レーザー核融合ペレットの金属膜厚測定

吉田 弘樹, 山取 真也*, 阪上 幸男

岐阜大学工学部電気電子工学科 (〒501-1111 岐阜市柳戸 1-1)

Accurate Metal Thickness Determination of a Pellet for Laser Fusion

Hiroki YOSHIDA, Shinya YAMADORI, and Yukio SAKAGAMI

Department of Electrical and Electronics Engineering, Faculty of Engineering
Gifu University, 1-1 Yanagido, Gifu 501-1111

(Received October 1, 1997)

Spectrophotometry for determining the metal thickness of a laser-fusion pellet is proposed. The technique, which uses Ni ion solution from Ni-coated glass micro-balloon, is demonstrated within $\pm 5\%$ error. Using this technique, a conventional quartz crystal monitor is calibrated for spherical pellets.

Key Words: Laser fusion, Pellet calibration, Determination of thin film thickness, Spectrophotometry

1. はじめに

レーザー核融合研究では, GMB (Glass Micro-Balloon), PMB (Plastic Micro-Balloon), フォームシェルを用いており, それらにAu, Al等の金属をコートする場合が多い. また, イグニッションの達成には, レーザー照射の均一性向上が重要である. 筆者らは, その達成にはペレットの無接点支持が有効と考え, ペレットにNi薄膜をコートして磁気力で無接点支持する磁気懸架の研究を行っている^{1,2)}. したがって, Niの膜厚を測定する必要があるが生じた.

一般に, 膜厚測定として, 機械的方法(触針), 質量測定(天びん, 水晶振動子), 電気的方法(抵抗, うず電流, 容量), 電子顕微鏡(走査型, 透過型), 光学的方法(光吸収, 干渉, 偏光, 変位), 分光光度分析(吸光, 比色), レーザー顕微鏡(干渉, レンズ焦点検出), 放射線(X線ラジオグラフィ, 蛍光X線, 放射化分析, イオンプローブ), が上げられる.

レーザー核融合研究では, 金属薄膜計測として, 上で述べた水晶振動子, 走査型電子顕微鏡³⁾, X線ラジオグラフィ³⁾, 光学的方法, 等が行われている. 本論文では分光光度分析(吸光)が有用な方法であることを述べる. 次に, 球状のNi膜厚測定では水晶振動子の測定値を断面積と表面積との比で換算せざるを得ず, 水晶振動子の較正に対してもこの方法が有用な方法であることを述べる.

2. Ni 薄膜コート

今回, ペレットとしてGMBを, 金属薄膜としてNiを, 磁気懸架に用いている. Fig.1は筆者らの抵抗加熱式真空蒸着

装置である. 以下に, この装置を用いたNiコートGMB (Ni-GMB)の製作について説明する. およそ10個のGMBをメッシュ(銅線0.24mm ϕ , ピッチ0.65mm)製のかご(20mm $\times$ 20mm, 高さ12mm)に入れ, バイブレータで ~ 350 Hzの振動を与える. このGMBの数とバイブレータの振動周波数は, GMBが良好に転がる値として実験的に決めた数値である. ここでは, バイブレータとして電磁スピーカーを用いる. Ni (99.99%)を装置下部のタングステンボートに乗せ, AC電流を ~ 120 A流してNiを蒸発させる. このかごとタングステンボートとの距離は標準で90mmとしている. そして, タングステンボードの上のシャッターを開き, 水晶振動子式の成膜コントローラ(日本真空技術, CRTM-5000)で監視しながら蒸着する. 後に述べる水晶振動子の較正に基づいて成膜コントローラの値が目標の膜厚の11倍になるまで蒸着したら, シャッターを閉めて蒸着を終える. 膜厚70nmの蒸着をする場合, 蒸着時間は10分間程度である. なお, GMBとメッシュのかごは下地処理として, アセトンで5分間以上超音波洗浄を行い, 油脂及び油脂以外の付着物を除去してから用いる.

