

放射元素・
核種の小さな物語

坂本 浩
工藤博司

日本放射化学会

放射性元素・核種の小さな物語

坂本 浩

工藤博司

日本放射化学会

まえがき

日本放射化学会は、平成 18 年 10 月、放射化学討論会 50 周年記念事業の一つとして「放射化学用語辞典」を刊行し、会員に配布した。その際、付録として「代表的な元素・核種など」を短く解説した。放射化学を学ぶ者にとって、放射性元素・核種は第一義的に直接の対象である。存在しうる核種は 6000~8000 種と予想されているが、現在、安定核種約 270 を含めて 3000 種近くが既知である。それらのうち放射化学および関連分野で特に重要な役割を演じている核種と放射性元素について、それぞれの生い立ち（発見・確認の経緯）と役割を追記紹介し、さらに詳しく調べたい読者の手引きとなる文献を加えて小冊子とした。

採録した元素・核種は、放射化学用語辞典編集委員会の当初選定分に本執筆者が任意に加えたが、まだ取り上げるべき核種がある。読者からの要望を、誤りのご指摘とともに待ちたい。

本冊子の執筆にあたり、なるべく原論文にあたることとしたが、その蒐集には多くの方々の手を煩わした。特に、羽場宏光、松村宏、菊永英寿の諸氏の協力がなければ、執筆は進展しなかった。吉田善行氏には編集と挿入図作成で、永目論一郎氏には超重元素の各項目の校閲、故福嶋紀子と羽場宏光の両氏には原稿作成への協力をいただいた。これらの方々には深く感謝の意を表す。

なお、引用の核データは“Table of Isotopes,” R.B. Firestone, V.S. Shirley ed., 8th ed., John Wiley & Sons, N.Y., 1996 および J. Magill, I.G. Pfennig, I.J. Galy, Karlsruhe Nuklidkarte, 7th ed., Forschungszentrum Karlsruhe, 2006 と原論文による。

最後に、本書の出版に際して寄せられた多くの方々の深い理解と強力な支援に心から謝意を表します。

平成 19 年 9 月 24 日

坂本 浩
工藤 博司

(第 50 回放射化学討論会記念事業)

目 次

重水素 deuterium (^2H または D)	1
トリチウム(三重水素) tritium (^3H または T)	3
ベリリウム-7, -10 beryllium-7, -10 (^7Be , ^{10}Be)	4
炭素-14 carbon-14 (^{14}C)	6
ナトリウム-22, -24 sodium-22, 24 (^{22}Na , ^{24}Na)	8
アルミニウム-26 aluminium-26 (^{26}Al)	10
ケイ素-32 silicon-32 (^{32}Si)	12
リン-32 phosphorus-32 (^{32}P)	13
塩素-36 chlorine-36 (^{36}Cl)	13
カリウム-40 potassium-40 (^{40}K)	14
カルシウム-41 calcium-41 (^{41}Ca)	16
マンガン-53 manganese-53 (^{53}Mn)	18
鉄-60 iron-60 (^{60}Fe)	19
コバルト-60 cobalt-60 (^{60}Co)	22
クリプトン-85 krypton-85 (^{85}Kr)	23
ルビジウム-87 rubidium-87 (^{87}Rb)	24
ストロンチウム-90 strontium-90 (^{90}Sr)	25
ニオブ-92 niobium-92 (^{92}Nb)	26
モリブデン-99 molybdenum-99 (^{99}Mo)	28
テクネチウム technetium (Tc)	29
パラジウム-107 palladium-107 (^{107}Pd)	32
ヨウ素-129 iodine-129 (^{129}I)	33
ヨウ素-131 iodine-131 (^{131}I)	35
セシウム-135 caesium-135 (^{135}Cs)	36
セシウム-137 caesium-137 (^{137}Cs)	38
プロメチウム promethium (Pm)	39
サマリウム-146, -147 samarium-146, -147 (^{146}Sm , ^{147}Sm)	40
ルテチウム-176 lutetium-176 (^{176}Lu)	42
ハフニウム-182 hafnium-182 (^{182}Hf)	44
レニウム-187 rhenium-187 (^{187}Re)	46
白金-190 platinum-190 (^{190}Pt)	48
ポロニウム polonium (Po)	49
アスタチン astatine (At)	52
ラドン radon (Rn)	53
フランシウム francium (Fr)	54

ラジウム radium (Ra).....	55
アクチノイド actinoides	57
アクチニウム actinium (Ac)	58
トリウム thorium (Th)	59
プロトアクチニウム protactinium (Pa)	61
ウラン uranium (U)	62
ネプツニウム neptunium (Np)	66
プルトニウム plutonium (Pu)	68
アメリシウム americium (Am).....	71
キュリウム curium (Cm)	72
バークリウム berkelium (Bk)	73
カリホルニウム californium (Cf)	74
アインスタイニウム einsteinium (Es)	75
フェルミウム fermium (Fm)	75
メンデレビウム mendelevium (Md).....	76
ノーベリウム nobelium (No).....	77
ローレンシウム lawrencium (Lr)	78
超アクチニド(元素) transactinides	
[または超重元素 superheavy elements (SHE)]	79
ラザホージウム rutherfordium (Rf)	83
ドブニウム dubnium (Db)	85
シーボーギウム seaborgium (Sg)	87
ボーリウム bohrium (Bh)	89
ハッシウム hassium (Hs)	90
マイトネリウム meitnerium (Mt)	92
ダームスタチウム darmstadtium (Ds)	93
レントゲニウム roentgenium (Rg)	94
ウンウンビウム ununbium (Uub)	94
ウンウントリウム ununtrium (Uut)	96
ウンウンクアジウム ununquadium (Unq)	96
ウンウンペンチウム ununpentium (Unp)	97
ウンウンヘキシウム ununhexium (Unh)	97
ウンウンオクチウム ununoctium (Uno)	98

付 録

付録図 1	周期表	付-1
付録図 2	アクチニウム系列	付-2
付録図 3	トリウム系列	付-3
付録図 4	ウラン系列	付-4
付録図 5	ネプツニウム系列	付-5
付録表 1	ラジオアイソトープの製造と利用	付-6
付録表 2	加速器によるラジオアイソトープの製造	付-7
付録表 3	ジェネレータ用ラジオアイソトープ	付-8
付録表 4	年代測定に用いられる核種	付-9
付録表 5	消滅核種(半減期の順)	付-10

重水素 deuterium (^2H または D)

質量数 2 の水素の安定同位体。原子核は重陽子 (deuteron) と呼び、 d と表記。1931 年、米国コロンビア大学のユーリー (H.C. Urey, 1893-1981) と助手のマーフィー (G.M. Murphy, 1903-1989) および NBS (国立標準局, 現 NIST) のウォッシュバーン (E.W. Washburn, 1881-1937) のもとにいたブリックウェッデ (F.G. Brickwedde, 1903-1989) が、ウォッシュバーンが水の電解で水素と酸素をつくった残液の比重が大きいことに気づき、これを分光学的に測定して水素のバルマー系列の H_β 線に近接 (0.10-0.12 Å) する微かな新しい線 (^2D 線) を発見し、質量数 2 の水素として deuterium (“2” を意味するギリシア語に由来) と名付けた (*Phys. Rev.*, **39**, 164 ; 同誌, **40**, 1, 1932 ; これに対し通常の水素 ^1H は protium と呼ばれる)。1919 年以来質量分析装置で多くの元素の同位体および原子量を測定したアストン (F.W. Aston, 1877-1945) は、 ^{16}O 基準の水素の原子量を 1.00778 ± 0.00015 (化学スケールで 1.00756) としたのに対し、バージ (R.T. Birge) とメンツェル (D.H. Menzel) は 1929 年に化学スケールの値を 1.00777 ± 0.00002 と報告した。ユーリーは、その差は未知の同位体の存在に起因する (同位体存在比 $^1\text{H}^2\text{H} = 4500$ に相当) と考えられることから、重水素発見の重要な手掛りとなったと述べている (ノーベル賞受賞講演 1935)。

元素に同位体が存在することは、1913 年、ソディー (F. Soddy, 1877-1956; “isotope” という名称を提唱) とファヤンス (K. Fajans, 1887-1975) が化学的に、トムソン (J.J. Thomson, 1856-1940) とアストンが陽極分析という物理的方法で確認していた。同位体の謎が解けたのはチャドウィック (J. Chadwick, 1891-1974) の中性子発見確定の報 (1932 年 5 月 10 日付け

Proc. Roy. Soc., **136A**, 692) であった (第 1 報は 2 月 17 日付け *Nature*, **129**, 312, 1932)。ちなみに、チャドウィックの師ラザフォード (E. Rutherford, 1871-1937) は、1920 年の講演 (*Proc. Roy. Soc.*, **97A**, 374) で、中性子、重水素、三重水素、 ^3He などの存在を予言しているが、いずれも中性子発見以前の話である。

ユーリーは、1935 年までに重水 (重水素を含む水) に関する 10 編の論文 (総説を含む) を発表した。このうち、1932 年に発表した論文は水の電解濃縮の工業的基礎となる研究であった。その後、水の多段蒸留、液体水素の蒸留、化学交換反応 [特に Girdler-Sulfide 法と呼ばれる $\text{H}_2\text{O}(\text{l}) + \text{HDS}(\text{g}) \rightleftharpoons \text{HDO}(\text{l}) + \text{H}_2\text{S}(\text{g})$] などの方法も開発した。1933 年には、ユーリーの師であり化学結合論で有名なカリフォルニア大学のルイス (G.N. Lewis, 1875-1946) は望む濃度の重水を得る方法を報告した。この年、イギリスのラザフォードとオリファント (M.L.E. Oliphant, 1901-2000) はルイスから貰った 0.5 mL の重水を使ってコックロフト・ワルトン装置による ($\text{Li} + \text{d}$) 反応を、バークレーのローレンス (E.O. Lawrence, 1901-1958) らは ($\text{D} + \text{d}$) 反応を成功させた。日本では、台北帝国大学の荒勝文策 (1890-1973) と太田頼常 (1902-1970) が 90% 濃縮の重水 2 mL を核反応に供した (1934)。大阪大学の千谷利三は「重水素と重水」(裳華房, 1935) およびその続編 (1936) を刊行し、重水を使った化学を展開した (日本では重水を当初ノルウェーより輸入していたが、1941 年の大東亜戦争開戦からは、両教授の要請で、(株)日窒化学延岡工場で生産)。

*isotope の日本語訳 “同位元素” は飯盛里安によるもので (1921)、その後 “同位体” と呼ぶようになった。

ルイスは重水 D_2O の中ではタバコの種が発芽しない (1933) ことを、プリンストン大学のテイラー (H.S. Taylor) らは蛙のおたまじゃくしや淡水魚など小さい生物が死ぬことを見出し、重水の有毒性が観察された。重水の化学的性質は通常の水 (H_2O) と同じであるが、トリチウム水 (HTO) とともに質量依存の同位体効果が大きい。D の同位体存在度は 0.0115% であるが、自然界の D/H 比は陸水と降水 (雨, 雪) では海水より小さい (海水の D/H 比はほぼ一定であり、地球化学では標準平均海水 SMOW として NIST の標準 NBS-1 を基準とする。現在では、IAEA の SLAP を使用)。一般の地球試料では 70% にのぼる変動がある (酒井均, 松久幸敬著 “安定同位体地球化学” 東大出版会, 1996)。

水や含水素化合物の特定位置の H を D で置換した重水素誘導体の合成方法が開発され、D は H の移動を伴う同位体交換反応、配位子や置換基の置換反応、種々の転移・開裂反応などの反応機構解析のトレーサー (追跡子) として利用されるようになった。また、分子の振動エネルギー準位の同位体質量差による違いは赤外線吸収スペクトルなどのズレ (同位体シフト, isotope shift) として現われ、有用な知見となる。重水の測定は当初精密比重測定によったが、現在では質量分析が主流である (参考: 化学総説, No.23, “同位体の化学”, 日本化学会編, 学会出版センター, 1979)。D の核スピンの 1 であることから、重水素化合物は 1H -核磁気共鳴測定の溶媒としても広く用いられる。

太陽など恒星のエネルギーは、中心部で起こる核融合 ($4H \rightarrow ^4He + 26.218 \text{ MeV}$; $2H \rightarrow D + \beta^+ + \nu + e^-$, $H + D \rightarrow ^3He, \dots$) による。“制御核融合炉”では D-D 反応 ($D + D \rightarrow ^3He + n + 3.27 \text{ MeV}$ および $D +$

$D \rightarrow T + H + 4.03 \text{ MeV}$) と D-T 反応 ($D + T \rightarrow ^4He + n + 17.59 \text{ MeV}$; この反応は小型コックロフトワルトン型加速器で d を加速する 14 MeV 中性子発生にも使われる) を利用する。D は海水から入手し、T はリチウムの原子炉照射 [$^6Li(n, \alpha) T$] によってつくる。また、高エネルギー加速器からのミュオン (μ^-) 粒子を D_2 と T_2 の混合系 (液相) に打ち込み、ミュオンオニック水素をつくって分子内核融合反応 [$(dt\mu) \rightarrow ^4He + n + \mu^- + 17.6 \text{ MeV}$] を誘起させる“ミュオン触媒核融合”が永嶺謙忠を中心に研究されている。熱核兵器 (水素爆弾) では、重水素化リチウム (6LiD) に濃縮ウランの核分裂 ($^{235}U + n \rightarrow FP + xn + 200 \text{ MeV}$) で発生する中性子を当てて 6Li から T をつくり、D-T および D-D 反応を起こさせる。爆弾の外側を原子番号の大きい天然ウランで覆って (タンパー) 中性子の効率を高めて速中性子による ^{238}U の核分裂を引き起こすと 3F 爆弾 (Fission-Fusion-Fission) となる。

重陽子 deuteron (d) は陽子 1 個と中性子 1 個より成るが、結合エネルギーは 2.223 MeV と小さく、低エネルギー核反応では核子の一方のみが標的核内に入る特別な過程 (オッペンハイマー-フィリップス過程) が起こる。ちなみに、遮蔽不十分の γ 線検出器のバックグラウンドに 2.223 MeV のピークが現れるのは大気中での $n + H \rightarrow D + 2.223 \text{ MeV}$ による。

重水 (D_2O) による中性子吸収断面積は軽水 (H_2O) に比べて小さいので、冷却材に重水を用いると原子炉の中性子減速特性は向上する。重水が減速と冷却を兼ねる“重水炉”としてカナダの CANDU-PHWR (天然ウラン) があり、重水減速・軽水冷却方式には英国の SGHWR (濃縮ウラン) やカナダの CANDU-BLW (濃縮ウラン) がある。

トリチウム(三重水素)

tritium (${}^3\text{H}$ または T)

質量数3の水素の放射性同位体 ($E_{\beta}^{\max} = 18.591 \text{ keV}$, $T_{1/2} = 12.32 \text{ y}$). 原子核は三重陽子(triton)と呼び, t と表記. 1939年アルバレ(L.W. Alvarez, 1911-1988)とその学生コーノグ(R. Cornog)は, カリフォルニア大学バークレー校放射線研究所の60インチサイクロトロンからの24 MeV- ${}^3\text{He}$ ビームで ${}^{28}\text{Si}$ を照射 (${}^{30}\text{P}$ が生成)した時, ${}^3\text{He}$ ビーム源として大気から得られるガスを使うかガス井戸からのものを使うかによって ${}^{30}\text{P}$ の生成率が変わることを見出した. 大気から得られるガスの ${}^3\text{He}/\text{He}$ 比はガス井戸の12倍もあったことによる. そこで, ベーテ(H. Bethe, 1937)の予想とは逆に, ${}^3\text{He}$ は安定核であり ${}^3\text{H}$ が放射性であろうと考え, (D + d) 反応で ${}^3\text{He}$ と ${}^3\text{H}$ をつくり, ${}^3\text{H}$ は半減期が150 (± 40) 日の β^- 放射体であると報告した (*Phys. Rev.*, **56**, 613, 1939; 同誌, **58**, 197, 1940).

トリチウムは高層大気中で宇宙線の作用による核反応 [主に ${}^{14}\text{N}(n, {}^3\text{H}){}^{12}\text{C}$] で絶えず生成し (約 0.5 原子/cm²・s), 直ちに水に取り込まれて地球上の水循環に加わる. 対流圏に入ると5~20日で雨として降下する(大気中の平均滞留時間は2年). 天然の T/H 比は $10^{-17} \sim 10^{-18}$ 程度であり, 原子比 T/H = 10^{-18} を1トリチウム単位(TU)と呼ぶ. 1 TUの水は約7 dpm/Lであり, 地表水では2~8 TU (平均3.5 TU)である. 天然トリチウムの存在比については, ファルチングス(V. Faltings)とハルテック(P. Harteck)がドイツのハンブルグ近郊で1949年に集めた大気試料の測定 ($0.38 \pm 0.12 \text{ TU}$) が最初である.

トリチウムの製造には原子炉での ${}^6\text{Li}(n, \alpha)\text{T}$ や ${}^3\text{He}(n, p)\text{T}$ 反応が利用されるが, サイクロトロンを用いる ($\text{Be} + \text{d}$)

反応でもつくられ, 核燃料の三体核分裂や重水炉での D(n, γ)T 反応でも発生する. 14 MeV 中性子では ${}^7\text{Li}(n, n'\alpha)\text{T}$ 反応が起き, 核融合炉のトリチウム増殖に利用される. 原子力発電サイクルで放出されるトリチウムは, 炉型にもよるが平均的に40 TBq/GWe・yであり, 再処理施設からの放出量は600 TBq/GWe・yと見込まれる. 1952~1962年の大気圏水爆実験では大量 ($2.6 \times 10^{20} \text{ Bq}$) のトリチウムが放出された (F. Begemann, I. Friedman, *Z. Naturforsch.*, **14a**, 1024, 1959). 現在の天然トリチウム濃度は地表水で20~40 TU, 雨水で4~25 TUであり, 赤道付近で低く緯度とともに増加する. 雨水のみがトリチウムの供給源であった頃の T は陸水や極地方の氷の年代測定に有効であったが, 現在では難しくなった. 天然トリチウムの測定は, β^- 線エネルギーが非常に低いため(平均5.7 keV), 比例またはガイガー領域で計数ガス(メタンなど)に標識化して計数するが, 低バックグラウンド液体シンチレーション計測が一般的である. 現在では AMS (加速器質量分析) も広く使われる. 環境水試料などの測定ではトリチウム濃縮が有効である. 以前は試料水を蒸留精製後にアルカリ電解質溶液から電解していたが, 最近, 固体高分子電解質膜を利用する電解濃縮が開発された(百島則幸らおよび佐久間洋一ら, 第10回環境放射能研究会報 - KEK2003-II, p.331, p.326, 2003). さらに大気中トリチウムを化学形別 (HTO, HT, CH₃T など) に捕集して, 比例計数計測を行うトリチウムモニターの開発も行われている.

制御核融合炉は大量の燃料トリチウムを必要とする. フランスのカダラッシュに建設される国際核融合実験炉(ITER)のトリチウム装荷量は3~5 kg [約 10^{18} Bq] と見積もられており,

その確保にはリチウムの原子炉照射 [${}^6\text{Li}(n,\alpha)\text{T}$] による大量製造や重水炉からの回収が計画されている。旧日本原子力研究所では核融合研究の一環として、 ${}^6\text{Li}\text{-Al}$ 合金ターゲットを材料試験炉 (JMTR, 中性子束 $2 \times 10^{14} \text{ cm}^2/\text{s}$) で 80 日間照射して 1 回当たり 0.1 g (37 TBq) の大量製造に成功し (棚瀬正和他, *J. Nucl. Sci. Technol.*, **22**, 147, 1985), ミュオン触媒核融合実験の $\text{D}_2\text{-T}_2$ ターゲットとして用いられた (工藤博司他, *Appl. Radiat. Isot.*, **43**, 577, 1992)。このような大量トリチウムの計量に放射線計測は不向きで、質量、容量、圧力、熱量などの測定が有効である。

ベリリウム-7, -10

beryllium-7, -10 (${}^7\text{Be}$, ${}^{10}\text{Be}$)

ベリリウムの放射性同位体 (${}^7\text{Be}$: EC, $E_\gamma = 477.6 \text{ keV}$, $T_{1/2} = 53.3 \text{ d}$; ${}^{10}\text{Be}$: $E_\beta^{\text{max}} = 0.556 \text{ MeV}$, no γ , $T_{1/2} = 1.5 \times 10^6 \text{ y}$). 1938 年, ワシントン DC のカーネギー研究所地磁気研究部のロバーツ (R.B. Roberts) とハイデンバーグ (N.P. Heydenburg) およびペンシルバニアのフランクリン研究所のロッチャー (G.L. Locher) が, ${}^6\text{Li} + \text{d} \rightarrow {}^7\text{Be} + \text{n}$ の反応から ${}^7\text{Be}$ (EC, $T_{1/2} = 43 \text{ d}$) を見出した (*Phys. Rev.*, **53**, 1016, 1938)。一方, 1936 年, カリフォルニア大学バークレー校放射線研究所のマクミラン (E.M. McMillan) は, 37 インチサイクロトロンで中性子発生用に d ($E_d = 2\text{--}3 \text{ MeV}$) で照射したベリリウム中に ${}^9\text{Be}(\text{d,p}){}^{10}\text{Be}$ 反応でつくられたと考えられる長寿命 β^- 放射体の発見を報告した。さらにいくつかの測定報告が続いたが, ${}^9\text{Be}(\text{d,t}){}^8\text{Be}$ 反応による ${}^3\text{H}$ 生成の誤りと分かった。1943 年, マクミランと化学教室のリュウベン (S. Ruben) は照射履歴の異なる 3 種のベリリウムを化学的に精製し, ${}^{10}\text{Be}$ の β^- 最大エネルギーは $560 \pm 50 \text{ keV}$ であり, 半減期は約 1.3×10^6 年であるとの結果を得た。マクミランはさらに 1947 年, ワシントン大学セントルイス校のサイクロトロンで d を照射したベリリウムを使って $E_\beta^{\text{max}} = 560 \pm 10 \text{ keV}$ および $T_{1/2} = (2.5 \pm 0.5) \times 10^6 \text{ y}$ の値を得, アルゴンヌ国立研究所のヒューズ (D.J. Hughes) らが同年にハンフォード原子炉で中性子照射した BeO を使って求めた $T_{1/2} = 2.9 \times 10^6 \text{ y}$ と一致することが分かった。この 2.5×10^6 年の値はその後長く使われてきたが, フランスのオルセー国立科学センターのユー (F. Yiou) とレイスベック (G.M. Raisbeck) は, ${}^{10}\text{Be}$ の宇宙・地球化学的関心から再測定を試み (1.5 ± 0.3)

$\times 10^6$ 年を得た (*Phys. Rev. Lett.*, **29**, 372, 1972). そこで, マクミランは 25 年前の実験ノートを再点検したところ, $\ln 2$ の因子を忘れていたことが分って落着いた [$T_{1/2} = (1.7 \pm 0.4) \times 10^6$ y; *Phys. Rev.*, **C6**, 229, 1972].

^7Be の半減期は発見以来現在まで 52.9 ~ 53.6 日の間の値が数多く報告されてきた. 1947 年, セグレ (E. Segrè) らが, 軌道電子捕獲 (EC) 過程は軌道電子の原子核内密度に依存し, 化学形や圧力などの物理的状態によって半減期が変化することを示唆し, ^7Be (EC の分岐比 89.6% は $3/2^-$ の ^7Li の基底状態へ, 10.4% は 478 keV で $1/2^-$ の第 1 励起状態へ遷移) はその検証に適するよい対象と目されてきたことによる. 長年にわたる多様な化学形についての検証実験で 0.2% までの差異が見られた. 2004 年, 東北大学原子核理学研究施設の大槻勤らはさらに大きな差異を発見し注目された. フラーレン C_{60} のケージに閉じ込めた ^7Be ($^7\text{Be}@\text{C}_{60}$) と金属 Be 中の ^7Be の半減期はそれぞれ 52.68 (± 0.05) 日と 53.12 (± 0.05) 日であり, $^7\text{Be}@\text{C}_{60}$ の値が 0.83% (約半日) 短くなることを報告した (*Phys. Rev. Lett.*, **93**, 112501, 2004).

^7Be と ^{10}Be は, 大気成層圏中で ^{14}N や ^{16}O の主に銀河宇宙線による核破砕でつくられる. その生成速度は 1962 年ラル (D. Lal) とピータース (B. Peters) によって緯度と高度について見積もられ (*Handbuch der Physik*, 46/2, p. 551, Springer, 1967; 旧半減期使用), それ以来世界各地で測定が続けられている. ^7Be は 477.6 keV の γ 線によって簡単に測定することができる. ^{10}Be の検出には, 化学的に純化した試料を特別に工夫した高感度ベータ線検出器 (Y. Fujita 他, *Nucl. Instr. Methods*, **128**, 523, 1975) で測定する方法が使われてきたが, 1980

年代以降は, 飛躍的に感度が高くなった加速器質量分析 (AMS; 例えば K. Kobayashi 他, *Nucl. Instr. Methods*, **B72**, 579, 2000) の利用が主流になっている. ^7Be と ^{10}Be の大気や海水中での滞留時間は短く, ほとんどは土壌や海底土に蓄積している. このことから, 堆積速度の小さい ($\sim 1 \text{ mm}/10^3 \text{ y}$) 海底堆積物中の ^{10}Be から宇宙線の長期変動あるいは堆積環境の研究が注目されてきた (S. Tanaka 他, *Science*, **160**, 1348, 1968; T. Inoue 他, *Nature*, **277**, 209, 1979; S. Tanaka, T. Inoue, *Earth Planet. Sci. Lett.*, **45**, 181, 1979; 永井尚生他, 東京大学原子力総合研究センター MALT Reports, 2001, 2003). 今村峯雄らは, 東北火山フロントの熔岩中の ^{10}Be を AMS を用いて測定し, ^{10}Be を含む深海底堆積物が太平洋プレートに乗って海溝下に沈み込み, 部分熔融したマグマと共に噴出したとする考えを提唱した (*Nucl. Instr. Methods*, **B5**, 211, 1984).

^{10}Be は, ^{26}Al あるいは ^{36}Cl と組み合わせ考古学で遺物の埋没年代や地層剝削速度の研究に重要な役割を果たしている (T.C. Partridge 他, *Science*, **300**, 607, 2003; R. Braucher 他, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **69**, 1473, 2005). ラルらは最近, バルバドスとプエルトリコの 12 ~ 20 万年 (通常ウラン系列核種で測定) のサンゴの中の $^{10}\text{Be}/\text{Be}$, $^{26}\text{Al}/\text{Al}$ および $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比を測定し, ^{26}Al と ^{36}Cl はサンゴ形成後に宇宙線でつくられ, ^{10}Be は海水中の溶解 Be と共に結晶格子に取り込まれたもので, サンゴの剝削速度や年代測定に使えることを示した (D. Lal 他, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **69**, 5717, 2005). 最近, 隕石中の最も始原始的な白色包含相 (Ca, Al-rich inclusions, CAI) の諸鉱物中に $^{10}\text{B}/^{11}\text{B}$ 比と $^7\text{Li}/^6\text{Li}$ 比の変動が見出された. これには, 隕石母天体に集積する以前の原始太陽 (T. Tauri 段階)

での陽子照射でつくられた ^{10}Be と ^7Be の壊変生成物である ^{10}B と ^7Li が関与すると考えられ、 ^{26}Al ($T_{1/2} = 7.1 \times 10^5 \text{ y}$) による $^{26}\text{Mg}/^{24}\text{Mg}$ 比の変動測定とともに、惑星形成過程の興味深い研究が展開されている (M. Chaussidon 他, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **70**, 224, 2006).

炭素-14 carbon-14 (^{14}C)

質量数 14 の炭素の放射性同位体 ($E_{\beta}^{\text{max}} = 157 \text{ keV}$; $T_{1/2} = 5715 \text{ y}$). 1936 年頃より、 ^{14}C のエネルギー (質量) が ^{14}N より 0.17 MeV ほど大きいので、 ^{14}C は放射性であろうと考えられ、 $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$ 反応で確かめようとしていた。カリフォルニア大学放射線研究所では、サイクロトロン の荷電粒子照射による $^{13}\text{C}(d,p)^{14}\text{C}$ や $^{11}\text{B}(\alpha,p)^{14}\text{C}$ 反応で ^{14}C をつくる実験を進めた。1940 年になって、同研究所のリューベン (S. Ruben) とカーメン (M.D. Kamen) が照射したグラファイトや NH_4NO_3 などから炭素を放射化学的に分離・精製して、 ^{14}C は $10^3 \sim 10^5$ 年の半減期をもつ β^- 放射体 ($E_{\beta}^{\text{max}} = 145 \pm 5 \text{ keV}$) であることを見出した (*Phys. Rev.*, **59**, 349, 1941; 同誌, **57**, 549, 1940; 同誌, **58**, 194, 1940). 1946 年、コロンビア大学のライド (A.F. Reid) らとダニング (J.R. Dunning) は改良ガイガーカウンターと質量分析計を使って $T_{1/2} = 4700 \text{ y}$ を得たが、1955 年にリビー (W.F. Libby) が求めた $T_{1/2} = 5568 \text{ y}$ が採用された。1962 年にケンブリッジ大学で開催された第 5 回放射性炭素による年代測定会議で、マン (W.B. Mann) ら 3 つのグループから提出された値から $T_{1/2} = 5730 \pm 40 \text{ y}$ を使うことにし、核実験など (1990 年までに 220 PBq; 原子力発電では 18 TBq/GWe \cdot y の ^{14}C が放出された) の影響のない 1950 年を“年代ゼロ年” (Before Present, BP) の基準とすることが確認された。

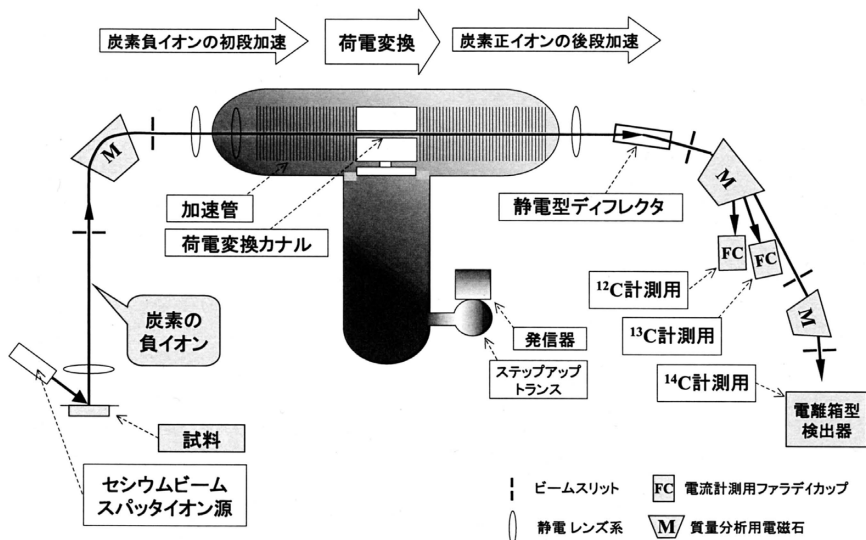
一方、 ^{14}C は二次宇宙線の中性子と大気窒素との $^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$ 反応でつくられると推測されていた (1934 年 A.V. Gross; 1939 年 C.G. Montgomery と D.D. Montgomery). 実際、リビーらは 1946 年にワシントン DC 近くのボルチモア市下水処理場のメタンガスの中にその存在を確認した (E.C. Anderson, W.F. Libby, *Phys.*

Rev, 72, 931, 1947). リビーはこの発見を機に ^{14}C による年代測定をはじめ (E.C. Anderson, W.F. Libby, *Phys. Rev.*, 81, 64, 1951; W.F. Libby, "Radiocarbon Dating, 2nd ed.", Univ. Chicago Press, 1955), その研究で 1960 年にノーベル化学賞を受賞した。 ^{14}C は生成すると直ちに $^{14}\text{CO}_2$ となり, 地球の炭素循環に入るが, 生成と壊変は平衡関係にあり, 地表での生成率は $2,200$ 原子 / $\text{m}^2 \cdot \text{s}$ である。 人類が化石燃料を燃やし始めてから ^{14}C を含まない CO_2 が増加 (Suess 効果) し続け (1900 ~ 1950 年で 1 ~ 3%) 比放射能は低下している。 1950 年以前の比放射能は 0.25 Bq/g-C であり, 現在では $0.226 (\pm 0.001)$ Bq/g-C であることが分かっている。

β^- 測定による ^{14}C 年代測定は, 求める精度にもよるが, 数グラムの試料で 2 ~ 3 万年までである。 生物遺体や地質学試料中の木片や木炭などについて既に膨大なデータが蓄積されており, 結果の多くは 1951 年から *Am. J. Sci.* 誌, 1959 年からはその別冊として年 1 回

"Radiocarbon" 誌に掲載されてきた。 日本では, 1960 年の初めに小田稔らの宇宙線グループが樹齡 1820 年の屋久杉の年輪について ^{14}C 比放射能測定を行い, 地磁気変動との相関を明らかにした。 その後, 学習院大の木越邦彦が日本における ^{14}C 年代測定拠点を開いた。 加速器質量分析 (AMS) は世界に 60 以上の施設があり, 多くは ^{14}C 測定に関わっている。 日本では名古屋大学年代測定センターが 1983 年以来, 装置更新を経ながら ^{14}C 専用 AMS を用いて実績を挙げ, 東京大学タンデム加速器研究施設 (MALT) も ^{14}C -AMS に重きを置いてきた。 日本の弥生時代開始が 500 年遡るとの国立歴史民俗博物館の最近 (2003) の結果も ^{14}C -AMS による (今村峯雄, *J. Nucl. Radiochem. Sci.*, 4 Suppl., 28, 2003)。

^{14}C 標識化合物は, 有機化学や生物化学の研究に利用される。 $^{14}\text{CO}_2$ を使ったカルヴィン (M. Calvin) による 1957 年の植物光合成機構解明は特筆すべき成果であった (1961 年ノーベル化学賞)。



C-14 測定用タンデム加速器質量分析装置

^{14}C の発見の経緯が長引いたのは、 β^- 線エネルギーが低いために測定が難しかったためで、逆同時計数遮蔽を用いたガイガー計数 ($^{14}\text{CO}_2$) および比例計数 ($^{14}\text{CH}_4$) [リビー・カウンターと呼ばれる] が計数ガス封入で使われ、液体シンチレーションも多用されてきた。1980年代からは、上記のように AMS が年代測定などでミリグラム量の試料中の極微 ^{14}C の測定に真価を発揮している。

ナトリウム-22, -24

sodium-22, 24 (^{22}Na , ^{24}Na)

ナトリウムの放射性同位体 (^{22}Na : β^+ , EC, γ , $E_\gamma = 1274.542$ keV, $T_{1/2} = 2.6019$ y; ^{24}Na : β^- , γ , $E_\gamma = 2754.028$ keV および 1368.675 keV, $T_{1/2} = 14.9590$ h). 1934年、ローマ大学のフェルミ (E. Fermi) らは Ra-Be および Po-Be 中性子源を用いる放射化実験の中で、 $^{23}\text{Na}(n,\gamma)^{24}\text{Na}$, $^{24}\text{Mg}(n,p)^{24}\text{Na}$ および $^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$ による ^{24}Na (β^- , γ ; $T_{1/2} = 15$ h) を見出した (この年のうちに $^1\text{H} \sim ^{238}\text{U}$ の 59 元素を照射し、化学的同定を含めて新放射性核種を随時報告; E. Amaldi 他, *Proc. Roy. Soc., London*, **149A**, 522, 1935). ^{24}Mg と ^{27}Al の反応は化学的同定を含めて早い時期に分かっていたが、 ^{23}Na の反応は照射場の水の存在で反応率が高まったこと (中性子減速効果; 同年 10 月に発見) が確認につながった。カリフォルニア大学バークレー校のローレンス (E.O. Lawrence) は、同年 (1934) 秋、27 インチサイクロトロンからの重陽子 (当時 “deutons” と呼んだ: $E_d = 2.15$ MeV) を NaCl に照射し、化学的同定と放出陽子数の測定によって $^{23}\text{Na}(d,p)^{24}\text{Na}$ 反応による ^{24}Na の生成を報告するとともに物理学 (高エネルギー β^- 線と γ 線の吸収) や生物学への応用 (トレーサー利用) を示唆した。 ^{24}Na の半減期測定は、1970 年代前半までに 20 報以上を数えるが、1995 年の評価 (R.B. Firestone, V.S. Shirley 編, *Table of Isotopes*, 8th ed., 1996) で現在値になった。

^{22}Na は 1935 年、ナチズムに追われ一時滞在したロンドンのバークベックカレッジからコペンハーゲンの理論物理学研究所に移ったばかりのフリッシュ (O.R. Frisch; 1939 年に叔母のリーゼ・マイトナーと共に核分裂を液滴模型で説明) によって発見された。マイトナーが

前年に見つけた $F + \alpha \rightarrow \beta^+$ の正体を確かめるため、ラジウムからの α 線を NaF と LiF に照射したところ、 $^{19}\text{F}(\alpha, n)$ 反応によって $^{22}\text{Na}(\beta^+)$ が得られたと報告した (*Nature*, **136**, 220, 1935). 1937 年、カリフォルニア大学バークレー校のラスレット (L.J. Laslett) はサイクロトロンからの 10 MeV の α ビームでこの反応を確かめるとともに、重陽子 ($E_d = 5.2$ MeV) で金属マグネシウムを照射して $^{24}\text{Mg}(d, \alpha)^{22}\text{Na}(\beta^+, T_{1/2} = 3.0 \pm 0.2 \text{ y})$ を報告し、 ^{22}Na の β^+ 壊変と競合する EC (湯川秀樹と坂田昌一が 1935 年に提唱, *Proc. Phys. Math. Soc. Japan*, **17**, 467, 1935, 同誌, **18**, 128, 1936) の検証 (^{40}K の項参照) を呼びかけた (*Phys. Rev.*, **52**, 529, 1937). インド・ボーズ研究所のサハ (N.K. Saha) は Po からの α 線で ^{19}F を照射して ^{22}Na をつくり、半減期 (2.8 ± 0.5 年) と最大 β^+ エネルギー ($E_{\beta^+}^{\text{max}} = 0.61 \pm 0.03$ MeV) を求め、サージェント則からスピン変化を $\Delta I = 2$ と推定した (現在値は $\Delta I = 2$, パリティ変化 $\Delta \Pi = 0$). 半減期の報告はその後、ラスレットの 3.0 年 (1949), メリット (W.F. Meritt) らの 2.58 年 (1957), ワイアット (E.L. Wyatt) らの 2.62 年 (1961) と続くが、1965 年の ORNL レポートでの評価値 ($T_{1/2} = 2.602 \pm 0.002 \text{ y}$) とメリット (J.S. Meritt) の 2.6026 ± 0.0022 年に基づく評価によって現在値に至っている (Table of Isotopes, 8th ed.). ^{22}Na の EC 分岐については、ラスレットの指摘および ^{22}Ne の第 1 励起準位への EC/ β^+ 分岐比 (0.110) がベータ壊変における Fierz 干渉項の存否検証につながるのと観点から、多くの実験がなされた (例えば A. Williams, *Nucl. Phys.*, **52**, 324, 1964).

ナトリウムは原子番号が奇数 ($Z = 11$) で、唯一の安定同位体である ^{23}Na (同位体存在度 100%) は比較的長半減期の

^{22}Na と ^{24}Na に挟まれている。このような関係は ^4Be , ^9F , ^{13}Al , ^{15}P , ^{21}Sc など安定同位体が 1 個のみの場合 (Be 以外はすべて Z が奇数) にみられる。 ^{22}Na と ^{24}Na は、壊変図式が単純な高いエネルギーの γ 放射体であり、測定の標準線源として重要な核種である。半減期は短いですが、 ^{24}Na の主要な β^- 分岐 (99.944%) は ^{24}Mg の 4122.874 keV の第 2 励起準位への転移 ($4+ \rightarrow 4+$) で、2754.028 keV と 1368.633 keV のカスケード γ 転移が続く。このため、ガンマ線スペクトルに現れるいろいろな光電ピーク (2 つの γ 線的全吸収ピーク, シングルおよびダブルエスケープピーク, 消滅放射線の全吸収ピーク) の好例として使われる。また、 ^{22}Na は陽電子源として広く利用される。

ローレンスが示唆した ^{24}Na のトレーサー利用はその後、人体を含めて生体におけるナトリウムの循環系や組織全体における挙動を外部から追跡することに活用されてきた。ナトリウムに天然放射性核種が存在するとの報告 (A.K. Brewer, *Phys. Rev.*, **49**, 856L, 1936) があつたが、これはすぐに否定された (M.B. Sampson, W. Bleakney, 同誌, **50**, 456, 1936). ^{22}Na と ^{24}Na はともに、自然界では大気中で宇宙線による Ar の核破砕反応でつくられ、大気エアロゾルや雨水中に検出され (^{22}Na : L. Marquez 他, *Nuovo. Cim.*, **6**, 1292, 1957; A. Sakaguchi 他, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **258**, 101, 2003; ^{24}Na : W. Rödel, *Nature*, **200**, 999, 1963; K. Komura 他, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **269**, 511, 2006), 他の宇宙線生成核種の ^7Be や ^{10}Be などとともに成層圏-対流圏における空気塊の移行過程の解明に役立ってきた (V.Yu. Luyanas 他, *J. Geophys. Res.*, **75**, 3665, 1970; H. Tokuyama, S. Igarashi, *J. Environ. Radioactivity*, **38**, 147, 1998; $^{7,10}\text{Be}$ の項参照).

隕石中では、ケイ素、鉄、ニッケルなどの核破砕生成核種の一つとして、 ^{22}Na の測定値も1950年代後半以降に蓄積され、地球近傍での宇宙線照射状況の知見を与えてきた。 ^{24}Na は隕石落下後の早い時刻に測定する必要があるが、半減期24時間以内の ^{28}Mg 、 ^{43}K 、 ^{57}Ni などとともに明確な測定がなされたのは1996年1月に落下したつくば隕石と1999年9月に落下した神戸隕石であった(井上睦夫、小村和久、*地球化学*, **35**, 13, 2001)。このような測定では、高感度の微弱放射能測定装置が準備され、かつ特別の方法が適用されなければならない(参考: 本田雅健、小村和久、坂本浩、“宇宙放射線生成核種”, 「西村純編, 実験物理学講座25」, 共立出版, 1986)。

アルミニウム-26

aluminium-26 (^{26}Al)

質量数26のアルミニウムの長寿命放射性核種(β^+ , EC, $E_\gamma = 1808.6$ keV; $T_{1/2} = 7.1 \times 10^5$ y)。1950年頃より、半減期6秒の β^+ 放射体 ^{26}Al ($Q_{\beta^+} = 4$ MeV)はスピン・パリティ ($I^\pi = 0^+$)の準安定状態で ^{26}Mg ($I^\pi = 0^+$)に壊変するが、基底状態 ($I^\pi = 5^+$)の方が長寿命の β^+ 放射体であろうとの指摘があった。1954年にピッツバーグ大学のコーマン(T.P. Kohman)らは、同大学のサイクロトロンを用いて、15 MeV-dの $^{25}\text{Mg}(d,n)^{26}\text{Al}$ および $^{26}\text{Mg}(d,2n)^{26}\text{Al}$ 反応で得た ^{26}Al からの0.51 MeV消滅放射線($E_{\beta^+} \sim 1$ MeV)と1.9, 0.717ならびに2.91 MeVの γ 線を見出し、半減期を $10^4 \sim 10^6$ 年と見積った。1959年に至って、彼らは $E_{\beta^+}^{\text{max}} = 1.16 \pm 0.05$ MeVの他 $E_\gamma = 1.83 \pm 0.03$ MeV(分岐比99.70%), 1.12 ± 0.03 MeV(3.7%), 2.96 ± 0.05 MeV(0.30%)および $T_{1/2} = 7.4 \times 10^6$ yを求め壊変図式をほぼ確立した。この間、オークリッジ国立研究所(ORNL)の86インチサイクロトロンで $^{27}\text{Al}(p,pn)^{26}\text{Al}$ および $^{27}\text{Al}(p,2n)^{26}\text{Si} \rightarrow ^{26}\text{Al}$ により生成する ^{26}Al の、キャベンディッシュ研究所では重陽子($E_d = 5$ MeV)による $^{28}\text{Si}(d,\alpha)^{26}\text{Al}$ で生成する ^{26}Al の壊変が調べられた。

コーマンらは1957年、 ^{26}Al (および ^{22}Na)の無担体調製法を研究し、広い分野(無機化学, 電気化学, 固体物理学, 地球化学, 鉱物・土壌学, 金属, 窯業, 生物学等)への応用を考えた。 ^{26}Al は近年、アルツハイマー病などの原因物質となるAl化合物の挙動, 河川水中の魚へのAlの吸着, 酸性化土壌からのAlの溶出などの研究のトレーサーとして利用されている(D. Berggren 他, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **69**, 5263, 2005)。

²⁶Al が特に注目されたのは、惑星母天体の形成(半径 100 ~ 200 km)後の 500 万年 ~ 1 億年の間に、マントルと核の分別に必要な 2,000 ~ 3,000°C に加熱する熱源として、 $10^4 \sim 10^8$ 年の消滅核種である ²⁶Al, ⁶⁰Fe, ³⁶Cl, ¹⁰Be, ²³⁷Np, ²⁴⁴Pu, ²⁴⁷Cm, ¹²⁹I や ⁴⁰K の放射熱が計算され、²⁶Al の重要な寄与が指摘された (R.A. Fisch, G.G. Goles, E. Anders, *Astrophys. J.*, **132**, 243, 1960; T.P. Kohman, *J. Chem. Ed.*, **38**, 73, 1961) ことによる。1970 年代中頃に、Allende 隕石の CAI (Ca,Al-rich inclusions) に消滅核種 ²⁶Al の壊変による ²⁶Mg が見つかった (T. Lee, D.A. Papanastassiou, G.J. Wasserburg, *J. Geophys. Res. Lett.*, **3**, 109, 1976; *Astrophys. J.*, **211**, L107, 1977; *Geochim. Cosmochim. Acta*, **41**, 1473, 1977). 消滅核種 ¹²⁹I と ²⁴⁴Pu から求められた形成年代(星内核合成から隕石母天体の形成までの時間)の 10^8 年では ²⁶Al は消滅しているはずで、別の星の r-過程の寄与が考えられるなどの議論を呼んだ (G.J. MacPherson 他, *Meteoritics*, **30**, 365, 1995). 近年では、始原的隕石に太陽系外先駆物質 (pre-solar materials) が見つかり、母天体集積前の宇宙線照射による短寿命核種生成に起源を求めたり、形成過程での原始太陽 (T. Tauri 星) からの陽子照射に起因するとする説明もある (E.D. Young 他, *Science*, **308**, 223, 2005; ^{7,10}Be, ³⁶Cl, ⁵³Mn の項参照).

²⁶Al は ¹⁰Be とともに高エネルギー (~ GeV) 銀河宇宙線 (p) による大気成分 (主に Ar) の核破碎反応や低エネルギー (≤ 100 MeV) 太陽宇宙線 (p) による宇宙塵物質との核反応でつくられ、地球上では深海底堆積物に蓄積する。これを確かめるため、東京大学原子核研究所の田中重男らは太平洋深海底 (5439 m) 堆積物のコア試料中の ²⁶Al と ¹⁰Be を調べ、核破碎反応起源 ²⁶Al の可能性を論じた (*Science*, **160**, 1348, 1968).

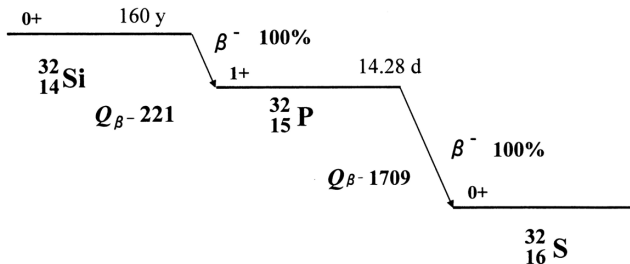
その後の田中ら (1976) および長谷部信行ら (1977) の研究により、宇宙塵由来の ²⁶Al は大気由来の 10% 程度以下であることが示された。近年、加速器質量分析の進歩で両核種の精度の良い測定が可能となり、地上近傍での ²⁶Al/¹⁰Be 生成比の一定性を使って人骨化石の埋没年代の測定にも使われた (例えば, T.C. Partridge 他, *Science*, **300**, 607, 2003).

²⁶Al の地表および地下での生成は、宇宙線の μ^- 粒子による ²⁸Si($\mu^-, 2n$)²⁶Al 反応が考えられ、1964 年から田中グループ (坂本浩, 高木仁三郎, 槌本道子) は大量の SiO₂ (珪岩) からの ²⁶Al の探索によって天然由来の ²⁶Al を γ 線計測によつてはじめて検出し、 μ^- 粒子の数百万年にわたる長期変動と岩石の剝削 (地層変動) を研究した (*J. Geophys. Res.*, **73**, 3303, 1968; 同誌, **80**, 3757, 1975). 現在では AMS を使う精密再測定により γ 線測定の結果を確認し、さらに μ^- 粒子束地下深度減衰と ²⁶Al 量の相関が明らかにされつつあり (柴田誠一他, *J. Nucl. Radiochem. Sci.*, **7**, 33, 2006), 長期にわたる海進・海退の研究への応用も検討されている。

ケイ素-32 silicon-32 (^{32}Si)

質量数 32 のケイ素の放射性同位体 ($E_{\beta}^{\text{max}} = 0.221 \text{ MeV}$, no γ ; $T_{1/2} = 160 \text{ y}$). 1953 年リンドナー (M. Lindner) は、カリフォルニア大学バークレー校放射線研究所の 184 インチ - サイクロトロン陽子 ($E_p = 340 \text{ MeV}$) で塩化ナトリウム NaCl を照射後、 $(\text{NH}_4)_2\text{SiF}_6$ を担体として化学分離し、 $^{37}\text{Cl}(p, \alpha 2p)$ 反応でつくられる半減期 710 年の β^- 放射体 ^{32}Si を見出し、娘核種 ^{32}P の放射能の成長を観測した (*Phys. Rev.*, **91**, 642, 1953). ^{32}Si の β^- 線の直接測定は難しいため、その後報告された半減期の値は 100 ~ 700 年にわたり分布し、ガイソフ (D. Geithoff) が 1962 年に報告した約 650 年が長い間使われてきた. 1977 年、金沢大学の坂本浩らは東京大学原子核研究所のシンクロサイクロトロンで NaCl 板のスタックを照射し、半減期 500 年を仮定して 52 MeV までの励起関数を測定した (*J. Inorg. Nucl. Chem.*, **40**, 1183, 1977). この ^{32}Si 試料を使って、東京大学物性研究所の本田雅健らはカリフォルニア大学ラホヤ校との加速器質量分析 (AMS) で $T_{1/2} = 108 \pm 18 \text{ y}$ の値を報告した (D. Elmore 他, *Phys. Rev. Lett.*, **45**, 589, 1980; W. Kutschera 他, 同誌, **45**, 592, 1980). その後の再測定で 172 年とされたが、現在では 160 年が正しいとされている.

^{32}Si は大気中で宇宙線による Ar の核破砕反応でつくられ、その生成量についてのラル (D. Lal) とピーターズ (B. Peters) の見積り (*Handbuch der Physik*, 46/2, p. 551, Springer 1967) 以来、水文学を含む地球化学的関心は高いが、上述の半減期の問題などがあって大きな進歩はまだない. 最近、東京大学タンデム加速器研究施設 (MALT) で ^{32}Si -AMS が開発されており (藤村匡胤他, *J. Nucl. Radiochem. Sci.*, **5**, suppl., 65, 2004), 今後の研究の進展が期待される.



