

解説

クーロン結晶と強結合プラズマ

林 康 明

(京都工芸繊維大学工学学部)

橋 邦 英

(京都大学工学部)

(1995年11月8日受理)

Coulomb Crystal and Strongly Coupled Plasma

HAYASHI Yasuaki and TACHIBANA Kunihide*

*Faculty of Engineering and Design, Kyoto Institute of Technology, Kyoto 606, Japan***Faculty of Engineering, Kyoto University, Kyoto 606, Japan*

(Received 10 November 1995)

Abstract

A plasma containing fine particles is strongly coupled and easily forms a Coulomb crystal. In this report, the liquid-to-solid phase transition in a strongly coupled plasma is described, and the transition in a fine particle plasma and the structures of Coulomb crystals are discussed.

Keywords:

Coulomb crystal, strongly coupled plasma, phase transition, dusty plasma, fine particles, processing plasma, space plasma, contamination, Mie scattering

1. はじめに

プラズマ中の荷電粒子の間にはクーロンの相互作用が働くが、同種粒子間のクーロン相互作用が大きく、クーロンポテンシャルエネルギーが熱運動エネルギーを上回ると、通常の放電プラズマ(弱結合プラズマ)とは異なった性質を示すことになる。こうしたプラズマは、強結合プラズマあるいはクーロン液体と呼ばれる。クーロン相互作用がさらに大きくなると、プラズマはクーロン結晶(またはクーロン固体、クーロン格子)に変化する。クーロン結晶とは、同種荷電粒子相互のクーロン力が全体で釣り合った結果、原子からなる結晶のように整然と並んで静止した状態を言う。電子と正イオンからなるプラズマ中でクーロン結晶が形成されるには、古典統計にしたがう場合、正イオンの電荷量では $+e$ 、温度を 10^6K とすると、プラズマ密度として 10^{32}cm^{-3} 以上が必要とさ

れる。これほどの密度は、低温プラズマ中はおろか、核融合プラズマや太陽の内部でも得ることができない。

しかし、微粒子を含んだプラズマ(微粒子プラズマ)中ならば、低温プラズマであってもクーロン結晶を形成することが容易であることが理論的に示された[1]。プラズマ中で微粒子は大きく負に帯電し、その間のクーロン相互作用によって結晶化が起きるわけである。実験的にこれを実現したのは最近のことで、世界の3カ所(日本、台湾、ドイツ)でそれぞれ独立して成功し、1994年に発表された[2-4]。クーロン結晶は、強結合プラズマの現象を調べる上で役立つが、それだけでなく、マクロな結晶モデルとなることから、結晶の相転移や振動、欠陥などの固体物理学的諸現象を調べる上で非常に良い研究対象ともなり得る。

本稿では、微粒子プラズマからなるクーロン結晶の形

成や特性について、私達の最近の研究を中心に概説する。クーロン結晶が実現されてから日が浅いため、まだ十分に理解されていない部分もあるが、ご了解願いたい。

2. 強結合プラズマ

はじめに、電子と正イオンのみからなるプラズマの系について考えてみる。正イオンの周りには電子が取り巻き、デバイ長程度の距離の範囲内で正の空間電荷を中和している。ここで、デバイ長を無限に大きくした極限で、空間的に一様な中和電荷の背景の中に、正イオンのみが存在しているとする理想化モデルを考える。これを一成分プラズマ (one component plasma) と呼ぶ[5]。この一成分プラズマ中で、正イオンどうしのクーロン相互作用が顕著になった場合は、通常のプラズマとは異なった性質を示すことになる。次の式で定義されるクーロン結合係数 (Coulomb coupling parameter) Γ がその目安を与える。

$$\Gamma = \frac{[\text{平均クーロンポテンシャルエネルギー}]}{[\text{熱運動エネルギー}]} \quad (1)$$

すなわち、 Γ が 1 より大きくなれば正イオン間のクーロン相互作用がプラズマに大きく影響を与えるわけである。1章でも述べたように、このようなプラズマを強結合プラズマと言ひ、 Γ が 1 より十分小さければ弱結合プラズマと呼ばれる。一成分プラズマ中では、弱結合プラズマはいわば気体の状態であり、強結合プラズマは液体の状態の性質を示す。したがって、強結合プラズマはクーロン液体と呼ばれる場合がある。さらに、クーロン相互作用が大きくなると、固体の状態に転移することも可能である。モンテ・カルロ法による計算機シミュレーションの結果では、 Γ が約 170 を越えればクーロン固体となることが示されている[6]。

クーロン液体やクーロン固体の強結合クーロン系の概念は、こうした電子と正イオンのみからなるプラズマの他に、イオントラップ中でレーザー冷却されたイオン[7]や荷電コロイド溶液[8]にも適用でき、実際に結晶状態が実現されている。

