

# レーザー誘起ブレイクダウン分光分析装置の立ち上げ

中村信行研究室 横田大地

## 1. 序論

### 1.1 重力波

重力波とは星の衝突や合体により生じた時空間の歪みのことを指す。重力波が生じる原因としては、2つのブラックホールの合体、ブラックホールと中性子星の合体、2つの中性子星の合体がある。1916年にアインシュタインは重力波の存在を予測していた。しかし、重力波の存在は連星パルサーの観測により明らかにされていたものの2015年まで実際に観測されたことはなかった。重力波の観測をすることで重力波天体の場所や発生源の質量などを知ることが出来る。

### 1.2 本研究における目的と背景

次世代の重力波検出器は連星系の中性子星の合体による重力波の信号を検出することが期待されている。その理由としては中性子星の合体において重元素が作られることが知られており、これまで謎とされていた重元素の起源に迫ることが可能となるからである。中性子星の合体で放出される重元素の量を測るために、合体において放射される電磁波を観測することが提唱されている[1]。そのためには、その重元素の吸収係数を考慮した輻射輸送計算が必要となるが、重元素の束縛-束縛遷移のデータが不足しているため、信頼性の高い計算ができないことが問題となっている[1]。特に、中性子星合体において多く放出されるはずである原子番号 26 よりも重い元素のデータ

数が、原子番号 26 以下のデータ数に比べて明らかに少ない。特に原子番号が 31 以上の3価のデータがないことが指摘されている。そのため重元素における発光線の測定は重要である。

そこで本研究では、種々の重元素の束縛-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ため、レーザー誘起ブレイクダウン分光 (Laser Induced Breakdown Spectroscopy: LIBS) 分析装置を立ち上げることを目的とした。LIBS は高強度レーザーを集光照射することで標的要素試料をプラズマ化し、そこからの発光を分光計測するものである。プラズマが局所的熱平衡条件を満たすことで、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。

## 2. レーザー誘起ブレイクダウン分光法

### 2.1 概要

レーザー誘起ブレイクダウン分光法 (Laser Induced Breakdown Spectroscopy: LIBS) は、試料にパルスレーザーを照射し生成されるプラズマの発光を分光することで、試料の元素構成を分析する方法である。LIBS の利点としては、試料に前処理をする必要がないこと、固体や液体、気体といった試料の形態を問わず実験が行えること、試料に非接触であり破壊が微量であること、即時に分析が可能であることなどが挙げられる[2]。

LIBS の測定ではまずパルスレーザーを試料に集光し、照射することでプラズマを生成する。生成されたプラズマは高温であり、局所的に試料から蒸発した原子やイオンが励起される。この現象をブレイクダウンと呼ぶ。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プラズマ温度は下がっていく。このとき励起された原子やイオンはその原子特有の発光を放射しながら基底状態へ戻る。そのようにプラズマは継時変化を示すが、ごく短い時間においては局所熱平衡状態にあると考えることができる。

分光分析においては、高分解能であることや広い波長域が測定可能であることが求められている。そこで LIBS においてはこの条件を満たす分光器としてエシエル型分光器がよく用いられている。またエシエル型分光器は高次数により分解能をあげるため、焦点距離の大きな一般的高分解能分光器と比べ、小型であることも特徴である。

## 2.2 観測方法

局所熱平衡状態が成り立つような短時間測定では、占有密度がボルツマン分布となるため、上準位から下準位への発光線の発光強度  $I$  とプラズマ温度  $T$  の関係式は(2.1)式で与えられる[3]。

$$\ln\left(\frac{I \times \lambda}{g \times A}\right) = -\frac{1}{kT}E + \ln\left(\frac{hc N}{4\pi Z}\right) \quad (2.1)$$

ここで、 $h$  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、 $\lambda$  は波長、 $N$  と  $Z$  は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

準位のエネルギーレベルを示す。 $gA$  や  $E$  が認知である発光線について、(2.1)式の左辺を  $E$  の関数としてプロットすると一定の傾きを持った直線となる。この直線を用いることで、発光強度と上準位のエネルギーレベルが分かれば遷移確率が導出可能となる。発光強度は標準ランプを用いて較正する必要がある。

## 3. 装置

### 3.1 全体の構成

本研究におけるレーザー誘起ブレイクダウン分光分析装置の概略図を図 3.1 に示す。その構成は、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 レーザーは試料をプラズマ化するために必要な高強度パルスを出力することが可能であり、エシエル型分光器は高分解能かつ広い波長域での測定ができることが特徴である。Nd:YAG レーザーから出力されたパルス光をミラーと集光レンズを用いて容器内試料に照射する。集光されたパルス光により試料はプラズマ化され発光線が放射される。試料からの発光線は集光レンズによりエシエル型分光器に導入され、回折格子で分散された後に CCD で検出される。Nd:YAG レーザーのパルス光を照射するタイミングと CCD を同期制御するため、この 2 つの機器を PC と接続する。

