

令和 5 年 6 月 11 日現在

機関番号：82401

研究種目：若手研究

研究期間：2020～2022

課題番号：20K14500

研究課題名（和文）イオンと分子の反応を利用したトリウム²²⁹核異性体の電子架橋遷移の観測

研究課題名（英文）Observing the electron bridge process of the Th-229 isomer utilizing ion-molecule reactions

研究代表者

重河 優大（Shigekawa, Yudai）

国立研究開発法人理化学研究所・仁科加速器科学研究センター・特別研究員

研究者番号：60845626

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）：Th-229m（Th-229原子核の第一励起準位）は8.3 eVという低い励起エネルギーを持つため、線放出や内部転換よりも高次の壊変過程である電子架橋遷移により壊変する可能性がある。本課題では、2価のTh-229mイオンと分子をイオントラップ中で反応させるという手法により、1価のTh-229mイオンや様々な分子イオンを生成し、電子架橋遷移を初めて観測することを目指した。本研究では、イオン引き出し装置とイオントラップ装置を開発し、U-233線源から飛び出す2価のTh-229mイオンの引き出しとトラップに成功した。さらに、イオントラップ中での反応で1価のTh-229mを生成することに成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究課題では、2価や3価のTh-229mイオンの引き出しと、イオン分子反応を利用した1価のTh-229mイオンの生成に成功した。1価のTh-229mイオンでは電子架橋遷移によって壊変する可能性が高いと理論的に予測されているため、本研究で開発した装置を用いることで、近日中に新規の核現象である電子架橋遷移を世界で初めて観測できる期待が高まる。一方、本研究で開発された多価のTh-229mイオン引き出し技術は、超高精密なTh-229原子核時計の実現に極めて重要である。本技術を利用して原子核時計を開発できれば、基礎物理学や測地学などの発展に大きく貢献できると期待される。

研究成果の概要（英文）：The first excited state of the Th-229 nucleus, Th-229m, has an excitation energy of 8.3 eV. This extremely low isomeric energy would allow the deexcitation by the electronic bridge process, which is a higher order process than the gamma-ray emission and the internal conversion process. In this project, we aim to observe the electronic bridge process for the first time using singly charged Th-229m ions produced by the reaction between doubly charged Th-229m ions and reactive gaseous molecules. We first developed an ion-extraction and ion-trap apparatus, and then we successfully extracted and trapped doubly charged Th-229m ions recoiling out of a U-233 source. Moreover, we were able to produce singly charged Th-229m ions by the chemical reaction in the ion trap.

研究分野：核化学

キーワード：トリウム²²⁹ 電子架橋遷移 核異性体 イオントラップ RFカーペット ガスセル イオン分子反応
原子核時計

1. 研究開始当初の背景

ほとんどの原子核のエネルギーレベルは、価電子に比べてはるかに大きい(図1)。そのため、 α 壊変などの原子核レベルの現象と化学反応などの原子レベルの現象は一般的に独立したものとして考えられる。しかし、 ^{229}Th 原子核の第一励起状態である $^{229\text{m}}\text{Th}$ は、価電子のエネルギーレベルに近い 8.3 eV[1]の励起エネルギーを持つ(図1)。そのため、原子核の半減期が化学的環境に応じて変化するなど、一般的な原子核では見られない様々な特異な核現象が観測されると期待されている。

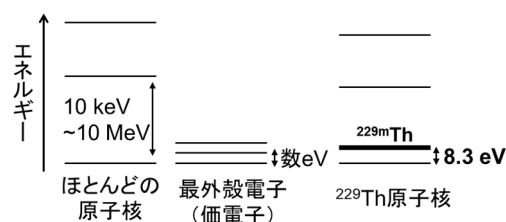


図1. 一般的な原子核, 最外殻電子(価電子), ^{229}Th 原子核のエネルギーレベル

本研究では、特異な核現象の一つである“電子架橋遷移”に着目する。電子架橋遷移は、 γ 線放出や内部転換過程よりも高次の γ 崩壊過程であり、量子電磁気学により存在が予測されている。電子架橋遷移では、図2に示すように、電子が励起状態の原子核から仮想光子を受け取り、原子核の励起エネルギーに近い電子準位Aを経由して、最終的に電子準位Bへ遷移する。余剰分のエネルギー(原子核の励起エネルギー - 電子準位Bの励起エネルギー)が光子として放出される。原子核の励起エネルギーと電子準位Aの励起エネルギーが非常に近い必要があるため、ほとんどの核種では電子架橋遷移の遷移確率が非常に低く、これまで明確な観測例はなかった。しかし、 $^{229\text{m}}\text{Th}$ では遷移確率が高く[2]、電子架橋遷移を明確に観測できると期待される。

