

JAERI-Research
2000-032



JP0050738



電子ビーム加熱蒸発時の液面くぼみの観測

2000年8月

大場 弘則・柴田 猛順

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の問い合わせは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越し下さい。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布を行っております。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Research Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 〒319-1195, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 2000

編集兼発行 日本原子力研究所

電子ビーム加熱蒸発時の液面くぼみの観測

日本原子力研究所東海研究所物質科学研究部

大場 弘則・柴田 猛順

(2000年7月3日受理)

電子ビーム加熱によりガドリニウム、セリウムおよび銅を蒸発させた時の液面くぼみ深さを、CCD カメラを用いた三角測量法で測定した。蒸気圧と液面の静水圧との釣り合いから推定したくぼみ深さは測定値と一致した。また、3~4 mm のくぼみが形成されると原子ビームの周期的変動が始まることがわかった。

Observation of Melt Surface Depressions during Electron Beam Evaporation

Hironori OHBA and Takemasa SHIBATA

Department of Materials Science
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received July 3, 2000)

Depths of depressed surface of liquid gadolinium, cerium and copper during electron beam evaporation were measured by triangulation method using a CCD camera. The depression depths estimated from the balance of the vapor pressure and the hydrostatic pressure at the evaporation surface agreed with the measured values. The periodic fluctuation of atomic beam was observed when the depression of 3 ~ 4 mm in depth was formed at the evaporation spot.

Keywords: Electron Beam, Evaporation, Liquid Metal, Depression, Gadolinium, Cerium, Copper, Triangulation, CCD Camera

目 次

1. はじめに	1
2. 実験方法	1
2.1 測定の原理	1
2.2 実験装置	2
3. 結果および考察	2
4. おわりに	4
参考文献	5

Contents

1. Introduction	1
2. Experimental Procedure	1
2.1 Principle for Measurement	1
2.2 Experimental Apparatus	2
3. Results and Discussion	2
4. Conclusion	4
References	5

This is a blank page.

1. はじめに

電子銃蒸発源は高融点金属の原子ビームを容易に得ることができるので、真空蒸着、原子法レーザー同位体分離や原子衝突実験等、多くの分野で利用されている。電子ビーム加熱で原子を蒸発させると、液面がくぼむことが知られている⁽¹⁾。液面くぼみ深さ h は液体金属の静水圧と蒸気による推力 $p_{thrust}(T)$ の釣り合いから、

$$h = \frac{p_{thrust}(T)}{\rho g}, \quad (1)$$

となることが多くの教科書で述べられている⁽²⁾。ここで、 ρ は液体金属密度、 g は重力加速度で蒸気による推力は飽和蒸気圧 $p_{sat}(T)$ を用いて

$$p_{thrust}(T) = \frac{p_{sat}(T)}{2}, \quad (2)$$

である。それにもかかわらず、電子ビーム蒸発時における液面くぼみ深さを計測した例は報告されていない。

電子銃蒸発源の電子ビームスポット部は高温で、黒体放射光がでている。この液面上の電子ビーム照射スポットの高輝度部を CCD カメラで検出し、ガドリニウム、銅およびセリウムを蒸発させた時のくぼみ深さを三角測量法で測定した。水冷銅るつぼを用いた通常の電子ビーム蒸発では、原子ビームが周期的に変動する。市販の電子銃電源では電子銃フィラメントの加熱に、サイリスタ制御の交流電源が用いられている。この電源を用いると、50Hz のフィラメント電流と同期して蒸発面温度が変化し、これにより原子ビームが変動する。フィラメント電源を直流にした場合でも、ビーム入力増加に伴い蒸発面温度が周期的に変動し、原子ビームが変動する^(3,4,5)。しかしながら、表面温度が時間的に変化する要因は明らかでない。ここでは、くぼみ形成と原子ビーム変動との関係も調べた。

2. 実験方法

2.1 測定の原理

くぼみ深さ測定の原理を Fig.1 に示す。蒸発面上の点 A を基準面とし、鉛直方向高さ H 、鉛直軸からの距離 L 、角度 ϕ の位置に固定された CCD カメラで撮像する場合を考える。蒸発面がくぼんで高さ方向が ΔH 変化した時、くぼみ底面点 A' は角度がわずかに ϕ' 変化するので、CCD 素子結像面では Δx のずれとして撮像されることになる。

実際の測定に先立ち、移動量と結像面での画素ずれとの関係を調べるため、精密昇降テーブルを用いて実験装置と同様の測定配置にした予備実験を行った。その結果、Fig.2 に示すように移動量と A/D 変換された画素ずれは直線関係になり、1画素ずれあたりの移動量は $59 \mu\text{m}$ であった。

2.2 実験装置

測定系概略を Fig.3 に示す。容量 40 cm^3 のるつぼ内に置かれた試料を偏向型電子銃で加熱蒸発させた。電子銃フィラメントの加熱には直流電源を用いた。望遠レンズ（ニコン製 $f=135 \text{ mm}$, F2.5）および接写リング（ニコン製 PK-11~13）を備えた 2 台のモノクロ CCD カメラ（日立電子製 KP-M1）を用いて、蒸発面を撮像録画した。2 台のカメラにより、電子ビーム入射の方向、垂直方向から同時に石英窓を通して撮像した。電子ビーム入射方向は、鉛直軸から 30° の角度、電子ビーム入射と垂直な方向は鉛直軸から 50° の角度から観測した。撮像時は 2 枚のミラーを用いて観測窓への蒸着を防いだ。また、レンズ絞り値を最大にした場合でも蒸発面からの強い放射により CCD 素子が飽和する時は ND フィルターを用いた。電子銃は Fig.4 に示すタングステンフィラメントを用いている。蒸発面では電子銃フィラメントの形状が投影されたものが観測される。画像処理装置を用いて、このフィラメント投影画像について濃淡処理や二値化を行い、フィラメント投影画像を抽出して液面位置を検出した。また、るつぼ内試料液化部の広がりをおよぼ真上から CCD カメラにてモニターできるようにした。蒸着速度はるつぼ上面から 260 mm の高さに設けた水晶振動子型膜厚計で測定した。蒸発部では原子ビームと加熱用電子ビームが衝突してプラズマが生成し、原子ビームとともに上昇する^(6,7)。このプラズマ中イオン量の変動は原子ビーム変動と同時に起こる。プラズマイオン量を検出して原子ビーム変動をモニターするため、 -9 V に印加した静電プローブ（タングステン製円筒、直径 0.7 mm 、長さ 3 mm ）をるつぼ上面から 140 mm の高さに設置した。電子ビーム入力は加速電圧 10 kV 一定として 0.5 kW から 5.0 kW の範囲で変化させた。蒸発試料はガドリニウム、銅、セリウムを用いたが、銅の場合、蒸発面から波長 510 nm および 578 nm に強い発光が観測されるので、この発光が撮像されないように透過波長 $600 \pm 5 \text{ nm}$ のバンドパスフィルターを用いた。

3. 結果および考察

Fig.5(a)~(c)はガドリニウム試料に 0.75 kW の電子ビームを照射し、蒸着速度が 7.5 \AA/s の時、ほぼ鉛直軸上、鉛直軸から 30° 、鉛直軸から 50° の 3 方向から撮像した液面のアナログ画像を 256 階調、 $640 \text{ 画素} \times 485 \text{ 画素}$ に変換し、さらに拡大したものである。なお、各図中右下の白抜き四角は、縦方向と横方向の寸法を示している。液面上のビームスポット部はフィラメントが線状に投影されている。液面がくぼむと線状の高輝度部が変形する。くぼむ前の高輝度部を基準として画素ずれを検出すれば移動量が求まる。Fig.5(b)では電子ビーム入射方向から液面を観測しているため、くぼみが生じた時のくぼみ底面位置が検出しにくい。このため、くぼみ深さの測定には Fig.5(c)の電子ビーム入射方向と垂直な方向から観測した投影画像を用いた。

Fig.6 は電子ビーム入力 0.5 kW でほとんど蒸発していない時から、入力が 2.5 kW で蒸着速度が 290 Å/s の時までのビームスポット部の拡大画像を示す。これらを濃淡処理、さらに二値化処理した画像も示す。液面の形状（フィラメントの投影スポット）が電子ビーム入力増加に伴って、変形していく様子が観測されている。図中の線 A-A' に着目すると、0.5 kW と 2.5 kW とでは 50 画素のずれが生じており、0.5 kW を基準とすれば 2.5 kW 入力時に 3 mm のくぼみが生じていることになる。大量に蒸発させると液面が低下するので撮像開始時と終了時では基準点が異なることがある。このため基準点として、0.5 kW 入力時の液面を蒸発前と蒸発後に撮像してその平均を選んだ。