一方、微粒子を含んだプラズマ中では、電子とイオンの移動度の違いから微粒子は負に帯電する。したがって、微粒子プラズマ中では、電子や正イオンのほか、負帯電した微粒子が存在する。この微粒子の周りに正イオンが取り巻き、微粒子の負の電荷を遮蔽する。しかし微粒子の帯電量が極めて大きいため、微粒子間のクーロン相互作用やクーロン結合係数 Γ も大きくなり得る。微粒子の電荷量を $-Q$ とすると、電荷の遮蔽効果を考慮した

ときのクーロン結合係数は次の式で表される。

$$\Gamma = \frac{Q^2 e^{-a/\lambda_D}}{4\pi\epsilon_0 a e k_B T} \quad (2)$$

ここで、 λ_D はデバイ長、 ϵ_0 は真空の誘電率、 k_B はボルツマン定数、 T は微粒子の絶対温度を示す。また、 a はウィグナー-ザイツ半径で、微粒子の密度を N とすると $[3/(4\pi N)]^{1/3}$ となる。低温プラズマ中でも、粒径が $1\mu\text{m}$ 程度以上の微粒子では、電荷量の絶対値は容易に $10^3 e$ (e は素電荷) を越える。そこで例えば、 $Q = 3 \times 10^3 e$ 、 $\lambda_D = 50\mu\text{m}$ 、 $T = 400\text{K}$ 、 $N = 10^5\text{cm}^{-3}$ の値を(2)式に代入すると、 $\Gamma = 194$ となり、クーロン結晶が形成される可能性があることがわかる。プラズマ中の微粒子によるクーロン結晶は、結合力の広範囲な制御が可能であり、格子定数が $100\mu\text{m}$ 以上と巨視的であることから、固体の諸現象を研究する上での良いモデルとなる。

3. 液体-固体間相転移現象

液体-固体間の相転移現象について、これまでいろいろな方法で研究が進められてきた。実験的には、様々な結晶モデルを用いた研究がなされてきた。しかし、これらは 2 次元の系であったり、結合力が弱いなどの問題があった。一方、計算機シミュレーションによる相転移現象に関する研究も進んでいる。1960 年前後より、剛体球からなる 3 次元の系における粒子の運動についてシミュレーションが行われ、状態方程式における体積と圧力の関係において、固体相、液体相、固体-液体共存状態に分かれることが見いだされた (Fig. 1) [9]。この場合、周期的境界条件を用いて箱の中の粒子の数を一定とし、その体積の変化によって相転移が生じる。こうした結果は、結晶化が起きるためには、構成要素間で斥力ポテンシャルがあれば十分であることを示す。ゆっくりと変化させる斥力ポテンシャル

$$V(r) = \epsilon \left(\frac{\sigma}{r} \right)^n \quad (\epsilon, \sigma: \text{正の定数}) \quad (3)$$

を用いたソフト球モデルについてもその後検討され、相転移が起きることが確認された[10] (この式で $n \rightarrow \infty$ のとき剛体球モデルの場合に、そして $n = 1$ のとき一成分プラズマの場合に対応する)。すなわち、ポテンシャルの斥力部分が固体状態を実現し、構成要素間の引力は物質が分解しないための凝集力を与えているだけなのである。したがって、クーロンの斥力のみが存在する系で粒子がお互いに反発し合っている、なんらかの力で

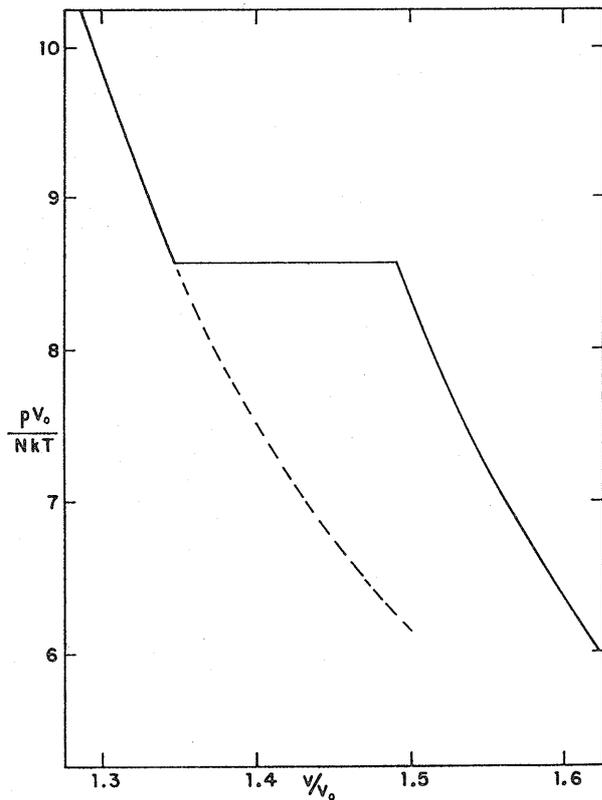


Fig. 1 Equation of state around the phase transition by computer simulation for hard spheres. V_0 means the close-packed volume [9].

閉じ込められていれば、クーロン結合係数がある値を越えたところで結晶化が起こり、粒子が静止・整列するわけである。これら斥力系での液体-固体間相転移は、Alder 転移と呼ばれている[11].

