博士論文

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

(Development of an Atomic Beam Source of Francium-221 for its Permanent Electric Dipole Moment Search)

佐藤　幹

Table of Contents

List of Figures v

List of Tables vii

1 序論 1
- 1.1 素粒子の永久電気双極子能率と CP 対称性の破れ 1
- 1.2 量子多体系における EDM 6
- 1.3 EDM 測定原理と先行研究 9
  - 1.3.1 JILA/LBNL グループ 11
  - 1.3.2 TRIUMF グループ 13
  - 1.3.3 CNS グループ 13
- 1.4 本研究の目標 16

2 冷却フランシウムの生成原理 17
- 2.1 Fr 線源と分子電着法 18
- 2.2 Fr 原子線源の原理 20
  - 2.2.1 原子の中性化 20
  - 2.2.2 アルカリ金属原子の表面中性化・脱離反応 21
  - 2.2.3 電着ターゲット上における Y 薄膜の作成法 22
- 2.3 光と原子の相互作用；レーザー冷却とトラップ 25
  - 2.3.1 ドップラー冷却 25
  - 2.3.2 磁気光学トラップ 26

3 レーザー冷却 Fr 源の開発 29
- 3.1 Ac の精製分離 30

3.2 電着実験 35
3.2.1 LN レジンでの精製 35
3.2.2 電着実験 35
3.3 Fr 実験装置 38
3.3.1 実験環境 38
3.3.2 実験装置 39
3.4 磁気光学トラップ (MOT) セットアップ 44
3.4.1 アンチヘルムホルツコイル 44
3.4.2 MOT セル 46
3.4.3 OTS コーティング 47
3.4.4 OTS コーティングのパッシベーション 49
3.4.5 MOT 蛍光観測系 51

4 Fr 原子線源の性能評価 53
4.1 スパッタリング実験 53
4.1.1 Y 板表面のクリーニング 53
4.1.2 Ac を電着させた基板へのスパッタリング条件 53
4.1.3 スパッタ前後の SSD 信号の比較 56
4.2 Fr 原子線源の評価 56
4.2.1 加熱時の SSD 信号の比較 57
4.2.2 加熱による引き出し効率の評価 62
4.2.3 中性化効率 63

5 MOT 実験の結果と議論 67
5.1 MOT 実験 67
5.1.1 ^{87}Rb を用いた模擬実験 67
5.1.2 Fr の MOT 実験におけるパラメータ 71
5.2 観測可能な原子数の見積もり 71
5.3 MOT 可能な原子数の評価 76

6 結論と今後の展望 79
6.1 Fr 原子線源の開発とその性能 79
6.2 今後の展望 80
6.2.1 MOT 効率の向上 80

6.2.2 観測可能な原子数の改善 80
6.2.3 Y 膜の表面状態 80
6.2.4 電着効率の改善 81

Bibliography 87

List of Figures

1.1 EDM の概念図 2
1.2 EDM と T 対称性の破れ 2
1.3 W ボゾンの EDM を発現させる最低次のダイアグラム 3
1.4 d クォークの EDM に寄与するダイアグラム 5
1.5 原子・分子の EDM に寄与する CP 対称性の破れの効果を模式的に表す図 6
1.6 電子 EDM の上限値更新の歴史 10
1.7 オーブン型の Fr 原子線源 11
1.8 JILA/NBNL グループの MOT セットアップ 12
1.9 TRIUMF グループの MOT セットアップ 13
1.10 理研仁科センターでの^{210}Fr 実験のセットアップ 14

2.1 Ac の崩壊系列 18
2.2 分子電着法の図 19
2.3 Ac 線源のアイディアの概念図 21
2.4 Fr が金属表面から脱離する際の中性化確率とイオン化確率 23
2.5 MOT の原理 27
2.6 Rb と Fr の遷準位 28

3.1 レーザー冷却 Fr 源の開発に向けたフローチャート 30
3.2 ^{229}Th の崩壊系列 30
3.3 Th と Ra,Ac の分離実験 33
3.4 DGA Resin のセットアップ 34
3.5 10 MBq Th の精製分離実験の写真 34
3.6 Ac 電着実験図 36
3.7 レーザー実験室から光ファイバー敷設の概観図 38

3.8 Fr 装置写真 40
3.9 Fr 装置の中身概念図 41
3.10 アルミナプレートの写真 42
3.11 SSD に金箔を張り付けた写真 43
3.12 膜厚計の写真 43
3.13 MOT セルと実装写真 46
3.14 OTS のガラス表面における振る舞い 47
3.15 OTS 単層膜、多層膜における付着した Rb の AFM 画像 48
3.16 OTS コートしたパイレックス製フラスコとしていない同じ製品 50
3.17 MOT 蛍光観測系の概略図 51

4.1 スパッタリングの様子 55
4.2 スパッタ時間ごとの SSD の信号 57
4.3 加熱を繰り返した際の SSD カウント数 58
4.4 領域 (VII) の SSD カウント数 59
4.5 Y 板に電圧を印加した場合としていない場合における Fr 原子線の振る舞いの違い 63
4.6 中性化効率評価実験における SSD のカウント数 64

5.1 Rb アンプルの取り付け図 68
5.2 RbMOT の CMOS カメラ画像 69
5.3 MOT チャンバーの断面図 73
5.4 CMOS で観測した時のシグナル値と時間 74
5.5 CMOS のシグナル値と時間にフィッティングしたグラフ 75
5.6 実験中の真空度のグラフ 78

List of Tables

1.1 アルカリ金属原子及びTl の電子 EDM に対する増幅率 8
1.2 JILA/NBNL グループ実験の各過程における Fr 原子の効率 12
1.3 TRIUMF グループ実験の各過程における Fr 原子の効率 14

2.1 Fr の第一イオン化ポテンシャルと金属の仕事関数 22
2.2 Y スパッタ収量 24

3.1 電着パラメータ 36
3.2 電着実験の結果と効率 37
3.3 作成したコイルのパラメータ 45
3.4 先行研究グループにおける Fr の MOT 数 47
3.5 CMOS カメラのスペック 51

4.1 Y_2O_3 スパッタリングパラメータ 54
4.2 Y スパッタリングパラメータ 1 54
4.3 Y スパッタリングパラメータ 2 54
4.4 SSD 周りの立体角 59
4.5 加熱に関するパラメータとその時の Fr 原子線の性能 61
4.6 中性化効率評価実験に関するパラメータと中性化効率 65

5.1 RbMOT 実験の典型的パラメータ 68
5.2 RbMOT 実験におけるスパッタリングの典型的パラメータ 70
5.3 RbMOT 実験の典型的パラメータ 71
5.4 MOT パラメータの比較 78

6.1 本研究で開発した Fr 原子線源の性能 79

Chapter 1

序論

素粒子の標準模型 (SM) は計り知れない実験的労力と、その結果に基づく理論的な考察の集積によって構築された理論であり、これまで様々な現象の説明に成功を収めてきた。しかしながら暗黒物質の存在やニュートリノ質量の起源、素粒子の階層性の問題を始め、SM では説明できない数多くの現象は現代物理学の喫緊の課題となっており、より根源的な理解に向けて、SM を超えた枠組み (Beyond Standard Model;BSM) を追求していく必要がある。[1]

その未解決の課題の中に、物質優勢宇宙の起源がある。宇宙初期に物質と反物質が対生成によって同じ数だけ生成したという仮定に基づくと、現在の宇宙には反物質の数に比べて物質の数が圧倒的に多く存在している。この起源を巡っては、C (Charge Conjugation; 荷電共役変換) 対称性、P (Parity; 空間反転) 対称性、T (Time Reversal; 時間反転) 対称性を含む基本的対称性が関わっており、特に C、P 変換を同時に施した CP 対称性の破れは「サハロフの 3 条件」の中で挙げられているように [2]、この物質優勢宇宙の起源の一つと考えられている。

1.1 素粒子の永久電気双極子能率と CP 対称性の破れ

物質・反物質対称性（CP 対称性）を破る観測量として、素粒子の永久電気双極子能率（EDM）が考えられる。EDM は、Fig1.1に示すように、大きさの等しい正負の電荷が異なる位置に存在する状態を示す物理量である。この EDM は Fig1.2に示すように、時間反転対称性を破っており、C,P,T 変換を同時に施しても物理法則が変化しないという CPT 定理をふまえると、CP 対称性を破る物理量となる。先に述べたように、宇宙創成の歴史の中で、CP 対称性が破れ反物質が消失した痕跡をとどめる物理

量として、EDM は常に注視されている。

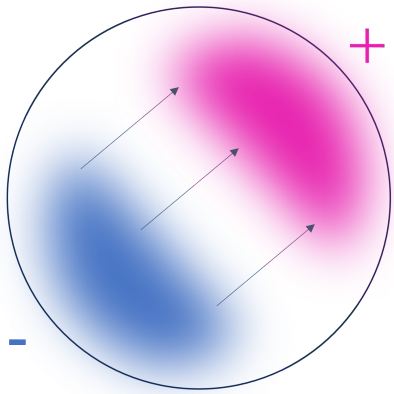


Fig 1.1: 電荷の偏りを持つ素粒子が、EDM を持つことを示す概念図

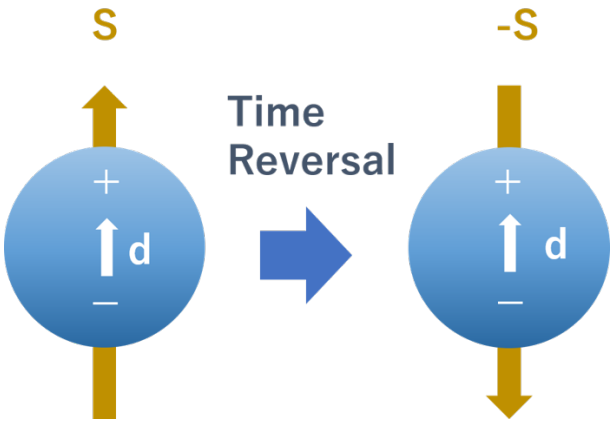


Fig 1.2: 有限の大きさの EDM を持つ粒子に時間反転を施すと、スピンの向きは反転するが EDM は反転しない

SM では、この CP 対称性の破れは小林・益川行列（KM matrix）に存在する CP を破る位相パラメータが起源となっており、CP を破る観測量はこの位相が含まれる Jarlskog の位相パラメータに比例する。

$$
\begin{aligned}
J_{\mathrm{CP}} &= \mathrm{Im}\,(V_{\mathrm{tb}}V_{\mathrm{td}}^{*}V_{\mathrm{cd}}V_{\mathrm{cb}}^{*}) \\
&= s_{12}s_{23}s_{13}c_{12}c_{23}c_{13}^{2}\sin\delta \\
&\sim 3\times 10^{-5}
\end{aligned}
\tag{1.1}
$$

ここで、V_{tb}，V_{tb^*},V_{cd},V_{cd^*} はそれぞれ CKM 行列の要素、δ は CP を破る位相である。したがって、この位相による SM からの EDM の寄与は強く抑えられ、現在の測定技術では検出不可能なほど、極端に小さい値が予測されている。

電子については弱い相互作用を通じて EDM が生じるため、W ボゾンの EDM を考慮する必要がある。この過程においては 1 次及び 2 次のループからの寄与は消滅し、3 次より高次のループからの寄与が EDM を生み出す。Fig 1.3に 3 次のダイアグラムを示す。

W ボゾンの EDM の大きさは以下のように計算されている。

$$d_W \sim J_{\mathrm{CP}} \left(\frac{1}{16\pi^2}\right)^2 \left(\frac{g^2}{8}\right) \frac{\alpha_s}{4\pi} \frac{e}{2m_W} \sim 8 \times 10^{-30} e \cdot \mathrm{cm} \tag{1.2}$$

これから 4 次のループまで考慮した際の電子 EDM の値は、その質量を m_e として、

$$d_e \sim \frac{g^2}{32\pi^2} \frac{m_e}{m_W}\, d_W \sim 8 \times 10^{-41} e \cdot \mathrm{cm} \tag{1.3}$$

と非常に小さな値になると予言されている。

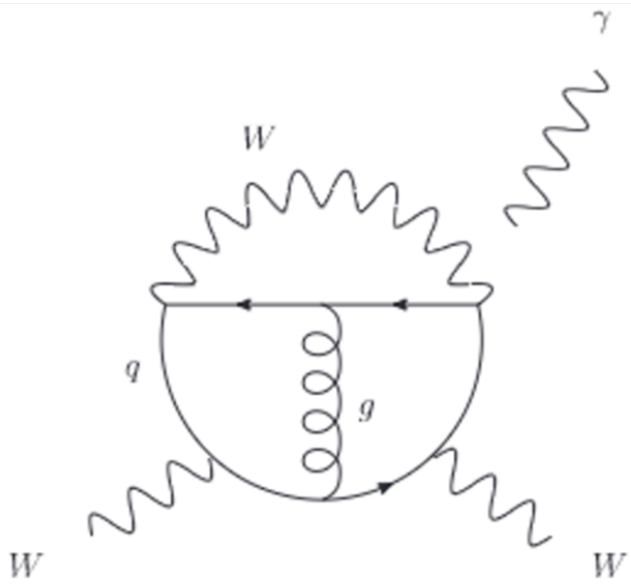


Fig 1.3: W ボゾンの EDM を発現させる最低次のダイアグラム。文献 [3] より引用。

BSM 粒子においてはより低次の相互作用によって CP 対称性の破れの効果が現れるため、より大きな d_{e} が発現する。

ある BSM 粒子から現れる d_{e} の大きさは

$$d_e \sim \frac{e\hbar}{2m_e c}\sin\phi_{\mathrm{CP}}\left(\frac{g^2}{2\pi}\right)^{n_l}\left(\frac{m_e}{m_X}\right)^2 \tag{1.4}$$

とかける [4]。ここで、ϕ_{CP} は CP 対称性を破る位相、g は無次元の結合定数、n_l はループの数、m_X は相互作用を媒介する粒子の質量を表す。この対応関係から、電子の EDM の探索は BSM 粒子の質量範囲の探索に繋がると考えることができる。最新の結果では、信頼度 90%で $d_e = 4.1 \times 10^{-30}$ e cm 以上の電子 EDM の存在は否定されており [5]、d_e に寄与する BSM 粒子が存在するとすれば、TeV を超える質量を持つことが示唆されている。このように、電子 EDM の探索は BSM 物理の探究において、高エネルギー衝突型加速器実験を補完する極低エネルギーの精密測定実験であると言える。

次にクォークの EDM の場合、d クォークの EDM に寄与するダイアグラムを Fig1.4に示す。このとき、d クォークの EDM d_{d} は以下の式で書ける。

$$d_{\mathrm{d}} \simeq e\frac{m_{\mathrm{d}} m_{\mathrm{c}}^2 \alpha_{\mathrm{s}} G_{\mathrm{F}}^2 J_{\mathrm{CP}}}{108\pi^5}\,\mathrm{In}^2\left(m_{\mathrm{b}}^2/m_{\mathrm{c}}^2\right)\mathrm{In}\left(M_{\mathrm{W}}^2/m_{\mathrm{b}}^2\right) \tag{1.5}$$

α_s は強い相互作用の結合定数、G_{F} は弱い相互作用の結合定数、m_{d}，m_{c}，m_{b}，m_{W} は d クォーク、c クォーク、b クォーク、W ボゾンの質量、e は素電荷である。J_{CP} は Jarlskog 位相と呼ばれ、下記の式で表される。

$$\begin{aligned} J_{\mathrm{CP}} &= \mathrm{Im}\left(V_{\mathrm{tb}}V_{\mathrm{td}}^* V_{\mathrm{cd}} V_{\mathrm{cb}}^*\right) \\ &= s_{12}s_{23}s_{13}c_{12}c_{23}c_{13}^2\sin\delta \\ &\sim 3\times 10^{-5} \end{aligned} \tag{1.6}$$

ここで、V_{tb}，V_{tb^*},V_{cd},V_{cd^*} はそれぞれ CKM 行列の要素、δ は CP を破る位相である。

d クォークにおいては 1 次のループと 2 次のループから EDM への寄与は存在せず、3 次のループにおいてじめて 0 でない寄与が生じる。これから、d クォークの EDM の値は $d_{\mathrm{d}} \sim 10^{-34} e\cdot\mathrm{cm}$ と計算されている [3,6]。

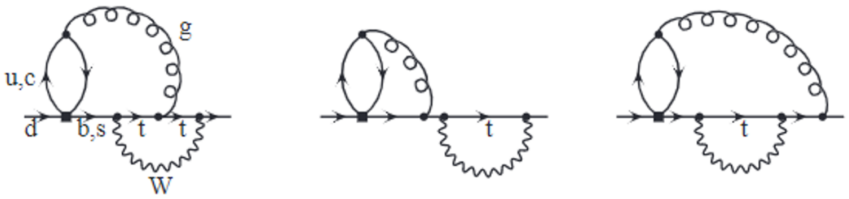


Fig 1.4: SM における d クォークの EDM に寄与するダイアグラム。u,d,s,c,b,t はそれぞれ三世代のクォークであり、g はグルーオン，W は W ボゾンを示す。文献 [3] より引用。

1.2 量子多体系における EDM

本研究では、素粒子の EDM をその粒子を構成要素に持つ量子多体系を用いて測定することを目指す。ミュオンや軽イオンのように、蓄積リング中で 1 軸方向にトラップすることで、EDM を測定することが進められているものの、電荷を持っている素粒子の場合、EDM を測定するための外場をかけることで、外場中を運動してしまうため、EDM によるエネルギー変位を高精度に測定することが難しい。他方、原子・分子は素粒子の束縛状態であるとともに、有限の大きさ、そして形を持つことが特徴である。そのため、後述するように軌道電子の相対論効果や原子核の変形効果により、素粒子の EDM やシッフモーメントが大きく増幅される。このことが、量子多体系を用いる優位性となっている。

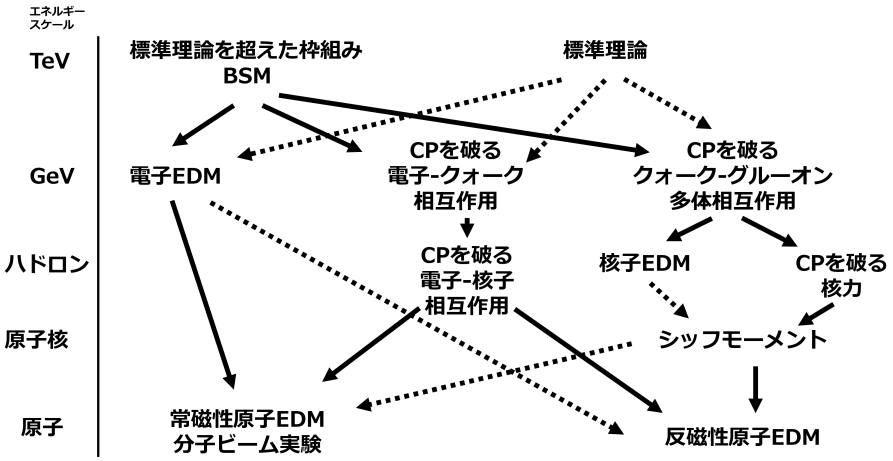


Fig 1.5: 原子・分子の EDM に寄与する CP 対称性の破れの効果を模式的に表す図。破線は一般的に弱い寄与を示す。

Fig 1.5に、常磁性原子あるいは反磁性原子の EDM に、どのような CP 対称性を破る効果が寄与するのかを模式的に示す。原子系は、電子と原子核（核子）から構成されているが、一般に、不対電子を最外殻にもつ常磁性原子系では電子 EDM に感度が高く、閉殻原子である反磁性原子系では原子核に生じる EDM に感度が高くなる。これらの多体系では、構成粒子同士の相互作用に生じる CP 対称性の破れも発現することとなり、アルカリ金属原子や極性分子のような常磁性系においては、構成する電子の EDM だけでなく、CP 対称性を破る電子-核子相互作用である $C_N^{S-PS(0)}$ も EDM に

寄与する。そのため、測定値 $d_{A/M}$ は以下のように考える必要がある。

$$d_{A/M} = Rd_e + SC_N^{S-PS(0)} \tag{1.7}$$

ここで,R,S はそれぞれ測定値に現れる d_e,$C_N^{S-PS(0)}$ の増幅率を示す。後述するように、重いアルカリ金属原子においては $R \gg 1$ であることが知られている。

先に進む前に、原子 EDM に関するシッフ遮蔽について述べておく。1963 年にシッフは電子や原子核が EDM を持っていたとしても、原子の EDM はゼロになることを証明した [7]。これは以下のように理解することができる。すなわち、原子に外部電場 $\mathbf{E}$ を印加すると、原子核の周りの電子雲は外部電場によって中心位置をシフトさせ、その結果、原子内部で外部電場を打ち消すような電場 $\mathbf{E}_{\rm int}$ が作られる。このため、原子内の原子核や電子が感じる正味の電場 $\mathbf{E}_{\rm eff}$ は

$$\mathbf{E}_{\rm eff} = \mathbf{E} + \mathbf{E}_{\rm int} = \mathbf{0} \tag{1.8}$$

となってしまい、EDM を持っていたとしてもエネルギー差はゼロとなり観測されない。

しかし、このシッフの定理の証明にはいくつかの重要な前提条件がある。その一つは、電子の運動は非相対論的であるということである。このことは水素原子のような軽い原子においては成立しているとみなしても良いが、重い原子については成り立たない。Bohr の原子模型においては、原子番号 Z の原子における主量子数 n の最外殻電子の速度 v_e は $v_e = (Z\alpha/n)c$ とかける。重いアルカリ金属原子の場合はこの速度が光速の数%になり、相対論の枠組みで議論する必要がある [8]。相対論的に、EDM と電場の相互作用を考えると、

$$\mathcal{H}_{\rm EDM;rel} = -d_e\gamma_0\mathbf{\Sigma}\cdot \mathrm{E}_{\rm eff} \tag{1.9}$$

ここで

$$\gamma_0 = \begin{pmatrix} \boldsymbol{I} & 0 \\ 0 & -\boldsymbol{I} \end{pmatrix}, \mathbf{\Sigma} = \begin{pmatrix} \boldsymbol{\sigma} & 0 \\ 0 & \boldsymbol{\sigma} \end{pmatrix} \tag{1.10}$$

であり、$\boldsymbol{\sigma}$ はパウリ行列を表す。

ここで、原子番号 Z のアルカリ金属原子における、基底状態 $|\psi_n\rangle = \left|nS_{1/2}\right\rangle$ からのエネルギーシフトを計算することができる。

$$
\begin{aligned}
\langle\psi_n|\mathcal{H}_{\mathrm{EDM;rel}}|\psi_n\rangle &= 2d_e\sum_{m\neq n}\frac{\langle\psi_n|\sum_l e\boldsymbol{r}_l|\psi_m\rangle\langle\psi_m|\sum_k(\gamma_{0,k}-1)\boldsymbol{\Sigma}_k\nabla_k(Z\alpha/r)|\psi_n\rangle}{E_n-E_m}\\
&\sim -2d_e\frac{\langle nS_{1/2}|er|nP_{1/2}\rangle}{E_{nP_{1/2}}-E_{nS_{1/2}}}\left\langle nP_{1/2}\left|(\gamma_0-1)\,Z\alpha\frac{\boldsymbol{\Sigma r}}{r^3}\right|nS_{1/2}\right\rangle\\
&\sim -d_e\frac{ea_B\left\langle E_{\mathrm{eff}}\beta_e^2\right\rangle}{E_{nP_{1/2}}-E_{nS_{1/2}}}\sim-\left(10Z^3\alpha^2\right)E
\end{aligned}
\tag{1.11}
$$

これは EDM によるエネルギーシフトであるため、Rd_eE に対応する。電子 EDM の増幅率 R は原子番号の 3 乗に比例して大きくなることが分かる。相対論的クラスラー理論など、第一原理計算による EDM の増幅度の計算結果を Table1.1に示す。増幅率においては、電子 EDM の増幅度は重いアルカリ金属原子であるほど有利であり、最大の原子番号であるFr は最大の増幅率を持つと考えられる。

原子	$^{39}_{19}$K	$^{85}_{37}$Rb	$^{133}_{55}$Cs	$^{205}_{81}$Tl	$^{210}_{87}$Fr
増幅率	2.42 [9]	25.74 [10]	120.53 [10]	585 [11]	799 [12]

Table 1.1: アルカリ金属原子及びTl の電子 EDM に対する増幅率

また、シッフの定理のもう一つの前提条件として、原子核が大きさを持たない点粒子と見なすという条件がある。原子核が持つ有限体積を考慮した場合、

- 原子核 EDM と外部電場との相互作用の寄与
- 原子 EDM のうち原子核 EDM と電子との相互作用によって生じる項と外部電場との相互作用の寄与

の和は、以下のようにゼロにならない [13]

$$
\begin{aligned}
&\Delta E_2\left(\bar{g}_{\pi NN},q_N\right)+\Delta E_3\left(\bar{g}_{\pi NN},q_N,q_e\right)\\
&=\sum_m\frac{1}{E^{(e)}_{\mathrm{g.s.}}-E^{(e)}_m}\\
&\quad\times\left\langle\psi^{(e)}_{\mathrm{g.s.}}\left|-\boldsymbol{d}_{\mathrm{atom}}\cdot\boldsymbol{E}_{\mathrm{ext}}\right|\psi^{(e)}_m\right\rangle\left\langle\psi^{(e)}_m\left|V_{\text{NSM-1}}\right|\psi^{(e)}_{\mathrm{g.s.}}\right\rangle\\
&\quad+\ \mathrm{c.c.}
\end{aligned}
\tag{1.12}
$$

