アルゴン気中放電における後方散乱のモンテカルロ・シミュレーションによる γ_i の決定

慶応義塾大学
慶応義塾大学

中 村 義 春
森 為 可

1. ま え が き

紫外線あるいはその他の何らかの外部作用で電子が固体表面（陰極）から気中へ初速度をもって放出されるとき、その表面からある距離隔たった点における電子流は、その表面から放出された値より必ず小さくなる。これは放出された電子の一部が気体原子あるいは分子と衝突して後方に散乱され、再び陰極に吸収されるため、従って、気体中への最終的な二次電子放出量は真空中へのそれより必ず小さくなる。

この後方散乱現象は、気中放電の陰極面上における二次過程を正確に論じようとするとき重要である。また真空中へのポテンシャル放出の理論が確立され⁽¹⁾、また、それに基づく測定も数多く発表されている⁽²⁾⁽³⁾ことから、後方散乱現象の正確な知識が得られれば、真空中での測定結果を容易に気体中への値に変換し、利用することができる。

後方散乱現象の気体運動論的な解析は、Thomson 氏⁽⁴⁾によって最初に試みられた。そこでは、電子は気体および電界と熱平衡状態にあることが仮定されているが、この仮定は後で述べるように妥当とは考えられず、この理論は測定結果と明らかに違いを示している。

その後、Bradbury 氏⁽⁵⁾および Loeb 氏⁽⁶⁾により、その理論の修正が試みられたが、本質的には Thomson 氏のそれと同じである。

これらの理論では、電子と原子（あるいは分子）の間の衝突の種類を明確にしないで、それらの相互作用は一括して電子の移動速度で表現されている。すなわち、単位時間あたりに陰極を出発する電子数 n_0 に対する最終的に陰極から脱出することのできる単位時間あたりの電子数 n の比は

$$\frac{n}{n_0} = \frac{4v_d}{C+4v_d} \dots\dots\dots (1)$$

で与えられている。ここで、 C は平均の電子の放出速度であり、Thomson 氏は気体と熱平衡状態にある電子の熱平均運動速度を該当させている。また、 v_d は E/p_0 (E : 電界, p_0 : 0°C に換算した気体圧力) で決まる気体中の電子の移動速度である。

しかしながら、一般に放出時の電子の速度は平均熱運動速度に等しいとは言えず、電子を放出させる外部作用の種類に依存して大きく変化することが考えられる。また、 E/p_0 で決まる一定のドリフト速度を用いるときは、電子と原子（分子）および電界との間にエネルギー平衡が確立されていなければならないが、後方散乱が起きている陰極近傍の領域ではエネルギー平衡は満足されない。このことは、最近の多くのモンテカルロ法による電子なだれのシミュレーション⁽⁷⁾の結果からも明らかである。(1)式が実験結果を正確に表現しえないのは上記の理由による。

後方散乱の研究は、その後 Hartzsche 氏⁽⁸⁾, Felsche 氏と Pech 氏⁽⁹⁾によっても行なわれている。前者は放出電子の第1回目の衝突のみを考慮して後方散乱の解析的表現を得ており、後者は後方散乱の物理的過程を全く無視して、光電子の後方散乱の実験から光電子の最大放出エネルギーと気体運動論的な平均自由行程（一定の衝突断面積を仮定する）で表わされる経験式

A Determination of γ_i by Monte Carlo Simulation of Back-scattering of Electron in Argon Discharge. By Yoshiharu Nakamura, Member & Tameyoshi Mori, Member (Faculty of Engineering, Keio Gijuku University).

中村義春: 正員, 慶応義塾大学工学部
森 為可: 正員, 慶応義塾大学工学部

を得ている。更に、Felsche 氏と Pech 氏は、ここで得た経験式を電子の放出エネルギーのより高い値にまで拡大して適用することで、気体中で得た γ_i の値を補正して真空中でのイオンによるポテンシャル放出係数の値と比較している⁽¹⁰⁾。

本報告は、上記の諸研究に関連して、低気圧アルゴン気中における後方散乱現象をモンテカルロ法を用いて模擬することで気体の電子透過係数（後方散乱係数と相補の関係にある）に対する曲線を求め、これを用いてイオンによる真空中への二次電子放出係数をイオンによる二次電離係数に変換する方法および結果について記述するものである。

モンテカルロ法による後方散乱の模擬の特徴は、各種衝突断面積などの電子と気体原子（分子）の間の相互作用に対する正確な確率論的記述のみが必要になることであり、従って、ここでは Thomson 氏あるいは Loeb 氏らの気体運動論的取り扱いでは不可避であった多くの仮定、あるいは制限を除くことができ、更に Hantzsche 氏および Pech 氏らの取り扱いでは不可能であった衝突断面積のエネルギー依存性および放出電子のエネルギー分布をも容易に考慮することができるところにある。