Si-32, P-32 の壊変図 (エネルギーの単位は keV)

リン-32 phosphorus-32 (^{32}P)

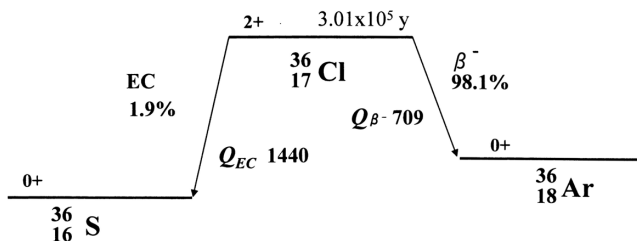
質量数 32 のリンの放射性同位体 ($E_{\beta}^{\max} = 1.709 \text{ MeV}$, no γ ; $T_{1/2} = 14.28 \text{ d}$). ローマ大学のアマルディ (E. Amaldi), フェルミ (E. Fermi) およびセグレ (E. Segrè) のグループは, 1934 年より始めた Rn (または Ra)-Be および Po-Be 中性子源を用いる中性子 (水素減速の遅い中性子; 10 月 22 日偶然に発見) による一連の放射化実験の一つとして, 照射した硫黄から抽出したリンが半減期 14 日で β^- 線のアルミニウム半減厚みが 0.1 g/cm^2 を示すことから, これは同位体存在度 94.93% の ^{32}S の (n,p) 反応で生成した ^{32}P であるとした (E. Fermi 他, *Proc. Roy. Soc.*, **146A**, 483, 1934; E. Amaldi 他, 同誌, **149A**, 522, 1935). 嵯峨根達吉は 1936 年, カリフォルニア大学放射線研究所の 27 インチサイクロトロンからの重陽子 ($E_d = 4 \text{ MeV}$) で硫黄を照射し, 化学分離を併用しながら ^{30}P や ^{34}Cl とともに ^{32}P (β^- ; $T_{1/2} = 14 \pm 0.3 \text{ d}$) の生成を, また D-D 反応からの中性子照射で $^{34}\text{S}(n,\alpha)^{31}\text{Si}$ と $^{32}\text{S}(n,p)^{32}\text{P}$ 反応による ^{31}Si (β^- , γ ; $T_{1/2} = 2.62 \text{ h}$) と ^{32}P の生成を確認した (*Phys. Rev.*, **50**, 1141, 1936). 同研究所のライマン (E.M. Lyman) は 1936 年, 重陽子 ($E_d = 5 \text{ MeV}$) を赤リンに照射して ^{32}P をつくり, 磁気スペクトロメーターによって ^{32}P の β^- 線エネルギー (E_{β}^{\max}) を 1.69 MeV と決定した.

^{32}P は, ^{92}Y とともに特に高いエネルギーの純 β^- 放射体で測定しやすく, 半減期が適当に長いことから β^- 線の標準や放射化学の基礎的諸実験に重宝される. また, 原子炉で大量に製造できることから, 生物化学の分野で ^3H , ^{11}C , ^{14}C , ^{35}S などとともにトレーサーとして利用され, リン酸基標識などに広く用いられている.

塩素-36 chlorine-36 (^{36}Cl)

質量数 36 の塩素の放射性同位体 (β^- 98.1%, $E_{\beta}^{\max} = 0.709 \text{ MeV}$; EC 1.9%, β^+ 0.001%, $Q_{\text{EC}} = 1.44 \text{ MeV}$; $T_{1/2} = 3.01 \times 10^5 \text{ y}$). 1941 年, 米国マサチューセッツ工科大学のアムハーストカレッジのグレイハム (D.C. Graham) と英国リバプール大学のウォルケ (H.J. Walke) はカリフォルニア大学バークレー校の 37 インチサイクロトロン照射台近くに 6 ヶ月以上置いた多量 (各 1 ポンド) の塩素酸ナトリウム NaClO_3 と過塩素酸ナトリウム NaClO_4 から $^{35}\text{Cl}(n,\gamma)$ 反応に伴うシラードチャルマース反応を受けた ^{36}Cl を水に溶解し, AgCl 沈殿, アンモニア溶解, 不純物スカベンジなどの操作の後に NaCl としてその放射線をローリッツェン検出器と霧箱で観察し, ^{36}Cl が 10^3 年以上の半減期をもち β^- 壊変 ($E_{\beta}^{\max} = 0.64 \text{ MeV}$) と EC 壊変をする核種であることを見出した (*Phys. Rev.*, **60**, 909, 1941). その後, 半減期として $2 \times 10^5 \sim 2 \times 10^6$ 年との報告があったが, 1955 年にカナダ・チョークリバー原子力公社のバーソロミュー (R.M. Bartholomew) らは, 中性子照射した NaCl から精製した Cl の質量分析と 4π -メタン・フロー比例計数の絶対測定によって $T_{1/2} = (3.08 \pm 0.03) \times 10^5 \text{ y}$ と決定した (*Can. J. Phys.*, **33**, 43, 1955). 同年, 英国グラスゴー大学のドレバー (P.W.P. Drever) とモルジク (A. Moljk) が壊変様式を確定した (*Phil. Mag.*, **46**, 1337, 1955).

塩素の生物科学での重要性から, ^{36}Cl は ^{38}Cl (β^- , $E_{\beta}^{\max} = 1.643 \text{ MeV}$; $E_{\gamma} = 2.167 \text{ MeV}$; $T_{1/2} = 37.2 \text{ min}$) とともにトレーサー利用に供されてきた. ^{38}Cl は測定し易いが半減期が短く, ^{36}Cl は半減期は長いが測定は難しい. ^{36}Cl の測定には液体シンチレーション計数法が使われてきた. 隕石などの地球外物質では $^{56}\text{Fe}(p,X)^{36}\text{Cl}$ などの反応で ^{36}Cl がつくら



Cl-36の壊変図(エネルギーの単位は keV)

れ、宇宙線照射年代の知見を与える。地球上では、高エネルギー宇宙線により地表の K や Ca あるいは大気中の Ar の核破碎、遅い中性子による Ar の核反応、熱中性子による $^{35,37}\text{Cl}(n,\gamma)$ (地表・地中) および $^{40}\text{Ca}(\mu^-, \alpha)$ 反応 (地中で卓越) でつくられる。また、1954～58年の大気圏核実験(特に海洋上実験)で放出された ^{36}Cl (～75 kg) も拡散している。地下深部やウランの多い地域では、 ^{238}U の自発核分裂からの中性子の捕獲反応も起こる。近年では、 ^{36}Cl の高感度測定に加速器質量分析 (AMS) が用いられ、環境水や大気循環のトレーサーとして、JCO 事故、広島原爆、加速器遮蔽コンクリートでの中性子評価などにおいて活躍している (例えば、関李紀, 放射化学ニュース, No.11, 22, 2005)。宇宙線生成起源の ^{36}Cl は ^{129}I とともに、地下数キロメートルでの水循環のトレーサーとしても注目されている (J. Lippmann 他, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **67**, 4597, 2003; $^{7,10}\text{Be}$, ^{26}Al , ^{129}I の項も参照)。

カリウム-40 potassium-40 (^{40}K)

質量数 40 のカリウムの天然放射性同位体 ($E_{\beta}^{\text{max}} = 1.3116 \text{ MeV}$, 分岐比 89.3%; EC, γ , $E_{\gamma} = 1.4608 \text{ MeV}$, EC 分岐比 11.7% のうち直接基底状態へ 0.048%; $T_{1/2} = 1.27 \times 10^9 \text{ y}$)。カリウムは地球岩石中に平均 3% 含まれ (K_2O として), ^{39}K (同位体存在度 93.258%), ^{40}K (0.0117%) および ^{41}K (6.7302%) からなる。1905年にトムソン (J.J. Thomson, 1856-1940) がカリウムとルビジウムから放出される β^- 線を発見し (*Phil. Mag.*, **10**, 585, 1905), それぞれ ^{40}K と ^{87}Rb によると同定したが, 半減期や壊変図式が確定するまでには時間を要した。それより前の 1897 年末から, マリー・キュリー (M.S. Curie, 1867-1934) はベクレル線がウランに特有かどうかを知るため, 入手できるすべての材料を調べた際 (Po の項参照) に K を含む 2 つの化合物 (potassium floxy tantalate と niobate) に僅かな放射能を認めたが, Ta と Nb によるとした。1928 年, ヘベシー (G. von Hevesy, 1889-1966) らは蒸留により同位体を濃縮して ^{39}K より重い方のフラクションに放射性を認め, 1935 年に ^{40}K であるとした (*Z. anorg. allgem. Chem.*, **171**, 1, 1928; *Z. Phys. Chem.*, Bodenstein Festband, 309, 1931; *Naturwiss.*, **23**, 583, 1935)。同年, ニーア (A.O. Nier) が ^{40}K の存在 (同位体存在度 1/8300) を発見した (*Phys. Rev.*, **48**, 283,

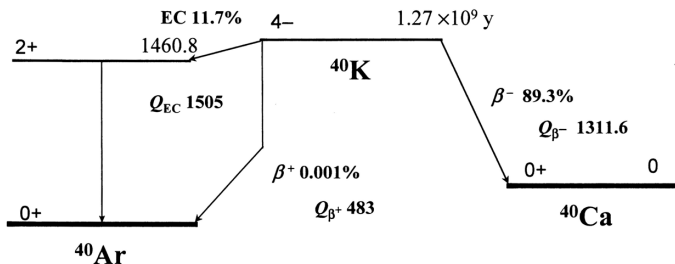
1935). ジッテ (K. Site) は、質量差から ^{40}K は β^+ 放出で ^{40}Ar と ^{40}Ca になると考えたが β^+ の検出ができず (実際 β^+ の分岐は 0.0010%), カリウムの放射能は当時未知の ^{43}K でないかとした (*Z. Phys.*, **96**, 593, 1935).

1935年, 京都大学の湯川秀樹 (1907-1981) と坂田昌一は質量差が $2m_e c^2$ 以下の場合には軌道電子捕獲 (orbital electron capture, EC) のみが起き, $2m_e c^2$ 以上では β^+ 放出と競合するという軌道電子捕獲の理論を構築した (*Proc. Phys. Math. Soc. Jpn.*, **17**, 467, 1935; 同誌, **18**, 128, 1936). 1938年, アルバレ (L.W. Alvarez, 1911-1988) が ^{67}Ga ($T_{1/2} = 3.26$ d) の EC で生じる Zn の KX 線を測定してこの理論を詳しく検証した. その際アルバレは, ^{40}K をはじめ多くの核種 ($^{180\text{m}}\text{Ta}$, ^{65}Zn , ^{197}Hg , ^{106}Ag , 107 or ^{109}Cd , ^7Be , ^{54}Mn) の EC および ^{67}Ga などの γ 転移における内部転換も調べた (両過程共に特性 X 線を放出; *Phys. Rev.*, **54**, 486, 1938). この前年に, スミセ (W.R. Smithe) とヘメンディングー (A. Hemmendinger) が質量分析と放射線測定で ^{40}K の放射性を確定した (*Phys. Rev.*, **51**, 178, 1937). しかし, この時期までの半減期は 1.6×10^8 年 (W. Mühlhoff, 1930) から 2.4×10^8 年 (E. Bleuler, M. Gabriel, 1947) までの値が, また年代の分かった雲母類中の ^{40}Ca と ^{40}K の γ 線測定から 4.5×10^8 年 (L. H. Ahrens, R. D. Evans, 1948) の値が

報告されていた. 引き続き半減期や壊変様式の測定と提案が数多くなされた (12報) が, 1950年のニーアの同位体比再測定を経て, リューツ (H. Leutz) らの測定 (*Z. Phys.*, **187**, 151, 1965) でほぼ現在の値に集束した (参考: K. Min 他, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **64**, 73, 2000; F. Begemann 他, 同誌, **65**, 111, 2001).

この間, 岩石鉱物中の ^{40}K の壊変で生じる ^{40}Ar の蓄積量から地球岩石や隕石の固化年代を得る方法 (A.O. Nier, 1948) が進歩した. さらに, 鉱物試料を中性子照射し, $^{39}\text{K}(n,p)^{39}\text{Ar}$ で生成する ^{39}Ar ($T_{1/2} = 269$ y) と ^{40}Ar の比を質量分析する Ar-Ar 年代測定 (C.M. Merrihue, G. Turner, *J. Geophys. Res.*, **71**, 2852, 1966; ^{129}I の項参照; 近年では前述の Min ら) が確立し, 段階加熱法の適用により鉱物内での ^{40}K - ^{40}Ar の親娘相関関係の検証や ^{40}Ar の保持性の知見が確保されるようになった (G.B. Dalrymple, M.A. Lanphere, "Potassium-Argon Dating for Geologist," W.H. Freeman & Co., San Francisco, 1969).

岩石中のカリウム量はコーマン (T.P. Kohman) と斎藤信房によるまとめ (*Ann. Rev. Nucl. Sci.*, **4**, 1954) によると, 石灰岩の 0.1% から花崗岩の 3.5% まで多様である. 土壌中のカリウム量はカリ肥料の使用量に依存する. 海水中の ^{40}K は約 20 Bq/L で, K/Na 比は岩石平均の 1/30



K-40 の壊変図 (エネルギーの単位は keV)

程度である。体重 70 kg のヒトの体内には必須元素として約 140 g のカリウムがあり（大部分は筋肉に存在）、体内の ^{40}K の放射能は 10^4 Bq 程度となり、内部被ばくは軟組織で約 0.2 mSv/年となる。

カルシウム-41 calcium-41 (^{41}Ca)

質量数 41 のカルシウムの放射性同位体 (EC, no γ ; $T_{1/2} = 1.03 \times 10^5$ y). カルシウムの原子核は陽子数 20 の魔法 (マジック) の数をもち、質量数 40 から 48 にわたって 6 個の安定同位体が存在する。中性子数もマジック (二重マジック) の ^{40}Ca は存在度 96.94% で最も多い。 $^{48}_{20}\text{Ca}_{28}$ も二重マジックで存在度は 0.187% であるが、半減期 5×10^{19} 年の二重ベータ壊変が報告されている。これらの同位体には含まれる ^{47}Ca ($T_{1/2} = 4.53$ d) はエネルギーの高い β^- 放射体 ($E_{\beta}^{\max} = 0.694$ MeV, 1.990 MeV, $E_{\gamma} = 1297.1$ keV) であり、 ^{45}Ca ($T_{1/2} = 162.7$ d) は 99.9981% が低エネルギー β^- 放射体 ($E_{\beta}^{\max} = 0.258$ MeV) である。 ^{41}Ca については、安定同位体として見当たらないことから、1940 年以來 ^{40}Ca と重陽子 ($E_d = 8$ MeV) や ^{40}Ca と遅い中性子の反応で調べられてきたが、X 線測定が難しかった。1950 年、リチャード (H.T. Richard) らが $^{41}\text{K}(p,n)^{41}\text{Ca}$ 反応のしきい値測定 (0.44 ± 0.02 MeV) から ^{41}Ca の電子軌道捕獲 (EC) が期待されることを示し、カナダ・チヨークリバーのヤッフエ (L. Yaffe) のグループが 1950 から 53 年にかけて注意深く中性子照射と化学的純化実験およびカリウムの KX 線 (3 keV) の比例計数測定を行って $T_{1/2} = (1.1 \pm 0.3) \times 10^5$ y の EC 壊変を見出した (F. Brown 他, *Proc. Roy. Soc., London*, **220A**, 203, 1953). その後、半減期の値としてヤッフエらの (7.5 ± 1.1) $\times 10^4$ 年 (J.R.S. Drouin, L. Yaffe, *Can. J. Chem.*, **40**, 833, 1962) やワーリンによる 1.2×10^5 年 (L. Wahlin, *Nucl. Phys. A*, **169**, 95, 1971; 214, 1, 1973) が出されたが、1973 年に馬淵久夫のグループは濃縮 ^{40}Ca の中性子照射で ^{41}Ca をつくり、注意深い X 線測定から (8.85 ± 0.35) $\times 10^4$ 年を得た。文頭に記した値 [(1.03

$\pm 0.04) \times 10^5$ 年] は、この再検討値 (H. Mabuchi 他, *J. Inorg. Nucl. Chem.*, **36**, 1687, 1974) である。

Ca のトレーサーとして ^{45}Ca が使われたことがあるが測定は難しい。 ^{41}Ca は半減期が長すぎ、測定も難しい。自然界では、 $^{40}\text{Ca}(n,\gamma)^{41}\text{Ca}$ により生成する ^{41}Ca のトレーサー利用が考えられ、生物学や地球科学の観点から興味深いが目立った研究はまだない。しかし、原子力や加速器施設のコンクリート廃材のクリアランスレベルの観点から ^{41}Ca 測定が注目され、半導体レーザーによる共鳴励起蛍光測定や多段共鳴電離質量分析を利用する高選択性・高感度測定が達成されようとしている (若井田育夫他; 第 5 回環境放射能研究会報 - KEK2004-8, 261, 2004)。クリアランスレベルの測定だけでなく、医療 (骨代謝) やカルシウムが関与する他の分野への応用が期待される。

太陽系原始星雲への新しい核合成物質の付加と物質の固化との時間間隔は始原隕石中の消滅核種 ^{26}Al (^{26}Mg 異常) の研究で確立されつつあるが、 ^{41}Ca の半減期は ^{26}Al ($T_{1/2} = 7.1 \times 10^6$ y) より短いのでより初期の太陽系生成史のヒントが得られると期待される。 ^{41}Ca については 1994 年、シュリニバーサン (G. Srinivasan) らが炭素質隕石 Efremovk (CV3) の Ca-Al に富む含有物 (CAI) 中の $^{40}\text{Ca}/^{41}\text{K}$ 比の高い pyroxene と perovskite (ともに高温鉱物) のイオンマイクロプローブによる分析から ^{41}K の過剰を見出したことに始まる。CAI の固化は新合成 ^{41}Ca 取り込みの後 100 万年以内で、このとき $^{41}\text{Ca}/^{40}\text{Ca} = (1.5 \pm 0.3) \times 10^{-8}$ と報告している (*Astrophys. J.*, **431**, L67, 1994; *Geochim. Cosmochim. Acta*, **60**, 1823, 1996; S. Sahijpal 他, *Nature*, **391**, 559, 1998)。半減期が同様に短い ^{36}Cl や ^{99}Tc なども合わせて知見が深められつつある

(J.N. Gosawami, A.T. Vanhala, in *Protostars and Planets IV*, V. Mannings 他 編, Univ. Arizona, Tucson, 963, 2000)。

マンガン-53 manganese-53 (^{53}Mn)

質量数 53 のマンガンの長寿命放射性同位体 (EC, no γ ; $T_{1/2} = 3.7 \times 10^6$ y). マンガンの安定同位体は ^{55}Mn のみである. 1955 年, ウィルキンソン (J.R. Wilkinson) とシーライン (R.K. Sheline) は中性子マジック 28 をもつ $^{53}_{25}\text{Mn}_{28}$ は長寿命核種に違いないと予想し, シカゴ大学のベータトロンで $^{54}\text{Fe}(\gamma, p)^{53}\text{Mn}$ 反応を試みたが ^{53}Mn は見つからなかった. そこで 92.1%濃縮の ^{53}Cr を陽子 ($E_p = 9.5$ MeV) で 8 時間照射して Mn を化学分離後, ^{52}Mn (EC, β^+ , γ ; $T_{1/2} = 5.7$ d, 現在値 5.59 d) の影響のない 100 日~26 ヶ月後の壊変から Cr の $K\alpha$ X 線を放出する ^{53}Mn を検出し, $\log ft$ 値の見積もりから半減期を 140 年と推定した. 翌年, ドブロウオスキー (W. Dobrowoski) らが ^{53}Mn の基底状態のスピンが ^{55}Mn と同じ 5/2 ではなく 7/2 であると指摘し, これに基づき, シーラインとフーパー (J.E. Hooper) は半減期を見直して 2×10^6 年 (誤差 10%) とし, この核種の宇宙化学的意義を提起した (*Nature*, **179**, 85, 1957). 鉄隕石では宇宙線の作用で $^{56}\text{Fe}(p, \alpha)^{53}\text{Mn}$, $\text{Fe}(p, \text{spall})^{53}\text{Mn}$ などの反応が考えられ, 数百万年にわたる宇宙空間での宇宙線照射歴や宇宙線強度長期変動の知見が得られる, というものであった. 半減期はその後, 1957 年のハイゼンガ (J.R. Huizenga) とウィング (J. Wing) の 1.3×10^5 年以上, 1965 年のケイ (J.H. Kaye) とクレッシィ (P.J. Cressy) の $(1.9 \pm 0.5) \times 10^6$ 年, 1969 年のホールフェルダー (J.J. Hohlfelder) の $(10.8 \pm 4.5) \times 10^6$ 年を経て, 1971 年に本田雅健らが $(3.7 \pm 0.4) \times 10^6$ 年と決めて推奨値となった (M. Honda, M. Imamura, *Phys. Rev.*, **C4**, 1182, 1971). 最近 (2000-2002), 本田らは, 下記のような研究の進展に対応するために, LEPS による $\text{Cr}K\alpha$ 線測

定と $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$ の質量分析で半減期の再検討を行い, $(3.0 \pm 0.15) \times 10^6$ 年を得たが, まだ精度不足といわれている.

本田らは 1960~61 年に鉄隕石中に ^{53}Mn を初めて検出し (*Geochim. Cosmochim. Acta*, **22**, 133, 1961; *J. Geophys. Res.*, **67**, 4847, 1962), それ以来, 鉄・石質隕石, 月試料, 地球物質の測定でも ^{53}Mn を検出した. ^{53}Mn の測定には, はじめのうちは Cr の $K\alpha$ X 線が使われたが, 1965 年にミラー (H.T. Millard, Jr.) が $^{53}\text{Mn}(n, \gamma)^{54}\text{Mn}$ (EC, $E_\gamma = 834.8$ keV; $T_{1/2} = 312.1$ d) による放射化法を提案した. 1970 年代前半, 松田英毅らは 750 MeV- $p + \text{Fe} \rightarrow ^{53}\text{Mn}$ と鉄隕石 Aroos 中の ^{53}Mn について, 今村峯雄らは, 15 MeV- $\alpha + ^{50}\text{Cr} \rightarrow ^{53}\text{Mn}$ と 4 種の鉄隕石中の ^{53}Mn についてこの放射化法を詳しく検討し, 適用した.

隕石では銀河宇宙線 (GCR: galactic cosmic ray) と太陽宇宙線 (SCR: solar cosmic ray) の陽子線の寄与が重要で, 月表面では SCR が重要である. GCR の二次中性子は $^{56}\text{Fe}(n, p3n)$, $^{54}\text{Fe}(n, 2n)$, $^{56}\text{Fe}(p, \alpha)$ などを通じて ^{53}Mn をつくり, 宇宙線照射年代や隕石の地球大気突入前の大きさの情報を与える. これらの研究には, ^{53}Mn 生成核反応断面積が必要であるが, 1970 年代はじめは陽子エネルギー 730 MeV での測定 (本田他, 1971) があるのみで, 1964 年の本田とラル (D. Lal) の GCR による ^{53}Mn の見積もり, 1972 年のリーディ (R.C. Reedy) とアーノルド (J.R. Arnold) や同年の田中重男らの月の石と宇宙塵への SCR (E_p , $E_\alpha < 100$ MeV) による ^{53}Mn の見積もりには既報の同タイプの励起関数から推測するしかなかった. 1973 年に古川路明らは 52 MeV までの陽子と Fe の反応の励起関数を, 1974 年には柴田誠一らが $E_d = 8.3 - 20$ MeV での $^{52}\text{Cr}(d, n)^{53}\text{Mn}$ 反応の励起関数を測定した. 宇宙塵起

源の ^{53}Mn (深海底土) の探索も行われ、 $\sim 10^{-3}$ dpm/g-Mn の値から 1 年間に地球に流入する宇宙塵の量は 3×10^4 トンであるとの知見が得られた(今村他, 1978)。

近年、太陽系の最も始原的な物質であるコンドライトの白色含有物(CAI)や球粒(コンドリュール)あるいは変性度の高い隕石の中に ^{53}Mn の壊変による ^{53}Cr の過剰が検出され(J.L. Birck, C.-J. Allégre, *Geophys. Res. Lett.*, **12**, 745, 1985), ^{26}Al - ^{26}Mg 対などとともこれら物体の形成について 100 万年スケールでの時間軸と空間軸を入れた詳細な過程が議論されている(参考: $^{7,10}\text{Be}$, ^{26}Al , ^{36}Cl , ^{60}Fe の各項; G.W. Lugmair, A. Shukolyukov, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **62**, 2863 1998; *Meteoritics & Planet. Sci.*, **36**, 1017, 2001; M. Gounelle, S.A. Russell, 同誌, **69**, 3129, 2005)。

鉄-60 iron-60 (^{60}Fe)

質量数 60 の鉄の長寿命放射性同位体 (β^- , γ : $T_{1/2} = 1.5 \times 10^6$ y)。鉄(原子番号 26)の安定同位体は中性子マジック 28 をもつ ^{54}Fe (同位体存在度 5.845%), ^{56}Fe (91.754%), ^{57}Fe (2.119%) および ^{58}Fe (0.282%) である。間に挟まれる奇数中性子の ^{55}Fe (EC, no γ) の半減期は 2.73 年である。 ^{59}Fe (β^- , γ : $T_{1/2} = 44.50$ d) は早くから知られていて、測定し易いガンマ線 ($E_\gamma = 1.292, 1.099$ MeV) をもつことから、鉄の放射性同位体として各方面で重宝がられてきた。 ^{60}Fe は偶々核の安定谷の端より先に位置して β^- 放射体と思われたが、 Q_β の系統性からみてエネルギーは低く、基底状態 ($0+$) の ^{60}Fe から ^{60g}Co の $5+$ への β^- 遷移は第 4 禁制遷移となり、 ^{60m}Co の $2+$ への遷移 ($T_{1/2} = 10$ min) は第 2 禁制遷移となる。このことから $Q_\beta = 0.1 - 0.2$ MeV (現在の値は 0.237 MeV) では $T_{1/2} = 10^8$ y と予想された。

^{60}Fe をつくるのが難しかったため、 ^{60}Fe の半減期を定めることは容易でなく失敗が続いたが、1950 年代中頃にカーネギー工科大学のロイ (J.-C. Roy) とコーマン (T.P. Kohman) は、 ^{60}Fe は ^{60m}Co を経て ^{60}Ni (安定核, 存在度 26.223%) に至り、その半減期は 3 倍の不確定性をもつが、その範囲で 0.3×10^6 y であると初めて報告した。彼らは、同大学のジョーンズ (J.W. Jones) が ^{60}Fe 探索の試みの中で、陽子による Cu の核破砕反応によって高収率で ^{60}Fe が得られる可能性のあることを示したことから、同大学のシンクロトロンで 5 ヶ月前まで中間子発生用に 400 MeV の陽子で 3 ヶ月 (1200 h, 1 mA) 照射した銅ターゲットを入手し、鉄を化学分離して 1 mCi (6×10^7 Bq) の ^{59}Fe とかなりの量の ^{55}Fe を得た。 ^{60}Fe の直接測定はできなかったので、上記の予想から ^{60m}Co のミルキングを繰り返し、特製の

低バックグラウンド GM 計数装置を用いて ^{60}Fe の量を測定し、ジョーンズが求めた核破砕反応の系統性を使って半減期を推定したのであった (*Can. J. Phys.*, **35**, 649, 1957). この結果にコーマン自身が疑問を抱いていたが、1984年にアルゴンヌ国立研究所のクチェラ (W. Kutsehera) らはブルックヘブン国立研究所のラジオアイソトープ製造用ライナック BLIP を使って陽子 ($E_p = 191 \text{ MeV}$) で銅板を28日間 (18.75 mA) 照射した。1年間冷却後に鉄を化学分離し、 $^{60}\text{Fe}/\text{Fe}$ 比をアルゴンヌ国立研究所の FN タンデム - 超電導ライナックを用いる加速器質量分析 (AMS) で測定した。 ^{60}Fe の放射能は ^{60}Co のガンマ線 (1.332 MeV) の成長を1年間追跡して求め、 $T_{1/2} = (1.49 \pm 0.27) \times 10^6 \text{ y}$ を得た。

コーマンは当初から、 ^{60}Fe は消滅核種 ($T_{1/2} < 3 \times 10^8 \text{ y}$) で、特に鉄は存在度が高く広く分布していることから、宇宙年代学にきわめて有用な核種であると考え、隕石母天体形成初期の熔融分化の熱源の一つとして注目していた (T.P. Kohman, N. Saito, *Ann. Rev. Nucl. Sci.*, **4**, 401, 1954). カリフォルニア大学スクリプス海洋研究所のシュコリユーコフ (A. Shukolyukov) とルグメーヤー (G.W. Lugmair) は質量分析計を使って玄武岩質隕石であるユークライト Chervony Kut ($\text{Fe}/\text{Ni} = 10^4 - 10^5$) の全岩と分離鉱物の輝石ならびにトロイライト (FeS) で初めて ^{60}Fe の壊変で生じたと考えられる $2.4 \sim 50 \text{ } \epsilon$ ($\epsilon = 10^{-4}$) にわたる ^{60}Ni 過剰を見出し、全岩固化時の $^{60}\text{Fe}/^{56}\text{Fe}$ 比として $(3.9 \pm 0.6) \times 10^{-9}$ を得た (*Science*, **259**, 1138, 1993). 別のユークライト Juvinas ($\text{Fe}/\text{Ni} = 10^4 - 10^5$) については $^{60}\text{Fe}/^{56}\text{Fe} = (4.3 \pm 1.5) \times 10^{-10}$ を得た (*Earth Planet Sci. Lett.*, **119**, 159, 1993). 両者の違いは結晶化時期の差 (4.7×10^6 年) に相当する。始原的炭素質隕石 Allende の高温生成物 CAI (Ca, Al-rich inclusions)

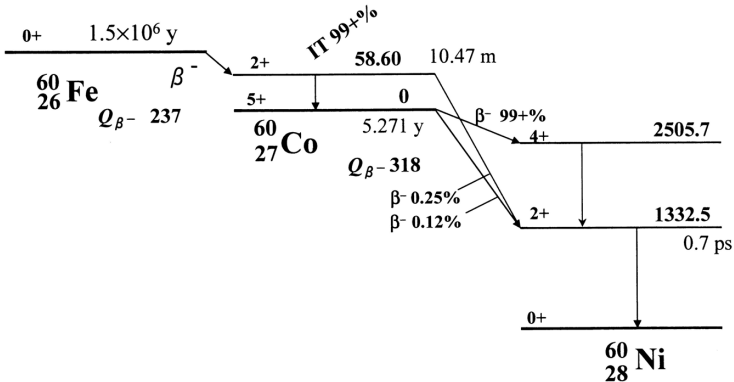
については $^{60}\text{Fe}/^{56}\text{Fe} = (1.6 \pm 0.5) \times 10^{-6}$ となり (J.L. Birk, G.W. Lugmair, *Earth Planet. Sci. Lett.*, **90**, 131, 1988), モステファオ (S. Mostefaoui) らが普通コンドライト Semarkona (LL3.0) のイオンマイクロプローブで選んだトロイライト ($\text{Fe}/\text{Ni} = 5 \times 10^4$) の二次イオン質量分析 (SIMS) では $^{60}\text{Fe}/^{56}\text{Fe} = 0.92 \times 10^{-6}$ という非常に大きな値を得た (*Astrophys. J.*, **625**, 271, 2005). これは、N.T. Kita ら日本の地質調査所と東京大学のグループによる Semarkona 隕石中のフェロマグネシウムに富むコンドリュール (球粒) 中の $^{60}\text{Fe}/^{56}\text{Fe} < 3.4 \times 10^{-7}$ (*Geochim. Cosmochim. Acta*, **64**, 3913, 2000) やコイ (B.-G. Choi) らカリフォルニア大学グループによるコンドライト Bishumpur 中の球粒の $^{60}\text{Fe}/^{56}\text{Fe} < 1.6 \times 10^{-6}$ (*Lunar Planet. Sci. Conf.*, **30**, 1862, 1999), アリゾナ州立大学の立花らによる変成度の低い普通コンドライトの Bishumpur と Krymka 中のトロイライトの $^{60}\text{Fe}/^{56}\text{Fe} = (1.8-1.73) \times 10^{-6}$ (*Astrophys. J.*, **588**, L41, 2003; 同誌, 639, L87, 2006) など比べても大きい。いずれの結果も $^{26}\text{Al}-^{26}\text{Mg}$ 対の測定値に一致するが、この大きな初期値は連続合成モデルに合わない。むしろ、生まれつつある太陽系星雲近傍 (数十~数百 pc) での II 型超新星 (SN: supernova) からの付加によるものであるとされている (A.G.W. Cameron 他, *Astrophys. J.*, **447**, L53, 1995; G. Wasserburg 他, 同誌, **500**, L689, 1998). ただし、この SN が星雲収縮のトリガーとなった (A.G.W. Cameron 他, *Icarus*, **30**, 447, 1977; *Astrophys. J.* **447**, L53, 1995; G.J. Wasserburg 他, 同誌, **500**, L189, 1998) とは必ずしも言えない (N.T. Kita 他, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **64**, 3913, 2000). 赤色巨星に至る AGB 星 (G. Wasserburg 他, *Astrophys. J.*, **424**, 412, 1994) や Wolf-Rayet 星 (WR 星: M. Arnold 他, *Astron. Astrophys.*, **321**, 452, 1997) で

も説明できない量であり、原始太陽からの宇宙線照射を考慮しても説明できない (T. Lee 他, *Astrophys. J.*, **506**, 898, 1998).

ところが最近、コペンハーゲン大学のビザロ (M. Bizzarro) らデンマークと米国のチームは、ニッケル同位体の高精度質量分析から、太陽系内の古い物質を代表する地球、火星、炭素質および普通コンドライトでは ^{26}Al の壊変でつくられる ^{26}Mg と違って ^{60}Ni の過剰は存在せず、より新しい分化した隕石母天体の各部 [玄武岩質地殻 (エイコンドライトの 1 種アングライト), 金属核 (鉄隕石), マントル-核境界 (石鉄隕石の 1 種パラサイト), 融解残渣 (エイコンドライトの 1 種ウレイライト)] では、Fe/Ni 比の大小によらず平均 $\epsilon^{60}\text{Ni} = -0.24 \pm 0.02 \epsilon$ 単位 (10^{-4}) の一様な欠損が存在すること報告した。これは、屋内合成された ^{26}Al と ^{60}Fe (および中性子過剰核の ^{62}Ni , ^{54}Cr) が母天体材料の分子雲に同時に取り込まれたのではないことを示唆する。 ^{26}Al は ^{41}Ca や ^{107}Pd とともに 200 万年ほど続く WR 星でつくられるのに対して、 ^{60}Fe は AGB 星や SN II ではなく、太陽質量の 30 倍以上の星の WR 星段階の後に起る SN b/c でつくられて太陽系原

始星雲に持ち込まれたと考える。また、 ^{53}Mn や ^{182}Hf を含む微惑星も ^{60}Fe が存在しない状態で固化したと言える (*Science*, **316**, 1178, 2007; 解説: R.A. Kerr, 同誌, **316**, 1111, 2007)。

ミュンヘン工科大学のニー (K. Knie) らのグループは、南および中部太平洋の深海底 (1300 m および 4830 m) から採取した鉄・マンガン団塊のクラスト層中に live ^{60}Fe を AMS で検出し (K. Knie 他, *Phys. Rev. Lett.*, **83**, 18, 1999; 同誌, **93**, 171103, 2004), 話題を集めている。この ^{60}Fe (クラスト層の $^{10}\text{Be}/\text{Be}$ 比から成長速度を求め、 ^{53}Mn の測定から宇宙線による ^{60}Fe 生成を排除) は 280 万年前あるいは 500 万年前に太陽系から数十 pc で起きた SN によるものと考えられる。もしそれが本当であれば、当時の地球の気候変動 (cosmic-ray winter) や古生物への影響があったと考えられる (B.D. Fields, J. Ellis, *New Astron.*, **4**, 419, 1999)。



Fe-60, Co-60 の壊変図 (エネルギーの単位は keV)

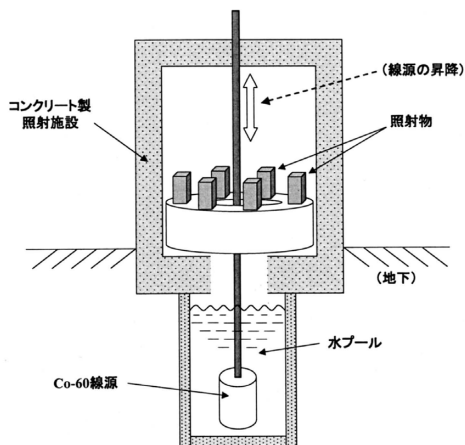
コバルト-60 cobalt-60 (^{60}Co)

質量数 60 のコバルトの放射性同位体 ($E_{\beta}^{\max} = 0.318 \text{ MeV}$; $E_{\gamma} = 1332.5, 1173.2 \text{ keV}$, $T_{1/2} = 5.271 \text{ y}$). ローマ大学で 1934 年からはじめられた Rn-Be 中性子源を使う一連の放射化実験の中で、フェルミ (E. Fermi, 1901-1954) らはコバルトからの γ 線を観測したが、それは ^{56}Mn ($T_{1/2} = 2.5 \text{ h}$) に帰属するとした。アストン (F.W. Aston, 1877-1945) の質量分析測定からコバルトの安定同位体は ^{59}Co のみであると分かっていたので、水で減速した中性子の吸収により生成した 20 分の半減期を示す放射能は ^{60}Co であろうと思われた (*Proc. Roy. Soc.*, **149**, 522, 1935; 同誌, **146**, 483, 1934). プリントン大学のサンプソン (M.B. Sampson) らは 1936 年、アストンの結果を確認する (ただし ^{57}Co も安定とした) とともに、Ra(68 mCi)-Be 中性子源による 1 ヶ月の Co 照射から得た ^{60}Co の放射能は 2 週間の追跡でも減衰せず、半減期は 1 年以上であると推定した。同じグループのリッサー (J.R. Risser) は Ra(55 mCi)-Be 中性子源で 10 週間照射した Co 試料について Al と Pb による吸収測定を行い β 線のみを観測し (γ 線のエネルギーは 1.5 ~ 2.0 MeV と推定したが γ 線放出はなしと結論)、6 週間の減衰追跡から半減期として 2.0 (± 0.5) 年を得た。1940 ~ 41 年に、リビングウッド (J.J. Livingood) とシーボーク (G.T. Seaborg) は ^{59}Co に重陽子を照射してつくった ^{60}Co から約 1.2 MeV の γ 線とリッサーらと同じ β 線を見出し、半減期の値として 5.3 年を得た (*Phys. Rev.*, **60**, 913, 1941; 同誌, **53**, 847, 1938). その後、1950 年代を通じて 5.20 年から 5.27 年にわたる数多くの値が報告されたが現在採用されている 5.27 年に収まった。精密な γ 線エネルギーおよび内部転換率が決定したのは 1970 年代になってからであ

る (Table of Isotopes, R. B. Firestone 他編, 6-8th eds., 1967, 1978, 1996). ^{59}Co の熱中性子吸収断面積についても 1935 年のプリントン大学のダニング (K.L. Dunning) らの研究以来、22 から 38 バーンにわたる数多くの値が報告されてきたが、核異性体である ^{60m}Co (IT 99+%, $T_{1/2} = 10.47 \text{ min}$) の生成を経由することもあり混乱した。

^{60}Co の主な γ 線である 1173.2 keV と 1332.5 keV の 2 本の γ 線はカスケード放出であり、 γ 線エネルギーおよび放射能強度の標準に、また方向角相関の基準に用いられる最も典型的な核種の一つである。トレーサーとしても広く利用されてきたが、半減期が長過ぎることから ^{57}Co (EC, $E_{\gamma} = 122 \text{ keV}$; $T_{1/2} = 271.8 \text{ d}$) や ^{55}Co (β^+ , EC, $E_{\gamma} = 931.2, 477.2 \text{ keV}$ 他; $T_{1/2} = 17.53 \text{ h}$) が使いやすい。前者は $^{56}\text{Fe}(d,n)$ 反応、後者は $^{54}\text{Fe}(d,n)$ 反応でつくられる。

大量の ^{60}Co 線源 (数百万キュリー: 10 ~ 100 PBq) は金属コバルトの原子炉照射による $^{59}\text{Co}(n,\gamma)$ 反応でつくられ、医療器具、薬品あるいは食品の滅菌、農作物の品種改良、不妊化ウリウミバエの放飼



コバルト-60 ガンマ線照射装置

(日本・メキシコ)などに使われている。 ^{60}Co の γ 線は透過性が高く(中くらいの密度の物質で数10 cm)、百万キュリー(37 PBq)の線源で15 kWの出力があり、1~10 kGy/hの線量率を与えるが、その強度は1ヶ月に1%ずつ減少する。医療では、小規模線源が癌治療のために世界中の病院で日常的に使用されている。工業用線源(溶鉱炉内のレベルゲージなど)としても使われてきた。

クリプトン-85 krypton-85 (^{85}Kr)

質量数85のクリプトンの放射性同位体($E_{\beta}^{\text{max}} = 0.687$ MeV, 分岐比99.5%他; $T_{1/2} = 10.756$ y)。1946年のはじめ頃には、 ^{235}U の中性子誘導核分裂で生成する核種のベータ壊変系列は64ほど知られていた。KrとXeは安定核が多く[最重核 ^{86}Kr と ^{136}Xe はそれぞれ中性子マジック50および82をもち、セグレ・チャート(核種図)のハイゼンベルグの谷が広がる]、中性子過剰核の β^- 壊変列の終端となる。質量数85の系列として ^{85}Kr ($T_{1/2} = 4$ h)が知られていたが、長寿命核異性体の存在も示唆されていた(N. Sugarman, C. Hoagland in C. Coryell's ACS Address, 1946)。カナダ・マクマスター大学のソード(H.G. Thode)とグレイハム(R.L. Graham)は、1944年12月から1年間かけて、冷却時間の異なる(144, 407, 619日)原子炉照射したウラン板からKrとXeを抽出して質量分析を行い、そのうち407日間冷却した試料から核分裂生成の $^{83-86}\text{Kr}$ の収率を求め、 ^{85}Kr は放射性であり、半減期が10年であることを明らかにした(*Can. J. Res. A*, **25**, 1, 1947)。

^{235}U の中性子誘導核分裂における質量数85の同重体収率は1.327%で、 ^{85}Kr は原子炉運転中の排ガス中に残る。使用済核燃料の再処理でも大気中に放出される量が多く、水圏への ^3H の排出とともに取り扱いがやっかいである。大気中の ^{85}Kr 濃度は 1.0 Bq/m³と推定されているが、 ^{85}Kr は希ガスのため生体濃縮は起こらず、純ベータ核種のためにヒトの皮膚(飛程2~3 mm)への影響が考えられるものの、原子炉からの排出は問題ないとされている。使用済核燃料の再処理過程での放出には注意を要し、冷凍分離・吸着溶解(フロン-12, 活性炭)による隔離が必要となる。

ルビジウム-87 rubidium-87 (^{87}Rb)

質量数 87 のルビジウムの天然長寿命放射性同位体 ($E_{\beta}^{\max} = 0.282 \text{ MeV}$; no γ ; $T_{1/2} = 4.88 \times 10^{10} \text{ y}$). 天然のルビジウム同位体には, ^{85}Rb (存在度 72.17%) と ^{87}Rb (存在度 27.83%) があり, ^{87}Rb (3/2-) は β^- 核種で ^{87}Sr (安定) の基底状態 (9/2+) に遷移する. 1898 年, マリー・キュリー (M.S. Curie, 1867-1934) は夫ピエール (P. Curie, 1859-1906) の電気計を用いて多くの鉱物試料の放射能を調べたが (Po の項参照), Rb および Sm 含有鉱物については言及しなかった (*Compt. Rend. Acad. Sc. Paris*, **126**, 1101, 1898; β^- 線のエネルギーが低かったためか). 1905 年, ケンブリッジ大学のトムソン (J.J. Thomson, 1856-1940) は金箔検電器で K と Rb が電子 (β^-) を放出するのに気づき, その後トリニティ・カレッジのキャンベル (N.R. Campbell) とエマニュエル・カレッジのウッド (A. Wood) がカリウムの放射能はウランの 1000 分の 1 であり, ルビジウムの放射能はそれより遥かに小さいと報告した (*Proc. Camb. Phil. Soc.*, **14**, 15, 211, 577, 1906). ウランやトリウムより軽いこのような元素に自然放射能があることを発見した最初の報告である. 1919 年, ドイツのハーン (O. Hahn, 1879-1968) らは ^{87}Rb の半減期を 7.3×10^{10} 年と報告し, 1937 年には ^{87}Rb - ^{87}Sr 対による年代測定を提唱した (このときの半減期は 6.3×10^{10} 年: *Naturwiss.*, **25**, 189, 1937). その後, 1960 年前後まで 4.3×10^{10} 年から 6.4×10^{10} 年の範囲の値が数多く報告された. 年代測定には, オルドリッチ (L.C. Aldrich) らの 1956 年の値 [$(5.0 \pm 0.2) \times 10^{10}$ 年: *Phys. Rev.*, **103**, 1045, 1956] ならびにフライン (K.F. Flynn) とグレンデニン (L.E. Glendenin) の 1959 年の値 [$(4.70 \pm 0.10) \times 10^{10}$ 年: *Phys. Rev.*, **116**, 744, 1959] の両方が使われてきた. 両者が隕石の形成年代に 5.5% の差を生む.

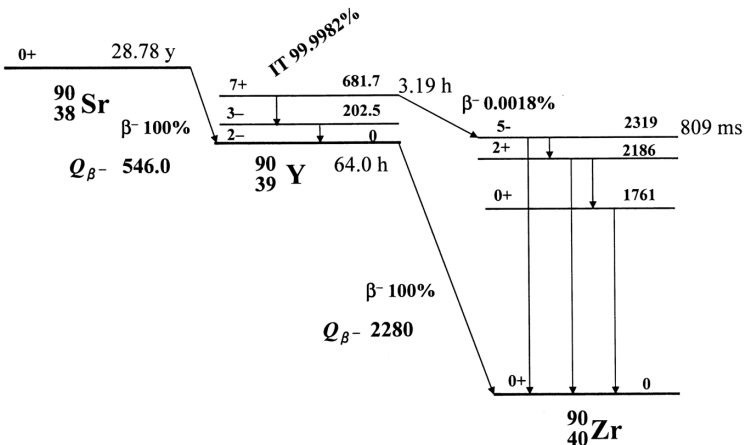
^{87}Rb は寿命が長く β^- 線のエネルギーが低いため β^- 線測定 (液体シンチレーション, 4π 比例計数など) では困難をとまなう (W.F. Libby 他, *Phys. Rev.*, **55**, 245, 1939; *Anal. Chem.*, **29**, 1566, 1957; K.F. Flynn, L.E. Glendenin, *Phys. Rev.*, **116**, 744, 1959). 地質年代測定では, ルビジウムを含む鉱物中に ^{87}Rb の壊変で蓄積する ^{87}Sr の量は微量であるため, 同位体希釈質量分析によって注意深く定量する. この方法による測定では, 既知量の ^{87}Rb から生成する ^{87}Sr の量を 7 年後, さらに 19 年後に測定して半減期を求めた努力もある (C. C. McMullen 他, *Can. J. Phys.*, **44**, 3033, 1966; D. W. Davis 他, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **41**, 1745, 1977). ^{87}Rb - ^{87}Sr 対は, $^{238,235}\text{U}$ - ^{232}Th - $^{206,207,208}\text{Pb}$ 対, ^{40}K - ^{40}Ar 対, ^{147}Sm - ^{143}Nd 対, ^{187}Re - ^{187}Os 対, ^{176}Lu - ^{176}Hf 対などととともに隕石, 月, 地球などの岩石鉱物の生成年代の測定で主要な役割を演じ, 国際地質学会 (IUGS) の地質年代委員会の議論を通じて壊変定数の使用取り決めがなされてきたが, 測定の精密化に伴ってこれらの放射能時計が一致せず, 半減期の見直しが今なお要請されている (F. Begemann 他, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **65**, 111 2001). 現在受け入れられている半減期は, 1977 年にスタイガー (R.H. Steiger) とイエガー (E. Jäger) が Ar-Ar 年代との比較から求めた $(4.88 \pm 0.03) \times 10^{10}$ 年に基づく (*Earth Planet. Sci. Lett.*, **36**, 359, 1977) が, ベーゲマンらは再検討が必要であると述べている.

ストロンチウム-90 strontium-90 (^{90}Sr)

質量数 90 のストロンチウムの放射性同位体 ($E_{\beta}^{\max} = 0.546 \text{ MeV}$, no γ ; $T_{1/2} = 28.78 \text{ y}$). 1943 年, コリエル (C.D. Coryell) が ^{235}U の中性子誘導核分裂生成物中の ^{90}Sr の半減期を 30 年を報告したが, 1946 年にグレンデニン (L.E. Glendenin) は ^{90}Sr - ^{90}Y 対の親娘関係を見直し 25 年という値を出した. 1948 年, ハイデン (R.J. Hayden) が質量分析と放射線測定を組み合わせ、25 年の Sr は ^{90}Sr , 60 時間の Y は ^{90}Y と同定した. その後, パワーズ (R.I. Powers) とボグト (A.F. Voigt) の 1950 年の値 ($19.9 \pm 0.3 \text{ 年}$) が, さらにワイルス (D.M. Wiles) とトミリンソン (R.H. Tomlinson) の 1955 年の値 ($27.7 \pm 0.4 \text{ 年}$) が正しいとされた (*Can. J. Phys.*, **33**, 133, 1955; 現在の評価値は 28.78 年). ストロンチウムの安定核種は ^{84}Sr (0.56%), ^{86}Sr (9.86%), ^{87}Sr (7.00%) および ^{88}Sr (82.58%) であり, ^{88}Sr は中性子マジック 50 をもつ偶々核である. 中性子過剰側の ^{89}Sr (β^- ; $T_{1/2} = 50.52 \text{ d}$) と ^{90}Sr , 中性子不足側の ^{85}Sr (EC, γ ; $T_{1/2} = 64.84 \text{ d}$), ^{83}Sr (EC, β^+ ; $T_{1/2} = 1.350 \text{ d}$)

および ^{82}Sr (EC, no γ ; $T_{1/2} = 25.34 \text{ d}$) は核分裂収率の高い一群をなす. ^{235}U , ^{233}U , ^{239}Pu などの誘導核分裂の中でも, ^{90}Sr (および娘核種の ^{90}Y ; $E_{\beta}^{\max} = 2.281 \text{ MeV}$, no γ ; $T_{1/2} = 2.67 \text{ d}$) は ^{137}Cs (β^- , γ ; $T_{1/2} = 30.07 \text{ y}$, ^{137}Cs の項参照) と並んで高い核分裂収率 (約 6%; 分裂核によって多少異なる) をもち, 半減期が 30 年前後であるため, 核分裂後 10 年以上経過すると両核種の放射能は核分裂生成物の中で卓越する.

^{90}Sr は娘核種の ^{90}Y と 3 週間ほどで永続平衡となり, ミルキングによって得られる ^{90}Y の高エネルギー β^- 線の測定などは放射化学基礎実験の格好の材料である. この方法を使って, 特に大気圏核実験由来の ^{90}Sr の環境動態調査・研究が, 食物連鎖の観点から盛んに行われてきた. 大気中の核爆発では大部分の ^{90}Sr が成層圏に放出され, 1.5 ~ 2.5 年の平均滞留時間の後, 対流圏界面 (tropopause) における窓を通じて対流圏に供給される (平均滞留時間は約 1 年), 地上に降下する. この移行の研究は雨水や直接の降下物 (巨大粒子) 中の ^{90}Sr の観測から詳しい大気循環の解明に役立った (例えば,



Sr-90, Y-90 の壊変図 (エネルギーの単位は keV)

黒田和夫“雨の放射能”，科学，45，649，1975）。ストロンチウムはアルカリ土類元素の一つでヒトの体内では骨に濃集するので，食物連鎖に関与する土壌，牧草，牛乳，人骨などの中の ^{90}Sr の量が詳しく調べられてきたが，現在では検出限界以下に減少している。

ニオブ-92 niobium-92 (^{92}Nb)

ニオブの長寿命放射性同位体 (EC, γ ; $T_{1/2} = 3.5 \times 10^7 \text{ y}$)。ニオブの安定同位体は ^{93}Nb のみである。 $^{91}_{41}\text{Nb}_{50}$ は中性子マジック50をもち，核異性体の $^{91\text{m}}\text{Nb}$ (IT, EC; $T_{1/2} = 62 \text{ d}$)と $^{91\text{e}}\text{Nb}$ (EC; $T_{1/2} = 7 \times 10^2 \text{ y}$)が知られている。これらの同位体に挟まれる ^{92}Nb とさらに重い ^{94}Nb (β^- , γ ; $T_{1/2} = 2.0 \times 10^4 \text{ y}$)はともに長寿命であることが予想され，後者については1950年代に調べられた。前者については1972年，ロスアラモス国立研究所 (LANL) のナイト (J.D. Knight) らが半減期を 1.7×10^8 年と報告したが，疑問が残った。東京大学の中西 (旧姓牧野) 友子らは1974年5月から翌年2月にわたって，5グラムの金属モリブデンを日本原子力研究所の材料試験炉 (JMTR) で中性子照射し ($6.9 \times 10^{20} \text{ cm}^{-2}$)，ニオブを化学分離した後 ^{92}Nb の放射能をGe (Li) 検出器で， $^{92}\text{Nb}/^{94}\text{Nb}$ 比を同位体希釈質量分析で求め，半減期として $(3.4 \pm 0.6) \times 10^7$ 年を得た [$^{92}\text{Nb}/^{94}\text{Nb}$ の放射能比からは $(3.3 \pm 0.5) \times 10^7$ 年] (*Geochim. Cosmochim. Acta*, **41**, 1521, 1977)。その後，ネザウェイ (D.R. Nethaway) らは $^{93}\text{Nb}(n,2n)$ 反応で ^{92}Nb をつくり， $(3.6 \pm 0.3) \times 10^7$ 年の値を報告した (*Phys. Rev.*, **C17**, 1409, 1978)。本項文頭に記した値は両者の平均値である。

^{92}Nb は，星内核合成ではp-過程核種であり，p-消滅核種である ^{53}Mn ， ^{97}Tc および ^{146}Sm とともに核合成 (p-捕獲あるいは光分解) 理論の検証に有用である (D.L. Lambert, *Astron. Astrophys. Rev.*, **3**, 201, 1992; $^{146,147}\text{Sm}$ の項参照)。ニオブと娘核種のジルコニウム (^{92}Zr : 安定核種で同位体存在度17.15%) はともに不揮発性で親石性 (還元条件でのNbは親鉄性) に富み，熔融残液相に残る (固相結晶格子に不適合, incompatible) ので，両元素の地球化学的分別はケイ酸塩の部

分熔融によりジルコン (ZrSiO_4), イルメナイト (チタン鉄鉱 FeTiO_3), ルチル (金紅石 TiO_2) などの従属鉱物 (accessory minerals) が結晶化する際に起き, その後に高温化現象が生じてても分別しない.