3. 膜厚測定

3.1 吸光光度分析法による膜厚測定の原理

吸光光度分析は試料による光の吸収の割合を測定比較して分析を行うものである. 単色光が均質な媒質を通過するとき, 入射光強度 I_0 , 透過光強度 I , 媒質層の厚さ l , 媒質中の光を吸収する成分の濃度 c , 吸光係数 ϵ_λ とすると, Lambert-Beerの法則より吸光度 A は

*現在の所属: 三菱電線工業株式会社

* Present address: Mitsubishi Cable Industries

Fig.1 Resistance heating vacuum deposition system.

$$A = \log \frac{I_0}{I} = -\log \frac{I}{I_0} = \varepsilon_\lambda l c \quad (1)$$

となる。Niの吸光光度分析では、多くの有機発色試薬が知られているが、そのうちHON=C-C=NOH基⁴⁾をもつ試薬がもっとも多く用いられている。この基をもつジオキシム類はNiと反応して発色を示す。Niを溶かした液量をLとするとNiの質量mは

$$m = c \cdot L \quad (2)$$

である。また、GMBの半径を r_p 、Niの膜厚を t 、Niの密度を ρ とすると、

$$m = 4\pi r_p^2 t \rho \quad (3)$$

となる。Eq.(1)-(3)より膜厚 t は

$$t = \frac{AL}{\varepsilon_\lambda 4\pi r_p^2 \rho} \quad (4)$$

と求められる。したがって、 ε_λ を求めておき、個々のNi-GMBのAと r_p をEq.(4)に与えることによって t を得る。またこの式は、メッシュのかごに入れた同一ロットのGMB~10個に関してAが r_p^2 に比例するならば、そのロットのNiの膜厚がみな等しいことを意味している。この原理に基づいて、以下に示す手順で実験をした。この時、測定値の有効桁数は2または3である。

3.2 検量線の作成

1.0mgのNi板(99.99%)を塩酸で溶かし、水で希釈してNi濃度0.10mg/mlの溶液(A)10.0mlを作った。この溶液(A)から5.0, 10.0, 20.0 μ lをとり、それぞれに、酸化剤として飽和臭素水40.0 μ lを加え、アンモニア水およそ80 μ lを加えてpH8~10にした。さらに、ジメチルグリオキシム溶液40.0 μ lを

加えて発色させて溶液(B)を作った。これらを純水で希釈して全容1.00mlにすることによって、Ni濃度0.50, 1.0, 2.0 μ g/mlの溶液(C)を作った。これらを測定試料として、 $l = 10.0$ mmの分光光度計の標準ガラスセルに移した。このとき参照試料としては溶液(A)を用いずに溶液(B)~(C)と同じ手順で作った溶液、すなわち、飽和臭素水40.0 μ l、アンモニア水およそ80 μ l、ジメチルグリオキシム溶液40.0 μ l、に純水を加えて1.00mlにしたものを用いた。なお、これらの試薬を作ったあと10分以内に、自記分光光度計(日立、UV-330)で吸光度を測定した。

Ni濃度1.0 μ g/mlの溶液(C)の波長に対する吸光度を測定して得た吸収曲線をFig.2に示す。これより吸収極大波長は445nmであることを確認した。この波長の吸光度は、溶液を作った後10分程度の時間内はほとんど変化しない⁵⁾。残りのNi濃度の異なる2つの溶液(C)の吸光度も測定し、Fig.3に示す検量線を作成し、その傾きと $l = 10.0$ mmから吸光係数 $\varepsilon_{445\text{nm}} = 25 \text{ l}/(\mu\text{g} \cdot \text{mm})$ と決定した。

3.3 膜厚測定結果

前述のように我々の真空蒸着装置では、一度におよそ10個のGMBをコートできる。今回、水晶振動子式成膜コントローラーの値 t が $8.00 \times 10^2 \text{ nm}$ と $6.20 \times 10^2 \text{ nm}$ になるまで蒸着して、異なる膜厚の2ロットを準備した。また、あらかじめGMBの半径を測定することで、コート後でもNi-GMBを特定できるようにした。

各ロットそれぞれ9個のNi-GMBについて、それぞれ個別にNiを80.0 μ lの塩酸で溶かして溶液(A')を作った。これに飽和臭素水40.0 μ l、アンモニア水およそ80 μ lを加えてpH8~10にした。さらに、ジメチルグリオキシム溶液40.0 μ lを加えて発色させ、溶液(B')を作った。これに純水を加えて全量で1.00mlの溶液(C')を作り、これを測定試料とした。そ

Fig.2 Absorption spectrum of the solution (C).

Fig.3 Calibration curve of the solutions (C).

Fig.4 Measured dependence of A on r_p .

