

第 59 回 応用物理学会北海道支部 第 20 回 日本光学会北海道支部 合同学術講演会予稿

B 会場 (B31 講義室)

B - 2 1 月 6 日 (土) 15:30 ~ 17:30 座長：本久 順一 (北大工)

- B-2-1 イオン層エピタキシー法による ZnO ナノシートの完全選択合成 ★
○松村竜之介¹, 風間勇太¹, Narathon Khemasiri², 長島一樹²
(北大理学部¹, 北大電子科学研究所²)
- B-2-2 高配向 CNT 薄膜を実現するための成膜条件の探索
○村井 達, 川上 佳悟, 高橋 飛翔, 中村 基訓
(旭川高専生産システム工学専攻)
- B-2-3 Ar または He 中で蒸着したポーラス Al 膜の作製と特性評価 ★
○工藤 聡大, 川村 みどり, 木場隆之, 阿部 良夫
(北見工大)
- B-2-4 $K_2SO_4 \cdot (NH_4)_2SO_4$ の混晶育成及び物性測定
○佐伯 瞬, 磯田 広史
(室蘭工業大学大学院)
- B-2-5 Thermoelectric $Ba_{1/3}CoO_2$ Freestanding Single Crystalline Films ★
○(D) Kungwan Kang¹, Fumiaki Kato², Akitoshi Nakano², Ichiro Terasaki²,
Hyoungjeen Jeen³, Hiromichi Ohta⁴
(IST-Hokkaido Univ.¹, Physics-Nagoya Univ.², Physics-Pusan Nat'l Univ.³,
RIES-Hokkaido Univ.⁴)
- B-2-6 Ag/ZnS/Ag 外部共振器構造による OLED 発光波長の精密制御 ★
○増田 侑杜, 木場 隆之, 川村 みどり, 阿部 良夫
(北見工大)
- B-2-7 電子衝突解離断面積の測定における初期電子エネルギー分布の影響 ★
○岩部 由芽, 川口 悟, 高橋 一弘, 佐藤 孝紀
(室蘭工業大学)
- B-2-8 二重シャッタードリフトチューブを用いた気体中の電子輸送係数測定 ★
—低電流領域における測定方法の確立—
○塚本 優希, 川口 悟, 高橋 一弘, 佐藤 孝紀
(室蘭工業大学大学院工学研究科)

イオン層エピタキシー法による ZnO ナノシートの完全選択合成

北大理¹, 北大電子研²

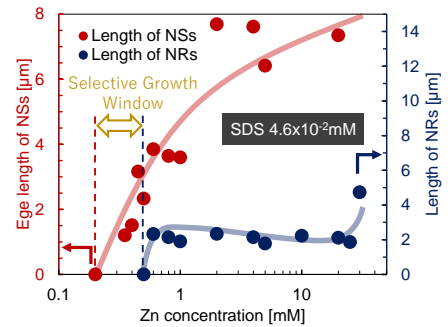
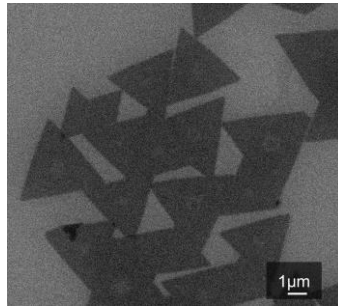
○(B4)松村竜之介¹, 風間勇太¹, Narathon Khemasiri², 長島一樹²

E-mail: matsumura.ryunosuke.t8@elms.hokudai.ac.jp

【背景および目的】 二次元ナノ材料である酸化亜鉛ナノシート (ZnO NSs) は、ZnO の機能物性である高い励起子結合エネルギー (60meV)、ワイドバンドギャップ(3.37eV)、堅牢性と2次元結晶の柔軟性、原子層制限空間などの構造特性を併せ持つ魅力的なナノ材料であり、ナノエレクトロニクスやフォトニクス分野で注目を集めている。現在までに CVD/PVD 法、層状物質剥離法等、様々な合成アプローチが報告されてきたが、特に油水界面に配列した界面活性剤分子層をテンプレートとして利用する『イオン層エピタキシー法 (ILE 法)』は簡便性と拡張性から有望な方法論として期待されている。しかしながら、従来の ILE 法による ZnO NSs の合成反応では不要な副生成物が同時に形成され、ナノシートのデバイス応用展開へ向けた本質的な課題となっている。本研究では副生成物の正体やその形成メカニズムを明らかにすると共に ZnO NSs の完全選択合成の設計指針構築に成功したので報告する。

【実験方法】 硝酸亜鉛六水和物 ($\text{Zn}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$) とヘキサメチレンテトラミン (HMTA) を 2:1 のモル比で脱イオン水 15mL に混合して成長溶液を調製した。 $\text{Zn}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ の濃度は 0.01-40mM の範囲で変調した。次いで、7mM のドデシル硫酸ナトリウム (SDS) 溶液を 80°C で酢酸エチルと混合し、100 μL の SDS 溶液を成長溶液表面に滴下した後、2 時間静置した。ZnO NSs の合成は 60-80°C、2 時間の条件で行い、成長溶液表面に形成された ZnO NSs をディップコート法により Si/SiO₂ 基板に転写した。ZnO NSs および副生成物の形状は走査型電子顕微鏡 (SEM) にて評価した。

【結果および考察】 初めに既報の合成条件 (Zn 25 mM, 60°C) で ZnO NSs の合成を行った所、多量の副生成物の形成が確認された。副生成物に対して各種トリートメント (O₂ プラズマ照射、酸処理) を施した結果、副生成物の正体は不完全に反応した Zn 由来の化合物であることが明らかとなった。実際に合成温度を 80°C まで上昇させ



Figs. SEM image of selectively synthesized ZnO NSs (left) and selective growth window on ZnO NSs/NRs synthesis (right).

