

YAG レーザで生成した液体プラズマの成長特性

Liquid plasma development characteristic produced by YAG laser

池田 義男[†] , 津田 紀生^{††} , 山田 諄^{††}
Yoshio IKEDA , Norio TSUDA , Jun YAMADA

Abstract Many works on plasma produced by laser light in a gas or at a surface of solid have been carried out. But, little is known about plasma produced by laser light in liquid. The purpose of this study is to get plasma fundamental data in liquid. Experiment on laser plasma produced by YAG laser in ultra pure water with NaCl was carried out. Spot diameter, threshold intensity and plasma temperature were measured. In this paper, liquid plasma laser is produced by YAG laser and a behavior of plasma development is observed by streak camera. Plasma length and plasma development velocity are examined. It is seen that development mechanism of liquid plasma produced by YAG laser differs depending on the density. The development velocity depends on radiation supported shock wave up to NaCl concentration 1% and depends on breakdown wave theory over 1%.

1. はじめに

現在までに、気体と固体中にレーザー光を液体中に集光照射し、発生するプラズマに関する研究は多数行われている。しかし、液体中に生成されたプラズマに関する研究は、ほとんど行われていない。ここで、液体中に生成したプラズマを液体プラズマと呼ぶ。本研究では、レーザーを集光照射して生成した液体プラズマの生成メカニズムについての研究を行い、その物性の解明を目指している。本研究の応用として、液体中の汚染物質の分解に有用であると考えられる。今までに、液体レーザープラズマのスポット径、電子温度、プラズマ生成のしきい値光強度等が研究された¹⁾。スポット径は、YAG レーザの波長が 1064 (nm)では 92.4 (μm)、532 (nm)では 54.1 (μm)である。電子温度は、 10^4 (K)程度である。

本研究では、プラズマの特性であるプラズマ成長について研究した。プラズマは、YAG レーザを集光照射して NaCl 水溶液中に生成する。プラズマ成長は、この生成したプラズマ光をストリークカメラで撮影し測定した。プラズマ成長速度を検討する際には、高気圧気体中のプラズマ成長速度理論と比較した。

2. 高気圧気体中のプラズマ生成原理

液体中におけるレーザープラズマの成長理論は、まだ確

立されていない。液体中は非常に高密度のため、生成したプラズマの成長特性を高気圧気体中におけるプラズマの理論と比較した。以下に、その理論を述べる。

2-1 電離過程²⁾

レーザーによる気体の電離過程は、主に 2 つ考えられている。1 つ目は、多光子電離過程と呼ばれる同時に多数の光子を吸収することにより直接電離が生じる現象である。2 つ目は、カスケード電離過程と呼ばれるレーザー光の強電界中における逆制動放射による電子の加速と、それに続く衝突による電子増倍機構の現象である。

本研究の条件下では、プラズマは初めに多光子吸収による中性原子の直接電離によって生成され、その後、逆制動放射で加速され、カスケード電離が起きプラズマが生成する。

2-2 プラズマの成長原理³⁾

高気圧気体中にレーザー光を集光照射し、起こるプラズマの成長過程は、Breakdown wave と Radiation supported shock wave の 2 つがある。

Breakdown wave による成長は、レーザー光の集光により、初期電子が多光子吸収によって作られた後、逆制動放射によるエネルギー吸収と、カスケード電離衝突によって進展する。この成長は、プラズマの破壊時間の遅れによる成長である。Breakdown wave の成長速度 v_b は(1) 式で表される。

