんだ固有関数(perturbed stationary state; PSS)法など衝突エネルギーに応じた理論を組み合わせる。部分波による方法では、全空間的に広がる波動関数で表される入射波 Ψ (例えば波数ベクトル \mathbf{k}_0 の平面波 $\Psi \propto \exp(i\mathbf{k}_0 \cdot \mathbf{r})$)が散乱後、散乱しなかった波動関数と散乱で生じた外向き球面波の和で $r \rightarrow \infty$ において $\exp(i\mathbf{k}_0 \cdot \mathbf{r}) + f(r/r, \mathbf{k}_0/k) \exp(ikr)/r$ と書けるようにシュレーディンガー方程式を解き、散乱振幅 f から断面積を求める。実際に波動関数を計算するには、摂動法と緊密結合法に大別される近似が必要で、それぞれ高および低衝突エネルギーで有効である他、比較的簡単な衝突系においては時間依存の波動関数を有限要素法により数値的に解くことも行われている。

摂動法の代表的手法であるボルン近似では、前節あるいは参考文献[2]第5章にもあるように、解くべきシュレーディンガー方程式を、衝突系全体の波動関数を標的の固有関数で展開した上で、両辺に系の波動関数 Ψ が登場する積分方程式に変形しておき、入射粒子の運動エネルギーが相互作用ポテンシャルに比して十分大きく、相互作用による運動への影響はごくわずか(散乱断面積も小)であるとの前提から、積分方程式左辺の Ψ を、相互作用がない入射平面波の波動関数 $\Psi^{(0)} = \exp(i\mathbf{k}_0 \cdot \mathbf{r})$ として右辺の

$\psi = \psi^{(0)} + \psi^{(1)}$ より散乱波 $\psi^{(1)}$ を求め (1次ボルン), 散乱振幅と断面積を求める. 次に $\psi = \psi^{(0)} + \psi^{(1)}$ を左辺に代入して $\psi = \psi^{(0)} + \psi^{(1)} + \psi^{(2)}$ を求め (2次ボルン), これを高次まで繰り返せば厳密な解に収束するはずであるが, 実際には1次ボルンあるいは必要に応じて2次ボルンまでの計算が行われる. 当初は相互作用がない状態の平面波を最初の波動関数 $\psi^{(0)}$ として用いた平面波ボルン近似が使われたが, 現在では完全な平面波ではなくある程度散乱の影響を織り込んだ波動関数を用いたり, 2次ボルンまで計算するなど精度を上げるための方法が用いられる.

低エネルギー衝突では, ボルン近似のような入射粒子原子核と標的原子核の相互作用を無視する方法は使えず, 歪曲波近似法により入射粒子と標的の相対運動の変化を取り入れて計算を行う. 衝突する入射粒子と標的の全電子が取り得る状態 (どちらの核のどの準位に束縛されるか, あるいは自由電子としていくらの運動量を持つか) に応じた系のポテンシャルエネルギーを, 入射粒子と標的の核間距離の関数として描いた図7を (断熱) ポテンシャル曲線と呼ぶ. 散乱はこの図で始状態を表すポテンシャル曲線の右方極限 (核間距離 $r \rightarrow \infty$) から, 曲線に従って最近接距離 $r = R_0$ まで左に移動 (接近) した2粒子が, ふたたび右方極限まで離れると表現でき, この間に始状態の曲線から別の曲線への“乗り換え”が起こり別の状態のまま核同士が離れていく場合に, この終状態へ遷移する非弾性散乱が起こる. 状態0と1の間に何の相互作用もなければ, それぞれのポテンシャル曲線は図7(a)のようにある距離 $r = R_c$ で交差するが, この場合状態01間の遷移は起こらない. 状態間に電子相互作用が働く (従って遷移が可能な) 場合には, 二つの曲線は図7(b)のように $r = R_c$ において $\Delta E = U_{01} \hbar^2 / 2\mu$ のオーダーで“反発”し交差しなくなる (擬交差). U_{01} は電子相互作用があるときの両状態のエネルギー差 (相互作用がなければ $U_{01} = 0$ となり曲線は交差) μ は換算質量である. この ΔE を越えて遷移が起こる確率を p_ℓ とすると, 遷移が起こるのは状態0で接近する系が $r = R_c$ で状態1に遷移し, 最近接距離 $r = R_0$ に至った後引き返し離遠時に $r = R_c$ で状態0に遷移することなく離れていく場合と, 逆に接近時に遷移せずに離遠時に遷移する場合の二つとなり, 散乱による状態01間の遷移確率は, $p_\ell(1-p_\ell) + (1-p_\ell)p_\ell = 2p_\ell(1-p_\ell)$ となる. p_ℓ の表式はLandau[33]とZener[34]により独立に求められたが, $p_\ell \ll 1$, $p_\ell \approx 1$ いずれの場合にも非弾性過程の断面積は小さくなり, ($p_\ell \approx 1$ の場合衝突中の状態は異なるものの) 弾性散乱が主体となる. また

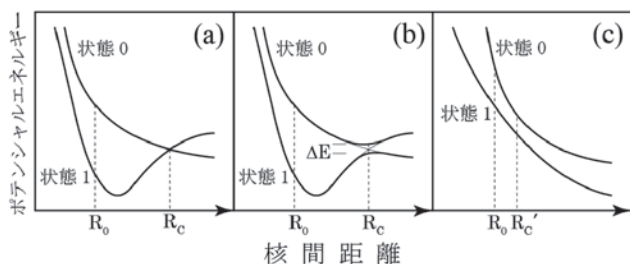


図7 ポテンシャルエネルギー曲線とその交差点 $r = R_c$ における挙動.

古典論によると, 接近速度 $v(R)$ が小さく核間距離の変化によるポテンシャル変化が十分小さいとき, 遷移の振動励起の周期 $\theta \approx \hbar / \Delta E$ が衝突時間 $T = a/v(R)$ に比して十分短く ($T/\theta \gg 1$) になると, 衝突は断熱的となって状態間遷移確率は低い (Massey の断熱判定基準[2]). 図7(c)のようにもともとポテンシャル曲線が交差しなくても, 01間のポテンシャル差 $|k_0^2 - k_1^2 + U_{00} - U_{11}|$ と $|U_{01}|$ の差が最小となる核間距離で遷移は可能である. この例では二つの曲線のみ考えたが, 実際の系では励起, 電離, 電子移行など起こりうる非弾性過程のポテンシャル曲線が複雑に絡んで相互に関連しており, 取り得る量子状態をできるだけ多く正確に取り入れて計算する方法が緊密結合法である. 衝突中, 系は準分子 (擬分子) の状態にあることから, ポテンシャル曲線の計算にあたっては, 電子波動関数を個別原子ではなく準分子の電子波動関数による展開で表現する.

古典力学理論も水素様原子あるいは等価と見なせる衝突系の高エネルギー衝突において有効な理論式を与える他, 種々の半経験式作成のベースとなっている. 水素様より複雑な系での高エネルギー衝突では, 標的中の電子と原子核の相互作用を無視し, 入射粒子が (核に束縛されない) 自由電子に衝突すると近似する2体衝突近似が有効であるが, 2体衝突近似は励起断面積の計算には使えない. 中エネルギー領域では, 複雑な衝突系において衝突に関わるすべての原子核と電子の古典的相互作用を連立して解く古典軌道モンテカルロ法が成功を収めている. (今井 誠)

3.4 データ評価

原子分子データがどれだけ信頼できるのか, どの程度不定性があるのか, その評価は重要であり, データを利用する原子分子物理学以外の研究者にとっては, 評価されたデータが提供されることが望ましい. しかしながら, データ評価は容易ではなく, 原子分子物理学についての知識と理解, 理論計算方法・実験方法に関する理解と, データ評価の経験が必要である. そのため, 世界においてもごくわずかな研究者が評価済みデータを作成しているのが現状である.

データ評価の方法を簡単に記そう. データを評価するには, まず, 文献を調査し, 既存のデータ集めから始まる. 集めたデータは, 誰 (どのグループ) が, どのような方法で求めたデータか, 誤差はどのくらいか, 理論の場合はどのような仮定のもとで計算されているか, 実験であれば, どのような装置や条件で測定されたか, などをリストアップする. 数値データについてはグラフ化し, 値を比較する. このとき数値データベースがすでにあれば大変便利である. 断面積などは, 衝突エネルギーに対する振る舞いの傾向などを吟味し, 推奨データを決めていくことになる. その決め手となるのは, やはり実験による測定値とその誤差であるが, 実験方法をよく吟味し, 理論計算とも比較する必要がある. データ値のエネルギー依存性および値が, 高エネルギーまたは低エネルギーでの漸近形に近づいているかで信頼性を判断できる. 市川は多くの分子などの電子衝突断面積の評価を行っているが, その中で評価の指針を次のよ

うに述べている[35].

- ① 理論データと実験データがあれば、基本的には実験データを優先する.
- ② 実験方法の信頼性を評価する. 独立した測定方法による結果が一致するものは、精度が高いと判断できる.
- ③ 一つの方法によるデータセットしかない場合は、参考データとする. (評価済みデータとはしない). 複数の測定値のばらつきが大きいものも、データ評価を行わない.

一方、イオンの電子衝突励起断面積など実験による測定値がほとんどないが、応用上重要なデータの場合、理論計算の手法や計算内容により判断して推奨データをまとめることもある. 評価済みデータ、推奨データは、解析式でフィッティングして提供されることも多い.

このデータ評価の際に、既存のデータベースがあればそれは重要な役割を果たす. 収集したデータをそのデータベースに追加することにより、グラフ化や比較が容易になり、データのアップデートによる再評価も難しくはない.

データベースの中には、このように収集した元データを収納・公開しているものと、評価済みデータのみを公開しているものとに分かれる. 核融合研の衝突過程数値データベース[36]は前者であり、NISTの原子分光データベース[37]は後者になる. データベースの使い方については、第4章で紹介する.