1982年, パリ第VIおよび第VII大学のミンスター (J.-F. Minster) とアレグレ (C.J. Allégre) は炭素質コンドライト Allende (CI), 普通コンドライト Beaver Creek (H4), 二つのユークライト (Pasamonte と Ibitira), 二つの月試料 (砂とTiに富む玄武岩) および地球のジルコン2種について三重フィラメント付熱イオン化質量分析計を用いてジルコニウム同位体を測定し, 太陽系初期値として $(^{92}\text{Nb}/^{93}\text{Nb})_{\text{initial}} < 0.007$ を得たが, ^{92}Nb を消滅核種として初めて検出したのはハーバード大学のハーパー (C.L. Harper, Jr., *Astrophys. J.*, **466**, 437, 1996) である. 鉄隕石 Toluca (IA) 中の Nb/Zr 比が大きい 60 個の Nb-ルチル粒 (主成分 TiO_2) のニオブとジルコニウムの誘導プラズマ質量分析 (IPCMS) から, コンドライトについて得た標準値 ($^{92}\text{Zr}/^{94}\text{Zr} = 0.98600 \pm 0.00002$) との差として $\epsilon^{92}\text{Zr} = 8.8 \pm 1.7 \epsilon \text{ unit}$ (10^{-4}) を求め, $(^{92}\text{Nb}/^{93}\text{Nb})_{\text{initial}}$ として $(1.6 \pm 0.3) \times 10^{-5}$ を得た. p-過程安定核種である ^{92}Mo を指標とし, p-過程核種の ^{146}Sm ($T_{1/2} = 1.03 \times 10^8 \text{ y}$) / ^{144}Sm ($T_{1/2} = \infty$) をも参照しながら Ia および II 型超新星での p-過程の理論計算と照合し, 銀河系内核合成史と太陽系の元になった分子星雲の年代学を論じた. さらに新しい値として, 同じハーバード大学のイン (Q.Z. Yin) らの鉄隕石 Zagora (IA) のルチルの測定から求めた $\epsilon^{92}\text{Zr} = 32-14 \epsilon \text{ unit}$ がある. $(^{92}\text{Nb}/^{93}\text{Nb})_{\text{initial}}$ は 10^{-3} となり, p-過程での生成比の議論に混乱をもたらした (*Astrophys. J.*, **536**, L49, 2000).

ドイツ・ミュンスター大学のミュンカー (C. Münker) らは, 地球上の年代

が既知の 29 試料 (全岩, ジルコン, チタンに富むルチルやイルメナイト), 地球外試料の炭素質隕石 Allende の全岩と Nb/Zr 比の異なる CAI (Ca-, Al-rich inclusion), 同じ炭素質の Murchison と Orgueil, 普通コンドライトおよびエンスタタイト (E) コンドライト, ユークライト, 月隕石など 17 試料のマルチコレクター (MC)-ICPMS 測定により, 地球, 月およびコンドライトは同じ $^{92}\text{Zr}/^{93}\text{Zr}$ 比を示す“太陽系平均物質”から成ること, ならびに太陽系で最も始原的な Allende の CAI と IAB 型鉄隕石の単斜輝石 (Caが多い) の $\epsilon^{92}\text{Zr}$ が負の値 ($-2 \sim -4$) を示すことを見出した. 負の $\epsilon^{92}\text{Zr}$ は Nb/Zr 比が小さいジルコンでも見られ, 母天体形成後の ^{92}Nb が存在している早い時期 (5000 万年以内) に大規模な分別 (マグマオーシャン; 集積熱と放射壊変熱による母天体融解) が起き, これらの鉱物中の ^{92}Nb は“平均物質”より少なくなったと説明した (*Science*, **289**, 1938, 2000). フランス・リヨン高等学院のサンロップ (C. Sunlop) からも MC-ICPMS を用いて炭素質コンドライト, 普通コンドライト, E-コンドライトおよび月隕石のジルコニウム同位体を調べて負の $\epsilon^{92}\text{Zr}$ を見出し, これは ^{92}Nb の壊変によるとするよりも, Zr 同位体生成に寄与する核合成過程によると考えた (*Earth Planet. Sci. Lett.*, **184**, 75, 2000).

一方, 東京工業大学の平田岳史は, レーザー融解 MC (LA: 10-20 μm ピット) -ICPMS を用いて地球鉱物のジルコンとバデレー石 (ZrO_2) およびユークライト Camel Donga の Zr 同位体と U-Pb 年代を測定したが, ^{92}Nb の壊変による ^{92}Zr は見出せず, $(^{92}\text{Nb}/^{93}\text{Nb})_{\text{initial}}$ の上限値は 10^{-4} であると結論した (*Chem. Geol.*, **176**, 323, 2001). また, スイス・チューリッヒ工科大学のシェンベヒラー (M. Schönbacher)

らは、フランスおよび米国のグループと共同で MC-ICPMS を用いて H6 コンドライト Estacado のイルメナイトで $\epsilon^{92}\text{Zr} = 1.01 \pm 0.38 \text{ \epsilon unit}$, メソシデライト Vaca Muerta のイルメナイトで $\epsilon^{92}\text{Zr} = 0.52 \pm 0.11 \text{ \epsilon unit}$ を見出し、他の鉱物との等時線が引けて、前者の $(^{92}\text{Nb}/^{93}\text{Nb})_{\text{initial}}$ として $(1.2 \pm 0.6) \times 10^{-5}$, 後者については $(0.6 \pm 0.3) \times 10^{-5}$ を得た。両者の差は、p-過程での生成率および固化時までの壊変(形成時間)の違いによるものとした (*Science*, **295**, 1705, 2002)。以上のように、僅少鉱物の Zr 同位体の測定は容易でなく、結果の議論にはまだ困難をともなう。p-過程の検証には同一試料(隕石)での他の p-過程核種の測定と合わせて議論することが必要であり、さらなる研究が待たれる (^{146}Sm , ^{147}Sm の項参照)。

モリブデン-99 molybdenum-99 (^{99}Mo)

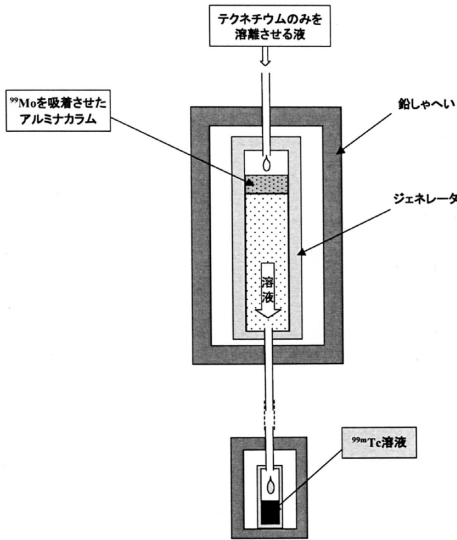
質量数 99 のモリブデンの放射性同位体 ($E_{\beta}^{\text{max}} = 1.214 \text{ MeV}$ 他; $T_{1/2} = 2.7476 \text{ d}$)。嵯峨根遼吉は 1937 から 38 年にかけてカリフォルニア大学バークレー校放射線研究所で、その後は東京の理化学研究所で、それぞれのサイクロトロンからの 5.5 ~ 7.6 MeV および 3 MeV の重陽子 (d) ビームで Li または Be を照射して得られる高速および減速中性子を用いて Y, Zr, Cb (Nb の旧名) ならびに Mo を放射化する研究した (*Phys. Rev.*, **54**, 542, 1938)。その中で、半減期 64 時間の β^- 放射体である ^{99}Mo の生成を報告した。シーボーク (G.T. Seaborg, 1912-1999) とセグレ (E.G. Segrè, 1905-1989) は d ビームを直接照射して半減期 6.6 時間の Tc を見出し、線スペクトル(内部転換電子)を研究した。この短寿命の Tc は Mo の中性子照射で生成する ^{99}Mo から成長してくる ^{99}Tc の励起状態(核異性体 $^{99\text{m}}\text{Tc}$) であり、 ^{99}Tc の基底状態は長寿命ないし安定であることを化学的に証明した (*Phys. Rev.*, **54**, 772, 1938; 同誌, **55**, 808, 1939)。

$^{99}\text{Mo} \rightarrow ^{99\text{m}}\text{Tc}$ (IT , $E_{\gamma} = 142.7 \text{ keV}$; $T_{1/2} = 6.01 \text{ h}$) $\rightarrow ^{99}\text{Tc}$ ($E_{\beta}^{\text{max}} = 0.294 \text{ MeV}$; $T_{1/2} = 2.13 \times 10^5 \text{ y}$) の ^{99}Mo - $^{99\text{m}}\text{Tc}$ は 10 時間ほどで過渡平衡に達する。 ^{99}Mo からのミルキングで $^{99\text{m}}\text{Tc}$ を分離して核医学診断に供することになったのは 1958 年(ブルックヘブン国立研究所 BNL-Rept. 3746) からで、150 keV 近傍の γ 線イメージング技術の発展は 1960 年代以降である。ミルキングにはイオン交換が使われ、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ の溶離には当初の酸 (HNO_3 , HCl) に代わって生理食塩水が使えること(1964 年)と多様な錯体合成の発展(1970 年代以降)が利用を大きく促した。現在では、 ^{98}Mo の中性子照射や UO_2 の核分裂によって得られる ^{99}Mo が原子炉を用いて大量に生産され、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ジェネレータ

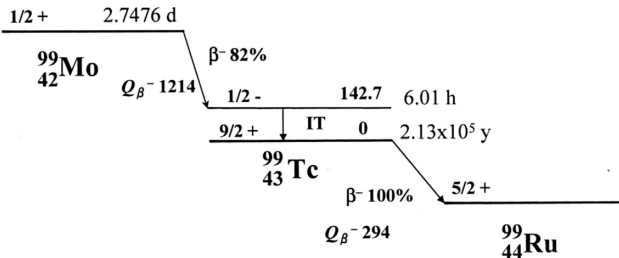
として頒布されている (参考: テクネチウムの項および A.G. Jones, *Radiochim. Acta*, **70/71**, 289, 1995).

テクネチウム technetium (Tc)

原子番号 43 の人工放射性元素。同位体として $^{86}\text{Tc} \sim ^{114}\text{Tc}$ が知られているがすべて放射性である。最長寿命核種である ^{98}Tc でも半減期は 4.2×10^6 年であり、地球の年齢に比べて短く、特別の場合を除き天然には存在しない。1936 年、イタリアのセグレ (E.G. Segrè, 1905-1989) は新婚旅行の途中、カリフォルニア大学バークレー校のローレンス (E.O. Lawrence, 1901-1958) を訪ね、サイクロトロンで数ヶ月使用されて強放射性となった Mo 製ディフレクター (偏向板) を貰い受けてパレルモ大学に帰り、ペリエ (C. Perrier) と共に Re のキノリノール (8-hydroxyquinoline) 錯体の沈殿中に放射能を見出した。 10^{-10} g と見積もられたこの物質の化学的性質の Mn と Re との類似性について研究し、放出 X 線から原子番号 43 の新元素と特定した (C. Perrier, E.G. Segrè, *J. Chem. Phys.*, **5**, 712, 1937; 同誌, **7**, 155, 1939; *Nature*, **140**, 193, 1937)。1938 年にファシズムを逃れてアメリカに出国し、シーボーグ (G.T. Seaborg, 1912-1999) と協力して半減期が 6 時間の核異性体 ($^{99\text{m}}\text{Tc}$) を見つけた (*Phys. Rev.*, **54**, 772, 1939; 同誌, **55**, 808, 1939)。1940 年に嵯峨根遠吉らは、バークレーと理研のサイクロトロンを用いて (Li, Be+d) 反応で発生する速・遅中性子を Y, Zr および Mo に照射し、迅速放射



テクネチウム-99m ジェネレーター



Mo-99, Tc-99 の壊変図 (エネルギーの単位は keV)

化学分離で三つ目の新核種 ^{101}Tc [$T_{1/2} = 14.2 \text{ min}$; 半減期 $9 (\pm 1)$ 分の ^{101}Ma と報告, *Phys. Rev.*, **57**, 750, 1940] などを発見した. 1947年, セグレはパネート (F.A. Paneth, 1887-1958) に新元素の命名を促がされ, ギリシャ語の *technikos* (人工的) にちなんで *technetium* と名付けた [*Nature*, **159**, 24, 1947; 生成反応は $^{94}_{42}\text{Mo} + d \rightarrow ^{95}_{43}\text{Tc}$ (EC, β^+ ; $T_{1/2} = 60 \text{ d}$)].

1905年, 小川正孝 (1865-1930) はラムゼイ (Sir W. Ramsay, 1852-1916) の研究室でセイロン産トリアナイト (1.5 kg) から 43 番元素を発見したとして “nipponium (Np)” と名付け 2 編の論文として発表した (M. Ogawa. *Chem. News*, **98**, 216, 249, 1908). 帰国して東北帝国大学教授に就任した後も, 日本産のモリブデナイトを対象に追試を続けたが確認できなかった. 近年, 吉原賢二による再検討で, 小川の “ニッポニウム” は当時未発見のレニウムであったと考えられる (吉原賢二, 日本放射化学会 放射化学ニュース, No.2, 10, 2000; “科学に魅せられた日本人”, 岩波ジュニア新書 372, 岩波書店 2001; “化学者たちのセレンディピティー”, 東北大学出版会 2006). この他多くの人々が 43 番元素を探索し, “davyum”, “illmenium”, “lucium” の名が提案されては消えていった. さらに 1925年, ノダック (W. Noddak, 1893-1960), タッケ (I. Tacke, 後の I. Noddak) およびベルク (O. Berg) は, Re と共に 43 番元素を単離したとして “masurium, Ma” (東プロイセンのマズリア, 現在ポーランド領マズールに由来) と名付けたが, 後に誤りとされた. これについてファンアッシェ (H. M. Van Assche) は 1988年, 「ノダックらの Ma はコロンプ石中の U の自発核分裂による ^{99}Tc をみたもので, $Z = 43$ の発見は彼らに帰すべき」と述べ (*Nucl. Phys.*,

A480, 205, 1988) セグレの晩年を困惑させた. この件は黒田和夫 (P.K. Kuroda, 1917-2001) が反論して決着した (*Nucl. Phys.*, **A503**, 178, 1989).

1952年, メリル (P.W. Merille) は 200 インチ望遠鏡で観測した R. アンドロメダ星雲中の S 型星の発光スペクトルにテクネチウム原子による線を発見した. バービッジ (E.M. Burbidge), バービッジ (G.R. Burbidge), ファウラー (W.A. Fowler) およびホイール (F. Hoyle) は, この発見を星内核合成理論の中で s-過程の証拠として挙げた ($B^2\text{FH}$ と略称: *Rev. Mod. Phys.*, **29**, 547, 1957). この頃, 黒田和夫は温泉水中の非照射硝酸ウラニルあるいは各地のピッチブレンド数キログラム中の一連の核分裂生成核種の探索を始め, 1950年に ^{99}Mo (P.L. Parker と P.K. Kuroda), 1960-64年には ^{99g}Tc の分離・測定に成功した (B.T. Kenna と P.K. Kuroda; 最近の探索は D. Curtis 他, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **63**, 275, 1999). 1972年にはアフリカのガボン共和国で 20 億年前に 60 ~ 150 万年間働いた天然原子炉の化石 (オクロ現象: 1956年に黒田が予言) が発見された. フレジャック (C. Frejacques) らは Ru 同位体の測定を行い, ^{99}Ru , ^{100}Ru , ^{101}Ru , ^{102}Ru および ^{104}Ru の相対的存在度が 93% ^{238}U , 3% ^{235}U および 4% ^{239}Pu の核分裂から期待される値と一致することを見出した. ^{100}Ru の小さな過剰は $^{99}\text{Tc}(n, \gamma \beta^-)^{100}\text{Ru}$ による生成と $^{99}\text{Tc} - (\beta^-) \rightarrow ^{99}\text{Ru}$ の壊変プラス中性子捕獲で説明され, この両過程の競争から炉の稼働時間が推定された (自然界のテクネチウムについては, 例えば坂本浩, 京都大学原子炉実験所報告 KURRI-TR-362, 24, 1990 参照).

1940年に戻るが, セグレとウー (C.S. Wu) は, 原子炉中性子によるウランの核分裂生成物の中に高収率の 43 番元素を見出した. やがて大量の Tc が入手で

きるようになりテクネチウムの研究が進んだ。Tc 同位体 ($^{86}\text{Tc} \sim ^{114}\text{Tc}$) の中では、特にベータ安定谷に位置する ^{97}Tc [EC: $T_{1/2} = 2.6 \times 10^6 \text{ y}$], ^{98}Tc (β^- : $T_{1/2} = 4.2 \times 10^6 \text{ y}$) [小林貴之ら (1999) によると $(6.6 \pm 1.0) \times 10^6 \text{ y}$], ^{99}Tc (β^- : $T_{1/2} = 2.13 \times 10^5 \text{ y}$) などが長寿命である。半減期については、1955 年ボイド (G.E. Boyd) らがオークリッジ国立研究所 (ORNL) のサイクロトロンを用いる Mo の陽子照射 ($E_p = 22 \text{ MeV}$) でテクネチウムを発見して以来いくつかの研究があったが、前 2 核種の半減期も 1990 年から約 10 年かけた小林貴之らの再測定まで確定しなかった。

テクネチウムは周期表で遷移金属元素のほぼ中央に位置し、他の遷移金属元素との対比でその化学的性質について関心が寄せられている。Tc の化学的性質は Re に似ているが、必ずしも同じではなく、 $-1, 0, +1, +2, +3, +4, +5, +6, +7$ の酸化数を取り得る。安定な酸化物は TcO_2 で、酸化性水溶液中では TcO_4^- が安定である。還元条件下では pH により TcO^{2+} , $\text{TcO}(\text{OH})_2$ または $\text{Tc}(\text{OH})_4$ の Tc(IV) の形をとる。テクネチウム化学の研究には秤量可能な量 ($\sim \text{mg}$) の ^{99}Tc が用いられ、化合物 (錯体) の結晶構造や物性についても多くの知見が蓄積されている [Proc. Intern. Symp. Technetium (IST-2005), *J. Nucl. Radiochem. Sci.*, **6**(3), 2005]. Tc は錯体形成能が大きくて多様な標識化合物が合成され、1964 年以来、放射診断薬としての $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 標識化合物の研究が幅広く進められている。酸化数の多様性とともにも $^{99\text{m}}\text{Tc}$ のガンマ線 ($E_\gamma = 141 \text{ keV}$) と半減期 (6.0 h) が体内投与や体外検出に適した核特性をもち、 ^{99}Mo (β^- : $T_{1/2} = 66 \text{ h}$) からのミルクキングで容易に入手できることによる。 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ は現在、核医学利用として世界で最も頒布量の多いラジオアイソトープである。

^{99}Mo (核分裂収率 6.13%) の壊変生成物である ^{99}Tc は寿命が長く ($T_{1/2} = 2.1 \times 10^5 \text{ y}$)、かなりの量が核燃料中に蓄積する。3%濃縮のウラン燃料 1 トンを原子炉で 2 ~ 3 年使用すると 1 キログムの ^{99}Tc が生じる。 ^{99}Tc の β^- 線最大エネルギーは 294 keV で放射性毒性は弱いが、寿命が長いことと大量生成のため、環境中での挙動が注目されている (田上恵子, 放射化学ニュース, No.8, 3, 2003)。

隕石に消滅核種としての ^{99}Tc と ^{98}Tc の証拠 (^{99}Ru , ^{98}Ru) を探す試みもある (Q. Yin 他, *Meteoritics*, **27**, 310, 1992) が、再確認の必要がある。ただし、親元素のテクネチウムが天然に存在しないことの困難が避けられない。

パラジウム-107 palladium-107 (^{107}Pd)

質量数 107 のパラジウムの放射性同位体 (β^- , no γ ; $T_{1/2} = 6.5 \times 10^6$ y). 1949 年, 米国オークリッジ国立研究所のパーカー (G.W. Parker) らは核分裂生成物 (FP) から Pd を分離し, その半減期を 7×10^6 年と報告した. その後, ユーレイ (H.C. Urey) による消滅核種としての重要性の指摘 (1955) と鉄隕石 Toluca と Canyon Diablo を用いる探索の試み (D.C. Hess, R.R. Marshall, H.C. Urey, *Science*, **126**, 1291, 1957; V.R. Murthy, H.C. Urey, *Astrophys. J.*, **135**, 626, 1962; V.R. Murthy, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **26**, 481, 1962) もあって, 1969 年にアルゴンヌ国立研究所のフライン (K.F. Flynn) とグレンデニン (L.E. Glendenin) は約 14 年冷却した FP から Pd (約 160 μg) を分離して 10 mL の貯蔵液とし, 比色分析で Pd 濃度を, 質量分析で ^{107}Pd の相対存在度を求め, パラジウム含有量の異なる 3 種の電着線源からのベータ線 ($E_\beta = 40$ keV) を 2π ガスフロー比例計数管で計測して半減期を $(6.5 \pm 0.3) \times 10^6$ 年と決定した.

上記のユーレイらによる隕石中の ^{107}Pd の壊変による ^{107}Ag の過剰は, 後の測定で確認できなかった (A.K. Chakraborty 他, 1964; J.R. Dews, R.S. Newbury, 1966) が, 1978 年になってカリフォルニア工科大学 (Caltech) のケリー (W.R. Kelly) とワッサーバーグ (G.J. Wasserburg) が Pd/Ag 比が 10^4 という高温で形成の VIB グループに属する鉄隕石 Santa Clara ではじめて放射起源の ^{107}Ag の過剰 ($^{107}\text{Ag}^*$) を見出した. 銀はイオン化効率が低く, かつ同重体 (特に AsS⁺) の妨害除去が難しい. また, Ag には同位体が 2 つしかないことが問題であった. ワッサーバーグらが 1976 年に, 平均寿命が 2300 万年の ^{129}I や 1 億 1500 万年の ^{244}Pu に比べて寿命の短い (103 万

年) ^{26}Al が消滅核種であることを見出したことも $^{107}\text{Ag}^*$ 探索の動機になった (^{26}Al の項参照).

その後 Caltech グループは鉄隕石の多様なグループ (IA, IIA, IIB, IIIA, IIIB, IVA など Ga, Ge, Ir と Ni との相関によって分類; J.T. Wasson, Meteorites, W.H. Freedman & Co., NY, 1985) の金属相とトロイライト相 (FeS) およびいくつかの球粒隕石 (コンドライト), 石鉄隕石 (パラサイトとメソシデライト) について精力的に測定した (J.H. Chen, G.J. Wasserburg, "Extinct ^{107}Pd in the early solar system and implications for planetary evolution" in Earth Processes: Reading the Isotopic Code, A. Basu, S. Hart 編, Geophys. Monograph 95, AGU, pp. 1-20, 1996). これらのうちで, IVA の Gibeon の金属相 8 箇所の ($^{107}\text{Ag}/^{109}\text{Ag}$) 対 ($^{108}\text{Pd}/^{109}\text{Ag}$) はよい直線相関を示し, その勾配は $^{107}\text{Ag}^*/^{108}\text{Pd} = (2.40 \pm 0.05) \times 10^{-5}$ (r は ^{107}Pd の壊変分), 原点 (初期値) は $^{107}\text{Ag}/^{109}\text{Ag} = 1.11 \pm 0.01$ となり, 他の IVA 鉄隕石の金属からの値はこの直線上に分布することがわかった (*Geochim. Cosmochim. Acta*, **54**, 1729, 1990). ちなみに, Gibeon のトロイライトは相関性が乏しい. また, IVB, あるいは IIIA と IIIB, IIA と IIB はそれぞれ別の直線を示すが, 差は小さく, 互いに 1200 万年内につくられたことが分かる. 石鉄隕石やコンドライトにも $^{107}\text{Ag}^*$ が認められるが, 等時線は明瞭でない. これらの事実と揮発性元素の特徴から, 星雲内での Pd-Ag の分別や Fe-Ni 合金の形成, 引き続き起きた微惑星同士ないし母天体での衝突と融解の影響が考えられている. 同じ鉄および石鉄隕石での平均寿命 530 万年の ^{53}Mn ($\text{EC} \rightarrow ^{53}\text{Cr}$) との比較から, 隕石冷却過程での ^{53}Cr の移動も指摘されている. 平均寿命が 210 万年の $^{60}\text{Fe}(\beta^-)$ [$\rightarrow ^{60\text{m.g}}\text{Co}(\beta^-)$] $\rightarrow ^{60}\text{Ni}$ (安定)]

との比較に興味もたれるが、鉄隕石でも最近やっと一つの報告が出た (^{60}Fe の項参照). 比較的短寿命の ^{26}Al ($T_{1/2} = 7.1 \times 10^5 \text{ y}$), ^{53}Mn ($T_{1/2} = 3.7 \times 10^6 \text{ y}$), ^{41}Ca ($T_{1/2} = 1.0 \times 10^5 \text{ y}$), ^{60}Fe ($T_{1/2} = 1.5 \times 10^6 \text{ y}$), ^{107}Pd ($T_{1/2} = 6.5 \times 10^6 \text{ y}$) および ^{182}Hf ($T_{1/2} = 9 \times 10^6 \text{ y}$) により求められる隕石形成年代は、最も古い ($4.559 \pm 0.004 \text{ Gy} \sim 4.566 \pm 0.002 \text{ Gy}$) Allende 隕石の CAI (Ca-, Al-rich inclusion) の形成 (Y. Amelin 他, *Science*, **297**, 1678, 2002) より 1000 万年以内となり、鉄あるいは石鉄隕石で見られる火成作用・元素分別は母天体集積前の熱い領域に存在した微惑星で生じたことを示している (J.H. Chen 他, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **66**, 3793, 2002).

ヨウ素-129 iodine-129 (^{129}I)

質量数 129 のヨウ素の長寿命放射性同位体 ($E_{\beta}^{\text{max}} = 0.15 \text{ MeV}$; $T_{1/2} = 1.57 \times 10^7 \text{ y}$). カリフォルニア大学放射線研究所における 1932 年からの 27 インチサイクロトロンおよび 1939 年からの 60 インチサイクロトロンによるシーボーク (G.T. Seaborg, 1912-1999) らの新核種研究で、放射性的の Sb, Te および I の中に質量数 129 の同重体の壊変鎖 ^{129}Sb ($T_{1/2} = 4.2 \text{ h}$) \rightarrow ^{129}Te ($T_{1/2} = 72 \text{ min}$) [および $^{129\text{m}}\text{Te}$ ($T_{1/2} = 32 \text{ d}$)] \rightarrow ^{129}I (長寿命) \rightarrow ^{129}Xe (安定) が見つかった (*Phys. Rev.*, **54**, 775, 1938; 同誌, **55**, 794, 1939; ^{131}I の項も参照). セイラー (J. Seiler) がクリントン炉で 123 日間中性子照射したウラン片からヨウ素を分離し, ^{131}I ($T_{1/2} = 8 \text{ d}$) が壊変してしまったヨウ素試料の測定から, ^{129}I は極めて長寿命であるかあるいは極めて軟らかい (エネルギーの低い) 放射線を放出する, またはその両方の性質を備えるとの結論を得た (Manhattan Project Prog. Rept., CN-1998, p. 2). 1947 年, カリフォルニア大学ロスアラモス科学研究所のキャトコフ (S. Katcoff) はセイラーのヨウ素試料をロスアラモス炉で照射し, $^{129}\text{I}(n,\gamma)^{130}\text{I}$ 反応で ^{129}I を ^{130}I ($E_{\beta}^{\text{max}} = 0.4, 0.62 \text{ MeV}$; $E_{\gamma} = 536.1, 668.6 \text{ keV}$ 他; $T_{1/2} = 12.6 \text{ h}$) に変換して ^{129}I を測定し, いくつかの仮定のもとで ^{129}I の半減期を 10^8 年以上とした. 彼はさらに, オークリッジ炉で 4 年間照射し, 21 ヶ月冷却したウラン塊からヨウ素を分離・精製した後にヨウ化メチルとし, 比例計数管に導入して計測した. その試料を Na^{129}I に転換して AgNO_3 滴定でヨウ素量を決めた後, いくつかに分けて再精製したうちの 9 試料の $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比を質量分析計で求め, 半減期を 1.72×10^7 年 (誤差 5%) と定めた. ジューズ (H. Suess) の指摘 (*Z. Phys.*, **125**, 386, 1948) に

従い、彼はこの値を使って元素の生成と地球大気の形成（地球形成時間 T ）との時間間隔（形成時間 t ）が 2.7×10^8 年で、元素の年齢を 3.6×10^9 年 ($T + t = 3.35 \times 10^9 + 2.7 \times 10^8$ 年) と推定した (*Phys. Rev.*, **82**, 688, 1951；同位体存在度の系統性からみて地球大気中の ^{129}Xe と ^{40}Ar の過剰を $^{129}\text{I}/^{40}\text{K}$ によるとして解いた).

1960 年、レイノルズ (J.H. Reynolds, 1923-2000) は、Richardton 隕石に ^{129}Xe の大過剰を見つけた (*Phys. Rev. Lett.*, **4**, 8, 1960). これが消滅核種 ^{129}I の壊変による $^{129\text{r}}\text{Xe}$ (r: radiogenic) であることを示すため、翌年、ジェフェリー (P.M. Jeffery) と共に Abee 隕石 1.5 グラムを中性子で 480 時間照射 ($6 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$) した後、真空中で 100°C 毎の段階加熱を行い、各温度で放出される Xe 同位体を質量分析した. 600°C 以上では、 $^{129\text{r}}\text{Xe}$ と $^{127}\text{I}(n,\gamma\beta^-)$ 反応により生成する $^{128\text{n}}\text{Xe}$ (n: neutron-produced) との良い相関を見つけた (Xe-Xe 法；この方法は ^{40}K - ^{40}Ar 年代測定に応用され、 $^{39}\text{K}(n,p)^{39}\text{Ar}$ を使う ^{40}Ar - ^{39}Ar 法を創出することになった. (^{40}K の項参照). その後、高精度の ^{129}Xe - ^{128}Xe 測定が多様な隕石とそれらの鉱物分についてなされ、もうひとつの消滅核種である ^{244}Pu の自発核分裂由来の ^{131}Xe - ^{136}Xe 測定とともに詳細な形成時間差 (約 100 万年) と隕石 (母天体) 生成過程の関係の議論がなされるようになってきた (例えば、R.H. Brazzile 他, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **63**, 739, 1999). 星内の r-過程でつくられる ^{244}Pu と違って、 ^{129}I には r-過程に加えて原始太陽 (T. Tauri 星) からの宇宙線照射の寄与も考えられ、その生成過程は複雑である (P.K. Kuroda, "The Origin of the Chemical Elements and the Oklo Phenomenon", Springer-Verlag, 1982).

^{129}I は地球上で宇宙線と大気中の Xe の反応や地殻中のウランの自発核分裂で

生成し、定常状態の海洋での $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比は 1.5×10^{-12} と推定されている (ヨウ素濃度は約 $0.5 \mu\text{M}$). ヨウ素が海底堆積物に取り込まれると ^{129}I の供給が止まるため $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比は ^{129}I の半減期に従って減衰する. 日本では、放医研の村松康行 (現学習院大学) らが千葉・房総半島の地下 1000 ~ 2000 m からの鹹水中の ^{129}I (堆積物起源) を加速器質量分析 (AMS) で測定してヨウ素の年代として 4900 万年を得た (*Earth Planet. Sci. Lett.*, **192**, 583, 2001). ロチェスター大学のスナイダー (G.T. Snyder) らは石灰層由来のメタン産出の大きいコロラド-ニューメキシコ境界のサンファン盆地のガス井戸からの塩水の ^{129}I (および ^{36}Cl , δD , $\delta^{18}\text{O}$) による歴史 (6000 万年) と起源を研究している (*Geochim. Cosmochim. Acta*, **67**, 4529, 2003). その他、温泉、島弧噴気水、海盆起源塩水などでの ^{129}I (および ^{36}Cl) の研究も AMS を使って広く行われている (上掲文献および Synder 他, *Earth, Planets Space*, **54**, 265, 2002；U. Fehn 他, *Science*, **289**, 2332, 2000). 1960 年代末、東京大学原子核研究所の高木仁三郎らは宇宙線の μ 粒子と地球物質との核反応の一連の研究の中で、形成年代の異なるテルル鉱石中の ^{129}I を放射化法により初めて検出した (*Earth Planet. Sci. Lett.*, **24**, 141, 1974； ^{26}Al の項を参照). ^{129}I は大気圏核実験や使用済核燃料再処理で環境へ放出され、広く分布している. 自然界のヨウ素サイクルで微生物の作用は大きく、 ^{129}I の拡散・濃縮過程の研究は重要であり、原子力施設近傍のモニタリングだけでなく、地球規模でのヨウ素の挙動と生物との関わりが AMS の威力を用いて究明されつつある (村松康行, *Isot. News*, 2005 年 5 月号).

ヨウ素-131 iodine-131 (^{131}I)

質量数 131 のヨウ素の放射性同位体 ($E_{\beta}^{\max} = 0.606 \text{ MeV}$; $E_{\gamma} = 364.5 \text{ keV}$; $T_{1/2} = 8.020 \text{ d}$)。カリフォルニア大学バークレー校放射線研究所では、1932 年に世界ではじめて稼動した 27 インチサイクロトロン陽子の陽子 ($E_p = 4 \text{ MeV}$)、重陽子 ($E_d = 8 \text{ MeV}$)、 α 粒子 ($E_{\alpha} = 16 \text{ MeV}$) および (Be+d) 反応で発生する速・遅中性子 (n) を使って、また 1939 年からは 60 インチ (クロッカー) サイクロトロン陽子の重陽子 (16 MeV) を使って数多くの放射性核種がつくられた。その中で、1938 ~ 40 年にシーボーグ (G.T. Seaborg, 1912-1999) らはテルル (アンチモンを含む) の d および n 照射で生成する放射性 Te とその娘核種である放射性 I を化学分離し、一連の Te と I の放射性同位体 (核異性体を含む) を見つけた。また、半減期が 8 日のガンマ放射体は ^{131}I もしくは ^{129}I と同定した (*Phys. Rev.*, **55**, 794, 1939)。ウランの核分裂がドイツから報じられた 1939 年、バークレーのエイベルソン (P. Abelson) は中性子照射したウラン化合物から Se, Te および I を化学分離し、 ^{131}I ($T_{1/2} = 8 \text{ d}$) の生成を確認した (*Phys. Rev.*, **56**, 1, 1939)。

^{131}I は無担体で大量に調製でき (核分裂では収率 2.9%)、主要な壊変経路が単純で γ 線測定が容易であり、半減期も手頃であるため含ヨウ素化合物の標識やトレーサーとして広く利用されてきた。医学利用では甲状腺機能亢進症や甲状腺癌の治療用 (atomic cocktail) に使われた。近年、PET (陽電子放出断層撮影) 診断のために β^+ 放射体である ^{124}I (β^+ , EC, $E_{\gamma} = 602.7 \text{ keV}$; $T_{1/2} = 4.176 \text{ d}$) が使われるようになったが、より寿命の長い ^{125}I (EC, γ ; $T_{1/2} = 59.4 \text{ d}$) や ^{126}I (EC, β^- , γ ; $T_{1/2} = 13.0 \text{ d}$) とともにサイクロトロンでしかつくれないため利用が限定される。

大気圏核実験 (1945 ~ 1962) や原子力

発電所の事故 (チェルノブイリ, 1986 年 4 月) では揮発性であるヨウ素などの放出は深刻であった。 ^{131}I はチェルノブイリ事故の際には日本でも観測された。熱核兵器やメガトン級原爆の場合には成層圏に入り、地上に降下するまでの平均滞留時間約 1 年で地球一周に約 3 週間を要するので、この間にかなり減衰する。しかし、小規模核実験 (100 キロトン) の場合や原子力発電所事故では対流圏に入って地球を周回しながら地上に降下する。放射性ヨウ素は、植物表面に沈着し、家畜が摂取して牛乳や他の乳製品に入り、ヒトの甲状腺に集まる (摂取量の 30%)。事故時に、原子炉施設周辺住民にヨウ素剤を配布するのは甲状腺に蓄積する ^{131}I の置換排除に利用するためである。

セシウム-135 caesium-135 (^{135}Cs)

質量数 135 のセシウムの長寿命放射性同位体 (β^- 100%, $E_{\beta}^{\max} = 268.5 \text{ keV}$, no γ ; $T_{1/2} = 2.3 \times 10^6 \text{ y}$). 初期 (米国の Plutonium Project) の核分裂生成核種の研究では ^{79}Se , ^{107}Pd および ^{129}I とともに ^{135}Cs からの放射線測定には成功せず, これらの核種は長寿命軟ベータ放射体と考えられた. 実際, カリフォルニア大学ロスアラモス研究所に出向していたフィンクル (B. Finkle) とシュガーマン (M. Sugarman) は中性子照射したウランからヨウ素を分離し, ^{135}I ($T_{1/2} = 6.7 \text{ h}$) と ^{135}Xe ($T_{1/2} = 9.2 \text{ h}$) の壊変を待って雲母窓付 GM カウンターによる測定を試みたが検出できず, 半減期は 1200 年以上であると推定した. グレンデニン (L.E. Glendenin) とメトカルフ (R.P. Metcalf) は同様の試みから, 半減期は 2000 年より長いと推定した (The Plutonium Project, 1945 and 1946; *J. Am Chem. Soc.*, **68**, 2411, 1946). エンゲルマイア (D.W. Engelmeir) は, 30 mCi ($1.2 \times 10^8 \text{ Bq}$) の ^{135}Xe から生成する ^{135}Cs を窓なし計数器で測定し, 半減期は 2 万 5000 年以上であると推定した. 1949 年になって, シカゴ大学原子核研究所に戻ったシュガーマンは 36 Ci と 30 Ci ($1.1 \sim 1.2 \times 10^{12} \text{ Bq}$) の ^{135}Xe を調製し, ^{135}Cs のベータ線エネルギーをアルミニウム吸収によるフェザー法を使って $E_{\beta}^{\max} = 0.21 \pm 0.01 \text{ MeV}$ と求め, 半減期として $(2.1 \pm 0.7) \times 10^6 \text{ 年}$ を得た. その際, ^{135}Cs 試料を再放射化して ^{136}Cs の生成を確認し, 中性子放射化断面積として $14.5 \pm 4 \text{ b}$ を得た. 同じ頃, オークリッジ国立研究所のセルゲス (H. Zeldes) らは, 核分裂でつくった ^{135}Cs を用いて $T_{1/2} = (2.95 \pm 0.30) \times 10^6 \text{ y}$ を報告した (ORNL-286, 1949). その後 1952 年から 1982 年まで, ^{135}Xe の β^- 壊変, $^{135\text{m}}\text{Cs}$ の IT 壊変および $^{138}\text{Ba}(\mu^-, 3n)$

反応が調べられたが, Table of Isotopes の第 6 版 (1967) と第 7 版 (1978) では ORNL-286 の値が $T_{1/2} = 3.0 \times 10^6 \text{ y}$ として採用され, 第 8 版では核データグループの評価値として $T_{1/2} = (2.3 \pm 0.3) \times 10^6 \text{ y}$ が採用され現在に至っている.

この核種が注目されるのは, 始原的隕石の包含物中の Ba 同位体の変動である. バリウムには 7 個の安定同位体があり, ^{130}Ba と ^{132}Ba は超新星 (SN, Supernova) 爆発時の p-過程 (光核反応) で, ^{134}Ba と ^{136}Ba は AGB 星 (Asymptotic Giant Branch star, 漸近的巨大分岐星) における s-過程で, ^{135}Ba , ^{137}Ba および ^{138}Ba は s-過程と r-過程 (SN 爆発) の両過程でつくられる. さらに, ^{135}Ba (と ^{137}Ba) は消滅核種である ^{135}Cs (と ^{137}Cs) の壊変による付加が考えられ, 核合成から包含物の固化 (壊変親娘核種の固定) までの時間軸 (形成時間) を与える. 1970 年代中頃, 平均寿命 103 万年の ^{26}Al に由来する ^{26}Mg が Allende 隕石の CAI (Ca, Al-rich inclusion) 中に見つかったことから, 平均寿命が 100 万年から 1 億年の消滅核種候補 (特に ^{41}Ca , ^{26}Al , ^{60}Fe , ^{53}Mn , ^{135}Cs , ^{107}Pd , ^{182}Hf) に注目が集まった. 同時に, CAI などにはコンドライトの平均と異なる同位体組成が発見され, これらの包含物は原始太陽系星雲物質の同位体均質化から逃れたのか, あるいは別の場所で作られて付加された (太陽系外先駆物質, presolar grains) のかの議論に発展した. 包含物や太陽系外先駆物質の SiC, グラファイト, ダイヤモンドなどでは s-過程あるいは r-過程の特徴を強く示すことが分かり, 太陽系元素への複数の星および進化過程の異なる段階での合成生成物の付加が明らかになってきた. 具体的には, 安定同位体数の多いバリウムやネオジムの測定が 1970 年代末より行われた. Allende 隕石の CAI で見つかった

^{135}Ba , ^{137}Ba および $^{144}\text{Nd} \sim ^{150}\text{Nd}$ の異常は r-過程の付加とされ (M.T. McCulloch, G.J. Wasserburg, *Astrophys. J.*, **220**, L15, 1978), Murchison 隕石の SiC とダイヤモンドでは s-過程核の ^{134}Ba と ^{136}Ba の過剰も発見された (U. Otto 他, *Nature*, **332**, 700, 1988; *Astrophys. J.*, **353**, L57, 1990; E. Zinner 他, 同誌, **382**, L47, 1991; C.A. Prombo 他, 同誌, **410**, 393, 1993). この s-過程は, 質量が太陽の 5 倍程度以下の星が赤色巨星過程 (He 中心核の外殻での H 燃焼) を経てやがて白色矮星へと移行する途中の AGB 星での遅い中性子捕獲で説明される (例えば M. Busso 他, *Ann. Rev. Astron. Astrophys.*, **37**, 239, 1999; M.C. Ranen 他, *Science*, **314**, 809, 2006).

セシウム-135 が消滅核種であることを初めて明確にしたのは広島大学の日高洋らであり, Allende 隕石の CAI と普通コンドライトの Beardsley ならびに Zag の段階的酸溶解抽出分の Cs/Ba 比に基づく. セシウムとバリウムでは揮発性や化学反応性が異なるため CAI などの高温生成物の Cs/Ba 比は小さいが, 酸抽出分では残渣の 10 ~ 20 倍の大きな値となった. さらに, CAI での太陽系初期値として $^{135}\text{Cs}/^{133}\text{Cs} = (4.8 \pm 0.8) \times 10^{-4}$ を得, 二つのコンドライトはそれぞれ CAI より 820 ~ 1190 万年および 1390 ~ 1760 万年後に ^{135}Cs 時計が動き出したという結果を得た (H. Hidaka 他, *Earth Planet. Sci. Lett.*, **193**, 459, 2001). ワシントン大学 (St. Louis) のニコルス (R.H. Nichols, Jr.) らは Orgueil 隕石の段階的酸抽出分のバリウム分析で ^{135}Ba の過剰を見出し, 日高らの結果と矛盾しないことを示した (*Lunar Planet. Sci.* XXXIII, #1929, 2002). 日高らはさらに, Murchison など 5 種類の炭素質隕石と一つの玄武岩質エイコンドライト Juvinas で同様の測定を行い, r- および s-過程バリウム同位体の過剰を

見出したが, ^{135}Cs 起源の ^{135}Ba の存在は明確ではなかった (H. Hidaka 他, *Earth Planet. Sci. Lett.*, **214**, 455, 2003). ^{135}Cs に起因する ^{135}Ba 過剰の評価には, r-過程の寄与分を正しく見積もる必要があり, やや複雑である.

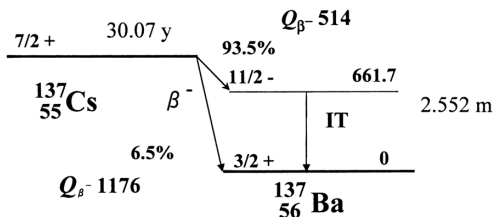
セシウム-137 caesium-137 (^{137}Cs)

質量数 137 のセシウムの放射性同位体 ($E_{\beta}^{\text{max}} = 0.514, 1.176 \text{ MeV}$; $E_{\gamma} = 661.7 \text{ keV}$; $T_{1/2} = 30.07 \text{ y}$). 第二次世界大戦中の米国の原爆製造計画 (マンハッタン計画) の中で, ^{137}Cs は熱中性子 n_{th} による ($^{235}\text{U} + n_{\text{th}}$) や ($^{239}\text{Pu} + n_{\text{th}}$) 反応の核分裂収率が 高く ($\geq 6\%$), 測定し易いために早い時期に発見された核種の一つである (N. Sugarman, *Phys. Rev.*, **75**, 1473, 1949). セシウムの安定核は ^{133}Cs (同位体存在度 100%) であるが, ^{137}Cs は中性子数 82 のマジックで, その間にはさまれた同位体 ^{134}Cs (β^{-}, γ ; $T_{1/2} = 2.065 \text{ y}$), ^{135}Cs (β^{-} , no γ ; $T_{1/2} = 2.3 \times 10^6 \text{ y}$), ^{136}Cs (β^{-}, γ ; $T_{1/2} = 13.16 \text{ d}$) はいずれも比較的安定で, 近辺の同重体は核分裂収率の高いグループを形成する (^{90}Sr の項も参照). ^{137}Cs の最大エネルギー 0.514 MeV の β^{-} 分岐 (94.4%) は $^{137\text{m}}\text{Ba}$ (IT, $E_{\gamma} = 661.660 \text{ keV}$; $T_{1/2} = 2.552 \text{ min}$) を經由して ^{137}Ba (安定) に至る. この壊変特性の単純さのため, 標準 γ 線源あるいは γ 線照射用大量線源として重宝される. また, ^{137}Cs から $^{137\text{m}}\text{Ba}$ のミルキングは, ^{140}Ba (β^{-}, γ ; $T_{1/2} = 12.75 \text{ d}$) - ^{140}La (β^{-}, γ ; $T_{1/2} = 1.678 \text{ d}$) や ^{90}Sr (β^{-} , no γ ; $T_{1/2} = 28.78 \text{ y}$) - ^{90}Y (β^{-} , weak γ ; $T_{1/2} = 2.67 \text{ d}$) などとともに放射化学の基礎実験教材として広く使われる.

1945 ~ 63 年の大気圏核実験では大量の ^{137}Cs (0.95 EBq; 気象研究所の青山道夫らによる北半球での降下量観測積算値

は $765 \pm 79 \text{ PBq}$) が放出された. これらは陸上か海域かを問わず世界各地で観測が続けられ, 陸域および海洋での物質移動のトレーサーとしても利用されている. 現在, 降下物としては観測されなくなった (1986 年のチェルノブイリ原子力事故等における突発放出を除く) が, ^{137}Cs を指標とする地上および海洋での動態研究は今なお重要であり, 地上降下 ^{137}Cs の再浮上 (例えば, 中国からの黄砂 - 核実験場ロップノールは西部砂漠にある一の飛来) の観測が注目されている. また, 使用済み核燃料再処理における液体廃棄物の河川・海への放流は規制されているとはいえ, いまだに無視できない量が残存している (例えばアイリッシュ海).

土壌中のセシウムは, 土が動かない限りほとんど移動しない. ヒトを含めて動物の体内に摂取された ^{137}Cs の 60% は筋肉に分布し, 生物学的半減期は 50 ~ 150 日 (子供の全身で 44 日) と見積もられている.



