

# 修士学位論文

## 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

Development of a Francium-221 Atomic Beam Source  
with an Electrodeposited Actinium-225 Plate  
for the Permanent Electric Dipole Moment Search

2021 年度

広域科学専攻・相関基礎科学系

31-206946

山根 風樹

# 目次

1	序論	3
1.1	物質優勢の宇宙	3
1.2	CP 対称性	3
1.3	素粒子の永久電気双極子能率 (EDM)	3
1.4	EDM の測定実験	4
1.4.1	EDM の測定原理	4
1.4.2	EDM の測定精度	4
1.4.3	EDM 測定実験の現状	5
1.4.4	電子 EDM の増幅効果	5
1.5	本研究の目標	6
2	Fr による電子 EDM 測定実験	7
2.1	$^{210}\text{Fr}$ EDM 測定実験の概要	8
2.2	$^{221}\text{Fr}$ EDM 測定実験の概要	11
2.2.1	$^{221}\text{Fr}$ EDM 実験の意義	12
2.2.2	$^{225}\text{Ac}$ 電着線源	13
2.2.3	$^{221}\text{Fr}$ 原子線源	14
3	Fr 測定装置の開発	15
3.1	Fr の $\alpha$ 崩壊	15
3.2	Fr 測定装置の設計	17
3.2.1	シリコン半導体検出器 (SSD) の測定原理	18
3.2.2	キャピラリー	19
3.2.3	SSD アパーチャー	19
3.2.4	Y キャッチャーからの立体角の計算	20
3.3	$^{210}\text{Fr}$ 測定実験	20
3.3.1	標準線源による SSD の校正	20
3.3.2	Y キャッチャーに堆積する Fr-210 のモデル計算	23
3.3.3	$^{210}\text{Fr}$ の測定結果	27
3.4	まとめと課題	30
4	$^{225}\text{Ac}$ 線源の開発	31
4.1	電着の原理	31
4.2	電着基板・電着セルの設計	32
4.3	ゲルマニウム半導体検出器による測定	34
4.4	$^{88}\text{Y}$ による電着の最適化	35
4.4.1	$^{88}\text{Y}$ の生成	36
4.4.2	$^{88}\text{Y}$ の分離精製	36
4.4.3	$^{88}\text{Y}$ の電着溶液の作成	37

4.4.4	$^{88}\text{Y}$ の解析	38
4.4.5	$^{88}\text{Y}$ の電着最適化実験の結果-Pt 基板	38
4.4.6	$^{88}\text{Y}$ の電着最適化実験の結果-Ti 基板	40
4.5	$^{225}\text{Ac}$ の電着	43
4.5.1	$^{225}\text{Ac}$ の電着結果-Pt 基板	43
4.5.2	$^{225}\text{Ac}$ の電着結果-Ti 基板	45
5	$^{221}\text{Fr}$ 原子線評価実験	46
5.1	実験概要	46
5.2	Ac 由来測定	49
5.2.1	実験結果	49
5.2.2	解析	50
5.3	Y 由来測定	53
5.3.1	実験結果	53
5.3.2	解析	54
5.4	炭素膜による $^{221}\text{Fr}$ の低エネルギー化評価実験	55
5.4.1	炭素膜によるエネルギー減衰の原理	55
5.4.2	炭素膜によるエネルギー減衰のモデル計算	56
5.4.3	炭素膜を被せた基板の作成	59
5.4.4	実験結果	61
5.4.5	解析	63
6	今後の展望	66
6.1	$^{225}\text{Ac}$ 線源の大強度化	66
6.2	最適な炭素膜の厚さの評価	66
7	補遺	68
7.1	補遺 A 低エネルギー $^{221}\text{Fr}$ 発生装置の開発計画	68
7.1.1	低エネルギー $^{221}\text{Fr}$ 発生装置の概要	68
7.1.2	低エネルギー $^{221}\text{Fr}$ 発生装置の開発	68
7.1.3	低エネルギー $^{221}\text{Fr}$ 原子線で MOT 収量予測	70
7.2	補遺 B MOT される $^{210}\text{Fr}$ 量の概算	71
7.3	補遺 C 電着した $^{225}\text{Ac}$ の厚さの概算	71
7.4	補遺 D 炭素膜による $^{221}\text{Fr}$ の Y キャッチャーへの堆積量の変化	72
7.5	補遺 E 炭素膜による真空度の悪化	72
8	謝辞	74
9	参考文献	76

# 1 序論

## 1.1 物質優勢の宇宙

現在通説となっているインフレーション宇宙論では、宇宙はビッグバンによって高エネルギーの塊として誕生し、宇宙初期にそのエネルギーを用いた対生成によって物質と反物質が厳密に同じ量生成されたと考えられている。しかし、現在の宇宙は反物質に対して物質の方が圧倒的に多い「物質優勢の宇宙」となっている。このバリオン数がゼロの状態から正味のバリオン数が正である物質優勢の宇宙になるには、サハロフの3条件 [1] と呼ばれる

1. バリオン数を破る過程が存在すること
2. C 対称性および CP 対称性の破れが存在すること
3. 熱非平衡状態が存在すること

を満たす必要がある。このうち、バリオン数の破れと熱非平衡状態が宇宙の進化のなかで存在したことはわかっている。そのため、次節で言及する C 対称性および CP 対称性の破れを説明することで物質優勢の宇宙が生まれた過程を説明することができる可能性がある。

## 1.2 CP 対称性

CP 対称性とは、粒子と反粒子の荷電共役変換 (C 変換; Charge Conjugation) と空間反転 (P 変換; Parity Transformation) を同時に行ったときの対称性である。

素粒子物理学の標準模型では、カビボ・小林・益川理論 [2] によって弱い相互作用に起因する CP 対称性を破る効果が内在することがわかっている。この CP 対称性を破る過程は、 $K^0$  中間子の崩壊過程の観測 [3] や  $B^0$  中間子の崩壊過程の観測 [4] によって確認されている。しかし、この標準模型の弱い相互作用による CP 対称性の破れでは、現在の物質優勢の宇宙を説明するには不十分であると考えられており [5]、標準模型を超えた大きさの CP 対称性の破れが存在すると予想されている。

また、C 変換と P 変換に加えて時間反転 (T 変換; Time Reversal) を同時に行ったときの対称性を CPT 対称性という。この CPT 対称性が破れる現象は見出されておらず、CPT 対称性は保たれていると考えられている。

## 1.3 素粒子の永久電気双極子能率 (EDM)

CP 対称性を破る物理量として素粒子の永久電気双極子能率 (EDM : Electric Dipole Moment) が挙げられる。EDM とは素粒子がもつ電荷分布の偏りを示す物理量であり、素粒子のスピンベクトル  $\mathbf{s}$  を用いて  $\mathbf{d} = d \frac{\mathbf{s}}{|\mathbf{s}|}$  と定義され、EDM の外部電場  $\mathbf{E}$  との相互作用ハミルトニアン  $\mathcal{H}_{EDM}$  は、

$$\mathcal{H}_{EDM} = -\mathbf{d} \cdot \mathbf{E}$$

と表される。この式に T 変換を施すと、

$$T(\mathcal{H}_{EDM}) = -(-\mathbf{d}) \cdot \mathbf{E} = -\mathcal{H}_{EDM}$$

となるため、 $d$  が有限値を持つとき  $T$  対称性を破ることがわかる。この  $T$  対称性の破れは  $CPT$  対称性から  $CP$  対称性の破れと同義である。よって、素粒子の EDM の探索は  $CP$  対称性の破れの探索となり、EDM の大きさを知ることは非常に重要である。

標準模型における  $CP$  対称性を破れによる EDM の大きさは、カビボ・小林・益川行列から導くことができる。例えば、電子 EDM は、

$$d_e^{SM} = 5.8 \times 10^{-40} \text{ e} \cdot \text{cm}$$

と計算される [6][7]。

## 1.4 EDM の測定実験

標準模型から予測される EDM の大きさは大きさは、現在の実験技術で測定可能な感度に比べて非常に小さい。しかし、前述したように物質優勢の宇宙を説明するためには標準模型以外の  $CP$  対称性の破れが必要であると考えられており、その効果によって EDM の大きさが測定可能なほどに大きくなる可能性がある。そのため、EDM の測定精度を上げていく過程で標準模型で予測される EDM より大きな値が観測されることで、標準模型を超えた  $CP$  対称性の破れの検証につながることを期待されており、複数の研究グループが電子や中性子などの EDM 測定実験を進めている。

### 1.4.1 EDM の測定原理

EDM の大きさの測定は、素粒子に対して電場と磁場を平行にかけたときと反平行にかけたときのスピン歳差運動の差から求めることができる。

スピン  $\mathbf{s}$ 、EDM  $d$ 、磁気モーメント  $\boldsymbol{\mu}$  をもつ粒子が、外部電場  $\mathbf{E}$ 、外部磁場  $\mathbf{B}$  と相互作用するとき、ハミルトニアン  $\mathcal{H}$  は以下の式で表される。

$$\mathcal{H} = -\boldsymbol{\mu} \mathbf{B} \cdot \frac{\mathbf{s}}{s} - d \mathbf{E} \cdot \frac{\mathbf{s}}{s}$$

ここで、電場と磁場を平行・反平行にかけたときのエネルギー固有値  $h\nu_{\pm}$  はそれぞれ、

$$\begin{aligned} h\nu_+ &= -\mu B + dE \\ h\nu_- &= -\mu B - dE \end{aligned}$$

であり、これらの周波数の差  $\Delta\nu$  は、

$$\Delta\nu = \frac{2dE}{h}$$

である。よって、EDM の大きさ  $d$  は、

$$d = -\frac{h\Delta\nu}{2E} \quad (1)$$

と表すことができ、外部電場  $E$  に依存したスピン歳差運動の周期変化を観測することで EDM の大きさを求められることがわかる。

### 1.4.2 EDM の測定精度

(1) 式より EDM の測定精度は、粒子が相互作用する時間  $\tau$ 、一度に測定する粒子数  $N$ 、測定回数  $n$  を用いて以下の式で表される。

$$\delta d = \frac{h\delta(\Delta\nu)}{2E} \sim \frac{1}{2E\tau\sqrt{Nn}} \quad (2)$$

これより、EDM の測定精度を上げるには、

- 電場を大きくする
- 相互作用時間を長くする
- 粒子数を多くする
- 測定回数を増やす

とよいことがわかる。EDM の測定に向けて、これらの影響を考慮しながら実験を計画する必要がある。

#### 1.4.3 EDM 測定実験の現状

現在、EDM は有限値として測定されていないが、実験によりその上限値が定められている。例えば、電子 EDM は酸化トリウム分子ビームを用いた実験によって、その上限値が

$$d_e < 1.1 \times 10^{-29} \text{ e} \cdot \text{cm}$$

と定められている [8]。

標準模型を超える物理理論 (BSM 理論) の中には、未知の新粒子による効果によってより大きな EDM が発現することを予言するものがある。BSM 理論である超対称性理論によると、超対称性粒子によって発現する電子 EDM  $d_e^{SUSY}$  は、

$$d_e^{SUSY} \sim 10^{-31} \text{ e} \cdot \text{cm}$$

と予測されている [9]。

よって、EDM の測定精度を上げることでこのような新粒子の検証につながるうえ、測定精度を 1 桁向上することによって電子 EDM が観測される可能性があると言える。

#### 1.4.4 電子 EDM の増幅効果

電子 EDM を測定するとき、電子を直接外部電場と相互作用させると加速されてしまうため測定が困難である。そこで、原子や分子といった中性の粒子を測定対象として、内部の電子 EDM を構造計算から算出する方法が用いられる。この構造計算は構造が複雑な系では困難であるが、アルカリ原子は最外殻電子が不対電子であるため高精度に電子 EDM を評価することが可能である。そのため、アルカリ原子は電子 EDM を測定するプローブとして期待される。

また、電子 EDM は、相対論効果によって原子内部の有効電場と相互作用し増幅することが知られている。アルカリ原子による電子 EDM の増幅度  $K$  は、電子 EDM  $d_e$ 、アルカリ原子の EDM  $d_A$ 、アルカリ原子の原子番号  $Z$ 、微細構造定数  $\alpha$  とすると、

$$K = \frac{d_A}{d_e} \sim Z^3 \alpha^2$$

と表される [10]。この式からアルカリ原子の原子番号が大きいほど増幅効果が大きくなる傾向にあることがわかる。

フランシウム (Fr) は、基底状態の原子の中で増幅度が最大であり、 $^{210}\text{Fr}$  の増幅度は、

$$K_{\text{Fr}} \sim 799$$

と計算されている [11]。

## 1.5 本研究の目標

本研究では、物質優勢の宇宙の起源の解明のために、FrEDM を高精度で測定することを目指して、

- 加速器を用いて生成した  $^{210}\text{Fr}^+$  ビームの性能評価
- $^{225}\text{Ac}$  電着基板の開発および  $^{225}\text{Ac}$  の  $\alpha$  崩壊によって生成した  $^{221}\text{Fr}$  を磁気光学トラップに供給するための低エネルギー原子線源の実現に向けた基礎開発

の2点を行った。

## 2 Fr による電子 EDM 測定実験

序論で述べたように、EDM を測定するためには測定精度をさらに向上させる必要がある。フランシウム (Fr) は、基底状態の原子の中で電子 EDM の増幅度  $K$  が最も大きく、相対論効果により 800 倍ほど増幅する。また、アルカリ原子であるため最外殻電子は不対電子となっており、相対論的結合クラスター理論など第一原理計算を用いて高精度に EDM を評価することが可能である。しかし、Fr は安定同位体を持たず半減期が最長の同位体の  $^{223}\text{Fr}$  でも 22 分であるため、測定の統計誤差を抑制するためには、同位体の寿命と比較して十分に短い時間で大強度の Fr を生成し測定を行う必要がある。

$n$  回測定を行うとき、

現在の EDM の実験による上限値である  $d = 1.1 \times 10^{-29} \text{ e} \cdot \text{cm}$  の精度を出すために必要な Fr の個数  $N$  は (2) 式より、増幅度  $K = 799$ 、外部電場  $E = 100 \text{ kV/cm}$ 、相互作用時間  $\tau = 3 \text{ s}$  とすると、

$$N = \frac{\hbar^2}{4K^2 E^2 \tau^2 n \delta d^2} = \frac{1}{n} \times 1.5 \times 10^{10}$$

と計算される。

つまり、現在の最も精度の良い実験による上限を更新するには、仮に一度に  $10^8$  個の Fr で測定を行うことができるとすると 150 回の測定で到達できるが、一度に  $10^6$  個の Fr で測定を行うと 15000 回の測定が必要であるということが言える。よって、できるだけ多くの Fr を安定的に捕獲領域に供給することが実験を成功させるために重要である。

そこで、大強度の酸素ビームを金標的に照射することで生成した  $^{210}\text{Fr}$  を冷却・捕獲し、電子 EDM を測定することを目指している。現在は、 $^{210}\text{Fr}$  の  $10^7/\text{s}$  の生成に成功し、磁気光学トラップによる捕獲の実験を進めている。

また、 $^{221}\text{Fr}$  を  $^{225}\text{Ac}$  の  $\alpha$  崩壊によって生成し捕獲する実験装置の開発を並行して進めている。この  $^{221}\text{Fr}$  線源は、線源強度の強い  $^{225}\text{Ac}$  を使用することで大強度化が可能である。

このように、Fr の複数の同位体で EDM 測定実験を行う理由は、異なる CP 対称性の破れの起源の探索となるためである。Fr のような重元素は、中性子数が異なる多数の同位体が存在する。このような重元素では、原子核の構造、特に変形効果が同位体によって異なり、 $^{221}\text{Fr}$  および  $^{223}\text{Fr}$  では 8 重極変形の効果が顕著になる [12]。原子の EDM は、その構成要素である電子と原子核 (クォーク)、そしてそれらの相互作用における CP の破れの寄与の和として表わされるが、この原子核変形効果が異なる同位体を用いることで、これらの異なる CP 対称性の破れの起源を識別・抽出することが可能になる。

本研究では、2 種類の同位体による EDM 探索を目指し、Fr の高輝度原子線源、そしてその収量を測定するための測定装置の開発を行った。 $^{210}\text{Fr}$  EDM 測定実験に関しては Si 半導体検出器 (SSD) による Fr の測定から、MOT 領域への  $^{210}\text{Fr}$  輸送量を評価した。また、 $^{221}\text{Fr}$  EDM 測定実験に関しては、 $^{221}\text{Fr}$  を捕獲する装置を新しく導入することを目指して  $^{221}\text{Fr}$  の親核である  $^{225}\text{Ac}$  を基板に電着する手法の最適化を行い  $^{225}\text{Ac}$  の電着基板を作成した。さらに、その  $^{225}\text{Ac}$  を  $^{221}\text{Fr}$  線源として使用する装置の開発を行い、SSD の測定によって線源を評価した。

この章では、順に実験の概要を紹介する。

## 2.1 $^{210}\text{Fr}$ EDM 測定実験の概要

$^{210}\text{Fr}$  による電子 EDM 測定実験は理化学研究所・仁科記念棟 E7 実験室で展開している。現在、実験装置は図 1 に示したように

- ECR イオン源から供給される酸素イオンを加速し酸素ビームを生成する AVF サイクロトロン
- 酸素ビームを金標的に照射し  $^{210}\text{Fr}$  を生成した後、イオンとして引き出しイットリウム板 (Y キャッチャー) に照射する表面電離イオン源
- 直進回転導入機に接続された Y キャッチャーによって輸送された  $^{210}\text{Fr}$  を中性粒子として放出する中性化チャンパー
- 中性化した  $^{210}\text{Fr}$  を磁気光学トラップ (MOT) によって、冷却・捕獲する MOT 用真空チャンパー

によって構成されている。

MOT した  $^{210}\text{Fr}$  を捕獲する光格子および EDM を測定する空洞共振器は開発中であり、真空チャンパーに組み込むことを予定している。

この節では、本実験の各過程を説明する。

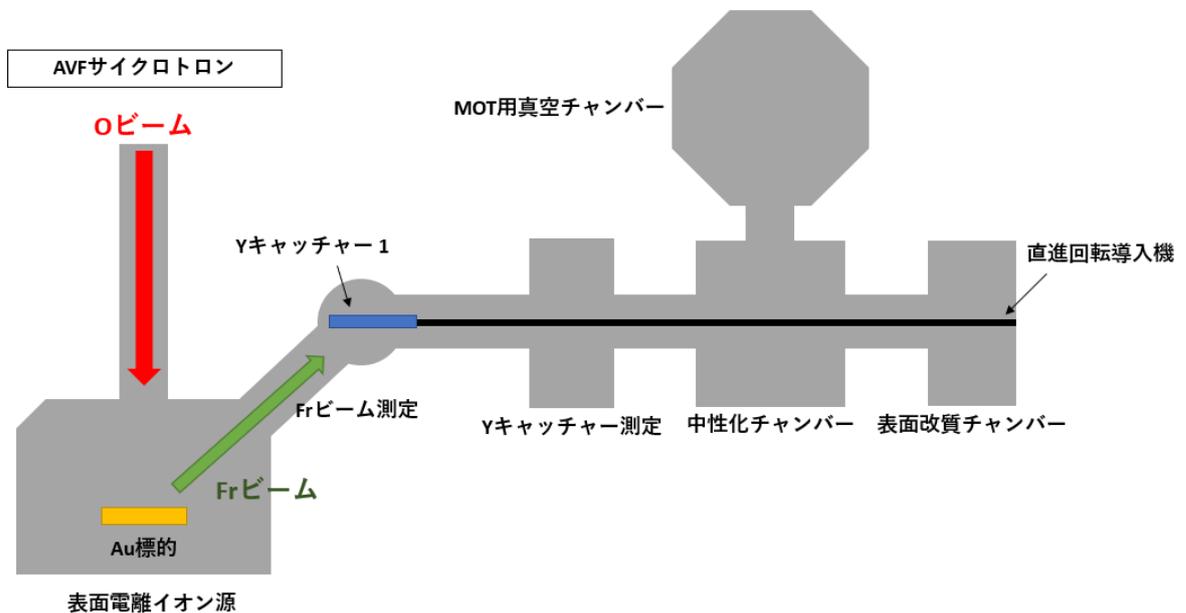


図 1  $^{210}\text{Fr}$  EDM 測定実験の装置の模式図。

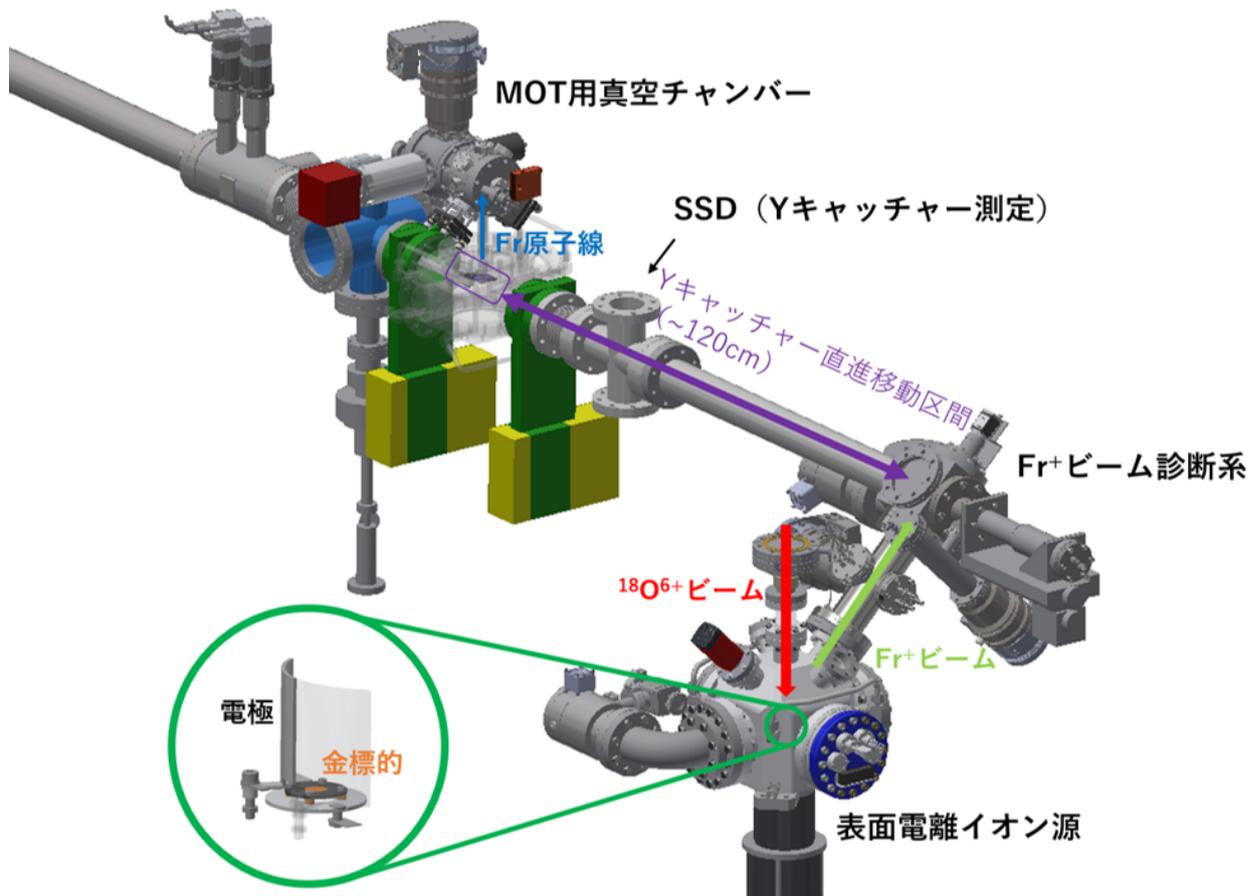
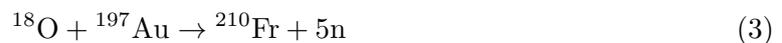


図2  $^{210}\text{Fr}$  EDM 測定実験の装置の3D図。

### $^{210}\text{Fr}$ の生成

理研 ECR イオン源から供給される  $^{18}\text{O}^{6+}$  を、仁科加速器科学研究センター AVF サイクロトロンで  $7\text{ MeV/u}$  ( $112\text{ MeV}$ ) まで加速する。加速された  $^{18}\text{O}^{6+}$  ビームを Au 標的に照射し、式 (3) の核融合反応を起こすことで  $^{210}\text{Fr}$  を生成する。



この核融合は、 $^{210}\text{Fr}$  を生成する AVF サイクロトロンで照射可能な原子と標的の組み合わせの中で、標的が化学的に安定であること融点が比較的高いことなどを考慮して選定された。

### $^{210}\text{Fr}^+$ ビームの生成

Au 標的を赤外線ヒーターで加熱することで内部で生成された  $^{210}\text{Fr}$  を熱拡散および熱脱離させる。このとき、Au の仕事関数が Fr の第一イオン化ポテンシャルより大きいため、 $^{210}\text{Fr}$  は一価の陽イオンとして放出される。この  $^{210}\text{Fr}^+$  を電極によって  $100 \sim 1000\text{ eV}$  のエネルギーで引き出すことで  $^{210}\text{Fr}^+$  ビームを生成する。

### $^{210}\text{Fr}$ の MOT 領域までの輸送

$^{210}\text{Fr}^+$  ビームを中性化標的であるイットリウム (Y) キャッチャーに当てて捕獲し、直進回転導入機によって MOT 領域直下まで移動させることで輸送する。このとき、Y キャッチャーに堆積した  $^{210}\text{Fr}$  の量を測定することで、 $^{210}\text{Fr}^+$  ビームを評価することができるうえ、MOT 領域に輸送される  $^{210}\text{Fr}$  量を計算することができる。3 章では、シリコン半導体検出器によって Y キャッチャーに堆積した  $^{210}\text{Fr}$  量の測定装置を開発し、評価した詳細を記述する。

その後、MOT 直下で Y キャッチャーを赤外線ヒーターで加熱することで  $^{210}\text{Fr}$  を熱拡散および熱脱離させる。このとき、Y の仕事関数が Fr の第一イオン化ポテンシャルより小さいため、 $^{210}\text{Fr}$  は中性原子として放出される。この  $^{210}\text{Fr}$  を吸着防止コーティングを施したキャピラリーを通して、MOT 領域まで輸送する。

### 磁気光学トラップ (MOT) での捕獲

捕獲された  $^{210}\text{Fr}$  を磁気光学トラップ (MOT) で捕獲する。MOT とは、中性原子を 3 方向からのレーザー冷却と反ヘルムホルツコイルの不均一磁場によるゼーマンシフトによって 3 次的に冷却・捕獲する手法である。

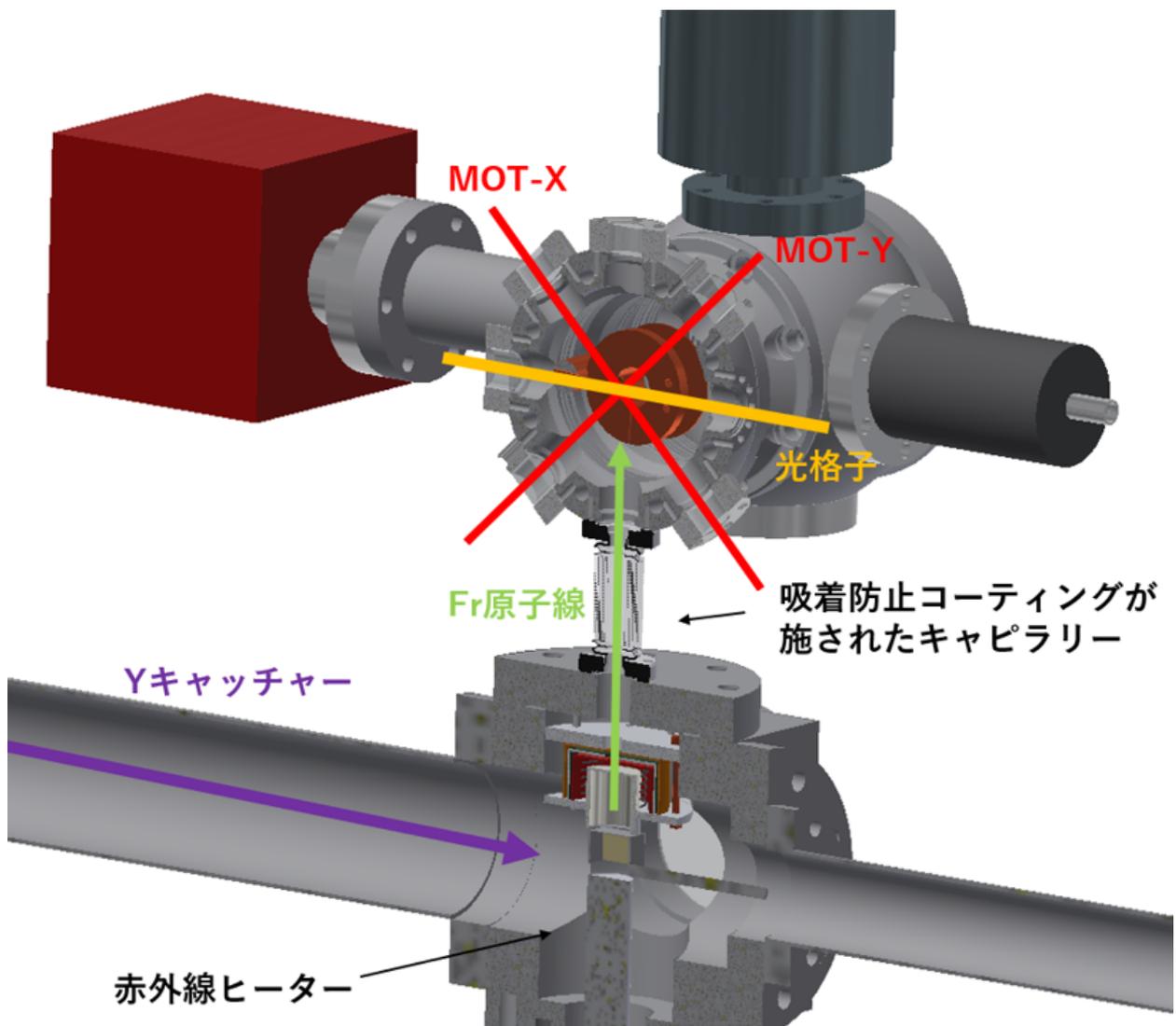


図 3 MOT 周辺の 3D 図。

## 光格子での捕獲・EDM 測定

MOT で捕獲された  $^{210}\text{Fr}$  を、大強度のレーザー光で生成した光格子で捕獲する。光格子とは光の定在波で形成される格子状のポテンシャルである。光格子に  $^{210}\text{Fr}$  を配置することで捕獲して磁気シールドされた空洞共振器内まで輸送し、ラムゼー分光により EDM を測定する。

