プラズマの分光学的計測法[†]

正会員 村山 精一*

1. ま え が き

プラズマの分光学的計測法は、プラズマの温度、粒子密度などを非接触で測定できる点に特徴がある。プラズマから放射される光を利用する方法と、プラズマの外部からレーザー光などを照射して、その入射光の吸収、散乱を利用する方法がある。ここでは、まず2章でプラズマ中の放射過程に関する基礎的事項について述べ、3章で個々の測定法の原理について述べる。紙面の都合で具体例は文献を挙げるに止める。表1に代表的な分光学的測定法を纏めて示しておく。表には、本報では取り扱っていない測定法も含まれているが、それらについては、文献(1)などを参照されたい。なお、本章では、「光」という用語は可視光のみでなく、紫外放射、赤外放射を含む放射を意味するものとする。また、本章の内容の詳細については文献(1-3)などを参照されたい。

2. プラズマ中の放射過程

2.1 遷移確率

図1に三つの放射過程を示す。(a)は自然放出過程と呼ぶ。上準位2に励起されている原子が単位時間にある一定の確率で下準位1に遷移するものである。このとき、上準位2のエネルギーを E_2 、下準位1のエネルギーを E_1 とすると、

$$h\nu_{21} = E_2 - E_1 \quad (1)$$

を満たす振動数 ν_{21} を持った光子が放出される。なお、 h はプランクの定数である。(b)は誘導放出過程と呼ばれる。上準位2に励起されている原子に、式(1)を満たす振動数の光が入射したとき、励起原子がこの入射光に誘導されて、入射光と同じ振動数で等しい位相の光を放出し、下準位1に遷移する過程である。(c)は吸収過程と呼ばれる。下準位1にある原子に式(1)を満たす振動数の光が入射したとき、原子がこの振動数の光を吸収した上準位2に励起される過程である。

上準位2に励起されている原子が自然放出過程により下準位1に単位時間に遷移する確率 A_{21} [s^{-1}]をアインシュタインのA係数と呼ぶ。いま、振動数が ν と $\nu + \Delta\nu$ の間の光のエネルギー密度を $u(\nu)\Delta\nu$ [$J \cdot m^{-3}$]と書くことにす

表1 代表的な分光学的計測方法

測定方法	測定対象	章、節
原子スペクトルの絶対強度	励起原子密度	3.1
	温度	3.1
原子スペクトルの相対強度	温度	3.1
分子スペクトルの相対強度	振動温度	—
	回転温度	—
連続スペクトルの絶対強度	電子温度	*
連続スペクトル強度波長分布	電子温度	*
スペクトル線の吸収法	下準位の密度	3.2
蛍光光	下準位の密度	—
H β 線のプロファイル	電子密度	2.2
スペクトル線のシュタルク幅	電子密度	*
スペクトル線のドプラー幅	温度	*
バーテルズの方法	温度	*
トムソン散乱の強度	電子密度	3.3
トムソン散乱半値幅	電子温度	—
ラマン散乱の強度	粒子密度	3.3
スペクトル線反転法	温度	—

*本特集の「ランプ・プラズマのその他の計測法」を参照のこと。

図1 三つの放射過程

Fig.1 Three radiation Processes

る。振動数が式(1)を満たす ν_{21} で、エネルギー密度 $u(\nu_{21})$ [$J \cdot m^{-3} \cdot s$]の放射場の中に上準位2に励起されている原子があるとき、単位時間に誘導放出過程によって上準位2から下準位1に遷移する確率は $u(\nu_{21})$ に比例し、 $u(\nu_{21})B_{21}$ で与えられる。その比例定数 B_{21} [$m^3 \cdot J^{-1} \cdot s^{-2}$]をアインシュタインのB係数と呼ぶ。吸収は誘導放出の逆過程で、単位時間に吸収過程によって準位1から準位2に励起される

[†] Spectroscopic Measurement Methods of Plasmas

*神奈川工科大学 Seichi Murayama

確率は、同様にアインシュタインのB係数を用いて $u(\nu_{21})$ B_{12} と書ける。 B_{21} と B_{12} の関係は、

$$g_2 B_{21} = g_1 B_{12} \quad (2)$$

である。ここで、 g_i ($i=1,2$) は準位 i の多重度と呼ばれ、準位 i に属する量子力学的状態の数である。また、A係数とB係数の関係は、

$$\begin{aligned} A_{21} &= (8\pi h \nu_{21}^3 / c^3) B_{21} \\ &= (8\pi h \nu_{21}^3 / c^3) (g_1 / g_2) B_{12} \end{aligned} \quad (3)$$

