

創立25周年記念誌

レーザー総研25年の進歩

The 25th Anniversary

公益財団法人レーザー技術総合研究所

目 次

あいさつ

「創立25周年記念誌発刊にあたって」	理事長	橋本徳昭	1
「(財)レーザー技術総合研究所創立25周年を迎えて」	副理事長・名誉所長	山中千代衛	2
「新しい門出」	所長	井澤靖和	3

研究成果

レーザー開発

太陽光励起レーザー装置開発とその応用		中塚正大	8
高出力多波長レーザー開発		藤田雅之	11
大型レーザーの開発		古瀬裕章	14
Research and Development Frontiers of High Power Lasers: Coherent Beam Combining (CBC)	ハイク	コスロービアン	17
新レーザー材料と小型レーザー装置開発		本越伸二	19
テラヘルツスミス・パーセル放射源研究		李 大治	22
レーザー開発と見習い研究員		櫻井俊光	25

レーザープロセス

パルスレーザー加工		藤田雅之	29
極端紫外(EUV)光源開発(実験)		島田義則	39
極端紫外(EUV)光源開発(理論)		砂原 淳	44
レーザーコンプトン散乱ガンマ線の発生と核変換への応用		今崎一夫	48
レーザー損傷メカニズムとデータベース		本越伸二	52
レーザーアブレーション法によるナノ粒子生産とエネルギー関連分野への応用		谷口誠治	55
高速点火レーザー核融合研究		砂原 淳	59
様々な種類の物理現象のシミュレーションを行うにあたり		古河裕之	63

レーザー計測

レーザーを用いたコンクリート欠陥検出実験		島田義則	68
Development of Laser-based System for Remote Non-destructive Testing	オレグ	コチャエフ	72
白色光ライダーの開発		染川智弘	77
超高速光誘起電子移動反応のメカニズム — 分子反応から生体内反応へ —		谷口誠治	81
Fluorescence Dynamics and Electron Transfer Phenomena in Photoreceptor Proteins: Early Studies and Recent Developments	ハイク	コスロービアン	87
レーザープラズマ応用研究			
— レーザーを用いた碍子表面の塩分密度計測 —			
— レーザープラズマから放射されるマイクロ波を用いた土壌埋設金属の探査 —			
		島田義則	90
フェムト秒レーザーを用いたダイオキシン類検出研究		島田義則	94

資料編

1. 財団組織図			97
2. 発起人名簿			98
3. 歴代理事・監事、評議員、総務委員、技術企画委員、総務企画委員、企画委員			99
4. 賛助会員名簿			109
5. 受賞一覧			110
6. 泰山賞の贈呈			112
7. 特許一覧			113
8. 刊行物一覧			114
9. 役職員・共同研究員名簿			115
10. OB研究者・職員の推移			116
11. 研究所25年の歴史と実績			117
12. メディア掲載			119

創立25周年記念誌発刊にあたって



理事長 橋本徳昭

レーザー技術総合研究所創立25周年記念誌の発刊にあたりまして、一言ご挨拶申し上げます。

当レーザー技術総合研究所は、1987年文部省、通商産業省、科学技術庁の3省庁共管により設立され、大学等での光科学技術の基礎研究を踏まえ、それを産業界に結びつける研究開発を積極的に推進することを使命とし、今日まで活動を続けて参りました。

おかげさまで本年10月に創立25周年を迎えることとなりました。平成21年7月に8代目理事長に就任し、私の代で25周年の記念事業ができましたことを光栄に思っております。これもひとえに関係省庁、企業、大学等研究機関の皆様のご指導、ご協力の賜物と厚く御礼申し上げます。

公益法人制度改革におきましては、本年4月1日に移行登記を行い、この記念すべき創立25周年にあたり公益財団法人レーザー技術総合研究所として新しいスタートを切ることになりました。

現在、私たちを取り巻く環境は、地球温暖化、エネルギー、人口増加、資源問題等地球規模の課題が多々発生しており、その解決には科学技術の果たす役割がますます重要となっております。

21世紀は「光の時代」と言われ、光科学技術は、幅広い応用が期待されており、今後その期待はますます高まっていくと思われれます。また、第4期科学技術基本計画には震災からの復興、再生とともに科学技術イノベーションの推進が示されています。大学や公的研究機関の優れた研究成果を、迅速かつ効果的に産学連携につなげる仕組みの必要性が高まっています。当研究所は、まさしく国および産業界が目指している基礎研究ならびに開発研究について牽引的役割を果たすべく、先端的な研究活動を推進し、新技術の確立と産業の発展に貢献しているものと考えております。

また、省エネルギー効果のあるCFRPへのレーザー加工技術の応用やレーザーコンクリート欠陥検査技術など実用化に向けて大きく前進した研究成果も出てきております。このように当研究所はレーザー技術および光科学技術を通じて、不特定かつ多数の者の利益の増進に寄与することを目的に公益財団法人として次の四半世紀へと新たに出発致しました。震災後の経済状況がまだ厳しい状況にはありますが、未来への夢の実現をめざし、今まで以上に積極的に研究事業に取り組んでいく所存でございます。今後とも関係各位のさらなるご支援、ご協力をお願い申し上げます。

(財) レーザー技術総合研究所創立 25 周年を迎えて



副理事長・名誉所長 山中千代衛

財団法人レーザー技術総合研究所は今年創立 40 周年の大阪大学レーザー核融合研究センターのレーザー応用部門 (Laser Application Section) を母体として誕生した。昭和 62 年 (1987) 4 月に大阪科学技術センターや関西電力の支援の下設立準備室が発足し、5 月の発起人会を経て 7 月科学技術庁、文部省、通産省共管のレーザー研究財団として設立された。

当時筆者はたまたま電気学会の会長だった関係から電気関連の学界、産業界に知人も多く、また政府、官庁でもレーザー核融合研究を通じて多くの支援者があり、経済的にも Japan as No.1 の時代であったから斯界の支持を受け、比較的スムーズに設立が認可された。1 年早くても、1 年遅くても財団設立は難しかったと言われている。

研究目標は当初レーザー開発と同位体分離の学術的研究を中心に、4 研究部の部長はすべて大阪大学レーザー核融合研究センターの教官が担当した。したがって大阪大学とは密接な協力関係が保たれ、学生の研究支援の場としても活用され、ポストクの活躍の場でもあった。所長の構想として大学との人事交流を最も大切なポイントと考えていたのである。

米国リバモア国立研究所のジョン エメットが目標とするウラン濃縮の活動に対抗する体制を構築し、さらに通産省の企画する自由電子レーザー研究所へも対応し、また科技庁の大出力・可変波長レーザー研究委員会を推進し、関西原研設立に尽力した。

1990 年代には大出力 CO₂ レーザーを用いたレーザー誘雷の研究を展開し、美浜の嶽山にレーザーサイトを開設し、レーザー誘雷に成功した。2000 年代に入ってレーザー加工では EUV 光源開発、レジストレーザー剥離、フェムト秒加工による周期構造生成の研究をすすめ、白色ライダーによる大気観測を実施し、レーザー超音波による建造物欠陥の検出では JR 西日本と共同研究を展開してきた。

その他レーザーバイオ研究、宇宙太陽光エネルギー利用レーザーや兵庫県立大学の SR ニュースバルを用いたγ線核変換の研究も実施している。さらにレーザー損傷の耐力向上の研究では耐力評価スタンダードの確立につとめている。

この四半世紀に及ぶ研究員の努力はレーザーの開発とその応用の領域で優れた評価を獲得している。今年創立 25 周年を迎え、千里阪急ホテルでこの 7 月盛大に記念行事が開催され、第四回泰山賞授与式も举行される。

(財) レーザー技術総合研究所は大阪大学レーザーエネルギー学研究センターを基盤に、レーザー学会、OEL の技術集団を形成してパワーレーザーの振興に努めてきた。この半世紀に及ぶ長い経験から私達は前途をすべて苦にするペシミストよりは大らかに「日はまた昇る」を期待するオプティミストでありたい。

おわりにこの 25 年いろいろとご配慮を頂き、ご援助賜った関係者の皆様に心から御礼申し上げ、今後ともよろしく願い申し上げます次第である。

新しい門出



所長 井澤靖和

レーザー技術総合研究所は、昭和 62 年（1987 年）7 月、2 つの研究部と総務部からなる体制の下で活動を開始した。当時の記録を見てみると、所員は研究部 5 名、総務部 3 名となっている。電力会社を中心にレーザー濃縮技術研究組合が設立され、国家プロジェクトとしてレーザーウラン濃縮技術開発が始められた頃で、基礎的、基盤的側面からその開発を支援するというのが研究所の重要な使命であった。筆者はレーザー同位体分離関連の研究をしていたこともあって、創設当初の研究所運営のお手伝いをさせて頂いた。

その後、レーザー微量分析、光化学反応、自由電子レーザー、生体科学、レーザー加工など、研究分野も原子力から電力、環境、材料、バイオなどへと広がった。当研究所の大きな特長となっている、レーザー誘雷、コンプトン散乱ガンマ線と核変換、レーザー超音波によるコンクリート探傷、白色光ライダー、太陽光励起レーザーなどの研究でも成果を上げることができた。研究組織も研究部制から研究チーム制へと変更し、現在 6 研究チームと 1 開発室の体制で幅広い研究を行っている。

レーザーの発明以来半世紀を経て、今や、レーザー技術は先進的な産業や科学の発展を支える必要不可欠な基盤技術に成長してきた。また、新しい産業の創成を牽引するイノベーションの源泉でもある。産業分野では、まず、半導体レーザーが光通信・光情報処理産業の発展を支え、ついで炭酸ガスレーザーがレーザー加工でものづくり産業の基盤を発展させてきた。近年は、炭酸ガスレーザーに代わって固体レーザーやファイバレーザーが主流になりつつある。

本格的な光の時代を迎え、次のレーザー産業の芽となるものは何か？そこではどのようなレーザーが必要とされるのか？食料やエネルギーの確保、安全・安心社会、健康長寿、省エネルギー・省資源など、わが国の将来を考える上で重要な戦略的課題は多い。具体的な未来像を描くことは難しいが、レーザー技術が未来社会で大きな役割を果たすことは間違いない。

創立 25 周年に併せて、当研究所は公益財団法人として認可され、本年 4 月より新しい形でスタートすることになった。公益財団法人では、その活動が広く一般社会の利益増進に貢献するものであることが強く求められる。次の四半世紀に向けて、所員一同初心に戻り、未知・未踏へ挑戦する心を忘れず、大学や産業界と連携しながら積極的に研究に取り組むとともに、成果の普及・情報発信に努め、レーザー産業の振興・発展に貢献したいと考えている。

最後に、長年にわたる皆様方からの暖かいご支援、ご協力に対し心より感謝申し上げますとともに、今後とも、引き続きご指導、ご鞭撻賜りますようお願い申し上げます次第である。



前列左より 今崎一夫、井澤靖和、山中千代衛、中塚正大、三宅浩史、藤田雅之
 中列左より 李 大治、本越伸二、ハイク コスローピアン、古河裕之、片岡紀子、幸脇朱美、小野田理恵、オレグ コチャエフ
 後列左より 砂原 淳、古瀬裕章、柴川智弘、櫻井俊光、谷口誠治、島田義則、渡邊英世 (2012年1月)

知天時
 盡人事
 山中千代衛



研究成果

2003年～2012年



レーザー開発

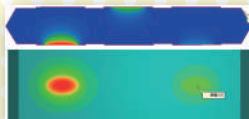
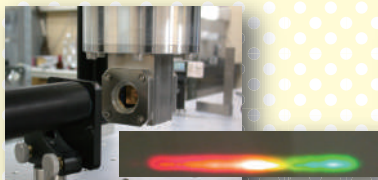
レーザープロセス

レーザー計測

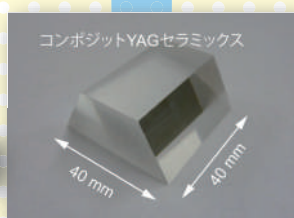
レーザー開発

高平均出力レーザー開発

冷却Yb:YAG
OPCPA

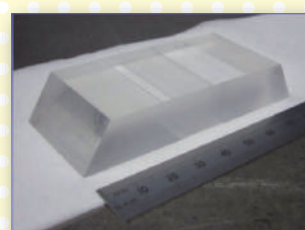


TRAM型
増幅器開発



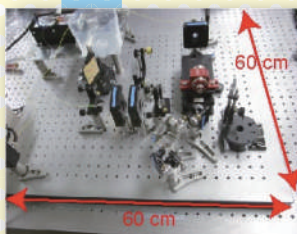
高出力多波長レーザー開発

ZiZa-AM型
増幅器開発

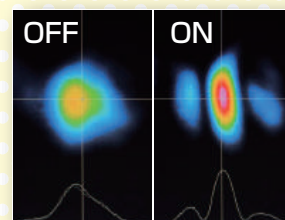


小型レーザー開発

マイクロチップ
レーザー開発



コヒーレント ビーム結合技術

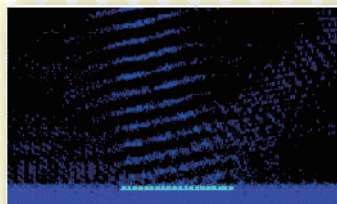


自由電子レーザー開発

ファイバレーザー 発振器開発

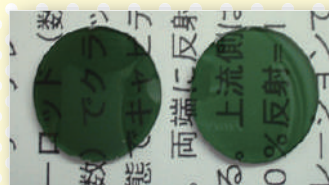
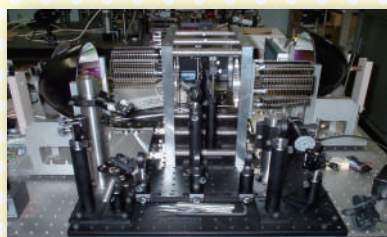
スミス・パーセル放射源開発

太陽光励起レーザー開発



アクティブミラー型増幅器開発

Nd/Cr:YAG材料の物性評価



Nd/Cr/Ce:YAG材料開発

Ce:YAG
材料開発

ディスオーダード
材料開発

2003

2004

2005

2006

2007

2008

2009

2010

2011

2012

太陽光励起レーザー装置開発とその応用

中塚正大

太陽光のコヒーレント変換が高効率で実施できると、応用先は広く環境・エネルギー問題への対応と同時に新しい低コスト新産業創成につながる可能性を持っている。レーザー総研では6年ほど前からプロジェクトテーマとして取り上げ、機関誌「レーザークロス」でも研究成果（183, 194, 195, 210, 222, 232, 242号）を報告してきた。レーザー技術開発の現状と今後についてまとめる。

地上に降り注ぐ太陽エネルギーは170 PWと人類の化石エネルギー消費13 TWに比して、とてつもなく大きい。地球温暖化は地球のエネルギー収支バランスの崩れで生じており、発生エネルギーの大きさではない。温暖化を進めている要因を無くさなければならぬ。

太陽光は従来からバイオマスの育成、光電変換による電気エネルギー化、高温水の直接利用や蒸気発電等に利用が進められているが、コヒーレンスの利用には至っていない。光のコヒーレンスの特徴はビーム拡散がなく、長距離伝送が可能で、狭い領域へのエネルギー集中が可能、単色のためスペクトル上で取り扱いが容易、パルス化が可能で高いピーク出力が得られるなどである。

太陽光励起レーザーでは効率的太陽電池の研究と同様に、太陽光の広いスペクトルをくまなく利用し尽くすことが高効率システム開発に要求される。既に報告してきたようにCrイオンをNd:YAGセラミックスに高濃度で共ドープすることにより、900 nm以下の太陽スペ

クトルの80%以上をレーザー媒質に投入できる。CrイオンからNdイオンへのエネルギー移乗率は極めて高く、量子デフェクトをも考慮して50%がレーザー励起に寄与する。Ndイオンの量子効率はやや高く85%程度である。結果として効率30%以上の変換可能性を持っている。

既に太陽模擬ランプ励起アクティブミラー（AM型）増幅器システムで200 W連続出力を実現した。経時的発展を図1に示したが、高濃度ドープセラミックス（Nd 1%, Cr 3%）ではじめて実現できるものである。材料研究は大阪大学レーザー研と協力してきたが、その他の効率的増感イオンなどの調査が続けている。

Nd/Cr:YAGセラミックス媒質を用いたレーザー増幅器システムの解析には、レーザー物性パラメータを知ることが重要である。6,000°Cの黒体放射スペクトルを励起源とする場合、励起量の計算にスペクトル積分が必要となる。Crイオンの濃度によって決まる励起スペクトルを積分データベース化することでレーザー特性の計算が簡単化される。実用ではNdイオンの濃度はいろいろ変えることはなく濃度消光の検討からその最適値は1%である。CrイオンとNdイ

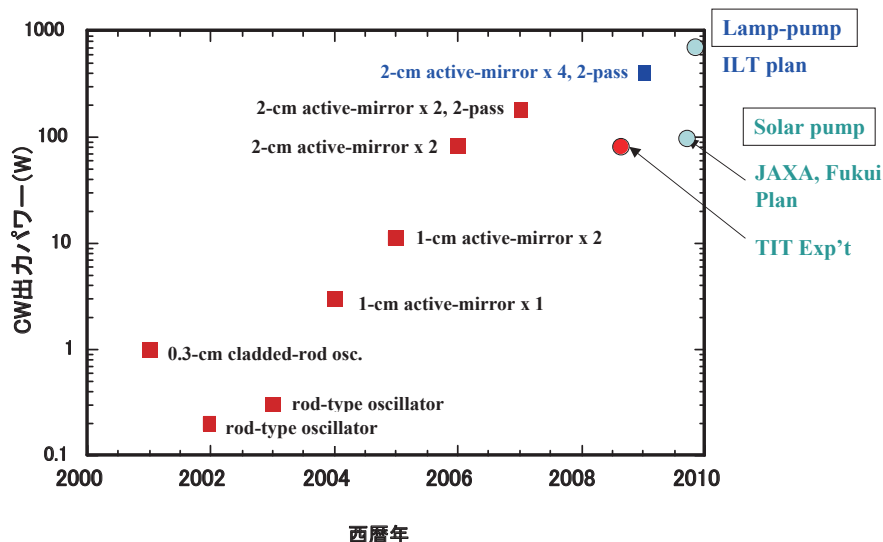


図1 太陽光励起レーザー開発の推移（ILT、JAXA、福井大学、東京工業大学）

オンの結合は極めて大きく、Crイオンの存在がNdイオンのレーザー特性に与える影響は次の通りである。Crイオンのエネルギー蓄積を表わす準位からの蛍光寿命はmsオーダーで、Ndイオンレーザー上準位寿命の0.2 msに比べて長い。Crイオンからのエネルギー移乗が継続するためにNdイオンのレーザー蛍光寿命は見かけ上大きく増加する。エネルギー移乗のためにNdイオンのレーザー上準位電子数密度はCrイオンの入っていない場合に比べて当然増加する。ランプ励起ロッドレーザーでは出力は3倍にもなる。さらにレーザー増幅度が大きくなり飽和増幅領域に入ると、増幅特性は増幅飽和エネルギー係数で左右される。

これまでの研究では、Crイオンの効果をNdイオンのレーザーパラメータに繰り込むことによってレーザー計算を単純化する手法を提案した。濃度の定まったCrイオンの効果によるNdイオンの見かけの寿命、および見かけの誘導放出断面積を定義することとした。その結果、高出力レーザー増幅器で重要なパラメータである増幅飽和係数が、Nd:YAGレーザーでは約3 kW/cm²程度であるが、Cr 3%コドープでは80 W/cm²程度と激減し、エネルギー抽出効率が格段に増加することが明らかとなった。

高濃度Crのドーピングには光散乱係数の増加という問題点が残っている。YAG中でNdイオンは同じ希土類のY（イットリウム）のサイトに入るが、CrイオンはAlのサイトに入る。Crのイオン半径が大きいために高濃度化の際のYAG結晶粒界の制御に困難がある。製造過程のばらつきもあって安定なセラミックス製造法は未だ研究途上である。しかし、セラミックスメーカーの努力により、その散乱量も年々軽減し、Cr 2%程度では、Nd:YAG結晶と遜色の無いところまで来ている。

Cr以外の増感作用元素について阪大レーザー研と共同研究であり、次期候補としてCeイオンが見いだされている。1%程度のCeを追加共ドーピングすることで、短波長領域の励起ではNdとCrの場合の2倍程度の蛍光強度の増加が得られている。レーザー作用上の有効性の検討が進められている。

紫外線領域スペクトルの照射で一部の材料にカラ

ーセンターが生じることがセラミックYAGの不純物効果としての欠点である。400°C程度の熱アニリングで消失することがレーザー総研の研究で明らかとなり、高温動作によるカラーセンター抑制が提案された。

YAGセラミックスの製造に関してはレーザー総研ではすべて神島化学工業（株）に依頼し共同研究している。最近、ファインセラミックスセンター関連企業（ワールドラボ）でもいい結果が出はじめた。前者ではセラミックス材料は30 cm角程度までの板状セラミックスが製造可能で、将来を見越しても技術限界とはならない。5 mm厚アクティブミラー増幅器では強励起で50 W/cm²程度の取り出しが期待されるので、30 cm角では出力は50 kW に達するからである。後者のCr/Nd:YAG材料はJAXA（宇宙航空技術開発機構）と福井大（金邊忠教授）で実太陽光による実験が行われた。

意外とむずかしいのは効率的で低コストの太陽光集光装置である。自然太陽光密度（約 0.1 W/cm²）の何倍の励起密度が必要かはレーザー媒質の形状と排熱技術で決まる。通常は500倍から1,000倍くらいが望ましい。集光素子は価格から見ると、プラスチックフレネルレンズか高反射コートをしたプラスチックフィルムが使える。フレネルレンズでは70%程度の利用率で、屈折率分散から生じる色収差で集光度に限度があるが低価格性に優れている。フィルムの反射率は全スペクトルで95%を超えるものが市販されている。フィルムを貼付ける凹面基礎構造が価格を決めている。低価格化のためには多分割小平面からなる集光素子を製作する技術研究が必要であり、これはレーザーが大型化するほど容易である。レーザー素子としてはアクティブミラー形式が集光光学系との整合性が高い。

排熱技術とレーザー素子の高温動作の可能性が将来の太陽光励起レーザーの効率的運用の鍵である。平面形状のレーザー素子の排熱技術はすでにマイクロチップレーザーなどで研究が進んでいる。レーザー総研のアクティブミラー増幅器ではヒートパイプを応用している。Nd/Cr:YAG の高温動作の可能性については現在研究中であるが250°C程度まで利用可

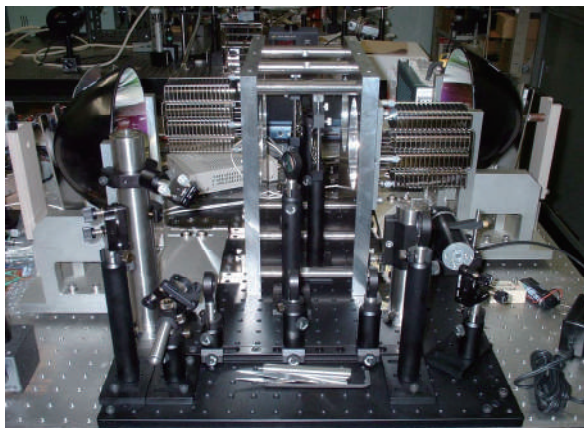


図2 模擬太陽光励起アクティブミラー型増幅器

能との示唆を得ている。

太陽光励起レーザーの応用では、このレーザーの特徴を活かす必要がある。太陽光をレーザー光に変換することでビーム広がり小さくなり、1) 長距離伝播が可能、2) エネルギー集中から高温発生が可能、3) 単一波長であるなど、また何よりも励起源コストが極端に低いことから4) エネルギー単価の低減、5) 運転コストの低減などの利点を得られる。欠点としては宇宙空間利用を除いて日照時間により動作時間の制限が挙げられる。

すでに良く知られた応用の一つは、長年JAXAにおいて取り上げられてきた宇宙における太陽発電・地上へのエネルギー伝送の研究がある。もともとエネルギー形態は数GHz帯のマイクロ波生成を想定していたが数年前から、システム効率、軽量性、コンパクト性、地上での小規模基地などからレーザー利用が並行した課題として取りあげられるようになった。平成8年から、JAXAでは「1kW級レーザーシステム開発検討会議」（主査：福井大学金邊忠教授）を立ち上げ産官学連携で設計し、福井大学に100W級試作レーザーの開発を進めた。ジグザグディスク型発振器であり、プラスチックフィルムを貼った大型カセグレン反射鏡で集光している。平成10年冬には、福井のつかの間の晴間で約20W出力を確認している。

太陽光で高温を実現してエネルギー応用を進める方法があるが、その多くは500℃程度までの熱水利用、もしくは1,000℃程度までの水素生成化学反応など

である。2,000℃を越す温度は太陽光の直接集光では困難であって、レーザー光への変換で4,000℃～数万℃が実現される。

東工大の矢部孝教授や、内田成明特任教授（現東京大学客員教授）は、金属Mgをエネルギー蓄積源とした新しいエネルギーサイクルを提案している。高温水と反応したMgはエネルギーを放出してMgOとなる。MgOの還元過程に4,000℃を越す高温環境が必要で、低コスト熱源として太陽光励起レーザーの利用を考えている。平成19年には、北海道・千歳の地に2m角の大型フレネルレンズを集光器とし、主にロッド型レーザーを用いて研究を行い、100W出力まで達成している。

現在、本研究を牽引してきたJAXAは、残念ながら直接励起方式について一端研究を中止することになった。しかし、理化学研究所や、豊田中央研究所など、新たな機関が研究を推進するようになり、太陽光励起レーザーとその応用は、新たな段階に入ったと言える。今後は、さらに国際的な協力へと広がりゆくと期待している。

本研究について、これまで阪大レーザー研からは研究支援を、JAXAや関西電力からは研究資金の支援をいただいた。ここに深く感謝します。

（本稿は、レーザークロスNo.264に掲載された「太陽光励起レーザー開発の現状」を加筆・修正しまとめた）

発表論文（主要）

- 1) 佐伯拓、今崎一夫、中塚正大、“太陽光直接励起レーザーの現状と将来”レーザー研究, **37**, 120 (2009).
- 2) T. Saiki, K. Imasaki, S. Motokoshi, C. Yamanaka, H. Fujita, M. Nakatsuka and Y. Izawa, “Disk-Type Nd/Cr:YAG Ceramic Lasers Pumped by Arc-Metal Halide-Lamp”, Opt. Commn., **268**, 155 (2006).

高出力多波長レーザー開発

レーザープロセス研究チーム

藤田雅之

1. 失われかけた10年

レーザー開発の国プロの流れを振り返ると、1977年～1985年の「超高性能レーザー応用複合生産システム」での炭酸ガスレーザー開発、1986年～1994年の「超先端加工システム」でのエキシマレーザー開発、2年空けて1997年～2001年に実施された「フォトン計測・加工技術」研究開発プロジェクトでのLD励起YAGレーザー開発の後、しばらくレーザー開発の国プロが途絶えていた。この間、何の動きもなかったわけではない。国プロが始まると同時に先導研究と呼ばれる調査研究が行われ、次の国プロの準備に入るとするのが常であった。

公開資料を紐解くと、1994年～1996年にかけて先導研究が行われ、1997年2月に研究開発の基本計画が公表され、1997年春に「フォトン計測・加工技術」研究開発プロジェクトの公募が実施されていた。同様に「フォトン計測・加工技術（'97～'01）」が始まると、1998年、2000年、2001年にフォトンセンターを中心に調査研究が行われていた。2000年の技術動向調査では、レーザー総研もオプトメカトロニクス協会と共にフォトンセンターに協力し事務局を務めた。この時は、ナノ加工がキーワードであったと記憶している。ビームの発生・制御・ナノ計測技術・反応制御技術について今後重要となるレーザー技術の調査を行った。しかし、3回に渡る先導研究が国プロに結びつくことはかなわず、国内でのレーザー開発プロジェクトは、しばらく途絶えることになった。

2. プロジェクト復活を目指して

日本でレーザー開発プロジェクトが途絶えている間に、欧州、特にドイツでレーザー開発プロジェクトが盛んに行われるようになった。1993年にLaser 2000と称される枠組みが設定され、1997年～2002

年にNOVALAS、1999年～2005年にFSTプロジェクト、それを受け継いだ2004年～2009年のFEMTONIK、2004年～2009年にかけて半導体レーザーやファイバーレーザー開発のBRIOLASと、光技術を国家基幹技術と位置付けた研究開発が進められていた。

国内では2007年になってようやく、(財)機械システム振興協会から委託を受けて(財)製造科学技術センターが「高品質化した加工用レーザーと開拓される新加工領域に関する調査研究」を立ち上げた。国内外のレーザー技術動向調査を行い、レーザー技術の体系化及び将来動向分析を進め、次世代ファイバーレーザー及び次世代ファイバーレーザーによる新加工領域(製造技術)の技術開発提案をまとめることを目的としていた。この調査研究では、次世代レーザー技術活用調査委員会(委員長:中井貞雄、光産業創成大学院大学・学長)の下に次世代レーザー技術体系化調査WG(主査:塚本雅裕、大阪大学・講師)と次世代レーザー加工技術調査WG(主査:吉田実、近畿大学・准教授)と2つのWG(ワーキンググループ)が設置された。また、海外調査も行われ、2007年11月12日にFraunhofer ILTを訪問、2007年11月14日、15日の二日間にわたってドレスデンの国際会議場において開催された第3回ファイバーレーザー国際ワークショップに参加した。この時の調査団メンバーは、阿部信行(大阪大学・准教授)、塚本、岡本康寛(岡山大学・助教)、藤田、間野隆久(製造科学技術センター・課長)であった。

翌年、2008年にも、(財)機械システム振興協会から委託を受けて(財)製造科学技術センターで「産業用次世代レーザー応用・開発に関する調査研究」が行われた。産業用次世代レーザー応用・開発調査委員会(委員長:中井貞雄、副委員長:植田憲一)の下に、異種材料・切断接合調査WG(主査:片山



図1 2007年11月12日にFraunhofer ILTを訪問

聖二、大阪大学教授)、局所表面改質調査WG(主査:新井武二、中央大学教授)、反応制御調査WG(主査:水野一彦 大阪府立大学大学院教授)、次世代レーザー加工システム調査WG(主査:神成文彦、慶應義塾大学教授)と4つのWGが設置された。2008年11月28日(金)~29日(土)には、箱根ホテル小涌園で合宿委員会が行われ、深夜まで議論が交わされた。熱い議論のせい、飲み過ぎのせい、この時若干一名が泥酔状態で部屋に担ぎ込まれたようである。

また、レーザー学会では「次世代産業用レーザー」専門委員会(主査:塚本、副主査:河仲準二(大阪大学レーザーエネルギー学研究中心)、幹事:甲藤正人(宮崎大学産学連携センター))が立ち上がり、2009年4月~2012年3月の3年間活動することとなった。

3. 国プロ復活

2007年、2008年の調査研究が功を奏し、2009年度の終わり頃、2010年1月、2月にはNEDOポストで平成22年度新規/拡充研究開発プロジェクト(案)概要が公開され、パブリックコメントの募集が行われた。また、2010年1月20日の日刊工業新聞1面には「経産省 国産レーザー加工機支援 炭素繊維複合材など対象」という見出しのトップ記事が掲載された(ちなみに、隣の記事の見出しは「JAL、更生法申請」であった)。そして、2010年3月30日に「高出力多波長複合レーザー加工基盤技術開発プロジェクト」に係る公募がNEDOホームページで公開された。NEDO内の担当部は機械システム技術開発部で、研究開発期間は平成22年度~平成26年度の5年間、平成22年度事業規模が一般勘定665百万

円であることが、基本計画ならびにH22年度(2010年度)実施方針と共に示された。提案書の締切日は5月10日であった。

国プロの公募が年度末ギリギリになったことには、事業仕分けの影響が無かったとは言えない。2010年度予算編成に対して2009年11月から逐次実施された「事業仕分け」は、それまでの予算編成の仕組みを根底から覆すようなものであった。また、予算編成のみならず独立行政法人(NEDOや産総研など)や公益法人の存続が危ぶまれる状況が生まれた。それまでは、中立的な公益法人や産総研が中心となり企業の研究開発案件を調整し、役所での予算確保を促し、提案をまとめる、といった作業が常であったが、この仕組みが打撃を受ける、あるいは先が見えない状態になっていた。今回の国プロ立ち上げ・調整では、事業仕分けの影響が小さかった大学人の東奔西走とそれを支援する企業人が小さからぬ役割を担っていた。

4. プロジェクトへの参画

公募がオープンとなり提案書の準備作業が進められた。また、提案書の作成と共に、共同提案のための技術研究組合の設立準備も進められた。プロジェクトリーダーを前レーザー学会会長を務められた尾形仁士氏にお願いし、技術研究組合次世代レーザー加工技術研究所、大阪大学 接合科学研究所、大阪大学 レーザーエネルギー学研究中心、浜松ホトニクス(株)、(株)アルバックとの連名でレーザー総研は共同提案に加わった。提案書の提出時点では技術研究組合は認可待ちの状態であったが、2010年5月17日にレーザー学会会長の中井貞雄氏を理事長とする技術研究組合次世代レーザー加工技術研究所(英文名:Advanced Laser and Process Laboratory Technology Research Association、略称:ALPROT)が設立された。当初の参画メンバーは、浜松ホトニクス(株)、古河電気工業(株)、(株)アルバック、ミヤチテクノス(株)、新日本工機(株)、(株)アスペクト、(株)片岡製作所、三菱化学(株)、(独)産業技術総合研究所であった。

提案に対して5月28日にヒアリングが行われ、6

月 21 日に我々の提案の採択が決定した。この時、共同提案者であったレーザー総研は、ALPROT への加入がプロジェクト参加への条件となった。事業仕分けの影響で、財団法人が NEDO からの直接委託を受けることや再委託先となることに対してはばかられる風潮があったようである。大阪大学と産総研に集中研を置き、レーザー総研は ALPROT の一員として出向の形で阪大レーザー研と共にレーザー開発に携わることとなった。

5. 新たなプロジェクトの試み

今回の国プロの大きな特徴は、(レーザー開発に関して) 大学が NEDO プロ研究成果のアウトプットで大きな役割を担うことであろう。先のフォトン計測・加工プロジェクトでも大阪大学は参画していたが、三菱電機の再委託先であった。今回は直接委託であり、且つレーザーの最終出力を達成するという責務を負う計画となっている。国プロの成果では世界最高性能かつ市場を切り開くことが求められる。今回のプロジェクトでは MOPA (Master Oscillator and Power Amplifier) システムのレーザー開発を掲げ、世界最高性能を有するレーザー増幅器開発を大学が、市場が求める売れ筋の出力のレーザー開発を企業が分担するという体制がとられている。実力のある中小企業も参画している。どうしても大企業は市場規模がある程度大きくないと製品投入をためらいがちだが、中小企業であればプロジェクトの成果を活かして市場を切り開いていけるのでは、と期待している。ドイツの中小企業であったトルンプが国の研究助成・支援を受けてレーザー加工機の世界企業に成長したように。



図2 サンフランシスコの中華街にて
後段左から：尾形、井澤、吉田、藤崎
前段左から：藤田、塚本

6月30日には東海大学交友会館で、ALPROTの第一回理事会、総会が開催され、平成22年8月にプロジェクトが正式にスタートした。

2011年1月23日～27日にかけてサンフランシスコで開催された Photonics West 2011 に ALPROT から尾形 PL、藤田、新納弘之(産総研)、間野、藤崎晃(古河電工)が参加し、現地で合流した井澤靖和、塚本、吉田治正(浜ホト)らと共に海外のレーザー開発動向の調査を行った。それから約2年半が経ち、2012年8月にはプロジェクトの中間評価が行われる。

文中、敬称を略しています。

大型レーザーの開発

レーザープロセス研究チーム

古瀬裕章

レーザー技術総合研究所（以下 ILT）では 2007 年度より、三菱重工株式会社（以下 MHI）の委託を受け、産業用大出力レーザー開発を行ってきた。最終目標は CW 10 kW 以上であり、高効率と高品質を同時に満たす新しい光源が要求された。筆者は 2007 年度の秋、学位取得をきっかけに今崎主席研究員の誘いを受け、レーザー総研に入所し、光源開発に携わることとなった。

筆者が入所した当時のチーム状況は、今崎主席、佐伯拓研究員（現関西大学准教授）、そして筆者の 3 名であり、まだレーザー材料や増幅方式の選定について議論中であった。2007 年度の出力目標は 200 W であり、年度内に達成できるかが極めて厳しい状況にあった。その後、大阪大学レーザー研（以下 ILE）の宮永憲明教授、河仲準二准教授の多大なる御協力を得ることになる。河仲准教授は低温冷却 Yb:YAG レーザーに逸早く着目し、核融合ドライバーの可能性について言及されていた。そして、ロッド、ディスク、アクティブミラー方式の増幅特性や、CW、Q スイッチ、再生増幅、モードロック発振器開発等を精力的に行われており、世界的に注目を浴びていた。特に低温冷却 Yb:YAG は 4 準位系のエネルギー構造を示すため高効率動作が可能であり、発熱が少ない。実際に 90% の変換効率が河仲グループで達成されている。さらに熱伝導率や熱膨張係数等の物性値も向上するため、熱に強い材料と言える。

今崎主席は宮永教授、河仲准教授をチームに引き込み、ILT-ILE-MHI の共同チームができた。そして河仲准教授からコンポジットセラミックスを用いた低温冷却 Yb:YAG の全反射アクティブミラー方式（Total-Reflection Active-Mirror: TRAM）が提案された。TRAM 方式では 1 mm 以下の Yb:YAG を底面に貼り付け、液体窒素で直接冷却する。そして Yb:YAG

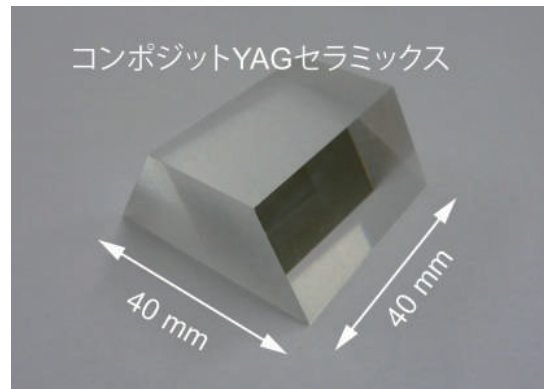


図1 TRAM Yb:YAG 材料サンプル

と液体窒素界面の全反射を利用してレーザー光を伝搬させる。この方式だと従来のアクティブミラー方式で施されていた高反射膜が不要となり、高い廃熱が期待できる。

筆者は ILE のアイデアを基に、さっそく実験準備に取り掛かった。何も物品が無い状態からのスタートであったため、光学定盤の準備から、コンポジットセラミックスの設計、発注、励起 LD の選定、集光光学系、共振器の設計と光学部品の準備、液体窒素クライオスタットの製作、測定機器の準備等、多くの作業を短期間で行う必要があった。特に筆者はレーザー開発に関しては全くの素人であったため、ほとんどが初めての経験であった。筆者の机を河仲グループに用意して頂き、河仲准教授ご指導の下、レーザー開発の知識・技術を相当参考にさせて頂いた。当時共同研究員で来られていた浜松ホトニクス の川嶋利幸氏、安原亮氏（現核融合研）、栗田隆史氏、関根尊史氏、池川恭史氏、片井隆志氏には多くの助言と激励を頂いた。また学生であった竹内康樹君（現浜松ホトニクス）や吉田陽君（現博士後期課程）にもずいぶん相談に乗って頂いた。多くの方のご協力を得て、ぎりぎり年度末に 200 W 級出力を達成することができた。

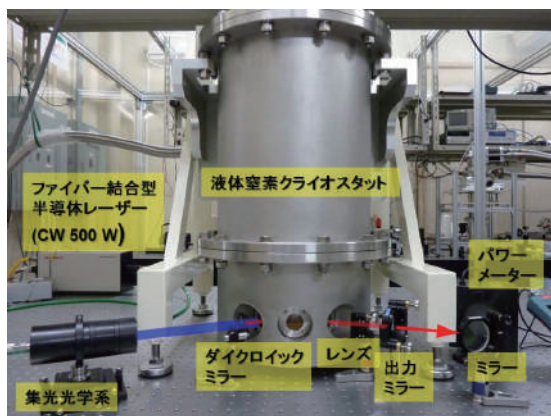


図2 液体窒素クライオスタットと実験セットアップ

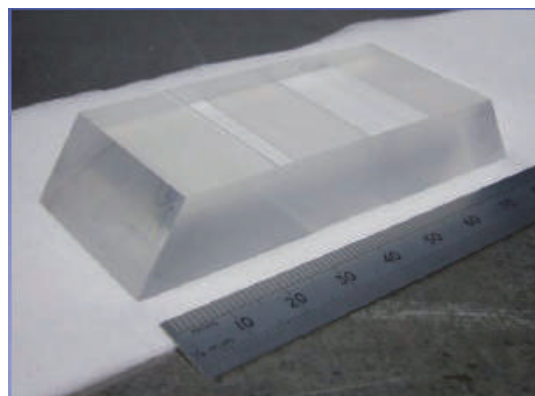


図3 ZiZa-AM Yb:YAG 材料

低温冷却 Yb:YAG の TRAM レーザーは、非常に良い結果を残した。2008 年の夏には最大出力 273 W、スロープ効率 72%を達成した。200 W 以上のレーザーでは当時世界最大効率であった。その成果は 2009 年の ASSP、CLEO、CLEO-Europe、レーザー学会、応用物理学会等で報告させて頂いた。特に CLEO に投稿した論文はレーザー開発分野で最高得点をマークした。

TRAM レーザーが世界的に注目され始めた頃、すかさず 3 つの TRAM を一体化させた ZiZa-AM (ZigZag Active-Mirror) という新しい材料構造を試作・考案、特許出願した。液体窒素で直接冷却するため、レーザー材料の設置が困難であったが、何とかレーザー試験を実現した。ZiZa-AM レーザーではほとんど熱による悪影響が見られず、出力 200 W 以上を達成できた。そして得られた成果を ASSP2010 で報告した。より高出力の励起光源を準備できれば、キロワット出力は容易に実現できる。井澤靖和所長

や藤田雅之主席研究員、ハイクコスロビアン副主任研究員、櫻井俊光研究員が新たにチームに加わり、TRAM、ZiZa-AM の増幅実験、波面測定等から、コヒーレントビーム結合まで光源開発の幅を広げ、現在は 100 kW レーザーの概念設計まで完了した。今後は熱計算を中心に行い、大出力レーザー開発への発展を試みる予定である。

上記光源開発の目的は産業用途であると同時に、低温冷却 Yb:YAG TRAM レーザーの高平均出力化実証でもある。筆者の所属する ILE 河仲グループは核融合炉用ドライバーの開発を主目的としており、現在そのマイルストーンとして 1 kJ、100 Hz の GENBU (Generation of ENergetic Beam Ultimate) レーザー開発が掲げられている。その前置増幅部には低温冷却 Yb:YAG の TRAM 方式が導入されることになり、筆者は CW 光源開発と並行して高エネルギーのチャープパルス増幅器の開発にも携わってきた。

2008 年度から 2009 年度にかけて、最初に行ったのは超短パルスモードロック Yb ファイバー発振器

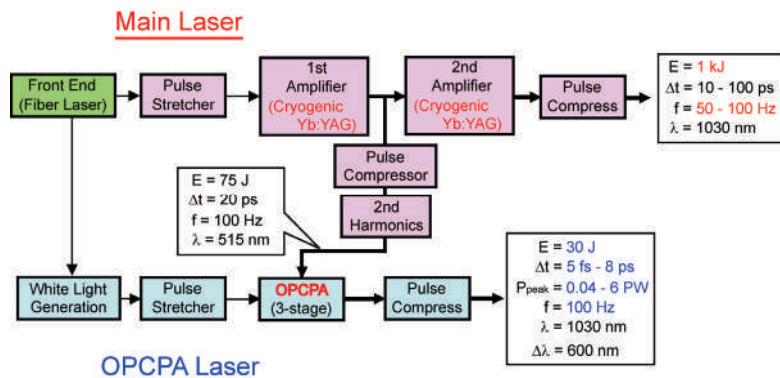


図4 GENBU レーザーの構成図

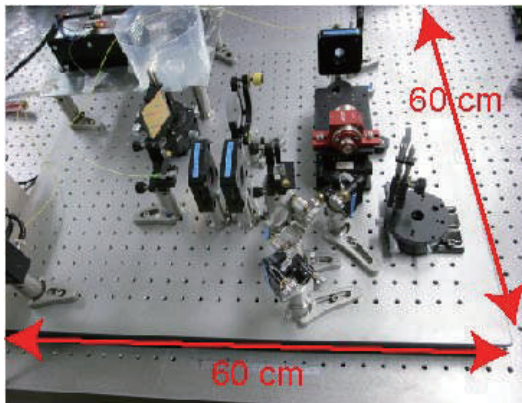


図 5 Yb ファイバーモードロック発振器

の開発であった。GENBU レーザーの主発振器である。当時 Yb ファイバーによる多くのモードロック発振器に関する報告があり、産総研からファイバーで世界最短パルスである 28 fs が達成されていた。当時修士 1 年であった安野裕介君（現三菱原子燃料）と開発を始め、まずは CW 動作確認から行った。必要な物品の準備や、開発の際にはファイバーレーザー開発実績のある ILE 吉田英次技術専門職員にご協力を頂き、前半はスムーズに研究が進んだ。2008 年 4 月から物品準備を始め、夏の応物では CW 発振の出力特性や、温度変調によるスペクトル制御に関して報告を行った。さらに 11 月にはモードロック発振を観測し、様々なデータを取得した。しかし、なかなか 1 ps 以下にパルス圧縮できなかつたのである。共振器内部の分散補償量を調整したり、励起パワーを調整したり、ファイバーの温度変調も試みた。結局、非線形相互作用長となるファイバー長が長すぎることが原因と発覚し、不要なファイバーをカットしたのである。2009 年 10 月によく 50 fs までパルス圧縮できるようになり、GENBU の主発振器として導入を開始した。この発振器は現在もセルフスタート、出力安定で動作している。

2010 年 4 月からは増幅部の重要な箇所を任せて頂くことになった。パルス伸張器、前置増幅部等のフロントエンド部を博士後期課程の竹内君（前述）

が開発し、2 mJ の出力を達成していた。筆者はこれを 1 J まで増幅する必要がある。当時修士 1 年生であった中西拓也君（現経産省）が準備した増幅部のクライオスタットの組立て作業を行い、TRAM 2 個を用いた増幅実験を試みた。また 2010 年 10 月からはフランス LULI (Laboratoire d'Utilisation des Lasers Intenses) より Daniel Albach 博士が共同研究員として半年間滞在し、共に主増幅部の実験を行った。

現在所有している TRAM は Yb 添加濃度が高く、寄生発振が最も大きな問題となっている。これを克服する新しいレーザー材料を設計し、高出力増幅を試みている。今夏中に 1 J 出力を達成する予定で研究を進めている。

発表論文

- 1) H. Furuse, J. Kawanaka, K. Takeshita, N. Miyanaga, T. Saiki, K. Imasaki, M. Fujita and S. Ishii, "Total-reflection active-mirror laser with cryogenic Yb:YAG ceramics," *Optics Letters*, **34**, 3439 (2009).
- 2) H. Furuse, J. Kawanaka, N. Miyanaga, T. Saiki, K. Imasaki, M. Fujita, K. Takeshita, S. Ishii and Y. Izawa, "Zig-zag active-mirror laser with cryogenic Yb³⁺:YAG /YAG composite ceramics", *Optics Express* **19**, 2448 (2011).
- 3) T. Kurita, H. Yoshida, H. Furuse, T. Kawashima and N. Miyanaga, "Dispersion compensation in an Yb-doped fiber oscillator for generating transform-limited, wing-free pulses", *Optics Express* **19**, 25199 (2011).
- 4) J. Kawanaka, Y. Takeuchi, H. Furuse, T. Nakanishi, A. Yoshida, T. Norimatsu, T. Kawashima and H. Kan, "Total-reflection active-mirror amplifier for high pulse energy and high average power by using a composite ceramics", *Optical Materials*, **34**, 977 (2012).

