

# 博士学位論文

## 中性化膜一体型フランシウム 221 原子源の 性能評価

(Performance evaluation of a neutralizer-combined  
francium-221 atomic source)

中下輝士



# 目次

<b>第 1 章</b>	<b>序論</b>	<b>1</b>
1.1	研究背景 . . . . .	1
1.2	本研究の目的 . . . . .	3
1.3	本論文の構成 . . . . .	3
<b>第 2 章</b>	<b>実験原理</b>	<b>4</b>
2.1	基本的対称性と EDM . . . . .	4
2.2	EDM 測定 の 原理 . . . . .	7
2.3	$^{225}\text{Ac}$ の $\alpha$ 崩壊による $^{221}\text{Fr}$ 生成 . . . . .	8
2.4	東京大学での Fr 原子源 . . . . .	12
<b>第 3 章</b>	<b>実験</b>	<b>19</b>
3.1	フランシウム源の作製 . . . . .	19
3.2	フランシウム原子の減速と中性化 . . . . .	29
<b>第 4 章</b>	<b>結果および解析</b>	<b>46</b>
4.1	実験ごとの概要 . . . . .	46
4.2	SSD 測定データの解析方法 . . . . .	47
4.3	成膜実験 . . . . .	50
4.4	中性化実験 . . . . .	53
<b>第 5 章</b>	<b>結論</b>	<b>69</b>
5.1	結論 . . . . .	69
5.2	今後の展望 . . . . .	70
<b>補遺 A</b>	<b>Ramsey 分光法</b>	<b>71</b>

謝辭	74
参考文献	76

# 目次

2.1	Fr 原子のイオン化確率と仕事関数の関係 . . . . .	10
2.2	オープンを用いた Fr 原子ビーム源 . . . . .	11
2.3	TRIUMF グループによる $^{221}\text{Fr}$ 磁気光学トラップの実験セットアップ . . . . .	12
2.4	中性化膜一体型原子源の構造 . . . . .	13
2.5	イオン交換クロマトグラフィーの系のイメージ図 . . . . .	13
2.6	LN レジンと硝酸の分配関数 . . . . .	15
2.7	アルゴンの Paschen 曲線 . . . . .	17
2.8	スパッタ成膜表面状態と圧力・温度の関係 . . . . .	18
3.1	$^{229}\text{Th}$ の崩壊系列 . . . . .	20
3.2	Th から Ac を分離するイオン交換クロマトグラフィーの流れ . . . . .	21
3.3	Th 溶液から Ra と Ac を分離する様子 . . . . .	21
3.4	Th の分離手順 . . . . .	23
3.5	DGA レジンのレジン容量係数 . . . . .	24
3.6	Ra の分離手順 . . . . .	24
3.7	DGA レジン使用時の様子 . . . . .	25
3.8	Ac の精製手順 . . . . .	26
3.9	LN レジンのカラムとテフロンビーカー . . . . .	26
3.10	電着装置のセットアップ . . . . .	27
3.11	電着後の白金箔と焼成用の電気炉 . . . . .	28
3.12	成膜用真空装置の概念図 . . . . .	30
3.13	$\alpha$ 線測定中の成膜用真空装置 . . . . .	31
3.14	直進導入器の構造 . . . . .	31
3.15	直進導入器の先端に固定された Ac . . . . .	32
3.16	イットリウム基板の写真 . . . . .	33

3.17	SSD と金箔の写真 . . . . .	34
3.18	測定パートの電極の画像 . . . . .	35
3.19	Fr イオンの軌道のシミュレーション . . . . .	35
3.20	成膜パートの概念図 . . . . .	36
3.21	スパッタリング中の圧力・電流・電圧の変化 . . . . .	38
3.22	測定パートの概念図 . . . . .	39
3.23	$^{225}\text{Ac}$ の崩壊系列 . . . . .	40
3.24	SSD で測定された $\alpha$ 線のエネルギースペクトル . . . . .	41
3.25	SSD 測定の実験シーケンス . . . . .	42
3.26	SSD での測定結果と Fr の解析のイメージ . . . . .	44
3.27	中性化率測定実験の結果の例 . . . . .	45
4.1	SSD による測定結果とフィッティング結果の例 . . . . .	48
4.2	2 時間のスパッタ成膜ごとに測定した $\alpha$ 線スペクトル . . . . .	51
4.3	成膜時間と反跳 Fr 量の関係 . . . . .	52
4.4	原子源内部の Fr 分布の予想 . . . . .	54
4.5	補正後の Fr カウント数 . . . . .	55
4.6	成膜時間に対する SSD での Fr カウント数の変化 . . . . .	55
4.7	成膜時間ごとの Fr カウント数 . . . . .	56
4.8	成膜時間と観測された Fr 数の関係 . . . . .	57
4.9	成膜時間に対する中性化率の変化 . . . . .	58
4.10	実験結果を説明する Fr 分布モデル案 . . . . .	59
4.11	高温での加熱の前後による脱離 Fr 量の変化 . . . . .	60
4.12	高温加熱の前後における脱離 Fr の中性化率 . . . . .	61
4.13	加熱温度を変えて中性化測定を実施した際の補正後 Fr カウント数 . . . . .	62
4.14	加熱条件を変更した際の脱離 Fr 数 . . . . .	63
4.15	加熱条件ごとの中性 Fr の割合 . . . . .	64
4.16	成膜時間と反跳 Fr 量の関係 . . . . .	65
4.17	アルゴンスパッタリング成膜の Thornton モデル . . . . .	66
4.18	Fr 原子源の加熱に対する圧力変化 . . . . .	67
A.1	座標系と記号の定義 . . . . .	71
A.2	Ramsey 分光法の原理 . . . . .	73

# 表目次

3.1	Ac の電着結果 . . . . .	27
3.2	$^{225}\text{Ac}$ の崩壊系列上の $\alpha$ 崩壊する核種 . . . . .	40
3.3	観測された Fr の分類 . . . . .	43
3.4	加熱条件に対応する Fr 検出数 . . . . .	44
4.1	Ac を使用した実験の概要 . . . . .	47
4.2	印加電流量と原子源の温度の関係 . . . . .	60
4.3	2411 実験における電着 Ac の量 . . . . .	62
4.4	各実験において作製された Fr 原子源の評価 . . . . .	68

# 第 1 章

## 序論

### 1.1 研究背景

素粒子の永久電気双極子能率 (electric dipole moment、以下 EDM と表記する) が存在すれば、時間反転対称性 (T 対称性) の破れを意味し、CPT 定理より CP 対称性の破れを意味する。これは、宇宙の物質・反物質の非対称性の謎を解明するために重要である。素粒子物理学の標準模型 (Standard Model) を超えた新たな理論モデルにより、大きな EDM の値が予言されており、原子や分子を用いて EDM の測定を試みる様々な研究がこれまでに実施されている [1]。EDM  $\mathbf{d}$  を測定するためには、外部から電場を印加することで、エネルギーシフト  $\mathcal{H} = -\mathbf{d} \cdot \mathbf{E}$  を測定する。電子 EDM は、原子内で相対論効果により原子番号 (原子核の陽子数)  $Z$  の 3 乗に比例して増幅される [2]。電子 EDM の実験については、Tl 原子 [3]、YbF 分子 [4]、ThO 分子 [5] の実験があるが、原子ビームや分子ビームは電場を発生する電極を通過する時間が短いため、電場との相互作用時間が約 1 ms 程度に限定されてしまう。それに対して、レーザー冷却・トラップ技術を用いることで、相互作用時間を約 1000 倍の 1 秒程度に長くすることができる。現在、HfF 分子イオントラップを用いた研究が最高精度の上限値  $4.1 \times 10^{-30} e \text{ cm}$  を与えている [6]。しかし、イオントラップ中に捕獲されたイオン同士の衝突による影響が分子コヒーレンスを劣化させる [7]。一方、レーザー冷却した原子を光格子中に捕獲した場合、光格子を生成するレーザー光の定在波の腹に個々の原子がトラップされるため、原子同士の衝突を抑制することが可能であり、電子 EDM の上限値の更新が期待されている [8]。原子系では、電子 EDM の増幅度は原子番号の 3 乗に比例し、原子番号が最大のアルカリ原子であるフランシウム (Fr) では、電子の EDM の大きさが約 799 倍に増幅されると予測されている [9]。そのため、Fr 原子をレーザー冷却し光格子ポテンシャル中に捕獲し EDM を測定するこ

とで、電子 EDM の測定精度の向上が期待されており、特に量子センシング技術を用いることで、現在の上限値を超える  $10^{-30}$  以下の測定が可能である [10]。

Fr の中でも八重極変形核を持つ  $^{223}\text{Fr}$  と  $^{221}\text{Fr}$  は、原子核の Schiff モーメントを持ち、クォーク色電荷-EDM に対する感度を持つ [11, 12]。いずれも未だ測定されていないため、 $^{223}\text{Fr}$  と  $^{221}\text{Fr}$  の EDM 測定は間接的な測定の例として重要である。 $^{221}\text{Fr}$  はアクチニウム  $^{225}(\text{Ac})$ 、半減期 9.9 日 [13] の  $\alpha$  崩壊で生成されるため、 $^{221}\text{Fr}$  原子の供給源として  $^{225}\text{Ac}$  を用いた原子源を作製することが必要となる。 $^{225}\text{Ac}$  を用いた  $^{221}\text{Fr}$  原子源として、次の 2 つのグループの研究がある。アメリカの JILA のグループは、白金線に電着した  $50\ \mu\text{Ci}$  の  $^{225}\text{Ac}$  ( $1.85\ \text{MBq}$  相当) をオープンに入れ、1 秒当たり約  $3.8 \times 10^4$  個の Fr 原子をビームとして取り出し、磁気光学トラップを行った研究がある [14, 15]。その実験では、 $^{225}\text{Ac}$  の  $\alpha$  崩壊で発生する Fr はイオン化しているため、電場を利用してイットリウムの表面に Fr イオンを収束させ収集し、イットリウム表面で中性化して、中性 Fr 原子を生成する手法を用いている。しかし、原子源がるつぼ状の形のため、原子源の出口から出射される原子数は生成される原子数の 2% と少なくなってしまう。また、カナダの TRIUMF のグループは、タンタル箔にあらかじめ  $^{225}\text{Ac}$  原子ビームを照射して埋め込み、 $\alpha$  崩壊で放出される核種のみを利用する方法も開発されている [16]。この研究では、タンタル箔内の Ac から放出された Fr をイットリウム箔に照射する手法により、イオンを中性原子に変換する電子再結合 (中性化) の操作が含まれる。しかしながら、Fr イオンをイットリウムの表面へ移送する過程において Fr の損失が発生してしまう。以上の従来手法に対して、これまでの損失のある Ac 源を改良するためには、Ac の表面にイットリウムの薄膜を直接形成することができれば、生成される Fr 原子は全てイットリウム薄膜で閉じ込めることができ、加熱することで Fr を熱脱離させれば、Fr 原子の供給量は大幅に上昇すると期待される。

本研究グループでは、国内外の共同研究者とともに、Fr 原子を用いた電子 EDM 測定を目指し、精密分光に必要な捕獲技術の開発を行っている。Fr 原子を生成し、中性化して、レーザー冷却・トラップ後に光格子中で電場を印加して、EDM 測定を行う。これまでに、 $^{210}\text{Fr}$  原子の磁気光学トラップ (MOT) [17] や、光格子トラップ中での Rb と Cs の共存磁力計の開発にも成功している [18]。ここでは、Fr 原子源に注目する。2020 年に実施された実験では、理化学研究所・仁科センターの加速器 AVF サイクロトロンを用いた酸素 ( $^{18}\text{O}^{6+}$ ) ビームと金 (Au) ターゲットの核反応により、イオンビームとして毎秒  $5 \times 10^6$  個の  $^{210}\text{Fr}$  を引き出すことに成功している [19, 20]。 $^{221}\text{Fr}$  についても、白金基板上に電着された  $^{225}\text{Ac}$  上にイットリウムの薄膜を形成し、中性化の機能をもたせた  $^{221}\text{Fr}$  原子源を作製した [21]。しかしながら、捕獲領域までの移送効率の問題などにより、現状  $^{221}\text{Fr}$  原

子の真空中でのレーザー冷却・トラップには至っていない。Fr を脱離させる際に、Fr 原子源を 1000 °C 近くまで加熱する必要があり、捕獲領域の真空度の悪化につながっていた。また、Ac へのイットリウム薄膜形成の過程や生成される Fr 原子数および中性化効率の最適化など、未解明な点が多い。

## 1.2 本研究の目的

本研究では、 $^{221}\text{Fr}$  原子源を作製する過程と、 $^{221}\text{Fr}$  原子の生成率および中性化効率とその基礎特性を詳細に研究することを目的とする。

## 1.3 本論文の構成

本論文の第 2 章では、実験に関する原理を述べる。つまり、対称性の破れ、EDM 測定方法、 $^{221}\text{Fr}$  原子源の歴史、我々のグループの原子源の原理について説明する。第 3 章では Fr 原子の供給源となる Ac の使用方法および中性化膜の作製方法について、詳細な実験手順を述べる。第 4 章では、実験結果について、中性化膜による Fr の減速の効果と中性化の性能について、それぞれの検証結果を議論する。以上の結果を踏まえた結論と今後の展望を第 5 章にまとめる。

## 第 2 章

# 実験原理

### 2.1 基本的対称性と EDM

物質と反物質の非対称性は、現在の物理学における主要な課題の一つである。例えば現在の宇宙には多くの物質からなる天体が確認されている存在する一方で、観測可能な範囲に天体を構成し得る量の反物質は存在しないことが知られている。このような物質優勢宇宙の形成には、「Sakharov の 3 条件」として知られる以下の 3 つの条件が必要である [22]。

- バリオン数の非保存
- C および CP 対称性の破れ
- 熱平衡の破れ

この内、バリオン数の非保存については、インフレーション理論などにおいてビッグバン直後の宇宙のバリオン数がゼロだったことが示唆されたこともあり、バリオン数を保存しない反応を含む多くのモデルが検討されている [23]。また、現在も宇宙が加速膨張している観測結果などから、現在の宇宙は熱平衡に達していないと考えられている。本研究ではこの中で CP 対称性の破れを議論の対象とする。素粒子物理学の標準模型において、CP 対称性の破れは CKM 行列理論によって理論的に示され [24]、K 中間子や B 中間子の崩壊過程などの様々な実験 [25–27] から確認されている。しかしながら、これまでに確認されている CP 対称性の破れだけでは、なぜ宇宙が反物質ではなく物質に満ちているのかを説明するには不十分である [28]。さらに強い相互作用においては、量子色力学 (QCD) の理論式に CP 対称性を破る項が存在できるものの、実験ではその効果がほとんど観測されていない。この「なぜ CP が破れないのか」という不自然さは強い CP 問題 (strong CP

problem) と呼ばれ、物理学における重要な未解決課題の一つとなっている [29]。これを自然に説明する解決策として、アクシオンと呼ばれる仮想粒子を導入する Peccei-Quinn 機構が提案されている [30]。また、標準理論を超える新たな CP 対称性の破れを生み出す未知の効果を含む理論の研究も活発に進められている。

CP 対称性の破れは、CPT 不変性のもとにおいて T 対称性の破れと等価である。ここで CPT 不変性とは、CP 変換と時間反転の操作 (T 変換) を同時に行う操作に対する対称性のことであり、T 対称性とはこの時間反転操作に対して変化しない性質のことを指す。CPT 不変性は相対論的な場の量子論の範囲で理論上成り立つことが知られ [31]、反物質の精密測定などの様々な検証実験においても高い精度で確認されている [32-34]。そのため、T 対称性の破れに関わる現象の観測により、CP 対称性についての理解が深まることが期待される。

### 永久電気双極子能率と T 対称性の破れ

永久電気双極子能率 (permanent electric dipole moment、以下 EDM と表記する) を持つ素粒子の存在は、T 対称性を破る現象である。このことは、以下のように説明される。スピン  $\mathbf{S}$  ( $|\mathbf{S}| = S$  とする) を持つ粒子の磁気双極子モーメントの大きさを  $\mu$ 、EDM の大きさを  $d$  とする。素粒子に EDM が存在する場合、その向きは必ずスピンと平行もしくは反平行になる。この粒子に電場  $\mathbf{E}$  と磁場  $\mathbf{B}$  を印加したときの相互作用のハミルトニアンは

$$\mathcal{H} = -\mu \frac{\mathbf{S}}{S} \cdot \mathbf{B} - d \frac{\mathbf{S}}{S} \cdot \mathbf{E} \quad (2.1)$$

と書ける [29]。この系に対して時間反転の操作を行う事を考える。まず角運動量であるスピン  $\mathbf{S}$  は時間反転によって反転する。次に磁場はベクトルポテンシャル  $\mathbf{A}$  を用いて  $\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A}$  と書ける。ベクトルポテンシャルは電流に由来するので、磁場  $\mathbf{B}$  も時間反転操作によって反転する。一方で、時間の影響を含まない電場  $\mathbf{E}$  は T 変換の前後で変化しない。よって式 (2.1) で表されるハミルトニアンに時間反転操作を施すと、ハミルトニアンは

$$\mathcal{H}' = -\mu \frac{\mathbf{S}}{S} \cdot \mathbf{B} + d \frac{\mathbf{S}}{S} \cdot \mathbf{E} \quad (2.2)$$

と変化する。 $d \neq 0$  の場合は  $\mathcal{H} \neq \mathcal{H}'$  となるので、T 変換によって電磁場と素粒子の相互作用ハミルトニアンは変化する。ゆえに、有限の EDM を持つ素粒子は T 対称性を破る性質を持つということが出来る。<sup>\*1</sup>

---

<sup>\*1</sup>  $\mathbf{B}$  と  $\mathbf{S}$  が軸性ベクトル、 $\mathbf{E}$  が極性ベクトルであることから、空間反転 (P 変換) に対しても式 (2.1) は同様に形を変える。よって EDM の存在は T 対称性と P 対称性を同時に破る効果である。

標準理論を超える物理学を考える際には、標準理論よりも大きな CP 対称性の破れが想定される。その結果として標準理論よりも大きな EDM の存在が予想されることから、EDM の測定は、標準理論を超える新たな物理学の理論に対して実験結果から制限を与え、理論構築の一助となることが期待される。

### 素粒子の EDM

素粒子が有限値の EDM を持つ可能性については、1950 年に Purcell と Ramsey によって指摘されている [35]。標準理論の範囲では Cabibbo-小林-益川行列の位相に由来し、さらにクォークについては、量子色力学 (QCD) から導かれる CP を破るパラメータ ( $\theta$ -term) も EDM に寄与する [29]。ここで、質量  $m_f$  のフェルミオンに対して EDM を生じさせる反応の Feynman diagram のループの数を  $n_l$  として、その EDM の大きさは次の式 (2.3) のように書ける [1]。

$$d \sim \mu_f \sin \phi_{\text{CP}} (g^2/2\pi)^{n_l} (m_f/m_X)^2 \quad (2.3)$$

ここで、 $\mu_f = e\hbar/(2m_f c)$  はフェルミオンの磁気モーメント、 $m_X$  はループ内の重粒子の質量を表す。また、 $g$  は無次元の結合定数で、例えば電磁気力が影響している場合は  $g^2 = \alpha$  となる。標準理論において、クォークの場合は 3 次のループで有限の EDM が生じ、その大きさは約  $-0.7 \times 10^{-34} e \text{ cm}$  と見積もられている [36]。また、レプトンである電子の場合は 4 次のループで有限の EDM が生じ、その大きさは約  $5.9 \times 10^{-40} e \cdot \text{cm}$  と予想されている [37]。これはいずれも現在の実験精度と比較しても非常に小さな値であり、有限の値として測定することは困難である。

一方で、未発見の新粒子の存在や CP 対称性を破る未知の効果の存在を想定する理論においては、標準理論を上回る CP 対称性の破れに付随して新たな T 対称性の破れが導かれ、低次のループで EDM が発現する機構など、より大きな EDM の存在が予想されている [38]。

### 複合粒子の EDM

核子や原子のような複合粒子においては、各物質を構成する素粒子の持つ EDM に加えて、構成粒子間の相互作用が粒子全体の EDM に寄与する [29, 39]。不対電子を持たない水銀などの反磁性原子においては、原子核の EDM に由来する成分、nuclear Schiff moment に由来する成分、およびスピンに依存する電子-原子核相互作用によって原子の EDM が発現する。さらに不対電子の存在するタリウムやフランシウムなどの常磁性原子においては、この不対電子の EDM と、電子-原子核間の相互作用が原子全体の EDM に

寄与する。

電氣的に中性な原子の場合、非相対論的な範囲で点粒子の EDM は原子内で遮蔽される。しかし原子核の大きさや電子の相対論効果を考慮した場合、EDM は完全には遮蔽されず、特に重元素においては増幅され原子の EDM として発現することが分かっている [2]。この増幅度は原子番号の 3 乗に比例し、原子番号最大のアルカリ原子である  $^{210}\text{Fr}$  では約 799 倍と予測されている [9]。

## 2.2 EDM 測定の原理

粒子の EDM を測定する際には、電磁場を印加し EDM に比例する物理量を測定する必要がある。代表的なものとして、Larmor 歳差運動の周波数変化を、遷移周波数の差分として測定する方法がある。以下の議論は、文献 [40] に基づく。磁気双極子モーメント  $\boldsymbol{\mu}$  を持つ原子に外部磁場  $\boldsymbol{B}$  を印加すると、

$$\boldsymbol{T}_m = \frac{\partial \boldsymbol{\mu}}{\partial t} = \boldsymbol{\mu} \times \boldsymbol{B} \quad (2.4)$$

のトルクが発生し、原子は  $\boldsymbol{B}$  の周りに歳差運動を行う。これを Larmor 歳差運動と呼び、ポテンシャルエネルギーは

$$W_m = -\boldsymbol{\mu} \cdot \boldsymbol{B} \quad (2.5)$$

で表され、 $\boldsymbol{\mu}$  を磁場の向きに揃えるような力が働く。

同様に粒子が EDM  $\boldsymbol{d}$  を持っている場合に外部電場  $\boldsymbol{E}$  を印加すると、トルク

$$\boldsymbol{T}_e = \boldsymbol{d} \times \boldsymbol{E} \quad (2.6)$$

が発生し、粒子は歳差運動を行う。そのポテンシャルエネルギーは  $W_e = -\boldsymbol{d} \cdot \boldsymbol{E}$  で表される。これらのトルクを合わせた角運動量を考えると、歳差運動のポテンシャルエネルギーは

$$W_{\text{pot}} = W_m + W_e = -\boldsymbol{\mu} \cdot \boldsymbol{B} - \boldsymbol{d} \cdot \boldsymbol{E} \quad (2.7)$$

と書ける。

ここで、磁場の向きを一定としたまま電場の向きを反転させると、ポテンシャルエネルギーは

$$W'_{\text{pot}} = -\boldsymbol{\mu} \cdot \boldsymbol{B} + \boldsymbol{d} \cdot \boldsymbol{E} \quad (2.8)$$

と変化する。この 2 準位間のエネルギー差から、

$$W'_{\text{pot}} - W_{\text{pot}} = 2\boldsymbol{d} \cdot \boldsymbol{E} \quad (2.9)$$

として、電場の大きさが既知であれば、粒子の EDM の電場方向の成分の大きさを求めることができる。

Larmor 歳差運動の周波数を測定するには、主に Ramsey 分光法が用いられる。この詳細な原理については、補遺 A で述べる。測定の際に Ramsey 分光法を用いた場合、測定結果から得られる EDM の不確かさ  $\delta d$  は

$$\delta d \propto \frac{\hbar}{ET\sqrt{mN}} \quad (2.10)$$

と表される [41]。ここで、 $E$  は測定対象粒子に印加される外部電場の大きさ、 $T$  は外場との相互作用時間、 $m$  は測定回数、 $N$  は一度の測定で観測される粒子の数を表す。測定の不確かさを減らすためには、これらの測定パラメータを増やすことが重要となる。例えば極性分子を用いる実験では、分子内部の偏極によって結合軌道上の電子に印加される実効的な電場 (式 (2.10) の  $E$ ) が大きくなり、極板などの人工的な方法では達成が困難な数十 GV/cm もの電場を実効的に印加することも可能である [4–6]。しかし YbF 分子 [4] や ThO 分子 [5] などの分子ビームで測定を行う実験では、電場を印加するための電極を通過させるため、相互作用時間  $T$  が約 1 ms に限定されてしまう。Roussy らの研究 [6] では HfF 分子イオンをイオントラップ中に捕獲することで相互作用時間  $T$  を 1 秒程度に伸ばし、現在最高精度での電子 EDM 測定結果を得ている。しかしながら粒子同士の衝突による影響が不確かさを与えている [7]。原子系での実験は極性分子に比べて実効的な電場は小さくなるものの、レーザー冷却・トラップ技術を用いることで、同様に 1 秒程度の相互作用時間を得ることができる。さらに、光格子に捕獲することができれば粒子同士の衝突の影響も抑制され、原子系で増幅度が最大となる Fr 原子を光格子に捕獲して測定を行うことで、電子 EDM の上限値を更新することが期待される [10]。

## 2.3 $^{225}\text{Ac}$ の $\alpha$ 崩壊による $^{221}\text{Fr}$ 生成

安定同位体を持たない Fr は自然界にほとんど存在せず、実験に用いるためには人工的に合成する必要がある。合成方法としては、加速器などの高エネルギー粒子ビームを用いて核反応を起こす方法と、半減期の長い核種の娘核を利用する方法がある。

前者の方法の例としては、金ターゲットに酸素 18 のイオンビームを照射して  $^{197}\text{Au} (^{18}\text{O}, xn) ^{215-x}\text{Fr}$  反応を起こし、質量数 208 から 212 の比較的短寿命な Fr の同位体が生成されている [42–45]。また CERN の ISOLDE では、ウラン標的に陽子ビームを照射することで核破砕反応を起こし、反応生成物を質量分離して取り出すことで、質量数 205 から 231 までの Fr の生成に成功している [46]。

後者の方法としては、アクチニウム  $^{225}\text{Ac}$  の  $\alpha$  崩壊によって発生する  $^{221}\text{Fr}$  を利用するものがある。核反応による方法では典型的に 1 秒あたり  $10^5$  から  $10^6$  個程度の Fr イオンが生成されるのに対して [46, 47]、100 kBq の Ac の核分裂で発生する Fr の量も 1 秒あたり約  $10^5$  個と、供給量は大きくは変わらない。しかしながら半減期 9.9 日の  $^{225}\text{Ac}$  から継続的に供給されるため、加速器を用いる場合と比較して長期間実験を行うことが可能である。このことは、実験回数 (式 (2.10) の  $m$ ) を増やすことによる精度向上の意味で大きな利点となる。

### 2.3.1 $^{221}\text{Fr}$ の生成方法

$^{225}\text{Ac}$  の  $\alpha$  崩壊で発生する  $^{221}\text{Fr}$  は、 $\alpha$  粒子を放出する反跳により約 103 keV の運動エネルギーを持った状態で生成される [13]。これは約  $2 \times 10^5$  m/s の運動エネルギーに相当し、磁気光学トラップによる捕獲には適さない。また、原子核から放出された  $\alpha$  粒子が内殻電子を擾乱することにより、娘核の Fr はイオン化した状態であることが予想される [48]。従って Fr 原子源には、発生する Fr の運動エネルギーをレーザー冷却可能な範囲まで減速する性能と、イオンとして発生した Fr を原子へと変換する中性化の性能が求められる。以下では、 $^{221}\text{Fr}$  を使用した先行研究に共通する減速と中性化の原理について述べた上で、それぞれの先行研究についてまとめる。

#### 減速

一般には高速の Fr を金属などの物体中に照射して静止させたいうで、加熱することで表面から熱脱離させる方法が用いられる。Ac から発生した高速の Fr は、白金やイットリウムなどの金属表面から約 40 nm の範囲内で停止すると予測されている [14, 16, 49]。

