

令和 3 年 6 月 9 日現在

機関番号：15301

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18H01230

研究課題名(和文)トリウム229極低エネルギーアイソマーの解明と基礎物理への応用

研究課題名(英文) Study on thorium-229 Low-lying Isomer state and its application for fundamental physics

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) 13,300,000円

研究成果の概要(和文)：世界で最小の励起エネルギーを持つトリウム229の第1励起状態(アイソマー状態)を人工的に生成することに成功した。高輝度放射光X線および高速X線検出器による核共鳴散乱を用いた新しい手法により、第2励起状態を経由してアイソマー状態の生成を行った。本研究により、トリウム229アイソマー状態を大量かつ自在に生成することが可能となり、今後、生成したアイソマー状態を有効に利用することで、アイソマー状態の詳細な解明を行う。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で達成された手法により、トリウム229のアイソマー状態の解明が進めば、トリウム原子核のレーザー励起、さらに原子核時計の早期の実現が可能となる。トリウム229を用いた原子核時計は、最先端の原子時計を上回る精度を達成できる可能性があり、様々な分野への応用が期待されている。基礎物理分野においては、物理定数の経年変化の検証、新しい手法での暗黒物質探索、等、新しい物理探究のプラットフォームを提供可能である。

研究成果の概要(英文)：We have succeeded in artificially producing the first excited state (isomer state) of thorium-229, which has the smallest excitation energy in the world. The isomer state was produced via the second excited state by a new method using nuclear resonant scattering with high-brilliance synchrotron radiation X-rays and a fast X-ray detector. This study has enabled us to produce a large number of thorium-229 isomer states in controllable manner, and we will make effective use of the produced isomer states to elucidate the isomer states in detail.

研究分野：素粒子実験

キーワード：原子核時計 トリウム 放射光X線 核共鳴散乱 物理定数の経年変化 X線検出器 暗黒物質 レーザ

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。

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

(1) トリウム同位体 ^{229}Th は約 8 eV と極めて低い励起エネルギー準位 (アイソマー準位) を持っており、レーザー励起可能な唯一の原子核として注目されている。原子核をレーザーで操作することが可能になれば、外場の影響を受けにくい安定な量子状態を実現することができるため、超精密「原子核時計」など、様々な応用が期待されている。

(2) ^{229}Th のアイソマー準位を原子核時計に利用するには、そのエネルギーや寿命を詳細に知る必要があるが、数 10 年にもわたり様々な研究が行われてきたにも関わらず、測定精度は十分ではなく、これまでレーザーにより直接励起に成功した例はない。その原因のひとつが研究に必要なアイソマー準位を基底準位から人工的に生成する方法がなかったことが考えられる。

2. 研究の目的

本研究では、アイソマー準位へ励起するために、従来のようにエネルギーが不確かな 8 eV 付近の真空紫外光を用いるのではなく、次に示すようにエネルギーが確定している 29.2 keV の第 2 励起準位を経由して、その崩壊によりアイソマー状態を作り出し、その特性を詳細に調べることが目的とする。第 2 励起準位への励起には、高輝度放射光 X 線を用いた核共鳴散乱の手法を用いる。

(1) 29.2 keV の単色 X 線を ^{229}Th の基底状態に照射し、核共鳴散乱の手法でアイソマー準位へ Λ 型遷移 (図 1 の① → ②) したことを確認する。X 線のエネルギーが励起エネルギーに一致した時のみ、 ^{229}Th が第 2 励起準位へ励起され、寿命だけ遅れた散乱信号が発生するので、精度よく共鳴エネルギーを決定することができる。

(2) X 線のエネルギーを(1)で得られた共鳴エネルギーに合わせて照射して、アイソマー準位から基底準位への脱励起光を観測し、分光器により波長を精度よく決定する。(図 1 の③)。この手法は、核共鳴散乱のピークを確認することにより、確実にアイソマー準位に移ったことを確認でき、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というメリットがある。

