# 研究終了報告書

# 非公開

「**感度と速度を極めた中赤外画像診断による革新的プラズマの創出」** 研究期間:2020年10月~2024年3月 研究者: 稲田優貴

1. 研究のねらい

大気圧パルス放電の応用技術は、医療・エネルギ・環境・農業分野の救世主と期待され ている。近年では、がん治療、免疫療法、石油の燃費向上技術、汚染物質の浄化技術など、 画期的な応用例が数多く提案されている。こうした新技術の実現を担うのは、放電内で生成 される活性種である。活性種は非常に反応性が高く、反応相手の性質を劇的に改変すること ができるため、革新的な機能や特性を発現させることができる。

しかし活性種応用技術の実用化が遅滞している場面も少なくない。これは活性種を選択 的に大量生成することが難しいためである。活性種の生成を制御するためには、活性種の生 成を司る電子密度・電界の実測データに基づいて活性種の生成機構を解明する必要がある。 しかし、大気圧パルス放電は概して、①放電路に再現性がない、②電子密度・電界が低い、 ③10ps の時間スケールで高速進展するため、電子密度・電界の測定は既存技術では不可能 である。そのため、活性種の計測に基づいた生成機構の解明がこれまで世界中で精力的に行 われてきたが、生成結果である活性種だけでは反応経路などが特定できず、生成機構は長年 にわたり未解明である。さらに、④活性種の生成量が放電パルス毎にばらつくことも、生成 機構の解明を阻む大きなボトルネックとなっている。

一方、本研究ではこれまで、単一測定で電子密度が可視化できる独自のセンサを世界に先 駆けて開発した。しかしこれをパルス放電に適用するためには測定感度が 100 倍不足して いる。さらに 10ps で空間をランダムに進展する放電を捉えるためには、10ps の間隔で連続 撮影を行う必要があるが、連写機能は実現できていない。

そこで本研究では、赤外フェムト秒レーザーの波長と波面を極限制御することで、上記の 電子密度可視化センサを改良し、100 倍の感度向上と 10ps の連写速度を実現する。また同 ーの赤外パルスで3次非線形光学効果を誘起する新方式の採用により、電界測定でも、既存 技術に比して 100 倍の感度向上と 10ps の連写速度を実現する。これにより、挙動が毎回ば らつくパルス放電の電子密度と電界が同時に、世界トップ性能より2 桁優れた感度と速度 で、全放電パルスに渡って連続可視化できる卓越した統合的システムを開発する。これは、 0 次元1 時刻測定が一般的なプラズマ診断の常識を根底から覆す完全に異次元のシステム である。そしてこれらの実測データと従前の数値シミュレーション結果を徹底比較するこ とで、活性種の生成機構を解明する。



2. 研究成果

(1)概要

本研究では、赤外フェムト秒レーザーの波長と波面を極限制御することで、放電内の電 子密度・電界画像が同時に、全放電パルスに渡って 100 倍の測定感度および 10ps のフ レームレートで連続可視化できる、卓越した統合的システムの開発に挑戦した(図 1)。 この目標に対する達成度を表1に示す。

- ① 赤外フェムト秒レーザーパルスをグレーティングペアでパルス幅 160 ps (FWHM)に ストレッチした後、分極反転素子 PPMgSLT にて効率よくアップコンバージョンし、ス ライスミラー系により約25ps(=160ps/6)の連続撮影機能を実現した。これは電子密 度・電界センサに共通した要素技術である。
- ② 本電子密度センサはレーザー波面センサであるためこれまでと同様、レーザー波面全域 にわたって波面勾配を測定・解析することで可視化(2D)性能を得た。一方、電界センサで は可視化性能は得られなかったが、電界ベクトルの 1 次元分布測定を実現し、本手法で 初めてプラズマの電界ベクトルが高精度かつ高空間分解能で測定できるようになった。
- ③ 電子密度センサでは、高次の Talbot 効果を適用することでマイクロレンズアレイを 実装した従来のレーザー波面センサに比して10倍の高感度化を実現した。これによ り、高電子密度の1次放電にくわえ、低電子密度の2次放電においても電子密度を 測定することが出来るようになった。一方、電界センサでは第2高調波が検出でき ず、測定感度は改善できなかった。
- ④ 大気圧パルス放電の活性種生成を支配する重要なパラメーターである電子密度と電界が セットで測定できるようになったことで、新活性種とそれに起因した新反応経路の存在を 明らかにするなど、長らく未解明であった活性種生成メカニズムの一端を解明した。



