

### 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<sup>+</sup> 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<sup>+</sup> を直接観測領域内に導入し、Ba<sup>+</sup>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<sup>+</sup> 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べシフトは少なく、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。

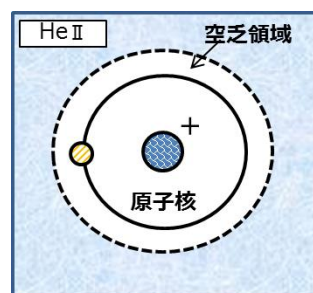


Fig. 1 原子のバブルモデル

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<sup>+</sup> 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<sup>+</sup>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、液体ヘ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<sup>+</sup>に注目し、He II中におけるBa<sup>+</sup>とHeとの間の相互作用を受けたBa<sup>+</sup>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<sup>+</sup>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<sup>+</sup>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<sup>+</sup>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<sup>+</sup>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。

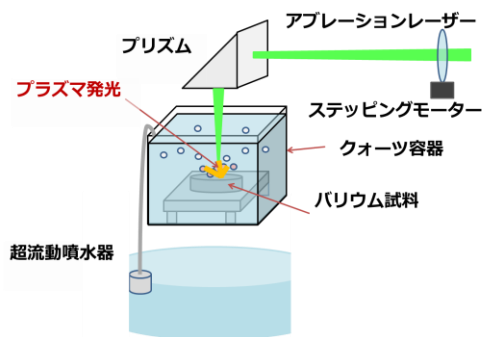


Fig. 2 不純物イオン導入方法

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。

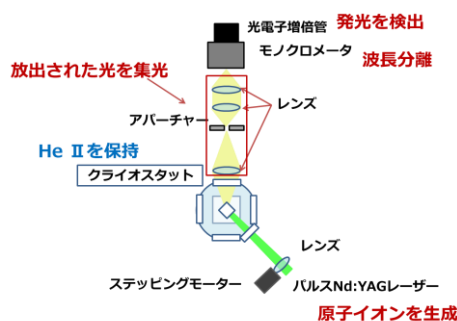


Fig. 3 実験セットアップ(上面図)

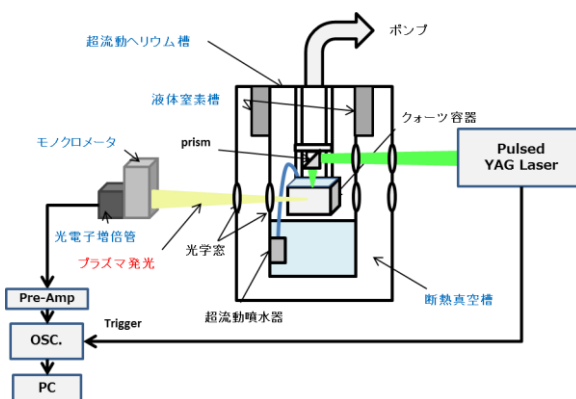
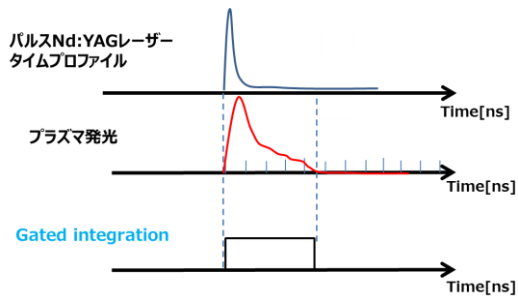


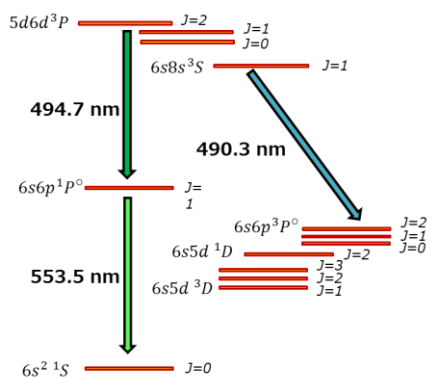
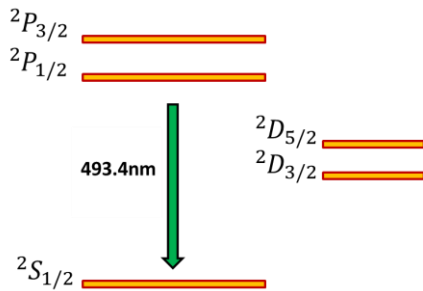
Fig. 4 実験セットアップ(概要図)

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、レーザーが一か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。



## 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付近における  $Ba^+$  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。

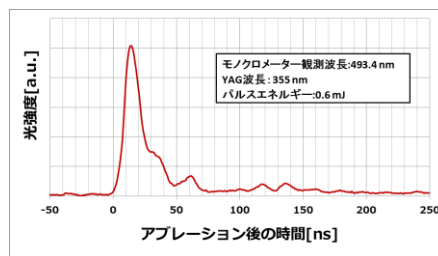
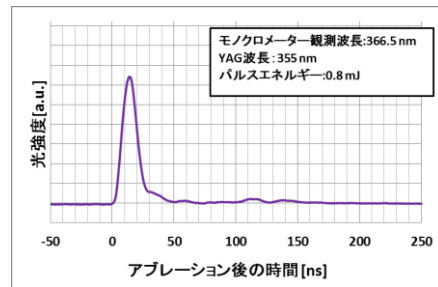