Research and Development Frontiers of High Power Lasers: Coherent Beam Combining (CBC)

Laser Process Research Team

Haik Chosrowjan

Though I am working at ILT since 1996, I have joined the high power laser development team only recently – about two years ago. Generally, high average and peak power lasers are increasingly required for many applications. However, in many specific cases like in material processing, inertial fusion, as a neutron source or in space applications, not only the output power but the obtained high radiance (brightness) and/or far-field, on-axis intensity of the beam are essential. Unfortunately, as we all know it well, lasers cannot be scaled to arbitrarily high power while maintaining their beam quality simply by supplying them with more pump power. Equally, they cannot be focused to arbitrarily small size. Hence, various concepts have been developed to circumvent the power/brightness scaling limitations. To obtain ultra-high intensities from multi-kilowatt class laser systems, *beam combining* concept emerged as one of the viable choices. Coherent beam combining (CBC) (coherent addition of multiple laser beams) is a relatively new research direction in beam control/laser physics field. To understand the importance of laser beam combining (BC) in simplified terms, an analogy between laser BC and parallel computing seems to be appropriate. When the speed or capacity of one computer is not enough for solving a given problem, N computers are used in parallel configuration to reduce the workload of a single unit. Similarly, when a given laser source does not deliver sufficient power and/or brightness for a given application, N number of similar laser beams are combined to achieve the required power and/or brightness level of the given application. There are different BC types (coherent, incoherent, filled aperture, tiled aperture, etc.). For far-field, on axis applications,

however, tiled-aperture CBC is better suited, because in contrast to other beam combining techniques, in this case the central lobe intensity I is proportional to the $\sim N^2$, where N is the number of combining beams (Fig. 1). The most difficult part of successful CBC is the need to control and lock the phases of individual beams. Many implementations of CBC exist, but most of them have limitations on single beam power, number of beam channels, material damage threshold, etc. We had set a goal toward scaling peak and average brightness beyond the limitations of any single source technology – develop a method for coherent combination of multiple kilowatt class laser beams in parallel (tiled-aperture design) using a simple, effective approach without complicated phase retrieval algorithms and control electronics.

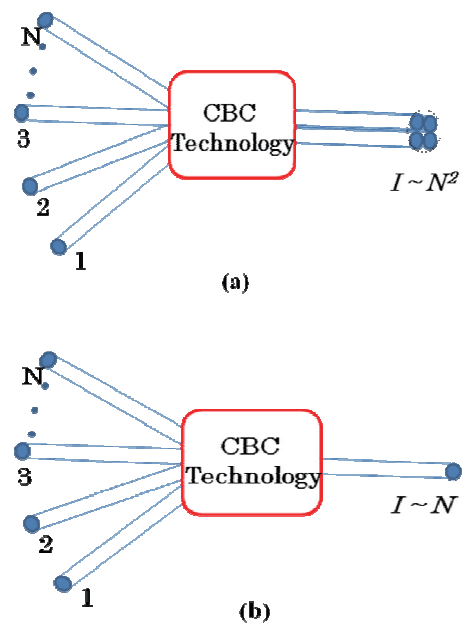


Fig. 1 Comparison between (a) tiled- vs. (b) filled-aperture near field output designs in N channel CBC system, and corresponding far-field on axis intensity I dependence on beam number N

Week after week I was drawing and offering strategies for CBC, but all my efforts were in vain – the ideas I thought and came with were either done, unrealistic or physically wrong.

Back in 2010 I was often talking about CBC problem with my colleague Dr. Oleg Kotyaev, who is an excellent specialist of remote control non-destructive laser diagnostics. I was always impressed by video demonstrations of phase stabilization techniques he use in his research. And one day, during our regular laboratory meetings an idea came – why not expand the phase stabilization technique in remote sensing (usually applied for single laser beam phase stabilization) to a case of many beams and control/lock the phases of individual beams by a simple analogue negative-feedback technique? Several rounds of discussions with Prof. Izawa, Prof. Miyanaga (ILE) followed, and finally a new technique called



Fig. 2 A snapshot of the CBC apparatus layout

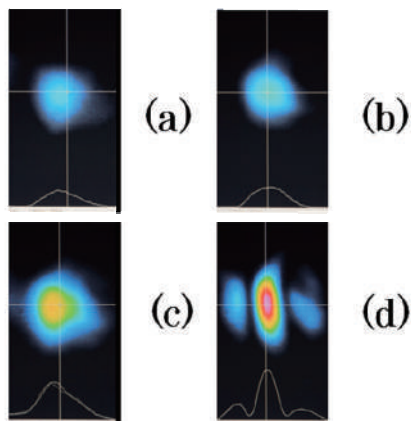


Fig. 3 Far field images of single beams (a) and (b), and their incoherent (c) and coherent ($\phi \sim 0$) (d) combinations

interferometric phase shift compensation method emerged (Fig. 2).

The reference beam in the new technique is not frequency shifted and it does not require explicit knowledge of the optical phase (phase retrieval algorithms are obsolete), hence is quite simple in implementation.

Recently we experimentally demonstrated, as a proof of principle, this novel concept for applications in high power multichannel laser amplifier systems with tiled aperture design.

Using a photodiode pair coupled piezo-actuator mirrors we demonstrated robust beam locking bandwidth (~ 1 kHz) and accuracy ($\sim \lambda/25$) for two beam channels (Fig. 3). We estimate that the performance of the technique can be further enhanced in terms of operation bandwidth and rms ($\sim \lambda/100$) phase locking accuracy if diffraction limited optical components are used. This technique is not limited by single beam power or channel number restrictions, can be integrated into various MOPA architectures and perform with high speed and accuracy. In our future works, we plan to apply this CBC technique to cryogenic Yb:YAG total reflection active mirror (TRAM) amplifiers also under the development at ILT and investigate its performance potential in more detail.

We have started investigations on CBC using four channel amplified beams. Other CBC concepts are also under the consideration at our institute. For instance, the viability of a concept using only a single diode detector for all beam channels is under investigation, etc.

In conclusion, I would like to note that various BC methods and techniques are becoming a new trend in high power solid state laser physics. I expect more breakthroughs in this area in terms of new laser sources based on BC concepts with record brightness and high-/average power generation, and I will do my best to keep the activities in ILT at the forefront of these developments.

新レーザー材料と小型レーザー装置開発

レーザー技術開発室

本越伸二

レーザー装置の大きな課題の一つに低コスト化が挙げられている。様々な分野で、レーザー使うといえるものができるが、高価だから使えない等の話を耳にする。当然、レーザーの応用範囲は付加価値の高いものに限定される。レーザー装置が安くなれば、もっといろんな所に使用できる。

2007年、有限会社オプトエレクトロニクスラボラトリー社から、マイクロチップ固体レーザーの製造、販売を開始した。これは、中塚正大副所長、佐伯拓研究員（現、関西大学准教授）の尽力による。当時、半導体レーザー励起小型レーザー装置は、市販されていたが、1W程度の出力でも、数十万円していたと記憶している。これは、半導体レーザーの価格に加え、電源、温度制御器など比較的精度の高いものを使用していたためである。もっとシンプルに、もっと安価にできないか、を命題に試行錯誤し出来上がったのが上記マイクロチップレーザー装置である。多少手作り感があることは否めないが、レーザー総研から、ベンチャー企業を通して世に出た第1号の製品であった。

この研究の淵源は2001年にまで遡る。その頃はまだレーザーウラン濃縮用高平均出力レーザーの開発研究を行っていた。5kHzの繰返しパルスに対して、100Wのグリーン光を出力していたが、AOQスイッチ、マルチモード発振とビーム特性が良くなかった。短パルス化、ビーム品質の改善を目的に、シード光となるマイクロチップレーザー装置の開発を行った。実験は本越が担当し、理論計算には椿本孝治助手（阪大レーザー研、現助教）にお願いし進めた。このビーム品質の改善は確認できたが、短パルス化については、ASE光を完全に抑えこむことができず受託期間が終了。

その結果を下に製品化されたマイクロチップレー

ザー装置ではあるが、ファイバ結合型半導体レーザーや、ファイバレーザーで、同等以上の性能が得られるようになったので、今では開発に培った知識と技術のみが残るものとなってしまった。

低コスト化でもう一つ重要な要素は、レーザー材料の開発。半導体レーザーが安価になってきたとは言え、未だに低繰返しではフラッシュランプ励起が使用されている。Nd:YAGレーザー材料に対するフラッシュランプ光による励起効率は3%程度。その原因は、広い発光帯域を持つフラッシュランプに対して、Ndイオンの吸収波長は限られていることにある。その解の1つが、太陽光励起レーザー開発（別掲）で進められているCrイオンの共添加であり、透光性セラミック技術である。

Nd/Cr:YAGセラミックス材料自身は、既に、太陽光励起レーザーの実験で使用されていたが、高効率動作に必要なNdとCrの最適濃度については、判っていなかった。様々な濃度に対してセラミックスを製作し測定するには、コストが掛かりすぎるためである。それを独自でセラミック焼結前の粉体状態で評価することを始めた。これには、阪大レーザー研の藤岡加奈研究員（レーザー技術推進センター）に多大な時間と労力をお借りすることになった。お願いついでに、より高効率動作を可能にするCr以外の共添加イオンについて検討を依頼した。様々な添加

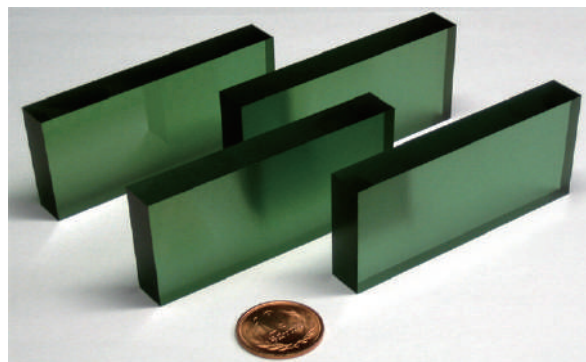


図1 Nd/Cr:YAGセラミック材料(神島化学工業)

イオンに対する蛍光、吸収の文献調査から始まり、試作粉体の製作と評価と、約1年掛かって、Ce イオンが青—紫外域の増感剤となり、Nd、Cr を合わせることで、より高効率期待できる結果を得た。その後、Ce 添加濃度の最適化など、更に苦労を重ねたが、藤岡研究員の材料に関する地道な研究は、2011年1月学位取得へと結実した。

Nd/Cr:YAG セラミック材料に話を戻そう。ここ数年、様々な企業、研究機関で太陽光励起レーザーに関する研究が開始された。ここで問題となるのが、Nd/Cr:YAG セラミック材料の正味の物性値である。Cr イオンによる励起光の吸収は増加する。しかし、その吸収されたエネルギーがどのように Nd イオンに移るのか、またどれくらいのエネルギーが移るのかが、十分に理解されていないまま利用が進んでいる。レーザー総研でも、理論と合わないことが多々出てきた。そのため、もう一度、物性特性、光学特性の評価を行うようになった。折しも、近畿大学吉田実准教授（現教授）の研究室から修士の本田能之君（現大阪大学大学院後期課程1年）を迎え、実験を担当してくれるようになった。異なったイオン間のエネルギー移乗を理解するためには、それぞれのエネルギー準位を明らかにする必要がある。エネルギー準位の決めるためには、吸収スペクトル、蛍光スペクトルが必要だが、これまで室温でしか評価されていなかった。室温では、材料のエネルギー準位は既に縮退を生じ、スペクトルの広がりを持つ。そのため、低温の吸収スペクトル、蛍光スペクトルを



図2 種々の添加元素を加えた YAG 粉体材料

評価することが要求され、低温を測るなら、一層のこと高温までの温度依存性を評価しようと、彼の研究テーマが決まった。蛍光分光装置、分光光度計は既にある。評価用材料には、これまで使用した Nd/Cr:YAG セラミックスや、藤岡研究員の試作がある。試料の温度制御には、藤本靖助教（現、阪大レーザー研講師）が大事にしていたクライオスタットを借りることができた。準備万端、後は測るだけと思ったが、そうは行かなかった。最も大きな問題は、試料設置の僅かなずれで、蛍光強度が異なること。このままでは異なった材料間の違いが確認できないことがわかった。測定と解析を繰返す中、幸運にも、Nd イオンの吸収スペクトル、蛍光スペクトルは、Nd:YAG でも、Nd/Cr:YAG でも変わらない。また、Nd イオンのエネルギー準位は、温度に対して鈍感であることが判り、Nd のスペクトルで規格化できるようになった。この結果、多くの新しい知見が得られ、一気にエネルギー移乗の理解が深まった。本田は、後期課程になってもこのテーマを続けてくれているので、更に理解が深まるだけでなく、Nd/Cr:YAG 以外のレーザー材料に対するエネルギー遷移過程の解明に繋げていくことを期待したい。

レーザー材料が作れるようになったので、新しい材料に挑戦しようと始めたのが、Ce:YAG 材料。Ce:YAG 材料自身は、シンチレータや、白色 LED に応用されているので、それほど新しくはない。しかし、青色 400nm 帯に大きな吸収をもち、500~650nm に掛けて広い発光域を持つので、レーザー動作が可能になれば面白い。また、先述の Nd/Cr:YAG 材料の増感材として、Ce 添加は既に実験しているので透明

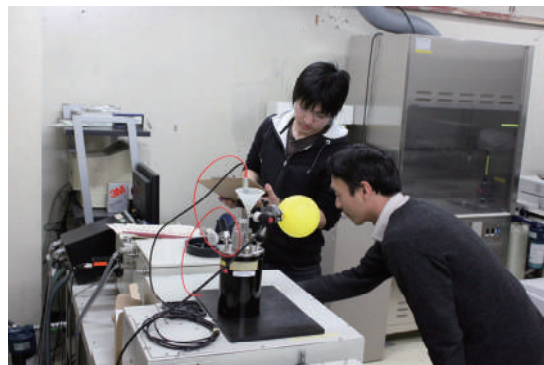


図3 蛍光特性測定の様子
（手前：本越、奥：本田）

セラミックス化まで出来そうである。

まず、藤岡研究員が残っていた Ce:YAG 粉体をセラミックスに固めてくれた。レーザー動作の可能性だけと、佐伯研究員がフラッシュランプを用いて発振実験を行ってくれた。「発振した!!」と俄然盛り上がり、では本格的に研究しようと学生を一人付けることにした。タイミングよく入ってきてくれたのが、近畿大学吉田研究室の多田尚史君（大阪大学大学院前期課程を経て、現在東ソー株式会社）。蛍光特性などデータを取得しながら、過去の文献調査などを行ってくれた。レーザー動作に対して黄色信号が出てきた。1 つは、極端に短い蛍光寿命。一般的な Nd:YAG 材料の蛍光寿命は約 230 μ s として知られている。Ce:YAG 材料の蛍光寿命は約 100ns であった。逆に、蛍光スペクトルから算出された誘導放出断面積は、Nd:YAG の約 10 倍であることが判った。共振器間隔を短くし、短時間で発振までビルドアップできれば、まだ可能性がある。もう 1 つの問題。Ce:YAG 材料の蛍光上準位からの吸収（励起状態吸収、ESA: Excited State Absorption）の存在である。つまり、折角青色光で励起を行っても、蛍光を自身でもう一度吸収してしまい、共振器においては大きな損失となる。事実、発振実験を行っても、強い蛍光は確認できるが、レーザー発振は確認できなかった。では、この ESA を詳しく調べようと、スペクトル、寿命、吸収係数などの計測に取りかかった。過去の論文では、励起エネルギー準位から、YAG 自身の伝導帯準位に再吸収されるとの記載もあった。しかし、ESA スペクトルから考えると、Ce イオンの上準位への再吸収の可能性が大きいことが判った。であれば、結晶場を変えることにより、蛍光スペクトルと ESA スペクトルを分離し、レーザー発振が可能な波長があるはず・・・と、ここで多田が卒業、現在に至る。お楽しみは、次の 5 年に持ち越しになった。

セラミックレーザー材料は、日本発のレーザー材料技術である。これまで、池末明生氏（ワールドラ

ボ）、柳谷高公氏（神島化学工業）を始め、多くの研究者や技術者の手によって、実用可能な高品質のものに仕上げられた。ファイバレーザーの高出力化、半導体レーザーの直接利用など、これまでの固体レーザー装置からの置き換えも進み、安価なレーザー結晶材料も入手可能になってきている中、大型化だけではセラミックレーザー材料の優位性を出すことは難しくなっている。先述の Nd/Cr:YAG 材料のように、セラミック材料でしかできないものを探求することが必要と思われる。現在、ディスオーダード（無秩序な）結晶のセラミックス化を進めている。光学品質を維持しながら、単結晶以上の乱れを生じることにより、セラミック材料の新しい可能性を検証していきたい。

発表論文（主要）

- 1) K. Fujioka, T. Saiki, S. Motokoshi, Y. Fujimoto, H. Fujita and M. Nakatsuka, *J. of Luminescence*, **130**, 455 (2010).
- 2) 藤岡加奈、佐伯拓、本越伸二、藤本靖、中塚正大、“ゾルゲル製作粉体によるドーパ YAG セラミックスの蛍光特性評価”、レーザー研究、**35**, 393 (2007).
- 3) 藤岡加奈、中塚正大、佐伯拓、本越伸二、今崎一夫、藤本靖、藤田尚徳、“太陽光励起レーザー用 Ce/Cr/Nd:YAG 材料の蛍光特性評価”、レーザー研究、**38**, 207 (2010).
- 4) 多田尚史、本越伸二、本田能之、實野孝久、藤岡加奈、吉田実、“Cr:YAG セラミックスにおける光学特性の温度依存性”、レーザー研究、**38**, 382 (2010).
- 5) Y. Honda, M. Yoshida, S. Motokoshi, K. Fujioka, T. Jitsuno and M. Nakatsuka, “Temperature Dependences of Fluorescence Characteristic for Nd/Cr:YAG Materials”, *Proc. of Laser Damage Symposium 2011*, SPIE, **8190**, 66 (2012).

テラヘルツミス・パーセル放射源研究

レーザーエネルギー研究チーム

李 大治

2004年、アメリカ Vanderbilt 大学の C. Brau 教授が、新型ミス・パーセル放射源の提案を報告した。この提案は、従来のミス・パーセル放射源と異なり、共振器を使わずコヒーレント放射が起きることで、小型、高出力、波長可変のテラヘルツ放射が可能であることを示している。Brau 教授の理論解析では、電子ビームが金属グレーティングの表面に存在する表面電磁波と相互作用し、電子ビームを集群させることでコヒーレント放射を得る。しかし、従来のミス・パーセル放射に関する実験では、表面電磁波が観測されたことはない。理論的に予言された表面電磁波は本当に存在するか、そして、新型ミス・パーセル放射源は実現可能かを明らかにするため、この研究を開始した。

まず、particle-in-cell シミュレーションの手法を利用し、二次元と三次元の解析研究を詳しく展開した。2006年、シミュレーション解析により、表面電磁波が存在すること明らかにした。そして、表面電磁波と電子ビームとの相互作用の根拠も発見された。閾値電流を超えると、相互作用の増大により電子ビームが集群され、コヒーレントミス・パーセル放射が起き、一定の角度で放出される。この成果は Physics Review PRST-AB と Applied Physics Letters に発表した。また、同年ベルリンで開催された国際自

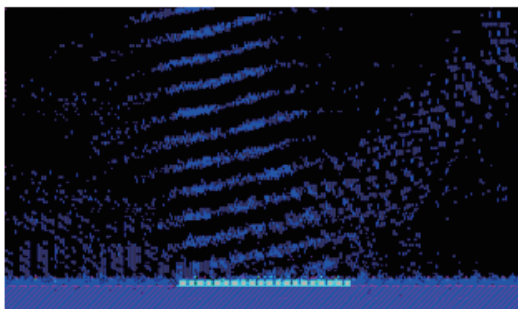


図1 集群された電子ビームによりコヒーレントミス・パーセル放射図案

由電子レーザー学会に図1に示すようなコヒーレントミス・パーセル放射図案を初めて発表した。我々の particle-in-cell シミュレーションの結果は、Brau 教授の表面電磁波の予言を支持するものであった。その学会で Brau 教授本人に会い、新型ミス・パーセル放射源の研究開発について意見交換を行った。それにより、電子ビームと表面電磁波との相互作用効率を改善する研究課題が洗い出せた。

2007年、側壁グレーティングの提案を Applied Physics Letters に発表した。図2に示した側壁グレーティングでは、表面電磁波が横の方向に拘束されることで、相互作用効率を高めることが出来た。2009年、Vermont Photonics 社に於ける新型ミス・パーセル放射実験ではこの提案を採用し、テラヘルツ領域の表面電磁波を初めて観測した。残念ながら、この実験は電子ビーム電流が低いため発振出来ず、コヒーレント放射が得られなかった。また、理論解析とシミュレーションの手法で表面電磁波を詳しく調べ、ブラッグ反射機構付きグレーティングのアイデアを Applied Physics Letters に発表した。図3に示すように、表面電磁波の波長に依存する反射構造を

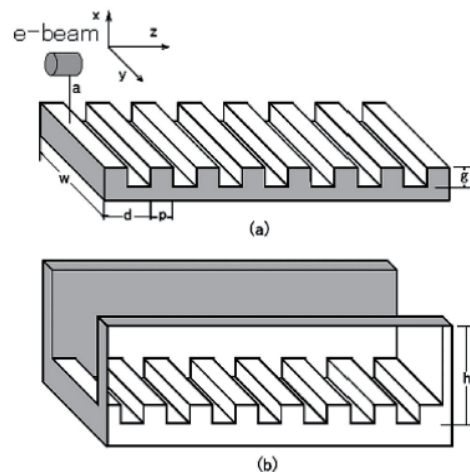


図2 通常の平板グレーティング(a)と、効率を改善できる側壁グレーティング(b)

置くことで、反射率は0.3から0.8以上になり、電子ビームと表面電磁波との相互作用効率が改善することができる。

2010年、阪大レーザー研の萩行正憲教授から負の屈折率メタ材料を紹介して頂いた。通常物質では屈折率は正であり、その中を伝播する電磁波は電場、磁場、波数ベクトル（伝播方向）の方向が右手系の関係になるため右手系物質と呼ばれる。しかし、誘電率と透磁率が共に負の物質は負の屈折率を有し、その中では電場、磁場、波数ベクトルの方向が左手系の関係を持つため、左手系物質と呼ばれる。このような系は全く新しい光学材料として機能する可能性を秘め、逆ドップラー効果や逆チェレンコフ放射等の特異な電磁波現象が予想される。新型スミス・パーセル放射源に、この新たに登場したメタ材料を導入し、従来の限界を打ち破る新型光源（特にテラヘルツ放射源）のアイデアを考えた。負の屈折率を持つグレーティングを用いたスミス・パーセル放射源のメリットを2011年の自由電子レーザー国際会議で報告した。

新型スミス・パーセル放射源の理論研究は、2004年から多数報告されているが、理論解析結果とparticle-in-cellシミュレーション結果とは一致していない。よく調べると、それらの理論の中、電子ビームと電磁波との相互作用について誤解があることがわかった。この意見を阪大レーザー研の萩行正憲教授と大阪産業大学の網脇恵章教授と交換し、2010年から新理論を作るために、具体的な研究を開始し、2012年に、新理論がApplied Physics Lettersに掲載された。この新理論は、電子ビームと周期構造体との相互作用メカニズムを詳しく表し、スミス・パーセル放射デバイスだけでなく、進行波管と後進波管などの領域にも適用できる。

2006年以来、新型スミス・パーセル放射源の研究が世界に注目され、アメリカ、フランス、インド、中国、韓国などで、理論解析、シミュレーション、実験が行われている。日本では我々が、学会や研究会などで新型スミス・パーセル放射源を提案するとともに、国際的な研究動向を紹介してきた。兵庫県立大の宮本修治教授、関西大学の浅川誠教授、阪大

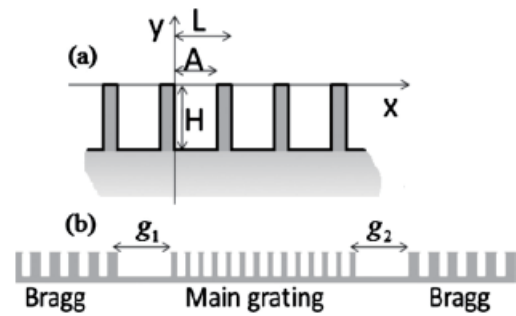


図3 通常のグレーティング(a)と、効率を改善できるブラッグ反射機構付のグレーティング(b)

産研の小方教授の研究チームは、スミス・パーセル放射実験を計画している。今後、テラヘルツスミス・パーセル放射デバイスを実現するため、全力で取り組んでいく所存である。

発表論文

- 1) D. Li, M. Hangyo, Y. Tsunawaki, Z. Yang, Y. Wei, S. Miyamoto, M. R. Asakawa and K. Imasaki, "Theoretical analysis of Smith-Purcell free-electron laser", Free-electron lasers, ISBN:978-953-51-0279-3, 151 (2012).
- 2) D. Li, M. Hangyo, Y. Tsunawaki, Z. Yang, Y. Wei, S. Miyamoto, M. R. Asakawa and K. Imasaki, "Super-radiant Smith-Purcell radiation from periodic line charges", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A **674**, 20 (2012).
- 3) D. Li, Z. Yang, Y. Tsunawaki, M. R. Asakawa, M. Hangyo, S. Miyamoto and K. Imasaki, "Improve growth rate of Smith-Purcell free-electron laser by Bragg reflector", Applied Physics Letters **98**, 211503 (2011).
- 4) D. Li, M. Hangyo, Z. Yang, M. R. Asakawa, S. Miyamoto, Y. Tsunawaki, K. Takano and K. Imasaki, "Smith-Purcell radiation from a grating of negative-index material", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A **637**, 135 (2011).
- 5) D. Li, Z. Shi, Z. Yang, M. R. Asakawa, G. Huo, Y. Tsunawaki and K. Imasaki, "Output of super-radiant

- Smith-Purcell radiation: A theoretical analysis”, *J. Infrared Milli Terahz Waves*, **31**, 1271 (2010).
- 6) D. Li, K. Imasaki, M. Asakawa and Y. Tsunawaki, “Nonlinear analysis of Cherenkov free-electron laser with double-slab structure”, *Infrared Physics & Technology*, **53**, 204(2010).
- 7) D. Li, G. Huo, K. Imasaki and M. Asakawa, “Gain of double-slab Cherenkov free-electron laser”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, **A 606**, 689 (2009).
- 8) D. Li, K. Imasaki and M. Asakawa, “Analysis on the gain of a compact Cherenkov free-electron laser”, *Proceedings of FEL2009*, 398 (2009).
- 9) D. Li, K. Imasaki, X. Gao, J. Hou and Z. Yang, “Improvement of grating for Smith-Purcell device”, *Terahertz Science and Technology*, **1**, 221 (2008).
- 10) D. Li, K. Imasaki, Z. Yang and Gun-Sik Park, “Smith-Purcell free-electron laser with sidewall grating”, *Proceedings of FEL08*, 432 (2008).
- 11) D. Li, K. Imasaki, W. Liu, G. Huo, M. Asakawa and Gun-Sik Park, “Terahertz Cherenkov free-electron laser”, *Proceedings of FEL08*, 157 (2008).
- 12) D. Li, K. Imasaki, Z. Yang, Gun-Sik Park, S. Miyamoto, S. Amano and T. Mochizuki, “Effect of grating surface loss on the Smith-Purcell free-electron laser”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, **572**, 948 (2007).
- 13) D. Li, K. Imasaki, Z. Yang, Gun-Sik Park, S. Miyamoto, S. Amano and T. Mochizuki, “Smith-Purcell radiation with three-dimensional simulation”, *Japanese Journal of Applied Physics*, **46**, 601 (2007).
- 14) D. Li, K. Imasaki, X. Gao, Z. Yang and Gun-Sik Park, “Reduce the start current of Smith-Purcell backward wave oscillator by sidewall grating”, *Applied Physics Letters*, **91**, 221506 (2007).
- 15) D. Li, Z. Yang, K. Imasaki and Gun-Sik Park, “Particle-in-cell simulation of coherent and superradiant Smith-Purcell radiation”, *Physical Review Special Topics - Accelerators and Beams*, **9**, 040701 (2006).
- 16) D. Li, K. Imasaki, Z. Yang and Gun-Sik Park, “Three-dimensional simulation of super-radiant Smith-Purcell radiation”, *Applied Physics Letters*, **88**, 201501 (2006).
- 17) D. Li, K. Imasaki, Z. Yang and Gun-Sik Park, “Absolute and convective instability of Smith-Purcell free-electron laser”, *Proceedings of FEL 2006*, 431 (2006).
- 18) D. Li, K. Imasaki, Z. Yang and Gun-Sik Park, “Study on superradiant Smith-Purcell radiation”, *Proceedings of FEL 2006*, 439 (2006).
- 19) D. Li and K. Imasaki, “Free-electron laser with Bessel beam cavity”, *Proceedings of the 27th International Free Electron Laser Conference*, 336 (2005).
- 20) D. Li, K. Imasaki, Ziqiang Yang and Gun-Sik Park, “Particle-in-cell simulation on grating radiation”, *Proceedings of the 27th International Free Electron Laser Conference*, 309 (2005).

レーザー開発と見習い研究員

レーザープロセス研究チーム

櫻井俊光

学生時代は、北海道大学低温科学研究所にて、極地氷床コアに含まれる微粒子の化学組成解析と、氷多結晶内における微粒子の存在状態に関する研究を行ってきた。極地氷床コアは、過去数十万年間の大気情報が保存されており、過去の地球環境変動は、将来の地球環境を予測する上で欠かせない情報である。氷床コア中の微粒子は、水溶性のものが多く含まれており、これまでの分析方法は、氷を融かすと微粒子の化学組成の情報を失う欠点があった。そこで、氷を融かさずに、レーザー顕微ラマン分光法を利用して、水溶性微粒子の化学組成解析を行った。四半世紀もの間、推測に留まっていたことも、レーザーを利用することで、新しい事実がいくつも明らかになった。たとえば図1は、空気包接水和物に付着した硫酸塩微粒子の写真とラマンスペクトルを示している。硫酸イオン (SO_4^{2-}) は、氷結晶粒界に濡れて存在していると考えられてきたが、固体の塩微粒子あるいは液滴として氷内や界面に存在していることが明らかになった。レーザーの持つ可能性を知った瞬間である。しかし、これまで利用してきた顕微ラマン分光法は、連続発振のレーザーで、それに限界も感じていた。

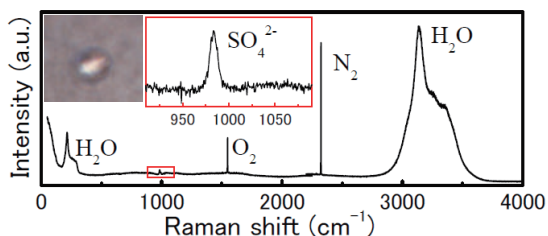


図1 硫酸塩微粒子 ($\phi 10\mu\text{m}$) の顕微鏡写真と、氷床コアに含まれる空気包接水和物の表面における硫酸塩 (SO_4^{2-}) と空気包接水和物 (N_2 , O_2) のラマンスペクトル

以来、私は常々レーザーを利用した新しい分析手法がないものか、またレーザーの可能性を深く追究したいと考えるようになっていた。2010年夏に、大阪大学理学研究科・谷篤史助教よりレーザー総研を紹介していただいた。レーザー開発と氷などの応用研究に関する新しい展開を希望して、2010年12月より、レーザー総研で研究を始めることとなった。

着任してすぐに、Yb:YAG材料を用いたTRAM (Total Reflection Active Mirror) レーザー開発をすることになった。これまでの氷の研究から離れ、全く知らない世界が広がっていた。不安はあったが、興味が先行していた。私自身がレーザーに関して如何に未熟であるか思い知らされることが多く、先輩・古瀬裕章研究員に教えてもらわなければ一人では何もできない「見習い研究員」であった。これは修行である、と心に決めた。研究者は、自立した研究が求められる。それは理解しているが、先輩研究員等と同じ研究をすることは、自立した研究とは言えないし、芸がない。自分にできることは何か。これを探すこと一年が経った、2011年12月。阪大レーザー研・河仲準二准教授から、有限要素法を利用したレーザー媒質の熱計算をしてみないか、と言われたことがきっかけであった。これまでは氷屋であり、着任以来はレーザーの実験屋であった。経験がなくてもできないことはない。一年間の修行が、そう私を後押ししていた。

有限要素法の計算は、境界条件を決めて、コンピュータに計算させれば、計算結果は出る。しかし、パラメータが多い。形状は実験装置と全く同じで良いか？メッシュ数は？計算する領域は？発熱量の与え方は？液体窒素の流速は？・・・。

適当に与えて計算すれば結果は出るが、内容をどう判断して良いか全く解らない。井澤所長をは

はじめ、河仲准教授、古瀬研究員等と相談して、計算結果と実験結果を合わせる方法で評価しようと判断した。ここで、一年間の修行も役に立った。

形状は、実験装置と全く同じにしていたが、液体窒素を流す必要があり、乱流が発生するなど、液体窒素タンクは実験で利用しているものと全く同じ形状では問題があることが解った。メッシュ数は、知りたい情報によって変更すれば良く、まずは百万メッシュ程度とした。計算する領域によっても、メッシュ数が変わるため、TRAMと液体窒素の部分だけに着目した領域のモデルにした。計算では外部との接触は断熱とした。実験でもTRAMに霜が付着しないように数パスカル程度の真空であるため、ちょうど良かった。発熱を与える体積は一様発熱にしていたが、深さ方向に発熱量が減衰するようにした。奮闘の末、以上のパラメータは、計算結果に大きな影響はないことが解った。それよりも問題は、液体窒素の流速であった。実験の液体窒素は、タンクに溜め、Yb:YAGに接触しているだけであり、励起していないときは、液体窒素の流れはない。実際の材料温度はYb:YAGの蛍光スペクトル比から算出している。この温度と有限要素法の計算で得られる温度を同程度になるように、液体窒素の流速を0.01 m/sから10 m/sまで与えた。結果、流速3 m/sで、励起レーザー照射強度0.1 kW/cm²におけるYb:YAGの実験温度と概ね一致した。この流速で、有限要素法で得られた結果を評価することにした。あとは、励起強度の変化に伴う発熱量を与えて、励起スポット径を変えて計算した。

熱解析の主な解析項目である、波面歪の評価も大変であった。光線追跡を容易にこなせるようなシミュレーションの経験はない。実験屋でも簡易的ではあるが、計算できる方法はないか模索した。井澤所長とハイク・コスロービアン研究員と良く相談し、波面歪は、温度に依存した屈折率変化と線膨張係数を考慮した光路長差から算出できることが解った。ただし、Yb:YAGの変形の効果は考慮していない。方法は、シミュレーションではなく手計算である。図2に、光路長差から求める熱

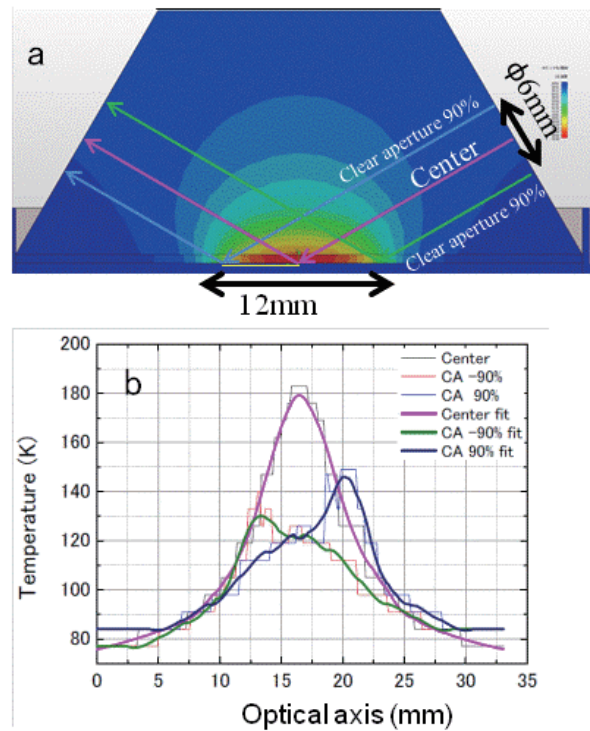


図2 光路差の算出方法

- a. 中心と両側 Clear aperture90%の光路
- b. 各光路における温度分布

レンズ焦点距離に利用したものを示す。中心とClear aperture 90%における光路長を求めてその差を算出する。この方法は地味ではあるが、確実であった。Peak to Valleyと熱レンズ焦点距離を定性的ではあるが、評価できるところまで昇華し、2012年3月の応用物理学会で発表するまでに至った。三ヶ月間の格闘であった。

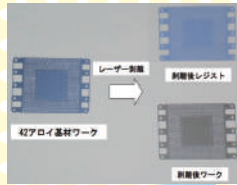
周りの皆様のお陰で、ここまで進めることができた。ご指導とご鞭撻を賜りました皆様に、改めて篤く御礼を申し上げたい。熱計算については、まだまだ内容として不十分と考えているため、周りの皆様と共に、協力させていただきながら、今後さらに進めたいと考えている。

着任してから一年半、レーザーについて少しずつではあるが、着実に会得している。しかし、まだまだ勉強が足りないを実感もしている。今後も、レーザー開発・応用と氷を得物にした、私にしかできない、私だからこそできる自立した研究を目指し邁進したい。

レーザープロセス

レーザー加工

レジスト剥離

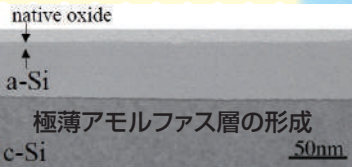


CFRP材料加工

閾値以下のフェムト秒レーザー加工

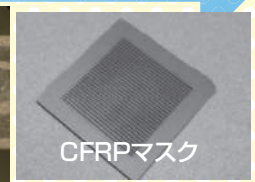
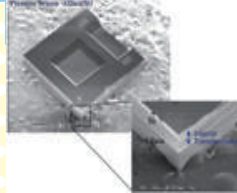
Si結晶性制御

ダイナミクス解析



MEMSダイシング

MEMSレーザー転写

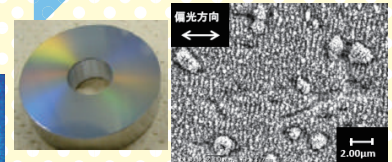
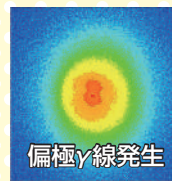
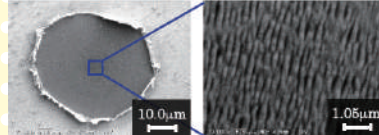
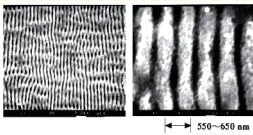


ナノ周期構造材料依存性

初期形成機構の解明

透明材料への加工

合金加工



レーザーコンプトンγ線応用

γ線発生実験

偏極γ線発生

ヨウ素129の核変換

中性子計測

二次核変換の検討

プラズマプロセス応用

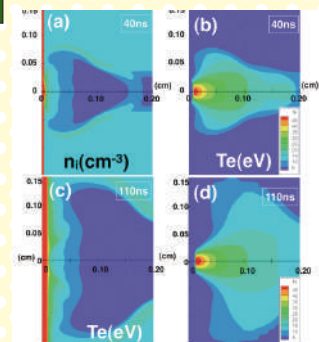
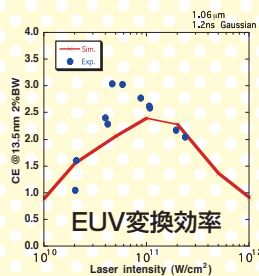
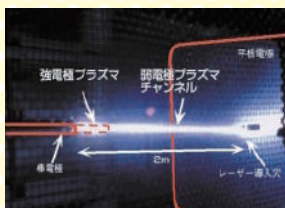
レーザー誘雷

電界計測

碍子塩分濃度計測

レーザープラズマ・マイクロ波相互作用(地雷探査)

非平衡プラズマによる脱塩素化



EUV光源開発

EUV光源開発シミュレーション

2003~2007 文科省LP極端紫外光源開発

2003

2004

2005

2006

2007

2008

2009

2010

2011

2012

パルスレーザー加工

レーザープロセス研究チーム

藤田雅之

1. フェムト秒レーザー加工

2000年にフェムト秒レーザー装置が導入され、フランス留学から帰国したての橋田君と共にレーザー加工の研究を一気に立ち上げた。フェムト秒レーザー加工は、レーザー光とプラズマが相互作用する時間がなく、低強度のパルスを用いた場合には照射部周囲への熱的な影響が無視できるため加工初期段階の痕跡がそのまま加工後に観察できるという特徴があり、加工しきい値近傍の現象に着目して研究を進めた。この時の研究成果に対して、2004年5月にレーザー学会業績賞「フェムト秒レーザーアブレーションによる新加工領域の特徴とナノ構造形成」を受賞した。

橋田君が2003年5月に京都大学に転籍した後、しばらく一人でラボを切り盛りすることになった。2004年には近大の中野人志先生の学生である和田勇次郎君にナノ周期構造の金属材料依存性に関する研究を手伝ってもらった。また、2003年に近大から卒研で来ていた木下 篤君が阪大修士課程に進学し、低フルーエンス領域でのSiのアブレーションレートを徹底的に調べてくれた。我々は、アブレーションレートを実験的に求めるのに「クレーター法」を採用しているが、低フルーエンスで測定可能なクレーターを得るのに照射数を重ねないといけない。Siのような結晶性の材料は多重照射の間に物性が変化してしまい、金属のようなはっきりした加工しきい値が現れにくい。再現性を確認するために何度もデータの取り直しをしてもらった。

この2004年は阪大原子力工学科から井澤靖和先生の学生である井澤友策君（以降、友策）が新戦力として加わった年でもある。友策は卒研において、Si表面にナノ周期構造が形成される初期段階でアブレーションが起きずに試料表面の光沢が変化することを見いだした。加工しきい値以下で試料に何らかの

変化が起きていることに着目し、試料の断面を観察することとなった。このとき初めて透過型電子顕微鏡（TEM）でSiのアモルファス層や結晶層で原子が配列した像を見ることになる。その後修士に進学し、イメージング-ポンプ-プローブ法を開発してフェムト秒レーザーとSiの相互作用をこれでもかと言うぐらいに解明してくれた。2006年夏には「フェムト秒レーザーと半導体の超高速相互作用に関する研究」と題した修論を提出し、半年飛び級で博士課程に進学することになった。この時、既に内定を得ていたようであるが、周囲の強引な説得で就職を2年半先延ばしすることとなった。

ナノ周期構造の研究に関しては、2005年に近大・中野先生の研究室から派遣された近田和敬君が、リップルの成長率や材料依存性、レーザー照射角度依存性を調べてくれた。2008年3月に近大修士課程を修了する直前にはブリュースター角（Siの場合は約75°）でのレーザー照射というユニークな実験に挑戦してもらった。垂直入射では見られない複雑なナノ構造が観察された。

2006年には近大の吉田実先生の学生であった鶴見洋輔君が卒業研究で金属コート誘電体表面への微細周期構造形成の研究に取り組んでくれた。透明材料にナノ周期構造を形成するために表面に金属を薄く

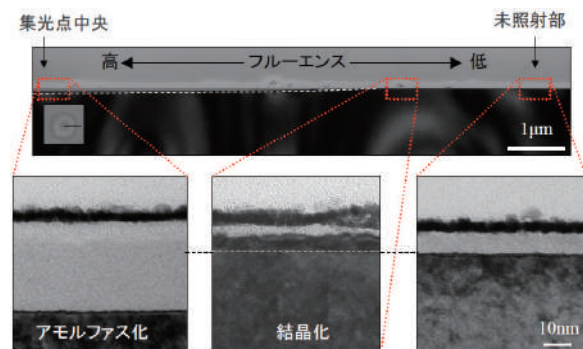


図1 フェムト秒レーザーを照射したSi試料の断面TEM像

コート（～100nm）し、金属層で形成されるナノ周期構造が透明基板にインプリントされることを期待していたが、驚きの結果が得られた。金属表面では600nmの周期構造が観測されたが、なんと、金属がアブレーションされた後にはさらに微細な約200nmの周期構造が形成されていた。透明材料表面への微細周期構造形成はパナソニック電工から持ち込まれたテーマであったが、意外な結果が得られたのである。光の波長よりも小さな微細構造が形成されると表面のフレネル反射が抑制されるという効果があったが、可視域全体でのフレネル反射の抑制には至らなかった。鶴見君はその後阪大修士課程に進学することになるが、配属先の宮永先生からは研究テーマをレーザー加工から光制御に変えるという宣告を受けると、レーザー加工をやるために修士に進学することにしたんだから近大に戻ると言い出した。「まだ阪大には入学金と授業料を納めていませんから」との殺し文句で阪大教授を説き伏せた何とも性根のすわった男であった。阪大修士課程で鶴見君は友策と共に MEMS ウェハのレーザーダイシングに取り組むこととなる。

2007年には近大・吉田先生の学生である濱村隆司君が研究に参加してくれた。加工対象をSiからワイドバンドギャップ半導体であるSiCに替え、ダブルパルスで照射しパルス間隔によってナノ周期構造がどのように変化するかを調べてもらった。第一パルスで励起されるであろうプラズモンと第二パルスの相互作用が加工痕として観測されるのではないかと、プラズモンの寿命がある程度推測できないか、ということで実験を行った。そして、20psのパルス間隔で照射した時にナノ周期構造の溝方向が90°回転するという興味深い結果を得たが、その原理を解き明かすには至らなかった。

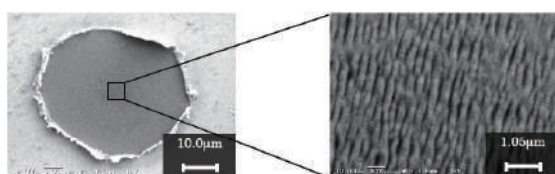


図2 CuをコートしたSiO₂試料上に形成されたLIPSSのSEM像

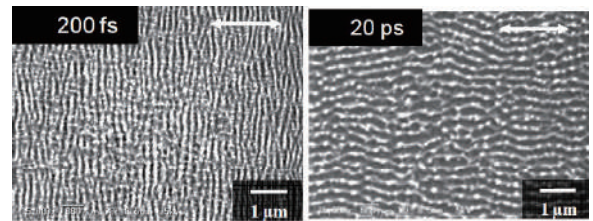


図3 ダブルパルス照射によるナノ周期構造形成
パルス間隔は、（左）200fs、（右）20ps

2008年に染川智弘君が研究員として入所し、彼本来のテーマであるリモート計測に加えてレーザー加工も手伝ってもらえるようになった。

2009年春に友策は「パルスレーザー誘起構造変化の計測とその応用」と題した博士論文を提出し2年遅れで東京エレクトロンに就職、鶴見君はニコンに就職し、替わりに近大・吉田先生の学生である尾崎巧（たくみ）君が研究に加わった。ちょうど2009年にはNEDO省エネのプロジェクトが3件採択されたこともあり、尾崎君の研究テーマは低炭素社会に資するレーザー加工となった。Al-Si合金の低摩擦加工やCFRPのレーザー加工などで肝となる実験データを取得し、2012年春に近大修士課程を修了した。

この間、2000年代にOPCPAなどレーザー開発の手伝いをしてもらい、その後阪大・河仲先生のグループに移っていた小川奏君が2008年春に博論を提出し原研へ就職、竹内康樹君は2011年春に博論を提出し、浜ホトへ就職した。

2. MEMS ウェハのレーザーダイシング

2005年末頃に松下電工の久保雅男さんから、MEMS ウェハのレーザーダイシングをしませんか、と声をかけられた。それまでMEMSという言葉に馴染みがなかったのだが、エアバッグの加速度センサなど世の中のあちらこちらで使われている物であることが分かった。僅か数mmのチップに機械素子や電気素子が詰め込まれているMEMSは脆弱なものである。ブレード（刃）でダイシングすると、どうしても水をかけながら切らなくてはいけないので歩留まりが上がらないようである。水をかけてはいけないのでレーザーで、ゴミを出してはいけないので内部加工で、できるのではないかと考えた。案の定、

既にウェハのレーザーダイシング装置として浜ホトから“ステルスダイシング”と呼ばれるレーザーによる内部加工を用いた技術が市販されていた。ただ、この技術は詳細が開示されておらず、中味もステルスであった。また、関係者の間では、使い物にならないという評判がたっていた。その理由は技術的には申し分ないのだが値段が高すぎるということであった。

