

# 二段階レーザー励起オプトガルバノ法による ネオンホローカソード放電中の電界計測

松田良信\*・天崎文晶\*\*  
藤山寛\*

## Electric Field Measurement of a Neon Hollow-Cathode Discharge by the Optogalvanic Spectroscopy with Two-Step Laser Excitation

by

Yoshinobu MATSUDA\*, Fumiaki AMAZAKI\*\*,  
and Hiroshi FUJIYAMA\*

Optogalvanic spectroscopy with two-step laser excitation was successfully applied to the electric field measurement of a Neon hollow-cathode discharge. Experimental results of the radial distributions of electric field and charge density in the cathode-fall region are presented.

### 1. まえがき

グロー放電の陰極降下領域は、エッチング、薄膜形成、表面処理等のプラズマプロセスへの実用的な応用から重要な役割を果たしている。陰極降下領域は放電の維持に不可欠なプラズマと固体表面の境界領域であり、非平衡領域であることから、基礎的な学問的興味も非常に大きい。しかし、従来の研究は、その実的重要性と取り扱いの容易さから、主に平行平板二極のグロー放電を対象としており、スペクトル光源やレーザー放電に幅広く利用されているホローカソード放電の陰極降下領域を対象とした研究は、実験的にも理論的にも非常に少ない<sup>1)</sup>。ホローカソード放電では、準安定原子や紫外・真空紫外光の幾何学的閉じ込め効果により、陰極表面からの二次電子放出が、通常の平行平板グロー放電より大きいと考えられている。その陰極降下領域のキネティクスの理解のためには、陰極降

下領域内の電界を正確に知ることが最も本質的である。

陰極降下領域の電界計測は、非攪乱で信頼性が高いことから、レーザー誘起蛍光法 (LIF)<sup>2, 3)</sup> やレーザーオプトガルバノ法 (LOG)<sup>4, 5)</sup> などのレーザー計測がここ数年來盛んに適用されてきた。その結果、平行平板二極グロー放電において、電界が陰極表面からの距離に対し線形に変化する様子が明らかにされた。

LIF 法では、エネルギー準位間のシュタルクミキシングによる禁制遷移からの蛍光発生を利用する。この方法では蛍光収率が電界測定 of SN を制限するので、上位準位としてあまり大きな主電子数 ( $n$ ) を利用できない。ただし、適当な  $n$  を選ぶことにより高周波に追従した時間分解計測が可能である。しかし、本方法は蛍光観測が制限されるホローカソード放電の電界計測には適用困難である。

平成4年4月28日受理

\*電気情報工学科 (Department of Electrical Engineering and Computer Science)

\*\*大学院電気工学専攻 (Graduate Student, Department of Electrical Engineering)

一方、LOG 法では、高リユードベリ状態原子をオプトガルバノ検出するので、光電管等を必要とせず簡単な装置構成で非常に高感度の電界測定が可能である。高リユードベリ原子は、わずかな電界でも大きなシュタルク効果を生じ、反応断面積が非常に大きいのでプラズマ中では容易に電離される<sup>6)</sup>。さらに陰極降下領域では電子増倍作用により、さらに感度の増幅が行われる<sup>7)</sup>。LOG 法は、時間分解能が数10 $\mu$ sに制限されるため、おもに直流や低周波のグロー放電に適用可能で、ホローカソード放電中の電界計測にも容易に適用可能と考えられる。

しかし実際のところ、ホローカソード放電中の電界のレーザー計測はほとんど行われていない。我々の知っている限りでは、広瀬らの LOG 実験が唯一のものである<sup>8, 9)</sup>。彼らは、アルゴン (Ar) ホローカソード放電中の電界分布を Ar 原子の2次のシュタルクシフト絶対量から評価し、電界分布が陰極面からの距離に対して線形でないこと、その分布が陰極シース内の電離を考慮した簡単なモデルで説明できることを示した<sup>10)</sup>。

そこで本研究では、広瀬らの結果の妥当性を検証するために、彼らの方法とは異なる二段階励起 LOG 法を用いて、ホローカソード放電の陰極降下領域の電界計測を試みた。この方法は、もともと平行平板の直流グロー放電中電界のピンポイント計測法として提案されたものである<sup>6)</sup>。本実験ではホローカソード放電の陰極降下領域の電界計測を行うために、2本のレーザービームをそれぞれ反対方向から同軸入射させるような工夫を施した。

