



Title	超短パルスレーザー照射による過飽和水蒸気からの氷晶核形成
Author(s)	
Citation	令和6（2024）年度学部学生による自主研究奨励事業研究成果報告書. 2025
Version Type	VoR
URL	https://hdl.handle.net/11094/101298
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

令和6年度大阪大学未来基金「学部学生による自主研究奨励事業」研究成果報告書

ふりがな 氏名	まつお あおと 松尾 碧大	学部 学科	理学部 化学科	学年	3年
ふりがな 共同 研究者氏名		学部 学科		学年	年
					年
					年
アドバイザー教員 氏名	吉川 洋史	所属	工学研究科 応用物理学コース		
研究課題名	超短パルスレーザー照射による過飽和水蒸気からの氷晶核形成				
研究成果の概要	研究目的、研究計画、研究方法、研究経過、研究成果等について記述すること。必要に応じて用紙を追加してもよい。(先行する研究を引用する場合は、「阪大生のためのアカデミックライティング入門」に従い、盗作剽窃にならないように引用部分を明示し文末に参考文献リストをつけること。)				

1. 研究目的

水が凍るという現象は我々に取って身近な現象であり、中谷宇吉郎の氷の形状・温度・湿度に関する系統的な研究（中谷ダイヤグラム）に代表されるように、古くから研究対象になってきた^[1]。特に、氷結晶が温度の低下に伴い板状と柱状を繰り返すことは知られているものの、その分子的なメカニズムは解明されていないなど研究課題は多く残る。しかし、単に水を冷却するだけでは、過飽和水蒸気から結晶核となる凝集核は時空間的にランダムに形成されるため、その過程を直接観察することは困難である。

このような課題に対し、近年大阪大学の高橋・吉川らは、過冷却水中に超短パルスレーザーを集光照射して刺激することで、集光領域の近傍から氷の結晶化が始まることが明らかになった^[2]。そこで本研究に置いて代表者は、アドバイザー教員の吉川とともに、過飽和蒸気中に超短パルスレーザーを照射し刺激を加えることで、氷の結晶化を制御することができるのでないか推察し、その実験系の構築と検証を行った。

2. 研究計画・方法

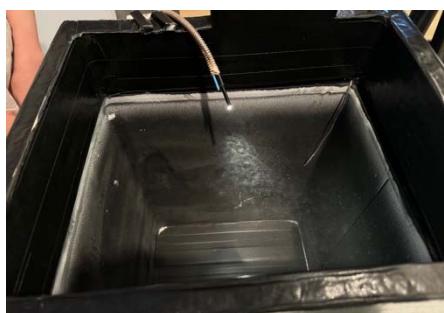


図 1 中谷宇吉郎雪の科学館(石川県加賀市)で行われているダイヤモンドダストの演示実験

過飽和蒸気からの氷生成における現象として、ダイヤモンドダストが知られている。-10°C以下の気温で大気中の水蒸気が氷結し、生成した微小な氷結晶が光に反射することでキラキラと輝いて見える現象である^[3]。このダイヤモンドダストを作り出す方法として、縦型の冷凍庫に蒸気を入れ、内部で気泡緩衝材を潰すことでその刺激によってダイヤモンドダストが生成されることが知られている（図1）。

