エキソ電子の蒸着膜透過

岡部 茂*・青木 正義*・津守 邦彦**
 盛山 武祥***・奥田 修一***

(昭和56年6月1日 受理)

Exoelectron Transfer through Evaporated Films

Shigeru OKABE, Masayoshi AOKI,
 (Faculty of Engineering, Fukui University, Bunkyo, Fukui)

Kunihiko TSUMORI,
 (Institute of Scientific and Industrial Research, Osaka University, Suita, Osaka)

Takeyoshi SEIYAMA, and Shuichi OKUDA
 (Radiation Center of Osaka Prefecture, Shinke-Cho, Osaka)

(Received June 1, 1981)

Exoelectron transmission through thin films is studied by evaporating non-exoelectron materials on exoelectron emission surfaces. The transmission curves through carbon and gold films are separated into two components, the thin film transmission part and the thicker film one. The decay rate in the later part shows almost the same tendency in various films and it is considered as a kind of diffusion process. This is an interesting result from the point of view of low energy electron transmission.

1. 緒 言

エキソ電子は各種の物質に放射線、紫外線などによる励起、加圧変形、表面損傷などの刺激が加えられたとき、またはその後に加熱、光照射などが行われたときに表面から放出される0.1~2 eV前後のエネルギーをもった電子の総称で、加熱による放出現象をTSEE、光によるものをOSEEという。普通エキソ電子放出量は放射線の照射線量に比例するので、この現象を利用した放射線検出器の開発が現在すすめられている。その他触媒との関係なども研究されているので¹⁾、多くの人々の関心

を引き、いくつかの解説^{2~4)}も著されている。

われわれはエキソ電子を用いた放射線検出器の研究をここ数年つづけて来たが、よく知られているように、同一線量に対する同一試片によるエキソ電子放出量の再現性はあまりよくない。この原因として不特定因子による表面状態の変化が考えられるので、再現性のよい試片を得る目的で試片の表面にエキソ電子を放出しないと言われている非エキソ物質を蒸着し、表面の安定化を試みるとともに、エキソ電子の蒸着膜透過特性について調べてみた。エキソ電子の透過性を調べることは、単に今回の目的である再現性のよいエキソ電子検出器を試作する上で必要であるのみでなく、放射線物理の立場で、従来からデータの欠けている低エネルギー電子の吸収係数、或は阻止能を知る上でも非常に興味があり^{5~7)}、また最近

*福井大学工学部 (福井市文京)

**大阪大学産業科学研究所 (吹田市山田上)

***大阪府立放射線中央研究所 (堺市新家町)

Fig. 1 The schematic diagram of the exoelectron detection system with 2π gas flow counter.

のようにマイクロな表面研究が盛になってくると、エキソ電子の蒸着膜透過現象そのものが、真空装置を取扱う人々にとって極めて興味のあることと思われる。

ここではエキソ電子放出物質の表面に非エキソ物質である炭素や金を数Å~数百Åの厚さに蒸着して、エキソ電子の蒸着膜透過特性について調べたので、これについて報告する。

2. 実験方法

エキソ電子放出試料として、ここでは CaSO_4 の微粉粒子をアルコールに懸濁し、これを純度の高いグラファイト板に沈殿させ、 400°C で2時間アニールしたもの、 LiF の単結晶で $1 \times 6.5 \times 6.5 \text{ mm}^3$ の磨いた結晶片の面がそれぞれ (111), (100) のもの、および同じ寸法の Al_2O_3 で結晶軸が試料面に垂直($\perp$)なものも平行($\parallel$)なものなどを用いた。

測定は CaSO_4 については γ 線照射後、試料加熱皿上に試片をのせて真空容器内におき、試料から1 cm 離れた集電極に +200 V の電圧をかけ、エキソ電子電流をピコ電流計で読み、X Y レコーダに試片の加熱温度と共に記録した。 LiF , Al_2O_3 などエキソ電子放出量の少い試片は、これを 2π 型ガスフロー計数管の底のグラファイトの薄い加熱皿にのせ、直下からヒータで加熱するようにした。昇温は時間に対して線形に、室温から 400°C まで、 $1.4^\circ\text{C}/\text{sec}$ の割で行った。計数管の底部、加熱皿の試片の上部にはグリッドを設け、150 V 程度の引出し電圧をかけ、エキソ電子を加速して計数管に導くようにした。計数管の信号はプリアンプ、レートメータをとおしてレコーダの Y 軸に入れ、X 軸には加熱皿に接触した熱電対の信号を入れ試片の温度を示すようにした。Fig. 1 に用いた装置の概略を示す。

試片表面への炭素および金の蒸着は、蒸着槽を用い、 10^{-6} Torr に排気後、蒸着の均一さを保つためアルゴンガスを 10^{-2} Torr だけ入れて行った。蒸着膜の厚さは、試片の近くに置いた水晶発振子の蒸着による振動数の変化を利用する水晶式膜厚計を用いて測定した。所定の蒸着膜を被せた試片は空気中で保存した。使用した試片は、

Fig. 2 Difference of exoelectron glow peaks observed before and after evaporation of carbon or gold on CaSO_4 samples.

