

## $^{176}\text{Lu}$ 半減期を正確に測定



早川 岳人\*1  
Hayakawa Takehito



静間 俊行\*1  
Shizuma Toshiyuki



飯塚 毅\*2  
Iizuka Tsuyoshi

### 1 始めに

数十万年以上の半減期を有する放射性同位体は、宇宙惑星科学や宇宙核物理学等の分野において、ある現象が発生した年代の計測に用いられているため、宇宙核時計と呼ばれる場合がある。特に数億年から数百億年の半減期を有する放射性同位体は、年代の絶対値計測に用いられている。近年の誘導結合プラズマ質量分析法（ICP-MS）等の元素の同位体の精密分析技術の発達によって、1/10000 程度の精度で同位体組成の計測が可能になった。そのため、親核と娘核の量から、宇宙核時計が含まれている隕石や岩石が形成された年代や、そもそも親核が太陽系形成以前にある恒星の中で生成された年代の測定に使うことができる。そのような長寿命放射性同位体の1つがルテチウム 176 ( $^{176}\text{Lu}$ ) である<sup>1)</sup>。 $^{176}\text{Lu}$  は約 400 億年の半減期で  $\beta$  崩壊して、娘核のハフニウム 176 ( $^{176}\text{Hf}$ ) に壊変される (図 1)。隕石や鉱物等の試料中の  $^{176}\text{Lu}$  と  $^{176}\text{Hf}$  の量を計測することで年代測定に使用可能なことは古くから知られていた。特に、 $^{176}\text{Lu}$ - $^{176}\text{Hf}$  システムは、地球、月、火星等の太陽系内の様々な天体において、マグマから地殻とマントルが形成された年代を評価するのに適していることが知られていた。

宇宙核時計を用いる場合に最も重要な物理量は、親核の半減期である。しかし、2000 年以降の研究によって、 $^{176}\text{Lu}$  の半減期に大きな 2 つの問題が見つかった。 $^{176}\text{Lu}$  の半減期は 1960 年代以降だけでも

20 以上の研究グループによって計測されていた。しかし、その値は約 350 億年から 410 億年と幅を持っているため、年代測定に用いても年代が良く定まらないという問題があった。それぞれの報告された半減期の値は十分に小さい誤差を持つが、代表値が誤差の範囲を大きく超えて異なっているという状況であった。このような状況であったが、 $^{176}\text{Lu}$  を用いて年代計測研究を行いたい宇宙惑星科学・地球惑星科学の専門家は、原子核物理学の手法で計測された半減期を信用せずに、自分達自身で宇宙惑星科学的な手法であるアイソクロン法による  $^{176}\text{Lu}$  の半減期の計測を行った。この手法では、最初に  $^{238}\text{U}$  と  $^{235}\text{U}$

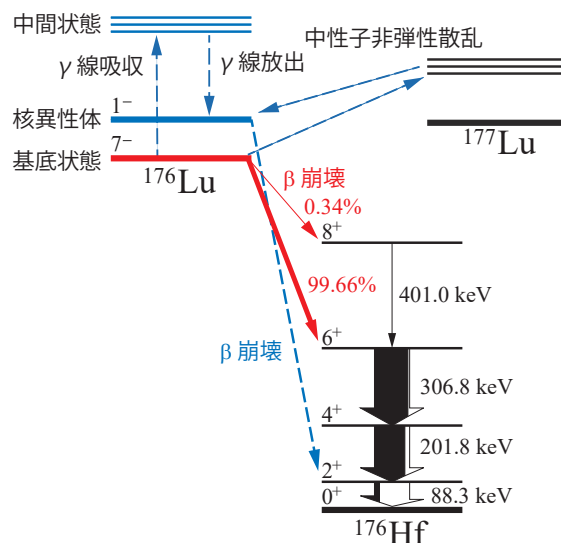


図 1  $^{176}\text{Lu}$  の崩壊図

の $\alpha$ 崩壊によるPb同位体の量の変化を精密に計測することで試料の形成された年代を計測する。次に、この試料からLuとHf元素を化学処理によって抽出し、それぞれの同位体組成をICP-MS等の質量分析装置を用いて精密に計測する。これらの量から、 $^{176}\text{Lu}$ の半減期を求めることができる。この手法では、試料の固体差があるため複数の試料を分析する必要があるが、それぞれの試料におけるHfやLuの初期の同位体組成が均一であるとの仮定が必要である。また試料が形成されてから現在まで、LuとHfの元素が試料から流出したり新たに流入したりしていないとの前提が必要である。更に、この手法では $^{238}\text{U}$ の半減期の値を基準にしているため、原理的に $^{238}\text{U}$ の半減期の精度を超えることができない。アイソクロン法で $^{176}\text{Lu}$ の半減期を計測した結果、地球岩石や一部の隕石で概ね一致した約372億年の半減期が得られたが、別の隕石からは系統的にずれた約350億年の半減期が得られた。この2系統の半減期の問題は今なお解決されていないが、初期太陽系で半減期が異なって見えるようになる何かしらの現象が発生したことを示唆している。この問題を解決するためには、まず $^{176}\text{Lu}$ の半減期の真の値を求める必要があった。