プラズマ中の微粒子の場合については、湯川型の遮蔽されたクーロンポテンシャルとなるが、それをういた液体-固体間相転移のシミュレーションも行われている。ウィグナー-ザイツ半径とデバイ長との比 κ をパラメータとして、液体と bcc (body-centered cubic) 構造をした結晶との間の相転移が生じるクーロン結合係数の値、 Γ_m^* が分子動力学シミュレーションにより求められている[12,13]. Fig. 2 は、その結果を示す。図中、 Γ_m は Γ_m^* から遮蔽の部分を取り除いた値を表している。 $\kappa = 0$ が一成分プラズマの場合に相当する。また計算により、クーロン結晶において静電エネルギーが最も低いのは、 $\kappa \leq 1.066$ で bcc 構造、 $\kappa \geq 1.066$ で fcc (face-centered cubic) 構造であると計算されている。

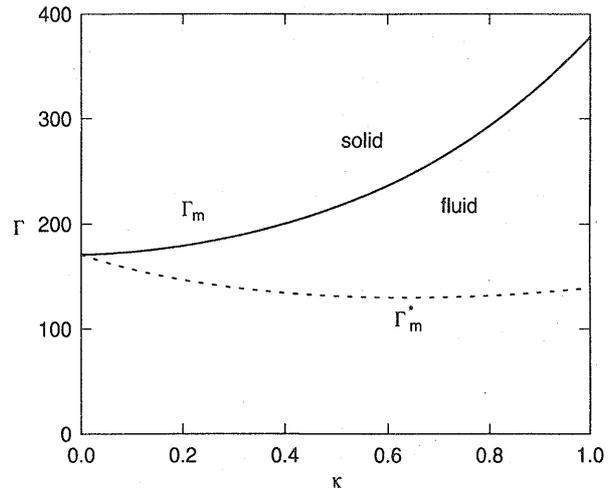


Fig. 2 The liquid/solid phase transition curves obtained from computer simulation as a function of κ , which means the ratio of the Wigner-Seitz radius to the Debye length. The solid curve and the dashed curve represent Γ_m and Γ_m^* respectively, where $\Gamma_m^* = \Gamma_m \exp(-\kappa)$ [13].

4. 微粒子プラズマ中のクーロン結晶

(1) 微粒子プラズマの研究

宇宙の中でプラズマや塵は様々な役割を演じており、微粒子プラズマは宇宙物理学における研究の対象であった[14,15]. ところが一方で、半導体集積回路製造プロセスにおいて、回路パターン欠陥の原因となるダスト付着の問題が、近年、クローズアップされている。こうした材料の成膜や加工プロセスにプラズマが多く利用されるようになってきており、プロセスプラズマ中の微粒子ダストの発生・成長・挙動・輸送などに関する研究が最近、盛んになってきた[16,17]. プラズマ中のクーロン結晶の実現は、こうした研究の流れと無縁ではない。

プロセスプラズマ中のダストを制御して半導体基板への付着を防ぐには、まず、ダストとなる微粒子に働く力の関係を知ることが必要である。プラズマ中で微粒子は、条件によって、バルクプラズマ内の静電ポテンシャルの高いところに集まったり[18], 電極シースとプラズマの境界付近に押しやられたりする。後者の場合、計算機シミュレーションから、電極側に向かうイオン粘性力と逆にプラズマ側に押し返すシース電界による力が釣り合った結果であるとの解釈がなされている[19]. 微粒子に働く力としては、さらにガス粘性力、重力、熱泳動力、分極による力[20], クーロン力なども挙げられる。こうした力の関係を詳しく解析するためには、その観察において全体的な微粒子雲と捉えるよりも、個々の微粒子の運

動を調べる方が確かな結果が期待できる。それゆえ、応用上も、微粒子プラズマ中のクーロン結晶の研究は重要な役割を果たすと考えられる。

(2) クーロン結晶の形成

クーロン結晶は、 μm オーダの単分散微粒子を一定密度以上、低温プラズマ中に保持することによって形成される。Thomas らの方法では、平行平板 RF 放電による密度 10^9cm^{-3} 程度のプラズマ中に、直径約 $7\mu\text{m}$ のラテックス球を約 $4 \times 10^4 \text{cm}^{-3}$ の密度で投入し、クーロン結晶を作っている [4]。クーロン結晶を構成する微粒子は、下部の RF 電極側のプラズマ-シース境界近傍に存在し、それを大きな穴の開いた上部の接地電極側から CCD ビデオカメラを用いて観察している。Chu らは、周辺部にリング状に溝を設けた円形接地電極と、それを取り囲む円筒状の RF 電極との間に放電を発生させ、プラズマ中で作製した酸化シリコン微粒子をその溝の中にトラップしてクーロン結晶を形成している [3]。トラップされた微粒子の粒径は $10\mu\text{m}$ 、密度は $2 \times 10^5 \text{cm}^{-3}$ である。微粒子の観察は上部を覆う覗き窓から行い、顕微鏡を用いたビデオ記録を利用している。

