

運転する転位に対する flexible boundary condition

大沢, 一人
九州大学大学院総合理工学研究科高エネルギー物質科学専攻

蔵元, 英一
九州大学大学院総合理工学研究科高エネルギー物質科学専攻

<https://doi.org/10.15017/17423>

出版情報 : 九州大学大学院総合理工学報告. 18 (4), pp.311-322, 1997-03-01. 九州大学大学院総合理工学研究科
バージョン :
権利関係 :



運動する転位に対する flexible boundary condition

大沢一人*・蔵元英一*

(平成8年11月30日 受理)

Flexible Boundary Condition for Moving Dislocation

Kazuhito OHSAWA and Eiichi KURAMOTO

The displacement field around the dislocation is a long range field which falls away inversely with distance from the dislocation line, so that, with rigid boundary condition, the imaginary force from the boundary affects the result in the simulation for dislocation. Flexible boundary condition for static dislocation has developed to avoid such boundary effect. With the flexible boundary condition, the displacements of atoms in the boundary region change according to the state of whole system. Various modified versions of the boundary conditions have been applied to the calculations of the core structures of the dislocations and the Peierls stresses. Now, new flexible boundary condition is obtained for the moving straight dislocation, which is introduced by Lagrangian principle. As an example, the glide motion of the screw dislocation are simulated on a two dimensional lattice with the flexible and the rigid boundary conditions. The effects of model size, boundary conditions, and potential will be discussed. The results of the system with low Peierls stress with the flexible boundary condition are independent of the model size used in the simulations, and in agreement with the large rigid boundary model.

1. 序 論

格子欠陥のまわりの原子配置を知ることはその欠陥の性質を把握し、さらに材料の性質を知るためにも重要である。今日、STM など直接原子の配置を決定する実験手段は開発されているが、一般には原子の位置を直接観察することはできない。そこで、原子間ポテンシャルとして適当なものを選び計算することが盛んに行われるようになった。点欠陥など有限な大きさの格子欠陥については欠陥から十分遠方の原子配置は結晶のものと同じであることを仮定し、欠陥近傍の原子に対してのみ原子間ポテンシャルに従った緩和を行う方法が一般に行われている。転位については少し複雑で遠方の原子の変位は線形連続弾性論のものを仮定し、転位に近い領域の原子については原子間ポテンシャルに従った緩和を行うという方法がある。この弾性論の解に固定した境界条件は rigid boundary (固定境界) と呼ばれている。しかし、転位のまわりの変位場は r^{-1} で減衰する長距離場である。また、線形連続弾性論では格子の不連続性や非線形性は考慮されていない。そのため固定境界を課す計算のやり方では正確な転位芯構造を計算できない。特に、固定境界から転位に作用する鏡像力は強い斥力としてはたらくことが知られている。固定境界でも大きなサイズで計算すれば境界まで遠くなるため鏡像力は小さくなるが、それでも計

算機の能力のため限界がある。そこで、境界からの影響を少なくするために工夫された計算方法が flexible boundary (可変境界) である。この方法では転位のまわりの変位場を弾性論の解で固定せず、状況に応じて境界原子も一定の制約のもとに動くようにしたものである。主に3つの流儀があってそれぞれ Flex-S¹⁾, Flex-I²⁾, Flex-II^{3,4)} と呼ばれている。

格子欠陥の分野でも将来は分子動力的計算が行われ、運動する転位と点欠陥の相互作用といった計算がされるようになることが予想される。ところが、運動する転位は静止したものよりも強い影響を境界から受ける恐れがある。そこでわれわれは運動する転位に対しても flexible boundary を導入してそのような影響を少なくできないかと考えた。そのため、Sinclair が開発した静的問題に対する flexible な境界条件 Flex-S を発展させ、動的な問題に応用するようにした。Flex-S では転位近傍の領域と境界領域の弾性エネルギーを同時に極小にすることで flexible な境界条件を導入したが、われわれは Lagrangian を最小にすることで動的な問題に対する flexible な境界条件を導入する。

運動する転位の例として2次元格子上的の螺旋転位の運動をシミュレーションする。それをもとに境界条件や計算に使うモデルサイズ、原子間ポテンシャルの影響について議論する。

*高エネルギー物質科学専攻

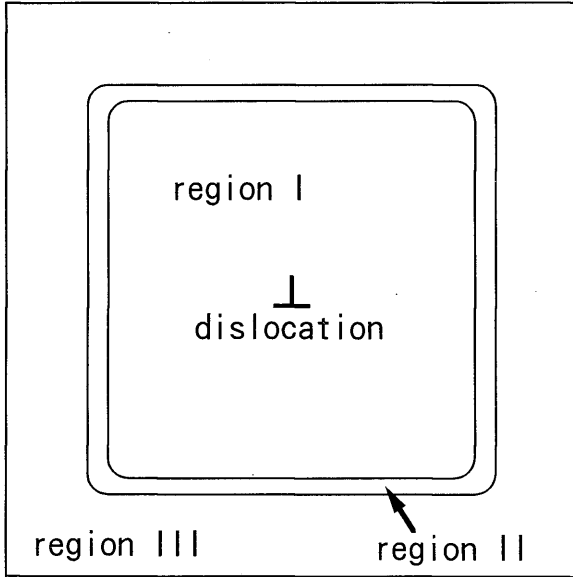


Fig. 1 Concentric arrangement of regions for the flexible boundary model.

2. flexible な境界条件

2.1 格子中の転位モデル

われわれは2次元問題, すなわち直線転位の運動を扱うことにする. flexible な境界を導入するにはまず Fig. 1 のように転位を中心として格子を3つの領域に分割する. 転位芯を含む領域 I では弾性論の解が適用できないため一般には非線形な原子間ポテンシャルに従って原子の挙動が決まる領域である. 領域 II は境界領域で flexible な境界とはこれに属する原子の座標が計算の過程で変化することで導入される. 領域 III は最も外側の領域でこの領域に属する原子は一部を除いて計算の過程に関与しない. 原子間力は有限の cut-off があることを仮定する. 領域 II の厚さはその cut-off 長より大きくするものとする. すなわち領域 I と III の原子が直接力を及ぼし合うことはない.

2次元格子上の i 番目の原子の j 方向の変位成分を u_{ij} , その原子にはたらく力を f_{ij} とする. 正確には2次元問題なので変位とは z 軸に平行な原子列の変位, 力とは単位長さあたりの原子列にはたらく line force というべきである. 転位線の位置を X_1 ($X_1 = X$, $X_2 = Y$) とする.

2.2 静的転位に対する flexible な境界条件

一様な外部応力中でしかも静止した転位に対する flexible な境界条件について述べる. これから述べることは Sinclair の研究¹⁾を参考にしている.

領域 I の原子は通常の緩和計算で平衡位置が決められる. しかし, 領域 II と III に属する原子の変位は次のような式で表されることを仮定する.

$$u_{ij} = u_{ij}^0(X_1) + \sum_k S_k u_{ij}^k + u_{ij}^{ef}, \quad (1)$$

ここで u_{ij}^0 は転位が X_1 にある時の線形連続弾性論から導かれる変位場. u_{ij}^k は弾性論の解よりも高次の微小項, S_k はその係数. u_{ij}^{ef} は外部応力によって加えられる一様な歪に起因する変位である. 領域 II, III に属する原子の変位は変数 X_1 , S_k が変化することによって変わる. 弾性論の解 u_{ij}^0 は X_1 に依存するが, 高次の項 u_{ij}^k は依存しないことを仮定する. すなわち, 転位が移動しても u_{ij}^k は変化しない. この仮定は奇妙かもしれないが計算の簡略化のために導入した. また, 高次の項の関数形については外力 0 の場合は Sinclair¹⁾ によってはっきりと示されている. しかし, 高次の項を何項までとるか, 外力がはたらくときの関数形などについてはある程度の任意性がある. 具体的なことは後に述べる.

Flexible な境界条件での計算では原子の平衡状態の計算に寄与するのは領域 I と II に属する原子だけであることを仮定する. その2つの領域の全弾性エネルギーを U とする. 領域 I の原子の平衡条件は

$$f_{ij} = -\frac{\partial U}{\partial u_{ij}} = 0 \quad (2)$$

一方, 変数 X_1 , S_k はこれを解析力学の一般座標とみなし平衡条件は次のようになる.

$$\begin{aligned} f_{X_1} &= -\frac{\partial U}{\partial X_1} = -\sum_{i \in II, j} \frac{\partial U}{\partial u_{ij}} \frac{\partial u_{ij}}{\partial X_1} = \sum_{i \in II, j} f_{ij} \frac{\partial u_{ij}^0}{\partial X_1} = 0 \\ f_{S_k} &= -\frac{\partial U}{\partial S_k} = -\sum_{i \in II, j} \frac{\partial U}{\partial u_{ij}} \frac{\partial u_{ij}}{\partial S_k} = \sum_{i \in II, j} f_{ij} u_{ij}^k = 0 \end{aligned} \quad (3)$$

ここで式(3)の和は領域 II のすべての原子についてとるものとする. f_{X_1} , f_{S_k} はそれぞれ X_1 , S_k に共役な一般力である. 静的な計算の場合, 平衡位置を求めるには適当な初期条件から緩和計算を始め, 式(2)と(3)がある精度で成り立つまで逐次近似を繰り返す. 領域 III の原子は領域 II の原子にはたらく力を求めるためだけに使われる.

