



同位元素表の作成にまつわることなど

元理化学研究所

橋爪 朗

1. はじめに

同位元素表を私が作成したのは 1958 年から約 1 年間で、大変古いことなので、編集委員からお話があったとき、昔話はすぐわないと感じたのですが、これを機会に、この 40 年間に放射性核種がどのように増えてきたのか、大略の傾向をお知らせすることが、何かのお役に立つのではないかと考え投稿させていただくことにしました。

まだ理研が東京駒込の一角にあった頃のある日、主任研究員の山崎文男先生が部屋に入ってきて、「きみどうだい GE の RI Chart よりもう少し詳しい図表を作ってみないかい」と話を持ちかけられた。その当時は理研内には戦後のサイクロトロン第 1 号が働いていたがビームダクトはなく、しかもサイクロトロン内の D と高周波電源がむきだしのコイルでカップリングしていたため建物内では検出器と回路はその強い高周波をひろうため使用不可能だった。そのため、原子核反応の実験は直ちに始めるすべもなく、手っ取り早く？、核の壊変に関する仕事をやろうと準備していた矢先だった。ちょうど RI を作成する上でそのような表が欲しいと思っていて、なんとなく話題にしていた時だった。まさか自分自身で作ろうとは思っていなかったが、当時存在していた GE の Chart はあまりにも簡略すぎて物足りなく思っていたので引き受けることにした。その後すぐに同位元素表は日本放射性同位元素協会（当時）と仁科記念財団の共同の形で出版する予定となった。

当時はもちろん今のような電算機はなく、一番進んでいた計算機はサイクロトロンのそばでカシャカシャと音をたてていたリレー計算機だった。研究室ではモノローのメカニカル計算機で計算をしていた。IBM の大型計算機は使えないことはなかったが、研究所内にはなく、思うように使用できない上、FORTRAN による関数計算や数値計算が主要目的なので数字はともかくイメージは扱えなかった。従って作業はカードを利用した手作業になり、それを約 $5 \times 5 \text{ cm}^2$ の紙の上に一枚一枚核種毎に書き込んでいく手段しかなかった。

最初悩んだのは陽子数と中性子数のどちらを横軸にするかであった。全体として中性

子数の数が陽子数に比較して多いため、陽子数を横軸にとると余計に行変えする必要があり、表が見にくくなる恐れがあったが、原子番号と陽子数の対応から考えると陽子数を横軸にとるのが自然に思え、結局横軸を陽子数にすることにした。表には安定同位元素の存在比、原子質量、放射性同位元素の壊変の形、半減期、放出される主な2-3の放射線のエネルギー、スピン、磁気双極子モーメント、中性子断面積などを掲載した。存在比については例えば放射性同位元素と考えられていた ^{180}Ta が存在比0.0123%の安定同位元素で従来の半減期はアイソマーであることが見いだされたり、 ^{10}B の存在比がロシアのデータが19.58%と特別大きくて処置に困ったり、その他さまざまな当時なりの話題があった。結局GEの同位元素表になかった90核種を新しく加えて原稿を作成した。ここでは古い話をいまさら詳しく持ち出しても仕方がないと思うので、「RIの同定の確実さ」について、あとで取り上げて見たい。

表はカラー印刷にすることを決めたが、その当時精密にカラー印刷ができる大きさに制限があった。印刷会社と相談の上、印刷可能な最大限の大きさにすることにして、自然に表の全体の大きさが決まったように記憶している。

表ができあがってから、当時すでに理研から教育大に移られていた光学の藤岡教授がIAEAにこの表をおみやげに持っていったらえらく喜ばれたと大変機嫌良く話されておられた。

2. 同位元素表のメリット

同位元素表はただ核種を陽子数と中性子数で並べ、壊変に関する半減期、主な放射線の種類とエネルギー、基底状態のスピンなどを書き入れただけの図表であるが、次のような利点があると考えられる。

