

## 高輝度 X 線を用いた核共鳴散乱技術による原子核 $^{229}\text{Th}$ アイソマー状態の人工生成



海野 弘行<sup>\*1</sup>  
Kaino Hiroyuki



笠松 良崇<sup>\*2</sup>  
Kasamatsu Yoshitaka



重河 優大<sup>\*3</sup>  
Shigekawa Yudai



羽場 宏光<sup>\*3</sup>  
Haba Hiromitsu



平木 貴宏<sup>\*4</sup>  
Hiraki Takahiro



増田 孝彦<sup>\*4</sup>  
Masuda Takahiko



山口 敦史<sup>\*3</sup>  
Yamaguchi Atsushi



横北 卓也<sup>\*3</sup>  
Yokokita Takuya



吉見 彰洋<sup>\*4</sup>  
Yoshimi Akihiro



吉村 浩司<sup>\*4</sup>  
Yoshimura Koji

### 1 はじめに

1960年代にレーザーが登場してから、原子の利用は飛躍的な進歩をとげた。コヒーレント光による高度な原子操作をとおして、分光、冷却、量子情報等、様々な革新的な技術が創成され実用化されてきた。近年、原子核についても光を用いて操作する様々な手法 ( $\gamma$ 線による光核反応、同位体検知、核共鳴散乱等) が、精力的に研究されているが、原子核の励起エネルギーは原子に比べて桁違いに高く (keV~MeV)、また遷移強度も弱いため、高輝度放射光 X 線源、コンプトンガンマ線源、等、の大規模な施設が必要不可欠となっている。

Th の同位体である  $^{229}\text{Th}$  は図 1 に示すように原子核遷移としては特異な極めて低い 8 eV 程度のエネルギーの励起準位 (アイソマー準位) を持つと考えられており<sup>1)</sup> (2 番目に低い準位は  $^{235}\text{U}$  の 76 eV)、レーザーにより励起することが可能な原子核として大きな注目を集めている。原子内の多数の電子に遮

蔽されているため外場の影響を受けにくく、予測されている寿命が  $10^3 \sim 10^4$  s と長いこともあり、原子核のレーザー操作による、 $^{229}\text{Th}$  を用いた超精密「原子核時計<sup>2)</sup>」の実現が期待されている。その相対精度は現在の「原子時計」の性能を凌駕する  $10^{-20}$  に到達すると予測されている。この超精密「原子核時計」は、一般相対論効果により数 mm の重力ポテンシャルの変化を捉えることが可能であり、超精密測地学や地中の資源探査への応用が期待されている。基礎物理分野においても、物理定数の恒常性を現在よりも高い精度で検証することが可能となり<sup>3)</sup>、加速膨張している宇宙の謎を解明するのに役立つ。また、 $^{229}\text{Th}$  原子をドープした結晶を用いた「全固体型原子核時計」は、原子時計よりも小型化が可能であり、超高精度ポータブル時計としての応用が考えられている。原子核と電子遷移の干渉効果についても、核が電子を介して脱励起をするプロセス (電子架橋過程) では、その核遷移が化学状態に大きく依存すると考えられており、原子核遷移による化学状

## 基底状態の回転励起状態

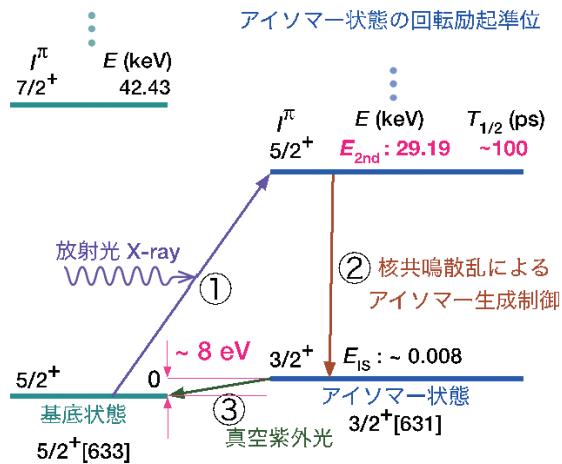


図1  $^{229}\text{Th}$  のエネルギー準位

態研究の新しいプローブとして期待されている。

このように  $^{229}\text{Th}$  のアイソマー遷移は様々な分野で注目を集めながらも、数十年の間、直接観測はできなかった。2016年ドイツの実験グループがアイソマー準位の崩壊からの内部転換電子を捉えることで、アイソマー準位の存在を世界で初めて報告し<sup>4)</sup>、2019年にはそのエネルギー測定を行った<sup>5)</sup>。ただし、これまでに光による遷移(図1の③)を直接観測した例はなく、エネルギー測定精度についてもレーザー励起を実現するには十分ではないのが現状である。

