

学 位 論 文 題 名

Studies on Development of Electron Swarms
in Gases by the Boltzmann Equation

(気体中における電子スオームの発展過程に関するボルツマン方程式解析)

学位論文内容の要旨

近年、弱電離非平衡プラズマは、照明灯、気体レーザー、オゾナイザー、プラズマディスプレイ等の機器はもとより、半導体素子製造プロセス、大気汚染ガスの分解プロセス等の様々な分野において応用されている。弱電離非平衡プラズマは、電子のみが非常に高い温度を有しながら中性気体粒子やイオンは常温に近い、ガラス管や金属容器での閉じ込めが容易な一方、電子の衝突を介しての様々な化学反応を起こしうる、という特長をもつ。このような弱電離気体を用いた応用システムの最適化、高効率化を達成するためには、気体プラズマを構成する電子群(スオーム)の時間的空間的挙動や電子エネルギー分布についての深い理解が必要となる。本研究は、電子スオームの振る舞いを記述する連続の式や発展方程式、電子スオームパラメータの定義を詳細に検討するとともに、利用頻度の高い実際のガス(Kr, CH₄, SF₆, N₂)中でスオームパラメータや電子エネルギー分布をボルツマン方程式解析によって算出するものである。そして、これにより、気体の電子衝突断面積から演繹的にプラズマのマクロな特性を推定する明確な手段を確立し、工学的応用に寄与する電算機シミュレーションを支援することを目的としている。

本論文は全8章で構成されている。第1章は序論であり、研究の歴史的背景と本研究の意義を述べている。第2章は、従来のいわゆるタイムオブフライト(TOF)理論の再検討を行なっている。第3章は、エキシマレーザーなどで用いられるKrの電子衝突断面積を決定している。第4章では、電子到着時間分布に関するATS理論の検証を行った結果について述べている。第5章と第6章は、フーリエ変換形ボルツマン方程式による、電界方向と電界と垂直な方向の電子スオームパラメータの解析について、その方法と結果を述べている。第7章では、電子到着時間分布を観測した実験に対する直接的な理論解析結果を提示している。第8章は全体のまとめである。このうち、第4章と第7章は本論文のメインテーマを扱っており、電子スオームの発展過程を記述する際の原理的な問題点の解決を目指している。すなわち、電子スオームが電界により移動し成長する過程を観測する際に、従来のTOF理論では電子スオームの時々刻々の全空間電子密度をコマ取り写真的にとらえて記述するのに対して、実際のいわゆるTOF実験と呼ばれる方法ではドリフトチューブ内の固定された位置で電子が到着する時間分布を観測していることに着目し、この実験的観測方法に直接対応する解析を行おうとするものである。ATS理論はこれを可能とする理論として1990年に報告されたが、実際の解析に用いられたことはなく、本研究ではじめて実ガスに適用され、有効であることが確認されている。また、第2章のTOFパラメータの意味の厳密な検討に加え、観測法によるパラメータの違いと相互の関係を明らかにしている。さらに、第5, 6章ではATS理論で導入された新しいスオームパラメータとTOFパラメータを求める効果的な方法を確立している。

第2章から第7章におけるテーマの概要と結果を以下に述べる。

第2章ではTOF理論の基本をなす電子流連続の式から、TOFパラメータがどのように定義されるかを明確に示すとともに、ボルツマン方程式の電子密度勾配による展開を用いた解法について明らかにした。また、各種パラメータの物理的意味を探り、特に、電離や電子付着の空間的不均一の影響や電界による電子の加速の効果等が、電子拡散係数の中に含まれていることを示した。

第3章のKrの電子衝突断面積の決定では、電子スオームのドリフト速度と電離係数の計算値が実測値と良く一致するように、1~30 eVのエネルギー範囲において、これまでの報告データをもとに運動量移行断面積を修正するとともに、電子励起断面積を下位の4励起準位と残りの全励起準位をひとまとめにしたものに分けて推定した。Kr Fレーザなどに用いられる換算電界強度の範囲で、パラメータの計算値が実測値と良く一致する断面積のセットが得られた。