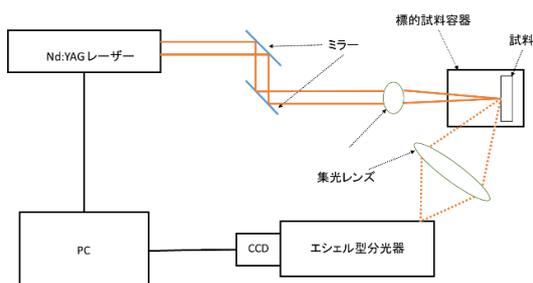


図 3.1 レーザー誘起ブレイクダウン分光分析装置の概略図

### 3.2 Q スイッチ Nd:YAG レーザー

試料をプラズマ化させるためのレーザーとして Spectra-Physics 社製の Q スイッチ Nd:YAG レーザー(GCR-150)を用いた。波長は 1064 nm、繰り返し周波数は 10 Hz、出力エネルギーは 650 mJ、パルス幅は 9 ns、ビーム径は 9 mm である。入射ビーム径を  $W_1$ 、レーザーを集光させた部分であるビームウエストにおけるビーム径を  $W_2$ 、集光レンズの焦点距離を  $f$ 、波長を  $\lambda$  とすると、ビームウエストにおけるビーム径は式(3.1)で与えられる[4]。

$$W_2 \approx 2.44 \times \lambda \frac{f}{W_1} \quad (3.1)$$

したがって焦点距離 150 mm の YAG レーザー用集光レンズを用いることでビームウエストにおけるビーム径を 43  $\mu\text{m}$  にできる。またパワー密度  $F$  はレーザーの出力エネルギーを  $P$ 、パルス幅を  $\tau$ 、ビーム径を  $d$  とすると(3.2)式で表される。

$$F = \frac{4P}{\pi d^2 \tau} \quad (3.2)$$

(3.2)式を用いてレーザーのパワー密度を

求めると  $5 \times 10^{16} \text{ W/cm}^2$  となる。

## 4. 動作確認

### 4.1 Q スイッチ Nd:YAG レーザー

これまで研究室にありながら長年使用しておらず発振していなかった Q スイッチ Nd:YAG レーザーの整備を行った。まず冷却水の流量不足によりインターロックがかかった状態であったので、冷却システムの動作を確認した。冷却水を循環させるポンプが原因であることが判明した。そこでポンプとフィルターの交換を行うことで流量を確保することができた。

しかしインターロックが解除されてもレーザーは発振されなかったため、レーザーを発信させる箇所に問題があると考えられた。そのため共振器内の反射鏡とフラッシュランプの交換を行った。その結果レーザーは発振したのでレーザー内部素子のアライメントを行い出力を最適化した。その結果を表 4.1 に示す。繰り返し周波数は 10 Hz で行った。仕様である出力と比較しても正常に機能していることがわかる。

表 4.1 Q スイッチ Nd:YAG レーザーの出力結果

波長 (nm)	出力エネルギー (mJ)
1064	700
355	190

### 4.2 エシエル型分光器

分光器には液体窒素冷却型 CCD を取り付け、動作確認を行った。スリットの高さ調整を行った結果を図 4.1 と図 4.2 に示す。この時に用いた光源は連続光である。横軸は

凹面回折格子による分散、縦軸はエシエル回折格子による分散を示している。



図 4.1 CCD 動作確認  
(スリット高さ 4 mm)

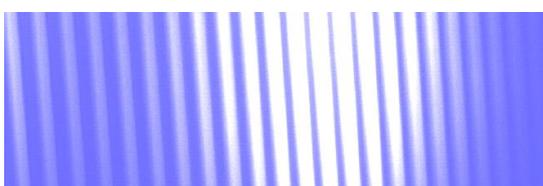


図 4.2 CCD 動作確認  
(スリット高さ 2 mm)

図 4.2 に示したように次数ごとに発光線を観測することができた。また、隣接する次数の重なりはスリットの高さを調整することで解消できることを確認し、観測において適したスリット高さが 2 mm であることが判明した。

## 5. まとめと展望

本研究では新たな分光分析装置として LIBS を立ち上げ、レーザーや分光器の動作確認と光学素子の検討を行った。レーザーの動作確認では仕様を満たすことを確認した。一方、分光器の動作確認としてはスリットの高さにより結果が変化することを確認し、適切なスリットの高さを決定した。また光学素子については試料をプラズマ化するために必要なパワー密度に耐えるものを用意した。

今後は正確な試料の発光線を測定するた

めに試料容器の検討を行い、それを元にレーザーを集光させる集束光学系と試料からの発光線をエシエル型分光器に集光させる集光分光計を設置する。その後、Nd:YAG レーザーとエシエル型分光器の同期を PC で行い、実際に試料を用いた分光分析を開始する。

## 参考文献

- [1] Masaomi Tanaka and Kenta Hotokezaka ApJ, 775:113 (2013)
- [2] Sergo Musazzi, Umberto Perini 「Laser-induced breakdown spectroscopy : theory and applications」 (Berlin : Springer, 2014)
- [3] 赤岡克昭, 大場正規, 宮部昌文, 音部治幹, JAEA-Research 2015-012 (2015)
- [4] 原田明, 澤田嗣郎 「レーザー分光分析」 (丸善, 2009)