

研究終了報告書

「原子核時計」実現に向けた原子核量子計測技術の開発」

研究期間：2018年10月～2022年3月

研究者：山口 敦史

1. 研究のねらい

本研究のねらいは、原子核遷移の共鳴周波数を基準とする周波数標準「原子核時計」の実現に向け、トリウム 229 イオンをイオントラップに捕獲し、その量子状態をレーザーにより測定する新しい技術を開発することである。

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だけでなく、GPS 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。

この 18 桁の精度をさらに超える可能性を秘めた原子時計が「原子核時計」である。既存の原子時計は、すべて電子遷移を参照しているが、原子核時計は、原子核の遷移を参照する。原子核は、軌道電子によってシールドされているため、その共鳴周波数が電子遷移に比べて格段に外部電磁場の影響をうけにくい。したがって、現在開発されている原子時計と同じレベルに外部電磁場のゆらぎを制御しただけでも、原子核時計ならば精度の向上が期待される。ところが、原子核遷移の共鳴エネルギーは一般的に 1～100 keV 程度で、分光に必要なレーザーを作れるようなエネルギー領域ではないため、今まで「原子核時計」は実現されてこなかった。

しかし近年、トリウム 229 だけは、わずか 8.3 eV という異常に低い共鳴エネルギーの原子核遷移をもつことが明らかになってきた。8.3 eV は、波長に換算すると 149 nm（真空紫外）であり、レーザーを作ることができるエネルギーである。すなわち、トリウム 229 の原子核遷移を使えば、原子核を精密レーザー分光することができ、「原子核時計」を実現できる。

本研究では、「原子核時計」を実現するプラットフォームとなるトリウム 229 イオントラップ装置を構築し、トリウム 229 イオンをトラップ・レーザー分光するための基盤技術を開発する。本研究で提案する手法を使うと、原子核状態が基底状態のトリウム 229 だけでなく、エネルギー 8.3 eV の励起状態（アイソマー状態と呼ばれる）のトリウム 229 イオンもトラップすることができる。アイソマー状態のトリウム 229 イオンを使えば、アイソマー状態の寿命やエネルギーの精密測定といった、「原子核時計」の実現に不可欠な基礎パラメータの測定も可能となる。

2. 研究成果

(1) 概要

本研究の成果は、以下の3つである。

- A. トリウムイオンのトラップ装置とレーザー冷却用光源を開発した
- B. トリウム 229 生成用のウラン 233 電着線源を作成した
- C. トリウム 232 イオンをトラップし、レーザー分光した

本研究ではまず、トリウム 229 イオンを生成・輸送・トラップするための「トリウムイオントラップ装置」を開発した(研究成果 A)。装置の概要は以下の通りである。トリウム 229 イオンは、ウラン 233 がアルファ崩壊する際に放出される反跳トリウム 229 イオンを使う。このトリウム 229 イオンは、エネルギーが 86 keV と高くそのままではトラップできないため、ヘリウムガスと衝突させ、エネルギーを数 eV に落とす。この低エネルギートリウム 229 イオンを、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取り出し、四重極イオンガイドで輸送し、トラップする。

トリウムイオンのレーザー冷却には、波長 1088 nm、690 nm、984 nm の 3 色のレーザー光源が必要である。本研究では、これら 3 色のレーザー光源の周波数を、外部参照用光共振器に安定化し、レーザー冷却に使用するための準備を完了した(研究成果 A)。

これと並行して、トリウム 229 を生成するウラン 233 線源を作成した。大口径電着装置を独自開発し、600 kBq のウラン 233 を、直径 9 cm のチタン薄膜に均一に電着した。作成した線源から出てくる放射線の強度を測定し、この線源の表面から毎秒 10^5 個程度という、本研究にとっては十分な量のトリウム 229 イオンが放出されていることを確認した(研究成果 B)。

研究成果 A のイオントラップ装置で、トリウム 232 同位体イオンをトラップした。トリウム 232 イオンの生成には、レーザーアブレーション法(パルスレーザーを固体に照射し、イオン化する方法)を用いた。トラップしたトリウム 232 イオンに、波長 402 nm の電子遷移に共鳴するレーザーを照射し、その発光信号を確認することで、イオンのレーザー分光を行った(研究成果 C)。

