法政大学学術機関リポジトリ

HOSEI UNIVERSITY REPOSITORY

PDF issue: 2024-12-22

超流動ヘリウム中イオンのレーザー分光に向 けた 液体中アブレーション法による Ba+の 発光観測

富永, 大樹 / TOMINAGA, Daiki

(出版者 / Publisher)法政大学大学院理工学・工学研究科

(雑誌名 / Journal or Publication Title)
法政大学大学院紀要.理工学・工学研究科編 / 法政大学大学院紀要.理工学・工学研究科編
(巻 / Volume)

58 (開始ページ / Start Page) 1 (終了ページ / End Page) 5 (発行年 / Year) 2017-03-31 (URL) https://doi.org/10.15002/00014347

超流動ヘリウム中イオンのレーザー分光に向けた 液体中アブレーション法による Ba⁺の発光観測

OBSERVATION OF FLUORESCENCE SIGNAL FROM BARIUM IONS PRODUCED BY LASER ABLATION IN LIQUIDS FOR THE LASER SPECTROSCOPY OF IONS IN SUPERFLUID HELIUM

富永大樹 Daiki TOMINAGA 指導教員 松尾由賀利

法政大学大学院理工学研究科システム理工学専攻創生科学系修士課程

We aim to study the energy level structures of atomic ions in superfluid helium. These impurity ions are expected to show interesting features due to the interaction between ions and surrounding helium atoms. To establish the method to introduce ions into superfluid helium, we have examined the effectiveness of the laser ablation in liquids. A solid sample of barium is placed in a quartz cell filled with superfluid helium and ablated by the second- and third-harmonic generations of a Nd:YAG laser. We have successfully observed fluorescence signal from Ba ions produced by laser ablation in the observation region. Difference in the production efficiencies of Ba ions by the wavelength of the ablation laser is discussed.

Key Words : laser spectroscopy, laser ablation, barium ions, superfluid helium.

1. 概要

本研究は超流動ヘリウム(He II)中原子イオンのエネル ギー準位構造の研究を目指している. He II 中の不純物イ オンは周囲のヘリウムとの相互作用により、特異な振る 舞いを持つと予期されている.本研究では He II 中への イオンの導入方法を確立するために、液体中レーザーア ブレーション法によるイオンの導入法の有効性を検討し た.バリウムの固体試料を He II で満たされたクォーツ 容器内に設置し、Nd:YAG レーザーの第二高調波及び第 三高調波を用いてアブレーションを行った.その結果、 レーザーアブレーション法によって Ba⁺を直接観測領域 内に導入し、Ba⁺由来の発光を観測することに成功した. また、アブレーションレーザーの波長による Ba⁺導入の 効率性の違いについて述べる.

2. 研究背景

我々の研究室では、He II 中に植え込まれた不純物原子 及びイオンにレーザー分光法を用いることで原子及びイ オンと He 間の相互作用を受けた原子構造について研究 を行っている. He II 中に不純物原子を導入すると、不純 物原子の最外核電子と周囲の He 原子の電子との間にパ ウリの排他律に基づく強い反発力が働く.このため不純 物原子の周囲に空乏領域が形成される.これは原子バブ ルと呼ばれる. He II 中における原子の分光学的特徴は原 子バブルモデルを用いてよく説明される. He II 中の原子 スペクトルは原子バブル効果により、励起スペクトルが 真空中に比べ短波長側にシフトし線幅が広がり、放出ス ペクトルは励起スペクトルに比ベシフトは少なく、線幅 が鋭いなどの影響を及ぼすことが分かっている. そのた め He II 中の原子バブルを研究することにより、不純物 原子と周囲の He 原子との間の相互作用を調べることが できる. 原子バブルモデルを Fig.1 に示す.



Fig.1 原子のバブルモデル

液体 He 中の不純物原子イオンの研究は Heidelberg 大 学のグループが Ba⁺の発光・吸収スペクトルを観測した のが最初の報告である[1].それとほぼ同時期にレーザー アブレーション法を応用して様々な原子を液体 He 中に 導入する方法が開発された.レーザーアブレーション法 とは固体試料に高強度のパルスレーザーを集光し、原子 やイオン、電子、クラスターなどの粒子を生成する方法 である. Himbert らは液体 He 液面上方に設置した Ba 試 料をアブレーションし、生成された Ba⁺を電場によって 液体中に引き込み、電子と再結合させることにより、液 体へリウム中の原子を観測できるようになった[2]. 1993 年には京都大学の Takahashi らが液体中に金属試料を置 き、レーザーアブレーションを行って液体中に直接原子 を導入することに成功した[3].