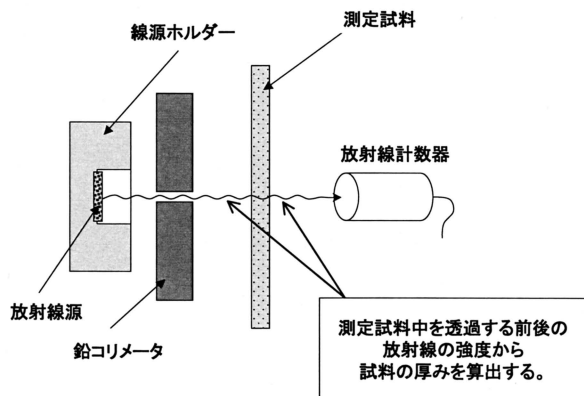
Cs-137 の壊変図 (エネルギーの単位は keV)

プロメチウム promethium (Pm)

原子番号61の人工放射性元素。1947年、米国オークリッジのクリントン研究所のマリンスキー (J.A. Marinsky), グレンデンイン (L.E. Glendenin) およびコリエル (C.D. Coryell, 1912-1971) は原子炉照射でつくったウランの核分裂生成物から希土類混合物を分離し、クエン酸アンモニウムを溶離液とする Amberlite カラムの陽イオン交換分離で予想溶離位置に溶離する ^{147}Pm (β^- , γ ; $T_{1/2} = 2.62$ y) を見出し (J.A. Marinsky 他, *J. Am. Chem. Soc.*, **69**, 2781, 1947), はじめ研究所名から clintonium と名付けたが、後に Mrs. Grace Mary Coryell の助言でギリシャ神話の火の神 Prometheus (天から火を盗んで人類に与えたためにゼウスにより拷問にかけられたが、人類は自らつくった核兵器の危険という拷問に苦しむと言う寓意) にちなんで prometheum (J.A. Marinsky, L.E. Glendenin, *Chem. Eng. News*, **26**, 2346, 1948) を提案した。IUPAC は他の金属元素の名称に合わせて promethium と命名した (*Chem. Eng. News*, **27**, 2996, 1949)。

希土類元素の性質は互によく似ているため 20 世紀初めより混乱があったが、

1914 年にモーズレー (H.G.J. Moseley, 1887-1915) が原子番号 Z と特性 X 線の振動数の平方根 $\sqrt{\nu}$ の直線関係 (モーズレー則) を見出して始めてこのグループの元素数が分った。この時、周期表に $Z = 43, 61, 72, 75, 85, 87$ および 91 の 7 個の空欄が残されていて、その一つは ^{60}Nd と ^{62}Sm の間にあった。1926 年、イリノイ大学のハリス (J.A. Harris) とホプキンス (B.S. Hopkins, 1873-1952) はモナズ石からの Nd や Sm 試料中に新スペクトル線を見付けたとして "illinium, II" と名付けた。フィレンツェ大学のローラ (L. Rolla) とフェルナンデス (L. Fernandes) もブラジル産モナズ石から希土類元素を分離し、61 番元素が含まれているとして "florentium" と命名した。天然には、ウラン鉱中に ^{238}U の自発核分裂で生成するプロメチウムが平衡量 (10^{-15} g/kg) 存在している (M. P. Menon, P. K. Kuroda, *J. Inorg. Nucl. Chem.*, **26**, 401, 1964; M. Attrep, Jr., P. K. Kuroda, *J. Inorg. Nucl. Chem.*, **30**, 699, 1968) が、分光学的手法で見える量ではない。オハイオ州立大学のロー (H.B. Low), プール (M.L. Pool), クルバトフ (J.D. Kurbatov) およびクイル (L.L. Quill) は、1941 年、Nd



厚み計

と Sm をサイクロトロンからの n, d あるいは α で衝撃して 61 番元素 II を見付けたとして “cyclonium” の名を提案した。1942 年, ウー (C.S. Wu) とセグレ (E.G. Segrè, 1905-1989) もこれを支持したが決定的証拠は得られなかった。

マリンスキーとグレンデニンが Pm の発見を発表した時には既にミリグラム量を単離していた。1963 年, ウェイゲル (F. Weigel) は 750 ~ 1090 °C の高真空中で PmF₃ を Li で還元して金属 Pm を得た (*Angew. Chem.*, **75**, 451, 1963)。Pm 同位体は ¹²⁸Pm ~ ¹⁴⁵Pm が β^+ および EC 壊変, ¹⁴⁷Pm ~ ¹⁵⁹Pm が β^- 壊変, ¹⁴⁶Pm は EC と β^- 壊変をする。最長寿命核種は半減期が 17.7 年の ¹⁴⁵Pm で, ¹⁴⁶Pm の 5.53 年, ¹⁴⁷Pm の 2.62 年などがこれに続く。この ¹⁴⁷Pm ($E_{\beta}^{\max} = 0.224$ MeV) は薄青から黄緑に光る夜光塗料に使われたり, 寿命 5 年ほどのミニ電池として誘導ミサイル, 時計, ペースメーカー, ラジオなどに使われる。また, この β^- 放射体は γ 線放出が僅かで β 線厚み計としても使われている。

サマリウム-146, -147

samarium-146, -147 (¹⁴⁶Sm, ¹⁴⁷Sm)

サマリウムの長寿命放射性同位体 (¹⁴⁶Sm: $E_{\alpha} = 2.455$ MeV, $T_{1/2} = 1.03 \times 10^8$ y; ¹⁴⁷Sm: $E_{\alpha} = 2.23$ MeV; $T_{1/2} = 1.06 \times 10^{11}$ y)。天然のサマリウムは, 中性子マジック 82 をもつ ¹⁴⁴Sm₈₂ (存在度 3.07%) の他に, ¹⁴⁷Sm (14.99%; α , $T_{1/2} = 1.06 \times 10^{11}$ y), ¹⁴⁸Sm (11.24%; α , $T_{1/2} = 7 \times 10^{15}$ y), ¹⁴⁹Sm (13.82%), ¹⁵⁰Sm (7.38%), ¹⁵²Sm (26.75%) および ¹⁵⁴Sm (22.75%) から成り, これらに挟まれる ¹⁴⁵Sm (EC, γ ; $T_{1/2} = 340$ d), ¹⁴⁶Sm (α ; $T_{1/2} = 1.03 \times 10^8$ y), ¹⁵¹Sm (β^- , γ ; $T_{1/2} = 93$ y) および ¹⁵³Sm (β^- , γ ; $T_{1/2} = 1.928$ d) はいずれも寿命が長い。これらのうち星内元素合成の p-過程核 ¹⁴⁶Sm が消滅核種かどうかの最初の研究が, 1974 年に東大の野津憲治と馬淵久夫によってなされて以来 (K. Notsu 他, *Earth Planet. Sci. Lett.*, **19**, 29, 1973) 注目され, 隕石の (¹⁴²Nd/¹⁴⁴Nd) 対 (¹⁴⁴Sm/¹⁴⁴Nd) 等時線から隕石固化時の ¹⁴⁶Sm/¹⁴⁴Sm 比測定へと発展した (G. W. Lugmair, K. Marti, *Earth Planet. Sci. Lett.*, **35**, 273, 1977)。Sm も Nd も共に希土類に属する耐火性 (不揮発性) 親石元素であるが, マグマからマフィック (鉄とマグネシウムに富む, mafic) なケイ酸塩鉱物がつくられるときは結晶格子に不適合 (incompatible) な元素として液相に残る。しかし, 不適合性は Nd の方がより強く, Sm と Nd の分別が生じる。この過程を, 特に火星起源と考えられる一連の SNC (shergottite, nakhlite, chassignite) 隕石で ¹⁴⁶Sm 起源の ¹⁴²Nd が測定され, 火星での ¹⁴⁶Sm が壊変しきっていない初期のマグマ分化史が追求されている (C. Foley 他, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **69**, 4557, 2005 など; ¹⁸²Hf の項も参照)

¹⁴⁶Sm-¹⁴²Nd 対と同じく, ¹⁴⁷Sm も娘核種の ¹⁴³Nd と共に岩石生成後の二次的

影響に対して閉鎖性を保ちやすいことから、野津らと同じ頃 (G.W. Lugmair, *Meteoritics*, **9**, 369, 1974; Lugmair, Marti, *Earth Planet. Sci. Lett.*, **39**, 349, 1978) から、U, Th, Rb などのように太陽系の年齢や全地球規模での初生 $^{142}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$ 比の進化の議論が盛んである。最近、ワシントン・カーネギー研究所のボイエット (M. Boyet) とカールソン (R.W. Carlson) による多数のコンドライトとユークライト中の Sm と Nd の精密同位体分析の結果が注目された。過去 25 年間の測定で、地球上の岩石とコンドライトで同じとされてきた $^{142}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$ 比が、この測定で後者は 20 ppm 低いことが分かった。コンドライト組成である地球が形成された 3000 万年後にマグマオーシャン (主に微惑星の集積エネルギーによる地表付近の融解—マグマの海) で Sm と Nd の分別が生じ、 ^{146}Sm を含むサマリウムがマントル上部 (および地殻) に、Sm/Nd 比の小さい部分がマントル最下部の 200 km 厚の層 (D' 層と呼ばれる; 参考 E.J. Garnero, *Ann. Rev. Earth Planet Sci.*, **28**, 509, 2000) に同じ不適合元素である U, Th, K などとともに入ったと解釈される。これは、地中からの放射熱源不足 (43%) や地球核ダイナモの動力源、さらにハワイやアイスランドの元になったマントルプルームをも説明できることになる (M. Boyet, R.W. Carlson, *Science*, **309**, 576, 2005; R.A. Kerr の解説, 同誌, **308**, 1723, 2005)。月の玄武岩の Sm と Nd の同位体測定ではコンドライトの $^{142}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$ 比と同じで、地球に比べてやはり 20 ppm 低い (K. Rankenburg 他, *Science*, **312**, 1369, 2006)。月は火星の大きさの天体が地球に衝突してできたという説 (W.K. Hartmann 他, "Origin of the Moon," *Lunar Planet Inst.*, Houston, 781, 1984) もボイエット - カールソンの結果に整合するモデルで議論さ

れている。最近さらに、炭素質コンドライトの p-過程生成核種 ^{144}Sm が他の隕石や地球岩石に比べて少ない (~ 100 ppm) ことが分かり、同じ p-過程生成核種 ^{146}Sm の壊変で生じる ^{142}Nd も約 11 ppm 少なくなることになる。p-過程は超新星で起きると考えられるが、超新星で起きる r-過程や赤色矮星ないし AGB 星 (漸近的巨大分岐星) で起きる s-過程により生成する Sm と Nd の他の同位体には差がないことから、別の超新星の寄与を考えなければならない (R. Andreeasen, M. Sharma, *Science*, **314**, 806, 2006; R.W. Carlson 他, 同誌, **316**, 1175, 2007; ^{135}Cs の項も参照)。

サマリウムの放射能を測定する試みは 1930 年代の初期に遡る [G.K. von Hevesy (1885-1966) と M. Pahl, 1932; I. Joliot-Curie (1897-1956) と F. Joliot-Curie (1900-1958), 1933; W.F. Libby (1908-1980), 1933]。1950 年にウィーバー (B. Weaver) が ^{147}Sm が α 放射体であることを示す前は、全 Sm について $(0.63 - 1.4) \times 10^{12}$ 年という半減期が与えられていた。同位体存在度を考慮し直した 1936 年のホースマン (R. Hosemann) の値 $[(1.50 \pm 0.11) \times 10^{11}$ 年] を含めて、1992 年までに 14 の報告値がある。1954 年にベアード (G. Beard) とヴィーデンベック (M.L. Wiedenbeck) が $(1.25 \pm 0.06) \times 10^{11}$ 年という半減期を与えて以降、その値は 1960 年にルグメイアーらが採用した $(1.060 \pm 0.008) \times 10^{11}$ 年に向かって収束し (F. Begemann 他, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **65**, 111, 2001), すべての宇宙・地球年代学でこの値が採用され膨大なデータが蓄積されてきている。近年 (2000 ~ 06), 中西孝と木下哲一は、96%濃縮 ^{147}Sm の α 線再測定から $(1.17 \pm 0.02) \times 10^{11}$ 年を得た。彼らはさらに、この ^{147}Sm を用いて $^{147}\text{Sm}(\gamma, n)^{146}\text{Sm}$ 反応で ^{146}Sm を

調製して再測定した。 ^{146}Sm の半減期の上限値として 1.4×10^9 年を得たことから、太陽系外由来の宇宙塵中に ^{146}Sm の存在が期待される(^{244}Pu の項を参照)。

ルテチウム-176 lutetium-176 (^{176}Lu)

質量数 176 のルテチウムの天然長寿命同位体 (β^- 99.66%, $E_{\beta}^{\text{max}} = 0.565 \text{ MeV}$; $E_{\gamma} = 306.8, 201.8 \text{ keV}$ 他; $T_{1/2} = 3.75 \times 10^{10} \text{ y}$)。ルテチウムの天然同位体は ^{175}Lu (同位体存在度 97.41%) と ^{176}Lu (2.59%) である。この 71 番元素は、フランス・ソルボンヌ大学のユルバン (G. Urbain, 1872-1938; 日本の無機化学、地球科学の祖柴田雄次の師) が 1907 年に発見し、生地パリの古名 Lutece から lutecia と呼んだがラテン語由来の lutetia に変更された。英国生まれで米国ニューハンプシャ大学のジェームス (C. James, 1880-1928) はユルバンの発表前に大量の純ルテシアをつくっていたが発見の優先を主張しなかった。一方、オーストリアのウィーン生まれでハイデルベルク大学のヴェルスバッハ (C.A. Freiherr von Welsbach, 1858-1929, 白熱灯発見者として有名) も独立にこの元素を発見し cassiopeium (Cp) と名づけ、この名称はドイツ語圏内では長く使用された。

^{176}Lu の放射性に関しては、1938 年、ハイデン (M. Hayden) とヴェフェルマイヤー (W. Wefelmeyer) が“カシオピウムの天然 β 放射能”を発見し、半減期を 4×10^{10} 年と報告したことにはじまる。彼らは ^{177}Cp によるとしたが、同年マッタウ (J. Mattau) とリヒトブラウ (H. Lichtblau) が天然同位体は質量数 175 と 176 から成ることを質量分析によって示し、同重体則 [天然の奇・奇核 (陽子・中性子数とも奇数の核) は隣り合う偶核の同重体へ β^- および (あるいは) EC 壊変するという経験則^{*}; Mattau, 1934] から

* 軽い 4 つの奇奇核 (^2H , ^6Li , ^{10}B , ^{14}N) を除けば、 ^{40}K , ^{50}V , ^{138}La , ^{176}Lu および ^{180}Ta が天然長寿命放射性核種として知られているが、半減期の下限値のみが知られている例 (^{180}Ta : $T_{1/2} > 10^{15} \text{ y}$) もある。

^{176}Cp が放射性であろうとした。1939年リビー (W.F. Libby, 1908-1980) はスクリーン壁付カウンターで 220 keV の β^- 線を測定し, ^{176}Lu の半減期を $(7.3 \pm 2) \times 10^{10}$ 年と決め, その値が長い間使われた。その間 1954 年にアーノルド (J.R. Arnold) およびディクソン (D. Dixon) らによる壊変図式の提案, 1980 年のアメリカ地質調査所 (コロラド) の立本光信らの隕石年代測定への初めての応用 (P.J. Patchett, M. Tatsumoto, *Nature*, **288**, 571, 1980) を経て, さらに数多くの (i) β^- あるいは γ 線測定, (ii) 古い地球鉱物や (iii) 隕石での他の放射性時計との年令比較によるなど, 2006 年 3 月現在までに 36 報の半減期のデータがある。 (i) では $(4.56 - 2.1) \times 10^{10}$ 年で収斂値 $(3.83 \pm 0.37) \times 10^{10}$ 年, (ii) では平均 $(3.711 \pm 0.053) \times 10^{10}$ 年, (iii) では平均 $(3.534 \pm 0.016) \times 10^{10}$ 年と少しずつ食い違い, 現在でもより高い精度を求めて議論が続いている (F. Begemann 他, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **65**, 111, 2001; F. Albarède 他, 同誌, **70**, 1261, 2006)。日本では, 1967 年に坂本浩が天然存在度の Lu_2O_3 を用いて極低レベル用 NaI (Ti) による γ - γ サムコインシデンス法で半減期 $(5.0 \pm 0.3) \times 10^{10}$ 年, 1972 年に小村和久, 坂本浩, 田中重男が Ge (Li) による濃縮 ^{176}Lu の再測定で新しい β^- 分岐と $(3.79 \pm 0.03) \times 10^{10}$ 年 (誤差は 3σ) および坂本のデータの再検討値 $(3.8 \pm 0.1) \times 10^{10}$ 年, 1983 年に佐藤純らが $(3.78 \pm 0.01) \times 10^{10}$ 年を報告した。1989 年, 小村らは内部標準法の singles γ 測定で $(3.63 \pm 0.03) \times 10^{10}$ 年を得た。この項のはじめに記した値は “核構造データ評価ファイル, ENSDF file” による (Chart of Nuclides, 16th ed., Rockheed Martins, 2002) が, Karlsruhe Nuklidkarte, Marktdienste Haberbeck GmbH, 2006 では 3.8×10^{10} y と記載されている。

^{176}Lu の EC および β^+ 分岐に関する研究も, 1947 年のフラマースフェルド (A. Flammersfeld) とマッタウの $\beta^+/\beta^- = 2$ の報告以来いくつかの探索がなされてきたが, Q_{EC} (106.2 keV) とスピン・パリティ差 ($7^- \rightarrow 0^+$) からみて無視できるほど小さい (Y. Amelin, W.J. Davis, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **69**, 465, 2005)。

上記の (ii) と (iii) における半減期の値の明瞭な統計的差異が, 鉱物の冷却速度 (親娘核種の閉鎖時間・温度) や形成環境の違いを反映する (^{40}K - ^{40}Ar などと比べて二次変化に対する閉鎖性が強い) と考えられ, また星雲中のガス・塵の段階で若い太陽ないし近傍で爆発した超新星からの γ 照射により $^{176\text{m}}\text{Lu}$ (EC, β^- ; $T_{1/2} = 3.635$ h) への励起 (123.0 keV) が ^{176}Hf 量を変動させたという考えもあり, ^{176}Lu - ^{176}Hf 対による年代測定は今後さらに高精度の半減期測定と共に展開するであろう (前掲 F. Albarède らを参照)。

質量数 176 の β^- 壊変系列では ^{176}Yb が遮蔽核のため, ^{176}Lu は星内元素合成 r-過程ではつくられず, 唯一純粋な長寿命 s-過程核として注目されてきた。r-過程が起こる超新星爆発より以前の赤色巨星 (AGB 星, Asymptotic Giant Branch stars) の段階の元素合成過程を探る手段となると考えられるからである (J. Audouze 他, *Nature*, **238**, 8, 1972; H. Beer 他, *Phys. Rev.*, **C30**, 464, 1984)。

地球上の最古の岩石鉱物は 38 ~ 40 億年 (カナダ・アカスタ片麻岩, グリーンランド Itsaq 片麻岩) で, 45 億 6720 (± 60 万) 年前の太陽系形成後の 6 億年間はその間に形成されたジルコン粒 ZrSiO_4 を除いて地質学的証拠が消滅したという意味で暗黒時代 (冥王代, Hadean) と呼ばれてきた。最近 (2005 年), オーストラリア国立大学のハリソン (T.M. Harrison) ら米国, フランスおよび英国

の国際チームは、西オーストラリア Jack Hills の大きな集塊岩体に含まれる碎屑性ジルコン粒 5000 個の $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 比を高分解能多重コレクター付きイオンマイクロプローブで調べ、40 億 1000 万年～43 億 7000 万年の U-Pb 年代をもつ 44 個を溶液多重コレクター ICP-MS で、60 個をレーザー融解 IPC-MS で分析し $^{176}\text{Hf}/^{179}\text{Hf}$ 比を測定した結果、 $\varepsilon_{\text{Hf}}(\text{T}) = +15 \sim -10$ (10^{-4} 単位; T は U-Pb 年代) の変化を見出した。これは、地球も 45～44 億年前に大規模なマントル分化—大陸地殻の形成 (Lu/Hf 比は地殻で低く、残部マントルで高くなり、この時期の火成作用で分別した物質からジルコンが形成) が起き地球規模のプレートテクトニクスが始まったという、教科書が書き換えられるような発見を意味する (T.M. Harrison 他, *Science*, **310**, 1947, 2005; Y. Amelin の解説, 同誌, **310**, 1914, 2005; D. Trail 他, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **71**, 4044, 2007)。ちなみに、英国マンチェスター大学のターナー (G. Turner) らは、ハリソンらならびに米国 UCLA とコロラド大学との合同チームで同じ Jack Hills の 41 億 2000 万年～42 億 2000 万年の Hadean ジルコンの超高感度希ガス質量分析 (RELAX, refrigerator-enhanced laser analyzer for xenon) を行い、消滅核種 ^{244}Pu ($T_{1/2} = 8.2 \times 10^7$ y) 起源の $^{131}\text{Xe}/^{136}\text{Xe}$ 比を報告している (*Science*, **306**, 89, 2004)。

ハフニウム-182 hafnium-182 (^{182}Hf)

質量数 182 のハフニウムの放射性同位体 ($E_{\beta}^{\text{max}} = 3.737$ MeV, γ ; $T_{1/2} = 9 \times 10^6$ y)。天然には質量数 174 (同位体存在度 0.16%; $T_{1/2} = 2.0 \times 10^{15}$ y の α 放射体), 176 (5.26%), 177 (18.60%), 178 (27.28%), 179 (13.62%) および 180 (35.08%) の同位体がある。さらに重い ^{182}Hf 核は基底状態が $0+$ で ^{182}Ta に対して $Q_{\beta^-} = 0.5$ MeV をもつが、 ^{182}Ta の基底状態および準安定の $^{182\text{m}}\text{Ta}$ ($T_{1/2} = 16.5$ min; $E_{\gamma} = 503$ keV, $8+$) までの既知の励起状態のスピンは 3 または 3 以上であり、 β^- 転移は少なくとも第 3 禁止と考えられることから長寿命が予想された。米国アルゴン国立研究所のウィング (J. Wing), スワルツ (B.A. Swartz) およびハイゼンガ (J.R. Huizenga) は、材料試験炉で 93% 濃縮の ^{180}Hf (HfO_2 , 300 mg) を 1956 年 9 月から 1 年間照射し、二重中性子捕獲で ^{182}Hf をつくった。 ^{181}Hf (β^- , γ ; $T_{1/2} = 75$ d) と ^{175}Hf (EC, γ ; $T_{1/2} = 70$ d) を数千分の 1 とするよう 3 年間冷却後、化学的に精製して同位体分析し (^{182}Hf 0.138 \pm 0.001 atom%), γ 線を 3 \times 3 インチ NaI(Tl), β^- 線を 1/2 インチのアントラセンで測定して 271 keV の γ 線と上限 0.4 MeV の β^- 線を観測した。残存の ^{175}Hf と ^{181}Hf の混入を避けるよう ^{182}Ta (β^- , γ ; $T_{1/2} = 115$ d) の 1 MeV 以上の γ 線の成長と 4π カウンター計数とを比較しながら放射能の絶対測定を行い、 ^{182}Hf の半減期として (9 ± 2) $\times 10^6$ 年を得た (*Phys. Rev.*, **123**, 1354, 1961)。同じ頃、同様の方法でカリフォルニア大学ローレンス・リバモア放射線研究所 (LRL) のハッチン (W. Hutchin) と lindner (H. Lindner) は 8.5×10^6 年 (*J. Inorg. Nucl. Chem.*, **16**, 369, 1961), フリック化学・パルマー物理学研究所のナウマン (R.A. Naumann) とカリフォルニア大学ローレンス・バークレー研究所 (LBL)

のミッCHEL (M.C. Michel) は $(8 \pm 5) \times 10^6$ 年 (*J. Inorg. Nucl. Chem.*, **17**, 189, 1961) を報告した。それ以来 40 年間余, ^{182}Hf の半減期再測定は行われずに標記の値のままであったが, 下記の関心の高まりからボッケンヒューバー (C. Vockenhuber) らオーストリア, スイス, アメリカ, 台湾のグループ 12 名は 2004 年に再測定を行い, $(8.90 \pm 0.09) \times 10^6$ 年を得た。彼らは, ヘルマー (R.G. Helmer) らが 30 年前に照射でつくった ^{182}Hf の 2 試料 (260 Bq と 300 Bq) を用い, 前者は中性子放射化分析 (^{180}Hf) に質量分析 ($^{182}\text{Hf}/^{180}\text{Hf}$ 比) と γ 線 (^{181}Hf と ^{182}Hf の壊変率) 測定を組み合わせ, 後者は ^{182}Hf の同位体希釈質量分析と γ 線測定という通常の方法で, それぞれ $(9.034 \pm 0.251) \times 10^6$ 年および $(8.896 \pm 0.089) \times 10^6$ 年を得た。上記の値はそれらの荷重平均値である (*Phys. Rev. Lett.*, **93**, 172501, 2004)。

^{182}Hf は ^{182}Ta を経て ^{182}W (安定) になる。3 元素とも耐火性が高く, 高温でも地球化学過程に影響され難い。Hf は親石元素であり, W は親鉄性が高いので惑星の融解・核 (コア) 形成時には大きな分別が生じ, ケイ酸塩部分に Hf が, コア部分に W が濃集する。 ^{182}Hf が残存していれば ^{182}Hf 起源の ^{182}W がケイ酸部に過剰として期待されるというユニークな消滅核種対である。この対が太陽系内惑星形成の強力な時計であろうことは早くから指摘されていた (E.B. Norman, D.N. Schramm, *Nature*, **304**, 515, 1983)。1995 年にミシガン大学のリー (D.-C. Lee) とハリディ (A.N. Halliday) が, 1996 年にハーバード大学のハーパー (C.L. Harper) とヤコブセン (S.B. Jacobsen) が鉄隕石の Toluca などの中の $^{182}\text{W}/^{184}\text{W}$ 比がケイ酸塩地球 (コアを除く全地球) ないしコンドライト (球粒隕石) に対して 1 万分の 4 程度欠損していることを見出し, 地球の微惑

星集積・コア分別の時期や月の形成 (火星サイズの惑星の地球への衝突) の直接的議論が開始された。引き続き, 多様な鉄隕石, 炭素質および普通コンドライト, 月試料 (D.-C. Lee, A. N. Haliday, 1997, 1998, 2002; Haliday 他, 1999, 2000, 2003; R. Schoenberg 他, 2002), 玄武岩質隕石で小惑星ベスタ起源といわれるユークライト (G. Quitté, J.L. Birk, 2004; T. Kleine 他, 2005), 火星起源隕石といわれるエイコンドライト (Shergottite, Nakhlite, Chassignite, SNC; D.-C. Lee, A.N. Haliday, 1996; T. Kleine 他, 2004; C.N. Foley 他, 2005), 炭素質コンドライト中の高温鉱物からなる Ca と Al に富む包含物 (CAI), 金属に富むコンドライト, 玄武岩質および非玄武岩質鉄隕石 (T. Kleine 他, 2005), 高温・高圧条件下のマントル起源鉱物間での Hf-W の分配実験 (K. Righter, C. K. Shearer, 2003) などの W 同位体測定がなされ, ^{182}W の過剰ないし欠損の系統的特徴が明らかにされた。これにより地球, 月の他に火星や種々の隕石の母天体でのマントル分化・コア形成 (地球のコアは 45 億 3000 万年前頃) の年代順などの詳細が判明しつつある。

タングステン は第 1 イオン化ポテンシャルが 7.98 eV と高く, 熱イオン化質量分析 (TIMS) では高効率・高精度の質量分析は難しかったが, 1990 年代に入って陰イオン法 (NTIMS) と多重コレクター付誘導プラズマ質量分析計 (MC-ICPMS) が発達してはじめて精密測定が可能となった。一方, ^{182}W は ^{186}Os (α : $T_{1/2} = 2.0 \times 10^{15}$ y) の壊変による増加, 銀河宇宙線による W の核破砕と二次中性子誘起 $^{182}\text{W}(n,\gamma)$ 反応による減少と $^{181}\text{Ta}(n,\gamma\beta^-)$ 反応による増加に対する補正 [$^{157}\text{Gd}/^{158}\text{Gd}$ 比, ($^{149}\text{Sm}/^{150}\text{Sm}$) 比および ($^{54}\text{Cr}/^{52}\text{Cr}$) 比を用いる] が必要との議論がある (J. Leya 他, *Earth Planet. Sci.*

Lett., **175**, 1, 2000; *Geochim. Cosmochim. Acta*, **67**, 529, 2003). 宇宙線の効果は月表面試料で大きい、他の消滅核種についても注意が喚起されている。 ^{182}Hf - ^{182}W 対による年代学は ^{10}Be - ^{10}B 対, ^{26}Al - ^{26}Mg 対, ^{41}Ca - ^{41}K 対, ^{53}Mn - ^{53}Cr 対, ^{60}Fe - ^{60}Ni 対, ^{92}Nb - ^{92}Zr 対, ^{98}Tc - ^{98}Ru 対, ^{99}Tc - ^{99}Ru 対, ^{107}Rd - ^{107}Ag 対, ^{129}I - ^{129}Xe 対, ^{244}Pu - $^{134,136}\text{Xe}$ 対などによる年代学と合わせて、地球化学的性質と半減期の違いや類似性と整合する太陽系の形成進化の物語が読み取られようとしている(参考: S.B. Jacobsen, C.L. Harper, Jr., in *Earth Processes: Reading the Isotopic Code*, A. Basu, S. Hart 編, IUGG Monograph 95, Am. Geophysics Union, 1996, pp. 47-74; K. Righter, *Ann. Rev. Earth Planet. Sci.*, **31**, 135, 2003).

レニウム-187 rhenium-187 (^{187}Re)

質量数 187 のレニウムの天然放射性核種 ($E_{\beta}^{\max} = 0.00247 \text{ MeV}$, no γ ; $T_{1/2} = 4.12 \times 10^{10} \text{ y}$). レニウムの天然同位体は ^{185}Re (存在比 37.40%) と ^{187}Re (62.60%) であり、後者が長寿命の β^- 放射体であることは早くから知られていた (N. Sugarman, H. Richter および S.N. Naldrett, W. F. Libby とともに 1948) が、 β^- エネルギーが非常に低く、壊変の約 1/3 の電子は Re 原子の外に出られないために半減期測定は難しかった。それでも、1962 年のウルフ (C.J. Wolf) とジョンストン (W.H. Johnston) の $T_{1/2} = 1.2 \times 10^{11} \text{ y}$ に至るまで (1950 年代) にいくつかの半減期測定がなされた。このため、鉛法 (ウランの項参照) などで年代既知の鉱物試料中の Re と Os の質量分析による方法が必要であった (W. Herr 他, *Z. Naturforsch.*, **16a**, 1053, 1961; J.M. Luck 他, *Nature*, **283**, 256, 1980). ヘルらがこの方法で 4.3×10^{10} 年の値を出し (B. Hirt 他, *Nucl. Sci. Abst.*, **18**, No.13118, 1964), クレイトン (D.D. Clayton) が 1964 年に ^{87}Rb の利用と共に提唱して始まった太陽系初期の年代学への応用や多くの隕石・地球岩石の年代測定への応用が進むことになる。 ^{186}Os と ^{187}Os は星内核合成の r-過程核である ^{186}W と ^{187}Re によってそれぞれ遮蔽された s-過程核種であり、 ^{187}Os には r-過程核の ^{187}Re の β^- 壊変分 ($^{187}\text{Os-rad}$) が付加している。この $^{187}\text{Os-rad}/^{187}\text{Re}$ 比は r-過程の頻度と期間を表す生成関数に依存する。 ^{87}Rb , $^{235,238}\text{U}$ および ^{232}Th についても同様に解析することによって元素合成モデルの検証ができる (野津憲治, 宇宙年代学, 岩波講座地球科学 6 地球年代学, 小嶋稔, 斉藤常正編, 1978).

レニウムは極微量ながら地球岩石中に一様に分布しているが、硫化鉱石、特に輝モリブデン鉱には多量に ($5 \times 10^{-3} \sim 10^{-7} \text{ g/g}$) 含まれることがある。 ^{187}Os の

同位体存在度は 1.64% であるが、そのような鉱物では ^{187}Re 起源の ^{187}Os が卓越する場合があって、鉱物生成年代が容易に求められる。

このようなことから、精度の高い半減期測定への努力は今なお続いている。リンドナー (M. Lindner) らは他の放射能時計に頼らない方法として、精密に調製した既知量の Re 溶液からの ^{187}Os の生成量を長年にわたって測定し $T_{1/2} = 4.22 \times 10^{10}$ y ($\pm 3\%$) を得た (1989)。一方、スモリアー (M.I. Smoliar) らは、鉄隕石 (グループ III AB; 小惑星核の結晶化過程で生じたと考えられる) の 6 試料と Ca の少ない無球粒隕石の一つであるアングライト (太陽系生成の極めて初期段階で変成した) の鉛年代 [$(4.5578 \pm 0.0004) \times 10^9$ y] を用いて Re-Os 等時線から $T_{1/2} = 4.16 \times 10^{10}$ y (壊変定数 $\lambda = 1.666 \times 10^{-11} \text{ y}^{-1}$, $\pm 1\%$) を得た (*Science*, **271**, 1099, 1996) が、壊変定数の値としては 1996 年のシェン (J.J. Shen) らの $1.66 \times 10^{-11} \text{ y}^{-1}$ との間に正しい値があるという意見もある (J.L. Birck, C.J. Allègre, *Meteorite Planet. Sci.*, **33**, 647, 1998)。分析法の進歩が ^{187}Re - ^{187}Os 年代学の汎用性と高精度化促進させる一方で、さらに ^{187}Re の壊変定数の見直しが進んだ。特に、マイクロボロメータ (微小放射エネルギー測定用の抵抗温度計) を利用した測定結果 [$\lambda = (1.682 \pm 0.045) \times 10^{-11} \text{ y}^{-1}$, M. Galeazzi 他, *Phys. Rev.*, **63**, 014302, 2001; $\lambda = (1.604 \pm 0.004) \times 10^{-11} \text{ y}^{-1}$, C. Arnaboldi 他, *Phys. Rev. Lett.*, **91**, 161802, 2003] が報告された。これらに対してセルビィ (D. Selby) らは、9000 万から 27 億年の U-Pb 年代をもつ 10 種のモリブデン鉱物からスモリアーらの値と一致する $\lambda = (1.6689 \pm 0.0031) \times 10^{-11} \text{ y}^{-1}$ を得ている [*Geochim. Cosmochim. Acta*, **71**, 1999, 2007; ここでは ^{238}U の壊変定数として A.H. Jaffey らの値 (1971)

を, ^{235}U については B. Schoene らの値 (2006) を使用 (ウランの項参照)]. この項の初めに記した値は “Chart of the Nuclides, 16th ed., Lockheed Martin, 2002” による。なお, ^{187}Re - ^{187}Os 対に基く宇宙・地球化学の進歩は, 例えば S.B. Shirey, R.J. Walker, *Ann. Rev. Earth Planet. Sci.*, **26**, 423-500 (1998) を参照。

白金-190 platinum-190 (¹⁹⁰Pt)

質量数 190 の白金の天然放射性同位体 (α : $T_{1/2}=6.5 \times 10^{11}$ y). 天然の白金には ¹⁹⁰Pt (同位体存在度 0.014 %), ¹⁹²Pt (0.782 %), ¹⁹⁴Pt (32.967 %), ¹⁹⁵Pt (33.832%), ¹⁹⁶Pt (25.242%) および ¹⁹⁸Pt (7.163%) の同位体がある. そのうち最も軽い ¹⁹⁰Pt は放射性であり, その α 放射能は 1954 年, ボン大学のポルシェン (von W. Porschen) とリーツラー (W. Rietzler) によって, 写真乾板を用いた一連の天然 α 放射体探索研究中に発見された ($E_{\alpha}=3.1$ MeV, $T_{1/2}=5 \times 10^{11}$ y). 1961 年, カーネギー工科大学のマクファーレン (R.D. Macfarlane) とコーマン (T.P. Kohman) は, 試料を 1,200 cm² に拡げて測定できる管状電離箱を製作し, 希土類元素, Hf, W, Pt および Hg の濃縮同位体の α 放射能を調べ, ¹⁹⁰Pt について $E_{\alpha}=3.11 \pm 0.03$ MeV および $T_{1/2}=(6.9 \pm 0.5) \times 10^{11}$ y を得た (*Phys. Rev.*, **121**, 1758, 1961). 同じ頃, ソ連科学アカデミー・ラジウム研究所のペテルザーク (K.A. Petrzhak) とヤクーニン (M.I. Yakunin) もグリッド付き管状電離箱 (試料表面積 2,900 cm²) を使い, 天然同位体比の白金 (321 \pm 5 mg) の測定から $E_{\alpha}=3.17 \pm 0.02$ MeV および $T_{1/2}=(4.7 \pm 1.7) \times 10^{11}$ y を得た (*JETP*, **14**, 1265, 1962). また, ヘルシンキ大学のグラーフエ (G. Graeffe) とヌルミア (M. Nurmia) も $E_{\alpha}=3.16 \pm 0.05$ MeV および $T_{1/2}=6.8 \times 10^{11}$ y あるいは $T_{1/2}=5.4 \times 10^{11}$ y を報告した (1961, 1963). これら三つの計数で得られた結果の荷重平均をとって, $T_{1/2}=6.4 \times 10^{11}$ y という値が長い間採用されてきた. 1987 年になって, ミシガン大学のアルバタイナ (B. Al-Batina) とジェネツケ (J. Jänecke) は, 陰極表面積 1,550 cm² の比例計数管を使って $E_{\alpha}=3.19 \pm 0.10$ MeV および $T_{1/2}=(6.65 \pm 0.28) \times 10^{11}$ y を得,

前述の $(6.9 \pm 0.5) \times 10^{11}$, $(4.7 \pm 1.7) \times 10^{11}$ および $(5.4 \pm 0.6) \times 10^{11}$ の平均から標準値を $(6.50 \pm 0.22) \times 10^{11}$ y とした (*Radiochim. Acta*, **42**, 159, 1987).

1997 年, メリーランド大学のウォーカー (R.J. Walker) らの研究チームは, シベリアの Noril'sk の貫入熔岩 (マントル起源岩体; 2.51×10^8 年前) 中の白金元素 (PGE) に富む鉱物の ¹⁸⁶Os/¹⁸⁸Os 比対 ¹⁹⁰Pt/¹⁸⁸Os 比等時線から 1% の誤差で壊変定数 $\lambda=1.542 \times 10^{-12}$ y⁻¹ と半減期 $T_{1/2}=(4.495 \pm 0.5) \times 10^{11}$ y を得た (*Geochim. Cosmochim. Acta*, **61**, 4799, 1997) が, 後に ¹⁹⁰Pt の同位体存在度 0.0124% が再測定で 0.01296% に変更されたため, 壊変定数は 1.477×10^{-12} y⁻¹ となり, 半減期は結局 4.69×10^{11} y に改められた. これは, α 計数の値と 40% も違うが理由は不明である (F. Begeman 他, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **65**, 111, 2001).

白金, レニウムおよびオスミウムは親鉄性が高く, いずれも難揮発性で, 地球のケイ酸塩部 (マントルと地殻) に比べて核に濃縮する. 現在, 上部マントルに含まれる PGE は, 核・マントル分化後の原始地球に降り積もった CI コンドライト様物質から供給されたと考えられている. また, マントルから地殻への分化過程では白金とレニウムはケイ酸塩鉱物には入り難く熔融マグマの液相部に残り (incompatible), オスミウムから分別される (例えば, J.W. Morgan 他, *Meteor. Planet. Sci.*, **36**, 1257, 2001; A. Luget 他, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **71**, 3082, 2007). このような過程を研究する手段として ¹⁸⁷Re-¹⁸⁷Os 対が使われる (¹⁸⁷Re の項参照) が, ¹⁹⁰Pt-¹⁸⁶Os 対では ¹⁹⁰Pt の同位体存在度が低いこと, ¹⁸⁶Os が長寿命 ($T_{1/2}=2 \times 10^{15}$ y) の α 放射体であることから, 利用の難しさが指摘されてきた. しかし, 上部マントル起源の熔岩でオスミウム

含量が多いクロマイトや砂鉱では Pt/Os 比や Re/Os 比が小さいので、これらの鉱物が生成する以前のマントル内での進化の歴史 (^{190}Pt と ^{187}Re の壊変) を追跡することができるかと期待されている。最近、マントル起源の鉱物、多様な始源隕石、鉄隕石などについて同位体希釈 ICP 質量分析 (ICP-MS) や陰イオン質量分析 (NTIMS) による $^{190}\text{Pt}/^{188}\text{Os}$ 比, $^{186}\text{Os}/^{188}\text{Os}$ 比および $^{187}\text{Os}/^{188}\text{Os}$ 比の精密測定が開始され、マントル進化の議論が展開されつつある (A.D. Brandon 他, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **70**, 2093, 2006)。

ポロニウム polonium (Po)

原子番号 84 の天然放射性元素。1898 年 7 月 マリー・キュリー (M. Sklodowska Curie 1867-1934) は夫ピエール・キュリー (P. Curie, 1859-1906) と共にピッチブレンドに含まれるウランより強い放射性のビスマスに似た新元素が分離されたとして、マリー・キュリーの母国ポーランドにちなむ polonium をその名称として提案した (Po の表記が最初に使われたのは、P. キュリーの 7 月 13 日付の実験ノート；論文は 7 月 18 日付の P. Curie, S. Curie, *Compt. Rend. Acad. Sci. Paris*, **127**, 175, 1898)。

この年の 12 月には Ra を発見するが、一連の研究には放射化学の原点となるいくつかの手法が導入された。1894 年の夏にパリ大学で数学と物理学で学士試験を終えたマリー・スクロドフスカは翌年 7 月ピエール・キュリーと結婚し、1897 年 7 月に長女イレーヌを出産したが、年末から博士論文のテーマとして前年発表されながら衆目の少なかったベクレル線に注目し、これがウランに固有かどうかを調べることにした。入手できる多様な金属類、塩、酸化物、鉱物などについて、ピエールが発明したキュリー電位計と水晶板ピエゾ電気計付電離箱を用いて“放射性 radioactive”の度合、“放射能 radioactivity” (キュリー夫人命名) を定量的に比較測定した。すぐに Th が放射能をもつこと、U の放射能は試料の量に比例するが鉱物、特にピッチブレンドと天然のシャルコライト (リン酸銅ウラン鉱 $\text{Cu}(\text{UO}_2)_2(\text{PO}_4)_2 \cdot 6-8\text{H}_2\text{O}$) は金属ウランよりそれぞれ 4 倍と 2 倍の放射能を示すことを見出した。鉱物の化学組成は分析して分かっていたので、U より放射能の高い元素が極微量存在するに違いないと考えた。1898 年 4 月からはベモン (G. Bemont, 1867-1932) を助手

にし、粉末にした 100 グラムのピッチブレンドを塩酸に溶解（不溶分は K_2CO_3 と $NaOH$ で融解後塩酸溶液化）し、 H_2S を通じて Pb 、 Cu および Bi を硫化物とし、 $(NH_4)_2S$ で As と Sb を可溶化した後、硫酸と硝酸で $PbSO_4$ を除き、 NH_4OH で Bi を沈殿させて Cu を分離したところ、 Bi の分画分に U より 150 倍強い放射能を得た。さらに酸性溶液に水を加えて Bi を分別分離し、対 U 比 400 倍に濃集した。ピエールは Pb 、 Bi および Cu の硫化物を真空にした管内で $700^\circ C$ に加熱した。 Bi と Pb は高温部に残ったが、 $250 \sim 300^\circ C$ の位置に U の 330 倍の放射性を示す黒い薄層を得た。その際、分離分画分の“放射能”を逐次測定しながら、放射性部分を追跡すると言う“放射化学分離”を初めて行った。新元素は予想通り極微量、すなわち“tracer”レベルであって、 Bi を担体、すなわち“carrier”としたことになる（S. Curie, *Rev. Gén. Sci.* **10**, 41, 1899）。

当時、新元素発見と唱えるには純物質を単離して原子量と新しい元素に特徴的なスペクトル線を示さなければならなかった。分光分析学の大家ドマルセー（E.A. Demarcay, 1852-1904）がスペクトル測定を試みたが不純物による線スペクトル以外は見出せなかった。キュリー夫妻の試料（100 g）の Po 含量は 6 ナノグラム程度で検出限界を越えるはずもなく、放射線のみで検知しうる量であった。実際にマリー・キュリーとドビエルヌ（A.L. Debierne, 1874-1949）がウラン鉱の硫酸処理残渣数トンから 0.1 ミリグラム（0.45 Ci）の Po を含む 2 ミリグラムの試料を用いて特性スペクトルを得たのは 12 年後であった（M. Curie, A. Debierne, *Compt. Rend. Acad. Sci. Paris*, **150**, 386, 1910）。このようなことから、 Po の発見は疑問視された。ドイツのマルクヴァルト（W. Marckwald）はウラン鉱処理残渣の

数キログラムからその 1% に相当する重量の放射性の高い $BiOCl$ を抽出して電解法で、また $BiOCl$ 水溶液に金属 Bi 箔を挿入することで Bi と分離した。さらに、この放射性物質は Sb より電氣的に陰性で、 Sb - Bi 属より S - Te 属に近いとして“radiotellurium, $RdTe$ ”と呼び、キュリー夫妻の Po と違って放射能は減衰しないとされた（W. Marckwald, *Ber. Dtsch. Chem. Ges.*, **35**, 2285, 1902; 同誌, **35**, 4239, 1902; *Phys. Z.*, **4**, 51, 1902/03）。1905 年になって両者の一致する $T_{1/2} = 140$ d が得られ、また $RdTe$ と Po が同じ元素でエカテルルの位置を占めることになった（W. Marckwald, *Ber. Dtsch. Chem. Ges.*, **38**, 591, 1905, *Phys. Z.*, **7**, 369, 1906; M. Curie, *Compt. Rend. Acad. Sci. Paris*, **142**, 2273, 1906）が、秤量できる量の Po を得るまでにさらに 5 年、純粋な金属 Po を単離する（1946）には約半世紀を要した。ちなみに、M. キュリーが「放射性物質に関する研究」でパリ大学より理学博士の学位を得たのは 1903 年 6 月で、夫 P. キュリー、H. ベクレル（A.H. Becquerel, 1852-1908）と共にノーベル物理学賞を受賞したのはこの年の 12 月であった。

マリーの長女イレヌ・ジョリオ・キュリー（Irène Joliot Curie, 1897-1956）と夫のフレデリック（Jean Frédéric Joliot Curie, 1900-1958）は新しい化学的単離法を開発しつつ ^{210}Po の α 線の性質を調べ、それぞれの学位論文（1925 年イレヌ「ポロニウムのアルファ線に関する研究」、1930 年ジョリオ「放射性元素の電気化学」）を仕上げ、さらに強力な ^{210}Po 線源（40 ~ 200 mCi; $1 \text{ mCi} = 3.7 \times 10^7 \text{ Bq}$ ）などを調製した。ウラン鉱物から直接 ^{210}Po を得るよりも、1.5 g の Ra 溶液入りガラス瓶（“キュリー瓶”）からとった Rn 管を希硝酸-塩酸混合液で洗うと 70 ミリグラムの RaD (^{210}Pb) が得られ、 RaF (^{210}Po) を Ag または Ni 板上に析出

させることができた。彼らはこの Po 線源を使って数多くの軽元素中の α 線透過を調べた。Po-Be 線源から非常に高いエネルギーのガンマ線が発生することに気付いていたところに (1932), ボーテ (W.W.G. Bothe, 1891-1957) と彼の学生ベッカー (H. Becker) による (Po- α + Be, B) \rightarrow 高エネルギー γ 線 (14 MeV) の発見 (*Z. Phys.* **66**, 289, 1930) を知り, その追試を進める中で Po- α + $^{27}\text{Al} \rightarrow ^{30}\text{P}$ (β^+ , $T_{1/2} = 3.5$ min) $\rightarrow ^{30}\text{Si}$ および Po- α + $^{10}\text{B} \rightarrow ^{13}\text{N}$ (β^+ , $T_{1/2} = 9.9$ min) $\rightarrow ^{13}\text{C}$ 過程を確認し, 初めて人工放射能を発見 (I. Curie, F. Joliot, *Compt. Rend. Acad. Sci. Paris*, **198**, 559, 1934; F. Joliot, I. Curie, *Nature*, **133**, 201, 1934) した (1935 年ノーベル化学賞)。なお, ボーテ-ベッカーの実験は, チャドウィック (J. Chadwick, 1891-1974) の中性子発見 (*Nature*, **129**, 312, 1932) にもつながった。

ポロニウムの同位体として, 現在 ^{186}Po から ^{218}Po までが知られているが, 発見にまつわる ^{210}Po ($E_\alpha = 5.30438$ MeV; $T_{1/2} = 138.38$ d) は $^{238}\text{U}(4n+2)$ 系列核種で RaF と呼ばれた。この系列には ^{218}Po (RaA, α 99.98%, $E_\alpha = 6.0024$ MeV, β^- 0.02%; $T_{1/2} = 3.05$ min), ^{214}Po (RaC', $E_\alpha = 7.6869$ MeV; $T_{1/2} = 163.7$ μs) があり, $^{235}\text{U}(4n+3)$ 系列には ^{215}Po (AcA, α 100%, $E_\alpha = 7.3862$ MeV, β^- 5×10^{-4} %; $T_{1/2} = 1.781$ ms), ^{211}Po (AcC', $E_\alpha = 7.450$ MeV; $T_{1/2} = 0.516$ s) が, $^{232}\text{Th}(4n)$ 系列には ^{216}Po (ThA, $E_\alpha = 6.7783$ MeV; $T_{1/2} = 0.145$ s) と ^{212}Po (ThC', $E_\alpha = 8.785$ MeV; $T_{1/2} = 0.3$ μs) がある。最長寿命核種は ^{209}Po ($E_\alpha = 4.881$ MeV; $T_{1/2} = 102$ y) であり $^{209}\text{Bi}(p,n)$ 反応でつくられる。 ^{210}Po は現在 $^{209}\text{Bi}(n,\gamma\beta^-)^{210}\text{Po}$ 反応でつくられるが, 1 グラムの ^{210}Po を含むカプセルの放射熱は大きく (520 kJ/h), 容易に 500 $^\circ\text{C}$ くらいになるので人工衛星の軽量熱源に使われたり, Po-Be 合金を携帯用中性子源と

して用いたこともある。Po は既知の化学物質中で最も毒性が強いとみなされ, 体内安全負荷量は 7 pg (1 kBq) である。空気中には Rn が存在し, 体内吸入後 Po が生成する。タバコの葉には鉛が濃集することからこの鉛に含まれる RaD (^{210}Pb) から ^{210}Po が生じ, Po の揮発性のため喫煙時に吸入される。Po は特定の臓器に濃集することはないが, 強力な α 放射体のため DNA 損傷が発ガンの原因となる可能性がある。

ポロニウムの酸化数は -2, +2, +4, +6 をとるが, 溶液中では +4 が安定である。

アスタチン *astatine* (At)

原子番号 85 の天然放射性元素。ハロゲン族“エカヨウ素”の探索は長年続いたが、1940年にコルソン(D.R. Corson, 1914-1989)、マッケンジー(K.R. Mackenzie)とセグレ(E.G. Segrè, 1905-1989)は、カリフォルニア大学の新しい60インチサイクロトロンを用いる $^{209}\text{Bi} + \alpha \rightarrow ^{211}\text{At} + 2n$ 反応で金属の性質を持つと思われる85番元素を得たと報告した(*Phys. Rev.*, **58**, 672, 1940)が、戦時研究で中断した。1947年に研究を再開してこれを確認し、元素名として“アスタチン”(ギリシャ語の *astatos* 不安定の意)を提案した(*Nature*, **159**, 24, 1947)。 ^{211}At は半減期が7.22時間のEC(60%)と α (40%)壊変をする核種であるが、最長寿命核種の ^{210}At でも半減期は8.3時間と短い。現在、 ^{191}At から ^{223}At までの33の同位体が知られている。この中で、天然には ^{238}U 系列の ^{218}Po の β^- 分岐(0.02%)で ^{218}At (α : $T_{1/2} = 1.5$ s)、 ^{235}U 系列中の ^{215}Po の β^- 分岐(5×10^{-4} %)で ^{215}At (α : $T_{1/2} = 100$ μs)と ^{223}Fr の α 分岐(4×10^{-3} %)で ^{219}At (α , β^- : $T_{1/2} = 56$ s)が知られている。1931年、アラバマ大学のアリソン(F. Allison)らは磁気・光学的方法でAtを見つけたとして、地名から“alabamine”と名付けたが受け入れられなかった。ウラン鉱物中でさえ、小さな分岐と短寿命から見て有り得ることではなかった。

アスタチンは $10^{-11} \sim 10^{-15}$ モルのトレサー量でしか入手できないが、単体は揮発性であり、水に少し溶け、ベンゼンや四塩化炭素に抽出できる。 At_2 を Br_2 で酸化すると AtO^- が、 HClO^- で酸化すると AtO_3^- が生じる。 ^{211}At は α 放射体($E_\alpha = 5.868$ MeV)で、ガン治療への応用、 At^- の甲状腺集積などが研究されている。ヨウ素との類似性はTcとReあるいはPmと希土類元素ほどではない。

アスタチンの化学的性質は、他のハロゲン元素との比較で、大阪大学の音在研究室で長年研究されてきた(K. Otozai, I. Tohyama, *Z. Anal. Chem.*, **279**, 196, 1976; K. Otozai, N. Takahashi, *Radiochim. Acta*, **31**, 201, 1982; N. Takahashi 他, 同誌, **61**, 35, 1993; *J. Radioanal. Nucl. Chem. Lett.*, **103**, 1, 1986; 同誌, **218**, 103, 1997; 同誌, **243**, 631, 2000)。ここで得られた知見は、間もなく発見されるであろう117番元素の化学的性質の推測にも役立つとしている(N. Takahashi, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **251**, 299, 2002)。

ラドン radon (Rn)

原子番号 86 の天然放射性気体元素。1899 年 9 月、カナダの McGill 大学に赴任したラザフォード (E. Rutherford, 1871-1937) は、電気工学のオーエンス (R.B. Owens, 1870-1940) の協力でトリウム化合物から放射性の粒子が放出されることに気付きエマネーション (発散) と呼んだ (R.B. Owens, *Phil. Mag.*, **48**, 360, 1899; E. Rutherford, 同誌, **49**, 1, 1900)。キュリー夫妻 (P. Curie, 1859-1906; M.S. Curie 1867-1934) はラジウム試料の周辺の物質に放射能が誘導されることを観察したが、ギーゼル (F.O. Giesel, 1852-1927) やドビエルヌ (A.L. Debierne, 1874-1949) もアクチニウム試料について同様の現象を報告した (F.O. Giesel, *Ber. Dtsch. Chem. Ges.*, **35**, 3608, 1902; 同誌, **36**, 342, 1903, 同誌, **37**, 1696, 1904; A.L. Debierne, *Compt. Rend. Acad. Sci. Paris*, **129**, 593, 1899; 同誌, **130**, 906, 1900; 同誌, **136**, 446, 1903)。ラザフォードとソディー (F. Soddy, 1877-1956) はエマネーションが液体空気温度で凝縮する重い不活性気体であることを見付け、Th からトロン Tn (^{220}Rn ; α , $T_{1/2} = 55.6$ s), ^{226}Ra からラドン Rn (^{222}Rn ; α , $T_{1/2} = 3.825$ d), Ac からアクチノン An (^{219}Rn ; α , $T_{1/2} = 3.96$ s) が発生することを明らかにした (*Proc. Roy. Soc.*, **18**, 120, 1902; *J. Chem. Soc.*, **81**, 321, 1902; *Phil. Mag.*, **5**, 561, 1903)。1900 年に Ra の壊変生成物 Rn が放射性気体 (古名はラジウムエマネーションまたはニトン) であることを発見したのはドイツ Halle 大学のドーン (F.E. Dorn, 1848-1916) である。 (*Abh. Naturf. Ges., Halle*, **23**, 1, 1900)。また, McGill 大学のブルックス (H. Brooks, 1876-1933) は Rn に曝された物の上に薄い層として生成する短寿命の放射性付着物を研究した (*Nature*, **70**, 270, 1904; *Phil. Mag.*, [6], **8**,

373, 1904)。この研究から、ラザフォードは RaA (^{218}Po), B (^{214}Pb), C (^{214}Bi) が生成することを見出し、さらに長寿命付着物の中に RaD (^{210}Pb), E (^{210}Bi), F (^{210}Po) を発見した。1910 年、ロンドンのラムゼイ (W. Ramsay, 1852-1916) とグレイ (R.W. Gray, 1877-1958) は“ニトン (輝き)” と呼び、精密な密度測定 (9.7 g/L) から既知気体のうち最も重い元素であることを示した (*Compt. Rend.*, **151**, 126, 1910)。名称がラジウムから生成する希ガスという意味で「ラドン」に統一されたのは 1923 年である。

ラドンの同位体として、現在 ^{95}Rn から ^{228}Rn までが知られており、すべて α 放射体 ($^{199}\text{Rn} \sim ^{211}\text{Rn}$ は EC 分岐あり) である。上記の ^{222}Rn が最長寿命 (3.825 日) で、 ^{211}Rn (14.6 時間) と ^{210}Rn (2.4 時間) 以外の半減期は 30 分以下である。Rn は Xe と同じく不安定な化合物 RnF_2 と RnF^+ がつくられたことがある。融点 -71°C 、沸点 -62°C で、融点以下にすると鮮やかな燐光が見られる。以前は、Rn を薄い金製の管に入れてがん治療に用いたり、 α 線源 (中性子源) に使用した。

ラドンはヒトが自然放射線に被ばくする年間平均線量 (2.4 mSv) の 50% 以上を占める。大気中に放出されるラドンは ^{220}Rn と ^{222}Rn で、その壊変で生じる娘核種が塵に付着・降下する。また直接のラドン吸入もある。中でも ^{210}Pb (RaD , $T_{1/2} = 22$ y) の形で体内に入ると残留時間も長い。1980 年代から 90 年代に、地下のウラン鉱山労働者や花崗岩製の建物内に住む人へのラドンの影響が注目され、各国で濃度測定や疫学調査が行われた。ウラン鉱山労働者については肺がんと有意な関係が認められたが、一般人の場合は逆相関も指摘されている。1 グラムの ^{226}Ra から 0.001 cm^3 の Rn が発生するが、

Ra との平衡量より多くの Rn 含む鉱泉や温泉を“ラドン泉”，そうでない場合を“ラジウム泉”と称し，ラドンを含む気体 (CO₂) を吸入する療法 (アレルギー，免疫系疾患など) もある。(最近の状況は山田裕司による国際会議紹介：日本原子力学会誌，47, 260, 2005 を参照.)

