空間分解X線分光法を用いた高圧ガスパフにおける レーザー生成プラズマの特性評価

鈴木 将之, 大道 博行*, 酒屋 典之*, Henryk FIEDOROWICZ**

Andrzej BARTNIK**, 中山 斌義

近畿大学大学院 工学研究科電子工学専攻 (〒577-8502 大阪府東大阪市小若江3-4-1)

*大阪大学 レーザー核融合研究センター (〒565-0871 大阪府吹田市山田丘2-6)

**Institute of Optoelectronics, Military University of Technology (Kaliskiego 2, 00-908, Warsaw, Poland)

Characterization of Laser-Produced Plasmas from High Pressure Gas-Puff Using Space Resolved X-Ray Spectroscopy

Masayuki SUZUKI, Hiroyuki DAIDO,* Noriyuki SAKAYA,* Henryk FIEDOROWICZ**

Andrzej BARTNIK,** and Takeyoshi NAKAYAMA

School of Science & Engineering Kinki University, 3-4-1 Kowakae, Higashi-Osaka, Osaka 577-8502, Japan

*Institute of Laser Engineering, Osaka University, 2-6 Yamadaoka, Suita, Osaka 565-0871, Japan

**Institute of Optoelectronics, Military University of Technology, Kaliskiego 2, 00-908, Warsaw, Poland

(Received February 2, 1999)

In order to characterize the interaction process between a high power laser and a high pressure pulsed gas (gas puff), we have studied laser irradiate gas puff targets. A YAG Laser pulse of 10 ns time duration with intensities of 10^{12} W/cm² was used to produce plasmas. We have systematically measured space-resolved x-ray emission spectra in the wavelength range between 8 nm and 22 nm for various kind of gases.

Key Words: X-ray emission, Laser plasma, Gas puff target

1. はじめに

レーザープラズマからの軟X線放射については、これまで多くの研究があり基礎科学や産業技術にX線源として応用することも試みられている¹⁾。例えば、X線顕微鏡²⁾、X線リソグラフィ³⁾、X線ホログラフィ⁴⁾、X線非破壊検査用光源などにX線源として用いられている。

このプラズマからのX線放射は、X線源としての用途に加えてレーザープラズマの相互作用の研究手段として有用である。すなわちX線を測定対象とすることによりレーザー照射に伴う物質のイオン化、電子温度、電子密度等に関する詳細な知見を得ることができる。特に高圧ガスパフターゲット⁵⁾を用いると噴出ガス中にクラスター⁶⁾が生じ、クラスターとレーザー光との特異な相互作用を研究することもできる。またプラズマから放出される高エネルギーイオンも物質改質に応用可能であり高出力レーザーとガスパフターゲットとの相互作用解明は重要でかつ興味深い研究テーマである。

本論文では、高圧ガスパフターゲットを用いたときに生成するレーザープラズマの評価の一環として、波長域8-20nmの軟X線の空間分解測定に関する実験結果について

報告する。

2. 実験方法

実験は、大阪大学レーザー核融合研究センターの小型繰り返しレーザープラズマX線発生装置HIREXを用いて行われた⁷⁻⁹⁾。直径52cmのステンレス製真空チャンバー内に配置されたレンズの焦点距離は約100mm、集光のf数は約10でありスポット系は約100μmである。実験配置図をFig.1に示す。Nd:YAGレーザーパルスを高圧ガスパフターゲットに照射して、生成するレーザープラズマX線の各波長における空間分解測定を行った。用いたレーザーは、Nd:YAGレーザー(HOYA Continuum社製、YG682)で波長1.06μm、レーザーパルスエネルギーは0.7J、ターゲット上での照射強度約 10^{12} W/cm²、パルス幅8ns(FWHM)であり10Hzの繰り返し運転が可能である。真空チャンバー内のレーザー集光位置にガスパフノズルを設置した。レーザー照射の約200-300μs前にノズルの入り口のバルブ(直径0.5mm)が開き、ガスがチャンバー内に噴出される。なおガスの背圧(Backing pressure)は10気圧でありノズルの約0.5mm上のレーザーが照射される位置では約1気圧である¹⁰⁾。これに

Fig.1 Experimental set up.

よって生成したレーザープラズマを幅100 μ m, 長さ2cmのスリットを(ガスパフノズルから19.5cmの位置に設置)平面結像型斜入射分光器(1200lines/mm)の前に配置し一種のクロススリットカメラの配置をとって生成したレーザープラズマの空間分解測定を行った。この配置での倍率は約5倍であり幾何光学的なフレネル効果による空間分解能は120 μ mである。一方CCDカメラのピクセルサイズは24 μ mなので測定系としての分解能は120 μ mと評価できる。

測定方法を、Fig.2に示す。斜入射型分光器とターゲットとを結ぶ軸を回転中心にして分光器の回転を調節することによりレーザー照射光軸の垂直方向と光軸方向に分けて空間分解測定を行った。すなわち、光軸方向の空間分解測定を行うときには、Fig.2 (a)のようにスリットを垂直にして分光器に軟X線を導く。光軸に対して垂直方向の空間分解測定を行うときには、Fig.2 (b)のスリットを光軸方向に向けて分光器を90度回転させて測定を行った。ターゲットとして使用したガスは、酸素、クリプトン、キセノン

Fig.2 Schematic diagram of the space resolved spectral measurement system.