である。

2.2 スペクトル線のプロファイル

前述のように、図1の遷移過程で放出される光は特定の振動数 ν_{21} を持っている。この光を分光して詳しく調べると、振動数にある幅があることが判る。つまり、検出器に入射する分光放射束は、極く狭い振動数の範囲内で変化している。この分光分布をプロファイルと呼んでいる。

プロファイルの極大値の半分になる二点間の間隔を、半値全幅 (FWHM=Full Width at Half Maximum) と呼び、その半分を半値半幅 (HWHM=Half Width at Half Maximum) という。

(a) 自然幅

自然放出過程のため励起原子に寿命があることに伴って広がり (natural broadening) が生じる。この広がり幅、すなわち自然幅 (natural width) は自然放出係数 (A係数) によって決まり、そのプロファイルと半値全幅は次のように表される。

$$P(\nu) = (\Delta \nu_L / \pi) / [(\nu - \nu_{21})^2 + (\Delta \nu_L)^2] \quad (4)$$

$$\Delta \nu_{FWHM} = 2\Delta \nu_L = A / (2\pi) \quad (5)$$

このプロファイルをローレンツ形プロファイル、または、分散形プロファイルと呼ぶ。A係数は 10^8 [s^{-1}] の桁であるから、自然幅の半値全幅は 10 [MHz] の桁である。したがって、通常の実験室プラズマ中では、自然幅は後述の衝突広がりやドップラー広がり比べて小さい。ここで、示したプロファイル $P(\nu)$ は規格化プロファイルと呼ばれ、

$$\int_0^\infty P(\nu) d\nu = 1 \quad (6)$$

の関係が成立する。

(b) 衝突広がり

一般に、衝突により原子状態が乱されることが原因で生じるスペクトル線の広がりを、衝突広がり (collision broadening) と呼ぶ。また、広がり幅が圧力に依存するため、圧力広がりと呼ぶこともある。

励起原子が、それと同種の基底状態原子と衝突する場合、特に大きな広がりを示す。この広がりを共鳴広がりと呼ぶ。共鳴広がりプロファイルはローレンツ形である。また、電子やイオンのような荷電粒子による圧力広がりをシュタルク広がりと呼ぶ。水素原子では一次のシュタルク効果があり、広がりには特に大きい。(水素原子以外では2次のシュタルク効果しか起こらない。)

そのため、水素の $H\beta$ 線は電子密度の測定によく利用される^(1,4)。重水素放電管についての測定例では、装置関数の半値幅 0.0039nm で、 $(1.6-5.0) \times 10^{23}\text{m}^{-3}$ 程度の電子密度を測定している⁽⁵⁾。二次のシュタルク広がりには、ほぼローレンツ形で、広がり他に中心波長のシフトも生じる。

(c) ドップラー広がり

静止している原子から放射される光の振動数を ν_0 とする。この原子が ν_z の速さで運動している時、その運動方向に放出される光の振動数 ν_v は、

$$\nu_v = \nu_0 (1 + \nu_z / c) \quad (7)$$

となる。ここで c は光速である。この現象をドップラー (Doppler) 効果という。もし、光を放出する原子がマクスウェルの速度分布をしているとすると、スペクトル線のプロファイルは、

$$P(\nu) = [1 / (\pi^{1/2} \Delta \nu_D)] \exp [-(\nu - \nu_0)^2 / \Delta \nu_D^2] \quad (8)$$

$$\Delta \nu_D = (\nu_0 / c) (2kT / M_A)^{1/2} \quad (9)$$

となる。ここで、 M_A は光を放出する原子の質量、 k はボルツマン定数、 T は温度である。このプロファイルはガウス形と呼ばれる。その半値全幅は次式で表される。

$$\Delta \nu_{FWHM} = 7.16 \times 10^{-7} \nu_0 \times (T [\text{K}] / A)^{1/2} [\text{Hz}] \quad (10)$$

$$\Delta \lambda_{FWHM} = 7.16 \times 10^{-7} \lambda_0 \times (T [\text{K}] / A)^{1/2} \quad (11)$$

ここで、 A は原子の原子量である。

もしスペクトル線の広がりがドップラー効果のみによるものであれば、その半値全幅を測定することによって、式(10)、(11)から気体の温度を知ることができる。ランプ・プラズマの場合、ドップラー広がり以外の原因による広がりが共存するので、次項のコンボリューションの結果が測定されたプロファイルに一致するように各種広がり半値幅を決定する必要がある。

(d) コンボリューションによるプロファイルの形成

プラズマ中でのスペクトル線の広がりは、多くの場合、二種類以上の原因による広がりが重なっている。いま、共通の中心振動数 ν_0 を有する二種類の広がり $P_1(\nu)$ と $P_2(\nu)$ が重なっているとすると、両者を合成したスペクトル線のプロファイル $P(\nu)$ は、コンボリューション (convolution, たみ込み積分)

$$P(\nu) = \int_0^\infty P_1(\nu') P_2(\nu + \nu_0 - \nu') d\nu' \quad (12)$$

で表わされる。例えばドップラー効果によるガウス形の広がり、自然放出および衝突によるローレンツ形の広がり、殆ど常に共存する。この二つの合成プロファイルをフォークト・プロファイルと言う。

