

高気圧下におけるフェムト秒レーザーを用いたプラズマの観測

Observation of plasma produced by femtosecond laser in high pressure gas

富田祐司†,津田紀生††,山田諄††

Yuji Tomida, Norio Tsuda, Jun Yamada

Abstract Plasma produced by the femtosecond laser in high pressure gas has been studied. The threshold laser power of plasma is measured by viewing. The threshold laser power of plasma decreases with increasing gas pressure. It is thought that both ionization processes, cascade ionization and multi-photon ionization, exist in the plasma production processes by femtosecond laser. The plasma streak image is taken by streak camera. The one plasma plume is made in low gas pressure and the multiple plasma plumes are made in high gas pressure. The one plasma plume has longer lifetime, higher luminosity and is made in focal spot. The multi plasma plumes have shorter lifetime, lower luminosity and made on near a focus point. The number of plasma increases with increasing gas pressure.

1. はじめに

現在、プラズマは様々な分野で研究、応用が行われている。多くの分野で使用されているプラズマであるが、その多くは、アーク放電やグロー放電等の低圧力下における放電によるプラズマが使用されている。それに対して、レーザーによるプラズマは、高気圧下でのプラズマ生成が容易であること、高速で高密度のプラズマを生成することが出来るという利点があることから、我々の研究室ではルビーレーザーや XeCl エキシマレーザー等を用いた高気圧下でのプラズマの生成過程の解明等の研究を行ってきた¹⁾。XeCl エキシマレーザーを用いた場合でのプラズマの生成過程では、レーザー光パルス幅中での逆制動放射によるカスケード電離によりプラズマが成長するといえる結果を得ている²⁾³⁾。本研究では初めて、単発のパルス幅がフェムト秒(10^{-15} 秒)という非常に短いレーザーを用いて高気圧でプラズマを生成した。フェムト秒レーザーを用いた高気圧下でのプラズマ生成過程の解明、プラズマの性質の調査を最終目的に掲げ、本研究では、プラズマ生成閾値調査およびプラズマストリーク像観測の実験を行った。この実験結果および、結果から想定出来る考察について述べる。

2. プラズマ生成過程

フェムト秒レーザーにより生成されるプラズマの電離過程はほとんど明らかにされていないが、パルス幅がナノ秒のレーザーにより生成されるプラズマの電離過程は二つある。一つは光子の原子へのエネルギー吸収によって引き起こされる。レーザーの光子 1 個が持つエネルギーは、電離電圧よりもはるかに小さいので直接電離を引き起こせない。しかしレーザー光強度が高くなり光子密度が高くなると、複数の光子を同時に吸収し電離電圧を上回る多光子電離過程が起こる。この実験で使用するフェムト秒レーザーの場合、中心波長が 800nm であることから、光子 1 個のエネルギーは 1.6eV である。使用したガス媒質は Ar であり第一電離電圧は 15.76eV、第二電離電圧は 27.6eV である。多光子電離過程が生じるためには、第一電離では 10 個の光子、第二電離では 18 個の光子が同時吸収することで引き起こされる。

もう一つの電離過程はカスケード電離である。多光子電離過程で生じた初期電子は、レーザー光パルス幅中の逆制動放射によって加速される。その加速された電子が次々と中性原子と衝突し、衝突電離を繰り返すことで次第的に電離していく過程がカスケード電離である。多光子電離過程で必要なレーザー光強度はガス圧力に依存しないのに対して、カスケード電離はガス圧力が高いほど、必要なレーザー光強度は低下する。

† 愛知工業大学大学院 工学研究科
電気電子工学専攻 (豊田市)

†† 愛知工業大学 工学部 電気学科
電子情報工学専攻 (豊田市)

3. 実験装置

この実験で使用したレーザ TALES JAPAN 社製のフェムト秒レーザ Alpha10 を使用した。性能を表 1 に示す。Alpha10 はシード光用のパルスジェネレータとポンピング用の YAG レーザという 2 種類の外部機器と、本体内部にある光学系と増幅器から構成されている。チャープパルス増幅法によって極短パルス幅の高出力レーザ光を出力している。