2.3 動的転位に対する flexible な境界条件

静的計算では弾性エネルギー U を最小にすることで flexible な境界条件を導入した. 動的な場合はこれを作用を最小にすることに置き換える. Lagrangian は

$$L = \frac{m}{2} \sum_{i \in I, II, j} \dot{u}_{ij}^2 - U(u_{ij}), \quad (4)$$

である. ここで和は領域 I と II のすべての原子に対してとる. 領域 II と III の原子変位は式(1)で定義されて

いるからその時間微分は

$$\dot{u}_{ij} = \frac{\partial u_{ij}^0}{\partial X_i} \dot{X}_i + \sum_k \dot{S}_k u_{ij}^k \quad (5)$$

である。Lagrange の運動方程式は

$$\frac{d}{dt} \left(\frac{\partial L}{\partial \dot{q}} \right) = \frac{\partial L}{\partial q} \quad (6)$$

である。これより領域 I の原子の運動については Newton の運動方程式になる。

$$m \ddot{u}_{ij} = f_{ij} \quad (7)$$

一般座標 X_i , S_k については Lagrange の運動方程式より

$$m \sum_{i \in I, j} \frac{\partial u_{ij}^0}{\partial X_i} \left(\sum_{i'} \frac{\partial u_{ij}^0}{\partial X_{i'}} \dot{X}_{i'} + \sum_{k'} u_{ij}^{k'} \dot{S}_{k'} \right) = \int f_{X_i} dt \quad (8)$$

$$m \sum_{i \in I, j} u_{ij}^{k'} \left(\sum_{i'} \frac{\partial u_{ij}^0}{\partial X_{i'}} \dot{X}_{i'} + \sum_{k'} u_{ij}^{k'} \dot{S}_{k'} \right) = \int f_{S_k} dt$$

である。ここで指数 i の和は領域 II の原子についてとる。 f_{X_i} , f_{S_k} は式 (3) で定義した一般力である。式 (8) は一般速度 \dot{X}_i , \dot{S}_k についての連立方程式とみなすことができる。これを解くために次のような行列 \mathbf{M} を定義する。

$$\mathbf{M} = \begin{pmatrix} a_{i1'} & a_{ik'} \\ a_{k1'} & a_{kk'} \end{pmatrix}, \quad (9)$$

ここで行列 \mathbf{M} の成分については

$$a_{i1'} = m \sum_{i \in I, j} \frac{\partial u_{ij}^0}{\partial X_i} \frac{\partial u_{ij}^0}{\partial X_{i'}} \quad (10)$$

などと定義する。式 (8) は適当な初期条件を与えられれば

$$\begin{pmatrix} \dot{X}_i(t) \\ \dot{S}_k(t) \end{pmatrix} = \mathbf{M}^{-1} \left(\int_0^t f_{X_i} dt \right) + \begin{pmatrix} \dot{X}_i(0) \\ \dot{S}_k(0) \end{pmatrix} \quad (11)$$

となる。転位の運動を flexible な境界条件で解くには式 (7) に加えて (11) を同時に計算すればよい。

3. 螺旋転位の運動シミュレーション

3.1 2次元格子上の螺旋転位

転位の運動計算に flexible な境界条件が有効であるか調べるために Fig. 2 のような正方格子上の螺旋転位のすべり運動を例にとってシミュレーションを行った。異なるモデルサイズで計算した結果や rigid な境界を課した場合の結果を比較する。2次元格子の原子列は z 軸方向にのみ変位するものとする。格子定数

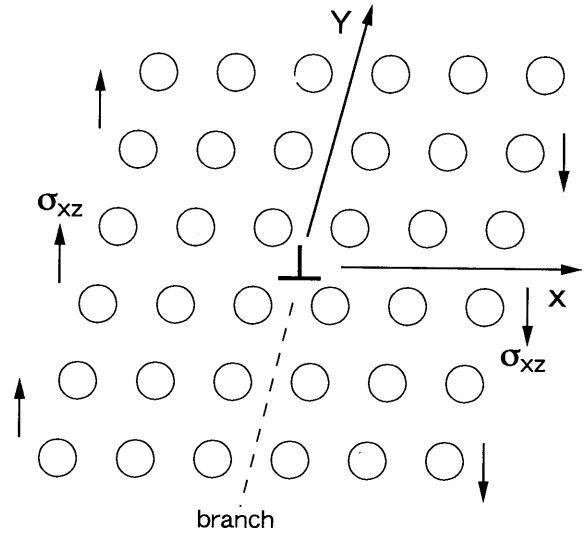


Fig. 2 Screw dislocation on a two dimensional rectangular lattice.

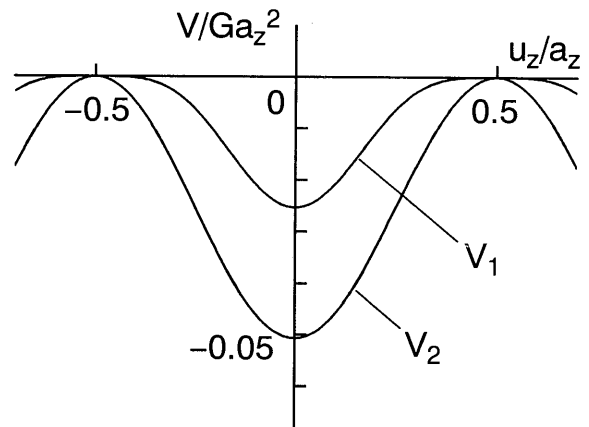


Fig. 3 Inter-atom-row potentials used in the simulations.

を a_x , a_y , a_z , ただし $a_x = a_y$ とする。また、原子列間ポテンシャルは隣接する4つの原子列の間のみ作用し、その力の大きさは隣り合う2つの原子列の z 方向の相対変位にのみ依存するものとする。計算に用いたポテンシャルは Fig. 3 で示す。関数形⁵⁾は

$$V(z) = -\frac{1}{4\pi^2(1+\lambda)} \left(\cos \frac{2\pi z}{a_z} + \frac{\lambda}{4} \cos \frac{4\pi z}{a_z} + 1 - \frac{\lambda}{4} \right) Ga_z^2. \quad (12)$$

である。 V_1 は式 (12) で $\lambda=1$, V_2 は $\lambda=0$ である。どちらも連続体極限では剪断弾性率は G に規格化してある。外部応力は σ_{xz} 成分のものだけが作用する一様応力である。 Fig. 2 のような外部応力のもとでは転位は y 軸の正の向きに運動する。簡単化のため変位場の branch は y 軸の負の向きにとる。線形連続弾性論によると螺旋転位の変位場は

$$u_{iz}^0(0, Y) = \begin{cases} \frac{a_z}{2\pi} \tan^{-1} \frac{y_i - Y}{x_i} - \frac{a_z}{4}, & x_i > 0 \\ \frac{a_z}{2\pi} \tan^{-1} \frac{y_i - Y}{x_i} + \frac{a_z}{4}, & x_i < 0 \end{cases} \quad (13)$$

である。ここで対称性より $X=0$ 。 (x_i, y_i) は原子列 i の 2次元格子面上の座標である。高次の項 u_{ij}^k は 3項までとるものとする。

$$\begin{aligned} u_{iz}^1 &= \frac{a_z}{2\pi} \frac{-2x_i y_i}{(x_i^2 + y_i^2)^2} \\ u_{iz}^2 &= \frac{a_z}{2\pi} \frac{-2x_i(x_i^2 - 3y_i^2)}{(x_i^2 + y_i^2)^3} \\ u_{iz}^3 &= \frac{a_z}{2\pi} \frac{24x_i y_i(x_i^2 - y_i^2)}{(x_i^2 + y_i^2)^4} \end{aligned} \quad (14)$$

対称性より高次の項に y 軸に対して偶関数のものは現れない。また、時間の単位はスケーリングにより $\tau = a_z \sqrt{\rho/G}$ である。ここで ρ は密度である。

螺旋転位の運動シミュレーションを行う手順は次のようにする。まず、静的な flexible な境界条件のもとで外部応力 0 の状態での安定な転位の位置と転位芯構造を決定する (Fig. 4)。次に転位が非可逆的に運動を開始する最小の外部応力 (Peierls 応力) を計算する。これには flexible な境界条件のもとで外部応力を $5 \times$

Table 1. Peierls stress in the case of the potential V_1 and V_2 , external stress imposed on the dislocation in the glide motion, and core structure in no external stress.

potential	Peierls stress	external stress in glide motion	core structure at $\sigma=0$
V_1	$7.15 \times 10^{-4} G$	$7.25 \times 10^{-4} G$	asymmetry
V_2	$1.5955 \times 10^{-2} G$	$1.5965 \times 10^{-2} G$	symmetry

$10^{-6}G$ 刻みで次第に大きくしてゆくことで決定した (Table 1)。計算は領域 I の大きさが $30 \times 30, 40 \times 40, 60 \times 60$ の 3通り行ったが Peierls 応力の値は大きさにはほとんど依存しなかった。ただし、特に rigid な境界条件を課した場合には領域 I のサイズをあまり小さくすると Peierls 応力が高くなる。このような準備の後に Peierls 応力をわずかに $1 \times 10^{-5}G$ 越えた外部応力のもとでの螺旋転位の運動をシミュレーションした。Peierls 応力を越える外力を加え始めた時刻を $t=0$ とする。比較のために境界条件が flexible と rigid の 2通りで計算を行った。flexible な境界では式 (11) に従って変数 X_i, S_k が時間変化する。その初期値は Peierls 応力を越えないぎりぎりの外部応力をかけていたときの値をそのまま使う。一方 rigid な境界では時間が経っても X_i, S_k の値は初期値のまま維持さ

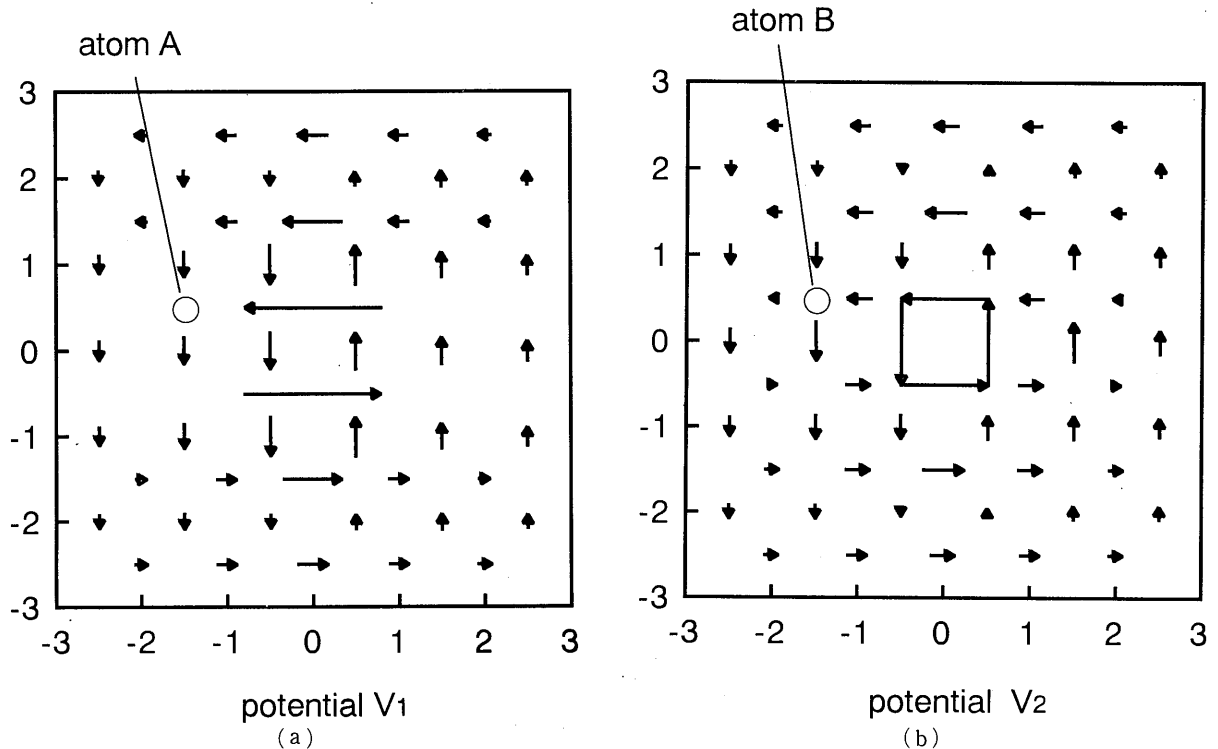


Fig 4 Static core structures expressed by Vitek's representation. (a) and (b) are corresponding to the potential V_1 and V_2 , respectively. The atoms A, and B are the typical set of atoms whose behaviors are shown in Fig. 6.