いずれも測定に都合の良い線量 $10^3 \sim 10^5$ R を Co-60 の γ 線を用いて空気中で照射した。

3. 実験結果

得られた結果の中、代表的なものを Fig. 2, 3, 4 に示す。Fig. 2 に CaSO_4 からのエキソ電子放出と温度との関係を、炭素を蒸着してない試片と、50 Å の厚さに蒸着したものについて示してある。この場合 125°C , 185°C , 235°C の各グローピークの炭素50 Å 透過による減衰の割合は、Fig. 5 にまとめて示してあるようにほぼ同じである。また Fig. 2 には CaSO_4 に金を4.3 Å 蒸着したものも示してある。この膜厚の値は水晶膜厚計によって測定されたもので、4.3 Å と云う蒸着膜の状態が微視的にみてどのようなものかはっきりしないが、炭素膜の場合と異なり、 235°C の所のピーク値がかえって増加しているのが見られる。これらの試片はいずれも Co-60 γ 線で 10^5 R 照射した。

Fig. 3 は Al_2O_3 の結晶軸が試料面に平行($\parallel$)なものと垂直($\perp$)なものについて、その各々に炭素を54 Å, および70 Å 蒸着した時のエキソ電子の減少の様子を 2π ガスフロー計数管で測ったものを示している。これらの試片はいずれも Co-60 の γ 線を 10^5 R 照射した。 Al_2O_3 ($\parallel$)にみられる 210°C のグローピークは炭素蒸着膜透過後にはノイズレベルに埋ってしまっははっきり見えない。

Fig. 4 は LiF の試片の面が (111) のものと、(100) のものに厚さ64 Å の炭素を蒸着した場合と、しない場合のエキソ電子放出を、 2π ガスフロー計数管で測ったもの

Fig. 3 Difference of exoelectron glow peaks observed before and after evaporation of carbon on Al_2O_3 . Crystals with surfaces parallel (//) to or perpendicular ($\perp$) to the C axis.

である。105°Cのグローピークは290°Cのものに比べて非常に強いことが判る。また一応両ピークとも60または64 Åの炭素膜をつけても観測にかかっている。この時のCo-60 γ 線の照射量は 10^8 Rであったので、LiFは Al_2O_3 の約 3×10^8 倍の放射線感度をもっていることが判る。

なおLiFなどをグラファイトに蒸着した面から、放射線などによる刺激を与えなくてもエキソ電子の放出がみられるが⁹⁾、ここでは省略する。また放射線刺激によるLiF蒸着面からのエキソ電子グローピークの形はFig. 4のいずれの結晶面のものとも異っている。このことは CaF_2 結晶およびその蒸着面、石英結晶および熔融石英などのエキソ電子グローピークについても同様に観測された。

4. 測定結果の検討

CaSO_4 から出たエキソ電子の各グローピークの炭素蒸着膜による減衰をまとめるとFig. 5のようになる。3つの曲線はいずれも殆んど同じ減衰傾向を示し、かつ点線で示すように大きく2つの成分に分けることができる。

Fig. 4 Difference of exoelectron glow peaks observed before and after evaporation of carbon on LiF crystals with (111) surface or (100) surface.

さらにここに示した他の試料の蒸着膜による減衰曲線をまとめるとFig. 6のようになる。図の横軸は蒸着膜の厚さを 10^{-6} gr/cm²であらわし、同時にこれに相当する炭素の厚さをÅで示してある。図には参考のためLewowski⁹⁾のNaClの上に銀を蒸着し、これを20 kVのX線で照射した後のNaClからの光刺激エキソ電子放出のデータをのせてある。図の直線は横軸の関係で、銀100~200 Åの辺りのデータ平均を示してある。又Kanter¹⁰⁾による6 eV電子による金蒸着膜透過のデータも示してあるが、これも横軸の範囲の都合で金100~600 Åによる吸収の平均的傾向のみを示してある。この場合入射電子のエネルギーが6 eVと云うのは少し疑わしい。

Fig. 6をみると各試片のエキソ電子の蒸着膜による吸収曲線は、Fig. 5に点線で示したように蒸着膜の薄い所と厚い所の2成分に分けて考えることができる。

蒸着膜の薄い所での減衰率は、試料の種類により、また蒸着膜の種類によって異っている。この部分はエキソ電子の硬成分による減衰と考えられ、試片によって若干エネルギーの異なるエキソ電子が、蒸着膜の薄いために生じる微視的な膜厚の不均一性や、そのための表面仕事関

Fig. 5 Exoelectron transmission through carbon films. Symbols P_1 , P_2 , and P_3 correspond to the glow peaks in Fig. 2.