### 2.2 $^{221}\text{Fr}$ EDM 測定実験の概要

$^{221}\text{Fr}$  EDM 測定実験は、 $^{225}\text{Ac}$  線源から生成される  $^{221}\text{Fr}$  を捕獲し EDM 測定を行う実験である。実験装置は図 4 に示したように、 $^{210}\text{Fr}$  EDM 測定実験で使用する MOT 用真空チャンバーの上部に、 $^{225}\text{Ac}$  線源、直進導入機に接続した Y キャッチャーおよび MOT 用ガラスセルで構成された装置を新たに導入することを計画している。

この装置で、

- $^{225}\text{Ac}$  線源から放出される  $^{221}\text{Fr}$  を Y キャッチャーで捕獲する
- 直進導入機によって MOT 用ガラスセル直下まで輸送する
- 熱脱離または光誘起脱離によって放出した  $^{221}\text{Fr}$  を MOT 用ガラスセル内の MOT 領域で捕獲する
- プッシュ光または重力を利用し真空チャンバーまで輸送する
- $^{210}\text{Fr}$  同様、光格子で捕獲し EDM を測定する

ことを目指して、開発を進めている。

ガラスセルには吸着防止コーティングを施すことで、真空チャンバーに比べて到達できる真空度は低くなるが高効率に MOT することが可能であるため、第一段階の捕獲として有効である。吸着防止コーティングされたガラスセルを使用して内壁に吸着した  $^{221}\text{Fr}$  を脱離させ MOT 領域を何度も通過させることで、ガラスセルに入射した  $^{221}\text{Fr}$  の 56 % である  $1.3 \times 10^3$  個の MOT に成功した例が報告されている [13]。

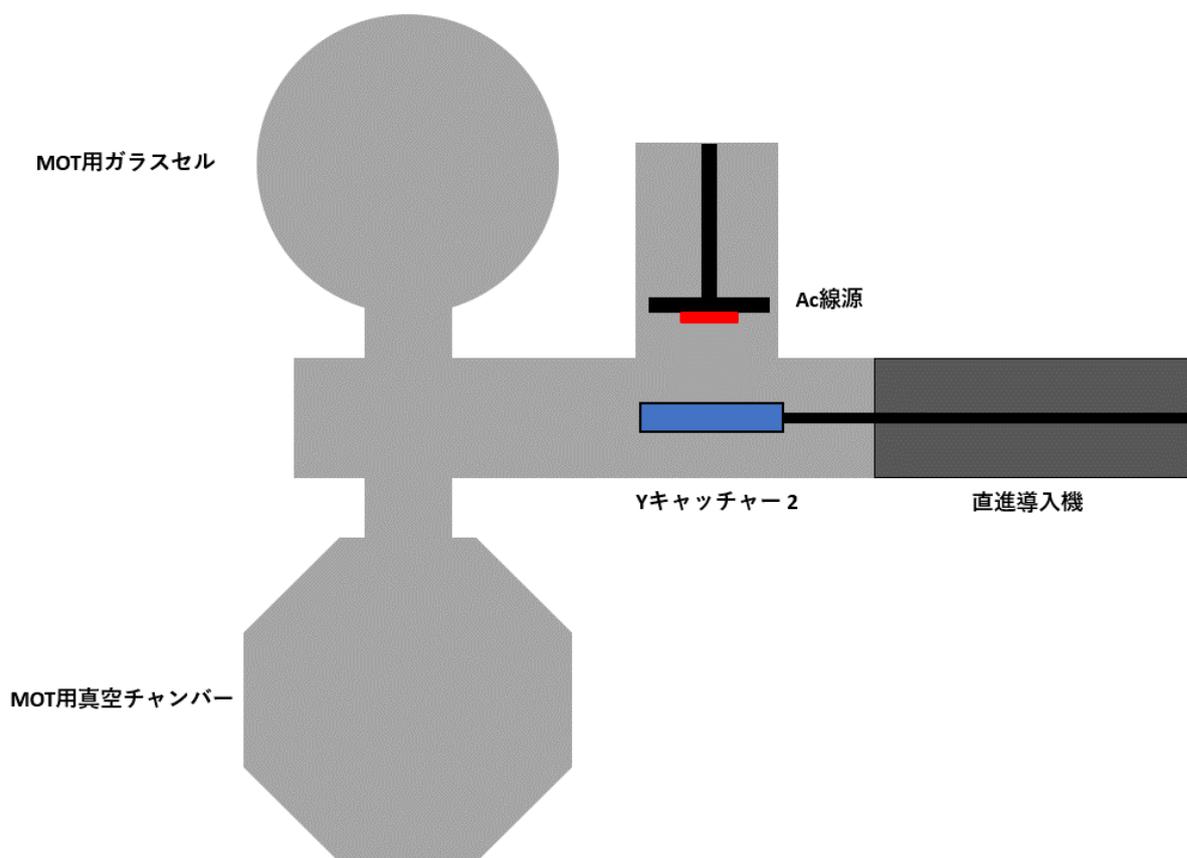


図4  $^{221}\text{Fr}$ EDM 測定実験の装置の模式図。 $^{210}\text{Fr}$ EDM 測定実験の装置の上部に組み込むことを計画している。図中の MOT 用真空チャンバーは、図1の MOT 用真空チャンバーと同じものである。Y キャッチャーは図1のものとは異なり新たに導入する。

また、本研究では  $^{225}\text{Ac}$  線源を組み込んだ低エネルギー  $^{221}\text{Fr}$  発生装置を開発し、MOT 用真空チャンバーの MOT 領域の近くに導入することで、直接 MOT 領域に  $^{221}\text{Fr}$  を放出する計画および評価も行った。この詳細は補遺に載せた。

この節では  $^{221}\text{Fr}$ EDM 測定実験の意義と本研究で行った  $^{225}\text{Ac}$  基板の作成および  $^{221}\text{Fr}$  原子線の評価の概要を述べる。

### 2.2.1 $^{221}\text{Fr}$ EDM 実験の意義

原子 EDM は、原子を構成するクォークと電子に内在する EDM およびこれらの素粒子の間に生じる相互作用における CP 対称性の破れの効果が足しあわされることによって発現する。序論で述べたように、原子中の電子 EDM は相対論効果によって原子核の内部電場と相互作用し増幅される。一方で、クォーク色電荷 EDM が要因となって生じる原子核 EDM は核構造の変形によって増幅される [14]。電子 EDM は同位体によって大きく変化しないのに対して、原子核 EDM の増幅度は同位体によって異なるため、複数の同位体の EDM を測定することでさまざまな CP 対称性の破れの起源を識別することが可能になる。

特に、Fr のような重元素領域では多くの同位体が存在し、その原子核構造は中性子数に応じて多彩な様相を持つ。本研究では、 $^{210}\text{Fr}$  とともに中性子数が 11 個多い同位体である  $^{221}\text{Fr}$  に着目す

る。 $^{221}\text{Fr}$  は原子核において 8 重極変形が大きくなるため、原子核 EDM の増幅度が大きくなることが核構造理論計算によって示唆されている [15][16]。よって、 $^{210}\text{Fr}$  と  $^{221}\text{Fr}$  の 2 つの同位体の EDM 測定により、電子 EDM と原子核 EDM の識別を行うことができることが期待される。

将来的には、 $^{210}\text{Fr}$  と  $^{221}\text{Fr}$  を図 5 のような装置で同時に捕獲して EDM 測定を行うことを計画している。このように同時に測定を行うとノイズの影響などの実験条件が揃えられるため、それぞれの EDM 測定を別々に行った結果から電子 EDM と原子核 EDM を評価するよりも精度良く評価できると考えられる。

$^{221}\text{Fr}$  は  $^{225}\text{Ac}$  の  $\alpha$  崩壊で生成するため、加速器を使用しないオフラインでの実験が可能であるため、測定中に中性子などの影響を受けにくいことや実験室内で遠隔操作をすることなく実験が行えることなどの実験的メリットが存在する。しかし、安全管理の観点から非密封線源である  $^{225}\text{Ac}$  の実験室内での使用可能な線源強度は、現段階では 1 日あたり 10 kBq までと制限されており、オンラインでの  $^{210}\text{Fr}$  EDM 測定実験に比べて得られる Fr の量が少なくなる。そのため、 $^{221}\text{Fr}$  をできるだけ高効率で輸送および捕獲することができるように計画を進めている。

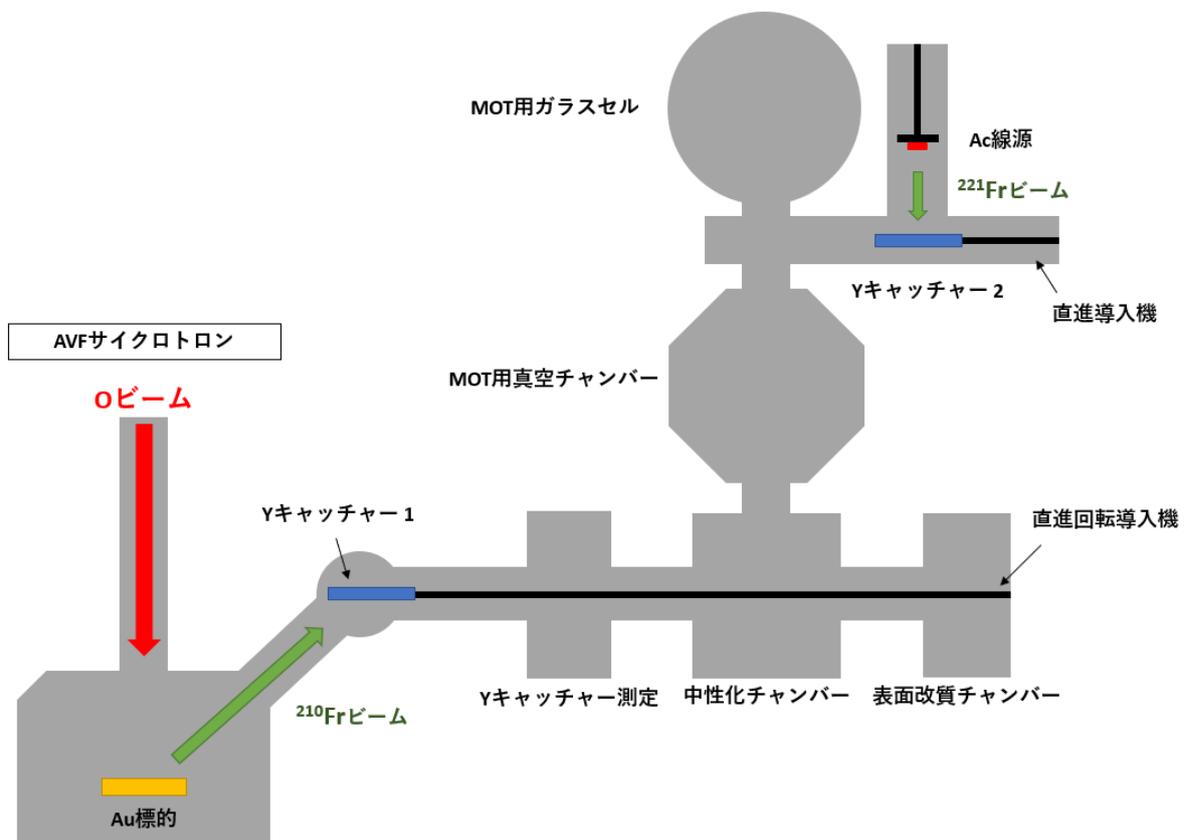


図 5  $^{210}\text{Fr}$  EDM 実験と  $^{221}\text{Fr}$  EDM 実験を合わせた実験装置の模式図。

### 2.2.2 $^{225}\text{Ac}$ 電着線源

$^{225}\text{Ac}$  は、半減期 7880 年のタリウム ( $^{229}\text{Tl}$ ) の  $\alpha$  崩壊の娘核であるラジウム  $^{225}\text{Ra}$  の  $\beta^-$  崩壊から生成される。ここから分離精製することで純度 99.6(7)% の  $^{225}\text{Ac}$  を入手することができる

[17]。現在は、オークリッジ国立研究所で製造されている 74 MBq の  $^{225}\text{Ac}$  が購入可能である。将来的には、理化学研究所で製造が計画されており、さらに高線量の  $^{225}\text{Ac}$  を分離精製後、崩壊が進む前に使用できるようになることが期待されている。

表 1  $^{225}\text{Ac}$  の崩壊特性

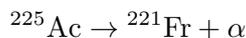
半減期	9.9 d.
$\alpha$ 崩壊の分岐率	$b_{\alpha} = 100\%$
主な $\alpha$ 崩壊のエネルギー (分岐率)	5732(8.0%)
	5790 keV (8.6%)
	5792.5 keV (18.1%)
	5830 keV (50.7%)

The Lund/LBNL Nuclear Data Search[18] をもとに作成

$^{225}\text{Ac}$  線源は、 $^{225}\text{Ac}$  を基板に電着させることで作成する。電着の方法は経験則的に開発されているため、使用する基板の材質と形状に対して  $^{225}\text{Ac}$  がどの程度電着できるかは、十分検証する必要がある。そこで、 $^{225}\text{Ac}$  を電着する基板および電着のためのセルの開発を行い、化学的性質が似ている  $^{88}\text{Y}$  を使用し電着パラメータを最適化する実験を行った。この実験をふまえて  $^{225}\text{Ac}$  の電着を行い、 $\gamma$  線測定によって線源の評価を行った。これらの詳細は 4 章に示す。

### 2.2.3 $^{221}\text{Fr}$ 原子線源

$^{221}\text{Fr}$  は  $^{225}\text{Ac}$  の  $\alpha$  崩壊の反跳で飛び出してくる娘核として得ることができる。



$^{225}\text{Ac}$  の  $\alpha$  崩壊によって放出される  $\alpha$  線の主要なエネルギーは 5830 keV であり、この反跳で飛び出す  $^{221}\text{Fr}$  のエネルギーは 105 keV である。エネルギー損失計算コード SRIM[19] で計算を行った結果、105 keV の  $^{221}\text{Fr}$  は Y キャッチャーに 33.4 nm 埋め込まれて停止する。これは Y 原子 175 層ほどに相当し、Y キャッチャー表面まで  $^{221}\text{Fr}$  の半減期より十分短い時間で輸送し、脱離させるためには、700 °C 以上まで加熱する必要がある。熱脱離する  $^{221}\text{Fr}$  は、その加熱温度のエネルギーが与えられるため、加熱温度低をく抑えることができると、MOT の捕獲効率の向上が期待される。

そこで、 $^{225}\text{Ac}$  線源に炭素膜を被せることで、照射される  $^{221}\text{Fr}$  を低エネルギー化させることを計画した。低エネルギーで飛び出した  $^{221}\text{Fr}$  を Y キャッチャーの表面近くくに堆積させることで、熱脱離に必要な加熱温度を下げる可以考虑。

5 章では、 $^{221}\text{Fr}$  線源の開発を行い、SSD での測定によって性能評価を行った。さらに、炭素膜による  $^{221}\text{Fr}$  の低エネルギー化の実験を行い評価した。

### 3 Fr 測定装置の開発

電子 EDM を  $d_e < 10^{-30} \text{ e} \cdot \text{cm}$  の測定精度で探索するために、磁気光学トラップ (MOT) で  $10^6$  個以上の原子を捕獲することを目指している。そのために、Fr 生成表面電離イオン源、Fr ビーム輸送系、高輝度 Fr 原子線生成装置および MOT という複数の構成要素を段階的に評価し最適化を行う必要がある。 $^{210}\text{Fr}$  は、核融合反応により生成するため、安定原子と比較して生成原子数が極めて限られる。そのため、生成された  $^{210}\text{Fr}$  を高効率で MOT まで輸送することが重要である。本研究では、高効率の輸送の実現を目指して、Au 標的から引き出された  $^{210}\text{Fr}$  を輸送するイットリウム (Y) キャッチャーに堆積している  $^{210}\text{Fr}$  の量を測定する装置の開発を行った。この測定結果を解析することで、各輸送系のパラメーターの最適化が可能になるうえ、MOT 領域に到達する  $^{210}\text{Fr}$  の量を評価することができる。さらに、この測定によって、Au 標的から引き出された Fr が Y キャッチャーのどこに付着しているかを知ることができるため、Y キャッチャーを MOT 領域の真下に精度良く持って行くことが可能になり、MOT 領域に到達する Fr 量が増えることが期待される。

また、 $^{221}\text{Fr}$  も同様に  $\alpha$  崩壊するため、5 章に記述した  $^{221}\text{Fr}$  原子線評価実験でもこの装置で測定を使用した。

この章では、Fr 測定装置の開発について記述し、 $^{210}\text{Fr}$  捕獲実験での測定結果から MOT の収量を予測する。

#### 3.1 Fr の $\alpha$ 崩壊

Fr のような重元素は、 $\alpha$  崩壊や  $\beta$  崩壊によって安定核へ遷移していく。 $\alpha$  線のエネルギーとその分岐率は核種によって一定であるため、 $\alpha$  線のエネルギーを測定することで核種を同定し、その強度から核種の量を計算することができる。しかし、 $\alpha$  線の大気中での飛程はわずか数 cm であるため、測定は真空中で行う必要がある。

$^{210}\text{Fr}$ 、 $^{221}\text{Fr}$  はそれぞれ下表のような特性をもつ。また、 $^{210}\text{Fr}$ 、 $^{221}\text{Fr}$  の崩壊系列を図 7、図 7 に示した。

表 2  $^{210}\text{Fr}$  の崩壊特性

半減期	3.18 min.
$\alpha$ 崩壊の分岐率	$b_\alpha = 60\%$
$\beta^+$ 崩壊の分岐率	$b_\beta = 40\%$
主な $\alpha$ 崩壊のエネルギー (分岐率)	6543 keV (100%)

表 3  $^{221}\text{Fr}$  の崩壊特性

半減期	4.9 min.
$\alpha$ 崩壊の分岐率	$b_\alpha = 100\%$
主な $\alpha$ 崩壊のエネルギー (分岐率)	6126.3 keV (15.1%) 6243.0 keV (1.34%) 6341.0 keV (83.4%)

The Lund/LBNL Nuclear Data Search[18] をもとに作成

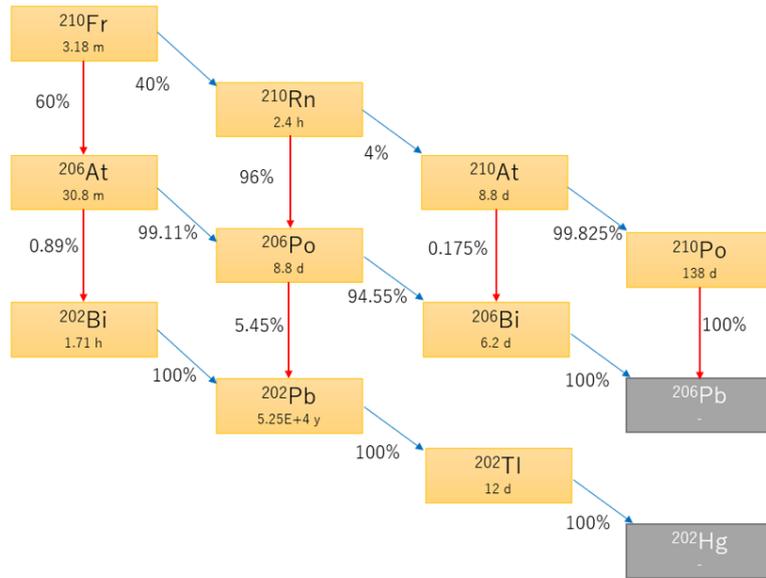


図 6  $^{210}\text{Fr}$  の崩壊系列および各核種の寿命と分岐率。赤矢印は  $\alpha$  崩壊、青矢印は  $\beta^+$  崩壊。

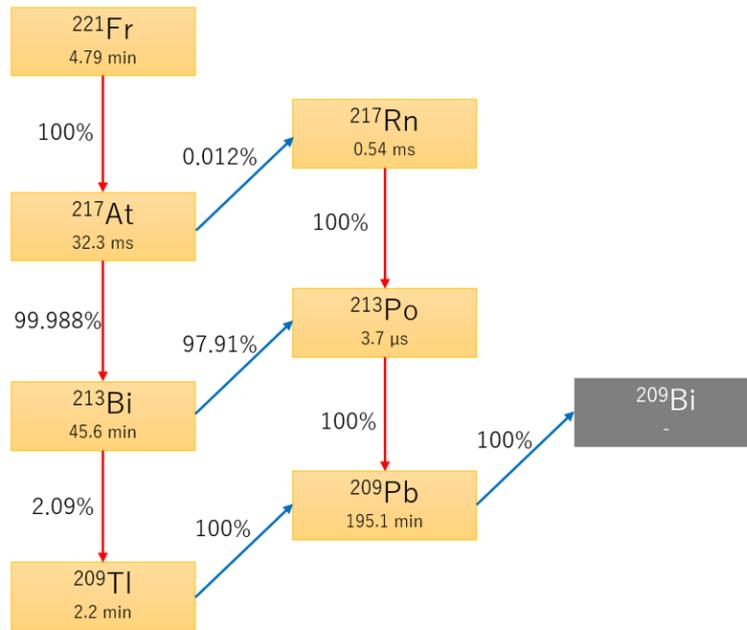


図7  $^{221}\text{Fr}$  の崩壊系列および各核種の寿命と分岐率。赤矢印は $\alpha$ 崩壊、青矢印は $\beta^-$ 崩壊。

### 3.2 Fr 測定装置の設計

Fr 測定装置は、Fr を輸送する Y キャッチャーに堆積している Fr の $\alpha$ 線を測定するために、シリコン半導体検出器 (SSD) および Fr 原子をコリメートするアパーチャーで構成し、堆積された Fr を精度良く評価できるようにした。

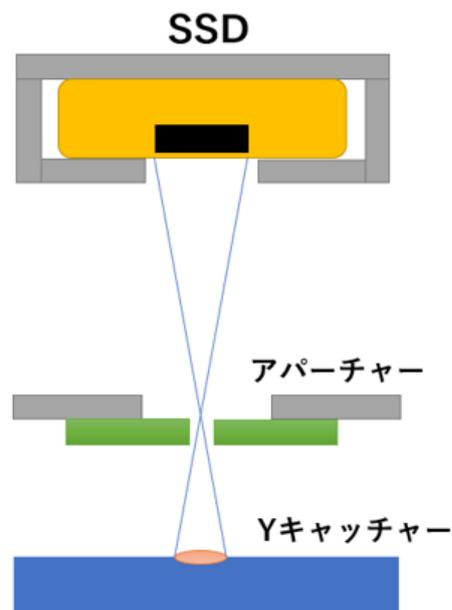


図8 SSD の概略図

### 3.2.1 シリコン半導体検出器 (SSD) の測定原理

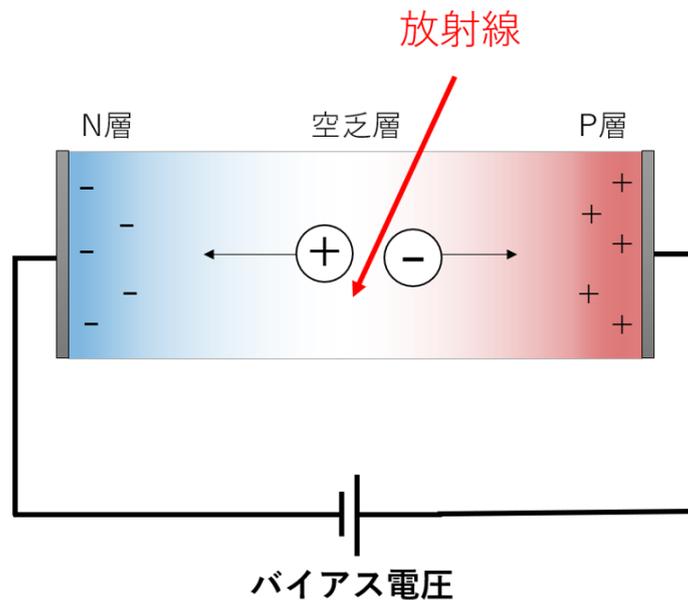


図9 半導体検出器の原理

半導体検出器は、図9のような原理で動作する検出器である。高エネルギーの荷電粒子や光子などの放射線が通過し、半導体のバンドギャップを超えることで伝導することが可能になった電子・正孔対がバイアス電圧によってそれぞれ電極に引き付けられパルス信号として検出される。α線のエネルギーの大きさに生成される電子・正孔対の数に対応するため、パルス信号の電流の大きさを測定することでα線のエネルギーを求めることができる。

本研究では、SSD を使用してα線のエネルギーの検出を行った。SSD は ORTEC 製のモデル番号 TB-018-150-300 を使用した。この SSD は、シリコン表面障壁型全空乏層検出器であり、α線のスペクトルの半値幅 16.2keV が保証されている。シリコンの表面には 40.3  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$  のアルミニウムが蒸着されているが、これによるα線のエネルギーの減衰は無視できる。

SSD は、図10のような回路を用いることで信号を検出している。まず、SSD から得られるパルス信号をプリアンプで積分し、シェイピングアンプで波形の増幅と整形を行う。そこから得られた電圧パルスの高度を PC ベース計測器で時間とエネルギーのデータとして記録する。

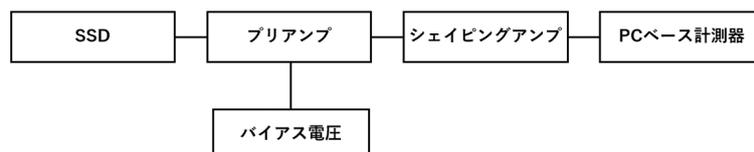


図10 SSD の測定回路

### 3.2.2 キャピラリー

MOT 領域に到達する  $^{210}\text{Fr}$  を評価するために、Y キャッチャーの中でキャピラリーの真下に位置する直径 15 mm の領域の  $^{210}\text{Fr}$  の量の測定を行えるようにする。キャピラリーは、図 11 のように Y キャッチャーから熱脱離した Fr を MOT 領域に誘導する役目をもつ。キャピラリーの内壁には、アルカリ原子に吸着防止効果が認められているダイヤモンドライクカーボン (DLC) またはパラフィンがコーティングされている。

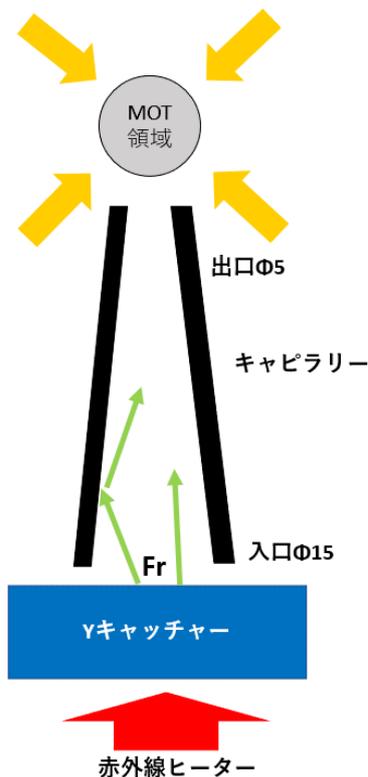


図 11 キャピラリーの模式図。

### 3.2.3 SSD アパーチャー

そこで、図 8 のように 7 月および 9 月実験では Y キャッチャーの中心直径 15 mm の領域の Fr を評価するためアパーチャーを用いて SSD が直径 15 mm の外の領域を測定しないようにした。また、この装置は直径 5 mm の領域の Fr を評価するアパーチャーにも変更でき、 $^{210}\text{Fr}$  が最も堆積している場所を特定し、MOT 領域の真下に精度良く移動させることができるようになった。図 12 に測定装置の開発に使用した 3D 図と製作・組み立て後の測定装置を示した。



図 12 Fr 測定装置の 3D 図と製作・組み立て後の様子。

### 3.2.4 Y キャッチャーからの立体角の計算

図 8 のように、Y キャッチャーからアパーチャーを通り SSD を見る立体角をもとめることで、SSD での  $\alpha$  線のカウント数から Y キャッチャーに堆積していた Fr 量を計算することができる。

立体角の計算には、イオン光学設計ソフト SIMION[20] を用いた。実際に設計した CAD を用いてシミュレーションを行った結果、アパーチャーが直径 15 mm、5 mm のときの立体角はそれぞれ、

$$\Omega_{Y(\phi 15) \rightarrow SSD} = 0.00379(6)$$

$$\Omega_{Y(\phi 5) \rightarrow SSD} = 0.00148(4)$$

となった。

## 3.3 $^{210}\text{Fr}$ 測定実験

### 3.3.1 標準線源による SSD の校正

標準線源とは、既知のエネルギーの放射線源が含まれている線源であり、放射線測定の際のエネルギーの校正に使用する。

SSD で測定された  $\alpha$  線は、そのエネルギーに応じたチャンネルと時間のデータセットとして記録されるため、標準線源を用いてチャンネルに対応するエネルギーを求める必要がある。

今回は、 $^{237}\text{Np}$ 、 $^{241}\text{Am}$  および  $^{244}\text{Cm}$  の 3 種混合の  $\alpha$  線標準線源を使用した。これらの核種は、崩壊時に  $\alpha$  崩壊する分岐率がほぼ 100 % であり、そのうち特定の  $\alpha$  線のエネルギーの割合が大きいものがあるため測定時にピークを見つけ出しやすい。また、半減期が長いので短期間の測定では減衰が無視できる。