(2) 詳細

研究成果 A 「トリウムイオンのトラップ装置とレーザー冷却用光源の開発」

図1に、本研究で開発したトリウムイオントラップ装置を示す。装置は、左から順に

- ① トリウム 229 イオンの生成と取り出し
- ② イオンの輸送
- ③ トラップおよびレーザー分光

の3つの部分で構成されている。

まず①で、トリウム 229 イオンを用意する。トリウム 229 イオンは、ウラン 233 がアルファ崩壊する際に放出される反跳トリウム 229 イオンを使う。この反跳トリウム 229 イオンを、

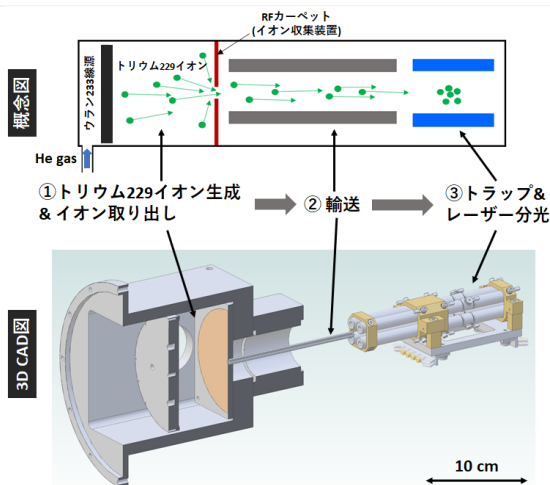


図 1:トリウムイオントラップ装置

ヘリウムガス(He gas)との衝突で減速し、RF(ラジオ波)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取り出す。RFカーペットとは、同心円状に配置された電極に RF 電圧を印加する

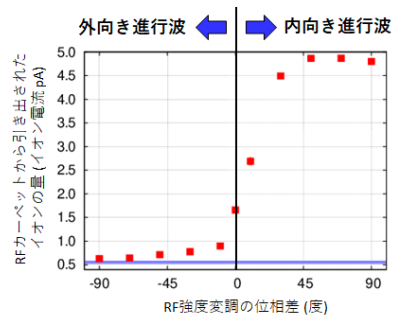
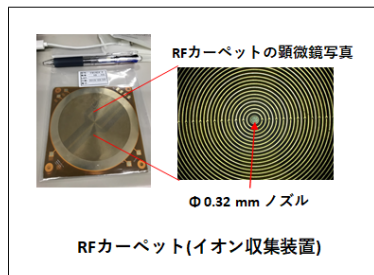


図 2: (左)RF カーペット (右) RF カーペットによるイオンの引き出し

ことで、電極基板表面にイオンに対するバリアポテンシャルを形成する装置である(図 2(左))。このとき、RF カーペットに印加する RF の振幅に強度変調をかけ、その変調の位相を電極ごとに調整すると、内向き(中心の穴に向かってイオンを集める向き)もしくは外向きの進行波ポテンシャルを作ることができる。この仕組みは RF サーフィンと呼ばれ、これによりイオンを中心の穴に輸送する。セシウムイオンを使い、RF カーペットの動作テストをした結果を図 2(右)に示す。横軸が RF 振幅変調の位相、縦軸がカーペットから取り出されたイオンの量を表す。位相がプラスのときは内向きの進行波(すなわちイオンを収集する向き)、マイナスのときは外向きの進行波である。図 2(右)に示すように、位相をプラスにするとイオンが引き出されていることを確認した。

次に②により、こうして取り出したイオンを、トラップ領域まで輸送する。輸送には、PCB 基板で作られた四重極イオンガイドを使用した。本研究では、さらにイオンを押し出す機構を追加するため、イオンガイドの入口から出口にむけて一定の電場勾配も印加できるセグメント型四重極イオンガイドを用いた。

