

# 加圧液体中に生成されたレーザープラズマの電子密度

## Electron density of laser plasma produced in liquid under pressure

森下達也 †, 津田紀生 † †, 山田諄 † †

Tatsuya Morishita, Norio Tsuda, Jun Yamada

**Abstract** Plasma produced in liquid under pressure has been studied. The plasma is produced by focusing YAG laser beam, and the electron density of plasma is measured by Mach-Zender interferometer. Ultra pure water and dissolved NaCl 16% are used as a test liquid, and are pressurized up to 15 atm by Nitrogen gas. As a result, the electron density increases with increasing pressure. Then, electron density is proportional to the about 1/3 powers of pressure. The electron density in NaCl aqueous solution also increases with increasing pressure, although the rate of increase is smaller than that in ultra pure water. This implies that dense plasma can be produced using even same laser power. So pressurizing is advantage in production of dense plasma.

### 1. はじめに

現在までに、気体および固体にレーザー光を集光照射することによって生成されたプラズマの研究は多く行われている。しかし、液体中に生成されたプラズマに関する研究はあまり行われていない。最近では液体プラズマも注目され始め様々な研究が行われているが、まだまだその物性は未知である部分が多く、本研究の目的は、YAG レーザにより生成された液体レーザープラズマの物性の解明を目的とする。液体レーザープラズマは液体中の汚染物質の除去への応用が考えられる。従来の処理方法は焼却炉内を一定で高温に保つ必要があり、そのため安全性の確保が必要となる。そこで、小型で高速であり、安全面でも優れている処理法としてプラズマを用いた液体中の汚染物質除去があげられる。

これまでの研究で、大気圧での液体中に生成したレーザープラズマの電子密度は  $10^{25}[\text{m}^{-3}]$  程度であり、大気圧中の気体の密度よりも大きく、液体の密度よりも十分小さいことがわかっている。本研究はさらに高密度のプラズマを生成するために液体に圧力を加えた。これは高気圧気体中に生成したレーザープラズマの電子密度は圧力に比

例して増加するというデータより、もし液体が一度気化したのちプラズマ化するならば、圧力を加えた液体中に生成されるレーザープラズマの電子密度は大きく増加すると考えた。そこで本研究では加圧液体中にプラズマを生成し電子密度分布の測定を行う。

本研究は YAG レーザを加圧液体中に集光レンズを用いて集光照射することによってプラズマが生成し、プラズマ生成率と電子密度分布測定を行った。電子密度の測定はマッハツェンダー干渉計を用いて測定を行った。液体は超純水と NaCl 濃度 16% の水溶液を使用する。また加圧は窒素ガスのボンベからのガス圧力を利用し、0～15atm まで気圧を変化させている。

### 2. プラズマ生成機構

#### 2.1 電離過程

レーザープラズマの場合、電離は光子の吸収によって引き起こされる。通常、レーザーの集光照射において、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さない。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する多光子電離過程が起こる。多光子吸収過程で生じた初期電子は、逆制動放射吸収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なだらかに増倍するカスケード電離過程によってプラズマが生成される。

† 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 工学部 電気学科  
電子工学専攻 (豊田市)

## 2・2 成長過程

液体中にレーザープラズマを生成したとき、生成されたプラズマは集光したレーザー光のライトコーン内において焦点の前方及び後方に成長する。しかし液体レーザープラズマの成長機構に関してまだ解明されていない。そのため本研究では、液体中が高密度であるという観点から、条件の近い高気圧気体中に生成したレーザープラズマの理論<sup>り</sup>で検討する。

### i) Breakdown wave

Breakdown wave は、破壊時間の遅れを示す成長機構である。絶縁破壊は、多光子電離によって作られた初期電子によりカスケード電離が起こることですと考えられている。レーザーパワーがピークに達する前に焦点で絶縁破壊が起きたと仮定すると、レーザーパワーが高くなるにしたがって電離可能な領域が広がっていき、絶縁破壊が起こる領域がライトコーン内で焦点後方に広がっていく。