[†] 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 電気学科電子工学専攻 (豊田市)

$$v_b \propto n_g^{1/2} \cdot W^{1/2} \cdot \tan^{-1} \alpha \quad \dots(1)$$

n_g : 気体密度、 W : レーザパワー、 α : 入射角

Radiation supported shock wave による成長は、レーザー光の集光によって、焦点付近において絶縁破壊が起こり、圧力が高くなり shock wave が起こる。Radiation supported shock wave は、この shock wave でプラズマの成長が起こる流体力学的な成長である。radiation supported shock wave の成長速度 v_r は、(2)式で表される。

$$v_r \propto (W / m_g n_g)^{1/3} \quad \dots(2)$$

m_g : 原子質量

3. 実験装置

レーザープラズマの成長の様子を高速ストリークカメラで観測した。レーザーの進む方向を前方、逆向きを後方として NaCl 濃度、光強度変化に対するプラズマの成長依存性を測定した。プラズマを光軸方向、光軸と直角方向に分け、成長速度とプラズマ長について検討した。

3-1 実験方法

実験では、YAG レーザを基本波と 2 倍の高調波である発振波長 1064 (nm)、532 (nm) で使用する。YAG レーザは、焦点距離 60 (mm) の集光レンズで集光する。液体を入れる容器は、内寸 75×45×70 (mm) で厚さ 10 (mm) のアクリル製のものを使用し、レーザー光の通過する場所に石英ガラス製の窓を取り付ける。液体の溶媒には超純水、溶質には NaCl を濃度 0~24 (%) で混ぜ、濃度変化特性を観測する。

図 1 に実験装置の概略図を示す。YAG レーザ光を集光レンズに通し、容器内に集光照射しプラズマを生成する。そして、プラズマからの光を焦点距離 60 (mm) のリレーレンズに介してストリークカメラのスリット表面で結像

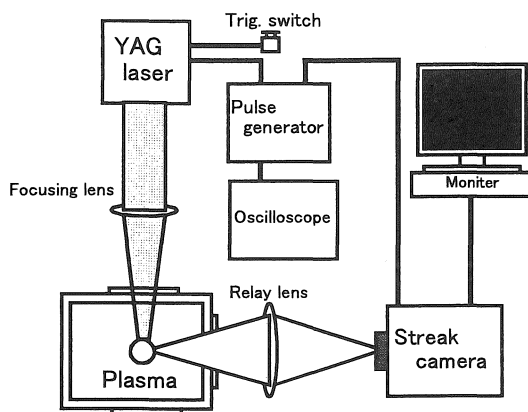


図.1 プラズマ成長の実験装置図

し、ストリークカメラを用いてプラズマストリーク像を撮影する。この際に、撮影するタイミングを調節するためにパルスジェネレータを使用する。直角方向の成長を測定する際には、ストリークカメラを縦置きにして撮影する。そして、撮影されたストリーク像から、濃度変化及び光強度変化に対するプラズマ成長の特性を測定する。

4. 水平方向の実験結果

ストリーク像は、光軸と水平方向と光軸と垂直方向の 2 つに分けて撮影した。ここでは光軸と水平方向のプラズマ成長について述べる。

4-1 ストリーク像

図 2 は光軸と水平方向のプラズマストリーク像の一例である。ストリーク像の縦軸は時間軸を表し、上から下に時間掃引しており、横軸はプラズマの大きさを表している。図 2 より、プラズマは、集光位置からほぼ後方のみ成長していることがわかる。従って、水平方向の成長は、後方のみを解析した。また、1064(nm)では、複数の地点からプラズマが生成し、1 つの大きなプラズマを形成し、532 (nm) では一つのプラズマ成長を確認した。図 2 において、焦点位置より高速で直線的に成長したものを、レーザーパルス照射中におけるプラズマの成長と考え、この成長速度とプラズマ長について検討した。