フランシウム francium (Fr)

原子番号 87 の天然放射性元素。1939 年パリ・キュリー研究所のペレー (M. Perey, 1909-1975) は，精製した ²²⁷Ac ($T_{1/2} = 21.773$ y) からわずかながら飛程 3.5 cm の α 線を確認し，さらに新しい β^- 放射能が急に ($T_{1/2} = 22$ min) 復活することを見出した。この β^- 放射体の化学的性質は Ba, Ce および Pb とは異なるが，Cs と同じであった。すなわち，²²⁷Ac は大部分 (98.8%) が β^- 壊変で RdAc (²²⁷Th, α : $T_{1/2} = 18.7$ d) になり，わずか 1.2 (± 0.1) % が α 壊変で新元素の ²²³[87] (β^- : $T_{1/2} = 21.8$ min) となることを明らかにし，これを AcK と表した (*Compt. Rend. Acad. Sci. Paris*, **208**, 97, 1939)。AcK は β^- 壊変で AcX (²²³Ra, α : $T_{1/2} = 11.4$ d) を生じるが，AcX は大量にある RdAc の α 壊変でもつくられるので見付けにくかった。ペレーは塩化バリウムを使って AcX を徹底的に除去し，AcK を過塩素酸セシウム CsClO₄ あるいは種々の Cs 複塩 [塩化白金 (IV) 酸セシウム Cs₂PtCl₆，塩化アンチモン (V) 酸セシウム CsSbCl₆] と共沈させ，さらにペーパークロマトグラフィーやイオン交換で分離するなどしてアルカリ金属の性質をもつことを証明し，1946 年に祖国フランスにちなむ元素名 (記号 Fa) を提案し，1949 年に Fr の元素記号を付すことで承認された (*J. Chim. Phys.*, **43**, 269, 1946; 同誌，**43**, 262, 1946)。

フランシウムは，天然に存在する (放射性) 元素として発見された最後のものである。1913 年にラッセル (A.S. Russel, 1888)，ソディー (F. Soddy, 1877-1956)，ファヤンス (K. Fajans, 1887-1975) らの放射性変位則 (A.S. Russel, *Chem. News*, **107**, 49, 1913; 同誌，**107**, 97, 1913; K. Fajans, *Ber.*, **46**, 422, 1913) が明らかにされてから未発見元素探索が精力的になされた。その一つとして，エカセシウムを発見したと

して“ルシウム russium”, “アルカリニウム alkalinium”, “バーギニウム virginium”, “モルダヴィウム moldavium”の名が提案されたが確証が得られなかった。フランシウムの同位体として現在, ^{199}Fr から ^{232}Fr までが知られている。 $^{199}\text{Fr} \sim ^{221}\text{Fr}$ はすべて α 放射体 (一部を EC 分岐を含む) であり, $^{222}\text{Fr} \sim ^{232}\text{Fr}$ は β^- 放射体 (^{222}Fr と ^{223}Fr は小さい α 分岐あり) である。最長寿命核種は天然唯一の同位体である ^{223}Fr ($T_{1/2} = 21.8 \text{ min}$) で, ^{212}Fr ($T_{1/2} = 20.0 \text{ min}$) が続き, 他の同位体の半減期は 5 分以下である。原子番号 1 から 92 の間の元素の中で, Fr は半減期 25 分以上の同位体をもたない唯一の元素である。ペレーはフランシウムをラットに注入すると排泄器官 (膀胱や腸), 腎臓, 唾液そして肝臓に, 肉腫をもつラットでは腫瘍組織に集積することを報告した (M. Perey, A. Chevallier, *Compt. Rend. Soc. boil.*, **145**, 1205, 1951; 同誌, **145**, 1208, 1951)。 ^{223}Fr は, ^{226}Ra ($n, \gamma \beta^-$) ^{227}Ac (α : $T_{1/2} = 21.772 \text{ y}$) や ^{232}Th ($p, 2n$) ^{231}Pa (α : $T_{1/2} = 3.28 \times 10^4 \text{ y}$) \rightarrow ^{227}Ac を経由してつくられるが, 秤量できる量を得るのは難しい。

ラジウム radium (Ra)

原子番号 88 の天然放射性元素。1898 年 12 月 26 日ピエール・キュリー (P. Curie, 1859-1906), マリー・キュリー (M. Sklodowska Curie 1867-1934) およびギユスターヴ・ベモン (G. Bémont, 1867-1932) は“ピッチブレンドに含まれる放射性の高い新物質”という論文を, radium (光る元素, 光のラテン語 radius: 暗所で青く輝く) の名称とともにフランス科学アカデミー (*Académie des Science*) に報告した (*Compt. Rend. Acad. Sci. Paris*, **127**, 1215, 1898)。この年の 4 月, ピッチブレンドの塩酸溶解液からの硫化物沈殿をつくったとき (Po の項参照), 沈殿しない Ba と挙動を同じくする強放射能成分を見つけていたが, 11 月 11 日からその原因の追求に移った。彼らは市販の BaCl_2 (50 kg) を精製して Ba 自体が放射性でないことを確かめた上で, “放射性塩化バリウム”を濃塩酸 (BaCl_2 不溶) に入れ, 水 (BaCl_2 可溶) とアルコール (BaCl_2 不溶) を使って分別結晶を繰り返し, ウランの 60 倍の, さらに 11 月末には 900 倍の放射能を得た。 RaCl_2 の溶解度は BaCl_2 より低いことが示されたのである。これらの試料を分光学者ドマルセー (E.A. Demarçay, 1852-1904) に送ったところ, 発光スペクトルに新しいいくつかの線が現れた。最強の 3814.8 \AA は, はじめの試料では“大変弱い”, 後の方では“顕著”というもので, このドマルセーの結果は, キュリーらの 12 月 26 日の Ra 発見の報告に添えられ (E.A. Demarçay, *Compt. Rend. Acad. Sci. Paris*, **127**, 1218, 1898) 重みを加えた。

新元素として確定するには可秤量の純粋な塩化物または金属として取り出して原子量を決める必要があったが, これらの試料にはせいぜい $30 \mu\text{g}$ の Ra が含まれていたと見られる (産地により異

なるがピッチブレンド 1 トン当りの Ra は 150 ~ 350 mg). P. キュリーはセント・ヨハミスタール (現在のチェコ・ヤヒモフ) に野積みのピッチブレンドの滓 (かす: ウランを硫酸抽出した残り) を, 1898 年 11 月に 100 kg, 1899 年 12 月に 1 トン, 1900 年 2 月に 5 トン, 1902 年 8 月, 1904 年 6 月および 1905 年 10 月に各々 5 トンを入手した. M. キュリーはこれを 20 kg ずつ逐次処理して, 1902 年 7 月に純粋な RaCl_2 ($\text{Ra}/\text{Ba} = 10^6$, 放射能比 $\text{Ra}/\text{U} = 10^6$) 120 mg を用いて原子量 225 ± 1 (現在値 226.0254) を得, 周期表中のエカバリウムの位置を確定した (*Compt. Rend. Acad. Sci. Paris*, **135**, 161, 1902). M. キュリーとドビエルヌ (A.L. Debierne, 1874-1949) が RaCl_2 の電気分解 (Hg 陰極への Ra のアマルガム化と Hg 揮散) によって銀白色の金属ラジウム得たのは 1910 年のことである.

ラジウムの同位体はすべて放射性で, 現在 ^{201}Ra から ^{234}Ra までが知られており, $^{201}\text{Ra} \sim ^{224}\text{Ra}$ と ^{226}Ra は α 放射体, ^{225}Ra と $^{227}\text{Ra} \sim ^{234}\text{Ra}$ は β^- 放射体である. 発見にまつわる上記の ^{226}Ra は最長寿命 ($T_{1/2} = 1599 \text{ y}$) で ^{238}U 系列に属するが, アクチニウム (^{235}U) 系列に ^{223}Ra (AcX; α , $T_{1/2} = 11.435 \text{ d}$), ^{232}Th 系列に ^{228}Ra (MsTh I; β^- , $T_{1/2} = 5.75 \text{ y}$) と ^{224}Ra (ThX; α , $T_{1/2} = 3.66 \text{ d}$) がある. 1 グラムの ^{226}Ra は毎秒 3.61×10^{10} 個の α 粒子を放出する. この壊変率は近年まで放射能の単位 (キュリー, Ci) として使われ, 1 キュリー $\equiv 3.7 \times 10^{10}$ Bq と定義されてきた. ラジウムの化学的性質は Ba に似ているが揮発性はより高く, 酸素や水と反応し易い. Ba や Ra の分離は, 現在ではイオン交換法が利用される.

20 世紀はじめより, ^{226}Ra と Be の混合物は携帯用中性子源として, RaBr_2 と ZnS の混合物は蛍光性夜光塗料として, また “ラジウム針” (RaCl_2 あるい

は RaBr_2) としてがん治療に用いられてきた. 時計用自発光塗料や Ra 針の製造に従事した人は放射線障害のため血球減少や死に至る病を得た. Ra は “奇跡の薬” として貼り薬や飲み薬として広く市販され, 障害を与えるもとにもなった (Rn の項も参照).

アクチノイド actinoides

原子番号 89 (Ac) から 103 (Lr) までの 15 元素の総称。 $_{89}\text{Ac}$, $_{90}\text{Th}$, $_{91}\text{Pa}$, $_{92}\text{U}$, $_{93}\text{Np}$ および $_{94}\text{Pu}$ は単独 (Th, U) ないし、それらの壊変 (Ac, Pa) または核反応生成物 (Np, Pu) として天然に存在する。 $_{95}\text{Am}$ 以降は人工元素。アクチノイドはランタノイドとともに f 軌道に電子をもつ f-ブロック元素で、ラドンの電子配置の上にもまず $_{87}\text{Fr}$ と $_{88}\text{Ra}$ で 7s が満たされ、次に $_{89}\text{Ac}$ から $_{95}\text{Am}$ までは 5f 軌道または 6d 軌道のエネルギーの低いレベルにやや複雑に詰まっていき、 $_{97}\text{Bk}$ からは 5f 電子のみの増加で Lr の $[\text{Rn}]5f^4 6d^1 7s^2$ で完結する。f-ブロックの概念は 1944 年

シーボーグ (G.T. Seaborg, 1912-1999) の超ウラン元素と希土類元素 (この名称はランタノイドに Sc と Y を含める) との類似という点を基にしたアクチノイド仮説に始まる (G.T. Seaborg, *Chem. Eng. News*, **23**, 2190, 1945: “アクチノイド” は Ac を除くアクチノイド元素の総称)。当時 $_{94}\text{Pu}$ までしか知られていなかったが、この年の暮れに 95 番元素 Am を、1947 年に 96 番元素 Cm を、1950 年に 97 番元素 Bk と 98 番元素 Cf を、また 1954 年以降 1961 年まで続く 99-103 番元素 Es, Fm, Md, Lr (いずれもこの分野に偉大な貢献をした科学者 Albert Einstein, 1879-1955, Enrico Fermi 1901-1954; Dimitrii Ivanovich

元 素	電 子 軌 道												
	1s	2s2p	3s3p3d	4s4p4d	4f	5s5p	5d	5f	6s	6p	6d	7s	
ラ ン タ ノ イ ド	La	2	8	18	18		8	1		2			
	Ce	2	8	18	18	2	8			2			
	Pr	2	8	18	18	3	8			2			
	Nd	2	8	18	18	4	8			2			
	Pm	2	8	18	18	5	8			2			
	Sm	2	8	18	18	6	8			2			
	Eu	2	8	18	18	7	8			2			
	Gd	2	8	18	18	7	8	1		2			
	Tb	2	8	18	18	9	8			2			
	Dy	2	8	18	18	10	8			2			
	Ho	2	8	18	18	11	8			2			
	Er	2	8	18	18	12	8			2			
	Tm	2	8	18	18	13	8			2			
	Yb	2	8	18	18	14	8			2			
Lu	2	8	18	18	14	8	1		2				
ア ク チ ノ イ ド	Ac	2	8	18	18	14	8	10		2	6	1	2
	Th	2	8	18	18	14	8	10		2	6	2	2
	Pa	2	8	18	18	14	8	10	2	2	6	1	2
	U	2	8	18	18	14	8	10	3	2	6	1	2
	Np	2	8	18	18	14	8	10	5	2	6		2
	Pu	2	8	18	18	14	8	10	6	2	6		2
	Am	2	8	18	18	14	8	10	7	2	6		2
	Cm	2	8	18	18	14	8	10	7	2	6	1	2
	Bk	2	8	18	18	14	8	10	9	2	6		2
	Cf	2	8	18	18	14	8	10	10	2	6		2
	Es	2	8	18	18	14	8	10	11	2	6		2
	Fm	2	8	18	18	14	8	10	12	2	6		2
	Md	2	8	18	18	14	8	10	13	2	6		2
	No	2	8	18	18	14	8	10	14	2	6		2
Lr	2	8	18	18	14	8	10	14	2	6	1	2	

ランタノイドおよびアクチノイドの電子配置

Medeleev, 1834-1907; Ernest Orlando Lawrence, 1901-1958 にちなむ)の発見でアクチノイドが完結した。

なかでも、希土類相互分離に威力を発揮した陽イオン交換法は溶離位置が原子番号(大きい方から溶出)に対応するので新元素同定の証拠となったほどである。ただ、電子配置から分かるようにAcからAmまでの酸化状態はLa～Euに比べて多様である。Acは化学的にLaに類似するが、Th, Pa および U はそれぞれ IV, V, VI 価が安定で 5d 元素の Hf, Ta および W に近く、Cm 以降は Gd 以降と類似する。4f と 5d 軌道に比較して 5f と 6d 軌道が接近しているためである。このため、シーボークの f 元素仮説には当初反論があった。例えば、ハイシンスキー (M. Haïssinsky, 1898-1976) は 5f と 6d が混成し、6d 電子に近くて VI 価をとりうる U～Am を uranides, 真の 5f 遷移として III 価が最も安定な Cm～Lr を curides と呼んだ (M. Haïssinsky, *J. Chem. Soc.*, **1949**, S241; *Experientia*, **9**, 117, 1953)。このような事実から、近年の周期表では Th～Lr (アクチノイド) を Ce～Lu のランタニドと同様に欄外に置くが、Th～Pu は階段状に、Am～Lr を水平に並べることがある(付録図 1 参照)。

アクチノイドのイオン半径は原子番号とともに減少し、ランタノイドと同様に“収縮”が見られる。(参考: J.J. Katz, G.T. Seaborg, L. Morss, “Chemistry of the Actinide Elements”, 2nd ed., Chapman and Hall, London, 1986; G.T. Seaborg, W. D. Loveland, “The Elements Beyond Uranium”, Wiley, New York, 1990; 超ウラン元素発見物語は G.T. Seaborg, *Radiochim. Acta*, **70/71**, 69, 1995)

アクチニウム actinium (Ac)

原子番号 89 の天然放射性元素。ピエール・キュリー (P. Curie, 1859-1906) の教え子の一人であるドビエルヌ (A.L. Debierne, 1874-1949) が、1899 年にピッチブレンドから U, Ra および Po を除去した残渣から Th に似た化学的性質を示す高放射性新元素を発見し、アクチニウム (ギリシャ語の akits, actions = 光線: 放射線による空気のイオン化で化合物は暗所で光る) と命名した (*Compt. Rend. Acad. Sci. Paris*, **129**, 593, 1899; 同誌, **130**, 906, 1900)。1902 年、ギーゼル (F.O. Giesel, 1852-1927) は、ドビエルヌとは独立に、ピッチブレンドから (Th を含まない) 希土類分画に濃集する La に似た化学的性質をもつ新元素にエマニウム (emanium, ラテン語「放出」の意) の名を与えた (*Ber. Dtsch. Chem. Ges.*, **35**, 3608, 1902; 同誌, **37**, 1696, 1904)。化学的には後者が正しいが、後に (1904)、ハーン (O. Hahn, 1879-1968) とサックール (O. Saccul) は、半減期測定により両者は同じ元素 (核種) であると証明した。²³⁵U 系列の ²²⁷Ac ($T_{1/2} = 21.77$ y) も ²³²Th 系列の ²²⁸Ac ($T_{1/2} = 6.13$ h) も β^- 放射体であるため、当時は測定が難しく、娘核種の RdAc (²²⁷Th, 1906 年にハーンが発見) や RdTh (²²⁸Th, 1906 年にハーンが発見) 以下の系列核種の成長による放射能 (α) の検出によるものであった。現在、Ac はこの天然 2 核種の他に ²⁰⁶Ac から ²³⁴Ac までが人工的に合成されている。²⁰⁶Ac～²²⁵Ac は α 放射体 (一部 EC 分岐あり)、²²⁶Ac～²³⁴Ac は β^- 放射体 (ただし、²²⁶Ac は β^- , EC) である。最長寿命核種は上記の ²²⁷Ac。

金属アクチニウムは銀白色で、水と反応すると水素ガスを発生し、自らは Ac₂O₃ になる。3 価の Ac 溶液は無色で、化合物はすべて白色である。La と似て

いるため、市販の La 化合物には Ac とその系列核種が含まれている。

トリウム thorium (Th)

原子番号 90 の天然放射性元素。1815 年、スウェーデンのベルセリウス (J.J. Berzelius 1779-1848) はガドリ石に似た希少鉱物の一つを分析しているとき、新金属の酸化物を発見したとして古代スカンジナビア神話の雷神 Thor にちなんでトリウムと命名したが、10 年余を経た 1828 年、この新物質はリン酸イットリウム (ゼノタイム) であることを自身で証明した。1829 年、ベルセリウスはエスマルク牧師 (H.M.T. Esmark, 1801-1882) が発見したガドリ石に似た新鉱物の分析を依頼され、新金属のケイ酸塩であることを証明し、この鉱物をトール石 thorite (ThSiO_4)、金属をトリウムと名付けた。彼はフッ化トリウムカリウムと金属ナトリウムをガラス管中で加熱して金属 (不純) を得た。1914 年、オランダ・白熱電球会社のレーリ 2 世 (D. Lely, Jr.) とハンブルガー (L. Hamburger) は金属ナトリウムと塩化トリウムを減圧した銅製円筒中で蒸留して純度 99% の Th を得た (*Z. anorg. Chem.*, **87**, 209, 1914)。

1898 年、ドイツのシュミット (G.C. Schmidt 1865-1949) は 2 月 4 日に (*Verh. Dtsch. Phys. Ges. Berlin*, **17**, 14, 1898; *Wied. Ann.*, **65**, 141, 1898; *Compt. Rend. Acad. Sci. Paris*, **126**, 1264, 1898), フランスのマリー・キュリー (M. Sklodowska Curie, 1867-1934) は 4 月 12 日に (*Compt. Rend. Acad. Sci. Paris*, **126**, 1101, 1898), それぞれ独立に、トリウムに放射能があることを発見・報告した。ドイツで有機化学の学位を得たハーン (O. Hahn, 1879-1968) は、1905 年に希ガスの発見で有名なイギリスのラムゼー (W. Ramsay, 1852-1916) のもとに留学し、セイロン産トリアナイト中に RdTh (^{228}Th : α , $T_{1/2} = 1.9 \text{ y}$) を発見し (*Phys. Z.*, **7**, 412, 1906; 同誌, **7**, 456, 1906),

2年後に MsTh (^{228}Ra : β^- , $T_{1/2} = 5.76 \text{ y}$) が中間生成物であることを示した (*Ber.*, **40**, 1462, 1907; 同誌, **40**, 3304, 1907). これは, もう一つの中間生成物 MsTh II (^{228}Ac : β^- , $T_{1/2} = 6.13 \text{ y}$) が 1908 年に発見されたために MsTh I と呼ばれるようになった. 英国のソディー (F. Soddy, 1877-1956) とベルリンのマルクヴァルト (W. Marckwald) が独立に, MsTh I が化学的に Ra と同一であることを示してから MsTh I の製造が容易になり, ^{226}Ra の代わりに医療や時計の文字盤の発光に使われた.

1902 年, ラザフォード (E. Rutherford, 1871-1937) とソディーは, $\text{Th}(\text{OH})_4$ を取り除いた溶液残渣はトリウム塩よりもはるかに放射性であることを知り, この中にトリウム系列に属する ThX (^{224}Ra : α , $T_{1/2} = 3.64 \text{ d}$) を発見した (*Trans. Chem. Soc.*, **81**, 321, 1905; 同誌, **81**, 837, 1905) [$^{232}\text{Th} \rightarrow \text{ThX} \rightarrow ^{238}\text{U} \rightarrow \text{UX} (^{234}\text{Th}) \rightarrow$ の放射平衡にある親娘核種を化学分離した親分画中での X 体の成長と娘分画中の娘 X 体の減衰の放射能の和が一定の関係は, 1931 年にラザフォードが男爵位を授けられたとき, ラザフォード卿の紋章に取り入れられた]. 一方, 1899 から 1902 年にかけてオーエンス (R.B. Owens, 1870-1940) はラザフォードと共に, トリウム・エマネーション (トロロン, Tn) が放射性の気体 (Rn の同位体) であることを発見した (R.B. Owens, *Phil. Mag.* [5], **48**, 360, 1899; E. Rutherford, 同誌, [5], **49**, 1, 1900; 同誌, [5], **49**, 161, 1900). 同じ研究室のガイガー (H.J.W. Geiger, 1882-1945) とマースデン (E. Marsden) はその娘核種である短寿命の ThA (^{216}Po : $T_{1/2} = 0.15 \text{ s}$) を発見した (*Phys. Z.*, **11**, 7, 1910). ラザフォードは, ThA はさらにやや長寿命の β^- 放射体 ThB (^{212}Pb , $T_{1/2} = 10.6 \text{ h}$) を経て ThC (^{212}Bi : β^- , $T_{1/2} = 60.6 \text{ min}$) へと系列壊変すること

を見出した. 学生であったスレーター嬢 (J.M.W. Slater) は ThB を白金線上で $700 \sim 1000^\circ\text{C}$ に加熱し, その残渣から ThC (^{212}Bi) を得た (*Phil. Mag.* [6], **9**, 628, 1905; *Chem. Zentr.*, **76**, 1629, 1905). マースデンとバラット (T. Barrat) およびハーソンとマイトナー (L. Meitner, 1878-1968) は独立に, ThC は ThC' (^{212}Po : α , $T_{1/2} = 0.3 \mu\text{s}$) および ThC'' (^{208}Tl : β^- , $T_{1/2} = 3.1 \text{ min}$) に壊変することを明らかにした (E. Marsden, T. Barrat, *Proc. Phys. Soc.*, **24**, 50, 1911). これにより, 「 α 壊変の生成物の化学的性質は, 周期系における族数が親元素のそれより 2 つ少ない元素の化学的性質に対応し, 原子量は 4 単位減少する」また「 β^- 壊変では原子番号 (族数) が親元素のそれより 1 つ大きい元素に対応する」というソディーの「元素進化の行進」は ThD (^{208}Pb) で終わることが明らかになった. このような ^{232}Th (4n) 系列壊変の大要はウランシリーズ (^{238}U), アクチニウムシリーズ (^{227}Ac) とともに 1913 年までにほぼ確立した (A.S. Russel, *Chem. News*, **107**, 49, 1913; F. Soddy, 同誌, **107**, 97, 1913; K. Fajans, *Ber.*, **46**, 422, 1913). (付録図 2, 3, 4 参照).

トリウムの同位体として $^{209}\text{Th} \sim ^{238}\text{Th}$ が知られている. $^{209}\text{Th} \sim ^{230}\text{Th}$ と ^{232}Th は α 放射体 [ただし, ^{225}Th ($T_{1/2} = 8.72 \text{ min}$) の 10% は EC] であり, ^{231}Th および $^{233}\text{Th} \sim ^{238}\text{Th}$ は β^- 放射体である. 最長寿命で α 放射体の ^{232}Th ($T_{1/2} = 1.405 \times 10^{10} \text{ y}$) および ^{238}U 系列核種の ^{230}Th (Ionium, Io; $T_{1/2} = 7.54 \times 10^4 \text{ y}$) は年代測定に使われる. 金属トリウムは銀白色で空気中では表面に酸化被膜ができ内部が保護される. 酸化数として +2, +3 および +4 価が知られているが, 前 2 者は不安定である.

トリウムは, 地殻中に平均 12 ppm 存在し, U (2.4 ppm) の 4 倍以上である.

トール石, ウラノトール石 (Th, U) SiO_4 あるいは方トリウム石 ThO_2 の化学形で存在する。ランタノイドの資源鉱物モナズ石 (12% ThO_2) などには商業採算量が含まれ, 全世界で年間約 3 万トンの生産がある。トリウムの放射線障害が認識されるまでは, トリウム化合物は多方面で利用されていた。中でも, ガス燈のマントルには大量に使われ, また 20 世紀はじめにはトリウム入り練り歯磨粉が市場に出た。酸化トリウム ThO_2 は融点が高い (3390°C) ため, 耐火材やアーク溶接の電極に使われ, 石油精製や硝酸合成の触媒, 熱電子放射材, 光電素子などとして現在でも利用されている。 $^{232}\text{Th} + n \rightarrow ^{233}\text{Th} (\beta^-: T_{1/2} = 22 \text{ min}) \rightarrow ^{233}\text{Pa} (\beta^-: T_{1/2} = 27.0 \text{ d}) \rightarrow ^{233}\text{U} (\alpha: T_{1/2} = 1.592 \times 10^5 \text{ y})$ でつくられる ^{233}U は, 核分裂性であるため核燃料としての利用が提案され注目を集めているが, 技術的, 経済的問題もあり開発は進んでいない (参考: 山脇道夫他, 日本原子力学会誌, **47**, 802, 2005; 同誌, **48**, 20, 2006; D. Clery, *Science*, **309**, 1172, 2005)。

プロトアクチニウム protactinium (Pa)

原子番号 91 の天然放射性元素。英国のソディー (F. Soddy, 1877-1956), スコットランド出身のラッセル (A.S. Russel), ポーランド生れで米国ミシガン大学のファヤンス (K.S. Fajans, 1887-1975) はそれぞれ独立に, ウラン系列に Va 族に属する新しい元素 (エカタンタル) が存在すると予測した。1913 年, ファヤンスとゲーリング (O.H. Göhring) は, 王立化学大学のクルックス卿 (W. Crookes, 1832-1919) が 1900 年に ^{238}U の壊変生成物中に見付けて UX と呼んだもの (W. Crookes, *Proc. Roy. Soc.*, **66A**, 409, 1900) から β^- 壊変で生じる半減期の短い放射能 (実際は UX II, $^{234\text{m}}\text{Pa}$: $T_{1/2} = 1.17 \text{ min}$) を同定して brevium (束の間, 短寿命元素の意) と名付けたが, 原子番号は決められなかった (*Phys. Z.*, **14**, 877, 1913; *Naturwiss.*, **1**, 339, 1913)。ドイツではハーン (O. Hahn, 1879-1968) とマイトナー (L. Meitner, 1878-1968) が第 1 次世界大戦従軍中の 1917 年にベルリンに戻った折を見つけては実験を続け, 瀝青ウラン鉱粉の熱濃硝酸処理を繰り返して生じる不溶性ケイ質状残渣をアルカリ溶融して Ta によく似た元素を発見し, protoactinium (アクチニウムの元の意) と名付けた (すぐに protactinium と短くした) (*Phys. Z.*, **19**, 208, 1918; *Naturwiss.*, **6**, 324, 1918)。同年, ソディーとクランストン (J.A. Cranston) も “Ac の親” と題する論文を発表した (*Nature*, **100**, 498, 1918; *Proc. Roy. Soc. London*, **94A**, 384, 1918)。引き続き, ハーンとマイトナーは, ウラン (^{238}U) の直接の壊変生成物である UX I (^{234}Th), UX II ($^{234\text{m}}\text{Pa}$) および UZ (^{234}Pa) の半減期分岐比を調べ, 天然に存在する唯一の核異性体である $^{234\text{m}}\text{Pa}$ (UX II: $T_{1/2} = 1.17 \text{ min}$) と ^{234}Pa (UZ: $T_{1/2} = 6.69 \text{ h}$) の対を発見した (O. Hahn, *Ber.*, **54**, 113, 1921)。

また、AcU (^{235}U : α) \rightarrow UY (^{231}Th : β^- , $T_{1/2}$ = 1.063 d) \rightarrow Pa (^{231}Pa : α , $T_{1/2}$ = 3.28×10^4 y) \rightarrow Ac (^{227}Ac : β^- , $T_{1/2}$ = 22 y) \rightarrow RdAc (^{227}Th : $T_{1/2}$ = 18.68 d) \rightarrow の分岐も詳しく調べた (*Phys. Z.*, **15**, 236, 1914). ハーンの協力者グローセ (A.V. Grosse) は、1927年にリン酸ジルコニウム共沈法を使って2 mgの白色Pa₂O₅の調製に成功し、1934年にはPa₂O₅を二つの方法で還元し、原子量として230.4と230.8の値(現在値231.0036)を得た (*J. Am. Chem. Soc.*, **56**, 2200, 1934).

このように、天然放射性壊変系列の中にPaの3核種の存在が示された。現在では、同位体として $^{212}\text{Pa} \sim ^{239}\text{Pa}$ が知られ、 $^{212}\text{Pa} \sim ^{225}\text{Pa}$ は短寿命の α 壊変核種、 $^{226}\text{Pa} \sim ^{229}\text{Pa}$ は α とEC、 ^{230}Pa は α と β^- 、 ^{231}Pa は最長寿命($T_{1/2} = 3.276 \times 10^4$ y)の α 、そして $^{232}\text{Pa} \sim ^{239}\text{Pa}$ は β^- 放射性である。Paの価電子配置は($5f^2 6d^1 7s^2$)で5fと6d軌道のエネルギー準位が接近しており、Taの($5d^3 6s^2$)と同様の状態をとるため両者の化学的性質が類似する。金属プロトアクチニウムの融点(1840°C)と沸点(4000°C)は、タンタル(融点2996°C, 沸点5425°C)よりは低いものかなり高い。酸素、水あるいは酸には侵されるが耐アルカリ性である。

ウラン uranium (U)

原子番号92の天然放射性元素。1789年にドイツのクラプロート (M.H. Klaproth, 1743-1817) がピッチブレンド(瀝青ウラン鉱)から分離した。ハーシェル (F.W. Herschel, 1738-1822) が1781年に発見した新惑星天王星(ウラヌス)に因んでuraniumと命名された (*Crell's Ann.*, **12**, 387, 1789). 金属ウランは、多くの誤った試みの後、1841年にフランスのペリゴー (E.M. Peligot, 1811-1890) がUCl₄をカリウムと共に密閉白金ルツボに入れて加熱して初めて得た (*Compt. Rend.*, **12**, 735, 1841). ウランは19世紀には陶磁器やガラスの着色に広く用いられた。ガラスに1%以上の酸化ウランを添加した暗緑色のウランガラスは紀元79年(ヴェスヴィオ山大噴火: ポンペイ埋没)頃の帝政ローマ期の貴族の別荘跡から発掘されたガラスモザイク中にも発見されている (E.R. Caley, *Isis*, **38**, 190, 1948). チェコのヤヒモフの町のヨハミスタール鉱山で採取されたウランは、16世紀はじめからは銀(製品の硬貨は“Taler”と呼ばれ、US “Dollar”の元と言われる)の、19世紀中頃からはガラスや陶器の色付けに用いられた。その鉱山の名は、キュリー夫妻 (P. Curie, 1859-1906; M. Sklodowska Curie, 1867-1934) のRaでも有名である (参考: A. Zeman, P. Benes, *Radiochim. Acta*, **70/71**, 23, 1995).

ウランが放射性であることは、フランスのベクレル (A.H. Becquerel, 1852-1908) により1896年に偶然発見された。その前年の1895年11月8日のレントゲン (W.C. Röntgen, 1845-1923) のX線発見を受け、パリ大学のポアンカレ (J.H. Poincaré) はCrookes管の中で陰極線の衝突により蛍光を発している内壁からX線が放射されていることに注目し、「強い燐光や蛍光を発する物質もX線に似た

不可視で透過力のある線を出すのではないか」との疑問を提出した。これを聞いて、ウランの化合物が燐光を放つことを知っていたベクレルは、硫酸ウラニルカリウム結晶を使ってこれを調べる実験に取り掛かった。ゼラチン臭化物の感光板を日光に感光しないように黒い厚紙で二重に包み、その上に結晶の切片を置き、数時間太陽光線に曝した。この予備実験で、感光板に燐光物質の影が現れることを認め2月24日のフランス科学アカデミーの例会で発表した(第1報: *Compt. Rend. Acad. Paris*, **122**, 420, 1896)。これをさらに確かめるため、新しい感光板を不透明の黒い布で包み、一方をアルミニウムの板で蓋をし、その上に硫酸ウラニルカリウムの結晶片を固定した。さらに結晶片とアルミニウム板の間に厚さの異なる薄い銅板(0.1 および 0.04 mm 厚)を挟んだ試料を幾つかつくった。日光に当てた後に現像することにしたが、曇天が4,5日続いた。実験を中断し、試料を機の引き出しに入れたままにしておいたが、アカデミーの例会が迫っていたので、そのまま取り出し現像してみた。驚いたことに、前回の実験の時以上に結晶片の像も薄い銅板の影もはっきり写っていたのであった。このことから、ウラン塩から燐光とは無関係に、X線のように物質を透過する目に見えない線が出ていることを知り、3月2日のフランス科学アカデミー例会で発表した。ベクレルはその後も精力的に実験を続けた。5月中旬になって、モアッサン(F.F.H. Moissan, 1852-1907)が調製に成功した純粋な金属ウラン片を借用することができ、ウラン自体が“放射線”を出すことを最終的に確認した[第6報: *Émission de radiations nouvelles par l' uranium métallique,* *Compt. Rend. Acad. Paris*, **122**, 1086, 1896。同誌には、この論文に続いてモアッサンの論

文” *Préparation et propriétés de l' uranium*”が掲載されている。なお、ベクレルは第II報(同誌, **122**, 501, 1896)、第III報(同誌, **122**, 559, 1896)、第IV報(同誌, **122**, 689, 1896)、第V報(同誌, **122**, 762, 1896)、第VII報(同誌, **123**, 855, 1897)、第VIII報(同誌, **124**, 438, 1897)、第IX報(同誌, **124**, 800, 1897)、第X報(同誌, **128**, 771, 1899)と短い報告をした後、ウランの研究から離れゼーマン効果に興味を移した。しかし、キュリー夫妻の研究に刺激を受けて再び放射能の研究に戻り、1903年にキュリー夫妻と共にノーベル賞を受賞した(H. Becquerel, *Mémoires de l' Acad. Sci. Paris*, **46**, 1903)。ベクレルは、この放射線の正体を突き止めることはできなかったが、その問題はなお数年を経てラザフォード(E. Rutherford, 1871-1937)やソディー(F. Soddy, 1877-1956)の研究によって解決された。

ウランの同位体として ^{220}U 、 ^{221}U および ^{241}U を除き ^{217}U から ^{242}U までが知られている。最長寿命核種は ^{238}U (α , SF: $T_{1/2} = 4.468 \times 10^9$ y)で、天然にはこの ^{238}U と ^{235}U (α , SF: $T_{1/2} = 7.038 \times 10^8$ y)が99.2742%と0.7204%存在し、 ^{238}U の壊変でつくられる ^{234}U (α : $T_{1/2} = 2.455 \times 10^5$ y)が0.0055%含まれる。 ^{238}U は8回の α 壊変と6回の β 壊変を経て ^{206}Pb となり、質量数は $4n + 2$ (n は整数)で表されるのでウラン系列もしくは $(4n + 2)$ 壊変系列と呼ぶ(付録図4参照)。 ^{235}U は $(4n + 3)$ 系列で ^{207}Pb に至るが、 ^{227}Ac (β : $T_{1/2} = 21.773$ y)を経由するのでアクチニウム系列と呼ぶ[^{235}U は1934年、A.J. Dempster(1886-1950)が質量分析で発見; アクチノウラン AcU と呼ばれた: *Nature*, **136**, 180, 1935] (付録図2参照)。ウランは地殻中に2.4 ppm、海水中に3.3 $\mu\text{g/L}$ 程度含まれる。主な鉱物は閃ウラン鉱、カルノー石、リン灰ウラン鉱などがある。

ウランは天然に存在する元素のうち最も大きい原子番号をもつ (^{239}Np と ^{239}Pu は U 鉱物中で ^{238}U からつくられて存在する)。中性子照射と β 壊変で 93 番以上の元素をつくる試みが 1934 年頃からフェルミ (E. Fermi, 1901-1954) らやイレーヌ・キュリー (Irene J. Curie, 1897-1956) とサビッチ (P. Savitch) によって試みられ、“Ra” や “Ac” に似たいくつもの新核種が見つけられていた。1939 年 12 月、ハーン (O. Hahn, 1879-1968) とシュトラスマン (F. Strassmann, 1902-1980) は MsTh I (^{228}Ra) をト्रेसーとして Ba 担体中の “Ra” が MsTh I でなく Ba と行動し、また La 担体中の “Ac” が MsTh I の娘の MsTh II (^{228}Ac) でなく La と行動すること、そして “Ac” は “Ra” から成長することを見出した。Ba と娘 La に対応することが分かったが、なぜそうなるかについては言及しなかった (*Naturwiss.*, **27**, 11, 1939; 同誌, **27**, 89, 1939)。この発見をスウェーデンで知らされたマイトナーと甥の物理学者フリッシュ (O.R. Frisch, 1904-1979) は直ちに液滴モデルに基づく計算を行い、 $^{235}\text{U} + n \rightarrow ^{236}\text{U}$ の “核分裂” で説明した (*Nature*, **143**, 239, 1939; 同誌, **143**, 276, 1939)。それまでの 4 年間の 93 番元素探索の困難は、当時の周期表では $_{92}\text{U}$ はエカタンゲストン、93 番元素はエカレニウムとされていたにもかかわらず、Re と似た化学的性質を示す新核種が見出せなかったことによる (参考: G. Herrmann, *Radiochim. Acta*, **70/71**, 51, 1995)。

翌年早々 “核分裂” の発見が報じられると、1 年のうちに約 100 篇の支持傍証となる論文が発表された (L.A. Turner, *Rev. Mod. Phys.*, **12**, 1-29, 1940)。これらの中で、日本の仁科芳雄、矢崎為一、江副博彦、木村健二郎および井川正雄による 1938 ~ 42 年の U と Th の速中性子反応による ^{237}U と ^{231}Th (UY) の発見や対

称核分裂の報告が注目された (参考: 齋藤信房; “日本における放射化学の黎明と進展 1907-1957”, 放射化学討論会からみた放射化学研究 50 年のあゆみ, p.1, 日本放射化学会編, 2007)。シラード (L. Szilard, 1898-1964) やオッペンハイマー (J. R. Oppenheimer, 1904-1967) は核分裂の際に約 200 MeV のエネルギーと 2 ~ 3 個の中性子が放出され、“核分裂連鎖反応” が起こることを予見した。フェルミらは最初の原子炉 (シカゴ・パイル I) を設計し 1942 年に連鎖反応を成功させるとともに、1940 年 12 月に発見された ^{239}Pu の製造にも成功した。

1940 年にロシアのフレロフ (G.N. Flerov) とペテルザク (K.A. Petrzhak) は ^{238}U の自発核分裂を発見した (*Phys. Rev.*, **58**, 89, 1940; *Compt. Rend. Akad. Sci., USSR*, **25**, 500, 1940)。1972 年にはアフリカのガボン共和国オクロ鉱山のウラン鉱物中の ^{235}U 含有量が異常に高い (または低い) ことから 17 億 4 千万年前に核連鎖反応が起きた (“天然原子炉”) ことがフランスの科学者によって見出された (参考: M. Maurette, *Ann. Rev. Nucl. Sci.*, **26**, 319, 1976)。これは、1956 年に黒田和夫 (P.K. Kuroda, 1917-2001) が「ウラン鉱物の核物理的安定性」という論文 (*J. Chem. Phys.*, **25**, 781, 1956, 同誌, **25**, 1295, 1956) で予言していた。ウランの酸化数は +2 から +6 価までが知られているが、+4 価と +6 価が安定で、ハロゲン (X) 化合物は揮発性で UX_6 (特に X = F) の蒸気圧が最も高い (“アクチニド” の項の参照)。

米国エール大学のボルトウッド [B.B. Boltwood, 1870-1927, ionium (Io, ^{230}Th) の発見者] は、1905 年にウランの最終壊変生成物は Pb であると確信して古い層位の鉱物ほど Pb/U 比が高いことを見出し、同一鉱物中の U, Th および Pb の量から

鉱物生成年代を決めることができると指摘した。地質学者ハットン (J. Hutton, 1726-1797) が、彼の“斉一説” (1785) で「地球は古い歴史をもつが、初期の痕跡は見られない」と述べてから 120 年後のことであった。1939 年、ニア (A.O. Nier) が多数の鉛鉱物の同位体組成が一定でないことを見出し、このことから ^{238}U - ^{206}Pb 対による U-Pb 法と ^{235}U - ^{207}Pb 対による AcU-Pb 法の 2 つを組み合わせた $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 法 (単に Pb-Pb 法あるいは鉛法) および ^{232}Th - ^{208}Pb 対による Th-Pb 法と呼ぶ年代測定法が発展した。

1964 年にプライス (P.B. Price) とウォーカー (R.M. Walker, 1929-2004) が開発した ^{238}U の自発核分裂 (分岐比 $5.45 \times 10^{-5}\%$) による核分裂片飛跡法は年代測定を含む広い応用の道を開いた (参考: 阪上正信 “粒子トラックとその応用”, 南江堂, 1973)。 ^{235}U や ^{238}U に基づく年代測定は、 ^{87}Rb 法や ^{40}K 法とともに、地球の年齢、地殻を構成する諸岩石や鉱物、あるいは隕石や月の石の含有鉱物の年齢を与えるだけでなく、元素の星内合成過程や太陽系の歴史ならびに地球、月、隕石などの起源と進化解明の鍵でもある (参考: 小嶋稔, 齊藤常正編 “地球年代学”, 岩波講座地球科学 6, 1978; 木越邦彦 “年代測定法—放射能による”, 紀伊国屋書店, 1965; 倉沢一 “同位体地質学”, ラティス, 1970 など)。また、壊変系列中の ^{230}Th ($T_{1/2}$: 7.54×10^4 y), ^{231}Pa (3.28×10^4 y) および ^{234}U (2.455×10^5 y) は数 10 万年わたる第四期の年代, また ^{210}Pb (β^- : $T_{1/2} = 22.3$ y) は数十年の堆積物速度の測定に使われてきた。最長寿命の親核 $^{235,238}\text{U}$ は他の放射能時計の標準ともなる重要性和微小試料, 特に酸性 (felsic) 火成岩中に普遍的で閉鎖性の強いジルコンなどの 0.1% レベルという測定精度の向上から, 壊変定数の見直しの努力が今なお続けられて

いる (F. Begemann, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **65**, 111, 2001 の Figs. 1, 2)。半減期として, 1971 年のヤッフエイ (A.H. Jaffey) らの α 計測による値 $T_{1/2}^{238} = (4.4683 \pm 0.0024) \times 10^9$ y および $T_{1/2}^{235} = (7.0381 \pm 0.0048) \times 10^8$ y が 1976 年の国際地質学連合 (IUGS) の地球年代学委員会で推奨されて広く使われてきたが, 精度の再評価が論じられている (R. Schön 他, *Appl. Radiat. Isotopes*, **60**, 263, 2004; B. Schoene 他, *Geochim. Acta*, **70**, 426, 2006)。

ネプツニウム neptunium (Np)

原子番号 93 の放射性人工元素。1934 年、ローマでフェルミ (E. Fermi, 1901-1954) と セグレ (E. G. Segrè, 1905-1989) らが $^{238}\text{U} + n \rightarrow ^{239}\text{U} (\beta^-) \rightarrow$ 93 番元素の方法で探索 (E. Fermi, *Nature*, **133**, 898, 1934) をはじめて以来、フランスのイレーヌ・キュリー (Irène J. Curie, 1897-1956) と サヴィチ (P. Savitch), ドイツのハーン (O. Hahn, 1879-1968), マイトナー (L. Meiner, 1878-1968), シュトラースマン (F. Strassmann, 1902-1980) らもウランの中性子照射と放射化学分離と測定に挑戦していた (I. Curie, P. Savitch, *Compt. Rend. Acad. Sci. Paris*, **206**, 1643, 1938; O. Hahn 他, *Ber.*, **69**, 905, 1936)。日本では、仁科芳雄, 矢崎為一, 江副博彦, 木村健二郎および井川正雄が理研の 26 インチサイクロトロンからの速中性子を使って $^{232}\text{Th}(n,2n)^{231}\text{Th}$ および

$^{238}\text{U}(n,2n)^{237}\text{U}$ 反応によって新しい核種を発見し, Re_2S_3 との共沈物中にそれぞれの β^- 壊変により長寿命娘核が生れることを示したが, 新元素発見には至らなかった。一方, ドイツのグループは同じ試みの中で核分裂を発見し, 照射生成物の中味は核分裂生成核種が圧倒的であることが分かった (ウランの項参照)。1939 年, マクミラン (E.M. McMillan, 1907-1991; 1951 年にシーボーグと共にノーベル化学賞受賞) は薄く広げた酸化ウランにアルミニウム箔とタバコの巻紙を重ねて中性子照射し, ウラン試料から反跳で飛び出す核分裂生成物を捕え (キャッチャー・ホイル法), 反跳エネルギー測定を行った。ウラン試料の方にフェルミ以来同定ができていなかった半減期 23 分と約 2 日の 2 つの β^- 放出核種を見つけ, 前者は ^{239}U であり, 後者はその娘核種の $^{239}\text{[93]}$ であると結

酸化状態	Ac	Th	Pa	U	Np	Pu	Am	Cm	Bk	Cf	Es	Fm	Md	No	Lr
1													△		
2	△		△				△	△	△	△	△	○	○	◎	
	(-4.9)		(-2.59)				(-2.30)	(-3.5)	(-2.80)	(-1.6)	(-1.3)	(-1.2)	(-0.15)	(+1.45)	
3	◎	△	△	○	○	○	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎	◎
		(-3.8)	(-2.0)	(-0.553)	(+0.219)	(+1.047)	(+2.62)	(+3.0)	(+1.67)	(+3.2)	(+4.5)				
4		◎	○	○	○	◎	○	○	○	△	△				
			(-0.25)	(+0.447)	(+0.604)	(+1.031)	(+0.84)								
5			◎	○	◎	○	○	?		?					
				(+0.088)	(+1.159)	(+0.936)	(+1.60)								
6				◎	○	○	○	?							
					(+2.04)	(+2.3)	(+2.5)								
7					○	△	?								

*1 ◎ 最も安定、○ 安定に存在しうる、△ 不安定、? 提案されているが未確認

*2 括弧内の値は 1 M H⁺ の溶液中での M(Z)/M(Z+1) 間の酸化還元電位、V 対 NHE。"The Chemistry of The Actinide and Transactinide Elements" 3rd ed., vol. 4, ch. 19, Eds. L.R. Morss, N.M. Edelstein, J. Fuger, J.J. Katz, Eds., Springer 2006.

水溶液中でのアクチノイドイオンの酸化状態¹ と標準酸化還元電位²

論付けた (E.M. McMillan 他, *Phys. Rev.*, **57**, 1185, 1940). 1940 年の春, 彼は大学院生のエーベルソン (P.H. Abelson, 1913-) と共に, その化学的性質 (Re にではなく U に似て 6 価と 4 価をとる) とミルキング実験で親娘関係を確認して 93 番元素発見を確認し, 海王星 neptune にちなんで neptunium (Np) と名付けた. ^{239}Np は弱い β^- 放射体で, ロシアのスタルケ (K. Starke) は酢酸ウラニルベンゾイルの中性子照射で無機性の ^{239}U を集め (シラード・チャルマース反応), 半減期 2.3 日の娘核種 (^{239}Np) を確認した (K. Starke, *Naturwiss.*, **30**, 107, 1942). シュトラースマンとハーンも大量の照射ウランから直接 ^{239}Np を化学分離し, 薄窓の測定器で確認したが, 発表は 1942 年になってからであった (F. Strassmann, O. Hahn, *Naturwiss.*, **30**, 256, 1942).

現在, ^{226}Np から ^{244}Np までの同位体が知られている. ^{231}Np までと, ^{233}Np , ^{235}Np および ^{237}Np が α 放射体 (^{228}Np , ^{231}Np , ^{233}Np および ^{235}Np には EC 分岐があり, ^{237}Np は自発核分裂異性体をもつ), $^{230}\text{Np} \sim ^{235}\text{Np}$ は主に EC, ^{236}Np は EC と β^- , $^{238}\text{Np} \sim ^{242}\text{Np}$ は β^- 放射体である. ^{237}Np ($T_{1/2} = 2.144 \times 10^6 \text{ y}$) は原子炉を使えば大量に製造できる. 天然には消滅核種であるが, ウラン鉱物中で生成し僅かに存在する (C.A. Levine, G.T. Seaborg, *J. Am. Chem. Soc.*, **73**, 3278, 1951). この核種は ^{233}U (α : $T_{1/2} = 1.592 \times 10^5 \text{ y}$) や ^{229}Th (α : $T_{1/2} = 7.3 \times 10^3 \text{ y}$) などを経て ^{209}Bi に至るネプツニウム ($4n+1$) 壊変系列をつくる (付録図 5 参照). 金属ネプツニウムは, 銀白色で α , β および γ の三つの結晶形が知られている. α 型 (斜方) は常温で表面が空気酸化され易く, 酸化性の試薬に溶解する. 酸化数は +2 ~ +7 価が知られている. Np(IV), Np(V) および Np(VI) が重要で, ウランと比べると低原子価化

化合物がより安定である. ウランの安定な化学形として U_3O_8 が一般的であるが, Np_3O_8 をつくることは難しい. 酸性の水溶液中では +5 価 (NpO_2^+) が最も安定である (アクチノイドの項の参考を参照).