### ii) Radiation supported shock wave

レーザー光を集光照射すると焦点でプラズマが生成され、その後すぐにレーザーのエネルギーをプラズマが吸収して急激に加熱され、焦点から球状の shock wave の形で膨張が起こる。しかし液体中のため、プラズマは周囲の原子と衝突してエネルギーを失う。このため、レーザー光によりエネルギーが供給される焦点後方のみ shock wave の形で膨張が持続する。

## 3. 実験装置

プラズマ生成には LOTISTH 社製 LS-2135 の Nd : YAG レーザを使用し、基本波の 1064[nm]と第二高調波の 532[nm]を使用した。YAG レーザの特性を表 1 に示す。

表 1. YAG レーザの特性

YAG laser	Fundamental wavelength	Second harmonic wavelength
Wavelength[nm]	1064	532
Pulse width[ns]	15	15
Max power[mJ]	350	180
Beam size[mm]	3.7×5.2	6.1×5.6
Spot diameter[μm]	120.0	80.0

液体を入れる容器はステンレススチール製で直径 90[mm]、長さ 72[mm]の円柱状のものに直径 40[mm]の穴を空け、穴を厚さ 14[mm]の蓋で塞いだものを用いた。蓋には直径 20[mm]の石英ガラス製の窓をプラズマ生成用

レーザーの入射窓として取り付けている。またプラズマ観測用として光軸上の入射窓と反対側、光軸と直角方向の両側面に直径 10[mm]の窓を三か所に取り付けた。

## 4. 破壊しきい値光強度

本研究は、ガス圧によって加圧した液体中に生成したプラズマの電子密度を測定する。しかし液体への加圧に使用したガスの溶解が考えられ、溶解によるプラズマに対する影響は未知数であるため、破壊光強度しきい値の測定結果から気体の溶解の影響を考える。

図 1 にプラズマ生成率の測定時の実験装置を示す。YAG レーザを焦点距離 60[mm]の集光レンズにより集光照射しプラズマを生成した。プラズマの生成はプラズマの発光を目視で確認し、プラズマ生成率は 300 回測定した時の生成の割合とした。レーザーパワーの調整はフィルターを通すことで行なった。

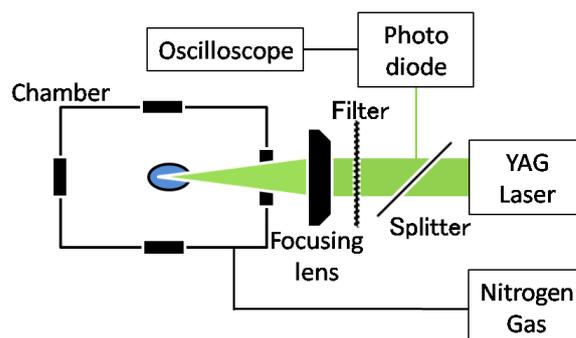


図 1. プラズマ生成率測定装置図

図 2 にプラズマ生成率の測定結果を示す。横軸は光強度、縦軸はプラズマの生成率を示す。またプラズマ生成率が 50%となる光強度をしきい値光強度とする。

プラズマは光強度が低い場合は全く生成されないが、ある値を境に急激に生成率が増加する。その傾向は圧力などの条件に依らず、同様の傾向を示す。しきい値光強度は、圧力に依らず実験誤差以内でありほぼ一定となった。しかし波長や不純物による変化を示した。液体中に生成されたプラズマは、周囲の液体との衝突によってエネルギーを損失する。スポット径が小さく生成されるプラズマが小さい 532[nm]は温度勾配が急であり、熱の損失量が大きいため、プラズマを安定して生成するためにはより多くのエネルギーを必要とする。また Na 原子が他の原子などに比べ電離電圧が低く衝突断面積が大きいため電離確率が上がりプラズマ生成光強度が低下したと考えられる。