であった。これらのガスを用いた理由としては、原子番号が8, 36, 54でありそれぞれが特徴的なスペクトル構造を有していることである。すなわち原子番号8番では、1本ずつの線スペクトルX線、36番では線スペクトルの構造を残しつつも多くが重なり合いブロック化し、54番ではその重なりが一層進み連続スペクトルに近くなっている。また8-20nmの波長域内で輝度の高い軟X線放射スペクトルが得られ、精度良くプラズマの特性評価を行いうるからである。すべてのスペクトル測定は背面照射型CCD(Charge Coupled Device)カメラ(Princeton Instruments社製モデルSX-TM/CCD-1024-TK/1)を用いて行った。

3. 実験結果

3.1 酸素プラズマの空間分解測定

測定結果をFig.3に示す。本論文の光源のサイズは半値全幅(FWHM)を用いている。光軸方向のスペクトル図のFig.3-5の(a)の縦軸の下方よりレーザーが照射されている。実験結果より波長13nm近傍で見られるLi様: $1s^22s-1s^23p$ 遷移の光軸方向のソースサイズは、約520 μ m, 垂直方向は、約270 μ mであった。また、波長15nm近傍で見られたLi様: $1s^22p-1s^24d$ 遷移の光源のサイズは、レーザー照射光軸に対して光軸方向約500 μ m, 垂直方向は約280 μ mであり、光軸方向と垂直方向で光源のサイズが大きく異なっている事がわかった。一方、波長18nm近傍のBe様: $2s2p-2s3d$ 遷移からの放射では光軸方向が480 μ m, 垂直方向は約320 μ mであった。垂直方向のBe様とLi様の遷移の光源のサイズを比較するとLi様の方がイオン価数が高いにもかかわらず

Fig.3 Space resolved spectral images of laser irradiated Oxygen gas puff target. (a) On axis image (co-axial to the incident laser axis). (b) Transverse image (perpendicular to the incident laser axis).

イズは、ほぼ等しいことがわかった。

3.2 クリプトンプラズマの空間分解測定

測定結果をFig.4に示す。まず光軸方向とそれに垂直方向の各遷移からの放射を比べる。Fe様の遷移¹¹⁾からの光源サイズは、光軸方向が約330 μm 、垂直方向は約150 μm であった。Co様の遷移からの放射の光源のサイズは光軸方向が約350 μm 、垂直方向は約150 μm 。またNi様の遷移からの放射では、光軸方向が430 μm 、垂直方向は250 μm という結果が得られた。すなわちFe様、Co様のサイズは光軸方向、垂直方向ともにそれぞれ、ほぼ同程度であり、Ni様だけが他の2つに比べて1.2-1.6倍大きかった。

3.3 キセノンプラズマの空間分解測定

測定結果をFig.5に示す。波長16nm近傍でのPd様4d-5p遷移¹¹⁾の光源のサイズは光軸方向が約430 μm 、垂直方向は約240 μm と測定された。また波長17nm近傍のAg様¹¹⁾遷移の光源のサイズとして、光軸方向が約500 μm 、垂直方向は約240 μm が得られた。キセノンのスペクトルも酸素、クリプトンと同様に垂直方向と光軸方向のサイズを見比べてみると垂直方向のサイズの方が小さいことがわかった。

4. 考 察

実験結果よりどのガスにおいても光軸方向と垂直方向のサイズを比較すると垂直方向のサイズの方が常に小さいことがわかった。Fig.6にレーザーの集光光学系と発生ガスパフプラズマの形状を示す。また光軸方向の空間分解像の位置がスペクトル線により大きくずれていることがわかった。Fig.5 (a)に特に顕著に表れている。図中の下側がレーザーの入射方向である。波長11nmから14nmに

Fig.4 Space resolved spectral images of laser irradiated Krypton gas puff target. (a) On axis image (co-axial to the incident laser axis). (b) Transverse image (perpendicular to the incident laser axis).

Fig.5 Space resolved images of laser irradiated Xenon gas puff target. (a) On axis image (co-axial to the incident laser axis). (b) Transverse image (perpendicular to the incident laser axis).

