レーリー散乱による中真空領域の実用真空計の検討

宋 一兵・堀 司・迫田 忠則*・内野喜一郎

村岡 克紀・柳下 浩二**・中村 静雄**・山川 洋幸**

(受付1994年7月18日, 掲載決定1994年11月5日)

Development of a Barometer Using Rayleigh Scattering in the Medium Vacuum Region

Yi Bing SONG, Tsukasa HORI, Tadanori SAKODA*, Kiichiro UCHINO
Katsunori MURAOKA, Koji YANAGISHITA**, Sizuo NAKAMURA** and
Hiroyuki YAMAKAWA**

(Graduate School of Engineering Sciences, Kyushu University, Kasuga Fukuoka 816)

* (Kitakyushu National College of Technology, Kokuraminami Kitakyushu 803)

** (ULVAC Japan, Ltd., Chigasaki Kanagawa 253)

(Received July 18, 1994, Accepted November 5, 1994)

The feasibility of employing laser Rayleigh scattering as pressure sensor in the medium vacuum region ($1-10^3$ Pa) was investigated by performing two experiments. The first experiment was aimed at demonstrating that such a pressure sensor could be realized. For this purpose, a YLF laser was used. The results were i) the stray light level was reduced to 2.7 Pa, and ii) signal linearity was obtained for the pressure range between 2.7 Pa and 1.2×10^3 Pa with an error of less than 7%. The second experiment was performed to demonstrate that a compact pressure sensor could be fabricated. For this purpose, a laser diode was used, and signals were successfully detected down to 130 Pa with an error of less than 9%. This means that the sensor will be realized if the detection lower limit can be improved by a factor of one hundred.

1. ま え が き

中真空領域の1 Pa~ 10^2 Paは, 半導体プロセスなど産業応用の場で多用されており重要である。産業技術の発展に伴い, この領域の真空場の測定に対する要求は圧力の種類, 範囲および精度の面で多様化されつつある。例えば, 半導体プロセスにおいて, 圧力センサーに対する腐食性のあるガス種の圧力測定や, 局部圧力(あるいは局所的な分子, 原子密度)の測定などの特別の応用の場合には, 既存の圧力測定法では対応できないことがある。すなわち, 従来の圧力測定法がすべて被測定気体と

測圧子とを直接接触させて測定するものであることに起因する困難性が大きくなっている。そこで, 非接触型の圧力計の開発が強く望まれてきた。レーザー光の中性粒子による弾性散乱であるレーリー散乱を用いた方法は, 広い圧力範囲にわたって, そのような可能性を持つものである。本研究では, レーリー散乱法を中真空領域の実用真空計へ応用する可能性についての検討を行った。

これまで, 筆者らは, 出力1 J程度のルビーレーザーを光源とした実験により, レーリー散乱法を中真空領域の標準真空計として用いる可能性を示した^{1,2)}。すなわち, 圧力に対する線形性および精度とも1%以内が求められる標準真空計への要請が満たせることを示した。しかし, 実用真空計にルビーレーザーなどの比較的大きなレーザーを用いることは, 価格, サイズ, 操作性などの点で適当ではない。実用真空計としては, 精度の10%

九州大学大学院総合理工学研究科 (〒816 春日市春日公園 6-1)

* 北九州工業高等専門学校 (〒803 北九州市小倉南区志井 5-20-1)

** 日本真空技術株式会社 (〒253 茅ヶ崎市萩園2500)

程度までの劣化は犠牲にしても、装置が安価、小型で、操作性が良いことが要請される。これらは、標準真空計とは全く異なった要求であるので、具体的にどのような光源や検出器を用いて真空計を構成するか検討する必要がある。これらの要求を満たすものとして、光源には半導体レーザー、検出器には半導体デバイス、感圧部としては小型の容器を用いる装置が考えられる。小型の感圧部を用いる際は、容器の窓や壁などで発生した迷光をいかに低減するかが最も重要な問題となる。また、低出力の半導体レーザーを光源とするので、微弱な散乱信号を精度良く検出する必要がある。

