



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

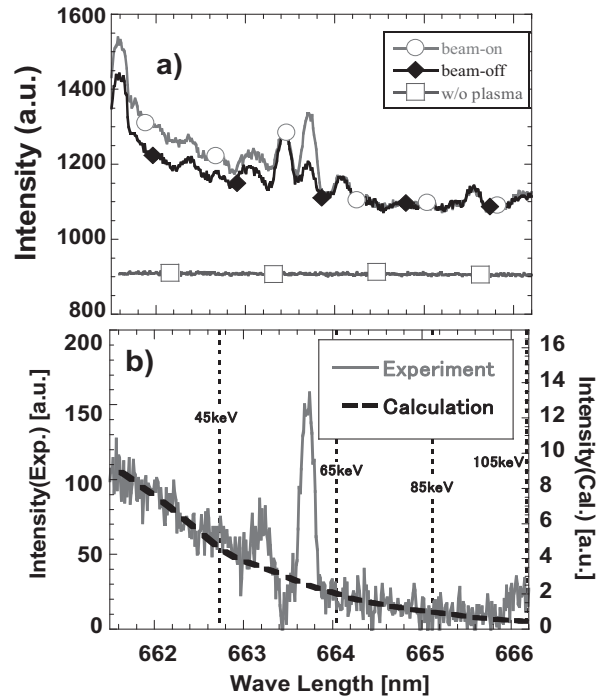


図 1 (a) LHD における高速イオン荷電交換分光素 (FICXS) スペクトル。(○)径方向 NB 入射時のものと (◆) 同 NB 非入射時の受動的な FICXS スペクトル。(□) プラズマがない時に観測された分光器のノイズレベル (b) 実線: 径方向 NB 入射時の観測スペクトルから非入射時のスペクトルを差し引くことによって求めた NB によって導入された能動的な中性粒子源に起因する FICXS スペクトル成分。破線: 高速イオン輸送シミュレーションコード (GNET) の結果をもとに評価した FICXS スペクトル。

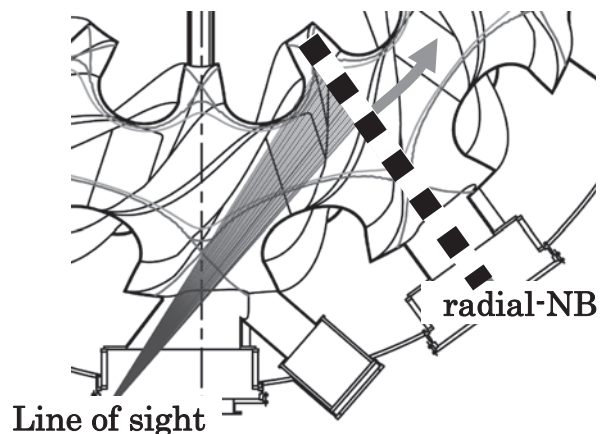


図 2 LHD 接線視野 FICXS 計測の観測視線 (Line Of Sight: LOS)。

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4.41×10 7 [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5×10 6 [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