筆者らは高輝度X線を用いた全く新しい手法を用いて、アイソマーを人工的に生成することに世界で初めて成功した。これは  $^{229}\text{Th}$  のレーザー励起実現につながる、アイソマー状態の詳細な解明の第一歩である。本稿では、人工的にアイソマー生成する手法を  $^{229}\text{Th}$  標的技術に焦点をあてて解説し、今後の展望を述べる。

## 2 X線を用いた新しいアイソマー生成手法

$^{229}\text{Th}$  のアイソマー状態の解明になぜこれほどまで時間がかかったのだろうか? その原因の1つはアイソマー状態の生成方法にあったと考えられる。 $^{229}\text{Th}$  は  $^{233}\text{U}$  の  $\alpha$  崩壊により生成されるが、従来、アイソマー状態の研究に用いられてきたのは、 $\alpha$  崩壊の際にわずかに励起された状態で生成されたものである。 $^{233}\text{U}$  の  $\alpha$  崩壊はランダムに起こるため、ア

イソマーの生成を制御することはできず、またその生成時には  $\alpha$  崩壊およびカスケード崩壊による、多くの放射線が発生し、クリーンな状況での測定が困難であった。

一方、基底状態の  $^{229}\text{Th}$  から直接励起してアイソマー状態を能動的に生成する試みは、紫外光放射光等を用いて行われてきたが、これまでに成功した例はない<sup>6, 7)</sup>。アイソマー状態のエネルギー、寿命について大きな不定性がある状態で、しかも励起に使用する光と脱励起で観測する光の波長が同じであるという困難があったからである。

そこで、筆者らはアイソマー準位の上にある第2励起準位 (29.2 keV) を経由して  $\Lambda$  型にアイソマー準位へ遷移させる方法を用いることにした(図1)。

- ① 29.2 keV の単色 X 線を  $^{229}\text{Th}$  に照射して、第2励起状態へ遷移させる。X 線のエネルギーが励起エネルギーに一致した時、 $^{229}\text{Th}$  が第2励起準位へ励起される。
- ②核共鳴散乱の手法(後述)を用いて、アイソマー準位への遷移を確認する。
- ③ X 線のエネルギーを得られた共鳴エネルギーに合わせて照射することにより、人工的にアイソマー準位を生成して、アイソマー準位から基底準位への脱励起光を観測する。

この手法のメリットは、既にエネルギーが既知の第2励起準位を使うことにより、確実に励起することができ、アイソマー準位からの脱励起光(真空紫外光)と違う波長の X 線を用いることができるという点である。原子核が共鳴励起したことは、散乱光を観測することにより行う。原子核の共鳴励起による散乱を観測する手法は核共鳴散乱(Nuclear Resonant Scattering)と呼ばれ、物性分野で広く利用されている。図2に示すように、標的原子に X 線を照射すると通常は軌道電子と衝突して瞬間的に散乱を起こすが(即時的電子散乱、以下プロンプト)、入射 X 線のエネルギーが共鳴準位と等しい場合には、原子核に吸収されて原子核を励起し、励起準位の寿命後に  $\gamma$  線あるいは内部転換に伴う X 線を放出して脱励起する。したがって、核共鳴散乱は、プロンプトよりも時間的に遅れた信号として同定される。通常の核共鳴散乱の場合は、励起準位が ns 程度以上の寿命を持つため、プロンプトが十分落ち切ったタイミングで測定を始めることが可能である

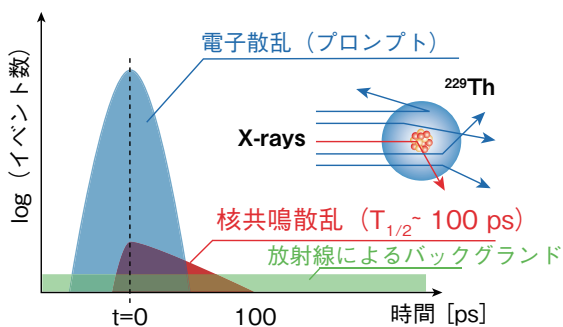


図2  $^{229}\text{Th}$  の核共鳴散乱信号の時間分布

が、 $^{229}\text{Th}$  の第2励起準位の寿命は100 ps程度と極めて短いと予想されており、プロンプトの時間分布とほとんど区別がつかない。核共鳴散乱の信号に比べ6~7桁も多い巨大なプロンプトと、 $^{229}\text{Th}$  の崩壊に伴うランダムな放射線バックグラウンドに挟まれた、わずかな時間領域でのみ観測が可能となる。この厳しい測定状況において $^{229}\text{Th}$  の第2励起準位の核共鳴散乱を観測するためには、以下に示すように、高密度標的試料の開発とX線ビームの高度化、高速高時間分解能X線検出システムの開発、超精密X線エネルギーモニタの導入が必要であった。