#### 中性化

アルカリ原子である Fr はイオン化エネルギーが小さく、イオンとして生成される場合がほとんどである。電荷をもった状態の Fr は磁気光学トラップによる捕獲やその後の冷却に適さないため、捕獲の前に中性原子にする必要がある。ここでは、主に白金基板上に電着された Ac から放出される Fr イオンを想定し、中性原子へと変換する電子再結合 (中性化) の原理について述べる。

金属表面から原子が脱離する際、イオン化する場合と中性原子として脱離する場合の比は、次の Saha-Langmuir の式と呼ばれる関係式で表される [50, 51]。

$$\alpha = n_+/n_a = (\omega_+/\omega_a) \exp [e(\Phi - V)/k_B T] \quad (2.11)$$

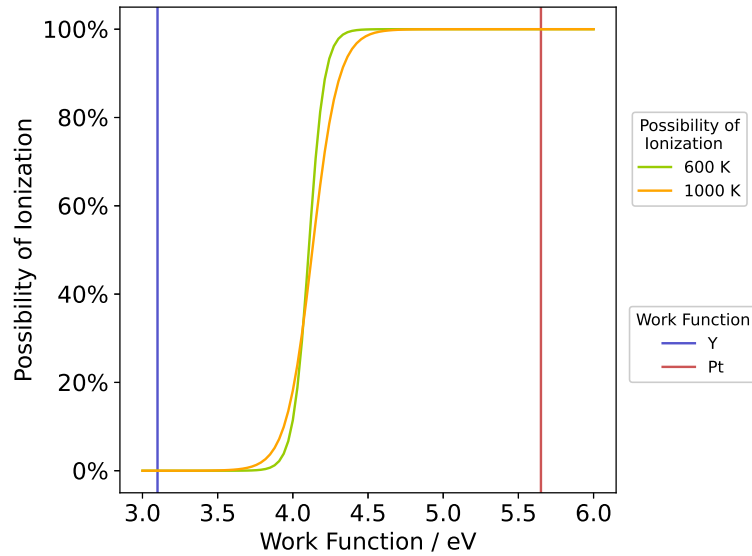


図 2.1: Fr 原子がイオン化して脱離する確率と仕事関数の関係。白金表面から脱離する際はほとんどの原子がイオン化されて脱離するが、イットリウム表面からは多くが原子の形で脱離する。イオン化エネルギーと仕事関数の値は [52, 53] をもとにした。

ここで、 $e$  は電気素量、 $\Phi$  は脱離する面の電子の仕事関数、 $V$  は原子のイオン化エネルギー、 $k_B$  は Boltzmann 定数、 $T$  は絶対温度である。また  $\omega_a$  と  $\omega_+$  はそれぞれ中性原子とイオンの状態における粒子の統計的重みづけであり、アルカリ原子の場合は  $\omega_+/\omega_a = 1/2$  であることが知られている。この式 (2.11) から、イオン化して脱離する確率  $P_{\text{ion}}$  は以下のように計算される。

$$P_{\text{ion}} = \frac{\alpha}{1 + \alpha} = \frac{1}{1 + (\omega_a/\omega_+) \exp[-e(\Phi - V)/k_B T]} \quad (2.12)$$

図 2.1 に、式 (2.12) に基づいて計算された、Fr 原子が脱離時にイオン化する確率と、金属の仕事関数の関係を示す。アルカリ原子である Fr のイオン化エネルギーは 4.07 eV であり、白金の仕事関数 (5.65 eV) に比べて低い [52, 53]。したがって、白金の表面からはそのほとんどがイオンの形で脱離する。Fr イオンを中性原子にする方法としては、仕事関数が 3.1 eV [52] と低いイットリウムに照射したうえで脱離させ中性化する方法が、加速器を用いて Fr を生成する実験を含めた多くの先行研究で用いられている [16, 54, 55]。<sup>\*2</sup>

<sup>\*2</sup> 表面が酸化膜で覆われやすいイットリウムの代わりにジルコニウム (仕事関数約 4 eV) を使用する例も存在する [56, 57]。

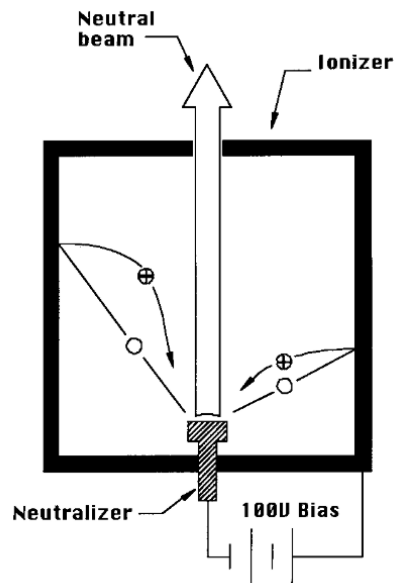


図 2.2: オープンを用いた Fr 原子ビーム源。文献 [14] より引用。

### 先行研究における Fr 原子源

■コロラド大学 図 2.2 に JILA と LBNL のグループが使用した Fr 原子源の構造を示す。白金線に電着された Ac から放出された Fr は、白金が蒸着されたオープン内壁に衝突する。オープンは約  $750^{\circ}\text{C}$  から  $1050^{\circ}\text{C}$  まで加熱される。内壁から熱脱離する Fr イオンを、 $-100\text{V}$  の電圧が印加されたイットリウム製の中性化器で収集し、中性化器から脱離する Fr 原子をオープンの開口部からビーム状に放出する構造である。この方式により、電着された Ac から発生する Fr の約 2% をオープンから取り出している [15]。

■TRIUMF カナダ・TRIUMF 研究所の研究グループでは、ウラン標的の核破碎反応で生成した  $^{225}\text{Ac}$  ビームをタンタル箔に埋め込み  $^{221}\text{Fr}$  源として使用した [16]。図 2.3 に装置の概念図を示す。図の左側から供給される約  $20\text{keV}$  の Ac ビームは、回転可能な治具に固定されたタンタル箔に照射され埋め込まれる。タンタル箔に十分な量の Ac を蓄積したのち、箔を回転させてイットリウム箔に向けることで、Ac から放出される Fr をイットリウム箔に埋め込むことができる。このイットリウム箔を  $90$  度回転させて図の上側に向け加熱することで、磁気光学トラップを実施するガラスセルに Fr 原子を供給する。この方式を用いて約  $1.9\text{Mbq}$  相当の Ac をタンタル箔に埋め込み、約  $2300$  個の Fr 原子を捕獲して観測することに成功している。

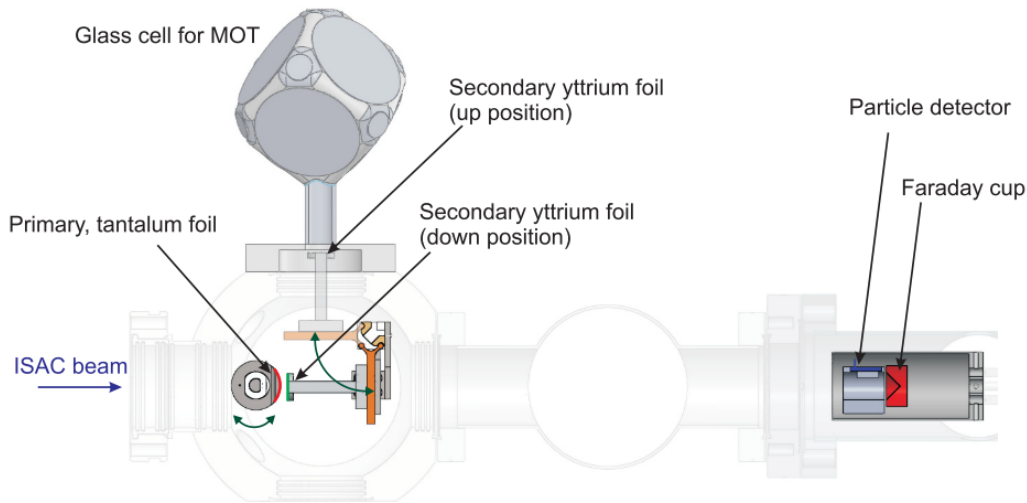


図 2.3: TRIUMF グループによる  $^{221}\text{Fr}$  磁気光学トラップのセットアップ。文献 [16] から引用。

## 2.4 東京大学での Fr 原子源

我々のグループにおいても、 $^{221}\text{Fr}$  原子の供給源として  $^{225}\text{Ac}$  を用いる研究を行っている。本グループの Fr 原子源はイオンを中性化器に収集する方式ではなく、電着された Ac を中性化性能を持つ膜で覆う構造をしている [21]。図 2.4 に、この原子源の構造を示す。Ac の  $\alpha$  崩壊で発生した Fr は、 $\alpha$  線の反跳によって高い運動エネルギーを持ちイオン化するため、そのまま捕獲し精密測定に用いることは困難である。しかし表面を十分な厚みを持つ膜で覆うことにより、放出される Fr を膜の内部に留めることが可能となる。Fr イオンを中性化させられるイットリウムの膜で覆うことにより、内部で静止した Fr を熱脱離させる際には中性原子として脱離させることができる。この方式により、Ac から生成される Fr のうちの約 10% の Fr を中性原子として取り出すことに成功している。以下では、 $^{225}\text{Ac}$  を用いた Fr 原子源開発の手法の背景となる原理について述べた上で、原子源の作製に用いた技術について説明する。

### 2.4.1 イオン交換クロマトグラフィー

$^{225}\text{Ac}$  は 4 回連続の  $\alpha$  崩壊を特徴とする核種であり、その高い線エネルギー付与と極めて短い飛程を活かし、がん細胞を内部から選択的に破壊する「内用放射線治療 (Targeted

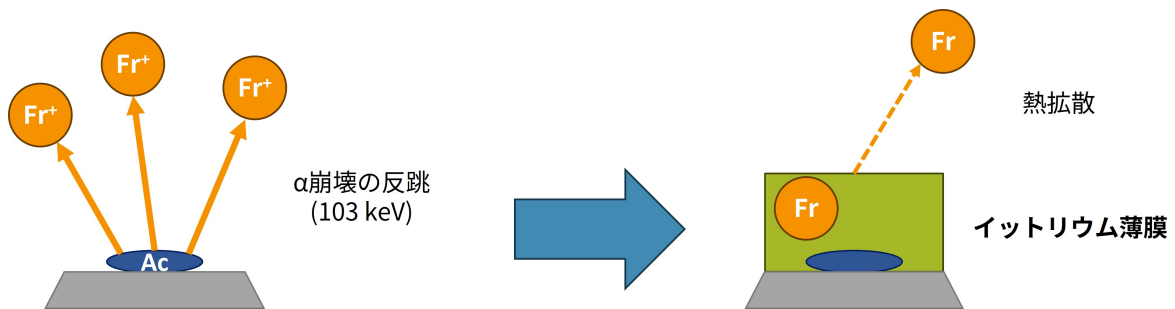


図 2.4: 中性化膜一体型原子源の構造。文献 [21] をもとに作成。

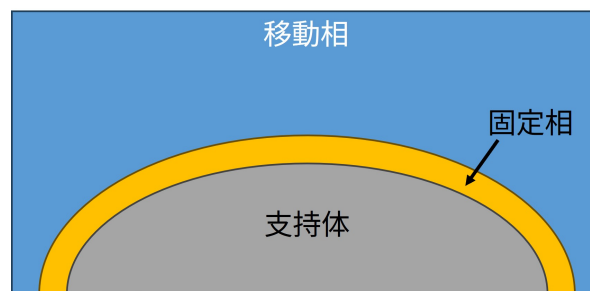


図 2.5: イオン交換クロマトグラフィーの系のイメージ図

Alpha Therapy: TAT)」における放射性薬剤として、国際的に需要が急速に高まっている。内用治療では、腫瘍特異的な標的分子に  $^{225}\text{Ac}$  を標識し体内投与することで、 $\alpha$  線によりがん細胞の DNA 二重鎖切断を誘発し細胞死を導く。一方で  $\alpha$  線の飛程は数十  $\mu\text{m}$  と短く、周囲の正常組織への影響を最小限に抑制できる利点を持つ。この治療法の普及に伴い、国内外において  $^{225}\text{Ac}$  の安定供給体制の確立が強く求められている。本研究開始当初は、日本アイソトープ協会から  $^{225}\text{Ac}$  を購入して原子源の開発を進めていた。しかしながら、内用治療用途における需要の急増により、日本国内での  $^{225}\text{Ac}$  供給は停止され、研究継続の大きな障壁となった。そこで本研究では、トリウム 229 ( $^{229}\text{Th}$ , 半減期約 7340 年) から放射化学的分離精製により  $^{225}\text{Ac}$  を分離する手法を実施した。

$^{229}\text{Th}$  を含む溶液から  $^{225}\text{Ac}$  を分離するためには、イオン交換クロマトグラフィーの技術を用いる。イオン交換クロマトグラフィーは、カラムに充填されたイオン交換樹脂などと溶液の間で生じるイオン交換反応の、溶液濃度に応じた分配係数の違いを用いることで、特定の物質のみを取り出す手法である。

図 2.5 に、クロマトグラフィーの概念図を示す。クロマトグラフィーの系は硝酸や塩酸などの水溶液である移動相 (mobile phase)、疎水性の抽出材からなる固定相 (stationary phase)、表面に抽出材を固定するための多孔質の支持体から構成される。移動相中に含ま

れる金属イオンは、固定相中の帯電した官能基との相互作用により吸着される。固定相は支持体を溶かさないうえに、官能基を導入する必要があるため、スチレン-ジビニルベンゼン共重合体 (St-DVB) が多く用いられる。この固定相に官能基を導入して抽出材としたものをイオン交換樹脂、またはレジンと呼ぶ。レジン抽出材や粒径から様々な種類が存在し、化学的な性質によって主に3種類に分類することができる。

- 陽イオン交換樹脂

負に帯電する官能基が導入され、溶液中で  $H^+$  と陽イオンを交換する反応が起きる。スルホン酸基 ( $-SO_3$ ) を交換基とする強酸性陽イオン交換樹脂と、カルボン酸基 ( $-COOH$ ) を交換基とする弱酸性陽イオン交換樹脂がある。

- 陰イオン交換樹脂

正に帯電する官能基を持ち、 $OH^-$  と陰イオンを交換する反応を媒介する。4級アミン基を交換基とする強塩基性陰イオン交換樹脂と、3級以下のアミン基を交換基にもつ弱塩基性陰イオン交換樹脂が存在する。

- キレート樹脂

特定の金属イオンに対してキレート結合を形成する構造を持ち、高い選択性を有する特徴がある。

抽出溶媒中に含まれるイオンの濃度に対する固定相中のイオン濃度を分配係数 ( $K_d$ ) と呼び、式 (2.13) で定義される。

$$K_d := \frac{c_s}{c_m} = \frac{p}{1-p} \cdot \frac{v_m}{m_s} \quad (2.13)$$

ただし、 $c_s$  は固定相中のイオン濃度 (mol/g)、 $c_m$  は移動相中のイオン濃度 (mol/mL)、 $p$  は吸着されたイオンの割合、 $m_s$  は固定相の質量 (g)、 $v_m$  は移動相の体積 (mL) をあらわす。この値は対象のイオン種及び樹脂の種類と、移動相の溶液濃度によって変化する。抽出対象のイオンのほとんどが吸着される濃度の酸に溶液を溶かして滴下すると、分配係数の小さい不純物を取り出すことができる。その後目的のイオンが固定相に吸着されにくくなる濃度の溶液を滴下することで、目的のイオンのみを抽出する。実施する際はカラムにイオン交換樹脂を詰め、硝酸や塩酸を滴下することで抽出する。図 2.6 に本研究で用いた Ln レジン (Eichrom 社製 LN-B25-A 100-150  $\mu m$ ) の、硝酸系における金属イオンの分配関数の例を示す。一般に  $K_d$  が 3 倍以上異なる物質についてはこの方法で分離する事が可能である [58]。

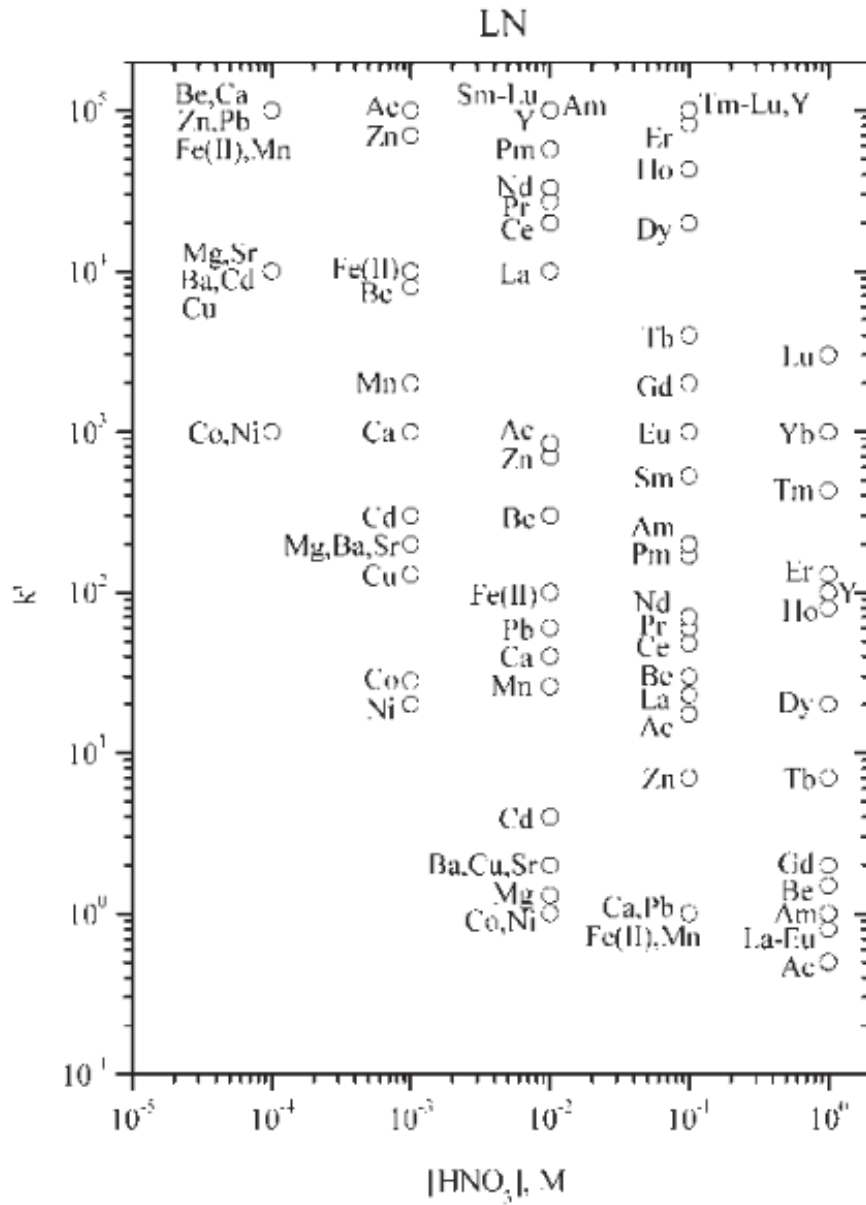


図 2.6: LN レジンの硝酸濃度に対する金属イオンの分配関数。縦軸の  $k'$  は、移動相に存在する溶質の物質質量に対する固定相中の溶質の物質質量の比 (レジン容量係数、または保持係数) をあらわし、LN レジンの場合は  $k' = K_d/4.33$ 。文献 [59] より引用。

## 2.4.2 電着

電着 (electrodeposition) は微量の化合物を金属基板上に固定する手法の一つである。特に有機溶媒を用いる場合は分子電着法 (molecular plating) と呼ばれ、水系での電着と区別される [60]。目的とする化合物を含む溶液に電圧を印加することで、電極基板上に目的のイオンを高い効率で固着させることができる。有機溶媒を用いる方法は水溶液の場合に比べて高電圧と高い溶液の純度が要求される一方で、短時間で済み再現性が高いという特徴がある [61]。詳細な化学的過程は解明されていないが、基板上には対象のイオンが酸化物または水酸化物の形で付着し、溶媒の電気分解によって発生した有機化合物なども含まれると考えられている [62]。

理化学研究所 仁科加速器科学研究センターの核化学研究開発室においては、Ac の白金基板上への分子電着の実績があり、本研究では文献 [63] で得られた知見をもとに Ac を白金箔上に電着した。詳細な実施手順については 3.1.2 節に示す。

## 2.4.3 スパッタリング成膜

金属などの薄膜を作製する方法の一つにアルゴンスパッタリングがある。数 Pa のアルゴン雰囲気下で電圧を印加することでグロー放電を起こすと、発生したアルゴンイオンは電場によって加速され、陰極基板に高エネルギーで衝突する。この衝突により基板表面の原子がはじき出され、真空容器内で拡散し標的基板に付着して薄膜を形成する。これを一定時間継続して行い、目的の厚さを得られるまで陰極基板を構成する物質を成膜することが可能となる。本研究ではこの方法によって Ac の表面にイットリウムを成膜し、2.3.1 節で示した Fr の減速と中性化を同時に行うことが計画された [21]。

### アルゴン雰囲気下での放電

気体中で放電が発生する絶縁破壊電圧  $V_B$  と、気体の圧力  $p$  および電極間の距離  $d$  の間には、式 (2.14) に示す Paschen 曲線と呼ばれる関係が存在することが知られている [64]。

$$V_B = \frac{Bpd}{\ln(pd) + \ln\{A/\ln(1+1/\gamma)\}} \quad (2.14)$$

ここで、定数  $A$ 、 $B$  は気体の原子種ごとに実験的に定まる値であり、衝突断面積に関係しているといわれている。 $\gamma$  は二次電子放出係数と呼ばれるもので、原子種と電極の材質などの条件によって変化する [65]。アルゴン中での放電について、文献 [66] の値、

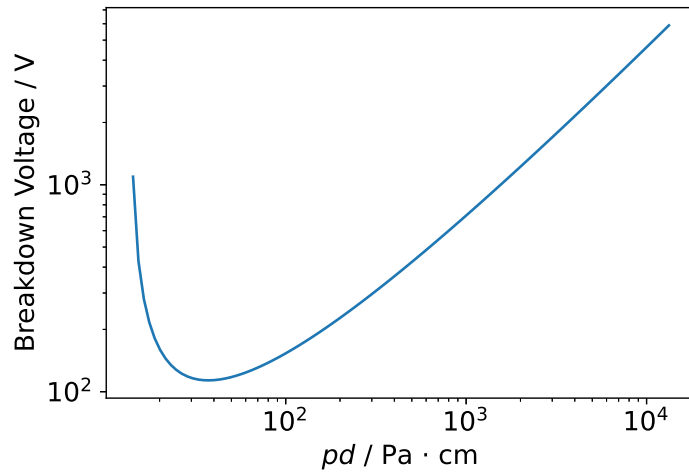


図 2.7: アルゴンの Paschen 曲線。横軸は圧力  $P$  と極板間距離  $d$  の積を表す。各定数の値は文献 [66] の値を使用した。

$A = 11.5 \text{ cm}^{-1} \cdot \text{Torr}^{-1}$ ,  $B = 176 \text{ V} \cdot \text{cm}^{-1} \cdot \text{Torr}^{-1}$ ,  $\gamma = 0.07$  を採用しプロットした Paschen 曲線を図 2.7 に示す。ほとんどの場合において、電極間の距離  $d$  は装置の設計で決まる定数なので、横軸は圧力に比例すると考えることができる。そのため下に凸なピークの左側の領域は圧力の変化に対して放電開始電圧の変化が激しい不安定領域、一方右側は圧力変化に対して電圧変化が穏やかな安定領域ということができる。継続した放電を行うためには安定領域で行うことが望ましいと思われるが、高い Ar 圧力の下では飛散した粒子の平均自由行程が短くなり、結果として成膜速度が遅くなってしまう。

### スパッタ粒子による成膜

一般にスパッタで飛散する粒子は陰極基板を構成する中性単一粒子が大半を占め、成膜させる基板に到達するまでにアルゴン原子と衝突を繰り返すことで熱平衡化していると考えられる。また、アルゴン原子は形成された薄膜の中にとり込まれる [67,68]。一般にアルゴンスパッタリングによって形成される金属膜の表面状態は、成膜される金属の融点と基板の温度の比 ( $T/T_m$ ) およびアルゴンの圧力によって変化することが知られている [69,70]。図 2.8 にその関係性を示す。Zone 1 から Zone 3 および Zone T の 4 種類が示されている。Zone 1 では柱状の多孔質な構造が形成され、基板の温度が上昇するにつれて緻密な構造が形成される。Zone T は Zone 1 と Zone 2 の間に位置し、Zone 1 より稠密な繊維状の構造を示す。Zone 2 では基板に付着した粒子が基板の表面を拡散することで、結晶が横方向にも成長するようになる。Zone 3 の高温条件では結晶内部の粒子も

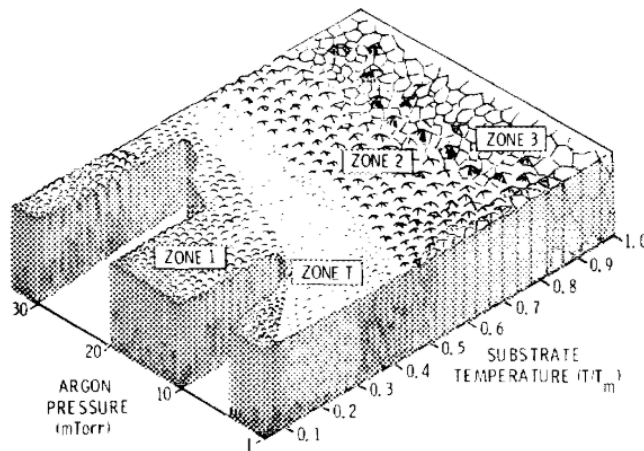


FIG. 2. Microstructure zone diagram for metal films deposited by magnetron sputtering.  $T$  is the substrate temperature and  $T_m$  is the coating material melting point. From Ref. 3.

