

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 3 年 6 月 22 日現在

機関番号：15301

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2019～2020

課題番号：19K21879

研究課題名（和文）ガンマ線レーザー研究のためのトリウム-229 核量子操作

研究課題名（英文）Quantum control of Th-229 isomer for study of gamma-ray laser

研究代表者

吉見 彰洋（Yoshimi, Akihiro）

岡山大学・異分野基礎科学研究所・准教授

研究者番号：40333314

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 5,000,000 円

研究成果の概要（和文）：固体結晶中にドーブされたTh-229原子核の8eV極低エネルギーアイソマー準位の特性（正確なエネルギー値および半減期）を明らかにして、ガンマ線レーザーの研究に繋げることが目的である。真空紫外光に対して透明な結晶 CaF₂ にドーブされた Th-229 に対して、アイソマー準位へ放射光X線励起を試みた。アイソマーの脱励起に伴う真空紫外光のバックグラウンドとなる蛍光スペクトル測定を行い、紫外から真空紫外領域へ減少していくスペクトルを得た。また、そのバックグラウンドを抑制しつつアイソマー準位からの真空紫外光を検出するシステムを構築し、CaF₂ 中の Th-229 アイソマー遷移分光へ道筋をつけた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

原子核の状態は通常はレーザー光で直接操作することはできないが、Th-229 は唯一それが可能な原子核として知られている。光で原子核状態を制御できれば、宇宙の謎を明らかにできる精密な原子核時計や、人類が実現したことのない高エネルギー光領域（ガンマ線）でのレーザー発振が可能になると期待されている。そのような Th-229 の特殊な状態は未だ不明な点が多く、本研究ではその一旦でも明らかにすることを目的とした。放射光を使う我々が開発した独自の Th-229 特殊状態の生成法を利用し、結晶中に埋め込まれた Th-229 の特性について一歩進んだ知見を得ることができた。

研究成果の概要（英文）：We tried excitation to the low-energy nuclear isomer of Th-229 doped in CaF₂ crystal by using Synchrotron radiation X-ray. The luminescence spectrum from the Th:CaF₂ induced by X-ray irradiation and radioactivity was measured, and the decreasing from ultraviolet to the vacuum ultraviolet region. We constructed a system to detect vacuum ultraviolet light from the isomer while suppressing the background, and paved the way for Th-229 isomer transition spectroscopy in CaF₂.

研究分野：原子核物理実験

キーワード：トリウム-229 アイソマー ガンマ線レーザー 原子核時計

1. 研究開始当初の背景

トリウム同位体の1つ ^{229}Th は、原子核としては異常に小さい8 eV程度の第一励起エネルギー準位を持ち、その準位は寿命の長い状態(アイソマー状態; $\tau = 10^3 \sim 10^4 \text{ s.}$)であると考えられている。原子核は軌道電子と違い、環境の外乱を極めて受けにくいことから核遷移を用いた精密「原子核時計」への応用がよく知られている。一方で、このアイソマー状態への反転分布を生成することで原子核遷移を使ったレーザー発振の実現も重要なテーマだと認識されている。原子核遷移に伴う電磁波をガンマ線と定義するならば、これは ^{229}Th の低エネルギーアイソマー遷移を使ったガンマ線レーザーと言って良いものである。一見、波長がVUVである点が重要性を曇らせるように感じるが、世界初のレーザー発振の実現が実はマイクロ波領域のメーザー発振で行われた事実を考えると、この ^{229}Th アイソマーを使ったガンマ線レーザーというのは極めて重要な第一歩と考えられる。また、近年このトリウム-229をドープした結晶でバンドギャップエネルギーがVUV領域より高い10eV程度ある、 Th:CaF_2 、 Th:LiSrAlF_6 のようなものが開発されてきており、ガンマ線レーザー研究にとって重要な固体系と考えられる。このような単結晶にドープされた Th-229 では一様な結晶電場勾配によって引き起こされる電気四重極分裂を利用して、疑似反転分布つまりレーザー発振を可能にする状態を作ることが可能であることから、トリウムドープ結晶自体の研究も重要な位置を占めている。