### (1) 高密度 $^{229}\text{Th}$ 標的の開発とビームの高度化

微弱な核共鳴散乱の信号レートを増加させ、 $^{229}\text{Th}$  の放射線起因のバックグラウンドを抑制するために、 $^{229}\text{Th}$  標的試料の高密度化とそれに対応したX線の集光システムが有効である。 $^{229}\text{Th}$  標的技術については次節で詳しく述べる。X線ビームは高精度モノクロメータにより単色化したのち、モノキャピラリーまたは複合屈折レンズを使用して、小径化した標的に有効に照射できるサイズにまで集光を行った(0.15 mm(h) × 0.065 mm(v): 複合屈折レンズ)。

### (2) 高速高時間分解能X線検出システムの開発

プロンプトと核共鳴の信号を分離できるような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φ0.5 mmのSi-APD S12053-05(浜松ホトニクス)を採用した。必要なアクセプタンスを確保するためにアレイ状に9個並べたものを新たに開発することにより、アクセプタンスと時間応答性能を両立させることが可能になった。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パルス波高、パルス幅の情報をパルス毎に時間情報と同時に測定可

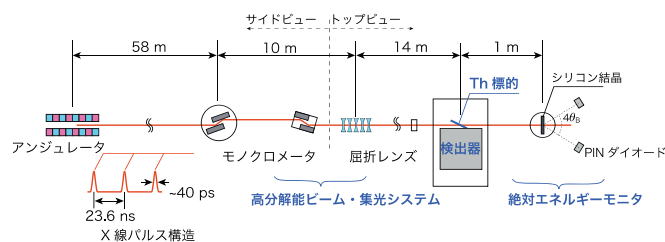


図3 SPring-8における核共鳴散乱観測のための実験レイアウト

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。詳しくは文献<sup>8)</sup>参照のこと。

### (3) 入射X線の絶対エネルギーモニタの導入

共鳴エネルギーを精度よく決定し、その再現性を確保するために、高精度な絶対エネルギーモニタが必要である。筆者らは、産業総合研究所の協力を得て、格子定数が良く分かっているシリコン標準結晶と超精密角度制御可能なターンテーブル(SelfA)を組み合わせボンド法を用いた高精度エネルギーモニターを開発し、0.07 eVの絶対精度で入射X線のエネルギーを決定することに成功した。

以上開発した装置を組み込んだ、核共鳴散乱観測のためのSPring-8での実験レイアウトを図3に示す。

## 3 トリウム標的技術

極めて稀な核共鳴散乱事象を放射線バックグラウンドに埋もれることなく観測するためには、 $^{229}\text{Th}$  標的性能が重要になってくる。 $^{229}\text{Th}$  試料として、今回使用したのはトリウム研究の先駆者である三頭聰明氏が10年以上も前に東北大学金属材料研究所附属量子エネルギー材料国際研究センターにおいて $^{233}\text{U}$ から化学分離したものである。通常 $^{233}\text{U}$ には $^{232}\text{U}$ が微量含まれており、分離直後にはその娘核の $^{228}\text{Th}$ (半減期1.9年)による放射能が非常に強いが、長期間の保存期間中に $^{228}\text{Th}$ は既にほとんど崩壊して、純粋な $^{229}\text{Th}$ となる。今回放射線バックグラウンドに埋もれることなく、核共鳴散乱を観測できたのは、このような良質の $^{229}\text{Th}$ 試料を使用することができたおかげである。

さて、このような大変貴重かつ稀少な $^{229}\text{Th}$ 試料を用いて標的を作成する際に特に留意した点は、1)  $^{229}\text{Th}$ 試料をできるだけ多くX線のスポットと同

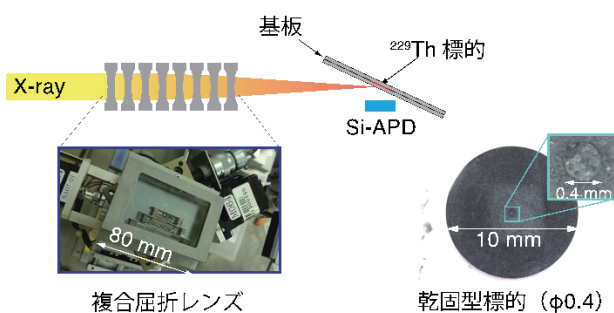


図4 X線集光システムと高密度小径<sup>229</sup>Th標的

程度に凝縮させる（収集効率を上げる）、2）X線照射時に変性せず、物理的、化学的に安定である（固体として基板に固着させる）、3）外部に漏れないように厳重に密封する、ということである。これまで放射化学的な手法で様々なタイプの標的試料が作成されてきたが、本研究で要求されているような小径（～mm）スポットサイズに全量を凝縮させた例はほとんどなく、筆者らが、以下のような3種類の手法を用いて開発を行った。