最後に、こうして輸送されたイオンを③でトラップした。トラップの写真を図 3(上)に示す。トラップは、リニア型ポールトラップと呼ばれる 4 本の円柱型電極に RF と定電圧を印加する方式のトラップである。中心のトラップ電極と、それを両側から挟む入口・出口電極から構成される。入口と出口電極に電圧を印加することで、イオンに対してポテンシャル障壁を作り、イオンを中心のトラップ部分に捕獲する。②から輸送されるイオンをトラップ部分に蓄積し、イオンが十分たまったところで入口電極にも電圧を印加し、イオンをトラップ領域に閉じ込めた(トラップした)。トラップ寿命を見積もるため、動作テスト用のセシウムイオンを一定時間トラップした後、出口電極の電圧を下げてトラップを開放し、捕獲されていたイオンの数を計測した。結果を図 3(下)に示す。横軸がトラップ時間、縦軸が検出されたイオン数である。少なくとも 90 秒はイオンをトラップできていることが確認された。以上により、トリウム

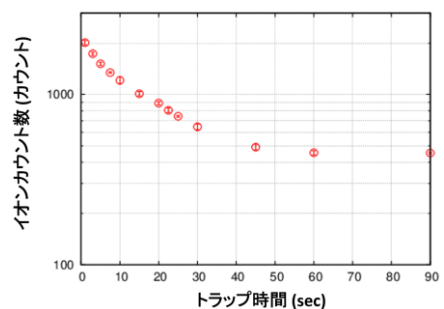
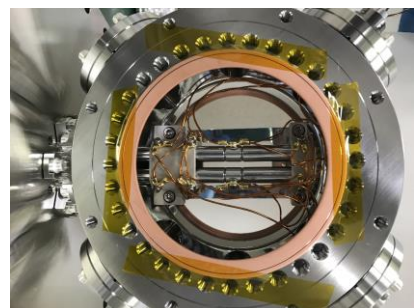


図 3: (上)本研究で開発したリニア型ポールトラップ。(下) 動作テスト用セシウムイオンを使用したトラップ寿命の測定。

229 イオンをトラップするために必要な、図 1 の①-③すべての装置を連動して動作させることに成功した。

イオントラップ装置の開発と並行して、トリウムイオンのレーザー冷却に必要なレーザー光源を開発した。レーザー冷却に必要な波長は、1088 nm、690 nm、984 nm の 3 色である。すべて

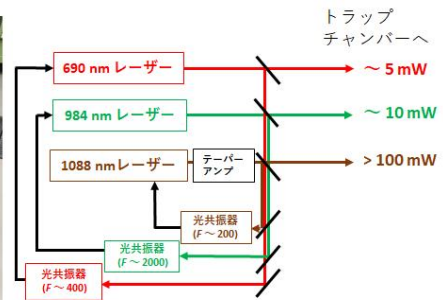
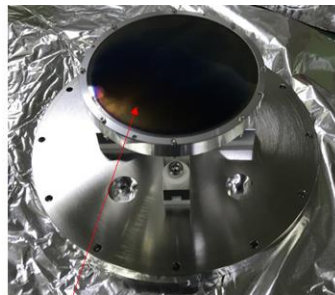


図 4: トリウムイオンレーザー冷却用光源。(左) 3 色すべてのレーザー光源が搭載された光源ステーション。(右)レーザー光源構成図。

市販の半導体レーザーを使った。図 4 に本研究で開発したレーザー光源を示す。それぞれの光源は外部共振器型半導体レーザーであるが、トリウムイオンをレーザー冷却するためには、これだけでは周波数の安定度が十分でない。そこで、外部に周波数参照用光共振器をそれぞれ追加で用意し、周波数安定化を行った。これら 3 つのレーザー周波数を、波長計を用いてトリウムイオンの共鳴周波数に安定化した。4 時間以上安定に動作し、レーザー冷却に使用できる性能が達成されていることを確認した。

研究成果 B 「トリウム 229 生成用のウラン 233 電着線源の作成と評価」

トリウム 229 イオン生成用のウラン 233 電着線源を作成した。研究成果 A で述べたように、トリウム 229 イオンは、ウラン 233 線源表面から放出される反跳イオンを利用する。本研究では、大口径電着装置を独自に開発し、600 kBq のウラン 233 を、直径 9 cm のチタン薄膜に均一に電着した(なお、直径 9cm の領域に電着する場合、これ以上ウラン 233 を増やして