- 1 すでに知られている核種と未知の核種の限界が明瞭に示されている。
- 2 各種の入射粒子とターゲットの組み合わせで、どのような生成核が生じるか見当をつけるのに便利である。特に重イオンを入射粒子とした時どのような反応生成核ができるかを見いだすのに便利である。
- 3 目的とする核種の陽子数と中性子数の近辺にどのような半減期と γ 線を放出する核種があるか、概略を頭の中に入れておくのに便利である。これは特に不純物かどうかを判断する時に役に立つ。
- 4 魔法数に星印が付けてあるので、興味のある核の陽子数あるいは中性子数が魔法数に近いのか、あるいはどのくらい離れているかが一目瞭然で、核のcollectivityを概略推定できる。
- 5 医学利用や生物の研究に利用されている各種のトレーサにしても不純物の少ない、あるいは結果的に化学分離の簡単な核反応を探すのに便利である。
- 6 基底状態の全角運動量の変化とアイソマーの多い領域などシステムティック的に

概略ではあるが理解できる。

なお、元広島大学のグループが原研から出版している未知の核種の半減期まで推定した同位元素図表は大変特長があるものであり、また最近出版された Karlsruhe Nuklidkarte (6th ed.改訂版)は特に項目 1, 2 を意識して作成されているように思える。

3. 同位元素の同定

同位元素表を作成するに当たって一番重要なことは、その核種が報告された半減期で存在するかどうかの信頼度である。つまり、研究論文の結果が正しいかどうかの問題がある。幸いなことに、G. Seaborg にひきいられた Berkley のグループは、すでに 1940 年から Reviews of Modern Physics あるいは その後の Table of Isotopes に、RI の信頼度を A, B, C, D, E, F, G と 7 段階に分類して発表してきていた。しかし、この作業は 1978 年の Table of Isotopes 6th edition までで、そのあとは Berkley グループが ENSDF を利用することになり、この分類法はとぎれてしまったように思える。ENSDF の評価作業は各核種についてはいわば All or Nothing で、評価者があやしいと思えば切り捨ててしまうやり方になっている。ややあやしいと思った時はせいぜい ‘?’ を付して準位を点線にする手段しかない。また評価者がそのようにした理由は詳しく説明されていない。工学的に核種を利用する時は多分このような簡単な分類が便利と思われるが、同位元素表を作ったり、核物理の研究をするときは不安が残る。この辺の事情を示すため、発見された同位元素の数がどのようになっているかを示したのが図 1 である。信頼度 A, B, C, D, E, F, G の内容については、

- A 元素(Z)と質量数が確実に知られているもの。
- B 元素は確かで、質量数のもっともらしい(probable)もの。
- C 元素はもっともらしく、質量数は確実にあるいはもっともらしいもの。
- D 元素は確実であるが、質量数が確実に立証されていないもの。
- E 元素はもっともらしく、質量数も確実に立証されていないもの。
- F 不十分な証拠しかないもの。
- G 多分間違っているもの。

などである。この外 Table of Isotopes 7th ed.では新しく R なる分類を設け、「原子核の基底状態あるいは励起状態が核反応で確認できたが放射性壊変は観察されていないもの」という項目を加えている。この分類だと例えば最近の In-Beam の実験で新しい核種について励起準位が組み立てられているが、その報告の一番エネルギーの低い状態が基底状態かアイソマーか不明な場合などに適用できて評価者にとっては便利と思われる。ただし、この分類は 7th ed.のみで継続性がないため今回の図 1 からは除外した。

図 1 で縦軸は放射性核種の数でこれはアイソマーも数の中にいれてある。横軸は 1978

年までは Revs.Mod.Phys.あるいは Table of Isotopes が発行された年で、各ヒストグラムの上にある数字は参考文献 No.に対応している。1996 年のは ENSDF 採用後の Table of Isotopes に掲載されている放射性核種の数である。1998 年のは Karlsruhe の同位元素チャート(Karlsruher Nuklidkarte)からとった。図の横軸については、それぞれの文献にはその発行年月日の前にデータ収集の dead line が報告されているが、文献によっては質量数毎に dead line が異なる場合があり、ここでは便宜上文献そのものが発行された年で統一した。この図からわかるように B 以下のカテゴリーに入っていた核種が A のカテゴリーに入って行き、さらに新しい核種が加わって行く様子が見てとれる。1996 年および 1998 年のデータは A から F までの分類がされていないのでただ全体の核種の数を示してある。1996 年以降急激に核種数が増加しているのは RI ビームとそれに絡む実験技術の向上により陽子や中性子の各ドリップラインにより近い多くの核種が発見されていることによる。ただし、これらの核の多くは半減期あるいは準位幅は測定されておらず、R の分類に入れられるものが多い。

