レーザによる粒子計測(3)*

国分 清秀**・橋詰 宙子**・清水 肇**・一村 信吾**
大和田野 芳郎**・松本 裕治**・遠藤 和弘**

(受付1988年12月3日, 掲載決定1989年2月10日)

Particle Detection by a Laser (3)

Kiyohide KOKUBUN**, Hiroko HASHIZUME**, Hajime SHIMIZU**,
Shingo ICHIMURA**, Yoshiro OOWADANO**, Yuji MATSUMOTO**
and Kazuhiro ENDO**

(Electrotechnical Laboratory, Umezono, Tsukuba-shi, Ibaraki)

(Received December 3, 1988, Accepted February 10, 1989)

1. はじめに

近年発展の目覚ましいレーザ・イオン化法は、極めて高い粒子検出感度を有する。例えば、共鳴イオン化分光法 (Resonance Ionization Spectroscopy) を開発した米国オークリッジ国立研究所の G. S. Hurst 等は、この方法により、多数の異種原子中に存在する僅か1個のCs原子を検出することに成功した¹⁾。このような背景の下に、著者らは、レーザ・イオン化法を超高真空から極高真空領域における圧力計測へ応用することを目指している²⁾。この目的のための、主として希ガスの非共鳴レーザ・イオン化に関する基礎的な実験結果を、現在まで報告してきた²⁻⁸⁾。本報告では、ArF エキシマ・レーザを用いた希ガス (Xe, Kr および Ar) のイオン信号強度—圧力特性および3種のエキシマ・レーザ (XeCl, KrF および ArF) を用いた、N₂ および O₂ のイオン信号強度—圧力特性の測定結果について報告する。

2. 実験装置および実験方法

実験装置については、すでに報告した²⁾。真空槽の下部に市販の四重極質量分析計を取り付けてあり、分析計のイオン化室の中央に、真空槽外に置かれたレンズを通してレーザ光が集光されるようになっている。集光部分

で生成された気体イオンは、四重極質量分析計の測定系によって計測される。レーザ・イオン化実験を行っている間は、分析計に付属しているフィラメントは使用しない。この真空装置の到達圧力は、 10^{-9} Torr (10^{-7} Pa) 台の良い所である。試料ガスは、可変リークバルブを通じて、真空槽内へ導入される。

レーザとして、XeCl, KrF および ArF の3種のエキシマ・レーザを使用した。レーザ光の波長は、それぞれ308, 248および193 nm, 発散角は、それぞれ0.4, 0.2および4 mrad, さらに出力強度は、1パルス当りそれぞれ280, 800, 90 mJ 程度である。光学レンズには、焦点距離が30 cm のものと50 cm のもの2種を用いた。

3. 実験結果および議論

上述した装置を用いて、イオン信号強度—圧力特性を測定した。レーザ・イオン化法による圧力計測の原理は、レーザ光によって生成される気体イオンの量 (イオン化信号) が気体圧力に比例して変化するというものである。従って、イオン信号強度—圧力特性は、圧力計測への応用という立場からは、最も重要な特性である。

はじめに、ArF エキシマ・レーザを用いた希ガスについての結果を述べる。Fig. 1 は、Xe, Kr, Ar ガスそれぞれについてのイオン信号強度—圧力特性を示している。図において、縦軸は四重極質量分析計の目盛盤の指示値を表わす。この値はイオン化量に比例する。図中に描かれた3本の直線の勾配は、いずれも1である。従っ

* 昭和63年11月11日 第29回真空に関する連合講演会で講演 (11Bp-6)

** 電子技術総合研究所 (茨城県つくば市梅園1-1-4)

Fig. 1 Ionization signal vs gas pressure characteristics of Xe, Kr, and Ar gases in an ArF excimer laser. The slopes of the straight lines in the figure are 1.

て、XeおよびKrガスの場合には、 1×10^{-5} Torr (1.33×10^{-3} Pa) から 10^{-8} Torr 台 (10^{-6} Pa 台) まで、Ar ガスの場合には、 10^{-7} Torr 台 (10^{-5} Pa 台) まで、いずれもイオン信号の大きさは、気体圧力に比例して変化していることが判る。

ArF エキシマ・レーザの波長は193 nm である。この波長は光子1個のエネルギーが6.42 eV であることを示している。Xe, Kr および Ar 原子のイオン化エネルギーは、それぞれ12.1, 14.0および15.8 eV である。従って、各原子に ArF レーザ光を照射したとき、Xe 原子では2個、Kr および Ar 原子では3個の光子を吸収してイオン化が起こる。これに対して、例えば、KrF エキシマ・レーザの場合、波長は248 nm で、光子エネルギーは5.00 eV であるから、Xe および Kr 原子は3光子吸収、Ar 原子は4光子吸収によって、イオン化が起こる。従って、ArF レーザを使用したときには、KrF レーザの場合よりも、各原子のイオン化確率は高い、つまりイオン信号は大きく出るはずである。しかし、KrF レーザの場合について今までに得られているデータ⁷⁾と比較すると、ArF レーザにおけるイオン信号の大きさは、むしろ1桁程小さい。この原因は、使用した ArF レーザの強度が90 mJ/パルスと小さいこと (KrF レーザでは300 mJ/パルス程度)、発散角が KrF レーザより1桁以上大きいこと (ArF で4 mrad, KrF で0.2 mrad) にあると思わ

