

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和元年5月28日現在

機関番号：15301

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2017～2018

課題番号：17K14291

研究課題名(和文)トリウム229極低励起エネルギー準位観測のための高時間分解能X線検出器の開発

研究課題名(英文) Development of the fast X-ray detector system toward measurement of the isomeric energy level of  $^{229}\text{Th}$ 

研究代表者

平木 貴宏 (Hiraki, Takahiro)

岡山大学・異分野基礎科学研究所・特別研究員(PD)

研究者番号：40791223

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：トリウム(原子番号90)の同位体の1つ $^{229}\text{Th}$ は、原子核の第一励起準位が10eV程度と原子核の中で最低で、エネルギースケールが真空紫外領域に対応するため、この準位は真空紫外レーザーにより励起することが可能である。しかし、レーザー励起するためには励起エネルギーの正確な値が必要である。しかしながら、未だに正確な励起エネルギーは分かっておらず上に述べた精度の悪い値しかないので、レーザー励起は実現されていない。本研究では高速で高レート耐性のあるX線検出器を開発し、第二励起状態への核共鳴散乱による第一励起状態への励起に成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

現在周波数標準で最も精度が良いものは原子の電子の遷移を用いた原子時計である。これに対し、トリウム229原子核を用いた「原子核時計」の開発に成功すれば、より高精度な周波数標準が実現できると期待されている。一般相対論の効果により時間の流れ方が標高依存性を持つことから、高精度な周波数標準は地殻変動の監視や地下資源の探索を行うことができると期待されている。本研究では、 $^{229}\text{Th}$ の第一励起状態への能動的ポンピングに初めて成功した。これは原子核時計の開発に向けた一つのステップである。

研究成果の概要(英文)：The first excited state of Thorium-229 nucleus is an isomeric state whose energy level is specifically low. This energy splitting is roughly 10 eV. For this reason, it is possible to excite Thorium-229 nuclei by a vacuum-ultraviolet laser. However, this laser excitation has not yet realized because the accurate energy level of the first excited state has been unknown. In this research, We developed a X-ray detection system which has a good timing resolution and capability of the high-rate data acquisition.

By using this X-ray detector system, we succeeded to excite Thorium-229 nuclei to the first excited state by using nuclear resonance scattering to the second excited state.

研究分野：素粒子物理学

キーワード：原子核実験 トリウム229 低エネルギー励起準位 核共鳴散乱 放射光 APD検出器 高時間分解能

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

原子核の励起エネルギーは通常 keV から MeV のスケールである。その一方、トリウム同位体  $^{229}\text{Th}$  は、第一励起準位が 8 eV 程度と原子核の中で最低であり、しかも極端に低い(2番目に低い  $^{235}\text{U}$  は 78 eV で、他は全て 1 keV 以上である)。また、その準位は準安定状態(アイソマー状態)であることが知られている。 $^{229}\text{Th}$  第一励起準位のエネルギースケールは真空紫外領域に対応するため、 $^{229}\text{Th}$  は真空紫外レーザーにより励起することが原子核の中で唯一可能で近年原子核物理のみならず原子物理・放射化学などといった幅広い分野で注目を集めている。特に原子核は外乱の影響を受けにくいという利点があるため、これまでの原子時計を超える周波数精度を持つ原子核時計の実現が考えられている。しかし、過去の世界的、精力的な探索にも関わらず、この準位のエネルギーはレーザー励起できる精度では測定されていない。また、 $^{233}\text{U}$  の崩壊により第一励起準位の  $^{229}\text{Th}$  が用意できるが、第一励起準位からの脱励起光の観測は未だ行われていない。

### 2. 研究の目的

この研究の最終目標は核共鳴散乱を用いた新しい手法を用いて第一励起状態からの脱励起光を世界に先駆けて観測し、脱励起光を分光してエネルギー準位を正確に決定することである。

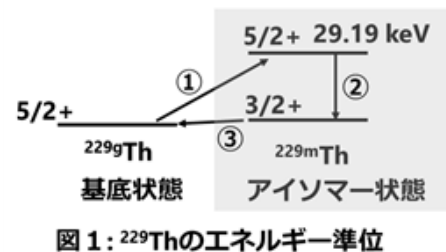
### 3. 研究の方法

これまで行われてきた  $^{229}\text{Th}$  の第一励起準位に直接励起する手法を用いた実験は、第一励起準位のエネルギーや寿命がよく分かっていないこと、脱励起光のエネルギーが入射紫外線のエネルギーと等しく背景事象の削減が難しい等の理由で、励起されているのかを確認することが困難であった。それに対して本研究では以下の独自の手順で第一励起状態からの脱励起光を観測する。