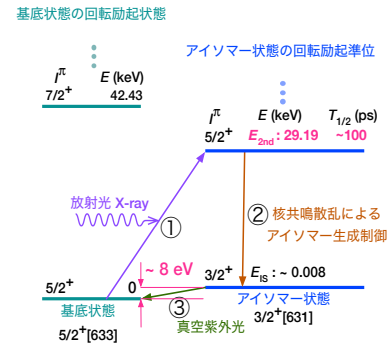


図 1 ^{229}Th のエネルギー準位

3. 研究の方法

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 X 線ビームを用いて実験を行う。図中アンジュレータで生成された X 線は 2 段階のモノクロメータにより単色化・エネルギー調整を行った後、集光レンズで集光され、焦点におかれたトリウム試料に照射される。トリウム試料で散乱された X 線は X 線検出器で時間情報とエネルギーを測定する。散乱 X 線のほとんどが電子との散乱に起因するもので、入射 X 線のエネルギーが第 2 励起エネルギーと一致した時のみ、 ^{229}Th 原子核と散乱を起こして、半減期 0.1~0.2 ns で減少する核共鳴信号が観測される (図 3)。ただし、核共鳴散乱の信号は電子散乱に比べて極めて微小で、時間分布もほぼ似通っているため、巨大なバックグラウンドから抽出するのは困難であった。本研究では、高速高時間分解能 X 線検出システム、高密度小径標的試料、X 線エネルギーモニタを開発することにより、検出を可能にした。

(1) 高速高時間分解能 X 線検出システムの開発

高速時間応答を持ち、バックグラウンドが小さい検出器として、空乏層が薄い、小径 $\phi 0.5$ mm の Si-APD S12053-05 (浜松ホトニクス) を 9 個並べたものを新たに開発し、アクセプタンスと時間応答性能を両立させることを可能にした。Si-APD で検出した信号から X 線のエネルギーやパイルアップの情報を得るために時間情報に加えて、パルス波高、パルス幅の情報をパルス毎に同時に測定可能なエレクトロニクスを独自に開発した。これらの情報を用いてバックグラウンド事象を抑制することに成功した [1]。

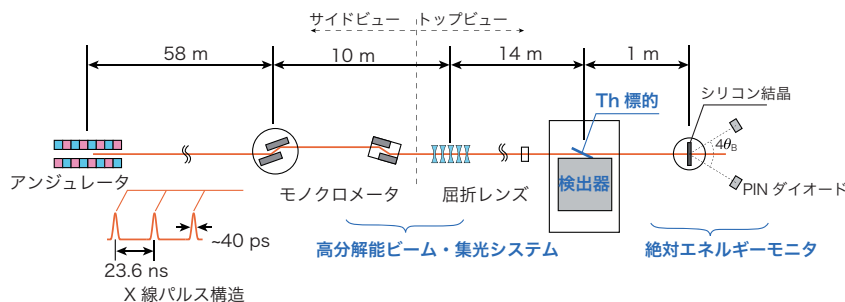


図 2 SPring-8 核共鳴散乱実験レイアウト

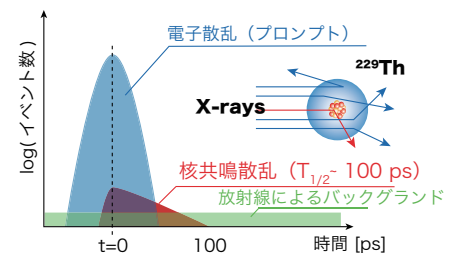


図 3 核共鳴散乱信号時間分布

(2) 標的システムと X 線ビーム集光システムの開発 (図 4)

核共鳴散乱の信号は電子による散乱信号に比べて非常に弱いために、効率よく反応させるために、トリウム試料を小面積に凝集させ、かつ、その領域に X 線を集光させる必要がある。本研究では、研究分担者の笠松とともに、理化学研究所、東北大学の協力を得て、乾固法とよばれる方法で、0.4 mm 径の小径試料を開発した[2]。また、集光システムとして、高輝度放射光科学研究センターの協力を得て、複合屈折レンズを開発した。

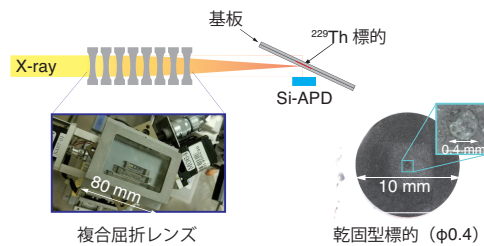


図 4 X 線集光システムと高密度トリウム標的

(3) 入射 X 線の絶対エネルギーモニターの開発

核共鳴散乱を観測するためには、X 線ビームのエネルギーを変えながら信号量の変化を観測して、そのピークを捉える必要がある。核共鳴のエネルギーを精度よく決定し、再現性を確保するためには、入射 X 線のビームエネルギーを正確にモニターする必要がある。この用途のために、産業総合研究所の協力を得て、自己較正機能つきロータリーエンコーダ (SelfA) と高精度シリコン結晶を組み合わせて、精度 0.1 eV でエネルギーをモニターできるシステムを開発した[3]。