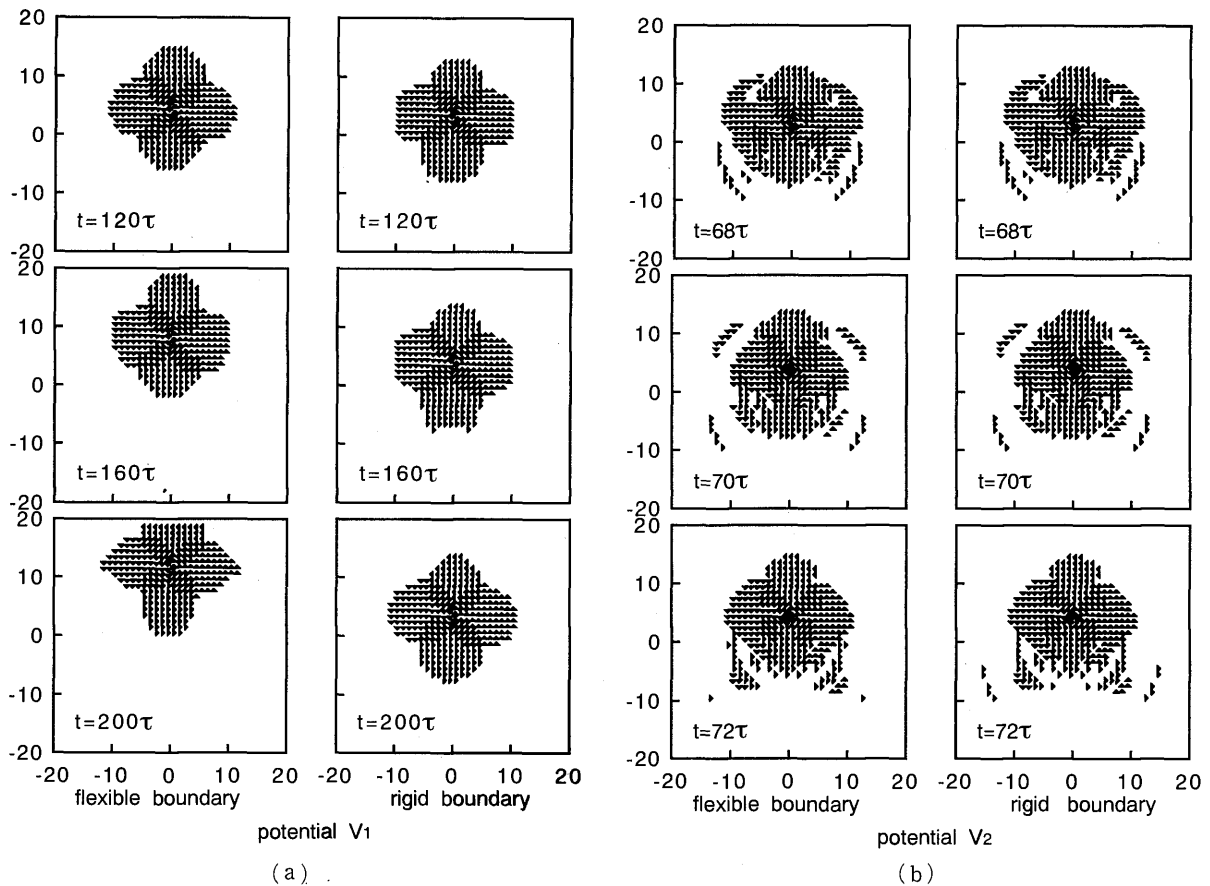


Fig. 5 The glide motions of the screw dislocations with the flexible and the rigid boundary conditions, which are expressed by Vitek's representation. Differences larger than $0.015 a_z$ are exhibited. (a) potential V_1 . (b) potential V_2 .

れ、領域 I の原子だけが運動方程式 (7) に従って運動する。つまりどちらの境界条件でも $t=0$ では領域 I の原子座標も X_i , S_k の初期値もまったく同じである。数値計算は時間刻み 0.0005τ の差分法で行った。時々 0.0001τ 刻みで計算したものと比較したが結果はほとんど違わなかった。

3.2 ポテンシャル V_1 での結果

外力が 0 のときの転位芯構造は Fig. 4 (a) のようになる。転位の安定な位置は正方格子の中心で転位芯構造は x , y 方向に非対称である。Peierls 応力は比較的低い $7.15 \times 10^{-4}G$ である (Table 1)。螺旋転位の運動の様子は Vitek⁹⁾ の表示で Fig. 5 (a) で示す。隣の原子列との段差が $0.015a_z$ 以上の大きな所だけを表示した。flexible な境界条件を課すと転位は静止することなく移動し続ける。領域 I のサイズが 40×40 の場合 $t=200\tau$ で転位の中心部は領域 I の端に到達する。一方 rigid な境界条件では転位は約 3 原子ほど移動して静止する。これは転位を動かそうとする Peach-Koehler 力と rigid な境界からの鏡像力が釣り合うためであると思われる。

1 つの原子の z 軸方向の運動についても調べてみた。Fig. 4 (a) で示したはじめ転位線の近くにある原

子 A の運動について Fig. 6 (a) に示す。flexible な境界では計算に用いるモデルのサイズが 30×30 , 40×40 , 60×60 と変化しても原子 A の振る舞いはあまり変化しない。しかし、rigid な境界ではサイズが変わると原子 A の振る舞いも明らかに変化する。また、rigid な境界を課しても大きなモデルサイズでの計算、たとえば 60×60 のサイズでは flexible な境界の結果に近づいていく。

3.3 ポテンシャル V_2 での結果

原子間ポテンシャルが V_2 の場合外力が 0 のときは Fig. 4 (b) のように x , y 方向に対称な転位芯構造が安定である。また、転位の運動の様子は Fig. 5 (b) で示すように V_1 のものとはだいぶ違うことがわかる。図の中に見える同心円状の歪の大きな部分は転位芯から発射され外へ向かう振幅の大きな格子振動である。これはポテンシャルが V_2 の場合は境界条件が rigid でも flexible でも発生する。また、Fig. 6 (b) をみると異なる境界条件でのシミュレーションでもサイズが同じもの同士が似た結果になる。したがって flexible な境界を課すことはポテンシャル V_2 の計算の場合には効果がなかった。

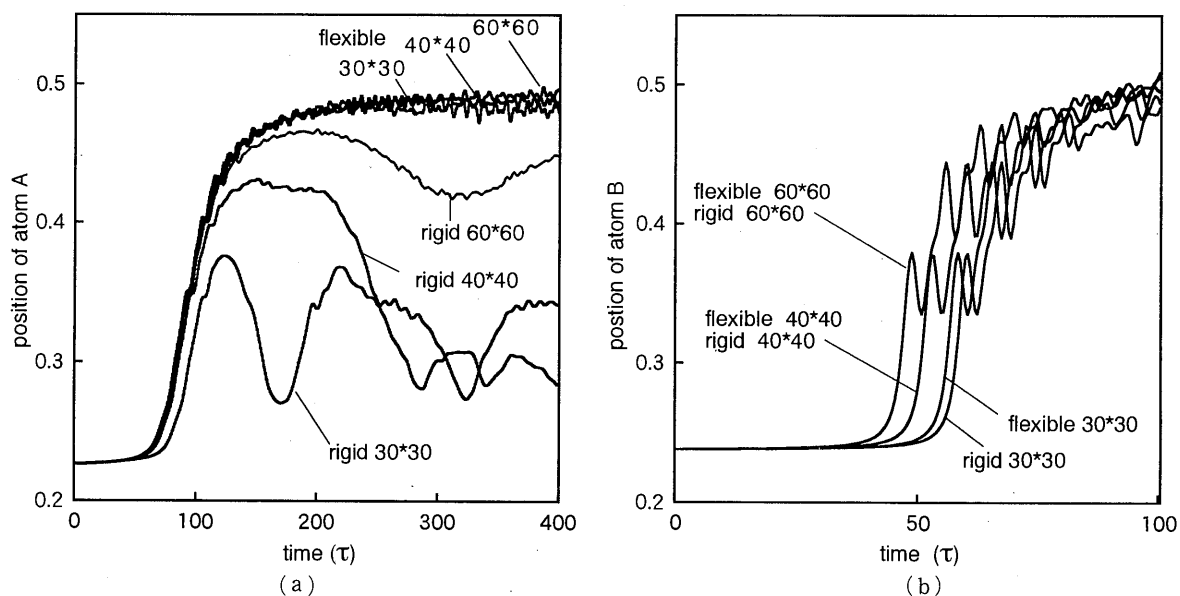


Fig. 6 The behaviors of the atoms in various model size and boundary conditions. (a) atom A in Fig. 4(a) for potential V_1 . (b) atom B in Fig. 4(b) for potential V_2

4. 議論と考察

運動する転位のための flexible な境界条件を導入し、その有効性を螺旋転位の運動を例に調べてきた。まず、flexible な境界条件を課すことが有効なのはポテンシャル V_1 の場合であった。静的な転位芯構造の計算¹²⁾とと同じく計算結果がモデルのサイズにほとんど依存しなかった。このことより flexible な境界は鏡像力の影響を小さくする効果があると考えられる。それとは逆にポテンシャル V_2 によるシミュレーションでは flexible な境界条件を課すことはまったく役に立たない。これは Fig. 5 (b) で示したように振幅が大きくしかも振動数が高い格子振動が発生したことによると思われる。このような振動にはたとえ flexible な境界でも追従できず結果としては境界が rigid であるのと同じことになったと考えられる。ポテンシャル V_2 のときに大きな振動が発生したのは高い Peierls 応力が原因と思われる。つまり、転位が動く直前までに大きな歪エネルギーが貯えられ、転位の運動開始に伴い格子振動としてエネルギーが解放されたからである。

ポテンシャル V_1 の rigid な境界条件でのシミュレーションでは、やはり境界から受ける鏡像力がたいへん大きくサイズ 40×40 のモデルによる計算でも転位の動く距離がせいぜい 1 から 2 原子距離以下でなければ正確な結果が得られないことがわかる。したがって、安易に転位の運動シミュレーションをするべきではなく十分な注意が必要である。flexible な境界条件もそのために工夫した計算方法であるが、まだ改良しなければならない点が多くある。式 (1) の高次の項

をどのような関数にすればよいかについては必ずしも一意的に決められるわけではない。また、高次の項の個数を多くすれば近似の精度が上がってよいというわけでもない。それは次元が高くなると式 (11) で行列 \mathbf{M} の逆行列を計算することが難しくなるからである。これらのことは今後の研究課題である。

5. 結論

運動する転位に対する flexible な境界条件を Lagrange の原理を応用して導入し、それをを用いて螺旋転位の運動シミュレーションを行った。Peierls 応力の比較的低い場合は flexible な境界条件を課した計算はたいへん効果があり、計算の結果はモデルのサイズに依存しなくなる。一方、Peierls 応力が高い場合は振幅の大きな格子振動が発生し flexible な境界条件を課す効果はなかった。

謝辞

本研究は平成 7 年度総合理工学研究科奨励研究費の援助を受けた。

参考文献

- 1) J. E. Sinclair, J. Appl. Phys., **42**, 5321 (1971).
- 2) P. C. Gehlen, J. P. Hirth, R. G. Holand, and M. F. Kanninen, J. Appl. Phys., **43**, 3921 (1972).
- 3) J. P. Hirth, Scripta Met., **6**, 535 (1972).
- 4) J. E. Sinclair, P. C. Gehlen, R. G. Holand, and J. P. Hirth, J. Appl. Phys., **49**, 3890 (1978).
- 5) F. Minami, E. Kuramoto, and S. Takeuchi, Phys. Stat. Sol. (a), **22**, 81 (1974).
- 6) V. Vitek, R. C. Perrin, and D. K. Bowen, Phil. Mag., **21**, 1049 (1970).

