

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年5月29日現在

機関番号：14301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2010～2011

課題番号：22654069

研究課題名（和文） 光周波数コム型レーザー光による大気圧プラズマ分光診断

研究課題名（英文） Spectroscopic diagnostics of atmospheric pressure plasmas by optical frequency-comb laser ray

研究代表者

酒井 道 (SAKAI OSAMU)

京都大学・工学研究科・准教授

研究者番号：30362445

研究成果の概要(和文):新規の汎用分光法として、光周波数コム干渉型分光計測法を開発した。その基本構成として、光周波数コムレーザー光と単一波長レーザー光の干渉信号を利用するシステムを確立した。そして、実際に高気圧プラズマ分光に適用し、アルゴン準安定励起原子の吸収スペクトルの詳細構造を一括取得することに成功した。本分光計測法は、プラズマ診断のみならず、一般的な各種サンプルに対する細線スペクトルの精密測定への応用が期待できる。

研究成果の概要(英文): Novel frequency-comb interference spectroscopy is successfully developed, which includes optical frequency-comb and single wavelength laser rays and utilizes their interference (beat) signals. A specific signal measured in one shot of a high-pressure Ar plasma reveals a fine absorption spectrum of Ar metastable atoms. This method is not limited for use in plasma diagnostics, and can be applicable to general diagnostics of fine optical frequency spectra with high accuracy.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	1,900,000	0	1,900,000
2011年度	900,000	270,000	1,170,000
年度			
年度			
年度			
総計	2,800,000	270,000	3,070,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：プラズマ科学・プラズマ科学（プラズマ計測）

キーワード：大気圧プラズマ、レーザー分光計測、光周波数コム、準安定励起原子、吸収スペクトル

1. 研究開始当初の背景

近年、高気圧下で熱非平衡性を持つプラズマの様々な生成法が報告され、簡便な材料プロセスや、液体や生体へのプロセスの実現などの技術革新に向けた研究が進められている。この高気圧プラズマ中の励起粒子密度計測は、プラズマ生成原理の解明やプロセス応用への放電の最適化を行う際に必須であり、自然放出寿命が長くプロセス時に重要な役

割を果たす準安定励起原子やイオン等の計測が行われている。しかし、高気圧下では衝突広がりが大きく吸収スペクトルが数十 GHz と広帯域になるため、励起粒子密度診断に有効なレーザー吸収分光法では半導体レーザーのモードホップにより吸収スペクトル全体を連続的に計測することが困難という問題に直面する。

この問題点を解決する手法として、別分野

で発展を遂げている光周波数コム発生器による広帯域でコヒーレントなレーザ光の発生手法[1]に着目した。これは半導体レーザ光を周波数領域で等間隔に並ぶコヒーレントなレーザ光の集合である「光周波数コム」に変換したものであり、光源として用いることで広帯域な吸収スペクトルを同時計測することが可能となると推測される。

申請者は、織物状電極を用いた大気圧フレキシブル面状プラズマ生成法の研究[2]や、ミリ波透過法や近赤外レーザ吸収分光法によるプラズマ診断[3, 4]に取り組んできた。今回は上記の知見を基にして広帯域なレーザ光源として光周波数コムを採用し、さらに吸収スペクトル検出に対して元のレーザ光と光コムとのビート信号の利用を行うことを着想した。この新規分光測定法により、回折格子型分光器に付随するような装置広がりとは無縁の、革新的な連続スペクトル計測法が提案できる。

2. 研究の目的

本研究で用いる新規分光測定法の光源として、まず励起粒子密度計測に最適な光コム発生器を製作する(図1参照)。現在汎用となっている発生器はその各コム間隔が数 GHz と広く、全体で数十 GHz の広がりとなる励起粒子診断には適していないため、各コム間隔が数十~数百 MHz 程度で全体の帯域が数十 GHz となるような発生器を新たに導入する(図2参照)。また、吸収スペクトルの検出系についてはプラズマを透過した光コムを元々の単一波長レーザ光と重畳してビート信号を発生させ、そのスペクトルを測定する。ビート信号の帯域は光コムの間隔と同様の数十 GHz となると予測されるので、マイクロ波スペクトルアナライザでの測定が可能となる。これらの光源・検出系からなる新規分光測定装置を用いて、大気圧プラズマ中励起粒子の原子・分子吸収スペクトルを時間分解能がミリ秒、空間分解能 $500 \mu\text{m}$、周波数分解能 ~100 MHz のスペックで一括計測する。

3. 研究の方法

本研究では、まず大気圧プラズマ中励起原子の吸収スペクトル計測に最適な光周波数コム発生器を新たに設計し、位相変調器と光共振器の組み合わせにより製作する。その後ビート信号のスペクトル検出系と組み合わせることにより、分光測定系全体を構築する。

計測対象のプラズマ源として、典型的な高気圧プラズマ源であるランプ用直流放電や、近年研究が盛んに行われている大気圧プラズマジェット等を作製し、放電基礎特性を従来の手法(発光分光法など)で診断する。動作ガスとしてはアルゴンや窒素、それらの混

