レーザー励起分光法による放電ヘリウムガス流速測定

関根 千津*,**・関根 重幸*,***・和田 昭英*・広瀬 千秋*

(受付1993年8月4日, 掲載決定1993年11月6日)

Resonant Doppler velocimetry of He flow discharge

Chizu SEKINE*,**, Shigeyuki SEKINE*,***, Akihide WADA* and Chiaki HIROSE*

(Research Laboratory of Resources Utilization, Tokyo Institute of Technology, 4259 Nagatsuta, Midori, Yokohama 227)

(Received August 4, 1993, Accepted November 6, 1993)

We demonstrated the resonant Doppler velocimetry of He atoms in a flowing DC plasma. The laser-induced emission of He atoms was detected while the wavelength of a dye laser was scanned (LIF excitation spectroscopy), and the flow velocity was derived from the Doppler shift of the observed spectral line. The overall accuracy of measured velocity was $30\text{--}60\text{ ms}^{-1}$. We found that flow velocity exhibited a significant dependence on the discharge current at a constant flow rate. We also observed a spectrum by the LIF excitation method combined with Lamb's dip technique. The combination method was useful when the spectral line exhibited Stark shift.

1. はじめに

放電気体の流速を高い空間分解能で測定することは、放電プロセス研究やプラズマへの物質供給などの観点から興味をもたれている。しかし、放電気体の流速を計測するために、プローブの挿入や微小粒子などの混入を行なうと、プラズマの電気的特性や原子、イオンの流れを乱すことになる。したがって、光学的手段による測定方法が最適である。特に、レーザーを用いる測定法は一般的に空間分解能が高く、測定対象として光が透過する流体であれば、気体、液体を問わないという汎用性がある。ところが、実用化の進んでいるレーザドップラー法¹⁾ (laser Doppler velocimetry: LDV 法) では微粒子の混入が必要なので、低圧気体の測定や、プラズマ診断には適さない。共鳴吸収を利用する流速測定法^{2~13)} (resonant Doppler velocimetry: RDV 法) では、レーザ光を照射して、流れている気体原子・分子の吸収線を測定し、

そのドップラーシフトにより流速を計測するので、LDV 法に比べて微粒子を混入する必要がない点で優れている。

これまで報告されている RDV 法測定例を見ると、測定対象がプラズマではなく、スペクトル測定のために吸収線が可視域にあるナトリウム^{2~6)} やヨウ素^{7~10)} などを気体の流れに混入したり、あるいは、プラズマ中の流速測定例では、プラズマ中のイオン種^{11~12)} (イオンドリフト測定) やラディカル¹³⁾ のスペクトル線を利用して、汎用性の面で制限がある。そこで、CVD (chemical vapor deposition) プラズマ、MHD (magnetohydrodynamic) 発電プラズマや核融合プラズマなどに混入することが可能な希ガスのスペクトル線の利用が考えられる。希ガスは、基底状態からの吸収線を可視域に持たないので流速測定の観点からは利用されていなかったが、プラズマ診断としての流速測定では、プラズマ中で生成する励起状態からの可視域の吸収線が利用できる。

我々は測定対象モデルとして、ヘリウムを流した直流グロー放電の陽光柱プラズマを取り上げ、ヘリウム原子の励起状態間遷移のスペクトル線を利用した流速測定 (RDV 法) を行なった。空間分解能を上げるため、レーザーの波長を掃引しながらレーザー誘起蛍光 (laser

* 東京工業大学資源化学研究所 (〒227 横浜市緑区長津田町4259)

** present address: Sumitomo Chemical Co., Ltd., 6 Kitahara, Tsukuba, Ibaraki 300-32, Japan

*** present address: Electrotechnical Laboratory, 1-1-4 Umezono, Tsukuba, Ibaraki 305, Japan

induced fluorescence) の強度変化を観測して吸収スペクトル測定をする, 蛍光励起スペクトル法 (LIF excitation spectroscopy) を採用した. 第2章で測定方法について述べる. 第4章の測定結果はこの方法によるものである. また, 第3章ではラムディップ法と組み合わせた蛍光励起スペクトル法についてのスペクトル測定例を示す.