図 2.8: スパッタ成膜時の表面状態と圧力・温度の関係を示す相図。 $T$  は成膜される基板の温度、 $T_m$  は蒸着させる物質の融点を表す。文献 [69,70] より引用。

拡散することで再結晶化が起こり、粒径が拡大して結晶境界の溝が大きくなる。

本研究では、この方法で成膜したイットリウムを用いて Fr の減速と中性化を行う。電着された Ac の表面にイットリウムを成膜し、 $\alpha$  崩壊で発生する Fr 原子を膜中に留める。その後、原子源全体を加熱することで、膜中で静止した Fr をイットリウムの表面から熱脱離させる。

## 第3章

# 実験

### 3.1 フランシウム源の作製

#### 3.1.1 アクチニウムの分離精製

東北大学金属材料研究所 アルファ放射体実験室において、トリウム  $^{229}\text{Th}$  の  $\alpha$  崩壊によって生成される  $^{225}\text{Ac}$  の分離作業を行った。図 3.1 に  $^{229}\text{Th}$  の崩壊系列を示す。用いる Th 試料中ではこれらの娘核が放射平衡に達している状態と考えられ、原子数にしておよそ  $^{229}\text{Th} : ^{225}\text{Ra} : ^{225}\text{Ac} = (2.7 \times 10^5) : 1.5 : 1$  の割合で含まれている。ここから Ac のみを取り出し利用するため、Th とラジウム (Ra) をイオン交換クロマトグラフィーによって分離する。

図 3.2 に、イオン交換クロマトグラフィーの流れの概要を示す。最初に陰イオン交換樹脂で Th のみを分離し、その後 Ra と Ac を含む溶液をから、DGA レジンを用いて Ra と Ac を分離する。本節ではこの分離手順の詳細を記す。

本実験で用いられた  $^{229}\text{Th}$  には、不純物として  $^{228}\text{Th}$  がわずかに含まれる。その崩壊系列にあるラドン  $^{220}\text{Rn}$  (半減期 55.6 秒) が  $\alpha$  線を放出する希ガスであるため、作業はすべて図 3.3 の Rn 回収装置の中で行った。<sup>\*1</sup> 回収装置の内部はポンプで減圧され、内部の空気はコールドトラップを通して水を除去したうえで、Rn を吸着させるための活性炭が入った U 字管 (チャコールトラップ) を通過してから排気される。コールドトラップと U 字管はドライアイスの入ったエタノール浴で常に冷却されている。

---

\*1  $^{229}\text{Th}$  の娘核からは  $^{225}\text{Ra}$  (半減期 14.9 日) が  $\alpha$  崩壊することで  $^{221}\text{Rn}$  が発生するが、 $^{225}\text{Ra}$  の  $\alpha$  崩壊の分岐比は 0.026(6)% でありほとんど無視できる。 $^{221}\text{Fr}$  の  $\beta^-$  崩壊から発生する  $^{217}\text{Rn}$  についても同様。



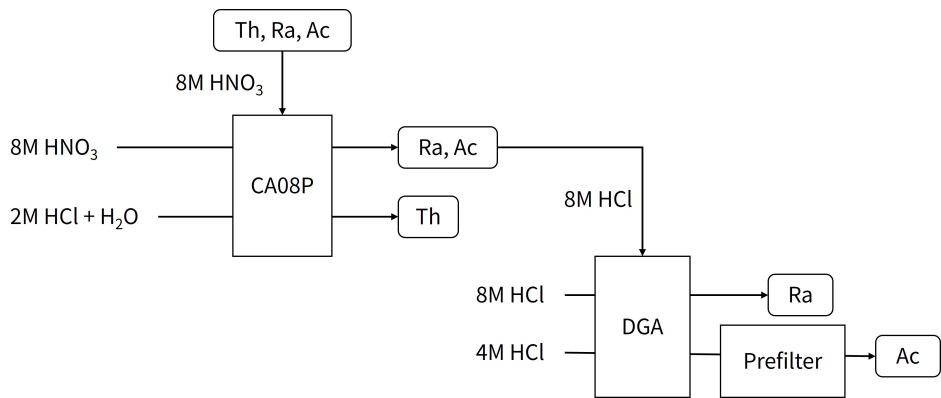


図 3.2: Th から Ac を分離するイオン交換クロマトグラフィーの流れ

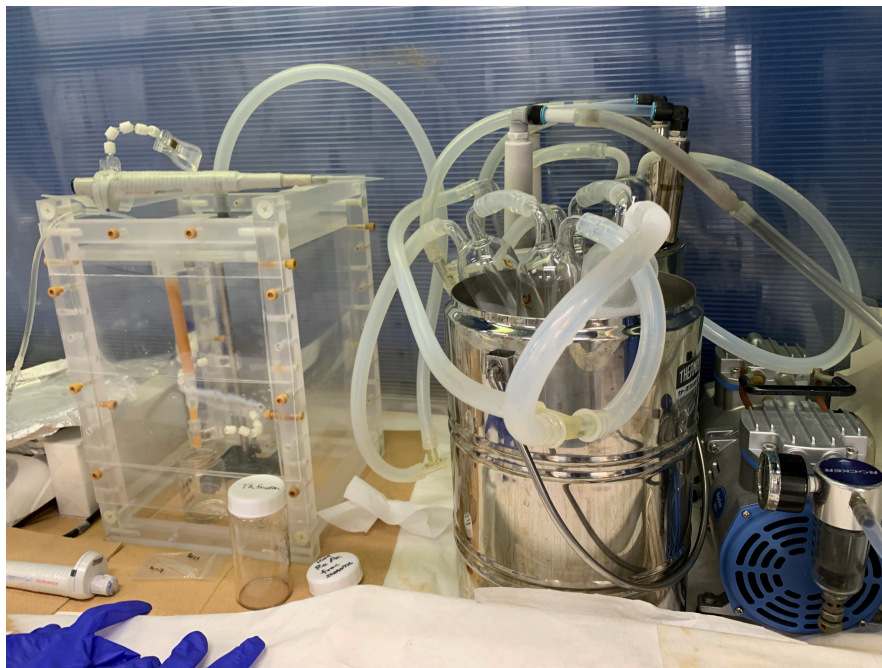


図 3.3: Th 溶液から Ra と Ac を分離する様子。イオン交換樹脂の入った 3 段のカラムが写真左側の Rn 回収装置内に設置されている。コールドトラップと活性炭管が右側のエタノール浴で冷却されている。

## Th の分離

陰イオン交換樹脂の入った3段のカラム (図 3.3) を、ここでは上から順に 1st column, 2nd column, 3rd column と呼ぶことにする。1st column は室町ケミカル社製のムロマック® ミニカラム L、2nd column と 3rd column は Bio-Rad 社の Micro Bio-Spin™ カラムを使用する。カラム内の樹脂の見かけの体積はそれぞれ 10 mL, 1 mL, 0.5 mL である。上段のカラムを通過した液がそのまま下のカラムに入るように各カラムが設置され、3rd column の下には回収用の容器が置かれる。

分離作業を開始する前には、イオン交換樹脂に対してコンディショニングと呼ばれる前処理操作が行われる。使用前のレジンに吸着されている不純物を流しだすとともに、イオン交換樹脂の官能基を適したイオン形にする、抽出したい溶液の濃度が変化しないようにするという目的がある。最初に滴下する溶液と同じ濃度の溶液を、カラムの体積の3倍から4倍程度滴下することで行われる。Th 分離の際には 40 mL の 8 M 硝酸を 1st column からチューブポンプ (東京理化工械 MP-2000) で滴下することで実施した。

Th は硝酸溶液中で錯イオンを形成して陰イオンとなる。そのため陰イオン交換樹脂と反応し、高濃度の硝酸溶液中では陰イオン交換樹脂に吸着される [71]。また塩酸溶液中においては、塩酸濃度が高いほど Th は陰イオン交換樹脂に吸着しにくいことが知られている [72]。そこで、Th の容器内部の固体を 8 M の硝酸溶液に溶かしてカラムに移すことで Th のみをレジンに吸着させ Ra と Ac を分離する。その後カラムに残った Th は 2 M の塩酸溶液で流しだす。

Th を Ac と Ra から分離する実験手順の詳細を図 3.4 に示す。分離には三菱ケミカル社製の陰イオン交換樹脂 CA08P を用いた。分離作業では、まず約 8 MBq の Th を含む固体の入ったガラス容器に、0.5 mL の 8 M (=8 mol/L) 硝酸溶液を加えて内容物を溶かし、1st column に移す。この作業を 3 回行い、容器内に存在した Th、Ra、Ac をカラムに移す。次に 40 mL の 8 M 硝酸を 1st column からチューブポンプで滴下する。ポンプによる滴下が終わった後は、2nd column にのみ 8 M 硝酸 1 mL を 4 回、3rd column にのみ 8 M 硝酸 1 mL を 2 回加える。以上の抽出液は全て Ra/Ac fraction としてガラス容器に回収する。抽出後に 2nd column と 3rd column をゲルマニウム検出器で測定し、Th に由来する 193 keV の  $\gamma$  線がどちらからも検出されなければ、Ra/Ac fraction 内に Th は流れ出していないと判断できる。その後、1st column に残っている Th を 50 mL の 2 M 塩酸と 30 mL の純水の順番で洗い流し、元の Th 保管用容器に回収する。保管容器に回収した溶液を蒸発乾固させた後、 $\alpha$  崩壊の反跳核がガラスに打ち込まれることを抑制するために、数 mL の 0.5 M 硝酸を加えて保管する。

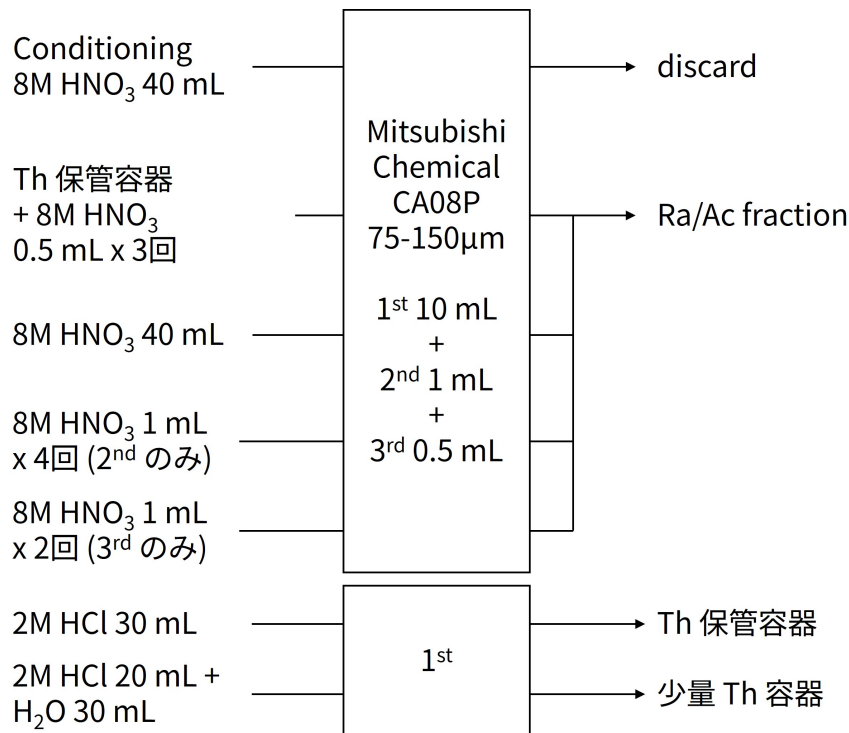


図 3.4: Th の分離手順。Ra を含む系の作業は全て Rn 回収装置の中で行われる。

### Ra の分離

Ra/Ac fraction から Ra を分離する際は、キレート樹脂の一種である DGA レジンをを用いてイオン交換を行う。図 3.5 に DGA レジンの塩酸溶液に対するレジン容量係数を示す。塩酸を用いる場合、Ra はいずれの濃度においても流出する。一方で、Ac は 2M 未満の塩酸では流出し、8M 付近で最もよく吸着される。そこで、Ra/Ac fraction を 8M の塩酸溶液にしたうえで DGA レジンのカラムに移し、Ra のみを分離する。その後低濃度の塩酸で DGA レジンに吸着された Ac を取り出す。手順の詳細を図 3.6 に示す。

DGA レジンは Th の分離に用いた陰イオン交換樹脂に比べて溶液を通しにくいいため、図 3.7 のような形でポンプにより気圧差を発生させることで溶液を通過させる。Ra を含む溶液からは、<sup>228</sup>Th に由来する <sup>224</sup>Ra から Rn が発生する可能性があるため、Th 分離時と同様に図 3.3 にある Rn 回収装置内に密閉容器を設置して行った。

まず 8M 塩酸 0.5 mL に Ra/Ac fraction のバイアル内壁の固体を溶かして DGA レジンに加えることを 4 回繰り返す。さらに 8M 塩酸を 1 mL ずつ、合計で 9 mL 加える。このとき抽出される液は Ra fraction としてガラス容器に回収する。

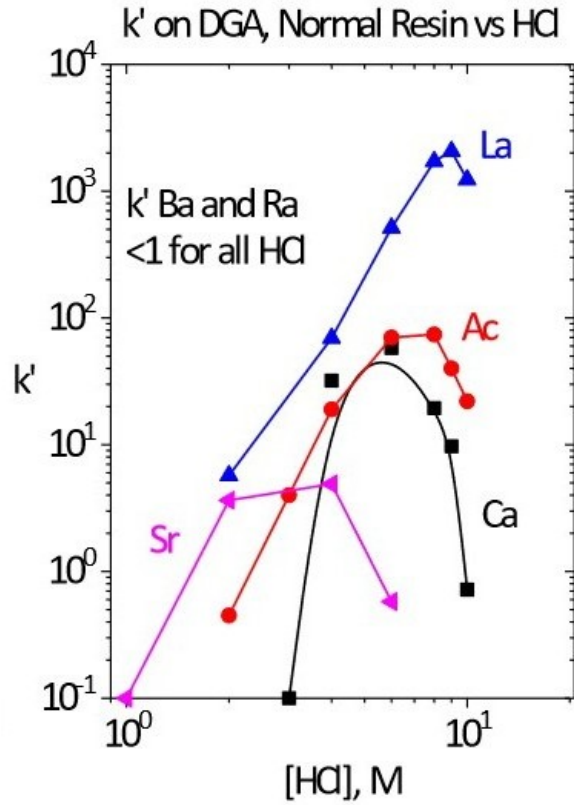


図 3.5: DGA レジンのレジン容量係数。Eichrom 社のホームページより引用。  
(<https://www.eichrom.com/products/dga-resins/> 最終閲覧日 2025 年 11 月 30 日)

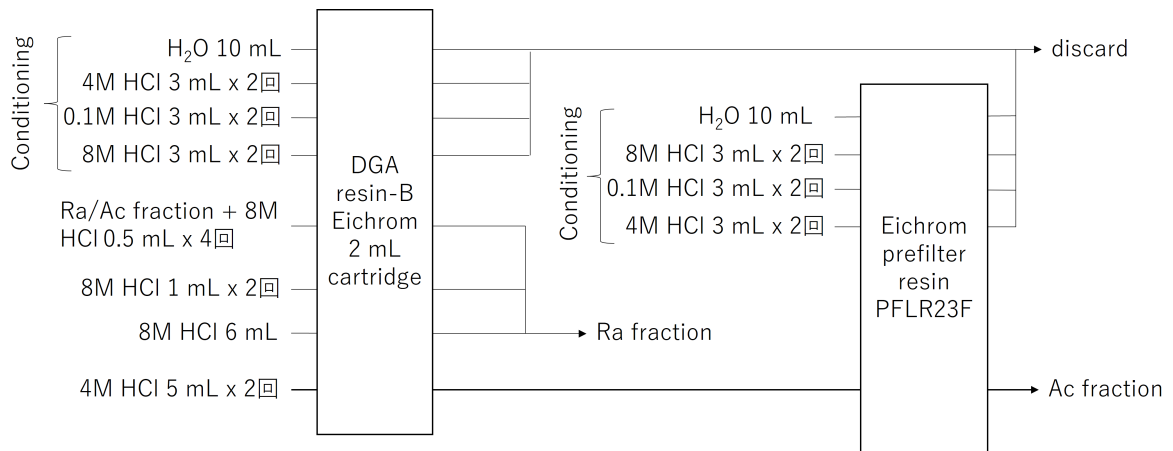


図 3.6: Ra の分離手順。Ra を含む系の作業は全て Rn 回収装置の中で行われる。



図 3.7: Ra の分離に用いる実験装置。写真左の亚克力容器内には溶液を受けるビーカーが設置され、蓋についたゴム栓の中に DGA レジンカートリッジが取り付けられている。亚克力容器内は写真右側の真空ポンプで減圧される。この写真は分離作業前のコンディショニング時に撮影されたものであり、分離を行う際は亚克力容器を図 3.3 の Rn 回収装置に入れて実施する。

次に、DGA レジンカートリッジの下にプレフィルターレジンカートリッジを取り付ける。プレフィルターレジン抽出材でコーティングされていないレジンの支持体であり、有機物を吸着する性質を持つ。レジンで除去しきれない不純物や浸出してきた抽出材などを取り除く役割を持つ。4M 塩酸を上から合計 10 mL 加え、この時の抽出液を Ac fraction としてガラス瓶に取り出した。Ac fraction は線量を測定したのち、蒸発乾固して理研に移送される。

### 3.1.2 Ac の電着

東北大学で分離された Ac を理研へ移送後、陽イオン交換樹脂である LN レジン (eichrom 社製 100–150  $\mu\text{m}$ ) を用いてさらなる不純物の除去を行う。図 3.8 に精製の手順を示す。室町ケミカル社製 ムロマック<sup>®</sup> ミニカラム S に、目皿からの高さが 24 mm となるまで LN レジンを詰める。このときの樹脂の見かけの体積は約 0.5 mL である。0.5 mL の 0.08 M 硝酸にバイアル内で固体となっている Ac を溶かしてカラムに移すことを 5 回繰り返す。これにより、バイアル中の Ac をすべてカラムに移す。

その後さらに 0.5 mL の 0.08 M 硝酸を直接カラムに加えることを 3 回行う。以上の抽出液は、Ac を含む可能性がある廃液としてビーカーに集める。次に、0.2 M の硝酸をカ

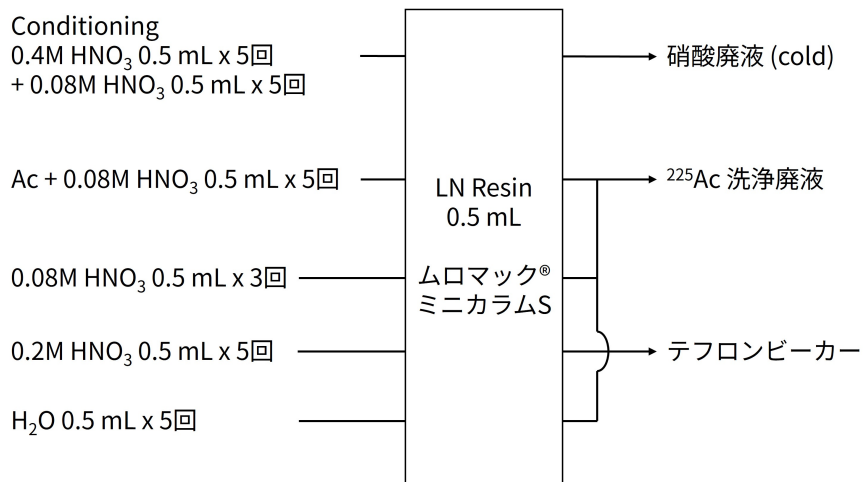


図 3.8: Ac の精製手順。LN レジンの体積は空隙を含む見かけの体積を表す。



図 3.9: LN レジンのカラムとテフロンビーカー

ラムに 0.5 mL ずつ 5 回加える。このときの抽出液はテフロンビーカーで受け、カラムからの液滴が落ちなくなった段階でランプとホットプレートで蒸発させる。カラムに残った硝酸は水で洗い流し Ac を含む廃液のビーカーに回収する。図 3.9 に LN レジンによる精製の様子を示す。

蒸発が終了したテフロンビーカー内に残った固体は、10  $\mu$ L の 0.01 M 硝酸にすべて溶解させる。さらに 2-プロパノールを 2 mL 加え、マイクロピペットで十分に攪拌する。この混合溶液を、図 3.10 に示す装置に移して白金箔への電着を行う。白金箔は厚さ 10  $\mu$ m のものを 12 mm  $\times$  20 mm の大きさに切断して使用する。電着前には約 30 秒間王水に浸して表面を清浄化したうえで、純水、2-プロパノールの順にそれぞれ 10 分間超音波洗浄

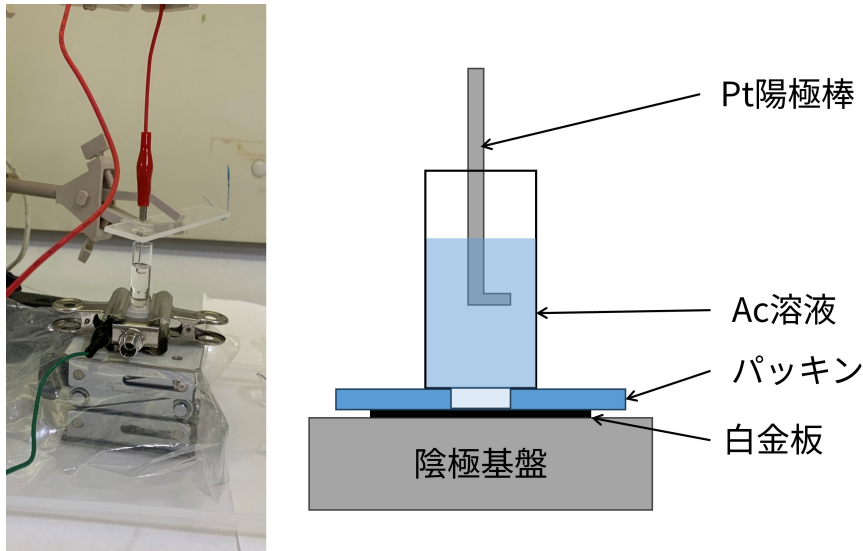


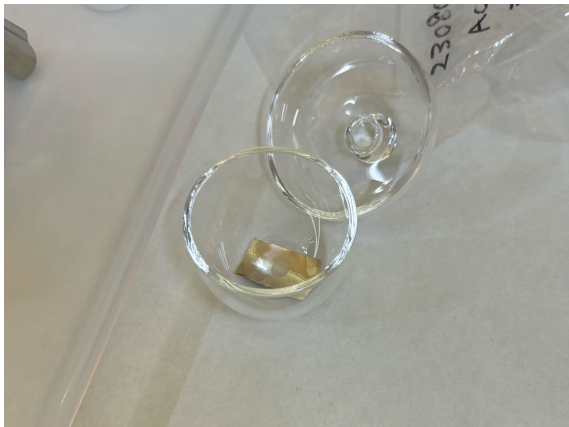
図 3.10: 電着装置のセットアップ。白金製の陽極棒に 1 kV の電圧を印加する。プロパノール溶液中に存在するアクチニウムイオンが陰極の白金上に付着する。

表 3.1: Ac の電着結果

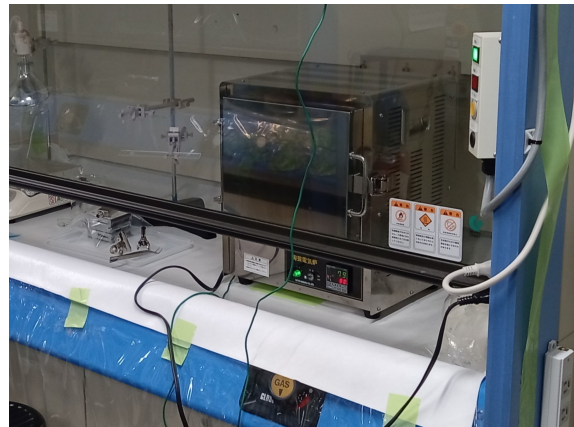
電着	電着装置内の Ac 量	電着された Ac	電着率
2024 年 4 月	1.4 MBq	0.8 MBq	57 %
2024 年 7 月 1 回目	1.4 MBq	0.91 MBq	63 %
2024 年 7 月 2 回目	0.18 MBq	0.16 MBq	93 %
2024 年 11 月 1 回目	2.3 MBq	0.98 MBq	42 %
2024 年 11 月 2 回目	0.17 MBq	0.16 MBq	94 %
2025 年 7 月 1 回目	2.6 MBq	0.35 MBq	14 %
2025 年 7 月 2 回目	0.92 MBq	0.45 MBq	49 %

を行った。陽極に用いる白金の棒は高圧電源装置 (高砂製作所 TMK1.0-50) に接続され、白金箔を陰極として 1 kV の電圧を印加できる。本研究では文献 [63] をもとに、陽極に 1 kV の電圧を 40 分間印加する。

表 3.1 に実施した電着ごとの結果をまとめる。電着装置の溶液に含まれる Ac のうち、白金箔に固定できた量の割合を電着率として記載した。ただし、電着装置内の Ac の量を直接測定することはできないため、抽出液を蒸発させた直後のテフロンビーカー中の Ac の量と、プロパノール溶液を電着装置に移した後のテフロンビーカーおよび使用したピペットに残存していた Ac の量をそれぞれゲルマニウム検出器で測定し、差分から推定し



(a) Ac 電着後の白金箔の様子



(b) 電着後の焼成に用いた電気炉

図 3.11: 電着後の白金箔と焼成用の電気炉

た値を記載している。以前の実験 [63] において 63% 以上の電着率を達成した電着パラメータを継続して使用したが、実施するごとに電着率のばらつきは大きく、電着の再現性には課題が残る。

Ac が電着された白金箔の画像を図 3.11a に示す。直径 5 mm の円形状の電着領域には、白色の固体が付着している様子が確認できた。白金箔はプロパノールを乾燥させたうえで坩堝に移し、図 3.11b の陶芸用電気炉で焼成する。電気炉は 2 時間かけて室温から 600 °C まで上昇し、その後温度が 6 時間維持される。6 時間経過後は自然冷却によって約 3 時間ほどで室温付近まで冷却される。

## 3.2 フランシウム原子の減速と中性化

白金基板上に電着した Ac 上にイットリウムを成膜することで、生成された Fr 原子を減速するとともに中性化させることが可能であることが以前の研究で確認された [21]。一方、このときの研究では中性化の効率を判断するために Ac の崩壊で発生する Fr を膜中で完全に停止させていたため、Fr を脱離させるためには 700 °C 近くまで原子源を加熱する必要があった。この昇温に伴って MOT 領域の真空度は  $10^{-5}$  Pa 近くまで上昇した。真空ゲージよりも熱源に近く、ターボ分子ポンプからのコンダクタンスが悪い MOT 領域は MOT を行うのに適さない条件であったと想定される。この真空度で MOT を行うことはほぼ不可能なので、圧力上昇を抑える方法が求められる。本研究では、可能な限り MOT 領域周辺の真空度を低く抑えたうえで Fr 原子を脱離させるため、イットリウムの成膜に用いる新たな真空装置の開発と、成膜量の最適化を試みた。

### 3.2.1 成膜用真空装置

新たに作製した成膜用真空装置の概略図を図 3.12 に示す。装置はその機能から直進導入器、排気系、成膜パート、 $\alpha$  線測定パートの 4 つの部分に大別される。Ac を用いて実験を実施する際は、図 3.13 の写真に示すように、装置全体を理化学研究所 仁科ホットラボ室のドラフトフード内に設置し、真空ポンプの排気をドラフト内に排出して実施した。

#### 直進導入器

図 3.14 に、直進導入器部分の構造の詳細を示す。ベローズ部を伸縮させることにより、図の右端のフランジに固定された柱状の治具を最大 300 mm 動かすことができる。治具の先端にはアルミナ製の Ac 固定用ロッドが取り付けられており、3.1.2 節に示した手順で Ac を電着した白金箔は、直進導入器の先端のアルミナロッドに、タンタル製の治具で白金箔を抑える形で固定される (図 3.15)。このタンタル治具はフィードスルーに接続され、電流を流すことで箔を加熱することができる。また、この直進導入器はゲートバルブで封じ切ることができるため、原子源を密閉した状態で移送することが可能である。さらに、内部の真空を十分引いた状態でイオンポンプを動作させゲートバルブで封じることによって、成膜後も高い真空度を維持したまま Fr 捕獲用の真空装置へ移送することが可能な設計となっている。