表 1 フェムト秒レーザ性能表

Wave length[nm]	800
Pulse width[s]	100×10^{-15}
Max. laser power[mJ]	100
Spot diameter[μm]	30

プラズマを生成する容器として、ステンレススチール製の高圧容器を使用した。直径 110mm、長さ 140mm のステンレススチール製の円筒形で、光軸方向に直径 30mm、光軸と垂直方向に 20mm の穴を空け、厚さ 10mm の石英ガラス製の 4 つの窓を取り付けた。レーザ入射用の窓の一つに焦点距離 40mm 直径 30mm のレンズを取り付けてある。高圧容器は、真空ポンプにより真空中に排気した後、ガスポンプを用いてアルゴンガスを供給した。高圧容器内の気圧を 50atm 以上にすることは手動式圧縮ポンプで加圧した。

ストリークカメラは浜松ホトニクス社製の C7700 を使用した。外付けの CCDC4742-98、ストリーク像表示用のコンピュータ、パルス遅延用のディレイユニットと共に使用した。ストリークカメラの性能を表 2 に示す。

表 2 ストリークカメラ性能表

Time resolution[s]	0.5×10^{-12}
Time window[s]	$0.5 \times 10^{-9} \sim 1.0 \times 10^{-3}$

4. プラズマ閾値調査

4-1 実験方法

プラズマの生成過程の調査の最初の一步としてプラズマ生成閾値調査を行った。実験装置を図 1 に示す。Ar ガスを封入した高圧容器に Alpha10 からパルス幅 100fs 程度のレーザ光を照射する。高圧容器内部のレンズでレーザ光を集光して焦点でプラズマを生成した。一回の実験で 20 回レーザ光照射して、プラズマが生成される回数を目視により観測しプラズマ生成率として、レーザパワー依存性、ガス圧依存性を調査した。観測者 3 名で、5 回実験

を行った結果を平均した。レーザパワーはレーザ自体で制御が出来ないため、ND フィルター(波長依存性の無い)を用いて、レーザパワーを調整した。

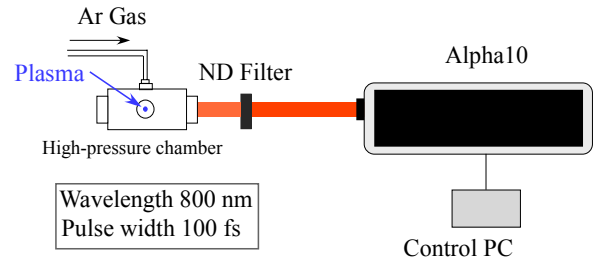


図 1. プラズマ生成閾値実験図

4-2 ガス圧依存性

レーザパワーを一定にした状態で、ガス圧力を変化させ、プラズマ生成率を導出した。図 2 にプラズマ生成率のガス圧依存性を示す。

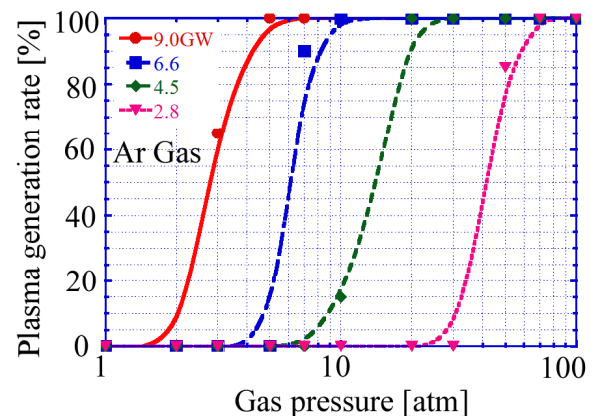


図 2. ガス圧依存性

横軸がガス圧力、縦軸がプラズマ生成率を示している。右にゆくほどレーザパワーが小さくなる。実験結果から、ガス圧力の上昇に伴い、プラズマ生成率が上昇することが確認出来た。ガス圧の上昇とともにガス分子密度が増加するため、プラズマの生成率が上昇するためであると思われる。