MEMS チップは一つのウェハ上に数千個作成され、チップ一つ当たりの単価は極めて安い(だから、これだけ普及している)。世界を相手に毎日数 100 万個を売りさばれば、1 台 1 億円のダイシング装置の導入も可能であろうが、MEMS は多種多様であり、そうそう数が出るものばかりではない。あるメーカーは IT バブル崩壊後、数枚のウェハで 3 年分の在庫を抱えてしまったそうである。しかも、ダイシングは後工程なので、なおさらコストを掛けるわけにはいかないようである。従って、ダイシングでゴミを出さないという条件に加えて、高価なレーザーを使わないという条件も課せられた。すなわち、比較のためにフェムト秒レーザーで実験をしてもいいけど、最後は CO₂ レーザーや YAG レーザーのように一般に普及している安価なレーザーで条件出しをなささい、ということであった。

MEMS に関しては素人であったが、松下電工の取り計らいで MEMS の聖地である東北大学江刺研究室の田中秀治先生と NEDO プロ「高集積・複合 MEMS 製造技術開発事業」への共同提案を行うこととなった。レーザーダイシングに適した構造を東北大が検討し MEMS ウェハを供給、阪大レーザー研(再委託先)のレーザー制御技術を用いてレーザー総研でレーザーダイシング技術を開発、東北大と松下電工が評価を行うという体制であった。

2006 年 5 月 8 日付けで MEMS/MEMS の高集積結合技術の開発テーマに対して「多層ウェハレベル接合体の低ストレスダイシング技術」開発の提案書を提出し、6 月末に採択が決定した。プロジェクトとしては 2006 年 6 月 27 日から 2009 年 3 月 20 日までの 3 年間で約 2 億 4000 万円(3 機関合計)の規模であった。開発目標は、破損率についてトータルで

1%以下を達成する、と設定した。

MEMS ウェハの基本構造であるガラス/Si 接合ウェハをレーザーで内部加工するわけだが、ガラスはアモルファスで近赤外まで透明、Si は結晶で可視域には不透明、というまったく機械的・光学的に異なる性質のものを相手にすることになった。吸収がなければレーザー加工は始まらない。ガラスと Si に光を吸収させるために多光子吸収を可能にする高ピークパワーのナノ秒パルスレーザーを中心に加工実験を進めた。幸いにして、十分な予算が認められたので高繰り返し率の赤外ナノ秒レーザー、グリーンナノ秒レーザー、赤外パルスファイバーレーザー、波長 1.5 μ m のピコ秒ファイバーレーザー、CO₂ レーザーや高速加工ステージ等を次々に導入し実験を行った。いずれのレーザーもターンキーで簡単に操作できる産業用で、加工ステージはリニアモーター駆動でストローク 30cm の大型のものを選択した。

プロジェクトが始まるやいなや、手に入る試料を次から次へと加工してデータを取得していった。100%補助の助成事業であるのでなるべく細かいところまで加工データを開示していったことと、他の補助事業は企業内で行われていて具体的な成果が見えづかったこともあって、NEDO からは好評をいただき毎年のように加速資金をつけてもらった。レーザー総研は MEMS に対して素人であったが、MEMS 業界はレーザーに対して素人であったことも幸いしたと思う。

2008 年も暮れる頃、プロジェクト終了間際になって、失敗サンプルから新たなダイシング手法が見いだされ加工の品質が格段に向上した(詳細はレーザ

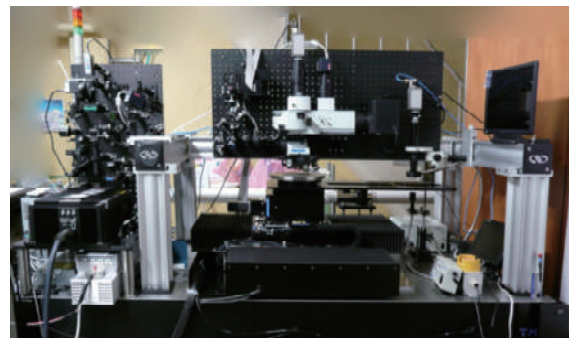


図 4 MEMS プロジェクトで導入したレーザー加工ステーション

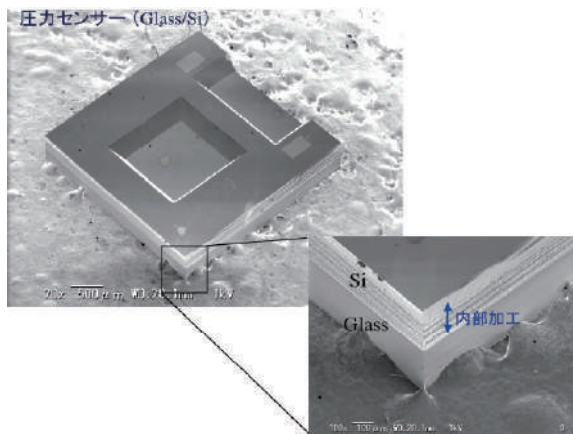


図5 レーザーダイシングでチップ化された多層構造（ガラス/Si）をもつMEMS圧力センサー

ークロス 2009年7月号 No.256 参照)。最終的に破損率としてサンプルAで1/289、サンプルBで2/323、パナソニック電工支給のサンプルに対しては0/141を達成した。2009年3月10日にはNEDO開発成果事例としてDVDムービー撮影が行われ、2009年5月にはレーザー学会業績賞進歩賞、電気学会学術振興賞（論文賞）を受賞するという栄に浴した。また、CO₂レーザーとNd:YVO₄レーザーを搭載したレーザー加工システムの簡易版を東北大学に設置した。

お陰様で、MEMS業界ではレーザー加工ならレーザー総研という定評が立ちつつある。プロジェクト後、2010年にはパナソニック電工から、2011年～2012年には田中秀治先生から新たなレーザー転写という仕事をいただき、ダイシングのみならずMEMSへのレーザー加工応用の研究テーマは継続している。

3. Al-Si合金の低摩擦加工

2008年10月にKYB（株）基盤技術研究所の中瀬さんから技術相談のメールをいただいた。フェムト秒レーザーで形成されるナノ周期構造の摩擦低減効果に興味があり、自社製品への適用を検討したい、とのことであった。以前、光洋精工（現ジェイテクト）と同テーマで技術相談対応を行ったことはあったが、それ以来の自動車部品メーカーからの研究依頼であった。11月に上司の小林さんと共に来所され、お話しを伺い、とりあえずサンプル加工をしましよ

うということになった。試料は油圧ポンプに用いられているAl-Si合金であり、フェムト秒レーザーを照射するのは初めてであった。打合せで、フェムト秒パルスのコストが高すぎるため基礎研究は興味深い実用化は難しいかもしれない、と投げかけると、エッチング等でナノオーダーの表面処理をする場合は世界中どこの工場でも同じ品質を得るために温度や湿度等の管理が大変だがレーザーを用いれば安定的なナノ加工が期待できるのでメリットは大きい、との答えが返ってきた。レーザー加工に対する意外な評価点を指摘されたのが印象的であった。

2009年2月に入りお試し加工を行い、表面へのナノ構造形成に関して手応えを感じたのでNEDOの省エネルギー革新技術開発事業に応募することにした。公募の締め切りは3月2日と間近に迫っており、KYB社内での手続きが間に合わないため、レーザー総研単独で提案することとなった。

2009年5月に「先導研究（事前研究）／レーザーを用いた低摩擦表面処理技術開発の事前研究」が採択され、2009年5月7日から2010年2月28日までの約1年間のプロジェクト研究がスタートした。レーザー総研で試料を加工しKYB社で摩擦係数を測定するという協力体制で研究を進めた。Al-Si合金はAlとSiが均一に混ざっているのではなく、母材であるAlの中に硬いSiが結晶粒として点在している。AlとSiそれぞれのアブレーションレートを定量的に評価すると、興味深いことにアブレーションレートの曲線が交差することが分かった。照射フルエンスを調整することで、AlまたはSiを選択的にアブレーションできることに着目し、表面形状の制御技術を確認していった。（詳細はレーザークロス2011年10月号 No.283 参照）。最終的には（種々の条件にもよるが）、最大で27%の摩擦低減効果が得られた。従来から言われていたナノ周期構造が持つ摩擦低減効果に加えて、硬いSiが突き出すことによってマイクロベアリング効果が発揮されたのではないかと推測している。Si粒の突き出し量をナノオーダーで安定的に制御できれば、摺動面の間隔をナノオーダーで制御できるようになり、圧力ポンプの気

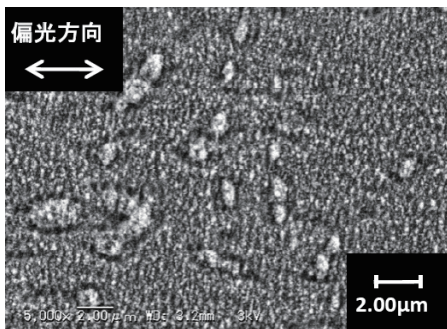


図6 Si粒が表面に突きだしたAl-Si合金の表面

密性が向上することが期待される。フェムト秒レーザーを用いたナノ周期構造形成による低摩擦加工はキヤノンマシンリーが特許を成立させているが、今回開発した技術はそれとはコンセプトが異なるもので、特許申請を行った（特開 2011-245492）。フェムト秒レーザー加工を先導してきたレーザー総研としては面目躍如といったところである。

これまで、純金属など素性の分かった試料を相手に基礎研究を進めていたが、産業応用を目指す研究所としては産業界で使われている部材に対して積極的にアプローチしていく必要性和面白さを感じた。

4. CFRP のレーザー加工

2008年度に（財）製造科学技術センターで行われた「産業用次世代レーザー応用・開発に関する調査研究」の異種材料・切断接合調査WGにおいて、これからの産業用素材としての CFRP（Carbon Fiber Reinforced Plastic：炭素繊維強化プラスチック）の重要性が注目され、次世代レーザーが加工する対象物として調査が行われた（本調査の前後の話は本稿の「多波長複合レーザー開発」を参照）。国プロを目指す上でも省エネというキーワードにぴったりの加工対象物である。ところが情けないことに、国内には CFRP のレーザー加工に関する知見がほとんどなかったのである。そんな状況下で目標値を定めた国プロの提案ができるはずもなく、WG メンバーを中心として 2009 年度の NEDO 省エネルギー革新技術開発事業に提案することとなった。

2009年3月に財団法人製造科学技術センターを管理法人として、国立大学法人大阪大学（接合科学研究所）、財団法人レーザー技術総合研究所、独立行政法人産業技術総合研究所が再委託先となり「挑戦

研究（事前研究）／革新的材料（CFRP）加工技術の事前研究」の提案を行った。

2009年5月に条件付き採択通知が届いた。事業仕分けの影響で、研究実態がない財団法人が管理法人を行うことや、そこに再委託先をぶらさげることがはばかられたのである。最終的には研究開発責任者を製造科学技術センターの間野氏として4機関が連名で NEDO から委託を受ける形となり、研究期間 2009年5月7日から2010年3月20日までの1年間の事前研究がスタートした。

製造科学技術センターが「産業応用・実用化調査分析委員会」と「次世代レーザー加工プロセス検討委員会」を運営し、阪大接合研（片山聖二教授）が kW-CW レーザー、レーザー総研が超短パルスレーザー、産総研がナノ秒紫外レーザーを用いて同じ CFRP サンプルを加工し比較検討を行った。また、阪大接合研は CFRP と金属の接合、産総研は機械加工やウォータージェット加工との比較も行った。

委員会メンバーの東レと三菱化学からは合わせて 13 種類の複合材サンプルが供給された。この 13 種類の試料を片っ端から 3 機関が所有するレーザーで切り刻んでいったのである。加工する側にしてみれば大変な作業であったが、市場では簡単に手に入らないレアな試料で実験ができる機会に恵まれ、供給する側からすれば無料でレーザー加工のデータが手に入るという上手い組合せであった。ここで初めて複合材料の奥深さを実感することになる。炭素繊維には 2 種類あり、炭素繊維の形態でもクロス、一方向、長繊維、短繊維と 4 種類、樹脂にいたってはエポキシ、ABS、PA、PP、・・・と何種類もの組合せが存在するのである。

レーザー総研においては、せっかくのサンプルであるので、フェムト秒やピコ秒レーザーだけではなく、200ns ファイバーレーザーや赤外ナノ秒レーザー、グリーンナノ秒レーザー、炭酸ガスレーザー、外注で CW ファイバーレーザー等を使ってデータを積み重ねていった。炭素繊維を切断するにはピークパワーが高いパルスレーザーが必要であることや、ピークパワーが低い CW レーザーでは連続繊維 CFRP の高品質な加工は困難であることが分かって

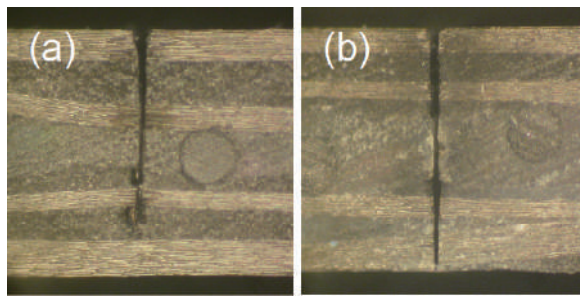


図7 超短パルスレーザーを用いたCFRP (2mm厚) の切断：パルス幅は(a) 100fs、(b) 200ps

きた。

この2009年度NEDO省エネ事前研究の成果(3機関での実験結果や調査研究、委員会活動)は経産省にも伝えられ、2001年度にスタートした「高出力多波長レーザー開発」プロジェクトの策定に役立てられることになる。

CFRPは炭素繊維を樹脂で固めたものであり、樹脂に熱影響が生じると炭素繊維が露出してしまふ。また、クロス材の場合は炭素繊維を90°ずつ配向をずらしながら積層しており、樹脂にダメージが生じると層間剥離が起きて素材の破壊に至るためレーザー加工の熱影響を最小限に抑えなければいけない。その意味で超短パルスレーザーによるCFRP加工の品質は極めて良好であるが、いかんせんパルスエネルギーが小さすぎて加工速度が遅いという弱点が明らかとなった。

2009年度の事前研究が終わり国プロがスタートした2010年には、何とかしてフェムト秒レーザーをCFRP加工に役立てたいと頭を悩ませていた。幸いなことに、手元には13種類の試料の切れ端がまだ残っており、自主研究としてフェムト秒レーザーの使い道を探ることにした。フェムト秒レーザーを使ったCFRPの切れ味は何物にも代え難いという熱い思いを抱いていたのである。

一つの方向性としては、数mm厚の試料の切断にこだわらずに溝掘り加工を行うことであった。図7に示す加工断面を見ると切断溝が細すぎて奥までレーザー光が届きにくいことが一目瞭然である。そこでレーザー入射側の間口を広げるV溝加工を試みて試料の切断に至ることを確認したわけであるが、よく考えると加工品質が求められるのは溝の壁面だけ

である。V溝全体をわざわざフェムト秒レーザーで加工する必要はない。そこで、溝の両端だけをフェムト秒パルスで加工し、溝内部をナノ秒パルスで吹き飛ばす「デュアルレーザー加工法」を思いついた。この時に、炭素繊維さえ超短パルスレーザーで細切れにしさえすれば後はどんなレーザーを使ってもCFRPを除去できることに気付いた。また、熱伝導が良い炭素繊維を切断することで周囲への熱影響を遮断できることが分かってきた。

これと並行して三菱化学テクノロジーの三田雅昭氏と薄物のCFRPの用途を議論していった。やはり、フェムト秒レーザーの優位性を活かすには単純な切断ではなく微細加工という土俵を用意しなければいけない。アイデアマンの三田さんから、有機ELディスプレイの蒸着に現状でメタルマスクが用いられているがこれをCFRPで置き換えることができるだろうか、という提案があった。メタルを用いると大型化の際に重量が大きくなり且つ熱膨張による変形も問題となる、CFRPは軽量且つ熱膨張が小さいために有機ELディスプレイの大型化に一石を投じることができる、というのである。ディスプレイの高精細化が進んでくると30μm以下の精度で画素を蒸着しなければならない。CFRPはメタルと違ってフォトリソが使えないので、フェムト秒レーザーによる微細加工の優位性が発揮できる材料であることに気がついた。

三田さんを介して三菱樹脂から厚さ100~300μmのCFRP材料の供給を受けてマスクを試作した(図8)。スリットマスクの場合、一方向CFRPを用いて炭素繊維と平行にスリットを形成すればレーザー加工しやすい。2010年9月には三菱樹脂と共同で特許出願(特開2012-77328)し、NEDOの省エネルギー革新技术開発事業へ提案する準備を進めた。

蒸着マスクだけでは用途が限定されるため、印刷マスクも含めた次世代マスクをCFRPで製造する研究開発として、2011年5月に「事前研究(先導研究フェーズ) / レーザー精密加工を用いた次世代マスク製造技術の事前研究」を提案し、7月に採択が決定した。三菱化学テクノロジー、レーザー技術総合研究所、大阪大学産業科学研究所が協力して2011

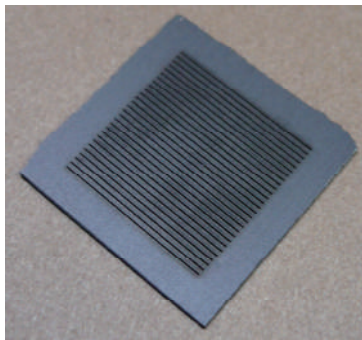


図8 極薄 CFRP を用いたマスク

年8月から2012年2月29日までの約半年間、研究開発を行った。2012年7月段階では、プロジェクト成果の事後評価を受けているところである。

2009年度のNEDO省エネ事前研究では厚さ数mmのCFRPの、2011年度の事前研究では厚さ数100 μ mのCFRPの超短パルスレーザー加工を行った。それぞれ、我が国が得意とする自動車産業と電子産業への貢献を期待して研究を進めた。CFRPという素材は勉強すればするほど、研究すればするほど、身の回りのメタルを置き換えるポテンシャルを有する優れた材料であることを実感した。

5. 省エネレーザー加工調査研究から技術戦略へ

2009年以降、省エネ効果をうたった複数のレーザー加工プロジェクトに参加してきた。このようなプロジェクトは一朝一夕で立ち上がるものではなく、日頃の様々な活動の賜物である。NEDO省エネルギー部は2007年頃からレーザー加工がもたらす省エネ効果に注目していた。

2007年度にはNEDO省エネ部からの委託で(財)光産業技術振興協会が「レーザー加工分野における省エネルギーの可能性に関する調査」を行っていた。レーザー加工省エネ調査委員会(委員長:小原 實、慶應義塾大学教授)が活動し、4月~8月の5ヶ月間でレーザー加工により得られる省エネ量の調査報告書をまとめあげていた。

翌2008年度にはレーザー総研が委託を受け、「省エネルギー効果が期待されるレーザー加工に関する垂直統合型技術開発テーマ抽出のための調査」を行った。レーザー加工に関する垂直統合型技術開発調査委員会(委員長:井澤靖和)の下に高効率光源調査ワ

ーキンググループ(主査:河仲準二、大阪大学准教授)と光エネルギー利用調査ワーキンググループ(主査:塚本雅裕、大阪大学講師)を設置し、省エネ効果が期待されるレーザー光源やレーザー光利用技術、レーザー加工技術に関する調査を行った。(有)パラダイムレーザーリサーチの鷲尾さんには外注で協力してもらい、「国内におけるレーザー加工についての技術開発プロジェクトの動向調査」、ならびに国際会議動向やドイツにおける公的助成、プロジェクトの動向を報告書としてまとめてもらった。

また、2008年11月には、井澤靖和、阿部信行(大阪大学准教授)、塚本雅裕、吉田 実(近畿大学准教授)、ハイク・コスロービアン、藤田雅之をメンバーとして海外調査を行い、カールツァイス社、イエナ(フリードリッヒ・シラー)大学、イエナオプティクス社、フラウンホーファーILT、IPG社、ダイヤモンド社、シュツットガルト大学IFSWを訪問した。イエナでは伝統的な光学部品に加えて半導体レーザーの開発が、フラウンホーファーILTではINNOSLABと称した独自コンセプトの高平均出力超短パルスレーザーの開発が、IFSWではProf. Grafが新たに所長として就任しファイバー線引機を導入してファイバーレーザーの開発が進んでいた。

最終的に調査報告書においては、光源として半導体レーザー、ファイバーレーザー、セラミックレーザー、EUV光源が重要となり、これら光源を有効利用するためのファイバー結合技術、ビーム結合技術、高速スキャナ技術の開発を進めることにより自動車、太陽電池、電子デバイス産業でのレーザー加工技術



図9 イエナの地ビールレストランにて
左から、ヤヌンツ(イエナ大学)、藤原(NEDO)、井澤、コスロービアン、藤田(敬称略)

導入により省エネ効果が期待できるという結論に至った。また、半導体レーザーで励起されたファイバーレーザーとセラミックス増幅器を組み合わせたハイブリッドレーザーというコンセプトを提案した。これらの内容は2010年に始まった国プロのレーザー開発計画に概ね反映されていると言える。2009年2月には経産省が改訂を進めていたエネルギー分野における技術ロードマップへも調査結果を反映させることができた。

2010年に資源エネルギー庁省エネ課が所管するNEDO委託事業で「省エネルギー技術に関する今後の方向性に関する情報収集」調査をみずほ情報総研(株)と再委託先の(財)エネルギー総合工学研究所が行っていた。資源エネルギー庁省エネ課では省エネルギー技術戦略策定の大詰めを迎えているようであった。省エネルギー技術戦略2011を策定するための省エネルギー技術戦略委員会(委員長:横山明彦、東京大学教授)が設けられ、その下に産業WG(主査:田中忠良、省エネルギーセンター部長)、家庭・業務WG(主査:田辺新一、早稲田大学教授)、運輸WG(主査:飯田訓正、慶應義塾大学教授)が設置されていた。2010年12月9日に産業プレワーキンググループでの有識者ヒアリングとしてレーザー加工技術に関する意見を求められた。その後、産業WGの委員として加わり、1月31日に第1回の産業WGが開催され、レーザー加工技術の技術シートやロードマップ、導入シナリオの作成に協力させていただいた。

3月15日に第2回のWGが予定されていたが、3月11日の東日本大震災により開催されず、メール審議となったが、最終的に2011年3月28日に経済産業省の資源エネルギー庁省エネルギー・新エネルギー部から「省エネルギー技術戦略2011」が発表された。晴れて、レーザー加工技術が省エネ技術戦略の重要技術として公に認められることとなった。

6. レーザー加工の人材育成

2007年以降、レーザー技術に関する様々な調査研究が行われていたが、その一方でレーザー加工の人材育成を進めていこうという動きが関東と関西であ

った。

2008年から関東経済産業局では光産業創成大学院大学を管理法人として「レーザープロセシングの基礎から産業応用までを熟知したものづくり中核人材の育成」と題した3年間の産学連携人材育成事業が始まっていた。加藤義章光産業創成大学院大学教授をプロジェクトコーディネーター、杵名宗春光産業創成大学院大学特任教授をプログラム開発リーダーとして、日本中の産業界・学界の英知を結集したレーザー加工の人材育成プログラム作成が行われた。小生は、超短パルスレーザー加工のテキスト執筆と講義、ケーススタディ(加工技術)の講師を担当することとなった。2008年にテキストを作成し、2009年11月に3日間の模擬講義、2010年に17日間の実証講義が行われて(いずれも参加費無料)事業が終了し、2011年には19日間に及ぶ有料の中核人材育成講座が開講した。この講座では座学に加えて、静岡県工業技術研究所浜松工業技術支援センターでのレーザー加工実習や光関連企業の会社見学を兼ねた研修が含まれている。ちなみに、2011年度受講は3コースから選ぶことができ、基礎コース7日間、加工技術コース6日間、産業応用コース6日間、それぞれ75,000円であった。2012年は18日間の講座が8月に開講する予定である。

その一方で、近畿経済産業局ではレーザー総研が管理法人となり、2009年から2年間かけて「省エネ、省資源加工プロセス開発型人材育成プログラム」を作成する産業技術人材育成支援事業が進められた。中核となる大阪大学接合科学研究所(プロジェクトコーディネーター:阿部信行准教授)、近畿大学モノづくり専攻(プログラム開発リーダー:中野人志准教授)に加えて、コンソーシアム協力機関として(株)レザック、京都大学化学研究所、宮崎大学産学連携センター、大阪府立産業技術総合研究所、大阪市立工業研究所、(財)近畿高エネルギー加工技術研究所、福井県工業技術センター、石川県工業試験場、(株)レザックス、丸文通商(株)、富士高周波工業(株)、レーザープラットフォーム協議会が参加した。

カリキュラム作成事業では、プログラムを3つの

ステージに分けて、基礎教育・基礎技術の習得を目的とした第1ステージ(座学:4コマ、実習:4コマ)、基礎実験・実現性の提案能力の習得を目的とした第2ステージ(座学:5コマ 実習:7コマ)、実用開発研究の提案能力の習得を目的とした第3ステージ(座学:3コマ 実習:5コマ)の段階的なカリキュラムを作成した。本カリキュラムの特徴は、座学よりも実習の時間が多いことである。これに合わせてテキスト作成事業では、座学で使うテキスト資料と実習で使う実験手引き書を作成し、講義・実習実験事業を進めた。

2009年に取り組んだ第1ステージでは中小企業の初心者を対象として、3色の発光ダイオードや赤色レーザーポインタを用いて色セロハンを使った光の吸収やミラーによる光の反射、レンズによる集光、ファイバーでの導光などが体感できるような実習を行う実験キットを作成した。2010年には実験キットをスーツケースに収納した可搬型に改良して福井県工業技術センターに持ち込み、出張実習を行った。

2010年度に取り組んだ第2ステージでは、公設試や(株)レザックに設置してあるレーザー装置を用いたレーザー溶接や切断等を行うレーザー加工の実習プログラムを作成した。第3ステージではさらに高度な内容となる。「レーザ焼き入れ」、「セラミックス加工」、「薄板溶接」、「レーザクラディング」の4つのテーマを設定し2日間に分けて、与えられたテーマのレーザー加工実験計画書の作成を座学で行い、別の日に計画書に沿った実験を行いレポートをまとめるというプログラムを作成した。第3ステージでは講師一人につき受講生3-4名というマンツーマンに近い体制であった。

2011年からは、阿部先生と中野先生の指導の下で



図10 第1ステージでの実習の様子(左)とスーツケースに納められた実習キット(右)

レーザープラットフォーム協議会が中心となり、人材育成プログラムを展開している。

発表論文

- 1) 橋田昌樹、藤田雅之、節原裕一、“フェムト秒レーザーによる物質プロセッシング”、光学、**31**、621 (2002).
- 2) 小原實、藤田雅之、“フェムト秒レーザーとは”、電気学会誌、**122**、740 (2002).
- 3) 鍋川康夫、藤田雅之、“フェムト秒レーザー装置の現状”、電気学会誌、**122**、754 (2002).
- 4) 長嶋謙吾、橋田昌樹、甲藤正人、塚本雅裕、藤田雅之、井澤靖和、“Al₂O₃セラミックスのフェムト秒レーザーアブレーション”、IEEJ Trans. EIS, **124**、338 (2004).
- 5) 藤田雅之、橋田昌樹、“フェムト秒レーザーの応用”、応用物理、**73**、178 (2004).
- 6) 藤田雅之、橋田昌樹、“フェムト秒レーザー加工”、プラズマ核融合学会誌、**81**、Supplement, 195 (2005).
- 7) 藤田雅之、吉門 章、堀邊英夫、“レーザーによるレジスト剥離”、レーザー研究、**33**、452 (2005).
- 8) Y. Izawa, Y. Setuhara, M. Hashida, M. Fujita, and Y. Izawa, “Ablation and Amorphization of Crystalline Si by Femtosecond and Picosecond Laser Irradiation”, Jpn. J. Appl. Phys., **45**、5791 (2006).
- 9) 井澤友策、時田茂樹、橋田昌樹、藤田雅之、井澤靖和、“フェムト秒レーザーと単結晶 Si の超高速相互作用”、レーザー研究、**34**、773 (2006).
- 10) Y. Izawa, Y. Setuhara, M. Fujita, R. Sasaki, H. Nagai, M. Yoshida and Y. Izawa, “Ultrathin amorphous Si layer formation by femtosecond laser pulse irradiation”, Appl. Phys. Lett., **90**、044107 (2007).
- 11) S. Matsumoto, A. Yane, S. Nakashima, M. Hashida, M. Fujita, Y. Goto and S. Takahashi, “A Rapid Flow Mixer with 11- μ s Mixing Time Microfabricated by a Pulsed-Laser Ablation Technique: Observation of a Barrier-Limited Collapse in Cytochrome cFolding”, J. Am. Chem. Soc., **129**、3840 (2007).
- 12) 藤田雅之、“レーザー加工の物理 3 光パルス

- 幅と加工”、光学、**36**, 459 (2007).
- 13) Y. Izawa, Y. Tsurumi, S. Tanaka, H. Kikuchi, K. Sueda, Y. Nakata, M. Esashi, N. Miyanaga and M. Fujita, “Debris-Free Laser-Assisted Low-Stress Dicing for Multi-Layered MEMS”, IEEE J. Trans. SM, **128**, 91 (2008).
- 14) 藤田雅之、井澤友策、 “フェムト秒レーザー加工の現状と将来動向”、レーザー研究、**36**, 257 (2008).
- 15) Y. Izawa, Y. Tsurumi, S. Tanaka, H. Fukushi, K. Sueda, Y. Nakata, M. Esashi, N. Miyanaga and M. Fujita, “Debris-Free Laser-Assisted Low-Stress Dicing for Multi-Layered MEMS”, IEEE J. Trans. SM, **129**, 63 (2008).
- 16) 鶴見洋輔、井澤友策、菊地秀幸、末田敬一、中田芳樹、江刺正喜、宮永憲明、田中秀治、藤田雅之、 “積層 MEMS のためのパルスレーザー支援デブリフリー低ストレスダイシング技術”、レーザー研究、**37**, 384 (2009).
- 17) Y. Izawa, S. Tokita, M. Fujita, T. Norimatsu and Y. Izawa, “Ultra Fast Melting Process in Femtosecond Laser Crystallization of Thin a-Si Layer”, Appl. Surf. Sci. **255**, 9764 (2009).
- 18) Y. Izawa, S. Tokita, M. Fujita, M. Nakai, T. Norimatsu and Y. Izawa, “Ultrathin amorphization of single-crystal silicon by ultraviolet femtosecond laser pulse irradiation”, J. Appl. Phys., **105**, 064909 (2009).
- 19) M. Fujita, Y. Izawa, Y. Tsurumi, S. Tanaka, H. Fukushi, K. Sueda, Y. Nakata, M. Esashi and N. Miyanaga, “Debris-free Low-stress High-speed Laser-assisted Dicing for Multi-Layered MEMS”, IEEE J. Trans. SM, **130**, 118 (2010).
- 20) 藤田雅之、染川智弘、尾崎巧、吉田実、宮永憲明、 “超短パルスレーザーによる炭素繊維強化プラスチックの切断加工”、レーザー研究、**39**, 701 (2011).
- 21) 藤田雅之、 “フェムト秒レーザーが切り開く新しい微細加工技術”、応用物理、**81**, 380 (2012).

極端紫外(EUV)光源開発(実験)

レーザー計測研究チーム

島田義則

1. 極端紫外(EUV)光源開発研究へ

2003年、大阪大学レーザーエネルギー学研究所(以降、阪大レーザー研)は文部科学省のリーディングプロジェクト研究を始めた。当研究所も阪大レーザー研と共同で研究を始めることとなった。EUV研究に関わりのない研究者からは「レーザープラズマを使ったEUVなんてできるわけないだろ。」などと言われ、プロジェクトが終了する5年後を心配していた。しかし、やればできる物で、今では試作機が出来上がり、EUV光を用いて露光を行っている。本稿では弊所で行ったEUV研究の成果について述べる。

2. 激光XII号レーザーを用いた球状スズプラズマからのEUV光発生

レーザープラズマからの高強度放射光は幅広い応用が期待されている。その中で、極端紫外(EUV)光の研究が次世代リソグラフィーの光源として注目されている。次世代リソグラフィーの光源として必要なEUV光のパワーは、180W以上(波長13.5nm、2%バンド幅)であり、これを満足させるためには高効率(レーザーエネルギーからEUV光への変換効率(以降:変換効率)4%以上)の光源が不可欠である。

EUV光源にはレーザープラズマ方式と放電プラズマ方式がある。レーザープラズマ方式はプラズマ密度が高く、点光源のプラズマが生成できる利点を持つ。レーザープラズマ方式は世界各国で研究が行われてきた。2003年頃の実験は、1Jクラスのレーザーを用いて、プラズマスケール長より小さなレーザースポットサイズで行われた。そのため、実験結果には、プラズマ膨張ロス、横方向に拡散する熱のロス、低イオン化のスズ原子によるEUVの吸収等の影響が含まれ、レーザーからEUVへの変換効率を低下

させる要因であったと考えられる。2003年度、これらの影響を最小限に抑えるために阪大レーザー研の激光XII号レーザーを用いて、スズ球を球状に照射して擬似的に1次元プラズマを生成させる実験を行った。

2.1 スズ球プラズマからのEUVスペクトル計測

透過型回折格子分光計測装置を用いてスズ球プラズマから放出されるEUVスペクトルを計測した。ターゲットには、直径700から750 μm のプラスチックにスズを1 μm コートした球状ターゲットを使用した。レーザーパルス幅は1.2nsで、レーザーエネルギーを変化させることにより、ターゲット表面でのレーザー照射強度を 2×10^{10} から 1×10^{12} W/cm²まで変化させた。図1に放射スペクトルを示す。低レーザー強度(図1a)では13.5nm付近のみの放射であるが、レーザー強度を増加させると13.5nm付近の放射量の増加とともに、1~2.5nm、4~8nmの放射が現れる(図1b、図1c)。

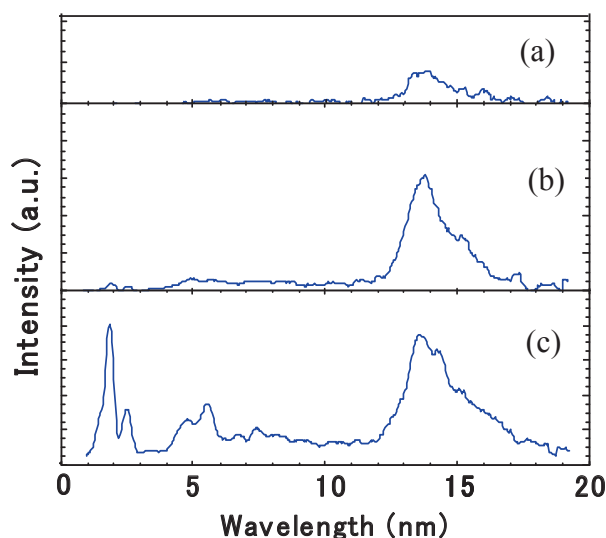


図1 EUV放射スペクトル(レーザー照射強度 (a) 8.8×10^{10} 、(b) 3.0×10^{11} 、(c) 9.0×10^{11} W/cm²)

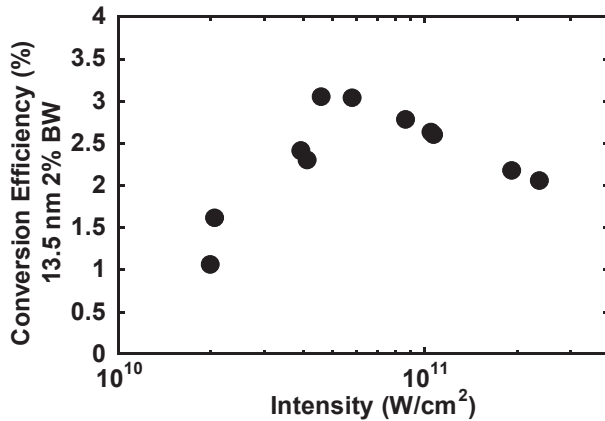


図2 レーザー強度を変化させた場合、レーザーエネルギーから EUV 光への変換効率

2.2 世界最高の変換効率 3%を達成 (当時)

レーザー照射強度を変化させた場合の変換効率を図2に示す。レーザー照射強度を 0.5×10^{11} から 1×10^{11} W/cm²にした場合、もっとも変換効率が良く、世界最高値の3%を示した。(平板を小さなスポット径で照射した場合の変換効率は1~2.5%程度である)。照射したレーザー照射強度が 0.5×10^{11} から 1

$\times 10^{11}$ W/cm²の最適レーザー強度よりも高い場合にはスズ原子のイオン化が進み、短波長の放射が支配的となる。結果的に12~17 nmの放射が相対的に低下して変換効率は低下する。一方、低レーザー強度ではスズ原子のイオン化が十分に進まないために変換効率は低下する。

3. リチウムターゲットを用いた極端紫外 (EUV) 光源研究

研究では主にスズターゲットを用いてEUV光源開発を行ってきたが、2004年11月に宮崎で行われたEUVLシンポジウム国際会議でCymer社(USA)がリチウムもターゲットの候補になりうることを発表した。これを受け弊所に於いてもリチウムターゲットの変換効率等を確認し、スズに代わる材料となりうるかを確かめる実験を行った。

3.1 リチウムプラズマからの EUV 光スペクトル計測

リチウム金属平板をレーザー照射し、その発光スペクトルを計測した。図3 a)にリチウムプラズマの

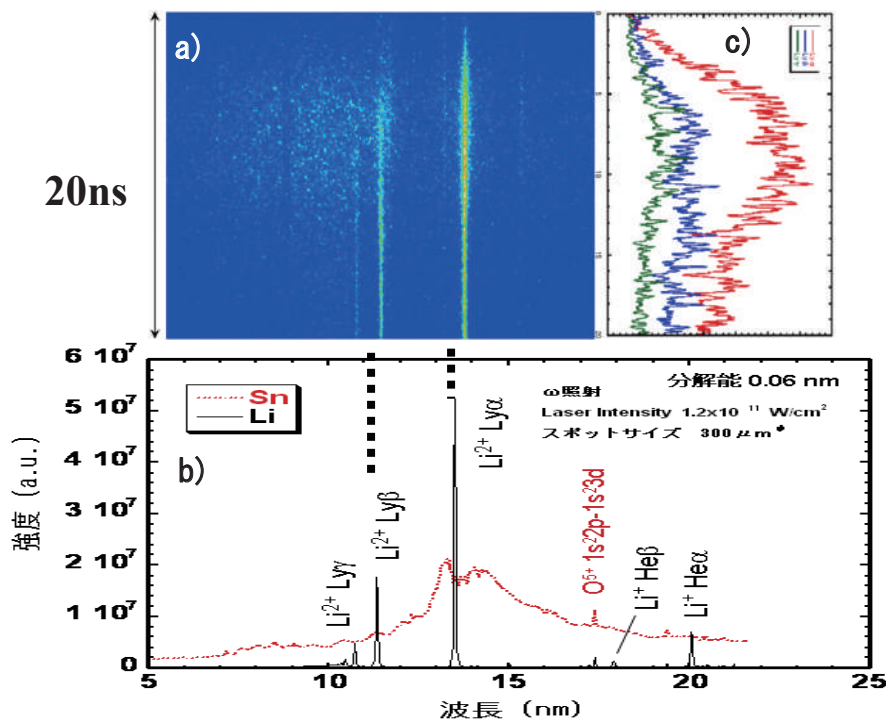


図3 a)リチウムプラズマの時間分解分光計測 (ストリーク像) b)発光スペクトル c)ライマンアルファ線 (右線)、ライマンベータ線 (中央線)、およびライマンガンマ線 (左線) の発光時間プロファイル

時間分解分光計測像を示す。縦軸が時間（上から下に時間が経過する）、横軸が発光スペクトル（左側が短波長、右側が長波長側）である。図3 b)に時間積分スペクトルを示す。実線がリチウムからの発光スペクトル、波線がスズからの発光スペクトルである。リチウムプラズマから放射されるライマンアルファ線はEUV光源に必要な13.5nmの波長に一致し、その輝度は非常に高い。また、リソグラフィーに必要でないアウトバンド領域の放射エネルギーがスズターゲットなどに比べて少ないことがわかる。

3.2 EUVの時間発展

図3 c)は図3 a)のストリーク像のライマンアルファ（右端）、ライマンベータ（中央）、ライマンガンマ（左端）線での時間プロファイルである。レーザーパルス幅は7 ns である。ライマンアルファ線の半値全幅はレーザーパルス幅より長い。

変換効率はキセノンターゲットと同程度の1%前後を示した。また、ライマンベータ線とライマンガンマ線との強度比から求めた温度や自由-束縛放射から求めた温度は20~25 eV程度でスズターゲットの最適温度に比べて低い。EUV放射に最適なプラズマの電子温度が低いことは、リチウムイオン、中性粒子（デブリ）の持つエネルギーが低く、ミラー損傷の低減が期待できる。また、ミラーにリチウムのデブリが付着しても400℃程度に加熱することによりリチウムを蒸散させることができるなどの報告があり、リチウムターゲットの利点は大きい。

4. パンチアウトターゲット供給方式の開発

レーザーエネルギーからEUV光への変換効率を向上させる研究以外に、スズターゲットを10 kHzで供給する研究開発も重要である。スズターゲット供給方式はドロップレットや回転ドラム式などが提案されているが、弊所では図4に示すパンチアウトターゲット方式も候補の一つであると考えた。パンチアウトターゲット方式は基板と蒸着された薄膜スズの2層構造で、基板側から蒸着スズに向けてパンチアウトレーザーを照射し、基板と薄膜スズの界面で発生したプラズマの圧力によってスズを噴出・飛

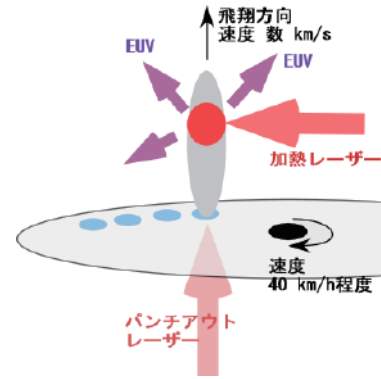


図4 パンチアウトターゲット供給装置概念

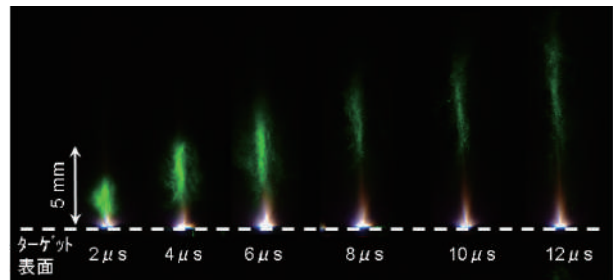


図5 ドットスズターゲットの飛行状態

翔させる方法である。飛行した微粒子状のスズは加熱レーザーでプラズマ化されEUV光を放射する。

EUV光源としてスズターゲットに要求される仕様は、EUV光を発生させるために必要な最小質量程度 (10^{15-16} 個) で、そのスズが直径500 μm の球内に納まっていること (スズ密度は $10^{17-20} \text{ cm}^{-3}$) である。レーザー強度、レーザーパルス幅やターゲット初期状態などを変化させ、パンチアウトターゲットの諸特性、最適な条件を求めた。

波長532 nmのレーザーをプローブ光として飛行したスズ微粒子からの散乱計測を行い、飛行状態を観測した。基板に蒸着されたスズターゲットはレーザースポットサイズより小さいドットサイズとした。パンチアウトレーザー照射時刻をゼロとし、時間経過と共に飛行するスズ微粒子の状況を図5に示す。パンチアウトレーザーの照射強度は $5 \times 10^8 \text{ W/cm}^2$ 、スポットサイズ500 μm である。散乱計測用レーザーのパルス幅は10 nsを用いた。飛行したターゲットはほぼ直線的に進んだ。また、飛行速度は1~2 km/sであった。

次に、飛行したスズ微粒子の面密度をバックライト法により計測した。その結果、中心付近の面密度

は $10^{17}/\text{cm}^2$ 程度であった。パンチアウトターゲットの直径を $400\ \mu\text{m}$ とすると平均密度は $2.5 \times 10^{18}/\text{cm}^3$ で、この値は EUV 光を発生させるために最適なスズ初期密度であった。

パンチアウトターゲット方式を用いて $10\ \text{kHz}$ 連続供給を行うためには基板を高速で移動させる必要があり、ディスク型、テープ型などが考えられている。筆者らはディスク型を用いて $10\ \text{Hz}$ のターゲット供給実験を行い、安定したパンチアウトターゲットを供給できることを実証した。しかし、ディスク交換作業が必要等解決しなければならない項目があり、最終的には採用されなかった。

5. ドロップレットターゲットを用いたダブルパルスレーザー照射実験

低デブリ発生と高変換効率を両立させる方法として上述のパンチアウトターゲットの他にドロップレット方式が有力な候補である。この方式はプレパルスレーザー (Nd:YAGレーザー) で固体のスズドロップレットを微粒子化して膨脹・飛散させることにより平均密度の低いターゲットを作り、そこにメインパルスレーザー (CO_2 レーザー) を照射することにより EUV 光を発生させる方式である (ダブルパルス方式)。図6 a)は $36\ \mu\text{m}$ のスズ球をプレパルスレーザーで照射してから $1\ \mu\text{s}$ 後のターゲット膨脹の像を示す。これにメインパルスレーザーを照射し EUV 光を発生させた時の画像を図6 b)に示す。右側の発光点はプレパルスレーザーが $36\ \mu\text{m}$ のターゲットに照射され発生した光で、左側の発光はメインパルスレーザー照射によるものである。プレパルスとメインパルスの時間差を変化させた場合の変換効率を図7に示す。遅延時間を $1\ \mu\text{s}$ とした場合、変換効率は 4% で当時の世界最高値を記録した。この値は EUV リソグラフィ実用機に必要な値である。ダブルパルス方式を用いることで高変換効率が達成できることを示した。

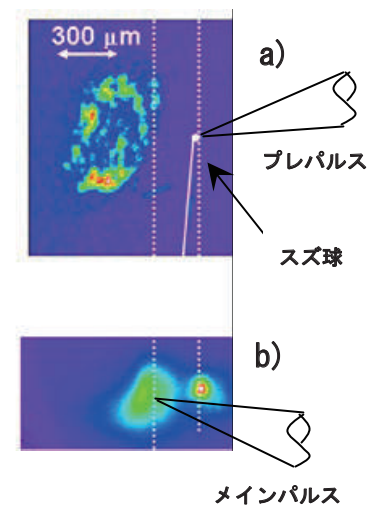


図6 a)プレパルス照射から $1\ \mu\text{s}$ 後の $36\ \mu\text{m}$ 球ターゲットの膨脹像
b)メインパルスレーザー照射による EUV 発光

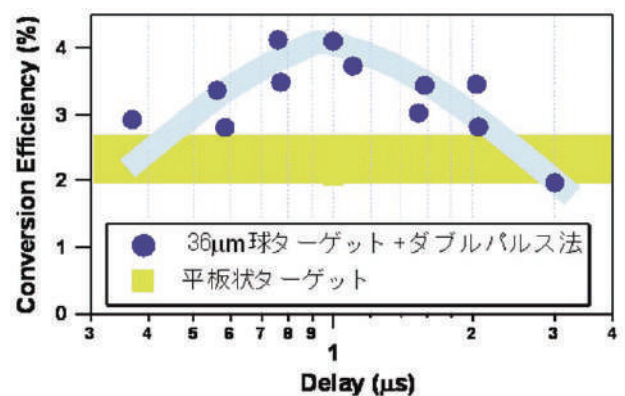


図7 ダブルレーザー照射による高変換効率 4% を達成

6. まとめ

5年間に亘り、スズやリチウムターゲットを用いて EUV 発光効率の向上やターゲット供給方法について研究を行った。研究初期の段階では変換効率は 1% 程度であったが5年後には 4% を達成することができた。リーディングプロジェクトは成功裏に終了し、現在では露光メーカーが EUV を用いた露光機がテスト中である。やればできることを実感した。

発表論文

- 1) 西村博明 他、“レーザー生成球対称 Sn プラズマからの極端紫外線(EUV)放射特性”、プラズマ核融合学会誌、**80**, 325 (2004).
- 2) Y. Shimada et al., “Properties of EUV emissions from laser-produced tin plasmas”, Proceedings of SPIE, **5374**, 912 (2004).
- 3) T. Kawamura et al., “Estimation of emission efficiency for laser-produced EUV plasmas”, Proceedings of SPIE, **5374**, 918 (2004).
- 4) K. Shigemori et al., “Experimental study on basic properties of laser-produced EUV plasmas on GEKKO-XII laser facility”, Proceedings of SPIE, **5374**, 971 (2004).
- 5) Y. Shimada, H. Nishimura, M. Nakai, K. Hashimoto, M. Yamaura, Y. Tao, K. Shigemori, T. Okuno, K. Nishihara, T. Kawamura, A. Sunahara, T. Nishikawa, A. Sasaki, K. Nagai, T. Norimatsu, S. Fujioka, S. Uchida, N. Miyanaga, Y. Izawa and C. Yamanaka, “Characterization of extreme ultraviolet emission from laser-produced spherical tin plasma generated with multiple laser beams”, Appl. Phys. Lett., **86**, 051501 (2005).
- 6) M. Yamaura et al., “Characterization of extreme ultraviolet emission using the fourth harmonic of a Nd:YAG laser”, Appl. Phys. Phys. Lett., **86**, 181107 (2005).
- 7) S. Fujioka et al., “Opacity Effect on Extreme Ultraviolet Radiation from Laser-Produced Tin Plasmas”, Physical Review Letters, **95**, 235004 (2005).
- 8) S. Fujioka et al., “Properties of ion debris emitted from laser-produced mass-limited tin plasmas for extreme ultraviolet light source applications”, Appl. Phys. Lett., **87**, 241503 (2005).
- 9) T. Ando, et al., “Optimum laser pulse duration for efficient extreme ultraviolet light generation from laser-produced tin plasmas”, Appl. Phys. Lett., **89**, 151501 (2006).
- 10) K. Nagai et al., “Angular distribution control of extreme ultraviolet radiation from laser-produced plasma by manipulating the nanostructure of low-density SnO₂ targets”, Appl. Phys. Lett., **88**, 094102 (2006).
- 11) 砂原 淳 他、“レーザー生成スズプラズマからの極端紫外光発生の放射シミュレーション”、プラズマ核融合学会誌、**83**, 920 (2007).
- 12) T. Ando et al., “Fine Structures of Laser-Driven Punched-Out Tin Fuels Observed with Extreme Ultraviolet Backlight Imaging”, JJAP, **47**, 293 (2008).
- 13) S. Fujioka et al., “Pure-tin microdroplets irradiated with double laser pulses for efficient and minimum-mass extreme-ultraviolet light source production”, Appl. Phys. Lett., **92**, 241502 (2008).
- 14) 島田義則 他、“レーザー駆動パンチアウトターゲットからの極端紫外(EUV)光放射”、レーザー研究、**36**, 736 (2008).
- 15) 西村博明 他、“極端紫外光源の開発の基盤研究”、レーザー研究、**36**, 700 (2008).
- 16) 西原功修 他、“極端紫外光源の原子モデルと最適設計”、レーザー研究、**36**, 690 (2008).