一方、Hayashi らは、小型の平行平板 RF プラズマ CVD 装置内のメタン (あるいはエチレン) プラズマ中にカーボン超微粒子 (粒径 50nm 程度) を瞬間的に導入し、その回りにアモルファスカーボンを堆積して、粒径 $1\mu\text{m}$ 以上の球形・単分散微粒子をプラズマ中に保持させている [21]。下部の接地電極近くのシースとプラズマの境界近傍に集まった微粒子がクーロン結晶を形成するが、それを上部 RF 電極に開けた小さい穴から両電極の間から、接写写真およびビデオ撮影で確認している (Fig. 3) [2, 22, 23, 26]。

(3) クーロン結晶形成過程の解析

ここでは、Hayashi らの行ったクーロン結晶形成過程の解析の結果について述べる [2, 22, 23]。

微粒子が成長すると、微粒子の帯電量が增大し、微粒子の集合が液体状態から固体状態へと変化する。その過程を解析するためには、各時間における微粒子の粒径と密度を正確に評価する必要がある。その手段として、新しく開発したミー散乱エリプソメトリが用いられている。この方法では、微粒子から散乱される光の偏光成分強度比および位相差の変化を、ミー散乱理論に基づくシミュレーションと対応させて、その光学定数、粒径分布の広がり、粒径を求める [21, 24, 25]。粒径が正確に決まれば、散乱強度の値をクーロン結晶中の微粒子密度で校正して、それぞれの時間における密度を正確に得る。メ

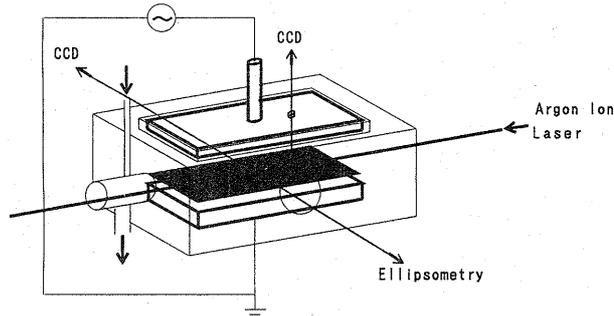


Fig. 3 Schematic arrangement of the system for Coulomb crystal formation and the observation [26].

タンプラズマ中での微粒子の成長において求められた粒径と密度の時間変化を Fig. 4 に示す。微粒子密度は、はじめは指数関数的に減少して行くが、25分前後を境に急激に減少が止まり、ほぼ一定の値をとり続けていることがわかる。接写撮影による写真からも、この時間付近で微粒子が整列を始めることが観察されており、結晶化はこの時点で起きたことが推測されている。微粒子の集合がクーロン液体からクーロン固体に変化することによって全体の凝集力が強まり、微粒子が外部へ散逸しにくくなったことが、微粒子密度の減少を停止させたものと考えられている。

上の結果を用いて、微粒子の帯電量や電子密度の変化も調べられている。イオン密度を一定とし、微粒子に流れる電流およびプラズマ中の電荷密度の総和が 0 であるという 2 つの条件を満たす方程式を解いて、微粒子の帯電量と電子密度が同時に求められている (Fig. 5)。ただし、計算に用いられたイオン密度、電子温度やイオン温

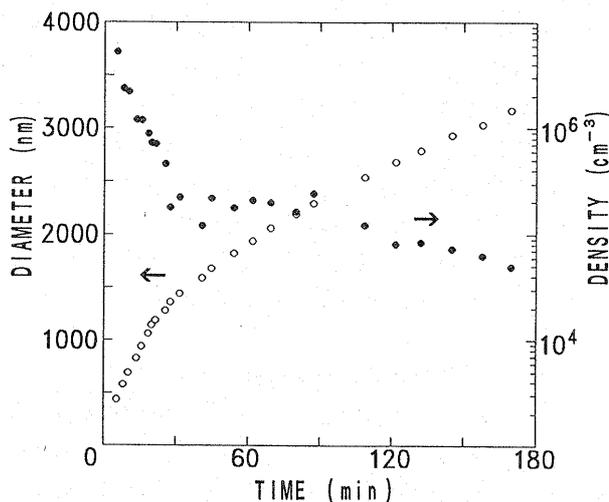


Fig. 4 Time evolutions of the particle diameter and the density [2].

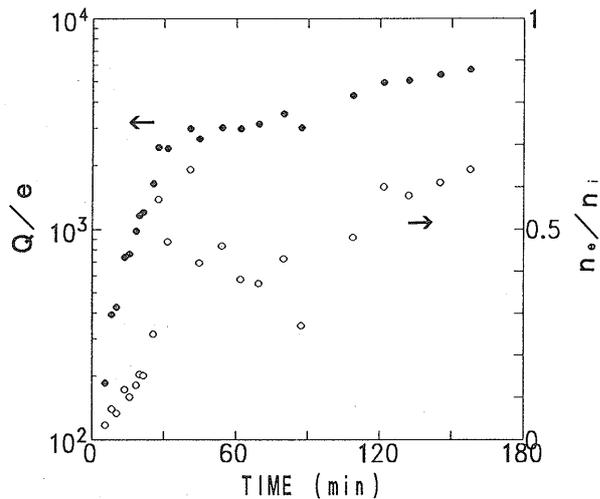


Fig. 5 Time evolutions of the particle charge Q and the ratio of electron density n_e to ion density n_i [22].

