

JAERI-Research  
98-020



## 表面電離法による希土類原子ビームの計測

1998年3月

田村浩司・足立 肇・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。  
入手の問合せは、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、お申し越しください。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おこなっております。

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, 1998

編集兼発行 日本原子力研究所  
印 刷 いばらき印刷(株)

## 表面電離法による希土類原子ビームの計測

日本原子力研究所東海研究所燃料研究部

田村 浩司・足立 肇・柴田 猛順

(1998年2月20日受理)

表面電離を用いた小型原子ビーム検出器を試作し、さまざまな希土類元素 (Ce, Nd, Sm, Dy, Yb) を用いて、その特性を調べた。いずれの元素においても原子ビームによる蒸着速度と表面電離イオン電流に比例領域があり、本検出器によるこれら希土類原子ビーム流束測定が可能であることがわかった。Nd, Sm, Dy, Ybでは、100~200 Å/s程度までの蒸着速度に比例するイオン電流を得ることができた。Ceについては蒸着速度が30 Å/sを越えると、イオン電流に飽和傾向が見られた。これはCeの蒸気圧が低いため、Ce原子がフィラメントから十分速く離脱せず、Ce原子のフィラメントへの被覆によるものと考えられる。

Measurements of Atomic Beam Flux of Rare Earth Elements by Means of Surface Ionization

Koji TAMURA, Hajime ADACHI and Takemasa SHIBATA

Department of Chemistry and Fuel Research

Tokai Research Establishment

Japan Atomic Energy Research Institute

Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received February 20, 1998)

We have developed a compact atomic beam flux monitor by means of surface ionization. The property was studied by measuring the various rare earth elements (Ce, Nd, Sm, Dy, Yb). The proportional region between the beam flux and the surface ionization ion current was observed for all elements, which indicates that with this monitor atomic beam flux can be determined from the observed ion current. For Nd, Sm, Dy, and Yb, ion current was proportional to the beam flux of 100~200Å/s. On the other hand, the ion current for Ce saturated at the beam flux of 30Å/s. It is explained that since the vapor pressure of Ce atoms is low they do not desorp fast enough from the filament and the filament is covered with the atoms.

Keywords: Atomic Beam Flux Monitor, Surface Ionization, Rare-earth Element

## 目 次

1. はじめに .....	1
2. 実験 .....	1
3. 結果 .....	2
4. 考察 .....	3
5. おわりに .....	4
謝辞 .....	5
参考文献 .....	5

## Contents

1. Introduction .....	1
2. Experimental .....	1
3. Results .....	2
4. Discussion .....	3
5. Conclusions .....	4
Acknowledgments .....	5
References .....	5

This is a blank page.

## 1. はじめに

表面電離をイオン化法として用いた原子ビーム計測法は、従来の水晶振動子膜厚計を用いた測定に比べ、応答速度が速く高速の蒸気量変動が測定できる、長時間連続的に使用できる、などの利点を有する。Nd を用いた測定により、フィラメント電流を十分上げることにより、 $30\text{ A/s}$  程度までの蒸着速度に比例したイオン電流が得られ、また、電子ビーム加熱で問題となる  $100\text{ Hz}$  の蒸気変動も測定できることを示した[1]。本報告では、本検出器の実用化を目指し、直径  $35\text{ mm}$  の真空ポートから導入できる小型ビーム検出器を試作した。Nd 原子ビームについては、より高い蒸着速度でもイオン電流が比例するかどうか調べた。さらに、Ce, Sm, Dy, Yb の原子ビームを用いてその特性を調べ、本検出器のさまざまな元素の原子ビーム測定の可能性を調べた。

## 2. 実験

図 1 に試作した原子ビーム検出器を示す。本体は外径  $22\text{ mm}$  のシールドボックスにフィラメントとコレクター電極を組み込んだものである。高温表面は直径  $0.25\text{ mm}$ 、長さ  $22\text{ mm}$  の 5 % レニウム入タンクステンフィラメント (Goodfellow 社製) を直流電源で通電加熱することにより得た。フィラメントの電流電圧特性を図 2 に示す。ここで電圧はフィラメント両端で直接測定したものである。フィラメントへの投入電力と放射損失のバランスから、表面温度を推定した。ここで表面の放射率  $\epsilon$  はタンクステン表面と等しく  $2000\sim3000\text{ K}$  で  $0.30$  とした[2]。各フィラメント電流値での推定表面温度を図 3 に示す。

原子ビームは、検出器下部の長さ  $10\text{ mm}$  のスリットから導入した。フィラメント表面でイオン化した原子を、フィラメントを円筒状にかこみ、 $-225\text{ V}$  の負電位を印加したコレクター電極に集めた。コレクター電極からのイオン電流量は  $10\text{ k }\Omega$  の抵抗を介し、オシロスコープやレコーダーで電圧として測定した。原子ビームやフィラメントからの蒸発物により、絶縁セラミックスが覆われるのを避けるため、セラミックス部にはカバーを取り付けた。検出器は直径  $70\text{ mm}$  のコンフラットフランジに取り付け可能となっている。

フィラメントへの通電直後には、脱離ガスなどによるバックグラウンドシグナルの上昇が見られたが、測定時にはイオン信号に比べ十分低い値となった。フィラメント電流が  $7.5\text{ A}$  以下では、数時間の連続的使用によってもその特性にはほとんど変化はなく、安定に測定を行うことができた。しかし、フィラメント電流を  $8\text{ A}$  程度まで増加させると、バックグラウンドシグナルが大きく変動し始め、

安定な測定ができなくなった。これは、フィラメントに含まれるレニウムの蒸発が原因と考えられる。

実験装置の配置を図4に示す。希土類元素の原子ビームは、いずれもるつぼ中の金属試料を電子ビーム加熱(10kV)することにより得た。ただし Ce は、融点が低くしかも蒸気圧も低いので、Ce 金属の電子ビーム加熱では十分蒸発させることができない。このため、Ce を含浸させた多孔質タンクステンを電子ビーム加熱することにより原子ビームを得た。<sup>[3]</sup> 生成した原子ビームに含まれるプラズマは、除去電極に-50V を印加することにより除いた<sup>[4]</sup>。検出器はるつぼの上 425mm のところに置いた。また、検出器と同じ高さに配置した水晶振動子膜厚計（日本真空技術（株）製、CRTM-1000）で、原子ビーム流束（以下、原子ビーム量と記す）に比例する蒸着速度を同時に測定した。

また、これまでに電子ビーム加熱で生成した Gd や Nd の原子ビームには、酸化物等がほとんど含まれていないことを確かめている。これは金属液体表面からの蒸発であるためと考えられる。これに対して、Yb や Sm では、電子ビームにより液化しないで固体表面から昇華して蒸発する。このとき金属表面が酸化物になっていれば、YbO や SmO が蒸発する可能性がある。このため、Yb の蒸発時に四重極型質量分析計を用いて、原子ビームの組成を調べたが、YbO、YbO<sub>2</sub> 等のピークは認められず、蒸発種は Yb 原子のみであることを確認した。

### 3. 結果

図5～9にそれぞれ、Nd, Ce, Sm, Dy, Yb の原子ビームから得られたイオン電流の蒸着速度依存性を示す。いずれもフィラメント電流を変えて測定した。いずれの元素においても、蒸着速度とともに増加するイオン電流が得られた。また、イオン電流はフィラメント電流の増加とともに増加した。

Nd の場合、フィラメント電流を 6.5A 以上にすれば、約 200 Å/s 以上の蒸着速度に比例したイオン電流が得られた。しかし、フィラメント電流 6A では蒸着速度 20 Å/s 以上で、5.5A では 2 Å/s 以上でイオン電流は蒸着速度に比例せず、飽和する傾向が見られた。