れる。この数値から単純計算すると、光子密度において、ArF レーザ光は KrF レーザ光に較べて4桁程低くなるからである。

Fig. 1 のデータにおけるもう一つの奇妙な点は、Xe ガスにおけるイオン信号の大きさが、Kr ガスにおけるそれよりも小さいことである。Xe 原子は、Kr 原子よりイオン化エネルギーが低く、ArF レーザの場合には、Kr 原子が3光子吸収でイオン化するのに対し、2光子吸収でイオン化するのであるから、これは一見不思議なことである。事実、XeCl や KrF レーザを使用した場合には、Xe ガスのイオン信号の方が Kr ガスのそれより大きい。同じ実験を繰り返し行っても同じ結果が出るので、実験上の手違いとは思えない。この点に関しては、別の機会に詳しく議論するつもりである。

次に、分子気体 N_2 および O_2 にかんする実験結果について述べる。Fig. 2 は、XeCl エキシマ・レーザ (波長308 nm, 光子エネルギー4.03 eV) を使用したときの、 O_2 ガスのイオン信号強度—圧力特性である。 O_2 分子のイオン化エネルギーは、12.1 eV である。XeCl レーザの光子エネルギーは4.03 eV であるから、4光子吸収によって、 O_2 分子はイオン化する。図から、 O_2 分子の場合にも、 1×10^{-5} Torr (1.33×10^{-3} Pa) から 10^{-8} Torr 台 (10^{-6} Pa 台) までの測定圧力範囲において、イオン信号強度は O_2 圧力に比例して変化していることが判る。ただし、希ガスの場合に較べて、幾分、比例関係

Fig. 2 Ionization signal vs gas pressure characteristics of O_2 gas (XeCl excimer laser).

(図中の直線) からのバラツキが大きくなる傾向が見られた。これは、分子においては、振動、回転あるいは解離といった、希ガスなどには見られない各種の励起モードが存在するためと考えられる。特に、解離は顕著で、O 原子の質量に対応する所に、O₂ と同じオーダー程度のイオン信号が観測された。O₂ の解離によって生成されたと考えられるこの O 原子のイオン信号強度の圧力依存性も、Fig. 2 にプロットされている。なお、N₂ ガスの場合には、イオン信号を観測できなかった。ただし、XeCl レーザの強度は 280 mJ/パルスであった。

Fig. 3 は、KrF エキシマ・レーザを使用したときの、O₂ および N₂ ガスのイオン信号強度—圧力特性を示している。この場合も、測定圧力範囲内で、イオン信号強度と気体圧力とは比例関係を示している。KrF レーザの光子エネルギーは 5.00 eV である。N₂ 分子のイオン化エネルギーは、15.6 eV であるから、O₂ は 3 光子吸収、N₂ は 4 光子吸収でイオン化する。図に見られるように、O₂ ガスの場合、解離によって生成されたと思われる O 原子のイオン信号が O₂ 分子のそれより大きい。N₂ の場合には、両者のイオン信号は、ほぼ同程度である。

Fig. 4 は、ArF エキシマ・レーザを使用したときの O₂ および N₂ ガスのイオン信号強度—圧力特性を示す。ArF レーザ照射では、O₂ は 2 光子、N₂ は 3 光子吸収でイオン化が起こる。O₂ ガスの場合、データは、大体勾

Fig. 3 Ionization signal vs gas pressure characteristics of O₂ and N₂ gases (KrF excimer laser).

Fig. 4 Ionization signal vs gas pressure characteristics of O₂ and N₂ gases (ArF excimer laser).

配 1 の直線の周りに分布しているが、バラツキがかなり大きい。一方、解離 O 原子のイオン信号は、O₂ 分子のそれと同程度である。N₂ ガスの場合においては、解離 N 原子のイオン信号の大きさは、O₂ 分子のそれより大幅に小さい。Fig. 2, 3 および 4 から、解離について言うことは、解離が起こる確率は、レーザ光によって変わること、つまりレーザ波長によってかなり変動するということである。

4. む す び

希ガスに関しては、ArF エキシマ・レーザを使用して、また、O₂ および N₂ ガスについては、XeCl, KrF および ArF エキシマ・レーザを用いて、それぞれイオン信号強度—圧力特性を測定した。いずれの場合においても、測定圧力範囲内で、イオン信号強度と圧力との間の比例関係を確認した。この結果は、今までに得た結果と合わせて、レーザ・イオン化法による圧力計測の有効性をより低い圧力まで実証していく上での重要な足がかりとなるものである。

O₂ および N₂ ガスでは、かなりの程度の解離が観測された。解離の程度は、使用するレーザ光によって、変動することが判った。

〔文 献〕

- 1) G. S. Hurst et al: Appl. Phys. Lett. 30 (1977) 229.

- 2) S. Ichimura et al: JJAP **26** (1987) L573.
- 3) 国分他：第27回真空に関する連合講演会予稿集 ('62) p. 9.
- 4) 一村他：同上 p. 11.
- 5) 国分他：第34回応用物理学関係連合講演予稿集 ('62) p. 11.
- 6) 同上：第48回応用物理学会予稿集 ('62) p. 366.
- 7) 同上：第28回真空に関する連合講演会予稿集 ('62) p. 74.
- 8) 同上：第43回物理学会予稿集第4分冊 ('63) p. 18.