

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年6月8日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2009～2011

課題番号：21604003

研究課題名（和文）物理・化学的に時々刻々変化する水溶液表面からのレーザー誘起パルスX線発生最適化

研究課題名（英文）Optimization of laser-induced X-ray emission from solution of which the surface changes its physical/chemical characteristics temporally.

研究代表者

畑中 耕治（HATANAKA KOJI）

東京大学・大学院理学系研究科・准教授

研究者番号：90312545

研究成果の概要（和文）：これまで照射するレーザーや溶液の各種パラメーターに応じて発生するX線の強度・スペクトルが大きく変化することを見いだしていた。本研究ではこれまでの研究をさらに推し進め、水溶液表面が物理・化学的に異なる条件下でパルスX線発生実験を行い、その際メインパルスのチャープを変化させて実験を行うことで、強光子場と水溶液との相互作用機構に関する理解をさらに深めるばかりでなく、応用を指向した新たな光源の可能性を探る。

研究成果の概要（英文）：It has been already clarified that the intensity and spectra of laser-induced X-ray emission from solutions change depending on parameters of the laser and the solution. In this research project, experiments of such laser-induced X-ray emission have been carried out with samples with physically/chemically different solution surface. Discussion on the X-ray emission mechanism is performed with results by changing the laser pulse shape (laser chirp).

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	2,300,000	690,000	2,990,000
2010年度	700,000	210,000	910,000
2011年度	700,000	210,000	910,000
年度			
年度			
総計	3,700,000	1,110,000	4,810,000

研究分野：時限

科研費の分科・細目：量子ビーム科学

キーワード：X線・水溶液・フェムト秒レーザー・チャープ・強光子場・アブレーション

1. 研究開始当初の背景

本研究代表者は、水溶液を試料としフェムト秒レーザーを集光照射して得られるパルスX線の強度並びに発光スペクトルが、パルス幅（チャープ）や偏光に対して大きく変化することをこれまでに見いだしている。例えばパルス幅（チャープ）を変化させた場合は必ずしも最短パルスを励起パルスとした場合ではなく、ネガティブチャープでより高いX

線強度が得られること、また偏光を円偏光とする場合はそのs偏光成分がX線発生を抑制していることを見いだしている。また比較的強度の低いプレパルスを事前に照射し、それ以降時々刻々変化する水溶液表面を用意した上で、メインパルス（一定パルス幅、直線偏光）を照射した場合は、プレパルス照射後の時間経過とともにいくつかのX線発光強度のピークが観測されている。またシング

ルパルス励起の場合と比べてX線発光強度が最大で10,000倍増強することも見いだしている。時間分解画像撮影や吸収分光測定、ならびに水溶液試料を様々に変えて実験を行った結果、これらのピークはプレパルス照射による、プレプラズマ生成、アブレーション前駆現象としての水溶液表面の構造化、液滴生成、溶媒和電子生成が関与していると現在のところ推測されている。

2. 研究の目的

本研究では物理・化学的性質が異なる水溶液表面を試料とし、X線発生のためのメインパルスのパルス幅（チャープ）を様々に制御した上で実験を行い、異なる水溶液表面に応じた照射するメインパルス波形の最適条件を探索する。これにより、強光子場と水溶液との相互作用機構に関する理解をさらに深めるばかりでなく、X線パルスを利用した各種時間分解測定への応用を指向した新たな光源開発や、さらには将来の陽子線パルスや中性子線パルスなどの他の量子ビーム開発の指針を得ることを目的とする。試料には純水を標準試料とし、粒径の異なる塩化金酸コロイド溶液を対象とすることで、イオン化ポテンシャルの低下、電子散乱断面積の増加、プラズモン増強場の寄与、化学結合状態の違い、粘性・表面張力の違いによるアブレーションダイナミクスの違いなど、プレパルス照射後の物理・化学的状態変化機構が異なる条件下でのメインパルスの最適化条件の違いを明確にし、強光子場と水溶液との相互作用機構を明らかにしたい。

