

# 高反射ミラーによるレーザー吸収分光法の感度向上

東京大学大学院 高柳大樹  
東京大学新領域 松井 信 小紫公也  
東京大学工学部 荒川義博

## Sensitivity Enhancement of Laser Absorption Spectroscopy Using High Reflection Mirrors

Hiroki TAKAYANAGI, Makoto MATSUI\*, Kimiya KOMURASAKI\*  
and Yoshihiro ARAKAWA

Department of Aerospace and Astronautics, The University of Tokyo

\*Department of Advanced Energy, The University of Tokyo

### Abstract

Cavity enhanced absorption spectroscopy system using a diode laser was developed to increase the sensitivity of a conventional laser absorption spectroscopy method. Firstly, for comparison, single path laser absorption spectroscopy was applied to investigate target plasma torch flow using an absorption line of ArI 842.46nm. The measured center fractional absorption, temperature and number density were 16.4%, 10400K and  $9.9 \times 10^{17} \text{m}^{-3}$ , respectively. Next, the novel system was applied to the same flow to evaluate its sensitivity. As a result, very strong absorption, whose center fractional absorption was close to 100%, was observed. From the whole absorption profile, it was found that the sensitivity of this system was enhanced one hundred times as high as that of the conventional method.

**Keywords:** Laser Diagnostics, Plasma flow, High sensitive spectroscopy, Cavity enhanced absorption spectroscopy

### 1. 目的および背景

宇宙往還機などの熱防護システム(Thermal Protection System: TPS)の開発には再突入環境を模擬するためにさまざまな高エンタルピー風洞が用いられる。本研究室ではこのような高エンタルピー風洞に対しレーザー吸収分光法(Laser Absorption Spectroscopy: LAS)を用いて気流診断を行ってきており、アーク風洞により生成されたアルゴン・酸素気流及び、誘導加熱風洞により生成された純酸素気流中における準安定準位酸素原子の吸収プロファイル (777. 19nm, 3s5S→3p5P)

を得ることで気流中の数密度分布、並進、エンタルピー分布を測定してきた<sup>1-5)</sup>。

しかしながら、窒素・酸素もしくは空気を作動ガスに用いると誘導加熱風洞気流でわずかに吸収プロファイルが得られはしたものの、アーク風洞気流では検出できなかった<sup>6)</sup>。これは窒素・酸素流では窒素の解離に投入エネルギーが消費される分、気流の温度がアルゴン・酸素流より低くなり、その結果、励起準位である準安定準位数密度が低く、測定感度を下回るためだと考えられる。よって窒素・酸素流で吸収プロファイルを得るに

はLASの感度を向上させる必要がある。

近年、高感度LASとしてキャビティリングダウン分光法 (Cavity Ring Down Spectroscopy: CRDS) が幅広く用いられつつある<sup>7,8)</sup>。CRDSは2枚の高反射ミラーで共振器を形成し、共振器内に測定対象を設置することで、共振器を透過するパルスレーザーの減衰時間から吸収係数を測定する方法であり、従来のLASに比べ飛躍的に感度を向上させることができる。

しかしながら、安価で容易に波長掃引ができるためLASでは有用であった半導体レーザーをCRDSに応用するにはレーザー光を1 $\mu$ s以下の高速でパルス化する必要があり、またレーザー強度が他のパルスレーザーに比べmW程度と弱く、透過光はnW以下となり非常に高感度な検出器が必要である。そこで本研究では連続発振レーザー光をパルス化することなく共振器に導入するキャビティエンハンスト吸収分光法 (Cavity Enhanced Absorption Spectroscopy: CEAS) を応用する<sup>9-11)</sup>。CEASは感度がCRDSと同程度である上、レーザー光を共振させるため、透過光強度はCRDSに比べ遥かに大きく検出が比較的容易である。連続発振レーザーを使うことはまた、CRDSに比べ時間分解能が高い点でも優位である。