通常、スペクトル線の波長は原子核の質量に僅かに依存している。質量の違いによる波長のシフトを同位体シフトと呼んでいる。同位体シフトのため、複数の同位体を持った元素では、1本の線スペクトルは少しずつ波長の異なる

複数の線の集合となっている。さらに、質量数が奇数の同位元素では、電子の角運動量 J と核スピン I の相互作用により、合成角運動量 F の異なる複数の準位に分かれる。そのため、質量数が奇数の同位元素の 1 本の線スペクトルは複数の線の集合となっている。これを超微細構造と呼んでいる。以上述べた、同位体シフトと超微細構造によりスペクトル線形は極めて複雑な形をしている。

スペクトル線プロファイルの測定には、高分解能の分光器やファブリー・ペローのエタロンを用いるか、被測定スペクトル線幅に比べ十分細い線幅を持った可変波長レーザによる吸収測定が利用される。いずれにせよ、プロファイルを正確に決定するには、測定装置の分解能を表す装置関数を正確に知る必要がある。何故なら、観測されるプロファイルは、2 種類の広がり の合成の場合と同様に、真のスペクトル線のプロファイルと装置関数のコンボリューションとなるからである。

2.3 放出係数と吸収係数

プラズマの放射特性を表す重要な二つの物理量がある。それは、放出係数と吸収係数である。いま、上準位 2 に存在する原子の密度を N_2 とすると、単位体積、単位時間あたり、上準位 2 から下準位 1 への自然放出遷移の数は $A_{21}N_2$ である。したがって単位体積、単位時間あたりに放出される光のエネルギーは $A_{21}N_2h\nu_{21}$ となる。自然放出の場合、光は等方的に放出されるので、単位体積、単位時間、単位立体角あたりに放出される光のエネルギー ϵ は

$$\epsilon = (1/4\pi)A_{21}N_2h\nu_{21} \quad [W \cdot m^{-3} \cdot sr^{-1}] \quad (13)$$

である。この ϵ をプラズマの放出係数と呼ぶ。したがってスペクトル線の規格化プロファイルを $P(\nu)$ で表すと、振動数が ν における単位振動数幅当りの分光放出係数 $\epsilon(\nu)$ は次のように表される。

$$\epsilon(\nu) = (1/4\pi)A_{21}N_2h\nu_{21}P(\nu) \quad [W \cdot m^{-3} \cdot sr^{-1} \cdot s] \quad (14)$$

放出係数と並んで重要な量は、光子がプラズマの単位長さを進む間に吸収を受ける確率を表す吸収係数 $\kappa(\nu)$ である。吸収係数 $\kappa(\nu)$ とアインシュタインの B 係数の関係は、

$$\kappa(\nu) = \{ (h\nu/c) [B_{12}N_1 - B_{21}N_2] \} P(\nu) \quad (15)$$

で与えられる。 $N_1 \gg N_2$ が成立する場合、式(15)を振動数で積分して次式が得られる。

$$\int_{\text{line}} \kappa(\nu) d\nu = (h\nu_0/c) B_{12}N_1 \quad (16)$$

2.4 プラズマ中の放射伝達

よく知られているように、光の放出や吸収が無い限り放射輝度は保存される。したがって、プラズマ中の位置 x において、 x 軸方向に伝播する振動数 ν と $\nu + d\nu$ の間の分光放射輝度を $L(\nu, x)d\nu$ とすると、分光放射輝度の増加分は放出と吸収の差になるので、

$$dL(\nu, x)/dx = \epsilon(\nu, x) - \kappa(\nu, x)L(\nu, x) \quad (17)$$

が成立する。ここでは簡単な例として、 x 方向の厚みが d の一様なプラズマを考える。このプラズマの内部では、 ϵ と κ は x に依らず一定であるから、これらを $\epsilon(\nu)$ 、 $\kappa(\nu)$ と書く。プラズマの外部からプラズマに振動数 ν の光が入射するとし、この光の入射位置 $x = 0$ における分光放射輝度を $L(\nu, 0)$ とすると、式(17)の解は、 $z = d$ において、

$$L(\nu, d) = L(\nu, 0) \exp [-\kappa(\nu)d] + [\epsilon(\nu)/\kappa(\nu)] \{1 - \exp [-\kappa(\nu)d]\} \quad (18)$$

