

平成 30 年 6 月 11 日現在

機関番号：15301

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15H03661

研究課題名(和文)トリウム229アイソマー極低エネルギー準位の決定とその特異性の究明

研究課題名(英文)Study on Thorium-229 low-lying isomeric state

研究代表者

吉村 浩司 (Yoshimura, Koji)

岡山大学・異分野基礎科学研究所・教授

研究者番号：50272464

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,100,000円

研究成果の概要(和文)：原子核としては異常に小さい eV オーダーのトリウム-229アイソマー準位を、高輝度放射光 X 線および高速検出器系による核共鳴散乱を用いた新しい手法で探索した。そのための高時間分解能高速応答X線計測システム、高性能標的システム、X線集光システムを開発し、従来では困難であった1 ns以下の短い寿命の高精度な核共鳴データを取得することに成功した。

研究成果の概要(英文)：We searched for eV-order meta-stable isomeric excited state of Th-229, which is extraordinarily low-lying for ordinary nuclei. We developed the new scheme using nuclear resonant scattering with high intense synchrotron radiation X-ray source, fast X-ray detection system, high performance targetry, and X-ray focusing system. We have successfully observed the precise signal from nuclear resonant scattering of nuclei with half life below 1 ns.

研究分野：素粒子実験

キーワード：原子核時計 核共鳴散乱 X線検出器 トリウム APD 周波数標準 物理定数の経年変化

1. 研究開始当初の背景

トリウム 229 ( $^{229}\text{Th}$ ) は、古くから低い励起準位を持つことが知られていたが、最近のガンマ線遷移の測定から間接的に導き出されたエネルギー準位は、 $7.8 \pm 0.5 \text{ eV}$  で、原子核遷移としては特異な極めて低いエネルギーであることがわかってきた(図1)。このエネルギー範囲であれば、真空紫外レーザーにより励起することが可能であることから、レーザー励起可能な原子核遷移として大きな注目を集めている。

通常の電子遷移に比べて原子核が電子に遮蔽されているため外場の影響を受けにくく、予想されている半減期が  $10^3 \sim 10^4 \text{ s}$  と極めて長いという特長があり (アイソマー状態)、次々世代周波数標準 (原子核時計)、あるいは基礎物理定数の経年変化測定、等の応用が期待されている。又、電子遷移と同程度の低エネルギー準位を持つ唯一の原子核ということで、原子核と原子の軌道電子系との相互作用が期待できる。量子的な干渉効果により、その核遷移が化学状態に大きく依存すると考えられており、原子核遷移による化学状態研究の新しいプローブとして期待されている。

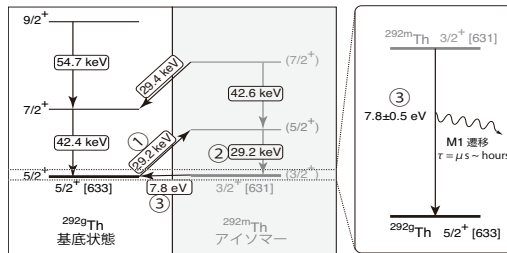


図1 トリウム 229 の励起準位とアイソマー準位への励起方法

2. 研究の目的

本研究では、以下に示すように高輝度放射光 X 線による核共鳴散乱を用いた新しい手法により、トリウム 229 アイソマー状態の確認とそのエネルギー決定を行うことを目的とする。

- (1) 29.2keV の単色 X 線を  $^{229}\text{Th}$  標的に照射し、核共鳴散乱の手法を用いてアイソマー回転励起準位 ( $5/2^+$ ) への励起を確認する (図1-①)。
- (2) (1) で得られた共鳴スペクトル中心に照射 X 線エネルギーを合わせることで、回転励起準位 ( $5/2^+$ ) への励起に引き続いて起こるアイソマー準位 ( $3/2^+$ ) への脱励起を観測する (図1-②)。
- (3) アイソマー準位から基準準位へ脱励起する光を分光器にかけてスペクトルを測定 (図1-③)。

この手法は、従来行われてきた  $7.8 \text{ eV}$  付近の真空紫外光で励起する手法に比べて以下の利点を持つ。(i) 核共鳴散乱のピーク (図6 参考) を確認することによりアイソマー準位に移ったことを確認できる。(ii) 励起光と測定

