

原子核時計実現に向けたトリウムイオンのレーザー冷却

Laser cooling of thorium ions toward a nuclear clock

(日本物理学会推薦)

代表研究者 理化学研究所 山口 敦史 RIKEN Atsushi YAMAGUCHI

Thorium-229 (^{229}Th) has an extremely low-energy nuclear-excited state called an isomer state ($^{229\text{m}}\text{Th}$). The energy of $^{229\text{m}}\text{Th}$ is estimated to be 8.3 eV. This energy is in the vacuum ultraviolet range, enabling high-resolution laser spectroscopy of the atomic nucleus. One of its applications is a nuclear clock: an atomic clock based on the resonance frequency of the transition between the nuclear ground and the isomer state of ^{229}Th . Laser cooling of ^{229}Th , which eliminates frequency fluctuations caused by the Doppler effect, is required to realize a nuclear clock. For the laser cooling of ^{229}Th ions, we performed trapping and laser spectroscopy of ^{229}Th ions. We also demonstrated the trapping of $^{229\text{m}}\text{Th}$ ions. Laser spectroscopy of trapped $^{229\text{m}}\text{Th}$ ions revealed hyperfine structures of electronic levels in $^{229\text{m}}\text{Th}$ which were key information for the future operation of the ^{229}Th nuclear clock.

研究目的

本研究の目的は、原子核時計の実現にむけて、真空中にトラップされたトリウム ^{229}Th イオンをレーザー冷却するための基盤技術を開発することである。

^{229}Th は、基底状態からわずか 8.3 eV と極めてエネルギーの低い原子核励起状態をもつ。この励起状態はアイソマー状態($^{229\text{m}}\text{Th}$)と呼ばれる。8.3 eV は、波長に換算すると 149 nm の真空紫外で、レーザーを作成することができる。すなわち ^{229}Th は、原子核基底状態とアイソマー状態の間の遷移を使って、原子核を直接レーザー分光できる、現在知られている中では唯一の元素である。この遷移の応用として注目されているのが「原子核時計」である。

原子核時計とは、原子核遷移の共鳴周波数を基準とする周波数標準（原子時計）である。今までに開発されてきた原子時計では、基準の遷移として原子の電子遷移が使われてきた。これに対し原子核の遷移を使うメリットは、原子核がまわりを電子殻に囲まれているため、電子遷移に比べて外部電磁場の影響を受けにくい点である。現在最先端の原子時計では 19 桁に迫る精度が達成されているが、原子核時計

ならより高い精度の周波数標準を実現できると期待されている。

原子核時計実現のためには、 ^{229}Th を真空中でトラップしレーザー冷却することで、その運動状態を制御することが必須である。なぜなら、もし ^{229}Th が動き回っていると、ドップラー効果により基準となる原子核遷移の共鳴周波数がずれてしまい、時計の基準として使えないからである。Th の場合、価数 3 の Th^{3+} イオンのみが、レーザー冷却に利用可能な電子遷移を持つ。したがって本研究では、原子核時計を実現するプラットフォームとして「 $^{229}\text{Th}^{3+}$ のイオントラップ」を使い、 $^{229}\text{Th}^{3+}$ イオンのレーザー冷却に必要な基盤技術を開発することを研究目的とする。

研究経過

$^{229}\text{Th}^{3+}$ のレーザー冷却の実現にむけて、本研究ではまず、① $^{229}\text{Th}^{3+}$ イオン源の作成、② $^{229}\text{Th}^{3+}$ イオントラップ装置の開発、そして③ $^{229}\text{Th}^{3+}$ のレーザー分光およびレーザー冷却実験に必要なレーザー装置の開発を行った。その結果、 $^{229}\text{Th}^{3+}$ イオンのトラップとレーザー分光に成功した(研究成果①)。さらに本研究では、原子核がアイソマー状態のイオン($^{229\text{m}}\text{Th}^{3+}$)の

トラップとレーザー分光にも世界で初めて成功し、 $^{229m}\text{Th}^{3+}$ のレーザー冷却にむけた道筋をつけた(研究成果②)。以下では、①—③の実験について詳細に説明した後、研究成果①②についてまとめる。