(1). 放射光施設で利用できる単色 X 線バンチビームを用いて  $^{229}\text{Th}$  を第二励起状態 (29.19 keV) に核共鳴励起させる (図 1 - )。

(2). 第二励起状態に励起された  $^{229}\text{Th}$  はほぼ第一励起状態に遷移する (図 1 - )。その時生成される脱励起信号(核共鳴散乱信号)は入射 X 線に比べわずかに遅れて出てくるため、時間情報を正確に測定することで入射 X 線信号との区別が可能である。核共鳴散乱事象のない場合の時間スペクトルが背景事象の見積もりのために必要であるが、これは入射 X 線のエネルギーを共鳴点から数 eV 変えるだけで同一のものが取得できる。

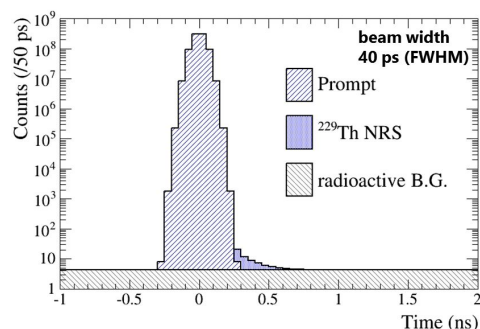
(3). 第一励起状態から基底状態へ脱励起する真空紫外光(図 1 - )を光電子増倍管や分光器を用いて観測する。 $^{233}\text{U}$  の崩壊を用いた手法と比べると核共鳴散乱の方が原子核の反跳エネルギーがずっと低く、クリーンな状況での測定が可能となる。



一方、この核共鳴散乱を用いた手法には以下の難点がある。

(1). 第二励起状態の寿命が非常に短い(100 ps 程度)。この寿命はこれまでに測定された核共鳴散乱のうち最短の  $^{201}\text{Hg}$  (半減期: 約 600 ps) よりも更に短い。よって、図 2 のように核共鳴散乱信号の立ち上がり部分は入射 X 線と標的の散乱事象 (Prompt) に埋もれてしまう。

(2).  $^{229}\text{Th}$  は放射性同位元素であり、 $^{229}\text{Th}$  やその娘核の崩壊が背景事象として混入してしまう。



よって  $^{229}\text{Th}$  の核共鳴散乱信号を観測するためには prompt 信号と核共鳴散乱信号を区別するための高時間分解能、prompt 信号を veto なしで取得する高いレート耐性 (~1 MHz)、更に核共鳴散乱信号と放射性同位体による背景事象を区別するためのエネルギー分解能を持った X 線検出器が必要であり、本研究でこの要求を満たす検出器の開発を行った。

核共鳴散乱信号観測用セットアップを図 3 に示す。トリウム標的は硝酸トリウム溶液をグラフィットのくぼみに付着させ、加熱することで固着させる。標的は直径 0.4 mm で、およそ 0.24  $\mu\text{g}$  の  $^{229}\text{Th}$  含まれている。X 線レンズで集光した X 線ビームを標的に入射し、そこから出てくる。核共鳴散乱信号を観測する。

X線信号の観測にはアバランシェフォトダイオード検出器(APD)を用いる。検出器のアクセプタンスを稼ぐため、1つの基板 APD センサーを9個並べた。APD は時間分解能の良い薄型のものを用いている。APD からの出力信号をすぐ下流の高速プリアンプにより増幅して後段のノイズによる影響を抑える。APD からの信号は高速プリアンプを通した後 CFD (constant fraction discriminator)に入力する。CFD は信号出力タイミングが入力信号の大きさに依存しないため、高精度でデジタル時間情報に変換できる。Belle 実験グループにより開発された高レート耐性の CFD を使用した。ATC (Amplitude-to-time converter)は波高の違いを遅延時間の違いとして出力する回路で、1Mcps の高計数率に対応している。最後に、加速器側から送られるタイミング信号と CFD と ATC のデジタル出力は 100 ps サンプリングの multi-stop TDC で計測される。検出器の時間分解能は 120 ps (FWHM)を達成し、また同時に約 20% (FWHM)のエネルギー分解能を持っている。

