

令和 5 年 6 月 6 日現在

機関番号：15301

研究種目：基盤研究(A)（一般）

研究期間：2019～2022

課題番号：19H00685

研究課題名（和文）能動的核異性体生成法で迫る、トリウム229原子核異性体の高精度レーザー分光

研究課題名（英文）Precision laser spectroscopy of thorium-229 nuclear isomers approached by active isomer pumping method

研究代表者

増田 孝彦（Masuda, Takahiko）

岡山大学・異分野基礎科学研究所・特任准教授

研究者番号：90733543

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 35,130,000円

研究成果の概要（和文）：トリウム229の第一励起準位（アイソマー準位）は、励起エネルギーが約8eV程度と低く寿命が1000秒を超えると予想されている、特殊な原子核準位である。本研究では能動的核異性体生成法を用いて、トリウム229原子核の基底準位からアイソマー準位に人工的に励起する手法を用いて、アイソマー準位からの真空紫外光発光観測を行った。

能動的核異性体生成に重要なX線ビームのエネルギーの精密モニタの開発、真空紫外光発光観測のための高効率ダイクロミックミラー開発などを進め、真空紫外光の発光を示唆する実験結果を得ることができた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

トリウム229の第一励起準位（アイソマー準位）は超精密周波数標準「原子核時計」の候補として注目されている原子核である。そのためにはアイソマー準位へレーザー励起する必要があるが、そのためにはアイソマー準位のエネルギーや寿命の決定が必須となる。

本研究ではそのエネルギーや寿命の決定のため、能動的核異性体生成法を用いてアイソマー準位を人工的に用意し、その脱励起を観測する実験を進めた。期間終盤に脱励起に伴う発光の兆候を捉えることに成功しており、今後、発光を詳細に研究する手がかりを掴むことができた。

研究成果の概要（英文）：The first excited level of thorium 229 (isomer state) is a special nuclear level with a low excitation energy of about 8 eV and a lifetime expected to exceed 1000 seconds. In this study, we have succeeded in obtaining an indication of vacuum ultraviolet (VUV) emission from the isomer state of Thorium-229 nucleus by using the active pumping of the isomer state, in which the isomer state is artificially excited from the ground state of Thorium-229 nucleus to the isomer state.

We have developed a precise monitor of X-ray beam energy, which is important for active nuclear isomer production, and a high-efficiency dichroic mirror for the observation of vacuum ultraviolet luminescence.

研究分野：基礎物理

キーワード：トリウム229 核共鳴散乱 核異性体 原子核時計

1. 研究開始当初の背景

トリウムは原子番号 90 番でアクチノイド元素の一つである。その同位体の一つ、トリウム 229 は半減期 7932 年で天然には存在せず、親核であるウラン 233 の α 崩壊生成物としてのみ存在する同位体である。トリウム 229 は、その第一励起準位のエネルギーが極めて低いという特徴がある。通常の原子核は keV から MeV のエネルギースケールの励起エネルギーをもつが、トリウム 229 の第一励起エネルギーは基底準位からわずか 8eV 程度しか離れていないと考えられている。この第一励起準位はそのエネルギーの小ささから寿命が数分以上あると考えられており、アイソマー (核異性体) であると予想されている。

本研究課題を開始した 2019 年 4 月時点ではアイソマーからの内部転換電子放出が確認されているだけで、レーザー励起に必要な光学遷移の観測は実現していない状況であった。アイソマーのエネルギーも 5-8eV 程度でばらついた実験結果が報告されていた。もう一つ重要なパラメータであるアイソマー準位の寿命についての実験結果は無く、1000-10000 秒程度の理論予想のみであった。

2. 研究の目的

本研究課題では上記の背景を鑑み、まずアイソマー準位と基底準位間の光学遷移を観測し、レーザー励起に必要なエネルギーと寿命、光学遷移確率を求めることを第一の目的とした。

