

^{48}Ca 同位体濃縮に向けた
大強度レーザーダイオードの開発と
ラビ振動を利用した高効率原子ビーム偏向法の開発

大阪大学大学院理学研究科物理学専攻 川畑研究室 修士二年
谷川秀憲

2026年4月12日

概要

ニュートリノを放出しない二重ベータ崩壊 ($0\nu\beta\beta$) は、ニュートリノ質量の決定や物質優勢宇宙の解明につながる極めて重要な現象である。しかし、これまでにその確実な観測には至っておらず、現在も世界各地の地下実験施設で高感度な探索が続けられている。本研究の対象である CANDLES (CALcium fluoride for studies of Neutrino and Dark matters by Low Energy Spectrometer) 実験も、 ^{48}Ca を崩壊核として $0\nu\beta\beta$ 崩壊の探索を行っている実験の一つである。 ^{48}Ca は、二重ベータ崩壊を起こす既知の同位体の中で最も高い崩壊 $Q_{\beta\beta}$ (4.27 MeV) を有し、そのエネルギーは環境放射線 (β, γ) の最大エネルギーを上回る。このため、バックグラウンドが極めて少ない環境での測定が可能であるという大きな利点を持つ。一方で、 ^{48}Ca は自然存在比がわずか 0.187% と小さい欠点があり、実験的な感度を高めるためには、同位体濃縮による崩壊核の増加が不可欠である。

現在の CANDLES III 検出器では、 CaF_2 結晶中に自然存在比に対応する約 350 g の ^{48}Ca が含まれており、この結晶中の ^{48}Ca を $0\nu\beta\beta$ 崩壊のターゲット核としている。一方、次世代検出器では同位体濃縮を前提として、 CaF_2 結晶中の ^{48}Ca 存在比を 80% 以上に向上させ、検出器の大型化と併せて総量 2 ton 以上の CaF_2 結晶の実現を目標としている。

CANDLES では ^{48}Ca の大量生産に向けて、Ca 同位体間の同位体シフトという特性を活かし、レーザー偏向法に基づく ^{48}Ca の選択的分離手法の開発が進められている。年間 300 kg 規模の ^{48}Ca の生産を目指すにあたり、複数の Ca 原子ビームおよびレーザーを用いた大規模なシステム構成が想定されている。その実現には、半導体レーザー (FP-LD) を用いた注入同期技術に加え、注入同期時における高効率な出力増幅が求められる。本研究では、評価対象の FP-LD に対して外部光注入を行い、注入同期時における出力増幅特性に加えて、注入同期の成立条件や安定性といった挙動を含めた総合的な性能評価を行った。

一方、従来のレーザー偏向法では、大強度レーザー照射により励起された原子の自然放出が光子損失を引き起こし、分離効率を制限するという課題がある。さらに、レーザーパワーの増大に伴い、ラビ振動による誘導吸収・誘導放出が支配的となることから、分離効率に制限が生じる条件も存在する。そこで本研究では、 ^{48}Ca を誘導放出させることで光子損失を抑制し、ラビ振動を利用して分離効率を向上させる手法の開発にも並行して取り組んだ。本手法は CANDLES において新規の試みであり、本研究では Ca 蒸気の作成、コリメートによる Ca ビーム形成、およびラビ振動観測手法の検討を行った。

さらに、CANDLES の解析においては、 $0\nu\beta\beta$ 事象の観測に向けて ^{208}Tl 由来の背景事象が依然として課題となっている。この背景事象の除去に向けて、先行事象である ^{212}Bi の α 事象らしさに基づく事象同定や、veto 幅の最適化が検討されている。これらの手法では、背景除去と $0\nu\beta\beta$ 事象検出効率の両立のため、Livetime の評価が不可欠である。しかしながら、

CANDLES III実験データにおける $\beta\beta$ 事象は統計的に十分とは言えない。そのため本研究では、 $\beta\beta$ 事象をモンテカルロシミュレーションにより生成し、 ^{208}Tl 由来の背景事象除去手法の検証に向けた準備を行った。

目次

第 1 章	序論	5
1.1	ニュートリノ	5
1.2	ニュートリノ振動	5
1.3	マヨラナ性	7
1.4	二重ベータ崩壊	7
1.5	$0\nu\beta\beta$ 探索実験	9
第 2 章	CANDLES 実験	12
2.1	CANDLES 実験の概要	12
2.2	CANDLES 検出器	12
2.3	背景事象	14
2.4	実験感度	15
第 3 章	Ca 同位体濃縮	17
3.1	同位体濃縮の一般的手法	17
3.2	Ca 同位体と同位体シフト	19
3.3	Ca エネルギー準位図	20
3.4	レーザー偏向法	21
3.5	大量生産に向けたレーザー偏向法の評価	22
第 4 章	大強度レーザーダイオードの開発	24
4.1	偏向レーザーのシステム	24
4.2	注入同期実験の構成	25
4.3	Single FP-LD の評価	28
4.4	Multi FP-LD の評価	30
4.5	AR コート品の比較	33
4.6	選定結果まとめ	34
第 5 章	高効率原子ビーム偏向法の検証	36
5.1	従来のレーザー偏向法における課題	36
5.2	ラビ振動を利用したレーザー偏向法	37
5.3	誘導放出を利用した濃縮システム	38
5.4	ラビ振動の観測可能性	40

5.5	457.7 nm レーザーの特性	42
第 6 章	ラビ振動の観測に向けて	44
6.1	Ca 蒸気の作成	44
6.2	Ca ビームのコリメート	50
6.3	Ca 蛍光強度測定	52
6.4	ラビ振動観測に向けて	55
第 7 章	背景事象除去に向けた解析	62
7.1	CaF ₂ 結晶内部の放射性不純物	62
7.2	従来 of 解析除去手法	63
7.3	²⁰⁸ Tl 除去に向けた新しい解析手法	65
第 8 章	$\beta\beta$ 事象の MC データ生成	66
8.1	$\beta\beta$ 事象 MC 生成の目的と手法	66
8.2	放出電子のエネルギーおよび角度の確率密度関数	66
8.3	$\beta\beta$ 事象のエネルギースペクトルの作成	67
8.4	Geant4 シミュレーション	70
8.5	CANDLES III データの再現	71
8.6	人工波形の作成	72
8.7	PSD 計算	73
8.8	$\beta\beta$ 事象の MC データの信号再現性評価	74
第 9 章	まとめと展望	76
付録 A		77
A.1	ラビ振動	77
A.2	ガウシアンビーム	80
A.3	ガウシアンビームにおけるラビ周波数の空間分布	81
謝辞		83
参考文献		85

第 1 章

序論

1.1 ニュートリノ

ニュートリノは物質を構成する最小の単位である素粒子の一種であり、電荷をもたずスピンの $1/2$ のフェルミ粒子である。現在では、電子ニュートリノ (ν_e)・ミューニュートリノ (ν_μ)・タウニュートリノ (ν_τ) の 3 種類のフレーバーが確認されており、それぞれに対応する反粒子を含めて 6 種類存在している。またニュートリノは、弱い相互作用 (および重力相互作用) のみを介して他の物質と反応する。そのため、物質中をほとんど影響を受けずに通過するという特性を持ち、観測が極めて困難な粒子である。

1930 年に W. Pauli は β 崩壊におけるエネルギー保存則を説明するため、未知の粒子の存在を仮定した [1]。その仮定をもとに、1934 年には E. Fermi によって β 崩壊の理論が構築され、この未知の粒子に「ニュートリノ (neutrino)」という名称が与えられた [2]。さらに 1956 年、F. Reines と C. L. Cowan によって、原子炉から放出される反電子ニュートリノが逆 β 崩壊 ($\bar{\nu}_e + p \rightarrow e^+ + n$) を通じて初めて検出され、ニュートリノの存在が実験的に証明された [3]。その後、太陽ニュートリノや超新星ニュートリノの観測が行われ、さらに後述するニュートリノ振動の発見により、標準模型において質量を持たないとされていたニュートリノに対して、少なくとも 2 つの質量固有状態が有限の質量を持つことが明らかとなった [4]。この発見は、ニュートリノの性質が標準模型を超える物理を内包している可能性を示唆するものである。

1.2 ニュートリノ振動

ニュートリノ振動とは、生成時に決定されたニュートリノのフレーバーが、空間を飛行中に別のフレーバーへと変化する現象である。1962 年に Pontecorvo によって最初に予測され [5]、1998 年にスーパーカミオカンデ実験グループにより実際に観測された [4]。

ニュートリノのフレーバーと質量の固有状態はそれぞれ 3 種類存在し、フレーバーの固有状態: ν_α ($\alpha = e, \mu, \tau$) は質量の固有状態: ν_i ($i = 1, 2, 3$) の混合和として表される。

$$|\nu_\alpha\rangle = \sum_i U_{\alpha i} |\nu_i\rangle \quad (1.1)$$

ここで $U_{\alpha i}$ はクォークにおける小林・益川行列と同様の役割を果たす混合行列であり、Pontecorvo・牧・中川・坂田行列 (PMNS 行列) と呼ばれる 3 行 3 列のユニタリー行列で、以下のように表される。

$$\begin{aligned}
U_{\text{PMNS}} &= \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & c_{23} & s_{23} \\ 0 & -s_{23} & c_{23} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} c_{13} & 0 & s_{13}e^{-i\delta_{\text{CP}}} \\ 0 & 1 & 0 \\ -s_{13}e^{i\delta_{\text{CP}}} & 0 & c_{13} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} c_{12} & s_{12} & 0 \\ -s_{12} & c_{12} & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \\
&= \begin{pmatrix} c_{12}c_{13} & s_{12}c_{13} & s_{13}e^{-i\delta_{\text{CP}}} \\ -s_{12}c_{23} - c_{12}s_{23}s_{13}e^{i\delta_{\text{CP}}} & c_{12}c_{23} - s_{12}s_{23}s_{13}e^{i\delta_{\text{CP}}} & s_{23}c_{13} \\ s_{12}s_{23} - c_{12}c_{23}s_{13}e^{i\delta_{\text{CP}}} & -c_{12}s_{23} - s_{12}c_{23}s_{13}e^{i\delta_{\text{CP}}} & c_{23}c_{13} \end{pmatrix} \quad (1.2)
\end{aligned}$$

ここで、 c_{ij}, s_{ij} はそれぞれ質量固有状態 ν_i と ν_j との混合角 θ_{ij} を用いて、 $c_{ij} = \cos \theta_{ij}, s_{ij} = \sin \theta_{ij}$ であり、 δ_{CP} は複素位相である。 $\delta_{\text{CP}} \neq 0$ のとき PMNS 行列は CP 対称性を破るため、 δ_{CP} は CP 位相とも呼ばれる。

以下では、ニュートリノ振動の本質を明確にするため 3 世代の場合を単純化し、2 世代間での混合を考える。混合角を θ_{12} とすると、フレーバー固有状態: $|\nu_\alpha\rangle, |\nu_\beta\rangle$ は質量固有状態: $|\nu_1\rangle, |\nu_2\rangle$ を用いて次式で表される。

$$\begin{aligned}
\begin{pmatrix} |\nu_\alpha\rangle \\ |\nu_\beta\rangle \end{pmatrix} &= U \begin{pmatrix} |\nu_1\rangle \\ |\nu_2\rangle \end{pmatrix} \\
&\equiv \begin{pmatrix} \cos \theta_{12} & \sin \theta_{12} \\ -\sin \theta_{12} & \cos \theta_{12} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} |\nu_1\rangle \\ |\nu_2\rangle \end{pmatrix} \quad (1.3)
\end{aligned}$$

質量固有状態 $|\nu_i\rangle$ の時間発展は、ニュートリノのエネルギーを E_i 、運動量を \mathbf{p}_i 、位置を \mathbf{r} として、

$$|\nu_i(t)\rangle = e^{-i(E_i t - \mathbf{p}_i \cdot \mathbf{r})} |\nu_i(0)\rangle \quad (1.4)$$

で与えられる。また、ニュートリノの質量は非常に小さく、 $m_i \ll E_i$ とみなせるため、

$$\mathbf{p}_i = \sqrt{E_i^2 - m_i^2} \simeq E_i - \frac{m_i^2}{2E_i} \quad (1.5)$$

と近似できる。さらに自然単位系 ($c = 1$) を用い、ニュートリノはほぼ光速で伝播すると仮定することで、飛行時間 t と飛行距離 L を同一視する。

以上の過程のもとで、ニュートリノのフレーバー状態の時間発展を考える。このとき、時刻 $t = 0$ で生成された ν_α が距離 L だけ伝播した後、 ν_β に変化する確率は

$$\begin{aligned}
P(\nu_\alpha \rightarrow \nu_\beta) &= |\langle \nu_\beta(t) | \nu_\alpha(0) \rangle|^2 = \frac{1}{2} \sin^2 2\theta_{12} \left\{ 1 - \cos\left(\frac{|m_1^2 - m_2^2|}{2E} L\right) \right\} \\
&\equiv \frac{1}{2} \sin^2 2\theta_{12} \left\{ 1 - \cos\left(\frac{\Delta m^2}{2E} L\right) \right\} \\
&= \sin^2 2\theta_{12} \sin^2\left(\frac{\Delta m^2 L}{4E}\right) \quad (1.6)
\end{aligned}$$

となる。式 (1.6) より、フレーバー状態と質量固有状態の間に混合が存在し ($\theta_{12} \neq 0$)、かつ質量の異なる固有状態が存在する ($\Delta m^2 \neq 0$) とき、 $P(\nu_\alpha \rightarrow \nu_\beta) \neq 0$ 、 $P(\nu_\alpha \rightarrow \nu_\alpha) \neq 1$ となり、ニュートリノ振動が生じることがわかる。このように、ニュートリノ振動はニュートリノが有限の質量を持つことを示すが、その絶対質量の大きさや、粒子としての本質的性質については依然として未解明である。

1.3 マヨラナ性

ニュートリノ振動の観測により、ニュートリノは少なくとも2つの質量固有状態を持ち、質量がゼロではないことが明らかとなった。質量を持つフェルミオンには、粒子と反粒子が区別されるディラック粒子と、粒子が自分自身の反粒子であるマヨラナ粒子の2種類の可能性が存在する。ニュートリノがどちらに分類されるかは未だ決定されておらず、理論的・実験的に最も重要な問題の一つである。

一般にニュートリノの質量項は、左巻きニュートリノ ν_L と右巻きニュートリノ ν_R (電荷共役を含む) を基底とすると、次の 2×2 の質量行列で表される。

$$\mathcal{L}_{\text{mass}} = -\frac{1}{2} \begin{pmatrix} \bar{\nu}_L & \overline{(\nu_R)^c} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} M_L & m_D \\ m_D & M_R \end{pmatrix} \begin{pmatrix} (\nu_L)^c \\ (\nu_R) \end{pmatrix} + h.c. \quad (1.7)$$

ここで、 m_D はディラック型質量、 M_L, M_R はそれぞれ左巻き・右巻きニュートリノに対するマヨラナ型質量を表す。標準模型のゲージ対称性の下では、左巻きニュートリノは $SU(2)_L$ ダブルレットに属するため $M_L = 0$ が自動的に課される。一方、右巻きニュートリノ ν_R はゲージ中性であるため、大きなマヨラナ質量 M_R を自然に持つことができる。

このとき、質量行列を対角化するため、固有値を λ として $\det(M - \lambda I) = 0$ を解くと、以下の固有値が得られる。

$$\lambda = \frac{M_R \pm \sqrt{M_R^2 + 4M_D^2}}{2} \quad (1.8)$$

$M_R \gg M_D$ の近似を行うと、以下の軽いニュートリノと重いニュートリノの2つの質量固有値が得られる。

$$m_{\text{light}} \simeq \frac{M_D^2}{M_R}, \quad m_{\text{heavy}} \simeq M_R \quad (1.9)$$

この機構は「シーソー機構」と呼ばれ、巨大な M_R によって軽いニュートリノ質量が自動的に抑制されるため、実験で観測される極めて小さなニュートリノ質量を自然に説明できる。また、この質量行列にマヨラナ質量 M_R が含まれることから、ニュートリノの質量固有状態はマヨラナ粒子となる。

1.4 二重ベータ崩壊

二重ベータ崩壊とは、原子核内の2つの中性子(陽子)が、同時に陽子(中性子)に弱い相互作用によって転換する反応である。

一般に、単一 β^- 崩壊:

$$(A, Z) \rightarrow (A, Z + 1) + e^- + \bar{\nu}_e$$

が起きるためには、崩壊前後の核質量差が正 ($Q > 0$) であることが必要条件となる。このような崩壊前後の核質量差は、半経験的質量公式 (Bethe-Weizsäcker の公式) に含まれるペアリング項によって理解することができる。半経験的質量公式では、総結合エネルギーは体積項、表面項、クーロン項、非対称項に加え、ペアリング効果を表す項の和として以下で記述される。

$$E_B^{\text{BW}}(N, Z) = a_V A - a_S A^{2/3} - a_C \frac{Z^2}{A^{1/3}} - a_A \frac{(N - Z)^2}{A} + E_B^{\text{pair}} \quad (1.10)$$

ここでペアリング項 E_B^{pair} は

$$E_B^{\text{pair}} = \begin{cases} +\Delta(A) & (N, Z \text{ ともに偶の偶偶核 (even-even)}) \\ 0 & (N, Z \text{ のいずれかが奇の奇核 (even-odd/odd-even)}) \\ -\Delta(A) & (N, Z \text{ ともに奇の奇奇核 (odd-odd)}) \end{cases} \quad (1.11)$$

で与えられる。この項により、偶偶核は結合エネルギーが増大し相対的に安定化する一方で、奇奇核は結合エネルギーが減少し質量が大きくなる。その結果、特定の偶偶核においては、単一 β^- 崩壊によって生成される娘核 (奇奇核) の質量が親核よりも大きくなり、遷移がエネルギー的に禁止されている場合がある。この状況を質量放物線として模式的に示したものが図 1.1 である。あるいは、崩壊前後でスピン・パリティが大きく異なるなどの核構造的要因により、単一 β^- 崩壊が強く制限されている場合には、原子番号が 2 つ増加する二重ベータ崩壊が最も低次の許された崩壊モードとなる。

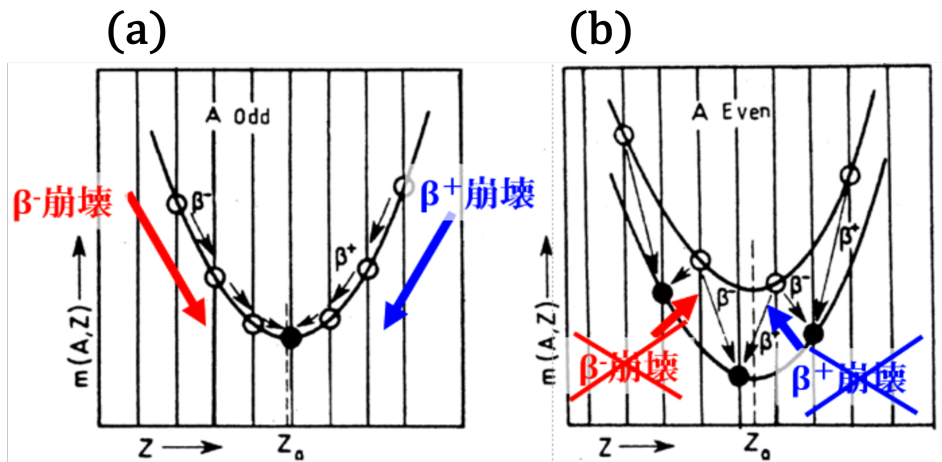
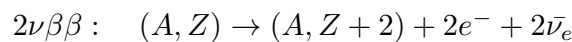
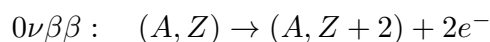


図 1.1: 質量放物線に基づく単一 β 崩壊の可否を示す概念図
(a) は奇奇核、(b) は偶偶核の場合を示している。

このような条件下で単一 β 崩壊が抑制され、二重ベータ崩壊が支配的な崩壊過程となった際、図 1.2 に示す反ニュートリノを 2 つ放出する過程:



ではレプトン数が保存されていることから、 10^{19} 年を超える極めて長い半減期を持ちながらも標準模型において許される反応となる。一方で、ニュートリノがマヨラナ粒子であり、粒子と反粒子が同一であるならば、放出された反ニュートリノは内部線として再吸収されることが可能となる。その結果、図 1.3 に示すニュートリノを放出しない二重ベータ崩壊:



が起こりうる。この過程は、レプトン数が $\Delta L=2$ だけ破れるため、ニュートリノがディラック粒子である場合には起こらない。したがって、 $0\nu\beta\beta$ の観測は、ニュートリノのマヨラナ性を直接的に示す証拠となるとともに、極端に軽いニュートリノ質量を説明するシーソー機構のようなニュートリノ質量生成機構を自然に示唆する。

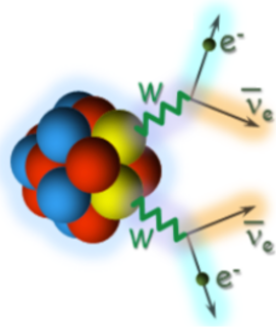


図 1.2: $2\nu\beta\beta$

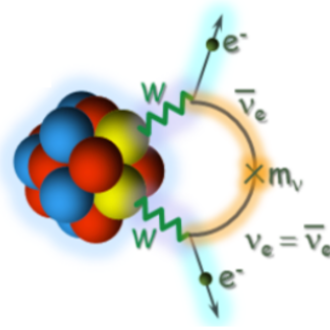


図 1.3: $0\nu\beta\beta$

図に示した $0\nu\beta\beta$ 過程を定量的に記述するためには、その半減期が重要な物理量となる。 $0\nu\beta\beta$ 崩壊の半減期は、以下のように位相空間、原子核構造、ならびにニュートリノの性質に依存する因子の積として表される。

$$\left(T_{1/2}^{0\nu}\right)^{-1} = G^{0\nu} |M^{0\nu}|^2 \langle m_\nu \rangle^2. \quad (1.12)$$

ここで $G^{0\nu}$ は放出される 2 電子の運動学によって決まる位相空間因子であり、崩壊の Q 値や電子のエネルギー分布などに依存する。 $M^{0\nu}$ は原子核内での 2 つの中性子から 2 つの陽子への転換を記述する核行列要素であり、中間状態を含む原子核構造を反映した量である。

一方、 $\langle m_\nu \rangle$ はニュートリノのマヨラナ有効質量であり、 $0\nu\beta\beta$ が起こるための本質的な要素を表している。 $0\nu\beta\beta$ 過程では、仮想的に放出された反ニュートリノが再吸収される必要があるが、弱相互作用で生成されるニュートリノは左巻き成分に限られる。そのため、ニュートリノがマヨラナ粒子であっても、再吸収の際にはヘリシティ反転が必要となり、その確率はニュートリノ質量に比例する。この結果として、 $0\nu\beta\beta$ 崩壊の振幅はニュートリノ質量に比例し、半減期は $\langle m_\nu \rangle^2$ に依存する。

以上より、 $0\nu\beta\beta$ 崩壊の半減期測定は、ニュートリノがマヨラナ粒子であるかどうかを検証するだけでなく、ニュートリノ質量スケールに直接的な制限を与える重要な手法である。

1.5 $0\nu\beta\beta$ 探索実験

これまで述べてきたように、 $0\nu\beta\beta$ の観測はニュートリノのマヨラナ性の検証やニュートリノ質量生成機構の解明に直結する重要な課題である。この観測を実現するためには、極めて長い半減期に対応する高感度測定が必要であり、崩壊核の選択、大質量化、背景低減、およびエネルギー分解能の向上が本質的に重要となる。

現在、これらの要件を満たすために、異なる核種および検出方式を採用した複数の $0\nu\beta\beta$ 探索実験が世界各地で進められている。表 1.1 に二重ベータ崩壊の主な候補核を示す。本節では、核種選択と検出方式の観点から代表的な実験を取り上げ、それぞれの特徴を概説する。

KamLAND-Zen

^{136}Xe は気体・液体として取り扱いが容易であり、大容量化およびガス遠心分離法により同位体濃縮が比較的容易であるという利点を持つ。KamLAND-Zen(Kamioka Liquid-scintillator

Anti-Neutrino Detector Zero neutrino double beta decay search) 実験は、この特性を活かして ^{136}Xe を崩壊核として用いる $0\nu\beta\beta$ 探索実験である。KamLAND-Zen 実験は、岐阜県飛騨市神岡町にある神岡地下実験施設において行われており、自然存在比が 8.86% の ^{136}Xe を約 91% まで濃縮し、約 13t の液体シンチレーターに溶解させることで大質量の崩壊核を用いた測定を実現している。 ^{136}Xe は崩壊 $Q_{\beta\beta}$ 値が約 2.48 MeV と主要な候補核の中では中程度であるが、大質量の崩壊核を用いることで統計的感度を高める設計となっている。Xe を溶解した液体シンチレーターは球形のナイロン製バルーンに封入されており、発生したシンチレーション光はバルーンを 4π で囲うように配置された 1879 本の光電子増倍管で検出される。

これまでに KamLAND-Zen 実験では、 ^{136}Xe の $0\nu\beta\beta$ 崩壊半減期について $T_{1/2}^{0\nu} > 10^{26}$ 年オーダーという世界最高水準の下限値が報告されている。さらに、集光量向上によるエネルギー分解能の改善を目指し、実験精度向上を目的とした将来実験 KamLAND2-Zen が計画されている。

GERDA/LEGEND

^{76}Ge は半導体検出器として高いエネルギー分解能を実現できる核種であり、放出電子の和エネルギーが単一ピークとして現れる $0\nu\beta\beta$ 探索に適している。この特性を活かした代表的な実験が GERDA (GERmanium Detector Array) 実験である。GERDA 実験は、イタリア・グランサッソ地下研究所において行われ、高純度ゲルマニウム (HPGe) 検出器そのものを崩壊核かつ検出器として用いることで、数 keV 程度の優れたエネルギー分解能を実現している。 ^{76}Ge は主要な候補核の中で $Q_{\beta\beta}$ 値が約 2.0 MeV と比較的低い一方で、この極めて高いエネルギー分解能により、 $Q_{\beta\beta}$ 近傍における背景事象を強く抑制することが可能となっている。また、 ^{76}Ge は四フッ化ゲルマニウム (GeF_4) として化学的ガス遠心分離法により同位体濃縮されており、自然存在比 7.83% の ^{76}Ge を約 86% まで高めた材料が検出器として用いられている。さらに、検出器を液体アルゴン中に直接沈める構成を採用しており、外部放射線の遮蔽に加えて、能動的な背景事象除去が可能となっている。

GERDA は最終段階である Phase II において、背景事象率を 10^{-3} counts/(keV · kg · yr) 以下まで低減することに成功し、 ^{76}Ge の $0\nu\beta\beta$ 崩壊半減期に対して $T_{1/2}^{0\nu} > 1.8 \times 10^{26}$ 年という下限値を設定した。

これらの成果を基盤として、現在は GERDA および MAJORANA 実験の技術を統合した後継実験である LEGEND (Large Enriched Germanium Experiment for Neutrinoless $\beta\beta$ Decay) が進められている。LEGEND では、最終的に ^{76}Ge を約 1000 kg 規模まで増量しつつ、背景事象率を 10^{-5} counts/(keV · kg · yr) 以下に抑えることを目標としており、 $0\nu\beta\beta$ 崩壊半減期感度 $T_{1/2}^{0\nu} \sim 10^{28}$ 年に到達することが期待されている。

CUORE

^{130}Te は自然存在比が約 34% と高く、同位体濃縮を行わずに大質量の崩壊核を確保できる核種である。CUORE (Cryogenic Underground Observatory for Rare Events) 実験は、この特性を活かした代表的な $0\nu\beta\beta$ 探索実験である。CUORE 実験は GERDA/LEGEND 実験と同様にイタリア・グランサッソ地下研究所において行われており、 ^{130}Te を含む TeO_2 結晶を崩壊核として用いている。CUORE では、 TeO_2 結晶を極低温 (約 10 mK) まで冷却し、ポロ

メータとして動作させることで、崩壊に伴う微小な温度上昇を高精度に測定し、高エネルギー分解能を実現している。

CUORE は、約 5 kg の TeO_2 結晶を 988 個用いた大規模検出器で構成されており、全検出器質量は約 741 kg に達する。 ^{130}Te は崩壊 $Q_{\beta\beta}$ 値が約 2.53 MeV と主要な候補核の中では中程度であるが、ボロメータ方式により優れたエネルギー分解能を実現しており、 $0\nu\beta\beta$ 崩壊の特徴である単一ピーク事象の識別に適している。

これまでの測定により、CUORE 実験では ^{130}Te の $0\nu\beta\beta$ 崩壊半減期に対して $T_{1/2}^{0\nu} > 2.2 \times 10^{25}$ 年という下限値が報告されている。現在は、背景低減技術の改良や解析手法の高度化が進められており、さらなる感度向上が期待されている。

EXO-200/nEXO

KamLAND-Zen と同様に ^{136}Xe の特性を活かした $0\nu\beta\beta$ 探索実験として、異なる検出方式を採用した EXO-200(the Enriched Xenon Observation) 実験がある。EXO-200 実験は、アメリカ・ニューメキシコ州の地下実験施設において行われ、約 80% まで同位体濃縮した ^{136}Xe を液体キセノンとして用いた時間投影型検出器 (TPC) を採用している。液体キセノン TPC では、 $0\nu\beta\beta$ 崩壊に伴う電離電子およびシンチレーション光を同時に検出することで、エネルギー測定と三次元位置再構成を同時に実現している。EXO-200 では、約 80% まで濃縮した ^{136}Xe を液体キセノンとして用い、時間投影型検出器 (TPC) によりエネルギーと事象位置を同時に測定する。

このような位置情報を用いた事象識別により、検出器外部からの背景事象や多点エネルギー沈着事象を効率的に識別・除去することが可能となり、 $Q_{\beta\beta}$ 近傍の背景事象を抑制している。

EXO-200 実験では、これらの特性を活かした測定により、 ^{136}Xe の $0\nu\beta\beta$ 崩壊半減期に対して $T_{1/2}^{0\nu} > 3.5 \times 10^{25}$ 年という下限値が報告されている。

これらの成果を基盤として、後継実験である nEXO(next Enriched Xenon Observatory) が計画されている。nEXO では、約 5 t 規模の濃縮 ^{136}Xe を用いた大型液体キセノン TPC の建設が構想されており、自己遮蔽効果の向上とさらなる背景低減を図ることで、 $0\nu\beta\beta$ 崩壊半減期感度 $T_{1/2}^{0\nu} \sim 10^{28}$ 年に到達することが期待されている。

表 1.1: 二重ベータ崩壊探索に用いられる主な候補核

候補核	$Q_{\beta\beta}$ 値 [MeV]	自然存在比 [%]
^{48}Ca	4.271	0.187
^{76}Ge	2.039	7.83
^{82}Se	2.995	8.73
^{96}Zr	3.351	2.80
^{100}Mo	3.034	9.67
^{116}Cd	2.805	7.49
^{130}Te	2.529	34.08
^{136}Xe	2.476	8.86
^{150}Nd	3.367	5.53

第 2 章

CANDLES 実験

2.1 CANDLES 実験の概要

CANDLES(CALcium fluoride for studies of Neutrino and Dark matters by Low Energy Spectrometer) 実験は、 $\beta\beta$ 崩壊候補核である ^{48}Ca を用いて、ニュートリノを放出しない二重ベータ崩壊 ($0\nu\beta\beta$) の探索を行う実験である。実験装置は、岐阜県飛騨市神岡町にある地下約 1000m の東京大学神岡宇宙素粒子研究施設内の実験室 D に設置されており、宇宙線ミュオンによる背景事象を大幅に低減した環境で測定が行われている。

2.2 CANDLES 検出器

CANDLES 検出器は、稀な $0\nu\beta\beta$ 事象を高感度で探索するため、低バックグラウンド化を重視した多層構造を採用している。図 2.1 に検出器全体の概略構造を示す。検出器中心には $\beta\beta$ 崩壊候補核である ^{48}Ca を含む CaF_2 結晶アレイが配置され、その周囲を液体シンチレーター (LS) が 4π 方向から取り囲む構成となっている。さらに外側には水およびホウ素・鉛遮蔽材が配置され、外部起源の放射線を段階的に低減する設計となっている。

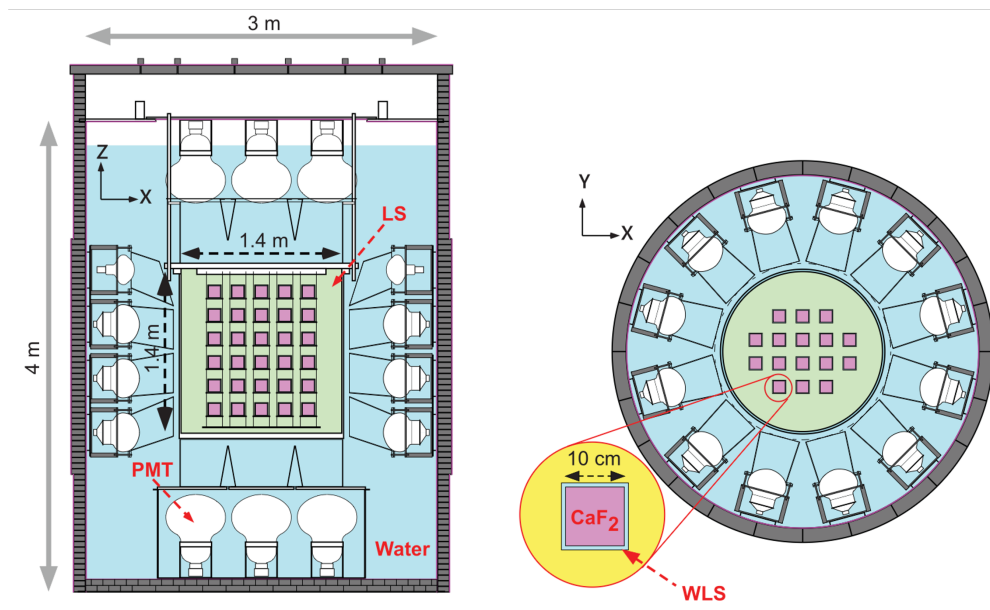


図 2.1: CANDLES 検出器

2.2.1 CaF₂ モジュール

CANDLES 検出器で用いる CaF₂ モジュールは、100 mm 立方体 (3.18 kg) のユーロピウム元素 (Eu) などの活性剤を含まない CaF₂ 結晶を中心とし、その外側を厚さ 5 mm の波長変換層 (WLS) と厚さ 3 mm のアクリル容器で構成されている。CaF₂ のシンチレーション光は紫外線 (UV) 領域にピークを持つため、Bis-MSB(0.1 g/L) を溶解した鉱油から成る WLS により可視光へ変換し、PMT の量子効率が高い波長域 (最大値: 約 400nm) へ導く設計となっている。これらの CaF₂ モジュール 96 個は、直径 1.4 m、高さ 1.4 m の LS 容器内に図 2.2 のように 6 層 × 16 個の構造で配置され、容器上部からワイヤーにより吊り下げられている。総質量は 305 kg であり、天然の Ca 同位体を使用していることから、CaF₂ モジュール内には $\beta\beta$ 崩壊核である ⁴⁸Ca が約 350 g 含まれている。