上述した様に、これまで数多くの分光学的な研究が行われてきた.その中で He II 中における研究では中性原子を対象とした研究が多く、アルカリ原子である Rb や Cs ではゼーマン副準位間隔や超微細構造間隔の研究も 盛んである[4].しかしイオンでは中性原子に比べ He II 中に導入できる個数が少なく、周囲の電子との相互作用 を受け中性化してしまうため取り扱いが難しい[5].その ためイオンを扱う研究例は少ない.そこで、最外核電子 が一つでアルカリ原子と同様の準位構造を持つアルカリ 土類イオンである Ba⁺に注目し、He II 中における Ba⁺と He との間の相互作用を受けた Ba⁺の原子構造について研 究を行っている.

3. 研究目的

先行研究によって Ba⁺のレーザー誘起蛍光(LIF)観測 実験が過去に行われているが、Ba⁺の導入個数が少なく信 号強度が微弱である問題があった[6].本研究の目的は He II 環境における Ba⁺のレーザー・MW/RF 二重共鳴法 による原子と周囲のヘリウム原子との間の相互作用を調 べるために、He II 中への不純物原子イオンの導入方法を 変更し、イオンの導入方法を確立することである.その ために、まず新導入方法を用いて実験を行い、導入時に 発生するアブレーションプラズマの発光から観測領域内 に Ba⁺が存在していることを確認する.

4. 実験方法

本研究で用いた不純物イオン導入方法を Fig. 2 に示す.



Fig. 2 不純物イオン導入方法

実験はクライオスタットと呼ばれる魔法瓶構造、光学 窓を持つ装置の中で行われる. クライオスタットは He II

環境を実現させるための装置であり、He II 環境でのレー ザー分光を行うために用いる.クライオスタット内部に は Ba 試料が底に固定された透明なクォーツ容器、超流 動噴水器、プリズムを取り付けた装置を封入し密閉して いる.内部を真空ポンプにより真空引きして液体 He を 減圧することによって He II へと転移させる.その He II は超流動噴水器を介して観測領域であるクォーツ容器に 導入され、実験を行うことができるようになる.He II 中 への不純物イオンの導入はパルス Nd:YAG レーザーの第 二高調波及び第三高調波を光学窓からクライオスタット 内に照射しプリズムを介して Ba 試料表面に集光するレ ーザーアブレーション法を用いて行われた.実験セット アップの上面図を Fig.3に、概要図を Fig.4 に示す.



Fig.3 実験セットアップ(上面図)



Fig.4 実験セットアップ(概要図)

また、レーザーのエネルギーを狭い領域に集中させ光 強度を高めるために f=250 mm のレンズを用いてパルス Nd:YAG レーザーを Ba 試料表面に集光した.この時、レ ーザーが一カ所に集光し粒子の生成効率が下がることが ある.これを防ぐため、集光レンズを光学軸に垂直な平 面上で周期的に動かし集光スポットを移動するようにし た.レーザーアブレーションによりアブレーションプラ ズマが生じプラズマ中の高励起状態にある原子及びイオ ンが脱励起する時に発光が生じる.光学系により Ba 試 料表面から5 mm 上空でプラズマ発光を観測する.この プラズマ発光を観測することで観測領域内に不純物原子 及びイオンの存在を示す事が出来る.観測領域内で発光 したプラズマ発光を三枚のレンズで集光しモノクロメー ターで特定波長のみ波長分離した後、光電子増倍管で検 出し信号強度を観測する.パルス Nd:YAG レーザーを照 射したタイミングをトリガーとして、光電子増倍管から の信号を検出する.モノクロメーターの観測波長を掃引 する際にはプラズマ発光の一部にゲートをかけ積算し計 測することでよりイオンに発光する時間の信号だけを積 算することができる.パルス Nd:YAG レーザーによるア ブレーション後から検出までのタイミングチャートを Fig.5 に示す.