となる。

$[\epsilon(\nu)/\kappa(\nu)]$ は源泉関数 (source function) $S(\nu)$ と呼ばれ、プラズマの光学的な特性を表す重要な量である。熱平衡が成り立っている時は、源泉関数は次式の黒体の分光放射輝度に等しくなる。

$$S(\nu) = \epsilon(\nu)/\kappa(\nu) = (2h\nu^3/c^2) / \{ \exp [h\nu/(kT)] - 1 \} \quad (19)$$

これをキルヒホフ (Kirchhoff) の法則という。

式(18)の指数関数の中の $\kappa(\nu)d$ は、振動数 ν の光に対するプラズマの光学的厚みと呼ばれる。 $\kappa(\nu)d \ll 1$ が成立すると、プラズマ中での吸収が無視できる。この様なプラズマを振動数 ν の光に対して光学的に薄いと言う。逆に、 $\kappa(\nu)d \gg 1$ の場合、プラズマは振動数 ν の光に対して光学的に厚いと言う。

2.5 光の散乱

光が物質に入射したとき、光の振動数、進行方向、偏光状態が変化する現象を光の散乱と呼ぶ。(したがって、吸収も広義の散乱現象である。)電荷を持った粒子に電磁波が照射すると、その粒子は電磁波の電場から力を受け、加速度を持つことになる。荷電粒子が加速度を持って運動するとき、電磁波を放射することが知られているが、上記の入射電磁波によって引き起こされる加速度運動により放射される光が散乱光である。

図2 散乱過程とエネルギー準位
Fig.2 Scattering processes and relevant energy levels

入射する電磁波が光の場合は、振動の周波数は 10^{14} [Hz] の桁で極めて大きいので、原子核のような質量の大きい荷電粒子は光の電場の変化に追従できない。質量の軽い電子のみが光の散乱に寄与する。後述するレイリー散乱やラマン散乱は、原子や分子による散乱であるが、実は、原子核の周りに存在する電子が散乱に寄与する。

光の散乱には、散乱の前後で光子のエネルギー $h\nu$ が変化しない弾性散乱と変化する非弾性散乱がある。前者では、電子と光子は運動量を交換するだけで、エネルギーの交換はない。後者は、光子と電子との間にエネルギーのやり取りがある。トムソン散乱、レイリー散乱は弾性散乱で、ラマン散乱やコンプトン散乱は非弾性散乱である。図2は、これらの散乱を原子のエネルギー準位図で模式的に示したものである。光の散乱は、吸収や蛍光などと異なり、入射光の振動数が任意の値で起こる。

図3に示すように、原点Oに散乱を引き起こす電子があり、入射光はx軸方向に進行する平行ビームとし、その偏光方向（電場の方向）をz軸方向に取る。入射光の電場Eの複素数表示を、

$$E = E_0 \exp(i\omega t) \quad (20)$$

で表す。このとき、単位面積当たり単位時間に入射する光のエネルギー（放射束密度） I_0 [$\text{W} \cdot \text{m}^{-2}$] は、

$$I_0 = \epsilon_0 c |E_0|^2 / 2 \quad (21)$$

と書ける。ここで、 ϵ_0 は真空の誘電率、 c は光速である。

図3に示すように、散乱点から θ, ϕ 方向の距離 r の位置にある点Pでの散乱光の電場を同様に、

$$E = E_s \exp[i(\omega_s t + \phi)] \quad (22)$$

と書くと、この点で単位面積当たり単位時間に通過する散乱光のエネルギー（放射束密度） I_s は、

$$I_s(\theta, \phi) = \epsilon_0 c |E_s|^2 / 2 \quad (23)$$

と書ける。単位時間に散乱される全エネルギーは、

$$\int I_s(\theta, \phi) r^2 d\Omega \quad (24)$$

となる。ここで、 $d\Omega$ は θ, ϕ 方向の微小立体角である。散乱の確率は、全散乱放射束を入射光の放射束密度で割って、

$$\sigma_T = \int [I_s(\theta, \phi) / I_0] r^2 d\Omega \quad (25)$$

と書ける。この σ_T は式(25)から明らかなように面積の次元を持ち、散乱断面積と呼ばれる。(散乱断面積は、入射光子数で全散乱光子数を割ったものとして定義される場合もある。この定義に従えば、式(25)の右辺に (ω / ω_s) を掛ける必要がある。ここでは、文献(6)の定義を採用した。)したがって、 θ, ϕ 方向の単位立体角内に散乱される確率、すなわち、微分散乱断面積は、

$$\begin{aligned} \sigma(\theta, \phi) &= d\sigma_T / d\Omega \\ &= [I_s(\theta, \phi) r^2 / I_0] \end{aligned} \quad (26)$$

