外部作用による放射能半減期の変化†

清水 榮

京都大学化学研究所，放射性同位元素総合センター

1. まえがき

放射性原子の崩壊定数 λ あるいは半減期 $T = \log 2 / \lambda$ はその原子に固有な一定不変の定数で，あらゆる外的な物理および化学的作用によらないものと考えられてきた。これは放射能研究の初期の時代より種々の外的作用により λ を変化させようという実験的試みの結果がいずれも不成功であったためである。初期の時代に多くの研究者は当時使用できた天然の放射性物質の温度を零下 250°C より 3,000°C まで変化してみたり，2,000 気圧の高圧で圧縮してみたり，強力な電場，磁場，遠心力場においてみたりしたが， λ の変化がみられなかった。有名な実験としてたとえば，Rutherford¹⁾ は Rn を 1,000 倍以上に圧縮しても，その T が 0.05% 以内で一定であることをみている。これはのちに Mme Curie²⁾ によっても同様な実験で確かめられている。Mme Curie と Kamerlingh Onnes³⁾ は Ra 試料を液体水素の温度 (20K) においたが λ の変化は実験誤差以上は認められなかった。Hevesy⁴⁾ は U および RaD の試料を 800 mg の Ra より β および γ 線にさらしてその影響を注意深く観測したが，測定にかかるほどの効果を見出さなかった。A.H. Compton⁵⁾ は Rn 試料を 2,000 × g の遠心力場においてみたが結果はネガティブであった。その後 1920 年代にもこうした T を変える試みがなされたが，いずれも実験誤差以上の有意義な変化を見出すことができなかった。1942 年に Freed, Jaffey, Schultz⁶⁾ は空気駆動式の高速回転体を利用して種々の人工放射性核種について $9.7 \times 10^5 \times g$ までの高い遠心力場を作用させ， T が変化するか否かの実験を試みたが，やはり実験誤差以上の変化を認めることはできなかった。このように外からの物理的，化学的作用によっては放射能の T は変わることがなく，おのおのの放射性原子に固有な定数であると考えられてきた。一般に放射能は原子核の現象であり，通常われわれが起こすことのできる物理的，化学的作用に比してはるかに強大な核力の支配する世界の

できごとであることを思えば当然である。加速した荷電粒子や中性子によって核反応を起こし， λ がまったく異なる核を生成することは λ を変える話とはべつのことである。

その後放射能の研究が進むにつれ放射性崩壊について多くの事実が解明されてきた。1921 年になって Ellis⁷⁾ によって連続 β 線スペクトル中に現われる単一エネルギーの電子スペクトルが殻電子の放出によるもので，このエネルギーは核より放出される γ 線のエネルギーと光電効果の Einstein 式と同じ式で関係づけられていることがわかった。1933 年になって Taylor と Mott⁸⁾ により，この現象は核の励起準位の転移のときに転移エネルギーが γ 線の形で放出される代わりに直接殻電子に与えられて起きることが明らかになった。それで今日理解されている内部電子転換 (以下 IC と略記) の現象ははっきりした。人工放射性核が生成されるに至り， β^+ 崩壊核が見出された。 β^+ 崩壊では核内の陽子が中性子に変わって陽電子とニュートリノが放出されるのであるが，この場合に核外にある殻電子，すなわち束縛状態の陰電子が核に捕獲されて陽子が中性子になる可能性がある。これは 1935 年湯川と坂田⁹⁾ により理論的に指摘されたが，1938 年になって初めて Alvarez¹⁰⁾ によって ^{67}Ga で実験的に検証された。 β^+ 崩壊は母核と娘核の質量差が $(m_0 + \mu)c^2$ 以上のときのみ可能である。この場合には殻電子捕獲 (以下 EC と略記) も起こりうるが，これより質量差が小さいときには EC のみ起こる。一般には K 殻電子が核に最も近いので K 電子の捕獲が起こりやすい。EC 型の核崩壊をする核種は今日では数多く知られている。

この 2 つの型の核の変換はいずれもその原子の核外にある殻電子と核との直接の相互作用によるものであり，当該電子の核の近傍における電子密度 $|\psi(0)|^2$ に

† External Effects on the Radioactive Half-Life. Sakae SHIMIZU: Institute for Chemical Research and Radioisotope Research Center, Kyoto University, Sakyo-ku, Kyoto.

比例していることがわかっている。したがって外的原因によってこの電子の核のところでの波動関数 $\Psi(0)$ に影響を及ぼすことができれば、上記2つの型の核崩壊の半減期 T あるいは崩壊定数 λ を変化させることが可能であることが予想される。

1947年に至って Berkeley の Segrè¹¹⁾ および Paris のラジウム研究所の Daudel¹²⁾ は EC 崩壊の場合にはその原子を含む化合物の形を変えることによって λ が変化しうることが最初に指摘した。化合物の形を変えると当該殻電子の $\Psi(0)$ が変化して、 λ の変化となって観測しうると予想した。主として、K, L 殻電子が捕獲されるので、原子番号の小さい核種のほうが観測しやすい。具体的には ${}^7\text{Be}$ の K 電子捕獲がこれに適しているとして、Paris の Daudel, Bouchez ら^{13), 14)} が、ついで Berkeley の Segrè ら^{15), 16)} のグループが実験した。また IC についても上記のごとき理由で λ の変化を期待しうることが指摘された。転移エネルギーが小さいほど外殻の電子の寄与が大きく、内部転換係数も大きいので化合物の形の影響を受けやすいと考えられ、 ${}^{99m}\text{Tc}$ ($T=6.04\text{h}$) の E 3 転移について Brookhaven 国立研究所の Bainbridge, Goldhaber, Wilson¹⁷⁾ のグループによって最初の実験が行なわれた。

以上要するに放射能の T を人為的に変える試みは戦前に多く試みられたが、いずれもネガティブな結果であった。戦後になり EC と IC の2つの型について外的作用により $\Psi(0)$ を変えることができれば λ 、したがって T を変えうるという予想のもとにこの種の試みが行なわれるに至った。EC と IC での λ の核物理学的理論の詳細は割愛するが、 λ は $|\Psi(0)|^2$ 、すなわち関与する殻電子の核の近傍での電子密度に比例する。これを変えてやればよいということのみにとどめておく。

以下主として、微小な λ の変化を測定する方法の原理と従来実験されて一応の結果が得られた核種について述べ、これに関連して若干の研究を述べることにする。

2. λ の微小な変化 $\Delta\lambda$ の測定原理

外的作用により λ が変化する場合、その差 $\Delta\lambda$ は一般に 10^{-3} のオーダー以下なので、単に放出される核放射線強度の減衰を時間に対し semi-log の直線で表示し、この傾斜より λ あるいは T を求めるという方法では精度よく測定することは困難である。微小な $\Delta\lambda/\lambda$ を測定するには一般に Rutherford¹⁾ によって考案された Differential 法または Balance 法という手段に

よる。測定の原理は、構造および性能の等しい2個の検出器 M_1 と M_2 を使用する。これの感度あるいは利得をそれぞれ G_1, G_2 とする。最初に強度が大体等しい放射線源 S_1, S_2 をそれぞれ M_1, M_2 で測定する。その崩壊定数をそれぞれ $\lambda, \lambda+\Delta\lambda$ とする。両検出器の出力を利得 G をもつ差動増幅器に入れ、その出力 $E(t)$ を測ると、

$$E_1(t) = G[G_1 S_{1-1} e^{-\lambda t} - G_2 S_{1-2} e^{-(\lambda+\Delta\lambda)t}], \quad (1)$$