さらに、将来の高精度レーザー分光実験に向けてイオントラップを開発する。北米や欧州の一部機関ではすでにイオントラップの開発が進められているが、本課題では理化学研究所の持つノウハウをもとに独自の手法でのイオントラップを開発する。

これらの目的は、原子核時計のためのレーザー励起のための重要なステップである。

3. 研究の方法

アイソマー準位の光学遷移には、我々の開発してきた能動的核異性体生成法を用いる。能動的核異性体生成法の概念図を図 1 に示す。これは放射光核共鳴散乱を応用した手法で、基底状態のトリウム 229 原子核を第二励起準位 (エネルギー 29.19keV) へ X 線で共鳴励起し、アイソマー準位 (第一励起準位) へ脱励起させる手法である。

放射光実験は SPring-8 の BL19LXU ビームラインで行う。ビームラインを含めた実験セットアップを図 2 に示す。図中の Undulator から IC まではビームライン備え付けの機器である。下流の VUV measurement と NRS measurement が我々の開発する部分である。NRS

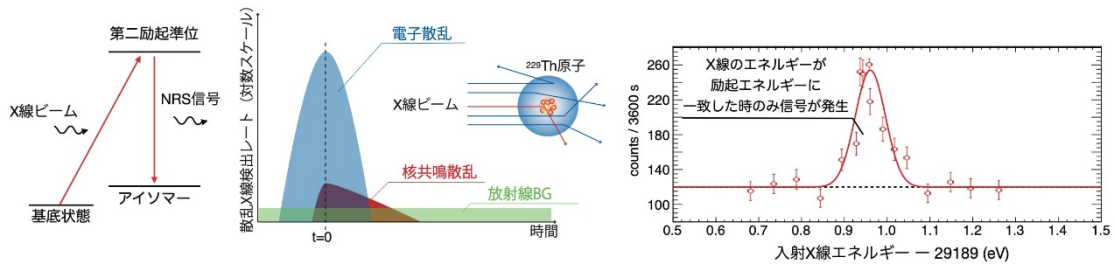


図 1 能動的核異性体生成法。(左) トリウム 229 原子核のエネルギー準位の最も低い部分の拡大図と、実験中の遷移を示した。基底状態のトリウム 229 に X 線ビームを照射し第二励起準位に励起し、アイソマーへ脱励起する。共鳴が起きていることを核共鳴散乱 (NRS) 信号の観測により確認する。(中) 核共鳴散乱信号の時間応答。電子散乱と放射線による背景事象が存在しており、核共鳴散乱信号はその間に発生し、時定数 82 ピコ秒の時間構造をもつ。(右) X 線のエネルギーをスキャンすることで共鳴を確認し、その共鳴ピークに X 線のエネルギーを固定することで、アイソマーを生成する。

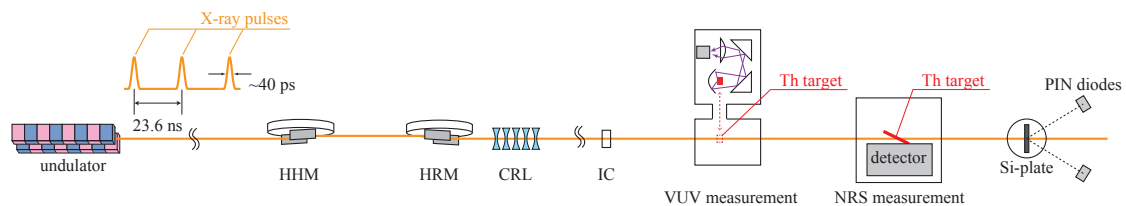


図 2 ビームラインセットアップ。X 線ビームは左の Undulator でコヒーレントに生成され、途中の HHM (High heat load monochromator) と HRM (High resolution monochromator) でエネルギー幅を狭めて、トリウム標的に照射する。途中の CRL は X 線ビームを集光するためのレンズで、NRS measurement では用いるが、VUV measurement 時には退避させる。最下流の Si-plate と PIN diode のセットは X 線ビームエネルギーモニター (後述) である。

measurement はすでに開発済みのもので、核共鳴散乱の共鳴ピークを確認して、そのピークにビームエネルギーを合わせるために使用する。VUV measurement が主に本研究課題で開発する部分である。

