

## 펄스 레이저를 이용한 미세물방울에서의 X 선 발생연구

조형준, \*이헌주, 최치규, 김두철, 유명훈

제주대학교 자연과학대학 물리학과, \*제주대학교 기계에너지생산공학부

### 요약

미세 산란 구형 입자에서 X 선 발생 효율이 증가하는 이유를 Mie 산란과 MPI 이론을 이용하여 계산하였다. 구형의 산란 입체는 일반적인 평면형태에서 광학적 브레이크다운을 일으키기 위한 입사 전자기파의 에너지보다 작은 에너지를 사용하여도 미세 산란 구형입체에서는 광학적 브레이크다운현상이 일어나고 산란체 내에 이온이 형성된다. 이온이 형성되면 흡수율이 증가하며, 이온 농도가 충분히 커지고 충분한 에너지를 흡수하여 이온농도가 X 선을 발생시킬 정도로 커지면 X 선을 발생하게 된다. 또한 미세 구형입자가 입사 전자기파에 대하여 산란체 표면이 매끈하지 않고 거칠어져 마치 나노 구조나 어떠한 구조를 가지는 산란체와 같은 효과를 가져와 X 선 변환효율이 증가됨을 각도에 따른 산란효율을 계산함으로써 알 수 있었다.

### 1. 서론

NT(Nanotechnology), BT(Biotechnology) 산업의 발전으로 X 선에 대한 요구가 증대되고 있다. X 선을 이용한 X 선 현미경은 나노미터 크기의 물체를 식별할 수 있고 특히 가시광선으로는 침투할 수 없는 부분까지 조사할 수 있어 많이 요구되고 있고[1-3]. 반도체 산업 및 많은 산업 분야에서 X 선을 이용한 석판(lithography) 기술을 요구하고 있다[4,5]. X 선을 이용한 석판 기술은 단시간에 많은 문양을 형성할 수 있는 장점이 있어 많이 요구되고 있다. 이러한 X 선을 발생시키기 위하여 많은 방법들이 연구되고 이용되고 있다. 그러나 최근까지의 연구는 연속적인 X 선(CW: Continuous Wave) 발생에 국한되어 있었다. 즉 정적인 상태를 조사, 연구하는 곳에 X 선이 사용되어 왔다. 그러나 분광학적으로 정적인 조사도 중요하지만 동적인 연구도 매우 중요하다[6,7]. 이러한 X 선 영역에서의 동적 연구를 위하여 펄스형 X 선 발생에 대하여 최근에 많은 연구자들이 관심을 가지기 시작하였다. 펄스형 X 선을 발생시키는 방법은 방사선 가속기를 이용하는 방법[8-10], 레이저와 물질의 상호작용으로 만들어진 플라즈마를 이용하는

방법 및 자유전자 레이저를 이용하는 방법 등이 있다[11-13]. 이중 가속기를 이용하는 방법은 고출력의 펄스형 X 선을 발생시킬 수 있으나 매우 짧은 펄스를 발생시키는 데 한계가 있고, 발생장치가 매우 크다는 단점이 있다. 그리고 자유 전자 레이저를 이용하여 펄스형 X 선을 발생시키는 방법은 현재 연구가 진행 중인데, 장치가 매우 크다는 단점이 있다. 그리고 물질과 레이저 상호작용으로 형성된 플라즈마를 이용하는 방법은 CPA(Chirped Pulse Amplifier) 방법[14]이 개발되면서 급속히 각광을 받게 되었다. CPA를 이용한 방법은 장치가 소규모인 매우 큰 장점이 있으나, X 선 발생 효율 면에서는 개선되어야 할 부분이 많이 있다. 즉 레이저 빔과 물질의 상호작용에 의한 플라즈마 발생효율을 증가시키는 방법에 대한 연구가 절실한 형편이다. 초기에는 평면고체[15]를 이용하였으나 debris 문제로 인하여 시간에 따라 변환 효율이 변화하는 문제와 저 변환 효율의 문제가 있었고, 변환 효율을 증가시키기 위하여 표면이 거친 시료나 나노 구조를 가지는 시료를 이용하는 방법이 제안되었다[16-19]. 이 방법은 변환 효율은 증가시킬 수 있었으나 시간에 따라 변환 효율이 변화하는 문제는 해결할 수 없었다.

