

レーザー誘起ブレイクダウン分光分析装置の立ち上げと評価

中村信行研究室 横田大地

1. 序論

1.1 背景

2015年にブラックホール同士による重力波が検出されてから中性子星同士の合体による重力波の検出が期待されていた。その理由としてはブラックホール同士の合体では検出できない様々な波長の電磁波を検出することで、これまで謎とされてきた重元素の起源に迫ることが可能となるからである。中性子星同士が合体することで中性子星の一部の物質は放出される。放出された空間は中性子数密度がとても高いと考えられており、中性子が高速に捕獲される r -プロセスという過程を経て放射性元素となる。放射性元素の崩壊がエネルギーの供給源となり、可視領域および近赤外領域において強く放射する。このように放出される発光は「キロノバ」と呼ばれ、中性子星合体における大きな特徴とされている[1]。 r -プロセス過程を経てランタノイド族が生成されることにより可視光領域よりも赤外領域において長時間明るく観測されることが予想されている[2,3]。これはランタノイド族の元素は $4f$ 軌道に電子が配置されていることからエネルギー準位が密になっており、束縛-束縛遷移における赤外領域の吸収や放射が起こりやすいことが原因である[4]。

初めて中性子星合体による重力波が検出されたのは、2017年8月17日にアメリカにある2台のレーザー干渉計重力波天文台 Laser Interferometer Gravitational-Wave Observatory (LIGO) とイタリアに存在する Virgo 干渉計によるものであった。以上の3つの重力波検出器による重力波源の位置決定が行われ、続けてすばる望遠鏡や南アフリカ赤外線

天体観測所において可視領域や近赤外領域の電磁波観測が行われた[5]。

中性子星合体における発光の観測結果と輻射輸送計算を比較することで排出された物質がどのような元素になり、どのくらいの量が排出されたかが分かるようになる。輻射輸送計算には元素の吸収係数が必要となる。田中ら[6]は Se ($Z=34$)、Ru ($Z=44$)、Te ($Z=52$)、Ba ($Z=56$)、Nd ($Z=60$)、Er ($Z=68$) の吸収係数を計算することで輻射輸送計算を行った。これらの元素は異なる開殻における吸収係数を考慮するために選択され、Ba は s 開殻元素、Se は p 開殻元素、Ru は d 開殻元素、Nd と Er は f 開殻元素である[6]。また、これらのイオン化状態は合体後1日以降のキロノバで一般的である中性原子、1価イオン、2価イオンにおいて考えられている。ランタノイド族を含む重元素生成を考慮した輻射輸送計算と中性子星合体の観測結果は合体の2日から7日まで良い一致を示した[1]。このことから中性子星合体について重元素であるランタノイド族が生成されていることが示唆された[1]。

1.2 レーザー誘起ブレイクダウン分光法

レーザー誘起ブレイクダウン分光法 (Laser Induced Breakdown Spectroscopy: LIBS) は試料表面に高強度のレーザーパルスを照射することで標的試料表面にプラズマを発生させ、そのプラズマの発光を分光するものである。LIBSの特徴としては試料に対する事前の処理を必要としないこと、試料の状態(固体、液体および気体)に依存しないこと、試料に非接触かつ破壊が微量であること、分光

が即時に行えることなどがあげられる。

図 1.1 に LIBS の典型的な概略図を示す。レーザー源から照射されたパルスレーザーは集束光学系を経て試料容器内の試料に照射される。この時、試料表面に強い電場が印加されることで原子や分子は電子が引きはがされプラズマ化する。このことをブレイクダウンと呼ぶ。試料表面に照射されたパルスレーザーにより試料表面は高温かつ電子が高密度であるプラズマが生成される。プラズマ内には蒸発した原子やイオンが存在し、パルスレーザーの照射が終わるとプラズマは膨張していき冷却される。この時に励起されていた原子やイオンは放射により基底状態へ戻る。プラズマは時間によって温度や電子密度が変化するが、短い時間および限定された空間においては局所熱平衡状態が成り立つ場合がある。原子やイオンから放出された発光線は集光光学系を経て分光器に導入される。分光器に導入された発光線はプリズムや回折格子などにより分散され検出器で検出されコンピュータにてデータが保存される。コンピュータと遅延発生器についてはレーザーの照射されるタイミングと検出器が発光線を検出するタイミングを制御することを目的としている。生成したプラズマの電子密度やプラズマ温度が時間に依存して変化するため、時間発展測定は不可欠な要素である。

