

JAERI-Tech  
97-020



電子ビーム加熱により生成した  
金属原子蒸気流の角度分布

1997年3月

大場弘則・雨川和博・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開している研究報告書です。  
入手の間合わせは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越してください。なお、このほかに財団法人原子力公済会資料センター（〒319-11 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 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1997

編集兼発行 日本原子力研究所  
印 刷 (株)高野高速印刷

電子ビーム加熱により生成した金属原子蒸気流の角度分布

日本原子力研究所東海研究所燃料研究部  
大場 弘則・雨川 和博・柴田 猛順

(1997年3月3日受理)

電子銃蒸発源により生成した蒸発流の角度分布を、アルミニウム、銅、ガドリニウム、セリウムについて測定した。また多孔質体を用いて生成させた銅蒸気流の角度分布特性についても測定した。蒸発の角度分布は、蒸発源から等距離の120mm上に取り付けた半円状の蒸着板に付着した蒸着重量から求めた。測定分布は $\cos^n \theta$  ( $n$ : 角度分布指数,  $\theta$ : 蒸発面の法線に対する角度) で表すことができ、低密度から高密度の蒸発にわたって $n=1$ から連続的に増加した。多くの試料について、指数 $n$ は蒸着速度の0.25乗に比例することを確認した。多孔質体を使用して生成させた極端に高い密度の蒸気流の角度分布は余弦則では表現できないことがわかった。蒸発原子の平均自由行程と蒸発スポット径で定義した蒸発面上でのクヌーセン数の逆数 $Kn_0^{-1}$ を用いると、各試料の蒸発角度分布の指数 $n$ が共通の定数 $\alpha$ を用いて $n = \alpha Kn_0^{-1}$ で表せることがわかった。

Angular Distributions of Atomic Vapor Stream Produced by Electron Beam Heating

Hironori OHBA, Kazuhiro AMEKAWA and Takemasa SHIBATA

Department of Chemistry and Fuel Research  
Tokai Research Establishment  
Japan Atomic Energy Research Institute  
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received March 3, 1997)

The angular distributions were measured as a function of deposition rate for aluminium, copper, gadolinium and cerium vapor stream produced by an electron beam gun with water-cooled copper crucible. The distributions were recorded on the mounted on a semicircular (120mm in radius) mask over the evaporation source. The measured distributions were able to be described by a simple cosine law, that is  $\cos^n \theta$ , except for the case of extremely high evaporation rate with a porous material, where  $n$  is a rate-dependent beaming exponent,  $\theta$  is the angle from the vertical. For many kinds of evaporants, it was confirmed that the beaming exponents increase continuously from unity to 3 or 4 with increasing deposition rate and are approximately proportional to  $R^{0.25}$ , where  $R$  is the deposition rate. Moreover, it was found that the beaming exponents  $n$  are able to be expressed as  $n = \alpha Kn_0^{-0.25}$ , where  $Kn_0^{-1}$  is the inverse of Knudsen number, which is defined by the mean free path of evaporated atoms and the evaporation spot size, and  $\alpha$  is the constant.

Keywords : Electron Beam Heating, Evaporation, Angular, Distribution, Aluminium, Copper, Gadolinium, Cerium,  
Porous Material, Cosine Law, Inverse of Knudsen Number

## 目 次

1. はじめに .....	1
2. 測定方法 .....	2
3. 測定結果および考察 .....	3
3.1 各試料の蒸着速度の電子ビーム入力依存性 .....	3
3.2 水冷銅るつばからの蒸発角度分布 .....	4
3.3 多孔質体を用いた場合の蒸発角度分布 .....	7
3.4 広角度分布について .....	8
3.5 クヌーセン数を用いた指数の $n$ 評価 .....	9
4. おわりに .....	11
参考文献 .....	12

## Contents

1. Introduction .....	1
2. Experimental Procedure .....	2
3. Results and Discussion .....	3
3.1 Deposition Rates of Evaporants as a Function of Electron Beam Input .....	3
3.2 Angular Distributions of Vapor Produced from a Water-cooled Copper Crucible .....	4
3.3 Angular Distribution of Vapor Produced with a Porous Materials .....	7
3.4 On the Angular Distributions at a Large Angle from the Vertical .....	8
3.5 Estimation of the Beaming Exponent Using Knudsen Number .....	9
4. Conclusion .....	11
References .....	12

## 1.はじめに

電子ビーム蒸発源は高融点金属でも容易に大量の原子蒸気を作ることができることから、真空蒸着や原子衝突実験、原子法レーザー同位体分離等多くの分野で用いられている。電子ビーム加熱蒸発は水冷るつば内に置かれた試料に電子ビームを照射して溶融させる。液体金属表面の電子ビーム照射スポットからは原子蒸気が発生し、上方に方向性を持つ蒸気流を形成する。この原子蒸気方向性は、真空蒸着では成膜時の膜厚分布として材料の機能および品質を左右するものとなり、衝突実験装置では反応部の設計、原子法レーザー同位体分離では分離装置の機器設計に大きな影響を与える。特に原子法レーザー同位体分離装置においては原子蒸気の利用効率を高めることが大きな課題となっている。このため、蒸気利用効率を向上させる技術開発のための基礎データとして、蒸発角度分布特性を知ることが極めて重要である。

これまでに電子ビーム加熱により生成した蒸気の角度分布は、アルミニウムや銅、ガドリニウム等が測定されており<sup>1,2,3,4)</sup>、角度分布が $n$ 乗余弦則で表せることを示している。ここで $n$ は蒸発速度に依存する角度分布指数である。Graper<sup>1)</sup>によるアルミニウムを用いた実験では、蒸発速度の増加とともに蒸気流は上方への指向性が増加するため $n$ の値が1から徐々に増加することを報告している。また、Nishimura *et al.*<sup>4)</sup>は高出力の斜入射電子ビーム照射によりガドリニウムを大量蒸発させ、分子流領域から連続流領域の広い範囲にわたって角度分布指数 $n$ を決定し、さらに数値シミュレーションを行い実験結果との良い一致を報告している。しかしながら、これまでの報告における蒸発角度分布測定法は、蒸発面からある高さに蒸着プレートをしてプレート上へ蒸着させ、それを半球面上への蒸着に変換することがほとんどである。また、蒸発面の鉛直軸からの角度が小さい時は精度良く測定できるが、角度が大きくなるに従って正確性に欠けたり、また広角度の分布を測定するには装置の制限を受けたりする。この手法は実用的な蒸着プロセス装置上での膜厚分布特性を知るためには重要なことであり且つ十分である。しかし種々の試料の電子ビーム加熱による蒸発現象を理解する上では広角度の分布を知ることが望ましい。

そこで今回、著者らは蒸発スポットを中心とした半円状の蒸着プレートを取り付けると

ともに、様々な試料の蒸発速度を広い範囲にわたって蒸発させ、半円状蒸着プレートへの蒸着分布を測定して金属原子蒸気の角度分布を調べることにした。また著者らは蒸発の熱効率を向上させるため多孔質金属を用いた蒸発試験を試み、銅を用いて少ない投入電力で高密度の蒸気生成を可能にしている<sup>5)</sup>。原子法レーザー同位体分離装置では蒸発効率の向上が重要な課題となっており、この蒸発法により高密度蒸気を生成させたときの蒸発角度分布も把握しておく必要がある。本報告ではそれらの実験結果も併せて報告する。

## 2.測定方法

Fig.1には実験装置の概略を示した。電子ビーム蒸発源は市販の磁場偏向型小型電子銃（日本真空技術（株）製EGK-35，最大加速電圧10kV，最大出力6kW）を用いた。るつば容積は40ccである。電子銃電源も市販品（日本真空技術（株）製1610F）であるが、サイリスタ制御されたフィラメント電源であるため、エミッション電流が50Hzで変動し、表面温度、蒸気も同期して変動することがわかっている<sup>6)</sup>。このため整流回路を付加して安定したエミッション電流が得られるようにした。電子ビームスポット径は蒸発面温度分布測定<sup>7)</sup>から約8mm×5mmの楕円とみなせる。なお、本装置は電子ビームスポット径可変ではない。試料を溶解させた後一定の電子ビーム入力で蒸発させた。多孔質体を用いた時も多孔質体に十分に試料を溶浸させた後一定の電子ビーム入力で蒸発させた。

蒸発原子は電子ビーム照射スポット領域から真空中へと膨張して蒸着プレートへと到達する。蒸発の角度分布は蒸発面からある高さに設けた蒸着板への付着重量から求めた。

Fig.2に示すように蒸着板は蒸発源から一定の距離（120mm）を保つように半円状にSUS304製マスク板を取り付けた。マスク板には中心軸上を0°として、10°間隔に直径10mmの穴を開け、穴を通過した蒸気が穴の上に取り付けた蒸着板（20mm×20mm）に付着するようにした。蒸発源上に設けたシャッターを開閉することにより蒸発時間を制御して付着させた。蒸着板への付着時間は予め水晶振動子式膜厚計を用いて、電子ビーム入力に対する蒸発量を測定しておき、電子ビーム入力値と蒸着時間をパラメータとして計測した。蒸着前後の蒸着板の重量を測定し、中心軸上（角度0°）での蒸着量で規格化した。

ともに、様々な試料の蒸発速度を広い範囲にわたって蒸発させ、半円状蒸着プレートへの蒸着分布を測定して金属原子蒸気の角度分布を調べることにした。また著者らは蒸発の熱効率を向上させるため多孔質金属を用いた蒸発試験を試み、銅を用いて少ない投入電力で高密度の蒸気生成を可能にしている<sup>5)</sup>。原子法レーザー同位体分離装置では蒸発効率の向上が重要な課題となっており、この蒸発法により高密度蒸気を生成させたときの蒸発角度分布も把握しておく必要がある。本報告ではそれらの実験結果も併せて報告する。

## 2.測定方法

Fig.1には実験装置の概略を示した。電子ビーム蒸発源は市販の磁場偏向型小型電子銃（日本真空技術（株）製EGK-35，最大加速電圧10kV，最大出力6kW）を用いた。るつぼ容積は40ccである。電子銃電源も市販品（日本真空技術（株）製1610F）であるが、サイリスタ制御されたフィラメント電源であるため、エミッション電流が50Hzで変動し、表面温度、蒸気も同期して変動することがわかっている<sup>6)</sup>。このため整流回路を付加して安定したエミッション電流が得られるようにした。電子ビームスポット径は蒸発面温度分布測定<sup>7)</sup>から約8mm×5mmの楕円とみなせる。なお、本装置は電子ビームスポット径可変ではない。試料を溶解させた後一定の電子ビーム入力で蒸発させた。多孔質体を用いた時も多孔質体に十分に試料を溶浸させた後一定の電子ビーム入力で蒸発させた。

蒸発原子は電子ビーム照射スポット領域から真空中へと膨張して蒸着プレートへと到達する。蒸発の角度分布は蒸発面からある高さに設けた蒸着板への付着重量から求めた。

Fig.2に示すように蒸着板は蒸発源から一定の距離（120mm）を保つように半円状にSUS304製マスク板を取り付けた。マスク板には中心軸上を0°として、10°間隔に直径10mmの穴を開け、穴を通過した蒸気が穴の上に取り付けた蒸着板（20mm×20mm）に付着するようにした。蒸発源上に設けたシャッターを開閉することにより蒸発時間を制御して付着させた。蒸着板への付着時間は予め水晶振動子式膜厚計を用いて、電子ビーム入力に対する蒸発量を測定しておき、電子ビーム入力値と蒸着時間をパラメータとして計測した。蒸着前後の蒸着板の重量を測定し、中心軸上（角度0°）での蒸着量で規格化した。



重量増加は精度0.1mgの電子天秤で測定した。本試験では、Fig.2の幾何学的形状から蒸着の角度 $\theta$ の範囲は $-80^\circ \leq \theta \leq 80^\circ$ である。蒸発試験は真空容器内圧力を $10^{-4}$ Pa以下にして行った。