최근에 와서 변환 효율 문제와 debris 문제를 해결하기 위하여 cluster 혹은 microdroplet를 이용하는 방법이 제안되어 연구가 진행되고 있다[20-23]. Cluster나 microdroplet를 이용하여 플라즈마를 발생시키면 debris 문제와 변환 효율 문제를 해결할 수 있다.

본 연구에서는 미세 물방울을 이용한 x 선 펄스 발생 메커니즘을 Mie 산란과 MPI(Multiphoton Ionization)이론을 이용하여 조사하였다.

## 2. 이론적 배경

### 2-1 Mie 산란

산란에는 전자기파의 파장과 산란 물질의 크기 관계에 의하여 레일리(Rayleigh) 산란과 Mie 산란이 있다. 레일리 산란은 산란 물질의 크기가 전자기파의 파장보다 매우 작은 경우로 산란에 의한 시간 지연을 고려하지 않는 경우이고, Mie 산란은 입자가 전자기파의 파장이 산란물질의 크기와 비슷하여 산란에 의한 시간 지연을 고려한 이론이다. 본 연구에서 사용할 전자기파의 파장은 800 nm 이고 산란 물질의 크기는 5 $\mu$ m로 시간 지연을 고려하여야 하기 때문에 Mie 산란을 이용하여야 한다. 다음과 같이 산란 입자에 전자기파가 입사하는 경우를 고려하자.

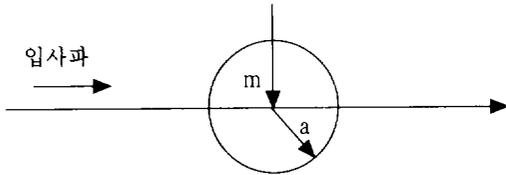


Fig. 1. Scattering Geometry.

Mie 산란에서 가장 중요한 인자는 Mie 산란 계수로 다음과 같이 주어진다[24].

$$\begin{aligned} a_n &= \frac{m^2 j_n(mx)[x j_n'(x)] - j_n(x)[mx j_n'(mx)]}{m^2 j_n(mx)[x h_n^{(1)'}(x)] - h_n^{(1)'}(x)[mx j_n'(mx)]} \quad (1) \\ b_n &= \frac{j_n(mx)[x j_n'(x)] - j_n(x)[mx j_n'(mx)]}{j_n(mx)[x h_n^{(1)'}(x)] - h_n^{(1)'}(x)[mx j_n'(mx)]} \\ c_n &= \frac{j_n(mx)[x h_n^{(1)'}(x)] - h_n^{(1)'}(x)[x j_n'(x)]}{j_n(mx)[x h_n^{(1)'}(x)] - h_n^{(1)'}(x)[mx j_n'(mx)]} \end{aligned}$$

$$d_n = \frac{m j_n(mx)[x h_n^{(1)'}(x)] - m h_n^{(1)'}(x)[x j_n'(x)]}{m^2 j_n(mx)[x h_n^{(1)'}(x)] - h_n^{(1)'}(x)[mx j_n'(mx)]}$$

여기서 m은 산란 물질의 굴절율이고, x는  $x=ka$ 로 a는 산란 물질의 반경,  $k=\frac{2\pi}{\lambda}$ 이다.  $j_n(z)$ ,  $h_n^{(1)}(z)$ 는 구좌표 베셀함수이고,  $h_n^{(1)}(z)=j_n(z)+iy_n(z)$ 이며,  $[z j_n'(z)]'=z j_{n-1}(z)-n j_n(z)$ 이다.