Ce の場合、フィラメント電流を 7.5A にすると、蒸着速度が 30 Å/s まではイオン電流に比例しているが、30 Å/s 以上になるとイオン電流は蒸着速度に比例せず飽和する傾向が見られた。フィラメント電流を 7A にすると比例領域は 5 Å/s 以下になり、さらにフィラメント電流を下げ、フィラメント温度を下げると蒸着速度とイオン電流の比例領域はなくなった。

Sm と Yb ではフィラメント電流 5A 以上で、Dy では 6A 以上流すことで、測

定した全領域で蒸着速度に比例したイオン電流が得られた。

図10に各元素のフィラメント電流7.5Aでの、イオン電流と蒸着速度の関係をまとめたものを示す。いずれの元素においてもイオン電流が蒸着速度すなわち原子ビーム量に比例する領域がある。この比例領域を用いることで本検出器のみで原子ビーム量の測定ができることがわかる。図11は今回測定した金属原子の蒸気圧を示したものである。蒸気圧の低いCeでは、フィラメント電流を7.5Aにしてフィラメント温度を高温にしても、比例領域は蒸着速度30Å/s以下でしかない。Ceについて蒸気圧の低いNdで6.5A以上、Dyで6A以上で蒸着速度に比例したイオン電流が得られた。これに対して、蒸気圧の高いYb, Smでは、フィラメント電流5A以上の測定領域で、蒸着速度に比例したイオン電流が得られている。

#### 4. 考察

原子のイオン化係数 $\beta$ は次式で表わされる。

$$\beta = N_+ / (N_+ + N_0) = M \cdot i / (e \cdot \rho \cdot N \cdot S \cdot t \cdot R), \quad (1)$$

ここで、 $N_+$ ,  $N_0$ は表面から脱離するイオンと中性原子との数、Mは元素の原子量、iはイオン電流量、eは電子の電荷、ρは元素の密度、Nはアボガドロ数、Sはフィラメントへの照射面積、tはメッシュの透過率、Rは蒸着速度である。フィラメント電流7.5Aのときのイオン電流から、上式(1)により得られた各元素の30Å/sでのイオン化係数を図12(β-mes)に示す。

表面電離によるイオン化係数 $\beta$ はSaha-Langmuirの式により記述される[5]。  
 $\beta = \alpha / (\alpha + 1),$

$$\alpha = N_+ / N_0 = (q_+/q_0) \exp [(\phi - E_i) / k T],$$

ここに、 $q_+, q_0$ はイオンと原子の分配関数、 $\phi$ はフィラメントの仕事関数、 $E_i$ は原子のイオン化ポテンシャルである。 $E_i$ は文献値を用いた[6]。また、 $q_+, q_0$ も文献[6]に記されている原子とイオンの基底状態近傍の準位のJ値とエネルギー値を用いて計算した。用いたフィラメントは合金であるので、その仕事関数が不明である。ここでは仕事関数がタンクステンに等しいとした場合(4.50eV)の $\beta_{cal}$ を図12に示す。イオン化係数の変化の傾向は、Sahaの式によりよく表されていることがわかる。

イオン化係数のフィラメント温度依存性をNdの場合について図13に示す。ここで、蒸着速度10Å/s～30Å/sでのイオン化率をそれぞれ $\beta_{10} \sim \beta_{30}$ として示す。イオン化係数はフィラメント温度の低下により急激に低下した。また、蒸着速度を増すと、特に低温域でのイオン化係数が低下することがわかる。

図14に、 $30\text{ \AA/s}$ でのSahaの式より得られたイオン化係数の温度依存性 $\beta_w$ を、同じく $30\text{ \AA/s}$ での実験結果 $\beta_{mes}$ とともに示す。計算結果は、高温域では実験結果と近い値となっているが、低温域では実験結果と傾向が異なることがわかる。また、高温領域でも計算結果は実験結果と比べ小さくなっている。この計算ではフィラメント表面がWで覆われていると仮定したが、実験に用いたフィラメントはWとReの合金であるため、イオン化も両元素の寄与によって起きると考えられる。仕事関数にレニウムの値を用いた計算結果 $\beta_{Re}$ も図14に示す。フィラメントのバルク組成が表面でも保たれていると仮定した場合のイオン化係数 $\beta_{WRe}$ を、

$$\beta_{WRe} = S_w \beta_w + S_{Re} \beta_{Re},$$

で評価した。ここで、 $S_w$ と $S_{Re}$ はWとReに覆われた表面の割合、すなわち合金組成である。この計算値も図14( $\beta_{WRe}$ )に示す。フィラメントの合金組成を仮定すると、高温域のイオン化係数はより実測に近づくことがわかった。

しかし、フィラメント温度低下時の、イオン化係数の大幅な低下は、図10におけるイオン電流の蒸気量依存性の飽和と対応しており、本計測器の使用範囲を制限する原因となる。これは、フィラメント温度が低下すると、蒸発原子が表面に吸着してから脱離するまでの時間が増加し、フィラメント表面が蒸発原子で覆われることが原因であると考えられる[7]。希土類元素の仕事関数はReやWに比べいずれも小さいため(Ndで $3.3\text{ eV}$ )[8]、希土類元素に覆われたフィラメント表面はイオン化には寄与しなくなり、イオン化係数が低下したものと考えられる。Ceの蒸気圧はNdより低いため、フィラメント電流を $7.5\text{ A}$ ( $3050\text{ K}$ )にしても蒸着速度 $30\text{ \AA/s}$ 以上で飽和傾向が見られた。これは、Ceが今回測定した元素の中で最も蒸気圧が低いため、フィラメント上のCe原子が脱離に時間を要し、フィラメント表面がCeで覆われたためであると考えられる。一方、蒸気圧の高いYb, Smでは、フィラメント電流 $5\text{ A}$ ( $2310\text{ K}$ )以上でフィラメント表面が蒸発原子で覆われず、蒸着速度に比例するイオン電流が得られている。

## 5. おわりに

表面電離を用いた小型原子ビーム検出器を試作し、さまざまな希土類元素(Ce,Nd,Sm,Dy,Yb)の原子ビームを用いて、その特性を調べた。いずれの元素においても原子ビーム量とイオン電流に比例領域があり、本検出器によるこれら希土類原子ビーム量測定が可能であることがわかった。蒸着速度 $100\sim200\text{ \AA/s}$ 以上のビーム量に比例したイオン電流を得るに必要なフィラメント電流は、

蒸気圧の高い Sm や Yb では 5 A で十分なのに対し、Dy では 6A 以上、蒸気圧の低い Nd では 6.5A 以上必要であった。さらに蒸気圧の低い Ce ではフィラメント電流を 7.5A にしても 30Å/s を越えるとイオン電流に飽和傾向が見られた。イオン電流の飽和はフィラメントに付着した原子が十分速く離脱せずフィラメントを覆い、フィラメントの仕事関数が低下するためと考えられる。

### 謝辞

本研究の実験、取りまとめにあたり、岡崎哲治氏をはじめ同位体分離研究室のかたがたに御協力いただきました。ここに、心から感謝いたします。また、本論文を読んでいただき貴重なコメントをして下さった燃料研究部物理化学研究室の池添康正氏に深く感謝いたします。

### 参考文献

- 1] 田村浩司、柴田猛順: JEARI-Tech, 97-011
- 2] Brandes E.A. ed.: "Smithells Metal Reference Book", Butterworths, London, 17 (1983).
- 3] Ohba H., Amekawa K., and Shibata T., JAERI-Tech, 97-020 (1997).
- 4] Ohba H., Nishimura A., Ogura K., and Shibata T.: Rev. Sci. Instrum., 65, 657 (1994).
- 5] Kaminski M.: "Atomic and Ionic Impact Phenomena on Metal Surface", Springer-Verlag, Berlin Heidelberg New York, 127 (1965).
- 6] Martin W.C., Zalubas R., and Hagan L.: "Atomic Energy Levels - The Rare-earth Elements", NSRDS-NBS 60, (1978).
- 7] Wilson R.G., and Brewer G.R.: "Ion Beams with Applications to Ion Implantation", John Wiley & Sons, New York, p29 (1973).
- 8] Michaelson H.B.: J.Appl.Phys., 21, 536 (1950).

