

令和 3 年 5 月 26 日現在

機関番号：15301

研究種目：若手研究

研究期間：2019～2020

課題番号：19K14740

研究課題名（和文）トリウム229極低励起エネルギー準位観測のための高密度トリウム標的の開発

研究課題名（英文）Development of Th-doped crystal for the study of the isomeric state of the 229Th

研究代表者

平木 貴宏（Hiraki, Takahiro）

岡山大学・異分野基礎科学研究所・特任助教

研究者番号：40791223

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）：トリウム229原子核は、第一励起準位が8eV程度と原子核の中で最低である。このため、真空紫外レーザーによりこの準位に励起することが可能で、様々な応用が期待されている。しかしながら、未だにレーザー励起は実現されておらず、また第一励起準位からの脱励起光の観測例もない。本研究では世界初の脱励起光の観測に向けて、放射光施設SPring-8を利用した独自の手法で第一励起準位のトリウム229を生成し、その脱励起光を観測する実験を行った。また232トリウムを高濃度でドーブしたCaF₂結晶標的の透過率やX線ビーム照射の影響を評価した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

現在周波数標準で最も精度が良いものは原子の電子遷移を用いた原子時計である。これに対し、トリウム(原子番号90)の同位体の1つであるトリウム229原子核を用いた「原子核時計」の開発に成功すれば、より高精度な時計(周波数標準)が実現できると期待されている。しかしそのために必要なトリウム229原子核の第一励起準位からの脱励起光の観測に成功した例は未だない。本研究では脱励起光探索を高感度で行うためのセットアップを構築し、脱励起光探索実験を遂行し、更に感度を向上させるための手法を研究した。

研究成果の概要（英文）：The nucleus of thorium-229 has the lowest first excitation level among all nuclei at about 8 eV. Therefore, it can be excited to this level by a vacuum ultraviolet laser, and various applications are expected. However, laser excitation has not yet been realized, and there are no reports of observation of de-excitation light from the first excited level. In this study, we generated the first excited level of thorium-229 by our original method using the synchrotron radiation facility, SPring-8, and attempted to observe the de-excitation light. We also evaluated the transmittance of a highly 232Th-doped CaF₂ target and the degradation effect by X-ray beam irradiation.

研究分野：素粒子物理

キーワード：原子核実験 トリウム229 放射光

1. 研究開始当初の背景

原子核の励起エネルギーは通常 keV から MeV のスケールである。その一方、トリウム同位体の一つ ^{229}Th は、第一励起エネルギーが 8 eV 程度と原子核の中で最低であり、しかも極端に低い (2 番目に低い ^{235}U は 78 eV で、他は全て 1 keV 以上である)。また、その準位は準安定状態 (アイソマー状態) であることが知られている。第一励起エネルギーは真空紫外領域に対応するため、 ^{229}Th は真空紫外レーザーにより励起することが原子核の中で唯一可能で、近年原子核物理のみならず原子物理・放射化学などといった幅広い分野で注目を集めている。特に原子核は外乱の影響を受けにくいという利点があるため、これまでの原子時計を超える周波数精度を持つ原子核時計の実現が考えられている。近年 ^{229}Th 原子核に関する研究は急速に進展しているものの、レーザー励起は未だ実現していない。また、第一励起準位からの脱励起光の観測も未達成である。この測定が困難である一つの理由は中性の ^{229}Th 第一励起状態は内部転換過程により半減期 7 μs 程度で脱励起してしまうためである。更に第一励起状態の光学遷移寿命も不定性の大きい理論的な予測があるのみである。

2. 研究の目的

この研究の最終目標は以下に示す核共鳴散乱を用いた独自の手法を用いて第一励起状態からの脱励起光を世界に先駆けて観測し、第一励起準位の光学遷移寿命の直接測定および第一励起エネルギーをこれまでより高精度に決定することである。図 1 に ^{229}Th 原子核のエネルギー準位を示す。

まず大強度放射光施設 SPring-8 で利用できる単色 X 線バンチビームを用いて ^{229}Th を第二励起状態 (29.19 keV) に核共鳴励起させる。