度などの値については、ある程度の誤差範囲を考慮しなければならない。また、微粒子の密度や粒径の変化に伴ってプラズマ密度（イオン密度）も変化するものと考えられ厳密ではないが、概略のことは結果より理解できる。この場合、液体相では電子の密度は小さく、負電荷のほとんどは微粒子によって占められている。したがって、微粒子の帯電量はその密度から（上で述べた後者の方程式から）ほぼ決定されるので、微粒子が減少することによって微粒子1ヶ当たりの帯電量が増加していったものと考えられることができる。

求められた帯電量を式(2)に代入して見積られたクーロン結合係数 Γ が、Fig. 6 に示されている。 Γ は、結晶化前は急激に増加し、結晶化の時点においてほぼ200に達している。また、この時点におけるウィグナー-ザイツ半径は約 $90\mu\text{m}$ である。この値はオーダ的にデバイ半径程度であるので κ は1前後となる。そこで、求められた Γ の値を Fig. 2 中の Γ_m^* の値と比較すると、この場合誤差の範囲内であると言ってよい。結晶化後は、 Γ はそのまま増大していくことはなく変化が小さいが、これは、密度がほぼ一定になったことと、帯電量 Q が主に上の前者の方程式から決定されるようになったためと考えられている。

(4) クーロン結晶の結晶構造

クーロン結晶の結晶構造については、何種類か観察されている。最も多いのは、プラズマ-シース境界面と平行な面で最密の配列をなし、直交する方向に一直線上に整列した、六角柱の構造となるものである[2-4, 22, 23, 26-28]。その他、bcc [3, 26, 27], fcc [3], hcp (hex-

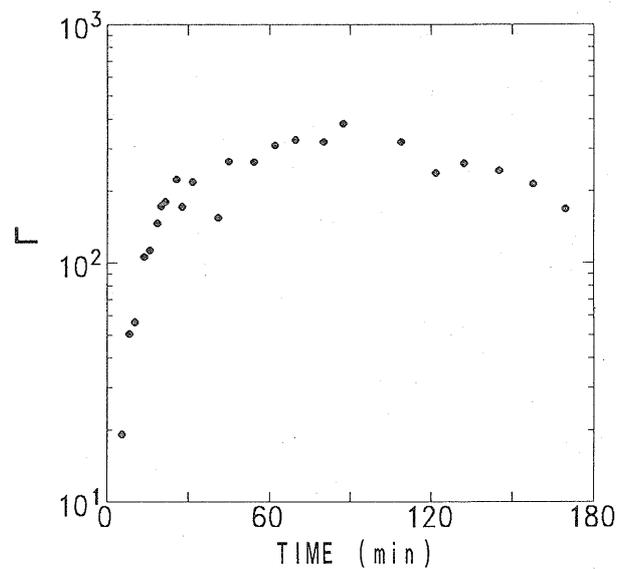


Fig. 6 Time evolution of the Coulomb coupling parameter Γ [22].

agonal close-packed) [29] 構造なども報告されている。

Hayashi らは、微粒子がエチレンプラズマ中で成長していく過程における結晶構造の変化を調べている[26]。Fig. 7 は、その実験において、ミー散乱エリプソメトリにより決定した微粒子の粒径と密度の時間変化を示す。密度の変化には、減少（20分まで）、一定（20～30分）、減少（30分以降）と3段階あることがわかる。また Fig. 8 は、ミー散乱エリプソメトリの測定と同時に、レーザービーム内に存在する微粒子を、Fig. 3 の配置において側方から撮った CCD ビデオ画像の変化を示す。微粒

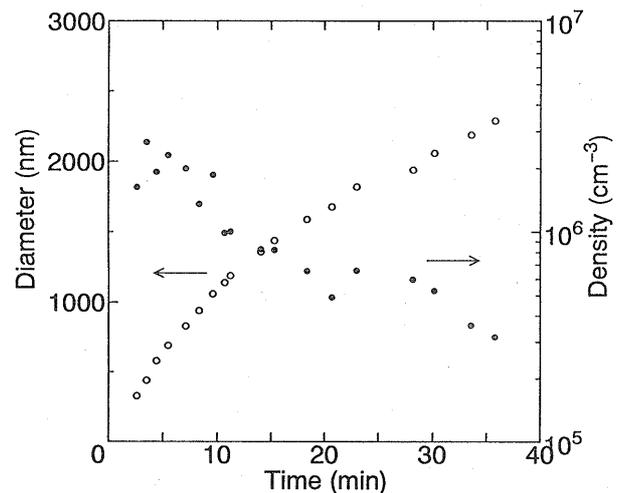


Fig. 7 Time evolutions of the particle diameter and the density [26].