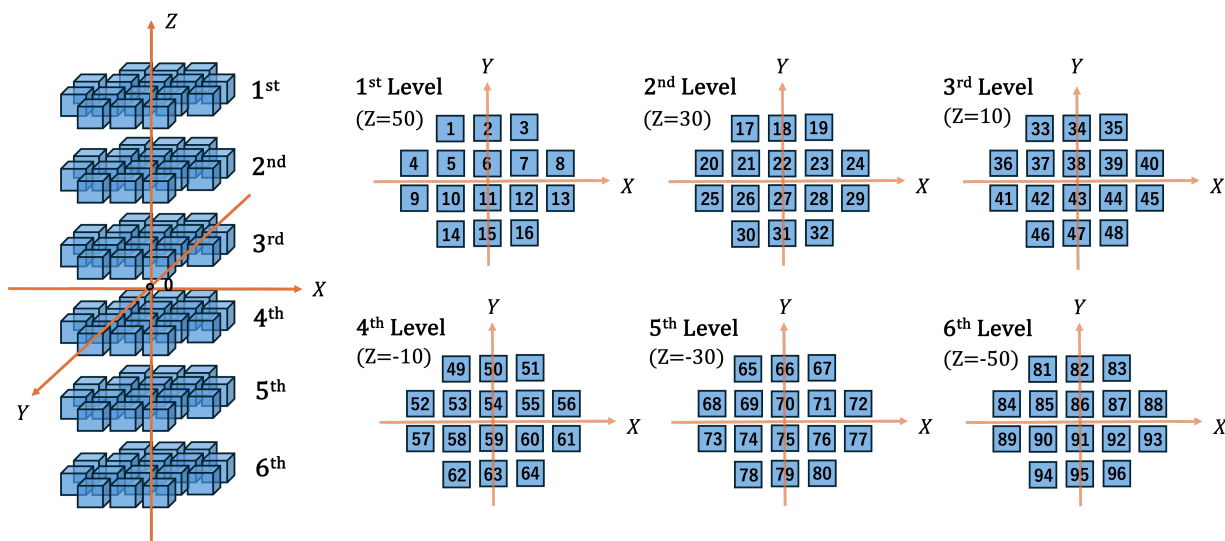


図 2.2: CaF₂ 結晶の配置図

2.2.2 液体シンチレーター

96 個の CaF₂ モジュールは、ミネラルオイル (80%) とプソイドクメン (20%) を主成分とし蛍光体 (PPO; 1.0g/L, Bis-MSB; 0.1g/L) が溶解した液体シンチレーター (LS) によって取り囲まれている。LS の発光時定数は数十 ns と短い一方で、CaF₂ シンチレーターは数 μ s と長い。この時間構造の違いを利用することで、CaF₂ 結晶内での $\beta\beta$ 事象と LS による検出器外部起源の γ 線や宇宙線ミューオンの信号を効果的に弁別することができる。また、LS は外部 γ 線に対する 4π アクティブシールドとして機能し、結晶に到達する背景量を大幅に抑制している。

2.2.3 光電子増倍管

CaF₂ 結晶および LS からのシンチレーション光は本体タンクに取り付けられた計 62 本の光電子増倍管 (PMT) によって読み出されている。使用している PMT は 10-inch, 13-inch, 20-inch の 3 種類である。図 2.3 のように、10-inch PMT は側面の最上段 (1 段目) に 12 本配置され、13-inch PMT は側面の 2~4 段目に計 36 本設置されている。残る 20-inch PMT はタ

シクの上面および下面に各7本ずつ配置されており、立体的に結晶アレイを囲む構造となっている。また、これらすべてのPMTにはアクリル製ライトパイプが取り付けられており、結晶およびLSからの光を効率よく集光するよう設計されている。

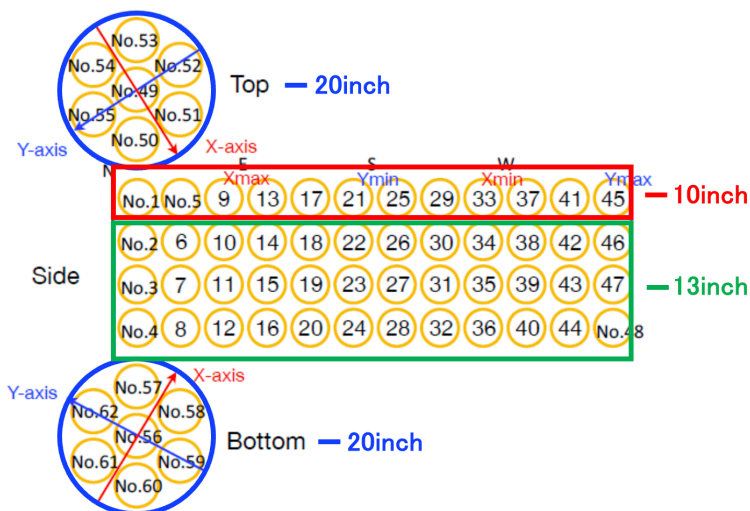


図 2.3: PMT 配置図

2.3 背景事象

CANDLES 実験における $0\nu\beta\beta$ 崩壊探索では、検出器外部起源と内部起源の背景事象が以下のように分類される。

2.3.1 検出器外部起源

宇宙線ミュオン

CANDLES 検出器は地下約 1000m の神岡地下実験施設に設置されており、岩盤により宇宙線が大幅に遮蔽されている。神岡地下におけるミュオンフラックスは地表 ($\Phi_{\mu}^{\text{surface}} \simeq 100 \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$) に比べて約 5 桁減少しており、 $\Phi_{\mu}^{\text{Kamioka}} \simeq 3 \times 10^{-3} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ と測定されている。このように深い地下での設置により一次ミュオンは大きく抑制されているものの、完全にゼロにはならず、残存ミュオンは周囲の岩盤・構造物で中性子を生成し、さらに捕獲反応 (n, γ) を通じて MeV 領域の γ 線を誘発する。

岩盤および周辺構造物由来の自然放射性 γ 線

高エネルギーの γ 線として、U/Th 系列の ^{208}Tl (2.6 MeV) 等が挙げられるが、 ^{48}Ca の崩壊 Q 値は 4.27 MeV と高いため、 $0\nu\beta\beta$ のシグナル領域に到達する事象は極めて少ない。さらに、LS によるカットも行われるため背景事象にはならない。

2.3.2 検出器内部起源

subsubsection* $2\nu\beta\beta$ 崩壊事象現状の CANDLES III 検出器のエネルギー分解能は、 $0\nu\beta\beta$ 崩壊 Q 値付近 ($E \simeq 4.27 \text{ MeV}$) において FWHM $\simeq 4\%$ である。この有限なエネルギー分解能のため、0 ~ 4.27 MeV の連続スペクトルを持つ $2\nu\beta\beta$ 事象の高エネルギー側のエンドポ

イントが $0\nu\beta\beta$ のシグナル領域に重なり、避けられない背景事象を形成する。これに対して CANDLES では現在、蛍光熱量計を用いた読み出し系の開発を進めており、FWHM \simeq 0.5% までの分解能向上を目標としている。

図 2.4 に、ニュートリノの有効マヨラナ質量を 5 meV と仮定した際に予想される $\beta\beta$ 事象のエネルギースペクトルを示す。ここでは、エネルギー分解能の違いが $0\nu\beta\beta$ 崩壊探索における背景事象の寄与に与える影響を比較している。

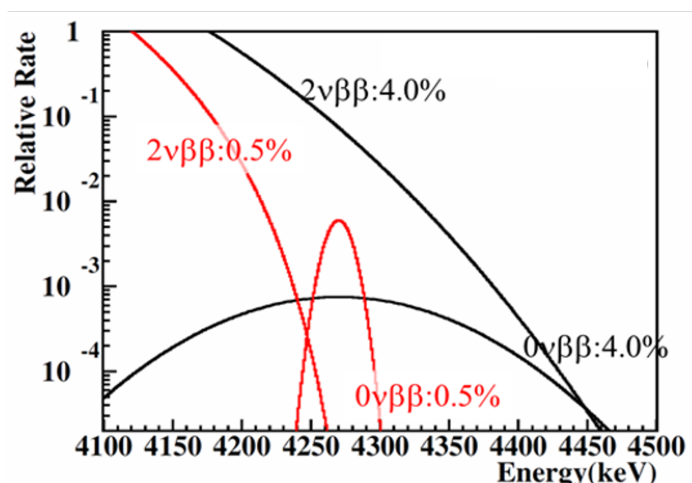


図 2.4: ニュートリノの有効マヨラナ質量を 5 meV と仮定した際に予想される $\beta\beta$ 事象のエネルギースペクトル。黒線はエネルギー分解能を FWHM \simeq 4% とした場合、赤線は FWHM \simeq 0.5% とした場合のエネルギースペクトルを示している。エネルギー分解能の向上により、 $2\nu\beta\beta$ 崩壊事象の高エネルギー側エンドポイントからの寄与が $0\nu\beta\beta$ 崩壊のシグナル領域において大きく抑制されることが分かる。

CaF₂ 結晶内部の放射性不純物

CANDLES における内部起源背景事象の主要因は CaF₂ 結晶中に含まれる ²³²Th 系列の放射性不純物である。特に ²¹²Bi は ²¹²Po と ²⁰⁸Tl への 2 つの崩壊分岐を持ち、 $0\nu\beta\beta$ 崩壊の Q 値付近にエネルギー事象が分布するため、重要な内部背景となる。詳細については第 7 章で述べる。

2.4 実験感度

本節では、CANDLES 実験における $0\nu\beta\beta$ 崩壊探索の感度を定量的に評価し、検出器質量、測定時間、同位体存在比といった実験パラメータが半減期感度に与える影響を明らかにする。

まず、崩壊核数 N_{iso} に対する単位時間あたりの期待崩壊率は、 $0\nu\beta\beta$ 崩壊の半減期 $T_{1/2}^{0\nu}$ が与えられたとき、放射性壊変の定義から次式で与えられる。

$$R = \frac{\ln 2}{T_{1/2}^{0\nu}} N_{\text{iso}} \quad (2.1)$$

ここで、 N_{iso} は検出対象となる ⁴⁸Ca 同位体原子核数であり、Ca 全体の質量 M 、存在比 a 、

質量数 W 、アボガドロ数 N_A を用いて、

$$N_{\text{iso}} = \frac{MaN_A}{W} \quad (2.2)$$

と表される。検出効率 ε を考慮し、測定時間 t の間に得られる期待信号数 S は、

$$S = Rt\varepsilon = \frac{\ln 2}{T_{1/2}^{0\nu}} \frac{MaN_A}{W} \varepsilon t \quad (2.3)$$

で与えられる。観測されるエネルギー領域 (ROI) には、2.3 節で紹介したような背景事象が存在する。ROI 中の背景期待値を B とすると、ガウス近似が成立する領域では、統計的ゆらぎは \sqrt{B} で表される。このとき、信号が特定の有意度 n_σ で背景から識別されない条件より、信号上限値 S_{limit} は

$$S_{\text{limit}} = n_\sigma \sqrt{B} = n_\sigma \sqrt{b \Delta E M t} \quad (2.4)$$

で与えられる。ここで b はバックグラウンド指数 [cts/(keV · kg · yr)]、 ΔE は ROI 幅である。式 (2.3) および (2.4) を用いることで、背景存在時における $0\nu\beta\beta$ 半減期下限値は

$$T_{1/2}^{0\nu} > \frac{\ln 2}{S_{\text{limit}}} \frac{MaN_A}{W} \varepsilon t = \frac{\ln 2 N_A}{W} \frac{a\varepsilon}{n_\sigma \sqrt{b \Delta E}} \sqrt{Mt} \quad (2.5)$$

と導出される。この式は、 $0\nu\beta\beta$ 探索の感度が背景の影響下では

$$T_{1/2}^{0\nu} \propto a\varepsilon \sqrt{Mt} \quad (2.6)$$

で向上することを示している。この結果は、背景が支配的な条件下では、半減期感度が Ca 全体の質量および測定時間の平方根に比例する一方で、 ^{48}Ca の存在比 a および検出効率 ε には一次で依存することを示している。特に、 ^{48}Ca は自然存在比が 0.187% と極めて低いため、検出器質量の増大や長時間測定のみでは感度向上に限界があり、同位体存在比そのものを増加させることが有効な手段となる。

第3章

Ca 同位体濃縮

3.1 同位体濃縮の一般的手法

同位体濃縮には、同位体間の物理的・化学的性質のわずかな差を利用したさまざまな手法がこれまでに開発されてきた。代表的な濃縮方法としては、以下が挙げられる。

- 気体拡散法
- 遠心分離法
- 電磁分離法
- 化学分離法

この節では、これら同位体濃縮方法の一般的な説明と Ca を対象とした場合について述べる。

3.1.1 気体拡散法による同位体分離

まず気体拡散法とは、分子の熱運動速度が質量の平方根に反比例する性質を利用し、多孔質膜を通過する速度差によって同位体を分離する手法である。分子流（エフュージョン）近似では、流束 Φ は分子質量 M に対して

$$\Phi \propto \frac{1}{\sqrt{M}} \quad (3.1)$$

となる（Graham の法則）。したがって、同位体（同位体分子）1 と 2 の通過率比は

$$\frac{\Phi_1}{\Phi_2} = \sqrt{\frac{M_2}{M_1}} \quad (3.2)$$

で与えられる。このとき 1 段あたりの分離係数 α は以下のように近似ができる。

$$\alpha \simeq \sqrt{\frac{M_2}{M_1}} \quad (3.3)$$

ここで ^{48}Ca と ^{40}Ca を仮定すると、

$$\alpha_{\text{Ca}} \simeq \sqrt{\frac{48}{40}} \simeq 1.095 \quad (3.4)$$

となり、1 段あたりの分離効果は小さい。濃縮度を同位体比 $R = x/(1-x)$ で表すと、理想化した多段分離では $R_n \simeq \alpha^n R_0$ より、天然存在比 $x_0 = 0.00187$ から $x_f = 0.8$ へ濃縮するため

に必要な段数は

$$n \simeq \frac{\ln(R_f/R_0)}{\ln \alpha} \approx 84 \quad (3.5)$$

と見積もられる。

さらに Ca は常温で固体であり、気体拡散法の前提となる安定な原料ガス（揮発性分子）を形成しにくい。CaF₂ や CaCl₂ など代表的な化合物は固体であり、高温での蒸気化は材料への付着・反応や膜の閉塞を引き起こす。以上より、Ca 同位体、特に ⁴⁸Ca の高濃縮・大量生産に気体拡散法を適用することは困難である。

3.1.2 遠心分離法による同位体分離

遠心分離法とは、高速回転する円筒内での遠心力により、質量差に基づいて同位体を分離する手法である。回転系における粒子数密度 $n(r)$ は、

$$n(r) \propto \exp\left(\frac{m\omega^2 r^2}{2kT}\right) \quad (3.6)$$

で与えられ、質量 m の大きい粒子ほど外側に偏在する。

このとき、同位体間の 1 段あたりの分離係数 α は近似的に

$$\alpha \simeq \exp\left(\frac{\Delta m \omega^2 r^2}{2kT}\right) \quad (3.7)$$

と表される。¹³⁶Xe のように常温で安定な気体として存在する元素では、高速回転および連続運転が可能であり、遠心分離法は有効な同位体分離手法である。

一方、Ca は常温で固体であり、遠心分離法を適用するためには高温で蒸気化する必要がある。高温条件では分離係数が低下することに加え、材料への付着や腐食、回転体の耐久性といった工学的課題が大きく、実用的な適用は困難である。

また、遠心分離法の派生として化学的ガス遠心分離法がある。この手法は、元素を揮発性の分子に変換し、その分子質量差を利用して遠心分離を行うものである。しかし、Ca は常温で安定に存在する揮発性分子を形成せず、CaF₂ や CaCl₂ などの代表的な化合物はいずれも固体である。そのため、化学的ガス遠心分離法を Ca 同位体濃縮に適用することも困難である。

3.1.3 電磁分離法 (イオン化法) による同位体分離

電磁分離法 (イオン化法) は、原子をイオン化し、電場および磁場中での運動軌道の違いを利用して質量ごとに同位体を分離する手法であり、質量分析 (mass spectrometry) の原理に基づく同位体分離法である。磁場 B 中を速度 v で運動する電荷 Ze をもつ粒子の軌道半径 r は、

$$r = \frac{mv}{ZeB} \quad (3.8)$$

で与えられる。このため、同一の電荷状態および運動エネルギーをもつ場合、質量 m の大きい同位体ほど軌道半径が大きくなり、磁場中で空間的に分離される。

2 つの同位体 m_A および m_B が磁場中で分離される距離 d は、

$$d = r_A - r_B = \frac{1}{B} \sqrt{\frac{2V}{Ze}} (\sqrt{m_A} - \sqrt{m_B}) \quad (3.9)$$

と表される。ここで V は加速電圧である。このように、電磁分離法は原理的に高い分離能を有するが、イオン源の電流や空間電荷効果の制約により処理量が小さく、大量生産には適さないという課題がある。

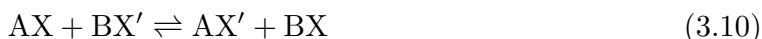
Ca 同位体分離に電磁分離法を適用する場合、イオン化過程において同位体選択性を確保することが重要となる。Ca 原子は基底状態 1S_0 からの直接イオン化が困難であるため、後述する同位体シフトを有する光学遷移を利用した共鳴励起を経由した選択的イオン化が検討されている。

このようなレーザー共鳴イオン化を組み合わせた電磁分離法は、Ca 同位体に対しても高い選択性を実現できる可能性があり、CANDLES においても並行して研究が進められている。一方で、装置構成の複雑さや処理量の制約から、 ^{48}Ca の大量濃縮を目的とした主手法としては課題が多い。

3.1.4 化学分離法 (化学交換法) による同位体分離

化学分離法の代表的な手法として、化学交換法が挙げられる。化学交換法は、同位体間に存在するわずかな化学反応性の差、すなわち同位体効果を利用し、異なる化学種あるいは異なる相の間で同位体が交換反応を起こすことにより分離を行う手法である。

一般的な化学交換反応は、以下のように表される。



ここで、A および B は異なる化学種を表し、X および X' は互いに異なる同位体を示す。式 (3.10) は、2 つの化学種 A および B の間で同位体 X と X' が交換される反応を表している。

この化学交換反応の平衡定数 K は、反応前後における各化学種の分配関数によって定まり、統計力学的には換算分配関数比 (reduced partition function ratio) を用いて

$$K = \frac{\beta_{\text{BX}'}}{\beta_{\text{AX}'}} \quad (3.11)$$

と表される。ここで β は換算分配関数比を表し、各化学種における並進・回転・振動自由度を含んだ分配関数から定義される物理量である。同位体間の質量差に起因する振動数および零点振動エネルギーの違いが、 β の差として反映され、これが化学交換反応における同位体分離の起源となる。

しかしながら、Ca 同位体の場合、 ^{48}Ca と ^{40}Ca の質量比は約 1.2 と小さく、同位体間の化学的性質はほぼ同一である。さらに、Ca は強いイオン性を示す元素であり、同位体間での化学結合状態や反応性の差が極めて小さい。以上より、化学交換法を Ca 同位体濃縮に適用することは実用的には困難である。

3.2 Ca 同位体と同位体シフト

Ca は原子番号 20 のアルカリ土類金属であり、魔法数であることから複数の安定同位体および放射性同位体を有している。また、各同位体間では核質量および核電荷分布の違いに起因して、同一の電子遷移であっても共鳴周波数に微小な差が生じる。この差は同位体シフトとして知られており、レーザー分光により同位体ごとに識別可能な重要な物理量である。

表 3.1 に Ca の主な同位体について、天然存在比、半減期、および代表的な光学遷移における波長、ならびに ^{40}Ca を基準とした同位体シフトを示す。特に、Ca 原子の $^1\text{S}_0 \rightarrow ^1\text{P}_1$ 遷移 (波長 422.79 nm) 付近においては、 ^{48}Ca と ^{40}Ca の間で約 1.5 GHz の同位体シフトが存在することがわかる。

表 3.1: Ca の同位体の天然存在比、半減期および $^1\text{S}_0 \rightarrow ^1\text{P}_1$ 遷移 (422.79 nm 付近) における同位体シフト

同位体	天然存在比 [%]	半減期	波長 [nm]	周波数 [THz]	同位体シフト [MHz]
^{40}Ca	96.941	—	422.79179	709.07823	0
^{41}Ca	—	9.94×10^4 [y]	—	—	—
^{42}Ca	0.647	—	422.79156	709.07862	385.7
^{43}Ca	0.135	—	N.A.	N.A.	N.A.
^{44}Ca	2.086	—	422.79133	709.07901	771.5
^{45}Ca	—	162.61 [d]	—	—	—
^{46}Ca	0.004	—	422.79110	709.07940	1157.2
^{47}Ca	—	4.536 [d]	—	—	—
^{48}Ca	0.187	—	422.79089	709.07975	1509.4

3.3 Ca エネルギー準位図

Ca 原子は可視域に複数の光学遷移を持ち、それぞれ異なる電子状態間の遷移として記述される。図 3.1 に Ca 原子の主要なエネルギー準位構造を示す。Ca 原子の基底状態は $^1\text{S}_0$ であり、ここから励起状態 $^1\text{P}_1$ への遷移は電気双極子 (E1) 遷移として強く許容されている。この遷移は遷移確率が大きく、非常に短寿命 (ns) である。可視域において強い蛍光を伴うため、レーザー分光やレーザー操作に広く利用されている。遷移後の $^1\text{P}_1$ 状態から $^1\text{D}_2$ 状態への遷移も E1 遷移として許容されており、励起された原子は一定の確率で $^1\text{D}_2$ 状態へと遷移する。一方で $^1\text{D}_2$ 状態は、基底状態 $^1\text{S}_0$ との間の直接遷移が角運動量およびパリティの選択則を満たさないため、電気双極子遷移としては禁止されている。その結果、この遷移は遷移確率が小さく、遷移後の $^1\text{D}_2$ 状態は放射寿命が ms~s と比較的長い準安定状態として振る舞う。これらの準位間の遷移はレーザー分光により選択的に励起可能であり、同位体ごとの核質量および核電荷分布の違いは、各遷移の共鳴周波数に微小な差として現れる。

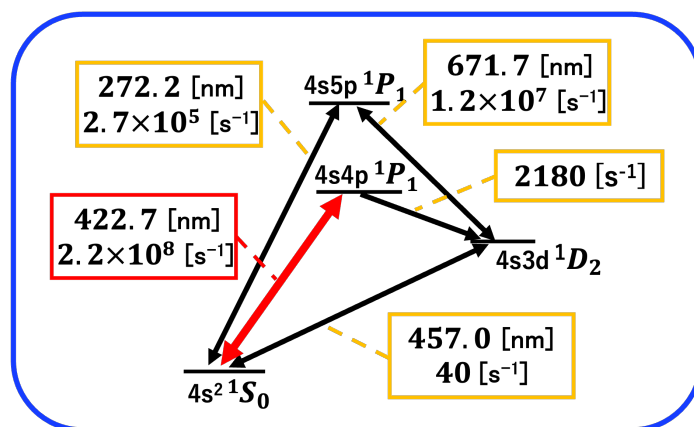


図 3.1: Ca エネルギー準位図

3.4 レーザー偏向法

レーザー偏向法は、レーザー光と原子との共鳴相互作用を利用し、光子の運動量を原子に与えることで、レーザーの照射方向に原子の軌道をずらす同位体分離手法である。Ca 同位体分離に向けたレーザー偏向法の概念図を図 3.2 に示す。Ca は常温で固体であり、同位体分離を行うには加熱することで蒸気化する必要がある。そのため、蒸発源(るつぼ)を用いて Ca 蒸気を生成し、コリメーターを通過させることで指向性を持った原子ビームを形成する。この原子ビームに対し、⁴⁸Ca の共鳴波長に同調したレーザー光を原子ビームに直行する方向から照射することで ⁴⁸Ca のみが選択的に光子を吸収し、レーザー照射方向に運動量を受ける。

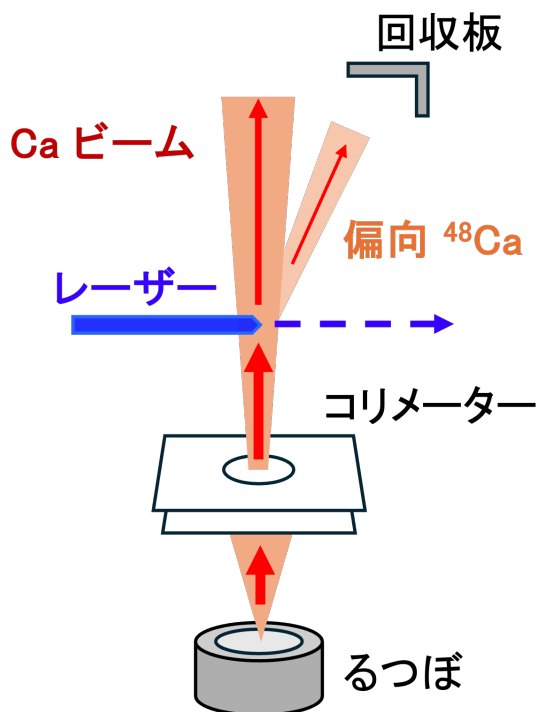


図 3.2: レーザー偏向法による Ca 同位体分離の概念図

原子が光子を 1 個吸収すると

$$p_{rec} = \hbar k = \frac{h}{\lambda} \quad (3.12)$$

の運動量を受ける。

その後、図 3.3 に示す通り、ランダムな方向に光子を自然放出し、放出した方向とは反対の向きに運動量を得て基底状態に戻る。しかし、吸収に対して放出は 3 次元空間的にランダムに起こるため、多数回の吸収・放出を起こす場合、自然放出により得られる運動量は平均的にはほぼゼロになると考えることができる。したがって多光子散乱を繰り返し起こさせると、レーザーの照射方向に累積的に偏向することができる。別角度に回収板を設置し、偏向した ^{48}Ca を回収することで同位体分離を行う。

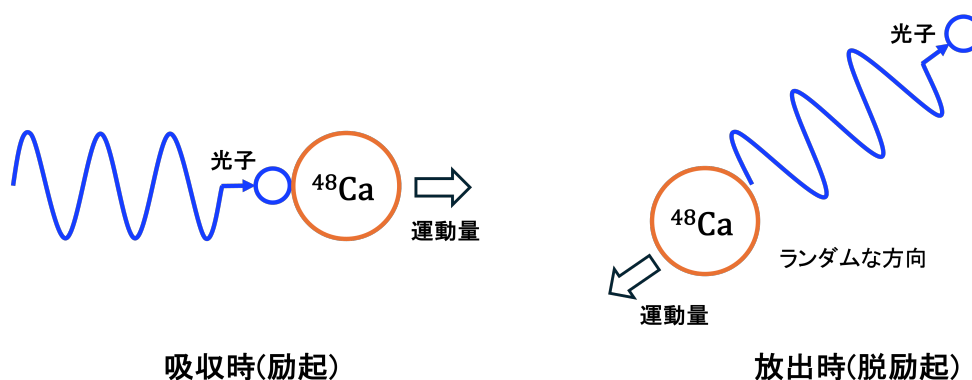


図 3.3: 光子の吸収・放出時の運動量方向

3.5 大量生産に向けたレーザー偏向法の評価

2.2.1 でも紹介した通り、現在の CANDLES III 検出器では CaF_2 結晶に 350g (自然存在比に対応する量) の ^{48}Ca が含まれている。次世代検出器では、同位体濃縮により CaF_2 結晶中の ^{48}Ca 存在比を 80% 以上に向上させた上で検出器を大型化し、総量として 2 ton 以上の ^{48}Ca を含む CaF_2 結晶の実現を目標としている。

この目標に向けて、まずは年間およそ 300 kg 規模の ^{48}Ca を安定的に製造することを目指している。このような大規模生産を想定した場合、同位体シフトを利用した Ca 同位体分離手法の中でも、3.4 節で述べたレーザー偏向法は有力な候補として検討されている。

ここでは、Ca 原子の $^1\text{S}_0 \rightarrow ^1\text{P}_1$ 遷移 (波長 422.7 nm) を用いたレーザー偏向法について、必要となるレーザーエネルギーの概算評価を行う。422.7 nm のレーザーに含まれる 1 光子のエネルギーは

$$\frac{hc}{\lambda} = 4.70 \times 10^{-19} \text{ [J]} \quad (3.13)$$

である。十分な空間分離 (偏向角度: 約 31.6 mrad) を得るために、1 個の ^{48}Ca 原子が約 1000 個の光子を吸収すると仮定する。この仮定の下で、年間 300 kg の ^{48}Ca を分離・回収するために必要なレーザーエネルギー E は、

$$\begin{aligned} E &= \frac{hc}{\lambda} \times 1000 \times 6.02 \times 10^{23} \text{ [mol}^{-1}] \times \frac{3.0 \times 10^5 \text{ [g]}}{48 \text{ [g/mol]}} \\ &= 1.77 \times 10^{12} \text{ [J]} = 1.77 \text{ [TJ]} \end{aligned} \quad (3.14)$$

と見積もられる。この値を、1年間にわたって連続的にレーザー駆動を行う上限評価として平均化すると必要なレーザーパワーは

$$P_{\text{Laser}} = \frac{1.77 \times 10^{12} [\text{J}]}{60 \times 60 \times 24 \times 365 [\text{s}]} \quad (3.15)$$
$$= 56.1 [\text{kW}]$$

となる。この出力を単一のレーザー装置で長期間安定に賄うことは困難である。そのため、実際の大規模濃縮システムでは、図 3.4 に示すように、複数の Ca 蒸気ビームおよび複数の偏向レーザーを並列に配置したシステム構成が必要になると考えられる。

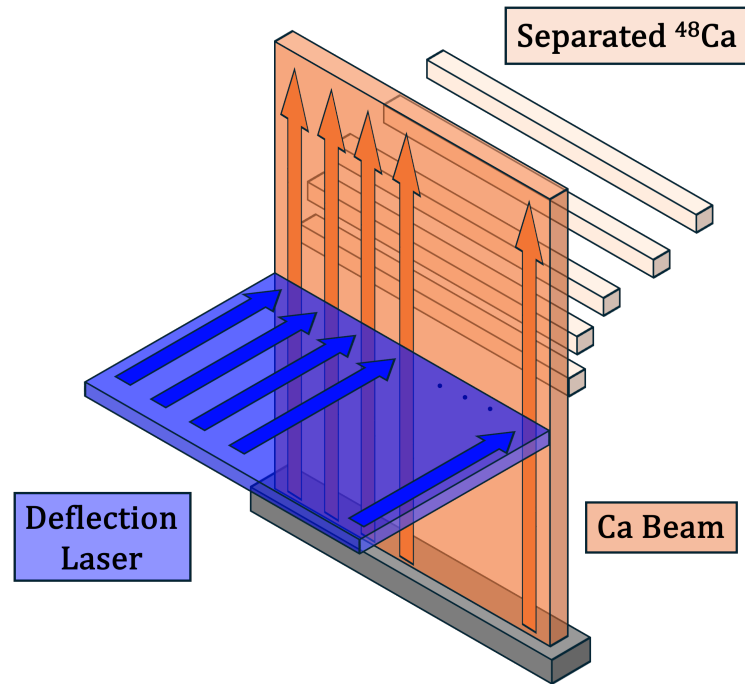


図 3.4: 大量生産に向けた濃縮システムの概略図。各矢印は、Ca 蒸気ビームとそれに対応する偏向レーザーの組を表している。

第4章

大強度レーザーダイオードの開発

4.1 偏向レーザーのシステム

3.5節で定量的に評価した通り、 ^{48}Ca の大量生産を実現するためには、極めて大きな総レーザー出力を安定に供給可能な偏向レーザーが必要となる。このような高出力を単一のレーザー装置で実現することは技術的・コスト的に困難である。そこで本研究では、図4.1に示すように、単一波長で安定に発振するDFB型半導体レーザー(DFB-LD)を種光源(Master Laser)とし、その出力を複数分岐してFabry-Pérot型半導体レーザー(FP-LD)へ注入する構成を検討している。以下では、注入されるFP-LDをSlave Laserと呼ぶ。

DFB-LDは内部に波長選択機構を有する半導体レーザーであり、単一縦モードで発振し、狭い線幅を有する。そのため、同位体シフトが数百MHz程度であるCaの同位体選択励起において、特定の遷移のみを選択的に励起するための安定な種光源として適している。

一方、FP-LDは端面反射により形成される共振器構造を持つ比較的単純な半導体レーザーであり、高出力化が容易かつ低コストであるという利点を有する。多数のレーザー素子を並列に用いる必要がある偏向レーザーシステムにおいて、拡張性およびコスト効率の観点から適した選択肢である。

外部光が注入されたFP-LDでは、後述する『注入同期』という現象により、発振波長および位相がマスター光に引き込まれ、同一波長・同一位相での増幅発振が実現される。この方式により、単一のマスター光源から複数の高出力レーザー光を得ることが可能となり、大強度偏向レーザーシステムの実現が期待される。

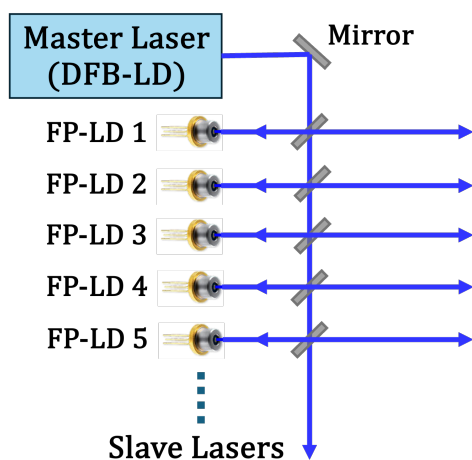


図4.1: 偏向レーザーのシステム

注入同期

注入同期とは、外部から注入した光によってレーザーの発振周波数と位相が強制的に外部光へ引き込まれる現象である。FP-LD は通常、複数の縦モードを持ち広いスペクトルで発振するが、外部から単一波長の DFB-LD 光を注入すると、その光により発振モードが支配される。図 4.2 に注入同期の典型的なスペクトル変化を示す。

特に、自己発振成分の抑圧量 (図中の Contrast 比) は注入同期の成立度を表す重要な指標である。注入光強度の増加に伴い自己発振成分はさらに抑制され、Slave Laser はより安定にマスター光と同一波長・位相で発振する。

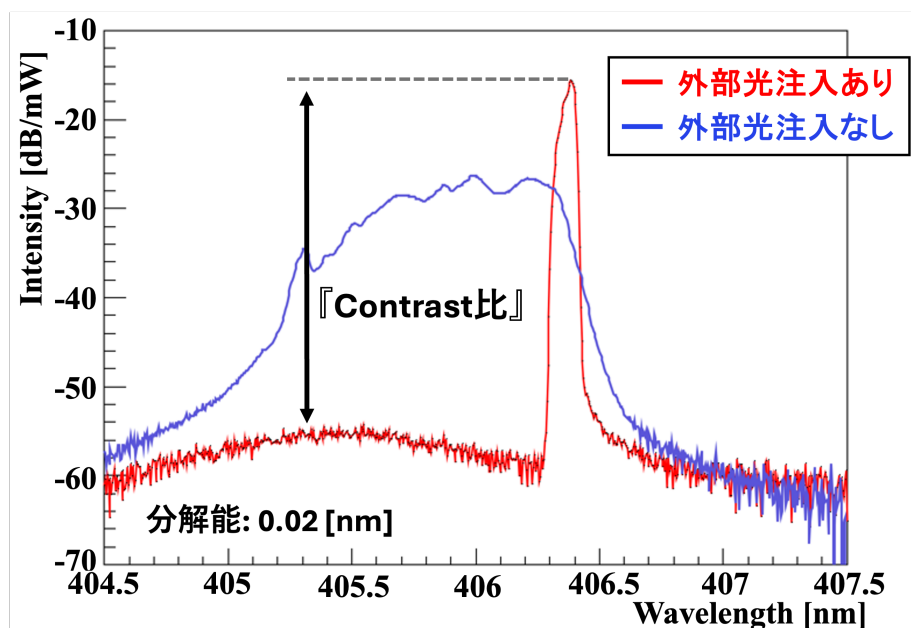


図 4.2: 注入同期に伴う発振スペクトルの変化。青線は外部光未注入時の Free-running FP-LD の多モード発振を示しており、赤線は外部光注入により単一波長へ引き込まれた注入同期後の発振を示している。データは後述する Single FP-LD 通常コートで取得した。