スポット径、NaCl 濃度の変化による破壊光強度への影

響は大きい、窒素ガスによって圧力をかけた際の窒素の溶解による破壊光強度の変化はほとんど現れなかった。そのため、プラズマ生成において窒素の溶解による影響は小さいと考えられる。

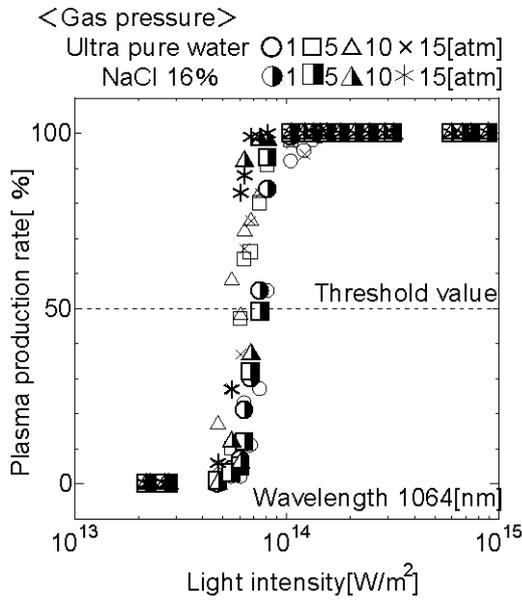
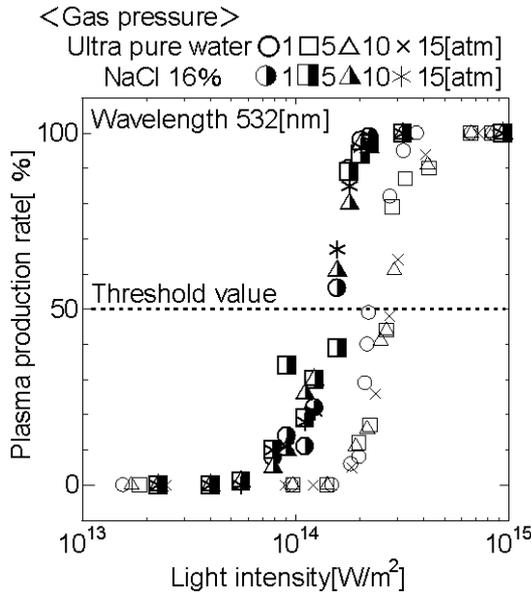


図2 プラズマ生成率測定結果

### 5. 圧力下の電子密度分布

図3に電子密度測定装置を概略的に示す。YAGレーザー光をレンズによって液体中に集光照射することによってプラズマを生成し、アルゴンイオンレーザー（出力2mW）を用いてマッハツェンダー干渉計を構成することによって電子密度を測定した。プローブレーザーはプラズマ中と

空气中を伝搬させたレーザー光を分光器のスリット上で干渉させ、分光器終端の光電子増倍管によって干渉縞を観測した。また、電子密度分布は、集光レンズをXステージに載せ、光軸方向に前後させ集光位置を変化させることで求めた。レーザーパワーの調整にはYAGレーザーとチャンバー間に光学フィルターを挿入することで調整した。またフォトダイオードを用いて、パルス幅の計測と干渉波形のトリガー信号を取り出した。

