

令和 5 年 6 月 22 日現在

機関番号：30127

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：20K03890

研究課題名（和文）半導体レーザーを用いた二段励起レーザー誘起蛍光法による高感度電界計測法の開発

研究課題名（英文）Development of sensitive electric field measurement method by two-stage laser induced fluorescence technique with tunable diode lasers

研究代表者

西山 修輔（Nishiyama, Shusuke）

日本医療大学・保健医療学部・教授

研究者番号：30333628

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：本研究はシースおよびプレシースにおける電界構造の実験的計測が可能となる半導体レーザーを光源としたプラズマ中の高感度電界計測法の開発を行うことが目的である。水素原子を対象とする二段励起レーザー誘起蛍光法では、中間準位である $n=3$ 状態で微細構造準位間におけるポピュレーションの移動、原子速度分布の熱化が生じ十分な波長分解能のスペクトルは得られないことが分かった。キャビティリングダウン吸収分光法(CRDS)に飽和度の評価を導入したSCAR法では、低密度の水素プラズマに対してもラムディップによる高い波長分解能のスペクトルが得られ、シース電界中でラムディップが移動、分裂していることが確認できた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で導入したSCAR法では高い電界計測感度と吸収感度を実現することが可能で、より低密度の水素プラズマや水素を一部含む混合プラズマ、トレーサーとして微量の水素を含むプロセスプラズマにおけるシース・プレシース領域の電界構造の解明によってプラズマプロセスの高度化やシミュレーションにおけるプラズマモデルの精密化への寄与が期待できる。

研究成果の概要（英文）：The purpose of this study is to develop a highly sensitive electric field measurement method in plasmas using a tunable diode laser as a light source, which enables experimental measurement of electric field structures in sheaths and pre-sheaths. In the two-stage laser-induced fluorescence method for hydrogen atoms, it is found that spectra with sufficient wavelength resolution cannot be obtained due to the migration of populations between fine structure levels and thermalization of atomic velocity distribution in the $n=3$ state, which is the intermediate level. The SCAR method, which introduces saturation evaluation into cavity ring-down absorption spectroscopy (CRDS), provides high wavelength-resolution spectra due to ram-dip even for low-density hydrogen plasmas, and it is confirmed that ram-dip is shifted and split by the Stark effect due to the sheath electric field.

研究分野：プラズマ計測

キーワード：電界計測 水素プラズマ レーザー誘起蛍光法 キャビティリングダウン吸収分光法 ラムディップ

1. 研究開始当初の背景

プラズマと固体表面の界面に形成されるシース領域やそのシースへつながるプレシース領域における電界構造は、プラズマ物理学の基礎的な課題として長年にわたり議論されている。プロセスプラズマによくみられる質量や電荷が異なる複数種のイオンを含む混合プラズマにおけるシース構造や、高周波やパルス電圧印加による過渡的なシースにおける電界構造の時間変化には応用上からも大きな関心を持たれているが、プラズマ中の電界を高精度かつ高空間分解能で計測することは難しく、その実測例は少数に留まっている。また、シミュレーションにおいてはシースのモデルが組み込まれているものの、実験的な検証が難しいためにシースのモデルに関してもいまだに議論が重ねられており、種々の条件下における、バルクプラズマからシースにわたる電界構造は明らかになっているとは言い難い。これが明らかにされることでプラズマと固体あるいは液体との界面を介した反応の理解が大きく進むとも期待されている。

2. 研究の目的

本研究は、導入および運用が容易な半導体レーザーを用いてシースおよびプレシースにおける電界構造の実験的計測を行うことが可能な高い電界検出感度を持ち、適用範囲の広いプラズマ中の電界計測法の開発が目的である。水素原子のバルマー線の飽和吸収分光法を用いた電界計測法では、線形シュタルク効果のため電界による波長偏移が大きい水素原子とドップラーフリーの高い波長分解能を持つ飽和吸収分光法によって高い電界検出感度が可能となったが、バルマー線の吸収が小さいことが電界計測を行う上での障害となっていた。この困難を解消するため、半導体レーザーを2台用いてさらに上準位へ励起し、その準位からの蛍光を検出するレーザー誘起蛍光(LIF)法を導入してより高い電界検出感度と幅広いプラズマパラメータへの対応を目指し研究を行った。また、より微小な吸収における高分解能の吸収スペクトルが計測可能な飽和吸収キャビティリングダウン分光法の適用も試みた。