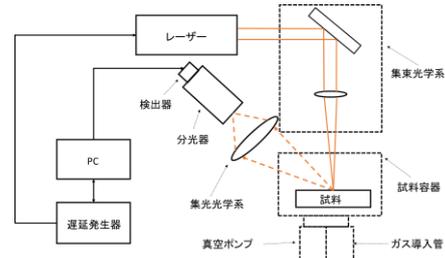


図 1.1 LIBS の概略図

LIBS の測定において試料表面で生成されたプラズマからの発光を観測することで、発光線の強度から遷移確率を導出することが可能となる。これは局所熱平衡が成り立っており、元素の占有密度がボルツマン分布であると仮定した条件が必要となる。そのような条件下では上準位から下準位への発光線の発光強度 I とプラズマ励起温度 T の関係式は式(1.1)で与えられる[7]。

$$\ln\left(\frac{I \times \lambda}{g \times A}\right) = -\frac{1}{kT}E + \ln\left(\frac{hc N}{4\pi Z}\right) \quad (1.1)$$

この時、 h はプランク定数、 c は真空の光速、 g は統計重率、 A は遷移確率、 λ は波長、 N と Z はそれぞれ原子またはイオンの数密度と分配関数、 k はボルツマン定数、 E は上準位のエネルギーを示す。このように(1.1)式の左辺は傾きが温度に依存する上準位のエネルギーの 1 次関数で示すことが出来る。したがって上準位のエネルギーが分かっているならば発光強度から遷移確率を導出することが可能となる。

1.3 目的

中性子星合体による重力波が検出されたことで中性子星合体の電磁波観測が行

われ、重元素の吸収係数を考慮した輻射輸送計算との比較により重元素の起源が中性子星合体によるものである説をより強調した[5]。しかし輻射輸送計算を行う上で必要な束縛一束縛遷移の遷移確率のデータは限られているため、現状では中性子星合体で生成される元素すべてを考慮しているわけではない。より正確な輻射輸送計算とし、重元素合成をより確かにするために、中性子星合体で一般的とされる原子番号が26以上である重元素の中性原子および1価イオン、2価イオンの遷移確率データが必要とされている。

そこで本研究では種々の重元素の束縛一束縛遷移についてその波長と遷移確率のデータを収集することを目的としたLIBSを立ち上げた。LIBSにおけるプラズマが局所熱平衡条件を満たし、発光強度から遷移確率を実験的に得ることが可能であることを確認・評価する。

2 実験

2.1 CCDを用いた実験構成

検出器としてCCDを用いたLIBSの概略図を図2.1に示す。構成としてはQスイッチNd:YAGレーザー、標的試料容器、エシエル型分光器、分光器の検出器としてCCD、ミラーや集光レンズなどの光学系、および制御PCとなる。QスイッチNd:YAGレーザーは高強度パルスレーザーでありミラーを介して標的試料容器内の試料に照射される。その際、集光レンズにより高強度パルスレーザーは試料表面で集光され、試料をプラズマ化するのに十分なパワー密度を有する。

集光レンズは焦点距離が150 mmのものを用いた。プラズマ化した標的試料内の試料は発光線を放射する。放射された試料からの発光線は集光レンズによりファイバー内に導入される。ファイバー内を伝播した試料からの発光線はエシエル型分光器により分散されたのちにCCDで検出される。QスイッチNd:YAGレーザーの照射するタイミングとCCDで検出するタイミングを制御するためにパルスジェネレーターを用いており、その波形を図2.2に示す。QスイッチNd:YAGレーザーとCCDを動作させるのに必要である5Vの矩形波の波形をパルスジェネレーターで出力した。波形が立ち下がりCCDが動作する時間をAとし、立ち上がりレーザーが照射される時間をBとする。用いたCCDは機械式シャッターを利用しておりCCDのシャッターが全開となるまでに10ミリ秒が必要とされている。そのためLIBSにおける局所熱平衡状態を満たすような短時間内の測定を行うことは困難である。したがってCCDの測定においてはCCDのシャッターを全開にした状態でレーザーを照射するようにパルスジェネレーターのパルス幅を設定した。またCCDの露光時間はプラズマの発光時間よりも充分長い時間とした。

