

エキシマレーザにより生成した 高気圧アルゴンプラズマの特性

Properties of High Pressure Argon Plasma by Irradiation of Excimer Laser

山田 諄・柴田幸二

Jun YAMADA・Kohji SHIBATA

High pressure argon gases from 2 to 150 atm are irradiated by an intense XeCl excimer laser light with a maximum power of 17MW and a half width of 30ns. A hot and dense plasma is produced in the high pressure gas. The transmitted laser light is observed to study the mechanism of the breakdown and absorption, the breakdown time and the absorption rate are obtained.

The breakdown time experimentally obtained agrees with the calculated one based on the cascade ionization. Therefore, in the breakdown process, the cascade ionization is dominant.

At a low pressure below 100atm, the laser light is entirely absorbed by the laser-produced plasma. But it is not entirely absorbed at a high pressure. Because the laser-produced plasma decays so fast that the absorption length is shortened even during the laser pulse at a high pressure.

1. まえがき

高気圧気体中に大出力のレーザ光を集光照射すると、高温高密度のプラズマが生成されることが知られている。このような高温高密度のプラズマの研究は、レーザによる核融合を目指し精力的に行われている。

高温高密度レーザプラズマの研究は固体ターゲットを中心に行われているが、千気圧以上の高気圧気体中にレーザ光を集光照射することにより固体ターゲットのプラズマに匹敵する十分高密度なプラズマを生成することができると予想される。また、気体ターゲットの場合には固体ターゲットにおけるターゲットの保持や不純物の混入などの問題点が軽減されるなどの利点があげられる。そこで、我々の研究

室では、これまでに可視光のルビーレーザを高気圧アルゴン気体に集光照射して高密度レーザプラズマを生成し、そのプラズマについて研究を行ってきた¹⁾。

ところで、近年エキシマレーザが実用化され、大出力の紫外レーザ光が得られるようになった。紫外レーザは、可視光のレーザと比較して光子1個の持つエネルギーが大きい。そのために、可視光のレーザと比較して効率良くプラズマが生成されることが考えられる。そこで、エキシマレーザをアルゴン気体に集光照射してプラズマを生成し、そのプラズマの特性について研究を行った。その場合に、以前行われたルビーレーザにより生成したレーザプラズマと今回のレーザプラズマとを比較検討した。紫外光を用いた高気圧レーザプラズマの研究は全く行われてい

ないので、その物性についても興味を持たれる。

本論文では、まず実験に用いたエキシマレーザの特性について述べ、レーザ光による気体の破壊やレーザ光の吸収のメカニズムについて報告する。

2. エキシマレーザ

本実験に用いたエキシマレーザは Lambda Physik 製の LPX205i であり、高速繰り返し放電励起によりポンピングが行われる。レーザパワーは最大約17MWで、レーザパルスの半値幅は約30nsであった。

LPX205iは、レーザヘッド内に混入するガスの種類を変えることにより数種類のレーザ発振波長を選択することができ、それを表1に示す。これらの中から、今回の実験ではエキシマがXeClである波長308nmの光を用いた。これは、XeClが他のエキシマに比べて効率が良かったためである。レーザヘッド内の気体の全圧力は約2900mbarであり、その分圧はNe:2760mbar, Xe:60mbar, HCl:80mbarである。

このエキシマレーザ LPX205iは、付属のミニコントローラにより制御されている。このレーザは、高速繰り返し放電により最大50Hzまでで発振することが可能である。また、外部からトリガパルス信号を入力することにより単発で発振することも可能であり、本実験では単発発振で使用した。

レーザパワーは、レーザの電源電圧を変化させると図1のように変化した。電源電圧が高いほどレー

ザパワーは高い値を示した。また、単発発振の場合のレーザパワーと1Hzで発振した場合のレーザパワーを比較すると同じ条件において同じ大きさを示した。発振ごとのレーザパワーの変動率は3%以下であった。