極端紫外(EUV)光源開発 (理論)

理論・シミュレーションチーム

砂原 淳

1. 極端紫外光源開発の理論研究

極端紫外(EUV)光源開発は回路線幅 22nm 以下の次世代半導体リソグラフィ用の光源として期待され、高効率、高出力光源の開発が世界中で精力的に進んでいる。この EUV 光源開発における理論研究の役割は、極端紫外線の発光の物理をモデリングすることであり、対象とする物理の中身は大きく2つに分類できる。一つはプラズマからの極端紫外線の発光に関する原子過程研究であり、もう一つはプラズマのダイナミクスと実際の発光スペクトルを解く輻射流体研究である。プラズマの原子過程は長く研究されてきた分野であるが、レーザープラズマに関して言えば、発光強度のオーダーが解ればよいというのが EUV 光源開発研究以前の認識であった。しかし、EUV 光源開発研究では定性的な物理の理解だけでは駄目で、反射鏡の反射率が高く、EUV 光として使える狭い波長域内で発光する線スペクトルを特定して発光強度の絶対値を見積らなければならず、相当の定量性が求められた。レーザープラズマからの線スペクトル群の発光で、これほどまでに定量性が求められたことはかつてなかったのではないだろうか。一方、輻射流体研究はレーザー核融合の爆縮計算等で実績があったため、比較的研究の見通しが効き、研究開始当初は順調に計算を進めていけると思われた。しかし、レーザー核融合の場合とは異なり、球対称性が仮定できない多次元性が顕著なプラズマが対象であり、多次元の輻射流体計算を解く必要があった。このため、研究を始めてしばらくすると多くの計算上の困難にぶつかり、精度の良い計算結果を出すために多くの数値計算手法を試し、コード開発を進める必要があった。紆余曲折様々な事があったが、2003 年から大阪大学レーザーエネルギー学研究センターを中心に始まった文部科学省リーディングプロジェクトの下、我々はスズの発光に関する

原子過程研究と、輻射流体研究の双方を精力的に進めた。その結果、分光研究レベルの高い精度で輻射流体計算を実現し、EUV 光源開発で多くの成果を上げることが出来た。ここでは研究上重要であった点に注目して、EUV 開発の理論研究を簡潔に振り返ることにする。

2. 詳細原子コードによるスズの原子過程研究

EUV 光源開発の理論研究には日本全国から多くの原子過程研究者が参加し、共同研究がなされた。それぞれの研究者によるスズやキセノンの詳細な原子過程研究が進められ、様々な角度から物理が探求された。その中で特筆すべき進歩は図1に示す詳細原子コード Hullac による計算と電荷交換分光法による実験結果の比較である。これにより、各々の

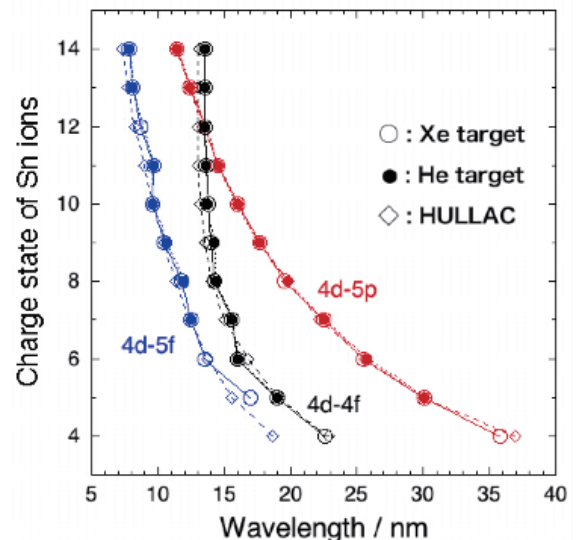


図1 スズの EUV 発光に寄与する3つの主要な遷移(4d-4f, 4d-5p, 4d-5f)について詳細原子コード Hullac による計算結果(◇を結ぶ実線)と電荷交換分光法による実験結果(○及び●を結ぶ点線)の比較

電離状態のスズの EUV 発光に関する Hullac の計算精度が実験的に確認され、実験のライン位置を再現出来るようになった。図 1 ではスズの EUV 発光域、即ち 13.5nm、2%バンド幅内の発光に寄与する主な遷移を比較しているが、特に 4d-4f 遷移が重要である。この 4d-4f 遷移は主量子数が不変の遷移であり、電離状態が変化しても遷移エネルギー、即ち発光波長が変化しにくいという特徴を持つ。図 1 で 4d-4f 遷移について Hullac と電荷交換分光の実験結果はほぼ一致しているように見えるが、13.5nm の波長域で僅かに 0.5nm 程度のずれがある。13.5nm の 2%バンド幅は 0.2nm しか幅がないため、この 0.5nm の波長ずれも見過ごすことは出来ない。これについては計算精度の向上やモデルの検討等、様々な議論がなされ、最終的に我々は実験のラインの位置を再現する Hullac に基づいた高精度原子データを手に入れることが出来た。また、ここでは詳細を記さないが、大阪大学の激光 XII 号レーザーを用いたスズのオパシテティ測定も行われ、ライン位置のみならず、振動子強度に至るまで実験的な検証が進められた。このように高精度に検証された原子データがその後の輻射流体研究を加速させることとなった。

3. 1次元輻射流体計算

原子データの精度の高さ、及び原子過程のモデリングの正しさを確認するため、大阪大学の激光 XII 号レーザーを用いてスズの 1 次元球状プラズマを生成し、測定された EUV スペクトルを一次元球対称の輻射流体計算と比較した結果を図 2 に示す。レーザー波長 1.06 μm 、強度は $9 \times 10^{11} \text{W/cm}^2$ 、パルス幅は 1.2ns である。輻射流体計算が 13.5nm を中心に短波長から長波長に至るまでの実験のスペクトルを高い精度で再現できていることが見て取れる。これはリーディングプロジェクト初期の重要な成果の一つである。

4. スズと炭酸ガスレーザーの組み合わせ

図2に示したように、我々は早い段階で、実際のプラズマからのEUV放射を精度よく計算できる環境

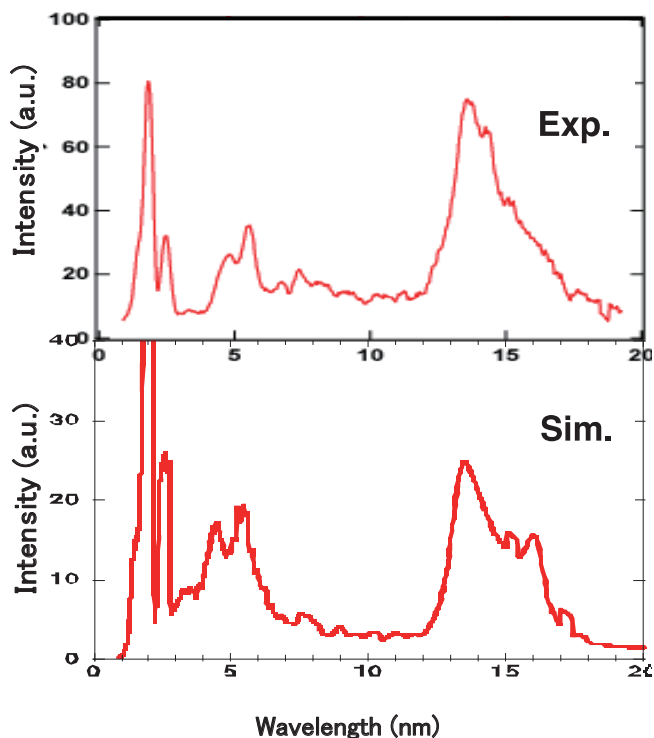


図 2 スズの球状プラズマからの EUV 発光スペクトルの実験結果(上)と計算結果 (下)

を整えることに成功し、スズプラズマの基本的特性が13.5nmに於いては”光学的に厚い“ことを見いだした。言い換えると、スズプラズマは自分で発光した EUV 光を自分で吸収してしまう特性が強いということになる。このことから、従来から標準的に用いられて来たNd:YAGレーザーで生成されるような高密度プラズマよりもっと低密度プラズマがEUV発光の高効率化に有効であることが示唆された。リーディングプロジェクトにおける実験的なプラズマ条件最適化の努力と相まって、我々はスズと炭酸ガスレーザーの組み合わせによりスズプラズマから3%を超える変換効率でEUV光を取り出せることを世界で初めて示すことが出来た。2004年に宮崎で開かれたEUVL光源シンポジウムでこの結果を発表して以降、世界のEUV光源開発研究はスズと炭酸ガスレーザーの組み合わせに一気に舵が切られた。

5. 炭酸ガスレーザー生成プラズマ

炭酸ガスレーザーを用いることで高効率にEUV光を発光させることが可能になる一方、EUV発光に最適なレーザー強度はNd:YAGの場合より一桁程度小さくなる。このことは実際の光源において一定の

EUV出力を得ようとするれば、より長いレーザーパルス幅が必要となる事を意味する。それまでNd:YAGの計算ではせいぜい10ns程度の計算で良かったのが、100nsを超える計算が必要になり、計算負荷は増大した。また、炭酸ガスレーザーの臨界密度はNd:YAGよりも2桁低いため、アブレーション時にスズの密度はより急峻に変化する。さらに熱源が低密度にシフトするため表面のごく薄い部分しかアブレートしない。このような状況は全て計算を困難にする。我々は高精度流体スキームの検討を繰り返し、炭酸ガスレーザー生成プラズマを高精度に計算することが出来る二次元の輻射流体コード開発に2年以上も費やしてしまった。しかしながら、リーディングプロジェクト4年目には炭酸ガスレーザー生成スズプラズマのEUV発光特性を高精度に計算できるようになった。その結果、炭酸ガスレーザー生成がスズプラズマに吸収される際の吸収率が50%程度以下であることが判った。そして、この炭酸ガスレーザーの吸収率を改善すれば図3に示すように最大6-8%程度の高いEUV変換効率が得られることを見いだした。具体的にはダブルパルス照射方式により二段階の照射とし、最初のパルスで長いスケール長を持つスズプラズマを生成し、その後に炭酸ガスレーザーを照射すればいいということになる。このダブルパルス

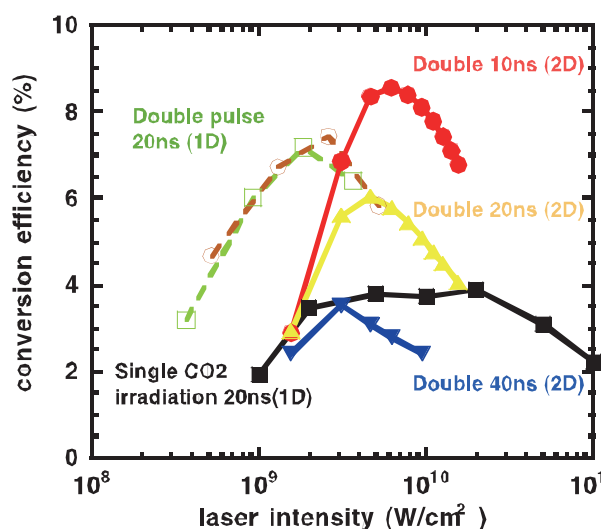


図 3 一次元及び二次元輻射流体シミュレーションで計算されたダブルパルス照射時のEUV変換効率のレーザー強度依存性

照射方式でEUV変換効率6-8%の提案は我々のリーディングプロジェクトの成果の中でも特に重要なものである。デブリを極力減らすことを目的にスズドロップレットを用いる最小質量ターゲット化と組み合わせられて、以後、研究の流れはダブルパルス照射方式に移った。

7. ダブルパルス照射の有効性実証

ダブルパルス照射は5年間のリーディングプロジェクトの最終年に実験的に検証され、EUV変換効率4%の世界最高レベルを達成した。これにより輻射流体計算の予想である6-8%にはまだ届かないものの、ダブルパルス照射方式の有効性は確認された。この結果は理論と実験が協力して進めたリーディングプロジェクトを締めくくるのにふさわしい成果であり、5年間という短期間に原子過程、輻射流体、そして実験のそれぞれが協力して研究を進めたからこそ達成できたものである。また、このような大規模な研究体制は普段なかなかとれるものではない。EUV光源開発のみならず、多価イオンの原子過程、多次元輻射流体力学、数値計算法等、学術的にも多くのものをこのリーディングプロジェクトを通して得ることが出来た。

8. リーディングプロジェクト以後

レーザー技術総合研究所ではリーディングプロジェクト終了後もEUV光源を開発する企業と協力してEUV光源開発研究を進めている。現在の研究の中心はダブルパルス照射の最初のパルスで生成されるスズプラズマの挙動解明である。レーザー強度が低くなれば生成されるプラズマの温度も低くなり、プラズマの特性は非理想的な特性になる。例えば状態方程式も複雑になる。このような特性が生成されるプラズマの挙動にどのように影響するかを計算し、得られた知見を元にしてプラズマ条件の最適化を行っているところである。

9. まとめ

EUV光源開発研究を理論の側からまとめた。ここに示した成果の大半は2003年から2007年までの5年間に渡り大阪大学レーザーエネルギー学研究センターを中心に行われた文部科学省リーディングプロジェクトで得られたものである。しかしながら、EUV光源開発研究は今も続いており、ここに記述出来なかった多くの知見が得られている。EUV光源の効率は2003年当時1%台であった。現在は3-4%が実際に出せるようになっているが、光源出口で115W平均出力という目標にはまだ到達していない。今後、高効率、高出力のEUV光源を目指してさらに研究を続ける所存である。

謝辞

本研究の一部は文部科学省リーディングプロジェクト「極端紫外(EUV)光源開発等の先進半導体製造技術の実用化」の下で行われました。共同研究者の方々及び大阪大学レーザーエネルギー学研究センター高性能計算機室に感謝致します。

発表論文

- 1) H. Ohashi, H. Tanuma, S. Fujioka, H. Nishimura, A. Sasaki and K. Nishihara, "Charge exchange spectroscopy in Sn^{q+} ($q=6-15$)-He collisions", *J. Phys. Conf.*, **58**, 235 (2007).
- 2) H. Tanuma, H. Ohashi, S. Fujioka, H. Nishimura, A. Sasaki and K. Nishihara, "4d-4f unresolved transition arrays of xenon and tin ions in charge exchange collisions", *J. Phys. Conf.*, **58**, 231 (2007).
- 3) H. Tanuma, H. Ohashi, E. Shibuya, N. Kobayashi, T. Okuno, S. Fujioka, H. Nishimura and K. Nishihara *Nucl. Inst. Meth. Phys. Res.*, **B235**, 331 (2005).
- 4) A. Sasaki, A. Sunahara, K. Nishihara, T. Nishikawa, F. Koike and H. Tanuma, "The atomic model of the Sn plasmas for the EUV source", *Journal of Physics: Conference Series* **163**, 0121074 (2009).
- 5) S. Fujioka et al., "Opacity Effect on Extreme Ultraviolet Radiation from Laser-Produced Tin Plasmas", *Physical Review Letters*, **95**, 235004 (2005).
- 6) A. Sunahara, A. Sasaki and K. Nishihara, "Two dimensional radiation hydrodynamic simulation for extreme ultra-violet emission from laser-produced tin plasmas", *Journal of Physics: Conference Series* **112**, 042048-1-4 (2008).
- 7) K. Nishihara, A. Sasaki, T. Nishikawa and A. Sunahara, "Conversion Efficiency of LPP Source", *EUV Sources for Lithography*, SPIE Press, Editor Vivek Bakshi, PM149, Chapter 11, 339 (2006).
- 8) A. Takahashi, D. Nakamura, K. Tamaru, T. Akiyama and T. Okada, "Comparative study on EUV and debris emission from CO_2 and Nd: YAG laser-produced tin plasmas", *Journal of Physics: Conference Series* **112**, 042059 (2008).
- 9) K. Nishihara, A. Sunahara, A. Sasaki, M. Nunami, H. Tanuma, S. Fujioka, Y. Shimada, K. Fujima, H. Furukawa, T. Kato, F. Koike, R. More, M. Murakami, T. Nishikawa, V. Zhakhovskii, K. Gamata, A. Takata, H. Ueda, H. Nishimura, Y. Izawa, N. Miyanaga and K. Mima, "Plasma physics and radiation hydrodynamics in developing EUV light source for lithography", *Phys. Plasmas*, **15**, 056708-1-11 (2008).
- 10) S. Fujioka et al., "Pure-tin microdroplets irradiated with double laser pulses for efficient and minimum-mass extreme-ultraviolet light source production", *Appl. Phys. Lett.*, **92**, 241502 (2008).

レーザーコンプトン散乱ガンマ線の発生と核変換への応用

レーザーエネルギー研究チーム

今崎一夫

1. はじめに

原子炉からの使用済み燃料は再処理の後、セメントやガラスによる固定化処理を経て地層処分することになっている。長寿命核種の中でヨウ素 129 は半減期が 1590 万年と非常に長く、バリア材への吸着性能が低いため、固定化処理技術の開発と並行した形で、核変換・消滅処理の検討も行われている。

ヨウ素などの核変換については、高速増殖炉 FBR や加速器駆動未臨界炉 ADS による方式など、いくつかの方式が提案されているが、われわれは、コンプトン散乱を利用して発生させたガンマ線によるヨウ素 129 の核変換 (図 1) を提案し、その可能性について検討を続けてきた。

レーザーコンプトン散乱ガンマ線による核変換の原理を図 2 に示す。線幅の狭いレーザー光を高反射率のミラーで構成されるスーパー空洞に閉じ込め、空洞内でレーザー光の強度を $10^4 \sim 10^5$ 倍に増倍する。空洞内に電子ビームを入射し、高輝度で指向性のよいコンプトン散乱ガンマ線を発生させる。 γ 線源から数 10 m 程度離れた位置にターゲットとなる長寿命核種 (ヨウ素 129 など) をおいて、 (γ, n) 反応により短寿命核種あるいは安定核種に核変換する。レーザーの波長が $1\mu\text{m}$ 、電子ビームのエネルギーが 1 GeV 程度するとき、発生するガンマ線のエネルギーは最大 ~ 17 MeV となる。この程度のガンマ線エネ

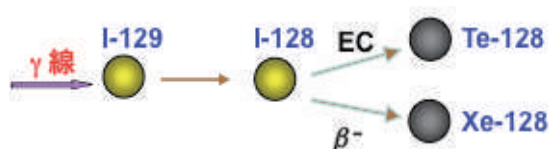


図 1 ヨウ素 129 の核変換・消滅処理過程

ヨウ素 I-129 は (γ, n) 反応でヨウ素 I-128 に核変換され、EC および β^- 崩壊を経て最終的に安定核テルル Te-128 とキセノン Xe-128 が生成される

ルギーでは巨大核共鳴を利用できるので、比較的高い効率で核変換が可能と期待される。

以上の考え方の下で、ガンマ線方式の可能性を探るため、実験とシミュレーション解析の両面から、次の順序で研究を進めた。

- 1) スーパー空洞による光子蓄積の検証
- 2) 電子蓄積リングを利用した γ 線発生実験
- 3) ガンマ線によるヨウ素 129 の核変換実験
- 4) ヨウ素 129 の核変換・消滅処理システムの検討

2. スーパー空洞による光子蓄積実験

1994 年に「高輝度 X 線又は γ 線の発生方法及び装置」の特許 (第 2528622 号、登録日: 1996 年 6 月 14 日) を出願し、光蓄積とコンプトン散乱増強の実験を開始した。図 3 にスーパー空洞 (キャビティ) の写真を示す。低膨張ガラスの筒の両端に高反射低損失ミラーをオプティカルコンタクトで固定したファブリー・ペロー共振器である。筒には電子ビームを通すための穴も開けてある。ミラーの反射率は

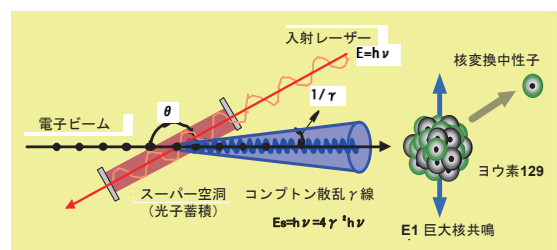


図 2 スーパー空洞を用いたコンプトン散乱ガンマ線による巨大核共鳴 (γ, n) 核変換



図 3 実験に用いたスーパー空洞 (全長 20cm)

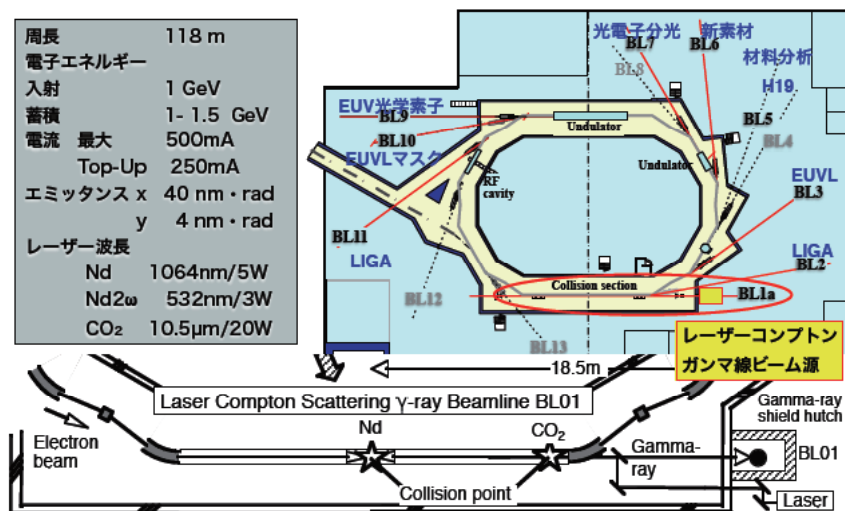


図4 New SUBARU を用いたレーザーコンプトン散乱γ線発生実験

99.992%、損失は32ppmでキャビティのバンド幅は約20kHzであった。このキャビティに対してバンド幅5kHz以下のCWレーザー光（波長1065nm）を周波数チューニングして光蓄積を行い、約8000倍の光蓄積を達成した。光蓄積にはミラーの反射率よりも損失の影響が大きく、ちょっとでも埃が付着したら全くスーパー空洞として使い物にならなくなる。1995年頃には、反射率99.99%以上のスーパーミラーと呼ばれる市販品が手に入るようになり、これを使って3000～4000倍の光蓄積を定常的に確認しコンプトン散乱実験へと移行していった。

光蓄積の実験と並行して、コンプトン散乱実験を行うためのCW100keV電子ビーム源の開発も進めていた。50WのCW炭酸ガスレーザーで熱陰極を1800℃まで加熱し電子ビームを発生させるレーザー加熱電子銃を1995年に完成させた。1996年には0.5Wの光（波長1064nm）を3000倍まで蓄積したスーパー空洞に、82keVの電子ビーム（5mA）を150°の角度で入射し、368nmのコンプトン散乱光の増強を観測した。

このコンプトン散乱実験では、電子ビームをガラスの筒に入射するとチャージアップが起これミラーのダメージが頻発したため、最終的にはステンレス製の筒を用いたスーパー空洞で実験を行った。陰極加熱レーザー、電子ビーム発生、蓄積レーザーの周

波数チューニング、散乱光観測とそれぞれに学生を配置して力尽くで実験をしたものである。

3. 電子蓄積リングを利用したガンマ線発生実験

2001年から、姫路工業大学（現兵庫県立大学）の協力を得て、電子蓄積リングNew SUBARUを用いてガンマ線の発生実験を実施した。リングの直線部分にレーザー光を入射し、電子ビームとの衝突点から20mほど離れた位置にGe検出器をおき、発生するガンマ線のエネルギー分布を測定した（図4）。また、イメージングプレートによりガンマ線のビームパターンを計測した。

レーザー波長1μm、電子ビームエネルギー1 GeVのとき、ピークエネルギー～15 MeV、最大エネルギー～17 MeVのガンマ線が得られ、そのエネルギー分布は理論的な分布と一致した。20m離れた位置でのビーム径は25mm程度で、コンプトン散乱では指向性のよいガンマ線ビームが得られることがわかる。

全ガンマ線光子数は～6000個/s/mA/Wで、電子ビーム電流200 mA、レーザーパワー4 Wのとき、6～16.7 MeVのエネルギー範囲で毎秒5 x 10⁶個のガンマ線光子が得られる。コリメータを用いてガンマ線を準単色化することも可能で、直径3mmのコリメータを用いたとき、15～16.7 MeVの準単色ガンマ線光子数は毎秒2 x 10⁵個 / 200 mA/4Wとなる。

近年は、レーザー光の偏光を変えて、発生するガンマ線の偏光を制御することも可能になってきた。また、兵庫県立大学では、レーザーコンプトン散乱ガンマ線の利用研究も活発に行っておられ、ガンマ線光子数の増強をめざして New SUBARU 本体の改造も計画しておられるようである。

4. 核変換実験

レーザーコンプトン散乱ガンマ線を用いて核変換実験を行った。まず最初に、金 Au-179 をターゲットに用いて、ガンマ線による核変換実証実験を実施した。長さ 5cm、直径 5mm と 10 mm の 2 種類のターゲットに対し、8 時間の照射を行った。Au-197 は (γ, n) 反応で Au-196 に核変換される。Au-196 は不安定で、主として 355.73 keV のガンマ線を放出して Pt-196 に崩壊する。崩壊に伴うガンマ線を NaI (TI) 検出器で検出し、Au-197 の核変換を確認した。ターゲット直径の差による崩壊ガンマ線光子数の比は、理論的に予測される比とほぼ一致した。

次に、非放射性的ヨウ素 I-127 の核変換実験を行った。NaI をターゲットに用いた。I-127 は (γ, n) 反応で I-126 に核変換され、13 日の特性時間で崩壊して最終的に安定核 Xe-126 と Te-126 を生成する。I-126 の崩壊に伴う 388 keV と 666 keV のガンマ線とその減衰特性を測定し、ヨウ素 I-127 の核変換を確認した。

最後に、放射性ヨウ素 I-129 の核変換実験を行った。また、I-129 の核反応断面積を測定し、I-127 のそれと比較した。ターゲットには PdI₂ 密封線源を用いた。電子ビームエネルギーを変えて γ 線エネルギーを調節し、 (γ, n) 反応で生成される I-128 からの崩壊 γ 線 (443 keV) を計測して断面積を求めた。I-129 の (γ, n) 反応断面積は、 γ 線エネルギー 15.9 MeV で最大となり、220 mbarn、半値半幅 2.55 MeV となった。直線偏光と円偏光の γ 線ではほとんど差はなく、I-127 の反応断面積とも大きな違いは見られないことなどが明らかとなった。

また、 (γ, n) 反応で生成される中性子のエネルギー分布や放出角度分布を I-129 や Au-197、Cu-63 + Cu-65 に対して測定した。放出中性子には異方性が

観測された。

5. ヨウ素 I-129 核変換システムの検討

上に述べてきた実験結果を下にして、モンテカルロシミュレーション解析により、原子炉から排出されるヨウ素 I-129 核変換・消滅処理システムについて検討した。ヨウ素 I-129 だけをターゲットとしたとき、核変換効率 (= 核変換核種数/入射 γ 線光子数) は ~1% 程度に留まると予測されるため、 (γ, n) 反応で発生する中性子を有効利用してヨウ素以外の長半減期の放射性廃棄物も核変換処理できるシステムの可能性を考えた。その一例は以下のようなものである。

ターゲットは、図 5 に示すような多層の同軸構造で、中心においたヨウ素 I-129 の (γ, n) 反応で発生する高速中性子によりその外側のネプツニウム Np やアメリシウム Am の核分裂を誘起して中性子を増倍する。増倍された中性子を水により熱化し、最外殻のヨウ素 I-129 やテクネチウム Tc-99 を (n, γ) 反応で更に核変換する。

各層表面での中性子エネルギー分布やターゲット内での核変換効率を計算した結果、核変換効率は I-129 で 2%、Tc-99 で 9% に向上した。このように I-129 の (γ, n) 反応で発生する高速中性子による 2 次核反応を利用すれば、I-129 と Tc-99 の核変換処理だけでなく、TRU の Np-237 や Am-243 などの核変換も可能となることがわかった。システムの検討はまだ初期段階にあり、ターゲット部の詳細な構造設計、熱設計、排熱解析とエネルギー回収などとともに、エネルギー回収型ライナックやレーザー一部の検討、さらには経済的成立性に関する検討などが必要である。

6. むすび

原子炉使用済燃料からのヨウ素 I-129 核変換を目

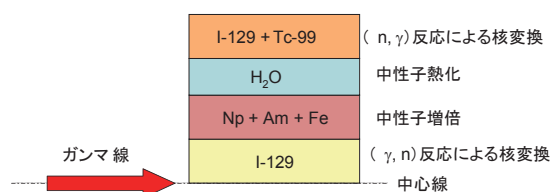


図 5 核変換ターゲットの基本構造

標として、レーザーコンプトン散乱ガンマ線を利用した核変換処理について検討してきた。スーパー空洞による光子蓄積からスタートし、電子蓄積リング New SUBARU を利用したガンマ線発生実験、ガンマ線による I-129 の核変換実証へと研究を進め、初歩的ではあるが、核変換システムの検討段階にまで到達することができた。まだまだ課題は多く残されているが、システムとしての原理的可能性を示すことができたと思っている。

レーザーコンプトン散乱では エネルギー15 MeV 近傍のガンマ線を発生できるので、ヨウ素 I-129 だけでなく、セシウム Cs-137 の核変換処理や核医学検査で重要な Tc-99m を作るための Mo-99 製造などへも応用が可能と考えられる。兵庫県立大学では、Mo-100 をターゲットとして (γ, n) で Mo-99 を生成できることを確認している。本研究では、(γ, n) 反応で発生する中性子の二次核反応を TRU 処理に利用することを検討したが、中性子源としての医学、あるいは工学利用など、他への応用も考えられる。欧州では ELI (Extreme Laser Infrastructure) 計画の一環として、2 ビーム 10 PW レーザーをベースにしたレーザーコンプトン散乱ガンマ線源の研究拠点をルーマニアに建設する計画が進行中で、核科学、原子核分光、天文学への応用など、レーザーコンプトン散乱ガンマ線の幅広い応用研究が始まろうとしている。

謝辞

本研究の大部分は関西電力からの委託研究として行われた。また、New SUBARU における実験は兵庫県立大学との共同研究として実施した。関西電力の関係者、望月孝晏教授、宮本修治教授をはじめとする兵庫県立大学高度産業科学技術研究所の関係者、ならびに共同研究者として本研究に協力頂いた藤田雅之、朝熊 孝、文雅司、青木政徳、李大治君をはじめとする諸氏に感謝する。

発表論文

- 1) J. Chen, K. Imasaki, M. Fujita, C. Yamanaka, M. Asakawa, S. Nakai and T. Asakuma, *J. Nucl. Instr. Meth.* **A341**, 346 (1994).
- 2) M. Fujita, T. Asakuma, J. Chen, K. Imasaki, C. Yamanaka, M. Asakawa, N. Inoue, K. Mima, S. Nakai, T. Agari, N. Nakao, A. Moon, N. Ohigashi, T. Minamiguchi and Y. Tsunawaki, *J. Nucl. Instr. Meth.* **A358**, 524 (1995).
- 3) J. Chen, K. Imasaki, M. Fujita, M. Asakuma, S. Nakai and C. Yamanaka, *J. Nucl. Instr. Meth.* **A358**, 14 (1995).
- 4) A. Moon, M. Fujita, E. Yasuda, H. Tanaka, P. K. Roy, M. Daicho, K. Ohkubo, N. Nakao, T. Watanabe, T. Ishida, K. Imasaki, N. Ohigashi, Y. Tsunawaki, K. Mima, S. Nakai and C. Yamanaka, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **36**, L1446 (1997).
- 5) A. Moon, M. Fujita, N. Nakao, K. Imasaki, N. Ohigashi, Y. Tsunawaki, K. Mima, S. Nakai and C. Yamanaka, *Rev. Laser Eng.*, **26**, 696 (1998).
- 6) K. Imasaki and A. Moon, *Proc. SPIE Advanced High Power Lasers and Applications*, SPIE, **721**, (2000).
- 7) D. Li, K. Imasaki and M. Aoki, *J. Nucl. Sci. Technol.*, **39**, 1247 (2002).
- 8) D. Li, K. Imasaki and S. Miyamoto, *Rev. Laser Eng.*, **32**, 211 (2004).
- 9) K. Imasaki, "Lasers and Nuclei", 147, Springer (2006).
- 10) D. Li, K. Imasaki, K. Horikawa, S. Miyamoto, S. Amano and T. Mochizuki, *J. Nucl. Sci. Technol.* **46**, 831 (2009).
- 11) D. Li, K. Imasaki, K. Horikawa, S. Miyamoto, S. Amano and T. Mochizuki, *Appl. Phys. Lett.*, **94**, 091112 1 (2009).
- 12) K. Horikawa, T. Mochizuki, S. Miyamoto, S. Amano, T. Watanabe, D. Li, K. Imasaki and Y. Izawa, *Rev. Laser Eng.*, **39**, 445 (2011).

レーザー損傷メカニズムとデータベース

レーザー技術開発室

本越伸二

2005年に「レーザー技術開発室」として、他のチームから独立した。これは、先に、「技術相談」と称して、広くレーザー技術、レーザー応用技術に対する相談を受け付ける中、光学素子、そのレーザー損傷耐性に関する相談が多くなり、光学素子技術開発を1つのグループにすることになったためである。言い換えると、ニーズから立ち上がったグループであった。

「レーザー技術開発室」としての主研究業務内容は、他のチーム研究に必要なレーザー技術に関する支援、光学素子に関する企業からの相談、そして高耐力光学素子に関する開発研究である。折しも、大阪大学レーザーエネルギー学研究中心（以下、阪大レーザー研）では、高速点火用高強度レーザー装置 LFEX の建設、次世代核融合用ドライバーとして低温冷却 Yb:YAG レーザー装置の開発、そして、レーザー損傷試験を一緒に担当してくれていた三上勝大君（現在：大阪大学大学院博士後期課程2年）が大学院（前期課程）に合格し研究の一翼を担ってくれた。

三上君の研究テーマは「レーザー損傷閾値の温度依存性」を明らかにすること。先述の低温冷却レーザー装置を設計する上で、装置内で使用される光学薄膜、光学材料のレーザー損傷閾値は、室温と同程度と考えていいのか、というのが研究の発端であった。以前から、銅蒸気レーザー装置（高温動作）の窓材コーティングの損傷閾値が低いという情報を聞いていた。これは、温度による光学特性の変化が原因と考えられていた。低温冷却装置では、真空中、低温による損傷閾値の低下が危惧された。最初の装置の立ち上げは苦戦した。既設の損傷評価用レーザー装置のラインに、他の評価を続けながら、真空容器の設置、冷却方法、制御方法などを組み込む。こ

れには、藤田雅之主席研究員や、河仲準二准教授（阪大レーザー研）など多くの方に指導をしてもらった。結果的に、2つの幸運に恵まれることになった。1つは、低温になるに従いレーザー損傷閾値は高くなること。これは、冷却型 Yb:YAG レーザーにとって、出力増大を可能にするものである。もう1つは、温度に対する損傷閾値は直線変化であること。また、材料の種類、純度により直線の傾きが変化すること。つまり、レーザー損傷を引きこす物理過程の中で、シンプルに温度に依存する項を考えることが出来るようになった。ガラスなどの誘電体材料のレーザー損傷は、高強度のレーザー光により自由電子が生成され、その自由電子がレーザー光の持つ強電場により加速、衝突を繰り返し、自由電子を増倍（電子雪崩）し、電子が臨界密度に達することにより発生す



図1 ナノ秒レーザー損傷評価用光学配置

る。その過程のどこに温度が影響するのか。スタートから4年間、材料を変え、レーザー条件を変え、データを蓄積し、漸く1つのモデルに到達しようとしている。担当の三上君、これを執筆している（平成24年5月）私の後ろで、学位取得を目指し苦悶日々を過ごしている。

一方、建設が進むLFEXレーザー装置の光学素子の評価をどうするか。LFEXレーザー装置の仕様は、パルス幅10psに対して、 $2.5\text{ kJ}/40\times 40\text{ cm}^2$ が4ビーム。これまでナノ秒で行っていたレーザー損傷評価では、ピコ秒へのスケールアップは出来ないため、ピコ秒のレーザー損傷評価装置を立ち上げ、高耐力光学素子の開発に繋げることが要求された。Timebandwidth社の発振器、Continuum社の再生増幅器と、古い装置を集めて装置の組み上げを始めたが、思うようにいかない。モードロックが上手く掛からない（励起半導体レーザーの出力低下が原因）、再生増幅器との同期が取れない（ドライバーを修理）、フラッシュランプが点灯しない（電源を修理）等々。これには、阪大レーザー研の修士課程の市木孝征君（2008年修了、現在ダイハツ工業）、佐藤英児特任技術職員、そして吉田英次技術職員の多くの時間を割いて頂き、現在、2.2ps、80mJのシステムが立ち上がり、LFEXレーザー光学素子、市販ミラー等の短パルスにおける損傷閾値の基礎データが蓄積できた。その間、阪大レーザー研宮永憲明教授をリーダーとするCRESTの研究が開始され、更に短い100fsパル

スに対する光学素子のレーザー損傷の基礎データを取得することになった。残念ながら、上記短パルスレーザー装置では、増幅器による狭帯域化のためにサブピコ秒は望めない。そのため増幅器の入れ替えを検討しながら、レーザープロセス研究チーム所有チタンサファイアレーザー装置のビームラインを借用し対応することになった。レーザー装置は他の応用で使用されているので安定に動作するが、損傷測定光学系は一からの立ち上げ。特に問題となったのが、測定試料上ビームサイズの決定方法。既存システムでは照射エネルギーに限界があるため、試料上で $50\mu\text{m}$ 程度まで集光する必要がある。そのまま測定すると、CCDカメラの分解能では誤差が大きすぎる。最終的に、試料上の像を拡大転送することで、漸く評価にこぎ着けた。この仕事は、三上君とともに修士課程の黒田耕平君（2012年修了、現在アイテック阪急阪神）が夜遅くまで調整を進めてくれた。結果、種々の誘電体材料に対する損傷閾値、多層膜における材料の違いなど、基礎データを取得し、短パルスにおける損傷物理の理解を進めることができた。この仕事は、今後さらにエクサワット級レーザー装置開発へと繋がっていく。

研究以外の大きな流れは、レーザー損傷閾値のデータベース化である。2004年頃より、技術相談を通して多くのメーカーの光学素子のレーザー損傷閾値評価を進めてきた。当然、各メーカーにはそれぞれの損傷閾値の結果が報告され、光学素子の改善に活かされた。しかし、その損傷閾値が強いと言えるのか。また、他社の光学素子に比べて高い閾値をもつのか。など、比較可能なデータを望まれる声が聞かれるようになってきた。その要求に応えるために、2008年より「レーザー損傷閾値データベース化試験」と称して、同一仕様の光学素子を各メーカーに要求し、その光学素子を同じレーザー条件にて損傷閾値を評価することにより、比較可能なデータベースとすることを試みた。こ



図2 ピコ秒レーザー損傷評価用光学配置

のデータベース化試験の結果は、各メーカーにおいては自社の光学素子の現状を理解し、開発目標を設定するのに利用されるだろう。また、ユーザに対しては、レーザー装置を設計、使用する上で、エネルギーの上限を決定する基礎データになるだろう。2008年1064nm用45°ミラーを第1回として、現在(2012年5月)第9回、10回の募集を行っている。参加メーカー数、個数ともに回を重ねる毎に増加し、第3回532nm用45°ミラーでは約70個になり、評価を担当していた加藤宏太君(レーザー技術推進センターより出向)から嬉しい悲鳴が出るようになった。昔に比べると、レーザー装置も格段に安定し、評価もシステム化されたとは言え、人の手にかかる部分が多い装置である。1週間で70個を評価するのは大変だったと思う。賛助会社サービスと連携することになったのを機に、当初3個までを無料としていた参加費を、非賛助会社から頂くように切替えた。このデータベース化試験の結果は、我々にも新しい情報を与えた。詳細は研究発表の場に譲るが、メーカーにより損傷閾値が異なる光学素子とあまり変わらない光

学素子、市販海外製品との違い、短パルスレーザーに対する高耐力の条件など、今後、開発すべき要素を示唆するものとなった。

この5年を振り返り、高耐力光学素子やその損傷閾値の評価技術について、もう一度見直すことができた期間と感じる。物理的にも、技術的にも、まだまだ不確かなところも見えてきた。さて、次の5年。高耐力光学素子の基盤を支える技術へ育てていきたい。

最後に、この研究を協力支援して頂いた阪大レーザー研實野孝久特任教授をはじめ LOT グループの諸氏、「高耐力光学素子研究会」に参加頂いた皆さんに感謝の意を表す。

発表論文(主要)

- 1) 三上勝大、本越伸二、藤田雅之、實野孝久、河仲準二、安原亮、“石英バルク材料のレーザー内部損傷しきい値”、レーザー研究、**38**, 458 (2010).
- 2) 三上勝大、本越伸二、藤田雅之、實野孝久、高井正憲、宰原健二、堀越秀春、“紫外レーザー照射に対する石英材料内部損傷しきい値の温度依存性”、レーザー研究、**38**, 620 (2010).
- 3) 三上勝大、本越伸二、藤田雅之、實野孝久、“誘電体材料のレーザー耐力温度依存性”、電気学会論文誌 C、**132**, 83 (2012).
- 4) S. Motokoshi, K. Mikami and K.Kato, “Database on Laser -Induced Damage Thresholds for AR and HR Coatings in Japan”, Proc. of Laser Damage Symposium 2010, SPIE, **7842**, F-1 (2011).
- 5) S. Motokoshi, K. Kato, T. Somekawa, K. Mikami, E. Sato and T. Jitsuno, “Database on Damage Thresholds of Picoseconds Pulse for HR Coatings”, Proc. of Laser Damage Symposium 2011, SPIE, **8190**, 57 (2012).

