科学研究費補助金研究成果報告書

平成22年5月27日現在

研究種目:若手研究(B) 研究期間:2008~2009 課題番号:20740322 研究課題名(和文) テラヘルツ時間領域分光法(THz-TDS)を用いたプラズマ診断法の開発 研究課題名(英文) Development of a plasma diagnostic tool with Terahertz time-domain spectroscopy (THz-TDS) 研究代表者 安藤 あゆみ (ANDO AYUMI) 大阪大学・工学研究科・特任研究員 研究者番号: 80452471

研究成果の概要(和文):

本研究はテラヘルツ時間領域分光法(THz-TDS)を用いた新しいプラズマ診断法の開発を目的 として行った。実験では、THz-TDS による誘導結合型放電プラズマや容量結合型放電プラズマ などの定常放電プラズマや、反応性プラズマの電子密度計測に成功した。また、ダブルプロー ブ法による電子密度計測の結果と比較することで、THz-TDS では精度の良い電子密度計測が可 能であることが分かった。

研究成果の概要(英文):

A new plasma diagnostic tool of terahertz time-domain spectroscopy (THz-TDS) has been developed in this project. The experimental results have been demonstrated that THz-TDS may be used for electron density measurements of the steady-state discharges generated by inductively coupled plasma or capacitively coupled plasma systems. The electron density estimated by THz-TDS agrees well with that estimated by a Langmuir probe for inductively coupled argon plasma.

交付決定額

			(亚旗中国,1)
	直接経費	間接経費	合 計
2008年度	1,000,000	300,000	1300,000
2009年度	800,000	240,000	1040,000
年度			
年度			
年度			
総計	1, 800, 000	540,000	1340,000

研究分野:数物学系

科研費の分科・細目:プラズマ科学 キーワード:プラズマ計測・反応性プラズマ・ラジカル

1. 研究開始当初の背景

これまでプラズマの電子密度の分光計 測にはマイクロ波干渉計が一般的に使わ れていたが、密度が高いプラズマや、マイ クロプラズマのような波長よりもプラズ マのサイズが小さくなるようなプラズマ には使用することが難しかった。本研究で 使用するテラヘルツ時間領域分光法

(令痴畄位・田)

(Terahertz time-domain spectroscopy, THz-TDS)は、サンプルを透過した後の THz 波(THz 領域: 0.1THz~10THz)を時間分解 計測し、その波形をフーリエ変換すること によって周波数ごとの振幅と位相を得る という新しい分光法である。プラズマ周波 数が THz 領域にあたる上、プラズマに擾乱 を与えずにその場測定が可能であること から、THz-TDS は新しいプラズマの電子密 度計測法として注目されている。近年盛ん に研究が行われている大気圧プラズマの プラズマ周波数も THz 領域にあるため、大 気圧プラズマの診断への応用が特に期待 される。さらに、THz 領域には気体の回転、 分子間振動など、物性科学で重要となる指 紋スペクトルが存在することから、プラズ マ中で生成されるラジカルの診断法とし ても期待されている。THz 波によるラジカ ル診断が可能になれば、これまで計測の難 しかった THz 領域に指紋スペクトルを持つ ラジカル種の同定を非破壊で行えるよう になる。しかし、THz-TDS を利用したプラ ズマ診断の研究例の数は極めて少なく、 THz-TDS を用いた新たなプラズマ診断法の 研究開発の余地は極めて大きい。このよう な背景を踏まえて、本研究では、THz-TDS による非接触、非破壊のプラズマの電子密 度計測、ラジカル計測法の開発を行った。

2. 研究の目的

本研究はテラヘルツ時間領域分光法(THz time-domain spectroscopy, THz-TDS)を利 用して新しいプラズマ診断法(電子密度計測、 ラジカル診断)を開発することが目的である。 最終的には、メタンプラズマやフロロカーボ ンプラズマなどの反応性プラズマの電子密 度計測やプラズマ中で生成されるラジカル の診断、及び、大気圧プラズマの電子密度計 測への応用を検討する。

