

# 放射光で探るレーザー光による超精密原子核制御の可能性： $^{229}\text{Th}$ 極低核励起準位

吉見彰洋

岡山大学 異分野基礎科学研究所 〒700-8530 岡山市北区津島中 3-1-1

笠松良崇

大阪大学 大学院理学研究科 〒560-0043 大阪府豊中市侍兼山町 1-1

北尾真司

京都大学 複合原子力科学研究所 〒590-0494 大阪府泉南郡熊取町朝代西 2

瀬戸 誠

京都大学 複合原子力科学研究所 〒590-0494 大阪府泉南郡熊取町朝代西 2

増田孝彦

岡山大学 異分野基礎科学研究所 〒700-8530 岡山市北区津島中 3-1-1

山口敦史

国立研究開発法人理化学研究所 〒351-0198 埼玉県和光市広沢 2-1

依田芳卓

公益財団法人高輝度光科学研究センター 〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1

吉村浩司

岡山大学 異分野基礎科学研究所 〒700-8530 岡山市北区津島中 3-1-1

## 要旨

原子核としては異常に低いエネルギー（eV オーダー）の励起準位を持ち、レーザーによる核状態操作が可能で超精密原子核時計等への応用が期待されているアイソトープ  $^{229}\text{Th}$  に近年注目が集まっている。我々は、この研究を展開するのに欠かせない低エネルギー準位のエネルギー・寿命の決定のために、高輝度放射光 X 線と高性能検出器・標的システムを組み合わせた核共鳴散乱実験を行っている。高度化した核共鳴測定システムの開発、それを用いた短寿命準位（ $^{201}\text{Hg}$  の 26 keV 準位）の高精度核共鳴実験の結果、および  $^{229}\text{Th}$  の核共鳴実験の現状について紹介する。

## 1. はじめに

原子核は陽子と中性子（総称して核子）が強い力で束縛された系であり、個々の核子はそれぞれがお互いを作る核力ポテンシャルの中で形成される軌道を運動している。また個々の核子の運動だけでなく、原子核全体の回転や振動という集団運動に起因するスペクトルが観測されるという大きな特徴がある。原子物理における軌道電子とは違い、原子核を励起する、つまり核子をより高いエネルギー軌道に上げたり回転・振動モードを励起するには通常 keV から MeV 程度のエネルギーが必要である。このため、量子エレクトロニクス分野で見られるようなレーザー光を利用した高度な量子操作は、原子核に対しては一般的に不可能である。一方で、原子核の量子状態は原子のそれに比べて極めて壊れにくい、外界から隔離された良い量子力学系で

あるという魅力がある。レーザー光を用いた原子核に対する量子エレクトロニクスの実現は新たな科学分野の開拓につながる期待されている。

このような理由で近年大きく興味を持たれている原子核が  $^{229}\text{Th}$ （自然存在比 0%，半減期 7880 年）である。 $^{229}\text{Th}$  はその第一励起状態が原子核としては異常に低く、レーザー光でアクセス可能な eV 領域にあることが分かってきた。このことは 1970 年代から指摘されていたが<sup>1)</sup>、このあまりにも低い励起状態を特定することは困難を極め、それがはっきりしてきたのは 2000 年代に入ってからである。2007 年に複数の  $\gamma$  線測定エネルギーを足し引きすることで、間接的にこの状態の励起エネルギーが  $7.8 \pm 0.5$  eV であるという報告<sup>2)</sup> がなされ、最近ではその励起エネルギーは確かに 6.3~18.3 eV の間に存在することが実験的に確かめられた<sup>3)</sup> (Fig. 1)。しかしこのエネルギーを直接的に

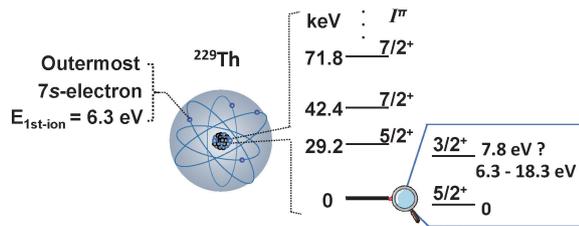


Fig. 1 (Color online) Nuclear energy level of  $^{229}\text{Th}$ . The energy of the extraordinary low-excited energy is still uncertain.

計測することには誰も成功していない。さらにこの励起状態の寿命もまだ未確定である。このような原子励起に近いレベルの核励起状態の寿命は軌道電子の状態に大きく影響を受ける。例えば2価のイオン状態 ( $^{229}\text{Th}^{2+}$ ) ではこの励起状態は極めて長い寿命 ( $10^3\text{--}10^4\text{ s}$ ) を持って  $\gamma$ -崩壊すると考えられるのに対して、金属表面で中性化された状況では最外殻電子 (Fig. 1) に励起エネルギーを与えてイオン化させて核の基底状態に脱励起する内部転換過程が  $7\ \mu\text{s}$  で起こる<sup>4)</sup>。この励起準位のように固有の寿命が長いものは一般的にアイソマー状態と呼ばれる。この  $^{229}\text{Th}$  のアイソマー状態のように原子の化学状態を変えることによって、核遷移の性質を劇的に変えることができるというのも興味深い一面である。

未だエネルギー・寿命が確定していない状況ではあるが、今この低励起状態の応用として最も興味を持たれているのが、この eV オーダーの核遷移を利用した超精密時計の実現である。超精密な周波数標準である原子時計は、自然科学において精密計測の基盤をなすものである。さらに、GNSS (Global Navigation Satellite System) 測位技術や高速データ通信における同期制御のように、一般社会においても重要な役割を果たしている。近年、光周波数コムや光格子時計といった革新的な技術が発明され、原子時計の性能はめざましい勢いで向上しており、今日ではその精度は18桁に到達している。それでは、この最先端の原子時計の精度をリミットしている原因は何であろうか？ 原子時計は原子の遷移(時計遷移と呼ばれる)を参照しているため、たとえば原子周辺の電磁場がゆらぎ、その影響で時計遷移の共鳴周波数がゆらぐと、そのまま時計の性能の劣化につながる。したがって、原子時計の開発においては、周波数変動をもたらす外部電磁場のゆらぎを制御し、その影響を正確に評価しなければならない。現在最先端の原子時計の精度をリミットしている主な要因は、制御(もしくは評価)しきれずに最後まで残ってしまう外部電磁場のゆらぎである。18桁の精度をさらに超える可能性を秘めた時計が、 $^{229}\text{Th}$  を使った「原子核時計」である。原子核時計とは、原子核の遷移周波数を基準とする周波数標準である。今まで開発されてきた原子時計では、基準としてまっばら電子遷移が使われてきた。これに対し基準として原子核遷移を使うと、原子核がまわりを取り囲む軌道電子により外界か

