

機関番号：13801

研究種目：基盤研究（A）

研究期間：2008 ～ 2010

課題番号：20246037

研究課題名（和文） フェムト秒パルスレーザーと水との光力学的相互作用の解明

研究課題名（英文） Investigation of the interactions between femto-second pulse laser and ultrapure water

研究代表者

齋藤 隆之（SAITO TAKAYUKI）

静岡大学・創造科学技術大学院・教授

研究者番号：10324328

研究成果の概要（和文）： フェムト秒パルスレーザー（以下、fs レーザー）は、その非常に高いエネルギー密度により種々の興味深い現象を引き起こす。fs パルスの物質への作用は、熱的効果ではなく、多光子吸収によるものである。本研究においては、この fs パルスを超純水に集光・照射することにより、ナノ秒パルスレーザーの照射により発生するレーザーキャビテーションとは全く異なる現象が発生することを見出した。小型石英容器内の超純水にパルス幅 50fs ～150fs、繰り返し周波数 1kHz、パルスエネルギー0.2 – 1.4 μ J の fs レーザーを集光・照射し、数フェムト秒からナノ秒オーダーでの時間分解計測（ポンプ・プローブ法）により、fs レーザーと超純水との相互作用を明らかにした。fs レーザー照射の初期段階における水の屈折率変化（多光子吸収による）のプロセス、多光子吸収の後に発生する水のプラズマ化、さらにプラズマが消失した後に生じる気泡核生成、その後の気泡成長を数フェムト秒からナノ秒の時間分解能により明らかにした。加えて、ミリ秒オーダーでその気泡の特異な運動を明らかにした。また、fs レーザーの水分子への多光子吸収が発生して、水分子が水素分子と酸素分子に分解されることを発見し、新たな水素製造方法を見出すことができた。

この知見に基づいて、個体透明物質（石英光ファイバー）と fs レーザーとの相互作用を明らかにするとともに、石英光ファイバーに高精度のマイクロ加工を施して、これまでにない新たな光ファイバープローブを創製した。本プローブを用いて、微小高速で飛翔する液滴や気泡を計測し、その優れた計測特性を実証した（英国物理学会より最優秀論文賞を受賞、2010年）。

研究成果の概要（英文）： Femtosecond-pulse lasers (fs pulses) cause very interesting phenomena due to their extremely high energy density. The effects on substances are not thermal, but multi-photon absorption. When this multi-photon absorption of fs pulses operates on water, extraordinary phenomena different from laser-induced cavitation by a usual laser such as a nano-pulse laser are induced. In the present investigation, fs pulses of 50 – 150fs in duration, 1 kHz in repetition rate and 0.2 – 1.4 μ J in pulse energy were focused at ultrapure water in a glass cell through several types of lens. The fs pulses split from original beams through a beam splitter were used as probe light. The femtosecond-order time-resolved optical measurement was realized by adjusting a light path length of the probe light (fs pulses). By effectively using this measurement technique, we elucidated the changes of refraction index of the water, the bubble nucleation and growth processes at an interval of femtoseconds, and the bubble properties at an interval of milliseconds. Based on these results, we have elucidated a relationship between those and fs-pulse peak intensity. In addition, we investigated the nucleation and growth processes in femtosecond- to picosecond-order. Finally, we have discovered the water molecules excited by the multi-photon absorption were decomposed into H₂ and O₂ molecules. We found out a new method of hydrogen production.

Furthermore, based on the above results, the interactions between a solid transparent material (quartz) and the fs pulses were investigated. An optical fiber was microfabricated by the fs pulses, and a new type optical fiber probe was created. The excellent performances of the probe were demonstrated in micro droplet/bubble measurement (the paper received the Outstanding Paper Award from Institute of Physics, 2010).