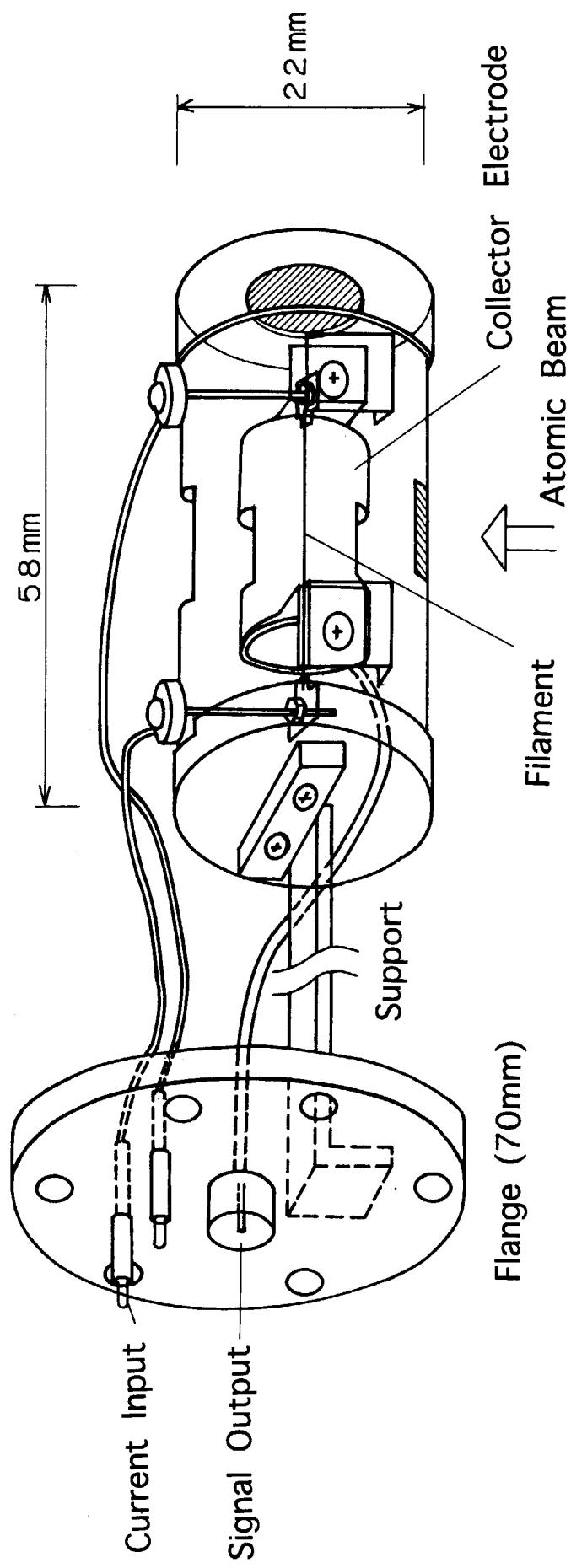


Figure 1. Schematics of atomic beam flux monitor by means of surface ionization.

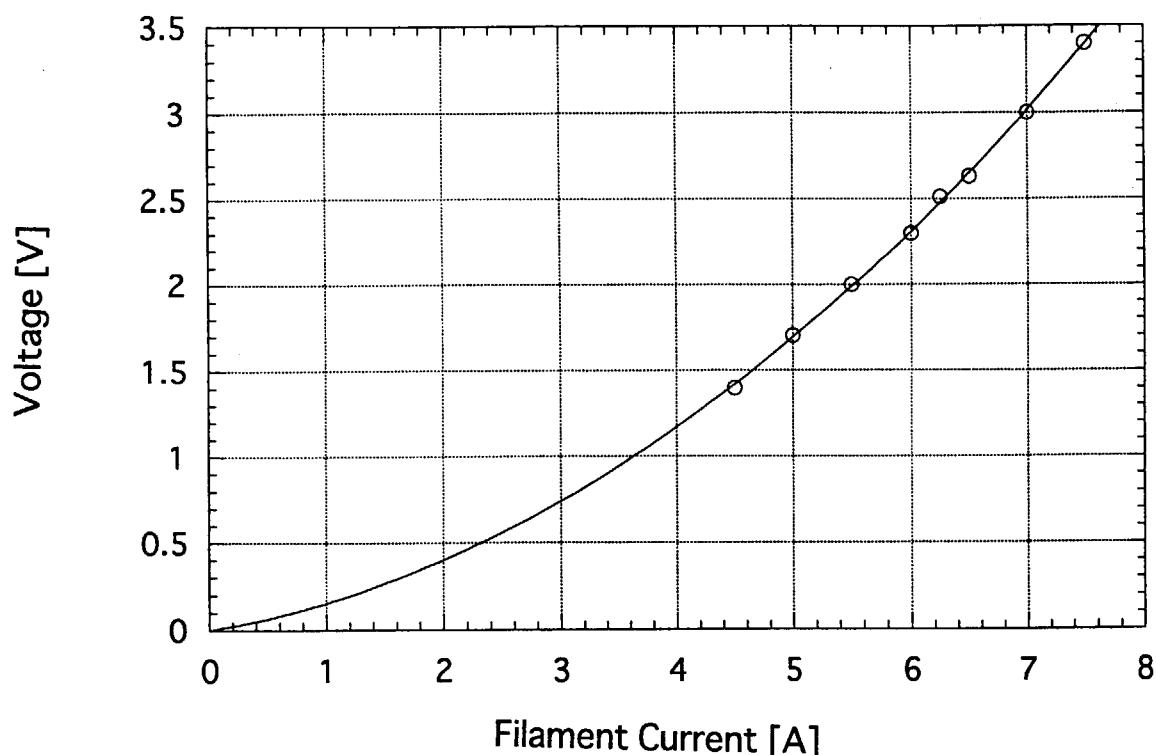


Figure 2. The relation of filament current and voltage.

