

令和 5 年 6 月 12 日現在

機関番号：82401

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2018～2022

課題番号：18H01241

研究課題名（和文）「原子核時計」実現にむけたトリウム229核異性体準位のエネルギー測定

研究課題名（英文）Energy measurement of the Thorium-229 nuclear isomer toward a nuclear clock

研究代表者

山口 敦史（Yamaguchi, Atsushi）

国立研究開発法人理化学研究所・開拓研究本部・専任研究員

研究者番号：70724805

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,500,000円

研究成果の概要（和文）：高分解能ガンマ線検出器である超伝導転移端センサーを用いた精密ガンマ線分光により、トリウム229(Th-229)の低エネルギー原子核励起状態(アイソマー状態)のエネルギーを 8.30 ± 0.92 eVと決定した。Th-229のアイソマー状態のエネルギーは、同時期に他のグループでも異なる実験手法で測定され、すべての測定値が不確かさの範囲内で一致し、実質的に値が確定された。これにより本研究は、原子核時計の実現に向けた次のステップである、Th-229原子核の直接レーザー分光の実現に道筋をつけた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

Th-229には、レーザーが作成可能な真空紫外領域の原子核遷移が存在する。この核遷移を使うと、高精度周波数標準である原子核時計が実現できると期待されている。研究開始当初、この核遷移の共鳴エネルギーの報告値はいくつかあったものの、互いに一致していなかった。本研究では、独自の手法によりこの遷移エネルギーを 8.30 ± 0.92 eVと決定した。本研究の報告値は、同時期に他のグループが異なる実験手法で測定した結果とも一致した。これにより、原子核時計の実現に向けた、レーザーによるTh-229原子核の精密レーザー分光の実現に道筋をつけることができた。

研究成果の概要（英文）：We determined the energy of the nuclear isomer state of Th-229 to be 8.30 ± 0.92 eV via gamma-ray spectroscopy using a microcalorimeter based on transition edge sensors. The isomer energy was also measured by other groups by different experimental techniques. All results agreed with each other within the uncertainties. Our result paved the way for direct laser spectroscopy of Th-229 nuclei toward a nuclear clock.

研究分野：周波数標準、レーザー分光

キーワード：原子核時計 ガンマ線分光 超伝導転移端センサー

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、研究者個人に帰属します。

1. 研究開始当初の背景

トリウム(Th)の同位体 Th-229の原子核準位には、基底状態からエネルギーが数 eVの真空紫外領域に準安定状態(アイソマー状態と呼ばれる)が存在する。真空紫外のエネルギー領域ではレーザーが作成可能である。従ってTh-229の原子核は、基底状態とアイソマー状態の間の遷移を使い直接レーザー分光できると考えられている。その応用として注目されているのが、この核遷移の共鳴周波数にレーザー周波数を安定化する周波数標準:「原子核時計」である。

研究開始当初、アイソマー状態のエネルギーの最新の報告値は 7.8 ± 0.5 eVであったが、その値は当時の過去の文献値と不確かさの範囲で一致していなかった。その不一致のため、Th-229原子核のレーザー分光は実現されておらず、それが原子核時計実現にむけて大きな支障となっていた。また7.8 eVという値は、アメリカのグループによって測定されて以来、一度も追試測定が行われていなかった。

2. 研究の目的

そこで本研究では、先行研究とは異なる独自の実験手法でTh-229のアイソマー状態のエネルギーを決定し、原子核時計実現に向けた道筋をつける事を目的とした。具体的には、超高分解能ガンマ線検出器である超伝導遷移端センサー(TES, Transition Edge Sensor)型マイクロカロリメータを用いて、ウラン233(U-233)がアルファ崩壊してTh-229に壊変する際に放出されるエネルギー29 keVのガンマ線を精密に分光し、アイソマー状態のエネルギーを精密に決定した。

3. 研究の方法

図1に、Th-229原子核のアイソマー状態(Isomer state)のエネルギーを測定するために、本研究で考案した手法を示す。図1にはTh-229の原子核準位(抜粋)が示されている。本研究では、エネルギー29.2 keVの第2励起状態に着目し、第2励起状態のエネルギー E_{CR} と、第2励起状態からアイソマー状態への遷移エネルギー E_{IN} の差からアイソマー状態のエネルギーを求めた。

先行研究で、大型放射光施設 SPring-8 の放射光を用いて、Th-229の原子核を基底状態から29.2 keVの第2励起状態に励起することに成功し、 E_{CR} の値を 29189.93 ± 0.07 eVと決定した。そこで本研究では、残りの E_{IN} を測定した。そのためには、Th-229の原子核を29.2 keV準位に用意する必要があった。本研究では線源としてU-233を用意し、U-233がアルファ崩壊してTh-229に壊変する際、0.3%の比率でTh-229の29.2 keV準位に遷移する性質を利用した。