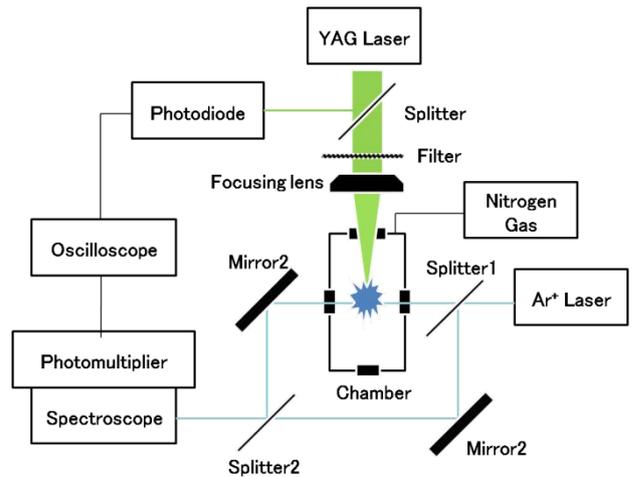


図3 電子密度測定装置図

オシロスコープで観測した干渉波形の例を図4に示す。時間t=0の時、YAGレーザーが照射されている。観測された波形から電子密度が最大時の位相変化量を求めたいが、プラズマによってプローブレーザー光の大部分が吸収・散乱されるためレーザー照射直後の波形は観測できない。そのため干渉波形の振動が収まったとされる点からフリンジ数をプロットし、レーザー照射直後まで外挿することにより求めた。これによって位相変化量が求められる。フリンジ数を外挿した例を図5に示す。

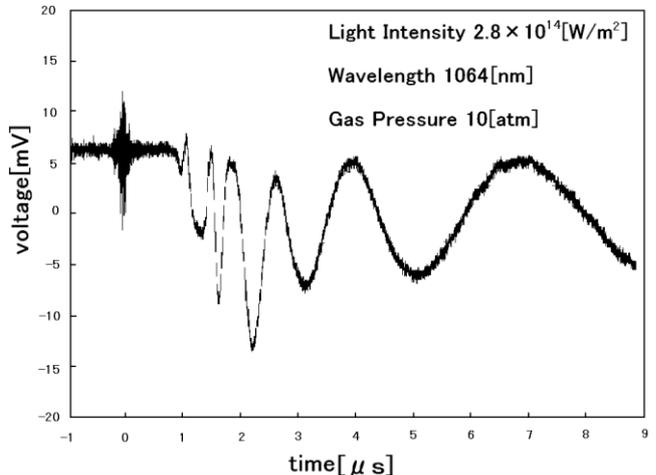


図4 干渉波形例

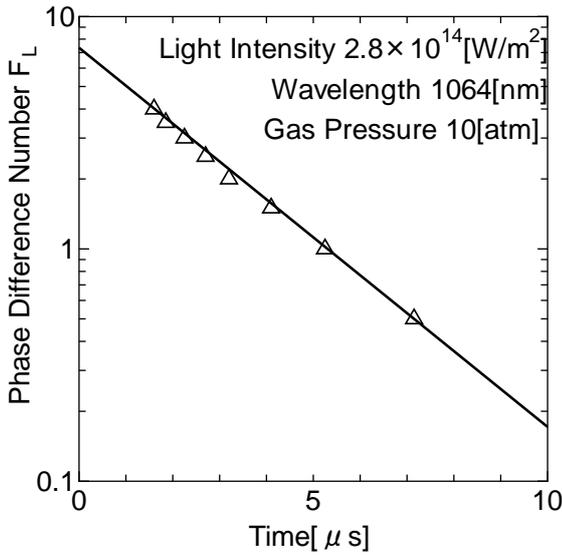


図5 フリンジ外挿例

図 6 に各条件における電子密度の測定結果を示す。横軸をレーザの集光位置を 0 とした光軸方向での位置、縦軸は電子密度の測定値である。また、レーザの進行方向を前方で正、逆方向を後方で負とした。

電子密度分布を見ると、焦点付近で電子密度が最大となり、気圧が 15[atm] の場合では  $10^{26}[\text{m}^{-3}]$  と非常に高密度のプラズマが生成された。また焦点から離れるに従って電子密度は減少傾向を示した。また今回装置の都合上、焦点の前後 2[mm] までしか測定できなかったためしくはわからないが、実際のプラズマの大きさは 4[mm] 以上である。