らよく遮蔽されており、電子遷移に比べて格段に外部電磁場の影響を受けにくいいため、精度が20桁にも達するような周波数標準が実現できると期待されている<sup>5)</sup>。この  $^{229}\text{Th}$  の低エネルギー状態の遷移は波長に換算すると160 nm 近辺の真空紫外波長領域であり、レーザーを作ることができる。すなわち、 $^{229}\text{Th}$  の原子核遷移を使えば、原子核を超精密レーザー分光することができ、結果として原子核時計を実現できることになる。

精度が20桁にも達する超精密時計が実現できれば、様々な応用が期待できる。例えば、一般相対論の効果により地球上の重力ポテンシャル中で高さが僅か数 mm 変わると時間の進み方に変化が生じる様子を観測することが可能になる<sup>6)</sup>。これは超精密測地学への応用として期待される分野である。他にもダークマター検出等、物理学の極めて根源的な謎に関わるプローブとしても利用できると期待されている<sup>7)</sup>。特に電磁気相互作用の強さを表す微細構造定数が本当に定数なのか(長時間かけて変わっていく変数ではないのか)という問題がある。現在の宇宙膨張はダークエネルギーと呼ばれる何かによって加速していることが知られているが、その正体は全く分かっていない。これは現在の素粒子・宇宙論における最大の謎の一つであり、多くの理論的仮説が提唱されている。そういった仮説では新しいスカラー場や多次元空間を導入しており、その結果として宇宙膨張に伴う物理定数の変化を予言する。したがって、微細構造定数の恒常性を精度良く求めることがこのような仮説の検証につながるのである。 $^{229}\text{Th}$  原子核時計の場合、その測定感度が通常の原子時計に比べ5-6桁高くなるという理論研究の報告もあり、注目を集めている<sup>8)</sup>。

さて、このように重要な核遷移であるにもかかわらず未だエネルギーと寿命が確定していない  $^{229}\text{Th}$  アイソマー準位に対して我々のグループは放射光 X 線を利用してその姿を明らかにしようとする研究を進めている。先行研究で行われていたような7.8 eV 付近の放射光でアイソマー状態に直接励起して脱励起光(真空紫外光)を検出する実験<sup>9,10)</sup>ではなく、ひとつ上の状態(29.19 keV)に放射光で励起する手法を採用する。こうすることでアイソマー状態のエネルギー及び励起幅の不確定性を気にすることなく、既知の29 keV 状態へ励起でき、そこからアイソマー状態に落ちる発光を検出すれば良い。つまり確実にアイソマー状態に遷移したことを確認した上で、そこから基底状態に脱励起する真空紫外光を分光することができるのがこの手法の強みである。分光器でこの真空紫外光を分光することで meV 程度の精度でこのアイソマー状態のエネルギーを決定できる。幸いなことに29 keV の X 線は放射光施設 SPring-8 にて世界最高レベルの輝度で利用することができる。続く章でこの実験原理を説明し、これまで展開してきた開発、実験を紹介したい。

## 2. $^{229}\text{Th}$ アイソマー状態の生成のための放射光核共鳴実験

放射光 X 線で原子核を共鳴励起させた後に脱励起する信号を検出する実験は「放射光核共鳴散乱」と呼ばれる手法として知られており、物性物理のプロブ手法として利用されてきた<sup>11-13)</sup>。物性分野では高分解能核励起スペクトルに現れるフォノンのエネルギー情報等を調べたりするが、本研究での要求は単純に核励起が達成された結果としての脱励起信号を検出することである。実験装置の概念図は Fig. 2 のように、放射光源および単色化のためのモノクロメータ、標的物質、そして検出器および信号処理系から構成される。

放射光 X 線を標的原子に照射した後に起こる現象を考えてみる。SPRing-8 での放射光のパルス幅は 35 ps 程度であり、我々のグループが使う運転モード (A モード) では、23.6 ns おきにこのシングルバンチが標的原子に照射される。30 keV 程度の X 線は Th のような重い標的原子に対して L 殻軌道電子をはじき飛ばして光電吸収されるのが主なプロセスである。その際極めて短い時間内に (< 1 ps) 特性 X 線を放出し、これが検出器の時間応答に応じた幅を持ってプロンプトピークとして検出器にかかる。そして、もし入射 X 線エネルギーを核励起に共鳴させたならば、入射 X 線は原子核にも吸収されて原子核は励起状態に持ち上げられる。その後励起状態の寿命を持って  $\gamma$  線あるいは内部転換に伴う特性 X 線を放出して脱励起するのを X-線検出器で観測する。

Fig. 3 に  $^{229}\text{Th}$  の核共鳴測定とアイソマー遷移の測定を説明するためのエネルギー準位図を示す。過去の核分光データから核子配位が異なる基底状態とアイソマー状態がそれぞれ回転励起のバンドを形成していると考えられている。放射光により 29 keV 状態に励起され (Fig. 3 内の (a)), その脱励起光 (同 (b)) を検出することでアイソマー状態に確実に遷移したことを知ることができる。なお、脱励起 (b) は  $\gamma$ -崩壊よりも内部転換過程に支配されており (内部転換係数 225), 29 keV の  $\gamma$ -線よりも内部転換に伴う 13-16 keV の蛍光特性 X 線を検出する方が効率が良い。この信号 (b) が検出されるような入射 X 線エネルギー

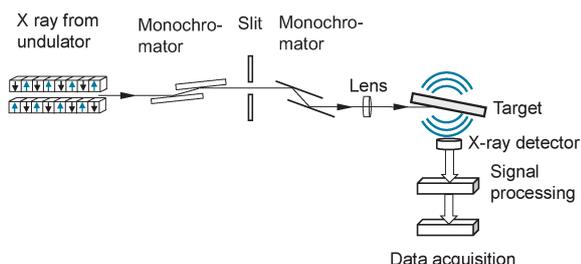


Fig. 2 Conceptual setup for nuclear resonant scattering (NRS) experiment with synchrotron X-ray.