蒸発試料はアルミニウム、銅、ガドリニウム、セリウムを用いた。主な物性値をTable.1にまとめた<sup>8)</sup>。アルミニウム、銅は成膜プロセスにおいて膜厚分布の測定例があること、物性値が良く知られていることから選定した。ガドリニウムは融点より少し高い温度で蒸発し、小型の水冷るつぼでも大量蒸発ができること、これまでに著者らは本試験装置を用いて蒸気特性を調べてきた<sup>9,10)</sup>が角度分布については未測定であったこと、大量蒸発時の角度分布測定例<sup>4)</sup>と比較できること、から選定した。セリウムはガドリニウムと同じ希土類元素（ランタノイド）であるが、Table.1からわかるように融点は低い蒸気圧がガドリニウムより2桁低く蒸発しにくい。このため液体金属流動に関する様々な観察が容易と思われる。またウランに物性が似ていることからウラン蒸発試験の模擬試料としても適している。

### 3.測定結果および考察

#### 3.1 各試料の蒸着速度の電子ビーム入力依存性

Fig.3は蒸発面からの高さ405mmのところに置いた水晶振動子式膜厚計で測定した各試料の水冷銅るつぼ使用時の蒸着速度の電子ビーム入力依存性を示したものである。銅は熱伝導率が高いために蒸発開始の電子ビーム入力値が高くなっている。アルミニウムも高熱伝導率であるが、銅よりは低いことと蒸気圧が高いために比較的低い電子ビーム入力値で蒸発する。銅よりも低い電子ビーム入力値で飽和の傾向を示す。ガドリニウムは熱伝導率が低いため水冷るつぼ壁への熱の逃げが少なく、融点より少し低い温度で蒸発するので、低い電子ビーム入力値でも電子ビームスポットのみが溶融し、温度が高くなって蒸発する。しかし電子ビーム入力の増加に伴いるつぼ内で溶融部が大きくなって液体金属流動も激しくなり、対流熱損失が増して電子ビーム照射ポットの温度は上昇せず蒸発量は飽和する。セリウムは熱伝導率が低く融点も低いので低い電子ビーム入力値で容易に溶解するが、蒸

重量増加は精度0.1mgの電子天秤で測定した。本試験では、Fig.2の幾何学的形状から蒸着の角度 $\theta$ の範囲は $-80^\circ \leq \theta \leq 80^\circ$ である。蒸発試験は真空容器内圧力を $10^{-4}$ Pa以下にして行った。

蒸発試料はアルミニウム、銅、ガドリニウム、セリウムを用いた。主な物性値をTable.1にまとめた<sup>8)</sup>。アルミニウム、銅は成膜プロセスにおいて膜厚分布の測定例があること、物性値が良く知られていることから選定した。ガドリニウムは融点より少し高い温度で蒸発し、小型の水冷るつぼでも大量蒸発ができること、これまでに著者らは本試験装置を用いて蒸気特性を調べてきた<sup>9,10)</sup>が角度分布については未測定であったこと、大量蒸発時の角度分布測定例<sup>4)</sup>と比較できること、から選定した。セリウムはガドリニウムと同じ希土類元素（ランタノイド）であるが、Table.1からわかるように融点は低い蒸気圧がガドリニウムより2桁低く蒸発しにくい。このため液体金属流動に関する様々な観察が容易と思われる。またウランに物性が似ていることからウラン蒸発試験の模擬試料としても適している。

### 3.測定結果および考察

#### 3.1 各試料の蒸着速度の電子ビーム入力依存性

Fig.3は蒸発面からの高さ405mmのところに置いた水晶振動子式膜厚計で測定した各試料の水冷銅るつぼ使用時の蒸着速度の電子ビーム入力依存性を示したものである。銅は熱伝導率が高いために蒸発開始の電子ビーム入力値が高くなっている。アルミニウムも高熱伝導率であるが、銅よりは低いことと蒸気圧が高いために比較的低い電子ビーム入力値で蒸発する。銅よりも低い電子ビーム入力値で飽和の傾向を示す。ガドリニウムは熱伝導率が低いため水冷るつぼ壁への熱の逃げが少なく、融点より少し低い温度で蒸発するので、低い電子ビーム入力値でも電子ビームスポットのみが溶融し、温度が高くなって蒸発する。しかし電子ビーム入力の増加に伴いるつぼ内で溶融部が大きくなって液体金属流動も激しくなり、対流熱損失が増して電子ビーム照射ポットの温度は上昇せず蒸発量は飽和する。セリウムは熱伝導率が低く融点も低いので低い電子ビーム入力値で容易に溶解するが、蒸

気圧が低いために液体の範囲が大きく蒸発させるには高い電子ビーム入力値を要する。電子ビーム入力の増加に伴い蒸発量は増加するが、激しい液体金属対流により熱損失が大きくなり蒸発量は飽和する。さらに電子ビーム入力を増加させるとビーム照射スポットから飛沫が生じ、飽和していた蒸発量は減少の傾向を示す。セリウムの測定結果はこれまでに報告されている電子ビームパワー密度を増加させた時の蒸発量変化測定結果<sup>11)</sup>と傾向が一致している。

また電子ビーム加熱による高密度蒸発時は蒸発面での蒸気圧力と表面張力により液面にくぼみが生じる。このくぼみをFig.1のように2枚のミラーとNDフィルターを通して観察することができた。くぼみ開始時のパワー入力値は試料によって異なり、おおよそ銅で2.8kW前後、アルミニウムで2kW、ガドリニウムで1kW前後、セリウムで1.8kWであった。くぼみの深さ $\Delta h(\text{mm})$ は蒸発試料の飽和蒸気圧 $p_s(\text{Torr})$ と密度 $\rho(\text{g/cm}^{-3})$ を用いて $\Delta h=6.8p_s/\rho$ で表せる<sup>12)</sup>。例えば蒸発面が1mmくぼんだ時を開始点として、この時の405mm高さでの蒸着速度を求めてみると、銅で0.98nm/s、アルミニウムで0.68nm/s、ガドリニウムで1.7nm/s、セリウムで1.62nm/sとなる。この蒸着速度での電子ビーム入力値はFig.3からそれぞれ銅で2.9kW、アルミニウムで2kW、ガドリニウムで0.9kW、セリウムで1.8kWに相当するので、目視観察によるくぼみ開始点と一致することがわかった。

Fig.4には多孔質体を用いた場合の銅の蒸着速度の電子ビーム入力依存性を示す。水冷銅るつぼからの蒸発と異なり高熱伝導率にもかかわらず低い電子ビーム入力値で高密度蒸気が生成でき、しかも飽和の傾向を示さないことがわかる。ハースを用いたことによるるつぼ壁への遮熱効果と多孔質体使用による対流抑制効果で蒸発の熱効率が向上している。

### 3.2 水冷銅るつぼからの蒸発角度分布

電子ビーム加熱での蒸発は電子ビーム照射付近の狭い領域から発生する。蒸発源近傍で蒸発原子同士の衝突がなければ、蒸気流の方向性は以下に示すLambertの余弦則で表せる。

$$\phi(\theta) = \phi_0 \cos \theta, \quad (1)$$

ただし、 $\phi(\theta)$ は蒸気流密度の分布、 $\phi_0$ は角度 $\theta=0^\circ$ の時の蒸気流密度、 $\theta$ は蒸発表面の法線に対する角度である。実際の蒸発源近傍では、蒸発原子同士の衝突があるので(1)式では表現できない。しかし極端に大きくない $\theta$ について近似式として蒸気流密度を次式で表すことができる<sup>13)</sup>。

$$\phi(\theta) = \phi_0 \cos^n \theta, \quad (2)$$

ここで、 $n$ は角度分布指数である。またGraper<sup>1)</sup>によれば、(2)式が1%以内の誤差で記述できるのは $\theta=50^\circ$ までとしている。このため本実験では $-50^\circ \leq \theta \leq 50^\circ$ の測定データに対してのみ $\cos^n \theta$ フィッティングを行ってみた。

Fig.5にはアルミニウム蒸気角度分布の測定例として、蒸着速度が(a)0.7nm/sの低密度、(b)22.8nm/sの中密度、(c)114.6nm/sの高密度蒸発時の結果をそれぞれに示した。横軸は蒸発角度、縦軸は規格化蒸発量である。図中の実線は蒸発が $n$ 乗余弦則で表せると仮定して最小自乗フィッティングさせたものである。低蒸発時はほぼ等方性の蒸気が形成され概ね $\cos \theta$ 分布で表現できるが、蒸発量を増加させるに従って中心軸に偏った蒸気が形成されているのがわかる。Fig.6はアルミニウムの蒸発角度分布指数 $n$ の蒸着速度依存性を示したものである。なお蒸着速度は蒸発面から120mmの高さに取り付けた蒸着板への付着重量と蒸着時間から算出した。角度分布測定時の蒸着速度の電子ビーム入力に対する変化はFig.3とは多少異なる。これは以下に述べる全ての蒸発試料に共通した結果であり、水晶振動子式膜厚計では瞬間的な蒸着速度を測定しているのに対して、長時間要する角度分布測定では平均蒸着時間としているため試料減少による蒸発量の低下などが影響していることによると思われる。指数 $n$ は蒸発量の増加に伴い大きくなるのがわかる。Graper<sup>1)</sup>はビームスポット可変の磁場偏向型電子銃でアルミニウムを蒸発させた結果、指数 $n$ は蒸発速度に対して連続的に変化し経験的に関数 $n = KR^{0.25}$ で表すことができると述べている。ここで $K$ は比例定数、 $R$ は蒸発量である。今回の測定では、低い蒸発密度の範囲では概ね $n = 1.34R^{0.25}$ で表せるが、 $n$ は蒸着速度が6nm/sを越えると $n = 1.34R^{0.25}$ で表せる値を越えて

大きくなり、蒸発の指向性がかなり強くなっている。この原因としては次のことが考えられる。今回の試験では直径5mmの球状のアルミニウム試料をるつぼ内に入れて溶かしたが、溶解が十分でなかったために試料内の空隙が多くなるつぼ壁と試料との接触面積が小さくなっている可能性がある。その結果、熱損失が少なくなり溶融領域も大きくなる。さらに、今回用いた電子銃はスポット径固定なので、蒸発量増加に伴い深くくぼみが形成されて蒸発源がノズルのように振る舞い、指向性の強い蒸気を発生する。このことは次に述べる銅を用いた試験でも同じ結果を得ている。

Fig.7に銅の蒸発角度分布の測定例を示す。蒸着速度はそれぞれ(a)0.38nm/s, (b)11.7nm/s, (c)58.3nm/sである。アルミニウムと同様に蒸発量の増加に伴い蒸気の指向性が形成されているのがわかる。Fig.8には銅を用いたときの指数  $n$  の蒸着速度依存性を示した。銅の場合、分布指数は  $n = 1.36R^{0.25}$  で表現できることがわかった。銅の蒸発試験では、るつぼ内の銅試料が十分に溶解して試料と水冷るつぼ壁との接触面積が大きい場合と、るつぼとの接触面積が小さい場合があった。ここでは試料と水冷るつぼ壁との接触面積が大きい場合についてのみ図示した。指数  $n$  の蒸着速度依存性では接触面積が小さい場合の方が  $n$  の値が大きくなった。接触面積が大きい場合、るつぼ壁への熱損失は大きくビーム照射領域のみ溶融蒸発し、その蒸発量は接触面積の小さい場合に比べて少ない。一方接触面積が小さい場合、上述のアルミニウムの蒸発試験と同じように溶融領域も広がり、くぼみも深くなる。このため、蒸着速度に対する指数  $n$  の変化の割合は両者で異なると思われる。このように、高熱伝導率の試料を蒸発試験に用いるときは、試料溶解時に細心の注意が必要ながわかった。

