



Title	天然存在の ^{176}Lu および ^{180}Ta の壊変
Author(s)	坂本, 浩
Citation	大阪大学, 1967, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/29407
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed 大阪大学の博士論文について

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

氏名・(本籍)	坂 本 浩
学位の種類	理 学 博 士
学位記番号	第 1303 号
学位授与の日付	昭和 42 年 12 月 21 日
学位授与の要件	学位規則第 5 条第 2 項該当
学位論文名	天然存在の ^{176}Lu および ^{180}Ta の壊変
論文審査委員	(主査) 教授 音在 清輝 (副査) 教授 緒方 惟一 教授 池田 重良 教授 小泉 光恵

論文内容の要旨

宇宙や地球の歴史を知る手掛り、あるいはより直接的に地質学における情報源と云う観点から、過去数年に亘り他の協同研究者らと共に、天然に存在する放射性核種を見出すとか核データを確立する、さらにその応用性を検討するといくつかの研究を行なってきた。これに関連して、さらに高感度の放射線測定装置を研究し、その中のガンマ線装置を完成した。^{1~4)}

そこで、本装置を使い、上記と同様の見地から、すなわち、岩石の年代測定に有用と思われる核種の一つである ^{176}Lu の壊変を調べ、そのために最も重要な壊変定数の決定を試みた。また、放射性であることが予測されながら未だ確認されていない ^{180}Ta について、壊変図式を新しく予測し、それに伴うガンマ線の検出を行ない、半減期を導出した。

^{176}Lu については、過去 30 年に亘り数多くの人々によって研究され、半減期の値だけでも 12 の報告がみられるが、その結果は大きく異り、 2.1×10^{10} 年から 7.3×10^{10} 年にわたる値が与えられている(第 1 表)。これは長寿命核種の測定に特有の事情であり、測定の難しさを物語るものである。そこで、以下述べるように、放射化学的に十分純度よい試料を用い、十分に感度よい測定装置で、 ^{176}Lu の壊変に特有の、かつ補正の少ない単純な方法で測定を行ない、信頼できる値を導出するよう努力した。このようにして、 ^{176}Lu の半減期は、 $(5.0 \pm 0.3) \times 10^{10}$ 年と決定された。

この半減期の値は、稀土類鉱物等岩石の年代測定への応用の面からみると、適当な大きさである。一般に、放射性同位体を用いる年代測定学は、同位体地球化学の主要な内容の一つとなつておる、絶対編年を行なうというユニークな特徴を持っている。そのために、既にいくつかの天然存在の放射性同位体が利用されているが、それぞれ利点と共にまた問題点をも含んでいる。そのため、これらに相補的であると共に、さらに対象範囲を拡大するために新しい同位体の利用も望まれている。本研究では、 ^{176}Lu の壊変定数が決定されたのを機会に、これを用いて実際に年代測定を行なう際、本研究で

用いたような高感度測定装置によれば放射能測定のみで可能であろうことを考察し、一方法として提案した。

^{180}Ta に関しては、今までに、古い Ta 鉱物中の ^{180}Hf あるいは ^{180}W の量から、あるいはまた Ta からの X 線の測定から、その壊変性を調べる試みがあったが、結果は否定的で、半減期は下限値しか与えられていない（第 2 表）。 ^{180}Ta は、 ^{176}Lu などと同様に天然に存在する奇核（中性子数、陽子数共に奇数）の 1 つで、原子核の安定性の規則から当然放射性であることが考えられる。実際、両隣りの偶核に対して、0.81 MeV (Q_{EC})、および 0.52 MeV (Q_{β-}) の高い質量差をもつ。また、systematics から、 ^{180}Ta の spin-parity は $8+$ と推定される。そこで、 ^{180}Ta は、軌道電子捕獲により ^{180}Hf の 641 keV $6+$ の、 β^- 線放出により ^{180}W の 336 keV $4+$ の準位へ転移することが考えられる。本研究では、特に前者の転移に伴う 332 keV-216 keV の cascade γ 線を、高感度測定装置を用いて探索し、天然の ^{180}Ta が放射性であることを確かめ、半減期が軌道電子捕獲の分岐について $\gtrsim (1.5 \pm 0.5) \times 10^{13}$ 年であること、を結論した。

^{176}Lu の測定：

(i) 測定原理、 ^{176}Lu は β^- 壊変を行ない、引続き単純な cascade γ 転移 ($310 \rightarrow 202 \rightarrow 88.4$ keV) が伴われる（第 1 図）。このことから、 γ 線の sum peak 法⁷⁾ による絶対測定を行なうこととした。今、310 keV と 202 keV の光電ピーク、およびこれらの sum peak ($310+202$ keV) での計数率を、 N_3 、 N_2 および N_s とすると、壊変速度 N は

$$N = N_s (N_2/N_s + 1/f_3) (N_2/N_s + 1/f_2)$$

で表わされる。ここで、 f_3 と f_2 は光全比である。なお、88.4 keV γ は内部転換率 $e/\gamma = 5.8$ であるから、これに伴う X 線の影響を別とすれば、その存在は問題にならない（第 3 表）。