に合わせた状況であれば、アイソマー状態から確実に脱励起する際に伴う真空紫外光を分光できる (同 (c))。ただし遷移 (c) で光子放出を起こさせるためには、Th ドープされたイオン結晶のような内部転換を抑制する標的を用いる必要がある。29 keV 状態の半減期は未測定なので、励起効率とともに推定するしかない。変形核の回転バンド模型を仮定し、過去の核分光データを考慮すると、半減期は 0.1-0.2 ns, また励起幅は 1 neV 程度と推定できる。

容易に想像が付くように、プロンプトピークを形成する光電吸収反応と遅延して検出にかかる核共鳴過程は反応断面積に大きな隔りがあり、核共鳴が一般的には 6-8 桁も小さい。これまで行われてきた核共鳴散乱実験では、この小さい核共鳴信号が十分識別できる程度にプロンプトピークが収まる時間経ってから、検出器の信号取得を開始するのが一般的であった。実際には X 線検出器の時間応答の制限から、プロンプトピークから 1~5 ns 後に検出ゲートを開くというのが一般的である。つまり核共鳴実験は、励起状態の寿命が最低でも 1 ns 程度以上のものに限定されてきた。従来の実験ではこのような計測方法で良かったが、 $^{229}\text{Th}$  の 29 keV 状態の核共鳴実験を行うためには、プロンプト事象と核共鳴事象を一括測定して両者を分別できるような高度化が必要である。それはこの核共鳴励起状態が先述したような短い半減期を持ち、励起幅も狭いことが予想されるために、期待される核共鳴信号がプロンプトピークのテール部分に僅かに現れるのを捉えなければならないからである。 $^{229}\text{Th}$  の核共鳴測定で予想されるプロンプト信号と核共鳴信号を Fig. 4 に示す。この予想スペクトルでは  $\sigma = 50$  ps の幅を持つ検出器でプロンプト信号を観測するのとほぼ同時に、上述した半減期と励起幅を持った  $^{229}\text{Th}$  の核共鳴信号が現れるのを示している。ここでは 29 keV の入射 X 線のエネルギー幅を 150 meV まで単色化したと仮定しているが、それでもこのような見え方になる。この予想図から、いかに速い時間応答で感度良く共鳴

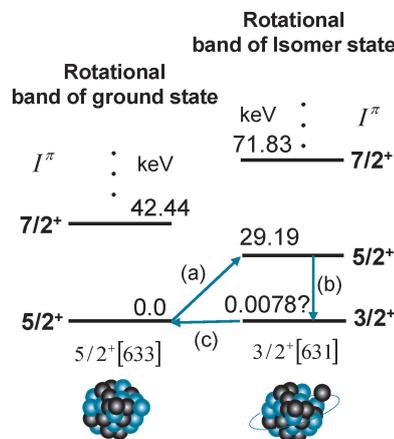


Fig. 3 Nuclear energy level of  $^{229}\text{Th}$  and excitation scheme to the isomer state with synchrotron X-ray.

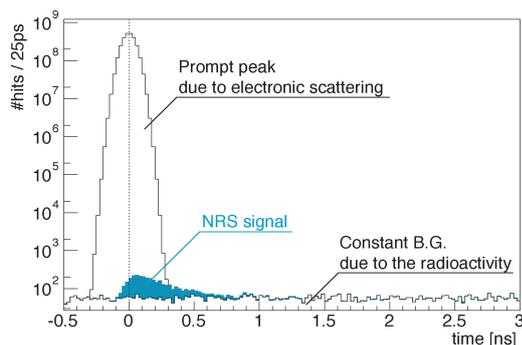


Fig. 4 Estimated NRS signal and the prompt peak for  $^{229}\text{Th}$  experiment.

信号を検出する必要があるかが分かる。また、 $^{229}\text{Th}$ が $\alpha$ 崩壊する放射性元素であることから、この図にもあるように常に一定の放射性バックグラウンドが現れるという点も考慮して検出器にエネルギー識別能力を持たせたい。

一方、標的を準備するという点からは、希少なアイソトープ $^{229}\text{Th}$ を最低限の量（ $\sim\mu\text{g}$ ）用意して、この取り扱いにくい核燃料物質を精製・凝集させて高品質の標的を開発することが重要となる。もちろん、SPring-8のような高輝度放射光源および最適なビーム単色化を行うモノクロメータの選択等も重要な事項である。以上をまとめると、1) 速い時間応答かつエネルギー識別できる X 線検出器・信号処理系の開発、2) 凝縮された高純度  $^{229}\text{Th}$  標的の開発、が本研究にとって重要な鍵になる。

そこで、次章および次々章ではどのような計測システムおよび標的の開発を行ってきたかについてやや詳しく紹介したい。その後の章で核共鳴実験の結果・現状を紹介するので、そちらを先に読みたい読者は読む順番を適宜入れ替えてもらいたい。

### 3. 計測システムの開発

$^{229}\text{Th}$ の第二励起準位は寿命が非常に短く励起確率も低いため、通常の核共鳴散乱とはやや異なった設計思想のもとに計測システムの開発を行っている。繰返しになるが、特に可能な限り時間応答速度を上げること、単一 X 線光子の時間とエネルギーの同時測定を高計数率下で行うこと

が重要である。時間応答に関しては、プロンプトピークのテールが信号を覆い隠さないレベル、具体的には0.5–1 nsでピーク高さから $10^{-6}$ – $10^{-8}$ 程度に減少するまで押さえ込む必要がある。Thの放射線バックグラウンドを抑制するために、エネルギー測定も極めて重要である。この背景事象はエネルギー的に幅広く分布する。一方、核共鳴散乱信号はトリウム内部転換係数が大きいいため蛍光 X 線として放射され、12–16 keV 付近のエネルギーを持つ。したがって、一光子ごとのタイミングとエネルギーを同時測定し、オフライン解析で蛍光 X 線周辺のエネルギーを持つ事象のみを選択することで、放射線バックグラウンドを削減できる。さらに、本実験の場合はプロンプトピークを含む高計数率（ $10^6$  cps 程度）でデジタル化まで行わなければならない。

上記の要求を実現するため、本グループでは専用の計測システムを開発した。Fig. 5に全体像を示す。X線センサにはシリコンアバランシェフォトダイード（以下、Si-APD）を用いている。これは通常の核共鳴散乱と同様である<sup>14,15</sup>。Si-APDは時間応答に優れており、半値全幅で100 psを切るような性能も報告されている<sup>16</sup>。ただし、本課題では半値全幅のような全体的な応答よりもむしろテール成分が小さいことが重要である。さらに、 $10^7$ – $10^8$  cpsを超える高計数率でも動作する、X線領域でダークカウントレートが低い、小型なため試料にぎりぎりまで近づけることができ立体角を大きくできるなどの利点がある。Si-APDセンサからのアナログ信号はConstant fraction discriminator（以下、CFD）とAnalog-to-Timing convertor（以下、ATC）で時間情報と波高情報のロジック信号に変換され、Time-to-digital convertor（以下、TDC）で計測する。本記事では概要を述べるにとどめるため、詳細に興味を持たれた方は文献<sup>17</sup>を参照されたい。