学位論文審査報告

氏名(本籍) 中山 亮 治 (福岡県)
 学位記番号 総理工博乙第250号
 学位授与の日附 平成8年9月24日
 学位論文題目 水素雰囲気中熱処理による
 Nd-Fe-B系永久磁石作製に関する研究

論文調査委員

(主査) 九州大学 教授 沖 憲 典
 (副査) 〃 〃 森 永 健 次
 〃 〃 友 清 彬 昶

論文内容の要旨

希土類磁石の磁気特性は、微細組織に強く依存することから様々な製造法による微細組織制御が研究されている。これらの製造法の中で、熱処理の温度および雰囲気等の条件は磁気特性を決定する重要な因子である。特に、近年の最高レベルの磁気特性を有するNd-Fe-B系磁石の開発において、熱処理条件の中で雰囲気としての水素の影響に関しては、強磁性金属間化合物の水素化物 $Nd_2Fe_{14}BH_x$ の基礎的特性について調べられているが、この水素化物の異方性磁場が低下することや650℃以上の高温では水素化物が相分解して消失してしまうことから、水素を熱処理雰囲気として積極的に用いることには関心がもたれていなかった。また、水素雰囲気が微細組織におよぼす影響についての報告はほとんどない。

本論文は、Nd-Fe-B系永久磁石材料において合金に及ぼす水素の影響を磁気的および組織学的観点から研究を行い、材料合金から永久磁石やボンド磁石用永久磁石粉末を作製するプロセスに関して水素吸蔵や脱水素を含めた水素雰囲気中焼結および熱処理による微細組織制御を試み、永久磁石特性と微細組織の関係を明らかにすることを目的として行った研究をまとめたものであり、以下の7章から構成されている。

第1章では、本研究の背景と目的および本論文の構成を述べた。

第2章では、水素雰囲気中焼結による焼結磁石の磁気特性と微細組織について研究を行った。昇温と焼結過程が全て水素雰囲気である通常の水素焼結では、異方性圧粉体を用いても保磁力 iH_c が低下した等方性磁石が得られた。昇温過程の650~1080℃までが水素中である場合のみに磁気特性が等方性になることが明らかとなり、その知見から焼結温度過程のみが水素中であると真空焼結に比べて密度が向上し高特性異方性焼結磁石が得られることを見出した。組織観察により、

等方性に变化した原因は、焼結前の異方性圧粉体中の強磁性金属間化合物 $Nd_2Fe_{14}B$ 相とは結晶方位が異なる $Nd_2Fe_{14}B$ 相が生成するためであることを明らかにし、焼結工程において $Nd_2Fe_{14}B$ と NdH_2 , Fe , Fe_2B とが可逆的な相変化をおこし結果的に $Nd_2Fe_{14}B$ 相が再び生成する可能性を指摘した。また iH_c が低下した原因は、再生成した $Nd_2Fe_{14}B$ 相の異常粒成長が起こった可能性が強いことを述べた。

第3章では、水素圧力を制御して主相の粒界部を崩壊させる選択的水素吸蔵崩壊法を行い、異方性磁石粉末を得るための検討を行った。高保磁力の焼結体に減圧下で水素吸蔵させた後に真空熱処理を行うと、焼結体と同程度の iH_c を有する磁石粉末が得られることが判明した。しかし、これらの磁石粉末を圧力成形して作製した圧粉体の磁気特性では成形圧力の増加によって iH_c が大幅に低下し、実用的なボンド磁石用原料としては充分ではないことを指摘した。組織観察の結果、選択的水素吸蔵崩壊法で作製した磁石粉末表面は焼結体組織の主相粒界部が崩壊して生成した状態であることを確認した。

第4章では、第2章の結果をもとにNd-Fe-B-H系の相状態を調べて水素による磁気的および組織的な変化を追跡し、新規製造法で微細組織制御を行い高保磁力磁石粉末を得る水素化相分解、脱水素再結合処理法 (Hydrogenation-Decomposition-Desorption-Recombination; HDDR 処理法) に関する詳細な研究を行った。 $Nd_2Fe_{14}B$ は 1 atm の水素中600~1000℃の温度範囲で NdH_2 , Fe , Fe_2B の3相に相分解し、1000℃以上ではこれらが $Nd_2Fe_{14}B$ 相に再結合することが明らかとなった。そこで、750~900℃の温度領域において $Nd_2Fe_{14}BH_x$ の水素化による NdH_2 , Fe , Fe_2B への相分解と、その状態から真空中で脱水素を行うことによる $Nd_2Fe_{14}B$ の再生成、という相変態を利用した水素処理 (HDDR 処理) を行うと高保磁力の磁石粉末が得られることを見出した。HDDR 処理法では $Nd_2Fe_{14}B$ 相の化学量論合金組成付近で高い磁石特性が得られること、Nd-Fe-B 3元系合金から得た磁石粉末は磁気的にはほぼ等方性を示すこと等を明らかにした。組織観察の結果、HDDR 処理を行った磁石粉末は再結合した $Nd_2Fe_{14}B$ 相が $0.3\mu m$ 程度に制御された微細組織を有しており、再結合微細結晶粒界部分には層状の粒界相はほとんど存在しないことが判明した。このことから、従来の焼結磁石ならびに超急冷磁石とは異なる保磁力の発現機構の可能性について述べた。HDDR 処理過程の微細組織観察を行い、相分解した NdH_2 が $10^{-1}\mu m$ 程度に微細に分布することを明らかにした。

第5章では、HDDR 処理した磁石粉末における添

加元素による残留磁化と保磁力の向上に着目して異方性磁石粉末を得ることを目的とし、それらの磁気特性と微細組織について検討を行った。Nd-Fe-Co-B 合金に Ga, Zr, Hf, Nb, Ta 元素を適正量添加することにより磁石粉末に磁気的な異方性化が発現すること、および Al, Si, Ga を適正量添加することにより iH_c が増大することを明らかにした。異方性磁石粉末は最適粒度範囲で最大エネルギー積 BH_{max} が最高 43.2MGOe を示し、異方性ボンド磁石としては世界最高レベルの $BH_{max}=20.1MGOe$ が得られることが判明した。微細組織観察の結果、粉末内部に $0.3\mu m$ 程度の微細な $Nd_2(Fe,Co)_{14}B$ 結晶粒の集合組織が存在することを明らかにした。これらの集合組織は、 a , c 軸各結晶方位が同程度に配向した特異な方位関係になっており、磁石粉末の磁気異方性の出現は微細結晶粒の c 軸配向によることを実験的に明らかにした。また、この特異な方位関係の集合組織は HDDR 処理前には一つの結晶であることを提言した。HDDR 処理した異方性磁石粉末の異方性発現機構に関して、相分解前の $Nd_2(Fe,Co)_{14}B$ 相の結晶方位が継承されているとの仮説に立った結晶方位のメモリーサイトの存在を提唱した。

第 6 章では、HDDR 処理した磁石粉末にホットプレスを行うことでバルクの磁石作製を試みた。磁石粉末の磁気特性をほとんど損なうことなくバルクの磁石が得られることが判明した。異方性磁石粉末を用いた場合は BH_{max} が 30MGOe を越える異方性磁石が得られ、ホットプレス温度条件と磁気特性の関係および磁気特性の温度変化を示した。

第 7 章は結論で、本研究を通じて得られた成果を総括した。

論文調査の要旨

希土類磁石の磁気特性は微細組織に強く依存し、作製プロセスにおける熱処理温度および雰囲気によって大きく左右される。近年の最高レベルの磁気特性をもつ Nd-Fe-B 系磁石においても、磁気異方性の付与や保磁力の発現となる微細組織制御をめぐる様々な製造法が開発されてきたが、熱処理雰囲気としての水素の積極的利用についての関心は薄く、また水素雰囲気の微細組織への影響に関する研究は非常に少なかった。

本論文は Nd-Fe-B 系永久磁石作製における材料合金に及ぼす水素の影響を磁気的および組織学的に研究している。特に、HDDR 法と呼ばれる新規製造法を提案し、水素雰囲気中焼結および熱処理によって微細組織制御を試み、永久磁石特性と微細組織の関係を明らかにしたもので、以下の結果を得ている。

1. 水素雰囲気中焼結による磁石の磁気特性と微細組

織を研究している。通常の水素焼結では異方性圧粉体を用いても保磁力の低下した等方性磁石が得られること、焼結過程のみを水素中で行うと、真空焼結に比べて密度が向上し高特性の異方性磁石が得られることを明らかにしている。また、焼結前の異方性圧粉体とは結晶方位の異なる $Nd_2Fe_{14}B$ 相が生成するために磁気特性が等方性に変化すること、およびこの相の異常粒成長が原因で保磁力が低下することを指摘している。

2. 水素圧力を制御して $Nd_2Fe_{14}B$ 相の粒界部を崩壊させる選択的水素吸蔵崩壊法による異方性磁石粉末の作製法を検討している。高保磁力の焼結体に減圧下で水素を吸蔵させた後、真空中で熱処理を行うと焼結体と同程度の保磁力を有する磁石粉末が得られるが、圧力成形によって作製した圧粉体では成形圧力の増加に伴い保磁力が大幅に低下し、実用的ボンド磁石用原料として十分でないことを指摘している。