2. 研究の目的

上述したように Th-229 原子核のアイソマー状態は例外的な特徴を持つ原子核準位で、ガンマ線レーザー実現の鍵になるものではあるが、未だそのアイソマー状態にレーザー光で励起することに成功した例は無い。これはその励起エネルギーの値の不確かさが0.3 eV程度あること、およびその寿命に至っては置かれている環境に依存してマイクロ秒から数時間までに跨ると思われ、未だ確定した値が分かっていないことが原因である。 Th-229 のアイソマー状態は中性原子の状態では内部転換過程を通じて基底状態へ脱励起する。その過程は光子を放出せずに、7 μs という速い時間スケールで遷移するので、原子核時計やガンマ線レーザー等の分野には使えない。一方、 CaF_2 や LiSrAlF_6 等の結晶に理想的な置換でドープされた場合、 Th-229 は4価のイオン状になると期待され、アイソマー状態の寿命は $10^3 \sim 10^4$ 秒程度の長い値を持つと推定されている。このような固体環境でのアイソマー遷移の特性は実験的に明らかにするべき事項である。そのことを踏まえて、本研究では CaF_2 結晶にドープされた Th-229 に対して、申請者が独自に構築した放射光核励起によるアイソマー励起を利用して、アイソマー状態のエネルギー値・寿命を明らかにすることを旨とし、そのために重要となる蛍光・燐光のバックグラウンドの特性を明らかにし、その削減システムを構築する。

3. 研究の方法

Th-229 のアイソマー準位への励起は SPring-8 の高輝度放射光を利用する。エネルギー 29.19 keV の放射光を2つのモノクロメータで幅 100 meV 程度に単色化し、 Th-229 がドープされた CaF_2 結晶に照射する。 Th ドープ結晶は共同研究を行っているウィーン工科大学のグループが開発しているものを使用した。本研究期間にドープ密度が $10^{16} / \text{cm}^3$ のものから $10^{17} / \text{cm}^3$ のものへ着実にアップグレードしてきた。結晶サイズは最小のもので $1 \text{ mm} \times 1 \text{ mm} \times 1 \text{ mm}$ の立方型である。結晶全体の Th-229 からの放射能(activity) は 1 kBq 程度である。

第2励起状態へ共鳴核励起された中で、その6割がアイソマー準位に脱励起する。励起エネルギーは 29189.93 eV である。図1は第2励起状態からの脱励起信号を励起 X 線エネルギーの

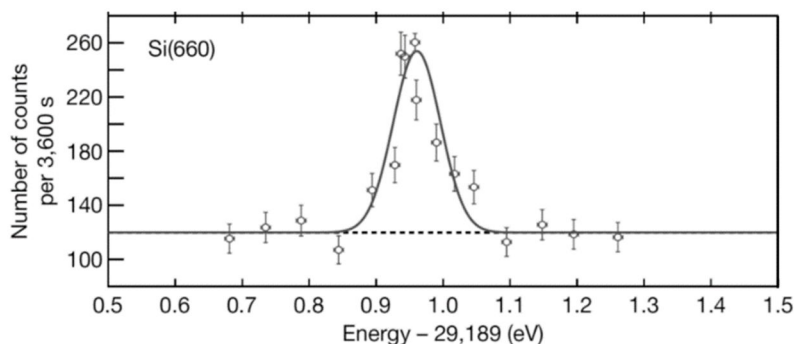


図1: Th-229 第2励起状態への励起スペクトル

キャンに対してプロットして得られた共鳴データである。入射 X 線エネルギー共鳴・非共鳴をコ

ントロールすることによって、第2励起状態、つまりアイソマー準位への遷移を On/Off することが可能になる。このスペクトルを得るのに半日程度要するが、一旦得られればエネルギーの再現性が良いことは確認している。なお、この核共鳴励起のエネルギースペクトルを得る際は、信号対雑音比を上げる必要があるため、標的試料は結晶ではなく、高密度のトリウム乾固標的を用いた。

アイソマー準位へ遷移した Th-229 はその寿命程度で、150 nm 近辺の真空紫外光を放出して基底状態へ脱励起する。アイソマー準位の半減期は現在未確定だが、いくつかの理論研究および実験事実を踏まえた考察により、5,000 秒~7,000 秒程度である可能性が高い。なお、CaF₂ 結晶は波長 150 nm の光に対して屈折率約 1.6 であるので、結晶中でのアイソマー準位の radiative な半減期は n³ 倍に促進され、1,000~2,000 秒程度と仮定するのが良いと思われる。従って半減期 30 分と仮定して、X 線ビーム照射 30 分、その後の脱励起に伴う VUV 光の観測を 30 分行うという測定法を基本とする(図2)。