最も重要な特性は時間応答であるため、Si-APDには空乏層が薄く、面積の小さい物が望ましい。本実験では浜松ホトニクス社製の短波長型Si-APD S12053-05を採用した。空乏層厚は公開されていないが、データシートや実測した検出効率（13 keVのX線に対して約2%）から10  $\mu\text{m}$ 未満と推測される。低い検出効率を補うため、製造メーカーである浜松ホトニクスに依頼し、9チャンネルの

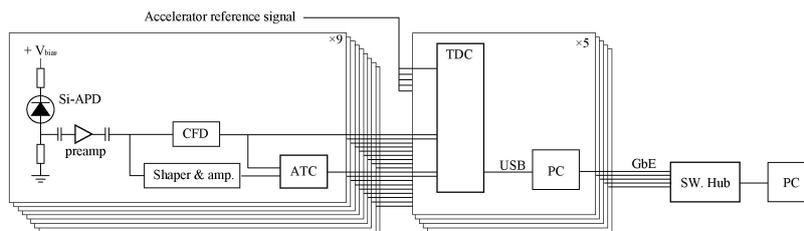
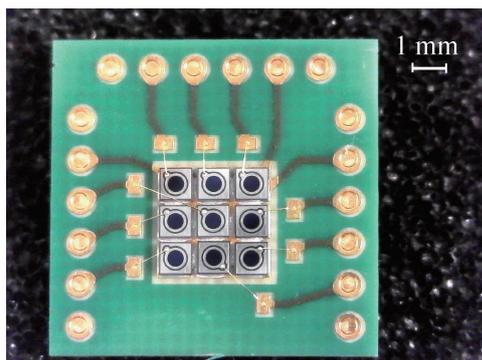
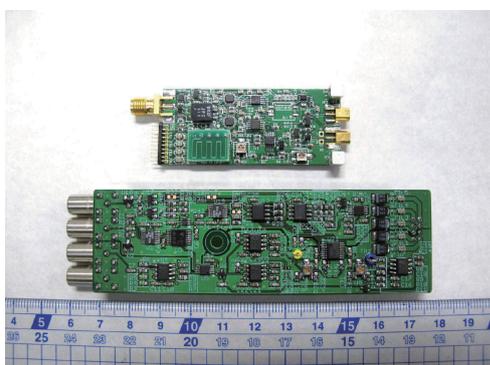


Fig. 5 Block diagram of the detector system. Si-APD: silicon avalanche photodiode; CFD: constant fraction discriminator; ATC: amplitude-to-time convertor; TDC: time-to-digital convertor; USB: universal serial bus; SW. Hub: network switching hub; GbE: giga-bit ethernet.

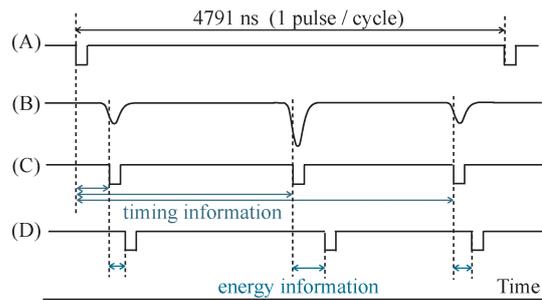


**Fig. 6** (Color online) 9-ch Si-APD array. The nine chips are closely aligned at the center of the substrate. The pitch between chip centers is 1.14 mm.



**Fig. 7** (Color online) top: CFD card. Bottom: ATC card.

アレイ型センサを製作した。Fig. 6 に写真を示す。これをトリウム標的に3.5 mm まで近づけることで、立体角0.95%を確保している。Si-APDの信号はMini-circuits社製RFアンプRAM-8A+を用いた前置増幅器で増幅し、Fig. 7 上に示すCFDに送られる。このCFDは名古屋大学高エネルギー素粒子物理学研究室で開発されたものをカスタマイズして使用している。次のATC (Fig. 7 下) は波高情報をロジック信号の時間遅延に変換する回路である。通常、エネルギー情報を取得するにはMulti channel analyzerやAnalog-to-digital convertorを用いることが多いが、高計数率での同時測定に対応するためには高速化が容易なTDCで全てデジタル化する方が都合がいい。システム全体が高計数率に対応することを主眼に置いて開発しており、変換速度10 ns/keVを達成している。Si-APDに入射するX線のエネルギーは大半が20 keV以下なので、1 Mcpsを超える計数率下でも汎用的なTDCで測定できるようになっている。CFDとATCのロジック信号は最下流のTDCに送られ、100 ps サンプルングで計測して保存する。TDCはBL09XUビームライン備え付けの高速Multi-stop TDC MCS6 (FAST ComTec GmbH製)を用いている。加速器のRF信号からサンプルングした同期信号も入力し、加速器のバンチと検出信号との同期を取る。



**Fig. 8** Timing chart of a channel. (A) Accelerator reference signal synchronizing to accelerator RF. (B) Si-APD output analog pulses. (C) CFD output logic pulses. (D) ATC output logic pulses.

TDCで計測する信号のタイミングチャートの例をFig. 8に示す。加速器運転モードは蓄積リング内に23.6 ns 間隔で203バンチが回るA-modeを使用しており、その一周ごとのタイミング信号を用いている。本TDCはさまざまな計測モードがあるが、本システムではCFDとATCのペアリングを行うため、ヒット情報の生データを全て保存する。1ヒットの情報は64 bitなので、たとえばチャンネルあたり1 Mcpsの計数率なら、9チャンネル合わせたデータレートは576 Mbpsに達する。このデータを5台のPCでリアルタイムに圧縮処理し、最下流のPCでまとめて解析する。

#### 4. 標的試料とX線集光システム

X線が標的と核共鳴散乱反応を起こす頻度は、ビームフラックス (単位面積を単位時間あたりに通過する光子数)、散乱断面積、ビームが通過する標的粒子数の積で決まる。反応断面積が小さく極めて稀にしか起こらない核共鳴散乱反応を観測するためには、X線ビームを集光してフラックスを増加させるとともに、標的試料を集積させてビームに照射される標的粒子数を増やすことが必要である。この際、ビームスポットから外れた標的試料は、核共鳴散乱反応には寄与せず、放射線バックグラウンドの要因にしかならないため、S/Nを上げる上でも、小径の凝縮した標的試料の開発が重要となっている。