このように、原子核 EDM が周りの電子の遮蔽の結果生じる寄与がシッフモーメントと呼ばれる量である。

これとは別に、核子 EDM が電子に遮蔽された結果生じる寄与もあり、原子核 EDM から来るシッフモーメントとは独立な寄与であるが、電子との相互作用が全く同じ形になるために同じくシッフモーメントと呼ばれている。そのため観測されるシッフモーメントの量は、この両者の和となり、理論計算と照らし合わせて分離する必要がある。シッフモーメントも CP を破る観測量として電子 EDM と同じように重要な探索対象となっている。

Fr をはじめとする第 7 周期の重元素は中性子数の増加とともに、原子核における８重極変形の効果が大きくなる結果、シッフモーメントが増幅されることが知られている。その増幅率は 8 重極変形度が大きいほど高いことが示されているが、^{221}Fr は平均場近似による原子核の変形度の計算結果から、非常に大きい８重極変形を有していることが示唆されている [14]。従って、実験的に観測される原子系の EDM は、電子 EDM からの寄与、CP を破る相互作用からの寄与、そしてシッフモーメントからの寄与の３つの成分の和となる。

シッフモーメントの寄与が原子 EDM に現れない Fr 同位体の EDM を測定した場合、それらを ^{221}Fr の EDM 測定の結果と比較することでシッフモーメントの寄与による項を抽出することができる。

1.3 EDM 測定原理と先行研究

電子 EDM の測定は半世紀以上行われており、現在に至るまでその上限値は更新され続けている。Fig1.6に電子 EDM 測定実験による上限値の更新の歴史を示す。原子系を用いた測定による電子 EDM の測定は 1960 年代から更新され続けており、ここ 20 年ほどは、より内部電圧が大きいために高い増幅率を持つ分子系を用いた測定によって上限値の更新がされている。

EDM の大きさが d_A である原子に対して、外部磁場 $\mathbf{B}$ と外部電場 $\mathbf{E}$ を印加した場合、そのエネルギーシフト $\mathcal{H}_{d_A}$ は以下のように書ける。

$$\mathcal{H}_{d_A} = -\left(\boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{B} + \mathbf{d}_A\cdot\mathbf{E}\right) \tag{1.13}$$

ここで $\boldsymbol{\mu}$ は原子の磁気モーメントである。これに対して印加磁場に並行・反並行に電場を印加した際のエネルギー差は

$$\Delta\mathcal{H}_{d_A} = 2\mathbf{d}_A\cdot\mathbf{E} \tag{1.14}$$

とかけ、これをラムゼー分光法によって測定することで d_A が求まる。

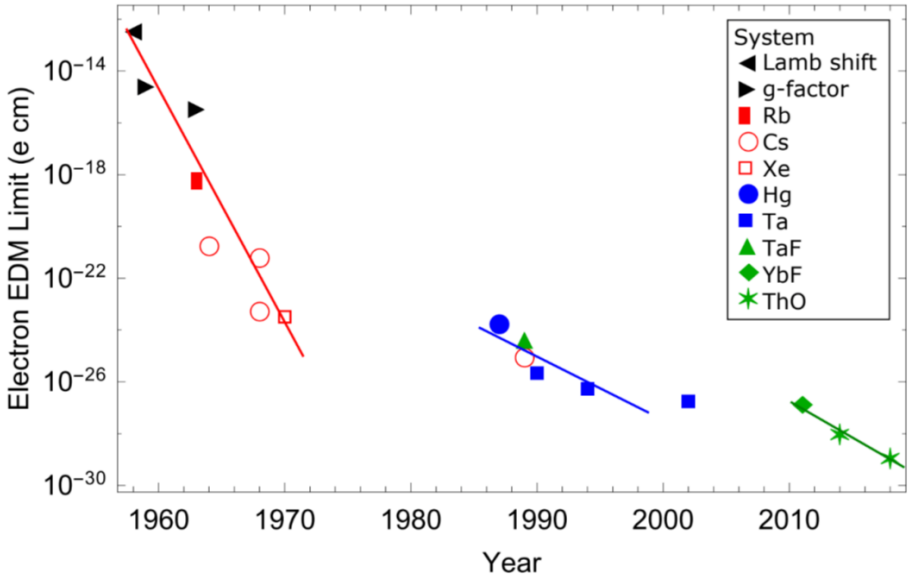


Fig 1.6: 電子 EDM の上限値更新の歴史。60-70 年代に行われた比較的軽い原子種による結果を赤線、80-90 年頃の重い原子種による結果を青線、分子系を用いた結果を緑線で示す。文献 [15] より引用。

この測定精度は実験パラメータに下記のように依存する [8]。

$$\delta d_e \sim \frac{h}{RE\tau\sqrt{nN}} \tag{1.15}$$

ここで、h はプランク定数、R は増幅率、E は印加電圧、τ は一回の測定時間、n は測定回数、N は一回に測定する原子数を表す。

この式から、EDM の増幅度が高い原子系、あるいは有効内部電場が高い分子系を測定対象にするとともに、外場との相互作用時間を長くすることが、測定感度向上の鍵となっている。原子ビーム、原子封入のセル、トラップ原子等、原子の運動を制御する方法によって、この相互作用時間を制御することが可能である。

Fr は原子系で最大の増幅率 $R = 799 \pm 24$ を持つことに加えて [12]、アルカリ金属原子の原子構造をもつために従来のレーザー技術を利用することができる。光格子を用いた場合、一回の測定における相互作用時間 τ は 1 s 以上となり、原子や分子ビームを用いた非捕獲系の場合は 1 ms 程度であることと比べると [11]、3 桁以上向上させることができる。

次に、Fr を用いた先行実験について述べる。

1.3.1 JILA/LBNL グループ

JILA/LBNL グループは、基本対称性の破れの探索を行うことを目的に、^{225}Ac の α 崩壊によって生じた^{221}Fr を高効率に磁気光学トラップへ供給するための原子線源を開発した [16]。Fig 1.7に開発されたオーブン型原子線源の図を示す。このオーブン内には白金ワイヤに電着された Ac があり、そこから放出される Fr は壁面で停止する。壁面にはタンタル製のワイヤーが巻きつけてあり、これに直流電流を流すことでオーブン全体を最大 950℃ まで温めることができるようになっている。壁面は白金製であり、Fr が熱脱離する際にはイオン化することが期待される。イオン化された Fr は底面中心部に固定され負の電圧が印加されたイットリウム (Y) 製電極に吸い付けられるが、ここから熱脱離する際 Fr は中性化される。この中性化、イオン化のプロセスについては次章にて詳しく述べることとして、脱離された Fr の一部はオーブン上部の穴から放出され、中性のフランシウム原子線となる。壁面についてしまった Fr はまた、最初のプロセスにもどり、再利用されることになる。

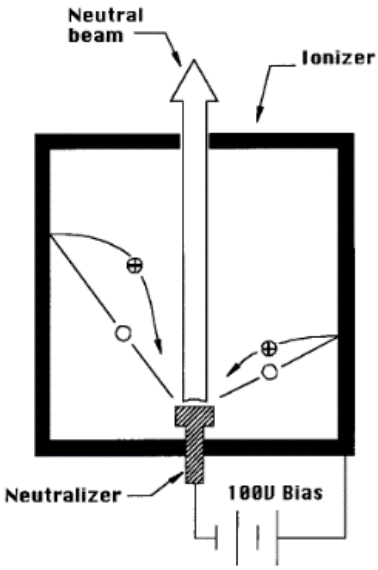


Fig 1.7: オーブン型の Fr 原子線源。文献 [17] より引用。

原子線源は Fig1.8に示す MOT 装置の左下に設置され、Fr を MOT 領域に送り込む。MOT 装置はガラス製のセルで構成されており、その内壁にはアルカリ金属原子吸着防止のためのコーティングが施されている。Table1.2に各過程における^{221}Fr 原子の効率をまとめる。表中の (3) は装置の幾何的な配置で決まる効率であり、(4) の MOT

効率が非常に高い一方で、(2) では^{225}Ac から生じた Fr の内 2%しか引き出せていないことが分かる。

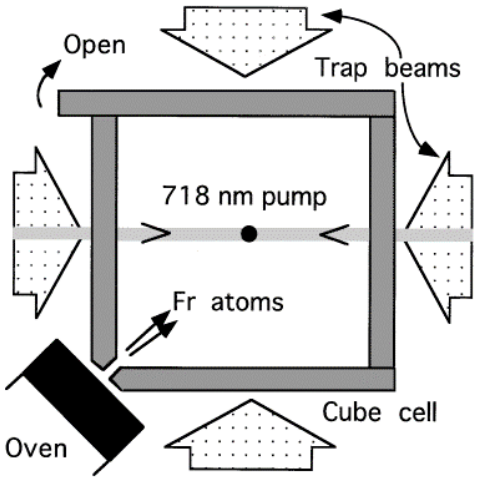


Fig 1.8: JILA/NBNL グループの MOT セットアップ。文献 [16] より引用。

	Stage	^{221}Fr Flux $\left(s^{-1}\right)$	Efficiency
(1)	Produced in oven	3.3×10^5	
(2)	Exit oven	7×10^3	2% of (1)
(3)	Enter cell	2.3×10^3	33% of (2)
(4)	Collected into trap	1.3×10^3	56% of (3)

Table 1.2: JILA/NBNL グループ実験の各過程における Fr 原子の効率。文献 [16] より引用

1.3.2 TRIUMF グループ

TRIUMF グループでは、JILA/LNBL グループと同様に、Ac の α 崩壊によって生成した Fr を用いて基本対称性の破れの探索を目指している。まず、高エネルギーの p ビームを U ターゲットに照射することで、核破砕反応を促し、Ac ビームを生成する。Ac ビームをタンタル製ターゲットに照射することで、Ac をターゲット表面近傍に停止させる。この際、タンタル製ターゲットの前に Y 製のターゲットを置いておき、α 崩壊によって放出された Fr を Y ターゲット表面に付着させる。Fr を Y ターゲットに十分量付着させた後、Y ターゲットを Fig1.9のように MOT セル直下まで移動させて加熱することで、ターゲット表面から脱離した Fr 原子を MOT セル中心まで輸送し、捕獲する。

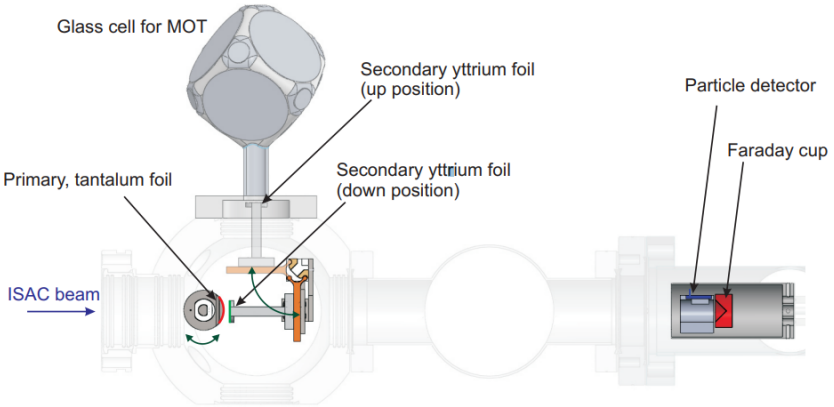


Fig 1.9: TRIUMF グループの MOT セットアップ。文献 [18] より引用。

このときの各過程における効率を Table1.3に示す。この手法では、まずタンタルターゲットから Y 製セカンダリーターゲットへの輸送効率が約 30%であり、ターゲットからの引き出し効率以降は、MOT 効率との切り分けが難しいものの、さらに 10%の効率になっている可能性もあることが示されている。

1.3.3 CNS グループ

^{221}Fr の同位体である ^{210}Fr は、Au ターゲットに ^{18}O^{6+} あるいは ^{18}O^{5+} イオンビームを照射し、以下の式に示すような核融合反応を促すことで生成される。

$$^{18}\mathrm{O} + {}^{197}\mathrm{Au} \rightarrow {}^{210}\mathrm{Fr} + 5n \tag{1.16}$$

Loss factor overall source	^{221}Fr amount	Explanation of loss factor
	$5.20 \cdot 10^8$	^{221}Fr amount in the primary foil
3	$1.78 \cdot 10^8$	Francium entering the secondary foil
2000	$8.9 \cdot 10^4$	Online trapping efficiency of ^{209}Fr
5	$1.78 \cdot 10^4$	^{221}Fr trapping efficiency as compared to ^{209}Fr
$2-5$		Implantation depth
$2-5$		Larger ^{221}Fr spot size
$1-10$		Possible damage to yttrium foil
	$2.3 \cdot 10^3$	Trapped francium

Table 1.3: TRIUMF グループ実験の各過程における Fr 原子の効率。文献 [18] より引用

このような生成方法による^{210}Fr を用いた精密分光あるいは EDM 探索の実験も数多く報告されており [10, 16, 19–24]、理化学研究所においても、東京大学原子核科学研究センター (CNS) のグループによる^{210}Fr の生成が行われている [25]。CNS グループは、上記の核融合反応を用いて生成した、電子 EDM にのみ感度が高い^{210}Fr を用いて電子 EDM の高精度測定を目指している。

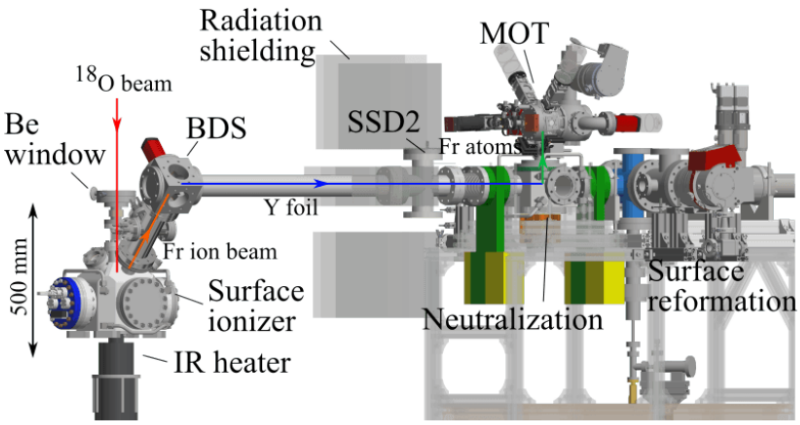


Fig 1.10: 理研仁科センターでの^{210}Fr 実験のセットアップ。文献 [25] より引用。

Fig1.10に仁科記念棟地下 E7 実験室における、^{210}Fr の生成、中性化、MOT を行う実験のセットアップを示す。図の左端の表面電離イオン源チャンバーには Au ターゲ

ットが固定してあり、AVF サイクロトロンから供給される $^{18}O^{6+}$ イオンビームを照射し、式**??**の核融合反応で^{210}Fr を Au ターゲット内にて生成する。

Au を融点付近まで加熱することで^{210}Fr を$^{210}Fr^{+}$ として取り出し、酸素ビームに対して斜め 45 度方向に設置された Y 箔に照射する。Y 箔は可動式で、MOT チャンバー直下まで移動し、そこで加熱されることで脱離させるとともに中性化が行われる。脱離した^{210}Fr 原子は、アルカリ原子吸着防止コーティングが内壁に施されたキャピラリーを通過することで、MOT セルへと輸送される。また、Y 箔を用いたFr^{+} の中性化・脱離反応を最適化するために、Y 箔表面の清浄化を行う工夫や、Fr 生成〜MOT による Fr 捕獲までの効率を分析するために、装置の各所にシリコン半導体検出器やファラデーカップが導入されている。

この実験において引き出した^{210}Fr のビームカレントとして

$$f_{210\mathrm{Fr}} = \left(6.7 \pm 0.1\ (\mathrm{stat.})\ ^{+0.8}_{-0.6}\ (\mathrm{syst.})\ \right) \times 10^{6}\ \mathrm{s}^{-1}$$

が報告されている [25]。

1.4 本研究の目標

EDM の測定感度は式1.15にあるように、測定対象となる量子多体系における基本粒子 EDM の増幅度 R と、外場との相互作用時間 τ に依存する。本研究では、この EDM 増幅度が高くなる重元素^{221}Fr を対象として、特に、相互作用時間も長くすることで、高い測定感度向上を実現するレーザー冷却 Fr 源の開発を進めた。先行研究では、セル中に蓄積した原子を用いた実験や、原子・分子ビームを用いた実験が行われてきた。しかし、セル中の蓄積原子はセル内壁との衝突により、スピン減偏極の効果が著しく、偏極を保持した長い相互作用時間を実現するのが困難であった。また、原子・分子ビームでは、オーブンで生成されたビームを、EDM 測定用の電極に通過させて、電場・磁場と相互作用させるものの、その設置場所や長距離に渡る磁場一様性の実現精度などに起因する境界条件により、秒オーダーの相互作用時間を実現するのは困難である。

そこで、本研究グループは、生成した^{221}Fr を、レーザー冷却・トラップすることで、相互作用時間を秒オーダーまで引き延ばし、高精度で EDM を探索することを目指す。本研究では、Fr EDM の測定精度に影響を及ぼす Fr 原子捕獲数を増強するために、高効率で Fr 原子を捕獲領域に供給するための Fr 原子線源の開発を行った。EDM 上限値更新を目指すためには、先行研究の例から明らかなように^{221}Fr の中性化効率および捕獲領域への導入効率を意識して原子線源を開発することが肝要である。原子線源と捕獲領域間の距離を短くすることにより、Fr 原子の導入効率が高まるため、原子線源はよりコンパクトな設計であることが望ましい。

本研究では、上記の条件を満たすような新たな原子線源を提案し、実際に開発した原子線源の評価を行った。

Chapter 2

冷却フランシウムの生成原理

高い EDM 測定感度を実現するためには、EDM 増幅度が高い Fr を測定対象とし、かつ外場との相互作用時間を長くするために、大強度の Fr 原子集団を真空中に捕獲した「冷却 Fr 集団」を生成する。放射性同位元素である Fr は人工的に生成する必要があり、また一定の寿命で崩壊してしまうために、短時間のうちに生成された Fr を減速しポテンシャル中に閉じ込める必要がある。

Fr を生成する方法として、重イオンビームを用いた核融合反応や、核破砕反応等、加速器ビームを用いた方法が考えられるが、この方法の場合、加速器を運転しながらオンラインで冷却・トラップを行う必要があるため、加速器ビームタイムに依存した実験手法となる。一方、本研究で提案する方法は、α 崩壊により娘核として ^{221}Fr を生成する ^{225}Ac の高強度線源を開発するものである。^{221}Fr の親核である ^{225}Ac の半減期は約 10 日間と Fr と比較して長いため、十分な量の ^{225}Ac を線源として確保することができれば、加速器のビームタイムにとらわれずに精密測定実験が可能となる。そこで、本研究では、^{225}Ac の高強度・高純度線源と磁気光学トラップ装置を組み合わせたレーザー冷却 Fr 源の開発を行った。^{225}Ac は、α 線を多段階に放出して崩壊していく α 放出核種であるが、この α 線の飛程はちょうど細胞のサイズ程度のスケールとなっている。このため、^{225}Ac をがん細胞領域までデリバリーして、^{225}Ac から崩壊して放出される複数の α 線で悪性の細胞を死滅させる放射線治療（内包治療）が、世界的に注目されるようになってきた。このため、近年国際的に Ac の供給が厳しくなっており、本研究においても、着手した当初は日本アイソトープ協会から購入した Ac を用いて高純度線源の製作を行ったが、ライフサイエンス利用の需要が高まり、2 年前からアイソトープ協会からの供給が停止された。

そこで、本研究では、自前で、Th から Ac を分離・精製し、Ac の高純度線源の実

現を目指した。また、非密封線源による実験となるため、後述するレーザー冷却・トラップ装置等を、ホットラボの中に設置されたドラフト内に全て配置する必要がある。これらの条件を満たすコンパクトなレーザー冷却 Fr 源を実現するために、2.1 では、Fr 線源の製作原理、2.2 では、トラップ装置に導入するための Fr 原子源の生成原理、2.3 ではレーザー冷却・トラップの原理を説明する。

2.1 Fr 線源と分子電着法

^{225}Ac の崩壊系列を Fig 2.1に示す。上に述べたように本研究では、^{221}Fr の親核である ^{225}Ac を生成源として用いる。非密封の RI を使用するにあたって、安全上わずかな流出も許されない。そこで、^{225}Ac は以下に述べる分子電着法を用いて基板に強く固着させた。これにより、電着後の基板からは容易に Ac が剝がれたり飛ばされたりすることはなく、思わぬ RI の流出を防ぐことができる。

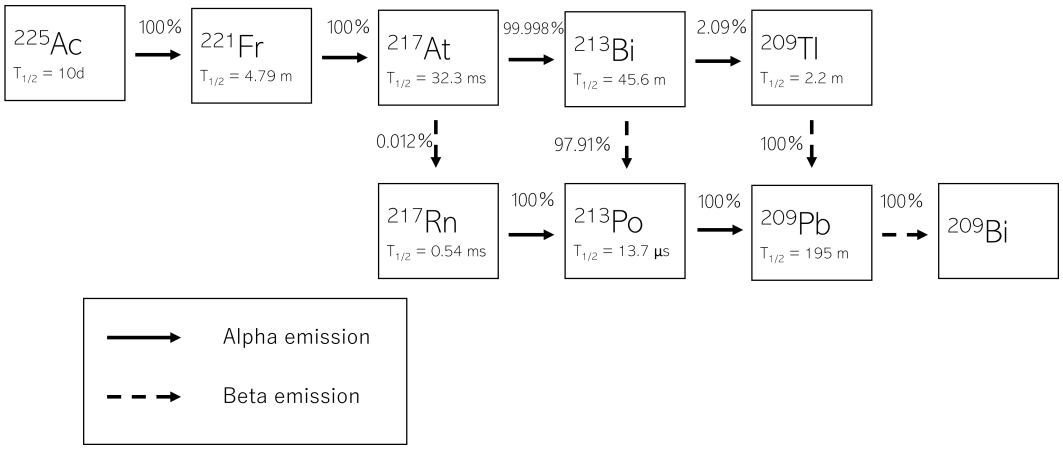


Fig 2.1: ^{225}Ac の崩壊系列

分子電着法

放射化学の分野において、金属表面上にごく微量の放射性物質を固着させる手法として、分子電着法 (Moleculer Plating Method) がよく知られている [26]。この手法では、目的の物質を溶かしたごく少量の溶液を有機溶媒と混ぜたものに電圧 (50-2000 V) を一定時間印加し続けることで、極板に均一な層として固着させることができるが、詳細な原理についてはまだ判明していない。溶媒中でわずかに極性を帯びた目的の化学物質が溶媒内の電場を感じて陰極側に強く押し付けられていると考えられてい

る。そのため電着率は溶液の組成や不純物に大きく影響を受ける。溶液に対して多量の有機溶媒を用いることで電流密度が抑えられ、結果として均一な層の生成を阻害する水素の発生が起こらないと共に、陽イオンが還元される反応も抑制される [27]。

分子電着法において 99%近い電着率も報告されており [28]、電着率は下記のパラメータに強く依存することが分かっている。

- 目的物質の物質量
- 有機溶媒と目的物質の溶液の比率
- 温度
- 電圧、電流および加圧時間

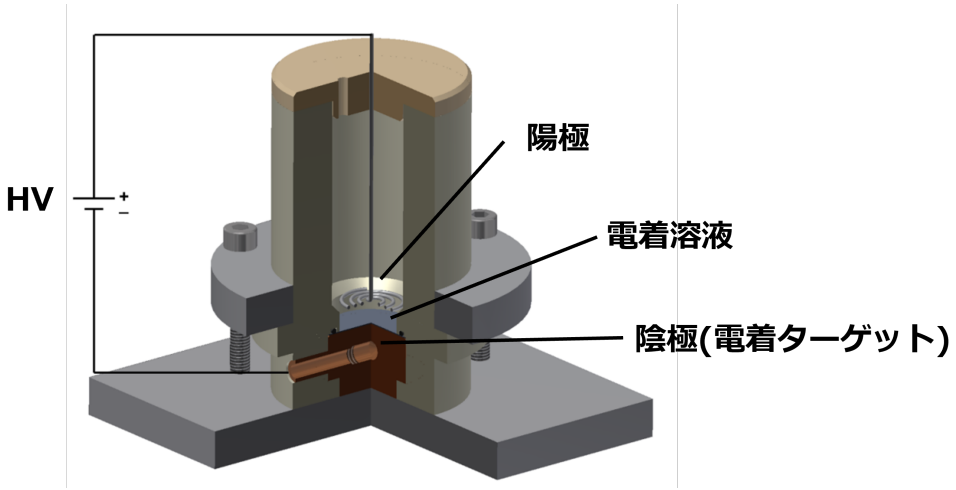


Fig 2.2: 分子電着法の模式図
[27] より引用

2.2 Fr 原子線源の原理

この節では Fr 原子線源の原理について述べる。^{225}Ac から α 崩壊して出てくる ^{221}Fr は約 100 keV のエネルギーを持っており、全ての ^{221}Fr が中性原子であるとは限らない。磁気光学トラップにおいて捕獲対象となる Fr 原子の温度は約 100 μK なので、減速、および中性化を行う必要がある。

