

ILT-APR Number 34  
Issued: July 2023  
ISSN 1340-6167

# ***ILT2023***年報

## Annual Progress Report

**2022-2023**

公益財団法人 レーザー技術総合研究所  
Institute for Laser Technology



## はじめに

公益財団法人レーザー技術総合研究所の令和4年度成果報告書（ILT 2023 年報 34 巻）を取りまとめました。何卒ご高覧の上、ご指導、ご助言賜りますようお願い申し上げます。

令和3年（2021年）度から開始された第6期科学技術・イノベーション基本計画では、Society 5.0の実現に向けて、サイバー空間とフィジカル空間の融合、地球規模課題の克服、レジリエントで安全・安心な社会の構築などが重要課題とされ、宇宙・海洋、環境エネルギー、量子技術、次世代インフラ・技術の整備・開発、カーボンニュートラルに向けた研究開発などの施策を進めるとされています。レーザー技術はこれら先進技術の基盤をなすものであり、当研究所ではこれらの分野の進展に貢献することをめざして積極的に研究開発を進めてきました。

令和4年（2022年）度は、「高速移動物体への遠距離・高強度光伝送のための予測的波面制御の研究」プロジェクトが最終年度を迎えました。目標とする3種類（Tip-Tilt 補正鏡、Defocus 補正鏡、高次の波面乱れ補正鏡）の大型（口径100mm）可変形鏡を製作し、高速制御性（10 kHz）と高耐力性（1 kW/cm<sup>2</sup>）を実証するとともに、長距離レーザービーム伝送試験で波面制御の有効性を示すことができました。

チーム研究でも研究が進展しました。レーザーエネルギー分野では、素粒子研究領域で計画されている二重ベータ崩壊実験用に、大量のCa同位体を濃縮するための青紫色半導体レーザーの高出力化研究を進めました。注入同期型増幅システムのモジュール開発で、レーザー線幅の狭帯域化や周波数安定性で目標とする性能が得られ、同位体濃縮実験への導入を計画しています。

レーザープロセス分野では、原子炉廃止措置で実用化が期待されるレーザー解体技術の基礎実験を進めてきました。金属、セラミックス、コンクリートなど、熱的、機械的特性の異なる材料のレーザー切断特性を詳細に研究し、切断時に発生する微粒子の閉じ込めと回収技術に向けた基礎データを集積しました。また、月資源を用いた基地建設材料の製造技術開発を目標として、月面模擬砂を材料とする三次元レーザー積層造形技術の開発研究を進めています。土木・建築業界でのレーザー技術の応用・普及をめざし、屋外でのレーザー利用に関する安全ガイドラインを策定すべく、委員会活動も継続しています。

レーザー計測分野では、レーザー打音法によるインフラ構造物の健全性評価技術の開発研究を継続するとともに、排水配管の減肉検査や落石予知など、工事現場や山岳トンネル切羽へのレーザー打音法の導入を目指した研究を進めています。環境計測技術に関しては、レーザー誘起ブレイクダウン分光法による表面付着物の分析研究を進めるとともに、大気中や海水中への有害物質の漏洩などを可視化して検出できるフラッシュラマンライダーの開発を開始しました。

レーザーバイオ化学分野では、蛋白質や酵素の生理活性構造の解明研究や溶液中での金属イオンの光酸化・還元反応の研究を進めてきました。放射性廃棄物分離用にアクチノイドイオンの光酸化・還元反応の研究に着手し、アメリカシウムの光酸化反応機構を解明するとともに、アメリカシウムとプラセオジウムの混合溶液を用いてレーザーアシスト元素分離の実証にも成功しました。

理論・シミュレーション分野では、レーザー加工の基礎となるレーザーと物質の相互作用研究や、地震先行現象の研究を進めてきました。後者では、地殻変動で生じた地表電荷が電離層に及ぼす効果をプラズマ物理の観点から理論的に解析しました。

レーザー技術開発室では、長年にわたり、光学材料・素子の高耐力化研究と、産業界からのご依頼によるレーザー損傷評価試験を実施してきました。損傷評価の自動化や、三次元造形を利用する光学素子の形成技術開発など、オリジナルな技術の積み上げを図っています。

昨年も活発な研究活動を継続して推進することができましたのは、偏に皆様方からのご支援によるものであり、厚く御礼申し上げます。所員一同、これまで以上に努力を積み上げ、成果の社会還元をめざします。今後ともなお一層のご支援、ご鞭撻を賜りますようお願い申し上げます。

2023年6月

公益財団法人 レーザー技術総合研究所  
所長 井澤靖和

# ILT2023 年報 (Annual Progress Report 2022-2023)

## 目 次

は じ め に

### 研 究 報 告 書

#### レーザーエネルギー研究チーム

ミリ秒 kW 級レーザーパルスと金属、金属酸化物との相互作用 — 加工特性の評価 — ..... 1

#### レーザープロセス研究チーム

レーザーを用いた月面基地建設材料の作製 ..... 6

高速動作・高光耐性可変形鏡の開発 ..... 14

Quantitative Evaluation of the Strehl Ratio for the Flattop and Gaussian Beams ..... 19

#### レーザー計測研究チーム

フラッシュラマンライダーによる水中油の可視化手法の開発 ..... 25

Investigations of Spectrally Tunable Nanosecond Laser Pulse Compression Characteristics  
by Stimulated Brillouin Scattering (SBS) Technique ..... 27

レーザーを用いたトンネル切羽の浮石検知に関する研究 ..... 32

#### レーザーバイオ化学研究チーム

ユウロピウムの共鳴多光子還元効率の評価 — レーザーによる希少金属回収技術の開発 — ..... 37

レーザーアシスト元素分離の実証 ..... 41

#### 理論・シミュレーションチーム

巨大地震先行現象の物理メカニズムの研究 — シミュレーションモデルの発展 — ..... 46

サブピコ秒レーザー照射による SiO<sub>2</sub> 結晶の損傷評価のための第一原理計算 ..... 50

#### レーザー技術開発室

プラズマ発光を利用した光学素子レーザー損傷の評価 ..... 53

発表論文リスト ..... 61

事業報告書 ..... 69

組 織 図 ..... 83

構 成 員 一 覧 ..... 84

評 議 員 ..... 89

理 事 ・ 監 事 ..... 90

賛 助 会 員 ..... 91



# 研究報告書



# ミリ秒 kW 級レーザーパルスと金属、金属酸化物との相互作用—加工の基礎—

<sup>1</sup> レーザーエネルギー研究チーム

大道博行<sup>1,3</sup>、山田知典<sup>2,3</sup>

<sup>2</sup> (公財) 若狭湾エネルギー研究センター、<sup>3</sup> (国研) 日本原子力研究開発機構

## 1. はじめに

福島の新築と復興への貢献は国民的課題となっている<sup>1,2</sup>。これを目的とした原子力機構の公募事業の一つとして採択された“レーザー加工により発生する微粒子の解析と核種同定手法の開発” (代表 長谷川秀一東大教授) に筆者らは2018年度から2021年度まで分担者として参加し、レーザーと各種レーザー照射ターゲットとの相互作用の観察と評価・解析に関する研究を行った。

本報告では筆者らが分担した研究成果に関し概要を紹介する。詳しい内容は2本の原著論文<sup>3,4</sup>)としてまとめられている。また本事業の成果はJAEA-Review<sup>5</sup>)として出版されている。

## 2. 実験方法

原子力機構楢葉遠隔技術開発センターに設置されているレーザーを主として用いて実験を行った。実験配置を図1に示す。図中右側は飛散する微粒子を捕集・伝送し、核種同定手法開発を行う装置である<sup>5</sup>。左側のレーザー照射チェンバーではレーザー照射による溶融、蒸気発生、微粒子生成と飛散、液滴 (スパッター) の生成と飛散、熱応力破砕による破砕片およびレーザー加工に繋がる溶融物の除去と照射痕の観察を行う。

レーザー照射パワーは0.3 kW~5 kW、レーザーの時間幅は10msである。図1中、燃料デブリ対象物質と記載されているレーザー照射ターゲットの一部を表1に示す。廃炉の対象となる金属、金属酸化物<sup>6</sup>)を模擬するため機械的特性、物理的特性の異なった金属酸化物を選んだ<sup>7</sup>。表中酸化ウランは本研究の照射対象物質ではないが、選んだ被照射物質との比較のため記載した。本報告ではレーザー照射チェンバー内の各種観察結果の概

要を報告する。

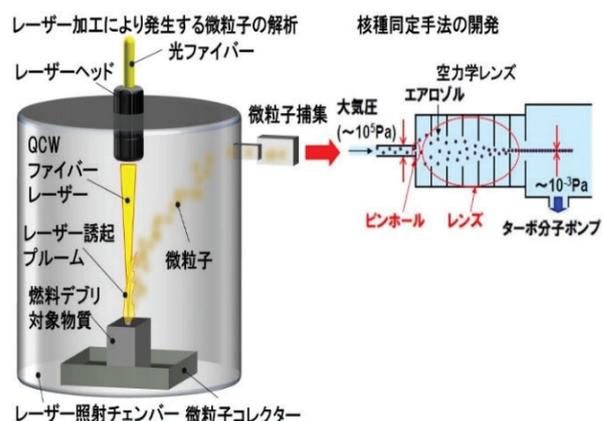


図1 レーザー照射チェンバーと核種同定装置

表1 ターゲットの機械的特性と物理特性

	アルミナ	ジルコニア	ステンレス鋼	酸化ウラン
弾性定数 GPa	360-150 (20-1500°C)	185-87 (25-1500°C)	200	180-160 (20-800°C)
熱膨張係数 10 <sup>-6</sup> /K	7	11	17	9-13 (27-1260°C)
ポアソン比	0.23	0.3	0.3	0.30
質量密度 g/cm <sup>3</sup>	3.6	6	7.9	7.9
比熱 J/(g・K)	0.79	0.46	0.5	0.5
熱伝導係数 W/m・K	20-5 (20-800°C)	3-2 (20-800°C)	15 25 (20-800°C)	9.6-3.4 (100-1000°C)
融点 (°C)	2072	2715	1420	2757
沸点 (°C)	2977	4300	2750 (Iron)	4346
溶融潜熱 kJ/g	1.5	0.71	0.276	0.22
蒸発潜熱 kJ/g	6.5	5.2	6.088	2.11

## 3. 実験結果

ここでは実験結果の内、金属としてステンレス鋼、金属酸化物としてジルコニア (酸化ジルコニウム) の結果を紹介する。図2に高速度カメラで撮影された影絵の時間変化を示す。影絵の照明光源はHe-Neレーザーであり、波長632.8 nmである。高速度カメラにはこ

の波長を中心に波長幅10 nmの波長選択フィルターを取り付けて、プルームからの発光による影絵の品質低下を抑制している。図中左列に示したステンレス鋼の影絵では、黒色の盛り上がった部分(図中Mに対応)や、それが千切れて液滴(D)になって飛散していることがわかる。この溶融部の周囲に煙状の微粒子群(F)が観察された。この微粒子群は溶融部周辺の蒸気がレーザー照射部から外れたときや、レーザー照射直後の急速冷却時に観察された。図2の右列に示したジルコニアでは、レーザー照射開始後3~5 msまでは図中上下にわたって帯状に写っている白色の発光(プルーム、Pの部分)と黒色に写っている照射部付近の溶融物(M)と液滴や破砕片(D)の影絵が観察された。レーザー照射の後半ではプルーム発光が消え、液滴と破砕片の飛散(D)を示す影絵が観察された。ジルコニアの分光測定によると、原子番号が大きいことによりステンレスやアルミナ等と比べ発光スペクトルが広がり、発光量も数十倍大きくなっている<sup>3)</sup>。このため波長選択フィルターの使用にもかかわらず、発光が影絵に重なっている。

図3、図4にステンレス鋼、ジルコニア照射痕の観察結果を示す。左側の写真はレーザー照射側から撮影したもので、右側にデジタリ顕微鏡で測定した断面図を示す。図3中、レーザーパワー1~2kWでは、溶融部内部に発生したガスにより表面が盛り上がった状態で凝固している。3kW以上では蒸気の反力により溶融部が千切れて飛散し、穴になっている。図4では図3に比べ、レーザー照射毎に安定した形状で深い穴が形成されている。

図5と図6にステンレス鋼、ジルコニアターゲットからの噴出質量のレーザー照射パワー依存性を示す。黒丸で示した噴出質量はレーザー照射前後のターゲットの質量差を電子天秤で測定して求めた。一方、照射痕はその断面が図3、図4に示したように円錐形、円錐台の形状をしており、穴の直径、穴の深さで体積を概略評価することができる。白丸のデータは、この方法で照射痕の

体積を評価し、穴から噴出した物質の質量密度を乗じて噴出質量を算出したものである。図5に示したステンレス鋼では、図中両矢印で示したようにパワー2kW以下で溶融は起こるが、噴出質量はほぼゼロで溶融部はターゲットに留まっている。一方、図6のジルコニアではパワー1kWまでは照射部が変化しない(相互作用しない)。1kWから2kWまでは溶融が起こらない場合、溶融する(相互作用する)場合がレーザー照射毎に不規則に観察された。ただし、いったん相互作用すると図4に示すように円錐台に近い形状の穴が形成される。

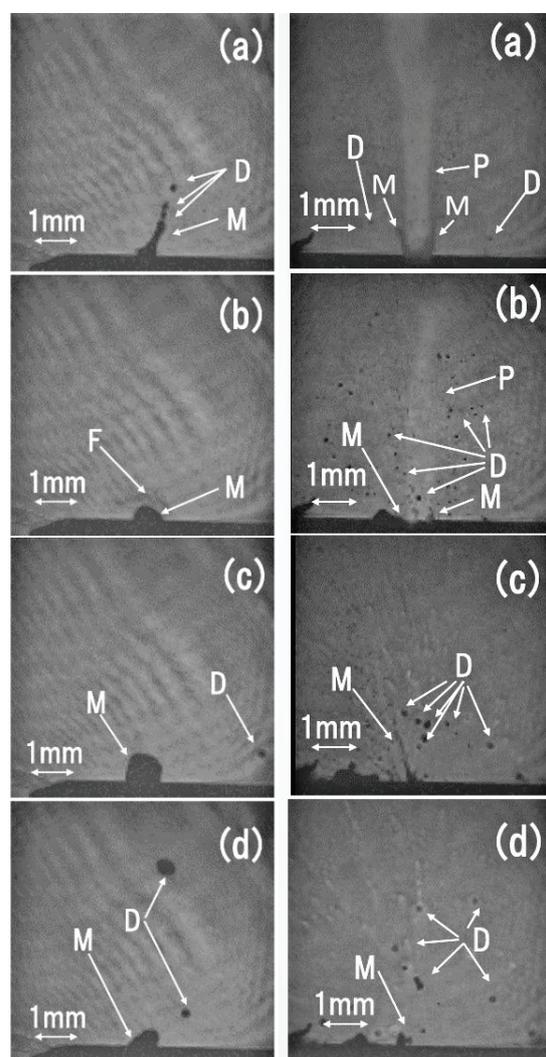


図2 ステンレス鋼(左列)、ジルコニア(右列)からの飛散粒子の高速度カメラによる影絵。レーザーパワーは2.7kW。(a)-(d)はそれぞれレーザー照射後1ms、5ms、10ms、11msの影絵

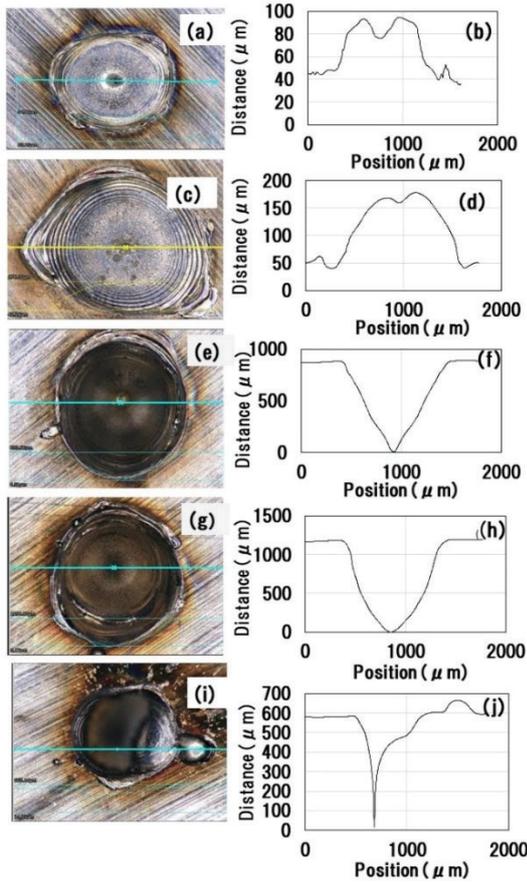


図3 ステンレス鋼の照射痕。左列はレーザー照射方向から撮影。右列は対応する断面図。(a)、(b) はレーザーパワー1kW、(c)、(d)は2kW、(e)、(f)は3kW、(g)、(h)は4kW、(i)、(j)は5kW

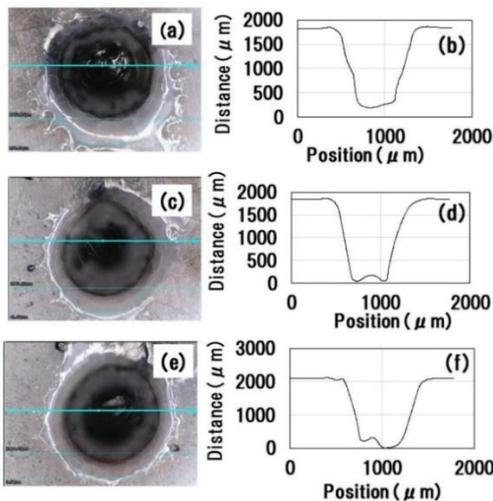


図4 ジルコニアの照射痕 (図3と同様)。(a)、(b)はレーザーパワー2kW、(c)、(d)は3kW、(e)、(f)は4kW

図5、図6中、白丸の質量と黒丸の質量は数十%程度の範囲で一致する。これを踏まえると質量の減少は照射痕からの微粒子、液滴、破砕片として噴出したものに概ね相当すると言える。また実験結果の中で例えば図5の5kWのデータのように体積評価による質量とターゲットの質量差測定が大きく異なる場合もあった。これは照射痕とその周辺の変形が進み照射痕の体積が噴出質量に対応していないからと考えている。

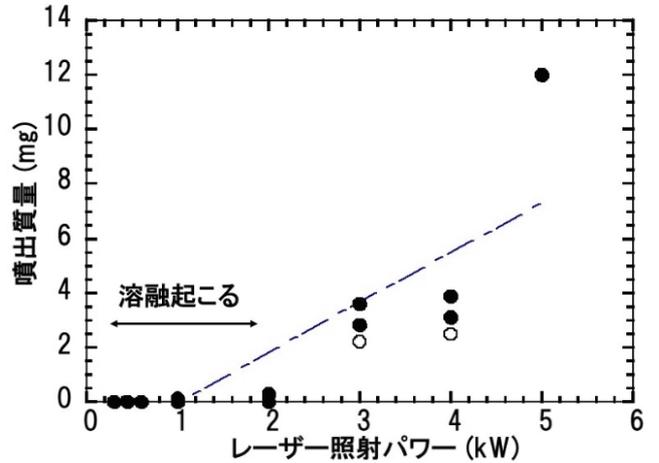


図5 図3で示したステンレス鋼のレーザー照射パワーに対する噴出質量の関係。白丸は体積評価、黒丸は質量差測定により求めた値。一点鎖線は最小二乗フィット

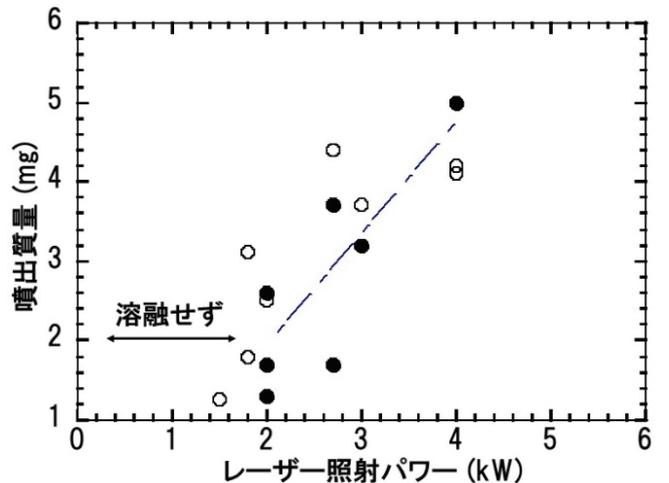


図6 図4で示したジルコニアのレーザー照射パワーに対する噴出質量の関係。白丸は体積評価、黒丸は質量差測定により求めた値。一点鎖線は最小二乗フィット

#### 4. 考察

レーザー照射により発生する微粒子は蒸気に由来するもの、溶融物の飛散に由来するもの（スパッター）が知られている。前者は過冷却、核形成、凝集<sup>9)</sup>、後者は流体運動や不安定性に関係している<sup>9)</sup>。さらに金属酸化物は脆性物質であり、物質内部の応力破碎に由来する粒径の大きな破砕片が観察されている<sup>4)</sup>。また図6に示すように相互作用の閾値近傍で噴出質量がショット毎に大きく変動するのも特徴である。図7(a)、(b)に今回の実験で得られた知見のまとめとして、レーザーと金属および金属酸化物との相互作用の概念図を示す。図7(a)の金属ではレーザーエネルギーの吸収が表面(スキン長)で起こり、表面から溶融が進む。さらに溶融部は蒸気の反力により盛り上がり、千切れて液滴となって飛散する<sup>10)</sup>。一方、図7(b)の金属酸化物では絶縁体であり吸収長が長く、レーザーがターゲット内部に入り込み吸収が起こる。この物質内部での吸収、溶融、飛散、破碎により、液滴や破砕片は金属に比べ長いレーザー吸収部から飛散し、金属に比べ深い穴が形成されると考えられる。また金属酸化物では温度の上昇に伴って熱伝導係数が低下または一定であり、金属に比べ熱勾配が大きくなる傾向がある。これが、より大きな熱応力発生に寄与する。また脆性物質である金属酸化物の場合、破壊靱性が延性を有する金属に比べ数桁小さく<sup>11)</sup>、熱応力により、破碎し易いことが飛散する破砕片等に現れている。これもレーザーと金属酸化物との相互作用の特徴である。

#### 5. まとめ

レーザー加工を用いると照射部に高いパワーを小

さい領域に集中できることから、様々な加工を比較的自在に行うことができる。一方で高いエネルギー集中性は照射部の温度を高め、蒸発、沸騰により大量の蒸気を生じる。この蒸気からナノメートルのサイズの微粒子が発生し、蒸気の反力により溶融部が千切れて数 $\mu\text{m}$ のサイズの液滴が飛散する。さらに、金属酸化物では熱応力破碎により、より大きな破砕片も飛散する。これらに加え、照射痕の観察、飛散した質量の測定を行い、相互作用の知見を深めた。以上の成果は本事業の目的である福島第一原子力発電所の廃炉技術に資することに留まらず、レーザー加工技術やレーザー相互作用研究にも資すると考えられる。

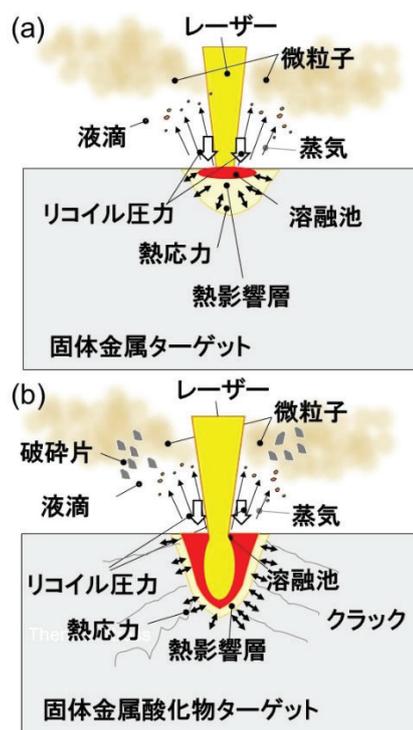


図7 レーザーと金属(a)と金属酸化物(b)との相互作用

#### 謝辞

本研究の一部は、日本原子力研究開発機構「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」により実施

された「レーザー加工により発生する微粒子の解析と核種同定手法の開発」(体系的番号 JPJA18B18072148)の助成を受けた。また原子力機構櫛葉遠隔技術開発センター、廃炉環境国際共同研究センター(CLADS)、敦賀総合研究開発センター、(公財)若狭湾エネルギー研究センターの御支援に対し、記して謝意を表する次第である。

## 参考文献

- 1) 東京電力ホームページ、廃炉作業の状況  
<https://www.tepco.co.jp/decommission/progress/>  
(参照 2023 年 5 月 13 日)
- 2) 原子力機構 CLADS の廃炉技術研究  
<https://clads.jaea.go.jp/jp/rd/> (参照 2023 年 5 月 13 日)
- 3) H. Daido, T. Yamada, K. Saruta, M. Miyabe, C. Ito, T. Shibata, K. Inoue, R. Terabayashi, S. Hasegawa, Observation and characterization of quasi-continuous wave kW-class laser interaction with metal and metal oxide targets using a high-speed camera and microscopes, *Physica Scripta* **98**, 035112 (2023), DOI 10.1088/1402-4896/acbba9
- 4) H. Daido, T. Yamada, H. Furukawa, C. Ito, M. Miyabe, T. Shibata and S. Hasegawa, Generation of particles and fragments by quasicontinuous wave fiber laser irradiation of stainless steel, alumina and concrete materials, *J. Laser Appl.* **33**, 012001(2021)  
<https://doi.org/10.2351/7.0000190>
- 5) レーザー加工により発生する微粒子の解析と核種同定手法の開発 (委託研究) 一令和元年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業—JAEA-Review 2022-015  
<https://jopss.jaea.go.jp/pdfdata/JAEA-Review-2022-015.pdf> September 2022; r3\_a1\_7.pdf (kenkyu.jp)  
(参照 2023 年 5 月 13 日)
- 6) C. Dazon, E. Porcheron, C. Journeau, C. Suteau, C. Chagnot, L. Doyen, E. Excoffier, and D. Roulet, Characterization of Chemical Composition and Particle Size Distribution of Aerosols Released during Laser Cutting of Fuel Debris Simulants, *Environ. J., Chem. Eng.*, **8**, 103872, pp. 1-14. (2020)
- 7) G. V. Samsonov, *The Oxide Handbook*, 1973, p. 524., Springer, Boston.
- 8) B. S. Luk'yanchuk, W. Marine, S. I. Anisimov, , Condensation of Vapor and Nanoclusters Formation within the Vapor Plume, Produced by ns-Laser Ablation of Si, *Laser Phys.* **8**, pp. 291-302 (1998).
- 9) A. F. H. Kaplan and J. Powell, Spatter in laser welding, *J. Laser Appl.* **23**, 032005 (2011).
- 10) V. Semak and A. Matsunawa, The role of recoil pressure in energy balance during laser materials processing., *J. Phys. D: Appl. Phys.* **36**, pp. 2541-2552 (1997).
- 11) 平川賢爾、遠藤正浩、駒崎慎一、松永久生、山辺純一郎、*機械材料科学*第2版、朝倉、2018

# レーザーを用いた月面基地建設材料の作製

レーザープロセス研究チーム

藤田雅之、田島孝敏<sup>1</sup>、新村 亮<sup>1</sup>、新述隆太<sup>1</sup>、湊田安浩<sup>1</sup>

<sup>1</sup>大林組

## 1. はじめに

2019年に米国からアルテミス計画が発表され、有人宇宙飛行計画（まずは月面着陸）の実現に対する期待が高まっている。アルテミス計画を遂行するためには、月面でのゲートウェイの建設や無人ロボットの開発など、様々な技術開発が求められることになる。我が国では、2020年度に「宇宙開発利用加速化戦略プログラム」（スターダストプログラム）が内閣府で創設され、関係省庁にて様々な技術開発を促進する施策が実施されている。

このスターダストプログラムの一環として「宇宙無人建設革新技術開発推進事業」（国交省及び文科省連携）が2021年にスタートし、国交省においては、「月面等での建設活動に資する無人建設革新技術開発推進プロジェクト」の公募が行われた。対象技術として、無人建設、月面で使用する建材製造、月面における簡易施設の建設が取り上げられ、大林組が提案した「月資源を用いた拠点基地建設材料の製造と施工方法の技術開発」が採択された。

本プロジェクトは2022年度以降も継続しており、大林組、名古屋工業大学、レーザー技術総合研究所が協力して研究を進めている。レーザーを用いた建設材料の製造をレーザー総研、マイクロ波を用いた建設材料の製造を名工大、焼成物の物性評価等を大林組が担当している。この共同研究の特徴としては、月の模擬砂だけを材料として（結合材や添加物等を加えずに）建材の作製を試みていることである。

本稿では、2022年に国交省スターダストプログラムにおいて得られた研究成果を報告する。

## 2. レーザーを用いた建設材料の製造

レーザー総研では、2019年から月の模擬砂をレーザーで加熱・焼成して立体物を作製する研究を開始し、そ

の後、市販の3Dプリンターを用いた積層造形の自動化を試みた。2020年～2021年には、レーザーを用いた2種類の造形手法（粉末床溶融結合（PBF：Powder Bed Fusion）法と指向性エネルギー堆積（DED：Directed Energy Deposition）法）においてレーザー照射の最適化を進め、造形条件および造形物の比較・評価を行った。両手法とも一長一短があるが、造形速度や造形物の強度の点ではDED法が優れており、2022年は主にDED法を用いて造形試験を進めた。

また、月環境下における製造システムの可能性を検討するために、低重力（月面では地上の1/6）かつ真空中での粉体搬送方法のシミュレーションを行った。

## 3. 建材としての強度試験

### 3.1 造形物の曲げ強度試験

これまで、造形物の圧縮強度試験を行い、DED法で作製した供試体では最大90 N/mm<sup>2</sup>という値が得られた。一般的に用いられるコンクリートの圧縮強度は18～24 N/mm<sup>2</sup>程度であり、重力1/6の月面で建材として使用するには充分である。そこで、2022年には曲げ強度試験を行うこととした<sup>1)</sup>。

積層造形には滋賀県工業技術総合センターに設置してある2kWファイバーレーザーを搭載した三菱重工工作機械（株）（現：日本電産マシントール（株））製のLAMDA200を用いた。月の模擬砂として市販の「FJS-1」<sup>2)</sup>を試料に用いた。SiO<sub>2</sub>が50%、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>が20%、CaOが10%、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>が8%を占める化学組成で、50%粒径D<sub>50</sub>が70-75 μmである。

図1に曲げ試験用供試体の設計形状寸法を、図2に作製された供試体の写真を示す。層毎にレーザーの掃引方向を90°回転させて積層した。x方向、y方向共に2mmのピッチでレーザーを掃引し、1層当たり概ね2mm程

度が積層された。レーザーパワーは 300 W、掃引速度は 450 mm/min. であった。

図 3 に曲げ強度試験（3 点載荷法）の様子を、図 4 に試験後の破断面の写真を示す。破断面の形状寸法から断面係数を算出し、曲げ応力度を算定した結果、2 体平均

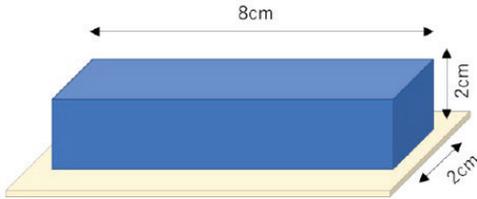


図 1 曲げ試験用供試体の形状寸法

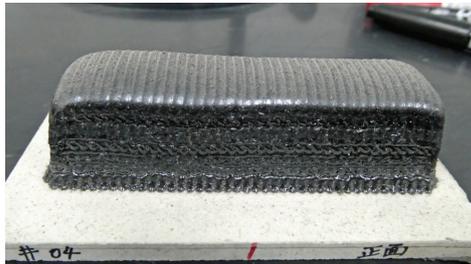


図 2 作製された曲げ試験用供試体の写真



図 3 曲げ強度試験の様子



図 4 曲げ強度試験後の供試体

で  $0.88 \text{ N/mm}^2$  となった。想定していた月面での運搬路の舗装用建材としての要求性能  $0.60 \text{ N/mm}^2$  以上は満足したが、離発着場舗装の要求性能  $2.1 \text{ N/mm}^2$  以上は満足しなかった。一方で、曲げ強度が小さい理由としては、表面の微少なクラックが破断の起点となっていることが考えられる。造形後の後処理（例えば、アニーリング等）により曲げ強度を向上させることができると考えている。

### 3.2 造形物の接合と曲げ強度試験

DED 法はレーザークラディング（肉盛り）やレーザー溶接と同様の原理を利用した造形法である。そこで、造形物同士の接合ができないか、と接合試験を試みることにした。図 5 に接合試験用供試体の設計形状寸法を示す。図 6 に接合試験用治具に固定された供試体を (a) 斜め上からと (b) 横方向から観察した写真を示す。本供試体は大林組において電気炉を用いて焼結体 ( $2 \text{ cm} \times$

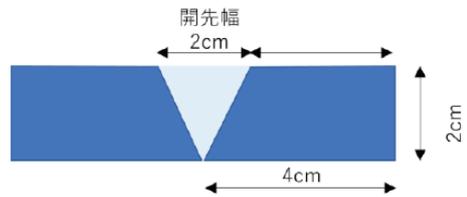


図 5 接合試験用供試体の形状寸法

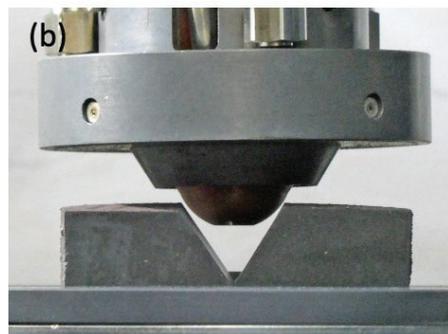


図 6 治具に固定された供試体、(a) 斜め上から、(b) 横方向から見た写真

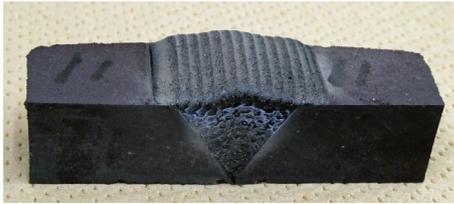


図7 曲げ強度試験用に作製した接合供試体

2 cm × 8 cm ) として作製され、機械加工で幅 2 cm の V 字型の開先加工が施された。レーザー造形物はガラス化が進んでおり、開先加工時に供試体にダメージが入る恐れがあるため、ここでは電気炉造形物（ガラス化が見られない焼結体）を使用している。

開先部を埋めるために、レーザー照射により溶融した模擬砂を層状に充填した。短軸方向に長さ 20 mm のビードをピッチ 2 mm で最下部から 1 本、2 本と増やしていき、最上部で 9 本のビードで埋めるように開先部を接合した。図 7 に作製された供試体の写真を示す。

接合部の盛り上がっている部分は研磨機で平面加工を施した後に曲げ強度試験に供し、前節と同様の 3 点載荷法で曲げ強度試験を行った。図 8 に曲げ強度試験の様子を示す。V 溝を埋めて接合したため、供試体を上向き（図 8(a)）と下向き（図 8(b)）にして試験を行った。上向き、下向き共に 2 体ずつ試験を行ったが、1~2 N/mm<sup>2</sup> の範囲で曲げ強度に顕著な差は見られず、平均して 1.5 N/mm<sup>2</sup> の値が得られた。いずれの場合も、破断はレーザー接合部内で発生しており、電気炉供試体とレーザー接合部の界面での破断は見られなかった。接合無しの母材（電気炉供試体）の曲げ強度も調べたが、平均して 22 N/mm<sup>2</sup> 程度であり、レーザー積層造形物が曲げに弱いことが改めて確認された。