蒸着速度に対してガドリニウム蒸発面くぼみの深さを測定した結果を Fig.7 に示す。くぼみ深さはくぼみ方向を正とした。液面の位置は蒸発が少ない時、液化による膨張で負の値を示すが、蒸発が顕著になると蒸気圧により液面がくぼみ始め、最大で 4 mm 程度のくぼみが観測された。Fig.8、Fig.9 にセリウム、銅の液面くぼみ深さの蒸着速度依存性をそれぞれ示す。ガドリニウム同様、蒸発がほとんど無い時、くぼみ深さは負の値を示し、蒸発が顕著になると正の値となる。銅の場合、熱伝導率が良いため、低蒸発時は液化部が小さく、蒸発が増大すると液化部も増大すること、また、固体から液体に変わる際の体積膨張が大きい⁽⁸⁾ことから、液面が大きく隆起している。

蒸着速度から蒸発面温度を推定することができる。蒸発面温度での飽和蒸気圧および液体金属密度の文献値^(9,10)を用いて、(1)、(2)式からくぼみ深さを求めた。その結果を Fig.7、Fig.8、Fig.9 に破線で示した。推定値の方が測定値よりも深くくぼみを形成するように見えるが、実際には蒸発量が少ない時、液化による液面隆起の方がくぼみ深さより大きい。ここで、蒸発が顕著になって十分にくぼんだ点から、くぼみが負から正方向に移動し始めた点にわたって直線を引いて、さらに延長線上の蒸発量が 0 Å/s の時のくぼみ位置を 0 mm とする。測定値を図のようにシフトさせて、液面隆起効果を補正した値を○印で再プロットした。補正した測定値は推定値と概ね一致する。これにより、くぼみ深さは、(1)、(2)式のように蒸気圧と液面の静水圧の釣り合いから決まるということが確認された。

Fig.10、Fig.11、Fig.12 はそれぞれガドリニウム、セリウム、銅についてのくぼみ深さ、蒸着速度、液化部広がり電子ビーム入力依存性である。液化部広がりには上方から CCD カメラで撮像した液化部の平均直径とした。電子ビーム照射により照射スポット部が加熱されて液化し、液化部はビーム入力増加に伴って広がり、ガドリニウムやセリウムではるつぼの内壁に到達する。くぼみ深さ、蒸着速度は電子ビーム入力増加に伴って増加するが、双方ともに飽和の傾向を示す。液化部が広がると液体金属の対流領域も増大し、るつぼへの熱損失が大きくなり、その結果表面温度が十分に上がらない⁽¹¹⁾。このために蒸発量およびくぼみ深さも飽和の傾向を示すと考えられる。一方、銅については固体の熱伝導率が高いので、蒸発させるのに多くの投入電力が必要であり液化部も小さい。さらに投入電力を増加させると、ガドリニウムやセリウムの場合と同様に液面が広がり、蒸発量およびくぼ

み深さは飽和の傾向を示すと予想される。

Fig.13 はガドリニウム蒸発時に静電プローブを用いて蒸発部生成イオン量を測定した例であり、電子ビーム入力を 0.75 kW、2.0 kW、3.5 kW にした時のオシロスコープの波形である。2.0 kW の入力で液化部広がり が 40 mm、くぼみ深さが 2.4 mm、補正後 3.6 mm になると蒸気中イオン量すなわち原子ビームの周期的変動が始まり、3.5 kW では振幅が大きくなるのが観測された。銅では 3.5 kW 入力時に液化部広がり が 22 mm、くぼみ深さが 1~2 mm、補正後のくぼみが 1.8~2.8 mm、セリウムについては 3.0 kW 入力時に液化部広がり が 47 mm、くぼみ深さが 1~2 mm、補正後のくぼみが 1.8~2.8 mm に達すると、周期的変動が観測された。いずれの金属の場合でも、補正後のくぼみ深さが 3~4 mm になると原子ビーム変動が観測される。高温部のスポット径は 5~8 mm であるが、この半分程度の深さになると一定のくぼみ深さを維持できなくなって振動が発生し、ビームスポット照射位置が変化する。これにより表面温度時間変化が生じて原子ビーム変動が発生すると考えられる。原子ビーム変動の周波数は液化部広がり で決まっている⁽⁵⁾。しかし、変動が始まるのは、液化部の広がり が、銅では 22 mm、ガドリニウム、セリウムでは約 40~50 mm の時であった。これにより、液化部の広がり は原子ビーム変動の直接の原因ではないと思われる。

4. おわりに

電子ビーム加熱によりガドリニウム、セリウムおよび銅を蒸発させた時の液面くぼみ深さを、CCD カメラを用いた三角測量法で測定することができた。蒸気圧と液面の静水圧との釣り合いから推定したくぼみ深さは、測定値とほぼ一致した。また、いずれの金属の場合でも、液面のくぼみ深さが 3~4 mm になると原子ビームの周期的変動が観測された。

参考文献

- (1) Schiller S. and Jäsch G.: *Thin Solid Films*, 54, 9 (1978).
- (2) Schiller S., Heisig U. and Panzer S.: “*Electron Beam Technology*”. John-Wiley & Sons, (1982), Chap.3.p.207.
- (3) Ohba H. and Shibata T.: *J. Vac. Sci. Technol.* A16, 1247(1998).
- (4) Ohba H. and Shibata T.: *Jpn. J. Appl. Phys.* 38, 4258 (1999).
- (5) 大場弘則, 柴田猛順 : JAERI-Research 00- (2000).投稿予定
- (6) 大場弘則, 有沢孝, 西村昭彦, 小倉浩一, 柴田猛順: *真空*, 35, 282(1992).
- (7) Ohba H., Nishimura A. and Shibata T.: *Jpn. J. Appl. Phys.*, 32, 5759(1993).
- (8) “*The Physical Properties of Liquid Metals*” Iida T. and Guthrie R. I. L., (Oxford, New York, 1988)p14.
- (9) Harbermann C. E. and Daane A. H.: *J. Chem. Phys.*, 41, 2818 (1964).
- (10) “*Smithells Metals Reference Book*”, 6th ed., edited by Brandes E. A., (Butterworths, London, 1983) 14.2.
- (11) Bhatia M. S. , Joshi A., Patel K. and Chatterjee U. K.: *J. Appl. Phys.*, 66, 1159 (1989).