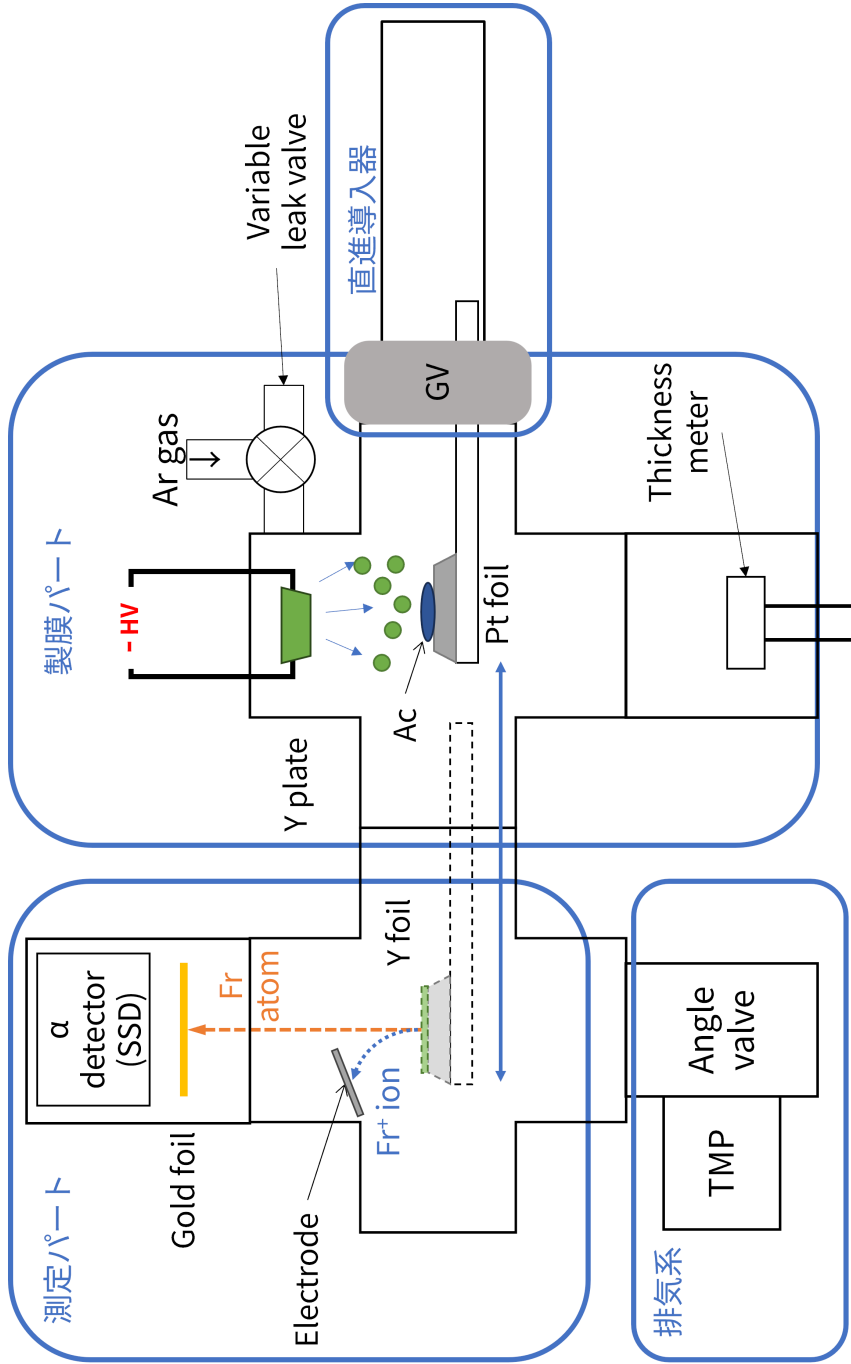


図 3.12: 成膜用真空装置の概念図。GV はゲートバルブ、TMP はターボ分子ポンプ、Y plate はイットリウム基板を表す。TMP の下流に設置されるスクロールポンプは省略している。

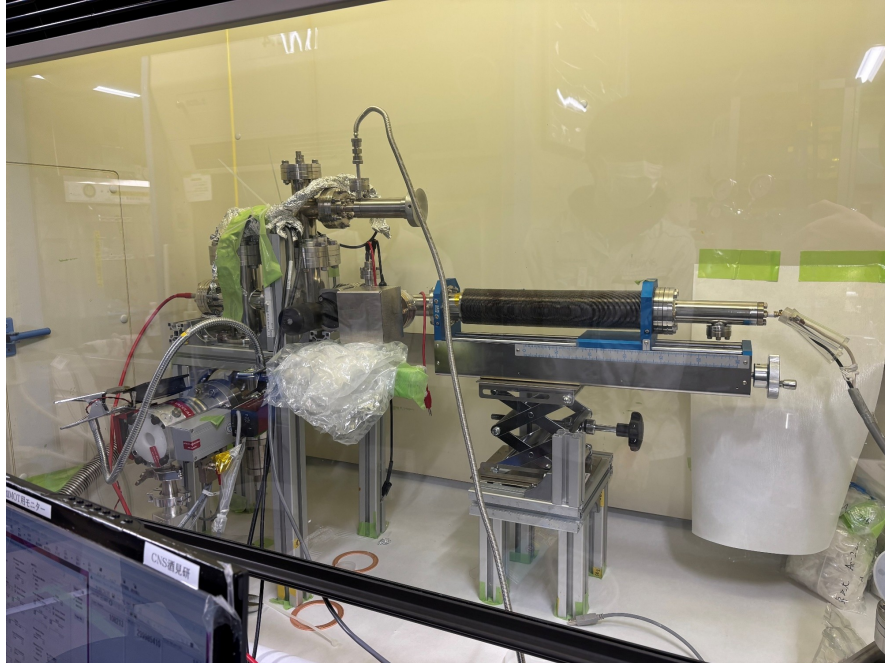


図 3.13:  $\alpha$  線測定中の成膜用真空装置の様子。Ac を使用する際はドラフトチェンバー内に設置して実験を行う。

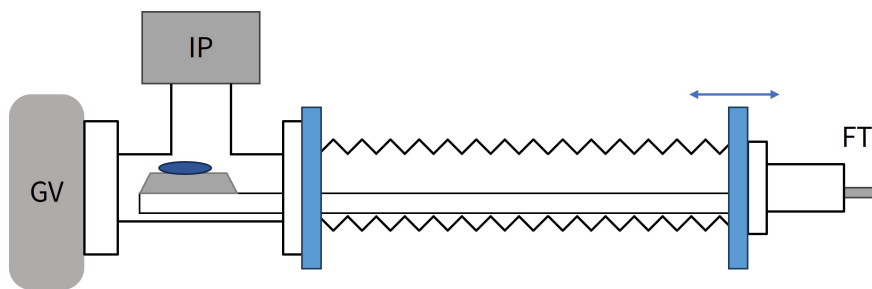
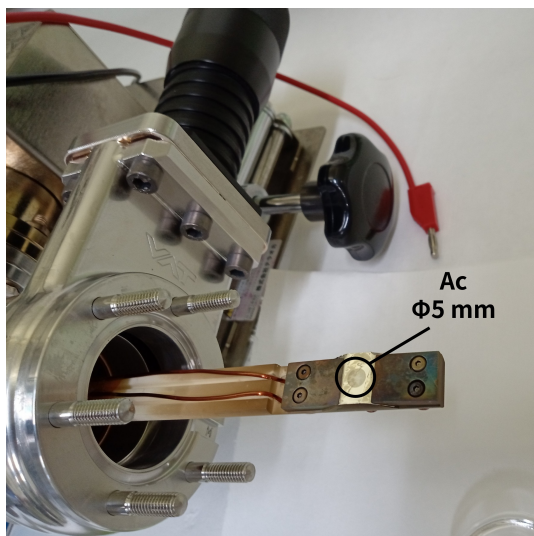
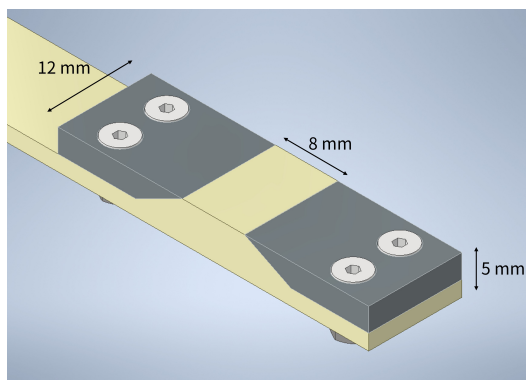


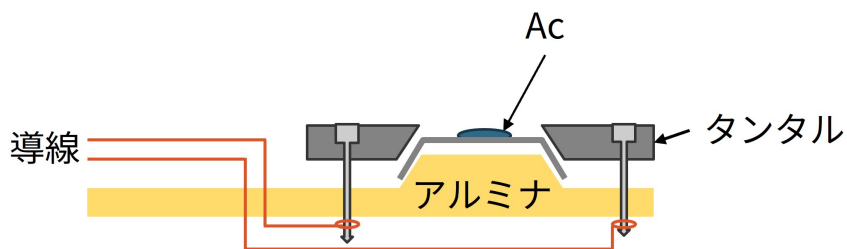
図 3.14: 直進導入器の構造。GV はゲートバルブ、IP はイオンポンプ、FT はフィードスルーを表す。右端のフランジを動かしベローズ部を伸縮させることで、内部の治具の先端に固定された Ac を移動させることが可能。



(a) Ac 取り付け後の様子



(b) 導入器先端部の寸法



(c) 電流加熱機構の模式図

図 3.15: 直進導入器の先端に固定された Ac。白金箔上の直径 5 mm の円形の範囲に Ac が分布している。フィードスルーから電流を流すことで白金箔を加熱することが可能。

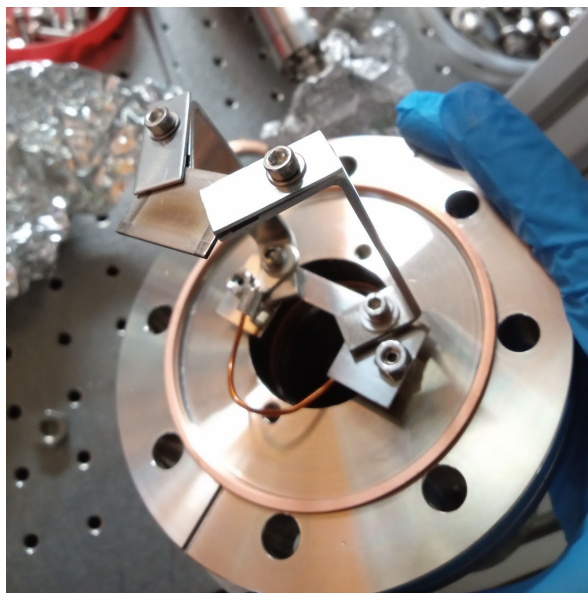


図 3.16: イットリウム基板の写真。フィードスルーを通して負電圧を印加可能。

### 排気系

本装置における排気系は、装置内部を真空にするために用いるスクロールポンプとターボ分子ポンプ (TMP)、およびその上流の ICF114 のアングルバルブからなる部分を指す。成膜を実施する際には、まず Ac を封じた直進導入器を装置に取り付けてゲートバルブを開け、十分に真空を引いた後 TMP 上流のアングルバルブを閉じ、バリアブルリークバルブからアルゴンを導入する。その後わずかにアングルバルブを開くことで、スパッタ成膜中もアルゴンの純度を保ちながら、約 4 Pa の Ar 圧力に維持することができる。

### 成膜パート

ICF114/70 の異径クロス管からなる部分。上部の ICF114 フランジにはイットリウム基板 (Goodfellow 製、厚さ 1 mm、大きさ 15 mm x 20 mm、純度 99%) が固定され、フィードスルーを通して約  $-500\text{ V}$  の電圧を印加することができる (図 3.16)。アルゴン雰囲気中で負電圧を印加することで放電を起こし、Ac 表面へのスパッタリング成膜を実施する。成膜実験手順の詳細は 3.2.2 節に記す。なお下部のフランジには INFICON 製の膜厚計が設置されているが、成膜中はイットリウム基板との間に導入器が存在するため、現状の設計で正確な成膜量を観測することはできない。

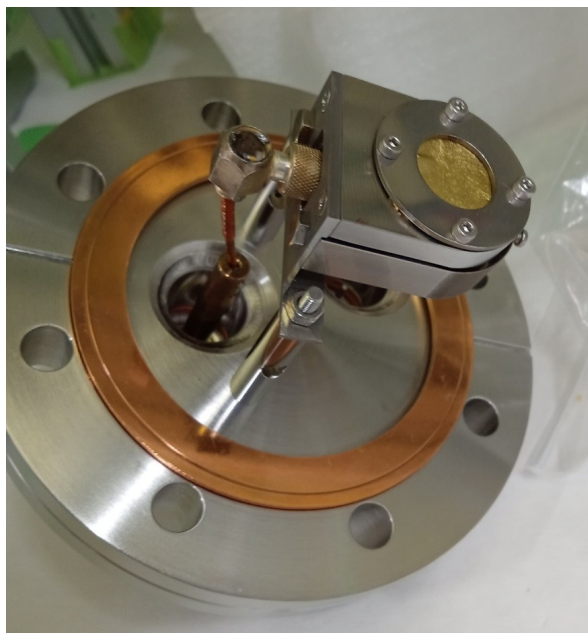


図 3.17: SSD と金箔の写真。SSD の観測面が金箔を向くように設置されている。

### 測定パート

成膜パートと同じく、ICF114/70 の異径クロス管で構成される。上面のフランジには、半導体検出器 (solid state detector; SSD, ORTEC TU-016-150-100) が設置されている。また、SSD の観測面の原子源側にはキャッチャーホイルとして厚さ  $1\ \mu\text{m}$  の金箔が検出面を覆うように設置されている (図 3.17)。Fr 原子はこの金箔を透過しないが、金箔に付着した Fr 原子が崩壊した際に放出される  $\alpha$  線は透過し SSD で検出される。

導入器の反対側の ICF70 フランジには図 3.18 に示すアルミ製の電極が設置され、フィードスルーから電圧を印加できる。この電極に負電圧を印加することで、イオンとして放出された Fr を測定から除去することが可能である。電極の構造は数値計算によるシミュレーションソフトウェア SIMION により、 $-100\ \text{V}$  を印加した際に、原子源から熱脱離した Fr イオンがすべて引き寄せられることを確認した。図 3.19 に、シミュレーションの結果を示す。Fr イオンが原子源上の Ac の分布範囲である直径  $5\ \text{mm}$  の円内に均等に 100 個分布し、 $0.2\ \text{eV}$  の運動エネルギーで、SSD 側の半球内に等方的な確率の向きで脱離すると仮定した。実際の Ac を使用した測定手順の詳細は 3.2.3 節に記す。

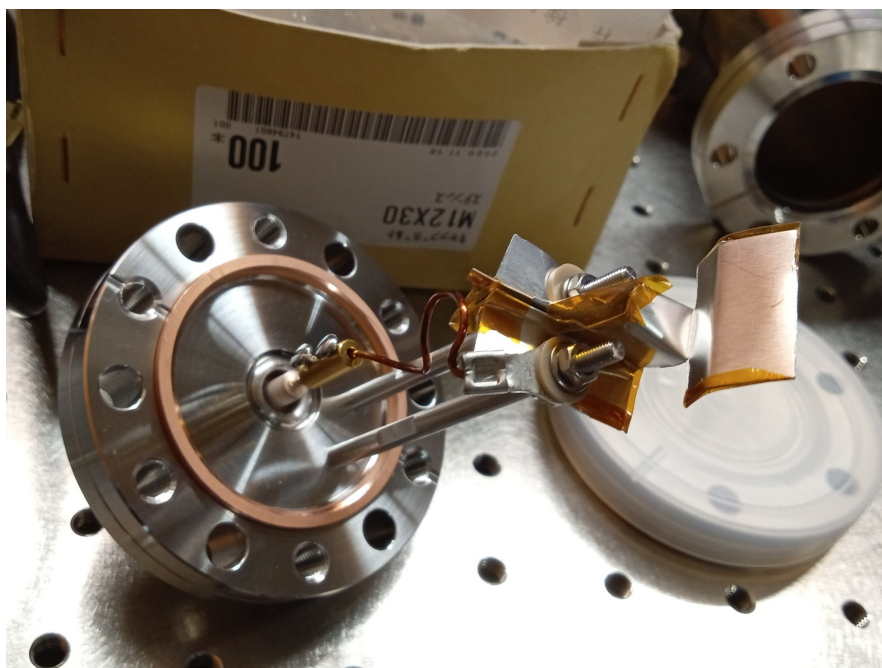
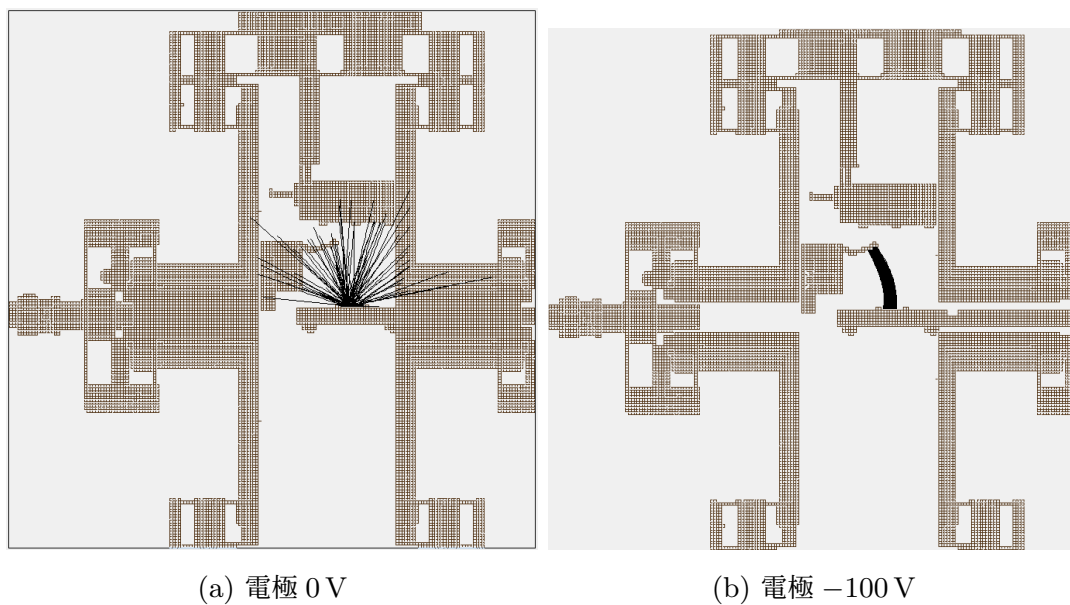


図 3.18: 測定パートの電極の画像。写真の右側の部分が装置の上側になるように設置される。



(a) 電極 0V

(b) 電極 -100V

図 3.19: Fr イオンの軌道のシミュレーション結果。粒子数は 100 個、熱脱離時の運動エネルギーは  $0.2\text{eV}$  で実施した。

### 3.2.2 イットリウムのアルゴンスパッタリング成膜

Ac を固定した導入器は、ゲートバルブを閉めて封じられたうえで成膜用真空装置に取り付けられる。この節では成膜パートで行われる成膜の手順を示す。図 3.12 で示した成膜パートの図を図 3.20 に再掲する。

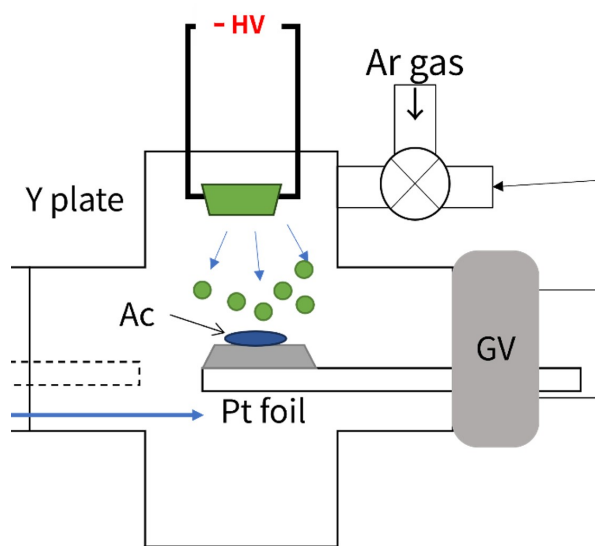


図 3.20: 成膜パートの概念図。図 3.12 より再掲。

#### 成膜前準備

ゲートバルブを開き、スクロールポンプと TMP を用いて、成膜装置と導入器の内部を  $10^{-4}$  Pa を下回るまで引く。<sup>\*2</sup> Ac 上に成膜を実施する前に、イットリウム基板表面の酸化膜を取り除くためのスパッタリングを行う。Ac をゲートバルブで封じた状態でイットリウム基板に約  $-500$  V の負電圧を印加し 30 分間放電を続ける。

#### 成膜スパッタリング

イットリウム基板の正面に Ac を移動させたうえで再度負電圧を基板に印加することで放電させ、Ac の表面にイットリウムの成膜を行う。電極間の距離は約 4.5 cm であり、放電中の圧力は 4 Pa 程度であったため、図 2.7 における  $pd = 0.135$  Torr·cm の不安定領域

<sup>\*2</sup> Ar の純度が低い場合、放電に必要な電圧が高くなり放電反応が不安定になる傾向があったため、Ar 導入用の配管内の空気も十分に排気しておく必要がある。

での放電となった。しかし排気系の調整によりアルゴンの圧力を安定させることで、十分に継続した放電が可能であった。また、白金箔を加熱せずに成膜を実施したため、イットリウムの融点 (約 1800 °C) との関係から、成膜中の条件としては図 2.8 における Zone 1 に相当する。

成膜中のアルゴンの圧力と、イットリウム基板に電圧を印加している電源の表示から読みとった電圧と電流の値をプロットしたグラフを図 3.21 に示す。イットリウムに電圧を印加している電圧電源の電流上限が 2 mA のため、イオン電流の量がこの値を上回らないよう、バリアブルリークバルブによって圧力を調整し、典型的に 1500–1800  $\mu$ A の電流で放電を続けるようにした。

成膜を 2 時間行うごとに、イットリウム基板に印加する電圧を下げてアルゴンを排気し、SSD で原子源から脱離する Fr の数を測定した。観測される Fr 由来のピーク量の減少から、イットリウムの薄膜が Ac の  $\alpha$  崩壊の反跳で発生する Fr を減速し抑え込む性能を確認した。SSD での測定の方法については、3.2.3 節に記す。反跳由来の Fr が十分に抑え込まれることを観測できるまで、成膜と測定を繰り返した。

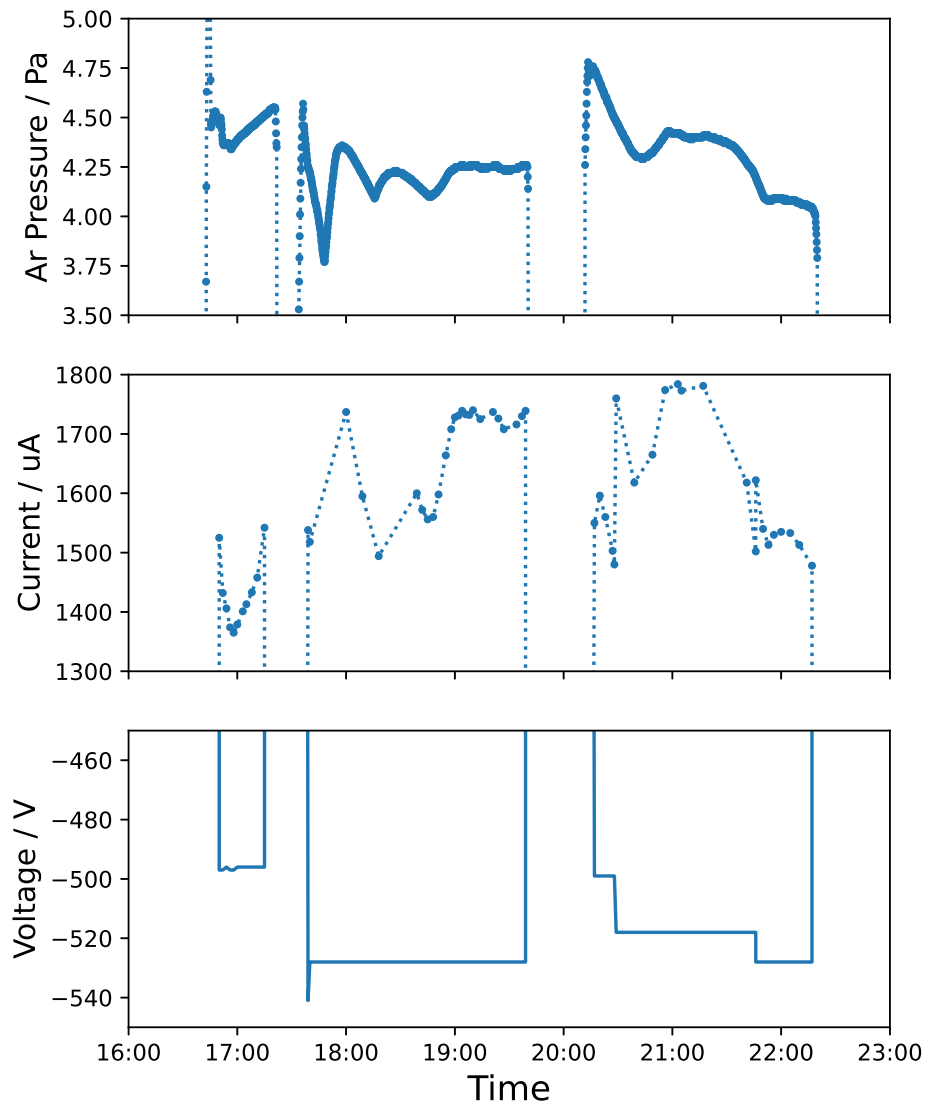


図 3.21: スパッタリング中の圧力・電流・電圧の変化の様子。30 分間の成膜前スパッタリングと、2 時間ずつ実施した 2 回の成膜スパッタリングのデータを示す。

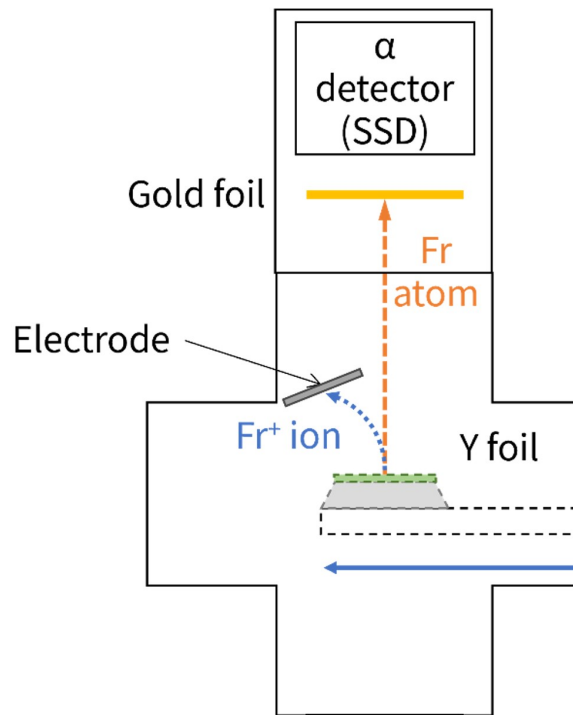


図 3.22: 測定パートの概念図。図 3.12 より再掲。

### 3.2.3 イオンと中性原子の測定

中性化膜を成膜することによる Fr の減速や、中性化膜から熱脱離する Fr に含まれるイオンの割合は、SSD を用いて  $\alpha$  線スペクトルを観測することで測定する。この節では、測定手順の詳細を示す。また、3.2.1 節で示した測定パートの概念図を図 3.22 に再掲する。

#### 検出器の校正

SSD で原子源を直接観測した場合、脱離した Fr 原子だけでなく原子源中の Ac とその娘核に由来する  $\alpha$  線が観測される。図 3.23 に、図 3.1 から抜粋した  $^{225}\text{Ac}$  の崩壊で生じる娘核を示す。このうち  $\alpha$  崩壊を起こす核種は  $^{225}\text{Ac}$  を含めて 5 種類存在する。それぞれの  $\alpha$  線のエネルギーを表 3.2 に示す。ただし、 $^{213}\text{Bi}$  が  $\alpha$  崩壊を起こす分岐比は約 2.1% であり、また半減期も他の核種に比べて長いことから、5 分間の測定ではほとんど検出されず、解析の際は無視している。

図 3.24 に、白金箔に電着された 150 kBq の Ac を SSD の直下においた状態で 5 分間測定を行ったときと、その 5 分の測定後に原子源を成膜パートまで移動させてから 5 分間測