た際には、反応が完全に進行し ZnO ナノロッド (ZnO NRs) の形成が確認された。核形成理論に基づく選択成長の可能性探索として、Zn 前駆体濃度を系統的に変調した所、ZnO NSs・ZnO NRs 間で臨界核生成濃度の差異は見られなかったものの、Zn 前駆体濃度の減少に伴って副生成物である ZnO NRs の発生が急激に抑制される結果を得た。そこで、油水界面近傍における SDS の分布を制御し、狙いの空間位置への Zn 前駆体の誘導を試みた所、ZnO NSs・ZnO NRs の臨界核生成濃度の差異に由来する “Selective Growth Window” の発現が確認された。本設計指針に基づき、Zn 前駆体濃度の精密制御を試みた結果、ZnO NRs の発生のない ZnO NSs の完全選択合成に成功した。本研究で構築した選択合成の設計指針は、ZnO NSs の更なる構造制御やデバイス応用展開に向けて極めて重要な知見である。

高配向 CNT 薄膜を実現するための成膜条件の探索

旭川高専 ○村井 達, 川上 佳悟, 高橋飛翔, 中村 基訓

1. はじめに

カーボンナノチューブ(CNT : Carbon Nano-Tube)は集積回路や太陽電池などの電力デバイスへの応用を目指して様々な研究が行われている. CNT のデバイス適用を考えた場合, 例えば薄膜などの形態で利用することができれば応用分野はさらに広がるが, 薄膜化した CNT はランダムに配向することから CNT が持つ特性を十分に発揮できない課題があった.

そこで, 我々は CNT を配向させて薄膜化する手法として, ろ過速度を注意深く制御した真空ろ過法に着目し, 特定の CNT 懸濁液においてよく配向した CNT 薄膜の形成に成功している[1]. しかしながら, 本手法のポイントであるろ過速度の調整は, ろ過された液滴の滴下時間を目視にて測定し, ろ過瓶内の圧力を手動操作で調整する必要がある, 人為的な誤差が大きいという課題がある.

本研究室ではこれまで, このろ過速度の安定化に着目し, 真空ポンプを用いたろ過瓶内圧力調整による速度制御ではなく, ペリスタポンプによる速度調整機構を取り入れたろ過システムを開発してきた[2]. 本報告では, このシステムを用いて, CNT 配向膜の形成に最適なるろ過速度のパラメータを見出すために, ろ過速度が配向度に与える影響について調査した.

2. 実験

Fig.1 には, 今回使用したろ過システムの概略図を示す. フィルタメンブレンを装着したフィルタヘッドの上にファネルを固定し, その中に CNT 懸濁液を入れる. 従来法では, フィルタヘッドからろ過された液体が滴下する間隔を目視により測定しており, 誤差が大きかった. さらに速度の調整はろ過瓶内の圧力を手動で調整していたため, 応答性が悪く制御が難しいという課題があった. これらの問題を解決すべく, 液滴の体積をそろえるために医療用の点滴筒をフィルタヘッドの後段に接続し, ろ過速度の調整には送液速度がコントロールできるペリスタポンプを使用した. 液滴の滴下時間の測定にはマシンビジョンを取り入れ, 点滴筒の先端部分を撮影し, Raspberry Pi 上の OpenCV を用いたソフトウェアで水滴を検出することで滴下時間の自動測定を可能にした.

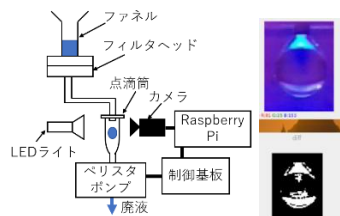


Fig.1 本システムの概略と撮影した液滴

3. 結果と考察

高配向膜を得るには, これまでの手動での成膜の経験から, ろ過終盤にろ過速度を上げる必要があることがわかっている. そこで, ろ過の序盤～中盤をステップ 1, 終盤をステップ 2 として, ろ過速度を 2 段階に設定して成膜を行った. Table1 にろ過速度を制御し成膜した CNT 配向膜の吸光度測定結果を示す. サンプル A ではろ過速度をステップ 1 : 3.0[mL/h], ステップ 2 : 6.5[mL/h]に設定し, サンプル B では, A のおおよそ倍の速度となるステップ 1 : 5.8[mL/h], ステップ 2 : 11.3[mL/h]で成膜した.

CNT 膜の配向度の評価方法は, まず光学素子を用いてレーザーの偏光軸を回転させ, 吸光度を測定する. CNT は入射光の偏光軸と CNT の配向方向が一致すると光を吸収するので, その最大値と最小値の差が大きいほど配向度が高いと評価できる. 測定箇所による違いを確認するため同一サンプルでそれぞれ 4 箇所の位置における配向度を測定している.

