Plasma Diagnostics by Laser Spectroscopy

レーザー分光によるプラズマ計測

SHIZUYO HASHIMOTO

Department of Physics, Faculty of Science

Tokai University

1117 Kitakaname, Hiratsuka, Kanagawa 259-12, JAPAN

TEL.0463-58-1211

(Received 01, December 1989)

(Accepted 16, January 1990)

Abstract

Recent development of plasma diagnostics by laser spectroscopy are reviewed. In particular, some current studies by use of dye-laser are presented; the method of laser-induced fluorescence(LIF) and beam-probe spectroscopy. A new diagnostic method using both techniques of neutral beam probing and LIF has been developed to measure the spatial electron density distribution. A novel technique to measure the magnetic field is also demonstrated, which is determined from the Zeeman splitting of the LiI resonance line with good time and spatial resolutions.

Key words : Dye Laser, Laser-Induced Fluorescence, Plasma Spectroscopy.

§ 1. はじめに

プラズマの分光計測法は近年受動的分光法から能動的分光法へと急速に発展し、レーザー誘起蛍光法をはじめ数々の新しい測定法が開発されてきている。

従来行われてきたプラズマの分光計測法とは、プラズマ自身の放出する光のスペクトルを捉えて、スペクトル線の強度比や、特定のスペクトル線の強度分布(プロファイル)の形状およびシフトからプラズマの温度や電子密度等を計測するものであった。これらを受動的分光法と言うが、この方法では分光器に入射するプラズマ部分が放出する光のトータルの強度を観測しているので、プラズマ局所の状態の変化を細かく知ることはできない。これに対して外部からレーザー等でプラズマに何等かの働きかけをして、それとの相互作用による応答を解析することによりプラズマに関する情報を得ようとする方法を、能動的分光法という。

比較的早くから行われた能動的分光法としては、レーザーによるトムソン散乱法(Fig.1 参照)、およびマッハツ

ェンダー干渉計やマイケルソン干渉計等で光路長の変化をフリンジ数の変化として観測し、プラズマの二次元的密度分布を測定する方法(Fig.2 参照)等がある¹⁾。

このような電磁波(光またはマイクロ波)を用いた能動的な測定法は、その入射レベルが十分低ければ、プローブ法に比してプラズマに与える擾乱が少ないため、以前から有力な測定法として注目されていた。その上レーザーを使用する能動的分光法の何よりの利点はプラズマ内の局所的な情報を細かく知ることができる点にある。プラズマ内の特定の位置にレーザー光を集光して照射すると、そこから散乱される再放射光はその場所におけるプラズマ状態の情報を持っているため、その位置を変えて行くことによりプラズマ内の各点における情報を細かく知ることができる。

§ 2. レーザー誘起蛍光法

近年色素レーザーの開発と相まって急速に注目されるよ

Fig.1. Schematic drawing of the experimental arrangement for 90°-Thomson-Scattering by ruby laser injection.

Fig.2. Schematic drawing of the experimental arrangement for plasma diagnostics with various interferometers.

うになった能動的分光法に、レーザー誘起蛍光法がある。多くの物質は紫外線または短波長の可視光を吸収すると吸収した光よりも長波長の蛍光を発する。この励起光源にレーザーを用いると殆どバックグラウンドなしに高感度の分光ができる。しかもこの蛍光の検出はフィルターまたは低分解能のモノクロメーターで十分できるので都合がよい。1973年にオランダの Coolen et al.(Ref.2)はNa原子についてこの蛍光を測定することにより 極めて低いNa蒸気密度の検出を行なった。彼らは Fig.3 に示すような装置でNaスペクトル光源を 希薄なNa蒸気(温度47~146°C)に照射し、D線の共鳴蛍光を検出することにより 10^{10} atoms/cm³ 以下の蒸気密度を測定している。

Fig.3. Experimental apparatus for the measurement of very-low sodium-vapor densities using optical resonance fluorescence: L, Na spectral lamp; D, diaphragms; C, chopper; TH, trapping horns; SC, scaler; LIA, lock-in amplifier; PM, photomultiplier; CR, cryostat; L, lenses; SVC, sodium-vapor cell.(Coolen et al. 1974)

