走馬灯のような放射線研究の思い出

五十棲泰人
Isozumi Yasuhito

1．はじめに

77 歳になった。さすがに人生に疲れた気分になる。そんな時，過ぎし日の想いが心を横切る。賑やかで活発な清水栄先生のもと放射線研究を始めた時期，何もわからずフランスに渡り R. J. Walen 先生のもと寂しくもあり充実した研究生活を送った時期，教授になったがため研究活動を中断して放射線安全管理で奮闘した時期。どの時期も放射線を相手にした戦いだった。先陣を争う放射線探索の成功や工夫を重ねた計測装置の完成で大喜びしたこと，アメリカの大先生 M. S. Freedman との論争でどうにもならない絶望感を味わったこと，放射能汚染を起こし除染作業でくたくたになったこと，大学の放射線安全管理の対応で胃袋に穴が開きそうな思いをしたこと，明るい思い出や暗い思い出が走馬灯のように浮かぶ。放射線安全管理に関わる経験談はこの“RI 歴書”にふさわしいと思うが，思い出したくもないのが本音である。ここでは敬愛する先生のもとでやった放射線研究の懐古譚を語ることにした。

2．清水栄先生と

1964 年京都大学工学部原子核工学科の学部学生のときは，荒木源太郎先生の研究室で β 崩壊の理論を勉強し, 将来は理論屋になりたいと夢見ていた。大学院への進学に際しても応用数学，量子力学の勉強を続けたいと思ったが, 親爺の強い反対にあった。“理論では飯は食えない。技術を身につけろ”というのである。原子炉関係の道は性にあわないと思ったので，物理実験をやれる研究室を探した。1965 年 4 月京都大学大学院の学生として化学研究所清水栄先生の核放射線部門に入門した。修士学生 2 年のとき“原子核ラマン散乱”の実験的検証を始めた。理論的には重い原子核は E1 遷移が可能な巨大共鳴領域（Giant Resonance Region）を持つため，変形核の回転レベルを通してラマン散乱が起きることが知られていた。実験内容は Li（p, γ）反応からの高エネルギー γ 線（14.8 MeV，17.3 MeV）を $^{181}Ta_2O_5$ に照射し，^{181}Ta からくる 10 MeV 以上のラマン線と回転レベルからの 303 keVγ 線を同時計数するものである。加速器は住友原子力工業のバンデグラーフを約 2 か月占有，泊まり込みでデータ取りをやった。2 台の NaI（Tl）検出器（サイズ：5”ϕ × 5”，5”ϕ × 2”）を使って，303keV γ 線を同時計数スペクトル上で見つけることができた。この結果は核ラマン散乱の最初の実験的検証として速報[1] にでた。バンデグラーフ内絶縁用の 7 m^3 窒素ボンベを数十本単位で何回も運び込んだこと，冷却器が故障で止まるたびにスイッチを入れに γ 線・中性子の発生している加速器室内に飛び込んだこと，徹夜実験が続くなか歯痛が起こり仕方なくヤスリで自家療法をやったため後で奥歯 2 本を抜く羽目になったこと。随分無茶をやったことを覚えている。加速器の長期間占有が難しくこの実験は続かなかった。そして，加速器を使う実験はもうやるまいと決めた。