図1 電子密度・電界画像が 10ps 間隔で超高速・高感度撮影できる統合的イメージング システムの概要

表 1	本研究課題の目標に対する達成度		
		電子密度センサ	電界センサ

	電子密度センサ	電界センサ
10 ps 撮影速度	0	0
可視化(2D)性能	0	$\triangle^{1D}$
100 倍高感度化	△10倍	×



(2)詳細

### 研究テーマI「電子密度センサの開発」

#### (A.1) 10ps の連続撮影機能

赤外フェムト秒レーザーにおいて~10psの連続撮影機能を実現すべく、その事前準備と して、可視光フェムト秒レーザーにて、原理検証および光学部品の選定を行った。具体的に は、可視光フェムト秒レーザーパルスをガラスブロックで周波数チャープさせ、そのチャープ光 を回折光学素子とバンドパスフィルタから成る波長フィルタリング装置に入射すること で、~10psのフレームレートを実現した。その後、レーザー波面センサを構築すること で、プラズマの電子密度がフレームレート~10psで連続撮影できるイメージングセンサ を開発した(図 2(左))。

なお、大気圧パルス放電は極微かつ高密度な形態をとることがあるため、レーザー波面の 回折やレーザー強度の吸収が大きく、空間分解能・測定精度の劣化が課題であった。そこで 本研究では、プラズマ透過後のレーザー波面伝播を数値解析と実験の双方から検証すること により、空間分解能・測定精度の劣化を最小化するセンサ構成を明らかにし実装した<sup>1)</sup>。

また、大気圧パルス放電はサブナノ秒~ナノ秒で経時変化する場合もあるため、本研究では、パラレルミラーと空間光変調器を搭載した独自構成を採用することで、0.1~3 ナノ秒のパルス間隔と各パルスの空間プロファイル制御を実現した<sup>3)</sup>。これはプラズマの経時変化速度や密度分布に応じて、最適なプラズマ画像診断を提供可能とする汎用的技術である。



図2 可視光フェムト秒レーザーで構築した~10 ps フレームレートの電子密度センサ。

可視光フェムト秒レーザーにて原理検証が完了したため、赤外フェムト秒レーザーにお いても 10ps フレームレートを有するイメージングセンサを構築した。赤外フェムト秒レ ーザーをチャープすべく構築した光学系を図3に示す。今回はグレーティングペアを用いるこ とで、波長広がり117 nm (FWHM)かつパルス幅 0.14 ps (FWHM)の赤外フェムト秒レーザー パルスをパルス幅 160 ps (FWHM)にストレッチした。





図3 赤外フェムト秒レーザーにて構築したチャープパルス系

図1に示した通り、本研究で開発する電子密度センサでは、赤外チャープ光をアップ コンバージョン(SHG)する。BiBO 結晶やBBO 結晶、半導体表面など、数多存在する アップコンバージョン方法の中から最も変換効率の高い方式を探索した結果、分極反 転素子 PPMgSLT を用いることで最も高い変換効率が得られることを見出した(図4)。 今後は、赤外フェムト秒レーザー光の種光源である基本波も160 ps (FWHM)にチャー プし、分極反転デバイスにより SFG を行うことで、更なるアップコンバージョン効率 の向上と大面積型の可視光用撮像素子の利用を可能とする。これにより、撮影画像の 枚数増加と高精細化を実現する。



図4 分極反転素子 PPMgSLT によるフェムト秒レーザー光のアップコンバージョン

赤外チャープ光を波長に応じてカメラ上へ空間配置するべく、超精密ミーリング加 工機によりスライスミラーを作製した(図 5(左)右)。今回作製したスライスミラーで は、6枚のミラーが並置されており、各ミラーは異なる「あおり角」を有する。赤外チ ャープ光をグレーティングにより波長分散させた後、このスライスミラーへ入射させ ることで、波長に応じて異なる空間へ反射光を導くことが可能である(図 5(左)左)。こ れにより、約 25 ps(=160 ps / 6)のハイフレームレートを実現し (図 5(右))、赤外フェム ト秒レーザーにおいても~10psの連続撮影機能を実現した。

本研究のスライスミラーは、理化学研究所 光量子工学研究センター 先端光学素子 開発チーム(山形グループ)および東京大学 大学院工学系研究科 バイオエンジニアリン グ専攻 中川桂一先生の協力を得て、理化学研究所にて作製した。





