# レーザー誘起プラズマ中の発光分光計測

## **Emission Spectroscopy of the Laser Induced Plasma**

○横田 一平・横田 茂・嶋村 耕平・尾崎 尚人(筑波大)・松井 康平・小紫 公也 (東大)

○Ippei Yokota • Sigeru Yokota • Kohei Shimamura • Naoto ozaki(The University of Tsukuba) • Kohei Matsui • Kimiya Komurasaki (The University of Tokyo)

#### **Abstract**(概要)

In this study, we evaluated the temporal behavior of the laser induced plasma in air. And focused on the continuum spectra from the plasma. To observe the expansion of laser induced plasma and the shock wave, the shadowgraph method was used. And measured the time when the plasma and the shock wave was separated. Next, the spectroscopic measurement was made by changing the delay time from the plasma was generated. The delay time was determined from the shadowgraph images. To estimate the ingredients of continuum spectra, the date obtained from spectroscopic measurements was used, the temporal behavior of the ratio of the energy loss from the bremsstrahlung and the recombination radiation was calculated. As the result, the energy loss from recombination radiation was much higher than from the bremsstrahlung in all delay times, and the ratio that the bremsstrahlung ingredient decrease with time. It implied that the ingredient of continuum spectra was mainly occupied by the recombination.

#### 記号の説明

- ハロゲンランプの放射強度の測定値  $m_{1}$ 発光分光法で得られたスペクトルデータ  $m_2$ : 絶対強度校正時の露光時間 tı: tz: 発光分光測定時の露光時間  $R(\lambda)$ : 光拡散板の反射率  $E(\lambda)$ : ハロゲンランプの放射輝度データ 絶対強度校正後のスペクトルデータ Ac: *ε*: 放出係数 *λ*: 波長 Λλ: 半値全幅 Ac: 線スペクトルの中心波長 アインシュタイン係数 A: 多重度  $g_i$ : Ek: 励起エネルギー k: ボルツマン定数 電子温度 T: 任意の定数 K: イオン拡がりパラメータ  $\alpha$ : 電子衝突パラメータ w: 電子密度 Ne: N: 中性粒子密度 電離エネルギー E:
  - E<sub>∞</sub>: 窒素の第一位イオン化エネルギー

- zi: 中性粒子の状態和
- z2: 一価電離イオンの状態和
- Pff: 制動放射によるエネルギー損失
- P<sub>b</sub> 再結合放射によるエネルギー損失

#### 1. 序論

大気吸込み型レーザー推進という次世代のロケットの推進 方式がある.これは大気を燃料の代わりにするというもので、 この方式では理論上は人工衛星などの打上げに必要となる燃 料をなくすことができるという利点がある。この方式が実用 化されれば今よりも低コストで人工衛星を打上げられるよう になると考えられる.しかし実用化はまだされていない.

このレーザービームの推力へのエネルギー変換の原理を理 解するためには、レーザープラズマ発生直後のレーザープラ ズマの特性と衝撃波伝搬への影響を調べる必要がある.レー ザープラズマの研究は数多くなされているが、その多くがレ ーザー照射後数マイクロ秒経過したあとのプラズマの線スペ クトルを解析したものである.この時間遅れは衝撃波面とプ ラズマ波面が分離したあとに相当するため、この時間遅れで のレーザープラズマは推力に影響を及ぼさない.また線スペ クトルの解析のみではプラズマの電子温度や電子密度を求め ることはできるが、それがどのような過程によって発生した ものなのかを理解することは困難である.



Figure 2. Plasma emission spectra at the instants of time t = 2 (1), 10 (2), 50 (3), and 200 ns (4) after the breakdown onset.

図 1-1 レーザー照射直後のスペクトル 1)

また Bukin らによって<sup>1)</sup>レーザー照射直後の時間遅れでは 図 1-1 に示すように線スペクトルがほとんど観測されず,プ ラズマが光学的に厚いことによる黒体放射に似た連続スペク トルが発生することが確認されている.また電離度が低いこ とによる窒素分子のスペクトルが発生していることも確認さ れている.このため連続スペクトルを解析する必要があると 言える.

