

結晶中のトリウム 229 原子核アイソマーを X 線で制御することに成功！ ～超高精度「固体原子核時計」実現に向けて大きく前進～

◆発表のポイント

- ・ 固体結晶中に埋めこんだトリウム 229 を高輝度 X 線で励起状態^(注 1) (アイソマー状態) にし、励起準位のエネルギーと寿命を測定することに成功しました。
- ・ 固体結晶中で生成したアイソマー状態の大部分が光を放出して基底状態に戻る (脱励起する) ことを確かめました。
- ・ X 線の照射により脱励起が早まり寿命が短くなる現象 (クエンチ現象) を初めて観測し、固体結晶中のアイソマー状態を制御できることを実証しました。

トリウム 229 原子核は、自然界で最小の 8.4 電子ボルトの励起状態 (アイソマー状態) を持ち、レーザーを使って励起することができる原子核です。この特性を利用して、超高精度時計「原子核時計」^(注 2) を作ることができます。これを用いることで、測位システムや測地学をはじめとするさまざまな応用に加えて、基礎物理研究のための重要なプラットフォームを実現できると期待されています。

原子核は環境の影響を受けにくいいため、固体に埋めこんでも高精度を保つことが可能で、「固体原子核時計」の実現が期待されています。しかし、これまでは固体中のアイソマー状態がどのようにして脱励起する (基底状態に戻る) のか、また、どうやってその寿命を短くする (強制的に基底状態に戻る) のか、が大きな課題でした。

岡山大学異分野基礎科学研究所の吉村浩司教授、吉見彰洋准教授、平木貴宏研究助教、高輝度光科学研究センター (JASRI) の依田芳卓主幹研究員、永澤延元研究員、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、理化学研究所の山口敦史専任研究員、重河優大特別研究員、羽場宏光室長、玉作賢治チームリーダー、大阪大学大学院理学研究科の笠松良崇教授、産業技術総合研究所 (産総研) の渡部司上級主任研究員、ウィーン工科大学の Thorsten Schumm 教授らの共同研究グループは、大型放射光施設「SPring-8」^(注 3) の高輝度 X 線を用いて、固体結晶中のトリウム 229 をアイソマー状態に励起し、それが基底状態に戻る際の光を観測することに成功しました。この際、アイソマー状態のほぼすべてが光を発して遷移することを確認し、その寿命とエネルギーを測定しました。さらに、X 線照射によってアイソマー状態の寿命を 10 分の 1 程度に短くできることを発見しました。これは、固体結晶中のアイソマー状態を外部から制御できることを示すものです。

これらの成果により固体原子核時計の実現に向けて大きく前進が期待されます。本研究成果は、7 月 16 日午後 6 時 (日本時間)、英国学術雑誌「*Nature Communications*」にオンライン掲載されました。

◆研究者からのひとこと

この研究成果は、オールジャパン&オーストリアの共同研究チームが協力し、最先端技術を結集して 10 年かけて達成したものです。最近、原子核時計に関する重要な成果が次々と発表され、まさに原子核時計の時代が始まろうとしている状況です。今後も連携をさらに強化し、世界初の原子核時計の実現を目指します。



吉見准教授



平木研究助教

■発表内容

<研究の背景>

《トリウム 229 原子核時計》

自然界には約 3300 種以上の原子核が存在します。このうち最も低い励起エネルギーを持つ原子核がトリウム 229（原子番号 $Z=90$ 、質量数 $A=229$ ）です。アイソマー状態と呼ばれるこの状態と基底状態間のエネルギー差はわずか 8.4 eV ^(注4) であり、レーザーでも励起可能なエネルギー領域にあります。ちなみに、通常の原子核は keV や MeV の励起エネルギーを持つため、トリウム 229 のアイソマー状態は極めて特異な存在といえます。

この特異なアイソマー状態のエネルギーは外界の影響を受けにくく、極めて安定なため、これを基準に使うと既存の原子時計を上回る高精度な時計「原子核時計」を構築することができると考えられています。原子核時計は全地球測位システム(GNSS; Global Navigation Satellite System)や地殻変動の観測をはじめとする測地学の進歩を可能にすると期待されています。また基礎科学の観点からは、暗黒物質 ^(注5) の探索や、物理定数の経年変化 ^(注6) を探索する舞台（プラットフォーム）として威力を発揮すると考えられています。