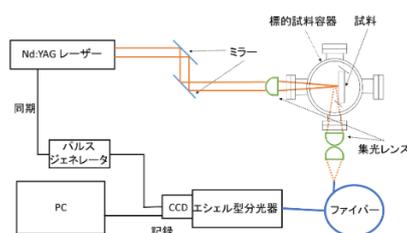


図 2.1 CCDを用いた実験装置の概略図

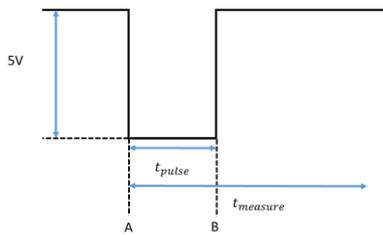


図 2.2 同期制御に用いたパルスジェネレーターの波形。 t_{pulse} はパルスジェネレーターで発生させたパルス幅の時間、 $t_{measure}$ は CCD で観測する時間。波形の立ち下がりで CCD の観測を開始し、立ち上がりでレーザーを照射させる。

2.2 sCMOS を用いた実験構成

検出器としてイメージインテンシファイア付き sCMOS を用いた実験装置を図 2.3 に示す。特徴としては CCD よりも時間分解能がよいことがあげられナノ秒スケールでの観測が可能となっている。そのためプラズマ中の局所熱平衡が成り立っている状態の発光線の観測が行える。高いフレームレートをもちデジタル遅延パルス発生器が内蔵されているため、レーザー外部のパルスジェネレーターが不要である装置構成となっている。レーザーを照射する際に出る信号を外部トリガーとして sCMOS に取り込み、デジタル遅延パルス発生器で sCMOS が観測するタイミングを遅延させて sCMOS で観測する。デジタル遅延発生器は 10 ピコ秒ごとに 10 秒まで遅延を発生させることが出来るため、プラズマの時間発展測定を行う際には適している。また sCMOS では電子式シャッターが用いられており、最速 2 ナノ秒のゲート時間で観測を行うことが可能である。そのためレーザーにより生成されたプラズマの局

所熱平衡が成り立っている短時間内での観測が可能となり、レーザーを照射してプラズマからの発光を観測した。

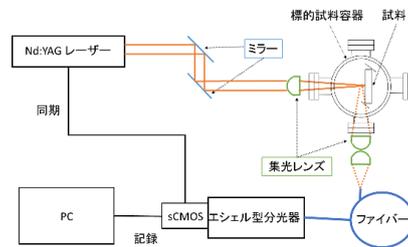


図 2.3 sCMOS を用いた実験装置の概略図

3 実験結果および考察

3.1 CCD 観測結果

図 2.1 で示した CCD を用いた装置構成で波長の分かっている波長校正用の水銀ランプを使用して観測を行った。その結果を図 3.1 に示す。スリットの幅は $100 \mu\text{m}$ 、スリット高さを 2mm 、CCD の露光時間を 10s とした。



図 3.1 水銀ランプの発光線

測定範囲は次数で 121 次から 144 次、波長では約 390 nm から約 470 nm である。140 次と 141 次に 404.7 nm 、139 次と 140 次に 407.8 nm 、130 次と 131 次に 435.8 nm の発光線が観測された。また図 3.1 における黒線の内側は、次数の重なりがない自由スペクトル領域であ

る。図 3.1 の緑の枠線で囲われた 140 次の 2 本の発光線の波長差と 404.7nm の半値全幅から、分解能は 4.6×10^4 と求められた。

次に LIBS の装置構成の確認のため試料として Al を用いた実験結果を図 3.2 に示す。NIST データベースより LIBS を用いた Al の発光線は 400nm で期待されていたので観測範囲の中心が 400nm となるように分光器のダイヤルを設定した。パルスジェネレーターのパルス幅を 20ms、スリットの幅は $100 \mu\text{m}$ 、スリット高さを 2mm、CCD の露光時間を 100ms とした。

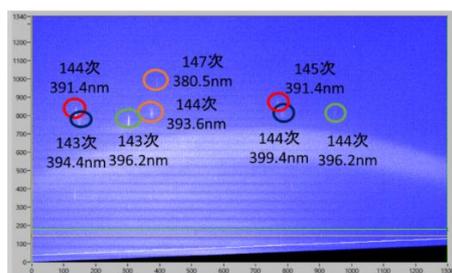


図 3.2 Al 試料を用いた観測結果

観測した測定範囲は 130 次から 154 次、波長では 365nm から 435nm である。NIST データベースを参考として図に記したように各発光線を同定した。また、水銀ランプでは見られなかった連続光が観測された。Al の発光線が観測できたことから LIBS の装置構成が成立していることを確認できた。

3.2 sCMOS 観測結果

図 2.3 で示したイメージインテンシファイア付き sCMOS を用いた装置構成で波長の分かっている波長校正用の水銀ランプを使用して観測を行った。その結果を

図 3.3 に示す。CCD を用いた観測と同様の条件でスリットの幅は $100 \mu\text{m}$ 、スリット高さを 2mm、CCD の露光時間を 10s とした。