これらの問題を同時に解決することは難しいので、本研究では、光源と検出器との組み合わせを変えた実験により、問題を分解して最終的解決へのアプローチを図る。

まず、3章では比較的高出力の半導体レーザー励起 YLF レーザーを光源とし、光電子増倍管 (PMT) を検出器として、(a) 検出下限の目標値 1 Pa 程度までの圧力検出と、(b) 小型の感圧部での迷光レベル低減の可能性を検討した。

次に、4章で更に実用的な真空計に近づけるため、変調をかけた連続発振出力半導体レーザーを光源とし、内部増幅機能を持つアバランシェフォトダイオード (APD) を検出器に用いて、迷光の低減と検出下限などを検討した。

本論文では、これらの実験結果について報告する。

2. 測定の方法

本方法では、レーリー散乱の散乱光子数が気体の分子密度 n_n に比例するので、散乱光子数を測定して分子密度を求める。温度が室温程度で既知ならば、圧力 $P (P = n_n k T, k$ はボルツマン定数, T は絶対温度である) が求められる。 $\Delta P / P = \Delta n_n / n_n + \Delta T / T$ において (Δ をつけた量はそれぞれの量の測定誤差), 右辺の第二項は多くの場合容易に数%以内にできるので、左辺は右辺第一項で決まる。

パルス当たりのレーリー散乱の受光光子数 N_{ph} は次式で表される。

$$N_{ph} = \frac{E_L}{h\nu} \cdot L \cdot n_n \cdot \sigma_R \cdot \Omega \cdot T_r \quad (1)$$

ここで、 E_L はレーザーパルス当たりのエネルギー、 $h\nu$ は光子 1 個のエネルギー、 L は散乱長、 σ_R はレーリー散乱微分断面積、 Ω は受光立体角、 T_r は受光系の透過率である。右辺の各項はそれぞれ既知または測定可能である¹⁾。

感圧部として用いるために、全長 230 mm、内径約 40

Fig. 1 Arrangement of the laser Rayleigh scattering experiment.

mm の小型のチャンバーを製作した。実験装置の配置を Fig. 1 に示す。Fig. 1(a) は全体図である。小型の感圧部を大きい真空容器 (圧力測定の対象とする真空容器) に取り付けた。感圧部の詳細を Fig. 1(b) に示す。光源のレーザービームはコリメーティングレンズ、入射側の反射防止膜付きの窓を通り、感圧部の中に設置されたバッフル B1~B4 を通過する。真空容器を通過したところでレーザービームの強度をフォトダイオードでモニターした。レーザー光は紙面に対して垂直に偏光して配置し、このレーザー入射方向と偏光方向の両方に対して 90° の方向 (図の下方向) から直径 60 mm の凸レンズ ($f=70$ mm) 2 枚組を通して散乱光を 1:1 の倍率で集光し、検出器で電気信号に変換した。この信号をデジタル・オシロスコープ (Tektronix 製 2440 型) で観測した。更に、信号をパーソナルコンピュータに取り込み、SN 比を向上するための積算を行った。試験ガスには窒素ガスを用いた。式 (1) の右辺の本実験装置に関する因子の値を示せば、受光立体角 Ω は 0.35 sr, 受光系の透過率 T_r は約 0.6 である。他の因子の値は 3 章と 4 章の実験で異なるので、それぞれの章に示す。入射窓や感圧部の

壁などに起因する迷光を極力抑えられるように、バッフル B1~B4 の位置、内径などには特に配慮した。レーリー散乱信号と比較するために二種類の隔膜真空計、MKS Instruments, Inc. 製 Baratron390 型（フルスケール 1.3×10^3 Pa, 有効分解能フルスケールの 10^{-6} , 公称精度は読みの 0.08%）、および日本真空技術(株)製 LPC501 型（測定範囲 $13 \sim 1.3 \times 10^5$ Pa, 精度は指示値の 0.5% 以下）を用いた。以下では、それぞれ Baratron390 および LPC501 と略記する。排気系には油回転ポンプとターボ分子ポンプを使い、到達圧力は 5.3×10^{-4} Pa であった。隔膜真空計のゼロ点調整はこの圧力で行った。