合ガスを想定する。

上記のプラズマ源を光コムによる分光測定部に設置し、アルゴンガスを用いた場合のプラズマ中アルゴン準安定励起原子の吸収スペクトルを計測し、その密度分布を算出する。

4. 研究成果

気相中の励起原子の分光診断において、上準位への遷移に伴うスペクトル幅はせいぜい数 GHzにとどまるため、その形状を特定するには気体分子の指紋スペクトルよりもさらに詳細な波長分解能での測定が求められる。これまで我々のグループでは、波長が 10^3 nm オーダーで精度良く設定可能な可変半導体レーザを用いて吸収スペクトルを得てきたが[4]、該当波長周辺での走査にある程度の測定時間を要していた。今回我々は周波数軸上で標準化可能な光周波数コムに着目し[5]、かつ単一波長レーザを併用することで、零位法として標準化された微細吸収スペクトルの一括取得法を開発した。以下、この手法を光周波数コム干渉型分光計測法と呼ぶ。

構成の概略を、図1に示す。光周波数コム光源としてはフェムト秒レーザ(波長 810 nm 近傍においてコム間隔 81 MHz で分布)を用い、サンプル(プラズマ)部を透過した後に単一波長の半導体レーザ(811.528 nm)を重畳し、そのビート信号をフォトディテクタに入力してマイクロ波帯でのスペクトルアナライザを用いて分析することとした。単一波長レーザ光周辺での周波数スペクトルの様子を図2に示す。プラズマを点灯するかしなにより、ビート波にプラズマ中の粒子による吸収スペクトルが得られると考えられる。

実際の実験における測定対象として、圧力 2.6 kPa の Ar ガス中で 13.56 MHz · 2 W の高周波にてプラズマを発生させ、長さ 30 mm の吸収光路長とした。これは、ガラス管内にて作製しているが、開放空間へ接続することでジェット状プラズマとなる形状である。Ar の準安定励起原子による吸収 ($1s_5 \rightarrow 2p_5$) 付近の波長で観測したところ、図3のような測定データ(図3は一部の拡大図)および図4のような吸収スペクトルが得られた。ビート波としては正負の両方向で同じ周波数差に対応するものが同様のマイクロ波周波数において両者観測されるが、一方に関して明瞭な吸収プロファイルが得られ(図3の "Lower level"), もう一方(図3の "Higher level")も零点での折り返し波形であることがわかった。同様の条件における吸収線の半値幅が 2 GHz 弱であるとの他報告[6]が従来法によりなされており、それとほぼ同様の吸収スペクトルを捉えていることから、確かに Ar の準安定励起原子由来の信号と言える。

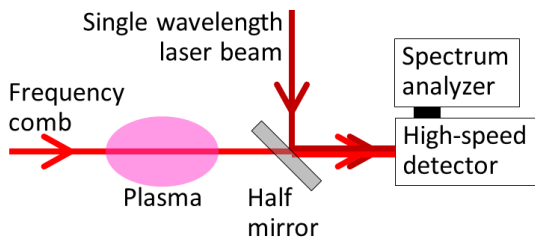


図1. 光周波数コム干渉型分光計測法の構成概要図。光周波数コム型レーザ光は、一定な周波数間隔を持つスペクトルが多数整列したコヒーレント光源である。ここに、単一波長レーザ光を重畳させ、2つの光のビート信号を検出し、それをマイクロ波帯の周波数スペクトルアナライザで解析する。

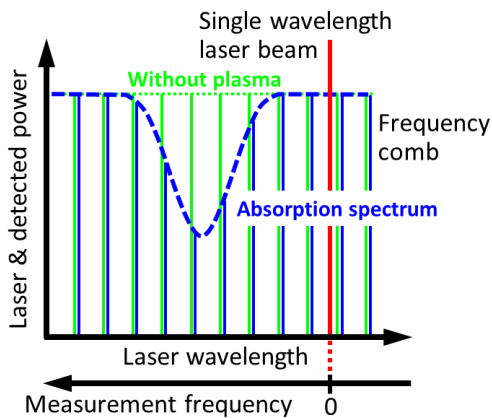


図2. 光周波数コム干渉型分光計測法の概念説明図。光周波数コム型レーザ光と単一波長レーザ光の干渉信号（ビート信号）は、単一波長レーザ光の波長を零点として、その差分の周波数を持つ低周波スペクトル（我々の場合、マイクロ波帯）として観測できる。