A と B を比較すると, A の 4 箇所の配向度平均は 1.60, 最大値は 1.72 であるのに対し, B は配向度平均が 1.28, 最大値は 1.41 と A に比べて配向度が低い. この結果から, ろ過速度に対して配向度が強く依存していることと考える.

講演ではステップ 1, 2 のろ過速度をパラメータとして CNT 配向膜との関係について詳細を報告する.

Table1. CNT 配向膜の配向度測定結果

		1	2	3	4	平均
配向度	A	1.61	1.72	1.46	1.60	1.60
	B	1.34	1.41	1.09	1.28	1.28

参考文献

- [1] X. He et al., Nature Nanotech.11, 633(2016)
- [2] 鍛冶澤路我ほか, 第 58 回応用物理学会北海道支部合同同学術講演会

Ar または He 中で蒸着したポーラス Al 膜の作製と特性評価

Fabrication and characterization of porous Al films deposited in Ar/He gas

北見工大 ○(M1)工藤 聡大, 川村 みどり, 木場 隆之, 阿部 良夫

Kitami Inst. of Tech., ○S. Kudo, M. Kawamura, T. Kiba, Y. Abe

E-mail: m3235400154@std.kitami-it.ac.jp

【緒言】 ポーラス構造を持つ金属膜は、黒色を呈し、高光吸収率、高表面積、低密度といった特徴を有するためセンサーデバイスなどへの応用が期待されている。ポーラス Al 膜は他のポーラスメタル膜と比べ安価であり、安定性も高い。¹⁾ 作製法として貴ガスを導入した低真空下での真空蒸着法が知られている。最近の研究では Ag ポーラス膜の作製時に He ガスを導入すると、Ar ガスを導入した場合より膜の吸収係数が高いとの報告があった。²⁾ しかしポーラス Al 膜作製におけるガス種の影響は報告されていない。そこで本研究では Ar または He 中でポーラス Al 膜を作製し、膜特性への影響を明らかにする。

【実験方法】 抵抗加熱式真空蒸着装置を用いて一度、 2.4×10^{-4} Pa まで排気した後、Ar または He ガスを導入した。2、20、100 Pa の圧力下で Al ワイヤを蒸発させ、ガラスまたはシリコン基板上にポーラス Al 膜を成膜した。蒸着源と基板との距離は 15 cm、蒸着時の電流は 30 A、蒸着時間は 60 s 一定で成膜した。作製した試料は SEM による膜表面および断面観察、分光光度計を用いた反射率・透過率測定を行い、波長 400nm から 2300nm までの平均の吸収率及び吸収係数をガラス基板の寄与を除去して算出した。²⁾ さらに電子天秤による質量測定の結果から密度、充填率、空隙率を算出した。

【結果と考察】 Fig. 1 は Ar/He ガス圧 20 Pa で成膜したポーラス Al 膜の SEM 像である。これより、He ガス下で作製した膜の方が、隙間の多い構造となっていることがわかる。断面 SEM 像から、He ガス下の方が厚膜であることが判明した。両者の充填率は、Ar ガス下では 7.4 %、He ガス下では 1.8 % となり、Ar ガス下の方が高充填率であることがわかった。Fig. 2 は Ar/He ガス 20 Pa で成膜した膜の吸収スペクトルである。これより、He 中での成膜の方がより高い吸収を示すことがわかる。しかし両者の膜厚が異なるため、吸収係数を求めて比較した結果を Table 1 に示す。その結果、どの圧力でも Ar ガスの方が高い値を示していることがわかる。特に 20 Pa で作製した膜では、吸収係数が Ar ガス下では $1.40 \mu\text{m}^{-1}$ 、He ガス下では $0.493 \mu\text{m}^{-1}$ と最も大きな差となった。これは Ar 中成膜の充填率の差が 5.6 % と大きかったことと対応する。以上よりポーラス Al 膜の成膜においては、He ガスよりも Ar ガスを導入した方が、より高い吸収特性を有する膜が得られることがわかった。

1)Y.Hao et al. Infrared Phys. Technol., 115 (2021) 103735.

2)Y.Hao et al. ACS Appl. Nano Mater., 5 (2022) 8612 -8620.

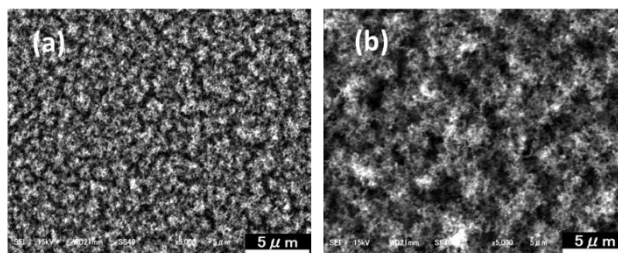


Fig.1 SEM images of porous Al films deposited in

(a)Ar (b)He

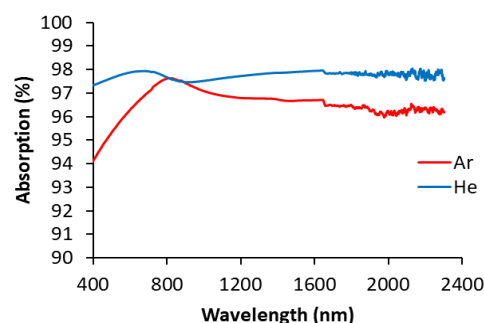


Fig.2 Absorption of spectra of samples deposited at 20 Pa.

