

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 18 日現在

機関番号：13801

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2013～2014

課題番号：25630389

研究課題名(和文)キャビティ法と変調法を組み合わせた超高感度レーザー吸収分光法の開発

研究課題名(英文)Development of Ultra-high sensitive laser absorption spectroscopy combined cavity method with wavelength modulation method

研究代表者

松井 信(MATSUI, Makoto)

静岡大学・工学研究科・准教授

研究者番号：90547100

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：禁則遷移0I636nmを用いて酸素原子数密度を測定するために高感度レーザー吸収分光法を開発した。まず、禁則遷移での吸収が可能かを集積共振器出力分光法(ICOS)による高感度化により確かめた。その結果、従来のレーザー吸収分光法に比べ感度を822倍に増幅することで酸素原子数密度の測定に成功し、その測定下限は $1.2 \times 10^{21} \text{m}^{-3}$ であった。次に波長変調法(WMS)を組み合わせることでさらなる高感度化を試みた。その結果、測定条件を最適化することでWM-ICOSの感度はICOSよりさらに26倍向上した。この結果、本システムは吸収長10mm、酸素原子分圧250Pa以上での測定が可能となることがわかった。

研究成果の概要(英文)：High sensitive laser absorption spectroscopy system was developed to measure atomic oxygen number density using a forbidden line of OI 636 nm. Firstly, to detect the small transition probability line, integrated cavity output spectroscopy (ICOS) was developed. The sensitivity enhancement was estimated as 822 times by the ring down time measurement. As a result of microwave plasma diagnostics, the number density could be measured as low as  $1.2 \times 10^{21} \text{m}^{-3}$ . Next, wavelength modulation spectroscopy (WMS) was combined with ICOS to increase the sensitivity. For the optimized modulation frequency, sweep frequency and time constant, the signal to noise ratio of WM-ICOS was increased 26 times as much as that of ICOS. This result shows the WM-ICOS system enables the number density measurement of atomic oxygen as low as 250 Pa.

研究分野：航空宇宙工学

キーワード：レーザー吸収分光 波長変調法 集積共振器出力分光法 酸素原子数密度測定

1. 研究開始当初の背景

宇宙往還機などの大気圏再突入時には、機体の前方に強い衝撃波が形成され、対流加熱及び輻射加熱によって機体は厳しい加熱環境に曝される。この熱環境から機体を保護する熱防御システム (TPS) を開発するため、これまで様々な高エンタルピー風洞が開発されてきた。これらの風洞試験における酸素原子、窒素原子の数密度は TPS の表面触媒性を評価する上で重要なパラメータであるが、特に衝撃波層内のような数 kPa を超える高圧条件下では未だその測定法は確立されていない。従来の真空紫外吸収分光法 (VUVAS) では吸収係数が大きく吸収長が  $\mu\text{m}$  程度となりプローブ光が衝撃波層内まで届かず、また二光子吸収レーザー誘起蛍光法 (TALIF) では衝突による消光の増加により蛍光が急激に減少するためである。

2. 研究の目的

そこで我々は基底準位からの禁制遷移である OI 636 nm を用いたレーザー吸収分光法 (LAS) により基底準位数密度を測定する計測法の開発を行っている。OI 636 nm の吸収係数は禁制遷移であるため、例えば許容遷移線である OI 777 nm の吸収係数に比べておよそ 9-10 桁小さく図 1 に示すように風洞気流の診断には従来の LAS の感度を 4 桁程度向上させる必要がある。そこで集積キャビティ出力分光法 (ICOS) と波長変調分光法 (WMS) を用いることで 4 桁以上の感度向上を試みる。本研究ではマイクロ波酸素プラズマに対し ICOS, WM-ICOS を用いて酸素原子数密度測定を行うことで感度性能をそれぞれ評価したのでその結果を報告する。

