

International Training Program ドイツ ルール大学ボッフム校 派遣報告

名古屋大学大学院工学研究科電子情報システム専攻 竹田 圭吾

はじめに
今回、ルール大学ボッフム校（ドイツ）の Uwe Czarnetzki 教授の研究室にて、テラヘルツ時間領域分光法（THz-TDS: Terahertz time-domain spectroscopy）によるプラズマ密度計測に関する実験を行った。滞在期間は平成 24 年 1 月 24 日から平成 24 年 3 月 23 日の 2 ヶ月間である。今回の滞在は、上記の実験以外にも、各種プラズマ診断をベースとしたプラズマ物理に関する知見を得ることができ、非常に有意義なものであった。これも受け入れ先研究室のスタッフのご協力のおかげであり、非常に感謝している。以下に今回の派遣の報告をまとめる。

ルール大学ボッフム校と滞在先研究室の紹介

ルール大学ボッフム校は、ドイツ・ノルトライン=ヴェストファーレン州ボーフムにある州立大学であり、1962 年に発足し、現在の教職員数約 5,000 人（そのうち教授は約 350 人）、学生数 34,000 人（学生の約 10%は留学生）であり、ノルトライン=ヴェストファーレン州の 3 番目に大きい大学である。学部は 20 部で、日本に関する本科もあり、日本史学と日本語学が学ばれている。また、大学は街中から少し離れ、その周辺は公園や森が広がっている自然が豊かな静かな環境であり、研究に集中するには最適な環境である。

近年においては、理系に重点を置かれており、プラズマ科学に関する研究センター[Center for Plasma Science and Technology (CPST)]も設置され、プラズマバイオ、プラズマ放電、プラズマ診断、シミュレーションなどプラズマ物理に基づいた研究活動がなされている。今回滞在了 Uwe Czarnetzki 教授の研究室も、上記センターの一部としての役割を果たしており、主にレーザー誘起蛍光分光法、発光分光、吸収分光法など分光技術を用いたプラズマ計測を主体としたプラズマ基礎

に関する研究を実施している。また、日本の大学研究期間との共同研究も活発に行っており、今回の滞在期間中も九州大学から一名の准教授の先生が昨年 9 月から一年間の間、共同研究のための滞在されており、さらに所属研究室は異なるが、九州大学の他のグループからも、博士課程の学生が 2 ヶ月間の間派遣されていた。



図 1 ある朝の大学からの眺め



図 2 Uwe Czarnetzki 教授の研究室に滞在されていた九州大学の皆様との食事会風景

テラヘルツ時間領域分光計測法 (THz-TDS) による電子密度計測実験

これまで低温プラズマ内の電子密度の計測は、一般的にはプローブ法をはじめとする接触型やマイクロ波干渉法などの非接触型の計測技術が用いられてきた。また、大型レーザーを用いた分光技術として、レーザートムソン散乱計測法が応用されている。そして、近年においては、天文、固体物性研究、生体・化学物質の分光・イメージングなどで利用されるテラヘルツ領域の電磁波を用いたテラヘルツ時間領域分光計測法 (THz-TDS) を用いた計測技術の応用研究がなされている。THz-TDS は、THz 領域の電磁波パルスの電場強度の時間波形をフーリエ変換することにより電磁波の振幅および位相のスペクトルを得る分光法である。THz パルスをプラズマ内部に入射することで、プラズマの複素誘電率により透過パルスが影響を受け、位相スペクトルに変化が生じる。この変化を読み取ることで、プラズマの電子密度や衝突周波数を計測することを可能とする。また、反応性プラズマ中で生成されるラジカル(特に高次ラジカル) の新しい計測方法としても注目される。このように THz-TDS は、プラズマのパラメータやプラズマ中で生成されるラジカルを非破壊、非接触でその場観測できる、新たな計測法として期待できる技術である。

本実験で用いたプラズマ密度計測用 THz-TDS システムにおいては、THz パルス波の発信・受信に光伝導アンテナを使用している。この光伝導アンテナの電極間に一定の電圧を印加した状態で、超短パルス光 (アンテナ材料の半導体のバンドギャップよりも高いエネルギー) を照射すると、光吸収により自由キャリア (電子と正孔) が生成され、流れる瞬時電流の時間変化に比例した光電場が放出される。これが 1ps 以下のパルス幅を持ったコヒーレントな放射となる。また、受信側においても同様に、THz パルス波をアンテナで受ける際に、フェムト秒レーザー光を同時照射することで THz パルス波の電場振幅に応じて自由キャリアが生成され、この微弱な電流をアンプで増幅することで取り出される。このとき THz パルス波に対するフェムト秒レーザー照射のタイミングを走査することで、THz パルス波を計測することができる。本実験で用いた電子密度計測用 THz-TDS システムを図 3 に示す。Ti:Sapphire レーザーからのフェムト秒レーザーパルス光を、ビームスプリッターにより分波し、一方は発信素子に集光され、テラヘルツ波を発生させる。もう一方のパルス光はディレイラインを通過した後に、受信素子に集光される。発信素子で発生した THz パルス波は、プラズマチャンバーを透過後、受信素子に照射されるが、このときディレイラインにより同時に照