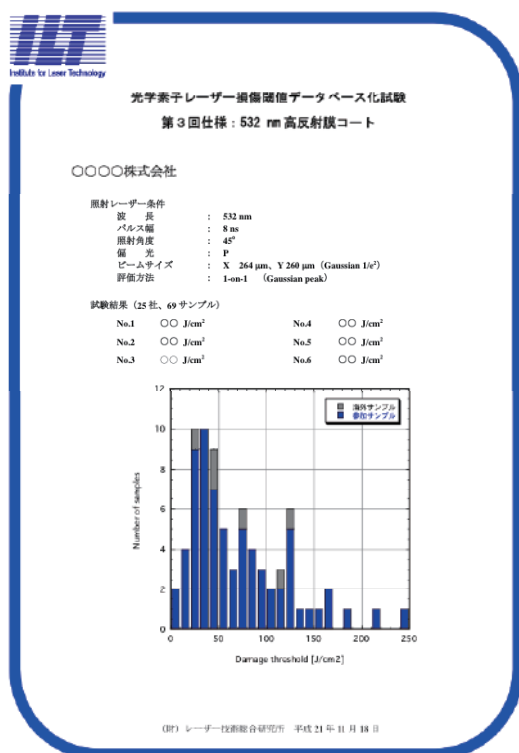


図 3 レーザー損傷閾値データベース化試験結果(例 第3回)

レーザーアブレーション法によるナノ粒子生産と エネルギー関連分野への応用

レーザーバイオ化学研究チーム

谷口誠治

1. 太陽光励起レーザーの応用に向けた取り組み

本研究は、当研究所で開発を進めてきた太陽光励起レーザーの応用研究の一環として、2010年から研究を開始したものである。本稿では、研究を始めるに至った経緯や、これまでの研究結果について述べる。

太陽光励起レーザーとは、太陽光をミラーやレンズ等で集光し、太陽光の数千倍のパワー密度を保ちながらレーザー媒質に照射・吸収させることで、レーザー媒質(Nd/Cr:YAG)を励起して発振や増幅を行うレーザーのことである。このレーザーは、太陽光をコヒーレントなレーザー光へ直接的に変換するため、高い効率(～40%)かつ非常に低いランニングコストで駆動できることが最大の特徴である。一方、太陽光励起レーザーの産業分野等への応用を考える場合には、いくらかの制限が生じることも確かである。太陽光励起レーザーは日中のみの駆動となるため、レーザー加工等、現在利用されているレーザー設備と単純に置き換えることは難しいであろう。また、熱エネルギーを利用するのであれば太陽光を単に集光して用いればよく、応用としてはレーザーの特性を生かしたものであることが重要となる。さらに最近では、太陽エネルギーの有効利用に対する関心がこれまでになく高まっていることから、太陽光励起レーザーを用いてエネルギーを何らかの形で蓄積あるいは変換し、化石燃料に替わるエネルギーとして利用することができれば、その有効性はより高まるものと考えられる。

筆者はこれらの条件を考慮し、太陽光励起レーザーをナノ粒子の生産に利用できないかと考えた。ナノ粒子を用いれば薄膜形成をしやすく、また表面積が大きいため反応効率も大きくなることから、近年、燃料電池や太陽電池の電極作成等に良く用いられる

ようになってきた。また、金属の酸化反応を利用した水素生産研究等についても、その反応性の高さから発生源としてナノ粒子がよく用いられる。このことから、太陽光励起レーザーを用いてナノ粒子を低コストで生産することができれば、エネルギー関連分野への応用としてその有用性を示すことができる。

レーザーを用いたナノ粒子生成法としては、金属板等の試料に高強度レーザーを直接照射してアブレート(蒸散)し、冷却ガス等により凝集させナノ粒子化する手法(レーザーアブレーション法)が知られる。通常、ナノ粒子生成は、真空チャンバー等を用いて気相で行われることが多いが、本研究では装置コスト、生産コスト等を考慮し、より簡便な手法である液中での生成法(液中レーザーアブレーション法)を選択した。

2. 液中レーザーアブレーション法

液中レーザーアブレーション法の実験図を図1に示す。レーザー光を水中のターゲット(試料)上に集光すると、集光点近傍にのみ高温状態が発生する。この時の温度は5000℃以上と予想される。光照射を受けた試料は瞬時に蒸散する。この時点では試料は原子あるいはクラスター状態であるが、集光点近傍を離れると周囲の液体により急速に冷却され、凝集してナノ粒子化する。この方式では液体が冷却剤を兼ねているため、化学気相成長法(CVD法)等の気相法のように気圧やガス組成を制御するチャンバーや冷却ガス等の冷却剤等を必要とせず、シンプルな装置の作成が可能である。また、生成ナノ粒子は反応直後に液中で冷却されるため粒径が小さい(～30nm)、生成ナノ粒子は液中に存在するため回収率が高く、粉塵公害等の環境への影響が少ない等の利点が挙げられ、この手法を応用すれば、より簡便で

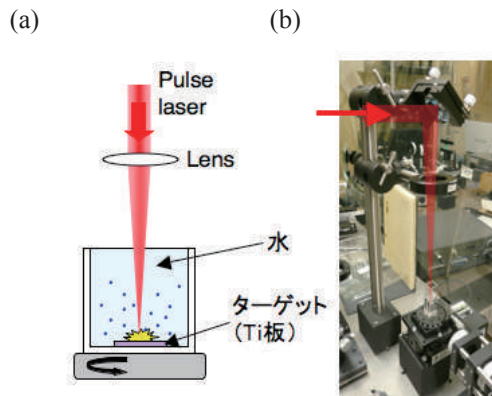


図1 (a)液中レーザーアブレーション実験図、
(b)実験時の写真

低コスト且つ環境適合性の高いナノ粒子生産システムの開発が可能となる。

3. 太陽電池部材としての酸化チタンナノ粒子の作成

太陽光の利用手段としては太陽電池が最有力であり、国内外で急速に導入が進められつつある。太陽電池の代表的なものとしてシリコン型太陽電池が知られるが、高い生産コスト、エネルギーコストが問題となっているため、より低コストで生産できる次世代型太陽光電池の開発が盛んに行われている。それらのうち実用化に近いものとして注目されているのが色素増感型太陽電池(図2)である。この電池は、材料としてシリコンを用いておらず、また作成過程が簡便で高温や真空等の条件を必要としないため、シリコン系に比べ低コスト、低エネルギーでの生産が可能になる。色素増感太陽電池には、半導体材料として酸化チタン(TiO_2)等の光触媒活性を持つ金属酸化物微粒子が用いられている。 TiO_2 は本来

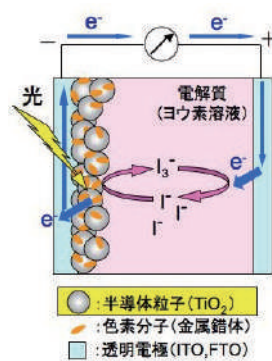


図2 色素増感型太陽電池の基本構造

顔料等に使用されるもので、生産量も多く比較的安価に入手可能であるが、通常は粒径が $1\mu\text{m}$ 以上と大きい。太陽電池の光変換効率を向上させ、実用性の高いものを作成する為には、比表面積の大きな粒径 30nm 以下の“ナノ粒子”を用い

ることが重要である。

この観点から、筆者は液中レーザーアブレーション法による酸化チタンナノ粒子の作成実験を行った。ターゲットにはチタン(Ti)板を用い、液体としては水を用いた。液体に水を用いることにより、蒸散したチタン原子は水と瞬時に反応して酸化し、酸化チタン(TiO_2)へと変化するものと予想された。光源としては太陽光励起レーザーを直接用いることが理想ではあったが、まずは照射条件を選定し易くするため、ナノ秒(ns)パルス $\text{Nd}^{3+}:\text{YAG}$ レーザー(Surelite II SLI-10、コンティニューム社、 1064nm 、ビーム径 6mm 、パルス時間幅約 8ns 、繰り返し周波数 10Hz 、光強度最大 3W ($300\text{mJ}/\text{pulse}$))を用いた。

4. ナノ粒子生成実験と物性評価

実際のナノ粒子生成は、蒸留水を満たしたセルの底にチタン板を置き、レンズで集光したパルスレーザーを照射する、といった簡便なものである(図1(b))。実験を開始した時点では筆者もこのような方式でナノ粒子ができるのかという点で半信半疑でもあったが、照射を進めていくと、透明であった液体部分が徐々に白濁していった(図3)。酸化チタンは白色を呈する(チタンは銀白色)ため、この時点でチタンから酸化チタンが生成したことは明らかである。また、生成した白濁液は実験後数日経過しても沈殿することは無く、恐らくナノメートルレベルの粒子が生成したであろうことも判断できた。このような形でレーザーによるナノ粒子生成実験は可能であることが分かったが、問題は生成物の物性をどう評価するかである。ナノ粒子の物性の評価法には様々あるが、重要なものはナノ粒子の粒径と組成、結晶構造を明確にすることである。筆者が最初に使用できたのは吸収スペクトルおよび動的光散乱法による粒径分析計のみであった。金、銀等の金属ナノ粒子の場合には、表面プラズモン現象により吸収スペクトルにピークが



図3 レーザー照射後の懸濁液の写真

見られるが、酸化物である TiO_2 ではこのような現象は表れない。また動的光散乱法では、生成したナノ粒子（1次粒子）同士が凝集し更に大きな粒子（2次粒子）を形成するため、精確な粒径分布が計測できない可能性がある。これらの分析には反射型電子顕微鏡（SEM）、透過型顕微鏡（TEM）、X線分析（EDS）や電子線アナライザ（EPMA）等による生成物の計測が必要となる。これらの計測をそのように行うのが大きな問題であったが幸いにもこの時期、これらの設備を全て有している（財）若狭湾エネルギー研究センターの支援を得ることができ、計測が可能となった。

図4、図5にそれぞれ生成酸化チタンのSEM観測像、TEM観測像の例を示す。SEM画像からは、生成物の粒子径が約70nm付近を中心とする分布を持ち、さらにそれらが凝集した1 μm 程度の粒子も見られることが分かった。また、界面活性剤により凝集を抑えた結果、粒子径は30nm付近にまで小さくすることができることがわかった。一方、TEMによる電子線回折の結果、生成する酸化チタンはルチル構造が主であり、完全に酸化されていない非晶質の低次酸化チタン（ $\text{Ti}_n\text{O}_{2n-1}$ （ $n=1\sim 10$ ））も混在することが明らかとなった。

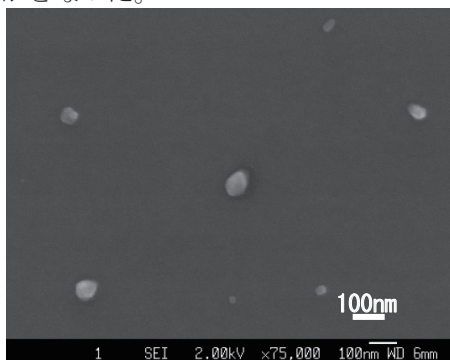


図4 生成ナノ粒子のSEM画像

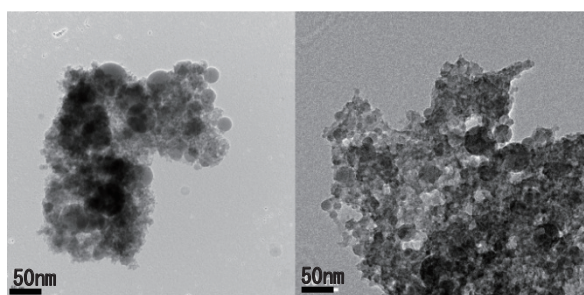


図5 生成ナノ粒子のBF-TEM画像

作成した酸化チタンは、その結晶構造や、低次酸化チタンの混入等の問題があるため現状ではそのまま太陽電池に利用することは難しいが、今後作成条件の絞り込みにより、より質の高い酸化チタンナノ粒子の作成に向け研究を行う予定である。

5. 酸化鉄の還元、ナノ粒子化と水素生産への応用実験

上記した酸化チタンナノ粒子はいわばエネルギー生産分野に関する間接的な応用であり、より直接的な応用として作成したナノ粒子の水素生産への応用を目指した研究を行っている。水素生産技術に関する研究は国内外で行われており、中でもアルミニウムや鉄等水との反応性が高い金属（活性金属）を用いて水を還元し水素を得る手法は、多くの研究例がある。一方これらの手法では、反応効率を上げるため金属をナノ粒子化する必要があること、また水と反応した金属酸化物を再利用するためには金属酸化物を還元して金属に戻す必要があるといった問題点もある。これに対し筆者は、レーザーを用いれば金属酸化物の還元とナノ粒子化を一段階で行うことができるのではないかと考えた。更に、太陽光励起レーザーを光源として用いれば、金属酸化物を水の酸化源としたクリーンな水素生産サイクルを構築することも可能であろう（図6）。筆者はこのようなモデルを確立するため、実際に太陽エネルギーレーザーを開発している関西大学システム理工学科佐伯准教授と共同で、液中レーザーアブレーション法による金属酸化物の還元を伴うナノ粒子生成に関する研究を行った。

実際に研究を進めるため、金属酸化物として酸化

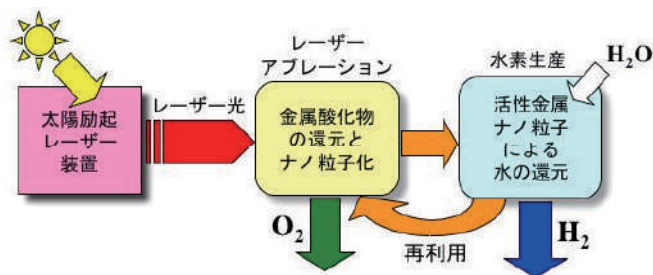


図6 太陽光をエネルギー源とする水素生産サイクル

鉄を用いることとした。その理由には、鉄は地球上に多く存在するベースメタルであり、入手が容易であること、酸化鉄には数種類あり、それぞれ色が異なるため還元反応を目視で判断しやすいこと、生成した還元鉄は常温では水を酸化しにくく加熱 (> 200°C) する必要があるものの、マグネシウムやアルミニウム等と比べて反応性が低いためかえって取り扱いがしやすく、安全性も高いことが挙げられる。

実験手法については、実は酸化チタン生成実験で行ったような照射法を用いることが難しい。その理由は、酸化鉄のような金属酸化物は一般に粉体で存在するため、結晶化や板状に加工することが難しい点にある。また、液中レーザーアブレーションでは液体として通常水が用いられるが、この場合には一旦生成した金属粒子が水との反応により再酸化されるため、水以外の溶媒を用いる必要がある。さらには液体中に空気（酸素）が存在する場合には一旦還元された金属が酸素と再酸化する可能性が高いことも問題である。これらの対策として、筆者は図7に示すレーザー照射系を用いた。液体としては酸化力の弱いアセトン等の有機溶媒を使用する。金属酸化物粉体はマグネットスターラーにより攪拌し、レーザー光を横から照射することにより金属酸化物粉体への照射強度を一定に保つことができる。また液体は不活性ガス（アルゴン）により置換し、溶存酸素の影響をできる限り抑制した。

金属酸化物として粒径約 45 μm の粉末状第二酸化鉄 (Fe_2O_3) を使い、レーザー光源にはナノ秒パルス YAG レーザー (1064nm、ビーム径 6mm、パルス時間幅約 8ns、繰り返し周波数 10Hz、光強度 1W (100mJ/pulse)) を用いた。レーザー照射を行うと、第

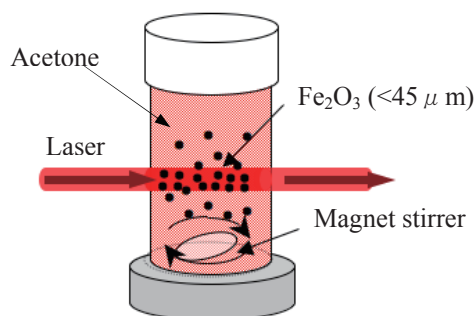


図7 レーザー照射実験図

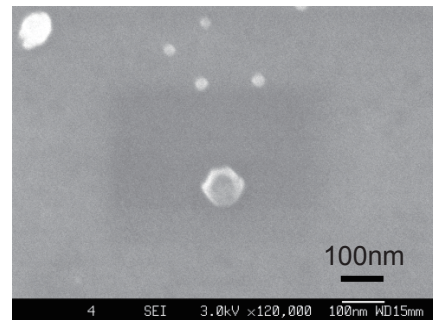


図8 レーザー照射後の生成粒子の SEM 画像

二酸化鉄はまず微細化し、試料の色は赤色から黒色に徐々に変化していった。試料の色の変化は、赤色の第二酸化鉄がレーザーにより黒色の第一酸化鉄 (Fe_3O_4) に還元されたことを示す。照射後の試料を回収し、SEM による粒子径の観測を行ったところ、20-100nm 近辺の粒子が観測され(図8)、レーザー照射により酸化鉄のナノ粒子化が起こることが分かった。EPMA(電子線マイクロアナライザ)による生成粒子表面の組成分析を行ったところ、試料の組成は Fe:O が約 1:1(化学量論比)となり、 Fe_2O_3 の組成比に比べ酸化数が低下した。このことから Fe_2O_3 から FeO(および不均化により生成する Fe_3O_4) への還元も同時に起こることが明らかとなった。

6. まとめと今後

本研究では、液中レーザーアブレーション法により二酸化チタンナノ粒子、および(酸化)鉄ナノ粒子生成実験を行い、酸化チタンナノ粒子、および還元酸化鉄ナノ粒子の生成を確認できた。しかしながら、生成ナノ粒子の粒径分布や物性は、応用にそのまま利用できるところまでは至っていない。今後は実験条件の絞り込み等を行ってより高精度のナノ粒子を作成し、エネルギー効率等も考慮して実際の応用に適用することを目的とした研究を進めていきたいと考えている。

発表論文

- 1) 谷口誠治、佐伯拓、岡田竹弘、古隆志、液中レーザーアブレーション法による活性金属ナノ粒子生成とその応用、レーザー学会第421回研究会報告、No.RTM-11-56, 25 (2011).

高速点火レーザー核融合研究

理論・シミュレーションチーム

砂原 淳

1. レーザー核融合の発展

2012 年は 1960 年に Meiman 等によってレーザーが発明されてから 52 年目にあたる。この間、レーザーは科学探求の道具として、また、光ファイバー通信に代表される情報分野、溶接、加工、切断などの工学分野、さらには医用分野への応用等、様々な分野に浸透し、目覚ましい発展を遂げてきた。核融合反応を用いて無尽蔵のエネルギーを取り出すという人類の夢、レーザー核融合研究も着実に発展して来た。2012 年の今年には米国の国立点火施設(National Ignition Facility: NIF)が人類初の制御熱核融合点火を達成すべく努力をしている段階にある。また、日本では大阪大学レーザーエネルギー学研究センターが高速点火レーザー核融合の原理実証実験(FIREX)を推進している。この高速点火レーザー核融合研究にレーザー技術総合研究所も理論・シミュレーションを中心として直接及び間接的に協力して来た。最近の高速点火レーザー核融合研究を振り返る。

2. 高速点火

日本のレーザー核融合研究は、阪大レーザー研を中心として、高速点火方式をこの 10 年あまり追求してきた。高速点火方式は NIF で採用されている自己点火方式、即ち、爆縮で燃料の圧縮と加熱の両方を達成しようとするものとは異なり、爆縮で燃料を高密度に圧縮しておき、別のレーザーを用いて加熱を行うものである。自動車のディーゼルエンジンと点火プラグで火をつけるガソリンエンジンとの対比がよく比喻で用いられる。この高速点火方式はより小さなレーザーエネルギーで高い核融合利得を得ることができると予測されているが、加熱の物理が複雑になるのが欠点である。NIF で核融合点火は実現されるだろうが、点火後を考えてとき、出来るだけ少

ないレーザーエネルギーで核融合利得を得る方向に研究が向かうのは必然であり、高速点火レーザー核融合研究はその先鞭をつけていると言える。

3. FIREX

日本の高速点火レーザー核融合研究は現在、阪大レーザー研を中心に、追加熱レーザーを用いて爆縮されたプラズマを点火温度に加熱することを目標として、高速点火原理実証実験(FIREX)のフェーズ I が進行中である。レーザー総研も阪大の FIREX 実験チームと協力して、主に理論・シミュレーション分野で研究を続けて来た。高速点火研究で一番の要となる物理は加熱の物理である。爆縮によって圧縮されたプラズマが高密度を保持出来るのは数 10 ピコ秒以内であるため、この短い時間の中に点火に必要なエネルギーを投入するための超高強度短パルスレーザーが加熱レーザーとして使われる。加熱用レーザーとして、阪大レーザー研では超高強度短パルスレーザーLFEX を建設してきた。2009 年から LFEX レーザーを用いた高速点火実験を開始し、児玉等が 2003 年に Nature に発表した成果を上回る中性子数を観測した。しかしながら目標の点火温度を達成するには解決しなくてはならない課題があることもわかって来た。

4. コントラスト

レーザー総研と阪大レーザー研の理論・シミュレーションチームは 2009 年の段階で既に LFEX のコントラストが実験で重要なファクターになることを予測していた。その前年の 2008 年にフランスの Baton によって、たった $7\mu\text{m}$ のスケール長のプリプラズマが存在しただけで高速電子の伝搬が妨げられるという計算結果が出ており、FIREX 実験におけるプレブ

ラズマレベルを評価する必要があった。幸い、レーザー総研では極端紫外(EUV)光源開発研究の実績があり、高Z物質にNd:YAGレーザーが照射された時のプラズマ膨脹の多次元シミュレーションを行っていたため、高速点火で用いられる金コーンにLFEXレーザーのプリパルスが照射される際のプリプラズマの生成を評価できる状況にあった。我々の計算結果は30-50 μm のスケール長でプリプラズマが存在するというものであり、LFEXレーザーのコントラストの改善が必要であるとのメッセージをレーザー、実験チームに比較的早い段階で出す事が出来た。また、超高強度レーザーパルスによる高速電子の発生についてPICシミュレーションが行われ、プリプラズマが存在すると高速点火に寄与する数MeVの高速電子の発生が著しく減少することが判った。最近5年間のFIREXプロジェクトにおける理論・シミュレーションの最大のトピックスはこのプリプラズマ関連テーマであったと言え、現在も金コーンの最適化等、有益な知見を得るための研究努力が続いている。

5. 高速電子の発散角

もう一点、重大な問題となっているのが、超高強度レーザーによって発生する高速電子の発散角の広さである。プレプラズマ問題同様、この問題は高速点火において爆縮されたコアを加熱する際の加熱効率に直接影響する。米国や中国などのPIC計算を行う研究者等と議論、共同研究により、発生する高速電子の不安定性はワイベル不安定性により全角100°にも広がる事がコンセンサスとなってきている。現在、LFEXの照射点と爆縮プラズマコアの間は50 μm 程度離れており、この距離はコーン先端を爆縮の高圧力による破壊から守るためになかなか小さく出来ない。このような状況において高速電子の発散角が100°もあれば、発生した高速電子のごく一部しか爆縮コアに到達しなくなる。

6. 磁場

我々は高速電子の発散角問題に対して磁場を利用

した高速電子の収束を試みようとしている。自己生成磁場、外部印加磁場の両方を用い、高速電子が発散せず、爆縮された高密度プラズマの方向に飛ぶように出来る可能性がある。既にFIREX実験チームにより、磁場生成の基礎実験も開始された。この磁場を用いる高速電子収束のアイデアはいささか難易度が高いが、成功すれば加熱効率を著しく向上させることが出来ると考えられ、期待が高まっている。

7. もう一つの研究プロジェクト

大阪大学レーザーエネルギー学研究センターを中心に行われているFIREXプロジェクトについて述べたが、日本の高速点火レーザー核融合研究プロジェクトはもう一つある。光産業創成大学院大学を中心として進められている高速点火レーザー核融合研究プロジェクトである。レーザー技術総合研究所は光産業創成大学院大学を中心とした研究グループとも協力して主に理論研究を行っている。このグループは数Jの小型レーザーながら、中性子の連続発生など、核融合の実用化を目指した研究を推進しており、阪大のFIREX計画と並んで精力的に研究を行い、成果を挙げている。

謝辞

本研究は大阪大学レーザーエネルギー学研究センター、及び光産業創成大学院大学との共同研究で進められている。

発表論文（最近3年間）

- 1) Y. Kitagawa, Y. Mori, O. Komeda, K. Ishii, R. Hanayama, K. Fujita, S. Okihara, T. Sekine, N. Satoh, M. Takagi, T. Kawashima, H. Kan, N. Nakamura, T. Kondo, M. Fujine, H. Azuma, T. Motohiro, T. Hioki, Y. Nishimura, A. Sunahara and Y. Sentoku, "Fusion Using Fast Heating of a Compactly Imploded CD Core", *Phys. Rev. Lett.*, **108**, 155001-1-5 (2012).
- 2) A. Sunahara, T. Johzaki, H. Nagatomo and K. Mima, "Generation of Pre-plasma and Its reduction for Fast Ignition", *Laser and Particle Beams*, **30**, 95 (2012).

- 3) H. Sakagami, A. Sunahara, T. Johzaki and H. Nagatomo, "Effects of long rarefied plasma on fast electron generation for FIREX-I targets", *Laser and Particle Beams*, **30**, 103 (2012).
- 4) H. Shiraga, S. Fujioka, M. Nakai, T. Watari, H. Nakamura, Y. Arikawa, H. Hosoda, T. Nagai, M. Koga, H. Kikuchi, Y. Ishii, T. Sogo, K. Shigemori, H. Nishimura, Z. Zhang, M. Tanabe, S. Ohira, Y. Fujii, T. Namimoto, Y. Sakawa, O. Maegawa, T. Ozaki, K. Tanaka, H. Habara, T. Iwawaki, K. Shimada, H. Nagatomo, T. Johzaki, A. Sunahara, M. Murakami, H. Sakagami, T. Taguchi, T. Norimatsu, H. Homma, Y. Fujimoto, A. Iwamoto, N. Miyanaga, J. Kawanaka, T. Jitsuno, Y. Nakata, K. Tsubakimoto, N. Morio, T. Kawasaki, K. Sawai, K. Tsujii, H. Murakami, T. Kanabe, K. Kondo, N. Sarukura, T. Shimizu, K. Mima and H. Azechi, "Fast Ignition Integrated Experiments with Gekko and LFEX Lasers", *Plasma Physics and Controlled Fusion*, **53**, 124029 (2011).
- 5) T. Johzaki, H. Nagatomo, A. Sunahara, H-B. Cai, H. Sakagami and Y. Nakao, "Pre-plasma effects on core heating and enhancing heating efficiency by extended double cone for FIREX", *Nuclear Fusion*, **51** 073022 (2011).
- 6) M. Koga, Y. Arikawa, H. Azechi, Y. Fujimoto, S. Fujioka, H. Habara, Y. Hironaka, H. Homma, H. Hosoda, T. Jitsuno, T. Johzaki, J. Kawanaka, R. Kodama, K. Mima, N. Miyanaga, M. Murakami, H. Nagatomo, M. Nakai, Y. Nakata, H. Nakamura, H. Nishimura, T. Norimatsu, Y. Sakawa, N. Sarukura, K. Shigemori, H. Shiraga, T. Shimizu, H. Takabe, M. Tanabe, K. A. Tanaka, T. Tanimoto, T. Tsubakimoto, T. Watari, A. Sunahara, M. Isobe, A. Iwamoto, T. Mito, O. Motoima, T. Ozaki, H. Sakagami, T. Taguchi, Y. Nakao, H. Cai, M. Key, P. Norreys and J. Pasley, "Present Status and Future Prospect of Fast Ignition Realization Experiment (FIREX) with Gekko and LFEX Lasers at ILE", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, **653**, 84 (2011).
- 7) Z. Zhang, M. Nishikino, H. Nishimura, T. Kawachi, A. S. Pirozhkov, A. Sagisaka, S. Orimo, K. Ogura, A. Yogo, Y. Okano, S. Ohshima, A. Sunahara, S. Fujioka, H. Kiriya, K. Kondo, T. Shimomura and S. Kanazawa, "Efficient multi-keV x-ray generation from a high-Z target irradiated with a clean ultra-short laser pulse", *Optics Express*, **19**, 4560 (2011).
- 8) H. Nishimura, H. Azechi, K. Mima, Y. Fujimoto, S. Fujioka, H. Homma, T. Jitsuno, T. Johzaki, M. Koga, J. Kawanaka, T. Kawasaki, N. Miyanaga, H. Murakami, M. Murakami, H. Nagatomo, N. Morio, K. Nagai, M. Nakai, T. Nakamura, T. Nakazato, Y. Nakata, K. Nishihara, T. Norimatsu, Y. Sakawa, N. Sarukura, K. Shigemori, T. Shimizu, H. Shiraga, K. Sueda, K. Tsubakimoto, A. Iwamoto, T. Mito, H. Sakagami, M. Isobe, T. Ozaki, O. Motojima, R. Kodama, K. A. Tanaka, H. Habara, K. Kondo, Y. Nakao, Y. Sentoku, A. Sunahara, T. Taguchi and T. Kanabe, "Present status and future prospect of Fast ignition Realization Experiment (FIREX) Project at ILE, Osaka", *AIP Conf. Proc.*, **1209**, 83 (2010).
- 9) K. Mima, A. Sunahara, H. Shiraga, H. Nishimura, H. Azechi, T. Nakamura, T. Johzaki, H. Nagatomo, C. Garcia and P. Velarde, "FIREX project and effects of self-generated electric and magnetic fields on electron-driven fast ignition", *Plasma Phys. Control. Fusion* **52**, 124047 (2010).
- 10) A. Sunahara, T. Johzaki, H. Nagatomo and K. Mima, "EFFECTS OF PRE-FORMED PLASMA INSIDE A GUIDING CONE IN FAST IGNITION SCHEME", *Journal of Physics: Conference Series*, **244**, Part 2, 022079-1-5 (2010).
- 11) Hong-bo Cai, K. Mima, T. Jozaki, H. Nagatomo, A. Sunahara, W. Zhou and R. J. Mason, "Collimation of relativistic laser-generated high energy electron beams via double cone target in fast ignition scheme",

- Journal of Physics: Conference Series, **244**, Part 2, 022030-1-5 (2010).
- 12) M. Hata, H. Sakagami, A. Sunahara, T. Jozaki and H. Nagatomo, “Effects of preformed plasma of CH foam on fast electron generation”, Journal of Physics: Conference Series, **244**, Part 2, 022037-1-5 (2010).
- 13) T. Johzaki, H. Nagatomo, A. Sunahara, H-B. Cai and K. Mima, “Integrated simulations of core heating in cone-guiding ast ignition, FIREX-I”, Journal of Physics: Conference Series, **244**, Part 2, 022040-1-5 (2010).
- 14) H. Nagatomo, T. Johzaki, A. Sunahara, H. Shiraga, H. Sakagami, H. Cai and K. Mima, “Controlling dynamics of imploded core plasma for fast ignition”, Journal of Physics: Conference Series, **244**, Part 2, 022050-1-5 (2010).
- 15) H. B. Cai, K. Mima, A. Sunahara, T. Johzaki, H. Nagatomo, S. Zhu and X. T. He, “Prepulse effects on the generation of high energy electrons in fast ignition scheme”, Phys. Plasmas, **17**, 023106-1-8 (2010).
- 16) H. Azechi, K. Mima, Y. Fujimoto, S. Fujioka, H. Homma, M. Isobe, A. Iwamoto, T. Jitsuno, T. Johzaki, R. Kodama, M. Koga, K. Kondo, J. Kawanaka, T. Mito, N. Miyanaga, O. Motojima, M. Murakami, H. Nagatomo, K. Nagai, M. Nakai, H. Nakamura, T. Nakamura, T. Nakazato, Y. Nakao, K. Nishihara, H. Nishimura, T. Norimatsu, T. Ozaki, H. Sakagami, Y. Sakawa, N. Sarukura, K. Shigemori, T. Shimizu, H. Shiraga, A. Sunahara, T. Taguchi, K. A. Tanaka and K. Tsubakimoto, “Plasma physics and laser development for the Fast-Ignition Realization Experiment (FIREX) Project”, Nucl. Fusion, **49**, 104024 (2009).
- 17) H. B. Cai, K. Mima, W. M. Zhou, T. Jozaki, H. Nagatomo, A. Sunahara and R. J. Mason, “Enhancing the Number of High-Energy Electrons Deposited to a Compressed Pellet via Double Cones in Fast Ignition”, Physical Review Letters, **102**, 245001-1-4 (2009).
- 18) H. Nagatomo, T. Johzaki, H. Sakagami, Y. Sentoku, A. Sunahara, T. Taguchi, H. Shiraga, H. Azechi and K. Mima, “Numerical Study of the advanced target design for FIREX-I”, Nuclear Fusion, **49**, 075028-1-6 (2009).

様々な種類の物理現象のシミュレーションを行うにあたり

理論・シミュレーションチーム

古河裕之

1. 極端紫外光源開発研究

筆者は、(財)レーザー技術総合研究所に入所以来、様々な物理現象のシミュレーションを行ってきた。その中でも、2003年度から2007年度にかけて参加した「極端紫外光源開発プロジェクト」抜きには、何も語れない。

「極端紫外光源開発プロジェクト」は、大学と産業界が相補に協力し合いながら研究開発を行う、という画期的なものであった。しかも、文部科学省と経済産業省が協力し合う、という稀有なプロジェクトであった。

大学側では、大阪大学レーザーエネルギー学研究中心を中心に、「レーザー開発チーム」、「ターゲット開発チーム」、「プラズマ実験チーム」、「理論・シミュレーションチーム」の4つの柱となるチームが作られた。筆者は「理論・シミュレーションチーム」の一員として、研究を行うこととなった。当初筆者に与えられた課題は、「状態方程式コードの開発」であった。筆者は、レーザー核融合炉設計研究の将来の発展を考えた際に、これを機に「放射流体シミュレーション」を行える技術を会得する必要がある、と考えていた。このことが、後述のように、極端紫外光源開発プロジェクト及びレーザー核融合炉設計研究に大きく役立った。

開発した状態方程式コードは、中性気体も扱えるコードであった。2003年当時、筆者は核融合科学研究所との一般共同研究において、「ダイバータの熱負荷における vapor shielding の効果に関する研究」も行っていた。ここでの vapor とは、「中性気体」のことである。開発した状態方程式コードは、核融合科学研究所との共同研究にも使用できうるものであった。状態方程式コードと並行して、原子モデルコード、流体コード、スペクトルコードの作成も行い、「放射流体シミュレーション」を行うための統合シ

ミュレーション技術を習得していった。

錫の平板にレーザーを照射し、アブレーションにより放出された気体における「中性気体」の割合をシミュレーションにより評価したところ、「7割位が中性気体である」という計算結果となった。2004年3月「中性気体の評価」も含んだ内容で学会発表を行なった。これ以降、デブリ対策に関する研究が大きく取り上げられることになり、中性粒子発生を抑えるための「最小質量ターゲット開発」へと発展していった。

筆者は、筆者単独で放射流体統合シミュレーションを行うスキルを得た。筆者が開発した「レーザーアブレーション統合シミュレーションコード」は、以下のアドバンテージを持つ。

- 中性気体、中性粒子を取り扱える。
- 固体から液体、液体から中性気体、中性気体から部分電離プラズマへの相変化を取り扱える。
- 固液界面、気液界面を取り扱える。
- 錫、キセノンだけでなく、色んな物質を比較的簡単に取り扱える。

これらのアドバンテージにより、「レーザー核融合炉チェンバー液体壁のアブレーション」、「レーザーピーニング」、「レーザーアブレーションによるロケットエンジン着火」、「レーザー照射による水素拡散」などの研究展開の拡がりを見せることになる。

2. レーザー核融合炉チェンバー液体壁のアブレーションのシミュレーション

筆者は1999年頃から、「レーザー核融合炉チェンバー液体壁のアブレーションのシミュレーション」を行っていた。2004年以降、「極端紫外光源開発プロジェクト」で得たスキルを投入し、様々な改良を行い、「レーザー核融合炉チェンバー液体壁のアブレーションのシミュレーションコード」を開発した。

レーザー核融合においては、核融合反応により生じた中性子、 α 粒子、X 線等、及び炉心プラズマデブリ粒子が照射されることにより、核融合炉チェンバー、特にその最も内側の壁（これを第一壁と呼ぶ）は、非常な高温環境下にさらされる。

レーザー核融合概念設計炉 KOYO-F では、第一壁は厚さ 3~5 mm の液体リチウム鉛の滝で保護されている。1 ショット当たり発生する核融合エネルギーは 200MJ、ターゲットとチェンバー第一壁の最短距離は 3 m となっている。このような条件下では、液体壁は液体から中性気体、部分電離プラズマへと相変化を伴いながらアブレーションする。アブレーションにより生成されたプルーム（気体、液体、固体などの塊）中では、クラスター生成、プルームの凝縮（気体から液体への相変化）が起こることが予想される。

このような現象をシミュレーションするためには、「極端紫外光源開発プロジェクト」で開発したシミュレーションコードの機能に加え、「物質と荷電粒子の相互作用シミュレーション」、「クラスター生成過程、プルームの凝縮過程のシミュレーション」の機能が必要であった。2004 年頃から、新たな機能を含んだ統合シミュレーションコードの開発に取り組んだ。

2004 年から、「レーザー核融合炉設計委員会」と「レーザー核融合炉要素工学研究会」が設立された。前者はレーザーエネルギー学研究センター主催、後者は阪大工学部の教授の主催であり、筆者は双方の幹事に任命された。「レーザー核融合炉設計委員会」は 4 つのワーキンググループを持ち、筆者は「レーザーワーキンググループ」と「炉システムワーキンググループ」の 2 つのワーキンググループの委員となった。「炉システムワーキンググループ」と「レーザー核融合炉要素工学研究会」は、研究内容がよく似ており、筆者の研究成果は両者の研究進展に大きく貢献した。

3. レーザーピーニングのシミュレーション

先に述べた極端紫外光源開発プロジェクトは、期間が 5 年と決められていた。筆者は、「極端紫外光源

開発プロジェクトが終了する前に、新しいテーマを作り出さなければならない。」と常々思っていた。ある先生から、「レーザーピーニングのシミュレーションをやってくれないか？」という依頼があった。レーザーピーニングとは、レーザーアブレーションによりプルームを生成し、その反作用として生じる圧力により、固体内部に衝撃波を発生させ、圧縮応力状態を作り、固体の強度を高める技術である。「固体から液体、液体から中性気体、中性気体から部分電離プラズマへの相変化を取り扱える」「固液界面、気液界面を取り扱える」「色んな物質を比較的簡単に取り扱える」、という筆者のシミュレーションコードの特長を、十二分に活かせる研究テーマである。

レーザーピーニング業界は、産業応用に近いということもあり、ほとんどが実験的研究である。金属（主に鉄系の合金）にレーザーを照射して、硬度がどの程度変化したか、残留応力がどの程度生成されたか、を測定する実験がほとんどである。

理論解析としては、市販の有限要素法を用いたコードを用いて応力解析を行う、というものがほとんどである。プルームの振る舞いは固体表面の圧力変化、として考察されるのみである。固体内部の温度変化も考慮されていないものがほとんどである。レーザーと物質の相互作用の研究は、ほとんど行われていない。「レーザーと物質の相互作用」「温度上昇」「物質の相変化」「プルームの放射流体運動」を連立させて計算している研究は、他にない。現在、近畿大学及び大阪産業大学で、レーザーアブレーション生成プルームに関する実験的研究等が進んでおり、レーザー総研と相補に協力しあいながら、研究を進めている。

4. 太陽光励起半導体レーザーのシミュレーション

放射流体関連ばかりではなく、「太陽光励起半導体レーザーのシミュレーション」も行なったことがある。半導体中のエネルギーギャップにより太陽光を吸収させ、電子を励起し、それにより電流を発生させてレーザー光を発振させる、というメカニズムである。半導体物理は専門外であるが、お話を頂いてからシミュレーションコードのプロトタイプが出来

上がるまで、2ヶ月未満であったと記憶している。

発表論文

- 1) 古河裕之、藤田和久、森谷信一、“ロケットエンジンレーザー着火におけるレーザーアブレーションのシミュレーションコードの開発”、プラズマ核融合学会誌、**87**, 642 (2011).
- 2) 古河裕之、乗松孝好、“レーザー核融合液体壁炉チェンバー内のアブレーション生成プルームのシミュレーション”、プラズマ核融合学会誌、**87**, 51 (2011).
- 3) 功刀資彰、古河裕之、“「今、核融合炉の壁が熱い！ 数値モデリングでチャレンジ」、第10回 壁は熱でどうなるか”、日本原子力学会誌、**51**, 416 (2009).
- 4) 相良明男、乗松孝好、古河裕之、他、“「今、核融合炉の壁が熱い！ 数値モデリングでチャレンジ」、第12回、まとめと今後の展望”、日本原子力学会誌、**51**, 563 (2009).
- 5) H. Furukawa, “Dynamics of ablation plumes produced by fusion products in laser fusion liquid wall chamber”, Journal of Plasma and Fusion Research Series, **8**, 1256 (2009).
- 6) H. Furukawa, M. Heya and M. Yamanaka, “Simulation on Laser Peening”, Proceedings of LAMP2009, online journal, <http://www.jlps.gr.jp/en/proc/lamp/09/00015.pdf>
- 7) H. Furukawa, “Study on dynamics of ablation plumes produced by fusion products in laser fusion liquid wall chamber”, IFSA2007 Proceeding, IOP Publishing, Journal of Physics: Conference Series, **112**, 032041 (2008).
- 8) 古河裕之、“錫ターゲットを用いたレーザー生成 EUV 光源におけるデブリ発生の評価”、レーザー研究、**36**, 742 (2008).
- 9) 神前康次、乗松孝好、古河裕之、林 巧、惣万芳人、西川正史、苫米地顕、“高速点火レーザー核融合発電プラント(KOYO-Fast)の概念設計／炉チェンバー・炉システム”、プラズマ核融合学会誌、**83**, 19 (2007).
- 10) T. Norimatsu, J. Kawanaka, M. Miyanaga, H. Azechi, K. Mima, H. Furukawa, Y. Kozaki, K. Tomabechi, “Conceptual Design of Fast Ignition Power Plant KOYO-F Driven by Cooled YB:YAG Ceramic Laser”, Fusion Sci. and Technol., **52**, 893 (2007).

レーザー計測

超音波探傷技術

金属疲労劣化検出

検出感度の向上

干渉縞安定化

新幹線トンネル実験

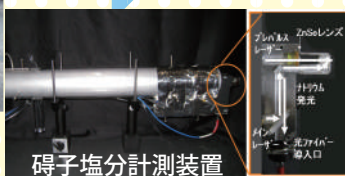


ホログラム干渉計

無レンズ結像加工技術



ひび割れの評価、高架橋欠陥検出



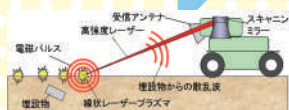
レーザープラズマ光線応用

レーザー誘雷

碍子塩分濃度計測

非平衡プラズマによる脱塩素化

レーザープラズマ・マイクロ波相互作用(埋設物探査)



環境応用



降雨予測(水蒸気プロファイル)

リモートエリプソメトリー実証実験

白色光ライダー

温室効果ガス(二酸化炭素)計測

リモートLIBS

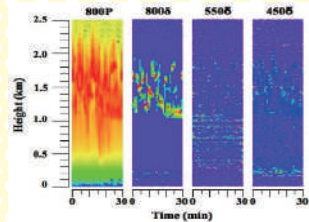
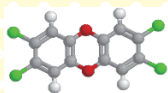
偏光解消度計測

黄砂観測

フェムト秒レーザーを用いたダイオキシン類検出

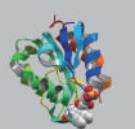
水中・水表面レーザーブレイクダウン分光法(LIBS)

水中ラマンライダーの開発



バイオ化学

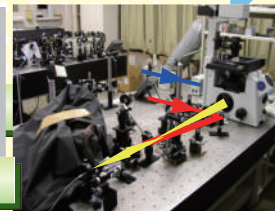
蛋白質構造計算



光機能性蛋白質のメカニズム解明

フラビン蛋白質の電子移動

顕微フェムト秒蛍光顕微鏡の開発



光活性黄色蛋白質(PYP)

蛋白質結晶の計測

Sub-10fs過渡吸収計測

励起状態円二色性



光導電効果の研究

2003

2004

2005

2006

2007

2008

2009

2010

2011

2012

レーザーを用いたコンクリート欠陥検出実験

レーザー計測研究チーム

島田義則

1. はじめに

山陽新幹線トンネル覆工コンクリート剥落事故後、レーザーを使ったコンクリート欠陥検査研究を開始した。2006年度からは、国からの支援を受けて、研究は更に進展して今では新幹線トンネル内の欠陥を検査出来る装置を構築した。本稿では、今まで行った実験を時系列で紹介する。

2. コンクリート欠陥検査原理

レーザーによる欠陥探傷の原理を説明する。衝撃波励起用パルスレーザーをコンクリート表面に照射し、コンクリート表面に微小振動を発生させる。次いで、検出用レーザー（連続光）をコンクリート表面に照射し反射された光を検出する。この反射光はコンクリート表面の微小振動に起因した周波数変調を受けており、スペクトル解析することで微小振動モードを得る。この微小振動モードは欠陥の有無により変化するため、微小振動モードを解析することで欠陥の遠隔・非接触検出ができる。

コンクリート振動の振幅は10～100 nm程度で、トンネル半径は約5 mである。これは1 cmの振動を500 km（約東京～大阪間）離れた場所から計測することに匹敵するほどの精度の高い計測である。

3. 宝塚トンネル実験

室内の実験において、コンクリート供試体の模擬欠陥が検出できることを確認した上で、旧福知山線の廃線トンネル内で、コンクリート実欠陥を検査す

る実験を行った。廃線トンネルまでの路面状況は悪く、軽トラックが普通に入っていける路面ではなかった（図1左）。このため、片輪を路肩にはみ出し、斜めになりながらトンネルまでたどり着いた。このトンネルは大正時代に作られたため、今では至る所にコンクリート欠陥が存在する。金槌でコンクリートを叩くとすぐにコンクリートの浮きを確認できた。その中で比較的検出が困難な欠陥を選びレーザーによる検査実験を開始した。一番の気がかりであったことは実験場でレーザーが故障せずに発振してくれるかどうかであった。レーザー装置に対して固定方法の工夫や、二重エアーススペンション等を用い、さらに運搬時は細心の注意を払い運転した。その甲斐あってレーザーは無事発振した。また、レーザー装置の動作確認も1日で完了した。

レーザー装置をコンクリート表面から50 cmから1 m離して設置し、レーザーをコンクリート表面に照射して欠陥検査実験を行った。レーザー装置は欠陥を検出することが出来た。2週間で数個の欠陥検査を行い、野外実験を無事に終えた（図2）。

4. 検出感度の向上が急務

半径5mの新幹線トンネルコンクリートの検査を行うためには、最低でも5m遠方から探傷できる能力が必要である。しかし、いままでの装置では1.5mが限界で、5m遠方のコンクリート探傷を行うためには、



図1 旧福知山線廃線トンネル

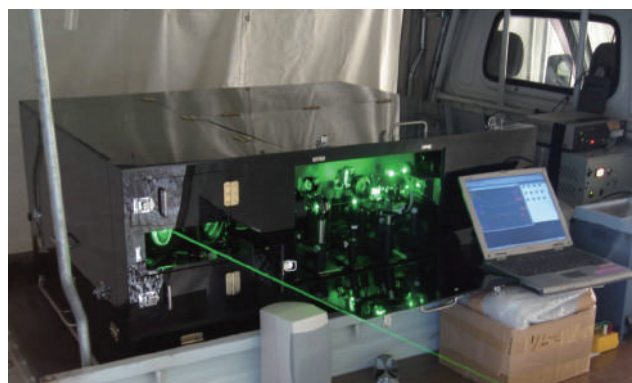


図2 レーザーコンクリート検査装置

装置のシグナル・ノイズ比(S/N比)を向上させる必要があった。S/N比を向上させるためには①装置内に使用するフォトリフラクティブ結晶中で参照光の回折効率を向上させること、②検出用レーザーのパワーを増強し、コンクリートから反射して戻ってくる信号光のパワーを増加させる方法がある。①の方法で信号振幅を約9倍増加させた。さらに、検出用レーザーのエネルギーを0.25W から2W に増強させることによりS/N比を約6倍向上させた。合わせて約50倍のS/N比の向上ができた。

6. 揺らぎ補償装置

トンネルコンクリートや探傷装置はそれぞれ固有の振動数で揺らいでいる。コンクリートとレーザー装置が個々に固有振動を持ち揺らいでいると、レーザー装置からコンクリートに向けて照射したレーザー光路が時間的に変化することとなり、コンクリートからの反射光と参照光で作られる、フォトリフラクティブ結晶内の干渉縞コントラストは低下する。最悪の場合は計測が出来ないこともある。このため、トンネルコンクリートと探傷装置の相対揺らぎを取り除くことが必要である。当研究所では、相対揺らぎを補償する装置を開発した(フォトリフラクティブ結晶中の干渉縞を安定化させる装置:干渉縞安定化装置)。干渉縞安定化装置はコンクリート表面から反射して戻ってくる反射光と参照光と



図3 山陽新幹線の第2滝ガ谷橋梁での実験

の位相ずれを検出し、 piezoelectric actuator に設置したミラーを駆動させることによってずれを補償し、相対揺らぎを停止させた。これによりフォトリフラクティブ結晶内に書き込まれる干渉縞のコントラストが高くなり、S/N比が約3倍向上した。

7. 新幹線橋梁のコンクリート欠陥検査

レーザー探傷装置を山陽新幹線の橋梁へ持ち込み、5m先の実コンクリート欠陥検査実験を行った(図3)。探傷箇所は橋梁の天井部分に入ったコンクリート浮きとした。図4に検出用レーザーをミラーで走査することにより得られた2次元の欠陥画像を示す。約20×30cmを2.5cm間隔で走査した。中央の黒色箇所がコンクリート浮きである。この欠陥の他にも探傷を行い、同じような結果を得た。

8. 新幹線トンネルでのコンクリート欠陥検査実験に挑戦

当研究所とJR西日本(株)、JR総研はレーザー検査装置の実用化を目指して新幹線トンネル覆工コンクリートの検査を始めた。当初はトンネル内特有の騒音やディーゼル機関車の振動によって思うように信号取れなかった。これらの問題を解決するために耐騒音・耐振動性能を有するクリーンルームを設け、その内側にレーザー装置を設置した(図5)。検査時には天井をスリット状に開口してレーザーをコンクリートに照射した。レーザーによるコンクリートへの衝撃波を増強させるために強力なレーザーを用意した。また、レーザー制御およびデータ収集を遠隔で操作できるように制御室を設けた。打音検査によ

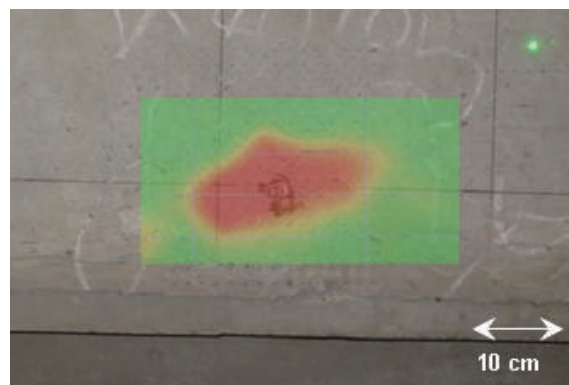


図4 レーザーを2次元に走査して得られたコンクリート欠陥(浮き)の全体像



図5 新幹線トンネル内でのコンクリート欠陥検査実験

り事前に振動スペクトルの情報を取得した欠陥箇所を対象にした。

2×1m 程度の大きなコンクリート浮きを検査した結果を図6に示す。図中の“○”、“△”及び“□”は、レーザーでコンクリートに衝撃波を与え、振動させた場合の表面振動振幅の大きさを3段階で表している。“□”は非常に大きい振幅（欠陥箇所），“△”は中程度（欠陥箇所）、および“○”はほとんど振動しない箇所（健全箇所）である。検査位置が100mmずれると振幅が異なる。コンクリート裏面は複雑な形状をしており、ある部分では大きく剥離して振幅が大きい。一方、隣接箇所は密着部分で振幅が小さいなど、複雑な形状であることがわかる。

図7にコンクリート表面にひび割れが存在する場合のレーザー探傷結果を示す。振動が大きい順に□、△、および○を示した。ひび割れに近い部分では振動が大きくなる。結果より、ひび割れ内部で左右のどちら方向にひび割れが進展しているかを把握できる。図7の結果では左上にひび割れは延びている。

9. 今後に向けて

宝塚トンネルから始まった実験は新幹線トンネルまでたどり着いた。今後は小型化し、容易に運搬できる装置に改良することや、数多くの実欠陥検査データを取得して実績を積む必要がある。

発表論文

1) 島田義則、“レーザー超音波リモートセンシング技術の産業応用”、検査技術、11, 8 (2006).