一般に、長寿命の放射性同位体の半減期計測には、質量が判明している試料から一定時間に放出される放射線の数の計測によって、崩壊率を計測する手法が行われている。半減期は崩壊率の逆数に比例するので簡単に求めることができる。従来の計測方法を調べたところ、大きく4種類に分類できることが分かった。まず、1番目の手法は単体の $\gamma$ 線検出器で $^{176}\text{Lu}$ の $\beta$ 崩壊に続いて放出される $\gamma$ 線を計測する手法である。放出される $\gamma$ 線のエネルギーは200~300 keVであるため(図1)、 $\gamma$ 線の検出は容易である。なお、この手法では検出器の検出効率の校正が必要であり、放射能の値が分かっている標準線源を用いて校正が一般に行われている。しかし、校正による誤差が最終的に得られる半減期の誤差に影響するだけでなく、校正そのものが大きく違っている可能性がある。また、 $\beta$ 崩壊1回当たりの $\gamma$ 線放出確率の校正が必要であるが、この値は過去の実験で計測されたものであり誤差を持つ。2番目の手法として、2台以上の $\gamma$ 線検出器を用いた $\gamma$ - $\gamma$ 同時計数や、サムピーク法が挙げられる。これらの手法では、検出

効率の校正が簡便になるという利点がある。ただし、 $^{176}\text{Lu}$ のように1回の $\beta$ 崩壊で3本以上の $\gamma$ 線が放出される場合には、1台の検出器に2本や3本の $\gamma$ 線が同時に入る確率の補正が必要であり、また、2本の $\gamma$ 線の放出角度の相関による補正も必要である。3番目の方法として、試料を液体シンチレータに溶かして、光電子増倍管で $\beta$ 線を計測する手法があげられる。この手法でも、 $^3\text{H}$ 等の標準試料を用いた検出効率の校正が必要である。4番目の手法は、既に説明した隕石・岩石に対するアイソクロン法であり、この手法が有効であるためには前提条件が満たされている必要がある。

## 2 本実験手法

このような状況で、どのように $^{176}\text{Lu}$ の半減期の真の値を測定するのが問題であった。仮に、従来の手法の1つを用いて非常に精度良く計測したとしても、それは新しい測定点を増やすのみであり、真の値はなんであるか?という問いに答えを与えるのは難しい。そこで、従来の測定法の問題点(つまり、誤差の要因)を回避できる新しい実験手法で $^{176}\text{Lu}$ の半減期を計測することにした<sup>2)</sup>。

本研究では窓無し<sup>3)</sup>の4 $\pi$ 型検出器を用いることにした。図2のように放射線検出器の内部にLu試料を設置して、どの方向に放射線が放出されても検知する手法である。理想的には検出効率がほぼ100%になるために、検出効率の補正が不要になるという長所がある。更に、低エネルギーの $\beta$ 線及び内部転換電子の検出効率を上げるために窓無し<sup>4)</sup>の検出器とした。そのため、吸湿性(潮解性)がない結晶が必要であり、200~300 keVのエネルギーの $\gamma$ 線の検出効率を上げるために、大きな原子番号を持つ物

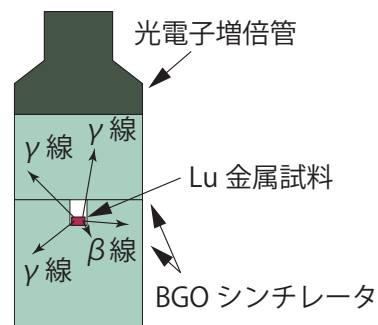


図2 検出器の概念図

質を含むシンチレーション結晶が必要であった。これらの条件を満たすものとして、ゲルマニウム酸ビスマス (BGO) シンチレータを選択した。原子番号 83 のビスマスを含むために高い検出効率を得ることができ、吸湿性もない。 $^{176}\text{Lu}$  の  $\beta$  崩壊では、**図 1** に示したように必ず  $\beta$  線と 3 本以上の  $\gamma$  線 (ないし内部転換電子) が放出される。そのため、 $4\pi$  型の検出器では複数の放射線が同時に検知されるため、高い確率でサムピークを形成する。測定された全エネルギーが 30 keV 以上の場合に、 $^{176}\text{Lu}$  の崩壊事象として数を数えた。このエネルギーの下限値は  $^{133}\text{Ba}$  標準線源を検出器内部に入れ、約 31 keV の Ba の X 線を測定することで確認した。

