長寿命核 ^{180m}Ta の半減期測定

Measurement of the Half-Life of the Long-Lived Isomer ^{180m}Ta

代表研究者	大阪大学	梅原さおり	The University of Osaka	Saori UMEHARA
協同研究者	大阪大学	吉田斉	The University of Osaka	Sei YOSHIDA
	大阪大学	佐久間幹人	The University of Osaka	Mikito SAKUMA
	大阪大学	野田健太	The University of Osaka	Kenta NODA
	大阪大学	高草元	The University of Osaka	Gen TAKAKUSA
	大阪大学	安田圭吾	The University of Osaka	Keigo YASUDA

Tantalum-180m (^{180m}Ta) is the only naturally occurring nuclear isomer, distinguished by its remarkably stable excited state, which is significantly more stable than its ground state. In fact, it has the longest known half-life among all excited nuclear states, and its decay has never been observed. Owing to these unique properties, ^{180m}Ta has attracted interest across various fields of research.

In this study, we aimed to measure the half-life of ^{180m}Ta by detecting low-energy gamma rays emitted from its decay using a germanium (Ge) detector. To this end, the detection efficiencies for low-energy gamma rays were carefully evaluated. By analyzing data collected over 344 days with a tantalum sample weighing 848.1 g, we obtained a new lower limit on the half-life of 3.1×10^{17} years, exceeding the previous best limit reported by 2022.

研究目的

タンタル 180m(^{180m}Ta)は、天然に存在する唯一の核異性体である。励起状態が基底状態よりもはるかに安定であり、励起状態の半減期がもっとも長い原子核でもある。この特徴ある原子核 ^{180m}Ta の崩壊は、いまだかつて観測されたことはないが、その特徴ゆえにさまざまな分野から研究対象となっている。

1. 禁制遷移の半減期：^{180m}Ta のベータ崩壊（ベータ崩壊、電子捕獲）は、スピン差が大きい(9-→6+)第三禁制遷移である。禁制度の大きな第三禁制遷移以上の崩壊の半減期は、これまでに数個の原子核でしか測定されていない。そのため、^{180m}Ta の半減期は、原子核物理分野で関心を持たれる。
2. 暗黒物質探索：粒子タイプの暗黒物質（DM）が ^{180m}Ta と散乱することにより、^{180m}Ta が脱励起する[1]。脱励起により放出される放射線の検出による DM 探索では、用いる原子核は、長寿命の

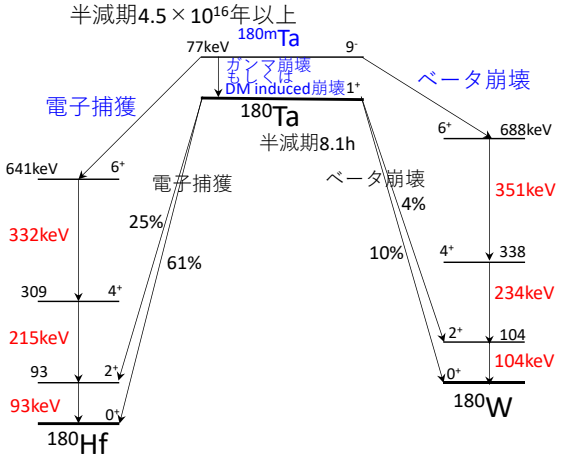

図 1：タンタル 180(^{180m}Ta)の崩壊図。^{180m}Ta は、基底状態の半減期よりも励起状態の半減期が長い。励起状態である核異性体（^{180m}Ta）の崩壊はまだ測定されていない。^{180m}Ta は、ガンマ線（332、215、93keV、もしくは、351、234、104keV）を放出して崩壊する。

核異性体である必要があるため、^{180m}Ta が現実的な唯一の候補となる。この手法による探索は、通常行われる原子核の弾性散乱による探索に対して相補的な測定である。そのため ^{180m}Ta の半減期測定は、暗黒物質探索分野で関心を持たれている。

3. 恒星内元素合成過程で説明できない存在比：^{180m}Ta は、その同位体比が 0.01%と太陽系に存在するもっとも希少な同位体の一つだが、そのわずかに存在する ^{180m}Ta の恒星内元素合成過程は長らく説明されていない。その原因は、^{180m}Ta の半減期にあるともいわれており、そのため、^{180m}Ta は、天体核物理の分野でも研究の対象となっている。