2. 測定方法

流速を大きくするために電極間のガラス管の内径が細いキャピラリー放電管を用いた. Fig. 1 に放電管の断面図を示す. 外管はパイレックスガラス製で, キャピラリーの内径 1 mm, 長さは 28 mm とした. またガラスタージョイントを設けて, 放電により表面変質した電極を容易に変換できるようにした. 電極は中空円筒型で内径が 6.3 mm, 外径 11.7 mm, 長さ 18 mm の真ちゅう製を用いた. 放電は上流側がカソードになるように直流定電流電源に接続して行った. 放電電極間電圧のリプルは 30 mV 以内であった.

放電管の排気は油拡散ポンプで行った. ヘリウム (99.95%) を試料ガスとし, 流量をマスフローコントローラにより制御した. キャピラリー上流側の圧力はキャパシタンストランスデューサーおよびピラニー圧力計で, 下流側ではピラニー圧力計で計測した. キャピラリー中にはヘリウムイオンに加えてヘリウム原子の準安定励起状態および高リユードベリ状態が生成しており, 強い発光 (例えば $3s^3S-2p^3P$, $3d^3D-2p^3P$) がみられた.

吸収スペクトルの測定は蛍光励起スペクトル法で行な

った. Fig. 2 に測定配置図を示す. 連続発振のアルゴンイオンレーザー (出力 5 W) で励起したシングルモードロッド色素レーザー (Spectra Physics SP380, 色素: ロードミン 6 G, 出力: 約 300 mW) の出力光をプローブ光とした. レーザー発振線幅は約 0.0007 cm^{-1} で, ヘリウム原子線の室温から数百度におけるドップラー幅 (約 0.2 cm^{-1}) に比べて十分小さい. 色素レーザーのビームをメカニカルチョッパーにより約 1.3 kHz で変調した後, キャピラリー内にガスの流れと反対向きにレンズで集光した. レーザ光の波長を掃引してヘリウム原子による光吸収が起きると, 別の遷移の発光強度が変化する. その発光強度変化を放電管の横方向から光検出器で検出し, レーザ光のチョッピング周波数でロックインアンプによって位相敏感検波した.

レーザー光の一部をビームスプリッターで分けて, 波長参照スペクトルを得るためのよう素セルとファブリペロ

Fig. 1 Cross-sectional view of the capillary discharge tube. Outer tube and cylindrical electrodes were made of Pyrex glass and brass, respectively.

Fig. 2 Schematic of the experimental setup of the LIF excitation method. FPE: Fabry-Perot etalon, I_2 : iodine cell, PD: photodetector, MC: mechanical chopper, HV: constant-current power supply, OSC: oscilloscope, P1 and P2: pressure gauges, and MF: mass flow controller.

ーエタロンに入射させた。これらの信号はヘリウムのスペクトルと同時にレコーダで記録し、ドップラースhiftしたヘリウム原子のスペクトル線の遷移波長を決定するために用いた。ファブリペローエタロンのフリンジ間隔は約 0.017 cm^{-1} であるが、温度変化による変動があるため、ヘリウムスペクトル線付近のよう素のスペクトル線2本の間隔から測定ごとに補正した。

キャピラリー部分からのレーザー励起発光は位置分解能向上のため、以下の方法を用いて検出した。放電管の横に焦点距離 90 mm のレンズを設置して放電の発光像をスクリーン上に結像させ、スクリーンにあけたピンホールの通過光をフォトダイオードで検出した。これにより、空間分解能は、レーザービームに垂直な方向に関して、焦点位置でのビーム直径($0.3\text{--}0.5\text{ mm}$)程度となり、レーザー光の進行方向に対してはピンホールの直径(約 0.5 mm)を像の拡大率(本実験では1倍)で割った値(0.5 mm)である。

ピンホールスクリーンとフォトディテクターを移動させることでキャピラリー管の任意の位置からの信号が観測可能である。今回はレーザービームがキャピラリーのほぼ中心軸を通過するように固定し、また、軸方向についてはキャピラリー中央部を測定点とした。なお、測定した吸収スペクトル線の遷移は $\text{He } 3d^3D_1\text{--}2p^3P_0$ (遷移波数, 17013.764 cm^{-1})であり、レーザー光の迷光は長波長透過ガラスフィルター(東芝硝子 R64)をピンホールの前に設置することにより除去した。蛍光を発する遷移は、例えば $3d^1D_2\text{--}2p^1P_1$ (14970.08 cm^{-1})であった。この遷移の上準位はレーザーで励起された原子との衝突により励起されたと考えられる。