2.2.1 原子の中性化

アルカリ金属原子を中性化する方法として、イオンビームを飛行中に中性化するインフライトの方式と、イオンビームを一旦標的に照射・停止させ表面脱離時における電子再結合によって中性原子を得る二つの方法がある。

インフライト方式の場合、同種、または異種のアルカリ金属原子蒸気中にビームを通過させ下記のような電荷交換反応を起こす。

$$\mathrm{X}^+ + \mathrm{Y} \rightarrow \mathrm{X} + \mathrm{Y}^+$$

Fr イオンビームの場合、Rb 蒸気との荷電交換反応による中性化の例があり [29]、そのほかフィラメントを加熱することで発生させる電子雲を通過させることで以下のような中性化を行う方法も存在する。

$$\mathrm{X}^+ + e^- \rightarrow \mathrm{X} + \gamma$$

いずれの方法も高い中性化効率を実現できる一方で、荷電交換断面積が大きく高効率で中性化できる原子線のエネルギーは数 keV 程度であり、そのためには Ac の崩壊によって生じる Fr の減速、イオン化、ビーム化が必要である。また、下流に設置する磁気光学トラップで効率よく捕獲できる中性原子のエネルギーと比べても、インフライト方式で中性化を行う際のビームエネルギーは桁外れに高く、中性化後に何らかの減速装置を追加するなどの工夫が必要となる。これらの理由により、インフライト方式は本実験には適さない。

表面中性化方式は、高エネルギーの Fr を金属標的に打ちこみ、一旦停止させ、標的を加熱することで、表面から熱的に脱離した中性原子を利用する方式である。ここで、標的内部で停止した Fr を熱拡散で標的表面まで輸送し、熱的に脱離させる上で、標的を加熱する必要がある。高効率で中性化反応を促進するためには、仕事関数が Fr の第一イオン化ポテンシャルより小さい金属を標的として選定する必要がある。米国ニューヨーク州立大学の実験グループ (SUSY) [30] やイタリア Ferrara 大学での実験

グループ (LNL) [31]、カナダ TRIUMF の実験グループ [18] においてはこの表面中性化の方式を採用している。

本研究ではこの表面中性化方式をさらに改良し、Fr 中性原子線源の開発を行った。従来の方法では、標的に Fr をある一定時間照射した後標的を MOT 領域の近くまで移動させて加熱し、MOT を行っていたため、MOT 領域への Fr 原子の供給は断続的にしか行えなかった。また、標的から Fr を中性原子として脱離させるための中性化・脱離効率は、標的表面の状態に強く依存するため、表面状態を制御する工夫を施さない限り、これらの効率は再現性が得られない。そこで、分子電着法によって電着ターゲット上に固着した Ac 膜の上に、仕事関数が低い Y の膜を真空蒸着することで、清浄な Y 薄膜を形成する手法を提案する。この際、Ac が α 崩壊することで生じた大部分の^{221}Fr が、Y 薄膜内で停止するように、薄膜の厚みを制御する。これにより、電着ターゲットを加熱し続けている限り、高効率で中性化した Fr 原子を MOT へ連続的に供給することができる。また、1.3.1 節で紹介した原子線源と比べて、コンパクトな設計となる。以上をまとめると、今回新たに提案する原子線源を開発することにより、Fr 原子を高効率かつ連続的に MOT 領域に供給することが可能になる。原子線源装置の概念図を Fig2.3に示す。本研究ではこのアイディアに基づいて線源の開発、評価を行った。

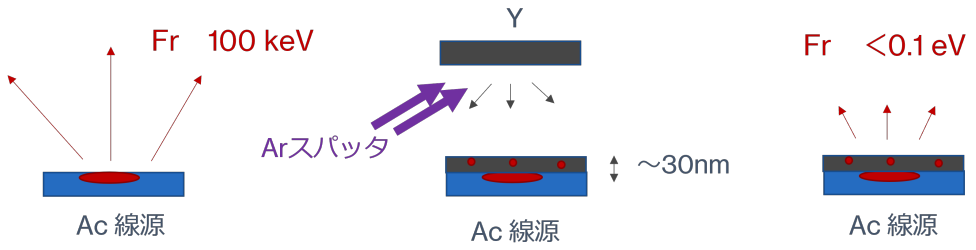


Fig 2.3: 新規開発した線源のアイディア
左の Ac 線源は分子電着法によって線源作成した直後の状態を示す。これの上に Y の膜をスパッタによって製膜する。この線源を加熱することで、低エネルギーの原子線源が実現することが期待される。

2.2.2 アルカリ金属原子の表面中性化・脱離反応

次に、金属表面におけるアルカリ金属原子の中性化・脱離反応について述べる。物質表面におけるアルカリ金属原子の滞在時間 τ は下のような式で表される [32]

$$\tau = \tau_0 \exp\left(E_{\mathrm{ads}} / k_B T\right) \tag{2.1}$$

ここで E_{ads} はアルカリ金属原子と物質表面間の吸着エネルギーで、τ_0 は表面近傍における原子の振動周期であり、これは典型的には 10^{-13}〜10^{-12} s であることが知られている。

金属表面にアルカリ金属原子が接近すると、原子と金属表面の波動関数が重なり複合したポテンシャルが形成され、最外殻の電子は両者で移動ができるような状況が生まれる。原子が表面から脱離する際、確率 P_N で中性原子として放出される。P_N は Saha-Langmuir の式として知られる以下の式で記述される。

$$P_N = \frac{1}{1 + (g_+/g_0)\exp\left[(\phi - I)/k_B T\right]} \tag{2.2}$$

ここで I は原子から最外殻電子を一つ取り除き、1 価の陽イオンにするために必要なエネルギーである第一イオン化エネルギー、ϕ は金属表面から電子を一つ取り出すのに必要な最小のエネルギーに対応する仕事関数である。g_+/g_0 はイオンと基底状態の原子との統計的比重であり、アルカリ金属原子の場合はその値は 1/2 であることが知られている。Table2.1に示す Fr の第一イオン化ポテンシャルをもとに、1200K における中性化の確率、および $P_i = 1 - P_N$ で定義されるイオン化の確率 P_i を Fig2.4に示す。この図にみるように、Fr の第一イオン化エネルギーより小さい仕事関数を持つような金属、例えば Y の場合、金属表面の Fr 原子はイオンとしてよりも中性原子として存在するものが多くなることが分かる。これとは反対に、仕事関数が Fr の第一イオン化ポテンシャルより大きい金属、例えば Pt の場合、イオン化した Fr 原子が金属表面に多く存在することが分かる。したがって、金属として Y を用いる場合は、脱離の際 Fr 原子は中性として脱離する状況が支配的になる。

Table 2.1: Fr の第一イオン化ポテンシャルと金属の仕事関数

Fr の第一イオン化ポテンシャル	4.07 eV
Y の仕事関数	3.1 eV
Pt の仕事関数	5.8 eV

2.2.3 電着ターゲット上における Y 薄膜の作成法

前節で述べた中性化の原理によって、Y を用いることで Fr の中性化を行う。ここで、Ac の上に Y の薄膜を作るために必要不可欠な技術である、スパッタリングにつ

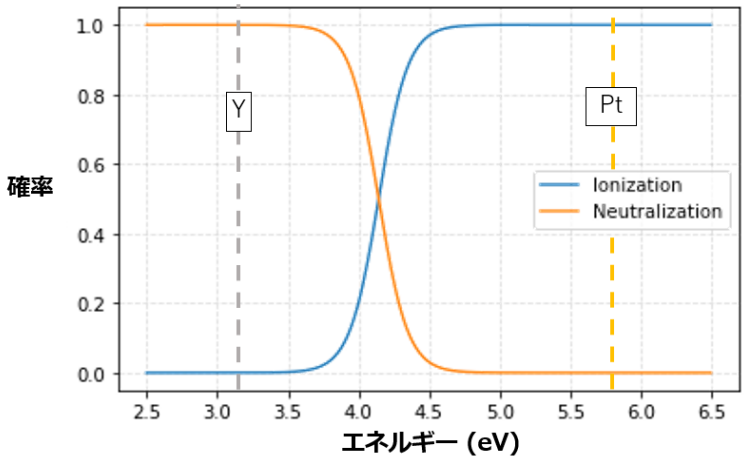


Fig 2.4: Fr が金属表面から脱離する際の中性化確率 (橙色) とイオン化確率 (水色)

いて述べる。

数十 eV 以上の運動エネルギーをもつイオンを固体試料に入射させたとき、入射イオンは試料を構成する原子と弾性衝突、あるいは試料内の電子と非弾性衝突を繰り返し、やがて試料内で停止するか、それ以前に試料の表面において背面散乱される。

この過程において、試料を構成する原子が入射イオンより運動量をもらい受け、その運動エネルギーが結晶格子によるポテンシャル障壁 (典型的には金属では 5〜25 eV) より十分大きければ、その原子は格子点からはじき出されることになる。はじき出された原子は直ちに近くの原子と順次衝突し、カスケードを生成する。この衝突カスケードが試料表面に達した時に、表面原子が試料背面方向に得る速度による運動エネルギーが表面の結合エネルギーを超えていると、その原子は試料表面から飛び出してくる。これがスパッタリングと呼ばれる現象である。

入射イオン 1 個当たりに対する、スパッタされる試料原子の平均個数はスパッタ収量と呼ばれ、典型的には 10^{-1}〜10 atoms/ion 程度である。

スパッタリングは試料表面の原子をたたき出すために、試料表面の清浄化に使われる他、スパッタ試料の直下に別の試料を置くことで、たたき出された原子をその試料に堆積させることができる。このスパッタでの成膜技術は産業界をはじめ、広く応用されている。

Table 2.2: 500 eV で貴ガスイオンを Y にスパッタした際のスパッタ収量 [33]

	He	Ne	Ar	Kr	Xe
Y	0.05	0.5	0.7	0.7	0.5

2.3 光と原子の相互作用；レーザー冷却とトラップ

この節では、中性原子のレーザー冷却する手法としてドップラー冷却と、トラップする手法として磁気光学トラップ (Magneto Optical Trap;MOT) の原理について述べる。

2.3.1 ドップラー冷却

原子を 2 準位系とみなしたとき速度 $\vec{v}$ をもつ原子が、強度 I のレーザー光を受けたときに受ける散乱力 F は

$$F = \hbar k \frac{\Gamma}{2} \frac{s_0}{1 + s_0 + [2(\delta - k \cdot v)/\Gamma]^2} \tag{2.3}$$

ここで、$s_0 = I/I_0$ はレーザー強度と原子の飽和強度 I_0 との比で定義される飽和パラメータ、Γ は自然幅、$\delta = \omega - \omega_0$ は原子の共鳴周波数 ω_0 とレーザー周波数 ω との差で定義される離調、k はレーザー光の波数ベクトル、v は原子の速度をそれぞれ示す。

原子の進行方向に対して両側から原子に対してレーザー光を入れることを考える。レーザー光の周波数は原子の共鳴周波数から負に離調されているとき、式2.3よりドップラー効果を考えると原子の進行方向から入射される光をより多く吸収することが分かる。原子が光を吸収すると、光子一つあたり運動量 $\hbar k$ を受け取り、励起するが、やがて脱励起しその際に同じ運動量 $\hbar k$ を放出する。脱励起の際に放出される光子の方向はランダムであるため、このプロセスが繰り返されると放出による運動量の変化量の平均はゼロとなり、原子は進行方向と逆側にレーザー光から運動量を受け取り続けることになる。この原理によって、運動する原子を減速させる冷却法をドップラー冷却という。

$v \ll \Gamma/k$ のときは Lamb-Dicke 領域と呼ばれ、式2.3を kv/Γ で展開し、一次までの項をとると

$$\begin{aligned} F(v) &\simeq -\alpha_{\mathrm{dop}}\, v \\ \alpha_{\mathrm{dop}} &= 2\hbar k^2 \frac{(2s_0)\,(2|\delta|/\Gamma)}{(1 + (2|\delta|/\Gamma)^2)^2} \end{aligned} \tag{2.4}$$

となり、Lamb-Dicke 領域においては、運動する原子は速度に比例する抵抗力を感じることが分かる。これはまさに糖蜜 (molasses) の中で物体が運動している様子を連想させるため、光モラセス (optical molasses) あるいは光糖蜜と呼ばれる。

ドップラー冷却によってどこまでも原子の冷却ができるかというとそうではない。原理の説明で触れたように、光子を吸収した原子は必ず脱励起し、その際光子をラン

ダムな方向に放出する。この際原子がうけとる反跳のエネルギーが原理的な冷却限界となる。したがって冷却と加熱の平衡状態にある原子のドップラー冷却限界温度 T_D は

$$k_{\mathrm{B}}T_{\mathrm{D}} = \frac{\hbar\Gamma}{2} \tag{2.5}$$

となる。ただし k_{B} はボルツマン定数である。

2.3.2 磁気光学トラップ

磁気光学トラップの原理について述べる。MOT は不均一磁場を印加した際の Zeeman 効果と、レーザー光の偏光における選択則を上手く利用し、散乱力によって原子を捕獲する手法である。

前節に引き続き 2 準位系のモデルにおいて、角運動量 $J_g = 0$ を持つ基底準位のエネルギー E_g を、角運動量 $J_e = 1$ を持つ励起準位のエネルギーを E_e とする。今、位置に依存する磁場

$$B(x) = bx \tag{2.6}$$

を印加することを考える。b は位置に対する比例定数とする。Fig2.5はこの時の基底準位のエネルギー、励起準位のエネルギーの空間依存性を示す。ここで、励起準位はゼロでない角運動量を持つため、磁気副準位 m_J に応じて Zeeman 効果によってエネルギーシフトが生じている。この原子に対して図中の x 軸正の方向から σ^- 偏光、負の方向から σ^+ 偏光のレーザー光を入れる。ここで、偏光の方向は x 軸の向きを基準に考えることにする。レーザー光の周波数は共鳴周波数から励起準位の自然幅程度負に離調しておく。原子が磁場の中心から正の方向に向かって運動しているとき、Zeeman 効果によって分裂する $m_J = -1$ 準位のシフトは大きくなっていき、やがてそのシフトの大きさがレーザーの離調の大きさと等しくなる。このとき原子は選択則から進行方向から来る σ^- 偏光のレーザー光を最もよく吸収し、運動量を受け取ることになる。x 軸負の向きに運動する場合は、同様に $m_J = 1$ 準位のシフトが大きくなっていき、離調の大きさと等しくなる時に、やはり進行方向から逆向きに来る σ^+ 偏光のレーザー光を最もよく吸収し運動量を受け取る。このように、磁場中心を運動する原子はどちらに進んだとしても磁場中心に引き戻される力を受けることになる。このように Zeeman 効果と選択則を巧みに利用して、原子に円偏光を区別させることによって、冷却原子を捕獲する技術を磁気光学トラップと呼ぶ。

MOT において、原子に働く散乱力は

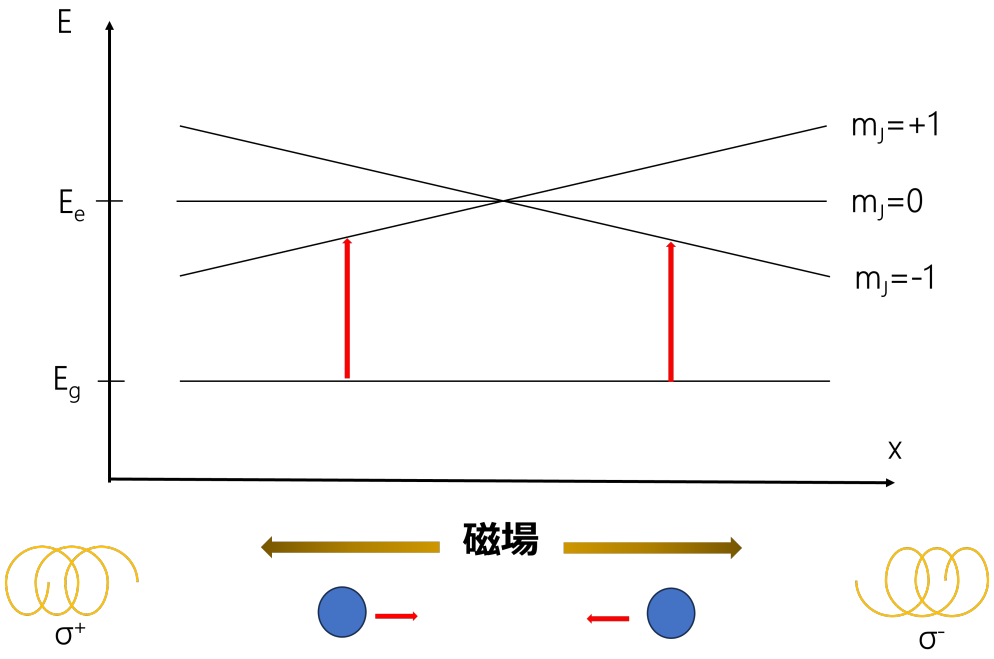


Fig 2.5: MOT の原理

$$F(v,x) = \hbar k \frac{\Gamma}{2}\frac{I}{I_0}\left\{\frac{1}{1+s_0+[2(\delta-kv+\beta x)/\Gamma]^2} - \frac{1}{1+s_0+[2(\delta+kv-\beta x)/\Gamma]^2}\right\} \tag{2.7}$$

$$\begin{aligned} \beta &= \frac{\mu' b}{\hbar} \\ \mu' &= (g_e m_e - g_g m_g)\,\mu_B \end{aligned} \tag{2.8}$$

ここで μ' は有効磁気モーメントで、基底準位と励起準位との間の Zeeman 効果によるシフトの差を表している。ここで、$kv, \beta x \ll \delta$ のもとで2.7を 1 次まで展開すると

$$F(v,x) \simeq -\alpha_{\mathrm{MOT}} v - \kappa x \tag{2.9}$$

ここで

$$\begin{aligned} \alpha_{\mathrm{MOT}} &= \frac{8\hbar k^2 \delta s_0}{\Gamma\left(1+s_0+(2\delta/\Gamma)^2\right)^2} \\ \kappa &= \frac{\beta}{k}\alpha_{\mathrm{MOT}} \end{aligned} \tag{2.10}$$

とした。これより、原子の運動方程式は以下のように書ける。

$$m\ddot{x} = -\alpha_{\mathrm{MOT}} v - \kappa x \tag{2.11}$$

この式から明らかなように、原子には復元力が働いている。

また、磁場を式2.6のような空間分布にするために、アンチヘルムホルツコイルが用いられる。原子を 3 次元空間中に捕獲するために、レーザー光は適切な円偏光にして、3 軸から入射する。この 3 軸からの光中心と磁場中心が重なり合うところに、ドップラー冷却限界温度まで冷却された原子集団がトラップされることになる。この際、捕獲対象以外の原子は、バックグラウンドガスとして冷却された原子集団と衝突し MOT を妨げる要因となるため、原子を秒単位で捕獲するためには、MOT 装置内を 10^{-7}Pa 以下に保つことが望ましい。

例として、^{87}Rb および ^{221}Fr の準位図を fig2.6に示す。アルカリ金属原子の MOT において、$\mathrm{nS}_{1/2}F = I + 1/2$ から $\mathrm{nP}_{3/2}F' = I + 3/2$ の遷移を冷却、トラップに用いる。ここで I は原子の核スピンであり、この遷移に相当する周波数のレーザー光をトラップ光と呼ぶ。この遷移における励起、脱励起の過程で、2 準位を外れて $\mathrm{nS}_{1/2}F = I - 1/2$ に状態が移ってしまうことがある。そこで、再び $\mathrm{nS}_{1/2}F = I + 1/2$ に状態を戻すためのリポンプ光を入れることでこの問題を回避して、安定した MOT が実現される。

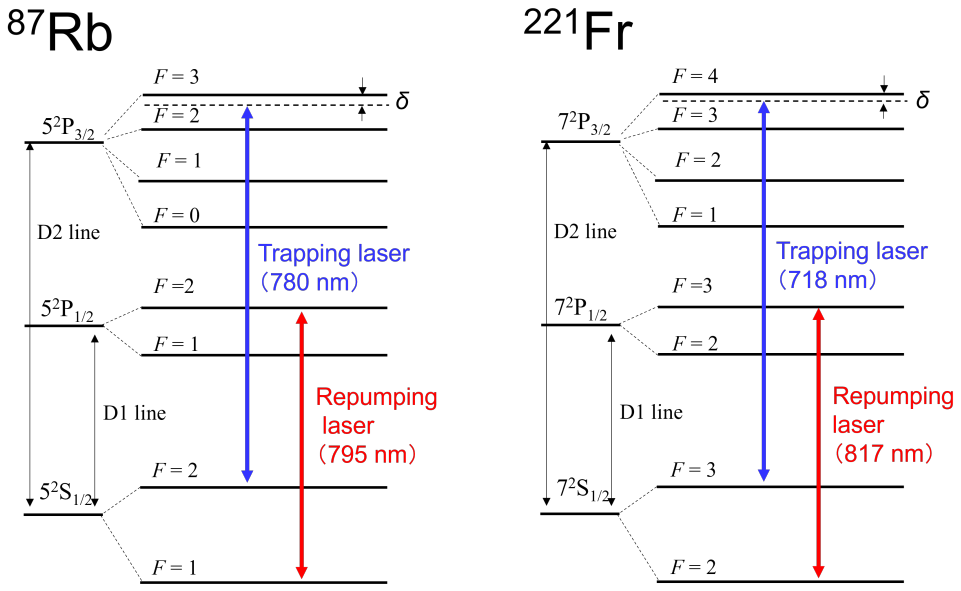


Fig 2.6: Rb と Fr の遷準位

Chapter 3

レーザー冷却 Fr 源の開発

本研究では、EDM を測定するために、電子 EDM と原子核 EDM の双方の増幅度が高い^{221}Fr を対象にしている。^{221}Fr は、放射性同位元素であり、人工的に生成する必要があるが、10 日間の寿命をもつ^{225}Ac を^{221}Fr の生成源として、その α 崩壊から娘核として^{221}Fr を生成することが可能である（Fig2.1に崩壊様式を示す)。特に、^{225}Ac は、10 日間の半減期をもつために、EDM 測定を行う場所から離れた施設で製造し、放射性同位元素として移送して利用することができるので、多彩な生成方法が考えられる。加速器ビームによる生成方法として、陽子ビームおよび光子ビームを用いた反応：

$$^{226}\mathrm{Ra}(p, 2n) \rightarrow {}^{225}\mathrm{Ac}$$

$$^{226}\mathrm{Ra}(\gamma, n) \rightarrow {}^{225}\mathrm{Ra}(\beta\ \text{崩壊}) \rightarrow {}^{225}\mathrm{Ac}$$

による生成が考えられる。これらの生成では、高強度ビームが必要であるが、理研、原研、東北大・電子光科学研究センター等、国内の加速器施設で検討、製造が進められている。一方で、加速器からのビームによる核反応を行わず、現在保有している Th からの分離・精製を行い、化学処理により Ac を抽出する方法が考えられる。今回この化学処理による Ac 精製を行う方法を採用し、この Ac を用いて最終的にレーザー冷却 Fr 源を実現する手順を Fig3.1に示す。まず、Ac を分離・精製し（3.1 節)、電着により高純度 Ac 線源を作成する（3.2 節)。この Ac 線源の表面には、崩壊 Fr が停止する程度の厚さの Y 膜を形成する。この Ac 線源を格納するレーザー冷却・トラップ装置を備えたチェンバーに導入し（3.3 節)、線源を加熱することで放出される中性^{221}Fr 原子を磁気光学トラップで捕獲して、冷却 Fr 集団が実現する（3.4 節)。これらの装置は、α 放出核を非密封線源として取り扱う必要があることから、ホットラボの中に設

置されたドラフトの中に、すべての装置を配置する必要がある。本章では、これらの各構成要素の設計、開発、性能評価に関して述べる。

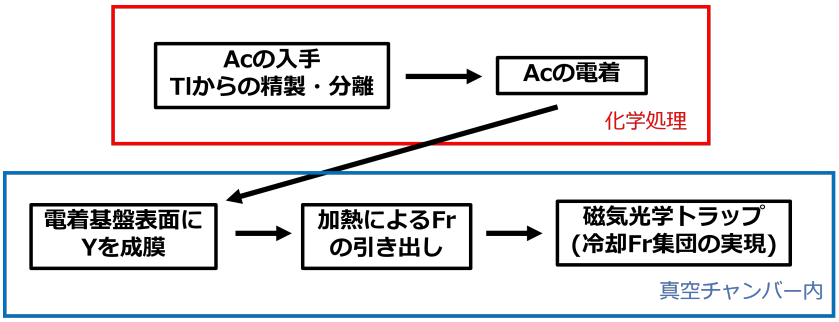


Fig 3.1: レーザー冷却 Fr 源の開発に向けたフローチャート

3.1 Ac の精製分離

本研究で使用するAc は東北大学金属材料科学研アルファ放射体実験室において、製造実験を行った。Ac は、Fig 3.2で示すような崩壊過程により、半減期が長い Th から、生成されるが、貴重な放射性同位体である Th を有効利用するために、確実に Th と Ac を分離・精製する必要がある。本節では、Ac の分離・精製実験に関して述べる。