[測定方法]

この ^{180m}Ta の半減期測定を、極低バックグラウンド技術を擁したゲルマニウム(Ge)検出器を用いて行なう。^{180m}Ta のベータ崩壊は、図 1 に示す通り、^{180}Hf や ^{180}W の励起状態（6＋）に遷移し、低エネルギーのガンマ線（332、215、93 keV、もしくは、351、234、104 keV）を放出して基底状態へ脱励起する。それぞれの崩壊で放出される 3 本のガンマ線を観測することで、^{180m}Ta のベータ崩壊事象を同定することができる。

この ^{180m}Ta の崩壊は、これまでにさまざまな放射線検出器を用いて測定が試みられているが、まだ観測されておらず、与えられている半減期の下限値は、4.5×10^{16} 年と非常に長い[2][3]。したがって、半減期測定には、極低バックグラウンドの放射線検出器を必要とする。本研究では、低バックグラウンドゲルマニウム半導体検出器を開発し、その検出器システムを用いて、^{180m}Ta の半減期測定を行う。

この半減期測定に重要となる点をまとめる。この半減期を求める際には、

$$T_{\frac{1}{2}} = \frac{I_\gamma \cdot In2 \cdot N_0 \cdot \varepsilon \cdot T}{S} \qquad (1)$$

$T_{1/2}$ ：半減期
I_γ ：ガンマ線の放出確率
N_0 ：^{180m}Ta 原子の数
T ：測定時間
ε ：検出効率
S ：観測された事象数

を用いる。したがって測定では、

1. 大量の ^{180m}Ta 原子核を用いること(N_0)

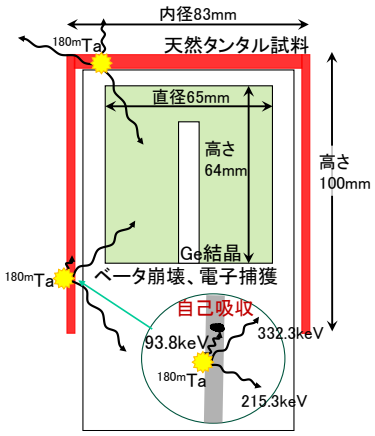

図 2：実験セットアップ。ゲルマニウム検出器とタンタル試料のサイズを示している。また、検出効率評価の際に重要となる自己吸収についても示している。

2. バックグラウンド事象量を低減すること
3. 用いる検出器の検出効率を精度よく評価すること(ε)
4. 長時間測定を行うこと(T)

が重要である。これらを満たすように、研究は下記の手順で進める。

1. タンタル試料の準備とゲルマニウム検出器の低バックグラウンド化
2. 低エネルギーガンマ線に対する検出効率の評価
3. 長時間安定測定による ^{180m}Ta の半減期測定

それぞれの詳細について下記に述べる。

研究経過

[研究 1. タンタル試料の準備とゲルマニウム検出器の低バックグラウンド化]

半減期測定は、タンタル試料から放出されるガンマ線をゲルマニウム検出器で観測することによって行う。この際に用いるタンタル試料は、できるだけ大量であることが望ましい。一方、資料の厚みが大きすぎると測定感度は良くならない。観測するガンマ線が 400 keV 以下（図 1）と低いため、物質に吸収されやすく、そのため、厚いタンタル試料を作成すると、タンタル試料自身によってガンマ線が吸収（自己吸収）されてしまう（図 2）ことによる。本研究では、ゲルマニウム検出器の周囲に約 2mm 厚になるようにタンタル試料（総重量 848.1g）を設置（図 2 参照）し、半減期測定をすることとした。

さらにゲルマニウム検出器の遮蔽材の増強を行っ

た。用いるゲルマニウム検出器のガンマ線遮蔽は、銅 5cm、鉛 15cm で行っていたが、この遮蔽状態での測定結果から、バックグラウンド事象として、環境ガンマ線および電子による制動放射の寄与が残っていることがわかった。これらの寄与を減らすため、タングステン板（厚み 0.5cm）と銅遮蔽材を、銅とゲルマニウムの間に追加設置した。また、使用する銅遮蔽材については、表面研磨と酸洗浄を行った。このことにより、表面に付着した埃や油を起源とするバックグラウンドを低減した。