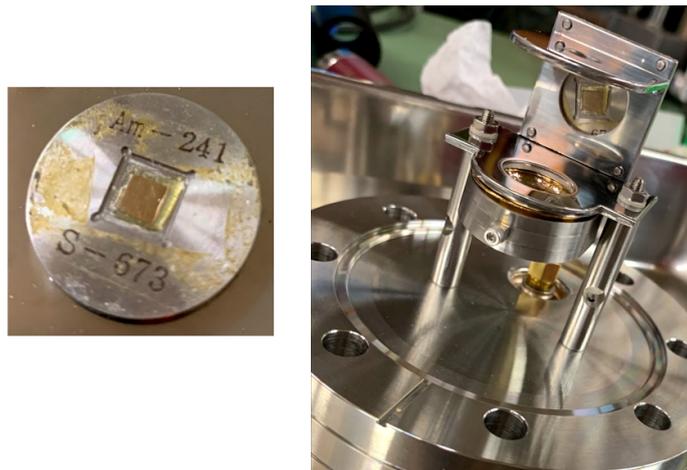


図13 α線の標準線源と測定装置に組み込んだ様子。

標準線源を SSD で測定した結果が図 14 である。また、標準線源の主な核種とその α 線のエネルギーを表 4 に記載した。このデータと測定結果からチャンネルとエネルギーの対応関係を計算する。

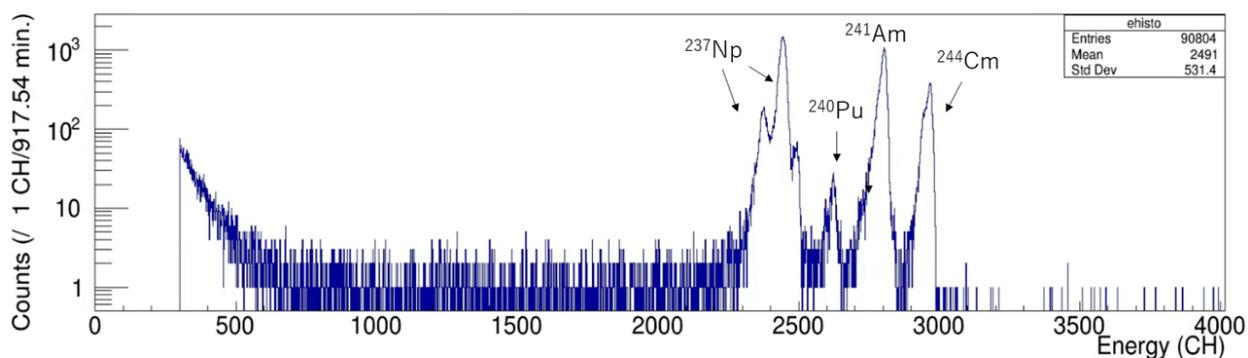


図 14 SSD での標準線源の測定結果。標準線源の 3 つの核種のうち最も半減期の短い  $^{244}\text{Cm}$  の娘核である  $^{240}\text{Pu}$  のピークも観測された。

表 4 α 標準線源の核種とそのエネルギー

核種	半減期	主な α 線のエネルギー/keV	分岐率 (/%)
Am-241	432 years	5486	84.5
		5442	13.0
		5388	1.6
Cm-244	18 years	5805	76.4
		5763	23.6
Np-237	$2.1 \times 10^6$ years	4788	47
		4771	25

## 校正方法

まず、測定されると予想されるスペクトルを核種の分岐率と崩壊のエネルギーの文献値からそれぞれのスペクトルをフィットする関数を考察する。図 15 は文献値から作成した標準線源のスペクトルである。

$^{241}\text{Am}$  および  $^{244}\text{Cm}$  は、分岐率が一番大きいスペクトルのエネルギーピークが実際のスペクトルの最大値であった。また、スペクトルの高エネルギー側は、他のスペクトルと重なっていなかったためその領域をガウス関数でフィッティングすることでエネルギー (CH) を得た。

$^{237}\text{Np}$  は複数のスペクトルが重なり合っている構造であったため、これらの文献値からスペクトルが最大となるエネルギーを計算すると、4781 keV であった。これらのスペクトルを分けて実験結果と比較することは困難であるため、4781 keV の一つのガウス関数としてフィッティングを行った。

図 16 は、 $^{241}\text{Am}$  のスペクトルをガウス関数でフィッティングしている様子である。同様に、 $^{237}\text{Np}$ 、 $^{244}\text{Cm}$  のフィッティングも行った。

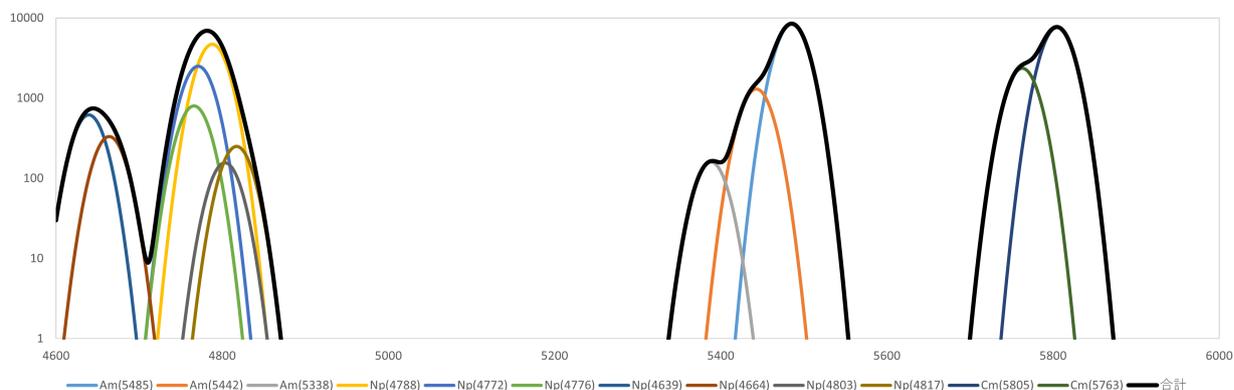
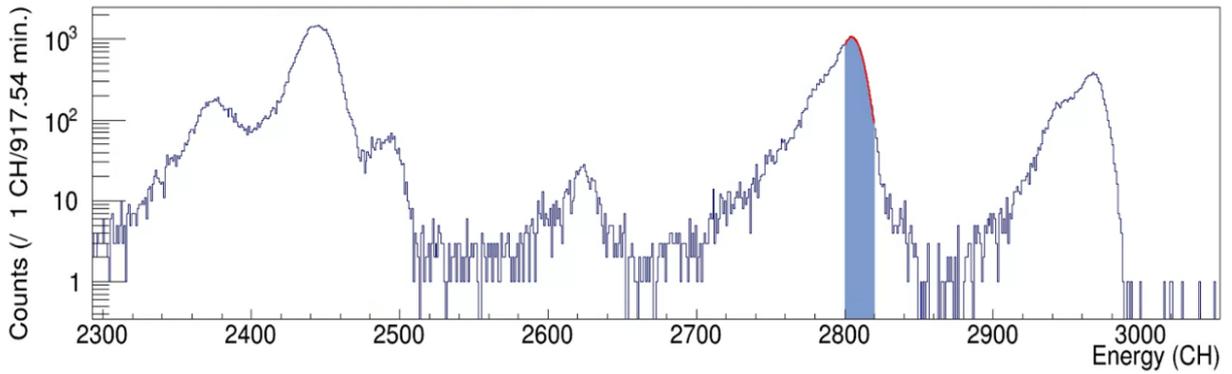


図 15 標準線源の核種の文献値から SSD で測定されると予測される標準線源のスペクトルをプロットしたもの。標準偏差  $\sigma = 16$  keV のガウス関数としている。



	VALUE	ERROR	SIZE	DERIVATIVE
1 Constant	3.86489e+02	6.13601e+00	1.04374e-02	2.96637e-05
2 Mean	2.96658e+03	1.68874e-01	1.41457e-03	1.08672e-03
3 Sigma	6.63312e+00	1.11548e-01	7.38009e-06	2.69411e-02

図 16 標準線源の測定結果の  $^{241}\text{Am}$  のスペクトルをガウス関数でフィッティングする様子。  
表はガウス関数の3つの変数のフィッティング結果。

$^{241}\text{Am}$ 、 $^{244}\text{Cm}$  および  $^{237}\text{Np}$  をフィッティングすることで得られた値と文献値から、図 17 のようなエネルギーとチャンネルの対応関係が得られた。

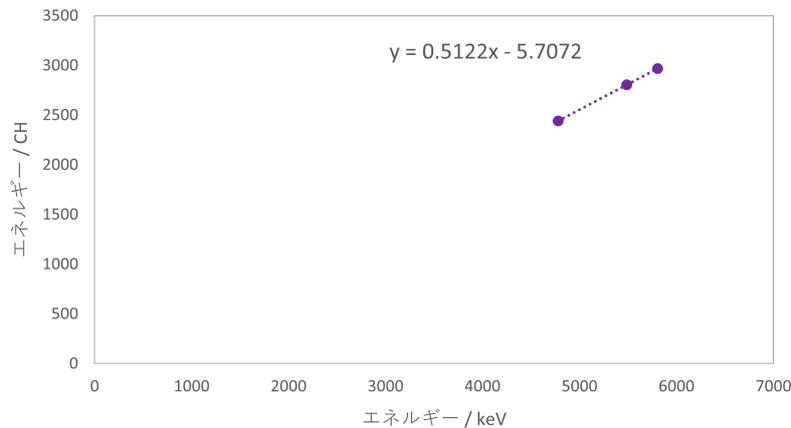


図 17  $^{241}\text{Am}$ 、 $^{244}\text{Cm}$  および  $^{237}\text{Np}$  のフィッティング結果と文献値のスペクトルの最大値から得られたエネルギーとチャンネルの対応関係。

### 3.3.2 Y キャッチャーに堆積する Fr-210 のモデル計算

実験の各パラメータを使用し、モデル計算から SSD に観測される  $^{210}\text{Fr}$  量を導く。

#### $^{210}\text{Fr}$ の核融合による生成数

$^{18}\text{O}^{6+}$  ビームと Au 標的の核融合によって、 $^{18}\text{O}^{6+}$  ビーム加速エネルギーに応じて、 $^{207}\text{Fr}$ 、 $^{208}\text{Fr}$ 、 $^{209}\text{Fr}$ 、 $^{210}\text{Fr}$ 、 $^{211}\text{Fr}$  が生成される。ビーム強度あたりの Fr の生成量は、図 18 のように計算される。

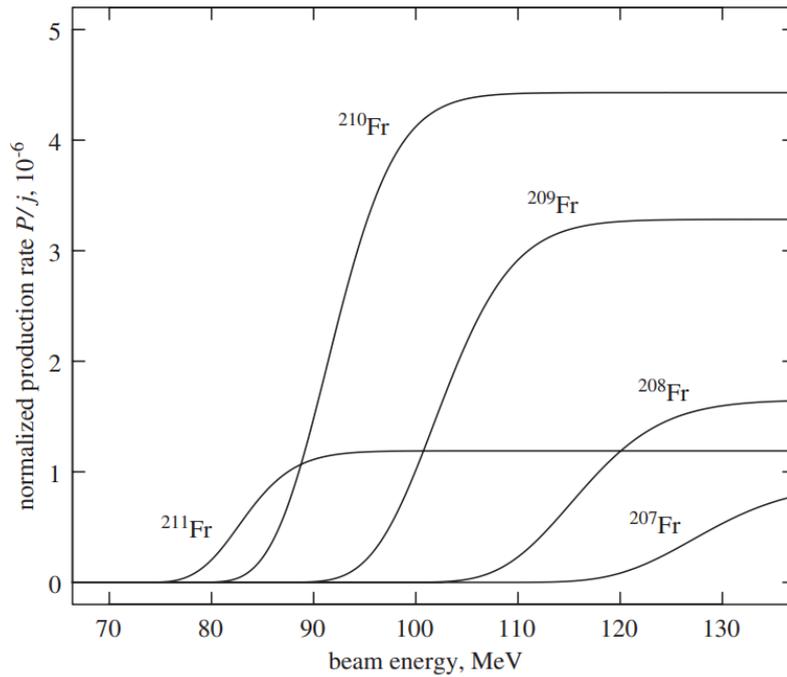


図 18 Fr の生成量のビームエネルギー依存性。[21] より引用。縦軸はビーム強度が  $10^{12}$ pps のときの各同位体の生成量。

Au 標的内部で生成された  $^{210}\text{Fr}$  は、ヒーターの加熱によって熱拡散され Au 標的の表面からイオンとして脱離する。生成された  $^{210}\text{Fr}$  が Au 標的の引き出し側表面から脱離する効率  $\epsilon_{\text{escape}}$  は、表面温度 960 °C のとき、

$$\epsilon_{\text{escape}} = 42.7\%$$

と計算される [22]。

## 2 次ビームの広がり

Au 標的で生成した  $^{210}\text{Fr}$  は、電極によって 100 eV から 1000 eV の 2 次ビームとして引き出される。この 2 次ビームは、電極のパラメータを調整することによって収束させることが可能であり、Y キャッチャー照射位置でのビームプロファイルのシミュレーション結果から、図 19 のようにビームは標準偏差  $\sim 2$  mm まで収束されることがわかる。

実際の実験では、照射位置のすぐ奥に設置されている 3 種類のファラデーカップの値を読みながら 2 次ビームを調整し、直径 15 mm まで収束されたことを確認してから Y キャッチャーへの照射を行う。

よって、 $^{210}\text{Fr}^+$  を Y キャッチャーに照射するとき、中心の直径 15 mm の領域に堆積するとして  $^{210}\text{Fr}$  の収量を評価する。

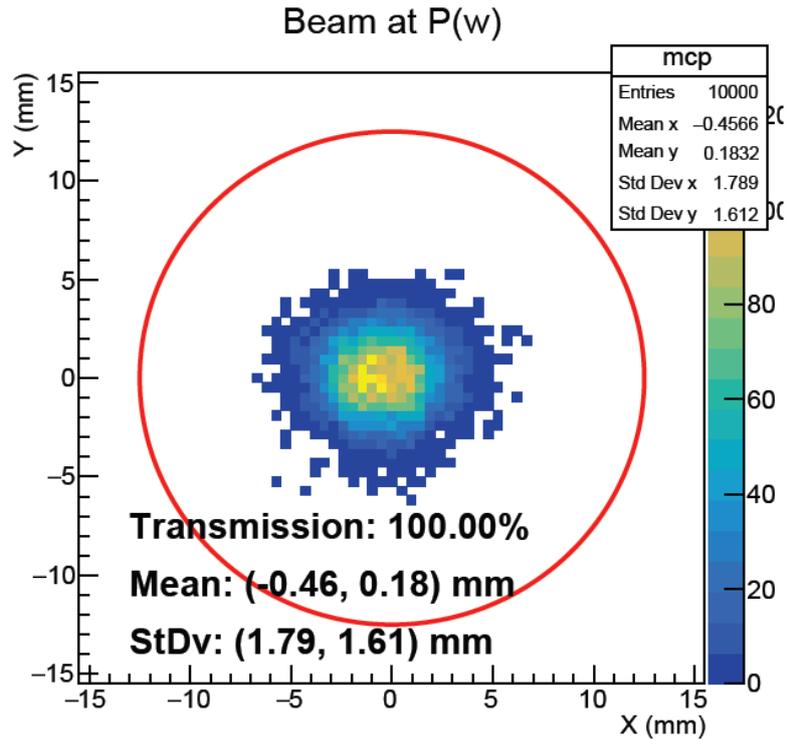


図 19  $^{210}\text{Fr}$ EDM 実験の 2 次ビームの軌道シミュレーション結果。[22] より引用。

### Y キャッチャーに堆積する $^{210}\text{Fr}$ 量

Au 標的で生成した  $^{210}\text{Fr}^+$  は、電極によって 100 eV から 1 keV の 2 次ビームとして Y キャッチャーへと照射される。単位時間あたりに引き出される個数を  $f_{Fr}$  とすると、 $t=0$  に照射を始めた後 Y キャッチャーに堆積する  $^{210}\text{Fr}$  の個数  $N(t)$  は半減期  $\tau_{Fr}$  によって定義された崩壊定数  $\lambda_{Fr} = \frac{\ln 2}{\tau_{Fr}}$  を用いて、

$$\frac{dN(t)}{dt} = f_{Fr} - \lambda_{Fr}N(t)$$

と表わされる。これを解くと、

$$N(t) = N(0)e^{-\lambda_{Fr}t} + \frac{f_{Fr}}{\lambda_{Fr}}(1 - e^{-\lambda_{Fr}t})$$

となる。

Au 標的に照射されるビームの強度 1  $\mu\text{A}$ 、エネルギー 114 MeV のときの 2 次ビームの強度は、図 18 の値を使用して、

$$\begin{aligned}
 f_{Fr} &= \epsilon_{escape} \times 2.75 \times 10^5 \\
 &\sim 1.17 \times 10^5
 \end{aligned}$$

であることから、Y キャッチャーに堆積する  $^{210}\text{Fr}$  の個数を、 $N(0) = 0$  として計算した値を図 20 にプロットした。

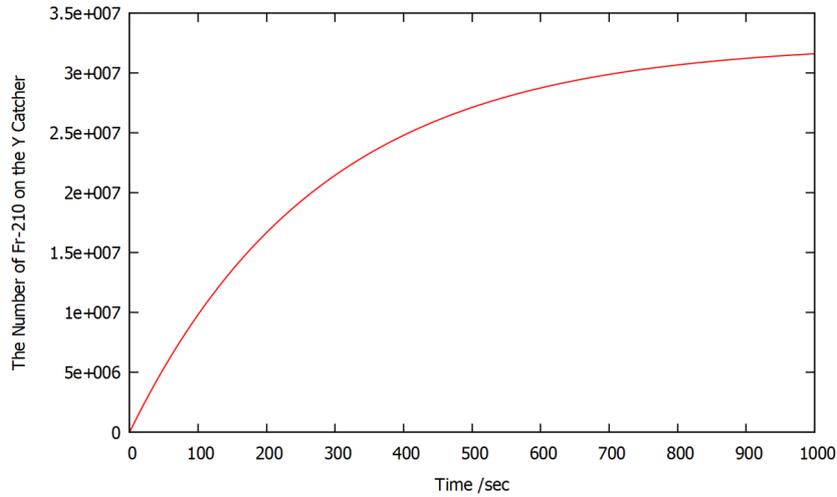


図 20 ビーム強度 1 pμA、ビームエネルギー 114 MeV のとき、2 次ビーム照射時間に対する Y キャッチャーに堆積する Fr-210 の個数。

Y キャッチャーに堆積可能な最大量  $N_{Y,max}$  は、

$$N_{Y,max} = \frac{f_{Fr}}{\lambda_{Fr}} = 3.25 \times 10^7$$

であり、この 50%、80%、90% 堆積させるのにかかる時間は、それぞれ

$$t_{Y,0.5} = 193\text{s}$$

$$t_{Y,0.8} = 448\text{s}$$

$$t_{Y,0.9} = 640\text{s}$$

である。本研究で行った実験では、2 次ビームを Y キャッチャーに 180 秒照射しているので、 $1.55 \times 10^7$  個堆積されたと計算される。

### SSD 観測される $^{210}\text{Fr}$

$^{210}\text{Fr}$  を堆積させた後、Y キャッチャーを SSD 測定地点まで移動させて測定を行う。2 次ビーム照射終了時に Y キャッチャーに堆積している  $^{210}\text{Fr}$  量を  $N_0$  として、時間  $t$  秒後には、

$$N_Y(t) = N_0 \times e^{-\lambda_{Fr}t}$$

と減衰している。SSD で観測される信号  $S(t)$  は、 $\alpha$  崩壊の分岐率  $b$ 、Y キャッチャーから SSD の立体角を  $\Omega$  とすると、実際に実験では、

$$S(t) = b \times \Omega \times \lambda N_Y(t)$$

と観測されると考えられる。実験パラメータを代入すると、

$$S(t = 8) = 117/\text{s}$$

と予測される。

### 3.3.3 $^{210}\text{Fr}$ の測定結果

SSD での測定結果から Y キャッチャーに堆積している  $^{210}\text{Fr}$  の量を計算し、MOT 領域に到達する  $^{210}\text{Fr}$  の数を求める。

実験は以下のパラメータで行った。

表 5 実験パラメータ

$^{18}\text{O}^{6+}$ ビーム加速エネルギー	7 MeV/u
ビーム強度	0.5 - 2.2 $\mu\text{A}$
ヒーター加熱時の Au 標的溫度	600 - 1000 $^{\circ}\text{C}$
Au 標的からの引き出しエネルギー	100 eV
Y キャッチャーへの 2 次ビーム照射時間	180 s
2 次ビーム照射終了から SSD 測定開始までの時間	8 s
2 次ビーム照射終了から MOT 直下で加熱開始までの時間	13 s

Y キャッチャーの SSD での測定結果は、図 21 のようになった。また、各ピークの核種を示した。Au 標的で生成される核種およびその娘核の中で分岐率が大きく寿命の短いもののスペクトルが観測された。

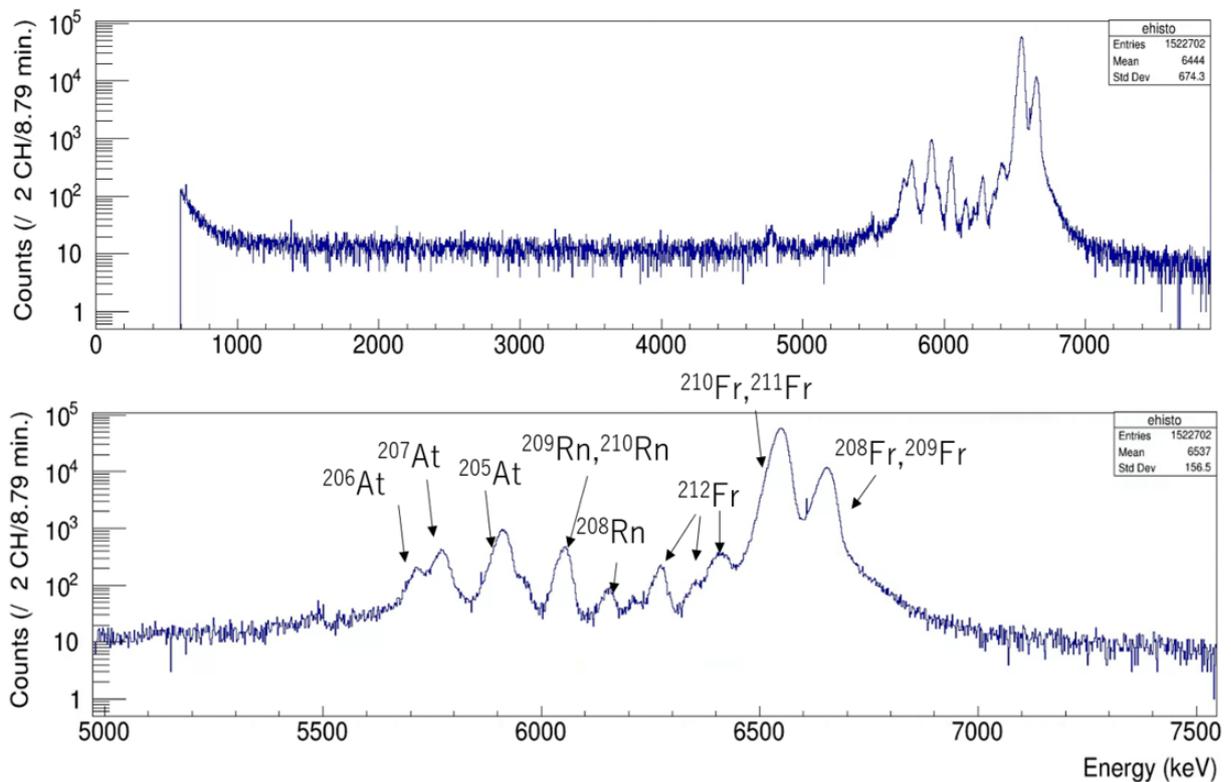


図 21 Y キャッチャーの SSD での測定結果を標準線源で校正したエネルギーに換算したスペクトル (上図)。各スペクトルの  $\alpha$  線源をエネルギーおよびスペクトルの高さから推定し示した (下図)。低エネルギー部はノイズが支配的であるため測定時にカットしている。

## 半減期による $^{210}\text{Fr}$ の同定

$^{210}\text{Fr}$  と  $^{211}\text{Fr}$  のスペクトルおよび  $^{208}\text{Fr}$  と  $^{209}\text{Fr}$  のスペクトルのカウント数の減衰のフィッティングを行った。各スペクトルはスペクトルエネルギーが近く分離できないため、組み合わせた半減期  $\tau_{210,211}$  で評価する。 $^{210}\text{Fr}$ 、 $^{211}\text{Fr}$  の 2 次ビームとして単位時間当たりに引き出される個数をそれぞれ  $f_{210}$ 、 $f_{211}$  とすると、

$$\begin{aligned}\tau_{210,211} &= \frac{f_{210}}{f_{210} + f_{211}}\tau_{210} + \frac{f_{211}}{f_{210} + f_{211}}\tau_{211} \\ &\sim \frac{\tau_{210} + \tau_{211}}{2}\end{aligned}$$

と表され、半減期の文献値を代入することで、

$$\tau_{210,211} \sim 188.4 \text{ s}$$

となる。同様に、 $^{208}\text{Fr}$  と  $^{209}\text{Fr}$  を組み合わせた半減期  $\tau_{208,209}$  は、

$$\tau_{208,209} \sim 54.6 \text{ s}$$

となる。

これを図 22 に示したフィッティングで得られた値と比較することでほぼ一致していることがわかり、各スペクトルの核種を半減期によって確認することができた。

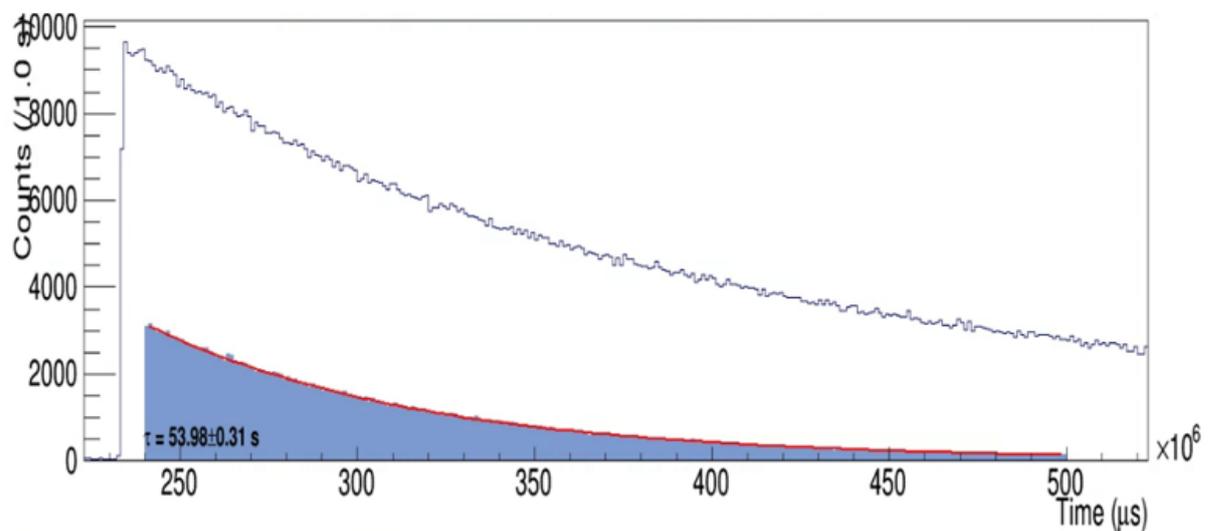
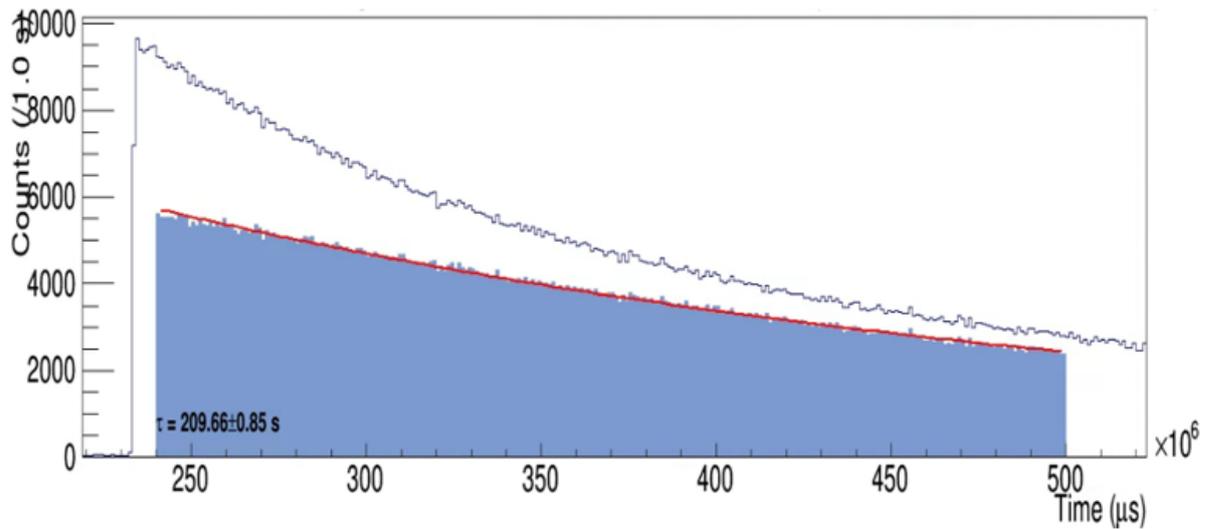


図 22 スペクトルを取り出し、そのスペクトルのカウント数の減衰をフィッティングした。 $^{210}\text{Fr}$  と  $^{211}\text{Fr}$  のスペクトルは  $\tau = 209.66 \pm 0.85\text{s}$ 、 $^{208}\text{Fr}$  と  $^{209}\text{Fr}$  のスペクトルは  $\tau = 53.98 \pm 0.31\text{s}$  であった。