Table 1 Absorption coefficient of samples obtained under each condition

Absorption coefficient (μm^{-1})	2 Pa	20 Pa	100 Pa
Ar gas	0.751	1.40	0.399
He gas	0.628	0.493	0.398

$K_2SO_4 \cdot (NH_4)_2SO_4$ の混晶育成及び物性測定

室蘭工業大学大学院 ○佐伯 瞬, 磯田 広史

【目的】本研究室では、様々な硫酸化合物結晶の作製、物性測定を行っている。その中でも、現在は $(NH_4)_2SO_4$ に着目している。 $(NH_4)_2SO_4$ は、直方晶系で約 $-50^\circ C$ で常誘電相から強誘電相へ相転移することが知られている^[1]。本研究室では、これまで $(NH_4)_2SO_4$ の単結晶育成、 $(NH_4)_2SO_4$ ベースでの K_2SO_4 との混晶育成及び物性測定を行ってきた。その中で、混合比率毎に異なる誘電特性を示すデータを取ることができた。 K_2SO_4 をベースに変えた場合は、どのような変化が起こるのか調べるために本研究を行った。

【実験方法】混晶育成では、水溶液の蒸発法を用いて育成を行った。今回、質量比で $K_2SO_4 : (NH_4)_2SO_4 = 6 : 4$ で母液作製を行った。物性測定は、試料のX線回折、誘電率の温度依存性の測定、解析を行った。X線回折は、Rigaku製全自動多目的水平型X線回折装置Smartlabを用いて、単結晶を粉末化した試料で測定、解析を行った。スキャン軸 $2\theta / \theta$ 、範囲 $5 \sim 90$ degree、スキャンスピード 20 deg/minで行った。誘電率の温度依存性では、NF製LCRメーターZM2353を用いて、電圧 $V=1V$ 、周波数 $f=1kHz$ の測定条件下で、 $T=20 \sim -43^\circ C$ の温度範囲で測定を行った。

【結果・考察】育成した混晶の一つを図1に、また結晶の粉末X線回折結果を図2、比誘電率の温度依存性を図3にそれぞれ示す。結晶の外観は、スが入って少し白くなっていた。粉末X線回折を行った結果より、 K_2SO_4 で指数付けを行い格子定数は $a=7.5381[\text{\AA}]$, $b=10.1078[\text{\AA}]$, $c=5.7943[\text{\AA}]$ であった。過去の本研究室で行った K_2SO_4 の誘電率測定では変化は見られなかったが^[2]、今回は1,2回目ともに誘電率測定では $-19^\circ C \sim -20^\circ C$ で比誘電率が小さくなる異常がみられた。同様の条件で測定を行い、変化が見られたので再現性があると考えた。今後は、最適な試料の作製法確立、測定を行っていく予定である。

【参考文献】

[1] Akikatsu Sawada, Yasuharu Makita and Yutaka Takagi (1975)

[2] 荒井真吾 他, 第55回応用物理学会北海道支部学術講演会講演予稿集



図1: 作製した単結晶

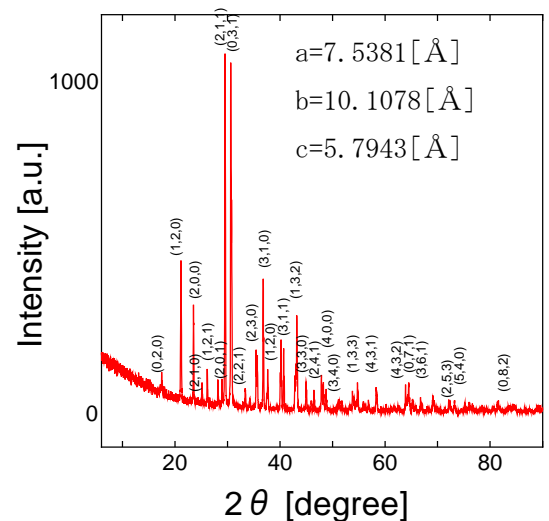


図2: 粉末X線回折結果

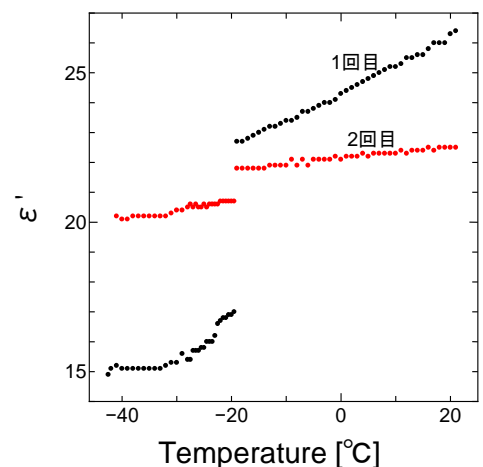


図3: 誘電率の温度依存性

Thermoelectric $\text{Ba}_{1/3}\text{CoO}_2$ Freestanding Single Crystalline Films

^o(D) Kungwan Kang¹, Fumiaki Kato², Akitoshi Nakano²,

Ichiro Terasaki², Hyoungjeen Jeen³, and Hiromichi Ohta⁴

¹IST-Hokkaido Univ., ²Physics-Nagoya Univ., ³Physics-Pusan Nat'l Univ., ⁴RIES-Hokkaido Univ.