#### 4. ロボットアームを用いた製造

これまで用いてきた DED 法レーザー積層造形装置では、レーザー出射部が固定され（焦点方向には可動）X-Y ステージを移動させながら供試体を作製した。この方法だとステージのストローク（可動範囲）で造形物の大きさが制限され、レーザーの出射方向も上から下へと固定されてしまう。そこで、レーザー溶接用ロボットアーム

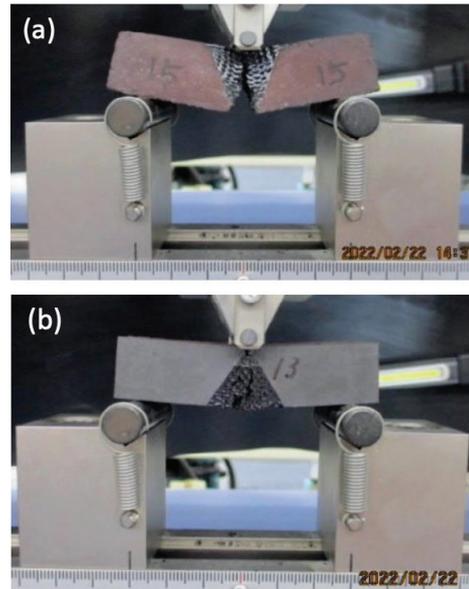


図8 接合供試体の曲げ試験の様子：  
接合部を (a) 上向き、(b) 下向きに設置して試験を行った。

ムの先端に DED 法のヘッドを取り付け、ロボットアームがカバーする範囲で自由な積層造形が可能であるかどうかを検証することとした。

実験は、神奈川県産業技術総合研究所の装置<sup>3)</sup>を用いて行った。図 9 に 6 軸駆動ロボットと DED 積層造形用ヘッドの写真を示す。枠内のヘッド部がロボットアームの先端に装着される。レーザー肉盛り溶接用の装置であり、先端のノズル部分に DED 積層造形用ヘッドが装着されている。通常は金属粉末を供給し肉盛りや溶接に用いられているが、レゴリス用に模擬砂の供給ラインを別途設置して利用した。

図 10 に、(a) 神奈川県産業技術総合研究所、(b) 滋賀

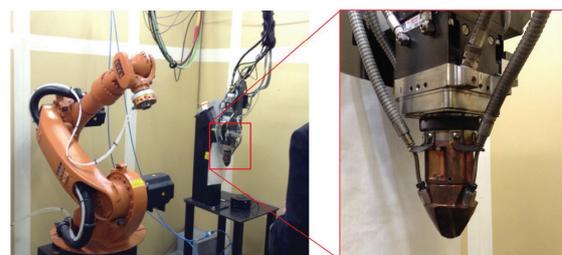


図9 神奈川県産業技術総合研究所の積層造形装置：ロボットアームの先端に赤枠で示した DED 積層造形用のヘッドを装着して利用した。

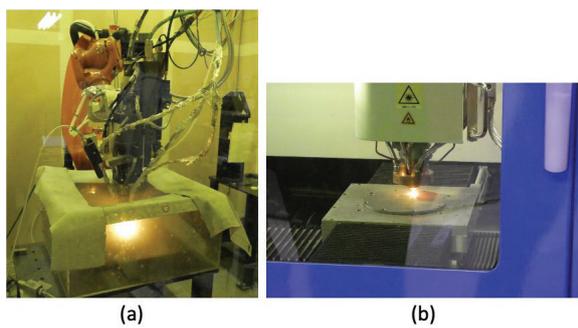


図 10 (a) 神奈川県産業技術総合研究所、(b) 滋賀県工業技術総合センターの積層造形装置の比較写真。

表 1 神奈川県産業技術総合研究所と滋賀県工業技術総合センターでの典型的な造形条件の比較

造形条件	神奈川	滋賀
レーザーパワー	100 or 200 W	300 W
スポットサイズ	4 mm	4 mm
照射強度	0.8 or 1.6 kW/cm <sup>2</sup>	2.4 kW/cm <sup>2</sup>
掃引速度	4 mm/s	7.5 mm/s (450 mm/min.)
エネルギー密度	6 or 12.5 J/mm <sup>2</sup>	10 J/mm <sup>2</sup>
ピッチ間隔	2 mm	2 mm
層当たりの積算照射量	12 or 25 J/mm <sup>2</sup>	20 J/mm <sup>2</sup>
積層厚	1.5~3 mm	~2 mm

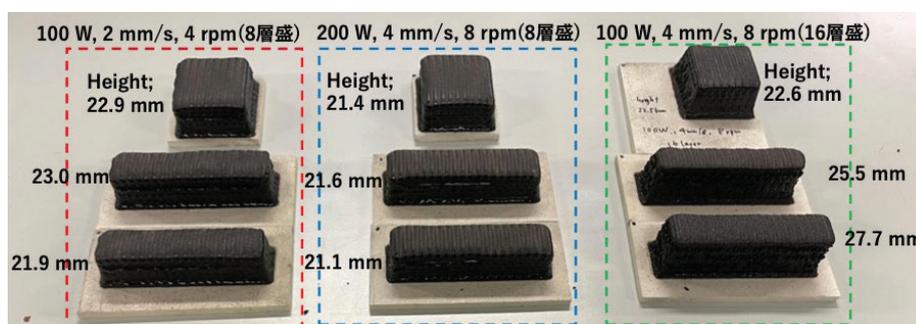


図 11 神奈川県産業技術総合研究所の積層造形装置を用いて作製した供試体。

点線枠上の条件は、照射レーザーパワー、掃引速度、粉末供給装置の回転数、積層数を示す。

県工業技術総合センターの積層造形装置の比較写真を示す。神奈川県産業技術総合研究所のロボットアームを用いた場合はアームの可動範囲内で自由な造形ができるが、滋賀県工業技術総合センターの装置では X-Y ステージのストローク内での造形に制限される。

図 11 に神奈川県産業技術総合研究所の積層造形装置を用いて作製した供試体の写真を示す。積層条件を変えながら、圧縮強度試験用に 40x40x20 mm の供試体を、曲げ試験用に 80 x 20 x 20 mm の供試体を作製した。表 1 に、神奈川県産業技術総合研究所と滋賀県工業技術総合センターでの典型的な造形条件の比較を示す。照射レ

ーザーパワー (W) および照射強度 (W/cm<sup>2</sup>) は滋賀県工業技術総合センターの方が大きい、掃引速度を調整することで両者でのエネルギー密度 (J/cm<sup>2</sup>) は同程度となっている。

#### 4.1 圧縮強度試験

図 11 の上段の供試体に対して圧縮強度試験を行った。上下面を機械研磨すると、クラック等のダメージが生じる恐れがあるので、研磨をやめて石膏によるキャッピングのみを施して試験を行った。図 12 に圧縮強度供試体の (a) 造形後の外観、(b) キャッピング後の外観を示す。いずれの供試体においても 60 N/mm<sup>2</sup> 以上の圧縮強度が得られ、3 体平均で 68 N/mm<sup>2</sup> という結果であった。

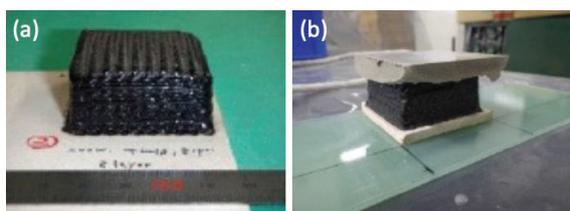


図 12 圧縮強度試験体：

(a) 造形後の外観、(b) キャッピング後

#### 4.2 曲げ強度試験

図 11 の中段、下段の細長い供試体に対して曲げ強度試験を 3 通りの载荷方向で行った。図 13 に 3 種類の (a) 上面を上、(b) 下面を上、(c) 側面を上下にして载荷

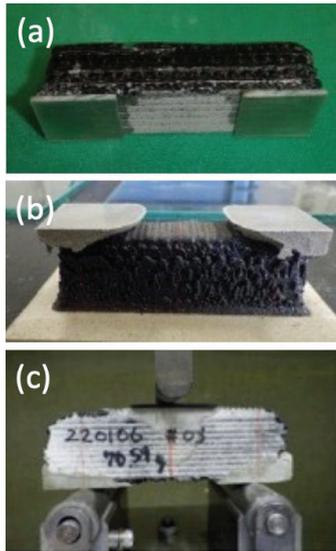


図 13 3種類の (a) 上面を上、(b) 下面を上、  
(c) 側面を上下にして載荷する場合の  
成形された供試体。

する場合の成形された供試体を示す供試体下部の基板は機械的にカットされ研磨により除去された後、支点部には厚さ 2 mm のガラス繊維補強プラスチック板が接着されている。

試験の結果、供試体の向きが上面上で平均  $0.65 \text{ N/mm}^2$ 、上面下で平均  $0.90 \text{ N/mm}^2$ 、側面上下で平均  $1.53 \text{ N/mm}^2$  という値が得られた。上面上の場合に最も小さな値が得られたが、これは供試体の下面研磨の際にひび割れが発生し（目視で確認）、このひび割れが強度結果に影響を及ぼした可能性が考えられる。供試体の向きが上面下の場合で、これまで得られていた値である  $0.88 \text{ N/mm}^2$  と同程度であった。上面下の場合は上面上に比べて 1.4 倍程度の強度が得られた。また、供試体の側面を上にした曲げ強度で大きな値が得られた。積層直角方向の曲げ強度は積層平行方向の曲げ強度よりも大きくなることが分かった。

## 5. 月環境下での粉体搬送

DED 法を用いた積層造形装置では、粉体を Ar ガスで搬送してレーザーの集光点付近に噴射している。一方、月面では真空且つ重力が地上の  $1/6$  となる。このような環境下で DED 法による積層造形を可能とするためには

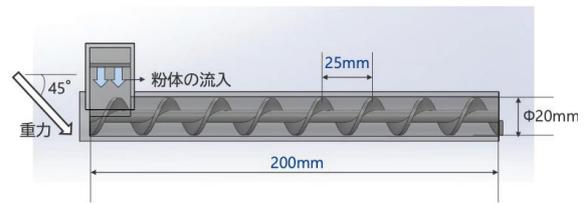
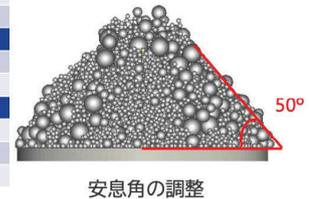


図 14 粉体搬送の解析モデル 1

表 2 粉体搬送シミュレーションで用いたパラメータ

物性値 (粉体)		粒度分布	
粒子径	$\mu\text{m}$	100, 200, 300, 400	材料
密度	$\text{kg/m}^3$	2900	100 $\mu\text{m}$
安息角	$^\circ$	50	200 $\mu\text{m}$
反発係数	-	0.9	300 $\mu\text{m}$
摩擦係数	-	0.7	400 $\mu\text{m}$
回転抵抗	-	0.4	
ばね定数	$\text{N/m}$	0.94	
運転条件			
回転数	$\text{rpm}$	60	
投入量	$\text{g/s}$	8	
解析パラメータ			
計算時間	$\text{s}$	30	
初期時刻	$\text{s}$	$1\text{e-}6$	
粗視化倍率	-	10	



真空中での粉体搬送技術を検討することが重要となる。地上で真空且つ低重力環境を模擬した実験を行うことは容易ではないので、シミュレーションを用いた検討を行った。

### 5.1 解析モデル 1

真空中であることを考慮して、ガスを問わずに機械的に粉体を搬送する機構の検討を行った。図 14 に粉体搬送の解析モデル 1 を示す。内径 20 mm のチューブ内でスクリューを回転させて粉体を搬送する構造である。スクリューのピッチは 25 mm、チューブの長さは 200 mm とし、重力の影響が見えやすいように重力を  $45^\circ$  方向に向けた状態で解析を行った。表 2 に粉体搬送シミュレーションで用いたパラメータを示す。

粉体の流量については、現状の DED 法積層造形装置で  $2\text{mm}^\phi$  のチューブを通して Ar ガス搬送されている値  $80\text{mg/s}$  から、 $20\text{mm}^\phi$  のチューブに対して  $8\text{g/s}$  と設定した。

図 15 と図 16 に解析モデル 1 の計算結果 (30 秒後の静止画) を示す。Case 1 として重力  $1g$ 、Case 2 として重力  $g/6$  の 2 通りの計算を行った。どちらも真空中である。

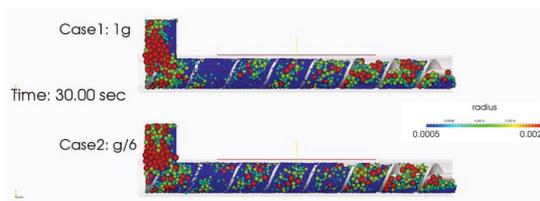


図 15 チューブ内での粉体搬送シミュレーション  
結果（搬送流れ）：解析モデル 1

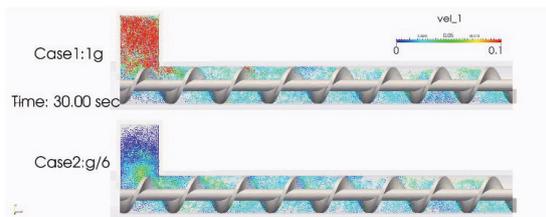


図 16 チューブ内での粉体搬送シミュレーション  
結果（速度分布）：解析モデル 1

図 15 は粉体の流れの様子、図 16 は粉体の速度分布である。重力の影響でチューブの入り口付近で若干の差が見られるものの、チューブ内でのスクリーによる搬送状態に大きな差が確認できない。機械的に搬送することで、重力とは関係無く構造によって粉体搬送を制御できることが分かった。

## 5.2 解析モデル 2

解析モデル 1 の結果を受けて、1) 粉体流入部を 45° 傾け、2) チューブの先端を細くし（テーパ部を設け）、3) 内部のスクリー長さを変えた解析モデル 2 を設計した。また、チューブの前方に自由空間領域を設けて、粉体がチューブ外で飛散していく様子を計算できるように領域を設定した。図 17 と図 18 に解析モデル 2（Design 1）と解析モデル 2（Design 2）を示す。Design 1 ではスクリーをチューブの直線部分だけに設置し、Design 2 ではスクリーをチューブのテーパ部まで

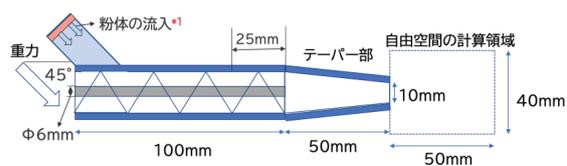


図 17 粉体搬送の解析モデル 2（Design 1）

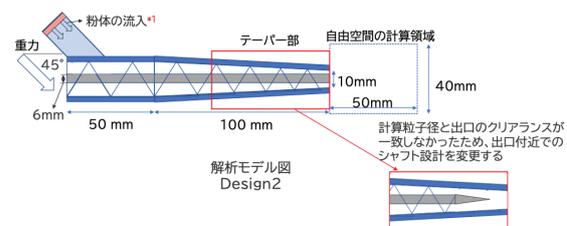


図 18 粉体搬送の解析モデル 2（Design 2）

延長している。

解析モデル 2 では表 3 に示す 3 つのケースについて計算を行った。地上と月面上での環境の影響を比較するために、Design 1 に対して Case 1（重力 1g、大気圧）と Case 2（重力 g/6、真空）を設定した。また、Design 2 に対しては Case 3 として重力 g/6、真空での計算を行った。

図 19～図 21 に解析モデル 2 の計算結果（30 秒後の静止画）を示す。図 19 は粉体の流れの様子、図 20 は粉体の速度分布、図 21 は自由空間領域での粉体の流れの様子である。解析モデル 1 の結果から搬送チューブ内では重力の影響で大きな差が確認できなかったことから、各ケースの差は大気の影響およびテーパ部の構造的影響によるものと考えられる。大気中（Case 1）に対して真空中（Case 2, Case 3）ではチューブからの吐出後に粉体が広がる様子が確認できる。また、Design 2 に比べて Design 1 ではチューブの先端付近で粉体が詰まり気味になり、吐出速度が低下している様に見える。解析ではチューブ先端での質量流量を評価したが、各 Case で大

表 3 粉体搬送シミュレーションで用いたパラメーター

ケース No.	モデル	重力 (m/s <sup>2</sup> )	スクリー回転数 (RPM)	流入量 (g/s)	物理時間 (s)	環境
1	Design 1	9.81	120	8	30	大気中
2	Design 1	1.635 (9.81/6)	120	8	30	真空
3	Design 2	1.635 (9.81/6)	120	8	30	真空

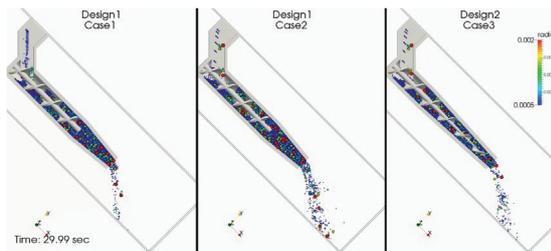


図 19 チューブ内での粉体搬送シミュレーション  
結果（搬送流れ）：解析モデル2

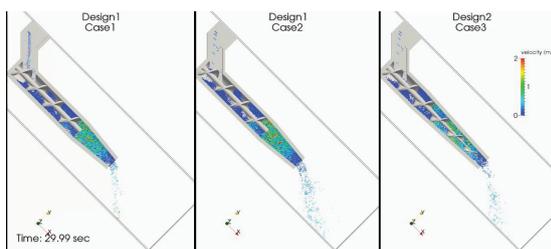


図 20 チューブ内での粉体搬送シミュレーション  
結果（速度分布）：解析モデル2

きな差は見られなかった。

今回のモデル計算では、チューブ吐出後に重力方向に粉体が落下していく様子が確認できた。レーザーの集光点に向けて粉体が収束気味に吐出されるように、スクリーウの回転を上げる、またはスクリーウの形状を最適化していく事が求められる。

## 6. まとめ

月の模擬砂を材料としてレーザー加熱による積層造形の実験を行い、造形物の建材としての評価を進めている。これまで圧縮強度試験を行ってきたが、今回は曲げ強度試験と造形物の接合試験を試みた。

曲げ試験用の供試体を作製し強度試験を行ったところ、約  $0.9 \text{ N/mm}^2$  の曲げ強度が得られた。想定していた月面での運搬路の舗装用建材としての要求性能  $0.60 \text{ N/mm}^2$  以上は満足したが、離発着場舗装の要求性能  $2.1 \text{ N/mm}^2$  以上は満足しなかった。

また、供試体同士の接合試験を試みた。電気炉で作製した造形物に開先加工を施して、V溝を埋めるように積層し強度試験を行った。曲げ強度として平均  $1.5 \text{ N/mm}^2$  の値が得られた。破断はレーザー接合部内で発生してお

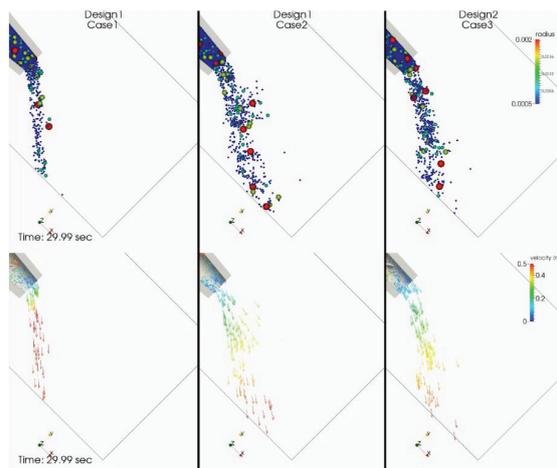


図 21 自由空間領域での粉体搬送シミュレーション  
結果の比較：解析モデル2  
上段（粉体流れ）、下段（速度分布）

り、電気炉供試体とレーザー接合部の界面での破断は見られなかった。

月環境での製造システムの要素試験として、レーザー溶接用ロボットアームによる造形技術の検証を行った。ロボットアームの先端にDED積層造形用ヘッドを装着し、積層造形および造形物の強度試験を行った。ロボットアームの可動範囲内で自由な積層造形が可能であり、市販3Dプリンター装置と同等の供試体の作製が確認できた。

供試体の強度試験において、試験の前処理として供試体の表面研磨を施していたが、研磨によるひび割れが曲げ強度結果に影響を及ぼした可能性（強度の低下）が見いだされた。供試体そのものの強度を的確に把握するために、試験体の成形法や前処理に関してさらなる最適化が必要であると思われる。また、新たな知見として、積層直角方向の曲げ強度は積層平行方向の曲げ強度よりも大きくなることが分かった。

粉体搬送シミュレーションによる真空中粉体搬送について検討を行い、低重力・真空の環境下でも機械的な手法で粉体の搬送が可能であることが確認できた。今後は、レーザーの集光点に向けて粉体が収束気味に吐出されるように、スクリーウの回転を上げる、またはスクリーウの形状を最適化していく事が求められる。

## 謝辞

本研究は、国交省・宇宙無人建設革新技術開発推進事業の下で大林組、名古屋工業大学との共同研究で行われた。実験の遂行に際してご協力頂いた滋賀県工業技術総合センターおよび神奈川県産業技術総合研究所の関係各位に感謝の意を表します。

## 参考文献

- 1) 田島 孝敏 他、「マイクロ波を用いた月面模擬砂の焼成実験」第 65 回宇宙科学技術連合講演会、オンライン、3H14 (2021).
- 2) 青木 滋、金森洋史、「無人月面探査に向けた地盤の力学的試験方法の検討」、清水建設研究報告、第 89 号、pp.95-104 (2012).
- 3) 薩田寿隆、「神奈川県産業技術センターの技術支援 (7) レーザー粉体肉盛溶接による表面硬化層形成技術」、金属 Vol.85 (2015) No.11.

# 高速・高光耐性可変形鏡の開発

レーザープロセス研究チーム<sup>1</sup>、レーザー技術開発室<sup>2</sup>

谷口誠治<sup>1</sup>、コスロービアン ハイク<sup>1</sup>、稲田順史<sup>1</sup>、本越伸二<sup>2</sup>、藤田雅之<sup>1</sup>

## 1. はじめに

当研究所は2018年度から、国立研究開発法人理化学研究所の委託を受け、三菱重工業（株）とともに防衛装備庁：安全保障技術研究推進制度（研究課題「高速移動物体への遠距離・高強度光伝送のための予測的波面制御の研究」）に参画している。本研究の目的は、大気中を高速移動する移動体への長距離レーザー伝送技術の開発とその原理実証にある。この技術を確立するための要素技術に、レーザー伝搬経路の波面擾乱（じょうらん）予測手法の確立、高速波面センサーの開発、高速・高光耐性可変形鏡の開発、レーザー伝送に用いる高出力CWレーザーの開発があり、その中で当研究所は、主に高速、高光耐性可変形鏡（defomable mirror）の開発を行ってきた。図1に可変形鏡の基本構造を示す。薄く柔軟性のある鏡面基板の背面に、縦方向に伸縮する駆動素子を複数配置し、電圧などの制御信号により鏡面の表面形状を変形させる構造である。レーザー光が伝送中に受ける波面の乱れを波面センサーにより計測し、この情報に基づき、伝送中の波面の乱れを補正するよう可変形鏡の表面を変形させる。伝送レーザーの波面を可変形鏡により予め歪ませておくことで、伝送地点でのレーザー波面が補償され、高いエネルギー効率の光伝送が可能となる。

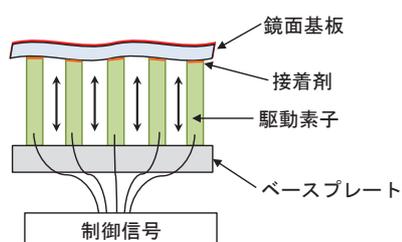


図1 可変形鏡の基本構造（断面図）

本研究に用いる可変形鏡には、大気揺らぎの変動をリアルタイムで補正可能な動作速度が必要となる。大気揺

らぎの変化速度は、伝送距離や大気の流れや温度、伝送レーザーの出力（光強度）などの要因に左右される。本研究では、伝送距離数キロメートル、最大風速10 m/sを想定しており、可変形鏡の開発目標を口径100 mm、補正速度（波面センサーのサンプルレート）最大10 kS/s（=10 kHz）、光耐性（損傷閾値） $>1 \text{ kW/cm}^2$ に設定した。2021年度までに、駆動素子にピエゾアクチュエータ（以下PAと呼ぶ。）を用い、高反射（HR）コーティングを施した鏡面を接着した状態での高速動作・光耐性試験を行い、光強度 $1 \text{ kW/cm}^2$ のCWレーザー照射下でも駆動素子の10 kHz高速動作が可能であることを確認した<sup>1</sup>。また影響関数<sup>2</sup>を取り入れたPAの動作制御法を導入し、試作した口径50 mmの小型可変形鏡の動作試験により、この制御法が鏡の波面形成に有効であることを確かめた<sup>3</sup>。さらに、得られた知見をもとに、長距離伝送時に最も変化が大きいとされるレーザーの進行方向の変動（ゼルニケ多項式<sup>4</sup>のチップチルト成分）を補正する鏡（以下Tip-Tilt補正鏡と呼ぶ。）、次いで変化が大きいビーム径の拡がり（デフォーカス成分）を補正する鏡（以下Defocus補正鏡と呼ぶ。）、その他の波面の乱れ（ゼルニケ多項式の15項までの成分）を補正する鏡（以下高次項補正鏡と呼ぶ。）の3種の口径100 mmの大型可変形鏡を製作し、Tip-Tilt補正鏡、Defocus補正鏡については動作試験による性能評価を行った<sup>5</sup>。本稿では、製作した高次項補正鏡を用いて波面形成試験および高速動作試験を行い、動作性能を評価した結果を報告する。

## 2. 高速・高光耐性可変形鏡の開発

### 2.1. 口径100 mm 高次項補正鏡

製作した高次項補正鏡のPA配置図を図2(a)に、鏡面および外観の写真を図2(b)、(c)にそれぞれ示す（ILT 2022年報<sup>5</sup>より再掲）。複雑な高次項成分の補正を行うため

合計 61 本の PA を用い、隣接する PA との間隔が全て等しい正三角形格子状の配置を選択した。鏡面基板には、近接した PA の動作に対応できるように、機械剛性が低い合成石英基板 (105 mm 径、厚さ 1 mm、片面 HR コート、反射率 99.8% @ 1064 nm) を用いた。鏡面を透過したレーザー光 (入射光の約 0.2%) が可変形鏡内部に侵入し PA の配線部へ照射、吸収され発熱や燃焼が発生するのを防ぐため、可変形鏡の鏡面と PA の間に金メッキを施した凸面状の保護板を挿入した (図 2(d))。

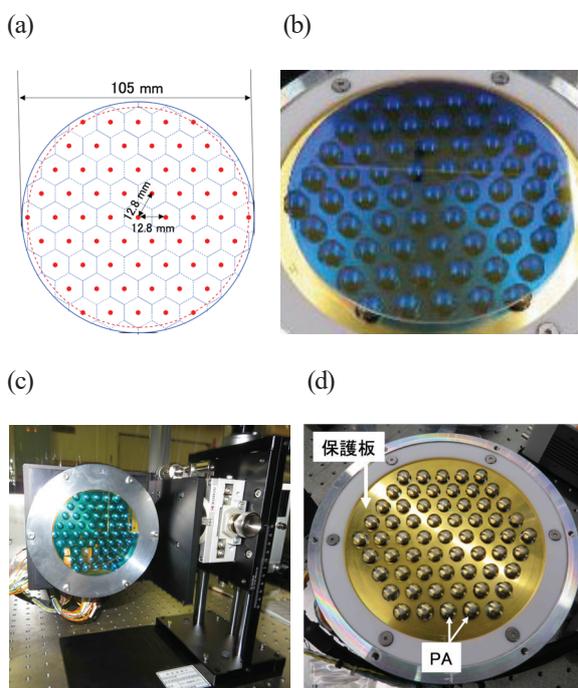


図 2 高次項補正鏡の (a) PA 配置 (61 点支持)、(b) 鏡面、(c) 外観、(d) 保護板 (鏡面基板接着前)

## 2.2. 波面形成試験

波面乱れの数学的解析に用いられるのがゼルニケ (Zemike) 多項式<sup>4)</sup>である。ゼルニケ多項式は単位円上で定義された直交関数列で、以下の式で表される。

$$Z_n^m(\rho, \varphi) = \begin{cases} R_n^m(\rho) \cos(m\varphi) & m \geq 0 \\ R_n^{|m|}(\rho) \sin(|m|\varphi) & m < 0 \end{cases}$$

ここで  $n$  は負でない整数、 $m$  は  $n \geq |m|$  となる整数、 $\rho$  は動径 ( $0 \leq \rho \leq 1$ )、 $\varphi$  は偏角、 $R_n^m(\rho)$  は動径多項式を示し、 $n$  の増加に伴い関数列も増加していく。図 3 に、波面乱れへの影響が大きい最初の 15 項を示す。色の変化は、単位

円内の座標から多項式を用いて計算される関数値 (規格化された)  $z$  軸方向の変位 (以下  $Z$  変位と呼ぶ。) を示している。多項式はそれぞれ、傾きを表すチップ・チルト ( $Z_1^1, Z_1^{-1}$ )、ピントを表すデフォーカス ( $Z_2^0$ ) ほかに、一般に非点収差 (アスティグマティズム、 $Z_2^{-2}, Z_2^2$ )、コマ収差 ( $Z_3^{-1}, Z_3^1$ )、球面収差 ( $Z_4^0$ ) などと呼ばれる基本的な波面収差の形状を表しており、任意の波面はこれらの線型結合で表すことができる。このことから、可変形鏡でそれぞれの収差を正確に再現できれば、その組み合わせで表される波面乱れの補正も可能と考えられる。

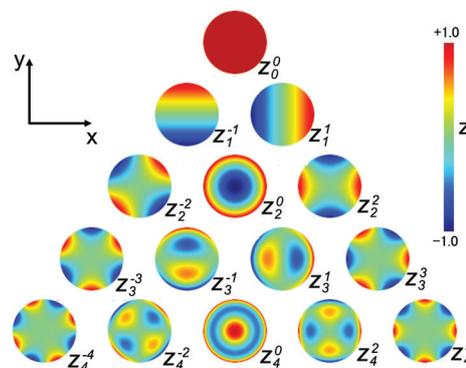


図 3 ゼルニケ多項式の最初の 15 項 (2 次元表示)

図 4 に波面形成試験の配置図を示す。可変形鏡の制御には以下の手法を用いた。ゼルニケ多項式を用いて波面の各 PA 位置 ( $x, y$ ) での  $Z$  変位を計算し、各 PA の影響関数を考慮<sup>3)</sup>して  $Z$  変位を PA への印加電圧データに変換する。電圧データを D/A 変換し、増幅したのち 61 個の PA へ同時に入力し動作させる。試験では、チップ・チルト ( $Z_1^1, Z_1^{-1}$ )、デフォーカス ( $Z_2^0$ ) を除く 15 項までの高次成分波面 ( $Z_2^{-2}, Z_2^2, Z_3^{-3}, Z_3^1, Z_3^3, Z_3^3, Z_4^4, Z_4^{-2}, Z_4^0, Z_4^2, Z_4^4$ ) を作成した。それぞれの高次成分で波面の  $Z$  変位量が  $\pm 2.5 \mu\text{m}$  となるよう印加電圧を設定し、鏡面基板の変形をフィゾー型干渉計で観測した。

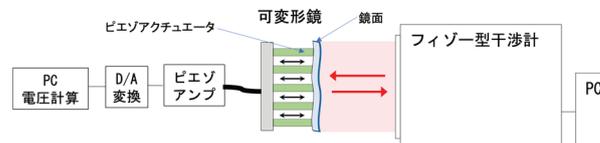


図 4 フィゾー型干渉計を用いた動作試験配置図

観測結果を図5に示す。図中の+、- はZ変位をそれぞれ正方向、負方向に設定した場合の観測結果である。それぞれの波面がよく再現されている。作成した波面の精度について検証するため、15項までのゼルニケ多項式を用いて波面解析を行った。この解析により、観測した表面形状にそれぞれの波面成分がどれほどの大きさで含まれているかがわかる。例として、アスティグマティズム成分 ( $Z_2^2$ ) を作成した際の解析結果を図6に示す。横軸はゼルニケ多項式の各項 (波面成分) を示しており (図3を参照)、縦軸はそれぞれの項のZ変位 ( $\mu\text{m}$ ) を示している。アスティグマティズム成分 ( $Z_2^2$ ) が顕著に表れ、Z変位は正方向、負方向を問わず設定値 ( $\pm 2.5 \mu\text{m}$ ) と同値となっている。一方、他の波面成分のZ変位はいずれも  $0.1 \mu\text{m}$  以下で、他の波面成分は殆ど含まれていないことがわかった。このことは、高次項補正鏡によりアスティグマティズム成分の波面のみが正確に再現されていることを示している。他の波面成分についても同様の解析を行った。図7に、それぞれの解析結果から、作成した波面成分のZ変位のみを抽出してプロットしたものを示す。ここで、各項のZ変位は図5に示すそれぞれの観測データの解析から得られたものである (例えば  $Z_2^2$  のZ変位は図5中の  $Z_2^2$  で示した観測値、 $Z_4^0$  のZ変位は図5中  $Z_4^0$  で示した観測値の解析によりそれぞれ得られたものである。)。spherical aberration ( $Z_4^0$ )、2次のコマ成分 ( $Z_4^{-2}$ 、 $Z_4^2$ ) など、内部形状が複雑な波面については設定値 ( $\pm 2.5 \mu\text{m}$ ) よりもZ変位はやや小さいが、いずれの波面も設定値に対して82%以上の値を示すことがわかった。

### 2.3. 高速動作試験

高次項補正鏡の高速動作について検討するため、レーザードップラー振動計 (PNV-RD-ADV1, Holobright 社) を用いた高速動作試験を行った。実験配置を図8に示す。レーザードップラー振動計は1点計測であるため、PAと鏡面の接着部を選定し、高次項補正鏡の高速動作時のZ変位量の時間変化を計測した。高次項補正鏡は、ゼルニケ多項式の4~14項の波面を  $+Z_2^{-2} \rightarrow -Z_2^{-2} \rightarrow +Z_2^2 \rightarrow -Z_2^2 \rightarrow +Z_3^{-3} \rightarrow -Z_3^{-1} \rightarrow \dots \rightarrow +Z_4^2 \rightarrow$

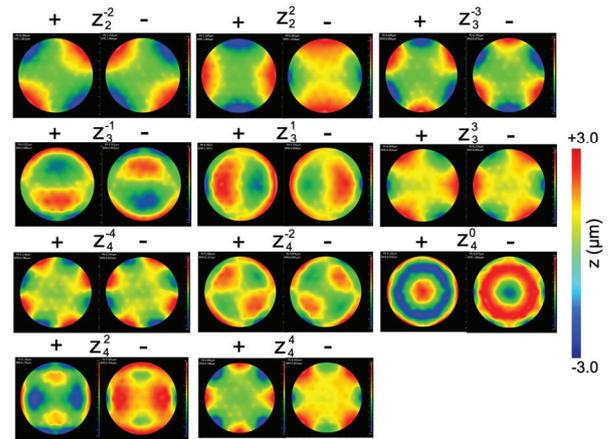


図5 高次項補正鏡によりゼルニケ高次項 (15項まで) 波面を作成した際の表面形状 (2次元表示)