プルトニウム plutonium (Pu)

原子番号 94 の人工放射性元素。カリフォルニア大学のマクミラン (E.M. McMillan, 1907-1891) は 1940 年の ^{239}Np の発見に引き続き、この核種の β^- 壊変生成物が 94 番元素 (質量数 239) になると考えたがうまくゆかず、もっと短い寿命の同位体を求めてバークレーの 60 インチサイクロトロンからの重陽子 (d) でウランを照射した。研究の途中で彼が軍事用レーダー研究のため MIT (マサチューセッツ工科大学) に移ったため、シーボーグ (G.T. Seaborg, 1912-1999) は学生のバール (A.C. Wahl) とケネディ (J.W. Kennedy, 1916-1957) とともに実験を進め、1940 年 12 月に ^{238}U (d, n) ^{238}Np (β^- , $T_{1/2} = 2$ d) \rightarrow $^{238}\text{[94]}$ ($T_{1/2} = 50$ y, 現在値は 87.74 y) による 94 番元素の合成に成功した (G.T. Seaborg 他, *Phys. Rev.*, **69**, 366, 1946)。最強の酸化剤 (過酸化二硫酸塩) と銀イオン触媒を使って、この新元素は Os ではなく、U に似た化学的性質を示すことを確かめ (G.T. Seaborg 他, *Phys. Rev.*, **69**, 367, 1946)、冥王星 Pluto にちなんで plutonium (Pu) と命名した。“plutium” とするか、また記号は “Pl” とするか “Pu” とするかで議論があったそうである。

シーボーグはさらにセグレ (E.G. Segrè, 1905-1989) の参加を得て、パラフィンブロックで囲った 1.2 kg の硫酸ウラニルを金属ベリリウムの背後に置いて重陽子 ($E_d = 16$ MeV) で 2 日間照射し、U をエチルエーテルで抽出・除去した後、 CeF_4 と LaF_3 担体の存在下で酸化・還元を繰り返して ^{239}Np を単離し、その娘核種である ^{239}Pu を 0.5 μg 得た。これは半減期 30,000 年 (現在値は 24,110 年) の α 放射体であり、中性子照射では ^{235}U より 50% 高い確率で核分裂することを見出した (1941 年 5 月)。シーボーグは、超微量化学の得意なカニンガム (B.B.

Cunningham) やヴェルナー (L.B. Werner) からの協力で、数 100 ポンドのウランを使って可視量 (2.77 μg) の ^{239}Pu (フッ化物) を得 (B.B. Cunningham, L.B. Werner, *J. Am. Chem. Soc.*, **71**, 1521, 1949)、これを用いて Pu の分離・精製の研究を進めた。Pu (VI) を共沈する“リン酸ビスマス法”を確立して原爆用 ^{239}Pu の大量生産 (ワシントン州ハンフォード) と化学プラント (テネシー州オークリッジ研究所) の建設へと進んだ。こうして開発されたプルトニウム爆弾は 1945 年 8 月 9 日、長崎の空で炸裂した。

プルトニウム発見の報告は 1941 年はじめに投稿されたが、軍事機密とされ、公表は上記のように 1946 年となった (この間、仲間内では 94 番元素と呼び、コード名は“銅”とされた。本当の銅と区別するときは“honest-to-God-copper”と呼ばれたそうである。なお、Np のコード名は“銀”とされた)。シーボーグとパールマン (M.L. Perlman) は、1941 ~ 42 年に 400 g のカナダ産ピッチブレンド (瀝青ウラン鉱) を使って自然界の Pu を探索し、 ^{238}U の自発核分裂で発生する中性子と ^{238}U の反応で ^{239}Pu が生成することを発見した。この公表も 1948 年まで遅れた (*J. Am. Chem. Soc.*, **70**, 1571; D. F. Peppard 他, 同誌, **73**, 2529, 1951; 近年の試みは D. Curtis 他, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **63**, 275, 1999; Tc の項も参照)。

現在、プルトニウムの同位体として ^{228}Pu から ^{247}Pu までが知られており、 ^{228}Pu から ^{232}Pu までと $^{236}\text{Pu} \sim ^{240}\text{Pu}$, ^{242}Pu および ^{244}Pu が α 放射体、 $^{230}\text{Pu} \sim ^{237}\text{Pu}$ は EC 分岐があり、 ^{241}Pu , ^{243}Pu , $^{245}\text{Pu} \sim ^{247}\text{Pu}$ は β^- 放射体である。 ^{236}Pu と $^{238}\text{Pu} \sim ^{240}\text{Pu}$, ^{242}Pu および ^{244}Pu には僅かな自発核分裂 (SF) への分岐がある。また、 $^{235}\text{Pu} \sim ^{245}\text{Pu}$ には自発核分裂異性体が知られている。最長寿命の ^{244}Pu (α 分

岐比 99.879%, SF 0.121% : $T_{1/2} = 8.05 \times 10^7$ y) は 1952 年, 西太平洋エニウエトク環礁で実施された熱核爆発(水素爆弾 Mike) の破片分析で ^{246}Pu (β^- : $T_{1/2} = 10.85$ d) とともに発見された。極く短時間 (10^{-9} s) の爆発で $(1-4) \times 10^{24}$ 個の中性子発生が予測され, 1954 年には珊瑚試料中に新元素 $^{253}_{99}\text{Es}$ と $^{255}_{100}\text{Fm}$ が発見された。 ^{244}Pu は超新星爆発時のこのような多重中性子捕獲とそれに続く β^- 壊変 (r -過程) でつくられる可能性がある。黒田和夫は 1960 年, 隕石中の Xe 同位体の解析から ^{244}Pu の SF による Xe 同位体の寄与を予言した。1964 年, 実際にバサモンテ隕石中に明確な痕跡(重い Xe 同位体)を大学院生のロウ (M.W. Rowe) と共に発見し, 太陽系形成時に ^{244}Pu が存在したことを示し, 超新星爆発時に実際につくられた ^{244}Pu を基に太陽系構成元素の年齢決定が可能であることを示した (M.M. Rowe, P.K. Kuroda, *J. Geophys. Res.*, **70**, 709, 1965; P.K. Kuroda, *The Origin of the Chemical Elements and the Oklo Phenomenon*, Springer-Verlag, 1982; ^{176}Lu の項参照)。1971 年, ホフマン (D.C. Hoffman) らは, 85 kg のカリフォルニア産 Ce 鉱物バストネサイト中に 2×10^7 原子の ^{244}Pu を検出し, 地球形成時に存在した ^{244}Pu が濃集されたものだと説明した (D.C. Hoffman 他, *Nature*, **234**, 132, 1971)。これに対し坂本浩は超新星残骸として宇宙塵に入り, 地球(太陽系)に恒常的に供給されているとして, 深海底堆積物中での探索を続けた (K. Sakamoto, *Nature*, **248**, 130, 1974; M. Paul 他, *Astrophys. J.*, **588**, L133, 2001; *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **272**, 243, 2007)。

プルトニウムの酸化数として +2 ~ +7 が知られているが, 水溶液中では +3 ~ +6 が安定でそれぞれ特徴的な呈色(青→黄・赤褐→淡紫→ピンク・橙赤)を示す。

金属プルトニウムは銀白色で反応性が高く, 空气中で酸化され発火する。Pu は原子燃料(原爆では高純度 ^{239}Pu 5 kg) として利用されるが, ^{238}Pu (α , 僅かに SF: $T_{1/2} = 87.74$ y) は原子力電池として人工衛星用電源や心臓ペースメーカー電源として使われている。Pu は放射性物質としてだけではなく, 化学的にも毒性が強く, 口や鼻からの吸入に特別の防護が必要である。

1945 から 63 年にわたる大規模核実験の結果, 大気圏実験で 350 kg, 地下実験で 100 kg の $^{239+240}\text{Pu}$ (両核種の α エネルギー接近のため和として測定) が放出された。同時に放出された約 10^{17} Bq の ^{241}Pu (β^- : $T_{1/2} = 14.4$ y) は ^{241}Am (α , SF: $T_{1/2} = 432.2$ y) に変換し, いずれも陸上・海洋を問わず, 特に北半球に降下している。また, 1964 年にインド洋上で大気圏に再突入し破裂した SNAP (Systems for Nuclear Auxiliary Power) 搭載衛星から 0.6 PBq の ^{238}Pu が飛散し, 南太平洋にも拡散している。1970 年代以降では, 英国のセラフィールドとフランスのラ・アーグの両使用済核燃料再処理工場からの放流や 1986 年のウクライナ(旧ソ連)のチェルノブイル原子力発電所および 1979 年の米国スリーマイル島 (TMI) 原子力発電所の事故による局所放出も少なくない。プルトニウムは, 陸上では土壤に吸着することが多い。海洋ではコロイド状浮遊塵に吸着するが, 海底堆積物への沈降も早い。U, Np, Pu, Am, Cm および Cf の長寿命核種の天然水中での化学挙動は複雑で, 環境科学の重要なテーマである(参考: E.R. Sholkovitz, *Earth Sci. Rev.*, **19**, 95, 1983)。なお, ^{239}Pu , ^{240}Pu および ^{244}Pu の測定には, 現在, Si(AU) 検出器による α 測定が使われるが, ^{239}Pu と ^{240}Pu の α 線エネルギーが接近しているため定量値は両核種の和として求められる。高感度質量分析 (ICP-MS, AMS) を使う測定法もある。

アメリカシウム americium (Am)

原子番号 95 の人工放射性元素。1940 年、カリフォルニア大学のシーボーグ (G.T. Seaborg, 1912-1999) とその共同研究者らは Np と Pu を発見するや、両元素の核的・化学的性質の研究を深める一方、95 および 96 番元素の探索を目指した。1944 年夏の ${}_{96}\text{Cm}$ の発見に続き、同年秋から 1945 年初めにかけてシーボーグ、ジェームス (R.A. James)、モーガン (L.O. Morgan) およびギオルソ (A. Ghiorso, 1915-) はシカゴ大学冶金研究所 (後のアルゴンヌ国立研究所, ANL) の原子炉で ${}^{239}\text{Pu}$ を照射し、多重中性子捕獲 ${}^{239}\text{Pu}(n,\gamma){}^{240}\text{Pu}(n,\gamma){}^{241}\text{Pu}(\beta^-: T_{1/2} = 14.35 \text{ y}) \rightarrow {}^{241}[\text{95}]$ (α , SF, EC: $T_{1/2} = 432.2 \text{ y}$) によって 95 番元素を得 (A. Ghiorso 他, *Phys. Rev.*, **78**, 472, 1950), ランタノイドで対応する位置にあるユーロピウム (Eu, ヨーロッパ大陸に因む) に対応して、発見場所のアメリカ大陸に因み americium (Am) と命名した。この ${}^{241}\text{Am}$ のさらなる中性子捕獲 ${}^{241}\text{Am}(n,\gamma){}^{242}\text{Am}(\beta^-: T_{1/2} = 16.0 \text{ h}) \rightarrow {}^{242}\text{Cm}$ で ${}^{242}\text{Cm}$ もつくられた。Am も Cm も酸性水溶液では +3 価が安定で、U, Np および Pu とは様子が異なる。このため約 1 年間かけた化学分離と同定の試みは失敗し、これらの元素をパンデモニウム (pandemonium, 伏魔殿) とかデリリウム (delirium, 錯乱) と名付ける主張もあったほどである。しかし最終的には、1947 年の Pm 発見で威力を発揮した陽イオン交換樹脂による吸着と選択的溶離を応用して Am の分離・同定に成功し、シーボーグのアクチニド仮説 (アクチノイドの項参照) を裏付けた (G.T. Seaborg, A.C. Wahl, *J. Am. Chem. Soc.*, **70**, 1128, 1948)。

アメリカシウムの同位体として ${}^{232}\text{Am}$ から ${}^{247}\text{Am}$ までが知られている。このうち、 ${}^{232}\text{Am} \sim {}^{240}\text{Am}$ は α 分岐をもつ EC 核種

である。 ${}^{241}\text{Am}$ と ${}^{243}\text{Am}$ は SF 分岐をもつ α 放射体、 ${}^{242\text{m}}\text{Am}$ は IT と一部 α 放射、 ${}^{242\text{g}}\text{Am}$ は EC と β^- 放射であり、 ${}^{244}\text{Am} \sim {}^{247}\text{Am}$ は β^- 放射体である。このうち、 ${}^{237}\text{Am} \sim {}^{246}\text{Am}$ には自発核分裂異性体が知られている。物理・化学的性質の多くは ${}^{241}\text{Am}$ を用いて調べられた。最長寿命核種は ${}^{243}\text{Am}$ (α , 一部 SF: $T_{1/2} = 7370 \text{ y}$) であり、原子炉内での ${}^{241}\text{Am}(n,\gamma){}^{242}\text{Am}$ (EC: $T_{1/2} = 16.02 \text{ h}$) \rightarrow ${}^{242}\text{Pu}(n,\gamma){}^{243}\text{Pu}(\beta^-: T_{1/2} = 4.956 \text{ h}) \rightarrow$ ${}^{243}\text{Am}$ あるいは ${}^{239}\text{Pu}(n,\gamma){}^{240}\text{Pu}(n,\gamma){}^{241}\text{Pu}(n,\gamma){}^{242}\text{Pu}(n,\gamma){}^{243}\text{Pu} \rightarrow$ ${}^{243}\text{Am}$ につくられる。金属アメリカシウムは銀白色で融点は 1170°C 、沸点は 2000°C 以上である。結晶形として α (六方) と β (面心立方) が知られ、常温では α が安定である (1951 年に AmF_3 を $1100 \sim 1300^\circ\text{C}$ に熱し、Ba で還元して得られた)。金属プルトニウムより蒸気圧が高いので、高温蒸留で精製することができる。+2 から +6 価の酸化状態をとるが、+3 価が特に安定である。 ${}^{241}\text{Am}$ は α 線源として厚み計や煙感知器に用いられ、低エネルギー γ 線は蛍光 X 線源に用いられる。また、 ${}^{241}\text{Am}$ -Be 混合物は中性子源として利用される。動物の体内に取り込まれたアメリカシウムの 25% は骨に (一部は骨表面)、70% は肝臓に見出されるが、肝臓からの排出はかなり速い。

キュリウム curium (Cm)

原子番号 96 の人工放射性元素。1944 年夏、カリフォルニア大学のシーボーグ (G.T. Seaborg, 1912-1999)、ジェームス (R.A. James)、ギオルソ (A. Ghiorso, 1915-) およびモーガン (L.O. Morgan) は、バークレーの 60 インチサイクロトロンを用いて 32 MeV の α 粒子で照射した ^{239}Pu をシカゴの冶金研究所に送って化学分離と同定を行い、 $^{239}\text{Pu}(\alpha, n)^{242}[96]$ により生成した 96 番元素を発見した (G.T. Seaborg 他, *Chem. Eng. New*, **23**, 2190, 1945)。また同じ頃、原子炉内で $^{239}\text{Pu}(n, \gamma)^{240}\text{Pu}(n, \gamma)^{241}\text{Pu}(\beta^-; T_{1/2} = 14.4 \text{ y}) \rightarrow ^{241}\text{Am}(n, \gamma)^{242}\text{Am}(\beta^-, T_{1/2} = 16 \text{ h}) \rightarrow ^{242}[96](\alpha, \text{一部 SF}; T_{1/2} = 162.94 \text{ d})$ および $^{239}\text{Pu}(n, \gamma)^{240}\text{Pu}(n, \gamma)^{241}\text{Pu}(n, \gamma)^{242}\text{Pu}(n, \gamma)^{243}\text{Pu}(\beta^-; T_{1/2} = 4.96 \text{ h}) \rightarrow ^{243}\text{Am}(n, \gamma)^{244}\text{Am} (^{244\text{m}}\text{Am}, \text{IT } \beta^-; T_{1/2} = 26 \text{ min}; ^{244}\text{Am}, \beta^-; T_{1/2} = 10.1 \text{ h}) \rightarrow ^{244}[96](\alpha, \text{一部 SF}; T_{1/2} = 18.10 \text{ y})$ でもつくられた (遅い中性子の捕獲: A. Ghiorso 他, *Phys. Rev.*, **78**, 472, 1950)。アメリシウムの項で述べたように化学的同定に困難が続いたが、陽イオン交換樹脂による分離・同定に成功し、アクチニド仮説の証明に役立った。対応するランタノイドのガドリニウム (Gd) は希土類元素研究で有名な化学者ガドリン (J. Gadolin, 1760-1852) に因むことから、96 番元素は放射能研究のキュリー夫妻の名をとって curium (Cm) と命名した。この 96 番元素と 95 番元素 (Am) の発見は軍事機密解除後の 1945 年 11 月 11 日、全米向けラジオの子ども番組でシーボーグが非公式に話したが、子どもによく理解されたかは不明である (正式論文はこの週内に発表)。

キュリウムの同位体として ^{234}Cm および ^{238}Cm から ^{251}Cm までが知られている。 ^{238}Cm と ^{239}Cm は EC 壊変だが核データは十分には確定していない。 ^{241}Cm を除

き $^{240}\text{Cm} \sim ^{248}\text{Cm}$ は α 放射体で、 ^{246}Cm までは僅かな SF 分岐を含み ^{248}Cm ($T_{1/2} = 3.4 \times 10^5 \text{ y}$) は α 91.74%, SF 8.39% の分岐壊変をする。 ^{249}Cm と ^{251}Cm は β^- 放射体である (^{250}Cm は SF 核種であるが核データは未確定)。また、 $^{240}\text{Cm} \sim ^{245}\text{Cm}$ には自発核分裂異性体が知られている。最長寿命核種は ^{247}Cm ($\alpha; T_{1/2} = 1.56 \times 10^7 \text{ y}$) である。キュリウムの物理・化学的性質の研究には、 ^{241}Am の原子炉中性子照射でつくられる ^{242}Cm が使われたが、最近では ^{239}Pu の多重中性子捕獲による ^{244}Cm が使われている。この反応は ^{239}Pu ($T_{1/2} = 24,110 \text{ y}$) の減量 (消滅処理) にも利用されている。

金属キュリウムの性質はアメリシウムと類似していて、酸化状態は +2, +3 および +4 価をとるが、Am と同様に +3 価が安定である。 ^{242}Cm は ^{244}Cm や ^{245}Cm ($\alpha, \text{SF}; T_{1/2} = 8.5 \times 10^3 \text{ y}$) とともに、月探査ロケット「サーベイヤー V」に搭載され、 α 線源として月表面の岩石の分析に利用された。また、金属キュリウム 1 グラム当たり 3 W の発熱があるため、ペーサーメーカーや航海用プイの電源などにも利用された。一方、この発熱のため溶媒の蒸発が早く、溶液化学の研究に難しさがある。

バークリウム berkelium (Bk)

原子番号 97 の人工放射性元素。カリフォルニア大学バークレー校のトンブソン (S.G. Thompson) は、学位論文のテーマとしてギオルソ (A. Ghiorso, 1915-) およびシーボーグ (G.T. Seaborg, 1912-1999) の指揮を受け、 ^{239}Pu を原子炉で 3 年かけて照射して 7 ミリグラムの ^{241}Am をつくった。これを 1949 年 12 月に 60 インチサイクロトロンからの α 粒子 ($E_\alpha = 35 \text{ MeV}$) で衝撃し、 $^{241}\text{Am}(\alpha, 2n)^{243}[97]$ (EC; $T_{1/2} = 4.35 \text{ h}$) の反応で 97 番元素を得た。最初、この元素は α 放射体と予想されていたため、何度照射してもなかなか見付からなかった。標的核である ^{241}Am の高放射能と生成核の予想と違う壊変様式 (EC; X 線放出) ならびに短半減期のため苦労したが、最終的には α 照射後 7 時間かけて Am をフッ化水素酸可溶の +4 価とし、[97] と Cm および残留 Am を LaF_3 と共沈で核分裂生成物から分離後、陽イオン交換によって分離した (S.G. Thompson 他, *Phys. Rev.*, 77, 838, 1950)。ランタノイドの対応する位置にあるテルビウム (Tb) はスウェーデンのイッテルビの町名に因むことから、[97] 番元素の名称はこの元素発見の町バークレーの名をとり、berkelium (Bk) と命名された。シーボーグは、Am と Cm を含む溶液から Bk を溶離する際に Cm との間に大きいギャップがあることを知り驚いたが、ランタノイドの Gd と Tb の間も同様にギャップがあり驚いたのは間違いだったと述べている。

バークリウムの同位体として ^{238}Bk と ^{240}Bk から ^{251}Bk までが知られている。 ^{238}Bk と $^{240}\text{Bk} \sim ^{246}\text{Bk}$ は EC 核種であるが核データは未確定である。 $^{243}\text{Bk} \sim ^{245}\text{Bk}$ は小さな α 分岐をもつ EC、 ^{246}Bk は EC のみ、 ^{247}Bk は α 、 $^{248}\text{Bk} \sim ^{251}\text{Bk}$ は

β^- 放射体である。これらのうち、 $^{248\text{m}}\text{Bk}$ ($T_{1/2} = 23.7 \text{ h}$) は IT ではなく EC 30 %、 β^- 70% の分岐壊変をする。 $^{248\text{g}}\text{Bk}$ ($T_{1/2} > 9 \text{ y}$) は主に α 壊変であるが詳細は未確定である。 $^{242}\text{Bk} \sim ^{245}\text{Bk}$ には自発核分裂異性体も知られている。最長寿命核種は ^{247}Bk (α ; $T_{1/2} = 1380 \text{ y}$) である。

物理・化学的性質の研究には ^{239}Pu の多重中性子捕獲と β^- 壊変の繰り返しでつくられる ^{249}Bk (β^- ; $T_{1/2} = 320 \text{ d}$) が使われる。可視量 ($\sim \mu\text{g}$) の Bk がつくられたのは発見から 9 年後の 1962 年のことで、最初に調製された化合物は二酸化バークリウム (BkO_2) であった。金属バークリウムは他のアクチノイドと同様に銀色で、空気酸化を受け易い。バークリウムは、+2, +3, +4 の酸化状態をとるが、+3 の他、+4 価も臭素酸や Ce^{4+} のような強い酸化剤が存在する水溶液中で比較的安定で、溶液は黄色を呈する。分離操作として、陽イオン交換の他に溶媒抽出法も使える。水溶液中では +3 価が安定であり黄緑色を呈し、+2 価は BkO の化学形でのみ存在する。

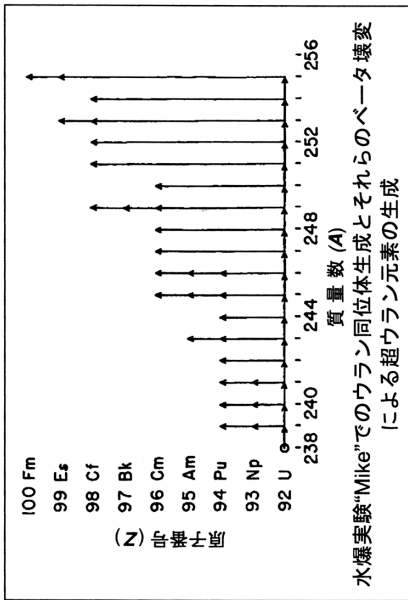
カリホルニウム californium (Cf)

原子番号 98 の人工放射性元素。1950 年 2 月、カリフォルニア大学バークレー校のトンプソン (S.G. Thompson, 1912-), ストリート 2 世 (K. Street, Jr. 1920-), ギオルソ (A. Ghiorso, 1915-) およびシーボーグ (G.T. Seaborg, 1912-1999) は, ^{241}Am の原子炉照射でつくったマイクログラム量の ^{242}Cm (α : $T_{1/2} = 162.94$ d) を標的とする $^{242}\text{Cm}(\alpha, n)^{245}$ [98] (α , EC: $T_{1/2} = 43.6$ min) によって得た約 5,000 個の原子で 98 番元素を同定した。当初, 244 [98] (α : $T_{1/2} = 19.4$ min) の生成と考えたが, 後に 245 [98] であること確認した。対応するランタノイドのディスプロシウム (Dy, 手に入れ難いの意のギリシャ語) に相当する名が見つからなかったため, 実験が行われた州名を取り, 大学名の名誉となるよう californium (Cf) と命名した (金鉱を探索していた 1 世紀前の人たちにとってカリフォルニアは到達困難の地だったことの意味も含む。S.G.Thompson 他, *Phys. Rev.*, **78**, 298, 1950)。[命名余談: 雑誌 *New Yorker* は新元素 97 (Bk), 98 (Cf) の発見命名の University of California at Berkeley を使って, 97 番 unversitium, 98 番 offium, 99 番 californium, 100 番 berkelium が公衆受けするとの記事を掲載。バークレーの科学者は当時未発見の 99 と 100 番が New York で発見されると, newium, yorkium と続き UC Berkeley の名が消えることになると述べたと言われる。]

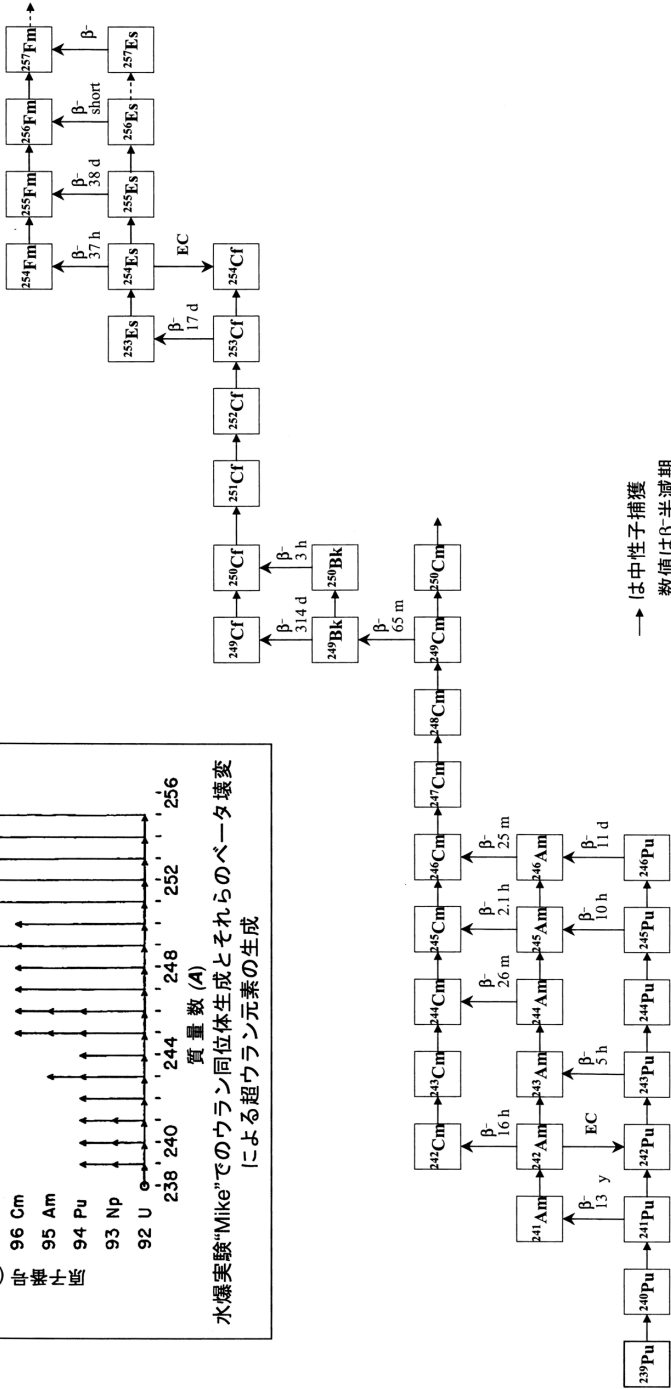
同位体として $^{237}\text{Cf} \sim ^{256}\text{Cf}$ が知られており, ^{237}Cf , ^{238}Cf および重い方の ^{254}Cf と ^{256}Cf は自発核分裂 (SF) 核種, ^{239}Cf と ^{240}Cf は α 放射体であり前者に EC, 後者に SF 分岐が報告されているが, 核データは未完。 $^{241}\text{Cf} \sim ^{245}\text{Cf}$ および ^{247}Cf は α 分岐をもつ EC, ^{246}Cf , $^{248}\text{Cf} \sim ^{250}\text{Cf}$ および ^{252}Cf は SF 分岐をもつ α 放射, ^{253}Cf

は α 分岐をもつ β^- 放射, ^{255}Cf は β^- 放射体である。最長寿命核種は ^{251}Cf (α : $T_{1/2} = 898$ y) である。これらは例えば $^{238}\text{U} + ^{12}\text{C} \rightarrow ^{246}\text{Cf} + 4n$ のような重イオン核反応でもつくりことができ, 質量数 250 以上の核種は Am や Cm の同位体と同じく原子炉内長期照射による ^{239}Pu の多重中性子捕獲でつくられる。 ^{252}Cf (α , SF: $T_{1/2} = 2.65$ y) は, ミリグラム量が容易につくられるので自発核分裂 (分岐比 3.09%) からの中性子 (3×10^6 n/ $\mu\text{g} \cdot \text{s}$) を利用する可搬中性子源として石油井戸のボーリングコア分析, 金鉱探索の放射化分析, 悪性腫瘍の治療などに利用される。 ^{254}Cf ($T_{1/2} = 60.5$ d) はより分岐比の大きい (99.69%) SF 核種である。

元素としての物理・化学的性質は ^{249}Bk ($T_{1/2} = 320$ d) の β^- 壊変で得られる ^{249}Cf (主に α : $T_{1/2} = 350.6$ y) によって研究された。金属カリホルニウムは銀色で, 空気中の酸素および水分によって酸化され易い。水溶液中では +3 価のみが安定であるが, +2 価 (CfBr_2 : コハク色), +3 価 (CfI_3 , 緑; Cf_2O_3 , 淡緑), +4 価 (CfO_2 , 黒; CfF_4 , 緑) の酸化状態をとることができる。



水爆実験“Mike”でのウラン同位体生成とそれらのベータ壊変による超ウラン元素の生成



→ は中性子補獲
数値はβ-半減期

^{239}Pu ターゲットの高中性子束炉照射による新核種生成経路

アインスタイニウム einsteinium (Es)

原子番号 99 の人工放射性元素。当初、軍事機密のために Pu の中性子照射でつくった超キュリウムとして発表した (*Phys. Rev.*, **93**, 908, 1954) が、実は 1952 年 11 月 1 日に西太平洋上で行われた最初の水爆実験“Mike”で生じた放射性塵の中に、米国カリフォルニア大学、アルゴンヌおよびロスアラモス国立研究所の 16 人により 1954 年に 100 番元素 Fm とともに発見された (^{253}Es : A. Ghiorso 他, *Phys. Rev.*, **99**, 1048, 1955)。アインシュタイン (A. Einstein, 1879-1955) の名に因んで einsteinium (Es) と命名された (Fm の項も参照: ちなみに、Es から後の元素には著名な科学者にちなむ元素名が付されることになる)。なお、この放射性塵サンプリング飛行でロビンソン (J. Robinson) 中尉がエニウェトク環礁に長時間滞在したために命を落とした。

現在では、ウランや超ウラン元素の原子核に加速器からの α 粒子や重陽子、あるいは原子炉中性子を照射して合成する。 ^{251}Es (EC: $T_{1/2} = 1.38$ d), ^{252}Es (α , SF: $T_{1/2} = 1.29$ y), ^{253}Es (α : $T_{1/2} = 20.47$ d), ^{254g}Es (α : $T_{1/2} = 275.7$ d), ^{254m}Es (β^- , α : $T_{1/2} = 1.638$ d), ^{255}Es (β^- , α : $T_{1/2} = 39.8$ d) など ^{241}Es から ^{257}Es までの同位体が知られており、 ^{253}Es と ^{254}Es はミリグラム量を得ることができる。金属アインスタイニウムは銀色で、空気酸化を受け易い。水溶液中では +3 価 (緑色) が安定であるが、強い還元条件下では +2 価も存在する。

フェルミウム fermium (Fm)

原子番号 100 番の人工放射性元素。初め、“中性子照射による超キュリウムの製造”としてハーベイ (B.G. Harvey), トンプソン (S.G. Thompson), ギオルソ (A. Ghiorso) および ショパン (G.R. Choppin) によって発表された (*Phys. Rev.*, **93**, 1129, 1954) が、勇み足であった。実際には、シーボーグ (G.T. Seaborg) らのカリフォルニア大学グループとスタディア (M.H. Studier) ら 9 人からなるアルゴンヌ国立研究所グループ、そしてブラウン (C.I. Browne), スミス (M.L. Smith) およびスペンス (R.W. Spence) のロスアラモス国立研究所の 3 グループ合計 16 人が 1952 年 11 月 1 日、西太平洋エニウェトク環礁 (Eniwetok Atoll) で行われた第 1 回水爆実験“Mike”の放射性塵の中に 99 番元素 (Es) と共に見出し、フェルミ (E. Fermi, 1901-1954) の功績を讃えて fermium (Fm) の名称を提案した (A. Ghiorso 他, *Phys. Rev.*, **99**, 1048, 1955)。Fm は、フェルミが 1930 年代に精力的に研究した中性子捕獲反応によって合成できる最も重い元素であり、この命名は先見の明であったといわれる。

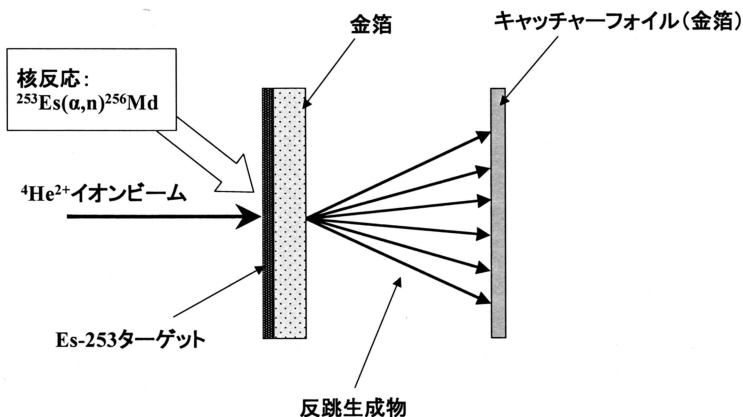
最初、空中採取と降下物から 200 原子の Fm を分離・検出した。プルトニウムの新同位体である ^{244}Pu と ^{246}Pu の存在から、数ナノ秒の間に $(1-4) \times 10^{24}$ 個の中性子が ^{238}U を衝撃した結果、 ^{238}U の多重中性子捕獲によって ^{255}U までの中性子過剰同位体がつくられ、それぞれの β^- 壊変で 100 番元素までのアクチノイド ($^{239}\text{Pu} \sim ^{255}\text{Fm}$) に至ったと結論した (74 ページの図参照; 超新星内の r-過程に類似)。上記の 3 研究グループは後に、数トンの珊瑚礁試料から ^{255}Fm の α 放射 (7.1 MeV) と半減期 (22 時間) を確認した。ちなみに、アイダホ州の材料試験炉を用いてグラム量の ^{239}Pu を 2~3 年間高線束で中性子照射し、多様な超プルト

ニウム核種がつくられた。これは、多重中性子捕獲の間に β^- 壊変が起き、さらに中性子吸収と β^- 壊変を繰り返すことによる (74 ページの図参照; 星内核合成の s-過程に類似)。一方, 1953 ~ 54 年にスウェーデンのノーベル物理学研究所では, $^{238}\text{U}(^{18}\text{O}, 3n)^{253}\text{Fm}$ (EC, α : $T_{1/2} = 3.0$ d) により 100 番元素を合成した。

同位体として $^{242}\text{Fm} \sim ^{259}\text{Fm}$ が知られており, $^{242}\text{Fm} \sim ^{252}\text{Fm}$ は α 放射体で偶数質量数の同位体は自発核分裂 (SF) 分岐を含む (^{242}Fm と ^{244}Fm では SF が卓越)。 ^{253}Fm は EC と α 放出分岐をもち, $^{254}\text{Fm} \sim ^{257}\text{Fm}$ は α 放射と小さい SF 分岐, ^{258}Fm と ^{259}Fm は SF のみとなる。最長寿命は ^{257}Fm (α : $T_{1/2} = 100.5$ d) である。原子炉の中性子捕獲で生成する最大質量核種は ^{258}Fm (SF: $T_{1/2} = 0.38$ ms) であり, これより重い核種 (および元素) の製造にはサイクロトロンなどを用いる α 粒子や重イオン照射が必要である。フェルミウムの化学的性質の研究は進んでいないが, +3 価が安定である。強い還元条件では +2 価もあり, アインスタイニウム [Es(II)] よりは安定でメンデレビウム [Md(II)] よりは不安定である。

メンデレビウム mendeleevium (Md)

原子番号 101 番の人工放射性元素。カリフォルニア大学バークレー校のシーボーク (G.T. Seaborg, 1912-1999) のグループは 1955 年 2 月, フェルミウムの項で述べたアイダホ材料試験炉での ^{239}Pu の照射でつくった約 10^9 個の ^{253}Es 原子を使い, $^{253}\text{Es}(\alpha, n)^{256}[101]$ 反応を起こさせれば, 1 回 (10^4 秒) の照射で 1 個の 101 番元素の生成を期待できると予測した (シングルアトム化学, atom-at-a-time chemistry のはじまり; 超アクチニド元素の項参照)。 ^{253}Es ($T_{1/2} = 20$ d) ターゲットの調製, $^{256}[101]$ の反跳分離 (金箔), 迅速陽イオン交換 (Dowex 50, 87°C 加温, α -ヒドロキシイソ酪酸溶離と 1 滴ずつの溶離液分取), 迅速測定, 60 インチサイクロトロンの α ビーム増強 (10 倍) などの工夫を重ね, 2 月 18 日夜, 3 回の照射実験で最終的に 101 番元素相当の溶離分に 5 個の自発核分裂事象を観測し, $^{256}[101]$ (EC, $T_{1/2} = 1.3$ h) \rightarrow $^{256}[100]$ (SF, $T_{1/2} = 2.63$ h) \rightarrow と結論した。追加実験を含めて合計 17 原子の生成を確認し, その元素名として, 周期表を創始して未発見元素の化学を予言した Dimitrii



Md-256 の合成実験の原理

Ivanovich Mendeleev に敬意を表して mendeleevium (Md) を提案した [A. Ghiorso, B.G. Harvey, G.R. Choppin, S.G. Thomson, G.T. Seaborg, *Phys. Rev.*, **98**, 1518, 1955: 1950 年に ${}_{97}\text{Bk}$ の発見が公表された直後に, ロシアのズノイコは mendeleevium と命名するよう主張した (A.P. Znoiko, V.I. Semishim, *Dokl. Akad. Nauk, SSSR*, **74**, 917, 1950) が, 遅かった。しかし, バークレーのグループは早い機会にその名の採用を望み, ここで提案した]。

その後, Es を増量して数 1000 個の Md 原子をつくって上記の結論を確認するとともに, 典型的な +3 価のアクチノイドであるとした。強い還元条件下では +2 と +1 の酸化状態が確認されている。メンデレビウムの同位体として ${}^{245}\text{Md} \sim {}^{260}\text{Md}$ が既知で, ${}^{245}\text{Md}$ は α 放射と SF, ${}^{246}\text{Md}$ は α 放射と EC, ${}^{247\text{m}}\text{Md}$ は α と SF, ${}^{247\text{g}}\text{Md}$ は α のみ, ${}^{248}\text{Md} \sim {}^{251}\text{Md}$ は EC と α , ${}^{252}\text{Md} \sim {}^{254}\text{Md}$ は EC のみ, ${}^{255}\text{Md} \sim {}^{257}\text{Md}$ は EC と α , ${}^{258\text{m}}\text{Md}$ は EC, ${}^{258\text{g}}\text{Md}$ は α のみ, ${}^{259}\text{Md}$ と ${}^{260}\text{Md}$ は SF の壊変方式が報告されている。最長寿命核種は ${}^{258\text{g}}\text{Md}$ (α : $T_{1/2} = 51.5$ d) で, ${}^{255}\text{Es}(\alpha, n)$ 反応でつくられる。フェルミウムの項で述べたように, ${}^{257}\text{Fm}$ より重いアクチノイドは中性子照射でなく α 粒子や重イオン反応でつくられる。

ノーベリウム nobelium (No)

原子番号 102 の人工放射性元素。発見の経緯は複雑であった。1957 年米国アルゴンヌ国立研究所, 英国ハーウェル原子力研究所およびスウェーデン・ノーベル物理学研究所の合同チームは, ノーベル研究所の重イオンサイクロトロンで ${}^{244}\text{Cm} + {}^{13}\text{C} \rightarrow {}^{253}[102]$ または ${}^{251}[102]$ (半減期約 10 分) の α 放射体 ($E_{\alpha} = 8.5$ MeV) を α -ヒドロキシイソ酪酸溶離の陽イオン交換クロマトグラフィーの期待位置に発見し, この 102 番元素にノーベリウム (nobelium, No) の名称を提案した (P.R. Field 他, *Phys. Rev.*, **107**, 1460, 1957)。これについて, ギオルソ (A. Ghiorso, 1915-) からカリフォルニア大学バークレー校のチームとフレロフ (G.N. Flerov, 1913-1990) からモスクワのクルチャトフ研究所のチームが追試をしたが, 確認できなかった (A. Ghiorso 他, *Phys. Rev. Lett.*, **1**, 17, 1958; G.N. Flerov 他, *Sov. Phys. Dokl.*, **3**, 546, 1958)。ギオルソらは 1958 年, バークレーに完成したばかりの重イオン線形加速器 (HILAC) と反跳分離-イオン交換法を用いて, ${}^{246}\text{Cm} + {}^{12}\text{C} \rightarrow {}^{254}[102] + 4n$ の反応で生成する α 放射体 ($E_{\alpha} = 8.3$ MeV, 30% SF: $T_{1/2} \sim 3$ s) と娘核 ${}^{250}\text{Fm}$ ($E_{\alpha} = 7.43$ MeV: $T_{1/2} = 30$ m) を見出し, 102 番元素を発見したと報告した。ところが, 実は用いた ${}^{246}\text{Cm}$ ターゲットにその 20 倍の ${}^{244}\text{Cm}$ が含まれていたことが判明し, ${}^{244}\text{Cm} + {}^{12}\text{C} \rightarrow {}^{252}[102] + 4n$ による ${}^{252}[102]$ ($E_{\alpha} = 8.4$ MeV, 30% SF: $T_{1/2} = 2.3$ s) の生成であったと訂正した。

新元素とするには娘核の ${}^{250}\text{Fm}$ の確認が必要であるが, 初めは ${}^{252}\text{No}$ の孫娘核 ${}^{244}\text{Cf}$ (7.21 MeV- α : $T_{1/2} = 19$ min) を ${}^{250}\text{Fm}$ と誤った。 ${}^{250}\text{Fm}$ も期待の溶離位置に 11 原子認められたが, このような経緯は “シングルアトム化学” (atom-at-a-time chemistry) の難しさを示している。同時

期に、フレロフらは $^{239}\text{Pu} + ^{16}\text{O} \rightarrow ^{254}[102] + n$ 反応による ^{254}No (8.9 MeV- α , $T_{1/2} = 2 - 40$ s) の生成を報告した。このような混乱の後、ソ連ドブナ原子核研究連合研究所のドネッツ (D. Donets) らは、反跳法と娘核 ^{252}Fm の化学的 (陽イオン交換) 同定により ^{256}No (α : $T_{1/2} = 2.9$ s) の発見を報告した (D. Donets, V.A. Schegolev, V.A. Ermakov, *Sov. J. At. Energy*, **16**, 233, 1964)。さらに 1966 ~ 67 年、彼らは ^{254}No の正しい半減期 (α , SF: $T_{1/2} = 55$ s) を初めて決定した。シーボーグによると、発見者の栄誉はバークレーとドブナの両グループが共有すべきとして、関係グループの合意により nobelium (No) の名称は残されることになった。

現在、ノーベリウムの同位体として $^{250}\text{No} \sim ^{259}\text{No}$ と ^{262}No が確認され、 $^{250\text{m,g}}\text{No}$, ^{258}No および ^{262}No は自発核分裂 (SF), $^{251}\text{No} \sim ^{257}\text{No}$ および ^{259}No は α 放射で、このうち ^{252}No , ^{254}No および ^{256}No には SF 分岐が、 ^{254}No , ^{255}No , ^{257}No および ^{259}No には EC 分岐が含まれる。最長寿命核種は ^{259}No (α , EC: $T_{1/2} = 58$ min) である。1998 年、アルゴンヌ国立研究所のグループは $\text{Pb} + \text{Ca} \rightarrow ^{254}\text{No}$ の反応で ^{254}No (α , EC, SF: $T_{1/2} = 55$ s) を 1 原子だけつくって Si 検出器に打ち込み、 γ 線解析から、この原子核はつぶれた球形の高スピン状態であると結論した。ノーベリウムはランタノイドのイッテルビウム (Yb) と同じく +2 価と +3 価の酸化状態をとるが、+2 価がより安定であり、陽イオン交換では 102 番元素が +3 価の溶離位置に現れることはない (ノーベル研究所の誤りの原因!)。

ローレンシウム lawrencium (Lr)

原子番号 103 の人工放射性元素。1961 年、米国バークレーのローレンス放射線研究所 (現 LBNL) のギオルソ (A. Ghiorso, 1915-), シッケランド (T. Sikkeland), ラーシュ (A.E. Larsh) およびラティマー (R.M. Latimer) は、3 μg の Cf 同位体 ($A = 249, 250, 251, 252$) の混合物をバークレーの重イオン線形加速器 HILAC からの ^{10}B と ^{11}B で照射した。生成した反跳核を金属蒸着したマイラーテープ上に捕捉し、このテープを一連の α 検出器上で動かして α 放射体 ($E_{\alpha} = 8.6$ MeV, $T_{1/2} \sim 8$ s) を観測し、これを $^{257}[103]$ としたが、後に $^{258}[103]$ ($E_{\alpha} = 8.6$ MeV, $T_{1/2} = 4.3$ s) と修正した (A. Ghiorso 他, *Phys. Rev. Lett.*, **6**, 473, 1961)。1965 年、ロシア (旧ソ連)・ドブナの原子核研究連合研究所のドネッツ (D. Donets), シェゴレフ (V.A. Schegolev) およびエルマコフ (V.A. Ermakov) は $^{243}\text{Am} + ^{18}\text{O} \rightarrow ^{256}[103] + 5n$ の反応生成物を二重反跳法を使って捕え、半減期が約 45 秒 (新データは 25.9 秒) の α 放射体 $^{256}[103]$ とその孫に当る既知核種 ^{252}Fm を確認した (E.D. Donets 他, *At. Energy*, **19**, 109, 1965; *Sov. J. At. Energy*, **19**, 995, 1965)。

102 番元素の名称としてギオルソらは、サイクロトロンを発明者で、一連の超ウラン元素の研究がなされた放射線研究所の創始者であるローレンス (E.O. Lawrence, 1901-1958) を讃えて lawrencium (記号は Lw) を提案したが、IUPAC (国際純正応用化学連合) は 1963 年、その記号を Lr として承認した。1970 年になって、ギオルソが比較的長寿命 ($T_{1/2} \sim 30$ s) の ^{256}Lr を使って化学的性質を調べ、期待どおりランタノイドの最後に位置するルテチウム (Lu) と同じ +3 価の酸化状態を確認し (R.S. Silva 他, *Inorg. Nucl. Chem. Lett.*, **6**, 733, 1970), アク

チノイド発見の一連の研究は完結した。

現在、ローレンシウムの同位体として $^{252}\text{Lr} \sim ^{262}\text{Lr}$ が知られており、 ^{261}Lr (SF: $T_{1/2}=39$ min) と最長寿命核種の ^{262}Lr (EC: $T_{1/2}=3.6$ h) を除くすべての同位体は α 放射体である。そのうち、 ^{253}Lr には核異性体がありどちらもSF分岐を、 ^{254}Lr と ^{256}Lr はEC分岐を、 ^{259}Lr は大きなSF分岐をもつ。

超アクチノイド(元素) transactinides

[または超重元素 superheavy elements (SHE)]

104番元素Rfからはじまる第7周期4族以上の元素の総称。2006年12月現在、原子番号(Z)が104から116までと118の14元素が加速器を用いて合成されており、1997年8月にラザホージウム($_{104}\text{Rf}$)、ドブニウム($_{105}\text{Db}$)、シーボーギウム($_{106}\text{Sg}$)、ボーリウム($_{107}\text{Bh}$)、ハッシウム($_{108}\text{Hs}$)およびマイトネリウム($_{109}\text{Mt}$)が、2003年8月にダームスタチウム($_{110}\text{Ds}$)が、2004年11月にレントゲニウム($_{111}\text{Rg}$)が国際純正応用化学連合(IUPAC)により承認された。[112]～[116]および[118]元素については、確証が得られ次第命名されるはずであり、現在、核物理学・核化学の最先端研究として米、独、ロ、日、仏、スイスなどを中心に、“シングルアトム化学(atom-at-a-time chemistry)”による超アクチノイド元素の化学的性質の解明が進められている。

化学の基本である周期表に、どれだけの元素が存在するかは重要な関心事であり、新元素の発見は国家の威信にも関わるほどであった。1960年代前半までは、原子核の液滴モデルに基づく予想から $Z=100$ (L. Meitner, O. Frisch, 1939)、あるいはせいぜい $Z=110$ (E. Feenberg, 1939)が上限で、 Z が大きくなるほど自発核分裂(SF; G.N. Flerov と K.A. Petrjak が1940年に ^{238}U で発見)が優先して原子核として存在し得ないと考えられていた。ところが、特定の陽子数または中性子数(マジック数)からなる原子核の特別な安定性(核の閉殻構造)の発見(M.G. Mayer, 1948; O. Haxel, J.H.D. Jensen, H.D. Suess, 1949)から、二重マジックの $^{208}_{82}\text{Pb}_{126}$ や中性子マジックの $^{209}_{83}\text{Bi}_{126}$ が最重安定核として理解されるようになった。さらに、この中性子マジックから

$Z = 126$, ($N = 184$) が次の安定核ではないかと予想され、これに対して“superheavy nuclei” (J.A. Wheeler, 1955) の呼称が生まれた。1966年、メルドナー (H. Meldner) の指摘の下にマイアース (W.D. Myers) とスィアテキー (W.J. Swiatecki) が彼らの新しい質量公式から $Z = 114$ と $N = 184$ がマジックになることを示した。1970年頃までの多くの理論計算の結果、 10^9 年以上の寿命が予想され、核種図上でこの閉殻核を中心に島状に分布する一群の元素を SHE (superheavy elements) と呼ぶようになった。この理論に沿って数多くの実験、特に自然界での探索が1980年頃まで続き、いくつかの成功例が報告されたもののすべて否定された。

一方、重イオン核反応で人工的に新元素を合成する試みが米国とロシア (旧ソ連) で行われてきた。米国ではローレンス・バークレー国立研究所 (LBNL) の重イオン線形加速器 HILAC (1957～)、次いで Super HILAC、さらに1992年から88インチサイクロトロン (1992～) が、ロシアではドブナの合同原子核研究所 (JINR) のフレロフ核反応研究所 (FLNR) の U-300 (1960～) および U-400 (1981～) サイクロトロン (数字は磁極径 cm, U = Uskoritel は加速器の意) が使われてきた。また、スイス・ヴィリゲンのポールシェラー研究所 (PSI) の Philips サイクロトロン、1976年からはドイツ・ダルムシュタットの重イオン研究所 (GSI) の線形加速器 UNILAC が参入し、最近では、フランスの国立重イオン加速器研究所 (GANIL) のサイクロトロン、わが国では日本原子力研究開発機構 (JAEA) のタンデムバンデグラーフと理化学研究所 (RIKEN) の重イオン線形加速器 RILAC が加わった。

SHE 合成のための核反応には、加速重イオンビームとターゲットのいろいろ

の組合せが使われるが、これまでのところ ^{238}U , $^{242,244}\text{Pu}$, ^{248}Cm などのアクチニドと ^{12}C , ^{22}Ne , ^{48}Ca など軽元素イオンを組み合わせる“熱い核融合 (hot fusion)”, あるいは中性子マジックの ^{208}Pb や ^{209}Bi と中性子過剰の $^{48}\text{Ca} \sim ^{86}\text{Kr}$ とを組み合わせた“冷たい核融合 (cold fusion)” が成功している。 ^{238}U と ^{238}U のような対称的組合せでは SHE 合成に至っていない。SHE の生成率 (反応断面積) はきわめて小さいのでイオンビームの強度が高く、かつ長時間にわたり安定性の良い加速器が必要である。さらに、物理的に安定なターゲットの調製に加えて、反応生成物を迅速に分離する装置と高感度検出器との一体化が不可欠であり、研究の成否はこれらの進捗にかかっている。実際、1961年のアクチノイドの最後の元素 Lr の合成から Rf の合成・確認までに8年、1970年の Db から Sg (1974) の合成まで4年、冷たい核融合による Bh (1981), Hs (1981) および Mt (1984) の合成までさらに10年、Ds (1994) と Rg (1995) の合成には次の10年を要した。それから10年余を経た現在までに、再び熱い核融合で [112] (1996), [113] (2004), [114] (1999), [115] (2004), [116] (2000, 2001) および [118] (2006) が合成され、確認検証を待っている。

合成が難しい理由の1つは、融合反応が熱いか冷たいかにもよるが、反応断面積が生成核の Z の増加とともに指数関数的に減少することにある。ノーベリウム合成のマイクロバーン (μb) から [112] 合成ではピコバーン (pb) となり、2003～04年の森田浩介らによる $^{209}\text{Bi}(^{70}\text{Zn},n)^{278}$ [113] では55フェムトバーン (fb) [世界最低値記録] にまで低下している。ピコバーンレベルでは、今の技術で1ヶ月照射して1原子をつくれる程度である。新元素発見にかかる核種の寿

命はミリ秒レベルで、その α 壊変系列が既知核に到達するまで位置検出器の同じ場所で追跡確認する(α - α 相関)必要がある。自発核分裂には一群の飛跡検出器やシンチレーターも使われる。このような経過の中で、 $Z = 108$ と $N = 162$ がマジック数であると考えられるようになり、 $^{270}_{108}\text{Hs}$ ($T_{1/2} = 3.6$ s) が二重マジックで比較的安定化する長寿命核であることが最近の実験で検証され(J. Dvorak 他, *Phys. Rev. Lett.*, **97**, 242501, 2006), Z が 110 (あるいは 120) で $N = 184$ の核種にも長寿命が期待されている。

一方、既発見核種でも、中性子数がこのようなマジック数に近づくと期待した安定性が見られ、 ^{265}Sg や ^{266}Sg のように半減期が 10 ~ 20 秒になると化学的性質の研究が十分可能になる。これまで、ハロゲン化物の沈着温度を調べる熱クロマトグラフと保持時間を測定する等温ガスクロマトグラフを用いる気相化学、あるいはミニカラムによるイオン交換や溶媒抽出挙動を調べる溶液化学が行われてきた。熱クロマトグラフとしては、FLNR のズバラ (I. Zvara) による逆温度勾配のカラム、PSI のゲゲラー (H.W. Gaeggeler) らによる温度可変等温システム OLGA (On-Line Gas Chromatography Apparatus) と改良を重ねた OLGA-II, -III がある。II の改良型には LBNL の HEVI (Heavy Element Volatility Instruments) があり、ドイツ・ロッセンドルフ研究センターでは I の改良型である HITGAS (High-Temperature Online Gas Chromatography Apparatus) が製作された。LBNL では CTS (Cryo Thermochromatography Separator) が HsO_4 の生成実験に使われている。溶液化学には、手動あるいはマイクロプロセッサ付のイオン交換や液-液抽出が行われる。手動では 10 μL 量で 1 分間の操

作を繰り返すが、1 時間に数原子の生成速度をもつ Rf と Db が対象となり、1 週間に数個の Sg や Bh では実用的でない。自動化装置の例としては、ヨハネス・ゲーテンベルク大学および GSI の協同グループによる ARCA-I, -II (Automated Rapid Chemistry Apparatus) があり、特に II は Rf, Db および Sg のイオン交換ならびに溶媒抽出挙動の研究に活躍している。また、陰・陽イオン交換カラムを交互に複数並べて (multi-column technique, MCT), α 壊変の娘・孫核種の分配比 (K_d) を同時に測定し、かつ親娘相関を確認する方法も開発されている。JAEA では永目論一郎らが ARCA-II をさらに改良した AIDA (Automated Ion-Exchange Separation Apparatus coupled with the Detection System for Alpha Spectroscopy) を製作し、ラザホージウム化学の系統的研究に威力を発揮している。溶媒抽出には、SISAK (Short-lived Isotopes Studied by AKUFVE-technique, AKUFVE は抽出分配比の連続測定を意味するスウェーデン語の頭文字語) が工夫され、名前の通り半減期 1 秒の核種を捉えている。

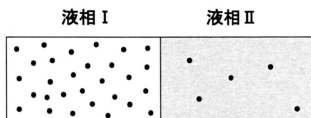
化学実験では、ターゲットから核反跳で飛び出した生成核を塩化カリウムなどに付着させ、エアロゾルとして He ガスの流れに乗せて化学実験室に運び、気相あるいは溶液化学を行い、手動あるいは自動で放射線測定系に導く。短寿命(ミリ秒)の新元素(核種)の探索には、核反跳でターゲットの前方に飛び出した生成核を数マイクロ秒内に直接検出器に導く。生成反跳核は、圧倒的に多い目的反応以外の生成核とターゲットを通過するビームイオンが混在するため、それらの質量、速度(エネルギー)およびイオン電荷の違いを利用して巧妙な電磁気的方法で分離しながら 10 メートルほど先にある低バックグラウンド検出器に

打込む(速度フィルター型およびエネルギーフィルター型). ターゲット前方の双極子磁場内で気体(1 mbar程度のHe)との衝突を繰り返し起こさせ, 反跳原子の電荷を揃える方式(気体充填型)もある. 目的核は α 壊変, EC壊変あるいは自発核分裂(SF)を行うので, 計測には細分画したSi検出器とGe検出器などを使用し, 検出器の直前に飛行時間(TOF)測定器を置く. 成功実績の高いこの種の装置として, GSIが開発した速度フィルター型のSHIP (Separator for Heavy-Ion Reaction Products; G. Münzenbergら1979; S. Hofmannら1995)とJINRが開発したエネルギーフィルター型のVASILISSA (ロシアのおとぎ話に出てくる人物)がある. 気体充填型装置としてはJINRのDGFRS (Dubna Gas-Filled Recoil Separator), LBNLのBGS (Berkeley Gas-filled Separator) およびRIKENのGARIS (Gas-filled Recoil Ion Separator)がある.