図には入れてないが、1978 年の文献によると G のランクに入れられた例が 78 核種と D や E に分類されているより多い。データの評価者にとりして、同定が間違っているかどうかは、次に新しいレポートができるまでわからないが、新しい核種が報告されているときは広い視点で評価する必要があると思う。

軽核、中重核および重核について具体例を少し挙げて見ることにする。C (図 2), Cd (図 3), In (図 4), Th (図 5), U (図 6) を例として示した。C と U について少しばかり説明をする。

C: 1940 年では知られていた人工でつくられた放射性核種は ^{11}C だけであった。1944 年ではこれに ^{10}C , ^{14}C が加わった。ただし年代測定で有名な ^{14}C の半減期はまだ確定されていない。1948 年では 1944 年で報告された ^{10}C の半減期(20s)が誤りで別のものであることが判明し、新しい半減期(8.8s)が採用されている。ランクも A から B に落とされている。また ^{14}C の半減期が 5100 年と報告されている。1953 年では ^{10}C が A に格上げされ、新たに ^{15}C がランク C で加わった。 ^{14}C の半減期が 5568 年と現在評価されている 5730 年に近くなっている。このようにして次第に他の質量数を持つ核種が加わり、現在は ^8C ~ ^{20}C , および ^{22}C の 12 放射性核種が知られている (質量数 12, 13 は安定核種)。このうち ^8C と ^{22}C は unbound state になっている。 ^8C は陽子放出核で準位幅も測定されている。 ^{22}C は準位幅も測定されておらず、ランク R に入れるべき核種である。

U: ウランで最初に作られた人工放射性核種は $^{238}\text{U}(n,\gamma)$ 反応による ^{239}U である。1940 年までに 5 つの報告があったが、ランクは厳しく B に格付けされている。その後多くの核種が加わり、現在ではアイソマーを含めて放射性核種の数には ^{218}U から ^{242}U まで 22 核種である。 ^{220}U , ^{221}U および ^{241}U はまだ発見されていない。なお、発見されている核種の中には ^{222}U のように $1\mu\text{s}$ のように極端に半減期が短いものがある。

4. 結 語

同位元素表は 2 で述べたように、単に核種のリストと違って幾つかの利点がある。放射性核種の数も 1958 年では 1228 核種であったものが, Karlsruher の表では 2988 核種と 3000 に迫る勢いで、まさに今昔の感が深い。

核種の確定は励起関数の測定, 放射線の同定, 半減期の測定, 娘核の確認などを, さまざまな化学分離の技術や質量分離器と組み合わせて行わなければならない, ランクが発表されていた 1978 年まで図 1 でわかるように, およそ 1/3 弱は A 以外にランクされた核種であった。現在の ENSDF の評価基準ではこのようなランク分けは行われていないが, もうすこし, きめ細かい自主基準を持って評価にあたるべきではないだろうか。

参考文献

- 1) J.J.Livingood and G.T.Seaborg: *Revs. Modern Phys.* **12**, 30(1940).
- 2) G.T.Seaborg: *Revs. Modern Phys.* **16**, 1 (1944).
- 3) G.T.Seaborg and I.Perlman: *Revs. Modern Phys.* **20**,585(1948).
- 4) J.M.Hollander, I.Perlman, and G.T.Seaborg: *Revs. Modern Phys.* **25**, 469 (1953).
- 5) D.Strominger, J.M.Hollander, and G.T.Seaborg: *Revs. Modern Phys.* **30**, 585 (1958).
- 6) C.M.Lederer, J.M.Hollander, and I.Perlman: *Table of Isotopes*, John Wiley and Sons, New York (1967).
- 7) C.M.Lederer, V.S.Shirley, E.Browne, J.M.Dairiki, R.E.Doebler, A.A.Shihab-Eldin, L.J.Jardine, J.K.Tuli, and A.B.Buym: *Table of Isotopes*, 7th edition John Wiley and Sons, New York (1978).
- 8) R.B.Firestone V.S.Shirley: *Table of Isotopes*, 8th edition, John Wiley and Sons, New York (1996).
- 9) G.Pfennig, H.Klewe-Nebenius, W.Seelmann-Eggebert: *Karlsruher Nuclidkarte*, Forschungszentrum Karlsruhe GmbH Technik und Umwelt(1998).