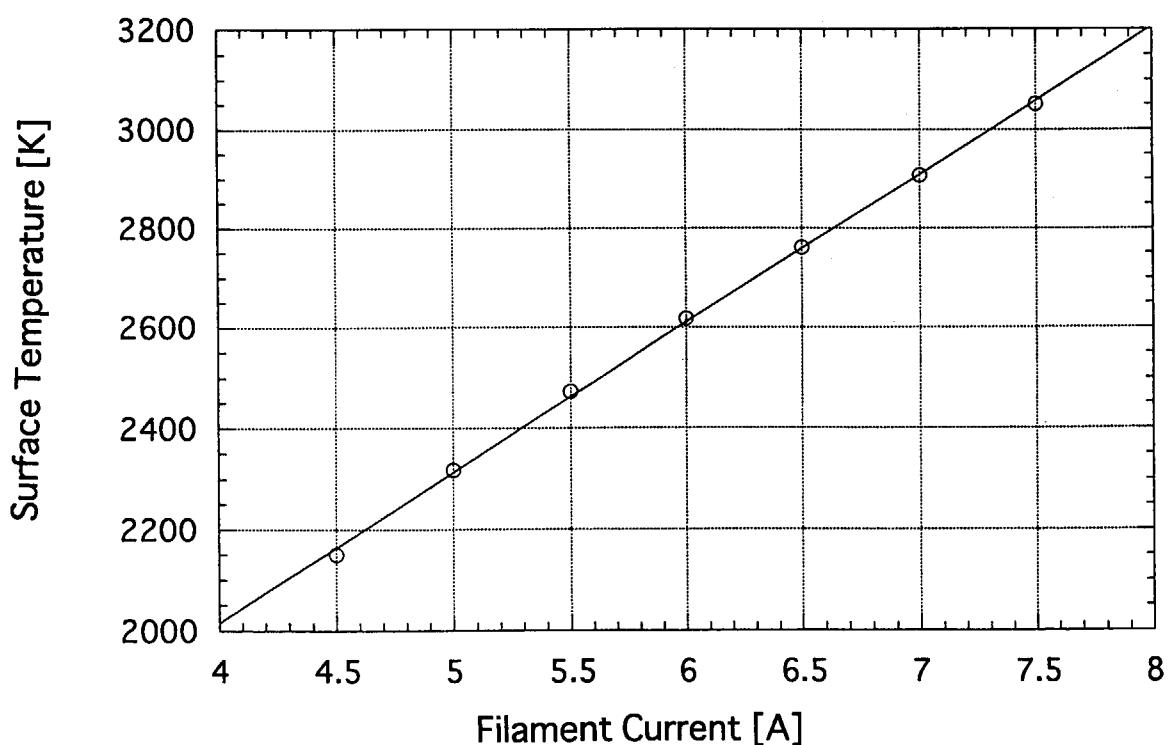


Figure 3. The estimated filament temperature as a function of filament current.

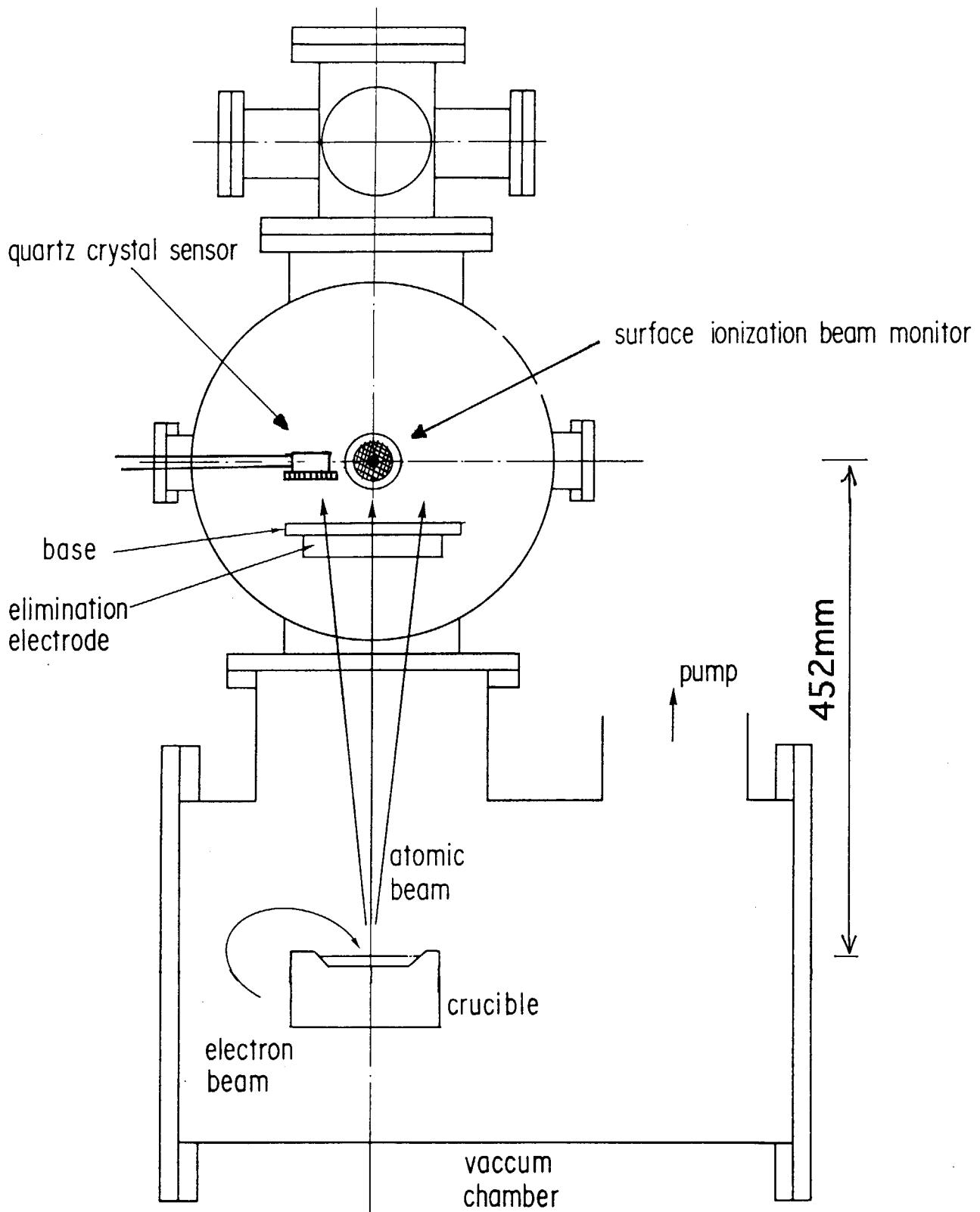


Figure 4. Schematics of experimental apparatus.

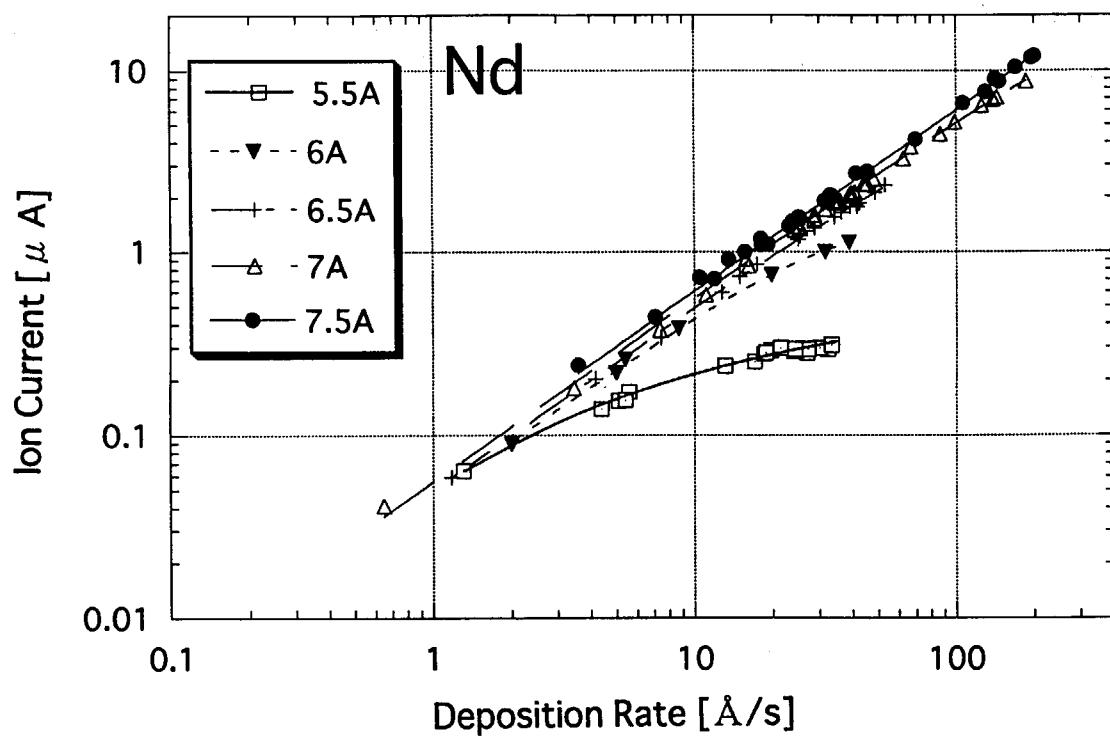


Figure 5. Surface ionization ion current of Nd as a function of atomic vapor deposition rate measured with the crystal thickness monitor.