[研究 2. 低エネルギーガンマ線に対する検出効率の評価]

放出される低エネルギーガンマ線観測によって ^{180m}Ta の半減期を測定するためには、ゲルマニウム検出器の低エネルギーガンマ線に対する検出効率の評価が重要である。その際には、下記 2 点が重要となる。

1. タンタルは原子番号が 73、密度が 16.7 g/cm^3 と大きいため、ガンマ線の自己吸収率が高い。そのため、自己吸収率を含めた評価が必要である。
2. タンタルのサンプルは、円筒状のゲルマニウム検出器を囲むように設置する(図 2 参照)。したがって、ゲルマニウム検出器結晶の側面の検出効率の評価が必要である。

まず、1.の自己吸収率の評価を行うためには、放射化で得られた ^{182}Ta から放出されるガンマ線を用いて検出効率の評価を行うと効果的である。これは、タンタル中に ^{181}Ta が 99.988%含まれていることを利用している。この ^{181}Ta は、中性子を吸収することによって ^{182}Ta となる。この ^{182}Ta は、半減期 114 日で崩壊し、低エネルギーガンマ線を放出する。この放

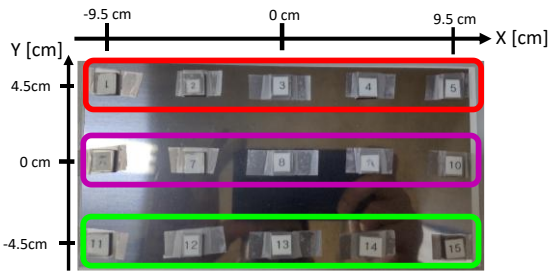

図 3 : 検出効率評価用放射化タンタル板と小片 15 個の写真。この小片の放射能をゲルマニウム検出器で測定し、放射化の均一性を評価した。またタンタル板は、検出効率の評価に用いた。

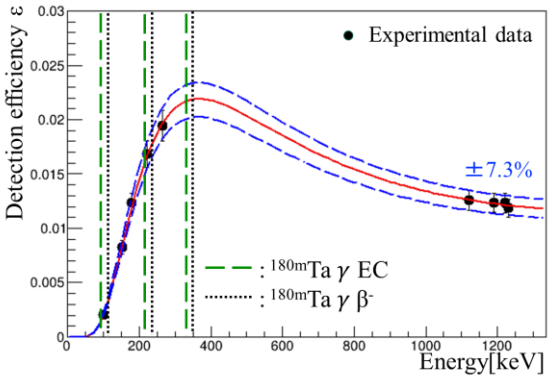

図 4 : 放射化タンタル試料を用いて得られた検出効率。^{180m}Ta の半減期を測定する際に用いるガンマ線のエネルギーと近い領域の検出効率評価を重点的に行った。

出されるガンマ線を検出することで自己吸収率の影響も含めた検出効率の評価が可能となる。実際の手順は下記のとおりである。

1. 評価用に 10cm×20 cm×0.05 cm のタンタル板試料 5 枚と 8 cmφ×0.1 cm 厚みのタンタル板試料 2 枚を中性子照射によって放射化した。また、その試料が均等に放射化されていることを確認するために、10 × 10 ×1 mm^3 のタンタル小片 15 個も同時に放射化した（図 3 参照）。
2. 放射化した各タンタル小片の ^{182}Ta の放射能を、ゲルマニウム検出器で放射線測定することで評価した。その際には、比較的高エネルギーのガンマ線を用いることで、タンタルによる自己吸収が問題とならない状態で放射能を評価した。また、検出効率評価用の放射化タンタル板の放射能も評価した。
3. 放射能を測定された放射化タンタル板をゲルマニウム検出器の側面に設置し、検出効率の評価を行った。このことで、位置による検出効率の差が大きいゲルマニウム検出器の側面の検出効率を、タンタルの自己吸収の影響を含めた状態で評価した。