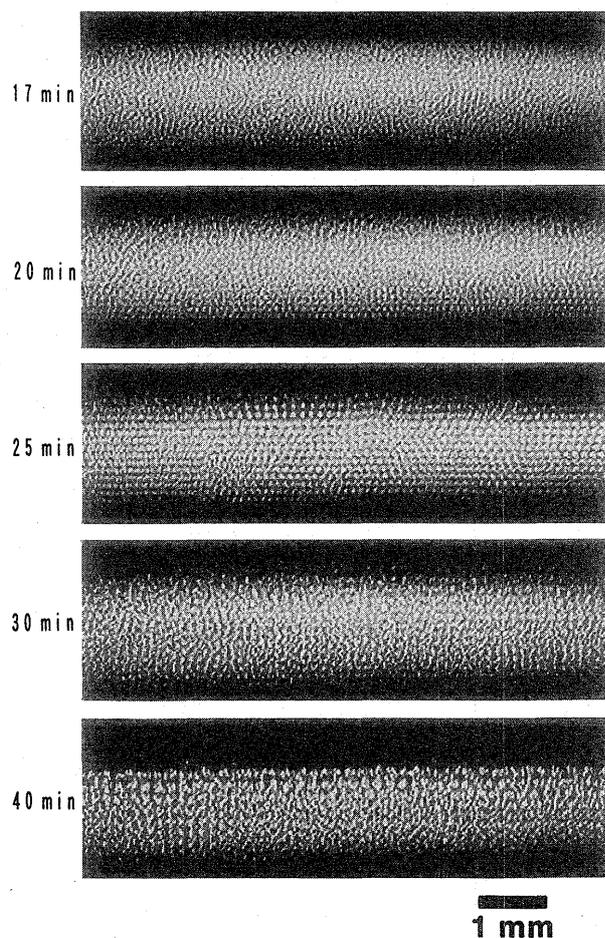


Fig. 8 Variation of particle arrangement observed through the side viewport [26].

子の整列は、シース境界付近から始まり、プラズマ側に向かって進行していることがわかる。しかし、30分頃より微粒子の再配列が起き、徐々に縦方向に列をなして並び始めているように見える。これらの変化がもっと分かり易いようにビデオ画像より取り出されたコマが、Fig. 9である。21分では、レーザービームに照射された微粒子の下部で上下互い違いに配列しているのに比べ、60分では上下で列をなしている様子がわかる。Fig. 10は、同時の観察ではないが、同じ条件のもとで実験を行ったときの、上方からの画像を示す (Fig. 3 参照)。この場合、レーザー光はシリンダリカルレンズを用いて電極面に平行に広げられ、クーロン結晶のシース側境界面付近が照らされている。レーザー光強度がガウス分布をしているため、界面第1層内の微粒子は列に並んだ中で強いスポットに、境界面第2層内は弱いスポットになっている。24分の画像を見ると、微粒子が列をなして並び、

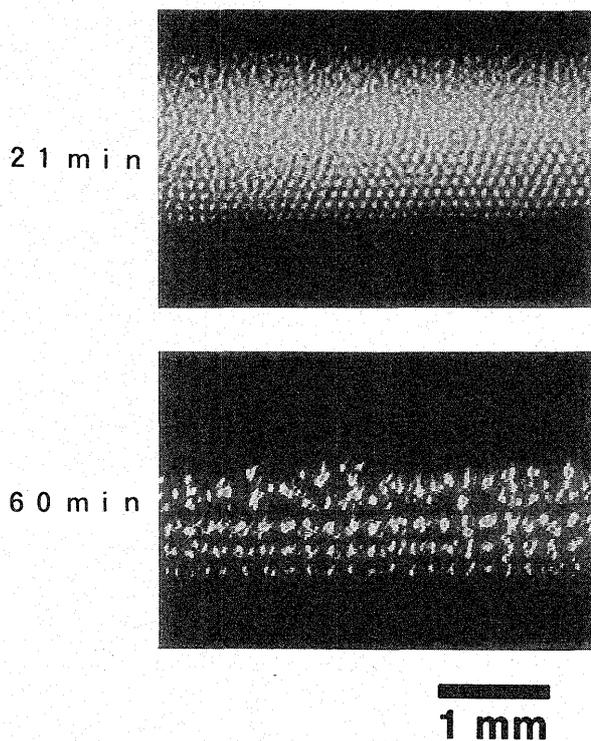


Fig. 9 Typical video images of particle arrangement observed through the side viewport [26].