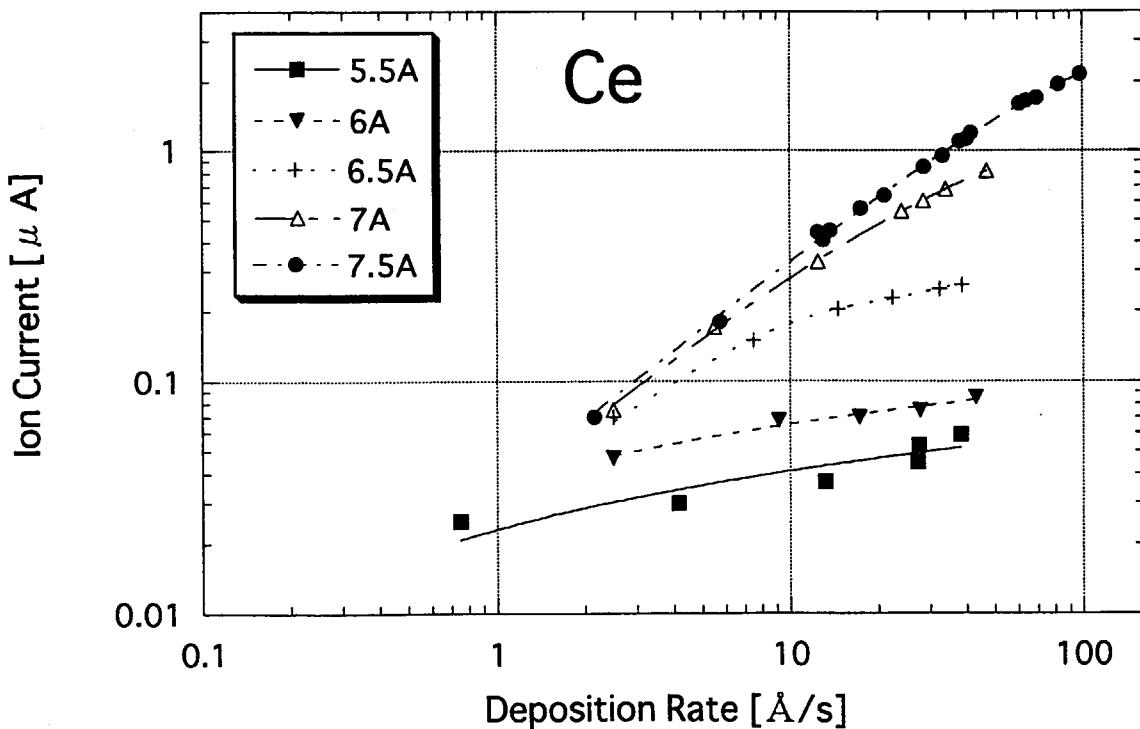


Figure 6. Surface ionization ion current of Ce as a function of atomic vapor deposition rate measured with the crystal thickness monitor.

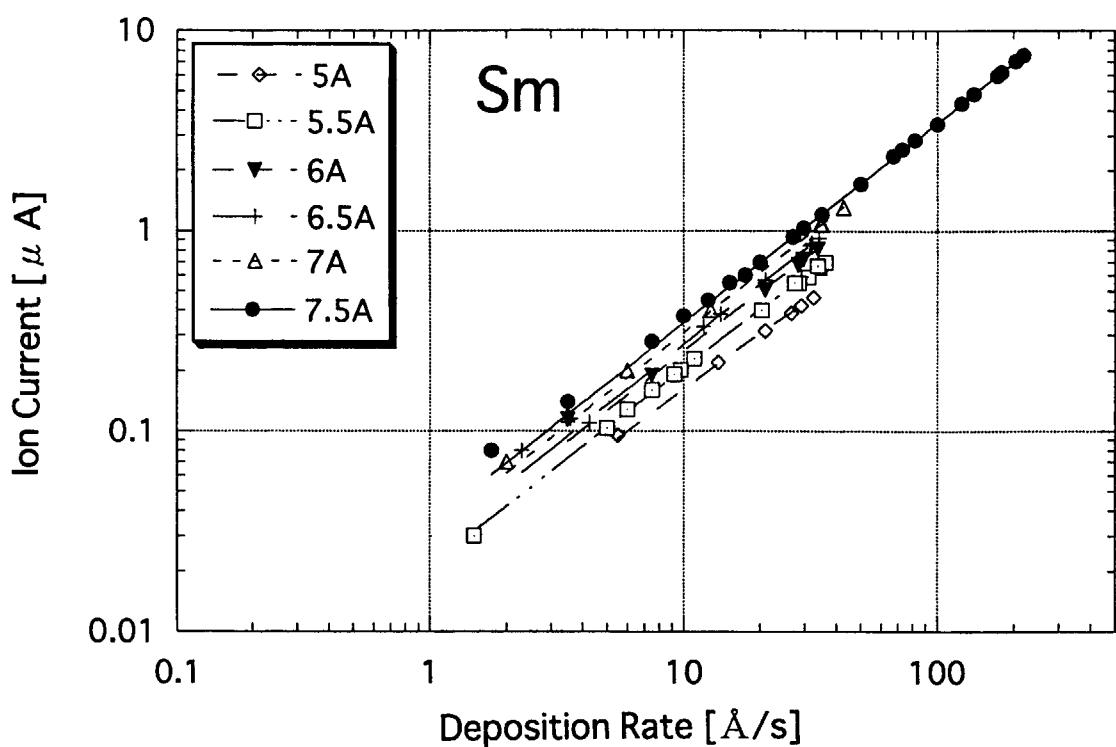


Figure 7. Surface ionization ion current of Sm as a function of atomic vapor deposition rate measured with the crystal thickness monitor.