図5 赤外フェムト秒レーザーにて構築した~10 ps フレームレートのイメージングセンサ

# (A.2) 100 倍の高感度化

マイクロレンズアレイを実装した従来型レーザー波面センサでは、放電を透過した レーザ波面の勾配信号 Tが、レーザ波長  $\lambda$  の 2 乗とレンズアレイの焦点距離 fに比例し て大きくなる(図 6)。本研究では赤外レーザ光を使用するため、勾配信号 Tは可視光を 採用した従来型よりも 10 倍増幅される。さらにピンホールアレイに起因した Talbot 効 果を新規適用することで、従来型レーザー波面センサが抱えていた回折限界の制約を 突破し、擬似的な焦点距離が大幅に更新できる(高次の Talbot 効果)。本項では、赤外光 と Talbot 効果の適用により、勾配信号 T すなわち測定感度を合計で 10×10=100 倍改善 する。



図6 高感度化手法および従来型センサとの比較

高次の Talbot 距離では空間分解能が低下する可能性があったため、可視光レーザー により実験と数値解析の双方から検証を行った。作製したピンホールアレイを図 7(左) に示す。放電空間の屈折率分布をレンズで模擬し、高次の Talbot 距離でレーザー波面 の勾配信号 Tを測定した図 7(中)。結果を図 7(右)に示す。同図には、以前行った波面 分割法による数値解析結果と、空間分解能の低下が無いとした時の理論式も描画し た。実測・数値解析ともに理論式が概ね再現できており、空間分解能の低下は少ない ことを実証した。このように高次の Talbot 距離を採用することで空間分解能を低下さ せることなく、10 倍の高感度化を達成した。





図7 高次の Talbot 効果を用いた電子密度センサの10 倍高感度化

本研究の大気圧パルス放電には、高電子密度の1次と低電子密度の2次が存在する。マイクロレンズアレイを実装した従来型レーザー波面センサでは1次でしか電子 密度を測定することが出来なかったが、10倍の高感度化が達成できたことで、2次に おいても電子密度を測定することが出来るようになった。これは、「研究テーマ(III)活 性種生成機構の解明」に供する重要な要素技術である。

# 研究テーマ II 「電界センサの開発」

本研究で開発している電界センサでは、プラズマ内部の電界に起因して発生する第2 高調波強度を測定する。この第2高調波強度は、レーザー進行方向に沿った一種の積分 値であるにもかかわらず、従来研究ではこの点が十分に考慮されておらず、測定精度が 不明であった。さらに上記の積分値に起因した、低い空間分解能も課題であった。そこ で本研究では、測定される第2高調波強度からプラズマ内部の電界分布を算定する解析 手法を考案することで、測定精度を確定させ、測定精度および空間分解能の高い電界ベ クトル測定センサを開発した<sup>2</sup>)。

この電界測定法を、大気圧パルス放電に適用した事例を図8に示す。本研究は、可視 光フェムト秒レーザーにて行った。シリンドリカルレンズで線集光したレーザー光によ り、図8(左)の点線に沿った径方向電界分布を測定することを考える。実測された第2高 調波強度の径方向分布は、図8(a)(b)内の灰色プロットである。ここで、ある電界分布を仮定す ると、レーザーの光路上で生起する第2高調波の複素振幅が計算できる。そのため、第2高 調波強度の径方向分布を事前に予測することが出来る。この予測分布が、実測分布と整合 するように電界分布を決めれば、その電界分布が求めるべき電界分布、という事になる。仮定 した電界分布が図8(a)(b)の赤実線であり、その結果計算された予測分布が黒実線である。こ の黒実線は、灰色の実測分布と整合しているため、仮定した赤実線の電界分布が、求めるべ き電界分布である。灰色の実測分布にはエラーバーがあるため、このエラーバーが説明できる 分布が赤点線で示してあり、赤点線で挟まれる範囲が電界の測定精度である。空間分解能は 第2高調波1次元分布の測定ピッチと等しく今回は20µmである。これは既存手法に比して1 桁以上高い空間分解能である。こうしたシステマティックな解析と実測の融合により、大気圧パ ルス放電をはじめとしたプラズマの電界ベクトルが、本手法で初めて高精度かつ高空間分解 能で測定できるようになった。





図 8(左)大気圧パルス放電の発光画像(点線に沿った径方向電界分布を測定)。(右)径方 向電界分布の(a)軸方向成分 *E*<sub>v</sub>/*N* と(b)径方向成分 *E*<sub>r</sub>/*N*。

# 研究テーマ III 「活性種生成機構の解明」

本研究では、大気圧パルス放電の活性種生成を司る電子密度と電界がセットで実測可能と なったことで、既存の数値シミュレーション結果の妥当性を評価できるようになった。一例を示 す。