そこで、ダイヤモンドダストが生成される環境を準備し、冷凍庫内にパルスレーザーを照射することとした。図2に実験系の模式図を示す。

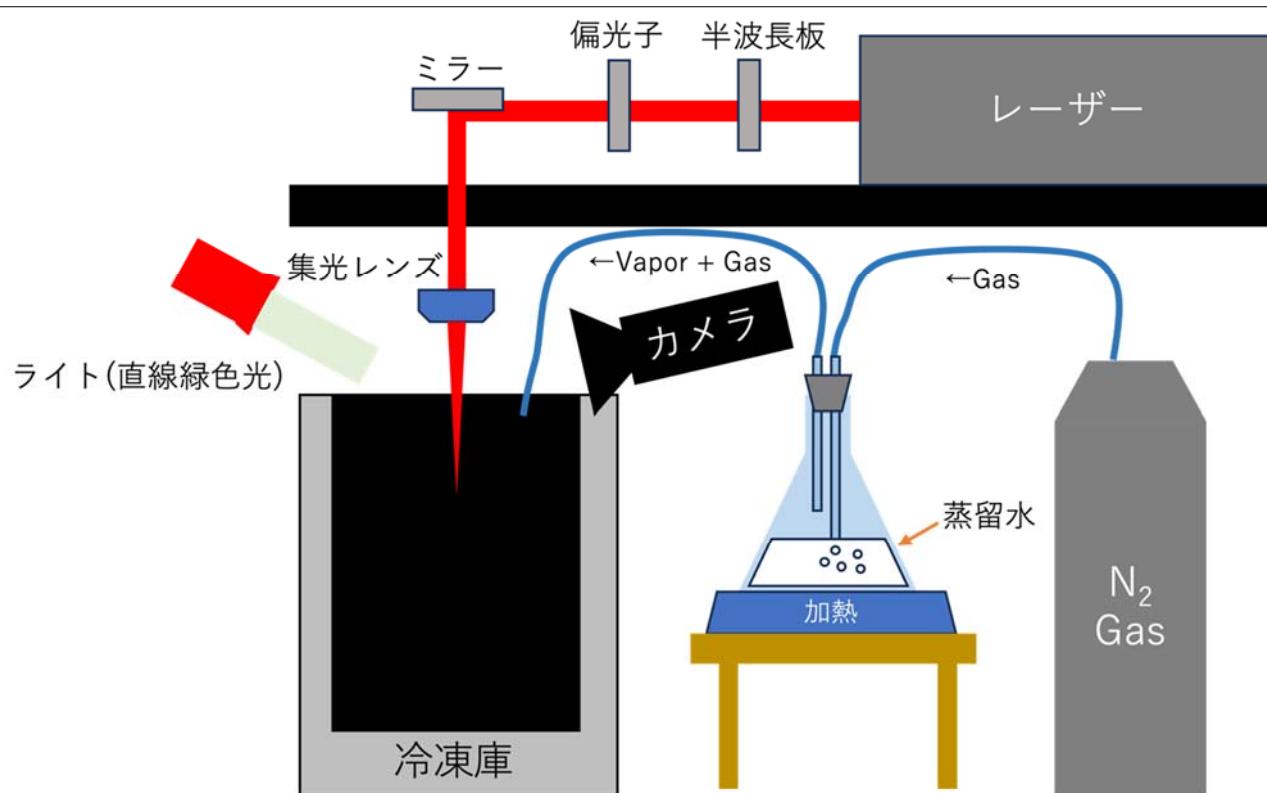


図2 実験装置全体の模式図

ホットプレートを用いて 80°C 程度に加熱した湯(250 mL)の中に窒素ガスをボンベから送り込むことで蒸気を生成した。蒸気を-20°C 程度まで冷却した縦型冷凍庫内にチューブを使って入れて過飽和蒸気を冷凍庫内に充満させた。冷凍庫内はダイヤモンドダストを観察しやすくするためにラッカーで黒色に塗った。

波長 800 nm の超短パルスレーザー (パルス時間幅: 100 fs ~ 10 ps) をレンズ (焦点距離 250 mm) 冷凍庫内に集光(冷凍庫上面から約 20 cm 下)し、集光点付近でのダイヤモンドダスト生成の



図3 組んだ実験系において観察されたダイヤモンドダスト

様子を観察した。観察のための光源は緑色の LED 光を使用し、ビデオカメラを用いて冷凍庫内の様子を撮影した。

本実験装置にて、過飽和蒸気ができているのか確認するためレーザーの代わりに蒸気を充満させた状態で発砲緩衝材を潰すとダイヤモンドダストを観察することができた(図 3)。このことから、本実験装置にて過飽和蒸気を生み出すことができており、パルスレーザーによる氷晶核生成を検証するものとして機能することを示している。