本論文では、二段階励起 LOG 法による Ne ホローカソード放電の陰極降下領域の電界計測の原理と測定結果について報告する。

## 2. 二段階励起 LOG 法の原理

準安定 Ne 原子の二段階励起 LOG 分光に用いる遷移を図1に示す。Ne の最低励起状態は2p電子の3s軌道への励起により作られる。この状態には電子スピンと軌道角運動量の組合せで4つの準位があり、パッシュェン表記で $1s_j$  ( $j=2, 3, 4, 5$ )、L-S 表記で $^1P_1$ 、 $^3P_0$ 、 $^3P_1$ 、 $^3P_2$ と表される。この状態のうち $^3P_0$  ( $1s_3$ )と $^3P_2$  ( $1s_5$ )が準安定状態で、それぞれ24.4sと430sの放射寿命をもつ。他の2つの準位は基底状態と放射結合しており、それぞれ放射寿命 $1.5 \times 10^{-9}$ s、 $2.1 \times 10^{-8}$ sをもつ<sup>11)</sup>。一般に放電プラズマ中では、衝突過程が準安定準位の寿命を縮め、放射トラッピング (自己吸収) が他の2つの状態の寿命を増す。

本実験でレーザー励起を行うのは $^3P_2$  ( $1s_5$ ) 準位である。図では準安定状態 $^3P_2$  ( $1s_5$ ) は、 $2p^5$  ( $^2P_{3/2}$ ) 3sとも表されている。2p電子が3p軌道以上に励起された状態では、 $jl$ 結合は $jj$ 結合が重要になるので、L-S 表記は必ずしも適切ではない。図では基底準位以外の準位を、イオンコアと励起された1電子のペアで表した電子配置表記と  $jl$  表記の両方で表している。

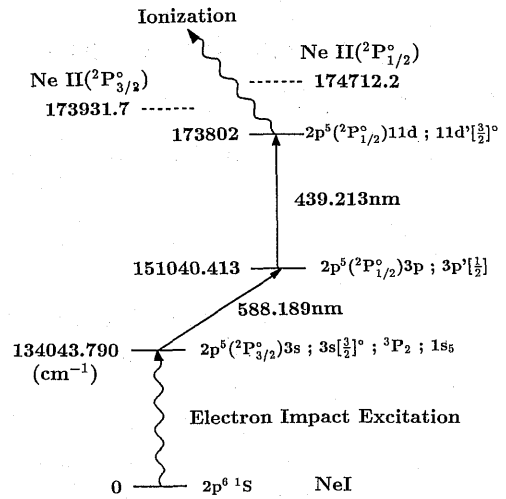


Fig. 1 Scheme of the two-step laser excitation of metastable Ne atoms.

波長588.2nmの第1のレーザー光で $2p^5$  ( $^2P_{3/2}$ ) 3p (または $^3P_2$ , または $1s_5$ ) 準位から、 $2p^5$  ( $^2P_{1/2}$ ) 3p (または $^3P_1$ , または $2p_2$ ) 準位に励起し、波長439.2nmの第2のレーザー光で $2p^5$  ( $^2P_{1/2}$ ) 3p準位から $2p^5$  ( $^2P_{1/2}$ ) 11dのシュタルク分裂準位に励起する。 $j=1/2$ のイオンコアをもつ高リユードベリ Ne 原子を用いるのは、微細構造分裂が小さいためである ( $< 1 \text{ cm}^{-1}$ )。  $2p^5$  ( $^2P_{1/2}$ ) 3p ( $^3P_1$ または $2p_2$ ) 中間準位のシュタルク分裂はほとんど無視できるが、 $2p^5$  ( $^2P_{1/2}$ ) 11dは大きなシュタルク分裂を生じる。高リユードベリ状態は非常に大きな衝突断面積をもち、急速に衝突電離されるので、高リユードベリ状態への励起により、LOG 信号検出のSNは大幅に改善される。こうして、第2のレーザーの周波数を掃引することで、シュタルク分裂したスペクトルがSN良くLOG検出される。さらに、本方法では2本のレーザービームの交差点のみからの情報を得ることが可能である。