E_{IN} を精度良く測定するため、本研究では29.2 keVでエネルギー分解能が最適化されたTES型マイクロカロリメータを独自に開発した。カロリメータとは、感度の高い温度計にガンマ線吸収体が結合された検出器である。ガンマ線が吸収体に入射すると、入射ガンマ線のエネルギーに応じて吸収体の温度が上昇する。この温度上昇を精度良く測定し、入射したガンマ線のエネルギーを決定する。TES型カロリメータでは、温度計部分に超伝導物質を用いる。超伝導物質は、常伝導から伝導に転移する際、温度に対して極めて急峻に抵抗値が変化する。素子の温度をこの転移

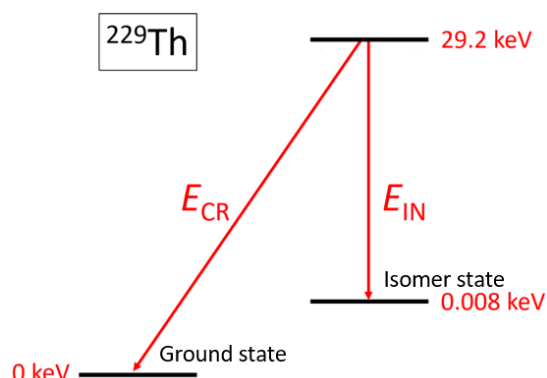


図1 Th-229の原子核エネルギー準位図。本研究では、 E_{IN} を精密に測定し、 E_{CR} (先行研究で測定済み)との差から、アイソマー状態のエネルギーを求めた。

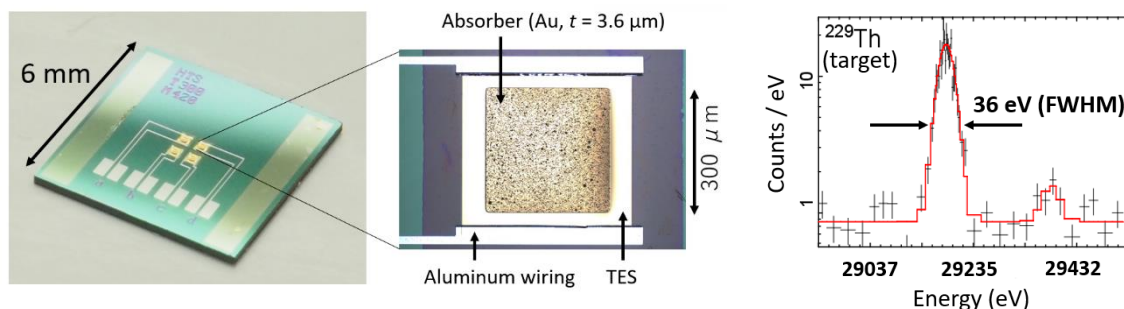


図2 (左) 本研究で開発した超伝導遷移端センサーの写真。本チップにはTESが4素子実装されている。(右) 観測されたエネルギー29 keVのスペクトル。スペクトル幅は36 eV(半値全幅)であった。

端(Transition Edge)に保持しておくことで、吸収体の温度上昇を抵抗値の変化として感度良く測定し、結果として入射ガンマ線のエネルギーを精度良く決定する。本研究では、研究分担者のJAXA/宇宙科学研究所の満田・山崎グループが、29 keV でエネルギー分解能 36 eV (半値全幅)をもつ TES 素子の開発に成功した(図2)。

4. 研究成果

このTES素子を使い、U-233がTh-229にアルファ崩壊する際に放出されるエネルギー29.2 keV のガンマ線を精密に分光した。図2(右)に得られたガンマ線スペクトルを示す。このスペクトルから E_{IN} を決定し、 E_{CR} と E_{IN} の差をとることで、アイソマー状態のエネルギーを 8.30 ± 0.92 eVと決定した[2]。Th-229のアイソマーエネルギー値は、同時期に他のグループでも異なる実験手法で測定された。図3 [1]

は、電子分光の手法を使っている。U-233がアルファ崩壊すると2%の確率でTh-229のアイソマー状態が生成される。このアイソマーから放出される内部転換電子のエネルギーを精密に測定し、その値からアイソマー状態のエネルギーを決定している。図3 [3]は、金属磁気マイクロカロリメータを使ったガンマ線測定による結果である。図3 [4]は、原子核がアイソマー状態から原子核基底状態に遷移する際に放出される真空紫外光子のエネルギーを分光器で測定した結果である。本研究の結果[2]は、他の実験グループによる測定値と不確かさの範囲内で一致した。