本研究の目的は大気吸込み型レーザー推進の実用化に向け た基礎研究として連続スペクトルの成分を評価し、どのよう な過程によってプラズマが膨張していくのかを調べることで ある.

そのためにまずシャドウグラフ法を用いて衝撃波面とプラ ズマ波面が分離する時間遅れを調べた.また同時にどのよう にプラズマと衝撃波面が膨張していくのかについても調べた. そしてそれらをもとにして発光分光測定を行う時間遅れを決 定し,連続スペクトルの成分の時間的変化を評価した.また 得られたデータからどのようにしてプラズマと衝撃波が膨張 していくかを考察した.

### 2. シャドウグラフ測定

#### 2.1 目的および実験方法

本実験の目的は発光分光測定を行う時間遅れを決定する ためのデータを取得することである.そのためにシャドウグ ラフ法を用いてプラズマ波面と衝撃波面を可視化し,発達の 時間的発達を調査した.

#### 2.2 光学系および実験装置

図 2-1 に示す光学系を用いてシャドウグラフ写真を撮影した.

この光学系ではコリメーターによって広げられたプローブ レーザーを焦点距離 500 mm の平凸レンズによって平行光に している.この平行光になっている部分にターゲットを置き そこでプラズマを発生させる.発生したレーザープラズマと 衝撃波によって平行光が乱され、その乱れ方からレーザープ ラズマと衝撃波面の様子を可視化できる. ピンホールとバン ドパスフィルタを焦点距離 250 mm のレンズの焦点の位置に 置くことによってプローブ光以外の光がハイスピードカメラ に入らないようにしてある.

ターゲットにはアルミニウム製の板を使用し, 焦点距離 140 mm の非軸パラボラミラーを用いて CO<sub>2</sub> レーザーをターゲット上に集光した. 使用した CO<sub>2</sub> レーザーと高速度カメラおよびプローブレーザーの諸元を以下に示す. また CO<sub>2</sub> レーザーのビーム形状および波形のグラフも以下に示す.



表 2-2 高速度カメラの諸元<sup>2)</sup>

Model	Instaspec V
CCD	EEV15-11 Asymmetric MPP
Pixel well depth	700000 electrons
Readout register	700000 electrons
Number of pixels	1024×256
Size of pixels	27 [μm]×27 [μm]
Max. image/second	0.15 [Hz]

表 2-1 プローブレーザーの諸元 3)

Model	MGL-FN-532
Wavelength	532±1 [nm]
Operating mode	CW
Output power	>1,5,10,20,,1500 [mW]
Transverse mode	TEM00

表 2-3 CO<sub>2</sub> レーザーの諸元

Model	TEA101	
Beam energy per pulse	4.9 [J]	
Beam shape	35×25 [mm]	

#### サンプル9ポイントで



図 2-2 ビーム形状



図 2-3 レーザー波形

### 2.3 実験条件

カメラの露光時間は 250 ns の条件で各時間遅れごとに一回 ずつ撮影を行った.

また測定した最小の時間遅れは 0.6  $\mu$ s でそこから 6.6  $\mu$ s まで 1.0  $\mu$ s ごとの間隔で撮影を行った. その後 10.6  $\mu$ s 後 まで 2.0  $\mu$ s の間隔で, 10.6  $\mu$ s から先は 25.6  $\mu$ s まで 5.0  $\mu$ s ごとの間隔で撮影を行った.

#### 2.4 実験結果

図 2-4 に一連のシャドウグラフ写真を示す.

この一連のシャドウグラフ写真から時間遅れ 2.0 µs 後ごろ に衝撃波面とプラズマ波面が分離していることがわかる. こ のことからこの CO<sub>2</sub>レーザーによって生る推力は 2.0 µs 後ま でのプラズマの状態によって決まるといえる.