リユードベリ準位の選択は、測定される電界の大きさによって決定される。電界が小さいほど、最適な主

量子数は大きくなる。Ganguly と Garscadden は、ヘリウムの  $n=30$  のリードベリ準位を用いて  $10 \pm 1$  V もの小さな電界を測定しているが、本実験で測定するグロー放電の陰極効果領域の電界は数 kV/cm 程度の大きさと考えられるので、その付近の電界で線形シュタルク効果を示すような  $n \sim 11$  が適当である<sup>2, 12, 13</sup>。

Ne の nd 準位への励起は都合がよい。なぜなら nd 準位の量子欠損は 0.018 と小さいためである。小さな量子欠損は適当な電界で線形シュタルク効果をもたらすことがわかっている。 $l > 3$  の nf, ng, nh, … 準位の量子欠損は 0 である。なお、ns と np 準位の量子欠損はそれぞれ 1.3 と 0.83 である<sup>11</sup>。

### 3. 実験装置と方法

図 2 に実験装置の概略図を示す。LOG 分光用として市販されている、シースルーホローカソード放電管（浜松ホトニクス製）を実験に用いた。陰極は Fe 製で、陰極内径 3 mm, 長さ 18 mm, 陰極外側はガラスでカバーされている。封入ガスは Ne で、圧力 6 Torr である。封じり放電管のため放電中の厳密な圧力は不明である。放電管は、バラスト低抗 50 k $\Omega$  を直列に接続して動作させた。放電は放電開始後約 10 分ではぼ定常状態に達し、放電の再現性は非常に良い。本実験では、放電電流、放電電圧をそれぞれ 1.6 mA, 156 V

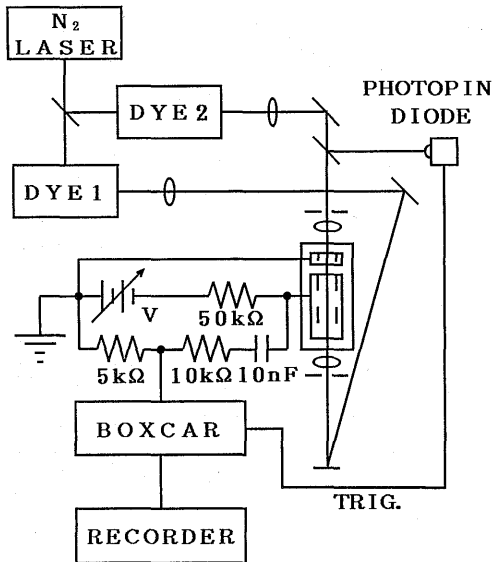


Fig. 2 Experimental setup for the electric field measurement of Ne hollow-cathode discharge by the optogalvanic spectroscopy with two-step laser excitation.

に設定した。

準安定 Ne 原子の二段階励起のために、1 台の窒素レーザーで励起された 2 台の色素レーザーを用いた。これらのレーザーはすべて手製のものである<sup>13</sup>。窒素レーザーは LC 反転型で、スパークギャップスイッチを用いて低気圧ガスフロー動作（窒素ガス圧約 50 Torr）させている。窒素レーザーの仕様は、最大出力 3 mJ/パルス、最大パルス繰り返し 10 Hz, 出力変動  $\pm 3\%$  で、レーザー放電ノイズが大きい点を除いては市販品とほぼ同程度の性能を有する。2 台の色素レーザーはいずれも回折格子斜入射形で、それぞれレーザー色素のローダミン 6 G とクマリン 120 を用いて、準安定 Ne 原子の二段階励起に必要な波長 588.189 nm と 439.213 nm のレーザー光を発生する。いずれの色素レーザーも最大出力約 40  $\mu$ J/パルス、スペクトル幅約 10 pm, 最大パルス繰り返し 4 Hz (色素セル内で色素覚搬を行っていないため) である。

2 本の色素レーザービームは、それぞれ焦点距離 600 mm のレンズで集光し、ホロー陰極放電管に互いに反対方向から同軸入射した。放電管内でのレーザービーム直径は約 0.1 mm である。LOG 信号は、レーザー入射にともなう放電電流の変化として図中の回路で検出し、ボックスカー積分器を通して積算した後、ペンレコーダーに出力した。シュタルクスペクトルは 2 段目のレーザー光の周波数を掃引することにより得た。なお、光学系の配置を変えずに電界強度の空間分布を測定するために、ホローカソードランプは可動ステージ上に装着した。また、データの解釈を容易にするために、色素レーザーの偏光方向とホローカソード内部の電界方向とが平行 ( $m = 0$ ) になる配置で実験を行った。