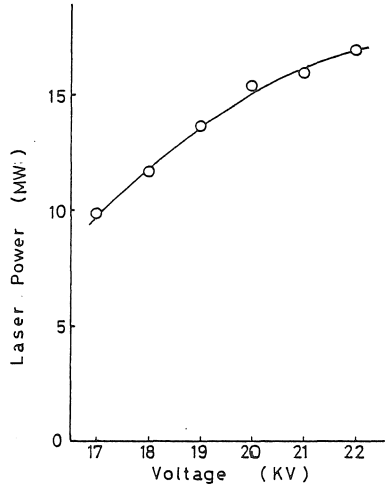


図1 エキシマレーザのパワー特性

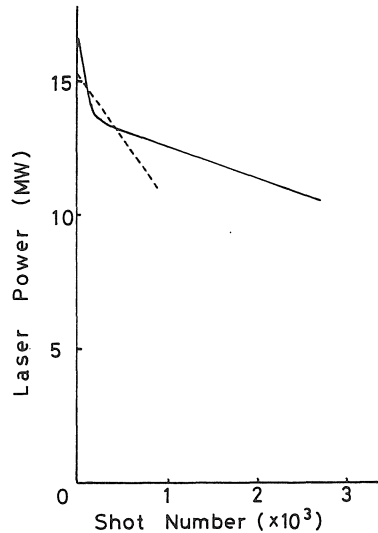


図2 レーザ発振回数に対するレーザパワーの変化

表1 LPX205iのエキシマの種類

| エキシマ | 波長 (nm) | Halogen | Rare | Buffer | Inert |
|----------------|---------|--------------------|------|--------|-------|
| F ₂ | 157 | F ₂ /He | | Ne | He |
| ArF | 193 | F ₂ /He | Ar | Ne He | |
| KrF | 248 | F ₂ /He | Kr | Ne He | |
| XeCl | 308 | HCl/He | Xe | Ne | |
| XeF | 351 | F ₂ /He | Xe | Ne | |

* 厳密にはF₂はエキシマではない

レーザヘッド内の気体はレーザの発振回数の増加とともに劣化し、レーザパワーは減少した。その様子を図2に示す。実線は単発発振で使用した場合のレーザパワーの減少の様子を、破線は1Hzで連続的に発振させた場合のレーザパワーの減少の様子をそれぞれ示す。レーザヘッド内の気体を交換してこの測定を行ったために初期のレーザパワーの値が異なる

る値となった。図2から、単発発振で使用すると3000回レーザを発振してもレーザパワーの減少の割合が30%であり、かなり寿命が長いことがわかる。しかし、発振の回数が増加しレーザパワーがある程度減少した場合には、レーザヘッド内の古い気体を排気し新しい気体に交換する作業を行った。その作業は、ミニコントローラにより自動的に行うことができる。レーザパワーは、レーザヘッド内の気体が交換される毎に変化した。その原因の1つとして、実験室の室温が挙げられる。室温が高い場合よりも低い場合の方がレーザパワーは大きな値となった。また、レーザヘッド内の気体の寿命も室温が低い場合の方が長かった。これは、室温が高い場合には気体原子の熱運動が活発になるために気体の劣化が早くなるためであると考えられる。

レーザビームの大きさは、約24mm×11mmの長方形であり、レーザ光の拡がり角は0.0057度であった。これは、レーザ本体の出射口とそこから光軸方向に1050mm離れたところにおいて黒い写真にレーザを照射してバンパターンを焼き付けてその大きさを測定することにより確かめた。拡がり角は小さな値であり、また、実験ではレーザ光の光路長は約50cmとそれほど長くないために、レーザ光の拡がりは無視することができる。

分光器によりレーザ光のスペクトルの半値幅を測定したところ、約3.6nmであった。

3. 実験装置及び実験方法

本研究に用いた実験装置の配置図を図3に示す。エキシマレーザから発振されたレーザ光は、焦点

距離40mmの石英ガラス製の光学レンズでチャンバーの中央に集光照射される。集光されたレーザ光は、焦点において約50×80 μ mの楕円形となった。これは、厚さ20 μ mの金箔にレーザ光を集光照射しそれに穴をあけ、その大きさを顕微鏡で測定することにより確かめた。