4.2 注入同期実験の構成

大強度偏向レーザーの実現に向けては、Slave Laser として用いる FP-LD が安定に注入同期することに加え、注入光を効率よく増幅し、高出力を取り出せることが重要である。そこで本研究では、注入同期下における FP-LD の増幅特性および出力特性を評価した。本節では、そのために実施した注入同期実験の構成について述べる。

4.2.1 評価試料の FP-LD

FP-LD は発振横モード数の違いにより、Single Mode 型と Multi Mode 型に分類される。Multi Mode 型 FP-LD はストライプ幅 (電流を注入する活性層の水平方向幅) が広く、複数の横モードで同時に発振する構造を持つことから、Single Mode 型 FP-LD と比較して高出力動作が期待される。以下では、Single Mode 型 FP-LD を Single FP-LD、Multi Mode 型

FP-LD を Multi FP-LD と呼ぶ。

また、共振器ミラー部分のコーティングとして、通常コートおよび片側ミラーの反射率を低減した反射防止 (AR) コートの 2 種類を用いた。AR コートを施した FP-LD では、片側ミラーの反射率が約 1% と低く抑えられており、外部から注入されるマスター光の影響を受けやすい構造となっている。そのため、注入同期による発振波長および出力特性の変化が通常コートと比較して顕著に現れることが期待される。

以上の理由から、本研究では発振横モード数およびミラー反射率の異なる 4 種類の FP-LD を評価対象として選定した。評価に用いた FP-LD 素子の構造および主な仕様を表 4.1 に示す。

表 4.1: 評価資料の FP-LD

LD 種類	共振器のミラー部分のコーティング	Typical 電流値	注入 DFB 波長
Single FP-LD	< 10%/90%: 通常コート	150 [mA]	406.2 [nm]
Single FP-LD	< 1%/90%: AR コート	150 [mA]	406.2 [nm]
Multi FP-LD	< 10%/90%: 通常コート	475 [mA]	408.3 [nm]
Multi FP-LD	< 1%/90%: AR コート	475 [mA]	408.3 [nm]

4.2.2 光学系および測定系

図 4.3 に測定セットアップを示す。DFB-LD を種光源 (Master Laser) とし、その光をミラーとビームスプリッタを介して、Slave laser である FP-LD に注入している。DFB-LD からの出力光の一部はビームスプリッタによって分岐され、波長計に入力することで発振波長のモニタリングを行った。一方、FP-LD からの出力光は光スペクトラムアナライザに入力し、主に発振波長スペクトルの測定を行った。

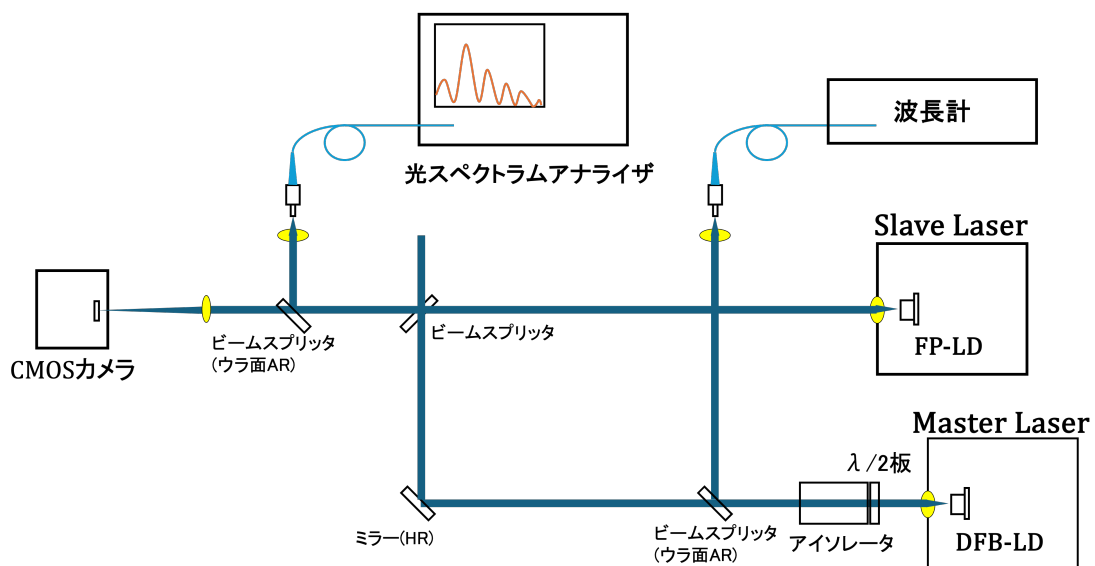


図 4.3: 実験セットアップ

1/2 波長板

DFB-LD から FP-LD へ注入するレーザー光のパワーを調整するために、DFB-LD の出力側直後に 1/2 波長板 (Half-Wave Plate: HWP) を設置した。

1/2 波長板とは、直交する 2 つの偏光成分間に位相差 π を与える光学素子であり、入射する直線偏光の偏光方向を回転させる作用を持つ。入射偏光の偏光方向と波長板の速軸とのなす角 θ とすると、出射光の偏光方向は 2θ だけ回転する。この偏光回転を偏光ビームスプリッター (PBS) と組み合わせることで、透過光および反射光の強度比を連続的に制御することが可能となる。透過光のパワー P は、入射光パワー P_0 を用いて

$$P = P_0 \cos^2(2\theta) \quad (4.1)$$

と表される。本実験では、この関係を利用して FP-LD へ注入する DFB-LD の注入パワーを調整した。図 4.4 に実験に使用した 1/2 波長板の写真を示し、図 4.5 に偏光角度と注入パワーの関係を示す。

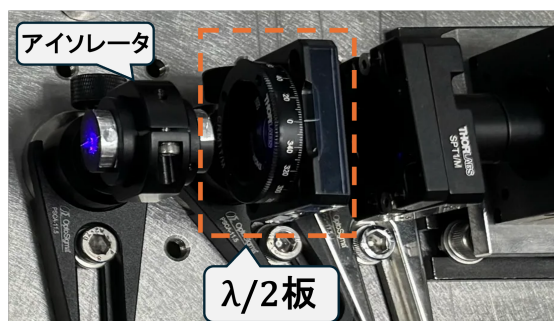


図 4.4: 使用した 1/2 波長板の写真

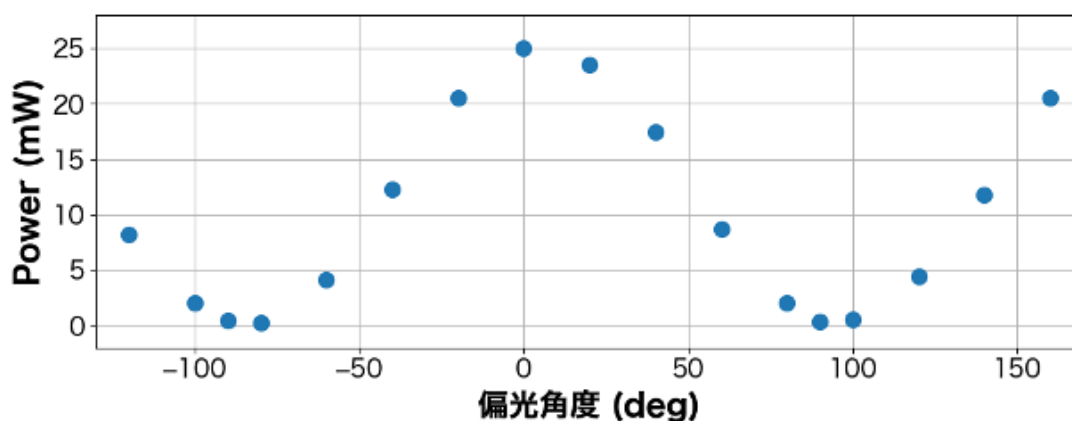


図 4.5: 偏光角度と注入パワーの関係

光アイソレータ

図 4.3 のセットアップおよび図 4.4 の写真に示すとおり、DFB-LD の出力側に光アイソレータを配置した。

注入同期実験では、FP-LD 側で反射した光がマスターレーザーである DFB-LD へ戻ることによって、発振波長や出力が不安定になる可能性がある。DFB-LD の安定動作を維持するため、光アイソレータを用いて FP-LD からの戻り光の影響を低減した。

CMOS カメラ

FP-LD の窓径は $\phi = 1.6 \pm 0.2 \text{ mm}$ と小さく、DFB-LD 光の注入位置調整は困難である。そのため、CMOS カメラを用いて注入位置の調整を行った。CMOS カメラには、FP-LD 共振器内で反射した DFB-LD のレーザー光および FP-LD 自身の発振光を入力し、ミラーおよびビームスプリッタを用いて DFB-LD 光の照射位置を調整した。これにより、FP-LD 入射面における注入光の位置および重なりを可視的に確認しながら調整を行った。図 4.6 に注入同期調整時に取得した CMOS カメラの出力例を示す。図 (a) から図 (b) にかけて DFB-LD 光の照射位置を FP-LD 入射中心方向へ移動させている。(a) と比較して (b) では FP-LD 光の強度が増加していることがわかる。また、発振位置および発光状態が安定していることから、注入同期が成立していると判断できる。

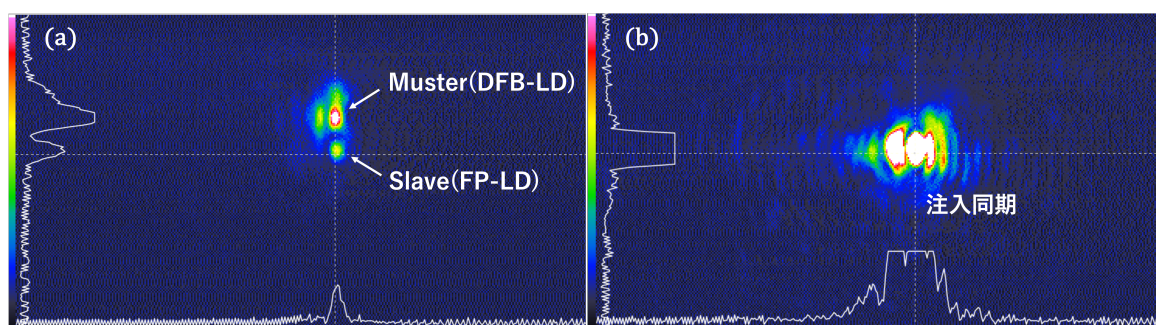


図 4.6: CMOS カメラの出力

4.3 Single FP-LD の評価

本節では、Single FP-LD について、注入同期時における出力特性および Contrast 比の駆動電流値依存性を評価した。これは、注入同期による出力増幅特性を定量的に把握するとともに、実験調整の安定性および調整難易度を評価することを目的としている。

4.3.1 出力特性

駆動電流値を変化させた際の Single FP-LD の総出力の関係を図 4.7 に示す。DFB-LD からの注入光パワーは 5.0 mW で固定し、通常コート品および AR コート品について、DFB-LD 光を注入して注入同期が成立している場合 (注入同期 ON) と、DFB-LD 注入光を遮断した場合 (注入同期 OFF) の出力特性を比較した。通常コート品では、DFB-LD 光注入の有無による $I-P$ 特性の変化はほとんど観測されなかった。一方、AR コート品では注入同期が成立した際に同一駆動電流値において明確な出力増幅が確認された。このことから、AR コート品は外部からの注入光に対して高い増幅応答を示すことが分かる。

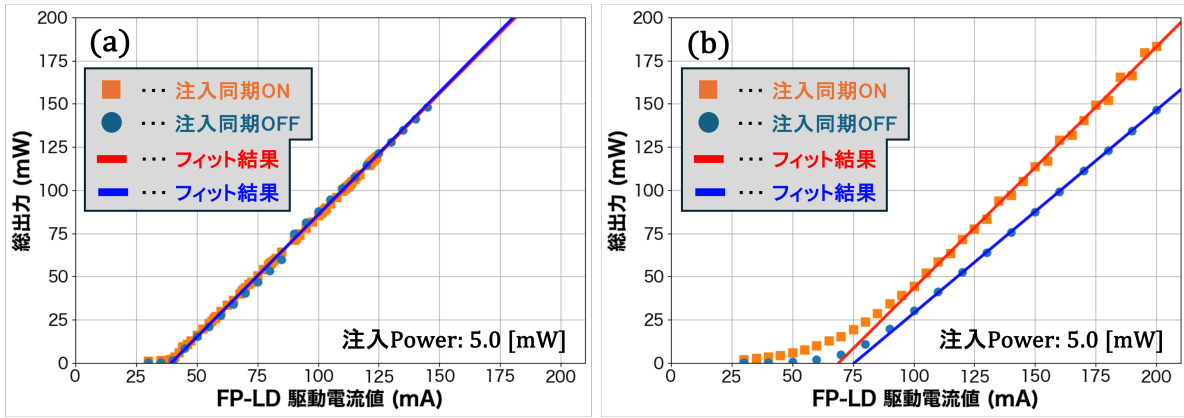


図 4.7: Single FP-LD 出力特性。(a) は通常コート品について、(b) は AR コート品についてのデータである。注入パワーは 5.0 mW で固定し、注入同期有無における出力特性を比較した。

また、出力増幅特性を定量的に評価するため、スロープ効率 (電力変換効率) に注目する。スロープ効率: η は、発振閾値以上の線形領域における $I-P$ 特性の一次フィットの傾きとして以下の式で定義される。

$$\eta \equiv \frac{dP}{dI} \quad (4.2)$$

さらに、上式を用いて実験データに対して一次フィットを行い、得られた直線を $P = 0$ に外挿することで、外挿閾値電流: I_{th} を評価した。 $I-P$ 特性の一次フィットに用いる線形領域として、出力が十分に大きく直線性が良好となる条件を選ぶため、本研究では $P > 50 \text{ mW}$ のデータ点のみを用いた。この条件は注入同期の有無にかかわらず共通に適用した。

表 4.2 に、Single FP-LD における注入同期の有無と、その時のコーティング条件ごとのフィッティング結果であるスロープ効率と外挿閾値電流をまとめる。通常コート品では注入同期の有無によるスロープ効率の差は小さく、注入同期がスロープ効率に与える影響は限定的である。一方で、AR コート品においては、注入同期 ON 時に増幅がおり、高出力線形領域におけるスロープ効率は通常コート品と同程度となった。また、AR コート品では注入同期 ON 時に発振閾値電流が低下する傾向が確認された。これは外部からの注入光によって共振器内の光子数が増加し、実効的に発振開始条件が緩和されたためと考えられる。この結果から、Single FP-LD では、外部からのフィードバック光を増加させることで、AR コート品においても通常コート品と同程度のスロープ効率を得られることが分かった。

表 4.2: Single FP-LD のスロープ効率および外挿閾値電流

共振器のミラー部分のコーティング	注入同期	スロープ効率: η [mW/mA]	発振閾値電流: I_{th} [mA]
< 10%/90%: 通常コート	OFF	1.4196	39.58
< 10%/90%: 通常コート	ON	1.4086	39.38
< 1%/90%: AR コート	OFF	1.1763	75.57
< 1%/90%: AR コート	ON	1.3991	69.17

4.3.2 Contrast 比の駆動電流依存性

続けて、出力と同時に測定を行った、FP-LD の駆動電流値を変化させた際の Contrast 比の変化を、図 4.8 に示す。通常コート品では、駆動電流値の増加に伴い、Contrast 比が周期的に 40 dBm/mW を超える大きな変動挙動が観測された。一方、AR コート品では駆動電流値に依存した周期的な変動は見られるものの、20 dBm/mW 以上の Contrast 比を維持しており、比較的安定した出力増幅が確認された。

この結果から、通常コート品では注入同期条件に対する感度が高く、安定した増幅動作を得ることが困難であることが分かる。そのため、複数の FP-LD 素子を用いて増幅を行う図 4.1 のシステムに適用する場合、注入同期条件の維持が難しくなると考えられる。

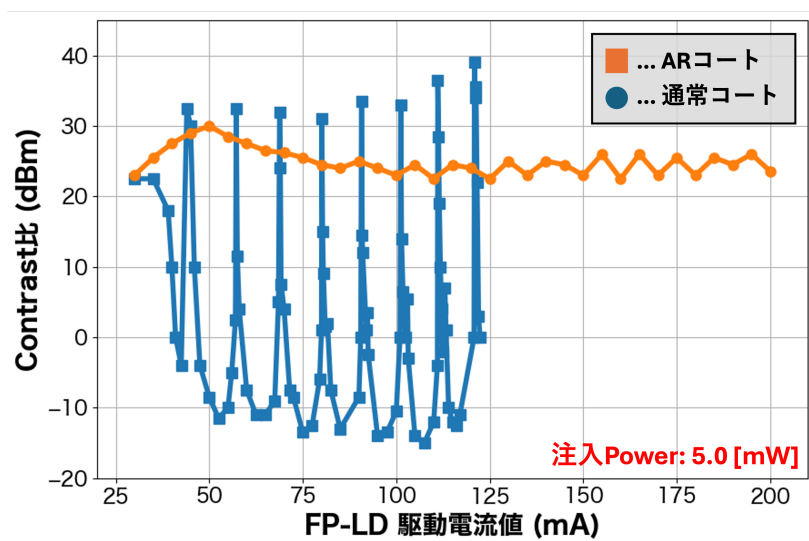


図 4.8: Contrast 比の駆動電流依存性

4.4 Multi FP-LD の評価

Single FP-LD の評価結果を踏まえ、本節では Multi FP-LD についても同様の評価を行った。

4.4.1 出力特性

駆動電流値を変化させた際の FP-LD 総出力の関係を図 4.9 に示す。Multi FP-LD の通常コート品では、注入同期の有無による出力特性の変化はほとんど観測されなかった。一方で、AR コート品では注入同期が成立した際に明確な出力増幅が確認された。これは Single FP-LD と同様に、共振器ミラー部分の反射率が低い AR コート構造において、外部からの注入光の影響を受けやすくなるためである。

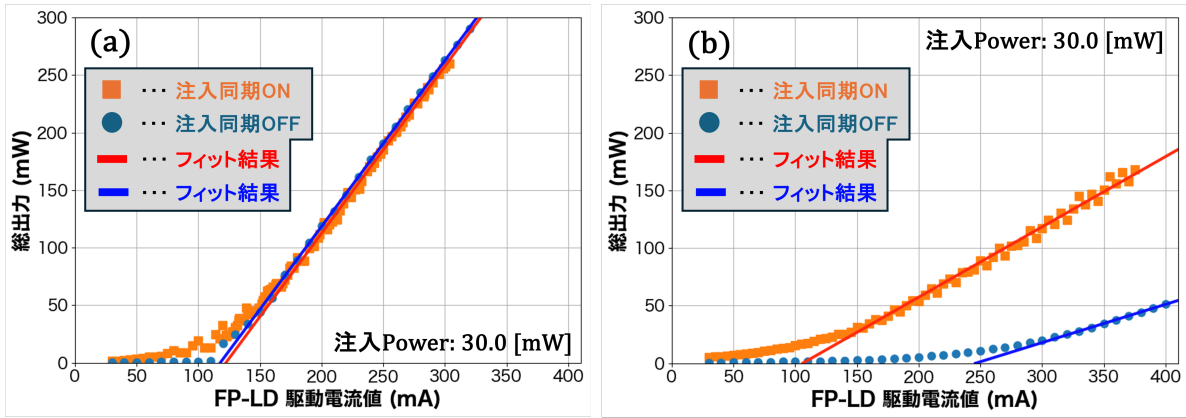


図 4.9: Multi FP-LD 出力特性。(a) は通常コート品について、(b) は AR コート品についてのデータである。注入パワーは 30.0 mW で統一し、注入同期有無における出力特性を比較した。

また、Single FP-LD での評価と同様に、式 (4.2) を用いて実験データに対して一次フィットを行った。一次フィットに用いる線形領域として、出力が十分に大きく直線性が良好となる条件を選ぶため、通常コート品においては $P > 100 \text{ mW}$ のデータ点のみを用い、AR コート品においては $P > 25 \text{ mW}$ のデータ点のみを用いた。この条件は注入同期の有無にかかわらず共通に適用した。

フィットにより得られたスロープ効率と発振閾値電流を以下の表 4.3 にまとめる。Single FP-LD と同様に、通常コート品では注入同期の有無によるスロープ効率の差は小さい一方で、AR コート品においては注入同期 ON 時に増幅が確認された。しかしながら、AR コート品において、注入同期 OFF 時の出力の絶対値が小さく、注入同期 ON 時の増幅は限定的となった。

スロープ効率が小さくなる要因としては、ストライプ幅が広いことによる複数の横モードおよび縦モードの同時発振が考えられる。結果として、注入光によって同期・増幅されるモード以外にも利得を消費するモードが存在し、注入光による利得の集中が起こりにくくなっていると考えられる。

表 4.3: Multie FP-LD のスロープ効率および外挿閾値電流

共振器のミラー部分のコーティング	注入同期	スロープ効率: η [mW/mA]	発振閾値電流: I_{th} [mA]
< 10%/90%: 通常コート	OFF	1.4414	117.81
< 10%/90%: 通常コート	ON	1.4508	122.39
< 1%/90%: AR コート	OFF	0.3319	245.95
< 1%/90%: AR コート	ON	0.6099	105.96

4.4.2 Contrast 比の駆動電流依存性

Multi FP-LD における Contrast 比の駆動電流依存性を図 4.10 に示す。AR コート品では、Single FP-LD と同様に、駆動電流値に対して 20 dBm/mW 以上の Contrast 比を維持する安定した増幅動作が確認された。一方、通常コート品では発振閾値を超えた低電流領域 (120-170 mA) において、周期的に 40 dBm/mW を超える Contrast 比の変動が観測され、それ以上の高電流領域では Contrast 比の顕著な上昇は見られなかった。

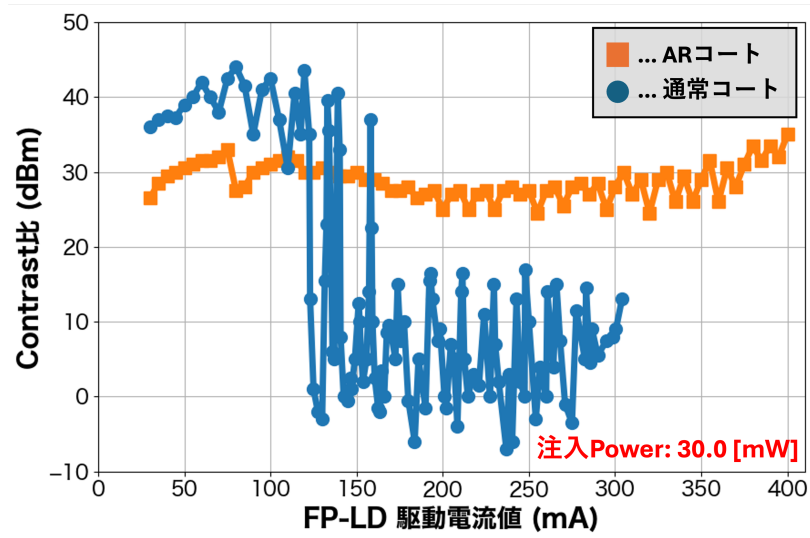


図 4.10: Contrast 比の駆動電流依存性

Multi FP-LD はストライプ幅が広く、発振閾値を十分に超えた電流領域では複数の縦モードが同時に発振する構造を持つ。その結果、図 4.11 に示すように、通常コート品では注入同期時においても、Single Mode で発振する DFB-LD による注入光ではすべての縦モードを十分に抑制することができず、Contrast 比の向上が限定的となったと考えられる。

このような現象は、 ^{48}Ca の共鳴吸収波長から僅かにズレた吸収波長を持つ他の Ca 同位体まで同時に偏向・分離してしまう要因となり得る。

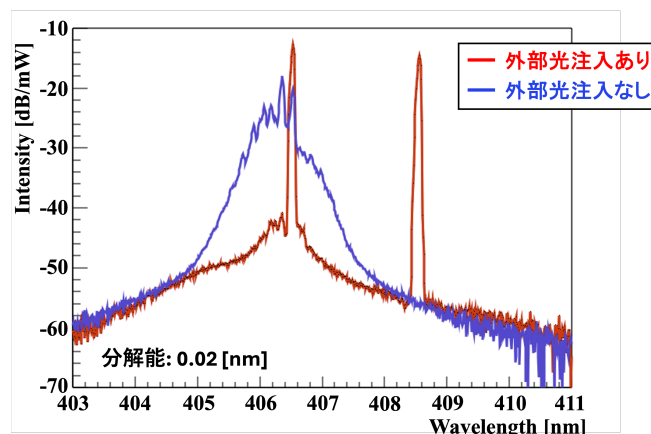


図 4.11: Multi FP-LD 通常コートの注入同期の有無による発振スペクトル。FP-LD の駆動電流値が 172.5 mA の条件における発振スペクトルを重ねて示している。

4.5 AR コート品の比較

前節までの評価から、通常コート品は AR コート品と比較して注入同期の調整難易度が高く、特に複数の FP-LD 素子を用いて増幅を行うシステムでは安定な動作が困難であることがわかった。一方、AR コート品は注入同期の調整が比較的容易であり、スロープ効率も通常コート品と同程度であることから、注入同期による増幅用途には AR コート品が適していると判断した。

本節では、AR コート品に絞り、Single FP-LD と Multi FP-LD の増幅特性を比較する。ここでは、駆動電流一定の条件下で外部から注入した光パワーに対する出力光パワーの増幅性能を評価するため、増幅ゲイン (小信号利得) に注目する。

増幅ゲイン (小信号利得): A は、小信号領域における入力光パワー P_{in} に対する ASE (Amplified Spontaneous Emission) 成分を除いた出力光パワー P_{out} の初期増加率として以下の式 (4.3) で定義される。ここで ASE とは、利得媒質内で生じた自発放出光が媒質によって誘導放散的に増幅された非コヒーレント成分を指す。

$$A \equiv \left. \frac{dP_{out}}{dP_{in}} \right|_{P_{in} \rightarrow 0} \quad (4.3)$$

測定において、入力光パワーは 1/2 波長板 (図 4.4) を用いて調整した。特に入力光パワーが小さい領域では図 4.12 に示すとおり、FP-LD の ASE 成分が支配的となる。注入同期による増幅特性を正しく評価するため、測定された出力スペクトルを積分し、ASE 成分を除外した出力光パワーのみを解析対象とした。

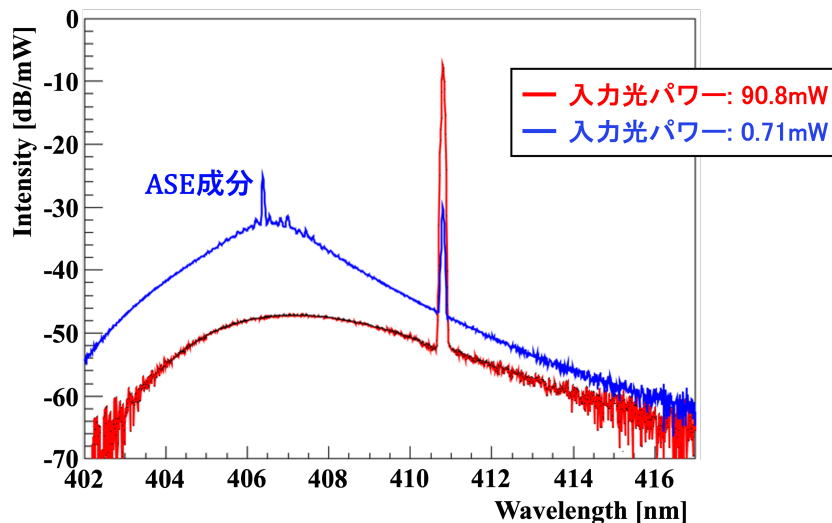


図 4.12: 入力パワーを変化させた際の FP-LD の発振スペクトル。Multi FP-LD AR コートで取得。赤は入力光パワーが 90.8 mW、青は入力光パワーが 0.71 mW である。

図 4.13 に、Single FP-LD および Multi FP-LD の AR コート品に対する入力光パワーと出力光パワーの関係を示す。また、実験で得られた入力光パワー依存性は、半導体光増幅器や注入同期で一般的に用いられる利得飽和モデル [11] を用いた以下の式 (4.4) でフィッティングを

行った。

$$P_{out} = \frac{AP_{in}}{1 + P_{in}/P_{sat}} + P_0 \quad (4.4)$$

ここで、 P_{sat} は利得飽和の入力パワー、 P_0 はオフセットである。

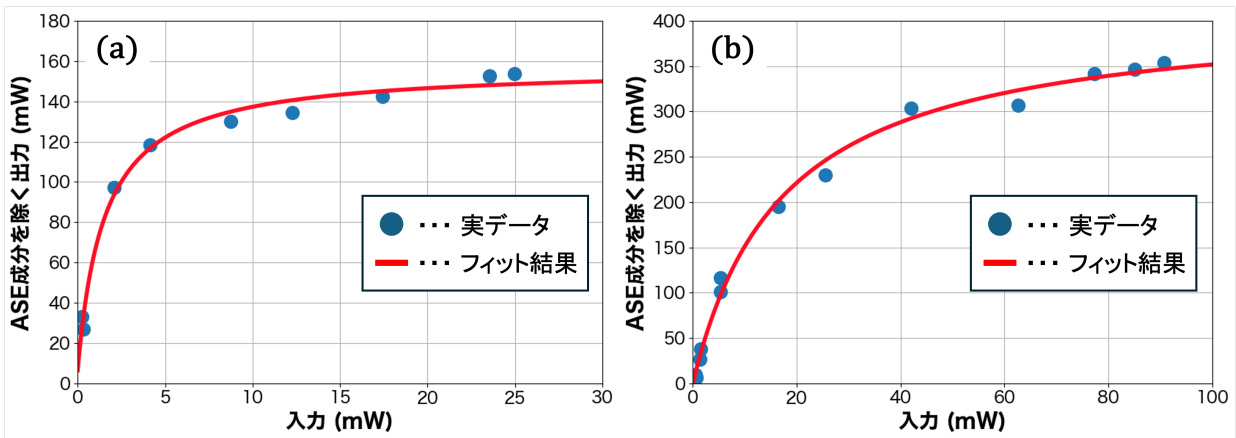


図 4.13: AR コート品に対する入力光パワーと出力光パワーの関係。(a) は Single FP-LD、(b) は Multi FP-LD についてである。

フィッティングの結果を表 4.4 に示す。Single FP-LD の AR コート品では小信号利得: $A = 99.05$ 、利得飽和入力パワー: $P_{sat} = 1.52 \text{ mW}$ が得られた一方で、Multi FP-LD の AR コート品では $A = 23.87$ 、 $P_{sat} = 17.30 \text{ mW}$ が得られた。この結果は、Single FP-LD では利得が単一モードに集中するため、小信号領域において高い増幅効率が得られる一方、Multi FP-LD では複数モードに利得が分配されることで有効な小信号利得が低下することを示唆している。

表 4.4: フィッティング結果

LD 種類	A	P_{sat} [mW]	P_0 [mW]
Single FP-LD AR コート	99.05	1.52	6.47
Multi FP-LD AR コート	23.87	17.30	-0.15

4.6 選定結果まとめ

前節までに評価した注入同期の調整難易度、スロープ効率、および増幅ゲインについて、各 FP-LD の特性を表 4.5 にまとめた。通常コート品は AR コート品と比較して注入同期の調整が難しく、特に安定した増幅動作を得ることが困難であることが確認された。一方で、期待通り、AR コート品は外部から注入した光に対して安定に増幅が生じやすく、注入同期を用いた増幅用途に適していることがわかった。

さらに、AR コート品同士を比較すると、Single FP-LD は Multi FP-LD と比べてスロープ効率および増幅ゲインがともに高く、電力変換効率の観点からも優れた特性を示した。以上の結果から、注入同期の調整難易度・スロープ効率・小信号利得の観点において、Single FP-LD の AR コート品が最も優れた増幅特性を有することが明らかとなった。

表 4.5: 選定結果まとめ

LD 種類	共振器のミラー部分の コーティング	注入同期調整 難易度	スロープ効率: η [mW/mA]	小信号利得: A
Single FP-LD	< 10%/90%: 通常コート	高	1.4086	—
Single FP-LD	< 1%/90%: AR コート	低	1.3991	99.05
Multi FP-LD	< 10%/90%: 通常コート	高	1.4508	—
Multi FP-LD	< 1%/90%: AR コート	低	0.6099	23.87

第 5 章

高効率原子ビーム偏向法の検証

5.1 従来のレーザー偏向法における課題

3.4 節で説明したように、レーザー偏向法による同位体分離の原理は、光吸収過程におけるレーザー光子から原子への運動量移動に基づいている。光子 1 個の吸収によって原子が受け取る運動量は $p = h/\lambda$ であり、 ^{48}Ca 原子の速度変化は

$$\Delta v = \frac{h}{m\lambda}$$

で与えられる。 $\lambda = 422.8 \text{ nm}$ の遷移を用いると $\Delta v \simeq 1.96 \times 10^{-2} \text{ m/s}$ と計算できる。約 1000 回の吸収・放出過程を経た後、横方向速度は ^{48}Ca は約 19.6 m/s に達する。

したがって、 300 kg の ^{48}Ca の全運動エネルギーは、

$$K_{\text{All } ^{48}\text{Ca}} = \frac{1}{2} \times 300 \text{ [kg]} \times (19.6 \text{ [m/s]})^2 \simeq 57.6 \text{ [kJ]} \quad (5.1)$$

と算出される。これは、3.5 節の式 (3.14) で見積もった分離に必要なレーザーエネルギー 1.77 [TJ] よりも桁違いに低い値である。この大きな差は、光子吸収によって励起された ^{48}Ca が自然放出を起こすことでエネルギーを放出するという事実に起因している。自発放出された光子はランダムな方向に放出されるため、単に無駄になり、回収して再利用することができない。レーザー偏向法では、偏向力は主として自然放出を伴う散乱過程により生じるため、レーザー強度を増加させても散乱率は飽和し、さらに強励起領域では後述するラビ振動が支配的となる。この場合、誘導吸収と誘導放出が繰り返されるため、運動量付与は相殺され、偏向効率は原理的に頭打ちとなる。

ラビ振動

ラビ振動とは、2 準位間のエネルギー差に相当する周波数のエネルギーを与えると、量子状態が 2 準位間を行き来する現象である。励起状態の占有確率 $P_m(t)$ は以下の式で与えられる。

$$P_m(t) = |\Psi_m(t)|^2 = \frac{\Omega^2}{\delta^2 + \Omega^2} \sin^2\left(\frac{\sqrt{\delta^2 + \Omega^2}}{2} t\right) \quad (5.2)$$