### 4. 実験結果と考察

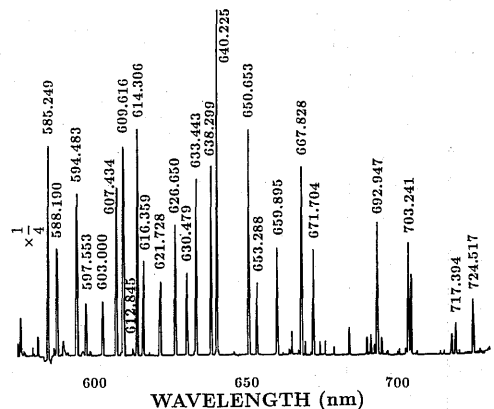


Fig. 3 Emission spectra of the Ne hollow-cathode discharge.

## 4. 1 Ne ホローカソード放電の発光スペクトル

図3にNe ホローカソードランプの中心軸における発光スペクトルを、図4に關係するNeのエネルギ準位図を示す。ただし、図3中の585.249nmのスペクトル強度は、実際の強度の4分の1の大きさである。

図3の発光分布に見られるスペクトル線は、ほぼすべてNeの遷移スペクトル(図4)と一致しており、本実験で用いたNeホローカソードランプ中には、Ne以外の不純物は存在しないことがわかる。

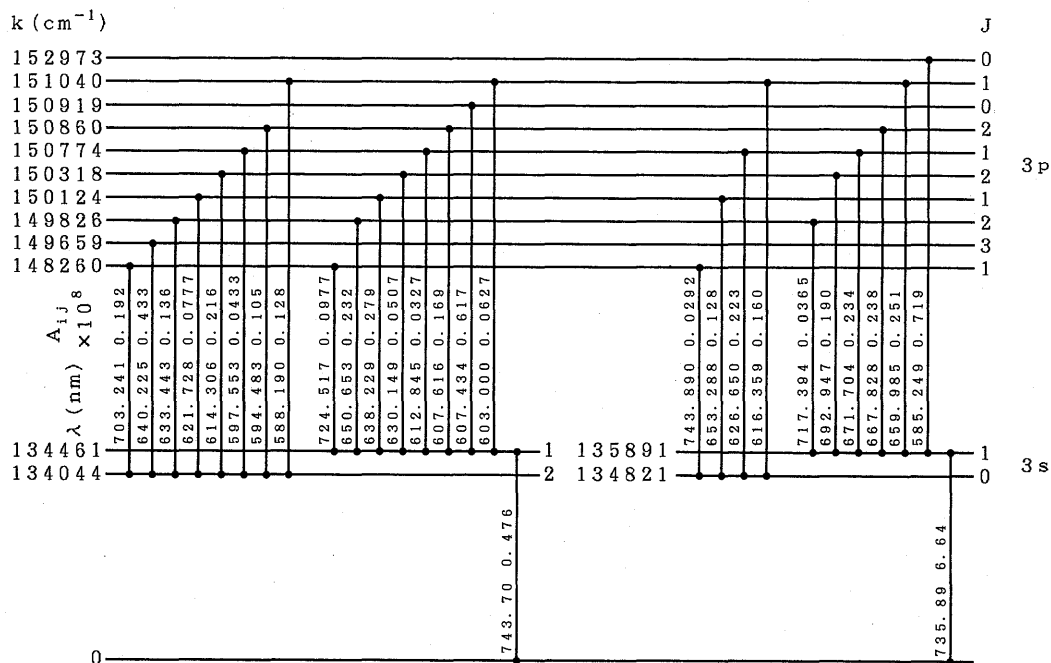


Fig. 4 Selected energy levels and transition data for NeI.