光のエネルギーが全く異なるため、励起光起因の蛍光等、測定時のバックグラウンドが少なく、また、励起しながら同時に脱励起光を観測することができるので、寿命が極めて短い場合 ( $\sim \mu\text{s}$ ) においても観測が可能となる。(iii) アイソマー準位への励起の ON/OFF を入射 X 線エネルギーをわずかに変えるだけで容易にコントロールできる。

3. 研究の方法

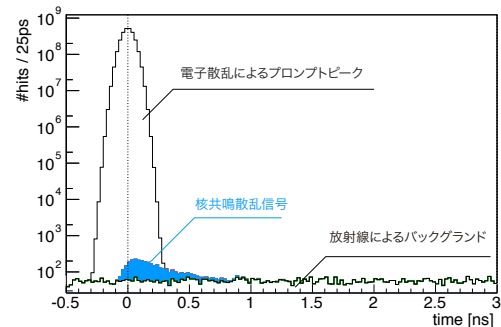
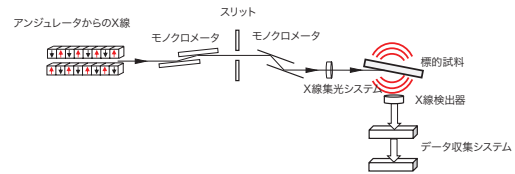


図2 実験レイアウトと予想される核共鳴散乱信号

図2に示すようなレイアウトで高輝度放射光施設 SPring-8 のビームを用いて実験を行う。X 線エネルギーが共鳴エネルギーに一致した際に回転励起準位に励起され、その脱励起にともなう散乱光を検出することにより、核共鳴散乱を観測する。観測される信号の時間分布は図2のようになり、通常の電子散乱による直接散乱光(プロンプト)の信号のあとで、有限の寿命をもつ核共鳴散乱信号が観測される。信号の同定は時間測定により行うために、高い時間分解能 ( $\sim 50 \text{ ps}$ ) で X 線の到達時間を測定し、また反応確率を増大させるために、高密度標的と X 線集光システムが必要となる。そのために、以下に示す項目の開発を行い、実験に臨んだ。



図3 9ch APD アレイを用いた高速応答型 X 線検出器

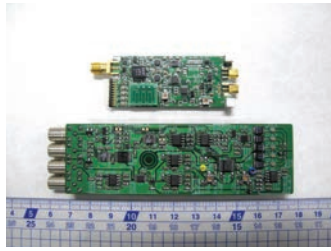


図4 APD読み出し用CFD(上)とATC(下)

- (1) 高速応答型 X 線検出器の開発  
50 ps 程度の時間分解能を有し、X 線領域でダークカウントが低く、また高計数率 (1 Mcps) での測定が可能な検出器として、空乏層の薄い直径 0.5 mm の Si-APD を用いた。立体角を増やすために、9 個の素子をアレイ状に配置したセンサーを浜松ホトニクスと共同で開発し、それを用いた検出システムを製作した (図 3)
- (2) 高速データ収集システムの開発  
APD 信号の時間とエネルギー情報を高計数率で同時に取得できるデータ収集システムを開発した。プリアンプで増幅した APD 信号を、Constant Fraction Discriminator (CFD) でデジタル化するとともに、波高についても Amplitude-to-Time Converter (ATC) により時間情報に変換して、高速 Multi-stop TDC MCS6 (Fast ComTec GmbH 製) で時間情報として記録する。図 4 に本実験のために作成した CFD および ATC を示す。これにより、トータルで 7 Mcps の計数率で散乱信号のエネルギーと時間を同時に測定することが可能となった。
- (3) 高性能標的および X 線集光装置の開発  
X 線が標的と核共鳴散乱を起こす頻度を増大させるために、集積度の高いトリウム標的試料、および、X 線集光システムを開発した。<sup>229</sup>Th は、非常に稀少な元素であり、核燃料物質として取り扱いが制限されるため、少量 (~ μg) の試料をビームスポット程度 (0.2 mm – 1 mm) に凝集させることが必要である。放射化学的な手法 (沈殿法、電着法) を用いて、φ 1.5 mm、φ 0.5 mm の標的試料を開発した。また、X 線集光システムについては、キャピラリ (XGT: X-ray Guide Tube)、複合屈折レンズを用いて、29.2 keV X 線ビームスポットをそれぞれ 0.2 (水平) x 0.08 (鉛直) mm (FWHM)、0.15 (水平) x 0.065 (鉛直) mm (FWHM) に集光することに成功した