E-mail: kkwjjang2@gmail.com

Thermoelectric energy conversion technology has garnered significant attention as a means of harnessing energy from waste heat, utilizing the Seebeck effect to convert it into electricity. Among the array of thermoelectric materials, those based on conducting oxides exhibiting a high figure of merit have emerged as particularly promising. These materials offer notable advantages, including excellent chemical and thermal stability, along with a non-hazardous nature, distinguishing them from chalcogenide-based thermoelectric materials commonly considered state-of-the-art. Within the realm of oxide thermoelectric materials, one standout candidate is $\text{Ba}_{1/3}\text{CoO}_2$, characterized by its layered crystal structure^[1]. This material showcases an impressive thermoelectric figure of merit (ZT) of 0.55 at 600 °C when measured in the in-plane direction under standard conditions. Notably, this ZT not only represents the highest among reliable measurements but also places it in the same league as other renowned p-type thermoelectric materials like PbTe and SiGe when evaluated at 600 °C^[2]. In practical applications, the utilization of $\text{Ba}_{1/3}\text{CoO}_2$ necessitates the fabrication of bulk ceramics or single crystalline forms. Here, we show freestanding $\text{Ba}_{1/3}\text{CoO}_2$ single crystalline films, accomplished by delicately detaching the $\text{Ba}_{1/3}\text{CoO}_2$ epitaxial films from their substrate (see Figure)^[4]. The process entails creating $\text{Ba}_{1/3}\text{CoO}_2$ epitaxial films and immersing them in 40 °C hot water for several minutes^[3]. Subsequently, the $\text{Ba}_{1/3}\text{CoO}_2$ epitaxial film spontaneously separates from the substrate and floats atop the water's surface, akin to seaweed. We conducted an exhaustive analysis of the crystal structure, chemical composition, and thermoelectric properties both before and after this peeling process, revealing negligible differences. These findings represent a valuable advancement, offering a practical methodology for producing freestanding oxide single crystalline films specifically tailored for thermoelectric applications.

a Peeling off of $\text{Ba}_{1/3}\text{CoO}_2$ film (in 40 °C hot water)

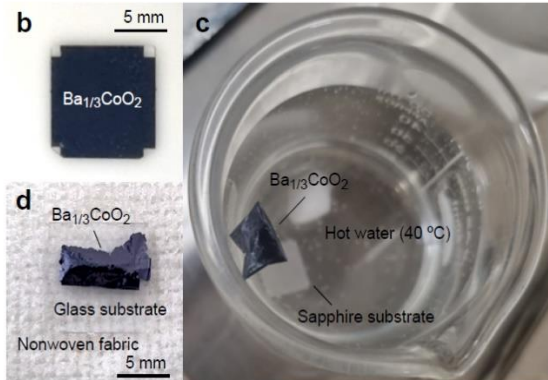
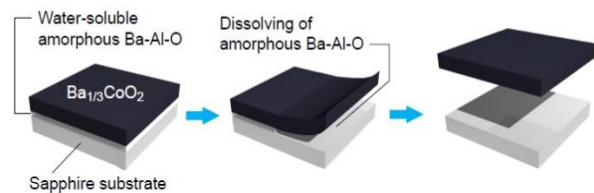


Figure | Fabrication of freestanding $\text{Ba}_{1/3}\text{CoO}_2$ single crystalline films. Peeling-off procedure of $\text{Ba}_{1/3}\text{CoO}_2$ epitaxial films.

References

- [1] Y. Takashima, Y. Zhang, J. Wei, B. Feng, Y. Ikuhara, H.J. Cho, H. Ohta, *J. Mater. Chem. A* **9**, 274 (2021).
- [2] X. Zhang, Y. Zhang, L. Wu, A. Tsuruta, M. Mikami, H.J. Cho, H. Ohta, *ACS Appl. Mater. Interfaces* **14**, 33355 (2022).
- [3] **K. Kang**, F. Kato, A. Nakano, I. Terasaki, T. Endo, Y. Matsuo, H. Jeen, H. Ohta, *ACS Appl. Electron. Mater.* **5**, 5749 (2023).
- [4] H. Ohta, A. Mizutani, K. Sugiura, M. Hirano, H. Hosono, and K. Koumoto, *Adv. Mater.* **18**, 1649 (2006).

Ag/ZnS/Ag 外部共振器構造による OLED 発光波長の精密制御

Precise control of emission wavelength of OLEDs using Ag/ZnS/Ag external resonator.