3. 研究の方法

(1) 二段励起レーザー誘起蛍光法による励起スキームの検討とLIF励起スペクトルの計測

半導体レーザーで励起可能な水素原子の主量子数が $n=2$ から $n=3$ (バルマー線, 656.28nm)および $n=3$ から $n=5$ (パッシュェン線, 1282.81nm)の遷移についての微細構造スペクトルごとの励起確率と、 $n=5$ からの脱励起において $n=2$ への遷移となるバルマー線(434.05nm)の蛍光収率を求め、励起経路を選択した。図1に示す実験体系で、選択した励起経路に合わせた波長の2台の波長可変半導体レーザーのレーザー光を同軸に重ねて誘導結合型プラズマ生成装置(ICP装置)で生成した水素プラズマ中に入射し、集光光学系と小型分光器、ロックインアンプを通してバルマー線の蛍光を検出する測定系で励起レーザーのいずれかの波長を掃引しながら励起スペクトルを測定し、検出感度や波長分解能を評価した。

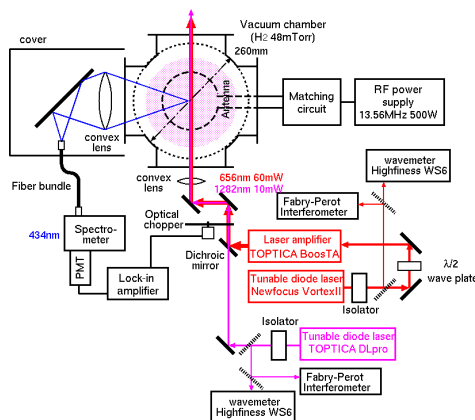


図1: 二段励起レーザー誘起蛍光法の実験体系

(2) 飽和吸収キャビティリングダウン分光法によるシュタルク効果の確認

図2に示すようにICP装置に高反射率凹面鏡2枚を用いた光共振器を取り付け、波長可変半導体レーザーの出力光を凹面鏡の裏面から入射し、共振器を通過したレーザー光をアバランシェフォトダイオード検出器で検出するキャビティリングダウン吸収分光法(CRDS)のシステムを構築した。共振器中の光強度の減衰時定数の逆数であるリングダウン周波数の時間変化から吸収の飽和度を評価してドップラーフリーの波長分解能を得る飽和吸収キャビティリングダウン分光法(SCAR)を試みた。長さ1mの共焦点キャビティを用い低密度の水素プラズマに対してレーザーの発振波長をバルマー線のドップラー広がり範囲で変えてリングダウン周波数の時間変化を解析し、吸収線の中心波長の均一広がり範囲でみられるラムディップによる吸収の減少と、電界印加時のラムディップの変化の検出を行い、電界計測への適用性を評価した。

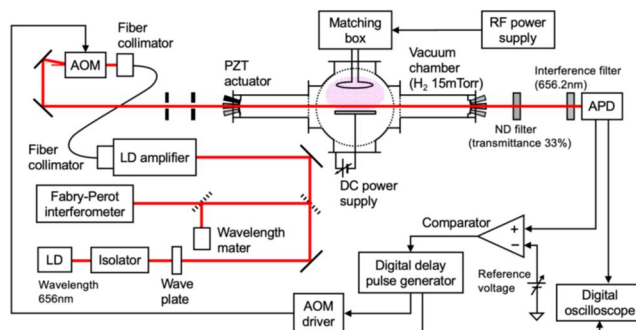


図2: 飽和吸収キャビティリングダウン分光法の実験体系

4. 研究成果

(1) LIFスキームの検討では、励起1段目のバルマー線および励起2段目のパッシュン線のインシュタインのB係数と、蛍光を観測するバルマー線のA係数を、微細構造スペクトルごとに励起確率と蛍光収率を比較して励起経路を検討した。1段目のバルマー線の励起では $2p^2P_{1/2}^o - 3d^2D_{3/2}$ および $2p^2P_{3/2}^o - 3d^2D_{5/2}$ の経路における励起確率が大きい、2段目の励起で $n=2$ 準位へ脱励起可能な5P準位への励起確率が比較的小さく5P準位からのバルマー線の蛍光収率も12%程度と小さい。蛍光収率も考慮すると、 $2s^2S_{1/2} - 3p^2P_{3/2}^o - 5d^2D_{5/2}$ の経路で励起した場合にバルマー線の蛍光が最も強くなるためこのLIFスキームを選択した。