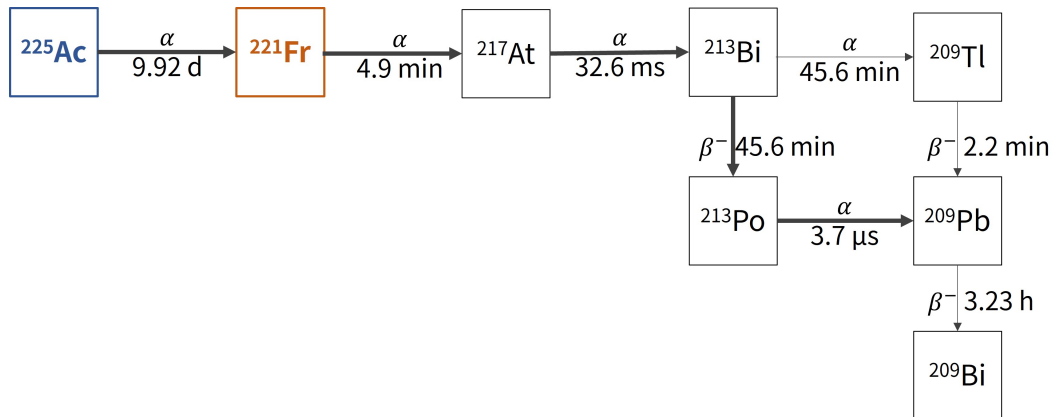
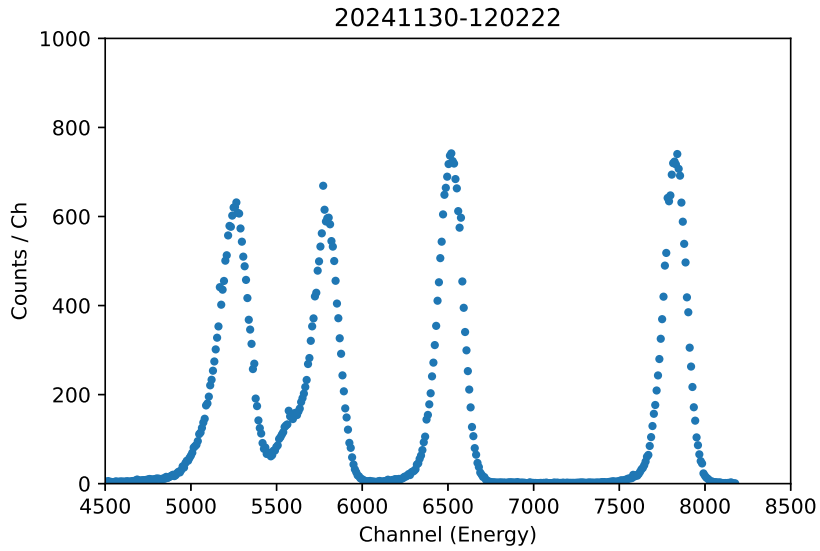


図 3.23:  $^{225}\text{Ac}$  の崩壊系列。図 3.1 より抜粋。分岐比や半減期の関係から、存在をほとんど無視できる核種を省略している。

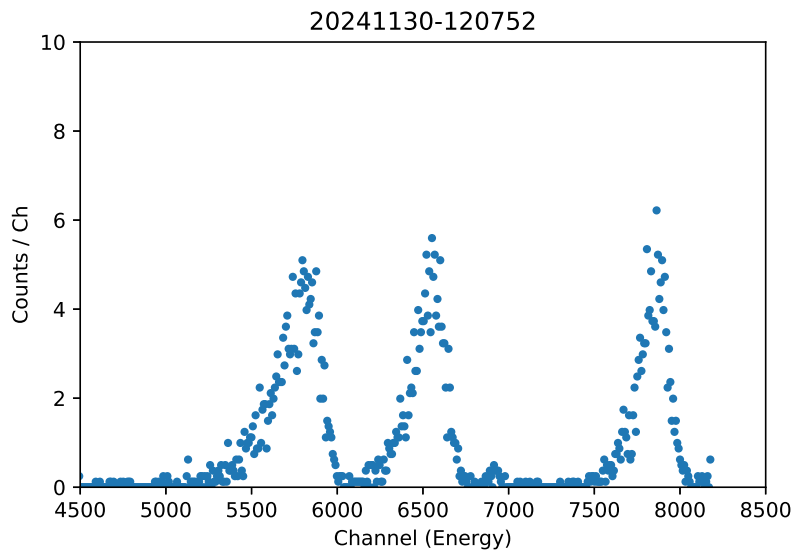
表 3.2:  $^{225}\text{Ac}$  の崩壊系列上にある  $\alpha$  崩壊する核種とその  $\alpha$  線のエネルギー。[13] に基づき作成。

核種	エネルギー
$^{225}\text{Ac}$	5830 keV
$^{213}\text{Bi}$	5988 keV
$^{221}\text{Fr}$	6352 keV
$^{217}\text{At}$	7064 keV
$^{213}\text{Po}$	8376 keV

定したときの、SSD で検出された  $\alpha$  線のスペクトルを示す。原子源が成膜パートにある状態では Ac 由来の  $\alpha$  線は SSD まで届かず、金箔に付着した Fr とその娘核に由来する  $\alpha$  線のみが検出される。図 3.24a の最もエネルギーの低いピークが図 3.24b で消失していることから、これが Ac に由来する  $\alpha$  線であることが確認できる。 $^{225}\text{Ac}$  の崩壊系列上の  $\alpha$  線を放出する核種は、低エネルギー側から順に  $^{225}\text{Ac}$  (5830 keV)、 $^{221}\text{Fr}$  (6341 keV)、 $^{217}\text{At}$  (7066 keV)、 $^{213}\text{Po}$  (8376 keV) であるため、図 3.24 の 4 つのピーク位置を文献値 [13] と照らし合わせることで、SSD チャンネルと  $\alpha$  線エネルギーの間の校正を行った。



(a) 原子源由来の  $\alpha$  線を直接測定



(b) 5 分間の Fr 蓄積後に測定

図 3.24: SSD で測定された  $\alpha$  線スペクトル。(a): 原子源を直接 SSD で 5 分間測定した際のスペクトル。(b): (a) の 30 秒後、原子源を成膜パートまで移動させて測定した際のスペクトル。5300 Ch 付近のピークのみ消失していることから、このピークが  $^{225}\text{Ac}$  由来のピーク (5830 keV) と特定される。

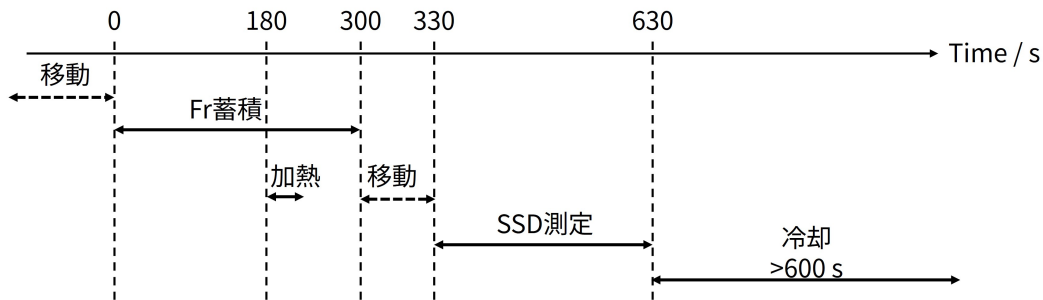


図 3.25: SSD 測定の実験シーケンス。横軸は Fr 原子源を SSD の直下に移動させた時点からの経過時間を表す。

### SSD 測定シーケンス

原子源から脱離する Fr 数の測定は図 3.25 に示す手順で実施する。

■1. Fr の蓄積 まず導入器を動かして SSD の直下に Fr 原子源を移動させる。その後 300 秒間留まり、この間に原子源から放出される Fr は金箔に蓄積される。また、蓄積中に加熱を行う実験条件では、蓄積の開始から 180 秒後に、原子源に電流を一定時間印加する。

Fr の蓄積中、電極に電場を印加することで、荷電粒子が金箔に到達しないよう制御できる。これにより、脱離した Fr のうちイオン化しているものを除去して測定することが可能である。

■2. SSD での測定 蓄積終了後、原子源からの  $\alpha$  線が SSD で観測されなくなる位置 (成膜パート) まで原子源を移動させる。蓄積終了から 30 秒後、移動が完了すると同時に SSD の測定を開始する。 $\alpha$  線が観測されたチャンネルと時刻が記録され、測定は開始から 300 秒で自動的に停止する。

■3. 冷却 原子源の温度を下げることで、金箔に付着した Fr の崩壊を待つため、SSD での測定が停止してから次の測定までの間は、10 分以上間隔を空ける。

表 3.3: 観測された Fr の分類

分類	特徴
反跳 Fr	Ac の $\alpha$ 崩壊の反跳で放出され、直接金箔に到達した Fr
低速 Fr 原子	中性化膜で停止し、中性な原子として熱脱離して金箔に到達した Fr
低速 Fr イオン	中性化膜で停止し、イオン化して熱脱離し金箔に到達した Fr

### 中性化率の測定

SSD のエネルギースペクトルに含まれるのは、5 分間の測定中に検出された  $\alpha$  線のヒストグラムである。ゆえに Fr のピークに相当する部分の面積は、5 分間の間に崩壊した Fr 原子の個数に比例する。蓄積終了から  $t$  秒後に金箔に存在する Fr 原子の個数を  $N(t)$  とすると、SSD で検出される Fr 由来の  $\alpha$  線の数に次のように書ける。

$$N(30) - N(330) = N_0 (e^{-\lambda \cdot 30\text{s}} - e^{-\lambda \cdot 330\text{s}}) = 0.479 \cdot N_0 \quad (3.1)$$

ここで、 $e$  は自然対数の底、 $\lambda = (\ln 2)/T_{1/2}$  は  $^{221}\text{Fr}$  の崩壊定数  $2.41 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$  を表し、 $N(0) = N_0$  とした。金箔から SSD 検出面までの立体角を  $\Omega$ 、SSD の検出効率を  $\epsilon$  とすると、Fr 原子数とピーク面積  $A$  の関係は

$$A = 0.479 \cdot \epsilon N_0 \frac{\Omega}{4\pi} \quad (3.2)$$

と書ける。したがってピーク面積  $A$  は金箔に付着した Fr の数に比例する。

金箔に付着する Fr 原子を、その特徴から、表 3.3 の 3 種類に分類して考察する。反跳 Fr は中性化膜によって完全には停止できていない Fr であるため、運動エネルギーが高く捕獲には適さない。また、運動エネルギーが高く電極で除去できないことから、加熱や電場の条件に関わらず検出される。ゆえに原子源を加熱せずに測定した際に金箔に付着している Fr が反跳 Fr に相当し、解析の際はバックグラウンドとして取り扱う。原子源の加熱によって増加する成分は、膜中で停止していた Fr が熱脱離したことで検出されたものと考えられる。この熱脱離で供給される Fr については、イオン化した成分を電極に引き寄せることが可能である。以上を区別して測定するため、同じ条件の原子源に対して加熱と電極に印加する電場によって、表 3.4 に示す 3 通りの加熱条件で Fr の蓄積を行う。各条件において脱離して SSD で観測される Fr は、表 3.4 に基づきそれぞれの差分を計算することで低速 Fr 原子数と低速 Fr イオン数を求める (図 3.26)。また、低速で脱離した Frのうち、電氣的に中性な原子として脱離した割合を、中性化率と呼ぶことにする。

表 3.4: 加熱条件に対応する Fr 検出数

加熱条件	検出される Fr
加熱なし + 電場なし	反跳 Fr
加熱あり + 電場なし	反跳 Fr + 低速 Fr 原子 + 低速 Fr イオン
加熱あり + 電場あり	反跳 Fr + 低速 Fr 原子

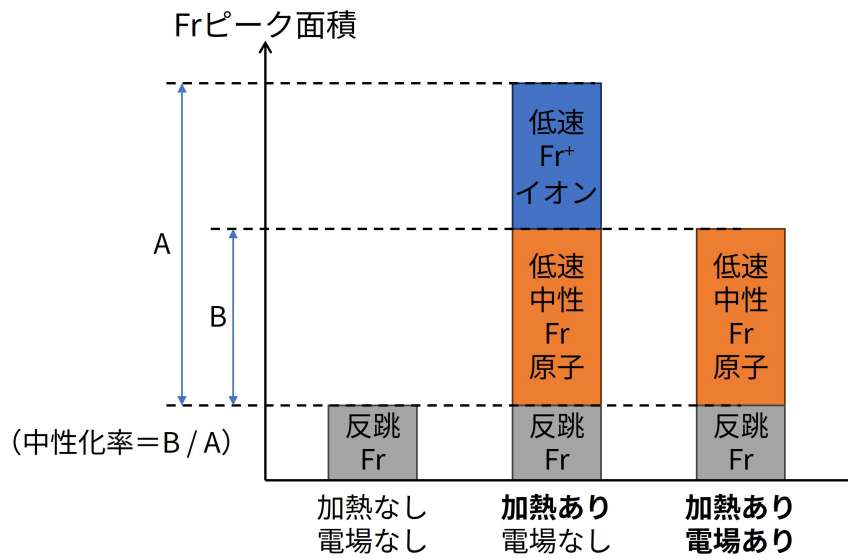


図 3.26: SSD での測定結果と Fr の解析のイメージ。各条件における Fr カウント数の差分から、原子源を脱離する Fr について観測する。

測定結果の例を図 3.27 に示す。表 3.4 の各条件について 3 回ずつ測定を行った。このとき、時間経過の影響を排除できるように、電極への電圧印加の条件は交互に行った。

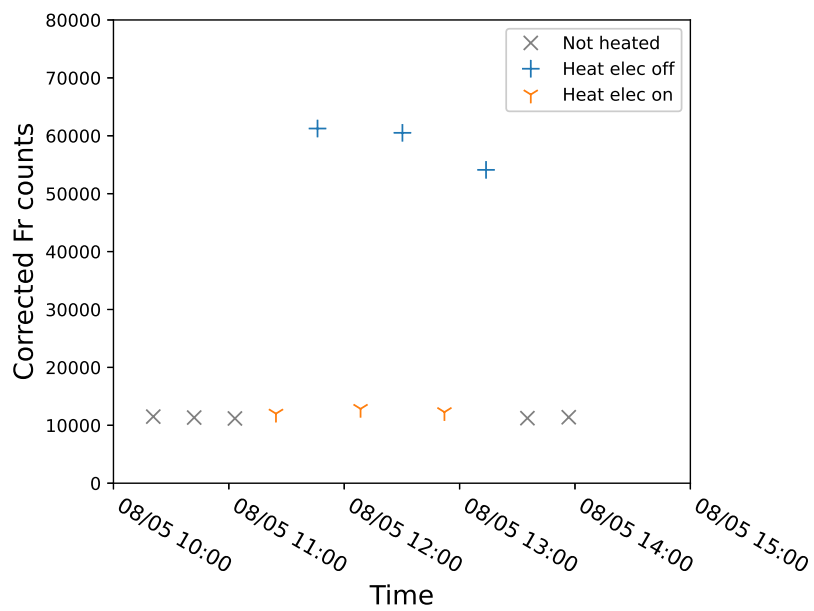


図 3.27: 中性化率測定実験の結果の例。加熱時の電場の有無については、時間経過の影響を取り除くため交互に実施した。

## 第 4 章

# 結果および解析

### 4.1 実験ごとの概要

2024 年 7 月から 2025 年 8 月にかけて、全 3 回にわたり Ac を使用して実験を行った。この章では、各実験において実施した成膜の結果についてまとめるとともに、作製された Fr 原子源の性能を解析する。なお、以下では 3 回の実験を、Ac の入手年月に基づきそれぞれ「2407 実験」「2411 実験」「2507 実験」と呼ぶことにする。

#### 4.1.1 2407 実験

中性化膜の成膜量が多すぎる場合、深い位置で停止した Fr を熱脱離できず、Fr 原子の脱離量が減少する可能性が考えられる。そのため、低速の中性 Fr 原子を最大化させるような最適な膜厚の探索を目的とし、中性化膜を成膜する量を変化させながら中性化率の測定を実施した。なお成膜量と熱脱離する Fr の数についての考察は 4.4.1 節に詳細を記す。

#### 4.1.2 2411 実験

2407 実験の結果を受け、加熱に伴う原子源への影響を低減させることを検討した。具体的には、Ac から放出される高速の Fr を停止させる量のイットリウムが成膜されるまでは原子源を加熱せず、成膜作業を終えた後にのみ、Fr を熱脱離させる測定を行った。また、加熱のために電流を印加する時間を 30 秒から 10 秒へと変更した。さらに、以前の研究で見られた加熱温度による中性化率の変化 [21] について確認するため、変化が見られた電流量に相当する 19 A の電流で加熱を実施し、その前後での中性化率の変化を確認した。

### 4.1.3 2507 実験

2411 実験で確認された高温での加熱の影響について検討するため、高温で加熱した際に脱離する Fr の中性化率を測定した。高温条件での加熱は、文献 [21] で中性化率に変化が生じたのと同じ 18.5 A の電流で実施した。中性化率測定後、脱離する Fr 原子に対して光の応答性があるかを確認するため、熱脱離した Fr に対して共鳴周波数周辺のレーザー光を照射し、SSD での測定結果の変化を確認した。このときの測定では光の影響や周波数依存性は観測されなかったため、本論文では解析を省略し、成膜と中性化率測定の結果についてのみ記載している。

以上の各実験の概要を表 4.1 にまとめる。

表 4.1: Ac を使用した実験の概要。電着量は成膜装置へ導入する時点での放射能を表す。

実験	Ac 電着量 (導入時)	加熱時間	実施内容
2407 実験	約 800 kBq	30 秒	成膜量ごとの中性化率の測定
2411 実験	約 850 kBq	10 秒	加熱による中性化率の変化の観測
2507 実験	約 350 kBq	10 秒	加熱温度ごとの中性化率の測定

## 4.2 SSD 測定データの解析方法

### 4.2.1 Fr 原子数の計算

成膜用真空装置の測定パートにおいて SSD で検出される  $\alpha$  線のカウント数を、チャンネルに対してヒストグラムにすることで、図 4.1 に示すような形のエネルギースペクトルを得ることができる。3.2.3 節に示した校正の手順において特定される Fr に由来するピークについて、その面積が SSD の測定中に検出された Fr 由来の  $\alpha$  線の数に相当する。ピーク面積の導出には式 (4.1) に示す関数を用いてフィッティングを行った [73]。

$$f(u) = \frac{A}{2\tau} \exp\left(\frac{u - \mu}{\tau} + \frac{\sigma^2}{2\tau^2}\right) \operatorname{erfc}\left[\frac{1}{\sqrt{2}}\left(\frac{u - \mu}{\sigma} + \frac{\sigma}{\tau}\right)\right] \quad (4.1)$$

ここで、 $A$  はピーク面積、 $u - \mu$  はピーク位置  $\mu$  からの差分、 $\sigma$  はガウシアン標準偏差、 $\tau$  は低エネルギー側のテールを表すパラメータに相当する。また、 $\operatorname{erfc}$  は

$$\operatorname{erfc}(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_x^\infty e^{-t^2} dt \quad (4.2)$$

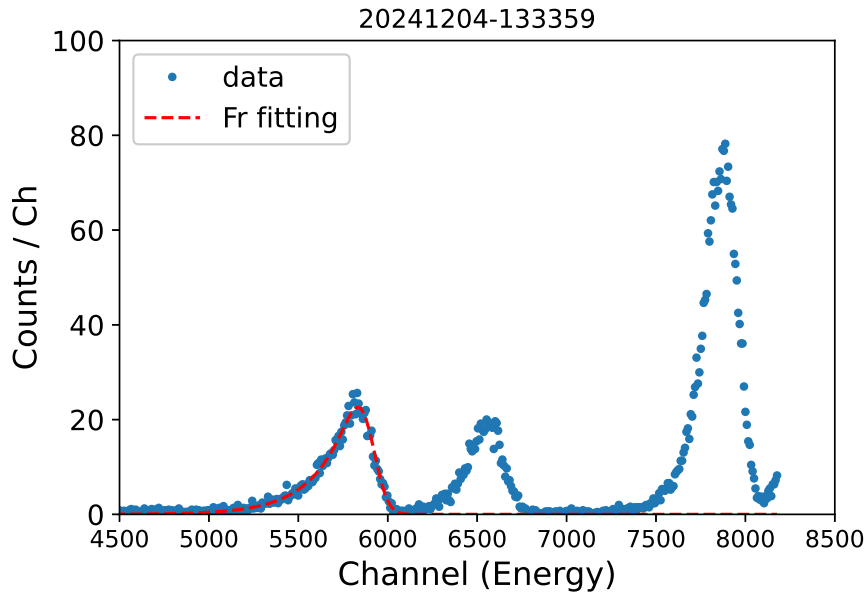


図 4.1: SSD による測定結果とフィッティング結果の例。この図のフィッティング結果は  $A = (7.8 \pm 3.5) \times 10^3$  であった。

で定義される相補誤差関数 (complementary error function) である。 $\alpha$  線のエネルギーにガウシアン広がりを与える要因であるランダムなノイズや energy struggling に加え、電荷収集の不完全性などの低エネルギー側にのみ広がりを与える影響が考慮されている。フィッティング計算は Python の lmfit パッケージを用いて行った [74]。

このピーク面積は、式 (3.2) に従って Fr の蓄積終了直後の原子数に置き換えることができ、さらに Fr 原子源から金箔までの立体角を考慮することで、原子源を脱離した Fr 原子の数に置き換えることが可能である。

## 4.2.2 測定データの補正

4.2.1 節の方法によって求められた Fr のカウント数は、Fr の崩壊と Ac の崩壊の影響に基づき、2 段階の補正を経て解析される。この節ではその手順について記す。

### Fr の蓄積による影響の補正

金箔に付着した Fr は半減期約 5 分で減少するものの、SSD での測定の間隔は最短で 15 分であり、測定開始時点では、一つ前の測定開始時点に存在した Fr のうち最大で 11% が残存している。一つ前の測定の際に多量に Fr が付着していた場合などは、Fr を過大に見積もってしまう。したがって、残存した Fr が再度カウントされてしまう影響を取り除く必要がある。

$N$  回目の測定結果の Fr カウント数を  $A_N$ 、測定開始時刻を  $t_N$  とすると、 $N - 1$  回目の測定時に金箔に付着していた Fr に由来するカウント数を除去した補正後のカウント数  $A_{Fr,N}$  は

$$A_{Fr,N} = A_N - A_{N-1} \cdot e^{-\lambda_{Fr}(t_N - t_{N-1})} \quad (4.3)$$

と書ける。ただし、 $\lambda_{Fr} = 2.35 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$  は  $^{221}\text{Fr}$  の崩壊係数を表す。

### Ac の崩壊による影響の補正

単位時間あたりに親核から放出される Fr の量は Ac の数量に比例するため、原子源に蓄積される Fr の量は Ac の崩壊とともに徐々に減少する。そのため、式 (4.3) に加えて、測定結果を最初の測定の際の Ac の数量に合わせる補正を行う。

$$A_{Fr,Ac,N} = A_{Fr,N} \cdot e^{\lambda_{Ac}(t_N - t_1)} \quad (4.4)$$

ただし、 $\lambda_{Ac} = 8.09 \times 10^{-7} \text{ s}^{-1}$  は  $^{225}\text{Ac}$  の崩壊係数を表す。以下では特に指定しない限りは、SSD で検出された Fr のカウント数は、式 (4.4) の  $A_{Fr,Ac,N}$  を表すものとする。

### 4.3 成膜実験

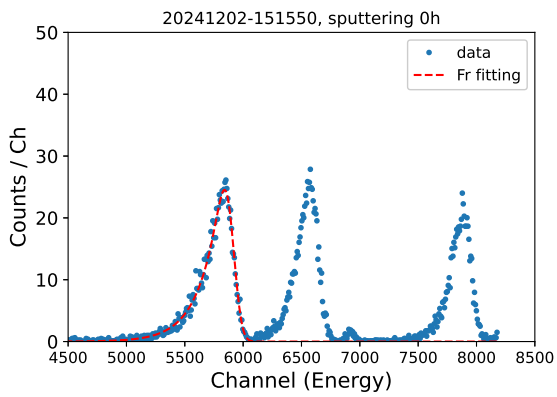
この節では、2411 実験と 2507 実験において行った中性化膜の成膜結果について解析する。成膜中に原子源をイットリウム基板の直下に置く場合、膜厚計が構造上遮られてしまい、Ac 上に形成された中性化膜の量を見積もることはできなかった。そこで、Ac の  $\alpha$  崩壊の反跳で飛散する Fr(表 3.3 の「反跳 Fr」) を SSD で観測し、その減少分で成膜量を判断することにした。この成膜中の測定では、加熱は実施せず反跳 Fr の量のみを測定した。

図 4.2 に、2411 実験での成膜途中に測定された  $\alpha$  線スペクトルを示す。また、図 4.3 に、2411 実験と 2507 実験における成膜時間ごとの反跳 Fr の観測量の変化を示す。いずれの実験においても成膜によって反跳 Fr が減少する様子が確認され、6 時間から 8 時間の成膜で、成膜前に観測されていた反跳 Fr の 9 割以上を中性化膜の内部に留められていることがわかる。

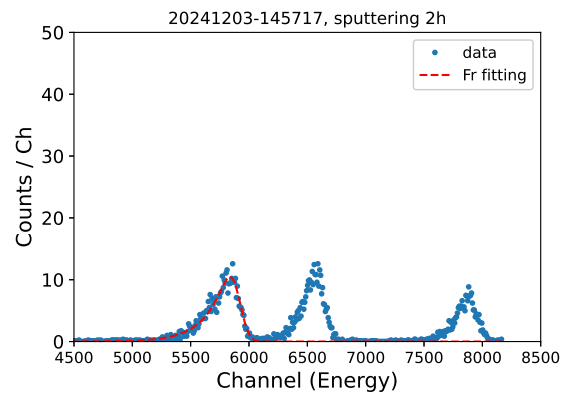
次に、本実験における成膜の速度について考察する。図 3.21 に示す通り、スパッタ成膜中の典型的な電流量は約 1600  $\mu\text{A}$ 、印加電圧は約 520 V、Ar 圧力は約 4 Pa である。標的に衝突したイオンの数に対する散乱された粒子の比を表すスパッタ率は、500 eV のアルゴンイオンの場合、約 0.68 である [75]。基板に流れる電流が一価のアルゴンイオンに由来すると仮定すると、スパッタされるイットリウム原子の個数レート  $R$  は、スパッタ時の電流を  $I_s$  として

$$R = 0.68I_s \cdot \frac{N_A}{F} \quad (4.5)$$

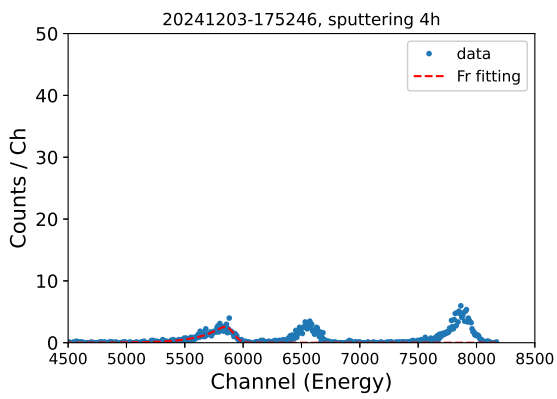
と書ける。ここで、 $N_A = 6.02 \text{ mol}^{-1}$  はアボガドロ数、 $F = 9.65 \times 10^4 \text{ C/mol}$  はファラデー定数である。1600  $\mu\text{A}$  の電流は、1 秒あたり約  $2.2 \times 10^{-7} \text{ cm}^3$  のイットリウムをスパッタしていることに相当する。スパッタされる粒子の角度分布については未解明な部分が多いが、仮に基板から全球に等方的に放出されると仮定すると、イットリウム基板から Ac の電着された白金箔までの立体角は、設計上全球に対して約 0.07% であり、白金箔の面積に対して 0.098 nm/min の成膜速度に相当する。これは 6 時間で 35 nm、8 時間で 47 nm のイットリウムが成膜される速度である。 $^{225}\text{Ac}$  からイットリウムへ放出される  $^{221}\text{Fr}$  は、約 30 nm から 40 nm の範囲内で停止すると考えられている [16, 49]。したがって、イットリウムをスパッタ成膜したことで Fr を膜中に留めた結果、観測量が減少していると考えすることに矛盾はない。



