

# 放射能発見における写真の役割 (下)

## レントゲン線とベクレル線

中 崎 昌 雄

〔前号 (上) より続く〕

9. 「リン光と X 線」 アイデア—Becquerel 1896 年 1 月
10. リン光性ウラン化合物と写真作用
11. 金属ウランからの放射線—Becquerel 1896 年 4 月
12. ポロニウムとラジウムの発見—Curie 夫妻 1898 年
13. Rutherford 「気体イオン化」—X 線からウラン, トリウムへ
14. 不活性ウランと活性「ウラン X」—Crookes 1900 年
15. 「原子壊変説」—Rutherford-Soddy コンビ 1902 年
16.  $\alpha$  粒子から原子「核」へ—1911 年
17. Laue と Bragg 父子による X 線回折実験—1912 年
18. Bohr 「原子構造論」と Moseley 「元素の番号づけ」—1913 年  
おわりに

### 付 録 (翻訳)

2. 「各種のリン光体から放射される不可視放射線について」  
Henri Becquerel, *Compt. rend.*, **122**, 501 (1896)
3. 「各種のウラン塩から放射される放射線について」  
Henri Becquerel, *Compt. rend.*, **122**, 689 (1896)
4. 「金属ウランからの新しい放射線の発生」  
Henri Becquerel, *Compt. rend.*, **122**, 1086 (1896)
5. 「ウランの放射能」  
William Crookes, *Proc. Roy. Soc.*, **66**, 409-22 (1899-1900)
6. 「ウランの放射性について」  
Henri Becquerel, *Compt. rend.*, **133**, 977-80 (1901)
7. 「放射性物質について」  
P. Curie & Mme. Curie, *Compt. rend.*, **134**, 85-87 (1902)

## 9. 「リン光と X 線」アイデア—Becquerel 1896 年 1 月

1896 年が明けたがパリ市民の中で、昨年暮れに発表された Röntgen X 線発見のニュースを知っているのは、数名の物理学者を除いてそう多くはなかった。それより人びとの話題は昨年暮れ 12 月 28 日 (土) 「Capucine」街 14 番地、オペラ座に近い「Grand Café」地下の小ホールで催された Lumière 兄弟「シネマトグラフ」(cinématographe) の一般公開についてであった。映写されたのは「列車の到着」「リヨン市リュミエール工場の出口」など数分もの 11 本で、これが大評判となり年が明けてもあと約 1 年間続映されることになった<sup>(66)</sup>。

フランス科学学士院は毎週月曜日に催されるから 1896 年の例会は 1 月 6 日から始まっている。このころ陰極線は流行のテーマであり、この日にもこれに関する報告が 1 つあった。これは数理物理学者 J. H. Poincaré (1854–1912) が発表していた陰極線の理論に関するもので<sup>(67)</sup>、G. Jaumann の報文のあとに Poincaré の補足がある<sup>(68)</sup>。次の月曜日例会 1 月 13 日には G. Séguéy が球形 Crookes 管と陰極線の金属、ガラスによる反射についての報告した<sup>(69)</sup>。そして 1 月 20 日の 1896 年第 3 月曜日例会になって始めて X 線関係の報告が出てくる。ただし、これは発表と言うより紹介と言うべき物で、たった 3 行に医師 Oudin 博士と Barthélemy 博士が「Röntgen 教授の X.-Strahlen」で撮った手の骨の写真を提示したとあるだけである<sup>(70)</sup>。

「M. M. les Drs. Oudin et Barthélemy communiquent une photographie des os de la main, obtenue à l'aide des «X.-Strahlen» de M. le Professeur Röntgen」

しかし、この報告はフランス科学学士院で発表された X 線関係の報告の最初のものとなった。Oudin らはこの 1 週間あとの 1 月 27 日例会でも「人体病理学研究における X 線写真の利用」について報告している<sup>(71)</sup>。このころ「科学学士院紀要」(Compt. rend.) は週 1 回発行され、口頭発表から 10 日以内に印刷されていた。1896 年、第 122 巻はこの年の 1 月から 6 月にかけての発表を収録しているが、この僅か 6 ヶ月の間にこの巻に収録された X 線関係の発表が 131 報もあったのを見ても、Röntgen の X 線発表に対する人びとの熱狂ぶりが想像されるであろう。

1896年1月20日科学学士院月曜日例会におけるX線写真の提示だけでは詳しいことは何も分からないが、この手の骨のX線写真は2人の医師によって撮影されたのは間違いない。X線の発生にはそのころ多くの物理実験室にあったCrookes管と誘導コイルがあればよいし、写真乾板もふつうの撮り枠に入った市販の物で十分だったから、手の骨の撮影がそんなに困難だったとは思えない。現におなじころヨーロッパの多くの大学でも手の骨の撮影に成功している<sup>(72)</sup>。2人の医師が科学学士院でこの写真を提示したとき、そこにPoincaréと実験物理学者Henri Becquerel (1852-1908)も居合わせ、BecquerelがX線の発生機構について質問した。彼にはRöntgenから論文の別刷を送られていなかったが、Poincaréがこれを持ち合わせていて、その中にあるRöntgenの意見を教えた。

X線は陰極線が放電管の壁に当たって蛍光を発するところから出るのである。Röntgenの論文の§12.には次のようにある<sup>(73)</sup>。

「§12. もっともよく蛍光を出す放電管の壁の場所が、あらゆる方向に拡がるX線の主発生点である。」

そこでBecquerelがアイデアを出した。蛍光のあるところにX線があるのだろう。それなら陰極線の代わりに、ふつうの光線を蛍光物質にあてて蛍光を発生させたら、蛍光と同時にX線も発生するに違いない。同じような考えはPoincaréもそのとき抱いたのであろう。これは10日あとの1月30日になって、別にそれをBecquerelから教えてもらったと断わらないで、Poincaréが同じ考えを発表している事からも分かる<sup>(74)</sup>。

「ガラス壁がこの放射線を出すのであり、蛍光を放つことによってそれを放出するのである。それなら、こう考えてもよいのではなかろうか。蛍光の強い物質はすべて、その蛍光の原因がどうであれ、可視光線のほかにRöntgenのX線を出すのではなかろうか。これらの現象（中崎注：X線の放射）は必ずしも電氣的刺激による物だけとは限らないだろう。それは、とてもありそうにないが、ないとは言えないし、試すのはそう難しくはないはずである。」

Becquerelが蛍光説に興味を抱いたのには理由がある。5年前に父Edmond Becquerel (1820-91)は死亡していたが、父親は蛍光とリン光研究の権威として知られていたし、Henri自身も父親の仕事を手伝ったこ

とがあって、父親の残した多くの蛍光物質の試料を手元に持っていたからである。

Becquerel はこのとき 43 歳になったばかりであったが、優れた科学者を生んだ Becquerel 家の 3 代目としては、まあまあの業績を挙げていた。祖父 Antoine-César Becquerel (1788-1878)<sup>(75)</sup> は B. Napoleon (1769-1821) が 1804 年に改組拡充した「砲工学校」(École Polytechnique) に入学し (1806)、卒業後は 10 年間ほど軍務に服した。しかし Napoleon がウォータロー会戦 (1815) で敗北し失脚したあとは、軍務を離れ科学研究に専念した。始めは鉱物学から入り、結晶のピエゾ電気やピロ電気を研究したが、やがてイギリス化学者 H. Davy (1778-1829) が開拓した電気化学の研究に移り、電気分解を利用して各種の無機化合物の合成に成功した。この業績で 1837 年にはイギリス王立学会から Copley メダルを授けられた。次の年、1838 年にセーヌ河を隔ててノートルダム寺院の望む植物園の土地に「自然科学博物館」(Muséum d'Histoire Naturelle) が設立され、ここの初代の物理学教授に彼が招かれて、そこの官舎に住むこととなった。この館長職は彼のあと息子と孫が継ぐことになる。

自然科学博物館では電気、磁気の研究を始め Faraday より先に反磁性を発見したりした。彼は 90 歳 (1878) まで生きたが、最後まで元気で科学学士院での討論に活発に参加し活躍した。Antoine の死で空席になった館長の椅子は息子の Alexandre-Edmond Becquerel (1820-91) が 58 歳で引き継いだ<sup>(76)</sup>。Edmond も優秀で 18 歳のとき難関で知られた「砲工学校」と「高等師範学校」(École Normal Supérieure) の両方に合格したが、まだ元気だった父親の助手をした方が勉強になると言うので、どちらにも進学しなかった。それでも 1840 年、20 歳の若さで光学の業績でパリ大学から学位を授けられている。あと、いろんな学校で物理学や化学を教えたが、一貫して父親の仕事を手伝い、父の死後すぐに自然科学博物館館長に任命された。始め彼の研究は父親に協力した電気化学、反磁性体に関するものであり、やがて 1840 年からは光学に興味を移した。これには 1839 年 1 月に発表されたダゲレオタイプ発明が刺激となっているのは確かであろう。次の年、1840 年 3 月 (20 歳) に発表した報文は、この写真に関するもので題名は次のとおりである<sup>(77)</sup>。

## 「線画と版画の複写に利用できるある感光紙について」

ダゲレオタイプ発表から4ヵ月にしか経っていない、1839年5月にスコットランド人 Mungo Ponton (1801-80) が重クロム酸カリウムを塗った感光紙を発表した。Becquerel の研究はこの感光性が紙にサイズとして加えてあった澱粉と重クロム酸カリウムとの間の光反応に起因することを実証したものである。この研究はやがて W. H. F. Talbot (1800-77) 「重クロム酸ゼラチン写真印刷」(1852) にまで発展した。Edmond はまたカラー写真についても先駆的な仕事 (1848-55) をしている<sup>(78)</sup>。彼の方法ではまず磨いた銀板を塩素水に浸けて紫色がかかった塩化銀膜を作る。この上に太陽光スペクトルを投射すると、赤から紫にかけてかなり良好な色対色の対応がみられた。ただし定着ができず、暗所でなら少し保存が効くが、明るいところに出すと消えてしまった。着色版画をカメラで撮るのでも10-13時間もの露出を必要とした。

このあと Becquerel の写真研究は全く新しい分野に向けられた。増感色素の仕事である。1873年10月ドイツ人化学者 H. W. Vogel (1834-98) が画期的な色素増感現象を発表した<sup>(79)</sup>。写真乳剤に色素を加えて乾板を作ると、色素が吸収する光線に乾板を感光させることができる。Vogel はこうして以前は不可能だと思われていた緑色に感じる乾板を作るのに成功した。ただ多くの人がこの報告を追試したが、彼の言うとおりにならないと言うので信用しない人の方が当時は多かったのである。その中であって Vogel 説に賛成して新しい実験を重ね、これを支援した極く僅かな研究者の中の1人に Becquerel が数えられる。Becquerel が試したのは植物色素「クロロフィル」(葉緑素) で、この色素を加えた乾板を作ると太陽スペクトルの E 線 (緑) のところまで写すことができた (1874)<sup>(80)</sup>。しかし Becquerel のもっとも有名な業績は蛍光、リン光現象に関する研究であろう。この方面の仕事は1859年に1冊の本に纏められ、これはすぐにこの方面の古典としての地位を獲得した。

この Edmond の息子がウラン自然放射能を発見する Henri Becquerel である<sup>(81)</sup>。彼は父と同じように植物園にある自然科学博物館で生まれた。祖父は長命 (90歳) だったから、Henri の26歳のときまで同じ官舎に住んでいた。Henri も祖父や父と同じように秀才で1874年に砲工学校を卒

業したが、そのあとどう言う理由からか土木工学を志望して官立「土木学校」(École des Ponts et Chaussées)に入った。こんな関係で彼はあとまで「土木学校」で物理学を教えた。1878年(26歳)のとき祖父が死んで、父親が館長職を継いだので Henri が昇格して助手に採用された。彼は Röntgen と同じように理論には強くなかったが、Röntgen と同じように実験が正確で巧みで、粘りも人一倍に強かった。Henri が Röntgen と違うところは、父 Edmond に教えられた化学実験にも巧みだった点であろう。

Henri は自分の手でだけ確かめた実験事実の上に立って推論をした。これは Pierre Curie (1859-1906)<sup>(82)</sup> とは反対の気質である。後年「ウラン X」や原子壊変説を巡っての彼らの論争(1901)は、彼らのこの気質の差を端的に表している<sup>(83)</sup>。もちろん、実験事実在即した Becquerel の方が正しかったのである。

Becquerel は実験が上手だったから、若いころは光学を中心にいろんな方面に手を出した。始めは磁場による平面偏光面の回転(ファラデー効果)を研究したが、そのうちに赤外線スペクトルに手を染め、やがて各種の結晶についてその結晶軸と光吸収の関係を調べた(1886-88)。そして1888年ころからはファラデー効果研究の延長である磁場によるスペクトル線の変化を検出する実験に手をつけていた。あとでオランダ物理学者 P. Zeeman (1865-1943) が発見する「ゼーマン効果」(1896)の研究である。Zeeman はこの研究でノーベル物理学賞(1902)をもらった。Henri は1889年に科学学士院会員に推薦され、1891年父が死亡するとそのあとを襲って、自然科学博物館の館長となった(39歳)。ここまで彼はますますの業績を挙げていたが、父の死を挟む数年間にはこれという目ぼしい仕事もなく、祖父や父の名声にまで達しているとは言えなかった。