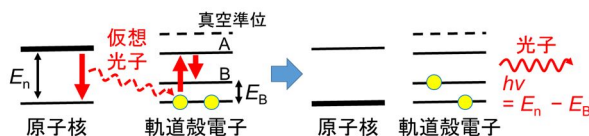


図2. 電子架橋遷移の模式図

原子核の励起エネルギーと電子準位Aの励起エネルギーが非常に近い必要があるため、ほとんどの核種では電子架橋遷移の遷移確率が非常に低く、これまで明確な観測例はなかった。しかし、 $^{229\text{m}}\text{Th}$ では遷移確率が高く[2]、電子架橋遷移を明確に観測できると期待される。

$^{229\text{m}}\text{Th}$ に関する先行研究では、電子のイオン化エネルギーが $^{229\text{m}}\text{Th}$ の励起エネルギー(8.3 eV)以下のとき(例えば $^{229\text{m}}\text{Th}$ が中性原子のとき)、 $^{229\text{m}}\text{Th}$ は内部転換により7 μs 程度の半減期で脱励起することが実験的に示された[3,4]。一方、電子のイオン化エネルギーが8.3 eVを上回る場合(例えば $^{229\text{m}}\text{Th}$ がイオンのとき)、内部転換が禁制となり、より半減期の長い γ 線放出や電子架橋遷移が観測されると期待される。特に、1価の $^{229\text{m}}\text{Th}$ イオン($^{229\text{m}}\text{Th}^+$)であれば、電子の励起エネルギーが8.3 eVに近いため、電子架橋遷移が高い確率で起こると理論計算により予測されている[2]。しかし、未だ $^{229\text{m}}\text{Th}$ の電子架橋遷移の観測に成功した例はない。一方、電子架橋遷移は“電子遷移を介した核壊変過程”であるため、 $^{229\text{m}}\text{Th}$ の化学状態(電子状態)が変われば、原子核の半減期(電子架橋遷移の遷移確率)が変化すると期待される。 $^{229\text{m}}\text{Th}^+$ やその他の化学状態の $^{229\text{m}}\text{Th}$ について電子架橋遷移を観測し、化学状態と半減期の関係を探ることができれば、未知な点の多い電子架橋遷移についての理解が深まり、量子電磁気学の検証や原子核と軌道殻電子の相互作用の解明などにつながると期待される。

2. 研究の目的

本研究の目的は、 $^{229\text{m}}\text{Th}^+$ を用いることにより、 $^{229\text{m}}\text{Th}$ の電子架橋遷移を世界で初めて明確に観測することである。さらに、 $^{229\text{m}}\text{Th}$ の半減期を様々な化学状態の $^{229\text{m}}\text{Th}$ 分子イオンについて測定し、電子架橋遷移の半減期と化学状態の関係を明らかにすることも目的とする。

3. 研究の方法

本研究では、低速の $^{229\text{m}}\text{Th}^{2+}$ イオンビームをイオントラップへ導入し、トラップ中でガス状の分子(NOガスなど)と反応させることで、 $^{229\text{m}}\text{Th}^+$ を生成する。そして、 $^{229\text{m}}\text{Th}^+$ のみを質量分離して、MCP検出器に引き出す。 $^{229\text{m}}\text{Th}$ のイオンは、MCP検出器表面で中性原子となり内部転換電子を放出する[3]ので、MCPによる電子の検出をもってMCPに到達した $^{229\text{m}}\text{Th}$ の個数を数えることができる。トラップ時間とMCPに引き出された $^{229\text{m}}\text{Th}^+$ の個数の関係を測定すると、図3の赤丸のようになると予想される。 $^{229\text{m}}\text{Th}$ の個数の経時変化は、 $^{229\text{m}}\text{Th}^{2+}$ が $^{229\text{m}}\text{Th}^+$ に変化する際の反応速度と、 $^{229\text{m}}\text{Th}^+$ の半減期を反映したものである。赤丸をフィッティングすることで、 $^{229\text{m}}\text{Th}^+$ の半減期を求めることができる。 $^{229\text{m}}\text{Th}^+$ の半減期が、内部転換の半減期($\sim 10 \mu\text{s}$ [4])や γ 線放出の半減期(~ 1000

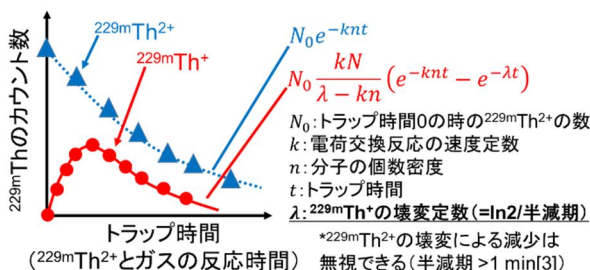


図3. イオントラップのトラップ時間と

$^{229\text{m}}\text{Th}^{2+}$ (三角) および $^{229\text{m}}\text{Th}^+$ (丸) のカウント数(内部転換電子の検出数)の関係。