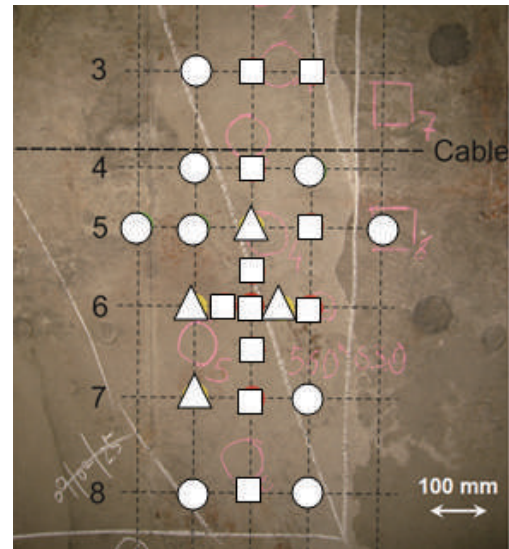


図6 内部欠陥検査結果

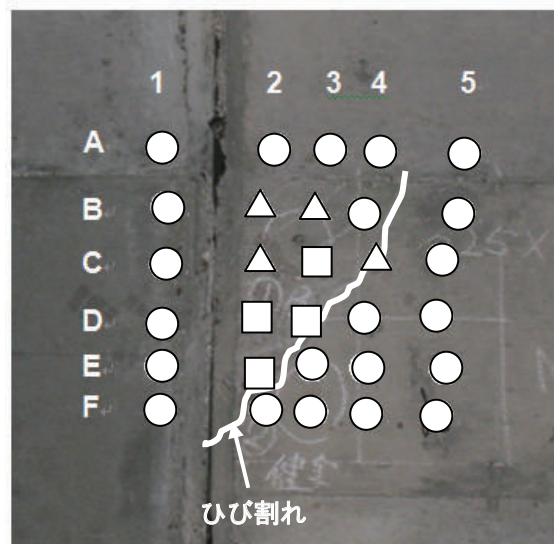


図7 ひび割れ欠陥検査結果（振動の大きさを測定することにより、ひび割れ内部の進展方向が遠隔から測定可能）

- 2) 島田義則、オレグコチャエフ、“レーザー超音波リモートセンシングを用いたコンクリート内部欠陥検出”、電学論C、127, 1192 (2009).
- 3) 御崎哲一、島田義則、篠田昌弘、“レーザー超音波リモートセンシングによるコンクリート欠陥の非破壊検査法の開発”、JREA、(社) 日本鉄道技術協会、52, 34294 (2009).
- 4) 島田義則、“レーザーリモートセンシングによるコンクリート欠陥の非破壊検査”、非破壊検査、58, 269 (2009).
- 5) 島田義則、“レーザー超音波によるコンク

- リート内部欠陥のリモートセンシング技術”、検査技術、**14**, 35 (2009).
- 6) 島田義則、“レーザー超音波によるコンクリート内部欠陥のリモートセンシング技術”、建設機械、**45**, **44** (2009).
- 7) 島田義則、“レーザーリモートセンシングによるコンクリート欠陥の非破壊検査配管技術”、配管技術、**45**, **44** (2009).
- 8) 島田義則, KOTYAEV Oleg, 篠田昌弘, 御崎哲一、“レーザを用いたコンクリート内部欠陥探傷技術”、レーザ加工学会誌、**16**, 281 (2009).
- 9) 島田義則、“レーザーを用いたコンクリート欠陥リモートセンシング技術”、電気評論、2010.9, 75, (2010).
- 10) 島田義則、“レーザーリモートセンシング装置を用いたコンクリート欠陥検出”、オプトニュース、**4**, 21 (2010).
- 11) 御崎哲一、島田義則、篠田昌弘、“レーザーリモートセンシングによるコンクリート欠陥の非破壊検査法の開発”、会誌「サイバネティクス」、**15**, 26 (2010).
- 12) 島田義則、オレグコチャエフ、“レーザーリモートセンシングを用いたコンクリート内部欠陥検出”、レーザー研究、**38**, 749 (2010).
- 13) 島田義則、オレグコチャエフ、石井政博、河野幸彦、吉田次男、“レーザー超音波を用いたひび割れ深さ計測実験”、材料学会、コンクリート構造物の補修・補強・アップグレードシンポジウム論文集、**10**, 119 (2010).
- 14) N. Misaki, Y. Shimada, M. Shinoda, “Development of Non-destructive Inspection Method of Defective Concrete Element by Laser Remote Sensing System”, Japanese Railway Engineering, **166**, 1 (2010).
- 15) 島田義則、“コンクリート欠陥を診断するレーザー超音波リモートセンシング技術”、月刊「セメント・コンクリート」、(2011).
- 16) 御崎哲一、坂本保彦、篠田昌弘、島田義則、オレグコチャエフ、江本茂夫、“レーザーを用いたコンクリート欠陥検知システムの実用化に向けた研究”、超音波テクノ、9-10月号 (2011).
- 17) 倉橋慎理、島田義則、乗松孝好、石井政博、河野幸彦、“レーザー励起表面波を用いたコンクリート表面のひび割れ深さ計測”、コンクリート構造物の補修、補強、アップグレードシンポジウム論文集、**11**, 299 (2011).
- 18) 御崎哲一、坂本保彦、篠田昌弘、島田義則、オレグコチャエフ、渡邊英世、江本茂夫、“レーザーリモートセンシングによるコンクリート部材の非破壊検査法の課題とその解決策”、鉄道工学シンポジウム、15 (2011).

Development of Laser-based System for Remote Non-destructive Testing

Laser Measurement Research Team

Oleg Kotyayev

1. Introduction

The development of laser-based system for remote non-destructive inspection in cooperation with JR West Company was started in ILT in 2004.

JR West Co was looking for a new technology of Shinkansen tunnel inspection after the accident which happened in 1999 in Sanyo Shinkansen line tunnel, when

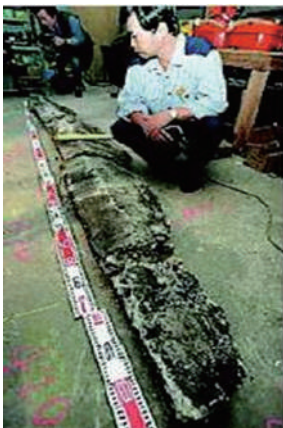


Fig.1 Big piece of concrete fell down from tunnel wall (Mainichi news paper)

226-kg concrete chunk fell from the Shinkansen tunnel wall (Fig.1).

The new technique should replace conventional methods based on hammering (Fig.2) and piezo-testing. The most attractive advantage of laser-based technique is really remote character of inspection.

By that time we had some experience in laser interferometry and dynamic



Fig.2 Hammering - usual procedure of tunnel inspection (Mainichi news paper)

holography. So, we proposed to adapt the idea of photorefractive interferometry and homodyne detection for laser-initiated vibration in concrete.

2. Principles of laser-based inspection

Figure 3 shows the basic idea of the proposed technique. A pulsed laser is used as a source of laser impact. Its pulse hits the inspected area and initiates vibration in concrete. A CW laser is used for probing the inspected area and for detection of initiated vibration. The detection is realized via interferometry of speckled radiation: two-wave mixing in photorefractive crystal and homodyne interferometry (Fig.4.).

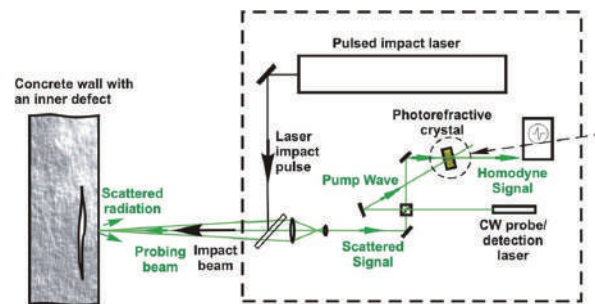


Fig.3 The basic idea of laser-based inspection

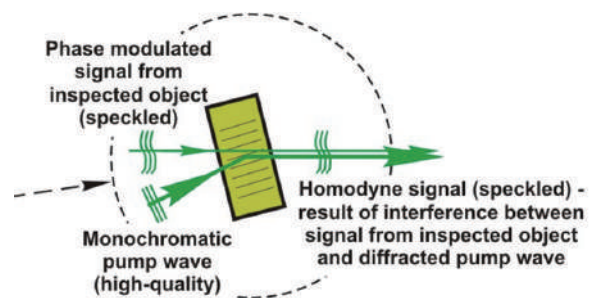


Fig.4 Two-wave mixing in photorefractive crystal

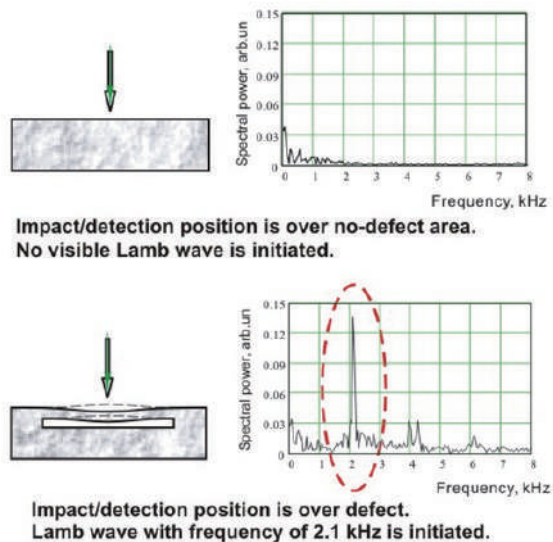


Fig.5 The presence of standing Lamb wave is criterion of defect recognition

The main criterion of the defect location is the presence of detectable natural vibration - standing Lamb wave in concrete layer between surface and inner defect. If there are no defects in the inspected area and corresponding concrete layer is thick then no detectable Lamb wave will be initiated. Lamb wave spectral power will be very low and its spectrum will have no detectable peaks. However, if there is an inner defect, Lamb wave will have much higher power which can be detected easily (Fig.5).

3. Experiments: from laboratory to real tunnel.

The system was assembled and tested in the laboratory conditions (Fig.6). Concrete samples with various types of defects were provided by JR West Co. The laser-based inspection technique has demonstrated very promising

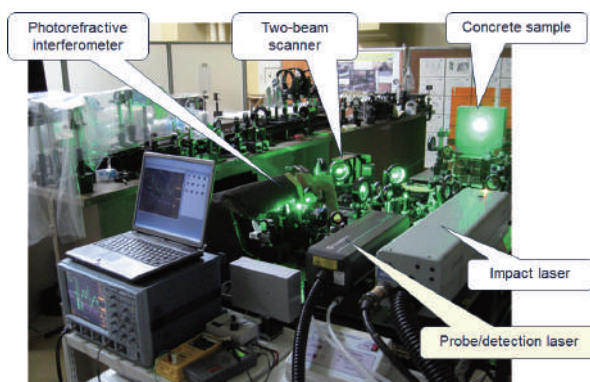


Fig.6 Test of concrete sample in laboratory



Fig.7 The first mobile prototype of the inspection system

results of defect location. Signal spectra shown in Figure 5 are real typical spectra of vibration signals obtained in these experiments.

After that, the system was loaded on the small truck (Fig.7); and the first mobile prototype of the laser-based inspection system was put into operation.

The main experimental sites where the mobile prototype was used are:

- testing site of the Tokyo Railway Technical Research Institute – the first field experiments;
- an old small tunnel in Takarazuka area, where real defects in tunnel walls were tested by our system for the first time;
- JR West testing site in Suita, where capability of laser-based inspection was examined in the long-distance conditions (more than 5 meters – radius of real Shinkansen tunnel);
- under a bridge between two Shinkansen tunnels in Kobe area, where more advanced version of the mobile prototype was tested – with stabilization system, automatic 2-dimensional scanning and real-time data processing.

Everywhere, the laser-based inspection system demonstrated very promising results; and finally it was decided to prepare the system for field tests in real Shinkansen tunnel.

However, the first tests in Shinkansen tunnel using the



Fig.8 The “Silver Wagon” with the system prototype

first mobile prototype were not successful. The real tunnel conditions appeared to be very unfriendly: strong mechanical vibration and very loud acoustic noise (more than 95 dB) affected the inspection performance and did not allow detecting vibration in real defect areas. As well, we found that recognition of real defects in Shinkansen tunnels required higher impact energy.

The system was modified and the second generation of mobile prototype was developed. The system was assembled on a flat-wagon using a 3-tonn table with sophisticated isolation from mechanical vibration. More energetic impact system was introduced into the system. And sound-proof walls and ceiling or so called “Silver Wagon” was built around the overall system (Fig.8).

In this system version, three laser units are used for producing laser impact: two CO₂ lasers and one Nd:YAG laser. Total energy of two CO₂ laser pulses is 8 J, pulse duration is 100 ns; and the Nd:YAG laser generates 1.5 J in 10 ns pulse. All lasers strike an inspected area of about 3 x 6 cm².

To direct impact beams to the inspected area, special scanners are used. The same scanners are used for directing the probe beam together with the impact beams, simultaneously.

A CW Nd:YVO₄ laser with 2-Watt power is used as a probe/detection laser.

As usual, the laser impact was used for initiation of vibration in the inspected area, and photorefractive

homodyne interferometer with BSO crystal was used for detection of initiated vibration. Spectral analysis of detected vibration gives information of defect situation: if spectral power after impact is much higher than before, then there is a defect in the inspected area. A laser photorefractive interferometer installed on the vibration-proof table was covered by sound-proof shield-box.

Before going to the tunnel with the laser system, we explored the tunnel walls and ceiling with a hammer. The tunnel hosting companies (JR West and RailTech Co) provided information of known defect locations; and we chose the most interesting defects. In total, 27 defect locations have been chosen, and 68 defect points have been selected for tests.

4. The main experiment in Shinkansen tunnel

After preliminary testing the system in the maintenance box culvert on the main base depot, the system was delivered in the Shinkansen tunnel. Figure 9 shows the system prototype inspecting the Shinkansen tunnel ceiling. Detection distance is about 6 ~7 m.

The use of sound-proof wagon and cover decreased acoustic noise. As a result, influence of acoustic noise on photorefractive interferometry was reduced; and laser-based detection of laser-initiated vibration in concrete was possible and reliable.

Figure 10 shows typical waveforms and corresponding



Fig.9 Mobile prototype of laser-based system in operation

spectra in defect and no-defect areas. Moment of laser impact is set in the middle of the waveform. Difference in waveforms and spectra between defect and no-defect situations is very clear: waveform in the defect area has the vibration signal with high amplitude and corresponding spectrum has high level of averaged spectral power.

5. Experimental results

During the set of the experiment, we spent 15 nights in Shinkansen tunnels and tested 27 defect locations, previously chosen. The results of defect and no-defect recognition are shown in Table 1. Good and excellent recognition had been observed in 63 from 68 defect points (93%).

Only one defect point was not recognized and recognition of four defect points was not reliable. Those defect points are difficult to recognize even with hammering. Moreover, it should be noted that the defect locations with these five non-recognized defect points have the other defect points where the laser-based system demonstrated good and excellent recognition capability. That means, during real inspection those defect locations could be detected quite reliably.

And we should not forget that hammering will be always more sensitive than laser detection because it is the contact method with the use of much stronger impact.

It should be noted, in these experiments, we did not use full-spec system: stabilization of interference pattern was

Table 1. Results of defect and no-defect recognition

Recognition	Defect points	%
Excellent	57	83.82
Good	6	8.82
So-so	4	5.88
Bad	1	1.47
Total	68	

not perfect. In future, the use stabilization system will make laser-based inspection more reliable.

6. Conclusions

The main results look very promising. The general summary is that the final verification of defect recognition capability of the laser-based inspection system was very successful: all 27 defect locations tested in Shinkansen tunnels have been recognized with good and excellent capability. Modified criterion of defect recognition based on comparison of averaged spectral power is more reliable.

We made certain that the use of vibration isolation and sound protection reduces influence of strong acoustic noise on the detection performance. The final version of the system should be equipped with vibration and sound protection.

Despite of the fact that more energetic impact is still

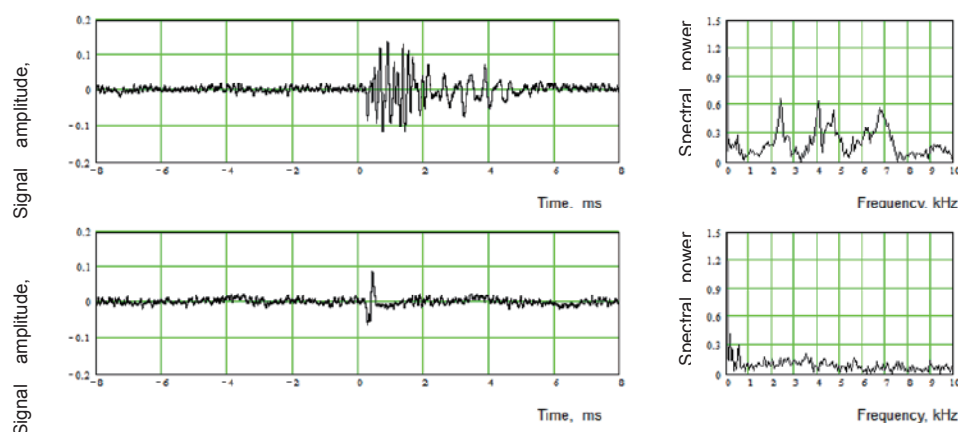


Fig.10 Waveforms and spectra in a defect (top) and no-defect (bottom) areas

desirable, the system can be used reliably for location actually dangerous defects and for their more detailed remote inspection.

The next step – industrial design of the inspection system. The most promising and most probable variant of the system will be designed for using the system not on the Shinkansen train lines but in the gutter between train lines. In this case, it would be possible to use the system not only in night time when Shinkansen traffic is stopped but also during day time at the presence of Shinkansen trains. So, the real industrial design is not so far from reality.

Published papers

- 1) O. G. Kotiaev, S. Uchida and K. Hashimoto, Proc. of the 12-th Symposium on Ultrasonic testing, 71, (2005).
- 2) O. Kotyaev, Y. Shimada, K. Hashimoto, Proc. of the 9-th European Conference on Non-Destructive Testing, 23, (2006).
- 3) 島田義則、Kotiaev Oleg、篠田昌弘、御崎哲一、レーザ加工学会誌、**16**, 281 (2009).
- 4) 島田義則、オレグコチャエフ、レーザー研究、**38**, 749 (2010).

白色光ライダーの開発

レーザープロセス研究チーム

染川智弘

1. 20周年から25周年の歩み

この25周年記念誌の執筆にあたり、前回の20周年記念行事の開催に携わっていない私は、20周年記念誌「レーザー総研 20周年の進歩」を参考にするように言われた。中には現レーザープロセス研究チームのチームリーダーである藤田による白色光ライダー開発の回顧録がある。私もその開発に携わった学生として名前が出てくるわけだが、藤田がフェムト秒加工にシフトしていったように、白色光ライダーは外部資金が獲得できず、2008年の入所当時は白色光ライダーの開発継続には黄色信号が灯っていたように思える。

白色光ライダーは再生増幅器付きのフェムト秒レーザーを、さらに2台のNd:YAGレーザーで励起するテラワット(TW)レーザーシステムを用いる。このTWレーザーパルスをKrガスに集光すると自己位相変調等の非線形効果が起こり、もともと800nmだったレーザーパルスが紫外から赤外までの連続スペクトルに変換される。この白色光源を大気中に打ち上げ、大気からの信号を望遠鏡で集め位置情報を得るのが白色光ライダー観測である。



図1 白色光ライダー実験の様子

図1がよくパンフレット等にも使われた白色光ライダー実験の様子である。写真では白色光が大気に見えるため、観測するには毎回許可を取るのかとよく質問していただくが、この写真はカメラを長時間露光して撮影したらしく実際は大気を伝搬している白色光はほとんど見えない。阪大レーザー研にはライダー観測専用の設備がないために、白色光レーザーはミラーで搬入用の扉から外に出し、観測毎に駐輪場に望遠鏡等の観測システムを設置する必要がある。私としては、修士で2年、博士で3年と学生生活を白色光ライダーにささげてきた身である。中でも博士3年目は黄砂がよく来る年であったため、4月～5月の黄砂が来た日は何があっても黄砂の観測を行かなければならない忘れられない1年である(なぜか土日が多かった)。

そんな中、大気中の黄砂の詳細な偏光計測を行うという研究で科研費が採択され、白色光ライダー研究は継続できたわけである。白色光に複屈折を持つ水晶で波長ごとに偏光変化を与えることで、黄砂等の詳細な偏光変化を測定しようという試みであり、白色光ライダーは大気観測だけでなく、エリプソメトリーにも応用できる新たな一面を示せた。手法の原理からサポートしていただいた北海道大学の岡准教授に感謝したい。

2. 温室効果ガス計測へ

この当時は(現在もそうであるが)、地球温暖化の対策として人為的な二酸化炭素の排出削減に向けた研究が必要とされた。そこで、関西電力株式会社、財団法人島津科学技術振興財団の支援を受けて、広帯域な白色光を用いた二酸化炭素の計測に発展していった。二酸化炭素は赤外域である1.6、2.0 μm に吸収を持つため、計測には吸収波長のレーザー開発が必要になるが、広帯域な白色光を利用すれば、レ

レーザー開発の必要なく赤外域に吸収ラインを持つ二酸化炭素、水蒸気、メタン等、様々な温室効果ガスの濃度評価が可能になる。ただ、白色光は単位スペクトルあたりの強度が低いという欠点がある。さらに赤外域は可視域に比べて感度のよい受光素子がないということもあり、散乱光を計測するライダー観測ではなく、白色光レーザーの大気伝搬後の透過スペクトルの変化から濃度を評価する長光路差分吸収分光 (DOAS) 法を採用した。このアイデアはキセノンランプや航空障害灯を用いて NOx 等を DOAS 法で計測をしていた千葉大学の久世教授の講演を参考にした。現在は、この研究の延長で千葉大学リモートセンシング研究センターの共同利用研究に参加させていただいている。

TW システムを用いた白色光レーザーでは、ガスセル実験において二酸化炭素濃度計測の可能性は示せていたが、TW システムでは装置設置場所からのビームの取り回しが行いにくいという欠点があり、大気透過スペクトル測定は十分な強度が得られていなかった。こうした状況のなか、堀場製作所の右近氏にオプトライン社を紹介してもらい、ナノ秒パルスレーザーとフォトニック結晶ファイバーを組み合わせた小型の白色光レーザーを借りることができた。白色光レーザーのパルスエネルギーは低下するが、装置が 15 cm 角程度と小型で可搬性があるため、屋外でのフィールド実験には最適である。また、これまでの TW システムでは起動に 1 時間程度かかり、複雑なレーザーのアライメント、タイミング調整を必要としていたが、この白色光レーザーはターンキー操作で通常家庭用コンセントで動作するため、非常に使いやすい。このような小型で可搬性のある白色光レーザーが未来の白色光ライダーシステムの光源かもしれない。

大気中の吸収スペクトルの変化から二酸化炭素濃度を取得するには最終的には 568 m の伝播距離を利用した。当然、レーザー研内では直線光路を取れるわけもなく、ミラーを複数枚用いた直線 100 m の折り返し光路となった。実験は安全面を考慮して、土日の夜に行うことが多く、学生に頼んで携帯電話でアライメントを行ったことが思い出される。不運に

も買出し帰りに通りがかった川上君、電話で呼び出された三上君に感謝したい。

ここまでの一連の白色光ライダーの開発で、幸運にも 2010 年の堀場雅夫賞をいただいた。H23、H24 年度の 2 年間に及ぶ助成金は白色光ライダーシステムの維持に利用させていただいている。ご尽力いただいた皆様に感謝したい。

3. 気象予測の向上へ

近年、ゲリラ豪雨と呼ばれる突発的で局所的な豪雨の発生頻度が増加しており、レーザーを用いてその前兆を予測できないかと相談を受けた。こうした豪雨対策として国交省から X バンド MP レーダーが全国各地に配備され、雨量情報が HP で公開されている。1 分ごとの降雨状況がかなりの位置精度でわかるが、レーダー観測では粒径の小さな雲は観測できず、雨粒に成長してからしか観測が行えない。前兆現象の把握としては上昇流、水蒸気等の情報がほしいとのことであったが、ドップラーシフトから風を見るドップラーレーダーでは雨粒しか観測できないため無降雨時には観測できず、水蒸気の高度分布情報は気球等によるゾンデ観測しか手法がなかった。レーザーを用いれば、大気中を常時浮遊しているエアロゾルを対象とすることができるので、常時の風観測が可能であり、ラマン散乱、吸収計測によって水蒸気の高度分布情報を取得することも可能である。ただ、ドップラー、ラマンともに波長のシフトを計測するために、広帯域な白色光源では利点がなかった。また、こうした実用化に向けたライダー観測には、残念ながら初期投資コスト、可搬性を踏まえると白色光ライダーは不向きである。

ライダーによる気象要素の研究は以前から活発に行われてきているため、先人たちの観測ノウハウはあり、レーザー等のライダー機器は所有している。そこで、ゲリラ豪雨が発生しやすい真夏の日の気象要素データを取得して、その得られたデータを気象モデルに取り込み、ゲリラ豪雨が予測できないかということになった。ライダー観測者としては、実際に得られたデータを気象に利用してもらうことは非常に面白い。関西電力、気象モデルの開発を行って

いる気象工学研究所の支援を受けて、レーザー観測データを用いた気象予測モデルの向上に向けた研究をスタートした。

1年目は最も豪雨予測につながる気象要素ということで風を対象にすることになった。実用化に向けて装置は安価なほうが良いということで、装置が複雑になるドップラーライダーの開発は避け、エアロゾルの動きから上空の風を推定する手法の開発を行った。レーザーは使いやすいファイバーレーザーを利用し、観測の望遠鏡に直接つけて、走査できる形をとった。

ゲリラ豪雨が発生しやすいのは水蒸気量が多い真夏の日である。そうした日を狙って、9時から16時程度まで阪大レーザー研の屋上で観測をするわけである(図2)。観測当初は他機関との共同研究ということもありむしろきれいな普段着であったが、途中から耐えられずにTシャツに短パンである。キャンプ用のテントで日差しを避け、スポットクーラーで冷をとった。お盆まで繰り返して観測をおこなったが、阪大吹田キャンパス周辺では局所流を観測するには至らなかった。観測システムの比較には三菱電機社製のドップラーライダーを使用させていただいた。快くお貸しいただいた三菱電機のライダーグループの方々に感謝を申し上げたい。

2年目は水蒸気の高高度分布情報を測ろうということで、水蒸気・窒素のラマンライダーを開発した。可視域を利用するラマンライダーでは昼間は太陽光が背景光となるため、日が落ち始める17時くらいから21時程度までを基本観測としてシステムを最適化し、日が昇る5時くらいまでの日変化観測も実施した。暑さからは解放されたが、眠気と蚊との戦いであった。355nmのナノ秒パルスレーザーを用いた水蒸気のラマンライダーデータは、潮岬のラジオゾンデ観測等の水蒸気分布ともよく一致した。得られたデータは気象工学研究所において予測モデルに取り込まれ、予測の精度が向上したとのことである。今後は、日中の水蒸気分布の観測を行う予定である。



図2 阪大レーザー研屋上での気象観測の様子

4. 海洋計測に向けて

これまでは空を見上げるライダー観測を行っていたが、新しい応用先を求めて下を見る海洋計測をスタートしている。日本は四方を海に囲まれており、海底下にはメタンハイドレートやレアアース・レアメタル等の海底鉱物資源や、温室効果ガスを海底下に貯留するCCS(Carbon dioxide Capture and Storage)の環境利用など、開発可能領域は広大である。まずは、海底鉱物資源の探査を目指して、阪大院理の山中准教授と学生の竹内君と共同で、水中でのレーザー誘起ブレイクダウン分光(LIBS)法による元素同定手法の開発から始めた。海底鉱物資源は水深3000m程度の海底下に多く眠っており、3000mの水圧下での元素同定手法が必要である。フェムト秒レーザーを用いると水中で生成する気泡の圧力が、水圧を上回るために感度よくLIBS法が行えるのではというアイデアだったが、水中でのフェムト秒レーザーではプラズマ発光が観測できず、現在は水の表面でのLIBS信号の取得に移行し、フェムト秒、ナノ秒パルスでの比較等を行っている。

LIBS法は高強度を必要とするためレーザーをレンズで集光した箇所の定点観測になる。また、分子等も元素にばらばらにして観測するため、分子等の同定も行いにくい。広大な海洋観測には、位置情報も取得できるライダー手法が最適ではないかと考え、水中ラマンライダーの開発を関西電力の支援のもとに行っている。まずはこれまでの二酸化炭素観測の経験を活かして、CCS実施時の海洋モニタリング手

法の開発として、水に溶けた二酸化炭素の検出から始めた。

水は紫外から緑色の波長領域のレーザーしか透過せず、赤外域では良い吸収帯として働くため、これまでのような赤外吸収計測は利用できない。二酸化炭素はラマン活性であるため、水を透過しやすい波長 532 nm のレーザーでのラマン散乱を利用することにした。開発当初は適切に二酸化炭素を水に溶存させるシステムを保有していなかったために、市販の炭酸水を用いた。ガラス瓶に入った炭酸水を数本購入し、栓を開けてない状態でレーザーを通すと、水に溶けた二酸化炭素からのラマン信号の検出に成功した。現在は 100 気圧まで二酸化炭素を水に溶存させるチャンバーを用いて、定量的に濃度をコントロールした計測が可能になっている。

水に溶存した二酸化炭素からのラマン信号を検出できたので、次はライダー型式で信号を取得できるかである。口径 20 cm の望遠鏡を横向きに設置し、20 m 離れた位置に先ほどの炭酸水・水を設置した。レーザーを望遠鏡の前から炭酸水に向かって照射しラマン散乱信号を観測した。ちょうど 20 m の位置に炭酸水では二酸化炭素のラマン信号が検出され、この手法で水に溶存している二酸化炭素の識別が可能であることが示せた。現在は海水に溶存した際のラマン信号の検出に向けて実験を進めている。

発表論文

- 1) M. C. Galvez, M. Fujita, N. Inoue, R. Moriki, Y. Izawa and C. Yamanaka, “Three-Wavelength Backscatter Measurement of Clouds and Aerosols Using a White Light Lidar System”, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **41**, L284-L286 (2002).
- 2) T. Somekawa, C. Yamanaka, M. Fujita and M. C. Galvez, “Depolarization Light Detection and Ranging Using a White Light LIDAR System”, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **45**, L165-L168 (2006).
- 3) T. Somekawa, C. Yamanaka, M. Fujita and M. C. Galvez, “Simultaneous three-wavelength depolarization measurement of clouds and aerosols using a coherent white light continuum”, *J. Appl. Phys.*, **103**, 043101 (2008).
- 4) T. Somekawa, C. Yamanaka, M. Fujita and M. C. Galvez, “A New Concept to Characterize Nonspherical Particles from Multi-wavelength Depolarization Ratios Based on *T*-matrix Computation”, *Part. Part. Syst. Charact.*, **25**, 49 (2008).
- 5) T. Somekawa, C. Yamanaka, M. Fujita and M. C. Galvez, “Observation of Asian Dust Aerosols with Depolarization Lidar Using a Coherent White Light Continuum”, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **47**, 2155 (2008).
- 6) 染川智弘、山中千博、藤田雅之、Malia Cecilia Galvez、”白色光偏光解消ライダーシステムの開発”、*レーザー研究*、**37**, 760 (2009).
- 7) T. Somekawa, K. Oka and M. Fujita, “Channeled Spectropolarimetry using a Coherent White-Light Continuum”, *Opt. Lett.*, **35**, 3811 (2010).
- 8) T. Somekawa, M. Fujita and Y. Izawa, “Direct Absorption Spectroscopy of CO₂ Using a Coherent White Light Continuum”, *Appl. Phys. Express*, **3**, 082401 (2010).
- 9) T. Somekawa, N. Manago, H. Kuze and M. Fujita, “Differential Optical Absorption Spectroscopy Measurement of CO₂ Using a Nanosecond White Light Continuum”, *Opt. Lett.*, **36**, 4782 (2011).
- 10) T. Somekawa, A. Tani and M. Fujita, “Remote Detection and Identification of CO₂ dissolved in Water Using a Raman Lidar System”, *Appl. Phys. Express*, **4**, 112401 (2011).

超高速光誘起電子移動反応のメカニズム

— 分子反応から生体内反応へ —

レーザーバイオ化学研究チーム

谷口誠治

この秋レーザー技術総合研究所は創立 25 周年を迎える。我々の研究チームでは、様々な分子や蛋白質の光誘起電子移動反応過程を、パルスレーザーを用いた時間分解蛍光計測法（蛍光アップコンバージョン計測法）により観測し、そのダイナミクス、メカニズムを明らかにするための研究を長年に渡り行ってきた。光誘起電子移動反応は化学反応の中で最も基本的な過程の一つであるばかりではなく、光合成反応の初期反応過程で見られるように、生体内反応においても特に重要な反応過程の一つでもある。この区切りの年に際し、レーザー総研におけるこれまでの研究についてまとめたいと思う。

1. 光合成モデル分子を用いた電子移動理論の証明

光誘起電子移動過程のメカニズムを解明しようとする際に基本的な理論として R.A.Marcus らによる電子移動速度のエネルギーギャップ則がある。この理論を実験的に証明しようとする研究は以前にも数多く見られたものの、電荷分離反応においてその予測を実験的に明確にした例はなかった。この点を明らかにするため、我々は、ポルフィリン分子に電子を受容する能力を持つイミド分子を結合させた一連の分子群（光合成モデル系分子）を用い（図 1）、ポルフィリンの第二電子(S_2)励起状態という高い光励起状態からの、ポルフィリンからイミドへの電子移動反応速度を観測することで、 S_2 励起状態と電荷分離状態間のエネルギー差（エネルギーギャップ）に対する電子移動速度依存性を広範囲に渡り明らかにした。その結果、電子移動速度はエネルギーギャップの増加に対して一旦は増加するものの、ある値を過ぎると減速に転じ、依存性がいわゆるベル型となるという Marcus の理論的予測を明確に示すことができた（図 2）。さらに、同様の手法で S_2 励起状

態から電子移動反応と競争して生成する第一電子 (S_1) 励起状態の生成過程を観測し、 S_2 励起状態からの電子移動過程をより定量的に明らかとした。

この成果は、ポルフィリンの第二電子励起状態を利用するというアイデアと、モデル分子の綿密な分子設計、および超高速電子移動 ($\sim 10^{13} \text{s}^{-1}$) の観測が可能なるレーザー計測技術の組み合わせにより初めて得られたものである。実際にこの実験を行う際に

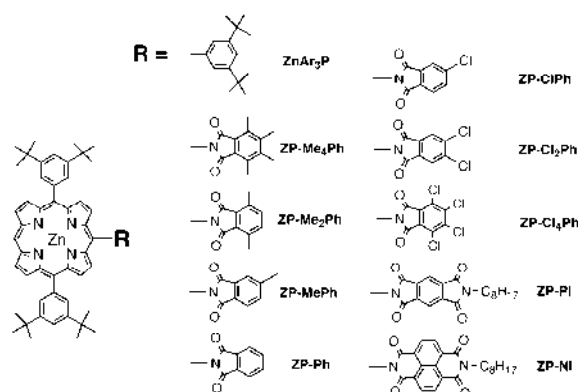


図 1 光合成モデル分子系
(ポルフィリン-イミド直結系)

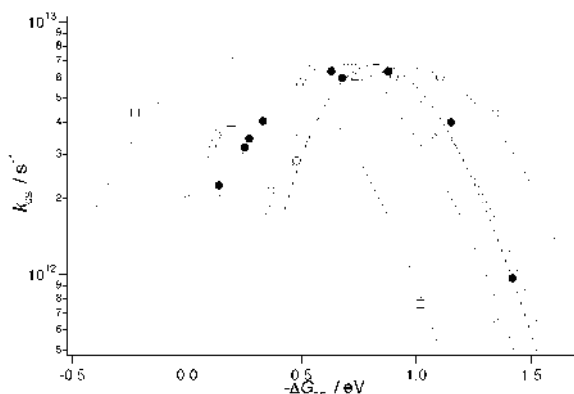


図 2 (□)メチルシクロヘキサン、(△)トルエン、(●)テトラヒドロフラン、(○)アセトニトリル中における S_2 励起状態からの電子移動速度のエネルギーギャップ依存性。図中実線はエネルギーギャップ則による fitting 曲線を示す。

は、図1に示すような10数種類の分子全てを正確に観測する必要があり、また溶媒も図2で示すように多くの種類を用いて計測する必要があったため、数多くの測定を根気よく行って行かなければならなかった。分子によっては測定に数時間以上かかり、徹夜で実験を行ったこともあったが、最終的に報われる結果を得ることができた。

2. フラビン蛋白質の光誘起電子移動

上記の研究は、光合成を模して合成された分子群を用いて行われたものであり、反応自体は溶液中で起こる。しかし実際には、光誘起電子移動は多数のアミノ酸が結合してできる蛋白質中で起こるため、環境の変化によりそのメカニズムはより複雑なものとなる。生体内における電子移動過程がどのようなメカニズムを示すかを明らかにしようとする研究は、それまで光合成反応の初期で光誘起電子移動を引き起こす蛋白質（光合成反応中心複合体）を用いたものが主であったが、光に対して電子移動反応を示す蛋白質は他にも存在する。その一つとしてよく知られるのがフラビン蛋白質である。フラビン蛋白質とは、電子授受能力が高いフラビンモノヌクレオチド(FMN)またはフラビンアデニンジヌクレオチド(FAD)と呼ばれる分子を内包する蛋白質の総称である。フラビン蛋白質は多くの動植物や微生物中に含まれ、生体内での酸化還元反応や電子輸送等の重要な役割を担っている。その多くは暗条件で起こるが、青色光で励起すると FMN、FAD の構成分子であるイソアロキサジン (ISO) が励起され、ISO 近傍のチロシン(Tyr)、トリプトファン(Trp)といった電子供与性を持つアミノ酸 (図3) から電子を受け取る、つまり電子移動反応を引き起こす。この事実は、フラビン蛋白質が生体内での電子移動メカニズムの解明のためのモデル蛋白質となる事を示している。この観点から我々の研究チームでは、種々のフラビン蛋白質を用いてフェムト秒レーザー計測法による光励起ダイナミクスを観測し、生体内での電子移動メカニズムを明確なものとするための研究を行ってきた。

本研究では数多くのフラビン蛋白質を取り扱ってきた。その名称 (および蛋白質を含む生体名) を、

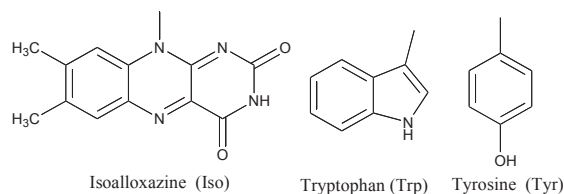


図3 イソアロキサジン(ISO)および電子移動に関するアミノ酸(Trp、Tyr)の分子構造

研究を開始した順に列挙すると以下のようになる。

- ・ FMN 結合蛋白質
(硫酸還元菌(*Desulfovrio vulgaris* Miyagaki F))
- ・ *p*-ヒドロキシフェニルアセテート (HPA) 水酸化酵素
(アシネトバクター菌(*Acinetobacter Baumannii*))
- ・ 炭水化物 (ピラノース) 酸化酵素
(腐朽菌(*Trametes multicolor*))
- ・ アミノ酸 (セリン) ヒドロキシメチル転移酵素
(マラリア原虫(*Plasmodium vivax*)、ヒト)
- ・ フラボドキシシン (ピロリ菌(*Helicobacter pylori*))

難解な名称や生体名が並ぶが、これはフラビン蛋白質が様々な生体内で様々な機能を果たしていることの表れである。これらの蛋白質試料は、大阪市立大学バイオ工学研究科の北村研究室、Mahidol 大学 (タイ) の Chaiyen 研究室から、共同研究として提供を受けたものである。またこの中には人体への危険性があるのではと思われる単語も見られるが、これらは遺伝操作により別の菌内で発現させたものである。この中から特徴的な光反応を示した FMN 結合蛋白質、HPA 水酸化酵素の研究結果について以下に述べる。

3. FMN 結合蛋白質の電子移動ダイナミクス

FMN 結合蛋白質の ISO 近辺の構造を図4に示す。ISO 周辺には蛋白質を構成するアミノ酸の一部であるチロシンとトリプトファンが配置しており、ISO の光励起により ISO がそのどちらか (あるいはそれら全て) との間で電子移動反応を引き起こすと考えられる。この蛋白質の水溶液中での蛍光ダイナミクスを蛍光アップコンバージョン法により観測した。

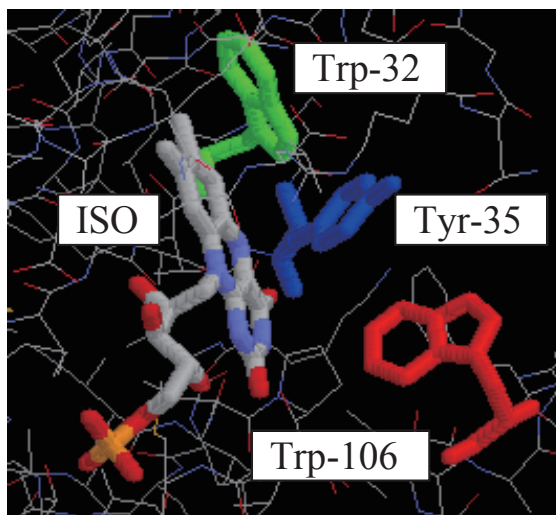


図4 FMN 結合蛋白質における ISO 近傍の構造

図 5(a)に蛍光減衰曲線を示す。蛍光強度の急速な減衰がみられ、これは ISO の光励起状態からの電子移動反応に起因するものである。寿命解析の結果蛍光寿命は 170fs で、ほぼ指数関数で減衰することが分かった。しかしこの場合、電子移動が可能であるアミノ酸は ISO 近傍に 3 種存在することから、電子移動の経路等のメカニズムについては明確にはならない。そこで、最も可能性の高い Trp-32 を電子ドナーとしての能力が低いと考えられるチロシンまたは電子ドナーとしては働かないと考えられるアラニンと

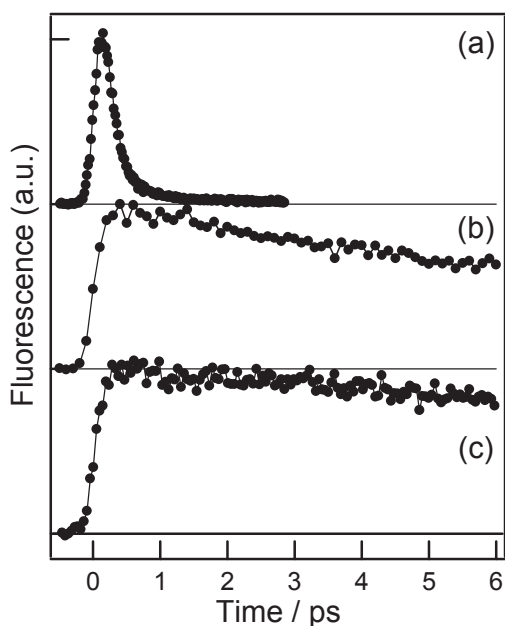


図 5 (a)FMN 結合蛋白質、(b)W32Y、(c) W32A の溶液中におけるフェムト秒蛍光ダイナミクス

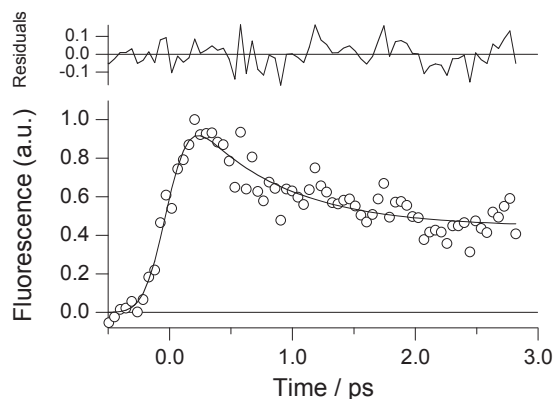


図6 FBP 結晶の蛍光ダイナミクスと 2 成分指数関数による fitting 曲線

入れ替えたミュータント試料 (W32Y、W32A) についても同様に観測を行った。結果を図 5(b)(c)に示す。蛍光減衰は W32Y、W32A の順で緩やかとなり、電子移動速度の大幅な低下がみられることがわかる。これらの結果から、FBP における電子移動は主として Trp-32 との間で起こることが明らかとなった。

FMN 結合蛋白質については、我々が独自に開発した顕微蛍光アップコンバージョン測定法を用いた計測により、結晶状態での観測も行った。結果を図 6 に示す。溶液中での測定と比較して蛍光寿命は約 700fs にまで長寿命化し、更に長い寿命成分 (~10ps) も観測された。これは電子移動速度が低下したためであり、水溶液中との反応性の大きな違いが見られた。結晶状態では ISO が水分子との水素結合相互作用等の溶媒効果を受けないため電子移動速度が低下するものと考えられる。

蛋白質試料の作成には非常に時間がかかり、またその作成量も少ない。また、試料は作成後冷凍保存を行わない限り冷蔵温度においても徐々に劣化してしまう。さらには、フラビン蛋白質は光照射に対する劣化度が大きいのでレーザー計測実験を行う際には、通常の測定とは異なり試料作成から実験までのスケジュール作成、測定時間やレーザー光強度、試料への光照射の方式等、様々な条件に常に細心の注意を払いながら行う必要があった。特に結晶の計測ではレーザー光強度を限界まで落として測定を行う必要があり、非常にデリケートな実験であったが、

そのかいあって溶液中との光反応過程との変化を実測でき、蛋白質結晶のフェムト秒蛍光ダイナミクスを初めて観測した研究として発表することができたのである。

4. *p*-hydroxyphenylacetate (HPA) 水酸化酵素中の還元蛋白質 (C1 蛋白質) の溶媒和ダイナミクス

HPA 水酸化酵素は材木中の木質素 (リグニン) 分解の職段階を担う酵素で、バイオマス分解などの利用等の応用も検討されている酵素である。この酵素は、2 つの蛋白質ユニットからなり、還元反応を担うユニットを C1 蛋白質、酸化反応を担うユニットを C2 蛋白質と呼ぶ。C1 蛋白質は電子供給源として FMN (フラビンモノヌクレオチド) を含んでおり、フラビン蛋白質の一種である。この蛋白質について、蛍光アップコンバージョン法によるフェムト秒蛍光ダイナミクスの測定を行ったところ、他のフラビン蛋白質に見られるような超高速電子移動は見られなかったものの、蛍光スペクトル全体が励起後数 100 フェムト~数 100ps で低波長側にシフトする様子が観測された。この現象は、溶質分子が光励起によりその電子分布を変化させ、それに伴い周囲の溶媒分子の相対的な配向が溶質分子の光励起状態がエネルギー的に最も安定になるように変化する、溶媒和と呼ばれる効果に起因するもので、凝集系の分子 (溶質) の観測では通常見られる挙動である。このような現象を dynamic Stokes shift と呼ぶ。観測波長効果の観測データから光励起後の蛍光スペクトルの時間変化を再構築すると (図 7)、dynamic Stokes shift の時間は、溶媒である水分子にはない寿命約 250ps の遅い成分を含むことが分かった。この要因として、溶媒和に関わる水分子が蛋白質の動き (ダイナミクス) と相互作用し、通常よりも遅い配向変化を示すことが挙げられる。つまり ISO は蛋白質表面に一部露出しているか表面付近に存在する、あるいは蛋白質内部に水分子が侵入しやすい立体構造を持つ等の理由から、自由に運動する水分子や蛋白質表面で蛋白質と相互作用している水分子の影響を受けやすい環境にあるものと考えられる。

この結果が示されるまで、蛋白質試料の測定では

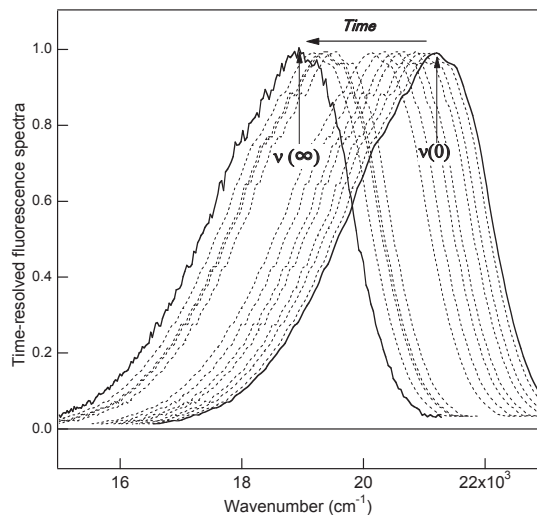


図 7 時間分解蛍光データの解析から見積もられた C1 蛋白質の蛍光スペクトルシフト。 $v(0)$ 、 $v(\infty)$ はそれぞれ $t=0$ 、 ∞ (平衡時)での蛍光ピーク波数を示す。

このような dynamic Stokes shift が観測された例はなかった。これは、蛋白質中の発色団周囲のアミノ酸は巧みに固定されており、光反応途中で溶媒和と同程度の大きな配向変化は起こさないためであると考えられたためである。その意味で C1 蛋白質は非常に興味深い挙動を示す蛋白質であった。その一方で、その後他のフラビン蛋白質の研究では、ISO が蛋白質内に完全に内包されているのかあるいは幾分か水中に露出しているのかといったことをその都度確認することが必要となり、解析時の考慮すべき事項が増えてしまうことにもなったのであった。

5. まとめ

本研究では分子モデルや種々のフラビン蛋白質を用いて生体内における複雑な反応過程についての様々な新しい知見を得、本稿ではその成果の一部を述べた。現在、分子動力学計算や電子移動理論を進展させたものを取り入れ、これまでに得てきた実験結果を包括するような蛋白質内電子移動モデルの構築に向けた取り組みを行っている。研究を遂行するにあたり、大阪市立大北村研究室、Mahidol 大 (タイ) P. Chaiyen 研究室、Chulalongkorn 大 (タイ) S. Kokpol 研究室、関西学院大学玉井研究室、田中文夫特別研究員等の協力を得てきた。協力に心より感謝

致します。最後になったが、我々の研究チームのリーダーであった又賀昇大阪大学名誉教授が 2011 年初頭に御逝去された。多くの御指導を頂いたことに心より感謝し、御冥福をお祈り致します。

発表論文

- 1) N. Mataga, H. Chosrowjan, S. Taniguchi, Y. Shibata, N. Yoshida, A. Osuka, T. Kikuzawa, and T. Okada, "Ultrafast Charge Separation from S_2 Excited State of Directly Linked Porphyrin-Imide Dyads: First Unequivocal Observation of the Whole Bell-Shaped Energy Gap Law and Its Solvent Dependencies", *J. Phys. Chem. A*, **106**, 12191 (2002).
- 2) N. Mataga, S. Taniguchi, H. Chosrowjan, A. Osuka and N. Yoshida, "Ultrafast Charge Separation and Radiationless Relaxation Processes from Higher Excited Electronic States of Directly Linked Porphyrin-Acceptor Dyads", *Photochem. Photobiol. Sci. (PPS)*, **2**, 493 (2003)
- 3) N. Mataga, S. Taniguchi, H. Chosrowjan, A. Osuka and N. Yoshida, "Ultrafast Charge Transfer and Radiationless Relaxations from Higher Excited State (S_2) of Directly Linked Zn-Porphyrin (ZP)-Acceptor Dyads: Investigations into Fundamental Problems of Exciplex Chemistry", *Chem. Phys.*, **295**, 215 (2003).
- 4) N. Mataga, H. Chosrowjan and S. Taniguchi, "Investigations into the Dynamics and Mechanisms of Ultrafast Photoinduced Reactions Taking Place in Photoresponsive Protein Nanospaces (PNS)", *J. Photochem. Photobiol. C, Photochemistry Reviews*, **6**, 37 (2004).
- 5) N. Mataga, S. Taniguchi and H. Chosrowjan, "Observations of the Whole Bell-Shaped Energy Gap Law (EGL) in the Intra-molecular Charge Separation (CS) from S_2 State of Directly Linked Zn-Porphyrin-Imide Dyads (ZP-I): Examinations of Wider Range of Energy Gap for the CS Rates in Normal Regions", *Chem. Phys. Lett.*, **403**, 163 (2005).
- 6) H. Chosrowjan, N. Mataga, S. Taniguchi, F. Tanaka and A. J. W. G. Visser, "The Stacked Flavin Adenine Dinucleotide Conformation in Water is Fluorescent on Picosecond Time Scale", *Chem. Phys. Lett.*, **378**, 354 (2003) .
- 7) H. Chosrowjan, S. Taniguchi, N. Mataga, F. Tanaka, D. Todoroki and M. Kitamura, "Comparison Between Ultrafast Fluorescence Dynamics of FMN Binding Protein from *Desulfovibrio vulgaris*, strain Miyazaki, in Solution vs. Crystal Phases", *J. Phys. Chem. B/Letters*, **111**, 8695 (2007)
- 8) F. Tanaka, H. Chosrowjan, S. Taniguchi, N. Mataga, K. Sato, Y. Nishina and K. Shiga, "Donor-Acceptor Distance-Dependence of Photoinduced Electron-Transfer Rate in Flavoproteins", *J. Phys. Chem. B*, **111**, 5694 (2007).
- 9) H. Chosrowjan, S. Taniguchi, N. Mataga, F. Tanaka, D. Todoroki and M. Kitamura, "Ultrafast fluorescence dynamics of FMN-binding protein from *Desulfovibrio vulgaris* (Miyazaki F) and its site-directed mutated proteins", *Chem. Phys. Lett.*, **462**, 121, (2008).
- 10) N. Nunthboot, F. Tanaka, S. Kokpol, H. Chosrowjan, S. Taniguchi and N. Mataga, "Quantum mechanical study of photoinduced charge transfer in FMN binding protein", *J. Phys. Chem. B*, **112**, 15837 (2008).
- 11) N. Nunthboot, F. Tanaka, S. Kokpol, H. Chosrowjan, S. Taniguchi and N. Mataga, "Simulation of Ultrafast Non-Exponential Fluorescence Decay Induced by Electron Transfer in FMN Binding Protein", *J. Photochem. Photobiol. A: Chemistry*, **201**, 191 (2009).
- 12) H. Chosrowjan, S. Taniguchi, N. Mataga, T. Phongsak, J. Sucharitakul, P. Chaiyen and F. Tanaka, "Ultrafast solvation dynamics of flavin mononucleotide in the reductase component of *p-Hydroxyphenylacetate Hydroxylase*" *J. Phys. Chem. B*, **113**, 8439 (2009).
- 13) H. Chosrowjan, S. Taniguchi, N. Mataga, T. Nakanishi, Y. Haruyama, S. Sato, M. Kitamura and F.