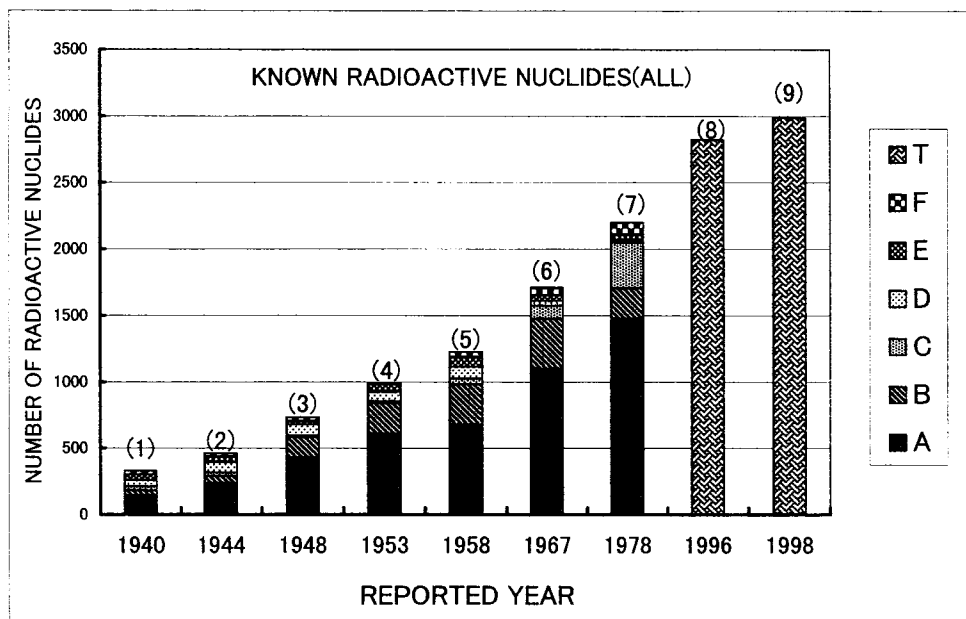


図1 同定の信頼度によって分類された核種の数(全核種)

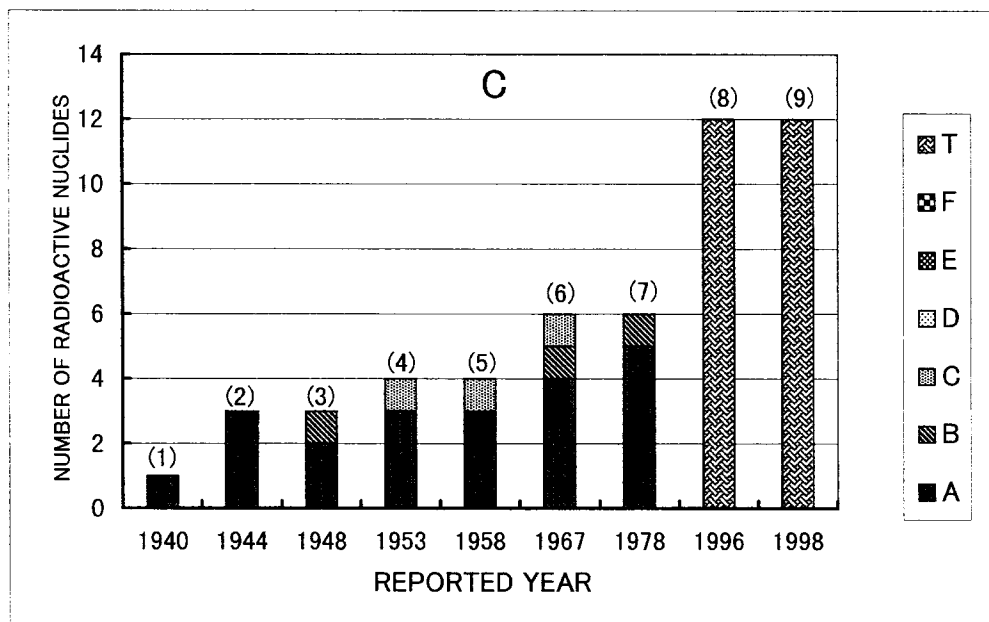


図2 同定の信頼度によって分類された核種の数(C)