また、それに先立って X 線照射に起因する蛍光・燐光、またトリウムの放射能起因の蛍光のスペクトルを真空紫外分光器で観測し、アイソマー脱励起信号のバックグラウンドの対策を行った。CaF₂ 結晶の蛍光・燐光のスペクトルは広い波長領域に跨っていることから、VUV 領域と UV 領域のブレース波長をもつグレーティングを2つ選択できるように分光器をセッティングして観測を行った。

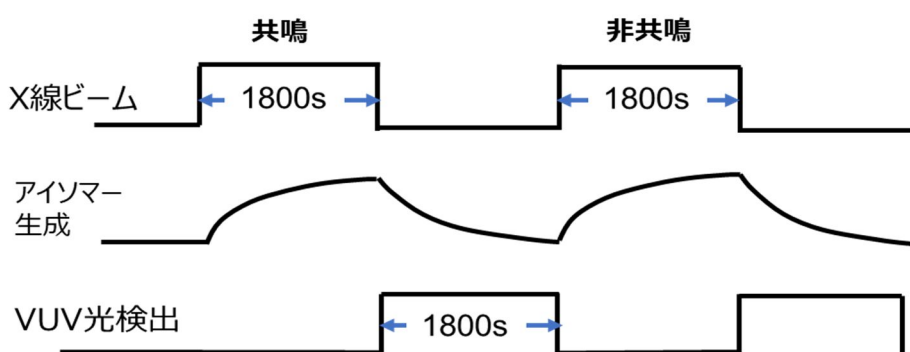


図2: VUV 光検出のための測定シーケンス

4. 研究成果

Th-229 がドープされた CaF₂ 結晶は、X 線ビームを照射しない状態でも、アルファ崩壊によるエネルギー放出に起因する蛍光が発生する。これは結晶中に生じた励起子(電子・ホール対から構成される量子系)が様々な過程を通じて再結合する際に放出する光が観測されるもので、その波長領域は紫外領域(UV)から可視領域まで広く跨っている。この radioluminescence と呼ばれる蛍光を真空紫外分光器で測定したものを図3(a)に示す。これは分光器の入射スリットの Open/Close を 500 s ごとにデータを取り、差分をとったものである。分光器のグレーティングを5つの領域をスキャンした全体スペクトルをとるのに、約1時間半の時間を要するものである。確かに、UV 領域の幅の広い蛍光スペクトルが観測され、幸運なことにアイソマー遷移に対応する 150 nm 近辺では蛍光成分が少ないものと期待できる。

アイソマー励起のために Th-229 ドープ結晶に 29-keV X 線ビームを照射する際にも、この照射に起因する蛍光・燐光が存在する。図3(b)はビーム照射中に分光器で観測した蛍光スペクトルである。ビーム照射中は強い発光が生じるので、このスペクトルは短時間(50 ms)の露光時間の間に一瞬で観測されるものである。この X 線照射起因による蛍光、photoluminescence と呼ばれるものも励起子を作り出す原因が X 線ビームであるだけで、蛍光の機構の大枠は radioluminescence と同様であり、UV 領域に観測された。

この photoluminescence は、ビーム照射を中断して時間が経過した後にも有限の減衰時間を持って、残光が残っているかどうかを調べる必要がある(燐光と呼ばれる)。ビーム照射中断して10秒後に、この燐光がどのようなスペクトルで残っているかを図3(c)に示す。この結果から分かるように、X 線照射を止めてアイソマー信号観測に移ったとしても、UV 領域の燐光スペクトルが残っている。これはより詳細な観測が必要であるが、格子欠陥や不純物のサイトにトラップされた励起子が長寿命生き残った後に再結合して発する光が観測されたものと思われる。これも幸い 150 nm 近辺には有意な成分は見られていないが、UV 領域のピークから短波長成分に伸びてくる裾の成分がどれくらいアイソマー遷移光検出に障害になるかが重要な事項であることがはっきりした。

これを踏まえて、バックグラウンドとなる紫外領域の発光成分は削減しつつ 150 nm 近辺の信号

成分のみを検出する実験装置を構築できた。照射中は大量のバックグラウンド蛍光が発生するので、標的を移動する機構を設け、X線照射とVUV光検出を異なるチェンバーで行うことにした。この装置を用いて、図2のような測定スキームでVUV光検出実験を行った。現時点では有意な量のVUV光は検出されていないが、期待されるVUV光と同程度まで 150 ± 6 nm領域のバックグラウンド蛍光・燐光を削減できるシステムを構築できた。これにより、Th-229の極低アイソマー状態のエネルギー(真空紫外光の波長)と寿命を測定する実験を行う道筋を付けられた。