この式の導出過程は付録 A で詳細に説明している。 $\Psi_n(t=0) = 1$ および $\Psi_m(t=0) = 0$ の初期条件では、 Ω はラビ振動数と呼ばれ、 $\Omega \equiv \frac{|\boldsymbol{\mu}_{mn} \cdot \mathbf{E}_0|}{\hbar}$ で定義される。また、 δ は離調 (デチューニング)、つまり外部場の周波数 ω と遷移周波数 $\omega_{mn} \equiv \frac{E_m - E_n}{\hbar}$ の差で与えられる。

図 5.1 は、離調がない ($\delta = 0$) の場合の式 (5.2) のグラフである。

付録 A 式 (A.34) で示す通り、ラビ振動数はレーザーパワーの平方根に比例 ($\Omega_0 \propto \sqrt{P}$) する。そのため、レーザーパワーを増加させるとラビ振動による誘導吸収・誘導放出が支配的となる。

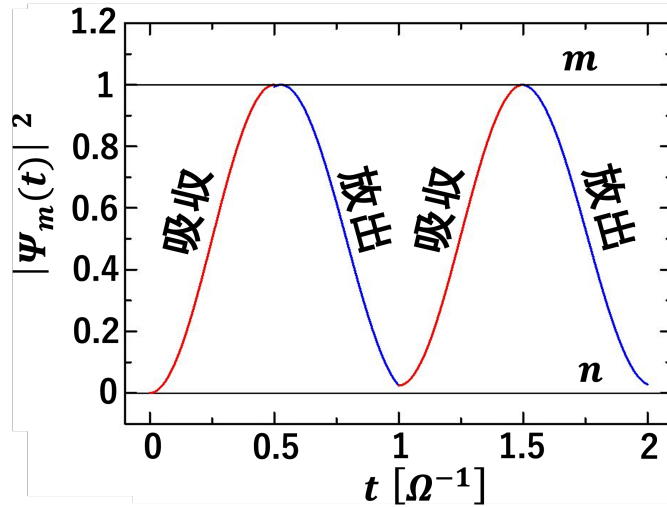


図 5.1: 離調がない ($\delta = 0$) の場合の励起状態の占有確率の時間依存性

5.2 ラビ振動を利用したレーザー偏向法

従来のレーザー偏向法では、励起された ^{48}Ca 原子が自然放出によって脱励起するため、放出される光子はランダムな方向に放出される。このため、光子の運動量は平均として原子の偏向方向には寄与せず、放出光子を回収して再利用することもできない。結果として、大きなエネルギー損失が避けられないという課題がある。一方、脱励起が誘導光の照射による誘導放出によって引き起こされる場合には、放出された光子は誘導光と同じ波数ベクトル、位相を持つ。そのため、放出光子は誘導光と同一の光路に含まれ、回収・再利用することが可能となる。

このような誘導吸収および誘導放出を制御された形で繰り返す手法として、本研究ではラビ振動に着目する。従来の偏向法とラビ振動を利用した偏向法の概念的な違いを図 5.2 に示す。

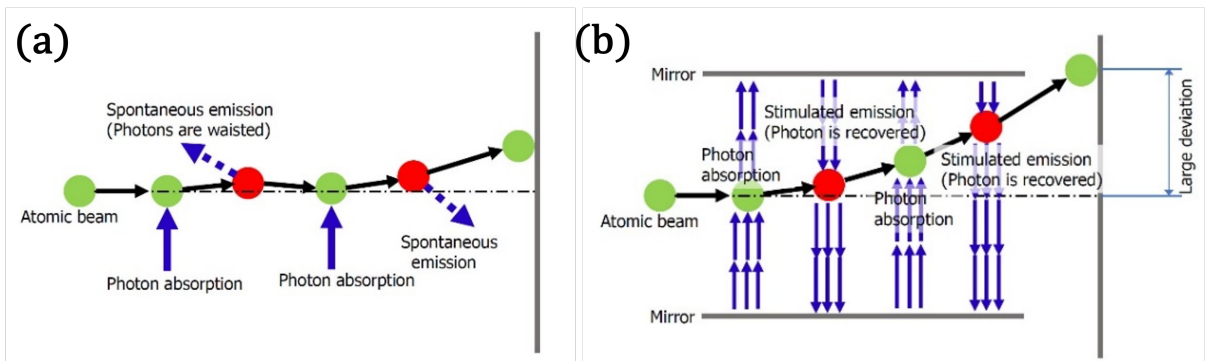


図 5.2: 従来のレーザー偏向法と、ラビ振動を利用したレーザー偏向法の概略図。

(a) 従来法では自然放出が支配的であり、放出光子は回収できない。(b) ラビ振動を利用した手法では、誘導吸収・誘導放出を制御することで光子を回収可能とし、効率的な運動量交換による原子ビームの大きな偏向を実現する。

このように、ラビ振動を利用したレーザー偏向法では、自然放出を抑制しつつ光子の回収が可能とすることで、従来法と比較して高効率な運動量交換が期待される。しかし、 ^{48}Ca を一方向に連続的に偏向させるためには、各光子吸収・放出過程における運動量移動の方向を一貫して揃える必要がある。

レーザー光を用いて多数の連続的な運動量移動を得るには、図 5.3 に示すようなシステムが有効であると考えられる。決められた方向に偏向・分離するには、誘導吸収段階および誘導放出段階の双方において ^{48}Ca が受け取る運動量の向きを一致させる必要があり、誘導放出用のレーザーは誘導吸収用のレーザーと反対方向の照射が要求される。

このシステムでは、励起に使用されたレーザー光子は脱励起過程において回収および再利用が可能のため、従来法と比較して必要な総レーザー出力を数桁削減することが可能である。

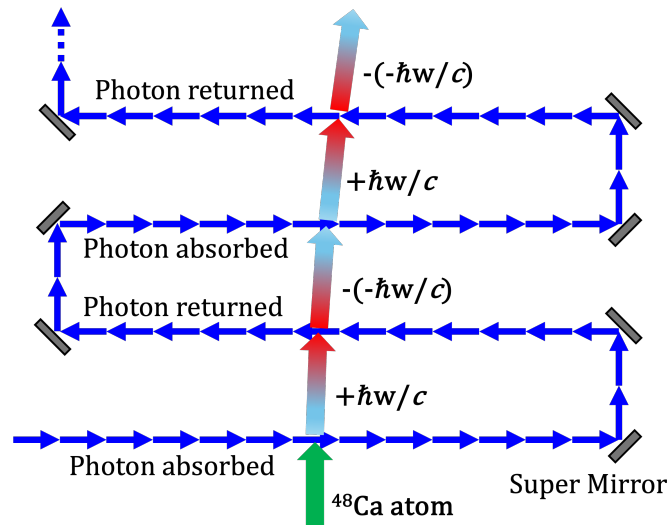


図 5.3: ラビ振動を利用したレーザー偏向法システムの概略図

5.3 誘導放出を利用した濃縮システム

数トンの ^{48}Ca を生産するためには、高効率の同位体濃縮技術が不可欠である。本研究では自然放出による光子損失を抑制し、光子を回収・再利用可能な誘導放出を利用した同位体濃縮システムに着目する。

誘導放出を利用した Ca 同位体濃縮の原理実証実験に向けては、図 5.4 に示す実験装置の構築が検討されている。

本システムでは、4 枚のミラーからなる Fabry-Pérot 共振器部を含むリング共振器で構成されており、Fabry-Pérot 共振器部では、前方ビームと後方ビームが交差する領域において ^{48}Ca とレーザー光の強い相互作用を実現する。この交差領域では誘導吸収および誘導放出が周期的に起こり、ラビ振動の誘起が期待される。500 回の光子放出後、従来の偏向法と比較して 1000 倍の効率向上を達成するためには、自然放出による遷移確率 f_{SE} とラビ振動による遷移確率 Ω の比 R_{Ω} が十分に小さい必要がある。この条件は次式で表される。

$$(1 - R_{\Omega})^{500} = \left(1 - \frac{f_{\text{SE}}}{\Omega}\right)^{500} > 0.999 \quad (5.3)$$

図 3.1 に示す $457.7 \text{ nm} (^1S_0 \rightarrow ^1D_2)$ 遷移では、自然幅が約 40 Hz と極めて小さく、式 (5.3) よりラビ周波数 Ω は以下の下限値が設定されることがわかる。

$$\Omega > f_{SE} \cdot 4.9975 \times 10^5 \simeq 20 \text{ MHz}$$

一方で、ラビ周波数 Ω には上限値も課される。その主な制限要因は、共鳴吸収波長近傍に存在する隣接同位体 ^{44}Ca による不要な光子吸収である。ここでは、原子との相互作用によって生じるラビ振動を時間的に周期的な駆動とみなし、レーザー電場が実効的に矩形波的な周波数変調を受けるものとして近似する。この時レーザー光は、周波数 $f_n = f_L + (2n - 1)\Omega$ および、振幅 $A_n = 1/(2n + 1)$ を持つフーリエ成分を含むと考えられる。

ここで、 $f_L = f_{48}$ 、 $f_{48} - f_{44} = 800 \text{ MHz}$ であることを考慮し、 $n \geq 2$ の高次成分を無視すると、 ^{44}Ca による吸収強度 I_{44} は次式で近似される。

$$I_{44} = \frac{\Omega^2}{(f_{44} - f_{n=1})^2 + \Omega^2} \left(\frac{A_{n=1}}{A_{n=0}} \right)^2 = \frac{\Omega^2}{(\Omega - 800)^2 + \Omega^2} \cdot \frac{1}{9} \quad (5.4)$$

^{44}Ca による吸収を十分に抑制するため、 I_{44} を 1% 未満とする条件を課すと、ラビ周波数は

$$\Omega < 191.4 \text{ MHz}$$

という上限が要求される。

以上より、本システムにおいて許容されるラビ周波数は $20 \text{ MHz} < \Omega < 191.4 \text{ MHz}$ の範囲に制限される。ラビ周波数 Ω は電界強度 E に比例するため、集光径を d とすると必要な光パワー P は $P \propto d^2$ に強く依存する。集光条件 (焦点径 2.5 mm) では、 $\Omega \sim 190 \text{ MHz}$ を実現するために必要なピークパワーは kW 級に達し得る。そのため図 5.4 に示すシステムでは、共振器によるパワービルドアップ $G \equiv P_{\text{cav}}/P_{\text{in}}$ を利用することで、外部からの入力パワーを $P_{\text{in}} = P_{\text{req}}/G$ まで低減する手法を利用することが必須となる。高反射率ミラーを用いた共振器では大きな G が期待でき、入力パワーを mW - W 級に抑えられる可能性がある。ただし実行的な G は鏡損失・結合条件・モード整合に依存するため、実装においてはこれらの最適化が重要となる。

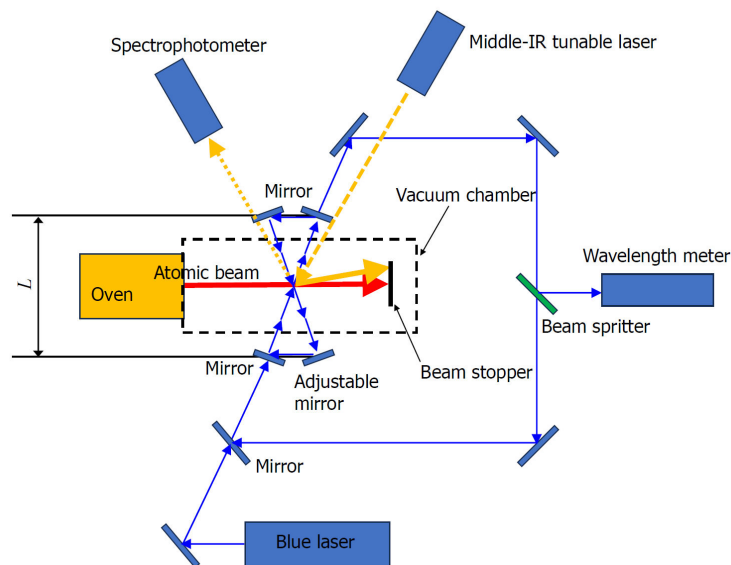


図 5.4: 原理実証実験に向けたセットアップの概略構成

5.4 ラビ振動の観測可能性

前節で議論した $457.7\text{ nm} (^1S_0 \rightarrow ^1D_2)$ 遷移における $\Omega \sim 190\text{ MHz}$ のような高いラビ振動数の実現には、高い電界強度および精密な共振器制御が要求される。しかしながら、ラビ振動の基本的な観測可否を議論する段階においては、まず自然放出やドップラー効果といった要因がコヒーレンスに与える影響を切り分けて理解することが重要である。

そのため本研究では、これらの効果が顕在化しやすい低電界強度におけるラビ振動数領域に着目し、ラビ振動観測の成立条件を明らかにすることを目的とする。ここで低電界強度とは、高反射率共振器や大きなパワービルドアップを用いず、単一パスのレーザー照射によって実現可能な電界強度を指す。

一方で、 ^{48}Ca は自然存在比が極めて低く、直接ラビ振動の観測を行うことは実験的に困難である。そこで本研究では、 ^{48}Ca のモデル系として自然存在比の高い ^{40}Ca を用いる。 ^{40}Ca および ^{48}Ca はともに核スピン $I = 0$ を持ち、超微細構造を持たないため、電子状態の準位構造は同一である。両同位体間の差異は、主として核質量および有限核サイズ効果に起因する同位体シフトとして共鳴周波数の差に現れる。

したがって、 ^{40}Ca において確立されたラビ振動の制御手法および観測条件は、レーザー周波数を同位体シフト分だけ調整することで ^{48}Ca に対しても適用可能であると考えられる。本節では、このような観点から ^{40}Ca を用いたラビ振動の数値計算を行い、誘導放出を利用した同位体濃縮に向けた基礎的な観測可能性を検討する。

5.4.1 ラビ振動の数値計算

第 3 章の図 3.1 のエネルギー準位に示す通り、Ca 原子の基底状態 1S_0 からの光学遷移には、複数の励起準位が知られている。それらの遷移には、自然放出率が $\Gamma \simeq 2.7 \times 10^5\text{ s}^{-1}$ の $4s5p$ 状態への遷移 ($\lambda = 272.2\text{ nm}$) が存在する。しかし、この遷移は紫外域に位置しており、レーザー光源の構築や光学系の調整が困難となる。そこで、本節では可視光領域に存在する $^1S_0 \rightarrow ^1P_1$ (422.7 nm) および $^1S_0 \rightarrow ^1D_2$ (457.7 nm) の 2 遷移に着目し、それぞれについてラビ駆動下での時間発展を数値計算により評価する。

数値計算を行う上で、付録式 (A.18)、(A.19)、(A.20) のブロッホ成分を数値計算させ、数値積分には 4 次のルンゲ = クッタ法 (RK4) を用いた。ブロッホ方程式は急峻な時間変化を含んでおり、特に Γ や Ω_0 が大きい条件では時間刻みの選択が結果の安定性に影響するため、ここでは $dt = 1\text{ ps}$ とし、十分細かい刻みで時間発展を追跡した。

表 6.1 のパラメータを用いて計算した各遷移におけるブロッホ方程式の時間発展を図 5.5 および図 5.6 に示す。両者は自然放出率 Γ が大きく異なるため、ラビ駆動下で観測されるダイナミクスも本質的に異なる。

表 5.1: 数値計算に用いた主なパラメータ

遷移	$^1S_0 \rightarrow ^1P_1$	$^1S_0 \rightarrow ^1D_2$
波長: $\lambda[\text{nm}]$	422.8	457.7
自然放出率: $\Gamma [\text{s}^{-1}]$	2.2×10^8	40
ラビ振動数: $\Omega_0 [\text{rad/s}]$	$2\pi \times 2.2 \times 10^8$	$2\pi \times 10^6$

422.8 nm($^1S_0 \rightarrow ^1P_1$) 遷移

422.8 nm($^1S_0 \rightarrow ^1P_1$) 遷移では、自然放出率が $\Gamma \simeq 2.2 \times 10^8 \text{ s}^{-1}$ と大きく、励起・脱励起のコヒーレントな往復運動よりも自発放出に伴う緩和過程が支配的となる。その結果、図 5.5 に示す通り、観測可能なラビ振動は ns スケールで急速に減衰する。この遷移で明瞭なラビ振動を長時間にわたり観測するためには、立ち上がりが ns スケールのパルスレーザーでの駆動や高時間分解能な検出系等が要求される。

図 5.5 において、青色の振動は自然放出による減衰のみを考慮し、ドップラーシフトを無視した場合の結果である。一方、緑色および橙色の振動は、原子の速度分布に起因するドップラーシフトを考慮し、それぞれ低温条件 ($T = 10 \text{ K}$) および高温条件 ($T = 573 \text{ K}$) におけるドップラー平均を行った結果である。これらを比較すると、422.8 nm 遷移ではドップラーシフトを考慮した場合においても、ラビ振動の振幅は低下するものの、573 K 程度の熱速度分布を有する条件下においても振動構造自体は明瞭に確認できる。これは、本遷移が遷移双極子モーメントの大きな強い許容遷移であり、比較的大きなラビ振動数で駆動されるため、ドップラー幅による有効離調がラビ振動数に対して相対的に小さいことに起因する。

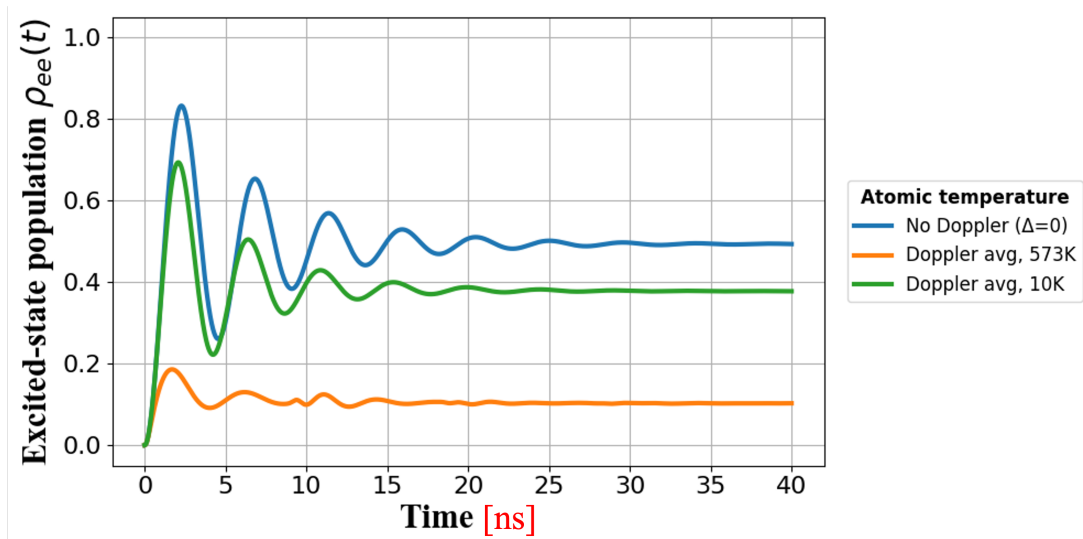


図 5.5: 422.8nm 遷移のラビ振動の数値計算結果

457.7 nm($^1S_0 \rightarrow ^1D_2$) 遷移

一方、457.7 nm($^1S_0 \rightarrow ^1D_2$) 遷移は禁制遷移であり、自然放出率が $\Gamma \simeq 40 \text{ s}^{-1}$ と極めて小さい。このため図 5.6 に示す通り、コヒーレンス時間が長く、十分な相互作用時間が確保できれば減衰の小さいラビ振動が期待できる。しかし禁制遷移であることは同時に遷移双極子モーメントが小さいことを意味し、所望のラビ振動数 Ω を得るには高い電界強度 (すなわち高レーザーパワー) を必要とする。さらに、 Ω が小さい条件では、わずかな離調 δ によっても有効ラビ周波数 $\sqrt{\Omega^2 + \delta^2}$ や振幅が大きく変化するため、原子の速度分布に起因するドップラーシフトの影響が相対的に顕著となる。

その結果、図 5.6 に示すように、 $T = 573 \text{ K}$ や 1 K といった条件ではラビ振動構造は著しく抑制され、有意な振動として識別することが困難となる。一方で、 10 mK 程度まで原子速度を抑制した場合には、振幅は小さいものの、複数周期にわたるラビ振動構造が保持されることが確認できる。

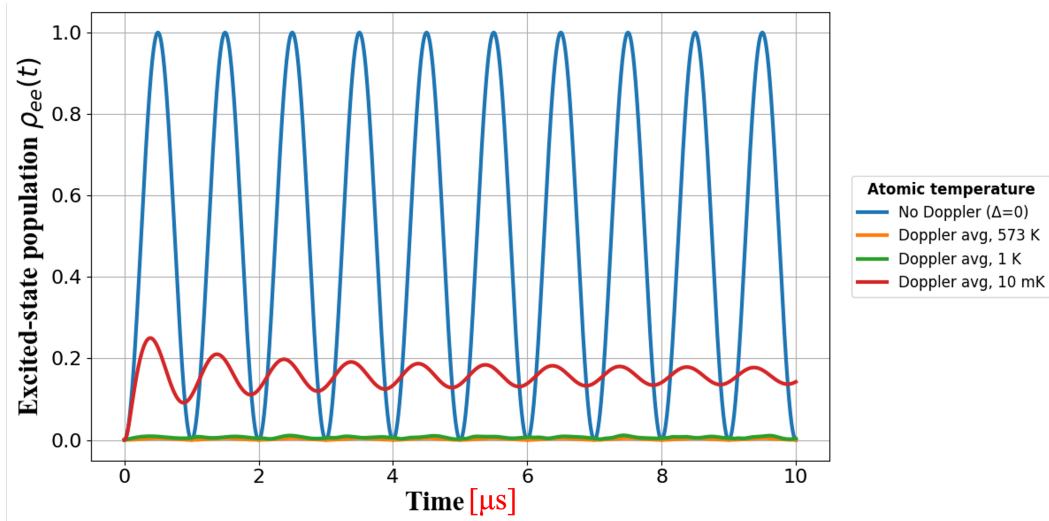


図 5.6: 457.7nm 遷移のラビ振動の数値計算結果

以上より、422.8 nm 遷移では自然放出による急速なデコヒーレンスがラビ振動観測における主要な制限要因となるのに対し、457.7 nm 遷移ではコヒーレンスは比較的長時間にわたり維持される一方で、十分なラビ振動数 Ω_0 の実現および離調の抑制が主要な課題となる。

457.7 nm 遷移においては、速度分布に起因するドップラーシフトの影響が顕著であり、単純に原子温度を低下させる場合には、極めて低温 (~ 10 mK) が要求されるように見える。しかしながら、ドップラーシフトはレーザー進行方向の速度成分によってのみ決定されるため、原子全体を低温化する必要は必ずしもない。すなわち、原子ビームの十分なコリメーションによってレーザー方向の速度分散を抑制することで、ドップラーシフトの影響を低減できる可能性がある。

一方、422.8 nm 遷移ではドップラーシフトの影響は比較的小さいものの、自然放出による減衰が ns スケールで生じるため、本研究で用いる検出系において十分な時間分解能でコヒーレントダイナミクスを追跡することは困難である。

以上の理由から、ラビ振動の検出を目的とする本研究では、観測可能なコヒーレントダイナミクスを優先し、457.7 nm 遷移を用いたラビ駆動を採用する。

5.5 457.7 nm レーザーの特性

ラビ振動駆動に使用予定の 457nm レーザーの外観および内部構造を図 5.7 に示す。このレーザーは外部共振器型半導体レーザー (ECLD) である。

ラビ振動の測定に先立ち、この 457.7 nm レーザーの出力特性および発振波長特性を評価した。駆動電流値に対する出力および波長を、それぞれパワーメーターおよび波長計を用いて測定した。測定結果を図 5.8 に示す。

本研究で用いた半導体レーザー素子の最大許容駆動電流値は 260 mA であり、本測定はその範囲内で行った。図 5.8(a) に示す通り、駆動電流の増加に伴い出力は概ね単調に増加し、最大で約 243.5 mW (駆動電流値: 260 mA) の出力が得られた。また、付録 A 式 (A.34) より、この出力はレーザーのビーム断面をガウシアン分布と仮定し、その $1/e^2$ 半径を

$w_y = 1.0 \text{ mm}$, $w_z = 1.0 \text{ mm}$ とすると、駆動可能なラビ振動数が約 380 kHz と評価できる。ただし、実際の実験系ではミラーやビームスプリッタ、ビューポート等を通ずる際にパワーロスが生じる。

また、図 5.8(b) は駆動電流値に対する発振波長を示している。本測定では 10 mA 刻みでデータを取得しているが、半導体レーザーの発振波長は外部光フィードバックおよび内部縦モードとの競合により微小な揺らぎを伴うことが知られている。 $(^1S_0 \rightarrow ^1D_2)$ 遷移において、 ^{40}Ca の共鳴吸収波長は 457.6737 nm であり、測定された発振波長の分布範囲内に含まれている。このことから駆動電流の調整により共鳴条件を満たす波長での運転が可能であることが確認された。

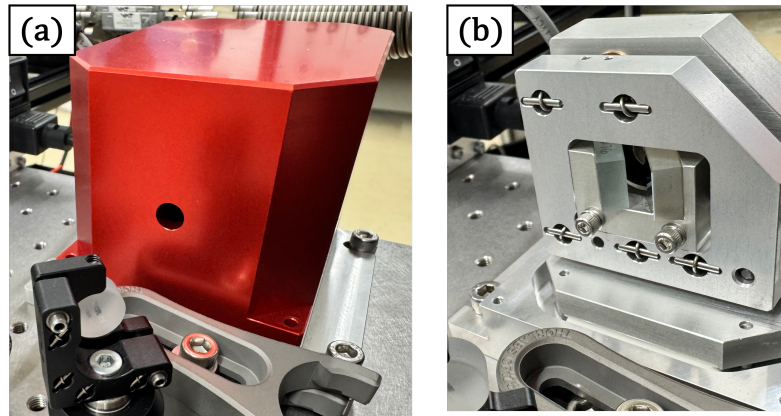


図 5.7: ラビ振動駆動に用いる予定の 457.7 nm 半導体レーザー。(a) レーザー外観。(b) 外装を取り外した内部構造。

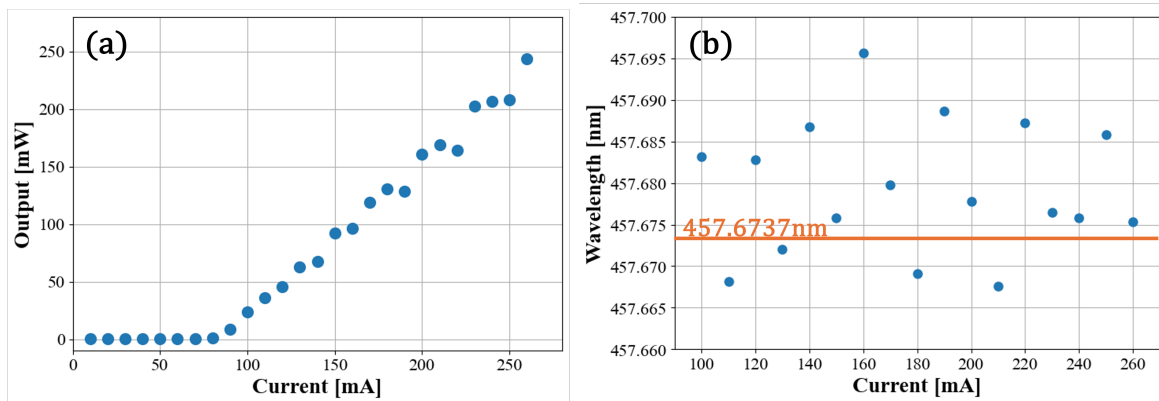


図 5.8: 457nm レーザーの特性。(a) 駆動電流値に対する出力の関係、(b) 駆動電流値に対する発振波長の関係。

第 6 章

ラビ振動の観測に向けて

6.1 Ca 蒸気の作成

ラビ振動を観測するためには、最終的にコリメートされ、指向性を持った Ca 原子ビームを生成する必要がある。その前段階として、本研究ではまず Ca 蒸気の生成を行った。

Ca は酸素や水分と反応しやすく、加熱中に不純物との反応が生じると安定した蒸気生成が困難となる。そのため、加熱時には十分に高い真空度を維持する必要があり、本研究では図 6.1 に示すようなステンレス製の真空フランジを用いて Ca 蒸気の生成を行った。

真空排気にはターボ分子ポンプを用い、真空フランジとは主に NW40 規格のフレキシブルチューブ (長さ 1 m) を介して接続した。また、レーザー光をフランジ内部の Ca 原子ビームに照射し、さらに発生する蛍光を観測できるように、真空フランジには 3 方向にビューポートを取り付けている。

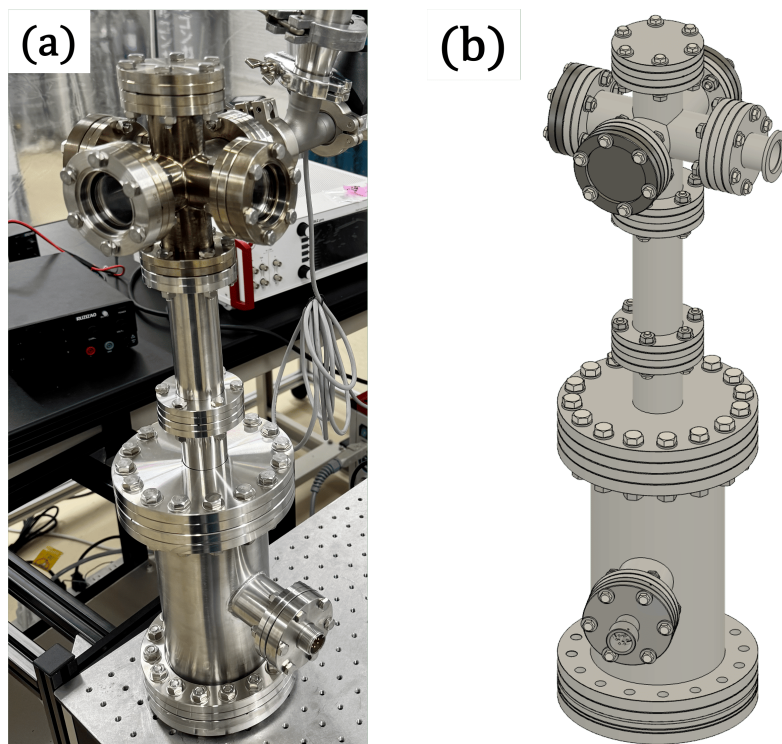


図 6.1: Ca 蒸気生成に用いた真空フランジ。(a) 実際に使用した真空フランジの写真、(b) フランジ構成を示す模式図 (Fusion 360 で作成)

Ca 試料

本研究で用いた Ca 蒸気生成用の金属 Ca 試料を図 6.2 に示す。Ca は酸素や水分と反応しやすく、表面が酸化した状態では加熱時に不純物由来のアウトガスが発生しやすくなる。そのため、表面の酸化が比較的少ない金属 Ca を選択し、5~6 粒 (約 0.2 g) を Ca 蒸気源として用いた。

Ca 試料を封入している瓶は大気中で保管しており、真空フランジへの封入作業も大気中で行っている。そのため、試料表面は作業過程において多少の酸化物および水酸化物が生成されていると考えられる。しかし、加熱時にはこれら表面由来の成分が主としてアウトガスとして放出され、十分な加熱および排気を行った後の定常状態においては、Ca 蒸気生成に対する影響は小さいと考えられる。



図 6.2: 金属 Ca 試料。(a) 金属 Ca 試料封入瓶、(b) 粒状の金属 Ca

Ca 蒸気を作成する上で、試料からのアウトガス成分を評価するため、昇温質量分析 (Temperature-programmed desorption: TDS) を実施した。測定は大阪大学豊中キャンパスの太陽エネルギー科学研究センター [12] にて行われ、試料を昇温しながら放出されるガス成分を質量分析計により測定した。本研究では、測定された複数のアウトガス成分のうち、主要な成分を抽出し、図 6.3 に示す。ここで、 M/z は質量分析におけるイオンの質量数 M と電荷数 z の比を表している。

図 6.3 より、多くの質量数においてアウトガス強度が二段階で増加する挙動が確認できる。低温側 (約 50–150 °C) での第一段階の信号強度の増加は、試料表面に吸着した水分や酸素などの表面由来成分の脱離によるものと考えられる。一方、高温側 (約 200–300 °C) での第二段階の信号強度の増加は、試料内部に起因する化学反応および熱分解過程によるアウトガスであると解釈できる。

特に $M/z = 18(\text{H}_2\text{O})$ 、 $2(\text{H}_2)$ 、 $16(\text{O})$ 、 $32(\text{O}_2)$ の増加は、Ca 表面に形成された水酸化物の熱分解反応



および関連する反応によるものと考えられる。これらの反応は CaCO_3 の熱分解に比べて低温で進行することが知られており、顕著なアウトガスとして観測されたと考えられる。

一方、 $M/z = 44(\text{CO}_2)$ は 300°C 以上においても減少に転じず、高温側で引き続き増加する傾向が確認された。これは Ca 試料中に含まれる炭酸カルシウムの熱分解反応



に由来すると考えられる。 CaCO_3 の主な熱分解は約 $600\text{--}900^\circ\text{C}$ の高温域であるが、 $300\text{--}400^\circ\text{C}$ 程度においても部分的な分解が進行し、 CO_2 の放出が生じている可能性がある。

さらに、高温側の第二段階においては Ca に起因する信号強度の増加も確認されており、このことから第二段階のアウトガスは単なる表面脱離ではなく、試料内部に由来する熱分解反応が支配的であることが示唆される。以上の結果より、Ca 試料の加熱過程においては、低温域では表面由来アウトガス、高温域では試料内部由来の熱分解反応がアウトガス挙動を支配していることが明らかとなった。

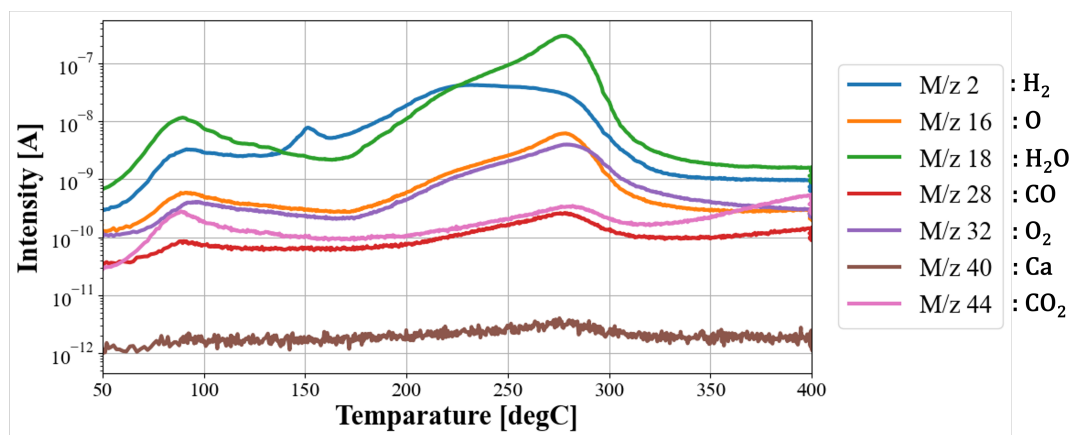


図 6.3: 昇温質量分析の結果

Ca 加熱るつぼ

Ca の加熱には、図 6.4 に示するつぼを用いた。るつぼには耐熱性および化学的安定性に優れ、高温加熱時のアウトガスが少ないアルミナ製のものを使用した。加熱にはタングステン製ヒーターを用い、ヒーターに電流を流すことで温度を上昇させた。