真空中への二次電子放出係数を気体放電における二次電離係数に変換する方法については後で述べるが、それは極めて一般的で、真空中への二次電子放出係数（及びそのエネルギー分布）の知られているすべての金属とイオンの系に対して適用できる。

モンテカルロ シミュレーションにより計算した透過係数と真空中への放出二次電子のエネルギー分布の測定値から計算したイオンの二次電離係数の値は、別の実施した清浄なニッケル電極（すなわち、残留気体の吸着層および酸化被膜がないと考えられる）を用いて測定した火花電圧の値から計算した二次電離係数と比較し、良い一致を得た。

2. 計算方法

電子計算機を利用した放出現象（電子なだれ）のモンテカルロ シミュレーションは伊藤・武者氏ら⁽¹¹⁾によって始められ、その後 Thomas 氏ら⁽¹²⁾によって更に完全なものにされた。現在、このモンテカルロ シミュレーションは電子なだれを解析するための有効な一手段として、様々の観点から試みられている⁽⁷⁾⁽¹³⁾。

ここで用いる計算手法の詳細は参考文献(14)を参照されたい。概要を述べれば、平等電界中を進む電子の衝突間の放物線軌道は長さ $\lambda/20$ の短い線分に分割され、個々のステップで擬似乱数との対応から衝突の生

起およびその種類を判定している。ここで、 λ は気体中を運動する電子の平均自由行程である。また、ここで用いている各種衝突断面積および微分断面積も文献(14)を参照されたい。

本研究では、イオンによる二次電離係数 γ_i を求めることを目的としている。従って、初期電子の放出時のエネルギー値を明らかにするために入射イオン種を決めなければならない。ここでは、 Ar^+ イオンによって陰極から電子がポテンシャル放出される場合を想定している。そして、Takeishi 氏らのニッケル清浄面での測定結果⁽²⁾から、陰極を出発する電子の初期エネルギーは 0 eV から 8 eV までの間に分布しているものとした。計算においてはその間を 10 等分割し、それぞれのエネルギーについて、初期エネルギーがそれぞれの値に相当する 100 個の電子を陰極面に垂直に放出させ、後方散乱の結果、再び陰極に到達する電子数、言い換えれば電子を追跡する過程で z 座標（陰極を原点として陽極方向にとった座標）の値が 0 または負になる電子数を求めた。このとき、陰極にもどった電子はすべてそこに吸収されるものと仮定し、その後の追跡は行なわない。

陰極までもどされた電子が、そこで更に反射されて気体中に入る可能性はこのエネルギー範囲では 5% 以下と考えられる⁽¹⁵⁾ことから、陰極を完全吸収面とする仮定は十分正しい結果を与える。

電子の透過係数 f_T は、放出電子（初期エネルギー W (eV), $0 < W < 8 \text{ eV}$ ）の数を N_0 ($=100$) とし、そのうち陰極にもどされる電子数（追跡途中で $z \leq 0$ となる電子数）を N_c とすると、

$$f_T = \frac{N_0(W) - N_c(W)}{N_0(W)} \dots\dots\dots (2)$$

で表わされる。

また、ここで想定するギャップ条件は、電極間距離を 2.0 cm、印加電圧を 200 V とし、所定の E/p_0 が得られるように気体圧力を変化するものとする。

E/p_0 としては 50, 100, 150, 200 V/cm·Torr を選んだ。

3. 計算結果および検討

シミュレーションの結果得られた透過係数 f_T と電子の初期エネルギー W との関係を図 1 に示す。同図には複雑になるのを防ぐため、プロットは $E/p_0 = 50$ および 200 V/cm·Torr についてのみを示してあるが、 $E/p_0 = 100, 150 \text{ V/cm·Torr}$ の結果は図の 2 曲線の間をほぼ等分割するように描くことができる。また、第 2 図にはシミュレーションの結果を気体運動論

第 1 図 電子の透過係数

Fig. 1. The results of the simulation of the transparency coefficient in argon.

第 2 図 電子の透過係数の比較

Fig. 2. Comparison of the transparency coefficients.