半減期の文献値とのずれは、ノイズや他スペクトルがそれぞれのエネルギースペクトルに加わったことによると考えられる。特に、 $^{210}\text{Fr}$  のスペクトルの低エネルギー側には半減期 20.2 分の  $^{212}\text{Fr}$  とスペクトルが一部重なったことが影響したと考えられる。

#### Y キャッチャーに堆積する $^{210}\text{Fr}$ の評価

$^{210}\text{Fr}$  の数量を求めるために SSD で測定された  $^{210}\text{Fr}$  および  $^{211}\text{Fr}$  のスペクトルにガウス関数のフィッティングを行い、カウント数を求めた。このカウント数から、減衰を考慮して SSD 測定開始時 ( $t = 8$ ) の  $^{210}\text{Fr}$  のカウント数を求める。1 次ビームエネルギーから計算される  $^{210}\text{Fr}$  と  $^{211}\text{Fr}$  の生成比から  $^{210}\text{Fr}$  の 1 秒当たりの SSD でのカウント数  $S(t)$  は、

$$S(t = 8) = 3985 \pm 63 / \text{s}$$

と計算された。この  $S(t)$  から、Y に堆積している  $^{210}\text{Fr}$  は、

$$N_Y(t) = \frac{1}{\lambda} \frac{1}{b\Omega} S(t)$$

と表せるので、

$$N_Y(t = 8) = (5.13 \pm 0.08) \times 10^8$$

と導かれた。

### 3.4 まとめと課題

本研究で、 $^{210}\text{Fr}$  を輸送する Y キャッチャーに堆積している  $^{210}\text{Fr}$  の量を測定する SSD を組み込んだ測定装置を新たに開発した。測定されたデータを解析することで、Y キャッチャーに堆積している核種の同定および定量評価が可能となった。今回の実験パラメータでは Y キャッチャーの中心の直径 15 mm の領域に  $5.1 \times 10^8$  個の  $^{210}\text{Fr}$  が堆積していたことがわかった。

この値から MOT される  $^{210}\text{Fr}$  量  $N_{MOT}$  を概算すると、 $N_{MOT} \sim 5 \times 10^2$  と計算された。この値は不定性が大きい参考として行い、計算過程は補遺に載せた。この量は、別途行われた  $^{210}\text{Fr}$  の代わりにルビジウム (Rb) を Y キャッチャーに堆積させて MOT を行った模擬実験から、MOT によって捕獲され、その信号が検出できる量であることがわかっている [23]。

しかし、 $^{210}\text{Fr}$  EDM 測定実験において  $^{210}\text{Fr}$  が MOT された信号は検出できていない。その原因の一つとして、Y キャッチャーに付着している  $^{210}\text{Fr}$  以外の核種や残留ガスも、 $^{210}\text{Fr}$  を熱脱離させる際に放出されるため、真空度が悪化し MOT された  $^{210}\text{Fr}$  を弾き飛ばしてしまい MOT による捕獲時間が短く、 $^{210}\text{Fr}$  の信号として検出できていないことが挙げられる。この解消を目指して、2 次ビームに RF フィルターをかけることで、Au 標的で生成された  $^{210}\text{Fr}$  以外の核種が Y キャッチャーに付着しないようにすることを計画している。また、直進回転導入機の位置精度や MOT のトラップ光の偏光などの改善も有効だと考え、調整を進めている。

## 4 $^{225}\text{Ac}$ 線源の開発

$^{221}\text{Fr}$ EDM 測定実験では、 $^{221}\text{Fr}$  を生成するために  $^{225}\text{Ac}$  線源を使用する。 $^{225}\text{Ac}$  線源を作成するために  $^{225}\text{Ac}$  を基板の特定の位置に電着させる必要がある。 $^{225}\text{Ac}$  は使用できる量が限られているうえ、実験で使用する基板にどの程度電着させることができるかは基板の材料・形状や電着させる原子に依存して大きく変わる可能性がある。本研究では、電着の際に使用する電着セルおよび電着基板を開発し、まず  $^{225}\text{Ac}$  と化学的性質が似ている  $^{88}\text{Y}$  で電着実験を行い電着のパラメーターの最適化を行った。その後、電着率の良いパラメータで  $^{225}\text{Ac}$  の電着を行い電着基板を作成し、電着率を評価した。

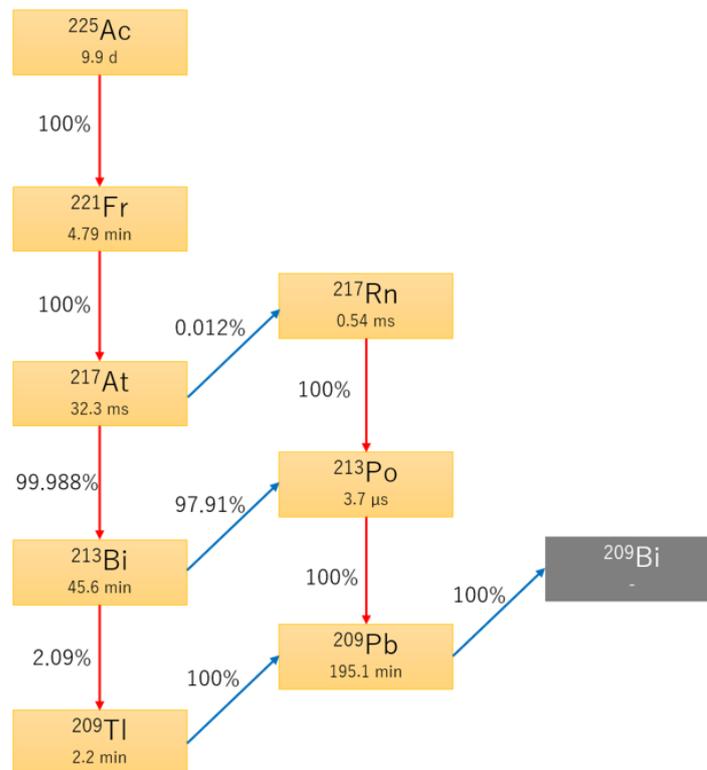


図 23  $^{225}\text{Ac}$  の崩壊系列。

### 4.1 電着の原理

金属基板に微量の化合物質を電着させる方法の一つに、分子電着法 (Molecular Plating Method) [24] がある。この方法では、目的元素を溶かしたごく少量の溶液に有機溶媒を加え大きな電圧 (50-2000 V) をかけることで、陰極に均一な層として固着させる。この電着の目的元素は純金属だけでなく、溶液中に存在する分子をそのままの化学形で基板に電着させることが可能である [25]。この電着の原理は解明されていないが、有機溶媒が目的元素に配位しわずかに極性を帯びることで陰極に引き寄せられると考えられている。そのため、わずかな不純物が電着率を下げる要因となる。目的元素の分離精製をよく行うこと、水滴などの不純物が入らないようにすることが重要である。また、有機溶媒を用いることで電流密度が小さくなり、均一な層の形成を阻害する水素の発生が起こ

らない。また、低電流であるため陽イオンが金属に還元されず、分子の状態で基板に固着すると考えられている [26]。

この方法で 90% を超える高い電着率も報告されており、電着に最適なパラメータを見つけることができると、微量の物質をほとんど金属基板に固着させることができる可能性がある。

電着率は、

- 元素の数
- 溶液の性質（有機溶媒と元素を溶かした溶液の比率）
- 溶液の温度
- 電圧・電流の大きさ、昇圧時間

などのパラメータに依存する。

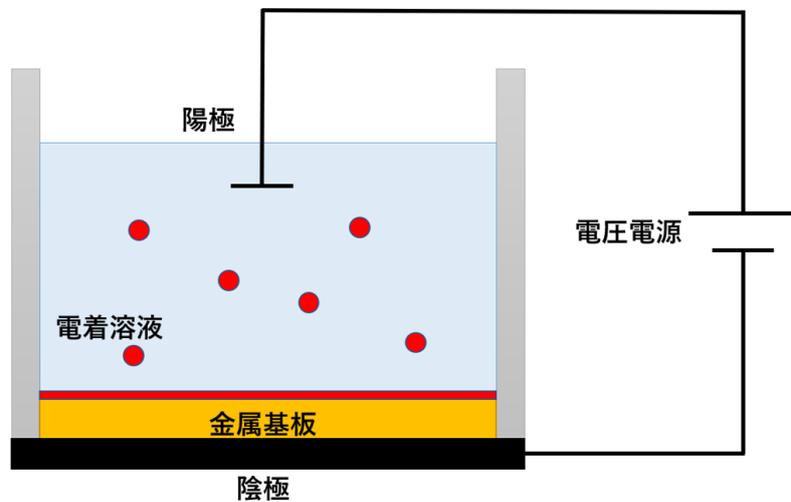


図 24 分子電着法の模式図。

## 4.2 電着基板・電着セルの設計

### Pt 基板

本研究で行う  $^{225}\text{Ac}$  線源の評価および  $^{221}\text{Fr}$  EDM 実験で使用する基板の材質は、化学的に安定である白金 (Pt) を選出した。Pt 基板は純度 99.98% の Pt 板を  $15 \times 15 \times 0.1$  mm の大きさにカッターで切断することで作成した。金属板への電着は理化学研究所核化学研究チームで実績があり、電着セルは同チームが最適化しているものを使用する。パッキンには直径 5 mm の穴が開いており、基板中心の直径 5 mm の領域に電着させることができる。

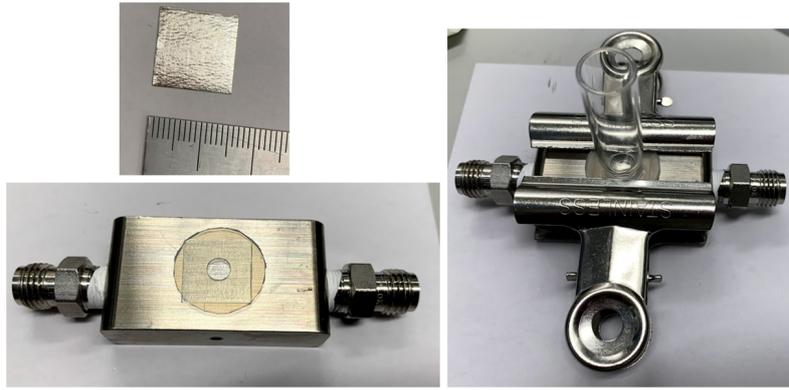


図 25 Pt 基板と Pt 基板用電着セル。

### Ti 基板

補遺に載せた低エネルギー  $^{221}\text{Fr}$  発生装置に組み込む基板は、MOT 領域の近くで使用することを想定しているため、非磁性体であるチタン (Ti) を採用した。低エネルギー  $^{221}\text{Fr}$  発生装置は、補遺で示したように  $^{225}\text{Ac}$  から生成した  $^{221}\text{Fr}$  をイットリウム箔にあてて中性の原子として熱脱離させた後、基板の穴内を通して MOT 領域まで輸送する。そのため、図 26 のように直径 2 mm の穴の開いた形状の基板を開発した。Ti 基板の穴の中へは電着させる必要がないため、円錐台状のシリコン栓を差し込み余分を切断することで電着溶液が入り込むことや電流が流れることを防いだ。穴の開いた基板への電着の例はなかったため、核化学研究チームの羽場宏光チームリーダーの協力のもと、図 27 のような電着基板とそれに適した電着セルを新たに開発した。Pt 基板用セルと同様に、水を流すチャラーを用いて溶液の温度を変えることができる設計にした。

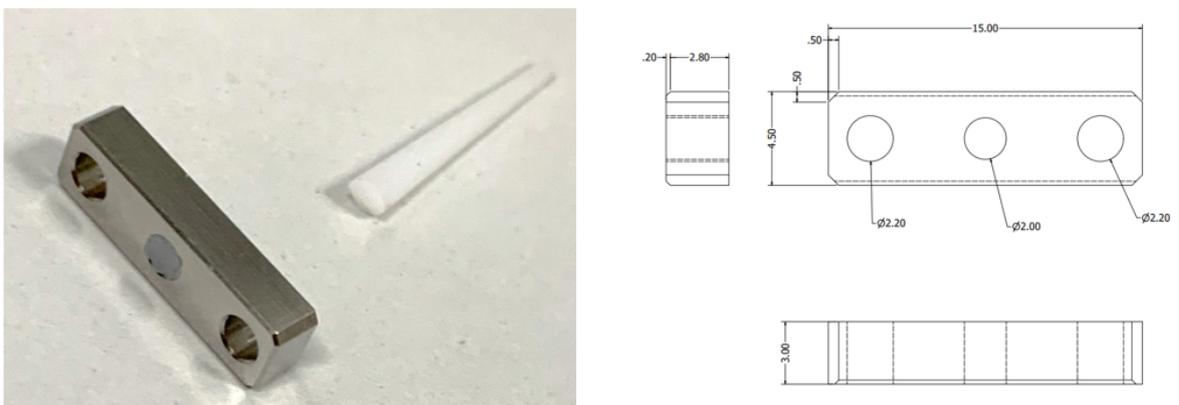


図 26 Ti 基板の設計。

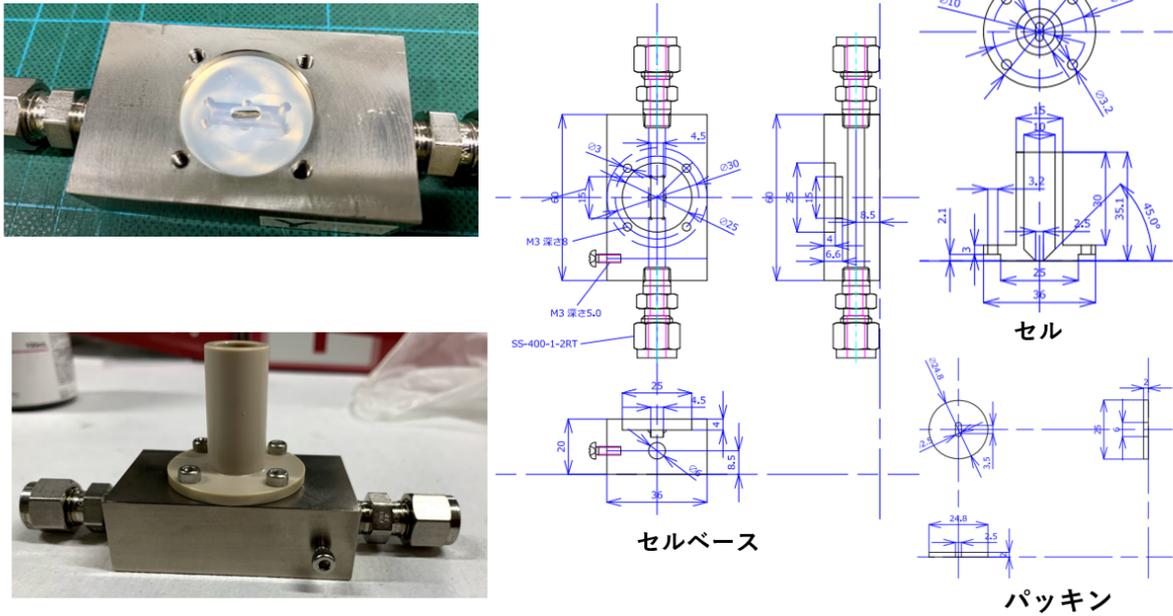


図 27 Ti 基板用電着セルの設計。セルベースはチタン製、セルは PEEK 製、パッキンはシリコン製。

### 4.3 ゲルマニウム半導体検出器による測定

電着で使用する  $^{88}\text{Y}$  および  $^{225}\text{Ac}$  の評価は、崩壊の際に放出される  $\gamma$  線をゲルマニウム半導体検出器 (Ge 検出器) で計測することで行う。

Ge 検出器は  $\gamma$  線の高精度測定に適した半導体検出器である。SSD と同様に半導体中を通過した放射線によって生成されるパルス信号を読むことで、エネルギーとカウント数を記録することができる。



図 28 Ge 検出器 (左図) と測定中の基板の様子 (右図)。

校正は、図 29 の  $\gamma$  線の標準線源を使用した。Ge 検出器で、図 30 のように標準線源のスペクト

ルを観測した後、核種ごとにピークエネルギーとカウント数から、チャンネル-エネルギーの対応関係と測定効率を計算する。測定効率はエネルギー依存性があるため、エネルギー  $E$  の測定効率  $E_{ff}(E)$  の校正式、

$$\ln[E_{ff}(E)] = a_0 + a_1 \ln(E) + a_2 \ln(E)^2 + a_3 \ln(E)^3 + a_4 \ln(E)^4 + a_5 \ln(E)^5$$

でフィッティングすることで求めた。



Nuclide Data				Results		
Gamma-Ray Energy (keV)	Nuclide	Half-life	Branching Ratio (%)	Activity	Gamma per second	Total Uncert.
60	Am-241	(432.17 ± 0.86) years	36.0	1.12 kBq (0.0303 μCi)	403.2	3.2%
88	Cd-109	(462.6 ± 0.7) days	3.63	15.8 kBq (0.427 μCi)	573.5	2.5%
122	Co-57	(271.79 ± 0.09) days	85.6	0.616 kBq (0.0166 μCi)	527.3	2.3%
166	Ce-139	(137.840 ± 0.023) days	79.9	0.793 kBq (0.0214 μCi)	633.6	2.3%
279	Hg-203	(46.595 ± 0.013) days	81.5	2.39 kBq (0.0646 μCi)	1948	2.3%
392	Sn-113	(115.06 ± 0.04) days	94.9	3.02 kBq (0.0816 μCi)	1960	2.3%
514	Sr-85	(84.849 ± 0.004) days	98.4	3.82 kBq (0.103 μCi)	3759	2.3%
662	Cs-137	(30.17 ± 0.16) years	85.1	2.63 kBq (0.0711 μCi)	2238	2.3%
898	Y-88	(106.630 ± 0.025) days	94.0	5.88 kBq (0.159 μCi)	5527	2.3%
1173	Co-60	(5.272 ± 0.001) years	99.86	3.07 kBq (0.0830 μCi)	3066	2.3%
1333	Co-60	(5.272 ± 0.001) years	99.98	3.07 kBq (0.0830 μCi)	3069	2.3%
1836	Y-88	(106.630 ± 0.025) days	99.4	5.88 kBq (0.159 μCi)	5845	2.3%
				Total Activity	39.1 kBq (1.06 μCi)	

図 29 Ge 検出器の校正で使用した  $\gamma$  線標準線源。

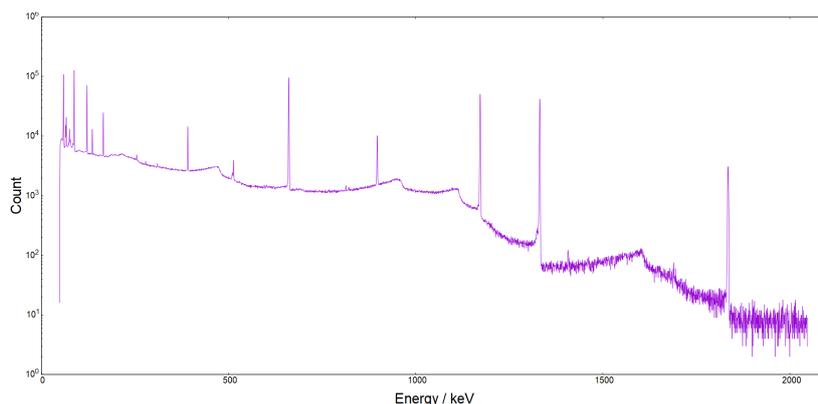


図 30 Ge 検出器で 10 cm の距離を離して計測したときの  $\gamma$  線標準線源のスペクトル。

#### 4.4 $^{88}\text{Y}$ による電着の最適化

$^{225}\text{Ac}$  の電着に最適なパラメータを調べるため、 $^{225}\text{Ac}$  と化学的性質が似ていて取り扱いが比較的容易である放射性元素で最適化実験を行う。本研究では、 $^{225}\text{Ac}$  と化学的性質が似ている希土類金属であり、 $\beta$ 崩壊の分岐率が 100% で半減期が 106 日と比較的長い  $^{88}\text{Y}$  を選定した。 $^{88}\text{Y}$  は、理化学研究所の AVF サイクロトロンで生成することで製造することが可能である。

表 6  $^{88}\text{Y}$  の崩壊特性

半減期	106.65 d.
$\beta^+$ 崩壊の分岐率	$b_{\beta} = 100\%$
$\gamma$ 線のエネルギー (分岐率)	898.042 keV (93.7%) 1836.063 keV (99.2%)

The Lund/LBNL Nuclear Data Search[18] をもとに作成

#### 4.4.1 $^{88}\text{Y}$ の生成

理化学研究所の AVF サイクロトロンにて  $^{88}\text{Y}$  の生成を行った。 $^{88}\text{Y}$  は、酸化ストロンチウム ( $^{\text{nat}}\text{SrO}$ ) 標的に重水を照射し、 $^{\text{nat}}\text{SrO}(\text{d}, \text{x})^{88}\text{Y}$  反応によって生成する。

まず、質量 157.9 mg の  $^{\text{nat}}\text{SrO}$  粉末を 1.6 t で 5 分間加圧することで直径 10mm の円板状 (面密度 207 mg/cm<sup>2</sup>) に圧縮成形した。この標的に重水素ビームを 3  $\mu\text{A}$ 、24 MeV で 4 時間照射することで  $^{88}\text{Y}$  を生成した。図 31 に生成の様子を示した。

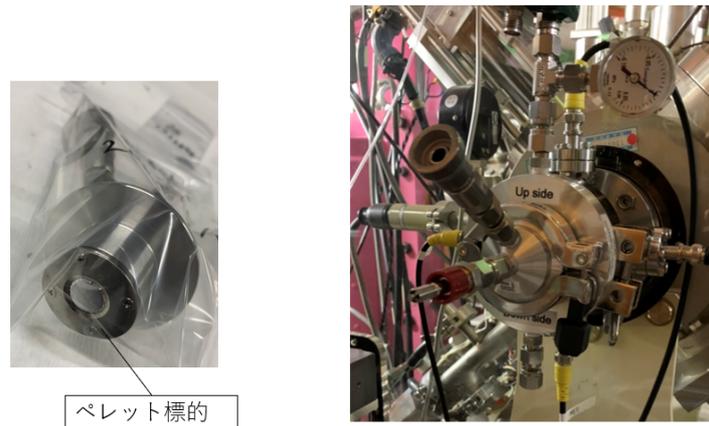


図 31 SrO 標的 (左図) とそれを組み込んだ装置 (右図)。写真奥側から重水素ビームが照射される。

#### 4.4.2 $^{88}\text{Y}$ の分離精製

生成した標的から不純物を取り除き、 $^{88}\text{Y}$  の純度を上げるために図 32 に表わした手順で分離精製を行った。この過程での  $^{88}\text{Y}$  の定量や純度は  $\gamma$  線をゲルマニウム半導体検出器で測定することで評価した。

まず、粉末状になった SrO ターゲットを取り出し硝酸に溶かして回収した。溶液を熱して干し上げ、半減期の短い核種をなくすために 1 か月保管した。その後、カラムに入れた Ln resin に通して分離を行う。Ln resin とは、図 33 のように、硝酸濃度に応じて吸着する割合が元素ごとに異なる抽出剤である。1M 硝酸に溶かした Y はほとんど吸着されるが、そこに 10M 硝酸を流し込むと溶液として抽出される。

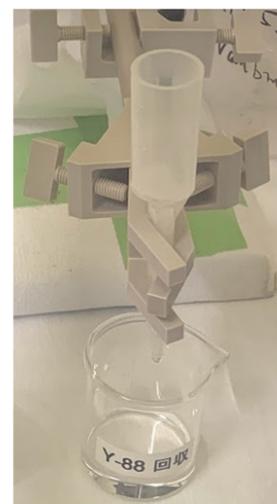
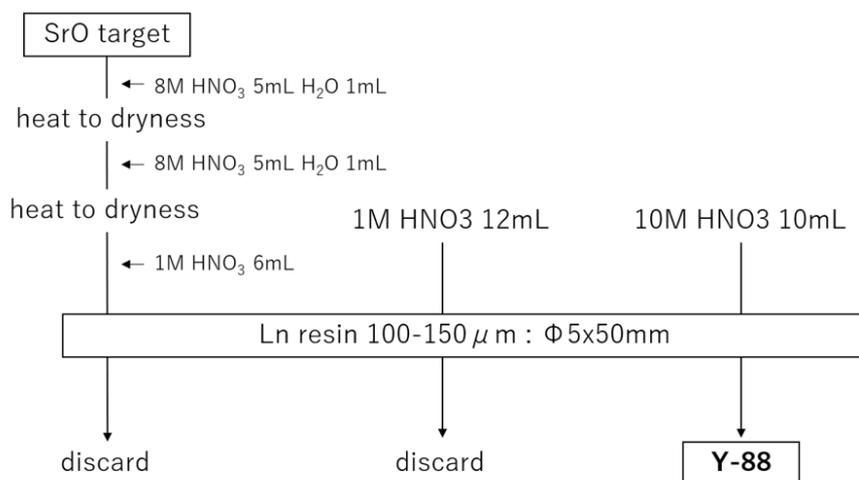


図 32 Ln resin を用いた分離精製の手順（左図）と分離精製の様子（右図）。

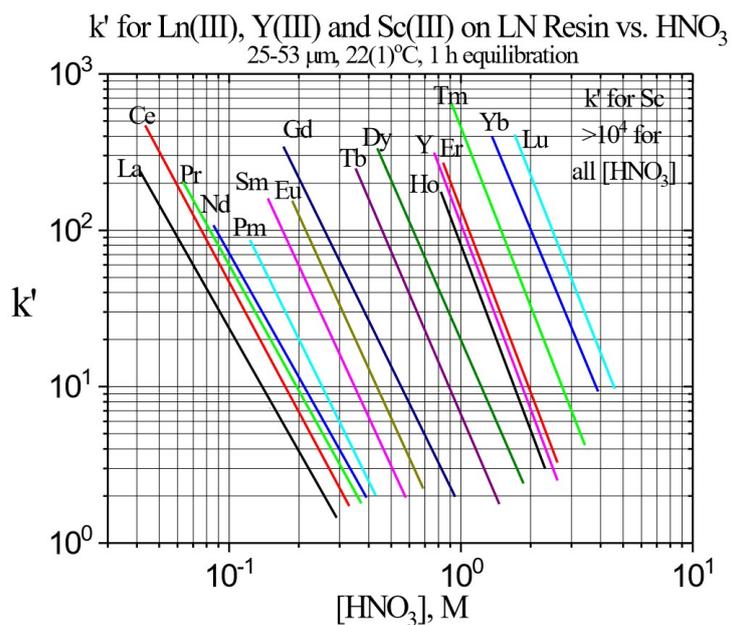


図 33 Ln resin の硝酸に対する分配係数 ( $K_d = 4.33 \times k'$ ) と硝酸濃度の関係。[27]

から引用。

#### 4.4.3 $^{88}\text{Y}$ の電着溶液の作成

基板に  $^{225}\text{Ac}$  を 1 MBq 電着させることを想定し、その原子量に相当する  $^{88}\text{Y}$  を電着させる。1 MBq の  $^{225}\text{Ac}$  は、 $2.07 \times 10^{-12}$  mol であり、その原子量の  $^{88}\text{Y}$  は 94.3 kBq である。

放射性同位体の  $^{88}\text{Y}$  と安定した同位体のイットリウム標準液を混合させた電着溶液を使い、その混合率を考慮して Ge 半導体検出器で  $\gamma$  線を計測することで電着率を計算することができる。イットリウム標準液とは 1 mL あたり 1 mg の Y が含まれる硝酸溶液である。標準液を使用することで、 $^{88}\text{Y}$  を使用する量が少なくなるため被曝のリスクを減らすことができる。

$7.22 \times 10^{-12}$  mol ( $3.27 \times 10^5$  Bq) の  $^{88}\text{Y}$  に  $2.12 \times 10^{-10}$  mol のイットリウム標準液を加えよく混ぜたものを 0.01M の硝酸 1 mL に溶かしてイットリウム溶液を作った。これを 1 回の電着に 10  $\mu\text{L}$  だけピペットで取り出して使用する。

このイットリウム溶液に有機溶媒である 2-propanol(isopropyl alcohol; IPA) 20 mL を加えて、ビーカーの中でピペットを使いよく混ぜた。これを 1 回分の電着溶液として電着セルに入れて電着を行う。

#### 4.4.4 $^{88}\text{Y}$ の解析

$^{88}\text{Y}$  の解析は、Ge 検出器で 898 keV、1836 keV の  $\gamma$  線を計測することで行った。

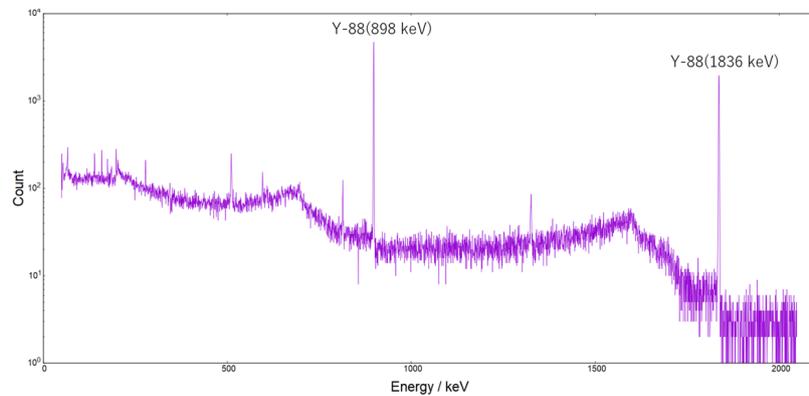


図 34  $^{88}\text{Y}$  のスペクトル。解析には、 $^{88}\text{Y}$  の 898 keV、1836 keV の  $\gamma$  線を使用した。電子対生成 (511 keV) およびコンプトンエッジも測定された。