3. 研究経過と成果

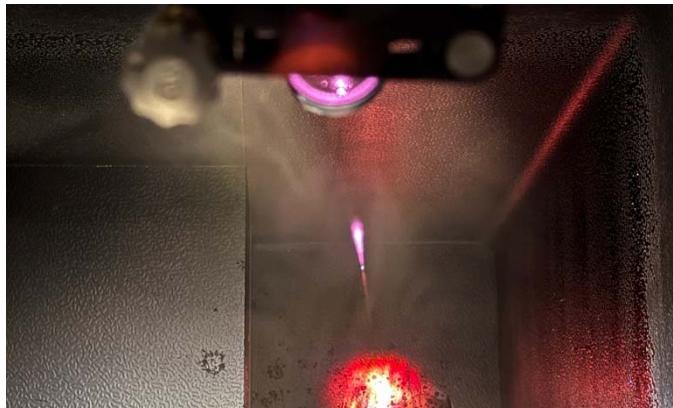


図 4 過飽和蒸気にパルスレーザーを照射する様子
(100 fs, 1000Hz, 連続照射)

100 fs または 10 ps のパルスレーザー(レーザーパワー:1.5 W, 繰り返し周波数 1000 Hz)を本実験装置の過飽和蒸気に照射したが、レーザーによってダイヤモンドダストが生成する様子は観察できなかった(図 4)。また、発砲緩衝材を用いて事前にダイヤモンドダストを生成した状態で過飽和蒸気にレーザーを照射する実験も合わせて行ったものの、レーザーによってダイヤモンドダストの状態に変化が生じる様子は観察されなかった。

ただし、100 fs では集光点付近で蒸気との相互作用による変化の様子は観察されなかったが、10 ps のパルスレーザーでは蒸気が集光点に接したと考えられるバチバチという音を常に渡って観察することができた。

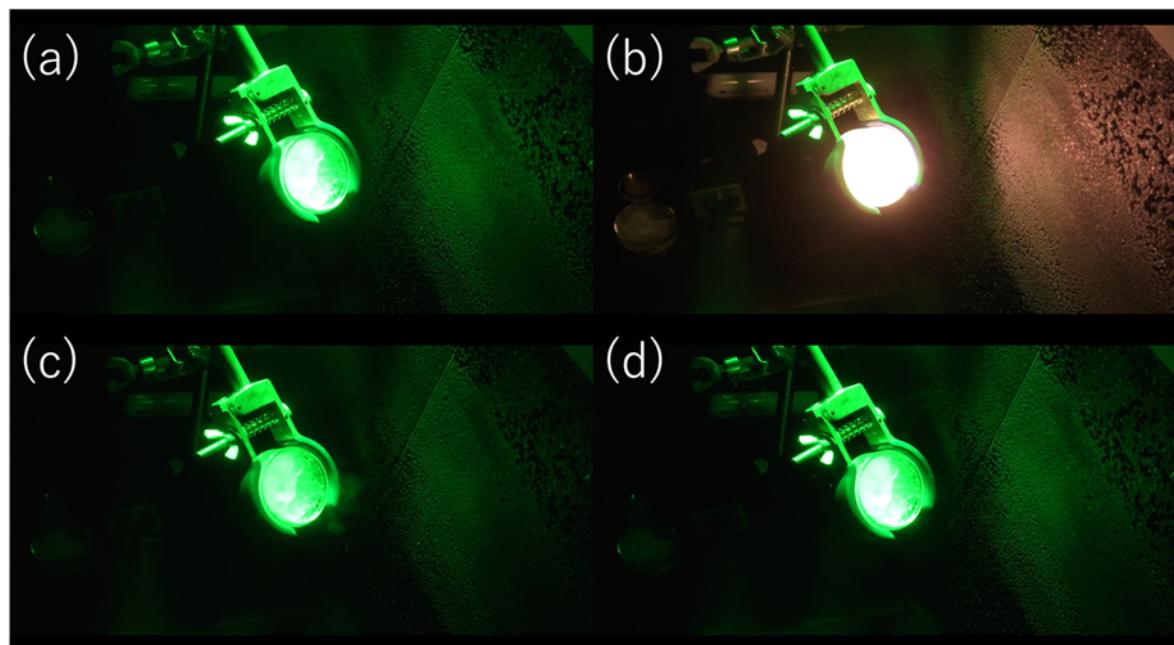


図 5 過飽和蒸気の氷にパルスレーザーを照射した様子(100 fs, 1000Hz, 1/4 秒間照射)
(a) パルスレーザー照射前 (b) レーザー照射中
(c) レーザー照射直後に氷から氷の微粒子のような雲が噴出する様子
(d) 照射からしばらく経過し氷の左上付近にダイヤモンドダストが存在