数の変化の影響をうけて減衰しているものと思われる。エキソ電子のエネルギーは物質によって異なるのみでなく、グローピークの温度によっても異なることが知られている。例えば Brunsmann¹¹⁾などによると、LiF の 100°C および 360°C における TSEE のエネルギーは、それぞれ 0.21 eV, 0.64 eV と報告されているし、久保添¹²⁾は MgO の TSEE のエネルギーが、50°C で 0.5 eV, 150°C で 0.1 eV, 250°C で 0.22 eV と報じている。エネルギーの測定値が少いので、今回の測定結果に対応させることは出来ないが、これも又減衰率の違いの原因をなしていると思われる。また LiF や Al_2O_3 の結晶軸の違いによる減衰率の違いには、表面の分子配列の違いによる仕事関数の影響もあるかと思われる。例えば久保添¹³⁾によると Al_2O_3 の真空中へ出るエキソ電子のエネルギーは試片の面が C 軸に平行(//)なものと垂直(⊥)なものでは各 1.4 eV と 0.7 eV で 2 倍違い由である。

蒸着膜の厚いところでのエキソ電子の減衰は、エキソ

Table 1 Mass-thickness of Evaporated Films for 1/10 Transmission.

Evaporated Material	Specific Gravity	Exoelectron Material	1/10 Mass Thickness (10^{-8} gr/cm ²)
C	2.25	LiF	830~1000
C	2.25	CaSO ₄	
Au	19.3	CaSO ₄	860~1100
Ag	10.5	NaCl	840~1050

Fig. 6 Exoelectron transmission through various films. The line for Ag is the transmission of TSEE of NaCl at 100 Å thickness of Ag by Lewowski⁹⁾ and that for Au is the transmission of photoelectrons of 6 eV at 200 Å of Au by Kanter¹⁰⁾.

電子のうちの低エネルギー成分に対応していると思われる。図にみられるようにこの部分でのエキソ電子の減衰は、実験を行った範囲内ではエキソ電子放出物の種類や蒸着物質に関係なく、一定値を示し、Kanter の金や Lewowski の銀の透過も同じ傾向を示している。これは蒸着膜のある厚さ以上を通過した 0.1~0.5 eV 程度のエネルギーの低い電子の透過は専ら運動量の変化を伴う散乱のみを繰返し、拡散現象が主役を果しているためかと考えられる。

Fig. 6 から得られた蒸着膜の厚い所で、エキソ電子が 1/10 に減少する厚さを求めてみると **Table 1** のようになる。物質による違いは少く、実験誤差の範囲内で一致している。この事実は先の結論に一致している。

おわりに、研究をまとめるに当たって討論して頂いた奈良教育大の藤村亮一郎教授に謝意を表する。

〔文 献〕

- 1) 島田 寿, 中島耕一: 日本金属学会会報 **19** (1980) 503.
- 2) K. Becker: IAEA, Atomic Energy Review **8** (1970) 173-216.
- 3) 岡部 茂: RADIOISOTOPS **22** (1973) 583.
- 4) 川西政治: 応用物理 **48** (1979) 94.
- 5) 中井洋太: 日本物理学会誌 **26** (1971) 486.
- 6) H. Ibach: Electron Spectroscopy for Surface

- Analysis (Springer, 1977) p. 1-12.
- 7) V. E. Henrich, G. Dresselhaus and H. J. Zeiger: Phys. Rev. **B 22** (1980) 4764.
 - 8) 青木正義：第28回応用物理連合講演会予稿集 (1981) p. 9.
 - 9) T. Lewowski: Act. Phys. Pol. **33** (1968) 27.
 - 10) H. Kanter: J. Appl. Phys. **34** (1963) 3629.
 - 11) V. Brunsmann, R. Huzimura and A. Scharmann: phys. stat. sol. (a) **26** (1974) K149,
 - 12) Y. Takemoto, Y. Takahashi, Y. Watanabe and T. Kubozoe: phys. stat. sol. (a) **58** (1980) K145.
 - 13) 久保添忠嘉：私信