このとき M_1, M_2 が電離槽型であれば測定するイオン電流の符号を両者で反対になるように集電極および槽壁に印加する電圧を逆にしておけば、差動増幅器を使用せずして直接 $E(t)$ が測れる。第2回目の測定で λ をもつ放射線源を M_2 で、 $\lambda+\Delta\lambda$ のものを M_1 で測定すると、出力は

$$E_2(t) = G[G_1 S_{1-2} e^{-(\lambda+\Delta\lambda)t} - G_2 S_{1-1} e^{-\lambda t}] \quad (2)$$

となる。この場合第2回目は第1回目の線源と同じものを入れ換えて使用してもよいし、新たに作った線源を使用してもよい。測定時間 t が同じであれば、この両式より $\Delta\lambda \ll \lambda$ とし、

$$\begin{aligned} \Delta E(t) e^{\lambda t} &= \frac{1}{2} [E_1(t) - E_2(t)] \\ &= \frac{1}{2} G [G_1 (S_{1-1} - S_{1-2}) - G_2 (S_{1-2} - S_{1-1}) + (G_2 S_{1-2} + G_1 S_{1-2}) \Delta\lambda t] \end{aligned} \quad (3)$$

となる。この式は $y = a + bt$ の形の t の1次式で、

$$y = \Delta E(t) e^{\lambda t}, \quad b = \frac{1}{2} G (G_2 S_{1-2} + G_1 S_{1-2}) \Delta\lambda$$

で与えられる。したがって t の関数として $\Delta E(t) e^{\lambda t}$ をプロットして最小二乗法により直線を求めると、その傾斜より $\Delta\lambda$ をただちに知ることができる。この方法によれば測定器の感度による誤差も少なくすることができて、この1組の測定を何回も行なえば、微小な $\Delta\lambda/\lambda$ とその標準偏差を精密に知ることが可能である。実際の場合には放射線源の寿命、測定する核放射線の種類によって種々くふうを施して多少変更した方法を用いる。2個の検出器を用いる代わりに1個のみ使い、比較すべき2種の線源のおのおのをまったく同じ幾何学的配置で交互に測定して上記の1組のデータを得ることも行なわれる。いずれにしても測定には長時間を要することが多いので、測定器系の極度の安定性や測定の幾何学的配置の厳密な再現性が要求される。また線源に測定すべき核種以外の放射能的混入物がまったく存在しないよう線源の調製に細心の注意を要することはもちろんである。

3. 殻電子捕獲 (EC)

3.1 ${}^7\text{Be}$

${}^7\text{Be}$ の T は 53.6 d で、歴史的に言って、最初に化学結合の違いによって T が変わることが測定された核種である。その崩壊図式を図 1 に示す。 λ の測定には ${}^7\text{Li}$ の励起準位に落ちてから放出される 477 keV の γ 線を検出して行なう。 ${}^7\text{Be}$ は比較的簡単な原子であるが、Be 金属、BeO、BeF₂ の場合にこの崩壊を支配する殻電子の Be 核のところでの電子密度、すなわち $|\Psi(0)|^2$ を定量的に正確に計算することは困難である。しかし、定性的にこの電子密度は Be(金属) > BeO > BeF₂ の傾向にあることが推定される。したがって λ についても $\lambda_{\text{Be(金属)}} > \lambda_{\text{BeO}} > \lambda_{\text{BeF}_2}$ であることが予想される。

図 1 ${}^7\text{Be}$ の崩壊図式

1947年 Bouchez ら¹³⁾は初めて実験的に ${}^7\text{Be}$ 金属と ${}^7\text{BeCl}_2$ について 477 keV の γ 線を 1 個の計数管を使用して測定し、両者について減衰の割合の差異を見出そうと試みたが、実験技術がこれを検出するほど精巧でなかったため、実験誤差以上の λ の違いは認めることができなかった。かれらは装置を改良し、2 個の電離槽を用いる上記の Differential 法を利用して、その翌年から精密な実験を行ない、 ${}^7\text{Be}$ 金属と ${}^7\text{BeF}_2$ との間の λ の差を検出した¹⁴⁾。 ${}^7\text{Be}$ はサイクロトロンを使い、6.7 MeV の重陽子により ${}^7\text{Li}(d, n){}^7\text{Be}$ 反応によって得ている。その後 1956 年かれら¹⁵⁾はさらに正確な実験を繰り返している。このときは純黒鉛を Harwell のシンクロ・サイクロトロン の 160 MeV の陽子で衝撃して ${}^7\text{Be}$ を作っている。

1948 年 Segrè と Wiegand¹⁵⁾は λ_{BeO} と $\lambda_{\text{Be(金属)}}$ とのわずかの差を Differential 法で測定した。2 個の同一構造のアルゴン入りの電離槽を用い、両者を小さい銅パイプで結び、内部のアルゴンの気圧 (23°C で 135.6 cm Hg) を共通にし、両者の電極を接続して、精

密な真空管式電位計によりイオン電流を測定している。各試料はルーサイト棒の先に付したアルミ片にワックスで固定して電離槽に直接挿入している。測定は 1 週間くらいの割合で行ない、全観測日数は 4 か月にわたっている。 ${}^7\text{Be}$ 試料は、サイクロトロンによって ${}^7\text{Li}(p, n){}^7\text{Be}$ 反応によって得ている。かれらは同じ方法で引続き λ_{BeO} と λ_{BeF_2} の差を測定している¹⁶⁾。

その後 1953 年 BNL の Goldhaber らは 2 個の電離槽を使用する Differential 法であとで述べる核異性体 ${}^{99m}\text{Tc}$ について精密な実験を行なったが、引続いてこの装置で Bainbridge ら¹⁹⁾は ${}^7\text{Be}$ 金属、 ${}^7\text{BeO}$ 、 ${}^7\text{BeF}_2$ について実験を行なった。有効数字 3 桁までの実験値を得ている。

1969 年にさらに多くの Be の化合物について λ の変化を 2 個の電離槽を使用する Differential 法で München の研究者²⁰⁾が測定した。かれらの結果によれば λ の大きさの順は

$$\lambda(\text{Be}_4\text{O}(\text{CH}_3\text{COO})_6) > \lambda(\text{Be}^{2+}(\text{OH}_2)_4) > \lambda(\text{Be}) \\ > \lambda(\text{BeO}) > \lambda(\text{Be}(\text{C}_5\text{H}_5)_2) > \lambda(\text{BeF}_2) > \lambda(\text{BeBr}_2)$$

であった。このことはこうした化合物中に Be がはいっているとき核のところでの Be の殻電子の電子密度の大きさがこの順序になっていることを意味する。

最近ハンガリーの Vatai と Ujhelyi²¹⁾は $\text{Be}_2\text{P}_2\text{O}_7$ と $\text{Be}^{2+}(\text{OH}_2)_4$ の両化合物中での ${}^7\text{Be}$ の λ を比較する測定を行ない、相対的差 $\Delta\lambda/\lambda = (18.0 \pm 4.3) \times 10^{-4}$ を得ている。いままです測定された化合物のうち $\lambda(\text{Be}_2\text{P}_2\text{O}_7)$ は $\lambda_{\text{Be(金属)}}$ より最も大きい差を示していて、この差は相対的に 20×10^{-4} に達する。EC の λ はこの場合主として 2 s 殻に電子が存在する確率によって決まるとし、この実験結果を信用すれば 2 s 状態での電子数の変化は約 13% くらいになると言っている。