1) 波長・遷移確率の評価

NISTの原子分光データベースに入っている原子のスペクトル波長や遷移確率はほとんどは評価済みデータであり、その結果は論文として発表もされている. 例として、タングステンイオンの波長について紹介する[38]. このデータ評価では、2007年までに出版された論文を調査し、実験により測定された $W^{2+} \sim W^{73+}$ の発光線波長とエネルギーレベル (一部のイオンのみ)、遷移確率を評価している. 実験としては、sliding spark light source, レーザー生成プラズマ, トカマク, 電子ビームイオントラップ装置 (EBIT) が用いられている. これらの中から精度の高い計測値を選び、遷移の同定については、独自に理論計算も行い、オリジナル論文の結果と比較して決定している. 複数のグループによる計測があるほうが望ましいが、タングステンイオンについては一つしかない場合が多く、その場合は、参考データと考えたほうが良い.

遷移確率は、測定としては発光線の寿命と分岐比の測定を行って理論計算と比較、評価するが、測定そのものが難しく、評価されたデータとしてNISTのデータベースに登録されたものは多くはない.

2) 衝突断面積・速度係数の評価

衝突断面積・速度係数の場合は波長と異なりエネルギー依存性加わるため、評価が大変難しい. さらに原子核衝突データと比較しても励起状態が多いためプロセスの数が多く、統一した評価済みデータはまだ確立されていない.

プラズマ中で重要となるイオンの電子衝突励起断面積データとしては Itikawa *et al.* [39] の評価済みデータは今で

もシミュレーションコードの中で用いられている. 他にもCイオン衝突断面積について[40], Feイオンについて[41]などがある.

ここでは、具体的な評価の例として、分子 CH_4 の電子衝突電離断面積を見てみる[42]. 既存の実験データを中心に収集、評価し、推奨データを選び、解析式でフィッティングをした. 解析式では、エネルギーの高いところでの断面積の振る舞いが正しくなるようにペーテ-ボルン理論による結果を考慮している. 分子の場合、電離後解離するチャンネルも多数あるため、その部分断面積の和がトータルの断面積になるように配慮する必要がある. 図8に例として、 CH_4 が電離して CH_3^+ と H ができる場合の断面積を示す. 図に示したように、一つの実験データ以外はほぼ一致している. この中で最も信頼性が高いデータを選んで推奨データ

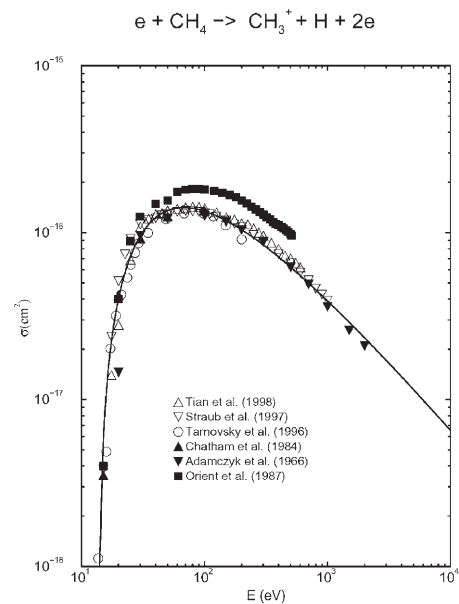


図8 電子衝突による CH_4 の解離性電離断面積の衝突エネルギー依存性. シンボルは実験データ, 実線は推奨データ. 文献[42]より転載.

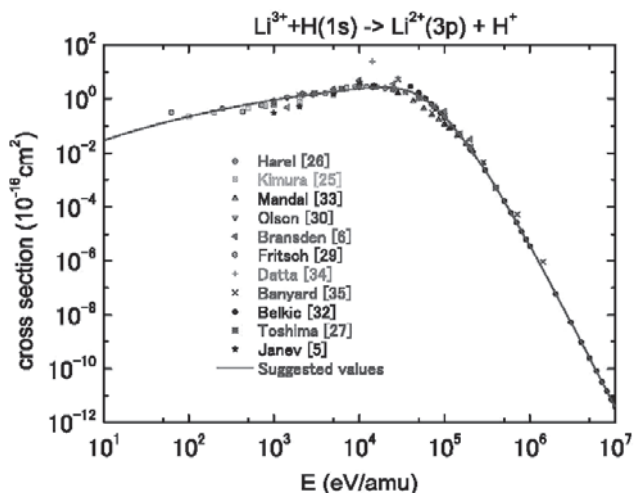


図9 Li^{3+} と H の荷電交換反応により、 $Li^{2+}(3p)$ へ電子が捕獲される断面積. 横軸は実験室系の核子1個あたりの衝突エネルギー. いろいろな理論データ (シンボル) を比較し、推奨データ (実線) を求めている. 文献[43]より転載.

としてフィッティングをし、図中に実線で示している。

原子衝突による荷電交換断面積は、全断面積は実験データがあるが、励起状態への部分断面積は実験測定データがない。しかし、荷電交換分光計測など応用上重要であるため、推奨データは理論計算から作成する必要がある。ただし、衝突エネルギー領域により、断面積の振る舞いが異なり、また計算手法も異なるため、それらを考慮して推奨データをきめなければならない。例として図9に Li^{3+} と H の衝突により $\text{Li}^{2+}(3p)$ への電子捕獲過程の断面積を示す [43]。おおよそ $(2 \sim 5) \times 10^4 \text{ eV/amu}$ あたりの断面積の振る舞いが変わっているところは、ちょうど計算手法も変わる境界領域で、高エネルギー側と低エネルギー側では異なる計算モデルで断面積が得られている。それぞれで信頼性が高いデータを選び、これらをつなぎ合わせてもっともらしいところに線を引く推奨データとしてフィッティングを行った。そのため、このつなぎ目の領域の断面積の値は、注意して用いる必要がある。(村上 泉)

3.5 データベース構築方法

収集した原子分子データをまとめ、あとで検索などができるように使いやすく格納したデータベースを構築するには、リレーショナルデータベースマネージングシステム (RDBMS) とよばれるソフトウェアを用いるのが一般的である。データを複数の表に分けて管理し、表と表の間は ID で関係付け、SQL と呼ばれるデータベース言語を用いてデータを検索、参照し、表示する。RDBMS には、MySQL [44] や PostgreSQL [45] というオープンソースソフトや Oracle, Microsoft SQL Server といった商用ソフトがある。これらのソフトでデータベースを構築し、ユーザーが検索など使いやすいような GUI 等による表示システムは別途開発する必要がある。Windows や MacOS で動く FileMaker などの市販ソフトは、一般的に使いやすく作られている。

RDBMS を使ってデータベースを構築するにあたり、まず、どのようなデータ構造にするか、設計する必要がある。原子分子データの場合は、文献情報と数値データに分けることができ、それぞれ別の表で管理するのが適当だと考える。文献情報は、著者、論文タイトル、雑誌名、巻・号、ページもしくは論文番号といった書誌情報が主で、電子ジャーナルの DOI などもあると便利である。一方、数値データは、断面積や速度係数、衝突エネルギー、誤差値といった数値そのものに加え、数値の単位の情報、実験系なのか中心質量系なのか、理論と実験の別、理論の方法や実験の方法の情報、どういう原子過程なのか、始状態と終状態の情報 (原子や分子名、イオン価数、エネルギー状態の量子数などの内部状態の情報) など、付随情報がいろいろ必要である。場合によっては、フィッティング関数の解析式やフィッティング係数などの情報も必要かもしれない。これらの数値データを更に複数の表に分けて管理することも可能だと思われる。これらの項目に対して、項目名、データの型 (文字列、整数、実数等)、データサイズ (バイト数) などを決めて表を設計する。忘れてはいけないのは、データセットを区別するキー (ID) を設定することである。

表が出来たら、データ検索であるが、直接 SQL 文を実行してデータベースへアクセスするのは、ユーザーには不便極まりないし、管理上好ましくない。したがって、GUI やブラウザ等を使って、ユーザーによる検索パラメータの入力や、それを RDBMS への SQL 文に変換し、検索を実行し、返ってきた結果を表示するシステムが必要である。ブラウザを用いるのであれば、C 言語などのプログラム言語を用いて CGI を作成し、データベースへの SQL 文の実行命令や、得られた結果を加工して表示するなど、ユーザーとのやりとりを行わせることになる。1.1 節で紹介したような統一フォーマット XSAMS に則った XML 形式による出力は、この段階で CGI が作成することになる。数値データをグラフ化する場合も、CGI によりグラフを作成するプログラムを起動して数値を渡し、グラフを作成・表示することになる。

現在インターネット上で公開されている検索機能の付いた原子分子データベースは、このような方法で構築されているといつてよいだろう。(村上 泉)