このため、真空中で電流供給が可能となるよう、図 6.1 に示す通り電流導入用フィードスルーを真空フランジに取り付けている。

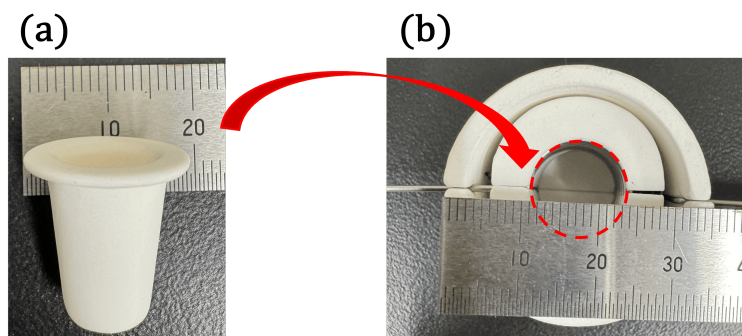


図 6.4: るつぼと加熱ヒーター。(a) アルミナ製るつぼ、(b) タングステンヒーターおよびアルミナ製断熱材

温度測定

温度の測定は熱電対を用いて行った。図 6.5(a) に示すようにるつぼの淵にガラス被覆を有する K 型熱電対の先端をアロンセラミックで固定した。熱電対はフィードスルーを介して大気側に引き出し、図 6.5(b) に示す K 型熱電対温度計を用いて温度のモニタリングを行った。

Ca 試料そのものの温度測定は困難であるため、本研究では Ca 近傍におけるるつぼの代表温度を測定している。測定においては、Ca 蒸気生成条件の再現性確保を目的としており、絶対温度の精密測定よりも相対的な温度変化の把握を重視した。

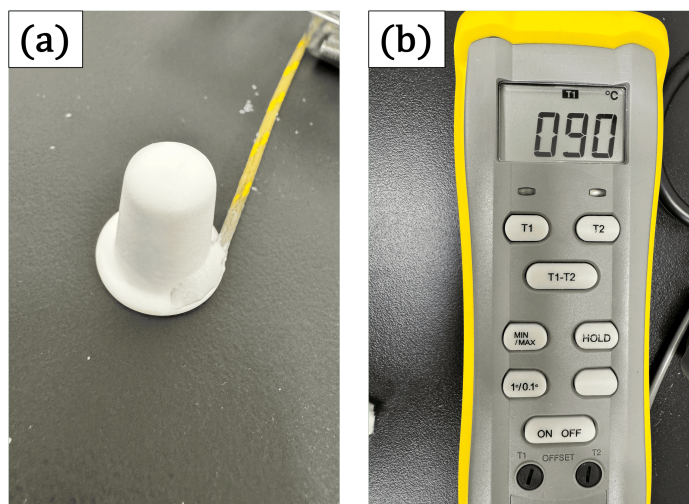


図 6.5: 温度測定方法。(a) るつぼに固定した熱電対、(b) 熱電対温度計

図 6.6 は、タングステンヒーターへの供給電力と測定温度の関係を、ヒーター印加電圧ごとに示したものである。本実験では印加電圧を段階的に設定し、それに応じてヒーターに流れる電流および投入電力を制御することで Ca 試料の加熱を行った。

各電圧条件下では、投入電力の増加に伴い温度が単調に上昇しており、同一運転条件下で安定した昇温が得られていることが確認できる。

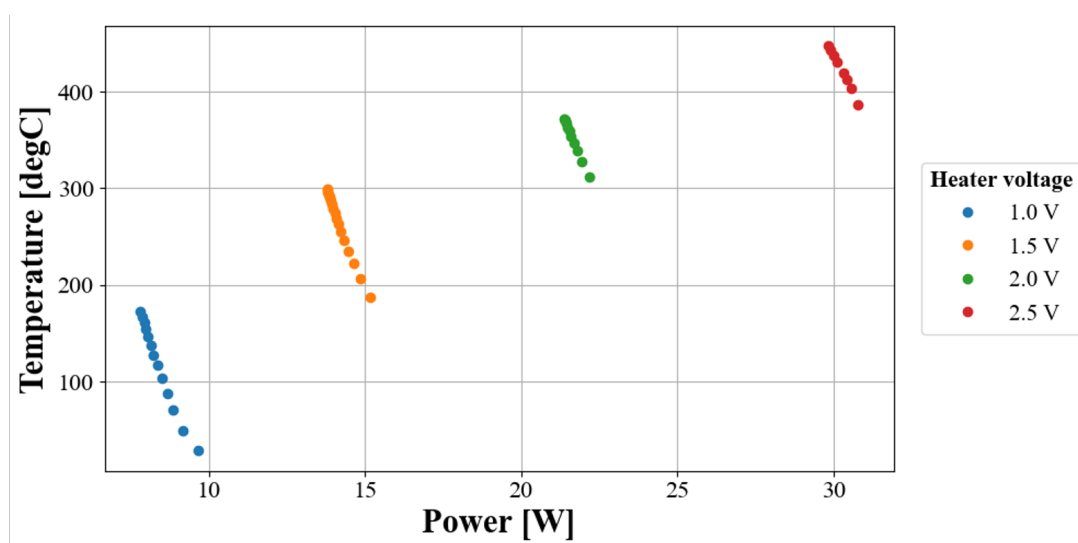


図 6.6: ヒーター印加電圧ごとに示した、供給電力と測定温度の関係。

6.1.1 Ca 蛍光観測セットアップ

Ca 蒸気が生成されたことを確認するため、Ca のエネルギー準位 (図 3.1) において遷移確率が高く、寿命の短い $4s^2\ ^1S_0 \rightarrow 4s4p\ ^1P_1$ 遷移 (422.8 nm) を用いた蛍光観測を行った。蛍光観測に用いた光学系のセットアップを図 6.7 に示す。422.8 nm レーザーは 2 枚のミラーで反射させた後、真空フランジのビューポートを通して内部に照射した。2 枚のミラーを用いることで、レーザー光の高さおよび入射位置の微調整を行っている。

また、レーザー出力直後にはビームスプリッターを設置し、レーザー光の一部を波長計に入力することで、波長のモニタリングを行った。

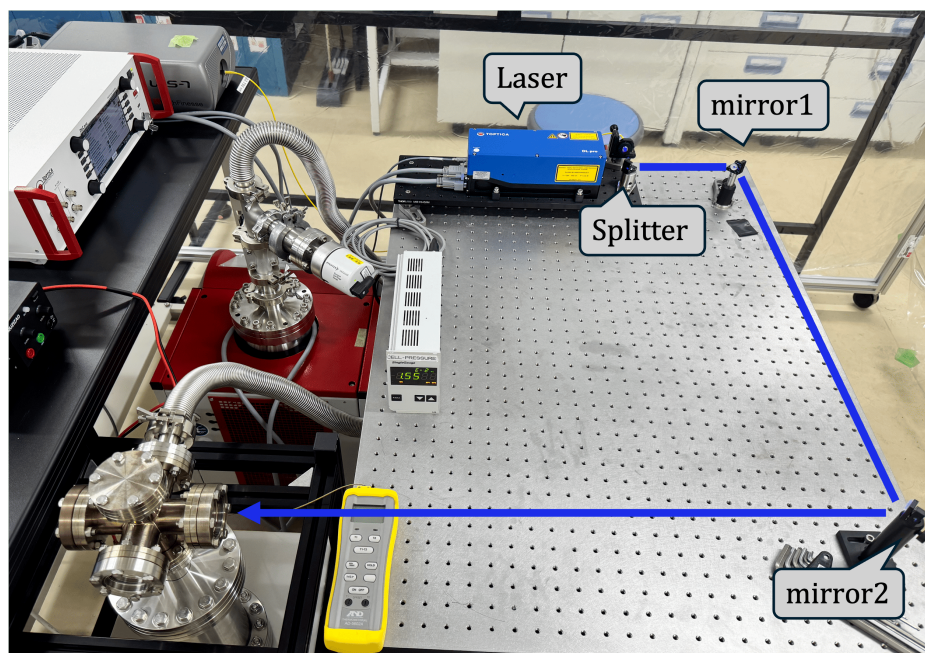


図 6.7: 蛍光観測セットアップ

6.1.2 観測された Ca 蛍光

図 6.8 は図 6.7 のセットアップにて観測された Ca 蛍光の様子を示したものである。Ca 原子からの蛍光が確認されたことから、加熱により Ca 蒸気が生成されていることが確認できる。図 6.8(a) は、照射レーザーの波長を ^{40}Ca の共鳴吸収波長に近い 422.79170 nm に設定した場合であり、図 6.8(b) は 422.79000 nm に設定した場合である。(a) と比較して (b) では蛍光強度が低下していることが目視で確認できる。

この蛍光強度低下は、原子の熱運動に起因するドップラー効果により説明できる。レーザー進行方向の速度成分 v_{\parallel} を持つ原子が見る周波数のずれ (デチューニング) $\Delta\nu$ は

$$\Delta\nu \simeq -\frac{v_{\parallel}}{c}\nu_0 \quad (6.3)$$

で与えられる。熱平衡にある原子の v_{\parallel} 分布は一次元 Maxwell 分布に従い、 $\Delta\nu$ の分布は Gaussian 形状となる。したがって、観測される蛍光強度は (背景成分 I_{bg} を含めて)

$$I(\nu) = I_{\text{bg}} + A \exp\left(-\frac{(\nu - \nu_0)^2}{2\sigma_{\nu}^2}\right) \quad (6.4)$$

と近似できる。ここで Gaussian 幅 σ_ν は

$$\sigma_\nu = \frac{\nu_0}{c} \sqrt{\frac{k_B T}{m}} \quad (6.5)$$

であり、 T は原子温度、 m は Ca 原子質量である。周波数の代わりに波長で表す場合、 $|\Delta\lambda| \ll \lambda_0$ の範囲で以下のように書ける。

$$I(\lambda) = I_{bg} + A \exp\left(-\frac{(\lambda - \lambda_0)^2}{2\sigma_\lambda^2}\right), \quad \sigma_\lambda = \frac{\lambda_0}{c} \sqrt{\frac{k_B T}{m}} \quad (6.6)$$

Ca 蒸気が加熱温度の 500°C で熱運動する場合、 641 m/s の平均速度を持つので、図 6.9 に示す通り、 $\lambda_0 = 422.79170\text{ nm}$ から $\lambda = 422.79000\text{ nm}$ へ $\Delta\lambda = -1.70\text{ pm}$ の離調がある。この離調により共鳴条件を満たす原子の割合が減少するため、図 6.8(b) において蛍光が弱くなったと解釈できる。

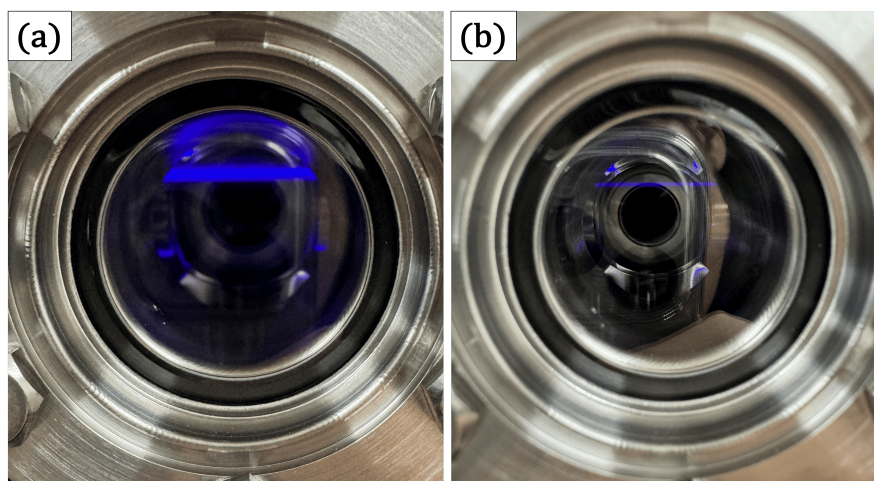


図 6.8: レーザーを写真右側から照射した際に観測された Ca 蛍光。(a) 側定温度: 476°C 、レーザー波長: 422.79170 nm 、(b) 測定温度: 482°C 、レーザー波長: 422.79000 nm

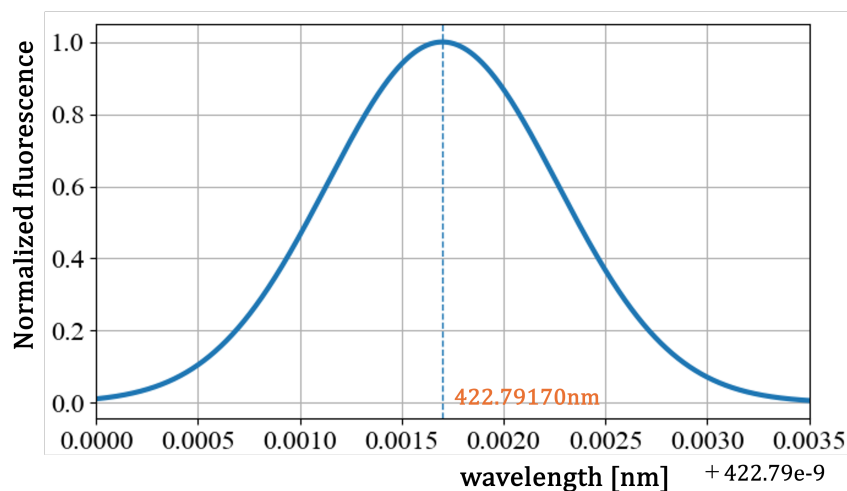


図 6.9: Ca 蒸気が 500°C で熱運動する際の蛍光強度の波長依存性グラフ

6.2 Ca ビームのコリメート

457nm 遷移でのラビ振動の観測に向けて、レーザー方向に対して 3 mrad 以下の Ca ビームのコリメートが要求される。この要求を満たすため、図 6.10 に示すようなコリメーターの設計を行った。

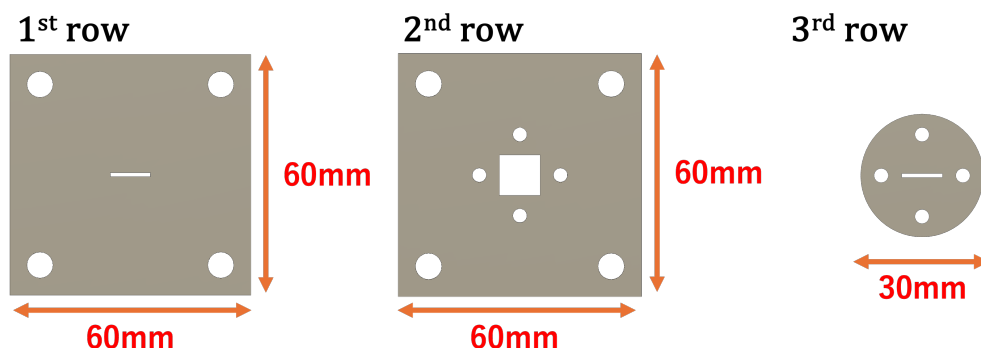


図 6.10: コリメーター部品

コリメーターは 1st row、2nd row、3rd row から成り立っており、各段のスリット形状はそれぞれ 1st row : 1 mm × 10 mm、2nd row : 10 mm × 10 mm、3rd row : 1 mm × 10 mm とした。コリメーションはレーザー進行方向の角度成分に対してのみ要求されるため、1st row、3rd row ではレーザー進行方向に垂直な方向のスリット幅を 10 mm と広く取り、Ca 原子の付着による閉塞を抑制する設計とした。一方、2nd row は主にネジ規格の変換を目的とした構造であり、スリット開口を 10mm×10mm と広く取っている。1st row と 3rd row の間隔は 300 mm であり、レーザー進行方向に対する有効 slit 幅が 1 mm であることからコリメート可能な最大角度は

$$\theta_{\max} = \sin^{-1}\left(\frac{1}{300}\right) \simeq 3.33 \text{ mrad} \quad (6.7)$$

と評価される。Ca 原子の 500 °C における熱速度は理想気体近似の下で約 641 m/s であるため、このコリメーターによりレーザー進行方向 (波数ベクトル方向) の速度成分は

$$v_{\parallel, \max} = v \sin \theta_{\max} \simeq 2.14 \text{ m/s} \quad (6.8)$$

まで抑制される。この速度成分に起因するドップラーシフトは

$$\Delta\nu = \frac{v_{\parallel}}{\lambda} \quad (6.9)$$

で与えられるため、波長 $\lambda = 422.8 \text{ nm}$ のレーザーに対する最大ドップラーシフトは

$$\Delta\nu_{\max} = \frac{v_{\parallel, \max}}{\lambda} \simeq 5.06 \text{ MHz} \quad (6.10)$$

と評価される。

ここで、同幅のスリットを 2 枚用いたコリメーションでは、許容角度に対する透過確率はスリット開口の重なりにより三角形分布となる。したがって、レーザー進行方向速度成分およびドップラーシフトの分布も三角形分布で近似できる。

三角形分布においては、半値となる点が最大値の半分に対応するため、ドップラー分布の半値全幅 (FWHM) は最大ドップラーシフトと一致し、

$$\Delta\nu_{\text{FWHM}} \simeq \Delta\nu_{\text{max}} \simeq 5.06 \text{ MHz} \quad (6.11)$$

と評価される。

コリメーター全体の構成を図 6.11 に示す。底面には ICF152 規格のブランクフランジを用いており、当該フランジには M6 のタップ穴を 4 箇所設けることで、コリメーターを真空チャンバーに対して再現性良く固定できる構造としている。

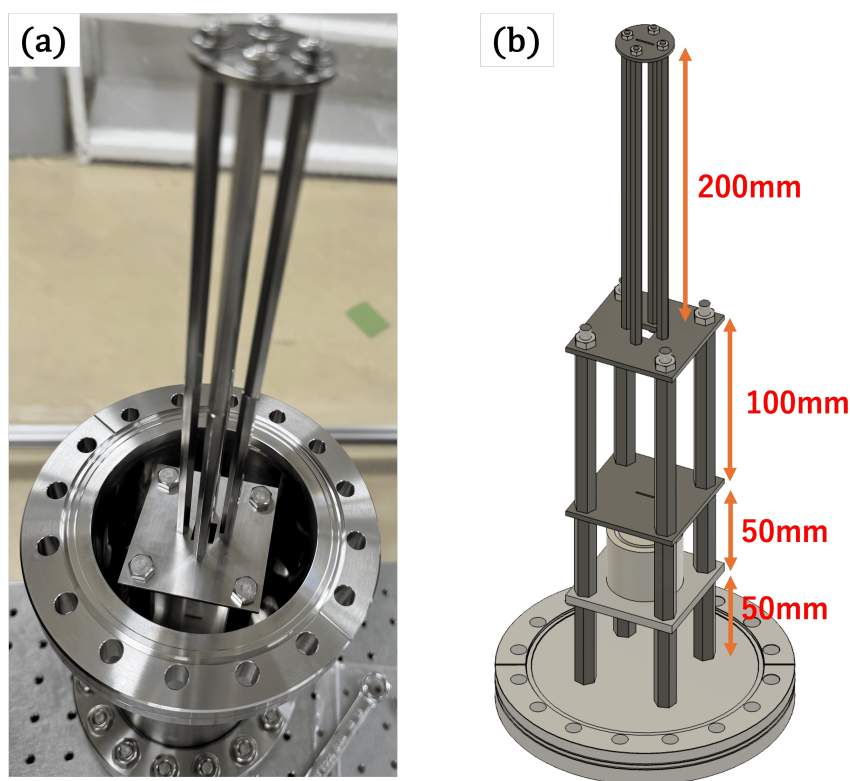


図 6.11: 組み立て後のコリメーター。(a) 実際のコリメーターの写真、(b) コリメーター構成を示す模式図 (Fusion 360 で作成)

6.2.1 コリメートされた Ca 原子ビームの蛍光

図 6.7 に示す測定セットアップを用いて、図 6.11 のコリメーターによりコリメートされた Ca 原子ビームの蛍光の様子を図 6.12 に示す。測定時の真空度はイオンゲージにより $3.74 \times 10^{-3} \text{ Pa}$ と測定され、Ca 加熱温度 (熱電対による測定温度) は 504°C であった。

図 6.12 に示す写真より、コリメーションが有効に機能している中心領域において強い蛍光が観測される一方、レーザー進行方向に沿って弱い蛍光も確認できる。このことから、Ca 原子は完全に単一のビームに集束しているわけではなく、空間的にある程度広がりを持って分布していることが分かる。この周辺部の蛍光は、Ca 原子が飛行中に主として残留ガス (アウトガス) との衝突によって散乱され、一部は Ca 原子同士の衝突も受けることで、コリメーション条件から外れた成分がレーザーと相互作用した結果であると考えられる。

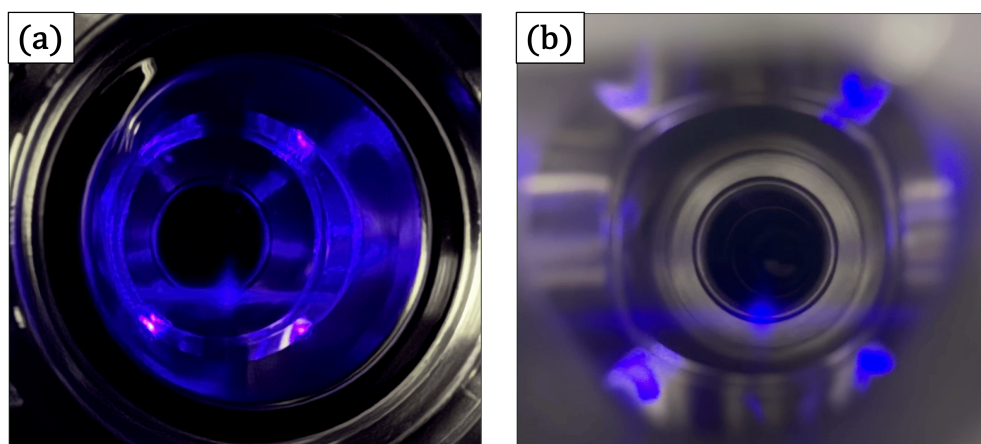


図 6.12: コリメートされた Ca 原子ビームの蛍光。(a) は暗室での Ca 蛍光の様子、(b) は明室での Ca 蛍光の様子である。測定温度:504 °C, レーザー波長:422.79168 nm, 真空度: 3.74×10^{-3} Pa

6.3 Ca 蛍光強度測定

図 6.13 に示すセットアップを用いて、コリメートされた Ca 原子ビームからの蛍光強度測定を行った。蛍光の検出には光電子増倍管 (PMT) を用い、集光レンズを介して蛍光を PMT に導入する構成とした。また、PMT の光電面を暗幕で覆い、中央部に設けた開口を通して集光された蛍光のみが入射するようにすることで、周囲光の影響を抑制した。さらに、外部光による背景信号を低減するため測定は夜間に実施した。

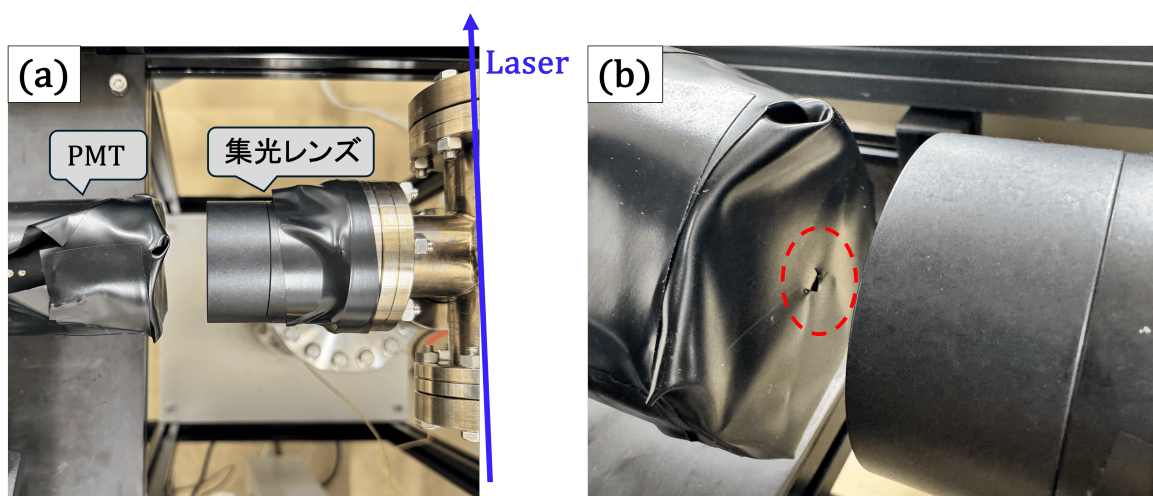


図 6.13: Ca 蛍光強度測定セットアップ。(a) は集光レンズと PMT のセットアップ、(b) は PMT 光電面に暗幕を被せ、集光された蛍光を

6.3.1 波長依存性

入射レーザーの波長を共鳴周波数近傍で段階的に変化させ、各波長における蛍光強度を PMT で測定した。レーザー波長は波長計により同時に記録し、測定された蛍光信号と対応付けることで、蛍光強度の波長依存性を取得した。

測定された蛍光強度の波長依存性を図 6.14 に示す。蛍光強度の波長依存性は、原子の熱運動に起因するドップラー幅と、励起遷移の有限寿命に由来する自然幅の両方の影響を受ける。

Ca 原子ビームは有限温度を有しており、原子速度分布は近似的に Maxwell 分布に従う。このため、ドップラー効果によるスペクトル線幅は Gaussian 形状で表される。一方、 $^1S_0-^1P_1$ (422.79 nm) 遷移の自然幅は約 35MHz と有限であり、さらにレーザー線幅およびパワーロードニング (強いレーザー強度により遷移が飽和し、有効線幅が増大する効果) の寄与を含めると、これらの効果は Lorentzian 形状として扱うことができる。

以上より、実験で観測される蛍光スペクトルは Gauss 成分 (式 (6.13)) と Lorentz 成分 (式 (6.14)) の畳み込みで表される Voigt 関数 (式 (6.12)) によって記述できると考えられる。本研究ではこの Voigt 関数を用いて蛍光強度スペクトルのフィッティングを行った。

$$V(\nu) = \int_{-\infty}^{\infty} G(\nu') L(\nu - \nu') d\nu', \quad (6.12)$$

$$G(\nu) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} \exp\left(-\frac{(\nu - \nu_0)^2}{2\sigma^2}\right), \quad (6.13)$$

$$L(\nu) = \frac{1}{\pi} \frac{\gamma}{(\nu - \nu_0)^2 + \gamma^2} \quad (6.14)$$

フィッティングによって得られたパラメータを表 6.1 に示す。フィッティング結果の Gaussian 幅 $\sigma = 0.352$ MHz から、ドップラー幅の半値全幅 (FWHM) は $\Delta\nu_D = 2\sqrt{2\ln 2}\sigma \simeq 0.83$ MHz と評価される。

この値は、コリメーター構造から幾何学的に算出されるドップラー幅 (式 (6.11)) よりも小さい結果となっている。これは、幾何学的評価が許容角度から得られる最大ドップラーシフトを与えるのに対し、Voigt フィットから得られる Gaussian 幅は実効的にスペクトル中心付近に寄与する成分を反映するためである。

また、本測定では Lorentz 成分の幅が Gauss 成分に比べて十分大きく、蛍光スペクトルは Lorentz 成分に強く支配されている。このため、Gauss 成分の寄与は相対的に小さく、ドップラー幅の評価には一定の不確かさを含むと考えられる。

表 6.1: Voigt 関数による蛍光スペクトルのフィッティング結果

パラメータ	値 [nm]	値 [MHz]	備考
Gaussian 幅: σ	2.10×10^{-7}	0.352	ドップラー幅
Lorentzian 幅: γ	4.43×10^{-5}	74.3	自然幅・線幅

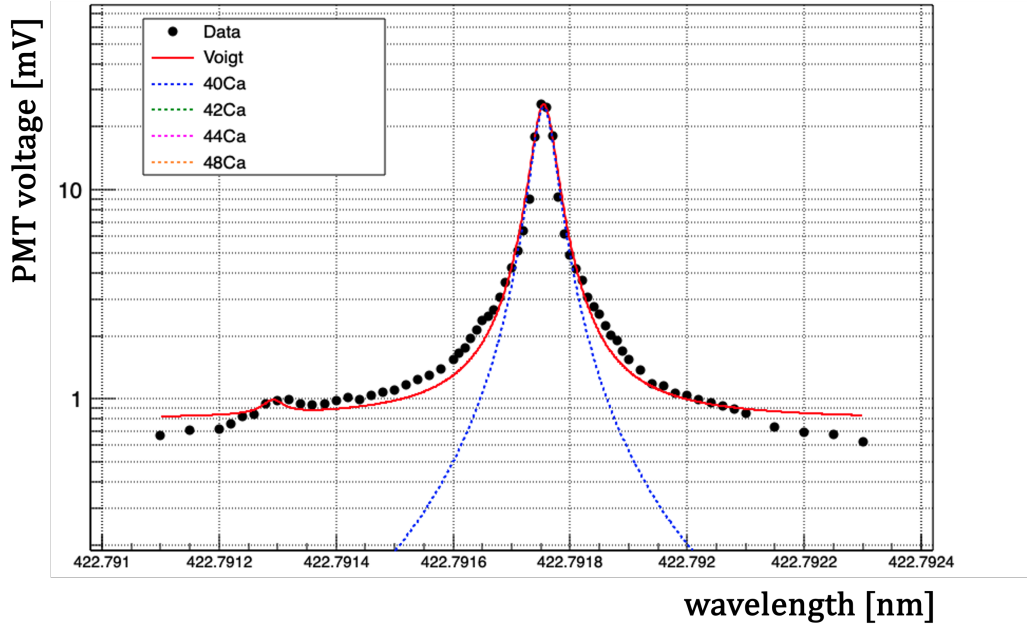


図 6.14: 蛍光強度の波長依存性。黒点は測定データ、赤線は Voigt 関数によるフィット結果を示す。青破線およびピンク波線はそれぞれ ^{40}Ca および ^{44}Ca の寄与成分を表す。縦軸は PMT 出力電圧 (蛍光強度に比例する量) であり、対数表示としている。横軸はレーザー波長 [nm] である。

6.3.2 真空度依存性

Ca 加熱用の真空フランジは、バルブを介してフレキシブルチューブと接続されている。本装置では、このバルブの開閉操作によりターボポンプの排気速度を制御することが可能である。

本研究では、真空度と蛍光強度の関係を明らかにするため、一度バルブを閉じることで意図的に真空度を悪化させ、その後バルブを徐々に開くことで真空度が良くなる過程において、蛍光強度の変化を測定した。測定された蛍光強度の真空度依存性を図 6.14 に示す。

Ca 原子ビームの蛍光強度は、観測領域に到達しレーザーと相互作用できる原子数に比例する。真空度が悪化すると、残留ガス分子との衝突により Ca 原子が散乱され、コリメーション条件や共鳴条件を満たさなくなるため、観測される蛍光強度は低下する。

残留ガスの数密度を n 、Ca と残留ガス分子の有効衝突断面積を σ 、原子がコリメーターから観測領域まで進む有効飛行長を L_{eff} とする。このとき、飛行中に衝突を受けない確率 P_{surv} (生存確率) は Poisson 過程により

$$P_{\text{surv}} = \exp(-n\sigma L_{\text{eff}}) \quad (6.15)$$

で与えられる。理想気体近似の下で n は圧力 P と

$$n = \frac{P}{k_{\text{B}}T_{\text{gas}}} \quad (6.16)$$

の関係にあるため、

$$P_{\text{surv}} = \exp\left(-\frac{\sigma L_{\text{eff}}}{k_{\text{B}}T_{\text{gas}}}P\right) \equiv \exp(-\alpha P) \quad (6.17)$$

と書ける。ここで T_{gas} は残留ガスの温度であり、

$$\alpha \equiv \frac{\sigma L_{\text{eff}}}{k_{\text{B}} T_{\text{gas}}} \quad (6.18)$$

は圧力に対する減衰係数である。

したがって、蛍光強度 $I(P)$ は、衝突による損失を受ける Ca 成分に比例する項と、暗電流・散乱光など圧力に依存しにくい背景成分 I_{BG} の和として、

$$I(P) = I_{\text{BG}} + I_0 \exp(-\alpha P) \quad (6.19)$$

とモデル化できる。

図 6.15 に示す測定結果は、圧力の増加に伴い蛍光強度が指数関数的に減少し、低圧側で一定値へ飽和する挙動を示している。これは式 (6.19) が表す通り、残留ガス衝突が支配的な領域から、衝突損失が無視できる領域へ遷移することで説明できる。

本測定では高温動作により装置内壁や導入部からのアウトガスが増加し得る。真空度の悪化要因としてはアウトガスの増加に加え微小リークも考えられるが、いずれの場合も残留ガス数密度 n の増加として式 (6.19) に反映され、観測される蛍光強度の低下を導く。

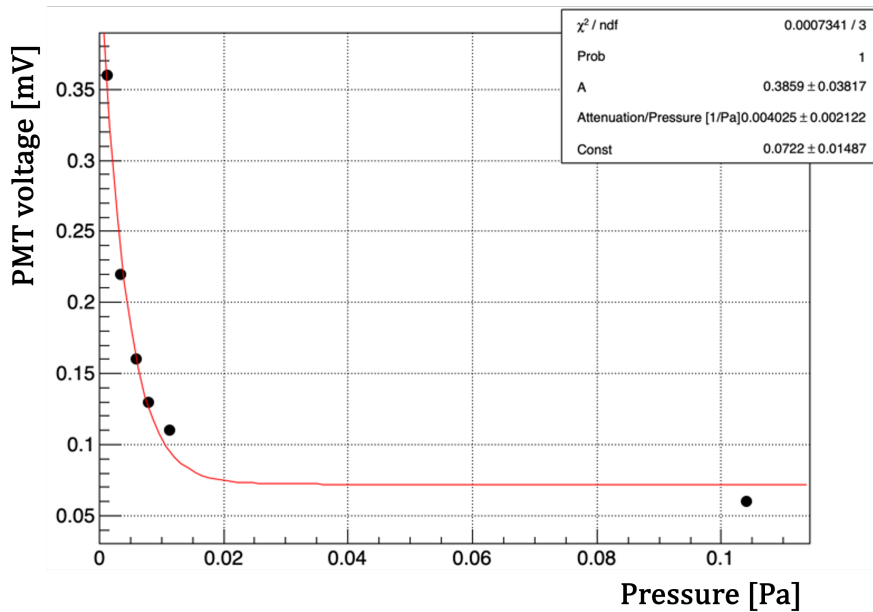


図 6.15: 蛍光強度の真空度依存性

6.4 ラビ振動観測に向けて

節 5.4.1 で述べたとおり、ラビ駆動には寿命が長い $457.7 \text{ nm} (^1\text{S}_0 \rightarrow ^1\text{D}_2)$ 遷移を採用する。

Ca 原子の熱運動を理想気体として評価すると、 $500 \text{ }^\circ\text{C}$ における平均速度は 641 m/s となり、原子は 1 mm を約 $1.56 \text{ } \mu\text{s}$ で通過する。一方、本研究で想定する $300 \text{ kHz} \sim 1 \text{ MHz}$ のラビ振動数では、ラビ振動の周期は約 $1 \sim 3.3 \text{ } \mu\text{s}$ であり、原子の移動時間と同程度の時間スケールとなる。このため、図 6.16 に示すように、 457.7 nm レーザーとの相互作用領域内において、Ca 原子は空間的に進行しながら $^1\text{D}_2$ 状態への遷移と基底状態への戻りを繰り返す。その結