となる。

3. 種々の計測法

本章では、比較的光学的に薄いプラズマの測定法について述べる。光学的に厚いプラズマの測定法については、本特集の「ランプ・プラズマのその他の計測法」(P3~4)を

図3 座標系の説明図

Fig.3 Coordinate system for the scattering processes

図4 軸対称プラズマの測定座標系

Fig.4 Coordinate system for the measurement of a coaxial plasma

参照されたい。

3.1 光学的に薄いプラズマの密度測定法

式(13)は、スペクトル線の放出係数を測定できれば、そのスペクトル線の上準位に励起されている原子の密度が求まることを示している。いま、外部からの入射光がなく、プラズマが光学的に十分薄く、吸収が無視できると仮定する。この場合は、振動数が ν と $\nu + d\nu$ の間の光に対する分光放射輝度は、式(17)に於いて $\kappa(\nu) = 0$ と置き、座標系を図4のように取ると、

$$L(y, \nu) d\nu = \int_{-x_m}^{x_m} \epsilon(\nu, x) d\nu dx \quad (27)$$

となる。

図4に示すように、プラズマが軸対称である場合を考える。このとき、 y の位置で x 方向から観測される分光放射輝度 $L(y, \nu)$ をスペクトル線のプロファイルについて積分した放射輝度、すなわち、

$$L(y) = \int_{\text{line}} L(y, \nu) d\nu \quad (28)$$

を測定する。具体的には、分光器のスリット幅を十分大きく取り、受光器上で式(28)の積分を行えばよい。このとき測定される放射輝度は式(27)、(28)から、

$$L(y) = 2 \int_y^R \epsilon(r) r dr / [r^2 - y^2]^{1/2} \quad (29)$$

と書くことができる。ただし、 $\epsilon(r)$ は分光放射輝度をスペクトル線にわたって振動数で積分したものである。式(29)はアーベルの積分方程式と呼ばれ、その解は、

$$\epsilon(r) = -(1/\pi) \int_y^R [dL(y)/dy] / [y^2 - r^2]^{1/2} dy \quad (30)$$

となる。

右辺の計算は、計算機で数値積分を行ってもよいが、例えば、文献(1)などに記載されている表を用いてもよい。 $\epsilon(r)$ が測定できれば式(3)から、 N_2 が求められる。つまり、プラズマの外部のx方向からスペクトル線の放射輝度の絶対値を測定し、それから放出係数 $\epsilon(r)$ を求めれば、準位2に励起されている励起原子の密度の径方向分布 $N_2(r)$ が求まることになる。絶対測定を行うためには、測定系の透過関数を知る必要があり、そのためには分光放射輝度の標準光源を必要とする。

もし、プラズマが熱平衡状態にあれば、

$$N_2 \doteq N_0 (g_2/g_0) \exp [-E_2/(kT)] \quad (31)$$

が成立する。添え字0は基底状態に関する量であることを示す。 N_0 が既知なら、求めた N_2 から式(31)を用いて温度が求まる。

上準位の異なる2本のスペクトル線の放出係数の比を求めれば、

$$(\epsilon_2/\epsilon_1) = (g_2 A_{21} \nu_2 / g_1 A_{11} \nu_1) \times \exp [-(E_2 - E_1)/(kT)] \quad (32)$$

が得られる。ただし、添字の1, 2はそれぞれ1本目および2本目のスペクトル線に対する値を表わし、 g , E の値としては上準位の値を取る。これより温度を決定できる。この方法の利点は、波長が近接している2本のスペクトル線を選択すれば、測定系の分光感度の補正を必要としないことである。注意すべき点は、 $(E_2 - E_1)$ があまり大きくない場合は、測定誤差が大きくなることである。

ここで述べた測定法の実例については例えば文献(4, 7-9)を、その他の発光法についての解説は例えば文献(1)を参照されたい。

3.2 吸収による密度測定

式(6)から判るように、吸収係数は下準位にある原子の密度に比例するから、線スペクトルを用いた吸収測定により下準位の密度が測定できる筈である。いま、プラズマへの入射光があり、プラズマからの放射が無視できる場合を考えよう。この場合、振動数 ν と $\nu + \delta\nu$ の間の光に対する分光放射輝度は、式(8)に於いて $\epsilon(\nu) = 0$ と置いて、

$$L(\nu, d) \delta\nu = L(\nu, 0) \delta\nu \exp [-\kappa(\nu)d] \quad (33)$$

と書ける。振動数について積分すると、

$$\int_{\text{line}} L(\nu, d) \delta\nu = \int_{\text{line}} L(\nu, 0) \exp [-\kappa(\nu)d] \delta\nu$$

となる。このように、測定される透過光の放射輝度は吸収係数に関して複雑な関数形をしている。したがって、入射光のスペクトル・プロファイルとプラズマ中のスペクトル線プロファイルが既知でなければ、吸収測定により粒子密度を求めることはできない。しかし、特殊な条件のもとでは、吸収測定により電子密度を求めることができる。