続いて、ICP装置で生成した水素プラズマ中に2台の波長可変半導体レーザーで発振したバルマー線およびパッシュン線の波長のレーザー光を同軸に重ねて入射し、バルマー線のLIFの検出を試みた。1段目励起レーザーの波長を $2s^2S_{1/2} - 3p^2P_{3/2}^o$ の遷移(656.2725nm)に合わせ、2段目励起レーザーのレーザー波長を $3p^2P_{3/2}^o - 5d^2D_{5/2}$ の遷移波長である1281.8091nmを中心に15GHzの範囲で掃引したところ、非常に弱いLIFが観測された。2段目遷移の励起スペクトルはドップラー幅よりは狭いものの2GHz程度の広がりがあるドップラーフリーの波長分解能とはならなかった。また、バルマー線のレーザー波長を $2p^2P_{3/2}^o - 3d^2D_{5/2}$ (656.2852nm)に合わせた場合には1281.81nm付近では $3p^2P_{3/2}^o$ 準位を励起したと思われる励起スペクトルが得られた。

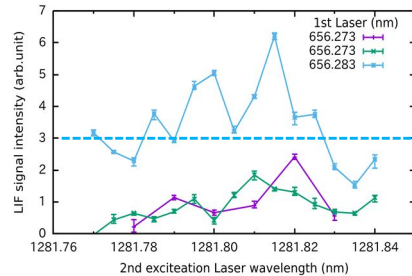


図3: 2段目励起レーザーの励起スペクトル

2段目励起レーザーの波長を $3p^2P_{3/2}^o - 5d^2D_{5/2}$ 遷移(1281.8091nm)に合わせ、1段目の励起レーザーの波長をバルマー線のドップラー幅をカバーする30GHzの範囲で掃引した場合は、12GHzの間隔で2つの半値全幅4GHzの励起ピークが得られ、1段目で $3d^2D_{5/2}$ 準位へ励起した場合でも $3p^2P_{3/2}^o$ 準位を経由して2段目励起され、LIFが観測されていることが推測された。このことから、第一段階で $n=2$ から $n=3$ の準位へ励起されたあとに $n=3$ の微細構造準位の間でポピュレーション移動があること、また、 $n=3$ の準位へ励起されたあとに速度分布が部分的に熱化されていることが示唆され、この方法ではシュタルク効果による電界計測に必要なドップラーフリーの波長分解能を得ることはできなかった。

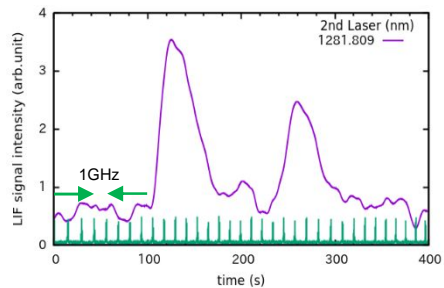


図4: 1段目励起レーザーの励起スペクトル

(2) ICP装置で水素プラズマを生成し、SCAR法でレーザーの発振波長を水素原子のバルマー線の範囲で変えてリングダウン周波数の時間変化を解析すると、共振器内部の光強度が強く吸収の飽和が生じている場合には減衰時定数の逆数であるリングダウン周波数 γ が共振器内部の光強度の減衰とともに増加し、空共振器およびプラズマによる不飽和時のリングダウン周波数をそれぞれ γ_c, γ_g 、飽和パラメータを G として次の式[1]に従っていることが確かめられた。

$$\frac{dG}{dt} = -\gamma(t)G(t)$$

$$\gamma(t) = \gamma_c + 2\gamma_g / (1 + \sqrt{1 + G(t)})$$

また、レーザーの発振波長を $2p^2P_{3/2}^o - 3d^2D_{5/2}$ の遷移波長である656.2852nmを中心に3GHzの範囲で変えてリングダウン波形のフィッティングで得られた不飽和時のリングダウン周波数 γ_g は、図6に示すように吸収スペクトルの中心に半値全幅400MHzの狭い範囲でラムディップによる減少が確認され、1/10000程度の吸収のプラズマに対してドップラーフリーの波長分解能で吸収スペクトルを得ることができた。

平板電極をキャビティ中の光軸に対して1.4mmまで近接させても共振状態への影響は小さく、空共振器のリングダウン周波数 γ_c はほぼ変わらなかった。そこで、平板電極とキャビティ中の光軸との距離を1.6mmとして電極に負の直流電圧を印加すると電極表面のシース電界によるシュタルク効果でラムディップが移動、分裂していることが確認された。図7は平板電極に-100Vを印加した場合に