## 4. 2 二段階励起による LOG 信号

LOG 信号の1例を図5に示す。レーザー入射を行わないとき、LOG 信号はほとんどみられないが、1段目のレーザーだけ入射した場合、約0.5VのLOG信号が発生している。さらに2段目のレーザーも同時入射した場合、LOG信号は約3~4倍も増加していることが確認できる。このように、高リユードベリ状態への励起により、LOG信号検出のSNは、大幅に改善される。パルス( $\sim$ ns)レーザーによる $2p^5$ ( $^2P_{1/2}$ ) $3p$ 単位への励起は小さな速い( $\sim$  $\mu$ s)正のオプトガルバノ効果と遅い( $\sim$ 10 $\mu$ s)負のオプトガルバノ効果を生じている。 $2p^5$ ( $^2P_{1/2}$ ) $3p$ 単位は結合性電離のしきい値より低いので、これによる速い電離は生じないはずであるが、 $2p^5$ ( $^2P_{1/2}$ ) $3p$ 単位は $2p^5$  $3s^1P_1$ 単位への遷移を有し、この共鳴励起準位の占有数を増加させるので、基底状態への真空紫外光遷移を増加させ、電離(速い正のオプトガルバノ効果)をもたらしている。遅い( $\sim$ 10 $\mu$ s)負のオ

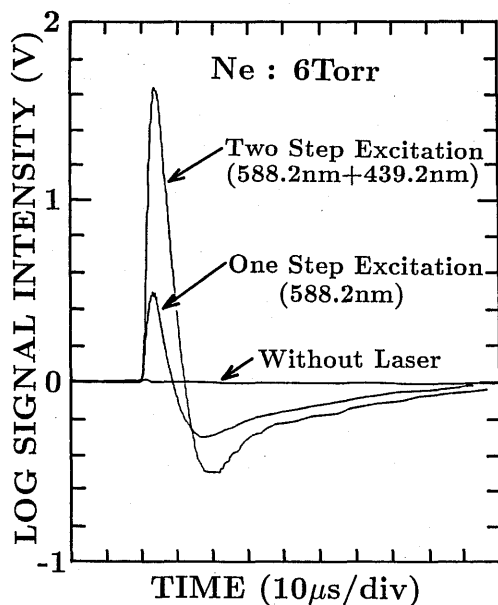


Fig. 5 Examples of the LOG signals.

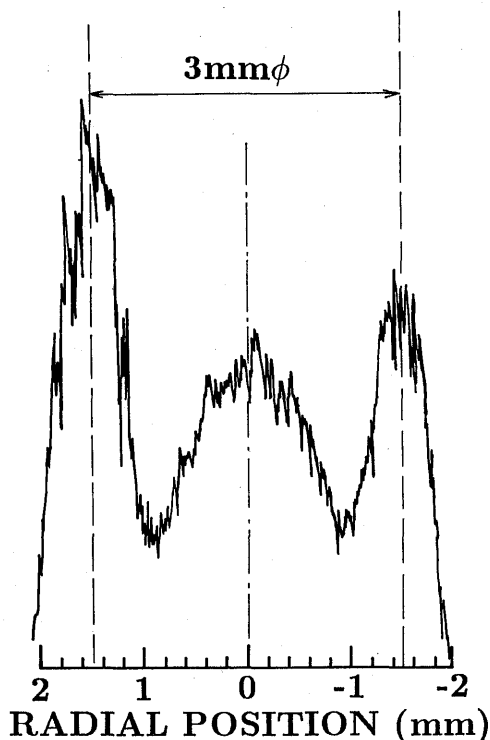


Fig. 6 Spatial distribution of LOG signal intensity.

プトガルバノ効果は、 $2p^5 3s^3 P_2$ 準安定準位の密度が減少することによるものである。高リユードベリ状態の  $2p^5 ({}^2P_{1/2}) 11d$ 準位への励起は、さらに大きな速いオプトガルバノ効果をもたらしている。一般に LOG 信号の強度は、準安定原子密度と光励起確率、励起状態からの電離（電界電離や衝突電離）確率、放電電界中での電子増幅などの複雑な関数であるので、定量的な議論は非常に難しいが、この二段階励起による LOG 信号の著しい増加は、高リユードベリ状態が非常に大きな衝突段面積を持ち、おそらく結合性電離により急速に衝突電離されるためである。なお、放電電流が  $1 \sim 5$  mA の範囲内では、これら LOG 信号の大きさにはほとんど変化がみられなかった。

#### 4. 3 LOG 信号の空間分布

レーザー波長を固定したまま放電管の位置を変化させて得られた LOG 信号の空間分布を図 6 に示す。図からわかるように信号はほぼ左右対称になっており、ホローカソード電極に対し色素レーザー光がほぼ平行入射していることがわかる。また、ホローカソードの位置決め精度は  $\pm 0.1$  mm 以下と評価できる。ホローカソード近傍の大きな信号は、LOG 信号に光電効果による信号が重畳されたものである。