4. 研究成果

(1) X線ビームモニタの開発

実験に不可欠の要素の一つに X 線のビームエネルギーを一定に保つ機構が挙げられる。通常 X 線ビームのエネルギーは上流のモノクロメータの回転角で調整するが、この回転角とエネルギーの関係は一定ではなく、時間によって変動してしまうことが知られている。本研究ではビームエネルギーを共鳴に合わせて続ける必要があるため、短時間でエネルギーをモニターしフィードバックする機構が必要である。本機構を開発し、安定したビームオペレーションを実現した。本成果は原著論文 (T. Masuda et al., J. Synchrotron Rad. (2021). 28) で報告した。

(2) 三次元配置による高消光比の真空紫外光ダイクロイックミラーの開発

アイソマーの脱励起に伴う発光は、波長 150nm の真空紫外光と予想される。そのためトリウム標的は真空紫外光を透過する必要があり、本課題では共同研究者の開発しているトリウム添加 CaF_2 結晶を使用した。一方で CaF_2 結晶はシンチレーション材質としても知られており、トリウムやその娘核の放射性改変に伴い UV 領域に発光がある。また同時にチェレンコフ光も発生する。さらに X 線照射に伴い XEOL (X-ray excited optical luminescence) も背景光となる。これらの背景光から微弱な信号を抽出するため、トリウム標的と検出器 (ソーラープラインド型光電子増倍管) の間に高消光比の波長弁別機構を導入する必要があった。

当初は市販の波長弁別フィルタを使用していたが、真空紫外領域では十分な性能のフィルタを入手することは不可能であり、期間中盤に UV-silica の直角プリズムに専用の誘電体多層膜を蒸着したダイクロイックミラーを複数組み合わせる立体配置多段反射型フィルタを考案した。

ミラーの試作を繰り返し、最終的に背景光を 5 桁以上削減しつつ信号を 50%程度保存する 4 段反射型フィルタの開発に成功した。図 3 にミラーセットの合成反射率の測定値を載せる。図は本番で使用する 4 枚ミラーセット 3 種の反射率スペクトルである。先行研究を示唆する 148.7nm 周辺をカバーするフィルタが完成した。

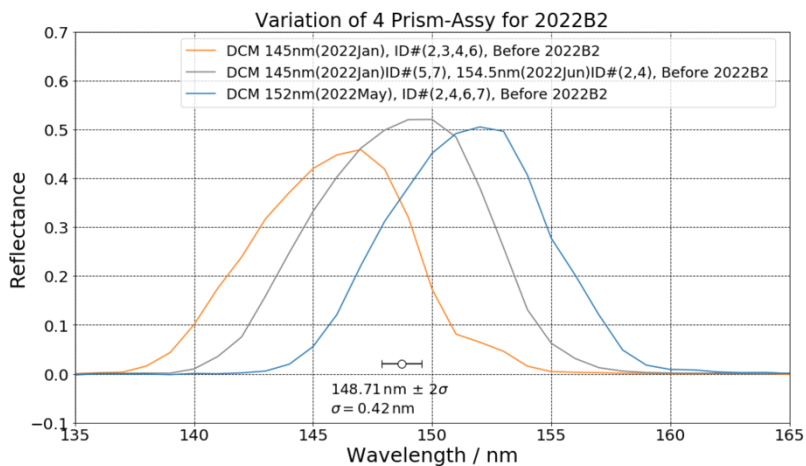


図 3 立体配置 4 段反射型フィルタ 3 セットの反射率スペクトル (実測値)。

(3) 真空紫外光の探索

上記のフィルタに加え、共同研究者らの開発した高濃度トリウム結晶と、高分解能 X 線モノクロメータを組み合わせ、2023 年 2 月にアイソマーからの真空紫外光発光検出実験を行った。アイソマーの寿命を 1000 秒程度と仮定し、600 秒の X 線照射と 1800 秒の発光観測を繰り返し行った。照射する X 線ビームのエネルギーをスキャンしたところ、共鳴に一致するエネルギーの時のみ信号の超過が確認され、アイソマー準位からの発光を示唆する重要な成果が得られた。今後はこの超過の詳細を確認することが必要となる。