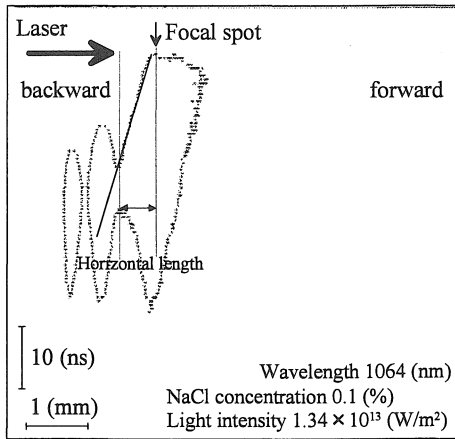
4-2 後方成長速度

成長速度は、高気圧気体中における理論と比較する。実験結果は、濃度依存、光強度依存性を検討する。

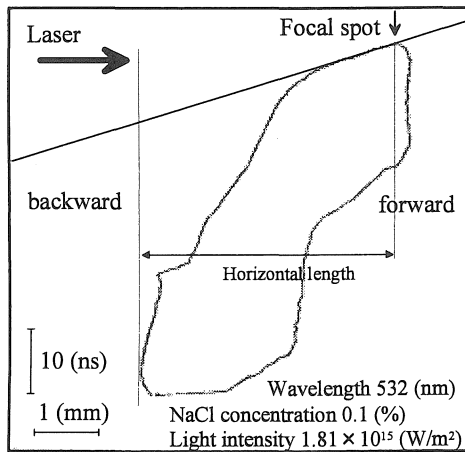
a) 濃度依存性

図 3 に後方成長速度の実験結果を示す。後方成長速度は、図 2 の焦点位置からの実線の傾きより求めた。また、図 3 中の実線と点線は、2 つの高気圧気体中の成長速度理論の傾きである。ここでは、液体プラズマの成長速度の NaCl 濃度依存性が、高気圧気体中の理論である、NaCl 濃度の $-1/3$ 乗に比例する Breakdown wave の理論か、NaCl 濃度の $1/2$ 乗に比例する Radiation supported shock wave 速度理論に従うかを検討する。

図 3 より、プラズマ成長速度は、NaCl 濃度 1 (%) 付近以下では Radiation supported shock wave 速度理論線の傾きに従い、1 (%) 付近以上では Breakdown wave 速度理論線の傾きに従う。成長速度は、濃度によって成長機構が異なる。この原因を述べる。濃度が低いときの依存性は、溶液中のモル数や電離電圧が低い Na 原子の数が少ないためカスケード電離が起こりにくく Breakdown wave の破壊時間は長い。そのため、成長速度は、Radiation supported shock wave 速度の理論式に依存する。濃度が高



(a) 1064 (nm)



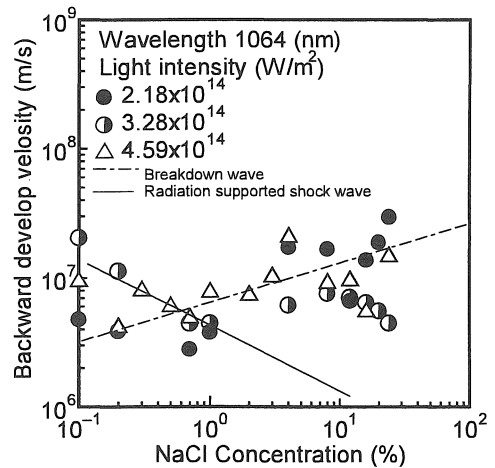
(b) 532 (nm)

図2 ストリーク像

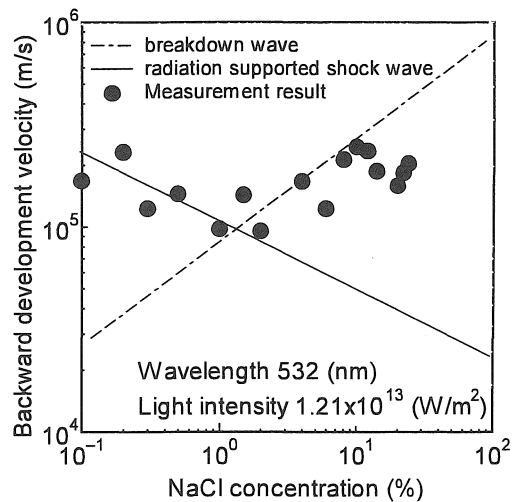
くなると、溶液中のモル数、Na 原子がともに増え、カスケード電離が起りやすくなり、破壊時間は短くなる。そのため、Breakdown wave の成長速度が Radiation supported shock wave の成長速度を上回り、Breakdown wave の成長速度の理論式に依存するようになる。この、破壊機構が変わる境界が 1 (%) 付近であると考えられる。