3. 小型のシステムを用いた圧力測定可能性の検討

この章では、1 章で述べた小型のシステムによる中真空領域での圧力測定の実証を目的とする。

Fig. 1 に示す配置で、光源には半導体レーザー励起 YLF レーザーの第二高調波（波長 523 nm, パルス幅 7 ns）を用いた。出力は 0.1 mJ（測定値）、繰り返し周波数は $1 \sim 10$ kHz である。レーザーヘッドの長さは約 360 mm, レーザービームの出射窓での直径は 0.2 mm, ビーム発散角 < 10 mrad であった。このレーザーは、このようにビーム直径と発散角が小さく、繰り返し周波数は高く、更に波長が可視域にあるために、大きなレーリー散乱断面積の値と高い PMT の量子効率を得られる。そのため、迷光の低減および高 SN 比を得るのに有利であり、ここでの実験の目的に適切な光源である。レーザービームをコリメートするため、焦点距離 $f = 300$ mm の凸レンズを用いた。検出器には、PMT（浜松ホトニクス R1333 型）を用いた。

まず、1 Pa 領域の圧力測定を可能とするため、迷光レベルの抑制をはかった。Fig. 1 の配置で、レーザービームに触れないようにバッフルを注意深く配置した。バッフル B1 によりレーザーのメインビーム以外の拡がり成分をカットし、またバッフル B2 により入射窓でのレーザー光の乱散乱および多重反射成分をカットした。さらにバッフル B2 の内径エッジに当たった光が受光系に入らないようにバッフル B3 を配置した。出射側にもバッフル B4 が配置されているが、これは入射側に配置されたものとは違い、出射しようとする乱散乱光成分はなるべくチャンバー外に逃がすと同時に、出射側で乱散乱するレーザー光が戻らないように寸法を決定した。具体的には、実験で乱散乱の様子を調べながら、バッフル配置の場所および内径寸法を調整した。更に、PMT の受光面の手前に幅 $1 \text{ mm} \times 5 \text{ mm}$ のアパーチャを取り付けた。上記の迷光対策の結果、迷光レベルは窒素ガス圧換

Fig. 2 Correlation between the Rayleigh scattering signal and the pressure measured by a diaphragm gauge.

算で 2.7 Pa (20 mTorr) まで抑えることができた。この迷光レベルでは、1 Pa の圧力の窒素ガスからの散乱信号の検出において、後述のように迷光に起因するショットノイズに対しての SN 比を 10 程度に確保できるので、同圧力での散乱信号の検出が可能である。

次に、真空装置の窒素ガス圧を隔膜真空計 Baratron390 を用いて $1.3 \sim 1.2 \times 10^3$ Pa (10 mTorr ~ 9 Torr) の範囲で変化させ、レーリー散乱信号と圧力との比例関係を調べた。圧力とレーリー散乱信号強度との関係を Fig. 2 に示す。各測定点は、レーリー散乱測定を 2560 レーザーショットずつ行なった積算平均値である。また、同図に 256 ショットの平均値を 10 回測定し、そのばらつきの標準偏差をエラーバーとして示している。実験の結果として、レーリー散乱信号は圧力と $1.3 \sim 1.2 \times 10^3$ Pa の広い範囲で比例関係にあることが分かった。圧力とレーリー散乱信号測定値との関係をより詳細に調べるために、隔膜真空計の測定範囲の最大値 (1.3×10^3 Pa) に近い 1.2×10^3 Pa (9 Torr) の測定値を基準点とし、圧力と散乱信号の積算値が比例して変わるとした 45° の直線と散乱信号との差を求めた。差は、1.3 Pa での値 (約 20%) を除いて、 $2.7 \sim 1.2 \times 10^3$ Pa (20 mTorr ~ 9 Torr) の範囲で 7% 以内である。ここで、測定値の直線上からのはずれの程度 (ばらつき) は、測定値の SN 比の逆数で評価できる。SN 比は、 $N_{pe} \sqrt{N} / \sqrt{N_s + N_{pe}}$ で見積られる³⁾。ただし、 N_{pe} はレーリー散乱信号による光電子数、 N_s は迷光による光電子数、 N は積算回数である。本実験の配置で、式 (1) の右辺の各因子の値 $E_L = 1 \times 10^{-4}$ J, $L = 4 \times 10^{-3}$ m, $\sigma_R = 6.5 \times 10^{-32}$ m²/sr を用い、PMT の量子効率を 5% として、1 Pa の窒素ガス (分子密度 2.4×10^{20}