(4) レーザー分光実験に向けたイオントラップ装置の開発

トリウム 229 原子核遷移の精密レーザー分光実験に向けて、トリウム 229 のイオントラップ装置を開発した。

図 4 に開発したイオントラップ装置の概念図を示す。装置は「イオン生成+引き出し」→「イオンの輸送」→「トラップ」の 3 つの部分から構成されている。最初のイオン生成部分にはウラン 233 線源が装着されている。ウラン 233 線源から反跳イオンとして得られるトリウム 229 イ

オンをヘリウムガスで衝突冷却し、RF カーペットと呼ばれるイオン収集装置でイオンビームとして引き出す。引き出したトリウム 229 イオンを、四重極イオンガイドでリニア型ポールトラップまで輸送し捕獲する。図 4(右)に、イオントラップに捕獲されたトリウムイオンを、レーザー光で発光させて撮影した CCD 画像を示す。数千個のトリウム 229 イオンをトラップすることに成功した。

先行研究では、極めて希少なトリウム 229 試料を、パルスレーザーでイオン化しトラップする実験が行われた。これに対して本研究のイオントラップ装置は、半永久的にトリウム 229 イオンを安定して供給するウラン 233(半減期 16 万年)をイオン源として使用している。これにより、トリウム 229 イオンのレーザー冷却、そして原子核遷移の直接レーザー分光といった、原子核時計の実現にむけた今後のさまざまな実験を、長期にわたり安定して遂行することが可能になった、という点で本研究の成果は重要である。

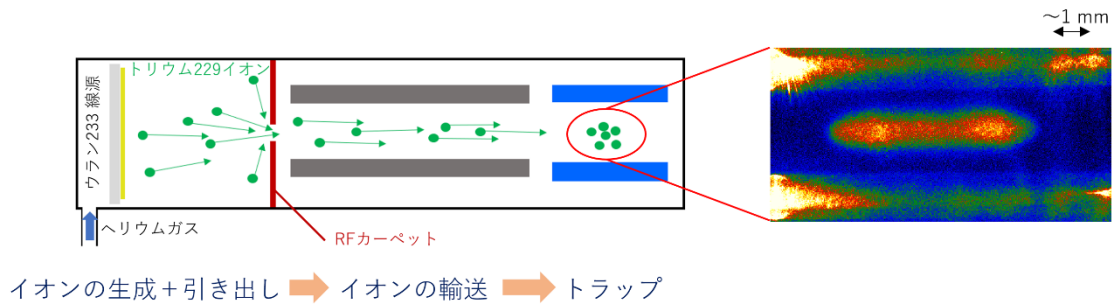


図4 (左)トリウム 229 イオントラップ装置。ウラン 233 線源から反跳イオンとして放出されるトリウム 229 イオンをヘリウムガスで衝突冷却した後、イオンビームとして引き出しトラップする。(右)イオントラップに捕獲されたトリウムイオン(数千個)をレーザー光で発光させて撮影した CCD 画像。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 4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 増田孝彦	4. 巻 65
2. 論文標題 トリウム 229 原子核におけるアイソマー準位のX線ポンピング	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 原子核研究	6. 最初と最後の頁 41
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 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 無
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 ^{229}mTh 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 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 該当する

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 200
2. 論文標題 Optimized TES Microcalorimeters with 14eV Energy Resolution at 30keV 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 452 ~ 460
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 Kitao S., Masuda R., Fujihara T., Tajima H., Nagasawa N., Yoda Y., Masuda T., Yoshimura K., Seto M.	4. 巻 2380
2. 論文標題 Development of Time- and Energy-Resolved Synchrotron-Radiation-Based Messbauer Spectroscopy	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Conference Series	6. 最初と最後の頁 12136
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1742-6596/2380/1/012136	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25件 (うち招待講演 9件 / うち国際学会 8件)