3. Nd-Fe-B-H 系合金の水素処理による磁気的および組織的变化を調べ、超急冷法、焼結法以外の本磁石材料の新規製造法として水素化相分解・脱水素再結合処理法 (HDDR 法) を提案している。すなわち、750~900°C で $Nd_2Fe_{14}BH_x$ の水素化 (Hydrogenation) による NdH_2 , Fe, Fe_2B の相分解 (Decomposition) と、その状態から真空中で脱水素 (Desorption) を行い再び $Nd_2Fe_{14}B$ 相を生成させる (Recomposition) という相変化を利用した HDDR 処理により高保磁力の磁石粉末を得ることに成功している。HDDR 処理法では $Nd_2Fe_{14}B$ 相の化学量論組成付近で高磁石特性が得られること、Fe に対する Co 置換で磁化が増加することを見出している。HDDR 処理後の磁石粉末は $0.3\mu m$ 程度の再結合 $Nd_2Fe_{14}B$ 相から成り、粒界部には層状の粒界層が存在しないことを電子顕微鏡観察で確認し、従来の Nd-Fe-B 系焼結磁石や超急冷磁石とは異なる保磁力の発現機構の可能性を提示している。

4. HDDR 処理磁石粉末への添加元素の効果に着目し、高特性の異方性磁石粉末の開発に成功している。Nd-Fe-Co-B 合金に Ga, Zr, Hf, Nb, Ta を添加すると磁気的な異方性が発現すること、Al, Si, Ga を添加すると保磁力が増大することを見出している。異方性磁石粉末は最大エネルギー積 BH_{max} が最高 43.2MGOe を示し、異方性ボンド磁石としては世界最高レベルの $BH_{max}=20.1MGOe$ を得ている。再結合した磁石粉末の内部には $0.3\mu m$ 程度の微細な $Nd_2(Fe, Co)_{14}B$ 結晶粒の集合組織が存在し、これらの集合組織は a , c 軸各結晶方位が同程度に配向した特異な方位関係を持つこと、磁気異方性の出現は c 軸配向によることを明らかにするとともに、この特異な集合組織は HDDR 処理前には一つの結晶であることを指摘している。また、異方性の発現機構に関して、

相分解前の $\text{Nd}_2(\text{Fe}, \text{Co})_{14}\text{B}$ 相の結晶方位が継承されているとの仮説にたった結晶方位のメモリーサイト説を提唱している。

5. HDDR 処理した磁石粉末にホットプレスを行い、バルク磁石の作製を試みている。ホットプレスにより磁石粉末の磁気特性を損なうことなくバルク磁石が得られること、異方性磁石粉末を用いると $BH_{\text{max}} = 30\text{MGOe}$ を越える異方性磁石が得られることを示している。

以上要するに、本論文は Nd-Fe-B 系永久磁石材料における永久磁石やボンド磁石用粉末の作製に関して、水素雰囲気中焼結および熱処理に伴う磁石特性と微細組織の関係を明らかにし、新規な水素化相分解・脱水素再結合処理法 (HDDR 法) を提案するとともに、実用化への指針を拓いたもので、金属材料学および磁性材料学上寄与するところが大きい。よって、本論文は博士 (工学) に値するものと認める。

氏名 (本籍) 郡島友紀 (神奈川県)

学位記番号 総理工博乙第251号

学位授与の日附 平成8年9月24日

学位論文題目 液晶の合成と表示素子への応用

論文調査委員

(主査) 九州大学 教授 田代昌士

(副査) 〃 〃 森 章

〃 〃 〃 筒井哲夫

論文内容の要旨

近年、液晶表示素子技術の発展はめざましい。その発展を支える液晶材料の研究の重要性も高まっている。この論文では1971年から著者が取り組んできた4系統の液晶の合成およびそれらの表示素子への応用研究について述べる。

本論文は次の六章から成っている。

第一章は序論であり、本研究の背景、目的及び意義について述べた。

第二章では、低融点でかつ安定な液晶の開発をめざして、従来、ほとんど研究がなされていなかった分子の短軸方向に置換基 (フッ素原子、塩素原子、メチル基) を有する安息香酸フェニルエステルを合成して、液晶としての性質と誘電率異方性に対する置換基の効果を調べて、次の結論を得た。

1. エステルの安息香酸側の2の位置のフッ素原子は液晶温度範囲をあまり狭くしないで、融点を低下させるのに有効であった。

2. 3種の4-アルキルカルボナト-2-フルオロ安息香酸-4-アルコキシフェニルエステルの混合液晶は、室

温域まで広げられ、 -2 から 60°C の広い温度でネマチック液晶相を示した。

3. この3元組成物は室温で5Vでツイステッドネマチック駆動が可能であった。

4. 短軸方向へのフッ素原子の導入効果の知見はその後の液晶開発に応用されている。

第三章では、ヘテロ環ユニットを有する液晶として、ほとんど研究例の無い3種類のピペリジン誘導体液晶を合成して、次の結論を得た。

1. 一種は、対応するシクロヘキサン誘導体と同程度の広いネマチック液晶温度範囲を示し、それらの液晶一等方性転移温度も高いので、表示素子用液晶組成物の高温成分として有用である。

2. 他の一種は、対応するフェニルシクロヘキサン誘導体より大きな誘電率異方性とより高い実質的なネマチック一等方性液体転移温度を示すので、混合液晶の1成分として、表示素子の動作温度を低下させることなく、駆動電圧を低下させるために有用である。

3. 1と2の結論は、窒素原子上の立体的にかさばった置換基はエクアトリアルポジションを占めるので、立体的には、1, 4-ジ置換ピペリジンはトランス-1, 4-ジ置換シクロヘキサンと似通った構造をしており、電気的には、ピペリジン環は電子が豊富な窒素原子の存在のために、シクロヘキサン環よりも極性に富んでいることによって説明出来ると考えられた。

4. ピペリジン環を有する2色性アントラキノン系液晶を合成した。耐光性の優れたアントラキノン系2色性色素としては、初めて見いだされた液晶性を示す化合物であり、そのため、普通の液晶に対する溶解性が高いので、液晶表示モードの1種であるゲスト・ホストモードに有用であると考えられる。この研究で見いだされたピペリジン環導入による、アミノ基を有する芳香族化合物の液晶化技術は、広く、アミノ基を有する機能性化合物の簡単な液晶化技術として応用できよう。

第四章では、表示素子の視野角や動作温度範囲および応答速度を改善するために、1-シクロヘキシル-2-フェニルシクロヘキシルエタン誘導体を合成し、その液晶としての性質すなわち、相転移温度、粘度、誘電率異方性 ($\Delta\epsilon$) と誘電率異方性 (Δn) を測定して、次の結論を得た。

1. 二つのシクロヘキサン環の連結基として、エチレン基 ($-\text{CH}_2\text{CH}_2-$)、オキシメチレン基 ($-\text{CH}_2-$) とエステル基 ($-\text{COO}-$) を選んで、相転移温度と粘度に対する効果を比較した結果、エチレン基を有する化合物はこれら三つの化合物のなかで最も広いネマチック温度範囲を示し、粘度も低いので液晶表示材料として好ましい。

2. シクロヘキシルビフェニル誘導体液晶よりもネマチック液晶温度範囲が広く、芳香環の共役の広がり小さいので、 Δn が小さい。

3. $\Delta\epsilon$ と Δn に対する末端置換基の極性の効果を置換基のハメットの σ_p に対してプロットして考察した結果、置換基の極性が増加するにつれて $\Delta\epsilon$ と Δn は増加する事がわかった。

4. エタン誘導体は広いネマチック液晶温度範囲を示し、粘度も低く、複屈折率も小さいので、車両のクロック・オーデイオメーターの表示素子のような広い動作温度と高速応答性と広い視野角が求められる表示素子の用途に好適であると考えられる。

第五章では、新たな高 $\Delta\epsilon$ 液晶材料として加水分解に耐えるジフルオロシアノベンゼン液晶を設計し、その合成方法を開発して、次の結論を得た。

1. 3, 5-ジフルオロプロモベンゼンを出発原料として、Grignard 反応によるアルキル化と、ベンゼン環の二つのフッ素原子に挟まれた水素原子のリチウム化と、それに引き続くカルボキシル化を主要反応とする新しい合成法を開発して、目的の化合物を合成できた。この新しい合成法は、広く、芳香族フッ素化合物の合成法の開発に寄与したものと考えられる。

2. ジフルオロシアノベンゼン誘導体化合物は非常に大きい誘電率異方性を示し、しかも、既存の大きい誘電率異方性を有する化合物のような加水分解のおそれがない。

3. ジフルオロシアノベンゼン誘導体化合物は、携帯用や車載用液晶表示素子のように、特に、低電圧駆動が求められている用途に適している。

第六章では本研究で得られた成果と液晶表示素子の展望をまとめた。

論文調査の要旨

液晶表示素子技術の発展はめざましく、あらゆる機器に液晶表示素子が備えられているといっても過言ではない。その発展を支える液晶材料の研究の重要性も高まっており、液晶表示素子に適した液晶の開発は最重要課題である。以上の観点から著者は液晶表示素子に应用可能な新しい液晶の開発を目的として、4系統の新しい液晶の合成およびそれらの表示素子への応用について研究し、以下に述べる興味ある知見を得ている。

1. 低融点でかつ安定な液晶の開発をめざして、従来、ほとんど研究がなされていなかった分子の短軸方向に置換基（フッ素原子、塩素原子、メチル基）を有する安息香酸フェニルエステル類を系統的に合成して、液晶としての性質と誘電率異方性に対する置換基の効果を調べた。即ち、エステルの安息香酸側の2の位置の

フッ素原子は液晶温度範囲を狭くしないで、融点を低下させるのに有効であった。本研究で得られた3種の液晶は、 -2°C から 60°C の広い温度でネマチック液晶相を示し、また室温で5Vでツイステッドネマチック駆動が可能であることを明らかにした。短軸方向へのフッ素原子の導入効果の知見は、含フッ素液晶開発に広く寄与した。

2. ヘテロ環ユニットを有する液晶として、ほとんど研究例の無い数種のピペリジン誘導体液晶を合成した。即ち、その中である液晶は、対応するシクロヘキサン誘導体と同程度の広いネマチック液晶温度範囲を示し、それらの液晶一等方性転移温度も高いので、高温成分として有効である。また、他の一種は、対応するフェニルシクロヘキサン誘導体より大きな誘電率異方性とより高い実質的なネマチック一等方性液体転移温度を示すので、表示素子の動作温度を低下させることなく、駆動電圧を低下させるために有用である液晶を見いだした。これらの結果は、窒素原子上の立体的にかさばった置換基はエクアトリアルポジションを占めるので、立体的には、1,4-ジ置換ピペリジンはトランス-1,4-ジ置換シクロヘキサンと似通った構造をしており、電氣的には、ピペリジン環は電子が豊富な窒素原子の存在のために、シクロヘキサン環よりも極性に富んでいることによって説明出来ることを明らかにした。さらに、ピペリジン環を有する2色性アントラキノン系液晶は普通の液晶に対する溶解性が高いので、液晶表示モードの1種であるゲスト・ホストモードに有用であることを示した。