산란효율은 산란 단면적에 비례하며, 소멸 산란 효율( $Q_{ext}$ ), 산란효율( $Q_{scat}$ ) 및 흡수산란효율( $Q_{abs}$ )의 관계는  $Q_{ext}=Q_{scat}+Q_{abs}$ 와 같으면 각각은 Mie 산란계수로 표현하면 다음과 같다.

$$Q_{scat} = \frac{2}{x^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) (|a_n|^2 + |b_n|^2) \quad (2)$$

$$Q_{ext} = \frac{2}{x^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) \text{Re}(a_n + b_n)$$

그리고 산란물체 내부에서의 산란효율은 산란 물체 내부의 전기장으로부터 알 수 있다. 산란물체 내부의 평균 전기장은 다음과 같다.

$$\begin{aligned} \langle |E|^2 \rangle &= \frac{1}{4} \sum_{n=1}^{\infty} (m_n |c_n|^2 + n_n |d_n|^2), \\ m_n &= 2(2n+1) |j_n(z)|^2 \quad (3) \\ n_n &= 2n(2n+1)(n+1) \left| \frac{j_n(z)}{z} \right|^2 \\ &\quad + \left| \frac{(z j_n'(z))'}{z} \right|^2 \end{aligned}$$

흡수산란효율은 다음과 같다.

$$Q_{abs} = \frac{Im(4m)}{x^2} \int_0^x \langle |E|^2 \rangle x'^2 dx' \quad (4)$$

### 2-2 MPI

물, 다이아몬드, 유리 등과 같이 에너지 밴드간격 (band gap)이 매우 큰 물질과 레이저 빔이 상호 작용할 때 레이저 에너지가 충분히 물질에 전달되기 위해서는 광학적 브레이크다운(Optical Breakdown)이 필요하다[25,26]. 일반적으로 광학적 브레이크다운이 일어나면 물질 내의 이온 농도가  $10^{18} \sim 10^{20}$  전자/cm<sup>3</sup> 정도로 매우 높다. 광학적 브레이크다운은 다광자이온화(MPI: multiphoton ionization)와 연속

적 이온화(Cascade ionization)과정에 의해서 설명될 수 있다. 그 중에서도 MPI 과정이 중요하다. MPI 과정에 의해서 이온 농도가 증가하면 플라즈마 주파수가 증가하여 입사빔의 투과 길이가 증가되고 물질에 의한 흡수 효율이 증가되어 입사 빛과 물질의 상호작용 효율이 증가한다. MPI 과정에 의한 물질내 이온 농도는 다음과 같이 구할 수 있다[27-29].

$$\left[ \frac{d\rho(t, z)}{dt} \right]_{mpi} = \frac{2\omega}{9\pi} \left( \frac{m'\omega}{\hbar} \right)^{3/2} \left[ \frac{e^2}{16nc\epsilon_0 m' \Delta E u(z)^2} I(t, z) \right]^k \times \exp(2k)\phi\left(\sqrt{2\left(k - \frac{\Delta E}{\hbar\omega}\right)}\right) \quad (5)$$

여기서  $\Delta E$ 는 물질의 에너지 간격,  $\omega$ 는 입사 전자기파의 각주파수,  $n, c, \epsilon_0$ 는 각각 물질의 굴절율, 진공 중에서의 전자기파의 속도와 유전상수이다.  $I(t, z)$ 는 입사 전자기파의 모양이며,  $\phi$ 는 Dawson 함수,  $m'$ 는 전자의 유효 질량이다. 그리고  $u(z)$ 는  $u(z) = w_0 \left(1 + \frac{z^2}{z_R^2}\right)^{1/2}$ ,  $z_R = \frac{n\pi w_0^2}{\lambda_0}$  로 위치에 따른 빔의 반지름이고,  $w_0$ 는 초점에서의 빔의 반지름이다.  $k$ 는  $\text{Int}\left(\frac{\Delta E}{\hbar\omega} + 1\right)$  와 같이 주어진다.