本研究では共振器のアライメントが容易な大気下でのプラズマトーチを用い、アルゴン原子の吸収ラインArI: 842.46nm (4s<sup>2</sup>[3/2] $\rightarrow$ 4p<sup>2</sup>[5/2])<sup>12)</sup>を対象としてCEASシステムを開発しLASと感度を比較・検証したのでその結果を報告する。

## 2. 測定原理

### 2.1 レーザー吸収分光法(LAS)

吸収係数 $k$ 、長さ $d$ の一様な物質を通過するレーザー強度 $I$ はBeer-Lambertの式により次のように関係づけられる。

$$I = I_0 \exp(-kd_0) \quad (1)$$

ここで $I_0$ は入射レーザー強度である。

吸収係数 $k$ は振動数 $\nu$ の関数であり、以下のフーリエプロファイルをもつ<sup>13)</sup>。

$$k(\nu) = K \frac{2}{\Delta\nu_D} \sqrt{\frac{\ln 2}{\pi}} \frac{y}{\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\exp(-t^2)}{y^2 + (x-t)^2} dt$$

$$x = (\nu - \nu_0) \sqrt{\ln 2} / \Delta\nu_D$$

$$y = \Delta\nu_L \sqrt{\ln 2} / \Delta\nu_D \quad (2)$$

ここで $\nu_0$ は吸収中心振動数、 $K$ は積分吸収係数、 $\Delta\nu_D$ はドップラー幅、 $\Delta\nu_L$ はローレンツ幅である。これより積分吸収係数から数密度が、ドップラー幅から並進温度を得ることができる。ローレンツ幅は一般に複合要因から成っており複雑ではあるが、プラズマ条件によって電子密度等を推定することができる<sup>14)</sup>。

### 2.2 キャビティエンハンスト吸収分光法(CEAS)

CEASでは対象とするプラズマの両端に2枚の高反射ミラーを平行に設置する。このミラーはFabry-Perot共振器を形成するため、透過レーザー光は共振条件を満たす必要があり、波長掃引に対して不連続である。従ってすべての波長に対しレーザー光を透過させるにはミラー間距離をピエゾ等により波長程度変位させる必要がある。ただし、本研究では共振器のFSRが吸収線の幅がりより十分小さく、不連続な透過光でもプロファイル形状を得ることができるのでミラー間隔を固定したまま測定を行った。

共振条件を満たす透過レーザー強度は各ミラー反射の際に漏れ出るレーザー強度の和であるので

$$I = I_0 (1 - R)^2 \sum_n R^{2n} \cdot \exp[-(2n + 1)kd_0] \quad (3)$$

と表される。ここでミラーの反射率を $R$ とし、ミラー透過損失は無視した。ミラー反射数 $n$ が大きい場合、式(3)における和は積分に近似でき、

$$I = I_0 (1 - R)^2 \frac{\exp(-kd_0)}{-\ln[R \exp(-kd_0)]} \quad (4)$$

となる。Fig. 1 に各ミラー反射率に対する LAS における吸収率と CEAS における吸収率の関係及び、測定可能領域を示す。図が示すように微小な吸収率に対し、CEAS により吸収率は  $1/(1-R)$  のオーダーで増幅される。この場合、吸収率は  $1 - \exp(-kd_0) \approx kd_0$  と近似できるので、共振により実効吸収長  $d$  が  $d = d_0/(1-R)$  になったとも解釈できる。例えば、LAS の測定限界は吸収率  $10^3$  程度であるが  $R=99.99\%$  のミラーを用いた場合、実効吸収長は 1000 倍程度になり、吸収率  $10^6$  程度の吸収線も測定可能になる。

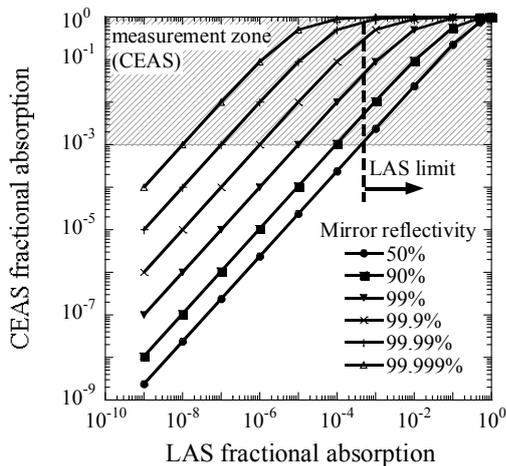


Fig. 1 Theoretical Enhancement of fractional absorption and measurement limit.