色素レーザーの出現により翌1974年に Fairban et al. (Ref.3)は励起光源にCW色素レーザーを用いて同様の実験を行い、Na蒸気密度 10^2 atoms/cm³ (-28°C)~ 10^{11} atoms/cm³ (144°C)を測定した。装置と実験結果を Fig.4および Fig.5 に示す。使用した色素レーザーは10mW; 570~630nm

TABLE I. Ground-state transitions of the 87 elements whose atomic energy levels are known. Only the most promising transition for use in the resonance fluorescence method is shown for each atom. (Fairbank et al. 1975)

Future (800-2300)Å	Doubled, mixed dye (1780-2650)	Commercial doubled dye (2650-3400)	Pulsed dye (3400-4300)	cw dye (4200-5400)	cw dye (easy) (5400-6500)	cw dye (6500-7800)
Ar 1067	As 1937	Ag 3383	Al 3961	Co 4234	Ac 6360	Sc 6211
Br 1541	B 2497	Au 2676	Ga 4033	Cr 4290	Am 6055	Sm 5626
Cl 1396	Be 2349	Bi 3068	Ho 4104	Cs 4593	Ba 5535	Ta 5403
F 956	Hg 2537	C 2967	In 4105	Fe 5110	Er 5827	Tc 5925
H 1216	I 1783	Cd 3261	Ir 3800	Nb 5252	Eu 6018	Th 5761
He 591	Po 2558	Cu 3274	Mo 3903	Os 4420	Gd 5709	Tm 5971
Kr 1250	Rn 1786	Ge 2652	Ni 3625	Ra 4826	Hf 6185	U 5915
N 1201	S 1915	Mg 2852	Rh 3692	Re 5276	La 5501	Y 6223
Ne 744	Sb 2311	Pb 2833	Ru 3926	Sr 4607	Lu 5737	Yb 5556
O 1359	Si 2514	Pd 2763	Tl 3776	Tb 5376	Mn 5433	Zr 6135
P 1775		Pt 3064		Ti 5174	Na 5890	
Se 2075		Sn 2863		V 4851	Nd 6149	
Te 2259		Zn 3076		W 4983	Pu 5865	
Xe 1491

Fig.4. Experimental apparatus for the absolute measurement of very low sodium-vapor densities using laser resonance fluorescence. (Fairbank et al. 1975)

Fig.5. Sodium-vapor-density measurements made in this experiment. The solid line is a thermodynamically derived curve, using $\Delta H_f^\circ = 25600$ cal/mole. (Fairbank et al. 1975)

波長可変である。この論文では更にレーザー誘起蛍光法を

Na以外の原子にも適用する可能性について議論している。その可能な線とレーザー波長域の例を Table 1 に示す。

また、分子の電子励起スペクトルをレーザー誘起蛍光法で測定することによりこの方法は分子の検出にも適用することができる (Table 2 参照) 4,5)。

Table II. The most promising electron-spectra in the ultra-violet, visible and infrared regions. (Tachibana 1983)

Elements	Transition	Wavelength (nm)	Detected methods (Refs.)
CF ₂	2A'₁-1A'₁	180~300	E (1)
CF ₂	Ā'B₁-X'A₁	220~325	E (2), LIF (3)
CF	B'4-X'11	197~220	E (2)
F	3p²P _{1/2} -3s²P _{1/2}	703.7	E (2)
CH ₃	B'A'₁-X'A'₁	216.4	A, MPI (4)
CH ₃	B'Σ _g -X'Σ _g	141.5	A
CH ₃	B'B₁-ā'A₁	490~920	A, LIF (5)
CH	A'4-X'11	431.4	E (6), LIF (7)
CH*	A'11-X'Σ	422.5	E (6)
C	3s²P _{1/2} -2p²S _{1/2}	247.9	E (6)
C ₂	A'11-X'11	516.5	E (6)
CCl ₄	Ā'B₁-X'A₁	587	
CCl ₄	A'4-X'11	278.2	LIF (8)
SiH ₄	Ā'B₁-X'A₁	500~600	E (9), LIF (10)
SiH	A'4-X'11	413.5	E (11), LIF (12)
SiH*	A'11-X'Σ*	399	E (11)
Si	4s-3p	244~288	E (11), A (13)
Si	H'Σ _g -X'Σ _g	390.8	LIF (14)
SiF ₄	Ā'B₁-X'A₁	218~276	
SiF	A'Σ*-X'11	436.8	E (15)
SiCl	A'Σ-X'11	450~640	
SiHCl	?	410~480	LIF (16)
NH ₃	Ā'A₁-X'B₁	901	LIF (5)
NH	A'11-X'Σ	336	LIF (17)
N ₂	C11-B'11	281~498	E
N ₂ *	B'Σ _g -X'Σ _g *	329~586	E
CO	A'11-X'Σ*	114~280	E (2)
CN	B'Σ*-X'Σ*	311~461	E (2)
H ₂	2p²Σ-2s²Σ	160~500	E (11)
H	3d²D _{5/2} -2p²P _{1/2}	656.3	E (11)
O	3p²P _{1/2} -3s²S _{1/2}	777.5	E (2)