以上各研究者によって測定された λ の変化を表 1 にまとめて示す。 $\Delta\lambda/\lambda = \Delta T/T$ である。

3.2 ${}^{90}\text{Zr}$ および ${}^{90}\text{Sr}$

${}^{90}\text{Zr}$ の T は 78.4 h で、その崩壊図式を図 2 に示す。強誘電体 BaTiO_3 は常温で正方晶系で、自発分極を有し、Ti 原子の位置で 10^8 V/cm 程度の強い内部電場があると思われる。Curie 点は 120°C で、これ以上の温度では等軸晶系になり、自発分極は消えて常誘電体になる。もし Ti 原子の位置に ${}^{90}\text{Zr}$ を入れれば、この強力な内部電場の影響が殻電子状態に作用し、 ${}^{90}\text{Zr}$ の EC の λ が変化することが期待される。図 2 で示す 910 keV の γ 線放出が $\text{BaTi}({}^{90}\text{Zr})\text{O}_3$ 線源を常温にした場合と Curie 点以上の温度とで異なるか否かを測定

表1 化合物による ^{7}Be の λ の相対的差異

No.	比較組合せ	$\frac{\Delta\lambda}{\lambda} \times 10^4$	実験者
1	$\lambda_{\text{Be金属}} - \lambda_{\text{BeF}_2}$ (非晶質)	$\simeq 60$	Bouchez, et al. ¹⁴⁾ , (1949)
2	$\lambda_{\text{Be金属}} - \lambda_{\text{BeF}_2}$ (非晶質)	12+1	Bouchez, et al. ¹⁸⁾ , (1956)
3	$\lambda_{\text{Be金属}} - \lambda_{\text{BeO}}$ (結晶質)	1.5+0.9	Segré and Wiegand ¹⁵⁾ , (1949)
4	λ_{BeO} (結晶質) - λ_{BeF_2} (結晶質)	6.9+0.3	Leiniger, Segré and Wiegand ¹⁶⁾ , (1951)
5	$\lambda_{\text{Be金属}} - \lambda_{\text{BeF}_2}$ (結晶質)	8.4+1.0	" " "
6	$\lambda_{\text{Be金属}} - \lambda_{\text{BeF}_2}$ (結晶質)	7.41+0.47	Kraushaar, Wilson and Bainbridge ¹⁹⁾ , (1953)
7	λ_{BeO} (結晶質) - λ_{BeF_2} (結晶質)	6.09+0.55	" " "
8	$\lambda_{\text{Be金属}} - \lambda_{\text{BeO}}$ (結晶質)	1.31+0.51	" " "
9	$\lambda_{\text{BeO}} - \lambda_{\text{BeF}_2}$	11.3±0.58	Johlige, Aumann, and Born ²⁰⁾ , (1970)
10	$\lambda_{\text{BeO}} - \lambda_{\text{Be}_4\text{O}(\text{CH}_3\text{COO})_6}$	-7.24±0.57	" " "
11	$\lambda_{\text{BeO}} - \lambda_{\text{BeBr}_2}$	14.72±0.63	" " "
12	$\lambda_{\text{Be}_4\text{O}(\text{CH}_3\text{COO})_6} - \lambda_{\text{BeF}_2}$	18.52±0.82	" " "
13	$\lambda_{\text{BeO}} - \lambda_{\text{Be}(\text{C}_2\text{H}_5)_2}$	7.95±0.74	" " "
14	$\lambda_{\text{BeO}} - \lambda_{\text{Be}^{2+}(\text{OH}_2)_4}$	-3.74±0.77	" " "
15	$\lambda_{\text{Be}(\text{C}_2\text{H}_5)_2} - \lambda_{\text{Be}^{2+}(\text{OH}_2)_4}$	-11.69±1.06	" " "
16	$\lambda_{\text{Be}_2\text{P}_2\text{O}_7} - \lambda_{\text{Be}^{2+}(\text{OH}_2)_4}$	18.03±4.3	Vatai and Ujhelyi ²¹⁾ , (1972)

注：Nos. 1～8 は分母の λ は表の比較組合せの前者の λ をとってある。Nos. 9～15 は分母の λ は $\lambda_{\text{Be}}(\text{金属})$, No.16の分母の λ は論文に明記していないが, $\lambda_{\text{Be}_2\text{P}_2\text{O}_7}$ である。誤差は標準誤差である。

図2 ^{89}Zr の崩壊図式

する。BaselのP. Huber一派^{22), 23)}はこの実験を行った。かれらは2個の同じNaI(Tl)検出器を用い1対の $\text{BaTi}(^{89}\text{Zr})\text{O}_3$ 試料を測定した。このとき試料の一方を熱した。計数率の時間的変化を追跡するかれらのいう“Steigungs”法と比較的短い時間間隔に一方の線源の温度をCurie点以上に上げたり下げたりして温度変化による計数率の変化を決める“ $\Delta\lambda$ -Sprung”法と称する方法を用いた。強誘電状態の BaTiO_3 中で ^{89}Zr は等軸晶系状態中にあるときより減

衰が遅くなることを見出した。 λ の変化は

$$[\lambda(\text{BaTi}(^{89}\text{Zr})\text{O}_3, 150^\circ\text{C}) - \lambda(\text{BaTi}(^{89}\text{Zr})\text{O}_3, 22^\circ\text{C})] / \lambda(^{89}\text{Zr}) = (6.2 \pm 0.2) \times 10^{-4}$$

EC部分のみに対しては $\Delta\lambda_{\text{EC}}/\lambda_{\text{EC}} = (8.0 \pm 0.3) \times 10^{-4}$ であった。この場合内部電場自身はECの λ に大きな影響はなく、測定された変化の大部分は単一結晶セル中での対称的位置から ^{89}Zr が変位するために核のところでの電子密度が変化することによると考えられる。

同様な測定が BaTiO_3 に置かれた ^{88}Sr についてもBaselの人々²⁴⁾によって行なわれ、簡単な予報が発表された。 ^{88}Sr のEC崩壊は $T=65.2\text{d}$ である。しかし、この場合は陽電子放出は伴わない。 λ の変化の符号は ^{89}Zr の場合と同じであるが、その大きさははるかに小さい。すなわち $\Delta\lambda/\lambda = (0.49 \pm 0.29) \times 10^{-4}$ であった。 ^{89}Zr の場合との差異はおそらくZr原子は置換されるTiと同じ d^2s^2 配置をもつが、自由なSr原子は4d電子をもたないためであろう。

3.3 ^{64}Cu

^{64}Cu は図3に示すようにEC, β^+ , β^- の3種の崩壊をする $T=12.8\text{h}$ の核種である。このECに対する化学結合の影響は1968年にハンガリーのKemény²⁵⁾が初めて発表した。金属銅, CuSO_4 水溶液, $[\text{Cu}(\text{NH}_3)_4]$