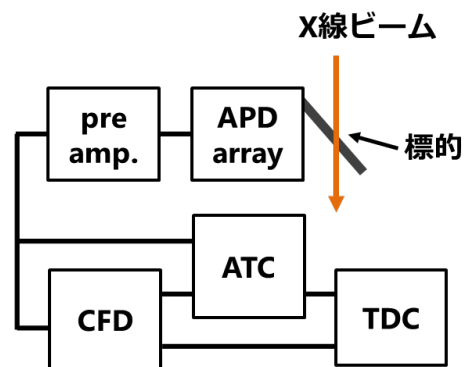


図3: 核共鳴散乱観測用セットアップ

#### 4. 研究成果

実験は大強度放射光施設 SPring-8 の BL09 および BL19LXU ビームラインで行った。X線ビームは Si モノクロメータを用いて単色化し、X線エネルギーの微調整をした。X線エネルギースキャンを行い、検出器信号に解析でエネルギーと時間のカットをかけた結果、図4のような核共鳴散乱ピークを観測した。これは  $^{229}\text{Th}$  第一励起状態への世界初の能動的な光ポンピングの成功である。この観測から  $^{229}\text{Th}$  の第二励起状態のエネルギー準位、寿命、断面積、第一励起状態への分岐比等を評価し、核共鳴散乱により第一励起状態に励起された  $^{229}\text{Th}$  の数を評価できるようになった。(論文投稿中)

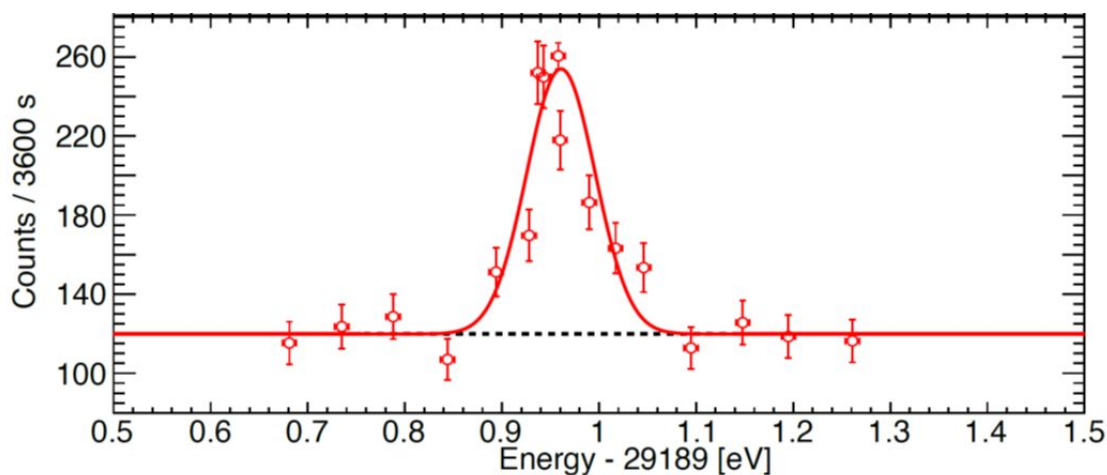


図4:  $^{229}\text{Th}$ 核共鳴散乱信号のエネルギースペクトル

この研究は当科研費の期間終了後も引き続き行う。今後は真空紫外領域に透過率の高い CaF<sub>2</sub> 結晶に  $^{229}\text{Th}$  をドーブした標的に核共鳴散乱法で第一励起状態に遷移した  $^{229}\text{Th}$  からの真空紫外光探索実験を行う。

#### 5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計 3 件)

T. Masuda, O.T. Hiraki, H. Kaino, S. Kishimoto, Y. Miyamoto, K. Okai, S. Okubo, R. Ozaki, N. Sasao, K. Suzuki, S. Uetake, A. Yoshimi, K. Yoshimura, "Energy response of X-rays under high flux conditions using a thin APD for the energy range of 6-33 keV", Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A, 913, 72 (2019)  
DOI: <https://doi.org/10.1016/j.nima.2018.10.029>

A. Yoshimi, H. Hara, O.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: new scheme for observation of  $^{229m}\text{Th}$  radiative decay", Phys. Rev. C **97**, 024607 (2018)  
DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevC.97.024607>

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. Instrum. **88**, 063105 (2017)  
DOI: <https://doi.org/10.1063/1.4989405>

〔学会発表〕(計 1 件)

○平木貴宏、" Search for the lowest-energy nuclear isomeric state of Th-229 toward a "nuclear clock" ", 重元素核化学研究会, 理化学研究所, 2019年3月27-28日

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
出願年：  
国内外の別：

取得状況(計 0 件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
取得年：  
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等  
なし

## 6. 研究組織

### (1)研究分担者

研究分担者氏名：

ローマ字氏名：

所属研究機関名：

部局名：

職名：

研究者番号(8桁)：

### (2)研究協力者

研究協力者氏名：

ローマ字氏名：

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。