3. 表示素子の視野角や動作温度範囲および応答速度を改善するために、1-シクロヘキシル-2-フェニルシクロヘキシルエタン誘導体を合成し、その液晶としての性質を検討した。即ち、二つのシクロヘキサン環の連結基として、エチレン基 ($-\text{CH}_2\text{CH}_2-$)、オキシメチレン基 ($-\text{CH}_2\text{O}-$) とエステル基 ($-\text{COO}-$) を選んで、相転移温度と粘度に対する効果を比較した結果、エチレン基を有する化合物はこれら三つの化合物のなかで最も広いネマチック温度範囲を示し、粘度も低いので液晶表示材料として好ましいことを明らかにした。エチレン誘導体は広いネマチック液晶温度範囲を示し、粘度も低く、複屈折率も小さいので、車両のクロック・オーデイオメーターの表示素子のような広い動作温度と高速応答性と広い視野角が求められる表示素子の用途に好適であることを明らかにした。

4. 新たな高誘電率異方性液晶材料として、加水分解に耐えるジフルオロシアノベンゼン液晶を設計し、その合成方法を開発した。3,5-ジフルオロプロモベンゼンを出発原料として、Grignard 反応によるアルキル化と、ベンゼン環の二つのフッ素原子に挟まれた水素

原子のリチオ化と、それに引き続くカルボキシル化を主要反応とする新しい合成法を開発して、目的の化合物を合成した。この新しい合成法は、広く、芳香族フッ素化合物の合成法の開発に寄与したものと考えられる。得られた液晶は携帯用や車載用液晶表示素子のように、特に、低電圧駆動が求められている用途に適していることを見いだした。

以上要するに本論文は、新たな液晶を設計し、その合成法を開発し、液晶構造と物性の関連を系統的に明らかにして高性能の液晶表示素子の開発に顕著な成果を挙げたもので、有機工業化学、有機合成化学、物理化学、応用物理学上価値ある業績である。よって、本論文は、博士（工学）の学位論文に値するものと認められる。

氏名(本籍) 杉本尚哉(福岡県)
学位記番号 総理工博甲第222号
学位授与の日附 平成8年9月24日
学位論文題目 マイクロ波レンズを用いた ECR
プラズマ生成に関する研究

論文調査委員

(主査) 九州大学 教授 河合良信
(副査) 〃 〃 伊藤智之
〃 〃 村岡克紀

論文内容の要旨

物質を構成する原子・分子が電離してイオンと電子に分離した状態にあるプラズマは、全体としては電気的に準中性で、多様な集団現象を起こす高温電離気体である。このように物質の特殊な状態であるプラズマの特性を応用するものとして、制御熱核融合、プラズマプロセッシング、MHD 発電、気体レーザー、イオンビーム源等が挙げられる。中でも、プラズマ CVD 法やプラズマエッチング等のプラズマプロセッシングは、常温程度の低温では進行しない化学反応を、プラズマを用いて高温下あるいは電界下での粒子の活性化作用により促進させて利用するものであり、半導体産業の分野で注目されている。

しかし、このような材料プロセスの分野においては、プロセスの高速化、超微細化、大面積化等が重要な課題となっている。これらの問題を解決するためには、低ガス圧力 (10^{-4} Torr $\sim 10^{-2}$ Torr) で高密度 (電子密度 $10^{11}\sim 10^{12}$ cm $^{-3}$)、低電子温度 (電子温度 $1\sim 10$ eV) のプラズマを、大口径で一様な分布で生成する必要がある。その代表的なもの1つが、電子サイクロトロン共鳴 (ECR) プラズマである。ECRプラズマ生成では、磁場中において真空容器内に入射されたマイクロ

波は、電子サイクロトロン波 (ECW) を励起する。ECW は磁力線に沿って伝播する右回り円偏向の電磁波で、ECR により電子を加速し、プラズマを生成する。このように ECR プラズマ生成では電子と電磁場との共鳴を利用するので、効率よく選択的に電子にエネルギーを注入することが可能で、その結果低圧力で比較的電子温度が高いプラズマを生成することができる。

ECR プラズマ生成では、マイクロ波は通常、マイクロ波源から真空容器の近くまで導波管により矩形 TE $_{11}$ モードで伝送され、真空容器内へ放射されるが、真空容器への導入の仕方についてはいくつかの方法がある。矩形導波管で伝送されてきたマイクロ波を円形 TE $_{11}$ モードに変え、テーパ導波管を通して導入するのもその1つである。しかし、円形 TE $_{11}$ モードでのマイクロ波の放射分布は非一様で、中心が最大となる山形の分布をしており、これが生成されるプラズマの径方向密度分布を非一様にしている原因の1つと考えられる。また、生成されるプラズマの径方向密度分布が中心部で高い分布となると、プラズマが ECW に対して凸レンズの効果を及ぼす。これらの理由から、テーパ導波管を用いた円形 TE $_{11}$ モードのマイクロ波入射による ECR プラズマ生成では、マイクロ波の径方向放射分布を拡げて一様にする必要がある。

本研究では、マイクロ波入射口前面にマイクロ波凹レンズを置き、テーパ導波管から放射されるマイクロ波の径方向分布を変化させ、ECR プラズマを一様化することを目的とする。以下に、各章の概要を示す。

第1章の緒言においては、プラズマプロセッシング用プラズマ源の現状を簡単にまとめ、本研究の意義を述べる。

第2章では、テーパ導波管とマイクロ波凹レンズについて述べる。円形 TE $_{11}$ モードで放射されるマイクロ波の径方向放射分布を拡大し ECR プラズマを一様化する目的としてマイクロ波凹レンズを製作し、それを基に直径42cmの大面積開口面を持つテーパ導波管を製作した。これらを用いて、大気中でテーパ導波管から放射されるマイクロ波の径方向放射分布を測定し、マイクロ波凹レンズにより径方向放射分布の半値幅は約1.2倍に拡大されることを確認した。

第3章では、マイクロ波凹レンズを用いた ECR プラズマの一様化について述べる。プラズマ生成を行った場合のマイクロ波の径方向放射分布の測定においても、マイクロ波凹レンズを使用した場合に径方向放射分布が拡大されることを確認した。入射マイクロ波パワー 3 kW 以上、アルゴンガス圧力 1×10^{-3} Torr 以上の時、マイクロ波凹レンズにより径方向放射分布の半値幅は約17cm から約23cm へと約1.4倍に拡大される。生成されたプラズマ中を伝播している波動を、干渉法

を用いて測定し分散特性を調べた結果、マイクロ波凹レンズの有無に関わらずプラズマ中には波長が約 5 cm の ECW が励起されていることがわかった。励起された ECW は共鳴点に到達する前に減衰するが、マイクロ波凹レンズを使用した場合の方が減衰率は大きい。これは、磁場の非一様性と電子温度の違いが原因であると考えられる。生成されたプラズマのイオン飽和電流の径方向分布は、直径約 20cm にわたってはほぼ一様である。入射マイクロ波パワー 3 kW、アルゴンガス圧力 1×10^{-3} Torr の場合、一様性はレンズが無い場合が $\pm 6\%$ 、レンズを使用した場合 $\pm 4\%$ であり、現在必要とされるプラズマ応用のためのプラズマ源として使用可能な値である。また、マイクロ波凹レンズにより、アルゴンガス圧力が低い場合には電子温度が上昇し、 1×10^{-3} Torr、入射マイクロ波パワー 5 kW の時、5eV から 12eV へと約 70% 上昇した。一方、さらにアルゴンガス圧力が高い場合には電子密度が上がり、 1×10^{-2} Torr、入射マイクロ波パワー 5 kW で、 $4.5 \times 10^{12} \text{cm}^{-3}$ から $6.0 \times 10^{12} \text{cm}^{-3}$ へと約 30% 増加した。このため、マイクロ波凹レンズを使用するとイオン飽和電流値が増加する。生成されたプラズマは、応用プラズマ源として十分な高密度プラズマである。

第 4 章では、生成されたプラズマのイオン飽和電流の分布への ECW の寄与について述べる。中心軸上以外でも ECW の干渉波形を測定し、プラズマ中を伝播している ECW の波面を合成した。ECW は中央部では平面波状が球面波状に伝播しているが、プラズマ周辺部の真空容器壁の近くでは伝播していくにつれて外向きから内向きへ伝播方向が変化している。また、中心軸上以外でもイオン飽和電流の軸方向分布を測定した結果、周辺部に発生するイオン飽和電流値の大きな領域では、マイクロ波入射口から約 40cm から約 60cm の間でイオン飽和電流値が急増していることがわかった。このようにイオン飽和電流値がマイクロ波入射口から離れた下流周辺部で高くなるのは、中央部と周辺部で ECW が伝播する向きが逆であるため、波動のエネルギーが集中する領域が現れるためであると考えられる。

最後に第 5 章において各章の結論をまとめ、今後の課題を述べる。

論文調査の要旨

電子サイクロトロン共鳴 (ECR) を利用して生成される ECR プラズマは、低圧力にもかかわらずプラズマ密度が高いため、プロセッシングプラズマとして期待されている。通常 ECR プラズマは、マイクロ波 (周波数 2.45GHz) の電場強度が導波管の中心軸上で最大となる基本モード (円筒導波管では TE_{11}) により

生成されているのでプラズマ密度が中心で高い分布となる。プロセッシングプラズマでは一様プラズマが求められるので、ECR プラズマではその一様化が最大の課題となっている。現在、ウエーハ径は 6 インチが主流であるが、将来的には 8 インチ又はそれ以上に移行すると予測されており、ウエーハの大口径化に対応出来る ECR プラズマの生成が要望されている。

本研究は、マイクロ波凹レンズを用いてマイクロ波の電場強度を径方向に広げることにより ECR プラズマの一様化を図ったもので、以下の成果を得ている。

(1) マイクロ波径方向放射分布を拡大するために直径 420mm のテフロン製マイクロ波凹レンズを製作し、大気中のマイクロ波放射実験を行い、径方向放射分布が凹レンズを用いない場合に比べて約 1.2 倍拡大されることを確認している。

(2) マイクロ波凹レンズを設置して ECR プラズマ生成を行った場合の径方向放射分布は、マイクロ波パワー 3kW、アルゴンガス圧力 1mTorr で径方向に凹レンズを用いない場合に比して約 1.4 倍に拡大されることを見出している。

(3) プラズマ中に励起された電磁波の分散関係を干渉法により測定することにより、マイクロ波凹レンズの有無にかかわらず電子サイクロトロン波が励起され、共鳴点に到達する前に減衰することを明らかにしている。