図3 ^{64}Cu の崩壊図式

SO_4 水溶液での ^{64}Cu の λ の変化の測定を 1345 keV の γ 線を使って行なった。 $[\lambda(\text{CuSO}_4) - \lambda(\text{Cu 金属})] / \lambda(\text{Cu 金属}) = (1.70 \pm 0.64) \times 10^{-2}$, $[\lambda(\text{Cu}(\text{NH}_3)_4\text{SO}_4) - \lambda(\text{Cu 金属})] / \lambda(\text{Cu 金属}) = -(0.87 \pm 0.30) \times 10^{-2}$ のように、 $\Delta\lambda/\lambda$ に対し非常に大きい値を報告したが、測定には NaI(Tl) 検出器を 1 個使用しているのみで、詳細がわからない簡単な報告で、この結果は信用し難い。

最近 Grenoble で Auric と Vargas²⁶⁾ の両名によって α 型フタロシアニン銅中での ^{64}Cu の λ がいかに変化するかに興味ある研究が発表された。この銅化合物を熱中性子の (n, γ) 反応で放射化し、1つの照射試料は約 380°C で 20 分アニーリングする。この両者中での ^{64}Cu の λ を 3・2 に述べた Huber らの方法で比較した。後者の前者に対する λ の相対的差 $\Delta\lambda/\lambda = (10.0 \pm 1.6) \times 10^{-4}$ であることを見出して、この差異はこの化合物中での ^{64}Cu 反跳原子が結晶中で原子状態で安定していることによるのであろうと興味ある議論をしている。 ^{64}Cu の EC は 90% が K 殻によって起こっている。各殻の結合エネルギーが、化合物中で少しく変化することにより、 λ の変化の問題はこうした化合物の ESCA による研究やフタロシアニン銅中の ^{64}Cu のホットアトム化学²⁷⁾ とも関連し、今後とも興味ある問題であろう。

4. 内部電子転換 (IC)

4・1 $^{99\text{m}}\text{Tc}$

$^{99\text{m}}\text{Tc}$ は図 4 に示すように、 $T = 6.04 \text{ h}$ で 2 keV の IC をし、このあとただちに 140 keV の γ 線を出して基底状態に移る。Goldhaber ら¹⁷⁾ は 1951 年にこの IC の λ が Tc 金属、 KTcO_4 、 Tc_2S_7 で互いにわずかに異なっていることを実験的に見出した。2 keV の転移エネルギーによって IC によって出てくる電子は M および N 殻電子である。この場合の内部変換率は非常に大きい。これらの電子が Tc 金属あるいは KTcO_4 内にあるとき放出される確率について Slater²⁸⁾ は大ざっぱな計算を試みている。Tc 原子の間隔は金属 Tc 中では 2.7 Å であるが、 KTcO_4 では Tc 原子と O 原

図4 ^{99}Mo の崩壊図式

子との間隔は約 1.7 Å と予想され、Tc 原子は後者中にあるほうが密に押し込まれていて、IC に関与する 4p 電子が “squeeze” しているとして一応 λ の変化を定性的に説明した。

Bainbridge および Goldhaber らの実験の詳細²⁹⁾ は 1953 年発表された。2 keV の IC の λ の変化は 140 keV の γ 線の強度の減衰を 2 個の鋼鉄製の電離槽 (13.6 atm のアルゴン封入) を用いて Differential 法によって測定した。測定は 20~30 時間にわたるので、測定系の安定性に細心の注意を払っている。 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ はモリブデン板を中性子照射して得る母核 ^{99}Mo より分離して製造している。不純物の影響を除くために苦心している。Tc 金属は銅で薄くコートしたニッケル板上に電着し、水素中で 1,000°C で 1 時間還元したものを使用している。線源は電離槽の中心棒状電極の中部に装填している。かれらの得た結果は

$$[\lambda_{\text{KTcO}_4} - \lambda_{\text{Tc}_2\text{S}_7}] / \lambda_{\text{Tc}_2\text{S}_7} = (27.0 \pm 1.0) \times 10^{-4}$$

$$[\lambda_{\text{Tc}_2\text{S}_7} - \lambda_{\text{Tc(金属)}}] / \lambda_{\text{Tc}_2\text{S}_7} = (3.1 \pm 1.2) \times 10^{-4}$$

1952 年に Bainbridge³⁰⁾ は $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 金属を 10 万気圧で圧縮すると常圧のときより λ が $(2.3 \pm 0.5) \times 10^{-4}$ だけ大きくなったと発表した。この研究の詳細は発表されなかった。これに対し Porter と McMillan³¹⁾ は理論的研究より 10 万気圧で圧縮した $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 金属では $\Delta\lambda/\lambda$ は $(2 \sim 4) \times 10^{-4}$ 程度になることを推論している。

そののちわれわれのグループ³²⁾ は超高圧下で圧縮した場合の $^{99\text{m}}\text{Tc}$ の λ の変化を測定した。8 個のアンビルを有する大型の超高圧装置を製作し³³⁾, carrier-free の $^{99\text{m}}\text{Tc}$ を 10 万気圧で圧縮し、これの λ を非圧縮の標準線源の λ と比較した。この場合には 140 keV の γ 線を 1 個の NaI(Tl) 検出器を使い分ける Differential 法を適用して行なった。超高圧装置を含めた全計測系

の安定性に細心の注意を払い、また圧力媒体として用いた pyrophyllite (葉礫石) の脱水加熱処理、線源の調製等多くの苦労を重ね、最終的な結果として

$[\lambda_{(100 \text{ kbar})} - \lambda_{(\text{非圧縮})}] / \lambda_{(\text{非圧縮})} = (4.6 \pm 2.3) \times 10^{-4}$ を得た。

^{99m}Tc の λ に対する温度およびこの金属を極低温下で超伝導状態においたときの影響について 1958 年に Byers と Stump³⁴⁾ が実験した。線源を 77K と 293K においたときには λ には変化がない。4.2K での実験では、超伝導状態にしたとき、これに 5.3 kG の磁場をかけて超伝導状態を破ったときとを比較してみた。これらの得た実験結果は

$$\lambda(4.2 \text{ K 超伝導状態}) - \lambda(293 \text{ K}) \\ = (6.4 \pm 0.4) \times 10^{-4} \lambda(293 \text{ K})$$

$$\lambda(4.2 \text{ K normal}) - \lambda(293 \text{ K}) \\ = (1.3 \pm 0.4) \times 10^{-4} \lambda(293 \text{ K})$$

超伝導効果は 4.2 で述べる ^{90m}Nb のときと符号が逆になっている。この実験も高圧のアルゴンを充填した 2 個の電離槽を使用した Differential 法によっている。これは固体物性物理学上興味ある問題で、これに関し目下われわれの研究室で ^{99m}Tc について温度、超伝導状態の影響について精密な実験が進行中である。

1970 年 Basel のグループ³⁵⁾ によって ^{99m}Tc の化合物 (Na_2TcCl_6 等) を強誘電体の粉末に混ぜ、0.2mm の厚さに成形して、平行板コンデンサーの間にに入れて、 $2 \times 10^4 \text{ V/cm}$ の電場下で IC の λ が変化するかどうかをみる実験が行なわれた。それによると $\lambda(2 \times 10^4 \text{ V/cm}) - \lambda(\text{電場なし}) = (1.2 \pm 0.2) \sim (1.1 \pm 0.4) \times 10^4 \lambda(\text{電場なし})$ という値を一応得ているが、そののち詳細がないのでこの値の信頼性については何とも言えない。