m^{-3})からのレーリー散乱信号で期待される光電子数を求めると、 N_{pe} は約0.2個となる。 N_s は N_{pe} の2.7倍(迷光レベル2.7 Pa)とし、また積算回数を $N=2560$ として、SN比は約10と見積られる。すなわち、1 Pa以上の圧力測定で、ばらつきの標準偏差は10%以内であると評価される。実験結果は、この予測とほぼ一致することがわかる。

4. プロトタイプの実用真空計の検討

この章では、実用真空計を実現させるために、どのような光源や検出器を用いて真空計を構成するか、また迷光レベルと検出下限の低減を検討した結果について述べる。

まず、光源について考える。比較的低出力の半導体レーザーを光源とする場合、光電子数を確保し、検出器で発生するショットノイズを抑えるため、連続発振半導体レーザーを幅の長いパルス出力に変調して用いることが有効である。次に、検出器について、フォトダイオードを用いる場合、外部増幅器が必要となっており、負荷抵抗で発生するジョンソンノイズが散乱光信号と一緒に増幅されるので、本実験に適さないことが予備実験⁴⁾で確かめられた。それに対して、内部増幅機能(電流増倍率は300~500倍)を持つアンバランス型フォトダイオード(APD)を用いれば、信号は増幅されるが、ジョンソンノイズは増幅されないため、SN比を大幅に改善できることが期待される。

以上の検討結果に基づいて、本実験での光源には、可視光の連続発振半導体レーザー(Spectra Diode Laboratories製SDL-7431-H1型、出力0.5 W、波長680 nm)を用いた。半導体レーザーの駆動電流を制御することにより、連続の光出力をパルス出力に変調した。受光光子数の確保および観測する周波数帯域幅を考慮して変調パルス幅は0.5 ms、繰り返し周波数は1 kHzに設定した。検出器には、APD(Advanced Photonix Inc.製TL15CA型)を用いた。APDは広いダイナミックレンジ、高い量子効率(量子効率は広い波長範囲で80%以上)およびコンパクト性の特徴を有する。大きな広がり角(約40°)をもつ半導体レーザービームをコリメートするため、焦点距離 $f=8$ mm、有効口径8 mm、開口数0.5のレンズを用いた。小型の感圧部および散乱光受光レンズは3章の実験と同じものを用いた。測定は、容易に信号が得られる 10^4 Pa程度の圧力から始めた。このため、隔膜真空計LPC501を比較に用いた。本実験の配置で、式(1)の右辺の各因子を示せば、 $E_L=2.5 \times 10^{-4}$ J、 $L=8 \times 10^{-3}$ m、 $\sigma_R=2.3 \times 10^{-32}$ m^2/sr である。

まず、3章で述べた迷光対策と同じ方針で、バッフル

の配置および内径を注意深く調整し、迷光レベルの低減をはかった。更に、受光側のAPDに8 mm×6 mmのアーチャを取り付けた結果、迷光レベルは窒素ガス圧換算で約 1.3×10^2 Pa (1 Torr)になった。迷光レベルが3章の実験より高いのは、半導体レーザーのビーム発散角が大きいため迷光対策が難しいだけでなく、後述のように、ここで用いたシステムのショットノイズで決まる検出下限が約 10^2 Paであることの影響も大きい。迷光レベルを更に低減するには、まず、システムの検出下限を改善する必要がある。