(4) 生成されるプラズマのイオン飽和電流値及びプラズマ密度の径方向分布をラングミュアプローブにより測定し、マイクロ波凹レンズを使用した場合マイクロ波パワー 3kW、アルゴンガス圧力 1mTorr で直径 200mm のイオン飽和電流値の変動率 $\pm 4\%$ を得ており、直径 8 インチのウエーハに十分対応できる一様プラズマの生成に成功している。

(5) マイクロ波凹レンズのプラズマパラメータ値への効果をガス圧力が (0.1-40) mTorr の領域で詳しく調べている。マイクロ波凹レンズの使用により、ガス圧力が低い場合には電子温度が上昇する、一方、ガス圧力が高い場合には電子温度はほぼ一定であるが電子密度が高くなることを観測している。具体的には、(i) ガス圧力 1mTorr、マイクロ波パワー 5kW で電子温度が凹レンズを使用しない場合と比べて 70% 上昇する、(ii) ガス圧力 10mTorr、マイクロ波パワー 5kW で電子密度が凹レンズを使用しない場合と比べて 30% 高くなる、(iii) この結果、マイクロ波凹レンズを使用するとイオン飽和電流値が増大し、プラズマプロセスの高速化が期待出来る、ことを指摘している。

(6) 中心軸以外での電子サイクロトロン波の伝播波形を干渉法により測定し、波面から求めた伝播方向とイオン飽和電流の径方向分布との関連を考察している。

この結果、中心と周辺で電子サイクロトロン波の伝播方向が逆になり、波動エネルギーが集中する領域が現れることを明らかにするとともに、実験で観測される周辺部でのイオン飽和電流の増大を説明している。

以上要するに、本研究はマイクロ波凹レンズの使用により ECR プラズマの様に大きな貢献をしたと評価され、プラズマ工学に寄与する所が大きい。よって本論文は博士（理学）に値すると認められる。

氏名(本籍) 庄山裕章(福岡県)
 学位記番号 総理工博甲第221号
 学位授与の日附 平成8年9月24日
 学位論文題目 非一様磁場に捕捉された電子の電子サイクロトロン波による統計的加速に関する研究
 論文調査委員
 (主査) 九州大学 教授 河合良信
 (副査) 〃 〃 伊藤智之
 〃 〃 〃 村岡克紀

論文内容の要旨

決定論的力学系に先験的にストカスティシティー(stochasticity)を導入することによって、現象の統計的記述をすることが広く行われているが、先験的ストカスティシティーの仮定の正当化はボルツマンが統計力学を建設して以来の重要な問題である。最近、ある条件下では決定論的力学系自身に起因したストカスティシティーによってその系が統計的挙動を示すということが理解されるようになった。特に、電磁場と荷電粒子から構成される力学系を扱うプラズマ物理学においては、この決定論的力学系自身が示すストカスティック(stochastic)な挙動の解明は、宇宙線の発生機構、プラズマの波動による統計加熱(stochastic heating)、トーラス磁場閉じ込めプラズマの磁気面の構造などに関連した重要な課題である。

非一様磁場中での電子サイクロトロン共鳴加熱(ECRH)実験でみられる高速電子群発生に対して、統計加熱の機構を適用する理論的研究がこれまでに数多くなされた。これらの研究は2つの方法に分類される。一つの方法は、運動方程式を積分することにより、勾配を持つ静磁場の電子サイクロトロン共鳴領域を電子が一回通過するときの電子のエネルギーの変化量を電子のサイクロトロン運動の初期位相と最終位相に依存する形で評価する。そして、この電子のエネルギーの変化量を位相平均し、電子のエネルギー増加の平均値を得る。もう一つの方法は、正準形式の摂動論に基づいている。この方法は、ある場合に位相空間の高エ

ネルギー領域に断熱不変量が存在することを示す。この断熱不変量は、電子が到達可能なエネルギーの上限を与える。後者の方法は、問題としている力学系の位相空間の大域的構造を直接把握するので、乱雑位相近似の適用限界を示すことが可能であり、前者より優れている。しかし、これらの理論が適用された実験は、多重モードキャビティーを含んでいたため、多数の波動が混在している複雑な物理系を構成していた。従って、現実の物理系から見ればいずれの理論もかなり単純化されており、統計加熱機構におけるストカスティシティーの起源が決定論的なのか否かの検証はこの実験では困難であると考えられる。

マイクロ波を静磁場に平行に入射することにより電子サイクロトロン共鳴(ECR)によって生成される高密度プラズマは、系内に存在する波動が電子サイクロトロン波のみであり、決定論的ストカスティック加速機構の検証に適していると期待される。本研究は、電子サイクロトロン波による非一様磁場に捕捉された電子の加速現象を実験対象として、決定論的ストカスティック加速機構の検証を目的としている。以下に各章の概要を示す。

第1章の序論においては、決定論的ストカスティシティーの重要性とこの観点によるプラズマ粒子の加速の研究の現在に至る進展を要約し、本研究の意義を述べる。

第2章では、直接型装置を用いて、2.45GHzのマイクロ波による電子サイクロトロン波プラズマの生成及び高速電子群発生現象の特性について実験的に調べた結果を述べる。マイクロ波を静磁場に平行に入射してプラズマを生成し、(1)プラズマ中にサイクロトロン波の単一モードが励起されていること、(2)バルクプラズマの電子密度と電子温度及び電子サイクロトロン波の伝搬形態は静磁場に弱い非一様性を付加してもほとんど変化しないこと、を確認した。さらに、静磁場に弱い非一様性を付加することにより、プラズマ電子の一部が電子サイクロトロン波によって高エネルギーに加速され、数10keVのエネルギー領域に及ぶ高速電子群が発生するのを観測した。

第3章では、高速電子群の発生機構を、与えられた電磁場中を運動する電子の1粒子問題として説明するためのモデルを構築し、その性質を調べた。電子の運動方程式を簡略化して常微分方程式系モデル(保存系)を導出し、その位相空間の断面を数値積分によって求め、位相空間があるエネルギーを境(断熱バリア)に低エネルギー側の粒子の運動がストカスティックな領域と高エネルギー側の断熱的な領域に分離していることを示した。この常微分方程式モデルをミラー捕捉によるバウンス周期で離散化して離散写像モデル

を導出し、この離散写像モデルが元の常微分方程式モデルを良く近似していることを確認した。また、波動の振幅が小さい場合に常微分方程式系モデルはフェルミ写像で近似されることを示し、このフェルミ写像より得られるストカスティシティーの条件から、断熱バリアの電磁波と静磁場のパラメーターに対する依存性を導いた。離散写像を用いて得た電子の運動は拡散的であるが、タイムステップがエネルギーに依存するバウンス周期であることから、そのエネルギー分布関数から求めた温度は時間の3/4乗に比例することがわかった。実験で得られた高速電子群の温度のミラー比依存性は、この結果によって説明できることがわかった。

第4章では、高速電子群の発生機構が捕捉電子と電子サイクロトロン波の相互作用であるという観点から、実験パラメーターに対する高速電子群発生現象の依存性を調べた結果を述べる。ミラー捕捉領域の静磁場を形状を変えずに、全体の磁場強度を変化させる実験を行った結果、高速電子群が効率よく生成される領域は、捕捉領域の磁場強度の最小値での ω/ω_{ce} (ω , ω_{ce} はそれぞれマイクロ波の周波数と電子サイクロトロン周波数) が1より小さい領域に広がりを持つことがわかった。また、 ω/ω_{ce} が減少するのに伴い、高速電子群の温度が上昇する傾向がみられた。これらの結果は Fermi 写像による断熱バリアのエネルギーが $\omega_{ce}(\min) - \omega$ ($\omega_{ce}(\min)$ は静磁場が最小値をとるときの ω_{ce}) に比例するという予測と定性的に一致する。入射マイクロ波のパワーを変化させる実験を行い、X線の計数のエネルギースペクトルのデータ点の最も高いエネルギーは、入射マイクロ波のパワーの1/2乗に比例することがわかった。この依存性も断熱バリアの依存性と一致する。また、ミラー捕捉領域の静磁場の平坦部の長さを変えて実験を行った結果、高速電子群の生成はミラー捕捉領域の静磁場の平坦部の長さには依存しないことがわかった。

最後に第5章において各章の結論をまとめ、今後の課題を述べる。

論文調査の要旨

最近の非線形力学の発展により決定論的力学系にもかわらずそれ自身に起因したストカスティシティーによってその系の集団が統計的挙動を示すことが理解されるようになった。プラズマ物理学では、磁気ミラー中の電子サイクロトロン共鳴加熱 (ECRH) 実験で観測される高速電子の発生に対して統計加熱の機構を適用する先駆的な理論研究がなされ、非線形力学の発展に貢献してきた。しかし、これまでの実験は多重モードキャビティを含んでいたため多数の波動が混在している複雑な系を構成しており、理論との単純な比

較には問題が多く、統計加熱機構におけるストカスティシティーの起源が決定論的なものであるか否かの検証は困難であった。

本研究は、マイクロ波を磁場に平行に入射して電子サイクロトロン共鳴によって生成される高密度プラズマでは系内に存在する波動が電子サイクロトロン波のみであることに着目し、電子サイクロトロン波による電子の決定論的ストカスティック加速機構の実験的検証を試みたもので、以下の成果を得ている。

(1) マイクロ波 (周波数 2.45GHz) を磁場に平行に入射することにより高密度の電子サイクロトロン共鳴プラズマ (ECR プラズマ) を生成し、プラズマ中に電子サイクロトロン波のみが存在する系を実現している。さらに、ミラー比が最大1.1の弱い非一様磁場を付加しても電子サイクロトロン波の伝播特性は変わらないことを電磁波の伝播測定により確認している。

(2) 磁場に弱い非一様性を付加すると数十 keV に及ぶエネルギーを持つ高速電子が発生し、高速電子はプラズマの中心軸付近に局在していることを観測している。

(3) ミラー捕捉領域の磁場形状を変えずに全体の磁場強度を変化させる実験を行い、高速電子が効率よく生成される領域を調べている。高速電子の密度はミラー捕捉領域の磁場強度の最小値での ω/ω_{ce} (ω と ω_{ce} はそれぞれマイクロ波の振動数と電子サイクロトロン振動数) が0.94と1の間の領域で高く、磁場に垂直にマイクロ波を入射する ECRH 実験で観測された $\omega/\omega_{ce} = 1$ を中心に高速電子が生成された結果と対照的であることを指摘している。

(4) ω/ω_{ce} が減少するのに伴って高速電子の温度が上昇することを観測している。この結果は、電子の運動方程式より導かれる常微分方程式系モデルをミラー捕捉によるバウンス周期で離散化することにより得られた離散写像モデルによる断熱バリアエネルギーが $(\omega_{ce} - \omega)$ に比例するという理論的予測と定性的に一致することを示している。