参考文献

- [1] G.O'Sullivan *et al.*, *EUV Sources for Lithography* (2006, SPIE Press), Chap. 5.
- [2] 浜口智志, 村上 泉, 加藤太治, プラズマ・核融合学会編: プラズマ原子分子過程ハンドブック (大阪大学出版会, 2011).
- [3] X. Ding *et al.*, *J. Phys. B* **44**, 145004 (2011).
- [4] 高柳和夫: 電子・原子・分子の衝突 [改訂版] (培風館, 1996).
- [5] Y. Itikawa, *Molecular Processes in Plasmas* (Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, 2007).
- [6] K. Bederson and L.J. Kieffer, *Rev. Mod. Phys.* **43**, 601 (1971).
- [7] D.F. Register, S. Trajmar and S.K. Srivastava, *Phys. Rev. A* **21**, 1134 (1981).
- [8] R.K. Nesbet, *Phys. Rev. A* **20**, 58 (1979).
- [9] L. Boesten and H. Tanaka, *At. Data Nucl. Data Tables* **52**, 25 (1992).
- [10] M. Zubek, N. Gulley, G.C. King and F.H. Read, *J. Phys. B* **29**, L239 (1996).
- [11] L.C. Pitchford, S.V. ONiel and J.R. Rumble, *Phys. Rev. A* **23**, 294 (1981).
- [12] R.W. Crompton, *Adv. At. Mol. Opt. Phys.* **33**, 97 (1994).
- [13] L.S. Frost and A.V. Phelps, *Phys. Rev.* **136**, A1538 (1964).
- [14] 嶋森 洋, 簇野嘉彦: 放射線化学 **18**, 2 (1983).
- [15] M. Larsson, *Rep. Prog. Phys.* **58**, 1267 (1995).
- [16] N. Nakamura, J. Asada, F.J. Currell, T. Fukami, T. Hirayama, K. Motohashi, T. Nagata, E. Nojikawa, S. Ohtani, K. Okazaki, M. Sakurai, H. Shiraiishi, S. Tsurubuchi and H. Watanabe, *Phys. Scr.* **T73**, 362 (1997).
- [17] H. Watanabe, N. Nakamura, D. Kato, T. Nakano and S. Ohtani, *Plasma Fusion Res.* **2**, 027 (2007).
- [18] B O'Rourke, F.J. Currell, H. Kuramoto, Y.M. Li, S. Ohtani, X.M. Tong and H. Watanabe, *J. Phys. B* **34**, 4003 (2001)
- [19] 日本における原子分子衝突および関連分野研究者の集まりに、原子衝突研究協会 <http://www.atomiccollision>.

- jp/がある.
- [20] J.S. Chang, R.M. Hobson, 市川幸美, 金田輝男共著: 電離気体の原子・分子過程 (東京電機大学出版局, 1982).
- [21] 金子洋三郎: 化学のための原子衝突入門 (培風館, 1999).
- [22] 金子洋三郎: 日本物理学会誌 **37**, 560 (1982).
- [23] K. Kumar, Phys. Rep. **112**, 319 (1984).
- [24] S.T. Graul and R.R. Squires, Mass Spectrometry Reviews **7**, 263 (1988).
- [25] G.H. Wannier, Bell System Tech. J. **32**, 170 (1953).
- [26] H.R. Skullerud, J. Phys. B **6**, 728 (1973).
- [27] L.A. Viehland, E.A. Mason and J.H. Whealton, J. Phys. B **7**, 2433 (1974).
- [28] S.L. Lin and J.N. Bardsley, J. Chem. Phys. **66**, 435 (1977).
- [29] L. Ferrari, J. Chem. Phys. **118**, 11092 (2003).
- [30] 高柳和夫: 原子衝突 (朝倉書店, 2007).
- [31] B.H. Bransden and M.R.C. McDowell, *Charge Exchange and the Theory of Ion-Atom Collisions* (Oxford University Press, New York, 1992).
- [32] G.W.F. Drake (ed.), *Springer Handbook of Atomic, Molecular, and Optical Physics*, Part D (Springer, 2005).
- [33] L. Landau, Physik. Z. Sowjet **1**, 88 (1932), *ibid.* **2**, 46 (1932). [in *Collected Papers of L.D. Landau*, Pergamon Press (1965) 52-59, 63-66].
- [34] C. Zener, Proc. R. Soc. Lond. A **137**, 696 (1932).
- [35] Y. Itikawa, J. Phys. Chem. Ref. Data **38**, 1 (2009).
- [36] NIFS atomic and molecular numerical database, <http://dbshino.nifs.ac.jp/>
- [37] Y. Ralchenko, A.E. Kramida, J. Reader and NIST ASD Team (2011). *NIST Atomic Spectra Database* (ver. 4.1.0). [Online]. Available: <http://physics.nist.gov/asd>. National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD.
- [38] A.E. Kramida and T. Shirai, Atomic Data Nucl. Data Tables **95**, 305 (2009).
- [39] Y. Itikawa *et al.*, Atomic Data Nucl. Data Tables **33**, 149 (1985).
- [40] K. Suno and T. Kato, Atomic Data Nucl. Data Tables, **92**, 407 (2006).
- [41] I. Murakami *et al.*, Atomic and Plasma-Material Interaction Data for Fusion (APID series), IAEA, accepted (2011).
- [42] R. Janev *et al.*, NIFS-DATA-68, NIFS (2001).
- [43] I. Murakami *et al.*, Atomic Data Nucl. Data Tables **94**, 161 (2008).
- [44] MySQL, <http://www.jp.mysql.com/>
- [45] PostgreSQL, <http://www.postgresql.org/>



むら かみ いずみ
村上 泉

核融合科学研究所核融合システム研究系教授。主な研究分野はプラズマ中の原子分子過程。2011年は、1月に教授昇進で始まり、3月にプラズマ原子分子過程ハンドブックが出版、4月から学童保育保護者会とPTA役員を務め、科研費も頂き、その他諸々、いろいろな意味で当たり年に。2012年はどんな年になるでしょう。小学生と幼児の子育てに奮闘中。特定非営利活動法人原子分子データ応用フォーラム理事長。



か とう だい じ
加藤 太治

1997年電気通信大学大学院修了。理学博士。旧科学技術振興事業団「多価冷イオンプロジェクト」研究員、核融合科学研究所COE研究員を経て、現在、同研究所助教。研究内容は、プラズマおよびプラズマ-壁相互作用における原子分子過程、原子分子データベース、第一原理分子動力学による炉材料の水素照射効果モデリング等。



きた じま まさ し
北島 昌史

東京工業大学大学院理工学研究科化学専攻、准教授。主な研究分野：原子・分子衝突科学、主に超低エネルギー電子-原子・分子衝突過程を研究。その他：物理と化学を行ったりきたりしながら、新しいことを探しています。



さか うえ ひろ ゆき
坂上 裕之

1991年上智大学大学院理工学研究科物理学専攻博士後期課程修了、理学博士。同年理化学研究所（大型放射光）の研究員としてSpring-8建設に従事。1995年に核融合科学研究所大型ヘリカル研究部開発研究系助手。現在に至る。専門は原子・分子衝突過程の実験的研究。



いま い まこと
今井 誠

京都大学大学院工学研究科原子核工学専攻助教。広島市出身。主な研究分野は、イオン-原子・分子衝突物理。3月まで、記事中にも登場する原子衝突研究協会の庶務幹事を務め、会員増加に苦闘している。「協会は、4月より原子衝突学会に改名いたします。ご関心をお持ちの方はお問い合わせください(^_^);」現在の個人的関心事は、専門を越えて20キロ圏内の除染。まずは圏外から、機会を見つけては福島に通う。



4. 主なデータベースの利用方法例

村上 泉

核融合科学研究所

(原稿受付：2012年1月27日)

原子分子データベースの具体的な利用方法例として、NISTの原子スペクトルデータベースと分子の化学反応データベース、核融合科学研究所の衝突過程の断面積等データベース、ADAS、そして化学反応データベースとしてGRI-Mechの使い方を紹介する。

Keywords:

atomic and molecular database, wavelengths, transition probabilities, collision cross sections, chemical reaction rate constants

本章では、原子分子データベースの具体的な利用方法をいくつか紹介する。検索方法は、データベースごとに異なっており、ちょっとしたコツがあったり、いろいろなオプションがあったりするので、是非自分でもいろいろ試して使ってみてほしい。どのデータベースでも、ユーザーからのフィードバックは重要なので、使い勝手や、データ内容などの要望は、どんどん出すと良い。インターネットでアクセスできるデータベースのほとんどを文献[1]第17章で紹介しているのでそちらも参照していただきたい。

原子の波長・遷移確率と、電子衝突電離、励起、再結合断面積・速度係数については、インターネット上のデータベースを一度に検索できる検索エンジンGENIE[2]がIAEAによって提供されており、これらは、原子(イオン)を指定するだけで検索が実行され、それぞれのデータベースからの検索結果がそのまま表示されるようになっている。これらのデータを調べたい場合は、このサイトを利用するのが手取り早い。

4.1 NIST

米国標準技術研究所(NIST)では、その名のとおり標準データ Standard Reference Data の整備に関する研究を広く行っており、多くのデータベースを提供している。それは、1968年にアメリカで制定した標準データを提供する法律に基づいている。その総合的な入り口としてNIST Data Gateway[3]がある。このページの左側の分野リストから「Atomic and Molecular Physics」を選ぶと、原子分子関係のデータベースのリストが出てくる。あるいは、右側のQuick Listから原子スペクトルデータベース"Atomic Spectra Database ASD"[4]へ行くこともできる。「Physical Reference Data」を選ぶと物理系のデータベースリスト[5]へ行く。ここには周期律表もある。その中に原子分光

データと分子分光データなどがある。原子分光データは、ASDのほか、基礎原子スペクトルデータハンドブック(中性原子と1価イオンのスペクトル線の波長と強度のデータ集で、データはASDに含まれている)、水素と重水素のエネルギーレベル(理論によるオンライン計算)、中性原子の基底状態と電離エネルギー表、X線遷移エネルギー($Z=10-100$ の $K\alpha$ 線等)、原子スペクトルの文献データベースなどがある。分子分光データは、2原子分子、3原子分子、炭化水素の回転遷移のマイクロ波スペクトルデータ(同位体を含む)、赤外分光器較正用波数表、星間分子のマイクロ波遷移周波数などがある。「Atomic and Molecular Physics」では、オンライン以外のデータベースもリストアップされている。オンラインのもので、NIST Chemistry WebBook[6]では分子の様々な基礎データが集められている。SRD107として、分子の電子衝突電離・励起断面積のスケーリング理論(BEBモデル)によるオンライン計算が実行できる[7]。そのほか、中性原子・分子の気相化学反応の速度係数のデータベース[8]、液相中の分子の化学反応の速度係数のデータベース[9]が提供され、化学反応式によって検索ができる。