#### 4.4.5 $^{88}\text{Y}$ の電着最適化実験の結果-Pt 基板

Pt 基板を使って電着条件の最適化実験を行った。電着の様子と電着後の基板を図 35 に示した。

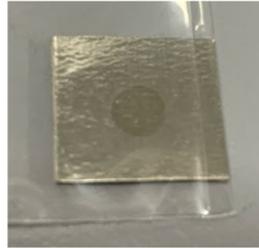
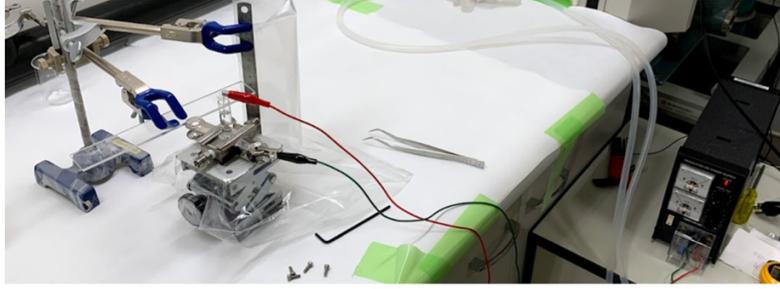


図 35  $^{88}\text{Y}$  の Pt 基板への電着の様子（上図）と電着後の基板（下図）。

電着のパラメーターは、

- 定電圧 : 1.0 kV
- 昇圧時間 : 10 分、20 分、30 分、40 分
- 電着溶液 : 0.01M 硝酸に溶かした  $^{225}\text{Ac}$  10  $\mu\text{l}$  + 2-propanol 2.000 mL
- チラー : なし

のように、電着時間を変えて行った。実験結果は、図 36 のようになった。全体として電着時間を長くすると電着率が高くなる傾向にあり、電着時間 40 分のときに電着率が 99.81(1) % となった。40 分までの測定で十分に高い電着率が達成されたため、これ以上長い電着時間の測定は行わなかった。

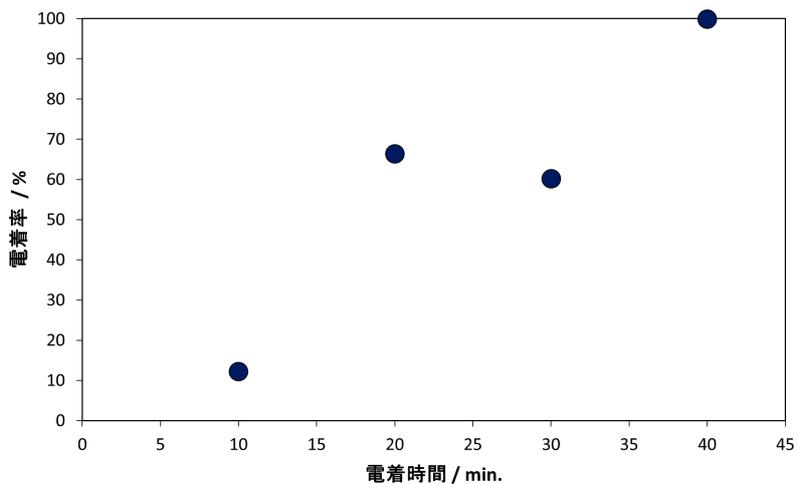


図 36  $^{88}\text{Y}$  の Pt 基板へ電着時間を変えたときの電着結果。電着時間は、10 分、20 分、30 分、40 分で行った。40 分の電着効率は 99.81 % であった。

#### 4.4.6 $^{88}\text{Y}$ の電着最適化実験の結果-Ti 基板

穴の開いた形状の Ti 基板を使って電着条件の最適化実験を行った。

変更したパラメータは、電着時間、電圧の大きさ、チラーの温度である。

##### 電着時間

電着のパラメーターは、

- 定電圧 : 1.0 kV
- 昇圧時間 : 10 分、20 分、30 分、40 分、60 分
- 電着溶液 : 0.01M 硝酸に溶かした  $^{225}\text{Ac}$  10  $\mu\text{l}$  + 2-propanol 2.000 mL
- チラー : なし

のように、電着時間を変えて行った。電着の結果は、図 37 のようになった。10 分から 40 分までは電着時間に応じて線形に電着率が高くなった。60 分で複数回電着を行ったが電着率は 68.2 % が最高値であった。これは、穴のある特殊な形状であることやその穴を Si 栓塞いでいることによって、電場分布が一様でないため、これ以上の電着率は望めない可能性が高いと考えられる。Si 栓を基板から取り出して測定を行うと、電着溶液の 3.17/sim4.38% ほど付着していることがわかった。

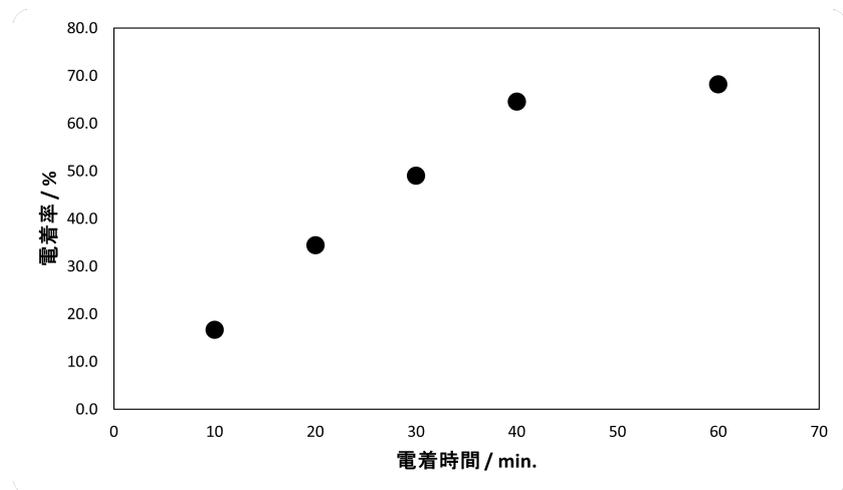


図 37  $^{88}\text{Y}$  の Ti 基板へ電着時間を変えたときの電着結果。電着時間は、10 分、20 分、30 分、40 分、60 分で行った。60 分の電着効率率は 68.2 % であった。

##### 電圧の大きさ

電着のパラメーターは、

- 定電圧 : 0.6 kV、0.8 kV、1.0 kV
- 昇圧時間 : 40 分
- 電着溶液 : 0.01M 硝酸に溶かした  $^{225}\text{Ac}$  10  $\mu\text{l}$  + 2-propanol 2.000 mL

- チラー：なし

のように、電圧の大きさを変えて行った。電着の結果は、図 38 のように電圧を上げると電着率が上がった。電圧を上げることで  $^{88}\text{Y}$  の基板方向にかかる力が大きくなる。その一方で、電流が大きくなるため電着溶液中を流れる電流密度が大きくなり水素の発生や陽イオンの還元などの電着に良くない現象が起きやすくなると考えられる。この結果から、電圧を上げることによる後者の影響は前者に比べて小さいことがわかった。以上の考察から、今回使用した電圧電源の最高電圧である 1.0 kV で電着を行うことにした。

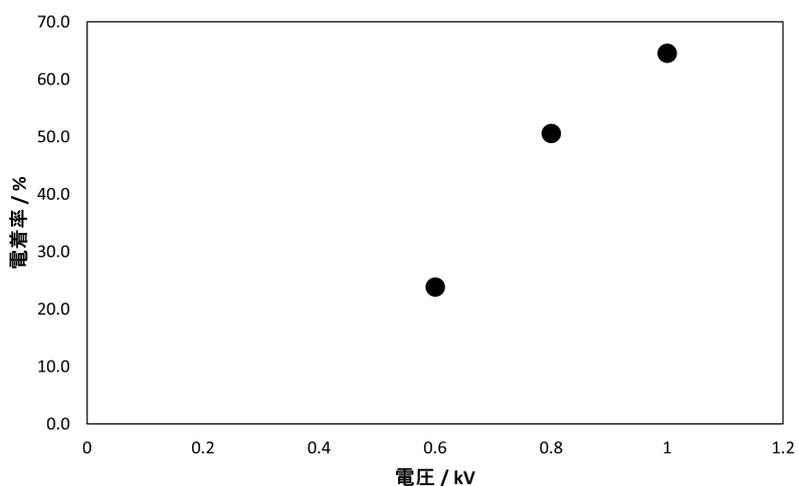


図 38  $^{88}\text{Y}$  の Ti 基板にかかる電圧を変えたときの電着結果。電圧は、0.6 kV、0.8 kV、1.0 kV で行った。

### チラーの温度

チラーを使って電着セルに流す水の設定温度を変えて電着を行った。チラーを使用しないとき、電着を開始すると電流が流れることにより少し温度上昇する。実験室の気温は 20 °C に設定されており、チラーを使用しないときの電着前の水温は 20 °C であったが、40 分の電着後には 21 °C と 1 °C 上昇した。チラーを使用すると、電着セルを冷却または加温することで電着溶液の温度を制御することができる。核化学研究チームの報告によると、経験的に常温でほとんど電着しなかった場合に水温を変化させることで急激に電着効率が良くなることがある。

電着のパラメーターは、

- 定電圧：1.0 kV
- 昇圧時間：40 分
- 電着溶液：0.01M 硝酸に溶かした  $^{225}\text{Ac}$  10  $\mu\text{l}$  + 2-propanol 2.000 mL
- チラー：10 °C、15 °C、20 °C、25 °C、30 °C、35 °C、40 °C

のように、チラーの設定温度を変えて行った。

電着の結果は、図 39 のようになった。

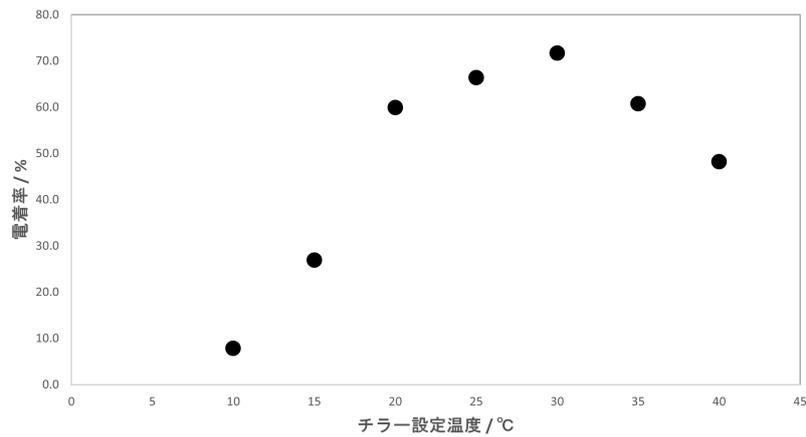


図 39 電着セルに流す水の設定温度をチラーを使って変えたときの  $^{88}\text{Y}$  の電着結果。チラーを使用していないときの電着セルの温度は 20 °C から 21 °C ほどである。

10 °C から設定温度を上げると電着率が上がり、30 °C で最大である電着率 71.7 % となった。それ以上、35 °C、40 °C と設定温度を上げていくと電着率は下がることがわかった。この特殊な形状の Ti 基板に  $^{225}\text{Ac}$  を最大量電着させる必要があるときはチラーを使用し 30 °C まで加温するとよい。また、10 °C、15 °C で著しく電着率が下がった原因として、空気中の水が結露して電着溶液に混入したためと考えられる。チラーの設定温度 10 °C、15 °C のとき、電着セルには図 40 のように水滴が見られた。



図 40 使用したチラー（左図）とチラーの設定温度 10 °C で電着したときの電着セル（右図）。電着セルの周りには水滴が見られた。

## 4.5 $^{225}\text{Ac}$ の電着

$^{225}\text{Ac}$  は、オークリッジ国立研究所が 2021 年 11 月 22 日に製造したものを日本アイソトープ協会を通して購入した。既に精製されていたため分離精製は行わずに硝酸に溶かして電着溶液を作成した。電着は、 $^{88}\text{Y}$  で電着効率が良かったパラメータで行う。電着後は基板を 0-600 °C で 6 時間焼き上げ、水分を飛ばすとともに酸化を促すことで、基板から  $^{225}\text{Ac}$  が取れにくいようにした。

### 4.5.1 $^{225}\text{Ac}$ の電着結果-Pt 基板

今回、26 MBq、72 kBq、24 kBq の 3 つの強度の違う電着溶液を電着させ、電着基板を作成した。

電着のパラメーターは、

- 定電圧 : 1.0 kV
- 昇圧時間 : 40 分間
- 電着溶液 : 0.01M 硝酸に溶かした  $^{225}\text{Ac}$  10  $\mu\text{l}$  + 2-propanol 2.000 mL
- チラー : なし

で行った。これは、 $^{88}\text{Y}$  で電着率が 99.8 % であったパラメーターである。

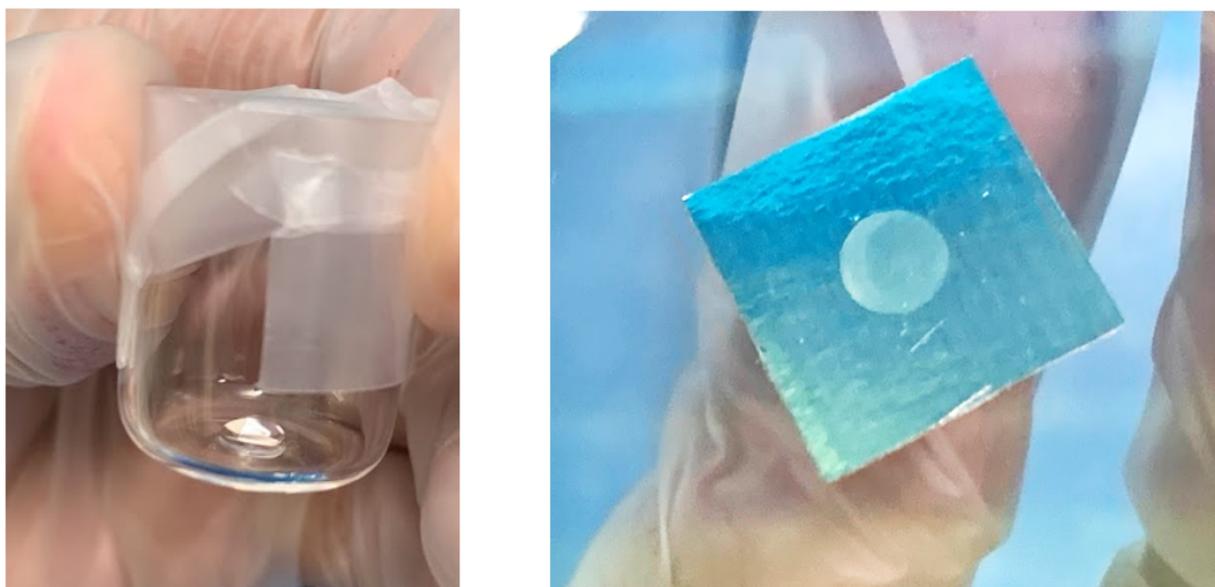


図 41 硝酸に溶かした  $^{225}\text{Ac}$  (左図) と電着後の基板 (右図)。

電着した  $^{225}\text{Ac}$  の放射能測定は、Ge 半導体検出器を用いて  $\gamma$  線を計測することによって行う。評価に用いる  $\gamma$  線のエネルギーは、他の核種と区別しやすいという統計的誤差が少なることからカウント数が大きなものを用いる。また、計測したい核種と娘核とが閉じた系の中で平衡状態になっているなら、娘核の放射能から親核の放射能を求めてもよい。 $^{225}\text{Ac}$  が放出する  $\alpha$  崩壊由来の  $\gamma$  線は、最も分岐率が大きいエネルギーは 99.9 keV (分岐率 1.0 %) である。そこで、 $^{225}\text{Ac}$  の定量評価には、 $^{221}\text{Fr}$  の  $\alpha$  崩壊由来の 218 keV (分岐率 11.6 %) の  $\gamma$  線を用いた。

解析の際は、測定時間によって強度が減衰するため、すべての線量の測定結果を電着溶液を測定した時間に換算することとした。また、電着直後は電着面が接触して  $^{225}\text{Ac}$  が取れてしまうことを防ぐために、焼き上げを行うまでは裏返さないほうが良い。Ge 半導体検出器は地面側から上向きに計測を行うため、電着直後は電着面の裏側を計測しそこから電着量を換算する。今回使用した厚さ 0.1 mm の Pt 基板では、218.2 keV の  $\gamma$  線のエネルギーは 12.2(7) % 減衰することが測定によって確認できているため、これを用いて換算した。

電着結果は、表 8 のようになった。電着する粒子数が多いほうが電着率が大きくなることがわかる。また、粒子数以外同じパラメータで行った  $^{88}\text{Y}$  に対して電着率が低くなった。 $^{88}\text{Y}$  の電着率より低くなった原因として、粒子数の違い、分離精製の仕方の違い、原子の性質の違いが考えられる。

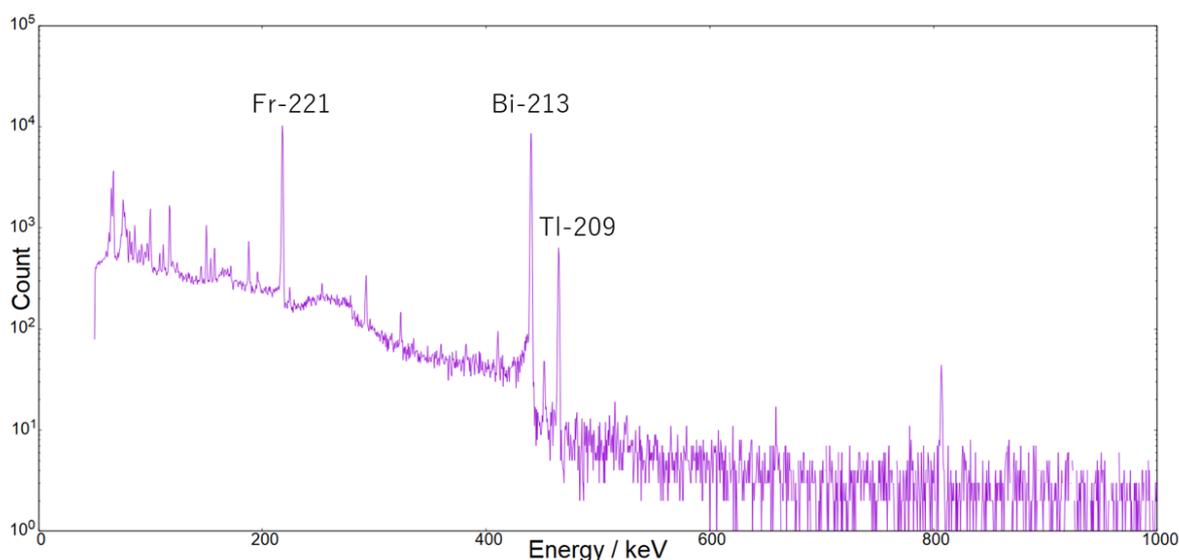


図 42  $^{225}\text{Ac}$  を 27 MBq を電着後の基板を Ge 半導体検出器で計測した測定結果  
356 秒計測したときのカウント数

表 7 解析で使った  $\gamma$  線のエネルギー

核種	半減期	$\gamma$ 線のエネルギー	$^{225}\text{Ac}$ からの分岐率
Fr-221	4.9 min	218.2 keV	11.6 %
Bi-213	45.59 min	440.5 keV	25.6 %
Tl-209	2.2 min	465.1 keV	2.0 %

表 8 Pt 基板に電着させた 3 種類の線源の強度と電着率

基板	粒子数	電着溶液	電着基板	電着率
Pt 基板 1	$5.59(5) \times 10^{-11}$ mol	26.17(24) MBq	20.39(7) MBq	77.91(77) %
Pt 基板 2	$1.22(6) \times 10^{-16}$ mol	72.80(30) kBq	48.82(56) kBq	67.05(103) %
Pt 基板 3	$4.98(6) \times 10^{-17}$ mol	24.06(27) kBq	15.16(9) kBq	63.01(80) %

また、図 23 のように  $^{221}\text{Fr}$  の孫核である  $^{213}\text{Bi}$  とさらに娘核である  $^{209}\text{Tl}$  を使用して Pt 基板 1

の電着後線量を同様に解析を行った結果、表 9 のような結果となった。 $^{213}\text{Bi}$  は  $^{221}\text{Fr}$  の崩壊後、半減期 32.8 ms で生成されるために計測時に既に放射平衡になっていたのに対して、 $^{209}\text{Tl}$  は  $^{213}\text{Bi}$  の崩壊後、半減期 45.6 min. で生成されるために計測時には放射平衡になっていなかったと考えられる。よって、 $^{225}\text{Ac}$  の線量を解析する際には、カウント数と計測時の平衡状態を考慮して、 $^{221}\text{Fr}$  および  $^{213}\text{Bi}$  の 2 つのスペクトルで行うことにした。

表 9 Pt 基板 1 のスペクトルを 3 つの核種で解析した結果。

$^{221}\text{Fr}$ で解析	20.39(7) MBq
$^{213}\text{Bi}$ で解析	20.34(7) MBq
$^{209}\text{Tl}$ で解析	19.55(25) MBq

#### 4.5.2 $^{225}\text{Ac}$ の電着結果-Ti 基板

今回、1.56 MBq の電着溶液を電着させ、電着基板を作成した。

電着のパラメーターは、

- 定電圧 : 1.0 kV
- 昇圧時間 : 60 分間
- 電着溶液 : 0.01M 硝酸に溶かした  $^{225}\text{Ac}$  10  $\mu\text{l}$  + 2-propanol 2.000 mL
- チラー : なし

で行った。これは、 $^{88}\text{Y}$  で電着率が 68.2 % であったパラメーターである。

電着の結果、表 10 のようになった。

表 10 Pt 基板に電着させた 3 種類の線源の強度と電着率

基板	粒子数	電着溶液	電着基板	電着率
Ti 基板	$3.23(3) \times 10^{-12}$ mol	1.561(15) MBq	0.611(10) MBq	39.13(72) %

同様のパラメーターで行った  $^{88}\text{Y}$  の電着率は 68.2% であった。 $^{88}\text{Y}$  の電着率より低くなった原因として、Pt 基板と同じく、粒子数の違い、分離精製の仕方の違い、原子の性質の違いが考えられる。

## 5 $^{221}\text{Fr}$ 原子線評価実験

$^{221}\text{Fr}$  の EDM 測定に向けて、 $^{225}\text{Ac}$  基板を組み込んだ  $^{221}\text{Fr}$  原子線源を開発し、SSD での測定によって線源を評価する。加えて、次の段階で進めることになる  $^{221}\text{Fr}$  の MOT 効率の向上を目指して、Y キャッチャーに堆積させた  $^{221}\text{Fr}$  の評価および炭素膜による  $^{221}\text{Fr}$  の低エネルギー化の評価を行う。

$^{225}\text{Ac}$  から放出される  $^{221}\text{Fr}$  は 105 keV と高エネルギーであり Y キャッチャー中の深さ 33.4 nm まで注入される。炭素膜によって  $^{221}\text{Fr}$  を低エネルギー化することで、Y キャッチャーへ堆積させる際に  $^{221}\text{Fr}$  が停止する深さが小さくなる。Y キャッチャー表面の十分浅い位置に  $^{221}\text{Fr}$  を停止させることができると、熱脱離させる際の加熱温度を低く抑えることが可能である。これによって、アウトガスが放出されて真空度が悪化し MOT での捕獲時間が低下することを防ぐことができる。また、MOT での捕獲効率は  $^{221}\text{Fr}$  の速度に依存するため、加熱温度を下げることでボルツマン分布に従った速度で放出される  $^{221}\text{Fr}$  が低速になり、MOT 可能な速度の  $^{221}\text{Fr}$  の割合が増加することが期待される。

### 5.1 実験概要

図 43 のような実験装置を開発した。この実験装置は、Ac を電着した基板と SSD、Y キャッチャー、ターボ分子ポンプ (TMP) で構成されている。CAD による設計で使用した 3D 図および E7 実験室の実験装置に組み込み後の写真を、図 44、図 45 に示した。この実験装置を使用し、

- $^{225}\text{Ac}$  線源からの崩壊  $\alpha$  粒子の測定 (Ac 由来測定)
- $^{225}\text{Ac}$  線源から  $\alpha$  崩壊して放出されて Y キャッチャーに堆積した  $^{221}\text{Fr}$  からの崩壊  $\alpha$  粒子の測定 (Y 由来測定)
- 炭素膜による  $^{221}\text{Fr}$  原子の低エネルギー化評価実験

の 3 つの実験を行った。以下にその手順と結果を示す。

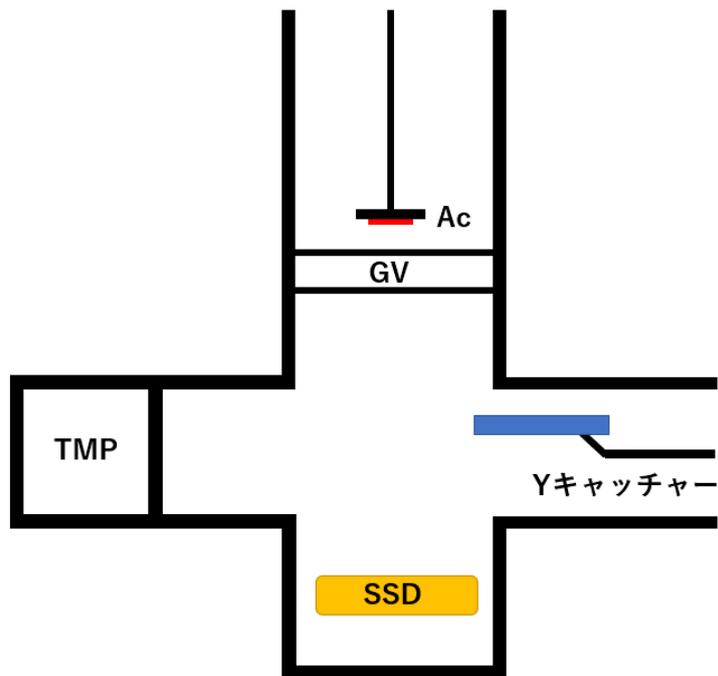


図 43  $^{221}\text{Fr}$  原子線評価実験のセットアップの模式図。

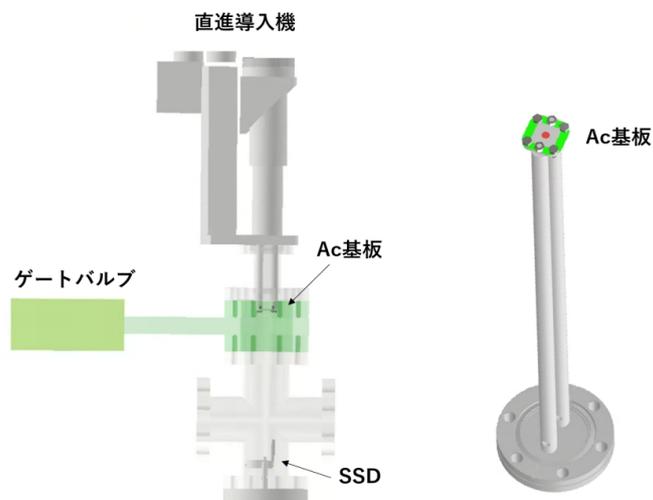


図 44 実験装置の全体像の 3D 図。非密封線源である  $^{225}\text{Ac}$  を安全に実験室まで運搬するためにゲートバルブ (GV) を使用した。そのため、 $^{225}\text{Ac}$  から SSD までの距離が遠くなってしまうので、直進導入機を使用して近づけることができるように設計した。



図 45 実験装置の写真。

### Ac 由来測定

$^{225}\text{Ac}$  線源からの崩壊  $\alpha$  粒子の測定 (Ac 由来測定) は、ゲートバルブ (GV) を開けて SSD で測定を行う。この測定によって、 $^{225}\text{Ac}$  線源のスペクトルを得ることができ、線量評価が可能となる。長時間 (5 時間以上) 測定を行うことで統計誤差を小さくすることにした。Ac から SSD への立体角は  $\Omega_{\text{Ac} \rightarrow \text{SSD}} = 0.00027(2)$  である。

この測定データを解析することで、 $^{225}\text{Ac}$  線源の強度を測定することができる。

### Y 由来測定

Y キャッチャーに堆積させた  $^{221}\text{Fr}$  の崩壊  $\alpha$  粒子の測定 (Y 由来測定) は、直進回転導入機に接続された Y キャッチャーを  $^{225}\text{Ac}$  直下まで移動し  $^{221}\text{Fr}$  の照射を 10 分間行った後、Y キャッチャーを回転し SSD で 10 分間の測定を行う。この一連の測定を複数回行い、データを取得したのちに、SSD で測定している時間のスペクトルを足し合わせることでデータ量を増やし統計誤差を小さくするようにした。Ac から Y キャッチャーへの立体角は  $\Omega_{\text{Ac} \rightarrow \text{Y catcher}} = 0.00724(9)$ 、Y キャッチャーから SSD への立体角は  $\Omega_{\text{Y catcher} \rightarrow \text{SSD}} = 0.0442(2)$  である。