그리고 연속적 이온화 과정은

$$\left[ \frac{d\rho}{dt} \right]_{cas} = \frac{1}{\omega^2 \tau^2 + 1} \left( \frac{re^2}{ncn\epsilon_0 m \Delta E} I(t - \tau_{ion}, z) - \frac{m\tau\omega^2}{M} \rho \right) \quad (6)$$

와 같다. 여기서  $m, M$ 은 각각 전자의 정지 질량,  $M$ 은 분자의 질량이다. 그리고  $\tau, \tau_{ion}$ 은 충돌 간 평균자유시간, 운동량 변환시간이다.

위의 MPI와 연속적 이온화 과정에 의한 총 이온 농도는

$$\frac{d\rho}{dt} = \left[ \frac{d\rho}{dt} \right]_{mpi} + \left[ \frac{d\rho}{dt} \right]_{cas} - \eta_{diff}\rho - \eta_{rec}\rho^2 \quad (7)$$

과 같다.  $\eta_{diff}, \eta_{rec}$ 는 전자의 확산계수, 재결합계수이며, 이로 인해서 물질 내 농도는 감소한다.

### 3. 계산 결과

#### 3-1 Mie 산란

그림 2는 산란물체 크기( $x = ka, a$ :산란물체 반지름)에 따른 산란효율  $Q_{ext}, Q_{scat}, Q_{abs}$ 이다. 그림 2로부터 산란 물체 크기와 흡수 파장의 관계를 볼 수 있다. 그림 3은  $x=10$ 인 경우 입사 빔의 에너지와 산란체 내부의 에너지 비이다. 산란 물체가 구의 형태를 가지고 있어 입사빔에 대하여 렌즈와 같은 역할을 하게 되고 입사 빔이 산란체 내부 국소부위에 에너지가 모이게 된다. 국소 부위의 에너지가 단위 면적당 입사 빔의 에너지 보다 약 18배가 증가되어 있음을 알 수 있다. 이러한 국소 부위의 큰 에너지는 물체 내에서 광학적 브레이크다운 현상을

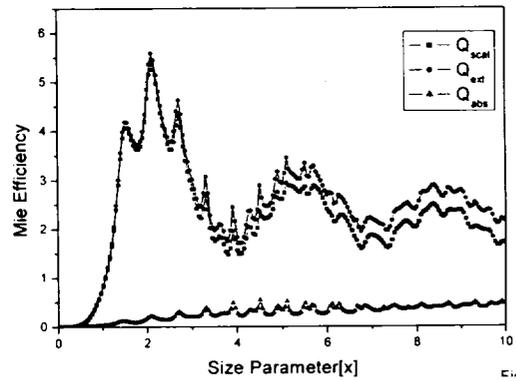


Fig. 2. Mie scattering efficiency for  $m=1.5 + 0.1i$  versus size parameter  $x$ .

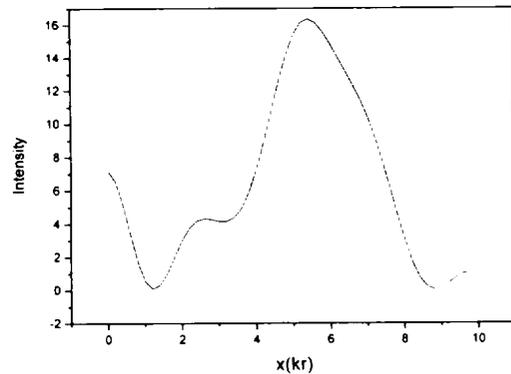


Fig. 3. Radial variation of the ratio of the internal/external absolute square electric field for  $x=10$ .