s[1])とは大きく異なる場合、電子架橋遷移によって脱励起している可能性が極めて高い。そこで次に、イオントラップの傍に光電子増倍管を設置し、トラップ時間に対して光子を計数する。光子のカウントが、図3の赤丸と同じように変化することを確認できれば、その光子の由来が電子架橋遷移由来であることを証明できる。 $^{229m}\text{Th}^+$ を用いて電子架橋遷移の観測に成功したのち、イオントラップ中に導入するガスの種類を変えて、 $^{229m}\text{ThO}^+$ 等の様々な化学種の分子イオンを生成する。 $^{229m}\text{Th}^+$ と同様の方法で電子架橋遷移が観測されるかどうかを確認し、電子架橋遷移の半減期が化学状態に応じて変化するかどうかを調べる。

本研究を遂行するにあたり、以下3つの研究開発を実施した。1つ目は、 ^{233}U 線源から α 壊変の反跳エネルギーで飛び出してくる高速の ^{229m}Th イオンを減速・収集し、低速のイオンビームとして真空中に引き出すための、イオン収集ガスセル装置の開発である。開発した装置の性能評価は、 ^{224}Ra 線源から飛び出してくる娘核の ^{220}Rn イオンや ^{216}Po イオンを用いて実施した。2つ目は、イオントラップ装置の開発と、 $^{229m,g}\text{Th}$ (^{229g}Th は基底状態の ^{229}Th)の引き出し・イオントラップの試験である。その際、 $^{229m}\text{Th}^{2+,3+}$ をMCPまで引き出して、 ^{229m}Th の内部転換電子を検出する実験も実施した。3つ目は、イオントラップ中で活性なガスと $^{229m,g}\text{Th}$ イオンを化学反応させる試験である。本研究で開発した装置は最終的に図4となった(詳細は研究成果の項で述べる)。

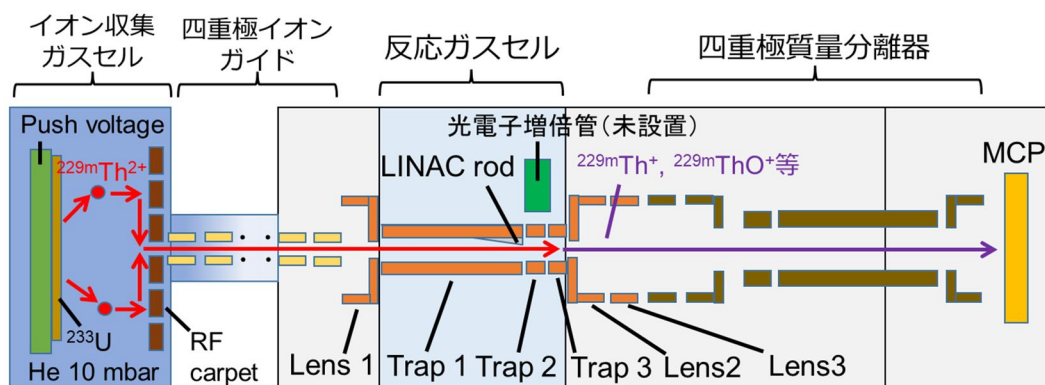


図4. ^{229m}Th イオンの引き出し・イオントラップ・質量分離装置

4. 研究成果

(1) イオン収集ガスセル装置の開発

初めに、RF (高周波) カーベットを利用したイオン収集ガスセル装置を開発した(図4の左端)。この装置では、 ^{233}U 線源から高いエネルギー(84 keV)をもって飛び出してきた $^{229m,g}\text{Th}$ イオンを、Heガス中で減速させ、直流電圧勾配によってRFカーベット表面まで運搬する。RFカーベットにRF電圧を印可することでイオンが電極に衝突することを防ぎつつ、低周波(AF)電圧を重畳することで進行波によりイオンを中心の穴(直径0.3 mm)まで運搬する。穴から出てきたイオンは、四重極イオンガイドにより高真空中に低速のイオンビームとして運搬される。

Heガスセル内の不純物はイオンの中性化や分子化を引き起こすため、イオンの引き出し効率を低下させてしまう。特に、多価のThイオンは酸素や水等の不純物との反応性が極めて高いことが知られている。そこで、ガスセルを超高真空仕様で製作し、ベーキングすることで、ガスセルの壁から放出される不純物量を真空中で 10^{-7} Pa台まで低減した。さらに、ゲッターポンプを設置することで、真空度を 1×10^{-7} Pa以下まで高めることができた。また、ガスセルに導入するHeガスを精製器で精製することで、ガス中の不純物を1 ppb以下まで抑えた。