3. 研究の方法

(1)研究方法概要

THz-TDS によるプラズマ診断法の開発のため、下記の実験を行った。実験に使用した装置については、後の(2)で説明する。

まず、THz-TDS の電子密度計測への有用性 を検証するために、電子密度の値が良く知ら れている誘導結合型アルゴンプラズマの電 子密度計測を行った。また、同じ条件で放電 したプラズマに対して、ダブルプローブによ る計測も行い、両者の値を比較した。

次に、反応性プラズマであるメタン(CH₄) プラズマ、フロロカーボン(CF₄)プラズマの 電子密度計測、ラジカル計測の実験を行い、 反応性プラズマ計測への応用を検討した。ま た、大気圧ヘリウム(He)プラズマの電子密 度計測の実験も行った。

(2) 実験装置

① THz-TDS システム

THz-TDS システムは大阪大学レーザーエ ネルギー学研究センターの装置を使用し た。図1に示すように、システムの構成は 光源であるフェムト秒レーザーと、レーザ ーから放射されたビームを導くための光 学系、THz 波を発生,検出するための光伝 導アンテナ、そしてアンテナ間でTHz 波を 導くための光学系で成り立っている。励起 光はフェムト秒レーザーから放射される パルス幅 100fs の超短波パルスを使用し、 繰り返し周期は 80MHz、中心波長は 800nm とした。

測定は THz 波発生素子と検出素子の間に プラズマ生成用のチャンバーを設置して 行った。フェトム秒レーザーから発振され る励起光をビームスプリッターで、THz 波 発生素子へ導かれるポンプ光と検出素子 へ導かれるプローブ光に分ける。ポンプ光 によって発生した THz 波はプラズマ中を透 過した後、検出素子へと到達する。プロー ブ光と、プラズマを透過した THz 波が同時 に検出素子に到達した時に、THz 波の電場 強度が計測される。プローブ光の光路上に 可動鏡を置き、光路長を変化させプローブ 光が検出素子に到達するタイミングをず らしながら THz 波の振動電場の時間波形を 計測する。計測された振動電場の時間波形 を高速フーリエ変換することにより、周波 数毎の振幅と位相を得る。プラズマ中を透 過した時の THz 波の位相変化△Φとプラズ マ周波数のの関係



から、電子密度 n.が求められる。





- ② プラズマ生成部
- ・誘導結合型高周波放電プラズマ(ICP) 生成装置

誘導結合型高周波放電プラズマ(ICP) の放電装置の概要を図2に示す。プラズ マ生成部はクロス形状の石英管(75mm, 両端フランジ間隔 140mm)と円筒状石英 管(75mm,長さ110mm)から構成されて いる。クロス形状の片腕周りにコイル状 のICP アンテナ(銅パイプ)を巻きつけ, マッチングボックスを経由し,高周波電 源(13.56MHz)により電力を供給してプ ラズマを生成した。石英チャンバー両端 には、THz 波の透過経率が高いポリエチ レン製の窓(・75mm,厚さ30mm)を設置し た。



図 2 誘導結合型放電プラズマ生成装置 概要図



図 3 容量結合型放電プラズマ生成装置 概要図

 ・容量結合型高周波放電プラズマ(CCP)生成 装置

反応性プラズマの電子密度計測、及び、ラ ジカル診断への THz-TDS の性能評価のために、 容量結合型高周波放電プラズマ(CCP)を生 成した。放電装置の概要を図3に示す。・75mm、 長さ250mmの石英チャンバーの外側に、長さ 180mmのチャンバーの外周に沿った半円筒の 銅の電極を2枚向かい合わせで設置している。 2 枚の電極に、マッチングボックスを経由し、 高周波電源(13.56MHz)により電力を供給し てプラズマを生成した。石英チャンバーの両 端には、THz 波透過経率の高い高抵抗シリコ ン製の窓(ϕ 75mm,厚さ14mm)を設置した。放 電は、メタンとアルゴンの混合ガス(CH₄/Ar) と、フロロカーボンとアルゴンの混合ガス (CF₄/Ar)の2種類の混合ガスで行った。