して、溶液(A')を用いずに溶液(B')～(C')と同じ手順で作った参照試料を用いて、自記分光光度計で波長445nmの吸光度を測定した。その結果得た半径と吸光度との関係をFig.4に示す。このときの吸光度は0.16～0.36であり、前述の検量線の測定範囲内にあった。図中の実線は r_p^2 の実験曲線であり、いずれのロットもAが r_p^2 に比例していることが判る。すなわち、これは同一ロットの膜厚がみな等しくなることを示している。

それらのNi-GMBの半径とその吸光度、 $l = 10.0\text{mm}$ 、 $L = 1.00\text{ml}$ 、前述で得た $\epsilon_{445\text{nm}} = 25\mu\text{l}/(\mu\text{g}\cdot\text{mm})$ をEq.(4)に与え、密度としてはNi板と同じ $\rho = 8.85\text{g}/\text{cm}^3$ として得た膜厚と半径との関係をFig.5に示す。同一ロット内では、半径によらず膜厚は一定であり、 $t' = 8.00 \times 10^2\text{nm}$ (800nm lotと称す)の膜厚は87nmで、 $t' = 6.20 \times 10^2\text{nm}$ (620nm lotと称す)の膜厚は71nmであった。この87nmと71nmの誤差は $\pm 5\%$ 程度であり、それはペレット半径、液量、吸光度の測定において生じたものである。

成膜コントローラの値が $8.00 \times 10^2\text{nm}$ のロットのNi-GMBの断面を走査型電子顕微鏡(日立、H-8100)によって観察した。それらの断面の一例をFig.6に示す。このNi-GMBのNiの膜厚は90nmであり、前述の誤差の範囲で一致していた。

4. 水晶振動子式成膜コントローラの較正

成膜コントローラの水晶振動子は平板であるがGMBは球状である。すでに述べたように、筆者らは成膜コントローラの測定値をGMBの断面積と表面積の比で換算してきた。ここで、上記の膜厚測定結果を用いて成膜コント

Fig.5 The determined thickness by spectrophotometry.

Fig.6 Cross sectional view of a Ni-GMB by a SEM.

Fig.7 Deposition model.

ローラを較正した。

水晶振動子とメッシュ上のGMBへの蒸着のモデルが提案されている。筆者らがそのモデルにメッシュの透過率を考慮をしたものをFig.7に示す。パイプレータによってGMBをメッシュ上でランダムに振動させながら蒸着する。そのGMBの断面積をS、メッシュの透過率をTとすると、Niの膜厚 t と水晶振動子のNiの膜厚 t' の関係は

$$4\pi r_p^2 = TS t' \quad (5)$$

となる。断面積Sは

$$S = \pi r_p^2 \quad (6)$$

であるから、これをEq.(5)に代入して

$$4\pi r_p^2 t = \pi r_p^2 t' \cdot T \quad (7)$$

となる。また、メッシュの透過率を44%と与えると、 t と t' の関係は

$$\frac{t}{t'} = 0.11 \quad (8)$$

である。これより $t' = 8.00 \times 10^2\text{nm}$ のとき膜厚 $t = 88\text{nm}$ 、 $t' = 6.20 \times 10^2\text{nm}$ のとき $t = 68\text{nm}$ を得た。

5. まとめ

今回, 吸光光度分析法を用いてNi-GMBから直接にNiの膜厚を測定し, この方法がNiの膜厚測定法の一つとして有用な方法であることを示した. レーザー核融合の分野で用いられている他の金属, たとえば, Auはジメチルアミノチオベンゾフェノンと反応して, Alはオキシシと反応して, 発色することが知られており⁶⁾, この方法はこれらの金属薄膜の測定にも適用できると考えられる. 次に, この方法を用いて水晶振動子式成膜コントローラの較正を行い, この方法が球状の膜厚測定に対しても有用な方法であることを示した.

謝 辞

本研究は, 文部省科学研究費基盤(C), および大阪大学

レーザー研究センターとの共同研究費の交付, により遂行した. SEMによる観測は, 本学機器分析センターの施設利用によって実施した.

参考文献

- 1) Y. Sakagami, H. Yoshida, T. Mizutani, S. Miyagawa, M. Sekimura, and K. Yasufuku: *Int. Conf. Laser Inter. and Related Plasma Phenomena* (AIP 1996) p.119.
- 2) H. Yoshida, Y. Sakagami, K. Yasufuku, S. Yamadori, and T. Konishi: *Proc. of the 1996 Int. Conf. on Plasma Phys.* (The Japan Soc. of Plasma Sci. and Nucl. Fusion Research 1996) p.1798.
- 3) Inst. of Laser Eng.: *Annual Progress Report on Laser Fusion Program Sep.1977-Aug.1978* ILE-APR-78 (Inst. of Laser Eng., 1978) p.129.
- 4) 無機応用比色分析編集委員会編: 無機応用比色分析 (共立出版, 1975) p.4.
- 5) A. M. Mitchell and M. G. Mellon: *Ind. Eng. Chem.* **17** (1945) 380.
- 6) 大西 実, 束原 巖: 吸光光度法—無機編 (共立出版, 1983).