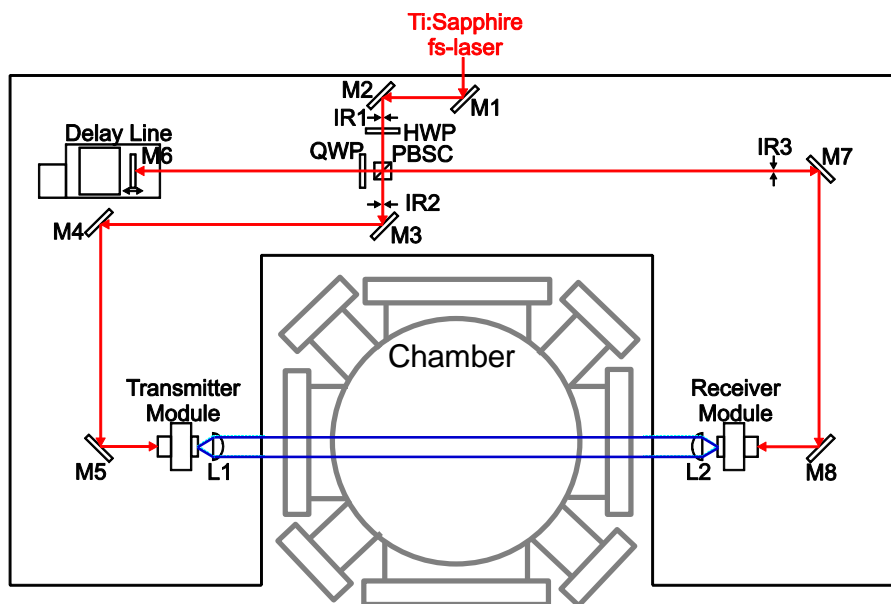


図 3 プラズマ内電子密度計測用テラヘルツ時間領域分光システム

射されるフェムト秒レーザーパルス光照射のタイミングを走査することで、THz パルス光の時間波形を検出する。これをフーリエ変換し、THz パルス波の振幅と位相のスペクトルを求めることが可能である。このうちプラズマの電子密度を計測するには、プラズマの有無による THz パルス波の位相スペクトルの位相差 $\Delta\Phi$ を読み取ることになり、プラズマ内部での電子間および電子-粒子間の衝突周波数が、入射パルス波の周波数よりも十分に小さいとすると下記の (1) 式で表すことができる。

$$\Delta\Phi = \frac{L}{2c\omega} \frac{n_e e^2}{\epsilon_0 m} \quad \dots (1)$$

ここで、 L はパルス波が透過するプラズマ長、 n_e はプラズマ内の平均電子密度、 ϵ_0 は、真空の誘電率、 ω は THz パルス波の角周波数、 e は電子の電荷量、 m は電子の質量、 c は光速である。図 4 に式 (1) で計算した各電子密度における位相シフト量を示す。図 4 から分かるように、より低周波数側、高密度条件のほうがより大きな位相シフトが起こることがわかる。このことから従来のプロセスに用いられる $10^{10} \sim 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ 程度の電子密度のプラズマにおいては、より高い S/N 比を持つ計測が要求されることが予想される。

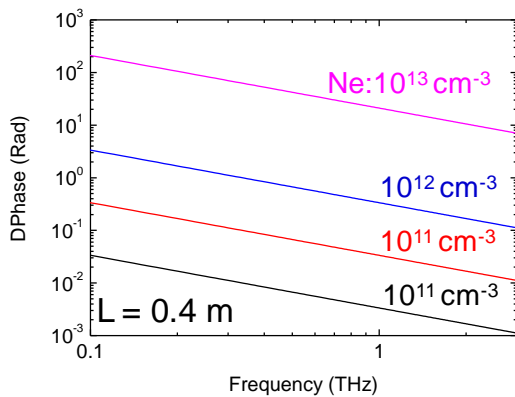


図 4 プラズマの電子密度と透過 THz パルス波の位相シフト量の関係

まず、Ar ガスを用いて圧力を 40 Pa に設定し、RF パワー 100 W を印加して生成された誘導結合型 Ar プラズマ (Ar-ICP) において、プラズマ有無における位相シフト計測をした。その際の位相

シフトの波長依存性と、式 (1) を用いてフィッティングした結果を図 5 に示す。この結果から計測された位相シフトと計算により求めたフィッティング曲線は良い一致を示し、その結果からこの条件下における Ar プラズマ内部の電子密度は、 $3 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ であった。