実験を実施するBL09XUビームラインにおいてアンジュレータから出射されるビームのサイズは約1.3 mm (h) × 0.7 mm (v) (FWHM)である。標的試料は、可能なかぎりAPDに近づけてアクセプタンスを大きくするため、ビーム軸に対し正対する位置から水平方向に75度傾けて配置される。このためビーム軸から円形の標的試料を見ると縦長の楕円形状となる。実験開始当初は、ビームの水平方向の広がりと同程度の $\phi 1.5$  mmのサイズを目標に標的試料の開発を行い、X線集光システムの導入でビームサイズが小さくなるのに応じて、さらに小径 ( $\sim \phi 0.5$  mm) の標的試料の開発を行った。

標的を開発する際の重要な点としては、1) 稀少なトリウム試料をなるべく多く標的位置に集めること（収集効率をあげる）、2) X線を照射しても変性しないように、化学的、物理的に安定であること（固体で基板に固着させる）、3) 外部に漏れないように、厳重に密封すること、である。以上の点に留意して、我々は以下のような3種類の標的を開発した。

**沈殿型標的** 水酸化トリウム沈殿の懸濁液を、ポリプロピレンの濾紙上に、吸引濾過することにより、水酸化トリウムの固体を濾紙上に固着させるという方法である。容器底面に $\phi 1.5$  mmの穴を開けることにより、 $\phi 1.5$  mmの領域に標的試料を収集することが可能になった。この方式の収集効率は高く、濾紙内に堅固に固着するため標的の安定度は高いが、 $\phi 1$  mm以下では吸引濾過に時間がかかり、収率は低下する。

**電着型標的** トリウム硝酸溶液をイソプロピルアルコールで希釈し、高電圧をかけてトリウムイオンを電極に向かって泳動させ、収集固着させる方法である。電極にベリリウム板を使用し、 $\phi 0.5$  mmの標的の作成に成功した。この方式では、小径の標的作成も可能であるが、電着の条件（溶液濃度、電圧等）の最適化が難しく、溶液の化学組成や不純物等により、収率が安定しないという問題がある。

**乾固型標的**  $\phi 0.4$  mm深さ $0.1$  mmの溝加工を施したグラファイト板に、極細径の針（ $\phi 0.15$  mm）を利用して、微量のトリウム溶液を断続的に滴下しつつ、蒸発乾固させることにより、小径の試料を作成する。 $\phi 0.4$  mmの標的試料を作成した。溶液全量を乾固させるため、収率はほぼ100%であるが、溶液に含まれるイオン交換樹脂等の不純物もそのまま析出するため、事前に念入りに精製を行うことが重要となってくる。

以上の方式で作成された標的試料は、いずれも $0.1$  mmのベリリウム板のカバーを接着して、厳重な密封状態にして使用される。

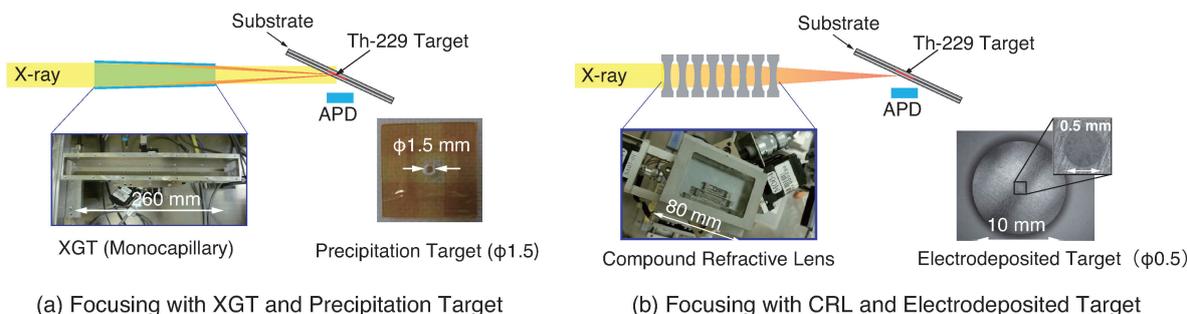
小径の標的試料の開発を進める一方で、X線の集光システムの導入を順次行った。要求される仕様としては、1)  $\phi 0.4$  mmの標的の使用を想定し、水平方向で $0.2$  mm程度のビームサイズまで集光可能なこと、2) 集光システムに

より光軸が変化せず、様々なビーム条件（モノクロメータ、位置）の変化に対して柔軟に対応できること、である。このような仕様を満たすものとして、すでにSPring-8で使用実績のある、モノキャピラリおよび複合屈折レンズを用いた集光システムを導入した。以下、それぞれの特徴を述べる。

**モノキャピラリ** テーパー状に加工したガラスチューブ内面を凹面鏡として用いてX線の集光を行うシステムで、XGT (X-ray Guide Tube) あるいはテーパーガラスキャピラリと呼ばれている。今回使用したのは、内径 $0.73$  mm $\sim 0.58$  mm、全長 $260$  mm、のガラスキャピラリ（堀場製作所製）で、SPring-8 BL36XUに装備されているものを移設して用いた。焦点距離は約 $400$  mm程度と短いのが特徴である。テーパー面に入射したX線はガラス面で全反射して集光されるが（ $0.2$  mm (h)  $\times$   $0.08$  mm (v) (FWHM)), テーパー面より内側（ $< \phi 0.58$  mm）に入ったビームは集光されずにそのまま通過する。反射面を利用するためビームエネルギーにより焦点距離が変化しない。また、大強度のビームを照射しても性能が劣化しないという利点を持つ。

**複合屈折レンズ** X線の屈折率が1より小さいことを利用して、凹レンズ状に微細加工を施したエポキシ樹脂製のレンズを複数配置することによりレンズを構成する。カールスルーエ技術研究所(KIT)が開発したものを導入した。光学系は $29.2$  keV X線に対して最適化され、透過率は67%程度で、集光スポットのサイズは $0.15$  mm (h)  $\times$   $0.065$  mm (v) (FWHM) が得られている。焦点距離は約 $14$  mmで、屈折率がエネルギー依存性をもつため、ビームエネルギーを変化させると焦点位置が変化する。最大強度のビームを長時間入射すると透過率が減少するという欠点がある。

ここで紹介した標的システム、集光システムは、様々な組み合わせで使用され、トリウムの核共鳴散乱観測に向けた測定システムの開発、改良を行ってきた。また、実際の核共鳴散乱の探索にも用いられている。Fig. 9に集光システムと標的の組み合わせの例を示す。本稿の最後に述べるトリウムに関する実験結果は、乾固型標的に複合屈折レンズで集光したビームを用いたものである。



**Fig. 9** (Color online) Two configurations of X-ray focusing system and Th-229 targets. (a) Mono capillary (XGT) and precipitation target. (b) Compound Refractive X-ray lens and electro-deposited target.

