解説

超高压下の原子核崩壊定数変化

Change of Nuclear Decay Constant under Ultra-High Pressure

郷農 靖之

Yasuyuki GONO

In the early days of nuclear science, many researchers tried to see if a nuclear decay constant could be changed by putting radioactive nuclei in various extreme environments, such as high and low temperatures, high pressure and high electromagnetic fields. They could not find any measurable change. Since then it was believed that a nuclear decay constant was independent of extranuclear conditions. In 1947, it was pointed out that there might be observable changes in decay constants when decay modes were dominated by an electron capture or an internal conversion process. Thereafter, many experimental studies were carried out, and their changes were observed. We studied the change of the decay constant of ^{99m}Tc by applying high-pressure. The present status of our study is described in this report.

[^{99m}Tc , Ge detector, differential method, $\Delta\lambda/\lambda$, DAC]

1. はじめに

筆者は 30 年程前に、京都大学の清水教授のグループが、 ^{99m}Tc の崩壊定数の高压下での変化を観測した[1]ことを耳にして大変興味を持った。

数年前、九大物理学教室の修士論文発表会で、高压下の結晶構造変化に関する発表を聞き、ここ 20 年の高压技術の進歩を知った。そこで、現在の進んだガンマ線測定技術と組み合わせれば、再実験の価値は十分にあると考えた。

早速高エネルギー物理学研究所（現在の高エネルギー加速器研究機構）のフォトンファクトリーに亀卦川博士を訪ね、私の意図を伝えたところ、共同研究をすることになった。

次の問題は実験場所である。この種の実験では、実験精度を上げるため、比較的強い放射線源を使う必要がある。そこで使用許可を持った実験施設である京大 RI 総合研究センターの五十棲教授に連絡し、共同研究の実施へと話が進んだ。幸いなことに、清水教授の下で、超高速回転する剛体球を使った遠心力による崩壊定数変化の実験で学位を取られた片野博士も参加して頂けることになった。

原子核崩壊定数の核外場依存性に関しては、20 世紀初頭 E. Rutherford[2], M. Curie, K. Onnes[3], A.H. Compton[4]等が温度・圧力・電磁場等、強い外場の下

で実験を行ったが、実験誤差の範囲で変化無しとの結論を得た。

1947 年になって Segre[5]と Daudel[6]は、電子捕獲崩壊や内部転換電子放出過程が支配的な役割をしている ^{7}Be 等の崩壊では、それらの過程が核外電子の原子核位置での存在確率に依存するため、化学結合形に依存して崩壊定数変化が観測にかかる程の変化を示す可能性があることを指摘し実証した。

過去の例では、 ^{7}Be , ^{89}Zr , ^{90m}Nb , ^{119}Sn 等多くの核の崩壊に関して、崩壊定数が化学結合により 10^{-2} - 10^{-4} 程度変化することが確認されている。

一方、圧力効果に関しては、実験例が少なく、1952 年の Bainbridge 等[7]、1972 年の間崎等 [1]の ^{99m}Tc に

Fig. 1. Decay scheme of ^{99}Mo and level scheme of ^{99}Tc .

関する実験と Gogarty 等 [8]と Hensley 等 [9]の ^7Be 、Cooper[10]の ^{90m}Nb に関する実験の報告があるのみであった。今回対象にした ^{99m}Tc については、前者が $\Delta\lambda/\lambda = (2.3 \pm 0.5) \times 10^{-4}$ 、後者が $\Delta\lambda/\lambda = (4.6 \pm 2.3) \times 10^{-4}$ と報告している。

最近になって、台湾の地質学の研究者が最新技術を使った実験結果として、 ^7Be の崩壊定数の圧力依存性に関する実験結果を発表した [11]。この結果に関しては、後の章で議論する。

2. 実験

実験は、最高圧力 100GPa 以上迄、圧力依存性を測定することを目標に、線源作りと DAC への装填を五十棲、片野、加圧操作を亀卦川、ガンマー線の測定を齋藤、小田原、郷農が担当して実施した。

2.1 線源の作成

^{99m}Tc は核医学診断医薬品として市販されている ^{99}Mo - ^{99m}Tc ジェネレーターから抽出、イオン交換樹脂を通して取り出した ^{99m}Tc を $30 \mu\text{m}$ の銅線に電着した。線源強度として $3.7 \times 10^7 \text{ Bq}$ 程度が必要であり、この強度の ^{99m}Tc を $30 \mu\text{m}$ の銅線に電着する技は、正に神業に見えた。この過程はこの後も実験の度に確実に成功した。