ここでは、最もよく利用されている原子スペクトルデータベースASD[4]について、簡単に使い方を紹介する。2つのデータベース「Lines」と「Levels」があり、Linesのほうはスペクトル線の波長と遷移確率、遷移の上準位、下準位の情報、データの出典が見られる。調べたいイオン、例えば、 C^{3+} イオンの場合は、分光記号でCIVと指定し、波長範囲を指定して検索する(図1)。複数のイオンを指定することも可能である。検索のときのオプションとして、表示方法をテキスト形式にしたり、レベルエネルギーの単位を変更したり出来る。検索条件に、エネルギー単位の範囲の指定や、遷移強度の範囲の指定、データ精度の指定を

図1 NISTのASD[4]のLineの検索画面。一番上部でイオン及び波長範囲を指定すると検索ができる。検索条件等の変更や、オプションで図の作成などでもできる。「Dynamic Plots」では、熱平衡を仮定したスペクトルの図も表示できる(図2参照)。「Grotrian Diagram」では、エネルギー準位と遷移の関係を図にしたグロトリアン図が作成できる(図3参照)。

したり、表示される波長を真空のみにしたり、といった変更もできる。デフォルトでの表示は、波長(計測値, Å), Ritzの波長(Å), 相対強度, 遷移確率 A_{ki} (s^{-1}), 遷移確率の精度(AAA (0.3%以下) ~ E (50%以上)), 上準位および下準位のエネルギー (cm^{-1}), 遷移の電子配置(Configuration), LS多重項(Term), 全角運動量子数 J , 統計重率 g , 遷移のタイプ(何もない場合は電子双極子遷移), 出典が表示される。波長は, 2000 Å以下および20000 Å以上は真空の波長, その間は空気中の波長である。また, Ritzの波長は, 遷移の上準位と下準位のエネルギーの差の逆数が真空の波長であるとしたRitzの原理[10]に基づき, 実験によって得られた準位のエネルギーを使って出している。

基本的に実験値を元に評価されたデータであるが, エネルギーレベルについては, 実験値からの外挿や理論値の場合があり括弧で表示される。オプションで, 波長の位置の図("Line Identification Plot")や, サハの熱平衡の場合のスペクトル線強度の計算を電子温度と電子密度を指定して作

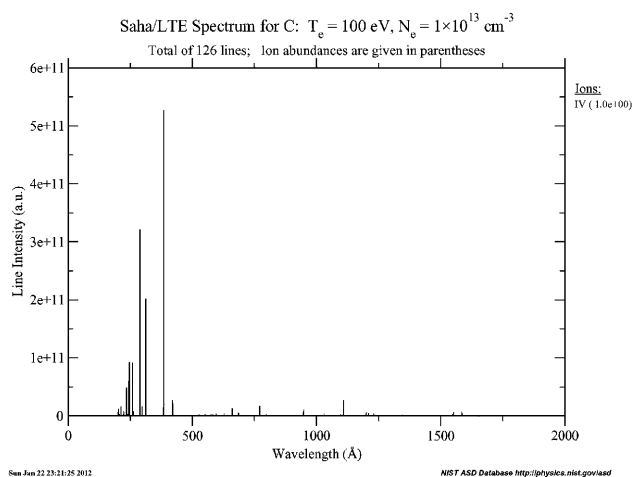


図2 NISTのASD[4]のLineの中で, Dynamic Plots オプションのSaha-LTE Spectrumを選択した場合に作成される, 熱平衡時のスペクトルで, C IVの例(1-2000Å)を示す。電子温度 100 eV, 電子密度 $10^{13} cm^{-3}$ を指定した。スペクトル線強度は相対値になる。

成することもできる("Saha-LTE Spectrum")。図2にC IVのスペクトルの例を示す。これらオプションで作成した図は, 検索結果の画面の一番下にリンクが出てきて, PDF等での表示・ダウンロードや, 図のデータのテキスト表示ができる。

また, グロトリアン図(Grotrian Diagram)と呼ばれる, エネルギー準位と準位間の光学的許容遷移の関係を表す図を作成することも可能である。図3にC IVの場合を示す。この図はJavaScriptを使ってダイナミックに表示される。遷移を示す線をクリックすると, 上準位や下準位の情報や, 波長, 遷移確率も表示できるため, スペクトル線の遷移の理解の助けになる。

次に, ASDのトップページに戻り「Levels」を選択すると, イオンの原子構造を調べることができる。イオンを分光記号で指定すると, 励起状態の電子配置, LS多重項, 全角運動量子数 J , レベルエネルギー (cm^{-1}) が表示される。検索のときに, エネルギーの表示を eV に変更することも可能である。元素番号が大きな多価イオンの場合は, 配置間相互作用による混合があるため, その表示されている配置の占める割合(%)も表示される。例として, 図4にW LXX (W^{60+})で検索したときの結果を示す。レベルエネルギーの値が, 斜字体になっているのは, 実験による評価がない理論値で, +xと書かれているものは, 不定性があることを示している。電離閾エネルギーも表示される。

詳しい使い方, 説明は, ヘルプページ(ホームページ上部にリンク)に記述されている。

NISTが公開しているデータベースの中から, もうひとつ, 分子の化学反応のデータベース NIST Chemical Kinetics Database[8]を紹介する。様々な分子の気相化学反応の速度係数¹を, 化学反応式等を指定して検索できる。例えば, 初期状態として CH_4 と入力して CH_4 だけを指定して検索すると, 反応式ごとに分類した908レコードがヒットした。その中から, 7レコードヒットした $CH_4 + O_2 \rightarrow CH_3 +$

1 反応速度係数(Rate coefficients), 反応定数, 速度定数(Rate constant)などともいう。

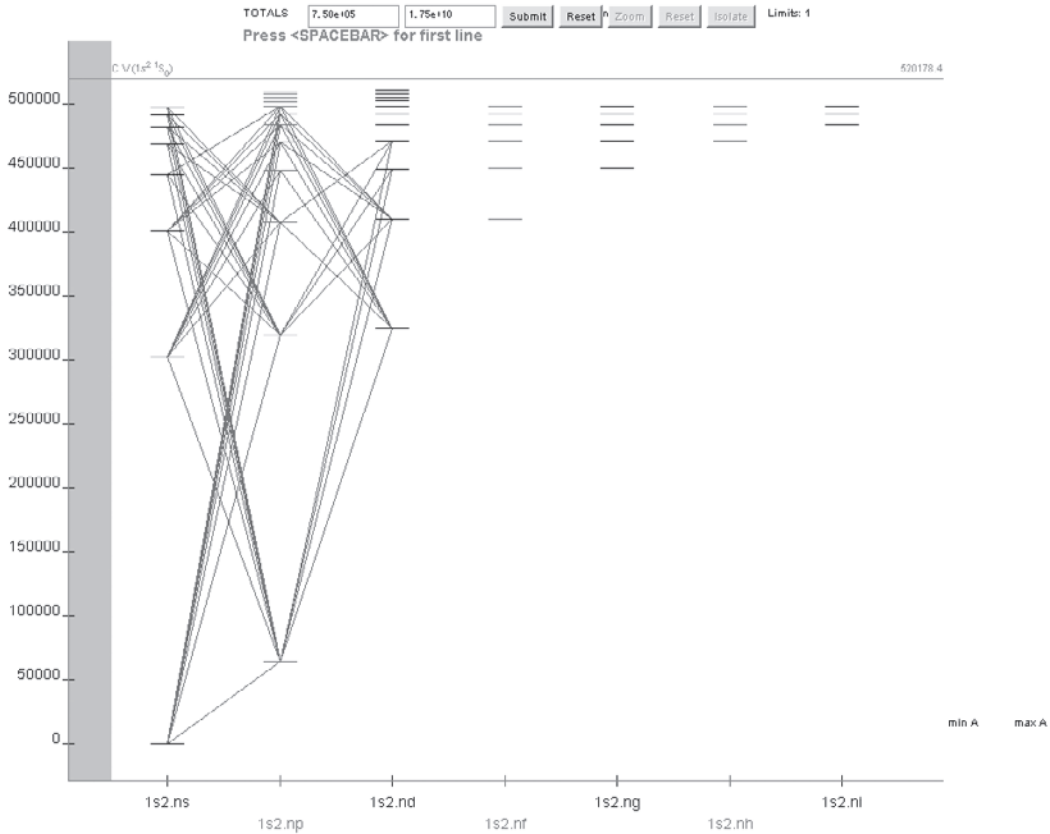


図3 NISTのASD[4]のLineのなかで作成したグロトリアン図の例として、C IVを示す。縦軸はエネルギーで、励起状態のエネルギー準位が横棒で示されている。それらの電子配置は、横軸に1s2 nsのように記され、これは、 $1s^2 ns$ の意味で、主量子数 $n=2\sim 9$ (np, ndはもう少し上まで)が描かれている。その横棒の間に引かれている斜めの線が、光学的許容遷移(電気双極子遷移, E1)である。電気双極子遷移の選択則として方位量子数 $\Delta l = \pm 1$ に当てはまるものが描かれている。その遷移の線をクリックすると、上準位, 下準位の情報や波長, 遷移確率が表示される。データベースの中に入っているデータを元に図が描かれているため、この場合、 l が3以上の励起状態間の遷移のデータが含まれていないこともわかる。