次に、過飽和蒸気へのレーザー照射ではなく過飽和蒸気中に置いた氷にレーザーを1/4秒間照射する実験を行った(図5)。

レーザーの照射に伴い氷から微粒子が噴出し、その数秒後にダイヤモンドダストが観察された。なお、同様の実験を照射時間1/125と1パルスの照射でも行ったがダストは発生しなかった。

他にも、冷凍庫中のガラスボトムディッシュに過冷却水(液量0.5mL, 冷却温度-20°C, 冷却時間12~15分間)を入れ、パルスレーザーを照射する実験を行った。照射時間1/4ではダイヤモンドダストは発生したが、照射時間1/125と1パルスの照射ではダストは発生しなかった(図6)。

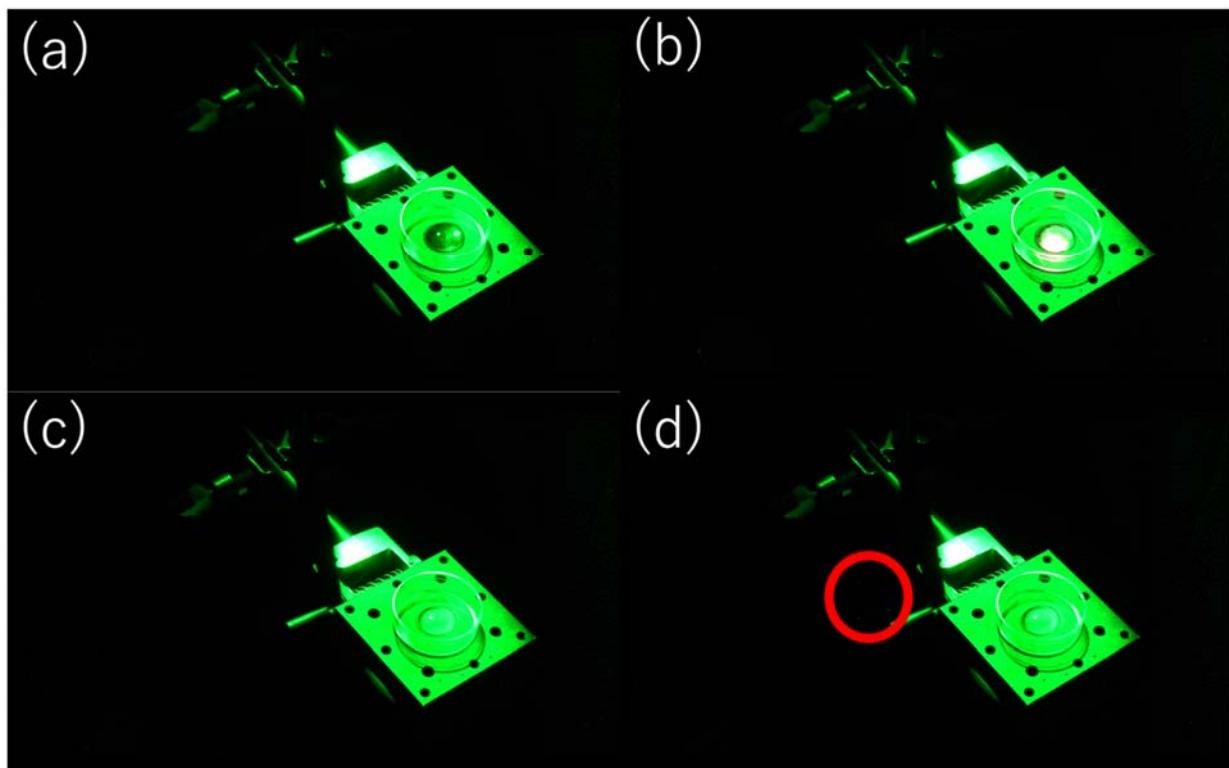


図6 過飽和蒸気の氷にパルスレーザーを照射した様子(100 fs, 1000Hz, 1/4秒間照射)