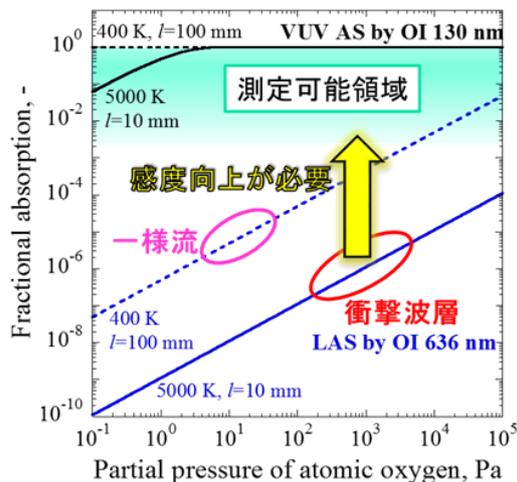


図 1. 酸素原子の基底状態を対象とした LAS(OI 636 nm)と VUVAS(OI 130 nm)の吸収率

3. 研究の方法

(1) 測定原理

①レーザー吸収分光法 (LAS)

LAS はプラズマに対しレーザー光を入射

させ透過光から得られる吸収率から吸収準位の数密度、温度を求める方法で、吸収率という相対強度のみから絶対数密度や温度を求められることが特徴である。波長、強度の単色光が測定対象を通過したとき、透過光強度は Beer-Lambert の法則から次式で与えられ、吸収率より吸収準位の数密度が得られる。

②集積共振器出力分光法 (ICOS)

ICOS はファブリ・ペロー共振器に対し、入射レーザー光を中心軸からずらすことで共振モードを複数形成する。これにより機械的振動に感度が影響されづらい長所がある。透過レーザー強度はレーザー光がミラーで反射する度に共振器を透過したレーザー強度の積分値となる。従って吸収率はミラーの実効反射率が高くなるほど実効光路長は大きくなり感度が向上することがわかる。ミラーの実効反射率はリングダウン時間より推定することができる。

③波長変調分光法 (WMS)

WMS は LAS におけるレーザーの波長を特定の変調周波数で変調する方法である。変調されたレーザー光をプラズマに入射することで得られる透過信号は変調周波数の整数倍の周波数成分の和で示され、ロックインアンプを用いることで特定の周波数成分のみを抽出することができる。またレーザー光の変調周波数を最適な値にすることでノイズの周波数成分を減衰させることができ、さらに信号を増幅することでノイズに埋もれた信号の SN 比を二桁以上向上することができる。WMS ではロックインアンプを用いて周波数 2f の成分を検波することで二次高調波と呼ばれる信号が得られる。この二次高調波のピーク値は数密度に比例するため数密度測定が可能となる。

(2) 実験装置

実験系概略図を図 2 に示す。プラズマに入射するレーザー光は半導体レーザーから発振される。このとき出力されるレーザー光の波長は 636 nm 付近であり、半導体レーザーに入力する電流と温度を半導体レーザーコントローラにより制御する。出力されたレーザー光の波長はファンクションジェネレータを用いてある波長幅でランプ状に変化させ、波長掃引を行う。これと別にロックインアンプからの変調信号を用いてレーザー波長を正弦波的に変調する。レーザー出口の直後にはアイソレータがあり、キャビティなどの反射による戻り光を防ぐ。また固体エタロンは波長計として用いている。自由スペクトル領域は 1.45GHz である。レーザー光は光学音響素子を通り、シングルモードファイバーに入れられる。ファイバーからの出力光はマッティングレンズによりビーム径を制御した後、周波数 2.45 GHz、TE<sub>10</sub> モードのマイクロ波放電管及びキャビティを通過し、プラズマからの発光を除去するため半値全幅 10 nm のバンドパスフィルタに通したのち光電

子増倍管で検出される。マイクロ波放電管両端には高反射ミラーが設置されておりこれがキャビティを形成する。両端のミラーはそれぞれ3軸のアライメント機構が取り付けられており、作動条件下でのアライメントが可能となっている。PMTで検出された信号はロックインアンプに入力され、特定の高調波が出力される。波形の表示及びデータの取得は周波数1 GHz オシロスコープを用いている。