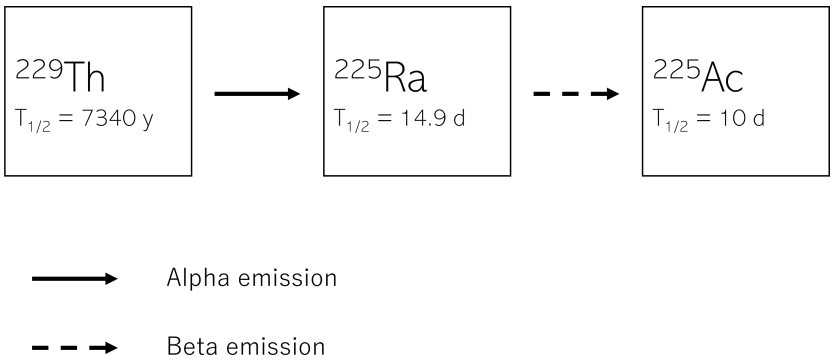


Fig 3.2: ^{229}Th の崩壊系列 ^{225}Ac 以降の崩壊については Fig 2.1を参照のこと

Th と Ac を分離するために、放射化学の分野で広く知られている樹脂・レジンを用いる。今回使うレジンは硝酸水溶液の濃度によって樹脂に吸着される原子種が異なる性質を持ち、異なる濃度の硝酸水溶液を適切に滴下することで狙いの原子種を分離することができる。実際にレジンを使用する際は、カラムと呼ばれる専用のプラスチック製の容器にレジンを詰めて、適切に固定したのちに溶液を注いで使う。

また、今回使用した Th は、線量が数 MBq のものと、約 10MBq のものと 2 種類あり、後者の Th は不純物が多く、Rn が多く放出されるため、精製分離の手法が異なる。まず前者の比較的不純物の少ない Th の分離手法について述べ、その後後者の Th の分離手法について述べる。

まず Th と Ra,Ac を分離するために BIO-RAD 製 AG 1-x8 Resin を樹脂体積 1 ml, 0.5 ml のカラムにそれぞれ詰めた。以降、樹脂体積 1 ml のカラムを 1st Column、樹脂体積 0.5 ml のカラムを 2nd Column と呼ぶ。カラムは開封直後は水溶液を通しにくいので、まずエタノールを流してから使うようにする。カラムはスタンドに固定し、それぞれに 8 M HNO_3 溶液を、樹脂体積の 4 倍量加えてコンディショニングを行った。

コンディショニングが終わったカラムは Fig 3.3のように、ドラフト内に 1st Column の直下に 2nd Column を連ねるように固定する。これにより、実験後に 2nd Column に Th があるかないか測定することで分離が成功したかどうかを判別することができる。分離は以下の手順で行った。

(i) Th の入ったバイアルに 8 M HNO_3 溶液 0.5 ml を加えてよく混ぜる。この溶液を 1st Column に加えて 2nd Column の下まで流れ落ちるのを待つ。これを 3 回繰り返す。このとき、なるべくカラムの内壁に溶液が付着しないように注意する。

(ii) 8 M HNO_3 溶液 0.5 ml を 1st Column に加えて、2nd Column の下まで流れ落ちるのを待つ。これを 3 回繰り返す。

(iii) この手順で 2cd Column から流れ落ちた溶液は、Ra,Ac fraction とラベルをつけて次の分離手順に移る。

(iv) Th を取り出すために、1st Column にのみ 2 M HNO_3 溶液を 5ml 滴下する。

この手順の後、Ge 半導体検出器を用いて 2nd Column に Th が残っていないか確認をする。ただし、Th の娘核が十分に崩壊していないと、少量の Th のピークは埋もれてしまい検出できないことに注意する。

次に Ra,Ac fraction 中の Ra と Ac を分離するために DGA Resin(Eichrom 製,DGA Resin B DBSR 18A) を用いる。DGA Resin は上から溶液を滴下しただけでは下から溶液が流出してこないので、Fig 3.4に示すように廃液ビーカーが入った容器に DGA Resin をセットし密封後、ポンプでゆっくりと中の空気を抜くことで気圧差を作り、Resin に溶液を浸透させる。この際バルブのつまみを調整することで、溶液の浸透するスピードをコントロールする。

DGA には以下の手順で溶液を滴下する。

(i) 0.05 M HNO_3 溶液を 10 ml 吸引させた後、純水を 10 ml 吸引させる。(コンディショニング)

(ii) 8 M HNO_3 溶液となっている Ra,Ac fraction に同量の純水を加えて約 4 M HNO_3 溶液にする。これを吸引させる。

(iii) 4 M HNO_3 溶液を 6 ml 吸引させる。これにより Ra のみレジンの下へ流出する。

(iv) Ac を取り出すために、0.05 M HNO_3 溶液を 10 ml 吸引させる。

次に線量が約 10MBq の Th における精製分離手法について述べる。用いるレジンの種類や手順は先の分離実験とほとんど同じであるが、線量が多い分レジンの量が増えた他、不純物由来の Rn が発生する都合上、Fig 3.5 のように実験装置を格納する容器は常に換気され、空気中の Rn を取り除くことができる構造になっている。

1st Column には 45 ml 分レジンを詰めて、2nd Column には 1 ml レジンを詰める。これを 2 セット分作り先の手順と同様にコンディショニングを行った上で、Th は半量ずつに分けて分離を行う。

(i) Th の入ったバイアルに 8 M HNO_3 溶液 1 ml を加えてよく混ぜる。それぞれの 1st Column に加えて 2nd Column の下まで流れ落ちるのを待つ。これを 3 回繰り返す。このとき、なるべくカラムの内壁に溶液が付着しないように注意する。

(ii) 8 M HNO_3 溶液 15 ml をそれぞれの 1st Column に加えて、2nd Column の下まで流れ落ちるのを待つ。これを 3 回繰り返す。

(iii) 8 M HNO_3 溶液 1.5 ml をそれぞれの 2nd Column に加えて、流れ落ちるのを待つ。これを 2 回繰り返す。

(iv) この手順で 2cd Column から流れ落ちた溶液は、Ra,Ac fraction とラベルをつけて次の分離手順に移る。

(v) Th を取り出すために、1st Column にのみ 2 M HNO_3 溶液を 150 ml 滴下する。この廃液に ^{229}Th が入ることになる。

(vi) H_2O 45ml ずつ 1st Column に加える。

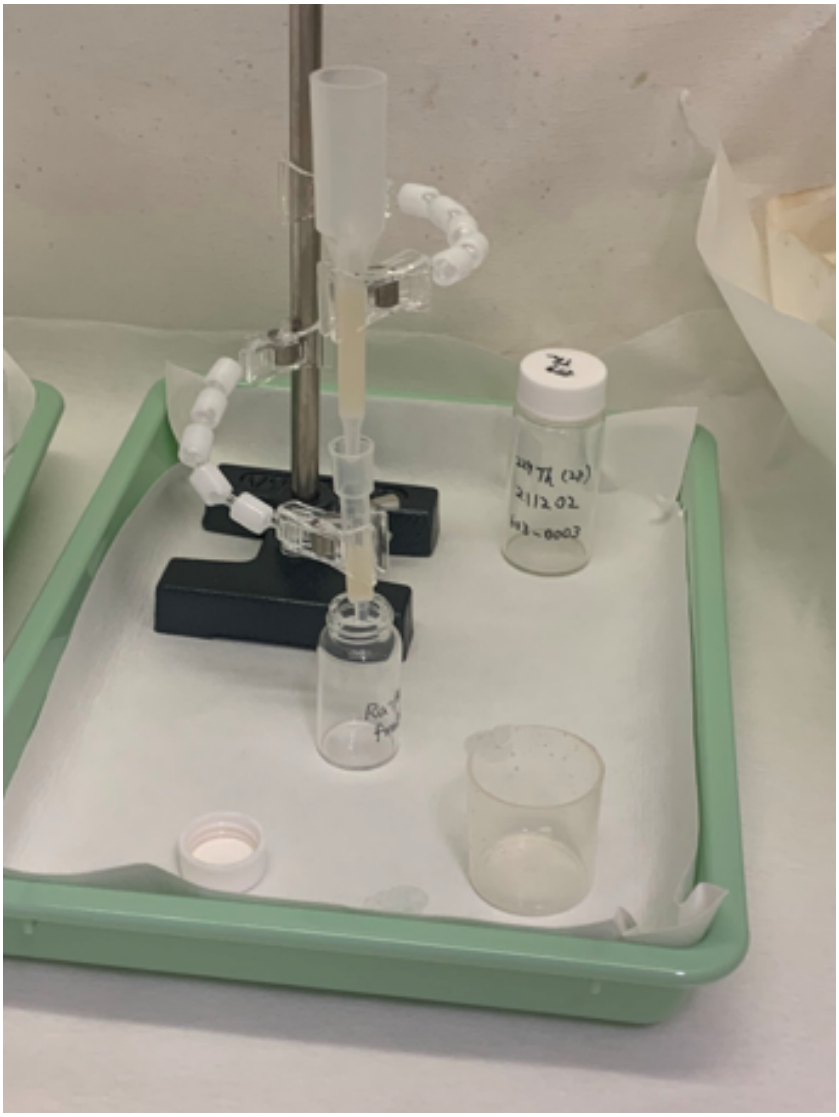


Fig 3.3: Th と Ra,Ac の分離実験の写真　1st Column と 2nd Column を連ねている

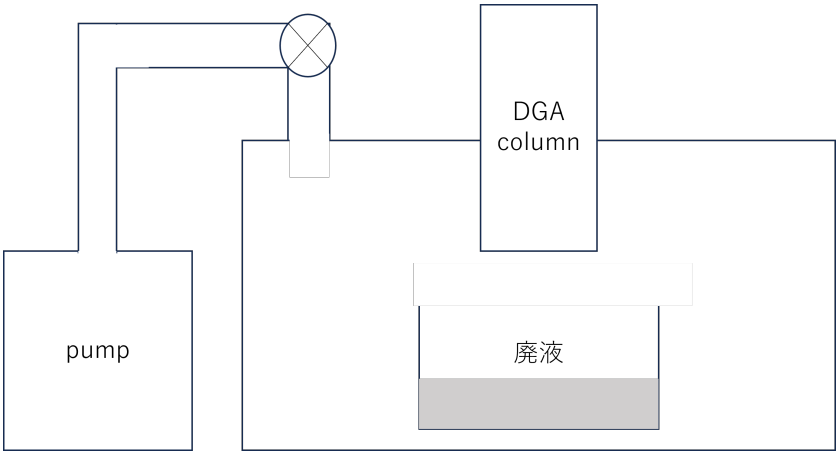


Fig 3.4: DGA Resin のセットアップ

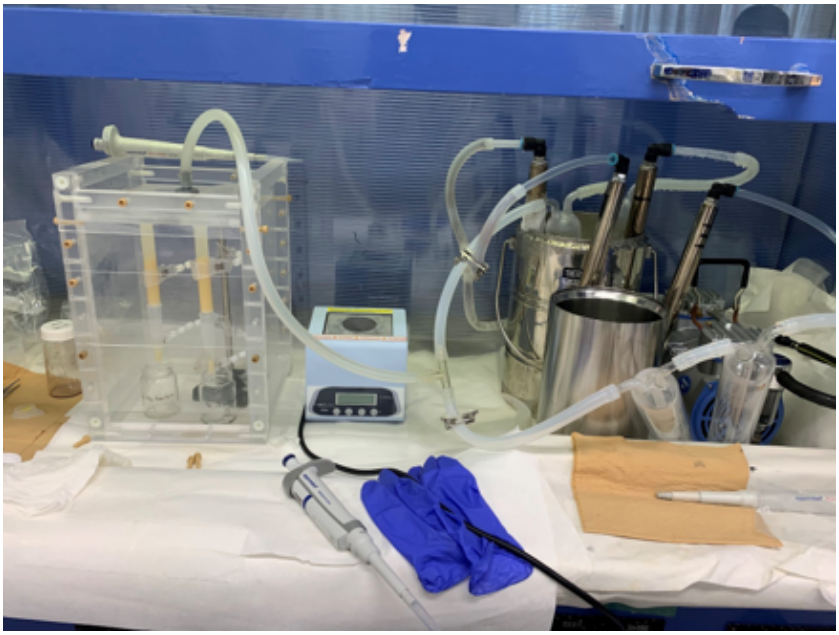


Fig 3.5: 10 MBq Th の精製分離実験の写真

3.2 電着実験

3.2.1 LN レジンでの精製

東北大学より送られてきたAc を、eichrom 製 LN レジン,100-150 μm を用いてさらに精製を行う。LN レジンのコンディショニングは以下の手順で行う。

(i) ムロマック製のカラム (樹脂体積 1ml) に LN レジンを詰めておく

(ii) 0.5 M HNO_3 溶液 1 ml を 5 回滴下

(iii) 0.05 M HNO_3 溶液 1 ml を 5 回滴下

コンディショニングの後、Ac を以下の手順で精製した。

(i) Ac が入ったバイアルに 0.05 M HNO_3 溶液 1 ml を加えて、カラムに入れる。カラムの内壁に溶液がなるべくつかないように滴下する。これを 3 回繰り返す。

(ii) 0.05 M HNO_3 溶液 1 ml をカラムに入れて、流れ落ちるまで待つ。これを 3 回繰り返す。

(iii) 0.2 M HNO_3 溶液 1 ml をカラムに入れて、流れ落ちるまで待つ。これを 5 回繰り返す。ここで流れ出る溶液中にはテフロンビーカーに集めておく。

3.2.2 電着実験

前節で精製した Ac をそのまま乾燥させて装置に入れたのでは、些細な衝撃や風などでアルファ放射体である Ac 化合物が宙に舞ってしまい、予期しない汚染が拡大するリスクが高く、非常に危険である。

そこで、Ac を金属基板に強く固着させる手法として、分子電着法を行った。

今回の線源作成においては、基板の材質としてはニラコ製の純度 99.95%、厚み 10μm の白金箔を用い、これを 12×20 mm の大きさにカッターで切断した。白金板への Ac の電着については理化学研究所核化学研究開発室において実績 [28] があり、この実験で用いたセルを使用する。シリコンゴムのパッキンには直径 5 mm の穴が空いており、基板中心の直径 5 mm の領域に電着する。

白金箔は電着面を清浄にするため、王水に数十秒間浸した後、純水で十分にすすいだ後に、純水、2-プロパノール (富士フィルム製 infinty pure) の順にそれぞれ 10 分

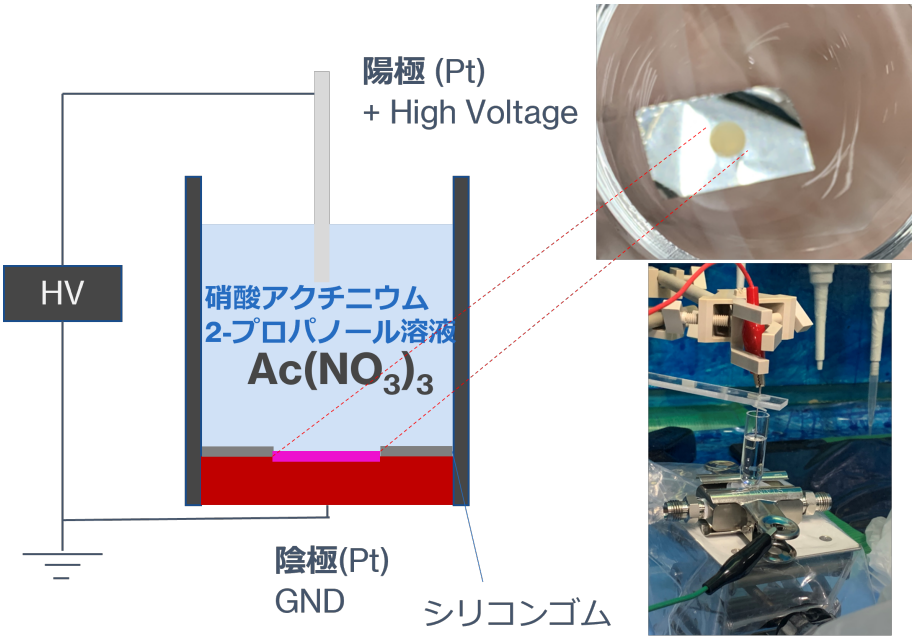


Fig 3.6: 電着実験の図と実験の様子の写真

間超音波洗浄を行った。また、使用するパッキンもよく洗浄したのちに純水、エタノールの順に同様に超音波洗浄を行った。

LN レジンで精製を行った後のテフロンビーカーはホットプレートにて溶液を干上げる。干上げの工程が不十分だと電着効率の低下の原因となるため、水分が完全に無くなるまで干上げる。そこに 10 μl の 0.01 M HNO_3 溶液を加えて、テフロンビーカー底面に付着している Ac をしっかりと溶かす。さらに 2-プロパノール 2 ml を加え、よく混ぜる。

3.6のように、白金箔、パッキン、セルの順に重ねたものを液漏れがないようにしっかりと固定し、セルの中に先の溶液を入れる。そこに白金棒を入れ、図のように電圧を印加した。電着のパラメータは以下に示す。

Table 3.1: 電着パラメータ

電圧	1 kV
電圧をかけた時間	40 分
温度	常温

電着後、基板を常温から 600℃ まで 2 時間かけて昇温し、6 時間温度を保って焼成

した。これにより水分が飛ばされるとともに、Ac の酸化を促進させることで基板により強く定着させることができる。

電着前後の Ac の線量と電着効率を表3.2に示す。

電着前の線量	3.91 MBq
電着後の線量	1.73 MBq
電着効率	44.2%

Table 3.2: 電着実験の結果と効率

3.3 Fr 実験装置

前節で作成した Ac を電着させた基板を用いて、^{221}Fr の原子線評価および MOT を行う装置を開発した。この節ではこの装置の概要を述べる。

3.3.1 実験環境

実験は仁科記念棟地下ホットラボ室にて行った。放射性物質を使用する装置である都合上、非密封線源が取り扱えるホットラボ実験室のドラフト内に格納して実験を行う。この際、排気用のエアホースもドラフト内に返し、ドラフト内の換気を常に行う。

MOT のためのレーザー光源はホットラボ実験室内に置くことができないため、RIBF 棟レーザー実験室より 400 m ファイバーを敷設し、E7 実験室階段下の中継地点まで光を伝送し、ここから加速器オンライン実験で生成する^{210}Fr をレーザー冷却する E7 実験室へ伝送する経路と、ホットラボ内の MOT へ 55m の光ファイバー中に伝送する経路と、２種類の伝送経路を整備し、今回はホットラボに必要なレーザー光を供給した。

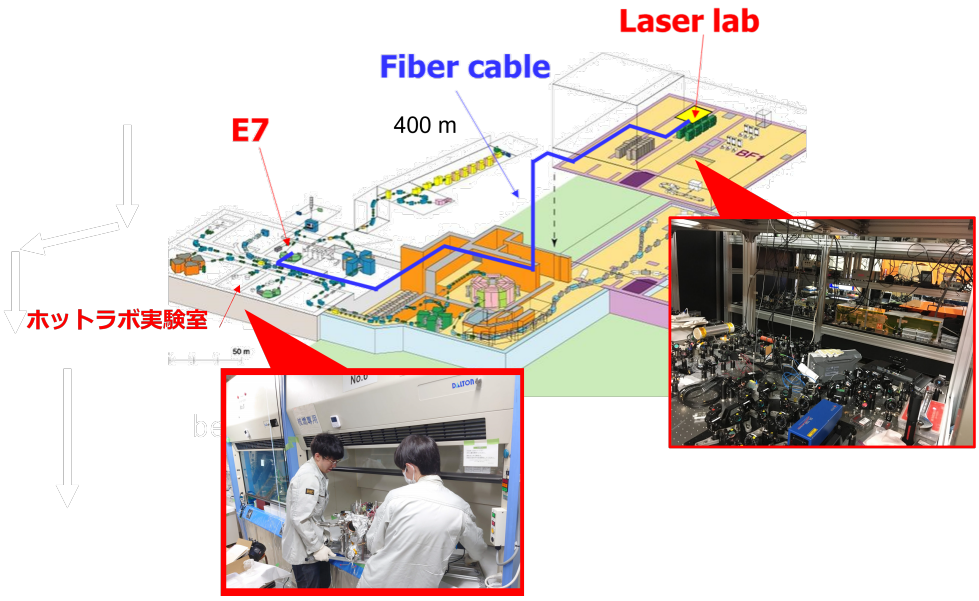


Fig 3.7: レーザー実験室からホットラボ実験室までの光ファイバー敷設の概観図

3.3.2 実験装置

3.8が今回開発した装置の写真で、その構成の概略図を3.9に示す。前節で作成した線源はアルミナ製のロッドの先端に固定され、ロッドを固定するフランジは直進導入機で動かすことができる機構とした。この機構により、線源は MOT セル直下からシリコン半導体検出器 (SSD) 直下にかけて約 10 cm を行き来することができる。また、ロッドには導線を這わせ、線源に電流を流すことができるようになっており、そのジュール熱によって線源を加熱することができる。

MOT セルの左右にはコイルが固定されており、電流を流すことで磁場を適宜印加することができる。MOT セルの対面にあるフランジにはアルミナ製のプレートが固定してあり、このプレートにはスパッタ用の Y 板が固定されている。Y 板直下には膜厚計が設置されており、スパッタによる Y の成膜速度を測定することができる。プレート上には穴が空けてあり、その上部に SSD を設置することで、α 線を測定することできる。これらの構成要素の詳細は後述する。

その他に排気用のターボ分子ポンプ (TMP)、真空ゲージ、Ar ガス封入用のバルブが導入されており、装置内の真空度は約 10^{-8} Pa 程度まで保つことができる。

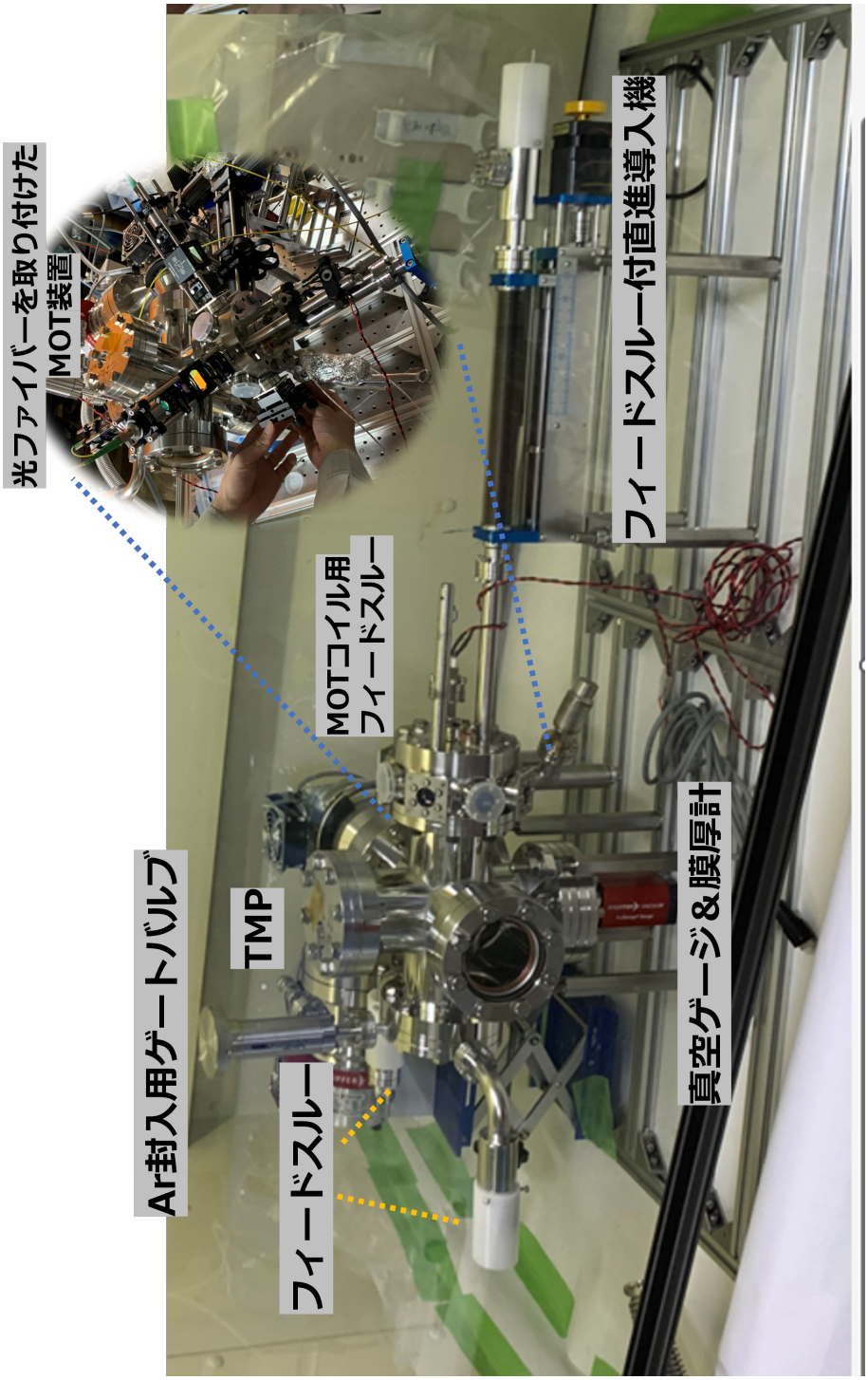


Fig 3.8: Fr 装置写真
Ac 線源を入れる場合は実験室のドラフトの中に装置を置く

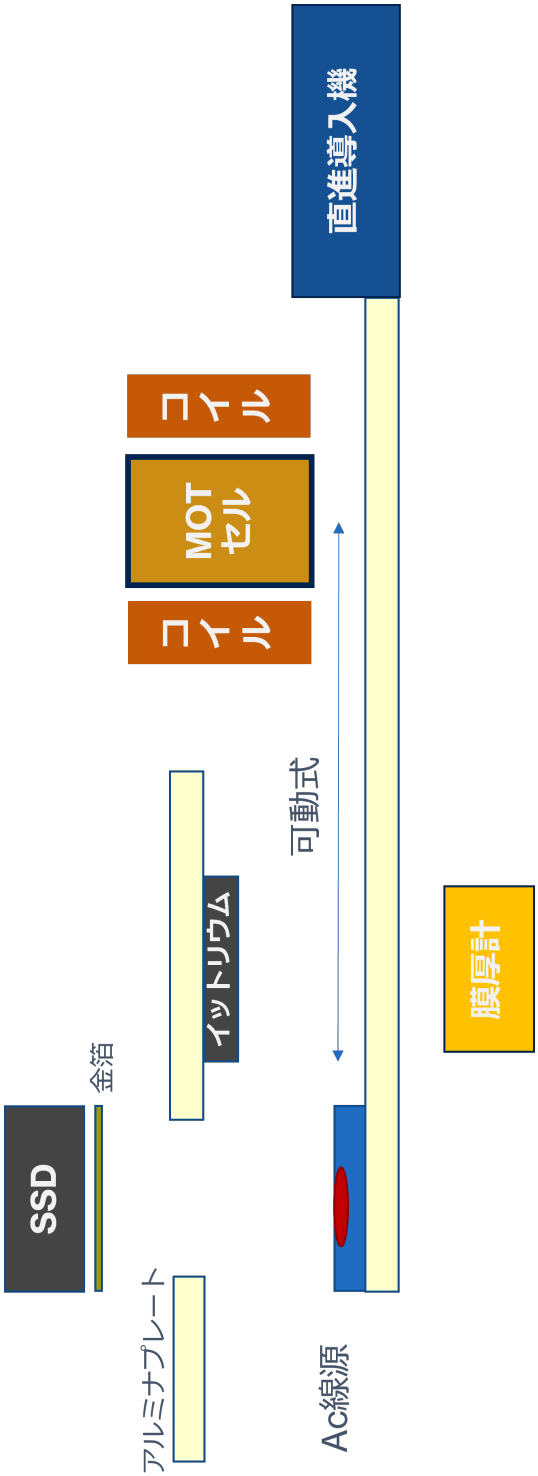


Fig 3.9: Fr 装置の中身の概念図

アルミナプレート

装置内に実装してあるアルミナ製のプレートの写真を3.10に示す。プレートに固定してある Y は Googfellow 製、純度 99%厚み 1 mm の 15 mm×15 mm であり、フィードスルーを通して電流・電圧を印加することができるようになっている。