E: Emission spectroscopy, A: Absorption spectroscopy, LIF: Laser Induced Fluorescence, MPI: Multi Photon Ionization, LA: Laser Absorption, CARS: Coherent Anti-stokes Raman spectroscopy

さらにまた、つぎのようにして電子密度の測定も可能である。プラズマ中の原子がレーザー光により状態1から2 (Fig.6(a)参照)へ励起されたとき励起原子のあるものは直接光を放出してエネルギーを失うが、あるものはプラズマ中の電子との衝突により、光を出すより前に2に近いエネルギー状態3に移る場合がある。準位3にある原子はすぐに光を放出して準位4に落ちるものとする、この時放出する衝突励起蛍光I_cとレーザー誘起蛍光I_Lとの比 R₀ = I_c/I_L は電子密度n_eと係数<σv>の関数として表される。ここにσは衝突断面積、vは電子速度、< > はマクスウェル分布についての平均である。従って<σv>

が分かっているならば R_0 を観測することによりプラズマの局所的電子密度を知ることができる。この方法で n_e を観測する際に S/N 比をよくするためには準位 2 の population density が準位 1 のそれと等しくなるという飽和条件を満たすに十分なレーザー出力が望ましい。Tsuchida et al. (Ref.6) はヘリウムプラズマ ($T_e \sim 6\text{eV}$) についてこの方法で電子密度の空間分布を測定し、 $n_e = 10^{11} \sim 10^{12}/\text{cm}^3$ を得ている。この時用いた色素レーザーの出力は $100\text{kW}/\text{cm}^2$ 程度であり、トムソン散乱による電子密度測定の際のレーザー出力 $100\text{MW}/\text{cm}^2$ に比べれば十分小さく、しかも衝突断面積は $\sigma \sim 10^{-15}\text{cm}^2$ とかなり大きいため高感度である。(トムソン散乱では $\sigma \sim 10^{-24}\text{cm}^2$ である。)

Fig. 6a. —Energy levels and transitions relevant to a laser-induced fluorescence (I_L) and a collision-induced fluorescence (I_C). ρB_{12} : absorption, ρB_{21} : induced emission, A_{21} : spontaneous transition, $n_e \langle \sigma v \rangle$: rate coefficient for a collisional process with plasma particles.

b. —A conceptual figure for the local electron density measurement with the LCIFM. (Laser- and Collision- Induced Fluorescence Method)

c. —Spatial distribution of electron density obtained from the LCIFM (○) and the electrostatic probe (—). Error bar means random error of the density measurement with the LCIFM (67% confidence limit). (Tsuchida et al. 1983)

§ 3. ビームプローブ分光法

このようにレーザー誘起蛍光法は低い粒子密度や電子密度の空間分布を調べる上に有効な手段であるが、上記のような特別な遷移をする準位が見つからないと測定が出来ない。調べようとする目的のプラズマにそのような適当な準位が見つからない場合もあり、何にでも適用できると言うわけには行かない。そこで新たに考え出されたのがビームプローブ分光法である。これは測定に便利な粒子をプローブ用としてビームの形でプラズマ中に注入し、そこへ色素レーザーを照射して電子衝突励起とレーザー励起による共鳴線の蛍光の空間分布を測定し、その相対的な強度比からプラズマ内の電子密度の空間的分布を知ろうとするものである。(Fig.7 参照)

Fig. 7. Experimental setup for the measurement of local electron densities by Li²-beam probe spectroscopy. (Kadota)