Fig.9はガドリニウムの蒸発角度分布の測定例である。この試料でも電子ビーム入力が増加に従い、蒸気の方が中心部に集まっていくのがわかった。Fig.10はガドリニウムの指数  $n$  の蒸着速度依存性である。  $n$  値は0.7nm/s~75nm/sの低中密度蒸発時はアルミニウム、銅と同じ様な傾向を示して単純に増加する。しかしながらガドリニウムの場合、高密度蒸発時の蒸発面がアルミニウムや銅よりも激しく振動しているのが観測された。この結果蒸発量の多いときは逆に指向性が弱くなると思われる。指数  $n$  と蒸着速度との関係は  $n = 1.19R^{0.25}$  で表現できた。

セリウムの蒸発角度分布の測定例をFig.11に示す。蒸着速度はそれぞれ(a)0.35nm/s, (b)1.05nm/s, (c)10.5nm/sである。Fig.12はセリウムの蒸発角度分布指数  $n$  の蒸着速度依存性である。セリウムは少ない投入電力で溶解するが、蒸気圧が低いので金属試料が液体から蒸発するまでの温度範囲が大きい。このため他の試料よりもさらに液体金属流動が激しくなっていると思われる。さらに電子ビーム入力の高い時には多くの飛沫が観測されたので、蒸発面の形状が指数  $n$  に影響を与えていると考えられる。なお、セリウムについては低密度蒸発時を除いては、指数  $n$  と蒸着速度の関係を  $n = KR^{0.25}$  で表現するのは困難であった。今後、再度セリウムの角度分布測定を行う予定である。

以上の結果から、各試料の蒸発には有効に使用できる電子ビーム入力値あるいは蒸発量の範囲が存在すること、アルミニウムの高密度蒸発時とセリウムの中高密度蒸発時を除いて、指数  $n$  と蒸着速度の関係では算式を概ね導出できることが確認できた。また、試料へのビーム照射スポットは目視で中心に調整したにもかかわらず、全ての試料において蒸発量のピークが若干電子ビーム入射方向に対して右側にずれていることがわかった。Fig.13はガドリニウムの低密度蒸発時にNDフィルターとCCDカメラを用いてビーム照射付近の10mm×10mm四方のスポット部を拡大して撮像した輝度分布画像である。この図は電子ビームフィラメントの熱分布が液面に投影されたものを示している。今回使用した電子銃はフィラメントの熱分布が一様あるいはガウス分布ではないために、蒸発面での温度分布に偏りができてその結果蒸発角度分布中心のずれが生じていると思われる。これは多孔質体使用時の銅蒸発面温度分布測定<sup>5)</sup>からも確認できる。

### 3.3 多孔質体を用いた場合の蒸発角度分布

多孔質体を用いたときの銅の蒸発角度分布測定例をFig.14に示す。蒸発面からの高さ120mmでの蒸着速度が(a)6.45nm/s, (b)47.4nm/sおよび(c)414.3nm/sの時の測定例を示した。(a)は多孔質体を用いた場合では少ない蒸発量であるが、水冷銅るつぼからの蒸発に比べれば高密度蒸発に相当する。しかし角度分布は $\cos\theta$ で表すことができた。蒸発時、直径10mmの多孔質金属は液体銅から約3mm出ている。このため液面から上の多孔質金属の表面全体が十分に高温になるので、見かけ上大きな蒸発源となり蒸発原子間の衝突が少ない

ためと思われる。また、(b)の中蒸発から(c)の高密度蒸発にわたっての角度分布は  $-50^\circ \leq \theta \leq 50^\circ$  の測定データに対して高い精度で  $\cos^n \theta$  にフィッティングできることがわかった。しかしながら、570nm/sを越える極端に高い蒸発密度における角度分布は、Fig.15に示すように中心軸上よりも周辺での密度が高くなり、余弦則では表現できない。この現象は電子ビーム入力値が1.25kWを越えると必ず生じた。この原因は現在不明であるが、多孔質表面の中心付近での焼結体内空隙の収縮によって周辺からの蒸発が顕著になることや、蒸発部近傍で生成したプラズマの影響もあるかもしれない。Fig.16には指数  $n$  の蒸着速度依存性を示した。参考のため570nm/sを越える極端に高い密度における指数  $n$  も△印で示した。多孔質体を使用した場合くぼみは形成しないと思われるが、水冷銅るつぼからの銅蒸発に比べて高い蒸気密度にもかかわらず  $n = 0.82R^{0.25}$  で表現できた。指数  $n$  と蒸発量との関係は蒸発面の形状にはあまり依存しないことを示すものと考えられる。この考察は3.5節で述べる。

### 3.4 広角度分布について

これまでに試料上面から発生した蒸気流の方向特性は、 $-50^\circ \leq \theta \leq 50^\circ$  の測定データに対してまとめた結果、蒸発量の広い範囲にわたって  $\cos^n \theta$  分布で近似できると述べた。しかし実際の密度の高い蒸発では、蒸発面上にできる蒸気群が見かけの蒸発源が基準となると言われている<sup>13,14,15</sup>。今回の実験では $-80^\circ \leq \theta \leq 80^\circ$  の角度分布を測定しているが、Fig.2からわかるように電子ビーム偏向用磁極があるために試料上面から飛び出す蒸発原子が付着する角度は $70^\circ$ である。各試料の蒸発試験の結果、 $80^\circ$ あるいはそれ以上の大きな角度においても付着が認められた。特に銅蒸発時には $95^\circ$ 付近に磁極の影ができ、見かけ上の蒸発源がるつぼ面から20mm程度にあると推定される。Fig.14からわかるように多孔質体を用いた試験では、この現象が顕著に角度分布に現れている。

### 3.5 クヌーセン数を用いた指数 $n$ の評価

原子蒸気の膨張を研究する上でクヌーセン数は極めて重要なパラメータである。一般にノズル膨張等の場合には、ノズル出口におけるクヌーセン数による相似則が成立する<sup>16)</sup>。また、電子ビーム加熱で生成した蒸気の角度分布は蒸発面で定義したクヌーセン数によって決定できそうなことがわかった<sup>4)</sup>。これにより、各蒸発試料を用いた試験結果で異なる指数  $n$  の蒸着速度依存性を示しているにもかかわらず、クヌーセン数を用いることで比較ができると思われる。ここで、蒸発面上でのクヌーセン数の逆数を用いて今回の試験結果を比較してみる。蒸発面上でのクヌーセン数（平均自由行程／流れの代表長さ）の逆数は次式で表せる。

$$K_{n0}^{-1} = \frac{D}{\lambda} = \sqrt{2}\pi d_A^2 ND, \quad (3)$$

ここで  $\lambda$  は平均自由行程、 $d_A$  は原子直径、 $N$  は蒸発面上での原子密度、 $D$  は流れの代表長さであり蒸発面のスポット直径とした。原子密度  $N$  は以下に示すように、蒸着速度から推定できる蒸発面温度  $T_0$  より導いた。蒸発面温度  $T_0$  での電子ビームスポットからの蒸発速度  $\Gamma$  は飽和蒸気圧  $p(T_0)$  を用いて次式で表すことができる<sup>17)</sup>。

$$\Gamma = \frac{mNv}{4} = p(T_0) \sqrt{\frac{m}{2\pi k T_0}} S, \quad (4)$$

ここで  $m$  は蒸発試料の原子の質量、 $v$  は平均速度、 $k$  はボルツマン定数、 $S$  はビームスポット領域である。また原子蒸気の角度分布が  $\cos^n \theta$ 、付着係数が 1.0 である時、高さ  $H$  での蒸着速度  $R$  は次式となる。



$$R = \frac{(n+1)\Gamma}{2\pi\rho H^2} = \frac{(n+1)d^2}{8\rho H^2} p(T_0) \sqrt{\frac{m}{2\pi k T_0}}, \quad (5)$$

ここで $\rho$ は蒸発試料の密度、 $d$ はビームスポット径である。(4)式と(5)式から表面温度を求めた。例えば、銅の場合蒸着速度が蒸発面から120mmの高さにおいて3.8nm/sのとき、蒸発面温度は1808Kと推定され、原子密度は $1.6 \times 10^{15} \text{cm}^{-3}$ と求まる。またこの時のクヌーセン数の逆数 $Kn_0^{-1}$ は2.96となる。なお、ここで $d_A$ はTable.1に示した原子間距離を用いた。またビームスポット径については水冷銅るつぼを使用した試料は8mm×5mm、多孔質体を使用した試料は直径10mmとした。このようにして求めた $Kn_0^{-1}$ に対する指数 $n$ の変化を各蒸発試料について求めたものがFig.17である。セリウムを除いて蒸発量の少ない時、 $Kn_0^{-1} < 1$  ( $\lambda > D$ )では蒸発の角度分布は $\cos\theta$ で表すことができる。この結果はクヌーセンセルのオリフィスからの流出の場合と同様であり、この時の蒸気の流れは分子流領域に近いものと考えられる。蒸発量が増加すると $Kn_0^{-1}$ は連続流領域( $\lambda \ll D$ )となり、この時の原子蒸気の膨張はノズルからの膨張に類似している。多孔質体からの蒸発については、余弦則でフィッティングできた蒸発量範囲でスポット径を大きくしたために、高密度蒸発にもかかわらず水冷銅るつぼからの蒸発時の $n$ と $Kn_0^{-1}$ の関係と一致することがわかった。このことから、指数 $n$ はくぼみ形成等の蒸発表面形状には依存せず、蒸発原子の平均自由行程と蒸発のスポット径で決定されると思われる。また図中には、30kWの高出力の電子ビームで加熱蒸発させたガドリニウムの測定例<sup>4)</sup>も示した。今回の測定結果と一致することがわかった。このように、電子ビーム加熱で生成した蒸気の方向特性は、蒸発スポットや蒸着板の高さや電子銃の種類が異なっても、蒸発面での $Kn_0^{-1}$ をパラメータにすることにより整理できることが今回の実験でも確認された。角度分布指数はアルミニウムの高密度蒸発時の測定値、セリウムの中～高密度蒸発時の測定値を除いては、概ね $n = 1.3Kn_0^{-0.25}$ で表現でき、異なる試料でも一つの算式で表せる可能性があることがわかった。今後、アルミニウム、セリウムの追実験等を行い結果の確認をしたい。またこれらの実験結果との比較

のため、DSMC法 (Direct Simulation Monte Carlo method) による蒸発角度分布の数値シミュレーションを行う予定である。

#### 4. おわりに

電子銃蒸発源により生成した蒸気流の角度分布を、アルミニウム、銅、ガドリニウム、セリウムについて測定した。また多孔質体を用いて生成させた銅蒸気流の角度分布特性についても測定した。蒸発の角度分布は、蒸発源から等距離の120mm上に取り付けた半円状の蒸着板に付着した蒸着重量から求めた。測定分布は $\cos^n \theta$  ( $n$ :角度分布指数,  $\theta$ :蒸発面の法線に対する角度) で表すことができ、低密度から高密度の蒸発にわたって $n=1$ から連続的に増加した。多くの試料について、指数 $n$ は蒸着速度の0.25乗に比例することを確認した。多孔質体を使用して生成させた極端に高い密度の蒸気流の角度分布は余弦則では表現できないことがわかった。蒸発原子の平均自由行程と蒸発スポット径で定義した蒸発面上でのクヌーセン数の逆数 $Kn_0^{-1}$ を用いると、各試料の蒸発角度分布の指数 $n$ が共通の定数 $\alpha$ を用いて $n=\alpha Kn_0^{-1}$ で表せることがわかった。

のため、DSMC法 (Direct Simulation Monte Carlo method) による蒸発角度分布の数値シミュレーションを行う予定である。

#### 4. おわりに

電子銃蒸発源により生成した蒸気流の角度分布を、アルミニウム、銅、ガドリニウム、セリウムについて測定した。また多孔質体を用いて生成させた銅蒸気流の角度分布特性についても測定した。蒸発の角度分布は、蒸発源から等距離の120mm上に取り付けた半円状の蒸着板に付着した蒸着重量から求めた。測定分布は $\cos^n \theta$  ( $n$ :角度分布指数,  $\theta$ :蒸発面の法線に対する角度) で表すことができ、低密度から高密度の蒸発にわたって  $n=1$  から連続的に増加した。多くの試料について、指数  $n$  は蒸着速度の0.25乗に比例することを確認した。多孔質体を使用して生成させた極端に高い密度の蒸気流の角度分布は余弦則では表現できないことがわかった。蒸発原子の平均自由行程と蒸発スポット径で定義した蒸発面上でのクヌーセン数の逆数  $Kn_0^{-1}$  を用いると、各試料の蒸発角度分布の指数  $n$  が共通の定数  $\alpha$  を用いて  $n = \alpha \cdot Kn_0^{-1}$  で表せることがわかった。