4-3 レーザパワー依存性

ガス圧力を一定にした状態で、レーザパワーを変化させた、プラズマ生成率のレーザパワー依存性を導出した。図 3、図 4 にレーザパワー依存性を示す。

図 3 では、1~10 気圧下でのレーザパワー依存性を示している。図 4 では、10~100 気圧下でのレーザパワー依存性を示している。図 3、図 4 とも横軸はレーザパワー、縦軸はプラズマ生成率を示している。左に行くほど

ガス圧力が高い条件である。レーザーパワーの上昇とともに、プラズマ生成率が急激に上昇することが確認できる。レーザーパワーに比例して、レーザーパルス中に存在する光子の数が増えるため、電離が容易になったと想定出来る。

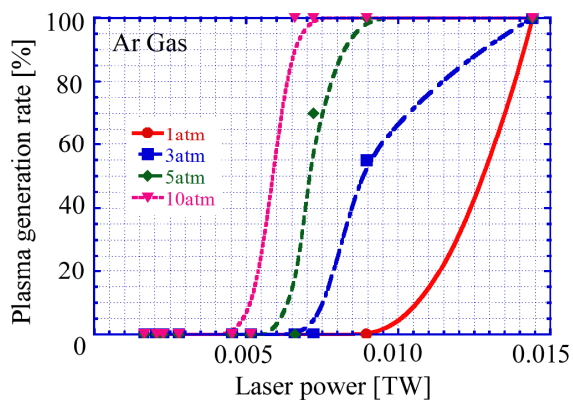


図3.レーザーパワー依存性 1

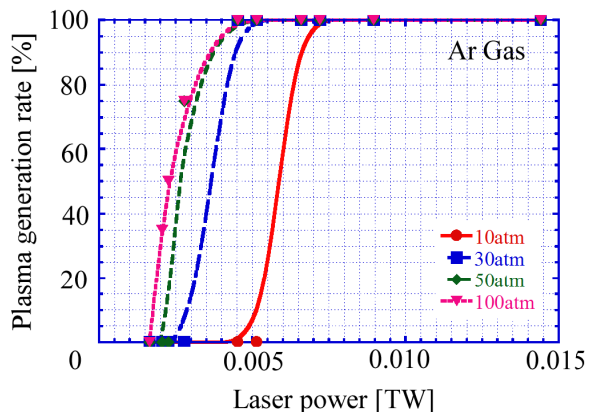


図4.レーザーパワー依存性 2

4-3 プラズマ生成閾値

プラズマの生成率のレーザーパワー依存性での生成率が50%となるレーザーパワーをプラズマ生成性閾値として導出を行った。生成閾値の結果を図5に示す。横軸はガス圧力、縦軸は生成閾値パワーを示している。ガス圧力の上昇と共に、生成閾値パワーは低下していくことがわかる。ガス圧力に対する実験結果の傾きは-0.42であった。比較用に示したカスケード電離、多光子電離の傾きはそれぞれ-1、0である。実験初期、パルス幅の長さから多光子電離が支配的であると想定していたが、実際には両電離過程の寄与が想定出来る結果となった。ナノ秒オーダーのレーザー(YAGレーザー、XeClエキシマレーザー等)では、カスケード電離が支配的である結果を証明しているため、フェムト秒というパルス幅が影響していると考えられる。この両過程の割合については、カスケード電離過程の割合は非常に小さく、多光子電離過程では電子密度が