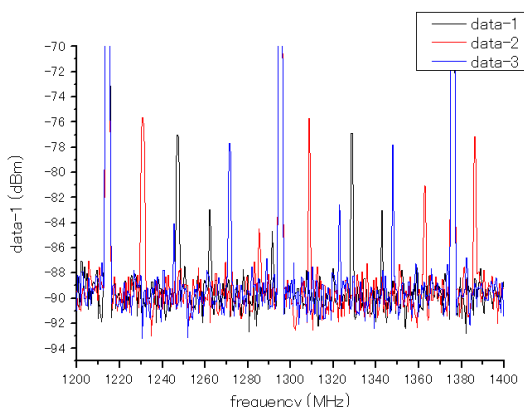


図3. 光周波数コム干渉型分光計測法で得られたマイクロ波帯スペクトルの例。異なる3ショットのデータを示す。

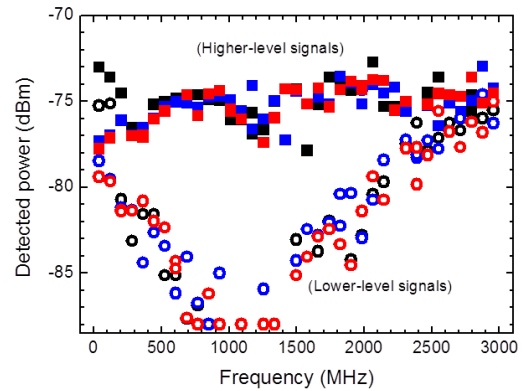


図4. 光周波数コム干渉型分光計測法により得られた、アルゴンの準安定励起原子による吸収信号。周波数がゼロのところ、単一波長レーザ光の周波数に相当する。

以上のように、光周波数コム型レーザと単一波長レーザを組み合わせることで、特定波長周辺での吸収分光スペクトルが一括して詳細に取得可能であることを示せた。すなわち、プラズマや気相中の分子も含んだ粒子種の診断にとどまらず、微細な光吸収構造を持つ一般的な診断対象に対して適用可能であり、用いた手法が他の系へ応用可能であることも含めて、汎用性のある成果と言える。

その他、測定対象として用いる Ar ガス中のプラズマ生成についての種々の検討も行った。上記に用いた測定対象は、このような事前検討を元に、最も適した測定対象として選択したものである。

(参考文献)

- [1] M. Kourogi *et al.*, *IEEE J. Quantum Electron.* **29** (1993) 2693.
- [2] O. Sakai *et al.*, *J. Phys. : Conf. Ser.* **86** (2007) 012015.
- [3] O. Sakai *et al.*, *Plasma Phys. Control. Fusion* **47** (2005) B617.
- [4] K. Tachibana, Y. Kishimoto and O. Sakai, *J. Appl. Phys.* **97** (2005) 123301.
- [5] S. A. Diddams, L. Hollberg and V. Mbebe, *Nature* **445**, 627 (2007).
- [6] S. G. Belostotskiy, V. M. Donnelly, D. J. Economou and N. Sadeghi, *IEEE Trans. Plasma Sci.* **37**, 852 (2009).

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3件)

- ① K. Urabe, B. L. Sands, B. N. Ganguly and

O. Sakai, "Temporally and spectrally resolved observation of crossed-flow DBD plasma jet using pure helium and argon/acetone mixed gases," *Plasma Sources Science and Technology*, 査読有り, vol. 21 (2012), pp. 034004-1-10.

doi:10.1088/0963-0252/21/3/034004

② K. Urabe, K. Yamada and O. Sakai, "Discharge-mode transition in jet-type dielectric barrier discharge using argon/acetone gas flow ignited by small helium plasma jet," *Japanese Journal of Applied Physics*, 査読有り, vol. 50 (2011), pp. 116002-1-11.

DOI: 10.1143/JJAP.50.116002

③ K. Urabe, Y. Ito, O. Sakai and K. Tachibana, "Interaction between Dielectric Barrier Discharge and Positive Streamer in Helium Plasma Jet at Atmospheric pressure," *Japanese Journal of Applied Physics*, 査読有り, vol. 49 (2010), pp. 106001-1-6.

DOI: 10.1143/JJAP.49.106001

[学会発表] (計3件)

① 占部 継一郎、酒井 道、光周波数コム干渉分光法の開発とプラズマ診断、第59回応用物理学関係連合講演会、2012年 3月18日、早稲田大学 (東京)。

② 山田慶太郎、占部 継一郎、酒井 道、光周波数コム干渉分光法の開発とプラズマ診断 (II)、第 58 回応用物理学関係連合講演会、2011年 3月24日、神奈川工科大学 (厚木市)。

③ 山田慶太郎、占部 継一郎、酒井 道、アルゴンガス中ジェット型誘電体バリア放電のガス組成制御によるグロー状放電生成と分光診断、第 71 回応用物理学会学術講演会、2010年 9月14日、長崎大学 (長崎市)。

6. 研究組織

(1) 研究代表者

酒井 道 (SAKAI OSAMU)
京都大学・工学研究科・准教授
研究者番号：30362445

(2) 研究分担者 該当無し

(3) 連携研究者

杉山 和彦 (SUGIYAMA KAZUHIKO)
京都大学・工学研究科・准教授
研究者番号：10335193