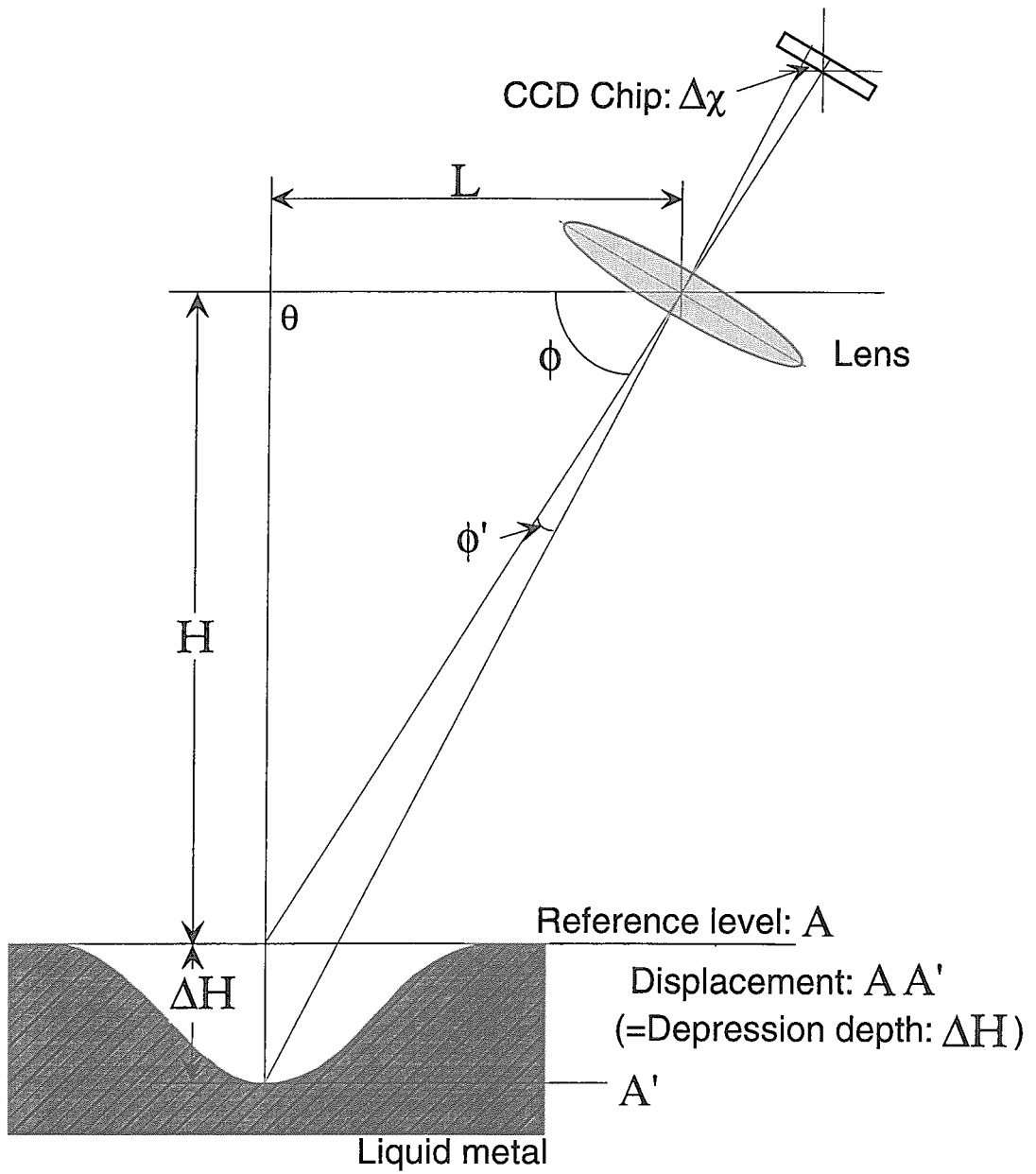


Fig.1 Depth measurement of melt surface depression.

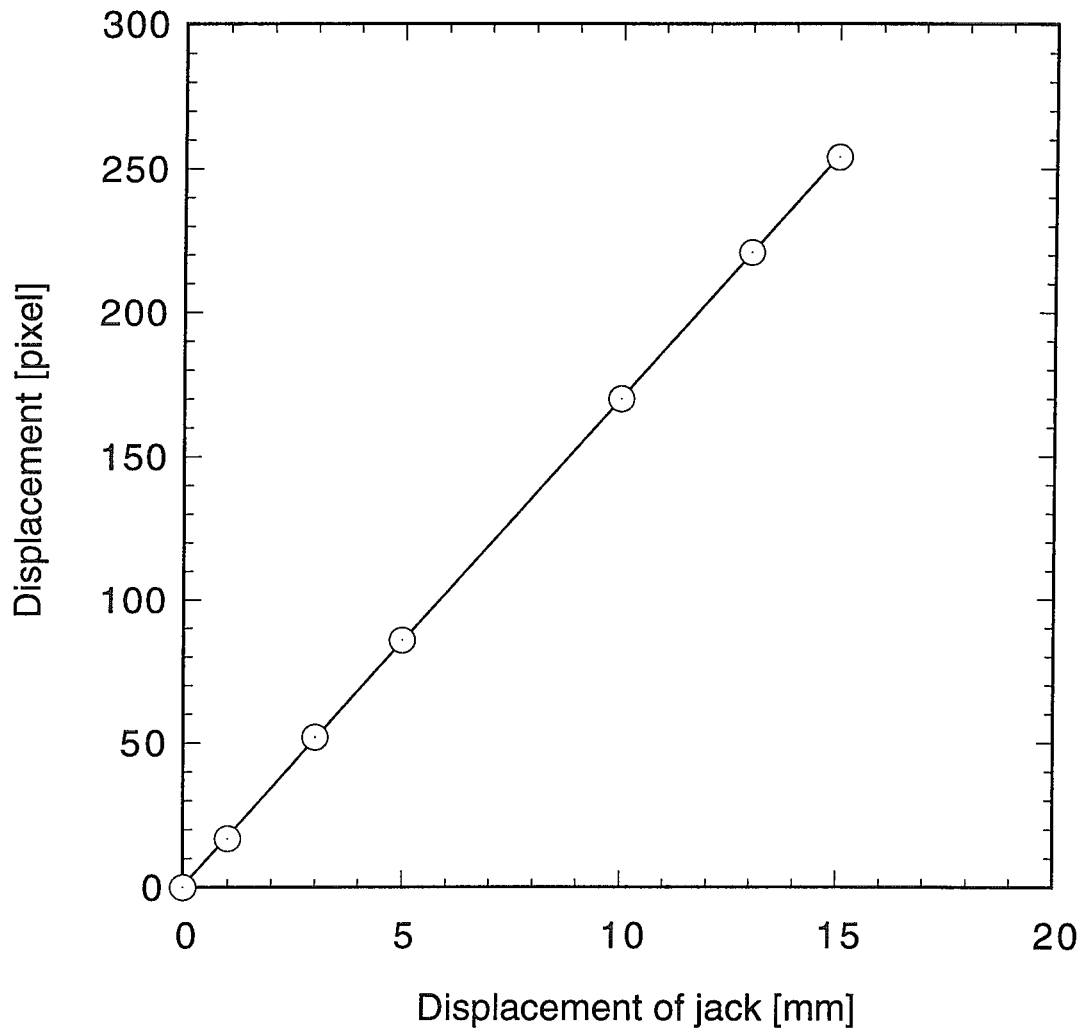


Fig.2. Relation between displacement of jack and A-D converted picture element.