プローブ用レーザービームの進行方向と反対向きに速度 v で流れている気体原子は、静止している原子の遷移周波数 ω_0 よりも $\Delta\omega=\omega_0v/c$ だけ低い周波数の光を吸収する(ドップラースhift)。ここで、 c は光速である。この関係式により、ドップラースhiftから流速を求めることができる。繰り返し測定を行なった結果、本測定法によるヘリウム放電ガスの流速測定では、 $30\text{--}60\text{ ms}^{-1}$ 程度の流速分解能が得られた。そして、 $\Delta\omega$ の広がりには速度分布を反映し、一般にはガウス関数形であり気体温度に依存するので、流速と温度の同時測定が可能である。

3. ラムディップ法による測定

本章では、光吸収スペクトル線の絶対波長とドップラースhiftを同時測定できるラムディップ法¹⁴⁾を併用した蛍光励起スペクトル法の測定方法とスペクトルの例を示す。本法を利用すれば、第2章に示した参照スペクトル測定を省略することも可能である。また、放電中で考えられるドップラースhift以外のスペクトル線のシフト(例えば、シュタルクシフト)と、ドップラースhiftを区別することができる。

ラムディップ法の実験配置図をFig. 3に示す。本法では、放電管内にいったん入射したレーザー光をポンプ光とし、透過したポンプ光をチョッパーで変調後折り返して再入射させプローブ光とする。波長を掃引していくと、レーザー光の進行方向の速度成分を持たない原子だけが、その吸収波長において両方向からの光を吸収することができる。したがって、その波長ではプローブ光を吸収できる原子数が、ポンプ光の効果で減少する。結果と

Fig. 3 Schematic of the experimental setup of the LIF excitation method combined with Lamb's dip technique. GL: Glan laser prism, $\lambda/4$: quarter-wave plate.

Fig. 4 Lamb's dip spectrum of He $3d^3D_1-2p^3P_0$ transition observed when the probe laser beam passed through the discharge tube against the flow direction. The Gaussian profile shifted to lower wavenumber from the dip. The flow velocity of 110 ms^{-1} was derived from the observed shift of 0.0062 cm^{-1} .

して、ドップラー広がりを持つスペクトルにディップを生じる。ディップの生じる波長は常に静止原子の吸収波長である。

Fig. 4にラムディップ法で測定したヘリウム原子の励起スペクトルチャートを示す。測定は放電電流10 mA、キャピラリーの上流側の圧力が900 Paの条件で行なった。ガウス形のスペクトルにディップが観測された。ディップの波長とガウス形スペクトルの中心波長とのずれがドップラーシフトである。プローブ光をガスの流れと反対の向きに入射させているので、ガウス形の中心がディップの長波長側（低波数側）にシフトした。シフトの大きさは 0.0062 cm^{-1} で、流速 110 ms^{-1} と見積られた。また、プローブ光とポンプ光の向きをFig. 4のスペクトルを測定した時とは反対にして測定を行ない、短波長側へのシフトを観測した。これにより、シフトがガスの流れによることを確認できた。

ドップラーシフトの大きさが線幅と比較してそれほど大きくない場合はラムディップ法で測定を行うと、ディップのためガウス形のスペクトルのピーク位置を精度よく読み取れない。従って、ラムディップ法を組み合わせた測定は、スペクトル線の絶対波長が十分な精度でわからない場合やドップラーシフト以外のシフトがあるときに用いる。このような場合、スペクトル線の絶対波長（あるいは、シュタルクシフトなどでシフトした波長）を予めラムディップ法で測定し、つぎに、Fig. 2に示した配置による通常の蛍光励起スペクトルをよう素のスペクトルとともに観測し、両者の波数差から流速を求めるのが良い。

Fig. 5 Discharge voltage and pressure difference between the upper and lower sides of the capillary versus discharge current.

Fig. 6 Dependence of flow velocity on discharge current. The data were obtained from the same experiment as were the results shown in Fig. 5.

4. 流速の放電電流依存性

キャピラリー放電管では、中空円筒陰極内部に負グローが、キャピラリー内には陽光柱が出現しているのが観測された。電極形状から、ホローカソード効果があるものと考えられる。グロー放電の特性から、陽光柱内では電場がほとんどないため、原子のスペクトル線のシュタルクシフトは無視できる。また、シフトがドップラー効果によることはラムディップ法を併用した測定で確認した。