#### [沈殿法]

<sup>229</sup>Thの硝酸溶液にアンモニア水を加えて水酸化トリウムとして沈殿させ、ポリプロピレンの濾紙を通して真空ポンプで吸引濾過することにより、濾紙上に沈殿を固着させる。その際に溶液が濾紙を通る部分の穴の径をφ1.5の小径にすることにより、φ1.5mmの標的を作成することに成功し、この標的を用いて、初期のR&Dを行った。この手法の収率は高く、濾紙内に堅固に固着するという利点はあるが、φ1mmより小さい径の標的を作成しようとすると、吸引の抵抗が増えて、収率が低下する。

#### [電着法]

<sup>229</sup>Thの硝酸溶液をイソプロピルアルコールにて希釈したものを、電圧をかけて硝酸トリウムの分子をベリリウム電極に収集固着させる方法である。電極面をφ0.5mmの穴を開けたテフロンパーツで覆うことにより、φ0.5mmの標的の作成に成功した。この方式では、原理的には、更に小径の標的の作成も可能であるが、電着条件（溶液の濃度、精製方法、電圧、電極の表面処理等）の最適化が非常に難しい。実際、不純物等があると収率が安定せず、電着条件の設定は困難を極めたが、最終的にφ0.5の標的作

成に成功した。

#### [乾固法]

厚さ0.5mmのグラファイト板にφ0.4mm、深さ0.2mmの溝加工を施し、マイクロポンプを用いて極細径φ0.15mmの針から微量の<sup>229</sup>Thを断続的に滴下しつつ、ホットプレートの上で蒸発乾固させることにより、小径の試料を作成した。溶液全量を乾固させるため、収率はほぼ100%であるが、溶液内の不純物も同時に析出するため、事前に念入りに精製を行うことが重要となる。

以上の方法で作成した標的は、ベリリウム板で挟み込むことにより厳重な密封状態にして使用した。開発した標的は、集光システムと組み合わせて使用され、SPring-8 BL09XU, BL19LXUビームラインにおいて核共鳴散乱に向けた測定システムの開発、改良に用いられた。最終的には、最も高密度で安定な乾固型標的と集光性能に優れた複合屈折レンズの組み合わせ（図4）を核共鳴散乱の観測に用いた。

## 4 核共鳴散乱の観測に成功

2018年7月にSPring-8 BL19LXUにおいて核共鳴散乱の探索を行った。まず分解能の低いSiモノクロメータSi(440)（エネルギー幅0.26eV）で大まかに探索を行った。探索範囲は過去の文献値を中心に±4eV程度とした。散乱信号をモニタしながら、0.1eVステップでエネルギーを変化させ、核共鳴信号で予測されるタイミング、エネルギーの信号の増加を探索する。合計113点、約3日弱の探索で信号の兆候が見つかり、その後、モノクロメータを高精度なSi(660)（エネルギー幅0.1eV）に変え、共鳴付近を複数回スキャンして、確かに核共鳴散乱であることを確認した。図5(a)にSi(660)で得られた共鳴ピークを示す。この共鳴のピークから共鳴エネルギーとして以下の値が得られた。