b) 光強度依存性

図4に後方成長速度の光強度依存性を示す。ここでは、液体プラズマの成長速度の光強度依存性が、レーザーパワーの1/3乗に比例するBreakdown waveの理論か、レーザーパワーの1/2乗に比例するRadiation supported shock wave速度理論に従うかを検討する。濃度依存と違い、プラズマが出来る範囲の光強度が $2 \times 10^{14} \sim 5 \times 10^{14}$ (W/m²)と狭いため、明確に高気圧気体中の理論に従うとは確認できない。光強度の依存性は、さらに広い光強度の範囲を取り検討する必要がある。



(a) 1064 (nm)



(b) 532 (nm)

図3 成長速度の濃度依存性

4-3 プラズマ長

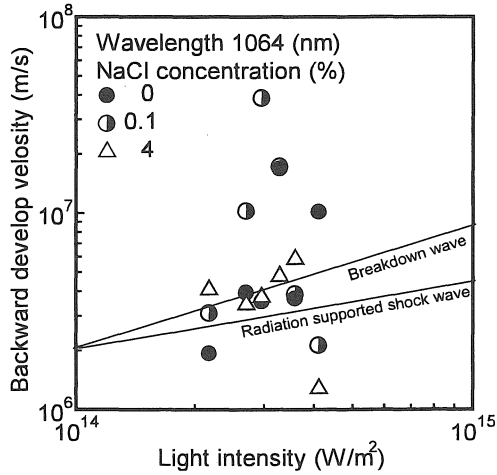
a) 濃度依存性

図5に、それぞれの波長におけるプラズマ長測定結果を示す。図2に示すように、プラズマ長は、1064 (nm)では、複数のプラズマが観測されたが、焦点位置で生成された1つのプラズマのみの長さ、532(nm)では焦点位置からの全長である。

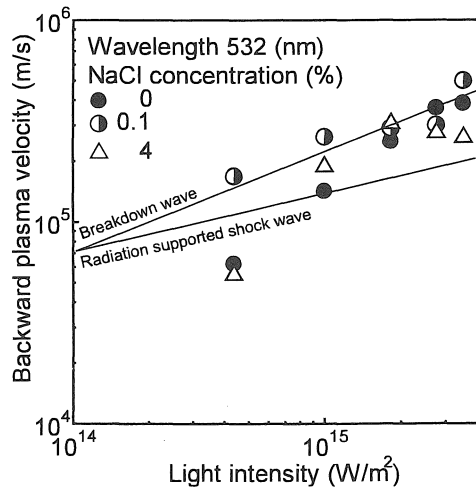
図5より後方プラズマ長は2(%)付近までは増加し、それ以降ではほぼ一定の値となる。これは、成長速度の測定結果からもわかるように、1(%)付近で成長機構が変わることに関連している。また、濃度が高くなることによって、NaCl濃度が増加しすぎてしまい、十分な電離エネルギーを得る以前に衝突が起こるためだと考えられる。

b) 光強度依存性

図 6 にプラズマ長の光強度依存性を示す。プラズマ長は、光強度に比例して増加する特性があるが関連性を示すことは出来ない。成長速度と同じく、光強度依存性は、さらに多くのデータを取り検討する必要がある。



(a) 1064 (nm)



(b) 532 (nm)