的に導出された(1)式による結果、及び Thomas 氏らのネオンについてのシミュレーションの結果と比較して示してある。

透過係数 f_T はシミュレーションでは電子の初期エネルギーが 0 eV のとき 1 に漸近するが、これは単純な力学的考察から明らかであり⁽¹⁶⁾、この結果から逆にシミュレーションにおける計算過程の正しいことを検証することができる。

第 1 図から透過係数 f_T がパラメータ E/p_0 に依存すると共に、陰極を出発するときの電子の初期エネルギーにも強く依存していることがわかる。もし、電子の平均エネルギーが平衡に達したあとの衝突過程で後方散乱が決定されるとすれば、 f_T が初期エネルギーに依存することは考えにくく、従って電子が非常に多数回の衝突を経たのち陰極にもどされることはむしろ少なく、比較的少数回の衝突のうちに電子の陰極への後方散乱が決定されるものと考えられる。初回の衝突のみを考慮する Hantzschke 氏の理論⁽⁸⁾ および平均

第 3 図 電子の透過係数の E/p_0 依存性および他結果との比較

Fig. 3. The relation between f_T and E/p_0 (The parameters show the initial energy of the electron at the cathode).

自由行程間の衝突のみを考慮する Pech 氏の理論⁽¹⁷⁾が実験結果と比較的良好く一致する原因はここにあると推察できる。

従って、同図および第 2 図に示される f_T の初期エネルギーに依存する特性は気体原子の運動量変換断面積の大小および入射電子エネルギー依存性から説明することができる。すなわち、一定初期エネルギーにおけるアルゴンの f_T の値がネオンより小さいこと、及び初期エネルギーの増大に伴って f_T が減少する傾向(従って、後方散乱される電子数が増加する)は、アルゴンがネオンに比べて運動量変換断面積が大きいこと、及び両気体の運動量変換断面積が入射電子エネルギーの低い領域で(アルゴンの Ramsauer-Townsend 効果を除けば)エネルギーの増大にほぼ比例して増大することによる⁽¹⁶⁾。

電子が電界と平衡状態にあることを仮定して(従って Loeb 氏の仮定)気体運動論的に導出された(1)式から後方散乱を見積った結果が第 2 図に示してあるが、ここでは電子が陰極を出発するときの平均速度は初期エネルギー W に対応させており、また電子の移動速度はモンテカルロ・シミュレーションの結果⁽¹⁴⁾から得ている。図に示すように、(1)式による結果は本シミュレーションの結果に比べて 15% ないし 50% 程度低い f_T を与える。これは Thomas 氏らのネオンにおける結果(15% ないし 40%)とほぼ一致することから、気体運動論的理論の一般的傾向と思われる。

第 3 図において、シミュレーションによる $f_T (= N/N_0)$ の結果を、Theobald 氏⁽¹⁸⁾、Kunze 氏⁽¹⁹⁾および Felsche 氏と Pech 氏⁽⁹⁾の実測結果と比較する。シミュレーションと測定の結果の対応は満足すべきもので、図に示すように Theobald 氏の値を良く外そうし

第4図 入射運動エネルギー 5eV の Ar^+ による真空中および気中への二次電子放出量

Fig. 4. Secondary electron yields into vacuum (N_0) and into the gas (N) by Ar^+ with the kinetic energy of 5 eV.

ており、特に Felsche 氏と Pech 氏の結果（電子の最大初期エネルギー 1.5 eV）と初期エネルギー 1.6 eV の電子に対するシミュレーションの結果はほぼ一致していることがわかる。

ここで、電子の初期エネルギー W の関数として透過係数 f_T が求められたので、この結果と Takeishi 氏と Hagstrum 氏が測定して得た清浄ニッケル表面から真空中への Ar^+ イオンによる二次電子放出量の値から、アルゴン気中放電における同イオンの二次電子放出量 (Townsend の二次電離係数 γ_i) を求めることができる。その過程を第4図および第5図に示す。

各図の点線で示した曲線は Ar^+ イオンの入射エネルギーが 5 eV 及び 100 eV における真空中への二次電子放出量のエネルギー分布であり、実線で示した曲線はそれと電子の透過係数 f_T との積を表わす。ここで、 $N(W)$ 及び $N_0(W)$ は入射イオン 1 個あたりに放出される二次電子のうち、エネルギーが W (eV) と $W+dW$ (eV) の間にあるものの数を示す。前者は気体中への、そして後者は真空中への値をそれぞれ表わす。従って、 $N(W)$ を放出電子が持ちうる全エネルギー範囲にわたって積分すれば、 Ar^+ イオン 1 個あたりの“気体中への”二次電子放出量 (Ar^+ イオンによる二次電離係数) が得られることは容易にわかる。すなわち、

第5図 入射運動エネルギー 100 eV の Ar^+ による真空中および気中への二次電子放出量

Fig. 5. Secondary electron yields into vacuum (N_0) and into the gas (N) by Ar^+ with the kinetic energy of 100 eV.

$$\gamma_i = \int N(W) dW = \int N_0(W) \cdot f_T(W) dW \quad \dots\dots\dots (3)$$

この積分は上で述べたように放出電子の全エネルギー範囲（ここでは 0~8 eV）で行なう。

実際に積分を行なって求めた二次電離係数を第6図に示す。その結果から、 E/p_0 の増大に伴う透過係数 f_T の増加に従って γ_i の値は徐々に増大することがわかる。

第6図 γ_i の計算結果およびパッシェン曲線から求めた γ との比較

Fig. 6. The calculated values of γ_i and the experimental values of γ .