## 10. リン光性ウラン化合物と写真作用

それが Röntgen の発表の次の年(1896)になって、急に新しい分野が彼のまえに開けたのである。

「始めて Röntgen の仕事を聞いたとき、すぐにいろんな物質がこの不可視で透過性を持つ放射線を出すかどうか、調べてみようと思いました。

1896年1月20日に Poincaré が科学学士院で最初の X 線写真を見せ

ました。彼は私の質問に答えて、この放射線の源は陰極線が当たるガラス球の光を放つ壁のところだと言いました。私はすぐにリン光を刺激する振動によって、この放射線が発生するかどうか、またリン光物質の全てがこの放射線を出すのかどうかを試してみようと考えました。この当時は誰もエネルギーが自然に発生するとは考えていませんでしたから、エネルギーが姿を変えているのだと考えるのが自然でした。言い換えると、放射線を出すためにはエネルギーを供給しなければならないと考えたのです。」<sup>(84)</sup>

科学学士院での討論の次の日から、Becquerel はスペクトル線の磁場効果の実験を中断して新しい実験を始めた。彼の可視光線による X 線発生の研究第 1 報はこれから約 1 ヶ月あとの科学学士院 2 月 24 日例会で報告された。

しかし、この 1 ヶ月の間にも「Poincaré-Becquerel」アイデアに基づいた蛍光、リン光と X 線発生の研究は彼以外にも多くの人を手掛けていた。たとえば 2 月 10 日例会では C. Henry が蛍光に起因すると思われる奇妙な X 線発生を報告した<sup>(85)</sup>。彼は臭化銀ゼラチン乾板を包んだ黒紙の上に、1 本の鉄針金を載せ、この上にさらに数個の銅貨をおいた。銅貨の 1 個の上に蛍光性の硫化亜鉛層をおいて、全体に X 線を当ててみた。乾板を現像してから焼付けて陽画にすると、硫化亜鉛銅貨の下の鉄針金のところの印像だけが少し薄かった。彼はこれを蛍光体から出た放射線が X 線に加わったためであるとした。

次の月曜日例会 2 月 17 日に G.-H. Niewenglowskie が、こんどは太陽光と蛍光性の硫化カルシウムの組合せでの実験結果を発表した<sup>(86)</sup>。彼は感光紙を黒紙で包み、この上に 2 個の銅貨を載せ、さらにこの上にガラス板をおいた。このガラス板の半分に硫化カルシウムを塗って、銅貨の 1 個だけがこの下にくるようにした。全体を太陽光に 4-5 時間当ててから現像すると、硫化カルシウム層の下の感光紙にだけ銅貨のシルエットが写っていた。あとからの追試によって、これらは紫外線による物ではなかろうかと考えられている。

Becquerel の方は始め真空放電管をまねて、減圧にしたガラス球のなかにリン光体を封じ、これに光を当てて X 線のような放射線が出るかどうか

か試してみた<sup>(87)</sup>。検出には黒紙に包んだ乾板を用いた。次におなじ黒紙に包んだ乾板の上に、蛍光体である蛍石（フッ化カルシウム）、6方晶系閃亜鉛鉱（硫化亜鉛）をおいて、全体を電気火花その他で長時間にわたって照射してみたが、いずれの場合も結果が出なかった。しかし彼は父親の作った多くの蛍光、リン光体の試料をもっていたので、これらの中で大きな結晶となり空気中でも安定な硫酸ウラン・カリウム複塩（sulfate double d'uranium et de potassium）を選んで試験してみることにした。

これらウラン化合物は父親が詳しく研究して、その結果を1872年に科学学士院で発表していたのであった<sup>(88)</sup>。

「私は以前から父の仕事の続きで、これらの放つリン光を研究する機会がたびたびありました。これらの物質はリン光の点からも光吸収の点からも、特異な分子的性質を持っておりました。」<sup>(89)</sup>

この化合物は本当はウラニル化合物と呼ぶのが正しいから、第2報からは正式に硫酸ウラニル・カリウム複塩（sulfate double d'uranyl et de potassium）としている。ただこの化合物の大きな美しい結晶は、ちょうど友人の物理学者 G. J. Lippmann（1845-1921）がもって帰っていた。Lippmann はこのころ手掛けていた光干渉によるカラー写真の研究用にこの結晶を借りていたのである。ただし1908年ノーベル物理学賞をもらった彼の光干渉カラー写真と、このウラン複塩結晶とはなんの関係もない<sup>(90)</sup>。

結晶が Lippmann のところから帰ってきたので Becquerel は実験を始め、その結果が科学学士院2月24日例会で読まれた。

その全訳を次に示す<sup>(91)</sup>。

「リン光によって発生する放射線について」

(Sur les radiations émises par phosphorescence)

「前前回の例会で Ch. Henry 氏はリン光性硫化亜鉛を Crookes 管から出る光線 (rayons) の通り道におくと、このアルミニウムを通り抜けられる放射線 (radiations) の強度を増大させると報告した。また（中崎注：前例会で）Niewenglowski 氏は市販のリン光性硫化カルシウムは不透明体を通過する放射線 (radiations) を出すことを発見したと報じた。これらの事実は他の多くのリン光体にも発見されるかも知れない。とくにリン光時間の非常に短いウラン塩ではそうである。



私は薄い板状で透明な硫酸ウラン・カリウム複塩 (sulfate double d'uranium et de potassium) の結晶を持っていたので、次の実験をすることができた。『Lumière』社製臭化銀ゼラチン乾板の1枚を2枚の非常に厚い黒紙で包んで、1日太陽に当てても感光しないようにした。つぎに、外からこの黒紙の上にこのリン光体の薄片を載せて全体を数時間太陽光に当ててみた。このあと乾板を現像してみるとリン光体のシルエットがネガの上に黒く現れているのを発見した。このリン光体と黒紙の間に1枚の貨幣とか、模様を打ち抜いた金属板をおくとネガの上にこれらの像が現れた。リン光体と黒紙の間に薄いガラス板をおいて同じ実験を繰り返すと、ここでも同じ結果が得られたから、これを太陽光によってリン光体から発生するかも知れない蒸気の化学反応によるものとする可能性はなくなる。

こうして、これらの実験から次の結論が導かれるであろう。問題のリン光体は光に不透明な紙を通過し、銀塩を還元する放射線 (radiations) を放射するのである。」

検出に使ったのは「Lumière」社製臭化銀ゼラチン乾板で、これを黒紙に包んだ物の上に、ウラン複塩を載せてから太陽光に数時間あてた。現像するとネガの上に結晶の形が黒く写っていた。こんどは黒紙に包んだ乾板の上にガラス板をおき、その上に貨幣、さらにその上にウラン複塩の結晶を載せて太陽光に曝してみると、ネガには黒地のなかに貨幣のシルエットが白く写っていた。こうして彼は結論する。

「問題のリン光体は光に不透明な紙を通過し、銀塩を還元する放射線を放射するのである。」

この実験には父 Edmond がまえに作っていたウラン複塩の試料を使い、放射線の検出にはこれまた父親が得意であった写真術を利用した。それで Becquerel はあとで、次のような感想を漏らしている<sup>(92)</sup>。

「放射能の発見が、われわれの自然科学博物館の研究室で行われたのは、全くふさわしいことでした。もし私の父親が1896年に生きていたら、彼こそがこれを発見したことでしょう。」

以上が1月20日科学学士院で Poincaré と意見を交わしてから開始した1ヵ月あまりの Becquerel の仕事である。彼はこの2月24日第1報に続

いてまとまった報告を、3月2日、3月9日、3月23日、3月30日、5月18日と5報を発表している。この約4ヵ月間 Becquerel はちょうど数ヵ月まえの Röntgen が X 線を研究したときと同じに、熱に浮かれたように仕事に打ち込んでいたに違いない。ただ Röntgen が最初の2ヵ月間の研究成果を第1報に纏めて発表したのと違って、Becquerel の方はほとんど1週間か2週間おきに口頭で科学学士院に報告している。このため Becquerel の報告は続き物のような体裁となり、彼の実験の進行ぶりと考えの変遷が分かる点で面白い読物になっている。

これらの報文の中で「セレンディピティー」的に見てもっとも面白いのは、第1報のあと1週間して3月2日に科学学士院で読まれた第2報であろう<sup>(93)</sup>。表題は第1報とほとんど変わらない。

「各種のリン光体から放射される不可視放射線について」

この報文は少し長いので全文の翻訳を「付録2」として巻末に収録しておいた。次にその内容を要約しておこう。始めに Becquerel は続いて使用する板状晶ウラン複塩について、その名前を「硫酸ウラニル・カリウム複塩」と訂正して、第1報より少し詳しく説明している。ただし彼が示す組成式  $[\text{SO}^4(\text{UO})\text{K} + \text{H}^2\text{O}]$  は現代風に書けば  $[\text{UO}_2\text{SO}_4 \cdot \text{K}_2\text{SO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}]$  である。

この化合物は強いリン光を放ち、その持続時間は100分の1秒程度である。

実験には第1報と同じように「Lumière」社製臭化銀ゼラチン乾板を黒紙に包んで使用した。その上にアルミニウム板を載せ、さらにその上にウラン複塩の板状晶をおいたものを、長時間太陽光に当ててから現像すると、ネガではこの結晶のシルエットが黒く出ていた。すなわち放射線らしい物はアルミニウム板を通過するのである。こんどは厚さ0.1mmの銅板に十字架を切り取ったものをアルミニウム板の上に載せ、さらのその上にウラン複塩板状晶を載せてから太陽光に当てた。乾板を現像してみると十字架がネガの上に黒く出た。すなわち放射線はアルミニウム板を通過するのに、X線と同じように銅板を通過し難いのである。これだけなら Röntgen X線研究の繰り返しであるが、さらに「セレンディピティー」的の偶然が Becquerel にも訪れた。

彼は2月26日(水)、2月27日(木)に次の実験に備えて、撮り枠に入

れた乾板の上にウラン複塩板状晶を紙帯で固定したものを作った。しかし、冬のパリは曇りの日が多くて太陽光に当てる実験ができず、数日間これを引出しにしまっておいた。3月1日(日)に「非常に淡い像」を期待して現像してみたところ、結晶のシルエットが大変に濃く写っていた。そこで、こんどは始めから暗室で実験することにして、ウラン複塩を直接に感光面においたり、アルミニウム板を隔てておいたものを、暗所に5時間放置してみた。乾板を現像するとやはり板状晶のシルエットがネガの上に黒く現れた。

このようにして、太陽光に当てなくてもウラン複塩からなにか放射線らしい物が出るのに気が付いたのが3月1日日曜日であるが、Becquerelはこの結果を次の日、3月2日月曜日の科学学士院例会で発表した。報告の最後に次のようにある。

「これらの現象が、リン光体から発生する可視光線によるものではなさそうな事を認めるのが大切である。この可視光線なら100分の1秒後には、とても弱くてなりほとんど感知できないに違いない。大変にありそうな仮説は、上記の放射線がLenardとRöntgenが研究した放射線の示す効果と大変に類似した効果を示すので、この放射線はリン光から発生するある種の不可視放射線ではなかろうかと言うものである。」

Becquerelは5年前に死んだ父Edmondが生きていたら、彼こそがウラン放射能を発見したに違いないと言っている。そうかも知れない。しかし、もしEdmondが生きていたら彼と同じような写真研究家Niépce de Saint-Victor (Niépce de St-V.と略す) (1805-70)が、30年ほどまえに発表したウラン化合物についての面白い報告を思い出したかも知れない。このNiépceはDaguerre銀板写真の基礎となった「ヘリオグラフ」を完成したNicéphore Niépce (1765-1833)の遠縁にあたる<sup>(94)</sup>。Niépce de St-V.は軍人であったが器用な男で、卵白ヨウ化銀ガラス写真(1847)でガラス写真の先鞭をつけ<sup>(95)</sup>、カラー写真でもEdmondと同じころ「ヘリオクロミー」(héliochromie) (1851)を研究したし<sup>(96)</sup>、鋼鉄板を使用する写真印刷(1853)でも成績を挙げていた<sup>(97)</sup>。

彼は1858年から1859年にかけて硝酸ウランを写真感光剤に使う実験をしている。硝酸ウラン(正しくは硝酸ウラニル,  $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ )を

紙に塗った物に太陽光を当ててから、これを暗所でヨウ化銀や塩化銀の感光板の上におくと、直接に光を当てたと同じようにこれらを感光させることができた。光に当てた硝酸ウラニル紙をブリキ容器に数ヵ月密封しておいても効果は変わらない。

1867 年 9 月 16 日科学学士院の報告では次のように言っている<sup>(98)</sup>。

「私は前報で版画または単なる紙 1 枚でも、これを太陽光に当ててから、たとえばヨウ化銀や塩化銀のような感光板の上におくと、暗所においてあたかも直接光に当てたように、これらがハロゲン銀塩を還元することを報告しておいた。ただし作用はずっと遅いが、これらの紙を光に当てるまえに、硝酸ウラン (azotate d'urane) または酒石酸に浸しておけば、銀塩の還元はずっと速くなる。とくに硝酸ウランで著しい。」