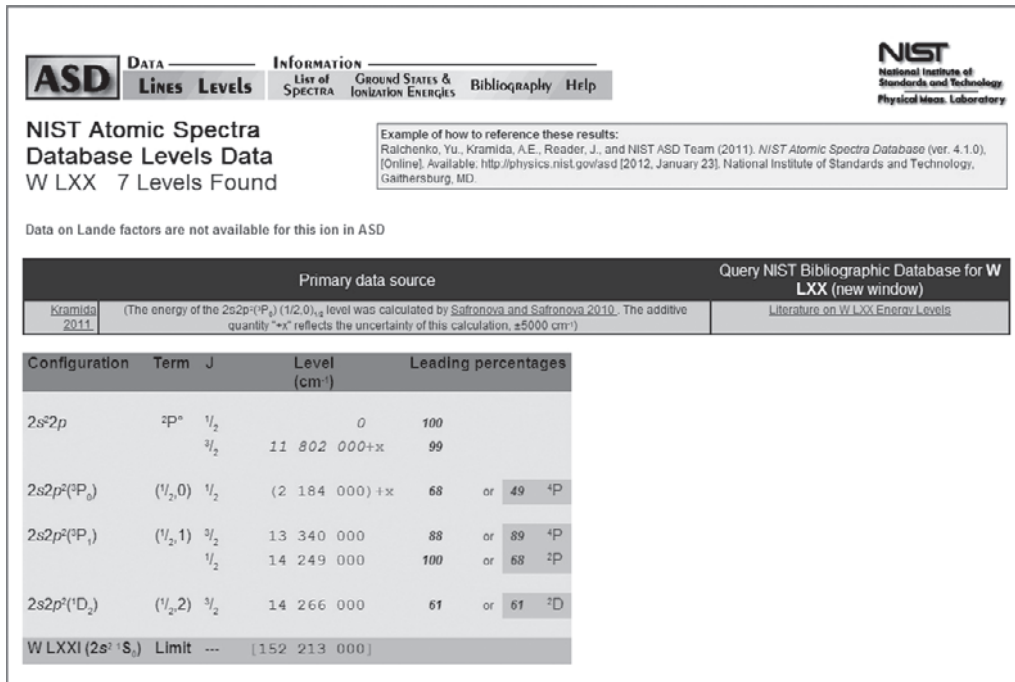


図4 NISTのASD[4]のLevelsで、W LXX (W⁶⁹⁺)を検索した結果。基底状態, 励起状態の電子配置 (Configuration), LS多重項 (Term), 全角運動量子数 J, エネルギーレベル (cm⁻¹; +xは計算値に不定性があることを示す), 混合の割合 (%)で、他の項が混ざっているときは、2番目に大きいものも表示。

HO₂を見てみると、図5のように、速度係数に関するアレニウスの式と、そのパラメータ A (頻度因子) と n , 活性化エネルギー E_a , 適用温度範囲がデータの出典ごとのリストとして表示される。化学反応が、1体反応 (1次) か、2体反応 (2次) か、3体反応 (3次) によって、order が分類され、速度係数の単位が、1次の場合が s^{-1} , 2次が $cm^3 molecule^{-1} s^{-1}$, 3次が $cm^6 molecules^{-2} s^{-1}$ となっている。

出典のところをクリックすると、論文の情報が得られる。さらに、上部に表示された化学反応式の分子をクリックすると、Chemistry webbook[6]へ飛んで、その分子の情報が見られるようになっている。

出典の前にあるチェックボックスをチェックして、"Create Plot"をクリックすると、図 (アレニウスプロット) が描かれて、データの比較ができる。図6に例を示す。アレニウスプロットは、横軸が温度の逆数、縦軸が反応係数の対数であるため、傾きから活性化エネルギーが求められる。チェックされたデータを使い、アレニウスの式で指数部の

前に温度 T の n 乗の項を仮定しない場合と仮定した場合のフィットも自動で実行して、結果が表示される。

4.2 NIFS

核融合科学研究所 (NIFS) では、原子・分子の衝突過程の断面積・速度係数等の数値データベース[11]を作成、公開しており、表1に示すように、9つのデータベースから構成されている。AMDIS, AMOLが電子衝突過程, CHART, CMOLが重粒子衝突過程のデータベースで、SPUTY, BACKSはプラズマ固体相互作用のデータベースである。データベース作成の歴史的経緯からDIOがあるが、近年は分子の電子衝突解離過程のデータはAMOLに格納している。データベースは1978年から順次作成され、現在のインターネットによる公開は、1997年から行っている。これらのデータベースに格納しているデータは、基本的には出版されている原著論文から収集したもので、一つの衝突過程に対して、複数の理論や実験などによるデータが表示されることが多い。原子データは、実験方法や理論

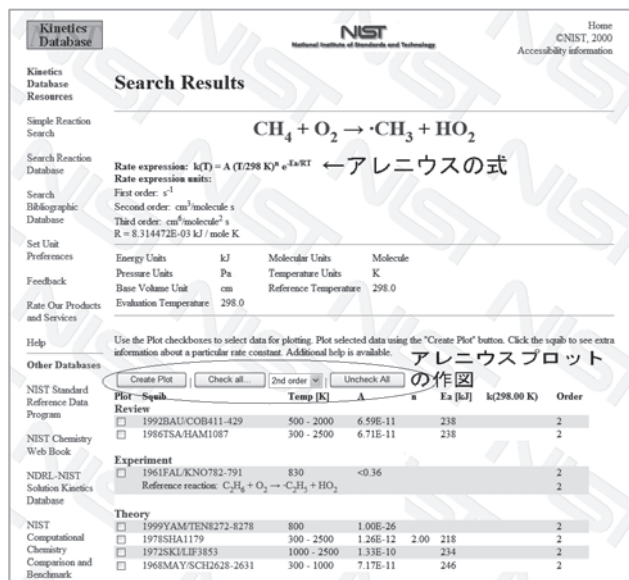


図5 NISTのChemical Kinetics Database[8]で検索し、 $CH_4 + O_2 \rightarrow CH_3 + HO_2$ の化学反応を選択して得られた検索結果。データの出典ごとに、適用温度範囲、速度係数を表すアレニウスの式のなかのパラメータ A , n , E_a に対する値が表示される。Orderは速度係数の単位を示す (本文参照)。

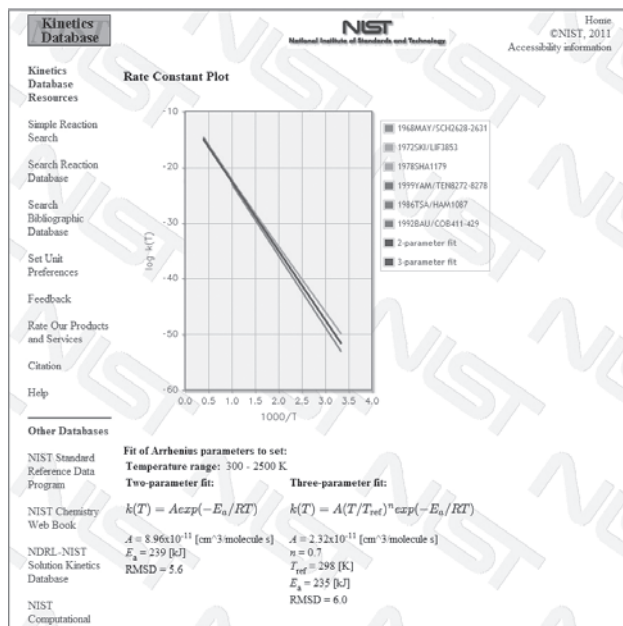


図6 NISTのChemical Kinetics Database[8]で検索し、図5で示した反応のすべてのデータをチェックしてアレニウスプロットを描いた結果。1968と1978の理論データを除き、他の文献からのデータもほぼ一致している。

表1 NIFS原子分子数値データベース[11]の構成。

データベース名	内容	備考	
AMDIS	ION	原子の電子衝突電離断面積, 速度係数	
	EXC	原子の電子衝突励起断面積, 速度係数	
	DIO	分子の電子衝突解離断面積	H ₂ など。
	REC	原子の再結合断面積, 速度係数	
CHART		原子の重粒子衝突荷電交換断面積, 電離断面積	分子標的の古いデータも含む
AMDIS Molecule (AMOL)		分子の電子衝突過程断面積, 速度係数 (全断面積, 弾性散乱, 励起, 電離, 解離, 再結合, 電子付着)	
CHART Molecule (CMOL)		分子の原子衝突過程断面積, 速度係数 (弾性散乱, 励起, 電離, 解離, 電荷移行, 組替)	
SPUTY		イオンの固体表面でのスパッタリング収率	
BACKS		固体表面での後方散乱係数	

計算手法などの違いなどにより、著者によって異なった値が出されていることが多々あり、どのデータを信頼して利用すべきか、気をつける必要がある。本講座3.4節でデータ評価について述べたが、核融合研のデータベースでは、そのような様々なデータを比較して、データ評価を行うことができるようになってきている。すでに論文として評価が行われたデータも収集してあり、そのようなデータは、実験(E)でも理論(T)でもなく、評価済み推奨データ「V」が表示されるようになってきている。研究の進歩により新たなデータが出されることもあるため、データベースのアップデートも重要である。アップデートは国内の原子分子物理学研究者の協力を得て行なっている。

表1で示したこれらのデータベースは検索システムを持ち、原子名などでの検索ができ、数値データは、数表の表示に加え、グラフ表示ができる。また、AMDIS ION, CHART, SPUTY, BACKSは、経験則による断面積も同時にグラフに書くことができる。IONの電離断面積については、Lotzの経験則(原子番号 ≤ 30) [12], CHARTは、H, H₂, He 標的に対する電荷移行断面積の経験則 [13], SPUTYは単原子固体に対するスパッタリング収率の経験則 [14], BACKSは軽元素入射に対する後方散乱係数の経験則 [15] を用いている。Lotzの式は、文献 [1] 第13章の(13.1.5)式にも記述してある。電荷移行断面積は、文献 [1] 第7章に様々な経験則が記述されているので、参考になる。データベースの中の CURVE へ行くと、経験則で断面積を作画することもできる。