けては、中性キセノンガスによる強い吸収がある。このガスによりFig.6右側で特に強い吸収を受けていることがFig.5 (a)よりわかる。一方光軸に対して垂直方向の空間分解像は、各スペクトル線のピーク強度の位置を中心にほぼ対称となっている。レーザー光がガス噴出領域に集光照射されると、まずブレイクダウンが起こりプラズマ生成がおこる。2方向の空間分解像より本実験条件ではレーリ長にわたり一様にブレイクダウンが起こり、それに引き続いてプラズマ生成がおこっていることが示されている。このとき光軸方向のイオン化の分布はクリプトン、キセノンでは一様でないことを実験データは示している。この点に関しては、時間空間分解測定により、レーザー照射に伴うイオン化の直接測定が望まれる。このときクラスター化が起こっているとプラズマ生成が起こるレーザーの強度のしきい値が変わり引き続いて起こるレーザー光

Fig.6 Schematic diagram of a laser created high pressure gas-puff plasma.

吸収過程が異なる可能性がある。そしていったん、レーザーエネルギーがプラズマに吸収され始め、プラズマの加熱が進むと音速でプラズマの膨張が起こりサイズが大きくなってゆくと考えられる。実験結果より原子番号が大きくなると平均として垂直、光軸両方向とも光源サイズが小さくなっている。これは、プラズマ中の音速と同程度の膨張速度の違いによりプラズマのサイズが決まっていることを示唆している。すなわち、原子番号が大きくなるとイオンの質量数が大きくなり膨張速度が低下し光源のサイズが小さくなっていると考えられる。ゾーンプレートを用いた波長2.87nmの単色2次元イメージ計測でも同様な結果が得られている¹⁰⁾。

クリプトンをターゲットに用いたときの実験結果でNi様遷移からの光源のサイズがCo様、Fe様遷移のサイズに比べて約1.2-1.6倍に大きくなった。Ni様の基底状態はd殻が充たされ安定配位であり広い範囲の電子密度、温度領域においてこのイオン種が存在するため安定でないCo様、Fe様遷移に比べてサイズが大きくなっていると考えられる。

本研究の照射パラメーターでは、キセノン等の高原子番号物質で顕著に起こると期待されるプラズマ中の放射輸送による加熱領域の拡大、それによるプラズマサイズの拡大は、プラズマサイズの原子番号依存性より顕著には起こっていないと考えられる。

5. 結 論

高圧ガスパフターゲットにレーザーを照射したときに生ずるレーザープラズマX線の評価の一環として軟X線源の空間分解測定を行った。今後時間分解X線測定装置、短パルスレーザーを用いて時間的に分解された物理的過程の解明を行ってゆく必要がある。

謝 辞

本研究の主要部分は、科学技術振興調整費総合研究「高密度光の発生と先端物質制御に関する研究」の一環として行われた。実験遂行にあたり常に有益な助言、助力を戴いた加藤 義章氏(現在日本原子力研究所関西研究所)、村井健介氏(大阪工業技術研究所)、大阪大学レーザー核融合研究センターの関係者に深く感謝する次第である。

参考文献

- 1) 大道 博行: X線ハンドブック(財)電子科学研究所(1997) p.541.
- 2) J. Kirz and H. Rarback: Rev. Sci. Instrum. **56** (1985) 1.
- 3) H. Kinoshita, K. Kurihara, Y. Ishii, and Y. Torii: J. Vac. Sci. Technol. **B7** (1989) 1648.
- 4) I. C. E. Turcu, I. N. Ross, M. S. Schulz, H. Daido, G. J. Tallents, J. Krishnan, L. Dwivedi, and A. Hening: J. Appl. Phys. **73** (1993) 8081.
- 5) H. Fiedorowicz, A. Bartnik, Z. Patron, and P. Parys: Appl. Phys. Lett. **62** (1993) 2778.
- 6) O. F. Hagen and W. Obert: J. Chem. Phys. **56** (1972) 5.
- 7) G. M. Zeng, H. Daido, T. Togawa, H. Aritome, M. Nakatsuka, K. Nishihara, and S. Nakai: J. Appl. Phys. **69** (1991) 7460.
- 8) G. M. Zeng, H. Daido, K. Murai, Y. Kato, M. Nakatsuka, and S. Nakai: J. Appl. Phys. **72** (1992) 335.
- 9) G. M. Zeng, H. Daido, T. Nishikawa, H. Takabe, S. Nakayama, H. Aritome, K. Murai, Y. Kato, M. Nakatsuka, and S. Nakai: J. Appl. Phys. **75** (1994) 1923.
- 10) H. Fiedorowicz, A. Bartnik, M. Szczurek, H. Daido, N. Sakaya, V. Kmetik, Y. Kato, M. Suzuki, M. Matsumura, J. Tajima, T. Nakayama, and T. Wilhein: to be published in Opt. Commun.
- 11) J. Reader, N. Acquista, and V. Kaufman: J. Opt. Soc. Am. **B8** (1991) 3.
- 12) J. Blackburn, P. K. Carroll, J. Costello, and G. O'Sullivan: J. Opt. Soc. Am. **173** (1983) 10.