(ii) 測定試料、市販特級の Lu_2O_3 (Johnson Matthey, J. M. と略す、および和光純薬製) の中、1.0366 g (J. M.) を 5 mm ϕ に丸めて point source の形に、1.6670 g (J. M. と和光) を精製した HgO の 60 g に混ぜて $0.3\text{ cm} \times 8.0\text{ cm} \times 8.0\text{ cm}$ の plate source の形にした。バックグラウンドの測定のためには、同形の精製 HgO を用いた。 Lu_2O_3 の純度は、発光分析の結果による他、いくつかの測定条件で得た γ 線スペクトルを詳細に検討し、十分であることを確認した。

(iii) 測定装置、はじめに述べた装置（東大核研鋸山微弱放射能測定孔に設置の極微ガム線測定装置）によった。検出器は、低バックグラウンド用 $3'' \times 3''$ $\text{NaI}(\text{Tl})$ 結晶の 2 組、A, B を、また point source 用に $1\frac{3}{4}'' \times 2''$ 井戸型 $\text{NaI}(\text{Tl})$ 結晶を用いた。^{5), 6)}

(iv) 測定結果、 ^{176}Lu の γ 線相和スペクトル、sum spect の 1 例を、第 2 図に示す。また第 3 図にバックグラウンドスペクトルの例を示す。第 2 図の点線は、各成分スペクトルで、次のようにして求めた。すなわち、試料と同じ形の ^{22}Na の γ 線源で得たスペクトル、および ^{176}Lu 自身の低立体角で得た単一結晶 (single) および同時計数 (coincidence) スペクトルから、310 keV, 202 keV および 510 (=310+202) keV の応答関数を作成し、 ^{176}Lu の相和スペクトルを剥離法で分解した。さらにこれから各 N_3 、 N_2 および N_s を、ガウス分布を仮定して算出した。 f_3 と f_2 も応答関数から求めた。結果を第 3 表に纏めて示す。各誤差は、計数の統計、応答関数の不確さ、および f_i の誤差を考慮して求めた。半減期の値は、 ^{176}Lu の存在比 2.59 % を用いて算出し、結局、全実験を平均して、

$(5.0 \pm 0.3) \times 10^{10}$ 年と決定した。

(v) 結果の検討、上で得た $(5.0 \pm 0.3) \times 10^{10}$ 年は、 β^- 分岐から求めた値である。電子捕獲の分岐は、今まで多くの人が探索したが、結果は否定的であった。最近の核反応のデータから ^{176}Lu は、 ^{176}Yb に比べてエネルギー差は極めて僅かである。また、転移のスピン差は非常に大きい ($\Delta I = 7$)。従って、この分岐は無視できる。

第1表に示したように、本研究で得られた値は、他の人々による値とかなり異っている。中でも、原理的に同じ方法で得られた McNair の値は約 1/1.5 短い。⁸⁾ これは、主として、 Lu_2O_3 試料の純度の差によるのではないかと考えられる。

(vi) 年代測定への応用、 ^{176}Lu の半減期が確定したことから、岩石中の $^{176}\text{Hf}/^{176}\text{Lu}$ を測定して、その岩石の年令を決めることができる。たとえば、ガドリン石で Lu_2O_3 が 0.191%， HfO_2 が $3.12 \times 10^{-4}\%$ 、ユーグセン石では Lu_2O_3 が 0.372%， HfO_2 が 0.45% 含まれている。そこで、 ^{176}Lu の定量は、本研究で用いた γ 線装置によれば極めて容易である。たとえば、同時計数法を行なうと、 $0.001\text{mg-Lu}_2\text{O}_3/\text{g}$ ($7.8 \times 10^{13} - 176\text{Lu}$ atoms)-sample、までの定量が可能である。他方、 ^{176}Hf の定量は放射化法も可能である。中性子で放射化した通常の Hf と試料からの Hf では、 ^{180m}Hf または ^{181}Hf の比放射能は、radiogenic ^{176}Hf の分だけ異なるはずである。たとえば、ガドリン石では、 $^{176}\text{Hf/Hf} = 44.9\%$ 、普通の Hf では $^{176}\text{Hf/Hf} = 5.15\%$ である。因に、この石の年令は、 1.7×10^9 年である。

^{180}Ta の測定：

(i) 測定原理、 $\text{NaI}(\text{TI})$ 結晶を検出器とし、 γ 線スペクトルを測定して、予想される γ 線の存在を確認しようとした。さらに、その cascade 関係を $\gamma-\gamma$ 同時計数法（第4図）によって確めた。