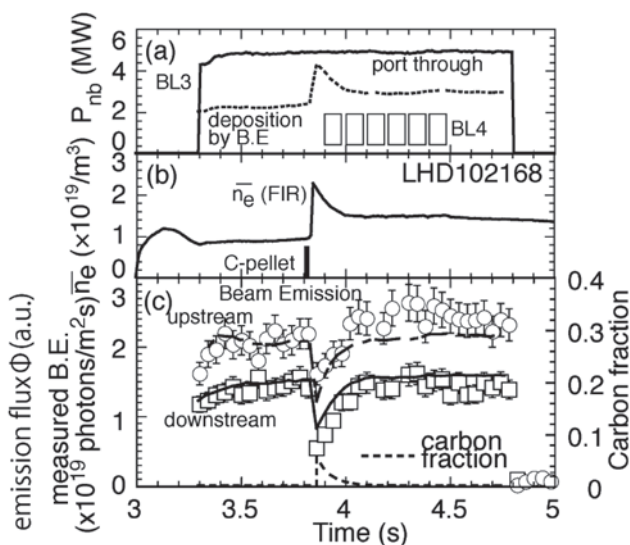


図 3 (a) NBI3 号機からの中性粒子ビームのポート通過パワーおよびビーム減衰解析で推定したビーム吸収パワー、(b) プラズマの線平均密度、(c) 計測した放射 $H\alpha$ の強度、および炭素不純物混合モデルによるビーム減衰解析で求めたビーム放射 $H\alpha$ 量 (相対値) の時間変化。