・誘電体バリア放電プラズマ生成装置

大気圧プラズマ診断ツールとしての THz-TDS の性能評価のためには、一様で大き な容積を持つ大気圧プラズマを作る必要が ある。しかし、これは困難であるため、本研 究では、プラズマチャンバー内に設置した対 向電極が THz 導波路となるようにして体積が 最小のプラズマを生成した。・75mm、長さ 260mm の石英チャンバーの内部に、片面にカ プトンテープを貼った 90mm×45mm の先細型 の2枚の電極を1.5mmの間隔で設置し、24kHz の繰返し周期を持つ電源を用いて、大気圧へ リウムプラズマを生成した。チャンバーの両 端には、高抵抗シリコン製の THz 透過窓を取 りつけている。

また、いずれのプラズマ生成装置も、周囲の計測器へのノイズの影響を防ぐために、実験中はアルミ製のシールドボックスに収められている。

(3) 計測方法

プラズマ中を透過した時のTHz 波の振幅と 位相の変化を求めるために、いずれのプラズ マに対しても下記の手順で実験を行った。ま ず、リファレンスデータとして、放電ガスを 石英チャンバー中に封入してプラズマは放 電しない状態でTHz 波の透過測定を行った。 次に、各放電条件でプラズマを放電し、THz 波の透過測定を行った。それぞれの場合に計 測されたTHz 波の時間波形を高速フーリエ変 換してTHz 波の周波数毎の振幅と位相を求め た。プラズマを放電しなかった時と放電した 時の振幅と位相の差を計算し、プラズマ透過 時の両者の変化を求めた。

- 4. 研究成果
- (1) 誘導結合型高周波放電プラズマの電 子密度計測
- ・誘導結合型アルゴンプラズマ(Ar ICP) 実験では、ガス圧力が 25Pa と 100Pa の時の Ar ICP の電子密度計測を行った。放 電電力を各圧力に対して 20W~100W まで 20W 間隔で変化させてプラズマを生成した。
 図4に、圧力 25Pa、放電電力 40W で生成した Ar ICP を透過した THz 波の位相シフト を示す。プラズマの電子密度は、(1) 式を 位相シフトのグラフ(図4)にフィッティン

グさせて求める。圧力が 25Pa、100Pa の時 の放電電力と THz-TDS で計測された線平均 電子密度との関係を図 5 に示す。ICP プラ ズマに対しては、電子の衝突周波数 ν が THz 波の周波数よりも十分小さいことが予 想されるため、(1) 式において / は無視し ている。また、プラズマの長さ L は、後に 示すダブルプローブによる電子密度分布 計測から、0.04 m としている。

THz-TDS で計測された電子密度の値が妥 当であるかを確認するために、同じ条件で 放電した Ar ICP の電子密度をダブルプロ ーブによって計測した。圧力 25Pa で放電 した Ar ICP に対して、THz-TDS とダブルプ ローブの其々の方法で計測された電子密 度の値を図 6 に示す。図 6 中のダブルプロ ーブによる電子密度の計測値は、THz 波透 の値の平均値である。図 6 から分かるよう に、両計測法によって計測された電子密度 の値は良く一致し、THz-TDS が電子密度計 測に有用であることが示された。



図 4 THz-TDS で計測された Ar ICP 透過後の THz 波の位相シフト(圧力 25Pa 放電電力 40W)



図 5 THz-TDS で計測された Ar ICP の電 子密度と放電電力の関係



図 6 THz-TDS とダブルプローブで計測さ れた Ar ICP の電子密度の比較(圧力 25Pa)



図7 THz-TDS で計測された CH₄/Ar ICP の 電子密度と放電電力の関係。CH₄: 1sccm Ar: 25sccm 圧力 23Pa の場合と、CH₄: 1sccm Ar: 50sccm 圧力 32Pa の場合での計測