レーザ光パワーは、前述したように電源電圧により変化させることもできる。しかし、その変化はそれほど大きくない。したがって、レーザの光軸上に光学フィルターを置くことにより、レーザパワーを変化させた。

また、入射光の一部をスプリッターで反射させそれをフォトダイオードに入射することにより得られる信号を、オシロスコープのトリガやレーザ光パワーのモニタとして用いた。フォトダイオードは、紫外感度増強タイプで高速のS1722-02を使用した。

アルゴン気体を封入するチャンバーは、ステンレススチール製で、直径110mm、長さ140mmの円柱形のものに光軸方向に直径30mm、それと直角方向に直径20mmの空洞をあけたものである。そして、厚さ15mm、直径30mmの石英ガラス製の窓を4つ取り付けることにより気体を封入した。

チャンバーに気体を封入する際には、回転式真空ポンプにより真空中に排気した後、ガスボンベよりアルゴン気体を供給する。さらに、手動式油圧コンプレッサー（AMINCO製、型式D8-1214）で加圧する。チャンバーに取り付けた石英ガラスの耐圧が十分でないために、気圧の上限は150atmとした。

次に実験方法について説明する。

チャンバー後方の光軸上に置かれたスプリッターによる反射光をフォトダイオードに入射させることに

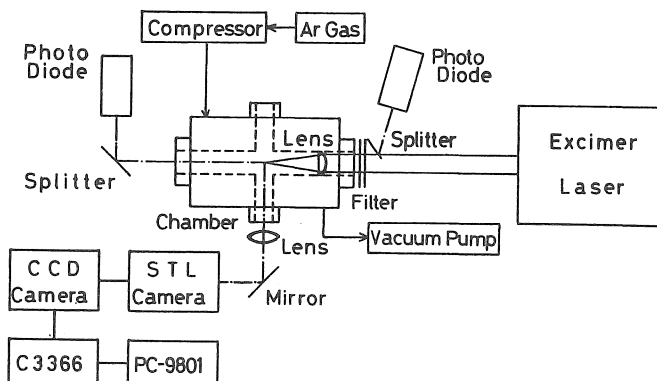


図3 実験配置図

より透過光を観測した。また、生成されたプラズマは白く発光することが光軸と直角方向の窓から確認することができた。そこで、その発光の様子を高速のストリークカメラを用いて観測した。その時、焦点距離10cmのリレーレンズを用いて、プラズマの像がストリークカメラの入射スリット上で結像するように光学系を設置した。ストリーク像は、CCDカメラとC3366という画像処理装置とパソコンにより光強度の疑似カラー表示でモニタ画面上に表示される。ストリークカメラ (C2830), CCDカメラ (C3140-60), C3366は、すべて浜松ホトニクス製である。

4. 破壊機構

4.1 理論

レーザー光による気体の電離には、逆制動放射により加速された自由電子が原子と衝突して自由電子を生成するカスケード電離と中性原子が一度に多数の光子を吸収して直接電離される多光子電離が考えられる。そこで、エキシマレーザーにより生成された高気圧アルゴンレーザープラズマがどのようにして電離されるかを破壊時間と破壊のしきい値を求めることにより調べた。

多光子電離による電離確率はGold, Bebb等により量子力学的に計算されている²⁾。しかし、それらは可視光の領域のものであり紫外光による電離確率は計算されていない。

一般に、高気圧気体中では衝突がしばしば起こるために電離はカスケード電離が支配的であると考えられている。ただ、カスケード電離は初期電子が必ず1個以上必要であるので、初期電子は多光子電離により生成されると考えられている。このことは、以前に本研究室で行われたルビーレーザーによる実験でも証明することができた。¹⁾したがって、エキシマレーザーにより生成したプラズマの場合もカスケード電離により破壊が起こるものと仮定して破壊時間を求めることにする。また、非常に短い時間の現象について考えているので、再結合や拡散などの自由電子の損失については無視した。