北見工大, °増田 侑杜, 木場 隆之, 川村 みどり, 阿部 良夫

Kitami Inst. of Technol., °Yuto Masuda, Takayuki Kiba, Midori Kawamura, Yoshio Abe

E-mail: m3225400223@std.kitami-it.ac.jp

【緒言】 金属/誘電体/金属(MDM)構造は、対称的な 2 つの金属/誘電体界面に生じる表面プラズモン(SP)間の相互作用により分散関係が変化し、表面プラズモンと光子が結合可能になる。その結果 MDM 構造内を特定波長の光が透過し、その透過光の波長は誘電体膜厚により制御できることから、MDM 構造はカラーフィルターとして機能し、様々な応用が期待できる[1]。一方、反射率の高い金属薄膜電極を用いた OLED 中で生じるマイクロキャビティ効果は、電極間に挟まれた有機層厚さに応じた特定波長の光を選択的に増強する。我々はこれまでに、Ag/ZnS/Ag (AZA)構造を緑色 OLED の陽極として組み込む事で、AZA 中の表面プラズモンと金属電極間のマイクロキャビティモードの 2 つが発光スペクトル形状に大きな影響を与える事を報告した[2]。本研究では、AZA-OLED の外部共振器となる AZA 構造の ZnS と Ag の膜厚を変化させ、プラズモンとマイクロキャビティモード間の共鳴関係および結合強度を調整することにより、発光スペクトルの分裂を含むスペクトル形状、およびピーク波長の制御を試みた[3]。

【実験方法】 抵抗加熱式真空蒸着法を用いて、AZA 積層膜および AZA-OLED をガラス基板上に作製した。作製した AZA-OLED の構造について Fig. 1 に示した。AZA 積層膜の Ag 層の下部は 30 nm、上部は 15 nm と 30 nm に固定し、ZnS 膜厚は 30, 45, 60, 75 nm と変化させた。AZA 積層膜では、透過、反射スペクトルを、AZA-OLED については、EL スペクトル、電流密度-電圧-輝度(J-V-L)特性を測定した。一方、AZA 積層膜および AZA-OLED についての電磁界解析シミュレーション(Lumerical, Ansys)を行い、透過・反射・EL スペクトルに関して実験結果との比較を行った。

【結果と考察】 Fig. 2 に AZA-OLED(ZnS 30, 45, 60, and 75 nm)の中間層の膜厚変化に伴う EL スペクトルを示した。Fig. 2(a)の Top-Ag 30 nm の EL スペクトルは、ZnS 30 nm でマイクロキャビティの共振波長の近傍に単一の鋭いピークを示した。そして、45, 60 nm と ZnS 膜厚が増加すると、AZA における表面プラズモンをマイクロキャビティモードとの結合による発光ピークの分裂を観測した。特に 60 nm では、マイクロキャビティの共振波長と表面プラズモンの共鳴波長が一致し、ピーク間隔が最大となった。これらのスペクトル変化は、FDTD 計算により予測した結果と概ね一致していた。さらに Fig. 2(b)に示すように、Top-Ag 膜厚を 30 nm から 15 nm にすることで、エネルギー分裂幅の拡大と EL ピークの狭帯化を確認し、緑色発光の色純度が向上した。

AZA-OLED は、OLED 構造の膜厚を維持したまま、外部共振器である AZA 陽極の ZnS や Ag 膜厚の変化のみで、発光波長と線幅の制御が可能であり、デバイス性能を損ねる事なく色純度の向上が可能である事が示唆された。

【参考文献】 [1] J. Feng et al. *Applied Physics Letters*, **90**, 081106 (2007). [2] M. Ohara et al. *Thin Solid Films*, **704**, 137999 (2020).

[3] Masuda et al. *ACS Photonics*, under review.

【謝辞】 本研究で使用した Alq₃ は、日鉄ケミカル&マテリアル社より提供を受けたものです。

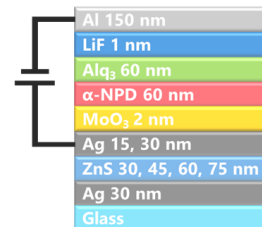


Fig. 1 Device structure of OLED with AZA film

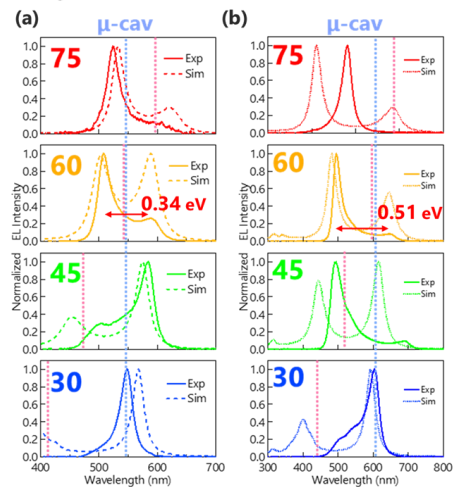


Fig. 2 EL spectra of AZA-OLED with ZnS interlayer of 30, 45, 60 and 75 film (a) Top-Ag 30 nm (b) 15 nm

電子衝突解離断面積の測定における 初期電子エネルギー分布の影響

Effects of initial electron energy distribution on the measurement of electron-impact dissociation cross section

室蘭工大, 岩部 由芽, 川口 悟, 高橋 一弘, 佐藤 孝紀

Muroran I.T., Yume Iwabe, Satoru Kawaguchi, Kazuhiro Takahashi and Kohki Satoh

1. はじめに 電子衝突解離断面積の測定では、質量分析法の原理が利用されており、低ガス圧力において電子のエネルギーを変化させながら気体分子に衝突させ、生成される各種イオンによる電流を測定している。この測定結果では、イオン電流値がしきい値付近から曲線的に増加しはじめ、その後、衝突電子エネルギーに対して直線的に増加する形状となる。この形状について Tanaka *et al.*^[1] は、フィラメントから放出される熱電子群の初期エネルギー分布に由来するものであると報告している。当研究室においても同様な方法で絶縁ガスについて解離性電離断面積を測定しており、その測定結果においても、しきい値付近で Tanaka *et al.* と同様の形状となることが確認されている^[2]。