図 4 成長速度の光強度依存性

5. 垂直方向の実験結果

光軸と垂直方向のプラズマの成長特性について検討する。検討した特性は、光軸方向の位置によるプラズマ直径の分布、濃度依存性、光強度依存性である。

5-1 ストリーク像

図 7 に直径方向のストリーク像を示す。プラズマ直径

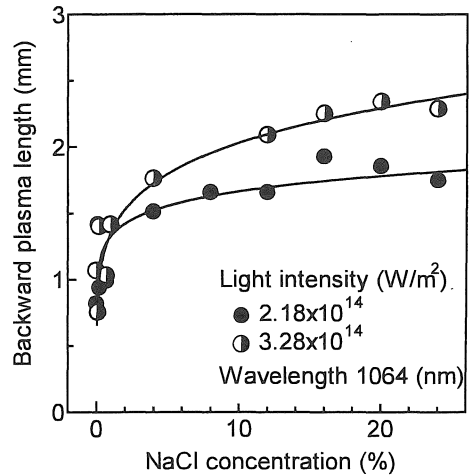
は、図に示すように、プラズマ像で一番成長した長さとする。

5-2 実験結果

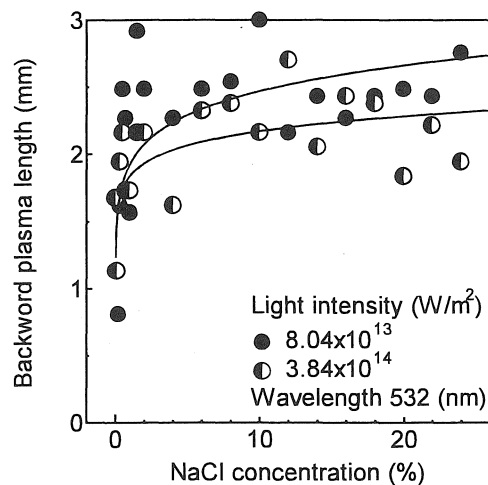
プラズマ直径は、レーザの光軸方向の位置でそれぞれ測定する。光強度、濃度依存性は、それぞれ位置変化で最大となったプラズマ直径について検討する。

a) 位置変化

図 8 に実験結果を示す。焦点位置でのプラズマ直径は、スポット径と比較して十分に大きい。この理由は 2 つ考えられる。1 つは、プラズマ自体の運動によるもの。2 つ目は、スポット径は、ガウス型曲線の 1/e の値で定義されているため、スポット径として定義されていないプラズマの種からの成長によるものである。

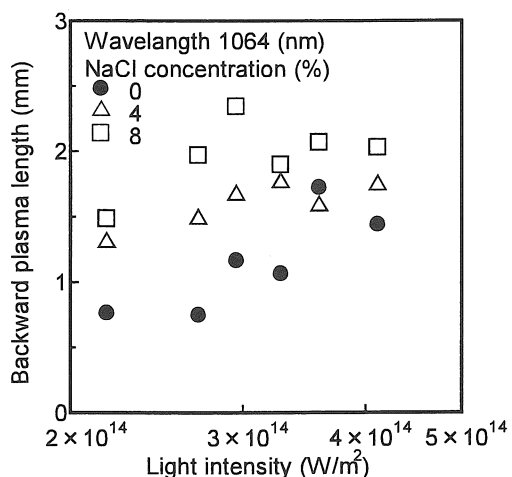


(a) 1064 (nm)

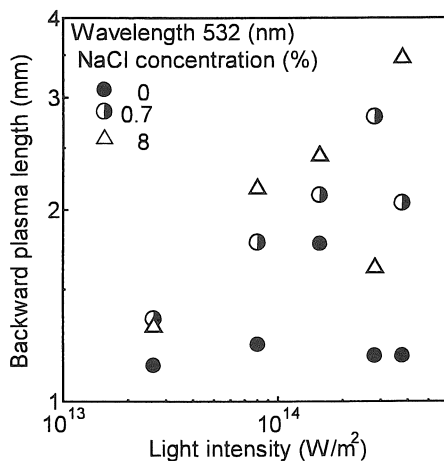


(b) 532 (nm)