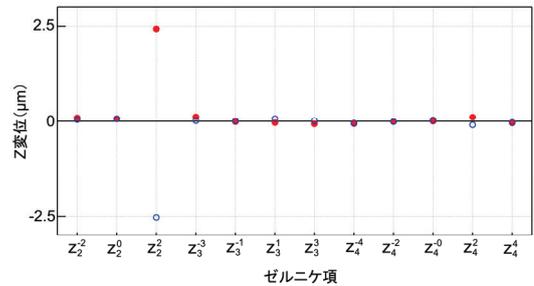


図6 高次項補正鏡により作成したアスティグマティズム成分 (図5中  $Z_2^2$ ) の波面解析結果 (設定値  $\pm 2.5 \mu\text{m}$ )

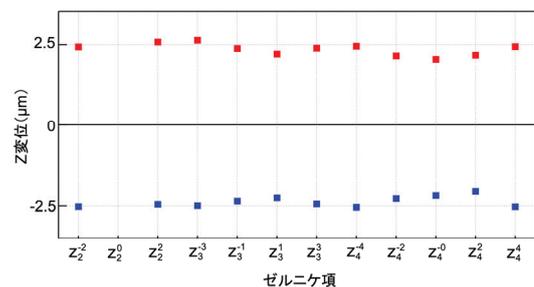


図7 高次項補正鏡により作成した各ゼルニケ波面 (図5を参照) の波面解析により求めたZ変位 (設定値  $\pm 2.5 \mu\text{m}$ )。ただし、チップ・チルト ( $Z_1^{-1}$ 、 $Z_1^1$ ) デフォーカス成分 ( $Z_2^0$ ) はそれぞれ Tip-Tilt 補正鏡、Defocus 補正鏡<sup>5)</sup>による補正を行うため、試験から除外した。

$-Z_4^2 \rightarrow +Z_4^2 \rightarrow -Z_4^2 \rightarrow +Z_4^2 \rightarrow -Z_4^2$  (図5を参照)の順に高速で動作させた(動作速度 10 kHz)。それぞれの波面は動作後 3 ms 静止させた。図9(a)に、中央部のPA(図8中P1)、図9(b)にその隣のPAの位置(図8中P2)で計測したZ変位の時間変化(図中赤実線)を示す。比較のため、図には動作時にそれぞれのアクチュエータに印加した電圧の時間変化を併せて示した(図中黒点線)。計測の配置上、印加電圧と変位量は逆位相となることに留意されたい。どちらの点も変位の時間変化は印加電圧に遅延なく応答しており、変位量も印加電圧の大きさにほぼ対応して変化した。また、高速動作時に懸念されたミラー基板の過渡振動の影響は殆ど見られなかった。これらの結果から、開発した高次項補正鏡は動作範囲 $\pm 2\mu\text{m}$ 以上で、10kHzの高速動作も可能な性能を有することがわかった。

### 3. まとめ

本研究では、大気中高速移動物体への遠距離・高出力レーザー伝送技術の確立のため、伝送時に起こる波面の歪みを補正可能な高速・高光耐性可変形鏡の開発を進めた。口径 100mm の大型可変形鏡(高次項補正鏡)を製作し、動作試験による性能評価を行った。その結果、ゼルニケ多項式の 15 項までの波面を精度良く再現することができ、動作範囲は $\pm 2\mu\text{m}$ 以上、動作速度 10 kHz の高速制御が可能であることが明らかとなった。可変形鏡による波面制御技術は、長距離光通信などの産業分野だけでなく、高精度天体観測<sup>6)</sup>や地上または宇宙レーザーによるデブリ除去<sup>7)</sup>といった、発展が期待される新しい応用分野にも必要とされている技術である。可変形鏡のさらなる高性能化を目指し、今後も開発を続けていく予定である。

### 謝辞

本研究は、防衛装備庁安全保障技術研究推進制度 JPJ004596 (研究課題「高速移動物体への遠距離・高強度光伝送のための予測的波面制御の研究」)の支援により実施された。ご協力頂いた国立研究開発法人理化学研究所、三菱重工業(株)の関係者各位に謝意を表します。

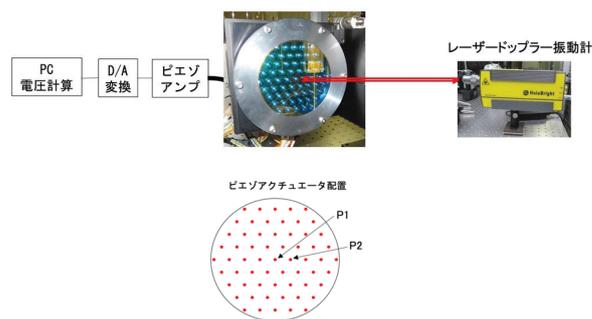


図8 高次項補正鏡高速動作試験配置と計測点(P1、P2)を示した図

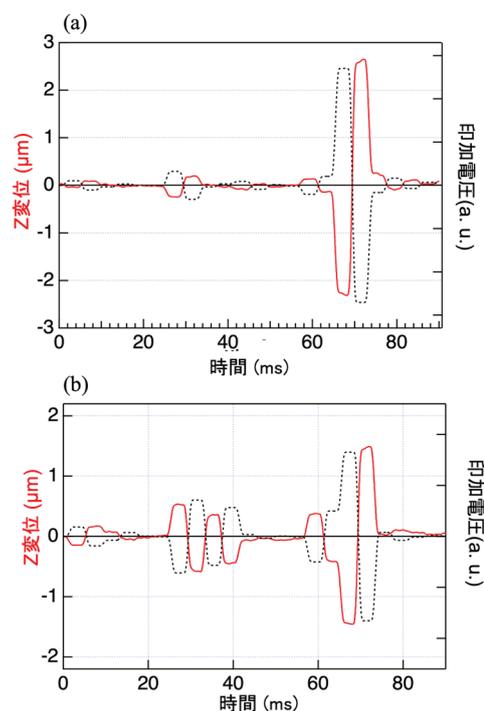


図9 高次項補正鏡を高速動作(動作速度 10kHz)させた際の計測点(a)P1、(b)P2(図8参照)におけるZ変位(赤実線)と印加電圧(黒点線)の時間変化の比較

### 参考文献

- 1) 谷口誠治他、ILT2021年報、pp.14-20(2021).
- 2) L. Huang *et al.*, *Optics Express* **16**(1), pp.108-114(2008).
- 3) Haik Chosrowjan *et al.*, ILT2021年報、pp21-28(2021).
- 4) F. Zernike, *Physica*, **1**, pp.689-704(1934).

5) 谷口誠治他、ILT2022 年報、pp.14-19 (2022).

6) Y. Hayano *et al.*, *Proc. SPIE*, **7736**, p.21 (2010).

7) T. Ebisuzaki *et al.*, *Acta Astronautica*, **112**, pp.102-

113 (2015).

# Quantitative Evaluation of the Strehl Ratio for the Flattop and Gaussian Beams

Laser Process Research Team

Haik Chosrowjan, Yoshifumi Inada, and Seiji Taniguchi

## 1. Introduction

Optical systems suffer performance degradation due to light wavefront (WF) distortion. When an optical wave propagates through inhomogeneous media such as a thick, low-quality glass or a turbulent atmosphere, refractive index differences in the lateral cross-section of the beam cause optical phase distortions along the propagation path. Various adaptive optics (AO) techniques are used to compensate for such phase aberrations. AO systems often consist of an active optical element, such as a deformable mirror (DM), for correcting the dynamic WF distortions. While AO has its roots in astronomy<sup>1)</sup>, it is currently used also in a wide range of medical and industrial applications<sup>2)</sup>.

In the AO systems, a WF sensor for measuring the aberrations present in the incoming beam, a DM for the WF correction, and a feedback iteration control algorithm to link these two elements in real-time are present. This approach is based on a “closed loop” negative-feedback technique hence, it is relatively slow due to the convergence time requirements for multi-channel DMs. In specific AO applications, where fast (~10  $\mu$ s) convergence is required, the “closed loop” approach is difficult to implement. In contrast, by an “open loop” approach, high operation bandwidth could be achieved if accurate WF measurement, data transfer, and *exact control* of the DM response are fulfilled.

In our previous reports<sup>3,4)</sup>, a control model for hexagonally arranged 61 piezo-actuator (PA) DMs, taking into consideration the crosstalk effect between the individual PAs, was theoretically described (influence function (IF) approach), verified, and experimentally demonstrated. In this report, quantitative techniques for DM performance evaluation metrics will be described and compared. Interrelation between the laser

beam quality (BQ) metrics ( $M^2$  and the Strehl ratio (SR)), and DM phase wavefront *rms* (root mean square) deviation (or variance) is elucidated. We determine and discuss the SR for several deformable mirrors developed at the Institute for Laser Technology (ILT) when used with flattop- and Gaussian intensity distribution beams, respectively. These results and analyses will lead to further performance quality improvements for our DMs in future developments.

## 2. The $M^2$ parameter and the Strehl ratio

The  $M^2$  parameter is a widely used metric for laser BQ. It is defined as the ratio of the beam parameter product (BPP) of an actual beam to that of an ideal Gaussian beam ( $\lambda/\pi$ ) at the same wavelength (Eq. 1).

$$M^2 = \frac{BPP}{(\lambda/\pi)} = \frac{\theta \omega_0}{(\lambda/\pi)} \quad (1)$$

Here  $\theta$ ,  $\omega_0$ , and  $\lambda$  are the beam divergence, waist radius, and wavelength of the light, respectively. Detailed definition and measurement procedure of the  $M^2$  for any arbitrarily, non-Gaussian, fully or partially coherent, single- or multimode, smooth or distorted real beam in free space is given elsewhere<sup>5)</sup>. Here we note that the  $M^2$  definition does not involve the beam power or intensity. A higher  $M^2$  only implies that the second moment of the beam expands faster.  $M^2$  is always  $\geq 1$ .

The Strehl ratio (SR) is a quality measure of optical image formation. It is originally defined as the ratio of the aberrated image intensity from a point source compared to the maximum attainable intensity using an ideal optical system limited only by diffraction over the system’s aperture. SR is always  $\leq 1$ . The SR is broadly used for assessing the image quality of

astronomical objects in the presence of atmospheric turbulence and evaluating the performance of AO correction systems. The SR can be alternately defined as a ratio of the far-field, on-axis intensity ( $I_{max,real}$ ) of a real beam propagating from a near-field hard aperture to the far-field, on-axis intensity ( $I_{max,ideal}$ ) of an ideal (in terms of uniform amplitude and phase), equal power beam filling the same hard aperture (Eq. 2).

$$SR = \frac{I_{max,real}}{I_{max,ideal}} \quad (2)$$

As we will show below, the alternate definition of the SR allows using it as another metric for a laser BQ characterization, especially when the laser beam reflects from a DM.

There is no exact mathematical transformation between the  $M^2$  and SR BQ metrics. This basic difficulty can be explained by the fact that only one number in either definition is used to characterize a beam with the spatial distribution of amplitudes and phases. Furthermore, an ideal Gaussian beam is infinite in the lateral direction, whereas SR is defined for a finite aperture.

To handle the latter, a *generalized* SR for a beam with an arbitrary waveform  $U(x, y) = E(x, y)\exp[-2\pi i\varphi(x, y)]$  propagating from near-field plane to a focal plane can be defined without including a hard aperture<sup>6</sup>. By using the Fraunhofer diffraction equation for calculating the intensities at the far-field origin (0, 0), Eq. 2 for the SR can be transformed into the following expression:

$$SR = \frac{\left| \int_{-\infty}^{+\infty} E(x, y)\exp[-2\pi i\varphi(x, y)] dx dy \right|^2}{\left| \int_{-\infty}^{+\infty} E(x, y) dx dy \right|^2} \quad (3)$$

In Eq. 3, the  $E(x, y)$  and  $\varphi(x, y)$  are the amplitude and phase distributions across the beam wavefront in the near-field, respectively. By only assuming that the WF phase noise can be described by some probability distribution function (PDF) with finite *rms* and expected values, SR can be expressed by the WF's random, uncorrelated phase noise distribution variance

$\sigma^2$  as follows:

$$SR(\sigma) = \sigma^2 |\Psi[PDF(\xi)]|^2 \quad (4)$$

Here  $\Psi$  is the Fourier transform of the WF aberration PDF, and  $\xi$  is the normalized random parameter. So, the *generalized* SR is proportional to the square of the Fourier transform of the PDF of the random phase noise. Eq. 4 is valid for any beam whose WF phase noise can be described by a PDF with a finite *rms* value  $\sigma$  and an expected value. If, for example, a hyperbolic secant noise function is assumed, then the  $PDF(\xi) = (2\sigma)^{-1} \text{sech}(\xi\pi/2)$ , and the  $SR(\sigma) = \text{sech}(2\pi\sigma)^2$ . If a Gaussian phase noise distribution is present, then the  $PDF(\xi) = [(2\pi)^{-\frac{1}{2}}/\sigma] * \exp(-\xi^2/2)$ , and the Eq. 4 becomes:

$$SR(\sigma) = \exp[-(2\pi\sigma)^2] \quad (5)$$

This is the well-known expression first introduced empirically by Maharajan<sup>7</sup>. In Eq. 5, the  $\sigma$  is expressed by  $\lambda$  units. In length units, the  $\sigma$  in Eq. 5 should be replaced by  $(\sigma/\lambda)$ , and in radian units, it should be replaced by  $(\sigma/2\pi)$ .

Although Eq. 5 is a special case for Gaussian PDF, no assumption for small WF error was made, so it is valid for a broader range of  $\sigma$ . For  $\sigma \ll 1$ , Eq. 5 yields other well-known approximations for Strehl ratio such as  $SR(\sigma) \approx (1 - (2\pi\sigma)^2/2)^2$  (Maréchal approximation) or  $SR(\sigma) \approx 1 - (2\pi\sigma)^2$ .

Eq. 5 was derived for uniform flattop beams, so it is not clear how well it will hold for Gaussian, super-Gaussian, or other real-world beams. It is also not clear how sensitive SR will be to amplitude variations. Finally, although Eq. 5 is strictly valid only for random, uncorrelated Gaussian phase noise, for small  $\sigma$  values ( $< \lambda/10$ ), it describes rather well other aberration cases with different PDFs, including also Seidel and Zernike aberrations. For the large  $\sigma$  values, however, it often underestimates the SR for low-order aberrations.

Eq. 3 and approximated Eq. 5 can be applied not only for the quantitative evaluation of the laser BQ but also for the quantitative evaluation of AO components like DM. Namely, by measuring the WF rms  $\sigma$  of a *known* beam after reflection from the DM surface, one can quantitatively estimate the DM surface quality (flatness) and its influence on the incident light beam in terms of the latter's SR.

Recalling the  $M^2$  parameter and Eq. 1, we note that in contrast to SR described above, there is no mathematical relation between  $M^2$  and the  $\sigma$ . This means that by measuring the  $\sigma$  of the laser beam WF distortion (or the DM surface roughness), one cannot make any rational quantitative prediction about the  $M^2$  BQ metric, and vice versa. Hence,  $M^2$  cannot be used for the quantitative evaluation of the DMs quality.

### 3. Determination of the Strehl ratio (SR)

There are at least eight techniques for the SR measurement listed in the References<sup>8)</sup>. To determine how much the various methods impact the measured SR values, a group of researchers from The Boeing Company, LLNL, Univ. of California, Berkeley, etc. created a series of simulated point spread functions (PSF; it describes what a single point in the object looks like in the image) and then sent around to the various researchers, who then measured the SRs. The measurements were done blindly, with no knowledge of the true SR. The comparative analysis of the data obtained from those methods showed that SRs reported in the literature err by as much as 10%, often biasing the SR downwards. They tested also the validity of the Maharajan approximation by measuring the rms phase error ( $\sigma$ ) of each wavefront, converting it to the SR (Eq. 5), and comparing it to the true SR. As mentioned by the Authors: "... the agreement (error < 1%) was very good and much better than what was anticipated"<sup>8)</sup>. Their results confirm the validity of the SR calculation based on the prior determination of the  $\sigma$ . Hence, for the SR determination of our DMs, we have carried out direct measurements of the rms phase error  $\sigma$  using the

ZYGO interferometer Verifire Dynaphase (AMETEK) with high precision, and then calculated the SRs using Eq. 3 and 5.

### 4. Strehl ratio (SR) for Gaussian- vs. the flattop beams

In previous sections, we have mostly discussed the SR when using the flattop beams. However, our DMs are not intended for imaging applications but for high-power CW Gaussian beam transmission to long distances through turbulent media. Hence, we need to characterize the DM influence on Gaussian beams. However, measuring the SR with a Gaussian input beam is problematic. In contrast to a flattop beam with a definite size, the Gaussian beam has infinite lateral dimensions. Its size is conditionally defined as the distance between two points on a central cross-section axis where the peak intensity of the beam drops by  $1/e^2$  times. Depending on the ratio of the DM size versus the Gaussian beam size, the Gaussian beam will strongly or weakly truncate. How do we define, for instance, what the aberration-free maximum intensity should be? In imaging applications, the Gaussian beam size, as defined above, is matched by the DM size (Fig. 1). In this case, only a weak truncation occurs. For high-power CW applications, however, even a weak truncation is impossible because the power fraction not entering the DM aperture will be just lost. Moreover, it will

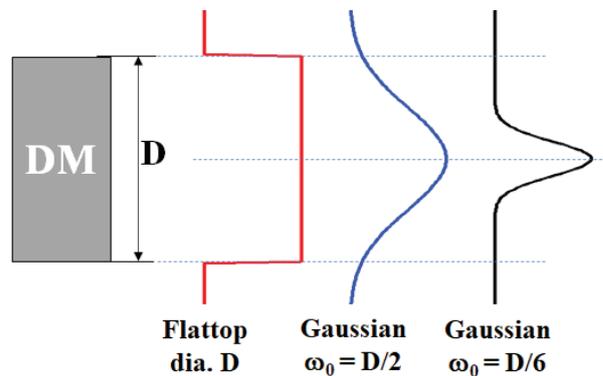


Fig. 1. Schematic diagram of a DM with an aperture  $D$  and intensity profiles of a flattop beam with a diameter  $D$ , and Gaussian beams with diameters  $D$  and  $D/3$ , respectively. The  $\omega_0$  is the spot radius (waist size) of the corresponding Gaussian beam.

heat and eventually destroy the DM. In our case, we set the Gaussian beam size, as defined above, to be 3 times smaller than the DM size (Fig. 1). In this case, the beam truncation is negligible, and Eq. 3 will be suited for SR calculations, while Eq. 5 will yield approximated values.

## 5. Experimental setup and results

We have constructed an experimental setup (Fig. 2) to measure the performance characteristics of several DMs with different numbers of piezo-actuators (PA), diameters, and thicknesses, summarized in Table 1:

Table 1. Main specifications of the DMs studied in this work.

	Diameter (cm)	Thickness (mm)	PA number N	Notes
DM1	5.08	1	19	homemade
DM2	10	1	25	homemade
DM3	10	1	61	homemade
DM4	10	2	61	homemade
DM5	1.5	~ 0.15	40	commercial

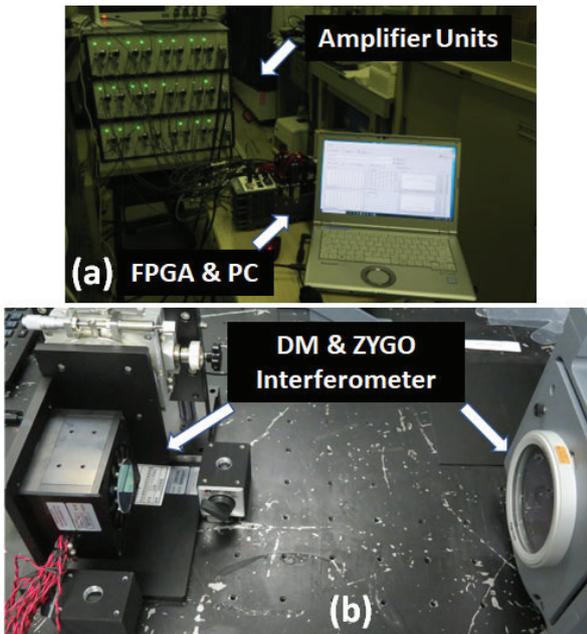


Fig. 2. FPGA-based DM control system: (a) the FPGA&PC system and PA amplifier units; (b) a DM positioned in front of the ZYGO interferometer.

Briefly, an FPGA (field-programmable gate array) system and corresponding software controlled by the PC were introduced in front of the DM PA amplifiers. A desired optical wavefront was created by a PTC Mathcad software and the  $Z = Z_i(x_i, y_i)$  ( $i = 1 \dots N$ ) displacement vector was calculated<sup>3</sup>. Using the influence matrix  $M$  and  $Z$ , the  $V$  vector was calculated and applied to the corresponding PAs<sup>4</sup>. The DM surface roughness was measured and characterized by a ZYGO interferometer (Fig. 2b).

In Fig. 3, DM surface roughness measurement results are presented for all DMs listed in Table 1. In Table 2, calculated SR ratios (flattop beam) are presented. It is seen that the homemade DMs are the same- or better quality as the commercial DM (DM5) studied for comparison.

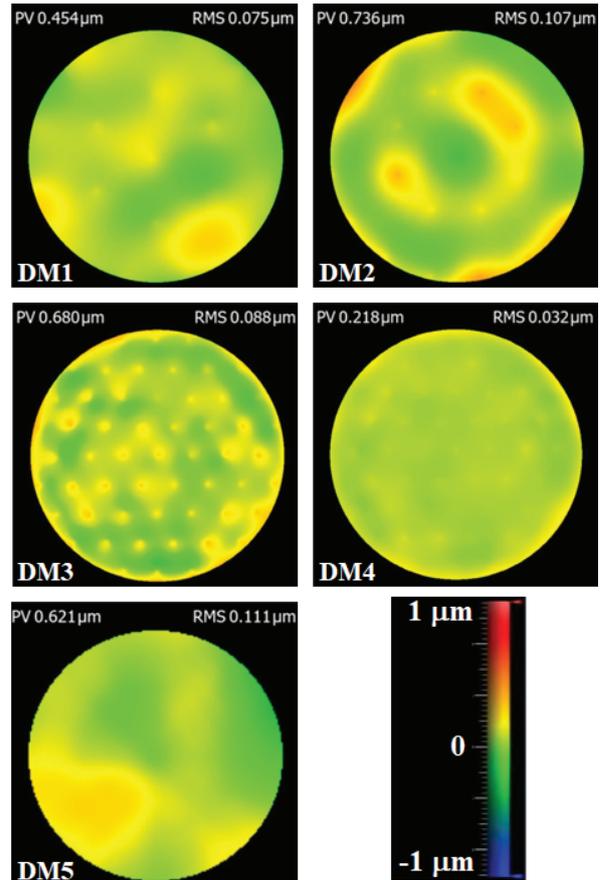


Fig. 3. Measurement results of surface roughness for all DMs listed in Table 1. In the bottom left, top left, and right corners of each image, the DM number, peak\_to\_valley (PV), and *rms* values are listed, respectively. The color code for  $\pm 1 \mu\text{m}$  displacement interval is also shown.

Table 2. Calculated SRs (flattop beam) for 1.064  $\mu\text{m}$  wavelength using the *rms* values obtained from the DM surface roughness measurements (Fig. 3).

	DM1	DM2	DM3	DM4	DM5
SR	0.822	0.671	0.763	0.965	0.651

Due to space limitations, we will refrain from discussing the details of SR discrepancies listed in Table 2. It is only noted that these originate from various factors such as the mirror substrate material, aspect ratio, number of PAs, etc.

Hereafter we will present analysis only for the DM4 because it has shown the largest SR. How does the DM4 affect the Gaussian beam propagation? Using Eq. 3, the SRs for Gaussian beams with  $2\omega_0 = D$  and  $2\omega_0 = D/3$  widths (Fig. 1) were calculated to be 0.969 and 0.984, respectively. If we consider the far-field, on-axis intensity reduction due to the Gaussian beam truncation<sup>9)</sup>( $\sim 0.8$ , and  $\sim 0.99$ , respectively), one will get reduced SRs ( $\sim 0.775$  and  $\sim 0.974$ , respectively). This was one of the reasons why a Gaussian beam with  $2\omega_0 = D/3$  width was used in the field experiments.

Next, to investigate how well the DM4 will correct atmospheric aberrations, we performed the following experiments: a *known* phase aberration was generated on the DM4 and measured by the ZYGO interferometer. Then, from the measured phase profile, the *known* phase aberration was subtracted. The remaining phase residuals were analyzed in terms of the SR. Three examples are shown in Fig. 4. The *rms* deviations were measured to be 0.038  $\mu\text{m}$ , 0.045  $\mu\text{m}$ , and 0.072  $\mu\text{m}$  for Ast45, Ast90, and SphAb3 Zernike aberrations, respectively, and corresponding SRs were calculated to be 0.951, 0.932, and 0.835. For low-order aberrations Ast45 and Ast90, the SRs are quite good, while for high-order SphAb3, it is a bit lower. Here we note that in many applications SR value above 0.8 is considered to be “diffraction limited”<sup>10)</sup>.

Using Eq. 3, the corresponding SRs for a Gaussian beam with a width  $2\omega_0 = D/3$  were calculated to be 0.97, 0.95,

and 0.85 for Ast45, Ast90, and SphAb3 aberrations, respectively. As we have already mentioned above, the truncation effect for this case is negligible.

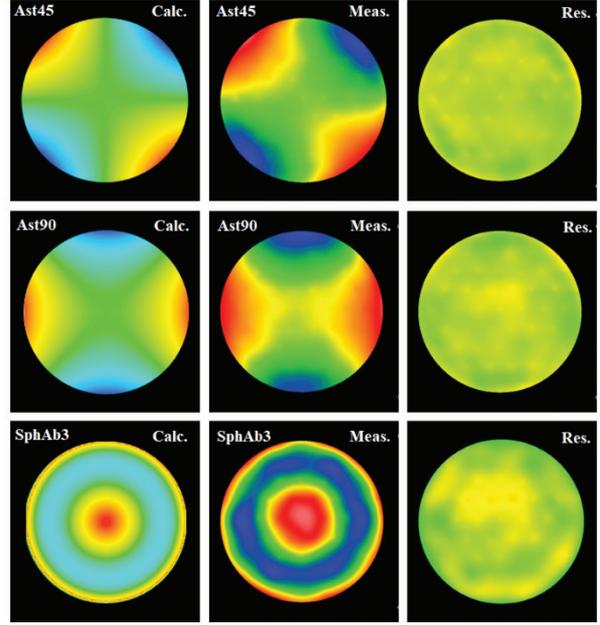


Fig. 4. First column: *known* (calculated) phase aberrations (top to bottom: Ast45, Ast90, and SphAb3); Second column: corresponding measurements; Third column: phase residuals. The color codes for the calculated (Mathcad; first column) and measured (ZYGO-AMETEK; second and third columns) phase distortions differ. The color code for the phase residuals is the same as in Fig. 3.

Interestingly, the SRs estimated by Eq. 3 are fractionally larger than those estimated by Eq. 5. This is because the phase gradients in the central part of the DM, where most power of the Gaussian beam is concentrated, are moderate and well compensated, while the edges of the DM, where the correction error is larger, do not contribute much to the beam’s SR in the discussed aberrations. For other Zernike aberrations such as ComX and ComY, the opposite effect could take place, because, in those aberrations, the phase gradients in central parts of the DM are larger. Another reason for the difference between the results calculated by Eq. 3 and Eq. 5 could be the possible presence of correlated phase noise, the absence of which was a condition for deriving Eq. 3.

## 6. Summary and Conclusions

In this report, we have elucidated the interrelation between the beam quality metrics  $M^2$ , Strehl ratio SR, and the deformable mirror's wavefront *rms* deviation  $\sigma$ . We have shown that the SR of the system is correlated with the  $\sigma$  while the  $M^2$  is not.

We have constructed an experimental setup for characterizing the performance of DMs with different numbers of PAs and aspect ratios. The *rms* phase error  $\sigma$  for several deformable mirrors developed at the Institute for Laser Technology, have been directly measured, and their SRs were determined when used with flattop- and Gaussian intensity distribution beams, respectively.

Analysis of a deformable mirror with a 10 cm diameter, 2 mm thickness, and 61 piezo-actuators (DM4) was presented to show the DM influence on Gaussian beam propagation. The peculiarities of the SR determination for a Gaussian beam have been discussed. It was revealed that a Gaussian beam with 1/3 diameter of the DM shows a fractionally larger SR compared with a flattop beam. A comparison of our DMs with a commercial one indicated that the homemade DMs are of equal or better quality.

These results and analyses will lead to further performance quality improvements for our DMs in future developments.

## Acknowledgment

This work was supported by the Innovative Science and Technology Initiative for Security, ATLA, Japan.

## References

- 1) P. W. Milonni: Am. Journal of Physics, **67** (6), 476, 1999.
- 2) A. Greenaway, and J. Bumett: IoP Publishing Ltd., Bristol, 2004.
- 3) H. Chosrowjan, S. Taniguchi, Y. Inada, and M. Fujita: ILT2020 Annual Progress Report, **30**, 16, 2020.
- 4) H. Chosrowjan, Y. Inada, and S. Taniguchi: ILT2021 Annual Progress Report, **31**, 21, 2021.
- 5) A. E. Siegmann: Proc. SPIE, **1868**, 2, 1993.
- 6) T. S. Ross: Appl. Opt. **48**, 1812, 2009.
- 7) V. N. Maharajan: J. Opt. Soc. Am. **72**, 1258, 1982.
- 8) L. C. Roberts Jr., M. D. Perrin, F. Marchis, et al.: Proc. SPIE, **5490**, 504, 2004.
- 9) A. E. Siegmann: Lasers, Sec. 18.4, University Science Books, Mill Valley, CA, 1989.
- 10) H. Ottevaere, H. Thienpont: Encyclopedia of Modern Optics, 2005.

# フラッシュラマンライダーを利用した油の遠隔計測技術の開発

レーザー計測研究チーム

染川智弘

## 1. はじめに

日本の領海・排他的経済水域は国土面積の 12 倍程度も大きく、海底鉱物・エネルギー資源の採掘、CO<sub>2</sub>の大規模削減を目指す CCS (Carbon dioxide Capture and Storage)、海底パイプラインなど、有効な海底利用が期待されている。海底開発では資源探査手法の開発だけでなく、海底インフラのメンテナンスや事故の早期発見、開発に伴う海洋生態系・環境への影響評価が重要とされている。現状の採取・採水測定による海中環境の評価は、頻度や評価可能なエリアに限度があるため、広範囲な領域を短時間でモニタリングが可能な水中ライダーを開発している<sup>1,3)</sup>。

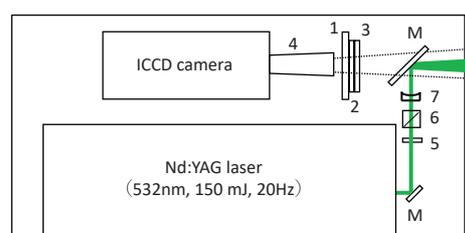
ライダーで水中物質・ガスの 3D イメージを取得する方式には、スキャン方式とフラッシュ方式がある。スキャン方式は、コリメート光の送出方向をガルバノミラーなどによって高速に走査し、そのライダー信号を連続で取得することによって 3D イメージを得るものである。一方、フラッシュ方式ではカメラ撮像のように、カメラの視野内にレーザーを拡散照射することによって得られる 2D イメージの取得時間を時間的に掃引することで 3D イメージを撮像する。フラッシュ方式は、レーザーの走査が不要であることから、撮像画面内の時刻ずれのないイメージが得られるというメリットはあるが、レーザー光を拡散ビームにするために、単位面積あたりのビーム強度が落ち、微弱なラマン散乱現象などへの応用は少なく、測距などにしか利用されていない。これまでに、SO<sub>2</sub> ガスの吸収ラインがある波長 217 nm 帯のレーザーを利用した共鳴ラマン効果を利用したフラッシュライダー技術を開発し、SO<sub>2</sub> ガス漏えいの 3D イメージの撮像に成功している<sup>4)</sup>。海中での CO<sub>2</sub> ガスの漏洩などを想定すると、大気中の微量有害物質検知に比べて濃度が濃いことが想定されるため、通常の日発ラマンを利用した

フラッシュラマンライダーによる海中モニタリング手法への適用検討を開始した。

本報告では、油が入った石英セルを観測点から 6 m 離れた位置に設置し、フラッシュラマンライダーによる大気中での模擬実験結果について報告する。フラッシュラマンライダーで得られる撮像画面内の時刻ずれのない広範囲なイメージ測定は、海中の漏洩モニタリングに有効ではないかと考えらえる。

## 2. フラッシュラマンライダーによる油の遠隔測定技術の開発

図 1 にフラッシュラマンライダーの光学配置図を示す。レーザーは水の透過率が高い波長 532 nm のパルスレーザーであり、パルスエネルギーは 100 mJ、繰り返し周波数は 20 Hz である。このレーザーを焦点距離 200 mm の凹レンズで 6 m 先の大気中に設置した水を入れた 500 ml のペットボトルとキャノラ油を入れた 40 mm×20 mm (厚み: 10 mm) の蛍光セルに拡散照射した。6 m 先でのビーム径は約 200 mm である。散乱光は、波長 532 nm のエッジ・ノッチフィルターでレイリー光を除去したのち、油、水のラマン波長であるそれぞれ 628, 649 nm の干渉フィルターで測定波長を制限し、ゲート機能付きの ICCD カメラで撮影した。測定の積算回



1: Filter wheel( Oil: 628nm(FWHM: 2 nm), H<sub>2</sub>O: 649nm (FWHM: 2 nm) )  
2: 532 nm edge filter      3: 532 nm notch filter      4: Camera lens  
5: Half wave plate      6: Polarizing beamsplitter cube      7: Plano concave lens

図 1 フラッシュラマンライダーの光学配置図

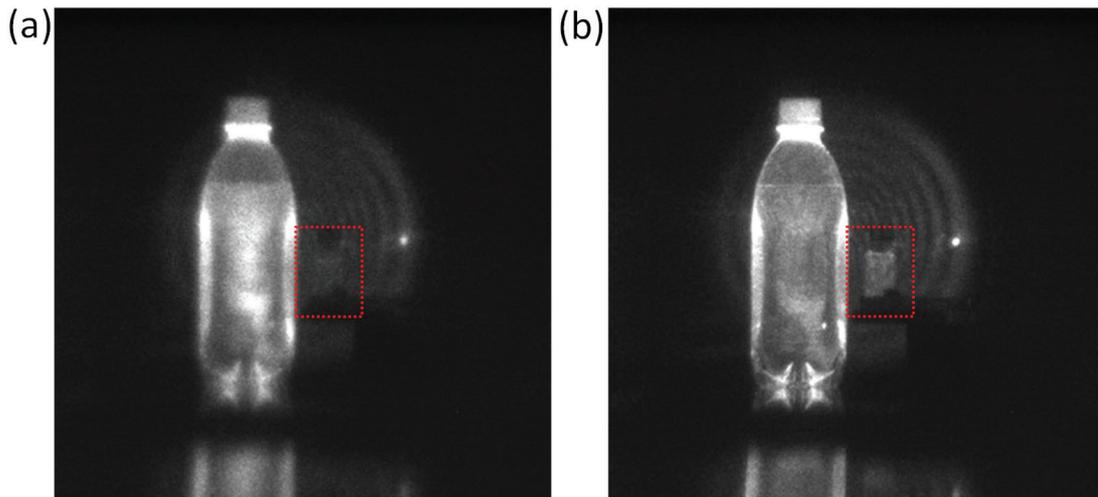


図2 フラッシュラマンライダーによる6 m先に設置した水を入れたペットボトルと蛍光セル中の油の(a)水、(b)油のラマン波長での撮影画像

数は100回であり、ICCDカメラのゲート幅は6 nsとして、ペットボトルなどの撮影画像強度が最大となるようにICCDカメラの遅延時間を調整した。

図2にフラッシュラマンライダーによる6 m先に設置した水を入れたペットボトルと蛍光セル中の油の(a)水、(b)油のラマン波長で撮影した測定結果を示す。油のラマン信号は水のラマン信号の裾にあるために、水のペットボトルは両画像で確認できるが、点線で囲った油のセルは油のラマン波長でのみ観測されている。以上のように、フラッシュラマンライダーでは測定したい物質のラマン波長の干渉フィルターを用いて画像を取得することによって物質を識別し、その位置や形状を画像として取得することが可能になる。また、ICCDカメラの遅延時間をコントロールすることによって位置情報の取得も可能である。

### 3. まとめ

水中ライダーによる環境モニタリングを効率的に実施するために、フラッシュラマンライダーの開発を開始

した。水、油のラマン波長での撮影画像から大気中で6 m先に設置した油の識別に成功した。今後は水中にある油の識別を実施したい。

### 謝辞

本研究はJSPS 科研費JP22H03756の支援を受けたものである。関係各位に深く感謝の意を表します。

### 参考文献

- 1) T. Somekawa, A. Tani, and M. Fujita: Appl. Phys. Express, 4, 112401, 2011.
- 2) T. Somekawa, J. Izawa, M. Fujita, J. Kawanaka, and H. Kuze, Opt. Commun. 480, 126508 (2021).
- 3) T. Somekawa, J. Izawa, M. Fujita, J. Kawanaka, and H. Kuze, Appl. Opt., 60, 7772, 2021.
- 4) T. Somekawa, Y. Ichikawa, M. Ogita, S. Sugimoto, H. Chosrowjan, S. Taniguchi, I. Asahi, Opt. Commun., 513, 128083, 2022.