Y の横には SSD 測定のための直径 14 mm の穴が空けてある。

また、本実験では使用していないが Rb ディスペンサ用の治具と、Y 板と同じ程度のサイズの金属板を固定できる治具もついている。

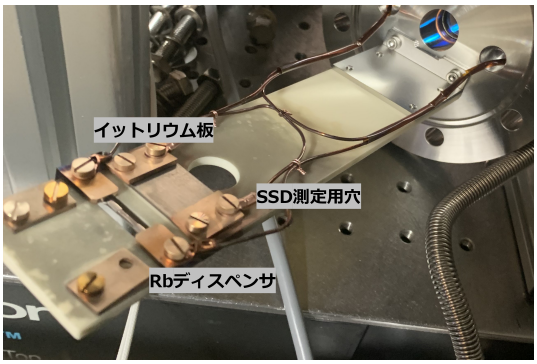


Fig 3.10: アルミナプレートの写真

シリコン半導体検出器（**SSD**）

SSD の原理を簡単に述べる。

半導体に高エネルギーの荷電粒子や光子などの放射線が入射した際、電子・正孔が励起され、半導体のバンドギャップを超えて伝導することが可能になる。半導体にバイアス電圧をかけている場合、それらはただちに電極へ引きつけられ、検出システムを用意しておくと、それはパルス信号として検出される。α 線が半導体に入射した場合、そのエネルギーの大きさによってパルス信号の電流値が変わる。

SSD は ORTEC 製のモデル番号 TB-018-150-300 を使用した。

今回の実験では、微量の原子線であってもその崩壊による α 線が検出できるように SSD と線源との距離をなるべく近くする必要がある。一方で線源を加熱する際、線源内で原子を熱拡散させるためには 1000℃ 近く加熱する必要があり、この時の線源からの輻射光は SSD のノイズ源となってしまう。そこで Fig3.11のように、SSD の測定領域の前に薄い金箔を設置した。これにより線源からの遮光が実現されるとともに、金箔は α 線を貫通させるほど薄いため SSD の測定に影響を与えない構造になっ

ている。

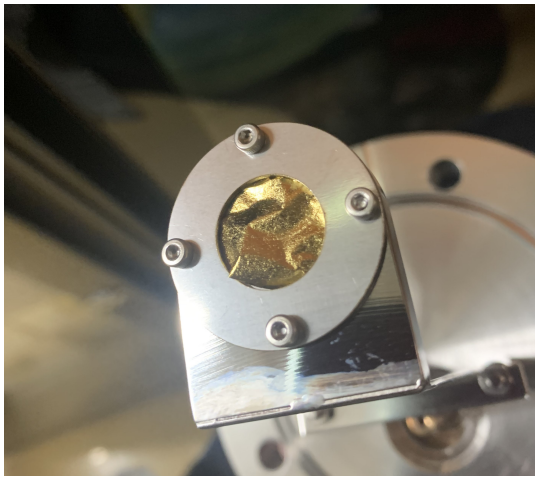


Fig 3.11: SSD の写真
金箔の奥に SSD を設置している

膜厚計

膜厚計は INFICON 製のコンパクトセンサーに同社製の水晶振動子を取り付け、STM-2 モニターと PC を繋げることでモニターをした。膜厚計は SSD 測定用の穴の真下付近に設置してあるが、Ac 線源が突き出すときは膜厚計の直上に Ac 線源が来るために、スパッタリングの最中は膜厚計でモニターをすることができない構造になっている。膜厚計の写真を Fig3.12に示す。

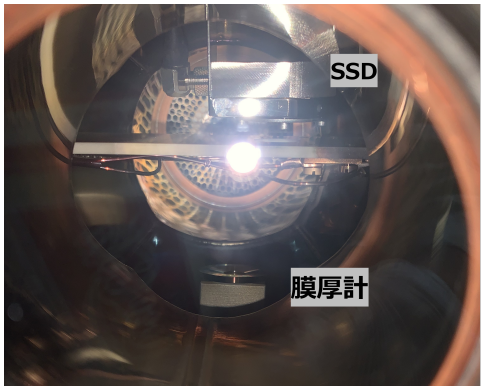


Fig 3.12: 膜厚計の写真

3.4 磁気光学トラップ (MOT) セットアップ

前節で述べた Fr 実験装置に、Ac 線源から放出される Fr をレーザー冷却・捕獲して、冷却 Fr 集団を生成するための磁気光学トラップ（MOT）を配置する。この MOT は、大量の原子線を用意できる安定原子のトラップと異なり、Ac から崩壊・放出される限られた強度の Fr を高効率でトラップする構造を持たせる必要がある。その方法として、MOT が形成するポテンシャルに効率よくトラップできるように、放出 Fr の速度を減速させる方法が考えられるが、本研究では、2.2.1 節で述べたように、Ac 線源に Y 膜を形成し、いったん Fr を Y 中で停止させた後、加熱により Y 表面から中性 Fr 原子を放出させることで、減速させる方法をとっている。さらに第 2 段階として、Fr が MOT のセル中で内壁に吸着されても、再脱離させるように吸着防止コーティングを施すことで、MOT のトラップ領域を繰り返し通過させることでトラップ効率を向上させる。以下、非密封 RI である Fr をトラップするのに必要な構造を持たせた MOT の設計と各構成要素の詳細を述べる。

3.4.1 アンチヘルムホルツコイル

トラップ領域の付近で、2.6のような線形の磁場分布を作るために、アンチヘルムホルツを作製した。アンチヘルムホルツコイルとは、同じ性能のソレノイドを向かい合わせ、同じ電流を流すことで実現される。

このとき形成される磁場について述べる。半径 R の円環導線の中心が z 軸上の $z = l$ の位置にあり、電流 I が流れるときに形成される磁場は、円柱座標系 (r, ϕ, z) を用いて

$$B_r^{(l,R)}(r,z) = -\frac{\mu_0 I}{4\pi}\frac{2z}{r\sqrt{(R+r)^2+(z-l)^2}}\left[-K(k) + \frac{R^2+r^2+(z-l)^2}{(R-r)^2+(z-l)^2}E(k)\right] \quad (3.1)$$

$$B_z^{(l,R)}(r,z) = -\frac{\mu_0 I}{4\pi}\frac{2}{r\sqrt{(R+r)^2+(z-l)^2}}\left[K(k) + \frac{R^2-r^2-(z-l)^2}{(R-r)^2+(z-l)^2}E(k)\right] \quad (3.2)$$

と書ける。ただし μ_0 は真空の透磁率で、$K(k)$、$E(k)$ はそれぞれ第一種、第二種完全楕円積分で、

$$\begin{aligned} K(k) &= \int_0^{\pi/2} \frac{d\theta}{\sqrt{1-k^2\sin^2\theta}} \\ E(k) &= \int_0^{\pi/2} \sqrt{1-k^2\sin^2\theta}\,d\theta \\ k &= \frac{4Rr}{(R+r)^2+(z-l)^2} \end{aligned} \quad (3.3)$$

と書かれる。

アンチヘルムホルツコイルはこのような円環電流を向かい合わせて作られるので、その磁場分布は

$$\begin{aligned} B_r^{\mathrm{AHC}}(r,z) &= B_r^{(l,R)}(r,z) - B_r^{(-l,R)}(r,z) \\ B_z^{\mathrm{AHC}}(r,z) &= B_z^{(l,R)}(r,z) - B_z^{(-l,R)}(r,z) \end{aligned} \tag{3.4}$$

z 軸上において z の一次で展開すると

$$B_z^{\mathrm{AHC}} \simeq -\frac{3l\mu_0 R^2 I}{(R^2+l^2)^{5/2}} z \tag{3.5}$$

となり、原点付近では2.6のように z に対して線形に変化する磁場分布がたしかに実現される。

実際にはソレノイドコイルであるので、これを中心軸 (z 軸) に巻き付けていき、その巻き回数を a、同径方向に b 回重ねて巻いたとする。ソレノイドを式3.4で表される円環導線の重ね合わせと考えると、形成される磁場は以下の重ね合わせの式で表される。

$$\begin{aligned} B_r(r,z) &= \sum_{i=1}^{a}\sum_{j=1}^{b} B_r^{\mathrm{AHC}}(r,z) = \sum_{i=1}^{a}\sum_{j=1}^{b}\left[B_r^{(l',R')}(r,z) - B_r^{(-l',R')}(r,z)\right] \\ B_z(r,z) &= \sum_{i=1}^{a}\sum_{j=1}^{b} B_z^{\mathrm{AHC}}(r,z) = \sum_{i=1}^{a}\sum_{j=1}^{b}\left[B_z^{(l',R')}(r,z) - B_z^{(-l',R')}(r,z)\right] \\ l' &= l + (2i-1)d \\ R' &= R + (2j-1)d \end{aligned} \tag{3.6}$$

MOT に際に必要な磁場勾配の大きさは約 10 G/cm 程度で、Table3.3に示すパラメータで作成し、約 1A の電流を流すことで、目的の磁場勾配を得ることが確かめられた。

l	R	d	a	b
13 mm	11 mm	1.15 mm	9 回	10 回

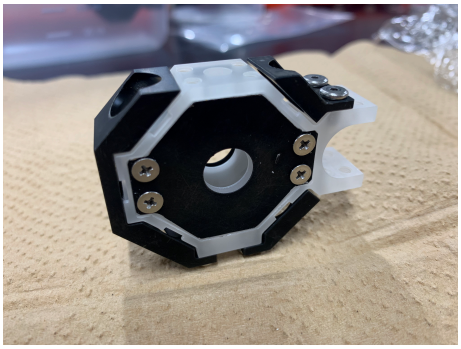
Table 3.3: 作成したコイルのパラメータ

3.4.2 MOT セル

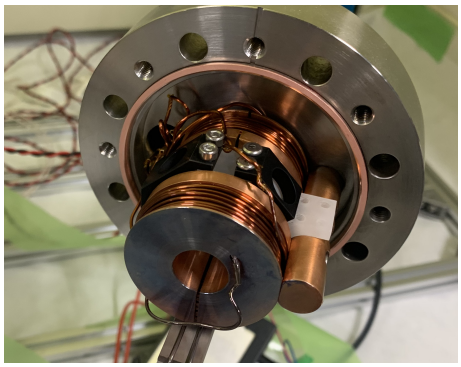
先行研究において、Fr の MOT に成功したグループはトラップ効率を飛躍的に向上させるために、後述するアルカリ金属原子吸着防止コーティングを用いている。コーティングの都合上、MOT が行われる空間はガラス製のセルで構成されており、その内壁にコーティングが施されている。

Fr の MOT を実現するにあたってこのコーティングの性能は肝要であり、本研究においても、最大限その性能が発揮されることを目指してガラスセルを作製した。

Fig3.13にセルの写真を示す。



(a)



(b)

Fig 3.13: (a) MOT セルと (b) その実装写真

MOT セル本体は石英製で、レーザー光を通すための穴が x,y,z 軸方向に合計 6 つ空けてあり、それらに加えて Fr 原子を導入するための穴が 1 つ空けてある。

レーザーを通すための穴にはウィンドウを取り付ける。このレンズはシグマ光機、BK-7 製の厚み 5mm、$\phi = 12.7$mm であり、片面にはレーザー光の反射防止 (AR) コーティングが施してあり、もう片面には後述する吸着防止コーティングを施している。取り付けの際は、AR コート面が外側に、吸着防止コーティング面が内側になるように取り付ける。

吸着防止コーティング

トラップ効率を向上させるために、レンズを含むセルの内壁に、アルカリ金属原子に対して吸着を防ぐコーティングを施した。

アルカリ金属原子吸着防止コーティングとして octadecyltrichlorosilane(OTS) を用いた。OTS はアルカリ金属原子吸着防止の機能だけでなく [34]、スピン緩和防止コー

ティングとしても広く用いられており [35]、代表的なコーティング材であるパラフィンと比較しても耐熱性が高いという特徴がある。

グループ名 (原子)	中性 Fr 導入量	MOT 原子数	文献
Boulder (^{221}Fr)	10^4 atoms /s	1.3×10^3	[16]
SUNY (^{210}Fr)	10^7 atoms	2.5×10^5	[30]
Legnaro (^{210}Fr)	10^5 atoms s	2×10^2	[36]
TRIUMF (^{209}Fr)	10^9 atoms	2.5×10^5	[37]

Table 3.4: 先行研究グループにおける Fr の MOT 数

3.4.3 OTS コーティング

OTS は分子式$CH_3(CH_2)_{17}SiCl_3$ で表されるシラン系の化合物で、一定条件下でガラスと化学吸着することが知られている。Fig3.14にガラスとの吸着の様子を示す。このような化学吸着をするため、OTS は高温においても溶けにくく、コーティング後に大気に晒したとしてもその状態は変わらないと考えられている。

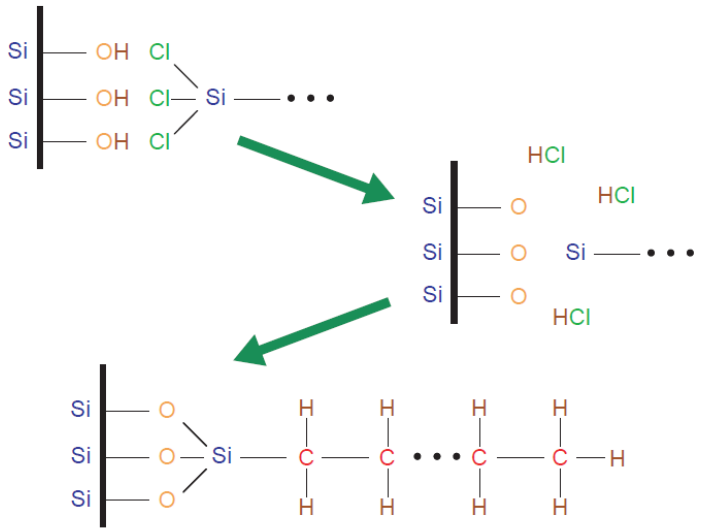


Fig 3.14: 文献 [38] より引用。ガラス表面のOH 基の H がHCl として外れ、OTS の Si と結合する。

OTS をガラス面にコーティングさせる際、その手法によってガラス面に形成され

る OTS 層の厚みが異なる。OTS 分子 1 層以上からなる膜を多層膜、1 層のみからなる膜を単層膜と呼ぶ。多層膜の膜厚は約 4.9 nm であり、これは OTS 分子約 2 つ分の長さに相当する [39]。この多層膜はコーティング作業を常温常圧下で行うことで成膜され、大気中の水分が 2 層目以降の膜の形成に寄与していると考えられている [40, 41]。実際に、大気中の水分が成膜に寄与しないように、窒素雰囲気下で製膜した場合、単層膜が形成されることが確認されている [42]。

Fig3.15は、ガラス面上に成膜した単層膜と多層膜の OTS コート面を Rb 蒸気に晒した後の表面を、原子間力顕微鏡法 (Atomic Force Microscopy: AFM) で撮影した画像である。この結果は、単層膜においては比較的小さな Rb 原子集団が多く吸着しており、Fig3.15(a) にみられるように、これは単層膜が成膜される過程で生成される膜の境界線上に Rb 原子集団が吸着することを示唆している。一方で多層膜の場合は Fig3.15(b) に示されており、稀に大きな Rb 原子集団が確認されるが、その専有面積は単層膜に比べるとはるかに小さい。

したがって単層膜の OTS コートよりも多層膜の OTA コートの方がアルカリ金属原子がより吸着されにくく、これを導入した場合 MOT 効率が高まることが期待される。本研究では、大気中で OTS コーティングを行い、多層膜でコーティングされることを狙って実験を行った。

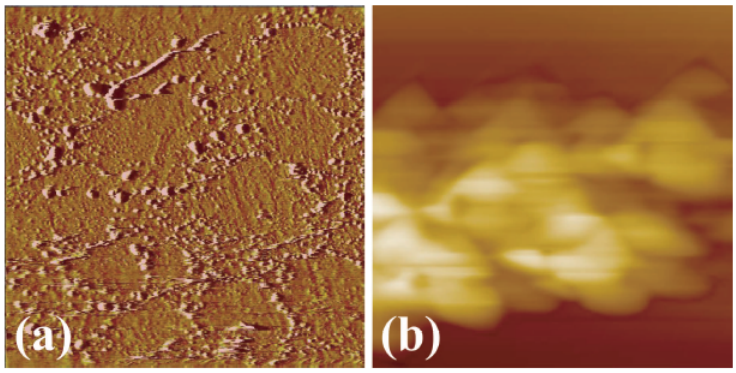


Fig 3.15: OTS 単層膜、多層膜における付着した Rb の AFM 画像
文献 [39] より引用

コーティング法

OTS のコーティング法は文献 [38] を参考にした。以下にその手法をまとめる。

実験環境としては、常温常圧の大気条件下においてドラフト内でコーティング実

験を行った。先述の通り、大気中の水分が多層膜の形成を促し、窒素雰囲気下や極端に乾燥している環境においては単層膜が支配的に形成される。

コーティング基板は石英製 MOT セル、BK-7 製片面 AR コートレンズを用い、まずこれらの洗浄を行った。Micro-90 2% の水溶液で 10 分間超音波洗浄を行い、純水でよくすすいだ後乾燥させる。OTS は水分と反応しうるため、確実に乾燥させることと、後の手順におけるピラニア酸と有機物が反応してしまうために、肉眼で見えるような有機物が表面に残っていないことに注意する。

ピラニア酸は過酸化水素と濃硫酸を 3:7 の割合で混ぜることで調製する。このとき、一般に濃硫酸を希釈する際とは逆に、必ず濃硫酸に対して過酸化水素水を少しずつ加える。逆にしてしまうと急激な化学反応が起きてしまい溶液が飛散する可能性があるので注意する。

この調整したピラニア酸を用いてコーティング基板のさらなる洗浄を行った。MOT セルはピラニア溶液に浸し、レンズはコーティング面のみが浸るようにし、1 時間放置する。これにより基板上の有機物はピラニア酸によって酸化され、ほとんど除去されることになる。ピラニア溶液での洗浄後、純水でよくすすぎ、真空ベーキングを 100℃ 以上で 1 時間行う。

次に OTS 溶液を調製する。OTS は Sigma-Aldrich 製を用いた。溶媒はクロロホルムとヘキサンを 1:4 の体積比で混ぜたものを用い、0.8 ml/L の濃度で調製する。ピラニア酸での洗浄と同様にコーティング面をこの溶液に浸し、5 分間放置する。基板を引き上げた後、5 分間大気に晒したのちクロロホルムでよくすすぐ。基板はその後 200℃ で 24 時間真空ベーキングを行った。

成膜後の MOT セルとレンズは、レンズのコーティング面が内側になるように組み立て、治具で固定し、装置へインストールした。

Fig3.16に試作として OTS コートを施したコーティングパイレックス製フラスコと、なにもしていない同じ製品に純水を入れて、その振る舞いを比較した時の写真を示す。右の OTS コートをしたフラスコは OTS の撥水効果によって大きな粒状を維持したまま水滴が弾かれるように底面に溜まるのに対して、コーティングを施していないものは水は底面に広がって、粒状になることはない様子が確認された。

3.4.4 OTS コーティングのパッシベーション

コーティングされたセルを真空チャンバーに導入した後、Rb アンプルを焚いてパッシベーションを行った。アルカリ金属原子吸着防止コーティングは、真空中でアルカリ金属原子蒸気中にしばらく晒すことで、その吸着防止効果が高まることが知られ

Fig 3.16: OTS コートしたパイレックス製フラスコ (右) としていない同じ製品 (左)
どちらのフラスコにも純水を入れてみたところ、左のフラスコはフラスコの底面に水が広がったのに対して、右のコーティングしたフラスコでは撥水性によって水滴が弾かれるようにおおきな粒状を維持している。
右のフラスコが少し汚れているのは、この試作を作る過程でピラニア酸から引きあげた後にメタノールで洗浄したところ、真空ベークの過程でその一部が炭化してしまったものとみられる。

ている [43]。

3.4.5 MOT 蛍光観測系

MOT で捕獲された原子は脱励起する際に光子を放出するため、その光子を検出することで MOT された原子集団を観測することができる。Fig3.17に文献 [44] をもとに構成した蛍光観測系の概略図を示す。アパーチャーを用いて検出器に入り込む迷光を抑制する。また、捕獲した原子集団の蛍光以外の波長の光をカットするためにバンドパスフィルター (BPF) を入れる。検出器には CMOS カメラ (Thorlabs CS165MU) を用いた。そのスペックを表3.5に示す。

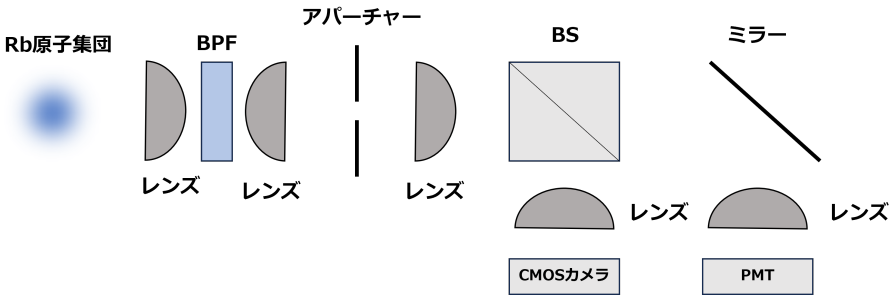


Fig 3.17: MOT 蛍光観測系の概略図

量子効率 (718 nm)	45%
飽和容量	11000e
露光時間	40μs − 26.843 s
ピクセルサイズ	3.45μm × 3.45μm
幅 × 高さ (pixel)	1440 × 1080

Table 3.5: CMOS カメラのスペック

Chapter 4

Fr 原子線源の性能評価

この章では前章で記述した実験の結果について、解析結果も含めて述べる。

4.1 スパッタリング実験

Fr を停止させる Y 標的は、2 章で述べたように、Y の仕事関数と Fr のイオン化ポテンシャルの関係から、Y 表面から脱離する際、中性 Fr 原子として放出される。したがって、Y 標的の表面が清浄であり、仕事関数等化学的な性質を維持することが必要である。実験の各過程で不純物が表面に堆積、化学結合することで標的表面の仕事関数が変化することを抑制するために、以下に示す方法で表面清浄化を実現する。

4.1.1 Y 板表面のクリーニング

取り付けた Y 板の表面は水、酸素、炭素、硫黄などの不純物に加えてY_2O_3 に覆われている。Ac 線源上に Y をスパッタする前に、これらを除去するためにスパッタリングを行った。この間、Ac 線源は後述する MOT セルの直下に移動させ、除去した不純物が堆積しないようにした。