図 5 プラズマ長の濃度依存性



(a) 1064 (nm)



(b) 532 (nm)

図6 プラズマ長の光強度依存性

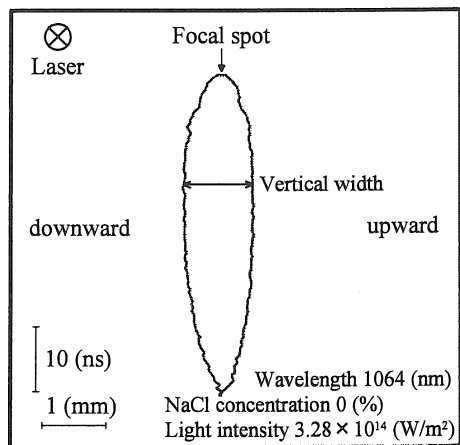
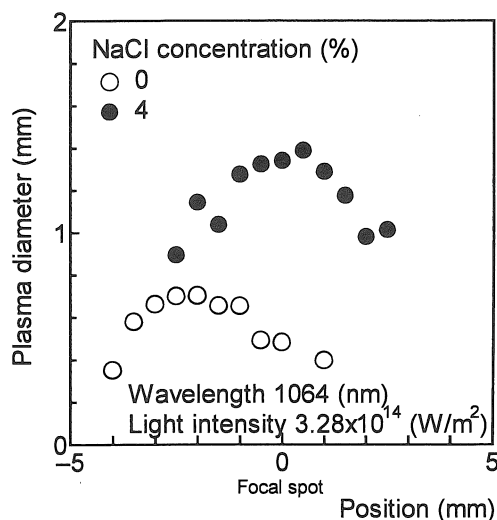
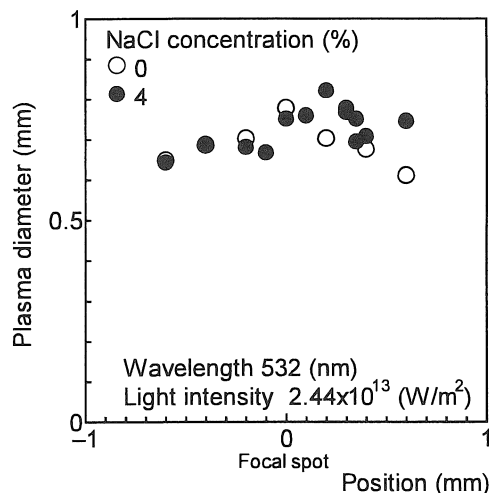


図7 ストリーク像

次に、波長が 1064nm の時の方がプラズマの直径を測定できる横幅が広い。この原因は、波長 1064nm ではプラズマが一度に複数形成され、多数のプラズマの直径を測定したためである。1064nm では、プラズマの直径が焦点付近から離れるにつれて小さくなるが、532nm ではその変化が見られない。1064nm では、複数のプラズマを観測しているため、焦点位置で生成される以外のプラズマの直径を測定しているからと考えられる。図 5.9 a) で NaCl 濃度が 0% の時に焦点位置からずれているのは、濃度が増加したときにプラズマの焦点距離が変化したことによるものと考えられる。



(a) 1064 (nm)



(b) 532 (nm)

図8 プラズマ直径の位置変化

b) 濃度変化

図 9 に濃度依存性の実験結果を示す。プラズマ直径は、濃度に比例して増加する。また、1064 (nm)の方が 532 (nm)と比較して大きな傾きである。プラズマが拡散していると仮定するならば、液体分子の影響により、濃度が高くなるほどプラズマ長は等しくなるか小さくなる。したがって、a)項で示した仮説は、プラズマの運動によるものは考えにくい。よって、プラズマの濃度と光強度に伴うプラズマ長の増加は、ガウス型曲線の $1/e$ の値の外の範囲からのプラズマの種のスポット径として定義されていないプラズマの種からの成長によるものであると予想できる。