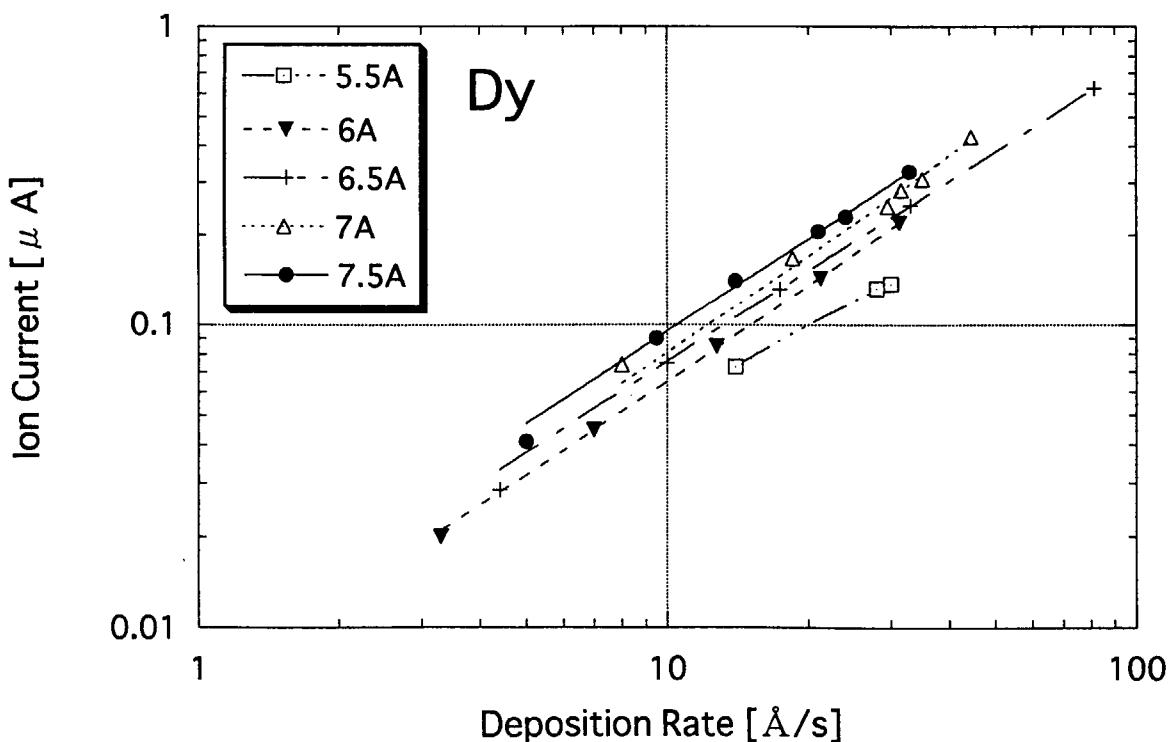


Figure 8. Surface ionization ion current of Dy as a function of atomic vapor deposition rate measured with the crystal thickness monitor.

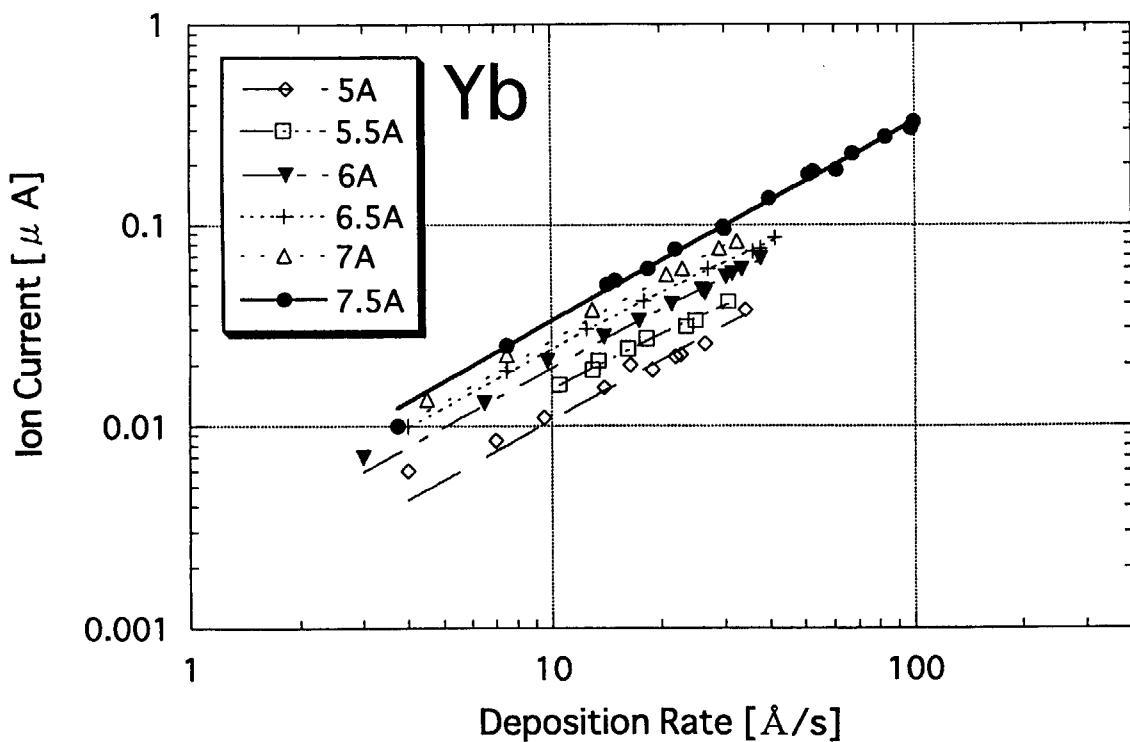


Figure 9. Surface ionization ion current of Yb as a function of atomic vapor deposition rate measured with the crystal thickness monitor.

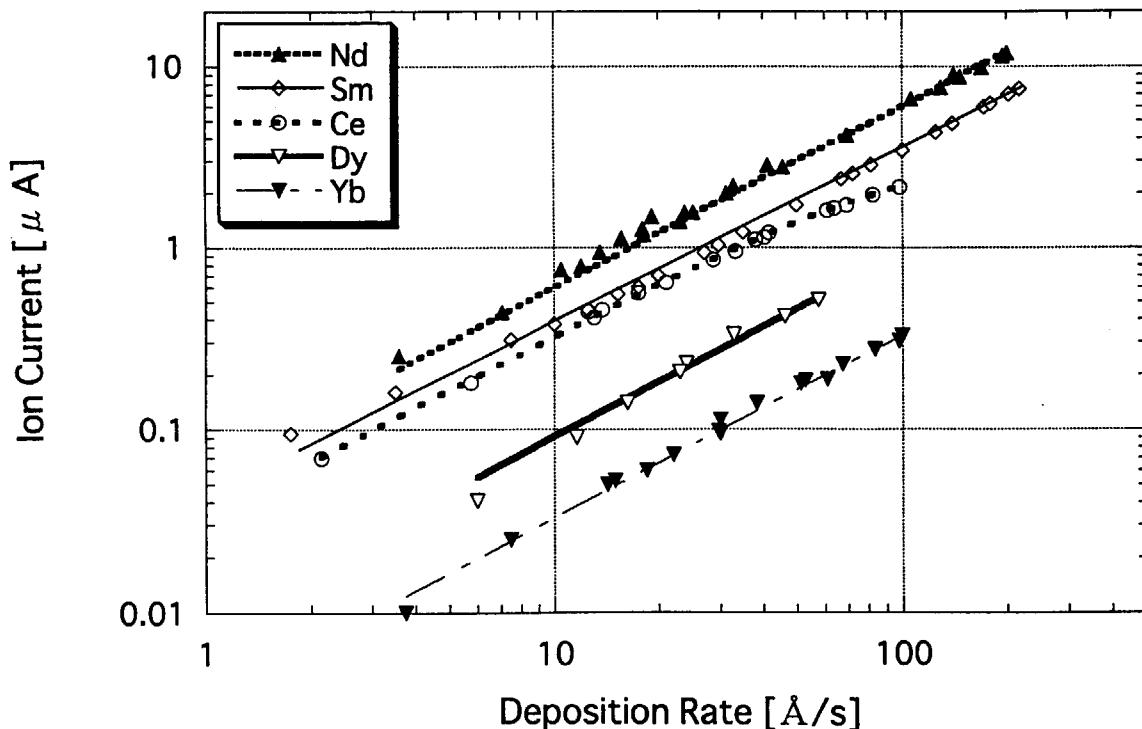


Figure 10. Surface ionization ion current of various rare earth elements as a function of deposition rate at the filament current of 7.5A.