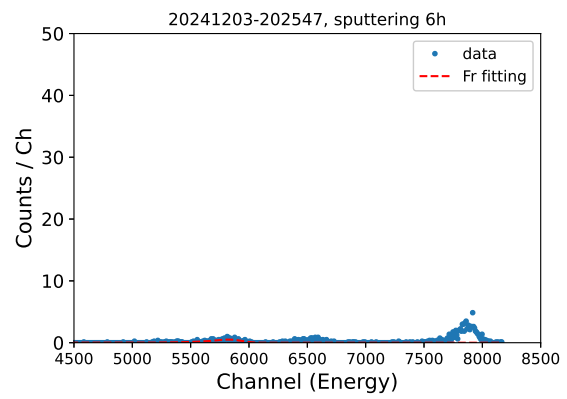
(a) 成膜開始前



(b) 成膜 2 時間後



(c) 成膜 4 時間後



(d) 成膜 6 時間後

図 4.2: 2411 実験において、2 時間のスパッタ成膜ごとに測定した  $\alpha$  線スペクトル。縦軸と横軸は共通。赤色の破線はフィッティング結果を表す。

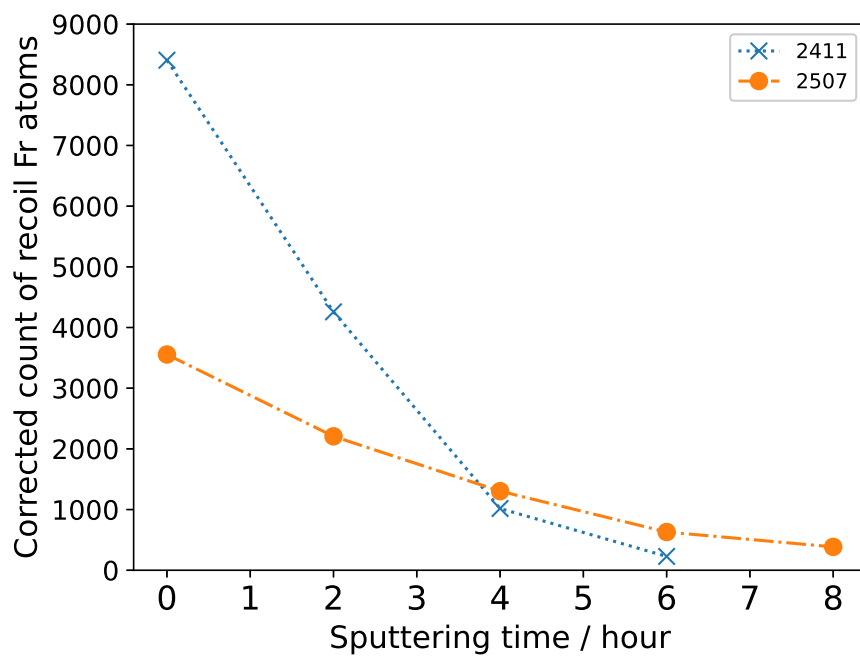


図 4.3: 成膜時間と反跳 Fr 量の関係。6 時間から 8 時間の成膜で反跳 Fr の 9 割以上が抑え込まれている。

## 4.4 中性化実験

### 4.4.1 膜厚の影響

2407 実験においては、中性化膜を少量ずつ成膜して中性化率が変化する様子の観測を試みた。反跳 Fr を抑え込むまで成膜と測定を繰り返し、累計で 18.5 時間のスパッタリング成膜を行った。この節ではその測定結果についてまとめる。

測定結果の解析には、成膜実験と同様に式 (4.4) に従って補正された値  $A_{\text{Fr, Ac}}$  を用いる。また、Fr 蓄積中の加熱と電場の条件により、表 3.4 に従って 3 種類の Fr カウント数をそれぞれ求めた。

#### Fr 原子の分布

Fr 原子をレーザー冷却し捕獲するためには、捕獲領域の超高真空状態を維持する必要がある。したがって、可能であれば比較的低温・短時間の加熱で Fr 原子が脱離する原子源が望ましい。そこで、まずは中性化膜および白金箔内部での Fr の分布について考察する。103 keV のエネルギーで放出された Fr 原子はイットリウムの中を約 30 nm 移動して停止するので、Fr 原子は中性化膜と白金箔の境界付近に約 30 nm の厚さで均一に分布すると仮定する。この時点で箔の外側に存在してしまう Fr は、核分裂後静止せずに放出された原子とみなす (後述する分類の 1. に相当する)。

生成された Fr 原子について、その放出後の位置と加熱時の移動をもとに次の 3 パターンに分類して考察する。

1. 核分裂後中性化膜で十分減速されず、通過して放出される
2. 中性化膜または白金箔の中で静止したが、原子源を加熱すると脱離する
3. 中性化膜または白金箔の中で静止し、原子源を加熱しても脱離しない

1. は成膜前の原子源から放出される Fr のほとんどを占め、成膜量が増加するにつれてその割合を減らしていくと考えられる。

2. は、金属箔の表面付近に存在する Fr 原子を指す。加熱条件が同じ場合、成膜量の増加に対してしばらくの間は一定で推移すると考えられるが、 $\alpha$  崩壊で放出される Fr をすべて留める量が成膜されると、その後は成膜量の増加につれて減少すると予想される。

3. は 2 よりも深い位置に存在する Fr を指し、1 と 2 とは異なり、SSD による観測が不可能である。成膜量が増えるにつれて増加していくが、ある程度の量成膜されると、すべ

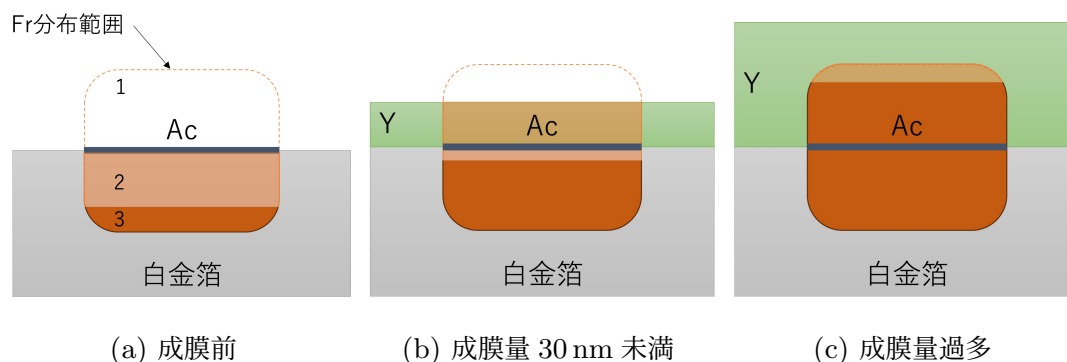


図 4.4: 原子源内部の Fr 分布の予想。図中の数字で示す範囲は本文中での分類に対応し、1: 中性化膜 (Y) で抑え込まれない反跳 Fr、2: 膜中で停止し加熱すると脱離する Fr、3: 加熱しても埋め込まれたまま脱離しない Fr、を表す。

て埋め込まれたまま加熱しても脱離しない状態になり、一定かつ最大となる。

以上の考察を図 4.4 にまとめた。成膜する量が増加するにつれて、中性化膜内で停止する Fr の量は増加し、減速しきれないで膜を通過する反跳 Fr は減少する。しかし、熱拡散によって脱離する Fr の量は、成膜を続けると減少していく。膜の内部に留まってしまった Ac を熱拡散で脱離させるためには長時間の加熱が必要となり、結果として真空度の大幅な悪化につながりかねない。

そこで 2407 実験では、イットリウムの成膜量を変化させながら Fr の中性化脱離効率を測定することにより、膜厚の増加によって埋め込まれる Fr と、加熱で脱離する Fr の量のバランスを最適化を行うことを目的とした測定を実施した。図 4.4 の議論を踏まえると、膜厚が増加するにつれて中性原子として脱離する Fr が増加するが、一定量成膜されると脱離する Fr 自体が減少するという描像が、実験前に予想された。

### 成膜量に対する中性化率の測定結果

2407 実験で実施した SSD での測定結果について、ピーク面積をフィッティングすることで Fr のカウント数を求め、4.2 節に示した方法で補正した結果を図 4.5 に示す。各点は、表 3.4 のそれぞれの条件における Fr のピーク面積の補正結果を、SSD の測定開始時刻に対してプロットしたものである。また、加熱時に白金箔に印加した電流量はいずれも 15 A である。ただし、グラフ上の左上にある 1 点 (Heat elec off, 成膜 0.5h) については、外れ値として解析から除外した。

図 4.5 の結果を成膜時間ごとに平均し、成膜時間に対してプロットしたグラフを図 4.6

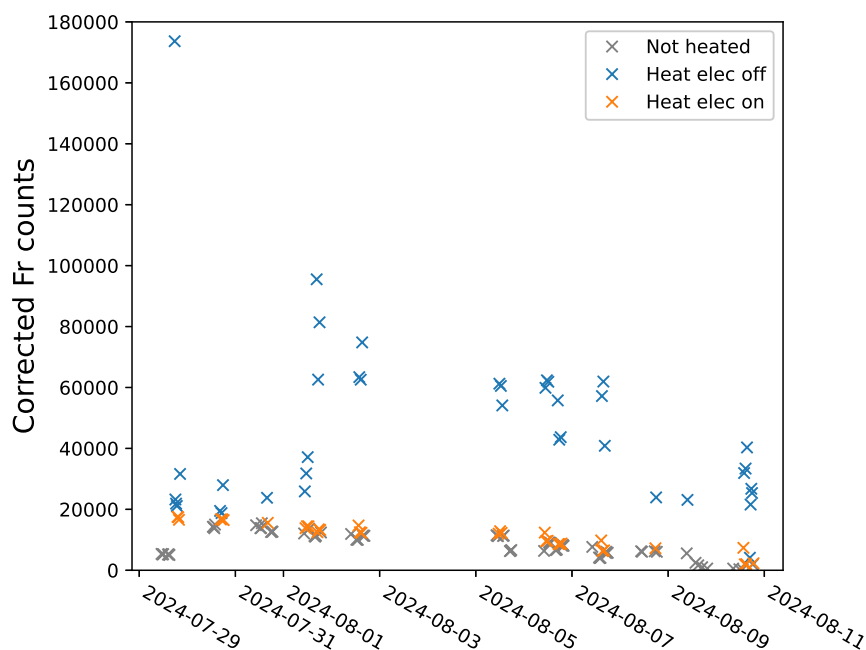


図 4.5: 補正後の Fr カウント数。SSD で観測したピーク面積を、測定開始時刻に対してプロットしている。グラフ上の左上に存在する 1 点を、解析時に外れ値として除外した。

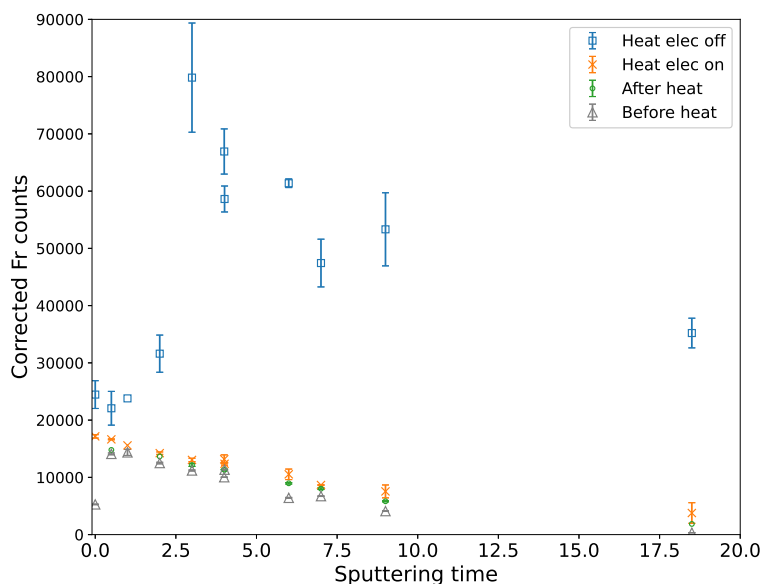


図 4.6: 成膜時間に対する SSD での Fr カウント数の変化。スパッタ成膜を 4 時間行った時点で停電を迎えたことにより、4 時間の測定点は 2 つずつ存在する。また、0 時間と 1 時間については、加熱実験後の反跳 Fr 量 (After heat) を測定していない。

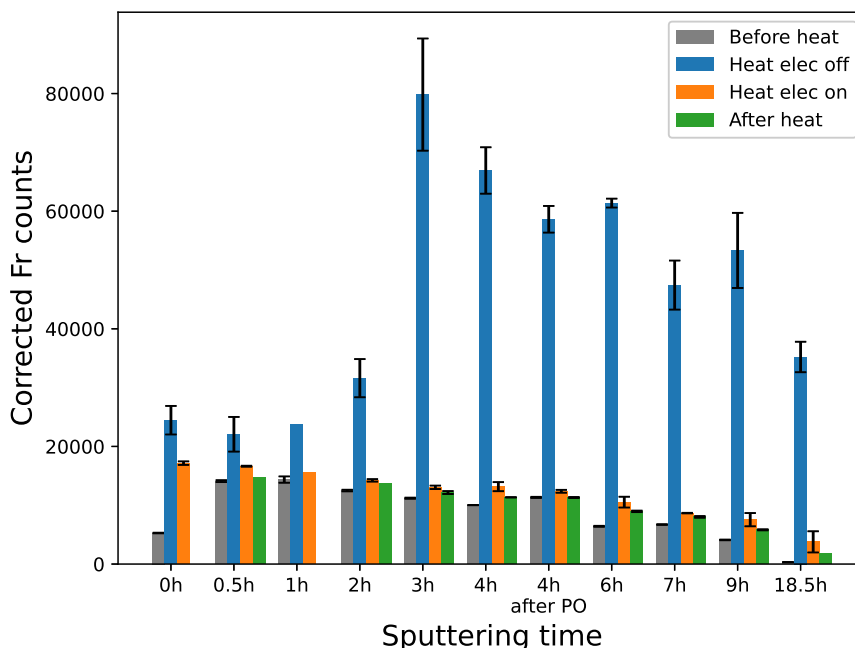


図 4.7: 成膜時間ごとの Fr カウント数。成膜時間 4 時間経過時点の結果は、停電の前後で 2 回測定している。

に示す。このとき、原子源を加熱する前後で反跳 Fr 数が変化する様子が見られたため、反跳 Fr 量を測定するための、原子源を加熱しない条件での SSD 測定を、加熱を伴う実験の前後で分けて記載した (図 4.6 の Before heat と After heat)。なお 4 時間の成膜を実施したのち、施設のメンテナンスに伴う停電があった。そのため、真空装置を封じた状態で、約 2 日間真空引きを停止している。停電前後の変化の確認のため、成膜 4 時間後のデータについては停電の前後で合計 2 組存在する。

図 4.6 の結果から各成膜時間に対する測定結果をまとめたグラフを図 4.7 に示す。さらに、この結果から図 3.26 の方法で差分をとることで、低速 Fr 原子、低速 Fr イオン、反跳 Fr の数をそれぞれ計算した結果を図 4.8 に示す。原子源を加熱する前後で増加した反跳 Fr 数についても同時に計算し、増分を棒グラフの緑色の部分に示した。ただし、成膜時間が 0 時間と 1 時間の条件においては、加熱後の反跳 Fr 数を測定していなかったため、グラフには記載していない。

成膜前 (成膜時間 0 時間) の測定結果では、低速 Fr 原子が他より多く存在するように見えるが、測定していない加熱後の反跳 Fr の増加分が含まれていると考えられる。中性化膜を成膜することで減るはずの反跳 Fr 数が、0.5 時間の成膜で増加していることから、成膜前の原子源を加熱したことで反跳 Fr を増加させる何らかの変化が起きていると推測

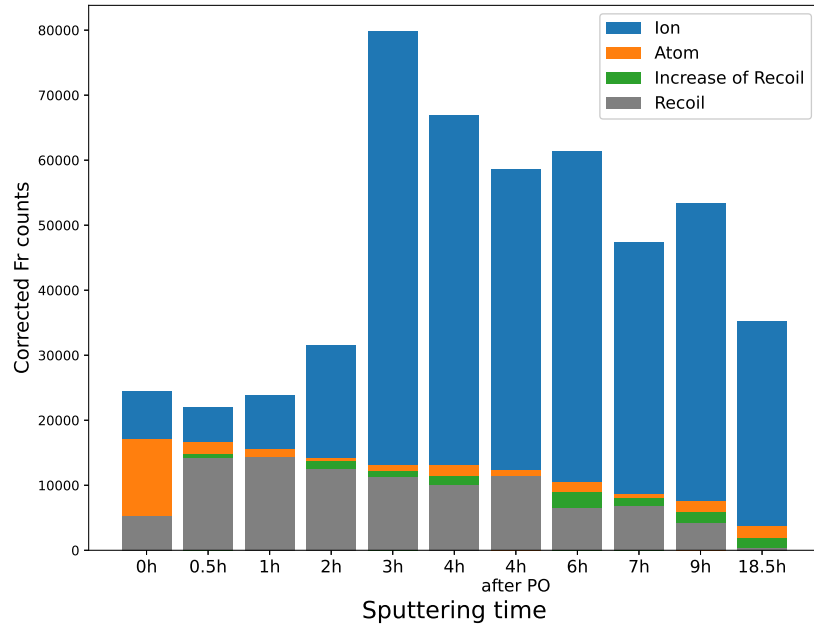


図 4.8: 成膜時間と観測された Fr 数の関係。青色が低速 Fr イオン、橙色が低速 Fr 原子、灰色が反跳 Fr に相当するピーク面積を表す。緑色は加熱した後で再度反跳を観測した際に増加した量を表す。ただし、成膜時間が 0 時間と 1 時間の条件では加熱後の反跳 Fr 量を測定していない。またグラフ中の「4h」と「4h after PO」はそれぞれ、4 時間の成膜後の、停電の前と後における測定結果を表す。

できる。しかし、他の成膜時間のデータとの比較ができないため、以降の解析においては、成膜前の測定結果に基づくデータについては議論の対象から除外する。

また、グラフからは、成膜時間が 3 時間になった段階でイオンが急激に増加した様子と、成膜を続けても中性原子の数がほとんど増加しない様子を読み取ることができる。

熱脱離により観測された Fr のカウントに含まれるの中性原子の割合として、中性化率  $P_n$  を式 (4.6) で定義する。

$$P_n := \frac{N_{\text{neut}} - N_{\text{recoil}}}{N_{\text{all}} - N_{\text{recoil}}} \quad (4.6)$$

ただし、 $N_{\text{all}}$  は電場を印加しない加熱条件での Fr カウント数、 $N_{\text{neut}}$  は電場を印加して加熱した場合の Fr カウント数、 $N_{\text{recoil}}$  は加熱しない条件での Fr カウント数を表す。各成膜時間に対して中性化率を計算した結果を図 4.9 に示す。このときの反跳 Fr 数  $N_{\text{recoil}}$  は加熱前の値を採用している。中性化率は成膜時間が 2 時間を過ぎて 10% 程度にまで低下し、18.5 時間成膜性も改善の様子は見られなかった。

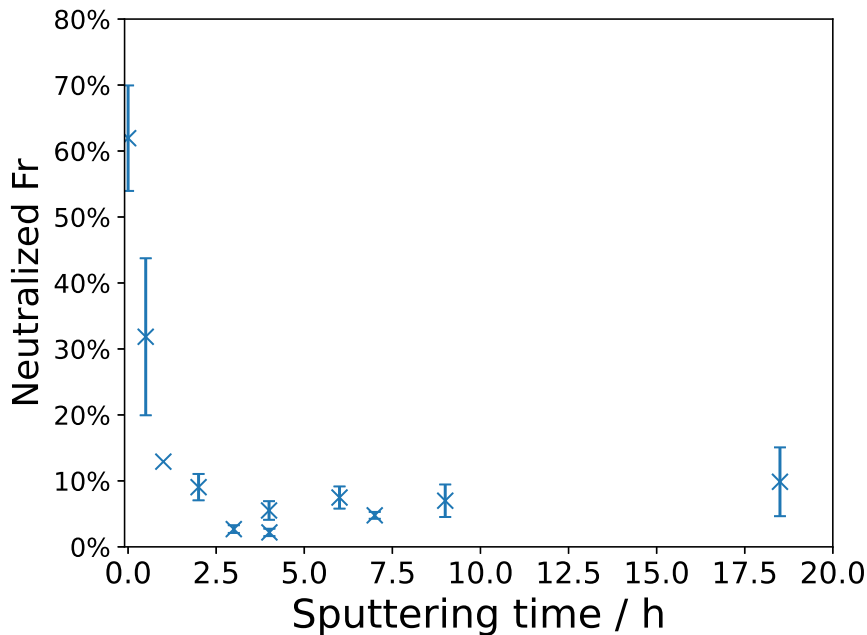


図 4.9: 成膜時間に対する中性化率の変化

### 中性化率測定の影響の考察

図 4.9 の結果からは、中性化膜の成膜量が少ない状態が中性化性能が高いという、不自然な結果が得られた。図 4.8 に示す通り、2 時間から 3 時間にかけての成膜において、イオンの脱離量が大幅に増加していることによるものであり、この時点で熱脱離するイオンの数を大幅に上昇させる何らかの変化が原子源に起きている。

また各測定において、加熱の前後で反跳 Fr 数が増加している様子が確認できる。これは中性化膜で減速できる Fr の数が減少していることを意味し、成膜量が減少していることに相当する。したがって、中性化率の測定自体が原子源の性能に影響を与えてしまっている可能性が考えられる。

以下に、図 4.4 に示した 3 パターンの Fr について再掲する。

1. 核分裂後中性化膜で十分減速されず、通過して放出される (反跳 Fr)
2. 中性化膜または白金箔の中で静止したが、原子源を加熱すると脱離する (低速 Fr イオン + 低速 Fr 原子)
3. 中性化膜または白金箔の中で静止し、原子源を加熱しても脱離しない (SSD では観測できない)

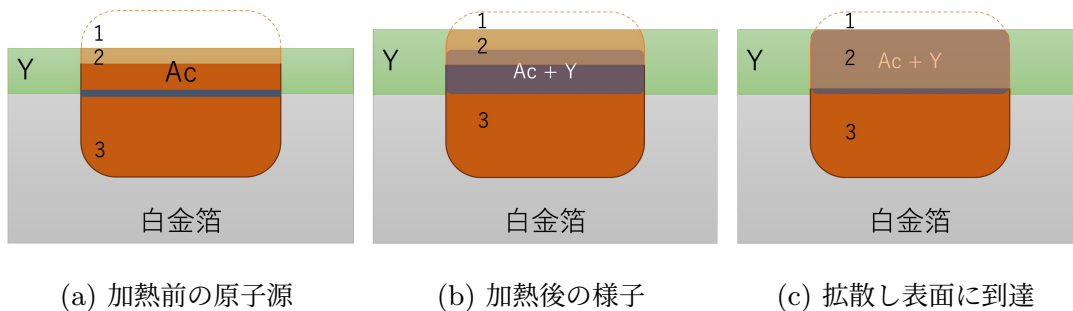


図 4.10: 実験結果を説明する Fr 分布モデル案。加熱により Ac を含む電着固体が拡散し、内部に捕獲された Fr 原子が熱脱離しやすくなる。図中の数字は、本文中に記載した Fr の分類に対応している。

低速 Fr イオンの数が、反跳 Fr と比較して大幅に増加していることから、このうち 3. の SSD で観測できない Fr が、2. の低速 Fr イオンに変化していることがわかる。したがって、加熱を繰り返すことで Fr が熱脱離しやすく変化する描像を考える。

このモデルの案を図 4.10 に示す。ここでは、加熱を繰り返すことによって Ac を含む電着固体が白金箔から一部脱離し、イットリウムの中性化膜内を拡散していく現象を仮定する。さらにこの拡散が発生した箇所では、イットリウムの中に電着された固体が混入し、純粋なイットリウムよりも Fr の熱拡散が起こりやすいと仮定する。これによって表面から熱脱離できる Fr の量が増大し、脱離 Fr 数の増大につながった (図 4.10b)。また、このときに拡散した Ac が中性化膜の表面にまで到達していた場合、その場所はイットリウムと異なる仕事関数を示し、Fr がイオン化して脱離する性質を持つ。特にこの実験では、成膜量が少ない段階から 15 A の電流で加熱する行為を繰り返し実施していたため、3 時間加熱した後の測定で、表面に到達するまでに拡散したと考えられる。ただし、便宜上図 4.10c では均等な拡散をしているように描いているが、実際はわずかながら低速原子も脱離していることから、Ac が表面に到達せず、低い仕事関数が保たれている箇所も残っていると考えられる。

表 4.2: 印加電流量と原子源の温度の関係

電流	温度
15 A	760 °C
18.5 A	930 °C
19 A	950 °C

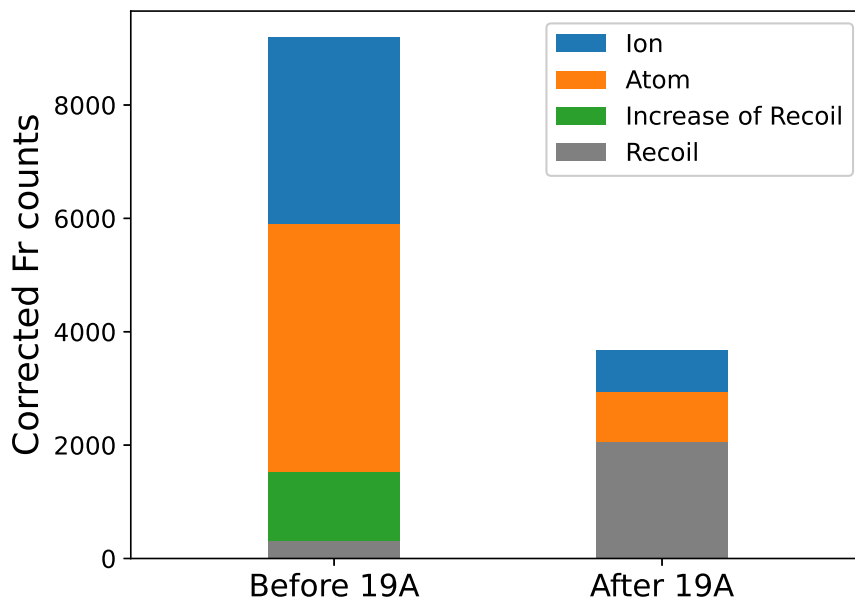


図 4.11: 高温での加熱の前後による脱離 Fr 量の変化。いずれも加熱時の印加電流は 15 A である。

#### 4.4.2 加熱による影響の検証

Fr を熱脱離させるための加熱が原子源の中性化性能に与える影響を検証するため、2411 実験と 2507 実験では、加熱時の印加電流量を変化させて中性化率の測定を行った。膜厚の影響と分離するため、成膜中に加熱を伴う測定は実施せず、反跳 Fr の 90% 以上を抑え込んだ成膜後にのみ中性化率の測定を実施した。加熱温度については白金箔に印加する電流量で調節し、あらかじめ放射温度計で測定した表 4.2 に示す値を目安とした。