2.2 加圧過程

加圧操作そのものは、専門家である亀卦川氏が担当したので、加圧・圧力測定ともに問題は無く、下記の線源装填過程に成功した際に 1 度 21 GPa の加圧に成功した。

線源を DAC のガスケットの直径 $100 \mu\text{m}$ の穴に装填する過程では線源の帯電が問題であった。

^{99m}Tc は Fig. 1 に示すように約 2.2 keV の電気八重極遷移で崩壊する核異性体でガンマー線を出さず、殆ど 100%内部転換電子放出により遷移する。このため銅片はプラスに帯電し、非常に高い電位になる。このことは、内部転換電子線のエネルギー測定に際して線源が絶縁された状態になっていると、keV のオーダーでエネルギー・シフトが起り、放電して電位がゼロに戻るまでシフトする現象として経験するものである。従って、このように微小な銅片は、近くに少しでも帯電した物質があるとか、周囲の状態、或いは形状が一樣でない誘導電位を生じると、飛び跳ねてしまい目的の穴に入れることが出来ない。最初の実験では、このた

めに線源をガスケットに装填出来なかった。この点が、通常の電的に中性な物質を扱うのと全く異なった点で、経験するまで予測出来なかった。この点は、銅線を切断する前に装填し、その後に切断することで逃れることが出来た。

2.3 ガンマー線の測定

ガンマー線の測定は、微小変化の検出に優れた差動法を採用した。この手法は、E. Rutherford [12] が開発使用したもので、2 つのほぼ同じ強度の線源を使い、片方は常圧、他方は加圧し、その計数率の差の時間依存性を測定するものである。以下に差動法を簡単に説明しておく。

2 つの線源を A,B とし、それらの崩壊定数を $\lambda + \Delta\lambda, \lambda$ とする。これら 2 つの線源について単位時間当たりの崩壊数の差を $d(t)$ とすると、

$$\begin{aligned} d(t) &= n_B(t) - n_A(t) \\ &= n_B(0)\exp(-\lambda t) \\ &\quad - n_A(0)\exp(-(\lambda + \Delta\lambda)t) \end{aligned}$$

ここで、 $\Delta\lambda/\lambda \ll 1$ なので $\Delta\lambda/\lambda$ で展開して、両辺に $\exp(\lambda t)$ を掛けて整理して、

$$\begin{aligned} d(t)\exp(\lambda t)/n_A(0) \\ = \{n_B(0) - n_A(0)\}/n_A(0) + \Delta\lambda t \end{aligned}$$

となり、左辺の量を時間 t の関数としてプロットすると、その勾配から $\Delta\lambda$ が求まる。

上記の手法を採用するため Fig. 2 に示した測定系の配置を取った。測定対象のガンマー線は Fig. 1 に見られる通りエネルギーが 140 keV と比較的低いもので、5 cm の鉛ブロックで完全に遮蔽出来る (10^{-15} 以上減衰する)。2 つの鉛シールドを線源と検出器の間に出し入れする

Fig. 2. Experimental set up.

Fig. 3. Gamma-ray spectra taken with a counting rates of 12 kcps (upper) and 130 cps (lower). An 'S' part originated from a pulse pile up and a sum effect.

ことで、線源と検出器の位置に全く影響することなく 2 つの線源からのガンマー線を交互に測定出来る。検出器は 140 keV のガンマー線測定に合わせて厚さ 10 mm の低エネルギーガンマー線測定用スペクトロメーター(LEPS)と呼ばれるゲルマニウム検出器を 1 台使用した。

得られたガンマー線のエネルギースペクトルを Fig. 3 に示した。Fig. 3 から分かるように、測定開始直後は計数率が高く、ハイルアップとサム効果によりスペクトルが大きく変形している。今回の実験では、過去の実験と異なり、ハイルアップ・リジェクションと呼ばれる手法も、シングルチャンネル分析器も用いず、得られるスペクトルをそのままデータとして取り込み、ハイルアップとサム効果の補正は実験後に行った。最初に常圧下の 2 つの線源を用いて差が出ないことを確認し、次いで常圧下と加圧下の 2 つの線源を用いて測定を行った。

3. 結果と考察

我々の最初の実験である、常圧下の 2 つの線源による測定では、

$$\Delta\lambda/\lambda = (1.9 \pm 2.0) \times 10^{-4}$$

を得た。これは誤差範囲で変化が無いことと、過去の実験 [1,7] が正しければ、同じオーダーの加圧で変化が測定可能な測定系であることを示している。しかしながら、21 GPa を加圧した時の結果は Fig. 4 に示したように、

$$\Delta\lambda/\lambda = (0.0 \pm 3.1) \times 10^{-4}$$

Fig. 4. Graphical display of a differential method. One ^{99m}Tc source was set under 21 GPa.

