



講座 レーザー生成プラズマの新しい温度、密度領域における物性とシミュレーション

3. EUV 光源や ICF におけるレーザープラズマ相互作用の初期過程 —レーザーアブレーション—

3. Initial Process of Laser-Plasma Interaction in the Extreme Ultra-Violet Light Source and the Inertial Confinement Fusion Plasmas — Laser Ablation —

砂原 淳

SUNAHARA Atsushi

公益財団法人レーザー技術総合研究所

(原稿受付：2013年4月26日)

物質にレーザーを照射すると、照射された物質表面は気体やプラズマとなって噴出する。この“レーザーアブレーション”の時間発展を記述する計算機シミュレーションのモデルについて考える。レーザーアブレーションにおいてターゲットとなる物質はレーザー照射開始時に固体や液体であることが多く、レーザー照射により気体やプラズマへと状態が変化する。そのため、レーザー照射初期の固体状態からプラズマ状態に至るまでの幅広い密度・温度領域カバーするモデルが必要になる。本章ではレーザーアブレーションの計算機シミュレーションで広く用いられている輻射流体力学モデルをベースに、物質の状態方程式や電子の輸送、電子とイオンまたは格子振動とのエネルギー緩和、レーザーの伝播、吸収、輻射輸送など、重要な物理過程の扱い方について説明する。さらに、固体状態からプラズマ状態までの幅広い密度・温度領域をどのように記述するかについて述べる。また、レーザー照射された物質がレーザーパルス初期にどのように電離してプラズマ状態に至るのかを自由電子の発生を中心に簡潔に述べる。

Keywords:

nano-second laser ablation, radiation hydrodynamic simulation, two-temperature model, thermal conduction, radiation transfer

3.1 はじめに

極端紫外 (Extreme Ultra-Violet: EUV) 光源やレーザー核融合プラズマにおけるレーザープラズマ相互作用の初期過程のモデリングの現状と課題を示すのが本章の目的である。EUV光源であれば金属であるスズのドロップレット (液体または固体)、レーザー核融合であれば内側の DT の核融合燃料層と外側のプラスチック (CH) アブレーターからなる燃料ペレットにレーザーを照射する。いずれも初期にはプラズマでない状態からプラズマへと時間発展する。このレーザー照射初期のプラズマ生成やその後の時間発展はどのように扱うべきだろうか。

本章ではまず、どのようにプラズマが生成されるのか？という問題について、自由電子の生成を中心に記述する。ここでは多光子吸収やトンネル電離、逆制動放射が重要になる。続いて、プラズマの時間発展をどのように計算するかについて、現状のモデルを説明する。ここではターゲットにレーザーが照射され、吸収されたレーザーエネルギーがどのように物質中に広がり、物質の密度や温度の変化に結びつくのかを輻射流体力学モデルをベースに考える。そして初期にはプラズマではない状態からプラズマ状態まで

の幅広い領域の物性をどのように統一的に記述するかについて考える。

3.2 自由電子の生成

プラズマ状態を固体、液体、気体に次ぐ第4の物質の状態として例える際、我々はプラズマを“電離している状態”として他の3つの状態と区別している[1]。レーザー生成プラズマという場合、レーザーをターゲット物質に照射し、電離度が低い物質状態から高い状態へと遷移させることこそがレーザーによるプラズマ生成過程といえる。金属のように金属内の原子間を比較的自由に動くことができる電子 (これを伝導帯電子、または完全にポテンシャルフリーではないが、原子間を自由に動けるといって自由電子と呼ぶことにする) が存在する場合はレーザーを照射する以前から、ターゲット物質にはある程度の電離度があり、物質内に自由電子が既に存在するものとして以後のレーザー吸収の素過程を考えればよい。しかし、伝導帯に電子が存在せず、禁制帯にのみ存在する誘電体の場合には“最初の1個目の自由電子”がどのようにできるかを考える必要がある。その場合の電離はレーザー強度にもよる

Theory and Computation team, Institute for Laser Technology, Suita, OSAKA 565-0871, Japan

author's e-mail: suna@ile.osaka-u.ac.jp

が、多光子吸収 (Multi-photon absorption) によって生じることが多い[2]. ϵ_I をイオン化に必要なエネルギーポテンシャルギャップ, 光子のエネルギーを $h\nu$ とすると, $m > \text{int}[\epsilon_I/h\nu + 1]$ の条件を満たす m 個以上の光子が同時に遷移に寄与することにより, 禁制帯から伝導帯への電子の遷移が生じる. $1\ \mu\text{m}$ の波長の光子はほぼ $1\ \text{eV}$ のエネルギーを持つから, 物質のエネルギーギャップが $10\ \text{eV}$ 程度であるとすると, 10 個以上の光子が同時に遷移に寄与する必要がある. ほとんどの場合で最初の自由電子を生成する物理過程は多光子吸収である[2]が, 現実のターゲット物質には不純物が含まれていることが多く, もっと小さいエネルギーギャップが生じ, 1 個の光子でも自由電子を生成する場合もある.