- (a) パルスレーザー照射前
- (b) レーザー照射中
- (c) レーザー照射によって瞬間的に凍結する様子
- (d) 凍結後、ダイヤモンドダストが確認された(赤丸で囲った部分)

4. 考察と展望

過飽和蒸気中にレーザーを照射する実験では、すべてのパルス時間幅においてダイヤモンドダストの生成は確認できなかった。冷凍庫を用いた実験系では発砲緩衝材による刺激ではダイヤモンドダストが生成するのに対し、パルスレーザーではダイヤモンドダストが生成しなかった。発砲緩衝材とパルスレーザーの違いを比較すると刺激が与える影響範囲が異なる。パルスレーザーを用いた過冷却水中からの氷の結晶化では、レーザーの刺激によってキャビテーションバブルが発生し、それが刺激となって結晶化すると推測されている^[2]。しかし、気相中では分子間の距離が融液中よりも大きく、融液中よりもより広範囲に刺激を広げる必要があると推察される。今回の実験では100 fsのパルスレーザーよりも5 psのパルスレーザーの方が同じエネルギー値であっても多光子吸収が起こる範囲が広がるため、よりパルス時間幅の長いレーザーを用いることで気相中からでも氷晶核を形成できる可能性がある。

一方、氷にレーザーを照射した実験においては、ダイヤモンドダストを生成することができた。

パルスレーザーを用いることで、氷表面を削り取りそれが飛散することで核となってダイヤモンドダストの生成につながると考えられる。ただし、これは現状では低確率的なイベントであり、1パルス照射したときや1/125秒間(8パルス)の照射ではダイヤモンドダストが生成しないことがあった。また、焦点が氷内部当たるとダストは発生せず、氷表面に照射された時のみ生成した。

過冷却水への照射では、1パルスの照射や1/125秒間の照射ではダイヤモンドダストは発生しなかった。このことから、過冷却水にパルスレーザーが照射されることによって凍結し、凍結した氷にレーザーが照射されることによって上記と同様のプロセスでダイヤモンドダストが生成すると予想できる。つまり、レーザーを連続的に照射することで凍結とダストの生成という別の現象が連続して起きることで、過冷却水からのダスト生成が可能になる。

以上本研究により、超短パルスレーザーを過冷却水や氷の表面に照射することで、気相中でのダイヤモンドダスト現象を誘起できることを見出した。またそのメカニズムとして、レーザー照射時の衝撃によって、氷晶核あるいは氷晶核の元になるものが気相に飛散することが鍵となっていることがわかった。本手法を用いることでこれまでよりも高い時空間精度で気相中でのダイヤモンドダストを誘起することが可能となり、今後ハイスピードカメラや顕微鏡を用いることで、その生成メカニズムの解明に寄与できると期待できる。

5. 参考文献

- [1] 低温科学研究所, 北海道大学. <http://www.lowtem.hokudai.ac.jp/ptdice/research.html> (accessed December 19, 2024).
- [2] Takahashi H. et al. Spatiotemporal Control of Ice Crystallization in Supercooled Water via an Ultrashort Laser Impulse. *J. Phys. Chem. Lett.* 2023, 14, 4394-4402
- [3] 内閣府大臣官房政府広報室, 政府広報オンライン. 「ダイヤモンドダスト」－北海道の冬の輝き https://www.gov-online.go.jp/eng/publicity/book/hlj/html/202201/202201_08_jp.html (accessed December 19, 2024).

6. 謝辞

金沢大学環日本海域環境研究センターの松木篤先生には気相中での氷晶核形成について、様々なアドバイスと知見をいただきました。厚く御礼申し上げます。