電子密度測定の結果、2 次の大気圧パルス放電では電離が発生していた。電界を測定して みると図 9(左)に示す通り、大気圧パルス放電の内部電界は電離電界を上回る 145 Td に達し ており、電子密度の測定結果と符合する。一方、数値シミュレーションでは電離は発生してお らず、大気圧パルス放電の内部電界は図 9(左)に示す通り電離電界未満である。この違いが 生じた原因を、数値シミュレーションを駆使して検証したところ、1次の大気圧パルス放電がv= 13 mm の陰極に到達した時点における電子密度分布の逆比で、2 次の電界が決まる、という 事実が示唆された。確かに 1 次到達時、シミュレーションでは電子密度のディップが無い(図 9(右)点線)のに対し、実験では y = 3 mm 近傍に電子密度のディップがあり、2 次の電界は高 い(図 9(左))。この実測結果にシミュレーション結果を近づけるためには、シミュレーションがデ ィップを持つ必要がある。 つまりシミュレーションコードに実装されている電子消滅速度が y = 3 mm 近傍でもっと早い必要がある。そこで数値解析コードに実装されていた反応式の取捨選択 を行ったところ、酸素テトラトミックイオンと電子の解離性再結合反応(O4++e → O2+O2)とい う新活性種とそれに起因した新反応経路を追加することで、実測された1次到達時の電子密 度分布が再現できることが分かった。このように、電子密度と電界をセットで測定することで、実 測と数値シミュレーション結果の差異が生じた理由を明らかにし、活性種生成メカニズムの一 端を解明することが出来た。



図 9 電子密度・電界測定に基づいた活性種生成機構の解明 (左)(右)の図はぞれぞれ A. Komuro, *et al.*, *J. Phys. D: Appl. Phys.* (2013, 2018)から作成



# 3. 今後の展開

本研究で開発した電子密度センサは広域なプラズマ現象のみならず、相界面における圧縮 性流体の超高速可視化、生体分子の挙動観察など、再現性のない現象の学術研究に広く適用 できる基盤技術である。一方電界センサでは、各種生産ラインやインフラ機器(電力機器、 高集積回路、エンジン等)の電界異常がスマートモニタリングできるため、5G/IoT と AI を 融合した高度情報化社会の実現に大きく貢献する。また活性種の革新的生成法は、プラズマ 医療を始めとした活性種応用技術の学理創成や実用化に直結する最重点技術である。

# 4. 自己評価

これまで多くの『超高速イメージング』が実施されてきたが、その多くは現象の概形を与えるシャド ウグラフやシュリーレンである。しかし、現象のメカニズムを解き明かすためには、こうした現象の"見 た目"のみでは不十分である。メカニズムの解明には、現象を司る内部の基礎物理量が必須である が、『超高速イメージング』で基礎物理量を測定するという研究はこれまで皆無であった。そこで本 研究では、『超高速イメージングによる基礎物理量測定』という未開拓分野を立ち上げるべく、さき がけでないと実施が難しい、ハイリスク&ハイリターンな研究内容に挑戦した。成果は虫食い的に なった部分もあり統合的システムの実現には至らなかったが、未開拓研究への挑戦により、大 気圧パルス放電の活性種生成を司る電子密度と電界がセットで実測可能となった。これにより活性 種生成メカニズムの一端を解明することが出来た。これは大気圧パルス放電のみならず、すべての プラズマ分野に波及する重要な成果であると考えている。本センサの各要素技術は断片的に明ら かにされているものもあったが、これらをプラズマ診断に適用するためには、これまで考慮されてこ なかった効果や原理を自身で抽出・解釈し、実装策を独自に切り拓く必要があった。これらの何例 かは本さきがけ期間内で原著論文として公表することが出来た。まだまとめきていない成果も順次、 公表予定である。

このように本さきがけでは、『超高速イメージングによる基礎物理量測定』という未開拓研究を始 動させることが出来た。本分野を立ち上げたトップランナーとしてこれから認知・評価されるためにも 引き続き、本技術と成果を国際・学際的に展開してゆく。

5. 主な研究成果リスト

(1)代表的な論文(原著論文)発表

研究期間累積件数:3件

1. Keitaro Shimada, Yuki Inada, Ayumu Ishijima and Keiichi Nakagawa,

Optical design of a laser wavefront sensor applicable under strong diffraction effects by

irreproducible microscale high-density plasma

Measurement Science and Technology 33(5), 055403 (2022).