図 2-4 シャドウグラフ写真

またプラズマ発生からの時間遅れが遅くなるにつれて衝撃 波およびプラズマ波面の膨張速度が小さくなっていっている ことがわかる.

次に最も推力の発生に寄与するであると考えられるレーザ ープラズマ発生直後の時間遅れに対して発光分光測定を行っ た.またプラズマの状態の時間的変化を評価するために、プ ラズマ波面と衝撃波面が分離した後のプラズマが推力に影響 しない時間遅れでのプラズマの状態も調査した.

#### 3. 発光分光計測

#### 3.1 実験目的および実験方法

本実験の目的は発光分光法を用いてレーザープラズマの連 続スペクトルを観測し、その成分の時間的変化からどのよう にしてレーザープラズマが膨張していくのかを調べ、そこか ら間接的にどのようにして推力が発生するのかを予測するこ とである.

そのためにレーザープラズマ発生直後とレーザープラズマ と衝撃波面が分離したあとの時間遅れでのスペクトルを観測 する.連続スペクトルを制動放射の式などでフィッティング できるようにするために得られたスペクトルデータに対して 絶対強度校正を行った.また線スペクトルから電子温度・密 度の算出も行った.

#### 3.2 光学系および実験装置

図 3-1 に発光分光計測で使用した光学系を示す. パラボラ ミラーおよび CO<sub>2</sub> レーザーはシャドウグラフ実験で用いたも のと同じものを使用した. ターゲットの板にはステンレス性 の板を使用し, レーザー光軸に対して 45°の角度をつけて置 かれている.またレーザープラズマから発生した光は直径 100 mm,焦点距離 150 mm と焦点距離 200 mm の平凸レンズに よって分光器に集光している.また表 3-1 に使用した分光器 の諸元を示す.

発光分光計測で得られたスペクトルデータに対して絶対強

度校正を行った.そのときに使用した光学系を図 3-2 に示す. 今回はハロゲンランプを標準光源として使用した.

与えられているハロゲンランプの放射輝度が 500 mm 離れ た点での放射輝度のため光反射板とハロゲンランプの距離が ちょうど 500 mm になるようにした.光反射板の中心は図 3-1 でレーザープラズマが着火していた点と同じ位置にしてあ り,その点に垂直にハロゲンランプからの光が入射するよう にしてある.また光反射板からの放射以外の光が分光器に入 ることを防ぐために測定中は部屋を暗くし,またハロゲンラ ンプから直接分光器に光が入射することを防ぐためハロゲン ランプから光反射板までの間の光路に光が出ていくのを防ぐ ためにカバーを付けている.この実験系で得られたデータ と比較することによって絶対強度校正を行った.使用した光 拡散板とハロゲンランプの性能を以下に示す.



図 3-1 発光分光計測時の光学系







#### 図 3-3 光拡散板の性能 4)



図 3-4 ハロゲンランプの性能 5)

- 衣 3-1 万 儿谷の/注
-----------------

Model	PMA50
Grathing	4.9 [J]
Wavelength resolution	35×25 [mm]

### 3.3 実験条件

まず波長領域 380-468 nm,449-533 nm の 2 つの領域に対し て発光分光計測を行った.468-449 nm の部分がオーバーラ ップしているのは分光器の素子の感度が経年劣化などにより 低下していて,その領域をカバーするためである.測定した 時間遅れはプラズマ発生直後の時間遅れである 780 ns とプ ラズマ波面と衝撃波面が分離したあとの時間遅れである 6.0 µs である.また露光時間は 132 ns で測定を行った.また誤 差をなくすために各 20 回ずつ測定を行い,明らかにずれて いるデータを消し、その平均値を取った.