カスケード電離では、その時刻に存在する電子数に比例して自由電子の数が増加するので、電子密度の時間的変化は次のように表される。

$$dn_e/dt = \nu_1 n_e \quad (1)$$

ここで、 n_e は電子密度、 ν_1 は衝突電離周波数である。初期電子密度を n_{e0} として式(1)を解くと、次のようになる。

$$n_e = n_{e0} \exp \int_0^t \nu_1 dt \quad (2)$$

そして、電子密度が増加して、初期原子密度 n_s の δ 倍 (δ : 電離度) になったときに破壊が起こるとして、破壊時間 t_b を求めることができる。

$$n_{e0} \exp \int_0^{t_b} \nu_1 dt = \delta n_s \quad (3)$$

また、衝突電離周波数 ν_1 は、吸収されるレーザー光がすべて電離に用いられると仮定すると、Holstein等により次式のように与えられる。³⁾

$$\nu_1 \sim \sigma_{en} I n_s / N h \nu \quad (4)$$

ここで、 σ_{en} は光子の吸収断面積、 I はレーザー光強度、 $h \nu$ はエキシマレーザーの光子のエネルギー、 N は電離に必要な光子の数である。

式(3)と式(4)より、破壊時間を求めるためにはレーザーパルスの時間依存性を知る必要がある。そこで、実際のレーザーパルスを立ち上がり時間と立ち下がり時間の異なる台形パルスで近似し、レーザー光パワー $W(t)$ を次のような式で表現した。

$$W(t) = W_0 t / \tau_1 \quad (0 \leq t \leq \tau_1) \quad (5)$$

$$W_0 \quad (\tau_1 \leq t \leq \tau_2) \quad (6)$$

$$W_0(\tau_3 - t) / (\tau_3 - \tau_2) \quad (\tau_2 \leq t \leq \tau_3) \quad (7)$$

ここで、 W_0 はレーザー光のピークパワー、 $\tau_1 = 6.7$ ns, $\tau_2 = 25.2$ ns, $\tau_3 = 44.5$ nsとした。また、レーザー光強度 I とレーザーパワー W の間には、 $W = I /$ (レーザー光の断面積) の関係がある。

破壊時間 t_b は式(3)~式(7)から求めることができるが、レーザーパルスの時間依存性によりレーザー

パワーの関数が異なってくるので場合分けをして破壊時間を求めなければならない。

その結果、破壊時間 t_b は次のようになる。

1) $0 \leq t_b \leq \tau_1$ の場合

$$t_b = \left(\frac{2\pi a b N h \nu \tau_1}{\sigma_{en} n_s W_0} \ln \frac{\delta n_s}{n_{e0}} \right)^{1/2} \quad (8)$$

2) $\tau_1 \leq t_b \leq \tau_2$ の場合

$$t_b = \tau_1 / 2 + \frac{\pi a b N h \nu}{\sigma_{en} n_s W_0} \ln \frac{\delta n_s}{n_{e0}} \quad (9)$$

3) $\tau_2 \leq t_b \leq \tau_3$ の場合

$$t_b = \tau_3 - (\tau_3 - \tau_2)^{1/2} \times \left(\tau_3 + \tau_2 - \tau_1 - \frac{\pi a b N h \nu}{\sigma_{en} n_s W_0} \ln \frac{\delta n_s}{n_{e0}} \right)^{1/2} \quad (10)$$

ここで、今は焦点における現象について考えているので、レーザ光の断面積は $\pi a b$ ($a = 40 \mu\text{m}$, $b = 25 \mu\text{m}$ の楕円形) とした。

また、プラズマが生成されるための破壊のレーザパワーしきい値は、レーザパルスの終了時間 τ_3 に破壊が起こるとすれば、求めることができる。したがって、破壊のしきい値 W_{th} は次のようになる。

$$W_{th} = \frac{2\pi a b N h \nu}{\sigma_{en} n_s W_0 (\tau_3 + \tau_2 - \tau_1)} \ln \frac{\delta n_s}{n_{e0}} \quad (11)$$

これらの式に $N = 4$, $h \nu = 4.03 \text{eV}$, $\sigma_{en} = 1.37 \times 10^{-40} \text{cm}^2$, $\delta = 0.1$, $n_{e0} = 1 \text{cm}^{-3}$, $\pi a b = 3.14 \times 10^{-5} \text{cm}^2$ を代入して、破壊時間及び破壊のレーザパワーしきい値を計算した。