真空中へ放出される二次電子のエネルギー分布および放出量は、イオンの入射運動エネルギーにはほとんど依存しないことが知られており、従って第6図に示すように、イオンの入射エネルギーが 5 eV から 100 eV まで大きく変化させてもアルゴン気中への二次電子放出量もほとんどその影響を受けない。

実際の気中放電においては入射イオンの運動エネルギーはある範囲に分布するが、そのような場合でも、 Ar^+ イオンによる二次電離係数は第6図の計算値に極めて近いことが上記の結果から推察できる。

4. 実験方法および結果

モンテカルロ シミュレーションの結果から、陰極近傍における気体原子による後方散乱を考慮した放出電子の透過係数を求め、これと真空中への Ar^+ イオンによる二次電子放出係数の測定結果とから、アルゴン気中放電におけるイオンによる二次電離係数を計算により決定することができた。この結果の妥当性を確かめるために、以下の実験によって火花電圧から二次電離係数を決定した。

Takeishi 氏と Hagstrum 氏の真空中への放出係数の測定は超高真空下で処理した清浄表面を用いて行なわれており、従って、ここでもそれと比較しう程度の電極表面を得なければならない。そのため、本実験では近似ログウスキー形電極の表面を 1×10^{-9} Torr の超高真空下でのニッケル蒸着膜で覆い、その後、真空そうに高純度アルゴン(純度 99.999%)を直接導入して測定を行なった。高純度アルゴンは直列に配置された二段の液体空気トラップおよび赤熱した銅網が詰った酸素トラップを通して真空そう(放電室)に導入している。従って、電極面上の吸着不純物原子の量およびそれらの気体中への遊離、更にアルゴンに含まれる凝縮温度の高い不純物や酸素の量は十分小さく抑えることができたと考えられる。

電極への電圧印加は時定数の大きな積分回路(CR ~ 50 s)およびサイクロンを含む分流回路を通して行なっている。前者によって電圧上昇速度およびその不整を小さくすることができ、また後者によって測定中に陰極表面が変化するのを防ぐことができる。

電極間距離の測定は放電室上部の窓から移動差顕微鏡(精度 1/100 mm)を用いて行なう。また気体圧力は、それによって陰極面の仕事関数が変化するのを防ぐために 2.0 Torr (室温)とした。

火花電圧の測定結果を第7図に示す。

アルゴン気中では、最小火花電圧付近でタウンゼントの自統条件が良く満足されることが確かめられてお

第7図 アルゴンのパッシュン曲線

Fig. 7. The Paschen's curve of argon with the clean nickel cathode.

り⁽²⁰⁾、この近傍の火花電圧から求めた二次電離係数は十分な妥当性を有すると考えられる。このようにして火花電圧から求めた二次電離係数を第6図に併記するが、その結果はモンテカルロ シミュレーションを用いて計算した電子の透過係数と真空中への二次電子放出量およびそのエネルギー分布の測定値とから計算した Ar^+ イオンによる γ_i の値と極めて良く一致する。

ここで必要になる一次電離係数 α/p_0 の値は、Kruithof 氏の測定値⁽²¹⁾を用いた。

火花電圧から計算して求めた二次電離係数は、一般には数種の二次電離作用の複合したものと考えられ、従って不純物イオンのない場合でもイオンによる、しかも Ar^+ イオンのみを考慮した二次電離係数 γ_i の値と火花電圧から求めた二次電離係数を比較することは無理があるかに思われる。しかし、ここで比較を試みる E/p_0 及び気圧の範囲では光子による二次電離係数 γ_p の寄与は γ_i のそれに比べて小さいと考えられ⁽²²⁾⁽²³⁾、また一般の低気圧アルゴン中の放電現象において、 Ar_2^+ あるいは Ar_2^{2+} が Ar^+ に比べて1けたないし2けた少ない事実⁽²⁴⁾から判断して、この比較は無意味ではないと考えられる。