《固体原子核時計》

従来の原子時計では、固体に埋めこんだ原子は内部電場の影響を強く受けるため精度のよい時計を作るのが困難でした。一方、原子核は環境の影響を受けにくいいため固体結晶などに埋めこんだ状態でも高精度を保つことが可能になります。これにより、コンパクトで持ち運びが容易な固体原子核時計が実現できると期待されています。その実現のためには、固体内におけるトリウム 229 原子核の励起・脱励起プロセスおよびその環境の影響を知り、それをコントロールすることが必要です。大きな課題のひとつであるレーザー励起に関しては、つい最近ドイツの研究所によって達成されました (J.Tiedau *et al.*, Phys. Rev. Lett. **132**, 182501 (2024))。今後は脱励起プロセスの解明、その制御が大きな課題となっています。

<研究成果の内容>

本研究では、大型放射光施設「SPring-8」の放射光 X 線を用いることにより、固体結晶中に埋めこんだトリウム 229 のアイソマー状態を生成し、その脱励起の詳細を調べ、X 線照射によりその寿命が変化する現象（クエンチ現象）を新たに発見しました。

《研究方法の詳細》

本研究は「SPring-8」の BL19LXU の高輝度 X 線を用いて行われました。図 1 に示すように、最初にトリウム 229 は基底状態にありますが、これに約 29 keV のエネルギーを持つ X 線を照射すると、いったん第二励起状態に遷移したのちに、その半分以上はアイソマー状態に遷移します。遷移は原子核共鳴散乱 ^(注7) と呼ばれる手法を使って確認します。この手法は、2019 年に我々のグループが開発したもので、産総研が開発した X 線エネルギー絶対値測定装置の導入により、X 線のエネルギーをわずかに変化させるだけで、アイソマー状態の生成をコントロールできるのがこの手法のメリットです。今回はその手法を固体結晶中に埋めこんだトリウム 229 に適用してアイソマー状態を生成しました。ここで使用した固体結晶はフッ化カルシウム (CaF_2) にトリウム 229 を埋めこんだもので、ウィーン工科大学との共同研究で開発されたものです。この固体結晶に、第二励起状態

のエネルギーに合わせた X 線を照射して、固体結晶内のトリウム 229 をアイソマー状態にし、その脱励起の光を観測しました。この光の波長は、8.4 eV のエネルギー差に相当する 148 nm で、真空紫外光と呼ばれ、空気中ではすぐに吸収されてしまいます。使用したフッ化カルシウム結晶はこの波長域の光でも透過可能です。

図 2 は横軸に入射 X 線のエネルギー、縦軸に観測した信号を表したものです。上は信号として共鳴散乱した X 線（従来の方法）を、下は真空紫外光（新しい方法）を採用したものです。同じ X 線のエネルギーで信号が増えているのが観測され、固体結晶中にトリウム 229 のアイソマー状態が生成されており、真空紫外光を発光して基底状態に戻っている（脱励起している）ことが分かります。

アイソマー状態の脱励起の時間変化を示したのが図 3 の右で、横軸は、X 線を照射してからの時間、縦軸は真空紫外光の信号になります。アイソマー状態の数が半分になる時間（半減期）が約 450 秒で、信号が減少しているのが見えます。図 3 の左図は X 線の照射時間を変化させたときの、照射直後の信号（アイソマー生成量に相当）の変化を表しています。点線のように半減期に応じた曲線で徐々に増加すると予想していましたが、実際はすぐに一定値に達して増加しなくなりました。これは、X 線照射中にアイソマー寿命が減少していることを表しており、アイソマー状態が X 線照射により強制的に脱励起していることを表しています。我々はこれをクエンチ現象と呼んでいます。図 4 は X 線のビーム強度を変化させたときのクエンチ現象を、照射する X 線量を変えることで、クエンチ現象の倍率、すなわちアイソマー寿命を制御できていることを示しています。

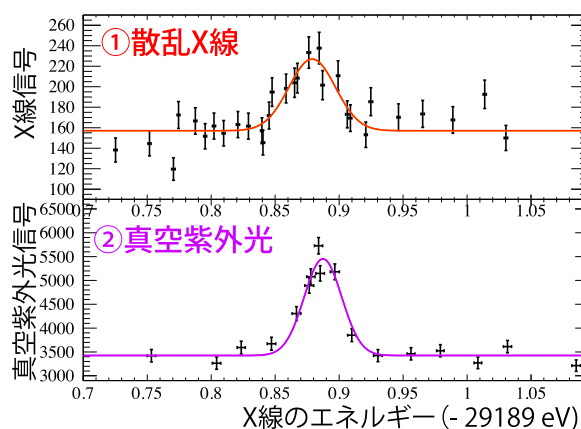
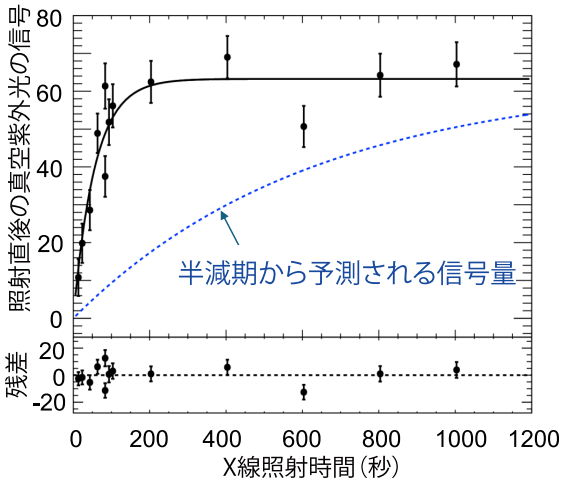