1967 年 4 月博士課程に進んで原子核崩壊に伴う原子の電離現象に興味を持つようになった。学部学

生の頃β崩壊の理論を勉強した関係で，研究テーマは“β崩壊に伴うK殻電離”を選んだ。この現象が起きるとβ線とニュートリノのほかK殻電子が飛び出しK殻に空孔を残す。このK空孔は外殻電子によって埋められ，同時にX線またはオージェ電子を放出する。すなわち，K殻電離が起きると2つの電子とKX線が飛び出る。世界的には，このKX線を検出してK殻電離の全遷移確率を決める実験が数多く行われるようになった。筆者は，全遷移確率を決めるだけでなく電離機構のより詳しい情報を得るため，2つの電子のエネルギー和の関数として遷移確率を測定する実験をやることにした。測定にはβ崩壊核種 ^{147}Pm と ^{63}Ni を選んだ。^{147}Pm に対してはアントラセン結晶を二分し切断面の中央に $^{147}PmCl_3$ の溶液を垂らし乾燥後，二分した結晶を光電子増倍管上で接合し電子検出器とした。このようにすれば ^{147}Pm のK殻電離後でてくる2つの電子をアントラセン結晶で捕えることができる。アントラセン結晶から抜け出た40 keV Sm KX線をアントラセン結晶に密接させた5 mm厚のNaI(Tl)で検出し，電子信号とX線信号の同時計測を行った。^{63}N に対しては大型の比例計数管（10 cmϕ × 30 cm）内に線源を挿入して2つの電子を検出できるようにした。この計数管の窓から出てくる8.1 keV Cu KX線を隣接した小型比例計数管（5 cmϕ × 30 cm）で検出し，電子信号とX線信号の同時計測を行った。計数管に挿入する ^{63}Ni 線源の作成には苦労したが，ホルンバール（Formvar）を利用する薄膜作成技術を使って解決できた。これらの実験結果をまとめて学位論文とし，学術誌[2]に投稿して直ちに受理された。後になって，この実験が原子物理学の関連分野の実験研究を紹介する教科書に詳しく取り上げられていることを知って何か誇らしい気になった。

3．論争に戸惑って

“β崩壊に伴うK殻電離”の実験に並行してその遷移確率の理論計算もやった。清水研の先輩が，水素型の相対論的波動関数を使って，K殻電子と連続状態の電子の重ね合せ積分（Overlap Integral）の計算式を作ってくれた。この式を基にして，主だったβ崩壊核種の遷移確率を計算した。その際，終状態にある2電子の反対称化を忘れなかった。J. Law と J.L.Campbell も同じ計算をやってその結果が先に学術誌に掲載された。彼らの結果が筆者の結果の約2倍であるのを知って，彼らの2電子反対称化の手続きが間違っていると確信した。直ぐに間違いを正す速報を書いたが，このことが4年間も続く大きな論争になるとは思わなかった。Law と Campbell との手紙によるやり取りの最中，アメリカ・アルゴンヌ研究所の M.S.Freedman 先生も議論に参入して来た。別格の大御所だったので，彼の手紙を受け取って非常に驚いた。清水先生にも強烈な反論の手紙がきた。内容は“反対称化で遷移確率が2倍になることこそ量子効果である”である。これは大きな間違いだ。2電子の反対称化を考慮すると遷移確率が下がることは，量子力学を少し勉強した者なら，誰でも分かる筈だ。論争の原因が単純な誤解によるものだと分かって安心した。しかし，著名な Freedman から手紙が来て以来，研究室の雰囲気が変わった。研究室での議論はなくなり筆者が間違っていることを危惧していることを肌で感じた。それでも，自分の計算結果を論文にして *Physical Review* に投稿したが，1年も待たされて，編集長名で掲載を拒否する旨の連絡が入った。レフリーの説明は一切なく，編集方針から掲載しないという紋切型の返事であった。

その後，フランスで開かれた原子物理学の若手研究者のための夏の学校で Freedman と直接議論する機会を持った。筆者の拙い英話のせいか話が通じないし，反対称化の議論をしても納得してもらえない。夕方薄く霞んだ地中海の波打ち際で途方に暮れていたら，Freedman と同じアルゴンヌ国立研究所の井口道生先生が話かけてくれた。昼 Freedman と討論している姿が心配になって探しに来たのだ。筆者の話を丁寧に聞いた後，夏の学校に来ている理論屋の J. W. Cooper と T. Åberg に相談するよう勧めてくれた。翌日先生に付き添われて彼らと話をしたら，“原子核崩壊に伴う電離現象”そのものに興味を示し，筆者の遷移確率の計算は国に帰って詳しく検討すると約束してくれた。1976年フランス・オルセー原子核分光センターの R.J.Walen 先生の研究室に滞在中に Law とも会う機会があった。先生の世話で1週間毎日議論することができたが，彼は反対称化の議論に納得しないままスイスのセルンに戻っていった。その1か月後，Law から思いがけない手紙を受け取った。理論計算の間違いに気付いたということ