初期原子密度を上回るという計算結果であるため、現在調査中である。

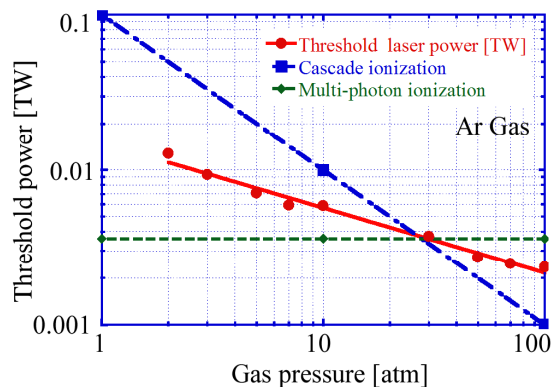


図5.プラズマ生成閾値図

5 プラズマストリーク撮影

5-1 ストリークカメラ撮影図

フェムト秒レーザーで生成されているプラズマの形状、寿命等の特徴を見るために、ストリークカメラを使用しプラズマの撮影を行った。図6に実験装置を示す。

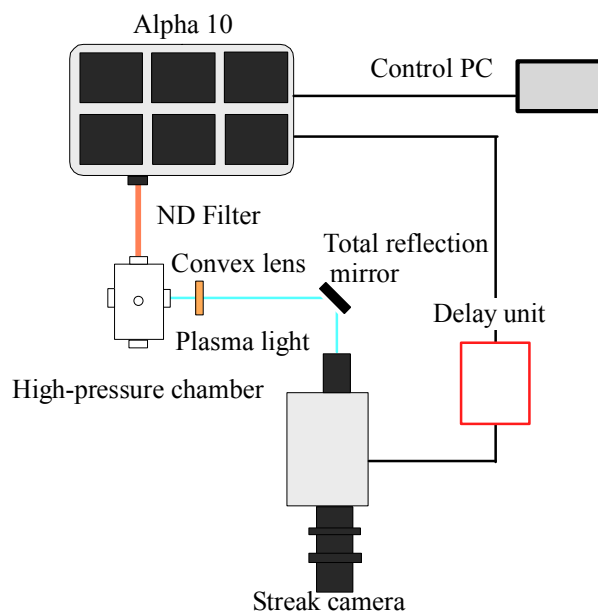


図6.実験装置図

プラズマを生成する方法は、生成閾値実験と同様である。生成されたプラズマからの発光を、レンズで集光して全反射ミラーを経て、ストリークカメラの入射スリット上で結像してシャッターを切る仕組みである。拡大率は3.68倍である。また、レーザー光軸に対して平行に撮影を行っている。

5-2 ストリーク像の種類

撮影されたプラズマのストリーク像の例を図 7、図 8 に示す。ストリーク像は縦軸が時間、横軸がスリット上の位置を示している。また、上から下へと時間掃引されている。撮影されたストリーク像は、大きく 2 種類に分けられる。図 7 のような単一のプラズマプルームと図 8 のような複数のプラズマプルームである。