・誘導結合型 CH₄/Ar プラズマ(CH₄/Ar ICP) 反応性ガスを用いた誘導結合型放電プラ ズマに対する電子密度計測も行った。図7は、 THz-TDS によって計測された、メタンとアル ゴンの混合ガス(CH₄/Ar)で生成した誘導結 合型放電プラズマの電子密度と放電電力と の関係を示している。Ar ICPの電子密度と同 様に、放電電力と電子密度が比例する関係に あることが分かる。

(2) 容量結合型放電プラズマ診断

実験では、メタンとアルゴンの混合ガス (CH₄/Ar)で生成したプラズマと、フロロカ ーボンとアルゴンの混合ガス(CF₄/Ar)で生成 したプラズマの2種類のプラズマの診断を行 った。CH₄/Arプラズマを透過した THz 波の位 相シフトを図8に示す。実験時の放電条件は、 CH₄/Arプラズマに対しては、CH₄の流量が 6sccm、Ar が 12sccm で圧力が 28Pa、CF₄/Ar プラズマに対しては、CF₄の流量が 6sccm、Ar が 12sccm で、圧力が 31Pa であった。放電電 力は、どちらのプラズマの場合も 100W であ る。図 8 の位相シフトに式(1)をフィッテ ィングさせた求められた電子密度の値は 4.4 ×10¹⁵ m⁻³ であった。CF₄/Ar プラズマに対して も同様に、THz 波の位相シフトから電子密度 を求めた結果、 5.9×10^{15} m⁻³ であった。プラ ズマの長さ *L* は電極の長さから 0.18mとし、 (1)式における電子の衝突周波数/は、ICP の時と同様に THz 波の周波数よりも十分小さ いことが予想されるため無視している。

また、プラズマ中を透過した THz 波の振幅 から、プラズマ中で生成されるラジカルの吸 収スペクトルの検出も行った結果、今回の計 測系では検出器の感度が低いため、ラジカル の吸収スペクトルを検出するためには、THz 波を多重反射させながらプラズマ中を複数 回透過させることにより S/N 比を向上させて 計測することが必要であることが分かった。



図 8 THz-TDS で計測された CH₄/Ar CCP 透過 後の THz 波の位相シフト (圧力 28Pa 放電電 力 100W)

(3) 大気圧放電プラズマの電子密度計測 実験では、石英チャンバー内にヘリウムガ スを圧力が 50kPa になるように封入し、放電 電圧 20kV_{pp}を電極に印加し、大気圧ヘリウム プラズマを生成した。実験の結果、一様なプ ラズマの生成に成功し、THz 波の透過波形の 計測から、放電電極が THz 波の邁波路として 正常に動作していることを確認した。また、 THz 波の検出システムを検証した結果、THz 波の位相と振幅の変化の計測には、プラズマ を THz 波の繰り返し周期と同期させて生成す る必要があることが分かった。

(4) まとめ 本研究により、THz-TDS を用いて誘導結合 型放電、容量結合型放電によって生成される 低圧の定常放電プラズマの電子密度計測が 可能であることが示された。また、その計測 値は、ダブルプローブ法による電子密度計測 の結果との比較により、信頼性の高いもので あることも示された。本研究結果は、定常放 電プラズマの診断に始めてTHz-TDSを応用し たものであると同時に、他の計測法の結果と 比較することで、その有用性を示した始めて の例である。

また、反応性プラズマ中で生成されるラジ カルの診断、大気圧プラズマの電子密度計測 も行った結果、THz 波の検出系の改良や、プ ラズマの放電と検出系との間で同期を取る ことで、これらの計測も可能になると予想さ れる結果を得たことから、今後、ラジカル計 測や大気圧プラズマの電子密度計測にも応 用できる可能性は非常に高いと考えられる。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者に は下線)

〔雑誌論文〕(計2件)