(1) 入射光の線幅が十分細い場合

入射光の線幅がスペクトル線の線幅に比べて十分細いときは、入射光の中心波長を ν_s とすると、

$$\int_{\text{line}} L(\nu, 0) \exp [-\kappa(\nu)d] \delta\nu = \exp [-\kappa(\nu_s)d] \int_{\text{line}} L(\nu, 0) \delta\nu \quad (35)$$

が成立する。したがって、入射放射束と透過放射束の比の対数は、式(35)から、

$$\ln \left[\int_{\text{line}} L(\nu, d) \delta\nu / \int_{\text{line}} L(\nu, 0) \delta\nu \right] = -\kappa(\nu_s)d = -(h\nu_0/c) B_{12} N_1 P(\nu_s) d \quad (36)$$

となる。入射光の振動数 ν_s を変えることにより $P(\nu_s)$ が決定できるから、この吸収測定により下準位にある原子の密度 N_1 が求められる。既に述べたようにスペクトル線は同位体シフトと超微細構造のため極めて複雑なプロファイルを持っている。文献(10)では、色素レーザーを用い、超微細構造の中の1本が他の線から比較的離れていることを利用し、この離れた線に関して実測プロファイルとフォークト・プロファイルの計算値が一致するように温度を決定し、求めた温度と同位体シフトや超微細構造のデータから複雑な $P(\nu)$ を決定している。

(2) 入射光の線幅が十分広い場合

連続スペクトル光源を用いる場合のように、入射光のスペクトル幅がスペクトル線の線幅に比べて十分広く、かつ、吸収があまり大きくないとする。この場合式(33)から、

$$L(\nu, d) \doteq L(\nu, 0) [1 - \kappa(\nu)d] \quad (37)$$

が成立する。いま、吸収率の分光分布をスペクトル線にわたって振動数で積分したものを W で表すと、

$$W = \int_{\text{line}} \{ [L(\nu, 0) - L(\nu, d)] / L(\nu, 0) \} d\nu. \quad (38)$$

この W は振動数の次元を持っているので、Equivalent Widthと呼ばれる。式(37)(38)から、

$$W = \int_{\text{line}} \kappa(\nu) d\nu = (h\nu_0/c) B_{12} N_1 d \quad (39)$$

が得られる。したがって、 W を測定することにより下準位の密度が求められる。吸収が大きいと W は式(39)のような簡単な式では表せない。しかし、プロファイルが既知なら W と N_1 の関係を求めることができる。この W と N_1 の関係をCurve of Growthと言う。文献(11)では、光源としてキセノンランプを用い、エシエル回析格子を用いたモノクロメータを使って、水銀の励起原子密度とイオン密度を測定して

図5 吸収測定用放電管

A:陽極, K1:第1陰極, K2:第2陰極

Fig.5 Discharge tube for absorption measurement

A: Anode, K1: Cathode 1, K2: Cathode 2

いる。

(3) 測定用光源自身の光を用いる吸収測定法

一般には、プロフィールが既知の適当な吸収測定用光源が無いのが普通である。その様なとき、もしプラズマ中でのスペクトル線のプロフィールが既知であれば、自分自身が放射する光を吸収用光源とする方法がよく用いられる。図5に示すように、二つの全く等しいと考えられる放電管を用い、放電管1のみのときの放射輝度と、放電管1と2が共存するときの放射輝度の両方を測定する。式(18)で $L(\nu, 0) = 0$ と置くと、第1の放電のみによる分光放射輝度は

$$L_1(\nu, d) = [\epsilon(\nu)/\kappa(\nu)] \{1 - \exp[-\kappa(\nu)d]\} \quad (40)$$

で与えられる。同様に、第1、第2の放電の両方が存在する場合に対しては、

$$L_2(\nu, 2d) = [\epsilon(\nu)/\kappa(\nu)] \{1 - \exp[-2\kappa(\nu)d]\} \quad (41)$$

となる。式中の $[\epsilon(\nu)/\kappa(\nu)]$ は波長に対して緩やかに変化する関数であるから、この二式から、測定される放射束 Φ_1 , Φ_2 は、その断面積を S とし、測定される放射束の広がり Ω 、中心波長を ν_0 とすると、それぞれ

$$\begin{aligned} \Phi_1 &= S\Omega [\epsilon(\nu_0)/\kappa(\nu_0)] \int_{\text{line}} \{1 - \exp[-\kappa(\nu)d]\} d\nu \\ \Phi_2 &= S\Omega [\epsilon(\nu_0)/\kappa(\nu_0)] \int_{\text{line}} \{1 - \exp[-2\kappa(\nu)d]\} d\nu \end{aligned} \quad (42)$$