レーザー波面センサは、放電をはじめとしたプラズマ内の2次元電子密度測定に多用され



てきたが、極微かつ高密度なプラズマではレーザー波面の回折やレーザー強度の吸収が大き く、空間分解能・測定精度の劣化が問題となっていた。そこで本研究では、プラズマ透過後の レーザー波面伝播を数値解析と実験の双方から検証することにより、空間分解能・測定精度の 劣化を最小化するセンサ構成を明らかにした。これはプラズマ内電子密度の画像診断に供す る基盤技術である。

2. Yuki Inada, Tatsutoshi Shioda, Ryosuke Nakamura, Mitsuaki Maeyama, Akiko Kumada, Shin Nakamura and Ryo Ono,

Systematic 1D E-FISH Measurement for Primary-to-Secondary Transition Phase of Positive Streamer Discharge under Atmospheric-Pressure Air

Journal of Physics D: Applied Physics 55(38), 385201 (2022).

大気圧パルス放電の電界ベクトル分布を正確に測定すべく、レーザーを用いた非接触セン サが数多く提案されてきたが、不明確な測定精度と低い空間分解能が原因で、信頼性の高い 測定は困難であった。そこで本研究では、レーザー光路方向のシグナル積算値から、実測す べき電界ベクトル分布を復元する独自の解析手法を考案した。これにより測定精度の算定を 可能とし、パルス放電内の1次元電界ベクトル分布を、従来よりも1桁以上高い空間分解能で 実測することに成功した。これによりプラズマのメカニズムにおいて特に重要な役割を果たす 電子密度と電界がセットで実測可能となった。

3. Keitaro Shimada, Ayumu Ishijima, Takao Saiki, Ichiro Sakuma,

Yuki Inada and Keiichi Nakagawa,

Spectrum shuttle for producing spatially shapable GHz burst pulses

Advanced Photonics Nexus 3(1), 016002 (2023).

超短パルスレーザーから成形されるパルストレインは、レーザー加工や超高速イメージングな ど様々な用途に利用されてきたが、サブナノ秒~ナノ秒のパルス間隔と、各レーザーパルスの 空間プロファイル制御を実現することは困難であった。そこで本研究では、パラレルミラーと空 間光変調器を搭載した独自構成を採用することで、0.1~3 ナノ秒のパルス間隔と各パルスの 空間プロファイル制御を実現した。これはプラズマの経時変化速度や密度分布に応じて、最適 なプラズマ画像診断を提供可能とする汎用的技術である。

(2)特許出願

稻田 優貴, 塩田 達俊, 中村 亮介 者 発 明 発明の名称 電界計測方法及び電界センサ 出 願 人 国立大学法人埼玉大学 1 2021年7月27日 出 願 日 出願番号 特願 2021-122635 概 センサ構成を最適化することで実用に足る測定精度で電界の空間 要 分布が取得できる電界計測方法及び電界センサを提供する。

研究期間全出願件数:1件(特許公開前のものも含む)

(3)その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

主要な学会発表

・ 稲田優貴「プラズマ診断・計測」応用物理学会プラズマエレクトロニクス分科会プラズマエレク



トロニクスインキュベーションホール, オンライン開催, 2021/9/6 (招待講演)

・ Yuki Inada, "Visualization Technique of Atmospheric Plasma", 第 38 回 プラズマ・核融合学会 年会, オンライン開催, 2021/11/24 (招待講演)

・稲田優貴「レーザーを用いたプラズマ診断技術の開発-電子密度、乱流、電界-」2022 年度第 1回静電気学会研究会,オンライン開催,2022/3/2(招待講演)

・稲田優貴「時空間制御された大気中シングルフィラメントストリーマ放電の電子密度・電界測定」 応用物理学会秋季学術講演会,東北大学,2022/9/20(招待講演)

• Yuki Inada, Tatsutoshi Shioda, Ryosuke Nakamura, Mitsuaki Maeyama, Akiko Kumada and Ryo Ono, "High Spatial Resolution Measurement of Electric Field Vector in Positive Secondary Streamer Discharge under Atmospheric-Pressure Air" 75th Annual Gaseous Electronics Conference (GEC2022), Sendai, Japan 2022/10/4 (口頭発表)

• Yuki Inada, "1D distribution measurement of electric field in streamer discharge by EFISH" 20th International Symposium on Laser-Aided Plasma Diagnostics (LAPD20), Kyoto, Japan 2023/9/11 (招待講演)