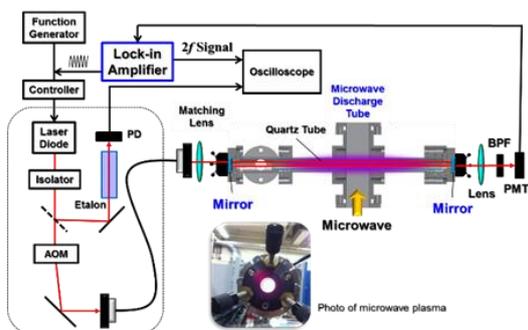


図2. WM-ICOS 測定システム

#### 4. 研究成果

##### (1) ICOSによる酸素原子数密度測定

図3にAOMによるレーザー光遮断後の透過強度すなわちリングダウン信号の時間履歴を示す。最小二乗フィッティングによりリングダウン時間が求まり、キャビティの実効反射率は0.9989であることがわかる。よって実効光路長は858倍に増幅されたことがわかる。本装置を用いて表1の作動条件で測定を行った。図4に典型的な吸収信号を示す。これより数密度を求めたところ、図5に示すとおり  $1.2 \times 10^{21} \text{ m}^{-3}$  が数密度の測定下限であることがわかった。数密度が酸素流量とともに減少しているのは入力電力が一定であるため比エンタルピーが下がり、酸素解離度が低下していったためだと考えられる。

本装置はプラズマ長が40 cmと長く、実際の風洞での衝撃波層のサイズが10 mm程度とすると本装置の測定限界は酸素原子の分

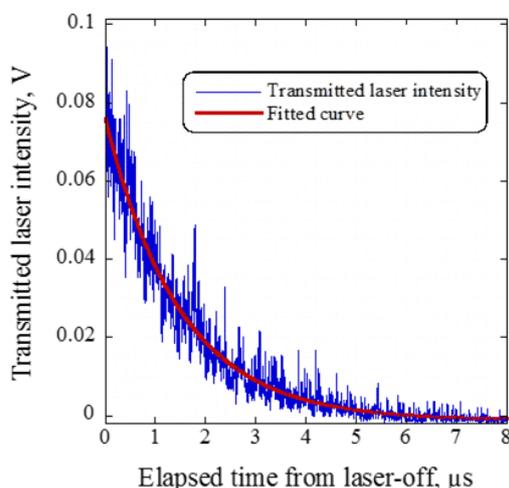


図3. リングダウン信号

圧6.4 kPaに相当する。この値は実際のTPS試験時の値と同程度かやや低い値であるため、一桁以上の高感度化が必要となる。

またドップラー幅より温度測定を推定したところ570 Kから770 Kとなり、この値は過去に酸素原子の準安定準位からの吸収ラインOI 777 nmを用いて測定した値と一致しており本測定の妥当性を裏付ける。

表1. 作動条件

作動ガス, $\times 10^{-2}$ mg/s	O <sub>2</sub> :1.2-6.0
入力電力, W	920
圧力, Pa	10-15
プラズマ長, cm	40
掃引周波数, Hz	1.0
積算回数, times	64
ミラー反射率, -	0.9989