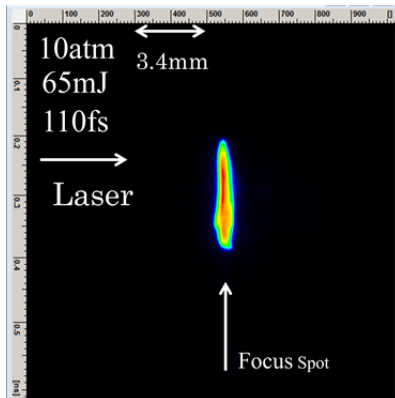


図 7.単一のプラズマプルーム

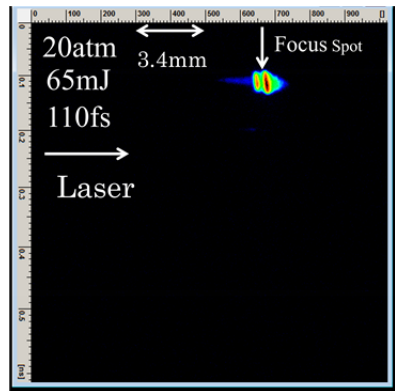


図 8.複数のプラズマプルーム

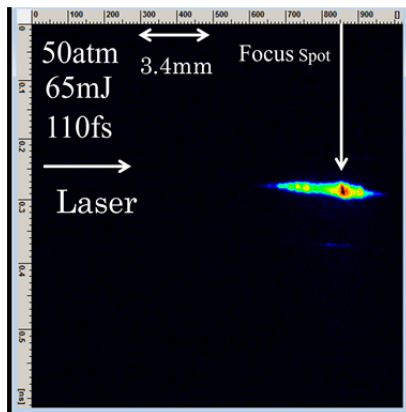


図 9.プラズマプルーム群

単一のプラズマプルームは、複数型のものに比べて寿命が長く、光強度は 5~8 倍程度であった。複数のプラズマでは、焦点の前後にプラズマプルームが生成されているのを確認した。気圧の上昇により、個数が増えていき、70~100 気圧程度では多くのプラズマプルームが重なり合っ、プラズマプルーム群として撮影されている。図 9 に示す。

5-3 種類別プラズマ生成率

レーザパワー65mJ、パルス幅が 110fs の条件で各気圧毎のプラズマプルームの種類別生成率を 20 回のプラズマプルーム撮影を行い導出した。以下の全実験結果でも同様の条件を使用している。図 10 に実験結果を示す。

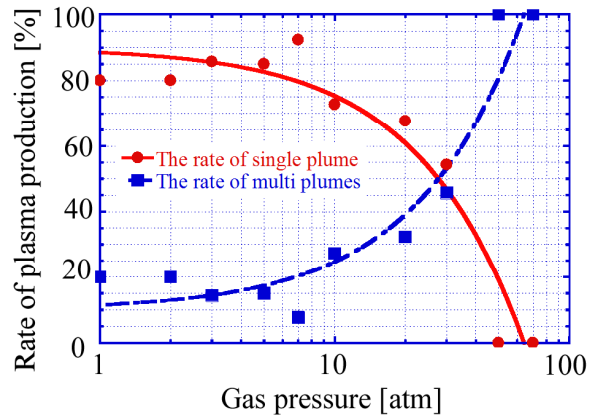


図 10.種類別プラズマ生成率

横軸はガス圧力、縦軸はプラズマ生成率を示しており、丸のプロットが単一のプラズマプルームを示し、四角のプロットが複数のプラズマプルームを示している。気圧の上昇共にプラズマの個数が増加していくことを確認出来る。両プラズマプルームの生成率は、30 気圧付近で割合が入れ替わることが分かる。プラズマの生成閾値はガス圧の上昇とともに低下するため、焦点前後に存在する偶存電子を種として、プラズマが生成されていると考えられる。

5-4 プラズマ寿命

種類別にプラズマの寿命の測定を行った。プラズマの寿命の測定する際には、ストリーク像自体から読み取るのではなく、ストリーク像の光強度分布を求め、最大光強度の e の分の 1 になる 2 点間の時間をプラズマ寿命として測定した。図 11 に結果を示す。横軸はガス圧力、縦軸はプラズマの寿命を示している。丸が単一のプラズマプルーム、四角が複数のプラズマプルームを示している。