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合 計
2008年度	16,100,000	4,830,000	20,930,000
2009年度	14,600,000	4,380,000	18,980,000
2010年度	7,300,000	2,190,000	9,490,000
年度			
年度			
総 計	38,000,000	11,400,000	49,400,000

研究代表者の専門分野：流体工学，混相流，レーザー応用計測
科研費の分科・細目：機械工学・流体工学
キーワード：フェムト秒レーザー，気泡生成，気泡運動，相互作用，混相流

1. 研究開始当初の背景

fs パルスレーザーは細胞可視化技術（共焦点顕微鏡ほか），表面加工技術（レーザーピーニングほか），医療（眼科治療）などに急速に普及しつつあり，日本学術会議の声明にも「新分野の創成に資する光科学研究の強化とその方策」と謳われている．しかし，工学・工業技術として fs レーザーの利用を促進するには，従来の研究は視野が限られたものと言わざるを得ない状況にある．特に，流体工学の視点から行われた研究は見当たらず，fs レーザーの工学的な進展の隘路となっていた．この状況を打破し，新たな工学体系・工業技術体系の基礎を構築することが急務であった．

2. 研究の目的

混相流工学と光科学・技術とを融合することにより，fs レーザーの水中照射時に発現する新規かつ特異な現象を世界に先駆けて明らかにすること，また工学的応用の基礎プロセスを確立することを目的とした．以下をその具体的な目標とした．

- (1)多光子吸収による超純水の物理的変化の過程を時間分解計測法により明らかにする．
- (2)レーザーキャビテーションとの相違を明らかにする．
- (3)fs レーザー焦点近傍における流体運動を明らかにする．
- (4)fs レーザー照射により生成される気泡の運動を明らかにする．
- (5)得られた知見を基に，新たな工学分野としての基礎を構築する．

3. 研究の方法

fs レーザーはパルス幅が十から百数十フェムト秒と極めて短くかつピーク強度が極めて高い．この特性を利用するポンプ・プローブ法により 10fs オーダーから 1nanosec オーダー

の時間分解計測を行った．fs レーザーのピーク強度，照射パルス数，集光方法などを変えて，fs レーザーと超純水との相互作用を高い時間分解能により計測した．

実験に使用した装置の概略を図 1 に示す．光学チョッパーとシャッターを利用して，1kHz の fs パルスを任意インターバルで任意個数取り出して実験に供した．fs レーザーシステムは，チタンサファイア再生増幅型（パルス幅 60fs，中心波長 800nm，パルス繰り返し周波数 1kHz）であった．また，相互作用を，空間分解能を上げて計測するために，共焦点光学系を組み込みだ．試料にはミリボア超純水装置により製造した超純水を脱気したものを使用した．なお，28kHz の超音波を印加しても，超音波キャビテーションが発生しないほどの脱気が成されていることを確認した．