(ii) 測定試料、予備測定の結果、市販の金属タンタルは、かなりの放射性不純物を含むことが判ったので、次の精製を行なった。

金属 Ta (99.9%) の 100 g を 50% HF に溶解、上澄の過剰 HF を除去後、 BaSO_4 によるスキベンジを 3 回行ない、しゅう酸とアンモニアで pH_4 として Ta をタンニン酸塩として沈殿させた。沈殿は、C. H_2SO_4 、続いて C. HNO_3 で分解後、Ta を水酸化物とし、最後に Ta_2O_5 とした。得られた Ta_2O_5 の 60 g を、 Lu_2O_3 -HgO と同形の plate source にした。

(iii) 測定方法、 ^{176}Lu と同じ装置で、但し、 $3'' \times 3''$ $\text{NaI}(\text{TI})$ の 2 個を 180° に対置し、その間隙 1 cm に plate source を挿入した。測定は、single 500 min, coincidence 5100 min (gate 270~370 keV), 1000 min (gate 155~260 keV) を行ない、バックグラウンドには HgO の plate source で各同時間ずつの測定を行なった（第5図）。エネルギーと計数効率の較正には、 ^{176}Lu および ^{22}Na の plate source を用いた。

(iv) 測定結果、single spectrum, coincidence spectra 共に、予想のエネルギー領域に、かなり顕著な過剰の計数が得られた（第6図）。しかし、測定器の分解能に較べて非常に広く分布し、また他のエネルギー領域にも若干の計数が得められ、試料の精製の不十分さを示した。それでも、期待の ^{180}Ta の壊変に伴う γ 線の存在は有意と考えられ、計数の統計、不純物の寄与を考慮して、gate 270~370 keV に対する同時計数から半減期を算出した。同位体存在比 0.0123 % を用いて得られた

結果は、 $(1.5 \pm 0.5) \times 10^{13}$ 年である。

なお、 β^- 分岐では、234→102 keV の cascade γ 線が期待される。gate 155~260 keV の同時計数スペクトルの 102 keV 領域に僅かの計数が認められたが、禁制度が高いこと、転換係数が大きいこと、および不純物が存在したことから、これが ^{180}Ta によるかどうかの判定は出来なかった。以上の結果を総合して、 ^{180}Ta の壊変は第 7 図に示す図式に従うと考えられる。

文献：

- 1) 田中, 坂本, 梶本, 東大核研報告 TCA 19 (1964) ; 宇宙線研究, 10, No. 1, 588 (1965)
- 2) 田中, 坂本, 高木, 梶本, J. Geophys. Res., to be published ; 東大核研報告 TCH 3, 準備中
- 3) J. Takagi, K. Sakamoto, S. Tanaka, J. Geophys. Res., 72 No. 8, 2267 (1967)
- 4) K. Sakamoto, Nucl. Phys., in press ; 東大核研報告 INS Report 111 (1967) ; 田中, 坂本, 高木, 東大核研報告 TCH 2, 準備中 ; S. Tanaka, K. Sakamoto, J. Takagi, Phys. Letters, to be published
- 5) 田中, 坂本, 高木, 東大核研報告 TCH 1, (1967)
- 6) S. Tanaka, K. Sakamoto, J. Takagi, Nucl. Instr. Methods, in press
- 7) P. Shapiro, R. W. Higgs, Rev. Sci. Instr., 28, 939 (1957)
- 8) A. McNair, Phil. Mag., 6, 851 (1961)

Table 1. Reported Half-life of ^{176}Lu

$T_{1/2}$ in 10^{10}y	Method	Investigator
4	β , Counter	Heyden & Wefelmeyer (1937)
7.3 ± 2	β , Screen wall counter	Libby (1939)
2.4	β , Counter	Flammersfeld & Mattauch (1943)
2.15 ± 0.1	γ , NaI crystal	Arnold (1954)
4.56 ± 0.3	β , Proportional counter	Dixon et al. (1954)
(4.1 ± 0.2)	Recalculation of Dixon et al.'s	McNair (1956)
2.1 ± 0.2	γ , NaI crystal	Glover & Watt (1957)
>2.8	β , Proportional counter	Glover & Watt (1957)
2.17 ± 0.35	Mass spect. of radiogenic ^{176}Hf	Herr et al. (1958)
3.6 ± 0.1	γ , NaI well crystal (Sum-coincidence)	McNair (1961)
3.2	β , Proportional counter	McNair (1961)
2.18 ± 0.06	β , Liquid scintillator	Donhoffer (1964)
5.0 ± 0.3	γ , NaI well & cylindrical crystals (Sum-coincidence)	Present work (1967)

Table 2. Reported Half-life of ^{180}Ta

$T_{1/2}$ in y	Method	Investigator
$>1 \times 10^{12} (\beta)$	Mass spect. of radiogenic ^{180}W	Eberhardt et al. (1955)
$>1.7 \times 10^{13} (\beta)$	K X-ray, NaI crystal	Bauminger & Cohen (1958)
$>2.3 \times 10^{13} (\text{EC})$	γ , NaI crystal	Bauminger & Cohen (1958)
$>5 \times 10^9 (\text{EC})$	Mass spect. of radiogenic ^{180}Hf	Eberhardt et al. (1958)
$\geq (1.5 \pm 0.5) \times 10^{13} (\text{EC})$	γ , NaI crystals (Coincidence)	Present work (1967)

Fig. 1 Decay Scheme of ^{176}Lu

The half-life is based on the present work.