チタン薄膜に電着されたウラン233

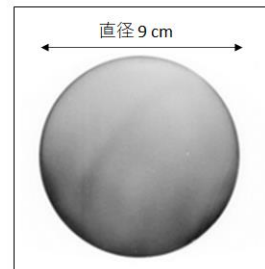


図 5: (左)作成したウラン 233 電着線源の写真。(右)線源のイメージングプレート画像。放射線の強い部分が黒く映るため、電着の均一性がわかる。

も、トリウム 229 がウラン 233 の厚みで止められ放出されないため意味がない)。図 5(左)は、作成したウラン 233 線源の写真である。図 5(右)は、そのイメージングプレート画像(放射線の強い部分が黒く映る写真)である。ウラン 233 がほぼ均一に電着されていることがわかる。この線源から出てくる放射線の強度を測定した結果、この線源の表面から、毎秒 10^5 個程度の、本研究にとっては十分な量のトリウム 229 イオンが放出されていると見積もられた。なお、このうち 2%(すなわち毎秒 2000 個程度)のトリウム 229 イオンは、原子核がアイソマー状態のイオンである。したがって、将来このアイソマー状態のイオンをトラップすることができれば、本装置を用いて、トリウム 229 のアイソマー状態の研究も可能になる。たとえば、アイソマー状態の寿命測定や、アイソマー状態から基底状態へ遷移する際に放出される光子のエネルギーを

測定することによる遷移エネルギーの精密測定など、「原子核時計」の研究にとって重要な測定が可能になる。

また、この手法でウラン 233 電着線源をもう1つ作成し、アイソマー状態の寿命を間接的に決める実験も行った。具体的には、ウラン 233 がトリウム 229 にアルファ崩壊する際に、カスケード的に放出されるアルファ線とガンマ線の同期測定を行い、トリウム 229 のアイソマー状態の寿命を $5.0(11) \times 10^3$ 秒と見積もった(原著論文 1)。アイソマー状態の寿命は、「原子核時計」で参照とする原子核遷移の遷移線幅を決める重要なパラメータである。

研究成果 C 「トリウム 232 イオンのトラップとレーザー分光」

トリウム 232 同位体イオンのトラップとレーザー分光を行った(トリウム 232 はトリウム 229 と違い、自然界に大量に存在し放射能も弱く、扱いやすい)。トリウム 232 の薄膜を図 1 の①領域に設置し、レーザーアブレーション法(パルスレーザーを固体に照射し、イオン化する方法)でイオン化した。生成されたトリウム 232 イオンを、イオンビームとして引き出し、輸送し、トラップした。

図 6(上)は、トリウム 232 イオンをトラップした後、トラップポテンシャルに強度変調をかけ、イオンのトラップ周波数を調べた(パラメトリック共鳴と呼ばれる)測定の結果である。横軸が、変調周波数、縦軸が変調後にトラップに残っていたイオンの数である。トリウム 232 イオンで期待される 185 kHz 付近にピークが観測され、トリウム 232 イオンがトラップされていることが確認された。

次に、トラップしたトリウム 232 イオンに、波長 402 nm の電子遷移に共鳴するレーザーを照射し、発光を光電子増倍管で観測した。レーザー周波数を共鳴付近で走査した際のスペクトルを図 6(下)に示す。スペクトル線幅は、899(6) MHz(半値全幅)であった。イオンの熱運動に起因するドップラー幅と考えると、イオン集団の温度は 660 K (= 0.06 eV) となる。トラップ初期のイオン集団の温度は 2-3 eV 程度であるため、バッファーガスにより室温に冷却されつつあるトリウムイオンを分光したものと考えられる(トラップのポテンシャル深さは 10 eV 程度である)。

以上の研究成果 A-C により、図 1 の装置で、「イオンの生成・輸送・トラップ・レーザー分光」のすべてを実証し、トリウム 229「原子核時計実現」にむけた基盤技術を確認した。