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

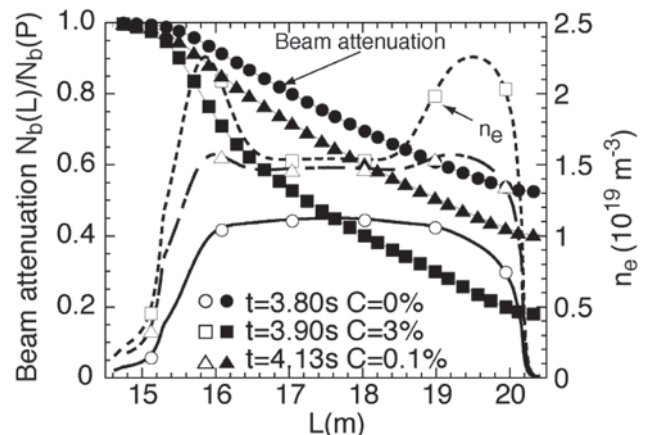


図 4 ビーム入射軸上の電子密度分布とビーム減衰率。

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。

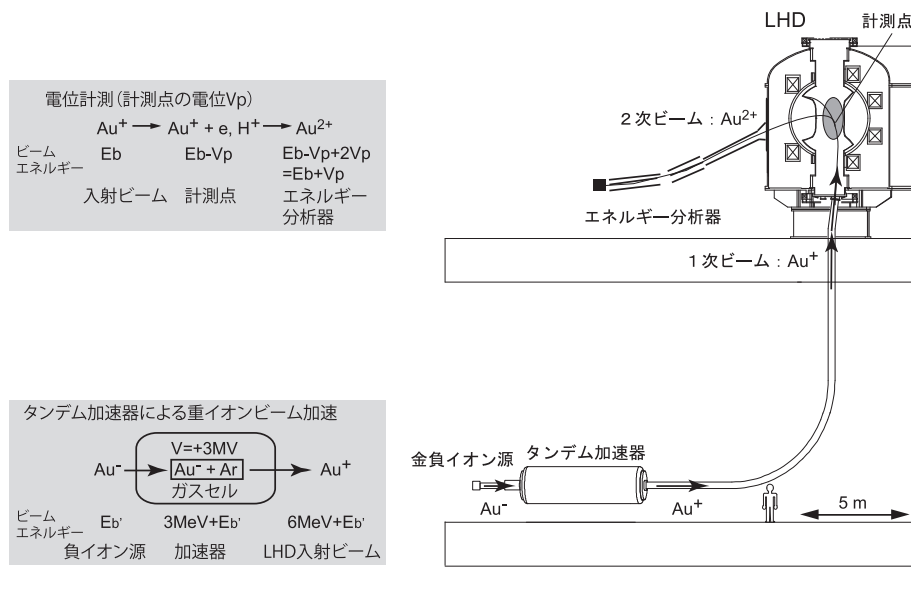


図5 LHD-HIBPのタンデム加速器による重イオンビーム入射系と電位計測のためのエネルギー分析器。

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

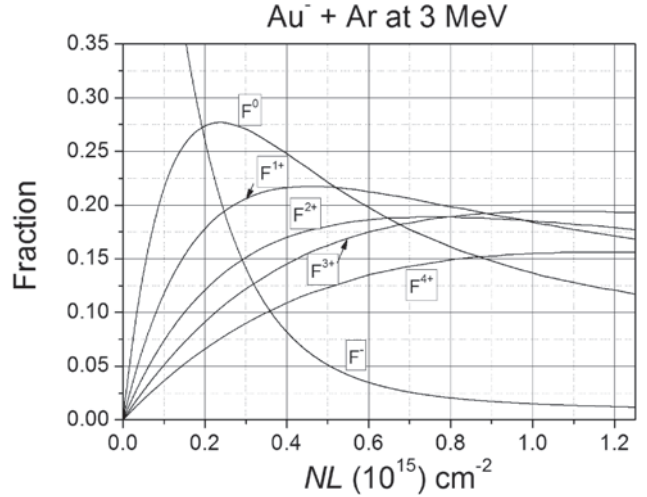


図 6 3 MeV Au^- の Ar ガスとの衝突により生じる Au^{q+} の電荷分布割合 F_q の Ar ガス密度長依存性の計算値 [40].

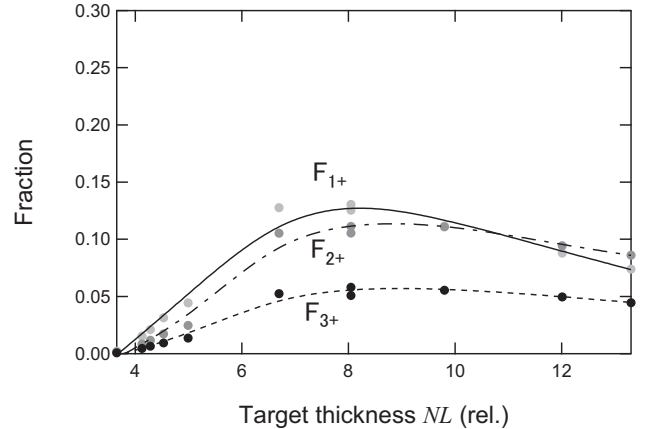
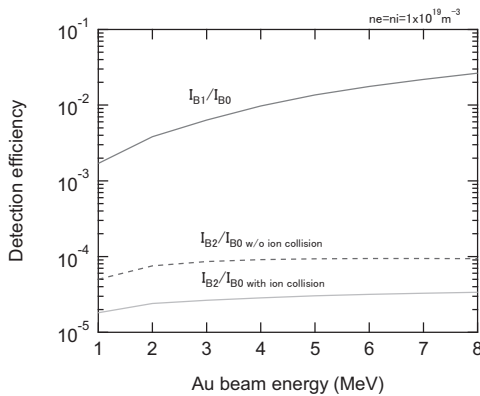
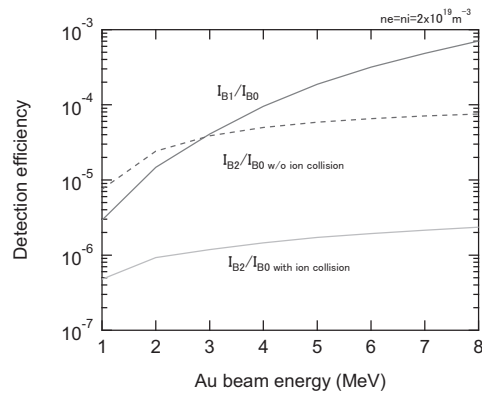


図 7 実験で得られた Au^- から Au^{q+} ビームへの電荷分布割合 F_q の Ar ガス密度長依存性 [40].