この測定データを解析することで、Y キャッチャーに堆積している  $^{221}\text{Fr}$  の量を測定することができる。

Ac 由来測定および Y 由来測定の様子を図 46 に示した。

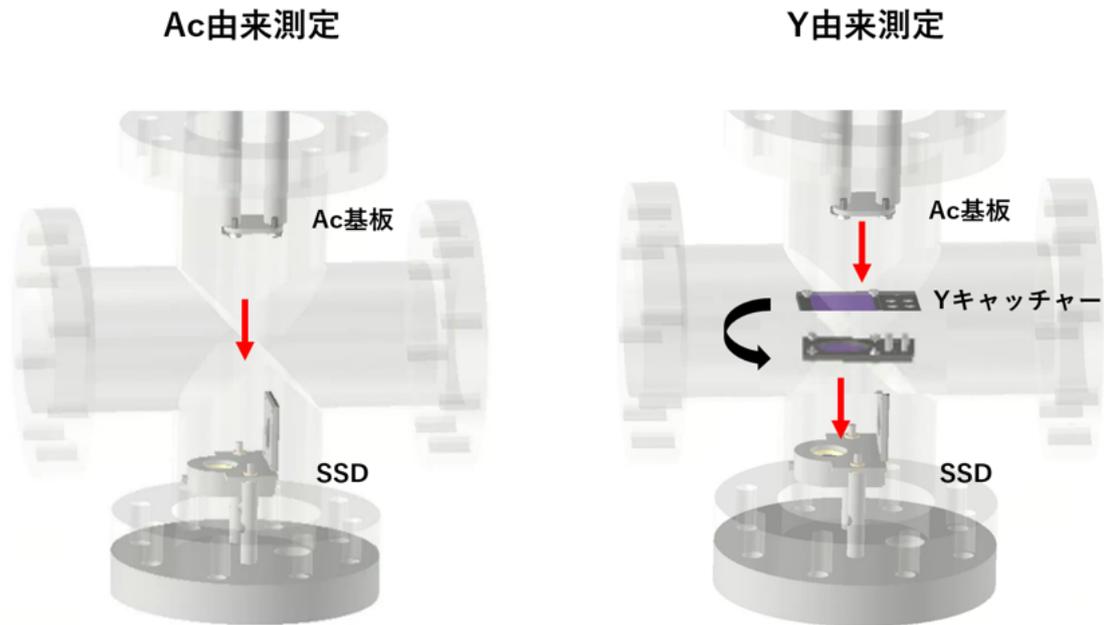


図 46 Ac 由来測定および Y 由来測定を表現した 3D 図。

## 炭素膜による $^{221}\text{Fr}$ の低エネルギー化評価実験

炭素膜を  $^{225}\text{Ac}$  線源に被せることにより、 $\alpha$ 崩壊によって放出する  $^{221}\text{Fr}$  のエネルギーが減衰することが期待される。このエネルギーの変化を、炭素膜の厚さを変えて Ac 由来測定および Y 由来測定を行うことで評価する。炭素膜には、14 nm、27 nm、50 nm の炭素（グラファイト、密度  $2.01(2) \text{ g/cm}^3$ ）の蒸着膜を使用した。

## 5.2 Ac 由来測定

### 5.2.1 実験結果

Ac 由来測定の結果、図 47 のスペクトルが得られた。このスペクトルの各ピークの核種を同定し、 $^{225}\text{Ac}$  線源の線量を求める。

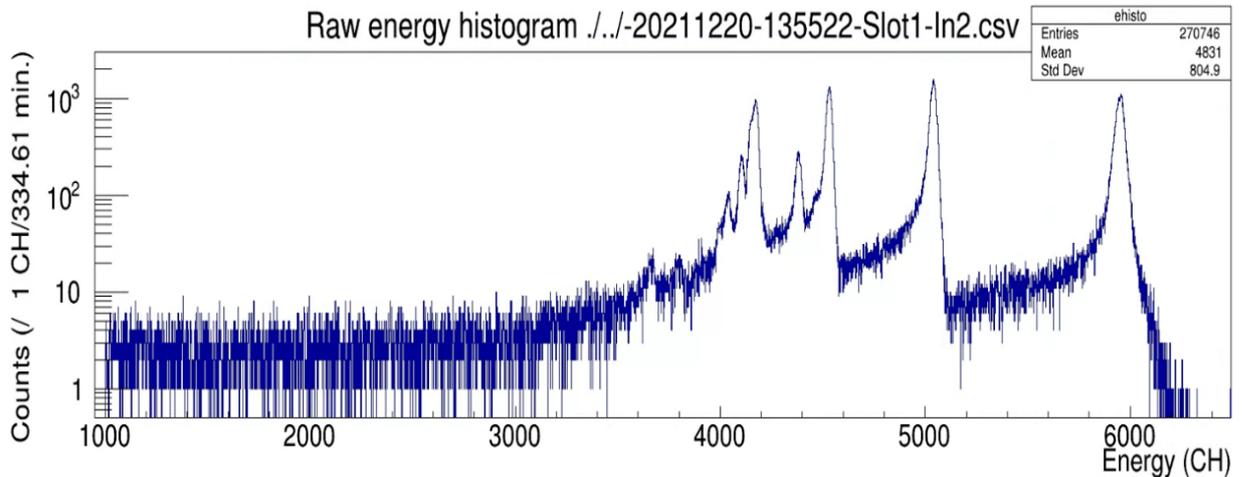


図 47  $^{225}\text{Ac}$  線源の Ac 由来測定のスเปクトル。

## 5.2.2 解析

### エネルギー・スペクトルによる核種の同定

$^{225}\text{Ac}$  は、図 23 のような崩壊系列に従って崩壊する。図 48 は、崩壊系列から測定されると予測される  $^{225}\text{Ac}$ 、 $^{221}\text{Fr}$ 、 $^{217}\text{At}$  および  $^{213}\text{Po}$  を  $\alpha$  線のエネルギーと分岐率の文献値から計算しプロットしたスเปクトルである。

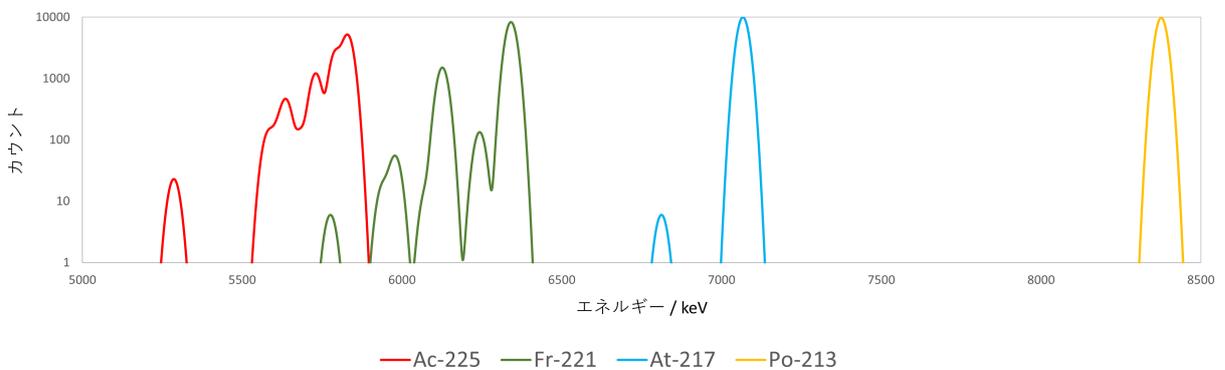


図 48  $^{225}\text{Ac}$  の崩壊系列の主なスเปクトルをエネルギーおよび分岐率の文献値から計算しプロットした。 $^{225}\text{Ac}$  が 10000 個崩壊し、 $\sigma=16$  keV のガウス関数で測定されるとしている。

図 49 からわかるように、この文献値によるスเปクトルを測定されたスเปクトルと重ねることで核種を同定した。各核種の主要なスเปクトルはエネルギー・カウント数ともに再現していることがわかる。

$^{213}\text{Po}$  は、 $^{225}\text{Ac}$  から 4 つ目の娘核であり、基板方向に崩壊しより埋め込まれたところに存在するなど、多様な経路を通して SSD に観測される可能性が高く、その際に埋め込まれたところから減衰されながら放出する粒子も存在するため、スเปクトルが文献値に比べてなだらかでピークのカウント数が減っていると考えられる。

よって、 $^{225}\text{Ac}$  線源を使ったモデル計算などを精度良く評価するには、SSD に観測されるまでの

経路が確実にわかる核種を使用するべきであると考えられる。

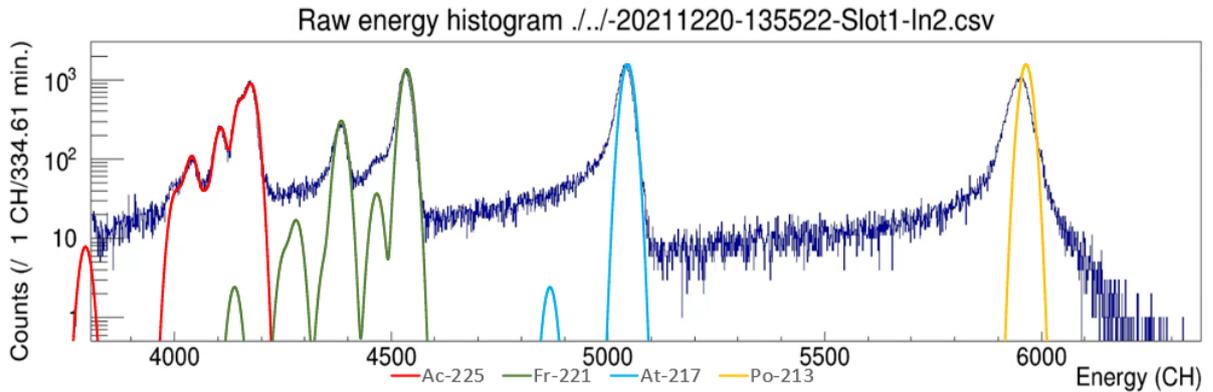


図 49  $^{225}\text{Ac}$  線源を SSD で観測したスペクトルと崩壊系列から計算しプロットしたスペクトルを重ねた図。

### 半減期による核種の同定

$^{225}\text{Ac}$  の半減期は文献値によると 9.9 日であるため、長時間の測定を行うと減衰の様子が確認できる。図 50 は、 $^{225}\text{Ac}$  のスペクトルのカウント数を取り出し、その時間変化をプロットしたグラフである。指数関数でフィッティングを行った結果、半減期  $\tau_{Ac}$  は、

$$\tau_{Ac} = 10.44 \pm 0.35 \text{ d}$$

であった。この結果から、このスペクトルは  $^{225}\text{Ac}$  または  $^{225}\text{Ac}$  の崩壊系列の半減期が短く放射平衡になっている核種であることがわかる。 $^{225}\text{Ac}$  の崩壊系列の中で測定される核種の半減期はすべて  $\tau \ll \tau_{Ac}$  であるため、Ac 由来測定では十分時間が経過した後は他の核種のスペクトルの半減期も  $^{225}\text{Ac}$  と同じ 9.9 日のように振る舞うことに注意する。

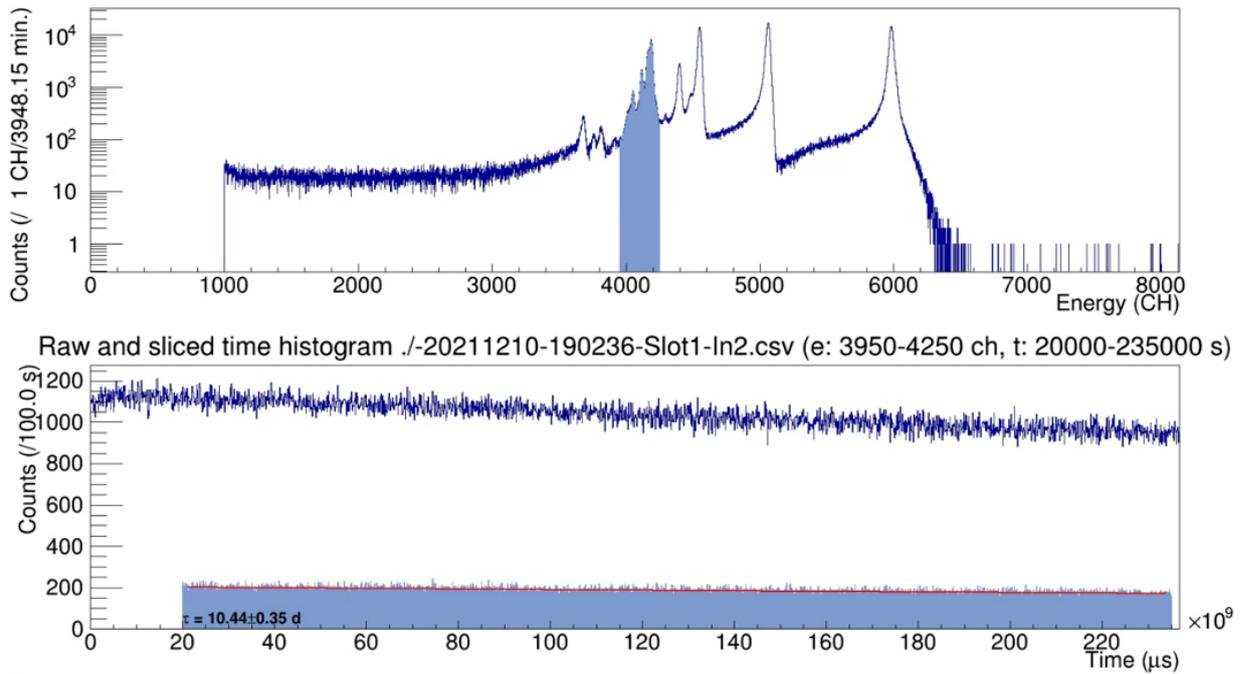


図 50 Ac 由来の測定結果から経過時間と Ac のスペクトルのカウント数を取り出しプロットした。水色部分が Ac のスペクトルのカウント数であり、指数関数でフィッティングを行った。測定時間は 65 時間。測定開始直後は、真空度が  $10^{-5}$  Pa 台に達していなかったためカットした。

### $^{225}\text{Ac}$ 線源の線源強度評価

測定されたスペクトルにフィッティングを行った結果から線源強度を求める。

$^{225}\text{Ac}$  のスペクトルは、最も分岐率の大きい 5830 keV のスペクトルにフィッティングを行うことで評価する。 $^{225}\text{Ac}$  の 5830 keV のスペクトルは図 51 のように低エネルギー側に他のエネルギーのスペクトルが重なっている。精度を高めるために、 $^{225}\text{Ac}$  のフィッティングによる評価では、(11) 式のようにガウス関数 3 つの和として表した関数で行うことにした。結果を図 52 に示した。

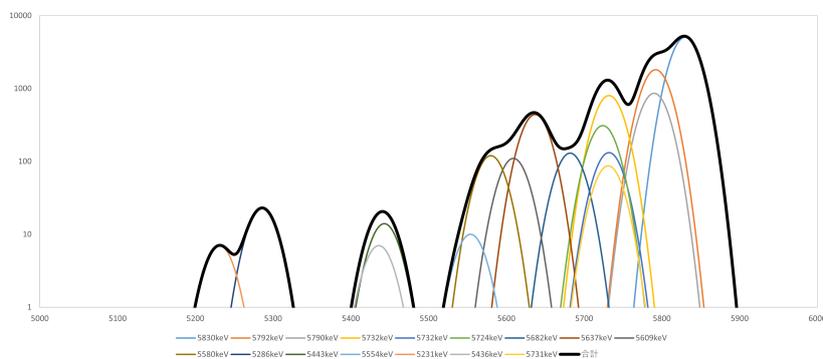


図 51 文献値のエネルギーと分岐率からプロットした  $^{225}\text{Ac}$  のスペクトル。 $^{225}\text{Ac}$  が 10000 個崩壊し、 $\sigma=16$  keV のガウス関数で測定されるとした。

$$y = a_1 \exp\left(-\frac{(x - x_1)^2}{2\sigma_1^2}\right) + a_2 \exp\left(-\frac{(x - x_2)^2}{2\sigma_2^2}\right) + a_3 \exp\left(-\frac{(x - x_3)^2}{2\sigma_3^2}\right) \quad (11)$$

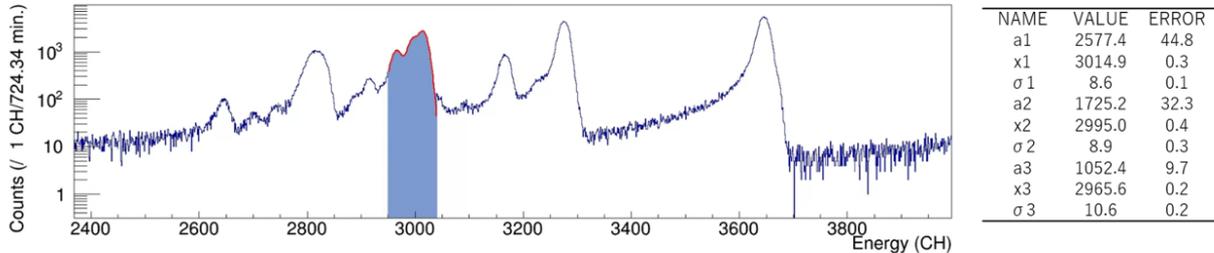


図 52  $^{225}\text{Ac}$  のフィッティングの様子とフィッティングによって得られた結果。

5830 keV のスペクトルのカウント数  $S_{\text{Ac}, 5830\text{keV}}$  は、ガウス関数の積分から

$$S_{\text{Ac}, 5830\text{keV}} = a_1 \sqrt{2\pi\sigma_1^2}$$

より 1 秒当たりの  $^{225}\text{Ac}$  の全カウント数  $s_{\text{Ac}}$  は測定時間  $t$  として、

$$s_{\text{Ac}} = \frac{S_{\text{Ac}, 5830\text{keV}}}{b \cdot t}$$

である。よって、

$$\begin{aligned} A_{\text{Ac,SSD,fit}} &= \frac{s_{\text{Ac}}}{\Omega_{\text{Ac} \rightarrow \text{SSD}}} \\ &= 10.9 \text{ kBq} \end{aligned}$$

と計算される。これは、より精度が高いと考えられる Ge 半導体検出器の結果を 5% の違いで再現しており、この精度で線源強度の測定を行うことができると考えられる。

## 5.3 Y 由来測定

### 5.3.1 実験結果

Y キャッチャーに付着した  $^{221}\text{Fr}$  を測定する Y 由来測定を行った。Y 由来測定は 1 回の測定で得られるカウント数が少ないため、10 分間  $^{225}\text{Ac}$  から放出される  $^{221}\text{Fr}$  を Y キャッチャーに照射し 10 分間測定を行う測定ループを 39 回行った。

Y 由来測定時には、 $^{225}\text{Ac}$  と SSD の間に Y キャッチャーがあるため、 $^{225}\text{Ac}$  のスペクトルは観測されない。しかし、実際は Y キャッチャーの直進回転動作時に  $^{225}\text{Ac}$  が見える時間があるため生データでは  $^{225}\text{Ac}$  が観測される。そこで、この測定ループにおいて、10 分間の Y キャッチャー測定中のスペクトルだけを取り出したものを Y 由来測定のデータとした。

測定および解析の結果、図 53 が得られた。青色の生データをプロットしたスペクトルでは  $^{225}\text{Ac}$  が観測されるが、水色で示した Y キャッチャーが SSD を向いている時間だけを取り出した Y 由来測定のデータ Y では、 $^{225}\text{Ac}$  のスペクトルは見られず、 $^{225}\text{Ac}$  の崩壊系列の核種のみが観測された。

この Y キャッチャーの動作時に見えてしまう  $^{225}\text{Ac}$  のスペクトルを、Y 由来測定時と同時に  
行っている Ac 由来測定  $^{225}\text{Ac}$  のスペクトルととらえることで、次節の炭素膜による  $^{221}\text{Fr}$  の低  
エネルギー化の評価実験で、エネルギー校正をする核種のようにして使用している。

Y 由来測定で得られたこのスペクトルを解析することで、Y キャッチャーに堆積した  $^{221}\text{Fr}$  量を  
計算することができる。

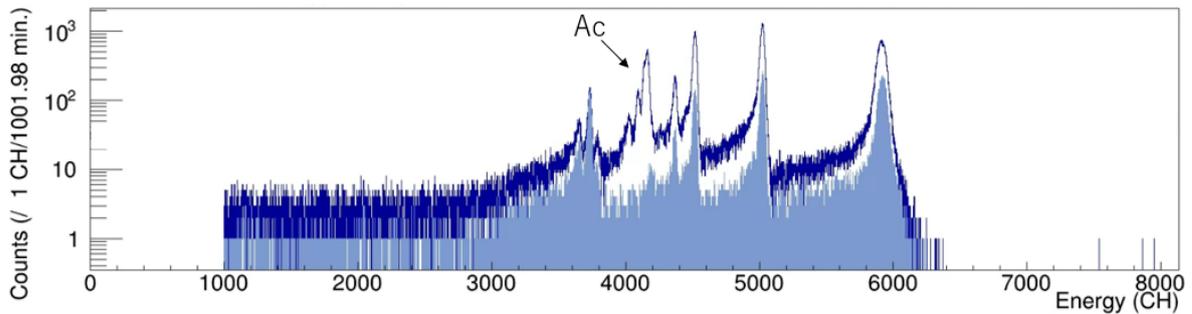


図 53 Y 由来測定時は、Y キャッチャーが回転および移動する動作があるため、SSD から直接  
 $^{225}\text{Ac}$  線源が見える時間がある。上図は、Y 由来測定の実験で得られた生データ（青色）から Y  
由来測定中のデータのみを取り出したスペクトル（水色）を重ねたグラフ。

### 5.3.2 解析

#### Y キャッチャーに堆積した $^{221}\text{Fr}$ 量

$^{221}\text{Fr}$  のスペクトルは、図 54 のように最大のピークの高エネルギー側に重なりがないため、6341  
keV のスペクトルをガウス関数でフィッティングを行うことで評価した。

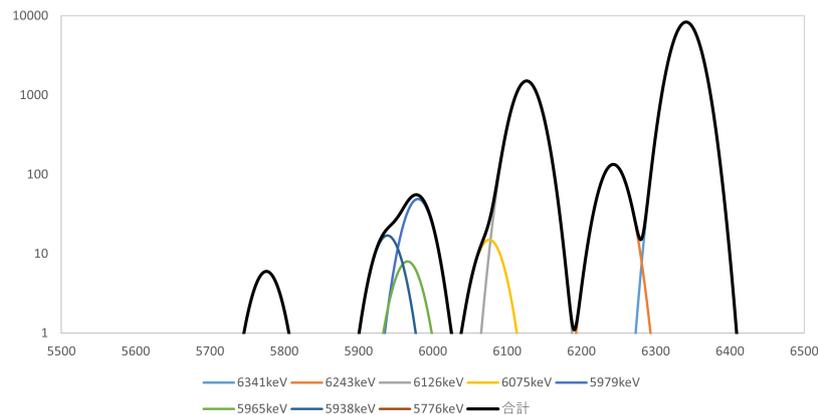


図 54 文献値のエネルギーと分岐率からプロットした  $^{221}\text{Fr}$  のスペクトル。 $^{225}\text{Ac}$  が 10000 個  
崩壊し、 $\sigma = 16$  keV のガウス関数で測定されるとした。

1 回の測定ループで得られる SSD のカウント数  $S_{Fr, Loop}$  は、堆積終了時、測定開始時、測定終

了時をそれぞれ  $t = 0$ 、 $t = t_1$ 、 $t = t_2$  とすると、

$$S_{Fr,Loop} = \int_{t_1}^{t_2} s e^{-\lambda t} dt$$

と表わすことができるため、Y キャッチャーに堆積した  $^{221}\text{Fr}$  量  $N_Y$  は、

$$s = \lambda \frac{S}{n_{loop}} \frac{1}{e^{\lambda t_1} - e^{\lambda t_2}} N_Y = \frac{1}{\lambda} \frac{1}{b\Omega} s$$

今回の測定パラメータを代入し、

$$N_Y = 3.75 \times 10^4$$

であることがわかった。

## 5.4 炭素膜による $^{221}\text{Fr}$ の低エネルギー化評価実験

炭素膜による  $^{221}\text{Fr}$  の低エネルギー化を評価するために、炭素膜を被せた  $^{225}\text{Ac}$  線源を作成し Y 由来測定を行った。炭素膜には、厚さ 14 nm、27 nm、50 nm の炭素の蒸着膜を使用した。

### 5.4.1 炭素膜によるエネルギー減衰の原理

高エネルギーの荷電粒子は物質を通過するとき、物質との相互作用によりエネルギーを失う。

炭素膜を被せると Ac 由来測定では、 $^{225}\text{Ac}$  中で崩壊し放出された  $\alpha$  粒子が炭素膜を通過することでエネルギーが減衰し、炭素膜なしのときに比べてより小さな値として測定されることが期待される。

Y 由来測定では、図 55 のように、炭素膜なしのときは  $^{225}\text{Ac}$  から放出された  $^{221}\text{Fr}$  が Y に注入され停止した後、Y 中で  $^{221}\text{Fr}$  が崩壊し放出された  $\alpha$  粒子は Y 中を減衰されながら通過し、SSD に測定される。一方、 $^{225}\text{Ac}$  に炭素膜を被せたときは、 $^{225}\text{Ac}$  から放出された  $^{221}\text{Fr}$  は炭素膜を減衰されながら通過し、Y に注入され停止する。このとき、 $^{221}\text{Fr}$  のエネルギーが減衰していることによって Y での停止深さが小さくなると考えられる。その後、同様に Y 中で  $^{221}\text{Fr}$  が崩壊し放出された  $\alpha$  粒子は Y 中を減衰されながら通過するが、このときに通過する Y の距離が小さいため炭素膜なしのときに比べて  $\alpha$  粒子のエネルギーは大きくなるため、Y 由来測定では炭素膜を厚くするほど  $^{221}\text{Fr}$  のエネルギーはより大きな値として測定されることが期待される。

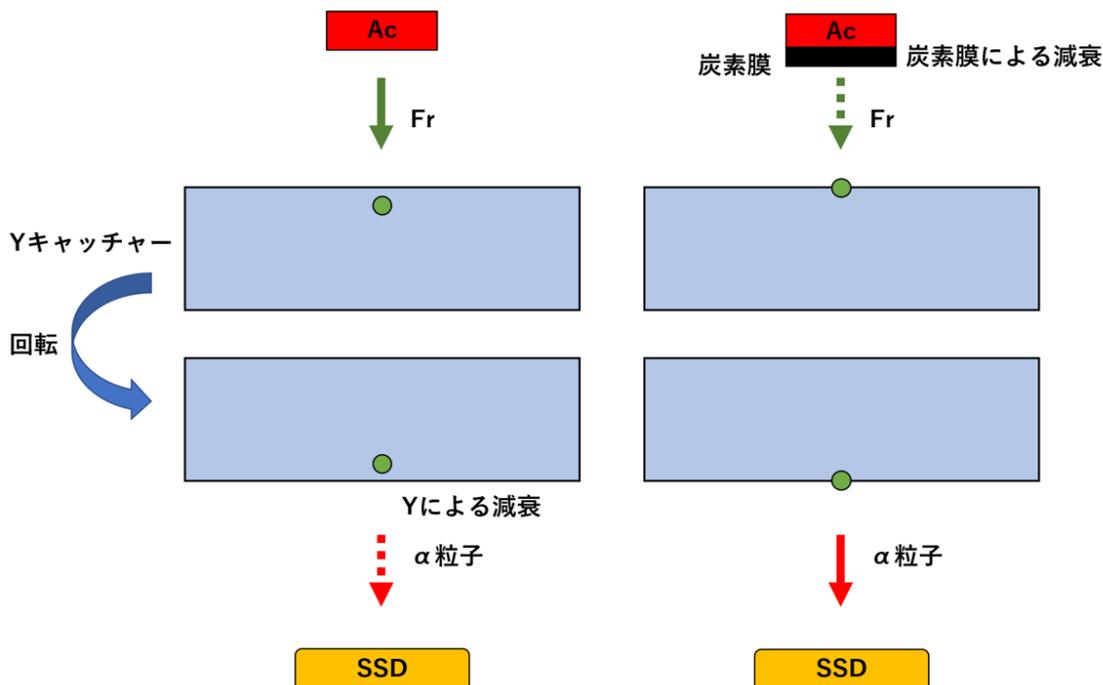


図 55 炭素膜による  $^{221}\text{Fr}$  減衰評価実験の原理の模式図。

#### 5.4.2 炭素膜によるエネルギー減衰のモデル計算

物質と荷電粒子の相互作用の理論に基づくと、単位長さあたりに失うエネルギー（阻止能）は、 $10^{-1} < \beta\gamma < 10^3$  の領域で、Bethe の式、

$$\frac{dE}{dx} = Kz^2 \frac{Z}{A} \frac{1}{\beta^2} \left( \frac{1}{2} \ln \frac{2m_e c^2 \beta^2 \gamma^2 W_{max}}{I^2} - \frac{\delta(\beta\gamma)}{2} \right)$$

で近似的に表される [28]。ただし、 $K \sim 0.3 \text{ MeV mol}^{-1} \text{ cm}^2$ 、 $z$  は入射粒子の電荷、 $Z$ 、 $A$  はそれぞれ標的原子の原子番号、モル質量 (g/mol)、 $W_{max}$  は衝突で失うエネルギーの最大値、 $I$  は平均励起エネルギー、 $\delta(\beta\gamma)$  はイオン化によって失うエネルギーの標的密度に応じた補正である。

この式およびその他補正効果を加えて様々なイオンの阻止能を数値計算するために開発されたエネルギー損失計算コード SRIM[19] を使用して、本実験において炭素膜の厚さに応じて SSD で測定されるエネルギーの遷移をモデル計算した。

まず、Ac 由来測定における  $^{225}\text{Ac}$  の崩壊  $\alpha$  粒子の減衰を評価する。 $^{225}\text{Ac}$  の崩壊  $\alpha$  粒子は 5830 keV で放出され、炭素膜を通過することで減衰し、SSD で測定される。このときの、炭素膜の厚さと通過後の  $\alpha$  粒子のエネルギーの計算結果を図 56 に示した。5830 keV の  $\alpha$  粒子は炭素膜の厚さが 26  $\mu\text{m}$  以上で停止するため、今回使用する炭素膜ではすべて通過し測定される。

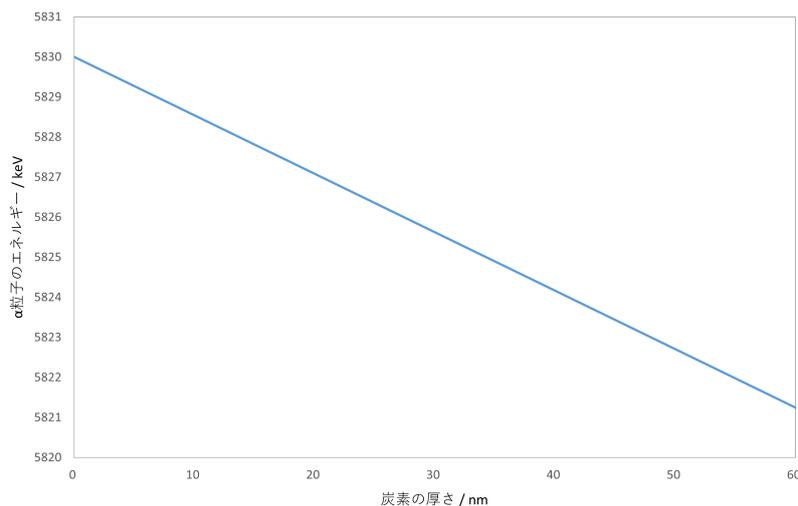


図 56  $^{225}\text{Ac}$  から 5830 keV で放出される  $\alpha$  粒子の炭素膜（密度  $2.01\text{ g/cm}^3$ ）通過後のエネルギー。