次に、窒素ガスを作動ガスとして、ガス圧を $1.3 \times 10^2 \sim 6.7 \times 10^3$ Pa (1~50 Torr)の範囲で変化させ、レーリー散乱信号と圧力との比例関係を調べた。APDの電流増倍率は500倍に設定した。後述のように、各圧力点で2560回の積算を行って得られた波形を、更にオシロスコープ時間軸の125点を取って移動平均処理をした。その結果の波形を、 $1.3 \times 10^2 \sim 1.3 \times 10^3$ Pa (1~10 Torr)の範囲でFig. 3に示しているが、 1.3×10^2 Pa (1 Torr)までのレーリー散乱信号が明確に検出できた。 $1.3 \times 10^2 \sim 6.7 \times 10^3$ Pa (1~50 Torr)の範囲で、レーリー散乱信号出力(波形のピーク値から迷光を引いた結果)と圧力との関係をFig. 4に示す。 6.7×10^3 Paの測定値を基準とした45°の直線からの各データ点の外れは9%以内にある。

散乱信号のゆらぎの要因は、APDの光電面で発生したショットノイズによって決まる^{5,6)}。APDのショットノイズ電流 i_s は次式で評価される。

$$i_s = \sqrt{2eB(i_R + i_{db}) \cdot M^2 \cdot F} \quad (2)$$

式中の e は電子の電荷量、 B は周波数帯域幅、 i_R はレーリー散乱信号電流、 i_{db} はAPDのバルク暗電流(光信号

Fig. 3 Waveforms of the Rayleigh scattering signal. Signals were averaged over 2560 laser shots and integrated over 125 time points (0.5 ms).

Fig. 4 Correlation between the Rayleigh scattering signal measured by a prototype pressure sensor system and the pressure measured by a diaphragm gauge.

と一緒に増幅される暗電流成分), M はAPDの増倍率である。増幅されない暗電流成分の寄与は $M > 100$ では無視できるので, 式(2)では省略した。 F は過剰ノイズ係数で, APDの増幅率 M と以下の関係にある。

$$F = kM + (2 - 1/M)(1 - k) \quad (3)$$

式中の k は正孔と電子による電離の比で, 本実験のAPDは $k = 0.0015$ である。

本実験での SN 比は, 負荷抵抗 R_L で発生するジョンソンノイズ電流を i_j として, 次式で評価される。

$$\frac{S}{N} = \frac{1}{6\sqrt{2}} \cdot \frac{M \cdot i_R}{\sqrt{i_s^2 + i_j^2}} \quad (4)$$

まず, APDのショットノイズ電流 i_s について評価する。 1.3×10^3 Pa (10 Torr)の窒素ガスからのレーリー散乱信号について $i_R = 2.7 \times 10^{-12}$ [A], また $i_{db} = 5 \times 10^{-10}$ [A], $B = 35$ [kHz], $M = 500$, $F = 2.75$ となる。これらの値を式(2)に代入して, i_s は 2×10^{-9} [A]となる。

次に, ジョンソンノイズ i_j は, $R_L = 1 M\Omega$, $B = 35$ [kHz], $T = 300$ Kとして, $i_j = 2.4 \times 10^{-11}$ [A]と評価できる。すなわち, 負荷抵抗のジョンソンノイズはAPDのショットノイズよりはるかに小さく無視できる。これは SN 比改善の最も重要な要因である。以上の結果を式(4)に代入して 1.3×10^3 Pa (10 Torr)の窒素ガスからの散乱信号の SN 比を求めると, SN 比は0.08となる。更に SN 比を改善するため, 2560回の信号波形積算(積算回数の平方根に比例して SN 比が改善される)および移動平均処理を行った。オシロスコープ時間軸の125点に変調パルス幅0.5 msに対応する。この移動平均は,

周波数帯域幅 B を35 kHzから1 kHzに落とすことに相当し, 式(2)より SN 比は周波数帯域幅 B の平方根の逆数に比例して改善されるので, 約6倍の SN 比改善が行えたことになる。これと信号積算の改善効果を合わせて, SN 比は約24と評価される。 SN 比=1まで圧力検出できるとすれば, 2560回の信号積算と125点の平均処理による圧力検出下限は55 Pa (0.42 Torr)となる。実験結果は, この評価とほぼ一致する。ショットノイズはAPDの冷却および周波数帯域幅を狭めることにより低減できるので, 圧力検出下限は更に下げられる可能性がある。