次に、イオンの測定対象である Ba⁺のエネルギー準位 図をFig.6に示す.また中性原子の観測線であるBa(490.3 nm,494.7 nm,553.5 nm)に関するエネルギー準位図を Fig. 7に示す.Fig.6に示した Ba⁺の遷移は D1 線と呼ばれる遷 移である.本実験の観測目標はこの D1 線の遷移を対象 にした.Fig.7に示した Ba の観測線は Ba のエネルギー 準位図の一部分であり、観測目標である 493.4 nm のプラ ズマ発光との分離を行う.



Fig.6 基底状態付近の Ba⁺のエネルギー準位図



Fig.7 Baの観測線に関するエネルギー準位図

5. 実験結果及び考察

(1) He II 中の不純物イオン導入実験

不純物イオン導入方法を確立するための実験として、 Ba⁺が直接観測領域内に供給されていることを確認する ために、Ba 原子及び Ba⁺由来のアブレーションプラズマ 発光の観測を行った. Nd:YAG レーザーのタイムプロ ファイルを観測した結果を Fig. 8、He II 中におけるモノ クロメーターの観測波長 493.4nm 付近においての Ba⁺ プラズマ発光観測結果を Fig. 9、He II 中における 553.5 nm 付近において Ba の発光観測結果を Fig. 10 に示す.



Fig. 8 Nd: YAG レーザーのタイムプロファイル



Fig. 9 He II 中 Ba⁺のプラズマ発光観測(493.4 nm)



Fig. 10 He II 中 Ba のプラズマ発光観測(553.5 nm)

Fig.9より、観測波長493.4 nm 付近において、Ba⁺由来 のプラズマ発光を観測した.Fig.8 に示したアブレーシ ョンパルスの後、Fig.9に示したプラズマ発光が生じる. 主にアブレーション後80 ns までにイオンの発光が見え ていることがわかる.これによりBa⁺が観測領域内に存 在することを確認した.またFig.9とFig.10により、 時間経過による発光の違いがイオンと中性原子で異なる ことがわかる.発光線の寿命自身はイオンでは約5.5 ns、 中性原子の553.5 nmでは約8 nsと寿命時間は発光が短い. しかし553.5 nmでは高励起状態からのカスケード遷移に よる発光が加わるため、アブレーション直後から尾を引 く様に発光が見える.

(2) He II 中のイオン導入方法効率化実験

5. 1節にて He II 中レーザーアブレーションにより Ba⁺のプラズマ発光を観測した.次に、モノクロメーター の観測波長を掃引しプラズマ発光観測実験を行った.よ り効率的なイオンの導入を行うために Nd:YAG レーザー の第二高調波及び第三高調波を用いて、アブレーション レーザーの波長を変えたことによるプラズマ発光を比較 した.本実験で観測した観測線は Ba⁺の 493.4 nm と Ba の 490.3 nm, 494.7 nm, 553.4 nm である.また、5.1 節の結 果を用いて、より Ba⁺のプラズマ発光を観測するため、 5.1 節の結果を用いて、ある期間にゲートをかけ、積算し た.ゲートをかけた範囲について 5.1 節の実験結果を用 いて Fig. 11 に示す.



Fig. 11 ゲートをかけた範囲(80ns)

Fig. 11 で黒く塗り潰されている範囲 80 ns がゲートを かけた範囲である. この条件の下、モノクロメーターの 観測波長をイオン、中性原子の遷移を含む 490.5~495.5 nm まで掃引し、掃引回数 10 回の平均値を取った.また、 アブレーションのパルス当たりのばらつきによるノイズ を抑えるために前後 41 点の平均値に補正し、解析を行っ た. 第三高調波 Nd:YAG レーザーによるプラズマ発光観 測結果を Fig. 12 に示す.





Fig. 12 の通り、モノクロメーター観測波長 493.4 nm 付 近で、Ba+由来のプラズマ発光の観測に成功した. 同様 の条件下において、第二高調波 Nd:YAG レーザーによる プラズマ発光観測結果を Fig. 13 に示す.



Fig. 13 モノクロメーターの観測波長掃引による 第二高調波 YAG レーザーを用いたプラズマ発光観測

次に、アブレーション後 100~200 ns にゲートをかけ、 モノクロメーターの観測波長を中性原子の遷移を含む 550.5~555.5 nm まで掃引した.また、アブレーションの パルス当たりのばらつきによるノイズを抑えるために前 後 41 点の平均値に補正し、解析を行った.結果を Fig. 14, Fig. 15 に示す.