[実験①] $^{229}\text{Th}^{3+}$ イオン生成用の ^{233}U 電着線源の作成

まず、 $^{229}\text{Th}^{3+}$ イオン生成用のウラン ^{233}U 線源を作成した。 ^{233}U は半減期約 16 万年でアルファ崩壊し ^{229}Th になる。したがって、 ^{233}U を金属表面に用意しておく、その表面から放出される反跳イオンとして $^{229}\text{Th}^{3+}$ イオンが得られる。本研究では、600 kBq の ^{233}U を直径 9 cm のチタン薄膜に電着した。作成した線源から出てくる放射線の強度を測定した結果、この線源の表面から(本研究を遂行するには十分な量である)毎秒約 10^5 個程度の ^{229}Th イオンが放出されていると見積もられた。

[実験②] $^{229}\text{Th}^{3+}$ イオントラップ装置の開発

Fig. 1 に、本研究で開発した $^{229}\text{Th}^{3+}$ イオントラップ装置の概要図を示す。装置は、「 $^{229}\text{Th}^{3+}$ 生成部 (Ion preparation & extraction)」→「イオン輸送部 (Transport)」→「イオントラップ (Trap)」という 3 つの部分から構成されている。

まず、実験①で作成した ^{233}U 線源を「 $^{229}\text{Th}^{3+}$ 生成部」に設置した。線源表面から放出される ^{229}Th イオン(エネルギー 83 keV)をヘリウムガスと衝突させ、室温程度に衝突冷却した。こうして冷却した $^{229}\text{Th}^{3+}$ イオンを、RF(Radio Frequency, ラジオ波)カーペットと呼ばれるイオン収集装置で低エネルギー(数 eV)イオンビームとして取り出した。RF カーペットは 1

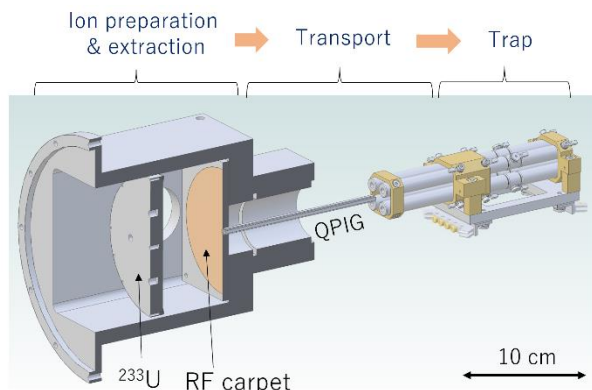


Fig.1 Ion trap system for $^{229}\text{Th}^{3+}$ for the research of the ^{229}Th nuclear clock.

辺 10 cm の正方形のプリント基板で、中心にイオンを取り出す穴(直径 0.34 mm)があいている。この穴を中心に同心円状に配置された円形電極に RF 電圧を印加することで、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ことができる。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)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しイオンビームとして取り出した。

本装置の重要な特徴の 1 つは、 ^{233}U 線源から放出される ^{229}Th イオンの 2%が、原子核がアイソマー状態のイオン $^{229m}\text{Th}^{3+}$ である点である。この 2%の $^{229m}\text{Th}^{3+}$ を使うと、原子核を励起せずとも、 $^{229m}\text{Th}^{3+}$ に関する実験的な研究を行うことができる。以下で述べるように、本研究ではこの $^{229m}\text{Th}^{3+}$ をトラップし、その電子準位の超微細構造を世界で初めて観測した。

[準備実験③] $^{229}\text{Th}^{3+}$ イオンレーザー分光用のレーザー光源の開発

$^{229}\text{Th}^{3+}$ イオンのレーザー分光およびレーザー冷却に必要なレーザーの波長は、690 nm、984 nm、1088 nm の 3 色である。本研究では、外部共振器型半導体レーザー装置を利用した。ただし、 $^{229}\text{Th}^{3+}$ イオンをレーザー分光するためには、これだけでは周波数の安定度が十分ではない。そこで、参照用光共振器をそれぞれ追加で用意し、さらなる周波数高安定化を行った。これらの周波数安定化機構は 1 日以上安定に動作し、レーザー分光およびレーザー冷却実験に使用できる性能が達成されていることを確認した。