次に、ガスセル中に ^{224}Ra 線源を設置し、娘核の ^{220}Rn イオンや ^{216}Po イオンを引き出す実験を実施した。その際、四重極イオンガイドの後段に四重極質量分離器を設置し、質量分離されたイオンをチャンネルトロンにより検出した。図5に示すように、 ^{224}Ra の娘核の質量ピークを明確に観測することに成功した。 ^{220}Rn イオンを用いてイオンの引き出し効率を求めたところ、各種電圧条件を最適化することで、16(2)%の効率を実現できることが分かった。

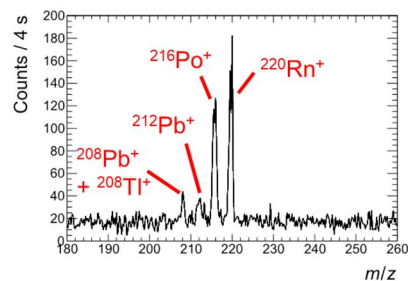


図5. ^{224}Ra 線源から引き出されたイオンの質量スペクトル

(2) イオントラップ装置の開発と $^{229m,g}\text{Th}$ の引き出し・トラップ

次に、図4および図6に示すようなイオントラップ装置を設計・製作した。イオントラップは3セグメントの線形四重極パウルトラップである。一つ目のセグメント(Trap 1)には、直流電圧勾配を形成するためのLINAC rod [5]を設置した。これにより、イオントラップ部にガスを導入した場合でも、イオンを素早く後段まで運搬できるようになった。また、イオントラップ部の入り口と出口を直径4 mmの穴が開いたイオンレンズで仕切ることで、トラップ部から他の部分

へのガスの流れ込みを抑えた。トラップ部に 1 Pa 程度のガスを導入しても、四重極質量分離器部等における真空度が十分に保たれることを確認した。

一方、大量の $^{229\text{m,g}}\text{Th}$ イオンを用いて実験を実施するために、大面積（直径 90 mm）の ^{233}U 線源を開発した。まず、 ^{233}U をイオン交換法により精製した後、 ^{233}U を硝酸および 2-プロパノールと混合して、並行平板型の電着セルを用いた電着法により線源を作製した。電着の収率はほぼ 100% であり、作製した線源の放射エネルギーは 600 kBq であった。線源中の Th イオンの飛程を考慮すると、1 秒間に 10^5 個の ^{229}Th イオンが ^{233}U 線源から飛び出してくると見積もられた。

次に、作製した ^{233}U 線源をイオン収集ガスセルに設置し、 $^{229\text{m,g}}\text{Th}$ イオンを引き出して質量分離し、MCP 検出器で検出する実験を実施した。その際、イオントラップはイオンガイドとして使用した。引き出されたイオンの質量スペクトルを図 7 に示す。 $^{229}\text{Th}^{2+}$ と $^{229}\text{Th}^{3+}$ のピークが明確に観測されていることが分かる。本研究で開発した装置によって、技術的に非常に難しい多価の Th イオンの引き出しを実現することに成功した。

次に、 $^{229\text{m,g}}\text{Th}^{2+}$ と $^{229\text{m,g}}\text{Th}^{3+}$ を 1 秒程度トラップし、トラップされたイオンを一齐に引き出す実験を実施した。その際、0.5 Pa の He をイオントラップ部に導入した。イオントラップによりパンチ化された $^{229\text{m,g}}\text{Th}^{3+}$ の検出時間分布は、図 8 の青線のようになった。イオンが He ガス中でトラップされることによって冷却され、時間幅の狭い（半値幅 20 μs 程度）のイオンパンチを形成することができた。次に、MCP の電圧を $^{229\text{m}}\text{Th}$ の内部転換電子が検出できるような条件に設定し、 $^{229\text{m,g}}\text{Th}^{2+}$ と $^{229\text{m,g}}\text{Th}^{3+}$ のパンチ化・引き出し実験を実施した。図 8 の赤線が、 $^{229\text{m,g}}\text{Th}^{3+}$ の場合の測定結果である。図 8 では、イオンだけを抽出したとき（青線）に比べ、電子を測定できる条件（赤線）では、明確に寿命の長い成分が観測されていることが分かる。 $^{233}\text{U}^{3+}$ を引き出した場合はこのような違いは観測されなかったことから、今回 $^{229\text{m}}\text{Th}$ の内部転換電子の観測に成功したことが分かった。寿命の長い成分の半減期は 7 μs 程度であり、先行研究[4]の結果を再現することができた。 $^{229\text{m}}\text{Th}$ の内部転換電子の観測と半減期の測定は、これまで 1 つのグループ[3,4]のみしか成功していなかった。従って、本研究によって $^{229\text{m}}\text{Th}$ の内部転換過程の存在をより確かなものにする事ができたと言える。また、 $^{229\text{m}}\text{Th}^{2+}$ を引き出した場合も、同様に内部転換電子を観測することができた。