## 5. 実験結果

この章では3, 4章で紹介した開発を経て得られた実験の結果を紹介したい。核共鳴励起準位の半減期・励起幅の実験値が無い $^{229}\text{Th}$ の測定を行う前に、我々は開発した検出器・信号処理系の性能を評価するためにそれらが既知である元素の核共鳴実験を行った。核共鳴パラメータに関して既知であり、 $^{229}\text{Th}$ 実験のためのシステムチェックとして適しているものとして、 $^{201}\text{Hg}$ の26.27 keV状態（半減期 $T_{1/2}=0.63$  ns）を選択した。この元素はこれまで核共鳴測定が行われた中で最短の励起寿命を持ち、かつ内部転換係数が大きく（ $\alpha=71.6$ ）、L殻特性X線が核共鳴検出信号となるという $^{229}\text{Th}$ と類似の性質を持つ。また、これまでの核共鳴実験にとってはこの状態の半減期が短すぎて測定されておらず、その値は昔の $\gamma$ -核分光測定による $T_{1/2}=0.63\pm 0.05$  nsから更新されていない<sup>18)</sup>。

入射X線エネルギーを核励起に共鳴させた場合と共鳴からはずした場合に観測された時間スペクトルをFig. 10に示す。このスペクトルは入射X線を2つのSiモノクロメータ(111)と(660)を用いて、エネルギー幅0.15 eVに単色化して得られたものである。非共鳴時のスペクトルから、プロンプト事象のみの信号は $\sigma=56$  psの狭い幅のピークとして現れ、かつそのピークから僅か1 ns後には9桁も信号を落とせる程の短時間のテールを実現できていることが分かる。このように大量のプロンプト事象を「切れ」の良い検出器で全て取得することで、核共鳴時に現れる裾の僅かな信号を識別することが可能になった。このデータはそれぞれ2,000 s間取得したもので、全チャンネル合わせたプロンプトと核共鳴の検出レートはそれぞれ3.6 MHz及び14 Hz（プロンプトテールと区別可能な1 ns以降のイベントに限ると4.7 Hz）であった。 $^{201}\text{Hg}$ の半減期程度ならば極めてクリアに核共鳴信号を観測できており、そのおかげで半減期もこれまでにない精度で決めることができた： $T_{1/2}=629\pm 18$  ps<sup>19)</sup>。モノクロメータの角度を掃引して入射X線エネルギーを変化させた際の核共鳴

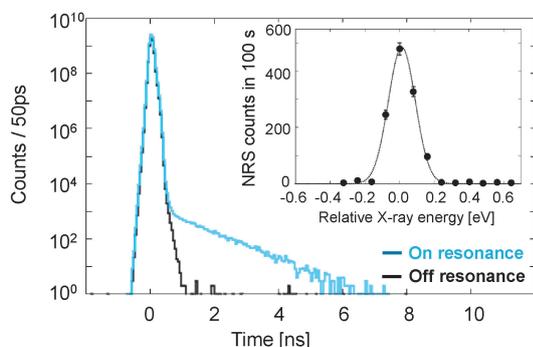


Fig. 10 Measured time spectra of NRS for 26.27 keV of  $^{201}\text{Hg}$ . The inset plot is NRS count as a function of incident X-ray energy.

成分の検出数をプロットしたものをFig. 10のインセットに載せてある。共鳴の幅はモノクロメータで決まるビームエネルギー幅で決まっている（0.15 eV程度）。

現在、我々はこのシステムを用いて $^{229}\text{Th}$ の核共鳴実験に着手している。なおここで示す実験データは前章で紹介した試料・集光システムのうち、現在最も高い信号レートが期待できる乾固型標的および複合屈折レンズの組み合わせを用いて得られたものである。 $^{229}\text{Th}$ の核共鳴信号は $^{201}\text{Hg}$ のそれに比べて半減期も短く、レートも小さいために我々のシステムをもってしてもプロンプトの裾に僅かに見えてくるであろうものを感度良く検出する必要がある。この小さい核共鳴信号を識別できる程度に入射X線のエネルギーを単色化しなければならないので、29 keV状態のエネルギーが既知だとはいえ、共鳴エネルギーのスキャンを丹念に行う必要がある。 $^{229}\text{Th}$ 実験では放射線バックグラウンドの棄却が重要なことから、信号検出時間と信号エネルギーの2次元スペクトルから示したい（Fig. 11）。3章で解説した信号処理系を用いることで、このように1つの取得信号イベント毎にその時間情報とエネルギー情報を2次元にマッピングできる。ここでは、先の $^{201}\text{Hg}$ の時と同じモノクロメータを使ってX線単色化を行っている。この結果は核共鳴エネルギー付近（29.19 keV）に入射X線エネルギーを合わせて、1,800 s間データを蓄積したスペクトルである。プロンプトピークに加えて、時間に対してコンスタントに放射性バックグラウンド事象が生じている。

$^{229}\text{Th}$ の核共鳴散乱のエネルギー12-14 keVのエネルギー領域のみを取り出した時間スペクトルをFig. 12に示す。プロンプトピークから僅か0.5 ns後にはそのピークが8桁も消失していることが分かる。この観測されたプロンプトピークとモノクロメータによるビームエネルギー幅、および先に述べた29 keV状態の半減期とその励起幅の推定値を用いて期待される核共鳴信号もこのプロットに同時に描いている（Fig. 12の色付領域）。同じ信号エネルギー領域に存在する放射性バックグラウンドが僅かに残っているが、期待される共鳴信号がぎりぎり検出できるところまで

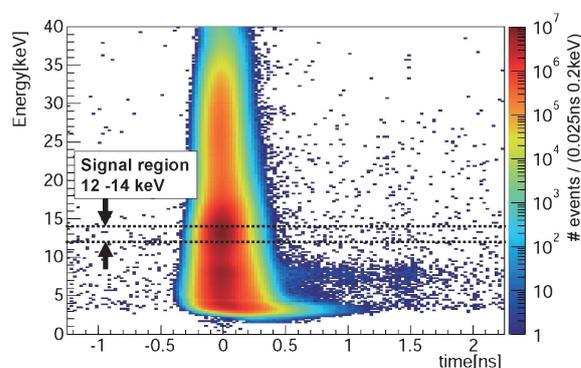


Fig. 11 (Color online) Measured two-dimension spectrum of nuclear resonant scattering for 29 keV of  $^{229}\text{Th}$ .