Table 4.1にスパッタのパラメータを示す。スパッタは膜厚計が 12 Å を示すまで行った。これは膜厚計からみた Y 板との立体角を加味すると約 100 層のY_2O_3 を除去したことになり、十分酸化膜層を除去したと考えられる。

4.1.2 Ac を電着させた基板へのスパッタリング条件

次に、Ac を電着させた基板へのスパッタの条件について述べる。

Table 4.1: Y_2O_3 スパッタリングパラメータ

Ar 圧力	13 Pa
Y 電圧	-500 V
Y 電流	1400 μA
時間	11 分
成膜厚	12 Å

Y のスパッタリングは開始から 240 分間は4.2のパラメータで行った。スパッタの途中で何度か Ac 線源を MOT 直下まで移動させ、SSD 金箔上についた娘核の崩壊を SSD で測定をした。これについては次節で結果を述べる。また、同時に膜厚計にて成膜速度を確認した。

240 分以降は、スパッタ効率を上げるために Ar の圧力を調整しながら Y の電圧を上げてスパッタを行った。パラメータを4.3に示す。これ以上電圧を上昇させると突発的に大きな電流が流れることが頻繁に起きてしまい、その度に電流電源の安全装置が作動し電源が落ちてしまう。

スパッタを開始し、Y 板に流れる電流が 1000μA を越えたあたりから、Fig4.1のように、Y 板近傍の紫色にぼんやりと光る様子が確認できた。これはアルゴンによる放電、スパッタリングが起きている証拠であり、電流量が上がるとより色が濃くなる傾向にある。

Table 4.2: スパッタリングパラメータ

Ar 圧力	13〜14 Pa
Y 電圧	-500 V
Y 電流	1500〜1800 μA
時間	240 分

Table 4.3: スパッタリングパラメータ

Ar 圧力	6〜8 Pa
Y 電圧	-750〜-800 V
Y 電流	1300〜1700 μA
時間	510 分

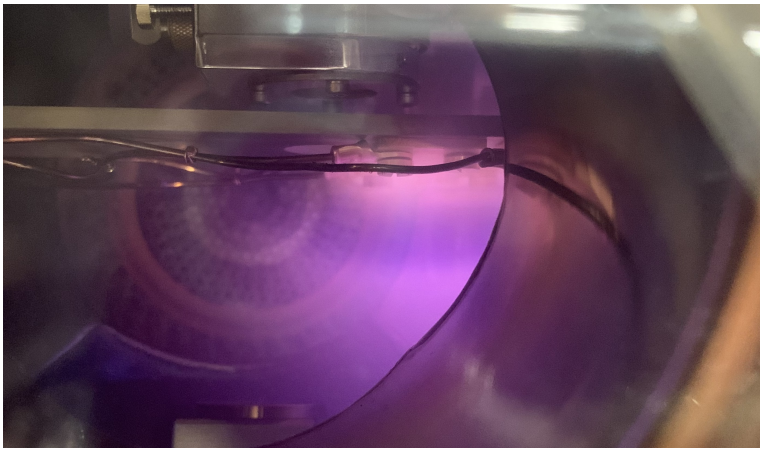


Fig 4.1: スパッタリングの様子

4.1.3 スパッタ前後の SSD 信号の比較

スパッタ中に Ac 線源を MOT 直下まで移動させたのちに、SSD で測定を行った結果を Fig 4.2に示す。このとき、横軸のチャンネルは SSD 検出部に侵入した α 線のエネルギーに対応する。特定の原子の α 崩壊によって生じる α 線のもつエネルギーはほぼ一定であり、SSD で測定した場合は対応するチャンネル付近で頻繁に信号が検出される。通常エネルギーの校正のための線源が設置されるが、今回の実験では、Fig2.1に示すように、^{225}Ac の崩壊系列の内、^{221}Fr、^{217}At、^{213}Po の 3 種類の原子の崩壊による α 線が検出されることが予想されたため、校正線源は導入しなかった。得られた信号には 3 つのピークが確認され、それらのピーク幅の比は^{221}Fr、^{217}At、^{213}Po の α 線のエネルギー幅の比にほぼ一致したことが確かめられた。また、各ピークに対応する α 線は左から順に、^{221}Fr、^{217}At、^{213}Po である。

この実験結果からスパッタ時間が増えるにしたがってすべてのピークの信号量が減っていることがわかる。

このことから、スパッタによって成膜される Y の膜厚が厚くなっていった結果、Ac からの崩壊時に約 100 keV の運動エネルギーを持つ Fr を Y 膜内で停止させることができていることが示唆される。また、^{213}Po のピークが残っているのは、その親核である^{213}Bi の半減期が約 40 分と比較的長いことに加えて、Ac から複数の α 崩壊を経て、飛び出してきた可能性も無視できないと考えられる。

4.2 Fr 原子線源の評価

スパッタリングを行った後、Ac 線源の上には Y の層が作られ、Fr などの娘核の一部はその Y 層内に停止していると考えられる。そこで、その Fr を取り出すために、Ac 線源を SSD 直下にて加熱した。この時、Ac は酸化アクチニウムとして白金に電着しているために、今回の加熱パラメータでは内部で熱拡散することはないと考えられ、実際、Ac が線源から脱離した形跡は確認できなかった。一方娘核である Fr は加熱によって線源内で熱拡散され、Fr-Y の吸着エネルギーを考慮すると、そのうち表面に出てきたものは速やかに脱離することが期待される (2.2.2 節参照)。脱離した原子は等方的に拡散し、その一部は SSD 前の金箔に付着する。付着した原子はやがて崩壊し、その際 SSD に入射する α 線の信号を測定した。また、ビューポートからサーモ理工製放射温度計 IR3S を Ac 線源に向けることで、温度もモニターしながら実験を行った。この際、放射率は Y の放射率である $\epsilon = 0.35$ として計測した。

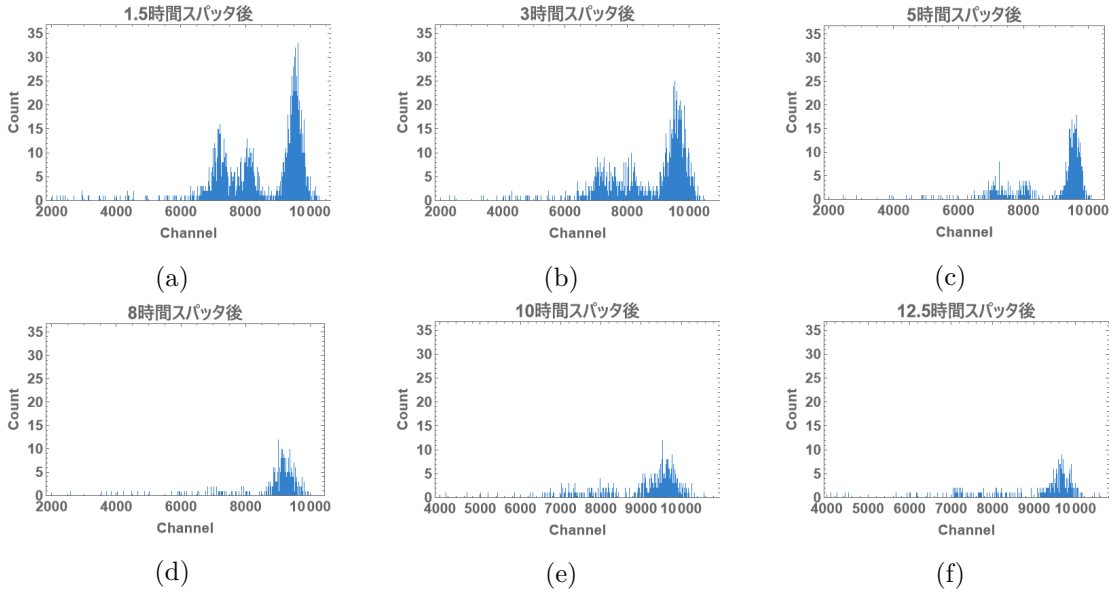


Fig 4.2: スパッタ時間ごとの、SSD の信号。測定時間はすべて 150 秒。左上からそれぞれ (a) 1.5 時間、(b) 3 時間、(c) 5 時間、(d) 8 時間、(e) 10 時間、(f) 12.5 時間のスパッタ時間に対応している。ピークは左から^{221}Fr、^{217}At、^{213}Po のピークに対応している。

4.2.1 加熱時の SSD 信号の比較

線源を SSD 直下まで移動させたのち、電流を流して加熱後、線源を MOT 直下まで移動させる操作を繰り返した。このとき、加熱温度は徐々に上げていった。また、この実験中は Y 板に-500V の電圧を常に印加しており、イオン化した Fr は SSD 前の金箔に付着しないようにして、中性化された Fr のみ SSD 前の金箔に付着させるようにした。その SSD のカウント数を Fig4.3に示す。カウント数が 10000 を超えている時間は、SSD の直下に線源があり、加熱が行われている時間である。大きくカウント数が減少している時間は Ac 線源が MOT 直下にいる時間であり、この間、SSD は金箔に付着した原子の崩壊を測定している。

Ac 線源が MOT 直下にあり、線源から飛来する α 線が SSD に直接入射しない時間帯における、α 線崩壊核種のエネルギースペクトルの一例を Fig4.4に示す。このグラフ中の 3 つのピークは左からそれぞれ、娘核である^{221}Fr,^{217}At,^{213}Po の α 崩壊によるものであると考えられる。そこで、得られたヒストグラムに対して以下のような 3 つの正規分布を和でフィッティングを行った。

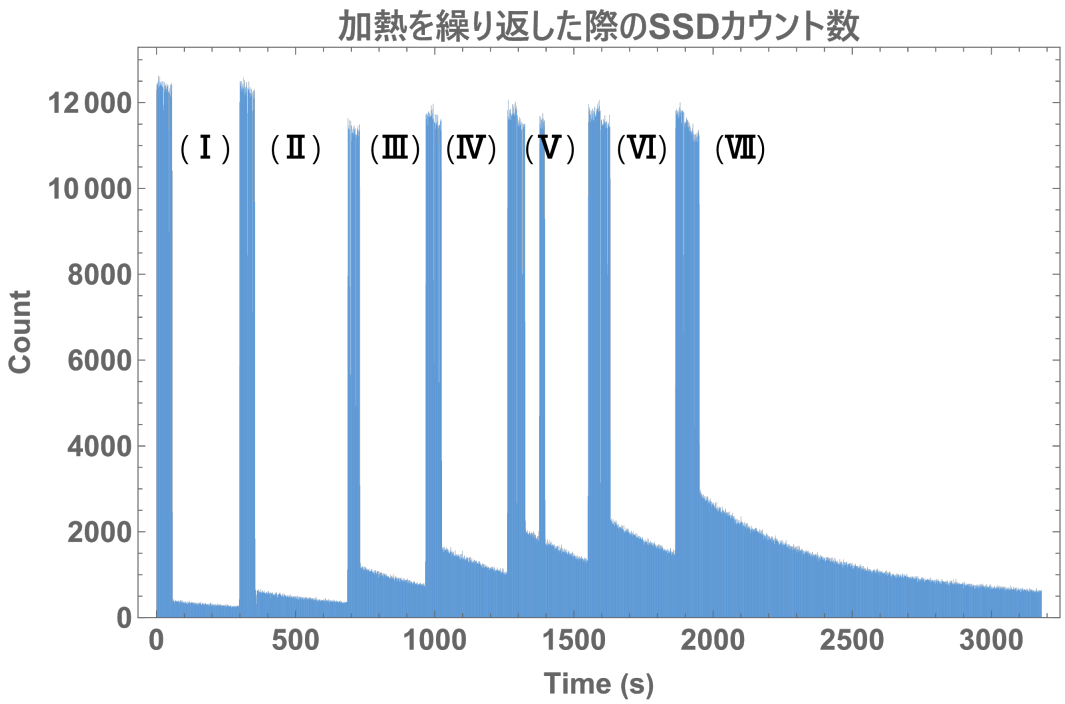


Fig 4.3: 加熱温度を上げながら加熱を繰り返した際の SSD のカウント数

$$y = \frac{a_1}{\sigma_1\sqrt{2\pi}}\exp\left(-\frac{(x-x_1)^2}{2\sigma_1^2}\right)+\frac{a_2}{\sigma_2\sqrt{2\pi}}\exp\left(-\frac{(x-x_2)^2}{2\sigma_2^2}\right)+\frac{a_3}{\sigma_3\sqrt{2\pi}}\exp\left(-\frac{(x-x_3)^2}{2\sigma_3^2}\right) \tag{4.1}$$

上式の第一項が^{221}Fr、第二項が^{217}At、第三項が^{213}Po に対応するように初期パラメータを設定した。ここで得られる a_1 の値は、その時間内に観測した^{221}Fr 由来の α 線の個数に一致する。そこで、フィッティングを行ったヒストグラムの時間を t とすると、測定開始時点で SSD 前の金箔についていた^{221}Fr がすべて崩壊した時に検出される α 線の総数 $A_{\text{Fr-221}}$ とすると

$$A_{\text{Fr-221}} = a_1 \times (1 - 2^{\frac{-\Delta t}{4.9\times 60}})^{-1} \tag{4.2}$$

とかける。Δt は a_1 をフィッティングしたデータにおける測定時間を表す。また Ac 線源から放出された Fr の総数、$N_{\text{Fr-221}}$ は

$$N_{\text{Fr-221}} = \frac{A_{\text{Fr-221}}}{\Omega_{\text{Au}\,\to\,\text{SSD}} \times \Omega_{\text{Ac}\,\to\,\text{Au}}} \tag{4.3}$$

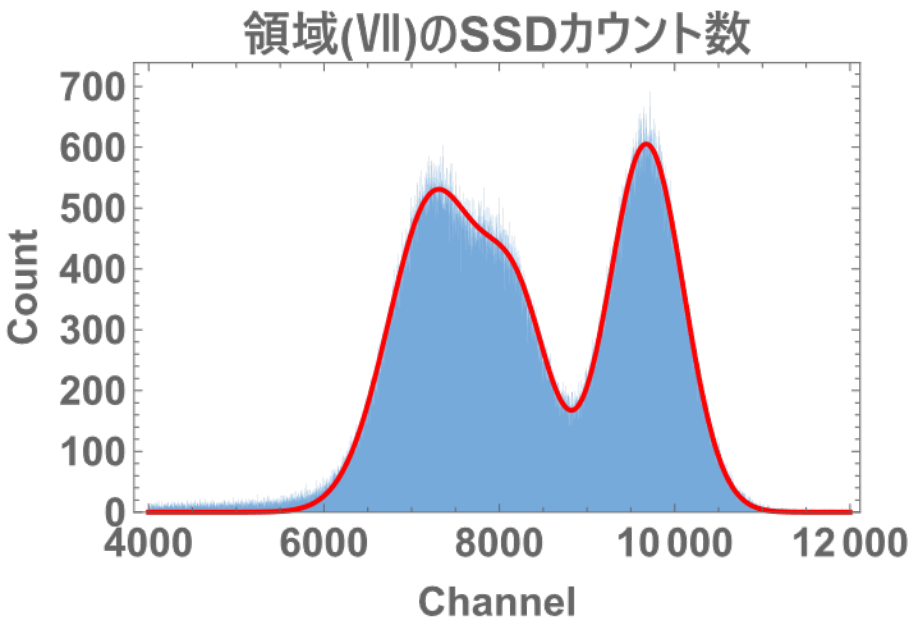


Fig 4.4: 領域 (VII) 約 21 分間のカウント総数のヒストグラム (青) と式4.1でフィッティングした関数 (赤)

と考えられる。ここで $\Omega_{\mathrm{Au}\to\mathrm{SSD}}$ は、金箔表面に均一に分布した原子が α 崩壊した時に放出される α 線の数と SSD によって検出される α 線の数の比で、$\Omega_{\mathrm{Ac}\to\mathrm{Au}}$ は Ac 線源の電着面 Φ5mm の表面領域に均一に分布した原子が等方的に脱離する原子数と、それらが散乱されることなく進んだ場合に金箔にあたる原子数の比を表す。これらの値はモンテカルロシミュレーションによって算出した値を用いる。(Table 4.4)

Table 4.4: $\Omega_{\mathrm{Au}\to\mathrm{SSD}}$ と $\Omega_{\mathrm{Ac}\to\mathrm{Au}}$ のパラメータ

$\Omega_{\mathrm{Au}\to\mathrm{SSD}}$	0.357
$\Omega_{\mathrm{Ac}\to\mathrm{Au}}$	8.26×10^{-3}

ただし、加熱したタイミングで放出された Fr 原子の数を求める場合はその変化量、$\Delta N_{\text{Fr-221}}, \Delta A_{\text{Fr-221}}$ を用いる。

$$\Delta N_{\text{Fr-221}} = \frac{\Delta A_{\text{Fr-221}}}{\Omega_{\mathrm{Au}\to\mathrm{SSD}}\times\Omega_{\mathrm{Ac}\to\mathrm{Au}}} \tag{4.4}$$

Fig 4.3内 i 番目の領域における加熱直後の時間を t_i とすると微分方程式

$$\frac{dN^i_{\text{Fr-221 in Ac}}(t)}{dt} = 1.074\times10^6 - \frac{\log 2}{294}N^i_{\text{Fr-221 in Ac}}(t) \tag{4.5}$$

ここで $N^{i}_{\text{Fr-221 in Ac}}(t)$ は領域 i において時刻 t のときの Ac 線源内にある Fr の原子数を表わす。初期条件では Ac の α 崩壊によって新たに生じる Fr の数と、Fr 自身の α 崩壊によって減少する数が等しい平衡状態になっていると考える。

$$N^{0}_{\text{Fr-221 in Ac}}(t) = 4.55 \times 10^{8} \tag{4.6}$$

また、時刻 t_i で領域が切り替わるときは、加熱により Fr 原子が放出されているので、その放出量を $\Delta N^{i}_{\text{Fr-221}}$ とすると

$$N^{i}_{\text{Fr-221 in Ac}}(t_i) = N^{i-1}_{\text{Fr-221 in Ac}}(t_i) - \Delta N^{i}_{\text{Fr-221}} \tag{4.7}$$

と計算される。これらの式から漸次微分方程式を解くことで、各領域における $N^{i}_{\text{Fr-221 in Ac}}(t)$ を数値的に求めることができる。

$$P_i = \frac{\Delta N^{i}_{\text{Fr-221}}}{N^{i-1}_{\text{Fr-221 in Ac}}(t_i)} \tag{4.8}$$

で定義する P_i は領域 i における加熱によって取り出される Fr の量と、加熱直前に Ac 線源内に在る Fr の原子数の比であり、原子線源の取り出し効率を意味する。

Table 4.5に、各領域における直前の加熱パラメータとヒストグラムに対するフィッティングパラメータ、P_i をまとめた。

結果として、原子線源の温度が高くなるにつれて取り出し効率は上昇し、最大で約 42%の取り出し効率であった。先行研究との比較は 6 章にて詳しく述べる。

Table 4.5: 加熱に関するパラメータとその時の Fr 原子線の性能

領域	電流量 (A)	加熱時間 (s)	最高到達温度 (℃)	$N^i_{\text{Fr-221}}$	$\Delta N^i_{\text{Fr-221}}$	P_i
(I)	17.0	20	766	$3.05(5) \times 10^7$	$3.05(5) \times 10^7$	$6.70(11) \times 10^{-2}$
(II)	17.5	20	799	$4.81(1) \times 10^7$	$3.31(3) \times 10^7$	$7.51(8) \times 10^{-2}$
(III)	18.0	20	913	$9.70(8) \times 10^7$	$7.74(8) \times 10^7$	0.178(2)
(IV)	18.5	20	922	$1.10(2) \times 10^8$	$6.16(24) \times 10^7$	0.151(6)
(V)	19.0	20	937	$1.66(2) \times 10^8$	$1.12(2) \times 10^8$	0.323(9)
(VI)	19.0	30	960	$1.83(2) \times 10^8$	$1.05(3) \times 10^8$	0.299(8)
(VII)	19.0	40	995	$2.37(2) \times 10^8$	$1.50(3) \times 10^8$	0.422(8)

4.2.2 加熱による引き出し効率の評価

前節で評価した取り出し効率 P_i において、その単位時間当たりの引き出し効率 p_i について評価する。

加熱時間 20 秒の間 p_i が一定であると仮定すると、P_i と p_i の関係は以下の式で書ける。

$$(1-p_i)^{20} = 1 - P_i \tag{4.9}$$

また、加熱中の時間発展は^{225}Ac の線量を D とすると

$$\frac{dN_{\text{Fr-221 in Ac}}}{dt} = D - \frac{\log 2}{294} N_{\text{Fr-221 in Ac}} - p_i N_{\text{Fr-221 in Ac}} \tag{4.10}$$

と表され、十分長い時間加熱を続けた場合、$N_{\text{Fr-221 in Ac}}$ は変化しなくなるので、

$$D = \frac{\log 2}{294} N_{\text{Fr-221 in Ac}} + p_i N_{\text{Fr-221 in Ac}} \tag{4.11}$$

が成り立つ。

したがって、最終的に線源が単位時間当たりに放出するFr の量は

$$p_i N_{\text{Fr-221 in Ac}} = \frac{p_i}{\frac{\log 2}{294} + p_i} D \tag{4.12}$$

となる。$P_i = 0.42$ のとき、$p_i = 2.7 \times 10^{-2}$ で、

$$p_i N_{\text{Fr-221 in Ac}} \simeq 0.92D \tag{4.13}$$

となり、Ac から放出される Fr のうち、90% 相当の Fr を取り出すことができると考えられる。

これは一見すると非常に高い値と思われるが、^{225}Ac から放出された Fr は、線源表面近くの高々 100 nm の層に分布しており、これらが加熱によって熱拡散されるとき、裏面へ到達する Fr よりも表面に到達して脱離する Fr の方が圧倒的に多いと考えられるため、自然な効率である。この効率が 90% に留まった要因としては、^{221}Fr の崩壊が無視できないことに加えて、Fr が Y 膜と Pt の境界を乗り越える際に効率を落としていることなどが考えられる。

4.2.3 中性化効率

Fr が Ac 線源から熱脱離する際、その表面は清浄な Y 面であるためそのほとんどが中性化されることが期待される。この中性化効率を評価するために、Ac 線源の加熱条件を揃えた上で Y 板に電圧を印加した。Y 板に電圧を印加していない場合、Fig4.5の左図のようにイオン化した Fr も SSD 前の金箔に付着し検出される。一方で SSD に負の電圧を印加した場合は Fig4.5の右図のようにイオン化した Fr のみ Y 板に吸い寄せられ、SSD によって検出されることはない。

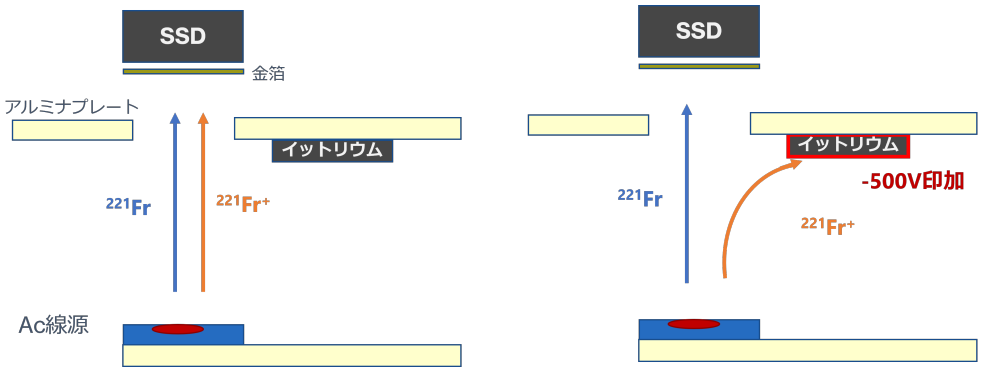


Fig 4.5: Y 板に電圧を印加した場合としていない場合における Fr 原子線の振る舞いの違い

Fig4.6に実験中の SSD のカウント数を示す。カウント数が 10000 を超えている時間は Ac 線源を直接 SSD が見ている時で、大きく下回っている領域は Ac 線源を移動させて、直接 SSD からは見えないようにした時間帯に対応する。Ac 線源が SSD 直下にいる間に 10 秒間直流電流を流すことで加熱させ、速やかに移動させた。流した電流量は 17.5A から 19.0A まで 0.5A ずつ上昇させていった。解析は前節の方法をとり、中性化効率は P_{i+1}/P_i で評価した。実験のパラメータとその結果を Table4.6に示す。