Kadota et al. (Ref.7,8) は Li 膜にルビーレーザーパルス照射して、粒子速度分布がほぼマクスウェル分布に近いプローブ用ビームを作り、これをプラズマに当て、そこへ色素レーザーを照射してレーザー誘起蛍光法によりプラズマの電子密度を測定した。ビーム種として Li を用いる理由としては計測に利用する原子過程の断面積が大きいこと、共鳴線を始めとする多くの遷移が可視域にあるので検出が容易であり、レーザー分光法と組み合わせるのに適していること、原子のエネルギー準位が比較的単純なので、ゼーマン効果やシュタルク効果を利用して磁場や電場の測定が比較的容易にできること、核電荷数が少ないので、プラズマへの不純物流入問題を軽減できること、ビーム生成法が比較的容易であること等がある。

ビームプローブ分光法はまた、プラズマ中の局所の磁場の測定にも有力な方法となっている。Kadota et al. (Ref.9) は Li ビームを 2 ~ 4 kG の磁場中のプラズマに注入し、Fig.8a に示すような配置で Li の共鳴線 ($2^2\text{S} - 2^2\text{P}$: 670.8nm) のゼーマン効果 (Fig.9 参照) によるスペクトル線の分離を観測して、プラズマ中の各局部における磁場を $\pm 2\%$ の精度で測定した。(Fig.10 参照) この場合光学系のスペクトル分解精度は $0.03\text{\AA}$ が必要であり、スペクトル線検出用の光学系には、干渉フィルター、偏光子およびファブリペロー干渉計を組み合わせ使用している。

Fig. 8. Experimental setup for the measurement of local magnetic fields by Li^0 -beam probe spectroscopy in NBT-1M. The dashed circle indicates the position of the second-harmonic electron cyclotron resonance zone at 18 GHz. (Kadota et al. 1985)

Fig. 9. Zeeman level diagram for the lithium resonance line (2^2S-2^2P , 6708 Å). (Kadota et al. 1985)

最近、このビームプローブによる磁場測定の手法にさらに色素レーザーを組み合わせ、低分解能のモノクロメーターでも一層精度よく局所磁場を測定できる新しい方法が Yamaoka et al. (Ref. 10) により開発された。従来のレーザー誘起蛍光法ではレーザーの振動数を変化させて掃引するが、この方法ではレーザーの周波数は固定しておき、ビーム粒子のドップラー効果を利用して掃引するものである。Fig. 11 に示すように、 Li ビームはQスイッチ・ルビーレーザー (400mJ, パルス幅50ns) を Li ターゲットに照射することにより極めて短時間に作られる。その粒子速度はほぼマクスウェル分布をしており 種々の速度の Li 粒子が含まれている。 Li ターゲットからプラズマまでの距離を ℓ とすると、これらの粒子がプラズマに到達するまでの時間

Fig. 10. Spectra of the lithium resonance line (2^2S-2^2P , 6708 Å). Upper: Doublet spectrum from the lithium hollow cathode lamp. Lower: Zeeman pattern of π components from the Li^0 beam injected into the NBT-1M plasma. (Kadota et al. 1985)

は速度により少しずつ異なる。これらの Li 原子が磁場中で発光するスペクトル線は発光原子自身が速度を持っているためドップラーシフトをする。通常この種の測定ではこのようなドップラーシフトを避けるため、観測は粒子の運動に垂直な方向からなされるのが常である。ところがこの新しい方法ではそのドップラーシフトを積極的に利用するのである。即ち、ビームと α ($\alpha \neq 90^\circ$) をなす方向からCW色素レーザーを照射する。するとそこから出てくるレ

Fig. 11. Schematic drawing of the experimental arrangement for blow-off beam injection, dye laser injection, and signal detection system. (Yamaoka et al. 1988)

ーザー誘起蛍光の波長 λ_{0i} は

$$\delta \lambda_{di} = -\lambda_{0i} (v/c) \cos \alpha \quad (\text{但し } v \text{ は粒子速度})$$