(3) イオントラップ中での化学反応

イオントラップに 0.5 Pa の Ar ガスを導入して、 $^{229\text{m,g}}\text{Th}$ イオンと Ar 中に含まれる微量の不純物ガスを反応させる実験を実施した。その結果、 $^{229\text{m,g}}\text{Th}^{2+}$ イオンと不純物ガスの反応により、 $^{229\text{m,g}}\text{Th}^+$ が生成することが確認された。トラップ時間と引き出された $^{229\text{m,g}}\text{Th}^+$ の関係を図 9 に示す。トラップ時間を増やすと $^{229\text{m,g}}\text{Th}^+$ の生成に伴いカウントが増加するが、トラップ時間が長すぎると $^{229\text{m,g}}\text{Th}^+$ が酸化物等の化学種に変化するため、カウントは減少していくことが分かった。

今後は、(2)と同様に $^{229\text{m}}\text{Th}$ の内部転換電子を測定することで、トラップ時間と $^{229\text{m}}\text{Th}^+$ の個数の関係を測定する予定である。電子架橋遷移により $^{229\text{m}}\text{Th}^+$ が脱励起する場合は、図 9 に比べて曲線の形が変化するはずなので、図 9 との比較により、 $^{229\text{m}}\text{Th}^+$ の半減期を求めることができる。半減期の値から電子架橋遷移による脱励起が期待される場合は、光電子増倍管を用いた電子架橋遷移由来の光子測定を試みる予定である。一方、 $^{229\text{m,g}}\text{ThO}^{2+}$ や $^{229\text{m,g}}\text{ThO}^+$ 等の化学種がイオントラップ中で生成されることを確認したため、これらの化学種についても同様に $^{229\text{m}}\text{Th}$ の半減期を求める実験を行い、電子架橋遷移の化学状態依存性を調べることが可能となる。

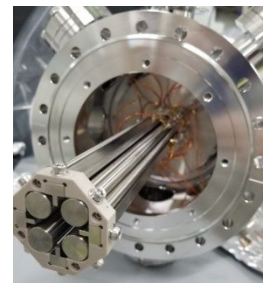


図 6. 製作したイオントラップ装置

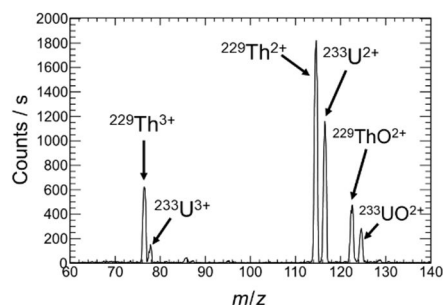


図 7. ^{233}U 線源から引き出されたイオンの質量スペクトル

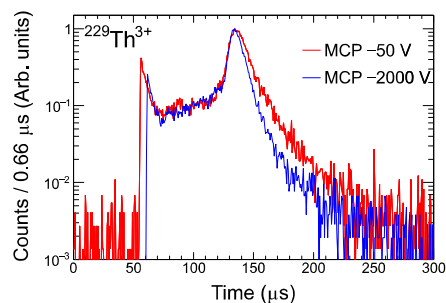


図 8. パンチ化された $^{229\text{m,g}}\text{Th}^{3+}$ の検出時間分布 (MCP -2000 V) と、 $^{229\text{m}}\text{Th}$ の内部転換電子 + $^{229\text{m,g}}\text{Th}^{3+}$ の検出時間分布 (MCP -50 V)

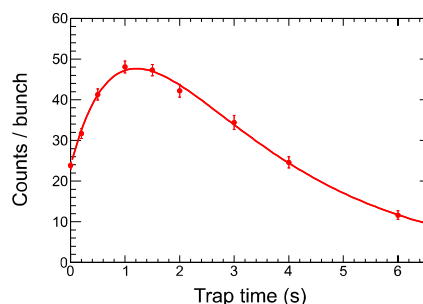


図 9. トラップ時間と $^{229\text{m,g}}\text{Th}^+$ のカウント数の関係

参考文献

- [1] S. Kraemer *et al.*, Nature **617**, 706 (2023).
- [2] F. F. Karpeshin and M. B. Trzhaskovskaya, Nuclear Physics A **969**, 173 (2018).
- [3] L. von der Wense *et al.*, Nature **533**, 47 (2016).
- [4] B. Seiferle *et al.*, Phys. Rev. Lett. **118**, 042501 (2017).
- [5] A. Loboda *et al.*, Eur. J. Mass Spectrom. **6**, 531 (2000).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計18件（うち査読付論文 18件 / うち国際共著 2件 / うちオープンアクセス 7件）