以上の、測定装置の開発および性能評価については、以下の雑誌論文②にまとめられている。

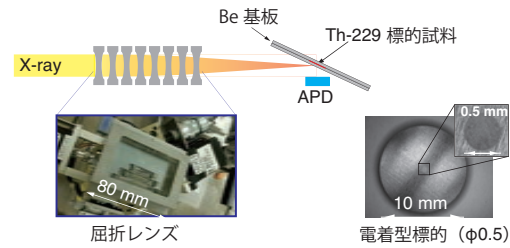


図5 電着型標的と X 線集光用屈折レンズ

#### 4. 研究成果

開発した実験装置を用いて、SPring-8 において実験を行い、以下に示す様な成果が得られた

- (1) 短寿命核共鳴散乱の観測  
開発した実験装置の性能を評価するために、<sup>201</sup>Hg の 26.27 keV 励起状態の核共鳴散乱の観測を行なった。この元素はこれまで核共鳴散乱が観測された中で、最短の励起寿命 (半減期  $T_{1/2} = 0.63$  ns) を持ち、従来の核共鳴散乱実験では半減期の測定が不可能であったものである。図 6 に測定された散乱光の時間分布を示す。入射 X 線エネルギーを変化させていくと、励起エネルギーに一致した場合 (On resonance) に、指数関数的に減少するテールが観測されたが、一致しない場合 (Off resonance) には観測されなかった。図 6 のインセットに示すように、時間の遅いテール成分のカウント数に明瞭な共鳴ピークが観測された。これにより、<sup>201</sup>Hg の半減期もこれまでで最も良い精度  $0.629 \pm 0.018$  ns で求めることができた。[雑誌論文①]

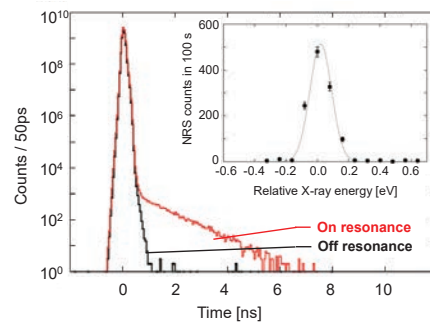


図6 <sup>201</sup>Hg の核共鳴散乱信号

- (2) トリウム核共鳴散乱の探索  
<sup>229</sup>Th の信号は半減期が 0.15 ns 程度と短いうえに、信号強度も弱く、また放射線のバックグラウンドもあるため、<sup>201</sup>Hg の測定よりもさらに感度をあげた測定が必要となる。本研究で開発された <sup>229</sup>Th 乾固型標的 (φ 0.4 mm) と屈折レンズで集光したビームを用いて観測を行なった。得られたデータを図 7 に示す。図 7 の上図は縦軸