第4章では、ATS理論において基本となる発展方程式が、良く知られた電子流連続の式と時空対称な関係にあること、またその方程式に導入される新しい係数群(α パラメータ)が、電子到着時間分布のn次時間モーメントに関する位置微分で定義されることを示し、この係数を求めるルジャンドル多項式展開によるボルツマン方程式解析法を具体的に示した。この方法はCH₄ガスに適用され、 α パラメータと定位置での到着電子の電子エネルギー分布が算出され、モンテカルロ法の結果と比較された。6項近似ボルツマン方程式解析の結果はモンテカルロ法と良く一致し、ATS理論の妥当性が実証された。また、ATS理論で求められる平均到着時間から定義されるドリフト速度 $W_{\parallel}$ と定常タウンゼント法実験でのドリフト速度 V_d 、従来のTOF理論で得られるスオーム重心のドリフト速度 W_r とスオーム内電子の平均ドリフト速度 W_v を、CH₄ガス中で算出し比較した。その結果、ほぼ $E/N=150 \text{ Td}$ 以上で4種のドリフト速度値が皆異なることがわかった。

第5章では、ボルツマン方程式を位置空間についてフーリエ変換することによって得られる方程式の固有値問題を考えることによりスオームパラメータを求める方法を導入し、実際のガスの解析に適用した。この方法は、量子力学におけるシュレーディンガー方程式の摂動法による解法と類似しており、摂動パラメータ $i k$ と固有値 ω のいわば分散関係を求め、これに高次多項式をカーブフィッティングすることによって多項式の係数としてのパラメータが決定される。TOF、ATS解析でのパラメータを、高次にわたって一括して求められることが、本方法の大きな特長である。電界方向の解析をKrとSF₆に対して行ない、従来求めることが困難であった3~4次までの高次パラメータを数値計算上比較的安定に算出することができた。また、電離や電子付着が存在する条件での W_r と $W_{\parallel}$ の相違が、 $i k - \omega$ 関係曲線によって明確に示されることが明らかとなった。電界と垂直な方向での解析は第6章で述べられており、CH₄とSF₆中において、横方向拡散係数 $D_{\perp}$ 等が算出された。さらに、電子付着が電離よりも優勢となると、定常タウンゼントモデル条件下で、電界と垂直な横方向の電子密度分布に関し、電離係数に類似した新しいパラメータを導入することが可能となることを示した。

第7章では、第4章で述べたATS解析をN₂中の解析に適用し、N₂中の電子到着時間分布を求めた実際の測定(2重シャッタ・ドリフトチューブを用いた典型的なTOF実験)での結果と比較した。 α パラメータを理論的にボルツマン方程式解析で導出する一方、実験の測定波形から直接時間モーメントを考慮して α パラメータを求め、両者を比較した。また、 α パラメータを用いて逆に到着時間分布を理論的に予想し実測値と比較した。理論と実験の結果はほぼ良い一致を示し、このことから、ATS理論がいわゆるTOF実験の原理に直接対応するものであることが確認された。

本研究では、以上のように、弱電離気体中の電子スオームの発展過程が従来のTOF理論に加え、これと時空対称な関係にあるATS理論によっても解析され得ることを実証すると共に、ATS解析の有効性を実際のスオーム実験との対応から示した。また、TOF

とATS解析両者にわたる種々のスオームパラメータの定義と意味を明確にし、それらの有効な算出方法を確認した。第8章のまとめでは、以上のような本研究での成果を要約している。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 田 頭 博 昭
副 査 教 授 酒 井 洋 輔
副 査 教 授 本 間 利 久
副 査 教 授 長谷川 英 機
副 査 教 授 山 崎 初 男

学 位 論 文 題 名

Studies on Development of Electron Swarms in Gases by the Boltzmann Equation

(気体中における電子スオームの発展過程に関するボルツマン方程式解析)

近年、非平衡プラズマ（グロー放電プラズマ）は、気体レーザー、半導体素子製造、汚染ガスの分解等、様々な分野で利用されており、その最適化のため、放電プラズマのシミュレーションが行なわれている。本論文は、これに必要な電子スオームパラメータを提供するための理論的手法に関するもので、全8章から成っている。