一方, レーザー強度がさらに高くなり, 電子が束縛されているポテンシャル障壁そのものが電場の影響を受けて歪むと, ポテンシャル障壁が実効的に低くなる. このとき電子はトンネル効果により, ポテンシャル障壁の外に出ることが可能になる. これをトンネル電離 (tunnelionization) または電界電離 (field ionization) という.

多光子吸収, トンネル電離のどちらも光電離吸収過程である. Keldysh は Keldysh parameter γ と呼ばれるフリーパラメータを導入して多光子電離とトンネル電離レートを統一的に扱う式を導いた[3]. Keldysh parameter γ は

$$\gamma = \frac{\omega}{\omega_t} = \frac{\omega\sqrt{2m_e I}}{e\mathcal{E}} = \sqrt{\frac{I}{2U}} = \frac{1}{2K_0 F}, \quad (1)$$

で与えられ, ω はレーザーの (角) 周波数, ω_t は電子がポテンシャルをトンネルする周波数, \mathcal{E} は振動電場の振幅, $K_0 = I/(h\omega)$ はイオン化ポテンシャル I のイオン化に必要な光子 $h\omega$ の数, $F = F = \mathcal{E}/(\kappa^2 \mathcal{E}_a)$, $\kappa = \sqrt{I/I_H}$, $\mathcal{E}_a = m_e^2 e^5 / h^4 = 5.14 \times 10^9\ \text{V/cm}$, $I_H = 13.6\ \text{eV}$ である[4]. また, U はポテンダモーティブポテンシャル (ponderomotive potential) であり, $U = e^2 \mathcal{E}^2 / (4m_r \omega^2)$, $m_r = m_e/2$ である. よって, $\gamma = \{(\text{イオン化ポテンシャル}) / (\text{ポテンダモーティブポテンシャル})\}^{1/2}$ ともいえる. $\gamma \ll 1$ であるほど, トンネルする電子からみると, 定常的なレーザーの電場がかかり, ポテンシャル障壁が下がることによってトンネル電離が生じやすくなる. 反対に $\gamma > 1$ では多光子電離が生じやすい. また, トンネル電離では最外殻の電子から電離するが, 多光子吸収電離では主量子数 n_p が小さい程断面積が大きく, 内殻からの電離が生じる. プラズマ生成の際, 電離以外の過程を含めた電子の数密度 n_e の時間発展は次の式で与えられる[5].

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} = \nu_i n_e + W_m I^m n - \nu_a n_e - \nu_R n_e + \nabla(D \nabla n_e). \quad (2)$$

ここでは多光子吸収を考え, 電離 m 個の光子によって $m h\nu > \epsilon_I$ となるから, 電離レートは $W_m I^m$ とする. n を中性粒子またはイオンの数密度, ν_i は衝突電離レート, ν_a は電子付着レート, ν_R は再結合レート, 最後は拡散項である. 多光子吸収またはトンネル電離によりひとたび自由電子が生成されると, レーザーの電場で振られた自由電子が

中性粒子またはイオン粒子と衝突することにより振動エネルギーを熱化してエネルギーを得る. この過程を逆制動放射 (Inverse-bremsstrahlung) という. エネルギーを得た電子は原子に衝突し, 電子衝突電離 (electron impact ionization) して, 電子数は増加する. そのとき, 励起やイオン化に使われる以上のレーザーエネルギー吸収が生じると, 電子衝突電離が連続的に生じ, 雪崩的に電離が進む. これを電子雪崩 (electron avalanche) という. これにより自由電子数が急速に増加し, 初期プラズマが生成される.

3.3 輻射流体力学モデル

レーザーアブレーションを記述する流体近似のモデルとして次に示す一流体二温度の輻射流体力学モデル, または単に二温度モデル (Two Temperature Model) [6, 7] が広く用いられている.

$$\frac{D\rho}{Dt} = -\rho \nabla \cdot \mathbf{v}, \quad (3)$$

$$\frac{D\mathbf{v}}{Dt} = \nabla(p_i + p_e), \quad (4)$$

$$\rho c_{vi} \frac{DT_i}{Dt} = -p_{\text{thi}} \nabla \cdot \mathbf{v} - Q_{ei}, \quad (5)$$

$$\rho c_{ve} \frac{DT_e}{Dt} = -p_{\text{the}} \nabla \cdot \mathbf{v} + Q_{ei} + \nabla \cdot (\kappa_e \nabla T_e) + S_e. \quad (6)$$

ρ は質量密度, \mathbf{v} は速度, T_i , T_e はそれぞれ格子振動 (phonon) またはイオン (ion) の温度, 電子 (electron) の温度である. $p_i = p_i(\rho, T_i)$ は格子振動またはイオンの圧力, $p_e = p_e(\rho, T_e)$ は電子圧力であり, $p_{\text{thi}} = p_{\text{thi}}(\rho, T_i) = T_i \left(\frac{\partial p_i}{\partial T_i} \right)_\rho$, $p_{\text{the}} = p_{\text{the}}(\rho, T_e) = T_e \left(\frac{\partial p_e}{\partial T_e} \right)_\rho$ と定義される. これらはそれぞれ密度, 温度の関数として, 状態方程式モデルに基づいて与えられる. Q_{ei} は電子と格子振動またはイオンと電子とのエネルギーの衝突緩和 (relaxation), S_e はレーザー加熱, 輻射加熱など, 単位体積あたり単位時間あたりの外部から電子へのエネルギー入力を表す. κ_e は電子の熱伝導度 (thermal conductivity) である. $c_{vi} = c_{vi}(\rho, T_i)$, $c_{ve}(\rho, T_e)$ はそれぞれ, イオンと電子の比熱 (specific heat) である. これも圧力と同じく, 密度・温度の関数としてモデルで与えられる.