# Investigations of Spectrally Tunable Nanosecond Laser Pulse Compression Characteristics by Stimulated Brillouin Scattering (SBS) Technique

Laser Process Research Team

Haik Chosrowjan, Seiji Taniguchi, and Toshihiro Somekawa

## 1. Introduction

There are many pulse compression techniques to increase the peak power of the laser pulses. In the ultrafast regime, techniques using prism- or grating pairs are applied to compress an optical pulse<sup>1)</sup>. However, these methods cannot be applied to nanoseconds (ns) duration pulses. Outside the optical resonator, pulse compression from several ns to sub-ns can be done by utilizing only nonlinear light-matter interactions such as stimulated Brillouin scattering (SBS)<sup>2)</sup>.

SBS pulse compression in liquids has been investigated for many years<sup>3)</sup>. Different SBS liquids and compression geometries, such as single-, double-cell, counter-propagating pulses, etc., have been utilized so far<sup>4)</sup>. Analysis of the available literature indicates that more than 50 times pulse compression factors and energy efficiencies as high as 95 % can be achieved. Most investigations, however, were performed at discrete wavelengths (1064 nm, 532 nm, etc.) using quite long (1 – 3 m) SBS amplifier cells<sup>5)</sup>. The primary goal in previous investigations was compressing Joule class, 5 – 20 ns duration optical pulses as short as possible (~ 100 ps) for application in the inertial confinement fusion reactions as an ignitor-shock spike<sup>6)</sup>.

In our investigations, we have set a goal to study pulse compression characteristics of low energy (tenths of mJ), tunable, varying duration ns pulses. Such pulse systems could have applications, for instance, in material processing or remote resonance Raman spectroscopy (RRS). In the latter case, strict conditions are applied to the excitation light sources. Broadly tunable lasers generating high energy, high peak power, and short but narrowband laser pulses are required. One such laser system satisfying most of the requirements is the tunable Ti:Sapphire laser operating in gain-switching mode<sup>7)</sup>. The

laser emits pulses at a 15 Hz repetition rate and several- to a tenth of mJ energy in a spectral range between 680 nm – 1000 nm. Although the second, third- and fourth harmonics can be easily generated to cover a broad spectral region down to ~ 210 nm, the shortest pulse duration obtained in such a system is about 15 ns. An additional inconvenience arises from the pulse duration dependence on the emitting wavelength, e.g., ~ 15 ns at 800 nm vs. ~ 30 ns at 880 nm. To increase the peak power and brightness of the pulses, minimize the pulse duration spread versus the wavelength, and achieve a good S/N ratio in, for instance, long-range RRS measurements, two strategies can be applied: increasing the pump power or compressing the ns pulses to sub-ns duration. Due to the limitations of power upscaling, pulse compression seems to be the most viable option.

In our previous report<sup>8)</sup>, the pulse compressor system with the new variable-length, compact (folded) SBS amplifier cell for ns pulse compression applications was described. An SBS pulse compressor was designed and built. Pulse compression experiments of ~ 18 ns duration, ~ 30 mJ energy Ti:Sapphire laser pulses at 780 nm, 800 nm, and 820 nm were performed. Although the pulses could be compressed from 18 to 8.7 ns, the SBS energy conversion efficiency decreased to ~ 30%. The main problems hindering the pulse compression ratio and energy conversion efficiency have been identified.

In the present report, we describe efforts to solve the identified problems. Firstly, to reduce the linewidth of the optical pulses, we have used a Fabry-Perrot etalon inside the laser resonator. Second, the effective SBS interaction length has been optimized, and third, the performance of another SBS liquid (FC-40 fluorocarbon) with a shorter phonon lifetime has been tested.

## 2. Stimulated Brillouin Scattering (SBS) phenomenon

SBS is an inelastic interaction between light and sound. It can be described by the 3rd order term of the polarization induced in the medium by the applied optical field. It is associated with the nonlinear  $\chi^{(3)}$  coefficient of the electric susceptibility of the material. SBS is a fully understood and mathematically described physical phenomenon<sup>9)</sup>, so in this article, we will not go beyond qualitative explanations. Briefly, SBS is initiated by spontaneous Brillouin scattering of light from the background phonon field of the medium created by thermal noise fluctuations. The phonon field consists of a periodic pressure variation, and thus a refractive index variation in the medium. The applied incident laser pump then interferes with the Stokes scattered light to increase the amplitude of the phonon field.

There are many applications of the SBS phenomenon, for instance, phase conjugation, optical limiting, coherent beam combination, pulse compression, etc. In the following, we will briefly describe the SBS pulse compression process.

SBS pulse compression is a Brillouin self-amplifying process converting a pump pulse to a Stokes-shifted pulse with considerably reduced pulse duration. Fig. 1 illustrates the principle of the SBS pulse compression process. A pump pulse is focused into the SBS cell producing a backward scattering Stokes pulse at the focus. The rising edge of the Stokes pulse sweeps through and depletes the counter-propagating pump pulse, converting the energy from the pump pulse into a temporally compressed Stokes pulse during the interaction.

In designing a pulse compressor, sufficient interaction length of the pump and Stokes pulses is required to ensure a high compression factor. As the SBS begins from the leading edge of the pulse, the interaction length should be no less than half the characteristic length of the pulse in the SBS cell defined as:

$$L_S = \frac{\tau * c}{2n} \quad (1)$$

Here  $\tau$  is the pump pulse duration (FWHM),  $c$  is the light

velocity, and  $n$  is the refractive index of the medium. For instance, to compress 20 ns pulses effectively, one would need a conventional SBS cell as long as  $\sim 2.4$  m.

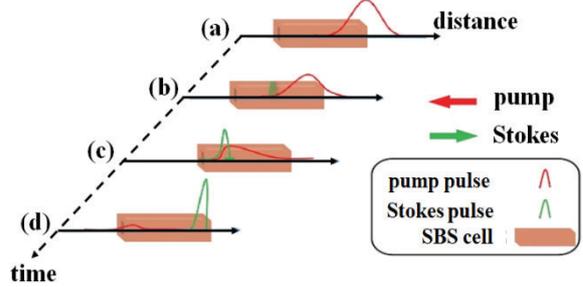


Fig. 1. Illustration of the SBS pulse compression process: (a), (b), (c), and (d) points on the time scale are representative moments for the pump pulse (red) entering the SBS cell, generating a counterpropagating Stokes wave (green), amplifying it by depleting the pump pulse, and exiting the SBS cell, respectively.

The SBS medium properties also have an impact on the pulse compression ratio. For example, the medium with a longer acoustic phonon lifetime results in a longer time for establishing the phonon field that ultimately leads to the longer rising edge of the Stokes pulse hence, to realize a higher pulse compression ratio, an SBS medium with a shorter acoustic phonon lifetime should be chosen. Fluorocarbons (FC-72, FC-70, FC-40, etc.) are widely used SBS media due to their broad Brillouin linewidth, acceptable gain coefficients, thermal and chemical stability, transparency in the 400 – 1100 nm spectral region, fast phonon lifetimes, etc. In the present experiments, FC-72 and FC-40 liquids with  $\sim 1.2$  ns and 0.2 ns phonon lifetimes,  $\sim 6$  cm/GW and  $\sim 3.8$  cm/GW SBS gain coefficients, and  $\sim 270$  MHz and  $\sim 1292$  MHz Brillouin bandwidths were used, respectively.

## 3. Experimental setup and results

The modified scheme of the SBS pulse compressor with the variable-length (folded), compact SBS amplifier, where the amplifier and the generator cells are merged into one cell, is presented in Fig. 2.

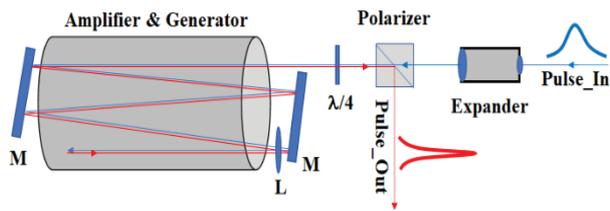


Fig. 2. Modified Schematic diagram of the pulse compression system using the variable-length SBS cell for SBS interaction length optimization.

Linearly polarized pump pulse (blue) passes the polarizer,  $\lambda/4$  plate, SBS cell with 50 cm length, and is tightly focused into the SBS cell using the lens L ( $f = 50$  cm). The generated SBS wave (red) propagates back, is amplified in the same SBS cell, and is extracted from the polarizer. By changing the angles of two mirrors (M) relative to the amplifier cell windows, one can control the round-trip numbers of the laser pulse in the cell to optimize the interaction length (temporal overlap) between the pump and generated pulses in the amplifier.

In Fig. 3, a snapshot of the experimental setup is presented. A Ti:Sapphire laser operating in the gain-switching mode with the following parameters: 15 Hz repetition rate, 10 ~ 30 mJ/pulse energy, 15 ~ 30 ns FWHM pulse duration, 680 – 1000 nm spectral tuning range, ~ 50 pm ( $\sim 0.72$   $\text{cm}^{-1}$ ) linewidth,  $M^2 \sim 1.6$ , was used. FC-72 and FC-40 fluorocarbon liquids were used as SBS liquids.



Fig. 3. Experimental setup of the SBS pulse compression system.

The SBS backward reflectivity (efficiency) from the FC

liquid was compared with the case when a conventional mirror ( $R = 99.5\%$ ) was set in place of the SBS cell unit. In the case of the mirror, the total efficiency (ratio of the output to input pulse energies) for the whole optical system comprising of a beam expander, polarizer, and a  $\lambda/4$  plate, was measured to be  $\sim 80\%$ , i. e., the linear optical losses of the whole system were estimated to be  $\sim 20\%$ .

Firstly, to reduce the linewidth of the optical pulses, we have inserted a Fabry-Perrot etalon inside the laser resonator. In this way, the pulse bandwidth at 820 nm was reduced from 50 pm to about 5 pm (from 22.3 GHz to 2.23 GHz). Second, the effective SBS interaction length has been optimized. Although Eq. 1 predicts the optimum interaction length to be  $\sim 2$  m, we set it at about 1.5 m (3 passes) to reduce the linear optical losses of the system. And finally, to improve the SBS performance efficiency, the FC-40 fluorocarbon with a shorter phonon lifetime was used.

In Fig. 4, the pulse FWHM dependence on the wavelength for two SBS liquids and  $L_S \sim 1.5$  m effective interaction length in comparison with the same dependence, but without a compressor, is presented.

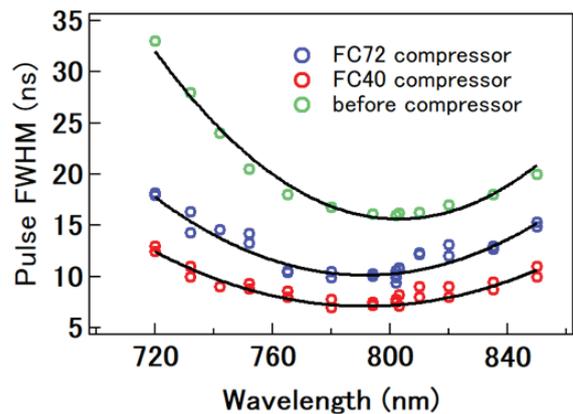


Fig. 4. Pulse FWHM dependence on the wavelength for FC-40 and FC-72 SBS liquids ( $L_S \sim 1.5$  m) in comparison with the pulse FWHM before the compressor.

As expected, due to the shorter phonon lifetime (0.2 ns vs. 1.2 ns), the compressed pulse FWHM in FC40 vs. FC72 was more

efficient. The SBS energy conversion efficiency at around 770 - 800 nm range (Fig. 5), on the other hand, was still low,  $\sim 0.55$  ( $\sim 0.7$ , if linear optical losses of the system are taken into consideration) for both FC-72 and FC-40 SBS liquids. Compared with the case without inserting the etalon and the same effective length of the SBS cell ( $L_S \sim 1.5$  m or 3 passes), the pulse width decreased from 11.2 ns to 7.0 ns, and the energy efficiency improved from  $\sim 42\%$  to  $\sim 55\%$ . Our analysis shows that the main reason for the low energy conversion efficiency is still the short coherence length of the pump pulses ( $L_c \sim 13.5$  cm, bandwidth  $\sim 2.23$  GHz). Compared with the SBS interaction length, the laser beam coherence length is still about 10 times smaller. We note that for transform-limited pulses with a Gaussian profile, 18 ns pulses would have about 25 MHz bandwidth or more than 3 m coherence length.

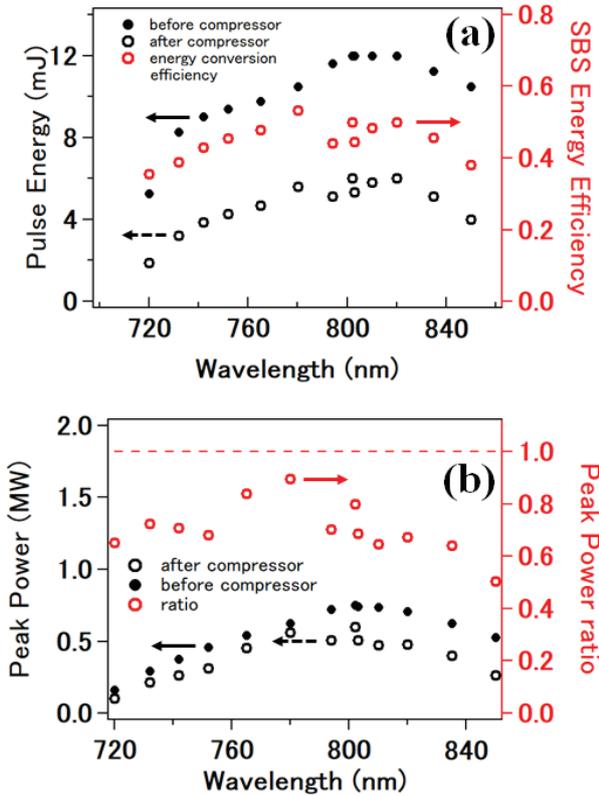


Fig. 5 (a) Pulse energy before and after the compression, and the energy conversion efficiency for FC-72; (b) Pulse peak power before and after the compression, and their ratio for FC-72. Similar results were obtained also for FC-40.

Obviously, the pulses generated by the gain-switching technique have much broader ( $\sim 100$  times) spectra. To increase the efficiency of the SBS process, which is an inherently coherent process by its nature, pulses with longer coherence length (narrowband) must be used. Increasing the coherence length physically means increasing the coherent portion of the interaction length between the pump- and the Stokes waves and enhancing the energy transfer rate/efficiency from the pump- to the Stokes pulse.

Finally, if one compares the pulse bandwidth ( $\sim 2.23$  GHz) with the Brillouin bandwidths of FC-72 ( $\sim 0.27$  GHz) and FC-40 ( $\sim 1.292$  GHz), it becomes clear that the pulse spectrum is broader than the gain spectrum in both media hence, a conversion efficiency loss is unavoidable.

In our forthcoming experiments, we will build an SHG unit and investigate the SHG conversion efficiency and stability of the compressed pulses in a broader spectral region. Our goal will be to obtain shorter SHG pulses and higher peak power for compressed pulses compared with the pulses before the compression.

#### 4. Summary and Conclusions

In this report, we have described the optical pulse compression principle based on the stimulated Brillouin scattering (SBS) phenomenon. A variable-length, folded SBS amplifier cell was employed to compress ns pulses. Pulse compression experiments using ns laser pulses in 720 – 850 nm spectral region were performed using two SBS liquids. Pulse compression characteristics in terms of pulse compression factor and energy conversion efficiency were presented and discussed. The main problems hindering the improvements of the pulse compression ratio and energy conversion efficiency have been identified, and efforts are being made to solve them.

#### Acknowledgment

This work is supported by the JSPS KAKENHI Grant Number 21K04934.

## References

- 1) M. Seidel, J. Brons, G. Arisholm *et al.*, Scientific Reports, **7** (1410), 1–8, 2017.
- 2) T. Omatsu *et al.*, Laser and Particle Beams **30**, 117–174, 2012.
- 3) Z. Bai *et al.*, Optical materials, **75**, 626–645, 2018.
- 4) S. Schiemann *et al.*, IEEE Journal of Quantum Electronics **33**, 358–366, 1997.
- 5) C. Feng, X. Xu, and J. C. Diels, Opt. Express, **25/11**, 12421–12434, 2017.
- 6) W. Theobald, R. Betti, *et al.*, Physics of Plasmas, **15**, 056306, 2008.
- 7) [https://www.rp-photonics.com/gain\\_switching.html](https://www.rp-photonics.com/gain_switching.html)
- 8) H. Chosrowjan, S. Taniguchi, and T. Somekawa: ILT2022 Annual Progress Report, **33**, 27–30, 2022.
- 9) M. O'Connor, Doctoral Thesis, the University of Adelaide, <https://drmc.library.adelaide.edu.au/dspace/bitstream/2440/19099/4/02whole.pdf>, 1–173, 1997.

# レーザーを用いたトンネル切羽の浮石検知に関する研究

レーザー計測研究チーム

倉橋慎理、染川智弘、

<sup>1</sup> 新村亮、<sup>1</sup> 鈴木健一郎、<sup>1</sup> 谷口信博、<sup>1</sup> 奥澤康一、<sup>1</sup> 渡辺淳、<sup>1</sup> 川北章悟

<sup>1</sup> 株式会社大林組

## 1. はじめに

山岳トンネルの工法は、以前は矢板と呼ばれる土留め用の板を掘削外周面にあてがい、支保工により支え、これらをコンクリートで巻き立てることにより土圧を覆工で支持する矢板工法（在来工法）による施工が一般的であったが、1980年代以降は、掘削後直ちにコンクリートを吹き付け、支保工、ロックボルトを併用し地山の保持力を利用してトンネルを保持する工法を用い、掘削に伴う変形が収束した後で覆工を施す、NATM（New Austrian Tunneling Method）と言われる施工が主流となった。

切羽とよばれる山岳トンネル工事における掘削の最先端では地山が露出しており、浮き石と呼ばれる地山から剥離した岩石の落下等（肌落ち）による労働災害がたびたび発生している<sup>1)</sup>。作業員が切羽に近づいて実施する装薬、支保工建込などの作業で災害発生が多い<sup>2)3)</sup>。肌落ち防止対策の一つに、浮石落とし（「こそく」とも呼ばれる。）がある。「こそく」はブレーカー等の建設機械を用いて比較的小さな浮石を予め落とす作業のことを示す。「こそく」に多くの時間がかかると、掘削した地山を長時間大気に開放することとなり、地山の状態に変化が生じ肌落ちにつながる恐れがあるため、作業は迅速に行われる必要がある。浮石の確認作業など、作業員がやむを得ず切羽に近づく機会があるが、これを低減するための機械化や遠隔化などの技術が防護対策として望まれている。

山岳トンネル工事の現場ではレーザー距離計を用いた切羽監視技術が導入されている。複数台のレーザー距離計を用いて切羽の押し出しなど地盤の変位を任意の時間間隔で計測し、予め設定した管理基準値を超えた場合、

切羽作業員に注意喚起を行うシステムである。

レーザー技術総合研究所では、これまでレーザーによるトンネルコンクリートの欠陥検査技術を開発してきた。レーザー法は、パルスレーザーを照射してコンクリート内に振動を誘起し、その表面振動をレーザーで検出するものであり、実際の鉄道トンネルや道路トンネルにおいて、コンクリートの浮きを検出する実証試験を行ってきた<sup>4)5)</sup>。また、山岳トンネル工事の現場でこれらの技術を適用するための研究を2018年度より継続して実施しており、切羽における浮石も、原理的にはコンクリートの浮きと同様に、浮石の形状や周囲との接触の状態によって決まる固有のモードで振動することを示した<sup>7)8)</sup>。上述したレーザー距離計を用いた監視技術が比較的長い周期の変位量を計測しているのに対して、本技術では短時間の振動を計測することで浮石を直接検知するものである。

2022年度は、実際の山岳トンネル工事現場の切羽において浮石検知の実証試験を実施した。本稿ではそれらの結果について報告する。

## 2. 実証試験

### 2.1 概要

実際の山岳トンネル工事現場の切羽において浮石検知の実証試験を実施した。バックホウと呼ばれる建設機械の先端に油圧ブレーカーを装着して地山の岩盤を打撃して弾性波を発生させ、岩盤を伝播してきた弾性波を、レーザー振動計（Polytec社、PSV Qtec）を用いて検出した。

計測の様子を図1に示す。切羽から約20 m離れた位置に振動計測装置を設置した。レーザー振動計システム



図1. 実際の計測の様子

にはガルバノミラーが内包されており、計測面の走査が可能である。ブレイカー先端の「のみ」が岩盤を打撃したときに発生した音を、マイクで検出し計測装置のトリガ信号とした。マイクに打撃音が到達する時刻は、計測点に弾性波が到達する時刻より後になるため、計測システムにはプレトリガ機能を持たせ、トリガ時刻以前の信号も記録できるようにした。また、各計測点を直接ブレイカーで打撃し、それぞれの計測点の健全性（浮石の有無）を確認した。

## 2.2 方法

図2に計測領域と打撃位置を示す。計測範囲は約3m×3mで、計測間隔は約50cm、7×7の49点で振動データを取得した。各計測点を左上から左下に向かって1、2、…、7とし、1の右となりを8、以下同様に右下が49となるよう名前を付けた。ブレイカーによる打撃箇所は、計測範囲の左上で、健全で安定した岩盤とした。

プレトリガをトリガ時刻の100ミリ秒前に設定し、マイクに打撃音が到達する前後100ミリ秒間のレーザー振動計から出力された信号波形を取得し、得られた信号

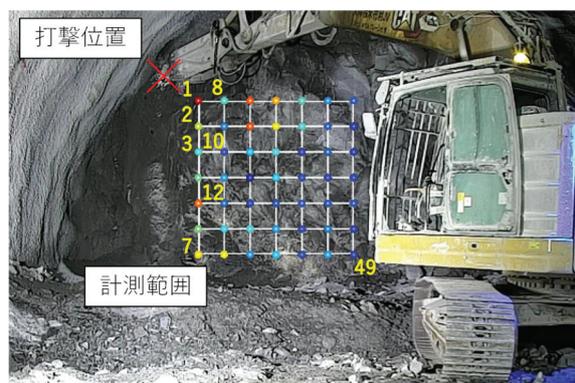


図2. 計測範囲と打撃位置

四角で囲った範囲が計測範囲、×印が打撃位置を示す

波形に対して高速フーリエ変換とウェーブレット変換を行い、それぞれ振幅スペクトルとスカログラムを得た。

## 2.3 結果と考察

図3に計測箇所10で計測された信号波形、スカログラム、振幅スペクトルを示す。この箇所は計測終了後のブレイカー打撃による検査の結果、浮石であったことを確認している。信号波形は時系列データを示しており、縦軸がレーザー振動計から出力された電圧、横軸が時間

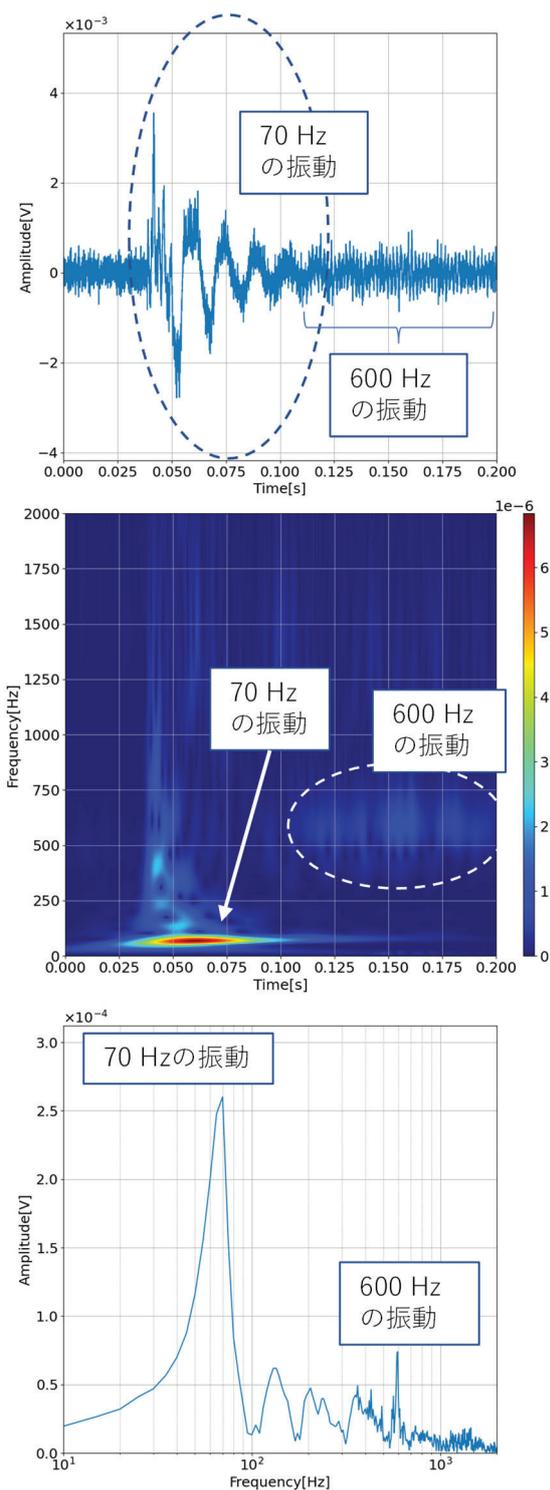


図3. 計測箇所10における (上) 振動波形、  
(中) スカログラム、(下) 振幅スペクトル

となっている。電圧に較正值をかけることで、ドップラ一速度に変換することが可能である。スカログラムは時系列データの時間周波数変換を示しており、縦軸が周波数、横軸が時間で、各時刻におけるそれぞれの周波数成

分の振幅をコンター図で表している。振幅スペクトルは、各計測点における計測時間 200 ミリ秒間での周波数特性を示し、縦軸が振幅、横軸が周波数を表している。

計測箇所10では、ブレーカー打撃により励起された振動の主成分たる周波数が約70 Hzであり、100 ミリ秒以上かけて減衰していく様子が見られた。また、マイクに打撃音が到達した時刻である100 ミリ秒以降に、約600 Hzの振動が検出されていることが分かった。

図4に計測箇所12で計測された信号波形、スカログラム、振幅スペクトルを示す。この箇所は計測終了後のブレーカー打撃による検査の結果、浮石でなかったことを確認している。各グラフの縦軸、横軸は図3と同じで、振幅のスケールのみが異なる。

計測箇所12では、ブレーカー打撃により励起された振動の主成分たる周波数が約500 Hzであり、10 ミリ秒程度ですぐに減衰していく様子が見られた。また、計測箇所10と同様に、マイクに打撃音が到達した時刻である100 ミリ秒以降に、約600 Hzの振動が検出されていることが分かった。

また、他の計測箇所においても、計測された信号の周波数や減衰の特徴が以通った箇所では、計測終了後のブレーカー打撃による検査の結果が同様の傾向を示すことを確認した。

健全に近い状態の岩盤ではブレーカー打撃により励起された弾性波が表面近傍を伝播する様子を計測することになり、比較的高い周波数の振動が見られたと考えられる。一方、岩盤に生じたひび割れや亀裂などの不連続面が浮石を形成する一因であるとする、浮きであるとされた岩盤では表面近傍を伝播する波は、起振点と計測点の間に不連続面が存在する場合、高周波成分が減衰し回折してきた低周波成分が検出されると考えられる。

表面近傍を伝播する弾性波は、周波数によって伝播する深度が異なることが知られており<sup>9)</sup>、高い周波数は地盤の浅い範囲を、低い周波数は地盤の深い範囲まで、地表面に沿って伝播していくため、浮きの状態にある岩盤では低周波側の成分が多く検出されると推定される。

加えて、浮きの状態にある岩盤は複数のひび割れや亀

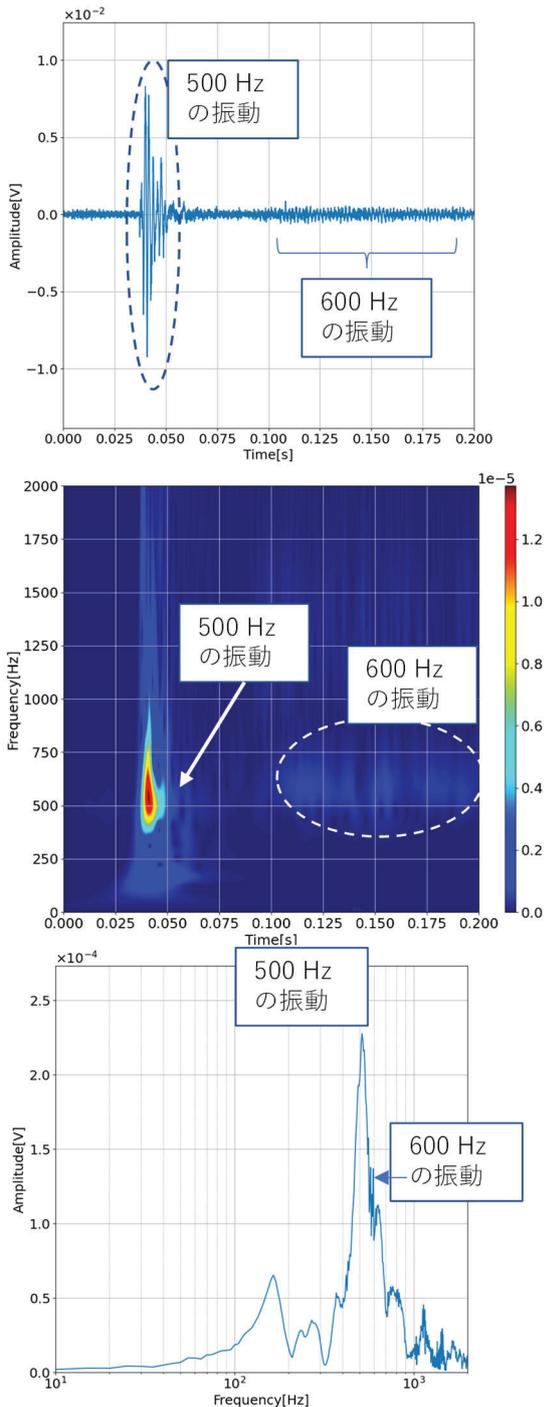


図4. 計測箇所12における(上)振動波形、  
(中)スカログラム、(下)振幅スペクトル

裂などの不連続面によって局所的に独立した構造を形成している可能性があり、その場合岩盤はいくつかの固有振動モードを持つと考えられる。計測箇所10で見られた比較的低い周波数で減衰していく振動は、ひび割れ等を回折し、浮きの状態にある岩盤に到達した弾性波のうち、岩盤の固有振動数に近い周波数成分を持つものが

共振した結果検出されたと推測される。

100ミリ秒以降に検出された約600Hzの振動はいずれの計測箇所においても検出されており、これはブレイカーによる打撃音が計測装置まで到達し、装置の固有振動モードで共振したためと考えられる。トンネル内のような閉鎖された環境では反響音があるため、長時間にわたって検出されたとと思われる。

### 3. まとめ

実際の山岳トンネル工事の現場において、現場にある建設機械を用いて岩盤を打撃し、その際生じる振動をレーザー振動計で計測することで、遠隔より浮石の検知を行う手法を提案し、実証試験を実施した。

各計測箇所において得られた結果と、計測終了後にブレイカーを用いて計測箇所を直接打撃し検査を行った結果を比較した。レーザー振動計により計測された振動で、比較的低周波成分のピークを持ち、長時間持続しながら減衰していく振動が検出された箇所では、のちのブレイカーによる検査で、浮きの状態にあると判断される傾向が見られた。

岩盤の岩質やひび割れなどの不連続面の配置、など様々な要素により周波数応答が異なると考えられるため、統一的な指標を示す手法の開発が引き続き求められる。また、並行して浮石の検知を自動で行うためのアルゴリズムの開発、重機オペレーターへの落とすべき浮石の指示方法、など、実用化へ向けた検査システム全体の検討を行っていく必要がある。

### 謝辞

本研究は株式会社大林組からの受託研究として実施された。実証試験の実施にご協力いただいた伊藤正寛氏、入江貴博氏に感謝いたします。

### 参考文献

- 1) 前郁夫, 花安繁郎: トンネル建設工事における労働災害の動向, 産業安全研究所技術資料 (1974)
- 2) 厚生労働省: 山岳トンネル工事の切羽における肌落

- ち災害防止対策に係るガイドライン (2018)
- 3) (独法) 労働安全衛生総合研究所：トンネルの切羽からの肌落ちによる労働災害の調査分析と防止対策の提案、労働安全衛生総合研究所技術資料(2012)
- 4) オレグコチャエフ 他：LASER CROSS, No.355
- 5) 島田義則：ILT2018 Annual Progress report
- 6) S.Kurahashi et al. : J. Appl. Remote Sens.12(1),015009
- 7) 倉橋慎理、他：ILT2019 Annual Progress report
- 8) 倉橋慎理、他：ILT2020 Annual Progress report
- 9) 林宏一、鈴木晴彦、斎藤秀樹：人工振源を用いた表面波探査の開発とその土木地質調査への適用、応用地質技術年報 No. 21 (2001) など