また第1層と第2層の微粒子が交互に配列していることがわかる。ところが45分の画像では、第1層目と第2層目の微粒子がほとんど重なり合い、面内で六角形の最密構造をなして配列している。こうした側方および上方からの画像から、Fig. 11のような結晶構造が考えられている。(a)は、20分~30分においてとる結晶構造で、bcc構造である。上方からの画像は、その(110)面を示し、測方からの画像は(111)面を示しているものと解釈できる。一方、(b)は40分以降においてとる構造で、六角柱構造をなしている。このように、時間と共に、クーロン結晶の構造が変化していることがわかる。

Pieperらは、微粒子周辺の電位ポテンシャルを変形することによりクーロン結晶の層数を変え、結晶構造の変化を調べている[27]。それによれば、層数の少ないときは六角柱の構造となるが、層数が多くなるとその中にbcc構造が混在してくることを確かめている。bcc構造などの立体的配列になるか六角柱構造の平面的配列になるかの違いはこうしたことが関係していることも考えられるが、今のところは定かではない。

結晶構造として六角柱の構造は、原子からなる固体においては一般的ではない。微粒子プラズマ中のクーロン結晶が、なぜこうした構造をとり易いのかは疑問である。

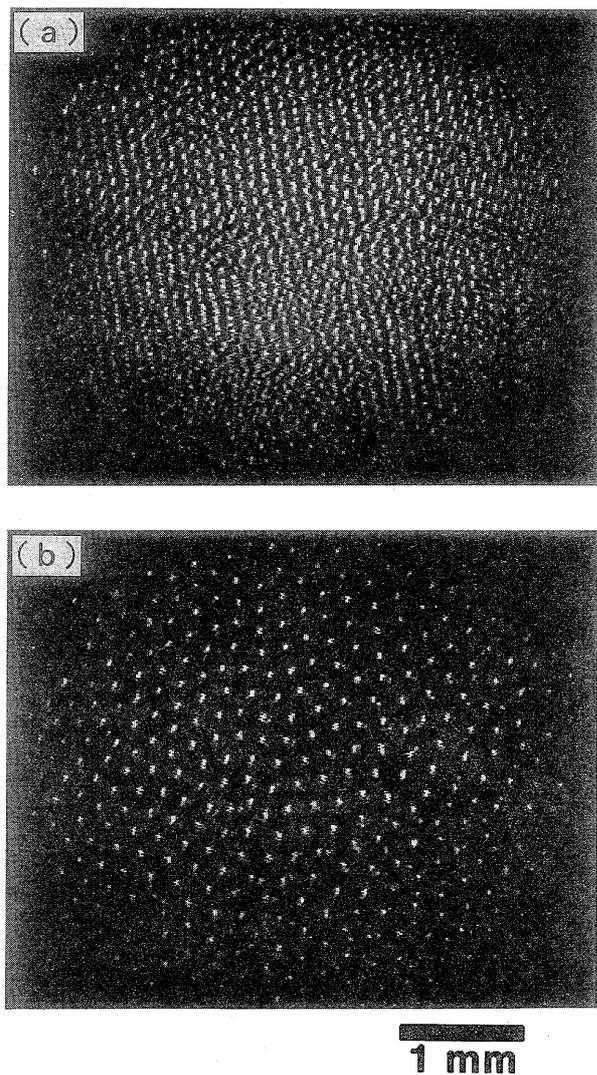


Fig. 10 Typical video images of particle arrangement observed through the upper viewport at 24min (a) and at 45min (b) [26].

負に帯電した微粒子とそれを取り囲む正イオンは、電極シースとプラズマの境界付近の電界で分極する。そのような双極子が、お互いに垂直方向に引力を及ぼし合って並ぶとする考えがある[26]。一方、電極方向に運動する正イオンが微粒子の周辺を通過するときに軌道を曲げられ、その結果それぞれの微粒子の電極側近傍に正の電位を形成することによるとの説明もある[30]。さらに、重力が関係しているとする考えもあるが[31]、どの考察もまだ十分ではない。

5. おわりに

微粒子プラズマ中のクーロン結晶の研究は、今後、多方面での展開が期待される。基礎的には、固体物理学に

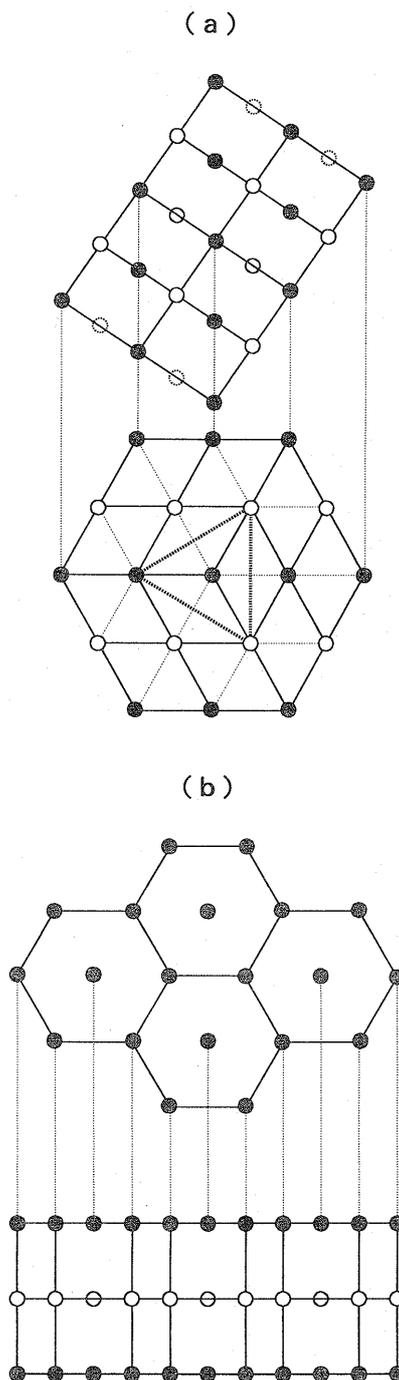


Fig. 11 Structures of Coulomb crystals. (a) The top view is parallel to a (110) plane and the front view a (111) plane of bcc structure. (b) The top view and the front view of hexagonal pole structure are shown [26].

