

令和 5 年 6 月 23 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2019～2022

課題番号：19H01886

研究課題名（和文）プラズマから出るイオン流れの多次元ハイスルーブットLIF計測

研究課題名（英文）Development of Laser-Induced Fluorescence Spectroscopy for the Measurement of Dynamic Behaviors of Ion Flow from Plasmas

研究代表者

占部 継一郎 (Urabe, Keiichiro)

京都大学・工学研究科・助教

研究者番号：80725250

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,400,000円

研究成果の概要（和文）：本課題はレーザー誘起蛍光法によるイオン流れ計測を連続出力可能な技術に進化させ、最先端プラズマ産業技術の発展に寄与することを目的とした研究テーマである。研究期間の前半では、連続光源である半導体レーザーを光源とした分光計を構築し、低圧プラズマ源において発生する磁場に沿ったイオンの運動や、不純物分子に起因したイオン密度変動を捉えることに成功した。また、プラズマ中に設置した金属電極近傍に形成されるプリシース・イオンシース領域におけるイオン加速の計測に研究期間後半にて取り組み、kHzオーダーの交流バイアスに対するイオン流れの時間分解計測を実現した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究は、従来のレーザー誘起蛍光法にはない【ハイスルーブット計測】という考え方を新たに導入したものであり、(1)プラズマ(イオン)挙動の連続的な計測や、(2)高速なシース(イオン)変動現象を捉えることに成功した。これらの研究成果は、イオン挙動やその制御性が性能に決定的な影響を与える宇宙電気推進器や材料プロセス用プラズマ(イオン)源の研究開発やオペレーションに活用されるものと期待される。また、その場で計測結果を出力する本研究の提案手法はビッグデータ・AI処理に最適化可能であり、分光計測が活用される様々な工学分野（例えば、燃焼プロセス診断、天文観測）への波及が期待される。

研究成果の概要（英文）：The purpose of this study is to develop advanced measurement system of ion dynamics in plasmas, based on the laser-induced fluorescence spectroscopy method. In the first half of the research period, we constructed a spectroscopic system using a continuous diode laser as a light source and succeeded in capturing ion motion along magnetic fields and ion density fluctuations caused by impurity molecules in low-pressure plasma sources. In the latter half of the research period, we also measured ion acceleration features in the pre-sheath/ion sheath regions formed in front of the metal electrode and demonstrated time-resolved measurements of ion energy distribution following an AC bias voltage on the order of kHz.

研究分野：プラズマ分光学

キーワード：プラズマ イオン レーザー分光 時空間速度分布 イオンシース

### 1. 研究開始当初の背景

プラズマを活用する様々な工学分野において、プラズマ内部や辺縁部での「イオンの運動」は重要なパラメータである。例えば、宇宙探査機等に用いられる電気推進器では放出されるイオンの運動量が推進性能を決定している。また、先端半導体デバイス作製プロセスに用いられるプラズマエッチング（微細加工）では、材料表面への高速イオンの衝突がエッチングに関わる化学反応に必要なエネルギーを与えている。

プラズマ中のイオン挙動を捉える計測手法は、電圧印加した多層金属電極を用いて計測するプローブ的手法と、イオンの光放出・吸収過程を活用して計測する分光的手法に大別することができる。特に、分光的手法はプラズマに擾乱を与えず計測するため、プローブの導入が困難と考えられる状況にも適用可能であり、電気推進器をはじめとする小型プラズマ機器開発などで重要な計測手法となっている。

分光学的なイオン挙動計測手法として、本研究の対象となっている「レーザー誘起蛍光法 (LIF: Laser induced-fluorescence spectroscopy)」がある。これはプラズマ中のイオンに限らず、火炎中のラジカルなど様々な気体中の粒子計測に用いられている手法で、測定対象粒子の運動により決定される光吸収波長のドップラーシフト (or 幅) を、励起レーザー波長掃引時に得られる蛍光強度変化から解析するものである。従来のプラズマに対する LIF 計測研究では、測定対象のプラズマを「静的 (定常状態)」なものと考えており、プラズマ状態の経時的变化を考慮することや、経時的变化そのものを研究対象とすることは行われていなかった。また、プラズマ状態が高速かつ周期的に変化するような状態 (例: プラズマエッチングに用いられる交流 (RF) 基板バイアス印可時のイオン挙動) においても、LIF 法によるイオン挙動解析はイオン速度分布の時間平均 (積分) を出力し、瞬間的な速度分布やその変化の詳細を捉えることは技術的に困難であった。