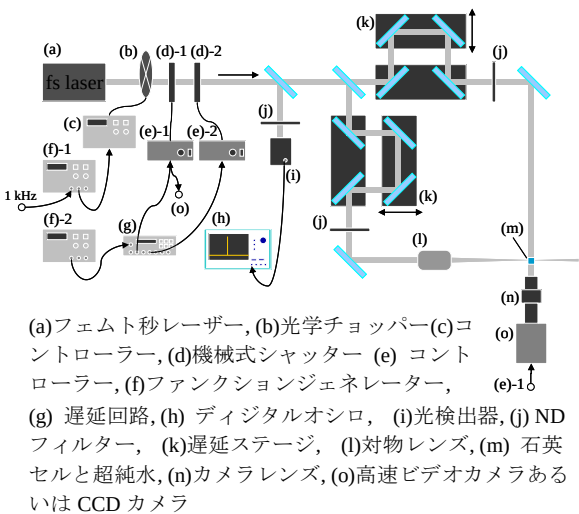


図 1 実験装置の概要

4. 研究成果

4.1 相互作用の時間分解過程

図2に相互作用の時間分解計測結果の一例を示す。fs レーザー照射後数十フェムト秒後、fs レーザーの集光部に干渉縞が現れる。これは、多光子吸収により水の屈折率が変化したことを示す。時間経過とともに屈折率の変化領域が拡大し、約 800ps 後のブレイクダウンが起き、プラズマが生成される。プラズマは徐々に成長し、約 1000ps (1ns) 後から急速に減衰する。fs レーザー集光部のほぼ中央 (fs レーザーのピーク強度が最大の部分 = 多光子吸収が最も発生した領域) に気泡核が形成される。このプラズマ発生から気泡核形成までの時間領域で、新たに開発した時間分解分光計測を行い、水分子が水素と酸素分子に分解されることを明らかにした。

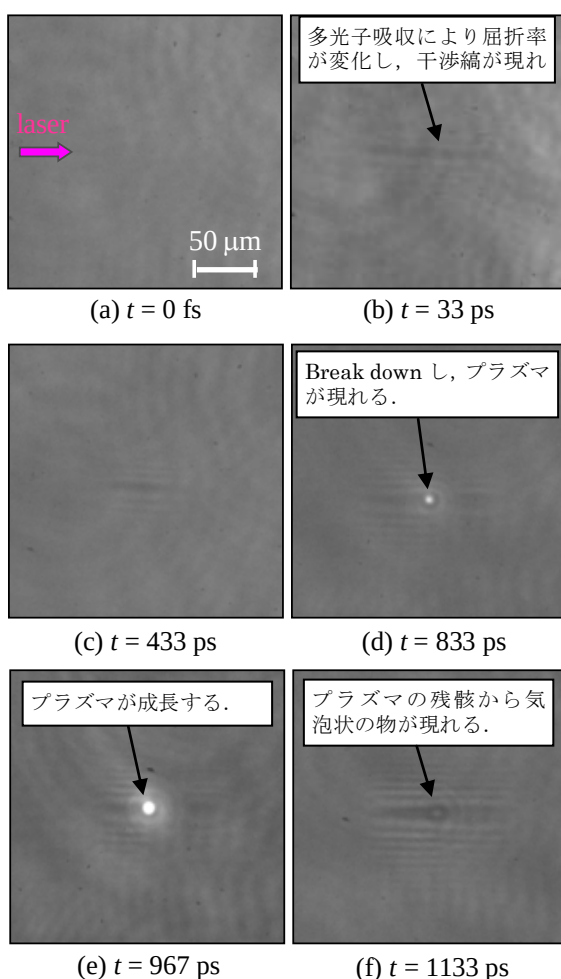


図2 fs レーザーと超純水との相互作用の時間分解計測 (ポンプ・プローブ法) 結果の一例。対物レンズ: NA 0.28, 倍率 $\times 10$ 。

4.2 生成された気泡の特性とレーザーキャビテーションの発生有無

fs レーザーの連続照射により生成した気泡群の一例を図3に示す。fs レーザーの集光点

を中心にマイクロバブルが生成し、全体には上方に移動している。気泡の体積の減少率から分子拡散係数を算出したところ、 10^{-19} オーダーであり、酸素、水素分子のそれとほぼ等しいことが分かった。さらに、シュリーレン法によりプラズマ生成後における周囲の水を観察したが、衝撃波は観察されなかった。以上から、生成された気泡は、通常のレーザーキャビテーションにより生成される気泡 (水の瞬時の沸騰による水蒸気) とは異なるものであることが分かった。

fs レーザーの理論集光径を算出したが、プラズマの径との差が大きいことから、集光径

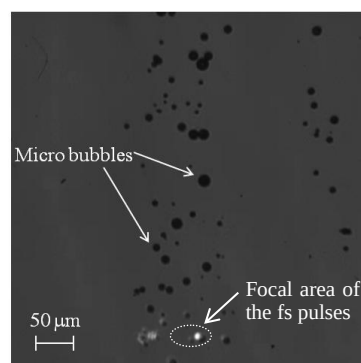


図3 fs レーザーの連続照射により発生したマイクロバブル。パルスエネルギー $1.0\mu\text{J}$, ピーク強度 $0.6\text{PW}/\text{cm}^2$ 。