図7に、例として電子衝突断面積、AMDIS IONの検索

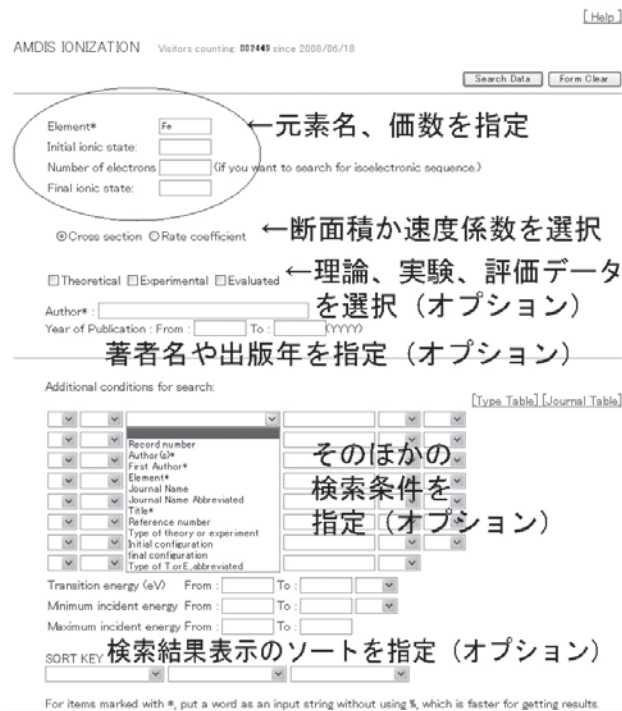


図7 NIFSのAMDIS IONデータベースの検索画面。元素名、価数などを指定して検索できる。検索データは断面積(デフォルト)、もしくは速度係数を指定する。データの種類として、理論、実験、評価データの指定や、著者、出版年、そのほかの項目も検索条件として指定できる。

画面を示す。元素名や価数などを指定して検索できる。検索する際は、断面積か速度係数を指定する必要がある(デフォルトは断面積)。オプションとして、理論、実験、評価データを選んだり、著者や出版年などの指定や、検索結果を例えば出版年でソートするように指定することもできる。検索の結果は、衝突過程ごとに分類されて表示される。ヒットするデータが300件を超えると検索が打ち切られてしまうので、ある程度狭くなるように条件を指定したほうが良い。このデータ数の検索上限は、AMDIS EXCとRECにはなく、EXCとRECの場合は、検索結果を一度、初期状態ごとに分類したリストが表示されて、そのなかから知りたい過程をさらに選択した後、個々の衝突過程のリストが表示されるようになってきている。

図7にあるようにIONで「Fe」のみ指定して検索すると、156件のデータがヒットした。例えばその中から中性鉄原子の電離断面積(1電子~4電子電離)をチェックボックスで選択して(その際、デフォルトのAll Data Listのチェックをはずす必要がある)、「Numerical Data Tables or Graphs」を選択して「Display」をクリックすると、図8

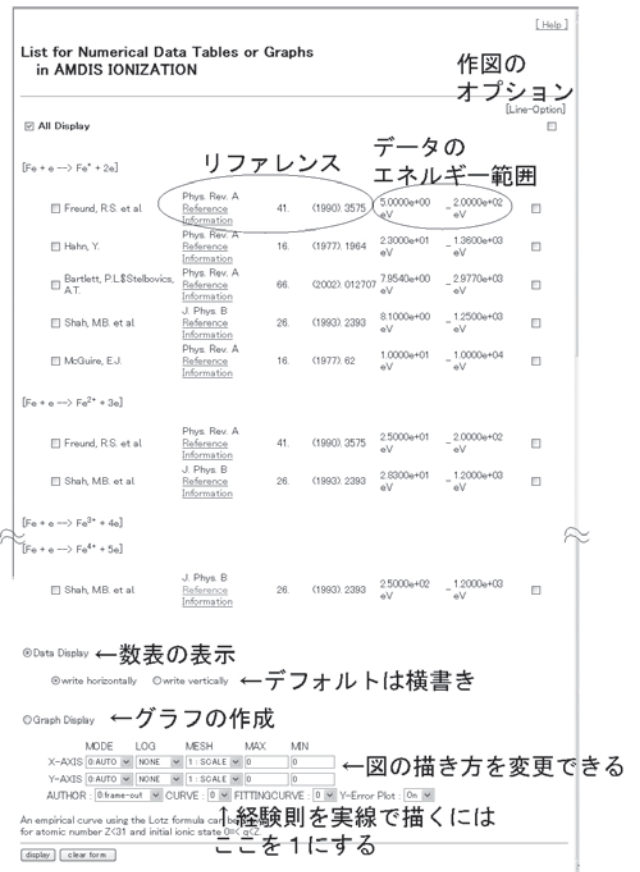


図8 NIFSのAMDIS IONデータベースで鉄を選択後、得られた結果の中から、鉄原子の1電子~4電子の電離過程を選択したあとに表示される画面。各衝突過程ごとに、データのリファレンスと衝突エネルギーの範囲が示される。ここで、数表や図で表示するデータを選択することができる(デフォルトは全部)。数表表示は、デフォルトは横書きなので、縦書きを選択すると、あとで利用しやすい。グラフの描き方もオプションで変更できる。経験則を同時に書く場合は、CURVEを1に変更する。凡例の表示場所はAUTHORの次のプルダウンメニューで指定する。

のようなページが表示される。衝突過程ごとに、データの出典論文の情報と、衝突エネルギーの範囲が表示される。個々のデータのリストのリファレンスの著者名の次に、Reference というリンクと、Information というリンクがあるが、Reference は、文献データベース ORNL への横断検索、Information は、データに付随する情報(詳しい書誌情報、データが取得された方法、データに対するコメントなど)を見ることができる。これらの情報は、この前のページで「Numerical Data Tables and Graphs」を選ぶ前に、「Standard」もしくは「Custom」の選択によっても見ることができる。

ここで「Graph Display」を選択してグラフを描くと、図9のようなになる。図を描く際に、オプション「Curve」を「1」にすると、経験則を実線で同時に描くことができる。また、個々のリファレンスごとに、データをシンボルでプロットするのではなく、線で結んで書くことも可能で、その場合は右側にある「Line-Option」のチェックボックスにチェックを入れる。図はPDFファイル等でダウンロードできる。図の描き方も変更でき、MODE をFIX にし、LOG をえらんで対数表示、MAX と MIN で表示区間を指定することができる。凡例を書く場所も AUTHOR の項目で、右上、などと変更できる。数表の表示は、Data Display を選択し、write vertically にすると、数値が縦に並ぶので利用しやすい。

核融合研では、表1に上げた検索機能付きのデータベースのほかに、いくつもの小さなデータベースを作成して公開している。リストが、ホームページ[11]に載っている。これらのデータベースは共同研究などの成果の公開等を目的に作成したもので、検索機能がなく、データをテキストファイルとしてリンクしているだけであるが、項目ごとにダウンロードできるようになっている。現在公開しているのは、二重励起状態のエネルギーレベルとサテライト線、

電子衝突による分子の微分断面積、陽子衝突による水素分子の電離微分断面積、水素分子への電子の解離付着係数、電離平衡時のイオン比、固体表面のスパッタリング収率・反射係数・飛程値、光吸収断面積、電気学会提供の原子分子の電子衝突断面積の推奨データセットとなっている。現在は、林真先生(故人)の収集された原子分子の衝突過程の文献および断面積の未発表データのデータベースの作成を電気学会放電委員会の協力を得て行っている。

4.3 Open-ADAS

ADAS (Atomic Data and Analysis Structure) [16]は、イギリスの Strathclyde 大学と JET が中心となった国際コンソーシアムが運営している原子データと解析用ソフトウェアのパッケージで、核融合プラズマや天体プラズマの分光解析等に有用な原子データや、それを使って作成された様々な2次データを利用したり自分で計算することができる。本講座1.2節aおよびbで紹介した荷電交換分光計測やビーム減衰解析では、ADAS のデータとパッケージを利用してデータの解析を行っている。そのほかにも、発光線強度と電離の数の比、いわゆるS/XBや、放射損失パワー、電離平衡のイオン密度比、などといった計算ができる。また、原子データは、核融合プラズマ関係の様々なシミュレーションコード (Strahl, EDGE2D, B2-IRENE, ERO など)でも利用されている。ADAS の膨大なマニュアルはホームページから参照でき、利用方法に熟知すれば、いろいろ有益に使える。しかしながら、このパッケージを利用するには、研究機関がコンソーシアムに参加(有料)する必要がある。国内では、NIFSと日本原子力研究開発機構が参加している。2009年より ADAS は ITER に絡んで EU からのサポートを得て ADAS-EU プロジェクトを行っている。このプロジェクトの中で若手研究者向けにトレーニングコースを毎年実施し、これはコンソーシアムメンバーでなくても参加ができる。

2008年7月より、ADAS は IAEA との協力により、OPEN-ADAS[17]として、基本的な原子データの公開を始めた。ADAS は、原子データを原子過程等により分類している。OPEN-ADAS で公開されている原子データは、荷電交換断面積 (ADF01)、「Resolved specific ion data collections」(ADF04: エネルギーレベル、基底状態や励起状態間の放射遷移確率と電子衝突励起速度係数が主体で、ファイルによっては、再結合速度係数や荷電交換再結合速度係数なども含み、衝突輻射モデルに使う励起状態のポピュレーションを計算したり発光強度を計算することのできる原子データのセット)、電子衝突電離速度係数 (ADF07)、放射再結合速度係数 (ADF08)、二電子性再結合速度係数 (ADF09)、等核子マスターファイル (ADF11; イオン密度を電離平衡等で計算するために必要なデータ、実効再結合速度係数 ACD, 実効電離速度係数 SCD, 荷電交換 Cross Coupling Coefficients CCD, 準安定状態 (Metastable) を区別してイオン密度を計算する際に必要となる Cross Coupling Coefficients XCD と、Parent Cross Coupling Coefficients QCD, 励起によるライン発光による放射パワー