この一流体二温度モデルは, 電子とイオンを一体となって動く流体とみなし, イオンまたは格子振動と, 電子のそれぞれのエネルギー式を考えるため, 電子間, イオン間 (または格子振動間) のエネルギー緩和時間より長い時間スケールを扱うのに有効である. 電子とイオンで電荷分離が生じるような場合や, フェムト秒レーザー照射時に, 電子がマクスウェル分布になる緩和時間よりもレーザー照射のパルス幅が短かい場合など, 明らかに適用範囲外の問題を除き, 多くの問題に適用されている. しかし現実には, 式の中で使われる圧力や比熱, 熱伝導係数やレーザー吸収率等の物性値が正しく与えられるか? という大きな問題が

ある。物性値データが計測され、データベース化されていることもあるが、往々にしてデータが限られていたりする。これらを順に考察する。

3.3.1 状態方程式

レーザーアブレーションのシミュレーションの状態方程式は Quotidian Equation of State:QEOS[8] が広く使われている。また、いくつかの物質については Los Alamos 研究所の SESAME テーブル[9] が利用できる。比熱や熱伝導係数などの物性値については産業技術総合研究所の分散型データベースも利用できる[10]。いずれにしても、固体からプラズマまでの全てを精度よくカバーする状態方程式のモデルは未だ探求されつづけており、詳細は本講座第2章を参照していただきたい。

3.3.2 電離度

次に電離度について考える。レーザープラズマ中の電離度は Collisional Radiative Steady State (CRSS) に基づいて計算されることが多い[11]。これはプラズマ中の衝突過程、輻射過程を考慮したレート方程式を定常を仮定して解くもので、高密度極限では局所熱平衡 (Local thermal equilibrium: LTE) になり、低密度極限ではコロナ平衡 (Corona Equilibrium: CE) になる[12]。図1にシンプルな CRSS で計算したアルミの電離度を示す。高密度低温度側では LTE であるが、高温もしくは低密度になると相対的に輻射過程が衝突過程に比べて無視できなくなり、衝突輻射平衡 (Collisional Radiative Equilibrium: CRE) になる。さらに低密度になると衝突で励起され、放射脱励起するコロナ平衡になる。コロナ平衡になると電離度は密度に依存しなくなる。図から、密度・温度領域は LTE, CRE, CE の3つの領域に分かれることがみて取れる。固体のターゲットにレーザーを照射すると最初は LTE の状態にあるが、加熱され、膨張したプラズマは CRE 領域に向かう。ほとんどのアブレーションでは固体 (典型的なイオン密度 10^{22} cm^{-3}) から膨張気体もしくはプラズマ (典型的なイオン密度 10^{19} cm^{-3}) に一気に膨張するが、温度が低いままであれば LTE ですべてをカバーできる。

LTE であればいくつかの方法で比較的簡単に電離度を計算できる。例えば、 $T = T_e$ として Saha-Eggert 方程式

$$\frac{n_e n_{r+1}}{n_r} = \frac{2U_{r+1}(T)}{U_r(T)} \left(\frac{m_e k_B T}{2\pi \hbar^2} \right)^{\frac{3}{2}} \exp\left(-\frac{I_r - \Delta I_r}{k_B T} \right), \quad (7)$$

で与えられる[13]。 U_r , U_{r+1} はそれぞれ r 価, $r+1$ 価のイオンの分配関数 (partition function) である。 n_r は r 価に電離した原子の数密度で、 $r=0$ は中性原子、 $r=1$ は1価電離した原子を意味する。 n_e は電子の数密度を表す。 I_r は r 価から $r+1$ 価へ電離する際のイオン化エネルギー、 ΔI_r はイオン化ポテンシャルの低下 (potential lowering) である。 \hbar はプランク定数、 m_e は電子の質量である。実際に電離度を求めるには分配関数 U_r , U_{r+1} が必要である。

また、LTE で固体ターゲット等のような高密度の場合には Thomas-Fermi モデルに基づいた電離度評価も可能であり、電離度のフィッティング公式等が利用可能である

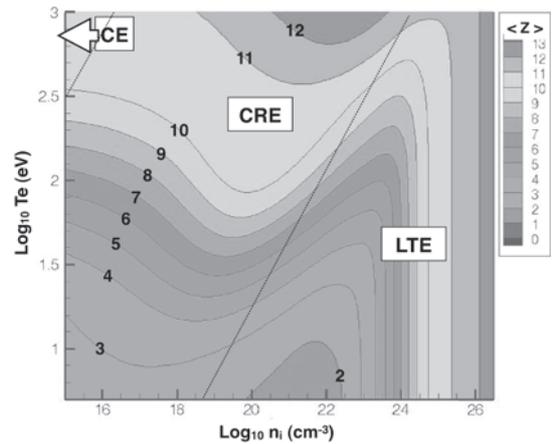


図1 CRSS による Al の平均電離度 $\langle Z \rangle$ の計算例。LTE, CRE, CE に分かれる。破線は領域の区分がわかりやすいように付けたものである。