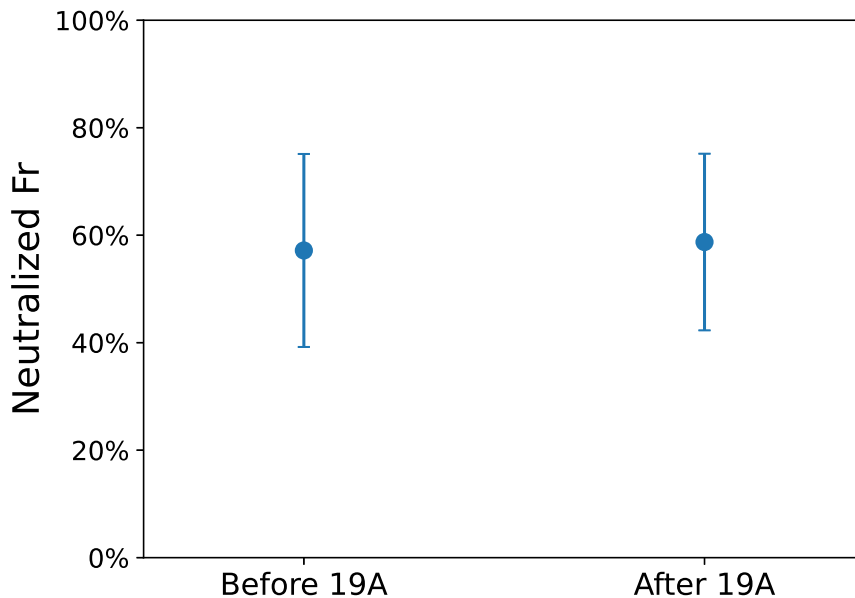


図 4.12: 高温加熱の前後における脱離 Fr の中性化率。いずれも加熱時の印加電流は 15 A である。

### 高温加熱実験の結果

2411 実験においては、成膜後に中性化率を測定した後、原子源に一度だけ 19 A の電流を 10 秒間印加し、その前後で Fr 脱離数と中性化率に変化が生じるかを確認した。中性化率を測定するための加熱電流は 15 A に統一した。このときの Fr カウント数の結果を図 4.11 に示す。加熱によって反跳 Fr が増加する現象は、19 A での加熱後に 15 A で加熱した際は見られなかった。また、一度 19 A で加熱をすると、15 A で加熱した際に脱離するイオンと中性原子がともに減少する様子が確認できた。低速 Fr イオンは 53% 減少し、低速 Fr 原子は 77% 減少した。また、各条件における中性化率を図 4.12 に示す。高温での加熱の前後で中性化率は大きく変化していないことから、高温の加熱によって、イオンか中性原子かに関わらず Fr の熱脱離を抑制するという結果が得られた。

これは原子源に含まれる Ac が減少していることにも相当する。しかし、実験後に原子源中の Ac から放出される  $\gamma$  線をゲルマニウム検出器で測定した結果、有意な減少は確認できなかった。測定結果を表 4.3 に示す。

次に、900 °C 以上に加熱した場合に脱離する Fr の性質について確認するため、2507 実験においては、高温条件での加熱時においても中性化率の測定を行った。中性化率の測定

表 4.3: 2411 実験における電着 Ac の量。表中の相対量は、Ac の崩壊を考慮した上で、焼成後の放射能を 100 % としたときの相対量。

測定時	放射能	相対量
2024/11/28 焼成後	1.02 MBq	100 %
2024/11/30 導入時	0.87 MBq	98 %
2024/12/12 取り出し後	0.40 MBq	103 %

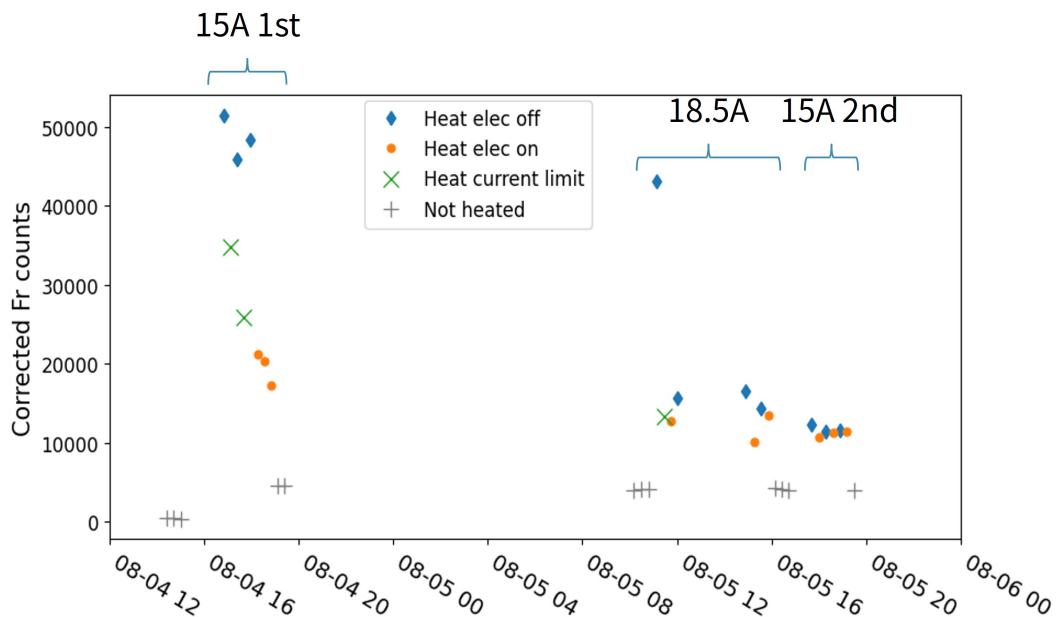


図 4.13: 加熱温度を変えて中性化測定を実施した際の補正後 Fr カウント数。Heat current limit は、電極に流れる電流が上限を超えたために印加電圧が不十分だった測定点を表す。

条件として、加熱時に印加する電流を 15 A と 18.5 A の 2 通りで測定を実施した。図 4.13 に、中性化率を測定した際の SSD での Fr カウント数を、式 (4.4) に従い補正した結果を示す。ただし、電極に電場を印加した際に、電源の電流上限を上回り電圧印加が不十分だった点 (Heat current limit) が含まれる。1 度 18.5 A で加熱した後、2 回目の 18.5 A の加熱ではカウント数が大幅に減少し、低速 Fr イオンと低速 Fr 原子を合わせた数は 1 回目の約 28 %、15 A 加熱時の 26 % となった。時間を空けた測定や、その後実施した 15 A での加熱でも回復する様子は見られなかった。

2507 実験においては、2 回目の中性化率測定の後、Fr 原子源から脱離する Fr 原子に対してレーザー光を照射し光に対する応答性を確認する分光実験を実施していた。この実験

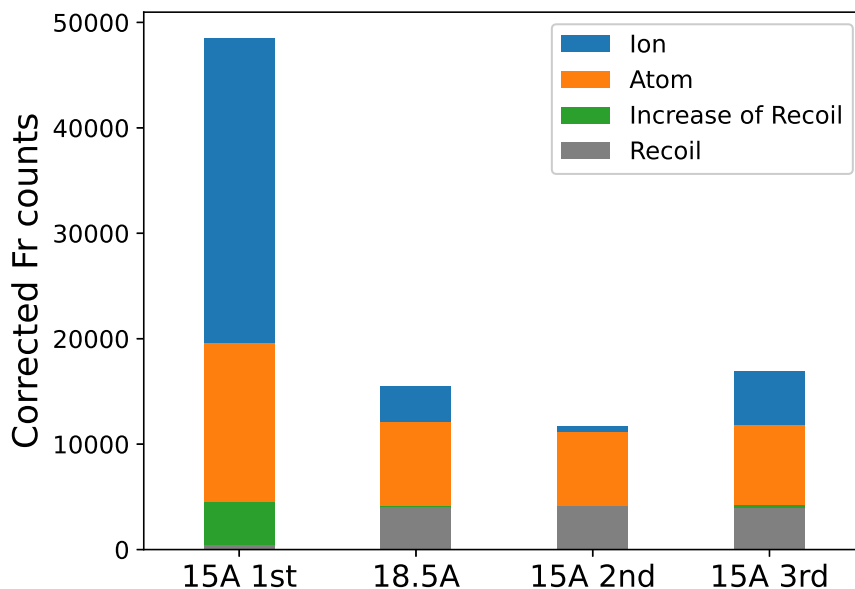


図 4.14: 加熱条件を変更した際の脱離 Fr 数。3 回の 15 A での加熱の結果はそれぞれ、18.5 A での加熱前後および、分光実験後の測定結果を示す。また、18.5 A のデータには、初回の加熱時のデータを含まない。

においては、15 A の電流加熱を合計で 39 回実施している。その後、再度中性化率を 15 A の電流加熱で測定したところ、低速 Fr イオンのカウント数のみ増加が確認された。以上の結果を図 4.14 にまとめる。ただし、18.5 A で加熱したデータの内、最初の測定は外れ値として除外して計算している。また、この結果をもとに計算された中性化率を図 4.15 に示す。

### 加熱による影響の考察

4.3 節においてすでに述べた通り、2411 実験と 2507 実験においては、6 時間から 8 時間のスパッタ成膜で、反跳 Fr の 9 割以上を減速させ膜中に止めることができた。一方で、成膜と加熱を繰り返していた 2407 実験では 18.5 時間のスパッタ成膜を要しており、加熱による成膜速度の減少があったと考えられる。また 2411 実験と 2507 実験においては、Fr 原子源を高温で加熱することで Fr が熱脱離しづらくなる現象が観測された。特に 2507 実験においては、低速 Fr 原子に比べて低速 Fr イオンの脱離量が顕著に減少した。図 4.8 に見られるようなイオンの脱離数が増加する現象は見られず、2507 実験の分光実験後にのみ確認された。また、すべての実験に共通して、成膜後最初に原子源を加熱した際のみ、加熱前と比較して、反跳 Fr の数が増加する現象が確認できた。この節では、こ

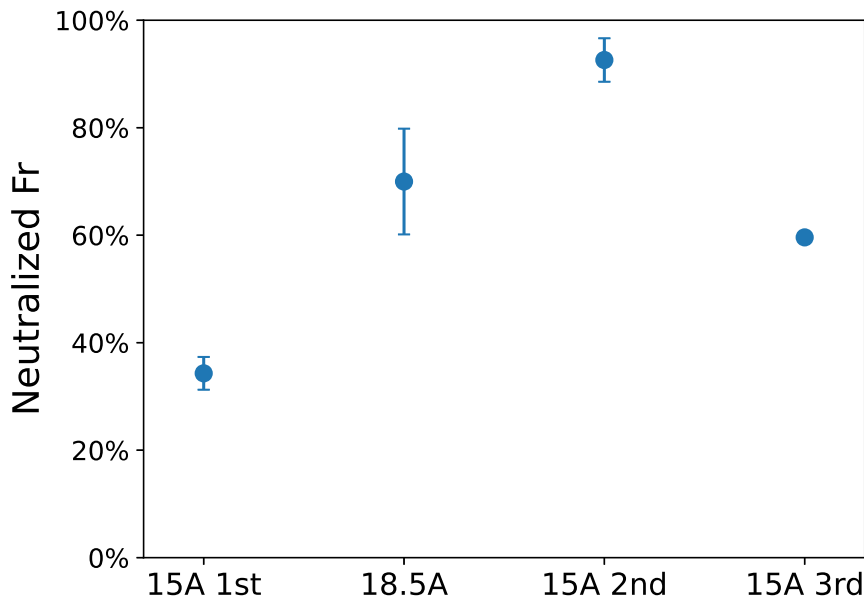


図 4.15: 加熱条件ごとの中性 Fr の割合

これらの観測結果の変化についてまとめ、それぞれ考察する。

■**成膜速度の変化** 成膜中に加熱を行わない場合、2407 実験で 18.5 時間かかっていたスパッタ成膜を 8 時間以下に短縮できている。図 4.16 に、3 回の実験のスパッタ成膜時間ごとの反跳 Fr 量の比を示す。中性化膜の反跳 Fr を抑え込む性能は、加熱を伴う実験によって悪化する。図 4.10 の案に基づくと、成膜量が少ない段階で加熱を行ったことにより、Ac の拡散の影響が大きく見られたためと説明可能である。

■**低速 Fr イオンの増加現象** 2407 実験で見られた低速 Fr イオンの脱離数が急激に増加する現象について、2411 実験以降では同程度の増加は見られなかった。この理由の一つとして、加熱時の膜厚の差が考えられる。加熱の影響の確認を目的とした 2411 実験及び 2507 実験においては、成膜中に加熱を伴う測定を行わず、成膜前の反跳 Fr の 9 割以上を中性化膜で抑え込んでからのみ、中性化率測定を実施している。したがって、脱離イオン数の増加は、膜厚が薄い状態の原子源を加熱した際に見える現象であった可能性が考えられる。これは上述の Ac の拡散のモデルでは、拡散した成分に対して中性化膜の物質が多く、拡散による熱脱離量の上昇の影響が小さかったためと説明できる。

もう一つの可能性として、加熱時間の差が考えられる。表 4.1 に示すように、2407 実験においては原子源の加熱を 30 秒間実施していた。加熱時間が 10 秒間の場合、2507 実験において 15 A の電流による加熱を 39 回の繰り返したのちに、低速 Fr イオンが増加す

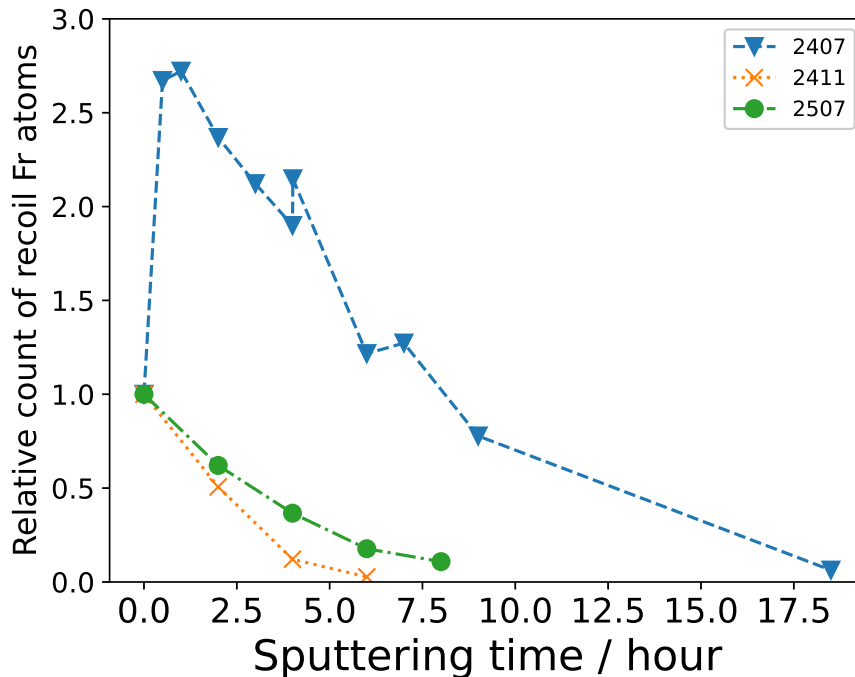


図 4.16: 成膜時間と反跳 Fr 量の関係。3 回の各実験について、成膜前の Fr カウント数を 1 としたときの比を表す。2407 実験のみ、成膜の途中で中性化率の測定を行った。

る様子が確認できている。2407 実験における低速 Fr イオンの増加は成膜時間が 2 時間となった 17 回目の 15 A での加熱で見られた現象であり、加熱時間の蓄積が影響して見られた現象であった可能性が考えられる。図 4.10 の考察を用いると、一回の加熱に対する Ac の拡散の移動度が小さかったことに相当する。

**■高温加熱による低速 Fr イオン数の減少** 高温で加熱することによる低速 Fr イオンの脱離数の減少は、2407 実験では見られなかった現象であり、930 °C 以上の高温での加熱で特徴的に見られるといえる。上述の Ac の拡散以外の影響によるものと見られることから、融点の高いイットリウムに関して、何らかの性質の変化が起きていると考えられる。

アルゴンスパッタリングによって成膜される薄膜は、成膜時のアルゴンの圧力と成膜される基板の温度に応じて変化する。図 4.17 に、成膜時の構造についての Thornton モデルを、図 2.8 から再掲して示す。さらに、本研究での成膜条件と加熱時の温度についても示した。成膜中の条件から、作製された中性化膜は Zone 1 の柱状構造をしていると考えられる。15 A での加熱時には Zone T と Zone 2 の境界付近、18.5 A での加熱時には Zone 2 に相当する温度まで上昇していることがわかる。この図はあくまでも成膜中の基

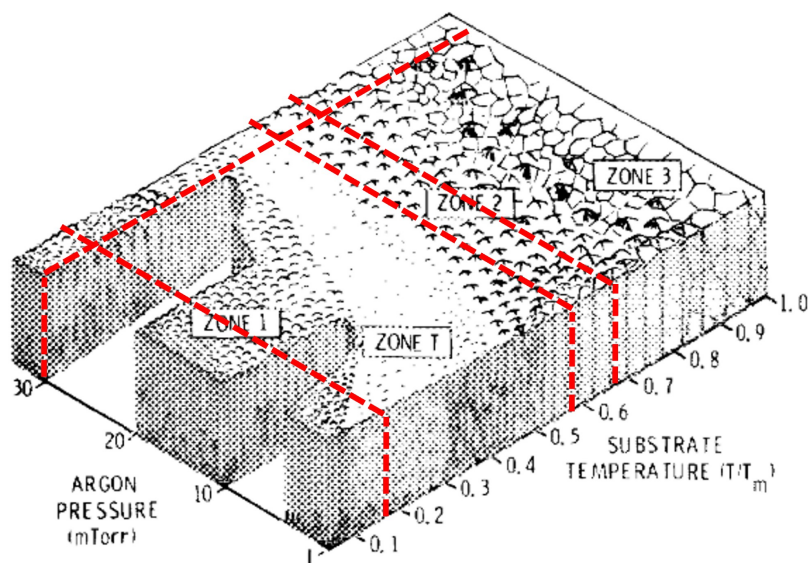


図 4.17: アルゴンスパッタリング成膜の Thornton モデル。文献 [69, 70] より引用。成膜中のアルゴンの圧力 (4 Pa) と、イットリウムの融点 (約 1800 K) に対する常温 (300 K)、15 A での加熱時 (1030 K)、18.5 A での加熱時 (1200 K) を示す赤色の破線を追加した。

板の温度を表しており、成膜後の 10 秒間の加熱で柱状構造が粒状の構造に変化するとは考えにくい。しかしながら、Zone 2 はスパッタ粒子が結晶表面で拡散する領域であり、成膜後の中性化膜の表面構造のみが変化した可能性は考えられる。イットリウムの構造の変化によって Fr を熱脱離させにくい部分ができたとすれば、高温加熱後の脱離粒子の減少を説明できる可能性もあるが、現状では構造が変化した明確な根拠はなく、十分な説明を与えることができない。

**■反跳 Fr の増加** いずれの実験においても、成膜後最初の中性化率測定実験を行うと、その後反跳 Fr の数が増加する様子が確認できた。成膜後に行う初回の中性化実験でのみ観測され、その後の測定では観測されなかったことから、成膜中にイットリウム膜に取り込まれたアルゴン原子が脱離する影響と考えられる。図 4.18 に、2407 実験における、6 時間成膜後の初回の加熱時と 2 回目の加熱時の圧力変化を示す。いずれも加熱は 15 A で 30 秒間行った。初回のみ電流印加直後の圧力上昇が大きいことがわかる。アルゴンが脱離したことにより瞬間的に圧力が上昇し、その後の加熱では大きな上昇は見られなかった。中性化膜中にアルゴンの分の欠損が生じることで、反跳 Fr を抑え込む性能が悪化したと推測する。

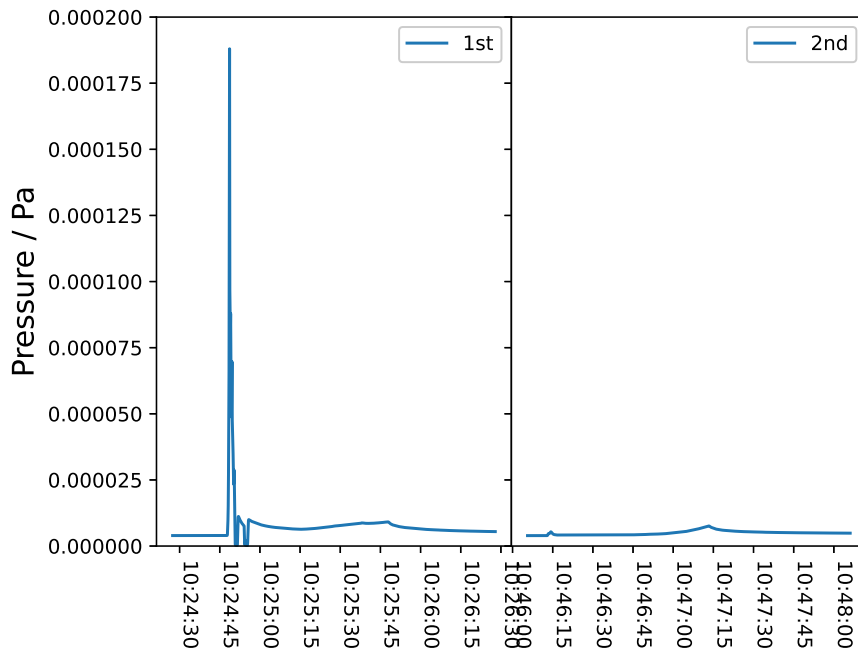


図 4.18: Fr 原子源の加熱に対する圧力変化

#### 4.4.3 実験結果のまとめ

表 4.4 に、作製した原子源の中性化率を示す。いずれの実験においても電着した Ac 上に中性化膜を直接成膜することで、 $\alpha$  崩壊によって放出される Fr を減速させ膜中に捕捉できることを確認できた。しかしながら、加熱を伴う測定と成膜を繰り返した 2407 実験においては、成膜による Fr の中性化を確認することができなかった。

成膜中に加熱を実施しなかった他の 2 回の実験では、中性化率の向上を確認することができた。一方で、高い中性化率が出ている条件では、脱離する中性原子の絶対数が増加しているのではなく、イオンの数が減ったことによって相対的に中性原子の割合が増加している様子も確認された。

表 4.4: 各実験において作製された Fr 原子源の評価

	2024 年 7 月	2024 年 11 月	2025 年 7 月
Ac 電着量	800 kBq	850 kBq	350 kBq
成膜時間	18.5 時間	6 時間	8 時間
反跳 Fr 減少率	94 %	97 %	89 %
最大中性化率	$32 \pm 12 \%$	$59 \pm 16 \%$	$93 \pm 4 \%$

# 第5章

## 結論

### 5.1 結論

本研究では、イットリウム中性化膜を Ac 電着基板の上に直接スパッタ成膜することで Fr 原子源を作製した。また、作製した原子源から供給される Fr の性質を調べることで、原子源の性能評価を行った。

原子源から熱脱離する Fr の中性化率を測定した結果、本研究の方式により作製された中性化膜一体型の Fr 原子源は、加熱されることで Fr の減速と中性化の性能が変化することが明らかとなった。具体的には、解析の結果以下の3点を観測した。

- 760°C での短時間の加熱でも、反跳 Fr を抑え込む性能は加熱により悪化する。
- 930°C 以上での加熱を行うと、原子源から熱脱離する Fr イオンの数は減少する。
- 760°C で加熱を繰り返す、または中性化膜の量が少ない状態で加熱すると、熱脱離するイオンは増加する。

以上の現象について説明可能なモデルを、電着 Ac 上に成膜したイットリウム中性化膜内部での、Ac を含む電着固体の拡散の可能性に基づき考案した。本研究により、中性化膜一体型の Fr 原子源を加熱して使用する際に、熱脱離する Fr の状況が明らかとなった。加熱することにより低エネルギーの電氣的に中性な Fr 原子を放出させることが本来の使用目的ではあるが、膜の厚さや加熱の温度によっては、放出される Fr 原子の数を大幅に減らしてしまう。原子源を作製・使用する際には、加熱することで中性化率や脱離数を悪化させる可能性を考慮し、慎重に使用しなければならない。

## 5.2 今後の展望

### Ac 拡散仮説の検証

現状では中性化膜成膜後の Ac や Fr の振る舞いについては、原子源から脱離した Fr 原子および Fr イオンの数量のみによって評価している。加熱前後の原子源の表面の構造の変化や、電着された固体の加熱に対する応答などを、電子顕微鏡などで多角的に確認できれば、原子源のさらなる理解に繋がり、低速 Fr 原子数を最大化する成膜・加熱方法の確立につながることを期待される。

### Ac の電着の改良

1 MBq の  $^{225}\text{Ac}$  が電着された場合、物質量は  $2.0 \times 10^{-12}$  mol に相当する。しかし図 3.15 に示すように、電着後の白金箔には目視でわかるほどの量の固体が付着していた。これは分子電着法によって白金箔上で還元された 2-プロパノール由来の有機物が、焼成によって固着したものと考えられる。したがって、低速 Fr イオンの脱離量の増加の原因として、中性化膜内部で拡散したと推測される電着固体についても、そのほとんどが Ac ではなく有機物成分であると推測できる。本研究のモデルでは、この固体は Fr を中性化膜内で熱拡散させやすくする一方で、表面の仕事関数を上昇させ、Fr をイオン化して脱離させる。電着時の不純物の除去や、水溶液系での電着の採用を検討し、電着される Ac 以外の成分を減らすことができれば、イットリウムの表面状態を保ち中性化率を向上させる可能性が考えられる。

## 補遺 A

# Ramsey 分光法

Larmor 歳差運動の周波数を測定する方法の一つに Ramsey 分光法がある。文献 [41] に基づき、以下にその原理を示す。

図 A.1 に示す座標系を用いる。中心には測定対象の粒子が存在し、スピン角運動量  $\mathbf{S}$  をもつ。 $z$  軸の向きに静磁場  $\mathbf{B}_0 = B_0 \hat{z}$  が印加されている状態で、さらに  $y$  軸方向に時間  $\tau$  の間だけ振動磁場  $\mathbf{B}_1$  を印加することを考える。このとき印加する磁場の振動数  $\omega$  は、Larmor 周波数  $\omega_0 = \gamma B_0$  に十分近いとする。ここで  $\gamma$  は測定対象粒子の磁気回転比を表す。 $|\omega - \omega_0| \ll \gamma B_1$  とした場合、 $y$  軸方向に印加されている磁場は次のように書ける。

$$\mathbf{B}_1 = 2B_1 \cos \omega t \hat{y} = B_1 [\sin \omega t \hat{x} + \cos \omega t \hat{y}] + B_1 [\sin(-\omega t) \hat{x} + \cos(-\omega t) \hat{y}] \quad (\text{A.1})$$

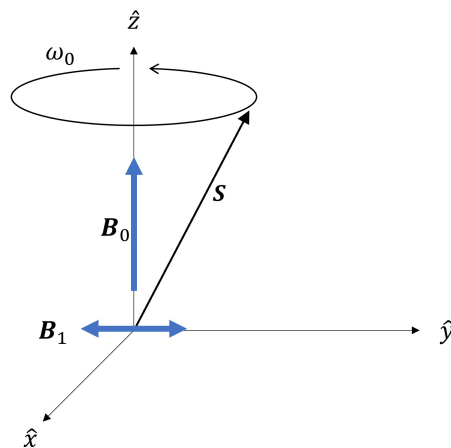


図 A.1: A 節で使用する座標系と記号の定義。 $\mathbf{S}$  は測定対象粒子のスピン角運動量、 $\mathbf{B}_0$  は静磁場、 $\mathbf{B}_1$  は粒子に照射された電磁波に由来する振動磁場を表す。文献 [41] に基づき作成。

よって  $y$  軸に沿って直線的に振動する磁場は、 $z$  軸を中心にして互いに反対向きに回転する 2 つの回転磁場として表現できる。この磁場を  $z$  軸を中心にして角速度  $\omega$  で回転する座標系から観測すると、一方の磁場は静止し、もう一方は角速度  $2\omega$  で回転して見える。振動磁場をレーザーなどの電磁波で印加することを想定すると、 $2\omega$  で振動する成分は観測時に時間的に平均化されるため無視できる\*<sup>1</sup>。また、座標系の回転の向きは Larmor 歳差運動の向きに等しくとることにする。歳差運動の角速度も静止座標系から変化するため、 $z$  軸に印加されていた静磁場は  $B_0 - \omega/\gamma$  に減少し、スピンは  $y$  軸に沿って角速度  $\gamma B_1/2$  で歳差運動する。また、 $\omega$  と  $\omega_0$  に差がある場合は、 $z$  軸の磁場  $\Delta B = B_0 - \omega/(2\gamma)$  と  $y$  軸の磁場  $B_1/2$  のベクトル和の向きを軸にスピンは歳差運動する。