における液体-固体間相転移現象, 金属結晶や強結合プラズマなどの物性の理解に役立つ。宇宙では, 中性子外殻などにおける高密度物質の研究とも関連する。また, 土星の輪の中で微粒子によるクーロン結晶が形成されている可能性が指摘されており興味深い[14]。応用上では, クーロン結晶中の微粒子に働く力の関係を解析して, 半導体プラズマプロセスにおけるダスト微粒子の制御に役立つことが期待される。また, 微粒子をクーロン結晶中に保持しながら表面に多層コーティングして材料を製作する新しい技術へと展開することも可能性として挙げられる。微粒子プラズマによるクーロン結晶の研究は始まったばかりで, 計測・解析方法の開発もこれからの課題である。多くの分野の研究者が関わり, この方面の研究が進展していくことを期待したい。

参考文献

- [1] H. Ikezi, Phys. Fluids **29**, 1764 (1986).
- [2] Y. Hayashi and K. Tachibana, Jpn. J. Appl. Phys. **33**, L804 (1994).
- [3] J. H. Chu and Lin I, Phys. Rev. Lett. **72**, 4009 (1994).
- [4] H. Thomas, G. E. Morfill, V. Demmel, J. Goree, B. Feuerbacher and D. Mohlmann, Phys. Rev. Lett. **73**, 652 (1994).
- [5] S. Ichimaru, Rev. Mod. Phys. **54**, 1017 (1982).
- [6] W. L. Slattery, G. D. Doolen and H. E. DeWitt, Phys. Rev. A **21**, 2087 (1980).
- [7] 立川真樹: 応用物理 **60**, 557 (1991).
- [8] S. Dosho *et al.*, Langmuir **9**, 394 (1993).
- [9] B. J. Alder, W. G. Hoover and D. A. Young, J. Chem. Phys. **49**, 3688 (1968).
- [10] W. G. Hoover, S. G. Gray and K. W. Johnson, J. Chem. Phys. **55**, 1128 (1971).
- [11] 和達三樹, 戸田盛和: 応用物理 **42**, 1160 (1973).
- [12] R. T. Farouki and S. Hamaguchi, Appl. Phys. Lett. **61**, 2973 (1992).
- [13] R. T. Farouki and S. Hamaguchi, J. Chem. Phys. **101**, 9885 (1994).
- [14] C. K. Goertz, Rev. Geophys. **27**, 271 (1989).
- [15] 横田俊昭: プラズマ核融合学会誌 **69**, 6 (1993).
- [16] 渡辺征夫, 白谷正治: プラズマ核融合学会誌 **69**, 752 (1993).
- [17] 浜口智志: 日本物理学会誌 **50**, 527 (1995).
- [18] R. N. Carlile, S. Geha, J. F. O'Hanlon and J. C. Stewart, Appl. Phys. Lett. **59**, 1167 (1991).
- [19] T. J. Sommerer, M. S. Barnes, J. H. Keller, M. J. McCaughey and M. J. Kushner, Appl. Phys. Lett. **59**, 638 (1991).
- [20] S. Hamaguchi and R. T. Farouki, Phys. Rev. E **49**, 4430 (1994).
- [21] Y. Hayashi and K. Tachibana, Jpn. J. Appl. Phys. **33**, 4208 (1994).
- [22] K. Tachibana and Y. Hayashi, Aust. J. Phys. **48**, 469 (1995).
- [23] Y. Hayashi and K. Tachibana, *Proc. 12th Symp. on Plasma Processing*, 467 (1995).
- [24] Y. Hayashi and K. Tachibana, Jpn. J. Appl. Phys. **33**, L476 (1994).
- [25] 林 康明, 橘 邦英: 応用物理 **64**, 565 (1995).
- [26] Y. Hayashi and K. Tachibana, J. Vac. Sci. Technol. **A14** (2), (1996) (to be published).
- [27] J. Pieper, J. Goree and R. Quinn, J. Vac. Sci. Technol. **A14** (2), (1996) (to be published).
- [28] H. Thomas and G. Morfill, J. Vac. Sci. Technol. **A14** (2), (1996) (to be published).
- [29] J. H. Chu and Lin I, Physica **A205**, 183 (1994).
- [30] F. Melandoso and J. Goree, J. Vac. Sci. Technol. **A14** (2), (1996) (to be published).
- [31] G. Morfill and H. Thomas, J. Vac. Sci. Technol. **A14** (2), (1996) (to be published).