だった。更に Åberg からも手紙が来て，筆者の計算に間違いがないことを知らせてくれた。1978 年にやっと Cooper と Åberg の論文[3] が出て長い論争に決着がついた。その後，Freedman 等は新しい理論計算の論文を出した。前の論文の誤りについての議論があると期待していたら，引用文献欄に筆者との議論を感謝するとのたった 1 行の記述しかなく，全く拍子抜けした。

4．R. J. Walen 先生と

Walen 先生と初めて会ったのは，夏の学校が終わってオルセーにある原子核分光センターを訪ねた時である。形式的な訪問のつもりが 1 週間近く滞在することになった。いきなり“論争”について講演をさせられたり，所内の研究会に出席させられたり，周りにある研究所に連れて行かれ所長や著名な研究者に紹介してくれた。生まれて初めて一人前の研究者として扱ってもらって本当に嬉しかった。帰り間際“1，2 年オルセーで一緒に仕事をしないか”という誘いを受け，その旨をしたためた清水先生宛の手紙を携えて帰国した。1976 年 9 月から Walen 先生の研究室で共同研究を始めることになった。

研究テーマは“電子捕獲崩壊に伴う 2 重 K 空孔の生成”を選んだ。電子捕獲崩壊では，通常，K 殻の 2 電子のうち 1 つが原子核に吸収され，原子は K 殻に 1 つの空孔を持つ状態になる。非常に小さい確率であるが，K 殻の 2 電子の内 1 つは原子核に吸収されもう 1 つは外に飛び出す過程もある。このとき，原子は 2 重の K 空孔を持つ状態になる。この 2 重 K 空孔の遷移は主に 2 つの L 殻電子が 2 つの光子を放出して K 殻に移る過程（2 光子放出過程）と 1 つの光子を放出して K 殻に移る過程（1 光子放出過程）とがある。2 光子放出過程で最初に飛び出す X 線は 2 重の空孔状態で発生するので，そのエネルギーは 1 重の空孔状態で発生する通常の KαX 線よりエネルギーが少し高い。この 2 重 K 空孔から最初に飛び出る X 線をハイパーサテライト K X 線と呼び，$K\alpha^h$ X 線と書く。1 光子放出過程では，2 つの L 殻電子がほぼ同時に K 殻に移り KαX 線の約 2 倍のエネルギーを持つ X 線を放出する。この 1 光子放出過程で飛び出す X 線を KααX 線と呼ぶ。当時，重イオン衝突実験で原子の 2 重 K 空孔の研究が進んでいた。原子核崩壊，特に，電子捕獲崩壊や内部転換過程のように軌道電子が原子核と直接相関する崩壊では 2 重 K 空孔が生成されることが知られていた。しかし，このような崩壊に伴う 2 重 K 殻空孔の生成確率は，崩壊あたり 10^{-4}～10^{-5} と非常に小さく実験的に検証することは難しい。電子捕獲崩壊に対しては，1960 年から実験的試みが数多く行われたが，当時使用できた X 線用検出器のエネルギー分解能が不十分なこともあって，$K\alpha^h$ X 線を確認できるような実験はまだなかった。