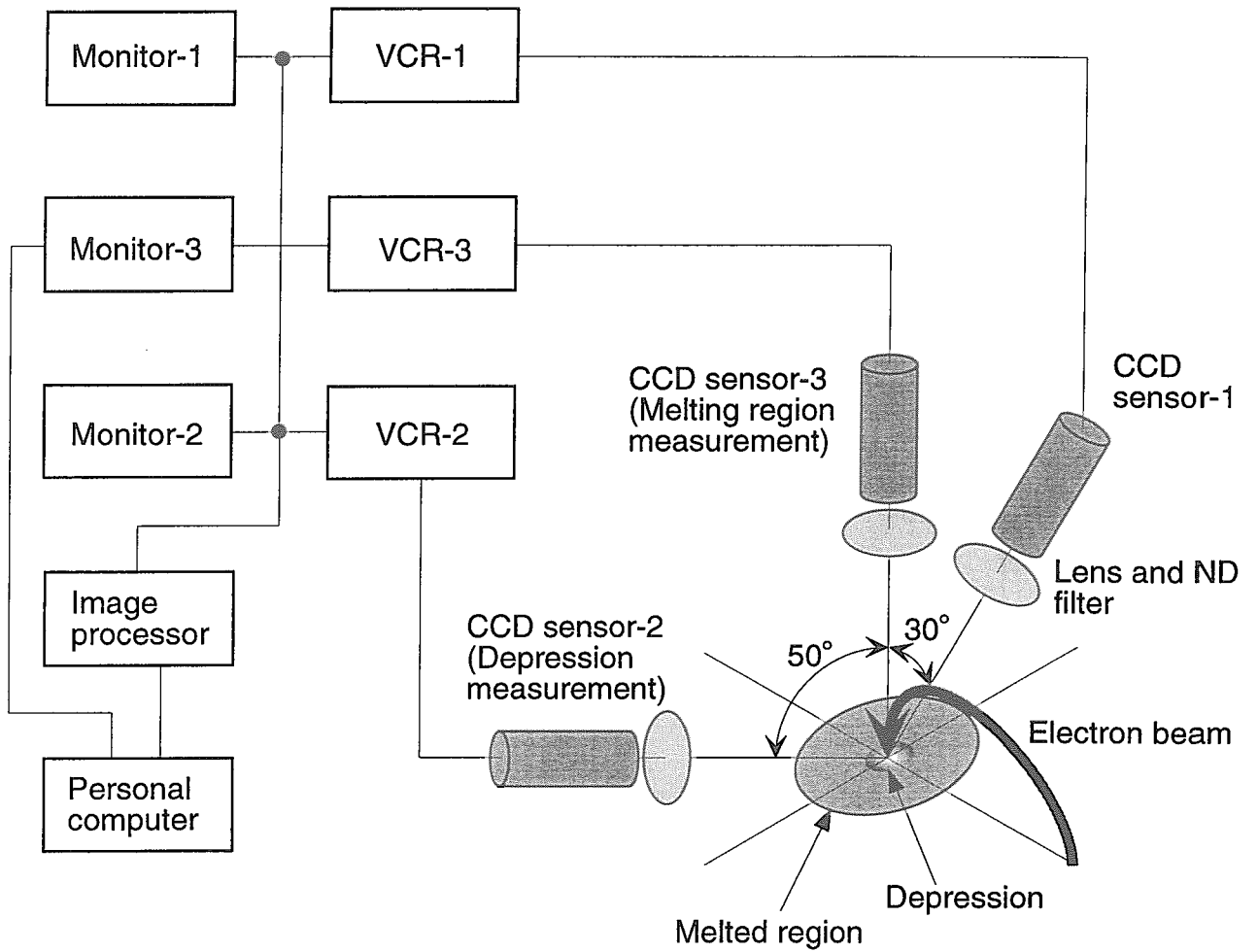


Fig.3. Experimental set up.

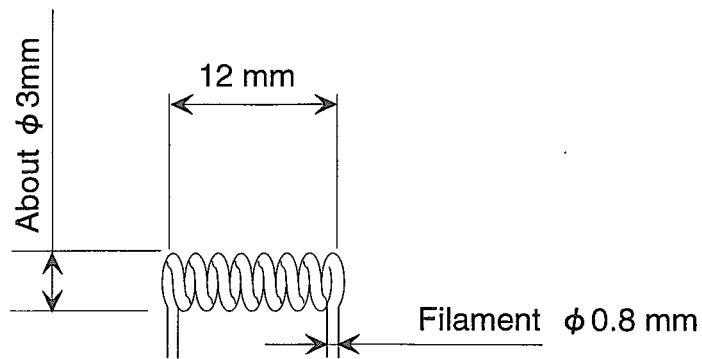


Fig.4. Electron gun filament.

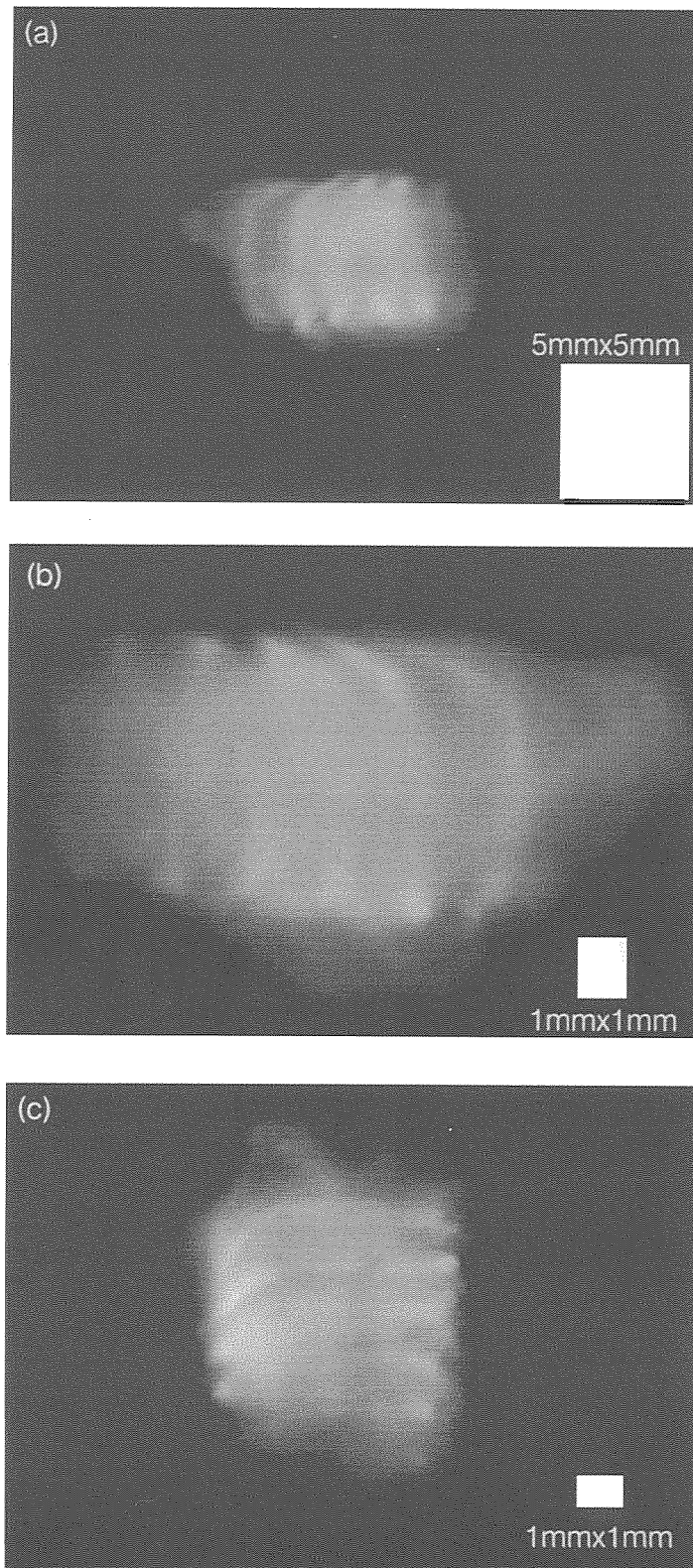


Fig. 5. Examples of images of liquid gadolinium surface at the electron beam power of 0.75 kW.

- (a): image at the vertical axis
- (b): image at angle of 30° from vertical axis
- (c): image at angle of 50° from vertical axis