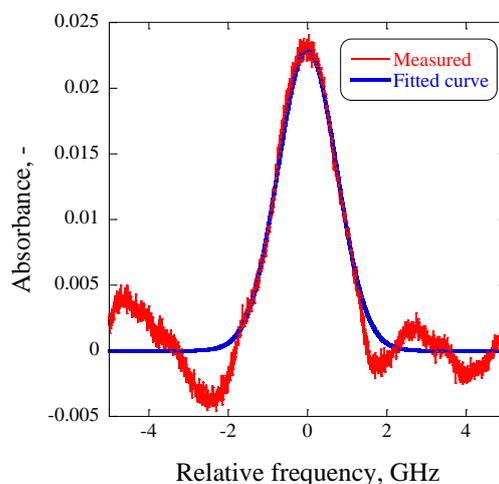


図4. ICOSによる吸収プロファイル

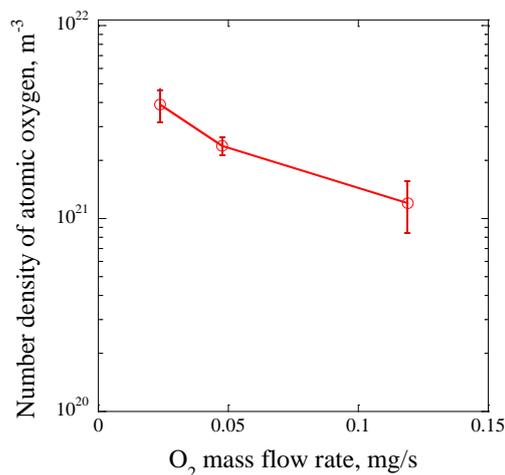


図5. 酸素流量に対するICOSによる酸素原子数密度

##### (2) WM-ICOSによる酸素原子数密度測定

ICOSのプローブレーザー光に変調を加えることでWMSと組み合わせ感度向上を試みた。この際、変調周波数が高過ぎるとICOSの共振条件を満たさないことが過去の研究からわかっている。図6に示すとおり、変調周波数1 Hzと1000 Hzの共振信号を数値計

算により計算したところ、後者ではフリンジのピークが大きく小さくなり周波数方向に伸びていることがわかる。これはレーザー光が共振条件を満たすのに十分な回数反射する時間に比べ変調周波数が高いことが原因だと考えられる。またこのピーク値の低下は実効光路長の低下を意味するため、ICOSでの感度を十分確保しつつWMSの効果を得るには共振条件を満たす変調周波数以下で測定を行わなければならない。

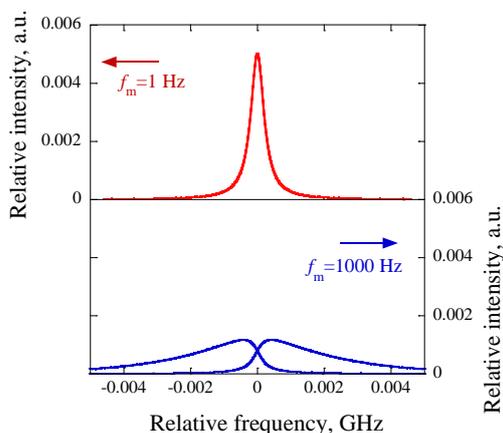
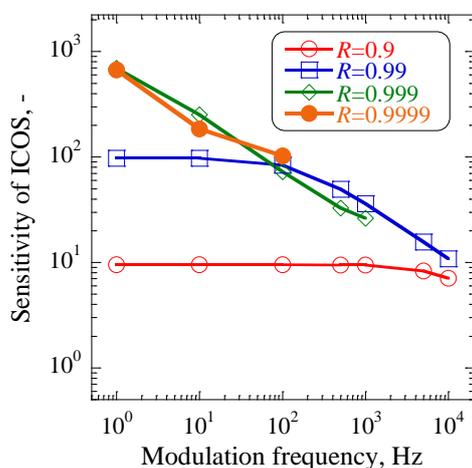


図6. 変調周波数のフリンジ信号への影響

図7に数値計算により得られた変調周波数およびミラー反射率とICOS感度の関係を示す。図が示すとおり、ICOS感度はある閾値以上の変調周波数では低下していくことがわかる。また、この閾値はミラー反射率が高くなるほど低くなる。一方でWMSでは変調周波数が高いほどSN比が高くなり感度が向上するため、WM-ICOSではミラー反射率と変調周波数には最適値が存在する。本研究では変調周波数、掃引周波数、時定数をパラメータとして感度の最適値を求めたところ、表2に示す条件下で感度は最適になった。ICOSでの測定下限条件でWM-ICOSを行った際の2f信号を図8に示す。この時のSN比は40.4であり、ICOSの1.6に比べSN比は26倍向上しており、感度は一桁以上上がったことがわかる。これより本WM-ICOSシステムでは吸収長10 mm、酸素原子分圧250Pa