(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

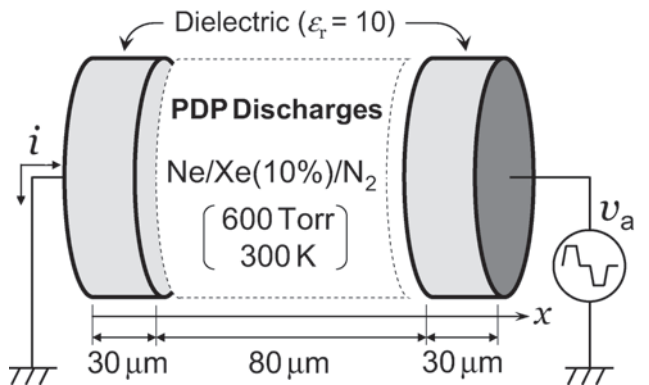


図9 N_2 添加 Xe/Ne 混合ガス PDP 放電のシミュレーション概念図.

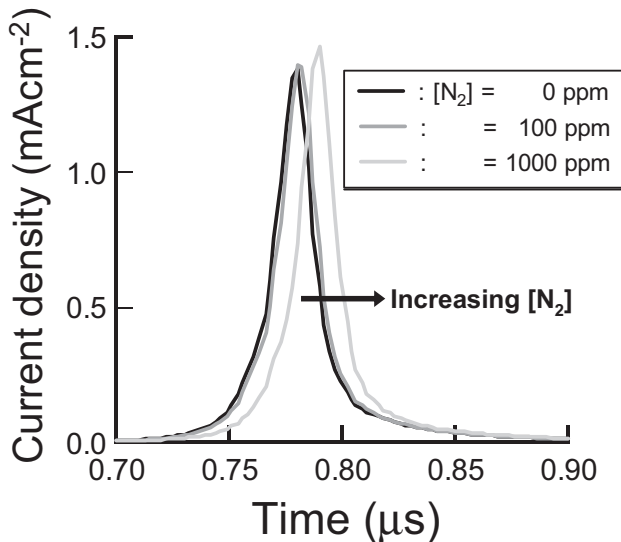


図10 様々な N_2 添加時における Xe/Ne 混合ガス PDP 放電の電流波形。

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)

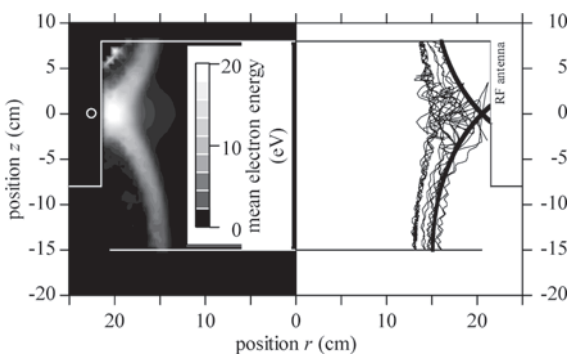


図11 NLD プラズマリアクター内の平均電子エネルギー分布 (左) と電子軌跡 (右) (右図太線の交点が Neutral Loop)。

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

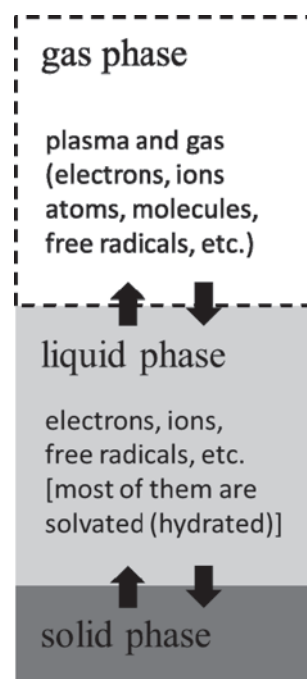


図12 気相、液相、固相におけるプラズマとその生成粒子の分布例。矢印は、相界面を通した、粒子の輸送を表す。

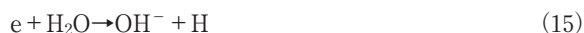
織（固相）に到達するまでに、気相から液相へと輸送される。そこで、本節では、プラズマのバイオ応用の特徴的な系として、図12のような、気相、液相、固相からなる系を想定して、気相と液相における化学反応を記述するためのデータベースについて議論する。輸送および界面反応についての議論は、割愛する。

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。

- [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NBI3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痩身しました。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。