- Tanaka, "Effects of the Disappearance of One Charge on Ultrafast Fluorescence Dynamics of the FMN Binding Protein", *J. Phys. Chem. B*, **114**, 6175 (2010).
- 14) R. Rujkorakarn, N. Nunthaboot, F. Tanaka, P. Chaiyen, H. Chosrowjan, S. Taniguchi and N. Mataga, "Time-resolved Stokes shift in proteins with continuum model : Slow dynamics in proteins", *J. of Photochem. Photobiol. A: Chemistry*, **215**, 38 (2010).
- 15) K. Lugsanangarma, S. Pianwanita, S. Kokpola, F. Tanaka, H. Chosrowjan, S. Taniguchi and N. Mataga, "Analysis of photoinduced electrontransfer in flavodoxin", *J. of Photochem. Photobiol. A: Chemistry*, **207**, 333 (2011).
- 16) K. Lugsanangarm, S. Pianwanit, F. Tanaka, H. Chosrowjan, S. Taniguchi and N. Mataga, "Photoinduced ET in WT/Mutated FD from *D. Vulgaris Strain Miyazaki*: Energy Gap Law", *J. of Photochem. Photobiol. A: Chemistry*, **208**, 32 (2011).
- 17) 谷口誠治、コスロービアン ハイク、"フェムト秒時間分解蛍光顕微鏡による光活性蛋白質微結晶の蛍光ダイナミクス"、レーザー研究、**39**, 931 (2011).
- 18) H. Chosrowjan, S. Taniguchi, T. Wongnate, J. Sucharitakul, P. Chaiyen and F. Tanaka, "Conformational heterogeneity in pyranose 2-oxidase from *Trametes multicolor* revealed by ultrafast fluorescence dynamics", *Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry*, **234**, 44 (2012).

Fluorescence Dynamics and Electron Transfer Phenomena in Photoreceptor Proteins: Early Studies and Recent Developments

Laser Biochemistry Research Team

Haik Chosrowjan

When I joined the Institute for Laser Technology (ILT), Prof. Noboru Mataga was just establishing a laboratory to study light driven processes and phenomena in various native and mutant proteins and fundamental problems connected with charge transfer reactions in condensed media. Our initial goals were to answer questions like – What is the primary mechanism of light triggering in photoreceptor proteins responsible for mammalian vision (rhodopsin) or bacterial sensing (PYP - photoactive yellow protein)? How fast the protein reacts to absorbed light? What cascaded processes are triggered by light and how are they interconnected? Can these processes be controlled and manipulated? At that time, main techniques used in our studies were conventional fluorescence up-conversion, single photon counting and steady state absorption/emission spectroscopy applied exclusively on liquid phase protein samples. First several years were quite productive. By investigating wavelength, temperature, environment dependences of ultrafast fluorescence in various native, denatured and mutant proteins, we have observed and explained many fundamental transient phenomena in photoreceptors (Fig. 1). For example, first-time direct measurement of rhodopsin chromophore's (protonated Schiff base 11-cis retinal) isomerization time ~ 150 fs, explaining the effect of H-bonding network on the reaction rate, coherent origin of reactions in native proteins, absence of dynamic Stokes shift, narrowing of fluorescence spectra within first few picoseconds of the reaction, coupling of intra-chromophore vibrations to the reaction, etc.

These results have been summarized in J. Phys. Chem. B, 108/8, 2686 (2004) paper and references

therein.

Around 2003, however, we slowly understood that investigations only in liquid phase are not enough, because quite valuable and complementary information could be obtained from solid-state proteins – protein single crystals! At that time Dr. Y. Imamoto (Kyoto University) has established a new method for growing large protein single crystals. By direct measurements we wanted to compare photo-isomerization rate of PYP's chromophore (trans *p*-coumaric acid) in liquid vs. single

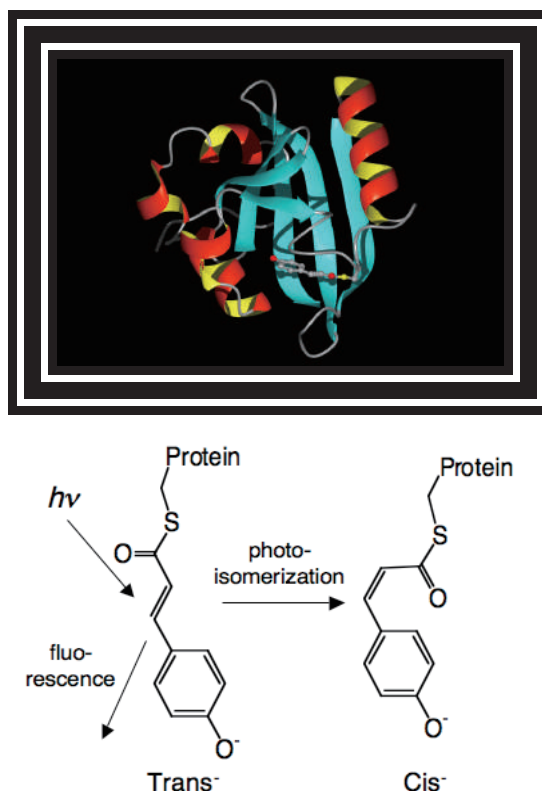


Fig. 1 Crystal structure of Photoactive Yellow Protein (PYP) obtained by X-ray crystallography (top) and the reaction scheme of initial photo-isomerization of PYP chromophore (*p*-coumaric acid) (bottom)

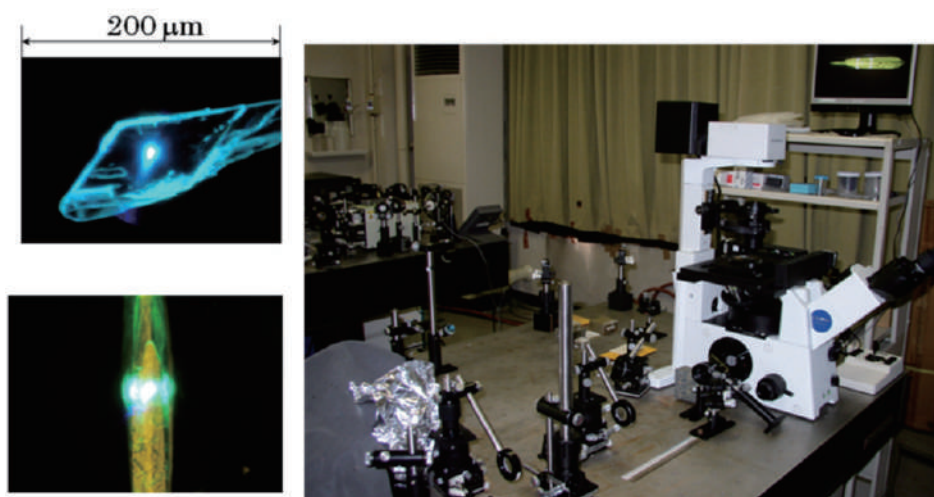


Fig. 2 Time- and space resolved fluorescence up-conversion apparatus and malachite green (top left) and PYP (bottom left) crystals under laser irradiation

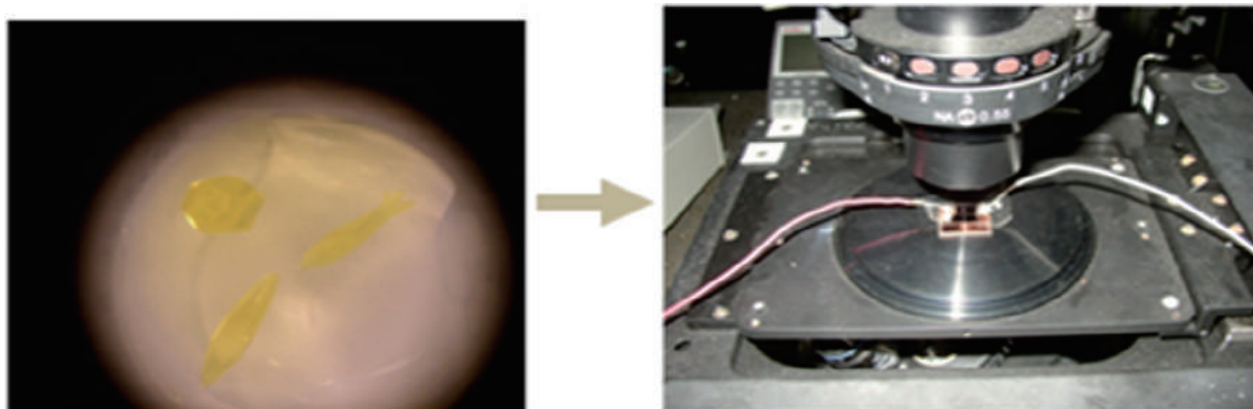


Fig. 3 PYP single crystals (right) and the photocurrent measurement system under the microscope (left)

crystal states. Are the dynamics of proteins in solution and single crystals similar or not? Such comparison was important because most experimental observations on proteins were made in solution, but explained using structures determined by X-ray crystallography on protein single crystals. We questioned that approach in general. However, there was one problem, namely no experimental device could measure photo-dynamics of protein crystals in femtosecond time precision. After several tries and failures, in around 2005 I have finally built a femtosecond time resolved fluorescence microscope system and successfully performed first experiments on malachite green dye micro-crystallines. The system consisted of an inverted microscope integrated into the conventional fluorescence up-conversion system with refractive geometry (Fig. 2).

At present the system utilizes ultra-low excitation conditions (~ 60 femtoJoule per pulse) for applications on solid protein materials. The time and space resolutions of the system have been estimated to be ~ 200 fs and $\sim 2 \mu\text{m}$, respectively. Recent successful measurements of ultrafast fluorescence dynamics of PYP and its R52Q mutant single crystals ($P6_5$ symmetry) and FMN BP crystal have been performed and summarized in *The Rev. of Laser Eng.* 39/12, 931 (2011).

Since 2007 we have worked also on an even challenging measurement system based on optical Kerr effect. The results are not yet satisfying and much work has to be done. However, I will continue perfecting the method, because if successful, it will allow ultrafast and space resolved broadband spectral measurements on light sensitive solid materials.

Another challenging problem we have addressed since 2009 was the signal transducing mechanism of PYP. Unlike in the case of bacteriorhodopsin (bR) which functions as a light driven proton pump in purple membrane of *Halobacterium salinarium*, PYP's exact role in signal transduction cascade, the receptor body and signaling mechanism are not established yet. Our primary aim was to check a hypothesis that the signaling process from PYP to the next signal transducer occurs via a charge transfer mechanism. To check this experimentally, we have attempted measuring photoconductivity effect in well oriented PYP single crystals, like it was done in case of bR membranes. If such an effect exists, then there is a quite high possibility that the phototactic signal transduction from PYP starts via charge transfer or charge shift mechanisms. This project was generously supported by the Kurata Foundation for the basic research.

To reach above stated objective, we have constructed a simple but highly sensitive measurement apparatus. Briefly, a tiny electrode was positioned under the inverted microscope and PYP single crystals were positioned on it (Fig. 3), gently covered by a thin glass plate and a bias voltage (0–10V range) was applied. A weak current difference (several tenths of picoA) could be measured when an incident laser light (15 mW at 415 nm) was turned on and off. The measurements were successful! We believe that these initial experiments will be the starting point for disclosing signal transduction cascade in PYP's host organism. Moreover, just a year ago we have started also a cooperation project with French scientists from ENS and Ecole Polytechnique, Paris, related to ultrafast time resolved circular dichroism (CD) of biomolecules. By implementing CD in pump-probe experiment, we will be able to measure conformational changes (folding) of proteins

At the end of this essay I want to mention Prof. Mataga's (1927 ~ 2011) contribution to ILT and the investigations described above. I will never forget how

passionately he explained me complicated reaction dynamics schemes and how patiently listened to my opinions and reservations. He was an excellent scientist, excellent teacher, but most of all a nice person. I will always remember Prof. Noboru Mataga.

Published papers

- 1) H. Chosrowjan, N. Mataga, N. Nakashima, Y. Imamoto and F. Tokunaga, "Femtosecond-Picosecond Fluorescence Studies on Excited State Dynamics of Photoactive Yellow Protein from *Ectothiorhodospira halophila*", Chem. Phys. Lett., **270**, 267 (1997).
- 2) H. Chosrowjan, N. Mataga, Y. Shibata, S. Tachibanaki, H. Kandori, Y. Shichida, T. Okada and T. Kouyama, "Rhodopsin Emission in Real Time: A New Aspect of the Primary Event in Vision", J. Am. Chem. Soc., **120**, 9706 (1998).
- 3) H. Chosrowjan, N. Mataga, Y. Shibata, Y. Imamoto and F. Tokunaga, "Environment Effects on the Femtosecond - Picosecond Fluorescence Dynamics of Photoactive Yellow Protein: Chromophore in Aqueous Solutions and in Protein Nanospaces Modified by Site - Directed Mutagenesis", J. Phys. Chem. B, **102**, 7695 (1998).
- 4) H. Chosrowjan, "Photomolecular Science in Relation to Biological Reaction Dynamics: Environmental Effects on the Femtosecond Fluorescence Dynamics of Photoactive Yellow Protein (PYP) ", Reports on Topical Meetings of Laser Society of Japan, Laser Biology, RTM98-39, 15 (1998).
- 5) N. Mataga, H. Chosrowjan, Y. Shibata, Y. Imamoto and F. Tokunaga, "Effects of Modification of Protein Nanospace Structure and Change of Temperature on the Femtosecond - Picosecond Fluorescence Dynamics of Photoactive Yellow Protein", J. Phys. Chem. B, **104**, 519 (2000).
- 6) H. Kandori, Y. Furutani, S. Nishimura, Y. Shichida, H. Chosrowjan, Y. Shibata and N. Mataga, "Excited-State Dynamics of Rhodopsin Probed by

- Femtosecond Fluorescence Spectroscopy”, *Chem. Phys. Lett.*, **334**, 271 (2001).
- 7) N. Mataga and H. Chosrowjan, Y. Shibata, Y. Imamoto, M. Kataoka, F. Tokunaga, “Ultrafast Photoinduced Reaction Dynamics of Photo- active Yellow Protein (PYP): Observation of Coherent Oscillations in the Femtosecond Fluorescence Decay Dynamics”, *Chem. Phys. Lett.*, **352**, 220 (2002).
- 8) N. Mataga, H. Chosrowjan, S. Taniguchi, N. Hamada, F. Tokunaga, Y. Imamoto and M. Kataoka, “Ultrafast Photoreactions in Protein Nanospaces as Revealed by Fs Fluorescence Dynamics Measurements on Photoactive Yellow Protein and Related Systems”, *Phys. Chem. Chem. Phys. (PCCP)*, **5**, 2454 (2003).
- 9) N. Mataga, S. Taniguchi, H. Chosrowjan, A. Osuka and N. Yoshida, “Ultrafast Charge Separation and Radiationless Relaxation Processes from Higher Excited Electronic States of Directly Linked Porphyrin-Acceptor Dyads”, *Photochem. Photobiol. Sci. (PPS)*, (Dedicated to Nobel Laureate Lord George Porter), **2**, 493 (2003).
- 10) H. Chosrowjan, N. Mataga, S. Taniguchi, M. Unno, S. Yamauchi, N. Hamada, M. Kumauchi and F. Tokunaga, “Low Frequency Vibrations and Their Role in Ultrafast Photoisomerization Reaction Dynamics of Photoactive Yellow Protein”, *J. Phys. Chem. B*, **108**, 2686 (2004).
- 11) P. Changenet-Barret, P. Plaza, M. M. Martin, H. Chosrowjan, S. Taniguchi, N. Mataga, Y. Imamoto and M. Kataoka, “Role of Arginine 52 on the Primary Photoinduced Events in the PYP Photocycle”, *Chem. Phys. Lett.*, **434**, 320 (2007).
- 12) Changenet-Barret, P. Plaza, M. Martin, H. Chosrowjan, S. Taniguchi, N. Mataga, Y. Imamoto and M. Kataoka, “Structural effects on the ultrafast photoisomerization of Photoactive Yellow Protein. Transient absorption spectroscopy of two point mutants”, *J. Phys. Chem. C*, **113/27**, 11605 (2009).
- 13) H. Miyasaka, Y. Satoh, Y. Ishibashi, S. Ito, Y. Nagasawa, S. Taniguchi, H. Chosrowjan, N. Mataga, D. Kato, A. Kikuchi and J. Abe, “Ultrafast Photodissociation Dynamics of a Hexaarylbiimidazole Derivative with Pyrenyl Groups: Dispersive Reaction from Femtosecond to Ten Nanosecond Time Regions”, *J. Am. Chem. Soc.*, **131/21**, 7256 (2009).
- 14) 谷口 誠治、コスロービアン ハイク、 “フェムト秒時間分解蛍光顕微鏡による光活性蛋白質微結晶の蛍光ダイナミクス”、*The Review of Laser Engineering*, **39**, 931 (2011).

レーザープラズマ応用研究

— レーザーを用いた碍子表面の塩分密度計測 — — レーザープラズマから放射されるマイクロ波を用いた土壤埋設金属の探査 —

レーザー計測研究チーム

島田義則

1. レーザープラズマの応用

レーザープラズマはプロセス技術や計測技術等に
応用されている。ここでは、レーザーを用いた「碍
子表面の塩分密度計測」と「レーザープラズマから
放射されるマイクロ波を用いた土壤埋設金属の探
査」について述べる。

2. レーザーを用いた碍子表面の塩分密度計測

2.1 レーザーを用いた塩分計測を開始

電線を鉄塔や電柱などに保持するために古くか
ら碍子（ガイシ）が使われている。碍子は台風など
によって海水が表面に付着して絶縁劣化を起こす。
このため、碍子表面の塩分密度を計測して絶縁劣化
度を評価する作業が定期的に行われてきた。塩分密
度は鉄塔や電線の脇に設置されたパイロット碍子の
表面を筆洗法を用いて求める。筆洗法は蒸留水を含
ませた筆を使って碍子表面を洗い流し、回収した水
の電気抵抗を測定することで碍子表面の塩分密度を
評価する。しかし、所定量の蒸留水で塩分を完全に
洗い流すのに手間がかかることや、熟練が必要とさ
れる欠点がある。これに代わる簡便な方式として、

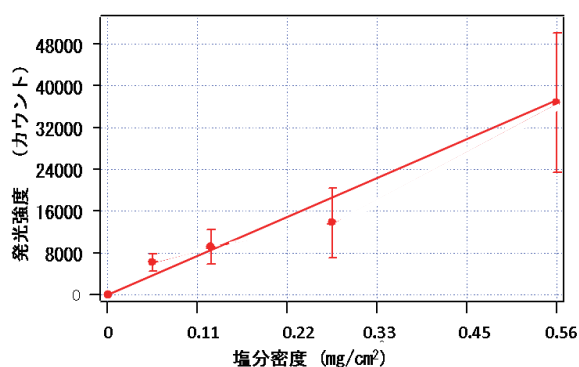


図1 塩分密度に対する発光強度
(分光器のカウント数)

レーザーを用いたポータブル塩分計測器を開発して
いる。レーザーによる塩分計測方法はレーザーで碍
子表面の塩分をプラズマ化して、ナトリウム原子の
発光線（ナトリウム D線）を捉える方式である。し
かし、碍子表面には、ナトリウムの混入した釉薬（ゆ
うやく）が塗布されており、高強度レーザーを碍子
表面に照射すると、釉薬中のナトリウムが発光して
計測誤差の要因となる。このため、レーザー強度の
弱いプレパルスレーザーを照射して表面の塩分成分
のみを飛散させ、それをメインレーザーで加熱して
ナトリウム発光を得るダブルパルスレーザー方式を
用いた。

2.2 塩分密度と発光強度との関係

塩分密度とナトリウム発光強度との関係を求める
ため、スライドガラス表面に一定量の塩分を含む純
水を塗布して乾燥させた試料を用いた。プレパルス
レーザーとメインパルスレーザーの遅延時間は 10
μs が最適であった。塩分密度に対する発光強度（分
光器のカウント数）を図1に示す。

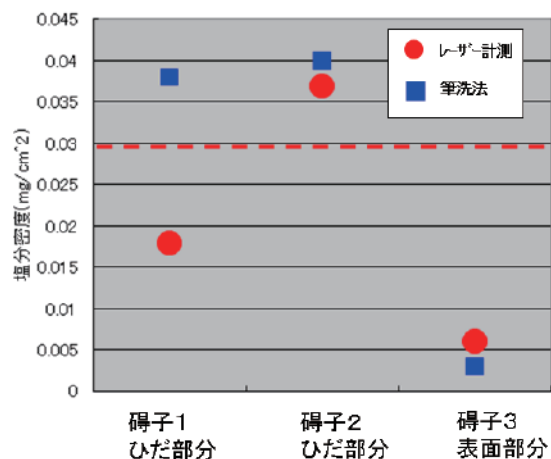


図2 レーザー計測と筆洗法との比較

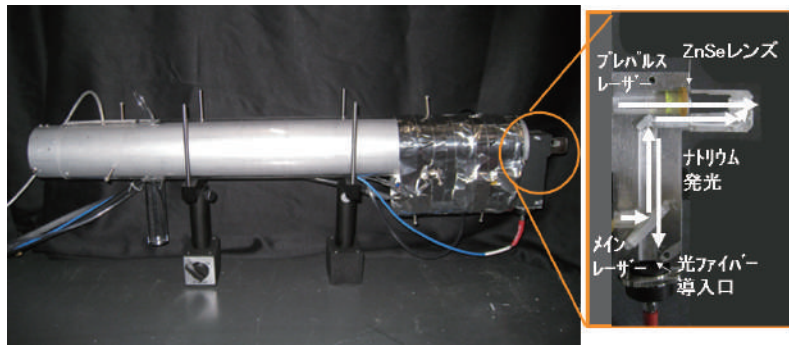


図3 碍子塩分計測装置外観

2.3 暴露碍子の塩分計測

6ヶ月間、屋外に暴露した碍子の塩分密度計測を行った。碍子の表面や裏面ひだ部分等をダブルパルスレーザー方式で計測した。碍子表面の20~30箇所を照射して得られた平均塩分密度値は筆洗法と比較して2倍以下の範囲に収まった。

2.4 可搬型レーザー計測装置

炭酸ガスレーザーをプレパルスレーザー、Nd:YAG マイクロチップレーザーをメインパルスレーザーとした可搬型レーザー装置の構築を行った(図3)。先端部分は碍子裏面のひだ部分に挿入出来る大きさとするため、小型光学部品をアルミブロック内部に組み込んだ一体型とした。プレパルスは碍子表面に垂直入射して表面の塩分を飛散させて、メインレーザーを斜め45度から照射してプラズマ発光を発生させた。プラズマ発光は光ファイバーに導入され分光器で計測される。現在の装置は持ち運び用としては大きいので今後、更にコンパクトな装置を構築する予定である。

3. レーザープラズマから放射されるマイクロ波を用いた土壌埋設金属の探査

3.1 マイクロ波を用いた遠隔探査のニーズ

コンクリート構造物内部の金属探査はマイクロ波や超音波、渦電流や電磁誘導を用いた方式が用いられる。しかし、これらの手法は被検査物の近くに装置を設置することが必要であり、人が近づけない場所や危険な場所での探査には不向きである。当研究所はレーザープラズマから放射されるマイクロ波

を利用して遠隔で金属探査を行う研究開発を行った。この方式は埋設地雷の探知やトンネル、高架の検査、土石流で埋まった車両の探知など多くの場所で使用可能と思われる(図4)。ここでは、レーザープラズマからのマイクロ波放射とそれを用いた埋設金属探知法について述べる。

3.2 サブナノ秒レーザープラズマからのマイクロ波放射

マイクロ波を用いて地中探査を行う場合、使用する周波数帯域は探知対象の埋設深さ、大きさ、およびマイクロ波の土中減衰によって決定される。探知対象の大きさが直径30cm、地表から数10cmの場合は0.5GHz~3GHz程度(L,Sバンド)を用いる。マイクロ波の放射には短パルスレーザーの急峻な立ち上がり時間を利用して、L,Sバンドを発生させた。放射スペクトルを図5に示す。レーザーエネルギーを140mJ、パルス幅を0.2nsとした場合、マイクロ波のピーク波長は1.5GHzで帯域は3GHz程度となり、探査に使用できるマイクロ波放射であることを確認した。

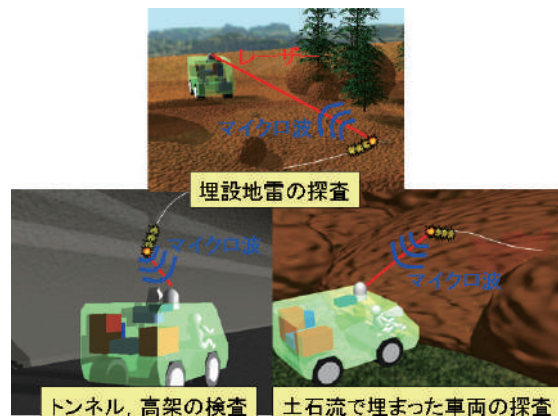


図4 レーザープラズマから放射されるマイクロ波を用いた探査

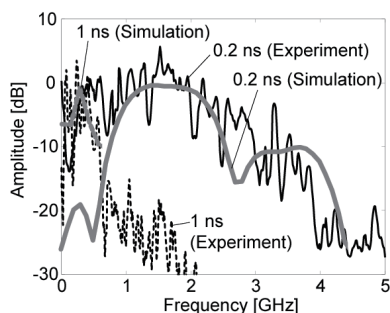


図 5 サブナノ秒レーザープラズマからのマイクロ波放射スペクトル

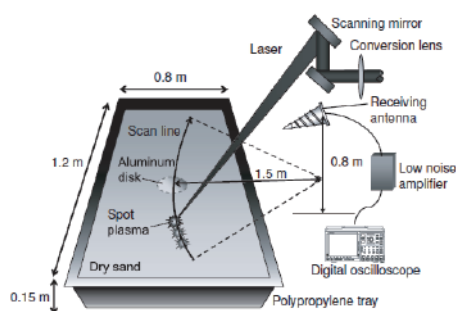


図 6 埋設したアルミ円盤の探査実験配置

3.3 マイクロ波を用いた金属探傷実験

サブナノ秒レーザープラズマから放射されるマイクロ波を用いて砂中に埋設したアルミ円盤を探査する実験を行った。実験配置を図6に示す。アルミ円盤はマイクロ波受信アンテナから1.5 m離れたところに設置した。レーザーエネルギーは140 mJ、パルス幅は0.2 nsである。レーザーを走査してアルミ円盤から反射して戻ってくるマイクロ波を受信することでアルミ円盤の有無を探査した。レーザー照射間隔は2.5 mmとした。アルミ円盤は砂表面から1.5 cmの深さに埋設した。円盤直径は7, 15, 26 cmを用いた。実験結果を図7に示す。図7a)は埋設物無し、図7b)はアルミ円盤直径が7 cm、図7c)は15 cm、図7d)は26 cmの結果である。いずれの場合もアルミ円盤を確認することが出来た。計測できる最小円盤直径は4 cm程度であった。また、探査可能埋設深度は放射されるマイクロ波の強度や砂の条件にもよるが、今回の実験条件なら約45 cm程度であることが分かった。

3.4 実用化にはマイクロ波放射エネルギーの増加が必要

サブナノ秒レーザーを用いることでレーザー装

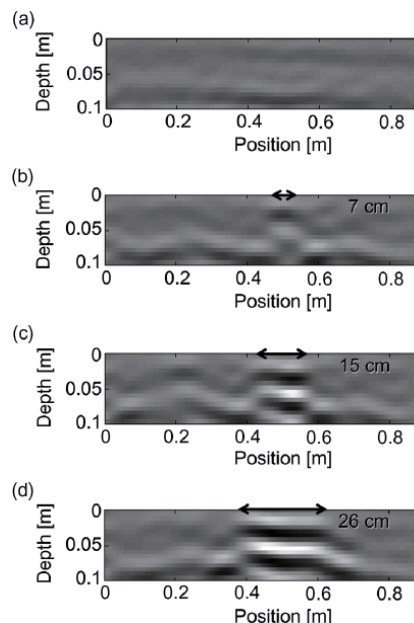


図 7 マイクロ波を用いたアルミ円盤の探査実験結果

置の小型化が可能で、図4に示すような埋設物探知車両構築の可能性を示した。しかし、水分を含んだ土や泥などを探査するためには、より大きなマイクロ波エネルギーが必要であり、今後の研究課題である。

発表論文

- 1) H. Nakajima, K. Hashimoto, M. Yamaura, Y. Shimada, M. Fujita and K. A. Tanaka, "Micro wave propagation via laser plasma channels", *Plasma and Fusion Research*, **2**, 012 (2007).
- 2) H. Nakajima, Y. Shimada, T. Somekawa, M. Fujita, and K. Tanaka, "Nondestructive sensor using microwaves from laser plasma", *Plasma and Fusion Research*, **4**, 003 (2009).
- 3) H. Nakajima, M. Yamaura, Y. Shimada, M. Fujita, and K. A. Tanaka, "Ground penetrating rader using a microwave radiated from laser-induced plasma", *IFSA2007*, **112**, 42086 (2007).
- 4) H. Nakajima, Y. Shimada, T. Somekawa, M. Fujita, and K. A. Tanaka, "Nondestructive sensor using microwaves from laser plasma by subnanosecond laser pulses", *IEEE Geoscience and Remote Sensing Letters*, **6**, 718 (2009).

フェムト秒レーザーを用いたダイオキシン類検出研究

レーザー計測研究チーム

島田義則

1. 身の回りのダイオキシン類

身の回りにあるダイオキシン類が人体に悪影響を及ぼす事実は1980年代から国内で少しずつ広まり、1997年から1999年にかけてテレビ報道などで取り上げられ、一般人にも知るところとなった。現在では、多くの研究機関で調査が行われ、日本の土壤に含まれるダイオキシン類の量は世界的に見ても1桁高い数値であることがわかっている。政府、自治体が動き出し、自治体が個々に所有していた小さな焼却炉を多くの自治体が参加して大きな焼却施設に立て替える事業が行われ、今日では焼却炉から放出されるダイオキシン類は減少傾向にある。しかし、今日まで放出されたダイオキシン類が土壤、河川、海水などにまだ多く含まれているのが現状である。

また、ダイオキシンは水にはあまり溶けないが、油には良く溶ける。このため食物連鎖の頂点にある動物にもっとも多くダイオキシンが蓄積される。

2. ダイオキシン類測定方法

ダイオキシン類の測定には、ポリ塩化ジベンゾ-*p*-ダイオキシン、ポリ塩化ジベンゾフラン、ポリ塩化ビフェニル(PCB)の量を測定しなければならない。また、ダイオキシン類に結合される塩素の数によって毒性が異なるため、塩素数も把握する必要がある。土壤などに含まれるダイオキシン類の量は汚染地域で数pgからng/g程度と極少量である。これらの測定には公定法と呼ばれる決まった手順で計測を行う。公定法はダイオキシン類の濃縮、抽出、定量と分かれ、濃縮、抽出過程がそれぞれ1週間程度の期間を要するために、測定結果を知るためには土壤の採取から少なくとも3から4週間後となる。一方、簡便法も多く使われている。簡便法はダイオキシン類の前駆体量を測定する手法や、生物学的手法を応用したものである。これらの方法により計測時間は短縮したが、それでもなお1週間程度の時間を要するの

が現状である。

当研究所は大阪市立大学と共に土壤等から抽出したサンプルを前処理(濃縮、抽出)工程を経ず、そのまま計測することにより、リアルタイムで、かつダイオキシン類そのものを測定することを目的として研究を行った。

3. フェムト秒レーザーを用いた試料分子の同定

レーザーを用いて試料同定を行う方法は、レーザーで試料をイオン化させ、外部電磁界で加速させる。その速度を、TOF型質量分析器を用いて計測するのが一般的である。試料をイオン化させる方法は、図1に示すように試料の励起準位にレーザー波長を合わせた共鳴多光子イオン化法と、フェムト秒レーザーを用いた非共鳴多光子イオン化法に分けられる。共鳴多光子イオン化法のイオン化効率は励起準位の寿命に左右されるが、非共鳴多光子イオン化法ではその欠点がない、また、レーザーパルス幅が短く親イオンがフラグメント化する確率が小さいために、イオン化効率が高く極微量の試料が計測可能である。

4. ポリ塩化ダイオキシンの測定に成功

フェムト秒レーザーと質量分析装置を用いて、ポリ塩化ダイオキシン、ポリ塩化ジベンゾフラン、ポ

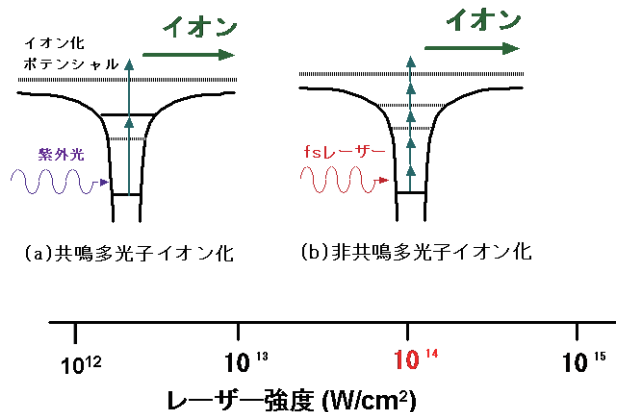
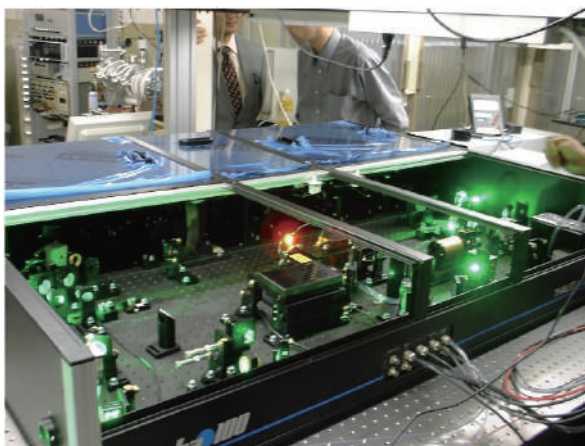
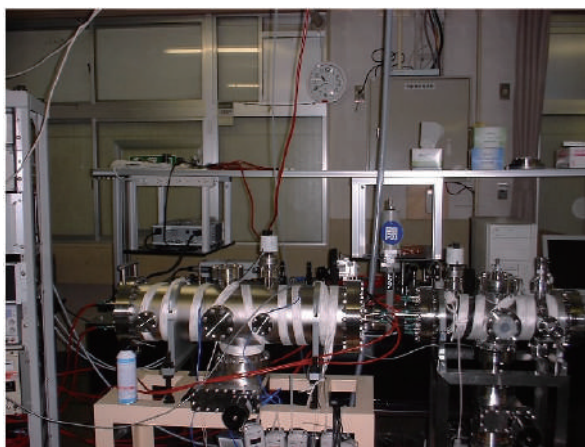


図1 レーザーを用いたダイオキシン類のイオン化方法

リ塩化ビフェニルの検出実験を行った。フェムト秒レーザーは THALES 社製 Alpha100/XS で、レーザーエネルギーは 1.2 mJ, パルス幅は 150 fs, レーザー



a)フェムト秒レーザー装置



b)質量分析装置

図2 実験装置

波長は 800 nm を用いた。また、OPA (Optical Parametric Amplifier /米, QUANTRONIX 社製)で、レーザー波長を 1200~2000 nm まで変化させた。ビーム直径は 12 mm とした。質量分析計のチャンバー直前で、焦点距離 200 mm の合成石英平凸レンズを用いてレーザーをチャンバー中心で集光させた。イオン検出にはリフレクトロン型の飛行時間質量分析装置(TOYAMA 製, $m/\Delta m \sim 850$)を用いた。飛行距離は 1.8m、引き出し電極の穴径は 12 mm とした。実験装置を図2に示す。

ポリ塩化ダイオキシン類は蒸気圧が低いため、チャンバー内で試料を加熱して蒸気化させた。また、レーザー照射によりポリ塩化ダイオキシン類の分子は分解されフラグメント化しやすいので、これを防ぐため、ポリ塩化ダイオキシン類の分子に吸収され難いレーザー波長 (1400~2000 nm) を選んで照射した。また、毒性が強いのでサンプル充填等は慎重に行った。

1,3,6-トリクロロジベンゾ-*p*-ダイオキシンのイオン化実験について述べる。イオン化エネルギーは 7.8 eV である。質量スペクトルを図3に示す。波長 800 nm では1価および2価の分子イオンが多く観測された。また、炭素イオンの信号と $m/z = 25$ から 120 付近にわたり多くのフラグメントが観測された。一方、波長 1400 nm では分子イオンが最も高いピークを示し、2価の分子イオンも1価同様多くのイオンが観

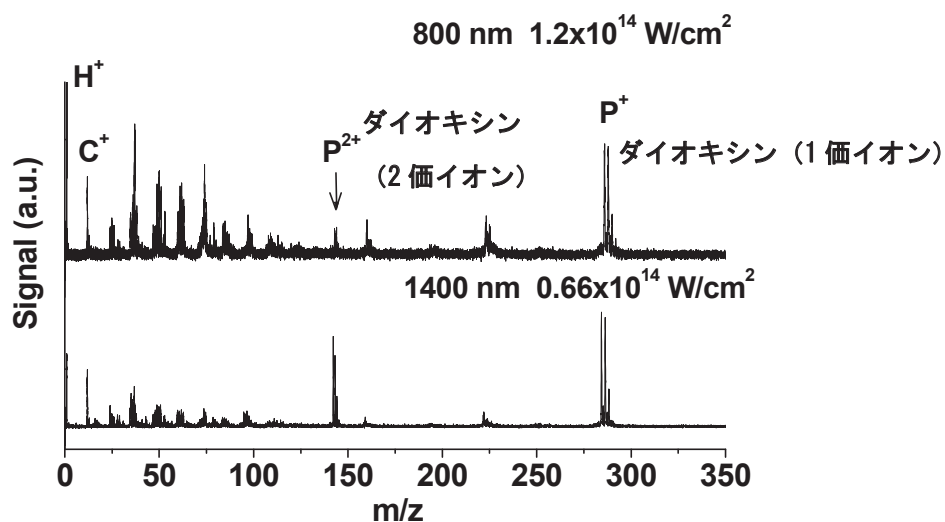


図3 1,3,6-トリクロロジベンゾ-*p*-ダイオキシンが検出された TOF 波形

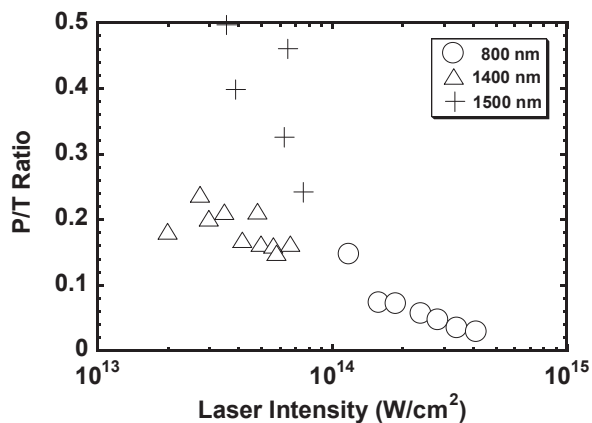


図4 1,3,6-トリクロロジベンゾ-*p*-ダイオキシンの分子イオン数/トータルイオン数比

測できた。m/z=25 から 120 のフラグメント数は波長 800 nm と比べ減少した。

図4に分子イオン数/トータルイオン数比(以下 P/T 比)を示す。レーザー波長は 800、1400 および 1500 nm である。レーザー波長 800 nm での P/T 比は 0.1 程度であった。一方、レーザー波長を 1400 nm にすると P/T 比は 0.25、1500 nm では 0.5 まで増加した。波長 1500 nm を用いることにより、ダイオキシンのフラグメント化を抑制して、イオン化させることができた。

5. 土壌等直接計測に向けて

フェムト秒レーザーを用いた計測手法の利点は、イオン化効率が高いことである。このため、微量の

ダイオキシン類でも計測が可能であり、この方法で直接土壌や汚染水、焼却炉の排ガス等のリアルタイム計測が出来る可能性がある。しかし、フェムト秒レーザー装置が高額である等の理由で現在も実用化には至っていない。原理はすばらしいと思うので、今後、フェムト秒レーザー装置の小型化、低価格化を期待する。

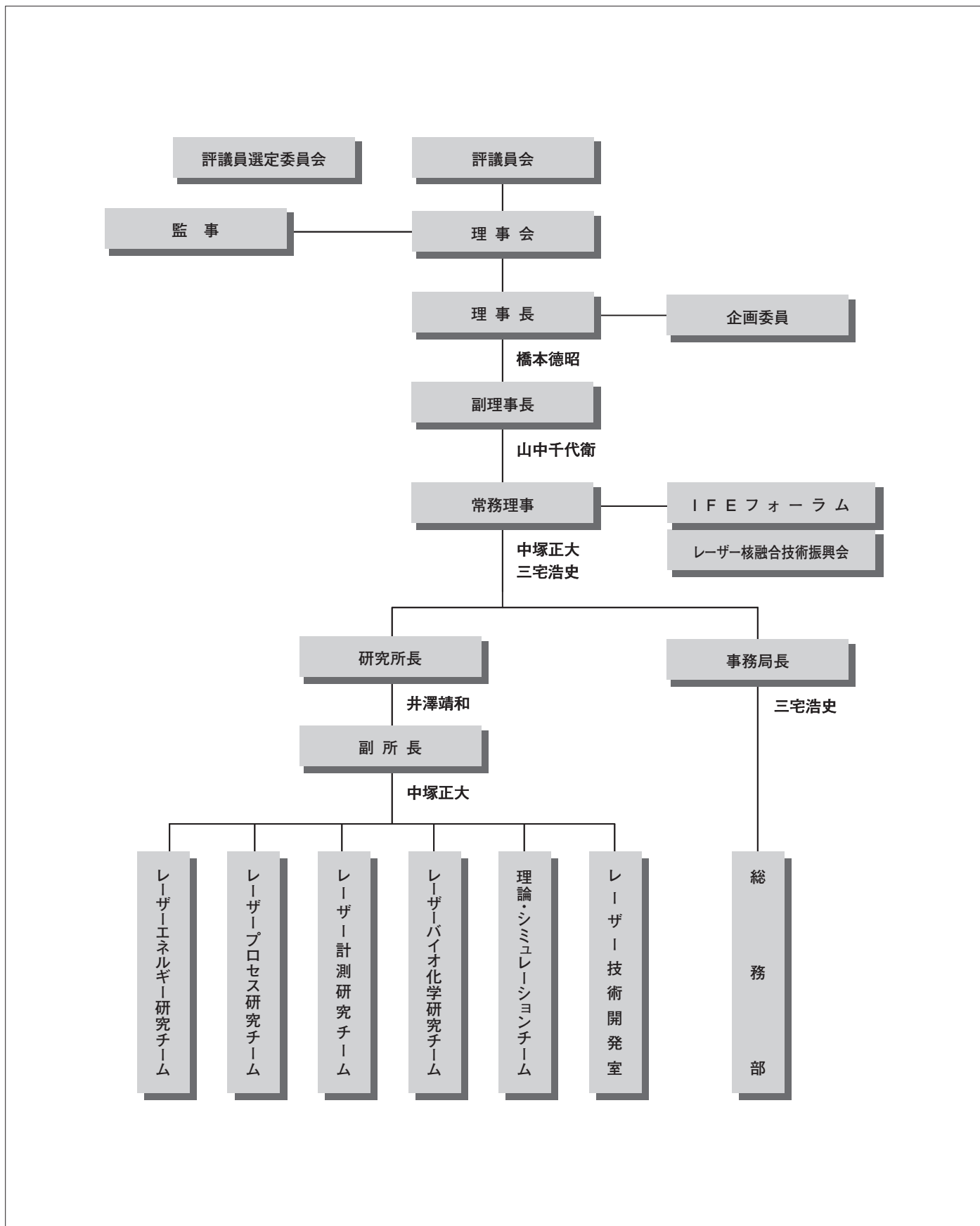
発表論文

- 1) 中島信昭、八ッ橋知幸、篠原秀則、島田義則、“フェムト秒質量分析法”、*応用物理*、**73**, 215 (2004).
- 2) 溝口竜二、島田義則、篠原秀則、八ッ橋知幸、中島信昭、“フェムト秒レーザーのパルス幅変化による有機分子のイオン化および解離過程”、*レーザー研究*、**32**, 717 (2004).
- 3) 島田義則、溝口竜二、篠原秀則、八ッ橋知幸、中島信昭、“フェムト秒レーザーイオン化法によるダイオキシン類の検出”、*分析化学*、**54**, 127 (2005).
- 4) M. Murakami, R. Mizoguchi, Y. Shimada, T. Yatsunashi and N. Nakashima, “Ionization and Fragmentation of Anthracene with an Intense Femtosecond Laser Pulse at 1.4 μm ”, *Chem. Phys. Lett.*, **403**, 238 (2005).