本研究の目的は、解離性電離断面積のしきい値決定における初期電子エネルギー分布の影響を明らかにし、しきい値決定の精度を向上させることである。今回は Ar を対象とし、この影響についてシミュレーションにより検討を行ったので、その結果について報告する。

2. 計算方法 図 1 は、当研究室で使用している質量分析計の構造を示している。フィラメントから熱電子が放出され、電子はフィラメントとイオン化室の間の電界によって加速される。加速された電子はイオン化室内に入り、気体分子と衝突することでイオンを生成する。生成されたイオンはマスフィルターで分離され、検出される。

本研究では、フィラメントを 0 eV で出発した電子が、イオン化室に入るまでに一様電界で加速される場合を仮定し、イオン化室内での電離衝突の回数をサンプリングした。電子の飛行は Monte Carlo 法^[3] を用いて正確に計算している。シミュレーション条件は実験条件と同一にし、ガス圧力

は 7.6×10^{-6} Torr, ガス温度は 293.15 K とした。なお、初期電子数は 2×10^8 個とした。

3. 計算結果 図 2 は、フィラメントーイオン化室間の印加電圧(以後加速電圧と記す)に対して、イオン化室内の電離衝突回数を示したものである。なお、ガス圧力が十分に低いので、イオン化室に入るときの電子エネルギーは加速電圧と等しくなっている。図 2(a)では、Ar の電離断面積も重ねて示しており、電子エネルギーに対する電離回数の変化は、電子衝突断面積の形状と一致していることがわかる。また、図 2(b)より、電離断面積のしきい値付近では、初期電子エネルギーが分布を持たない場合でも曲線的に増加する形状となっている。よって、しきい値付近のイオン電流の形状は必ずしも初期電子エネルギーの分布に由来するものではないことがわかる。

Tanaka *et al.* はしきい値付近のイオン電流の変化の形状が電子の初期エネルギー分布に由来するものと仮定したため、イオン電流が直線的に減少する部分を低エネルギー側に延長することでしきい値を決定しているが、この方法に従うと、図 2(b)中の破線より、しきい値は 16.16 eV となり、実際の値(15.75 eV)よりも約 0.4 eV 大きくなる。当研究室で Ar と N₂ のイオンの電流値を測定した結果では、どちらも約 +3.6 eV の差となった。よって、イオン電流のしきい値を決定するためには、しきい値が既知のガスを用いてキャリブレーションが必要であると考えられる。

本研究は JSPS 科研費 19K03806 の助成を受けて実施されたものである。

参考文献

- [1] Tanaka *et al.* : Jpn. J. Appl. Phys., **37**, Pt. 1, No. 9A (1998)
- [2] 佐藤ら : 電気学会北海道支部 予稿集 p.20 (2022)
- [3] 佐藤 : 応用物理, **89**, 253 (2020)

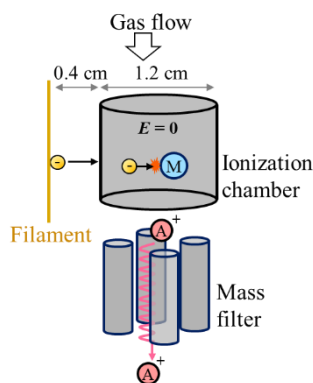
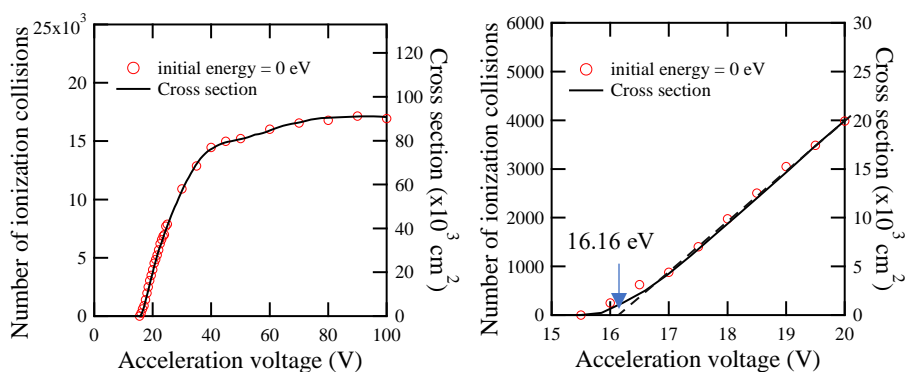


図 1 電子衝突電離型質量分析の原理



(a) 0 – 100 eV

(b) 15 – 20 eV

図 2 加速電圧に対する電離衝突回数

二重シャッタードリフトチューブを用いた気体中の電子輸送係数測定 —低電流領域における測定方法の確立—

室蘭工大, 塚本 優希, 川口 悟, 高橋 一弘, 佐藤 孝紀

Muroran I.T., Yuki Tsukamoto, Satoru Kawaguchi, Kazuhiro Takahashi and Kohki Satoh