1. 発表者名 Takahiko HIRAKI
2. 発表標題 Search for the nuclear isomeric state of 229Th toward nuclear clock
3. 学会等名 Nuclear Photonics conference 2020 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 増田孝彦
2. 発表標題 トリウム原子核アイソマー安定生成のためのX線ビームエネルギー測定システムの詳細
3. 学会等名 第15回核共鳴散乱研究会 (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 平木貴宏
2. 発表標題 トリウム229アイソマー状態からの脱励起真空紫外光探索
3. 学会等名 日本物理学会第77回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Akihiro YOSHIMI
2. 発表標題 X-ray pumping of the 229Th nuclear clock isomer
3. 学会等名 International Conference on Mossbauer Effect 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 吉見彰洋
2. 発表標題 高輝度放射光を用いたトリウム229原子核時計遷移分光の現状
3. 学会等名 第17回 AMO討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 岡井晃一
2. 発表標題 トリウム229アイソマー状態からの真空紫外光探索
3. 学会等名 日本物理学会2021年秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Guan Ming
2. 発表標題 Future plan of searching for vacuum ultraviolet signal from the isomeric state of Thorium-229
3. 学会等名 日本物理学会第77回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 A. Yamaguchi, Y. Shigekawa, H. Haba, M. Wada, and 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 (TCFS) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 A. Yamaguchi, Y. Shigekawa, H. Haba, M. Wada, and H. Katori
2. 発表標題 Development of an RF-carpet gas cell to obtain an ion beam of thorium-229
3. 学会等名 VICPEAC2021 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 山口敦史
2. 発表標題 原子核時計実現にむけたトリウム229イオントラップ装置の開発
3. 学会等名 第17回 原子・分子・光科学(AMO)討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 北尾真司
2. 発表標題 時間およびエネルギー分析Eu-151放射光メスbauer吸収分光法の開発
3. 学会等名 日本物理学会 第77回年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 S. Kitao, R. Masuda, T. Fujihara, H. Tajima, N. Nagasawa, Y. Yoda, T. Masuda, K. Yoshimura, and M. Seto
2. 発表標題 Development of Time and Energy Resolved Synchrotron Radiation based Mossbauer Spectroscopy
3. 学会等名 14th International Conference on Synchrotron Radiation Instrumentation(SRI2021) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 増田孝彦
2. 発表標題 トリウム229原子核におけるアイソマー準位のX線ポンピング
3. 学会等名 日本物理学会 第76回年次大会 (招待講演)
4. 発表年 2021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年秋期大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Takahiko Masuda
2. 発表標題 Active pumping of the isomeric state of ^{229}Th nucleus towards a nuclear clock
3. 学会等名 Cosmic acceleration conference (国際学会)
4. 発表年 2020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分光に向けた取り組み
3. 学会等名 第3回若手放談会：エキゾチック核物理の将来 (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 平木貴宏
2. 発表標題 Search for the nuclear isomeric state of ^{229}Th toward nuclear clock
3. 学会等名 RCNP研究会 「中性子と原子で探る基礎物理」 (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 平木貴宏
2. 発表標題 トリウム 229 アイソマー状態からの脱励起真空紫外光探索に向けた高密度NRS標的開発
3. 学会等名 第16回核共鳴散乱研究会 (招待講演)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 福永優太
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 平木貴宏
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
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 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 A. Yamaguchi, Y. Shigekawa, H. Haba, M. Wada, and H. Katori
2. 発表標題 Laser spectroscopy of triply charged thorium ions towards a nuclear clock
3. 学会等名 2022 URSI-Japan Radio Science Meeting (招待講演) (国際学会)
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年会次大会 (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

〔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	北尾 真司 (Kitao Shinji) (00314295)	京都大学・複合原子力科学研究所・准教授 (14301)	

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	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)	

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		
オーストリア	TU Wien		