c) 光強度変化

図 10 に光強度依存性の実験結果を示す。プラズマ直径は、光強度に比例して増加した。また、1064 (nm)の方が 532 (nm)と比較して大きな傾きである。

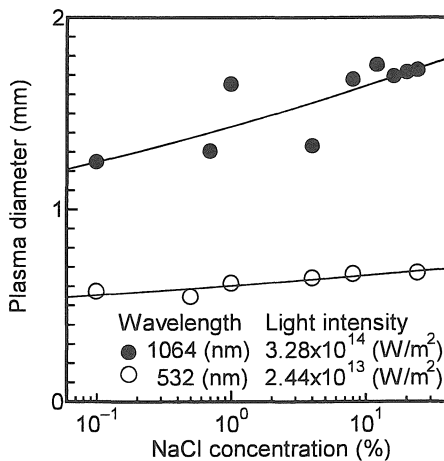


図 9 プラズマ直径の濃度変化

6. まとめ

本研究では、レーザを集光照射して生成した液体プラズマの生成メカニズムについての研究を行い、その物性の解明を目指した。本研究で得られたプラズマの成長特性の知見を以下に示す。

ストリークカメラでプラズマストリーク像を撮影し、光軸と水平方向のプラズマの成長速度と長さ、光軸と垂直方向のプラズマ長をそれぞれ求めた。

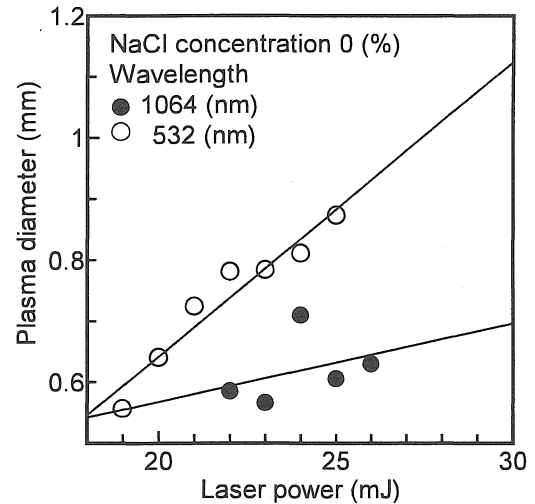


図 10 プラズマ直径の光強度変化

プラズマは、ほぼ後方にしか成長せず、1064(nm)では複数の地点からプラズマが生成することを確認した。水平方向の後方成長速度は、NaCl 濃度 1 (%) 付近以下では Radiation supported shock wave 速度理論線の傾きに従い、1 (%) 付近以上では Breakdown wave 速度理論線の傾きに従う。

プラズマ長は、水平方向では 2(mm)程度、垂直方向では 1(mm)程度である。

参考文献

- 1) 浦川隆之, 津田紀生, 山田諄: 「レーザ光照射により生成される液体プラズマのしきい値特性に関する研究」, 愛知工業大学研究報告 Vol.38 part.B, pp. 69-74 (2003-3)
- 2) Norio Tsuda, Jun Yamada: "Observation of forward breakdown mechanism in high pressure argon plasma produced by irradiation by an excimer laser. J.Appl.Phys, Vol.81, No.2, pp.582-586(1997-2)
- 3) Jun Yamada, Norio Tsuda, Yoshiyuki Uchida, Hideo Huruhashi, Toshio Sahashi: "Development Mechanism of High Pressure Argon Plasma Produced by Irradiation of Excimer Laser" T.IEE Japan, Vol.114-A, No4, pp.303-308 (1994-4)
山田諄・津田紀生・内田悦行・古橋秀夫・佐橋稔雄「エキシマレーザにより生成した高圧力アルゴンプラズマの成長機構」電気学会論文誌 A, Vol.114-A, No4, pp.303-308 (1994-4)

(受理 平成 18 年 3 月 18 日)