$$E = 29189.93 \text{ eV} \pm 0.07 \text{ eV}$$

図5(b)に示すように、共鳴時の時間スペクトルと非共鳴時の時間スペクトルの差を求めることにより、第2励起状態の半減期として

$$T_{1/2} = 82.2 \pm 4.0 \text{ ps}$$

が得られた。遷移強度を用いた詳細な解析により、第2励起状態の約58%がアイソマー状態に遷移し、

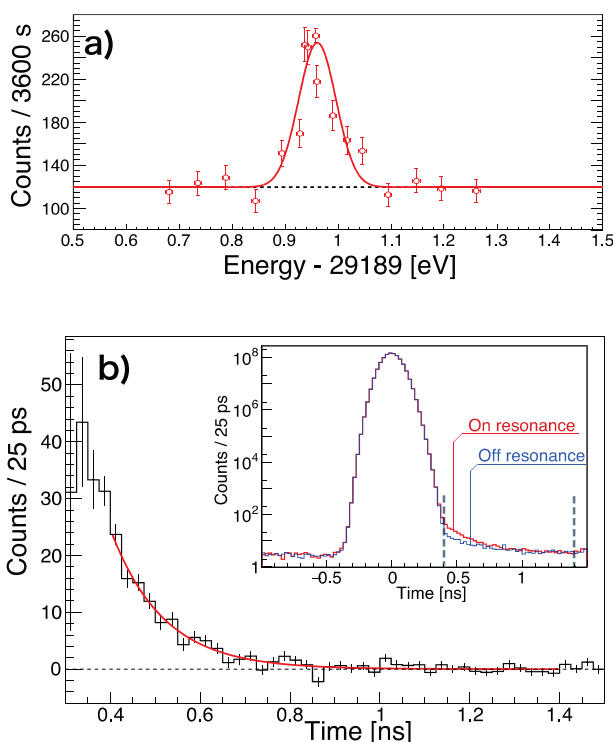


図5 a) 観測された核共鳴ピーク(Si(660)), b) 第2励起状態の半減期の測定<sup>9)</sup>

25 kHz でアイソマーが生成していることが確かめられた<sup>9)</sup>。

以上に述べたように核共鳴散乱の信号は、ひとつだけ見つかってしまえば、非常に明瞭かつ再現性のよいものであるが、最初に探索した際には、図5のデータからも分かるように、信号とバックグラウンドの比は1を切っており、探索感度の限界に近かったことが分かる。非常に多岐にわたる分野の共同研究者の力を結集することで、ようやく到達できた成果ということで大変感慨深いものがある。

## 5 今後の展望

今回の測定の最大のインパクトは世界で初めて<sup>229</sup>Thの基底状態からアイソマーを生成したということである。従来は、基底状態に落ちたものは再びアイソマー研究には使用できなかったが、新しい手法により、人工的にかつコントロールできる方法でアイソマーを生成することができるようになった。また、第2励起準位と分岐比が精度よく決まったことで、新たに高精度γ線測定と組み合わせたアイソマー準位のエネルギー測定結果も報告されている<sup>10)</sup>。

今後はこの手法を用いて、いよいよアイソマー状態から基底状態へ脱励起する際の真空紫外光の探索を行うことになる。脱励起光を観測するためには、予測される波長150 nm付近の真空紫外光に透過性のある試料が必要である。現在ウィーン工科大学との共同研究により、<sup>229</sup>Thをドープしたフッ化カルシウム結晶の提供を受け既に測定を開始している。今後、アイソマー状態からの脱励起光を観測して、その詳細を解明し、世界に先駆けてアイソマー状態のレーザー励起を目指していく。

本研究の標的開発に用いられた<sup>229</sup>Th試料は東北大学量子エネルギー材料科学国際センターの小無健司准教授、渡部信博士の共同研究に基づいて使わせていただきました。放射光施設SPring-8ビームラインBL09XU, BL19LXUにおける実験では、JASRIの依田芳卓博士、理化学研究所の玉作賢治博士、京都大学複合原子力科学研究所の瀬戸誠教授、北尾真司准教授にX線ビームの高度化、エネルギーモニタを含む全般にわたる協力をいただきました。またX線集光キャピラリーはJASRI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使わせていただきました。本研究で使用したX線絶対エネルギーモニターの開発においては、超精密角度制御可能なターンテーブル技術及び標準シリコン結晶の提供を含めて、一般的に産業総合研究所の渡部司博士、藤本弘之博士にご協力いただきました。

## 参考文献

- 1) B.R.Beck, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **98**, 142501 (2007)
- 2) E.Peik, and C. Tamm, *Europhys. Lett.*, **61** 181 (2003)
- 3) V.V. Flambaum, *Phys.Rev. Lett.*, **97**, 092502 (2006)
- 4) L. von der Wense, *et al.*, *Nature*, **533**, 47 (2016)
- 5) B. Seiferle, *et al.*, *Nature*, **573**, 243 (2019)
- 6) J. Jeet, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **114**, 253001 (2015)
- 7) A. Yamaguchi, *et al.*, *New J. Phys.*, **17**, 053053 (2015)
- 8) T. Masuda, *et al.*, *Rev Sci. Instrum.*, **88**, 063105 (2017)
- 9) T. Masuda, *et al.*, *Nature*, **573**, 238 (2019)
- 10) A. Yamaguchi, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **123**, 222501 (2019)

(\*1 岡山大学大学院自然科学研究科

\*2 大阪大学大学院理学研究科

\*3 理化学研究所

\*4 岡山大学異分野基礎科学研究所)