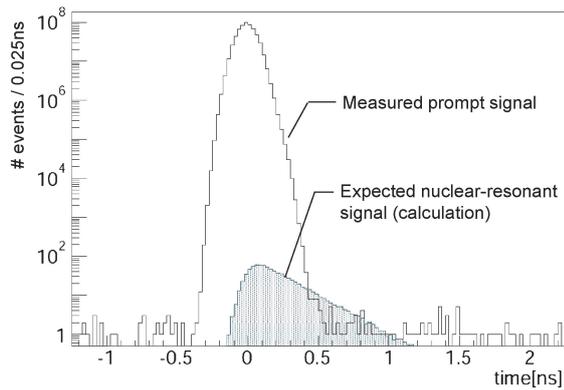


Fig. 12 Measured time spectrum of the search for NRS from 29 keV-level of  $^{229}\text{Th}$ .

我々は到達したと考えている。ただし、期待される信号強度およびその寿命は不確定性を持つことから、検出感度を向上する努力は続けている。共鳴エネルギーのスキャン範囲を丹念に探る必要があるため、できるだけ短時間で核共鳴信号を識別できるように、トリウム標的のサイズおよび密度、入射 X 線の集光および単色化モノクロメータの最適化を行った実験を行う予定である。

## 6. まとめと展望

本記事で紹介したように、幾多の挑戦にもかかわらず未だエネルギー・寿命がはっきり分かっていない  $^{229}\text{Th}$  の異常に低いアイソマー状態に対して、我々は高輝度放射光 X 線および高速検出器系を用いた核共鳴実験を通してその性質を明らかにしようとしている。今回構築した測定システムを用いて  $^{201}\text{Hg}$  の精密な核共鳴測定を実施することによって、従来の実験では得られなかった短い寿命の高精度な核共鳴データが得られることを示した。

前章で述べた通り  $^{229}\text{Th}$  のアイソマー状態への遷移確認実験を行える段階まで到達し、核共鳴エネルギー探索実験に着手している段階である。この測定が実現すれば、光源を使って能動的にアイソマー状態を生成する世界で初めての実験になることから、本テーマの研究の重要なステップに進むことになる。核共鳴信号の検出を通じて  $^{229}\text{Th}$  アイソマー状態に遷移した数を算出できるので、自信を持ってそこから基底状態に脱励起する真空紫外光を分光する実験を遂行できる。この分光実験で世界に先駆けて数 meV の精度でアイソマー状態のエネルギー・寿命を決めることで、励起波長の不確定性のためこれまで不可能であったレーザーでの核励起が一気に現実的なものになると期待している。分光実験を見据えて我々は現在、 $\text{CaF}_2$  (または  $\text{MgF}_2$ ) 結晶にトリウムをドーブした結晶  $\text{Th:CaF}_2$  の開発を行っているウィーン工科大学との共同研究を進めており<sup>20)</sup>、アイソマー遷移の際の内部転換を抑制して、放出された真空紫外光に対して透明な標的作製の検討等も行っ

ている。これはアイソマー遷移分光実験のみならず、コンパクトで搬送可能な全固体型のトリウム核時計の実現にとっても重要である。

また、ここでは紹介しなかったが、比較的重い元素では核励起寿命が短いアイソトープが多く存在する。高輝度放射光、高速検出器・信号処理、そして標的作製を組み合わせることで、より幅広く核共鳴散乱実験を開拓していき期待している。

## 謝辞

本研究における貴重なアイソトープ  $^{229}\text{Th}$  の標的開発は、著者の他に、東北大学量子エネルギー材料科学国際研究センターの小無健司准教授、渡部信博士、理化学研究所の羽場宏光チームリーダー、横北卓也研究員、大阪大学の重河優大氏、安田勇輝氏との共同研究に基づくものです。また、X 線集光キャピラリーは SPring-8 の宇留賀朋哉グループリーダー、関澤央輝研究員の協力で作成してもらいました。紹介した放射光実験の多くは SPring-8 の BL-09XU ビームラインにて行いました (課題 No. 016B123, 2017B1335, 2018A13262)。また、最新の結果は BL-19LXU での実験で得られたもので、理化学研究所の玉作賢治博士に協力を仰ぎました。検出器の性能評価に関しては KEK-PF の BL-14A ビームラインを使わせてもらいました (課題 No. 2017G085)、岸本俊二教授にお世話になりました。これらの実験は著者以外の岡山大学異分野基礎科学研究所のメンバーらの協力のもと行ったものです。

## 追記

本原稿の校正作業中に、我々は  $^{229}\text{Th}$  標的からの核共鳴散乱ピークを観測した。この重要な一歩を足掛かりにして、アイソマー遷移のエネルギー決定に向けての飛躍が期待できる。

## 参考文献

- 1) L. A. Kroger and C. W. Reich: Nucl. Phys. **259**, 29 (1976).
- 2) B. R. Beck *et al.*: Phys. Rev. Lett. **98**, 142501 (2007).
- 3) L. von der Wense *et al.*: Nature **533**, 47 (2016).
- 4) B. Seiferle *et al.*: Phys. Rev. Lett. **118**, 042501 (2017).
- 5) C. J. Campbell *et al.*: Phys. Rev. Lett. **108**, 120802 (2012).
- 6) T. Takano *et al.*: Nature Photon. **10**, 662 (2016).
- 7) A. Derevianko and M. Posperov: Nature Phys. **10**, 933 (2014).
- 8) V. V. Flambaum: Phys. Rev. Lett. **97**, 092502 (2006).
- 9) J. Jeet *et al.*: Phys. Rev. Lett. **114**, 253001 (2015).
- 10) A. Yamaguchi *et al.*: New J. Phys. **17**, 053053 (2015).
- 11) R. Röhlsberger: Nuclear Condensed Matter Physics with Synchrotron Radiation (Springer, 2004).
- 12) M. Seto: J. Phys. Soc. Japan **82**, 021016 (2013).
- 13) Y. Yoda: Nucl. Instr. Meth. A **467-468**, Part I, 715 (2001).
- 14) S. Kishimoto: Nucl. Instr. Meth. A **309**, 603 (1991).
- 15) 岸本俊二, 田中義人: 放射光ユーザーのための検出器ガイド-原理と使い方 (講談社サイエンティフィック, 2011).
- 16) A. Q. R. Baron *et al.*: J. Synchrotron Radiat. **13** 131 (2006).