## 参 考 文 献

- 1) E.B.Graepel: J.Vac.Sci.Technol. **10**(1973)100.
- 2) R.J.Hill: *Physical Vapor Deposition*, (Airco Temescal, 1975)43.
- 3) 荒木義雄, 明珍宗孝, 川上重秋, 須藤収, 秋山照夫, 矢戸弓雄: 動燃技報62(1987)85.
- 4) A.Nishimura, H.Kaburaki, H.Ohba and T.Shibata: J.Nucl.Sci.Technol. **30**(1993)270.
- 5) 大場弘則, 雨川和博, 柴田猛順: 真空 **40**(1997)印刷中.
- 6) H.Ohba, M.Araki and T.Shibata: Jpn.J.Appl.Phys. **33**(1994)L693.
- 7) H.Ohba and T.Shibata: Jpn.J.Appl.Phys. **34**(1995)4253.
- 8) J.B.Brandes: *Smithells Metals Reference Book*, 6th ed. (Butterworths, London 1983) 27.
- 9) 大場弘則, 有澤孝, 西村昭彦, 小倉浩一, 柴田猛順: 真空 **35**(1992)282, 286.
- 10) 大場弘則, 小倉浩一, 柴田猛順: 真空 **35**(1992)1001.
- 11) B.Antoni, G.Bartrand, E.Le Guyadee, P.Lemaire, J.Maury and J.Raveire: Proceedings of the 6th international topical meeting on nuclear reactor thermal hydraulics (NURETH6) Grenoble, 1471-1479 (1993).
- 12) S.Schiller and G.Jäsch: Thin Solid Films, **54**(1978)9.
- 13) S.Schiller, U.Heisig and S.Panzer: *Electron beam technology* (John-Wiley, Toronto, 1982) 175.
- 14) S.Schiller and U.Heisig: "真空蒸着"(アグネ, 1988)28.
- 15) M.D.Miller, P.J.Biltoft and M.Benapfl: J.Vac.Sci.Technol. **A11**(1993)2851.
- 16) H.Kaburaki, H.Yamamoto, M.Yokokawa and T.Arisawa: Proceedings of the first international conference on supercomputing in nuclear applications, (1990)51.
- 17) L.I.Maissel and R.Glang: *Handbook of Thin Film Technology* (McGraw-Hill, New York, 1970) Chap.1.

Table 1. Physical properties of evaporation materials.<sup>7)</sup>

	Al	Cu	Ce	Gd
Atomic weight	27	63	140	157
Density at 293K ( $\times 10^3 \text{kg/m}^3$ )	2.70	8.96	6.75	7.865
Melting point (K)	933.37	1357.8	1071	1623
Boiling point (K)	2793	2833	3703	3273
Thermal conductivity 273-373K (W/m/K)	238	397	11.9	8.8
Mean specific heat 273-373K (J/kg/K)	917	386	188	298
Vapour pressure at 2000K (Pa)	$1 \times 10^3$	$3 \times 10^2$	2	$2 \times 10^2$
Surface tension at melting point ( $\times 10^{-3} \text{N/m}$ )	914	1285	740	810
Inter atomic distance ( $\text{\AA}$ )	2.86	2.55	3.63	3.55

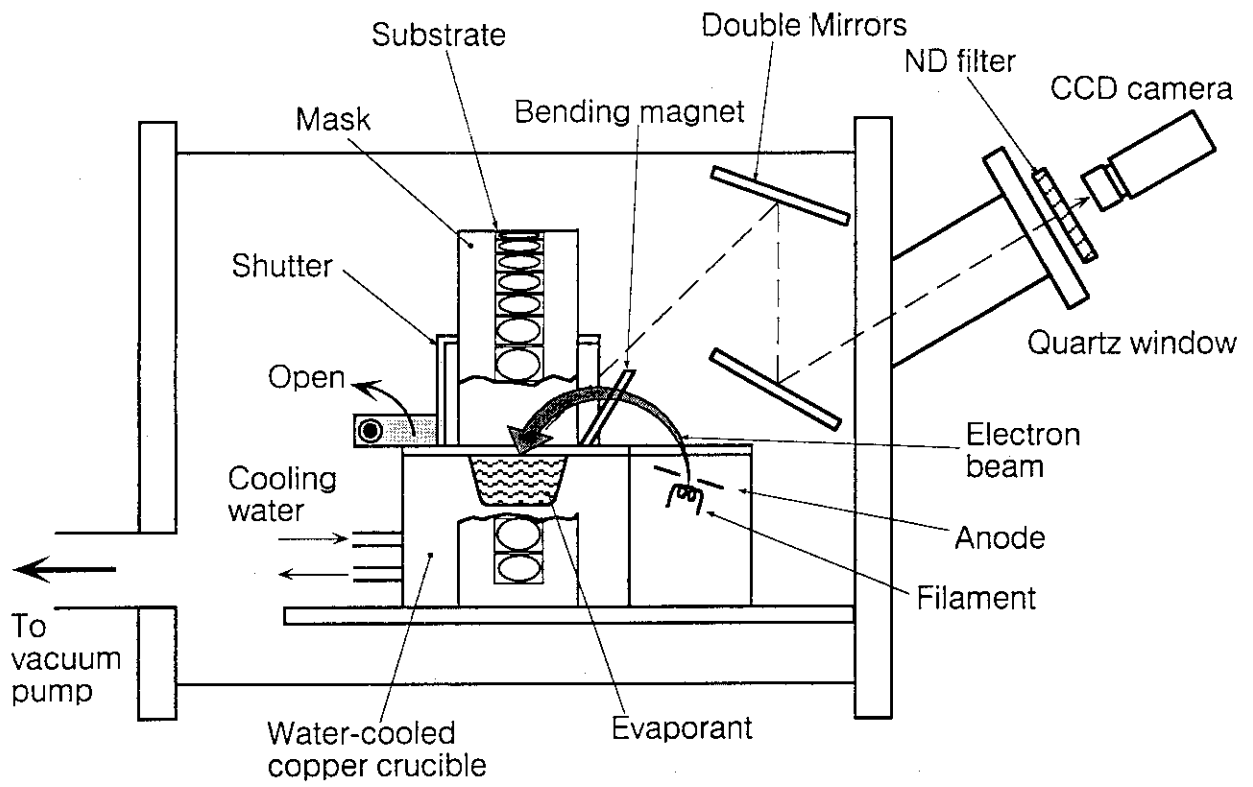


Fig.1 Schematic drawing of experimental set up.

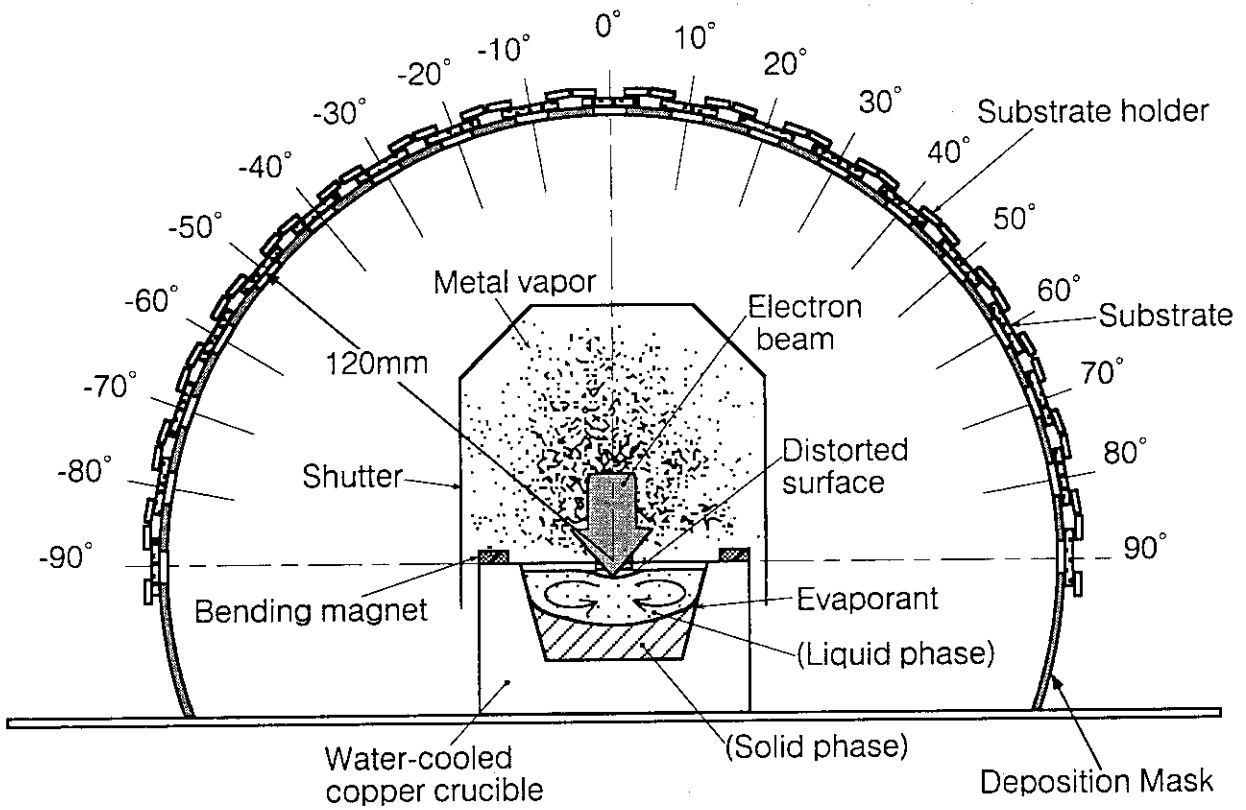


Fig 2. Schematic view of deposition plate set up for angular distribution measurements.

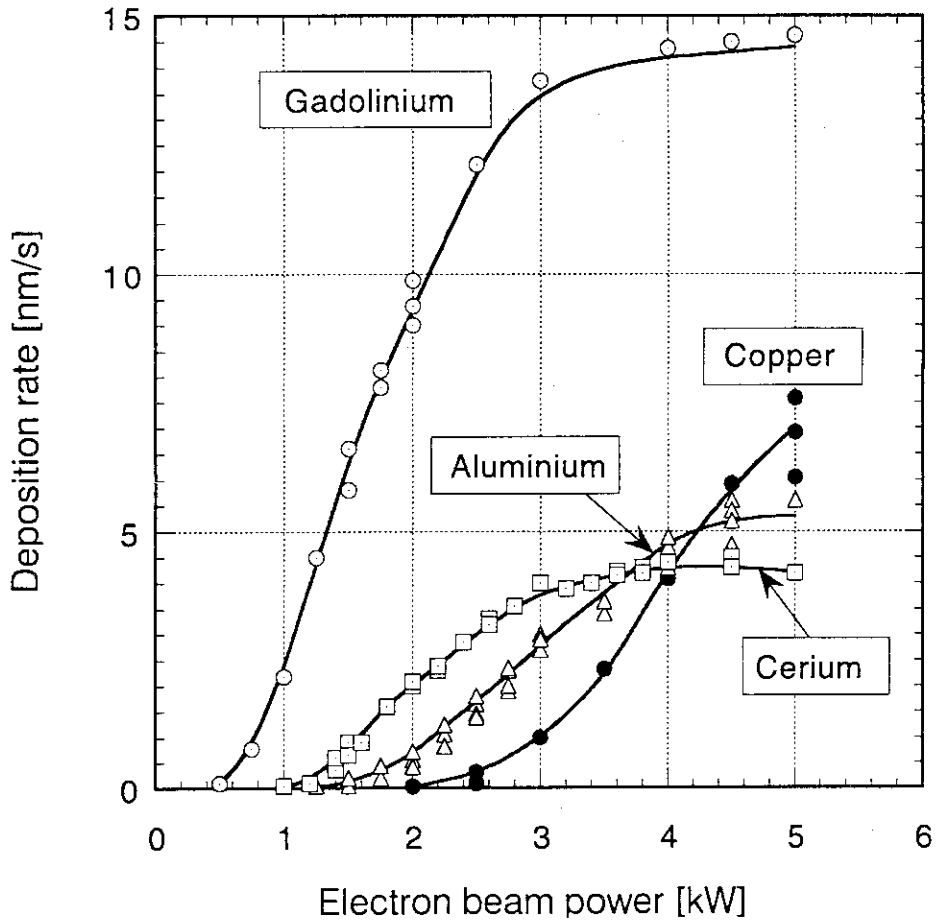


Fig.3 Deposition rates of evaporants measured with a quartz crystal sensor located at height of 405mm from the crucible top as a function of electron beam power using a water-cooled copper crucible.