- <u>Ayumi Ando</u>, Hideaki Kitahara, Tomoko Kurose, Katsuhisa Kitano, Keisuke Takano, Masahiko Tani, Masanori Hangyo and Satoshi Hamaguchi, "Electron density measurement for plasmas by Terahertz time-domain spectroscopy", Proceedings of 14th International Symposium on Laser-Aided Plasma Diagnostics (14th LAPD), Journal of Physics; Conference Series, 2010 (*in press*) (査読有)
- ② Hideaki Kitahara, <u>Ayumi Ando</u>, Tomoko Kurose, Katsuhisa Kitano, Keisuke Takano, Masahiko Tani, Masanori Hangyo, Satoshi Hamaguchi, "Estimation of Electron Densities of Plasmas by Terahertz Time-Domain Spectroscopy", The 34th International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves, Paradise Hotel, Busan, Paper No. W5E61, pp. 135-136, 2009. (査読有)

〔学会発表〕(計7件)

 Hideaki Kitahara, <u>Ayumi Ando</u>, Katsuhisa Kitano, Keisuke Takano, Masahiko Tani, Masanori Hangyo, and Satoshi Hamaguchi

"Diagnosis of atmospheric pressure plasmas by using terahertz time-domain spectroscopy", The 3rd International Workshop on Far-Infrared Technologies (IW-FIRT), P-22, Fukui, Japan, March, 2010.

② Hideaki Kitahara, <u>Ayumi Ando</u>,

Tsuyohito Ito, Katsuhisa Kitano, Masahiko Tani, Masanori Hangyo and Satoshi Hamaguchi

"Terahertz time domain spectroscopy for the atmospheric pressure plasmas" 4th International Symposium on Atomic Technology (ISAT-4) Hyogo, Japan, November, 2009.

- ③ <u>Ayumi Ando,</u> Hideaki Kitahara, Tomoko Kurose, Katsuhisa Kitano, Keisuke Takano, Masahiko Tani, Masanori Hangyo and Satoshi Hamaguchi, "Electron density measurement for plasmas by Terahertz time-domain spectroscopy" 14th International Symposium on Laser-Aided Plasma Diagnostics (14th LAPD), Castelbrando, Treviso, Italy, September, 2009 (招待講演)
- ④ Hideaki Kitahara, <u>Ayumi Ando</u>, Tomoko Kurose, Katsuhisa Kitano, Keisuke Takano, Masahiko Tani, Masanori Hangyo, and Satoshi Hamaguchi, "Estimation of Electron Densities of Plasmas by Terahertz Time-Domain Spectroscopy", The 34th International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves (IRMMW). Paradise Hotel, Busan, Korea, September, 2009.
- ⑤ <u>安藤あゆみ</u>,北原英明,北野勝久,高野 恵介,谷正彦,萩行正憲,浜口智志, 「テラヘルツ時間領域分光法による容量 結合型放電プラズマの診断」第56回応用 物理学関係連合講演会,30a-ZX-9,筑波 大学,2009年3月
- (6) <u>Ayumi Ando</u>, Tomoko Kurose, Katsuhisa Kitano, Hideaki Kitahara, Keisuke Takano, Masahiko Tani, Masanori Hangyo and Satoshi Hamaguchi, "Reactivity plasma diagnostic with Terahertz time-domain spectroscopy", 3rd International Symposium on Atomic Technology (ISAT-3), PP-4-97, Tokyo, Japan, March, 2009
- ⑦ Ayumi Ando, Tomoko Kurose, Katsuhisa Kitano, Hideaki Kitahara, Keisuke Takano, Masahiko Tani, Masanori Hangyo and Satoshi Hamaguchi, "CH₄/Ar plasma measurements with Terahertz time-domain spectroscopy" The 6th EU-JAPAN Joint Symposium on Plasma Processing, P-12, Okinawa, Japan, April, 2008.

6.研究組織(1)研究代表者安藤 あゆみ (ANDO AYUMI)

大阪大学・工学研究科・特任研究員 研究者番号:80452471