化学的性質を調べる実験では, いずれも同族元素および擬同族元素との類似性

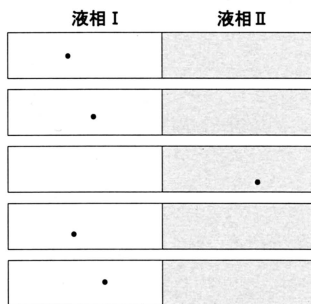
ならびに同族内での系統的变化の度合いが検討され, 周期表内での位置付けがなされてきた. 重元素領域では, s電子やp電子の軌道半径が相対論効果で小さくなり, 化学結合に関与するd電子やf電子の状態に変化を生じて軽い同族元素と化学的挙動の系統性が変わることが考えられ, 理論化学計算からもそのような興味深い結果が示されている. 現在のところ, Rfから[112]までは6d遷移元素であり, [113] ~ [118]では7p電子, [119] ~ [120]では8s電子の充填が考えられ, [121]は8p電子が基底状態で安定化すると考えられている. [122]では7d電子が入って, 4fのランタニド, 5fのアクチニドのように6f元素群として周期表の別枠となる[122] ~ [153]のスーパーアクチノイド群が期待される. ただし, [122]は $8s^2 7d 8p$ となり, Thの $7s^2 6d^2$ がCeの $4f^5 5d^1 6s^2$ とは異なるように, 違う電子配置となる可能性もある. 正確な相対論的理論計算はこの辺りまでで, $Z \geq 123$ では7d, 6f, 5g準位

従来の溶液化学での分配平衡の取り扱い
多数の物質の分配が対象:
例えば濃度 $10^{-3}M$
(1リットル当たり 6×10^{20} 個)
の金属イオン



$$\text{分配比} = \frac{\text{液相 I の金属イオンの濃度}}{\text{液相 II の金属イオンの濃度}}$$

シングルアトム化学での分配平衡の取り扱い
1個の物質の分配が対象:
例えば核反応で生成する
1個の金属イオン



$$\text{分配比} = \frac{\text{液相 I に金属イオンが存在する確率}}{\text{液相 II に金属イオンが存在する確率}}$$

シングルアトム化学での二液相間分配平衡の考え方

とさらに $9s$, $9p_{1/2}$, $8p_{3/2}$ などの準位はエネルギー的にさらに接近して、単純な電子配置に基づく分類は成り立たなくなる可能性がある。これまでのところ、気相化学では Rf, Db, Sg, Bh, Hs および [112] が、溶液化学では Rf, Db および Sg の化学的性質が調べられているが、化学的性質を原子の集団運動として理解するためには、統計論的取扱いが可能になるまで“シングルアトム化学”を多数回繰り返してデータを蓄積する必要がある、結論を得るまでには多くの困難がともなう。より長寿命の同位体が発見されれば、これらの元素の化学的性質の詳細が遠からず明らかにされるであろう。

このような事情から、超アクチノイドの各項目では、今後内容が変更されたり、新事実が加わる可能性が高い(参考: S. Hofmann, “On Beyond Uranium, Journey to the end of the Periodic Table”, Taylor & Francis, London and NY, 2002; M. Schädel 編, “The Chemistry of Superheavy Elements”, Kluwer Academic Publ., Dordrecht/Boston/London, 2003)。

ラザホージウム rutherfordium (Rf)

原子番号 104 の人工放射性元素。1964 年、ロシア(当時ソ連)のドブナにある合同原子核研究所(JINR)のフレロフ(G.N. Flerov)のチームは、 $^{242}\text{Pu}(^{22}\text{Ne}, 5n)^{259}$ [104] (α , SF; $T_{1/2} = 3.1$ s) をつくったとして、JINR 生みの親であるクルチャトフ(I. Kurchatov)にちなんで Kurchatovium (Ku) と名付けた(G.N. Flerov 他, *Sov. J. At. Energy*, **17**, 1046, 1964; *Phys. Lett.*, **13**, 73, 1964)。1969 年、米国カリフォルニア大学ローレンスバークレー国立研究所 LBNL (当時 LBL) のギオルソ(A. Ghiorso)らは重イオン線形加速器 HILAC を用いて $^{249}\text{Cf}(^{12}\text{C}, 4n)^{257}$ [104] (α : $T_{1/2} = 4.7$ s) \rightarrow ^{253}No (α , EC; $T_{1/2} = 1.6$ min) と $^{249}\text{Cf}(^{13}\text{C}, 3n)^{259}$ [104] (α , SF; $T_{1/2} = 3.1$ s) \rightarrow ^{255}No (α : $T_{1/2} = 1.4$ s) で [104] 原子を 1,000 個をつくり、rutherfordium (Rf) と命名した(A. Ghiorso 他, *Phys. Rev. Lett.*, **22**, 1317, 1969)。1997 年に国際純正応用化学連合(IUPAC)が“Rf”と決定するまで、ソ連では Ku と呼び、米国では Rf が使われた。Rf の同位体として現在、 $^{253}\text{Rf} \sim ^{263}\text{Rf}$ および ^{267}Rf が知られている。 ^{267}Rf (SF, $T_{1/2} = 2.3$ h) が最長寿命であるが、 283 [112], 287 [114] および 291 [116] の α 壊変系列の終端として知られている核種であり収率は低い。 ^{263}Rf (SF, α : $T_{1/2} = 11$ min) がこれに次ぐが、 ^{262}Rf (SF; $T_{1/2} = 2.1$ s) とともに SF 核種である。 ^{261}Rf (α : $T_{1/2} = 78$ s) はこれまで Rf の化学に使われてきたが、これは $^{248}\text{Cm}(^{18}\text{O}, 5n)$ 反応(断面積 $\sigma = 10$ nb) でつくられる。

ラザホージウムは、超アクチノイドの最初の元素、すなわち新たに 6d 遷移のはじまりとして Zr や Hf と同じ 4 族に属し、互いの類似性(同族性)が化学的にも証明された点で重要である(R.J. Silva 他, *Inorg. Nucl. Chem. Lett.*, **6**, 871, 1970)。Rf は、電子配置が $[\text{Rn}]5f^{14}6d^2 7s^2$

の d 元素というよりも $[Rn]5f^47s^27p^2$ あるいは $[Rn]5f^46d7s^27p$ の p 元素という計算があった。当初 (1966 年), ロシアのグループのズバラ (I. Zvara) らは, ^{259}Rf (Ku) 発見時から逆温度勾配のカラムでハロゲン化物の沈着温度を調べた (I. Zvara 他, *Sov. J. At. Energy*, **21**, 709, 1966; *Inorg. Nucl. Chem. Lett.*, **7**, 1109, 1971). 1996 年にバークレーのグループのカドコダヤーン (B. Kadkhodayan) らは, ^{261}Rf を使い OLGA や HEVI を用いて研究し, 塩化物と臭化物の揮発性から吸着エンタルピーを求めた (B. Kadkhodayan 他, *Radiochim. Acta*, **72**, 169, 1996). また, シルバラは陽イオン交換法を用いて, Rf の α -ヒドロキシイソ酪酸との錯形成能を 4 族の Hf や Zr と, またランタノイドの Tm ならびにアクチノイドの Cf および Cm と比較した。液-液抽出では, LBNL, GSI および PSI で TIOA/HCl, HF, TTA/HCl, TBP/HCl ならびに HBr 系での Rf と Zr, Hf, Th, Pu あるいは Ti との抽出率や加水分解度の比較がなされ, Rf の 4 族性とその中で Zr と Hf のどちらに近いかなどが調べられてきた。イオン交換法では, 陽-陰-陽イオン交換カラムを連続して通過させる方法で分配比 (K_d) や HF/HNO₃ 濃度の影響が調べられた (G. Pfrepper 他, 1997, 1998; E. Strub 他, 2000, A. Kronenberg, 2001). より明瞭な結果が最近, 永目諭一郎らの国際チームによって報告された (H. Haba 他, *J. Am. Chem. Soc.*, **126**, 5219, 2004). 原子力研究開発機構 (JAEA) のタンデム加速器を用いて ^{261}Rf をつくり, 自動イオン交換装置 AIDA を使って HCl 系と HF 系およびこれらの HNO₃ 混合系での陰イオン交換挙動を系統的に調べたものである。HCl 系では Rf, Hf および Zr の化学挙動が互いに類似することから Rf は 4 族元素と考えてよいが, HF 系では

Rf のフッ化物形成能が同族の Hf および Zr とは異なり, Rf における相対論効果によるのではないかと述べている。

ドブニウム dubnium (Db)

原子番号 105 の人工放射性元素。1967 年、ロシア(当時ソ連)のドブナにある合同原子核研究所(JINR)のフレロフ(G.N. Flerov)らは、 $^{243}\text{Am}(^{22}\text{Ne}, 5-6\text{n})^{260,261}$ [105] ($T_{1/2} = 1.5$ s と 1.8 s) による 105 番元素の発見を報告し、元素名としてデンマークの物理学者で原子構造の近代的説明に成功したボーア(N.H.D. Bohr, 1885-1962)に因んでニールスボーリウム(Ns)を提唱した(JINR, Dubna, Preprint, P7-3617, 1967; 同誌, P7-3808, 1968)。これに対して 1970 年、米カリフォルニア大学ローレンス放射線研究所(現 LBNL)のギオルソ(A. Ghiorso)らは重イオン線形加速器 HILAC を使って $^{249}\text{Cf}(^{15}\text{N}, 4\text{n})^{260}$ [105] で半減期が 1.5 秒の 105 番元素の同位体をつくり、核分裂を発見したハーン(O. Hahn, 1879-1968)に因んでハーニウム(Ha)と命名した(A. Ghiorso 他, *Phys. Rev. Lett.*, **24**, 1498, 1970)。同じ頃、ヅルイン(V.A. Druin)らは $^{243}\text{Am}(^{22}\text{Ne}, 4-5\text{n})^{260,261}$ [105] からの親娘対を報告した(*Yad. Fiz.*, **13**, 251, 1971)。1997 年までは両方の名称が使われたが、最終的には、ロシア側の発見場所に敬意を表してドブニウムとなり、ニールスボーリウムはボーリウム(Bh)として 107 番元素の名称になった。

ドブニウムの同位体として 2006 年 8 月現在、 ^{256}Db (α , EC; $T_{1/2} = 1.6$ s), $^{257\text{m,g}}\text{Db}$ (α , SF; $T_{1/2}^{\text{m}} \sim 0.76$ s, $T_{1/2}^{\text{g}} = 1.5$ s), ^{258}Db (α , EC; $T_{1/2} = 4.3$ s), ^{259}Db (α ; $T_{1/2} = 0.51$ s), ^{260}Db (α , SF?: $T_{1/2} = 1.5$ s), ^{261}Db (α , SF; $T_{1/2} = 1.8$ s), ^{262}Db ($E_{\alpha} = 8.45$ MeV, SF 33 % : $T_{1/2} = 34 \pm 5$ s), ^{263}Db (α , SF; $T_{1/2} = 27$ s), ^{267}Db (SF; $T_{1/2} = 73$ min) および ^{268}Db (SF; $T_{1/2} = 32$ h) が知られている。重い方の長寿命核種 ^{267}Db は 287 [115] の α 壊変終端として見出されている(Yu.Ts. Oganessian 他, *Phys. Rev.*, **C69**, 021601R, 2004)。

化学的性質の研究は、初期には $^{243}\text{Am}(^{22}\text{Ne}, 4\text{n})^{261}\text{Db}$ でつくられる ^{261}Db が塩化物と臭化物の気相化学に使われ、同族の Nb (14.6 h- ^{90}Nb) と 4 族の Hf (3.3 min- ^{169}Hf) との比較で Db は Hf に近いとみられた(I. Zvara 他, JINR, Dubna, Report P12-5120, 1970, *Sov. Radiochem.*, **18**, 371, 1976)。その後 $^{249}\text{Bk}(^{18}\text{O}, 5\text{n})$ 反応により生成する ^{262}Db [α 分岐は ^{258}Lr ($T_{1/2} = 3.9$ s) を経て ^{254}Md ($T_{1/2} = 28$ min) に至る] と ^{263}Db が気相・液相化学実験に使われてきた。Db の基底状態の電子配置は $[\text{Rn}]5f^{14}6d^37s^2$ と期待され、周期表では 5 族の Ta の下(第 7 周期)に位置する。ハロゲン(X)化合物は DbX_5 となるが、微量の O_2 や H_2O が存在すると揮発性の低い DbOX_3 のオキシハロゲン化物になりやすい。このため、 DbX_5 の等温ガスクロマトグラフでの Db, Ta および Nb のハロゲン化物の挙動の相互比較は難しい(M. Schädel, 2003)。5 族元素が濃硝酸中でガラスに吸着することから、ガラス板上に集めた ^{262}Db を初めに 3 μL の 15 M HNO_3 で、続いて 7 μL で洗うシングルアトム化学実験を 801 回繰り返して ^{262}Db をガラス板状に認めたが、Po (ターゲットの不純物の Pb から生成) と Fm の除染が不十分で結論は先送りとなった(K.E. Gregorich 他, *Radiochim. Acta*, **43**, 223, 1988)。彼らはまた、Ta は 3.8 M HNO_3 -1.1 M HF 溶液からメチルイソブチルケトン(MIBK)へ定量的に抽出されるのに対し Nb の抽出率は低いことに着目し、Db の抽出実験を 335 回行った。ところが Db は抽出されず、 DbF_7^{2-} の形成が示唆された。

同じ頃、マインツ大学のクラッツ(J.V. Kratz)らは、自動迅速化学装置 ARCA II を LBNL に持ち込み、88 インチーサイクロトロンでつくった ^{262}Db のトリイソオクチルアミン(TIOA)樹脂による逆相

クロマトグラフィーを行った。Nb, Ta および Pa が (12 M HCl + 0.02 M HF) あるいは 10 M HCl 溶液から TIOA 相に抽出されアセトンに溶解することから、先ず Zr, Nb, Hf, Ta, Pa と希土類元素のオンラインレーザー実験で Nb, Ta および Pa が $85 \pm 5\%$ 抽出されることを確かめた上で、 ^{262}Db について 4 回シリーズのシングルアトム化学実験を計 1500 回以上行ったところ、Db の抽出率は Nb, Ta, Db の順とはならず、Db のハロゲン化強度が Nb と Pa の中間にあり Pa に近いことが分かった (J.V. Kratz 他, *Radiochim. Acta*, **48**, 121, 1989)。ところが、同じ研究グループによる Db のジイソブチルカルビノール (DIBC) への抽出では $\text{Db} < \text{Nb} < \text{Pa}$ の順となり、TIOA でみられた Db と Pa の類似性は一般的でない結論された (M.K. Gober 他, *Radiochim. Acta*, **57**, 77, 1992)。さらに彼らは、5 族元素について新しい相対論的理論計算 (V. Pershina, 1998-1999) を基に、HF, HCl および HBr 系でのアミン抽出 (4 級アミン Aliquat 336) を ARCA-II を使って再度調べた。930 回の実験の結果、抽出の分配比 (K_d) の値は 6 M HCl 系で $\text{Pa} \gg \text{Nb} \geq \text{Db} > \text{Ta}$ の順となり、理論計算に一致した。377 回の HF 系の実験でも Db の K_d 値は Nb と Ta の K_d 値に近いが Pa のそれとは全く異なることが分かった (W. Paulus 他, *J. Alloys Comp.*, **271**, 292, 1998, *Radiochim. Acta*, **80**, 69, 1999)。ARCA-II を使った陽イオン交換では、5 族元素の α -ヒドロキシイソ酪酸 (α -HIB) へのキレート化能 (5 価の Nb, Ta, Pa は大きく、4, 3 価の金属イオンは小さい) を調べる実験で、Db は確かに 5 価、つまり 5 族に属することが示された (M. Schädel 他, *Radiochim. Acta*, **57**, 85, 1992)。

ちなみに、この実験では ^{18}O ビームエネルギーを 99 MeV から 93 MeV に下

げて $^{249}\text{Bk}(^{18}\text{O}, 4n)$ 反応で生成する ^{263}Db の分離を 374 回行った。生成断面積は (10 ± 6) nb, 半減期は 27^{+10}_{-7} 秒, SF 分岐比は $57^{+13}_{-15}\%$ で、8.45 MeV の α 線を放出して娘核 ^{259}Lr (α , SF: $T_{1/2} = 6.2$ s) に壊変することを確認し、 ^{262}Db および ^{263}Db とともに化学的性質の研究に使用できることが分かった。99 MeV の ^{18}O 照射での ^{262}Db と ^{263}Db の生成断面積はそれぞれ $6(\pm 3)$ nb および $2(\pm 1)$ nb であった (J.V. Kratz 他, *Phys. Rev.*, **C45**, 1064, 1992)。

シーボーギウム seaborgium (Sg)

原子番号 106 の人工放射性元素。1974 年 6 月、フレロフ (G.N. Flerov), オガネシアン (Yu.Ts. Oganessian) らのロシア・ドブナの合同原子核研究所 (JINR) グループは、最初の“冷たい核融合 (cold fusion)” 反応として $^{207,208}\text{Pb}(^{54}\text{Cr},1-2n)^{259,260,261}[106]$ を選び、 $^{259,260}[106]$ が自発核分裂 (SF) で壊変することを発見した (*JETP Lett.*, **20**, 265, 1974). 同じ頃、ギオルソ (A. Ghiorso) ら米国のローレンス・バークレー放射線研究所 (LBL) のグループは、完成したばかりの重イオン線形加速器 (改良 HILAC; Super HILAC) からの ^{18}O ビームで ^{249}Cf を照射し、 $^{263}[106]$ (α : $T_{1/2} = 0.9$ s) \rightarrow $^{259}[104]$ (既知核, α : $T_{1/2} = 3$ s) \rightarrow ^{255}No (α : $T_{1/2} = 3.1$ min) の過程を α - α 親娘相関で調べて $Z = [106]$ を確認した (*Phys. Rev. Lett.*, **33**, 1490, 1974). 両グループは互いに自分達の結果に自信があったが、再確認まで命名を保留した。10 年後に、ドイツ・ダルムシュタットの重イオン研究所 (GSI) のミュンツェンベルグ (G. Münzenberg) らが $^{260}[106]$ は 50% SF, 50% α の分岐壊変をすることを、さらに 10 年後 1994 年には、ドブナグループの最初の発見は $^{260}[106]$ (α : $T_{1/2} = 4$ ms) の娘核種 $^{256}[104]$ の SF ($T_{1/2} = 6.5$ ms) を見ていたことを報告した。さらに、バークレーの 88 インチサイクロトロンでの $^{263}[106]$ 合成の追試実験で、照射 1 時間あたり 1 原子の生成を確認した (K.E. Gregorich 他, *Phys. Rev. Lett.*, **72**, 1423, 1994). ドブナの U-400 サイクロトロンに付設したガス入り分離器 (GNS) を使って見出した $^{248}\text{Cm}(^{22}\text{Ne},4-5n)$ によって生成する $^{265}[106]$ と $^{266}[106]$ については化学研究ができる 10 ~ 20 秒の半減期が予想された [Yu.A. Lazarev 他, *Phys. Rev. Lett.*, **73**, 624, 1994; 現在値は 7 秒と 21 秒; $^{265}[106]$ は α 壊変が 3 代続き, $^{266}[106]$

は娘核の ^{262m}Rf ($T_{1/2} = 47$ ms) と ^{262g}Rf ($T_{1/2} = 2.3$ s) が SF]. これらの結果を踏まえて 1994 年、ギオルソらはこの新元素に超ウラン元素の発見でノーベル賞を受けたシーボーグ (G.T. Seaborg) にちなんで seaborgium (Sg) の名称を付すことを提案した。この提案は、共同発見者の一人であるヒューレット (K. Hulet) の米国化学会 (ACS) 核化学賞受賞講演の中で公表された。国際純正応用化学連合 (IUPAC) は当初、存命者の名前を使うことは不適として認めなかったが、1997 年に正式にこれを承認した。この決定を聞いてシーボーグは、ノーベル賞受賞以上の栄誉と大変喜んだそうである。

シーボーギウムの同位体として、 $^{258}\text{Sg} \sim ^{266}\text{Sg}$ および ^{271}Sg が知られている。1974 年以來 20 年余、 ^{263}Sg (α , SF: $T_{1/2} = 0.9$ s) が最長寿命核種であったが、現在 (2006 年末) では $^{248}\text{Cm}(^{22}\text{Ne},5n)$ 反応で生成する ^{265}Sg (α , SF: $T_{1/2} = 7.4$ s) や $^{291}[116]$, $^{287}[114]$ および $^{283}[112]$ の壊変系列で生成する ^{271}Sg (α , SF: $T_{1/2} = 2.4$ min) などが長寿命核種として知られている (中性子過剰核ほど長寿命)。ただし、親核の生成断面積は低い (Yu.Ts. Oganessian 他, *Phys. Rev.*, **C70**, 064609, 2004; 同誌, **C72**, 034611, 2005)。

シーボーギウムは、6 族 (Cr, Mo, W) の第 7 周期に位置する。6 族元素の金属は融点と沸点がともに高く、重くなるほど高い (W)。酸化状態の多様性を含めて Mo と W の化学的性質は近いが Cr との類似性は低い。6 価の W と Mo のハロゲン化物 [MX_6 ($M = \text{Mo}, \text{W}$; $X = \text{F}, \text{Cl}$)], オキシハロゲン化物 (MOX_4 , MO_2X_2), 水酸化物 [$\text{MO}_2(\text{OH})_2$] あるいはカルボニル錯体 [$\text{M}(\text{CO})_6$] が揮発性であることから、Sg のガスクロマトグラフによる研究に期待が寄せられた。1990 年代のはじめに、ドブナグループは Rf

と Db の化学的同定に用いたものと同じ熱クロマトグラフ装置を使って研究を進め、石英管の 150 ~ 250 °C の位置に残った 41 個の核分裂飛跡は $^{263}\text{SgOCl}_2$ の沈着によると結論した。同時に用いた ^{176}W (EC, γ : $T_{1/2} = 2.5$ h) はより低温部に沈着し、その化学形は WO_2Cl_2 よりも揮発性の WOCl_4 であるとした (S.N. Timokhin 他, *J. Radioanal. Nucl. Chem. Lett.*, **212**, 31, 1996; A.B. Yakushev 他, 同誌, **205**, 63, 1996)。1995 ~ 96 年, 米国, ドイツおよびスイスの国際チームはスイスのポールシェラー研究所 (PSI) の温度可変等温システム OLGA を使って ^{265}Sg , ^{266}Sg , ^{168}W (EC, γ : $T_{1/2} = 52$ s) および ^{104}Mo (β^- , γ : $T_{1/2} = 1.00$ min) を SOCl_2 で飽和した Cl_2 と 1,000 °C で反応させて昇化エンタルピーを比較した。測定結果は $-\Delta H_s^\circ (^{265}\text{SgO}_2\text{Cl}_2) = 98^{+2}_{-5}$ kJ/mol, $-\Delta H_s^\circ (^{168}\text{WO}_2\text{Cl}_2) = 96 \pm 1$ kJ/mol および $-\Delta H_s^\circ (^{104}\text{MoO}_2\text{Cl}_2) = 90 \pm 3$ kJ/mol となり, Sg の揮発性は周期表中でもっとも低いと結論した (M. Schädel 他, *Nature*, **388**, 55, 1997; A. Türler 他, *Angew. Chem. Int. Ed.*, **38**, 2212, 1999)。

1992 年, ブルツシュレ (W. Bröchle) らドイツの重イオン研究所 (GSI) とマインツ大学およびスイスの PSI グループは, 先ず擬同族体である U, 6 族元素の Mo と W ならびに ^{93}Y , ^{97}Y および ^{99}Mo から成る混合物の 5×10^{-2} M α -ヒドロキシイソ酪酸 (α -HIB) 溶液を使って, ARCA-II の陽イオン交換カラムからの溶離や, HCl (0.1 M)- HF (10^{-4} - 10^{-2} M) 溶液による溶離挙動を調べた後, GSI で ^{265}Sg をつくり溶離実験を行った。その結果, Sg は 6 族に典型的な挙動をとり, 陽イオン交換樹脂吸着性の α -HIB- UO_2^{2+} とは異なる挙動をとることが分かった。W と Sg については $\text{MO}_2\text{F}_3(\text{H}_2\text{O})^-$ あるいは中性の $\text{MO}_2\text{F}_2(\text{H}_2\text{O})_2$ の化学形が考えられる

が, Mo や W と同様に SgO_4^{2-} の化学形をとる可能性も残った。0.1 M HNO_3 系でも同様の実験を行い ^{169}W ($T_{1/2} = 76$ s) の挙動と比較したが, Sg はフッ化物イオン (F^-) なしでは陽イオン交換樹脂に吸着されたままで, 溶離しなかった。これは加水分解の程度が $\text{Mo} > \text{W} > \text{Sg}$ の順であることを示している (M. Schädel らの独, 米, 日共同研究; *Radiochim. Acta*, **77**, 149, 1997)。この実験結果は, ペルシナ (V. Pershina) とクラッツ (J.V. Kratz) による相対論的計算 (Mo, W, Sg の水および加水分解生成物の電子構造; *Inorg. Chem.*, **40**, 776, 2002) の結果とも一致した。GSI では, ARCA II に陽-陰-陽イオン交換カラムを交互に組み合わせる多重カラム法 (MCT) を採用し, α 壊変の娘および孫核種の吸着挙動 (分配比 K_d の測定) と合わせて Sg の化学的性質の研究が進められている (G. Pfrepper 他, *Radiochim. Acta*, **88**, 273, 2002)。

ボーリウム bohrium (Bh)

原子番号 107 の人工放射性元素。ドイツ・ダルムシュタットにある重イオン研究所 (GSI) のミュンツェンベルク (G. Münzenberg) らは 1979 年、高感度の重イオン反応生成分離装置 SHIP の開発に成功し、1981 から 1984 年にかけて線形加速器 UNILAC に付設し、冷たい融合反応を使って原子番号 107 ~ 109 の新元素合成に成功した。1982 年 2 月、 $^{209}\text{Bi}(^{54}\text{Cr},n)^{262}\text{Bh}$ (α : $T_{1/2} = 165$ ms と核異性体 6.9 ms) \rightarrow ^{258}Db (α , EC: $T_{1/2} = 121$ ms) \rightarrow ^{254}Lr \rightarrow ^{250}Md (α : $T_{1/2} < 219$ s) \rightarrow ^{246}Es (α : $T_{1/2} = 7.7$ min) \rightarrow の既知子孫核種を含む壊変系列を 5 回観測した (^{254}Lr の α 粒子は検出できず、 ^{250}Md の半減期の上限 219 秒は ^{254}Lr 分を含む; G. Münzenberg 他, *Z. Phys.*, **A300**, 107, 1981)。次いで 1985 年 3 月に 6 日間と 1987 年 8 月に 11 日間、 ^{54}Cr のビームエネルギーを上げて $^{209}\text{Bi}(^{54}\text{Cr},2n)^{261}\text{Bh}$ (α : $T_{1/2} = 11.8$ ms) の α 壊変系列 9 例を観測した (G. Münzenberg 他, *Z. Phys.*, **A333**, 163, 1989)。同じ反応系については、ロシア・ドブナ JINR のオガネシアン (Yu.Ts. Oganessian) らが 1976 年に核分裂飛跡検出器を用いて $^{261}[107]$ ($T_{1/2} = 1 - 2$ ms) とその娘の $^{257}[105]$ ($T_{1/2} = 5$ s) の自発核分裂 (SF) を報告していた (Yu.Ts. Oganessian 他, *Nucl. Phys.*, **A273**, 505, 1976) もの、奇核の系統性からみて十分な理解が得られていなかった。ホフマン (S. Hofmann) らは $^{262}[107]$ について壊変系列を都合 29 例観測した。そのうち 14 例は半減期が 8.2 ミリ秒 (基底状態) で、15 例は 106 ミリ秒 (準安定状態) であり、基底状態の生成断面積は 99 pb であった。 $^{262}[107]$ はさらに、1982 年 2 月と 1997 年 2 月の $^{266}_{109}\text{Mt}$ (α : $T_{1/2} = 1.7$ ms) 発見時にその娘核として (S. Hofmann 他, *Z. Phys.*, **A350**, 281, 1995; *Eur. Phys. J.*, **A14**, 147, 2002), また $^{264}[107]$ (α ,

SF: $T_{1/2} = 1.0$ s) は 1994 年 12 月と 2000 年 10 月の $^{272}_{111}\text{Rg}$ (α : $T_{1/2} = 1.8$ ms) 発見時に孫娘核として発見された (S. Hofmann 他, *Z. Phys.*, **A358**, 377, 1997)。別の同位体の ^{266}Bh (α : $T_{1/2} = 1$ s) と ^{267}Bh (α : $T_{1/2} = 17$ s) は、1999 年にスイス PSI および米国 LBL の合同チームによる熱い融合反応 $^{249}\text{Bk}(^{22}\text{Ne},4-5n)$ 反応でつくられた (R. Eichler 他, *Nature*, **407**, 63, 2000)。さらに、 ^{271}Bh (α : $T_{1/2} = 2.4$ min) と ^{272}Bh (α : $T_{1/2} = 10$ s) もそれぞれ $^{287}[115]$ と $^{288}[115]$ の壊変系列核種として知られている。

107 番元素の命名については、1985 年に国際純正応用化学連合 (IUPAC) と国際純正応用物理学連合 (IUPAP) の共同ワーキンググループが、104 ~ 107 番元素の命名権の再検討を行った評価 (1992) の中で、GSI が信頼度の高い報告を行ったので発見者の栄誉を担うべきだが、JINR はおそらく第 1 発見者であろうと述べた。それを受けて両グループが協議し、“ニールスボーリウム”を提案した。しかし、人名由来の元素名は姓によるとして bohrium (Bh) とすることになり、1997 年に IUPAC がこれを承認した。

ボーリウムの化学的性質の研究には、上記の $^{249}\text{Bk}(^{22}\text{Ne},4-5n)$ 反応により生成する ^{266}Bh と ^{267}Bh あるいは $^{254}\text{Es} + ^{16}\text{O}$ 反応により生成する ^{265}Bh と ^{266}Bh (^{265}Bh は α : $T_{1/2} = 0.94$ s) が用いられる。7 族元素は、6 族元素とともに多様な酸化状態をとり、同一周期で比較すると 3d 軌道が半分充填された電子配置をとる 7 族の Mn の安定性が高く、6 族の Cr や 8 族の Fe より揮発性が高い。しかし同族元素同士で比較すると、Mn は +2 の酸化状態が安定で +4 と +7 の状態では酸化剤となる。これに対して、Tc と Re は互いに似ており、高い酸化状態が安定である (ランタニド収縮の影響)。この傾向なら

びに Tc と Re の既知の性質から, Bh は酸化物 (M_2O_7), 過金属酸 (HMO_4), オキシハロゲン化物 (MOX_3, MOX_4, MO_3X) などが化学分離と同定に適していると考えられる. しかし, ドブナのズバラ (I. Zvara) らによる 600 Pa の湿空気を用いた 800 ~ 20°C での熱クロマトグラフ実験 (1984) と GSI のシェーデル (M. Schädel) らによる, 100 ppm 以下の水を含むヘリウムガス ($He + 20\% O_2$) を用いた 1,050 ~ 500°C での実験では Bh の同定に至らなかった.

気相化学分離の最初の成功は, 1999 年, アイヒラー (R. Eichler) らによる等温クロマトグラフ OLGA III を用いたオキシ塩化物系の実験であった. PSI の Philips サイクロトロンで ^{249}Bk と ^{159}Tb を ^{22}Ne で照射し, 生成した ^{267}Bh ($T_{1/2} = 17$ s) と ^{176}Re ($T_{1/2} = 5.3$ min) を同時に ORGA III の ($HCl-O_2$) 反応系に送り, ^{267}Bh の α 壊変系列を 180°C で 4 事象, 150°C で 2 事象を観測した. BhO_3Cl は 75°C で高収率を与える $^{169}ReO_3Cl$ より揮発性が低く, 同族元素間の揮発性は $Tc > Re > Bh$ の順になることを明らかにした (R. Eichler 他, 上掲 *Nature* 誌). なお, MO_3Cl ($M = Tc, Re, Bh$) の吸着エンタルピー ($-\Delta H_{ad}^\circ$) は, それぞれ 51 ± 3 kJ/mol, 61 ± 3 kJ/mol および 75^{+6}_{-9} kJ/mol となり, ペルシーナ (V. Pershina) らの完全相対論的密度関数に基づく計算 (*J. Chem. Phys.*, **113**, 1441, 2002) とよく一致した. 溶液化学については, バーケレーのグループにより SISAK を使う液-液抽出が提案されている.

ハッシウム hassium (Hs)

原子番号 108 の人工放射性元素. 1984 年 3 月, ドイツ・ダルムシュタットにある重イオン研究所 (GSI) のミュンツェンベルグ (G. Münzenberg) らのグループは, 重イオン線形加速器 UNILAC と速度選別器 SHIP を使った 10 日間の照射実験で $^{208}Pb(^{58}Fe,n)^{265}[108]$ (α : $T_{1/2} = 1.8$ ms) の 3 事象と $^{265}[108]$ の α 壊変で生成した ^{261}Sg と ^{257}Rf を観測した (G. Münzenberg 他, *Z. Phys.*, **A317**, 235, 1984). その後 (1986 年 4 ~ 5 月), $^{207}Pb(^{58}Fe,n)^{264}[108]$ (α , SF: $T_{1/2} = 76$ μ s) の α 壊変系列を 1 事象発見した. 1990 年代中頃にもさらに 1 事象見出し, 自発核分裂 (SF) の分岐比が 50% であることを確認した (S. Hofmann 他, *Z. Phys.*, **A350**, 277, 1995). この 108 番元素の名称として GSI グループは, ダルムシュタットがドイツ・ヘッセン州の前の州都であり, GSI 創立時 (1969 年) の研究者にヘッセン州の出身者が多かったことから, 当地の中世の地名 "Hassia" に因む hassium (Hs) を提案し, 1997 年に国際純正応用化学連合 (IUPAC) によって承認された. 日本の理化学研究所の森田浩介らは, 2002 年 7 月に理化学研究所の重イオン線形加速器 RILAC に付設したガス充填反跳イオン分離装置 GARIS の性能試験を目的とした実験で, $^{208}Pb(^{58}Fe,n)^{265}Hs$ (α : $T_{1/2} = 1.7$ ms) を 3 日間で 10 事象を観測し, GSI の結果を追認するとともに, 半減期が 0.8 ミリ秒の核異性体を発見した.

ハッシウムの同位体として, 2006 年末現在, ^{264}Hs , $^{265m,g}Hs$, ^{266}Hs , $^{267m,g}Hs$, ^{269}Hs , ^{270}Hs および ^{275}Hs が知られている. ^{266}Hs (α : $T_{1/2} = 2.3$ ms) は 2001 年に GSI で ^{270}Ds の娘核種として発見され, ^{267}Hs (α : $T_{1/2} = 59$ ms) と ^{269}Hs (α : $T_{1/2} = 10$ s) は, $^{271}_{110}Ds$ (α : $T_{1/2} = 56$ ms) と $^{277}[112]$ (α :

$T_{1/2} = 0.7$ ms) のそれぞれ娘および孫娘としてドイツとロシア合同チームによって発見された (S. Hofmann 他, *Z. Phys.*, **A354**, 229, 1996; *Rep. Prog. Phys.*, **61**, 639, 1998). それとは別に, ロシア・ドブナのグループは 1995 年, $^{238}\text{U}(^{34}\text{S}, 5n)$ 反応で ^{267}Hs の生成を確認した (Yu.A. Lazarev 他, *Phys. Rev. Lett.*, **75**, 1903, 1995). スイス・ポールシェラー研究所 (PSI) のチューラ (A. Tüler, 現ミュンヘン工科大学) らは 2001 年, GSI で $^{248}\text{Cm}(^{26}\text{Mg}, 4n)$ 反応によって ^{270}Hs を合成し, ^{262}Rf (SF: $T_{1/2} = 2.3$ s) と異性体 (SF: $T_{1/2} = 0.199$ s) に至る壊変系列を 2 事象見つけた. 彼らはさらに実験を進め, ^{270}Hs から ^{266}Sg (SF: $T_{1/2} = 444$ ms) に至る壊変系列を 4 事象見つけ, ^{270}Hs の半減期 (22 s), α 線のエネルギー (8.89 ± 0.04 MeV) および $^{248}\text{Cm}(^{26}\text{Mg}, 4n)^{270}\text{Hs}$ の反応断面積 (3 pb) を報告した (J. Dvorak 他, *Phys. Rev. Lett.*, **97**, 242501, 2006). $^{270}_{108}\text{Hs}_{162}$ は二重マジックの可能性があると注目されている (超アクチノイドの項参照). ^{275}Hs (α : $T_{1/2} = 0.19$ s) も熱い核融合 $^{238}\text{U} + ^{48}\text{Ca} \rightarrow ^{283}[112]$, $^{242}\text{Pa} + ^{48}\text{Ca} \rightarrow ^{287}[114]$ および $^{245}\text{Cm} + ^{48}\text{Ca} \rightarrow ^{291}[116]$ の壊変系列で確認されている.

化学的性質の研究に使える ^{269}Hs をつくる $^{208}\text{Pb}(^{70}\text{Zn}, n)^{277}[112] \rightarrow ^{273}_{110}\text{Ds} \rightarrow ^{269}\text{Hs}$ の核反応断面積は 1 pb, $^{248}\text{Cm}(^{26}\text{Mg}, 5n)$ 反応のそれは 7 pb と非常に小さい. それでも 2001 年 5 月, ドイツ, スイス, 米国, ロシアおよび中国の合同チームは GSI の UNILAC を用いて $^{248}\text{Cm}(^{26}\text{Mg}, 4-5n)$ 反応で ^{270}Hs と ^{269}Hs を合計 7 原子つくり, HsO_4 が OsO_4 と似た揮発性を示すことを見出した. 彼らの実験では, IVO (In-situ Volatilization and On-line Detection) を工夫し, HsO_4 の揮発性を低温ガスクロマトグラフィー (常温 $\sim -170^\circ\text{C}$) で調べ, HsO_4 と OsO_4 はそれぞれ -44°C お

よび -82°C で吸着することを見出した. 両者の吸着温度に差があるものの, この結果は HsO_4 の揮発性が OsO_4 と同様に高いことを示す. 彼らはまた, 検出器である窒化ケイ素表面への吸着エンタルピーを $\Delta H_{\text{ad}}^\circ(\text{HsO}_4) = -46$ kJ/mol および $\Delta H_{\text{ad}}^\circ(\text{OsO}_4) = -39$ kJ/mol と見積もり, Hs は 8 族元素であるとした (Ch.E. Dullmann 他, *J. Chem. Phys.*, **B106**, 6679, 2002; *Nature*, **418**, 859, 2002).

8 族元素では, Fe が $-2 \sim +6$ の酸化状態をとるのに対し, Ru は $+1$ を除く $-2 \sim +8$, Os は $-2 \sim +8$ の酸化状態をとり, Ru と Os の化学的性質はよく似ているが, Fe は異なる. Ru と Os は四酸化物 (MO_4) とハロゲン化物やオキシハロゲン化物が揮発性であり, Hs の気相化学でもこの点が着目される. また, 相対論的計算 (V. Pershina 他, *J. Chem. Phys.*, **115**, 792, 2001) も HsO_4 の非常に安定な揮発性を示している. 最近では, HsO_4 が水酸化ナトリウムと $\text{HsO}_4 + 2\text{NaOH} \rightarrow \text{Na}_2[\text{HsO}_4(\text{OH})_2]$ のように反応することも分かり, HsO_4 の形成がより確実なものになった. 米国のローレンス・バークレー国立研究所 (LBNL) では, 88 インチサイクロトロンに付設した OSCAR (On-line Separation and Condensation Apparatus; R.J. Dougan 他, 1987) を用いる実験が進められている. Hs (から [116] まで) は部分的に貴金属性が期待されていることから, 水溶液における電気化学的研究も遠からず行われるであろう.

マイトネリウム meitnerium (Mt)

原子番号 109 の人工放射性元素. 1982 年 8 月, ミュンツェンベルク (G. Münzenberg) らドイツ・ダルムシュタットの GSI のグループが, $^{209}\text{Bi}(^{58}\text{Fe}, n)^{266}[109](\alpha) \rightarrow ^{262}\text{Bh}(\alpha) \rightarrow ^{258}\text{Db}(\alpha) \rightarrow ^{254}\text{Lr}(\text{EC}) \rightarrow ^{254}\text{No}$ の α 壊変系列を 1 個観測した (G. Münzenberg 他, *Z. Phys.*, **A309**, 89, 1982; 同誌, **A315**, 145, 1984). さらに 1988 年 1~2 月の繰り返し実験で 2 つの α 系列を同定し (G. Münzenberg 他, *Z. Phys.*, **A330**, 435, 1988), この新元素の名称として 1938 年に核分裂の発見を導いた偉大な女性科学者マイトナー (L. Meitner) の功績を顕彰して meitnerium (Mt) を提唱した. この名称は 1997 年 8 月, 国際純正応用化学連合 (IUPAC) と国際純正応用物理学連合 (IUPAP) によって承認された. これに先立つ 1992 年 9 月 7 日, GSI においてドブナのオガネシアン (Yu. Ts. Oganessian) も出席して華々しい命名式典が開催された. さらに 1997 年 2 月, 12 回の α 系列を確認して半減期 (1.7 ms) と生成励起関数を得た (S. Hofmann 他, *Z. Phys.*, **A358**, 377, 1997). 1994 年 12 月と 2000 年 10 月には $^{272}[111]$ の α 系列中に新しく, より長寿命の ^{268}Mt ($T_{1/2} = 42$ ms) を 6 個観測した (S. Hofmann 他, *Eur. Phys. J.*, **A14**, 147, 2002; *Z. Phys.*, **A354**, 229, 1996).

マイトネリウムの同位体として, 2006 年 12 月現在, ^{266}Mt ($T_{1/2} = 1.7$ ms), ^{268}Mt ($T_{1/2} = 42$ ms), ^{270}Mt ($T_{1/2} = 5.0$ ms), ^{275}Mt ($T_{1/2} = 9.7$ ms) および ^{276}Mt (α : $T_{1/2} = 0.72$ s) が知られている. ^{270}Mt は $^{278}[113]$ の, ^{275}Mt は $^{283}[113]$ と $^{287}[115]$ の, ^{276}Mt は $^{287}[115]$ の壊変系列中に検出された. いずれの核種も化学的検証に使うには寿命が短過ぎる. Mt は, 原子番号からみて 9 族 (Co, Rh, Ir) に属するとされるが,

化学的性質を調べるためには中性子数ももう少し多い (半減期の長い) 同位体の探索が望まれる.

ダームスタチウム darmstadtium (Ds)

原子番号 110 の人工放射性元素。1994 年 11 月, ドイツ・ダルムシュタットの重イオン研究所 (GSI) の Hofmann (S. Hofmann) らは, 冷たい核融合 $^{208}\text{Pb}(^{62}\text{Ni},n)^{269}[\text{110}]$ にともなう α 壊変系列 $^{269}[\text{110}]$ ($\alpha: T_{1/2} = 393 \mu\text{s}$) \rightarrow ^{265}Hs ($\alpha: T_{1/2} = 583 \mu\text{s}$) \rightarrow ^{261}Sg ($\alpha: T_{1/2} = 72 \text{ms}$) \rightarrow ^{257}Rf ($\alpha: T_{1/2} = 779 \text{ms}$) \rightarrow $^{253}\text{No} \cdots$ のうち ^{261}Sg までを観測した $T_{1/2}$ は観測時点での数字。成功の鍵は, $^{208}\text{Pb}(^{50}\text{Ti},n)^{257}\text{Rf}$, $^{208}\text{Pb}(^{50}\text{Ti},2n)^{256}\text{Rf}$, $^{208}\text{Pb}(^{58}\text{Fe},n)^{265}\text{Hs}$ など ^{50}Ti と ^{58}Fe ビームにより ^{257}Rf や ^{265}Hs の合成反応の励起関数を測定し, これらと ^{54}Cr あるいは ^{62}Ni ビームによる実験結果と合わせて系統性を確立し, $^{269}[\text{110}]$ 生成の最適照射エネルギーが理論値 (5.02 MeV/u) より低い 4.96 MeV/u であることを予測したことにある。この [110] 元素発見の論文を大急ぎで提出し (11 月 11 日; S. Hofmann, *Z. Phys.*, **A350**, 277, 1995), 引き続き 12 日間の照射で同じ α 壊変系列を 3 回追跡して [その中の 2 回は ^{249}Fm ($\alpha: T_{1/2} = 2.6 \text{min}$) まで] 発見を確かなものとした。次いで $^{208}\text{Pb}(^{64}\text{Ni},n)^{271}[\text{110}]$ の α 壊変系列を 3.5 日の照射で 6 回, 次の 4.8 日で 1 回観測して, 2 つ目の同位体 $^{271}[\text{110}]$ を発見した (S. Hofmann, *Rep. Prog. Phys.*, **61**, 639, 1998)。ただし, もう一つの系列には人為的誤りが見つかった (S. Hofmann 他, *Eur. Phys. J.*, **A14**, 147, 2002)。

一方, 米国ローレンスバークレー研究所 (LBL) のギオルソ (A. Ghiorso) らは $^{209}\text{Bi}(^{59}\text{Co},n)^{267}[\text{110}]$ にともなう α 壊変系列を (*Phys. Rev.*, **C51**, R2293, 1995), ロシア・ドブナの JINR のラザレフ (Y.A. Lazarev) らは熱い核融合 $^{244}\text{Pu}(^{34}\text{S},5n)^{273}[\text{110}]$ にともなう α 壊変系列をほぼ同時に報告した (*Phys. Rev.*, **C54**, 620, 1996)。LBL の実験は 1991 年

8 ~ 12 月に行われたが論文受理は 1994 年 11 月 22 日であり, JINR の実験は 1994 年 9 ~ 12 月で GSI より早く始めたが論文受理は 1996 年 1 月 19 日であったため, 発見の優先権は GSI に与えられた。国際純正応用化学連合 (IUPAC) は 2003 年 8 月, GSI のある町名に因む darmstadtium (Ds) を元素名として承認した。ちなみに, 理化学研究所の森田浩介らは, 2003 年に正味 40 日かけて $^{208}\text{Pb}(^{64}\text{Ni},n)^{271}\text{Ds}$ の α 壊変系列を 14 事象 (GSI は 7 事象) 観測して半減期や壊変エネルギーの精度を上げ, 核異性体の存在を確認した (K. Morita 他, *Eur. Phys. J.*, **A21**, 257, 2004)。2001 年には ^{270}Ds が GSI の Hofmann らにより $^{207}\text{Pb}(^{64}\text{Ni},n)$ 反応でつくられ, 基底状態のほか, 高スピン状態 (スピン・パリティ 8+, 9- あるいは 10-) と考えられる異性体が発見された。また, 新核種 ^{266}Hs ($\alpha: T_{1/2} = 2.3 \text{ms}$) と ^{262}Sg (SF: $T_{1/2} = 6.5 \text{ms}$) が α 壊変系列中に見つかった (S. Hofmann 他, *Eur. Phys. J.*, **A10**, 5, 2001)。

2006 年 12 月現在, Ds の同位体として ^{267}Ds ($\alpha: T_{1/2} = 3.1 \mu\text{s}$), ^{269}Ds ($\alpha: T_{1/2} = 170 \mu\text{s}$), ^{270}Ds ($\alpha: T_{1/2} = 100 \mu\text{s}$ と 8.0 ms), ^{271}Ds ($\alpha: T_{1/2} = 1.63 \text{ms}$ と 69 ms) および ^{273}Ds ($\alpha: T_{1/2} = 0.17 \text{ms}$) の他に, $^{277}[\text{112}]$ ($\alpha: T_{1/2} = 0.7 \text{ms}$) の娘核種である ^{273}Ds , $^{291}[\text{116}]$ の曾孫核種である ^{279}Ds ($\alpha: T_{1/2} = 0.18 \text{s}$), $^{293}[\text{116}]$ の曾孫核種である ^{281}Ds (SF: $T_{1/2} = 9.6 \text{s}$) ならびに $^{290}[\text{114}]$ ($\alpha: T_{1/2} = 21 \text{s}$) の孫娘核種である ^{282}Ds ($\alpha: T_{1/2} = 1.1 \text{min}$) が報告されている。これらの核種は, 短寿命ないし低断面積であり, まだ化学的性質の研究結果は出ていない。Ds は, 周期表では 10 族の Ni, Pd および Pt と同族と考えられるが, その検証には年月を要するであろう。

レントゲニウム roentgenium (Rg)

原子番号 111 の人工放射性元素。1994 年 12 月、ドイツ・ダルムシュタットの重イオン研究所 (GSI) の Hofmann (S. Hofmann) らは、Ds を発見した実験の翌日からターゲットを ^{208}Pb から ^{209}Bi に変更して 17 日間のビームタイムで $^{209}\text{Bi}(^{64}\text{Ni},n)^{272}[111]$ の α 壊変系列を 3 事象 (うち 1 事象は既知核 ^{256}Lr に至る) 観測した (S. Hofmann 他, *Z. Phys.*, **A350**, 281, 1995). 国際純正応用化学連合 (IUPAC) がさらなる確認実験を求めたため、2000 年 10 月の 13 日間の実験でさらに 3 事象を確認した (S. Hofmann 他, *Eur. Phys. J.*, **A14**, 147, 2002). その結果を受けて IUPAC は 2003 年 8 月に 111 番元素の発見を認め、X 線を発見したレントゲン (W.C. Röntgen, 1845-1923) に因む roentgenium (Rg) を元素名として承認した。

理化学研究所の森田浩介らは、理研重イオン線形型加速器 RILAC と気体充填型反跳分離器 GARIS の一連の性能検査の一環として、2004 年の前半に 50 日間の追試を行い、14 原子の ^{272}Rg を合成して事象数を 20 として半減期と壊変エネルギーの精度を上げるとともに、 α 壊変系列中の ^{264}Bh (α : $T_{1/2} = 1.0$ s) が自発核分裂 (SF) または軌道電子捕獲 (EC) の分岐をもつことを発見した (K. Morita 他, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **73**, 1738, 2004).