3.2 で述べた ^{99}Zr の場合のごとく、強誘電体 BaTiO_3 の Ti 原子の位置に ^{99m}Tc を入れて強力な内部電場下で ^{99m}Tc の λ がいかに影響を受けるかの実験が最近われわれの研究室で行なわれた³⁶⁾。 $\text{Na}^{99m}\text{TcO}_4$ 溶液は母核種 ^{99}Mo を含む市販のゼネレーターをミルクングすることによって得た。 $\text{BaTi}({}^{99m}\text{Tc})\text{O}_3$ のセラミック試料は BaCO_3 と TiO_2 の 1:1 の混合粉末に $\text{Na}^{99m}\text{TcO}_4$ を加え円盤状に成型し、1,400°C で 10 分間焼結させて作った。この試料の性質は X 線回折による格子定数、Sawyer-Tower 法による自発分極の測定によって調べた。 $\Delta\lambda/\lambda$ の測定は Differential 法を用いた。同時に作った強度のほぼ等しい 2 つの試料の一方を室温に保ち、他方を Curie 点以上の 170°C に熱した。170°C では BaTiO_3 は常誘電体で内部電場は

ない。2 つの試料より出る 140 keV の γ 線を 2 個の $\text{NaI}(\text{Tl})$ 検出器を使用する Differential 法で測定する。測定法は図 5 に示す。われわれの結果は

$$\lambda[\text{BaTi}({}^{99m}\text{Tc})\text{O}_3, 170^\circ\text{C}] - \lambda[\text{BaTi}({}^{99m}\text{Tc})\text{O}_3, 20^\circ\text{C}] = (2.6 \pm 0.4) \times 10^{-3} \lambda({}^{99m}\text{Tc})$$

である。強誘電体の BaTiO_3 結晶中の ^{99m}Tc は常誘電状態の BaTiO_3 結晶中にある場合より減衰がわずかに遅い。この事実は 2.17 keV, E3 の IC に関する主として M 殻電子が強誘電体相では常誘電体相より内部電場の影響で少しく外側に広がっていることを示すものである。

図 5 BaTiO_3 中での ^{99m}Tc に関して $\Delta\lambda/\lambda$ を測定したときの全測定系。一方の試料は 170°C に熱する。

4.2 $^{90m}_{41}\text{Nb}$

図 6 に示すように $^{90m}_{41}\text{Nb}$ は 24 sec の T で 2.4 keV M2 の IC をして、その後 122.5 keV の γ 線を出し

図 6 ^{90}Mo の部分崩壊図式

て基底状態におさまる。この IC の内部転換率は非常に大きく、主として $S_{1/2}$ と $P_{3/2}$ の軌道が関係する。この核種は λ に対する化学的効果が大きいので有名になり、一時間問題の核種であった。

Berkeley の Cooper, Hollander, Rasmussen³⁷⁾ は ^{90m}Nb の化合物を変えて、これと放射平衡にある T がわずかに $(61 \pm 4) \times 10^{-6} \text{sec}$ の 122 keV の準位よりの E 2 転移の γ 線強度の時間的変化を観測した。Nb のハクを 50 MeV の陽子で衝撃して、 ^{90}Mo を $(p, 4n)$ 反応でうる。このハクを熱い $\text{HNO}_3\text{-HF}$ 溶液に溶かしてフッ素錯塩を作り、122 keV の γ 線の光電ピークの成長曲線を Ge(Li) 検出器で測定した。かれらの結果は $\lambda(\text{金属}) - \lambda(\text{フッ素錯塩}) = (3.6 \pm 0.4) \times 10^{-2} \lambda(\text{金属})$ 。 $\Delta\lambda/\lambda$ が % のオーダーであったので注目された。このあとただちに Göttingen 大学の Flammersfeld 教授ら³⁸⁾ がこれを追試した。Zr ハクを 19 MeV の重陽子でたたき、 $(d, 2n)$ 反応で ^{90m}Nb を得て、金属 Zr 中での ^{90m}Nb と、このハクを $\text{HNO}_3\text{-HF}$ 溶液に溶かして得たフッ素錯塩中での ^{90m}Nb について λ を比較してみたが、1% の実験誤差以上の変化は認められなかったと報告した。それで Berkeley グループの報告した $\Delta\lambda/\lambda$ の大きな値は疑問視されていたが、その後 1970 年になって Harvard 大学の Olin³⁹⁾ がこれを確かめる実験をした。Nb ハクを 50 MeV の陽子でたたいて ^{90}Mo を得ている。かれの結果は Berkeley の連中の大きな $\Delta\lambda/\lambda$ が間違いでないことを一応確かめたものであり、

$$\begin{aligned} \lambda(\text{金属}) - \lambda(\text{フッ素錯塩}) \\ &= (3.9 \pm 0.8) \times 10^{-2} \lambda(\text{金属}), \\ \lambda(\text{金属}) - \lambda(\text{Nb}_2\text{O}_5) \\ &= (-1.87 \pm 0.50) \times 10^{-2} \lambda(\text{金属}) \end{aligned}$$

という数値を得ている。

なお、Olin と Bainbridge⁴⁰⁾ は ^{90m}Nb を 4.2 K の極低温下に置き、超伝導状態にしたときと、これに磁場をかけ超伝導状態を破ったときとの λ を比較して

$$\begin{aligned} \lambda(\text{normal}) - \lambda(\text{超伝導状態}) \\ &= (19.5 \pm 5.5) \times 10^{-4} \lambda(\text{normal}) \end{aligned}$$

の結果を得ている。 ^{90m}Nb と ^{99m}Tc の 4.2 K での超伝導状態とそうでないときの $\Delta\lambda$ の符号が逆になっていることは ^{99m}Tc は E 3 転移で、 ^{90m}Nb は M 2 転移になっていて、関係するマトリックス要素が異なることを考えれば一応理解できる。

Cooper⁴¹⁾ は ^{90m}Nb について超高圧の効果を実験して、 $\lambda(10 \text{ 万 気 圧}) - \lambda(\text{非 圧 縮}) = (6.3 \pm 7) \times 10^{-3} \lambda(\text{非 圧 縮})$ という結果を出しているが、実験誤差は非常に

大きく、あまり正確な実験とは言えない。

4.3 ^{235m}U

図 7 に示すように ^{235}U の第 1 励起準位 ^{235m}U は 26.05 min の T を有し、ほとんど IC のみで基底状態に転移する。この転移エネルギーは 75 eV, $< 23 \text{ eV}$ あるいは $30 \pm 3 \text{ eV}$ と言われいまだはっきりしない点もあるが、いずれにしても数 10 eV 以下で非常に小さく、E 3 転移で主として 6p 状態の殻電子が IC に関係していると思われるので、 ^{235m}U の IC の λ に対する化学結合の効果は大きいであろうと思われる。これに関する実験は最初にわれわれの手で行なわれ、1966 年詳報が発表された⁴²⁾。 ^{235m}U は図に示すように、 ^{239}Pu の α 崩壊によって生成される。きわめて薄い ^{239}Pu 源より α 粒子が放出するとき、その反跳で近くに適当な負電圧を印加した金属板上に ^{235m}U のみ捕集することができる。 ^{235m}U についての実験の困難さは、放出される IC 電子のエネルギーがわずか 30 eV 程度で、IC の T が約 26 min くらいしかないということにあった。このためわれわれはこの低エネルギー放出電子の測定に 2 個の同一構造の demountable な Nier 型の 2 次電子増倍管を使用して、Differential 法を採用した。