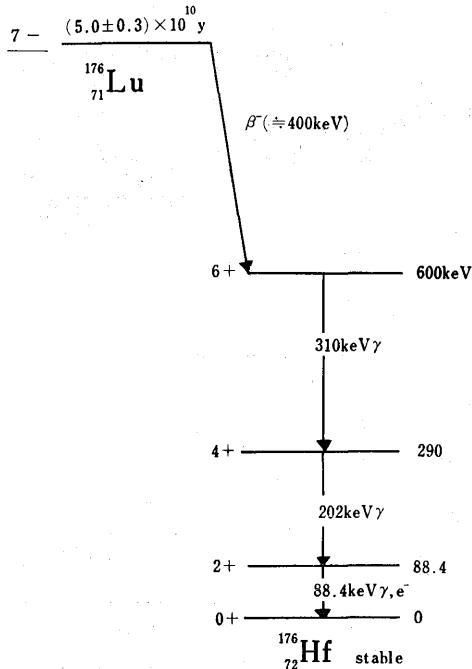


Fig. 2 ^{176}Lu Gamma-Ray Spectrum

Crystal: Well-type
 Source: "Point Source" in copper absorber
 Counting time: 20 min both for the source and for the background

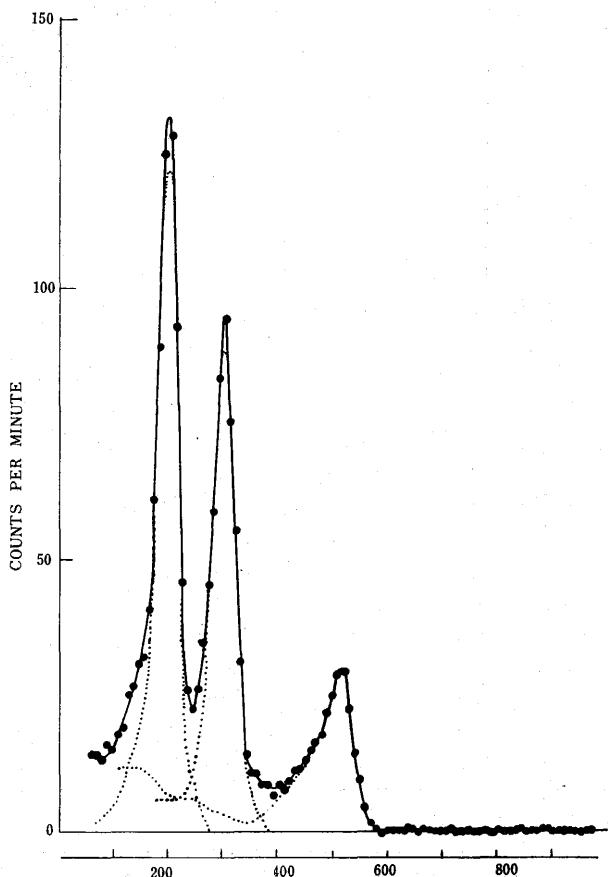


Fig. 3 Gamma-Ray Background Single Spectra

(a) measured with the $1\frac{3}{4}'' \times 2''$ well-type NaI crystal

(b) measured with the $3'' \times 3''$ cylindrical NaI crystal-A

Counting Sample: 1.8mm thick copper tube for (a) and 60g purified HgO plate source for (b)

Counting Time : 20min for (a) and 70min for (b)