まず、手順 1 では、放射化のために ^{252}Cf 線源（0.86 MBq）を用いた。放射化はタンタル板とタンタル小片（図 3 参照）を同時に行った。タンタル板を均等に放射化するために、^{252}Cf の位置を変えながら放射化を行った。^{252}Cf 照射は全 52 日間行った。手順 2.では小片の放射能を測定した。放射能定量は、^{182}Ta から放出されるガンマ線（1121 keV、1189 keV、

1221 keV、1231 keV）をゲルマニウム検出器で検出することで行った。結果として、位置による放射能の非一様性は 20%以下に抑えられていることを確認した。また、放射化タンタル板試料全体の放射能として、892±65 Bq（相対誤差 7.3%）を得た。手順 3.で、放射化タンタル板試料を、ゲルマニウム検出器の側面を含めて周りを囲うように設置し、検出効率の評価を行った。この測定においては、^{180m}Ta 由来のガンマ線（103.6keV、215.3keV、234.0keV、332.3keV、350.9keV）と同じエネルギー領域となる、^{182}Ta 由来のガンマ線（100.1 keV、152.4 keV、 179.4 keV,、222.1 keV、264.1 keV）を測定することで検出効率の評価を行った。得られた検出効率を図 4 に示す。図 4 には、^{182}Ta のガンマ線の検出効率を測定結果としてプロットで示し、^{180m}Ta の崩壊によって放出されるガンマ線のエネルギーを点線と破線で示した。赤実線は、経験的なフィット関数を用いて近似して得られた曲線を示している。また、青点線は、手順 2.で求めた放射化 ^{182}Ta の放射能の誤差範囲±7.3%を示している。本手順 3.で得た低エネルギー領域の検出効率は、この誤差±7.3%範囲内に収まっており、内挿によって、各エネルギーでの検出効率を高い信頼性で評価することができた。

[研究 3. 長時間安定測定による ^{180m}Ta の半減期測定]

半減期測定は、天然同位体比のタンタル 848.1g を用いて 11 カ月間行なった。解析では、この長期間にわたる測定期間中において、ゲルマニウム検出器増幅器の増幅率変動を解析的に補正することが必要である。本測定では、1 Hz の人工信号を入力し、そのピーク位置を、ゲルマニウム検出器増幅器の増幅率変動補正に用いた。この測定安定性は、^{180m}Ta 測定中に観測されるピークのエネルギー分解能も用いて評価した。これにより、1.4MeV 領域でのエネルギー分解能 2.7keV（半値全幅）で、十分に測定が安定していることを確認した。

結果および考察

この増幅器の増幅率変動を補正した後に得られた ^{180m}Ta 半減期測定のエネルギースペクトルを図 5 に示す。各ピークを同定したところ、^{180m}Ta の崩壊により放出されるガンマ線のエネルギー領域には、ピークは観測されず、観測されているピークは環境（主としてゲルマニウム 検出器の構造体に含まれる放射性不純物）由来のガンマ線バックグラウンド事象であることが確認された。そのため、^{180m}Ta からのガンマ線エネルギー領域における事象観測数から、半減期の下限値を得ることとした。^{180m}Ta からのガンマ線エネルギー領域での事象観測数（上限値）、見積もられる検出効率と、式(1)より、半減期の下限値を求めた。各ガンマ線エネルギー領域における観測事象量から、最も厳しい下限値を与えたのは、330.2 keV