図 7 ^{239}Pu の部分崩壊図式

金属ウランは白金板上にアルゴン気流中で ^{235m}U を反跳法で捕集したものを使う。Cu-Be 合金の上に炭素を蒸着し、これを水素中で熱還元したものの上にアルゴン気流中で ^{235m}U を捕えたものを UC 源とし、また USi 源としては塑性変形させたシリコン単結晶板の上に ^{235m}U を捕えたものを作った。これらを 2 次電子増倍管の第一ダイノードとして装填し、増倍管をすばやく 10^{-8} mmHg 以上の高真空にして、Differen-

M_1, M_2 : 2次電子増倍管; A: 差動増幅器; VI: 振動容量型電位計; D: デジタル・ボルトメーター; S_1, S_2 : 線源; H: 高圧電源; R: 記録計; VA: 排気用イオン・ポンプ

図8 ^{235m}U に関して $\Delta\lambda/\lambda$ を測定した時の全測定系。2種の線源は2次電子増倍管の第1ダイノードに直接つける。出力電流は差動増幅器を経てバランスさせる。

tial 法で両試料について $\Delta\lambda/\lambda$ を測定する。図8はこの実験の測定系の block diagram である。振動容量型電位計は $t=0$ における一方の試料の強度を測定するために使用する。測定は、式(1)の $E_1(t)$ と式(2)の $E_1(t)$ をおのおの T の約3倍の時間測り、これを U-UC および U-USi に対して約25回行なった。測定結果は

$$\begin{aligned} [\lambda(\text{U金属}) - \lambda(\text{UC})] / \lambda(\text{U金属}) &= (3.18 \pm 0.80) \times 10^{-3} \\ [\lambda(\text{U金属}) - \lambda(\text{USi})] / \lambda(\text{U金属}) &= (2.21 \pm 0.36) \times 10^{-3} \\ [\lambda(\text{USi}) - \lambda(\text{UC})] / \lambda(\text{USi}) &= (0.97 \pm 0.43) \times 10^{-3} \end{aligned}$$

であった。図9はこの実験で $\Delta\lambda/\lambda$ を得る式(3)に相当する測定結果を示したものである。U-U, ^{14}C - ^{14}C pair に対する直線が水平になっていることは測定系の安定性を示している。

図9 3種の ^{235m}U 試料の比較。直線の傾斜より $\Delta\lambda/\lambda$ を求める。UC は炭素のベースに、USi は Si のベースに ^{235m}U を捕集した試料。U-U, ^{14}C - ^{14}C 対の直線は測定系の安定性のテストのために測定したもの。

そのちベルギーの Mol の核エネルギー研究所の Nève de Mévergnies^{43)~45)}によって ^{235m}U の T に対する化学的環境の影響がさらに詳しく研究されている。実験の初期には ^{239}Pu より出る ^{235m}U を反跳法によりアルゴン中で金属板に捕集して、これを PR ガスの比例計数管で測定していたが、最近真空で捕捉して、そのまま真空中で channeltron 型2次電子増倍管で測定している。 ^{239}Pu より α 粒子の反跳で飛び出す ^{235m}U は約90 keV のエネルギーをもっているので -600V/mm の電場で金属に捕集されるときには、10ないし $100\text{\AA}$ くらい表面より内部に貫入する。放出される電子スペクトルは $2.5\sim 12.5\text{ eV}$ と $50\sim 75\text{ eV}$ の2つの部分に分けられ、この低エネルギー領域の電子については IC の T が捕集金属の電気陰性度との間に明らかに関係があることを見出している⁴⁴⁾。すなわちこの度合の高い Au (約2.5) を host 金属にした場合 T は約27.0minで、電気陰性度の小さいV (約1.63) の場合には25.5minになり、Pt, Ni, Cuでの T はこの中間の値になることを見出した。また最近のかれの報告⁴⁵⁾によれば、 λ は host 金属の自由電子密度に影響されていて、“rigid-band” および “screened-potential” モデルで定性的に説明ができるという。最も極端な場合は Mn と Pd を host 金属にしたときで、 $\lambda(\text{Mn host}) = (2.6613 \pm 0.0020) \times 10^{-2} \text{ min}^{-1}$, $\lambda(\text{Pd host}) = (2.2569 \pm 0.0030) \times 10^{-2} \text{ min}^{-1}$ で、両者の相対的差は $(5.2 \pm 0.2)\%$ にもなっている。しかし、かれは λ の測定は1個の検出器のみで、直接減衰曲線よりデータを得ているようで、精度の高い2個の検出器を用いる Differential 法の測定系を使用していないので、こうしたいたずらに有効数字の多いデータは信頼性に欠けたものであると言える。

4.4 $^{125m}_{52}\text{Te}$

$^{125m}_{52}\text{Te}$ は図10に示すように58dの T で109.4keVの M4 転移で ^{125}Te の第一励起準位に移る。この転移は主として K, L, M, N 殻の IC により起こる。 p 状態よりの IC は s 状態より約2倍多い。Malliaris と Bainbridge⁴⁶⁾ は λ の変化を Te, TeO_3 , Ag_2Te の3種について測定した。ジュラルミン製のシンプルをもつ鋼鉄製の球形電離槽を2個使用する Differential 法で $\Delta\lambda/\lambda$ を測定している。このシンプル内に線源を装填して、IC のあとで出てくる Te の KX線を電離槽で測定する。かれらの測定値は

$$\begin{aligned} [(\lambda(\text{Te}) - \lambda(\text{Ag}_2\text{Te})) / \lambda(\text{Te})] &= (2.59 \pm 0.18) \times 10^{-4} \end{aligned}$$

図10 $^{125m}_{52}\text{Te}$ の部分崩壊図式

$$\begin{aligned} & [\lambda(\text{TeO}_2) - \lambda(\text{Ag}_2\text{Te})] / \lambda(\text{Te}) \\ &= (2.23 \pm 0.18) \times 10^{-4} \\ & [\lambda(\text{Te}) - \lambda(\text{TeO}_2)] / \lambda(\text{Te}) \\ &= (0.36 \pm 0.17) \times 10^{-4} \end{aligned}$$

なお、 ^{125m}Te については λ の変化ではないが 35.5 keV の IC について O 殻の転換係数が Te 金属と Ag_2Te では違うという興味ある実験が報告されている^{47,48)}。

4.5 ^{193}Pt の第1励起準位

^{193}Pt の多くの励起準位は ^{193}Au ($T=16\text{h}$) と ^{193}Pt ($T=4.3\text{d}$) よりできる。 ^{193}Pt 自身不安定で T は約 600 y の EC で ^{193}Ir の基底状態に移る。 ^{193}Pt の複雑な励起準位は Johansson ら^{49,50)} によって研究されたが、第1励起準位はわずか 1.644 ± 0.004 keV だけ基底状態の上にあり、M1 転位の IC が主として N_1 , N_1 , O_1 殻で起こる。Marelius⁵¹⁾ はこの準位の T が 9.7 ± 0.3 nsec であることをきめ、さらにこの T が線源の化学的状態により異なることを実験で確かめた。線源として親核種 ^{193}Au を使用し、 ^{193}Pt が Au 金属の内部にあるときと AuCl_3 の内部にあるときとを比較した。第1励起準位の T を直接測定した。2個の長い磁気コイル・レンズを有する特殊な β 線スペクトロメーターを使用し、電子-電子同時放電法によってその遅延同時放電曲線より直接 T を求めた。