次に発光分光計測で計測したものと同じ波長領域に対して, 絶対強度校正用のデータの計測を行った.露光時間は14sで 行い20回ずつ測定を行ってその平均値を取った.

#### 3.4 実験結果

図 3-5 に発光分光計測で得られたスペクトルデータを示す. また図 3-6 にハロゲンランプの測定値のグラフを示す. なお どちらも縦軸は相対値である.

ここで光学系や分光器そのものによる測定値への影響が一 定だと仮定し,その値を定数 c とする.このとき測定値と真値 の間には以下の 2 つの式の関係がある.

$m_1 = c \times R(t) \times E(\lambda) \times t_1$	(3.1)
$m_2 = c \times A \times t_2$	(3.2)

これらの式から次の絶対強度校正の式が得られる. A=

$$\frac{R(t)}{\pi} \times \frac{m_2}{m_1} \times \frac{t_1}{t_2} \times E(\lambda)$$
(3.3)

この式を用いて絶対強度校正を行った. その結果を図 3-7

に示す.





図 3-6 ハロゲンランプの強度の測定値

このグラフに現れているほぼすべてのスペクトルが窒素の一 価電離イオン線である NII線である.またこのグラフから短 波長領域に行くに従って連続スペクトルの強度が強くなって いることがわかる. そして波長 430 nm 付近よりも長波長領 域では連続スペクトルの強度の変化がほぼ見られなくなって いるという傾向があることがわかる.

#### 3.5 線スペクトルのフィッティング

線スペクトルのプロファイルはガウス関数で表される成分 とローレンツ関数で表される成分の2つから構成されている. ここで半値全幅について考える. ガウス関数で表される成分 は基本的には原子の運動によって生じるドップラー幅のみで ある.このドップラー幅の式のを以下に示す.

$$\Delta \lambda = 7.16 \times 10^{-7} \times \lambda_0 \times \sqrt{\frac{T}{A}} \qquad (3.4)$$

ここで例として中心波長 504 nm,電子温度 30000 K,原子量 14 の窒素の一価電離イオン線のドップラー幅を計算すると

#### $\Delta\lambda \approx 0.0167 \text{ [nm]}$ (3.5)

ここで全成分を含めた半値幅の値が 0.5 nm 以上あることを 考えると、ドップラー成分が半値幅全体に対して占める割合 は3%ほどになることがわかる.そのため本実験での線スペ クトルはガウス関数成分がほぼ無視できるといえる. そのた め今回は簡略化のためにローレンツ関数とガウス関数を畳み 込んだ関数であるフォークト関数ではなくローレンツ関数を 用いて線スペクトルのフィッティングを行った.



図 3-7 絶対強度校正後のスペクトル

線スペクトル同士による相互作用によって見かけ上の連続 スペクトルの強度や形状が大きく変わることはほぼない. そ のため単一もしくはひとかたまりの線スペクトルの左右の裾 の部分が連続スペクトルの強度と等しいと仮定し、連続スペ クトル成分と思われる部分を減算してからフィッティングを 行った.

#### 3.6 電子温度算出

次にボルツマンプロット法を用いて電子温度の算出を行っ た. 式(4.6) がボルツマンプロットの式 6である.

$$\ln \frac{\varepsilon \lambda}{Ag_i} = -\frac{E_k}{kT} + lnK \qquad (3.6)$$

ボルツマンプロット法では線スペクトルの面積を放出係数 として式(4.6)の右辺を縦軸,励起エネルギーを横軸としてプ ロットを行う. このプロットした点同士の近似直線の傾きか ら電子温度を算出することができる.図 3-8 にプロットした 結果と算出された電子温度を示す. またこのプロットの線形 性を調べるためにプロットした点の縦軸の値と励起エネルギ ーとの間の相関係数を求めた.

求めた相関係数を表 3-2 に示す.相関係数とは-1 から+1 の 間の値を取る無次元量で、2 つの確率変数の間の相関関係の 強さを測る指標である.相関係数の絶対値が 0.7 を超えてい れば強い相関があるといえる.