「ブリキ容器に密封しておくと、数ヵ月後でも最初の日とおなじ活性を示した。」

### 11. 金属ウランからの放射線—Becquerel 1896 年 4 月

3 月 2 日第 2 報に続く Becquerel 第 3 報は 1 週間あとの 3 月 9 日例会で発表された<sup>(99)</sup>。

「各種のリン光体から出る不可視光線のいろんな新しい性質について」この報告は 3 章に分けられている。1. 荷電体への作用, 2. 反射と屈折, 3. 各種の物質からの放射と暗所における放射の持続。

この第 3 報で Becquerel は彼の発見した新しい放射線が、X 線と同じように荷電体を放電する能力のあることを報告している。この性質は続く第 4 報でさらに詳しく報告されることになる。彼はまたこの新しい放射線が可視光線のように反射, 屈折することを写真乾板を使って証明した。ただし、あとでこれは鏡に当たったときに、2 次的に発生する放射線によるものらしいと分かった。ウラン複塩はこれを 1 週間ほど暗所に放置しても放射線の強度に変化は見られなかった。ウラン複塩以外のリン光体から放射線が出るかどうかを調べたところ、この能力は酸化ウラン, 硝酸ウラン (nitrate d'urane) などウラン化合物に限られることが確かめられた。ただ 1 つの例外は Niewenglowshi が始めて報告したリン光性硫化カルシウムである。これは厚さ 2mm のアルミニウム板を通過する放射線を出した。

しかし、ウラン化合物と違ってこの能力は2週間で消滅した。

このように初期の Becquerel の報文の中には現在の目でみて、解釈に苦しむような観察も混じっている。だが、それにも係わらず彼は着実に目標に向かって近づいていく。ただウラン塩からの放射線では骨の写真は掲げなかった。

第4報はこの3月9日第3報から2週間して3月23日に科学学士院例会で読まれた<sup>(100)</sup>。

「各種のウラン塩から放射される放射線について」

この第4報の全訳が「付録3」である。この報告は5章に分けられている。

1. 荷電体への作用,
2. いろんなウラン塩からの放射, 持続性, 励起性,
3. いろんな物質による吸収, 4. 屈折, 5. いろんな物質における異常性。

内容の詳しいことは「付録3」を見てもらえばよいのであるが、Becquerel の考えが相変わらず放射能がリン光に関係があるのか、ないのかの間を微妙に揺れていると言う印象を受ける。荷電体の放電の測定には Hurmuzescu 検電器を使い、その金箔が1秒間に落下する角度で放射線の強度を測定した。この方法で硫酸ウラニル・カリウム複塩からの放射線が水晶を通過するときの吸収をX線のそれと比較した。この複塩をマグネシウム光で強烈に照射すると、少しであるが照射前より金箔の落下速度が大きくなった。ウラン化合物の間で比較するとリン光性のないウラン(IV)化合物でも放射線を出す。リン光と放射線との関係について Becquerel は硝酸ウラニル六水化物 ( $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ) で面白い実験をしている。この化合物は加熱すると結晶水に溶けてリン光を放たなくなる。そこで Becquerel はこの結晶を試験管の中で光を当てないようにして融解し、ついで冷却してもとの結晶にもどした。こうして得た結晶は一度も励起光に触れていないはずである。ところが、この結晶を乾板に載せて試したところ、ネガの上のシルエットは塩に光を当てたと同じように濃かった。つぎに写真乾板を利用して各種のウラン化合物から出る放射線が、いろんな物質に吸収される度合を調べた。また屈折の測定にはクラウン・ガラス製プリズムを使い、その頂角を挟む1面に直径1mmのガラス管に入れた結晶性硝酸ウラニルをおいて直線状の線源とし、別の面に検出用の写真乾板をおいた。3日後、乾板を現像すると少し広がった印像が得られた。ただ

し、この拡がりは可視光線の場合の拡がりと同じオーダーであった。

報文の最後に Becquerel は例の不可思議な硫化カルシウムからの放射線について報告している。始めは厚さ 2mm のアルミニウム板を通過する放射線を出したのに、次回の実験ではなんの結果も与えなかった。また蛍光性の 6 方晶系閃亜鉛鉱（硫化亜鉛）を加熱したり、冷却したり、太陽光照射で励起しても写真乾板に印像を与えなかった。

3月23日第4報に続く第5報は1週間あとの3月30日の科学学士院例会で報告された<sup>(101)</sup>。

「各種のウラン塩から出る不可視光線および、

Crookes 管の対陰極からの光線について」

この報告は4章に分けられている。1. 複屈折、電気石をとおるときの偏光と二色性、2. 各種の物質による吸収の差、3. いろいろなウラン塩からの放射線放出の特異性、4. 考察。

相変わらずこの報告の中の実験も確定的な結果を与えていない。あるとすれば検電器を用いたアルミニウム、銅、白金などによる吸収の比較であろう。リン光性硫化カルシウム、閃亜鉛鉱について実験してみたが、以前と変わらず結果はネガティブであった。ところがリン光性の硝酸ウラニル結晶を水に溶かして、まったくリン光を出さない水溶液にしても乾板に黒い印像を与えた。このようにリン光と放射線の放出とは無関係だとする結果が次第に増えてきた。

この3月30日第5報のあと7週間して、第6報が5月18日に科学学士院で読まれた<sup>(102)</sup>。これはリン光を放つはずのない金属ウランからの放射線の発生を報じたものである。

「金属ウランからの新しい放射線の発生」

この第6報の全訳が「付録4」である。Becquerel はウラン複塩を3月3日から5月3日までの2ヵ月光を通さないボール箱に入れて保存し、5月3日からは他の放射線から遮断する目的でこれを鉛の2重箱に入れた。複塩の底に写真乾板を挿入すると、やはり乾板が感光した。暗所に保管したこのウラン複塩の結晶をライデン瓶の放電による電気アークで照射すると、少し活性が増大したがこの活性も数時間のうちに減衰してしまった。このような従来の実験の追試のあと Becquerel は本題に入る。彼がこれま

で試験したウラン化合物は、リン光を出すものも出さないものも、例外なく放射線を放った。そこで Becquerel は考えた。

「この事から私はこの効果はこれらの塩に含まれているウラン元素の存在によるもので、金属ウランはその化合物よりずっと大きな効果を示すだろうと考えるにいたった。」

そこで実験室に永く保管してあった粗製ウラン粉末を、5月の始めに写真乾板で試験してみたところ、これは硫酸ウラニル・カリウム複塩よりずっと濃い印象を与えた。そのうちに友人の Henri Moissan (1852-1907) に頼んでおいた純粋な金属ウラン粉末、熔融ウラン、炭化ウランの試料が届いたので、これらについて試験をした。Moissan は「高等薬学学校」(École Supérieure de Pharmacie) の無機化学教授で Becquerel とは同じ年だった。Moissan は10年前の1886年に永く化学界の難問だったフッ素の単離に成功していた<sup>(103)</sup>。あとでこの業績に対して1906年ノーベル化学賞が彼に与えられた。

Moissan が Becquerel に頼まれてウランの仕事をしていたころ、彼の最大の関心事は自分が開発した電気炉の高温を利用して、無定形炭素からダイヤモンドを合成する実験であった。この成功はこのウラン研究と同じ1896年に報じられたが、現在では Moissan が使った温度と圧力では理論的に合成は不可能と分かっている。

Moissan のウランに関する報告は Becquerel 第6報と同じ日、5月18日に科学学士院で読まれ、「学士院紀要」では Becquerel 第6報のすぐあとに続いて印刷されている<sup>(104)</sup>。

#### 「金属ウランの製造とその性質について」

ウラン元素はすでに1844年 E. M. Péligot (1811-90) によって単離されていたから、Moissan の仕事はその改良に過ぎない。Moissan の出発物は Péligot を同じく四塩化ウラン ( $\text{UCl}_4$ ) であるが、この化合物自身は潮解性で取扱い難いので、食塩との複塩 ( $\text{UCl}_4 \cdot 2\text{NaCl}$ ) の形にして使った。これを金属ナトリウムと反応させたり、融解電解して金属ウランをかなり純粋な形で得ることができた。また酸化ウランと炭素を電気炉で強熱する冶金法でも作った。これらが Becquerel の使った試料である。この金属ウランや電気炉で合成した炭化ウランを写真乾板の上に載せ、硫酸ウラニル・カ

リウム複塩と比較したところ、複塩よりずっと濃い印象を与えることが分かった。また Hurmuzescu 検電器で放電速度を計ったらウラン複塩より約 4 倍ほど活性であった。

こうして一応はウラン化合物のリン光と放射活性とが無関係であると分かったのであるが Becquerel は相変わらず迷っている。それはこの放射線のもつエネルギーがどこから来ているのかが問題だったからである。すでに引用しておいたように、仕事を始めるまえ Becquerel は次のように考えていた<sup>(84)</sup>。

「この当時は誰もエネルギーが自然に発生するとは考えていませんでしたから、エネルギーが姿を変えているのだと考えるのが自然でした。言い換えると、放射線を出すためにはエネルギーを供給しなければならないと考えたのです。」

彼は 1896 年、新年早そうから始めた 4 ヶ月の仕事で、ウラン化合物についての目ぼしい仕事はこの 5 月 18 日第 6 報までに片付けて、1896 年後半では 1 報を出すだけとなった。次の年、1897 年には 2 報を出す、いずれもウラン放射線の荷電体に対する放電についての小さな仕事である。Becquerel は Röntgen の X 線のとおり、自分の発見したこの放射線が、電磁波なのか粒子性なのかを知らないのである。Becquerel 自身も次第にこの方面では新しい展開が望めないと考えて、ウランの仕事を始めるまえに手を着けていた「ゼーマン効果」実験の準備を始めた。彼がふたたび放射線の仕事にもどるのは 1899 年になってからであり、この間に放射線研究は Curie 夫妻のトリウムからの放射線、新放射性元素ポロニウムとラジウムの発見に代表される新しい方向に進んでいた。

## 12. ポロニウムとラジウムの発見—Curie 夫妻 1898 年

Maria Skłodowska (1867-1934) はポーランド生まれである<sup>(105)</sup>。姉 Bronia をパリへ留学させるために家庭教師をしたりして稼いだ、医師と結婚した姉を頼って 1891 年 (24 歳) パリに向かい、ソルボンヌ大学で数学、物理学、化学などを貧しい環境で勉強した。成績もよく、またなによりも熱心な学生であったから Lippmann 教授が特別に自分の実験室で仕事をさせてくれた。1894 年 4 月パリ在ポーランド物理学者の家でポー



ランドからの亡命者の集まりがあり、ここでパリ生まれの物理学者 Pierre Curie と知り合った<sup>(106)</sup>。彼女より 8 歳年上である。Maria はこのころ鋼鉄の磁氣的性質を調べていた。Curie も同じ磁気の仕事をしていて、あとで彼の名前をつけて呼ばれる「キュリー則」を纏めていた新進の物理学者であった。Pierre は子供のときから自然が好きで内省的であり、中等教育までは学校へ行かず家族か家庭教師に教えてもらった。大学で勉強したあと 4 歳上の兄 Jacques と共同で研究をした。これは結晶のピエゾ電気に関するものである。かれらは水晶ピエゾ電気を利用して簡便で鋭敏な電気計を制作し、また非周期 (aperiodique) 天秤の制作にもこの性質を利用した。彼らの業績が高く評価されたことは、イギリス物理学界の大御所 Kelvin 卿 (William Thomson, 1824-1907) が彼らと手紙のやり取りを希望したことからも伺える。彼らの共同研究は兄 Jacques が 1883 年モンペリエ大学鉱物学教授として赴任するまで続いた。

Pierre の方は 1882 年から新設の「パリ市立物理学化学学校」(École Municipale de Physique et Chimie) の物理学教授に採用され、ここで 22 年間仕事をする事となった。1895 年 3 月 Pierre の学位論文が通過し Pierre と Maria はこの年の 7 月 26 日に結婚した。すぐに Marie (フランス風) も学位論文研究を始めることとなり、彼女は Pierre より化学に強かったから、ちょうどそのころ発表された Becquerel のウラン放射線の研究を取り上げることにした。彼女にとって都合のよかったのは、「物理学化学学校」校長 P. Schützenberger 教授が学校で倉庫代わりに使っていた部屋を実験に使わせてくれたのと、放射線強度の測定に Curie 兄弟が開発した新式の電気計が利用できたことである。Pierre はもともと理論に強く、結晶の性質と対称の関係に興味をもっていて、その見地から結晶成長研究に手を着けていた。それが一時のつもりで、Marie の測定などを手伝ううちに、1906 年 4 月 19 日彼の不慮の死で中断されるまで、約 10 年ほど妻の放射能の仕事につき合う羽目になった。

彼らの放射能研究第 1 報は Becquerel の先駆的工作から 2 年あとの、1898 年 4 月 12 日に発表された<sup>(107)</sup>。著者は単独名で「M<sup>me</sup> Sklodowska Curie」となっており、かつての彼女の指導教授であった Lippmann が科学学士院で読んでくれた。

## 「ウランおよびトリウム化合物から放射される放射線」

(Rayons émis par les composés de l'uranium et thorium)