Fig. 14 モノクロメーターの観測波長掃引による 第三高調波 YAG レーザーを用いたプラズマ発光観測



Fig. 15 モノクロメーターの観測波長掃引による 第二高調波 YAG レーザーを用いたプラズマ発光観測

Fig. 14 より、パルス Nd:YAG レーザーの第二高調波及 び第三高調波で同様の不純物イオン導入方法による実験 を行った場合、三倍波の方がより効率的に原子、イオン を観測領域内に導入できることがわかる.本実験による 493.4nm の遷移である Ba⁺のプラズマ発光はパルス Nd:YAG レーザーの第二高調波に比べ第三高調波では約 1.5倍、553.5 nm の遷移である Ba のプラズマ発光は約 5.4 倍であった.この結果からパルス Nd:YAG レーザーの第 三高調波による不純物イオン導入方法を用いることでイ オン、中性原子共により効率的に導入できることがわか った.

6. まとめと今後の展望

我々の研究室では、He II 中に植え込まれた不純物原子 及びイオンにレーザー分光法を用いることで原子バブル 効果の影響によって原子及びイオンとヘリウム間の相互 作用を受けた原子構造について研究を行っている.

超流動ヘリウム環境におけるイオンのレーザー・ MW/RF 二重共鳴実験に向けて研究を行ってきた.まず 先行研究の課題であった Ba⁺の導入個数が少ないという 問題を解決するために、先行研究とは異なる液体中アブ レーション法によるイオン導入方法を用いて実験を行っ た. このイオン導入方法は直接超流動ヘリウム内にレー ザーアブレーション法によってイオンを導入させる方法 を用いた. レーザーアブレーションによって生じるプラ ズマ発光を分光しイオンからの発光を観測する実験を行 い、その結果、観測波長 493.4 nm において Ba+由来のプ ラズマ発光をモノクロメーターの観測波長を定点及び波 長掃引ともに観測することに成功した. この結果によっ て Ba⁺が観測領域内に存在することを示した. また、よ り効率的なイオンの導入を行うために、アブレーション レーザーによるパルス Nd:YAG レーザーの波長を第二高 調波(532 nm)と第三高調波(355 nm)を用いてプラズマ発 光観測実験を行い、第二高調波に比べ第三高調波の YAG レーザーの方がより効率的にイオンを導入できる可能性 を示した.

今後、LIF を観測するためには励起用レーザーである パルス色素レーザーとパルス Nd:YAG レーザーの照射タ イミングを調整する必要がある.また、超流動ヘリウム 中でイオンを導入する場合には、レーザーアブレーショ ン時にイオンや原子とともに気泡が発生するという問題 やイオンが周囲の自由電子によって中性化される等の問 題が予想される.今後の展望としてはこれらの問題を解 決し、超流動ヘリウム中で LIF 観測のための実験を行っ た後、レーザー・MW/RF 二重共鳴実験に向け励起用レ ーザーの改良及びスピン偏極生成のための実験を行って いく.

7. 謝辞

本研究を進めるにあたり、多くの方々にご指導、ご協 力をいただきました.本研究を支えてくださった全ての 方々に感謝致します.

参考文献

- 1) H. J. Reyher, H. Bauer, C. Huber, R. Mayer, A. Schäfer and A. Winnacker, Phys. Lett, A115, 238(1986)
- 2)M. Himbert, A. Lezama, and J. Dupont-Roc, J. Phys. (Paris)46, 2009 (1985)
- 3) T. Takahasi, K. Sano, T. Kinoshita and T. Yabuzaki, Phys. Rev. Lett. 71, 1035(1993)
- 4) 今村慧:「超流動ヘリウム環境における Cs 原子の超微 細構造間隔測定」修士論文,明治大学 2012
- 5) 実藤竜二:「超流動液体ヘリウム中におけるアルカリ 土類原子のレーザー分光」修士論文,慶応義塾大学大学 院,2001
- 6)筒井正機:「超流動ヘリウム環境における原子イオン 分光法の開発」修士論文,東京学芸大学大学院,2012