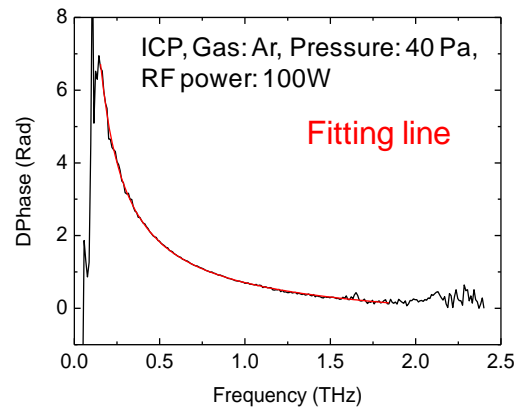


図 5 Ar-ICP (40 Pa、100 W) における THz 領域での位相シフト

次に、本システムの計測限界を評価するために、Ar-ICP において、圧力を 2 Pa に固定し、パワーを 20W から 200 W まで変化させて計測を行った。その結果を図 6 に示す。RF パワーを 20W から 200W まで上昇させることで、電子密度は $5 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ から $4.4 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ まで線形的に上昇する傾向が見られた。しかし、図 6 に示す 10^{11} cm^{-3} 前半の領域では、ばらつきが大きい結果となった。これは図 4 でも述べたように電子密度の低い条件では、計測される位相シフト量は非常に小さく現在のシステムでは十分な S/N 比のもとで計測ができていないことが問題であると考えられる。次に、RF パワーを 100W に固定した条件において、圧力を 2 Pa から 40 Pa まで変化させ、計測を行った。その結果を図 7 に示す。計測された電子密度は圧力上昇にともない、 $2 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ から $3 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$ まで上昇した。この圧力依存性の計測においては、データ点数をそれほど多くとることはできなかったが、データのばらつきはそれほど大きいものではなく、非常に良い再現性が得られる結果となった。今回のシステムでは、衝突周波数が THz パルスの周波数よりも低いという条件下ではあるが、

10^{11} cm^{-3} 後半以降のプラズマ密度では十分に安定した計測が可能であるといえる。しかし、それ以下の低密度の条件においても安定な実験を遂行するためには S/N 比の更なる向上が必要であり、今回の滞在では詳細な原因を判明させるところまで行くことは出来なかったが、THz パルス波の発信、受信素子の安定性向上、システム全体の振動やプラズマからのノイズ除去、ディレイラインの走査など全体をコントロールするソフトの最適化のなど、システム全体の安定化が必要であると考えられる。

プラズマ診断を専門としてきた自分にとって非常に良い経験となった。また、上記実験以外にも新たな計測技術やプラズマ物理に関する知見を得ることができ、非常に有意義に滞在であったと考えている。滞在先の Uwe Czarnetzki 教授、および研究室の皆様には誠に感謝するとともに、このような機会をくださった、堀勝教授、豊田浩孝教授、関根誠教授、諸先生方、名古屋大学工学研究科附属プラズマナノ工学研究センター ITP 事務局に心より感謝申し上げます。

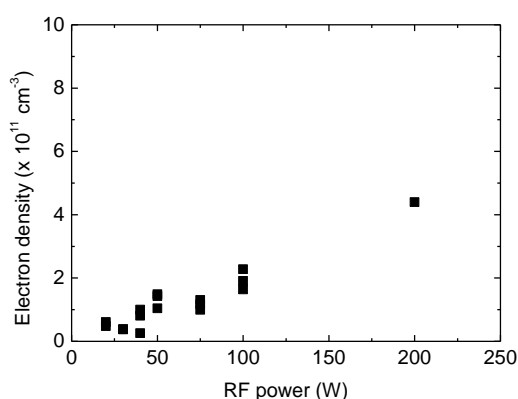


図 6 RF パワー依存性

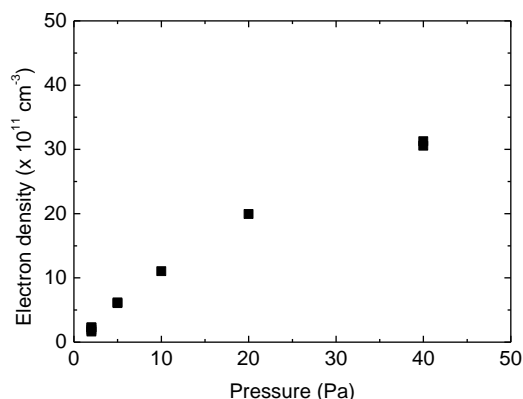


図 7 圧力依存性

まとめ

今回のルール大学ボッフム校での 2 ヶ月間の滞在中、プラズマの電子密度を計測する新しい技術としてテラヘルツ時間領域分光法の実験に携わることができ、これまでも分光技術などによるプ