果、 1D_2 状態および 1S_0 基底状態に存在する原子数は、レーザー進行方向に沿って空間的な分布を持つことが期待される。

また、 1S_0 基底状態に存在する Ca 原子数は、自然放出率の高い 422.8 nm ($^1S_0 \rightarrow ^1P_1$) 遷移を用いることで蛍光強度として検出することができる。 422.8 nm レーザーを Ca 原子ビーム位置において十分に集光し、照射位置を変化させながら蛍光強度を測定することで、ラビ振動の空間的構造を観測することを目指す。

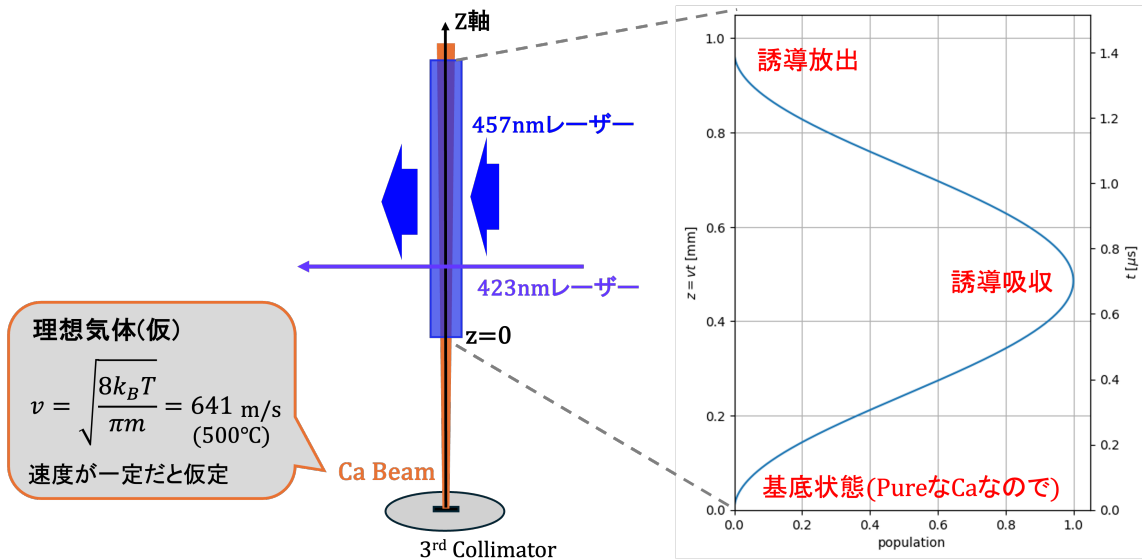


図 6.16: ラビ振動観測の概念図。457.7 nm レーザーとの相互作用領域を通過する Ca 原子は、移動しながらラビ振動を起こし、励起状態および基底状態の空間分布を形成する。右図はラビ振動数 600 kHz を仮定した数値計算結果であり、誘導吸収および誘導放出が 2 周期分現れている様子を示す。基底状態に存在する原子数は、 422.8 nm 遷移を用いた蛍光検出によって測定される。

しかしながら、理想的なラビ振動による空間分布は、以下に示す複数の要因によって崩れる可能性がある。

- 寿命 (2.5 msec) による自然放出
- ガウシアン強度分布を持つレーザー光によるラビ振動数の空間的不均一性
- レーザー進行方向の速度分布によるドップラー離調
- Ca 蒸気ビームの進行方向の速度広がり

以下では、これら 4 つの要因をそれぞれ順に考慮した数値計算を行い、すべての要因を考慮した場合においても、 1D_2 状態へ遷移する Ca 原子数が空間的な分布構造を保持するかどうかを評価する。以降の評価では、実験で想定される条件に基づき、ラビ周波数 (ビーム中心の Ω_0) を定めるための基準パラメータを以下のように設定する。

これらの基準条件の下で得られるラビ周波数は、付録 A 式 (??) より、377 kHz (周期: $2.65\text{ }\mu\text{s}$) と計算される。以降では自然放出、レーザー強度の空間的不均一性、ドップラー離調、および進行方向速度分布を順に導入し、空間分布および観測されるラビ振動コントラストへの影響を評価する。

表 6.2: 数値計算に用いた基準パラメータ

パラメータ	値
レーザーパワー: P	180 mW
$1/e^2$ 直径 (長辺): $2w_z$	1.5 mm
$1/e^2$ 直径 (短辺): $2w_y$	0.5 mm
Ca 蒸気温度: T_{Ca}	500 °C
Ca 原子ビーム最大発散角: θ_{max}	3.5 mrad

6.4.1 自然放出による減衰

まず、 1D_2 状態からの自然放出による減衰 (自然放出率: $40 [s^{-1}]$) のみを考慮した数値計算を行う。ラビ振動数は高さ方向においてピーク値である 377 kHz がおよそ 0~3.2 mm の Z 方向の空間において一様に分布していると仮定し、Ca 原子は 500 °C における平均速度 641 m/s で一定の速度であるとした。また、レーザー照射方向の速度分布はないものとし、ドップラー離調による影響も無視して数値計算を行った。

数値計算の結果を図 6.17 に示す。(a) はラビ振動数の空間分布、(b) はその条件下で得られた遷移状態の空間分布である。

457.7nm レーザーとの相互作用は数 μs の時間スケールであり、 1D_2 状態の自然放出寿命 (2.5 ms) と比較して十分に短いことから、自然放出による遷移状態分布の減衰はほとんど確認されないことがわかる。また、誘導放出・誘導吸収は周期 2.65 μs で起こっており、これはラビ振動数 377 kHz から計算される周期と一致していることが確認できる。

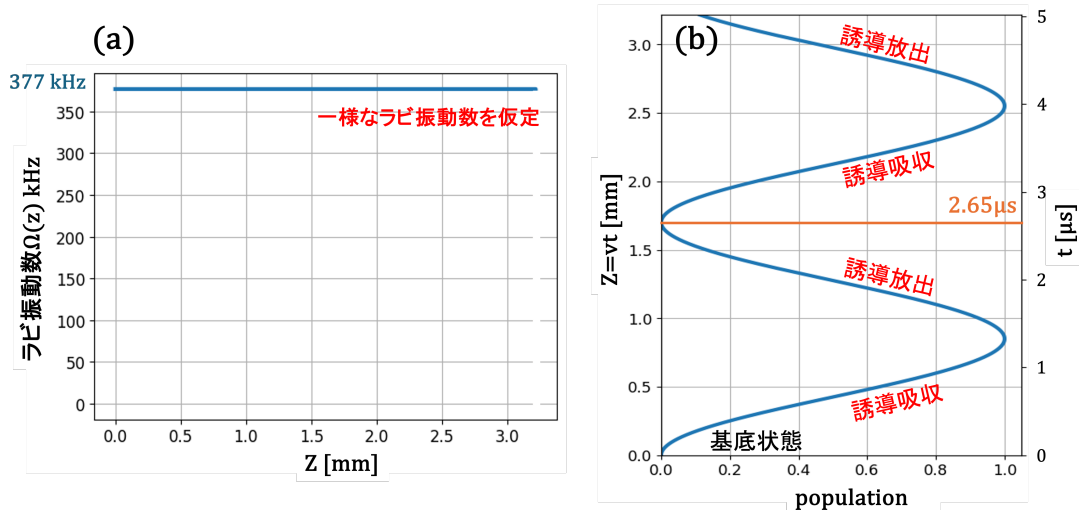


図 6.17: 自然放出による減衰を考慮した際の数値計算結果。(a) は一様に分布するラビ振動数、(b) はその条件下で得られた 1D_2 遷移状態の空間分布。

6.4.2 レーザー強度の空間的不均一性の影響

前節ではラビ振動数が空間的に一様であると仮定したが、実際には付録 A で示した通り、レーザー強度はガウシアン分布を持つ。また、ラビ振動数は電場振幅に比例し、電場振幅はレーザー強度の平方根に比例するため、ラビ振動数も式 (A.34) で表される空間分布を持つ。本説では、このラビ振動数の空間的不均一性を考慮した数値計算を行う。

結果を図 6.18 に示す。(a) はラビ振動数の空間分布、(b) はその条件下で得られた遷移状態の空間分布である。

ラビ振動数が一様に分布している場合と比較して、誘導吸収による遷移確率の立ち上がり緩やかになり、また誘導放出による遷移確率の立ち下がりも完全には起こらないことが確認できる。これは、原子が位置によって異なるラビ振動数の影響を受けるため、ラビ振動の位相が空間的にばらつくことに起因する。

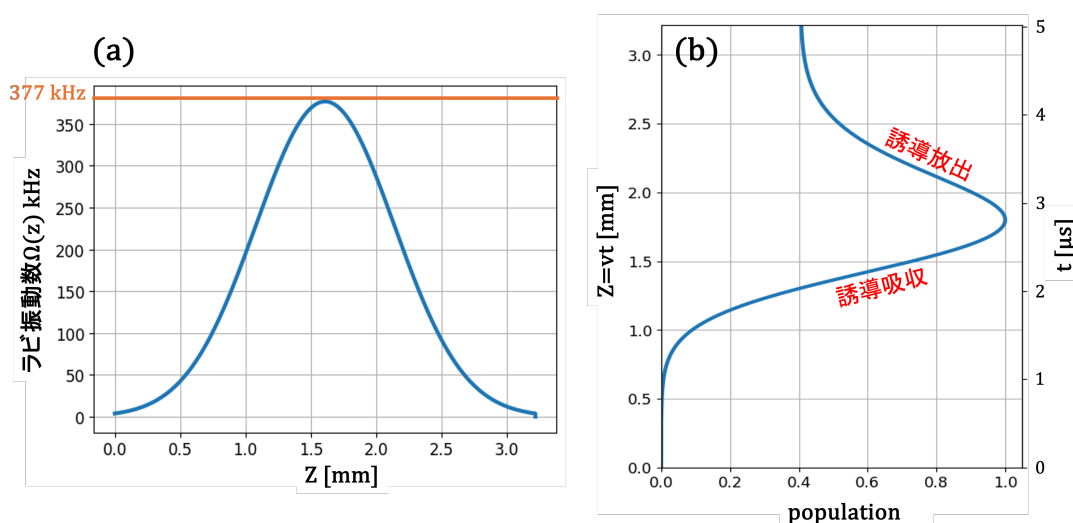


図 6.18: ガウシアンビームを追加で考慮した際の数値計算結果。(a) はガウシアンビームによるラビ振動数の空間分布、(b) はその条件下で得られた $^1\text{D}_2$ 遷移状態の空間分布。

6.4.3 ドップラー離調によるデコヒーレンス

次に、ドップラー離調によるデコヒーレンスの影響を考慮する。使用しているコリメーターは式 (6.7) より、最大発散角が $\theta_{\text{max}} \simeq 3.33 \text{ mrad}$ と評価される。Ca 原子ビームの発散は矩形分布と仮定し、スリット通過後の発散角 θ が $(-\theta_{\text{max}}, \theta_{\text{max}})$ の範囲で一様に分布するとした。この条件の下で、 $N = 100,000$ のモンテカルロ計算を行い、ドップラー離調による離調を評価した。離調 Δf は以下の関係式を用いて計算した。

$$\delta/2\pi [\text{Hz}] = \Delta f = \frac{v}{\lambda} \sin \theta \simeq \frac{v}{\lambda} \theta \quad (6.20)$$

数値計算の結果を図 6.19 に示す。(a) は 100,000 事象に対する離調分布、(b) はその離調を考慮した場合の遷移状態の空間分布である。

離調はラビ振動の式 (A.24) において、振幅と位相の両方に影響を与える。本研究の条件で

は、ラビ振動数 $\Omega_0 = 377$ kHz に対して離調の寄与が支配的となるため、ドップラー離調によるデコヒーレンスが顕著に現れることがわかる。

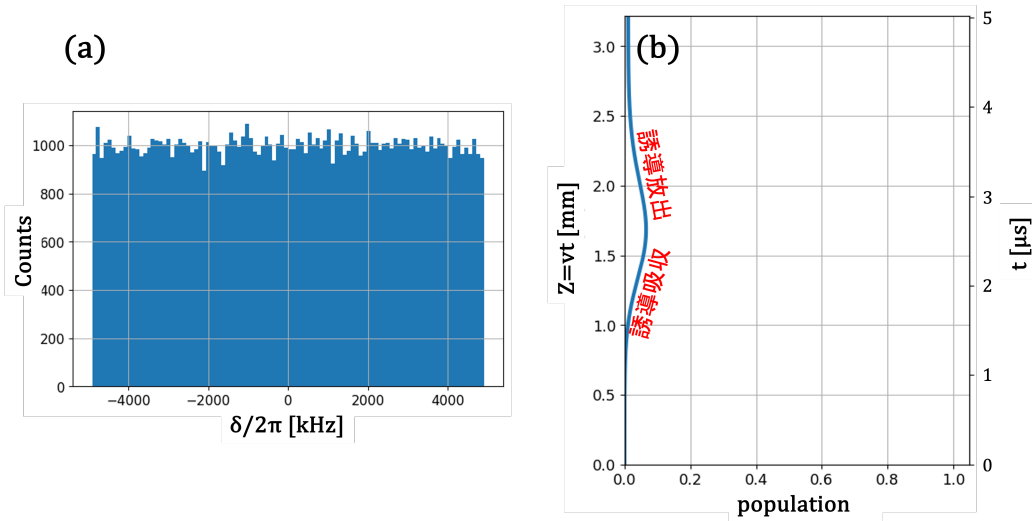


図 6.19: ドップラー離調を追加で考慮した際の数値計算結果。(a) は 100,000 事象に対するラビ相の分布、(b) はその離調を考慮した場合の 1D_2 遷移状態の空間分布

6.4.4 進行方向速度分布の影響

前節までの数値計算では、Ca 原子の進行方向速度を一定と仮定していた。しかし実際には、Ca 蒸気ビームは進行方向 (z 方向) にも有限の速度分布を持つことから、最後にこの進行方向速度ばらつきがラビ振動の空間分布に与える影響を評価する。

Ca 蒸気の進行方向速度分布は、熱平衡状態における以下の一次元 Maxwell-Boltzmann 分布に従うと仮定した。

$$f(v_z) = \sqrt{\frac{m}{2\pi kT}} \exp\left(-\frac{mv_z^2}{2kT}\right), \quad \sigma_v = \sqrt{\frac{kT}{m}} \quad (6.21)$$

また、原子ビームとして観測される粒子束は速度に比例するため、実際にレーザーと相互作用する原子の速度分布は、フラックス重みを考慮した以下の Rayleigh 分布で与えられる。

$$f(v_z) = \frac{v_z}{\sigma_v^2} \exp\left(-\frac{v_z^2}{2\sigma_v^2}\right), \quad \sigma_v = \sqrt{\frac{kT}{m}} \quad (6.22)$$

この分布に従い、 $N = 100,000$ のモンテカルロ計算を行って各原子の進行方向速度を生成した。

生成した速度に対して、レーザー周波数からの離調を評価した結果を図 6.20 に示す。(a) は 100,000 事象に対する進行方向速度分布、(b) はその速度分布に基づいて得られた離調分布、(c) は進行方向速度分布を考慮した場合の遷移状態の空間分布であるこの離調分布は、単純なガウス分布とは異なる非対称な形状を示しており、速度分布とフラックス重み付けの組み合わせによって特徴的な分布が形成されていることがわかる。

この速度ばらつきによる離調を考慮した数値計算の結果、誘導吸収および誘導放出に対応する遷移状態の空間分布は、依然として空間的に分離して観測されることが確認できた。すなわち、進行方向速度ばらつきはラビ振動コントラストの低下を引き起こすものの、本研究で想定する条件においては、誘導吸収・誘導放出による空間分離構造を破壊するほど支配的ではないことが示された。

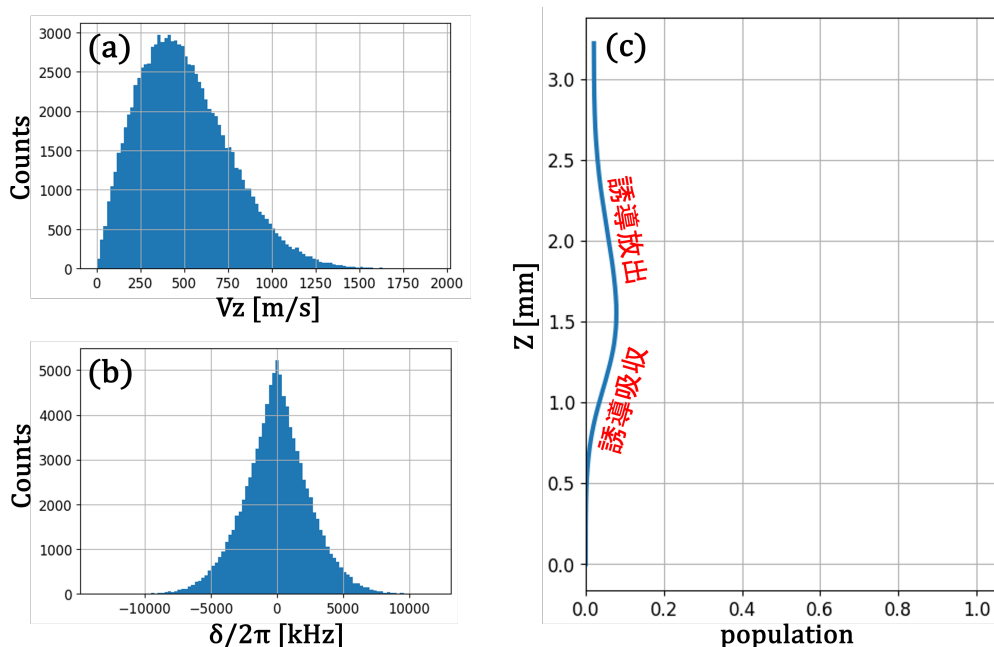


図 6.20: Ca 原子の進行方向速度のばらつきを追加で考慮した際の数値計算結果。(a) は 100,000 事象に対する進行方向の速度分布、(b) は速度分布に基づいて得られた離長分布、(c) 進行方向速度分布を考慮した場合の 1D_2 遷移状態の空間分布。

6.4.5 まとめ

本節では、457.7 nm 遷移を用いたラビ振動観測に向けて、理想的条件下で期待される空間分布が、現実的な実験条件においてどの程度維持されるかを数値計算により評価した。

まず、 1D_2 状態の自然放出寿命 (2.5 ms) はレーザーとの相互作用時間数 (μs) に比べて十分に長く、本研究で想定する時間スケールでは自然放出による減衰は無視できることが確認された。次に、ガウシアンビームによるラビ周波数の空間的不均一性を導入すると、ラビ振動の位相が空間的にばらつき、遷移確率のコントラストが低下するものの、誘導吸収・誘導放出に対応する空間構造自体は保持されることが示された。

一方、ドップラーシフトによる離調は、本研究で想定するラビ振動数に対して支配的な効果となり、ラビ振動のデコヒーレンスを引き起こす主要因であることが明らかとなった。しかしながら、図 6.21 に示す通り、進行方向速度分布を含めたすべての要因を考慮した場合においても、誘導吸収および誘導放出に対応する遷移状態の空間分布は依然として分離して現れることが確認された。特に、1.5 mm および 2.5 mm の位置における 1S_0 基底状態の population はそれぞれ $P_{1.5\text{mm}} = 7.83 \times 10^{-2}$ 、 $P_{2.5\text{mm}} = 3.05 \times 10^{-2}$ と評価された。422.8 nm 遷移を用

いた蛍光検出では、観測される蛍光強度は基底状態原子数に比例するため、

$$\frac{1 - P_{1.5\text{mm}}}{1 - P_{2.5\text{mm}}} = \frac{1 - 7.83 \times 10^{-2}}{1 - 3.05 \times 10^{-2}} \simeq 0.95$$

となり、位置によって約 5% の蛍光強度差が生じることが数値計算より示された。

以上より、ドップラー離調および速度分布によるコントラスト低下は存在するものの、空間的に分離したラビ振動構造は保持されることが示された。したがって、本研究で提案する 457.7 nm 遷移を用いたラビ振動の空間分布観測手法は、現実的な実験条件下においても原理的に成立し、観測可能であると結論づけられる。

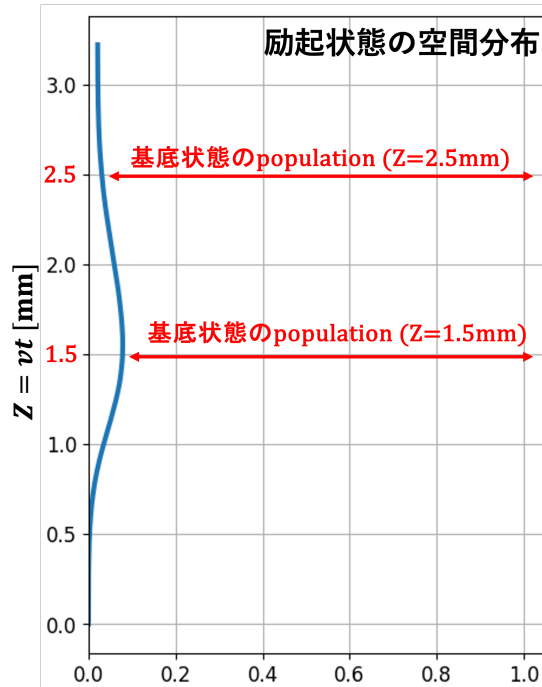


図 6.21: 自然放出、ガウシアンビームによるラビ周波数の空間的不均一性、ドップラー離調、および進行方向速度分布を含めた全ての効果を考慮した場合の励起状態の空間分布。

第7章

背景事象除去に向けた解析

7.1 CaF₂ 結晶内部の放射性不純物

第2章でも軽く触れたように、CANDLES では CaF₂ 結晶内部に微量に含まれる ²³²Th 系列の ²¹²Bi が重要な検出器内部起源の背景事象となっている。

図 7.1 に示すように、²¹²Bi の半減期は 60.6 min であり、以下の 2 つの崩壊モードを持つ。

- ・ 64.06 % の分岐で β⁻ 崩壊 (Q_β 値: 2.25 MeV) により ²¹²Po へ遷移
- ・ 35.94 % の分岐で α 崩壊 (Q_α: 6.21 MeV, E_{ee}: 1.7 MeV) により ²⁰⁸Tl へ遷移

ここで、CaF₂ 結晶中においては、α 線によるエネルギー沈着 (Energy deposit) は発光効率が低く、同じエネルギーを持つ電子線と比較して観測されるエネルギーが小さくなる (クエンチング)。本論文では、電子線に換算したエネルギーを電子等価エネルギー E_{ee} と定義している。

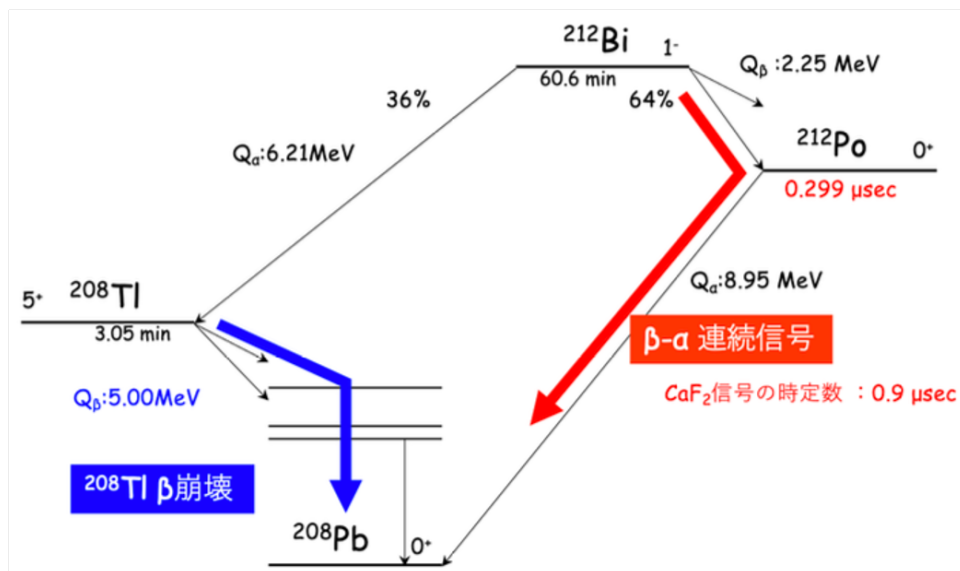


図 7.1: ²¹²Bi 連続崩壊の概略図

^{212}Bi - ^{212}Po 連続崩壊事象

^{212}Bi からの β^- 崩壊により生成される ^{212}Po は半減期が 295 nsec と極めて短寿命であり、直ちに α 崩壊 (Q_α : 8.95 MeV, E_{ee} : 2.85 MeV) を起こすことで ^{208}Pb に遷移する。この一連の過程は ^{212}Bi - ^{212}Po 連続崩壊事象と呼ばれる。両崩壊の時間差が CaF_2 シンチレーターの時定数: $1\ \mu\text{sec}$ に比べて十分短いため、CANDLES 検出器では先発事象の β 線と後発事象の α 線の波形が重なり、連続信号として検出されてしまう。その結果、本来は二つの事象が、見かけ上 4-6 MeV の単一事象として再構成されることがあり、 $0\nu\beta\beta$ のシグナル領域 ($Q_{\beta\beta}$ 値: 4.27 MeV) に侵入する背景事象となり得る。

^{212}Bi - ^{208}Tl 連続崩壊事象

一方、 ^{212}Bi から α 崩壊により生成される ^{208}Tl は半減期が 3.053 min であり、 β^- 崩壊 (Q_β : 5.0 MeV) により高いエネルギーの電子を放出し、励起状態の ^{208}Pb へ遷移する。さらに生成された ^{208}Pb は脱励起を起こす際に、2.614 MeV の γ 線 (^{232}Th 系列で最も強い線) を放出する。この γ 線は CaF_2 結晶内および周囲の LS でコンプトン散乱を起こし、複数のシンチレーション発光イベントを生成する。その結果、 β 事象と γ 事象が重なった複合的な信号となり、4-6 MeV の単一事象を再構成し、 $0\nu\beta\beta$ のシグナル領域に背景事象として現れる。

7.2 従来の解析除去手法

前節で述べたように、 ^{212}Bi の連続崩壊事象は $0\nu\beta\beta$ 探索の大きな背景事象となるため、正しく弁別し除去する必要がある。CANDLES 実験では、この背景事象を解析的に弁別している。本節では、その解析手法について説明する。

7.2.1 ^{212}Bi - ^{212}Po 連続崩壊事象の除去方法

この連続崩壊事象では、 ^{212}Bi と ^{212}Po の崩壊時間差: Δt が十分に短いことから発生する先発事象の β 線波形と後発事象の α 線波形が重なった複合波形 (Double Pulse: DP) と $\beta\beta$ 単一事象 (Single Pulse: SP) との弁別が非常に困難である。この DS に対して、単に reference 波形を用いた波形のフィッティングによる基準波形の時間差算出から事象除去を行う方法 (図 7.2) では、短い Δt において正確にフィットできず、この連続崩壊事象を完全に同定することが難しかった。そこで、CANDLES グループでは機械学習を導入し、短い Δt を判別する CNN(Convolutional Neural Network) の開発を行った。その結果、CANDLES 検出器による全測定期間 784.2 日のデータにおいて、 $0\nu\beta\beta$ のシグナル領域 ($Q_{\beta\beta}$ 値: 4.27 MeV) 付近での残留 DP 量を 1 以下にすることが可能となった。CNN による DP 除去効率の評価と正当性の確認は先行研究 [16] で説明されている。

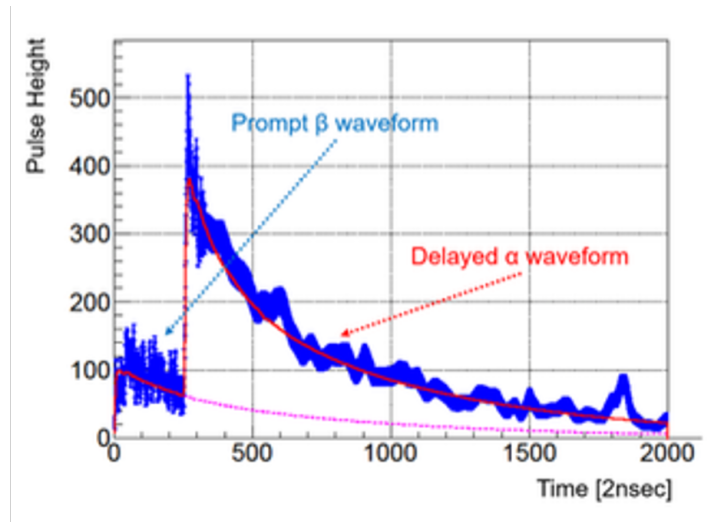


図 7.2: ^{212}Bi - ^{212}Po 連続崩壊の連続波形と基準波形による Fitting

7.2.2 ^{212}Bi - ^{208}Tl 連続崩壊事象の除去方法

後発事象である ^{208}Tl の崩壊事象は、先発事象である ^{212}Bi 崩壊と同じ結晶で発生する。また、 ^{212}Bi の半減期は 3.05 min と比較的に短いため、先発事象と後発事象の時間差に基づく遅延コインシデンス法が有効となる。そのため、 ^{212}Bi 崩壊に伴う α 線を先発事象としてタグ付けすることで ^{208}Tl 崩壊事象を除去することが可能となる。従来解析では、以下の条件を満たす事象の組を ^{212}Bi - ^{208}Tl 連続崩壊事象として同定していた。

- 先発事象のエネルギー E_p が $1450 \text{ keV} < E_p < 1850 \text{ keV}$
- 後発事象のエネルギー E_d が $2300 \text{ keV} < E_d < 5100 \text{ keV}$
- 後発事象の波形情報に対して $\text{PSD}_\beta < 1.5$
- 2つの事象の時間差 ΔT が $0 \text{ s} < \Delta T < 1200 \text{ s}$

先発事象のエネルギーは、 CaF_2 結晶中における α 線のクエンチング効果により、約 1.7 MeV にピークを持つ分布として観測される。このため、従来解析では先発事象のエネルギー領域として、ピーク位置の -2σ から $+4\sigma$ 程度の範囲が選択されている。低エネルギー側の領域を狭く設定しているのは、環境放射線である ^{40}K の γ 線 (1461 keV) の影響を低減するためである。一方、 ^{212}Bi の α 崩壊では 40 keV の γ 線が放出される場合が多く、 γ 線はクエンチングの影響を受けないことから、高エネルギー側は観測ピークよりやや広い範囲が採用されている。

後発事象である ^{208}Tl 崩壊では、2.6 MeV の γ 線が放出される。この γ 線は結晶内でコンプトン散乱を起こし、一部のエネルギーが結晶外へ逃げる可能性があるため、後発事象のエネルギー領域は 3.4 MeV より低い値まで含めて設定されている。しかし、このエネルギー領域には α 線などのバックグラウンド事象が混在する可能性があるため、従来解析では後発事象に対して PSD による追加のカットが適用されている。

以上の条件により ^{208}Tl 崩壊候補事象が同定された結晶に対して、従来の解析では 20 min の veto を課すことで、連続崩壊事象によるバックグラウンドの除去が行われてきた。

7.3 ^{208}Tl 除去に向けた新しい解析手法

7.2.2 で説明した解析手法は、 ^{208}Tl の崩壊で放出される遅延 β 線と遅延 γ 線が先発事象の ^{212}Bi の崩壊事象が起きた結晶で全てのエネルギーを落とす場合 (シングルヒット) に対して有効である。しかし実際には、図 7.3 に示すように、 ^{208}Tl 崩壊時に放出された遅延 γ 線が隣接する結晶に到達し、複数の結晶を同時に発光させるマルチヒット事象が存在する。このような事象は、 ^{212}Bi 崩壊が起きた結晶のみに veto をかける従来の解析手法では除去することができず、背景事象として Livetime に残ってしまう。

ここで、隣の結晶も含めて 20 min の veto をかける方法が考えられるが、 ^{212}Bi 崩壊事象をタグした結晶 (1 結晶) のみに veto をかける従来の解析方法で既に 15~20% の Deadtime をもつため、隣の結晶全てに同様の veto をかけると Deadtime がほぼ 100% に達してしまう。

そこで、 ^{212}Bi の α 事象らしさに応じて ^{208}Tl 事象を同定する、あるいは veto 幅を変更する新しい解析手法が検討されている。この解析手法では、 ^{208}Tl 事象の除去効率だけでなく、解析によって失われる Livetime を考慮しながら veto 条件を最適化する必要がある。そのため、この新しい除去手法によって実データ中に含まれる $\beta\beta$ 事象がどの程度同時に除去されてしまうかを評価することが不可欠である。しかしながら、 $\beta\beta$ 事象は極めて稀な事象であり、実験データのみから十分な統計を得ることは困難である。そのため、正しく Livetime を評価するにあたって、 $\beta\beta$ 事象をモンテカルロシミュレーション (MC) で作成し、作成した $\beta\beta$ 事象の MC データの再現性を評価した上で、CANLDES 検出器データに時間的にランダムに挿入する必要がある。

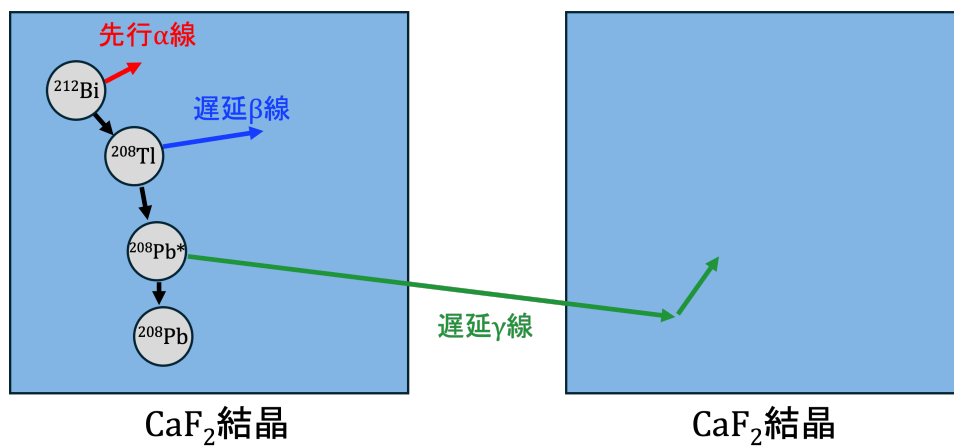


図 7.3: マルチヒット事象

第 8 章

$\beta\beta$ 事象の MC データ生成

8.1 $\beta\beta$ 事象 MC 生成の目的と手法

新しく検討されている ^{208}Tl の除去手法にて除去条件を最適化するためには、 $\beta\beta$ 事象を含んだ実データに対する Livetime を評価する必要がある。しかしながら、実験データから $\beta\beta$ 事象の十分な統計を得ることは困難である。そのため本研究では、 $\beta\beta$ 事象をモンテカルロシミュレーション (MC) によって人工的に生成する手法を採用した。

本来、 ^{48}Ca は半減期 6.4×10^{19} 年という極めて長い寿命を持ち、二重ベータ崩壊を起こす同位体である。しかし、Geant4 においては ^{48}Ca は安定粒子 (STABLE) として扱われており、現時点の標準実装では二重ベータ崩壊過程は含まれていない。