#### 4. 4 LOG 信号の飽和特性

励起用の 2 本のレーザー光のそれぞれの入射エネルギーに対する LOG 信号の飽和の様子を図 7 に示す。本実験条件ではいずれのレーザーについても飽和条件が満足されていることがわかる。また、2 段目のレーザーの飽和エネルギーは、初段のレーザーの飽和エネルギーより 2 桁以上大きいことがわかる。本実験では 2 つのレーザーのエネルギー比はほぼ同程度としたが、励起効率の面からは、2 段目のレーザーエネルギーを 1 段目のレーザーエネルギーに比べて圧倒的に大きくしたほうが望ましいことがわかる。

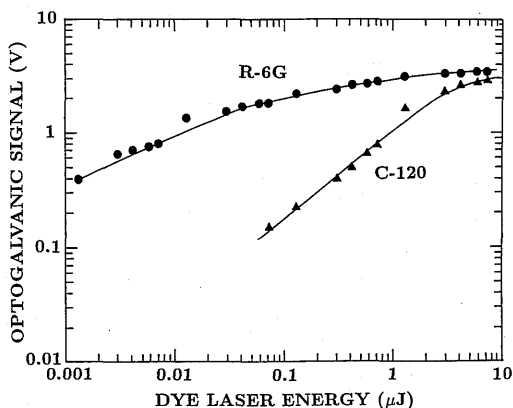


Fig. 7 Saturation characteristics of LOG signal against the first and the second laser energies.

#### 4. 5 シュタルクスpekトル

放電空間内に入射された 2 段目のレーザー波長を変化させながらレコーダに記録したシュタルク分裂スペクトルの例を図 8 に示す。図中、 $r$  は Ne ホローカソードランプの中心軸からの半径距離であり、 $r=1.5$  mm がホローカソード内面である。図中の太い実線はホローカソード放電管の中心軸で得られたもので、 $11d$  に対応する 1 本のピークが観測されている。このことは、明らかにホローカソードの中心では電界が零であることを示している。 $r=1.15$  mm (カソード面から  $0.35$  mm) では、分裂したスペクトルが確認できる。理論的には 9 本のスペクトルピークが存在するが、そのうちの 1 本はこの図の左端にはみ出している。また、最も右側の 2 本のスペクトルは、図中では完全に分離されていない。図のスペクトルピークの間隔をシュタルク分裂幅の理論計算結果と比較することにより、電界強度は  $2150 \pm 50$  V/cm と評価できる。

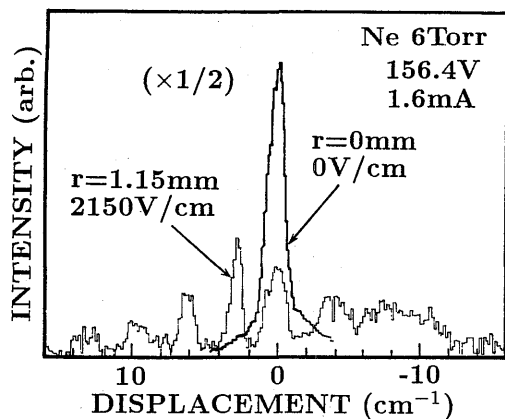


Fig. 8 Experimental examples of Stark splitted spectra.

シュタルクスpekトルの分解能は、レーザーpekトル幅とレーザービームの有限寸法により決まるが、本実験では後者の影響が大きい。レーザーのpekトル幅 $0.5\text{cm}^{-1}$  ( $10\text{pm}$ )に比べて図8のpekトル幅が十分大きいのは、レーザービーム体積(ウエスト直径 $0.1\text{mm}$ )内で電界が変化しているためである。本実験条件ではレーザービームのレーリ長が $5\sim 10\text{mm}$ で、ホローカソード電極の軸方向両端では、ビーム直径はさらに約25%も太くなっている。さらに、電極端部では端効果により電界が変化していることが予想され、それらがシュタルクスpekトルをなまらせる要因になっていると考えられる。