図3が示すように、異なるグループによる異なる手法で求められたすべての結果が、不確かさの範囲で一致した。これらの結果により、Th-229 アイソマー状態のエネルギーは、実質的に確定し、本研究は目的を達した。測定精度も、[4]では不確かさ 0.024 eVに達しており、レーザーを使って原子核遷移を探索する実験にとっても十分小さい値である。したがって今後は、本研究の結果を含めた[1]-[4]で決定されたエネルギー領域の励起用レーザーを作製し、Th-229 原子核の精密レーザー分光の実現に向けて研究が進むと期待される。

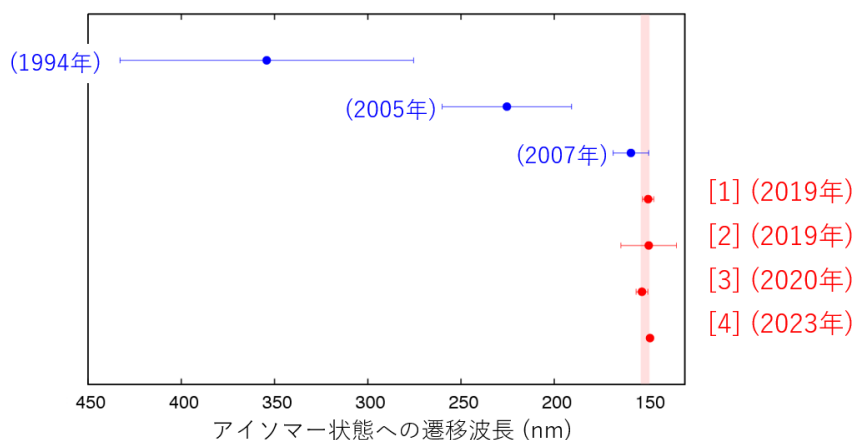


図3 Th-229 のアイソマー状態のエネルギー測定値。2018年以前までの値は、誤差の範囲で一致していなかった。2019年以降の値は、本研究の結果[2]を含め、不確かさの範囲で一致している。[1]-[4]のデータに対する縦の塗りつぶし領域は、[1]-[4]の値の加重平均。

- [1] B. Seiferle, *et al.*, “Energy of the ^{229}Th nuclear clock transition,” *Nature* **573**, 243 (2019).
- [2] A. Yamaguchi, H. Muramatsu, T. Hayashi, N. Yuasa, K. Nakamura, M. Takimoto, H. Haba, K. Konishi, M. Watanabe, H. Kikunaga, K. Maehata, N. Y. Yamasaki, K. Mitsuda, “Energy of the ^{229}Th Nuclear Clock Isomer Determined by Absolute γ -ray Energy Difference,” *Phys. Rev. Lett.* **123**, 222501 (2019).
- [3] T. Sikorsky, J. Geist, D. Hengstler, S. Kempf, L. Gastaldo, C. Enss, C. Mokry, J. Runke, C. E. Düllmann, P. Wobrauschek, K. Beeks, V. Rosecker, J. H. Sterba, G. Kazakov, T. Schumm, A. Fleischmann, “Measurement of the ^{229}Th Isomer Energy with a Magnetic Microcalorimeter,” *Phys. Rev. Lett.* **125**, 142503 (2020).
- [4] S. Kraemer *et al.*, “Observation of the radiative decay of the ^{229}Th nuclear clock isomer,” *Nature* **617**, 706 (2023).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 5件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 増田孝彦, 吉見彰洋, 山口敦史, 吉村浩司	4. 巻 76
2. 論文標題 最小エネルギーをもつトリウム229アイソマー状態の人工的生成 原子核時計の実現に向けて	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 日本物理学会誌	6. 最初と最後の頁 456
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Shigekawa Y., Yamaguchi A., Suzuki K., Haba H., Hiraki T., Kikunaga H., Masuda T., Nishimura S., Sasao N., Yoshimi A., Yoshimura K.	4. 巻 104
2. 論文標題 Estimation of radiative half-life of 229mTh by half-life measurement of other nuclear excited states in 229Th	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review C	6. 最初と最後の頁 24306
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevC.104.024306	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Yamaguchi A., Muramatsu H., Hayashi T., Yuasa N., Nakamura K., Takimoto M., Haba H., Konashi K., Watanabe M., Kikunaga H., Maehata K., Yamasaki N. Y., Mitsuda K.	4. 巻 123
2. 論文標題 Energy of the Th229 Nuclear Clock Isomer Determined by Absolute γ -ray Energy Difference	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 222501
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevLett.123.222501	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Muramatsu H., Hayashi T., Yuasa N., Konno R., Yamaguchi A., Mitsuda K., Yamasaki N. Y., Maehata K., Kikunaga H., Takimoto M., Nakamura K.	4. 巻 -
2. 論文標題 Optimized TES Microcalorimeters with 14 eV Energy Resolution at 30 keV for γ -Ray Measurements of the 229Th Isomer	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Low Temperature Physics	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s10909-020-02458-7	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 山口敦史	4. 巻 65
2. 論文標題 原子核時計の実現に向けて	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 原子核研究	6. 最初と最後の頁 23
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計13件 (うち招待講演 2件 / うち国際学会 3件)