放電管内を流れるヘリウム流量を一定に保って放電電流を変化させると、主に、電流とともに電圧も高くなる

異常グロー放電が見られたが、電流変化に対して放電電圧がほとんど変化しない正規グロー放電的な特性を示す場合もあった。この状況は電極の表面状態や放電管の内壁の状態に大きく影響された。電流電圧変化の測定は1例をFig. 5に示す。この例では、20-40 mAにおいて正規グロー放電的な特性が出現した。この実験では、ヘリウムガス流量を11 sccmに保ったが、電流増加にともない放電管の上流側の圧力の上昇がみられた。下流側は、十分に排気されており常時10 Pa以下であった。圧力変化の様子をFig. 5に同時に示した。上流側圧力上昇の主な原因は、ガス温度上昇にともなうガス粘性の変化に起因すると考えられる¹⁵⁾。

我々は、上記条件下において、キャピラリー陽光柱プラズマのガス流速測定実験を行なった。なお、測定ではラムディップ法は併用しなかった。Fig. 5の測定と同時に計測した流速の値をFig. 6に示す。正規グロー的な領域では、 300 ms^{-1} 程の流速であったが、異常グローへの移行にともない流速は不連続的に増大し、40 mA以上では 400 ms^{-1} 程度で一定値を保つ傾向をみせた。本実験は繰り返し行なったが、電極表面の状況などの影響を受け、安定した正規グロー放電特性の良好な再現性は得られず、定量的な評価は困難であった。しかし、正規グロー特性が現れているときと、異常グローとなっているときの流速で、 100 ms^{-1} 程度の流速差が観測されたことは興味深い。キャピラリー内の流れの状態に対して放電現象の影響があるものと考えられるが、プラズマのどのような特性と関連があるのかを調べるためには、さらに実験データの蓄積が必要である。

特に、Fig. 5に見られるように、キャピラリー上下の圧力差が変化しているにも関わらず大電流領域で流速の変化が顕著に現れないことは、現時点で解釈できていないが、放電管内での流れが(完全な層流ではなく)時間的また空間的に変動している可能性が示唆された。レイノルズ数は十分に小さいと見積られるので、通常の乱流とは異なった、プラズマ流体特有のメカニズムに起因する現象と考えられる。キャピラリー放電現象を十分に理解するためには、電極変質などの問題を解決した上で、キャピラリー内の径方向に関する流速分布、およびその

時間変化等の詳細な測定が望まれる。

5. ま と め

放電気体の流速測定の1例として、励起スペクトル法によるヘリウムプラズマの流速計測を行ない、測定精度は $30\text{--}60 \text{ ms}^{-1}$ であることがわかった。本方法では、レーザを利用した高い空間分解能の他に、プラズマ中の希ガスのスペクトル線による非接触測定が特徴である。これにより、核融合研究用磁場閉じ込めプラズマ装置でのプラズマ壁相互作用研究などへの応用が期待される。また、キャピラリー放電管内の平均流速は、正規グロー的な時よりも、異常グローの時の方が速くなることが見いだされた。

【文 献】

- 1) C. P. Wang: J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer **40** (1988) 309.
- 2) D. Hammer, E. Benes, P. Blum and W. Husinsky: Rev. Sci. Instrum. **47** (1976) 1178.
- 3) R. B. Miles: Phys. Fluids, **18** (1975) 751.
- 4) R. Bruckmüller, W. Husinsky and P. Blum: Radiation Effects **45** (1980) 199.
- 5) M. Zimmermann and R. B. Miles: Appl. Phys. Lett. **37** (1980) 885.
- 6) S. Cheng, M. Zimmermann and R. B. Miles: Phys. Fluids **26** (1983) 874.
- 7) J. C. McDaniel, B. Hiller and R. K. Hanson: Opt. Lett. **8** (1983) 51.
- 8) U. Westblom and S. Svanberg: Phys. Scr. **31** (1985) 402.
- 9) B. Hiller and R. K. Hanson: Appl. Opt. **27** (1988) 33.
- 10) U. Westblom and M. Aldén: Opt. Lett. **14** (1989) 9.
- 11) D. Dimock, E. Hinnov and L. C. Johnson: Phys. Fluids **12** (1969) 1730.
- 12) R. A. Dressler, H. Meyer, A. O. Langford, V. M. Bierbaum and S. R. Leone: J. Chem. Phys. **87** (1987) 5578.
- 13) A. Y. Chang, B. E. Battles and R. K. Hanson: Opt. Lett. **15** (1990) 706.
- 14) 片山幹郎, 「レーザ化学(I)」裳華房 (1985) p. 107.
- 15) 日本化学会編, 「化学便覧」改訂3版, 丸善 (1984), p. II-38.