図 3-8 ボルツマンプロット結果

表 3-2	相関係数
時間遅れ [µs]	相関係数
0.78	-0.9286
6.0	-0.8797

相関係数の値からこのプロットは強い負の線形性を持って いるといえる.このことから算出された電子温度は妥当なも のであるといえる.また電子温度が時間とともに減少してい くことがわかる.

#### 3.6 電子密度および電離度の算出

線スペクトルの半値幅成分のシュタルク成分から電子密 度の算出を行った. ローレンツ幅の中にはシュタルク幅以外 にも粒子同士の衝突によって生じる衝突幅や励起された粒子 が脱励起されることによって生じる自然幅等がある. 簡略化 のために今回はシュタルク幅以外の成分が無視できるという 仮定を置いた. 式(3.7)がシュタルク幅の式<sup>7)</sup>である. 式(3.7) から電子密度を逆算した. この式の物理量 a,w の値は Greim らのもの <sup>90</sup>を使用した. ローレンツ幅と算出された電子密度 および電離度を表 3-3 に示す.

$$\Delta\lambda_s = 2\left[1 + 1.75 \times 10^{-4} N e^{\frac{1}{4}} \alpha (1 - 0.068 N e^{\frac{1}{6}} T^{-\frac{1}{2}})\right] N e \times w \times 10^{-16}$$
(3.7)

また算出された電子温度・密度からサハの電離式を用いて電 離度も求めた.式(3.8)がサハの電離式である.

$$\frac{N_e^2}{N} = 2\frac{z_1}{z_0} \frac{(2\pi m_e kT)^{\frac{3}{2}}}{h^3} \exp\left(-\frac{E}{kT}\right) \quad (3.8)$$

プラズマ中のイオンや原子は周囲の荷電粒子が作る電場の 影響を受ける.そのため式 (3.8)中の電離エネルギーE はプ ラズマ中では孤立原子の値から低下する.また文献  $^{9}$ より  $E_{\infty} \gg kT$ のとき状態和の比を1と近似できることが示されて いる.これらのことを考慮すると式 (3.8)は以下の形になる.

$$\frac{N_e^2}{N} = 2 \frac{(2\pi m_e kT)^{\frac{3}{2}}}{h^3} \times \exp\left(-\frac{E_{\infty} - 3.3486 \times 10^{-30} \sqrt{\frac{N_e}{T}}}{kT}\right) \quad (3.9)$$

この結果から電子密度も電子温度と同じく時間とともに減 少していくが、完全電離プラズマであるとみなすことができ ることがわかる.

表 3-3	電子密度および電離度の時間変化
-------	-----------------

時間遅れ [µs]	電子密度 [m-3]	電離度
0.78	$4.40 \times 10^{24}$	1.00
6.0	$2.60 \times 10^{24}$	1.00

#### 3.7 連続スペクトルの成分の推定

連続スペクトルには2つの成分がある.電子の軌道がプラ ズマ中のイオンの原子核によって曲げられることによって生 じる制動放射と,電子とイオンが結合するときに電子が持っ ていた運動エネルギーとイオンの持っていた電離エネルギー を光子として放出する再結合放射の2つである.本研究では これらの過程によるプラズマからのエネルギーの散逸の割合 から全体としての連続スペクトルの成分の比率を評価した.