1. 発表者名 A. Yamaguchi
2. 発表標題 An optical nuclear clock
3. 学会等名 Virtual Humboldt Colloquium, "Top Global Research" and the Humboldt network: New Frontiers of German-Japanese Scientific Cooperation (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 K. Tanaka, K. Hirano, A. Yamaguchi, H. Muramatsu, T. Hayashi, N. Yuasa, K. Nakamura, M. Takimoto, H. Haba, K. Shirasaki, H. Kikunaga, K. Maehata, N. Y. Yamasaki, K. Mitsuda
2. 発表標題 Challenge to improve the 229Th isomer energy measurement with TES calorimeters
3. 学会等名 19th International Workshop on Low Temperature Detectors (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Atsushi Yamaguchi
2. 発表標題 Energy of the Th-229 nuclear clock isomer determined by absolute gamma-ray energy difference
3. 学会等名 GIMRT-REMAS2020 (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 山口 敦史
2. 発表標題 原子核時計実現に向けたトリウム229アイソマーエネルギーの測定
3. 学会等名 2020年電子回路研究会 周波数精密計測とその応用
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 山口 敦史
2. 発表標題 Nuclear Clock based on Thorium-229
3. 学会等名 2020年度 東北大学金属材料研究所放射線業務従事者再教育
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 山口 敦史
2. 発表標題 全固体型原子核時計実現に向けたトリウム229アイソマー状態のエネルギー測定
3. 学会等名 SMART2019 (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 山口 敦史
2. 発表標題 Search for the low-energy nuclear transition in Th-229 towards a nuclear clock
3. 学会等名 アトムの会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 山口 敦史, 村松 はるか, 林 佑, 満田 和久, 湯浅 直樹, 前畑 京介, 中村 圭佑, 滝本 美咲, 菊永 英寿
2. 発表標題 超伝導遷移端カロリメータによるトリウム 229 アイソマーエネルギーの測定
3. 学会等名 日本物理学会 2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 村松 はるか
2. 発表標題 229-Th異性体準位のTESマイクロカロリメータを用いた分光研究
3. 学会等名 第18回 高エネルギー宇宙物理連絡会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 山口 敦史
2. 発表標題 原子核時計の実現に向けて
3. 学会等名 異分野基礎科学研究所特別講演会（招待講演）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 山口 敦史, 村松 はるか, 満田 和久, 湯浅 直樹, 前畑 京介, 中村 圭佑, 滝本 美咲, 羽場 宏光, 菊永 英寿
2. 発表標題 原子核時計実現に向けたTh-229原子核時計遷移探索実験
3. 学会等名 2019重元素核化学ワークショップ
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 村松 はるか, 湯浅 直樹, 林 佑, 紺野 良平, 山口 敦史, 満田 和久, 山崎 典子, 菊永 英寿, 中村 圭佑, 滝本 美咲, 前畑 京介
2. 発表標題 トリウム229異性体のX線マイクロカロリメータを用いた分光実験
3. 学会等名 日本物理学会 第74回年次大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 湯浅 直樹, 前畑 京介, 村松 はるか, 満田 和久, 山口 敦史, 中村 圭佑
2. 発表標題 TES型マイクロカロリメータによる233U線源の線スペクトルの解析手法
3. 学会等名 第79回 応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	菊永 英寿 (Kikunaga Hidetoshi) (00435645)	東北大学・電子光物理学研究センター・准教授 (11301)	
研究分担者	満田 和久 (Mitsuda Kazuhisa) (80183961)	国立天文台・先端技術センター・特任教授 (62616)	
研究分担者	前畑 京介 (Keisuke Maehata) (30190317)	帝京大学・公私立大学の部局等・教授 (32643)	令和2年度まで

6. 研究組織（つづき）

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	滝本 美咲 (Misaki Takimoto) (40832316)	国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・核燃料・バックエンド研究開発部門 核燃料サイクル工学研究所 放射線管理部・技術・技能職 (82110)	令和2年度まで
研究分担者	中村 圭佑 (Keisuke Nakamura) (80705054)	国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・核燃料・バックエンド研究開発部門 核燃料サイクル工学研究所 放射線管理部・技術・技能職 (82110)	削除：2018年7月18日

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関