# ユーロピウムの共鳴多光子還元の実率評価 — レーザーによる希少金属回収技術の開発 —

<sup>1</sup>レーザーバイオ化学研究チーム、<sup>2</sup>レーザー計測研究チーム、

中島信昭<sup>1</sup>、谷口誠治<sup>1</sup>、コスロービアン ハイク<sup>1</sup>、染川智弘<sup>2</sup>、松田晶平<sup>3</sup>、横山啓一<sup>3</sup>、  
八ツ橋知幸<sup>4</sup>

<sup>3</sup>日本原子力研究開発機構、<sup>4</sup>大阪公立大学

## 1. はじめに

持続可能な社会の実現には資源の有効利用が欠かせない。発光材料や磁性材料として身近に存在するランタノイドは希少元素として知られている。そのため、これらの分離回収技術への期待は大きい。しかし、一般的にこれらの元素の分離は難しい。多くが3価の状態にあり、外殻電子配置が共通し、イオン半径及び酸化還元電位の差が小さく、化学的性質がよく似ているためである。そこで、ランタノイドの分光学的な特徴に着目する。

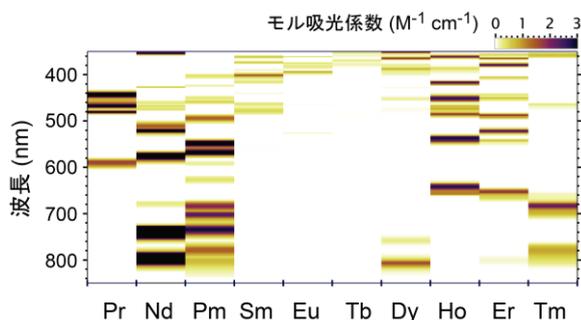


図1 ランタノイド（一部）の吸収スペクトル

図1にランタノイドのうち例として10元素を取り上げ、3価の水溶液における可視域の吸収スペクトルを示す。深さ方向の濃淡でモル吸光係数を描写した。液相であるにも関わらず、線幅の狭い元素固有の吸収ピークが確認できる。これはランタノイドの4f軌道に含まれる電子由来の $ff$ 遷移である。Laporte則では禁制であるため吸収は弱い。しかし、この選択的な吸収を利用して価数を制御、つまり、光酸化還元反応を引き起こすことができれば、異なる価数の分離は比較的容易なため、新規の分離手法として応用が期待できる。

弱い可視域の吸収を介して反応を誘起するためには、多光子励起が必要である。1970年代後半に Donohue が

$ff$  遷移を介した多光子励起による価数制御を実現することで、元素分離方法としての応用を提唱した<sup>12)</sup>。著者らのグループでも、ユーロピウム (Eu)、サマリウム (Sm)、イッテルビウム (Yb) に関して液相での実験結果を報告している<sup>36)</sup>。

一般的に、レーザーを用いた光過程をエンジニアリングまでスケールアップすることは効率の面から容易ではない。まず効率評価のためには、多光子過程の量子収率を正確に把握する必要がある。しかし、1光子過程に比べ複雑になるため難しい。そこで、ここではEuの共鳴多光子還元の実率の決定に取り組んだ。

## 2. 方法

試料は、溶質に塩化ユーロピウム六水和物 ( $\text{Eu}^{\text{III}}\text{Cl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ , 99.9%) 溶媒にメタノール ( $\text{CH}_3\text{OH}$ ,  $\geq 99.8\%$ ) を用い任意の濃度に調整した。この溶液を自作した液溜め付石英セルに入れた。溶存酸素の影響を取り除くため凍結脱気を行った後、ガラス導入管を焼き切ることで密閉した。

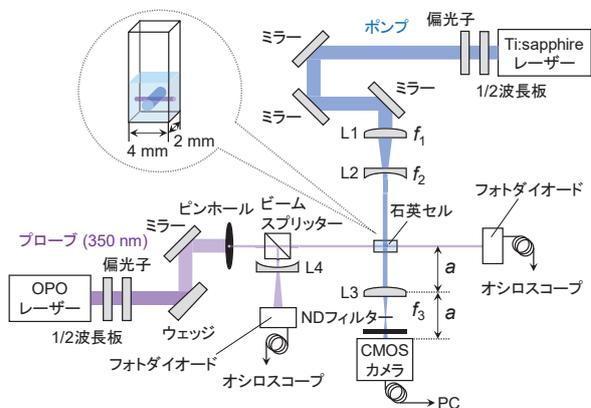


図2 光学配置の概略図。L: レンズ。  $a = 2f_3$  を満たすよう像転送した。

図2にレーザー照射のための光学配置を示す。反応誘起用にTi:sapphireレーザー(LT-2211N, LOTIS TII)を使用した(〜15 ns, 15 Hz)。出力は1/2波長板と偏光子で構成した減衰器により1~5 mJに制御した。

励起光は2枚のレンズ(L1, L2、焦点距離はそれぞれ $f_1, f_2$ )でコリメートした。励起光をL3のレンズで集光し、セル位置での像をCMOSカメラに転送することで、ビームプロファイルを取得した。図3に測定したビームプロファイルの例を示す。水平・鉛直方向それぞれの強度分布をガウス関数でフィッティングし、直径( $1/e^2$ )を見積った。断面は楕円として取り扱った。図3A, B, Cの断面積はそれぞれ $2.78 \times 10^{-2} \text{ cm}^2$ ,  $1.37 \times 10^{-2} \text{ cm}^2$ ,  $1.17 \times 10^{-3} \text{ cm}^2$ と決まった。

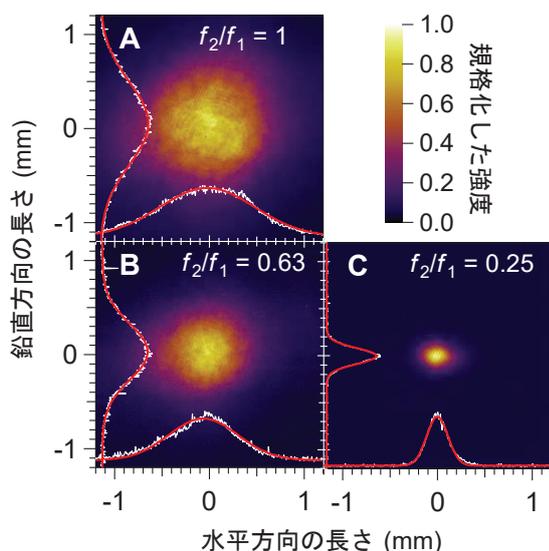


図3 励起レーザーの典型的なビームプロファイル。縮小率 $f_2/f_1$ は(A) 1, (B) 0.63, (C) 0.25。

生成物を吸光度変化により測定するためにOPOレーザー(Opolette355LD, Opotek)を用いた(20 Hz)。逆反応(1光子酸化)を抑制する目的でUVランプの使用を避けた。スペクトラムアナライザーを用い、ポンプ光とプローブ光の中心波長と線幅を確認した。ポンプ光の中心波長の正確さは $\leq 0.01 \text{ nm}$ 、線幅は $\leq 30 \text{ pm}$ 、プローブ光の線幅は $\leq 40 \text{ pm}$ であった。また、吸収スペクトルの測定には紫外可視分光光度計を使用した。

### 3. 結果と考察

#### 3.1 3価ユウロピウム( $\text{Eu}^{3+}$ )の還元

光化学反応による生成物は紫外可視吸収分光法により同定及び定量した。レーザー照射前後の差スペクトルから生成物は2価ユウロピウム( $\text{Eu}^{2+}$ )であった(図4)。これにより $\text{Eu}^{3+}$ の還元反応が誘起されることが確認できた。以下では差スペクトルにおける350 nmでの吸光度差( $\Delta A_{350}$ )を用いて生成物 $\text{Eu}^{2+}$ を定量した。

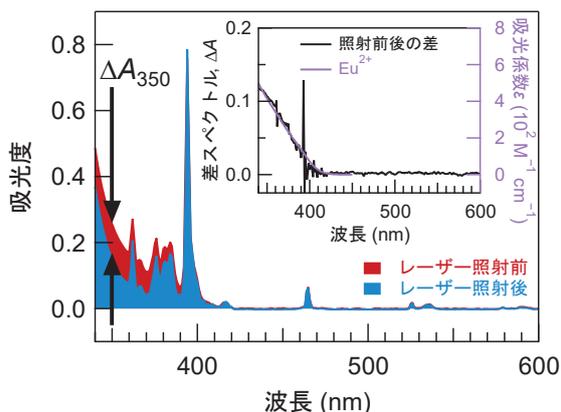


図4 励起レーザー照射前後の0.68 M  $\text{Eu}^{3+}/\text{CH}_3\text{OH}$ 溶液の吸収スペクトル。波長分解能1 nm。挿入図は照射前後の差スペクトル(左軸)と $\text{Eu}^{2+}$ のモル吸光係数のスペクトル(右軸)。

#### 3.2 励起波長依存性

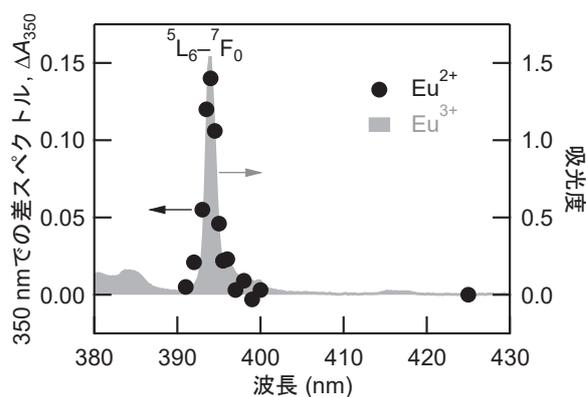


図5  $\text{Eu}^{3+}$ の共鳴多光子還元の励起波長依存性。各波長でのレーザー(5 mJ, 15 Hz)照射時間3 min。プロットは生成した $\text{Eu}^{2+}$ を意味する $\Delta A_{350}$ (左軸)。スペクトルは $\text{Eu}^{3+}$ の吸収(右軸)、波長分解能は0.2 nm。

$ff$  遷移波長での共鳴吸収により  $\text{Eu}^{3+}$  の還元反応が起こることを確認するために、 $\Delta A_{350}$  の励起波長依存性を測定した。その結果を図5にプロットした(左軸)。加えて、 $\text{Eu}^{3+}$  の吸収スペクトルも示した(右軸)。 $\Delta A_{350}$  の波長依存プロットは、 $\text{Eu}^{3+}$  の吸収スペクトルと良好に一致した。ここで、 $\text{Eu}^{3+}$  の吸収スペクトルにおける $\sim 394\text{ nm}$  のピークは、 $\text{Eu}^{3+}$  の最も強い $ff$ 遷移( ${}^6\text{L}_6 \leftarrow {}^7\text{F}_0$ 遷移)である。そのため、この結果は $\text{Eu}^{3+}$  の ${}^5\text{L}_6$ 状態を経由する共鳴吸収により $\text{Eu}^{3+}$  が還元したことを示唆している。

### 3.3 2価ユウロピウム ( $\text{Eu}^{2+}$ ) のモル吸光係数

$\text{Eu}^{3+}$  の還元反応の収率を評価するためには、 $\Delta A_{350}$  を生成物  $\text{Eu}^{2+}$  の濃度に換算する必要がある。そこで、 $\text{Eu}^{2+}$  のモル吸光係数を測定した。空気雰囲気下では $\text{Eu}^{2+}$  が容易に酸化するため、アルゴン雰囲気下のグローブボックス内で既知濃度の  $\text{Eu}^{3+}\text{Cl}_2/\text{CH}_3\text{OH}$  試料を調製し、吸収スペクトルを測定することで紫外可視域の吸光係数を決定した(図6)。 $\text{Eu}^{2+}$  の  $350\text{ nm}$  でのモル吸光係数  $\epsilon_{350}$  は  $414\text{ M}^{-1}\text{ cm}^{-1}$  であった。

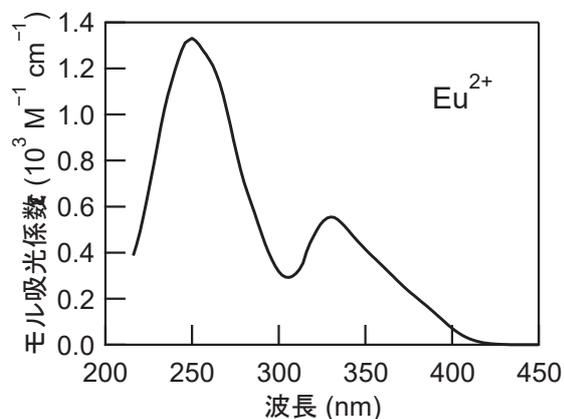


図6 メタノール溶媒中の  $\text{Eu}^{2+}$  のモル吸光係数。

### 3.4 励起光強度依存性

この還元反応は多光子過程であるため、還元効率は光子密度に依存する。励起レーザーパルスエネルギーとビーム断面積を制御し  $\Delta A_{350}$  を測定した。測定した  $\Delta A_{350}$  のレーザーフルエンス依存性を冪関数で近似し最適化すると、冪指数は光強度が低い領域 ( $\leq \sim 10^3\text{ mJ cm}^{-2}$ ) では $\sim 2$  であった。よって、観測された  $\text{Eu}^{3+}$  の還元反応を

2光子過程として解析した。

### 3.5 2光子吸収の量子収率

レーザーパルス当たりの反応確率を  $p_{\text{red}} = N_{\text{II}}/N_{\text{III}}$  と定義する。 $N_{\text{III}}$  はレーザーパルス照射前の反応領域での  $\text{Eu}^{3+}$  の数であり、 $N_{\text{II}}$  は照射後に生成した  $\text{Eu}^{2+}$  の数である。また、3準位の分布に関する微分方程式を解くことで  $N_{\text{II}}$  と  $N_{\text{III}}$  が導出でき、 $p_{\text{red}}$  は次のように表すことができる。

$$p_{\text{red}} = 1 - \exp(-\varphi_1\sigma_1h)(1 - (\varphi_1\sigma_1/\varphi_2\sigma_2)) - \exp(-\varphi_2\sigma_2h)(1 - (\varphi_2\sigma_2/\varphi_1\sigma_1)) \quad (1)$$

ここで、 $\varphi$ 、 $\sigma$ 、 $h$  はそれぞれ量子収率、吸収断面積、レーザーフルエンスである。下付きの数字は、2光子過程における1あるいは2段目の励起過程を示す。

図6に示した  $\text{Eu}^{2+}$  の吸光係数のスペクトルを眺めると、励起波長  $394\text{ nm}$  は電荷移動帯 (CTバンド) に含まれることがわかる。これは2光子還元で生成した  $\text{Eu}^{2+}$  が、同じレーザーパルスにより  $\text{Eu}^{3+}$  へ戻る逆反応 (1光子酸化) が起こる可能性があることを意味する。そのため、この逆反応を説明できるようにモデルに取り入れる。1光子酸化の反応確率  $p_{\text{oxi}}$  は次式で表せる。

$$p_{\text{oxi}} = 1 - \exp(-\varphi_3\sigma_3h) \quad (2)$$

ここで、 $\varphi_3$ 、 $\sigma_3$  はそれぞれ1光子酸化の量子収率、吸収断面積である。この量子収率  $\varphi_3$  については報告値  $\varphi_3 = 0.017$  を用いた<sup>8)</sup>。吸収断面積  $\sigma_3$  は、図6から読み取れる  $\epsilon_3 = 111\text{ M}^{-1}\text{ cm}^{-1}$  から換算した  $\sigma_3 = 4.24 \times 10^{-29}\text{ cm}^2\text{ molecule}^{-1}$  を用いた。また、観測される正味の還元反応確率  $p$  は次式で表せる。

$$p = p_{\text{red}}(1 - p_{\text{oxi}}) \quad (3)$$

ただし、励起レーザーのパルス幅が $\sim 15\text{ ns}$  であるため、1パルス間は生成物が拡散せず反応領域に留まっていると仮定した。式(3)により結果を解析するためには、 $p$

と  $\Delta A_{350}$  の関係が必要である。励起レーザー照射開始から生成物測定の間、反応領域内外の溶液が十分に混合すると仮定すると、この関係は次式で表せる。

$$\Delta A_{350} = m p N_{\text{III}} \varepsilon_{350} L^2 S / V \quad (4)$$

ここで、 $m$  はパルス数 2700、 $N_{\text{III}}$  は  $\text{Eu}^{3+}$  の初期濃度、 $L$  は光路長 4 mm、 $V$  は全溶液体積  $0.048 \text{ cm}^3$  である。

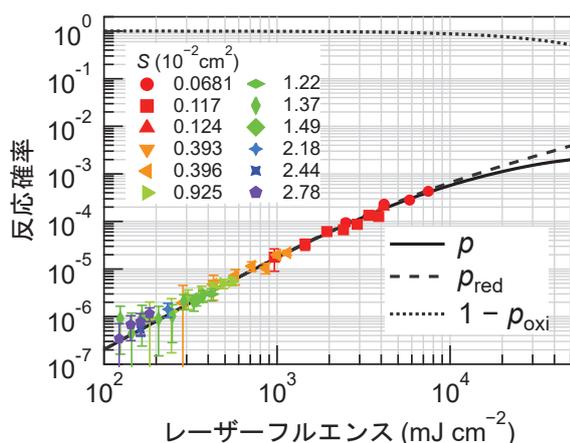


図 7 単一パルスによる  $\text{Eu}^{3+}$  の共鳴多光子還元反応確率のレーザーフルエンス依存性。

図 7 に反応確率のレーザーフルエンス依存性を示す。式(3)に式(1), (2), (4)を代入してフィッティングし、2次元の非線形最小二乗法により最適化した。フルエンス  $h$  と断面積  $S$  を独立変数とし、 $\varphi_1\sigma_1$  と  $\varphi_2\sigma_2$  をパラメーターとして扱った。最適化の結果、 $\varphi_1\sigma_1 = (4.2 \pm 0.7) \times 10^{-23} \text{ cm}^2 \text{ molecule}^{-1}$  と  $\varphi_2\sigma_2 = (2.7 \pm 0.8) \times 10^{-19} \text{ cm}^2 \text{ molecule}^{-1}$  が得られた ( $3\sigma$ )。報告値<sup>34)</sup>  $\varepsilon_1 = 2.9 \text{ M}^{-1} \text{ cm}^{-1}$  から  $\varphi_1 = (3.8 \pm 0.6) \times 10^{-3}$  と決定できた。これは  $10^{-4}$  オーダーの既報<sup>3)</sup> に比べ大きい。従来よりも広いフルエンス領域での測定と逆反応をモデルに取り入れたため、信頼性が高い。2光子目の CT バンドへの遷移の吸収断面積  $\sigma_2$  は、基底状態からの  $fd$  遷移に類似すると考えられる。そのため、 $\varepsilon_2$  を  $100 \text{ M}^{-1} \text{ cm}^{-1}$  と仮定すると、 $\varphi_2 = 0.7 \pm 0.2$  と見積ることができる。1光子で CT バンドへ遷移する 1光子還元反応の量子収率は 0.35–0.97 であるため<sup>9)</sup>、この見積値は妥当である。

#### 4. まとめ

ランタノイドに代表される希少金属元素の回収・再利用に向け、光で元素を選別する手法の確立のために、 $\text{Eu}^{3+}$  の共鳴多光子還元効率を評価した。励起レーザーの制御を工夫することで、従来よりも 1桁大きい領域でレーザーフルエンス依存性を測定することに成功した。これにより飽和を観測できた。光吸収の飽和と逆反応を組み込んだモデルを用いて解析することで、2光子吸収過程の量子収率  $\varphi_1$ ,  $\varphi_2$  を明らかにした。本研究はランタノイドの共鳴多光子電荷移動の正確な効率評価につながる。今後はより効率的な励起経路の探索に取り組みたい。なお、本記事にご興味を持たれた方は、詳細を記した原著論文 (題名: Laser-fluence dependence of resonance-enhanced multiphoton reduction of trivalent europium)<sup>10)</sup> を参照されたい。

#### 謝辞

本研究は JSPS 科研費 JP20K19999 の助成を受けたものです。厚く御礼申し上げます。

#### 参考文献

- 1) T. Donohue, *J. Chem. Phys.* **67**, 5402–5404 (1977).
- 2) T. Donohue, *Chem. Phys. Lett.* **48**, 119–121 (1977).
- 3) M. Kusaba et al., *Chem. Phys. Lett.* **221**, 407–411 (1994).
- 4) N. Nakashima et al., *J. Phys. Chem. A* **103**, 3910–3916 (1999).
- 5) D. Nishida et al., *J. Phys. Chem. A* **114**, 5648–5654 (2010).
- 6) N. Nakashima, K. Yamanaka, T. Yatsuhashi, *J. Phys. Chem. A* **117**, 8352–8359 (2013).
- 7) U. Lachish, A. Shafferman, G. Stein, *J. Chem. Phys.* **64**, 4205–4211 (1976).
- 8) D.D. Davis, K.L. Stevenson, G.K. King, *Inorg. Chem.* **16**, 670–673 (1977).
- 9) M. Kusaba et al., *J. Alloy. Compd.* **192**, 284–286 (1993).
- 10) S. Matsuda et al., *Chem. Phys. Lett.*, **802**, 139759 (2022).

# レーザーアシスト元素分離の実証

<sup>1</sup> レーザーバイオ化学研究チーム

中島信昭<sup>1</sup>、松田晶平<sup>2</sup>、横山啓一<sup>2</sup>、矢板毅<sup>2</sup>

<sup>2</sup> 日本原子力研究開発機構

## 1. はじめに

周期表において*f*ブロック元素に分類される元素群は、*f*軌道に電子が順に占有されるという特徴を持つ。第6周期の原子番号57~71までをランタノイド、第7周期の原子番号89~103までをアクチノイドと呼ぶ。

アクチノイドは使用済み核燃料に含まれる。放射性毒性が高いため、再処理後の高レベル放射性廃液をガラス固化し、長期間地層処分することが検討されている。含有される元素の中でも、アメリシウム (Am) の放射性毒性に対する寄与が大きい。そのため、Am だけ分離・回収できれば、地層処分の負担が飛躍的に軽減すると大まかに理解できる。しかし、現実には分離工程における長年の課題こそが、周期表で隣接するキュリウム (Cm) との分離、つまり、Am と Cm の相互分離である。

近年では、選択的に酸化状態を制御し、価数を変更することで分離を容易にするというアプローチがある。具体的には、配位子で表面修飾した電極を用い、電気化学的手法により Am の3価から5価あるいは6価への酸化反応を選択的に誘起することに成功したとの報告がある<sup>1)</sup>。これに対して本研究では、光により酸化状態を制御し分離につなげる「レーザーアシスト元素分離」に取り組んだ。

ここでまず、アクチノイドの分光学的性質に着目する。図1にアクチノイドの中から例として8元素を取り上げ、3価の水溶液における可視域の吸収スペクトルを示した。紙面に垂直方向の濃淡でモル吸光係数を描写した。これらの吸収ピークは、アクチノイドの5*f*軌道に含まれる電子由来の*ff*遷移である。5*f*軌道はランタノイドの4*f*軌道に比べ遮蔽されていない。特にアクチノイド系列の前半では遮蔽効果が弱いので、結果的に*ff*遷移の線幅がやや広い。

注目すべきは、Am と Cm の差である。503 nm では Am が吸収を持つのに対し、Cm は透明である。この吸収の差を利用して Am のみ酸化状態を制御することができれば、原理的には Am と Cm の相互分離を実現することが可能である。

そこで、本研究では Am 錯体の共鳴多光子電荷移動を調べ、アクチノイドで初めて共鳴多光子過程による酸化状態の制御に成功した。さらに、核分裂生成物の模擬としてプラセオジウム (Pr) を加えた2元素混合系からの Am 分離にも成功し、レーザーアシスト元素分離を実証した。なお、放射性同位元素に関する実験は、日本原子力研究開発機構 (JAEA) の放射線管理区域で行った。

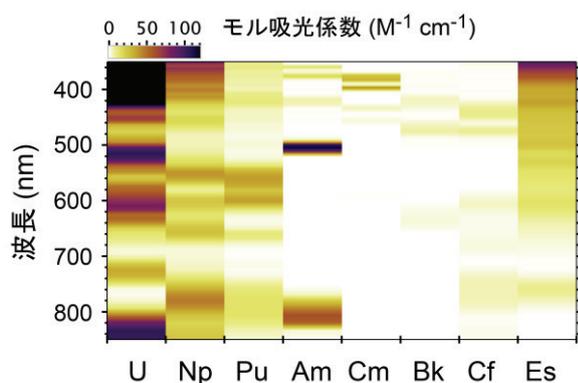


図1 アクチノイド (一部) の吸収スペクトル

## 2. 方法

### 2.1 アメリシウム硝酸錯体の共鳴多光子電荷移動

Am はストック溶液から石英セル (光路長 10mm、幅 2 mm) へマイクロピペットで量り入れた。そこへ硝酸 (60%, HNO<sub>3</sub>) 水溶液を加え、0.4mM 3 価アメリシウム (Am<sup>III</sup>) の 0.01, 0.1, 3, 12 M 硝酸水溶液を ~100 μL 調整した。その後、石英セルを密閉し、穏やかに攪拌した。実験に用いた光学配置の概略を図2に示す。励起光源には、OPO レーザー (NT342B, EKSPLA) を使用した (~5 ns, <34mJ, 10 Hz)。照射時間は 10–40 min。OPO レーザ

一の光学結晶のビームプロファイルを石英セル位置へ像転送することで、石英セル位置でのビーム直径を $\sim 2$  mm に制御した。紫外可視分光光度計を用いて吸収スペクトルを測定し、反応物と生成物を同定、定量した。

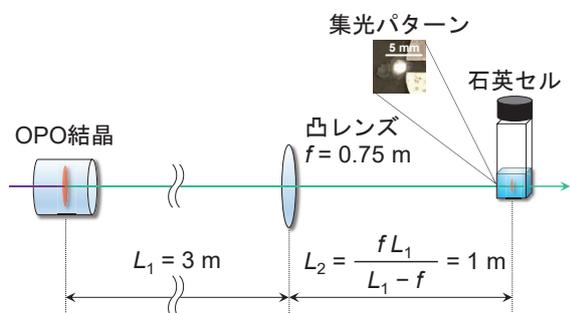


図2 光学配置の概略図。 $f$ は凸レンズの焦点距離。 $L_2 = fL_1 / (L_1 - f)$ を満たすよう像転送した。

## 2.2 レーザーアシスト元素分離

試料として 0.1 mM  $\text{Am}^{\text{III}}$  と 0.55 mM 3 価プラセオジウム ( $\text{Pr}^{\text{III}}$ ) を混合した 3 M 硝酸水溶液を $\sim 100$   $\mu\text{L}$  調整した。 $\text{Pr}^{\text{III}}$  は硝酸プラセオジウム六水和物 ( $\text{Pr}^{\text{III}}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ , >99.99%) を用いた。この試料へ OPO レーザー (503 nm,  $\sim 30$  mJ, 10 Hz) を 15 h 照射した。光学配置は図 2 と同様である。照射後、パストゥールピペットを用いて 2 mL バイアル瓶へ試料を移した。そこへ 16 mM の抽出剤 TODGA (N,N,N',N'-tetraoctyl-3-oxapentanediamide) のドデカン溶液を $\sim 100$   $\mu\text{L}$  加えた。そして、20 分間激しく攪拌した。その後、石英セル (光路長 10 mm, 幅 2 mm) へ入れ、遠心分離した。水相と有機相それぞれの吸収スペクトルを分光光度計で測定した。

## 3. 結果と考察

### 3.1 アメリカシウム硝酸錯体の共鳴多光子電荷移動

$\text{Am}^{\text{III}}$  硝酸水溶液の吸収スペクトルから  $\text{Am}^{\text{III}}$  の吸収ピークを同定した。また、503 nm レーザー照射後の吸収スペクトルから  $\text{Am}^{\text{III}}$  の消費と、5 価アメリカシウム ( $\text{Am}^{\text{V}}\text{O}_2^+$ ) と亜硝酸 ( $\text{HNO}_2$ ) の生成が確認できた。この  $\text{Am}^{\text{III}}$  から  $\text{Am}^{\text{V}}\text{O}_2^+$  への光酸化の反応機構を解明するために、励起波長依存性、励起光強度依存性、硝酸イオ

ン依存性を調べた。解析では、それぞれの吸収ピークの変化量から擬一次反応速度定数を見積り、各依存性を評価した。以下では、この光酸化による  $\text{Am}^{\text{III}}$  消費の速度定数を  $k^{\text{III}}$ 、 $\text{Am}^{\text{V}}\text{O}_2^+$  生成の速度定数を  $k^{\text{V}}$  で示す。

#### 3.1.1 励起波長依存性

励起波長を掃引し、各波長で測定した  $k^{\text{III}}$  と  $k^{\text{V}}$  を図 3 左軸で示す。また、レーザー照射前の  $\text{Am}^{\text{III}}$  硝酸水溶液の吸収スペクトルを図 3 右軸で示す。503 nm の吸収ピークは  $\text{Am}^{\text{III}}$  の  $ff$  遷移 ( ${}^5L_6 \leftarrow {}^7F_0$ ) に帰属される。 $\text{Am}^{\text{III}}$  光酸化の励起波長依存性と吸収スペクトルが明らかに一致した。この結果から、観測された光酸化は  $ff$  遷移で引き起こされることがわかった。

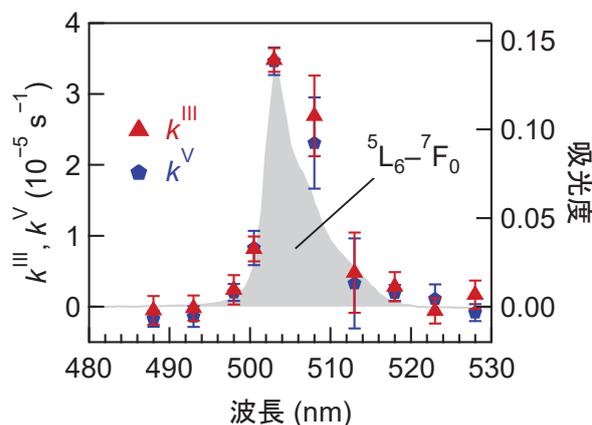


図3  $\text{Am}^{\text{III}}$  消費 ( $k^{\text{III}}$ ) と  $\text{Am}^{\text{V}}\text{O}_2^+$  生成 ( $k^{\text{V}}$ ) の速度定数に対する励起波長依存性 (左軸)。硝酸濃度  $[\text{HNO}_3] = 3$  M、レーザー ( $\sim 32$  mJ, 10 Hz) 照射時間 10 min。塗りつぶしは照射前の  $\text{Am}^{\text{III}}$  硝酸水溶液の吸収スペクトル (右軸)。

#### 3.1.2 励起光強度依存性

次に  $k^{\text{III}}$  の励起光強度依存性の測定結果を図 4 に示す。横軸はレーザーフルエンスで示した。プロットを冪関数で近似し最適化したところ、冪指数は $\sim 1.5$  が与えられた。この単純なフィッティングには光吸収の飽和が組み込まれていない。そのため、1 よりも有意に大きい値は、観測された過程が 2 光子過程であることを示唆している。実際に、503 nm の 2 光子のエネルギーは  $39761 \text{ cm}^{-1}$  であり、この値は電荷移動帯 (CT バンド) の閾値 42500

cm<sup>-1</sup>とおおよそ一致する。

一般に多光子過程は共鳴と非共鳴の過程に分類されるが、励起波長依存性の結果の通り、<sup>5</sup>L<sub>6</sub>状態への遷移に従って光酸化が起こった。そのため、このf電子励起状態を介する多光子過程であると考えられる。これは共鳴多光子イオン化に類似しているが、CTバンドへの励起と同時に酸化還元反応へ向かい、これらを切り分けることができないと理解できる。そのため、この特徴を踏まえて共鳴多光子電荷移動と呼ぶ。

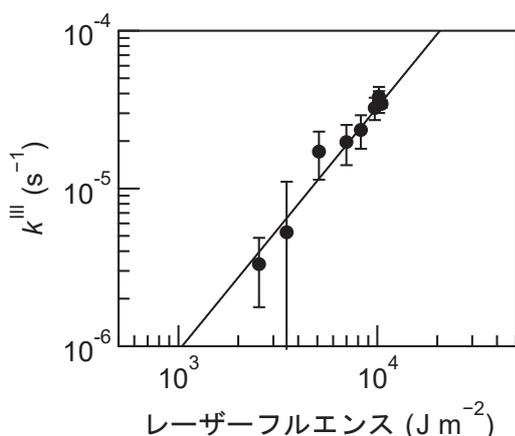


図4 Am<sup>III</sup>消費 ( $k^{\text{III}}$ ) の速度定数に対するレーザーフルエンス依存性。硝酸濃度[HNO<sub>3</sub>]=3 M、レーザー (503 nm, 10 Hz) 照射時間 10 min。

### 3.1.3 硝酸イオン依存性

これまでの実験のところ、Am<sup>III</sup>の共鳴多光子電荷移動は硝酸水溶液でのみ観測された。そこで、溶液中に共存する硝酸イオン(NO<sub>3</sub><sup>-</sup>)の影響を調べた。 $k^{\text{III}}$ の硝酸イオン濃度依存性を図5に示す。横軸は硝酸イオンの活量 $a_{\text{NO}_3}$ で表した<sup>2)</sup>。HNO<sub>3</sub>濃度0.01, 0.1, 3, 12 Mに相当する $a_{\text{NO}_3}$ で測定した $k^{\text{III}}$ をプロットした(左軸)。 $a_{\text{NO}_3} < \sim 1$  Mの領域では、 $k^{\text{III}}$ は傾き1に近く比例しているが、 $a_{\text{NO}_3} > \sim 1$  Mの領域では、飽和が確認できる。この結果は、Am<sup>III</sup>の水和イオンでは共鳴多光子電荷移動が起こらず、Am<sup>III</sup>とNO<sub>3</sub><sup>-</sup>の錯体で起こることを意味する。また、溶液中の錯体の比率 $f_n$ を右軸に示した。 $f_n$ は、活量 $a_{\text{NO}_3}$ とともに図5のように変化する。

錯体の寄与を定量的に評価するため、図6に示した反応スキームに基づいて、 $k^{\text{III}}$ の $a_{\text{NO}_3}$ 依存性である $k^{\text{III}}(a_{\text{NO}_3})$

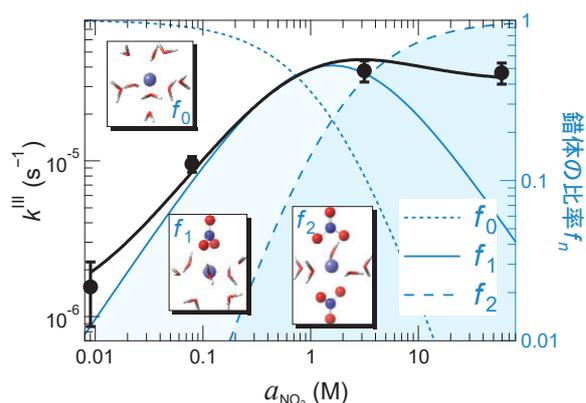


図5  $k^{\text{III}}$ の硝酸イオン活量依存性。レーザー (503 nm, ~32 mJ, 10 Hz) 照射時間 10 min。錯体の比率

$$f_n = [\text{Am}^{\text{III}}(\text{NO}_3)_n]^{3-n} / \sum_{i=0}^2 [\text{Am}^{\text{III}}(\text{NO}_3)_i]^{3-i}$$

