

COMSOL Multiphysics によるカーボンチューブにおけるプラズマのシミュレーション

計測エンジニアリングシステム株式会社

修 立柱

1. はじめに

プラズマシミュレーションは、プラズマの応用技術として光学的な応用を含むエネルギー分野、化学的、物理的な応用を含む物質・材料分野、廃棄物・廃ガス処理などの環境分野そしてロケット・衛星の推進エンジンへの応用を含む宇宙分野などの多種多様な分野に応用される[1].

本研究は、COMSOL Multiphysics プラズマモジュールによるカーボンチューブにおけるプラズマのシミュレーションの技法を紹介する。

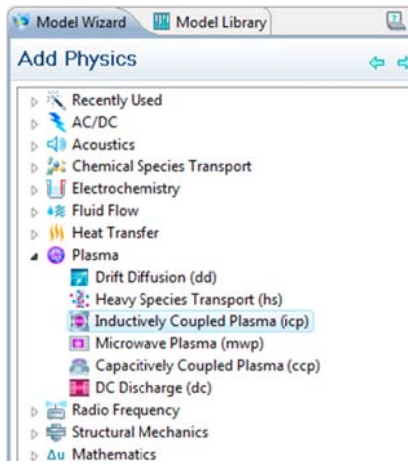


Fig. 1 Plasma modules in COMSOL.

2. 計算モデル

COMSOL Multiphysics には誘導結合プラズマ放電(ICP), マイクロ波プラズマ放電, 容量性結合プラズマ放電(CCP), DC 放電などの典型的なプラズマシミュレーションをユーザーインターフェースとして提供する(図 1). また, Boltzmann 方程式, 荷電粒子

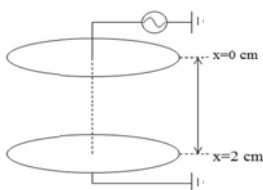


Fig. 2 Computational model.

のドリフト-拡散モデル及び非荷電粒子の転送などのモジュールもある。

本研究では, 1 次元の容量性結合プラズマ(CCP)を扱った[2]. 図 2 は計算モデルである. 計算条件は以下に示す.

- 電極間隔: 2 cm
- ガス種類: CH₄
- 高周波数: 13.56 MHz
- 電圧: 200 V
- 温度: 400 K
- 圧力: 0.5, 1, 2 Torr

初期電子密度と電子温度は 10¹²/m³ と 4eV として, 二次電子放出係数は 0.01 である. 表 1 は扱った粒子種であり, 粒子衝突化学反応は表 2 に示す. 電子衝突断面積及び粒子間化学反応レートを文献[2-7]から扱う. 電子密度とエネルギー密度のドリフト-拡散の計算方程式を以下に示す[8].

$$\frac{\partial}{\partial t}(n_e) + \nabla \cdot \Gamma_e = R_e \quad (1)$$

$$\frac{\partial}{\partial t}(n_\varepsilon) + \nabla \cdot \Gamma_\varepsilon + \mathbf{E} \cdot \Gamma_e = R_\varepsilon \quad (2)$$

ここに, $\Gamma_i = -n_i(\mu_i \mathbf{E}) - D_i \nabla n_i$ である. $i = e$ は電子密度, $i = \varepsilon$ は電子エネルギー密度を表示する. ソース R 項は

$$R_e = \sum_{j=1}^M x_j k_j N_n n_e, \quad R_\varepsilon = \sum_{j=1}^P x_j k_j N_n n_e \Delta \varepsilon_j \quad (3)$$

である. レート k を

$$k_j = \gamma \int_0^\infty \varepsilon \sigma_j(\varepsilon) f(\varepsilon) d\varepsilon \quad (4)$$

によって求める. $\gamma = (2q/m)^{1/2}$, σ_j は電子衝突断面積, $f(\varepsilon)$ は電子エネルギー分布関数 EEDF である.

イオン及び中性粒子種の輸送をマクスウェル・ステファン (Maxwell-Stefan) の方程式によって計算する. プラズマにおける電場の計算はポアソン (Poisson) 方程式

$$-\nabla \cdot \varepsilon_0 \varepsilon_r \nabla V = \rho \quad (5)$$

を扱う. プラズマにおける荷電粒子を含めるので, 空間電荷密度は

Table 1. Species used in the model

Neutrals	Electrons, Ions	Radicals
H ₂	e ⁻ , H ₂ ⁺	H
CH ₄	CH ₃ ⁺ , CH ₄ ⁺	CH, CH ₂ ,
C ₂ H ₂ , C ₂ H ₄ ,	CH ₅ ⁺	CH ₃ , C ₂ H,
C ₂ H ₆ , C ₃ H ₈	C ₂ H ₂ ⁺ , C ₂ H ₄ ⁺ , C ₂ H ₅ ⁺ , C ₂ H ₆ ⁺	C ₂ H ₃ , C ₂ H ₅