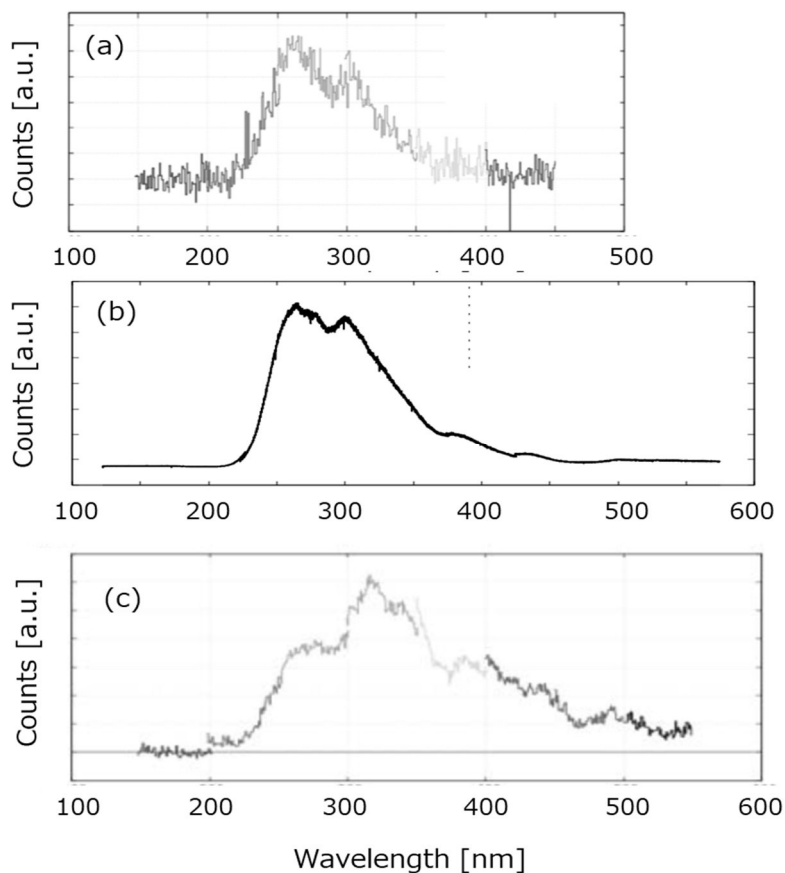


図 3: (a) Th-229 の放射能に起因する CaF₂ 結晶の蛍光スペクトル。(b) アイソマー励起のための 29 keV X 線ビームを照射中の蛍光スペクトル。(c) X 線ビーム照射停止 10 秒後に Th:CaF₂ から生じた蛍光スペクトル。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 T. Masuda, A. Yoshimi, A. Fujieda, H. Fujimoto, H. Haba et al.	4. 巻 573
2. 論文標題 X-ray pumping of the 229Th nuclear clock isomer	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Nature	6. 最初と最後の頁 238-242
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41586-019-1542-3	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 該当する

〔学会発表〕 計5件（うち招待講演 1件/うち国際学会 2件）

1. 発表者名 A. Yoshimi
2. 発表標題 “ Towards the spectroscopy of 229Th nuclear clock transition using Nuclear Resonant Scattering
3. 学会等名 DICP Workshop on Mossbauer Spectroscopy Related to Synchrotron Radiation and Free Electron Laser（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 A. Yoshimi
2. 発表標題 Production of the 229Th nuclear clock isomer with brilliant X-ray
3. 学会等名 International Nuclear Conference 2019（INPC2019）（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 吉見彰洋
2. 発表標題 229Th 原子核極低エネルギー準位と高精度原子核時計への応用
3. 学会等名 2019年度「物質階層原理&ヘテロ界面」研究報告会（招待講演）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 吉見彰洋
2. 発表標題 トリウム-229 極低アイソマー準位の測定
3. 学会等名 大洗アルファ合同研究会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 吉見彰洋
2. 発表標題 核共鳴散乱を利用したトリウム原子核時計の開発
3. 学会等名 第13回 SPRUC 核共鳴散乱研究会
4. 発表年 2019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

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