この検出器は原理的には検出効率の影響をほとんど受けないが、その確認のためにモンテカルロ型シミュレーションコード PHITS を用いて検出効率を計算した。一般に  $\gamma$  線が入射した場合、検出器内部で  $\gamma$  線がコンプトン散乱を発生させ、入射エネルギーの大部分を持った散乱  $\gamma$  線が検出器の外に逃げる可能性がある。その場合でも、コンプトン散乱で反跳した電子のエネルギーが 30 keV 以上の場合には検知するとした。 $^{176}\text{Lu}$  から  $\beta$  線や内部転換電子として電子が放出される。電子の場合、試料内部や検出器内部の空気エネルギーを失う可能性があるため、やはりシンチレーション結晶に 30 keV 以上のエネルギーを落とす場合を検知とした。それぞれの  $\gamma$  線と内部転換電子について検出確率を求め、最終的に  $^{176}\text{Lu}$  の 1 崩壊当たりの検知する確率を求めた。かなり高い検出効率になったが、実際の評価には余裕を持たせて  $99.9\pm 0.1\%$  の値を採用した。

BGO シンチレーション結晶には半減期が約 32 年の  $^{207}\text{Bi}$  が含まれているが、Lu 試料を内部に入れた場合と入れない場合の測定の差分をとることで、対処した。また、鉛ブロックには福島第一原子力発電所由来と推定される  $^{137}\text{Cs}$  の汚染があったため、組みなおした。

本研究では、同位体濃縮した  $^{176}\text{Lu}$  試料ではなく、天然の Lu 試料を用いた。同位体濃縮試料の濃縮度の精度より、計測されている天然の Lu の同位体組成の方が高精度であるためである。本測定法では、Lu 試料中に含まれる  $^{176}\text{Lu}$  以外の長寿命の放射性同位体がバックグラウンドを形成する可能性がある。そのため、実験に用いた Lu 金属と同じロットの試

料を ICP-MS で測定し、長寿命放射性同位体の含有量 (あるいは上限値) を計測した結果、それらの影響は無視できることが分かった。

約 150 mg の天然の Lu 金属板を入れた BGO 検出器を組み立て、厚さ 15 mm の銅板と約 15 cm の鉛ブロックで遮蔽した。Lu 試料を内部に入れた場合の測定と、入れていない場合の測定を、それぞれ 48 時間ずつ計測を行い、引き算することで Lu 試料からのスペクトルを得た。なお、試料は 2 個用意してそれぞれ独立に計測した。測定下限エネルギーである 30 keV から理論的に可能な最大エネルギーの範囲の計測数を数え、検出効率 (前述のように  $99.9\pm 0.1\%$ ) や同位体組成等の補正を行って崩壊数を求め、半減期に直した。最終的に得られた半減期は 371.9 億年であり、誤差は系統誤差も含めて 0.7 億年であった。

本測定法は、従来の実験手法と比較していくつかの利点がある。まず、 $99.9\pm 0.1\%$  の検出効率を持つため、検出効率の誤差の影響が非常に小さい点である。また、標準線源を校正に用いていないので標準線源の誤差は影響しない。更に、エネルギースペクトルの解析を行っていないので、解析による誤差の影響を受けない。前述したように原子核構造に不確定性があるが、本手法は影響を受けない。アイソクロン分析による半減期測定の前条件である試料の均一性や保持性とは全く関係ない。このように、本手法は従来の実験の問題点を解決した実験手法であるため、最も確からしさが高い、つまり真の値に最も近いと結論できる。長年に渡る  $^{176}\text{Lu}$  の半減期の矛盾問題を解決するものと言える。なお、いくつかの過去の実験値とは誤差の範囲で一致しているが、実験手法に何かしらの共通性はなかった。

### 3 隕石による加速崩壊の可能性

前述したように、隕石・地球岩石から計測された半減期は 2 系統の値を持つ。このうち、本成果は地球岩石から求められた値と誤差の範囲で一致した。ユークライトやアングライトと呼ばれる隕石から得られたもう一方の半減期は、見かけ上短くなっていることを意味している。これまで、惑星宇宙科学者によって短くなる場合の仮説が提唱されていた。まず、太陽系形成前に太陽系近傍で超新星爆発等の天