そこで本研究では、二重ベータ崩壊後に放出される二つの電子のエネルギーおよび電子間角度を、それぞれが従う確率密度関数に基づいてモンテカルロ法により人工的に生成した。さらに、生成された電子のエネルギーおよび角度情報をもとに、運動量保存を満たすように各電子の運動量ベクトルを決定し、三次元空間内で等方的に運動量成分 (p_x, p_y, p_z) を割り当てた。これらの放出電子の運動量情報を Geant4 シミュレーションへの入力として用いることで、 $0\nu\beta\beta$ および $2\nu\beta\beta$ 事象において、検出器内で電子がどのようにエネルギーを失い、そのエネルギーが検出信号として現れるかを再現した。

作成した MC データを実データに挿入するにあたっては、実際の $\beta\beta$ 信号事象と十分に近い特性を有している必要がある。そのため本研究では、人工波形の生成を行い、標準解析におけるエネルギーカットおよび PSD 解析を適用した際の検出効率や事象分布を評価することで、生成した MC データの信号再現性を確認した。

8.2 放出電子のエネルギーおよび角度の確率密度関数

^{48}Ca の二重ベータ崩壊において放出される二電子のエネルギーおよび電子間角度が従う確率密度関数を以下に示す。 $0\nu\beta\beta$ 事象ではエネルギー保存を表す $\delta(t_0 - t_1 - t_2)$ を課し、 $2\nu\beta\beta$ 事象では位相空間因子 $(t_0 - t_1 - t_2)^5$ を含む確率密度関数を用いた。ここで、 t_1, t_2 は放出電子の運動エネルギー、 t_0 は崩壊 Q 値を表す。用いた確率密度関数は、二重ベータ崩壊事象生成コード DECAY4 で採用されている表式に基づくものであり、詳細は文献 [10] に示されている。

$$0\nu\beta\beta: \rho_{12}(t_1, t_2 \cos \theta) = e_1 p_1 F(t_1, Z) e_2 p_2 F(t_2, Z) \delta(t_0 - t_1 - t_2) (1 - \beta_1 \beta_2 \cos \theta) \quad (8.1)$$

$$2\nu\beta\beta: \rho_{12}(t_1, t_2 \cos \theta) = e_1 p_1 F(t_1, Z) e_2 p_2 F(t_2, Z) (t_0 - t_1 - t_2)^5 (1 - \beta_1 \beta_2 \cos \theta) \quad (8.2)$$

ここで、 t_i は電子 i の運動エネルギー、 $e_i = t_i + m_e$ は全エネルギー、 $p_i = \sqrt{e_i^2 - m_e^2}$ は運動量、 $\beta_i = p_i/e_i$ は電子の速度を光速で規格化した量である。 Z は崩壊後原子核の電荷数であり、 $F(t_i, Z)$ は原子核クーロン場による補正を表すフェルミ関数である。

フェルミ関数 $F(t, Z)$ は以下で与えられる。

$$F(t, Z) = \text{const} \cdot p^{2s-2} \exp(\pi\eta) |\Gamma(s + i\eta)|^2 \quad (8.3)$$

ここで、 $s = \sqrt{1 - (\alpha Z)^2}$ 、 $\eta = \alpha Z e/p$ で与えられ、 α は微細構造定数である。式 (8.3) に含まれる $\Gamma(s + i\eta)$ はガンマ関数であり、以下の式で定義される。

$$\Gamma(s + i\eta) = \int_0^\infty t^{(s+i\eta)-1} e^{-t} dt \quad (8.4)$$

この積分は複素数を含む無限区間積分であるため、そのままの形では数値計算に適さない。そこで、 $u \equiv \log(t)$ と変数変換を行い、式 (8.5) のように被積分関数を指数関数的に減衰する形へ書き換えた。変数変換後も積分区間は $[-\infty, \infty]$ のままであるが、図 8.1 に示すように被積分関数はおおよそ $u \sim -10$ から $u \sim 3$ の範囲でのみ有意な振動および寄与を持つ。そのため、本研究では数値計算においては積分区間を $[-10, 3]$ に制限した近似を行った。

$$\begin{aligned} |\Gamma(s + i\eta)|^2 &= \left[\int_{-\infty}^\infty e^{-e^u} e^{us} \cos(\eta u) du \right]^2 + \left[\int_{-\infty}^\infty e^{-e^u} e^{us} \sin(\eta u) du \right]^2 \\ &\simeq \left[\int_{-10}^3 e^{-e^u} e^{us} \cos(\eta u) du \right]^2 + \left[\int_{-10}^3 e^{-e^u} e^{us} \sin(\eta u) du \right]^2 \end{aligned} \quad (8.5)$$

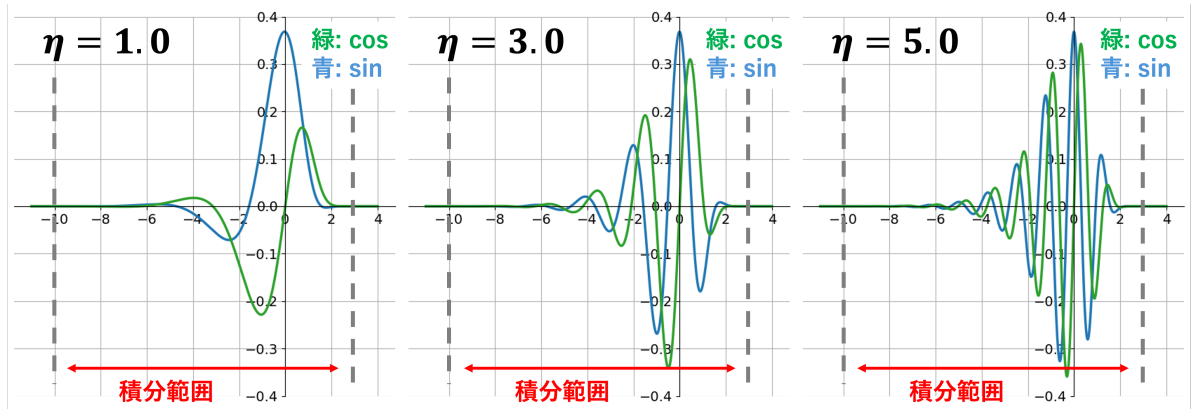


図 8.1: ガンマ関数のグラフ。青、緑曲線はそれぞれ横軸 u とした $e^{-e^u} e^{us} \sin(\eta u)$ と $e^{-e^u} e^{us} \cos(\eta u)$ のグラフである。また、 η の値を変えて 3 種類のグラフを描いている。

8.3 $\beta\beta$ 事象のエネルギースペクトルの作成

前節で示した確率密度関数に基づき、モンテカルロ法を用いて $\beta\beta$ 事象のエネルギー分布を生成した。イベント生成においては、 $0\nu\beta\beta$ 事象および $2\nu\beta\beta$ 事象それぞれについて 10^7 事象を生成した。生成した電子のエネルギースペクトルを図 8.2 に示す。 $0\nu\beta\beta$ 事象では、ニュー

トリノが放出されないため、二電子の全エネルギー ($E_1 + E_2$) が崩壊 Q 値である 4270 keV に集中したピーク構造を示している。一方、 $2\nu\beta\beta$ 事象では、ニュートリノが同時に放出されることから二電子が受け取るエネルギーは Q 値より小さくなり、低エネルギー側に広がった連続スペクトルが得られている。これらの結果は、理論的に期待されるエネルギー分布と良い一致を示している。

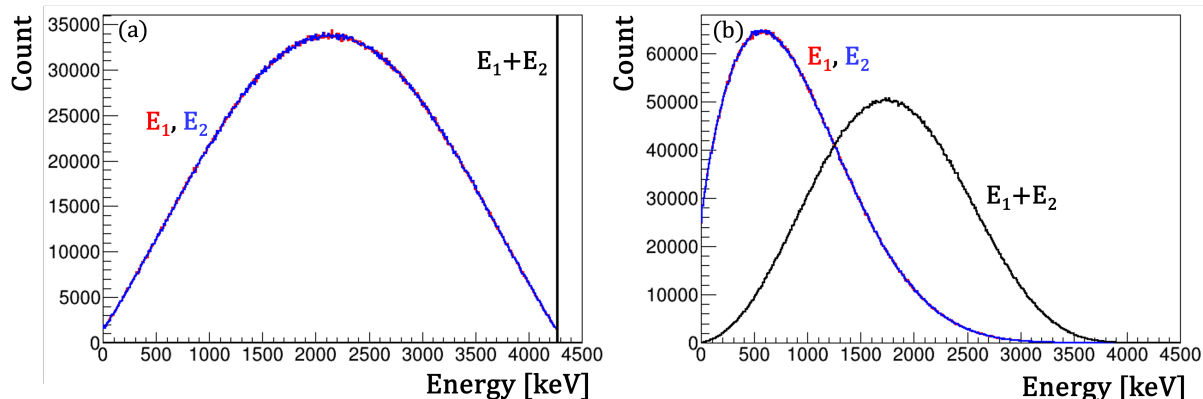


図 8.2: $\beta\beta$ 事象のエネルギースペクトル。(a) は $0\nu\beta\beta$ 事象、(b) は $2\nu\beta\beta$ 事象である。黒線は二電子の全エネルギー、赤線および青線は各放出電子のエネルギーを示す。

8.3.1 二電子エネルギーの相関分布

生成した $\beta\beta$ 事象に対する二電子エネルギーの相関分布を図 8.3 と図 8.4 に示す。 $0\nu\beta\beta$ 事象では、二電子のエネルギー和が 4.27 MeV で一定であるため、直線的な分布が現れている。また、二電子がほぼ等しいエネルギーを持つ 2.135 MeV 付近でイベント数が多くなっていることがわかる。これは、式 (8.1) に示した確率密度関数において、 $e_i p_i$ で与えられる位相空間因子が低エネルギー電子を抑制すること、および $\delta(t_0 - t_1 - t_2)$ によりエネルギー和が固定されていることに起因する。

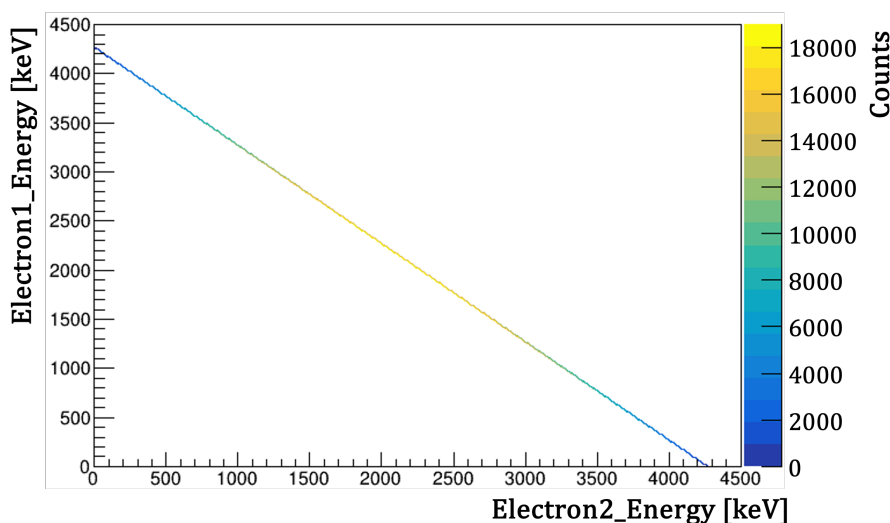


図 8.3: $0\nu\beta\beta$ 事象のエネルギー相関図

一方、 $2\nu\beta\beta$ 事象では、式 (8.2) に示した確率密度関数において $(t_0 - t_1 - t_2)^5$ の因子が含まれており、二電子が受け取らなかったエネルギーが同時に放出されるニュートリノに分配されることを反映している。このため、二電子のエネルギー和は t_0 以下の連続的な値を取り、エネルギー相関分布は Q 値 (4.27 MeV) 以下の領域に広がった分布を示す。また、 $t_1 + t_2 \rightarrow t_0$ の極限ではこの因子が 0 に近づくため、Q 値付近の事象は位相空間的に抑制される。

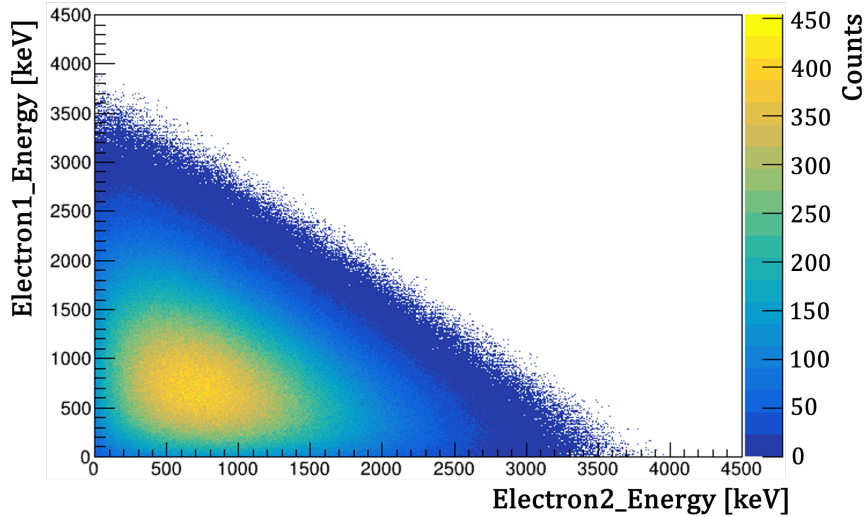


図 8.4: $2\nu\beta\beta$ 事象のエネルギー相関図

8.3.2 運動量ベクトルの等方生成

Geant4 シミュレーションにおいては、入力として三次元運動量成分を与える必要がある。そこで、確率密度関数より生成した二電子のエネルギーおよび二電子間角度 θ に基づき、それぞれの運動量ベクトルを三次元空間内で割り当てた。

電子 1 の運動量方向 \hat{n}_1 は、球面上の等方分布を満たすように $\cos \theta_1 : U(-1, 1)$, $\varphi_1 : U(0, 2\pi)$ として生成した。これにより、

$$\hat{n}_1 = (n_{1x}, n_{1y}, n_{1z}) = (\sin \theta_1 \cos \varphi_1, \sin \theta_1 \sin \varphi_1, \cos \theta_1) \quad (8.6)$$

と表され、電子 1 の運動量ベクトル (p_{1x}, p_{1y}, p_{1z}) は $\mathbf{p}_1 = p_1 \hat{n}_1$ により与えられる。

次に、 \hat{n}_1 に垂直な 2 本の単位ベクトル \hat{u} および \hat{v} を構成し、 $\{\hat{n}_1, \hat{u}, \hat{v}\}$ が正規直交基底を成すように定義した。 \hat{u} は、 $n_{1z} < 0.9$ の場合には $(-n_{1y}, n_{1x}, 0)$ を、それ以外の場合では $(0, -n_{1z}, n_{1y})$ を用いて定義し、正規化を行った。さらに右手系を満たすように

$$\hat{v} = \hat{n}_1 \times \hat{u} \quad (8.7)$$

とした。

電子 2 の運動量方向 \hat{n}_2 は、電子 1 方向 \hat{n}_1 となす角が θ となるように設定した。 \hat{n}_1 を軸とする円周上で、方位角 ϕ_2 を $\phi_2 : U(0, 2\pi)$ として一様に生成し、

$$\hat{n}_2 = \cos \theta \hat{n}_1 + \sin \theta (\cos \phi_2 \hat{u} + \sin \phi_2 \hat{v}) \quad (8.8)$$

により定めた。したがって電子 2 の運動量ベクトル (p_{2x}, p_{2y}, p_{2z}) は $\mathbf{p}_2 = p_2 \hat{n}_2$ により与えられる。

以上の手順により生成した運動量分布を図 8.5 に示す。図 8.5 の (a) および (c) は、 $0\nu\beta\beta$ 事象および $2\nu\beta\beta$ 事象における運動量成分 p_{1x} と p_{1y} の分布を示しており、原点を中心とした円対称な分布が得られている。また図 8.5 の (b) および (d) は、それぞれ各運動量成分 p_{1x}, p_{1y}, p_{1z} および p_{2x}, p_{2y}, p_{2z} の一次元分布を重ねて示したものであり、成分間に有意な差は見られず、特定方向への偏りは確認されない。

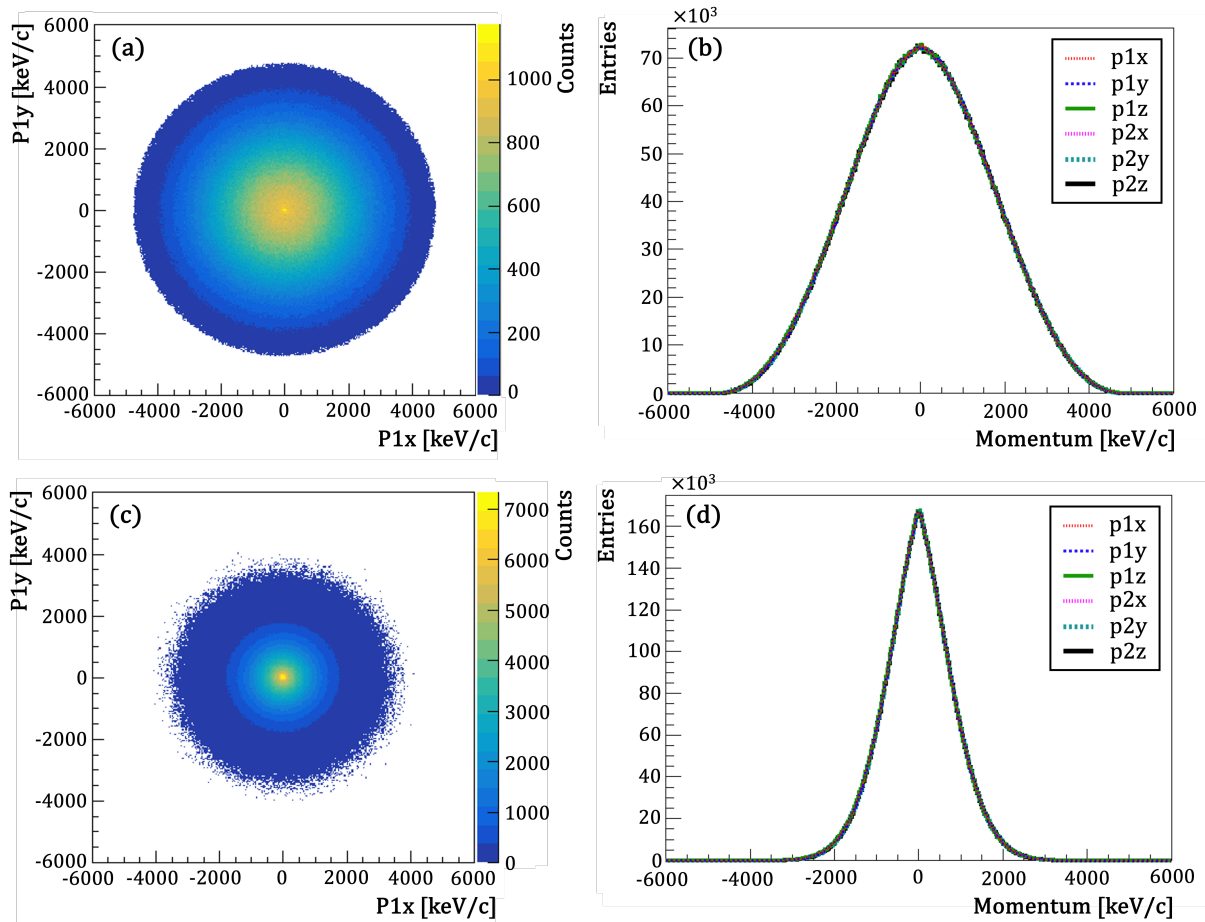


図 8.5: $0\nu\beta\beta$ 及び $2\nu\beta\beta$ 事象における二電子の運動量分布。(a) および (c) は $p_{1x} - p_{1y}$ の二次元分布、(b) および (d) は各運動量成分 $p_{1x}, p_{1y}, p_{1z}, p_{2x}, p_{2y}, p_{2z}$ の一次元分布を重ね書きしたものである。

8.4 Geant4 シミュレーション

CANDLES 検出器における $0\nu\beta\beta$ および $2\nu\beta\beta$ 事象を再現するため、8.3 節で生成した二電子の運動量ベクトルを初期条件として Geant4 シミュレーションを行った。シミュレーションでは、CANDLES-III 実験の検出器構造を模擬したモデルを用いた。電子対は同一崩壊点から同時に放出されるものとし、崩壊位置は 96 個の各 CaF_2 結晶内で一様分布となるように設定した。各結晶について 10,000 イベントを生成し、その位置および運動量を初期条件として Geant4 による粒子輸送を行った。シミュレーション結果として得られたエネルギースペクトルを図 8.6 に示す。

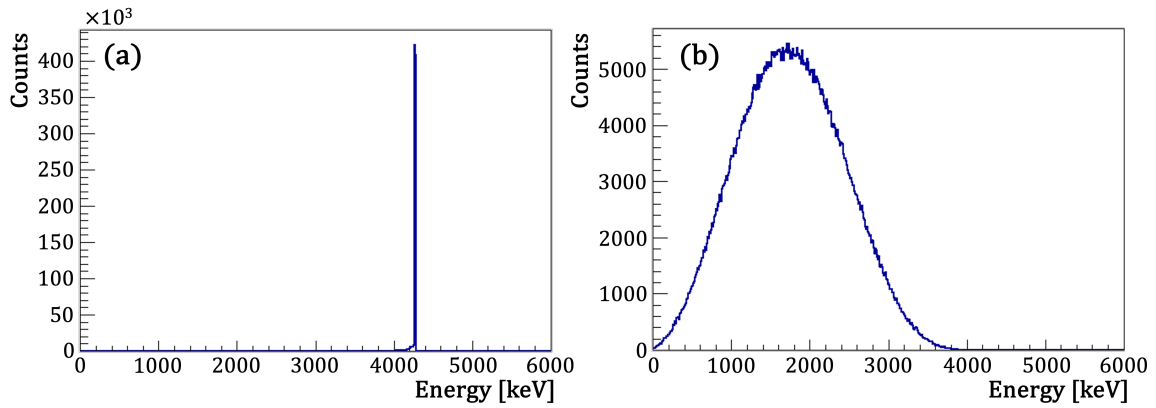


図 8.6: Geant4 シミュレーションにより得られた、CaF₂ 結晶および LS に付与された総エネルギースペクトル。(a) は $0\nu\beta\beta$ 事象、(b) は $2\nu\beta\beta$ 事象を示す。

$0\nu\beta\beta$ 事象のエネルギースペクトルでは崩壊 Q 値である 4.27MeV から低エネルギー側へ微量のテール構造が形成されていることが確認できる。この低エネルギー側テールは CaF₂ 結晶表面付近で崩壊が発生した事象において、電子の一部エネルギーが結晶外へ逃げたことに起因するものである。

図 8.7 に、全エネルギーが 4 MeV 未満の事象における崩壊位置の二次元分布を示す。表示範囲は結晶 1, 17, 33, 49, 65, 81 が設置されている $(x, y) = (-230 \text{ mm}, 320 \text{ mm})$ を中心とした領域である。結晶表面近傍に事象が集中していることから、低エネルギー側テールは結晶外部へのエネルギー損失に由来することが確認できる。

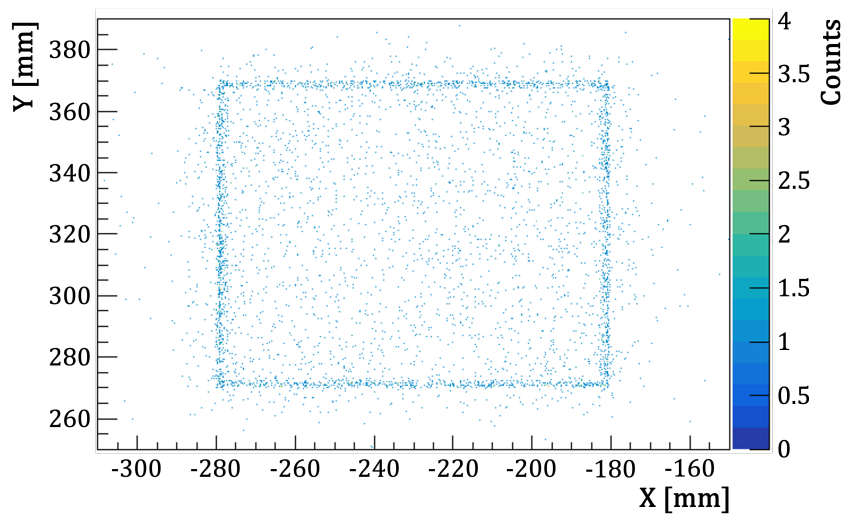


図 8.7: 崩壊位置二次元分布

8.5 CANDLES IIIデータの再現

Geant4 シミュレーションでは、粒子と物質との相互作用に基づくエネルギーデポジットを評価することは可能であるが、CANDLES III 検出器における実効的な検出器応答をそのまま再現することは困難である。CANDLES III で観測され得る事象の位置とエネルギースペクトルを再現するには、実験データから得た位置分解能と PMT の NPE 分布 (?) を MC シミュ

レーションに組み込む作業が必要となる。手順については既存の CANDLES 論文 [13] で明記されており、本研究ではそこで確立された解析手法に従ってデータ再現を行った。再現されたエネルギースペクトルを図 8.8 に示す。

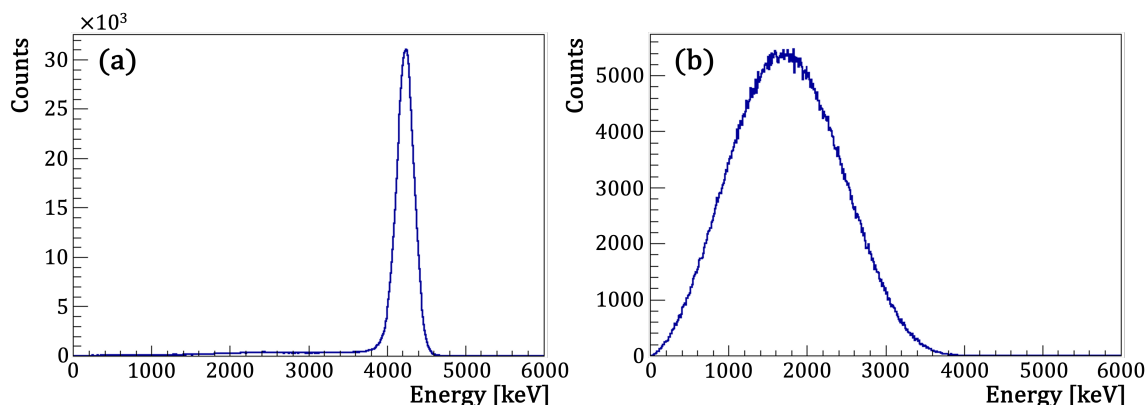


図 8.8: CANDLES III データを再現したエネルギースペクトル。(a) は $0\nu\beta\beta$ 事象、(b) は $2\nu\beta\beta$ 事象である。

8.6 人工波形の作成

人工波形は、観測データから抽出した 1 光電子 (1 p.e.) 波形を基に、光電子数のばらつきをモンテカルロ法によって再現することで作成した。各光電子の発生時刻を考慮し、1 イベント分の波形は次式で与えられる。

$$V(t) = \sum_{i=1}^{N_{pe}} v_{1pe}(t - t_i) \quad (8.9)$$

ここで $v_{1pe}(t)$ は 1 光電子波形、 N_{pe} はエネルギーデポジットに比例する光電子数、 t_i は各光電子の発生時刻を表す。本手法は、先行研究で確立された人工波形作成手法に基づいている [14]。

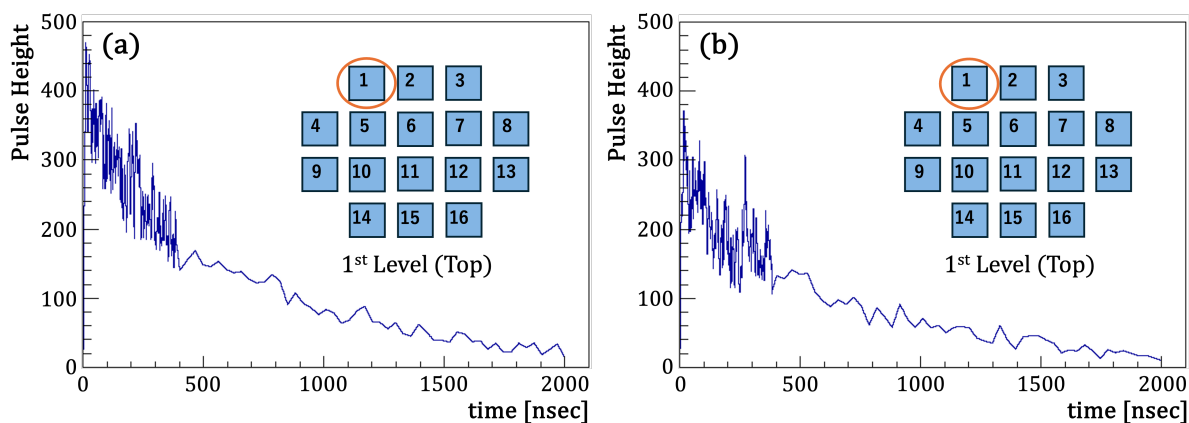


図 8.9: 人工的に作成した FADC 波形。(a) は $0\nu\beta\beta$ 事象、(b) は $2\nu\beta\beta$ 事象における例であり、いずれも 1 番の CaF_2 結晶で崩壊が発生したイベントを示す。(a) は 4187.9 keV、(b) は 2987.8 keV の事象における波形である。

8.7 PSD 計算

CANDLES 実験では、事象の波形形状の違いを利用した波形弁別として、PSD(Pulse Shape Discrimination) を用いている。PSD には、基準波形として用いる事象の種類に応じて以下の 3 種類が定義されている。

- PSD_α : α 線事象らしさを表す量
- PSD_β : β 線事象らしさを表す量
- $\text{PSD}_{\beta+LS}$: β 線および液体シンチレータ (LS) 由来の光が混在した事象らしさを表す量

PSD とは、取得した信号波形と基準波形との差を定量化した量であり、次式で定義される。

$$\text{PSD} = \frac{1}{d} \sum_{i=0}^{200ch} \frac{(\text{データ波形の波高} - \text{基準波形の波高})^2}{(\text{データ波形の波高エラー})^2} \quad (8.10)$$

ここで d は計算に用いた自由度であり、式 (8.10) は計算領域における χ^2 を自由度で規格化した量に相当する。PSD の具体的な計算手法および基準波形の作成方法については、先行研究 [14] で詳しく説明されており、本研究では $\beta\beta$ 事象の MC データを評価するべく、その手法に則って PSD 分布を構成した。

まず $0\nu\beta\beta$ 事象において、作成した PSD 分布を図 8.10 に示す。また比較のため、外部起因の ^{208}Tl 由来の γ 線 (2.6 MeV) 事象の実験データから作成した、LS 成分の寄与が小さい純粋な β 線事象の PSD を用意した。

純粋な β 線事象の抽出にあたっては、低エネルギー側に多く含まれる $\beta + LS$ 事象を抑制するため、エネルギー範囲を高エネルギー側: $2660.8 \text{ keV} \leq E \leq 2790.8 \text{ keV}$ に制限した。さらに、信号波形の立ち上がりから $4 \mu\text{s}$ までの積分値に対する 200 ns までの積分値の比で定義される Ratio パラメータを用い、その値を $0.1515\text{--}0.1527$ の狭い範囲に制限することで、LS が発光した事象をさらに低減した。このようにして抽出した純粋な β 線事象は、 CaF_2 結晶内で主に電子反跳が生じた事象を代表する分布とみなせる。純粋な $\beta\beta$ 事象の抽出方法の詳細については、文献 [15] に示されている。

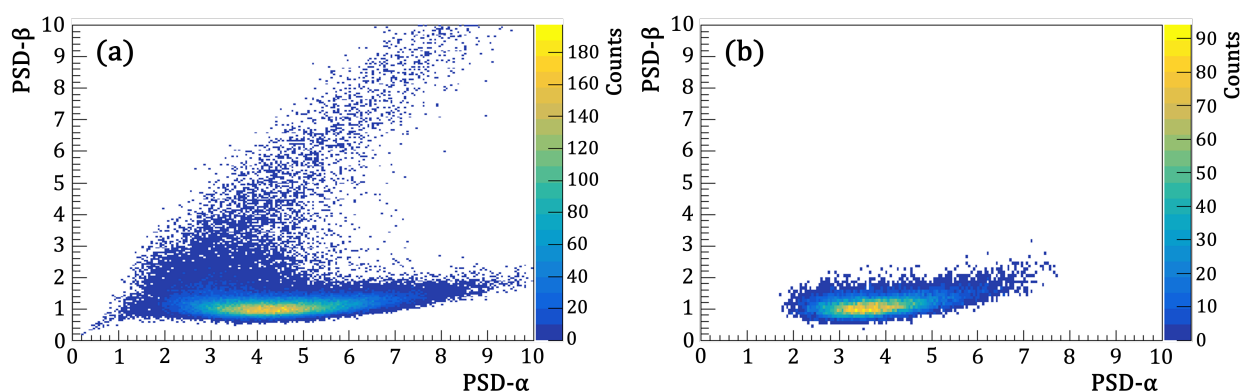


図 8.10: MC を用いて生成した $0\nu\beta\beta$ 事象と純粋な β 線事象の PSD 分布の比較。(a) は MC を用いて生成した $0\nu\beta\beta$ 事象の PSD 分布、(b) は CANDLES 検出器の実データから得られた純粋な β 事象の PSD 分布である。

純粋な β 線事象では、 CaF_2 結晶における β/γ 発光特性を反映した帯状の分布が形成されているのに対し、 $0\nu\beta\beta$ 事象ではこれに加えて、 PSD_β が大きいイベントが確認できる。これらのイベントは、LS の発光成分が寄与した事象に対応する。

さらに、 $0\nu\beta\beta$ 事象では純粋 β 線事象と比較して PSD_α が相対的に大きい側へ分布が広がる傾向が見られる。これは主に、 $0\nu\beta\beta$ 事象が Q 値近傍の高エネルギー領域に集中していることに起因すると考えられる。高エネルギー事象では、結晶外へのエネルギー損失や散乱光子の寄与が増加し、LS 成分を含む複合波形となる割合が相対的に増える。その結果、PSD 二次元分布は純粋な結晶内 β 事象の分布から外れ、 PSD_α 側へも広がりを持つと考えられる。