5. まとめと今後の課題

レーリー散乱法を用いた中真空領域実用真空計の検討結果をまとめれば, 次のようになる。

(1) 半導体レーザー励起YLFレーザーを光源とし, 光電子増倍管を検出器として, 小型の感圧部を用いた実験装置で, 迷光レベル2.7 Paを達成した。これにより, 1.3 Paまでの圧力が検出可能となり, $2.7 \sim 1.2 \times 10^3$ Paの範囲で隔膜真空計による圧力に対してレーリー散乱信号が7%程度以内の誤差で比例する結果を得た。これらの結果から, 小型の測定システムで中真空領域での圧力測定が可能であることを示した。

(2) パルス変調をかけた半導体レーザーを光源, アバランシェフォトダイオードを検出器とし, 小型の感圧部を用いた実験装置で, 迷光レベルを窒素ガス圧換算で 1.3×10^2 Paまで低減させた。 $1.3 \times 10^2 \sim 6.7 \times 10^3$ Paの範囲でレーリー散乱信号と隔膜真空計による圧力とは9%程度以内の誤差で比例する結果を得た。

以上の結果により, レーザー光のレーリー散乱法を, 中真空領域の実用真空計へ応用する道が開けたと考ええる。

今後, 上記(2)の実験システムで, APDの冷却, 検出回路の周波数帯域幅を狭くすること, および受光光子数を増やすこと(例えば, より高出力の半導体レーザーの使用, 受光立体角を増大化など)により, 検出下限を2桁下げ, 最終的に実用真空計を実現することが期待される。

最後に, 本研究と以前報告したルビーレーザーを光源とする実験^{1,2)}について, 装置諸元と実験結果を簡単に比較してTable 1に示す。なお, 同表の測定範囲は実験を実際に行った圧力範囲を示している。特に, 本法の上限については大気圧以上にわたって原理的制約はない。

本研究の遂行に際して, 日本真空技術(株)林主税会長, 内田岱二郎常務取締役には終始支援をいただきました。記して謝意を表します。

Table 1 Summary of the pressure measurements by Rayleigh scattering

Light source	Output/ Pulse width	Beam divergence	Detector	Size of pressure sensor	A : Detection limit B : Stray light level	Error/ Measured range
Ruby laser	1 J 30 ns	0.3 mrad	PMT	2 m	A : 0.09 Pa B : 0.09 Pa	5%* 1.3~1.2×10 ³ Pa
YLF laser	0.1 mJ 7 ns	10 mrad	PMT	230 mm	A : 1.3 Pa B : 2.6 Pa	7%** 2.6~1.2×10 ³ Pa
CW laser diode	0.5 W 0.5 ms (modulation)	1.1 rad	APD	230 mm	A : 130 Pa B : 130 Pa	9%*** 130~6.7×10 ³ Pa

* Error for single shot measurement. ** Error after averaging over 2560 laser shots. *** Error after averaging over 2560 laser shots and integration over 125 time points.

PMT : Photomultiplier tube. APD : Avalanche photodiode.

〔文 献〕

- 1) 迫田忠則, 内野喜一郎, 舩井信之, 村岡克紀, 山川洋幸 : 真空, **34** (1991) 275.
- 2) 迫田忠則, 宋 一兵, 内野喜一郎, 村岡克紀, Mark Bowden, 山川洋幸 : 真空, **36** (1993) 563.
- 3) A. W. DeSilva and G. C. Goldenbaum: Methods Exp. Phys., **9A** (1970) 61.
- 4) 宋 一兵, 堀 司, 迫田忠則, 内野喜一郎, 村岡克紀, 山川洋幸 : 平成 5 年度電気関係学会九州支部連合大会論文集, p. 296 (1993)
- 5) R. J. McIntyre: IEEE Transactions on Electron Devices, Vol **ED-13** (1996), p. 164-168.
- 6) P. P. Webb, R. J. McIntyre, and J. Conradi: RCA Review, June 1974, p. 234-278.