[11]。そこで、現実的なレーザーアブレーションのシミュレーションでは初期プラズマは Saha-Eggert や Thomas-Fermi モデルで電離度を計算し、低密度、高温部分は CRSS で計算したものに切り替えるということになる。CRSS が原理的にはすべての密度・温度領域をカバーするはずであるが、すべての準位間のレート係数を正確に考慮することは容易でない。

3.3.3 電子の衝突周波数

次に、熱伝導やレーザー吸収など、多くのモデルで登場する電子の衝突周波数 ν について考えてみる。実際の計算では電子と相互作用する相手が格子振動なのか、それともイオンなのかで計算に使用する物性が大きく異なるが、それらをつないで、固体からプラズマまでを統一的に扱う。

物質状態が固体であれば電子と格子振動との衝突が生じ、電子-格子振動の衝突周波数は

$$\nu_p = K \frac{e^2}{\hbar v_F} \frac{k_B T_i}{\hbar}, \quad (8)$$

となる。 v_F は縮退した電子気体のフェルミ面における速度で $v_F = (3\pi^2 n_e)^{1/3} \hbar / m_e$ である。 n_e は電子の数密度、 K は実験を再現するように調整されるパラメータである。Ramis [14] によれば Al で $K = 18.8$ である。また物質がプラズマであれば電子とイオンとの衝突が支配的となり、電子とイオンの衝突周波数は

$$\nu_e = \frac{4\sqrt{2\pi} Z n_e e^4 \ln \Lambda}{3\sqrt{m_e} (k_B T_e)^{3/2}}, \quad (9)$$

で与えられる。現実の計算では固体から、固体とプラズマの中間に位置するいわゆる Warm Dense Matter 領域を経てプラズマに至るすべてを計算する必要がある場合が多い。固体からプラズマ領域までをカバーする電子の衝突周波数 ν を統一的に記述することは容易でなく、現実的な方法としては、 ν_p と ν_e の調和平均を採るとするのが一つの方法である[15]。この場合、電子と格子振動との衝突周波数 ν は

$$\nu^{-1} = \nu_p^{-1} + \nu_e^{-1}, \quad (10)$$

とする。また、実際の計算では電子-電子衝突も考慮する必要があるのである[16]。

3.3.4 電子熱伝導

次に電子熱伝導について考える。熱伝導率 κ_e は一般に

$$\kappa_e(T_e) = \frac{1}{3} C_e(T_e) v(T_e) \ell(T_e) n_e, \quad (11)$$

で与えられ[17]、 C_e は単位体積あたりの電子の定積熱容量で $C_e = \rho c_{ve}$ である[17]。 ℓ は粒子の平均自由行程 $\ell = v_{th}/\nu_e$ である。 v_T は熱速度である。 $v = v_T$ として、式(12)変形すると

$$\kappa_e(T_e) = \frac{C_e v_T^2}{3\nu_e}, \quad (12)$$

となる。熱速度 $v_T^2 = k_B T_e$ より、電子-イオン衝突周波数が支配的なプラズマ極限では $\kappa_e(T_e) \propto T_e^{5/2}$ となる。電荷中性条件等が考慮されるため、まったく同じ式にはならないが、Spitzerの電子熱伝導係数と同じ形、 $\kappa_{\text{Spitzer}} = \kappa_0 n_e k_B^2 T_e / (m_e \nu_{\text{Spitzer}})$ になる[15]。また、金属の固体などでは縮退していることを考慮し、電子熱伝導係数は

$$\begin{aligned} \kappa_e(T_e, T_i) &= \frac{C_e}{3\nu_e} \left(v_F^2 + \frac{3k_B T_e}{m_e} \right) \\ &= \frac{\pi^2 n_e k_B^2 T_e}{6\nu_e \varepsilon_F} \left(v_F^2 + \frac{3k_B T_e}{m_e} \right), \end{aligned} \quad (13)$$

と見積もられる[7]。ここで、電子比熱 $C_e = (\pi^2/2) n_e k_B^2 T_e / \varepsilon_F$ 、 ε_F はフェルミエネルギー、 $\varepsilon_F = \frac{1}{2} m_e v_F^2$ である。

3.3.5 電子とイオンの温度緩和

電子とイオンとの温度緩和は係数 γ を用いて $Q_{ei} = \gamma(T_i - T_e)$ と表される。ここで γ は

$$\gamma = \frac{3m_e k_B \nu_e}{m_i^2}, \quad (14)$$

で与えられ[15]、 m_i はイオンの質量である。 ν_e に ν_{Spitzer} を代入すれば、プラズマにおける電子-イオンの緩和係数になる[18]。

3.3.6 輻射輸送

次に輻射輸送について概要を記す。より丁寧な解説は文献[19]を参照されたい。輻射輸送は一般的には空間3次元、運動量空間3次元の6次元の位相空間でボルツマン方程式を解くことになるが、計算負荷が大きすぎて現実的でない。そのため、何らかの近似を用いて輻射輸送を現実的な精度で解くという方法が採られる。