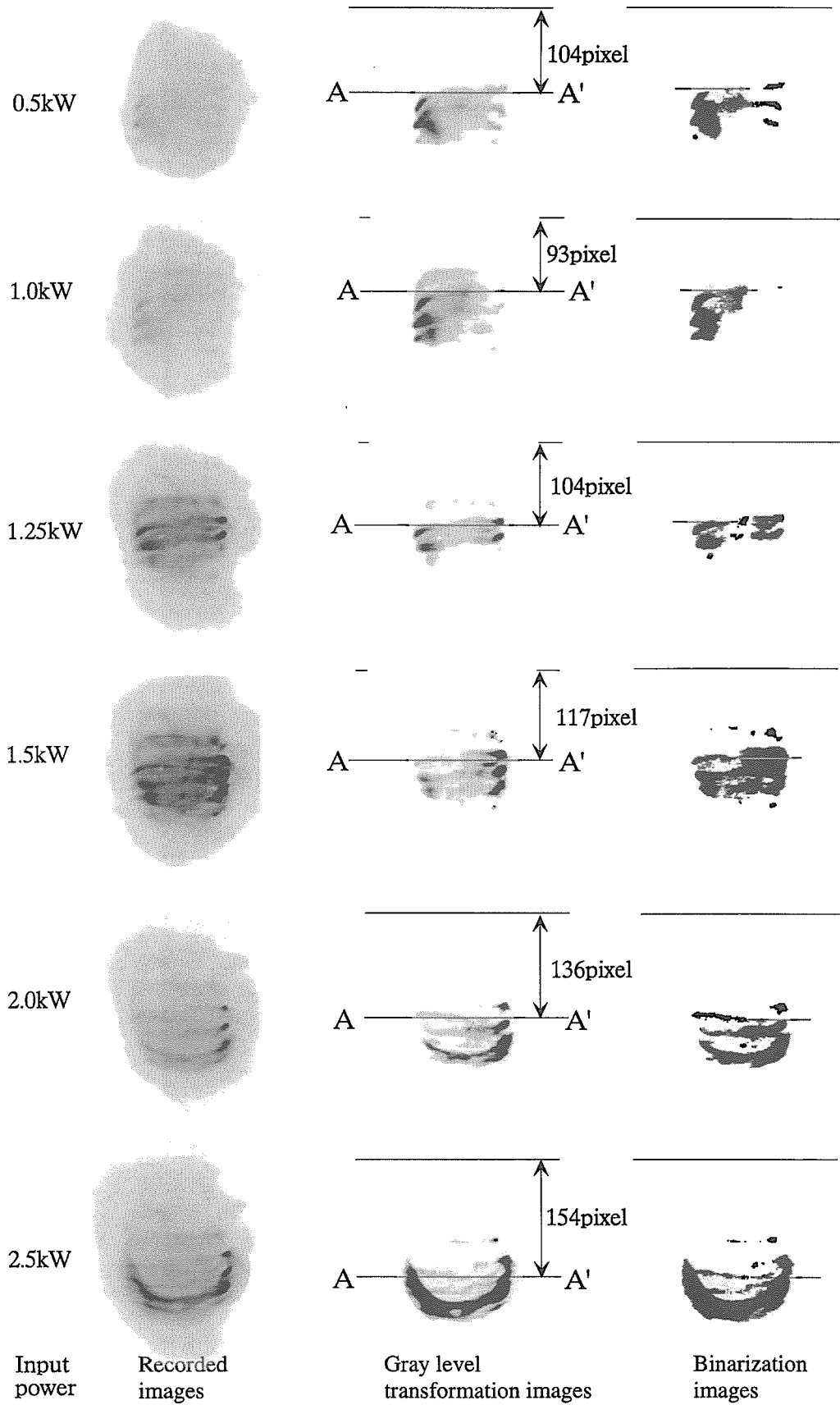


Fig. 6. Input power dependence on recorded images and processed images of liquid gadolinium surface.

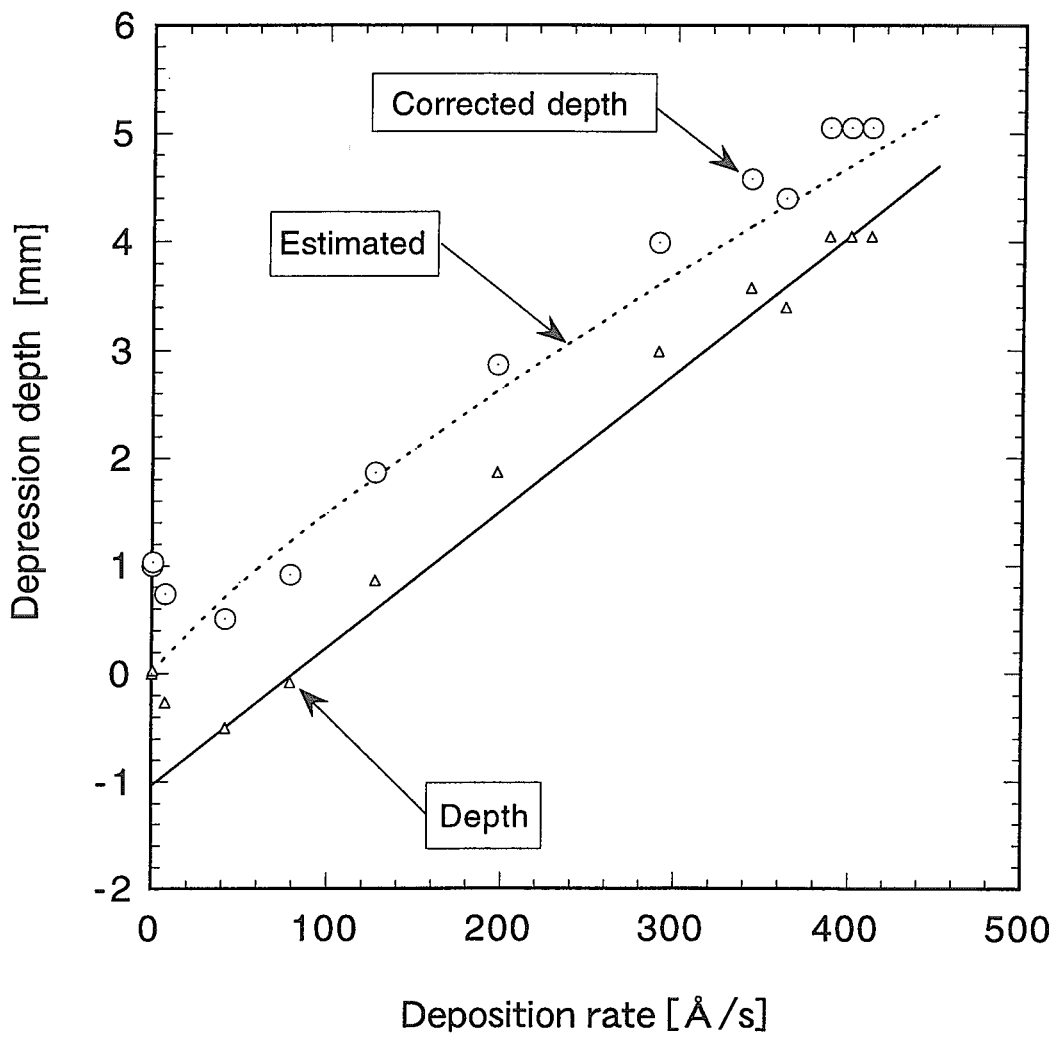


Fig. 7. Deposition rate dependence on depression depth of liquid gadolinium surface.

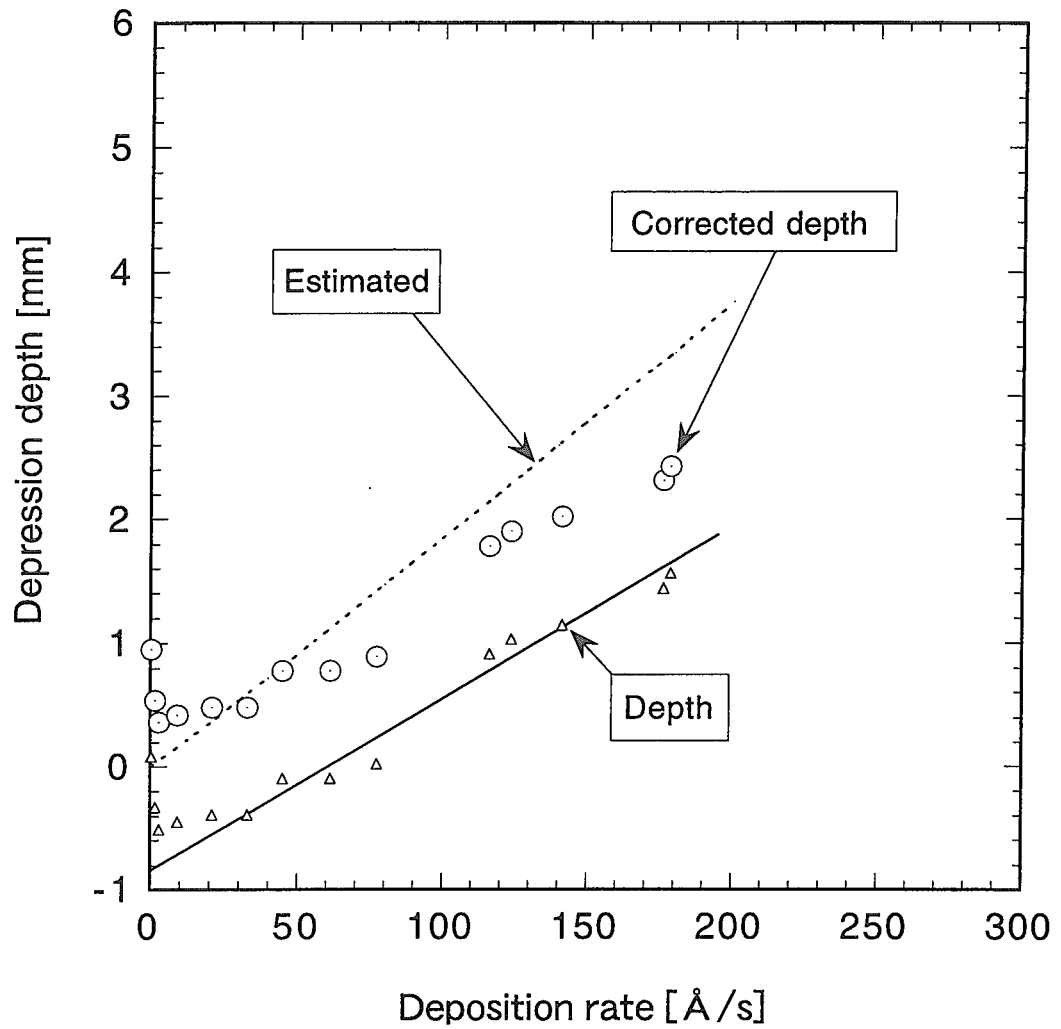


Fig. 8. Deposition rate dependence on depression depth of liquid cerium surface.