だけのドップラーシフトを受けて観測される。Liターゲットから色素レーザーを照射する場所までの距離を l 、そこに到達するまでの時間を t とすると $v = l/t$ の関係があるからドップラーシフトは

$$\delta \lambda_{di} = -(\lambda_{0i} l / c t) \cos \alpha$$

となる。従ってLiの共鳴線 670.8nm の σ 成分のゼーマン分離 $\Delta \lambda_m$ は

$$\begin{aligned} \Delta \lambda_m &\equiv \lambda_{01} - \lambda_{02} = (\lambda_0 + \delta \lambda_{d1}) - (\lambda_0 + \delta \lambda_{d2}) \\ &= \delta \lambda_{d1} - \delta \lambda_{d2} \\ &= (\lambda_{0i} l / c) (1/t_1) - (1/t_2) \cos \alpha \\ &\quad (\lambda_0 \doteq \lambda_{0i}) \end{aligned}$$

で表される。但しここに λ_0 はレーザー波長(固定)である。ゼーマン分離が測定されれば磁場 B は

$$B \propto \Delta \lambda_m$$

の比例関係があり、比例定数は既知であるので磁場が求まる。すなわちレーザーの波長は変えずに発光の時刻を時間軸で測定することによって局所の磁場を知ることができるのである。この方法による Yamaoka et al. の測定結果を Fig.12 に示す。

Fig.12. Typical traces of the output signal. Only the D_2 line is observed. In (a) the magnetic field is not applied. In (b) the polarization direction of the laser light is perpendicular to the magnetic field, and 45° in (c). (Yamaoka et al. 1988)

この方法はレーザー誘起蛍光を検出しているので蛍光の強度が大で測定し易いこと、色素レーザーの波長は固定でよいので調整が簡単であること、検出系にファブリプロード干渉計や高分解能の分光器を必要とせずホトマルと干渉フィルターまたはモノクロメーター程度でよいことなどの長

所があり、注目すべき画期的新方法であると思われる。

以上のように、波長選択が自由な色素レーザーを使用するプラズマ計測法は近年急速に開発されてきているので、今後のプラズマ計測に色素レーザーはますます不可欠の存在となるであろう。

References

- 1) W.E.Quinn, E.M.Little, F.L.Ribe and G.A.Sawyer: Plasma Physics and Controlled Nucl. Fusion Research vol.1 (1966) P237.
- 2) F.C.M.Coolen, L.C.J.Baghuis, H.L.Hagedoorn and J.A.Van: "Measurment of very-low sodium-vapor densities by means of optical resonance fluorescence"; J. Opt. Soc. America vol.64 (1974) PP.482-484.
- 3) W.M.Fairbank, Jr.T.W.Hansch and A.L.Schawlow: "Absolute measurement of very low sodium-vapor density using laser resonance fluorescence"; J. Opt. Soc. America vol.65 (1975) PP.199-204.
- 4) K.Tachibana: 「Ouyou butsuri」 vol.52 (1983) P606.
- 5) S.Ichimura, H.Shimizu, M.Hirata: 「Sinku」 vol.27 (1984)P267.
- 6) K.Tsuchida, S.Miyake, K.Kadota and J.Fujita: "Plasma electron density measurements by laser and collision-induced fluorescence methode"; Plasma Physics vol.25 (1983) PP.991-999.
- 7) K.Kadota, H.Yamaoka, K.Tsuchida, J.Fujita, H.Matsuoka, S.Miyake, T.Usui and T.Oda: "Measurement of electron density with combined technique of laser blowoff and laser-induced fluorecence"; Rev. Sci. Instrum. vol.56 (1985) PP.1036-1037
- 8) K.Kadota, A.Pospieszczyk, P.Bogen and Hintz: "Measurement of electron densities and temperatures in the plasma boundary combining neutral beam probe and laser-induced fluorescence ";IEEE Transactions on Plasma Science. vol.PS-12 (1984) PP.264-270.
- 9) K.Kadota, C.Takahashi, H.Iguchi, M.Fujiwara, K.Matsunaga and J.Fujita: "Space-resolved measurement of internal magnetic field in a bumpy torus by Li⁰-beam probe spectroscopy"; Rev. Sci. Instrum. vol.56 (1985) PP.857-859.
- 10) H.Yamaoka, K.Kadota, H.Yamai, S.S.Kano and J.Fujita: "Instantaneous measurment of magnetic field strength with combining beam probe and doppler-tuned laser spectroscopy"; Rev. Sci. Instrum. vol.59 (1988) PP.115-119.