### 2. 研究の目的

以上の背景から、研究代表者は「LIF 法によるプラズマ計測 (イオン挙動計測) のハイスループット化」を研究目的に設定し、本研究を開始した。これは、様々な時間スケールをもって経時的に移り変わるプラズマ状態に対し、LIF イオン挙動計測手法を用いて連続的にモニタリングする。そのために必要な計測システムや解析の方法論を構築していくことである。具体的には、プラズマによく用いられるアルゴンイオンを計測対象とし、以下の 3 項目について実験研究を行うこととした。

- (1) LIF 計測に重要な準安定アルゴンイオン密度の決定機構を知る
- (2) 分単位で変化するプラズマ状態を LIF 法にて連続的にモニタリングする
- (3) マイクロ秒単位で変化するイオン挙動を計測可能な新たな LIF システム構築

### 3. 研究の方法

図 1 に本研究で構築した LIF 計測システムを示す。連続計測を行うために、励起レーザー光源は半導体レーザーとテーパアンプの組み合わせとした。準安定アルゴンイオンの光吸収遷移にあたる 668 nm を励起波長とし、蛍光は脱励起波長 442 nm の光強度を光電子増倍管で計測した。プラズマからの発光と LIF 蛍光信号を切り分けるため、励起レーザー光を強度変調し、ロックイン計測により検出光中の変調周波数成分を抽出した。計測対象のプラズマ源には電子スピン共鳴 (ECR: Electron spin resonance) プラズマを採用し、プラズマパラメータモニタリングとして発光分光 (OES: Optical emission spectroscopy) 計測、ラングミュアプローブ計測、フローティング高調波プローブ (FHP: Floating harmonic probe) 計測を行った。これらの計測結果を比較検討することにより、LIF 法の計測結果の妥当性を検証した。

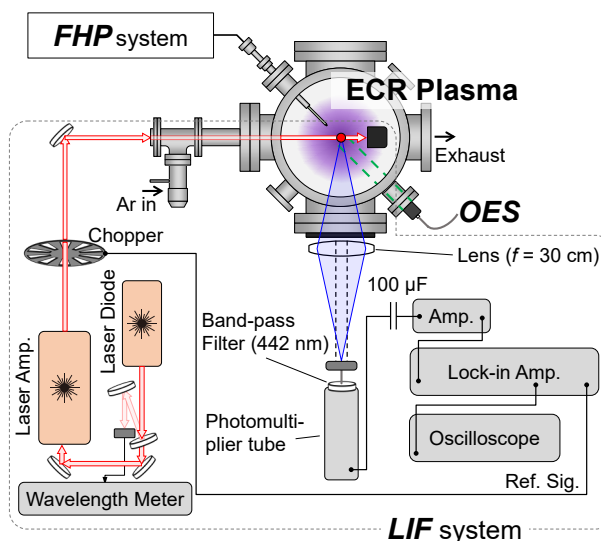


図 1: 本研究で用いた LIF 計測システム

#### 4. 研究成果

##### (1) 準安定アルゴンイオン密度の決定機構

アルゴンイオンの LIF 計測では、基底状態ではなく準安定励起状態のアルゴンイオンを計測対象粒子とする。これは、測定で活用する 3 準位系 (励起・蛍光) の遷移波長を共振・検出可能な範囲とするために必要な措置である。そのため、プラズマ中での準安定アルゴンイオン生成過程に関する知見が LIF 計測の研究開発には必要である。本研究では LIF 計測とプローブ計測を組み合わせ、準安定アルゴンイオンの生成には LIF 計測位置における高エネルギー (>18 eV) 電子の量が重要であることを明らかにした。(図 2, 引用文献①)

##### (2) 分単位で変化するプラズマ状態 (イオン挙動) のモニタリング

LIF 法によりイオン挙動の経時的変化をモニタリングする連続計測システム (繰り返し波長掃引+連続記録) を構築し, ECR プラズマ源を対象とした連続計測を OES 計測, FHP 計測と併せて実施した。図 3 に計測結果を示す。連続運転時間が 2.5 分に到達した後, 準安定アルゴンイオン密度や基底イオン密度, アルゴン発光強度が大きく減少したが, イオン温度や電子温度は一定を保っている。これは, プラズマにより昇温された真空容器内壁からの水蒸気脱離による電子数減少の影響を捉えたものと考えられ, OES 計測により明らかになった OH 発光強度の増加が考察をサポートしている。(文献②) このように, LIF 計測とその他計測を連続で行うことにより, プラズマ源内部でのイオン挙動に関わる経時的変動現象を捉えることが可能になった。