( $n$ はNO<sub>3</sub><sup>-</sup>の数： $n=0, 1, 2, \dots$ )を右軸で示す。

挿入した錯体構造は、密度汎関数理論 (DFT) 計算により最適化した。

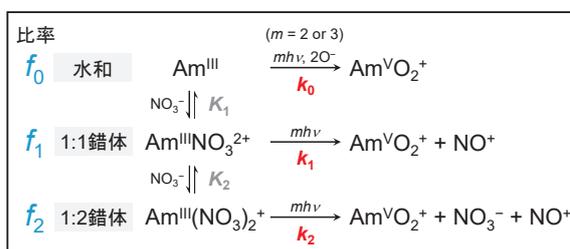


図6 Am<sup>III</sup>光酸化の反応スキーム

を検討した。 $k^{\text{III}}$ を各錯体由来に分割した $k_n$ と平衡定数 $K_n$ を用いると、 $k^{\text{III}}(a_{\text{NO}_3})$ は次式のように表される。

$$k^{\text{III}}(a_{\text{NO}_3}) = \frac{k_0 + k_1\beta_1 a_{\text{NO}_3} + k_2\beta_2 a_{\text{NO}_3}^2 + \dots}{1 + \beta_1 a_{\text{NO}_3} + \beta_2 a_{\text{NO}_3}^2 + \dots} \quad (1)$$

ここで $\beta_n$ は錯生成定数であり、平衡定数 $K_n$ との関係は $\beta_1=K_1, \beta_2=K_1K_2$ である。 $\beta_n$ の報告値を用い<sup>3)</sup>、 $k_n$ をパラメーターとして、 $k^{\text{III}}(a_{\text{NO}_3})$ の測定値を式(1)でフィッティングしたところよく再現された(図5黒線)。最適化された $k_n$ から、 $k_0/k_1 = 0.0040 \pm 0.0003$ と $k_2/k_1 = 0.44 \pm 0.07$ が得られた。 $k_1$ が $k_0$ に対して3桁大きいことは、1:1錯体( $\text{Am}^{\text{III}}\text{NO}_3^{2+}$ )が必要であることを示唆する。また、

$k_2$ が $k_1$ に対して $<1/2$ であることは、共鳴多光子電荷移動が1:2錯体で増大しないことを示唆する。これは図5のフィッティング結果である黒線(左軸)と錯体比率(右軸)との比較からも理解できる。

### 3.1.4 反応機構

$\text{Am}^{\text{III}}\text{-NO}_3$ 錯体における $\text{Am}^{\text{III}}$ から $\text{Am}^{\text{V}}\text{O}_2^+$ への共鳴多光子電荷移動の反応機構を検討する。実験結果から決定的なことは、(i)酸化には1:1錯体が必要、(ii)1:2錯体では飽和する、(iii) $\text{HNO}_2$ が副生成物という3点である。これらを満たす反応機構として、反応(2)のように2光子あるいは3光子によって、 $\text{Am}^{\text{V}}\text{O}_2^+$ とニトロソニウムイオン( $\text{NO}^+$ )を生成するモデルを提案した。また、 $\text{HNO}_2$ の生成は、反応(3)で説明できる。

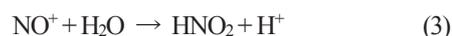
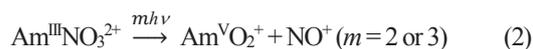


図7に $\text{Am}^{\text{III}}\text{-NO}_3$ 錯体における共鳴多光子電荷移動メカニズムの概要を示した。厳密には正確ではないが、理解のしやすさから、まず $\text{Am}^{\text{III}}$ の電子構造を単独で考える。503 nmを1光子吸収することで $\text{Am}^{\text{III}}$ は基底状態 $7\text{F}_0$ から $5\text{f}$ 遷移し、励起状態 $5\text{L}_6$ の電子配置 $(5\text{f})^6$ に変化する。2光子目の吸収により、 $5\text{L}_6$ 状態の2電子で占有された $5\text{f}$ 軌道から $6\text{d}$ 軌道への $f\text{-d}$ 遷移が起こると、 $\text{Am}^{\text{IV}}$ の基底状態 $6\text{H}_{5/2}$ の電子配置 $(5\text{f})^5$ になりうる。さらに3光子目を吸収し、 $6\text{H}_{5/2}$ 状態の $5\text{f}$ 軌道から $6\text{d}$ 軌道へ $f\text{-d}$ 遷移が起こり、2電子で占有された $6\text{d}$ 軌道ができると、 $\text{Am}^{\text{V}}$ の基底状態 $5\text{I}_4$ の電子配置 $(5\text{f})^4$ になりうる。

$\text{Am}^{\text{III}}\text{-NO}_3$ 錯体では、 $\text{NO}_3^-$ の2つのO原子が $\text{Am}^{\text{III}}$ へ対称的に二座配位すると報告されている<sup>4)</sup>。そのため、図7のように $f\text{-d}$ 遷移によって $\text{NO}_3^-$ の空軌道への電子移動が起こり、 $\text{Am}^{\text{V}}\text{O}_2^+$ と $\text{NO}^+$ に変化する可能性がある。この反応経路を検証するために量子化学計算を行った。その結果、ポテンシャルエネルギー曲面に沿って、錯体は図8のように構造変化することがわかった。また、各

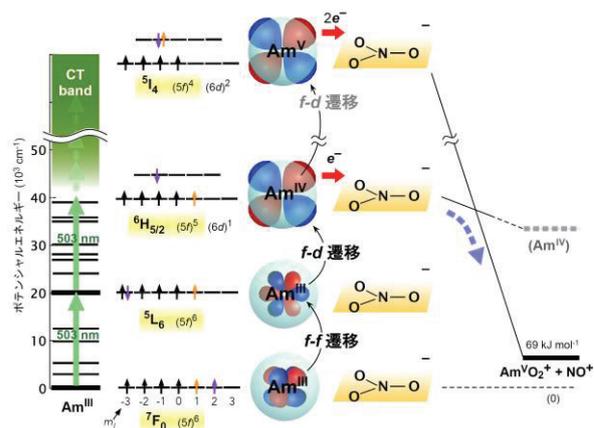


図7  $\text{Am}^{\text{III}}\text{-NO}_3$ 錯体における共鳴多光子電荷移動の概要。左から $\text{Am}^{\text{III}}$ のエネルギーダイアグラム、電子配置、原子軌道、光学遷移と電子移動のイメージ。

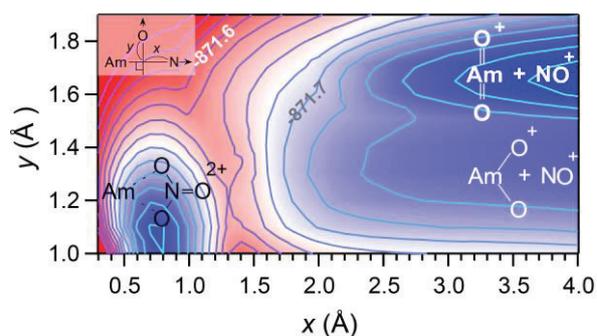


図8  $\text{AmNO}_3$ の断熱ポテンシャルエネルギー曲面と構造変化。左上は座標系の定義。

構造での $f$ 電子数の計算結果を考慮すると、 $\text{Am}$ の酸化数が $\text{III} \rightarrow \text{IV} \rightarrow \text{V}$ と段階的に変わる、つまり、 $\text{Am}^{\text{III}}$ から $\text{NO}_3^-$ に2電子が段階的に移動することが明らかになった。以上から、光励起で直接 $\text{Am}^{\text{V}}\text{O}_2^+$ が生成されるのではなく、光励起によって $\text{Am}^{\text{III}}\text{-NO}_3$ 錯体において電子の乗り移りが起こりやすくなることで、安定な $\text{Am}^{\text{V}}\text{O}_2^+$ が生成される反応経路をたどることが示唆された。

### 3.2 レーザーアシスト元素分離

上述した酸化状態の光学制御に基づく「レーザーアシスト元素分離」を実証する。そのために、核分裂生成物の模擬として $\text{Pr}^{\text{III}}$ を加えた $\text{Am}^{\text{III}}$ との2元素混合溶液からの $\text{Am}$ 分離を行った。

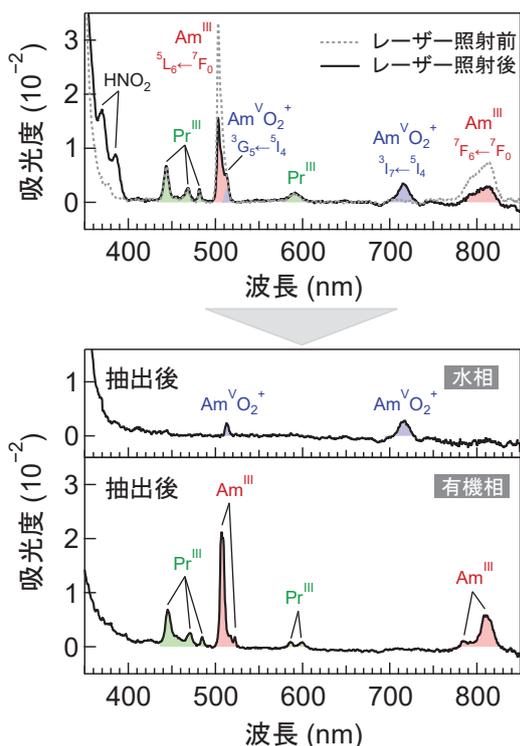


図9 0.1 mM Am<sup>III</sup>と0.55 mM Pr<sup>III</sup>を混合した3 M 硝酸水溶液へのレーザー照射 (503 nm, ~30 mJ, 10 Hz, 15 h) による変化(上)。照射後の溶液を TODGA により溶媒抽出した後の水相(中)と有機相(下)の吸収スペクトル。

図9(上)に調製した溶液の吸収スペクトルを点線で示す。吸収は Am<sup>III</sup>と Pr<sup>III</sup>の *ff*遷移と帰属された。これに対し 503 nm レーザー照射後の吸収スペクトルを実線で示した。照射後には新たに Am<sup>V</sup>O<sub>2</sub><sup>+</sup> (~700 nm) と HNO<sub>2</sub> (<400 nm) の吸収が確認できた。また、レーザー照射中の各元素の酸化状態の経時変化を図10に示す。Pr<sup>III</sup>と Am(total)は一定で、Am<sup>III</sup>の消費と Am<sup>V</sup>O<sub>2</sub><sup>+</sup>の生成だけが確認できる。そのため、期待された通り Am<sup>III</sup>-NO<sub>3</sub> 錯体における共鳴多光子電荷移動だけが誘起されたことがわかる。

照射後の試料に対し、3価に作用する抽出剤 TODGA を用いて溶媒抽出した結果が図9(中)、(下)である。明らかに3価と5価を分離することができた。この結果から、共鳴多光子電荷移動による元素の選択的な価数制御と溶媒抽出の組み合わせである「レーザーアシスト元素分離」が実証された。

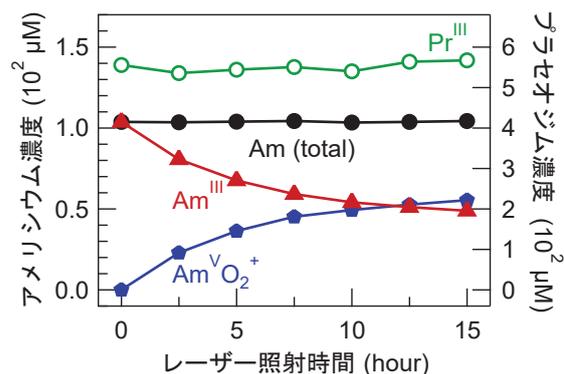


図10 レーザー照射中の各元素の酸化状態の変化

#### 4. まとめ

アクチノイドで初となる Am<sup>III</sup>-NO<sub>3</sub> 錯体における共鳴多光子電荷移動を発見し、その反応機構を明らかにした。さらに、2元素混合溶液でのレーザーアシスト元素分離を実証した。今後は模擬高レベル放射性廃液での Am と Cm の相互分離を実証したい。また、他の *f* ブロック元素への適用性を検証したい。なお、ご興味を持たれた方は、詳細を記した原著論文(題名: Marking actinides for separation: Resonance-enhanced multiphoton charge transfer in actinide complexes) <sup>5)</sup>を参照されたい。オープンアクセス(無料 web 閲覧可)である。

#### 謝辞

本研究は JSPS 科研費 JP20K19999 と福島復興研究活動に関する JAEA の予算による助成を受けたものです。厚く御礼申し上げます。

#### 参考文献

- 1) C. J. Dares et al., *Science* **350**, 652–655 (2015).
- 2) W. Davis, H.J. De Bruin, *J. Inorg. Nucl. Chem.* **26**, 1069–1083 (1964).
- 3) Ł. Steczek et al., *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **309**, 891–897 (2016).
- 4) M. G. Ferrier et al., *Chem. Sci.* **9**, 7078–7090 (2018).
- 5) S. Matsuda et al., *Sci. Adv.* **8**, eabn1991 (2022).  
<https://www.science.org/doi/10.1126/sciadv.abn1991>

# 巨大地震先行現象の物理メカニズムの研究 - シミュレーションモデルの発展 -

理論・シミュレーションチーム

古河裕之、山中千博<sup>1</sup>、近藤斎<sup>2</sup>、杉浦繁貴<sup>2</sup>

<sup>1</sup>大阪大学大学院理学研究科、<sup>2</sup>(株)コンポン研究所

## 1. はじめに

レーザー技術総合研究所では、2016年度から2022年度まで、大阪大学大学院理学研究科、(株)コンポン研究所と共同で、巨大地震先行現象の物理メカニズムの研究を行ってきた。北海道大学日置は、1994年から2015年までのM<sub>w</sub>=8級以上の地震について震源上空のTECを解析し、磁気嵐の時期を除いて、過去18回のすべての例で地震発生直前数十分以内においてTEC異常があったことを示した<sup>1-4</sup>。この現象を説明できる物理モデルの構築が、本共同研究の目的であった。

本研究において、物理モデルを構築し、シミュレーション結果を基に更なる物理モデルの改良を行い、最終的にTEC異常の測定結果を定量的に良く再現できる物理モデルを構築した。時間経過に沿って、本研究で構築した物理モデルを記す。

- 1) 1流体モデル(プラズマ近似)を用いて基礎方程式を導出した。(2016年度)
- 2) 1流体モデルを基本に、磁場の効果のみでなく電場の効果も含められるように基礎方程式を改良した。(2016年度)
- 3) 文献に従い、より現実に近い初期電子密度分布を与え、シミュレーションを行った。(2017年度)
- 4) 斜め地球磁場効果の導入、異方性を持つ電気伝導度の導入、マクスウェル方程式による全電場の求解、運動方程式の見直し、イオン-中性粒子の衝突の効果の導入、を行った。(2018年度)
- 5) 分極効果の導入を行い、マクスウェル方程式による全電場の求解の見直し、及び運動方程式の見直し、を行った。(2019年度)

- 6) 磁力線に平行な方向の電子の運動を記述するために、電子-イオンの2流体モデルを構築し、マクスウェル方程式による全電場の求解の見直し、運動方程式の見直し、電子-中性粒子の衝突のモデルの改良など、を行った。(2019年度 - 2022年度)

## 2. 1 流体モデル(プラズマ近似)<sup>5,6</sup>(2016年度)

2016年度には、1流体モデル(プラズマ近似)を用いて基礎方程式を導出し、空間2次元、速度3次元、磁場3次元のシミュレーションモデルを採用した。プラズマは水素イオンと電子から成るとした。岩盤上の電流による磁場を、ビオサバールの法則により求め、 $\mathbf{B}_{\text{bio}} + \mathbf{B}_{\text{earth}}$ の下でのプラズマの運動を求めた。地球磁場は $\mathbf{B}_{\text{earth}} = 25000$  nTとした。大地を平面とし、地球磁場はY方向に一様とした。座標系はX-Y-Zの直交座標系とした。

光電離などによるイオンの生成を無視すると、イオンの連続の方程式は以下のように書ける。

$$\frac{\partial n_i}{\partial t} + \nabla \cdot (n_i \mathbf{v}_i) = 0 \quad (1)$$

$n_e = n_i$ を仮定(プラズマ近似)すると、運動方程式は次式になる。

$$\rho \left( \frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} + \mathbf{v} \cdot \nabla \mathbf{v} \right) = -\nabla (P_i + P_e) + \mathbf{j} \times \mathbf{B} + \rho \mathbf{g} \quad (2)$$

1流体モデル(プラズマ近似)によるシミュレーション結果をGPSTECの結果と比較検討したところ、外部磁場の効果だけでは不十分であることが示唆された。そこで1流体モデルを基本に、磁場の効果のみでなく電場の効果も含められるように基礎方程式を改良した。

連続の方程式は、次式とした。

$$\frac{\partial e \Delta n}{\partial t} = \nabla \cdot \mathbf{j} \quad (3)$$

$$\Delta n \equiv n_e - n_i \quad (4)$$

$$\mathbf{j} = e(n_i \mathbf{v}_i - n_e \mathbf{v}_e) \approx -en_e \mathbf{v}_e \quad (5)$$

運動方程式は、次式とした。

$$\rho \left( \frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} + \mathbf{v} \cdot \nabla \mathbf{v} \right) = -\nabla(P_i + P_e) - e \Delta n \mathbf{E} + \mathbf{j} \times \mathbf{B} + \rho \mathbf{g} \quad (6)$$

電荷分布により生じる電場は、ポアソン方程式より求める。

$$\nabla^2 \phi = -\frac{e}{\epsilon_0} (-\Delta n) \quad (7)$$

$$\mathbf{E}_{ind} = -\nabla \phi \quad (8)$$

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_{ind} + \mathbf{E}_{ext} \quad (9)$$

### 3. 初期電子密度分布の改良 (2017 年度)

2017 年度において、文献に従い、より現実に近い初期電子密度分布を与え、シミュレーションを行った。図 1 は、シミュレーションに用いた初期電子密度の高さ方向の分布である。

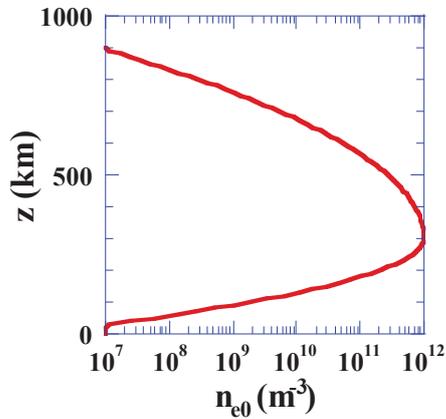


図 1 初期電子密度の高さ方向の分布

### 4. 斜め磁場、電気伝導度の異方性の導入 (2018 年度)

2018 年度に、斜め地球磁場効果の導入、異方性を持つ電気伝導度の導入、マクスウェル方程式による全電場の求解、運動方程式の見直し、イオン-中性粒子の衝突の効果の導入、を行った。

図 2 は、地球磁場の傾きと、地球磁場に沿った座標系の概念図である。

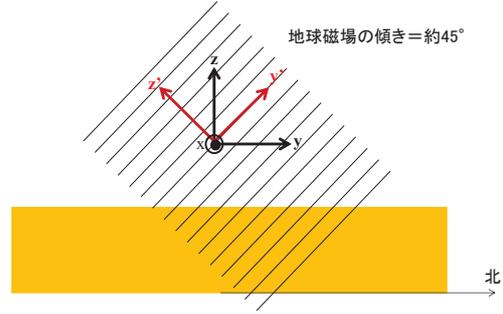


図 2 地球磁場の傾きと、地球磁場に沿った座標系の概念図

大気中、及び電離層中では、プラズマだけでなく中性分子も存在しており、イオンと中性分子の衝突の効果は無視できない。中性分子を半径  $r_n$  の剛体であると近似すると、イオンと中性分子の衝突周波数は、次式で表される。

$$\nu_{i-n} = n_n(z) \pi r_n^2 |\mathbf{v}_i| \quad (10)$$

$n_n(z)$  は、中性分子密度の高度分布である

イオンと中性分子の衝突の効果を考慮すると、運動方程式は、次のように与えられる。x-y'-z'成分別に記載する。

$$n_i \left( \frac{\partial v_x}{\partial t} + v_x \frac{\partial v_x}{\partial x} \right) = -j_z B_{y'} / m_i - n_i \nu_{i-n} v_x \quad (11)$$

$$n_i \left( \frac{\partial v_{y'}}{\partial t} + v_{y'} \frac{\partial v_{y'}}{\partial y'} \right) = -n_i \nu_{i-n} v_{y'} \quad (12)$$

$$n_i \left( \frac{\partial v_{z'}}{\partial t} + v_{z'} \frac{\partial v_{z'}}{\partial z'} \right) = j_x B_{y'} / m_i - n_i \nu_{i-n} v_{z'} \quad (13)$$

電流密度  $\mathbf{j}$  は、オームの法則から求められる。

$$\mathbf{j} = \sigma(\mathbf{E} + \mathbf{v} \times \mathbf{B}) \quad (14)$$

磁場は地球磁場のみとした。運動方程式において、初期値を  $\mathbf{v}_x = \mathbf{v}_{y'} = \mathbf{v}_{z'} = \mathbf{0}$  とすると、(12) 式より、恒等的に  $\mathbf{v}_{y'} = \mathbf{0}$  が成立する。

大気中、及び電離層中のプラズマは、磁力線に沿った方向と垂直な方向で、大きく異なる電気伝導度を持つ。その効果を取り入れるために、マクスウェル方程式を用いて電場を求めた。

SI 単位系で Maxwell 方程式を記す。

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \quad (15)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{H} = \mathbf{j} + \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} \quad (16)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{D} = \rho = 0 \quad (17)$$

変位電流を 0 とすると、次式が得られる。

$$\nabla^2 \mathbf{E} = \mu_0 \frac{\partial \mathbf{j}}{\partial t} \quad (18)$$

## 5. プラズマの分極を考慮した、新しい基礎式 (2019 年度)

2019 年度に分極効果の導入を行い、マクスウェル方程式による全電場の求解の見直し、及び運動方程式の見直し、を行った。

分極ベクトル  $\mathbf{P}$  と分極電荷  $\rho_c^p$  は、次式で関係づけられる。

$$\rho_c^p = -\nabla \cdot \mathbf{P} \quad (19)$$

分極電流  $\mathbf{j}^p$  は、次式で与えられる。

$$\mathbf{j}^p = \frac{\partial \mathbf{P}}{\partial t} \quad (20)$$

アナロジーとして、分極ベクトル  $\mathbf{P}$  と誘導電場  $\mathbf{E}^{\text{ind}}$  の間に、次の関係が成り立つと仮定する。

$$\mathbf{P} = -\varepsilon_0 \mathbf{E}^{\text{ind}} \quad (21)$$

最終的に次式が導ける。

$$\nabla^2 \mathbf{E}^{\text{tot}} = \frac{1}{\varepsilon_0} \nabla \rho_c^{\text{tot}} + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}^{\text{tot}}}{\partial t^2} + \mu_0 \sigma \left( \frac{\partial \mathbf{E}^{\text{ext}}}{\partial t} + \frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} \times \mathbf{B} \right) \quad (22)$$

$$\rho_c^{\text{tot}} = \rho_c^{\text{ext}} + \rho_c^{\text{ind}} = \varepsilon_0 \nabla \cdot \mathbf{E}^{\text{tot}} \quad (23)$$

## 6. 電子-イオン 2 流体モデル (2019 年度 - 2022 年度)

プラズマの分極を考慮したモデルでシミュレーションを行ったが、磁力線に平行な方向の電子の運動が十分記述できず、Heki-TEC を再現できなかった。そこで、電子-イオン 2 流体モデルを構築し、マクスウェル方程式による全電場の求解の見直し、及び運動方程式の見直しを行った。

磁力線に平行な方向の運動方程式は、次式で表される。

$$\frac{\partial v_{y'}^e}{\partial t} + v_{y'}^e \cdot \frac{\partial v_{y'}^e}{\partial y'} = -\frac{e}{m_e} E_{y'}^{\text{tot}} - v_{y'}^{e-n} v_{y'}^e \quad (24)$$

$$v_{e-n} = \frac{e^2 n_e}{m_e \sigma_{y'}} \quad (25)$$

$$\frac{\partial v_{y'}^i}{\partial t} + v_{y'}^i \cdot \frac{\partial v_{y'}^i}{\partial y'} = \frac{e}{m_i} E_{y'}^{\text{tot}} - v_{y'}^{i-n} v_{y'}^i \quad (26)$$

$$v_{y'}^{i-n} = n_n(z) \pi r_n^2 |v_{y'}^i| \quad (27)$$

シミュレーションの時間刻み 1 ms と比べ十分短い時間で、磁力線に垂直な方向の電子速度が平衡に達すると仮定すると、次式が導ける。

$$v_x^e = -\frac{e^2 E_z B_{y'} + e m_e E_x v_{e-n}}{e^2 B_{y'}^2 + m_e^2 v_{e-n}^2} \quad (28)$$

$$v_z^e = \frac{E_x}{B_{y'}} + \frac{m_e v_{e-n}}{e B_{y'}} v_x^e \quad (29)$$

同様に、磁力線に垂直な方向へのイオンの運動に関して、次式が導ける。

$$v_x^i = \frac{-e^2 E_z B_{y'} + e m_i E_x v_z^{i-n}}{e^2 B_{y'}^2 + m_i v_x^{i-n} v_z^{i-n}} \quad (30)$$

$$v_z^i = \frac{E_x}{B_{y'}} - \frac{m_i v_x^{i-n}}{e B_{y'}} v_x^i \quad (31)$$

地下の分極電荷モデルとして、震源深さを 24 km とし、電子はその深さの震源域の中止位置に点電荷として固定し、震源域内の地表面で正電荷が円状に拡散するモデルを仮定した。図 3 は、地表面の正電荷分布である。

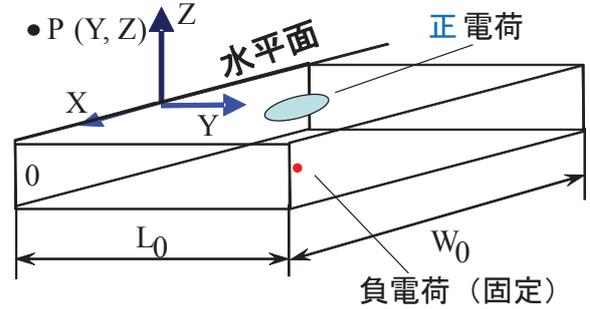


図 3 地表面の正電荷分布

図 4 は、地下の正電荷の拡散の様子を示したものである。

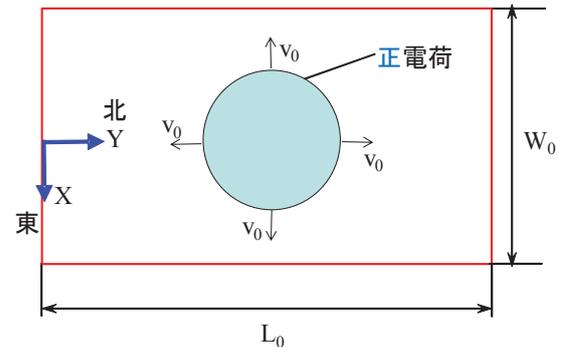


図 4 地下の正電荷の拡散の様子

時刻  $t$  における地下の電荷量  $Q(t)$  は、以下の式に従うとした。

$$Q(t) = \frac{\tau Q_{\max}}{t_c} \left[ 1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) \right] \quad t < t_c \quad (32)$$

$$Q(t) = Q(t_c) \exp\left[-\frac{t-t_c}{\tau}\right] \quad (33)$$

$$Q(t_c) = \frac{\tau Q_{\max}}{t_c} \left[ 1 - \exp\left(-\frac{t_c}{\tau}\right) \right] \quad t > t_c$$

図 5 は、電子—イオン 2 流体シミュレーションで求めた電子数の時間発展、及び地表の分極電荷の時間発展である。

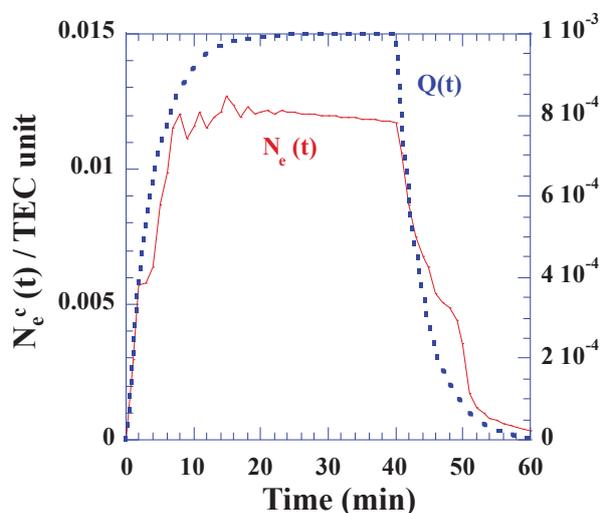


図 5 電子—イオン 2 流体シミュレーションで求めた電子数の時間発展、及び地表の分極電荷の時間発展

## 7. 結言

本研究において、物理モデルを構築し、シミュレーション結果を基に更なる物理モデルの改良を行い、最終的に TEC 異常の測定結果を定量的に良く再現できる物理モデルを構築した。

## 参考文献

- 1) K. Heki, *Geophys. Res.Lett.* 38. L17312. (2011)
- 2) K. Heki and Y. Enomoto, *J. Geophys. Res. Space Phys.*, **120**, 7006-7020, (2015).
- 3) K. Heki, 2018, *Parity*, **33**, No.2. (in Japanese).
- 4) He,L.and K. Heki; *J.Geophys.Res. Space Phys.*, **122**,8659-8678, doi:10.1002/2017JA024012, 2017.
- 5) J. D. Huba, G. Joyce, and J. A. Fedder:  
 ‘Sami2 is Another Model of the Ionosphere (SAMI2) - A new low-latitude ionosphere model’  
*J. Geophys. RESEARCH*, **105**, NO. A10, PAGES 23,035-23,053, OCTOBER 1, 2000.
- 6) 西川恭治、大林康二、若谷誠宏；「連続流体物理学」、朝倉現代物理学講座 - 9。

# サブピコ秒レーザー照射による SiO<sub>2</sub> 結晶の損傷評価のための第一原理計算

理論・シミュレーションチーム

古河裕之、矢花一浩<sup>1</sup>、長友英夫<sup>2</sup>、三間囿興<sup>2</sup>

<sup>1</sup> 筑波大学計算科学研究センター

<sup>2</sup> 阪大レーザー研

## 1. はじめに

大阪大学レーザー科学研究所との共同研究では、近赤外の超短パルスレーザーを用いた微細加工プロセスのシミュレーション手法の高度化を進めている。本報告は、共同研究の現状と展望をまとめたものである。

ピコ秒もしくはサブピコ秒の高強度パルスレーザーを SiO<sub>2</sub> 結晶などの光学素子に照射すると、光学素子の損傷が起こる場合がある。損傷のメカニズムは、多光子吸収、トンネリング効果、及び電子衝突による valence band から conduction band への電子励起による電子雪崩である。

本研究において、本報告書の共著者である筑波大の矢花らが開発した、時間依存密度汎関数理論コード「SALMON (Scalable Ab-initio Light-Matter simulator for Optics and Nanoscience)」<sup>1,3)</sup> を用いて、SiO<sub>2</sub> 結晶にサブピコ秒の高強度パルスレーザーを照射した際の、valence band から conduction band に励起された電子数密度の時間発展より、電子雪崩のレーザー強度依存性を評価した。

## 2. 密度汎関数理論<sup>4)</sup>

密度汎関数理論により、全系の基底状態のエネルギーが電子密度の汎関数として一意的に決まることが保証され、1 電子波動関数と電子密度を自己無撞着に決める。

全電子系のエネルギーは、次式で与えられる。

$$E[n_e(\mathbf{r})] = T_0[n_e(\mathbf{r})] + U[n_e(\mathbf{r})] + E_{XC}[n_e(\mathbf{r})] + \int d\mathbf{r} v_{ext}(\mathbf{r}) n_e(\mathbf{r}) \quad (1)$$

$$U[n_e(\mathbf{r})] = \frac{1}{2} \int d\mathbf{r} \int d\mathbf{r}' \frac{n_e(\mathbf{r}) n_e(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} \quad (2)$$

ここで、 $T_0$  は運動エネルギー、 $U$  は電子間静電相互作用エネルギー、 $v_{ext}$  は外場ポテンシャル、 $E_{XC}$  は交換相関エネルギー、である。基底状態の電子密度は、(1) 式において  $E$  が最小値を取るように決定される。

電子密度が、規格直交化された 1 電子波動関数を用いて、次のように書けると仮定する。

$$n_e(\mathbf{r}) = \sum_{\mathbf{k}} |\varphi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})|^2 \quad (3)$$

規格直交条件の下で(1) 式の変分を行うことで、Kohn-Sham の方程式が得られる。

$$H_{KS} = -\frac{1}{2} \nabla^2 + v_{eff}(\mathbf{r}) \quad (4)$$

$$H_{KS} \varphi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = \varepsilon_{\mathbf{k}} \varphi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}) \quad (5)$$

$$v_{eff}(\mathbf{r}) = v_{ext}(\mathbf{r}) + \int d\mathbf{r}' \frac{n_e(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} + v_{XC}(\mathbf{r}) \quad (6)$$

ここで、 $v_{eff}$  は有効 1 電子ポテンシャル、 $v_{XC}$  は交換相関ポテンシャル、である。

## 3. 時間依存密度汎関数理論<sup>1-3)</sup>

第一原理計算手法である時間依存密度汎関数理論で、結晶の光応答を調べる場合にレーザー電場をベクトルポテンシャル  $\mathbf{A}(\mathbf{t})$  で記述し、 $\mathbf{A}(\mathbf{t})$  を含む時間依存のシュレディンガー方程式を解き、波動関数の時間空間発展より、光から物質中の電子にエネルギーが移行する様子を求める。初期の波動関数は、密度汎関数理論により求める。基礎式は次式である。

$$i\hbar \frac{\partial \psi_i(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = \left\{ \frac{1}{2m_e} \left[ -i\hbar \nabla + \frac{e}{c} \mathbf{A}(t) \right]^2 + v_{ext}(\mathbf{r}) + v_H(\mathbf{r}, t) + v_{xc}(\mathbf{r}, t) \right\} \psi_i(\mathbf{r}, t) \quad (7)$$

$$\mathbf{A}(t) = -c \int_0^t \mathbf{E}(t') dt' \quad (8)$$

#### 4. 時間依存密度汎関数理論により求めた励起電子数密度の時間発展

本研究では、レーザー電場を次式で与えた。単位系は、ガウス単位系である。

$$A_z(t) = -\frac{A_0}{\omega} \sin^2\left(\frac{\pi t}{T}\right) \cos(\omega t) \quad 0 < t < T/2 \quad (9)$$

$$A_z(t) = -\frac{A_0}{\omega} \cos(\omega t) \quad T/2 < t$$

電場、光の強度は、次式で与えられる。単位系はガウス単位系である。

$$E_z(t) = -\frac{1}{c} \frac{dA_z(t)}{dt} \quad (10)$$

$$I(t) = cE_z^2(t) / 8\pi \quad (11)$$

$T$  はパルス幅、 $\omega$  は光の角周波数、 $c$  は光速である。本研究では、 $T = 15$  fs、光のエネルギー = 1.55 eV (波長 = 800 nm)、としている。図 1 は、光のピーク強度 =  $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>、の場合の光強度の時間発展を示す。