図 1 トリウム 229 準位図（関係する基底状態及び励起状態）

図 2 上：第二励起状態からの X 線散乱信号（図 1-①）、下：アイソマー状態からの真空紫外光信号（図 1-②）

アイソマー状態の生成



アイソマー状態の脱励起

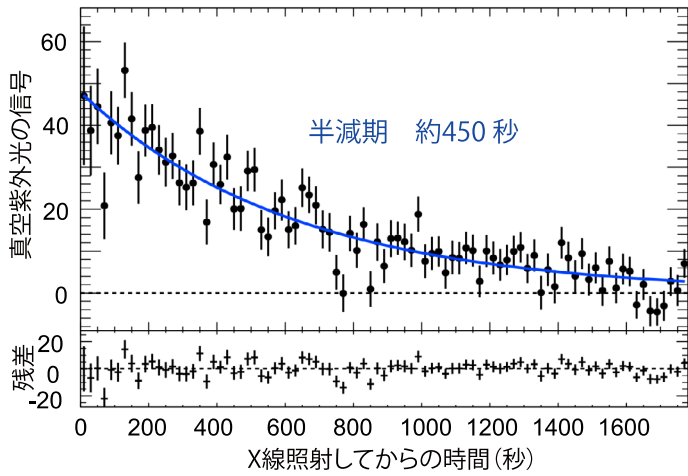


図3 右：アイソマー状態からの真空紫外光の時間変化、左：X線照射直後の真空紫外光（アイソマー状態の生成数に相当）のX線照射時間による変化。下はフィットからのずれ（残差）。

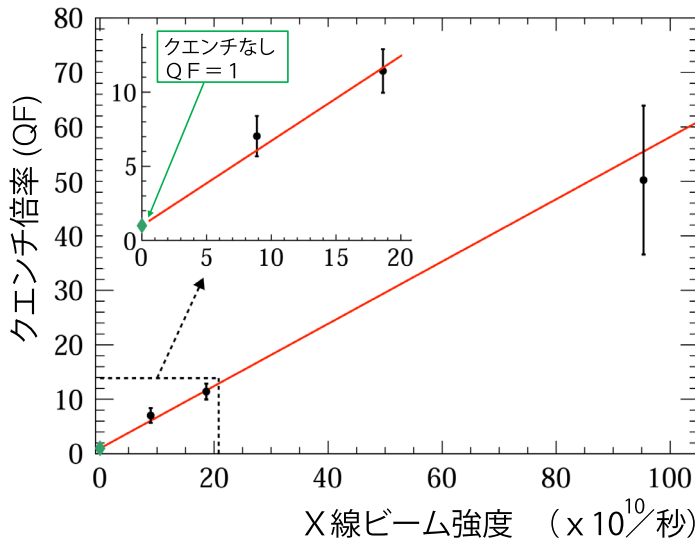


図4 ビーム強度を変化させたときの、クエンチ倍率（寿命がQF分1になる）の変化

<本研究の意義と今後の発展>

本研究の意義のひとつは、固体結晶中に埋めこんだトリウム 229 を X 線によって励起することに成功し、その脱励起光を観測した点にあります。固体結晶中に埋めこむと、光を出さずに電子を放出する遷移（内部転換過程）で脱励起する可能性もありましたが、今回の観測により、ほぼすべてのアイソマー状態が光遷移で基底状態に戻ることが示されました。また X 線照射によりアイソマー状態の寿命が制御可能なことが分かりました。これらは固体原子核時計の実現に必要な情報であり、その実現に大きく前進したということが出来ます。今後、この手法を進化させて、さらにその詳細を明らかにして、高精度のレーザー（開発中）と組み合わせることで、原子核時計を実現していくことを目標にしています。

■論文情報

論文名 : Controlling ^{229}Th isomeric state population in a VUV transparent crystal