◆ 資料編 ◆

1. 財団組織図
2. 発起人名簿
3. 歴代理事・監事、評議員、総務委員
技術企画委員、総務企画委員、
企画委員
4. 賛助会員名簿
5. 受賞一覧
6. 泰山賞の贈呈
7. 特許一覧
8. 刊行物一覧
9. 役職員・共同研究員名簿
10. OB研究者・職員の推移
11. 研究所25年の歴史と実績
12. メディア掲載

1. 財団組織図



2. 発起人名簿

氏名	役職（1987年当時）
赤崎 正則	九州大学 工学部 教授
葦原 悦朗	(株)東芝 常務取締役
渥美 和彦	東京大学 医学部 教授
飯田 孝三	関西電力(株) 取締役副社長
伊藤 憲昭	名古屋大学 理学部 教授
大島 恵一	東京大学 名誉教授
岡田 實	大阪大学 名誉教授
奥田 孝美	名古屋大学 工学部 教授
垣花 秀武	上智大学 工学部 教授
片山 仁八郎	三菱電機(株) 取締役会長
金井 秀	(株)日立製作所 常務取締役
河島 信樹	宇宙科学研究所 教授
熊谷 信昭	大阪大学 総長
佐野 忠雄	大阪大学 名誉教授
更田 豊治郎	日本原子力研究所 東海研究所 副所長
霜田 光一	慶應義塾大学 理工学部 教授
菅田 栄治	大阪大学 名誉教授
関口 忠	横浜国立大学 工学部 教授
関本 忠弘	日本電気(株) 社長
宅間 宏	電気通信大学 新型レーザー研究センター 所長
豊田 浩一	理化学研究所 半導体工学研究室 主任研究員
豊田 正敏	東京電力(株) 取締役副社長
中井 貞雄	大阪大学 レーザー核融合研究センター長
中里 良彦	富士電機(株) 取締役副社長
中根 秀彦	三菱重工業(株) 常務取締役
難波 進	大阪大学 基礎工学部 教授
西澤 潤一	東北大学 電気通信研究所長
早川 茂	松下電器産業(株) 専務取締役
藤井 陽一	東京大学 生産技術研究所 教授
伏見 康治	大阪大学、名古屋大学 名誉教授
水科 篤郎	京都大学 名誉教授
宮島 龍興	理化学研究所 理事長
山崎 魏	中部電力(株) 常務取締役
山中 千代衛	大阪大学 名誉教授
吉原 經太郎	分子科学研究所 教授

歴代評議員選定委員

※所属は就任時のもの
 は現職

役職	氏名	所属	S62~H23	H24	H25	H26	H27	H28	H29	H30
評議員選定委員	高杉政博	関西電力(株)		24.5						
	西原功修	大阪大学名誉教授		24.5						
	三宅浩史	(財)レーザー技術総合研究所		24.5						
	佐々木孝友	大阪大学名誉教授		24.5						
	阪部周二	京都大学		24.5						

歴代総務委員

※所属は就任時のもの

役職	氏名	所属	S62	S63	H1	H2	H3	H4	H5	H6	H7	H8~H25
委員長	前田 肇	関西電力(株)	62.11							6.3		
委員長	山崎吉秀	関西電力(株)								6.4	7.9	
	辻 勝之	(財)大阪科学技術センター	62.11		1.7							
委員	曾和正夫	(財)大阪科学技術センター					4.7				7.9	
	井上哲也	(財)大阪科学技術センター										
委員	井澤靖和	大阪大学教授	62.11								7.9	
	竹内榮次	中部電力(株)	62.11	63.10								
委員	葛島正生	中部電力(株)	63.10						5.3			
	神長茂里雄	中部電力(株)						5.4		6.8		
委員	成瀬喜代士	中部電力(株)								6.9	7.9	
	高城 眞	東京電力(株)	62.11				4.3					
委員	木嶋貞郎	東京電力(株)					4.4				7.9	
	阿部 進	(株)東芝	62.11				3.3					
委員	橋本 弘	(株)東芝				3.4				6.2		
	宮本俊樹	(株)東芝								6.3	7.5	
委員	後藤征一郎	(株)東芝									7.6	7.9
	福田令文	日本電気(株)	62.11		2.3							
委員	水澤宏治	日本電気(株)			2.4						7.9	
	和嶋常隆	(株)日立製作所	62.11		2.3							
委員	小笠原英雄	(株)日立製作所			2.4					6.2		
	近藤嶺一	(株)日立製作所								6.2	7.9	
委員	平田 寛	富士電機(株)	62.11								7.4	
	柳田正弘	富士電機(株)									7.5	7.9
委員	佐藤広栄	三菱重工業(株)	62.11	63.5								
	豊田行雄	三菱重工業(株)	63.4				3.3					
委員	鹿島浩生	三菱重工業(株)				3.4		4.3				
	中元弘之	三菱重工業(株)						4.4		6.4		
委員	濱田紘司	三菱重工業(株)								6.5	7.9	
	浅野俊郎	三菱電機(株)	62.11		2.3							
委員	榎 浩平	三菱電機(株)			2.4					5.3		
	大黒志郎	三菱電機(株)						5.4		7.9		

歴代技術企画委員

※所属は就任時のもの

役職	氏名	所属	S62	S63	H1	H2	H3	H4	H5	H6	H7	H8~H25
委員長	西村寅雄	関西電力(株)			1.7		3.3					
委員	青木正寛	関西電力(株)				3.4					7.9	
	河島信樹	宇宙科学研究所			1.7						7.9	
委員	松原健夫	(財)大阪科学技術センター			1.7		3.6					
	三間園興	大阪大学			1.7					5.6		
委員	加藤義章	大阪大学							5.7		7.9	
	久保宇市	近畿大学			1.7						7.9	
委員	三井 勉	住友電気工業(株)			1.7		3.6					
	野田伸雄	住友電気工業(株)					3.7				7.9	
委員	品田知章	中部電力(株)			1.7		4.3					
	小林 勇	中部電力(株)					4.4		5.9			
委員	鈴木光雄	中部電力(株)							5.10		7.9	
	高城 眞	東京電力(株)	1.7							5.6		
委員	木嶋貞郎	東京電力(株)							5.7		7.9	

役職	氏名	所属	S62~H6	H7	H8	H9	H10	H11	H12	H13	H14	H15	H16	H17	H18	H19	H20	H21	H22	H23	H24	H25	
幹事	葛西 彪	(株)富士電機総合研究所				9.2					14.4												
	原嶋孝一	富士電機(株)								14.4	14.7												
	引地正則	富士電機(株)								14.7						19.2							
	海田英俊	富士電機ホールディングス(株)													19.2		20.3						
	竹石 均	富士電機ホールディングス(株)														20.4			21.11				
	竹辺晴夫	富士電機(株)																21.11				24.3	
	高尾正敏	松下電器産業(株)		7.10																			17.6
	濱田紘司	三菱重工業(株)		7.10																			10.3
	三村 泰	三菱重工業(株)																					10.4
	大橋正雄	三菱重工業(株)																					14.1
	神田 誠	三菱重工業(株)																					14.1
	木村敏也	三菱重工業(株)																					18.3
	宮口仁一	三菱重工業(株)																					18.4
	松宮正幸	三菱電機(株)		7.10																			21.6
	路次安憲	三菱電機(株)																					21.6
	阪上武温	三菱電機(株)																					23.4
	谷 衛	三菱電機(株)																					23.4
	小橋秀一	三菱電機(株)																					23.4
	織戸浩一	三菱電機(株)																					24.3
	田代英夫	理化学研究所																					10.2
	堀 保恵	関西電力(株)		7.10																			10.1
	西嶋健一	関西電力(株)		7.10																			9.8
	林 良樹	関西電力(株)																					9.9
	鈴木一弘	東京電力(株)		7.10																			8.8
	蓮池 透	東京電力(株)																					8.9
	加藤俊明	東京電力(株)																					9.8
	水澤宏治	日本電気(株)		7.10																			9.9
	奥村泰彦	日本電気(株)																					8.1
高尾正敏	松下電器産業(株)		7.10																			8.8	
大黒志郎	三菱電機(株)		7.10																			12.3	
塩見俊也	関西電力(株)																					10.1	
深見晴男	三菱電機(株)																					10.1	

歴代企画委員

※所属は就任時のものは現職

役職	氏名	所属	S62~H23	H24	H25	H26	H27	H28	H29	H30
委員長	大濱稔浩	関西電力(株)		24.6						
委員長	中島信昭	大阪市立大学		24.6						
	井上哲也	(財)大阪科学技術センター		24.6						
	増原 宏	大阪大学		24.6						
	上田和夫	関西電力(株)		24.6	24.6					
	横井賢二郎	関西電力(株)		24.7						
	寺井 功	関西電力(株)		24.6	24.6					
	田中正人	関西電力(株)		24.7						
	奥田泰弘	住友電気工業(株)		24.6						
	名倉準一	中部電力(株)		24.6						
	植田憲一	電気通信大学		24.6						
	宮崎健創	京都大学		24.6						
	富田邦裕	東京電力(株)		24.6						
	向井成彦	(株)東芝		24.6						
	近藤公伯	(独)日本原子力研究開発機構		24.6						
	鈴木良和	オムロンレーザーフロント(株)		24.6						
	富永研司	(株)日立製作所		24.6						
	藤原関夫	兵庫県立大学		24.6						
	竹辺晴夫	富士電機(株)		24.6						
	宮口仁一	三菱重工業(株)		24.6						
	大谷浩二	三菱電機(株)		24.6						

4. 賛助会員名簿

会社・団体名	会社・団体名
ウシオ電機 (株)	(株) ダイヘン
(財) 応用光学研究所	中国電力 (株)
(財) 大阪科学技術センター	(財) 電力中央研究所
大阪ガス (株)	(株) 東芝
(有) 岡本光学加工所	西日本旅客鉄道 (株)
(株) オプトサイエンス	日新電機 (株)
オムロンレーザーフロント (株)	日本原子力発電 (株)
(株) 片岡製作所	日本電気 (株)
(株) 環境総合テクノス	(株) 日本ネットワークサポート
(財) 関西情報センター	パナソニック (株)
関西電力 (株)	浜松ホトニクス (株)
関電不動産 (株)	(財) 光産業技術振興協会
関電プラント (株)	(株) 日立製作所
(株) 気象工学研究所	日立電線 (株)
(株) ケイ・オプティコム	富士電機 (株)
(株) きんでん	北陸電力 (株)
原子燃料工業 (株)	北海道電力 (株)
(株) 原子力エンジニアリング	丸紅 (株)
光伸光学工業 (株)	(株) 三井住友銀行
(株) 神戸製鋼所	三菱原子燃料 (株)
ジオマテック (株)	三菱重工業 (株)
四国電力 (株)	三菱電機 (株)
(株) 島津製作所	三菱電線工業 (株)
住友電気工業 (株)	(社) レーザー学会

5. 受賞一覧

名 称	受賞者	受賞テーマ	受賞年月
レーザー学会奨励賞	藤原 関夫 出口 博史 畠山 卓也	固体化電源を用いた銅蒸気レーザー (CVL) の研究	平成2.5
レーザー学会業績賞論文賞	又賀 昇	エキサイプレックス化学の開拓と展開	平成7.5
レーザー学会業績賞進歩賞	今崎 一夫 藤田 雅之 浅川 誠	コンパクト自由電子レーザー装置の開発研究	平成7.5
電気学会電気学術振興賞進歩賞	内田 成明 山中 龍彦 河崎 善一郎 足立 幹雄	世界で初めてレーザー誘雷の実証に成功	平成10.5
レーザー学会業績賞進歩賞	内田 成明 島田 義則 安田 裕彦 本越 伸二 山中 千代衛 他	レーザー誘雷の実証研究	平成10.5
電気学会優秀論文発表賞	島田 義則	レーザー誘雷における強電離弱電離プラズマを用いた放電誘導実験	平成12.5
クリタ水・環境科学財団助成金	島田 義則	水中に於けるレーザープラズマ誘起放電とその制御に関する研究	平成14.8
レーザー学会業績賞進歩賞	橋田 昌樹 古河 裕之 塚本 雅裕 藤田 雅之 井澤 靖和	フェムト秒レーザーアブレーションによる新加工領域の特徴とナノ構造形成	平成16.5
プラズマ・核融合学会論文賞	西村 博明 島田 義則 砂原 淳 河村 徹 他	レーザー生成球対称Sn プラズマからの極端紫外光 (EUV) 放射特性	平成17.11
大阪府知事賞	李 大治	Study on superradiant Smith-Purcell radiation	平成19.6
松尾学術振興財団松尾学術研究助成金	砂原 淳	レーザー生成プラズマ中の輻射輸送における光電離・光励起過程の導入	平成19.10
電気学会電気学術振興賞論文賞	藤田 雅之 宮永 憲明 江刺 正喜 他	Debris-Free-LASER-Assisted Low-Stress Dicing for Multi-Layered MEMS	平成21.5
レーザー学会業績賞進歩賞	藤田 雅之 宮永 憲明 江刺 正喜 田中 秀治 他	積層MEMSのためのパルスレーザー支援デブリフリー低ストレスダイシング技術の開発	平成21.5
レーザー学会優秀論文発表賞	染川 智弘	白色光偏光ライダーの開発	平成21.5
倉田記念日立科学技術財団倉田奨励金	ハイク コスロビアン	光活性タンパク質の光電導効果の研究	平成22.1
倉田記念日立科学技術財団倉田奨励金	李 大治	ブラッグ反射機能を用いたテラヘルツスミス・パーセル放射減の研究開発	平成22.1
日本鉄道協会坂田記念賞	御崎 哲一 島田 義則 篠田 昌弘	レーザー超音波リモートセンシングによるコンクリート欠陥の非破壊検査法の開発	平成22.5
応用物理学会講演奨励賞	古瀬 裕章	全反射アクティブミラーレーザーの高出力化	平成22.3
堀場雅夫賞	染川 智弘	高強度フェムト秒レーザーを用いた白色光ライダーの開発	平成22.10
光産業技術振興会創立30周年記念功労賞	藤田 雅之		平成22.12
レーザー学会優秀論文発表賞	古瀬 裕章	次世代大出力レーザーのためのジグザグアクティブミラー増幅器の開発	平成23.5
レーザ・レーダ研究会廣野賞	染川 智弘		平成23.9

 	<p>電気学会電気学術振興賞論文賞 藤田雅之他 平成 21 年 5 月</p>
 	<p>レーザー学会業績賞進歩賞 藤田雅之他 平成 21 年 5 月</p>
 	<p>応用物理学会講演奨励賞 古瀬裕章 平成 22 年 3 月</p>
 	<p>レーザー学会優秀論文発表賞 染川智弘 平成 21 年 5 月</p>
 	<p>レーザー学会優秀論文発表賞 古瀬裕章 平成 22 年 5 月</p>
 	<p>日本鉄道協会坂田記念賞 島田義則他 平成 22 年 5 月</p>
 	<p>堀場雅夫賞 染川智弘 平成 22 年 5 月</p>
 	<p>光産業技術振興会創立 30 周年記念功労賞 藤田雅之 平成 22 年 12 月</p>
 	<p>レーザ・レーダ研究会廣野賞 染川智弘 平成 23 年 9 月</p>

6. 泰山賞の贈呈

第1回：平成21年7月16日

レーザー功績賞	霜田光一	マイクロ波分光学からレーザー レーザーに及ぶ永年にわたる光科学技術の先導的研究
レーザー進歩賞	宮永憲明 實野孝久	高エネルギーペタワットレーザー LFEX の開発

第2回：平成22年7月13日

レーザー功績賞	宅間 宏	レーザー科学の振興と発展に対する永年にわたる功績
レーザー進歩賞	緑川克美	高出力アト秒レーザーの開発と応用研究

第3回：平成23年7月12日

レーザー功績賞	山中千代衛	大出力レーザーと慣性核融合の先導的研究ならびに レーザー学会創立等による永年の科学技術への顕著な貢献
レーザー進歩賞	植田憲一	稀ガス・ファイバー・セラミックスレーザーの高出力化開発と その応用に関する研究

第4回：平成24年7月18日

レーザー功績賞	豊田浩一	レーザーマイクロプロセスの研究とレーザー科学技術の発展に 対する貢献
レーザー進歩賞	渡部俊太郎	超短パルス高強度レーザーとコヒーレント短波長光発生に関する 先導的研究

7. 特許一覧

国内特許

公開番号	発明の名称
平 08-017371	レーザープラズマ X 線源のデブリス除去方法及び装置
2003-012569	メタン又はメタノール生成システム
2003-057392	高エネルギー発生装置
2003-303789	フォトレジスト剥離除去方法及び装置
2004-229698	細長型 X 線照射具
2004-354535	光学媒質の光入出射部処理方法
2005-147813	レーザ超音波による材料非破壊検査方法及び装置
2006-085940	X 線発生方法、X 線発生装置
2006-169573	蒸着マスクのクリーニング方法、蒸着マスククリーニング装置、有機 EL 素子の製造方法、および、有機 EL 素子の製造装置
2006-276282	光学媒質の光入出射部処理方法
2007-237210	レーザ加工方法及び装置
2008-200698	円筒内周面の周期構造体加工方法と円筒内周面の周期構造体加工装置
2008-200699	外周体の周期構造体加工方法と外周体の周期構造体加工装置
2008-200700	シリンダブロックとシリンダブロックの周期構造体加工方法とシリンダブロックの周期構造体加工装置
2009-023215	積層体の切断方法
2009-030996	干渉縞安定化装置およびそれを用いた非破壊検査装置
2009-050904	周期構造体の加工制御方法と周期構造体の加工制御装置
2009-081235	n 型酸化物半導体の特性制御方法
2009-105006	EUV 光の放射方法、および前記 EUV 光を用いた感応基板の露光方法
2009-063558	超音波検査装置、超音波検査方法および原子力プラントの非破壊検査方法
2010-030870	バイオマスエネルギー変換装置
2010-177340	ダイシング方法およびエキスパンド装置
2010-177341	積層体の切断方法
2011-245492	金属表面加工方法及び金属表面加工装置
2012-077328	蒸着用マスク、その製造方法及び蒸着方法
2012-078812	レーザ装置
2012-078813	レーザ装置
2012-083321	初期生成プラズマ抑制と高速荷電粒子収束を同時に達成するターゲット形状

外国特許

登録番号	発明の名称
6,913,735	メタン又はメタノール生成システム (アメリカ)
ZL03109544.5	フォトレジスト剥離除去方法及び装置 (中国)
10-0962526	フォトレジスト剥離除去方法及び装置 (韓国)
I -330765	フォトレジスト剥離除去方法及び装置 (台湾)
I -1289209	光学触媒の光入出射部処理方法 (台湾)
10-0774436	光学触媒の光入出射部処理方法 (韓国)
ZL200610071433.1	光学触媒の光入出射部処理方法 (中国)
1707994	光学触媒の光入出射部処理方法 (ヨーロッパ)
8,026,459	光学触媒の光入出射部処理方法 (アメリカ)

8. 刊行物一覧

書籍名	著者	発行日
レーザーと未来社会	山中千代衛 編	昭和 60.10
レーザーセンシングとその応用	山中千代衛 編	昭和 63.9
レーザーと宇宙	河島信樹	昭和 63.9
レーザー同位体分離とレーザー技術開発	山中千代衛 編	昭和 63.11
最近のレーザー技術とプロセッシング	山中千代衛 編	昭和 63.12
最近の自由電子レーザー開発の動向とその応用	三間冨興、富增多喜夫	平成元 .6
最近のレーザー事情	山中千代衛	平成 2.2
新型レーザーが拓く先端技術	山中千代衛 編	平成 2.3
レーザーを用いた有機材料開発の最前線を探る	増原 宏	平成 2.4
21世紀とハイテクノロジー	山中千代衛	平成 2.8
大型放射光施設計画 - 6 GeV SOR -	原 雅弘、岩崎 準	平成 2.11
レーザープロセス技術の最先端 (I)	山中千代衛 編	平成 3.1
レーザーで拓く細胞工学	粕谷敬宏	平成 3.1
ハイパワーレーザー最新技術	山中千代衛 編	平成 3.6
光科学のフロンティア	角戸正夫	平成 3.7
X線レーザープロセス技術の最先端	山中千代衛 編	平成 3.12
レーザープロセス技術の最先端 (II)	山中千代衛 編	平成 4.2
自由電子レーザーの現状と応用	今崎一夫	平成 4.2
新しい極短波長光源を求めて	加藤義章	平成 4.3
極超低温を達成する - レーザーによる冷却 -	清水富士夫	平成 4.5
21世紀エレクトロニクス - 最も東洋的なるものを求めて -	柏木 寛	平成 4.5
フロンティアメディカルレーザー	渥美和彦	平成 4.5
レーザーを用いた計測技術	山中千代衛 編	平成 4.10
ILT 5年の進歩	レーザー技術総合研究所 編	平成 4.11
超高速光エレクトロニクス	末松安晴	平成 5.3
光通信で築く未来情報化社会の展望	山中千代衛 編	平成 5.5
レーザーの生体効果と医学	神川喜代男	平成 5.10
固体レーザーの魅力を探る	山中千代衛 編	平成 5.11
レーザーセンシングの最前線を探る	山中千代衛 編	平成 6.1
ソリトン通信	長谷川晃	平成 6.5
レーザーで拓く近未来マシン	浮田宏生	平成 6.9
スラブレザー研究開発の現状と展望	望月孝晏	平成 6.11
新しい光源が拓く最先端技術	山中千代衛 編	平成 7.2
光散乱計測	朝倉利光	平成 7.3
生物フォトンの計測とその応用	稲葉文男	平成 7.10
レーザー応用センシング	山口一郎	平成 8.3
原子光学とその応用	宅間 宏	平成 9.3
ビジュアル レーザーの科学	レーザー技術総合研究所 編	平成 9.9
ILT the 10th anniversary Laser とともに 10周年	レーザー技術総合研究所 編	平成 9.10
光と蔭	「光と蔭」編集委員会	平成 12.10
レーザーと現代社会	レーザー技術総合研究所 編	平成 14.10
ILT the 15th anniversary レーザーと現代社会	レーザー技術総合研究所 編	平成 14.11
光と蔭のはざまに	山中千代衛	平成 17.5
慣性核融合開発史 - レーザー核融合研究パイオニア物語 -	山中千代衛	平成 18.9
20年の進歩	山中千代衛 編	平成 19.10
ILT the 20th anniversary 光科学技術の拓く新天地	レーザー技術総合研究所 編	平成 19.11

9. 役職員・共同研究員名簿

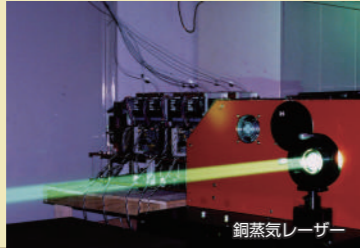
構 成 員		
理事長、業務執行理事等		共同研究員
理事長	橋本徳昭	大阪大学レーザーエネルギー学研究中心 センター長 崎地 宏
副理事長・名誉所長	山中千代衛	大阪大学レーザーエネルギー学研究中心 教授 猿倉信彦
所長	井澤靖和	大阪大学レーザーエネルギー学研究中心 教授 斗内政吉
常務理事	三宅浩史	大阪大学レーザーエネルギー学研究中心 教授 萩行正憲
常務理事・副所長	中塚正大	大阪大学レーザーエネルギー学研究中心 教授 西村博明
レーザーエネルギー研究チーム		大阪大学レーザーエネルギー学研究中心 教授 乗松孝好
主席研究員 (チームリーダー)	今崎一夫	大阪大学レーザーエネルギー学研究中心 教授 宮永憲明
研究員	李 大治	大阪大学レーザーエネルギー学研究中心 准教授 河仲準二
レーザープロセス研究チーム		大阪大学レーザーエネルギー学研究中心 准教授 坂和洋一
主席研究員 (チームリーダー)	藤田雅之	大阪大学レーザーエネルギー学研究中心 准教授 中田芳樹
副主任研究員	ハイク コスロビアン (兼務)	大阪大学レーザーエネルギー学研究中心 准教授 藤田尚徳
研究員	古瀬裕章	大阪大学レーザーエネルギー学研究中心 講師 藤本 靖
研究員	柴川智弘	大阪大学レーザーエネルギー学研究中心 助教 橋本孝治
研究員	櫻井俊光	大阪大学レーザーエネルギー学研究中心 特別研究員 西原功修
レーザー計測研究チーム		大阪大学レーザーエネルギー学研究中心 特任教授 實野孝久
主任研究員 (チームリーダー)	島田義則	大阪大学大学院工学研究科 教授 兒玉了祐
研究員	谷口誠治 (兼務)	大阪大学大学院工学研究科 教授 粟津邦男
研究員	オレグ コチャエフ	大阪大学大学院工学研究科 教授 河崎善一郎
レーザーバイオ化学研究チーム		大阪大学大学院工学研究科 教授 田中和夫
チームリーダー	中島信昭	大阪大学光科学センター 特任教授 佐々木孝友
研究員	ハイク コスロビアン	大阪大学大学院基礎工学研究科 教授 宮坂 博
研究員	谷口誠治	大阪大学大学院理学研究科 准教授 山中千博
理論・シミュレーションチーム		大阪大学接合科学研究所 教授 節原裕一
チームリーダー	井澤靖和 (兼務)	大阪大学接合科学研究所 准教授 塚本雅裕
研究員	古河裕之	大阪大学接合科学研究所 准教授 阿部信行
研究員	砂原 淳	大阪大学 名誉教授 柳田祥三
レーザー技術開発室		大阪工業大学工学部 教授 西口彰夫
主任研究員 (室長)	本越伸二	大阪工業大学工学部 教授 草場光博
研究員	加藤宏太	大阪工業大学工学部 准教授 部谷 学
総務部		大阪市立大学大学院自然科学研究科 教授 ハツ橋知幸
事務局長	三宅浩史 (兼務)	核融合科学研究所 助教 西川 亘
総務部長	三宅浩史 (兼務)	核融合科学研究所 助教 岩本晃史
マネージャー	幸脇朱美	関西学院大学理工学部 教授 安原 亮
マネージャー	小野田理恵	関西大学システム理工学部 教授 玉井尚登
マネージャー	高山大輔	関西大学システム理工学部 教授 浅川 誠
事務員	諸白景子	北里大学医学部 准教授 佐伯 拓
事務員	上田江利子	京都大学化学研究所 准教授 小池文博
事務員	中川道子	京都大学化学研究所 教授 阪部周二
特別研究員		京都大学化学研究所 准教授 橋田昌樹
京都大学	名誉教授 毛利明博	京都大学化学研究所 助教 時田茂樹
元日新電機(株)	鈴木泰雄	京都大学大学院理学研究科 教授 七田芳則
元三菱電機(株)	田畑則一	京都大学大学院理学研究科 教授 大須賀篤弘
三重県立看護大学	名誉教授 田中文夫	近畿大学理工学部 教授 吉田 実
元東京工業大学	准教授 糟谷紘一	近畿大学理工学部 教授 中野人志
(財)豊田理化学研究所	フェロー 中島信昭	近畿大学理工学部 教授 橋新裕一
		高知工業高等専門学校 准教授 芝 治也
		高知工業高等専門学校 准教授 赤松重則
		摂南大学工学部 教授 田口俊弘
		大学共同利用機関法人 情報・システム研究機構 国立極地研究所 准教授 藤田秀二
		千葉大学環境リモートセンシング研究センター センター長 久世宏明
		電気通信大学レーザー新世代研究センター 西岡 一
		電気通信大学企画調査室 特任教授 植田憲一
		東京工業大学大学院理工学研究科 教授 矢部 孝
		東京工業大学大学院総合理工学研究科 講師 河村 徹
		東京大学先端化学技術センター 客員教授 内田成明
		東北大学大学院工学研究科 准教授 田中秀治
		東北大学大学院理学研究科 准教授 柴田 稜
		奈良先端科学技術大学院大学 特任教授 増原 宏
		日本原子力研究開発機構物質本部レーザー共同研究所 所長 大道博行
		日本原子力研究開発機構量子ビーム応用研究部門 研究主幹 山川考一
		日本原子力研究開発機構量子ビーム応用研究部門 研究副主幹 佐々木明
		光産業創成大学院大学 准教授 藤田和久
		光産業創成大学院大学 特任教授 三岡開興
		兵庫県立大学大学院工学研究科 教授 藤原関夫
		兵庫県立大学高度産業科学技術研究所 教授 宮本修治
		兵庫県立大学 特任教授 望月孝晏
		広島大学大学院工学研究科 教授 遠藤琢磨
		広島大学大学院工学研究科 准教授 城崎知至
		福井大学大学院工学研究科 教授 仁木秀明
		福井大学大学院工学研究科 教授 金邊 忠
		福岡工業大学工学部 教授 河村良行
		北海道大学大学院工学研究科 教授 長谷川靖哉
		北海道大学大学院工学研究科 教授 足立 智
		宮崎大学産学・地域連携センター 准教授 甲藤正人
		山梨大学大学院医学工学総合研究部 教授 張本鉄雄
		山梨大学大学院医学工学総合研究部 助教 宇野和行
		立命館大学情報理工学部 教授 陳 延偉

レーザーに架ける夢、レーザーが拓く未来。 11.研究所25年の歴史と実績

原子力・エネルギー応用

レーザーウラン濃縮関連

レーザー同位体分離技術(1987~2000)
銅蒸気レーザーウラン濃縮開発(1987~1990)



波長可変固体レーザー開発(1990~1995)
レーザー光学反応と群分離の基礎研究(1990~1993)

LD励起固体レーザーシステム化(1996~)

FELを用いた安定同位体分離の基礎研究(1997~1999)

核種消滅処理技術の応用(1995~)

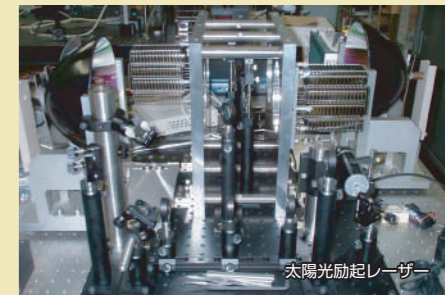
レーザーエネルギー伝送(1999~2005)
宇宙デブリ除去(1998~2003)
レーザークリーニング、レーザー除染(1996~1999)

太陽光励起レーザー開発(2001~)
レーザーロケット推進(2001~2005)

γ線発生(2001~)

200W級模擬太陽光励起レーザーの開発に成功(2005)

γ線によるヨウ素核変換に成功(2007)



電力・社会基盤関連

レーザー誘雷(1990~)

世界初の雷トリガに成功(1997)

レーザー超音波(1997~)



エネルギー輸送技術の調査研究(1989~1994)



白色光ライダー

トンネル内コンクリート探傷(2002~)



トンネル内コンクリート探傷

地球環境問題

環境保全CO2固定化(1990~2004)

白色光ライダー(1999~)

ダイオキシンの検出、分解(2000~2006)
非平衡プラズマによる排ガス無害化(2001~2003)

水中ラマンライダー(2008~)
温室効果ガス検出

新物質・材料 その他

レーザー加工
高平均出力YAGスラブレザー開発(1989~1990)
高輝度繰り返しスラブレザー開発(1990~1994)

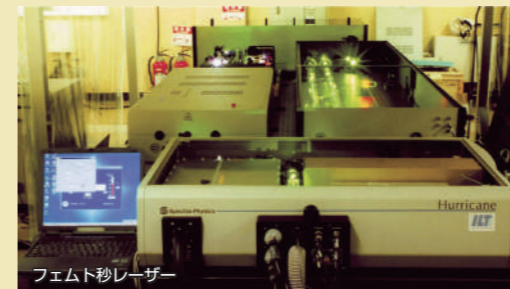
超高強度、極短パルスレーザーの開発(1990~)

レーザープラズマX線源(1991~1995)

自由電子レーザー開発(1989~2000)

フェムト秒レーザーによる非熱加工(1999~)

ナノ周期構造形成(1999~)

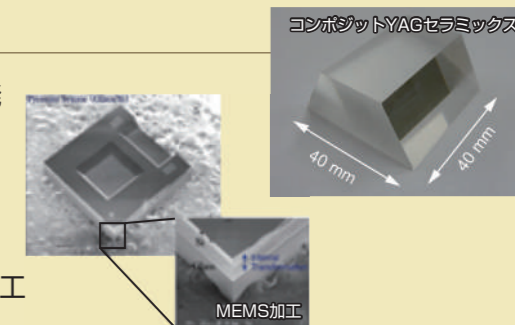


フェムト秒レーザー

極短紫外(EUV)光源開発(2003~)

MEMS加工技術開発(2006~)

CFRP材料加工(2009~)



MEMS加工

大出力Yb:YAGレーザーの開発(2007~)

コヒーレントビーム結合技術の開発(2010~)

生物・医学応用

生体の光機能メカニズムの解明(1998~)

顕微分光装置の開発(2005~2010)

レーザーによるナノ粒子合成(2010~)

財団の沿革

1987年

- 4月・設立準備室
- 5月・設立発起人会開催
- 10月・財団法人設立許可
- 10月・飯田孝三理事長就任
- 11月・財団設立総会開催
- ・第1回理事会開催

1991年

- 10月・第14回自由電子レーザー国際会議
- ・第1回組織委員会、実行委員会開催

1993年

- 4月・自由電子レーザー研究会設置
- ・7月北田幹夫理事長就任

1989年

- 4月・第四研究部設置
- 7月・技術企画委員会設置

1988年

- 3月・総務委員会設置
- ・試験研究法人
- 11月・レーザー技術調査委員会発足

1994年

- 11月・極限光子プロセス技術研究会設置
- (~平成8年度)

1992年

- 4月・成松啓二理事長就任
- 8月・ICFフォーラムおよびレーザー核融合技術振興会設置
- ・第14回自由電子レーザー国際会議(FEL'92)開催
- 11月・創立5周年記念行事実施

1995年

- 4月・第五研究部設置
- 11月・総務企画委員会設置、第1回委員会開催

1997年

- 7月・レーザー誘雷野外実験成功記者発表
- 8月・宮本一理事長就任
- 10月・設立10周年記念行事「シンポジウム」開催

1998年

- プロジェクト・チーム研究制導入

2001年

- 7月・森詳介理事長就任

2002年

- 11月・設立15周年記念行事「シンポジウム」開催

2005年

- 7月・齋藤紀彦理事長就任

2007年

- 7月・藤野隆雄理事長就任
- 11月・設立20周年記念行事「シンポジウム」開催

2008年

- 7月・橋本徳昭理事長就任

2012年

- 4月・公益財団法人へ移行
- 7月・創立25周年記念事業開催

2009年

- 4月・井澤靖和所長就任
- 7月・レーザー発明50周年記念泰山賞創設

2006年

- レーザー技術開発室設置

1987 1989 1991 1993 1995 1997 1999 2001 2003 2005 2007 2009 2011 2012~

平成 19 年 (2007) 1 月 10 日 読売新聞

放射性ヨウ素 無害化成功

兵庫県立大など「核のごみ」低減期待

原子力発電所から生じる放射性廃棄物の一種「放射性ヨウ素」を無害化できる基礎技術の開発に、レーザー技術総合研究所(大阪市)と兵庫県立大の研究グループが世界で初めて成功し、9日発表した。実用化できれば、処分が厄介な核のごみ量を低減できると期待される。

放射性ヨウ素は、原発の運転時や使用済み核燃料からプルトニウムなどを取り出す際に発生。日本の原子力政策では、強い放射能が長期間残る廃棄物はガラス状に固めて地中深くに埋め保管する計画となっているが、放射性ヨウ素は放射能の強さが半減する期間が約1600万年と、極めて長い上に気化しやすく、処理が難しいとされている。グループは、放射性ヨウ素の核にガンマ線を効率よく当てられれば、無害な物質キセノンに変換できると仮定。同大学高度産業科学技術研究所兵庫県上郡町にある加速器で、放射性ヨウ素と核の性質などがほぼ一致する天然のヨウ素に、ガンマ線ビームを当てると

レーザー技術総研主席研究員は「まだ基礎研究の段階。実用化に向け、さらにデータを集めていきたい」としている。成果は宮崎市で開かれるレーザー学会で18日発表される。

平成 19 年 (2007) 1 月 10 日 毎日新聞

「ヨウ素129」無害化成功

核のごみ、レーザー照射で

原発から生じる長寿命の放射性廃棄物であるヨウ素129の同位体に、ガンマ線レーザーを当てて無害の気体キセノンなどに核変換する実験を、レーザー技術総合研究所(大阪市)の今崎一夫主席研究員らのグループが成功した。高エネルギーのガンマ線を照射すれば、この核変換がで

きることは知られていたが、確認したのは初めてという。核のごみ対策の基礎研究として注目される。宮崎市で開かれるレーザー学会で18日発表する。今崎研究員は、兵庫県上郡町の県立大高度産業科学技術研究所の放射施設「ニュースバル」で、レーザー光から集約度の高いガンマ線ビームを作成。放射能のない同位体ヨウ素127に照射し、核変換に成功した。これはヨウ素129でも理論上可能であることを示す。

ヨウ素129は国内で年間約300kgが生じる。半減期は約1600万年と極めて長い。原発の高レベル放射性廃棄物の最終処分には、ガラス原料と一緒に4000t程度の溶融後、冷やしてガラス固化体にする必要があるが、ヨウ素129は約180度で気化する。処分困難とされる。今崎研究員は「レーザー強度を強めるなどして実験を重ね、実用化に向けてデータを蓄積したい」と話している。

【野田武】

平成 19 年 (2007) 1 月 10 日 日刊工業新聞

原発のごみ ヨウ素 ガンマ線で無害化

キセノンに変換 兵庫県立大など開発

原子力発電所から出る放射性廃棄物のヨウ素にガンマ線を当てると、無害な物質へと変換する基礎技術を兵庫県立大と財団法人レーザー技術総合研究所(大阪市)の研究グループが開発した。処分がつかない廃棄物のごみを減らす対策として期待できそうだ。放射性廃棄物のヨウ素129は、原子力基から年に6

ほど生まれる。原発の高レベル放射性廃棄物は、ガラス状に固めて地中深くに埋めることになっている。だが、ヨウ素129は放射能が弱まる半減期が1600万年と極めて長い上に、ガラス状に固めようとすると気化してしまうため、管理処分が難しくかった。ところが、予想通りキセノン

放射性ヨウ素無害化へ

ガンマ線ビームで核変換

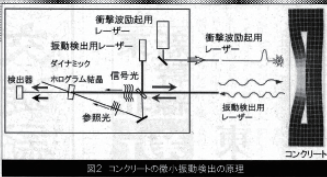
総研大 兵庫県立大 放射線部 今崎一夫 教授

放射性ヨウ素129は、原子力発電所から生じる長寿命の放射性廃棄物である。ヨウ素129の同位体に、ガンマ線レーザーを当てて無害の気体キセノンなどに核変換する実験を、レーザー技術総合研究所(大阪市)の今崎一夫主席研究員らのグループが成功した。高エネルギーのガンマ線を照射すれば、この核変換がで

きることは知られていたが、確認したのは初めてという。核のごみ対策の基礎研究として注目される。宮崎市で開かれるレーザー学会で18日発表する。今崎研究員は「レーザー強度を強めるなどして実験を重ね、実用化に向けてデータを蓄積したい」と話している。

平成 19 年 (2007) 1 月 19 日 朝日新聞

レーザー光線を用いた コンクリート欠陥 探傷装置の開発



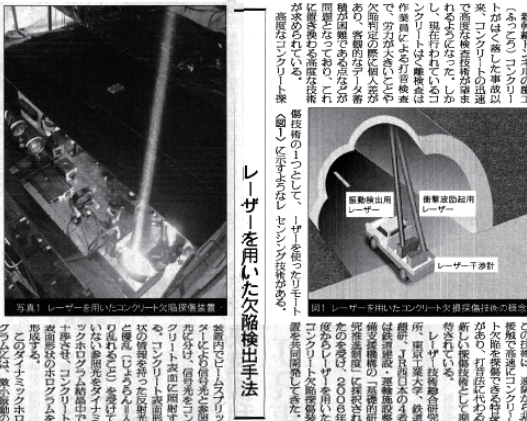
トンネル内壁内部にできた空洞は、コンクリートがはがれ落ちる原因になるなど、鉄道、道路を問わず交通の安全を脅かす要因となるが、従来の人手による打音検査に代わり、遠隔操作でレーザー光線を照射し空洞を見つけて出すための研究が、鉄道建設・運輸施設整備支援機構の支援を受けたレーザー技術研究所を中心とするチームの手で進んでいる。

レーザー探傷は、打音検査のハンマーの代わりに短時間で高減速を繰り返すパルスレーザーでコンクリート表面を振動させ、外部からは分からないひび割れや空洞、内部空洞を検出する仕組みだ。

レーザー総研、東京工業大学、鉄道総研、JR西日本の4者は2006年度(平成18年度)に機構の「基礎的研究推進制度」に採択されたのをきっかけ、レーザーを用いたコンクリート欠陥探傷装置を共同開発し、一定の成果を得た。

チームリーダーを務めたレーザー総研副主研究員に、レーザー探傷技術のポイントについて専断してもらった。

レーザー技術研究所
レーザー加工計測研究チーム
副主研究員
島田 義則



レーザーを用いたコンクリート欠陥探傷装置は、レーザー光線をコンクリート表面に照射し、その反射光の微小振動を検出することで、内部のひび割れや空洞を検出する。この装置は、従来の打音検査に比べて、遠隔操作が可能で、作業員が危険な場所に行かずに検査できるというメリットがある。

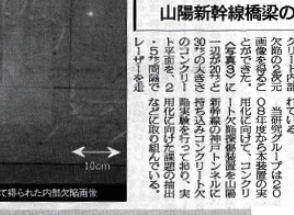
また、この装置は、コンクリートの強度や硬さを測定することもできる。これは、コンクリートの品質管理に役立つ。また、コンクリートの劣化状態を把握することもできる。これは、コンクリートのメンテナンスに役立つ。

コンクリート欠陥の新しい検査技術

この装置は、レーザー光線をコンクリート表面に照射し、その反射光の微小振動を検出することで、内部のひび割れや空洞を検出する。この装置は、従来の打音検査に比べて、遠隔操作が可能で、作業員が危険な場所に行かずに検査できるというメリットがある。

欠陥検出アルゴリズムの開発

この装置は、レーザー光線をコンクリート表面に照射し、その反射光の微小振動を検出することで、内部のひび割れや空洞を検出する。この装置は、従来の打音検査に比べて、遠隔操作が可能で、作業員が危険な場所に行かずに検査できるというメリットがある。



山陽新幹線橋梁のコンクリート部分の探傷実験

この装置は、レーザー光線をコンクリート表面に照射し、その反射光の微小振動を検出することで、内部のひび割れや空洞を検出する。この装置は、従来の打音検査に比べて、遠隔操作が可能で、作業員が危険な場所に行かずに検査できるというメリットがある。



また、この装置は、コンクリートの強度や硬さを測定することもできる。これは、コンクリートの品質管理に役立つ。また、コンクリートの劣化状態を把握することもできる。これは、コンクリートのメンテナンスに役立つ。

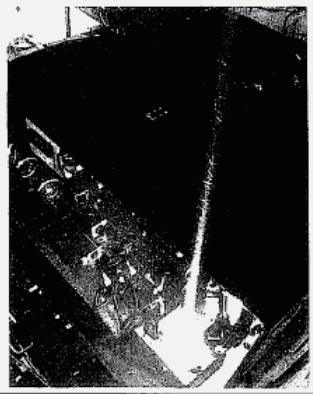
レーザー照射、コンクリ内部を遠隔探傷

産学グループが装置開発

レーザー技術研究所、東京工業大学、鉄道建設・運輸施設整備支援機構の産学連携による「レーザー技術研究所」が、コンクリート内部のひび割れや空洞を検出する装置を開発した。この装置は、従来の打音検査に比べて、遠隔操作が可能で、作業員が危険な場所に行かずに検査できるというメリットがある。

欠陥の位置と形状 正確・迅速に把握

この装置は、レーザー光線をコンクリート表面に照射し、その反射光の微小振動を検出することで、内部のひび割れや空洞を検出する。この装置は、従来の打音検査に比べて、遠隔操作が可能で、作業員が危険な場所に行かずに検査できるというメリットがある。



創立25周年記念誌 レーザー総研25年の進歩

発行／公益財団法人レーザー技術総合研究所
〒550-0004 大阪市西区靱本町1丁目8番4号
大阪科学技術センタービル4階
TEL 06-6443-6311 FAX 06-6443-6313
<http://www.ilt.or.jp/>

編集／公益財団法人レーザー技術総合研究所
制作／株式会社日報印刷
発行日／平成24年7月18日



Institute for Laser Technology

The 25th Anniversary