### 3. 実験装置

Fig. 2 に CEAS 計測システムの概略図を示す。本システムでは波長可変レーザー発振器として外部共振器付半導体レーザー(DMD845、EOSI 社製)を用いた。レーザー振動数の変調周波数、変調幅はそれぞれ 1Hz、30GHz である。共振器用ミラーとして曲率半径 1m の 2 枚の凹面ミラー (HR 820nm、Layertec 社製) を用いた。ミラー間距離は 50cm であり、FSR は 0.3GHz である。図中のアイソレータは反射光が外部共振器に戻るのを防ぐために、エタロン (FSR: 0.75GHz、ネオアー

ク社製) は波長計として用いた。また参照セルとして入力電力 2.0W (5mA)、封入アルゴンガス 80Pa のグロー放電管 (シニアテクノ社製) を用いた。共振器を透過したレーザー光はプラズマからの発光を除去するため半値全幅 10nm のバンドパスフィルタ (FB840-10、ソーラボジャパン社製) に通したのちフォトディテクタ (DET110、ソーラボジャパン社製) で検出した。

Fig. 3, 4 に本研究で用いたプラズマトーチの断面図及びプルーム写真を示す。プラズマトーチの出口径は 2mm である。作動条件は投入電力 400W (20A)、流量はアルゴンガス 2slm である。測定はトーチ出口直後で行った。

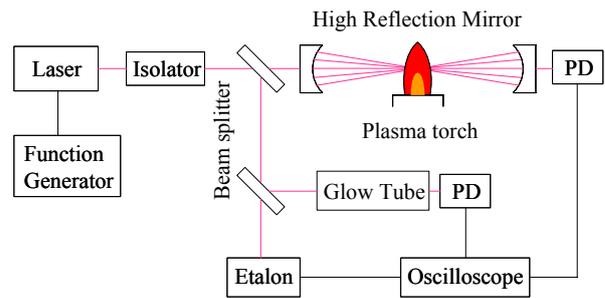


Fig. 2 CEAS system.

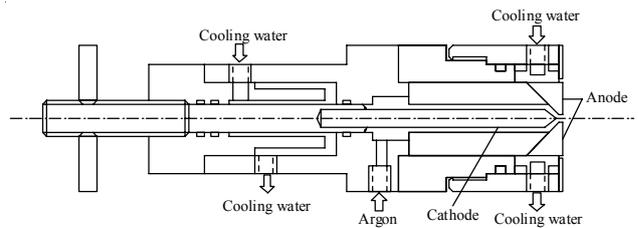


Fig. 3 Configuration of plasma torch.

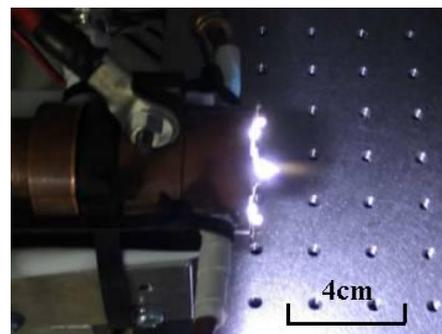


Fig. 4 Photo of plasma torch plume.