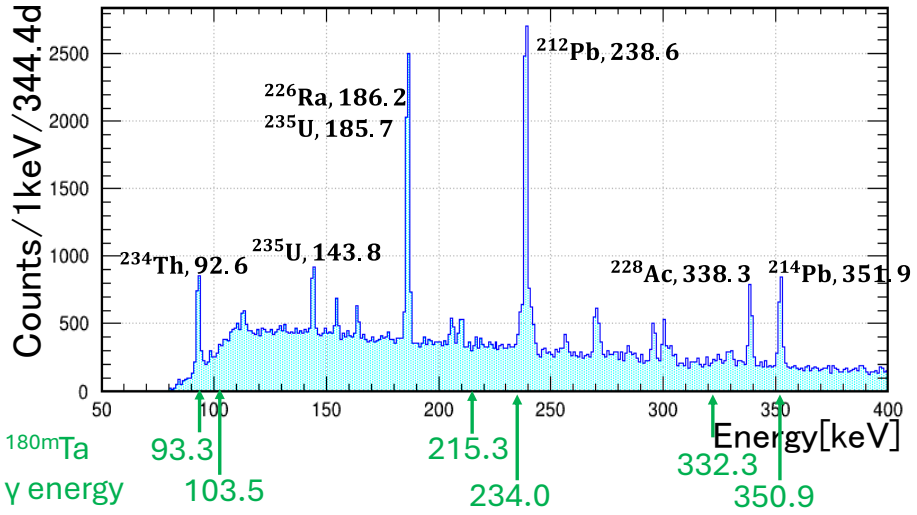

図 5：観測されたエネルギースペクトル。344 日の測定結果である。ピークとして観測されているのは環境（主としてゲルマニウム 検出器の構造体に含まれる放射性不純物）由来のガンマ線バックグラウンド事象である。^{180m}Ta の崩壊により放出されるガンマ線エネルギー領域にはピークは観測されなかった。

のエネルギー領域の観測による結果で、半減期下限値は 2.7×10^{17} 年であった。さらに複数のガンマ線測定から得られた結果を統合することで、半減期下限値 3.1×10^{17} 年を得た。この値は、17 kg のタンタル試料を用いた測定の結果として[4]で報告された半減期下限値を更新することはできなかったが、研究開始時に報告されていたそれまでの最高下限値を更新することに成功した。

参考文献

[1]M. Pospelov et al., Phys. Rev. D, 101, 055001 (2020).; B. Lehnert et al., Phys. Rev. Lett., 124, 181802 (2020).
[2]M. Hult et al., Appl. Radiat. Isot., 67, 918921, 2009.
[3]B. Lehnert, M. Hult, G. Lutter, and K. Zuber, preprint arXiv:1609.03725, 2016.
[4]MAJORANA Collaboration, Phys. Rev. Lett. 131, 152501(2023).

研究の発表

口頭発表/ポスター発表

1. Keigo Yasuda, “Evaluation for γ-ray detection efficiency with an activated Tantalum for the half-life measurement of ^{180m}Ta decay”, “International workshop on “Double Beta Decay and Underground Science”, US, Dec. 1st-3rd 2023.
2. Kenta Noda, “Production of Activated ^{182}Ta for the Half-life Measurement of ^{180m}Ta Decay”, “International workshop on “Double Beta Decay and Underground Science”, US, Dec. 1st-3rd 2023.
3. Mikito Sakuma, “Gamma-rays detection efficiency evaluation of low background HPGe detector installed in the Kamioka underground laboratory”, “Production of Activated ^{182}Ta for the Half-life Measurement of ^{180m}Ta Decay”, “International workshop on “Double Beta Decay and Underground Science”, US, Dec. 1st-3rd 2023.
4. Gen Takakusa, “Half-life measurement of ^{180m}Ta with ultra-low background HPGe detector at Kamioka Underground Laboratory”, “Production of Activated ^{182}Ta for the Half-life Measurement of ^{180m}Ta Decay”, “International workshop on “Double Beta Decay and Underground Science”, US, Dec. 1st-3rd 2023.
5. 野田健太、HPGe を用いた ^{180m}Ta の半減期測定、第 4 回新学術「地下宇宙」若手研究会、仙台市、2024 年 03 月 7 日～08 日
6. 佐久間幹人、長寿命核 ^{180m}Ta の半減期測定のための HPGe 検出器の γ 線検出効率の評価、第 4 回新学術「地下宇宙」若手研究会、仙台市、2024 年 03 月 07 日～08 日
7. Mikito Sakuma, Gamma-rays detection efficiency evaluation of low background HPGe detector installed in the Kamioka underground laboratory , “Unraveling the History of the Universe and Matter Evolution with Underground Physics”, Sendai、Mar. 4th-6th 2024.
8. 佐久間幹人ほか、日本物理学会 2024 年春季大会、長寿命核 ^{180m}Ta の半減期測定のための HPGe 検出器の γ 線検出効率の評価、オンライン、2024 年 03 月 18 日～21 日
9. 野田健太ほか、日本物理学会 2024 年春季大会、HPGe 検出器を用いた ^{180m}Ta の半減期測定、オンライン、2024 年 03 月 18 日～21 日