1. 著者名 Y. Shigekawa, A. Yamaguchi, K. Suzuki, H. Haba, T. Hiraki, H. Kikunaga, T. Masuda, S. Nishimura, N. Sasao, A. Yoshimi, and K. Yoshimura	4. 巻 55
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 2022年
3. 雑誌名 RIKEN Accel. Prog. Rep.	6. 最初と最後の頁 S13
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 オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Y. Shigekawa, K. Tokoi, A. Yamaguchi, N. Sato, M. Wada, and H. Haba	4. 巻 55
2. 論文標題 Development of RF carpet gas cell for extracting 229mTh ions	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 RIKEN Accel. Prog. Rep.	6. 最初と最後の頁 127
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 オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Y. Shigekawa, Y. Wang, X. Yin, A. Nambu, T. Yokokita, and H. Haba	4. 巻 55
2. 論文標題 Development of a photon measurement apparatus for observing the radiative decay of 229mTh produced from 229Pa	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 RIKEN Accel. Prog. Rep.	6. 最初と最後の頁 124
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 オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Y. Shigekawa, and H. Haba	4. 巻 55
2. 論文標題 Surface ionization of protactinium toward implanting 229Pa into a CaF2 crystal	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 RIKEN Accel. Prog. Rep.	6. 最初と最後の頁 126
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 オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Takashima Hiroki, Ohnuki Kazunobu, Manabe Shino, Koga Yoshikatsu, Tsumura Ryo, Anzai Takahiro, Wang Yang, Yin Xiaojie, Sato Nozomi, Shigekawa Yudai, Nambu Akihiro, Usuda Sachiko, Haba Hiromitsu, Fujii Hirofumi, Yasunaga Masahiro	4. 巻 20
2. 論文標題 Tumor Targeting of ²¹¹ At-Labeled Antibody under Sodium Ascorbate Protection against Radiolysis	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Molecular Pharmaceutics	6. 最初と最後の頁 1156 ~ 1167
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.molpharmaceut.2c00869	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 M. Tanaka and Y. Shigekawa (34人中29番目) et al.	4. 巻 91
2. 論文標題 Probing Optimal Reaction Energy for Synthesis of Element 119 from ⁵¹ V+ ²⁴⁸ Cm Reaction with Quasielastic Barrier Distribution Measurement	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 84201
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.91.084201	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 Kasamatsu Yoshitaka, Nagase Masahiro, Ninomiya Hidemi, Watanabe Eisuke, Shigekawa Yudai, Kondo Narumi, Takamiya Koichi, Ohtsuki Tsutomu, Shiohara Naoya, Shinohara Atsushi	4. 巻 179
2. 論文標題 Coprecipitation with samarium hydroxide using multitracer produced through neutron-induced fission of ²³⁵ U toward chemical study of heavy elements	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Applied Radiation and Isotopes	6. 最初と最後の頁 110006 ~ 110006
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.apradiso.2021.110006	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	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 ^{229m} Th by Half-Life Measurement of Other Nuclear Excited States in ²²⁹ Th	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 Y. Shigekawa, T. Yokokita, Y. Komori, and H. Haba	4. 巻 54
2. 論文標題 Production and photon measurement of ^{229}Pa toward the observation of radiative decay of $^{229\text{m}}\text{Th}$	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 RIKEN Accel. Prog. Rep.	6. 最初と最後の頁 143-144
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 Y. Shigekawa, A. Yamaguchi, N. Sato, A. Takamine, M. Wada, and H. Haba	4. 巻 54
2. 論文標題 Measurement of Extraction Time and efficiency of ^{220}Rn Ions Using a Cryogenic RF-Carpet Gas Cell for the Chemistry of Superheavy Elements	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 RIKEN Accel. Prog. Rep.	6. 最初と最後の頁 145-146
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 Watanabe Eisuke, Kasamatsu Yoshitaka, Yokokita Takuya, Hayami Sho, Tonai Katsuma, Ninomiya Hidemi, Kondo Narumi, Shigekawa Yudai, Haba Hiromitsu, Kitagawa Yasutaka, Nakano Masayoshi, Shinohara Atsushi	4. 巻 -
2. 論文標題 Anion-exchange Experiment of Zr, Hf, and Th in HNO_3 and Quantum Chemical Study on the Nitrate Complexes toward Chemical Research on Element 104, Rf	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Solvent Extraction and Ion Exchange	6. 最初と最後の頁 1~16
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/07366299.2021.2020956	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., Kasamatsu Y., Yamakita Y., Yasuda Y., Watanabe E., Kondo N., Haba H., Shinohara A.	4. 巻 976
2. 論文標題 Development of a retarding-field type magnetic bottle spectrometer for studying the internal-conversion process of ^{235}mU	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment	6. 最初と最後の頁 164207~164207
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.nima.2020.164207	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 Y. Shigekawa, A. Yamaguchi, K. Suzuki, H. Haba, T. Hiraki, H. Kikunaga, T. Masuda, S. Nishimura, N. Sasao, A. Yoshimi, and K. Yoshimura	4. 巻 53
2. 論文標題 Half-life determination of nuclear excited states of 229Th by the coincidence measurement between particles and rays from 233U	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 RIKEN Accel. Prog. Rep.	6. 最初と最後の頁 51 ~ 51
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 Y. Shigekawa, A. Yamaguchi, N. Sato, A. Takamine, M. Wada, and H. Haba	4. 巻 53
2. 論文標題 Development of an RF-carpet gas cell for the chemistry of superheavy elements	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 RIKEN Accel. Prog. Rep.	6. 最初と最後の頁 168 ~ 168
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 Kasamatsu Yoshitaka, Toyomura Keigo, Haba Hiromitsu, Yokokita Takuya, Shigekawa Yudai, Kino Aiko, Yasuda Yuki, Komori Yukiko, Kanaya Jumpei, Huang Minghui, Murakami Masashi, Kikunaga Hidetoshi, Watanabe Eisuke, Yoshimura Takashi, Morita Kosuke, Mitsugashira Toshiaki, Takamiya Koichi, Ohtsuki Tsutomu, Shinohara Atsushi	4. 巻 13
2. 論文標題 Co-precipitation behaviour of single atoms of rutherfordium in basic solutions	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Nature Chemistry	6. 最初と最後の頁 226 ~ 230
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41557-020-00634-6	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 Masuda Takahiko, Watanabe Tsukasa, Beeks Kjeld, Fujimoto Hiroyuki, Hiraki Takahiro, Kaino Hiroyuki, Kitao Shinji, Miyamoto Yuki, Okai Koichi, Sasao Noboru, Seto Makoto, Schumm Thorsten, Shigekawa Yudai, Tamasaku Kenji, Uetake Satoshi, Yamaguchi Atsushi, Yoda Yoshitaka, Yoshimi Akihiro, Yoshimura Koji	4. 巻 28
2. 論文標題 Absolute X-ray energy measurement using a high-accuracy angle encoder	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Synchrotron Radiation	6. 最初と最後の頁 111 ~ 119
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1107/S1600577520014526	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 Kasamatsu Yoshitaka, Kondo Narumi, Nakamura Kouhei, Kuboki Yuki, Ninomiya Hidemi, Shigekawa Yudai, Watanabe Eisuke, Yasuda Yuki, Toyomura Keigo, Nagase Masahiro, Yokokita Takuya, Komori Yukiko, Haba Hiromitsu, Yoshimura Takashi, Itabashi Hideyuki, Shinohara Atsushi	4. 巻 38
2. 論文標題 Solvent Extraction of Zr and Hf from HCl by Aliquat 336 using a Flow-Type Extraction Apparatus Toward Online Chemical Studies of Element 104, Rutherfordium	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Solvent Extraction and Ion Exchange	6. 最初と最後の頁 318 ~ 327
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/07366299.2020.1726075	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 Haba H.他 (Shigekawa Y. 19番目)	4. 巻 102
2. 論文標題 Production of Bh266 in the Cm248(Na23,5n)Bh266 reaction and its decay properties	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review C	6. 最初と最後の頁 024625 ~ 024625
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevC.102.024625	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15件 (うち招待講演 3件 / うち国際学会 3件)