## 4. 実験結果及び考察

### 4. 1 共振モード

共振器の光軸調整は透過光の空間分布を CCD カメラ (Beam Star V、Ophir Optonics 社製) によりモニターすることで行った。理想的な共振条件は横モードのないミラー軸上のみの縦モード共振 (Fig. 5(a)) であるが、Fig. 6に見られるように共振条件を満たすと強い透過光が得られるものの、共振条件が機械的な振動に敏感であり、透過光強度が不規則に大きく変動する。このため、吸収のない基準透過強度の決定が困難である。そこで、本研究ではミラー角度を微調整し、横モード共振を複数励起させて実験を行った (Fig. 5(b))。これにより実効光路長は低下し、感度は下がるものの、透過光強度が比較的均一であり基準投下強度の決定が容易に行える (Fig. 6)。

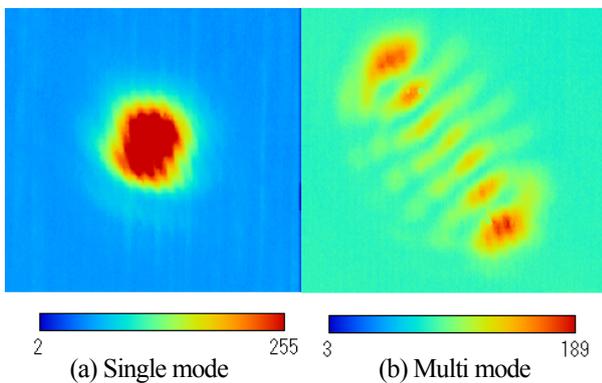


Fig. 5 CCD image of transmitted laser beam profile.

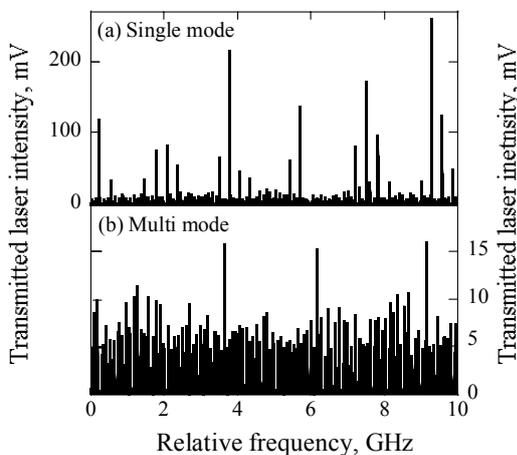


Fig. 6 Single mode and multi mode resonance signal by photo detector.

### 4. 2 LAS 測定結果

CEAS 結果と比較するため、まず LAS 測定を行った。Fig. 7にプラズマトーチ、グロー放電管の吸収信号及びエタロン信号を示す。得られた信号を規格化、フォークトフィッティングしたものを Fig. 8に示す。図が示すようにグロー放電管では圧力が低く、プロファイルはほぼガウス分布であるが、プラズマトーチでは雰囲気圧が大気圧であるため、圧力広がり、シフトが顕著に起きていることがわかる。ドップラー幅、積分吸収係数から推定される中心吸収率、並進温度、数密度はそれぞれ、プラズマトーチが 16.4%、10400K、

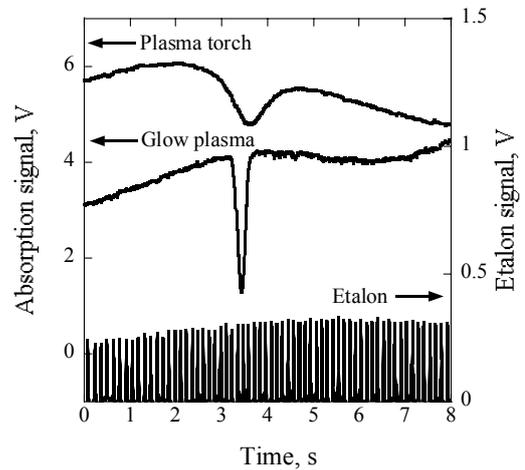


Fig. 7 LAS signal of plasma torch and glow plasma and etalon signal.