であり、Bainbridge 等 [7] と Mazaki 等 [1] の 10 GPa 加圧での過去の実験結果を誤差範囲では再現しているが、 ^{10}Be の場合に報告されている圧力依存性 [11]、

$$\begin{aligned} \Delta\lambda/\lambda &= (4.87 \times 10^{-5})P \\ &- (5.9 \times 10^{-8})P^2 \end{aligned}$$

(但し、P は kilobar 単位の圧力)

と同様な効果があるとすれば、過去の実験結果を再現しているとは言い難い。

この点に関して、過去の実験の詳細を検討すると、ガンマー線検出器として NaI (TI) を使い、シングルチャンネル分析器でガンマー線のピークのみの計数率を測定していることや、巨大な加圧装置を使っていて 2 つの線源を置き換えながら実験していることなど、その位置の再現性が本当に系統誤差を生じていないか、そして測定時のデッドタイムやハイルアップ、サム効果をどのように補正したか等不明な点も多く、我々の測定結果とどのように比較すべきか残された問題が多い。

他方、最近の実験 [11] は ^{10}Be の電子捕獲崩壊定数圧力依存性を見た実験の結果として、圧力依存性が上記の 2 次曲線になり、高圧になるに従って飽和を示す。このことは圧縮率の飽和性とコンシステントであると報告している。また、 ^{10}Be のような原子番号が小さい原子核ではこの効果が顕著であるが、 ^{85}Rb の予備的な実験結果として、変化が観測されていない。これは原子番号が大きくなったためであると結論している。

この事は、今回の我々の実験結果とコンシステントに見えるが、この実験も詳細に検討すると、データ解析でリジェクトしたハイルアップ・ハルスの影響をどう補正したか等検討の余地がある。

4. おわりに

ここに報告した、高压下の原子核崩壊定数変化の実験は、報告例が少なく、同じ条件下での再実験もない状態で、未だ結論には至らない。他方、地球物理ではマグマ中の ^{40}K の存在比異常が圧力による寿命の変化のせいではないかと問題になっている。ガンマー線天文学では特定の放射性同位体崩壊からのガンマー線の線スペクトルを発する星が同定出来るようになり、星の歴史に重要な情報を与えている。天体核物理学では、現在の太陽系の元素組成を理解する努力が続けられているが、高压下での寿命変化は元素合成にも影響する要素として、今後この種の研究に対する要求が高まると考えられる。

又、理論的には、文献[7]の結果を再現する計算の報告[13]があるが、論文中にも述べられている通り、不確定要素が多く、今後の研究にゆだねられている。

謝辞

本研究は、五十棲、片野（京大）、亀卦川（高エネルギー加速器研究機構・物質科学研究所）、小田原（西日本工大）、齋藤（九大）の各氏との共同研究である。その他にも何人かの方々に折に触れ助けて頂いた。ここに感謝致します。

参考文献

- [1] H. Mazaki, T. Nagatomo, S. Shimizu: Phys. Rev. **C5**, 1718 (1972).
- [2] E. Rutherford, J.E. Petavel: Brit. Assoc. Advan. Sci. Rep., 456 (1907).
- [3] M. Curie, M. Kamerlingh Onnes: Le Radium, **10**, 181 (1913).
- [4] A.H. Compton: Phil.Mag., **39**, 659 (1921).
- [5] E. Segre: Phys. Rev., **71**, 274 (1947).
- [6] R. Daudel: Rev. Sci., **85**, 162 (1947).
- [7] K.T. Bainbridge, M. Goldhaber, E. Wilson: Phys. Rev., **90**, 430 (1953).
- [8] W.B. Gogarty, S.S. Kistner, M.L. Perlman: E.B. Christian-sen: Office of Naval Research Technical Report **VII**, Nr-052-357 (1963).
- [9] W.K. Hensley, W.A. Bassett, J.R. Huizenga: Science, **181**, 1164 (1973).
- [10] J.A. Cooper: Univ. Calif. Rep., UCRL16910 (1966).
- [11] L.G. Liu, C.A. Huh: Earth Plan. Sci. Lett., **180**, 163 (2000).
- [12] E. Rutherford: Sitzber. Akad. Wiss. Wien **120**, 303 (1911).
- [13] R. A. Porter, W. G. McMillan: Phys. Rev. **117**, 795 (1960).

[2001年8月22日受理]