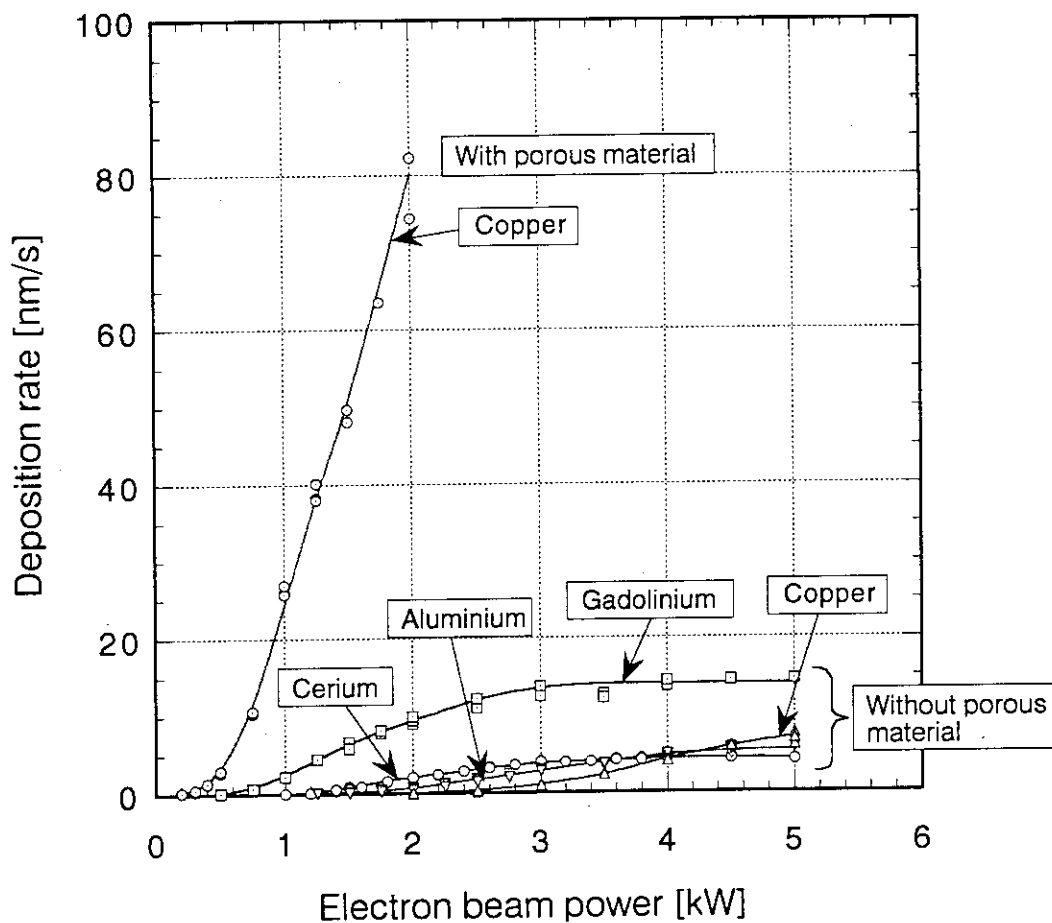


Fig.4 Deposition rates of evaporants as a function of electron beam power with a porous material and without a porous material.

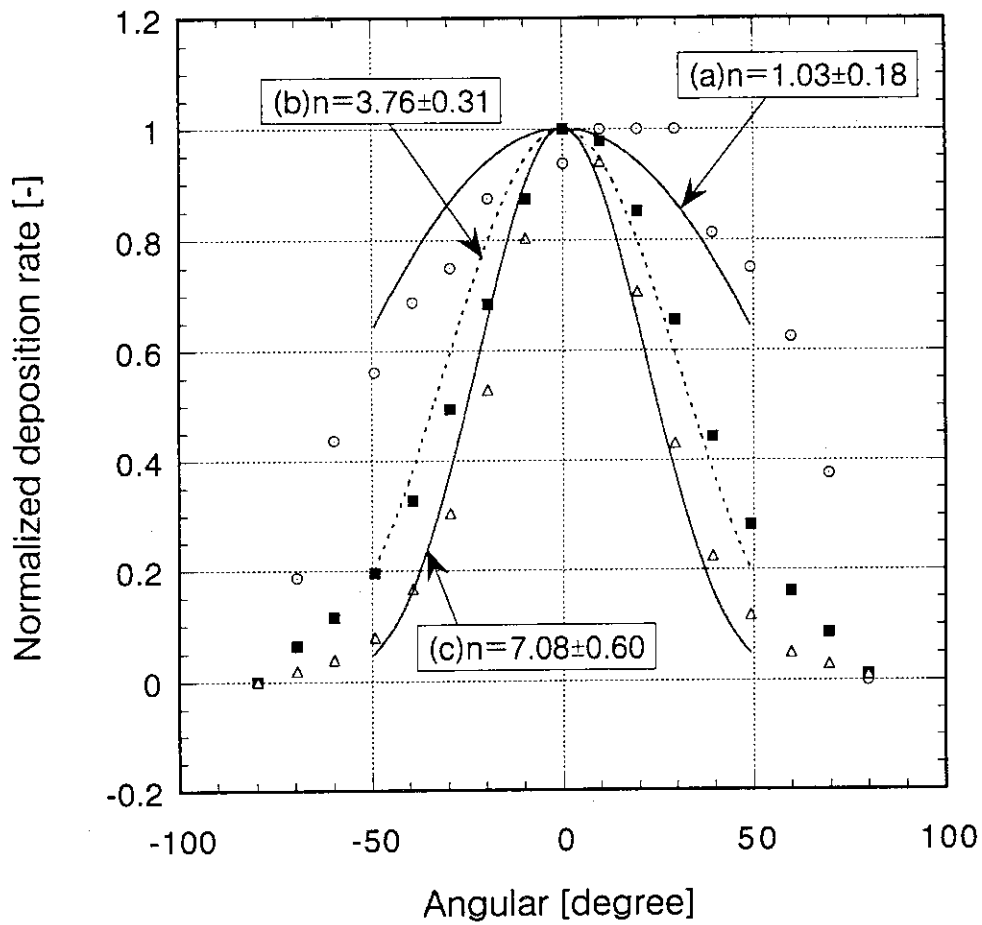


Fig.5 Angular distributions of evaporated aluminium at electron beam power, evaporation time and deposition rate at the deposition plate of (a):1.5kW,180min.,0.7nm/s,(b):2.5kW,180min.,22.8nm/s,(c):5.0kW,7min.,114.6nm/s

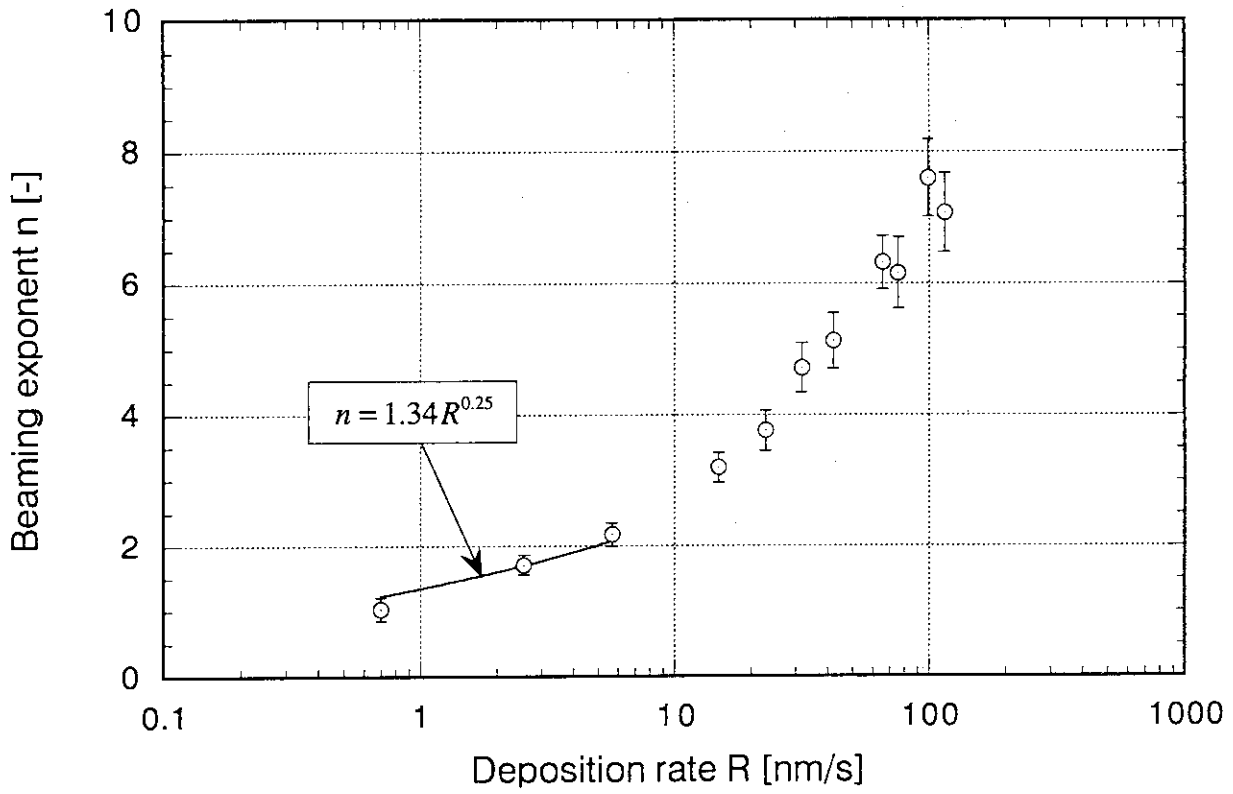


Fig.6 Deposition rate dependence on beaming exponent of aluminium at a height of 120mm from the crucible top.