火花電圧から計算して求めた二次電離係数は $E/p_0 = 100 \text{ V/cm} \cdot \text{Torr}$ 程度から E/p_0 の減少に伴ってわずかに増大する傾向にあり、 γ_p あるいは γ_m の寄与が現われるようであるが、この実験だけではそれを明らかにすることができない。

しかし、この実測の値が $E/p_0 = 100 \text{ V/cm} \cdot \text{Torr}$ 以上において E/p_0 の増大に伴って緩やかに増大するのは、明らかに後方散乱の影響によるものである。

4. 結 論

陰極から低気圧アルゴン気中へ放出される電子の後方散乱現象をモンテカルロ法を用いて模擬し、その結果から得られた電子の「透過係数」と Ar^+ イオンによる「真空中への」二次電子放出の測定結果とから、実際の気中放電におけるイオンによる二次電離係数 γ_i を計算により求めることを試みた。その結果、

(1) シミュレーションから得られた透過係数を用いて Takeishi 氏と Hagstrum 氏の測定結果を「アルゴン気中への」値に補正し、イオンによる二次電離係数 γ_i を計算することができた。この結果は実測した値と良く一致した。

(2) $E/p_0=100\text{ V/cm}\cdot\text{Torr}$ から $E/p_0=250\text{ V/cm}\cdot\text{Torr}$ において、 E/p_0 の増大に伴って二次電離係数が緩やかに増大するのは、主に後方散乱の影響によるものである。

(3) ここで用いた計算方法は一般的で、真空中で測られた二次電子放出量と二次電子のエネルギー分布が与えられれば、いかなる系(電極表面-気体種の)にも適用できる。また、ここでは電子のエネルギー平衡を仮定する必要がある。更に計算にあたり二次電子のエネルギー分布を容易に考慮することもできる。

(4) 電子が気体原子および電界と完全に平衡状態にあることを仮定する後方散乱の気体運動論的取扱いによって電子の透過係数を求めるとき、15~50% 低い値を見積る可能性がある。これは Thomas 氏らのネオン中での研究における記述とほぼ一致する。

終わりに、本研究の遂行にあたり、プログラミングに多大の協力を得た真壁利明(本学工学部助手)および佐久間秀一(現在、三菱電機(株)勤務)の両君に感謝する。

(昭和50年12月12日受付, 同51年5月31日再受付)

文 献

- (1) H.D. Hagstrum: Phys. Rev. **96**, 336 (1954)
- (2) T. Takeishi & H.D. Hagstrum: *ibid.* **137**, 2A, A641 (1965)
- (3) D.W. Vance: *ibid.* **164**, 372 (1967)
- (4) J.J. Thomson: Conduction of electricity through gases (1928) Cambridge Univ. Press
- (5) N.E. Bradbury: Phys. Rev. **40**, 980 (1932)
- (6) L.B. Loeb: Basic processes of gaseous electronics (1961) Univ. California Press
- (7) 酒井・田頭・坂本: 放電研究会資料 ED-72-4 (昭 47)
- (8) E. Hantzsch: Beitr. Plasmaphysik **8**, 283 (1968)
- (9) D. Felsche & P. Pech: *ibid.* **13**, 197 (1973)
- (10) D. Felsche & P. Pech: *ibid.* **13**, 253 (1973)
- (11) T. Itoh & T. Musha: J. Phys. Soc. Japan **15**, 1675 (1960)
- (12) R.W.L. Thomas, et al.: J. Phys. B **2**, 562 (1969)
- (13) A.B. Parker, et al.: Proc. Roy. Soc. Lond. **A325**, 511 (1971)
- (14) M.A. Folkard, et al.: Aust. J. Phys. **23**, 847 (1970)
- (15) 真壁・後藤・森: 電気学会論文誌 **93-A**, 229 (昭 48-6)
- (16) Handbook of Chemistry and Physics, CRC Press 54th Edition 1973-1974, D-191
- (17) 中村・佐久間・森: 電気学会論文誌(投稿中)
- (18) P. Pech: Beitr. Plasmaphysik **11**, 233 (1971)
- (19) J.K. Theobald: J. Appl. Phys. **24**, 123 (1953)
- (20) P. Kunze: Z. Phys. **219**, 475 (1969)
- (21) 佐伯・中村・森: 電気学会論文誌 **94-A**, 411 (昭 49-10)
- (22) A.A. Kruithof: Physica No. 7, 519 (1940)
- (23) L. Colli & U. Facchini: Phys. Rev. **96**, 1 (1954)
- (24) 山本・奥田訳: 改訂電離気体 **89** (昭 43) コロナ社
- (25) H. Held, et al.: J. Appl. Phys. **40**, 4395 (1969)