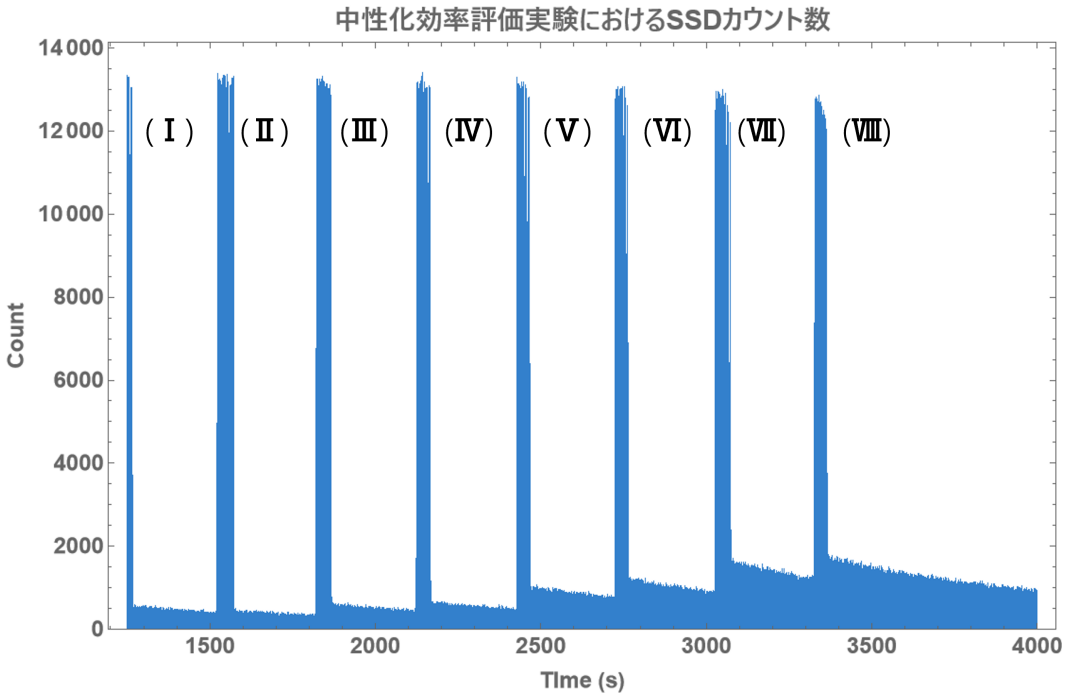


Fig 4.6: 中性化効率評価実験における SSD のカウント数

Table 4.6: 中性化効率評価実験に関するパラメータと中性化効率

領域	電流量 (A)	加熱時間 (s)	印加電圧 (V)	P_i	中性化効率 P_{i+1}/P_i
(I)	17.5	10	0	$4.20(11) \times 10^{-2}$	
(II)	17.5	10	-500	$1.00(7) \times 10^{-2}$	0.238(19)
(III)	18.0	10	0	$4.29(12) \times 10^{-2}$	
(IV)	18.0	10	-500	$3.57(11) \times 10^{-2}$	0.83(5)
(V)	18.5	10	0	$8.10(15) \times 10^{-2}$	
(VI)	18.5	10	-500	$8.55(15) \times 10^{-2}$	1.06(4)
(VII)	19.0	10	0	$13.4(2) \times 10^{-2}$	
(VIII)	19.0	10	-500	$10.8(2) \times 10^{-2}$	0.81(2)

電流量を上げるにつれて引き出し効率の上昇が確認されたとともに、中性化効率も改善の傾向が見られた。Saha Langmuir の式2.2によると、Fr が Y 表面から脱離する際、温度が高ければ高いほど中性化効率は落ちることが分かる。したがってこの中性化効率の上昇は、脱離温度が高いことによる影響ではなく、仕事関数の変化によって引き起こされたと考えられる。

この中性化効率評価実験は、前節の原子線評価実験の前日に行ったもので、スパッタした後にはじめて 17.5A 以上の電流を流していた。スパッタ後の Y 表面はランダムに Y 原子が降り積もった面であり、Ar 原子もその結晶内に存在しているために、理想的な結晶構造とは異なる結晶構造を形成していると考えられる。そのために Y 面のある部分においては実際の仕事関数はより大きな値になっており、大電流を流すことで表面が 900℃ 近くまで温まった際、結晶中に閉じ込められた Ar 原子が放出されるとともに結晶面の再構成が行われ、その結果仕事関数がより小さくなった可能性が考えられる。18.5A での中性化効率が 100％を超えたことは、この近辺で結晶面の再構成が急激に進んだ可能性を示唆している。この中性化効率の上昇を引き起こした要因及び表面再構成の過程については不明な部分も多く、今回得られたデータでは不十分であるため、さらに詳しく調べる必要がある。

Chapter 5

MOT 実験の結果と議論

5.1 MOT 実験

この節では、中性原子を磁場とレーザー光を組み合わせてトラップする MOT 実験の結果について述べる。

5.1.1 ^{87}Rb を用いた模擬実験

^{221}Fr の原子線を用いた MOT 実験を行う前段階として、化学的性質のよく似た同族原子の^{87}Rb を用いて、MOT のテストを行うとともに、Y のスパッタリングを用いた中性化機構の原理実証を行った。

Rb 原子線源としては既製品の Rb アンプルを用いた。Fig5.1にその導入図を示す。アンプルのサイズに合った、折り曲げ可能なベローズ内にアンプルを入れた。アンプルは一度使った後は大気に晒すことはできないので、ベローズと真空チャンバーとの間にはアングルバルブを取り付けた。これによりベローズの真空を保持できると共に、バルブの開閉によって Rb の導入を制御できるようになっている。アンプルをインストールした後は、初回に限りアングルバルブを開けてベローズ内まで真空を引いた後、ベローズを折り曲げて中のアンプルを割る。ベローズをリボンヒーターにより 100℃程度まで加熱することで、Rb 蒸気を真空チャンバーへと供給する。

直進導入機の先端に厚み 10 μm の白金板を取り付け、真空引きを行った後 Rb アンプルを焚いて MOT を観測した。この時、MOT セルは取り付けておらず、真空チャンバー内にコイルが入っている状態で実験は行った。

表に Rb の MOT 実験における実験パラメータをまとめる。この条件下において、CMOS カメラを用いて Rb の蛍光を撮影したところ、MOT された Rb 原子集団からの

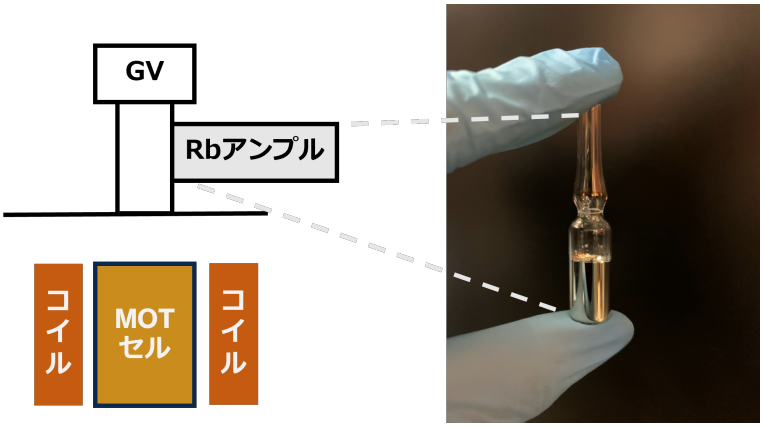


Fig 5.1: Rb アンプルは図のように MOT セル上部に ICF34 ゲートバルブを介して取り付けた

蛍光が観測された。Fig5.2にその CMOS カメラの画像を示す。図中の中央左に見える蛍光はアンチヘルムホルツコイルに流す電流の変化に対して反応し、電流をゼロにするとただちに消失したため、MOT された Rb による蛍光であると考えられる。

この MOT を観測している間、アンプルを焚き続けているので、真空チャンバー内には Rb 蒸気が充満しており、その一部は白金板上に付着していると考えられる。そこで、アンプル前のアングルバルブを閉じて、CMOS カメラで Rb の蛍光が観測されなくなったことを確認したのち、白金板を MOT 領域直下まで移動させ、白金板に直接電流を流すことで、ジュール熱を発生させ、加熱した。その結果約 720℃ まで加熱しても ^{87}Rb の蛍光は確認できなかった。

真空度	5×10^{-6} Pa
トラップ光パワー	各軸 12 mW
離調	20 MHz
リポンプ光パワー	各軸 3 mW
磁場勾配	9.3G/cm
CMOS カメラの露光時間	50 μs

Table 5.1: RbMOT 実験の典型的パラメータ

次に、白金板を Y 板直下に移動させ、表5.2のパラメータで 1 時間スパッタリングを行った。これにより、Y 板にAr^+ が衝突することで Y 原子が叩き出され、Y 原子が白金板に蓄積すると考えられる。続いてアンプルを焚いて約 5 分間アングルバルブを

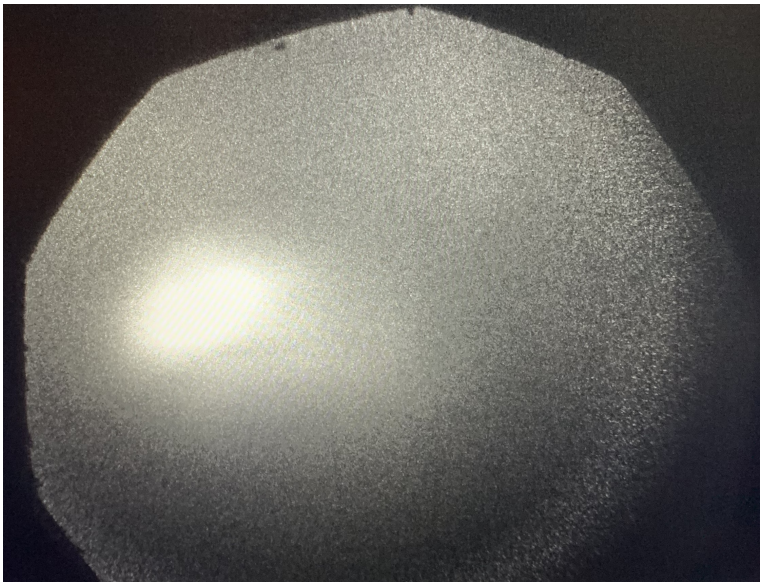


Fig 5.2: RbMOT の CMOS カメラ画像

開け、Rb の蛍光が見えなくなってから再び MOT 領域直下で徐々に加熱したところ、約 600℃ まで温度が上がった時点で MOT の蛍光が CMOS カメラで確認できた。この蛍光はしばらく加熱を続けると徐々に見えにくくなっていき、温度の上昇と共に蛍光量は瞬間的に増加する様子が確認できた。

この結果から、白金板の表面に付着した Rb が脱離する際、Saha Langmuir の式2.2から、そのほとんどはイオン化していると考えられ、実際に MOT は観測されなかったが、Y をスパッタすることによって白金板表面のほとんど、あるいはその一部が Y に覆われ、Y 表面から脱離する Rb は中性化されると考えられるので、MOT の蛍光が観測できたと考えられる。

この実験ではアンプルを焚いて Rb 蒸気を装置内に拡散させることによって加熱標的表面に Rb 原子を付着させたため、標的表面に付着した Rb 原子の数に関して定量的な評価ができなかったが、この結果から、Y の成膜ができかつその表面から脱離する Rb が中性化されることが示唆された。

この実験の後に、アンプルを約 5 分間焚いた後に、同条件でもう一度スパッタリングによる Y の成膜を行った。そのあとで MOT セル直下にて加熱を行うと 600℃ 近辺では MOT は確認されなかったが、700℃ 付近から少しづつ MOT の蛍光が観測され始め、温度の上昇に従ってその蛍光量は増加する様子が確認された。

これは最初表面にいた Rb 原子が、スパッタリングによって成膜された Y 層の中

真空度	3.1 Pa
Y 電圧	-1100 V
Y 電流	1010 μA
スパッタ時間	1 時間

Table 5.2: RbMOT 実験におけるスパッタリングの典型的パラメータ

に閉じ込められ、600℃ 近辺では脱離できなかったが、それ以上に加熱することで内部で熱拡散し、表面に到達した Rb が脱離していったことを示唆する結果となった。

5.1.2 Fr の MOT 実験におけるパラメータ

得られた原子線源を用いた Fr の MOT 実験について述べる。

今回開発した Fr 原子線源を MOT セル直下にて加熱し、MOT の蛍光の観測を試みた。実験中は CMOS カメラの映像と、その信号値をモニターしていたが、有意な信号は確認できなかった。離調は共鳴周波数 417.399580 THz からの離調を示しており、一回の加熱の後、5 MHz ずつ離調を変化させていった。実験は 5 分毎に 1 分間の加熱を行った。実験中のパラメータを表5.3に示す。

真空度	5×10^{-6} Pa
Fr 原子線源に流した電流量	19 A
加熱時間	60 s
トラップ光パワー	各軸 6.9 mW
離調	-70 〜+30 MHz
リポンプ光パワー	各軸 1 mW
磁場勾配	9.3 G/cm
CMOS カメラの露光時間	250 ms

Table 5.3: RbMOT 実験の典型的パラメータ

5.2 観測可能な原子数の見積もり

今回の実験では MOT の蛍光は観測されなかった。MOT された原子が放出する光子、およびそれによって検出されるシグナルと、実験時におけるノイズとを比べることで、捕獲された原子の最大値を見積もる。それを実験環境下で MOT される原子数の期待値と比べることで、MOT が観測されなかった要因について議論する。MOT された原子について、2 準位系とみなすとき、個々の原子が光子を散乱するレート R_p は

$$R_p = \frac{\Gamma}{2}\frac{s_0}{1+s_0}\frac{1}{1+(2\delta/\Gamma')^2} \tag{5.1}$$

とかける [45]。ただし、Γ は自然幅、$s_o = I/I_s$ は飽和パラメータ、I は原子に入射するレーザー光の強度、I_s は飽和強度を表し典型的には数 mW/cm^2 程度である。δ は ω をレーザー周波数、ω_0 を共鳴周波数としたときの離調 $\delta = \omega - \omega_0$ で、$\Gamma' = \Gamma\sqrt{1+s_0}$ である。

MOT された原子はエネルギー $\hbar\omega_0$ の光子を単位時間当たりに R_p 個等方的に放出するので、N_{atom} 個の原子が MOT されたとき、全方位に放出される光のパワー P_{total} は

$$P_{\mathrm{total}} = N_{\mathrm{atom}}\,\hbar\omega R_p \tag{5.2}$$

と書ける。

実際測定する際は、全方位に放出された光子のうち、検出器に入ったものが検出されることになる。MOT チャンバーの構成や検出機構は文献 [44] と同等のものであり、MOT 原子集団を点光源とみなした際の、検出機構がマウントされたビューポートの立体角は

$$\frac{\Omega}{4\pi} = \frac{8^2\pi}{4\pi \times 65^2} \simeq 0.0038 \tag{5.3}$$

となる。MOT チャンバーの断面図を Fig5.3に示す。

MOT の際の典型的なパラメータは $s_0 = 10, |\delta| = \Gamma/2$ であり、^{221}Fr の場合は $\Gamma = 2\pi \times 7.6$ MHz、$\lambda = 718$ nm であるから、これらの値を式5.1に代入することで、MOT された原子数に対して、検出器に入ってくる光パワーの関係が求められる。数個程度の MOT 原子を観測する際は 0.1 pW オーダーの光パワーを検出できる分解能が必要となる。

CMOS カメラの信号

CMOS カメラは Thorlabs の CS165MU を用いた。カメラの受光面にパワー P の光子が入ったとき、素子内では光電効果により光子が電子に変換される。このときの量子効率を η とすると、MOT された原子ひとつ当たりの CMOS の信号値 P_{atom} は

$$P_{\mathrm{atom}} = R_P\ \Omega\ \Omega_{\mathrm{BS}}\ T_{\mathrm{exp}}\ \eta \tag{5.4}$$

このとき T_{exp} は露光時間、Ω_{BS} はビームスプリッタによる減少分で、$\lambda = 718$ nm のとき $\Omega_{\mathrm{BS}} \simeq 1/2.3225$ である。露光時間が 250 ms のとき、

$$P_{\mathrm{atom}} \simeq 4.04 \times 10^3 \tag{5.5}$$

となる。

Fig5.4に、実験中の CMOS カメラからの信号の積算値と時間のグラフの一部を示す。

大きく信号量が増えている領域は加熱時間に対応しており、900℃ 以上に加熱された Fr 原子線源の輻射熱による信号と考えられる。非加熱時のベースラインは主に散

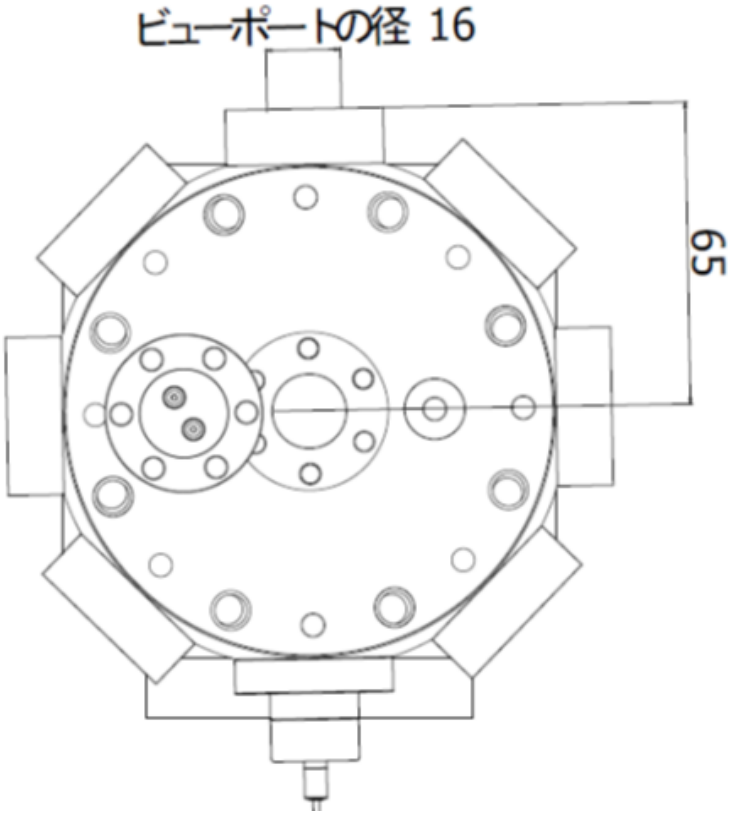


Fig 5.3: MOT チャンバーの断面図。
[44] より引用

乱光による信号であり、レーザーの偏光揺らぎやパワー揺らぎが見られる。一方で加熱中の揺らぎはそれらの揺らぎに加えて、加熱による輻射の揺らぎが含まれている。

実験中は加熱している間に、コイルに流す電流を 0 にすることで、MOT による蛍光が含まれていた場合に観測されるその信号量の減少を観測したが、いずれの場合も信号の揺らぎ以上の落差がありかつ再現性のあるトラップ周波数は見つからなかった。

CMOS カメラの信号量の揺らぎを求める。加熱時間中の信号量は不規則に変化するところがあるものの、30 秒以上ほぼ線形に変化していく時間があり、その部分において線形のフィッテイングを行う。Fig5.5にその領域とフィットした関数の例を示す。信号量の揺らぎは、そのフィットした関数と信号値との差分の分布の標準偏差として考える。加熱時間ごとにこの値を求め、その平均を $\sigma_{\text{heat \& laser}}$ とする

$$\sigma_{\text{heat \& laser}} \simeq 1.79 \times 10^5 \tag{5.6}$$

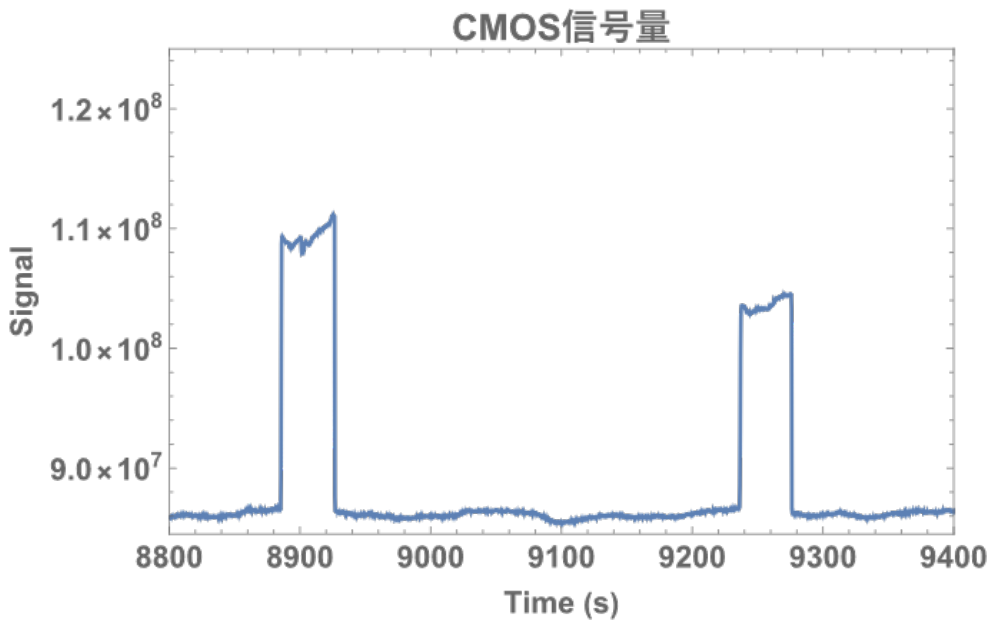


Fig 5.4: CMOS で観測した時のシグナル値と時間]

また、ベースラインについても同様にその揺らぎ σ_{laser} を求めると

$$\sigma_{\mathrm{laser}} \simeq 1.51 \times 10^5 \tag{5.7}$$

今、

$$\sigma_{\mathrm{heat\ \&\ laser}} = \sigma_{\mathrm{heat}} + \sigma_{\mathrm{laser}} \tag{5.8}$$

と仮定すると

$$\sigma_{\mathrm{heat}} \simeq 2.8 \times 10^4 \tag{5.9}$$

となり、加熱中は線源からの輻射によって信号量はほぼ線形に変化するが、その揺らぎの要因はレーザーの光強度の揺らぎが支配的であることが分かる。さらに、この揺らぎに相当する信号量を得るために必要な MOT 原子数は

$$\frac{\sigma_{\mathrm{heat\ \&\ laser}}}{P_{\mathrm{atom}}} \simeq 44 \tag{5.10}$$

と見積もられる。

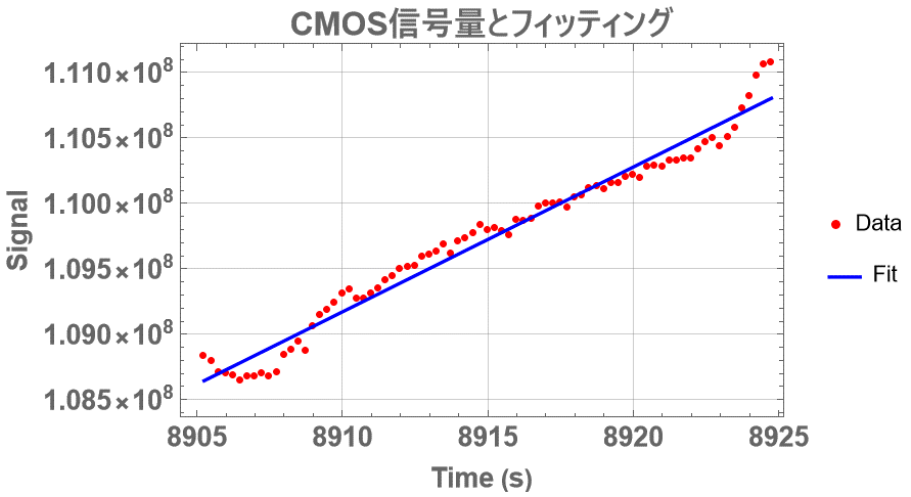


Fig 5.5: CMOS のシグナル値と時間にフィッティングしたグラフ

5.3 MOT 可能な原子数の評価

MOT で捕獲される原子数 N の時間変化は、以下のレート方程式に従う [46]。

$$\frac{dN}{dt} = R - \Gamma N - \beta \int n_{\mathrm{MOT}}^2(r,t)dV \tag{5.11}$$

ただし、R はバックグラウンドガスから MOT へのローディングレート、β はロスレート係数、Γ はバックグラウンドの熱原子とトラップされた冷却原子との衝突によるロスレート、n_{MOT} は MOT 原子密度を表す。したがって式5.11の右辺第三項は MOT された冷却原子同士の相互作用によるロスレートを意味している。

今、トラップされた冷却原子同士の相互作用は無視できるとしたときの定常状態の MOT 原子数は

$$N_{\mathrm{eq}} = R\tau = 0.1\frac{A}{\sigma}\left(\frac{v_c}{v_p}\right)^4 \tag{5.12}$$

と表される [47]。ここで、

$$\Gamma = 1/\tau = n_b \sigma v_p \tag{5.13}$$

であり、A はトラップ領域の断面積、σ はバックグラウンドガスとの衝突断面積、v_c は MOT 最大捕獲速度、v_p はバックグラウンドガスの平均速度、n_b はバックグラウンドガスの密度を表す。v_c はトラップ原子に及ぼす輻射圧に依存し、輻射圧はレーザー強度、磁場勾配、離調などの MOT パラメータに依存する。

実際の系では、原子は複数の準位を持っていてその散乱の過程はより複雑であり、レーザー光の不均一性の測定も困難であるため、このようなモデリングが実験結果と完全に整合することはない。

v_c の推定を巡っては様々な方法で MOT パラメータと v_c の関係が実験的に調査されてきた [46, 48, 49]。

ここでは実験結果から見積もられた最大トラップ効率から v_c を計算し、その妥当性を議論する。

簡単のため、最大捕獲速度 v_c 以下の速度をもつ原子はすべてトラップされるとし、ガラスセル内に入った Fr 原子はセル内で吸着・脱離を瞬時に繰り返していると仮定する。

このときのある速度分布 $f(v)$ をもつ原子集団において、そのトラップ効率は ϵ_{trap} は

$$\epsilon_{\mathrm{trap}} = \frac{\int_0^{v_c} f(v)dv}{\int_0^{\infty} f(v)dv} \tag{5.14}$$