4. 研究成果

開発に成功した装置を使って、SPring-8 において実験を行い、以下のような成果を得た[4]。

(1) 核共鳴散乱の観測

SPring-8 において核共鳴散乱の探索を行った結果、第 2 励起状態の核共鳴散乱を世界で初めて観測に成功した。まずは分解能が低い (半値全幅 0.26 eV) モノクロメータを用いて、広いエネルギー領域で探索を行いピークを観測した後、モノクロメータを高分解能なもの (半値全幅 0.1 eV) に変えて詳細なスキャンを行うことにより、ピークエネルギーを精密に決定し (図 5a)、その他のパラメータを測定した。

(2) ^{229}Th に関するパラメータの決定

観測されたエネルギースペクトルおよび時間スペクトルから、第 2 励起状態のエネルギー値を $29,189.93 \pm 0.07$ eV (図 5a)、半減期を 82.2 ± 4.0 ps 決定することができた (図 5b)。また、詳細な解析から基底準位から第 2 励起準位への幅を 1.70 ± 0.4 neV と決定することができ、他の実験で得られたデータを合わせると、第 2 励起準位からアイソマー準位へは約 60 % の分岐比で脱励起し、我々の実験では毎秒 25,000 個のアイソマー状態を生成できたことになる。

以上のように、本研究により、 ^{229}Th アイソマー状態を大量かつ自在に生成することが可能となり、今後、生成したアイソマー状態を有効に利用することで、アイソマー状態の詳細な解明を行うことができるようになった。現在、アイソマー準位から基底状態の真空紫外光遷移の探索をすすめている。観測のためには、標的試料に真空紫外光を透過する光学結晶を用いる必要があるが、既にウィーン工科大学と共同でトリウムをドープした光学結晶 (フッ化カルシウム) を開発しており、本研究で開発した真空紫外光観測用の光学系と組み合わせて、脱励起光の観測を行う予定である。

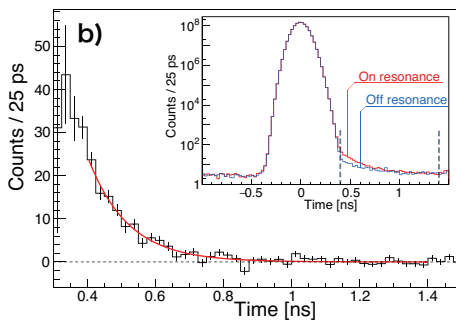
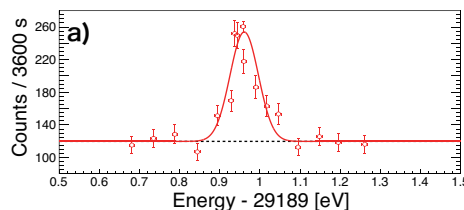


図 5 a) 観測された核共鳴信号エネルギーピーク

b) 第 2 励起状態の半減期の測定

<引用文献>

- [1] T. Masuda et al., Rev. Sci. Instrum. **88**, 063105 (2017)
- [2] H. Kaino et al., Isotope News **768**, 2 (2020)
- [3] T. Masuda et al., J. Synchrotron Rad **28**, 111 (2021)
- [4] T. Masuda et al., Nature **573**, 243 (2019)

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計9件（うち査読付論文 6件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 4件）

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 海野 弘行, 笠松 良崇, 重河 優大, 羽場 宏光, 平木 貴宏, 増田 孝彦, 山口 敦史, 横北 卓也, 吉見 彰洋, 吉村 浩司	4. 巻 768
2. 論文標題 高輝度X線を用いた核共鳴散乱技術による原子核 ²²⁹ Thアイソマー状態の人工生成	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Isotope News	6. 最初と最後の頁 2 ~ 6
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 無
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 平木 貴宏, 海野 弘行, 増田 孝彦, 岡井 晃一, 笹尾 登, 吉見 彰洋, 吉村 浩司, 北尾 真司, 瀬戸 誠, 玉作 賢治, 依田 芳卓	4. 巻 25
2. 論文標題 最小の励起エネルギーをもつ原子核状態 ^{229m} Thの人工的生成	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 SPRING-8/SACLA 利用者情報	6. 最初と最後の頁 88 ~ 95
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 無
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 T. Masuda, T. Hiraki, A. Yoshimi and K. Yoshimura	4. 巻 2019
2. 論文標題 Active pumping of ²²⁹ Th nuclear clock isomer by synchrotron radiation-based nuclear resonant scattering	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 SPRING-8 Research Frontiers	6. 最初と最後の頁 30-31
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 無
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 Masuda T., Hiraki T., Kaino H., Kishimoto S., Miyamoto Y., Okai K., Okubo S., Ozaki R., Sasao N., Suzuki K., Uetake S., Yoshimi A., Yoshimura K.	4. 巻 913
2. 論文標題 Energy response of X-rays under high flux conditions using a thin APD for the energy range of 6733 keV	5. 発行年 2019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 72 ~ 77
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.nima.2018.10.029	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