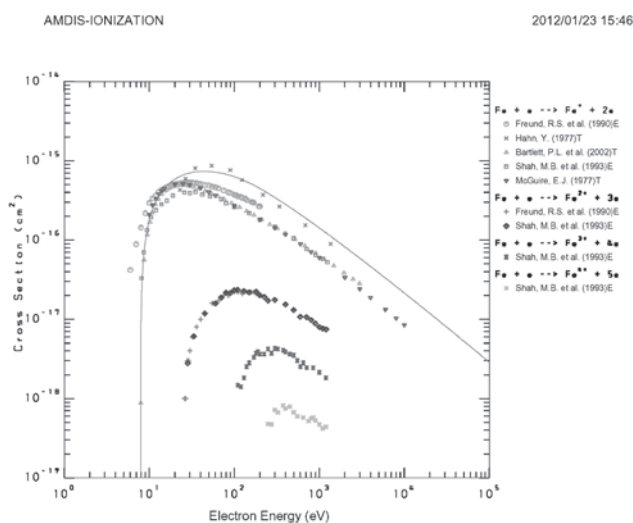


図9 AMDISION データベースでFeの電離断面積の検索を行い、そのうち、Feの1電子～4電子電離の断面積を表示させた。実線は、1電子電離断面積のLotzの経験則[12]である。各シンボルに対する文献の著者のリストのなかで、末尾のEは実験、Tは理論を示す。評価済みデータはVで示される(この図にはない)。

PLT, 再結合及び制動放射による放射パワー PRB, 荷電交換による放射パワー PRC, 個々の発光線による放射パワー PLS の 9 種類がある), 荷電交換再結合発光係数 (ADF12), 光子 1 個あたりの電離の係数, いわゆる S/XB (ADF13), 発光係数 PEC (ADF15), 実効ビーム阻止能係数 (ADF21), 実効ビーム発光係数 (ADF22) となっている。これらのデータを読み込むためのフォートランプログラムもダウンロードができるようになっている。フォーマットなどの説明は, マニュアル (Appendix) の中に記載されている。データファイルはテキスト形式で, データに対するコメントも記されている。ADAS のデータファイルは, データセットの形になっており, 例えば, あるイオンの ADF04 のファイルがあれば, そのイオンの衝突輻射モデルを構築してスペクトル合成ができるようになっていて, 利用しやすい。

ADAS の原子データは, 基本的には NIFS のデータベースと同様に, 一つの衝突過程等に対して, 異なる著者によって得られた複数のデータセットが存在する。データは, 学術雑誌に発表された原著論文のある理論計算データであったり, ADAS のグループが複数のデータを比較・検討して広い衝突エネルギー領域に適用できるようにして作成したデータなど, いろいろなものが存在する。また, 励起状態に対して微細構造レベルまで分解したデータ (resolved) と分解していないデータ (unresolved) といった違いがあったり, 準安定励起状態 (Metastable) を区別した場合と区別しない場合というのもある。原子データを利用して計算した 2 次データ, 例えば, 発光係数 (Photo Emission Coefficients, PEC) は, 計算に用いた原子データのセットが異なれば, 異なった値となり, それぞれのファイルに記述されているコメントをよく読んでから利用する必要がある。

データの検索は, 「Freeform search」としてキーワードなど自由な検索語による検索, 波長領域指定による検索, イオン指定による検索, データクラスによる検索が用意されている。例えば, 波長領域指定の検索をした場合の例を図 10 に示す。波長, イオン, データクラス, 遷移, データファイル名が表示され, データファイルをクリックすると, データファイルの詳細な説明が表示され, ファイルがダウンロードできる。ここでヒットしたものは, 発光係数 (PEC) と光子 1 個あたりの電離の数 S/XB, 荷電交換再結合による発光係数 (QEF) である。データファイル名は, 典型的には, “データファイルの中身を示す 3 文字” + “データ生成年” “元素” “データ生産者名イニシャル” “イオン”.dat (例えば, pec93#c_llr#c3.dat) であるとか, “等電子イオン系列” “データ生産者” “生成年” “イオン”.dat (例えば, lilike_wjd92#c.dat) といったような規則で作られている。イオン指定での検索は, あらゆるデータクラスのファイルがヒットする。Freeform 検索で, 適切なキーワードを複数指定したほうが, データを探しやすい。いろいろ試してみると良い。

4.4 そのほかのデータベース

文献[1]の第17章にあるように, 様々な原子分子データベースがインターネット上で公開されている。大気化学とか, 応用分野ごとに特化して収集されたデータベースがいろいろあるが, 異なる分野からであっても利用できるものは多い。

その中に記述されていないデータベースとして, GRI-Mech[18]をここでは紹介する。これは, 燃焼化学のための化学反応の速度係数のデータベースであるため, 酸素, メタンなどの炭化水素, 二酸化炭素など, 燃焼に用いられるガス分子に限られるが, 低温のプロセスプラズマなど応用プラズマ分野の化学反応を調べるのにも用いることができる。[18]のトップページから「Reaction Rate Coefficients」

The screenshot shows the OPEN-ADAS web interface. At the top, it says "OPEN-ADAS Atomic Data and Analysis Structure" and "OPEN-ADAS Version 1.2". There is a search bar and a "Search" button. Below that, there are options for "Freeform search" and "Search by wavelength". The main search area has "Wavelength" fields for "Minimum (Å)" (1000) and "Maximum (Å)" (1100). There are radio buttons for "Transition (longer list)" and "File (shorter list)". Below this is a table of search results with columns: Wavelength, Ion, Data Type, Transition, and File Details. The table lists several results for Wavelength 1000.3Å, 1001.5Å, and 1001.52Å, involving ions like W⁵⁺, W⁶⁺, and W³⁺.

図10 OPEN-ADAS [17]で, 波長領域を指定して検索した結果の例。波長, イオン名, データクラス, 遷移, データファイル名が表示され, データファイルをクリックするとデータファイルの詳細な説明が表示されダウンロードできる。

The screenshot shows the "SEARCH INSTRUCTIONS" page for GRI-Mech. It explains that reactions can be searched by reaction numbers, species names, or keys. Below this is a table with columns: Field Entry, First, Second, Third, and Action. The table lists various search criteria like "LIST", "ALL", "ACTIVE", "CH4", "OH", "CH3", "C2H5", and "5". Below the table is a search form with a "Find Reactions" button and a "Instructions" button. There are also labels for "第1入力パラメータ" (pointing to the search criteria table) and "第3入力パラメータ" (pointing to the search form).

図11 GRI-Mech[18]データベースの検索画面。画面下に入力フォームがあり, 画面上部にリストアップされた分子名や, プルダウンメニューを選択して, 検索を実行する。

Number	Reaction	Rate Coefficient $A T^n \exp(-E/RT)$			Served as Optimization Variable in GRI-Mech Releases
		A (mol ^{1/2} cm ³ s)	n (T in K)	E (cal/mol)	
118	HO2 + CH3 -> O2 + CH4	1.00E+12			1 1; 1 2; 2 1; 3 0

CH4 and O2 Find Reactions Instructions

図12 GRI-Mech[18]データベースで、CH4 と O2 で検索した結果、一つの化学反応がヒットした。速度係数をアレニウスの式で表した場合のパラメータがリストで示される。Numberの数字をクリックすると、データの詳しい情報が得られる。

を選択すると、図11に示す検索画面が表示される。ページの上部に検索方法についての説明、下部に検索条件をいれる入力フォームがある。第1入力欄には、CH4などの分子名を入れるが、ここにLISTと入力して検索を実行すると、このデータベースで扱っている分子のリストが表示される。2番目がプルダウンメニューで、分子ごとに選択できるものが表示されている。第3入力欄に標的分子等を入力して、検索を実行する。第3入力欄の説明にanyとあるものは、いろいろな分子が指定できる。例として、CH4とO2を指定してみると、図12に示すような結果が得られた。これは、4.1節の図5で示したものの逆の反応過程である。このデータベースは、一つの反応過程については、一つのデータのみを表示するようになっている。反応係数は、アレニウスの式のパラメータで表示されるが、図12の場合は、温度によらない一定値が示された。Numberに示された数字をクリックするとデータの詳細が表示され、データの出典や、温度ごとの速度係数、エントロピーやエンタルピーなどのデータが示される。

検索結果は、化学反応シミュレーションソフトウェアCHEMKIN（詳細化学反応解析支援ソフトウェア、市販品）で使えるフォーマットでの出力も可能になっている。

また、GRI-Mechでは、分子の熱化学基礎データとして、200-2000Kの温度に対する熱容量、標準エントロピー、分子形成の標準エンタルピーの値もデータベースとして用意している。熱化学基礎データはNISTのChemistry Webbook [6]にもあるので比較できる。Webbookはリファレンスごとに値が表示される。

以上、いくつかのデータベースの利用方法を紹介した。ここで紹介しなかったデータベースも、文献[1]の第17章

やリンクリストが[19]にあるので、是非一度のぞいてみて、自分の必要とするデータはどこから探すことができるか、調べてみてほしい。

参考文献

- [1] 浜口智志他編：プラズマ原子分子過程ハンドブック（大阪大学出版会，2011）。
- [2] GENIE, <http://www-amdis.iaea.org/GENIE/>
- [3] Standard Reference Data, <http://www.nist.gov/srd/>
- [4] Atomic Spectra Database, ver.4, <http://www.nist.gov/pml/data/asd.cfm>
- [5] NIST Physical Reference Data, <http://www.nist.gov/pml/data/>
- [6] <http://webbook.nist.gov/chemistry/>
- [7] <http://physics.nist.gov/PhysRefData/Ionization/Xsection.html>
- [8] <http://kinetics.nist.gov/kinetics/index.jsp>
- [9] <http://kinetics.nist.gov/solution/>
- [10] W. Ritz, *Astrophys. J.* **28**, 237 (1908).
- [11] NIFS Database, <http://dbshino.nifs.ac.jp/>
- [12] W. Lotz, *Z. Phys.* **261**, 241 (1968); **220**, 466 (1969); *J. Opt. Spc. Am.* **58**, 236 (1968); **58**, 915 (1965).
- [13] Y. Nakai *et al.*, *Phys. Scr.* **T28**, 77 (1989).
- [14] N. Matsunami *et al.*, IPPJ-AM-52, *Inst. Plasma Phys., Nagoya Univ.*, 1987.
- [15] R. Ito *et al.*, IPPJ-AM-41, *Inst. Plasma Phys., Nagoya Univ.*, 1985.
- [16] ADAS, <http://www.adas.ac.uk/>
- [17] OPEN-ADAS, <http://open.adas.ac.uk/>
- [18] GRI-Mech 3.0, <http://www.me.berkeley.edu/gri-mech/>
- [19] <http://dpc.nifs.ac.jp/dblinks1.html>