Table 2. Chemical reactions in the model

Chemical Reaction
1. CH ₄ + e ⁻ → CH ₄ ⁺ + e ⁻ (2 vib.)
2. CH ₄ + e ⁻ → CH ₄ ⁺ + 2e ⁻
3. CH ₄ + e ⁻ → CH ₃ ⁺ + H + 2e ⁻
4. CH ₄ + e ⁻ → CH ₃ + H + e ⁻
5. CH ₄ + e ⁻ → CH ₂ + 2H + e ⁻
6. H ₂ + e ⁻ → H ₂ ⁺ + 2e ⁻
7. H ₂ + e ⁻ → 2H + e ⁻
8. C ₂ H ₂ + e ⁻ → C ₂ H + H + e ⁻
9. C ₂ H ₂ + e ⁻ → C ₂ H ₂ ⁺ + 2e ⁻
10. C ₂ H ₄ + e ⁻ → C ₂ H ₃ + H + e ⁻
11. C ₂ H ₄ + e ⁻ → C ₂ H ₂ + 2H + e ⁻
12. C ₂ H ₄ + e ⁻ → C ₂ H ₄ ⁺ + 2e ⁻
13. C ₂ H ₆ + e ⁻ → C ₂ H ₅ + H + e ⁻
14. C ₂ H ₆ + e ⁻ → C ₂ H ₄ + 2H + e ⁻
15. C ₂ H ₆ + e ⁻ → C ₂ H ₆ ⁺ + 2e ⁻
16. C ₂ H ₆ + e ⁻ → C ₂ H ₅ ⁺ + H + 2e ⁻
17. CH ₃ ⁺ + CH ₄ → CH ₄ ⁺ + CH ₃
18. CH ₃ ⁺ + CH ₄ → C ₂ H ₅ ⁺ + H ₂
19. CH ₄ ⁺ + CH ₄ → CH ₅ ⁺ + CH ₃
20. CH ₄ ⁺ + H ₂ → CH ₅ ⁺ + H
21. CH ₅ ⁺ + C ₂ H ₆ → C ₂ H ₅ ⁺ + CH ₄ + H ₂
22. CH ₃ + CH ₃ → C ₂ H ₆
23. CH ₃ + H → CH ₄
24. C ₂ H ₅ + H → CH ₃ + CH ₃
25. C ₂ H ₅ + CH ₃ → C ₃ H ₈
26. CH ₂ + H → CH + H ₂
27. CH + CH ₄ → C ₂ H ₅
28. CH ₂ + CH ₄ → CH ₃ + CH ₃
29. CH ₂ + CH ₄ → C ₂ H ₄ + H ₂
30. CH ₄ + CH → C ₂ H ₄ + H
31. CH ₃ + CH ₂ → C ₂ H ₄ + H
32. C ₂ H ₅ + H → C ₂ H ₄ + H ₂
33. CH ₂ + CH ₂ → C ₂ H ₂ + H ₂

$$\rho = q \left(\sum_{k=1}^N Z_k n_k - n_e \right) \quad (6)$$

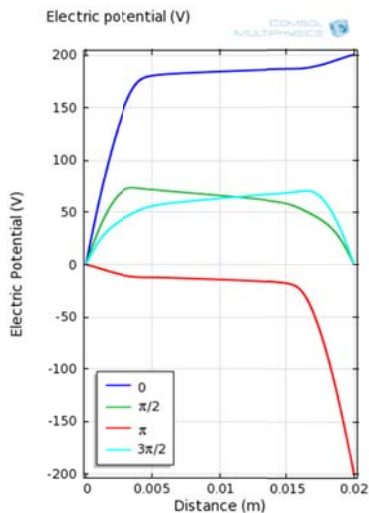
によって求める.

3. 結果

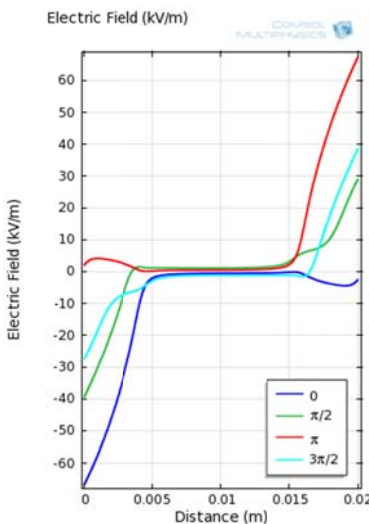
1次元の容量性結合 CH₄ プラズマ

(CCP)放電の計算結果を図3-5に示す。電極表面に繋ぐシーズを生成することが明らかになった(図3)。ガスの圧力を増加させると、電子密度が比例に上昇したことを分かった(図4)。