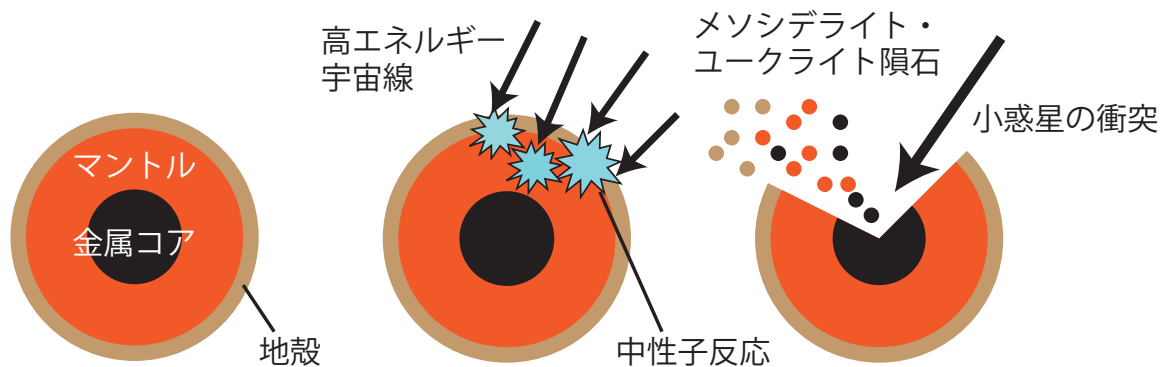


図3 小惑星ヴェスタにおける宇宙線照射とメソシデライト隕石形成の模式図

体現象があり、そこで Hf が生成され原始太陽系に不均一に混ざった可能性である。仮に、 $^{176}\text{Lu}$  の初期値が高ければ、見かけ上半減期が短く見える。しかし、いくつかの隕石で Hf の同位体組成の精密測定が行われたが、そのような痕跡が見つかっていない。2つ目の可能性として、Hf より Lu の方が水に溶けやすいため、隕石が地上に落下した後に雨や川のために隕石から Lu が多く溶け出した可能性である。ただ、その証明は困難である。3つ目の可能性として、太陽系形成の初期に高エネルギー $\gamma$ 線が局部的に照射され、 $^{176}\text{Lu}$  が高励起状態を経由して半減期約 3.7 時間の核異性体に遷移した可能性が指摘されている (図 1)。これを崩壊加速と呼ぶ。 $^{176}\text{Lu}$  が崩壊加速した場合、 $^{175}\text{Lu}$  に対して  $^{176}\text{Lu}$  の同位体量が有意に減るはずである。そのため、Lu の同位体組成の精密測定が行われたが、減少が確認されず  $\gamma$  線による崩壊加速の可能性は否定された。そこで、筆者らは高エネルギー宇宙線で生成された高エネルギー中性子による崩壊加速の可能性を提唱した。図 1 に示すように、高エネルギー中性子が  $^{176}\text{Lu}$  に入射すると、一次的に  $^{177}\text{Lu}$  の励起状態を形成し、一部が中性子を放出して  $^{176}\text{Lu}$  の核異性体を生成する。核異性体は続けて  $\beta$  崩壊して崩壊加速が発生する。この場合、 $^{175}\text{Lu}$  から  $^{176}\text{Lu}$  が生成されるので  $^{176}\text{Lu}$  の量は減らないため、既存の測定結果と矛

盾しない。メソシデライトと呼ばれる隕石中の Hf の同位体分析によって、メソシデライトの母天体で中性子の照射があったことが判明している<sup>3)</sup>。メソシデライトは小惑星ヴェスタから飛来したと考えられており、 $^{176}\text{Lu}$  の短い半減期が測定された隕石のユークライトも、やはりヴェスタから飛来したと考えられている。著者らは、ヴェスタ及びアングライトの母天体で宇宙線中性子による崩壊加速が発生した可能性を考えている (図 3)。

$^{176}\text{Lu}$  の短い半減期の他の可能性の 1 つが、地球上に落下した後に雨に晒されて Lu が溶け出した可能性である。そこで、地球に落下したことがない小惑星リュウグウの分析が期待される。はやぶサ 2 で回収されたりュウグウの試料の Hf と Lu の同位体組成の分析が進んでおり、近い将来、結果が出ることを期待されている。このように、 $^{176}\text{Lu}$  の半減期の精密測定は、初期太陽系で発生した事象の解明にもつながる。

## 参考文献

- 1) J. D. Vervoort, *et al.*, *Nature*, **379**, 624 (1996)
- 2) T. Hayakawa, *et al.*, *Communications Physics*, **6**, 299 (2023)
- 3) P. Sprung, *et al.*, *Earth Planet. Sci. Lett.*, **295**, 1 (2010)

(\*1 量子科学技術研究開発機構, \*2 東京大学)