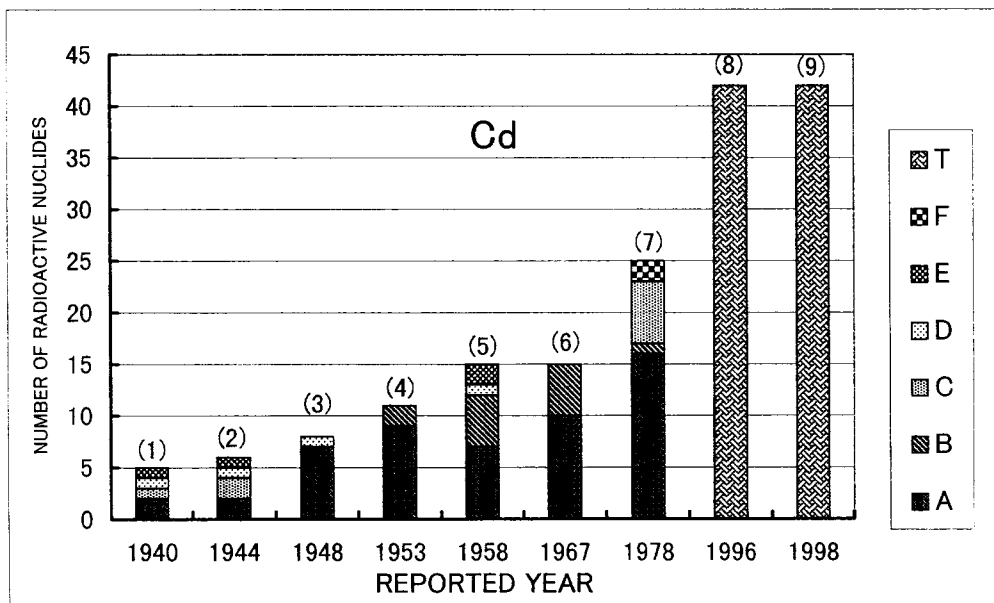


図3 同定の信頼度によって分類された核種の数 (Cd)

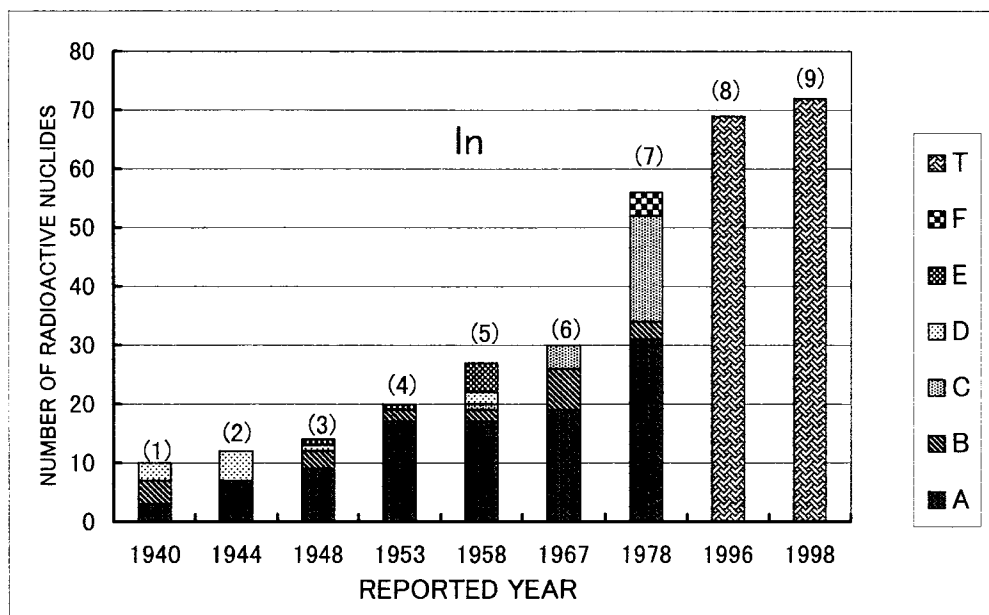


図4 同定の信頼度によって分類された核種の数 (In)