破壊時間の計算結果を図4の曲線です。気圧あるいはレーザパワーが高いほど、破壊時間が短くな

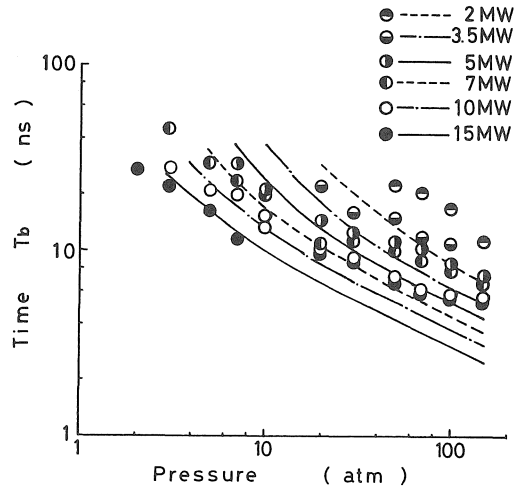


図4 破壊時間の計算結果と測定結果

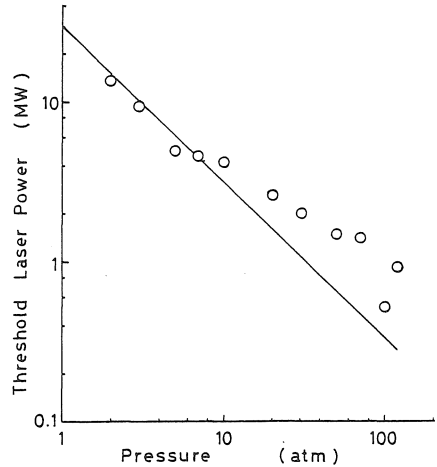


図5 破壊のしきい値の計算結果と測定結果

っていることがわかる。破壊しきい値の計算結果を図5の実線です。気圧が高くなるほど破壊のしきい値は小さくなっていることがわかる。

4.2 実験結果及びその検討

エキシマレーザを発振し、チャンパー後方の光軸上に置かれたスプリッタによる反射光をフォトダイオードに入射させることにより得られる透過光を観測した。

チャンパー内が真空中の場合の透過光波形とチャンパー内にアルゴン気体を封入してプラズマが発生した場合の透過光波形を重ね合わせたものの1例を図6に示す。プラズマが発生した場合の透過光波形は、真空中の透過光波形と比較して途中から急激に

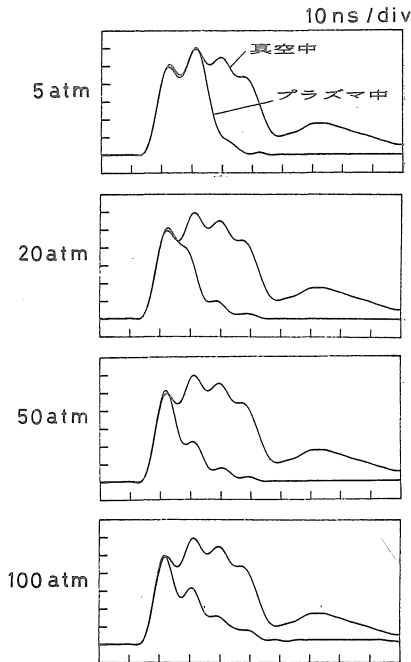


図6 透過光波形 (レーザーパワー15MW)

減少した。これは、レーザー光の集光照射により気体の絶縁破壊が起こり高密度のプラズマが生成され、プラズマがレーザー光を強く吸収するためと考えられる。

そこで、レーザーの立ち上がりからレーザーが急激に吸収され始めるまでの時間を破壊時間とした。破壊時間の測定結果を図4の丸で示す。気圧あるいはレーザーパワーが高くなるにつれて破壊時間は小さい値を示した。