となる。これにより、

$$(\Phi_2 - \Phi_1)/\Phi_1$$

$$= \frac{\int_{\text{line}} \exp[-\kappa(\nu)d] \cdot \{1 - \exp[-\kappa(\nu)d]\} d\nu}{\int_{\text{line}} \{1 - \exp[-\kappa(\nu)d]\} d\nu} \quad (43)$$

が得られる。吸収係数 $\kappa(\nu)$ は式(15), (16)で与えられ、 $P(\nu)$ とアインシュタインのB係数が既知であれば、式(43)の右辺は N_1 のみの関数となる。したがって、右辺をいろいろの N_1 について予め計算しておけば、式(43)の左辺を測定することにより N_1 が求められる。この方法の具体例については、文献(12, 13)を参照されたい。

入射光の放射束密度を大きくしていくと、最初は吸収される光の量は入射光の放射束密度に比例するが、そのうち、入射放射束密度を増しても吸収光量は増加しなくなる。これは、吸収のため上準位 N_2 の密度が増加し、式(15)において $B_{12}N_1 \doteq B_{21}N_2$ となるためである。これを飽和と呼んでいる。飽和吸収量は初期状態の下準位の密度に比例するので、密度測定に利用できる。この方法を飽和レーザー吸収法と呼ぶ^(14,15)。

3.3 散乱による測定法

ここでは、トムソン散乱 (Thomson scattering), レイリー散乱 (Rayleigh scattering), ラマン散乱 (Raman Scattering) を用いた測定法について述べる。なお、座標系としては図6で示したものを使う。

(1) トムソン散乱

トムソン散乱は自由電子による散乱である。トムソン散乱の微分散乱断面積 $\sigma(\theta)$ は、

$$\sigma(\theta) = r_0^2 \sin^2(\theta) \quad (44)$$

となる。ここで、 r_0 は古典的電子半径で、

$$r_0 = e^2 / (4\pi\epsilon_0 mc^2) = 2.818 \times 10^{-15} \text{ [m]} \quad (45)$$

である。入射光が無偏光の場合は、 θ について平均して、全立体角について積分すると、散乱の全断面積 σ_T は、

$$\sigma_T = (8\pi/3) r_0^2 \quad (46)$$

となる。

個々の電子が独立に運動すると考えられるときは、沢山の電子による単位体積当たりの散乱断面積は式(44), (46)の n_e (電子密度) 倍となる。したがって、散乱光強度を測定することにより、電子密度を求めることができる。

(2) レイリー散乱とラマン散乱

原子 (または、分子) による散乱現象を古典的に説明することは難しい。原子と放射場の相互作用により、入射光子一個が消滅し、新たに散乱光子が一個発生する。そのとき、入射光子の角周波数を ω とすると、散乱光子の角周波数は、 ω , $\omega - \omega_i$, $\omega + \omega_i$ の三つの角周波数成分からなる。 ω_i は原子 (分子) 固有の角周波数である。第1の成分がレイリー散乱、第2、第3成分がラマン散乱である。ラマン

図6 散乱実験の座標系

Fig.6 Coordinate system for the experiments of light scattering

散乱のうち、第2成分は、散乱光の周波数が入射光のそれより低い場合で、Stokes Raman と呼び、第3成分は散乱光の周波数の方が高くなる場合で Anti-Stokes Raman と呼ばれる。

図6に示すように、光の入射方向をx軸方向に取り、入射光の電場(偏光方向)をz軸方向に取り、散乱光の観測方向をy軸方向に取る。一般に、散乱光はz軸方向の偏光 E_z とx軸方向の偏光 E_x の二つの成分からなる。散乱断面積はそれぞれの偏光成分に対して異なる値となるが、詳細はここでは省略する。

文献(16-18)にNe, Ar, Xe, Al, Ga, In, Tlの散乱断面積が記載されている。また、レイリー散乱を用いた測定の実例については文献(16, 19)を、ラマン散乱の測定例については文献(16-18, 20, 21)を参照されたい。

以上は、線形分極によるラマン散乱であるが、非線形分極に伴うラマン散乱も存在する。特に、CARS (Coherent Anti-Stokes Raman Scattering) は3次の非線形分極率に関与するもので、分子ガスの温度測定などに使われている。

4. あ と が き

以上、プラズマの放射過程の基礎、光学的に薄いプラズマからの放射を利用した計測法、光吸収を用いた計測法、光散乱を用いた計測法について述べた。紙面の都合でかなり簡略に記述したが、不十分な点は参考文献を参照して頂きたい。