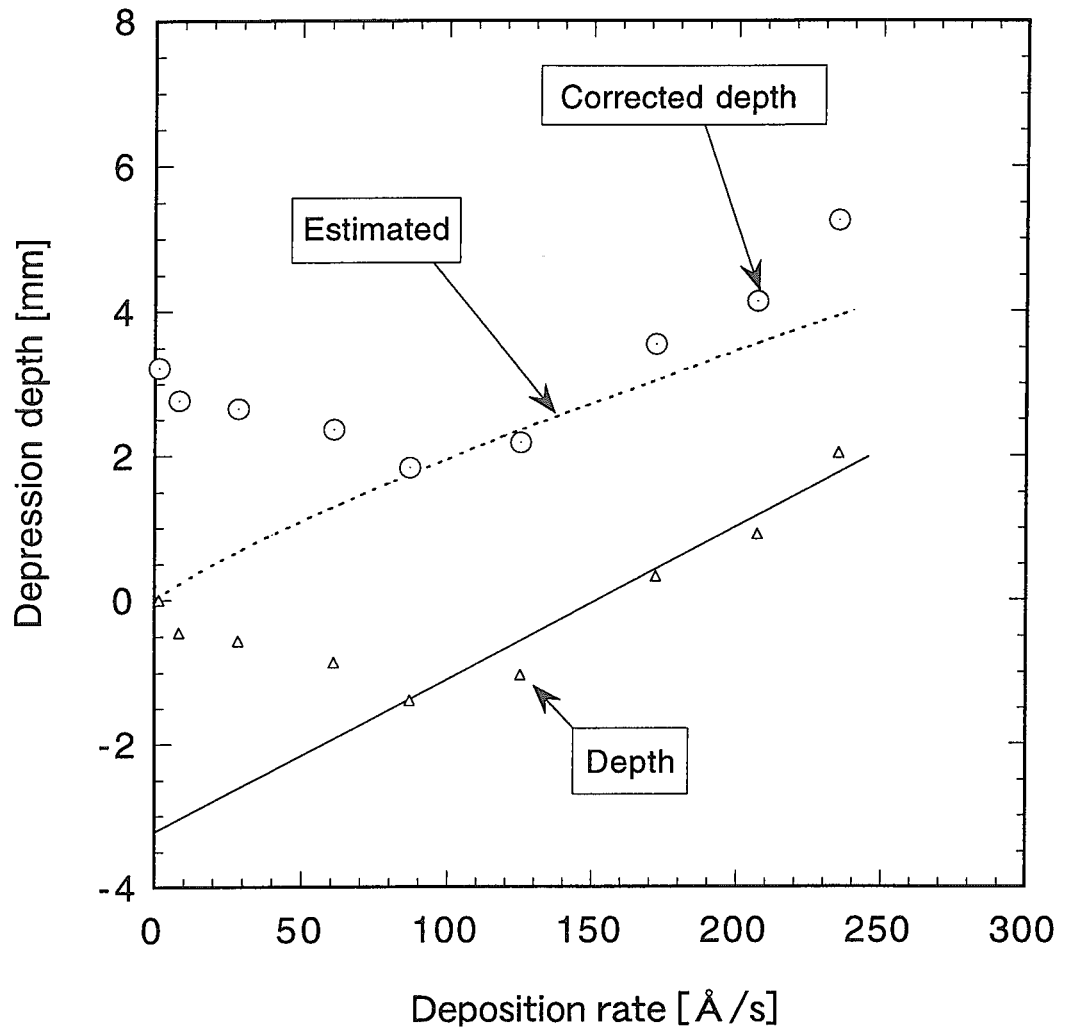


Fig. 9. Deposition rate dependence on depression depth of liquid copper surface.

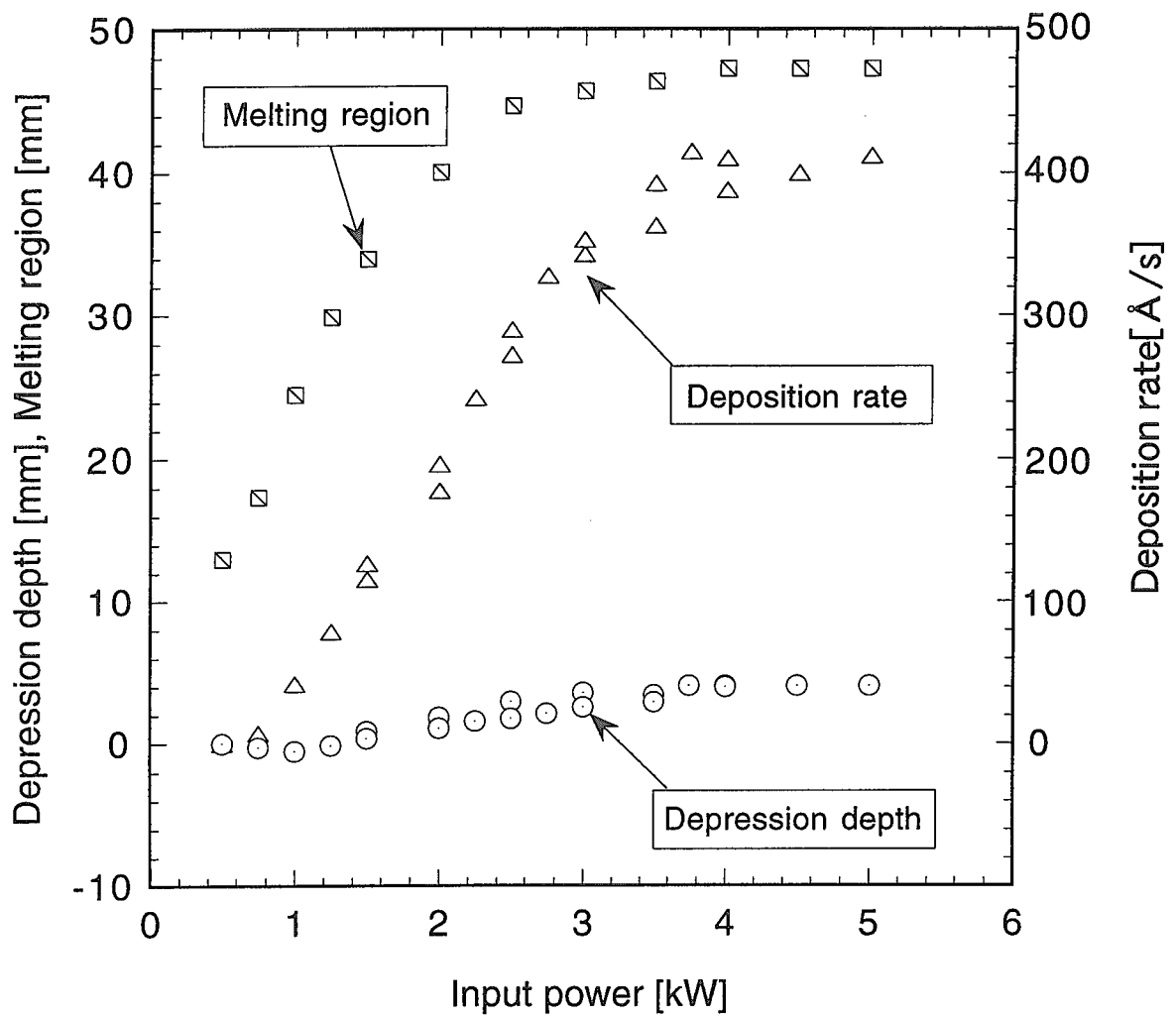


Fig.10. Input power dependence on depression depth, deposition rate and melting region of gadolinium.