また、光軸と直角方向の窓から観測すると、レーザーが照射されるとその付近が白く発光し高密度なプラズマが発生していることがわかった。ところが、レーザーパワーを低くしていくと高気圧においても発光がみられず透過光波形も真空時と同一になる場合があった。したがって、破壊のレーザーパワーしきい値が存在した。破壊のしきい値の測定結果を図5の丸で示す。高気圧になるほど破壊のしきい値が小さくなることがわかった。

ここで、破壊時間の測定値と理論値を比較する。測定値と理論値は両者とも高気圧でハイパワーほど破壊時間が小さくなっている。気圧やレーザーパワーに対する破壊時間の依存性を見ても、測定値と理論値は同じような傾向を示した。

破壊のしきい値についても同様のことが言える。

したがって、理論値はカスケード電離により破壊が起こるものとして求めたことから、破壊機構においてはカスケード電離が支配的であると言える。

しかし、10atm以下においては測定値と理論値はよく一致したが、10atm以上の気圧においては測定値は理論値よりも大きな値を示した。これは、

10atm以上の気圧では再結合などの自由電子の損失が起こっているためと予想される。これを確かめるためには、損失過程はプラズマの電子温度により大きく変化するために、プラズマの電子温度を測定する必要がある。

以前に行われたルビーレーザーを用いた実験の結果と比較する。¹⁾ 破壊時間については、ルビーレーザーの場合とエキシマレーザーの場合ではほぼ同じような値を示した。また、破壊のしきい値については、ルビーレーザーの結果と比較してエキシマレーザーの結果はほぼ1桁大きな値を示した。この結果は、エキシマレーザーを用いると波長が短くなったことにより電離に必要な光子の数が少なくてよいが、光子の吸収断面積が小さいためと考えた。したがって、可視レーザーと比較して紫外レーザーを用いるとプラズマが生成されるまでは効率よく破壊が起こるとはいうことができないことがわかった。

5. 吸収機構

破壊機構のところでも少し述べたように、透過光波形からプラズマが生成された場合には破壊時間以後急激にレーザー光がプラズマに吸収されていることがわかった。そこで、レーザー光の吸収について詳しく調べた。

図6より、気圧が変化すると、吸収の様子が変化していることがわかる。そこで、真空時の透過光波

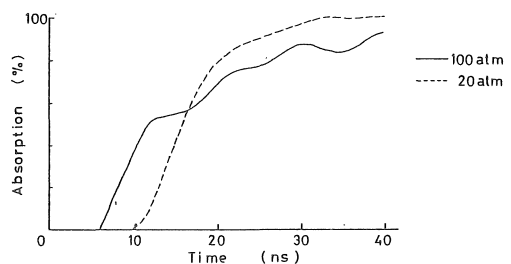


図7 レーザー光の吸収の割合の時間依存性

形に対するプラズマが生成された場合の透過光波形の吸収の割合の時間依存性を図7に示す。この図より、破壊時間以後吸収の割合が指数関数的に増加して、次第に飽和する。しかし、100atm以上の超高気圧の場合にはレーザー光は完全にプラズマに吸収されず20atm程度の低い気圧の場合と吸収の様子が異なっていた。

ところで、焦点で生成されたプラズマはその後高速で光軸後方に成長していることが、光軸と直角方向の窓よりストリークカメラで観測することにより確認できた。そのストリーク像を図8に示す。これは、光強度の疑似カラー表示でモニター画面上に表示されたストリーク像をある光強度しきい値を定めてプラズマの境界をとりそれをプロッタで表示したものである。図の縦方向は上から下に向かって時間掃引されており、横方向はプラズマの光軸方向の大きさを示している。また、レーザー光は図の右から左に向かって入射されている。プラズマは、境界の内側で示される。この図から、焦点において生成されたプラズマは光軸後方に向かって高速で成長していることがわかる。

気圧に対して成長の様子を比較する。10atm以下の低い気圧の場合には、プラズマは光軸後方に曲線的に成長した。そして、50atm程度の気圧になるとプラズマは光軸後方に直線的に成長した。さらに気圧が高くなり100atm以上の超高気圧になると、レーザーの照射中であってもプラズマが減衰した。これより、超高気圧になると、初期原子密度が高くなるためにプラズマが周囲の気体により冷却され温度が急激に下がりプラズマが早く減衰すると考えた。