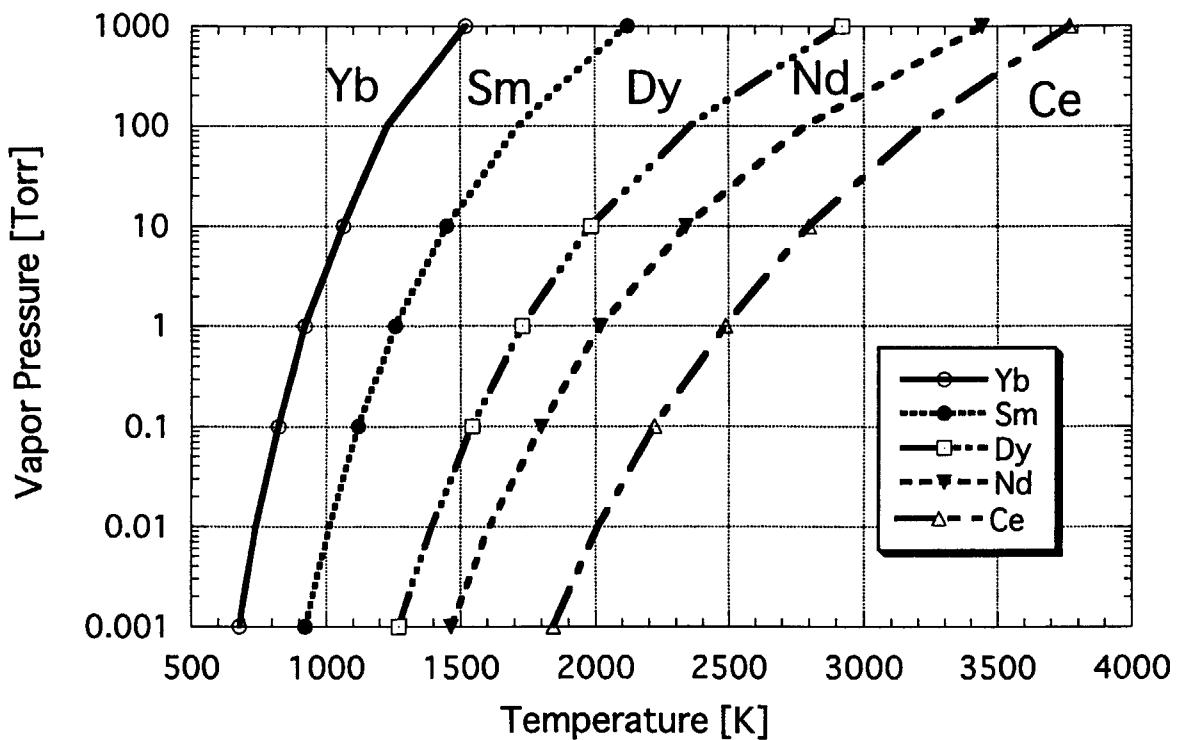


Figure 11 Vapor pressure of Yb, Sm, Dy, Nd, and Ce as a function of temperature.

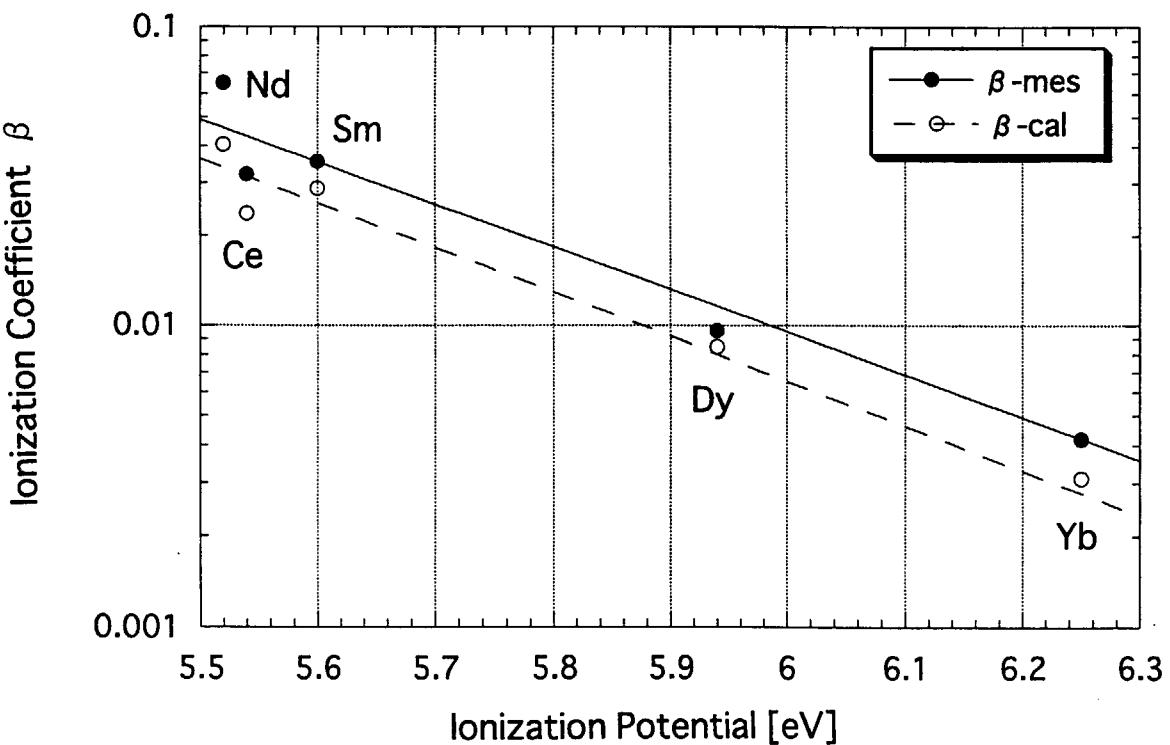


Figure 12. Experimental ( $\beta_{\text{mes}}$ ) and calculated ( $\beta_{\text{cal}}$ ) ionization coefficient at 30 Å/s and at the deposition rate of 30 Å/s.

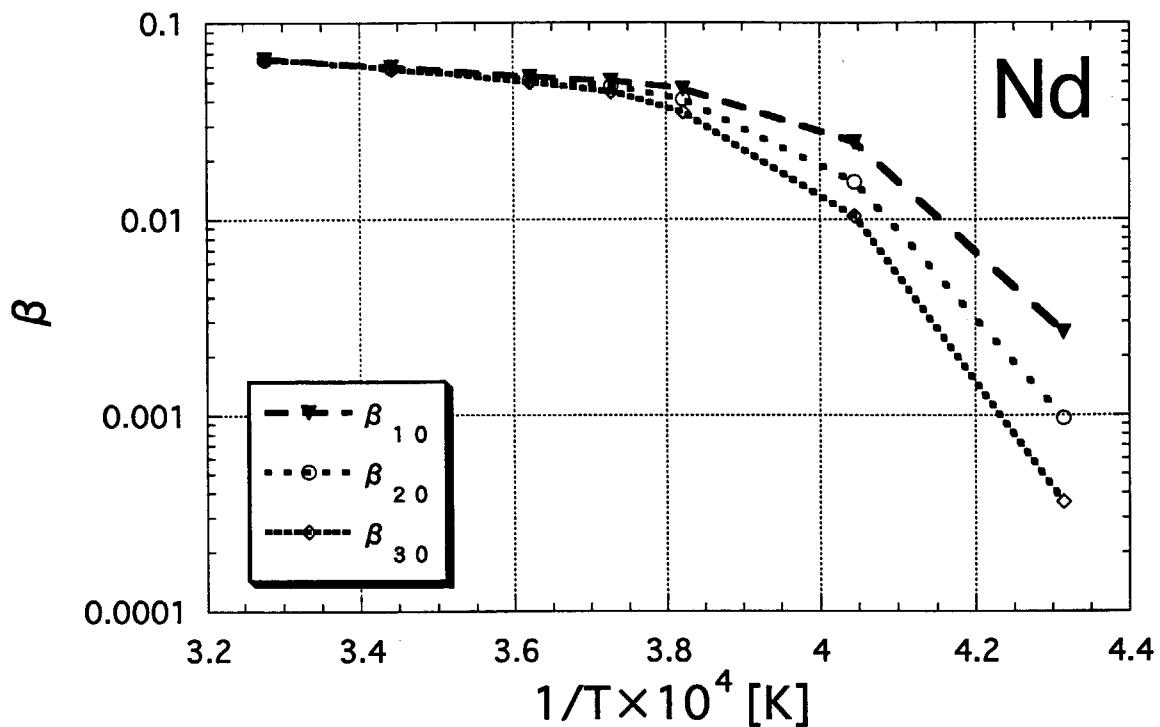


Figure 13. Experimental ionization coefficient of Nd from 10 Å/s ( $\beta_{10}$ ) to 30 Å/s ( $\beta_{30}$ ) as a function of filament temperature.