5. おわりに

村上 泉

核融合科学研究所

(原稿受付：2012年1月27日)

第1章では、核融合プラズマ研究のための原子分子データベースの半世紀にわたる歴史を紹介したが、原子分子データを必要としている応用研究者のために長い歴史の中でデータ収集が行なわれてデータベースが構築され、検索システムなどが開発され、提供されてきた。アメリカの法律で「標準データの提供」としてその活動が規定されているNISTを別として、そのほかは、応用分野ごとに、その指導的大学や研究所が、あるいは学会が主体となって、それぞれが必要とする観点から、それぞれのポリシーに従ってデータ収集とデータベース化が進められてきた。そのため、原子分子過程といった点から見れば、同じようなデータを収集したデータベースが実はいろいろ存在している。

原子分子物理を専門としない利用者からしてみれば、複数のデータベースを渡り歩いてデータを探すのではなく、一度に探せて、しかも、「お薦めデータ」であると助かるわけで、そのような使い方をめざした活動が近年進められつつある。本講座1.1節でも紹介したが、インターネット上の複数のデータベースを同時にアクセスできる「仮想データセンター」VAMDCプロジェクト[1]や出力フォーマットをXMLで統一化するXSAMS[2]がそれである。現在IAEAが提供している検索エンジンGENIE[3]は、複数のデータベースから一度に波長や電離断面積といった原子データを探し出せる。しかしながら、出力はそれぞれのデータベースの出力形式のままである。この取り組みを更に発展させようとしたのがVAMDCとXSAMSで、個々のデータベースの出力が、同じルールブックXSAMSに則って出てくれば、それを読み取るのも利用するのも容易になる。そうすると、その出力を、例えばプラズマシミュレーションコードに利用することも簡単にできるようになるだろう。

さらに、「お薦め原子分子データ」のデータベースを作るために、データ評価を国際的に組織だてて進めようという動きがIAEAの原子分子データユニットを中心に今年から始まる。3.4節で紹介したデータ評価は、重要であると誰もが認識しているのにもかかわらず、サポートやバックアップがなければなかなか進められない。核反応データは、IAEAの核データ部が中心に策定したデータフォーマットEXFORを使って、評価済みデータライブラリーが

日本（日本原子力研究開発機構のJENDL）[4]、アメリカ、ヨーロッパ、中国、ロシアでそれぞれ作成され、IAEAのホームページから同時に検索ができるようになっている[5]。このような取り組みを、核融合プラズマ研究のための原子分子データに対しても行おうというものである。これを進めるためには、原子分子物理学研究者の協力はもちろん、プラズマを研究しているデータ利用者からの理解とサポートと協力が欠かせない。

さて、原子分子データやデータベースについて更に勉強をしたい方に、いくつか関連する教科書を和書を中心に紹介する。既にこれまでに参考文献として挙げられているものを含む。

原子・分子物理学の基礎に関しては、「プラズマ原子分子過程ハンドブック」[6]の基礎編に加え、教科書として「原子分子物理学」[7]、「電子・原子・分子の衝突」[8]、「化学のための原子衝突入門」[9]、「原子衝突」[10]がある。プラズマ中の原子分子過程という観点から書かれているのが、「電離気体の原子・分子過程」[11]で、原子分子データの表もたくさん掲載されている。プロセスプラズマへの応用という観点から原子分子過程を記述しているのが文献[12]の第3章と第8章、プラズマ材料科学のためにまとめられた文献[13]には、プロセスプラズマなどに良く用いられている主だった分子の評価済み電子衝突過程断面積の図も付録として掲載されている。天体物理への応用が主眼になっているが、原子分子過程についてもよく記述されているのが、文献[14]と[15]、プラズマ分光の教科書で、原子過程についても記述があるのが文献[16]と[17]である。国内の原子衝突や関連分野の研究者によって構成されている原子衝突研究協会[18]が発行している会誌「しょうとつ」にも解説記事や講座記事が掲載されており、もっと原子分子過程などの勉強や研究をしたい方に参考になるだろう。

様々な分野での原子分子データの応用例として、国際会議ICAMDATAの会議集録も参考になる。これまでに7回開催されており、招待講演として発表された最先端での研究成果が掲載されている[19-25]。

最後に、原子分子データベースは、半世紀にわたる歴史の中で多くの先達たちの絶え間ない労力の結晶であり、改めて、これまでに原子分子データベースに携わってこれ

た多くの研究者の皆さんに感謝したい。プラズマ研究で原子分子データを利用する研究者と、原子分子物理学の研究者の方々の御理解とサポートに感謝するとともに、今後もデータベース活動を支えてくださるよう改めてお願い申し上げる。様々な技術の進歩を取り入れながら、原子分子データベースの維持と発展に努め、次世代へとつなげていきたいと思う。

参考文献

- [1] Virtual Atomic and Molecular Data Centre, <http://www.vamdc.eu/>
- [2] XSAMS (XML Schema for Atoms, Molecules, and Solids), <http://www-amdis.iaea.org/xml/>
- [3] A General Internet Search Engine for Atomic Data "GENIE", <http://www-amdis.iaea.org/GENIE/>
- [4] Japanese Evaluated Nuclear Data Library (JENDL), http://wwwndc.jaea.go.jp/jendl/Jendl_J.html
- [5] Evaluated Nuclear Data File (ENDF), <http://www-nds.iaea.org/exfor/endl.htm>
- [6] 浜口智志他編：プラズマ原子分子過程ハンドブック (大阪大学出版会, 2011).
- [7] 高柳和夫：原子分子物理学 (朝倉書店, 2000).
- [8] 高柳和夫：電子・原子・分子の衝突 [改訂版] (培風館, 1996).
- [9] 金子洋三郎：化学のための原子衝突 (培風館, 1999).
- [10] 高柳和夫：原子衝突 (朝倉書店, 2007).
- [11] J.S. Chang, R.M. Hobson, 市川幸美, 金田輝夫 共著：電離気体の原子・分子過程 (東京電機大学出版局, 1982).
- [12] M.A. Liberman, A.K. Lichtenberg 著, 堀勝監修, 佐藤久明訳：プラズマ/プロセスの原理 第2版 (丸善, 2010).
- [13] 日本学術振興会プラズマ材料科学第153委員会編：プラズマ材料科学ハンドブック (オーム社, 1992).
- [14] G.B. Rybicki and A.P. Lightman, *Radiative Processes in Astrophysics* (John Wiley & Sons, 1979).
- [15] L. Spitzer, Jr. 著, 高窪啓弥訳：星間物理学 星間物質における物理的諸過程 (共立出版, 1980).
- [16] T. Fujimoto, *Plasma Spectroscopy* (Oxford University Press, 2004)
- [17] H.R. Griem, *Principles of Plasma Spectroscopy* (Cambridge University Press, 1997).
- [18] 原子衝突研究協会：<http://www.atomiccollision.jp/>
- [19] P.J. Mohr and W.L. Wiese eds., Atomic and Molecular Data and Their Applications: ICAMDATA - First International Conference, AIP Conference Proceedings 434, American Institute of Physics, 1998.
- [20] K.A. Berrington and K.L. Bell eds., Atomic and Molecular Data and Their Applications: ICAMDATA - Second International Conference, AIP Conference Proceedings 543, American Institute of Physics, 2000.
- [21] D.R. Schultz, P.S. Krstic and F. Ownby eds., Atomic and Molecular Data and Their Applications: ICAMDATA - Third International Conference, AIP Conference Proceedings 636, American Institute of Physics, 2002.
- [22] T. Kato, H. Funaba and D. Kato eds., Atomic and Molecular Data and Their Applications: Joint Meeting of 14th International Toki Conference on Plasma Physics and Controlled Nuclear Fusion (ITC14) and 4th International Conference on Atomic and Molecular Data and Their Applications (ICAMDATA2004), AIP Conference Proceedings 771, American Institute of Physics, 2005.
- [23] E. Roueff ed., Atomic and Molecular Data and Their Applications: 5th International Conference on Atomic and Molecular Data and Their Applications (ICAMDATA), AIP Conference Proceedings 901, American Institute of Physics, 2007.
- [24] S. Zhu and J. Yan eds., ICAMDATA-2008: 6th International Conference on Atomic and Molecular Data and Their Applications, AIP Conference Proceedings 1125, American Institute of Physics, 2009.
- [25] A. Bernotas, R. Karazija and Z. Rudzikas eds., 7th International Conference on Atomic and Molecular Data and Their Applications - ICAMDATA-2010, AIP Conference Proceedings 1344, American Institute of Physics, 2011.



むら しみ
村上 泉

核融合科学研究所核融合システム研究系、教授。特定非営利活動法人原子分子データ応用フォーラム理事長。主な研究分野はプラズマ中の原子分子過程。IAEA 主導で核融合プラズマのための評価済み原子分子データのデータベースを作成するための会議を先日行い、データ評価の難しさを再確認。まずは基準作りと研究者ネットワーク作りから始まりそうです。