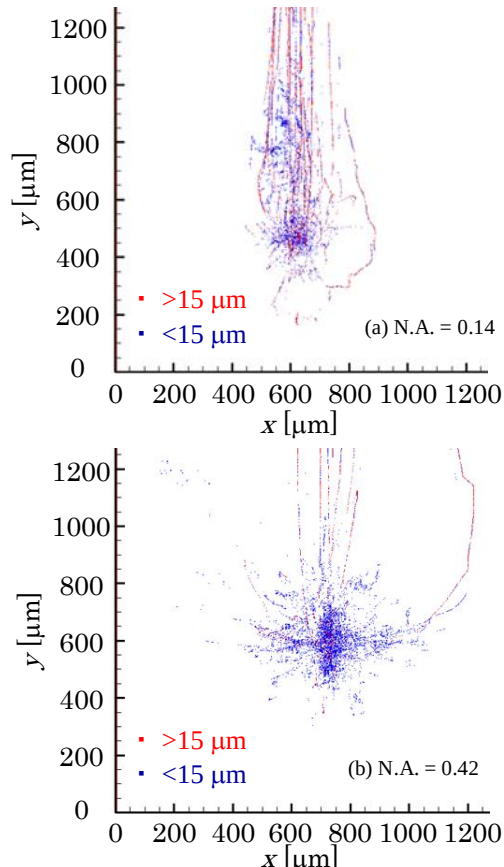


図4 生成した気泡の運動

を実測した。その結果、集光径は約 $8\mu\text{m}$ であった。生成した気泡の径の頻度分布、平均値を求めたところ、初期気泡径は約 $10\mu\text{m}$ であり、fs レーザーの集光径とほぼ等しいサイズであることが分かった。

4.3 生成気泡の運動

生成気泡の一部は合一し、初期気泡径よりも大きくなる。気泡を $15\mu\text{m}$ 以下とそれ以上の径でグループ分けし、それぞれの運動を計測した。図4は、気泡重心の軌道（青は 15μ 以下、赤は 15μ 以上）を示している。N.A.（開口数）が小さい場合、気泡は穏やかに上昇するが、N.A.が大きい場合には、初期段階において水平方向への運動が顕著である。また、N.A.が小さい場合には気泡の合一頻度が高く、一方 N.A.が大きい場合には合一頻度が小さいことが分かった。気泡核形成段階においては、集光径と同程度のサイズの気泡が生成されるが、その後の過程においては、生成される気泡径の分布には、N.A.の影響が顕著であることがわかった。

4.4 水素製造の新たな技術

fs レーザーにより水が水素と酸素とに分解されることを見出した。fs レーザーの集光径、ピーク強度、照射パルスインターバル、集光方法を基に、fs レーザーによる水素製造システムを検討した。その結果、太陽光励起による fs レーザーが実現されれば、新たな水素製造技術の候補と成り得るものであることが分かった。

4.5 石英加工への工学的応用と新たなプローブの開発

fs レーザーによる水の分解は、石英等の透明物質の精密加工が可能であることを示している．そこで、石英製光ファイバーを fs レーザーにより微細加工して、微小かつ高速で運動する液滴・気泡の径と速度を同時計測する新たな光ファイバープローブ（以下、fs-TOP）の開発を試みた．

図5は、その顕微鏡写真である。光ファイバーは光の導波路であるコアと反射層であるクラッドから成るが、クラッドを剥ぎ取ることで第2検出部を作り、1本のプローブで液滴や気泡の径と速度を同時計測するというプローブである(英国物理学会 最優秀論文賞受賞, 2010年)。図6に、加工装置の概略を示す。共焦点光学系を組み込んで、加工精度と分解能を飛躍的に高めた。

fs-TOP が液滴に接触すると同時に出力信号が減少し、fs レーザーによる微細加工部に液滴が接触するとさらに出力が低下する 2 段階信号が得られる。この「2 段階信号の時間差」と「fs-TOP 先端と加工部との長さ」から液滴