と考える。またセル内の Fr は三次元ボルツマン分布

$$f(v) = \sqrt{\frac{2}{\pi}}\frac{v^2}{\alpha^3}\exp\left(-\frac{v^2}{2\alpha^2}\right) \tag{5.15}$$

であり、セル内壁から脱離する際の熱交換により、ほぼ室温で脱離していると考えられるので $T = 300$ K として考える。

原子線源を加熱することでセル内に侵入した Fr 原子数を N_{cell} とすると

$$N_{\mathrm{cell}} = N_{\mathrm{Y}} \times \Omega_{\mathrm{cell}} \tag{5.16}$$

ここで N_{Y} は原子線源から脱離した原子数で、Ω_{cell} は原子線源からガラスセルの入口までの立体角である。この立体角 Ω_{cell} は原子線源から等方的に Fr 原子が熱脱離するとしたときのモンテカルロシミュレーションにより

$$\Omega_{\mathrm{cell}} \simeq 0.46 \tag{5.17}$$

である。また、MOT 実験を行った日の Ac の線量は約 0.407MBq であり、その引き出し効率は 42%であるとすると、

$$N_{\mathrm{cell}} < 3.41 \times 10^7 \tag{5.18}$$

と見積もることができる。

ここで、文献 [44] と本実験の MOT パラメータを Table5.4に示す。離調周波数については、本実験とほとんど同じ MOT セットアップである文献 [44] における、Rb の MOT における最適値であった 10 MHz としている。さらにその最大捕獲速度の見積もりは $v_c \sim 14$ m/s であることから、本研究における最大捕獲速度もこの程度であるとしたとき、5.14,5.15から、

$$\epsilon_{\mathrm{trap}} \simeq 3.75 \times 10^{-5} \tag{5.19}$$

となり、この時の捕獲原子数 N_{MOT} は

$$N_{\mathrm{MOT}} < N_{\mathrm{cell}}\epsilon_{\mathrm{trap}} \simeq 1.3 \times 10^3 \tag{5.20}$$

これは前節で見積もった CMOS カメラの信号量の揺らぎに換算すると約 29σ 分の信号量に相当し、有意な蛍光が見られると思われる。しかしながら実験中にそのような蛍光は確認されなかった。このことは上で見積もったトラップ効率が実際はもっと低かったことを示唆している。

	ビーム直径	トラップ光強度	離調	磁場勾配
文献 [44]	1 cm	6.6 mW/cm^2	10MHz[a]	13G/cm
本実験	1 cm	8.8 mW/cm^2	10MHz[a]	13G/cm

[a] MOT を観測できていないために、Rb の MOT における最適値を仮定した

Table 5.4: 文献 [44] と本実験との MOT パラメータの比較

MOT 効率が想定よりも低くなった要因は、そもそも周波数の探索が不十分であったことも考えられるが、文献 [44, 46] と比べて本実験中は真空度が悪かったという点が挙げられる。

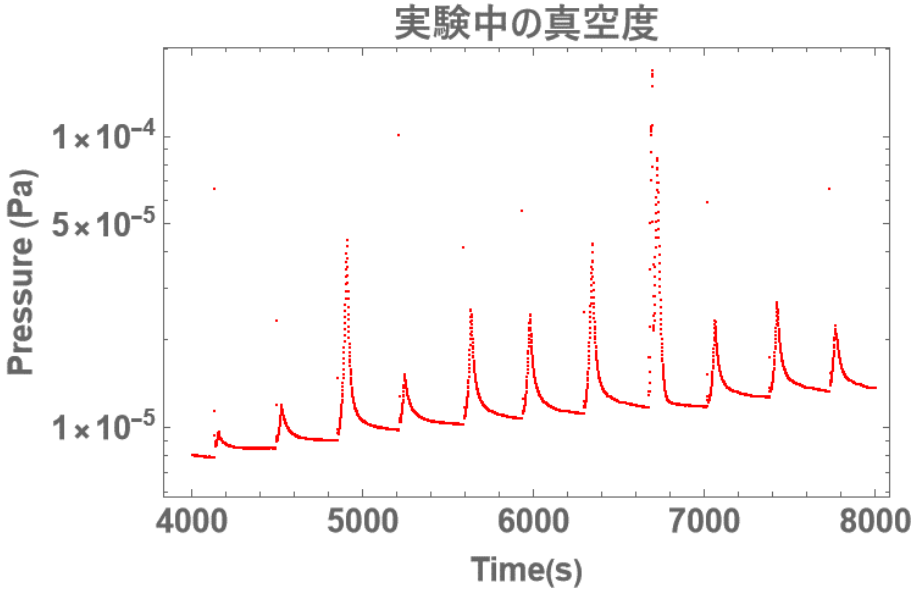


Fig 5.6: 実験中の真空度のグラフ

Fig5.6に真空チャンバーにおいて実験中に測定していた真空度を示す。文献 [44] において MOT セル内の真空度は 10^{-7} Pa 以下に保たれていた一方で、本実験では加熱時間にしたがって真空度は悪化し、ガラスセルの外で測定した値でおよそ 10^{-5} Pa 台であった。加熱源からのアウトガスが積極的に侵入していったと考えられるガラスセル内の真空度はさらに高かったと考えられ、これにより MOT の式5.11における第 2 項の衝突レートが増加した結果、MOT の原子数が減少してしまったと考えられる。

Chapter 6

結論と今後の展望

6.1 Fr 原子線源の開発とその性能

本研究では、EDM 測定精度向上に向けた、中性化・減速を高効率で行うことができる^{221}Fr 原子線源の開発を行った。親核の^{225}Ac を電着した白金基板に Y をスパッタによって製膜することで、中性化と減速を同時に高効率で実現した。Table6.1に今回開発した原子線源の効率を示す。

	^{221}Fr	効率
Ac の線量	1.07 MBq	
加熱による引き出し	1.5×10^8	42%
中性化効率	-	80%

Table 6.1: 本研究で開発した Fr 原子線源の性能

先行研究と比較してもその引き出し効率は 8 倍以上向上した。

第 1 章で述べたように、実験的に観測される^{221}Fr の EDM は、電子 EDM からの寄与、CP を破る相互作用からの寄与、そしてシッフモーメントからの寄与の 3 つの成分であった。Fr の同位体のうち、^{210}Fr の EDM は、電子 EDM と CP を破る相互作用に感度が高く、相対論的結合クラスター理論により、これらの 2 つの量の相関は、

$$D_a = 799 d_e + 10.5 \times 10^{-18} C_N^{S-PS(0)} e \text{ cm} \tag{6.1}$$

と記述されるが [12]、^{210}Fr の実験データと理論計算により、電子 EDM と CP を破る相互作用の寄与を高精度に評価することが可能である。^{210}Fr の EDM 探索計画は、並

行して理研・AVF サイクロトロンを用いて進められており、^{221}Fr の EDM との比較により、原子核 EDM の寄与を高精度に抽出できるが、その精度は、電子 EDM の精度に依存する。

6.2 今後の展望

6.2.1 MOT 効率の向上

今回開発した原子線源を用いた実験では、^{221}Fr の MOT の蛍光は観測されなかった。その要因の一つに MOT 効率の低さが考えられ、それはガラスセル内の真空度によるものと推察された。

また、別の要因として、今回の実験では Rb アンプルを用いた、コーティングセルのパッシベーションを行ったが、この効果は様々な要因で薄れていくために、実験中の加熱した輻射熱により、コーティングの劣化が進行していった可能性も考えられる。これを調べるためには、同族原子である Cs アンプルを用いてパッシベーションを行い、実験中 Rb アンプルを用いた MOT を観測することで、その蛍光量からコーティングの性能の劣化具合を確認すればよい。また、過剰なパッシベーションはガラスセル内のバックグラウンド原子数を上昇させるために、かえって MOT 原子数を減少させてしまう可能性もあるため注意が必要であると考えられる。

6.2.2 観測可能な原子数の改善

MOT 効率の向上に加えて、観測可能な原子数の改善によって MOT の蛍光を観測できる可能性が残されている。今回の MOT 実験では、ガラスセルに装着されたウィンドウ内壁のコーティングによる散乱光が大きく、レーザーの光強度の揺らぎの影響を強く受けていた。コーティング方法の改善により、散乱光を抑えることに成功すればより少ない原子数でもその蛍光を測定することができると考えられる。

6.2.3 Y 膜の表面状態

線源内部において、Ac からの α 崩壊によって生成した ^{221}Fr が、成膜した Y 膜内部で停止するために必要な Y 膜の厚みを得るために、約半日のスパッタリングを行う必要があった。これは何らかの要因で成膜速度が低いことが原因であり、Y 板と蒸着ターゲットとの距離をはじめ、電圧電源の性能向上やマグネトロンスパッタリングの導入などさらなる最適化の余地がある。スパッタされた Y が真空チャンバー内にも蒸

着することで、思わぬ短絡につながる可能性もあるため、今後繰り返しスパッタを行うためにはそれを防止する工夫も必要と考えられる。

また、スパッタされた Y 膜の表面状態は未知であり、本研究では成膜後に 900℃近く加熱することで表面状態の変化が起きている可能性が示唆された。この現象を理解するためには表面状態を調べる機構が必要であり、それによるさらなる中性化効率、引き出し効率の上昇につながる可能性がある。

6.2.4 電着効率の改善

今回東北大学金属材料研究所アルファ放射体研究室から理化学研究所へ移送した Ac は、実験室に到着した時点で線量は約 4 MBq で、電着効率は約 44% であった。同条件での電着効率 78% [28] と比べると電着効率が落ちていた。この要因としては

- 電着元素の物質量の違い
- 供給元の違いによる不純物の成分の違い

などが考えられる。今後、さらなる電着条件の最適化を行うと共に、供給源である Th からの精製分離の効率を改善することで、Ac 線量を増やすことができる。親核の物質量が増えることで、娘核の物質量が増えることに加えて、本実験で開発した原子線源の場合は、より低い加熱温度で十分量の Fr を引き出すことができ、その場合は真空度の急激な悪化を緩和することができる可能性が考えられる。

謝辞

この研究は様々な人たちのご協力のもと、遂行することができました。この場を借りて、感謝させていただきます。

指導教官である松田恭幸教授には、学部生の頃から大変お世話になりました。修士課程に入学した直後に海外での研究機会を作っていただいた他、東大 CNS での共同研究を開始するにあたっても私の希望を最大限尊重していただきました。修博を通して研究内容はもちろんの事、進路や私生活の相談に対しても松田教授が親身になってサポートしてくださり、様々なアドバイスを下さったおかげで充実した研究生活を送ることができました。ありがとうございました。

国立研究開発法人理化学研究所、仁科加速器科学研究センター核化学研究開発室の羽場宏光室長にも大変お世話になりました。化学に関して全くの素人の私を大学院生リサーチアソシエイト (JRA) として受け入れてくださり、本研究に欠かすことのできない放射化学の技術を一から丁寧に教えていただきました。ただでさえ素人であるにも関わらず不注意の多い私は何度研究室にご迷惑をおかけしたことか、もはや思い出すだけで心が痛くなるほどですが、そのたびに安全を最優先の上、優しく的確に私にご指導してくださったおかげで本研究を遂行することができました。ありがとうございました。

理学系研究科の酒見泰寛教授には、共同研究の申し出を快く承諾していただき、研究室に温かく迎え入れていただきました。研究について議論する際は実に多角的なご指摘、ご助言をいただいた他、励みになるお言葉を頂くことも多く、熱意を持って研究に打ち込むことができました。その他国際学会での発表機会を多く作っていただいたり、東北大での共同研究立ち上げに関しては最もスムーズな形で前に進めていただいたりと、酒見教授の全面的なサポートなしには本研究はありえませんでした。ありがとうございました。

同研究科の長濱弘季助教には研究を進めるために必要不可欠な知識、装置開発の

基礎から、研究に対する姿勢など本当に様々なことを学ばせていただきました。修士課程の頃から、困難に当たるたびに長濱助教には長時間議論に付き合っていただき、何度も突破口を見出していただきました。本研究の中心的なアイディアも、長濱助教との議論の中で生まれたものです。長濱助教と密に協力して研究を遂行した経験は私の人生においてかけがえのない財産になりました。ありがとうございました。

同研究科の中村圭介研究員には、レーザーに関して相談するたびに親身になって対応していただき、装置のことを分かりやすく教えていただきました。ありがとうございました。

松田研究室の中下輝士氏には、二人三脚でこの研究を進め、地道で大変な作業でも互いに励ましあいながら昼夜問わず付き合っていただきました。彼の協力がなければ本研究は決して成し遂げられませんでした。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。永瀬慎太郎氏はレーザーに関しての悩みはすぐに解決してくれ、研究以外の話で談笑する機会も多く、楽しく研究生活を送ることができました。深瀬未来氏は SSD の解析について相談させてもらい、彼の実直な研究姿勢に私も感化されてきました。ありがとうございました。

羽場研究室の皆様にも大変お世話になりました。重河優大研究員には、放射化学のプロフェッショナルとして素人質問にも関わらずなんでもすぐに答えていただき、実験のアドバイスもいただきました。南部明弘テクニカルスタッフには、放射化学の実験技術を基礎からご教示いただいただけでなく、放射性物質の汚染が発見された際には適切に対処していただいた他、難しい実験を手伝っていただいたりと大変お世話になりました。ありがとうございました。

仁科加速器科学研究センターの柳瀬宏太研究員には、シッフモーメントに関して丁寧かつ分かりやすく教えていただきました。ありがとうございました。

東北大学金属材料研究所アルファ放射体研究室の白崎謙次講師には、東北大学での分離精製実験にて数日間に渡って実験指導していただきました。電子光理学研究センター光量子反応研究部の菊永英寿准教授には Ac の精製分離実験を手伝っていただき、懇切丁寧にサポートしていただきました。国立研究開発法人日本原子力研究開発機構原子力科学研究部門先端基礎研究センターの塚田和明先生にも分離精製実験を手伝っていただき、実験中には放射化学にまつわる様々なことを明快に教えていただきました。ありがとうございました。

松田研究室の黒田助教には学部の頃からゼミで様々なことを学ばせていただきました。CERN 時代はご飯をご馳走していただき、研究生活の相談にも乗っていただきました。ありがとうございました。

ここまで私を育ててくれ、博士課程の間も惜しみなくサポートしてくれた家族に感謝します。最後に、研究がうまくいかない時には励まし支えてくれ、うまくいったときには共に喜びを分かち合ってくれた妻、真美華に心から感謝します。

Bibliography

[1] Makoto Kobayashi and Toshihide Maskawa. Cp-violation in the renormalizable theory of weak interaction. *Progress of theoretical physics*, Vol. 49, No. 2, pp. 652–657, 1973.

[2] Andrei D Sakharov. Violation of cp-invariance, c-asymmetry, and baryon asymmetry of the universe. p. 5(1):2427. JETP Lett., 1967.

[3] Takeshi Fukuyama. Searching for new physics beyond the standard model in electric dipole moment. *International Journal of Modern Physics A*, Vol. 27, No. 16, p. 1230015, 2012.

[4] MS Safronova, D Budker, D DeMille, Derek F Jackson Kimball, A Derevianko, and Charles W Clark. Search for new physics with atoms and molecules. *Reviews of Modern Physics*, Vol. 90, No. 2, p. 025008, 2018.

[5] Tanya S Roussy, Luke Caldwell, Trevor Wright, William B Cairncross, Yuval Shagam, Kia Boon Ng, Noah Schlossberger, Sun Yool Park, Anzhou Wang, Jun Ye, et al. An improved bound on the electron' s electric dipole moment. *Science*, Vol. 381, No. 6653, pp. 46–50, 2023.

[6] Maxim Pospelov and Adam Ritz. Electric dipole moments as probes of new physics. *Annals of physics*, Vol. 318, No. 1, pp. 119–169, 2005.

[7] LI Schiff. Measurability of nuclear electric dipole moments. *Physical Review*, Vol. 132, No. 5, p. 2194, 1963.

[8] Iosif B Khriplovich and Steve K Lamoreaux. *CP violation without strangeness: electric dipole moments of particles, atoms, and molecules.* Springer Science & Business Media, 2012.

[9] PGH Sandars. Enhancement factor for the electric dipole moment of the valence electron in an alkali atom. *Physics Letters*, Vol. 22, No. 3, pp. 290–291, 1966.

[10] Huliyar S Nataraj, BK Sahoo, BP Das, and D Mukherjee. Intrinsic electric dipole moments of paramagnetic atoms: rubidium and cesium. *Physical review letters*, Vol. 101, No. 3, p. 033002, 2008.

[11] BC Regan, Eugene D Commins, Christian J Schmidt, and David DeMille. New limit on the electron electric dipole moment. *Physical review letters*, Vol. 88, No. 7, p. 071805, 2002.

[12] Nanako Shitara, Nodoka Yamanaka, Bijaya Kumar Sahoo, Toshio Watanabe, and Bhanu Pratap Das. Cp violating effects in 210fr and prospects for new physics beyond the standard model. *Journal of High Energy Physics*, Vol. 2021, No. 2, pp. 1–21, 2021.

[13] Kota Yanase. Screening of nucleon electric dipole moments in atomic systems. *Physical Review C*, Vol. 103, No. 3, p. 035501, 2021.

[14] V Spevak, N Auerbach, and VV Flambaum. Enhanced t-odd, p-odd electromagnetic moments in reflection asymmetric nuclei. *Physical Review C*, Vol. 56, No. 3, p. 1357, 1997.

[15] Cristian Daniel Panda. *Order of magnitude improved limit on the electric dipole moment of the electron.* PhD thesis, Harvard University, 2019.

[16] Z-T Lu, KL Corwin, KR Vogel, CE Wieman, TP Dinneen, J Maddi, and Harvey Gould. Efficient collection of 221 fr into a vapor cell magneto-optical trap. *Physical review letters*, Vol. 79, No. 6, p. 994, 1997.

[17] Timothy Dinneen, Albert Ghiorso, and Harvey Gould. An orthotropic source of thermal atoms. *Review of scientific instruments*, Vol. 67, No. 3, pp. 752–755, 1996.

[18] M Tandecki, J Zhang, S Aubin, JA Behr, R Collister, E Gomez, G Gwinner, H Heggen, J Lassen, LA Orozco, et al. Offline trapping of 221fr in a magneto-optical trap from implantation of an 225ac ion beam. *Journal of Instrumentation*, Vol. 9, No. 10, p. P10013, 2014.

[19] S Liberman, J Pinard, HT Duong, Patrick Juncar, P Pillet, J-L Vialle, P Jacquinot, F Touchard, S Büttgenbach, C Thibault, et al. Laser optical spectroscopy on francium d 2 resonance line. *Physical review A*, Vol. 22, No. 6, p. 2732, 1980.

[20] SV Andreev, VI Mishin, and VS Letokhov. Rydberg levels and ionization potential of francium measured by laser-resonance ionization in a hot cavity. *JOSA B*, Vol. 5, No. 10, pp. 2190–2198, 1988.

[21] JE Simsarian, A Ghosh, G Gwinner, LA Orozco, GD Sprouse, and PA Voytas. Magneto-optic trapping of 210 fr. *Physical review letters*, Vol. 76, No. 19, p. 3522, 1996.

[22] JE Simsarian, WZ Zhao, LA Orozco, and GD Sprouse. Two-photon spectroscopy of the francium 8 s 1/2 level. *Physical Review A*, Vol. 59, No. 1, p. 195, 1999.

[23] SN Atutov, V Biancalana, A Burchianti, R Calabrese, L Corradi, A Dainelli, V Guidi, A Khanbekyan, B Mai, C Marinelli, et al. Production and trapping of francium atoms. *Nuclear Physics A*, Vol. 746, pp. 421–424, 2004.

[24] Y Sakemi, K Harada, T Hayamizu, M Itoh, H Kawamura, S Liu, Huliyar S Nataraj, A Oikawa, M Saito, T Sato, et al. Search for a permanent edm using laser cooled radioactive atom. In *Journal of Physics: Conference Series*, Vol. 302, p. 012051. IOP Publishing, 2011.

[25] Naoya Ozawa. Source of cold francium atoms aimed at a search for the permanent electric dipole moment(永久電気双極子能率探索を目指した冷却フランシウム原子源の開発). 博士論文, 2023.

[26] W Parker and R Falk. Molecular plating: a method for the electrolytic formation of thin inorganic films. *Nucl. Instr. Methods*, Vol. 16, , 1962.

[27] https://www.psi.ch/en/lrc/molecular-plating.

[28] 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, 東京大学大学院総合文化研究科, , 2022.

[29] JF Sell, K Gulyuz, and GD Sprouse. Collinear laser spectroscopy of francium using online rubidium vapor neutralization and amplitude modulated lasers. *Review of Scientific Instruments*, Vol. 80, No. 12, 2009.

[30] S Aubin, E Gomez, LA Orozco, and GD Sprouse. High efficiency magneto-optical trap for unstable isotopes. *Review of Scientific Instruments*, Vol. 74, No. 10, pp. 4342–4351, 2003.

[31] G Stancari, SN Atutov, R Calabrese, L Corradi, A Dainelli, C de Mauro, A Khanbekyan, E Mariotti, Paolo Minguzzi, L Moi, et al. Francium sources and traps for fundamental interaction studies. *The European Physical Journal Special Topics*, Vol. 150, pp. 389–392, 2007.

[32] R Delhuille, A Miffre, E Lavallette, M Büchner, C Rizzo, G Trénec, J Vigué, HJ Loesch, and JP Gauyacq. Optimization of a langmuir–taylor detector for lithium. *Review of scientific instruments*, Vol. 73, No. 6, pp. 2249–2258, 2002.

[33] 日本表面科学会. 日本表面科学会設立 10 周年記念　表面科学の基礎と応用. pp. 68–70, 1991.

[34] M Stephens, R Rhodes, and C Wieman. Study of wall coatings for vapor-cell laser traps. *Journal of applied physics*, Vol. 76, No. 6, pp. 3479–3488, 1994.

[35] SJ Seltzer, PJ Meares, and MV Romalis. Synchronous optical pumping of quantum revival beats for atomic magnetometry. *Physical Review A*, Vol. 75, No. 5, p. 051407, 2007.

[36] SN Atutov, R Calabrese, L Corradi, A Dainelli, CLAUDIO de Mauro, ALEN Khanbekyan, EMILIO Mariotti, Paolo Minguzzi, LUIGI Moi, S Sanguinetti, et al. A francium mot for atomic parity violation measurements. In *15th International School on Quantum Electronics: Laser Physics and Applications*, Vol. 7027, pp. 101–107. SPIE, 2008.

[37] M Tandecki, J Zhang, R Collister, S Aubin, JA Behr, E Gomez, G Gwinner, LA Orozco, and MR Pearson. Commissioning of the francium trapping facility at triumf. *Journal of Instrumentation*, Vol. 8, No. 12, p. P12006, 2013.

[38] Scott Jeffrey Seltzer. *Developments in alkali-metal atomic magnetometry.* Princeton University, 2008.

[39] DM Rampulla, N Oncel, E Abelev, YW Yi, S Knappe, and SL Bernasek. Effects of organic film morphology on the formation of rb clusters on surface coatings in alkali metal vapor cells. *Applied Physics Letters*, Vol. 94, No. 4, 2009.

[40] Yuliang Wang and Marya Lieberman. Growth of ultrasmooth octadecyltrichlorosilane self-assembled monolayers on sio2. *Langmuir*, Vol. 19, No. 4, pp. 1159–1167, 2003.

[41] Mingji Wang, Kenneth M Liechti, Qi Wang, and JM White. Self-assembled silane monolayers: fabrication with nanoscale uniformity. *Langmuir*, Vol. 21, No. 5, pp. 1848–1857, 2005.

[42] SJ Seltzer, DM Rampulla, S Rivillon-Amy, YJ Chabal, SL Bernasek, and MV Romalis. Testing the effect of surface coatings on alkali atom polarization lifetimes. *Journal of Applied Physics*, Vol. 104, No. 10, 2008.

[43] SN Atutov, R Calabrese, A Facchini, G Stancari, and L Tomassetti. Experimental study of vapor-cell magneto-optical traps for efficient trapping of radioactive atoms. *The European Physical Journal D*, Vol. 53, pp. 89–96, 2009.

[44] 永瀬慎太郎. 原子の電気双極子能率探索に向けたレーザー冷却フランシウム源の開発. 修士論文, 東京大学大学院理学系研究科, , 2022.

[45] Marold J. Metcalf and Peter van der Straten. Laser cooling and trapping. 1999.

[46] Magnus Haw, Nathan Evetts, Will Gunton, Janelle Van Dongen, James L Booth, and Kirk W Madison. Magneto-optical trap loading rate dependence on trap depth and vapor density. *JOSA B*, Vol. 29, No. 3, pp. 475–483, 2012.

[47] C Monroe, W Swann, H Robinson, and C Wieman. Very cold trapped atoms in a vapor cell. *Physical Review Letters*, Vol. 65, No. 13, p. 1571, 1990.

[48] Vanderlei Salvador Bagnato, Luis Gustavo Marcassa, SG Miranda, SR Muniz, and AL de Oliveira. Measuring the capture velocity of atoms in a magneto-optical trap as a function of laser intensity. *Physical Review A*, Vol. 62, No. 1, p. 013404, 2000.

[49] K Lindquist, M Stephens, and C Wieman. Experimental and theoretical study of the vapor-cell zeeman optical trap. *Physical Review A*, Vol. 46, No. 7, p. 4082, 1992.