

京都大学	博士（工学）	氏名	田村 文香
論文題目	Mechanism of laser-plasma formation in water and the application to in-situ elemental analysis (水中レーザープラズマの生成メカニズムとその場元素分析への応用)		

(論文内容の要旨)

本論文は、水中でのその場レーザー誘起ブレイクダウン分光法への応用を念頭に、水中レーザーアブレーションによるレーザープラズマの生成メカニズムについて調べたもので、序論および5章で構成されている。

序論では、レーザーアブレーションとレーザー誘起ブレイクダウン分光法 (LIBS) について概説し、水中でのレーザーアブレーションの特徴および水中その場でのレーザー誘起ブレイクダウン分光法への応用における問題点について述べている。さらに、この現象を解明するための実験方法、水中レーザーアブレーションで重要な役割を演じる衝撃波や気泡に関する研究、またダブルパルス法やロングパルス法といったレーザー照射方法の違いが現象におよぼす影響に関するこれまでの研究を概観し、本研究の目的および概要を記述している。

第1章では、レーザーアブレーションプラズマ中の原子の発光線のスペクトルプロファイルの向上を目指して、ダブルパルス法による水中 LIBS における最適な照射条件の探索を行っている。ダブルパルスを構成する2つのレーザーパルスのエネルギーおよびパルス間隔をパラメータとしてさまざまに変えて調べることにより、非常に低いエネルギーのパルスを用いた場合にプラズマ生成初期の連続スペクトル発光が著しく低減されることを見だし、時間分解測定することなく先鋭な発光スペクトル線を得ることに成功している。また、第1パルスは発光をほとんど誘起することなく気泡を生成させ、第2パルスが気泡中でプラズマを生成させることにより、高密度なプラズマの生成が抑制され、先鋭な発光スペクトル線が得られるというメカニズムを提案している。

第2章では、10個程度のパルスで構成されるパルス列 (マルチパルス) を照射したときの気泡の膨張収縮ダイナミクスを調べている。パルス間隔と各パルスのエネルギーは第1章のダブルパルス照射で先鋭な発光スペクトル線が得られた場合と同程度である。このマルチパルスレーザーで水中の銅ターゲットを照射し、生成した気泡の画像を時間分解測定することで気泡半径の時間変化を求めている。その結果、パルス列の照射が続いても気泡は維持されることなく収縮に向かうことを見だしている。気泡半径の測定結果を、気泡の膨張収縮を記述する Rayleigh-Plesset モデルによる計算と比較することで、主として第1パルスの効果だけで気泡の膨張収縮ダイナミクスが決定されており、第2パルス以降のパルスエネルギーは気泡の膨張にほとんど使われないことを明らかにしている。

第3章では、一般的なナノ秒パルスレーザー (約 10 ns) よりもパルス幅が長いロングパルス (約 100 ns) で照射した場合に水中で先鋭な発光スペクトル線が得られる理由を解明するため、照射レーザーパルスの時間プロファイルが発光スペクトルに与える影響を調べている。光学系を工夫することでパルス間隔が 76 ns のダブルパルスを実現し、パルス間隔を固定したままパルス幅やエネルギーを変化させることで異なる時間プロファイルのパルスを得ている。それぞれのパルスで照射した場合について発光スペクトル、発光強度の時間変化、衝撃波を測定した結果、100 ns 程度の時間持続的に照射スポットにエネルギーを供給することが、先鋭な発光スペクトル線を

京都大学	博士（工学）	氏名	田村 文香
<p>得るために重要であることを明らかにしている。</p> <p>第4章では、先鋭な発光スペクトル線を与えるような高励起なプラズマがロングパルス照射によって得られるメカニズムを解明するため、気泡生成のタイミングや生成直後の気泡の形状に対するパルス幅の効果について調べている。その結果、パルス幅によらず気泡はパルスの立ち上がりで生成しているが、パルス幅が短い場合気泡は扁平であり気泡中に高密度なプラズマが形成されるという結果を得ている。それに対してパルス幅が長い場合はパルス前半で明確な界面をもった半球状の気泡が生成していることを見いだしており、数百ナノ秒後のスペクトル測定時までプラズマが比較的高励起な状態を保持しているのは、初期に気泡中でプラズマが温存されるためと説明している。</p> <p>第5章では、レーザー照射中あるいは照射直後のプラズマと気泡を同時に観測し、生成初期の気泡とプラズマのサイズを比較することでパルス幅によるプラズマ生成メカニズムの違いを調べている。その結果、レーザーパルスのピーク付近の時間で、パルス幅が短い場合は発光が見られる領域のサイズが気泡より大きいのに対して、パルス幅が長い場合はプラズマのサイズが気泡よりも十分小さいことを見いだしている。パルス幅が短い場合、プラズマはその生成初期に周囲の水によって急速に冷却されるが、パルス幅が長い場合はこのような冷却効果が抑制されることにより、スペクトル測定のタイミングで高い発光強度を保っていると考えており、レーザー照射中での気泡の挙動が重要な役割を担っていることを明らかにしている。</p>			

(論文審査の結果の要旨)

本論文は、水中レーザーアブレーションによって生成するレーザープラズマの発光スペクトルとプラズマの生成メカニズムに関する研究成果をまとめたものであり、得られた成果は次の通りである。

1. ダブルパルス照射による水中レーザーアブレーションプラズマ中の原子の発光スペクトル線をさまざまな照射条件について検討し、非常に低いエネルギーのパルスを用いた場合にプラズマ生成初期の連続スペクトル発光が著しく低減されることを見だし、時間分解測定することなく先鋭な発光スペクトル線を得ることに成功している。また、第1パルスは発光をほとんど誘起することなく気泡を生成させ、第2パルスが気泡中でプラズマを生成させることにより先鋭な発光スペクトル線が得られるというメカニズムを提案している。

2. 非常に低いエネルギーのパルスで構成されるパルス列で照射した場合、主として第1パルスの効果だけで気泡の膨張収縮ダイナミクスが決定されており、第2パルス以降のパルスのエネルギーは気泡の膨張にほとんど使われないことを明らかにしている。

3. さまざまな時間プロファイルのパルスで照射した場合について、発光スペクトルの他、発光強度の時間変化、生成する衝撃波の数を検討することにより、100 ns 程度の時間持続的に照射スポットにエネルギーを供給することが先鋭な発光スペクトル線を得るために重要であることを明らかにしている。

4. 生成初期の気泡とプラズマの画像を測定し、パルス幅によるプラズマ生成メカニズムの違いを検討した結果、パルス幅が短い場合にはプラズマはその生成初期に周囲の水によって急速に冷却されるが、パルス幅が長い場合はこのような冷却効果が抑制され、それにともなって高い発光強度のスペクトルが得られるというメカニズムを提案している。

以上、本論文は、水中レーザーアブレーションによるレーザープラズマの生成メカニズムを解明し、レーザー照射方法と発光スペクトルの関係を明らかにすることにより、水中その場レーザー誘起ブレイクダウン分光法の精度向上のための指針を与えるものであり、学術上、実際上寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士（工学）の学位論文として価値あるものと認める。また、平成27年2月24日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行って、申請者が博士後期課程学位取得基準を満たしていることを確認し、合格と認めた。

なお、本論文は、京都大学学位規定第14条第2項に該当するものと判断し、公表に際しては、当該論文の全文に代えてその内容の要約したものとすることを認める。