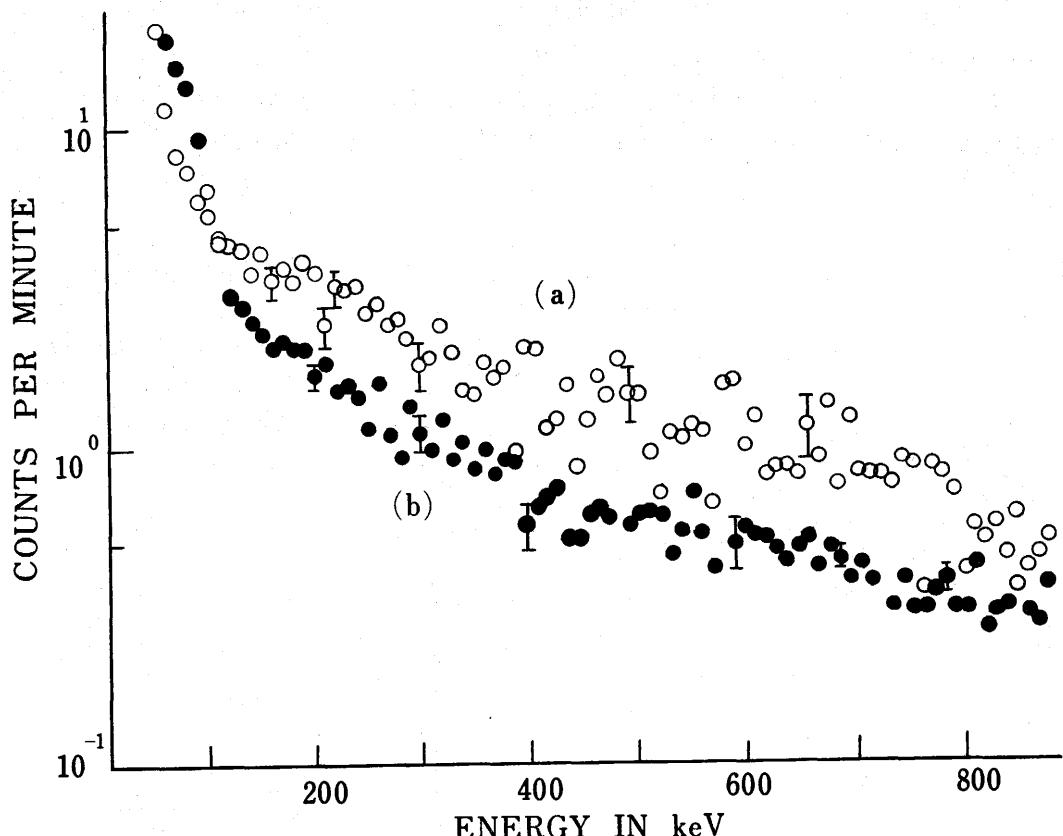


Table 3. Experimental Result for ^{176}Lu

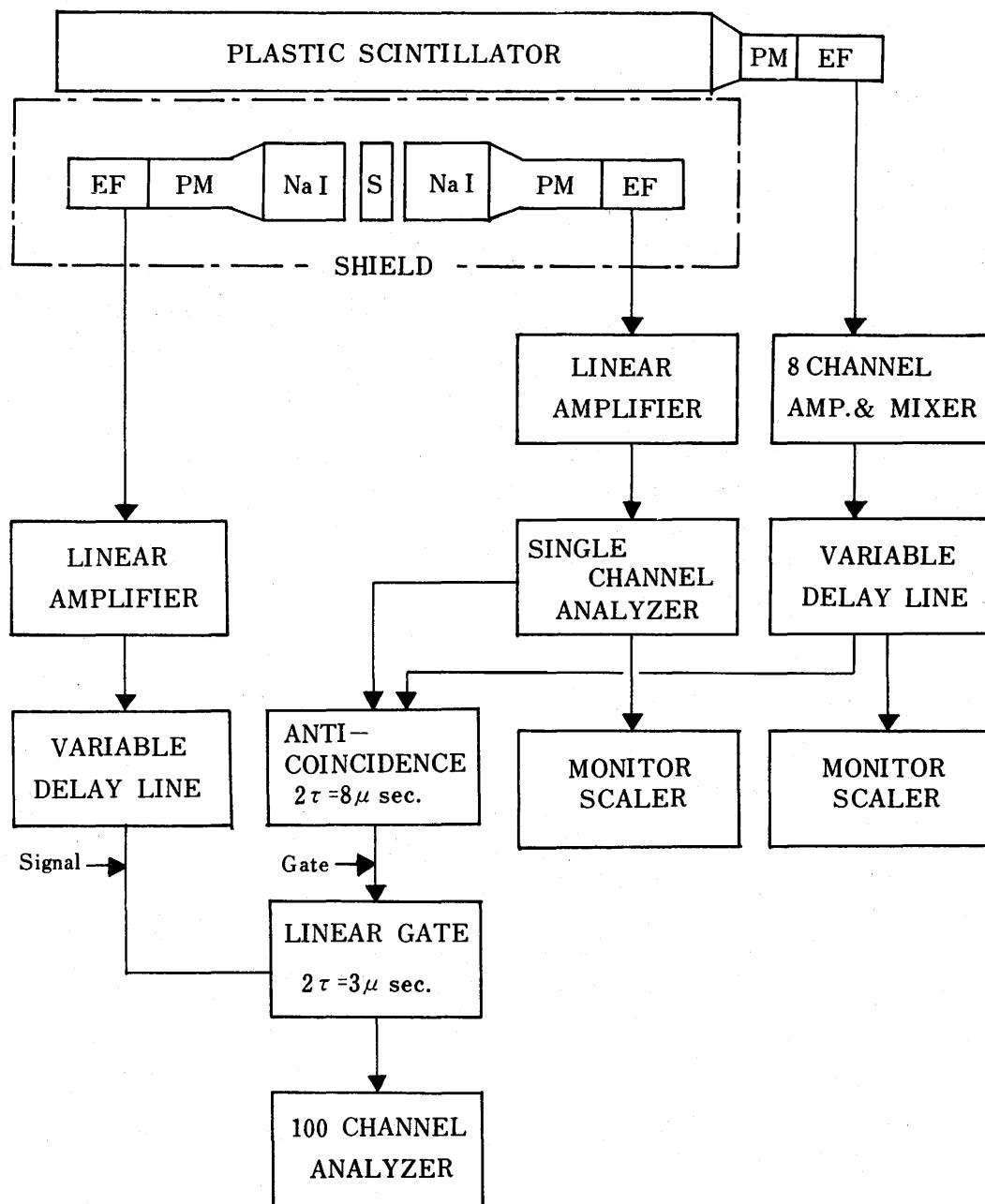
No. of Experiment	Source	Copper Absorber	NaI crystal	Specific Activity (10^3 dpm/g of Lu_2O_3)	$T_{1/2}$ in 10^{10}y	Geometry
1	point	yes	well	$2.04 \pm 0.16^*$	$5.11 \pm 0.40^*$	in well
2	point	no	well	2.06 ± 0.15	5.06 ± 0.38	in well
3	point	yes	cylindrical A	2.14 ± 0.09	4.85 ± 0.21	1.3 cm apart
4	point	yes	cylindrical A	2.10 ± 0.13	4.95 ± 0.31	0.4 cm apart
5	plate	no	cylindrical A	2.09 ± 0.08	4.96 ± 0.20	***
6	point	yes	cylindrical B	2.25 ± 0.11	4.62 ± 0.23	1.3 cm apart
7	plate	no	cylindrical B	1.97 ± 0.06	5.26 ± 0.16	***
Average				$2.10 \pm 0.12^{**}$	$4.97 \pm 0.29^{**}$	