1. 発表者名 Yudai Shigekawa, Wang Yang, Yin Xiaojie, Akihiro Nambu, Hiromitsu Haba
2. 発表標題 Progress toward observing α -rays emitted from ^{229m}Th by doping fluoride crystals with ^{229}Pa
3. 学会等名 5th International Conference on Application of RadiotraCers and Energetic Beams in Sciences (ARCEBS 2023) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 重河優大
2. 発表標題 超低エネルギー励起核U-235mとTh-229mの核壊変特性に関する研究
3. 学会等名 電気学会2022年度第1回調査専門委員会 (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 重河優大, Wang Yang, Yin Xiaojie, 南部明弘, 羽場宏光
2. 発表標題 Th-229mの 線観測に向けたPa-229のフッ化物結晶への導入法及び光子測定装置の開発
3. 学会等名 日本放射化学会第66回討論会(2022)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 A. Yamaguchi, Y. Shigekawa, H. Haba, M. Wada, H. Katori
2. 発表標題 Laser spectroscopy of triply charged thorium ions towards a nuclear clock
3. 学会等名 URSI-JRSM2022 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 A. Yamaguchi, Y. Shigekawa, H. Haba, M. Wada, H. Katori
2. 発表標題 Development of an RF-carpet gas cell to obtain a low-energy thorium ion beam
3. 学会等名 Second Workshop of the Center for Time, Constants and Fundamental Symmetries (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 平木貴宏, Kjeld Beeks, 藤本弘之, 福永優太, 管明, 羽場宏光, 笠松良崇, 北尾真司, 小無健司, 増田孝彦, 永澤延元, 岡井晃一, 笹尾登, Fabian Schaden, Thorsten Schumm, 瀬戸誠, 重河優大, 高取沙悠理, 玉作賢治, 植竹智, 渡部司, 渡部信, 山口敦史, 安田勇輝, 依田芳卓, 吉見彰洋, 吉村浩司, 吉村太彦
2. 発表標題 トリウム229アイソマー状態からの脱励起真空紫外光の探索
3. 学会等名 日本物理学会2023年春季大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名	高取沙悠理, Kjeld Beeks, 藤本弘之, 福永優太, 管明, 羽場宏光, 平木貴宏, 笠松良崇, 北尾真司, 小無健司, 増田孝彦, 永澤延元, 岡井晃一, 笹尾登, Fabian Schaden, Thorsten Schumm, 瀬戸誠, 重河優大, 玉作賢治, 植竹智, 渡部司, 渡部信, 山口敦史, 安田勇輝, 依田芳卓, 吉見彰洋, 吉村浩司, 吉村太彦
2. 発表標題	固体原子核時計の実現へ向けた放射光X線を用いたトリウム229結晶の特性評価
3. 学会等名	日本物理学会2023年春季大会
4. 発表年	2023年