i) 波長依存性

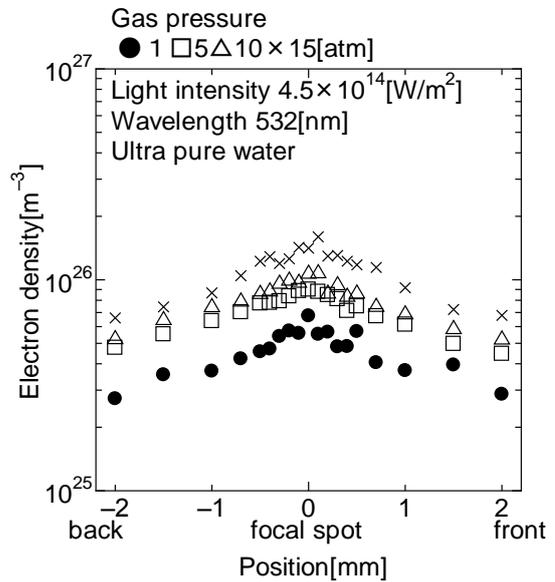
焦点以外での電子密度の減少が 532[nm] に比べ、1064[nm] のほうが大きくなった。これは 532[nm] のほうが、ビーム径が大きくスポット径が小さいため、集光角が大きくなりレーザ照射断面積に差が生じたためと考えられる。

ii) 光強度依存性

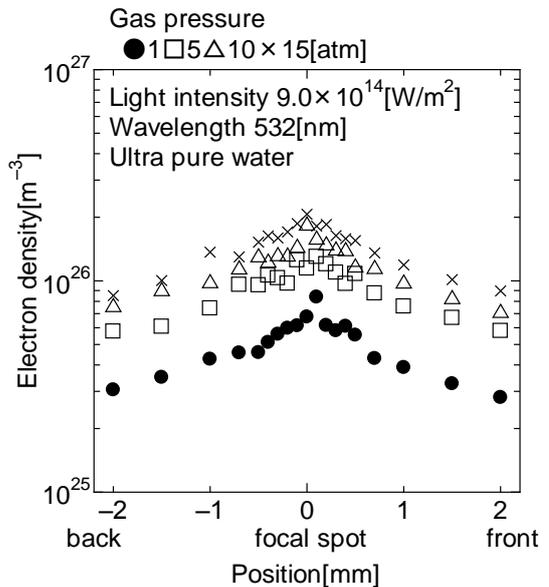
光強度が 2 倍になっているにも関わらず電子密度はわずかしこ増加しなかった。また焦点後方でプラズマが生成されやすくなるため、プラズマによるエネルギーの吸収が増加したためだと考えられる。実験中に目視でプラズマを確認した際、後方に複数のプラズマの種が確認され、大きく後方にプラズマが成長していたことから後方でのエネルギー吸収が大きいと言える。また NaCl 水溶液中に生成した場合、光強度の増加による電子密度の変化はほとんど見られなかった。これは他の水素原子等よりも衝突断面積が大きい Na 原子の増加により、冷却による損失がさらに増加したためだと考えられる。

iii) 圧力依存性

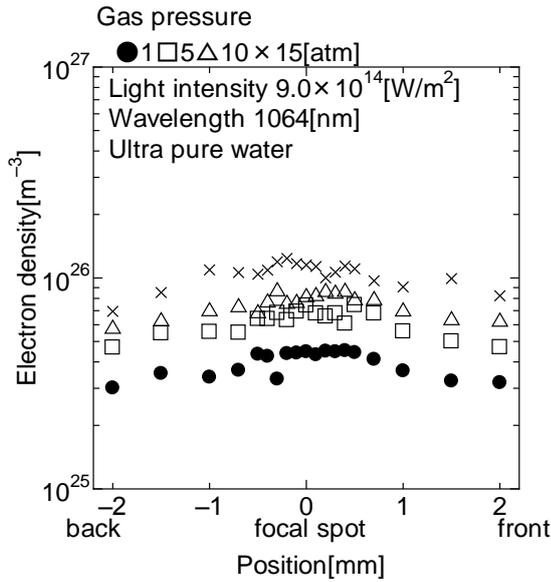
位置に関わらず、圧力が增加するに従って電子密度が増加していく傾向を示した。その増加量は圧力が 15 倍になったのに対して電子密度の増加は 2~3 倍程度であり、気圧に比例するというほどの増加ではなかったが、加圧によって高密度のプラズマが容易に生成された。また NaCl 水溶液中に生成した場合においても超純水中よりもやや増加量が低下するものの、加圧によって電子密度の増加を示した。超純水中よりも増加量が低下した要因として、高密度になることで Na 原子による冷却でのエネルギー損失が増加したためと考えられる。



