

「プラズマシミュレーションに用いる
レート係数の推算方法の調査」
分科会の趣旨

アテナシス 池田 圭

Dec. 13 2011

背景 (1)

プロセスプラズマを理解し、その応用を加速するためにシミュレーション技術は不可欠。現状、気相反応については様々なデータベースが世界各国で準備されつつある。

e.g. <http://www.lxcat.laplace.univ-tlse.fr/index.php>

しかし、例えば電子衝突断面積に限っても、生じ得る全ての反応過程に関するデータが揃っているわけではなく、実用的なプロセスでは依然としてデータベースが不足。

真空装置を必要としない大気圧プラズマでは、乾燥空気としての N_2/O_2 混合ガスにプロセスガス（例えば、C, H, F, S, 等を含む）を加えるのが一般的であり、更に水蒸気 (H_2O) の考慮も必要となる場合が多く、空気に対する反応モデルだけでも十分複雑。

背景 (2)

電子衝突以外にも、イオン・分子衝突、原子・分子衝突、励起種を含む分子同士の衝突の過程が存在。

例えば、 O_2 ガスの気相反応に対して、 $O_2(a^1 \Delta)$ や $O_2(b^1 \Sigma)$ といった分子の励起種、 $O(^1D)$ や $O(^1S)$ といった原子の励起種、 O_3 (オゾン) とその正負のイオン ($O_3^+ \cdot O_3^-$) 等を含む複雑な反応過程が知られている。

また、圧力が常圧近傍以上では3体衝突の重要性も高くなり、全ての反応過程が考慮されているかどうかを確認するだけでも容易ではない。

背景 (3)

シミュレーションで考慮する反応モデルは、数多くの反応過程を一つにまとめたデータセットとして準備されることが望ましいが、そのようなデータセットは一般には準備・公開されていない。

どのような反応過程が重要であるかを確認できたとしても、既存のデータベースの中に見つからない反応過程に対して、衝突断面積や反応速度定数が不明な過程は数多く存在すると予想される。

荷電粒子の生成・消滅過程だけでも、数多くの種類に分類される。これらの反応過程のうち、衝突断面積や反応速度定数が実験的に求められるものもある一方で、実験的に求めることが難しく、推算が欠かせないものも少なくないと思われる。

荷電粒子の生成・消滅過程

表 1-1 荷電粒子の発生過程

(a) 電 離	
1) 光 電 離	$\phi + X \rightarrow X^+ + e$ $\phi + X^* \rightarrow X^+ + e$ $\phi + X^+ \rightarrow X^{2+} + e$ $\phi + XY^*(\text{または } XY) \rightarrow X^+ + Y + e$ (解離)
2) 電子衝突電離	$e + X \rightarrow X^+ + 2e$ $e + XY \rightarrow X^+ + Y + 2e$ (解離) $\rightarrow XY^+ + 2e$ $\rightarrow X^+ + Y^-$ (イオン対生成)
3) イオン衝突電離	$X^+ + Y \rightarrow X^+ + Y^+ + e$ $\rightarrow X^{2+} + Y + e$ $X^+ + Y^* \rightarrow X^{2+} + Y^+ + e$ $\rightarrow X^+ + Y$ (電荷交換)
4) 準安定粒子による電離	$X^* + Y \rightarrow X^+ + Y + e$ (ペニング) $X^* + Y \rightarrow (XY^*) \rightarrow XY^+ + e$ (協合) $X^* + Y^* \rightarrow (XY^*) \rightarrow X^+ + Y + e$
(b) 付 着	
	$e + Y \rightarrow Y^- + \phi$ (放射) $e + XY \rightarrow Y^- + X$ (解離) $\rightarrow (XY^-)^* \xrightarrow{M} XY^-$ (衝突安定) $e + XY + M \rightarrow XY^- + M$ (三体) $e + Y \rightarrow (Y^*) \rightarrow Y^- + \phi$ (二重電子) $X^+ + Y \rightarrow X^+ + Y^-$ (電子交換)
(c) そ の 他	
	$X + Y \rightarrow X^+ + Y + e$ $\rightarrow X^+ + Y^-$ (電子捕獲)

表 1-2 荷電粒子の消失過程

(a) 体積再結合	
	$X^+ + e \rightarrow X + \phi$ (放射) $\rightarrow (X^{**}) \rightarrow X^+ + \phi$ (二重電子) $XY^+ + e \rightarrow X^+ + Y$ (解離) $X^+ + e + M \rightarrow X + M$ (三体) $X^+ + e + e \rightarrow X + e$ (電子) $X^+ + Y^- \rightarrow X + Y^*$ (イオン-イオン)
(b) 離 脱	
	$X^- + Y \rightarrow X + Y + e$ (衝突) $\rightarrow XY + e$ (協合) $X^- + \phi \rightarrow X + e$ (放射) $XY^- + \phi \rightarrow X + Y + e$ (解離放射) $X^- + e \rightarrow X + 2e$ (電子) $Y^- + Y^* \rightarrow X + Y + e$ $X^+ + Y^- \rightarrow X^+ + Y + e$ $X^- + Y^- \rightarrow X + Y^- + e$

表 1-3 交 換 反 応

1) 電 荷 交 換	$X^+ + Y \rightarrow Y^+ + X$ $X^+ + Y^* \rightarrow Y^+ + X$ $X^- + Y \rightarrow Y^- + X$
2) クラスタリング反応	$X^+ + Y + M \rightarrow XY^+ + M$
3) イオン-原子交換	$X^+ + YZ \rightarrow XY^+ + Z$
4) 原 子 交 換	$X^+ + Y + Z \rightarrow X^+ + Z + Y$
5) 光 解 離	$\phi + XY^+ \rightarrow X^+ + Y$

J.S. Chang他, 電離気体の原子・分子過程: 東京電機大学出版局

方針(案)

分科会の活動を進めるにあたり、以下のような点を整理して調査を行う。対象とするガスとして、始めに O_2 を選ぶ。

- 1) O_2 プラズマ中で生じ得る反応過程のリストアップと分類
- 2) 既存のデータベースの確認
- 3) 既知の推算式の確認
- 4) 重要な反応過程かどうかを見分ける手段の確認
- 5) 専門分野の方の人的データベース作成

分科会の活動を通して、推算可能な反応過程を少しずつ追加し、始めに O_2 に関する十分且つ必要なシミュレーションモデルのデータセットの構築を目指す。