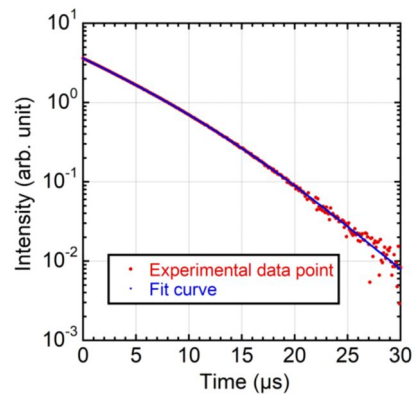


図5: 飽和したリングダウン波形

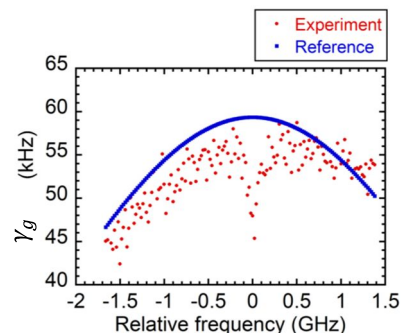


図6: ラムディップによるリングダウン周波数の減少

$2p^2P_{3/2}^0 - 3d^2D_{5/2}$ 遷移のラムディップが分裂している状態で、シュタルク効果の理論計算との比較から 600V/cm の電界と評価できた。SCAR 法では固体表面のごく近傍では光共振器が構成できないものの、低密度、定常放電のプラズマにおけるシース電界計測の見通しが得られた。

[1] P. Cancio, I. Galli, S. Bartalini, G. Giusfredi, D. Mazzotti, P. Natale, "Saturated-Absorption Cavity Ring-Down (SCAR) for High-Sensitivity and High-Resolution Molecular Spectroscopy in the Mid IR" in G. Gagliardi and P. Loock (eds.): Cavity-Enhanced Spectroscopy and Sensing, Springer (2014) pp. 143-162.

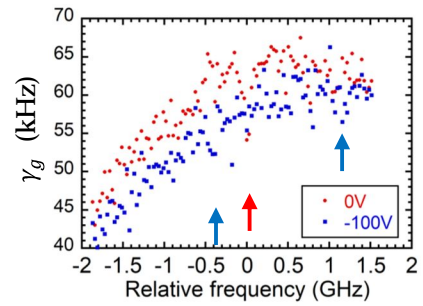


図 7: 電界によるラムディップの分裂

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Shusuke Nishiyama, Kosuke Takada, Koichi Sasaki	4. 巻 60
2. 論文標題 Estimation of sheath electric field in inductively coupled hydrogen plasma on the basis of Doppler-broadened absorption spectrum of hydrogen Balmer- line	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 076001-1 ~ -5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/ac075c	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Kosuke Takada, Shusuke Nishiyama, Koichi Sasaki	4. 巻 60
2. 論文標題 Comparison among translational temperatures of He(1P1 o), He(3S1), and Ar(4s[3/2]2 o) in inductively coupled plasmas	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 066003-1 ~ -6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/ac04f1	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Masahiro Yamazaki, Shusuke Nishiyama, Koichi Sasaki	4. 巻 29
2. 論文標題 Rate coefficient of CO2 splitting in recombining H2 and He plasmas with ultralow electron temperatures	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Plasma Sources Science and Technology	6. 最初と最後の頁 115016 ~ 115016
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-6595/aba722	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 伏見 公花, 西山 修輔, 佐々木 浩一
2. 発表標題 水素原子バルマーアルファ線のキャピティリングダウン吸収分光法における飽和パラメータ: プラズマ中の電場計測に向けて
3. 学会等名 第39回プラズマプロセッシング研究会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 伏見 公花, 西山 修輔, 佐々木 浩一
2. 発表標題 水素原子バルマーアルファ線のキャピティリングダウン吸収分光法における飽和パラメータ()
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 菱田 悠斗, 西山 修輔, 佐々木 浩一
2. 発表標題 プラズマ電界計測のための水素原子バルマーアルファ線におけるラムディップレーザー誘起蛍光法
3. 学会等名 第81回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 高田 晃佑, 西山 修輔, 佐々木 浩一
2. 発表標題 アルゴン/ヘリウム混合プラズマにおける準安定状態アルゴンおよびヘリウム温度の比較
3. 学会等名 第81回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 西山 修輔, 菱田 悠斗, 佐々木 浩一
2. 発表標題 水素原子二段励起レーザー誘起蛍光法における励起スペクトルの検討
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 K. Fushimi, S. Nishiyama, S. Tomioka, K. Sasaki
2. 発表標題 Lamb dip spectrum in cavity ringdown spectroscopy at Balmer- line of atomic hydrogen: toward sheath electric field measurement in plasmas
3. 学会等名 75th Annual Gaseous Electronics Conference (国際学会)
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関