図5に示すように、CH₄プラズマにおける主なイオンはC₂H₅⁺及びCH₅⁺であることを明らかにした。CH₄⁺及びCH₃⁺はCH₄とH₂と化学反応し(表2の反応式18-20に示す)、C₂H₅⁺とCH₅⁺を生成するため、プラズマバルクにおけるCH₄⁺とCH₃⁺の密度が下がった。また、ガス圧力を増加させると、これらの化学反応を増やし、密度をもっと下げることにあった。さらに、表2における反応式21を示すようにCH₅⁺とC₂H₆の化学反応によってC₂H₅⁺を生成するため、1と2 TorrでのプラズマバルクにおけるCH₅⁺密度を下げた。



(a) Electric potential



(b) Electric field

Fig.3 Electric field distribution at 1 Torr

4. おわりに

COMSOL のプラズマモジュールによるカーボンチューブにおけるプラズマシミュレーションを行った。22種の電子と分子の衝突、17種のイオンと分子および中性粒子間の衝突を扱った。カーボンチューブの生成に貢献するイオン(e.g., C₂H₅⁺, CH₅⁺)の分布を得た。

COMSOL プラズマモジュールによるカーボンチューブにおけるプラズマ特性の解明には適用性があることが明らかにされた。COMSOL プラズマモジュールの特徴は以下の通りである。

- (1) 入力データ: 衝突断面積などの複雑な入力作業は簡単に実現できるようになった。粒子間の衝突反応式をモジュール設定画面として直接に示し、非常に分かりやすくなっている。
- (2) 連成計算: 空間荷電粒子を含めた電場の計算は自動的に連成し、追加作業は不要である。
- (3) 実際のプラズマ計算に近づけるため、CFD、伝熱、電磁場などとの連成計算も可能である。

●文献

- [1] 浜口智志, 村上泉, 加藤太治, プラズマ・核融合学会, 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] A. Okita, *et al.*, *J. Appl. Phys.* **99**, 014302 (2006).
- [3] D. K. Davies, *et al.*, *J. Appl. Phys.* **65**, 3311 (1989).
- [4] Database link: <http://www.kinema.com/>
- [5] D. A. Alman, *et al.*, *Phys. Plasma* **7**, 1421

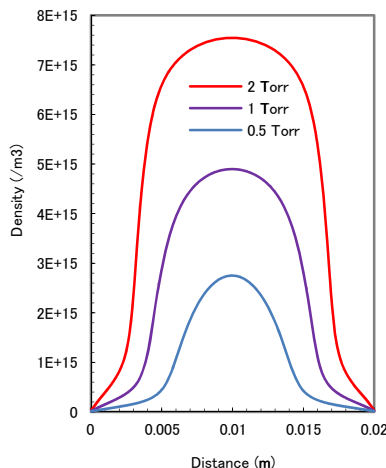


Fig.4 Electron densities at 0.5, 1, 2 Torr.

- (2000); *Phys. Plasma* **9**, 738 (2002).
- [6] D. Herrebout, *et al.*, *J Appl Phys.* **90**, 570 (2001).
- [7] I. B. Demchenko, *et al.*, *J. Appl. Phys.* **95**, 2713 (2004).
- [8] COMSOL Multiphysics 4.1, *Plasma Module User's Guide* (2009).

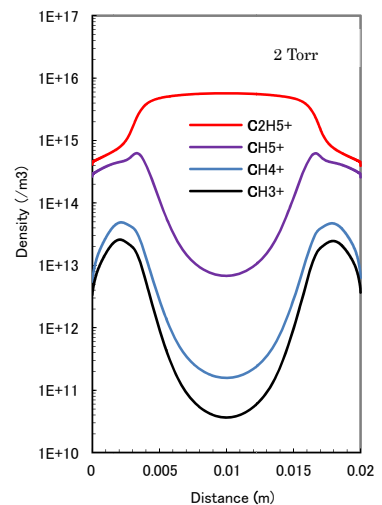
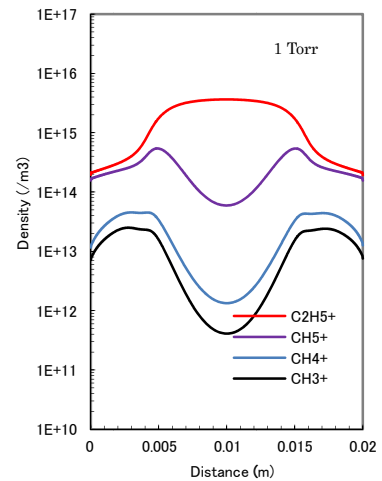
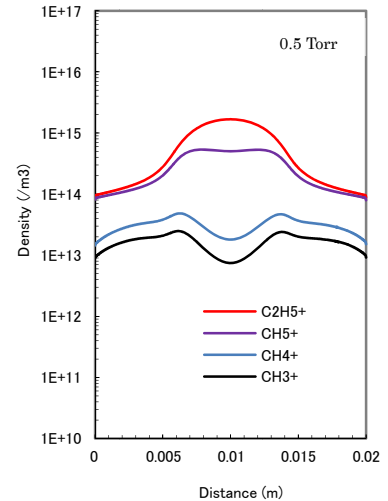


Fig.5 Ion densities at 0.5, 1, 2 Torr.