* Errors were estimated from combined ambiguities of counting statistics and spectrum analyses

** Averaged over all experiments

*** Sandwitched with the two crystals, A and B, 1 cm apart from each other

Fig. 4 Counting Block Diagram for Coincidence Measurement



S: Sample

NaI: 7.6 cm ϕ \times 7.6 cm NaI(Tl) crystal

PM: Photomultiplier, DuMont KM 2559 for NaI crystal and DuMont 6292 for plastic scintillator

Fig. 5 Gamma-Ray Background Spectrum Coincident with a Gate Width of (270~370) keV
 Counting Sample: 60g purified HgO plate source
 Counting Time : 5100 min

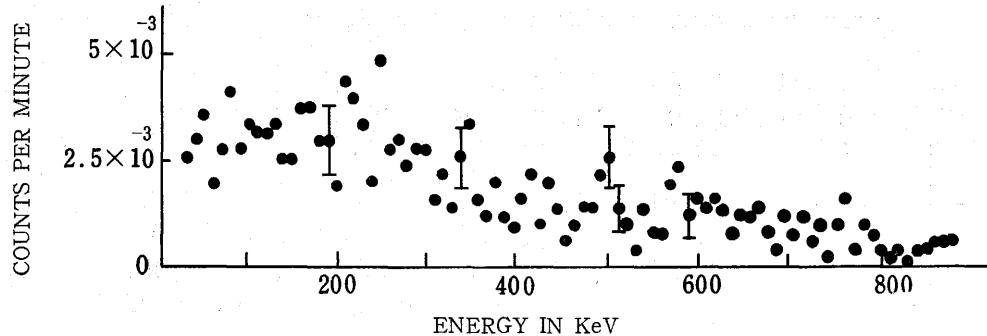
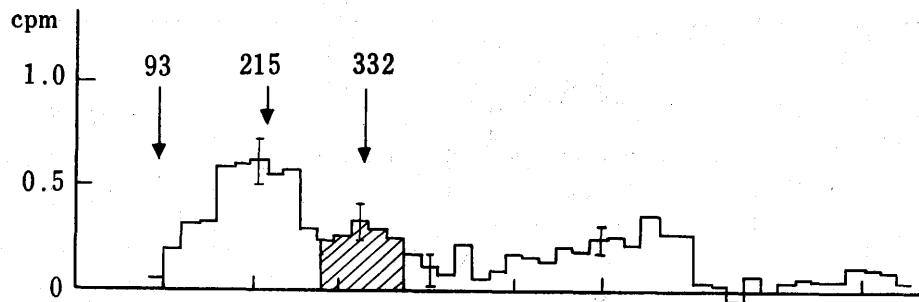