トリウムの放射能は同じころエルランゲン大学 G. C. Schmidt が独立に発表している、彼はあとでこれをフランス科学学士院に報告した<sup>(108)</sup>。これは5月2日になって同じく Lippmann 教授によって読まれた。

Marie の研究方針は Becquerel のそれよりずっと定量的であった。これには Pierre からの助言もあっただろうが、水晶ピエゾ電気を利用した Curie 兄弟発明の新式電気計が利用できたことも大いに与っている。このため Marie の研究では写真乾板にそれほど大きな役割が与えられていない。実験には試料粉末を直径 8cm, 間隔 3cm の平板コンデンサーに入れ、これに 100 ボルトの電圧をかけて、放射線によるイオン化で生じる電流を測定した。試料には Moissan からもらった少しカーバイトを含む金属ウラン、各種のウラン化合物それに酸化トリウムがあった。測定の結果、酸化トリウムが金属ウランより「活性」(active) であると分かった。彼女はここで放射能を示す「active」「activité」という言葉を使い始めている。Marie はまた放射活性であるウランとトリウムがともに原子量の大きな重元素に属することを指摘している。

それより彼女をもっとも驚かせたのはオーストリア産のウラン鉱石ピッチブレンド (pechblende) などが、ウラン自身より大きな活性を示したことであろう。

「この事実は注目すべきであって、これらの鉱石がウランよりずっと活性の大きな元素を含んでいるものと考えたい。」

Marie はまたウラン鉱石などの写真乾板に対する感光作用も調べていて次のように言っている。

「写真感光性 (Impressions Photographiques): 私はウラン、酸化ウラン類 (中崎注: 緑色, 黒色), ピッチブレンド, カルコライト (chalcocite, 中崎注:  $\text{Cu}(\text{UO}_2)(\text{PO}_4)_2 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$ ) および酸化トリウムでチャンとした写真印像を得た。短距離なら空気であれ, ガラスであれ, アルミニウムであれ, これらの物質を透過して作用がおこる。硫酸トリウムはずっと弱い印像を与え, オクソヘキサフルオロタンタル酸カリウム (fluoxytant-alate de potassium, 中崎注:  $\text{K}_3(\text{TaOF}_6)$ ) の与える印像は非常に弱かっ

た。」

Marie の第 2 報は 2 ヶ月あとの 1898 年 7 月 18 日科学学士院で発表された<sup>(109)</sup>。報告は Pierre と Marie の連名になっていて Becquerel が読んでくれた。

「ピッチブレンドに含まれる新しい放射性物質について」

(Sur une substance nouvelle radio-active,  
contenue dans la pechblende)

Becquerel が彼らの報告を科学学士院で読んでくれるのはこのときから、4 年あとの 1902 年 1 月 13 日報告までである。この 1902 年の報告で Curie 夫妻が Becquerel の見解に駁論したからである<sup>(83)</sup>。

第 2 報の表題で始めて「radio-active」(放射性)という言葉が登場している。Marie の化学実験は 4 月 14 日から始まった。この日、彼女は放射能がウランの 2.5 倍も大きいウラン鉱石ピッチブレンドを粉末にして、これを酸に溶かし硫化水素水と反応させた。あと定性分析の手段に従って各フラクションに分離し、フラクションの活性を測定していくと、最後に活性物質の硫化物が硫化ビスマスのところに残った。活性体と硫化ビスマスの分離には揮発性の差を利用した。混合物を減圧にして 700°C に加熱すると活性体の硫化物は硫化ビスマスより早く 250-300°C で昇華してきた。こうしてウランより 400 倍も活性な試料が得られた。

彼らはこの放射性元素を「ポロニウム」と名付けた。

「このようにして、われわれがピッチブレンド (pechblende) から抽出した物質は、その分析化学的性質からみてビスマスに近い、かなり珍しい金属を含むと考えている。この新しい金属の存在が確認されたら、われわれの 1 人の母国にちなんでこれをポロニウム (polonium) と呼ぶことを提案したい。」

Marie の第 3 報は第 2 報のあと 4 ヶ月して、1898 年の暮れも迫ったこの年最後の科学学士院例会で読まれた<sup>(110)</sup>。

「ピッチブレンドに含まれる強力な放射能をもつ新物質について」

ポロニウムよりさらに強力な新放射性元素「ラジウム」の発見を告げるこの報告は「物理学化学学校」化学実験主任 G. Bémont と連名になっている。これらの実験に使ったオーストリア産ピッチブレンド鉱石はかなり高

価であったから、購入費の一部は Pierre の研究費でまかなったであろうが、それでもこの費用は Curie 家の経済を圧迫したに違いない。それに、このころ家族には昨年 9 月 12 日に生まれた長女 Irène (Jolliot-Curie, 1897-1956) も加わっていた<sup>(111)</sup>。

Marie は定性分析の結果、新しい放射性元素はバリウムと同じフラクションに来ることを確かめた。これを塩化物にして水に溶かし、アルコールを加えて沈澱させると、活性体は沈澱しやすい方に集まった。根気のいる分別結晶を繰り返すことによって、Marie はウランより 800 倍も活性の塩化物を得ることができた。このフラクションはまだ多量のバリウムを含んでいるから、もしこの元素を純粋にしたら、その放射能たるや「莫大 (énorme) に違いない」と彼女は予想している。この試料をスペクトル分析の専門家 Eugène Demarçay (1852-1904) に頼んで調べてもらおうと、バリウムの輝線以外に紫外部に  $\lambda=3814.8$  に特有の線が発見された。この線は分別が進むに連れて濃くなった。Demarçay のスペクトル分析の結果は Curie 夫妻の発表と同じ日に、彼らの報告に続いて科学学士院で報告された<sup>(112)</sup>。Curie 夫妻はこの未知の元素を「放射線」(radiation) に因んで「ラジウム」と命名した。

「以上に列挙してきた多くの理由からわれわれは、この新しい放射性の物質が新元素を含有するものと考えざるを得ない。この元素に対してわれわれは、ラジウム (radium) という名前を提案したい。」

そして写真乾板に対する作用について次のように言っている。

「ウラン、トリウム、ポロニウム、ラジウムおよびこれらの化合物は空気を伝導性にし写真乾板を感光させる作用がある。この 2 点に関してポロニウムとラジウムはともにウランとトリウムよりずっと強力である。ラジウムとポロニウムとは 30 秒写真乾板におくだけで綺麗な像を与えるが、ウランとトリウムは同じ結果を与えるのに長時間を必要とする。」

報文の最後の脚注にはウィーン大学教授 Eduard Suess への謝辞がある。Suess 教授はフランス科学学士院の外国通信員であり、Curie 夫妻からの要請に答えてオーストリア政府との交渉に当たってくれた。その結果オーストリア政府が Joachimsthal 産ピッチブレンド鉱石からウランを採取した残渣 100kg を、運賃は別として無償で提供してくれることになった。こ

のあと化学者 Marie の仕事はこの 100kg を処理して、ラジウムの原子量が測定できる量の塩化ラジウムを製造することであった。これは 4 年後の 1902 年になって達成され、貯った塩化ラジウムの 0.09g を使って、ラジウムが原子量 225 (現在値: 226.0254) の重元素だと確認できた<sup>(113)</sup>。

Curie 夫妻のラジウム発見の次の年、1899 年 10 月には彼らと親しくしていた若い化学者 A. L. Debierne (1874-1949) がピッチブレンドの中に新しい放射性元素を発見した。彼はピッチブレンドを酸に溶かした溶液にアンモニア水を加えて、希土類とともに沈澱して来るフラクションが活性であるのを知り、この新放射性元素を「アクチニウム」(actinium, ギリシャ語, actis 放射) と名付けた<sup>(114)</sup>。

### 13. Rutherford 「気体イオン化」—X 線からウラン, トリウムへ

イギリス物理学者 Joseph John Thomson (1856-1940)<sup>(31)(115)</sup> は始めケンブリッジ大学 Trinity College にいたころは数理物理学に興味を持っていて、そのころ Maxwell が所長をしていたキャヴェンディッシュ研究所には足を踏み入れたこともなかったと言う。しかし 1884 年に 27 歳でケンブリッジ大学物理学教授となり、2 代目のキャヴェンディッシュ研究所長 Rayleigh 卿 (1842-1919) の後を継いでからは実験物理学に転向し、Hertz, Lenard, Crookes の研究で脚光を浴びていた陰極線や真空放電の研究を始めた。このころ Hertz や Lenard のような大陸の物理学者は陰極線を電磁波の一種と考え「乱されたエーテル」などと呼んでいたが、イギリスでは Maxwell の意見にも係わらずこれを粒子性とする考えの方が優勢であった。

1895 年の暮れ Röntgen がこの陰極線の研究中に X 線を発見し、第 2 報 (1896) で X 線に荷電体を放電する能力のあることを報告した。Thomson は気体中の放電による電気の流れは気体から発生する正、負のイオンによる物と考えていたので、X 線の照射によって荷電体が放電する現象もこのイオン化による物と思って、ちょうどニュージーランドから留学してきた Ernest Rutherford (1871-1937)<sup>(29)(116)</sup> にこの方面をやらせることにした。Rutherford はイギリスへ来るまえに鉄の磁化を研究し、これを利用して電波検知器を完成していた (1894)。優秀な成績だったので X 線

の発見された1895年に、イギリス本国からの奨学金でケンブリッジ大学にやって来た(24歳)。この奨学金(1851 Exhibiton Science Scholarship)は1851年ロンドン水晶宮万国博覧会の収益金を基金にした物で、Rutherfordに都合よかったのはちょうどこの年からケンブリッジ大学の学則が変わって、キャヴェンディッシュ研究所でも他大学の卒業生を受け入れるようになっていた。Rutherfordは研究所で始めは電波検知器の仕事をやっていたが、やがてThomsonに才能を認められ、発見されたばかりのX線による気体放電の研究をやらせてもらうようになった。

彼の第1報はThomsonとの連名で1896年夏リバプール市開催の英国科学振興会で発表された<sup>(117)</sup>。

「レントゲン線に当たった各種の気体中の電気の通過について」

この中でRutherfordはThomsonの指示によるのであろうが、X線照射した空気をフィゴで検電器のコンデンサーに送って、放電が起きることを確かめている。この経験があとでトリウムからのエマネーションを発見する契機となる。

第2報(1897)からはRutherfordの単独名となった<sup>(118)</sup>。

「レントゲン線に当たった気体の帯電と各種の気体、  
蒸気によるレントゲン線の吸収」

また同じ年に発表された第3報の表題は次のとおりである<sup>(119)</sup>。

「レントゲン線に当たった気体のイオンの速度と再結合の速さ」

これが第4報(1898)になると、気体のイオン化に紫外線を使うこととなった。

「紫外線による荷電の放電」<sup>(120)</sup>

これは現在の言葉で言えば、紫外線の光電効果による電子に起因する現象である。この報文の終わりの方でウランの放電効果についての言及がある。彼のキャヴェンディッシュ研究所時代の最後の報告、第5報(1899)はこのウラン放射線に関する仕事となった。このころThomsonは放電現象の研究から手を引いて、陰極線の本質に関する研究に興味を移していた。

X線やウラン放射線発見の契機となったこの陰極線については、1895年にPerrinが陰極線をファラデー管の中に集めて、これが陰電気を持つことを証明していた<sup>(121)</sup>。Thomsonの方はこの陰極線の電場と磁場による

偏向から、これが陰電気を帯びた粒子の流れと考え、その (e/m 比) (電荷対質量) を測定して、この粒子を水素イオンの 1000 分の 1 ほどの重さを持つ原子より下 (sub-atomic) の粒子であろうと推定した<sup>(122)</sup>。はじめ彼はこの粒子を「corpuscle」と呼んだが、人びとは次第にこれを J. Stoney (1891) の電気分解の単位「electron」(電子) と呼ぶようになった。

Rutherford はニュージーランド時代の下宿先の娘 Mary Newton と早く結婚したかったが、留学生の期限も切れこれ以上ながくケンブリッジ大学におれそうもなかったので、就職先を探していたところ Thomson の推薦でモントリオール市 (カナダ) McGill 大学「Macdonald」物理学教授の職にありつけた。前任者の H. L. Callender (1863-1930) はキャヴェンディッシュ研究所の先輩でロンドン「Universisty College」へ転任することに決まっていた。McGill 大学はモントリオール市の名士 Thomas McGill の遺産を基に創設され、この大学の理科、工科は煙草嫌いの「煙草王」William Macdonald が特別に資金援助をしていた。大学の物理教室がそのころイギリス本国と遜色ないほどに整備されていたのも彼の寄付金のお蔭である。この設備の良さが Rutherford が大西洋を渡って新開地に赴任した理由の 1 つになっているのは言うまでもない。

「Macdonald」教授と言うのはこの「煙草王」Macdonald が寄付した実験物理学講座の名前である。

1898 年 9 月 Rutherford は足掛け 3 年のケンブリッジ生活に別れを告げてカナダに向かって旅立った。彼は 1907 年マンチェスター大学に移るまでの実りの多い 9 年間でモントリオールで過ごすことになる。