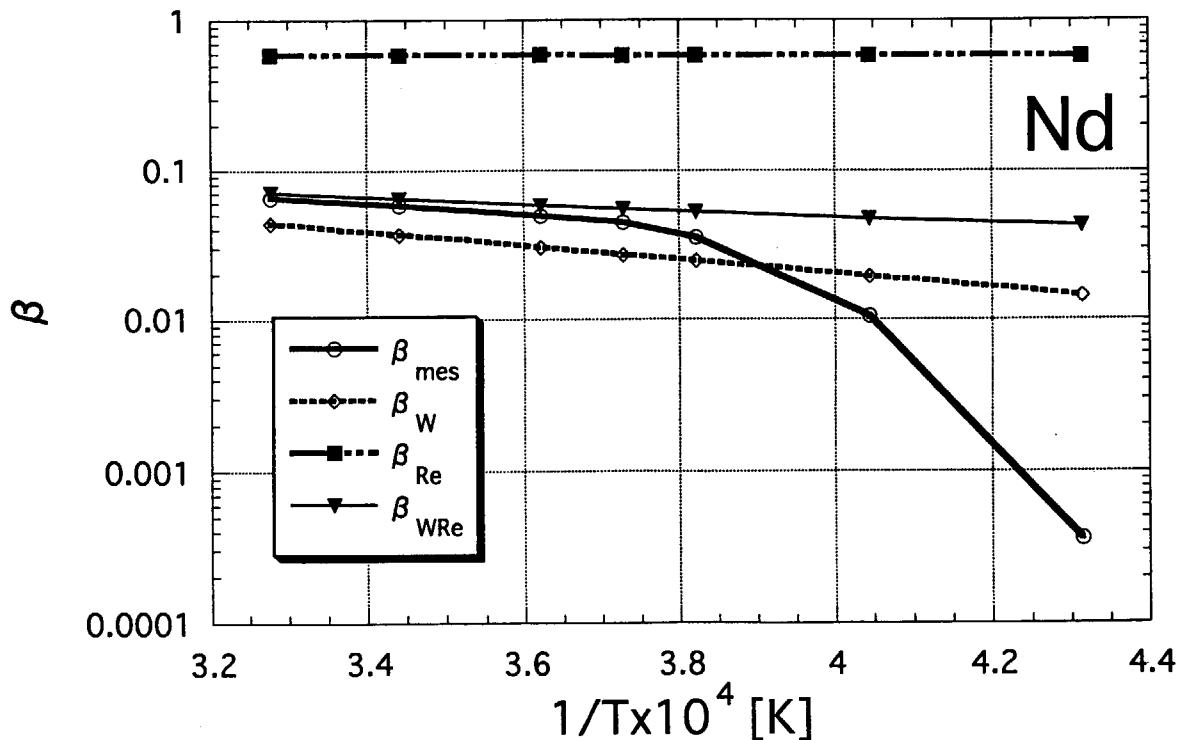


Figure 14. Experimental ( $\beta_{mes}$ ) and calculated ionization coefficient assuming W surface ( $\beta_w$ ), Re surface ( $\beta_{Re}$ ), and W-Re alloy surface ( $\beta_{WRe}$ ) at the deposition rate of 30 Å/s.

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 <sup>-1</sup>
力	ニュートン	N	m·kg/s <sup>2</sup>
圧力、応力	パスカル	Pa	N/m <sup>2</sup>
エネルギー、仕事、熱量	ジュール	J	N·m
功率、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	ファラード	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジーメンス	S	A/V
磁束	ウェーバ	Wb	V·s
磁束密度	テスラ	T	Wb/m <sup>2</sup>
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	
光束度	ルーメン	lm	cd·sr
照度	ルクス	lx	lm/m <sup>2</sup>
放射能	ベクレル	Bq	s <sup>-1</sup>
吸収線量	グレイ	Gy	J/kg
線量等量	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<sup>-19</sup>J

1 u=1.66054×10<sup>-27</sup>kg

表5 SI接頭語

倍数	接頭語	記号
10 <sup>18</sup>	エクサ	E
10 <sup>15</sup>	ペタ	P
10 <sup>12</sup>	テラ	T
10 <sup>9</sup>	ギガ	G
10 <sup>6</sup>	メガ	M
10 <sup>3</sup>	キロ	k
10 <sup>2</sup>	ヘクト	h
10 <sup>1</sup>	デカ	da
10 <sup>-1</sup>	デシ	d
10 <sup>-2</sup>	センチ	c
10 <sup>-3</sup>	ミリ	m
10 <sup>-6</sup>	マイクロ	μ
10 <sup>-9</sup>	ナノ	n
10 <sup>-12</sup>	ピコ	p
10 <sup>-15</sup>	フェムト	f
10 <sup>-18</sup>	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、1eVおよび1u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、ヘクタ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のカテゴリーに分類されている。
- E C開催理事会指令ではbar、barnおよび「血圧の単位」mmHgを表2のカテゴリーに入れている。

換算表

力	N(=10 <sup>5</sup> dyn)	kgf	lbf	MPa(=10bar)	kgf/cm <sup>2</sup>	atm	mmHg(Torr)	lbf/in <sup>2</sup> (psi)
	1	0.101972	0.224809	1	10.1972	9.86923	7.50062×10 <sup>3</sup>	145.038
	9.80665	1	2.20462	0.0980665	1	0.967841	735.559	14.2233
	4.44822	0.453592	1	0.101325	1.03323	1	760	14.6959
				1.33322×10 <sup>-4</sup>	1.35951×10 <sup>-3</sup>	1.31579×10 <sup>-3</sup>	1	1.93368×10 <sup>-2</sup>
				6.89476×10 <sup>-3</sup>	7.03070×10 <sup>-2</sup>	6.80460×10 <sup>-2</sup>	51.7149	1

粘度 1 Pa·s(N·s/m<sup>2</sup>)=10 P(ポアズ)(g/(cm·s))

動粘度 1 m<sup>2</sup>/s=10<sup>4</sup>St(ストークス)(cm<sup>2</sup>/s)

1 cal=4.18605J(計量法)

=4.184J(熱化学)

=4.1855J(15°C)

=4.1868J(国際蒸気表)

仕事率 1 PS(仏馬力)

=75 kgf·m/s

=735.499W

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

放射能	Bq	Ci
	1	2.70270×10 <sup>-11</sup>
	3.7×10 <sup>10</sup>	1

吸収線量	Gy	rad
	1	100
	0.01	1

照射線量	C/kg	R
	1	3876
	2.58×10 <sup>-4</sup>	1

線量当量	Sv	rem
	1	100
	0.01	1

(86年12月26日現在)