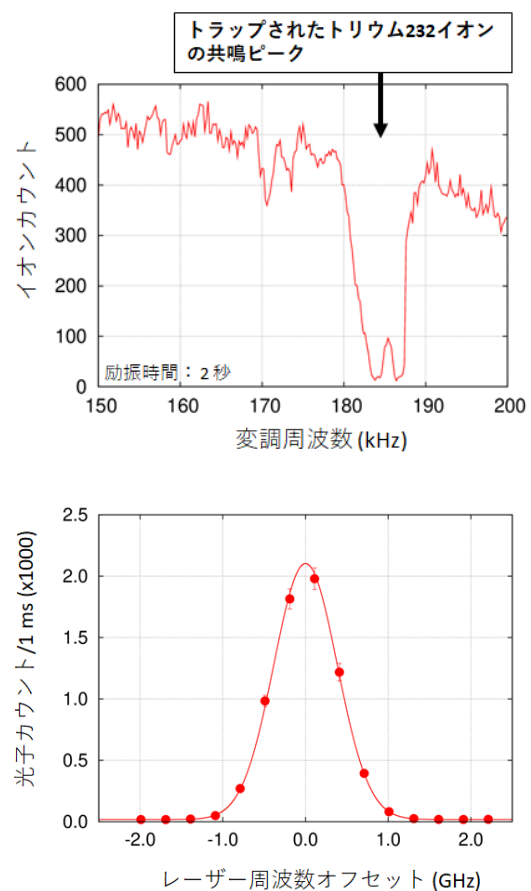


図 6: (上) トラップされたトリウム 232 イオンのトラップ周波数測定実験(パラメトリック共鳴)。(下) トリウムイオンの波長 402 nm 遷移のレーザー分光スペクトル。

3. 今後の展開

今後は、本研究で開発した技術を基盤として、トリウム 229「原子核時計」の実現に向け、トリウム 229 イオンのレーザー冷却を行う。そして、トリウム 229 イオンのレーザー分光に関連した様々な研究成果を創出したい。期待される成果は、例えば、アイソマー状態のトリウム 229 イオンのレーザー冷却、アイソマー状態のエネルギーおよび寿命の直接測定、同位体シフトやアイソマーシフトの測定によるトリウム原子核パラメータの超精密測定など、どれも関連分野に大きなインパクトを与えるものばかりである。本研究での成果を足がかりとして、今後 1-2 年のタイムスパンで、世界にさきがけてそのような実験を実施したい。

一方、トリウム 229「原子核時計」を実現するためには、原子核遷移を励起するため、波長 150 nm(真空紫外)のレーザーが不可欠である。真空紫外波長レーザーの作成方法としては、希ガスとパルスレーザーの非線形過程を利用する高次高調波発生(High Harmonic Generation)や、4 波混合、もしくは KBBF といった特殊な非線形結晶を用いた 2 倍波発生(Second Harmonic Generation)などが考えられる。今後 2-3 年で、そのような手法の最新の状況と原子核時計への適応性などを見極め、光源開発を早急に進めていく。

5-10 年後に「原子核時計」が実現されれば、様々な応用が考えられる。現在、光格子時計をはじめ様々な原子時計が開発されているが、それらの時計と比較した際の「原子核時計」の強みとして、(1)外場の影響を極めて受けにくいこと、周波数精度が高いこと、(2)物理定数の変化に対する感度が桁違いに高いこと、の 2 つが挙げられる。(1)の特性を活かし、トリウム 229 をドープした固体結晶を利用した全固体型原子核時計の研究を進めているグループもある。(2)は、基礎物理の分野に大きなインパクトを与える可能性のある応用である。原子核時計は、微細構造定数 α の変化に対する感度が、既存の原子時計の 1000 倍以上大きいと理論的に予測されている(P. Fadeev *et al.*, Phys. Rev. A, **102**, 052833 (2020))。宇宙膨張の加速を引き起こすダークエネルギーを説明しようとする近年の理論モデルでは、スカラー場が導入され、そのスカラー場の宇宙膨張による変化に応じて、物理定数が変化する可能性が指摘されている。すなわち、「原子核時計」を使って、桁違いに高い感度で物理定数の恒常性を検証できれば、宇宙膨張を説明する理論に強力な実験的証左を与え、宇宙進化に対する我々の理解に新たな知見をもたらすかもしれない。そして、「原子核時計」というテーブルトップサイズの装置による宇宙進化の解明という、新しい研究分野を創成する可能性も秘めている。