次に、Y 由来測定における  $^{221}\text{Fr}$  の崩壊  $\alpha$  粒子のエネルギーが炭素膜によってどのように遷移するかを順に評価する。 $^{225}\text{Ac}$  の  $\alpha$  崩壊によって  $^{221}\text{Fr}$  は 105 keV で放出される。放出された  $^{221}\text{Fr}$  は炭素膜を通過することで減衰する。このとき、炭素膜の厚さが 42.8 nm 以上であると、 $^{221}\text{Fr}$  は炭素膜中でエネルギーがゼロになり停止する。

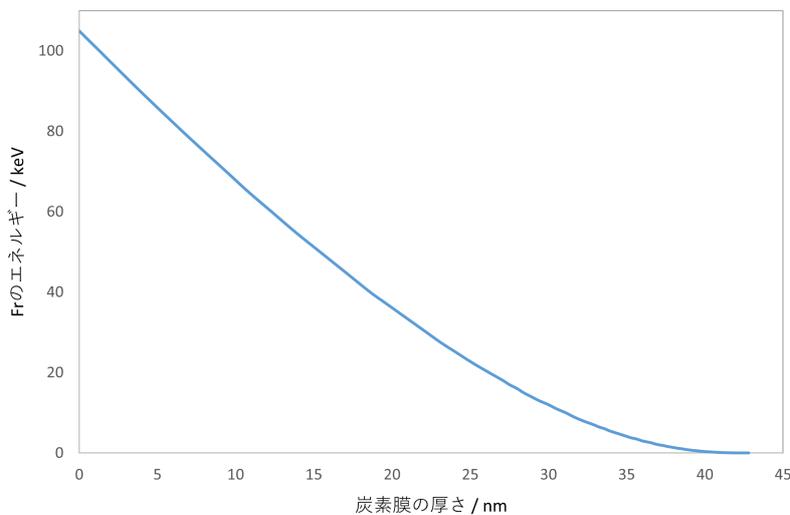


図 57  $^{225}\text{Ac}$  から 105 keV で放出される  $^{221}\text{Fr}$  の炭素膜（密度  $2.01\text{ g/cm}^3$ ）通過後のエネルギー。厚さ 42.8 nm 以上になると炭素膜中で停止する。

炭素膜を通過した  $^{221}\text{Fr}$  は Y キャッチャーにあたり、Y によって減衰し停止する。このときの停止深さはエネルギーによって異なり、図 58 のようになる。

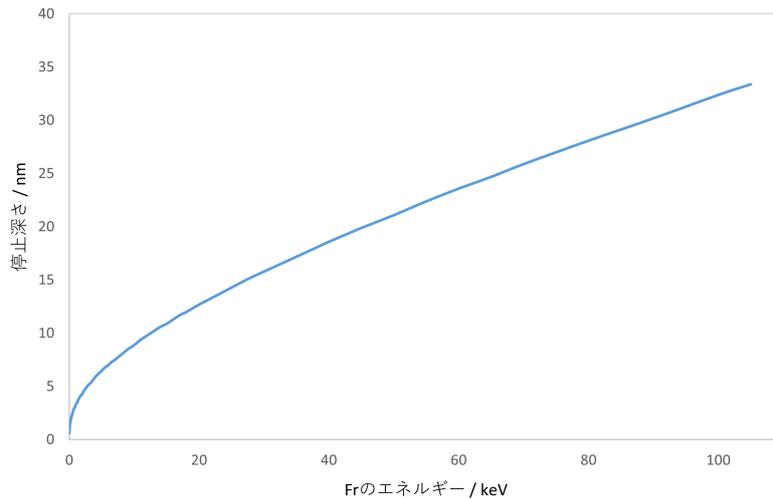


図 58  $^{221}\text{Fr}$  を Y (密度  $4.469\text{ g/cm}^3$ ) に注入したときの停止深さを SRIM で計算したグラフ。  
 $^{221}\text{Fr}$  が 105 keV のとき Y の深さ 33.4 nm で停止する。

この後、Y キャッチャー中の  $^{221}\text{Fr}$  は崩壊によって 6341 keV の  $\alpha$  粒子を放出する。この  $\alpha$  粒子は Y によって減衰されながら通過し、SSD で測定される。この  $\alpha$  粒子の Y を通過後のエネルギーは Y 中で停止していた位置によって異なり、図 59 のようになる。

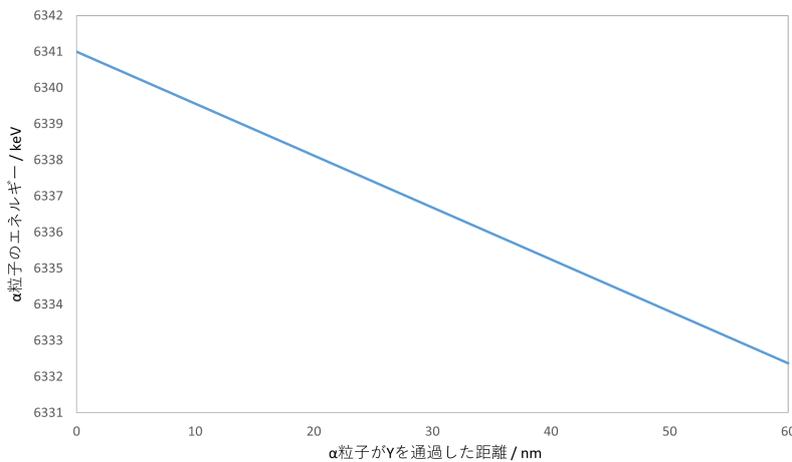


図 59  $^{221}\text{Fr}$  から 6341 keV で放出される  $\alpha$  粒子の Y (密度  $4.469\text{ g/cm}^3$ ) による減衰を SRIM で計算したグラフ。 $^{221}\text{Fr}$  が Y の 33.4 nm の深さで崩壊したとき  $\alpha$  粒子は 4.80 keV 減衰して脱離する。

これらの計算から、 $^{225}\text{Ac}$  から放出された  $^{221}\text{Fr}$  が炭素膜を通過し、Y キャッチャーに注入された  $^{221}\text{Fr}$  から放出される  $\alpha$  粒子が Y によって減衰し SSD に測定されるまでの過程を表 11 に示した。また、SSD で測定されることが予測される Ac 由来測定における  $^{225}\text{Ac}$  の崩壊  $\alpha$  粒子のエネルギーおよび Y 由来測定における  $^{221}\text{Fr}$  の崩壊  $\alpha$  粒子のエネルギーを、表 12 に示した。

この結果からわかるように、SSD で測定されるこの 2 つのスペクトルのエネルギー差は炭素膜を厚くすることによって大きくなる。その様子を図 60 に示した。 $^{221}\text{Fr}$  の低エネルギー化の評価実験ではこの差によって炭素膜による低エネルギー化を評価する。

表 11 Y 由来測定における Y 中の Fr の崩壊 α 粒子が測定されるまでの各過程の値

炭素膜	炭素膜通過後の Fr のエネルギー	Y 中で Fr が停止する深さ	Y 通過後の α 粒子のエネルギー
なし	105 keV	33.4 nm	6336.2 keV
14 nm	55.5 keV	22.5 nm	6337.8 keV
27 nm	19.6 keV	13.3 nm	6339.1 keV
50 nm	炭素内で停止	-	-

表 12 Ac 由来測定における Ac の崩壊 α 粒子と Y 由来測定における Fr の崩壊 α 粒子のエネルギーとその差

炭素膜 / nm	Ac からの α 線	Fr からの α 線	差
なし	5830 keV	6336.2 keV	506.2 keV
14 nm	5828.0 keV	6337.8 keV	509.8 keV
27 nm	5826.1 keV	6339.1 keV	513.0 keV
50 nm	5822.7 keV	Fr は炭素内で停止	-

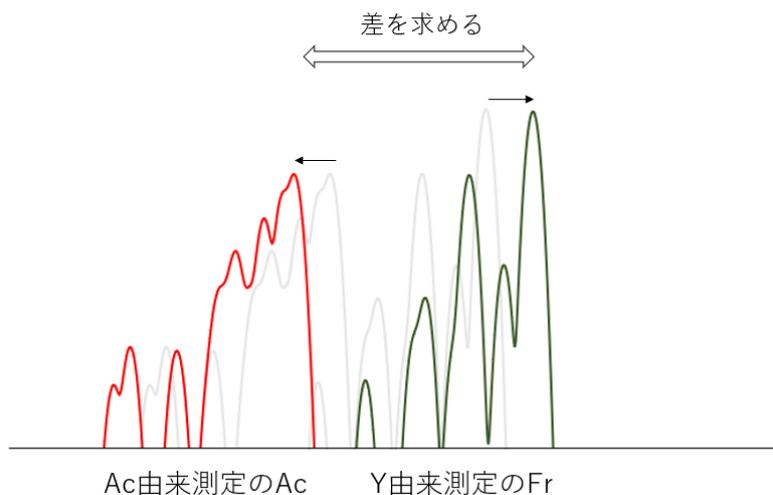


図 60 SSD で測定される Ac 由来測定における  $^{225}\text{Ac}$  から放出される α 粒子のスペクトルと Y 由来測定における Y キャッチャー中の  $^{221}\text{Fr}$  から放出される α 粒子のスペクトルのエネルギー差が炭素膜の厚さを大きくすることで広がっていく様子のイメージ図。この差の変化を求めると炭素膜による  $^{221}\text{Fr}$  の低エネルギー化を評価する。

### 5.4.3 炭素膜を被せた基板の作成

炭素膜を被せた  $^{225}\text{Ac}$  線源は、CF-Metals が公開する手順 [29] に倣って、超純水の入った容器中でガラスから炭素膜を剥がし、浮いた炭素膜に Ac 線源の基板をくぐらすことで作成した。 $^{225}\text{Ac}$  が電着されている基板中心の直径 5 mm の領域を覆うように炭素膜を被せた。

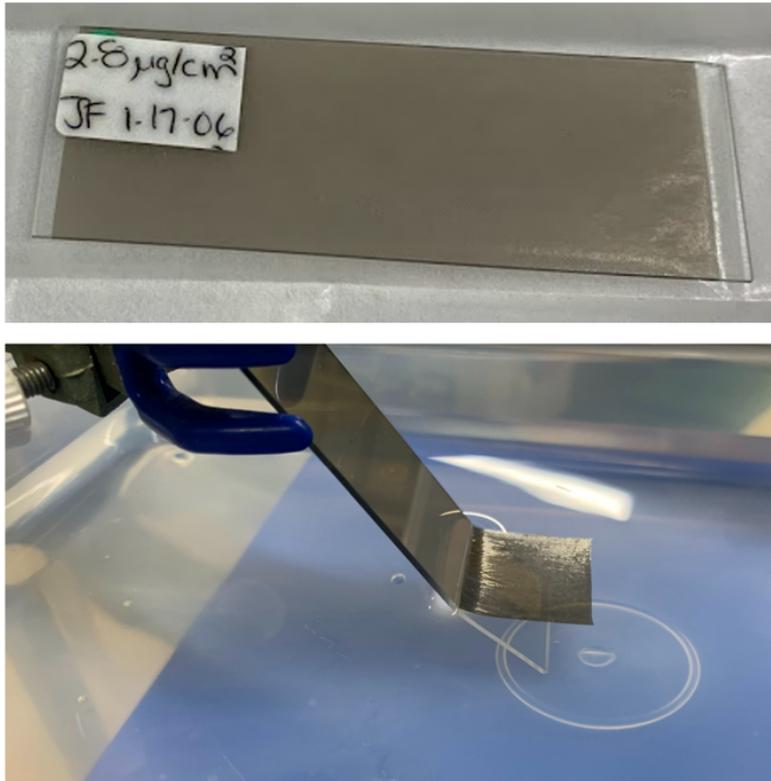


図 61 ガラスに真空蒸着された炭素膜（上図）と炭素膜を水中で剥がす作業の様子（下図）。

炭素膜の厚さを変えるために、表 13 のように面密度が異なる炭素膜を使用し作成した。作成後の基板を図 62 に示した。

表 13 炭素膜による減衰の SRIM での計算結果

炭素膜の厚さ	使用した炭素膜
14 nm	面密度 $2.8 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ (厚さ 14 nm)
27 nm	14nm + 面密度 $2.6 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ (厚さ 13 nm)
50 nm	面密度 $10 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ (厚さ 50 nm)



図 62 順に 14、27、50 nm の炭素膜を被せた基板

#### 5.4.4 実験結果

##### Ac 由来測定

Ac 由来測定の結果は、図 63 のようになった。Ac 由来測定では、炭素膜による減衰によってすべてのスペクトルが低エネルギー側にシフトしていることが期待される。しかし、その原因が SSD のゲイン変動と区別できないため、減衰の解析は Y 由来測定で行うことにした。

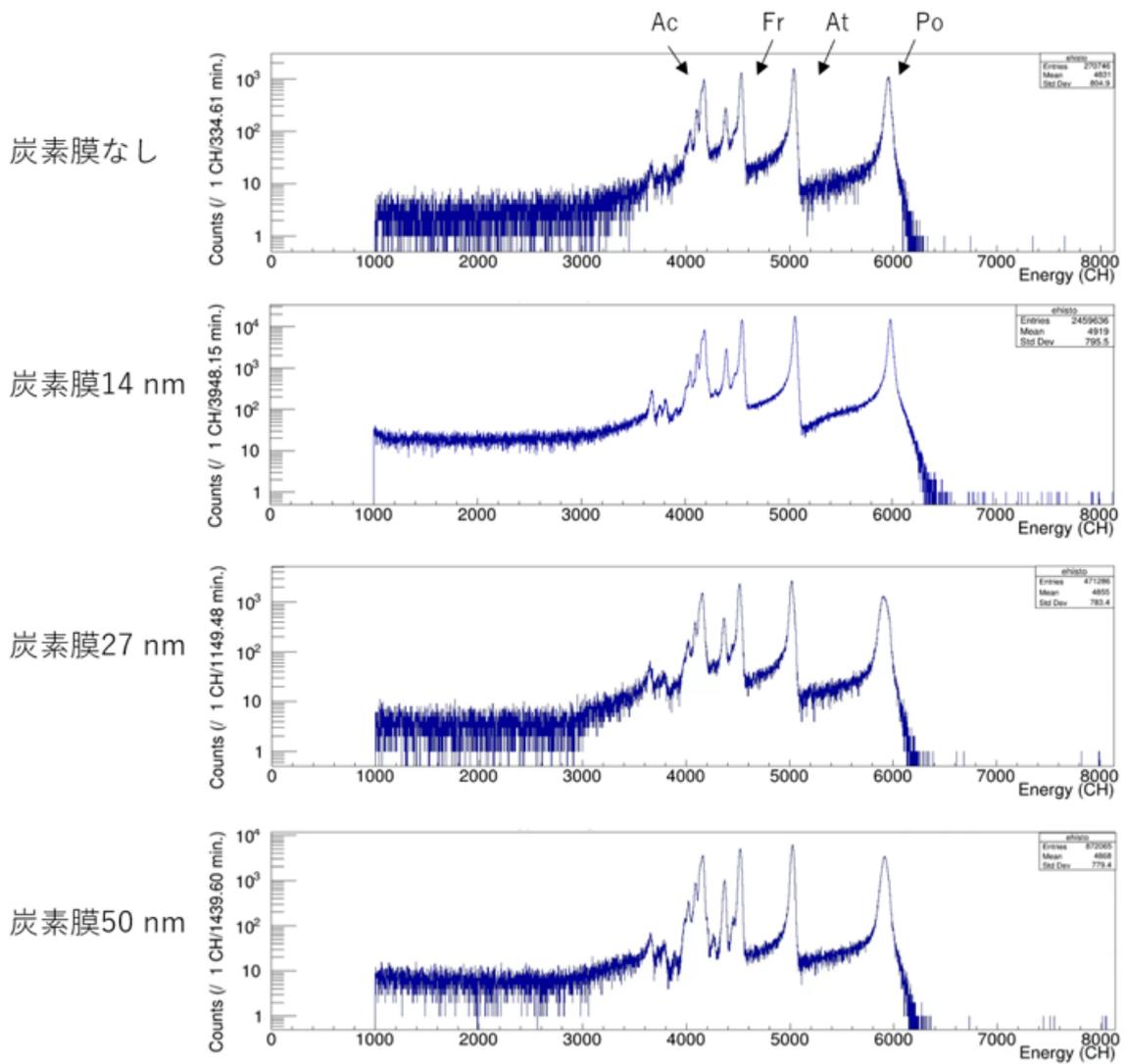


図 63 Ac 由来測定のスเปクトル。

### Y 由来測定

Y 由来測定の結果は、図 64 のようになった。炭素膜 50 nm のとき <sup>221</sup>Fr のスペクトルは観測されず、SRIM で行った計算通り <sup>221</sup>Fr は炭素膜中で停止し飛び出していないことが分かった。

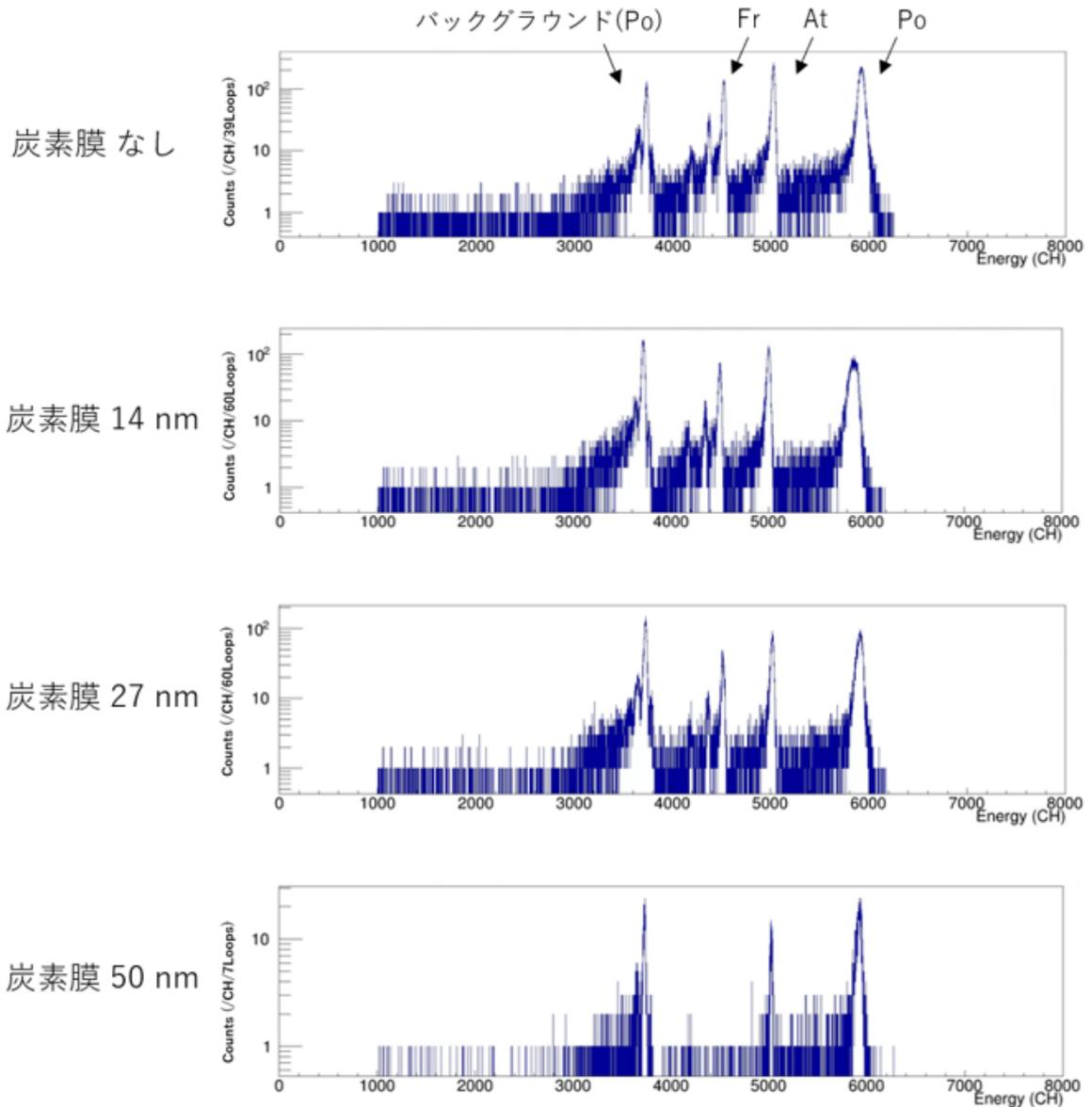


図 64 Y 由来測定のスเปクトル。炭素膜 50 nm では、 $^{221}\text{Fr}$  は観測されなかった。Y 由来測定時に見えるバックグラウンドのピークは  $^{206}\text{Po}$  のエネルギーであった。この測定で使用している Y キャッチャーは  $^{210}\text{Fr}$  EDM 測定実験で使用しているものと同じであるため、Y キャッチャー上に  $^{210}\text{Fr}$  の崩壊系列である  $^{206}\text{Po}$  が残っていたと考えられる。

#### 5.4.5 解析

##### $^{221}\text{Fr}$ の低エネルギー化の評価

Y 由来測定 of  $^{221}\text{Fr}$  の崩壊  $\alpha$  粒子のエネルギーとその測定中に行っている Ac 由来測定 of  $^{225}\text{Ac}$  の崩壊  $\alpha$  粒子のエネルギーから、炭素膜による  $^{221}\text{Fr}$  のエネルギー減衰を評価する。

SSD およびプリアンプなどの測定回路は温度変化などの影響を受けてゲイン変動が起きるため、チャンネルとエネルギーの校正が変わる可能性がある。今回評価したいエネルギー変化は数 keV

程度と小さいため、異なる時間帯の測定で校正した値を使用すると、炭素膜によるエネルギー変化とゲイン変動を区別できない。本来は $\alpha$ 線標準線源を入れて常に校正を行うとよいが、本研究では代わりとして Y 由来測定中に行っている Ac 由来測定の  $^{225}\text{Ac}$  の崩壊  $\alpha$  粒子を使用して、そのチャンネル差から評価する。

それぞれのスペクトルにフィッティングを行うことでピークエネルギーを求めて、その差を算出した解析結果を表 14 にまとめた。この誤差はフィッティングの精度によるものである。

炭素膜の厚さが大きくなるにつれて  $^{225}\text{Ac}$  のスペクトルと  $^{221}\text{Fr}$  のスペクトルの差が大きくなっていることがわかる。この傾向は、モデル計算と一致している。

表 14 Y 由来測定の解析結果

炭素膜	Ac からの $\alpha$ 線	Fr からの $\alpha$ 線	差
なし	$4161.66 \pm 0.39$ CH	$4516.94 \pm 0.26$ CH	$355.3 \pm 0.47$ CH
14 nm	$4139.68 \pm 0.71$ CH	$4497.73 \pm 0.53$ CH	$358.0 \pm 0.88$ CH
27 nm	$4152.81 \pm 0.30$ CH	$4512.59 \pm 0.53$ CH	$359.8 \pm 0.61$ CH

参考として、炭素膜なしでの Ac 由来測定の Ac および Fr によって計算した校正式  $y[\text{CH}] = 0.7017 \times x[\text{keV}] + 81.07$  を使用し換算したものを表 15 にまとめて、図 65 に示した。

表 15 Y 由来測定の  $^{221}\text{Fr}$  と Ac 由来測定の  $^{225}\text{Ac}$  のスペクトルの差について、モデル計算と実験結果を keV に換算した値を比較した。

炭素膜	モデル計算	実験結果を換算
なし	506.2 keV	$506.3 \pm 0.7$ keV
14 nm	509.8 keV	$510.3 \pm 1.3$ keV
27 nm	513.0 keV	$512.7 \pm 0.9$ keV

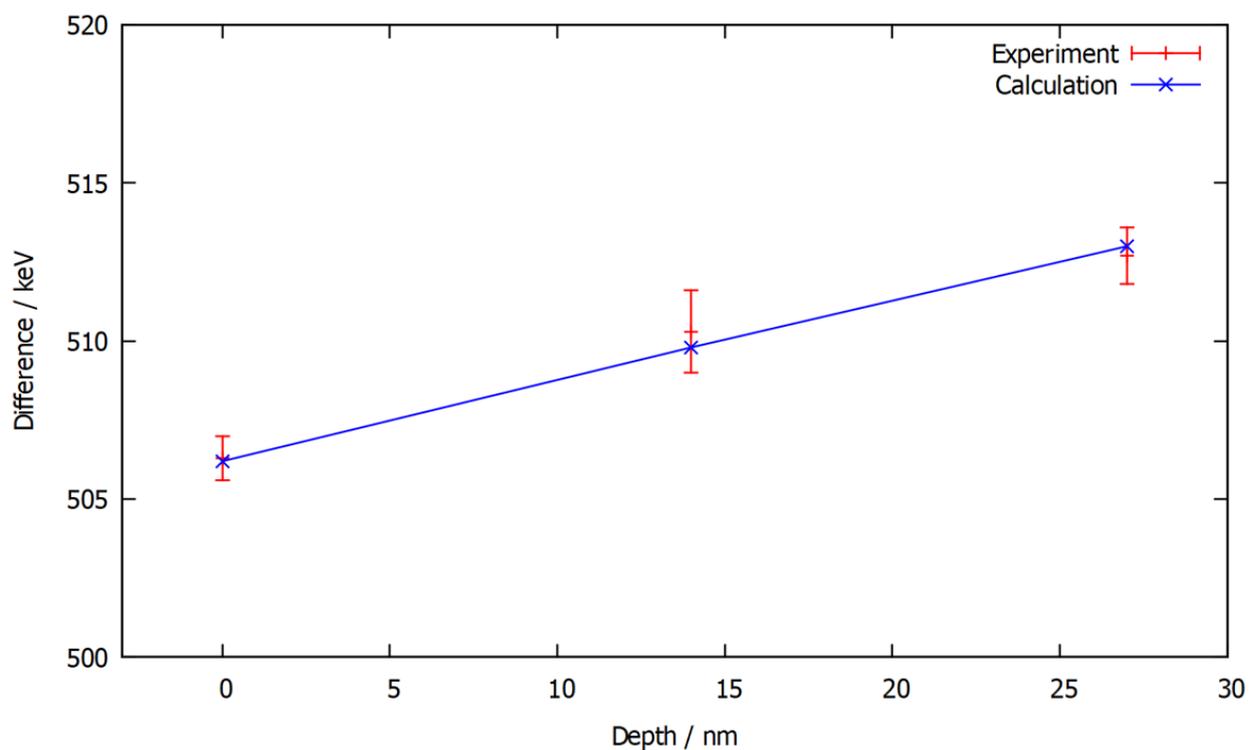


図 65 炭素膜の厚さによる Y 由来測定 of  $^{221}\text{Fr}$  と Ac 由来測定 of  $^{225}\text{Ac}$  のスペクトルのエネルギー差について、モデル計算と実験結果を keV に換算した値を示したグラフ。

以上の結果から、炭素膜によって  $^{221}\text{Fr}$  のエネルギーが減衰していることがわかった。また、SRIM を使用したモデル計算が本実験結果を再現できることが確認された。

よって、炭素膜による  $^{221}\text{Fr}$  の低エネルギー化は有効であり、 $^{221}\text{Fr}$  原子線に炭素膜を使用することで  $^{221}\text{Fr}$  の Y 中での停止深さを小さくすることができることがわかった。

## 6 今後の展望

$^{210}\text{Fr}$ EDM 測定実験では、Y キャッチャーに堆積する  $^{210}\text{Fr}$  量を評価する測定装置の開発を行った。 $^{221}\text{Fr}$ EDM 測定実験では、 $^{221}\text{Fr}$  の原子線源に使用する  $^{225}\text{Ac}$  を電着させた基板の開発を行った。また、開発した原子線源の評価実験および炭素膜を使用した原子線の低エネルギー化の評価実験を行った。

以下では、本研究の結果をふまえて今後の展望を述べる。

### 6.1 $^{225}\text{Ac}$ 線源の大強度化

本研究では、 $^{225}\text{Ac}$  を Pt 基板に 60 ~ 80 % の効率で電着し、最大で 20.39 MBq の  $^{225}\text{Ac}$  電着基板を作ること成功した。

非密封線源の規制から、原子線評価実験で使用した線源は ~ 10 kBq であり、 $^{221}\text{Fr}$ EDM 測定実験においても同程度の線源強度しか使用できないとしても成果を出せるように計画を進める予定である。しかし、 $^{221}\text{Fr}$ EDM 測定実験を安全に行うことができる実証をすることで、大強度の  $^{225}\text{Ac}$  が使用できる許可が下りる可能性がある。

また、 $^{225}\text{Ac}$  はオークリッジ国立研究所が製造した 74 MBq のものを購入することで入手しているため、到着後最短で使用しても線源強度は 40 MBq まで減衰している。現在、理化学研究所核化学研究チームによって  $^{225}\text{Ac}$  の製造が計画されており、将来的に最大で 100 MBq の  $^{225}\text{Ac}$  を使用して  $^{221}\text{Fr}$ EDM 測定実験を行うことができる可能性がある。

これらを考慮して、将来的な  $^{225}\text{Ac}$  線源の大強度化に向けて、安全管理および実験計画の準備を進めていく必要がある。その一つとして、補遺に低エネルギー  $^{221}\text{Fr}$  発生装置の開発計画を掲載した。