第二励起状態に励起された ^{229}Th の約 60% はすぐに第一励起状態に遷移する。

第一励起状態から基底状態へ脱励起する真空紫外光を波長選択して光電子増倍管で観測する。

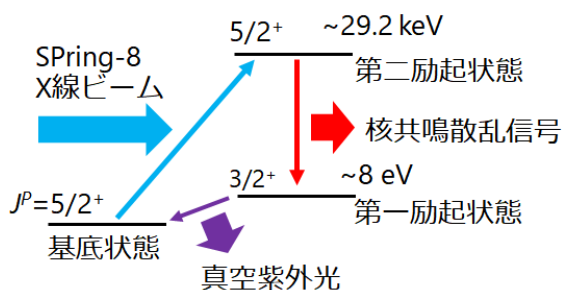


図 1: ^{229}Th 原子核のエネルギー準位

3. 研究の方法

図 2 に真空紫外光探索実験のセットアップを示す。実験は SPring-8 BL19LXU で行った。まずビームライン上流部のシリコンモノクロメータの角度を調整することで入射 X 線エネルギーを変えながら核共鳴散乱事象を探索し、共鳴条件の X 線ビームエネルギーを決定する。ビームラインの環境変化などでわずかに X 線エネルギーが変化することを考慮し、下流部に設置された X 線エネルギー高精度測定システムで真空紫外光探索実験中の X 線エネルギーをモニターする。その後真空紫外光探索実験に移る。

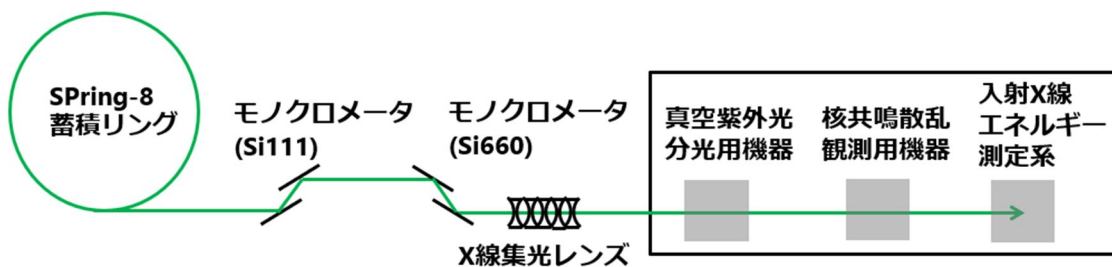


図 2: ^{229}Th 真空紫外光探索実験セットアップ (全体)

真空紫外光探索実験で使用する ^{229}Th 標的は以下の条件を満たす必要がある。

- (1). 真空紫外光が標的内部を透過できること (波長 150 nm で透過率 > 10 %)
- (2). ^{229}Th が 1 価以上の正イオンであること (中性では第一励起状態は半減期 7 μs 程度で内部転換する)
- (3). トリウムは核燃料物質であるため、外部への漏れがないこと

例えば核共鳴散乱探索実験に用いた ^{229}Th 標的はグラファイトの板のくぼみに硝酸トリウムを蒸発乾固させて製作したものであるため、条件(1)を満たさない。そのため(1)-(3)の条件を満たす標的として、本研究ではウィーン工科大学の T. Schumm のグループが開発を続けている ^{229}Th をドープした CaF_2 結晶を用いる。

図 3 に真空紫外光探索実験の実験セットアップを示す。X 線ビームを一定時間結晶標的に照射

した後別のチェンバーに標的ホルダーを移動させる。結晶から放出された光を球面ミラーで集光し、バンドパスフィルターで波長選択を行い真空紫外領域にのみ感度のある光電子増倍管で信号を検出する。この実験では主に3種類の背景事象が存在することが分かった。1. ^{229}Th やその娘核が崩壊した際に発生する光 2. 結晶標的にX線ビームを照射することにより発生する熾光 3. PMTのdark noise。背景事象の影響を抑えるためX線エネルギーが共鳴条件の場合と非共鳴条件の場合で測定しそれらの差分をとる。