や気泡の径と速度を同時計測できる。本 fs-TOP の計測性能は、現在のところ世界一の性能を有していることが分かった。

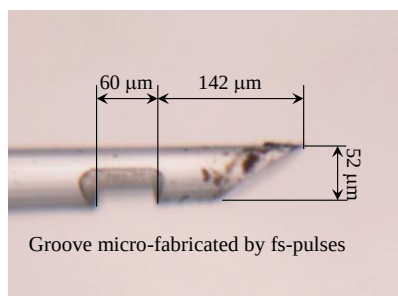


図5 fsレーザーにより微細加工して製作した光ファイバプローブの顕微鏡写真

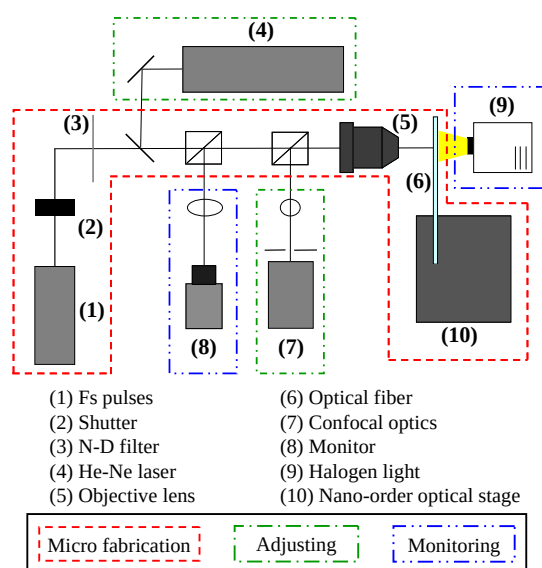


図6 fs-TOP用のfsレーザー加工装置の概要

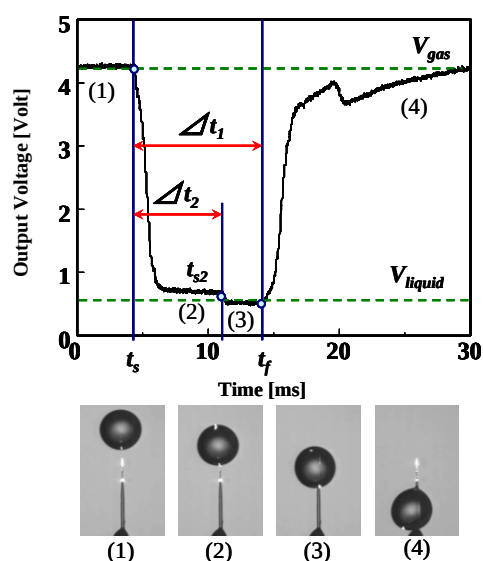


図7 fs-TOPの液滴計測時の出力信号と液滴との接触の高速ビデオ写真

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 22 編)