この結果によると塩化金中に ^{193}Pt 源があるときのほうが金属状の金のなかにあるときより T が $(4 \pm 2)\%$ 長くなるという。この実験は転移エネルギーの小さい IC を行なうごく短い核の励起準位の寿命がその核種の化学状態によって相当変化することを示した実験である。

5. おわりに

以上述べたように外部からの作用により λ あるいは

T を変化させることはもっぱら EC と IC 型の核変換についてのみ行なわれてきている。これらは殻電子の関係する核現象で、 λ の変化の測定ではないが、これと密接な関連があるものとして転移エネルギーの低い IC の場合に外殻軌道に対する内部転換係数の比が当該核種の化学結合の状態で異なることが ^{57}Fe , ^{119m}Sn , ^{125}Te , ^{169}Tm 等で測定されている。これはまた Mössbauer 効果の isomer shift が化合物の状態により異なることも関連している。最近の ESCA 法の発達、また電子、陽子、イオン衝撃による X 線や Auger 電子スペクトルの微細構造の解析も殻電子状態に新しいデータを提供してきている。こうした一連の現象は核物理学、原子物理学また物性物理学の各分野にわたる興味ある問題で、今後さらに発展するものと思われる。

なお、 α , β 崩壊について化学的、物理的外部作用による影響を研究した仕事が最近でも行なわれた。

α 崩壊に対する化学的作用について Alder, Baur, Raff⁵²⁾ は理論的に研究した。Gamov の α 崩壊の理論によれば λ は主として核のポテンシャル障壁を α 粒子が突き貫けるときの貫通度に大きく関係し、これは核半径に依存する。この障壁は核が裸のときと電子雲に囲まれているときにはわずかながら変化しうる。したがって殻電子状態に作用する化学的環境は λ に影響を及ぼす。かれらはこれの効果を電子のスクリーニングポテンシャルの変化 ΔV^* を用いて表示し、 $\Delta\lambda/\lambda$ を V^* と質量数 A , 原子番号 Z の関数として表わす近似式を求めて、 α 崩壊をするいくつかの核種について計算してみた。 $\Delta\lambda/\lambda$ は 10^{-4} のオーダーである。最近 Robinson と Perlman⁵³⁾ は Alder らの理論を訂正して、より真実に近い計算をした。かれらの計算結果によれば化学的效果による $\Delta\lambda/\lambda$ は 10^{-8} のオーダーで Alder らの値よりも 10^{-4} 小さい。いずれにしても α 崩壊に対する外的作用は測定にかからないほど微小であることが予想される。実験はいままでのところ行なわれていない。

Alder, Baur, Raff⁵⁴⁾ は β^- 崩壊の T に対する化学的環境の影響を理論的に検討した。この影響によるスクリーニングポテンシャルの違いが β^- 崩壊の Fermi 関数 $F(Z, W)$ の変化となって λ が変化すると考え、この $F(Z, W)$ を改良した WKB 法で計算した。かれらの計算結果によれば $\Delta\lambda/\lambda$ は $^3\text{H} \rightarrow ^3\text{He}$ で $3 \cdot 10^{-4}$, $^{24}\text{Na} \rightarrow ^{24}\text{Mg}$ で $0.03 \cdot 10^{-4}$, $^{35}\text{S} \rightarrow ^{35}\text{Cl}$ で $0.1 \cdot 10^{-4}$, $^{131}\text{I} \rightarrow ^{131}\text{Xe}$ で $0.008 \cdot 10^{-4}$ である。Kemény⁵⁵⁾ は ^{24}Na について NaCl 結晶とその水溶液の場合では $[\lambda(\text{NaCl})$

結晶) $-\lambda(\text{NaCl 水溶液})/\lambda(\text{NaCl 水溶液})=-(0.52 \pm 0.20) \times 10^{-2}$, またかれ⁵⁶⁾は ^{131}I について NaI 結晶とその水溶液について λ の値は結晶状態にあるほうが 1.6% も大きいという報告をしている。しかし、かれの測定は 1 個の NaI(Tl) 検出器を用いた粗雑な実験で、上記の Alder らの理論値よりもはるかに大きく、この実験値は正しくないと思われる。一般に β 崩壊の場合の外部作用による λ の変化は 10^{-4} よりも小さいと思われる。

強い遠心力場で λ が変化するか否かの実験は 1. に述べたように戦前に A.H. Compton⁵⁾ や Freed, Jaffey, Schultz⁶⁾ によって行なわれたが、戦後になっても試みられた。1963 年 Deutch と Gerholm⁵⁷⁾ は β 崩壊核種 $^{203}\text{Hg}(T=46.9\text{d})$ を $3.7 \times 10^5 \times g$ の遠心力場に 103 時間置いて λ が変化するか否かを実験してみたが、測定しうる変化は観測されなかった。Ageno と Amaldi⁵⁸⁾ は 1959 年ごろ空気駆動の Huguenard 型遠心装置で ^{226}Ra を $1.8 \times 10^5 \times g$ の遠心力場に置いてみたが、 ^{226}Ra の崩壊生成物である $^{214}\text{Pb}(T=26.8\text{m})$ および $^{214}\text{Bi}(T=19.7\text{m})$ の β 崩壊の λ を変化させることができなかった。 β 崩壊を支配する弱い相互作用に影響を及ぼすためにはこうした実験の場合よりはるかに強大な遠心力場を必要とする。現在 $10^8 \times g$ 程度の遠心力場を発生する装置が製作可能であるので、超高遠心力場下に置いた放射性核種の λ の変化を観測する研究は興味あるものである。現在われわれの研究室ではこうした試みを行なうべく実験の準備に努力中である。

なお λ の変化に関連して以上のほかこの総説には書かなかったが、多くの興味ある報告がある。たとえば星の内部のプラズマ状態でまったく裸になっている核についての放射能崩壊の問題、物理、化学的方法により放射能崩壊が Poisson 法則よりはずれるという実験なども報告されている。またより重要な問題として物理的現象を支配している重力、電磁気力、弱い相互作用、強い相互作用の結合定数、またさらにふつう定数として知られる G, h, c, e 等がはたして時間に関し永久不変の定数であるか否かという問題もある。こうした基本定数は非常に長い時間のスケールのなかでは定数ではないかもしれない。われわれの実験、観測手段によっては認識されないかもしれないが、永久に恒常不変のものが無いという仏教の教えは真理であるか？