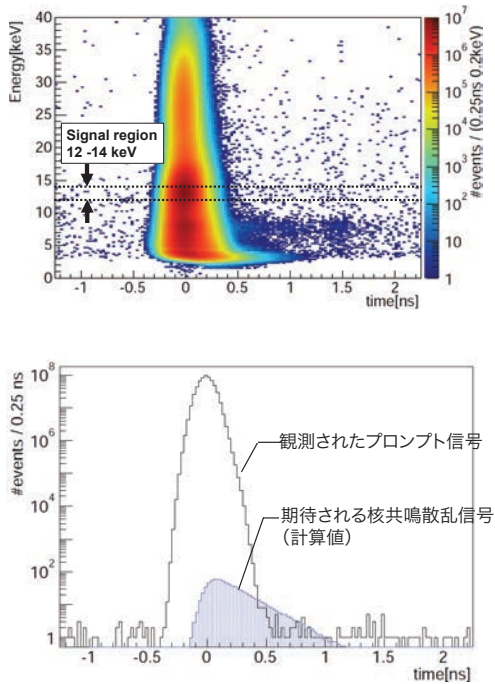


図 7 229<sup>Th</sup> による散乱 X 線のエネルギー vs. 時間分布 (上), エネルギーが 12-14 keV の領域の時間分布

に観測されたエネルギー、横軸に時間を、二次元でプロットしたものである。時間 0 付近に直接散乱光が分布しており、放射線バックグラウンドが時間方向にランダムに分布しているのが見られる。核共鳴散乱信号を取り出すために 12-14 keV のエネルギー範囲のデータの時間分布を求めた (図 7 下)。エネルギーで選別することにより、放射線バックグラウンドが低減されているのがわかる。図中のハッチ部分が核共鳴散乱から予測される信号である。励起エネルギーが一致すれば、明瞭に信号が同定可能できるレベルの感度を達成した。この測定条件で X 線エネルギーを 0.04 eV ステップで変化させて測定を行い、6eV の範囲で核共鳴信号を探索したが、有為な信号は観測されなかった。

今後、さらに感度をあげた探索を行い、核共鳴散乱を観測した後、アイソマー準位からの真空紫外光を観測する予定である。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 3 件)

- ① Yoshimi, H. Hara, T. Hiraki, Y. Kasamatsu, S. Kitao, Y. Kobayashi, K. Konashi, R. Masuda, T. Masuda, Y. Miyamoto, K. Okai, S. Okubo, R. Ozaki, N. Sasao, O. Sato, M. Seto, T. Schumm, Y. Shigekawa, S. Stellmer, K. Suzuki, S. Uetake, M. Watanabe, A. Yamaguchi, Y. Yasuda, Y. Yoda, K.

Yoshimura, and M. Yoshimura, "Nuclear resonant scattering experiment with fast time response: Photonuclear excitation of <sup>20</sup>Hg",

Phys. Rev. C **97**, 024607 (2018). 査読あり (DOI: 10.1103/PhysRevC.97.024607)

- ② T. Masuda, S. Okubo, H. Hara, T. Hiraki, S. Kitao, Y. Miyamoto, K. Okai, R. Ozaki, N. Sasao, M. Seto, S. Uetake, A. Yamaguchi, Y. Yoda, A. Yoshimi, and K. Yoshimura: "Fast x-ray detector system with simultaneous measurement of timing and energy for a single photon", Rev. Sci. Inst. **88**, 063105 (2017). 査読あり (DOI: 10.1063/1.4989405)

- ③ Simon Stellmer, Matthias Schreitl, Georgy Kazakov, Koji Yoshimura and Thorsten Schumm: "Towards a measurement of the nuclear clock transition in Th-229", J. Phys.: Conf. Ser. **723** 012059 (2016) 査読あり (DOI:10.1088/1742-6596/723/1/012059)

[学会発表] (計 10 件)

- ① A. Yoshimi, "Nuclear resonant scattering with high-brilliance X-ray for 229-Th isomer studies", 11th International workshop on Fundamental Physics Using Atoms, January 8 - 9, 2018 (Nagoya, Japan).
- ② K. Yoshimura, "Search for ultra-low nuclear energy level of Thorium-229 isomer-towards nuclear direct excitation with laser", 9th International workshop on Fundamental Physics Using Atoms (FPUA) (January 2017) Kyoto
- ③ K. Yoshimura, "Search for thorium-229 low-lying isomer using intense X-ray light source - toward nuclear excitation using coherent laser light", Gordon Research conference Atomic Physics, June 12, 2017, Newport
- ④ K. Yoshimura, "A search for ultra-low energy nuclear isomer state of Thorium-229 using intense X-ray source", ICOLS 2015, Singapore

[その他]

ホームページ等

<http://www.xqw.okayama-u.ac.jp>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

吉村 浩司 (YOSHIMURA, Koji)

岡山大学・異分野基礎研究所・教授

研究者番号: 50272464

### (2) 研究分担者

吉見 彰洋 (YOSHIMI, Akihiro)  
岡山大学・異分野基礎研究所・准教授  
研究者番号： 40333314

笹尾 登 (SASAO, Noboru)  
岡山大学・異分野基礎研究所・教授  
研究者番号：10115850

(3) 連携研究者

山口 敦史 (YAMAGUCHI, Atsushi)  
理化学研究所・香取量子計測研究室・研究  
員  
研究者番号：70724805

瀬戸 誠 (SETO, Makoto)  
京都大学・原子炉実験所・教授  
研究者番号：40243109

(4) 研究協力者

Simon Stellmer  
ウィーン工科大学・研究員