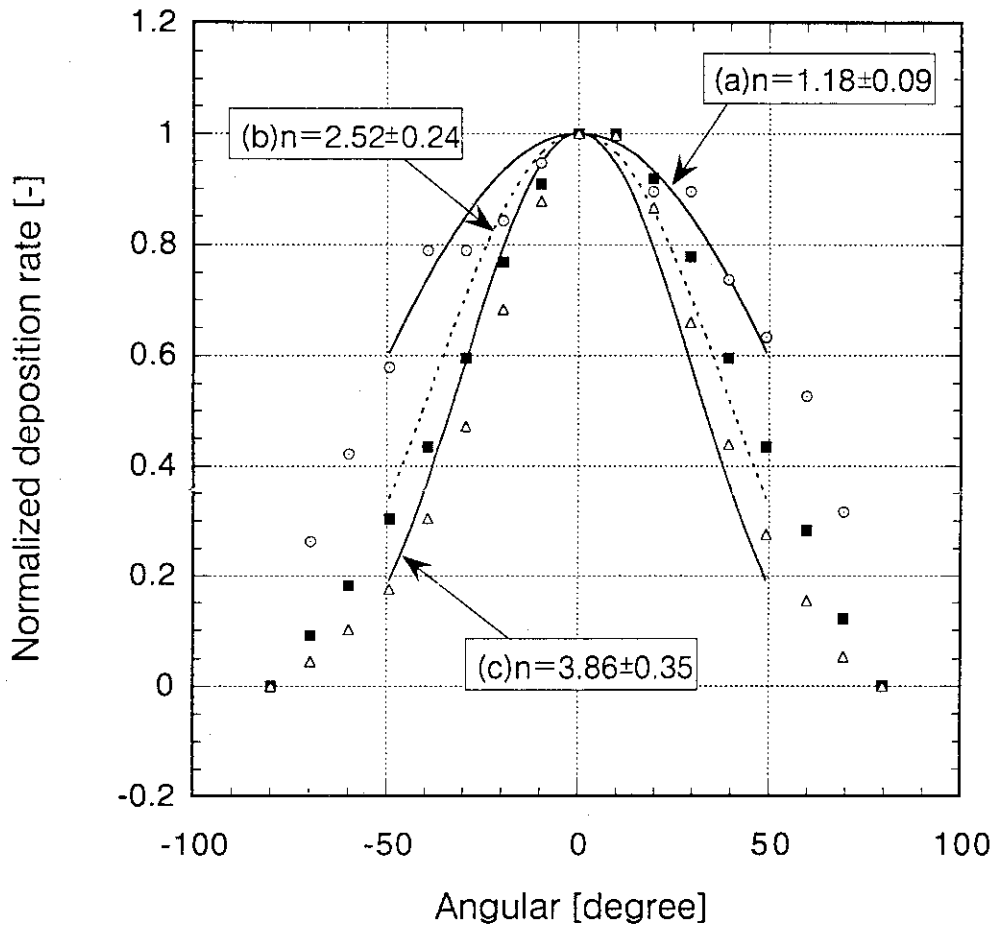


Fig.7 Angular distributions of evaporated copper at electron beam power, evaporation time and deposition rate at the deposition plate of (a):2.0kW,120min.,0.38nm/s,(b):3.5kW,20min.,11.7nm/s,(c):4.5kW,10min.,58.3nm/s

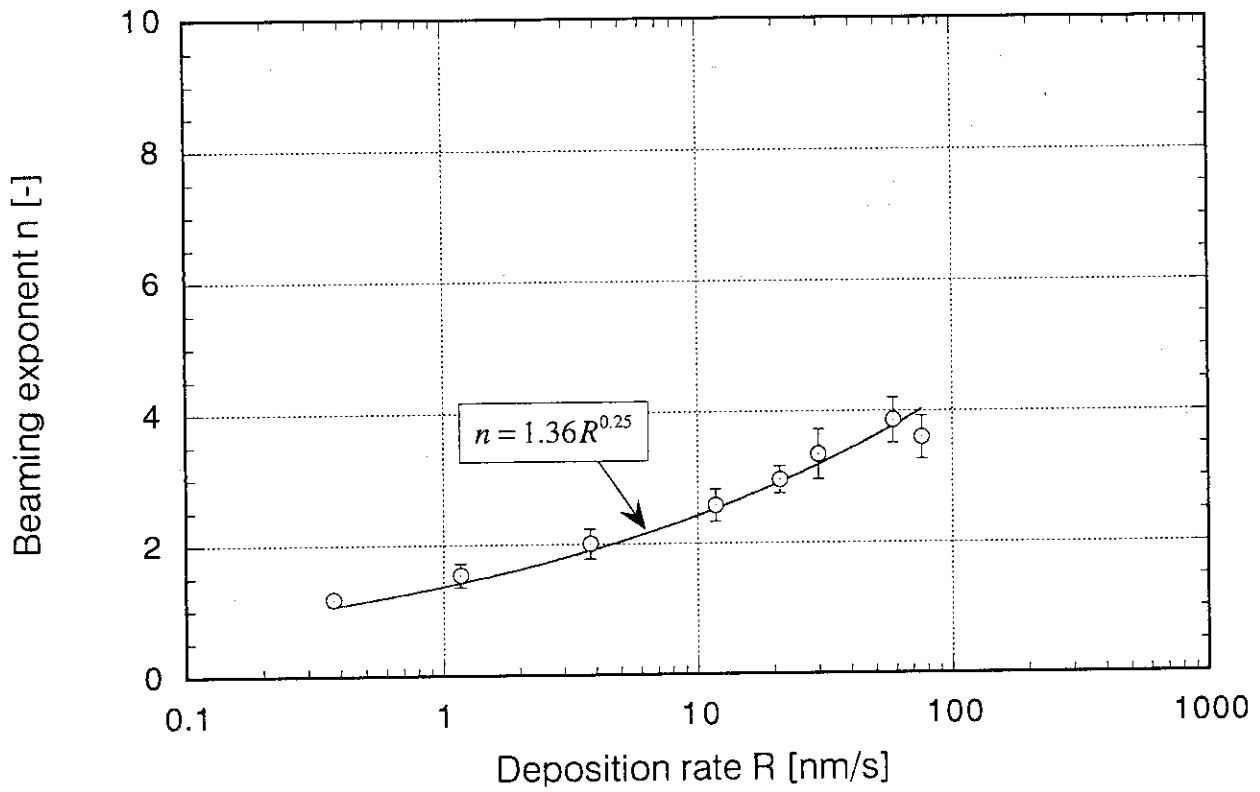


Fig.8 Deposition rate dependence on beaming exponent of copper at a height of 120mm from the crucible top.

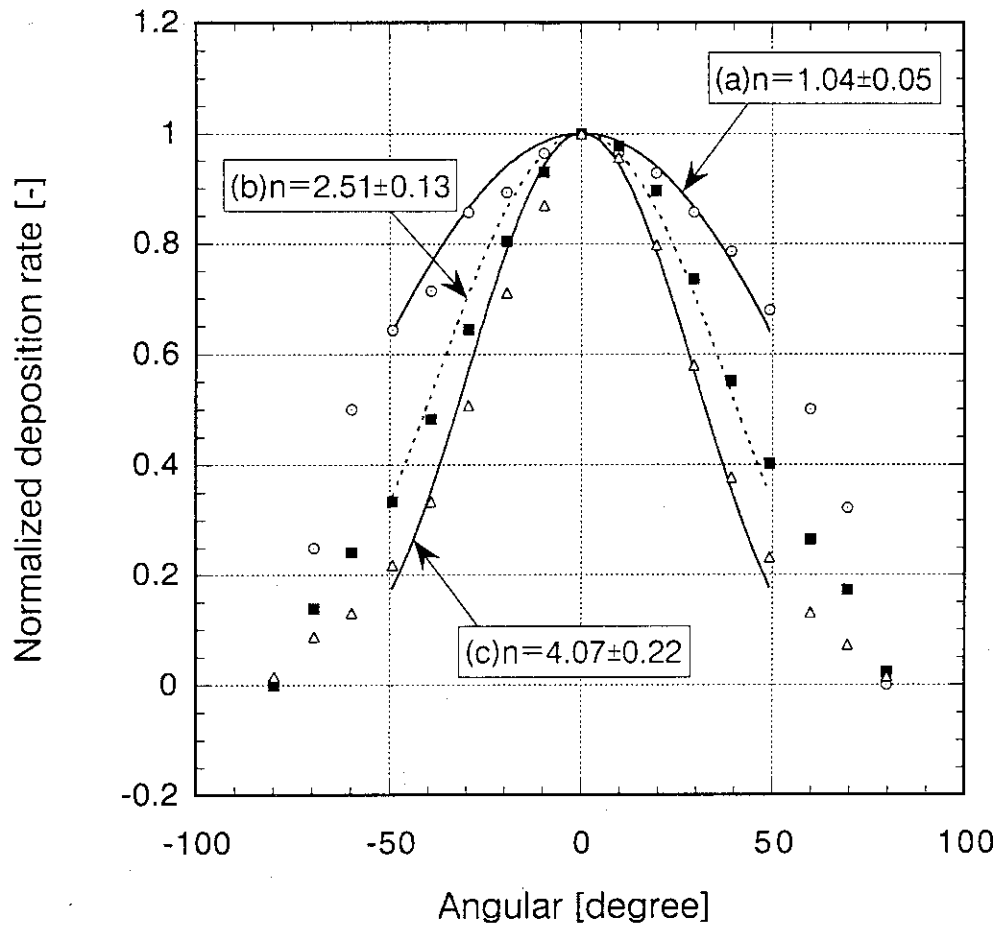


Fig.9 Angular distributions of evaporated gadolinium at electron beam power, evaporation time and deposition rate at the deposition plate of (a):0.5kW,120min.,0.7nm/s,(b):1.0kW,10min.,25.9nm/s,(c):2.5kW,1.5min.,137.1nm/s

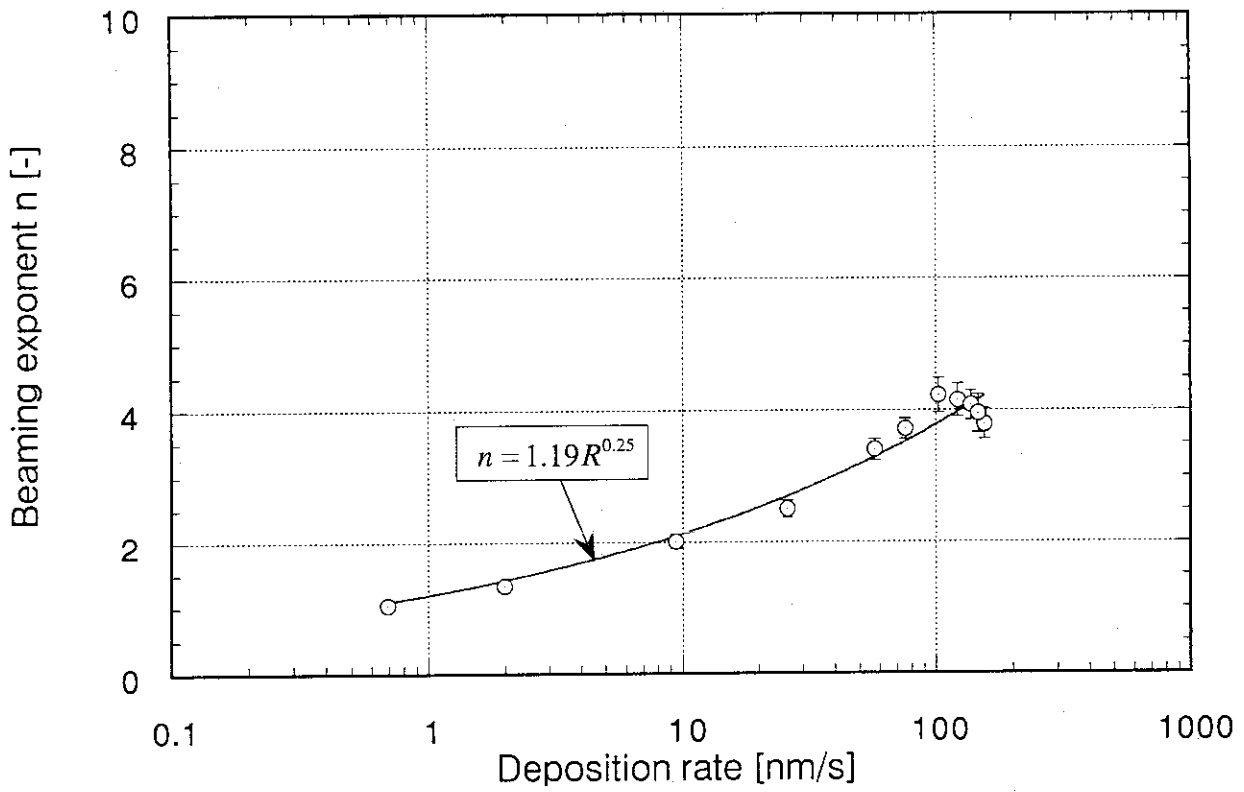


Fig.10 Deposition rate dependence on beaming exponent of gadolinium at a height of 120mm from the crucible top.