3. 研究の方法

インクジェットノズルから吐出される液体試料に、プレパルスとしてフェムト秒レーザーの基本波あるいは2倍高調波を照射する。液体試料には純水、塩化セシウム水溶液などの電解質水溶液、金コロイド水溶液を用いる。時間分解発光/吸収分光ならびにイメージングを行うことにより、プレパルス照射後の液体表面の物性変化ダイナミクスを明らかにする。同時に、プレパルス照射後遅延時間を経た後、チャープや偏光を制御したメインパルスを照射しX線発光強度/スペクトルを測定し、プレパルス照射後の液体表面の物性変化ダイナミクスに関する知見とあわせて考察し、パルスX線発生の最適化を試みる。

4. 研究成果

1) インクジェットノズルより吐出される液滴（直径30ミクロン程度、蒸留水）を試料とし、フェムト秒レーザーパルス（パルス幅35 fs、中心波長800 nm、繰り返し周波数1 kHz）を空气中で非軸放物面鏡により集光照射した。液滴吐出とレーザー照射はデジタル

遅延回路を用いて精密に行った。レーザー照射によって誘起されるアブレーション現象（液滴の爆発現象）を、ナノ秒ストロボ光とCCDカメラを用いた時間分解イメージング測定により観察した。液滴表面におけるレーザー光強度が十分高い時（1 mJ/pulse程度）は、表面からの衝撃波の発生・伝搬、ミストの発生など、液滴の爆発現象が顕著に観測された。レーザー光強度を徐々に低下させる（例えば0.2 mJ/pulse程度）と、液滴表面でのアブレーション現象は観測されなくなるが、液滴の裏側表面でアブレーションが誘起されることが明らかとなった。これは30ミクロン程度の液滴（屈折率1.3）自身がボールレンズの役割を果たし、入射するレーザー光が液滴内部での屈折に伴い、液滴裏側で単位面積あたりの実効的なレーザー光強度が増加したことに起因すると考えられる。これはより低いレーザー光強度で効率よくアブレーションを誘起できることを示している。

2) レーザーパルス照射後の液体表面の物理・化学的変化ダイナミクス（プラズマ生成、アブレーションによる形状変化、化学反応による吸収スペクトル変化など）に関する知見をもとに、メインパルスのチャープ（レーザーパルス幅内の周波数変化）を様々に変化させて照射した時のX線発光強度ならびにスペクトルの変化を測定した。強度測定にはガイガーカウンターを、スペクトル測定には半導体検出器を用い、実験は室温大気圧下で行った。対象試料には蒸留水や金ナノコロイド溶液の液滴（直径30ミクロンあるいは90ミクロン程度）を用い、チャープの制御は液晶空間光変調器を用いて精密に行った。その結果、ピーク強度が最高であるチャープフリーの最短パルスを照射した時よりも、時間経過とともに周波数（波長）が低く（長く）なるダウンチャープの時X線強度がより高くなるという結果を得た。またX線発光スペクトルをボルツマン分布を仮定した式でフィッティングして得られた電子温度もダウンチャ

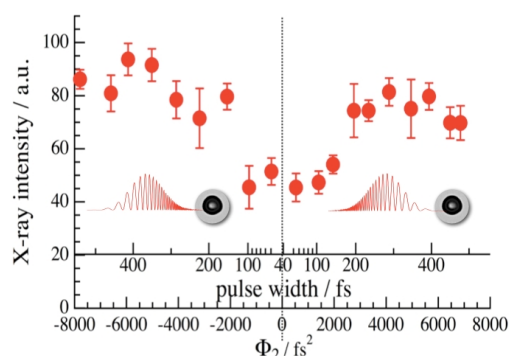


図 X線発光強度のレーザーチャープ依存性

ープのレーザーパルス照射により高くなる傾向が観測された。こうした結果は表面にナノ構造を有する固体試料で得られた結果と類似しており、水溶液を試料とすることで期待される特徴は現在までのところ観測されていないように考えられる。これらの結果は、プラズモン共鳴やプラズマ閉じ込め効果が有利に働き、さらに時々刻々誘起される初期イオン化、電子加速や電子密度の増加に対して、ダウンチャープがより有効であることを示している。

5. 主な発表論文等
〔雑誌論文〕(計2件)

1. Koji Hatanaka and Hiroshi Fukumura, "X-ray emission from CsCl aqueous solutions when irradiated by intense femtosecond laser pulses and its application to time-resolved XAFS measurement of Γ in aqueous solution", X-ray Spectrometry, in press.