電子捕獲崩壊に伴う 2 重 K 空孔の生成確率は $K\alpha^h$ X 線を計数することにより実験的に決めることができる。測定核種として ^{131}Cs を選んだ。^{131}Cs は ^{130}Ba(n, γ) 反応で作った ^{131}Ba の電子捕獲崩壊で生まれてくる。実際には $Ba(NO_3)_2$ の粉末を中性子照射した試料から，^{131}Cs を化学操作で取り出す。筆者は京大放射性同位元素総合センターの同僚の無機化学屋から初歩の化学分離の手解きを受けていた。そのためイオン交換樹脂が ^{131}Cs の分離精製に最適であることが予想できた。半年以上工夫を凝らした結果，10 mmϕ ×120 mm，2 mmϕ×70 mm，0.3 mmϕ×15 mm の大中小 3 個のイオン交換樹脂用のカラムを使い分けて，0.5 g の $Ba(NO_3)_2$ から無単体 20 MBq の ^{131}Cs を分離できた。特に，最小のマイクロカラムを使う過程で，ほぼ 100％の収率で，液滴約 40 μL 中に ^{131}Cs を濃縮できたことが分かって Walen もいたく感激してくれた。液滴中のわずかな交換樹脂の残該は，真空蒸着装置を使って ^{131}Cs を選択的にアルミニウム箔上に蒸着することによって，取り除くことができた。この線源で測定を始めたら予想外に 2, 3 日で $K\alpha^h$ X 線が確認できた。統計を上げるため半年に渡る長期測定を行った。論文を書く段階になって意気揚々と 1977 年 11 月に日本に戻った。膨大な実験データの解析をやる間に，解析上の問題点が表われその解決のため Walen は 2 度も 3 か月単位でオルセーに呼んでくれた。その間論文を完成させるため，^{131}Cs の分離精製法の効率化，条件付ピークフィットのプログラム開発，MCDF（Multi-Configuration Dirac-Fock）計算コードを使った多重空孔状態のエネルギー計算等必死で働いた。論文[4] ができ上がったのは 1982 年で，足かけ 6 年の大仕事であった。

Walen 先生とはいろんな思い出話がある。所長業で忙しいにも関わらず，^{131}Cs の分離濃縮作業を喜々

として手伝ってくれた。ガラスピペットがうまく作れなくて相談すると，数日後図面通りのピペットが10本近く筆者の机の上に置かれている。分離濃縮作業の開始前，実験室に日本式の雑巾がけをやっていると，やり方を聞いてドラフト内部に大きい体を潜りこませて清掃を手伝ってくれる。時々，実験室は管理区域なのに構わず紅茶とお菓子を持って現れ，隅にある小さい作業机を囲んで長話をした。Walenはオランダ人である。Marie Curieに憧れてフランスに来てすぐに娘婿のJ. F. Joliot-Curieに師事した。ラジウム研究所に居た頃，約1 Ci（37 GBq）のAm-Beの中性子線源を日に1回指でつまんでガラス容器に移す操作を繰り返すことがあった。その結果，人さし指と親指に炎症を起こし，治ったころには親指の指紋が無くなってしまったといって，その指を見せてくれた。人体影響を気にしない世代，ラジウム研究所で活躍した多くの研究者が放射線障害の影響で亡くなったことを教えてくれた。これまでの推定被ばく量から考えて，あの確率的影響のLNT仮説（Linear non-threshold hypothesis）は間違いだと思うとも言った。Walen先生のもとで“放射線・放射能の研究とはどんなものか”を骨の髄まで叩き込まれた。

5．一人になって

1977年11月フランスから京大放射性同位元素総合センターに戻って，電子捕獲崩壊核種^{55}Feの2重K空孔から飛び出るKαα X線の探索実験を始めた。重イオン衝突実験でKαα X線が見つかって以来，原子核崩壊でも同じX線を見つける試みが行われるようになった。筆者もWalenと探索実験を試みたが失敗している。自然鉄の中性子照射試料から作成した^{55}Fe線源は多量の担体（^{56}Fe，^{57}Fe，^{58}Fe）が含まれているため，これらが超微弱なKαα X線の観測を邪魔したと考えられる。Kαα X線の観測には^{131}Cs線源のような完全に無単体で不純物の無い線源を準備しなければならない。これがWalenとやった実験の結果である。無単体の^{55}FeはNEN（New England Nuclear, USA）に依頼して^{55}Mn(p, n)^{55}Fe反応で作ってもらった。NENからの原液には不純物として^{54}Mnが含まれているのでイオン交換樹脂のマイクロカラムで取り除いた。このようにして作成した線源を使って初めて問題のKαα X線を見つけることができた。この仕事は原子核崩壊からのKαα X線の最初の実験的検証になると思いすぐ論文[5]にした。レフリーからは難しいコメントはなく，“Congratulation！”という言葉をもらって非常に喜んだ記憶がある。