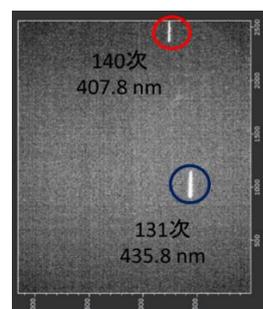


図 3.3 水銀ランプの発光線

CCD を用いた水銀ランプの発光線の観測結果と sCMOS を用いた水銀ランプの発光線の観測結果を比較することで 407.8nm(140 次)と 435.8nm(131 次)の発光線が確認できた。観測した測定範囲は 127 次から 140 次、波長では 404nm から 443nm である。またこの観測においては次数の異なる同じ波長の発光線が観測されなかったことから測定範囲は自由スペクトル領域内であると考えられる。

次に Fe 試料からの発光観測を試みた。Fe 試料からの発光線は 500nm で期待されていたので、観測範囲の中心がおおよそ 500nm となるように分光器のダイヤルを設定した。十分な光量を確保することを念頭におき、スリット幅を $500 \mu\text{m}$ とした。またスリット高さは観測された発光線を判別しやすくするため 2mm に統一し、sCMOS の露光時間は $5 \mu\text{s}$ とした。デジタル遅延発生器で発生させる遅延時間を 400ns とし観測した結果が図 3.4 である。

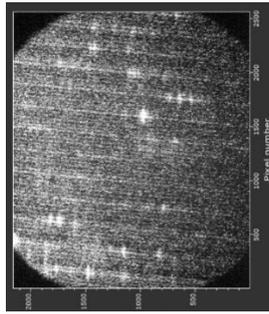


図 3.4 遅延時間が 400ns で観測した Fe 発光線

試料に用いた鉄の発光線を観測できたことが確認できた。しかしレーザープラズマからの発光としては鉄の発光線以外に CCD でも観測されていた連続光も確認された。次に図 3.4 と遅延時間を除いた条件は同様として遅延時間を $1\mu\text{s}$ とした実験結果を図 3.5 に示す。

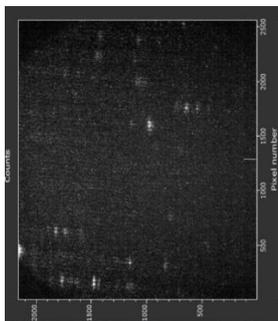


図 3.5 遅延時間が $1\mu\text{s}$ で観測した Fe 発光線

図 3.5 には図 3.4 にあるような連続光は確認できず、鉄の発光線のみを観測することが出来ている。これらの結果から CCD の観測結果や遅延時間を短く設定した観測では観測されていた連続光はレーザープラズマが生成された直後に観測されることがわかり、遅延時間を適切に設定することで連続光の除去が可能となった。そうすることで連続光により観測できていなかった束縛一束縛遷移の発光線の観測が

可能となった。

4 結論

CCD を用いた構成では、波長の分かっている波長校正用の水銀ランプと Al の測定を行った。水銀ランプを用いた実験ではから分解能を算出した。また Al の測定では水銀ランプを用いた実験と NIST のデータベースをもとに 8 本の発光線を確認し、LIBS の装置構成が成立していることを確認した。

sCMOS を用いた構成での Fe の実験では CCD では観測された連続光を除去することができ観測出来ていなかった発光線の観測が可能となった。今後は局所熱平衡状態が成り立つ条件で発光線を観測し、上準位のエネルギーが分かっている遷移についての遷移確率を導出していく必要がある。

参考文献

- [1] Masaomi Tanaka, et al., PASJ, 69(9), 102(1-7) (2017)
- [2] Jennifer Barnes, Daniel Kasen, ApJ, 775:18(9pp)(2013)
- [3] Masaomi Tanaka, et al., ApJ, 775:113(16pp)(2013)
- [4] 田中雅臣 「中性子星合体のマルチメッセンジャー観測」, 「パリティー」, 34(1), pp.50-51, (丸善出版 2019)
- [5] Yousuke Utsumi, Masaomi Tanaka, et al., PASJ, 69(9), 101(1-7) (2017)
- [6] Masaomi Tanaka, et al., ApJ, 852:109 (12pp) (2018)
- [7] 赤岡克昭, 大場正規, 宮部昌文, 音部治幹, JAEA-Research 2015-012 (2015)