Rutherford の第 5 報は「Phil. Mag.」誌 1899 年 1 月号に掲載された<sup>(123)</sup>。

#### 「ウラン放射線とそれによる伝導性について」

この報文の著者名のところには「Trinity College」と「McGill University」の両方が入っているが、実験はすでにキャヴェンディッシュ研究所で完成していた。ウランによる放電現象はすでに Becquerel が 1896 年に発表していたから、報文の中には 1896 年から 1897 年にかけての彼の報文が参考文献として挙げてある。Rutherford がベクレル放射線を取り上げたのは X 線からの当然の延長であるが、これが彼の原子核研究にまでおよぶ幅広く、かつ収穫の豊かな生涯の研究の端緒になろうとは、Ruther-

ford 自身も予測できなかったであろう。Rutherford は酸化ウラン ( $\text{UO}_2$ ) を試料ととして、ベクレル線の放電現象のみならず、アルミニウム箔への透過性を利用してこの放射線自身の分析までした。このようにこの報告には、彼のこれからの研究を特徴づける、細心と徹底性それに思い付きの良さがすでに頭を出している。

第 9 章「ウラン放射線の複雑な性質」のなかで、Rutherford はこの放射線の 2 成分について次のように言っている。

「今のところ少なくとも、この放射線には 2 つの明らかな種類がある。1 つは吸収されやすいもので、これを便宜上  $\alpha$  線 ( $\alpha$  radiation) と名付けよう。もう 1 つはもっと透過性の大きいもので、これから  $\beta$  線と呼ぶことにする。」

また報文の最後に近いところで Rutherford は次のような感想を書いている。「ウランおよびその塩から、切れ目なく放射されるこの放射線の原因と起源は、1 つの神秘のままである。」

彼のこれからの使命はこの「神秘」の解明にある。

Thomson はすでに放電現象から手を引いて、電子や陽極線の仕事に精力を集中していたから、Rutherford の方は新しい赴任地での研究を始めるに当たって、ウランが放射するこの奇妙な放射線の研究を続けることにした。ちょうど半年前まだ彼がキャヴェンディッシュ研究所にいたころ、Curie-Schmidt が酸化トリウム ( $\text{ThO}_2$ ) の放射活性を報告していたから、このトリウム放射線とウランからのベクレル線との比較がカナダでの初仕事として適当だと考えた。

都合のよいことに、彼と同じころ電気工学教室「Macdonald」教授として R. B. Owens (1870-1940) がコロンビア大学から赴任してきた。2 人は仲良くなり Owens がこの仕事を引き受けることになった。Owens の「トリウム放射線」と言う短い題の報告が着任から 1 年あとの「Phil. Mag.」誌 1899 年 10 月号に発表された<sup>(124)</sup>。

Owens はウランのときと同じ装置を使ったのに、イオン化の測定値が不規則に変動するのに悩まされた。たとえば実験室のドアの開閉にも影響されるのである。それで原因は空気の流れによると考え、酸化トリウムを金属箱に入れることで解決できた。それでもこの金属箱に空気を送ると、



測定値は急に下がり、15分ほどしないと元の値にもどらないことが分かった。この種の現象はX線やウランでは起こらなかったことで、酸化トリウムからなにか放射能をもった気体が発生しているのではないかと疑われた。しかしOwensが暑中休暇でイギリス旅行に出かけたので、あとの仕事はRutherfordが引き受けることになった。Owensのやり残した仕事の継続には1年半ほどかかり、この結果は「Phil. Mag.」誌1900年1月号と2月号に発表された。

「トリウム化合物から放射されるある放射性物質」<sup>(125)</sup>

「トリウム化合物の作用により物質に作られる放射活性」<sup>(126)</sup>

この2つの報告で感心させられるのは、未知の「神秘」に迫っていくRutherfordの実験の巧みさと着想の良さである。1月号の報告ではOwensの研究を踏まえて、酸化トリウムからの放射線はウランからのベクレル線やX線と同じ写真作用や放電作用を示すとし、これ以外にこの化合物から発生する物質について次のように言っている。

「このふつうの放射線の他に、私はトリウム化合物が途切れなくある種の放射性粒子 (particles) を出すことと、この放射能が数分間持続することを発見している。このものを簡単のために『エマネーション』 (emanation) と呼ぶことにするが、これは近くの気体をイオン化し、金属箔やかなりの厚さの紙を容易に通過する能力をもっている。」

このようにRutherfordは酸化トリウムからある種の粒子が発生するとし、これを「エマネーション」と名付ける。この言葉は $\alpha$ 線、 $\beta$ 線などとともに、これから永く使われることになった。

2月号ではエマネーションに触れた物質はすべて放射性を帯びることを報告している。この「誘導放射能」 (induced radioactivity) は約11時間の半減期で指数関数的に減衰するが、反対にエマネーションを取り除いた酸化トリウムの方は指数関数的にその放射活性を回復するのである。金属は誘導放射性を付与されても重さに変化はないが、この与えられた活性は表面的なものらしく、塩酸や硫酸で洗うと取り除くことができる。この酸溶液は濃縮するとあとに放射活性の残渣を残す。このような実験から分かるようにトリウム化合物の研究では、Rutherfordも次第に化学的な分野に引き込まれつつある。

またこの1900年2月号の報文の最後には脚注があって、ここで Rutherford はこの報告が印刷されている間に手に入った「Compt. rend.」1899年11月6日号掲載の Curie 夫妻の報告に触れている<sup>(127)</sup>。Curie 夫妻はウランより1万倍から5万倍も活性のあるラジウムとポロニウムの試料を使って、Rutherford が発見したと同じような他物質に対する「誘導活性」(radioactivité induite)を見出したと言う。

ただし彼らはこの現象を Rutherford と違って、物質的に考えずに電気的な励起によるものと考えている。

Rutherford は着任して2年目のこれらの報告が出た1900年の初夏に、暑中休暇を利用して故郷のニュージーランドに帰り、新妻を連れて9月にモントリオールに帰ってきた。彼はトリウム放射能の研究を続行するにあたって、次第に化学的色彩を帯びてきた自分の研究を助けてくれる助手を探していたところ、(あとで分かるが両者にとって)運の良いことに自分より6歳年下の青年化学者 Frederick Soddy (1877-1956)<sup>(128)</sup> の協力を得るのに成功した。Soddy はちょうど1900年5月に McGill 大学化学教室の演示助手 (demonstrator in chemistry) に採用されたばかりであった。Soddy は化学実験の巧みな頭の切れる非常な秀才で、有機化学を勉強し1898年オックスフォード大学を主席で卒業して理学士 (B. A. Oxon) となっていた。すこし性格に偏狭なところがあり、他人から拘束されるのを嫌ったから、あと2年間ほど独立して研究を続けた。1899年になってカナダのトロント大学に化学教授の空席ができたと聞いてカナダに渡った。しかし後任教授の人事はすでに済んでいたが、McGill 大学化学教室が拾ってくれて1900年5月から演示助手として採用されることになっていたのである。

#### 14. 不活性ウランと活性「ウラン X」—Crookes 1900年

Rutherford と協力することとなった化学者 Soddy にとって好運だったのは、万能の科学者 Crookes が例の好奇心からベクレル線の研究にも手を出して、ウラン化合物の放射線について彼らしい大変に奇妙な現象を発見して報告していたことである。これは Soddy が仕事を始めかけたころに印刷されていたからすぐに利用することができた。

## 「ウランの放射能」

この研究は Crookes も自信があったと見えて、1900年6月に王立学会で発表し、それが「王立学会紀要」に印刷された<sup>(129)</sup>。この§1から§39に分けられた報文は、Rutherford-Soddy トリウム放射能研究ひいては彼らの原子壊変説に対して、決定的な影響をおよぼす内容を含んでいる。

しかし、その割には今までこの報告の存在に注意が払われていないので、その全訳を「付録5」として巻末につけることにした。

Crookes の最初の研究目的は Curie 夫妻によって報告された珍しいラジウムとポロニウムの試料を自分でも作ってみるのにあった。そして68歳になる Crookes が自分で化学実験に手を付けたのである。始めはラジウムがバリウムと化学的性質が似ていると言うので、バリウム含有鉱物に含まれているかも知れないと考えて各種の鉱物をテストしてみた。放射能の検出にはすべて得意の写真乾板を利用した。試験したバリウム含有鉱物のすべてが不活性と分かったから、次に自分が収集していた全ての鉱物試料について写真テストをしてみたところ、その中の16種だけが活性であった。これらは全てウランかトリウムを含んでいて、なかでもピッチブレンドが最も活性であると分かった。このピッチブレンド鉱石について Crookes は面白い実験をしている。鉱石の磨いた面にセルロイド・フィルムの感光面を押し付け72時間してから、現像してみると陽画では長石、水晶、黄銅鉱などの不活性部分は暗く、放射線を出す部分だけが明るく写っていた。

結局ピッチブレンドをラジウム、ポロニウムの原料にすることにし、「Stirling」化学会社に頼んでピッチブレンド半トン进行处理してもらった。このとき放射活性テストの標準品に精製しやすい結晶性硝酸ウラン (uranium nitrate) を選んだ。この化合物はすでに Becquerel ウラン研究のところで説明したように、現在では硝酸ウラニル ( $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ) と呼ばれている。

Crookes がこの化合物の市販品半ポンドを出発物にして精製してみたところ、驚いたことに精製した結晶にはほとんど活性がなかった。

「こうして、私が始めに予想したように、ウランとその化合物の性質とされる放射能はこの元素の固有の性質ではなくて、これから分離できる何

か別の物質の中にあるのは明らかである。このように写真的に不活性な硝酸ウランを再結晶で作るのに成功したので、私は市販のこの塩の数ポンドから出発して、これからこの活性体 (active body) を分離するもっとも簡便な手段を見つける実験を開始した。」

この分離実験は次のようにした。結晶水をもった硝酸ウラニルにほぼ同量のエチルメチルエーテルを加えて振りまぜる。原文には「methylated ether」(比重 0.72) とあるが、おそらくメチルアルコールとエチルアルコールの同量混合物に濃硫酸を加えて合成した混合エーテルであろう。振り混ぜていると結晶がなくなり上部のエーテル層と下部の水層に分離する。この両層を分離して写真テストしてみると、下部の水層だけに活性が検出された。この部分をさらに水から分別再結晶すると活性物質は母液の方に集まった。反対に活性の弱いエーテル層からのものを再結晶すると、始めに析出した結晶は写真テストの結果まったく活性を示さなかった。

そこで Crookes は市販の硝酸ウラニルの「純品」について写真テストしてみた。これは再結晶で精製したと言われていたが、その活性は「ふつう品」の半分しかなかった。

次に Crookes は化学反応によって活性部と不活性部に分離できるかを試してみた。活性の大きな水層の部分を水に溶かして、この中にアンモニア水を加えると黄色のウラン酸アンモニウムが沈澱した。この沈澱と母液を写真テストすると、ほとんどの活性部分はこの沈澱の方にあった。これらの実験から Crookes は次のような結論に達した。

「§ 26. このようにして、いままで考えられたウランとその塩の放射能は、ウラン元素本来の性質ではなくて、異物 (foreign body) の存在によるのだと確実に証明できたので、この異物の性質を忍耐深く研究する必要に迫られた。ピッチブレンドからは数種の放射活性体が抽出され新種と主張されているが、私の新しく発見した UrX がこれら先行の活性物質に近い性質をもっているかどうかを、調べるための実験を新しく始めた。」

ここに脚注があって、このウランからの活性な未知物質を「UrX」(ウラン X) と呼ぼうと提唱している。

「脚注: 分かりやすくするために、この新物質に名前が必要である。もっ

と確実になるまで、私はウランの中の未知物質という意味で、仮に UrX と名付けようと思う。」

やがて Soddy はこの分別法に従ってトリウムから活性物質を分離して、これを「ThX」(トリウム X) と呼ぶようになる。

このあと Crookes は彼の「ウラン X」をポロニウム、ラジウムを比較して、これらとは決定的に違くと主張する。たとえば硫酸ラジウムは水や酸に溶けないのに、「ウラン X」は希硫酸に良く溶けて透明水溶液を与えるなどである。

報文の最後に近い § 37 で Crookes はトリウム化合物が活性物質と不活性物質に分離できるかを試した実験に触れている。始め硫酸トリウム ( $\text{Th}(\text{SO}_4)_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ ) を水から再結晶してみたが、各フラクションの写真テストには差がなかった。ついで硝酸トリウム ( $\text{Th}(\text{NO}_3)_4 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ ) を再結晶して 6 つのフラクションに分けて写真テストしてみると、活性は母液の方に集まっていた。以上のような実験から Crookes はこれらの化合物の放射能は複雑な内容を含んでいるに違いないと警告している。

「§ 38. これらの放射性物質に関する現在のわれわれの知識の段階では、広い心と言うよりも少し懐疑的な気持ちでいた方が安全であろう。」

老練な化学者である Crookes は分析実験でよく経験される「共沈」現象について警告するのを忘れてはいない。「ウラン X」は希硫酸によく溶ける。しかし、これに塩化バリウムを混ぜてから、硫酸を加えて硫酸バリウムを沈澱させると、この硫酸バリウムの中にも放射活性が発見されるのである。最後の § 39 では写真好きの Crookes らしく、放射活性の検出における写真テストの利点を強調している。写真法は積算的 (cumulative) であるから、時間さえかければ極く弱い放射能の検出に便利である。確かにその面はあるが、定量という面では検電器法の方に利点があるのは否めないであろう。

この Crookes の研究結果を踏まえた、Rutherford と Soddy 連名の最初の共同研究の第 1 報は、研究開始後 1 年半の 1902 年初頭「イギリス化学会誌」(J. Chem. Soc.) に発表された<sup>(130)</sup>。Rutherford がこれを、いつもの「Phil. Mag.」誌に出さなかったのは、Soddy の博士論文にするのには Soddy の専門の化学会の機関誌に出す方が有利だろうと言う親切心から

であった。

「トリウム化合物の放射能. 1. 放射性エマネーションの研究」

この報文の前の部分は物理的であるが、あとの方は Soddy らしく化学的な色彩が濃い。「エマネーションの化学的性質」のところでは、酸化トリウムから発生したエマネーションを、赤熱した白金黒、亜鉛末、クロム酸鉛のうえを通したところ変化がないので、こんなテストに耐えられるのは「最近に発見されたアルゴン族の気体だけである」と言っている。このエマネーションはあとで Soddy の予言どおりに「トロン」(thoron) と呼ばれる希ガスであると判明した。Ramsay は Rayleigh の指示に従って空気中に「アルゴン」(argon) を発見し (1895)、このすぐあとにウラン鉱石の中から太陽にしかないとされた「ヘリウム」(helium) を発見した。そして 1898 年になって、空気中から希ガス「クリプトン」(krypton), 「ネオン」(neon), 「キセノン」(xenon) を分離していたのである<sup>(131)</sup>。

Soddy は Crookes の実験をまねて硝酸トリウムの水溶液にアンモニア水を加えて水酸化トリウムを沈澱させた。すると放射活性部分は沈澱から分離した母液の部分に集まっているのが分かった。この活性部分を彼は Crookes の「ウラン X」に倣って「トリウム X」(ThX) と名付けた。

「結論的に言うと ThX はちゃんとした物質であって、化学的諸性質がトリウムと違うからこれから分離できる。」

問題は「トリウム X」が何からできて、どう変化するのか、エマネーションは何から発生するのか、さらに不活性トリウム自身がこれらとどう関係するかである。

Soddy の実験がここまで進み原稿に纏めたのが 1901 年 12 月の始めで、Rutherford は暮れになってからアメリカ物理学会に出席するためにニューヨークへ行った。Soddy が Rutherford に自分の使っている硝酸トリウムが不純かも知れないと訴えたので、Rutherford は出発まえに Crookes に手紙を書いて純品の入手方法を尋ねた。Crookes 報告の § 37 にベルリン市 Knöfler の好意で入手できた特製の硝酸トリウムとあったからである。ちょうどそのころ Crookes の方は、活性を失ったはずのウランを放置すると活性がもどると言う、奇妙な事実を告げる手紙を Becquerel からもらっていた。

Crookes は Rutherford のために硝酸トリウムの純品をベルリンへ注文するついでに、この Becquerel からのニュースを Rutherford に知らせてやった。12月9日になって Becquerel はこの発見をフランス科学学士院で発表した<sup>(132)</sup>。

#### 「ウランの放射性について」

この報告もこれからの Soddy-Rutherford 共同研究を導く大きな指針になったのであるが、その割に知られていないのでその全訳を「付録6」として巻末につけておいた。

Becquerel は Curie 夫妻がピッチブレンドから新放射性元素を、次つぎと発見するようになってから放射線の研究から手を引いていた。やがて Curie 夫妻から活性の大きな塩化ラジウムの試料をもらい、その  $\beta$  線、 $\alpha$  線の磁場、電場による偏向の実験を始めていた<sup>(133)</sup>。彼が夫妻からもらった塩化バリウムの入った試験管を、胸ポケットに入れて火傷した話は有名である。Becquerel は Crookes の報告を読んで、自分の保存している実験サンプルの中に「ウラン X」らしい性質のものがいないかと試験してみた。

Becquerel は考えた。なるほど Crookes は硝酸ウラニルを再結晶して、活性の大きな結晶と小さな結晶に分けることができた。しかし、いろんな精製法で作られた市販品は全てほぼ同じ放射能を示している。これは再結晶で放射能を失った結晶が放置している間に、もとのレベルの活性を取りもどすのではないかと考えるのが自然である。彼は少しまえに「共沈」の実験をしていた<sup>(134)</sup>。

塩化バリウムを含む塩化ウランの水溶液に、硫酸を加えると難溶性の硫酸バリウムが沈澱する。放射能を検べてみると硫酸バリウム沈澱は強く活性であるのに、ロ液から回収した塩化ウランは活性が小さくなっていた。Becquerel はこの操作を 18 回繰り返して活性の非常に小さな塩化ウランを得た。そこで自分の「放射能復活説」を確かめようと、18 ヶ月まえの試料について放射能を測定してみた。これには検電器によるイオン化測定と写真乾板テストを使った。その結果、強く活性であった硫酸バリウムは完全に不活性になっていたが、弱い活性しか示さなかった塩化ウランの方はもとの活性を取りもどしていた。Becquerel は自問する。

「ではどんなメカニズムでこの一時的に減少した放射能が復活したので

あろうか？」

そして1つの考えとして次のように言う。

「これが純粋な物質で起こると言うなら、これは一種の原子変換 (transformation moléculaire) に他ならない。」(中崎注: このころ術語としての分子と原子の区別は今ほど厳格でなかった)

1つの原子が別の原子に変換すると言うならこれは「錬金術」である。しかし Becquerel はそこまで言い切っていない。それは、かねてから Pierre Curie が放射能について全く別の意見を表明していたからである。案のじょう、Becquerel の「放射能復活」論文を読んだ Curie 夫妻はすぐに反論を発表した。この報告は Becquerel 報告の1ヵ月あと1902年1月13日の科学学士院例会で Becquerel 自身が読まされた<sup>(135)</sup>。Becquerel が Curie 夫妻の報告を科学学士院で読むサービスはこれが最後となった。

#### 「放射性物質について」

著者は Curie 夫妻の連名になっているが、理論家である Pierre がすべて書いたに違いない。この報文はその当時多くの人が放射能について、どのように考えていたかを知る上で参考になる。この全訳を「付録7」として巻末に掲載したのはこのためである。

Pierre は実験家の Becquerel と違って原理から出発する。「原子は不変なのだ。」そして次のように主張する。

「放射性物質のそれぞれの原子は1つのエネルギーの恒久的源泉 (source constante d'énergie) としての役割をもつ。」

それでは、この恒久的エネルギーはどこからくるのか。Pierre は放射性原子を「エネルギー変換装置」と考え、この原子は外界のエネルギーを取入れて、放射能の形で外に放出するのだとする。

「放射性原子はある『メカニズム』であって、その出すエネルギーを外界からその度に引き出すのである。」

すると人はその「メカニズム」とは何かと質問するであろう。これに答えて Pierre はそれはまだ、われわれの感覚の外にある問題だと言う。

「未知の源泉たとえば、われわれのまだ知らないある放射線から、これをもたらすのかも知れない。われわれは自分を取り巻く外界について、ほとんど知るところがないと言ってよいだろう。われわれの知識は直接的に



せよ間接的にせよ、自分の感覚を刺激する現象に限られているからである。」

Pierre の専門は物性研究でいわば静的な現象を取りあつかう分野と言えよう。ところが放射能は時間と共に変化する動的な現象である。Soddy は化学者として訓練されているから、物質の変化の追跡に慣れている。

原子と原子の関係である化学変化の延長として、放射能を「sub-atomic」な変化として捉えようと言うのが Rutherford-Soddy の基本姿勢である。すでに Thomson はこの「sub-atomic」な粒子として電子を発見しているではないか。

### 15. 「原子壊変説」—Rutherford-Soddy コンビ 1902 年

クリスマス休暇が済んで 1902 年、新年に実験室に帰ってきた Rutherford と Soddy を待っていたのは、ドイツから届いた純品の硝酸トリウム結晶と、Becquerel の論文の掲載されている「Compt. rend.」誌 1901 年 12 月 9 日号であった。Soddy のすることはこれで決まった。自分たちの活性「トリウム X」と不活性「水酸化トリウム」沈澱について、これらの放射能の減衰と復活を確かめればよいのである。彼らの 4 ヶ月の共同研究の結果は連名ですぐにイギリス化学会誌に発表された<sup>(136)</sup>。

#### 「トリウム化合物の放射能. 2. 放射能の原因と本質」

Becquerel の実験から予想されたように、始め不活性であった水酸化トリウムは活性を取りもどし、始め活性であったトリウム X は不活性になっていた。活性の上昇と減衰の速度は指数関数的でその半減期はともに約 4 日であった。この速度はふつうの化学反応と違って温度などの影響をうけない。トリウムとトリウム X は明らかに化学的性質が違う。しかもトリウム X はトリウムから生成したに違いない。トリウム原子がトリウム X 原子に変化するのであるから「錬金術」である。彼らはこの考えを報文の最後の「一般的考察」の中で、反響を恐れたのか少し婉曲に表現している。

「以上の考察から放射能を原子以下 (sub-atomic) の化学変化と考えざるを得ない。」「この変化のメカニズムについては何も言えない。しかしそれがどうであれ、化学原子の内部で起こっている過程についての情報を得るための手段を、放射能が与えるだろうと望むのは根拠のないこと

とは思えない。」

Rutherford はこのような意見は物議を醸すに違いないと予測していたから、イギリス本土の Crookes に手紙を書いて報告の印刷が遅れることのないよう配慮してくれと頼んだ。Crookes は「元素の進化」を信じていて、かねてから原子変換はあり得ると表明していたのである。

Soddy のこの仕事は、Crookes と Becquerel のウランについての仕事を足し算して、これをトリウムで確かめたものと言える。Soddy の次の仕事は当然このトリウムでの結果をウランに延長することであった。この研究「ウランの放射性」は Soddy の単独名でイギリス化学会誌に発表された<sup>(137)</sup>。始め仕事は順調には進まなかった。Soddy が Crookes の仕事を追試しても同じ結果が出なかった。この原因は Crookes が放射能の測定に写真乾板を使ったのに、Soddy の方は検電器を使ったからだと判明した。ウランが  $\alpha$  線を出すのに、ウラン X の方は  $\beta$  線を出すからである。

Rutherford-Soddy の共同研究は今まで全部イギリス化学会誌に発表されていたが、これでは肝心の物理学者が読んでくれそうにない。それで Rutherford はほぼ同じ内容を物理学者向きに書き直して「Phil. Mag.」誌に投稿することにした。これらは 2 報に分かれて同じ年、1902 年 8 月号と 10 月号に出た。表題は 2 報とも同じであるが、イギリス化学会誌の副題の方を表に出して使った。

「放射能の原因と本質」「第 1 報」<sup>(138)</sup> 「第 2 報」<sup>(139)</sup>

報文を出す順番も化学会誌のときと反対に、第 1 報にトリウム X 研究を報告し、第 2 報でトリウム・エマネーション研究を報告した。内容は化学会誌のときと大きく変わるところはないが、表現はこれより少し大胆になっている。

研究の方向が次第に化学に傾き始めたので、Rutherford はこれを物理的にもどそうと考え、その第一歩として Thomson の電子の研究に倣ってラジウムから豊富に出る  $\alpha$  線の電場、磁場による偏向を検べることから始めた。この結果は次の年、1903 年「Phil. Mag.」誌 2 月号に出た<sup>(140)</sup>。

「ラジウムから出る吸収されやすい放射線の磁氣的、電氣的偏向」  
正の電荷をもつ  $\alpha$  線が磁場で曲げにくいのは粒子が重いからである。 $\alpha$  粒子は軽い「sub-atomic」な電子と違って、原子ほどの重さをもつことが分

かった。報告はまたウラン，トリウム鉱石に吸蔵されているヘリウムと $\alpha$ 粒子との関係についても触れている。

この1903年には Becquerel, Curie 夫妻にノーベル物理学賞が授けられた。この年の始めに Soddy がイギリス本国に帰りたい意向を告げたので，Rutherford はまだ発表してない2人の共同研究の結果をまとめて3報とし，すべて連名で「Phil. Mag.」誌に投稿した。これらは4月号と5月号に掲載された。

「ラジウムの放射能」<sup>(141)</sup>

「ラジウムとトリウムの放射能の比較研究」<sup>(142)</sup>

「放射性エマネーションの液化」<sup>(143)</sup>

エマネーションの液化の実験には「煙草王」Macdonald に頼んで購入してもらった液体空気製造装置が役に立った。零下150°Cに冷却するとトリウムとラジウムのエマネーションはほぼ完全にトラップされ，エマネーションの物質性はこうして証明された。「Phil. Mag.」誌5月号にはこの液化実験報告のあとに続いて，18ヵ月にわたる Rutherford-Soddy 共同研究の総決算と言うべき報告が印刷されている。

「放射性変化」<sup>(144)</sup>

この中の全体のまとめに当たるのが「§6. 放射性変化と化学変化の関係」である。ここでは「化学変化」(chemical change)と言っているが，これは錬金術「原子壊変」その物なのである。放射性原子は $\alpha$ 線， $\beta$ 線(電子)を放出して次つぎと変化していく。Rutherford はこれら中間体を「メタボロン」(metabolon)と呼ぶことを提案している。そして彼はウラン，トリウム，ラジウムについて，次のようなメタボロン系列を並べた。

「ウラン→ウラン X→」

「トリウム→トリウム X→トリウム・エマネーション→」

「ラジウム→ラジウム・エマネーション→」

最後の「§7. 放射性変化のエネルギーと化学原子の内部エネルギー」で Rutherford は，かなり大ざっぱなデータを基礎に大胆な結論を引き出している。1gのラジウムの放出する全エネルギーは $10^8$ - $10^{10}$ カロリー程度である。これを水1gができるときの生成熱 $4 \times 10^3$ カロリーと比較すると，ラジウムのもつエネルギーがいかに膨大な物か分かるだろうと彼は言

う。この1gのラジウムは1年間に $1.5 \times 10^8$ カロリーの熱を放出する。これから計算するとラジウムの寿命は $10^8$ 年程度でふつうの鉱物よりずっと若い。ラジウムの中にこれだけのエネルギーが蓄えられているのだから、ふつうの原子のなかにもこの程度のエネルギーが蓄えられていると考えられる。これは宇宙物理学 (cosmical physics) にも関係するところがある。

「たとえば太陽の成分元素の内部エネルギーが原子以下 (sub-atomic) 変化で利用できるなら、太陽エネルギーの持続に関して根本的な困難はなくなる。」

Rutherford がこの原稿を書いているころ、フランスではすでにラジウムが放出するエネルギーについての実験が Pierre Curie, A. Laborde の共同研究で完了していて、これが1903年3月16日フランス科学学士院で発表されていた<sup>(145)</sup>。

「ラジウム塩から自然に発生する熱について」

彼らの熱量計による直接測定ではこの熱が Rutherford の結果より100倍も大きく出た。

1903年の春、26歳の Soddy は忙しかった18ヵ月の Rutherford との共同研究をすませて、ロンドン「University College」化学教授 Ramsay との共同研究に乗り換えた。Soddy にとって Ramsay との共同研究は名誉だったし、Ramsay の方は「アルゴン族」らしいラジウム・エマネーションを捕獲して、これを自分が空気中に発見していた「アルゴン族」の一員に加えたかった。

臭化ラジウムから発生するエマネーションを直接に「ガイスラー管」に導いて、そのスペクトルを観察する装置は7月に完成した。このころラジウムは臭化ラジウムの形のドイツ製品がロンドンに出回っていたから、始めは Soddy がロンドンで入手した臭化ラジウム 20mg を試料にしたが、夏休みで訪問してきた Rutherford が 30mg を足してくれた。実験してみると発生した気体のスペクトルは二酸化炭素のそれしか示さなかった。二酸化炭素はラジウムからの $\alpha$ 線がストップコックのグリースと反応して出たものであった。そこで二酸化炭素を液体空気でトラップしてスペクトルを観察すると、こんどはヘリウムのスペクトルが明瞭に出た。彼らの結果は「Nature」誌に連名で発表された。

「臭化ラジウムに吸蔵されている気体」<sup>(146)</sup>

「吸蔵」と言っても試料の臭化ラジウムは精製された結晶であるから、ヘリウムはこの結晶から発生したに違いない。この Ramsay-Soddy 実験は Rutherford-Soddy 「原子壊変説」に始めて物質的証明を与えたものとして、科学界一般に与えた衝撃は大きかった。ただし、このヘリウムが  $\alpha$  粒子に由来することの証明は 1907 年まで待たねばならない。

この年の 6 月、Rutherford (32 歳) は王立学会会員に推挙された。次の 1904 年には Ramsay が希ガスの研究でノーベル化学賞を受けた。同じ研究に対して Rayleigh 卿にはノーベル物理学賞が授けられた。次の年、1905 年 5 月 19 日 Rutherford が王立学会「Baker」講演に招かれた。

「放射性物質における変換の系列」<sup>(147)</sup>

この報告は王立学会誌に印刷されて 50 ページにおよぶ長大なもので、いわば Rutherford-Soddy 「放射能の化学的研究」の集大成と言うべきものである。Rutherford はすでに余りにも化学的になり過ぎたこの方面は Soddy やエール大学 B. B. Boltwood (1870-1927) などに委せて、自分自身は  $\alpha$  粒子の物質による散乱実験から原子核の研究などと、より物理的な方向に進んで行くことにした。

「Baker」講演の次の日、5 月 20 日には王立研究所での講演があった。聴衆の中に物理学界の大御所 Kelvin 卿の姿があった。Kelvin 卿は熱伝導と熱放散の研究から、地球が熔融状態から現在の温度になるまでに  $2 \times 10^6$  年から  $4 \times 10^6$  年が経過していると計算していた。ところが Rutherford の計算によると、地殻が極く微量のラジウムを含むだけで、地球から熱伝導と放散によって失われる熱は十分にキャンセルできるはずである。地球の年齢はずっと長いのである。衝突は避けられそうになかったが、Rutherford が機転を効かせて Kelvin 卿の説はラジウムのような「新しい熱源が発見されなければ」の上のことであるとして切り抜けた<sup>(148)</sup>。

Soddy の方は Ramsay との共同実験のあと 1904 年から、スコットランド Glasgow 大学化学教室に移り、ここに 1914 年までいた。この間、1913 年には放射性元素の壊変と元素周期律の関係を「変位則」にまとめた。化学者 Soddy の去った Rutherford 研究室に 1905 年 9 月からこんどはドイツ人化学者 Otto Hahn (1877-1968) がやってきた<sup>(149)</sup>。彼はもともと

と有機化学者であるが、入社予定の会社が英会話のできる人間を求めたので、Emil Fischerの紹介でロンドン Ramsayの実験室へ留学することにした。Ramsayはラジウムの原子量を精密に測定するには、有機化合物の誘導体にするるとよいと考えていたから、この仕事をHahnやらせることにして、微量のラジウムを含むバリウム塩100gからラジウムを抽出するように命じた。Hahnはすぐにこの中に新しい放射性元素「ラジオ・トリウム」(radiothorium)を発見した。Hahnはこの成功から放射化学に進むことに決め、その技術を習得する目的で私費でモンリオールのRutherford研究室に留学することにした。Rutherfordの友人化学者BoltwoodはHahnの「ラジオ・トリウム」を信用せず、あれは「トリウムXとバカ(stupidity)の化合物」だとけなしていたが、Hahnはすぐに新しい研究室でも新放射性元素「ラジオ・アクチニウム」(radioactinium)を発見して自分の腕前を証明してみせた。これから35年も先のことになるがHahnは1939年、中性子によるウランの核分裂を発見して1944年ノーベル化学賞を受けることになる。

## 16. $\alpha$ 粒子から原子「核」へ—1911年

このころRutherfordの方は $\alpha$ 粒子の研究に専念していた。そして、その電場、磁場による偏向のより精密な測定から、 $\alpha$ 粒子の「電荷対質量」比( $e/m$ )の新しい値を得ていた。この結果は「Phil. Mag.」誌1906年10月号に発表された<sup>(150)</sup>。

「ラジウム、アクチニウムから放出される $\alpha$ 粒子の質量と速度」 $\alpha$ 粒子は正電荷1の水素分子か、正電荷2のヘリウム原子だろうと言うのがRutherfordの結論であった。彼自身は後者らしいと思っている。この1906年4月19日にPierre Curieがパリ街角で馬車に轢かれて死亡した。47歳であった。2年あとの1908年にはBecquerelが死亡した。彼も56歳の働き盛りである。

この $\alpha$ 粒子に関する仕事がRutherfordのカナダMcGill大学における最後の仕事となり、彼は9年間いたモンリオールを去って、1907年5月からイギリス本土のマンチェスター大学物理教室に移ることにした。ここには、これから12年もいることになる。マンチェスター大学に移った

次の年、1908年の暮れに Rutherford (37 歳) にノーベル化学賞が授けられた。物理学者の彼は「このときの物理学者から化学者への変換」ほど早い変換は、これまで見たことがないと冗談を飛ばした。Rutherford に化学賞が回ってきたのは、フランス科学学士院が強力に推した Lippmann 「干渉現象によるカラー写真」に物理学賞を与えるためだと噂された。

ノーベル賞講演「放射性物質の放つ  $\alpha$  粒子の化学的性質」で彼は主に  $\alpha$  粒子についての研究を紹介したが、この中に新しく T. Royds と共同でした実験結果も入れるのを忘れなかった。Royds も Rutherford と同じ 1851 年万国博覧会奨学生である。彼らの仕事は 1909 年「Phil. Mag.」誌 2 月号に発表された。

#### 「放射性物質からの $\alpha$ 粒子の本質」<sup>(151)</sup>

装置の主要部は腕のよいドイツ人ガラス工 O. Baumbach が作ってくれた。2 重ガラス管の内管を非常に薄くして  $\alpha$  粒子は通すがヘリウムなどは通さないようにした。内管にラジウム・エマネーションを入れてから、しばらくして外管に高電圧をかけて放電させるとヘリウムのスペクトルが観察された。こうして  $\alpha$  粒子が正電荷 2 をもつヘリウム原子であると判明したのである。

この年、1909 年は「原子核」発見に繋がる  $\alpha$  粒子の金属箔による散乱実験が始まった年でもある。この実験は Rutherford が来る前から物理教室にいたドイツ人物理学者 Hans Geiger (1882-1945) が引き受けた。彼は実験の名手で「ガイガー計数管」(1915) にその名が残っている。そのころ Geiger はニュージーランドから来た 20 歳の若者 E. Marsden を指導していた。Rutherford と Geiger はこの若者に訓練のつもりで厚さ 0.01 mm 金箔に  $\alpha$  粒子を当てて、どこまで大きな角度に散乱されるかを試験させることにした。2 人ともそんなに大きな角度で散乱されるとは予想もしていなかったのである。 $\alpha$  粒子の検出に彼らが使ったのは、6 年ほどまえの 1903 年に Crookes (71 歳) が発明した科学玩具「spintharoscope」(spintharis, ギリシャ語, 閃光) である<sup>(152)</sup>。これはリン光性硫化亜鉛を塗った板で  $\alpha$  粒子が当たるとそこが光った。部屋を暗くして、その微かな閃光を低倍率の顕微鏡で観察すると、 $\alpha$  粒子を 1 個ずつ数えることができた。

Marsden は極く僅かな数ではあるが  $\alpha$  粒子の中には跳ね返されるもの

があるのを発見した。Geiger からこの報告を聞かされたときの Rutherford の反応はもう古典的伝説となっている。

「君が 1 枚の紙に向けて発射した 15 インチ砲弾が、跳ね返されて君に当たったような物でほとんど信じられない。」

実験の結果は Geiger と Marsden の連名で 1909 年王立学会紀要に報告された。

#### 「 $\alpha$ 粒子の拡散反射について」<sup>(153)</sup>

この実験結果は Thomson のいわゆる「plum pudding」原子模型 (1904) では説明できない。Thomson の原子は正電荷プディング球の中に、乾ブドウ粒のように電子が浮かんでいるものであった<sup>(154)</sup>。これに反して Rutherford の考えでは、正電荷はもっと狭い範囲に固まっていなければならなかった。彼はあとで娘婿になる数理物理学者 R. H. Fowler (1889–1944) の助けを借りて有名な  $\alpha$  粒子散乱式を導いた。 $\alpha$  粒子は  $10^{-13}$ cm 程度の範囲に押し込められた金原子の正電荷によって 1 回だけの衝突で跳ね返されるのである。原子とはこの正電荷のまわりを、正電荷を中和する数の電子が取り巻くことによってできる、 $10^{-8}$ cm 程度の大きさの固まりである。これらの考察の結果の報告は「Phil. Mag.」誌 1912 年 5 月号に掲載された。

#### 「物質による $\alpha$ 粒子と $\beta$ 粒子の散乱と原子の構造」<sup>(155)</sup>

Rutherford は報告の最後に長岡半太郎「土星原子模型」<sup>(156)</sup> について少し触れている。この報文の中で Rutherford は「便宜上」仮定した正電荷の固まりを「中心正電荷」と呼んでいたが、1912 年になってからこれを「核」(nucleus) と呼ぶようになった<sup>(157)</sup>。「原子核」の誕生である。現在ではこの Rutherford 原子模型を疑う人はないが、当時は「反対」する人より「無視」する人の方が多かったのである。

### 17. Laue と Bragg 父子による X 線回折実験—1912 年

Röntgen は 1895 年 X 線発見のあと 6 年目の 1900 年に、12 年間いた Würzburg 大学からミュンヘン大学物理学教室に移った。ここには 1920 年退職まで 20 年もいたが、その間に実験報告は 7 報しか書かなかった。大学の管理運営に忙しかったのが主な理由とされた。それでも彼は自分の