유발시키고 이로 인해 산란체가 이온화 된다. 이와 같이 이온화된 이온들의 온도가 충분히 높으면 x 선이 발생하게 된다.

그림 4 (a)와 (b)는 각각  $x=5$ 일 때와  $x=10$ 일 때 각도에 따른 산란세기 분포이다. 그림 4로부터 산란 세기가 각도에 의존함을 알 수 있고, 산란세기 분포가 각도에 따라 일정 하지 않을 뿐 아니라 물결 모양과 같이 거친 것을 알 수 있다. 이는 산란 표면이 매끈하지 않고 거칠어져 있는 효과이다. 즉 흡수에 의해서 산란체 표면이 전기장에 대하여 임의의 모양을 형성함을 나타내는 것이다. 서론에서 살펴본 것과 같이 매끈한 표면 보다는 거친 표면이 x 선 변환 효율이 높다는 것이 잘 알려져 있다. 마찬가지로 미세 액체 입자에서 흡수가 잘되는 영역에서 미세 액체 표면이 전기장에 의해서 매끈한 표면이 전기장에 대하여 표면이 거칠어진 효과를 낸다는 것이고, 이로 인해 x 선 변환효율이 증가한다는 것이다.

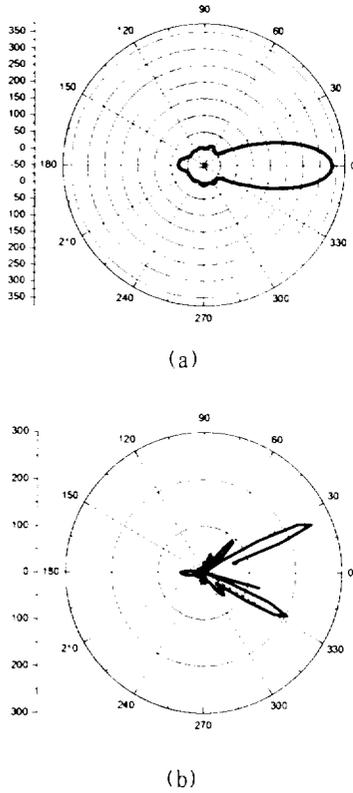


Fig. 4. Angular Mie scattering diagram for  $m=1.5 + 0.1i$ . (a)  $x=5$  (b)  $x=10$

그림 3과 4로부터 미세 입자에 의해서 입사빔의 에너지가 발생시킬 정도로 크지 않아도 미세 입자가 입사빔의 에너지를 국소 위치에 집중시켜 광학적 브레이크다운 현상을 일으키게 하여 이온화된 이온의 온도를 충분히 올려 x 선을 발생시킬 수 있다는 것을 보여 주고 있으며, 또한 산란체 표면이 입사 전기장에 대하여 매끈하지 않고 거칠어져 x 선 변환 효율이 증가됨을 보여주고 있다.

### 3-2 이온 농도

입사빔의 에너지와 산란체 내의 이온 농도와 관계를 알아보기 위하여 산란체 내의 이온 농도 변화를 계산하였다. 그림 5 (a)와 (b)는 입사 빔의 펄스폭 ( $\tau_p$ )이  $100fs$ 이고 빔의 세기가 각각  $1 \times 10^9 W/cm^2$ ,  $2 \times 10^9 W/cm^2$  인 경우 시간과 위치에 따른 이온농도의 계산 결과이다. 그림 5(a)로부터 입사빔의 에너지가  $1 \times 10^9 W/cm^2$ 인 경우는 이온 농도가 임계 농도 ( $\rho_{crit} = 10^{20} cm^{-3}$ )에 도달하지 못하여 광학적