2. 佐藤大輔, 松島進一, 小野博司, 梶本真司, 福村裕史, 畑中耕治, "蒸留水を試料とする円偏光フェムト秒レーザー誘起パルス X 線発生", レーザー研究, vol.37, pp.901-904 (2009).

〔学会発表〕(計14件)

1. K. Hatanaka, "Ultrawide Band Light Conversion by Controlling Structures of Microdroplets and Ultrashort Laser Pulses", JST さきがけ研究領域合同国際シンポジウム「持続する社会を先導する光科学: 環境・エネルギー・機能材料」、2012年3月26-27日、慶応義塾大学。

2. 畑中耕治, "金ナノコロイド溶液からのレーザー誘起 X 線発生", レーザー学会学術講演会、2012年1月30日-2月1日、仙台。

3. K. Hatanaka, "Imcomparable Intensity Increase of X-ray from Gold Nano-colloidal Droplets When Irradiated by Focused Femtosecond Laser Pulses in Air", SPIE Smart Nano+Micro Materials and Devices, 2011年12月4-7日, Swinburn University, Australia.

4. K. Hatanaka, "X-ray Emission from Gold Nano-colloidal Solution When Irradiated by Focused Femtosecond Laser Pulses", BIT's 1st Annual World Congress of Nano-S&T, 2010年10月23-26日、大連、中国。

5. K. Hatanaka, "Intense Femtosecond Laser Interaction with Liquids: From Laser Ablation to X-ray Emission", The 3rd Int'l Conf. on Laser Peening and Related Phenomena, 2011年10月11-14日、大阪。

6. 畑中耕治・吉田恵一・山内 薫, "金ナノコロイド溶液によるフェムト秒レーザー誘起 X 線発生: 表面プラズモン効果の可能性", 分子科学討論会、2011年9月20-23日、札幌。

7. 吉田恵一・畑中耕治・山内 薫, "金ナノコロイド溶液によるフェムト秒レーザー誘起 X 線発生: 粒子サイズ依存性", 分子科学討論会、2011年9月20-23日、札幌。

8. 畑中耕治・吉田恵一・山内 薫, "金ナノコロイド溶液を用いたフェムト秒レーザー誘起 ハルズ X 線発生", 光化学討論会、2011年9月6-8日、宮崎

9. K. Hatanaka, "Applications of pulse shaping to intense laser-matter interactions :from laser ablation to X-ray", 2011 MIIPS Ultrafast Pulse Shaping Workshop, 2011年8月19-21日, Michigan State University, USA.

10. K. Hatanaka, K. Yoshida, A. Iwasaki, and K. Yamanouchi, "Femtosecond Laser-induced X-ray Emission from Gold Nano-colloidal Solutions", 12th Int'l Conf. on Multiphoton Processes, 2011年7月3-6日, 札幌。

11. K. Hatanaka, "Ultrawide Band Light Conversion by Controlling Structures of Microdroplets and Ultrashort Laser Pulses", Academia Sinica/JST Joint Symposium, 2011年5月26日, Academia Sinica, Taiwan.

12. 畑中耕治, 吉田恵一, 岩崎純史, 山内 薫, "高強度フェムト秒レーザーパルス照射による各種構造化試料からの X 線発生", ナノ量子情報エレクトロニクスの進展、2010年12月22日、東京大学武田先端知ビル。

13. 畑中耕治, "金コロイド溶液とフェムト秒レーザーパルスの構造で操る X 線発生", プラズモン増強光電場の分子科学研究への展開、2010年6月19日、分子科学研究機構。

14. Koji HATANAKA, "Effects of Structures of Laser Pulses and Water Droplets upon X-ray Pulse Emission", The 14th East Asian Workshop

on Chemical Dynamics, 2010年5月12日, Nara International Seminar House.

〔図書〕(計2件)

1. 畑中耕治(分担)、“レーザーと化学”、日本化学会編、中島信昭、八ッ橋知幸著、共立出版、(2012).

2. 畑中耕治(分担)、“光科学研究の最前線”、強光子場科学研究懇談会(2009)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

畑中 耕治 (HATANAKA KOJI)
東京大学・大学院理学系研究科・准教授
研究者番号：90312545

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし