

# 特別講演

第2日 9月17日(木)

14:00～17:00

D会場



反陽子原子の化学

早野龍五

Chemistry of Superheavy Elements

**Matthias Schädel**

Aquatic Chemistry of Actinides : A Recent Progress  
Pertinent to the Safety Assessment of HLW Disposal

**Jae-II Kim**

## 概要

準安定な反陽子ヘリウム原子(ヘリウム原子核・電子・反陽子からなる奇妙な量子三体系:図1上)の発見の経緯と、その精密レーザー分光の成果について紹介するとともに、来年より新たな反陽子減速器"AD"を用いて行う実験計画についても触れる。

## Atomcule

90年代初頭に我々はKEKの陽子シンクロトンにおける実験で、液体ヘリウム中に静止した反陽子の約3%が数マイクロ秒の寿命を持つことを発見した。これは「物質中で反物質は長生きできない」という常識に反した異常現象である。その原因を追及すべく、我々はその後研究の場をCERNの低速反陽子蓄積リング(LEAR)に移し、ヘリウムガス、固体ヘリウム、そしてヘリウム3標的中でも「長生き」が起きることを見いだした。

理論的考察から長寿命の原因は準安定な反陽子ヘリウム原子の生成にあると考えられた(詳細は講演で述べる)。そのエネルギー準位の一部を図1下に示すが、準安定になるのは反陽子の主量子数 $n$ が $\sim 38^{i1}$  かつ軌道角運動量 $L$ が大ききところである(図中に実線で示した準位が準安定、波線で示した準位は短寿命)。

反陽子ヘリウム原子は、ヘリウム原子核・電子・反陽子からなる三体量子系である。ヘリウムの二電子のうちの一つを反陽子が置換したと考えると、エキゾティックなヘリウム原子と見ることが出来るが、反陽子とヘリウム原子核の二つの「核」に電子が束縛されたと見ると、エキゾティックな二原子分子との見方もできる<sup>i2</sup>。このことから、反陽子ヘリウム原子にはAtom + Moleculeの造語であるAtomculeというニックネームが付けられた。

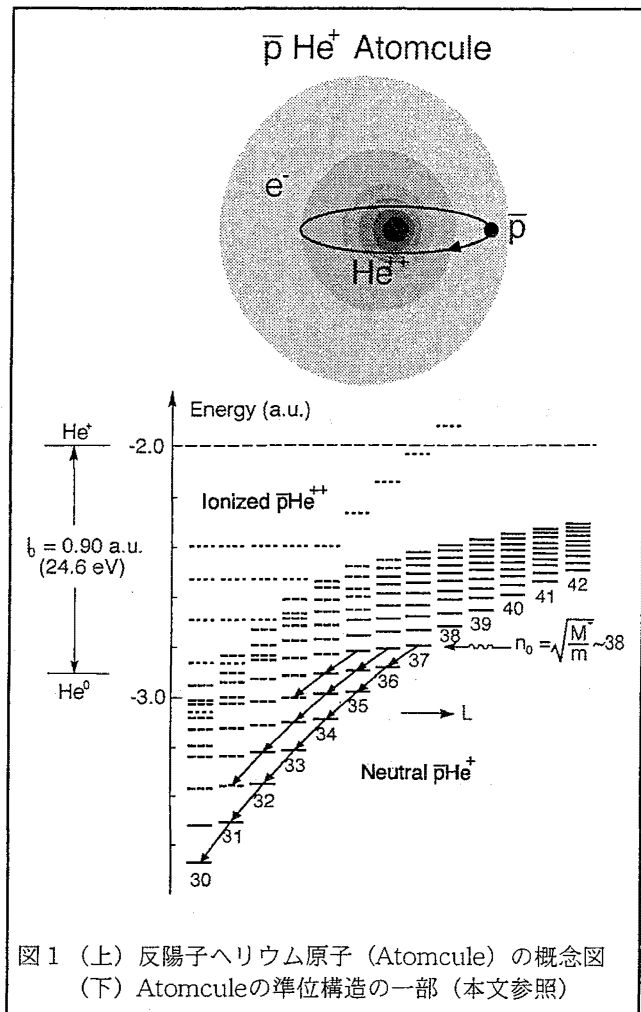


図1 (上) 反陽子ヘリウム原子 (Atomcule) の概念図  
(下) Atomculeの準位構造の一部 (本文参照)

<sup>i1</sup> 反陽子の軌道半径と置換される電子の軌道半径が等しくなるのが $n \sim 38$ であり、この近辺の軌道に反陽子が捕獲される確率が高いとされている。

<sup>i2</sup> 反陽子ヘリウムの場合は、片方の「核」の電荷が負であるから通常二原子分子とは事情が異なる。近距離では反陽子の軌道角運動量が大いことによる遠心力バリアが、遠距離ではヘリウム核と反陽子のクーロン引力が働き、結果的にモースポテンシャルと類似のポテンシャルを与えるのである。

### Atomculeのレーザー分光

Atomculeの準安定状態と短寿命状態の境界の準位間（例えば $(n, L)=(39, 35) \rightarrow (38, 34)$ 、 $\lambda \sim 597\text{nm}$ ）をパルスレーザーで共鳴させると、レーザーパルスに同期して反陽子の消滅率が増加する（図2）。最初にこの共鳴の探索を行った1993年当時、共鳴中心波長の理論予想値は約1000ppmの精度であり、共鳴発見は困難を極めたが、その後三体量子計算の理論精度が数10ppmに向上したことに助けられ、現在までにヘリウム4で10本、ヘリウム3で3本のレーザー共鳴遷移の観測に成功している。

共鳴中心波長の実験値と最近の計算値の比較を図3に示す。非相対論的計算の結果（●）に、電子の相対論補正と（○）1s電子のラムシフトを考慮することで、現在では実験値と理論値は1-2ppmで一致するに至っている（◇）。これらの計算は最も高精度な三体量子計算の一つであるとともに、この結果から陽子と反陽子の電荷及び質量の対称性を従来よりも高い精度で検証することが可能になった。

### Atomculeの「化学反応」

ヘリウム媒質の密度を上げたり、ヘリウムに微量な不純物（ $\sim 10$  ppmの水素など）を混合するとAtomculeが短寿命化する。我々はレーザー分光の手法を用いてAtomculeの個々の準位の寿命を測定する手法を確立した。その結果、Atomculeの量子数がほんのわずか変化させるだけで準位寿命に際だった変化が現れることが見いだされた。原因は反陽子を含む原子の原子衝突や化学反応によるものと考えられ、そのメカニズムの解明は今後の興味深い課題である。

### 反陽子減速器(Antiproton Decelerator : AD)

1999年からは、LEARに代わる新しい反陽子源ADがCERNに完成する。ADは5 MeVの反陽子ビームを供給するが、我々は更に線型減速器(RFQ)とペニングトラップを用いて反陽子を数keVないし数10 eVにまで減速し、反陽子と原子ビームの衝突など新たな実験を目指している。

**HAYANO, R.**

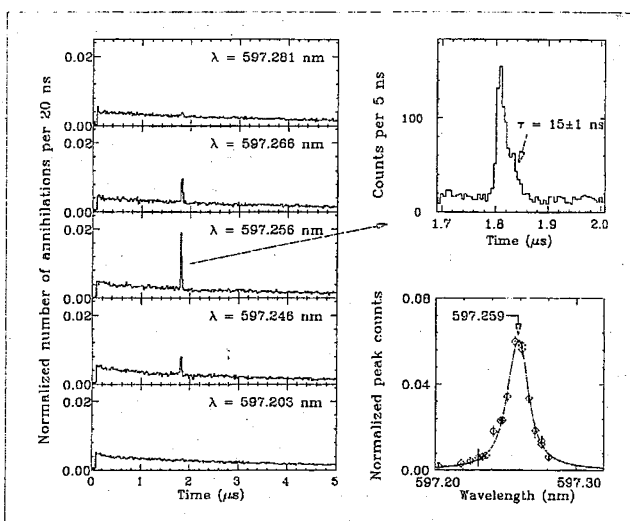


図2：Atomculeの $(n, L)=(39, 35) \rightarrow (38, 34)$ のレーザー共鳴。共鳴を起こすと、レーザーパルス照射に同期して反陽子の遅延消滅時間スペクトルにピークが現れる。

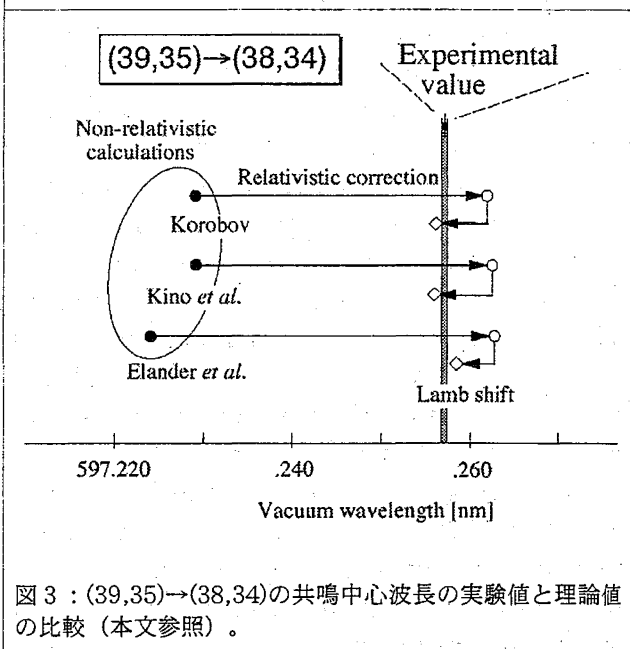


図3： $(39, 35) \rightarrow (38, 34)$ の共鳴中心波長の実験値と理論値の比較（本文参照）。

Matthias Schädel

Gesellschaft für Schwerionenforschung mbH (GSI)  
Planckstr. 1, D-64291 Darmstadt, Germany

Over more than two decades, the term "superheavy elements" was used specifically to describe elements located on an elusive island around  $Z=114$ . Today, it became common use to call – in a much more general sense – all elements "superheavy elements" which owe their existence to the stabilization through shell effect, regardless whether they are spherical, as predicted for the  $N\approx 178-184$  region around  $Z=114$ , or deformed, as the heaviest known elements up to  $Z=112$  [1] are. From this point of view it is justified to call all transactinide elements "superheavy elements". Important aspects of the nuclear stability in the  $N=162$  region and the nuclear reactions leading into the region of relatively long lived, neutron rich nuclides of the elements beyond  $Z=103$  will briefly be discussed.

The chemistry of the elements at the end of the Periodic Table has a large number of fascinating and challenging facets. It begins with the difficult synthesis of **single atoms** of these elements at a heavy ion accelerator. Typical production rates are about one atom per minute to one atom per hour for the first three superheavy elements rutherfordium (Rf,  $Z=104$ ), dubnium (Db,  $Z=105$ ) and seaborgium (Sg,  $Z=106$ ); the only superheavy elements for which chemical studies have been performed up to now.

Automated rapid chemical separation devices applying chromatographic techniques in the aqueous and the gas phase have been developed over the last decade to meet the needs of **atom-at-a-time chemistry** with short-lived isotopes of the transactinides. Characteristic features of the miniaturized liquid chromatography apparatus ARCA [2] and the gas-chromatographic apparatus OLGA [3] will be outlined.

After the very first experiments on rutherfordium and dubnium (until most recently, the name hahnium, Ha, was commonly used for element 105 and can be found in most of the publications), which showed that they constitute the first two transactinide elements positioned in group 4 and 5 of the Periodic Table, a larger number of more detailed investigations have been performed within the last decade; see e.g. [4] for a review. At a first glance, many surprising chemical properties have been observed, e.g. the non-Ta-like behaviour of dubnium in triisooctyl amine (TiOA) extractions from mixed HCl/HF solutions [5] and the low volatility of dubnium compounds in gas chromatographic separations with brominating agents [3]. Our present understanding of these results will be discussed including the most recent experimental and theoretical results.

The above mentioned surprising results stimulated a series of new experiments on elements 104 and 105, gave thrust to move on to the first chemical experiments on element 106 [6], and revived the theoretical interest in this field, see [7] for a theoretical review.

The central question behind all these effort is dealing with the influence of increasingly strong relativistic effects on the chemical properties of these superheavy elements and, consequently, is questioning the architecture of the Periodic Table at its upper end. In this context it was – and still is – of special importance (i) to investigate the chemical properties of the lighter superheavy elements in more detail and (ii) to move on to heavier elements to probe the increasing strenght of the relativistic effects on the chemical behaviour.

Three series of experiments have been performed on seaborgium using the isotopes  $^{265}\text{Sg}$  and  $^{266}\text{Sg}$  which were produced in the  $^{248}\text{Cm} + ^{22}\text{Ne}$  reaction at GSI's UNILAC. In our a first attempt [6] it was shown (i) that seaborgium forms hexavalent ions in aqueous solutions which, in general, show a behaviour typical for a group 6 element [9, 10], and (ii) that seaborgium forms volatile oxychlorides [8]. Both observations are in agreement with the expected chemical behaviour as deduced from the lighter homologs Mo and W. In these first experiments seaborgium did not show U-like properties.

While from the results of the first experiments in aqueous solutions of 0.1 M  $\text{HNO}_3$ /  $5 \times 10^{-4}$  M HF it was concluded that seaborgium forms neutral or anionic oxy- or oxyhalide-compounds [9] a second, more recent experiment, performed with pure 0.1 M  $\text{HNO}_3$ , gave evidence that the  $\text{F}^-$ -anions contributed significantly to the complex formation in the first experiment [10]

Recent gas chromatographic studies investigated the volatility of the seaborgium oxychloride in comparison with the lighter homologs – experiments which also obtained interesting new information on the nuclear properties of  $^{265}\text{Sg}$  and  $^{266}\text{Sg}$  [8] –; and studied the formation of volatile oxides/hydroxides, see [11] for results from preparatory tests with the lighter homolog molybdenum.

Preparations are under way to extent the chemical studies of superheavy elements beyond element 106 both in the aqueous and in the gas phase. Limitations of the present set-ups and recent developments which include the aspects of decreasing production rates and half-lives will briefly be discussed.

## References

- [1] Hofmann, S., et al.: *Z. Phys. A* **354**, 229 (1996).
- [2] Schädel, M., et al.: *Radiochim. Acta* **48**, 171 (1989).
- [3] Gäggeler, H.W., et al.: *Radiochim. Acta* **57**, 93 (1992), and  
Gäggeler, H.W.: *J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles*, **183**, 261 (1994).
- [4] Schädel, M.: *Radiochim. Acta* **70/71**, 207 (1996).
- [5] Kratz, J.V., et al.: *Radiochim. Acta* **48**, 121 (1989).
- [6] Schädel, M., et al.: *Nature* **388**, 55 (1997).
- [7] Pershina, V.G.: *Chem. Rev.* **96**, 1977 (1996).
- [8] Türler, A., et al.: *Phys. Rev. C* **57**, 1648 (1998).
- [9] Schädel, M., et al.: *Radiochim. Acta* **77**, 149 (1997).
- [10] Schädel, M.: *J. Alloys Comp.*, in print (1998).
- [11] Vahle, A., et al.: *Radiochim. Acta* **78**, 53 (1997).

## Aquatic Chemistry of Actinides: A Recent Progress Pertinent to the Safety Assessment of HLW Disposal

JAE-IL KIM

Forschungszentrum Karlsruhe, Institut für Nukleare Entsorgungstechnik  
D-76021 Karlsruhe, Germany

High Level Waste (HLW), comprising either vitrified HLW glass or spent fuel, contains most of the radioactivity inventory (ca. 99 %) in a small volume of waste packages ( $\leq 5$  %). Because of its great intensity of radiation, thus heat generation and high toxicity, the geological disposal of HLW entails safe confinement that will not be affected by geological evolution and geochemical processes. For the long-term safety assessment of a HLW repository, among others, most important is the geochemistry of long-lived actinides and some fission products that pertain to a dominant radiotoxicity over the period of many hundred thousand years. A relative toxicity of radionuclide groups arising in a typical spent fuel is shown in Fig. 1 as a function of time.

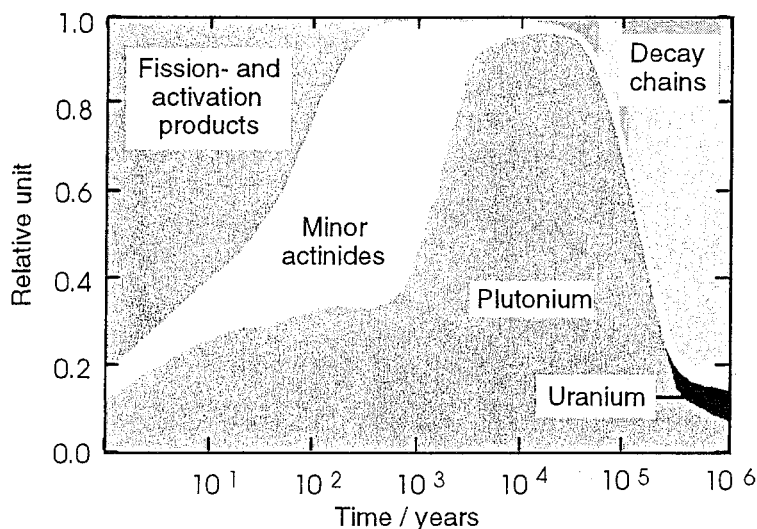


Fig. 1: Relative radiotoxicity of ingestion of disposed spent fuel (4% initial enrichment, 50 GWd/tHM) from Biblis reactor

For the long-term safety assessment, the actinides appear to be a preponderant radionuclide group to be taken into account. Whatever the scenario is put on a pedestal for the performance assessment of a given repository, knowledge on the fundamental geochemistry of actinides, namely their aquatic chemistry, is of cardinal importance for supporting and corroborating the computational prediction of their long-term behaviour in the geologic time scale.

A worldwide effort given over to this subject area has advanced noticeably our knowledge on the aquatic chemistry of actinides in recent years, particularly the speciation that comprises complexation, redox-reaction, colloid generation, solid-water interface interaction and new solid-phase formation. They are in aquatic systems oxidation state specific reactions, of which the predominant reactions for each oxidation state can be summarized as given in Fig. 2.

All radionuclides of metal element contained in HLW can be classified into seven oxidation states, in which actinides are comprised in four oxidation states: M(III), M(IV), M(V) and M(VI). Among these, M(V) and M(VI) involve redox sensitive actinides and tend to undergo reduction to M(III) or M(IV) under most repository conditions. This fact infers the significance of the long-term geochemical behaviour of M(III) and M(IV).



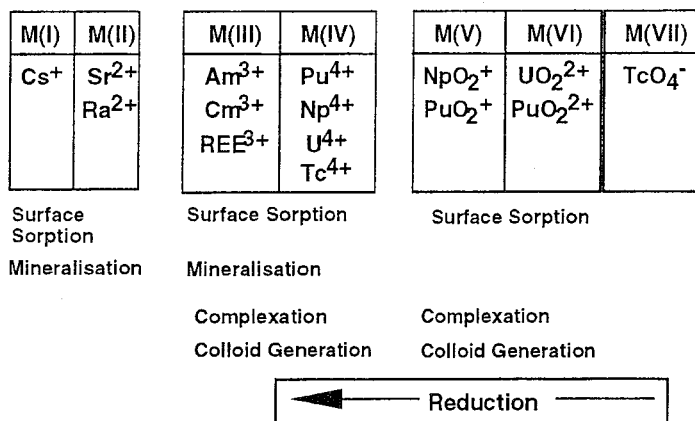


Fig. 2: Chemical states of radionuclides controlling the mobility in natural water system

The speciation can divide all reactions involved into two distinctive categories: mobilisation and immobilisation, which generate namely mobile and immobile species. As in all natural aquifer systems the geomatrices are covered with oxygen-borne negative charges, the mobile species of actinides are either negatively charged complexes or colloidal species. The immobile species, in which actinide ions are chemically incorporated, are sparingly soluble mineral phases and multicomponent precipitates.

The speciation of actinides in a given aquifer system encompasses the quantification of different reactions which are illustrated in Fig. 3 with relevant thermodynamic parameters.

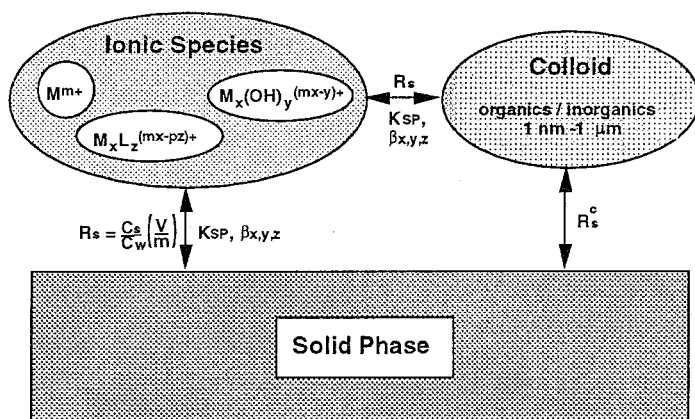


Fig. 3: Effect of Colloids in solid-water interface reactions  
 $R_s$ : distribution coefficient,  
 $K_{sp}$ : solubility product,  
 $\beta$ : complexation constant

The chemistry of actinides resolved from the near field to the far-field environment changes dramatically by dilution of their concentration. In the near-field the thermodynamic speciation is more or less capable of describing the chemical processes involved, whereas in the far-field the chemical behaviour of individual actinides is often submerged in the reaction processes of major geochemical constituents of given aquifer systems. Such submerging processes are complex and site specific, on which our knowledge is much deficient.

A conceptual overview is conferred on the above given strides in the aquatic chemistry of actinides for its cogent relevance to the long-term safety assessment of HLW disposal. Discussion is addressed to the present state of our knowledge on the subject and its shortcomings.

Key Words: Actinides, Aquatic Chemistry, Colloids, Safety Assessment



# ラジウム発見100年 記念講演

第3日 9月18日(金)  
9:20~10:40

P会場

父・山田延男の生涯

山田光男

Irène Curie と協同研究した東北大化学出身の山田延男博士  
— 研究内容などをめぐって —

阪上正信

ポロニウムとニッポニウム

吉原賢二

ラジウム標準線源について

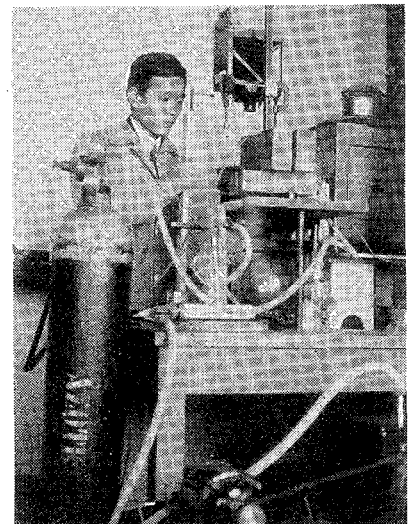
山寺 亮



亡父・山田延男（以下父）は、東北帝大理学部化学教室（当時）を卒業後、東京帝大航空研究所から派遣されてパリのラジウム研究所（現キュリー研究所）に留学（1923-1925）し、マリー・キュリー所長の指導を受けて、マリーの長女イレーネらと共にポロニウム、トリウム、ラジウムなどの放射能の研究にあたりました。パリ留学終了後、1925年12月、アメリカにおいてヘリウム採取法などの調査に当たった後、1926年3月に日本に帰国しました。

父は帰国前後から体調を崩し、東大病院に入退院を繰り返し、昭和2年（1927）11月に死去（31才）しました。父が留学した大正末期から昭和初期には、ラジウムによる放射線障害などの事実は、フランス（ラジウム研究所）では認識されず、まして日本では医学的に放射線障害の治療法などはありませんでした。東大病院では、父の診断名が決められず、従って適確な治療もできなかつたので、死後、解剖の結果「脳腫瘍」を死因としたと祖母から聞かされたのが真相であります。父の31年間の短い生涯を年表で示します。

- 1896(M・29)・6・4 兵庫県神戸市で誕生
- 1913(T・2) -3 台湾総督府中学卒業
- 1916(T・5)・7 東京高等工業学校応用化学科卒業
- 1916(T・5)・9 東北帝国大学理科大学化学科入学
- 1919(T・8)・7・10 " 理学部卒業
- 1919(T・8)・7・31 " 理学部講師就任
- 1921(T・10)・8・8 東京帝国大学助教授（航空研究所）
- 1923(T・12)・9・30 物理化学研究のためフランス留学
- 1926(T・15)・3・9 日本帰国
- 1926(T・15)・6・9 理学博士（東京帝国大学）
- 1926(T・15)・7 闘病生活開始
- 1927(S・2)・11・1 死去（31才）



ラジウム研究所でウイルソン雲箱で実験中の父

父のラジウム研究所での研究は薬学専攻の私には難解なので、坂上正信博士に解説をお願いした次第であります。一昨年（1996）、父の生誕100周年にあたって東北大学および東京大学資料室、理化学研究所および国会図書館、フランス大使館などを通じて父の資料を収集調査いたしました。また同年（1996）7月にはパリのキュリー研究所博物館を訪ねて75年前に父がイレーネ・キュリーと共同研究したレポートなど貴重な資料を見ることができ、感慨深いものがありました。この折、キュリー研究所で伺った処では、父と同時期に同所で放射能研究に従事した多数の研究者が放射線障害の犠牲になったとの事でした。

## コメント・研究内容などをめぐって

(金沢大名誉) 阪上正信

1995年に刊行のSusan Quinna著“Marie Curie, a Life”414頁に次の記載がある。(NobusはNobuoの

But on November 30, 1925, Irène received a letter from a Japanese scientist named Nobus Yamada, who had worked closely with her in preparing polonium sources. In July of 1924, Irène had written her mother that “Yamada has made some good plates with a new very strong source.” Sixteen months later, Yamada wrote Irène that he had fainted suddenly two weeks after his return home to Japan and had since been confined to bed. “The cause of the illness still isn’t clear. It is certain that I was very tired after the long stay abroad, but also there was a poisoning from the emanations. Here we don’t have enough quantity of radioactive substances and as a result we have no descriptions of poisoning from these substances.” He added his thanks “to Madame Curie and to you” for helping him to attain his doctorate. “It is very difficult to obtain this title here.”

Two years later, Nobus Yamada was dead. “He seemed to be suffering from nervous debility when he came home,” his widow wrote Marie Curie, “but one day he suddenly fell down senseless. Since then he has been totally confined to bed, and in spite of every effort and medical treatments he passed away forever.”

誤記、下線は演者による) これらは、1924年7月の Irèneから母 Marie への手紙 (全訳「母と娘の手紙」人文書院刊)、1925年11月の山田延男から Irène へ、1927年12月の浪江夫人から Marie Curie への手紙から引用されたものである。これからはわかる様に、山田博士は先ず強い Po-210線源を用い、それからのα線と長飛程の粒子の研究をした。その成果は下記の報告1)2)3)である。通常のα線固有の飛程より空気相当厚さの長い飛程の粒

子につき、その数とそれによる輝度を ZnS膜の閃光により正確に慎重に測定している。同様の測定をトリウムおよびラジウムからの放射性沈積物についても行い、報告4)5)となった。これら諸実験の検討から長飛程粒子は水素粒子であろうとしている。この研究は1919年のRutherfordによる $N(\alpha, p)$ 、1932年のChadwickによる $Be(\alpha, n)$ 、1934年Irène, Joliotによる $Al(\alpha, n)$ の研究といささか関連し興味がある。これら研究内容の概要を述べるとともに、東北大で物理化学を片山正夫博士に学び、片山博士が桜井錠二博士の東大に定年制を設け自ら辞任した後任として東京に転任した後、その薦めで移った東大航空研では天然ガス中のHe等の研究もした山田博士のそれ迄の研究にも言及する。なお100年前にRaより先に発見され命名されながら、化学元素としての確認がそれより遅れたPoにまつわる物語、明星大学図書館所蔵のMarie Curie自筆1919-1933年の実験(整理)ノートの目次内容についてもふれてみよう。

- 1) RADIOACTIVITÉ. — *Sur la distribution de longueur des rayons  $\alpha$  du polonium dans l’oxygène et dans l’azote.* Note (1) de M<sup>lle</sup> IRÈNE CURIE et M. NOBUO YAMADA, présentée par M. G. Urbain. C. r. t. 179, 761—763 (1924)
- 2) RADIOACTIVITÉ. — *Sur les particules de long parcours du polonium.* Note de M. NOBUO YAMADA, présentée par M. G. Urbain. C. r. t. 180, 436—438 (1925)
- 3) RADIOACTIVITÉ. — *Sur les particules de long parcours émises par le polonium.* Note de M<sup>lle</sup> IRÈNE CURIE et M. NOBUO YAMADA, présentée par M. G. Urbain. C. r. t. 180, 1487—1489 (1925)
- 4) RADIOACTIVITÉ. — *Sur les particules de long parcours émises par le dépôt actif du thorium.* Note de M. NOBUO YAMADA, présentée par M. Jean Perrin. C. r. t. 190, 1591—1593 (1925)
- 5) RADIOACTIVITÉ. — *Sur les particules de long parcours émises par le dépôt actif du radium.* Note de M. NOBUO YAMADA, transmise par M. Jean Perrin. C. r. t. 181, 176—178 (1925)  
(Compt. Rend. Acad. Sci.)

吉原 賢二

今年から100年前の1898年にキュリー夫人が最初に発見したのは放射性元素のポロニウムである。しかし元素としての知名度は同じ年の末頃に彼女らが発見したラジウムの方がはるかに高い。

ポロニウムの発見は新しい放射性元素の発見として衝撃的であった。しかしポロニウムの発見には「化学元素」の“確証”という立場からはいろいろの不備があったと言わざるを得ない。元素の発見の十分条件は

- 1.その物質が新しい物理的・化学的性質を示すこと
- 2.それが元素の周期表のどこに入るかをきめること
- 3.その物質を単離して見せること（できれば可秤量）

ポロニウムは1の条件は満たしていたが、2の条件は満たしていなかった。さらに3については何十年も後に、原子炉の運転を待ってようやく実現できたのである。

キュリーに少し遅れて、ドイツのマルクヴァルトの見出したラジオテルルはポロニウムに相当するものであり、彼はもともと化学者であったから、マリー・キュリーの仕事より化学的にはずっとしっかりしていたように思われる。周期表の位置がテルルの下としたのは正しい。ただ放射壊変の現象を見逃したので、マリー・キュリーに突こまれることになり、論事に破れてキュリーに功をゆずってしまった。

キュリーより10年遅れてニッポニウムの発見を報告した小川正孝の場合はどうだったのか。上の3条件のうち、4882 Åの発光スペクトルを見ていたから1は十分満たしていた。2は原子量計算法が正しくなかったため、周期表の位置をマンガンの下としてしまったが、現代的観点からはもう一つ下のレニウムの位置にあてればよかった。3の単離はほとんど成功していたのではないかと思われる。酸化物を還元して金属になるところを見ていたからである。

こうしてみると小川のニッポニウム発見は十分根拠があったのに、2の誤りのため、全面否定という扱いになってしまった。十分とは必ずしも言えないキュリーのポロニウム発見が認められ、小川の仕事が否定されたのは、小川の不運というほかにないようと思われる。

YOSHIHARA, K.

(東北大CYRIC) 山寺 亮

YAMADERA A

はじめに 東北大学の理学部にはキューリー夫人が作成したラジウム原器があり、古くは学生実験にも使われていたらしい。それがいつ頃からか学生実験にも使われなくなり、放置されて忘れられた。その線源の再発見と線源の様子について述べる。

**ラジウム線源の発見** 昭和50年に理学部物理学科の大学移転が開始されたが、引越しのための書類整理をしていた北垣教授の書棚から、ラジウム原器の証明書が再発見され、「物理教室のどこかの金庫にラジウム原器がしまっているはずだから、探したまえ!」となった。

サーベイメータを使って、図書室の開かずの金庫から放射線が漏れていること発見し、早速、クマヒラ金庫の社員に金庫を壊してもらい、再び日の目を見ることになった。現在は、東北大学マイクロン・ラジオアイソトープセンターの貯蔵庫に保管されている。

**線源の形状** 線源のガラス管は、白金線の先端に塩化ラジウム9.80mgを付けて外径3.2mm、長さ23mmで肉厚0.27mmの一次ガラス管(チューリングン硝子)に封入したものである。これがさらに一回り大きな二次ガラス管に入れられて、脱落防止のために口に脱脂綿が詰められている。二次ガラス管はさらに保護のために、外径25mm長さ80mmの鉄の容器に入れられ、その蓋には「Ra」と刻印されている。鉄容器はさらにピロードを張った木製の化粧箱に入れられていたが、金庫の中は湿度が高かったようで、化粧箱は原型をとどめない程に崩れてしまっていた。後からわかったが、化粧箱はラジウムで汚染されていた。その顛末は口頭で報告することにする。

**万国ラジウム原器会議発行の証明書** ラジウムの国際標準を作る動きは1911年に起こり、キューリー夫人の約21mgの塩化ラジウムによって作られた線源が、パリ郊外のセーブルの国際度量衡局に保管されて国際標準となった。これとウイーンの前原器を基準に多数のラジウム副原器ができたのであろう。No.8の副原器の証明書には、パリの万国原器とウイーンの前原器との $\gamma$ 線の比較測定によって、この線源を値付けし副原器にしたこと、パリとウイーンでの測定にはそれぞれマリー・キューリーとステファン・マイヤーがあたり、それぞれの署名が万国ラジウム原器会議の議長アーネスト・ラザフォードの署名とともに記されている。

**線源の安全性**  $^{222}\text{Ra}$ は9回壊変して安定な $^{206}\text{Pb}$ になるが、この間5回の $\alpha$ 崩壊をして、ヘリウムを放出する。ヘリウムガスが100%ガラス管内に留まっていると仮定すれば、管の内圧は2~3気圧(ガラス管内容積の不確かさを考慮)になっているはずで、さらに長年にわたって大きな放射線損傷を受けているので、ガラス管がいつまで耐えることができるか心配である。

線源の安全性については、専門家を集めて検討すべきであろう。



# COMMISSION INTERNATIONALE DES ÉTALONS DE RADIUM.

## CERTIFICAT.

Das als Chlorid dargestellte Radiumpräparat Nr. 8 entstammt St. Joachimstaler Uranpechblende und ist demnach praktisch frei von Mesothor.

Es enthält  $10.26$  Milligramm Salz.

Es wurde am  $1/IV 1913$  eingeschlossen in ein Glasröhrchen (Thüringer Glas) von  $0.27$  mm Wandstärke, äußerem Durchmesser  $3.2$  mm, Länge  $23$  mm, an dessen Ende ein feiner Platindraht eingeschmolzen ist.

Dasselbe wurde als **Sekundärer Standard** an den Wiener Etalons und an dem internationalen Standard in Paris nach mehreren  $\gamma$ -Strahlungsmethoden unabhängig voneinander geeicht.

Der  $\gamma$ -Strahlung nach ist es im Jahre  $1913$  äquivalent  $9.80$  mg  $RaCl_2$ . (Die jährliche Abnahme beträgt etwa  $0.4$  Promille.)

Unter Zugrundelegung der Atomgewichte von

226	für Radium
35.457	für Chlor
79.916	für Brom

entspricht dies

$7.46$	mg Ra-Element,
$9.80$	mg $RaCl_2$ ,
$12.74$	mg $RaBr_2$ .

Die Genauigkeit dieser Angabe wird auf  $0.2\%$  für gesichert gehalten.

La Préparation de Chlorure de Radium contenue dans l'ampoule Nr. 8 provient de la pechblende de St. Joachimsthal. Elle est donc pratiquement exempte de Mésothorium.

Elle contient  $10.26$  Milligrammes de sel.

Le sel a été enfermé le  $1/IV 1913$  dans un tube de verre (Verre de Thuringe.) Epaisseur du verre  $0.27$  mm; Diamètre extérieur  $3.2$  mm; Longueur  $23$  mm. Un fil de platine fin a été soudé à l'extrémité du tube.

En qualité d'**Étalons secondaires** l'ampoule a été comparée à l'Étalon de Vienne et à l'Étalon International de Paris, au moyen de méthodes de mesures basées sur le rayonnement  $\gamma$ . La comparaison a été faite indépendamment à Vienne et à Paris.

D'après mesurage par le rayonnement  $\gamma$ , la Préparation équivaut en l'année  $1913$  à  $9.80$  mg.  $RaCl_2$ . (La diminution par année est de  $0.4$  pour mille.)

En adoptant les poids atomiques suivants:

Radium . . .	226
Chlore . . . .	35.457
Brome . . . . .	79.916

on déduit la teneur correspondante en Radium élément et en Bromure de Radium:

Ra	$7.46$ mg.
$RaCl_2$	$9.80$ mg.
$RaBr_2$	$12.74$ mg.

La précision de ces résultats est considérée comme assurée à une approximation de  $0.2\%$ .

Specimen No. 8 of Radium is prepared as chloride from pitchblende of St. Joachimstal and is consequently practically free from Mesothorium.

It contains  $10.26$  Milligrammes of salt.

It was enclosed the  $1/IV 1913$  in a glass tube (Thuringian glass) of  $0.27$  mm thickness, exterior diameter  $3.2$  mm, length  $23$  mm, a thin platinum wire being fused into the end of the tube.

It is calibrated as **Secondary Standard** by comparison with the Vienna-Standard and with the International Standard at Paris, several independent  $\gamma$ -ray methods being used.

Measured by the  $\gamma$ -radiation, it is in the year  $1913$  equivalent to  $9.80$  mg.  $RaCl_2$ . (The yearly decay is about  $0.4$  per mille.)

Taking the atomic weights

226	for Radium
35.457	for Chlorine
79.916	for Bromine

this corresponds to

$7.46$	mg Ra-element,
$9.80$	mg $RaCl_2$ ,
$12.74$	mg $RaBr_2$ .

These statements are considered correct to  $0.2\%$ .

Für die Wiener Messung:

*Jefan Meyer*

*Fait en microscopie  
à Paris*

*M. Curie*

*The President of the  
Commission*

*E. Rutherford*