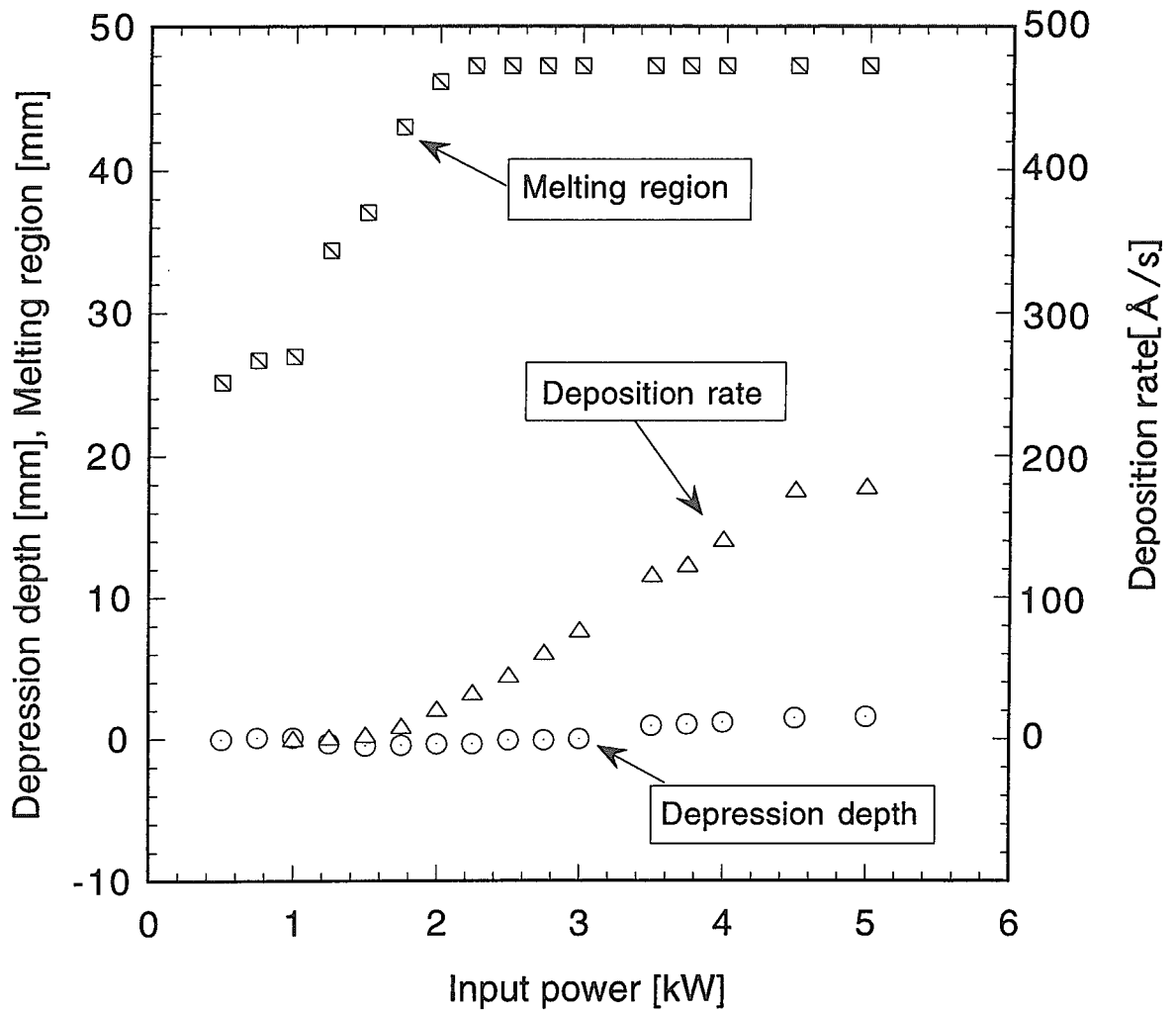


Fig.11. Input power dependence on depression depth, deposition rate and melted region of cerium.

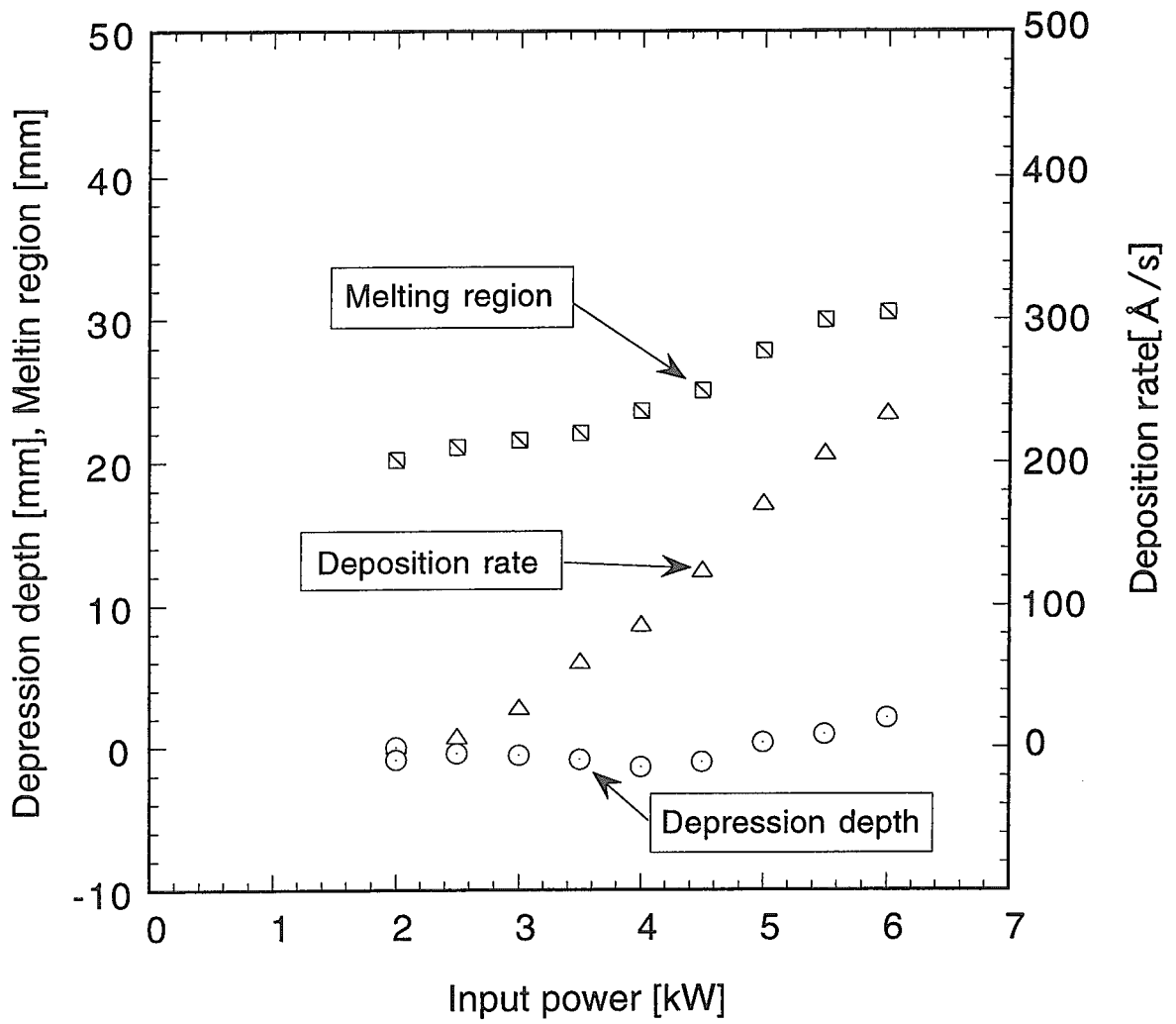
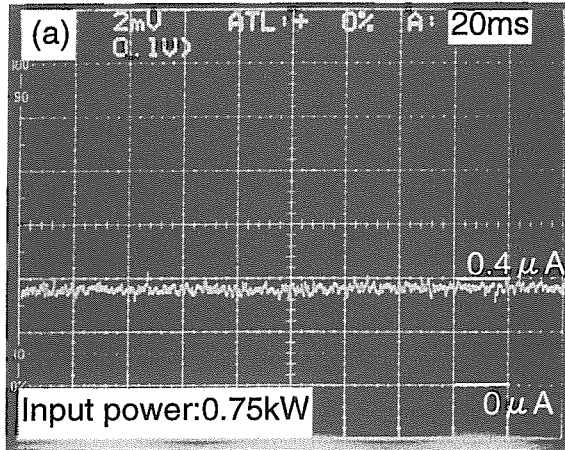
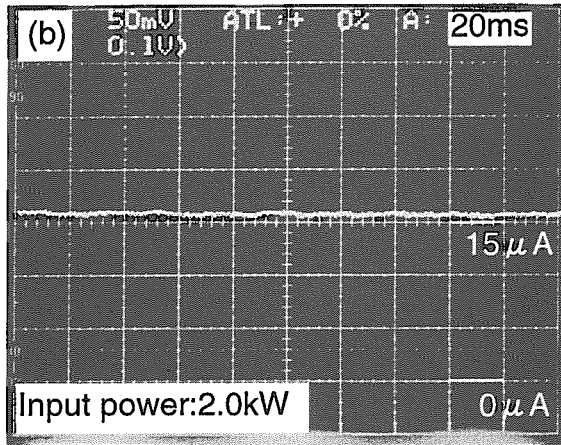


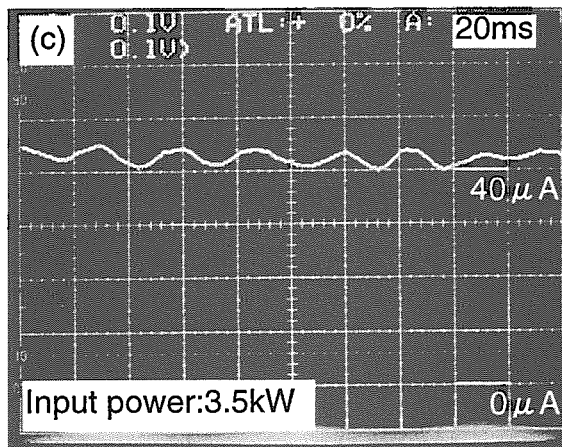
Fig. 12. Input power dependence on depression depth, deposition rate and melted region of copper.



Deposition rate: 9 $\text{\AA}/\text{s}$
Depression depth: -0.26 mm
Melting region: 17 mm



Deposition rate: 190 $\text{\AA}/\text{s}$
Depression depth: 1.86 mm
Melting region: 40 mm



Deposition rate: 380 $\text{\AA}/\text{s}$
Depression depth: 3.4 mm
Melting region: 46 mm

Fig. 13. Time variations of ion signals in the case of gadolinium evaporation.

This is a blank page.

国際単位系 (SI) と換算表

表1 SI基本単位および補助単位

量	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質質量	モル	mol
光度	カンデラ	cd
平面角	ラジアン	rad
立体角	ステラジアン	sr

表3 固有の名称をもつSI組立単位

量	名称	記号	他のSI単位による表現
周波数	ヘルツ	Hz	s ⁻¹
力	ニュートン	N	m·kg/s ²
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m ²
エネルギー, 仕事, 熱量	ジュール	J	N·m
工率, 放射束	ワット	W	J/s
電気量, 電荷	クーロン	C	A·s
電位, 電圧, 起電力	ボルト	V	W/A
静電容量	ファラド	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジーメンズ	S	A/V
磁束	ウェーバ	Wb	V·s
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ²
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A
セルシウス温度	セルシウス度	°C	
光束	ルーメン	lm	cd·sr
照度	ルクス	lx	lm/m ²
放射能	ベクレル	Bq	s ⁻¹
吸収線量	グレイ	Gy	J/kg
線量当量	シーベルト	Sv	J/kg

表2 SIと併用される単位

名称	記号
分, 時, 日	min, h, d
度, 分, 秒	°, ', "
リットル	l, L
トン	t
電子ボルト	eV
原子質量単位	u

1 eV = 1.60218 × 10⁻¹⁹ J
1 u = 1.66054 × 10⁻²⁷ kg

表4 SIと共に暫定的に維持される単位

名称	記号
オングストローム	Å
バ	b
バ	bar
ガ	Gal
キュリ	Ci
レントゲン	R
ラ	rad
レ	rem

1 Å = 0.1 nm = 10⁻¹⁰ m
1 b = 100 fm = 10⁻²⁸ m²
1 bar = 0.1 MPa = 10⁵ Pa
1 Gal = 1 cm/s² = 10⁻² m/s²
1 Ci = 3.7 × 10¹⁰ Bq
1 R = 2.58 × 10⁻⁴ C/kg
1 rad = 1 cGy = 10⁻² Gy
1 rem = 1 cSv = 10⁻² Sv

表5 SI接頭語

倍数	接頭語	記号
10 ¹⁸	エクサ	E
10 ¹⁵	ペタ	P
10 ¹²	テラ	T
10 ⁹	ギガ	G
10 ⁶	メガ	M
10 ³	キロ	k
10 ²	ヘクト	h
10 ¹	デカ	da
10 ⁻¹	デシ	d
10 ⁻²	センチ	c
10 ⁻³	ミリ	m
10 ⁻⁶	マイクロ	μ
10 ⁻⁹	ナノ	n
10 ⁻¹²	ピコ	p
10 ⁻¹⁵	フェムト	f
10 ⁻¹⁸	アト	a

(注)

- 表1-5は「国際単位系」第5版, 国際度量衡局 1985年刊行による。ただし, 1 eV および 1 uの値はCODATAの1986年推奨値によった。
- 表4には海里, ノット, アール, ヘクトールも含まれているが日常の単位なのでここでは省略した。
- barは, JISでは流体の圧力を表わす場合に限り表2のカテゴリに分類されている。
- EC閣僚理事会指令では bar, barnおよび「血圧の単位」mmHgを表2のカテゴリに入れている。

換算表

力	N (=10 ⁵ dyn)	kgf	lbf
	1	0.101972	0.224809
	9.80665	1	2.20462
	4.44822	0.453592	1

粘度 1 Pa·s(N·s/m²) = 10 P(ポアズ) (g/(cm·s))

動粘度 1 m²/s = 10⁴ St(ストークス) (cm²/s)

圧	MPa (=10 bar)	kgf/cm ²	atm	mmHg(Torr)	lbf/in ² (psi)
	1	10.1972	9.86923	7.50062 × 10 ³	145.038
力	0.0980665	1	0.967841	735.559	14.2233
	0.101325	1.03323	1	760	14.6959
	1.33322 × 10 ⁻⁴	1.35951 × 10 ⁻³	1.31579 × 10 ⁻³	1	1.93368 × 10 ⁻²
	6.89476 × 10 ⁻³	7.03070 × 10 ⁻²	6.80460 × 10 ⁻²	51.7149	1

エネルギー・仕事・熱量	J (=10 ⁷ erg)	kgf·m	kW·h	cal(計量法)	Btu	ft·lbf	eV
	1	0.101972	2.77778 × 10 ⁻⁷	0.238889	9.47813 × 10 ⁻⁴	0.737562	6.24150 × 10 ¹⁸
	9.80665	1	2.72407 × 10 ⁻⁶	2.34270	9.29487 × 10 ⁻³	7.23301	6.12082 × 10 ¹⁹
	3.6 × 10 ⁶	3.67098 × 10 ⁵	1	8.59999 × 10 ⁵	3412.13	2.65522 × 10 ⁶	2.24694 × 10 ²⁵
	4.18605	0.426858	1.16279 × 10 ⁻⁶	1	3.96759 × 10 ⁻³	3.08747	2.61272 × 10 ¹⁹
	1055.06	107.586	2.93072 × 10 ⁻⁴	252.042	1	778.172	6.58515 × 10 ²¹
	1.35582	0.138255	3.76616 × 10 ⁻⁷	0.323890	1.28506 × 10 ⁻³	1	8.46233 × 10 ¹⁸
	1.60218 × 10 ⁻¹⁹	1.63377 × 10 ⁻²⁰	4.45050 × 10 ⁻²⁶	3.82743 × 10 ⁻²⁸	1.51857 × 10 ⁻²²	1.18171 × 10 ⁻¹⁹	1

1 cal = 4.18605 J (計量法)
= 4.184 J (熱化学)
= 4.1855 J (15 °C)
= 4.1868 J (国際蒸気表)
仕事率 1 PS (仏馬力)
= 75 kgf·m/s
= 735.499 W

放射能	Bq	Ci
	1	2.70270 × 10 ⁻¹¹
	3.7 × 10 ¹⁰	1

吸収線量	Gy	rad
	1	100
	0.01	1

照射線量	C/kg	R
	1	3876
	2.58 × 10 ⁻⁴	1

線量当量	Sv	rem
	1	100
	0.01	1