輻射輸送の0次と1次のモーメント式は次のように表される。

$$\frac{\partial E_\nu}{\partial t} + \nabla \cdot \mathbf{F}_\nu = 4\pi\eta_\nu - c\chi_\nu E_\nu, \quad (15)$$

$$\frac{\partial \mathbf{F}_\nu}{\partial t} + \nabla \cdot \mathbf{P}_\nu = -c(\chi_\nu + \sigma_s) E_\nu, \quad (16)$$

ここで E_ν は輻射エネルギー $h\nu$ の輻射エネルギー密度であり、 \mathbf{F}_ν は輻射エネルギー流束、 \mathbf{P}_ν は輻射テンソルである。 $4\pi\eta_\nu$ は放射率、 χ_ν は吸収係数、 σ_s は散乱係数である。このままだと式が閉じないため、テンソル \mathbf{P}_ν をEddingtonテンソル \mathbf{f}_ν を用いて $\mathbf{P}_\nu = \mathbf{f}_\nu E_\nu$ と表すようにする。輻射場が等方的であれば $\mathbf{f}_\nu = (1/3)\mathbf{I}$ となる。 \mathbf{I} は単位テンソルである。等方的な輻射場 $\mathbf{f} = (1/3)\mathbf{I}$ を仮定し、さらに $\frac{\partial \mathbf{F}_\nu}{\partial t} = 0$ とすると最も簡単な拡散近似における輻射輸送の式を導出することができる。

$$\frac{\partial E_\nu}{\partial t} + \nabla \cdot (D_\nu E_\nu) = 4\pi\eta_\nu - c\chi_\nu E_\nu. \quad (17)$$

ここで、 $D_\nu = \frac{c}{3\chi_\nu}$ である。しかしながら、輻射場が等方的と仮定したために、非等方的な極限ではエネルギー流束を正確に評価することができない。そのため、電子熱伝導の時と同様に、非物理的な解を避けるための熱束制限を行う。輻射の場合には $F_\nu = cE_\nu$ が自由エネルギー流束となるから、完全等方的な輻射場を仮定したエネルギー流束 q と調和平均をとることにより、

$$D_\nu = \frac{c}{3\chi_\nu + \frac{|\nabla E_\nu|}{E_\nu}}, \quad (18)$$

とする。これにより、輻射場が等方的極限 ($|\nabla E|/E \ll 1$) と非等方極限の両極限で物理的に正しい解を得ることができる。このモデルは熱束制限拡散近似 (Flux-limited diffusion approximation) とよばれ、簡便であるが、ほどほどの精度で計算できるとして広く使われている。

また、輻射輸送方程式の右辺に用いる放射率 (emissivity)、吸収率 (absorption coefficient) は輻射輸送を解く際に非常に重要であるが、ここでは割愛する。文献[12]に詳しい記述がある。

3.3.7 レーザー吸収

レーザーを金属に照射すると、レーザーは臨界密度 (critical density) までしか伝播しない。 z 方向に伝播する直線偏光のレーザー電場を $E(z)$ は

$$\frac{\partial^2 E(z)}{\partial z^2} + \frac{\varepsilon(\omega, z)\omega^2 E(z)}{c^2} = 0, \quad (19)$$

のヘルムホルツ方程式に従う。ここで ω はレーザーの (角) 周波数、 $\varepsilon(\omega, z)$ は誘電関数である。 $z > 0$ を金属とすると、電場 $E(z)$ は金属表面 $Z = 0$ で $E(z = 0)$ として、

$$E(z) = E(0) \exp\left(-\frac{z}{\delta}\right), \quad (20)$$

で減衰する。ここで、金属における電場の侵入深さ、即ちスキン長 δ は $\delta = i \frac{1}{\varepsilon^{1/2}} \frac{c}{\omega}$ となる。プラズマの誘電関数は

$$\begin{aligned} \varepsilon &= 1 + \frac{4\pi\sigma}{\omega} = 1 - \frac{\omega_{pe}}{\omega(\omega + i\nu)} \\ &= \varepsilon_1 + i\varepsilon_2 \end{aligned} \quad (21)$$

$$= \left(1 - \frac{\omega_{pe}^2}{\omega_{pe}^2 + \nu^2}\right) + i \left(\frac{\nu \omega_{pe}^2}{\omega^3 + \nu^2 \omega}\right), \quad \times \left(\frac{2\pi}{3m_e k_B T_e}\right)^{1/2} n_e \sum_i z_i^2 n_i g_i,$$

である。ここで ω はレーザーの周波数、 ω_{pe} はプラズマ周波数、 ν は電子の衝突周波数である。これからスキン長 δ は $\nu/\omega \ll 1$ かつ $\omega/\omega_{pe} \ll 1$ のときに

$$\delta = \frac{c}{\omega_{pe}}, \quad (22)$$

となる。複素屈折率 $\tilde{n} = \sqrt{\tilde{\epsilon}} = n + ik$ を考えると

$$n = \sqrt{\frac{\epsilon_1 + \sqrt{\epsilon_1^2 + \epsilon_2^2}}{2}}, \quad (23)$$

$$k = \sqrt{\frac{-\epsilon_1 + \sqrt{\epsilon_1^2 + \epsilon_2^2}}{2}}, \quad (24)$$