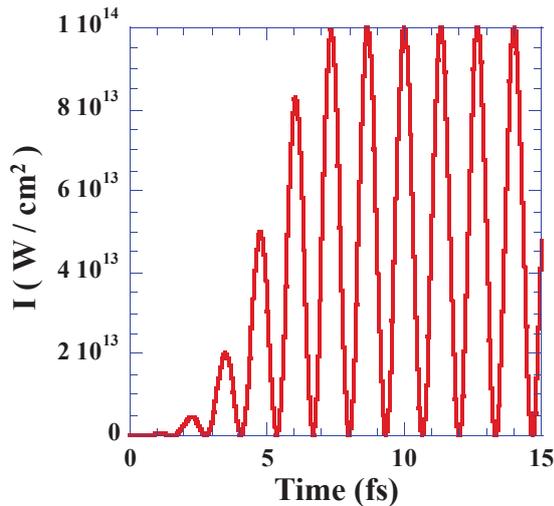


図 1 光強度の時間発展

文献 5 で記したように、電子が励起しない程度の光強度では、SALMON で求めた全電子系のエネルギーは、電場の 2 乗 (光の強度) に比例した振る舞いをする。Conduction band に励起された電子数密度の時間発展も、同様の振る舞いをするのが予想される。図 2 は、文献 5 中の(1)–(5) の考え方を、conduction band に励起された電子数密度の時間発展に適用し求めた、SiO<sub>2</sub> 結晶における  $I_1 = 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>、 $I_2 = 10^{12}$  W/cm<sup>2</sup> の場合の、励起された電子数密度の時間発展である。図中の  $n_e^{ex}$  は励起された電子数密度、 $n_e^{tot}$  は全電子数密度である。

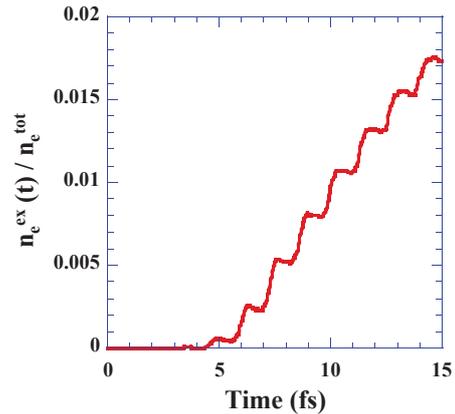


図 2 SiO<sub>2</sub> 結晶における、光強度  $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> の場合の、conduction band に励起された電子数密度の時間発展

図 2 では、高次の振動が残っているが、その部分を線形近似し傾きを求め、電子の励起係数 (単位時間あたりの励起電子数) を求めた。図 3 に記す。●印が SALMON で得られた電子の励起係数の光強度依存性、実線と点線は Keldysh のモデル<sup>6)</sup> で得られたそれである。Keldysh のモデルは、プラズマ物理の分野などで良く用いられる。valence band 内、及び conduction band 内の詳細なバンド構造などは考慮されていない。Keldysh のモデルの入力パラメーターは、バンドギャップと有効質量である。図 3 中の実線は、バンドギャップ = 8.95 eV、有効質量 = 0.3  $m_e$  の場合の結果、点線は、バンドギャップ = 8.95 eV、有効質量 =  $m_e$  の場合の結果である。SALMON の計算には、電子と光電場の相互作用、詳細なバンド構造だけでなく、電子間の相互作用も含まれている。SALMON の結果の物理的意味に関して、詳細に検討する必要がある。

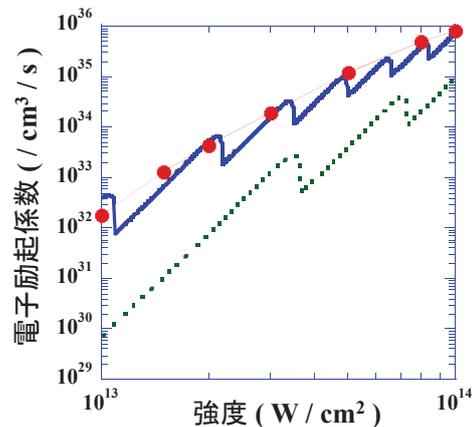


図 3 電子の励起係数の光強度依存性

## 5. 結言

SALMON<sup>1,3)</sup> を用いて、conduction band に励起された電子数の時間発展、及び電子の励起係数の光強度依存性を求め、Keldysh のモデル<sup>6)</sup> で得られた電子の光励起係数の光強度依存性との比較を行った。SALMON の計算には、電子と光電場の相互作用、詳細なバンド構造だけでなく、電子間の相互作用も含まれている。SALMON の結果の物理的意味に関して、詳細に検討する必要がある。

励起された電子数が一定数を超えると、電子雪崩が起こり、SiO<sub>2</sub> 結晶の損傷が起こる可能性がある。今後、SiO<sub>2</sub> 結晶の損傷閾値の検討なども行う。

矢花らは、時間依存密度汎関数理論とマクスウェル方程式を連立させ、レーザー光の結晶内部への伝搬も計算している<sup>1)</sup>。今後、レーザー加工の研究に広く活用するためには、上記理論を固体金属とレーザーの相互作用に適用することが大きな課題である。

## 謝辞

本研究は、HPCI システム利用研究課題（課題番号 hp220120）を通じて、スーパーコンピュータ「富岳」の計算資源の提供を受け実施した。

## 参考文献

- 1) 矢花一浩；レーザー研究 **44** (2016) 789-793.
- 2) Atsushi Yamada and Kazuhiro Yabana, Eur. Phys. J. D, (2019) 73-87.
- 3) Shunsuke A. Sato, Yasutaka Taniguchi, Yasushi Shinohara, and Kazuhiro Yabana, J. Chem. Phys. **143**, 224116 (2015).
- 4) 藤原毅夫、固体電子構造論、内田老鶴圃 (2015).
- 5) 古河裕之、矢花一浩、長友英夫、三間園興、ILT 2022 年報、p45–52.
- 6) L. V. Keldysh, Sov. Phys. JETP, **20**, (1965) 1307–1314.

# プラズマ発光を利用した光学素子レーザー損傷の評価

レーザー技術開発室

本越伸二

## 1. はじめに

レーザー装置およびその応用機器には、ミラーやレンズなど、多くの光学素子が使用されている。これら光学素子は高出力レーザー光に曝されると、しばしば損傷（レーザー損傷）を引き起こす。損傷が発生した部分は、当初の光学性能が得られないだけでなく、回折等により後段光学素子の損傷の要因にもなる。そのため、使用する光学素子のレーザー損傷しきい値を把握し、しきい値以下のエネルギー密度でレーザー装置を運転する必要がある。

レーザー技術総合研究所（ILT）では、平成17年度より光学素子のレーザー損傷しきい値評価試験を開始し、毎年約50個の光学素子の試験を行っている。また、平成20年度よりレーザー損傷しきい値データベース化試験（以下、データベース化試験）を行ってきた。レーザー損傷しきい値評価試験は試料への照射レーザーフルエンスに対する損傷の有無を観察し、損傷確率0%の最大フルエンスを求めるものであり、その方法は国際規格ISO-21254-1~4にて規格化されている。ここで重要なのは損傷の検出方法である。規格では、ノマルスキー型微分干渉顕微鏡（倍率10倍）にて試験前後の表面を観察することが述べられている。一方で、オンライン損傷検出のために、任意の適切な技術を使用すること、例えば、オンライン顕微鏡技術、光音響や光熱検出、プローブレーザーや損傷評価用レーザーによる散乱光検出、が述べられている<sup>25)</sup>。このオンライン損傷検出は、評価試験の自動化、省力化、そして高精度化のためには重要な技術である。これまでに、顕微鏡以外の損傷検出方法として、プローブ光による散乱光計測と、プラズマ発光計測を検討し、微分干渉顕微鏡による損傷検出と比較を行ってきた。結果として、プラズマ発光計測の方が顕微鏡観測に近いことが分かった<sup>9)</sup>。

本報告では、レーザー損傷しきい値評価試験の自動化を目的に、波長1064nm用反射防止コートに対して、顕微鏡観測とプラズマ発光計測による損傷検出を比較することにより、プラズマ発光計測による損傷検出の精度および課題について検討した結果をまとめた。

## 2. プラズマ発光の原理と計測配置

パルスレーザー光による光学素子の損傷は、レーザー光の光電場による光学素子材料の絶縁破壊として説明される。光学素子にレーザーパルスが照射されると、レーザーの光子エネルギーにより材料の価電子帯電子が上準位へ遷移する。材料のバンドギャップエネルギーはレーザー光の光子エネルギーよりも十分に大きいため、価電子帯電子は伝導帯まで直接遷移しないが、含有する不純物や欠陥の準位を介して伝導帯まで遷移する可能性がある。またレーザー光の強度が十分に大きくなると、多光子遷移過程により直接伝導帯に遷移することが可能になる。伝導帯での電子の寿命は数ピコ秒であり、多くの電子は格子にエネルギーを伝達して元の価電子帯に戻る。一部の電子は、レーザー光の電場により加速され自由電子となり他の原子に衝突し、新しい自由電子を生成する（衝突電離）。そのためレーザー光のパルス幅が数ピコ秒よりも長くなると、衝突電離が繰り返され、自由電子がカスケード的に増加し、最終的に臨界密度に達すると絶縁破壊となる。絶縁破壊により生成された自由電子とイオンは再結合する。この時に生じるのがプラズマ発光である。

図1にプラズマ発光計測の光学配置を示す。損傷発生用レーザー光をレンズで集光して評価試料に照射する。評価試料が入射角度0°に対する反射防止コートの場合、損傷発生用レーザー光は試料に対して垂直に照射し、透過光はビームダンパーにて遮光する。プラズマ発光計

測には、シリコンフォトディテクタ（ソーラボ製、PDA100A2、立ち上がり時間約32ns）を用いた。フォトディテクタは損傷発生用レーザー光に当たらないように、試料裏側斜め方向からレーザー照射位置に向け設置した。フォトディテクタの受光面には、損傷発生用レーザー光からの散乱光を防ぐために熱線吸収フィルターと光量調節用にNDフィルターを挿入した。図2に、損傷発生時に得られたフォトディテクタからの信号を示す（青色線）。また同時にトリガー信号に用いた損傷発生用レーザー光のパルス波形を黄色線で示す。損傷が発生しない場合には、フォトディテクタの信号は数十mVであるが、損傷およびプラズマ発光が発生すると図2の例のように100mV以上のピークをもつパルス波形が計測される。このパルスは損傷の大きさに依存して大きくなるため、プラズマ発光による損傷検出は信号ピークにて行った。

### 3. 評価試料と損傷しきい値決定法

損傷評価試料には、波長1064nm用反射防止コート15個を用意した。これらの試料は、材料および層数が異なる

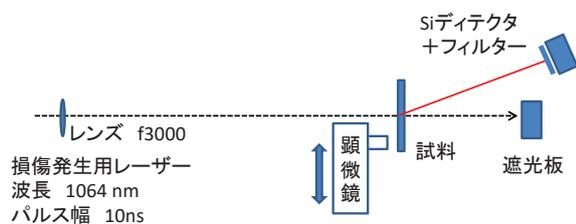


図1 プラズマ発光計測光学配置

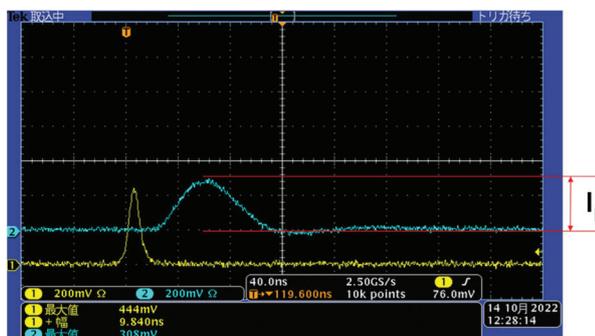


図2 シリコンフォトディテクタで計測したプラズマ発光波形例（青色線）。黄色線はトリガーに用いた損傷発生用レーザーパルス波形。

ったものであり、損傷しきい値も異なることから、プラズマ発光計測による損傷検出精度を確認するには適していると考えた。損傷しきい値評価方法には1-on-1試験を採用し、プラズマ発光計測と同時に微分干渉顕微鏡による表面観察で損傷の有無を確認した。

図3に損傷発生用レーザーの照射フルエンスに対するプラズマ発光信号ピーク強度の計測例を示す。顕微鏡観察で損傷が確認されたデータを●、損傷が確認されなかった（非損傷）データを○でプロットした。損傷発生用レーザーの散乱光は十分に小さいため、損傷が発生しない間はフォトディテクタ信号強度は損傷発生用レーザーフルエンスに依存せず、ほぼ一定である。急激にフォトディテクタ信号が増加している2例では顕微鏡でも損傷が確認されている。一方で、上記の2例の場合より照射フルエンスが低く、フォトディテクタ信号が小さい場合でも、顕微鏡で損傷が確認され、●で示されている場合がある。この差がプラズマ発光計測と顕微鏡観察による損傷しきい値の評価の違いとして現れる。

損傷が確認されなかったときのフォトディテクタ信号も±10mV程度のバラツキがあることが分かる。これはフォトディテクタおよびオシロスコープの量子化誤差である。この誤差と微小プラズマ発光信号を区別するために、統計的な異常検出手法を用いた<sup>7)</sup>。まず非損傷時のN個のデータを元に、フォトディテクタ信号強度の平均値 $\bar{y}$ 、標準偏差 $\sigma$ を求める。非損傷時のフォトディテクタ信号強度はt分布に従うものとする、95%の確率で非損傷と判断できるフォトディテクタ信号強度yの大きさの範囲（95%予測区間）は（1）式で与えられる。

$$y = \bar{y} \pm t(0.05, N - 1) \times \sigma \times \sqrt{1 + \frac{1}{N}} \quad (1)$$

ここで $t(0.05, N-1)$ はt分布関数であり、データの存在確率を示す。自由度N-1が大きくなるほど正規分布に近づき、95%予測区間の信号範囲が狭くなり異常検出精度が上がることになる。図3の測定データの95%予測区間を実線で示す。

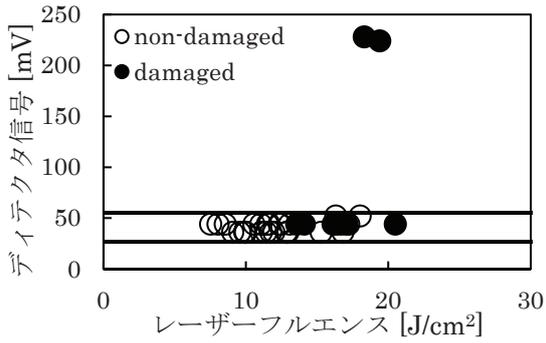


図3 照射レーザーフルエンスに対するフォトディテクタ信号ピーク電圧

#### 4. 損傷しきい値評価結果

図4に、15個の1064nm用反射防止コート試料に対するレーザー損傷しきい値評価結果を示す。青棒は顕微鏡観察により決定された損傷しきい値、赤棒はプラズマ発光計測により決定されたしきい値である。同一仕様の反射防止コートであっても損傷しきい値には大きな違いがある。15個中9個の試料については、顕微鏡観察とプラズマ発光計測ではほぼ同じしきい値として評価された。このことからプラズマ発光計測による損傷検出および損傷しきい値の評価は可能であると言える。顕微鏡観察と一致しなかった試料 (D、E、K、L、M、N) の結果では、プラズマ発光計測で評価したしきい値の方が高

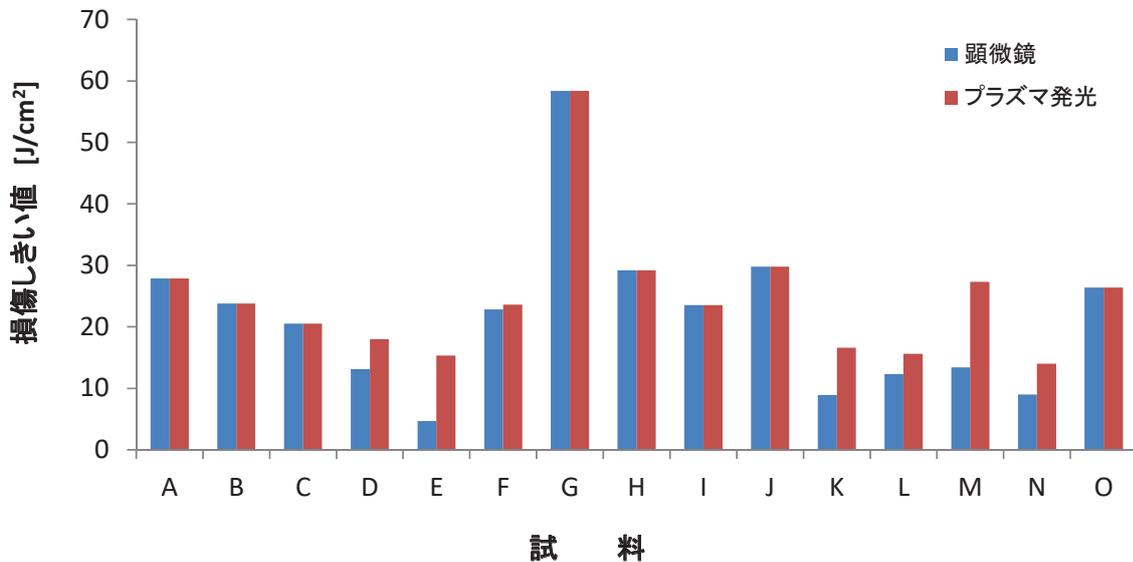


図4 1064nm用反射防止コートの損傷しきい値

いことが分かる。つまり、図3の計測例で示したように、低い照射フルエンスで損傷が発生した時にはプラズマ発光を検出できない場合があることを意味している。その違いを明らかにするために、顕微鏡観察とプラズマ発光計測による損傷しきい値の大きさを直接比較した。図5に比較した結果を示す。顕微鏡観察とプラズマ発光計測で評価した損傷しきい値が同じならば、測定点は図5の破線上にプロットされる。図5から明らかなように、顕微鏡観察で評価した損傷しきい値が20J/cm²未満の場

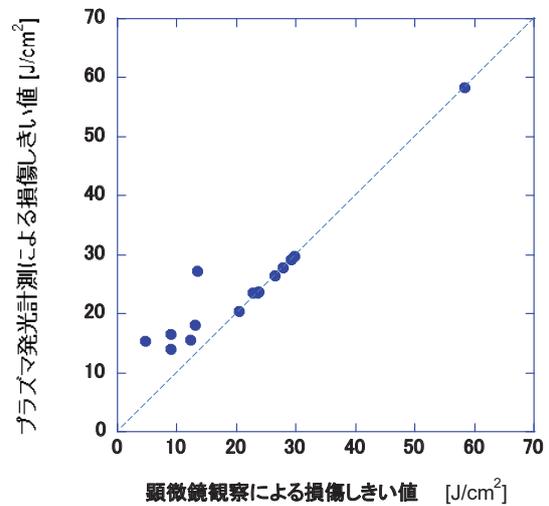


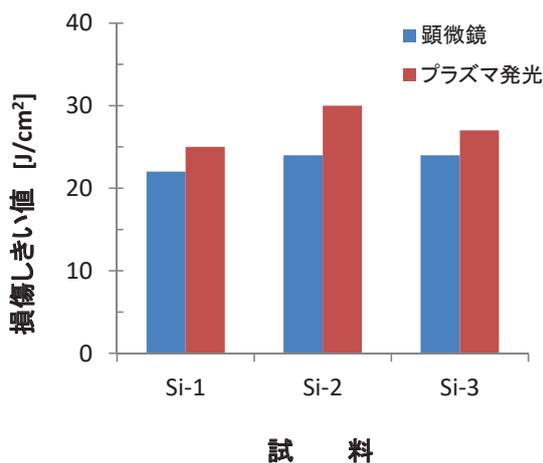
図5 顕微鏡観察とプラズマ発光計測による損傷しきい値の比較

合には、プラズマ発光計測点は破線よりも上に位置している。このことから、照射フルエンス  $20\text{J}/\text{cm}^2$  未満で損傷が発生した場合、プラズマ発光は現状では検出できないことが分かった。

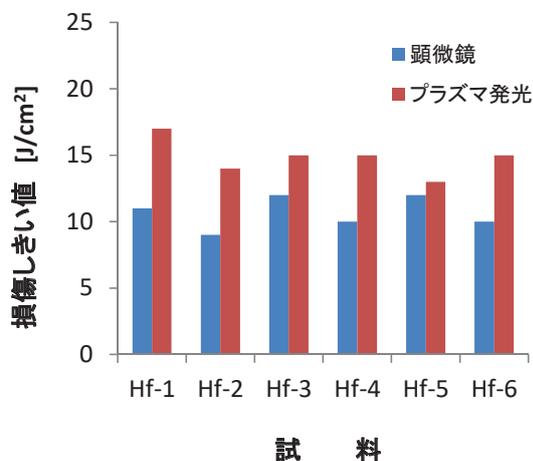
### 5. 波長 355nm 照射時の損傷しきい値の比較

光学素子の損傷評価に際しては、それぞれの素子の光学特性、仕様に応じて評価波長を選択し、安定に、精度よく、損傷を検出しなければならない。図 1 に示したプラズマ発光計測光学配置で、フォトディテクタの前に紫外線吸収フィルターを挿入して、波長 355nm のレーザー光照射時のプラズマ発光を計測し、顕微鏡観察による損傷評価との比較を行った。評価試料には、石英ガラス基

板上に蒸着した  $\text{SiO}_2$  単層膜 (3 個) と、 $\text{HfO}_2$  単層膜 (6 個) を用いた。それぞれの光学膜厚は  $3\lambda$  ( $\lambda=355\text{nm}$ ) として、損傷しきい値が変化するように成膜時の酸素分圧を調整し成膜した。顕微鏡観察およびプラズマ発光計測で評価した損傷しきい値の結果を図 6 に示す。2 種類の単層膜で損傷しきい値の大きさは異なっているが、全ての試料においてプラズマ発光計測による損傷しきい値の方が顕微鏡観察によるしきい値より高い値を示した。 $\text{SiO}_2$  単層膜の場合、損傷しきい値は  $20\text{J}/\text{cm}^2$  を越えており、図 4 や図 5 の  $1064\text{nm}$  の結果では両者の評価結果は一致してよいはずであるが、そうはなっていない。 $355\text{nm}$  照射の場合の不一致は別の要因と考えられる。 $355\text{nm}$  照射の場合には、レーザー損傷が発生しないフルエンス領域でも、フォトディテクタ信号が損傷発生用レーザーの照射フルエンスの増加に従って増えていることが確認された。 $355\text{nm}$  の散乱光は紫外線吸収フィルターにより除去できているが、3 倍高調波への波長変換時に発生する  $532\text{nm}$  (2 倍高調波) の迷光がディテクターに入射され、プラズマ発光検出を妨げるものと考えられる。プラズマ発光は白色光であるため  $532\text{nm}$  の迷光を抑制する必要がある。今後光学配置も含め、 $532\text{nm}$  迷光を防ぎ、 $355\text{nm}$ 、 $532\text{nm}$  の照射試験においてもプラズマ発光計測による損傷検出が可能になるように改善を図る。



(a)  $\text{SiO}_2$  単層膜



(b)  $\text{HfO}_2$  単層膜

図 6 355nm 照射による単層膜の損傷しきい値

### 6. まとめ

レーザー損傷しきい値評価試験の自動化を目的に、損傷時に発生するプラズマ発光計測による損傷検出について、顕微鏡観察によるしきい値との比較を行った。波長  $1064\text{nm}$  照射試験では、損傷しきい値が  $20\text{J}/\text{cm}^2$  以上の材料に対しては、両者が良い一致を示し、顕微鏡観察からの置き換えが可能であることが分かった。損傷しきい値が小さい試料を評価するためには、散乱光などの迷光に対する S/N の改善やプラズマ発光計測感度の向上が必要である。また波長  $355\text{nm}$  照射試験では、波長変換途中で発生する  $532\text{nm}$  の迷光がプラズマ発光計測を阻害すると考えられ、対策を検討する必要がある。

## 謝辞

本研究の一部は、大阪大学レーザー科学研究所、ならびに近畿大学大学院総合理工学専攻との共同研究として行われた。謝意を表します。

## 参考文献

1) <http://www.ilt.or.jp/testing/kenyukai.html>

2) J.B.Frank, et al., Nat. Bur. Stand. Spec. Publ. (1986) 727.

3) A.Stratan, et al., Proc. of SPIE Vol. 8530 (2012) (5301Y-1.

4) K.Mann, et al., Proc. of SPIE Vol. 1438 (1989) 39.

5) L.Sheehan, et al., Proc. of SPIE Vol.3578 (1998) 302.

6) 本越伸二, ILT2022 年報 (レーザー技術総合研究所, 2022) 53.

7) 山西健司他, 情報処理 46 (2005) 34.



# 発表論文リスト



## 発表論文リスト

### ○レーザーエネルギー研究チーム

著者	<u>Hiroyuki Daido</u> , Tomonori Yamada, Koichi Saruta, Masabumi Miyabe, Chikara Ito, Takuya Shibata, Kaoru Inoue, Ryohei Terabayashi, Shuichi Hasegawa
題目	Observation and characterization of quasi-continuous wave kW-class laser interaction with metal and metal oxide targets using a high-speed camera and microscopes
論文誌名	Physica Scripta 98 (2023)035112
著者	K. Fujioka, T. Murakami, S. Motokoshi, T. Yanagitani, H. Yoshida, K. Tsubakimoto, K. Yamamoto, <u>N. Miyanaga</u>
題目	Cascaded energy transfer and enhanced near-infrared emission in visible-pumped Cr and Nd co-doped Yb:YAG
論文誌名	Opt. Mater. 128 (2022) 112396 (2022)
著者	Y. Nakata, K. Tsubakimoto, H. Shiraga, <u>N. Miyanaga</u> , Y. Kosaka, M. Yoshida
題目	Simulation of optical radiation force distribution in interference patterns and necessary conditions for chiral structure formation on dielectrics
論文誌名	Sci. Rep. 12:15264 (2022)

### ○レーザープロセス研究チーム

著者	<u>Gaik Khosrovian</u> , <u>Seiji Taniguchi</u> , <u>Masayuki Fujita</u> , Tomohiro Tsukihana, Naoto Sakaki, Toshikazu Ebisuzaki, Masashi Iwashimizu, Takuya Noritake, Shingo Nishikata, Hiroyuki Daigo
題目	Development of Fast Deformable Mirrors:A Control Model using the Influence Function Approach
論文誌名	OPIC congress, Laser Solutions for Space and the Earth 2022 (LSSE2022)、1-2、(2022)
著者	<u>藤田雅之</u>
題目	レーザー技術の概要と将来展望
論文誌名	電気計算、vol.90, No.4, pp.16-20、(2022)

### ○レーザー計測研究チーム

著者	M. Ehret, Yu. Kochetkov, Y. Abe, K. F. F. Law, N. Bukharskii, V. Stepanischev, S. Fujioka, E. d'Humières, B. Zielbauer, V. Bagnoud, G. Schaumann, <u>T. Somekawa</u> , M. Roth, V. Tikhonchuk, J. J. Santos, and Ph. Korneev
題目	Kilotesla plasmoid formation by a trapped relativistic laser beam
論文誌名	Phys. Rev. E、Vol. 106、045211、(2022)
著者	R. Miyagawa, D. Kamibayashi, H. Nakamura, M. Hashida, H. Zen, <u>T. Somekawa</u> , T. Matsuoka, H. Ogura, D. Sagae, Y. Seto, T. Shobu, and A. Tominaga
題目	Crystallinity in periodic nanostructure surface on Si substrates induced by near- and mid-infrared femtosecond laser irradiation
論文誌名	Scientific Reports, Vol. 12、20955、(2022)
著者	<u>Shohei Matsuda</u> , Nobuaki Nakashima, Keiichi Yokoyama, <u>Seiji Taniguchi</u> , <u>Haik Chosrowjan</u> , <u>Toshihiro Somekawa</u> , Tomoyuki Yatsushashi
題目	Laser-fluence dependence of resonance-enhanced multiphoton reduction of trivalent europium
論文誌名	Chemical Physics Letters, Volume 802, 139759, (2022)

○レーザーバイオ化学研究チーム

著者	谷口誠治、佐伯拓、木村優作、石井隆太
題目	液中レーザーアブレーションによる酸化亜鉛微粒子の還元・ナノ粒子化と金属空気電池への応用
論文誌名	光学、第51巻、第5号、pp.243-251、(2022)
著者	<u>Haik Chosrwjan</u> , <u>Seiji Taniguchi</u> , <u>Masayuki Fujita</u> , Tomohiro Tsukihana, Naoto Sakaki, Toshikazu Ebisuzaki, Masashi Iwashimizu, Takuya Noritake, Shingo Nishikata, Hiroyuki Daigo
題目	Development and Control of Fast Deformable Mirrors using the Influence Function Approach
論文誌名	Advanced Solid State Lasers in Proceedings Optica Advanced Photonics Congress 2022, ISBN: 978-1-957171-20-3, 2pages, (2022)

## 国際学会発表リスト

### ○レーザープロセス研究チーム

著者	<u>G. Khosrovian</u> , <u>S. Taniguchi</u> , <u>M. Fujita</u> , T. Tsukihana, N. Sakaki, T. Ebisuzaki, M. Iwashimizu, T. Noritake, S. Nishikata, H. Daigo
題目	Development of Fast Deformable Mirrors: A Control Model using the Influence Function Approach
会議名	OPIC2022, LSSE2022, Laser Solutions for Space and the Earth 2022, 2022年4月21日, Pacifico Yokohama
著者	<u>H. Chosrowjan</u> , <u>S. Taniguchi</u> , <u>M. Fujita</u> , T. Tsukihana, N. Sakaki, T. Ebisuzaki, M. Iwashimizu, T. Noritake, S. Nishikata, H. Daigo
題目	Development and Control of Fast Deformable Mirrors Using the Influence Function Approach
会議名	Laser Congress and Exhibition, Advanced Solid State Lasers (ASSL), 2022年12月14日, Barcelona Int. Convention Centre, Barcelona, Spain

### ○レーザー技術開発室

著者	<u>Shinji Motokoshi</u> , Kana Fujioka, Junji Kawanaka
題目	Laser-Induced Damage Mechanism of Thin Films for 193-nm multiple pulses
会議名	Optical Interference Coatings 2022、2022年6月24日、Whistler Convention Center
著者	<u>Shinji Motokoshi</u>
題目	Laser-induced damage mechanism of optics for multiple pulses
会議名	2022 Autumn Conference、2022年11月24日、ラハンセレクト慶州

## 国内学会発表リスト

### ○レーザープロセス研究チーム

著者	田島孝敏、新村 亮、藤田雅之、遠藤康平、兒玉了祐、星野 健、金森洋史
題目	レーザー積層造形による月面基地建設材料の製造に関する研究
会議名	令和4年度土木学会全国大会、2022年9月16日、オンライン/国立京都国際会館
著者	藤田雅之
題目	超短パルスレーザーと物質の相互作用とその応用
会議名	日本金属学会 2022年秋季第171回講演大会、2022年9月22日、福岡工業大学
著者	藤田雅之、遠藤康平、兒玉了祐、田島孝敏、新村 亮、金森洋史
題目	レーザー加熱による土質材料の有効利用
会議名	第66回宇宙科学技術連合講演会、2022年11月2日、熊本城ホール
著者	藤田雅之
題目	レーザーの屋外利用に向けた技術専門委員会の取り組み
会議名	レーザー学会学術講演会第43回年次大会、2023年1月18日、ウインクあいち
著者	藤田雅之、遠藤康平、兒玉了祐、田島孝敏、新村 亮、金森洋史
題目	レーザー加熱による月の模擬砂を用いた建設材料の作製
会議名	レーザー学会学術講演会第43回年次大会、2023年1月18日、ウインクあいち

### ○レーザー計測研究チーム

著者	染川智弘
題目	レーザー誘起表面周期構造による道路構造物からの落雪防止について
会議名	2022年度夏季PWC着雪氷防止技術研究クラスター講演会、2022年8月23日、北大電子研
著者	染川智弘、倉橋慎理、伊澤淳、余語覚文、久世宏明
題目	ラマンライダーを利用した水中油の遠隔計測技術の開発
会議名	第40回レーザセンシングシンポジウム、2022年9月1日、福山大学社会連携推進センター
著者	荻田将一、朝日一平、杉本幸代、市川祐嗣、星野礼香、山下望、江藤修三、 <u>染川智弘</u> 、 <u>Haik Chosrowjan</u> 、 <u>谷口誠治</u>
題目	共鳴ラマンライダーを用いた微量SO <sub>2</sub> 、NH <sub>3</sub> ガスの昼間屋外計測
会議名	第40回レーザセンシングシンポジウム、2022年9月2日、福山大学社会連携推進センター
著者	染川智弘、眞子直弘、倉橋慎理、余語覚文、椎名達雄、久世宏明
題目	石炭の自然発火予測に向けたCOの遠隔赤外吸収計測
会議名	第40回レーザセンシングシンポジウム、2022年9月2日、福山大学社会連携推進センター
著者	染川智弘、市川祐嗣、荻田将一、杉本幸代、 <u>ハイクコスロービアン</u> 、 <u>谷口誠治</u> 、朝日一平
題目	フラッシュ共鳴ラマンライダーによるSO <sub>2</sub> ガスの漏えい検知技術の開発
会議名	第83回応用物理学会秋季学術講演会、2022年9月23日、東北大学川内北キャンパス+オンライン
著者	倉橋慎理、 <u>染川智弘</u> 、手塚英志
題目	厚肉コンクリート部材への適用に向けたレーザー超音波肉厚測定技術の開発
会議名	レーザー学会学術講演会第43回年次大会、2023年1月18日、ウインクあいち
著者	染川智弘、倉橋慎理、余語覚文、久世宏明
題目	フラッシュラマンライダーを利用した油の遠隔計測技術の開発
会議名	レーザー学会学術講演会第43回年次大会、2023年1月19日、ウインクあいち
著者	中村浩隆、上村拳生、太田裕也、三好雄大、Tatiana Pikuz、菖蒲敬久、冨永亜希、Rapp Ludovic、Rode Andrei、奈良康永、瀬戸雄介、 <u>染川智弘</u> 、兒玉了祐、尾崎典雅
題目	ベッセルビーム微小爆発による透明結晶内部での高圧物質凍結に関する研究
会議名	レーザー学会学術講演会第43回年次大会、2023年1月19日、ウインクあいち

著者	川崎昂輝、山田英明、長友英夫、弘中陽一郎、山ノ井航平、田中大裕、井手坂朋之、杵野由明、茶谷原昭義、嶋岡毅紘、三間園興、 <u>染川智弘</u> 、佐藤雄二、塚本雅裕、岩本晃史、重森啓介
題目	直接照射型レーザー核融合のためのダイヤモンド燃料カプセルの開発
会議名	レーザー学会学術講演会第43回年次大会、2023年1月19日、ウインクあいち
著者	荻田将一、朝日一平、杉本幸代、市川祐嗣、星野礼香、山下望、江藤修三、 <u>染川智弘</u> 、 <u>Haik Chosrowjan</u> 、 <u>谷口誠治</u>
題目	共鳴ラマンLIDARによる有害物質の昼間屋外での検出限界の評価
会議名	レーザー学会学術講演会第43回年次大会、2023年1月19日、ウインクあいち
著者	杉本幸代、市川祐嗣、荻田将一、山下望、朝日一平、江藤修三、 <u>染川智弘</u> 、 <u>Haik Chosrowjan</u> 、 <u>谷口誠治</u>
題目	共鳴ラマン効果による爆発物遠隔計測に関する検討
会議名	レーザー学会学術講演会第43回年次大会、2023年1月19日、ウインクあいち
著者	田中大裕、澤田寛、川崎昂輝、井手坂朋幸、 <u>染川智弘</u> 、藪内俊毅、宮西宏併、千徳靖彦、清水智弘、新宮原正三、重森啓介
題目	超高エネルギー密度状態下におけるナノワイヤーアレイ内でのエネルギー輸送に関する研究
会議名	レーザー学会学術講演会第43回年次大会、2023年1月20日、ウインクあいち
著者	上村拳生、中村浩隆、尾崎典雅、Rapp Ludovic、Gamaly Eugene、Rode Andrei、Pikuz Tatiana、菖蒲敬久、富永亜希、 <u>染川智弘</u> 、瀬戸雄介、兒玉了祐
題目	フェムト秒レーザー微小爆発によるシリカガラスの中距離構造変化
会議名	レーザー学会学術講演会第43回年次大会、2023年1月20日、ウインクあいち
著者	<u>染川智弘</u> 、 <u>倉橋慎理</u> 、余語 覚文、久世 宏明
題目	フラッシュラマンライダーによる水中油の遠隔計測技術の開発
会議名	第70回応用物理学会春季学術講演会、2023年3月17日、上智大学四谷キャンパス+オンライン