4. 自己評価

本研究では、トリウムイオンの「生成・輸送・トラップ・レーザー分光」という、「原子核時計」実現のために不可欠なすべての基盤技術を確立した。研究代表者は、バッファガス冷却、RF カーペット、四重極イオンガイド、リニア型ポールトラップといった要素技術を一つずつ習得し、すべてを連動して動作させることで、「原子核時計」実現のプラットフォームとして十分な性能をもつ本装置を構築した。個人型研究という枠組みで本研究を推進するにあたり、作業の効率化を強く意識して研究を推進した(達成目標に対する装置の適正な性能追求や納期を考慮した発注優先度の最適化など)。研究総括ならびにアドバイザーの先生方、イオントラップの知見が豊富な本領域の他の研究者の方々、所属する研究室のメンバーからの多数の有益な助言により、さらに加速して研究を推進することができた。

本研究をすすめる中で、「原子核時計」の強みの1つである、微細構造定数の変化に対する感度が極めて大きい点について、JAXA 宇宙科学研究所や国立天文台の宇宙物理学・天文学の専門家と定期的に議論をする機会を得た。宇宙の進化と物理定数の変化という新しい視点から、原子核時計の応用について理解を深めることができた。本研究をきっかけとして異分野の研究者とネットワークを築けたことは、今後「原子核時計」の研究をすすめるにあたり、大きな財産である。

5. 主な研究成果リスト

(1) 代表的な論文(原著論文)発表

研究期間累積件数: 3件

1. Y. Shigekawa, A. Yamaguchi, K. Suzuki, H. Haba, T. Hiraki, H. Kikunaga, T. Masuda, S. Nishimura, N. Sasao, A. Yoshimi, and K. Yoshimura, “Estimation of radiative half-life of ^{229m}Th by half-life measurement of other nuclear excited states in ^{229}Th ”, Phys. Rev. C **104**, 024306 (2021).

本研究ではトリウム 229 の励起状態の半減期を決定するため、ウラン 233 からの α 粒子と γ 線の同時計測を行った。得られた励起状態の半減期と Alaga 則に基づき、トリウム 229 アイソマー状態の放射性半減期を $5.0(11) \times 10^3$ 秒と実験的に見積もった。これは、今後のトリウム 229 原子核時計の開発において重要なパラメータの1つとなる。

(2) 特許出願

研究期間全出願件数: 0 件(特許公開前のもも含む)

(3) その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

A. Yamaguchi, Y. Shigekawa, H. Haba, M. Wada, and H. Katori

“Development of an RF-carpet gas cell to obtain a low-energy thorium ion beam”

Second Workshop of the Center for Time, Constants and Fundamental Symmetries (TCFS), Online, March 23, 2022.

A. Yamaguchi, Y. Shigekawa, H. Haba, M. Wada, and H. Katori

“Development of an RF-carpet gas cell to obtain an ion beam of thorium-229”

ViCPEAC2021, Online, July 21st, 2021.

増田 孝彦、吉見 彰洋、山口 敦史、吉村 浩司

“最小エネルギーを持つトリウム 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-“

日本物理学会誌 No.76, pp.456-461 (2021).

山口 敦史

「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」

第 17 回 原子・分子・光化学(AMO)討論会、オンライン、2021 年 6 月 18 日.

山口 敦史

“原子核時計の実現に向けて”

原子核研究 No.65, pp.23-33 (2020).

山口 敦史

「原子核時計実現に向けたトリウム 229 アイソマーエネルギーの測定」

2020年電子回路研究会 周波数精密計測とその応用 オンライン 2020年9月17日

Atsushi Yamaguchi

“Energy of the Th-229 nuclear clock isomer determined by absolute g-ray energy difference”

GIMRT-REMAS2020, Institute for Materials Research, Tohoku University (Online),
September 30th – October 3rd, 2020.

Atsushi Yamaguchi

“Prospects for optical nuclear clock”

Special lecture of RIIS, Okayama University, Okayama, Japan, December 14th, 2018.