1990年京大化学研究所の助教授になるとすぐ“β崩壊に伴うK殻電離”の研究に戻った。β崩壊では原子の中心にある電荷が突然変化して原子を電離する。加速器を使って陽子を原子に衝突させる場合，陽子の速度が軌道電子の速度より遅いので，中心部の電荷は断熱的に変化すると近似できる。断熱変化より突然変化の方が激しい内殻電離を起こし，X線スペクトルは非常に複雑なものになるが，まだ誰も観測していない。そのようなスペクトルを最初に観測しようと決心した。それで，博士課程の学生とβ崩壊核種^{35}SからのX線を高分解能で観測する実験を始めた。^{35}SのK殻電離で飛び出るX線のエネルギーは約2.6 keVである。このような低エネルギーではSiやGe系のX線用検出器を使っても分解能は足らない。そのため，アイソトープ線源からの低エネルギー光子を高分解能で検出するための結晶分光装置を開発することにした。径7 μmのカーボンファイバーを抵抗芯線とする位置検出用比例計数管，強力な磁石を使った小型のβ線排除装置，空気によるX線の吸収を無くすための特殊真空槽等工夫を凝らして，約2年かけて，完成させた。結晶分光装置を使う場合，線源の放射能強度は非常に強くなければならない。通常のX線検出器を使う場合の10^3～10^4倍の強度が必要である。^{35}Sは無単体の原液を市販品として購入できた。そのため分離・精製・濃縮は比較的簡単にイオン交換樹脂のマイクロカラムだけででき，約370 MBqのX線分光用線源の作成に成功した。このような強線源でも結晶分光装置によるX線スペクトル測定は45日かかった。結晶分光装置の前で，毎日，スペクトルをはらはらしながら見ていた。10日目には予想どおりのスペクトルであることが確信できて小躍りして喜んだ。最終的に得られたX線スペクトルは，K空孔だけでなく，KM-2重空孔，KL-2重空孔，KLM-3重空孔，KLL-3重空孔等の生成を示す非常に複雑なものだった。この仕事は学生の学位論文となると同時に論文[6]で公表した。筆者にとっては快心の仕事と思っ

たが，反響はあまりなかった。“原子核崩壊に伴う原子の内殻電離”も原子物理学および原子核物理学の衰潮と共に興味を持つ研究者が少なくなったのだろう。

1996年放射性同位元素総合センターの教授になった。そして2006年京都大学を退職した。この10年間は学問的には不作の時代であった。京大の放射線安全管理に関わる業務や国立大学の法人化に向けての対応業務等で謀殺され，学問どころではなかった。退職後すぐに“がん”が現れ，1年間ボウに振った。その後，不作の時代の鬱憤を晴らすべく，やり残した実験データの解析や放射線検出器の開発研究をやっている。放射性同位元素総合センターや古巣の研究室に助けられて，いまも好きな仕事を続けることができて幸せな奴だと思う。

（京都大学名誉教授）

参考文献

1）S. Shimizu, *et al., Phys. Lett.,* **25B**, 124-125（1976）
2）Y. Isozumi, *et al., Phys. Rev. C,* **4**, 522-535（1971）
3）J. W. Cooper, *et al., Nucl. Phys. A,* **298**, 239-245（1978）
4）Y. Isozumi, *et al., Phys. Rev. C,* **25**, 3078-3090（1982）
5）Y. Isozumi, *Phys. Rev. A,* **22**, 1948-1952（1980）
6）D.Ohsawa, *et al., Phys. Rev. C,* **60**, 044604（1-9）（1999）