- 17) T. Masuda *et al.*: Rev. Sci. Instrum. **88**, 63105 (2017).  
 18) P. Schüler *et al.*: Z. Phys. A **313**, 305 (1983).

- 19) A. Yoshimi *et al.*: Phys. Rev. C **97**, 024607 (2018).  
 20) S. Stellmer *et al.*: J. Phys. Conf. Ser. **723** 012059 (2016).

## 著者紹介

**吉見彰洋**

岡山大学異分野基礎科学研究所 准教授  
 E-mail: yoshimi@okayama-u.ac.jp  
 専門：原子核・原子を用いた基礎物理学  
**【略歴】**

2000年東京工業大学大学院理学研究科博士課程修了。博士（理学）。その後、理化学研究所基礎科学特別研究員、同研究員等を経て、2011年岡山大学極限量子研究コア准教授。2016年より現職。

**増田孝彦**

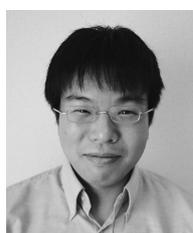
岡山大学異分野基礎科学研究所 特任講師  
 E-mail: masuda@okayama-u.ac.jp  
 専門：素粒子原子核物理，原子物理  
**【略歴】**

2014年3月京都大学大学院理学研究科博士課程修了。博士（理学）。2014年4月岡山大学極限量子研究コア助教（特別契約職員），2016年4月岡山大学異分野基礎科学研究所助教（特別契約職員），2017年12月より現職。

**笠松良崇**

大阪大学大学院理学研究科 講師  
 E-mail: kasa@chem.sci.osaka-u.ac.jp  
 専門：核化学，放射化学  
**【略歴】**

2006年3月大阪大学大学院理学研究科化学専攻博士後期課程修了。博士（理学）。2006年4月日本原子力研究開発機構博士研究員。2009年4月理化学研究所リサーチアソシエイト。2010年4月大阪大学大学院理学研究科助教。2016年4月大阪大学大学院理学研究科講師（現職）。

**山口敦史**

理化学研究所 研究員  
 E-mail: atsushi.yamaguchi.fv@riken.jp  
 専門：レーザー分光，時間周波数標準  
**【略歴】**

2008年3月京都大学大学院理学研究科博士後期課程修了。博士（理学）。2008年4月情報通信研究機構 有期雇用研究員。2011年6月フンボルト財団奨学生，2013年10月より現職。

**北尾真司**

京都大学複合原子力科学研究所 准教授  
 E-mail: kitao.shinji.5s@kyoto-u.ac.jp  
 専門：物性物理学，放射線物理学  
**【略歴】**

京都大学大学院理学研究科博士後期課程修了，博士（理学）。日本原子力研究所（現日本原子力研究開発機構）博士研究員，京都大学原子炉実験所（現 複合原子力科学研究所）助教を経て，同准教授（現職）。

**依田芳卓**

(公財)高輝度光科学研究センター利用研究促進部門 主幹研究員  
 E-mail: yoda@spring8.or.jp  
 専門：核共鳴散乱，放射光物理  
**【略歴】**

1991年東京大学大学院工学系研究科物理工学専攻博士課程途中退学，1999年東京大学にて博士（工学）。東京大学工学部文部技官，同助手，高輝度光科学研究センター副主幹研究員を経て2004年4月より現職。

**瀬戸 誠**

京都大学複合原子力科学研究所 教授  
 E-mail: seto@rri.kyoto-u.ac.jp  
 専門分野：核物性，放射光科学  
**【略歴】**

博士（理学）。2006年5月より現職。（2018年4月に原子炉実験所から複合原子力科学研究所に研究所名変更）

**吉村浩司**

岡山大学異分野基礎科学研究所 教授  
 E-mail: yosimura@okayama-u.ac.jp  
 専門：素粒子物理学  
**【略歴】**

1995年1月東京大学大学院理学系研究科物理学専攻博士課程中退。博士（理学）。1995年1月東京大学素粒子物理国際研究センター助手。2001年1月高エネルギー加速器研究機構准教授。2013年5月岡山大学極限量子研究コア教授。2016年4月より現職

---

# Exploring the possibility of ultra-precise nuclear clock by using synchrotron radiation: Extraordinary low-lying nuclear level of $^{229}\text{Th}$

---

<b>Akihiro YOSHIMI</b>	Research Institute for Interdisciplinary Science, Okayama University, 3-1-1 Tsushima-naka, Kita-ku, Okayama 700-8530, Japan
<b>Yoshitaka KASAMATSU</b>	Department of Chemistry, Graduate School of Science, Osaka University, 1-1 Machikaneyama Toyonaka, Osaka 560-0043, Japan
<b>Shinji KITAO</b>	Institute for Integrated Radiation and Nuclear Science, Kyoto University, Kumatori-cho, Sennan-gun, Osaka 590-0494, Japan
<b>Makoto SETO</b>	Institute for Integrated Radiation and Nuclear Science, Kyoto University, Kumatori-cho, Sennan-gun, Osaka 590-0494, Japan
<b>Takahiko MASUDA</b>	Research Institute for Interdisciplinary Science, Okayama University, 3-1-1 Tsushima-naka, Kita-ku, Okayama 700-8530, Japan
<b>Atsushi YAMAGUCHI</b>	RIKEN, 2-1 Hirosawa, Wako, Saitama 351-0198, Japan
<b>Yoshitaka YODA</b>	Japan Synchrotron Radiation Research Institute, 1-1-1 Kouto, Sayo-cho, Sayo-gun, Hyogo 679-5198, Japan
<b>Koji YOSHIMURA</b>	Research Institute for Interdisciplinary Science, Okayama University, 3-1-1 Tsushima-naka, Kita-ku, Okayama 700-8530, Japan

---

**Abstract** The isotope  $^{229}\text{Th}$  is attracting a lot of attention, because it has an exceptionally low-lying nuclear level (order of eV). This level is expected to be accessed by optical lasers, and then be used for ultra-precise nuclear clock. Our research group has conducted nuclear resonant scattering (NRS) experiments to determine uncertain energy and half-life of this level, by using high-brilliant synchrotron radiation, high-performance detectors, and target systems. We describe the development of the advanced NRS-measurement system, precise NRS experiment for a short-life nuclear level (26 keV-level of  $^{201}\text{Hg}$ ), and current status of NRS-experiment of  $^{229}\text{Th}$ .