(5) X線計数 (計測時間幅15秒) のエネルギースペクトルから得られる最も高いエネルギーの光子のデータ点 (断熱バリアの下限に相当する) は入射マイクロ波パワーの1/2乗に比例することを観測している。この依存性は、フェルミ写像から導かれる断熱バリアエネルギーの電子サイクロトロン波の電場強度依存性と一致することを明らかにしている。

(6) X線計測より得られた高速電子の温度はミラー比 R_m に対して $(\log R_m)^{3/4}$ に比例して上昇することを見出している。一方、離散写像理論より得られる高速電子の温度は時間の3/4乗に比例して上昇することを導いている。磁気ミラーに捕捉された捕捉電子が捕

捉されている時間は $\log Rm$ に比例するので、この理論結果は高速電子の温度の磁気ミラー比依存性を良く説明している。

(7) 以上の結果から、電子サイクロトロン波プラズマ中に磁場に非一様性が存在する場合に発生する高速電子の加速機構は決定論的のストカスティシティーによるものであることを結論している。

以上要するに、本研究は電子サイクロトロン波による非一様磁場に捕捉された電子の統計的加速機構の解明に大きな貢献をしたと評価され、プラズマ物理学に寄与する所が大きい。よって、本論文は博士(理学)に値すると認められている。

氏名(本籍) 加藤由紀(神奈川県)
 学位記番号 総理工博甲第223号
 学位授与の日附 平成8年9月24日
 学位論文題目 表面張力重力波の定常進行波解の安定性

論文調査委員

(主査) 九州大学 教授 及川正行
 (副査) 〃 〃 本地弘之
 〃 〃 〃 増田章

論文内容の要旨

2次元的な表面張力重力波においては、無次元表面張力係数 $\gamma = Tk^2/\rho g$ が $1/N$ に近いときに、基本波とその N 倍高調波との間に共鳴が起こることが知られている。ここで、 T は表面張力係数、 ρ は流体の密度、 g は重力加速度、そして k は基本波の波数である。以下では、基本波の波数を1とする。 γ が $1/N$ に近い場合には高調波共鳴が起こるために、ストークス展開では表せないような定常進行波解が存在する。ここでは、「定常」という用語を形を変えないという意味で使っている。このような定常進行波解については、解析的或は数値的な多くの研究があり、解が複雑な分岐をすることが明らかになってきている。ところが、このような解の安定性は、ほとんど調べられていない。共鳴が起こっているような定常進行波解について、その安定性を調べるのが本研究の目的である。本研究は主に二つの部分からなる。前半部では、 $\gamma = 1/20 \sim 1/5$ の範囲で、基本波と N 倍高調波との間に弱い共鳴が存在する場合の定常進行波解に擾乱を加え、その時間発展を調べた。後半部では、 $\gamma = 1/4$ の近傍で、主に基本波と4倍高調波との間に強い共鳴が存在する場合の線形安定性を調べた。

本論文は、これらの結果をまとめたものであり、全5章からなる。

第1章では、表面張力重力波の定常進行波解についてのこれまでの研究を概観し、本研究の目的を述べた。

第2章では、 $\gamma = 1/20 \sim 1/5$ の範囲での、定常進行波解に擾乱を加えた場合の時間発展について調べた結果を述べた。調べた解は、 $1/\gamma$ 程度の高調波成分がやや大きいような、弱い共鳴解である。加えた擾乱は、側帯波擾乱と高調波擾乱の2種類である。高調波擾乱としては2倍高調波と3倍高調波を用いた。いずれの擾乱を加えた場合でも、定常進行波解の振幅と γ の値がある範囲にあれば、定常進行波の周期で数周期程度の時間内に、基本波の上にさざなみが発生することがわかった。さざなみは、波列の中の一番振幅が大きい波の上に最初に発生すること、その発生地点はその波の頂点より前方の、水面の勾配が一番大きい点であることがわかった。さらに、水面の勾配の空間変化からさざなみの波数を評価した結果、さざなみは波数が $1/\gamma$ 近傍の波からなることがわかった。これらのことは、過去の実験結果と定性的に一致している。

第3章では、 $\gamma = 1/4$ の近傍での、弱非線形近似に基づく解の2次元的な長波長擾乱に対する線形安定性について述べた。まず、 $\gamma = 1/4$ 近傍で基本波はその4倍高調波の振幅のゆっくりとした時間的及び空間的な変化を記述する弱非線形近似の方程式系を導出した。その方程式系は、基本波の振幅を $O(\epsilon)$ としたとき、 $O(\epsilon^4)$ まで考慮した近似方程式系である。この方程式系を用いて、弱非線形の定常進行波解を求め、2次元的な長波長擾乱に対する安定性を調べた。 $O(\epsilon^3)$ までの近似方程式を使うと、波数が4の近傍の擾乱が成長することがわかった。これは、共鳴がない場合の波数4の波に対する変調不安定と本質的に同じものである。さらに、 $O(\epsilon^4)$ までの近似方程式を使って、波数4の波に対する変調不安定とは異なる、新しい不安定を2つ見出した。

第4章では、 $\gamma = 1/4$ の近傍での、弱非線形近似をしない完全な水の波の方程式系の解の線形安定性について述べた。まず、完全な水の波の方程式系の定常進行波解を境界積分法によって数値的に求め、第3章で求めた弱非線形近似解と比較した。 γ が $1/4$ に十分近くて、かつ、波数1の波の振幅が小さい場合は、両者はよい一致を示した。次に、この解の安定性を数値的に調べた。2次元的な擾乱に対する安定性を調べた結果、第3章で見出された不安定が、各々、波数1だけを含む4波共鳴と波数1と4の波を含む4波共鳴に起因した不安定であることがわかった。3次元的な擾乱に対する安定性を調べた結果、波数1と4の波に関連した共鳴曲線を中心として不安定領域が広がることがわかった。今回調べた範囲の解においては、波数4を含む3波共鳴による不安定が最大の成長率を持つことがわ

かった。さらに、擾乱の波数平面においてはどんな2種類の不安定領域も重なることはなく、多くの場合、2種類の不安定領域はつなぎかわるということがわかった。不安定領域のつなぎかわりは、過去の研究では見出されなかった現象である。

第5章では、以上の結果を総括した。

論文調査の要旨

波長の短い水の波においては、表面張力が重力に対して無視できなくなるが、波長の短くない波においても、振幅が大きくなるにつれ、波の頂点の曲率が増すため、局所的に表面張力の効果が大きくなる。したがって、水の波の発展における素過程、特にさざなみの発生のような現象を明らかにするためには、表面張力と重力の両方を考慮した扱いが必要になる。表面張力と重力の両方を考慮すると、無次元表面張力係数 $\gamma = Tk_0^2 / (g\rho)$ (T は表面張力係数、 ρ は流体の密度、 g は重力加速度、 k_0 は基本波の波数) の値に応じて、様々な共鳴が起こる。特に、 $1/\gamma$ が整数 N に近い場合には、高調波共鳴のために N 倍の高調波が基本波と同程度の大きさをもつような定常進行波解が存在する。従来からよく調べられてきた重力波に比べると、表面張力重力波の場合は定常進行波解自体が複雑であるために、その振る舞いについてはまだよくわかっていない点が多い。特に、応用上重要となるような、 γ の値が小さい共鳴定常進行波解については、時間発展はもとより線形安定性さえ、ほとんど解明されていないのが現状である。

このような観点から、本論文は、2次元的な深水表面張力重力波の共鳴定常進行波解の安定性を、非粘性の仮定の下で、解析的な近似法及び厳密な方程式に基づく数値計算を用いて調べた結果をまとめたものである。

本論文では、まず、 $\gamma = 1/20 \sim 1/5$ の範囲で、共鳴の弱い定常進行波解に擾乱を加えた場合の時間発展を、厳密な方程式を数値計算することによって調べ、 γ あるいは振幅のどちらかが大きい場合には、共鳴の弱い定常進行波解が、側帯波擾乱及び高調波擾乱に対して、不安定であることを明らかにしている。さらに、この不安定の結果、定常進行波の頂点の前面の、勾配の最も急な点からさざなみが発生し、このさざなみの波数は共鳴高調波の波数に近いことが明らかにされている。

つぎに、 $\gamma = 1/4$ 近傍で、弱非線形の仮定の下に近似方程式系を導出し、これを用いて、主に共鳴の強い定常進行波解の2次元的な長波長擾乱に対する線形安

定性を解析的に調べ、以下の成果を得ている。

(1) 基本波と共鳴高調波が同程度の大きさをもつ場合、及び、基本波に比べ共鳴高調波のオーダーが小さい場合について、振幅が時間的、空間的にゆっくり変化するという仮定下に、基本波と共鳴高調波の複素振幅の時間空間発展を記述する近似方程式系をそれぞれ導出してしている。

(2) 近似方程式系の解のうち定常進行波解に相当するものが、従来知られていた定常進行波解と一致することを明らかにしている。その際、従来知られていた定常進行波解はみな頂点に関する対称性を仮定した解であったが、十分な高次近似の下では、定常進行波解の波形はおのずと頂点に関して対称になることを発見している。

(3) 基本波と共鳴高調波が同程度の大きさであるような定常進行波解は、すべて不安定であり、解の種類に応じて、3種類の不安定が起こるを見出し、そのうち、1種類の不安定については、これが、共鳴がない場合の変調不安定と本質的に同じものであることを明らかにしている。

さらに、 $\gamma = 1/4$ 近傍で、厳密な方程式を数値計算することによって共鳴の強い定常進行波解を求め、その解の3次元的な擾乱にたいする線形安定性を数値的に調べ、以下の成果を得ている。

(4) γ が $1/4$ に近く、かつ、波の振幅が小さい場合には、上述の近似方程式系による解が良い近似解になっていることを明らかにしている。さらに、近似方程式系による解析で見出された2種類の新しい不安定が、それぞれ、基本波のみを含む4波共鳴と、基本波と共鳴高調波の両方を含む4波共鳴に起因する不安定であることを明らかにしている。

(5) 本論文で調べた範囲の定常進行波解はすべて3次元的な擾乱にたいして不安定であり、基本波と共鳴高調波を含むような3波共鳴、4波共鳴、5波共鳴の共鳴曲線を中心として、不安定領域が広がることを明らかにしている。その際、異なる種類の不安定領域は、擾乱の波数平面において重なることはなく、多くの場合つなぎかわることを見出している。

以上要するに、本論文は、表面張力重力波の共鳴定常進行波解の安定性を調べることによって、さざなみの発生機構や定常進行波解の不安定の機構などに関して多くの重要な知見を得ており、これらの成果は流体力学上寄与するところが大きい。よって本論文は博士(理学)の学位論文に値するものと認められる。