Fig. 9 He II 中  $Ba^+$  のプラズマ発光観測 (493.4 nm)

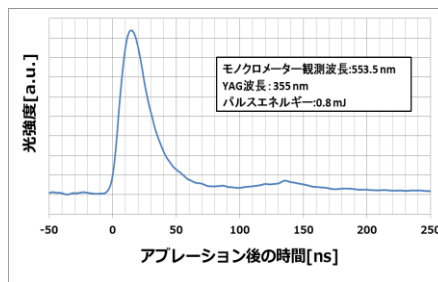


Fig. 10 He II 中 Ba のプラズマ発光観測 (553.5 nm)

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<sup>+</sup>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<sup>+</sup>の 493.4 nm と Ba の 490.3 nm, 494.7 nm, 553.4nm である。また、5.1 節の結果を用いて、より Ba<sup>+</sup>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。

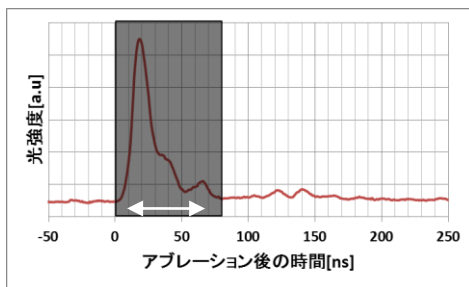


Fig. 11 ゲートをかかけた範囲(80ns)

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。

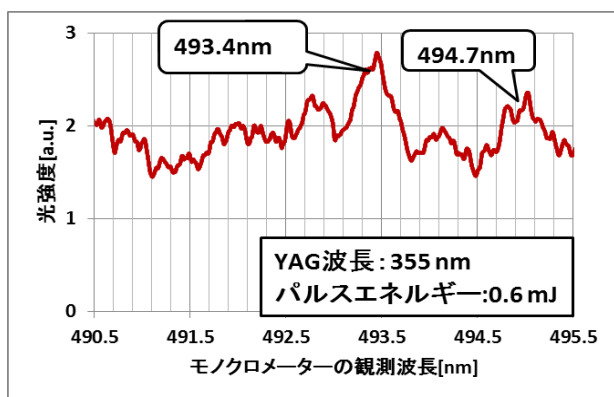


Fig. 12 モノクロメーターの観測波長掃引による第三高調波 YAG レーザーを用いたプラズマ発光

Fig. 12 の通り、モノクロメーター観測波長 493.4 nm 付近で、Ba<sup>+</sup>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。

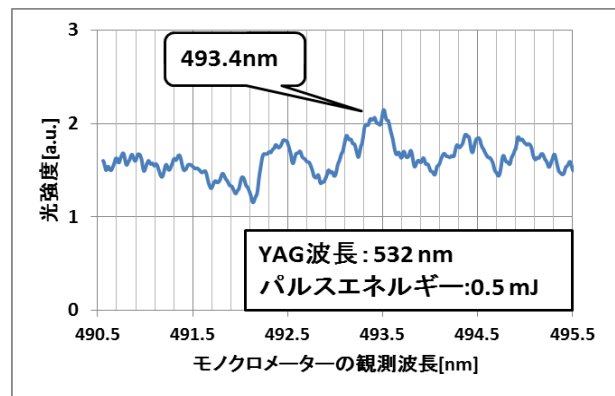


Fig. 13 モノクロメーターの観測波長掃引による第二高調波 YAG レーザーを用いたプラズマ発光観測

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。

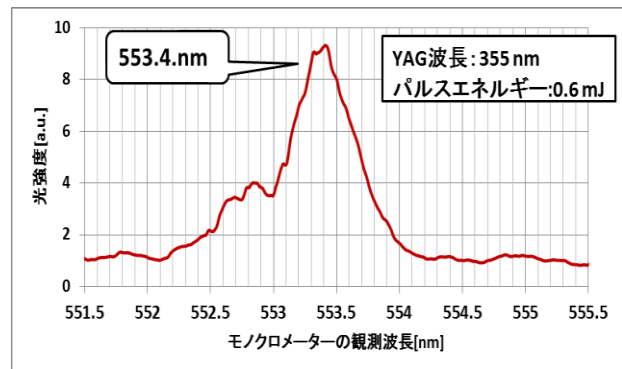


Fig. 14 モノクロメーターの観測波長掃引による第三高調波 YAG レーザーを用いたプラズマ発光観測

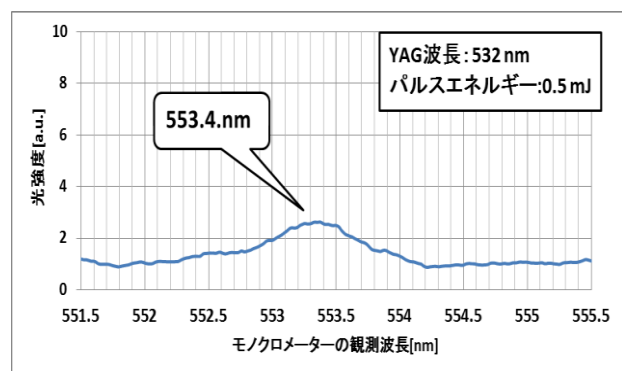


Fig. 15 モノクロメーターの観測波長掃引による第二高調波 YAG レーザーを用いたプラズマ発光観測

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, G. 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