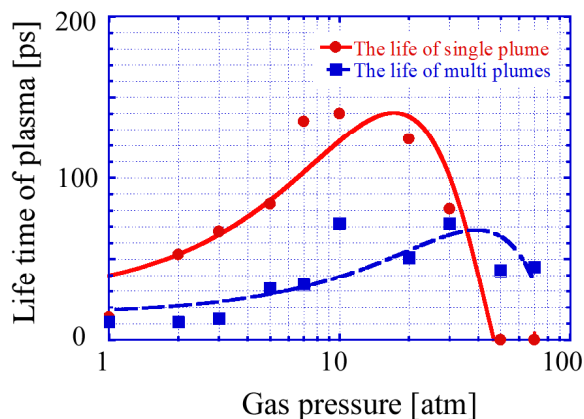


図 11. プラズマ寿命

20 気圧までは、ガス圧力の上昇と共に両プラズマブームの寿命が延びていくことがわかる。また、20 気圧以降では、プラズマブームの寿命が低下することが確認出来る。20 気圧程度までは、ガス圧力に依存性してプラズマの生成閾値が低下するため、高密度のプラズマが出来やすくなるため、プラズマの寿命が延びていくと想定出来る。20 気圧以降では、生成閾値低下によりプラズマが高密度化し寿命が延びるよりも、周囲のガス原子数の増加によるプラズマのエネルギー損失量が大きくなるため、寿命が減少していくと考えられる。また結果から、単一のものに比べて、複数のものの寿命の減少の割合は小さいことがわかる。30 気圧以降に生成されるプラズマのほとんどのものが、プラズマ群として撮影されるため、プラズマブーム全体の長さが長くなる。そのため、単一のものに比べて、体積あたりの表面積が減少していくため、エネルギー損失の割合が小さくなるため、減少率に差が存在すると考えられる。

5-5 プラズマ長

種類別のプラズマ長の測定を行った。撮影されたストリーク像上のプラズマ長が最も長くなっている場所を、寿命の測定と同様に最大光強度の e 分の 1 となる 2 点間の距離をプラズマ長として計測を行った。また、複数のプラズマブームでは、全てのプラズマブームを足し合わせて計測した。図 12 に結果を示す。横軸はガス圧力、縦軸は全プラズマ長を示している。単一を丸で、複数を四角で示している。ガス圧力に依存して両プラズマブームの長さは、上昇していくことがわかる。ガス圧力の上昇により生成閾値は低下するため、偶存電子を種としたプラズマの高密度化とプラズマの個数の増加という二つのことが起きていると想定できる。プラズマ群として撮影されたものと複数のものとのプラズマ長の比較を図 13 に示す。横軸はガス圧力、縦軸は全プラズマ長を示している。四角が複数のプラズマ、菱形がプラズマ群のもの

を示している。プラズマ群として撮影された時には、非常にプラズマ長が長くなる。ガス圧力の上昇とともに、閾値が下がることでプラズマブームの数が多くなると想定できる。

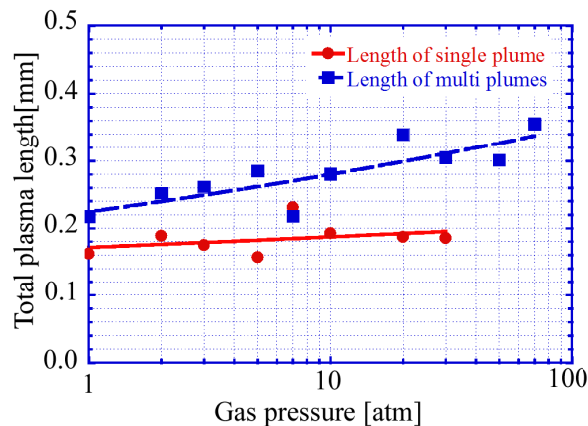


図 12. 全プラズマ長(単一と複数)

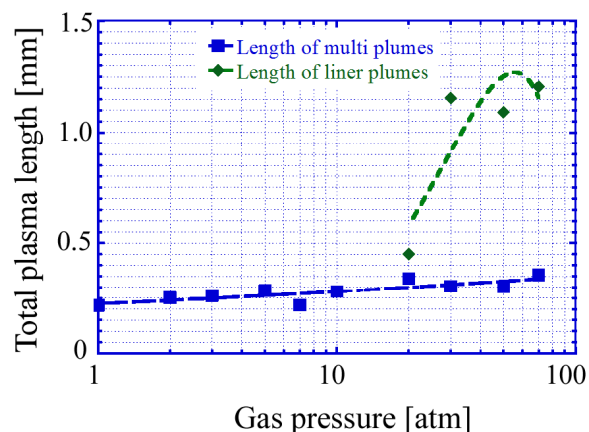


図 13. 全プラズマ長(複数とプラズマ群)