Ramsey 分光法では、振動磁場  $B_1$  に相当する電磁波の照射を次の手順で行う (図 A.2)。

1. 電磁波 ( $B_1$ ) を照射していない状態で、スピンを  $z$  軸に沿って偏極させる。
2.  $\tau = \pi/(\gamma B_1)$  の時間、電磁波を照射する。
3. 電磁波の照射終了後、時間  $T$  を空けて再度時間  $\tau$  の間電磁波を照射する。
4. スピンの  $z$  軸成分を観測する。

以下それぞれの手順ごとに詳細を示す。

### 1. スピンの偏極

電磁波を照射する前の初期状態として、外部電場の印加 [6] や STIRAP [5] などを用いて、あらかじめ外部磁場  $B_0$  と同じ向きに測定対象粒子のスピンを偏極させておく (図 A.2a)。

### 2. 電磁波の照射 1 回目

$\tau = \pi/(\gamma B_1)$  の間、電磁波を照射する。 $\omega\tau = (\gamma B_1/2)\tau = \pi/2$  が成り立つので、回転座標から見た場合、スピンは歳差運動によって  $x$  軸上に移動する。このようにスピンの向きを  $\pi/2$  変化させる電磁波を  $\pi/2$  パルスと呼ぶ (図 A.2b)。

### 3. 時間を空けて 2 回目の電磁波の照射

照射終了後  $x$  軸を向いたスピンは、 $z$  軸の磁場  $\Delta B$  を軸に  $xy$  平面上で時間  $T$  の間歳差運動を行う (図 A.2c)。その角速度は  $\Delta\omega = \gamma\Delta B$  なので、時間  $T$  経過後の  $x$  軸に対するスピンの角度は  $\phi = \Delta\omega T$  である。このときに 2 回目の  $\pi/2$  パルスを照射すると、 $y$  軸

---

\*<sup>1</sup> 回転波近似と呼ばれる。

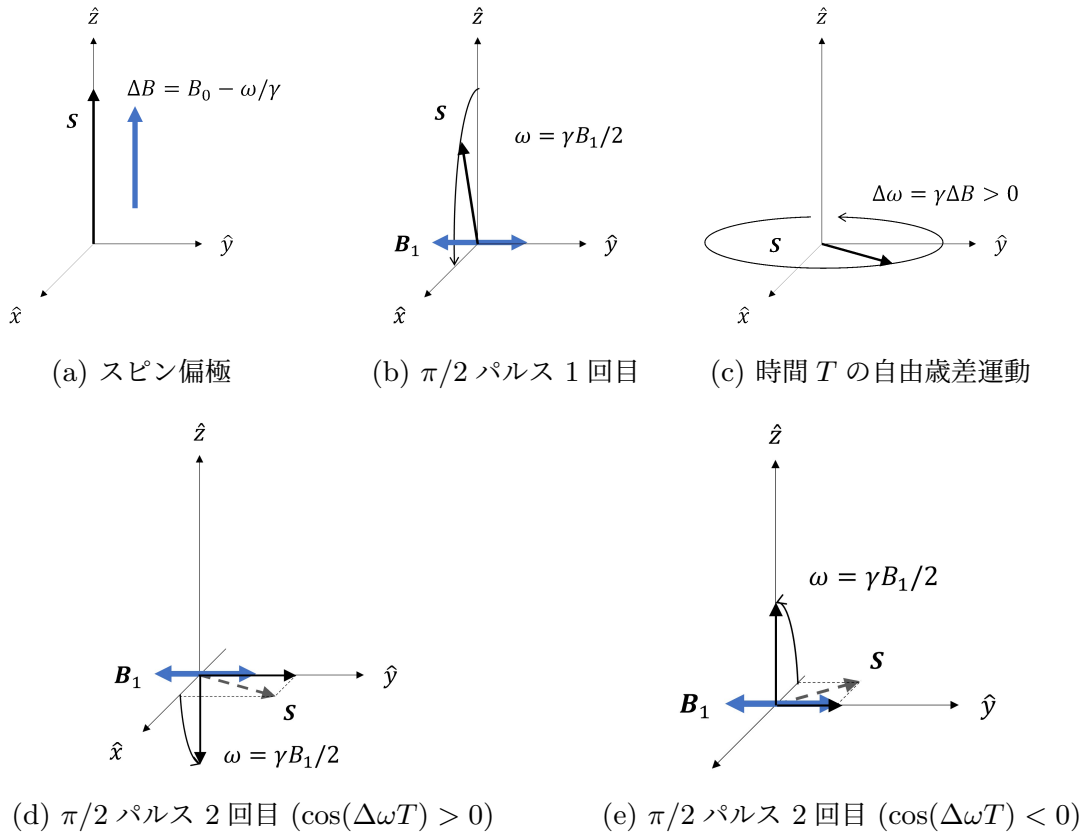


図 A.2: Ramsey 分光法の原理

を中心に歳差運動するのはスピンの  $x$  成分のみであり、2 回目の  $\pi/2$  パルスを照射した後、スピンの  $z$  成分は  $-\hat{z}$  の向きに  $\cos \phi$  に比例した大きさを持つ。

#### 4. スピンの $z$ 成分の測定

2 回目の  $\pi/2$  パルス照射後、スピンの  $z$  成分の大きさは  $-|\mathbf{S}| \cos \phi$  となる。+ 向きで観測される確率と - 向きで観測される確率をそれぞれ  $P_+$ ,  $P_-$  とすると、

$$P_+ - P_- = -\cos \phi = -\cos \Delta\omega T \quad (\text{A.2})$$

として、外部から印加した電磁波の周波数に対するスピン歳差周波数の差を得ることができる。

## 謝辞

本研究は東北大学金属材料研究所の共同利用による助成を受けています (課題番号 202411-RDKGE-0001)。この場をお借りし、感謝申し上げます。

本博士論文の作成にあたっては、大変多くの方々にお世話になりました。この場をお借りして、感謝の意を表したいと思います。

指導教員である松田恭幸教授には、修士1年の頃から大変お世話になりました。本研究に携わらせていただける機会を与えていただき、加速器実験、光学、放射化学と非常に幅広い分野にまたがる研究を行える、大変貴重な機会をいただきました。ありがとうございました。

東京大学原子核科学研究センター 基本対称性グループの皆様にも大変お世話になりました。酒見泰寛教授には、共同研究員として同グループに受け入れていただき、不自由なく活動できるよう様々な形でサポートいただきました。多くの研究機関と協力して本研究を進めるため、お力添えいただいたこと、誠にありがとうございました。

同センターの長濱弘季助教には、装置開発の段階から大変お世話になりました。実験の方針やデータの解釈など、さまざまなアイデアで研究を推進していただきました。ありがとうございました。

同センターの中村圭佑研究員 (現 早稲田大学 研究員) には、主に光源開発周辺の技術についてご指導いただきました。また、研究のさまざまな面でサポートいただきました。ありがとうございました。

理化学研究所 仁科加速器科学研究センター 核化学研究開発室の皆様にも大変お世話になりました。羽場宏光チームリーダーには、研修生およびリサーチ・アソシエイトとして受け入れていただき、放射化学の作業の多くを教えていただきました。ご迷惑をおかけすることも多々ありましたが、いつも寛大に対応していただき、とても感謝しております。

同南部明弘テクニカルスタッフには、化学実験や放射性廃棄物の処理の対応など様々な場面で大変お世話になりました。化学実験に不慣れな私に、手法や原理などについて教えていただき、多くの実践的な技術を学ばせていただきました。ありがとうございました。

大阪大学放射線科学基盤機構附属ラジオアイソトープ総合センターの白崎謙次准教授、東北大学先端量子ビーム科学研究センターの塚田和明教授、菊永英寿准教授、京都大学複合原子力科学研究所の佐藤哲也氏には、東北大学金属材料研究所アルファ放射体実験室での Ac の分離精製を行っていただきました。大変貴重な Ac を譲渡いただき、また作業時

には放射化学に関する様々なことを教えていただきました。ありがとうございました。

東京農工大学大学院工学府 島山研究室の熊原思光氏 (2025 年修士課程修了) には、2024 年度から Ac 実験に参加し協力いただきました。作製していただいた様々なプログラムのおかげで、実験が非常にスムーズに進むようになり大変助かっています。ありがとうございました。

酒見研究室の皆様にも大変お世話になりました。永瀬慎太郎氏 (現 産業技術総合研究所 研究員) には、真空装置や光学のさまざまなことについて教えていただきました。同時期に博士課程の研究に進んだ者として、研究の内容以外のことについても談笑する時間は心の支えでした。ありがとうございました。

同研究室の中澤正樹氏には、Ac 実験を含め様々な場面でお世話になりました。Ac 実験期間には何度も助けられました。中澤さんの持つ幅広い研究分野への探求心をとても尊敬しています。たびたび負担をかけてしまったこともあったかと思いますが、大変感謝しております。

立教大学理学研究科栗田研究室の阿部孝大氏、根津悠氏にも、Ac の分離精製や実験をサポートいただきました。ありがとうございました。

また本論文の執筆にあたっては、東京大学総合文化研究科の青木貴稔助教に多くのコメントをいただきました。ありがとうございました。

最後に、ここまで私を育ててくれ、生活面でも精神面でもサポートしてくれた家族に心から感謝いたします。

## 参考文献

- [1] M. S. Safronova, D. Budker, D. DeMille, Derek F. Jackson Kimball, A. Derevianko, and Charles W. Clark, *Search for new physics with atoms and molecules*. Rev. Mod. Phys. **90**, 025008 (2018).
- [2] P. G. H. Sandars, *The electric dipole moment of an atom*. Phys. Lett. **14**, 194 (1965).
- [3] B. C. Regan, E. D. Commins, C. J. Schmidt, and D. DeMille, *New Limit on the Electron Electric Dipole Moment*. Phys. Rev. Lett. **88**, 071805 (2002).
- [4] J. J. Hudson, D. M. Kara, I. J. Smallman, B. E. Sauer, M. R. Tarbutt, and E. A. Hinds, *Improved measurement of the shape of the electron*. Nature **473**, 493 (2011).
- [5] V. Andreev, D. G. Ang, D. DeMille, J. M. Doyle, G. Gabrielse, J. Haefner, N. R. Hutzler, Z. Lasner, C. Meisenhelder, B. R. O’Leary, C. D. Panda, A. D. West, E. P. West, and X. Wu, *Improved limit on the electric dipole moment of the electron*. Nature **562**, 355 (2018).
- [6] T. S. Roussy, L. Caldwell, T. Wright, W. B. Cairncross, Y. Shagam, K. B. Ng, N. Schlossberger, S. Y. Park, A. Wang, J. Ye, and E. A. Cornell, *An improved bound on the electron’s electric dipole moment*. Science **381**, 46 (2023).
- [7] L. Caldwell, T. S. Roussy, T. Wright, W. B. Cairncross, Y. Shagam, K. B. Ng, N. Schlossberger, S. Y. Park, A. Wang, J. Ye, and E. A. Cornell, *Systematic and statistical uncertainty evaluation of the Formula Presented electron electric dipole moment experiment*. Phys. Rev. A **108**, 012804 (2023).
- [8] C. Chin, V. Leiber, V. Vuletić, A. J. Kerman, and S. Chu, *Measurement of an electron’s electric dipole moment using Cs atoms trapped in optical lattices*. Phys. Rev. A, **63**, 033401 (2001).

- [9] N. Shitara, N. Yamanaka, B. K. Sahoo, T. Watanabe, and B. P. Das, *CP violating effects in  $^{210}\text{Fr}$  and prospects for new physics beyond the Standard Model*. J. High Energ. Phys. **2021**, 124 (2021).
- [10] T. Aoki, R. Sreekantham, B. K. Sahoo, B. Arora, A. Kastberg, T. Sato, H. Ikeda, N. Okamoto, Y. Torii, T. Hayamizu, K. Nakamura, S. Nagase, M. Ohtsuka, H. Nagahama, N. Ozawa, M. Sato, T. Nakashita, K. Yamane, K. S. Tanaka, K. Harada, H. Kawamura, T. Inoue, A. Uchiyama, A. Hatakeyama, A. Takamine, H. Ueno, Y. Ichikawa, Y. Matsuda, H. Haba, and Y. Sakemi, *Quantum sensing of the electron electric dipole moment using ultracold entangled Fr atoms*. Quantum Sci. Technol. **6**, 044008 (2021).
- [11] V. Spevak, N. Auerbach, and V. V. Flambaum, *Enhanced  $T$ -odd,  $P$ -odd electromagnetic moments in reflection asymmetric nuclei*. Phys. Rev. C **56**, 1357 (1997).
- [12] V. V. Flambaum and A. J. Mansour, *Enhanced nuclear Schiff and electric dipole moments in nuclei with octupole deformation*. Phys. Rev. C, **111**, 055501 (2025).
- [13] National Nuclear Data Center. From ENSDF database as of Dec. 1, 2025. Version available at <http://www.nndc.bnl.gov/ensarchivals/>
- [14] T. Dinneen, A. Ghiorso, and H. Gould, *An orthotropic source of thermal atoms*. Rev. Sci. Instrum. **67**, 752 (1996).
- [15] Z.-T. Lu, K. L. Corwin, K. R. Vogel, C. E. Wieman, T. P. Dinneen, J. Maddi, and H. Gould, *Efficient Collection of  $^{221}\text{Fr}$  into a Vapor Cell Magneto-optical Trap*. Phys. Rev. Lett. **79**, 994 (1997).
- [16] M. Tandecki, J. Zhang, S. Aubin, J.A. Behr, R. Collister, E. Gomez, G. Gwinner, H. Heggen, J. Lassen, L.A. Orozco, M.R. Pearson, S. Raeder, and A. Teigelhöfer, *Offline trapping of  $^{221}\text{Fr}$  in a magneto-optical trap from implantation of an  $^{225}\text{Ac}$  ion beam*. JINST **9**, P10013 (2014).
- [17] Y. Sakemi, K. Harada, M. Itoh, S. Ito, A. Uchiyama, T. Inoue, H. Kawamura, T. Aoki, A. Hatakeyama, Y. Takahashi, and J. Hisano, *Fundamental Physics with Cooled Radioactive Atoms*, JPS Conf. Proc. **35**, 011016 (2021).
- [18] S. Nagase, *Study on the optical Stark effect in an optical lattice by Faraday rotation for the permanent electric dipole moment search*. PhD thesis, 東京大学, 2025.
- [19] N. Ozawa, *Source of cold francium atoms aimed at a search for the permanent*

- electric dipole moment.* PhD thesis, 東京大学, 2023.
- [20] N. Ozawa, H. Nagahama, and Y. Sakemi, *Francium ion source with novel methods of target heating and beam characterization.* Rev. Sci. Instrum. **94**, 023306 (2023).
- [21] 佐藤幹, フランシウム 221 の永久電気双極子能率探索に向けた原子線源の開発. 博士論文, 東京大学, 2024.
- [22] A. D. Sakharov, *Violation of CP invariance, C asymmetry, and baryon asymmetry of the universe.* Pis'ma Zh. Eksp. Teor. Fiz. **5**, 32 (1967) [JETP Letters, **5**, 24, (1967)].
- [23] M. Dine and A. Kusenko, *Origin of the matter-antimatter asymmetry.* Rev. Mod. Phys. **76**, 1 (2003).
- [24] M. Kobayashi and T. Maskawa, *CP -Violation in the Renormalizable Theory of Weak Interaction.* Prog. Theor. Phys. **49**, 652 (1973).
- [25] H. Burkhardt *et al.* (CERN-Dortmund-Edinburgh-Mainz-Orsay-Pisa-Siegen Collaboration), *First evidence for direct CP violation.* Phys. Lett. B **206**, 169 (1988).
- [26] B. Aubert *et al.* (BABAR Collaboration), *Observation of CP Violation in the  $B^0$  Meson System.* Phys. Rev. Lett. **87**, 091801 (2001).
- [27] K. Abe *et al.* (Belle Collaboration), *Observation of Large CP Violation in the Neutral B Meson System.* Phys. Rev. Lett. **87**, 091802 (2001).
- [28] A. Shindler, *Flavor-diagonal CP violation: the electric dipole moment.* Eur. Phys. J. A **57**, 128 (2021).
- [29] M. Pospelov and A. Ritz, *Electric dipole moments as probes of new physics.* Ann. Phys. **318**, 119 (2005).
- [30] R. D. Peccei and H. R. Quinn, *Constraints imposed by CP conservation in the presence of pseudoparticles.* Phys. Rev. D, **16**, 1791 (1977).
- [31] R. F. Streater and A. S. Wightman, *PCT, spin and statistics, and all that* (W.A. Benjamin, New York, 1964).
- [32] C. Smorra, S. Sellner, M. J. Borchert, J. A. Harrington, T. Higuchi, H. Nagahama, T. Tanaka, A. Mooser, G. Schneider, M. Bohman, K. Blaum, Y. Matsuda, C. Ospelkaus, W. Quint, J. Walz, Y. Yamazaki, and S. Ulmer, *A parts-per-billion measurement of the antiproton magnetic moment.* Nature **550**, 371 (2017).
- [33] M. Ahmadi *et al.* (The ALPHA Collaboration), *Investigation of the fine structure of antihydrogen.* Nature **578**, 375 (2020).
- [34] P. Moskal, A. Gajos, M. Mohammed, J. Chhokar, N. Chug, C. Curceanu,

- E. Czerwiński, M. Dadgar, K. Dulski, M. Gorgol, J. Goworek, B. C. Hiesmayr, B. Jasińska, K. Kacprzak, L. Kapłon, H. Karimi, D. Kisielewska, K. Klimaszewski, G. Korcyl, P. Kowalski, N. Krawczyk, W. Krzemień, T. Kozik, E. Kubicz, S. Niedźwiecki, S. Parzych, M. Pawlik-Niedźwiecka, L. Raczyński, J. Raj, S. Sharma, S. Choudhary, R. Y. Shopa, A. Sienkiewicz, M. Silarski, M. Skurzok, E. Ł. Stepień, F. Tayefi, and W. Wiślicki, *Testing CPT symmetry in ortho-positronium decays with positronium annihilation tomography*. Nat. Commun. **12**, 5658 (2021).
- [35] E. M. Purcell and N. F. Ramsey, *On the possibility of electric dipole moments for elementary particles and nuclei*. Phys. Rev. **78**, 807 (1950).
- [36] A. Czarnecki and B. Krause, *Neutron Electric Dipole Moment in the Standard Model: Complete Three-Loop Calculation of the Valence Quark Contributions*. Phys. Rev. Lett. **78**, 4339 (1997).
- [37] Y. Yamaguchi and N. Yamanaka, *Quark level and hadronic contributions to the electric dipole moment of charged leptons in the standard model*. Phys. Rev. D, **103**, 013001 (2021).
- [38] J. Engel, M. J. Ramsey-Musolf, and U. van Kolck. *Electric dipole moments of nucleons, nuclei, and atoms: The standard model and beyond*. Prog. Part. Nucl. Phys. **71**, 21 (2013).
- [39] T. Chupp and M. Ramsey-Musolf, *Electric dipole moments: A global analysis*. Phys. Rev. C **91**, 035502 (2015).
- [40] W. Demtröder, *Atoms, Molecules and Photons*. (Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 2018), third edition.
- [41] I. B. Khriplovich and S. K. Lamoreaux, *CP Violation Without Strangeness*. (Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 1997).
- [42] G.D. Sprouse, L.A. Orozco, J.E. Simsarian, W. Shi, and W.Z. Zhao, *Laser trapping of radioactive francium atoms*. Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. Sec. B **126**, 370 (1997).
- [43] G. Stancari, S. Veronesi, L. Corradi, S.N. Atutov, R. Calabrese, A. Dainelli, E. Mariotti, L. Moi, S. Sanguinetti, and L. Tomassetti, *Production of radioactive beams of francium*. Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. Sec. A **557**, 390 (2006).
- [44] S. Sanguinetti, R. Calabrese, L. Corradi, A. Dainelli, A. Khanbekyan, E. Mariotti, C. de Mauro, P. Minguzzi, L. Moi, G. Stancari, L. Tomassetti, and

- S. Veronesi, *Accurate measurements of transition frequencies and isotope shifts of laser-trapped francium*. *Opt. Lett.* **34**, 893 (2009).
- [45] N. Ozawa, H. Nagahama, T. Hayamizu, K. Nakamura, M. Sato, S. Nagase, Y. Kotaka, K. Kamakura, K. S. Tanaka, M. Otsuka, T. Aoki, Y. Ichikawa, A. Takamine, H. Haba, H. Ueno, and Y. Sakemi. *Development of novel detection system for francium ions extracted from online surface ionizer*. *RIKEN Accel. Prog. Rep.* **54**, 117 (2021).
- [46] E. Jajčišinová, K. Dockx, M. Au, S. Bara, T. E. Cocolios, K. Chrysalidis, G. J. Farooq-Smith, D. V. Fedorov, V. N. Fedosseev, K. T. Flanagan, M. Heines, D. Hounbo, J. D. Johnson, A. Kellerbauer, S. Kraemer, B. A. Marsh, L. Popescu, J. P. Ramos, S. Rothe, M. D. Seliverstov, S. Sels, S. Stegemann, M. Stryczyk, and V. Verelst, *Production study of Fr, Ra and Ac radioactive ion beams at ISOLDE, CERN*. *Sci. Rep.* **14**, 11033 (2024).
- [47] G. Stancari, S. N. Atutov, R. Calabrese, L. Corradi, A. Dainelli, C. de Mauro, A. Khanbekyan, E. Mariotti, P. Minguzzi, L. Moi, S. Sanguinetti, L. Tomassetti, and S. Veronesi, *Francium sources and traps for fundamental interaction studies*. *Eur. Phys. J. Special Topics* **150**, 389 (2007).
- [48] J. Ärje, *Charge Creation and Reset Mechanisms in an Ion Guide Isotope Separator (IGIS)*. *Phys. Scr.* **T3**, 37 (1983).
- [49] 熊原思光, 永久電気双極子能率の探索に向けたフランシウム原子源の開発とその評価 . 修士論文, 東京農工大学, 2025.
- [50] I. Langmuir and K. H. Kingdon, *Thermionic effects caused by vapours of alkali metals*. *Proc. R. Soc. London A* **107**, 61 (1925).
- [51] M. J. Copley and T. E. Phipps, *The Surface Ionization of Potassium on Tungsten*. *Phys. Rev.* **48**, 960 (1935).
- [52] D. E. Eastman, *Photoelectric Work Functions of Transition, Rare-Earth, and Noble Metals*. *Phys. Rev. B*, **2**, 1 (1970).
- [53] S. V. Andreev, V. I. Mishin, and V. S. Letokhov, *Rydberg levels and ionization potential of francium measured by laser-resonance ionization in a hot cavity*. *J. Opt. Soc. Am. B* **5**, 2190 (1988).
- [54] J. E. Simsarian, A. Ghosh, G. Gwinner, L. A. Orozco, G. D. Sprouse, and P. A. Voytas, *Magneto-optic trapping of  $^{210}\text{Fr}$* . *Phys. Rev. Lett.* **76**, 3522 (1996).
- [55] S. Aubin, E. Gomez, L. A. Orozco, and G. D. Sprouse, *High efficiency magneto-*

- optical trap for unstable isotopes*. Rev. Sci. Instrum. **74**, 4342 (2003).
- [56] S. N. Atutov, R. Calabrese, V. Guidi, B. Mai, E. Scansani, G. Stancari, L. Tomasseti, L. Corradi, A. Dainelli, V. Biancalana, A. Burchianti, C. Marinelli, E. Mariotti, L. Moi, and S. Veronesi, *Cooling and trapping of radioactive atoms: the Legnaro francium magneto-optical trap*. J. Opt. Soc. Am. B **20**, 953 (2003).
- [57] G. Gwinner and L. A. Orozco, *Studies of the weak interaction in atomic systems: towards measurements of atomic parity non-conservation in francium*. Quantum Sci. Technol. **7**, 024001 (2022).
- [58] 阿部 光雄, **研究者のためのイオン交換反応の基礎実験**. 日本イオン交換学会誌 **12**, 20 (2001).
- [59] D. R. McAlister and E. P. Horwitz, *Characterization of Extraction of Chromatographic Materials Containing Bis(2-ethyl-1-hexyl)Phosphoric Acid, 2-Ethyl-1-Hexyl (2-Ethyl-1-Hexyl) Phosphonic Acid, and Bis(2,4,4-Trimethyl-1-Pentyl)Phosphinic Acid*. Solv. Extr. Ion Exch. **25**, 757 (2007).
- [60] W. Parker and R. Falk, *Molecular plating: A method for the electrolytic formation of thin inorganic films*. Nucl. Instr. Methods **16**, 355 (1962).
- [61] A.E. Lally and K.M. Glover, *Source preparation in alpha spectrometry*. Nucl. Instr. Methods Phys. Res. **223**, 259 (1984).
- [62] A. Vascon, S. Santi, A.A. Isse, T. Reich, J. Drebert, H. Christ, Ch.E. Düllmann, and K. Eberhardt, *Elucidation of constant current density molecular plating*. Nucl. Instr. Methods Phys. Res. A **696**, 180 (2012).
- [63] 山根風樹, **永久電気双極子能率探索に向けたアクチニウム-225 電着基板を用いたフランシウム-221 原子線源の開発**. 修士論文, 東京大学, 2022.
- [64] F. Paschen, *Ueber die zum Funkenübergang in Luft, Wasserstoff und Kohlensäure bei verschiedenen Drucken erforderliche Potentialdifferenz*. Ann. Phys. **273**, 69 (1889).
- [65] J. G. Theis, G. R. Werner, T. G. Jenkins, and J. R. Cary, *Computing the Paschen curve for argon with speed-limited particle-in-cell simulation*. Phys. Plasmas **28**, 063513 (2021).
- [66] M. A. Lieberman, A. J. Lichtenberg, *Principles of Plasma Discharges and Materials Processing*. (John Wiley & Sons, 2005) [佐藤久明 訳, **プラズマプロセスの原理 第2版**. (丸善, 東京, 2010), p. 435].
- [67] 北嶋真, 和佐清孝, **スパッタリングによる薄膜**. 表面科学 **5**, 514 (1984).

- [68] 日本表面科学会, 宮崎栄三, 岡田正和, 井上勝也, *表面科学の基礎と応用 : 日本表面科学会設立 10 周年記念*. (エヌ・ティー・エス, フジ・テクノシステム, 東京, 1991).
- [69] J. A. Thornton, *Influence of apparatus geometry and deposition conditions on the structure and topography of thick sputtered coatings*. J. Vac. Sci. Technol. **11**, 666 (1974).
- [70] J. A. Thornton, *The microstructure of sputter-deposited coatings*. J. Vac. Sci. Technol. A **4**, 3059 (1986).
- [71] D.J. Carswell, *Separation of thorium and uranium nitrates by anion exchange*. J. Inorg. Nucl. Chem. **3**, 384 (1957).
- [72] O. Alhassanieh, A. Abdul-Hadi, M. Ghafar, and A. Aba, *Separation of Th, U, Pa, Ra and Ac from natural uranium and thorium series*. Appl. Radiat. Isotop. **51**, 493 (1999).
- [73] G. Bortels and P. Collaers, *Analytical function for fitting peaks in alpha-particle spectra from Si detectors*. Int. J. Radiat. Applicat. Instrum. A **38**, 831 (1987).
- [74] M. Newville, R. Otten, A. Nelson, T. Stensitzki, A. Ingargiola, D. Allan, A. Fox, F. Carter, and M. Rawlik, *Lmfit: Non-linear least-squares minimization and curve-fitting for python*. Zenodo (2025).
- [75] G. Carter and J. S. Colligon, *Ion bombardment of solids*. (Heinemann Educational, London, 1968), p. 323.