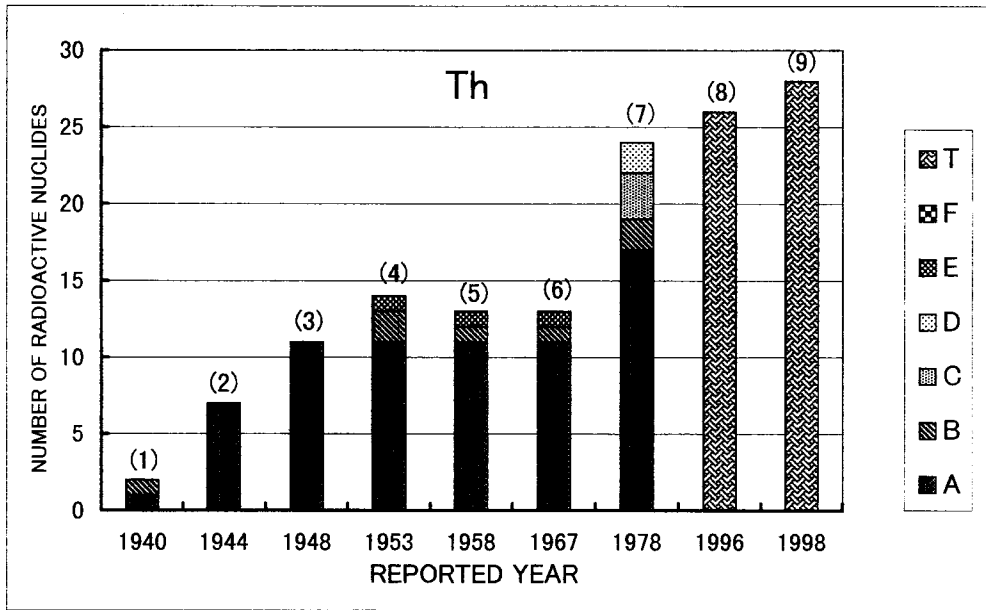


図 5 同定の信頼度によって分類された核種の数 (Th)

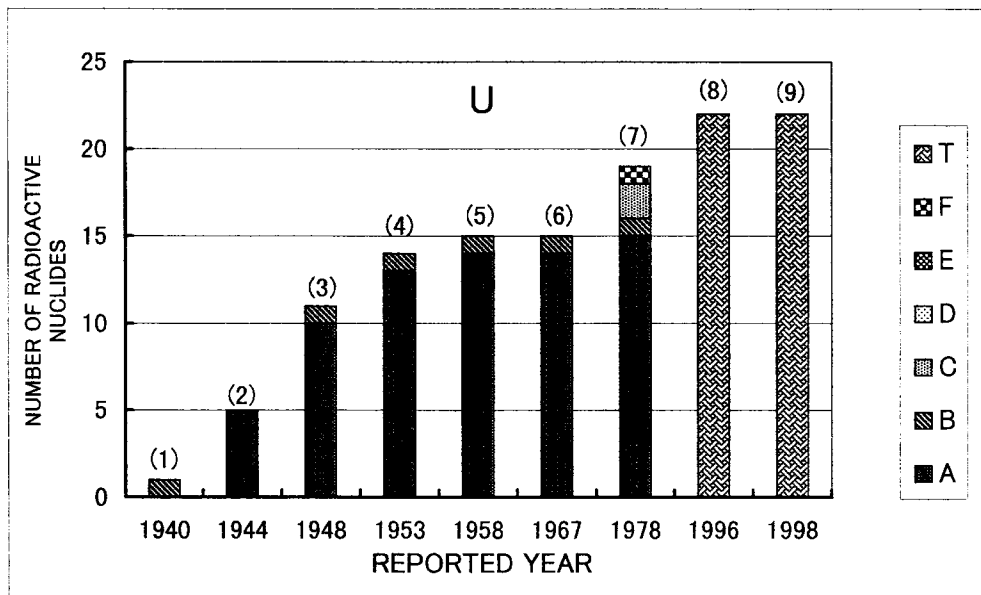


図 6 同定の信頼度によって分類された核種の数 (U)