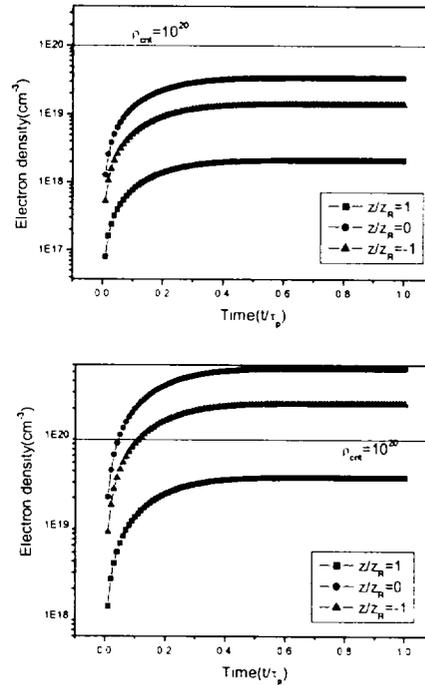


Fig. 5. Time dependent electron density evolution at different location for  $w_0 = 2.0 \mu m$ .

(a)  $P_{max} = 1 \times 10^9 W/cm^2$  (b)  $P_{max} = 2 \times 10^9 W/cm^2$

브레이크다운 현상이 생기지 않고 충분히 빛을 흡수하지 못하여 x 선을 발생 시키지 못한다. 그림 5(b)의 경우는 입사빔의 에너지가  $2 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$  초점인 위치 ( $z/z_R=0$ )와  $z/z_R = \pm 0.5$  인 곳에서는 임계 농도에 도달하나,  $z/z_R = \pm 1$ 인 영역에서는 임계 농도에 도달하지 못함을 알 수 있다. 이와 같이 이온 농도가 임계 영역에 도달하면, 흡수율이 증가되고 이로 인해 이온 온도가 증가 하여 x 선을 발생시킬 수 있다. 파장에 따른 최대 이온 농도는  $\rho_{\max} = \frac{\epsilon_0 m \omega^2}{e^2}$  와 같이 주어진다[30,31].

#### 4. 결론

미세 산란 구형 입자에서 x 선 발생 효율이 증가하는 이유를 Mie 산란과 MPI이론을 이용하여 계산하였다. 구형의 산란 입체의 경우 산란체 형태가 렌즈와 같이 작용하여 산란체 내 국소 부위에 에너지를 집중시킨다. 그러므로 일반적인 평면형태에서 광학적 브레이크다운을 일으키기 위한 입사 전자기파의 에너지 보다 작은 에너지를 사용하여도 미세 산란 구형입체에서는 광학적 브레이크다운현상이 일어나고 산란체 내에 이온이 형성된다. 이온이 형성되면 흡수율이 증가하며, 이온 농도가 충분히 커지고 충분한 에너지를 흡수하여 이온농도가 x 선을 발생시킬 정도로 커지면 x 선을 발생하게 된다. 또한 미세 구형입자가 입사 전자기파에 대하여 산란체 표면이 매끈하지 않고 거칠어져 마치 나노 구조나 어떠한 구조를 가지는 산란체와 같은 효과를 가져와 x 선 변환효율이 증가됨을 각도에 따른 산란 효율을 계산함으로써 알 수 있었다.