#### 4. 6 電界の空間分布

半径位置およびカソード内壁からの距離に対する電界強度の測定結果を図9に示す。電界の読み取り精度は半径位置 $0.75$ から $1.35\text{mm}$ では $\pm 50\text{V}/\text{cm}$ である。電界測定の下限は $400\text{V}/\text{cm}$ である。これは主に本実験で使用したレーザーのpekトル幅、ビーム寸法によって決まっており、その結果半径位置 $0.7\text{mm}$ 以下の電界強度の評価は困難であった。またカソードから $0.1\text{mm}$ 以下の点(半径位置 $1.4\text{mm}\sim 1.5$ )では、レーザービームが電極面に当たって生じる光電効果による信号がLOG信号に重畳されるため、SN比が低下し、電界の読み取りは困難であった。図中の実線は測定点を外挿したものである。

一般に平行平板電極を用いた場合の電界分布は、カソードからの距離に対し線形になることが知られている。しかし、本測定結果により、ホローカソードを用いた場合の電界分布は線形にならないことが確認された。これと似た結果が広瀬らによって、アルゴンホロー

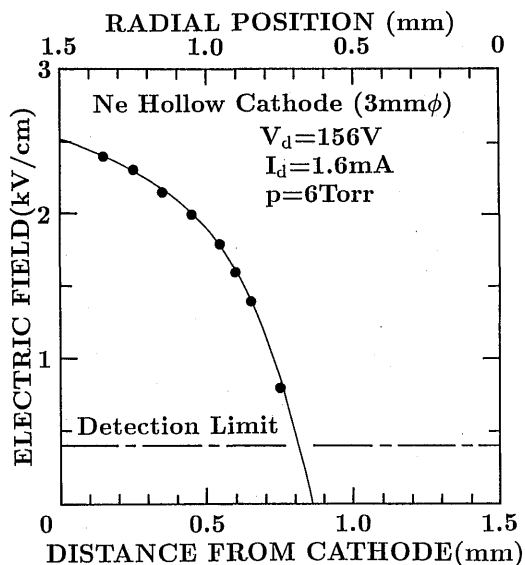


Fig. 9 Spatial distribution of the electric field in the cathode-fall region of the Ne hollow cathode discharge.

カソード放電について報告されている。彼らはこの原因を、ホローカソードの幾何学的効果の寄与とシース内での電離の寄与として理想化した単純な解析モデルを提案し、実験との良い一致を報告している。本実験の結果も彼らのモデルで説明できるものと考えられる。

#### 4. 7 空間電荷密度の算出

図9をもとに計算したポテンシャル分布と、電荷密度分布を図10に示す。電界を積分して求めた陰極降下領域の電圧は、放電電圧( $156.4\text{V}$ )と良い一致を示している。またガウスの法則( $\rho = \epsilon \cdot \text{div}E = \epsilon(1/r) d/dr(rE(r))$ )から求めた電荷密度分布はシース内で平坦ではない。これは、単にホローカソードの幾何学的な効果だけでなく、ポテンシャルに閉じこめられた電子によるシース端部での電離の寄与が大きいためと考えられる。

イオン密度(正味の電荷密度)はシース端で約 $5 \times 10^{10}\text{ions}/\text{cm}^3$ であり、これはバルクプラズマ中のイオン密度(通常ホローカソード放電のプラズマ密度は $10^{11}\sim 10^{12}\text{cm}^{-3}$ といわれている)に関係しているようである。ただし、ここでは市販の封じきりセルを用いているため、プローブによるイオン密度の実測は行っていない。一方、カソード前面でのイオン密度は $1.25 \times 10^{10}\text{ions}/\text{cm}^3$ であり、カソード面に流入するイオン電流密度は $0.66\text{mA}/\text{cm}^2$ と計算される。ここ

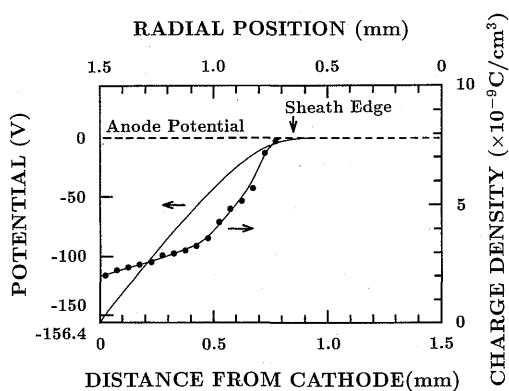


Fig.10 Spatial distributions of potential and charge density in the Ne hollow-cathode discharge, calculated from fig. 9.