掲載紙 : *Nature Communications*

著者 : Takahiro Hiraki¹, Koichi Okai¹, Michael Bartokos², Kjeld Beeks², Hiroyuki Fujimoto³, Yuta Fukunaga¹, Hiromitsu Haba⁴, Yoshitaka Kasamatsu⁵, Shinji Kitao⁶, Adrian Leitner², Takahiko Masuda¹, Ming Guan¹, Nobumoto Nagasawa⁷, Ryoichiro Ogake¹, Martin Pimon², Martin Pressler², Noboru Sasao¹, Fabian Schaden², Thorsten Schumm², Makoto Seto⁶, Yudai Shigekawa⁴, Kotaro Shimizu¹, Tomas Sikorsky², Kenji Tamasaku⁸, Sayuri Takatori¹, Tsukasa Watanabe³, Atsushi Yamaguchi⁴, Yoshitaka Yoda⁷, Akihiro Yoshimi¹ & Koji Yoshimura¹

¹Research Institute for Interdisciplinary Science, Okayama University, Okayama, Japan.

²Institute for Atomic and Subatomic Physics, TU Wien, Vienna, Austria.

³National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST), Tsukuba, Japan.

⁴RIKEN, Wako, Japan.

⁵Graduate School of Science, Osaka University, Toyonaka, Japan.

⁶Institute for Integrated Radiation and Nuclear Science, Kyoto University, Kumatori-cho, Japan.

⁷Japan Synchrotron Radiation Research Institute (JASRI), Sayo-cho, Sayo-gun, Hyogo, Japan.

⁸RIKEN SPring-8 Center, Sayo-cho, Sayo-gun, Hyogo, Japan.

DOI : 10.1038/s41467-024-49631-0

■研究資金

本研究は、独立行政法人日本学術振興会（JSPS）科学研究費助成事業（JP18H04353, JP18H01230, JP19K14740, JP19K21879, JP19H00685, JP21H01094, JP21H04473, JP22K20371, and JP23K13125）、伊藤科学振興会、稲盛財団、EU-ERC（No.856415（nuClock））、20FUN01-TSCAC, FWF（I5971（REThorIC） and P 33627（NQRclock））の支援を受けて実施しました。

■補足・用語説明

注 1. 原子核の励起状態 :

量子力学においては、原子核はとびとびのエネルギー状態を持ちます。この中で一番低いエネルギー状態（基底状態）にある原子核に、光や電子などの粒子を当ててエネルギーを与えると、原子核はそのエネルギーを吸収し基底状態とは異なる状態に移ります。この状態は一般に励起状態と呼ばれ、励起に必要なエネルギーを励起エネルギーといいます。ある時間（寿命）が経過すると、励起状態の原子核は基底状態に戻ります。

注 2. 原子核時計と原子時計 :

これらの時計はいずれも、特定の二つのエネルギー準位間の遷移によって吸収される光やマイクロ波の振動数が一定であることを利用し、時間の基準を作ります。原子核時計は、原子核が原子よりも 4~5 桁も小さいおかげで、環境変化の影響を受けにくいと考えられています。原子核時計の実現には二つのエネルギー準位間の遷移をレーザーで精密に制御する必要があります。

注 3. 大型放射光施設「SPring-8」:

兵庫県の播磨科学公園都市にある世界最高性能の放射光を生み出す理化学研究所の施設で、利用者支援等は高輝度光科学研究センター（JASRI）が行っています。SPring-8（スプリングエイト）の名前は Super Photon ring-8 GeV（ギガ電子ボルト）に由来します。放射光とは、電子を光とほぼ等しい速度まで加速し、電磁石によって進行方向を曲げたときに発生する、指向性が高く強力な電磁波のことです。SPring-8 では、この放射光を用いて、ナノテクノロジーやバイオテクノロジー、産業利用まで幅広い研究が行われています。

注 4. eV:

エネルギーの単位。例えば、2 eV は赤色の光（波長~620 nm、振動数~480 兆 Hz）に対応します。

注 5. 暗黒物質:

宇宙には、通常物質（原子・分子など）の 5~6 倍の量の暗黒物質が存在します。質量は持つが、望遠鏡などでは観測できないことから、このような名前が付けられており、その正体ははまだ解明できていません。

注 6. 物理定数の経年変化:

例えば、電子の電荷（厳密には微細構造定数と呼ばれる電荷に関連した数）は永久に変わることがないだろうと考えられており、従って物理定数と呼ばれてきました。近年、このような物理定数も宇宙史のスケールでは経年変化するかもしれないとの仮説が浮上しています。

注 7. 原子核共鳴散乱:

原子核が主として光や X 線を吸収して励起状態に遷移した後、一定の時間を経て、別の状態に遷移するような散乱過程。入射する光や X 線のエネルギーが励起状態のエネルギーと完全に一致したときのみ、このような過程が生じます。