#### References

- [1] J. Michalis, C. Hettich, J. Mlynek, and V. Sandogher, Nature 405, 325 (2000)
- [2] M. Berglund, L. Rymell, M. Peuker, T. Wilhein, and M. Hertz, J. Microsc., 197, 268 (2000)
- [3] D. A. Tichenor, G. D. Kubiak, M. E. Malinowski, R. H. Stulen, S. J. Haney, and O. R. Wood II, Opt. Lett., 16, 1557 (1991)
- [4] D. J. Nagel, R. R. Whitlock, J. R. Grieg, R. E. Pechac, and P. M. C., Proc. SPIE 135, 46 (1978)
- [5] C. J. Gaeta, H. Rieger, I. C. E. Tucu, R. A. Forber, K. L. Cassidy, S. M. Campeau, and R. M. Forber, Proc. SPIE 4688, 818 (2002)
- [6] C. W. Siders et al., Science 286, 1340 (1999)
- [7] A. Cavallen et al., Phys. Rev. Lett., 87, 237401 (2001)
- [8] R. W. Schoenlein et al., Science 274, 236 (1996)
- [9] W. P. Leemans et al., Phys. Rev. Lett., 77, 4182 (1996)
- [10] K. J. Kim, S. Chattopadhyay, and C. V. Shank, Nucl. Inst. & Meth., A341, 351 (2000)
- [11] A. M. Kondratenko and E. L. Saldin, Particle Accelerators 10, 207 (1980)
- [12] J. B. Murphy and C. Pellegrini, Nucl. Inst. & Meth., A237, 159 (1985)
- [13] J. Andruszkow et al., Phys. Rev. Lett., 85, 3825 (2000)
- [14] R. F. Service, Science 301, 154 (2003)
- [15] T. Nishikawa, H. Nakano, N. Uesugi, M. Nakao and H. Masuda, Appl. Phys. Lett., 75, 4079 (1999)
- [16] T. Nishikawa et al., Appl. Phys. Lett., 70, 1653 (1997)
- [17] M. M. Murnane et al., Appl. Phys. Lett., 62, 1068 (1993)
- [18] S. P. Gordon et al., Opt. Lett., 19, 484 (1994)
- [19] G. Kulcsar et al., Phys. Rev. Lett., 84, 5149 (2000)
- [20] H. Fiedorowicz, A. Bartnik, Z. Patron, and P. Parys, Laser Part. Beam 12, 471 (1994)
- [21] R. H. Moyer, H. Shielders, A. Martos, S. W. Fornaca, R. J. St. Pirtte, and M. B. Petach, Proc. SPIE 4343, 249 (2001)

- [22] M. Segers, M. Bougeard, E. Caprin, T. Ceccotti, D. Normand, M. Schmidt, and O. Sublemontier. *Microelectron. Eng.*, 61, 139 (2002)
- [23] H. M. Hertz, L. Malmqvist, L. Rymell, and M. Berglund. US patent No. 6, 002, 744 (1999)
- [24] C. F. Bohren and D. R. Huffman. 'Absorption and Scattering of Light by Small Particle' Jhon & Sons, Canada (1983)
- [25] M. Lenzner, J. Kruger, S. Sartamia, Z. Cheng, Ch. Spielman, G. Mourou, W. Kaut다, and F. Krausz. *Phys. Rev. Lett.*, 80, 4076 (1998)
- [26] C. H. Fan, J. Sun, and J. P. Longtin. *J. Appl. Phys.*, 91, 2530 (2002)
- [27] J. Noack and A. Vogel. *IEEE J. Quantum Electron.*, 35, 1156 (1999)
- [28] P. K. Kennedy. *IEEE J. Quantum Electron.*, 31, 2241 (1995)
- [29] L. V. Keldysh. *Sov. Phys. JETP* 20, 1307 (1965)
- [30] X. Liu, D. Du, and G. Mourou. *IEEE J. Quantum Electron.*, 33, 1706 (1997)
- [31] S. C. Rae. *Opt. Commun.*, 97, 25 (1993)

## X-ray emission from micro water plasma produced by femtosecond Laser pulse

HyungJun Cho, \*HeonJu Lee, ChiKyu Choi, DooCheol Kim, YoungHun Yu  
*Department of Physics, \*Major of Mechanical Engineering, Cheju National University*

**Abstract.** We have studied that the microdroplets efficiently absorb intense femtosecond laser pulse, resulting in the production of very hot electrons even at moderate intensities. The hard X-ray yield from droplet plasma is higher than the plain solid plasma under similar condition. The higher yields in microdroplet is explained in terms of multiple photon ionization and different scattering of light. Mie scattering calculation of the intensity distribution inside the droplet indicate an order of magnitude enhancement of the incident intensity inside the microdroplet.