以上の衝撃波層での測定が可能となり高エネルギー風洞を用いたTPS試験診断への適用が可能となる。

表2. WM-ICOSでの最適実験条件

変調周波数, Hz	100
掃引周波数, Hz	0.5
時定数, ms	3.0

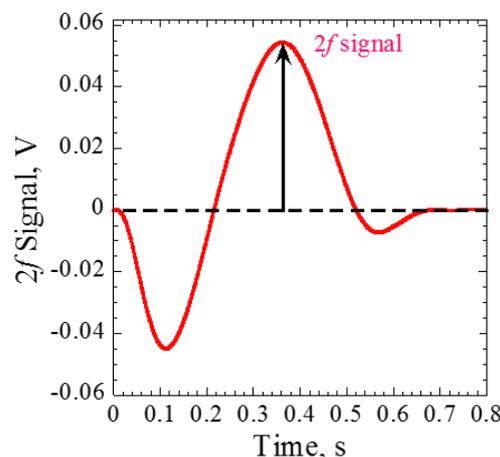


図8. WM-ICOSでの2f信号

#### 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)

- ① Morita, R., and Matsui, M., Effect of Modulation Frequency on Sensitivity Enhancement of Wavelength Modulated Integrated Cavity Output Spectroscopy, *Frontier of Applied Plasma Technology*, 査読有, Vol.7, No.1, 2014, pp.49-54.  
[http://gakkai.jst.go.jp/gakkai/detail?d\\_id=G01443&command\\_id=0](http://gakkai.jst.go.jp/gakkai/detail?d_id=G01443&command_id=0)
- ② Matsui, M., Yoneda, S., Komurasaki, K., Yamagiwa, Y., and Arakawa, Y., Atomic-oxygen-flow Generation by Laser-driven Plasma Wind Tunnel as Low-earth-orbit Environment Simulator, *AIAA Journal*, 査読有, Vol.52, No.8, 2014, pp.1806-1810.  
DOI: 10.2514/1.J052991

[学会発表] (計8件)

- ① 松井信, 森田陵, 禁則遷移を用いた超高感度レーザー吸収分光法による酸素原子数密度測定, 第62回応用物理学会春季学術講演会, 東海大学, (神奈川県・平塚市), 2015年3月11日~3月14日.
- ② Matsui, M., and Morita, R., Number Density Measurement of Ground State Atomic Oxygen in Microwave Discharge Plasma Tube by High Sensitive Laser Absorption

Spectroscopy, 8<sup>th</sup> International Workshop on Hybrid Functionally Materials, Honolulu(USA), 2015年3月6日～3月9日.

- ③ Sato, Y., Matsui, M., Nakano, M., Komurasaki, K., Arakawa, Y., Goto, T. and Shirakata, H., Collection efficiency measurement of reduced aluminum using laser sustained plasma,” 8<sup>th</sup> International Workshop on Hybrid Functionally Materials, Honolulu(USA), 2015年3月6日～3月9日.
- ④ Morita, R., and Matsui, M., The Number Density of Ground State Atomic Oxygen Measurement by High Sensitive Laser Absorption Spectroscopy using Forbidden Line OI 630nm, 53<sup>rd</sup> AIAA Aerospace Sciences Meeting, Kissimmee(USA), 2015年1月5日～1月8日.
- ⑤ Nishimoto, K., and M. Matsui, Experimental test of absorption saturation of forbidden line by diode laser for number density measurement, Plasma Conference 2014, Toki Messe(新潟県・新潟市), 2014年11月18日～11月20日.
- ⑥ Morita, R., Matsui, M., and Yamagiwa, Y., Development of High Sensitive Laser Absorption Spectroscopy for Plasma Wind Tunnel using High Power Laser, 3<sup>rd</sup> Advanced Lasers and Photon Sources, Pacifico Yokohama(神奈川県・横浜市), 2014年4月22日～4月25日.
- ⑦ 松井信, 森田陵, 西本昂司, 禁則遷移を用いた酸素原子数密度測定へのアプローチ, 第75回応用物理学会秋季学術講演会, 北海道大学(北海道・札幌市), 2014年9月17日～9月20日.
- ⑧ 森田陵, 松井信, 山極芳樹, 変調法を用いた集積共振器出力分光法の高感度化における掃引と変調の影響, 日本航空宇宙学会第45期年会講演会, 東京大学(東京都・文京区), 2014年4月10日～4月11日.

[図書] (計0件)

[産業財産権]

○出願状況 (計0件)

[その他]

ホームページ等

<http://www.ipc.shizuoka.ac.jp/~tmmatui/index.htm>

6. 研究組織

(1)研究代表者

松井 信 (MATSUI, Makoto)  
静岡大学・工学研究科・准教授  
研究者番号：90547100