で  $E/p=2500/6=417\text{V}/\text{cm}\cdot\text{Torr}$  のときの Ne ガス中の Ne イオンのドリフト速度を  $3.3 \times 10^5 \text{cm/s}$  とした。また、全電流密度は全電流がホローカソード内面 (表面積  $1.70\text{cm}^2$ ) のみに一様に流れるとすると  $0.941\text{mA}/\text{cm}^2$  である。これから二次電子放出係数が 0.43, またイオン電流と電子電流の比が 2.4 と計算される。ただし、ホローカソードの放電電極面積が実際はもっと大きく (ホローカソードの内面だけでなく端面も放電に寄与する) 放電電流密度が実際はもっと小さいと考えられること、真空紫外光、準安定 Ne 原子による二次電子放出への寄与が無視できないことを考慮すると、上記の値はそれぞれ二次電子放出係数の最大見積値とイオン電流と電子電流の比の最小見積値に相当する。

## 5. まとめ

二段階励起を利用した LOG 法を用いて、Ne ホローカソード放電の陰極降下部の電界を詳細に測定した。

Ne ホローカソード放電の陰極降下部の電界は、平行平板電極を用いた通常のグロー放電で観測されている直線的な変化とは異なった分布を示した。この空間分布は、広瀬らが Ar のホローカソード放電中で行った電界測定結果と良く一致しており、彼らが提案したシース内での電離を考慮した解析モデルを用いてうまく説明できるようである。

本計測法は、2本のレーザービームを交差させることにより原理的に空間1点計測が可能である。したがって、本質的に空間異方性を有する磁化プラズマ中や、幾何学的に複雑な形状の電極を用いた放電中の局所電界計測に有効であると考えられる。

## 謝 辞

実験に関して貴重なご助言をいただいた Wisconsin 大学 J. E. Lawler 教授および熊本大学工学部助手山形氏に感謝します。また、本研究に参加された電気情報工学科卒論生、池田正史氏に感謝します。本研究の一部は、文部省科学研究費 (奨励研究 A) と御器谷科学技術財団の補助を得て行われた。

## 参 考 文 献

- 1) E. F. Zalewski, R. A. Keller, and R. Engleman, Jr., *J. Chem. Phys.*, Vol. **70** (1979) 1015.
- 2) B. N. Ganguly, J. R. Shoemaker, B. L. Preppernau and A. Garscadden, *J. Appl. Phys.*, Vol. **61** (1987) 2778.
- 3) E. A. Den Hartog, D. A. Doughty, and J. E. Lawler, *Phys. Rev. A*, Vol. **38** (1988) 2471.
- 4) J. Derouard and N. Sadeghi, *Opt. Commun.*, vol. **57** (1986) 239.
- 5) C. A. Moore, G. P. Davis, and R. A. Gottsho, *Phys. Rev. Lett.*, Vol. **52** (1984) 538.
- 6) D. K. Doughty, S. Salih and J. E. Lawlar, *Physics Letters*, Vol. **103A**(1984) 41.
- 7) R. Shuker, A. Ben-Amar, and G. Erez, *Opt. Commun.*, Vol. **39** (1981) 51.
- 8) T. Masaki, A. Wada, Y. Adachi, and C. Hirose, *Appl. Spectrosc.*, Vol. **42** (1988) 49.
- 9) T. Masaki, A. Wada, Y. Adachi, and C. Hirose, *Appl. spectrosc.*, Vol. **42** (1988) 51.
- 10) C. Hirose, Y. Adachi, and T. Masaki, *Appl. Spectrosc.*, Vol. **42** (1988) 815.
- 11) C. E. Moore, *Atomic Energy Levels*, NSRDS-NBS **35** (U. S. GPO, Washington, D. C., 1971).
- 12) M. L. Zimmerman, M. G. Littman, M. M. Kash, and D. Kleppner, *Phys. Rev. A*, Vol. **20** (1979) 2251.
- 13) 天崎, 松田, 藤山, 長崎大学工学部研究科報告, 第22巻 第39号 (平成4年) (投稿中).
- 14) 松田, 天崎, 藤山, 長崎大学工学部研究科報告, 第22巻 第38号 (平成3年) 33-40頁.