##### (3) マイクロ秒単位で変化するイオン挙動を捉える新規 LIF システム

図 1 に示した従来型の LIF 計測システムでは, 数 10 ミリ秒の時間分解能が限界であり, より高速なイオン挙動変動現象を捉えることはできない。そこで, 本研究では励起レーザー光の強度変調に電気光学変調器, 検出光からの変調周波数成分抽出に高速位相検波器を導入し, マイクロ秒オーダーの LIF 信号強度変化を時間分解可能な計測システムを新たに構築した。基礎実験として, kHz オーダーの LIF 信号強度変化を模擬的に作り出し, その時間分解計測が可能であることを実証した。(文献③) また, プラズマ中に接地した金属電極に 1~100 kHz オーダーの交流電圧を印加し, 周期的に変化するイオン挙動 (イオンシース状態変化) を捉えることに成功した。

<引用文献>

- ① R. Takahashi, S. Kito, K. Eriguchi, and K. Urabe, Proc 75th GEC/ 11th ICRP, HW6.00018 (2022).
- ② S. Kito, K. Eriguchi, and K. Urabe, Proc. 2021 DPS, P-15 (2021).
- ③ 鬼頭 聖弥, 京都大学大学院 航空宇宙工学専攻 修士論文, (2022).

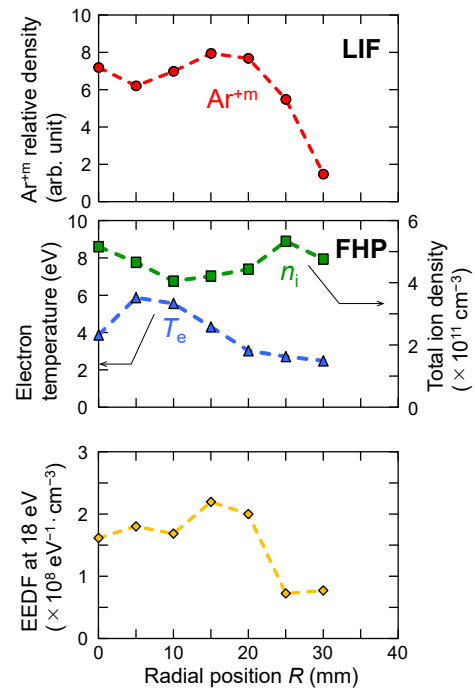


図 2: 実験 (1) で得られた LIF 蛍光強度 (準安定アルゴンイオン密度), 基底アルゴンイオン密度, 電子温度, 高エネルギー (>18 eV) 電子密度の径方向分布

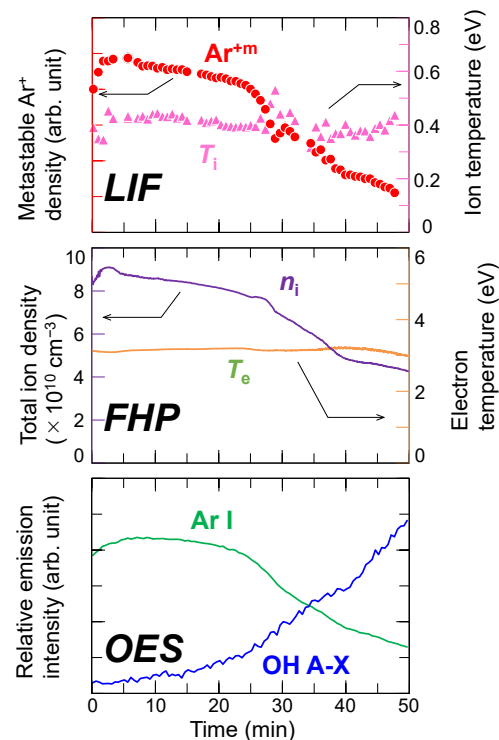


図 3: 実験 (2) で得られた LIF 蛍光強度 (準安定アルゴンイオン密度), イオン温度, 基底アルゴンイオン密度, 電子温度, アルゴン・OH 発光強度の時間変化