考察

[研究成果①] Th- $^{229}\text{Th}^{3+}$ イオンのトラップ

Fig. 2 (Left)は、真空槽に設置されたイオントラップ装置の写真である。イオントラップは、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トラップである。中心のトラップ電極と、それを両側からはさむ入口・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、イオンを中心部分に捕獲した。Fig. 2 (Right)は、トラップされた $^{229}\text{Th}^{3+}$ イオンにレーザー光を照射して発光させ、その発光の様子を CCD カメラで観測した画像

である (CCD 画像中心の縦長の明るい部分が、トラップされた $^{229}\text{Th}^{3+}$ イオンからの発光)。図の写真の発光強度より見積もった結果、数千個の $^{229}\text{Th}^{3+}$ イオンがトラップされていると見積もられた。

$^{229}\text{Th}^{3+}$ のイオントラップに関しては、アメリカのグループによる先行研究が 1 つある。先行研究では、 $^{229}\text{Th}^{3+}$ イオンを生成するために、 ^{229}Th を蒸発乾固させた試料を真空槽に設置し、それをパルスレーザーでイオン化させるレーザーアブレーション法と呼ばれる手法が用いられた。 ^{229}Th は自然界には存在しない極めて貴重な元素である。そのような貴重な元素をパルスレーザーで吹き飛ばしてしまうレーザーアブレーション法は、実験を長期にわたって継続するという視点からはあまり望ましくない。またレーザーアブレーション法では、対象のイオン以外にも試料基板材料由来のイオンなど多数の不純物イオンが同時に生成され超高真空が汚されてしまう。本研究の ^{233}U (半減期 16 万年) を使用する手法ならば、半永久的に $^{229}\text{Th}^{3+}$ が安定して常時供給され、真空も汚さない。したがって本研究により、長期にわたり安定して ^{229}Th 原子核時計の研究を遂行できるプラットフォームが実現できたと言える。

[研究成果②] $^{229\text{m}}\text{Th}^{3+}$ イオンのトラップとレーザー分光

上記でも述べたように、 ^{233}U がアルファ崩壊すると、2% の分岐比で $^{229\text{m}}\text{Th}^{3+}$ が生成される。この $^{229\text{m}}\text{Th}^{3+}$ をレーザー分光できれば、原子をレーザーで直接励起しなくとも、 $^{229\text{m}}\text{Th}^{3+}$ の性質を実験的に調べることができる。

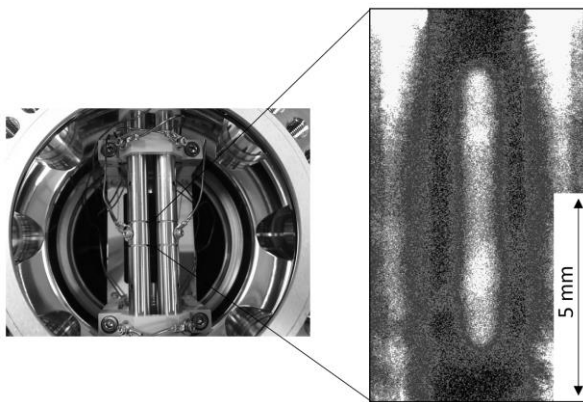


Fig.2 (Left) Picture of a linear Paul trap for trapping of $^{229}\text{Th}^{3+}$ ions. (Right) A CCD Image of trapped $^{229}\text{Th}^{3+}$ ions (bright vertical part of the center).

$^{229\text{m}}\text{Th}^{3+}$ を観測するためには、残り 98% の原子核基底状態 ($^{229\text{g}}\text{Th}^{3+}$) イオンと $^{229\text{m}}\text{Th}^{3+}$ を区別して検出する必要がある。その手法として、本研究では、イオンを発光させるために使っている $^{229}\text{Th}^{3+}$ の電子遷移の共鳴周波数が $^{229\text{g}}\text{Th}^{3+}$ と $^{229\text{m}}\text{Th}^{3+}$ でわずかに異なる点に着目し、両者を選択的に発光させて観測する独自のレーザー分光手法を開発した。Fig. 3 は、この手法を利用して $^{229\text{m}}\text{Th}^{3+}$ のイオンだけを選択的に発光させ、その電子遷移の 1 つをレーザー分光した結果である。