Fig. 6 ^{180}Ta Gamma-Ray Spectra

- (a) Single spectrum
 The shadowed area shows the gate for (b).
 Counting time: 500 min



- (b) Coincidence spectrum with a gate width of (270~370) keV
 The shadowed area shows photopeak at 216 keV.
 Counting time: 5100 min

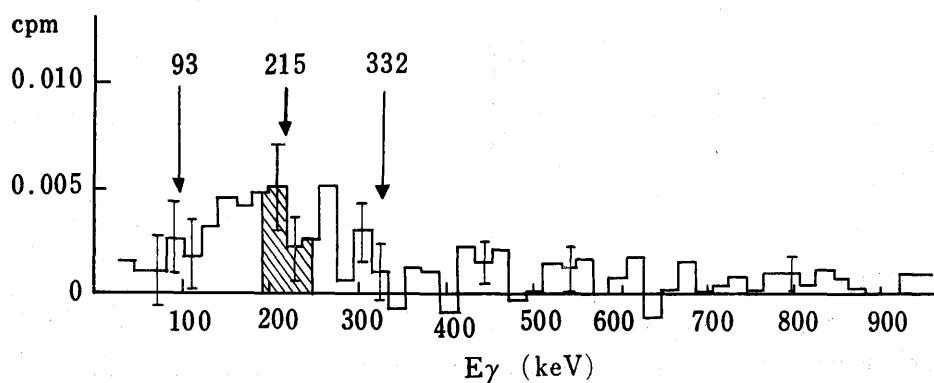
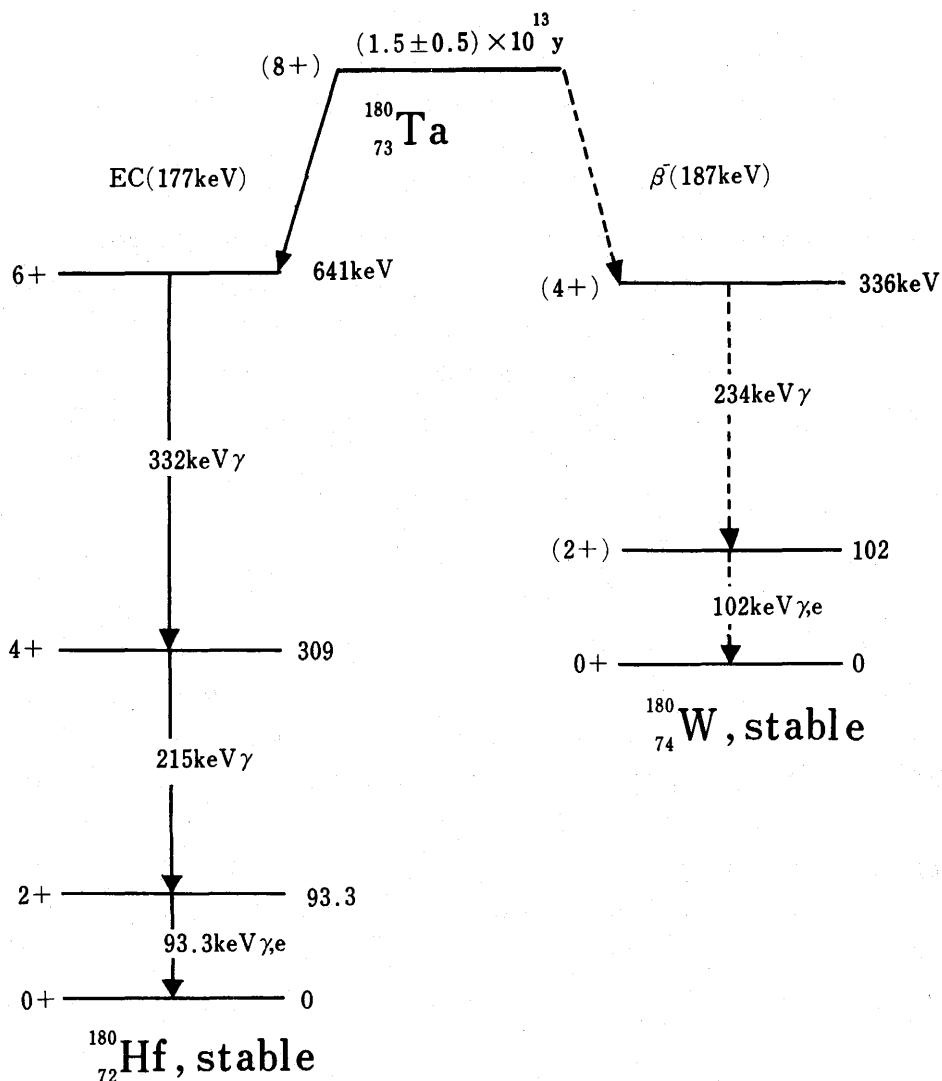


Fig. 7 Decay Scheme of ^{180}Ta

The half-life and the solid arrows which show the transitions are based on the present work.