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 J. Morozumi, T. Goya, T. Kuyama, K. Eriguchi, K. Urabe	4. 巻 62
2. 論文標題 In situ electrical monitoring of SiO <sub>2</sub> /Si structures in low-temperature plasma using impedance spectroscopy	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 S11010
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.35848/1347-4065/acc7ae	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 S. Kito, K. Urabe, K. Eriguchi	4. 巻 61
2. 論文標題 Multi-harmonic analysis in a floating harmonic probe method for diagnostics of electron energy and ion density in low-temperature plasmas	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 106002
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.35848/1347-4065/ac87e1	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 T. Akiyama, M.A. Van Zeeland, T.N. Carlstrom, R.L. Boivin, K.J. Brunner, J. Knauer, R. Yasuhara, K. Tanaka, H.Q. Liu, Y. Zhou, N. Oyama, A. Sirinelli, K. Urabe, N. Shirai	4. 巻 15
2. 論文標題 Recent Progress on dispersion interferometers for nuclear fusion and low-temperature plasmas	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Instrumentation	6. 最初と最後の頁 C01004
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1088/1748-0221/15/01/C01004	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 F.P. Sainct, K. Urabe, E. Pannier, D.A. Lacoste, C.O. Laux	4. 巻 29
2. 論文標題 Electron number density measurements in nanosecond repetitively pulsed discharges in water vapor at atmospheric pressure	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Plasma Sources Science and Technology	6. 最初と最後の頁 25017
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1088/1361-6595/ab681b	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計10件（うち招待講演 5件 / うち国際学会 3件）

1. 発表者名 R. Takahashi, S. Kito, K. Eriguchi, K. Urabe
2. 発表標題 Production of metastable-state argon ions in an electron cyclotron resonance plasma investigated by laser-induced fluorescence spectroscopy
3. 学会等名 75th Annual Gaseous Electronics Conference / 11th International Conference on Reactive Plasmas (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 両角 潤樹, 江利口 浩二, 占部 継一郎
2. 発表標題 高調波プローブ法を用いたプラズマ曝露環境下の材料表面状態モニタリング
3. 学会等名 第83回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 占部 継一郎, 両角 潤樹, 久山 智弘, 江利口 浩二
2. 発表標題 プラズマに曝露されている誘電体薄膜特性のin-situインピーダンス分光計測
3. 学会等名 第32回日本MRS年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 S. Kito, K. Eriguchi, and K. Urabe
2. 発表標題 Behaviors of metastable-state argon ion density in an electron cyclotron resonance plasma source measured by laser-induced fluorescence spectroscopy
3. 学会等名 42nd International Symposium on Dryp Process (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 鬼頭 聖弥, 佐藤 幹夫, 江利口 浩二, 占部 継一郎
2. 発表標題 フローティング高調波プローブ法によるプラズマパラメータ計測における浮遊容量とプローブポテンシャルの影響
3. 学会等名 第38回プラズマプロセッシング研究会 / 第33回プラズマ材料科学シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 占部 継一郎
2. 発表標題 マイクロプラズマ研究が創出した連携研究の機会と可能性
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会 (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 占部 継一郎
2. 発表標題 高調波干渉計を用いたプラズマ電子密度診断の現状と課題
3. 学会等名 第146回日本学術振興会プラズマ材料科学第153委員会研究会 (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Keiichiro URABE
2. 発表標題 Influence of Gas-Refractive-Index Dispersion on Measurement of Electron Density Using Dispersion Interferometry
3. 学会等名 The 29th International Toki Conference on Plasma and Fusion Research (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 占部 継一郎
2. 発表標題 大気圧プラズマの航空宇宙関連応用と分光計測
3. 学会等名 第472回 航空宇宙懇談会（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 占部 継一郎
2. 発表標題 プラズマ診断・計測（プラズマの診断とモニタリング）
3. 学会等名 第13回 プラズマエレクトロニクスインキュベーションホール（招待講演）
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

研究代表者所属研究室HP <a href="http://www.propulsion.kuaero.kyoto-u.ac.jp/">http://www.propulsion.kuaero.kyoto-u.ac.jp/</a>
---

6. 研究組織		
氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------