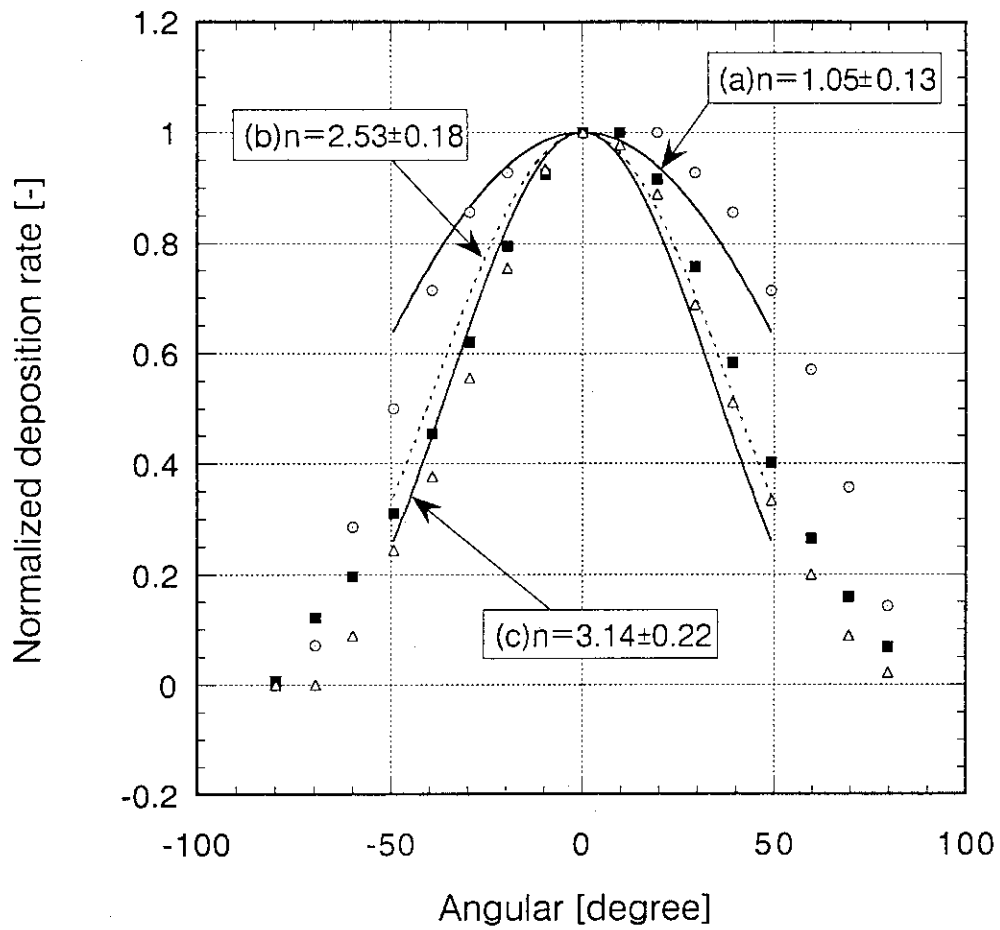


Fig.11 Angular distributions of evaporated cerium at electron beam power, evaporation time and deposition rate at the deposition plate of (a):1.0kW,90min.,0.35nm/s,(b):1.75kW,30min.,1.05nm/s,(c):4.0kW,3min.,10.5nm/s



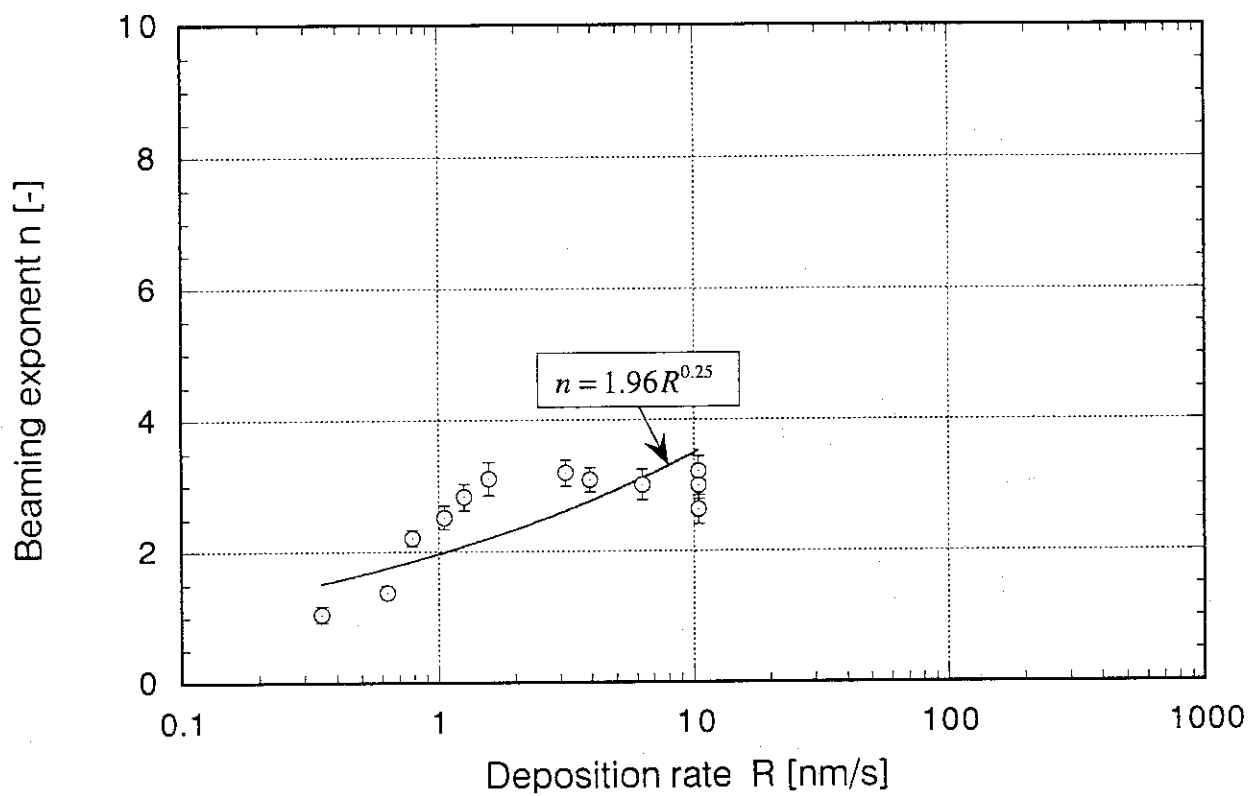


Fig.12 Deposition rate dependence on beaming exponent of cerium at a height of 120mm from the crucible top.

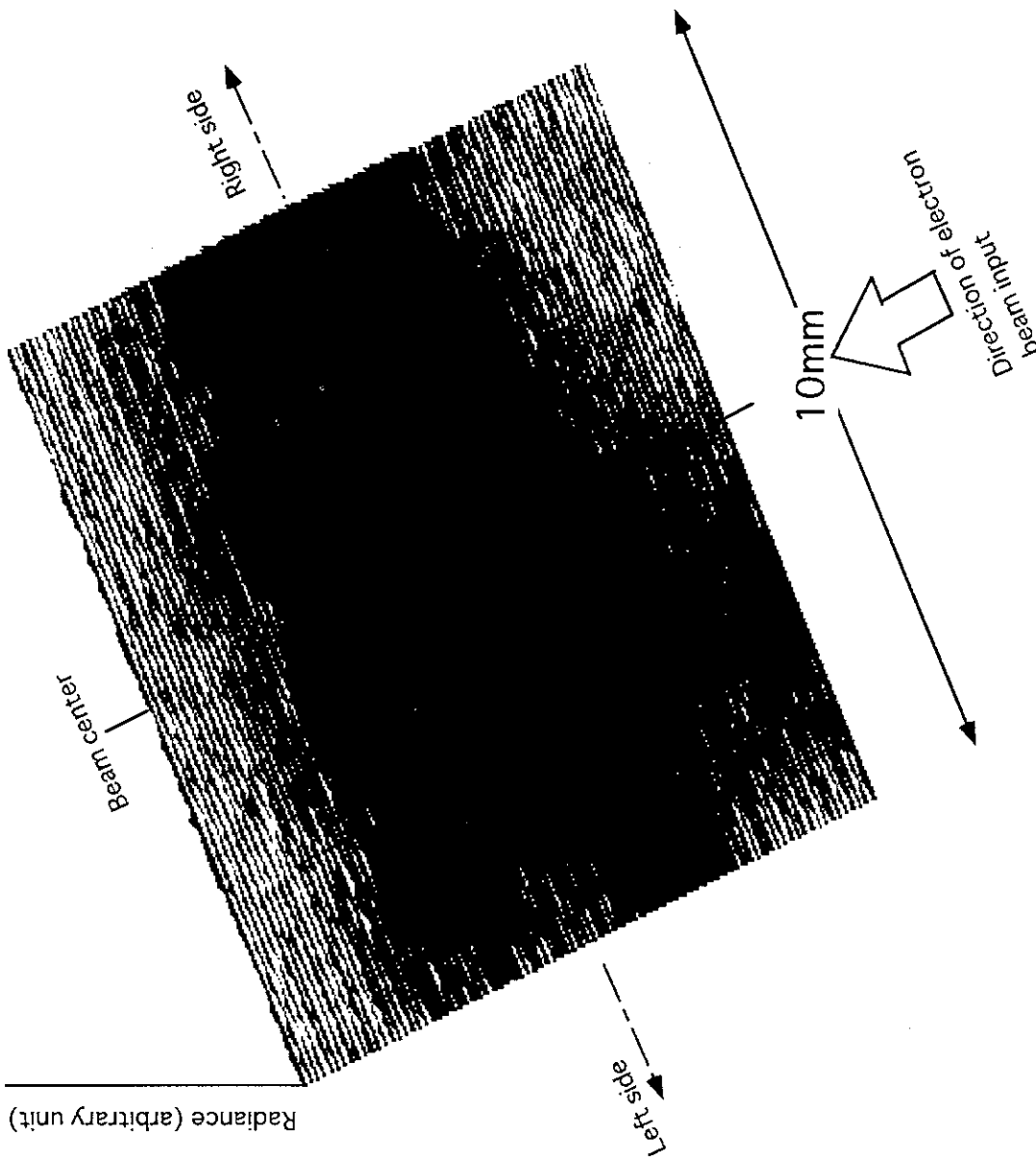


Fig.13 Surface plot of radiance profile on surface area irradiated by electron beam.