1. はじめに

ハロゲン原子を含むガスはプラズマエッチングやガス絶縁に用いられ, その電子輸送特性の理解が求められている。二重シャッタードリフトチューブ(Double Shutter Drift Tube : DSDT)は電子到着時間分布(Arrival Time Spectra : ATS)を電流として測定する装置であり, 得られたATSから平均到着時間ドリフト速度などの電子輸送係数を導出できる^[1]。DSDTの測定には振動容量型エレクトロメータが用いられており, 測定電流が小さい場合にはキャパシタの充電時間を考慮した測定が必要となる。一般にハロゲン原子を含むガスは電子付着が多く電流値が小さくなる傾向がある。

本研究では低電流領域における正確なATS測定を目的とし, エレクトロメータの応答がATSに及ぼす影響を調べたのでその結果を報告する。

2. 実験方法

円筒状チャンバー内(内径 $\phi 250$ mm \times 高さ350 mm)に金蒸着を施した石英板を組み込んだ光電陰極を設置するとともに, その下方に電子捕集電極を配置する。光電陰極の直下および捕集電極の直上に, ステンレス製のメッシュ板を2枚1組としたシャッターをそれぞれ設置し, 2つのシャッター間をドリフト空間とする。

図1はチャンバー内の電位分布を示す。ドリフト空間に一樣な電界 E を印加し, 光電陰極の背面から紫外線を照射することで光電陰極から初期電子を発生させる。初期電子は右方向へ進むが, S1に印加された阻止電圧により電子はドリフト空間へ進むことができない。ここで, S1の左側のメッシュに阻止電圧を打ち消す方向のパルス電圧を印加すると, 瞬間的にS1の電位分布が図1の破線のようになり, 電子群をドリフト空間へと放出させることができる。

ドリフト空間に入った電子群は電界と逆方向にドリフトし, シャッターS2へ到達する。S2には実線で示す阻止電圧が印加されており, S2の右側のメッシュに阻止電圧を打ち消す方向のパルス電圧を印加することでS2の電位分布を瞬間的に破線のような電位分布とし, S2に到達した電子群を捕集電極へ移動させる。S1を開くタイミングに対してS2を開くタイミングを少しずつ遅延させ, 各遅延時間における電流を振動容量型エレクトロメータを用い測定することでATSを得る。

今回の実験では N_2 ガス中において, 電流値が 10^{-13} Aオーダーとなるように設定し, シャッターを遅延させた直後から57.5 s後および2 s後の電流値をサンプリングした。

3. 実験結果

図2はS1を開く時間に対し, S2を開く時間を170 ns遅延させたときのエレクトロメータの測定値の変化を示す。0~50 sでは測定値に過渡的な応答が見られ, 50 s以降では一定になっていることが確認できる。

図3はシャッターの遅延から電流値のサンプリングまでの時間が57.5 sおよび2 sのATSをそれぞれ実線および破線で示す。2 sのATSは57.5 sのATSと比較し遅れていること, および, 立下りが緩やかであることがわかる。これは2 sではエレクトロメータの測定値が定常状態に達しないためであり, 低電流領域ではシャッターの遅延から電流値のサンプリングまで十分な時間が必要であることを示している。

参考文献

- [1] K. Kondo and H. Tagashira: J. Phys. D : Appl. Phys. **23**, 1175 (1990)

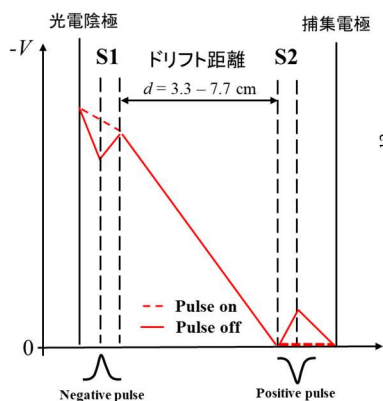


図1 チェンバー内の電位分布

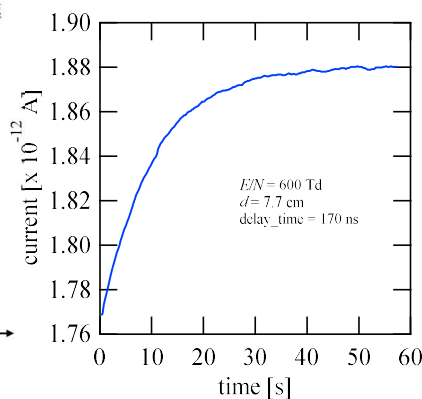


図2 エレクトロメータの測定値の変化

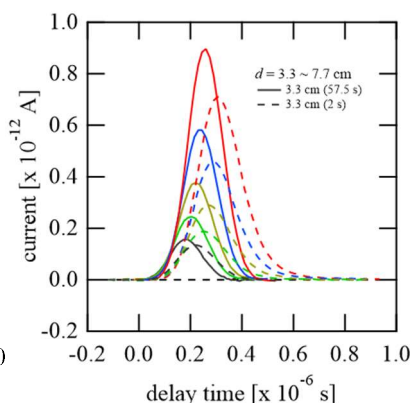


図3 ATS