- 1) T. Saito, T. Kajishima and K. Tsuchiya, Deep Ocean CO₂ Sequestration via GLAD (Gas-Lift Advanced Dissolution) System, Journal of Environment and Engineering, Vol. 6, No. 2, pp. 412-415, (2011). 査読有
- 2) K. Hanyu and T. Saito, Dynamical Mass Transfer Process of a CO₂ Bubble Measured by using LIF/HPTS Visualization and Photoelectric Probing, Canadian Journal of Chemical Engineering, Vol. 88, pp. 551-560, (2010). 査読有
- 3) T. Sanada, T. Saito, et al., Flow structure of steam-water mixed spray, Nuclear Engineering and Design, Vol. 240, pp. 3974-3983, (2010). 査読有
- 4) T. Saito, et al., A Study of Surfactant Effects on the Liquid-Phase Motion around a Zigzagging-ascent Bubble Using a Recursive Cross Correlation PIV, Chemical Engineering Journal, Elsevier, Vol. 158, pp. 39-50, (2010). 査読有
- 5) M. Higuchi and T. Saito, Quantitative characterizations of long-period fluctuations in a large-diameter bubble column based on point-wise void fraction measurements, Chemical Engineering Journal, Elsevier, Vol. 160, pp. 284-292, (2010). 査読有
- 6) T. Saito, S. Aoshima, et al., Measurement of tiny-droplets using a newly developed optical fiber probe microfabricated by femtosecond pulse laser", Measurement Science and Technology, Institute of Physics, Vol. 20, 114002, (2009). 査読有

〔学会発表〕(計 79 件)

国際会議 (計 31 件)

- 1) Y. Mizushima and T. Saito, Newly developed measurement technique for bubbles by an Optical fiber probe improved by using the Pre-signal method, APS (American Physical Society) 63rd Annual Meeting, (2010.11.23). Long beach Convention Center, USA.
- 2) T. Saito, S. Aoshima, et al., Nucleation of mysterious bubbles by irradiation of femtosecond pulses", APS 62nd Annual Meeting, (2009.11.22). Marriott Hotel San Antonio, USA.
- 3) T. Saito and S. Aoshima, A study on the interactions between femtosecond-pulse laser and water from a viewpoint of multiphase flows", APS 61st Annual Meeting, (2008.11.23). Minneapolis Convention Center, USA.

〔国内学会〕(計 48 件)

- 1) 齋藤隆之, 日本機械学会流体工学部門講演会, 混相流計測のための多機能光ファイバースローブ, 2010.10.30 (招待講演). 工学院大学 (東京都)
- 2) 齋藤隆之, 可視化情報シンポジウム (日本可視化情報学会主催), フェムト秒レーザーを用いた気液二相流の時間分解計測, 2010.7.21 (招待講演). 山形大学 (山形県)

〔その他〕

ホームページ

<http://flow.eng.shizuoka.ac.jp/>

受賞 (計 3 件)

- 1) 齋藤隆之, 三橋佑規, 日本冷凍空調学会学術賞, 光ファイバースローブによる水・水蒸気二流体ノズル内の液膜計測, (2011.5.16)
- 2) 齋藤隆之, 青島紳一郎ほか, 日本混相流学会技術賞, フェムト秒レーザーにより微細加工した光ファイバースローブによる微小液滴・気泡計測, (2010.7.18).
- 3) T. Saito, S. Aoshima, et al., Outstanding Paper Award, Measurement of tiny-droplets using a newly developed optical fiber probe microfabricated by femtosecond pulse laser, Measurement Science and Technology, Institute of Physics, (2010.6.5).

研究に参加した学生の受賞 (計 16 件)

- 1) K. Hanyu, The 18th International Conference on Nuclear Engineering (ICONE18) Best Poster Award, American Institute for Mechanical Engineers, (2010.5.18).
- 2) 松田桂輔, 日本機械学会三浦賞, (2010.3.22)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

齋藤 隆之 (SAITO TAKAYUKI)

静岡大学・創造科学技術大学院・教授

研究者番号: 10324328

(2) 研究分担者

真田 俊之 (SANADA TOSHIYUKI)

静岡大学・工学部・准教授

研究者番号: 50403978

(3) 研究分担者

岡本 正芳 (OKAMOTO MASAYOSHI)

静岡大学・工学部・准教授

研究者番号: 90293604

(4) 連携研究者

青島 紳一郎 (AOSHIMA SHIN-ICHIRO)

浜松ホトニクス株式会社・浜松ホトニクス

中央研究所・室長

研究者番号: 70393931