1. 発表者名	福永優太, Kjeld Beeks, 藤本弘之, 平木貴宏, 管明, 羽場宏光, 笠松良崇, 北尾真司, 小無健司, 増田孝彦, 永澤延元, 岡井晃一, 笹尾登, Fabian Schaden, Thorsten Schumm, 瀬戸誠, 重河優大, 高取沙悠理, 玉作賢治, 植竹智, 渡部司, 渡部信, 山口敦史, 安田勇輝, 依田芳卓, 吉見彰洋, 吉村浩司, 吉村太彦
2. 発表標題	トリウム229アイソマー準位探索のための核共鳴散乱標的の開発
3. 学会等名	日本物理学会2023年春季大会
4. 発表年	2023年

1. 発表者名	益田遼太郎, 安田勇輝, 澤村慶, 重河優大, 宮本祐樹, 吉村浩司, 篠原厚, 笠松 良崇
2. 発表標題	229mThの線測定に向けた希ガスマトリックス単離装置の開発
3. 学会等名	日本放射化学会第66回討論会(2022)
4. 発表年	2022年

1. 発表者名	岡井晃一, Kjeld Beeks, 藤本弘之, 福永優太, 管明, 羽場宏光, 原秀明, 平木貴宏, 稲垣新, 小早川大貴, 笠松良崇, 北尾真司, 小無健司, 増田孝彦, 宮本祐樹, 笹尾登, Thorsten Schumm, 瀬戸誠, 重河優大, 高取沙悠理, 玉作賢治, 植竹智, 渡部司, 渡部信, 山口敦史, 安田勇輝, 依田芳卓, 吉見彰洋, 吉村浩司, 吉村太彦
2. 発表標題	トリウム229アイソマー状態からの脱励起に伴う真空紫外光の探索
3. 学会等名	日本物理学会 2022年秋季大会
4. 発表年	2022年

1. 発表者名 山口敦史, 重河優大, 羽場宏光, 和田道治, 香取秀俊
2. 発表標題 原子核時計実現にむけたトリウムイオンのトラップとレーザー分光
3. 学会等名 レーザー学会学術講演会第43回年次大会 (招待講演)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 山口敦史, 重河優大, 羽場宏光, 和田道治, 香取秀俊
2. 発表標題 原子核時計実現にむけたトリウムイオントラップ装置の開発
3. 学会等名 日本物理学会2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 重河優大, 床井健運, 山口敦史, Wang Yang, Yin Xiaojie, 南部明弘, 佐藤望, 和田道治, 羽場宏光
2. 発表標題 Th-229mの壊変特性の解明に向けた高周波イオン収集・質量分離装置の開発
3. 学会等名 日本放射化学会第65回討論会 (2021)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 重河優大, 山口敦史, 鈴木健太, 羽場宏光, 平木貴宏, 菊永英寿, 西村俊二, 笹尾登, 吉見彰洋, 吉村浩司
2. 発表標題 U-233の - 同時計数測定によるTh-229の原子核励起状態の半減期の決定
3. 学会等名 日本放射化学会第64回討論会 (2020)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 重河優大, 山口敦史, 佐藤望, 高峰愛子, 和田道治, 羽場宏光
2. 発表標題 核化学研究用高周波イオン収集システムの開発
3. 学会等名 日本放射化学会第64回討論会(2020)
4. 発表年 2020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
研究協力者	山口 敦史 (Yamaguchi Atsushi) (70724805)	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 (82401)	
研究協力者	和田 道治 (Wada Michiharu) (50240560)	大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構・素粒子原子核研究所・教授 (82118)	
研究協力者	羽場 宏光 (Haba Hiromitsu) (60360624)	国立研究開発法人理化学研究所・仁科加速器科学研究センター・室長 (82401)	
研究協力者	床井 健運 (Tokoi Katsuyuki)		

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
---------	---------