図 8.11 に $2\nu\beta\beta$ 事象と純粋な β 線事象の PSD 二次元分布の比較を示す。

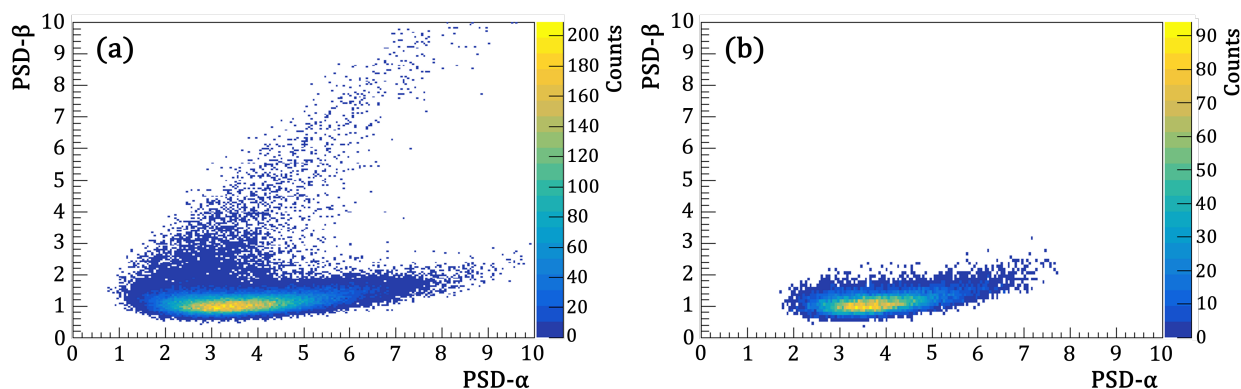


図 8.11: MC を用いて生成した $2\nu\beta\beta$ 事象と純粋な β 線事象の PSD 分布の比較。(a) は MC を用いて生成した $2\nu\beta\beta$ 事象の PSD 分布、(b) は CANDLE 検出器の実データから得られた純粋な β 事象の PSD 分布である。

$2\nu\beta\beta$ 事象においても PSD_β が大きいイベントが確認され、LS 発光成分を含む事象が混在していることがわかる。一方で、 $0\nu\beta\beta$ 事象と比較すると直線構造の低 PSD 領域での事象は少ない。これは、 $2\nu\beta\beta$ 事象では電子エネルギーが連続分布となり平均的に低いため、 CaF_2 結晶外へのエネルギー損失が比較的小さいことに由来する。結果として、LS が十分に発光した事象のみが PSD_β の大きいイベントとして可視化され、低 PSD 領域ではイベント数が相対的に少なくなると考えられる。

8.8 $\beta\beta$ 事象の MC データの信号再現性評価

前節までで、生成した $\beta\beta$ 事象の MC データに対応する波形が生成できた。Livetime を評価するにあたって実データに散りばめる $\beta\beta$ 事象の MC データがどの程度再現性のあるものかを評価する必要がある。そこで、標準のエネルギーカットを適用し、検出効率および LS 事象の低減度合いを確認した。

まず、CANDLE における標準のエネルギーカット ($4270 \text{ keV} - 1\sigma < E < 4270 \text{ keV} + 2\sigma$) を適用した際のエネルギースペクトルを図 8.12 に示す。

エネルギーカットの結果、イベント数は 100,000 から 66,568 へと減少し、検出効率は 66.568% となった。この値は、標準的な解析条件下における $\beta\beta$ 事象の検出効率として妥当な値である。

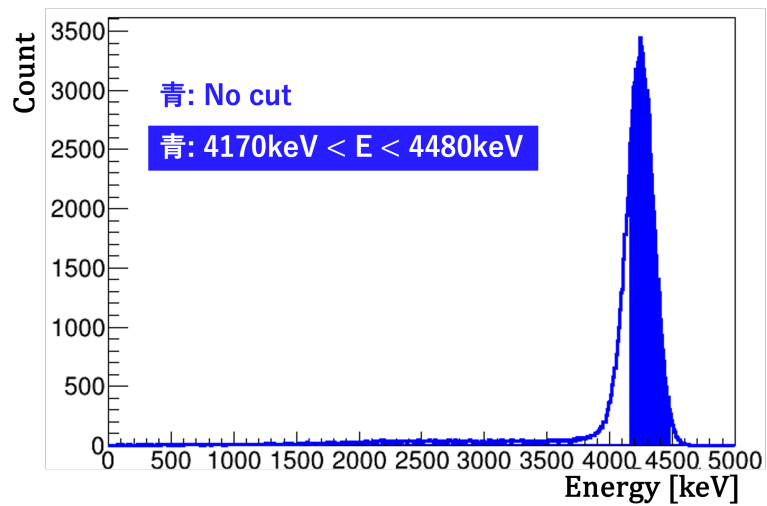


図 8.12: 標準エネルギーカット後のエネルギースペクトル

次に、エネルギーカット適用前後における $\beta\beta$ 事象の PSD 分布を図 8.13 に示す。エネルギーカット後には、主に LS が光った事象が低減されていることが確認でき、生成した MC データは実データにおける信号事象の特徴を適切に再現している。

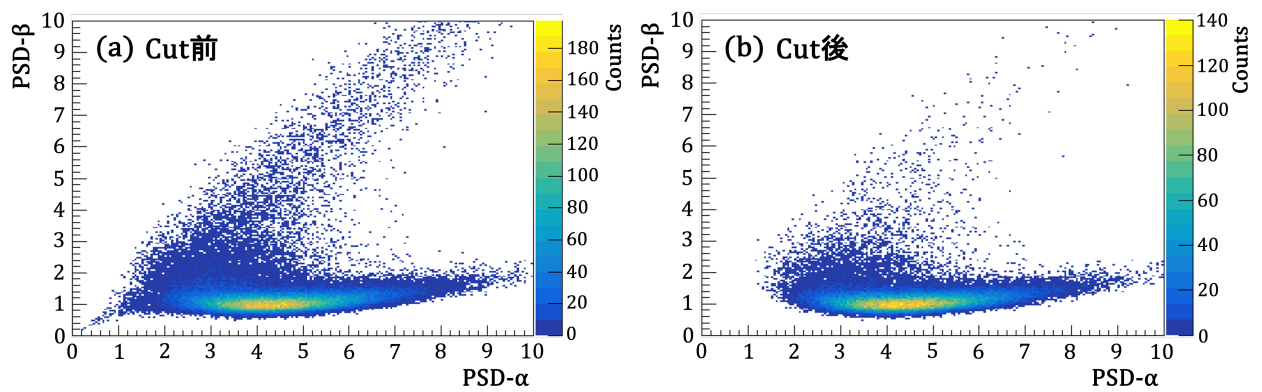


図 8.13: 標準エネルギーカット前後における $0\nu\beta\beta$ 事象の PSD 分布。(a) はカット前、(b) はカット後を示す。

第9章

まとめと展望

本論文では、CANDLES 実験における ^{48}Ca 同位体濃縮の実現に向けた濃縮装置の開発と、 ^{208}Tl 崩壊に起因する背景事象の除去を目的とした $\beta\beta$ 事象 MC データの作成について述べた。

濃縮装置の開発においては、レーザー偏向法に基づく大強度偏向レーザーの構築およびラビ振動を用いた同位体分離手法の検討を並行して進めてきた。大強度偏向レーザーの構築においては、注入同期による増幅に適した半導体レーザー素子の選定を行った。候補として4種類の半導体レーザー素子を比較検討し、注入同期の調整難易度、スロープ効率、および小信号利得の観点から評価を行った。その結果、Single FP-LD の AR コート品が最も適していると判断し、本研究ではこれを採用することとした。これらの評価結果に基づき、現在は 20 W 出力の偏向レーザーの作製に向けて、Single Mode 型 FP-LD の AR コート品の発注を進めている。

一方、ラビ振動を用いた同位体分離手法の検討においては、従来のレーザー偏向法における分離効率向上を目指し、その原理検証に向けた基礎研究を行った。具体的には、Ca 蒸気の生成、Ca 原子ビーム形成のためのコリメーターの設計・作製、および空間的なラビ振動観測方法の検討を行った。自然放出による減衰・ガウシアンビームによるラビ振動数の非一様性・ドップラーシフト・速度ばらつきなど、空間分布を崩しうる複数の要因を考慮した数値計算を行った結果、それらを影響を含めてもラビ振動が Ca 原子ビーム上に空間的構造を形成し、観測が可能であることが示された。また、本研究にて作製したコリメータは、ラビ振動観測において、十分にドップラーシフトを抑制する設計となっており、ラビ駆動に用いる 457.7nm レーザーおよび 422.8nm のプローブレザーを適切なビームサイズに調整することで、観測に進める段階にある。

さらに、 $\beta\beta$ 事象の MC データ作成においては、放出電子のエネルギー分布および二電子間の放出角度が従う確率密度関数に基づいて事象生成を行った。既存の解析手法を参考にしながら PSD 分布の作成を行い、実データに散りばめることを想定した MC データの再現性評価を行った。その結果、標準エネルギーカット後における検出効率や PSD 分布における LS 事象の低減度の観点から、実データ中の信号事象の特徴を適切に再現していることが確認された。これにより、実データでは十分な統計を得ることが困難な $\beta\beta$ 事象について、MC データを構築することができた。

今後の展望としては、実データに対して時間的にランダムに生成した $\beta\beta$ 事象 MC データを散りばめ、Livetime 評価に向けた解析準備を進めていく必要がある。

付録 A

A.1 ラビ振動

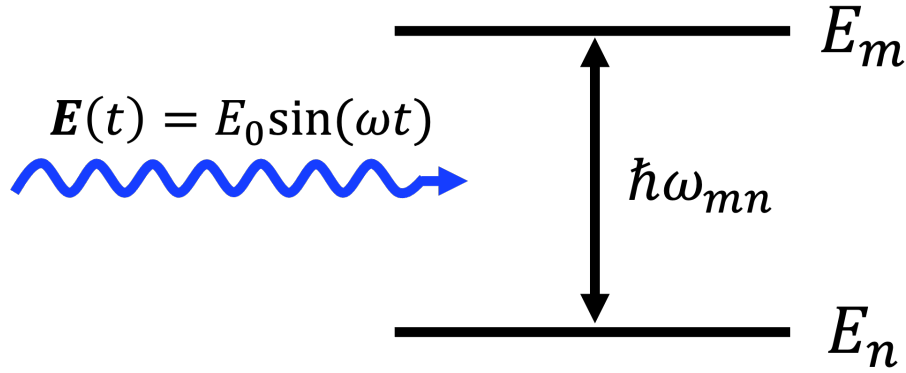


図 A.1: 光と二準位原子の相互作用

エネルギー差が $\hbar\omega_{mn}$ の二準位系 (上準位 m 、下準位 n) に対して、角振動数 ω で振動する電場 $E_0 \sin(\omega t)$ を印加した際の系の時間発展を考える (図 A.1)。ここで、 $\hbar = h/2\pi$ であり、 h はプランク定数である。この系を記述するハミルトニアンは、原子の遷移双極子モーメントを $\boldsymbol{\mu}_{mn}$ とすると、

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_{int} = \hat{H}_0 - \boldsymbol{\mu}_{mn} \cdot \mathbf{E}(t) \quad (\text{A.1})$$

とかける。ここで、 \hat{H}_0 は原子の自由ハミルトニアンであり、その固有状態 $\psi(\mathbf{r}, t)$ は $\hat{H}_0 \psi(\mathbf{r}, t) = E \psi(\mathbf{r}, t)$ を満たす。この固有状態系 $\{\psi_m, \psi_n\}$ を基底として、系の波動関数を

$$\psi(\mathbf{r}, t) = \sum_{i=m,n} \psi_i(\mathbf{r}, t) = \sum_{i=m,n} b_i(t) \exp(-iE_i t/\hbar) \cdot \varphi_i(\mathbf{r}) \quad (\text{A.2})$$

と展開する。ここで、 $b_i(t)$ は任意の複素係数であり、確率保存より $\sum_{i=m,n} |b_i(t)|^2 = 1$ を満たす。この展開を Schrödinger 方程式

$$i\hbar \frac{\partial \psi(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = H \psi(\mathbf{r}, t) \quad (\text{A.3})$$

に代入し、 $\psi_n(t)$ 、 $\psi_m(t)$ 成分を比較すると、次の連立微分方程式を得る。

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \begin{pmatrix} b_n(t) \exp(-iE_n t/\hbar) \\ b_m(t) \exp(-iE_m t/\hbar) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} E_n & \boldsymbol{\mu}_{mn} \cdot \mathbf{E}(t) \\ \boldsymbol{\mu}_{mn} \cdot \mathbf{E}(t) & E_m \end{pmatrix} \begin{pmatrix} b_n(t) \exp(-iE_n t/\hbar) \\ b_m(t) \exp(-iE_m t/\hbar) \end{pmatrix} \quad (\text{A.4})$$

左辺の時間微分の計算を進めると、

$$i\hbar \begin{pmatrix} \exp(-iE_n t/\hbar) \frac{\partial b_n(t)}{\partial t} \\ \exp(-iE_m t/\hbar) \frac{\partial b_m(t)}{\partial t} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & \boldsymbol{\mu}_{mn} \cdot \mathbf{E}(t) \\ \boldsymbol{\mu}_{mn} \cdot \mathbf{E}(t) & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} b_n(t) \exp(-iE_n t/\hbar) \\ b_m(t) \exp(-iE_m t/\hbar) \end{pmatrix} \quad (\text{A.5})$$

が得られ、さらに式を整理すると以下の関係式が得られる。

$$i \begin{pmatrix} \frac{\partial b_n(t)}{\partial t} \\ \frac{\partial b_m(t)}{\partial t} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & \frac{\boldsymbol{\mu}_{mn} \cdot \mathbf{E}(t)}{\hbar} \\ \frac{\boldsymbol{\mu}_{mn} \cdot \mathbf{E}(t)}{\hbar} & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} b_n(t) \exp(-i \frac{E_m - E_n}{\hbar} t) \\ b_m(t) \exp(-i \frac{E_m - E_n}{\hbar} t) \end{pmatrix} \quad (\text{A.6})$$

次に、 $\omega_{mn} = \frac{E_m - E_n}{\hbar}$ および $\mathbf{E}(t) = \mathbf{E}_0 \sin(\omega t) = \mathbf{E}_0 \frac{e^{i\omega t} - e^{-i\omega t}}{2i}$ を用いて、回転波近似 (RWA) を行う。急速振動項 $\exp\{i(\omega_{mn} + \omega)t\}$ を無視し、共鳴に近い成分 (ゆっくり振動する項) のみに注目する。離調を $\delta \equiv \omega - \omega_{mn}$ と定義すると、

$$i \frac{\partial b_n(t)}{\partial t} = \frac{\boldsymbol{\mu}_{mn} \cdot \mathbf{E}_0}{2\hbar} b_m(t) e^{i\delta t} \quad (\text{A.7})$$

$$i \frac{\partial b_m(t)}{\partial t} = -\frac{\boldsymbol{\mu}_{mn} \cdot \mathbf{E}_0}{2\hbar} b_n(t) e^{-i\delta t} \quad (\text{A.8})$$

さらに時間依存位相を消去するため、 $b_m \equiv a_m e^{+i\delta t/2}$ 、 $b_n \equiv a_n e^{-i\delta t/2}$ で変数変換を行う。また、ラビ振動数を

$$\Omega \equiv \frac{\boldsymbol{\mu}_{mn} \cdot \mathbf{E}_0}{\hbar} \quad (\text{A.9})$$

と定義すると、 $a_n(t)$ 、 $a_m(t)$ は以下の式を満たす。

$$i \frac{\partial a_n(t)}{\partial t} = \frac{\delta}{2} a_n(t) + \frac{\Omega}{2} a_m(t) \quad (\text{A.10})$$

$$i \frac{\partial a_m(t)}{\partial t} = -\frac{\delta}{2} a_m(t) + \frac{\Omega}{2} a_n(t) \quad (\text{A.11})$$

以下では次の式で定義される密度行列を導入し、励起状態占有確率の時間発展を求める。

$$\hat{\rho} = \begin{pmatrix} \rho_{gg} & \rho_{ge} \\ \rho_{eg} & \rho_{ee} \end{pmatrix} = |\psi(t)\rangle \langle \psi(t)| = \begin{pmatrix} a_g(t) a_g^*(t) & a_g(t) a_e^*(t) \\ a_e(t) a_g^*(t) & a_e(t) a_e^*(t) \end{pmatrix} \quad (\text{A.12})$$

ここで、 ρ_{ee} は励起状態の占有確率であり、 ρ_{eg} は基底状態と励起状態の間の量子コヒーレンスを表す。 ρ_{ee} の時間微分は

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_{ee} &= \frac{d a_e(t)}{dt} a_e^*(t) + a_e(t) \frac{d a_e^*(t)}{dt} \\ &= \frac{i\Omega}{2} (\rho_{eg} - \rho_{ge}) \end{aligned} \quad (\text{A.13})$$

同様に ρ_{eg} の時間微分は

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_{eg} &= \frac{d a_e(t)}{dt} a_g^*(t) + a_e(t) \frac{d a_g^*(t)}{dt} \\ &= i\delta \rho_{eg} + \frac{i\Omega}{2} (\rho_{ee} - \rho_{gg}) \end{aligned} \quad (\text{A.14})$$

ここで、変数 u, v, ω を次のように導入する。

$$u = \rho_{ge} + \rho_{eg} = 2\text{Re}[\rho_{eg}] \quad (\text{A.15})$$

$$v = i(\rho_{ge} - \rho_{eg}) = 2\text{Im}[\rho_{eg}] \quad (\text{A.16})$$

$$\omega = \rho_{ee} - \rho_{gg} \quad (\text{A.17})$$

これらの変数に対応する微分方程式は、

$$\frac{du}{dt} = -\frac{\Gamma}{2}u - \delta v \quad (\text{A.18})$$

$$\frac{dv}{dt} = -\frac{\Gamma}{2}v + \delta u + \Omega\omega \quad (\text{A.19})$$

$$\frac{d\omega}{dt} = -\Gamma(\omega + 1) - \Omega v \quad (\text{A.20})$$

寿命を考慮しない ($\Gamma = 0$) 場合、式 (A.18)、(A.19)、(A.20) より、 v の 2 回微分方程式は以下のように与えられる。

$$\frac{d^2v}{dt^2} + \Omega_R^2 v = 0, \quad \Omega_R \equiv \sqrt{\delta^2 + \Omega^2} \quad (\text{A.21})$$

これは角振動数 Ω_R をもつ単振動の方程式である。初期状態を基底状態 ($u(0) = 0, v(0) = 0, \omega(0) = -1$) とすると、式 (A.19) より $\dot{v}(0) = -\Omega$ であるため

$$v(t) = -\frac{\Omega}{\Omega_R} \sin(\Omega_R t) \quad (\text{A.22})$$

を得る。さらに、式 (A.20) より $w(t)$ は以下のように書ける。

$$\omega(t) = -\frac{\Omega^2 \cos(\Omega_R t) + \delta^2}{\Omega_R^2} \quad (\text{A.23})$$

励起状態の占有確率は $\rho_{ee} = \frac{1+\omega(t)}{2}$ で与えられるので、励起状態確率は次の形で表される。

$$|\Psi(t)|^2 = \rho_{ee} = \frac{\Omega^2}{\delta^2 + \Omega^2} \sin^2 \left(\frac{\sqrt{\delta^2 + \Omega^2}}{2} t \right) \quad (\text{A.24})$$

特に離調が存在しない場合 ($\delta = 0$) には、式 (A.24) は

$$|\Psi(t)|^2 = \rho_{ee} = \sin^2 \left(\frac{\Omega}{2} t \right) \quad (\text{A.25})$$

と簡単な形に帰着し、励起状態確率は時間に対して正弦二乗関数として振動する。

図 A.2 に、離調がない場合におけるラビ振動の時間発展の一例を示す。

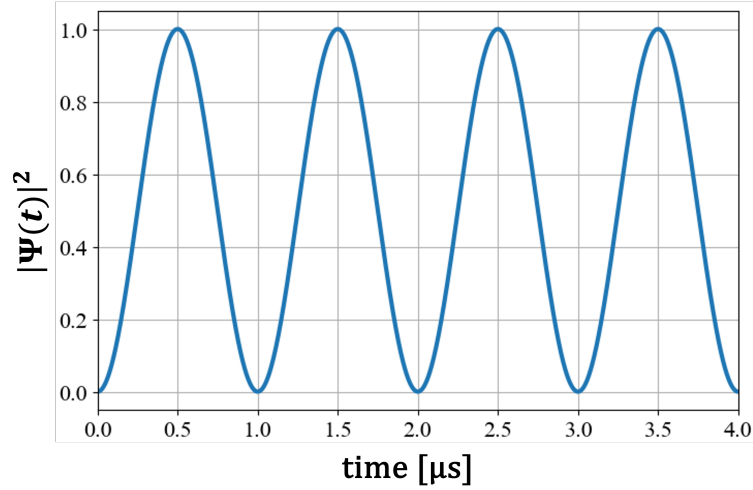


図 A.2: 離調がない場合のラビ振動の一例 (ラビ振動数: $\Omega/2\pi = 1$ MHz)

A.2 ガウシアンビーム

レーザー光の横断面における強度分布は、一般にガウシアンビームとして近似されることが多い。ビーム断面内の座標を (y, z) 、伝搬方向を x とすると、強度分布は以下で与えられる。

$$I(y, z) = I_0 \exp\left(-\frac{2y^2}{w_y^2} - \frac{2z^2}{w_z^2}\right) \quad (\text{A.26})$$

ここで、 I_0 はレーザーの中心における最大強度であり、 w_y 、 w_z はそれぞれ y 方向および z 方向の $1/e^2$ 半径である。これらは次の関係を満たす。

$$I(y = w_y, z = 0) = \frac{I_0}{e^2}, \quad I(y = 0, z = w_z) = \frac{I_0}{e^2} \quad (\text{A.27})$$

ガウシアンビームの全パワー P は、式 (A.26) で与えられるガウシアンビームの強度分布を、ビーム断面全体にわたって積分することで

$$P = \iint_{-\infty}^{\infty} I(y, z) dy dz \quad (\text{A.28})$$

と定義される。ガウシアン分布はビーム半径に対して指数関数的に減衰するため、積分範囲を $y, z \in (-\infty, +\infty)$ としても十分良い近似が成り立つ。そのもとで式 (A.26) を代入して積分を実行すると以下の関係式が得られる。

$$P = \frac{\pi}{2} I_0 w_y w_z \quad (\text{A.29})$$

したがって、レーザーの中心強度 I_0 は、 P を用いて

$$I_0 = \frac{2P}{\pi w_y w_z} \quad (\text{A.30})$$

と表される。

図 A.3 に $2w_y=0.5$ [mm]、 $2w_z=1.5$ [mm] の楕円形ガウシアンビームの強度分布を示す。

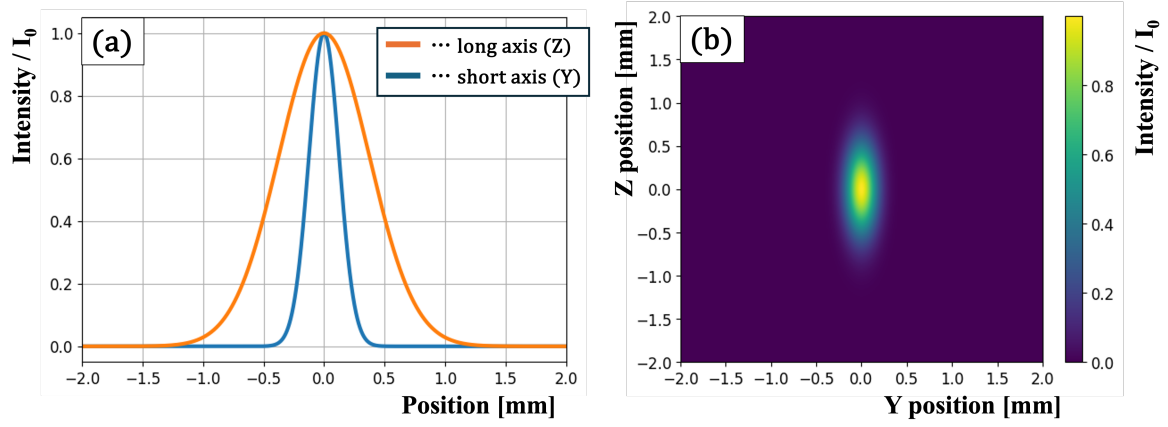


図 A.3: レーザー強度の空間分布

A.3 ガウシアンビームにおけるラビ周波数の空間分布

以下では、ガウシアンビームの強度分布がラビ周波数の空間分布にどのように反映されるかを示す。

二準位近似において、原子と電磁波の相互作用によるラビ周波数 Ω は、遷移双極子モーメント μ_{mn} と電場振幅 E_0 を用いて

$$\Omega = \frac{\mu_{mn} E_0}{\hbar} \quad (\text{A.31})$$

と表される。したがって、ラビ周波数は電場振幅に比例 ($\Omega \propto E_0$) する。

一方、単色電磁波における時間平均強度 I は電場振幅 E_0 の二乗に比例し、

$$I = \frac{1}{2} c \epsilon_0 E_0^2 \quad (\text{A.32})$$

と与えられる。この関係より、電場振幅は強度の平方根に比例することが分かる。

以上より、ガウシアンビームの強度分布が式 (A.26) で与えられる場合、電場振幅の空間分布は

$$E(y, z) \propto \sqrt{I(y, z)} = \sqrt{I_0} \exp\left(-\frac{y^2}{w_y^2} - \frac{z^2}{w_z^2}\right) \quad (\text{A.33})$$

と書けるので、ラビ周波数の空間分布は

$$\Omega(y, z) = \Omega_0 \exp\left(-\frac{y^2}{w_y^2} - \frac{z^2}{w_z^2}\right), \quad \Omega_0 = \frac{\mu_{mn}}{\hbar} \sqrt{\frac{4P}{\pi c \epsilon_0 w_y w_z}} \text{ [rad/s]} \quad (\text{A.34})$$

で表される。ここで Ω_0 はビーム中心におけるラビ周波数である。

このように、ガウシアン強度分布に対応するラビ周波数の空間分布は、指数の係数が $1/2$ となるガウシアン分布となる。原子がビーム断面内の有限な空間分布を持つ場合には、ラビ周波数の空間的不均一性により、観測されるラビ振動は位置平均によってコントラストが低下する可能性がある。

図 A.4 に $2w_y=0.5[\text{mm}]$ 、 $2w_z=1.5[\text{mm}]$ の楕円形ガウシアンビームにおける、ラビ振動数の空間分布を示す。

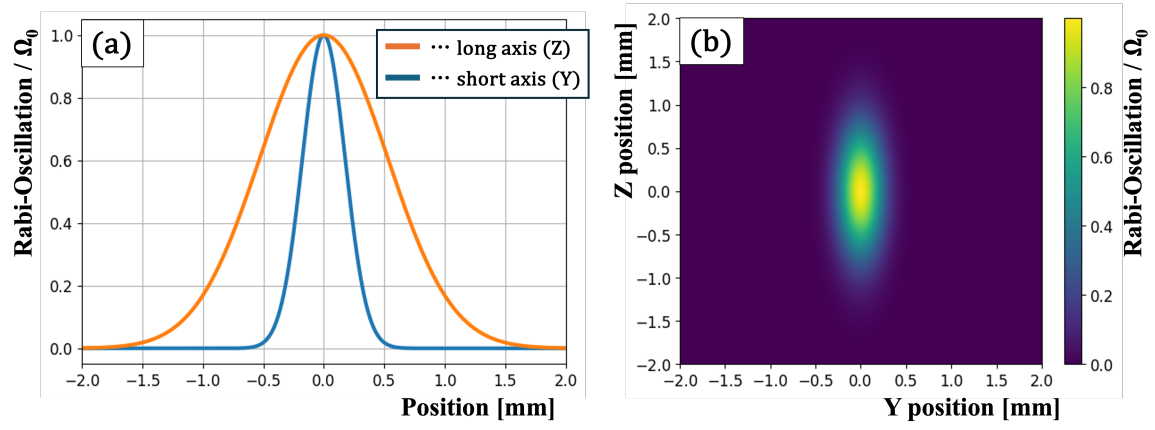


図 A.4: ラビ振動数の空間分布

謝辞

この論文は、私の大阪大学理学研究科物理学専攻川畑研究室における研究の成果をまとめたものです。本論文の作成にあたり、非常に多くの方々から多大なるご指導とご協力を賜りました。ここに深く感謝の意を表します。

まず、指導教員である吉田斉准教授には、2024年6月に CANDLES に配属させていただいて以降、終始温かく、かつ的確なご指導を賜りました。ROOT すらまともに使えず数ヶ月しか猶予のない中で、配属直後にもかかわらず無理を申し上げ、データ解析のテーマで秋の学会に参加させていただきました。お忙しい中、頻繁に居室にお邪魔して研究を進める日々が続いたと思います。成果がなかなか出ない状況が続き、発表練習は学会発表当日の深夜2時からお付き合いいただき、最後まで支えてくださいました。その後、研究テーマが ^{48}Ca 同位体濃縮へと変更になってからも、毎週のミーティングに限らず、研究の方向性から細部に至るまで多くのご指導・ご助言をいただきました。心より感謝申し上げます。

梅原さおり教授には、特に同位体濃縮に関する研究環境の整備において多大なるご尽力をいただきました。学会発表や修士論文に向けて成果が思うように出ず、焦りの中で無理なお願いや急な発注をお願いすることも多かったかと思いますが、その都度ご対応いただき、研究を進めることができました。深く御礼申し上げます。

京都大学の時田茂樹教授には、レーザー素子の選定をはじめ、ラビ振動の研究においても光学に関する多くの知識とご助言をいただきました。お忙しい中、光学系のトラブル等で度々ご相談させていただき、ご迷惑をおかけすることが多かったと思いますが、その都度丁寧にご対応いただきありがとうございます。

また、研究員の升野振一郎様、レーザー素子選定の実験において、測定機器の取り扱いから丁寧にご指導いただきました。昼食に誘っていただいたり、実験上の困りごとについて相談させていただいた際には親身に対応していただき、京都大学化学研究所へ一人で実験に赴く中で、大きな心の支えとなりました。京大化研の関係者の皆様には、半年ほどの短い期間ではありましたが、大変お世話になりました。様々なお話しをさせていただき、非常に楽しかったです。

特任研究員の Nick (Anawat) さんには、阪大での濃縮実験において、頻繁に実験器具をお貸しいただくなど、大変お世話になりました。特に Ca 蛍光がなかなか観測できなかった際には、英語での議論が難しい私に対して、LINE で文字に起こして会話してくださったり、ホワイトボードを使って図を描きながら説明してくださるなど、親身になって一緒に考えてくださいました。また、修士論文提出直前には、自身の実験を延期してまでサポートしてくださり、感謝の気持ちでいっぱいです。心よりお礼申し上げます。ありがとうございました。

嶋達志教授には、ラビ振動の研究において、Ca 蒸気の生成に関する議論をはじめ、様々な

観点から議論させていただきました。当初は議論についていくのが難かしく、あまり意見が言えず、また理解も疎い私ではありましたが、祝日であっても根気強く議論を重ねていただきました。457nm レーザーのパルス化に強くこだわっていた私に対して、DC 駆動による観測手法を提案してくださるなど、発想の転換の重要性を教えていただき、研究における視野の広げ方を学ばせていただきました。また、実験においても度々夜遅くまでご一緒していただき、手際の悪い中でも最後までお付き合いいただきました。ここに深く感謝申し上げます。

三島賢二教授、ラビ振動の研究において、お忙しい中、研究面・実務面の双方にわたり大変お世話になりました。研究出張等でご多忙にもかかわらず、私の研究を気にかけて度々お声がけいただき、相談に乗っていただきました。コリメータ設計や実験に必要な物品についても一緒に検討していただき、発注に関する手続きも円滑に進めることができました。また、土日を問わず測定データや数値計算の結果に目を通していただき、今後の研究の進め方についても多くのご助言をいただきました。これらのご支援のおかげで、ここまで研究を進めることができましたと感じております。心より感謝申し上げます。

川畑研同期の岡村君、下條君、高草君、野田君、松田君、前里君、安田君には大学院より外部の大学から入学した私を快く迎えてくれ、日々の研究生活にて大変お世話になりました。グループは違えど研究に関する悩みごとに付き合っていていただき、数々相談させていただきました。時には「らふおれ」の100円朝食目指して一緒に早起き頑張ったり、大部屋で雀卓を囲んだり、グランピングに行ったり、おかげさまで2年間の大学院生活はかけがえのない思い出となりました。各々が各研究で忙しく、プライベートで遊ぶことはあまりなかったですが、大阪に帰る際には声をかけるのでタイミングが合えば飲みに行ったり出かけたりしましょう。

同期でかつ同じ CANDLES グループの野田くん、お互い研究成果がなかなかでない中で、悩みを共有しながら多くの相談に乗っていただきました。また、出張先においても大変お世話になりました。別々に予約したにもかかわらず宿泊先のホテルが度々同じになるなど、不思議すぎる縁を感じるが多々ありました。特に、東京大学での研究会では、同じカプセルホテルどころか隣同士のカプセルだったこともあり、驚きもありましたが寝にくかったです。(ちなみに真上のカプセルが三島さんでした。) この2年間不運な話をたくさん耳にしましたが、今後は期待値を大きく上回る幸運事象が観測されることを祈っています。

最後に、同じ CANDLES グループの後輩である松本君、堤君、金城君をはじめ、B4,M1,Dの皆様、ならびに教員の先生方には、研究活動に限らず、日常の何気ない会話や交流を通じて、多くの時間を共に過ごすことができ、充実した研究生活を送ることができました。本研究を支えてくださったすべての方々に、心より感謝申し上げます。

参考文献

- [1] W. Pauli, "Letter to the Physical Society of Tübingen", 1930.
- [2] E. Fermi, "Tentativo di una teoria dei raggi beta", *Il Nuovo Cimento* **11**, 1–19 (1934).
- [3] F. Reines and C. L. Cowan, "Detection of the Free Neutrino", *Phys. Rev.* **92**, 830–831 (1953).
- [4] Y. Fukuda et al., "Evidence for Oscillation of Atmospheric Neutrinos", *Phys. Rev. Lett.* **81**, 1562–1567 (1998).
- [5] B. Pontecorvo, "Neutrino Experiments and the Problem of Conservation of Leptonic Charge", *Sov. Phys. JETP* **26**, 984–988 (1968).
- [6] S. Abe *et al.* (KamLAND-Zen Collaboration), "Search for Majorana Neutrinos near the Inverted Mass Ordering Region with KamLAND-Zen", *Phys. Rev. Lett.* **130**, 051801 (2023).
- [7] H. Acharya *et al.* (LEGEND Collaboration), "Search for Neutrinoless Double-Beta Decay with the First LEGEND-200 Data", arXiv:2505.10440 [hep-ex] (2025).
- [8] D. Q. Adams *et al.* (CUORE Collaboration), "Improved Limit on Neutrinoless Double-Beta Decay in ^{130}Te with CUORE", *Phys. Rev. Lett.* **124**, 122501 (2020).
- [9] G. Anton *et al.* (EXO-200 Collaboration), "Search for Neutrinoless Double-Beta Decay with the Complete EXO-200 Dataset", *Phys. Rev. Lett.* **123**, 161802 (2019).
- [10] O.A.Ponkratenko et al., The event generator DECAY4 for simulation of double beta processes and decay of radioactive nuclei (2001).
- [11] G. P. Agrawal and N. K. Dutta, *Semiconductor Lasers*, Springer, New York, 2nd ed., 1993.
- [12] Research Center for Solar Energy Chemistry, Graduate School of Engineering Science, Osaka University, <https://www.rcsec.osaka-u.ac.jp>, (accessed February 2026).
- [13] 三好剛, CANDLES 実験でのバックグラウンド事象低減に向けたモンテカルロシミュレーション開発, Master's thesis, 大阪大学, 2023.
- [14] 丹羽雄大, CaF₂ シンチレータによる稀現象探索実験におけるバックグラウンド提言の研究, Master's thesis, 福井大学, 2024.
- [15] 吉岡篤志, CANDLES 実験での ^{208}Tl 起源バックグラウンドの低減, Master's thesis, 大阪大学, 2023.
- [16] 白井竜太, CANDLES 実験における $0\nu\beta\beta$ 観測のための ^{212}Bi バックグラウンドの低減, Master's thesis, 大阪大学, 2024.