2006 年 12 月現在、Rg の同位体として上記の ^{272}Rg (α : $T_{1/2} = 3.8$ ms) の他、森田らが 2004 年に報告した [113] の同位体である $^{278}[113]$ の娘核 ^{274}Rg (α : $T_{1/2} = 6.4$ ms) ならびにロシア・ドブナのグループによりつくられた $^{287}[115]$ あるいは $^{286}[115]$ の孫核種である ^{279}Rg (α : $T_{1/2} = 0.17$ s) と ^{280}Rg (α : $T_{1/2} = 3.6$ s) が知られている。周期表では、Cu, Ag および Au と同じ 11 族に属すると考えられるが、化学的実証はまだない。

ウンウンビウム ununbium (Uub)

原子番号 112 の人工放射性元素。元素名はまだない。1996 年 1~2 月、ドイツ・ダルムシュタットの重イオン研究所 (GSI) の Hofmann (S. Hofmann) らは、24 日間にわたる 3.4×10^{18} 個の ^{70}Zn の照射で、速度フィルター SHIP により $^{208}\text{Pb}(^{70}\text{Zn},n)^{277}[112]$ (α : $T_{1/2} = 80$ μs) \rightarrow ^{273}Rg (α : $T_{1/2} = 110$ μs) \rightarrow ^{269}Hs (α : $T_{1/2} = 19.7$ s) \rightarrow ^{265}Sg (α : $T_{1/2} = 7.4$ s) \rightarrow ^{261}Rf (α : $T_{1/2} = 4.7$ s) \rightarrow ^{257}No (α : $T_{1/2} = 15.0$ s) \rightarrow ^{253}Fm の α 壊変系列を 1 事象観測し、生成断面積を 0.5 pb と推定した (S. Hofmann 他, *Z. Phys.*, **A354**, 229, 1996: $T_{1/2}$ は観測時点での数値。ちなみに 1994 年以来 SHIP で測定した計 34 系列の再解析から $^{277}[112]$ の 1 例で誤りを見付けて取り下げている (S. Hofmann 他, *Eur. Phys. J.*, **A14**, 147, 2002; ^{110}Ds , [118] の項も参照)。2000 年 5 月には、ほぼ同じ程度の繰り返し実験で、 ^{261}Rf (初めて SF 分岐を発見) までを確認した。2004 年 4~6 月、理化学研究所の森田浩介らは理研重イオンライナック RILAC で 4.4×10^{18} 個の ^{70}Zn ($E = 349.5$ MeV) 照射で生成した $^{277}[112]$ の α 壊変系列を ^{261}Rf まで 2 事象確認し、生成反応断面積として $0.44^{+0.59}_{-0.29}$ pb を得て、GSI の結果を追認した。

一方、JINR のオガネシアン (Yu.Ts. Oganessian) らロシア、ドイツおよび日本の合同チームは、1998 年 3 月から U400 サイクロトロンでエネルギー分散静電分離装置 VASSILISSA を使って $^{238}\text{U}(^{48}\text{Ca},3n)^{283}[112]$ からの自発核分裂 (SF) 事象を 2 例報告した (Yu.Ts. Oganessian 他, *Eur. Phys. J.*, **A5**, 63, 1999). 翌年の $^{242}\text{Pu}(^{48}\text{Ca},3n)^{287}[114]$ の反応では 21 日間の照射で 4 事象の SF を観測し、その際 $^{283}[112]$ を経由したと報告した (Yu.Ts. Oganessian 他, *Nature*, **400**, 242,

1999). また, $^{244}\text{Pu}(^{48}\text{Ca},4n)^{288}$ [114] にと
もなう 2 例の α 壊変系列で 284 [112] を見
つけた (Yu.Ts. Oganessian 他, *Phys. Rev.*,
C62, 041604, 2000). さらに 2000 年 7 月と
2001 年 5 月には, $^{248}\text{Cm}(^{48}\text{Ca},4n)^{292}$ [116]
にともなう α 壊変系列でも計 3 事象で
孫核種 284 [112] を經由して $^{280}_{110}\text{Rg}$ に到
達し SF を起こしたと報告した. 3 事
象とも孫核種として 284 [112] を經由し,
 $^{280}_{110}\text{Rg}$ に至って SF を起こした (Yu.Ts.
Oganessian 他, *Phys. Rev.*, **C63**, 011301,
2000; *Phys. At. Nucl.*, **64**, 1349, 2001).
 290 [114] (α : $T_{1/2} = 21$ s) の娘核種である
 286 [112] および 293 [116] の孫核種として
の 285 [112] の報告もあるが, いずれも再
確認を要する. 同位体の半減期は, GSI
グループによる 2004 年 11 月現在のま
とめ (*Nucl. Phys. News*, **14**(4), 5, 2004) では,
質量数 277 は 0.7 ms, 283 は 4.0 s, 284
は 101 ms, 285 は 34 s, 286 は 11 min と
なっているが, 観測例数が増すとさらに
変わる可能性がある.

112 番元素は周期表で 12 族の Hg の
下に位置し, Hg のように Au などの
金属表面に強く結合すると予想され
る. しかし, 相対論的計算によると
[Rn] $5f^{14}6d^{10}7s^2$ の $7s^2$ 電子が安定化し,
Rn のような希ガスに類似する揮発性
と化学的不活性も予測されている. 実
際, JINR のヤクシェフ (A.B. Yakushev)
らは Nd を混ぜた ^{238}U ターゲットを ^{48}Ca
で照射し, 生成した 283 [112] (SF: $T_{1/2} =$
3 min) と ^{185}Hg (EC, β^+ : $T_{1/2} = 54$ s) およ
び ^{220}Rn (α, γ : $T_{1/2} = 55.6$ s: ^{48}Ca と ^{238}U
の間の核子移行反応で生成) を He で流し
て 6 個の金蒸着 ($30 \mu\text{g}/\text{cm}^2$) および 2 個
の Pd 蒸着の半導体検出器に導き, 最後
に 84 個の中性子用 ^3He 充填電離箱で捕
獲したところ, ^{185}Hg は半導体検出器で,
Rn と [112] は電離箱で検出されたと報
告した (*Radiochim. Acta*, **89**, 743, 2001).

また, 電離箱を α と SF が検出ができる
ようにしたところ, SF を 8 例を観測し
た (同誌, **91**, 433, 2003). スイス・ポー
ルシェラー研究所 (PSI) のグループは一
連の金蒸着 PIPS 検出器に常温から Rn
吸着温度までの温度勾配をつけた装置
による実験を行い, Rn 吸着位置で 7 例
の [112] を検出したが, α 壊変相関は検
出されなかった (H.W. Gäggeler 他, *Nucl.*
Phys., **A734**, 208, 2004).

2006 年 5 月, PSI のアイヒラー (R.
Eichler) らはロシア・フレロフ核反応
研究所 (FLNR) の U400 サイクロト
ロンを使って $^{242}\text{PuO}_2$ ターゲット (少
量の Nd_2O_3 を添加) に ^{48}Ca を照射し,
 $^{242}\text{Pu}(^{48}\text{Ca},3n)^{287}$ [114] 反応の α 壊変生成
物として得た 2 原子の 283 [112] (α : $T_{1/2} =$
4 s) を改良型熱クロマトグラフ装置に導
き 112 番元素の金表面への吸着挙動を調
べた. この実験では, $^{142}\text{Nd}(^{48}\text{Ca},5n)$ 反
応で生成する ^{185}Hg ($T_{1/2} = 48$ s) と ^{242}Pu -
 ^{48}Ca 間の核子移行反応によって生成する
 ^{219}Rn ($T_{1/2} = 4$ s) を同時につくり, 283 [112]
の吸着挙動を ^{185}Hg および ^{219}Rn と直接
比較した. その結果, 283 [112] は非常に
揮発性が高く, 金表面との相互作用はラ
ドンとは異なり水銀に似ていること
を見出し, 112 番元素は 12 族に属すると
結論した (R. Eichler 他, *Nature*, **447**, 72,
2007).

ウンウントリウム ununtrium (Uut)

原子番号 113 の人工放射性元素。元素名はまだない。2004 年 7 月 23 日 18 時 55 分、理化学研究所 (理研) の森田浩介ら、理研、東京大学原子科学研究センター、埼玉大学、新潟大学、筑波大学、日本原子力研究所、山形大学、中国科学院蘭州近代物理学研究所および中国科学院高エネルギー研究所の 20 名のグループは、理研重イオン線形加速器 RILAC と気体充填型反跳分離器 GARIS を用いる実験で、 $^{209}\text{Bi}(^{70}\text{Zn},n)^{278}[\text{113}]$ (α : $T_{1/2} = 344 \mu\text{s}$) \rightarrow ^{274}Rg (α : $T_{1/2} = 9.26 \text{ ms}$) \rightarrow ^{270}Mt (α : $T_{1/2} = 7.16 \text{ ms}$) \rightarrow ^{266}Bh (α : $T_{1/2} = 2.47 \text{ s}$) \rightarrow ^{262}Db (SF: $T_{1/2} = 40.9 \text{ s}$) の壊変系列を 1 事象発見した。 ^{266}Bh 以下は既知核種で、先立つ 3 核種が新発見となる。この核反応の断面積は $55^{+154}_{-47} \text{ fb}$ で、最小断面積測定 (最高感度) の世界記録であった (*J. Phys. Soc. Jpn.*, **73**, 1738, 1904)。その後、2005 年 3 ~ 4 月にわたる 1 ヶ月間の再実験の 10 日目にもう 1 事象 ($^{278}[\text{113}]$; $T_{1/2} = 4.93 \text{ ms}$) の α 壊変系列を確認した。新元素承認の条件を満たすにはまだ不十分であるが、わが国初の新元素発見となることが期待される。ちなみに、2004 年にロシアのオガネシアン (Yu.Ts. Oganessian) らが $^{243}\text{Am}(^{48}\text{Ca},3-4n)^{288,287}[\text{115}]$ (α : $T_{1/2} = 32 \text{ ms}$ および 87 ms) のそれぞれ 3 事象と 1 事象を見つけ、 α 壊変系列で娘核種 $^{284}[\text{113}]$ (α : $T_{1/2} = 0.10 \text{ s}$) および $^{283}[\text{113}]$ (α : $T_{1/2} = 0.48 \text{ s}$) を経由したと報告したが、いずれの系列にも既知核種がなく、実証条件を満たしていない (*Phys. Rev.*, **C72**, 034611, 2004 参照)。

113 番元素は 13 族 (B, Al, Ga, In, Tl) に属すると考えられるが、化学的検証には中性子数が多い寿命の長い核種の発見まで待たなければならない。

ウンウンクアジウム ununquadium (Unq)

原子番号 114 の人工放射性元素。元素名はまだない。ロシア・ドブナのフレロフ核反応研究所 (FLNR) のオガネシアン (Yu.Ts. Oganessian) らは、1999 年 3 月に U400 にサイクロトロンと反跳分離器 VASSILISA を使って $^{242}\text{Pu}(^{48}\text{Ca},3n)^{287}[\text{114}]$ (α : $T_{1/2} = 0.51 \text{ s}$) を 4 事象 (α と SF) 観測したと報告した (*Nature*, **400**, 242, 1999)。1998 年末には、米国ローレンスリバモア国立研究所 (LLNL) グループと共同で U400 に別途付設した気体充填反跳分離器 DGFRS を 34 日間使い、 $^{244}\text{Pu}(^{48}\text{Ca},3n)^{289}[\text{114}]$ (α : $T_{1/2} = 2.7 \text{ s}$) の α 壊変系列 1 事象を (*Phys. Rev. Lett.*, **83**, 3154, 1999)、1999 年 7 ~ 10 月の 3.5 ヶ月の間に $^{244}\text{Pu}(^{48}\text{Ca},4n)^{288}[\text{114}]$ (α : $T_{1/2} = 0.80 \text{ s}$) を 2 事象観測した (*Phys. Rev.*, **C62**, 041604, 2000)。この $^{288}[\text{114}]$ は $^{248}\text{Cm}(^{48}\text{Ca},4n)^{292}[\text{116}] \rightarrow ^{288}[\text{114}] \rightarrow ^{280}[\text{110}] \rightarrow$ の連鎖でも見られるはずであるが、 $^{280}[\text{110}]$ が未確認核種であるため、まだ確認されたとはいえない。 $^{286}[\text{114}]$ (α , SF: $T_{1/2} = 0.13 \text{ s}$; *Phys. Rev.*, **C74**, 044602, 2006) と $^{290}[\text{114}]$ (α : $T_{1/2} = 21 \text{ s}$) の報告もある。今や 40 年来夢を見続けてきた [114] 元素の存在が実現し、 $N = 184$ にはまだ遠いものの化学的検証に耐えられる核種が現れつつある (超重元素の項参照)。

ウンウンペンチウム ununpentium (Unp)

原子番号 115 の人工放射性元素。元素名はまだない。2003 年 7 月 14 日～8 月 10 日、ロシア・ドブナのオガネシアン (Yu.Ts. Oganessian) らは、U400 サイクロトロンで加速した ^{48}Ca イオンを ^{243}Am 標的に照射し、 $^{243}\text{Am}(^{48}\text{Ca},3n)^{288}[\text{115}]$ 反応で生成する $^{288}[\text{115}]$ を 3 個、 $^{243}\text{Am}(^{48}\text{Ca},4n)^{287}[\text{115}]$ 反応による $^{287}[\text{115}]$ を 1 個発見したと報告した (*Phys. Rev.*, **C69**, 021601 (R), 2004)。 $^{288}[\text{115}]$ は $^{288}[\text{115}] (T_{1/2} = 87 \text{ ms}) \rightarrow ^{284}[\text{113}] (T_{1/2} = 0.48 \text{ s}) \rightarrow ^{280}[\text{111}] (T_{1/2} = 3.6 \text{ s}) \rightarrow ^{276}[\text{109}] (T_{1/2} = 0.72 \text{ s}) \rightarrow ^{272}[\text{107}] (T_{1/2} = 9.8 \text{ s})$ と α 壊変し、 $^{268}[\text{105}]$ の自発核分裂 (SF) に至った。スイス・PSI のシューマン (D. Schumann) らは、この未知核種 $^{268}[\text{105}]$ の長い半減期 (16 時間) を利用して ^{243}Am と ^{48}Ca との反応生成物を銅のキャッチャーに捕獲し、Db の化学分離と α /SF 比測定を行った。15 個の SF 事象 (半減期 32 時間) が観測されたことより、親核 $^{288}[\text{115}]$ が合成されたと結論付けた (*Radiochim. Acta*, **93**, 1, 2005; *Phys. Rev.*, **C72**, 034611, 2005)。

115 番元素の同位体としては、 $^{288}[\text{115}]$ と同じ実験で観測された $^{243}\text{Am}(^{48}\text{Ca},4n)^{287}[\text{115}]$ 反応で生成する $^{287}[\text{115}]$ (α : $T_{1/2} = 32 \text{ ms}$) が 1 例知られている。

ウンウンヘキシウム ununhexium (Unh)

原子番号 116 の人工放射性元素。元素名はまだない。2000 年 7 月、ロシア・ドブナのオガネシアン (Yu.Ts. Oganessian) らは U400 サイクロトロン照射の 35 日目に $^{248}\text{Cm}(^{48}\text{Ca},3n)^{292}[\text{116}]$ の 1 事象、2001 年 5 月に 2 事象を発見し、それぞれが半減期 46.9 秒、125.5 秒および 55 秒で α 壊変 ($E_{\alpha} = 10.56 - 10.49 \text{ MeV}$) し、 $^{280}[\text{110}]$ の自発核分裂 (SF) に至る系列を報告した (*Phys. Rev.*, **C63**, 011301, 2000)。しかし、既知核種を含まないことと半減期の値も不確かなため、さらなる確認実験が必要である (*J. Nucl. Radiochem. Sci.*, **3**, 5, 2002)。その他に、 $^{291}[\text{116}]$ (α : $T_{1/2} = 6.3 \text{ ms}$)、や $^{293}[\text{116}]$ (α : $T_{1/2} = 53 \text{ ms}$) の報告もあるが、これらに比べると $^{292}[\text{116}]$ の半減期は長すぎる (その後、 $T_{1/2} = 18 \text{ ms}$ が報告された; *Phys. Rev.*, **C70**, 064609, 2004)。いずれにせよ、中性子数が 180～184 の同位体の発見が望まれる。

オガネシアンらは最近、 $^{245}\text{Cm}(^{48}\text{Ca},xn)$ 反応で生成する $^{290}[\text{116}]$ を 10 原子、 $^{291}[\text{116}]$ を 3 原子検出しその α 壊変系列を追跡した。両者とも α 壊変核種であり、期待される半減期はそれぞれ 10 ミリ秒 ($E_{\alpha} = 0.84 \pm 0.068 \text{ MeV}$) および 20 ミリ秒 ($E_{\alpha} = 10.74 \pm 0.067 \text{ MeV}$) であると報告している。 $^{290}[\text{116}]$ は、 $^{249}\text{Cf}(^{48}\text{Ca},3n)^{294}[\text{118}]$ の α 壊変娘核種に相当することから、上記反応により直接生成する $^{290}[\text{116}]$ の核的性質を調べた (*Phys. Rev.*, **C**, 74, 044602, 2006)。

周期表では、16 族 (O, S, Se, Te, Po) に属することが期待され、相対論効果による金属性や揮発性の変化についての検討が待たれる。

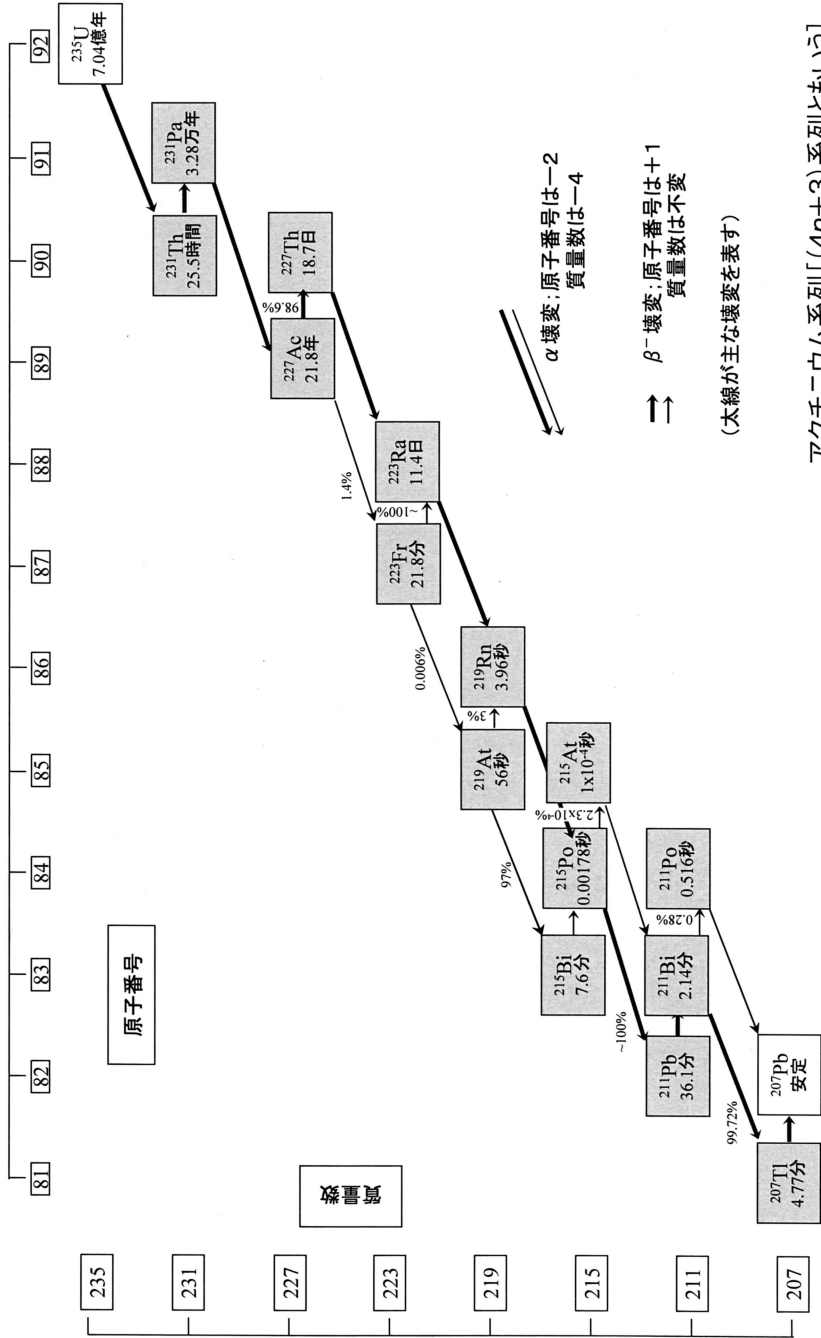
ウンウンオクテウム ununoctium (Uno)

原子番号 118 の人工放射性元素。元素名はまだない。ロシア・ドブナのオガネシアン (Yu.Ts. Oganessian) らと米国ローレンスリバモア国立研究所 (LLNL) の共同研究チームは JINR の U400 サイクロトロンで加速した ^{48}Ca イオンを ^{249}Cf 標的に照射し, $^{249}\text{Cf}(^{48}\text{Ca},3n)^{294}[118]$ 反応で生成する $^{288}[118]$ の α 壊変系列を 2002 年に 1 事象, 2005 年 2 ~ 6 月に 2 事象を発見した (*Phys. Rev.*, **C74**, 044602, 2006)。この共同研究チームが 2002 年に $^{294}[118]$ を発見しながら論文発表が 2006 年になったのは, α 壊変事象の確証に慎重で, 時間をかけたためである。実は, 118 元素発見の報告が 1999 年春に米国ローレンスバークレー国立研究所 (LBNL) から出された (*Phys. Rev. Lett.*, **83**, 1104, 1999) が, 後にデータのねつ造が発覚し取り消されたいきさつがある。オガネシアンらは今回の 3 事象から, $^{294}[118]$ ($E_{\alpha} = 11.65 \pm 0.06$ MeV; $T_{1/2} = 0.89^{+1.07}_{-0.31}$ ms) \rightarrow $^{290}[116]$ ($E_{\alpha} = 10.80 \pm 0.09$ MeV; $T_{1/2} = 10.0^{+11.9}_{-3.9}$ ms) \rightarrow $^{286}[114]$ ($E_{\alpha} = 10.16 \pm 0.09$ MeV; $T_{1/2} = 0.16^{+0.19}_{-0.06}$ s) \rightarrow $^{282}[112]$ (SF; $T_{1/2} = 1.9^{+8.9}_{-0.9}$ ms) の壊変系列を報告した。ここで, 慎重を期すため 98%濃縮の ^{48}Ca を用い, $^{245}\text{Cm}(^{48}\text{Ca},xn)^{290}[116] \rightarrow ^{286}[114] \rightarrow ^{282}[112]$ および $^{291}[116] \rightarrow ^{287}[114] \rightarrow \dots \rightarrow ^{267}\text{Rf}$, $^{242}\text{Pu}(^{48}\text{Ca},xn)^{286}[114] \rightarrow ^{282}[112]$ および $^{287}[114] \rightarrow \dots \rightarrow ^{267}\text{Rf}$, $^{238}\text{U}(^{48}\text{Ca},xn)^{282}[112]$ および $^{283}[112] \rightarrow \dots \rightarrow ^{267}\text{Rf}$ の既報結果ならびに新たな実験結果を調べて $^{294}[118]$ の壊変系列核種を確認した。

118 番元素は, 周期表で 18 族のラドンの下に位置すると考えられ, 希ガスに似た化学的性質をもつことが期待される。

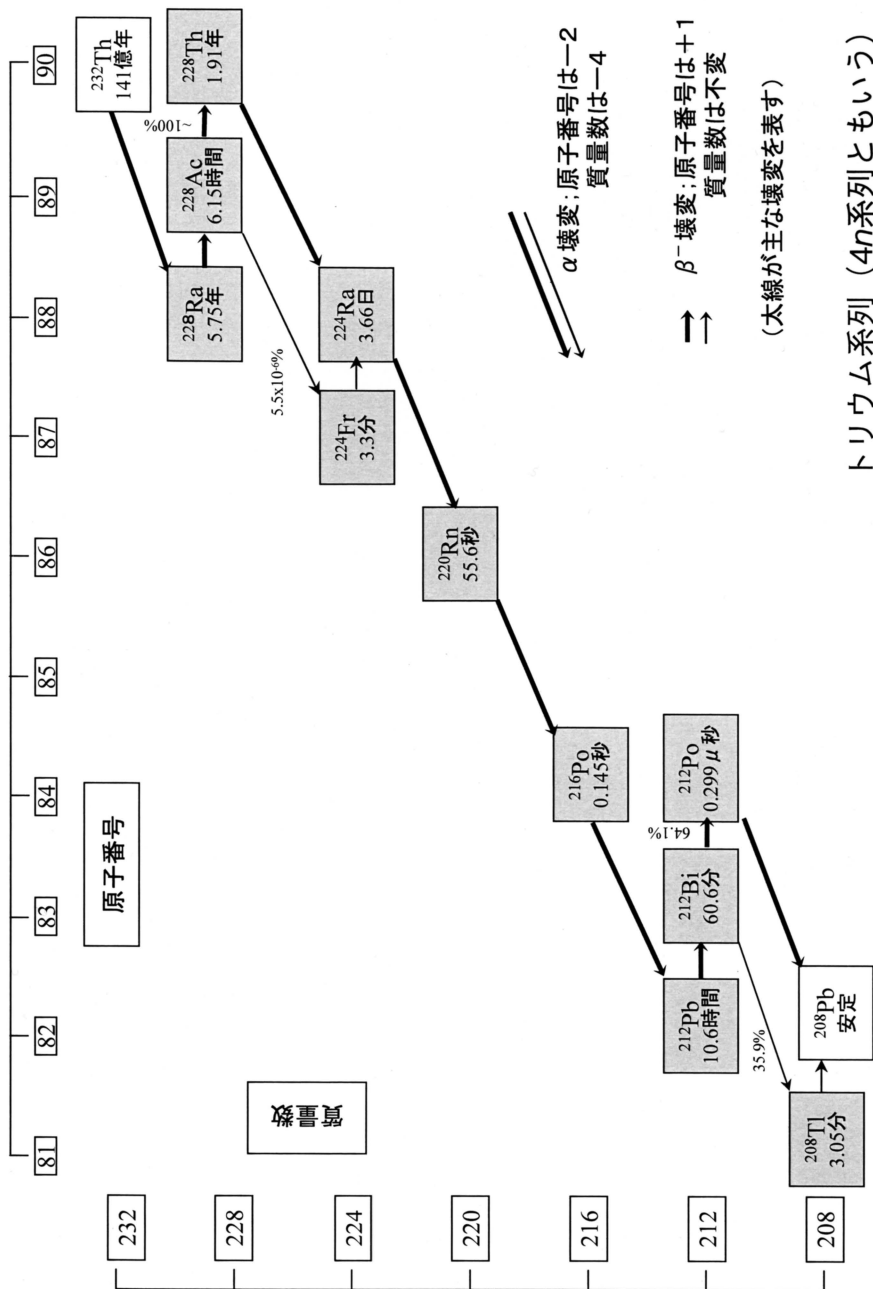
付 録

付録図2 アクチニウム系列



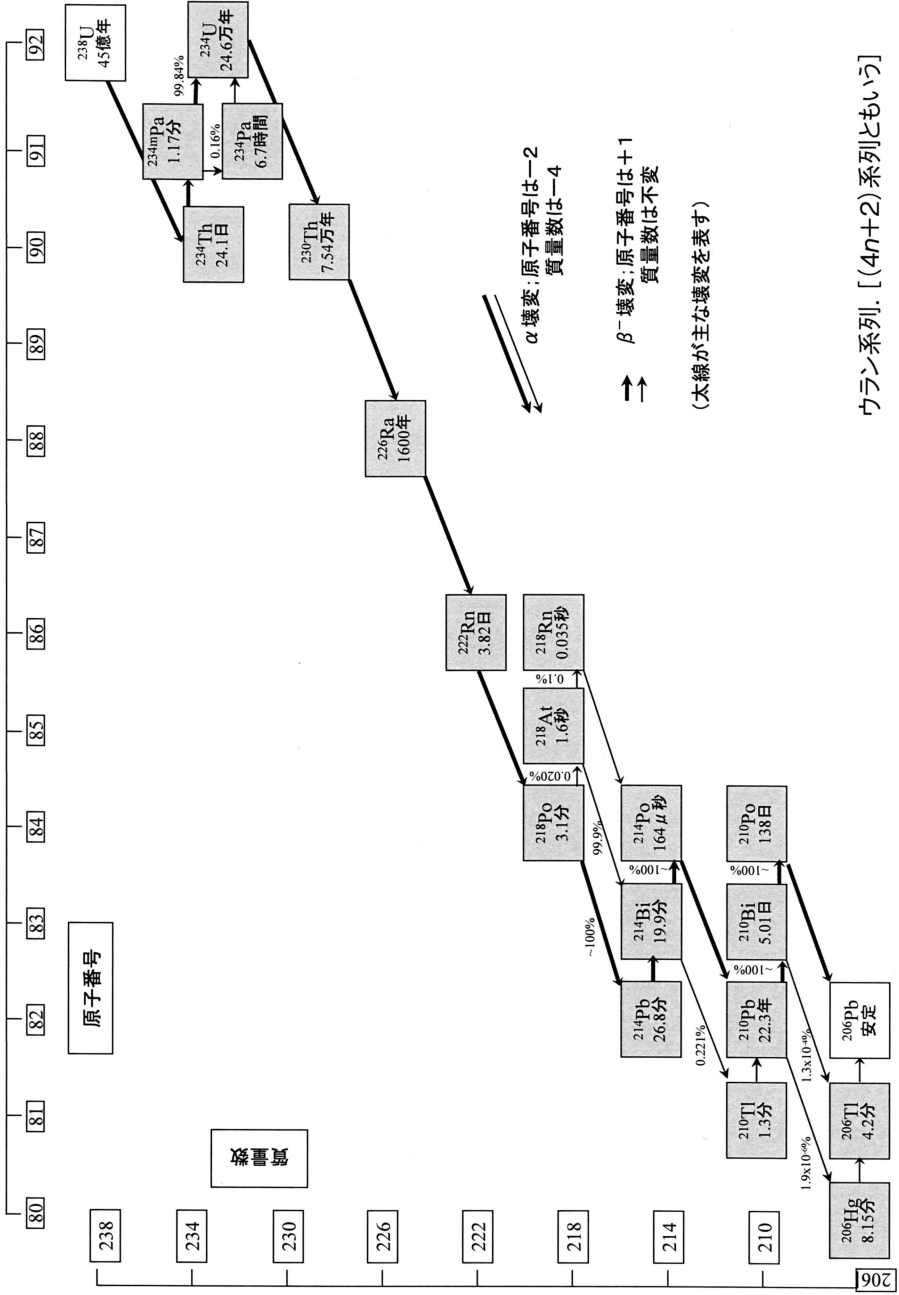
アクチニウム系列[(4n+3)系列ともいう]

付録図3 トリウム系列



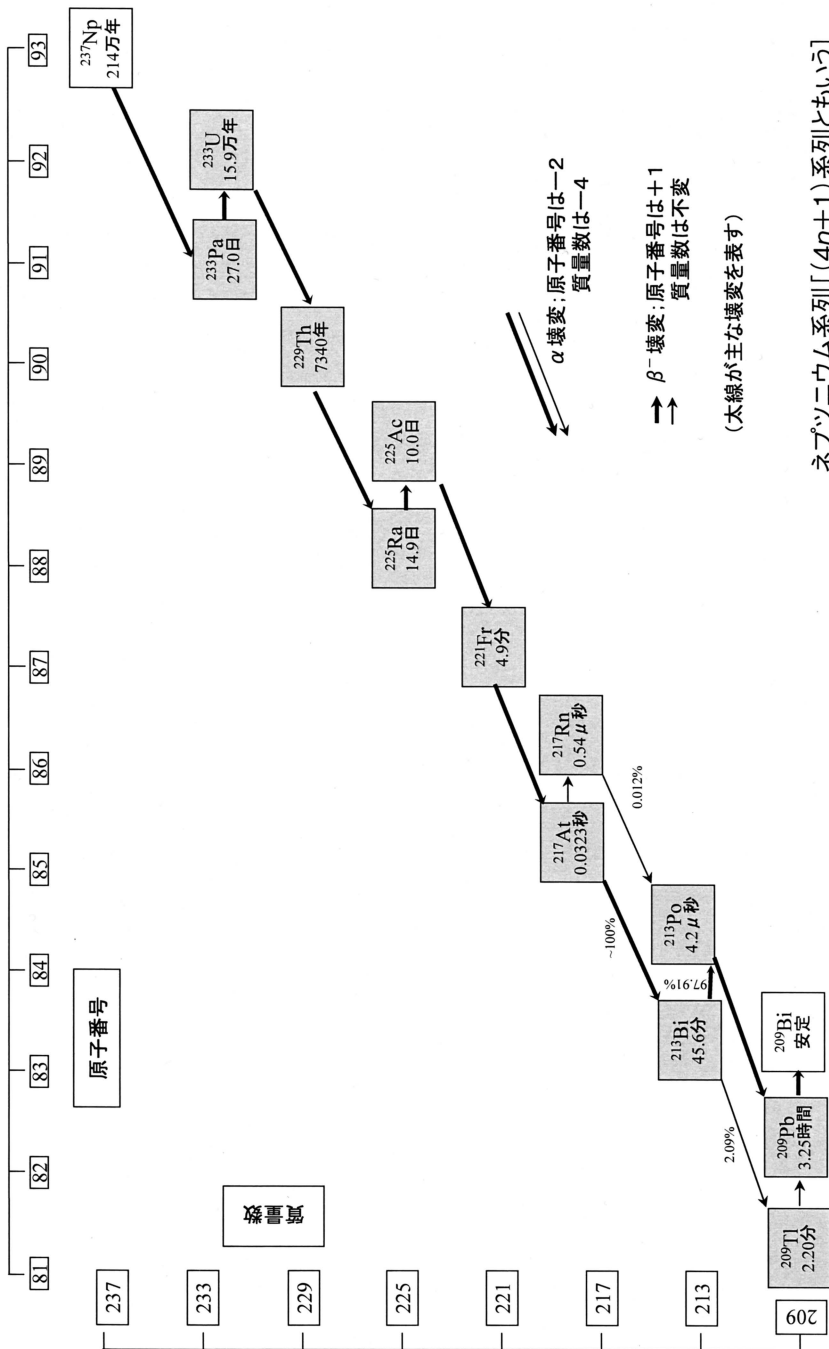
トリウム系列 (4n系列ともいう)

付録図 4 ウラン系列



ウラン系列. [(4n+2) 系列ともいう]

付録図 5 ネプツニウム系列



付録表 1 ラジオアイソトープの製造と利用

核種 (半減期)	壊変形式	主な生成核反応	ターゲット物質	利用例
^3H (12.33 y)	β^- (no γ)	$^6\text{Li}(n,\alpha)^3\text{H}$	濃縮 ^6Li -Al 合金	(理工) 核融合研究, 標識トレーサー (生科) 標識化合物
^{14}C (5730 y)	β^- (no γ)	$^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$	AlN	(医薬) 制がん剤開発, タンパク代謝 (工業) 厚み計線源
^{18}F (1.83 h)	β^+ , EC	$^{20}\text{Ne}(d,\alpha)^{18}\text{F}$	ネオンガス	(医薬) PET 診断薬
^{24}Na (14.96 h)	β^-	$^{23}\text{Na}(n,\gamma)^{24}\text{Na}$	Na_2CO_3	(理工) ガンマ線校正線源 (生科) 体液循環研究 (工業) ガラス混合物均一性試験
^{32}P (14.26 d)	β^- (no γ)	$^{32}\text{S}(n,p)^{32}\text{P}$	単体硫黄	(医薬・生科) 腫瘍検出, DNA 標識 (農) 作物根吸収力分布測定 (工業) 印刷インク厚み測定
^{35}S (87.32 d)	β^- (no γ)	$^{35}\text{Cl}(n,p)^{35}\text{S}$	KCl 結晶	(生科) 薬物送達, アミノ酸代謝 (農) 害虫卵駆除剤研究 (工業) 潤滑油消費量測定
^{51}Cr (27.70 d)	EC	$^{50}\text{Cr}(n,\gamma)^{51}\text{Cr}$	濃縮 ^{50}Cr K ₂ CrO ₄ 結晶 *	(理工) 電頭試料被覆厚み制御 (工業) 鉄鋼製品均一性試験 (医薬) 赤血球検査
^{57}Co (271.8 d)	EC	$^{58}\text{Ni}(p,pn)[\beta^+, \text{EC}]^{57}\text{Co}$	金属ニッケル	(理工) メスバウアー線源
^{60}Co (5.271 y)	β^-	$^{59}\text{Co}(n,\gamma)^{60}\text{Co}$	金属コバルト	(理工) ガンマ線校正線源 (医) がん治療線源 (農) ウリミバエ不妊虫放飼駆除 (工業) 非破壊検査線源, 溶鉱炉壁摩耗検査
^{64}Cu (12.70 h)	EC, β^- , β^+	$^{63}\text{Cu}(n,\gamma)^{64}\text{Cu}$	CuPc*	(生科) 生体内代謝研究
^{65}Zn (244.3 d)	EC, β^+	$^{64}\text{Zn}(n,\gamma)^{65}\text{Zn}$	金属亜鉛 ZnPc*	(理工) ガンマ線校正線源 (工業) エンジンオイル消耗量測定 (生科) 生体内代謝研究
^{67}Ga (3.261 d)	EC	$^{nat}\text{Ge}(p,xn)[\beta^+]^{67}\text{Ga}$	金属ゲルマニウム	(医薬) 骨腫瘍診断薬
^{95m}Tc (61 d)	IT	$^{92}\text{Nb}(\alpha,2n)^{95m}\text{Tc}$	金属ニオブ	(理工) 環境中の ^{99}Tc 分析
^{99}Mo (2.75 d)	β^-	$^{235}\text{U}(n,f)$ FP 分離	UO ₂ ペレット	(医薬) ^{99m}Tc ジェネレータ
^{99m}Tc (6.01 h)	IT	$^{99}\text{Mo}[\beta^-]^{99m}\text{Tc}$	(ジェネレータ)	(医薬) 血流検査, がん診断薬
^{123}I (13.27 h)	EC	$^{124}\text{Te}(p,2n)^{123}\text{I}$	TeO ₂	(医薬) SPECT 診断薬
^{125}I (59.41 d)	EC	$^{124}\text{Xe}(n,\gamma)^{125}\text{Xe}[\text{EC}]^{125}\text{I}$	キセノンガス	(医) がん治療用小線源
^{131}I (8.02 d)	β^-	$^{130}\text{Te}(n,\gamma)^{131}\text{Te}[\beta^-]^{131}\text{I}$	TeO ₂	(医薬) 甲状腺がん, 心不全治療
^{192}Ir (73.83 d)	β^-	$^{191}\text{Ir}(n,\gamma)^{192}\text{Ir}$	金属イリジウム	(医) がん治療用線状線源
^{198}Au (2.695 d)	β^-	$^{197}\text{Au}(n,\gamma)^{198}\text{Au}$	金コロイド	(医) がん治療用線源

注) 網かけの反応には加速器を利用. その他は原子炉(中性子)照射.

* 反跳効果を利用して製造する高比放射能ラジオアイソトープ(CuPc=銅フタロシアン, ZnPc=亜鉛フタロシアン).

付録表 2 加速器によるラジオアイソトープの製造（医学診断用 PET および SPECT 核種）

PET 核種の例 (PET: Positron Emission Tomography)

核種 (半減期)	核反応	エネルギー 領域 (MeV)	備考	
			β^+ (%)	$E_{\beta^+}^{\max}$ (MeV)
^{11}C (20.4 min)	$^{14}\text{N}(p,\alpha)^{11}\text{C}$	13-0	99.8 (EC, 0.2)	0.97
^{13}N (9.97 min)	$^{16}\text{O}(p,\alpha)^{13}\text{N}$	17-0	100	1.20
	$^{12}\text{C}(d,n)^{13}\text{N}$	8-0		
^{15}O (2.03 min)	$^{14}\text{N}(d,n)^{15}\text{O}$	10-0	100	1.74
^{18}F (1.83 h)	$^{20}\text{Ne}(d,\alpha)^{18}\text{F}$	14-0	97 (EC, 3)	0.635
	$^{18}\text{O}(p,n)^{18}\text{F}$	17-3		
^{38}K (7.64 min)	$^{35}\text{Cl}(\alpha,n)^{38}\text{K}$	22-10	99 (EC, 1)	2.68 (E_{γ} , 2.17)
	$^{40}\text{Ar}(p,3n)^{38}\text{K}$	33-28		
	$^{38}\text{Ar}(p,n)^{38}\text{K}$	16-12		
^{73}Se (7.15 h)	$^{75}\text{As}(p,3n)^{73}\text{Se}$	40-30	66 (EC, 34)	1.7 (E_{γ} , 0.359)
	$^{70}\text{Ge}(\alpha,n)^{73}\text{Se}$	28-13		
^{75}Br (1.61 h)	$^{75}\text{As}(^3\text{He},3n)^{75}\text{Br}$	36-25	90 (EC, 10)	1.7 (E_{γ} , 0.62)
	$^{76}\text{Se}(p,2n)^{75}\text{Br}$	28-22		

SPECT 核種 ^{123}I の例 (SPECT: Single Photon Emission Computed Tomography)

核反応	エネルギー領域 (MeV)	備考
直接法		^{123}I $T_{1/2} = 13.27$ h EC (no β^+) $E_{\gamma} = 0.159$ MeV (83%)
$^{124}\text{Te}(p,2n)^{123}\text{I}$	26 - 23	
$^{123}\text{Te}(p,n)^{123}\text{I}$	15 - 10	
$^{122}\text{Te}(d,n)^{123}\text{I}$	16 - 8	
間接法 ^{123}Xe [$T_{1/2} = 2.08$ h, EC (77.5%), β^+ (22.5%)] \rightarrow ^{123}I		
$^{127}\text{I}(p,5n)^{123}\text{Xe}$	65 - 50	
$^{124}\text{Xe}(p,pn)^{123}\text{Xe}$	30 - 25	

付録表 3 ジェネレータ用ラジオアイソトープ (Milking from Cow)

発生源核種 (Cow) (半減期)	壊変形式	生成核種 (Milk) (半減期)	壊変形式	エネルギー (MeV)
^{42}Ar (32.9 y)	β^-	^{42}K (12.36 h)	β^-	$E_{\beta^-}^{\text{max}} = 0.31$ $E_{\gamma} = 1.524$
^{68}Ge (270.8 d)	EC	^{68}Ga (67.63 min)	β^+ (89.1%), EC	$E_{\beta^+}^{\text{max}} = 1.90$ $E_{\gamma} = 0.511$
^{81}Rb (4.58 h)	EC, β^+	$^{81\text{m}}\text{Kr}$ (13.10 s)	IT (99.95%), EC, β^+	$E_{\gamma} = 0.1906$
^{87}Y (79.8 h)	EC, β^+	$^{87\text{m}}\text{Sr}$ (2.80 h)	IT (98.4%), EC	$E_{\gamma} = 0.3885$
^{99}Mo (65.9 h)	β^-	$^{99\text{m}}\text{Tc}$ (6.01 h)	IT (99.98%), β^-	$E_{\gamma} = 0.1427$

付録表 4 年代測定に用いられる核種

親核種	半減期(年)	娘核種	測定対象
一次放射性核種 ²³⁸ U ²³⁵ U ²³² Th ¹⁹⁰ Pt ¹⁸⁷ Re ¹⁷⁶ Lu ¹⁴⁷ Sm ⁸⁷ Rb ⁴⁰ K	4.468×10^9 7.038×10^8 1.405×10^{10} 6.50×10^{11} 4.12×10^{11} 3.75×10^{10} 1.06×10^{11} 4.88×10^{10} 1.27×10^9	²⁰⁶ Pb ²⁰⁷ Pb ²⁰⁸ Pb ¹⁸⁶ Os ¹⁸⁷ Os ¹⁷⁶ Hf ¹⁴³ Nd ⁸⁷ Sr ⁴⁰ Ar	岩石鋳物 岩石鋳物 岩石鋳物 岩石鋳物(特にマントル・核分化) 岩石鋳物(特にマントル・地殻分化) 岩石鋳物(特にマントル・地殻分化) 岩石鋳物(特にマントル・地殻分化) 岩石鋳物(特にマントル・地殻分化)
二次放射性核種 ²³⁴ U ²³⁰ Th ²³¹ Pa ²¹⁰ Pb	1.592×10^5 7.54×10^4 3.276×10^4 22.3	²³⁰ Th ²²⁶ Ra ²²⁷ Ac ²¹⁰ Bi	第四紀含ウラン鋳物, 深海底土, サンゴ 第四紀含ウラン鋳物, 深海底土, サンゴ 第四紀含ウラン鋳物, 深海底土, サンゴ 湖底堆積物
宇宙線生成核種 * ³² Si ¹⁴ C ³ H	160 5715 12.32	³² P ¹⁴ N ³ He	地下水 含炭素材 地下水

* 付録表 5 にある ¹⁰Be, ²⁶Al, ³⁶Cl, ⁵³Mn など年代測定に使われることがある(本文各項参照).

付録表 5 消滅核種 (半減期の順)

消滅核種	半減期(年)	娘核種	初期値 ¹⁾	親娘閉鎖 ²⁾	核合成過程と星 ³⁾
⁴¹ Ca	1.03×10^5	⁴¹ K	$^{41}\text{Ca}/^{40}\text{Ca} = 1.5 \times 10^{-8}$	CAI	s: SN, AGB, WR
²⁶ Al	7.16×10^5	²⁶ Mg	$^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al} = 5 \times 10^{-5}$	CAI	p: SN, N, AGB, WR, T.T.
⁶⁰ Fe	1.5×10^6	⁶⁰ Ni	$^{60}\text{Fe}/^{56}\text{Fe}$ $= (2.8-4) \times 10^{-7} \sim 2 \times 10^{-8}$	PD	eq, s: SN, AGB, T.T.
⁵³ Mn	3.7×10^6	⁵³ Cr	$^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn} = 2 \times 10^{-5}$	CAI, PD, PM	p: SN, T.T.
¹⁰⁷ Pd	6.5×10^6	¹⁰⁷ Ag	$^{107}\text{Pd}/^{108}\text{Pd} = (2-4.5) \times 10^{-5}$	PD	r: SN, AGB, WR
¹⁸² Hf	9×10^6	¹⁹² W	$^{182}\text{Hf}/^{180}\text{Hf} = 2.0 \times 10^{-4}$	PD	r: SN
¹²⁹ I	1.57×10^7	¹²⁹ Xe	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I} = 1.0 \times 10^{-4}$	CAI	r: SN
²⁴⁴ Pu	8.00×10^7	¹³¹⁻¹³⁶ Xe	$^{244}\text{Pu}/^{232}\text{Th} = 3 \times 10^{-3}$	CAI	r: SN
¹⁴⁶ Sm	1.03×10^8	¹⁴² Nd	$^{146}\text{Sm}/^{144}\text{Sm} = 1.0 \times 10^{-2}$	PD	p: SN
以下は今後確認研究を要する核種					
^{7,10} Be	53.29 d 6.5×10^6	⁶ Li, ¹⁰ Be	$^7\text{Be}/^9\text{Be} = 6.1 \times 10^{-3}$ $^{10}\text{Be}/^9\text{Be} = (4-9) \times 10^{-4}$	CAI	T.T.
⁹⁹ Tc	2.1×10^5	⁹⁹ Ru	$^{99}\text{Tc}/^{99}\text{Ru} = 10^{-4}$	CAI	r, s: AGB, WR
³⁶ Cl	3.01×10^5	³⁶ Ar	$^{36}\text{Cl}/^{35}\text{Cl} = (4-10) \times 10^{-6}$		s, eq: SN, AGB, WR
¹³⁵ Cs	2.3×10^6	¹³⁵ Ba	$^{135}\text{Cs}/^{133}\text{Cs} = 1.6 \times 10^{-4} ?$	CAI	r, s: AGB, WR
²⁰⁵ Pb	1.5×10^7	²⁰⁵ Tl	$^{205}\text{Pb}/^{204}\text{Pb} = 3 \times 10^{-4}$		s: AGB, WR
²⁴⁷ Cm	1.56×10^7	²³⁵ U	$^{247}\text{Cm}/^{232}\text{Th} < 6 \times 10^{-4}$	CAI	r: SN
⁹² Nb	3.5×10^7	⁹² Zr	$^{92}\text{Nb}/^{93}\text{Nb} = (0.6-2) \times 10^{-5}$	PD	p: SN

注 1) Ca-Al-rich Inclusion (CAI: 炭素質コンドライト中の白色含有物で太陽系最古の固化物)形成時 $[(4.566 \pm 0.002) \times 10^8$ 年; M. Wadhwa, S.S. Russel, "Timescales of Accretion and Differentiation," in Protostars and Planets IV, V. Mannings 他編, Univ. Arizona Press, 2000, p. 995]での値。

注 2) CAI: CAI 形成, PD: planetary differentiation (惑星母天体での分化・熔融・結晶化), PM: planetary metamorphism (惑星母天体での変成)。

注 3) s: 遅い中性子捕獲, r: 早い中性子捕獲, p: 光分解, eq: 平衡過程, SN: 超新星, N: 新星, AGB: 漸近的巨大分岐星, WR: Wolf-Rayet 星, T.T.: T. Tauri 段階または(および) X-wind 放出段階の原始太陽からの陽子照射。

放射性元素・核種の小さな物語

著 者 坂本 浩
工藤 博司

発 行 日本放射化学会
事務局所在地：〒 319-1195 茨城県那珂郡東海村白方 2-4
日本原子力研究開発機構 高度環境分析研究棟内
E-mail: jnrs.office@radiochem.org
Web: <http://www.radiochem.org/> または <http://wwwsoc.nii.ac.jp/jnrs>

印 刷 松枝印刷株式会社
〒 303-0034 茨城県常総市水海道天満町 2438

発行日 平成 19 年 9 月 24 日

©2007 日本放射化学会

本誌掲載記事の著作権は日本放射化学会に帰属します。