文 献

- 1) E. Rutherford: *Sitzber. Akad. Wiss. Wien*, **120**, 303 (1911)
- 2) Mme P. Curie: *Ann. de physique*, **2**, 405 (1924)
- 3) Mme P. Curie et M. Kamerlingh Onnes: *Le Radium*, **10**, 181 (1913)
- 4) G.V. Hevesy: *Nature*, **110**, 216 (1922)
- 5) A.H. Compton: *Phil. Mag.*, **39**, 659 (1921)
- 6) S. Freed, A.H. Jaffey, and M.L. Schultz: *Phys. Rev.*, **63**, 12 (1943)
- 7) C.D. Ellis: *Proc. Roy. Soc. A*, **99**, 261 (1921)
- 8) H.M. Taylor and N.F. Mott: *Proc. Roy. Soc. A*, **142**, 215 (1933)
- 9) H. Yukawa and S. Sakata: *Proc. Phys. Math. Soc. Japan*, **17**, 48 (1935)
- 10) L. Alvarez: *Phys. Rev.*, **53**, 213 (1938); **54**, 486 (1938)
- 11) E. Segrè: *Phys. Rev.*, **71**, 274 (1947)
- 12) R. Daudel: *La Revue Scientifique, Paris*, **85**, 167 (1947)
- 13) R. Bouchez, R. Daudel, P. Daudel et R. Muxart: *J. Phys. Radium*, **8**, 336 (1947)
- 14) R. Bouchez, P. Daudel, R. Daudel et R. Muxart: *Compt. rend.*, **227**, 525 (1948); *J. Phys. Radium*, **10**, 201 (1949); P. Benoist, R. Bouchez, P. Daudel, R. Daudel et A. Rogozinski: *Phys. Rev.*, **76**, 1000 (1949)
- 15) E. Segrè and C.E. Wiegand: *Phys. Rev.*, **75**, 39 (1949); Erratum, *Phys. Rev.*, **81**, 284 (1951)
- 16) R.F. Leininger, E. Segrè and C. Wiegand: *Phys. Rev.*, **76**, 897 (1949); Erratum, *Phys. Rev.*, **81**, 280 (1951)
- 17) K.T. Bainbridge, M. Goldhaber, and E. Wilson: *Phys. Rev.*, **84**, 1260 (1951)
- 18) R. Bouchez, J. Tobaillem, J. Robert, R. Muxart, R. Mellet, P. Daudel et R. Daudel: *J. Phys. Radium*, **17**, 363 (1956)
- 19) J.J. Kraushaar, E.D. Wilson, and K.T. Bainbridge: *Phys. Rev.*, **90**, 610 (1953)
- 20) H.W. Johlige, D.C. Aumann, and H.-J. Born: *Phys. Rev. C*, **2**, 1616 (1970)
- 21) E. Vatai and Cs. Ujhelyi: *Proc. Intern. Conf. Inner Shell Ionization Phenomena*

- and Future Applications, Atlanta, April 1972 (U.S. AEC Report CONF-720404, unpublished, p.2030 (1973))
- 22) P. Huber, St. Gagneux, and H. Leuenberger: *Phys. Letters*, **27B**, 86 (1968)
- 23) St. Gagneux, P. Huber, H. Leuenberger and P. Nyikos: *Helv. Phys. Acta*, **43**, 39 (1970)
- 24) P. Nyikos, S. Gagneux, P. Huber, H.R. Kobel, und H. Leuenberger: *Helv. Phys. Acta*, **43**, 412 (1970)
- 25) P. Kemény: Proc. Conf. Electron Capture and Higher Order Processes, in Nuclear Decays, Debrecen, Hungary, July 1968 (Eötvös Lorand Phys. Soc., Budapest, 1968), p.432
- 26) P. Auric and J.I. Vargas: *Chem. Phys. Letters*, **15**, 366 (1972)
- 27) K. Yoshihara and H. Ebihara: *J. Chem. Phys.*, **45**, 896 (1966)
- 28) J.C. Slater: *Phys. Rev.*, **84**, 1261 (1951)
- 29) K.T. Bainbridge, M. Goldhaber, and E. Wilson: *Phys. Rev.*, **90**, 430 (1953)
- 30) K.T. Bainbridge: *Chem. Eng. News*, **30**, 654 (1952)
- 31) R.A. Porter and W.G. McMillan: *Phys. Rev.*, **117**, 795 (1960)
- 32) H. Mazaki, T. Nagatomo, and S. Shimizu: *Phys. Rev. C*, **5**, 1718 (1972)
- 33) T. Nagatomo, H. Mazaki, and S. Shimizu: *Bull. Inst. Chem Res., Kyoto Univ.*, **50**, 1 (1972); 間崎啓匡: 日本物理学会誌, **26**, 504 (1971)
- 34) D.H. Byers and R. Stump: *Phys. Rev.*, **112**, 77 (1958)
- 35) H. Leuenberger, St. Gagneux, P. Huber, H.R. Kobel, und P. Nyikos: *Helv. Phys. Acta*, **43**, 411 (1970)
- 36) M. Nishi and S. Shimizu: *Phys. Rev. B*, **5**, 3218 (1972)
- 37) J.A. Cooper, J.M. Hollander, and J.O. Rasmussen: *Phys. Rev. Letters*, **15**, 680 (1965)
- 38) W. Weirauch, W.-D. Schmidt-Ott, F. Smed und A. Flammersfeld: *Zeit. f. Phys.*, **209**, 289 (1968)
- 39) A. Olin: *Phys. Rev. C*, **1**, 1114 (1970)
- 40) A. Olin and K.T. Bainbridge: *Phys. Rev.*, **179**, 450 (1969)
- 41) J.A. Cooper: Univ. California Report UC RL-16910 (1966)
- 42) H. Mazaki and S. Shimizu: *Phys. Rev.*, **148**, 1161 (1966); S. Shimizu and H. Mazaki: *Phys. Letters*, **17**, 275 (1965)
- 43) M. Nève de Mévergnies: *Phys. Letters*, **26B**, 615 (1968)
- 44) M. Nève de Mévergnies: *Phys. Rev. Letters*, **23**, 422 (1969)
- 45) M. Nève de Mévergnies: *Phys. Rev. Letters*, **29**, 1188 (1972)
- 46) A.C. Malliaris and K.T. Bainbridge: *Phys. Rev.*, **149**, 958 (1966)
- 47) M.L. Perlman and G.T. Emery: Radioactivity in Nuclear Spectroscopy, ed. J.H. Hamilton and J.C. Manthuruthil (Gordon and Breach, New York, 1972), p.781
- 48) K.V. Makariūnas, R.A. Kalinauskas, and R. I. Davidonis: *Zh. Eksp. Theor. Fiz.*, **60**, 1569 (1971)
- 49) A. Johansson, G. Malmsten, A. Marelus, B. Nyman, H. Pettersson, and B. Svahn: *Phys. Letters*, **26B**, 83 (1967)
- 50) B. Svahn, A. Johansson, B. Nyman, G. Malmsten, and H. Pettersson: *Zeit. f. Phys.*, **210**, 466 (1968)
- 51) A. Marelus: *Ark. f. Fys.*, **87**, 427 (1968)
- 52) K. Alder, G. Baur, and U. Raff: *Phys. Letters*, **34A**, 163 (1971)
- 53) W. Robinson and M.L. Perlman: *Phys. Letters*, **40B**, 352 (1972)
- 54) K. Alder, G. Baur, and U. Raff: *Helv. Phys. Acta*, **44**, 514 (1971)
- 55) P. Kemény: *Radiochem. Radioanal. Letters*, **2/3**, 119 (1969)
- 56) P. Kemény: *Radiochem. Radioanal. Letters*, **2/3**, 41 (1969)
- 57) B.I. Deutch and T.R. Gerholm: *Nuovo Cimento*, **30**, 1570 (1963)
- 58) M. Ageno and E. Amaldi: *Memo. Accad. Nazionale dei Lincei, Roma*, Ser. 8, Vol. 8 (1966)