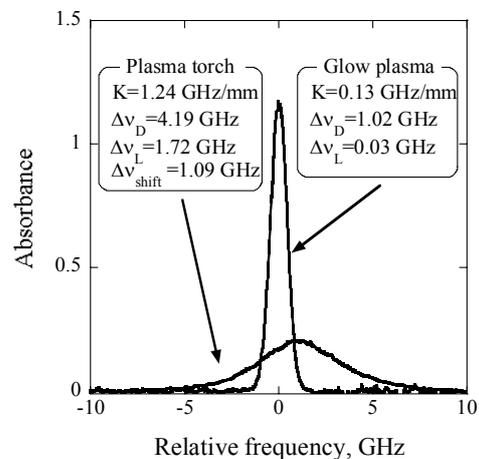
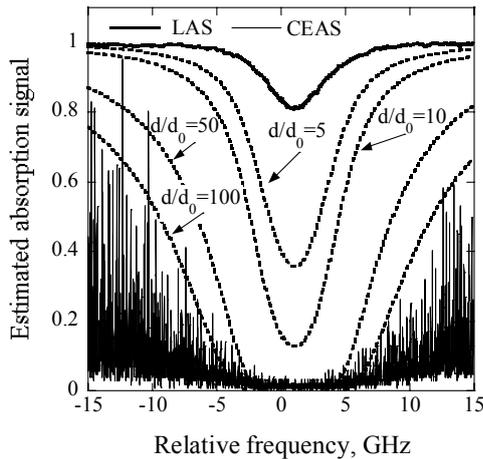
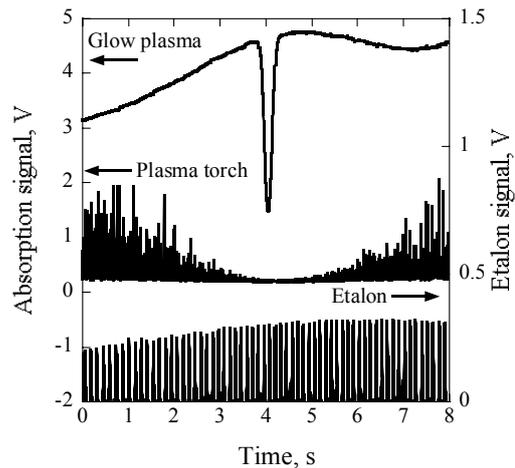


Fig. 8 Absorbance of plasma torch and glow plasma with Voigt fitting results.



**Fig. 9** CEAS signal of plasma torch、LAS signal of glow plasma and etalon signal.



**Fig. 10** Normalized CEAS and LAS profiles of plasma torch and estimated profiles with assumed effective absorption length.

$9.9 \times 10^{17} \text{m}^{-3}$  グロー放電管が 68.1%、610K、 $2.1 \times 10^{17} \text{m}^{-3}$  である。また、吸収準位と基底準位との間にボルツマン関係を仮定することで見積もられる電子励起温度は 9300K (プラズマトーチ)、11500K (グロー放電管) である。従って、グロー放電管は強い非平衡状態にあるがプラズマトーチは局所熱平衡状態に近いと考えられる。

#### 4. 3 CEAS 測定結果

**Fig. 9** にプラズマトーチのCEAS信号、グロー放電管のLAS信号及びエタロン信号を示す。図が示すようにグロー放電管の吸収信号に比べ非常に幅広い領域で透過光が吸収されているのがわかる。この信号を規格化したもの及びLASで得られた吸収プロファイルを示す。**Fig. 10** にはまたLASでの吸収プロファイルをシングルパス $d_0$ とし、実効吸収長を $d/d_0$ 倍と仮定した吸収プロファイルを点線で示す。図が示すように吸収中心では 100%に近い強い吸収が起こっており、プロファイル全体の外形から実効吸収長は 100 倍であることがわかる。これより本研究で開発したCEASシステムは測定感度が 2 桁向上したと考えられる。本研究で使用した高反射ミラーの反射率は99.9%以上が保証されており、この結果は 2.2 節で述べた理論と矛盾しない。今後、さらなる精