The Decays of Naturally Occurring ^{176}Lu and ^{180}Ta

Koh Sakamoto

Abstract :

An extremely low-level gamma-ray spectrometer was constructed for the cosmo- and geochemical studies of naturally occurring radionuclides. By the spectrometer gamma-rays associated with the decays of natural odd nuclides, ^{176}Lu and ^{180}Ta , were measured. The half-life of ^{176}Lu has been reported to be in the range of $2.1 \times 10^{10} \text{ y}$ to $7.3 \times 10^{10} \text{ y}$ by many investigators. In order to determine the decisive value of the half-life and to see the applicabilities of the

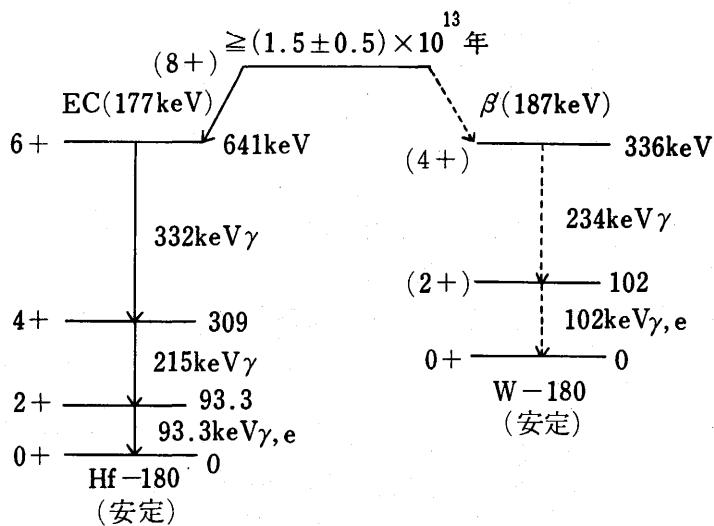
nuclide as a geochronological maker, the author tried to make the measurement as simple, specific and sensitive as possible. A new value of $(5.0 \pm 0.3) \times 10^{10}$ y was determined with use of a highly pure lutetium oxide by means of the single-crystal sum-coincidence method. A possible technique of determining the $^{176}\text{Hf}/^{176}\text{Lu}$ ratio in old rare-earth minerals was suggested for the lutetium-hafnium dating. The amount of ^{176}Lu can be determined by measuring its associated gamma-rays with use of a highly sensitive gamma-ray spectrometer such as the one used in the present work, and that of ^{176}Hf with the aid of radioactivation analysis. A search was also made for possible cascade gamma-rays following the electron capture of ^{180}Ta in a purified tantalum oxide by means of the usual gamma-gamma coincidence technique. Although the obtained spectra were slightly complicated by the presence of radioactive impurities in the sample, some positive evidences for the ^{180}Ta decay were observed. The lower limit deduced for the half-life was $(1.5 \pm 0.5) \times 10^{13}$ y. The decay scheme of the nuclide was tentatively proposed.

論文の審査結果の要旨

天然に残存する長命の放射性核種の壊変の性質は、地球放射化学的に大切なデータであるが試料の放射能が弱いため正確な測定が難しい。坂本君は極めてバックグラウンドの低い γ 線スペクトル測定装置を開発製作し、これを使って、Lu-176とTa-180の壊変の性質を詳しく研究した。

Lu-176については、過去30年にわたり多くの研究があり、壊変図式はほとんど確立されているが半減期では 2.1×10^{10} 年から 7.3×10^{10} 年にわたる大きい開きがあった。同君は、化学的、放射化学的に十分純粋な試料と上記高感度装置と、ならびに補正の少ない放射能絶対測定法によって $(5.0 \pm 0.3) \times 10^{10}$ 年という値をえた。これは従来値の約2倍に当るが相当信頼できるものと思われ、稀土類鉱物の年代決定に一つの可能性を与えるものである。

Ta-180は、ひどく長命でその壊変の性質については今までに信頼すべき研究はない。同君は、主として γ 線測定から次図のような壊変図式を提案し、特に半減期については $\geq (1.5 \pm 0.5) \times 10^{13}$ 年という値をえた。



以上、同君の研究は極めて高感度の γ 線測定装置を作り、それによって測定の難しい長命の天然放射性核種 Lu-176 と Ta-180 の壊変の性質を研究し、Lu-176 については、十分信頼できる半減期を与える、Ta-180については、はじめて放射性を確認し、壊変図式を提案し、半減期の下限値を与えたもので、地球放射化学に寄与するところ大きい。よって本論文は理学博士の学位論文として十分価値あるものと認める。