1. 著者名 Tajima Hiroyuki, Kitao Shinji, Masuda Ryo, Kobayashi Yasuhiro, Masuda Takahiko, Yoshimura Koji, Seto Makoto	4. 巻 58
2. 論文標題 Development of a measurement system enabling the reconstruction of γ -ray time spectra by simultaneous recording of energy and time information	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 108001 ~ 108001
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/1347-4065/ab3f19	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 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 -

1. 著者名 Masuda T., Hiraki T., Kaino H., Kishimoto S., Miyamoto Y., Okai K., Okubo S., Ozaki R., Sasao N., Suzuki K., Uetake S., Yoshimi A., Yoshimura K.	4. 巻 913
2. 論文標題 Energy response of X-rays under high flux conditions using a thin APD for the energy range of 6733 keV	5. 発行年 2019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 72 ~ 77
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.nima.2018.10.029	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 吉見彰洋、笠松良崇、北尾真司、瀬戸誠、増田孝彦、山口敦史、依田芳卓、吉村浩司	4. 巻 31
2. 論文標題 放射光で探るレーザー光による超精密原子核制の可能性:229Th極低核励起準位	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 放射光	6. 最初と最後の頁 304 ~ 314
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21件 (うち招待講演 9件 / うち国際学会 9件)

1. 発表者名 岡井晃一
2. 発表標題 トリウム229アイソマー準位からの真空紫外光探索に向けたTh:CaF ₂ 結晶の光学特性評価
3. 学会等名 日本物理学会 第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 K. Yoshimura
2. 発表標題 Novel Production Method of the Lowest-Energy Nuclear State - Thorium-229 Isomer
3. 学会等名 GIMRT-REMAS2020 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 平木貴宏
2. 発表標題 トリウム229アイソマー準位からの真空紫外光探索実験の現状
3. 学会等名 日本物理学会 2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 吉村浩司
2. 発表標題 高輝度X線によるトリウム-229極低エネルギーアイソマーの能動的生成－究極の原子核時計に向けての第一歩－
3. 学会等名 SPring-8シンポジウム (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 K. Yoshimura
2. 発表標題 Measurement of ultra-low energy level of Thorium-229 Isomer with high intense X-ray beam
3. 学会等名 The 12th International Workshop on Fundamental Physics Using Atoms (FPAU2020) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

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 (招待講演) (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) (招待講演) (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 理研「物質階層原理 & ヘテロ界面」2019年度研究報告会（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 2019年度 大洗アルファ合同研究会（招待講演）
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（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 増田孝彦
2. 発表標題 トリウム229原子核異性体からの真空紫外光観測の現状
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 海野弘行
2. 発表標題 トリウム229アイソマー準位からの真空紫外光の探索
3. 学会等名 日本物理学会大75回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Satoshi Uetake
2. 発表標題 A search for the low-energy 229Th nuclear isometric transition using an “optical” pumping technique at 29-keV
3. 学会等名 International coference on atomic physics 2018 (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 植竹智
2. 発表標題 トリウム229の極低エネルギー原子核時計遷移の探索 II
3. 学会等名 日本物理学会2018秋季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Takahiko Masuda
2. 発表標題 Search for the ultra-low energy isomer state of thorium-229 nuclei
3. 学会等名 5th Joint Meeting of the Division of Nuclear Physics of the APS and the JPS (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Takahiko Masuda
2. 発表標題 Fast APD detector with a short tail in the timing response for an experiment using synchrotron radiation X-ray beam
3. 学会等名 5th International Workshop on New Photon-Detectors (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Takahiko Masuda
2. 発表標題 X-ray pumping of the nuclear-clock isomer ^{229}Th
3. 学会等名 The 11th international workshop on Fundamental Physics Using Atoms 2019 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Takahiko Masuda
2. 発表標題 Realization of the active pumping of thorium-229 isomeric state
3. 学会等名 Cosmic acceleration " symposium (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 海野弘行
2. 発表標題 核共鳴散乱を用いたトリウム229アイソマー準位への能動的遷移
3. 学会等名 日本物理学会第74回年次学会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 吉見彰洋
2. 発表標題 トリウム-229 の原子核時計遷移分光
3. 学会等名 日本物理学会第74回年次学会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 平木貴宏
2. 発表標題 Search for the lowest-energy nuclear isomeric state of Th-229 toward a “nuclear clock”
3. 学会等名 核化学研究会
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
研究 分担 者	笠松 良崇 (Kasamatsu Yoshitaka) (70435593)	大阪大学・理学研究科・講師 (14401)	

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			
米国	UCLA			
オーストリア	ウィーン工科大学			