レーザー光の吸収はプラズマが存在する部分で起こるために、レーザーの吸収では吸収長が問題になる。そこで、ストリーク像を観測すると、100atmより低い気圧の場合にはプラズマの減衰はレーザー照射中では見られなかったがそれ以上の気圧になるとプラズ

マの減衰が早くみられた。したがって、超高気圧になると、吸収長が短くなるためにレーザー光がプラズマに完全に吸収されないと考えた。

ルビーレーザーの実験結果と比較する。¹⁾ルビーレーザーの場合には、ほぼ破壊時間の2倍の時間でレーザー光はどの気圧においても完全にプラズマに吸収された。この結果は、エキシマレーザーの場合と異なっていた。ルビーレーザーの周波数とエキシマレーザーの周波数を比較すると、エキシマレーザーの周波数の方が約2倍高い。したがって、周波数が高いためにエキシマレーザーの方がプラズマの影響を受けにくくなり、エキシマレーザーの場合にはレーザー光が完全に吸収されなかったと考えられる。エキシマレーザーを用いた場合には、レーザー光がプラズマに完全に吸収されないために破壊以後も焦点においてレーザー光の供給があるために電離が行われルビーレーザーにより生成されたプラズマと比較して高密度のプラズマが生成される。

6. まとめ

高気圧アルゴン気体中に波長 308nm, 最大出力 17MWのエキシマレーザーを集光照射してプラズマを生成し、そのプラズマの特性を研究した。

プラズマ中の透過光波形を真空中の透過光波形と比較することにより、破壊機構と吸収機構を調べた。破壊機構では、破壊時間と破壊のレーザーパワーしきい値を実験により求め、カスケード電離で破壊が起こると仮定して計算した理論値と比較した。その結果、破壊はカスケード電離が支配的であることがわかった。10atm以上の気圧ではやや測定値が理論値よりも大きな値を示したことから、この場合には再結合などの自由電子の損失が起こっていると考えられる。

吸収機構では、真空時の透過光波形に対するプラズマ中の透過光波形の吸収の割合を調べた。超高気圧の場合にはプラズマの減衰が早いためにレーザー光の吸収長が短くなりレーザー光がプラズマに完全に吸収されなくなり、低い気圧の場合と吸収の様子が異なっていた。また、ルビーレーザーと比較してエキシマレーザーは周波数が高いためにプラズマの影響を受けにくくなりプラズマ中を透過するようになった。したがって、破壊以後も焦点においてレーザー光の供給があるためにレーザー光による電離が行われルビーレ

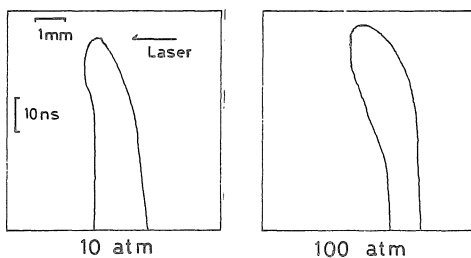


図8 ストリーク像 (レーザーパワー10MW)

ザにより生成したプラズマと比較して高密度のプラズマが生成された。

以上の結果より、エキシマレーザを用いると破壊以後効率よくプラズマが生成され、高密度のプラズマが生成されることがわかった。

7. 謝辞

本実験は平成2年度私立大学研究設備補助金の援助により行われた。

また、市川大輔, 松田和幸両卒研究生には実験の際非常にお世話になり感謝する。

8. 参考文献

- 1)山田諄, 鈴木潮, 名和靖彦:愛知工業大学研究報告No12(1977)“高気圧ガスターゲットレーザプラズマの研究 I (吸収機構)”
- 2)H.B.Bebb, A.Gold: Phys.Rev. 143 (1966)
- 3)T.Holstein: Phys.Rev. 72 (1947)
- 4)Kelley, Lax, Tannenwald: "Physics of Quantum Electronics" McGRAW-HILL

(受理 平成4年3月20日)