緻なプロファイル形状を得るためにはCEAS信号を積算し、共振長をピエーゾにより変位させる必要があると考えられる。

#### 5. まとめ

- 1) レーザー吸収分光法を用いてプラズマトーチ気流を診断した結果、並進温度 10400K、数密度  $9.9 \times 10^{17} \text{m}^{-3}$  が得られた。
- 2) 従来の吸収分光法に新たに高反射ミラーを組み合わせることでキャビティエンハンス分光システムを開発し、測定感度を評価した。
- 3) その結果、従来に比べ実効光路長が 100 倍に向上することがわかった。
- 4) 従って本システムの測定感度は従来に比べ 100 倍向上し、吸収率 0.01% 程度の吸収ラインも検出可能と考えられる。

#### 6. 謝辞

本研究は日本学術振興会特別研究員奨励費(16・10857, 2005)の補助を受けて行われており、ここに謝意を示す。

#### References

- 1) Matsui, M., "Application of Laser Absorption Spectroscopy to High Enthalpy Flow Diagnostics," doctoral dissertation, the University of Tokyo, (2005)

- 2) Matsui, M., Komurasaki, K., Arakawa, Y., "Laser Absorption Diagnostics of High Temperature Plasma Flow," *Journal of IAPS*, Vol.9, pp17-22 (2001), (in Japanese)
- 3) Matsui, M., Komurasaki, K., Arakawa, Y., "Absorption Saturation in Laser Absorption Diagnostics," *Journal of IAPS*, Vol.10, pp17-22 (2001), (in Japanese)
- 4) Matsui, M., Takayanagi, H., Oda, Y., Komurasaki, K., Arakawa, Y., "Performance of arcjet-type atomic-oxygen generator by laser absorption spectroscopy and CFD analysis," *Vacuum*, Vol.73, 3-4, pp.341-346, (2004)
- 5) Matsui, M., Komurasaki, K., Herdrich, G., Auweter-Kurtz, M., "Enthalpy Measurement in Inductively Heated Plasma Generator Flow by Laser Absorption Spectroscopy," *AIAA Journal* Vol.43, No.9, pp.2060-2064, (2005)
- 6) Matsui, M., Komurasaki, K., Herdrich, G., Auweter-Kurtz, M., "Laser Absorption Spectroscopy in Inductive Plasma Generator Flows, Symposium on Flight Mechanics and Astrodynamics, (2002), (in Japanese)
- 7) O'Keefe, A., Deacon, D. A. G., "Cavity ring-down optical spectrometer for absorption measurements using pulsed laser sources," *Review of Scientific Instrument*, Vol.59, 2544, (1988)
- 8) Wheeler, M. D., Newman, S. M., Orr-Ewing, A. J., Ashfold, M. N. R., "Cavity ring-down spectroscopy," *Journal of Chemical Society, Faraday Transaction*, Vol.94, pp.337-351, (1998)
- 9) Romanini, D., Kachanov, A. A., Stoeckel, F., "Diode laser cavity ring down spectroscopy" *Chemical Physics Letters*, Vol. 270, pp.538-545, (1997)
- 10) He, Y., Orr, B. J., "Ringdown and cavity-enhanced absorption spectroscopy using a continuous-wave tunable diode laser and a rapidly swept optical cavity," *Chemical Physics Letters*, Vol.319, pp131-137, (2000)
- 11) O'keefe, A., "Integrated cavity output analysis of ultra-weak absorption," *Chemical Physics Letters*, Vol.293, pp.331-336, (1998)
- 12) NIST Atomic Data:  
[http://physics.nist.gov/cgi-bin/AtData/main\\_asd](http://physics.nist.gov/cgi-bin/AtData/main_asd)
- 13) Demtroeder, W.: *Laser Spectroscopy*, 3<sup>rd</sup> edition, Springer, (2002)
- 14) Griem, H. R.,: *Principles of Plasma Spectroscopy*, Cambridge, University press, (2005)