となり、これからターゲット表面における反射率 R が求まる。

$$R = \frac{(n-1)^2 + k^2}{(n+1)^2 + k^2}. \quad (25)$$

ここからレーザーの吸収率 α は $\alpha = 1 - R$ によって

$$\alpha = 1 - R = 1 - \frac{(n-1)^2 + k^2}{(n+1)^2 + k^2} = \frac{2k^2}{(n-1)^2 + k^2}, \quad (26)$$

と見積もることができる[20]。また、ターゲットの加熱 $Q_L(z, t)$ は

$$Q_L(z, t) = \frac{1}{2} Re\{\sigma(z, t)\} |E|^2, \quad (27)$$

でありターゲット表面におけるレーザー強度を $I(z=0, t)$ とすると

$$Q_L(z, t) = baI(z=0, t) \exp(-bz), \quad (28)$$

となる[21]。ここで $b = 4\pi k/\lambda$ で、 λ はレーザーの波長である。

加熱されたターゲット表面が噴き出して比較的低密度気体/プラズマが生成されるとレーザーの臨界密度以下の状態が現れる。そこでは逆制動放射によってレーザーが吸収される。逆制動放射は自由電子が中性原子やイオンなどにより散乱される際に光を出す制動放射の逆過程である。電子-中性原子との衝突における吸収係数 κ_{IB}^{en} は

$$\kappa_{IB}^{en} = \left[1 - \exp\left(-\frac{h\nu}{k_B T_e}\right)\right] \sum_j Q_j n_e n_j, \quad (29)$$

与えられ[22, 23]、 j は中性粒子の種別、 Q_j は電子が j 原子と衝突する間に光を吸収する断面積であり、 10^{-36} cm^5 のオーダーである。 n_j は中性原子の数密度である。電子とイオンの衝突による逆制動放射吸収係数 κ_{IB}^{ei} は

$$\kappa_{IB}^{ei} = \left[1 - \exp\left(-\frac{h\nu}{k_B T_e}\right)\right] \frac{4e^6 \lambda^3}{3hc^4 m_e} \quad (30)$$

で、 z_i と n_i はイオンの価数と密度、 λ はレーザーの波長、 g_i はガウントファクターである。

3.4 逆制動放射の電子密度スケール長依存性

レーザー光の吸収の問題はレーザープラズマ応用において重要である。例えば EUV 光源ではレーザーのエネルギーをプラズマに吸収させ、EUV 発光として取り出すのが、レーザーから EUV 光への高い変換効率が求められるため、レーザー吸収率が十分高いことが不可欠である。アブレーションプラズマの密度分布を $n(x) = n_{crit} \exp(-x/L)$ と仮定する。ここで n_{crit} は臨界密度であり、レーザー波長によって決まる。 L は電子密度のスケール長である。真空側よりレーザーが入射し、伝播するに従い、プラズマの密度上昇とともに、レーザー吸収量は増加する。レーザー光は臨界密度まで到達すると反射され、真空側へと跳ね返り、再びエネルギーをプラズマに付与しながら真空側へと戻っていく。逆制動放射を仮定して全体の吸収率 α_{abs} を

$$\alpha_{abs} = \frac{I_{in} - I_{out}}{I_{in}} = 1 - \exp\left(-\int_0^L \kappa_{IB} dz\right) \quad (31)$$

として定義する。ここで I_{in} , I_{out} はそれぞれ、プラズマに入射するレーザー強度、吸収されずプラズマから反射されて出て行く際のレーザー強度である。 $n_e = 0$ から n_{crit} まで積分すると

$$\alpha_{abs} = 1 - \exp\left\{-\frac{8}{3} \frac{\nu_{ei}(n_{crit})L}{c}\right\} \quad (32)$$

となる[25]。ここではレーザーはターゲット面に対して垂直に入射するものとした。斜め入射の場合は垂直軸から θ だけ斜めに入射したとするとレーザー光は臨界密度 n_{crit} まで到達できなくなり、 $n_e = n_{crit} \cos^2(\theta)$ までしか入射しなくなる。局所的な逆制動放射の吸収率は密度の2乗に比例するから臨界密度が低下すると吸収率も減少する。そのため、平板ターゲットにレーザーを入射するのと球ターゲットを照射するのではレーザーの吸収率は大きく異なる。

またレーザー吸収率はレーザー波長に大きく依存する。図2に Nd:YAG レーザー (波長 1.06 μm) と、CO₂ レーザー (波長 10.6 μm) をの吸収率をスケール長 L と電子温度の関数としてプロットする。

図2より、Nd:YAG に比べ、CO₂ レーザーは極端にレーザーの吸収率が低いことが見て取れる。これは Nd:YAG に比べて臨界密度 n_{crit} が2桁小さいためである。そのため、CO₂ レーザーで十分なレーザー吸収を得ようとすると、スケール長 L を増加させるしかない。一次元の等温膨張を仮定すると、スケール長 L は音速と膨張時間の積で決まるため、レーザーのパルス幅を増加させると増加する。即ち、ロングパルスの方がレーザー吸収率は増大しやすいと考えられる。しかしながら、実際には一次元膨張と見なせる