Fig. 3 のスペクトルにより、世界で初めて $^{229\text{m}}\text{Th}^{3+}$ のトラップに成功したことが確認された。さらに、観測されたピークの共鳴周波数から、 $^{229\text{m}}\text{Th}^{3+}$ の超微細構造係数を決定した。超微細構造係数とは、 $^{229\text{m}}\text{Th}$ の原子核の磁気双極子モーメントおよび電気四重極子モーメントの大きさを反映して、どのくらい電子準位が分裂しているかの大きさを表す係数である。将来 $^{229\text{m}}\text{Th}^{3+}$ のレーザー分光やレーザー冷却の実験を行う際には、この超微細構造係数の値をもとに使用するレーザーの周波数を決定する。したがって、本研究成果は、将来の $^{229\text{m}}\text{Th}^{3+}$ のさらなる精密レーザー分光への道を開く重要な成果である。

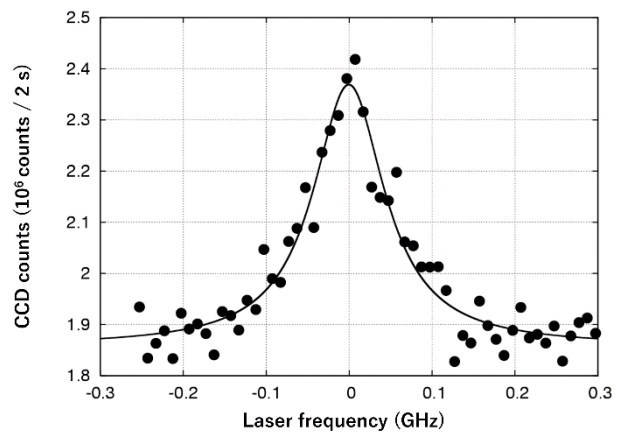


Fig.3 Laser spectroscopy of one of the hyperfine transitions in $^{229\text{m}}\text{Th}^{3+}$. The spectrum was fitted with a Lorentzian function to determine the center frequency of the observed peak. The center frequency contains information of hyperfine constants of $^{229\text{m}}\text{Th}^{3+}$ that were key for the operation of the ^{229}Th nuclear clock.

研究の発表

口頭発表

1. 山口敦史, 「Th-229 原子核時計: TES 型マイクロカロリメータを使った Th-229 アイソマーエネルギーの測定と最近の展開」, 2022 年度九州大学・宇宙科学研究所 研究連絡会 九州大学 伊都キャンパス 2023 年 2 月 28 日.
2. (招待講演) 山口敦史, 重河優大, 羽場宏光, 和田道治, 香取秀俊, 「原子核時計実現にむけたトリウムイオンのトラップとレーザー分光」, レーザー学会学術講演会 第 43 会年次大会 ウィンクあいち 2023 年 1 月 19 日.
3. A. Yamaguchi, “An optical nuclear clock”, Virtual Humboldt Colloquium, “Top Global Research” and the Humboldt network: New Frontiers of German-Japanese Scientific Cooperation, Online, November 17-18, 2022.
4. 山口敦史, 重河優大, 羽場宏光, 和田道治, 香取秀俊, 「原子核時計実現にむけたトリウムイオントラップ装置の開発」, 日本物理学会 2022 年秋季大会 東京工業大学 2022 年 9 月 15 日.
5. (招待講演) A. Yamaguchi, Y. Shigekawa, H. Haba, M. Wada, and H. Katori, “Laser spectroscopy of triply charged thorium ions towards a nuclear clock”, 2022 URSI-Japan Radio Science Meeting, Tokyo, September 1st, 2022.
6. 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.
7. 重河優大, 床井健運, 山口敦史, Wang Yang, Yin Xiaojie, 南部明弘, 佐藤望, 和田道治, 羽場宏光, 「Th-229m の壊変特性の解明に向けた高周波イオン収集・質量分離装置の開発」, 日本放射化学学会第 65 回討論会 オンライン 2021 年 9 月 22-24 日.
8. 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・光科学(AMO)討論会 オンライン 2021 年 6 月 18 日.
9. (招待講演) 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 21, 2021.

誌上発表

1. Y. Shigekawa, *et al.*, Estimation of radiative half-life of $^{229\text{m}}\text{Th}$ by half-life measurement of other nuclear excited states in ^{229}Th , Phys. Rev. C **104**, 024306 (2021).
2. 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 (2021).