全プラズマ長として測定を行った場合に、複数のプラズマブームでは、個数が増えていくことでプラズマ長の上昇していくと想定している。しかし、複数の中の一つ一つのプラズマ長に疑問を感じたため、測定を行った。この測定では、複数のプラズマブームでの焦点のプラズマ長を測定して、単一のものと比較を行った。焦点の判断は、撮影された最も光強度の強いものを焦点とした。測定では、単一のプラズマブームがほとんど左右対称の形状で撮影されているため、焦点位置でのプラズマブームを左右対称と仮定し測定を行った。また、プラズマ群の焦点でのものも同様に測定した。図 14 に結果を示す。横軸はガス圧力、縦軸はプラズマ長を示している。丸が単一のプラズマブーム、三角が複数の焦点でのプラズマブームを示している。両プラズマブームとも、ガス圧の上昇とともに伸びていくことがわかる。

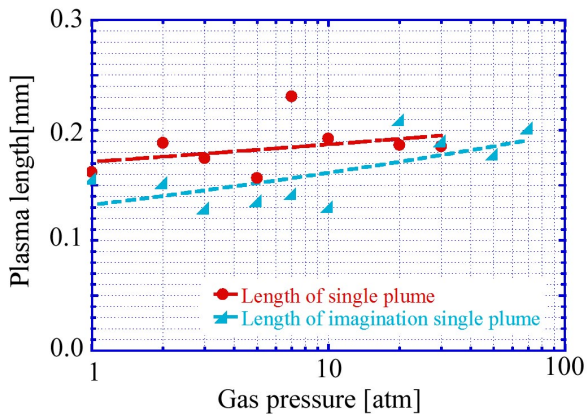


図 14.プラズマ長(単一と想定単一)

焦点でのプラズマプルームと単一のプラズマプルームでは、測定誤差を含めても、ほぼ同様のプラズマ長だと言える。このことから、複数及びプラズマ群では、最大で単一と同程度のプラズマプルームが多く生成されることで、全プラズマ長を伸ばしていくと想定する事が出来る。

6総括

高気圧気体中におけるフェムト秒レーザーで生成されたプラズマにおいて生成閾値実験、ストリーク像観測の実験を行った。結果からフェムト秒レーザーを用いた場合に高気圧下で生成されるプラズマは、カスケード電離、多光子電離の両電離過程が行われていると想定出来る結果が得られた。簡単ではあるが、この両電離過程の割合を計算した結果では、カスケード電離の割合が非常に小さくなり、多光子電離では、初期原子密度を大幅に上回る電子密度となった。この詳細を明らかにするために、Arガスの電離確率の調査を含めた、電離割合のシミュレーションを行う必要がある。

また、生成されるプラズマは、大きく分けて二つの形態をとることを明らかにした。単一のプラズマプルームと複数のプラズマプルームが生成されるのは、生成閾値低下が影響していると考えられる。生成閾値が高い低ガス圧力の場合には、レーザー光強度が最も強くなる焦点のみ、絶縁破壊が起こり、プラズマが生成される。一方、生成閾値が低下する高ガス圧力では、集光する手前のレーザー光路上でのエネルギー量で、偶存電子を種としてプラズマが生成されるため、複数個のプラズマが観測されたと考えられる。また、複数個のプラズマを生成するため、エネルギーが分散し、個々のプラズマの寿命と電子密度が少なくなると想定も出来る。

参考文献

- 1) Jun YAMADA and Takyoshi OKUDA, "Development Mechanism of Laser Spark in High Pressure Argon Gases", Jpn.J.Appl.Phys.Vol.18,No.1,JAMUARY,1979,pp.139-144
- 2) Norio TSUDA, Jun, Yoshihisa UCHIDA and YAMADA, "Spectroscopic Measurement of High-Pressure Argon Plasma produced by Excimer Laser", Jpn. J. Appl. Phys. VI.36(1997)pp.4690-4694, Part1, No.7B, July 1997
- 3) Norio TSUDA and Jun YAMADA, "Observation of forward breakdown mechanism in high-pressure argon plasma produced by irradiation by an excimer laser", Jpn. J. Appl. Phys. Vol.81, No.2, 15 January 1997

(受理 平成 24 年 3 月 19 日)