#### ○レーザーバイオ化学研究チーム

著者	<u>Haik Chosrowjan</u> 、 <u>Toshihiro Somekawa</u> 、 <u>Seiji Taniguchi</u>
題目	Investigations of wavelength-tunable nanosecond laser pulse compression characteristics by SBS technique
会議名	第83回応用物理学会秋季学術講演会、2022年9月21日、東北大学川内北キャンパス+オンライン
著者	<u>谷口誠治</u> 、 <u>ハイク コスロービアン</u> 、 <u>稲田順史</u> 、 <u>本越伸二</u> 、 <u>藤田雅之</u>
題目	高出力レーザー伝送への適用に向けた高速動作・高光耐性可変形鏡の開発
会議名	多元技術融合光プロセス研究会、2022年11月1日、東京都立貿易産業センター浜松町館+オンライン
著者	<u>H. Chosrowjan</u> 、 <u>T. Somekawa</u> 、 <u>S. Taniguchi</u>
題目	Nanosecond pulse compression by SBS technique and investigations of its SHG characteristics
会議名	2023年 第70回応用物理学会春季学術講演会、2023年3月15日、上智大学 四谷キャンパス
著者	<u>谷口誠治</u> 、 <u>コスロービアン ハイク</u> 、 <u>稲田順史</u> 、 <u>本越伸二</u> 、 <u>藤田雅之</u> 、 <u>則武卓也</u> 、 <u>岩清水優</u> 、 <u>西方伸吾</u> 、 <u>醍醐浩之</u> 、 <u>榎直人</u> 、 <u>月花智博</u> 、 <u>戎崎俊一</u>
題目	レーザー伝送への適用に向けた高速動作可変形鏡の開発
会議名	第70回応用物理学会春季学術講演会、2023年3月16日、上智大学四谷キャンパス+オンライン

#### ○レーザー技術開発チーム

著者	中村崇作、 <u>本越伸二</u> 、 <u>藤岡加奈</u> 、吉田実
題目	青色レーザー光に対する光学素子の耐光性評価
会議名	第43回年次大会、2023年1月18日、ウインクあいち
著者	<u>本越伸二</u> 、 <u>藤岡加奈</u> 、吉田実
題目	3Dプリンティングによる光学素子作製の基礎研究
会議名	第43回年次大会、2023年1月20日、ウインクあいち



# 事業報告書



# 事業報告書

(令和4年度)

## 概況

レーザー技術総合研究所は、レーザー及びその関連産業の振興を図り、我が国の学術の進展と科学技術の発展に貢献することを責務とし、レーザーとその応用に関する研究開発、調査、情報の収集・提供、人材育成などの事業を鋭意推進すべく活動してきた。令和4年度においても関係各位の協力を得て、概ね計画どおり活動することができた。

### 【令和4年度の主な活動】

産業用レーザー開発プロジェクトでは、高出力レーザーの長距離伝送技術を確立するため、大気ゆらぎによる波面乱れを補正し、ビームを高品質化できる大口径の高速動作可変形鏡を開発した。また、レーザーの大出力化を目的として、新しい位相差計測手法を用いたビーム結合技術を実証した。

レーザーエネルギー分野では、レーザーエネルギーの新しい応用分野の開拓をめざし、原子力や素粒子研究分野で要求されているレーザー関連技術の研究開発を推進した。

レーザープロセス分野では、ものづくりイノベーションを支援するため、レーザー加工等のレーザープロセス技術の基礎・応用開発研究を行った。

レーザー計測分野では、レーザー応用計測・分析技術の高性能化に資する基盤技術である、レーザ打音・レーザー超音波法等の非破壊検査技術やレーザーによる環境計測技術の研究開発を実施した。

レーザーバイオ化学分野では、蛋白質や酵素の機能解明に関するレーザー分光法による研究を進めた。また、光反応を利用した効率的、選択的放射性廃棄物分離法の開発を進めた。

理論・シミュレーション分野では、レーザー加工の物理を解明するため、レーザーと物質の相互作用に関する理論的研究を行った。また、シミュレーション結果を基に巨大地震前の電離層電子密度(TEC)異常現象を再現できる物理モデルの検討を進めた。

レーザー技術開発室では、光学部品や光学材料の開発を進めた。また、産学連携の中核的な存在として、技術、情報、人材等の連携・交流を進めた。

普及啓発活動では、研究成果報告会の開催および展示会への出展、機関誌「レーザークロス」の発行、「ILT2022年報」の発行、ホームページ更新およびメール配信など積極的な情報発信に努めた。

## 1. 役員等の異動

(理事)

年月日	就任	退任
R4.4.25	林 知則	坂本 憲志
R4.6.23 (改選)	高西 一光(再任)	
R4.6.23 (改選)	井澤 靖和(再任)	
R4.6.23 (改選)	中神 保秀(再任)	
R4.6.23 (改選)	上原 拓也(再任)	
R4.6.23 (改選)	川崎 守(再任)	
R4.6.23 (改選)	神崎 寛(再任)	
R4.6.23 (改選)	兒玉 了祐(再任)	
R4.6.23 (改選)	齋藤 公秀(再任)	
R4.6.23 (改選)	佐藤 俊志(再任)	
R4.6.23 (改選)	林 知則(再任)	
R4.6.23 (改選)	山下 圭(再任)	

(監事)

年月日	就任	退任
R4.6.23	日根野 健	日根野 文三

(評議員)

年月日	就任	退任
R4.5.26	中野 智之	大塚 倫生

## 2. 役員会等の開催

### (1) 理事会

第 49 回理事会 (令和 4 年 4 月 13 日 みなし決議)

決議事項

- ・臨時の第 36 回評議員会の招集及び目的である事項

第 50 回理事会 (令和 4 年 5 月 16 日 みなし決議)

決議事項

- ・臨時の第 37 回評議員会の招集及び目的である事項

第 51 回理事会 (令和 4 年 6 月 2 日 Web 会議)

決議事項

- ・令和 3 年度事業報告
- ・令和 3 年度財務諸表
- ・定時の第 38 回評議員会の招集及び目的である事項

報告事項

- ・職務執行状況の報告

第 52 回理事会（令和 4 年 7 月 11 日 みなし決議）

決議事項

- ・理事長、副理事長及び常務理事の選定

第 53 回理事会（令和 5 年 3 月 9 日 Web 会議）

決議事項

- ・令和 5 年度事業計画
- ・令和 5 年度収支予算書及び資金調達及び設備投資の見込み
- ・育児・介護休業等に関する規程の制定
- ・就業規則の改定
- ・給与規程の改定

報告事項

- ・職務執行状況の報告

(2) 評議員会

第 36 回評議員会（令和 4 年 4 月 25 日 みなし決議）

決議事項

- ・理事の選任

第 37 回評議員会（令和 4 年 5 月 26 日 みなし決議）

決議事項

- ・評議員の選任

第 38 回評議員会（令和 4 年 6 月 23 日 Web 会議）

決議事項

- ・令和3年度財務諸表
- ・改選期に伴う理事の選任
- ・監事の選任

報告事項 ・令和3年度事業報告

3. 賛助会員状況

令和 4 年度末会員数                      32 社      71.5 口

4. 学会および論文発表

学会発表                                      29 件（国内：25 件、国外：4 件）

論文発表                                      10 件（国内：8 件、国外：2 件）

5. 特許等出願件数

令和4年度出願件数 4件

令和4年度末特許保有件数 54件 (登録: 23件、公開: 21件、他: 10件)

## I 研究開発および調査事業

研究開発の推進と成果の拡充を図るため、研究部門では以下のとおり事業活動を実施した。

### 1. 研究調査事業

#### 【産業用レーザー開発プロジェクト】

レーザー加工技術の発展に資するため、kW 級産業用レーザーに必要とされる基盤技術の開発を進めた。

#### (1)波面制御技術に関する研究

レーザービームを高品質化できる波面制御技術について、大出力レーザーの波面歪みを補償する大口径の高速動作可変形鏡を開発した。

#### (2)ビーム結合に関する研究

レーザーの大出力化において重要性が高まりつつあるビーム結合技術に関し、新しい位相差計測手法を用いたビーム結合技術を実証した。

[関連する主な受託・共同研究]

- ・高速移動物体への遠距離・高強度光伝送のための予測的波面制御の研究

#### 【レーザーエネルギー研究チーム】

レーザーエネルギーの新しい応用分野の開拓をめざし、原子力や素粒子研究分野で要求されているレーザー関連技術の研究開発を推進した。

#### (1)原子炉廃止措置におけるレーザー応用の研究

レーザー解体は、原子炉廃止措置において実用化が期待される技術の一つである。金属（ステンレス鋼）、金属酸化物（ジルコニア、酸化ガドリニウム、アルミナ等、熱的特性、機械的特性の異なる酸化物）材料に対するレーザー照射特性を詳細に分析した。それを踏まえ切断時に発生する微粒子を閉じ込め、回収する技術に向けたデータを集積した。

#### (2) 二重ベータ崩壊の研究に必要なレーザーの開発研究

素粒子研究分野で実施されている二重ベータ崩壊の実験では、大量の  $^{48}\text{Ca}$  同位体が必要とされている。 $^{48}\text{Ca}$  のレーザー濃縮をめざし、注入同期型青紫色半導体レーザーの狭線幅化と多ビームアレイによる高出力化の研究を進めた。

[関連する主な受託・共同研究]

- ・ $^{48}\text{Ca}$  を用いたニュートリノマヨラナ性の研究と次世代高感度化技術開発

## 【レーザープロセス研究チーム】

ものづくりイノベーションを支援するレーザープロセス技術の基礎・応用開発研究を行った。

### (1) 短パルスレーザー加工に関する研究

フェムト秒からナノ秒領域の短パルスレーザーを用いた金属、半導体、誘電体等、各種材料の加工特性の検討を行った。

### (2) レーザー加工のインフラ構造物への適用性に関する研究

土木・建築業界へのレーザー技術の普及をめざし、安全ガイドライン評価基準の具体化を進めるとともに、表面クリーニング、積層造形による建材作製、ならびに道路標識の防雪、防氷などに関するレーザー加工技術の適用性を検討した。

### (3) レーザーによるナノ構造体生成技術の研究

レーザー加熱によるハイエントロピー合金ナノ粒子作成技術について調査し、具体的な試験条件および生成物の環境応用に関する知見を得た。

[関連する主な受託・共同研究]

- ・月資源を用いた拠点基地建設材料の製造と施工方法の技術開発
- ・レーザー加工による難着氷雪技術の研究

## 【レーザー計測研究チーム】

レーザー応用計測・分析技術の高性能化に資する基盤技術の開発を実施した。

### (1) 非破壊診断技術の高度化研究

レーザーを用いたコンクリート構造物の健全性評価技術の実用化をめざし、非破壊検査システムのさらなる高度化を検討した。また、システムの小型化と欠陥判定アルゴリズムの信頼性向上、機械学習を用いた欠陥判定技術の開発を進めた。

### (2) レーザー打音・レーザー超音波法の応用研究

重機打撃とレーザー振動計によるトンネル切羽での落石危険度の現場評価試験を実施した。新たな応用としてダム嵩上げ時の浮き石検知へのレーザー打音法の適用可能性を検討した。また、レーザー超音波による厚肉コンクリート部材への適用検討も実施した。

### (3) レーザーによる環境計測技術の研究

ラマン分光を利用した大気中微量分析が実施可能なレーザー光源などを調査し、海中環境の遠隔評価手法としてフラッシュ方式のライダー技術を開発した。また、レーザー誘起ブレイクダウン分光法によるコンクリート塩害評価に向けた基礎検討を継続した。

[関連する主な受託・共同研究]

- ・レーザーによるコンクリート欠陥検査に関する研究
- ・海底開発における環境影響評価に向けた水中ライダーシステムの開発

### 【レーザーバイオ化学研究チーム】

蛋白質や酵素の機能解明に関する研究を進めた。また、光反応を利用した効率的、選択的核廃棄物分離法の開発を進めた。

#### (1) 光合成関連酵素の機能研究

光合成反応に関わる機能酵素について、レーザー計測および理論計算により環境変化に伴う酵素構造の変化を予測した。

#### (2) パルスレーザーによる溶液中ランタノイドイオンの光酸化・還元の研究

多光子吸収過程を利用した核廃棄物分離プロセスについて、基礎的な分離手法を確立するとともに、光反応経路の分析を行った。

[関連する主な受託・共同研究]

- ・溶液中金属イオンの光酸化還元に関する研究

### 【理論・シミュレーションチーム】

レーザー加工の物理を解明するため、レーザーと物質の相互作用に関する理論的研究を幅広く行った。また、地震先行現象の物理モデルの検討を進めた。

#### (1) レーザー加工とその応用に関する理論的研究

相変化、微粒子生成、応力発生などを含め、大気中や水中のレーザー加工過程を記述するシミュレーションコードの精緻化を図った。また、第一原理計算で得られる光電場による励起電子数密度の結果を用いて、 $\text{SiO}_2$  結晶にレーザーを照射した際の光励起係数のレーザー強度依存性を評価した。

#### (2) 地震先行現象の物理メカニズム研究

シミュレーション結果を基に TEC 異常の測定結果を定量的に良く再現できる物理モデルを構築した。

### 【レーザー技術開発室】

光学部品や光学材料の技術開発を行い、技術、情報、人材等の連携・交流を進めた。

#### (1) 光学素子の高耐力化研究

光学素子・材料のレーザー損傷機構解明の研究を行い、紫外用高屈折率材料である酸化ハフニウム薄膜のコーティング条件の最適化を進めた。

## (2) レーザー損傷評価

光学素子・材料のレーザー損傷試験の自動化のためにプラズマ発光による損傷検出の精度、再現性を評価した。また、青色半導体レーザー光の高出力化に対応するために、波長 450nm 用の照射光学系を構築した。

## (3) 新材料技術の開発研究

レーザー三次元造形法を用いた光学素子形成技術開発を進めた。フェムト秒パルスレーザー照射によるシリコン油からガラスへの変化を確認した。

## 2. 各種研究会活動

当研究所の研究開発活動を効率的・発展的に推進するため、関連各界の意見・情報収集の場として、次のような研究会を開催し、当研究所の事業の活性化を図った。

[実施した主な研究会]

- ・次世代レーザー技術応用研究会
- ・高耐力光学素子研究会

## 3. 産学官連携の推進

ホームページ上の技術相談窓口等で受け付けた、企業の技術開発・改良に対する支援、光学部品の損傷評価、微細加工、超音波診断など 50 件の相談・要望に対し、積極的に対応した。

学界との連携では、大阪大学レーザー科学研究所等との共同研究をはじめ、国内外の大学と積極的に連携を図りながら研究を行った。

産学官の連携では、企業、大学等と連携を図りながら、国が主導する産学官連携プロジェクト研究に参画した。

## 4. 関連団体との連携

(国)日本原子力研究開発機構(JAEA)、(国)量子科学技術研究開発機構(QST)、(国)理化学研究所(RIKEN)、(国)宇宙航空研究開発機構(JAXA)、(一財)光産業技術振興協会(OITDA)、(一財)大阪科学技術センター(OSTEC)、(一財)近畿高エネルギー加工技術研究所(AMPI)、(公財)若狭湾エネルギー研究センター(WERC)、(一社)レーザー学会(LSJ)、(一社)レーザプラットフォーム協議会(LPF)、(特非)日本フォトニクス協議会関西支部(JPC 関西)、(特非)光科学アライアンスなど関連団体とも積極的に情報交流や人的交流を図り、これらの団体と連携してわが国のレーザー技術の発展と普及に寄与する活動を推進した。

## 5. 公募研究

国等が公募を行っている各種競争的研究資金の獲得に努め、本年度は以下の採択課題に参加した。

- (1) 高速移動物体への遠距離・高強度光伝送のための予測的波面制御の研究(安全保障技術研究推進制度)
- (2) 月資源を用いた拠点基地建設材料の製造と施工方法の技術開発(国土交通省)

## 6. 受託研究

展示会、ホームページなどを通じて受託研究の広報を行い、技術相談窓口等で依頼を受け、レーザー損傷評価試験も含め 30 件の受託研究を実施した。(公募によるものを除く)

## 7. 補助事業

文部科学省の科学研究費補助金を活用し、以下のような研究を実施した。

- (1) Investigations of spectrally tunable, nanosecond laser pulse compression characteristics by SBS technique(基盤研究 C)
- (2)  $^{48}\text{Ca}$  を用いたニュートリノマヨラナ性の研究と次世代高感度化技術開発  
(科学研究費補助金 新学術領域研究(研究領域提案型))
- (3) 海底開発での環境影響評価のための海中フラッシュライダー3D マッピング技術の開発(基礎研究 B)

## II 普及啓発活動事業

レーザー技術の普及啓発活動として、情報の発信・提供、人材交流などの事業を以下のとおり実施した。

### 1. 人材の育成

大学、関連研究機関、企業などとの共同研究や技術相談を通じ、若手研究員の技術指導を行うことによりレーザー技術に関する人材育成に貢献した。

## 2. 研究成果報告会

大阪ならびに東京にて、令和 3 年度の研究成果を報告する研究成果報告会 (ILT2022)を開催した。

- ・ 7 月 20 日 マイドームおおさか
- ・ 11 月 9 日 東京都立産業貿易センター 浜松町館

## 3. 機関誌等の発行

機関誌「Laser Cross」の発行および電子メールでの情報配信により、当研究所の研究成果やレーザーに関する国内外の研究開発動向など、幅広い情報の提供を行った。

## 4. 展示会への出展

関係団体が主催する光技術やレーザーに関する展示会へ積極的に出展し、当研究所の広報活動に努めた。

- ・ OPIE'2022(レーザーEXPO) 4 月 20 日～22 日 パシフィコ横浜
- ・ 光・レーザー関西 2022 7 月 20 日～21 日 マイドームおおさか
- ・ 光とレーザーの科学技術フェア 2022 11 月 9 日～11 日 東京都立産業貿易センター 浜松町館

## 5. 国際交流

海外のレーザー技術の開発動向や産業応用に関連した情報を収集するとともにレーザー関連団体や関係研究機関との情報交換・人材交流を図るため、計 4 の国際会議へ参加した。

- (1) OPIC 2022(4 月 18 日-22 日、パシフィコ横浜)
- (2) OPIC2022(6 月 19 日-24 日、カナダ・ウィスラー)
- (3) 韓国レーザー加工学会(11 月 24 日-25 日、韓国・慶州)
- (4) Laser Congress2022(12 月 11 日-15 日、スペイン・バルセロナ)

### Ⅲ そ の 他 事 業

#### 1. IFE（慣性核融合エネルギー：Inertial Fusion Energy）フォーラム活動

レーザー核融合によるエネルギー開発に向けた活動や産学共創を目指す委員会活動などを支援した。

#### 2. 出版物の刊行

令和3年度の研究成果を年報にまとめ、刊行した。

- ・「ILT2022年報」（2021～2022）（令和4年7月発行）

#### 3. 泰山賞の贈呈

泰山賞により、レーザー科学技術の研究開発とその産業応用に貢献した方々を表彰した。第三者を含む選考委員会において受賞者を選考し、7月の成果報告会(大阪)にて贈呈式を行った。

レーザー進歩賞

- ・「光渦レーザーの開発とその応用の開拓」

尾松孝茂氏

（附属説明書について）

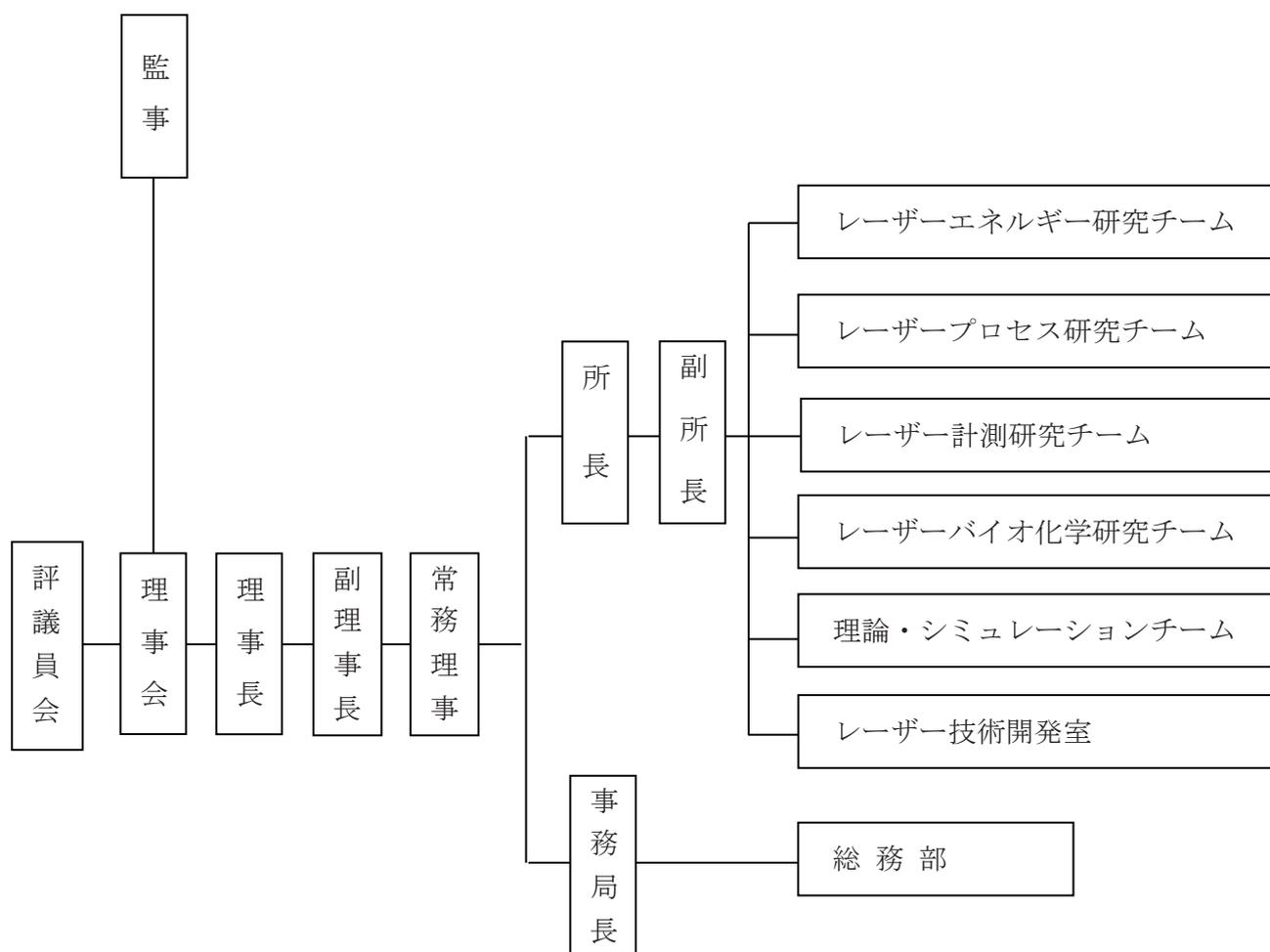
「一般社団法人及び一般財団法人に関する法律施行規則」第34条第3項に規定する附属明細書については、「事業報告の内容を補足する重要な事項」がないため、作成しない。



組 織 図  
構 成 員 一 覧



## 組 織 図



(令和5年6月現在)

## 構 成 員 一 覧

理事長 副理事長 常務理事	高西一光 井澤靖和 中神保秀
---------------------	----------------------

◇研究部	所長	井澤靖和
【レーザーエネルギー研究チーム】	チームリーダー 特別研究員 特別研究員	井澤靖和 (兼務) 宮永憲明 大道博行
【レーザープロセス研究チーム】	主席研究員 主任研究員 主任研究員 副主任研究員	藤田雅之 (チームリーダー) 谷口誠治(兼務) 染川智弘(兼務) コスロービアン ハイク(兼務)
【レーザー計測研究チーム】	主任研究員 研究員 研究員	染川智弘 (チームリーダー) 倉橋慎理 松田晶平
【レーザーバイオ化学研究チーム】	主任研究員 副主任研究員	谷口誠治 (チームリーダー) コスロービアン ハイク
【理論・シミュレーションチーム】	チームリーダー 研究員	井澤靖和 (兼務) 古河裕之
【レーザー技術開発室】	主任研究員	本越伸二 (室長)
◇総務部	事務局長 総務部長 マネージャー チーフ 事務員 事務員	中神保秀 中神保秀 (兼務) 小玉善文 藤田淑子 林 絢子 片岡紀子
【特別研究員】	元日新電機株式会社 三重県立看護大学 名誉教授 元東京工業大学 准教授 大阪市立大学 特任教授 大阪大学 名誉教授 大阪大学 名誉教授 元日本原子力研究開発機構 (株)コヒーレントシステムズ	鈴木泰雄 田中文夫 糟谷紘一 中島信昭 中塚正大 宮永憲明 大道博行 内田成明

(令和5年6月現在)

【共同研究員】

大阪大学レーザー科学研究所	所長	兒玉了祐
大阪大学レーザー科学研究所	教授	斗内政吉
大阪大学レーザー科学研究所	教授	山本和久
大阪大学レーザー科学研究所	教授	重森啓介
大阪大学レーザー科学研究所	教授	千徳靖彦
大阪大学レーザー科学研究所	教授	藤岡慎介
大阪大学レーザー科学研究所	教授	余語覚文
大阪大学レーザー科学研究所	准教授	坂和洋一
大阪大学レーザー科学研究所	准教授	中嶋 誠
大阪大学レーザー科学研究所	准教授	中田芳樹
大阪大学レーザー科学研究所	准教授	長友英夫
大阪大学レーザー科学研究所	准教授	藤岡加奈
大阪大学レーザー科学研究所	准教授	椿本孝治
大阪大学レーザー科学研究所	特任教授	乗松孝好
大阪大学大学院基礎工学研究科	教授	宮坂 博
大阪大学大学院理学研究科	准教授	山中千博
大阪大学接合科学研究所	教授	節原裕一
大阪大学接合科学研究所	教授	塚本雅裕
大阪工業大学工学部	教授	西口彰夫
大阪産業大学工学部	教授	草場光博
大阪産業大学工学部	教授	部谷 学
大阪公立大学大学院理学研究科	教授	八ッ橋知幸
岡山大学大学院自然科学研究科	助教	西川 亘
核融合科学研究所	准教授	岩本晃史
核融合科学研究所	教授	安原 亮
関西学院大学理学部化学科	教授	玉井尚登
関西大学システム理工学部	教授	浅川 誠
関西大学システム理工学部	教授	佐伯 拓
京都大学化学研究所	教授	時田茂樹
京都大学大学院工学研究科	特定助教	保田尚俊
近畿大学理工学部	教授	吉田 実
近畿大学理工学部	非常勤講師	橋新裕一
近畿大学理工学部	教授	中野人志
近畿大学生物理工学部	講師	三上勝大
国立研究開発法人土木研究所 寒地土木研究所	研究員	櫻井俊光
千葉大学環境リモートセンシング研究センター	協力研究員	久世宏明
千葉大学大学院工学研究院	准教授	椎名達雄
千葉工業大学	教授	藤本 靖
電気通信大学大学院情報理工学研究科	教授	西岡 一
東海大学総合科学技術研究所	特任教授	橋田昌樹
東京工業大学大学院総合理工学研究科	講師	河村 徹
東京工業大学環境・社会理工学院	教授	廣瀬壯一
東北大学大学院工学研究科	教授	田中秀治
東北大学大学院理学研究科	准教授	柴田 穰
日本原子力研究開発機構	客員研究員	田口俊弘
日本大学生産工学部建築工学科	教授	永井香織
光産業創成大学院大学	教授	藤田和久
広島大学先進理工系科学研究科	教授	遠藤琢磨
広島大学先進理工系科学研究科	教授	城崎知至
福井大学工学系部門工学領域	教授	金邊 忠
福岡工業大学情報工学部	教授	中村龍史
福井工業大学工学部電気電子情報工学科	教授	中井光男
国立研究開発法人物質・材料研究機構	主幹研究員	古瀬裕章
北海道大学大学院工学研究院	教授	足立 智
北海道大学大学院工学研究院	教授	長谷川靖哉

宮崎大学産学・地域連携センター	准教授	甲藤正人
山梨大学大学院総合研究部	教授	張本鉄雄
山梨大学大学院総合研究部	准教授	宇野和行
立命館大学情報理工学部	教授	陳 延偉
立命館大学総合科学技術研究機構	客員教授	七田芳則
量子科学技術研究開発機構量子ビーム科学部門関西光科学研究所光量子科学研究部	グループリーダー	山川考一
量子科学技術研究開発機構量子ビーム科学部門関西光科学研究所光量子科学研究部	専門業務員	佐々木明
量子科学技術研究開発機構量子ビーム科学部門関西光科学研究所光量子科学研究部	主幹研究員	長谷川登
量子科学技術研究開発機構量子ビーム科学部門関西光科学研究所光量子科学研究部	グループリーダー	錦野将元
量子科学技術研究開発機構量子ビーム科学部門関西光科学研究所研究企画室	室長	近藤修司
量子科学技術研究開発機構量子ビーム科学部門関西光科学研究所研究企画室	主幹技術員	岡田 大

評 議 員  
理 事 ・ 監 事  
賛 助 会 員



## 評 議 員

(敬称略)

- 重松昌行 住友電気工業株式会社 研究開発本部 技師長
- 添田純一郎 パナソニック株式会社 EW社 システムテクノロジー開発センター所長
- 高林幹夫 三菱電機株式会社 先端技術総合研究所 所長
- 田中 淳 量子科学技術研究開発機構 量子技術基盤研究部門  
関西光量子科学研究所 所長
- 長谷川友安 一般財団法人大阪科学技術センター 専務理事
- 原 勉 浜松ホトニクス株式会社 常務取締役 中央研究所長
- 東 邦夫 京都大学 名誉教授
- 藤井大士 関西電力株式会社 原子燃料サイクル室長
- 美濃由明 一般財団法人電力中央研究所 常務理事
- 山田裕之 富士電機株式会社 発電プラント事業本部 原子力事業部長

## 理事・監事

(敬称略)

理事長	高西一光	関西電力株式会社 執行役常務
理事	井澤靖和	公益財団法人レーザー技術総合研究所 所長・大阪大学 名誉教授
	中神保秀	公益財団法人レーザー技術総合研究所 常務理事
	上原拓也	東芝エネルギーシステムズ株式会社 エネルギーシステム技術開発センター 量子システム開発部 シニアマネージャー
	神崎 寛	三菱重工業株式会社 原子力セグメント 原子力技術部長
	兒玉了祐	大阪大学レーザー科学研究所 所長・教授
	齊藤知孝	中部電力株式会社 技術開発本部 技術企画室長
	齋藤公秀	日本電気株式会社 関西支社 官公第一営業グループ グループ長
	佐藤俊志	富士電機株式会社 関西支社 営業第二部 部長
	林 知則	三菱電機株式会社 関西支社 原子力部長
	山下 圭	東京電力ホールディングス株式会社 技術戦略ユニット技術統括室長
監事	西原功修	大阪大学 名誉教授
	日根野健	税理士法人日根野会計事務所 代表社員
	吉村 隆	株式会社三井住友銀行 大阪本店営業第二部長

## 賛助会員

(50音順)

会社・団体名	
一般財団法人大阪科学技術センター	株式会社ダイヘン
株式会社オカモトオプティクス	一般財団法人電力中央研究所
株式会社オプトサイエンス	東芝エネルギーシステムズ株式会社
鹿島建設株式会社	TOWAレーザーフロント株式会社
株式会社片岡製作所	日本電気株式会社
一般財団法人関西情報センター	パナソニック株式会社ライフソリューションズ社
関西電力株式会社	浜松ホトニクス株式会社
株式会社KANSOテクノス	一般財団法人光産業技術振興協会
関電不動産開発株式会社	株式会社日立製作所
関電プラント株式会社	富士電機株式会社
株式会社きんでん	前田建設工業株式会社
株式会社熊谷組	株式会社三井住友銀行
光伸光学工業株式会社	三菱重工業株式会社
株式会社島津製作所	三菱電機株式会社
清水建設株式会社	一般社団法人レーザー学会
住友電気工業株式会社	
	合計31社

# ILT2023 年報

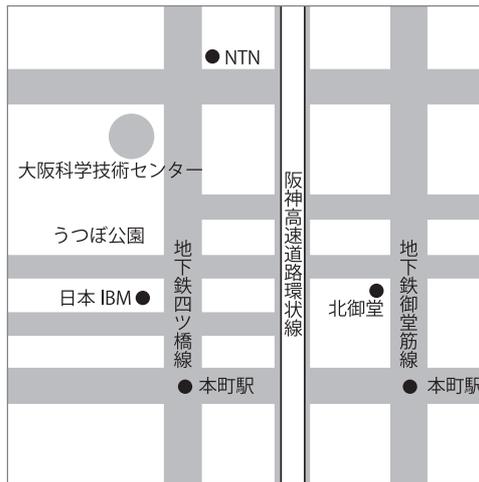
2023 年 7 月 発行

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 F

TEL (06) 6443-6311 (代)

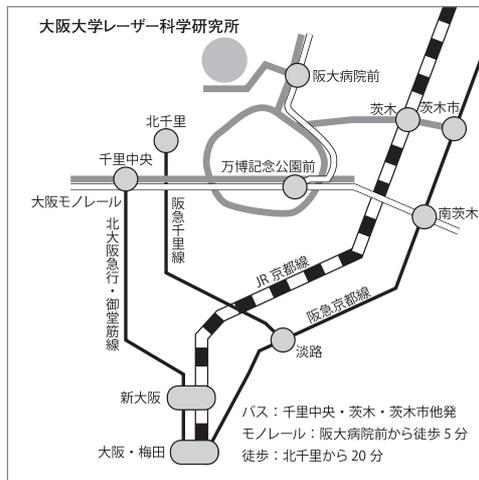
公益財団法人 レーザー技術総合研究所



総務部／ 大阪市西区靱本町1丁目8番4号 〒550-0004  
 大阪科学技術センタービル4F  
 TEL.06-6443-6311 (代)  
 FAX.06-6443-6313



研究部／ 尼崎市若王寺3丁目11番20号 〒565-0871  
 関西電力(株)技術研究所内  
 TEL.06-6492-7613  
 FAX.06-6492-5641



共同研究先／ 吹田市山田丘2番6号〒565-0871  
 大阪大学レーザー科学研究所  
 TEL.06-6878-1264  
 FAX.06-6878-1568



Institute for Laser Technology