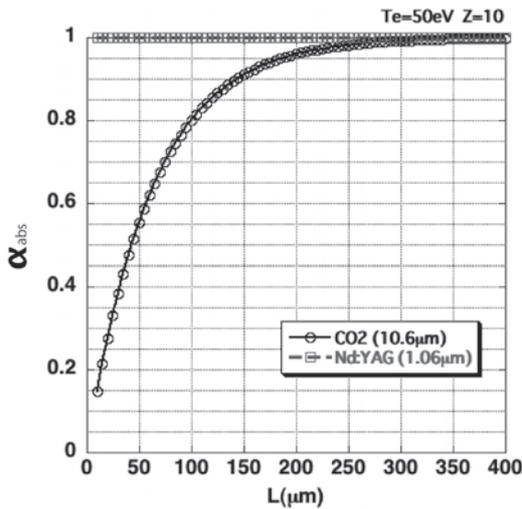


図2 Nd:YAG レーザーと CO₂ レーザーのレーザー吸収率のスケール長依存性. 温度は $T_e = 50$ eV に設定した.

(プラズマの膨張サイズ) \ll (レーザーのスポットサイズ) が成立するのは比較的短いレーザーパルスに限られ, ロングパルスでは 1 次元円柱的な膨張ではなく, 3 次元球のようにプラズマは広がる. そのためレーザーパルスを増加させてもスケール長 L が増加しにくくなる. 次世代の半導体リソグラフィ用の光源として開発が進んでいる EUV 光源ではメインのレーザーとして CO₂ レーザーを用いるため, 吸収率を増加させるために, 別のレーザーで長いスケール長 L のプラズマを生成してから CO₂ レーザーを照射するダブルパルス照射が考案されている [26].

3.5 電子熱伝導と輻射輸送の組み合わせ

高い原子番号を持つ物質では一般的により多くの光が放射されるために電子熱伝導よりも輻射によるエネルギー輸送が支配的になる. 輻射の平均自由行程は電子よりも長くなる事が多い. そのため, 低い原子番号の物質, 例えばプラスチック等に高い原子番号の物質を微量添加し, より高密度領域に吸収されたエネルギーを運ばせるようにすることもできる. 図3にプラスチックターゲットの例を示す. 右からレーザーをターゲットに照射するとアブレーションプラズマが真空側に膨張する. これは電子熱伝導によりアブレーションが駆動される例である.

次にプラスチックに微量 (原子数比 3%) の臭素 (Br) を添加したターゲットにレーザーを照射すると図4のようにアブレーションが 2 段階で生じる. まず, レーザーエネルギーが臨界密度付近で吸収され, 吸収されたエネルギーが電子熱伝導により運ばれる. 加熱されたプラズマ中の臭素が多く放射を出し, 輻射によってエネルギーがより高密度方向に運ばれる. これにより左側のアブレーションフロントが高密度側に形成される. このアブレーションは輻射によって駆動されている.

この 2 段階アブレーション構造全体をダブルアブレーション構造と呼ぶ. 2 段階の密度構造をもつダブルアブレーション構造はこの例のように高 Z 物質を添加する場合だけでなく, 中~高 Z のターゲットにナノ秒のレーザー

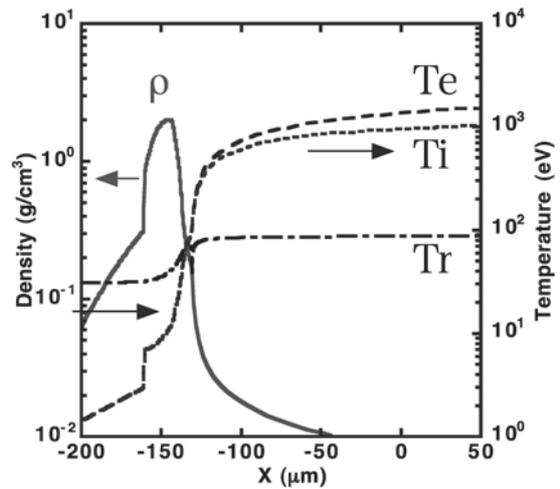


図3 プラスチック (CH) ターゲットに右から波長 $0.53 \mu\text{m}$ のレーザーを照射した際の密度 ρ , イオン温度 T_i , 電子温度 T_e , 輻射の輝度温度 T_r 分布 [27].