参 考 文 献

- (1) Lochte-Holtgreven, w. (Ed.): Plasma Diagnostics, (North-Holland, 1968).
- (2) Heitler, w.: The Quantum Theory of Radiation, (Oxford, 1954).
- (3) Loudon, R.: The Quantum Theory of Light, (Oxford Science Pub., 1983).
- (4) Murayama, S.: Ultrahigh-Frequency Discharge in Atmospheric-Pressure Gas, J. Appl. Phys., Vol.39, pp.5478-5484 (1968).
- (5) Hofmann, A., Smolka, E., Popp, H.-P., Schwarz, W., March, P., and Dietz, K.-J.: Spectroscopic measurements of electron densities and gas temperatures in deuterium lamps, Appl. Opt., Vol. 31, pp.3540-3542 (1992).
- (6) Penney, C. M.: Light Scattering in Terms of Oscillator Strengths and Refractive Indices, J. Opt. Soc. Am., Vol.59, No.1, pp.34-42 (1969).
- (7) Babucke, G., Hartel, G., and Kloss, H.-G.: On the energy balance in the core of electrode-stabilized high-pressure mercury discharges, J. Phys. D: Appl. Phys., Vol. 24, pp.1316-1321 (1991).
- (8) Dakin, J. T. and Gilliard, R. P.: Model and diagnostics of the high-pressure mercury discharge with sodium iodide additives, J. Appl. Phys., Vol. 60, pp. 1281-1288 (1986).
- (9) Tachibana, K.: Population Density and LTE of Excited

Atoms in a Positive-Column Plasma, Japan. J. Appl. Phys., Vol. 12, pp.895-902 (1973).

- (10) Post, H. A.: The absolute Hg 6¹P₁ direct electron impact excitation cross section determined in a low-pressure Hg discharge, J. Phys. B: At. Mol. Phys., Vol.17, pp.3193-3208 (1984).
- (11) Wamsley, R. C., Lawler, J. E., Ingold, J. H., Bigio, L., and Roberts, V. D.: Absorption spectroscopy on Hg+ and excited Hg in Hg-Ar discharges, Appl. Phys. Lett., Vol. 57, p.2416 (1990).
- (12) Lin, T., Goto, T., Arai, T., and Murayama, S.: Hg+ Ion Density in Low Pressure Ar-Hg Discharge Used for A Mercury Lamp, J. Appl. Phys., Vol. 66, pp.2779-2782 (1989).
- (13) Lin, T., Goto, T., Arai, T., and Murayama, S.: Account of Ionization Mechanism in Low Pressure Ar-Hg Discharge, J. Appl. Phys., Vol. 69, pp.4201-4205 (1991).
- (14) Bigio, L.: Density measurements of Hg (6³P_{0,1,2}) in a discharge using saturated laser absorption and hook methods, J. Appl. Phys., Vol.63, pp.5259-5269 (1988).
- (15) Bigio, L.: Laser Diagnostic Density measurements of Hg (6³P_{0,1,2}) in a Low Pressure Hg-Ar Discharge, Vol.136, pp.829-834 (1989).
- (16) Vriens, L. and Adriaansz, M.: Light scattering from Ne, Ar, and Xe arcs, J. Appl. Phys., Vol.45 No.10, pp.4422-4431 (1974).
- (17) Vriens, L.: Raman Scattering Cross Sections for In and Tl Atoms and Multiphoton Processes in Sr, Opt. Commun., Vol.11, No.4, pp.396-401 (1974).
- (18) Vriens, L. and Adriaansz, M.: Electronic Raman scattering from Al, Ga, In and Tl atoms", J. Appl. Phys., Vol.46, No.7, pp.3146-3150 (1975).
- (19) Vriens, L.: Light Scattering from Weakly Ionized Non-homogeneous Plasmas, Phys. Rev. Lett., Vol.30, No.13, pp.585-588 (1973).
- (20) Vriens, L. and Adriaansz, M.: Depolarization ratios for Anti-Stokes Raman scattering from In and Tl, Opt. Commun., Vol.11, pp.402-404 (1974).
- (21) Adriaansz, M. and Vriens, L.: Laser Raman Scattering from Metal-Halide Arcs", Philips Res. Repts Vol.31, No.3, pp.193-198 (1976).

(受付日1994年2月21日)

むらやま せいいち
村山 精一 (正会員)

1934年4月22日生。1961年3月東京大学電気工学科卒業、1961年4月日立製作所中央研究所入社、1993年4月神奈川工科大学電気工学科教授となる。工学博士。発光分光分析用プラズマ、ガス放電ディスプレイ、原子の磁気光学効果、X線CT用電離箱検出器、紫外線光源、照明用光源、リソグラフィ用軟X線源、光のスクイズド状態などを研究。専門はプラズマ分光光学で、応用物理学会、照明学会、電気学会、日本分光学会、物理学会会員。