制動放射によるプラズマからのエネルギーの散逸は以下の式で表せられる<sup>10</sup>.

$$P_{ff} \approx \frac{64}{3} \left(\frac{\pi}{3}\right)^{\frac{1}{2}} (\alpha a_0)^3 \left(\frac{kT}{E_H}\right)^{\frac{1}{2}} \frac{E_H^2}{h} z^2 N_e N_i \qquad (3.10)$$

また再結合放射によるプラズマからのエネルギーの散逸は以下の式で表せられる<sup>10</sup>.

$$P_{fb} \approx \frac{64}{3} \left(\frac{\pi}{3}\right)^{\frac{1}{2}} (\alpha a_0)^3 \left(\frac{E_H}{kT}\right)^{\frac{1}{2}} \frac{E_H E_{\infty}}{h} z^2 N_e N_i \quad (3.11)$$

この2式の比をRと定義する.

$$R = \frac{P_{fb}}{P_{ff}} = \frac{E_{\infty}}{kT}$$
(3.12)

式(4.10)から制動放射成分が占める割合は以下の式で表せられる.

$$\frac{1}{1+R} \tag{4.13}$$

表 3-4 に各時間遅れでの制動放射成分の値の時間変化を示 す.この表から時間経過とともに制動放射成分が減少してい くことがわかる.また連続スペクトルの成分のうち再結合放 射成分が主体的であるといえる

#### 4. 考察

全体としての連続スペクトルの強度自体が減少していて、制

#### サンプル9ポイントで

動放射成分が再結合成分よりも減少した割合が大きくなって いる.これは制動放射によって放出されるエネルギーは電子 の温度や密度に依存しているが、それに対して再結合放射に より放出されるエネルギーは電子の温度・密度だけでなく衝 突した先のイオンの電離エネルギーによっても決まる.時間 変化とともに電子温度・密度が減少するが、イオンの電離エ ネルギーは大きく減少することはない.

表 3-4	制動放射成分が占める割合の時間変化
公 0 4	· 刑判规划规划和口约公司口"2时间发行

時間遅れ [µs]	制動放射が占める割合 [%]
0.78	19.2
6.0	10.6

そのため結果として再結合放射の減少分が減りこのような 結果になっているのだと考えられる

レーザープラズマの膨張には、プラズマ中の輻射により電 子が加速されることによるものと、粒子自体の運動による電 子拡散によるものの2つの要因がある.時間経過とともに全 体としての連続スペクトル成分の強度が初期のものと比較し ておよそ77%まで減少し、電子密度も減少していってい

る.またシャドウグラフ写真から時間経過とともにプラズマ 波面の膨張速度が減少していることがわかるが、これは輻射 が減少したため輻射による粒子の加速が起こりにくくなり、 その結果として波面の膨張速度が減少したためであると考え られる.

ここで全体として再結合放射による成分が連続スペクトル 中で主体的であり、かつ推力の発生に影響を及ぼしているで あると考えられるプラズマ発生直後の時間領域では制動放射 成分も20%近くあることを考える.このとき大気に電離エ ネルギーが高く原子番号が大きい物質(Ar等)を混ぜれば より強い輻射が得られ,それによって発生する推力を増加さ せられることが考えられる.

#### 参考文献

1) O.A. Bukin, A.A. Il'in, Yu.N., Kul'chin, I.G. Nagornyi, A.N. Pavlov, A.V. Bulanov, 「Interaction of laser plasmas upon optical breakdown in the normal atmosphere」, Quantum Electronics 36(6) pp553-556, 2006

2) Oriel INSTRUMENTS, 「Intstruction Manual for InstaSpec V ICCD Detector Model 77193-5」

3) Changchun New Industries Optoelectronics Technology, <sup>[Date SHEET of MGL-FN-532]</sup>

5) Gooch & Housego、「Report of calibration for One Standard of Spectral Irradiance OL245M,Project No : 917-324」、2015

山本学,村山精一、「プラズマの分光計測」、学会出版センター、2002

7) 安藤剛三、「プラズマ中のスペクトル線の形」、分光研究、 1968

 A.von ENGEL 著、山本賢三,奥田考美共訳、「電離気体」、 コロナ社、1977

9) Hans R. Griem, <sup>[</sup>Plasma Spectroscopy], McGraw-Hill, 1964

10) Hans R. Griem , <sup>↑</sup> Principles of Plasma Spectroscopy J, Cambridge University Press, 1997