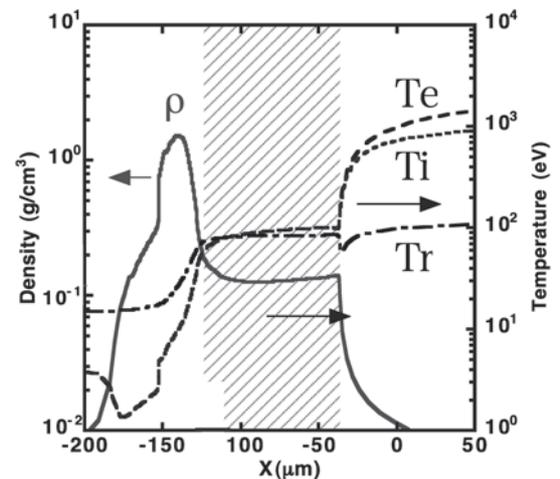


図4 臭素を原子数比 3% 添加した臭素化プラスチックターゲットに右から波長 $0.53 \mu\text{m}$ のレーザーを照射した際の密度 ρ , イオン温度 T_i , 電子温度 T_e , 輻射の輝度温度 T_r 分布 [27].

を照射すると形成される. 図4の斜線部分 (2つのアブレーション間の距離) は時間的に発展する. レーザー核融合ではこのダブルアブレーション構造を流体不安定性の抑制に用いる研究が進んでいる [27]. また, レーザー加速など薄膜をターゲットを用いる実験でも, 超高強度レーザーのプリパルスによってダブルアブレーション構造が出現することが計算で確認されている [28].

3.6 まとめ

レーザープラズマの初期プラズマ生成からその後の時間発展に至るまでの計算に必要な物理モデルを簡潔に述べた. 輻射輸送における輻射の放射率, 吸収率や状態方程式で原子過程がきわめて重要になるが, 本章ではほとんど割愛した. また工学的応用で重要になるレーザー吸収率の問題と, 輻射を用いたアブレーション構造の制御について記述した. レーザープラズマ相互作用における初期プラズマ生成のモデルは改良が続けられており, 今後さらに精度が上がっていくと思われる.

参考文献

- [1] S. Eliezer and Y. Eliezer, *The Fourth State of Matter* (IOP Pub., 2001).
- [2] 三上勝太, “光学材料レーザー損傷の温度依存性に関する研究” 博士学位論文 (大阪大学大学院工学研究科., 2013).
- [3] L.V. Keldysh, *Soviet Physics JETP* **20**, 1307 (1965).
- [4] V.S. Popov, *Physics-Uspekhi* **47**, 855 (2004).
- [5] L.J. Radziemski and D.A. Cremers, *Laser-induced plasmas and applications* (Marcel Dekker Inc., 1989).
- [6] S.I. Anisimov *et al.*, *Soviet Physics JETP* **39**, 375 (1974).
- [7] S. Eliezer, *The interaction of high-power lasers with plasmas* (Institute of Plasma Physics Pub., 2002).
- [8] R.M. More *et al.*, *Phys. Fluids* **31**, 3059 (1988).
- [9] S.P. Lyon and J.D. Johnson, Los Alamos National Laboratory Tech. Rep. No. LA-UR-92-3407 (1992).
- [10] <http://riodb.ibase.aist.go.jp/TPDB/DBGVsupport/>
- [11] D. Saltzmann, *Atomic Physics in Hot Plasmas* (Oxford University Press, 1998).
- [12] 浜口智志他: プラズマ・核融合学会編『プラズマ原子分子過程ハンドブック』第9章, 第10章, 第14章 (大阪大学出版会, 2011)
- [13] H.W. Drawin and P. Felenbok, *Data for plasmas in local thermodynamic equilibrium* (Gauthier-Villars., 1965).
- [14] R. Ramis *et al.*, *Computer Physics Communications* **183**, 637 (2012).
- [15] K. Eidmann *et al.*, *Phys. Rev. E* **62**, 1202 (2000).
- [16] P.S. Shternin and D.G. Yakovlev, *Phys. Rev. D* **74**, 043004-1-8 (2006).
- [17] C. Kittel: キッテル固体物理学入門 第8版 (丸善, 2005).
- [18] L. Spitzer Jr., 完全電離気体の物理 *Physics of Fully Ionized Gases* (コロナ社, 1963).
- [19] 大西直文: プラズマ・核融合学会誌 **88**, 467 (2012).
- [20] 新井武二: レーザー加工の基礎工学 (丸善, 2006).
- [21] R. Fang *et al.*, *Materials Transactions* **51**, 1156 (2010).
- [22] X.L. Mao *et al.*, *J. Appl. Phys.* **74**, 4915 (1993).
- [23] A. Bogaerts and Z. Chen, *Spectrochimica Acta Part B* **60**, 1280 (2005).
- [24] B. Wu and Y.C. Shin, *J. Appl. Phys.* **99**, 084310-1-8 (2006).
- [25] W.L. Kruer, *The Physics of Laser Plasma Interactions* (Frontier in Physics., Westview press, 2003).
- [26] K. Nishihara *et al.*, *Phys. Plasmas* **15**, 056708-1-11 (2008).
- [27] S. Fujioka *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 195001-1-4 (2004).
- [28] A. Sunahara and K.A. Tanaka, *Fusion Eng. Des.* **85**, 935 (2010).



すな はら あつし
砂原 淳

公益財団法人レーザー技術総合研究所理論・シミュレーションチーム研究員。大阪大学大学院工学研究科博士後期課程修了。博士 (工学)。専門はレーザー核融合や極

端紫外光源プラズマなど, レーザー生成プラズマの理論・数値シミュレーション。