### 6.2 最適な炭素膜の厚さの評価

$^{221}\text{Fr}$ EDM 測定実験で使用する  $^{221}\text{Fr}$  原子線源に最適な炭素膜の厚さの選定を行う必要がある。本研究では、炭素膜によって  $^{221}\text{Fr}$  原子が低エネルギー化され Y キャッチャーの表面近くに堆積させることができることがわかり、その値が SRIM を使用したモデル計算で再現されることを確認した。この低エネルギー化によって、 $^{221}\text{Fr}$  を Y キャッチャーから真空中へ熱脱離させるために必要な加熱温度を低くすることができ、真空度の悪化を抑えることができ、図 66 のように  $^{221}\text{Fr}$  が MOT 領域に到達するときの平均速度が低くなることで MOT 収量の向上が期待される。

また、 $^{221}\text{Fr}$  を Y キャッチャーの表面上または表面の極近くに堆積させることができると、熱脱離の代わりに、表面に吸着した原子に光を照射することで脱離させる光誘起脱離によって脱離させることが可能になる。これによって、さらに脱離する  $^{221}\text{Fr}$  の低速化や真空度の改善が期待されることから、こちらの採用も検討する予定である。

一方、炭素膜を  $^{221}\text{Fr}$  が停止する厚さに近づけていくと、多重散乱によって動径方向の成分が増え、炭素膜を通過して Y キャッチャーに堆積する  $^{221}\text{Fr}$  の量が減少することが考えられる。炭素膜による  $^{221}\text{Fr}$  の停止距離 42.8 nm の標準偏差は 5.5 nm であるため、本研究で行った炭素膜の厚さでは Y キャッチャーに堆積する  $^{221}\text{Fr}$  量の変化は無視できるが、図 67 のように炭素膜をさらに厚くしていくと  $^{221}\text{Fr}$  量は減少すると考えられる。実際に本研究の Y 由来測定の結果から、炭素

膜の厚さによる  $^{221}\text{Fr}$  の量の変化を計算したが、不定性が大きいと考えられたため補遺に載せた。

そこで、今後は  $^{221}\text{Fr}$  EDM 測定実験の設計および実験計画を進め、その設計に最適な  $^{221}\text{Fr}$  の厚さをシミュレーションおよび実験から評価する予定である。

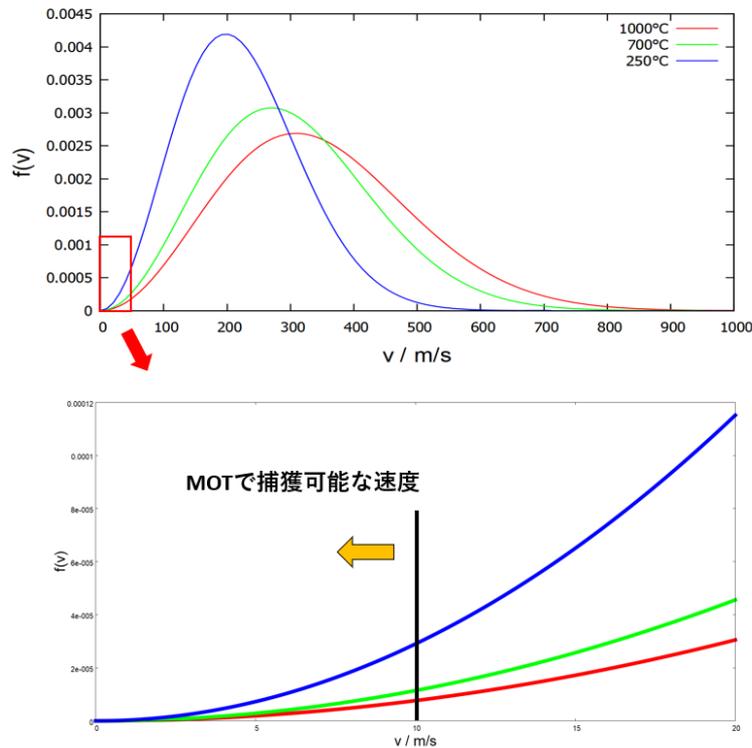


図 66 Boltzman 分布  $f(v)$  に Fr の MOT で捕獲可能と考えられている速度である 10 m/s を示したもの。Y キャッチャーを加熱すると、その加熱温度の分布で熱脱離すると考えられる。250°C は、Fr を表面に堆積させたときに脱離させることができる温度。700°C は Y キャッチャー内部に Fr が堆積しているとき半減期より十分短い時間で Fr を熱拡散し脱離させるのに必要な温度。参考として 1000°C も示した。

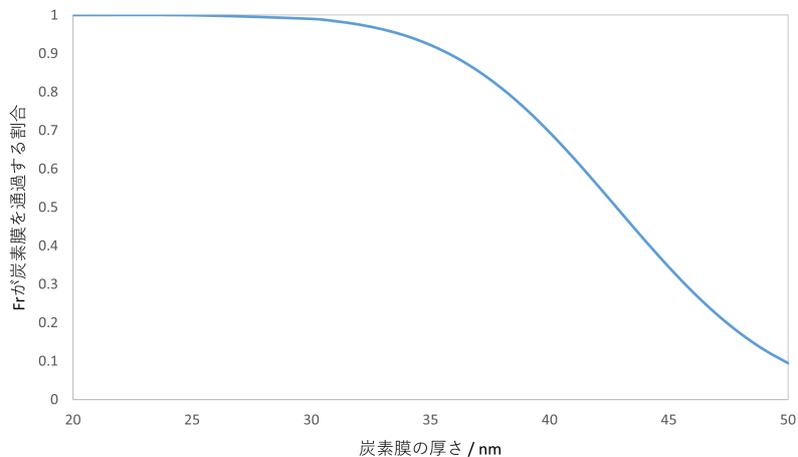


図 67 炭素膜の厚さによる  $^{221}\text{Fr}$  が通過する割合。  $^{221}\text{Fr}$  が密度  $2.01 \text{ g/cm}^3$  の炭素膜を通過するときの SRIM による計算結果の停止距離 42.8 nm、飛程方向の標準偏差 5.5 nm をグラフ化した。

## 7 補遺

### 7.1 補遺 A 低エネルギー $^{221}\text{Fr}$ 発生装置の開発計画

真空チャンバーの MOT 領域近くに低エネルギー  $^{221}\text{Fr}$  発生装置を導入する計画を進めた。この装置は、高強度の  $^{225}\text{Ac}$  線源を組み込み、低エネルギーの  $^{221}\text{Fr}$  線を放出する線源である。

この章では、この装置の説明と MOT により捕獲可能な量の評価を行う。

#### 7.1.1 低エネルギー $^{221}\text{Fr}$ 発生装置の概要

$^{210}\text{Fr}$ EDM 測定実験は、 $^{18}\text{O}^{6+}$  ビームが供給されるビームタイム時のみに限られるうえ、ビームタイム時は安全面から実験室に入出不可であるため遠隔での制御が必要である。加えて、MOT 領域に輸送するまでに Fr の損失があること、輸送により断続的に供給されることなどが実験を難しくする要因であった。

低エネルギー  $^{221}\text{Fr}$  発生装置は、MOT 領域に  $^{225}\text{Ac}$  を導入するため、MOT 領域に  $^{221}\text{Fr}$  を長期的および連続的に供給することが可能である。しかし、 $^{221}\text{Fr}$  は  $\alpha$  崩壊によって 105 keV で飛び出してくるためそのままでは MOT で捕獲することは困難である。そこで、低エネルギー化する機構を加えた装置とした。

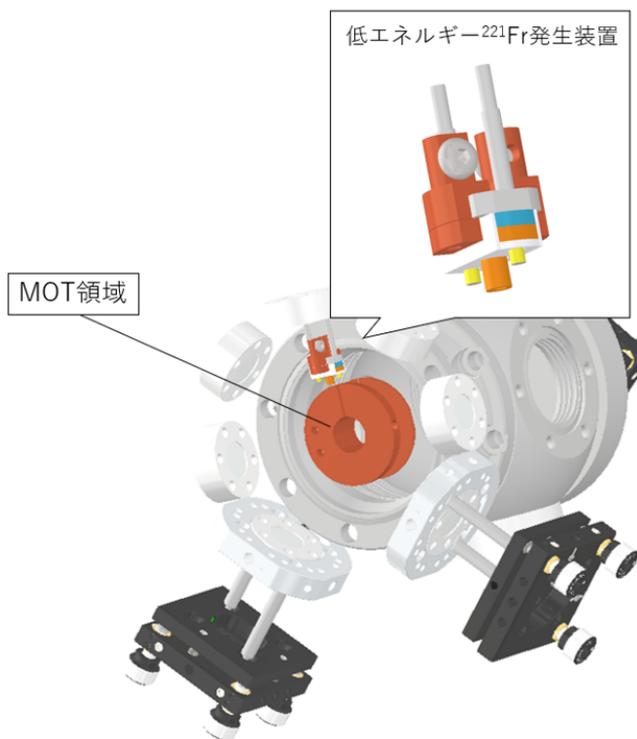


図 68 MOT チャンバーに組み込んだ低エネルギー  $^{221}\text{Fr}$  発生装置のイメージ図

#### 7.1.2 低エネルギー $^{221}\text{Fr}$ 発生装置の開発

図のように発生装置を MOT チャンバー内の MOT 領域の近くに設置する。この装置は  $^{221}\text{Fr}$  を低エネルギーにして、MOT 領域まで輸送するために、

1.  $^{225}\text{Ac}$  の  $\alpha$  崩壊で放出した  $^{221}\text{Fr}$  を Y 箔に於て停止させる
2. Y 箔に電流を流し加熱することで、 $^{221}\text{Fr}$  を中性粒子として熱脱離させる
3.  $^{221}\text{Fr}$  を DLC でコーティングしたキャピラリーで MOT 領域近くまで輸送する

ことができる装置である。

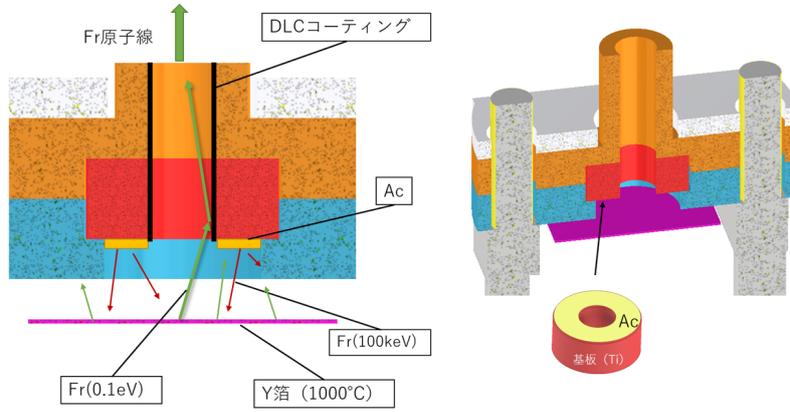


図 69 低エネルギー  $^{221}\text{Fr}$  発生装置の模式図。

### $^{221}\text{Fr}$ の熱脱離

Y 箔で  $^{221}\text{Fr}$  は SRIM での計算より深さ 33.4 nm で停止する。Y 箔に電流を流すことで 1000 °C まで加熱し熱拡散させ、Y 箔上部から熱脱離させる。

### $^{221}\text{Fr}$ の中性化

熱脱離する際の表面電離イオン化確率は、イオンおよび中性原子のエネルギー準位の縮退度をそれぞれ  $g_i$ 、 $g_0$ 、脱離する原子の第一イオン化エネルギーを  $\Phi_{IP}$ 、金属の仕事関数を  $\Phi_{WF}$  とすると、Saha-Langmuir の式より

$$P_{ion} = \frac{1}{1 + \frac{g_i}{g_0} \exp\left(-\frac{\Phi_{WF} - \Phi_{IP}}{k_B T}\right)}$$

と表すことができる。Fr が 1000 °C の Y 表面より脱離するとき、

$$\begin{aligned} \frac{g_i}{g_0} &= 2 \\ \Phi_{WF,Y} &= 3.1\text{eV} \\ \Phi_{IP,Fr} &= 4.1\text{eV} \end{aligned}$$

より、

$$P_{ion,Fr} = 6.8 \times 10^{-5}$$

である。よって、 $^{221}\text{Fr}$  はほぼすべて中性粒子として Y 表面から熱脱離することがわかる。

## DLC コーティングキャピラリーによる輸送

高効率で輸送するために、内部に吸着防止効果のあるコーティングを施したキャピラリーを使用する。このコーティングは、

- Fr 原子に対して吸着防止効果があること
- 加熱された Y 箔の輻射によって融解しないこと
- 真空度を悪化させないこと

を満たす必要がある。そこで、500 °Cまで耐熱し、アウトガスの少ない DLC が有効であると考えられる。DLC は、Fr と同様にアルカリ金属である Rb 原子で吸着防止効果が示されている [30]。

### 7.1.3 低エネルギー $^{221}\text{Fr}$ 原子線で MOT 収量予測

この低エネルギー  $^{221}\text{Fr}$  原子線によって、MOT される  $^{221}\text{Fr}$  の収量を概算する。線源強度  $A$  (Bq) の  $^{225}\text{Ac}$  線源を使用したとき、 $^{225}\text{Ac}$  から放出された  $^{221}\text{Fr}$  がキャピラリー出口より放出される割合を  $\epsilon_{generator}$ 、キャピラリー出口から MOT 領域までの立体角を  $\Omega_{generator \rightarrow MOT}$ 、MOT での捕獲率を  $\epsilon_{MOTcapture}$ 、崩壊時定数を  $\tau$  とすると、

$$N_{MOT} = A(\text{Bq}) \times \epsilon_{generator} \times \Omega_{generator \rightarrow MOT} \times \epsilon_{MOTcapture} \times \tau(\text{s})$$

と表すことができる。現時点での、設計モデルから計算した値である

$$\begin{aligned}\epsilon_{generator} &= 0.18 \\ \Omega_{generator \rightarrow MOT} &= 0.226 \\ \epsilon_{MOTcapture} &= 0.001\end{aligned}$$

を代入すると、10 kBq、100 MBq の  $^{225}\text{Ac}$  線源を使用したとき MOT の収量はそれぞれ、

$$\begin{aligned}N_{MOT,10kBq} &= 12 \\ N_{MOT,100MBq} &= 1.2 \times 10^6\end{aligned}$$

と計算される。

本研究の評価から 10 kBq では EDM の測定に十分でないことがわかった。現在、導入予定である E7 実験室で使用できる  $^{225}\text{Ac}$  の線源強度は 10 kBq までと制限されているため、現段階では 2 章で述べた  $^{221}\text{Fr}$  のガラスセル MOT の方が有効であることがわかった。



図 70 低エネルギー  $^{221}\text{Fr}$  発生装置の試作品。

## 7.2 補遺 B MOT される $^{210}\text{Fr}$ 量の概算

Y キャッチャーは MOT 領域直下で赤外線ヒーターによって加熱され、 $^{210}\text{Fr}$  は Y キャッチャーから熱脱離する。 $^{210}\text{Fr}$  脱離後、吸着防止コーティングされたキャピラリーを通り MOT 領域に到達する。MOT 領域はキャピラリー上部にある直径 15 mm の x 軸、y 軸、z 軸の 3 つのレーザー光が重なる領域である。

熱脱離にかかる時間は半減期に比べて十分早いため、熱脱離の効率は  $\epsilon_{\text{escape}} \sim 1$  とする。熱脱離後の  $^{210}\text{Fr}$  の速度分布は、ボルツマン分布に従う。MOT で捕獲可能な速度は、 $\sim 10\text{m/s}$  であるため、 $^{210}\text{Fr}$  が捕獲される確率を  $\epsilon_{\text{capture}} \sim 0.001$  とする。よって、MOT されると予測される  $^{210}\text{Fr}$  量  $N_{\text{MOT}}$  は Y キャッチャーから MOT 領域まで輸送効率を  $\epsilon_{\text{Y} \rightarrow \text{MOT}} \sim 0.01$  とすると、

$$N_{\text{MOT}} \sim \epsilon_{\text{escape}} \times \epsilon_{\text{Y} \rightarrow \text{MOT}} \times \epsilon_{\text{capture}} \times N_{\text{Y}} \\ \sim 5 \times 10^2$$

と概算することができる。

## 7.3 補遺 C 電着した $^{225}\text{Ac}$ の厚さの概算

原子線の評価にあたって、 $^{225}\text{Ac}$  の膜厚を考察する必要がある。 $^{225}\text{Ac}$  が層になって基板に電着している場合、深い位置にある  $^{225}\text{Ac}$  の崩壊時の  $\alpha$  線または反跳で放出される  $^{221}\text{Fr}$  は上の層にあるほかの  $^{225}\text{Ac}$  によってエネルギーが減衰して放出される。

分子電着法は均一な層として電着されるため、まず  $^{225}\text{Ac}$  が結晶状態と仮定して膜厚の計算を行った。Pt 基板の電着面積  $S = 3.14\text{mm}^2$ 、 $^{225}\text{Ac}$  の結晶は格子定数  $a = 5.31 \times 10^{-10}\text{m}$  の面心立方格子であることより、膜厚  $d$  は線量 10 kBq、100 kBq のとき、

$$d_{10\text{kBq}} = 2.9 \times 10^{-13}\text{m} \\ d_{100\text{MBq}} = 2.9 \times 10^{-9}\text{m}$$

と計算される。10 kBq では、 $a > d_{10\text{kBq}}$  であった。100 MBq では、 $d_{100\text{MBq}} = 2.9 \times 10^{-9}\text{m}$  のとき、最も深くにいる  $^{225}\text{Ac}$  の  $\alpha$  線は 0.6 keV、 $^{221}\text{Fr}$  は 12.6 keV だけ減衰する。実際は結晶状態

でないため分子間の距離はさらに大きいと考えられるため、膜厚は大きくなり、単位距離当たりのエネルギー減衰は小さくなり、単純に計算することはできない。

本研究で使用した 10 kBq の  $^{225}\text{Ac}$  基板では、 $a > d_{10\text{kBq}}$  であるため、 $^{225}\text{Ac}$  は基板上に層を形成しているのではなくまばらに付着していると解釈して解析を行う。

#### 7.4 補遺 D 炭素膜による $^{221}\text{Fr}$ の Y キャッチャーへの堆積量の変化

炭素膜の導入によって  $^{221}\text{Fr}$  の Y キャッチャーへの堆積量がどの程度減少するかを、Y 由来測定 の  $^{221}\text{Fr}$  のスペクトルのフィッティング結果から計算した。表 16 のように、炭素膜なしの  $^{221}\text{Fr}$  の堆積量と比較して、炭素膜 14 nm のときには増加し、27 nm のときは減少した。

表 16 Y の  $^{221}\text{Fr}$  の堆積量を線源強度で割った値を、炭素膜なしのときで規格化した値。

炭素膜	堆積量
なし	1
14 nm	1.11
27 nm	0.85

炭素膜を  $^{221}\text{Fr}$  が停止する厚さに近づけていくと、多重散乱によって動径方向の成分が増え、炭素膜を通過して Y キャッチャーに堆積する  $^{221}\text{Fr}$  の量が減少することが考えられる。炭素膜による  $^{221}\text{Fr}$  の停止距離 42.8 nm の標準偏差は 5.5 nm であるため、本研究で行った炭素膜の厚さでは Y キャッチャーに堆積する  $^{221}\text{Fr}$  量の変化はほとんどないと考えられるが、炭素膜をさらに厚くしていくと  $^{221}\text{Fr}$  量は減少すると考えられる。

この堆積量の変化の原因の一つとして、Y 由来測定は Y キャッチャーの直進および回転時に SSD から  $^{225}\text{Ac}$  線源が見えてしまう時間のカウントを差し引いているため、この切り取りを行う開始時刻が同じ条件ではなかった可能性があることが挙げられる。

#### 7.5 補遺 E 炭素膜による真空度の悪化

炭素膜を基板に被せるには、超純水の入ったビーカーの中でガラスから炭素膜を剥がし、浮いた炭素膜に Ac 線源の基板をくぐらす必要がある。MOT 領域は超高真空を保つことが重要であるため、同じ実験装置内に水が付着した線源を導入することで真空度が大幅に悪化することは好ましくない。今回は、水に浸していない炭素膜なしの Ac 基板と水に浸した炭素膜ありの基板を導入後、同様に真空引きを行い真空ゲージの値を記録した。

図 71 で示したように、水に浸した基板の方が真空度が良くなるまでに少し時間は要したが、 $1.0 \times 10^{-5}$  Pa 台まで真空を引くことができ、基板に付着した水が放出し続けて真空度が一定値より良くなるならないということは起こらないということがわかった。

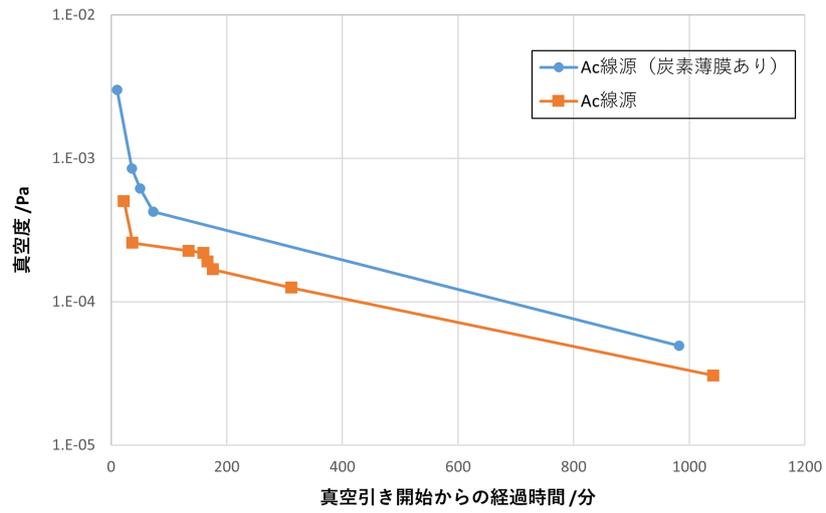


図 71 真空引き開始後の経過時間と真空度の推移を  $^{225}\text{Ac}$  線源のみのときと水に浸す必要がある炭素膜を被せた  $^{225}\text{Ac}$  線源のときの比較。

## 8 謝辞

本研究を遂行し学位論文としてまとめるにあたり、多くの方のご指導・ご協力を賜りました。この場を借りて、感謝申し上げます。

松田恭幸教授には、入学時からさまざまな面でご支援をいただきました。東京大学大学院理学系研究科原子核科学研究センターで研究を行うことを承諾いただき、研究報告をする際には多くのアドバイスをいただきました。ゼミや研究発表の練習では、何度もご懇意にご指導いただきました。コーヒーブレイクやゼミ後の雑談の時間には、科学の話や海外での研究生生活の話などをお聞きすることができ、とても興味深く楽しい時間を過ごすことができました。

東京大学大学院理学系研究科原子核科学研究センターの酒見泰寛教授には、共同研究の申し入れを快く承諾し実験チームに温かく迎え入れていただきました。本研究の方向性や本稿の構成などを何度もご相談させていただき、その度にご懇意にご指導いただいたうえ、本研究の物理学的意義を再確認していただき、たいへん鼓舞されました。また、非密封線源を扱う本研究が遂行できるように安全管理や手続きなどさまざまなご支援をしていただきました。

同センターの長濱弘季助教には、本研究を遂行するにあたってさまざまな技術や知識などをご教授いただきました。本研究について何度も議論を交えていただき、その度に多くの助言をいただいたことが本研究の指針となりました。また、長濱助教の新しいことをどんどん前に進める姿勢に刺激されることで、楽しく充実した研究生生活を送ることができました。

理化学研究所仁科加速器科学研究センター核化学研究チームの羽場宏光チームリーダーには、同チームの研修生として快く受け入れていただきました。また、電着をはじめとした本研究の化学的技術のご協力をいただき、同チームのノウハウを惜しみなく教えていただきました。

同チームの重河優大研究員と南部明弘テクニカルスタッフには、本研究の化学実験でわからないことがあった際に何度もご相談させていただきました。

酒見研究室の小澤直也さんには、実験技術や解析などの詳細なことまでご相談させていただきました。研究に行き詰ったときに度々居室に伺いましたが、快くご相談を受けてくださり、多くのことをご教授いただきました。また、 $^{210}\text{Fr}$ EDM 実験に参加するにあたって、小澤さんの丁寧なまとめられた修士論文を参考に学習することで必要な知識を得ることができました。

松田研究室の佐藤幹さんには、本研究の計画から設計、実験、解析まですべての段階においてご協力いただきました。本研究では長時間かかる実験が多かったですが、安全のために非密封線源を扱う際は常に予定を合わせて付き添ってくださりました。その際に、何度も議論を交えていただいたおかげで、安全に充実した研究を遂行することができました。

松田研究室の中下輝士さんには、同時期に原子核科学研究センターでの研究を始めた同期として、手続きのご相談や情報共有などのご連絡をさせていただいたおかげで、安心して研究生生活を始めることができました。

理化学研究所仁科加速器科学研究センターの早水友洋研究員には、本研究で非密封線源を扱う実験を行う手続きを進めていただきました。その際に、安全管理や実験手順などのご相談をさせていただきました。また、早水研究員が使用する大強度の電着基板の作成を任せていただいたことによって、将来の  $^{221}\text{Fr}$ EDM 測定実験の大強度化につながる実績をつくることができました。

酒見研究室の皆様にはたいへんお世話になりました。皆様と昼食やコーヒーブレイクの際に、議論や雑談を交えることで、楽しく研究生生活を送ることができました。中村圭祐研究員には、ゼミを

通じてレーザーの奥深さを学ばさせていただきました。永瀬慎太郎さんには、発表や解析に必要であった MOT の詳細な情報を教えていただきました。深瀬実来さんと上原大祐さんには、実験装置の組み立てを手伝っていただいたり、ゼミを通じて新しく進めていることの報告をたいへん興味深く聞かせていただいたりしました。

松田研究室の皆様にもたいへんお世話になりました。黒田直史助教には、研究発表の練習を何度も行っていただき的確にご指導いただきました。田中陶冶さん、フレック・マルクスさん、瀬尾俊さん、山内秀治さん、田中碧海さん、吉津文博さんとは、ゼミで輪講や論文紹介を共に行うことで、物理学の学びを進めることができました。

最後に、私をここまで育ててくれて、研究生生活を支援・応援してくれた家族に心から感謝します。ありがとうございました。

## 9 参考文献

### 参考文献

- [1] Andrej Dmitrievich Sakharov. Violation of CP invariance, C asymmetry, and baryon asymmetry of the universe. *JETP Lett.*, 5(1):24–27,1967.
- [2] M. Kobayashi and T. Maskawa. CP-Violation in the Renormalizable Theory of Weak Interaction. *Progress of Theoretical Physics*, 49:652–657, February 1973.
- [3] J. H. Christenson, J. W. Cronin, V. L. Fitch, and R. Turlay. Evidence for the  $2\pi$  decay of the  $K^0$  meson. *Phys. Rev. Lett.*, 13:138–140, Jul 1964.
- [4] Observation of large CP violation in the neutral B meson system. *Phys. Rev. Lett.*, 87:091802, Aug 2001.
- [5] Glennys R. Farrar and M. E. Shaposhnikov. Baryon asymmetry of the universe in the standard model. *Phys. Rev. D*, 50:774-818, Jul 1994.
- [6] Y. Yamaguchi and N. Yamanaka, Large long-distance contributions to the electric dipole moments of charged leptons in the standard model, *Phys. Rev. Lett.* 125 (2020) 241802 [arXiv:2003.08195] [INSPIRE].
- [7] 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 (2021) 013001 [arXiv:2006.00281] [INSPIRE].
- [8] ACME collaboration, Improved limit on the electric dipole moment of the electron, *Nature* 562 (2018) 355 [INSPIRE].
- [9] Safronova, M. S. al., *Rev. Mod.Phys.* 90(2018)025008
- [10] Dmitry Budker, Derek F. Kimball, and David P. DeMille. *Atomic Physics: An Exploration through Problems and Solutions*. Oxford University Press, 2 edition, 2008.
- [11] N. Shitara et al., *J. High Energ. Phys.* 2021, 124 (2021)
- [12] KY, *PRC* 103, 035501 (2021); arXiv:2008.03678.
- [13] Z.-T. Lu, K. L. Corwin, K.R. Vogel, and C. E. Wieman, *Phys. Rev. Lett.* 79, 994, Aug 1997.
- [14] V. Spevak et al., *Phys. Rev. C* 56, 1357 (1997)
- [15] Nuclear structure studies of rare francium isotopes using Collinear Resonance Ionization Spectroscopy (CRIS)
- [16] K.Yanase, Screening of nucleon electric dipole moments in atomic systems, *Phys. Rev. C* 103,035501 (2021)
- [17] Rose A. Boll, Dairi nMalkemus, Saed Mirzadeh, *Applied Radiation and Istopes* vol62(2005)
- [18] <http://nucldata.nuclear.lu.se/toi/>
- [19] J. F. Ziegler, M.D. Ziegler, and J.P. Biersack. SRIM - the stopping and range of ions in matter (2010). *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 268(11):1818 – 1823, 2010. 19th International

- [20] <https://simion.com/>
- [21] 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. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 557(2):390 – 396, 2006.
- [22] 小澤直也 フランシウム原子の電気双極子能率探索のための表面電離イオン源開発（修士論文）（2020）
- [23] 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）（2022）
- [24] W. Parker, R. Falk, Molecular plating: A method for the electrolytic formation of thin inorganic films, Nucl. Instr. Meth., 16 (1962) 355.
- [25] 日本化学会編 (1966). 実験化学講座 続4 /核化学と放射化学
- [26] <https://www.psi.ch/en/lrc/molecular-plating/>
- [27] <https://eichrom.com/eichrom/products/ln-resins/>
- [28] Tanabashi et al. Review of particle physics. Phys. Rev. D, 98:030001, Aug 2018.
- [29] ACF-METALS PRODUCT DESCRIPTIONS AND TECHNICAL INFORMATION (2005)
- [30] 佐藤幹 電気双極子能率探索に向けた高輝度フランシウム原子線源の開発（修士論文）（2021）