第1章は序論であり、研究の歴史的背景とその中における本研究の意義を述べている。

第2章は本研究の理論展開の基盤となる部分で、従来のTOF (Time of Flight)理論の出発点の電子流連続の式から、TOFパラメータがいかに定義されるかを示すとともに、電子密度勾配展開によるボルツマン方程式の解法について述べている。また、各種パラメータの物理的意味を明かにし、特に、電離や電子付着生起の空間的不均一性の影響や電界による電子加速の効果等が、電子拡散係数の中に含まれていることを述べている。

第3章ではエキシマレーザで重要なKrの電子衝突断面積の決定を電子スオーム法で行なっている。電子スオームのドリフト速度と電離係数の計算値が実測値とよく一致するように、1～30 eVのエネルギー範囲に対し、従来の運動量移行断面積を修正するとともに、主要な電子励起断面積も推定し、スオームパラメータの計算値が実測値とよく一致する断面積のセットを得ている。

第4章では、ATS (Arrival Time Spectrum)理論において基本となる発展方程式は、よく知られた電子流連続の式と時空対称な関係にあること、またその方程式に導入される新係数群 (α パラメータ) が、電子到着時間分布のn次時間モーメントに関する位置微分で定義されることを述べ、この係数を求めるルジャンドル多項式展開によるボルツマン方程式解析法を具体的にはじめて示した。さらにこの方法をCH₄ガスに適用し、 α パラメータと到着電子の電子エネルギー分布を算出して、モンテカルロ法の結果と比較した。6項近似ボルツマン方程式解析の結果はモンテカルロ法とよく一致し、ATS理論の妥当性が実ガスについてはじめて実証された。また、ATS理論で求められる平均到着時間から定義されるドリフト速度 W_m と定常タウンゼント実験でのドリフト速度 V_d 、従来のTOF理論で得られるスオーム重心のドリフト速度 W_r とスオーム内電子の平均ドリフト速度 W_v を、CH₄ガス中で算出し比較した。その結果、ほぼ $E/N = 150 \text{ Td}$ 以上で4種のドリフト速度値が皆異なることを明らかにしている。

第5章では、ボルツマン方程式に位置空間のフーリエ変換をほどこした方程式の固有値

問題としてスオームパラメータを求める方法を実ガスの解析にはじめて適用した。この方法では ik と固有値 ω の分散関係を求め、これに高次多項式をカーブフィッティングし、多項式の係数としてパラメータが決定される。TOF、ATS 解析の高次にわたるパラメータが一括して得られる点が、本方法の大きな特長となっている。電界方向のパラメータの解析を K_r と $S F_6$ に対して行ない、従来求めることが困難であった 3 ～ 4 次までの高次パラメータを数値計算上比較的安定に算出しうることを示している。また、電離や電子付着が存在する条件での W_r と W_m の相違を、 $ik - \omega$ 曲線によって明確に示した。

第 6 章は電界と垂直な方向の解析にあてられている。 CH_4 と $S F_6$ 中において、横方向拡散係数 D_T 等が算出された。さらに、電子付着が電離よりも優勢なとき、定常タウンゼント条件下で、電界と垂直な方向の電子密度分布が、電離係数に類似した新しいパラメータによって記述可能となることをはじめて示した。

第 7 章では、第 4 章で述べた ATS 解析を N_2 の解析に適用し、 N_2 中の電子到着時間分布を求めた実際の測定 (2 重シャッタドリフトチューブを用いた典型的な TOF 実験) の結果と比較した。 α パラメータを理論的にボルツマン方程式解析で導出する一方、実験の測定波形から直接、時間モーメントを考慮して α パラメータを求め、両者を比較した。また α パラメータを用いて逆に到着時間分布を理論的に予想し実測値と比較した。理論と実験の結果はほぼよい一致を示した。これらのことから、ATS 理論がいわゆる TOF 実験の原理に直接対応するものであることをはじめて実ガスに対して確認している。

以上を要するに本論文は現代の産業技術に多くの応用を持つ非平衡放電プラズマ (グロー放電プラズマ) のシミュレーションに要求される電子スオームパラメータのより現実に即した理論的決定法を開発してその新規性、有用性、有利性を明らかにするなど、多くの知見を与えたもので、放電工学と気体エレクトロニクスに貢献するところ大である。よって著者は北海道大学博士 (工学) の学位を授与される資格あるものと認める。