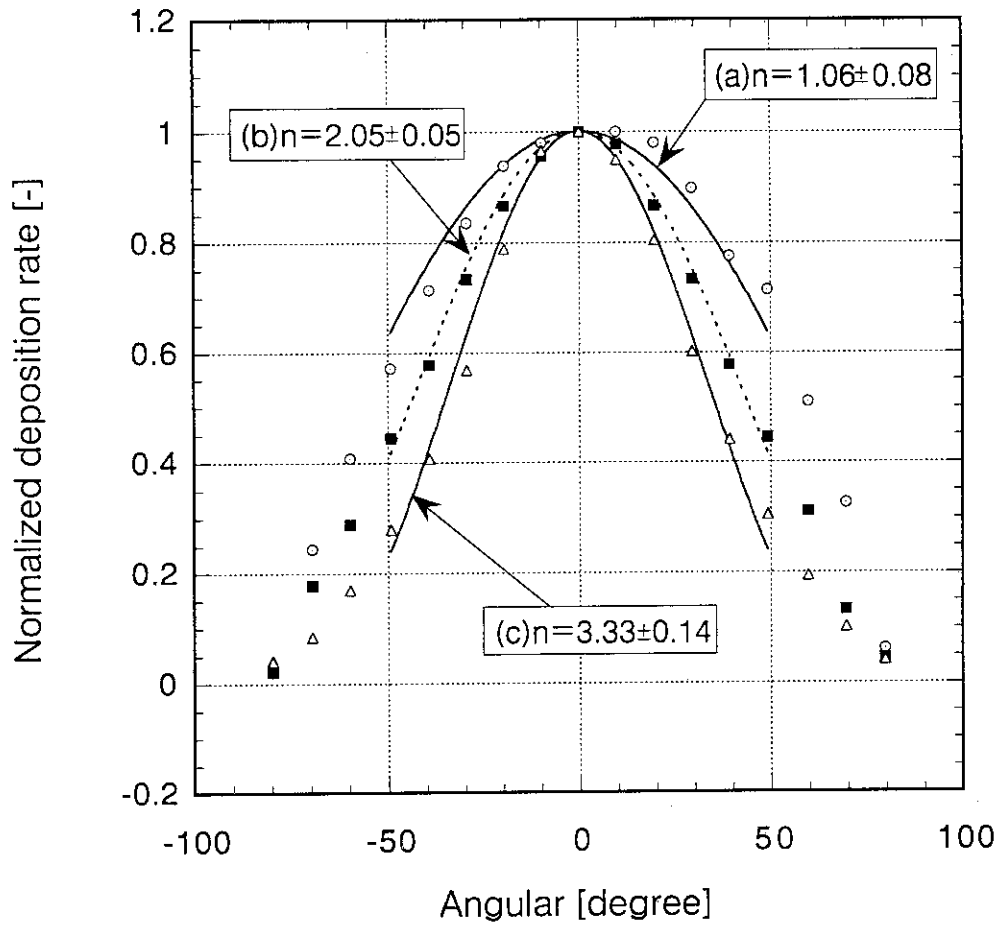


Fig.14 Angular distributions of evaporated copper with a porous material at electron beam power, evaporation time and deposition rate at the deposition plate of (a):0.4kW,20min.,6.45nm/s,(b):0.75kW,2.5min.,47.4nm/s,(c):1.25kW,45sec.,414.3nm/s

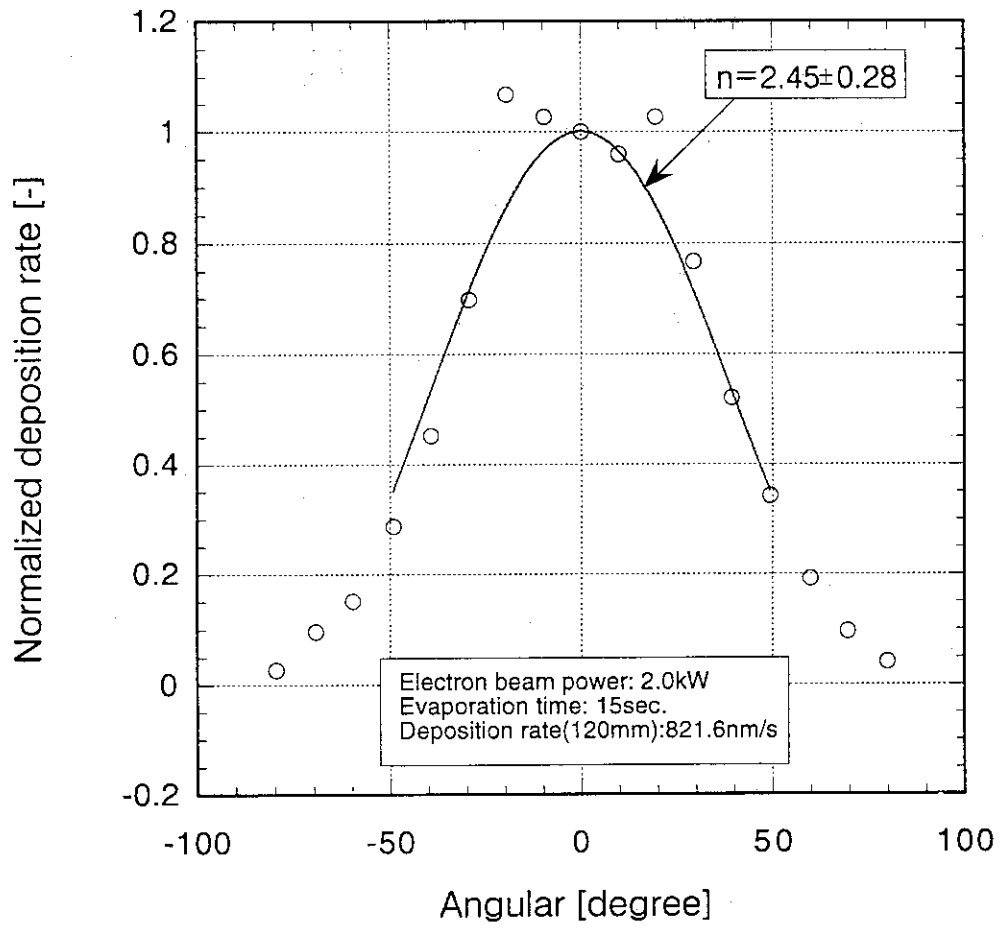


Fig.15 Angular distribution of evaporated copper with a porous material at extremely high evaporation rate.

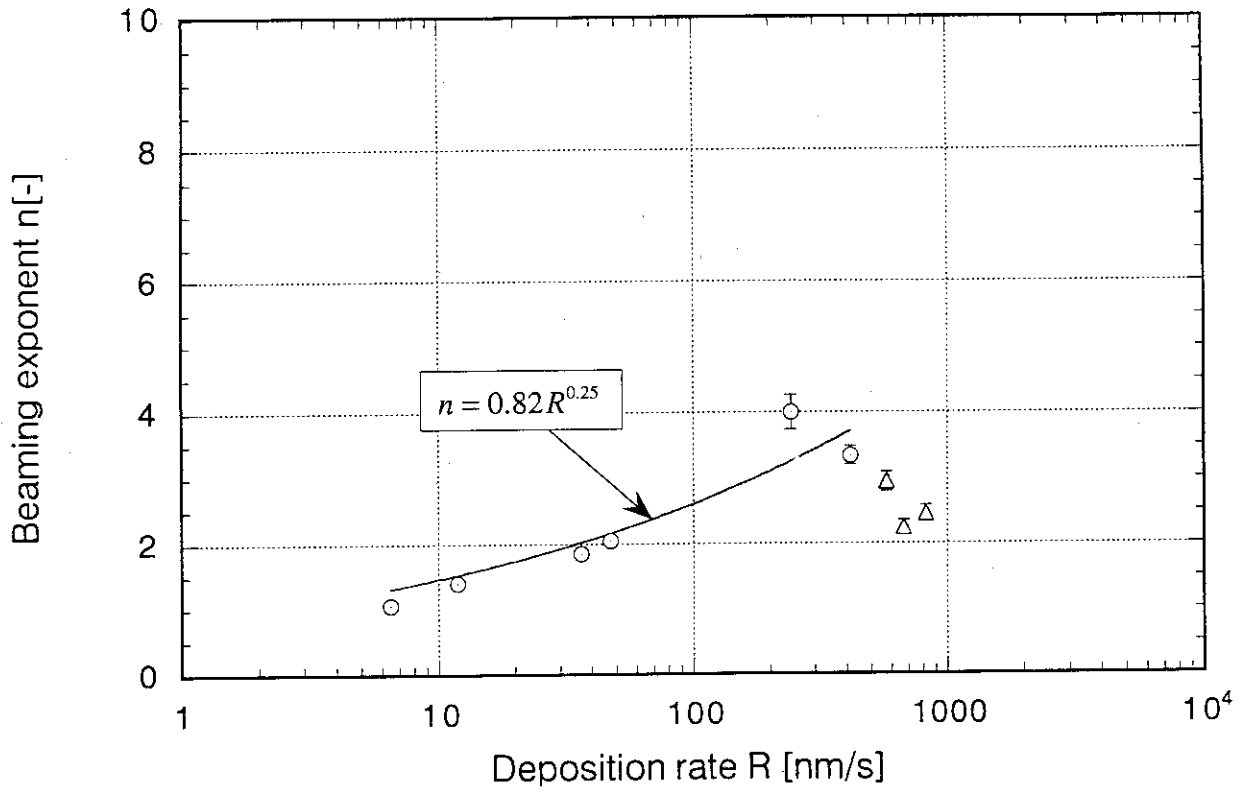


Fig.16 Deposition rate dependence on beaming exponent of copper with a porous material at a height of 120mm from the crucible top.

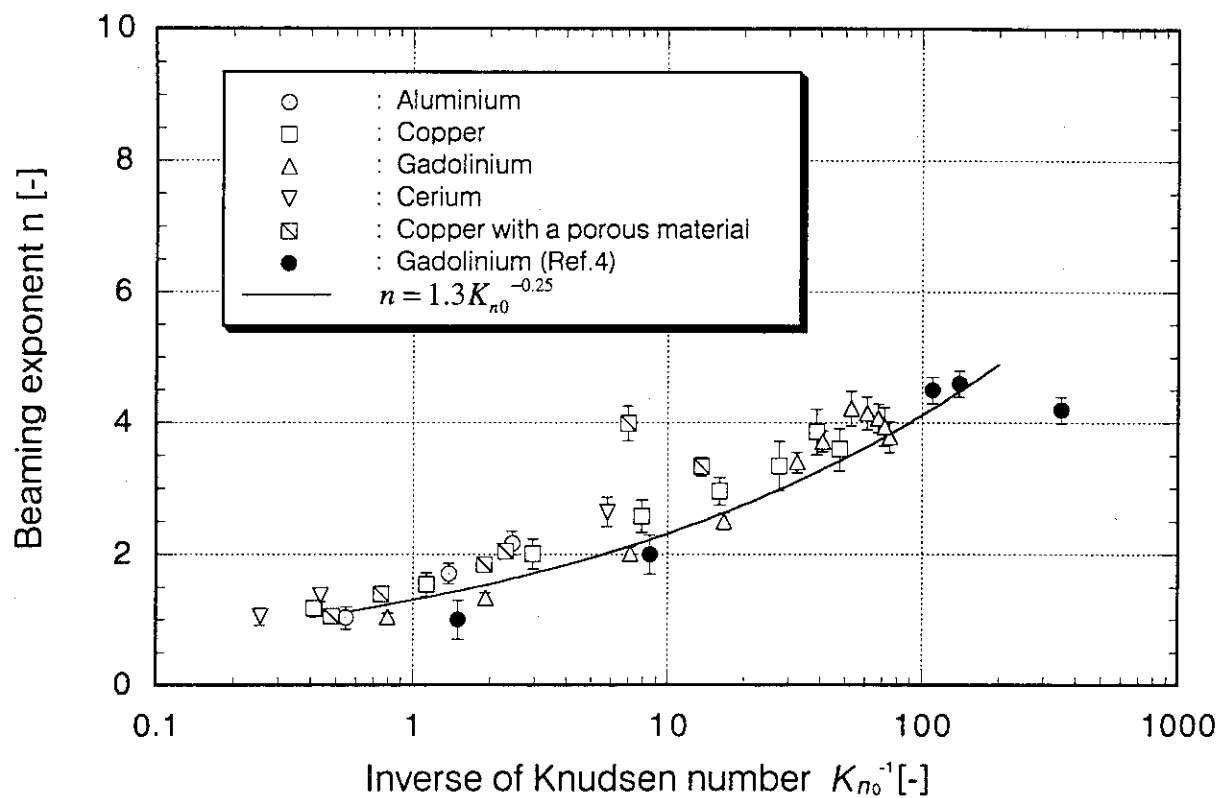


Fig.17 Beaming exponent of angular distributions of various evaporants as a function of inverse of Knudsen number.