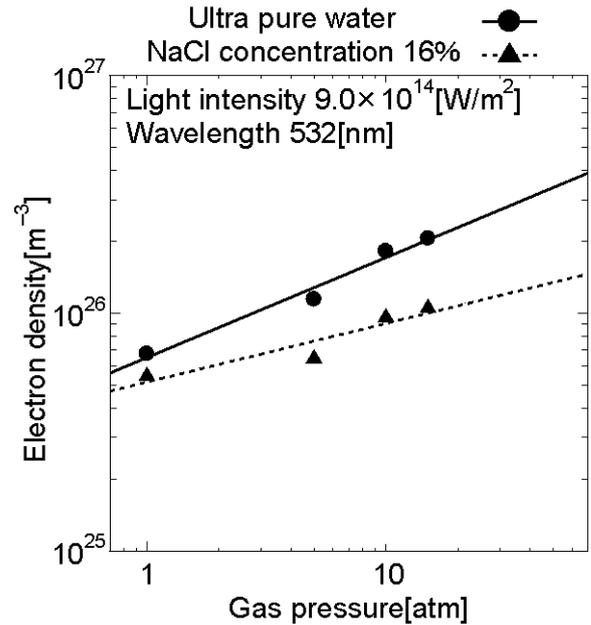
(a) 光強度  $4.5 \times 10^{14}[\text{W}/\text{m}^2]$  波長 532[nm] 超純水



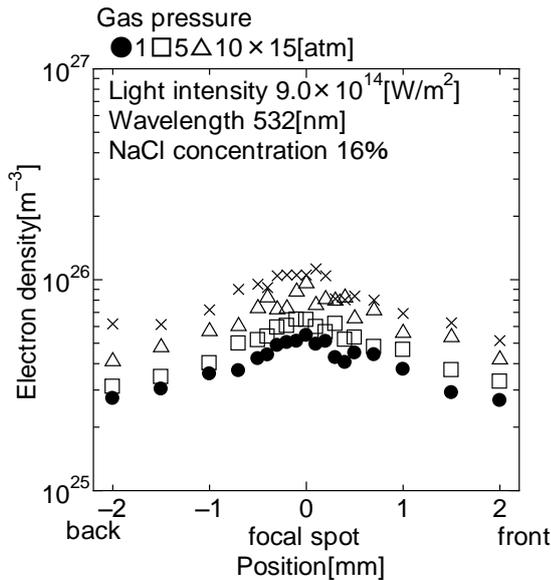
(b) 光強度  $9.0 \times 10^{14}[\text{W}/\text{m}^2]$  波長 532[nm] 超純水



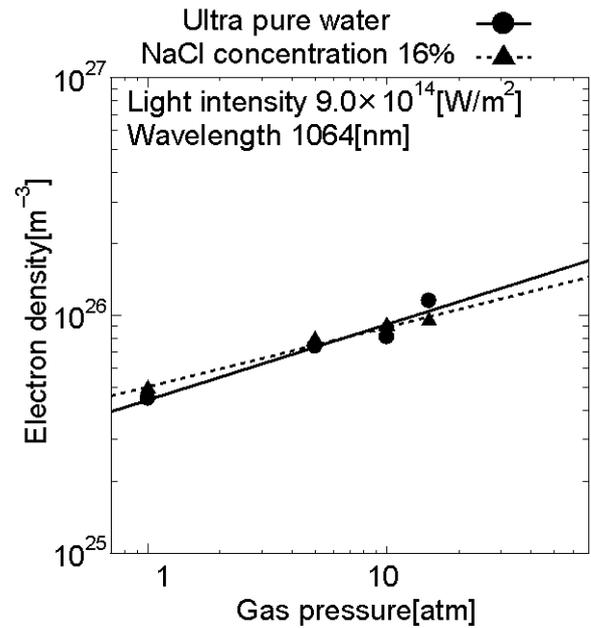
(c) 光強度  $9.0 \times 10^{14} [\text{W}/\text{m}^2]$  波長 1064[nm] 超純水