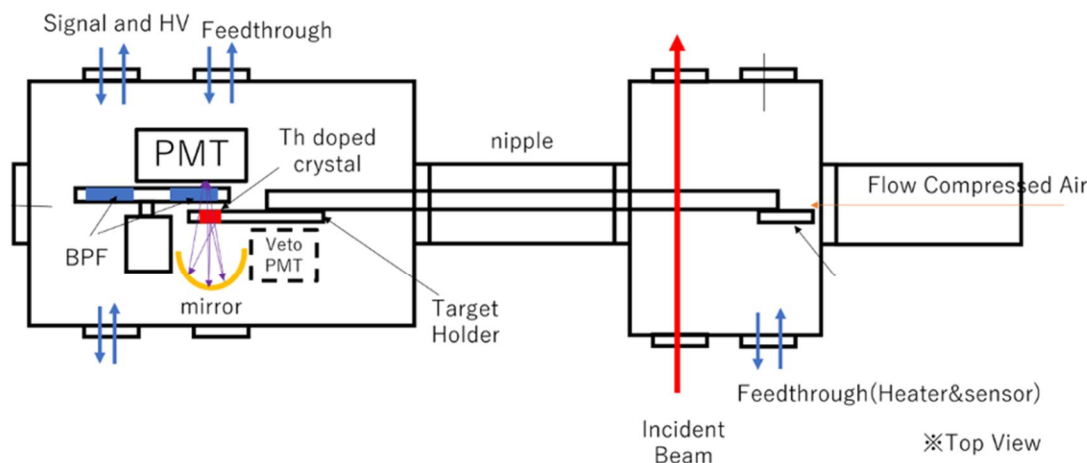


図3: ^{229}Th 真空紫外光探索実験セットアップ (全体)

4. 研究成果

^{229}Th 第一励起状態の正確なエネルギーや寿命は良く分かっていないため、使用するフィルターやX線照射時間などの条件を変えながら上記の手法で真空紫外光探索実験を行った。しかし結果として有意な信号は観測されなかった。背景事象は差分を取るものの脱励起信号と比べ数桁強く統計のふらつきに埋もれてしまうため、より背景事象を削減する必要があることが分かった。今後はセットアップの改良などにより背景事象を大幅に削減し探索実験を続けていく予定である。

真空紫外光探索実験に用いる結晶標的はX線照射を続けるうちに透明から徐々に色がつく、つまり透過率が低下していくことが分かっていた。しかし真空紫外領域での透過率の時間変化は良く分かっていなかったため、同じSpring-8のビームラインを使用してこの測定を行った。図4のようにX線ビームを照射しながら同時に重水素ランプ光源を真空紫外光探索実験で用いる結晶標的に照射し、透過した光を分光して第一励起エネルギーの領域の透過率のX線ビーム照射による時間減衰を測定した。またドープをしていない CaF_2 結晶や高濃度の ^{232}Th をドープした CaF_2 結晶でも同様の測定を行い、トリウムドープ濃度依存性を確認した。

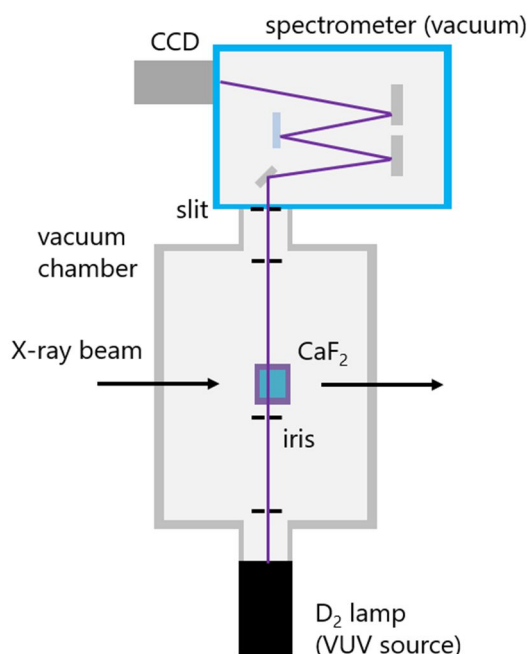


図4: ^{229}Th 真空紫外光探索実験セットアップ (全体)

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 5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 Takahiko, Yoshimi Akihiro, Hiraki Takahiro, Koji Yoshimura 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 オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計6件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 2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 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 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 吉見彰洋
2. 発表標題 核共鳴散乱を利用した原子核時計の開発
3. 学会等名 核共鳴散乱研究会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 吉見彰洋
2. 発表標題 Production of the 229Th nuclear clock isomer with brilliant X-ray
3. 学会等名 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 Towards the spectroscopy of 229Th nuclear clock transition using Nuclear Resonant Scattering
3. 学会等名 DICP Symposium (国際学会)
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
---------	---------