(a) 光強度  $9.0 \times 10^{14} [\text{W}/\text{m}^2]$  波長 532[nm]



(d) 光強度  $9.0 \times 10^{14} [\text{W}/\text{m}^2]$  波長 532[nm] NaCl 水溶液



(b) 光強度  $9.0 \times 10^{14} [\text{W}/\text{m}^2]$  波長 1064[nm]

図 6 電子密度測定結果

図 7 圧力に対する電子密度変化

次に圧力に対する電子密度変化を図 7 に示す。横軸はガスの圧力、縦軸は焦点における圧力に対する電子密度の変化を示している。波長や光強度などの条件に関わらず、圧力が増加するに従って電子密度は増加し、高密度のプラズマを容易に生成できることが分かった。焦点や前方、後方などの位置による増加量の差も見られず、同じ割合での増加が見られた。また今回は装置の都合上、15 気圧までしか測定できなかったが、圧力に対する傾きに飽和する傾向は見られないことから、さらなる加圧に

よって電子密度の増加は可能であると推測する。しかし超純水と NaCl 水溶液中での傾きが違う結果となった。

各位置で求めた電子密度の圧力に対する傾きの平均値を表 2 に示す。電子密度の圧力依存性は、超純水において圧力の約 1/3 乗に比例する。これは液体からプラズマまでの変化が非常に早く、状態に定まった形が存在せず過渡的に変化していくため、外部気圧に比例して増加しなかったと考えられる。

表 2 電子密度の圧力に対する傾き

Wavelength[nm]	Light intensity[W/m <sup>2</sup> ]	NaCl concentration[%]	average gradient
532	$4.5 \times 10^{14}$	0	0.30
		16	0.26
	$9.0 \times 10^{14}$	0	0.39
		16	0.25
1064	$4.5 \times 10^{14}$	0	0.34
		16	0.28
	$9.0 \times 10^{14}$	0	0.33
		16	0.29

## 6. まとめ

本研究では、液体中にレーザを集光照射して生成したプラズマの物性に関する研究を行ってきた。今回、加圧液体中に生成されたレーザプラズマの破壊しきい値光強度と電子密度の測定を行った。

破壊しきい値光強度は、プラズマの生成を目視で確認し、生成された数を数えることから求めた。圧力を1~15[atm]の範囲で変化させたが、破壊しきい値光強度への影響はほぼなかった。しかしレーザのスポット径や液体中の不純物は、プラズマ生成に対して影響を及ぼすことがわかった。

電子密度は、アルゴンイオンレーザを用いてマッハツェンダー干渉計を構成し、プラズマ中を透過する透過光と空气中を伝搬する参照光の位相差から求めた。その結果、波長や液体中の不純物の有無に関わらず、液体に加圧することで電子密度は増加し、超純水中では圧力の約1/3乗程度の増加を示した。15[atm]の時では同じレーザ光強度で大気圧中の2~3倍の高密度プラズマが得られた。

また電子密度の増加にも飽和する様子が見られなかったことから、より高密度のプラズマを生成できる可能性を見せた。これは同じエネルギーで高密度のプラズマが得られることを示し、レーザプラズマによる環境物質の分解などの応用において有利に働くと考えられる。方法としても容易であるため、液体中における高密度のプラズマの生成において非常に効率のよい手段である。

## 参考文献

- 1) 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, No.4, pp.303-308 (1994-4)
- 2) 山口剛, 津田紀生, 山田諄「液体中に YAG レーザで生成されたプラズマの物性に関する研究」, 愛知工業大学研究報告 Vol.43 part.B, pp. 35-40 (2008-3)

(受理 平成 22 年 3 月 19 日)