名声を利用して物理学教室の人事には口を出した。1906年 A. Sommerfeld (1868-1951) を連れてきて新しく理論物理学講座に据えたのは彼の力である。1909年になって Sommerfeld 研究室に新進の理論物理学者 Max von Laue (1879-1960) が私講師として採用された。Laue はベルリン大学 M. Planck (1858-1947) のところで学位をとったが、光学に興味をもって1907年に Einstein 特殊相対性理論 (1905) を光学的に証明すると言う業績を挙げていた。あとで結晶解析に逆格子 (1913) という便利な考えを導入した P. P. Ewald は 1911年 (23歳) Sommerfeld 研究室で博士論文と書いていた。Sommerfeld が彼に与えたテーマは結晶格子による光の干渉現象であった。Ewald は光学の専門家として知られていた Laue に忠告を求めたが、あまり良い考えをもらえないまま Ewald は 1912年 2月に学位論文を提出した。そのころ Sommerfeld は Röntgen の影響で X 線の仕事をしていて、X 線は波長  $10^{-9}$ cm ほどの電磁波であろうとしていた<sup>(158)</sup>。

これなら当時、推定されていた結晶内の原子間距離よりかなり短い。Ewald との議論が頭に残っていた Laue が、結晶格子が X 線に対する回折格子として使えるのではないかと考えて当然である。彼はこの考えを実験で確かめようと、新しく研究室に入ってきた W. Friedrich を助手に使わせてくれるように Sommerfeld に頼んだ。これを聞いた若い物理学者 P. Knipping もこのプロジェクトに参加した。都合のよいことに Knipping は Röntgen 教授のところで X 線に関する実験で学位をとったばかりであり、彼らの実験は 1912年 5月から始まった。実験結果はこの年の 6月 8日 ババリア科学学士院で Sommerfeld 教授が呼んでくれて、これは 1913年になってから「Ann. Phys.」誌に印刷された<sup>(159)</sup>。

#### 「レントゲン線の干渉現象」

Laue らは始め大きな硫酸銅 ( $\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ ) 結晶を作って、これに X 線光束を当ててみた。乾板を結晶の周りにおいたが、回折像らしいものが撮れたのは、X 線が結晶を通過するところにおかれた乾板だけであった。これに力を得て対称のよい等軸晶系に属する閃亜鉛鉱 (硫化亜鉛) で試すことにした<sup>(160)</sup>。

「結晶からいくらか離して、黒紙で包んだ写真感光板を、入射光線光束に

直角または平行に配置した。この写真感光板の上に何らかの干渉現象が写るはずである。かなり長い露出時間が予想できたので、レントゲン管の冷却が必要であった。予備実験には十分に成長した硫酸銅結晶を使った。この結晶を適当に装置にいたしたが、レントゲン線は結晶面にほぼ直角に当てた。結晶の背後におかれた写真感光板には入射光線の衝突点の他にまずまず整然と見える斑点の列が写った。干渉現象が始めて発見されたこの写真には、しかしあとの写真に見られるような濃い斑点の規則正しい配列は見られなかった。」「さらに対称のよい閃亜鉛鉱に光線を通すと、驚くほどに対称のよい像が得られた。閃亜鉛鉱結晶はその結晶面に平行に厚さ 0.5mm, 大きさ 10×10mm の平行平板に磨き、これを入射光束がその結晶面に正確に直角に当たるようにおいた。干渉斑点の位置は衝突点に関して完全に対称であった。結晶を入射光束を軸として回転すると、写真板上の像は共に回転するはずである。」「事実この方向の実験はこの推論の正しいことを完全に実証した。」

報告には始めに「理論の部」(Laue)があり、装置の説明図と 5 枚の回折像を挿絵にした「実験の部」(Friedrich, Knipping)がこれに続いた。「理論の部」について Laue はあとで次のように回想している<sup>(161)</sup>。

「Friedrich が私にこの写真を見せてすぐあと、私は Leopold 街を家に向かって歩きながら考えに耽けていました。Bismarck 街 22 番地の私のアパートの手前、ちょうど Siegfried 街 10 番地の家の前で、この現象の数学的説明が頭に浮かんだのです。ちょっと前に私は『数理科学辞典』(Enzyklopaedia der mathematischen Wissenschaften)の一節を書いていて、光学格子による回折の Scherzer 理論 (1835) を交差格子に適用できるように再構成していました。ですからこの新しい発見を説明するのに、空間格子の 3 次元周期性に対応させて、もう一度同じ条件を書き加えればよかったです。しかし決定的な日は数週間あとにきました。このとき、もっと美しい写真の力を借りて、私の理論をテストすることができたのでした。」

Laue らの実験のことは直ぐにキャヴェンディッシュ研究所に届いた。ここには William Laurence Bragg (1890-1971) が 1911 年から講師 (24 歳) として働いていた。彼は Leeds 大学物理学教授 William Henry

Bragg (1862–1942) の息子である。父 Bragg はケンブリッジ大学に学び 1885 年からオーストラリア Adelaide 大学の教授をしていたが、ここではゴルフばかりしていて 18 年の在職中に、X 線と  $\gamma$  線についての報告を 3 報仕上げただけであった<sup>(162)</sup>。しかも彼は X 線を粒子的に考えていたのである。そして 1909 年 Leeds 大学に招かれてイギリス本土の土を踏んだばかりであった。息子 Bragg は理論物理学者であったから Laue 斑点をみて、これらは「結晶内部における原子に富んだ平面で反射された X 線の干渉」によるものとして解釈できるのに気が付いた。そして、この考えをすぐに「ケンブリッジ大学科学紀要」に発表した<sup>(163)</sup>。高校の物理学教科書にも載っている有名な反射条件がその内容である。

$$n\lambda = 2d\sin\theta$$

息子 Bragg は純粋な理論物理学者 Laue と違って、この X 線回折を使えば結晶の構造解析ができると考え、これを実験家の父親と相談してすぐに装置を作って実験を始めた。彼らの連名の報告は 1913 年 4 月 7 日に王立学会に受理され 4 月 17 日に読まれた。

#### 「結晶による X 線の反射」<sup>(164)</sup>

Bragg の装置は光学分光計に似た形で、プリズムのところに結晶をおき、コリメーターから X 線光束が入るようにした。反射 X 線を検出するには写真乾板を使わずに電離箱を望遠鏡の位置においた。しかも Laue は連続 X 線を使ったのに Bragg 父子はほぼ単色の特性 X 線を使ったところも違う。試料には岩塩、方解石、閃亜鉛鉱など 6 種を選んだ。このうち岩塩については既知のデータから計算して反射平面間距離 ( $d$ ) を  $4.45 \times 10^{-8}$  cm とすると、使った X 線の波長 ( $\lambda$ ) が  $0.89 \times 10^{-8}$  cm と出た。これはあとで  $1.10 \times 10^{-8}$  cm と訂正された。

日本では寺田寅彦 (1878–1935) が結晶を動かしながら干渉模様を蛍光板で観察して、Laue 斑点は結晶面からの反射として解釈できると発表した<sup>(165)</sup>。X 線結晶解析に対する貢献に対して Laue に 1914 年、Bragg 父子に 1915 年ノーベル物理学賞が授けられた。

### 18. Bohr「原子構造論」と Moseley「元素の番号づけ」— 1913 年

Bragg 父子の報文の中に「Moseley と Darwin が最近ここで書いたと

同じ実験を行ったのを知った」とある。そのとおりであるが H. G. J. Moseley (1887-1915) の目的は Bragg 父子と違って原子の特性 X 線の振動数と原子核の正電荷の関係を明らかにするにあった。物質に X 線が当たったとき発生する 2 次的な X 線 (特性 X 線) についてはすでに、1906 年ころから C. G. Barkla (1877-1944) の詳しい研究が発表されていた<sup>(166)</sup>。特性 X 線はその元素を X 線管の対陰極にして、これに陰極線を当てても発生した。Barkla は特性 X 線の透過性 (硬さ) をアルミニウム板で検べて、その硬さが原子量に伴って大きくなるのを確かめ、これがその元素に特有だと言うので特性 X 線と呼んだ。彼はまた特性 X 線が硬さで 2 種類に分けられるのを発見して、これらを始め A, B と呼んで区別したが、慎重な彼はあとで A より硬い X 線が発見されると命名に困るというので、アルファベットの中央の K, L を使って呼ぶことにした。Barkla は特性 X 線の硬さが原子の中の電子に関係があるとし、原子内の電子は原子量の半分の数ではなかろうかと考えていた。

次の物語の主人公 Moseley は学者一家の出身である<sup>(167)</sup>。父親 H. N. Moseley はオックスフォード大学動物学教授で、進化論の Charles Darwin (1809-1882) と親交があった。

パブリック・スクール Eaton 校を卒業した Moseley は、若くして未亡人になった母親の近くに住みたいと言うので、1906 年オックスフォード大学 Trinity College に進んだ。1910 年、理学士になった Moseley はマンチェスター大学にラザフォードを訪ねて、研究室に入れてくれるように頼んだところ、許可されたので 10 月から物理学教室の演習助手としてマンチェスターに移り住んだ。研究室では Geiger の指導を受けて、ちょうどハイデルベルグ大学から留学してきた同い年の化学者 K. Fajans (1887-1975) と組んで仕事をする事となった。彼らの研究テーマはラジウム B, ラジウム C などが原子壊変するとき 1 原子から何個の  $\beta$  粒子が放出されるかを調べる事だった。Moseley は非常に勤勉で 2 年間ほどの間に 5 編の報告を仕上げた。1912 年の夏、次の実験に必要な液体空気製造装置の部品がドイツから到着しないので、そのころ物理学界の話題になっていた Laue X 線回折に関する実験をすることにした。Moseley は始め指導ができないと反対だった Rutherford をなんとか説得した。彼はまたこの新

しい研究プロジェクトに少年のときからの友人である C. G. Darwin (1887-1962) を誘った。Darwin はケンブリッジ大学出身の理論物理学者で Charles Darwin の孫である。11 月に Moseley は Leeds 大学に Bragg 父を訪ねて X 線実験操作を教えてもらった。Moseley-Darwin の始めの装置が光学分光計に似た Bragg 型であったのはこのためである。X 線管の対陰極に白金を、X 線の検出には電離箱を使い、X 線の回折分散には岩塩、セレナイト (selenite,  $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ )、フェロシアン化カリウム ( $\text{K}_2\text{Fe}(\text{CN})_6 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ ) 結晶からの反射を利用した。実験は 6 ヶ月で終わり研究結果は 2 人の連名で 1913 年「Phil. Mag.」誌 6 月号に印刷された<sup>(168)</sup>。

#### 「X 線の反射」

Moseley らの発表は Laue の画期的な論文の 1 年後であり、Bragg 父子の報告から言うと 2 ヶ月後になった。Darwin はすでに Bragg 父子と同じような反射条件を考えていた。

Moseley-Darwin 報告の末尾には 7 箇条に分けて実験結果が纏められている。この中で彼らは白金対陰極から出る X 線に、連続スペクトルと線スペクトルの 2 種類があると指摘した。線スペクトルの方は、おそらく白金特有の特性 X 線で、5 つの線スペクトルから構成されているようである。Moseley-Darwin コンビはこの報告を最後に解消した。それは Moseley が各元素に特有らしい特性 X 線の振動数を詳しく調べるといふ、どちらかと言うと「化学的」な方面に進み始めたからである。Moseley はすでに方針を決めていた。その指針は彼らの報文が載ったと同じ 1913 年「Phil. Mag.」誌 6 月号の第 1 ページを飾った 25 ページの報告である<sup>(169)</sup>。

#### 「原子と分子の構造について」

##### (On the Constitution of Atoms and Molecules)

著者 Niels Bohr (1885-1962) はデンマーク理論物理学者で Moseley とはすでに面識があった。Bohr は Moseley と同じく学者一家の出身で、2 年前の 1911 年博士論文「金属電子論」を提出していた。この年、英訳したこの論文を持ってキャヴェンディッシュ研究所に留学し、Thomson に見てもらったが Thomson はこれに関心を示さなかった。それで次の年、1912 年 3 月から 5 ヶ月ほど Rutherford 研究室に滞在することにした。Rutherford はちょうど「原子核」を中心に据えた「原子模型」論文を完成

したばかりのところであった。彼は原子核の周りに電子を配置したが、この原子核と電子の相互作用については何も言わなかった。しかし想像力に恵まれた理論家 Bohr はその鍵に気が付いていた。

「私はマンチェスター滞在の始めから、Rutherford 原子の電子配置は作用量子によって支配されるものと考えていました。」

Moseley は自分より 2 歳年上のこの理論物理学者との会話から、彼の理論の大要を聞かされたに違いない。Bohr はデンマークに帰ってから、考えをまとめ「原子と分子の構造について」(第 1 部)の英文原稿を 1913 年 4 月に Rutherford に送って彼の意見を求めた。Rutherford は「長い論文は誰も読んでくれないから」短くするように勧めたが、Bohr は論文を 3 部に分け、全体で 71 ページの長大な物に仕上げた。この「第 1 部」が 1913 年「Phil. Mag.」誌 6 月号のトップに掲載されたのである。

その「§ 1. 一般的考察」の中で Bohr は次のように言う。

- (1) 定常状態 (stationary state) にある系の力学的平衡は、ふつうの力学によって論じることができるが、異なる定常状態間の遷移はそれに基づいては扱えない。
- (2) 遷移過程には一様な光の放射が伴い、その振動数と放射されるエネルギーの関係は Planck 理論で与えられる。

1901 年 M. Planck は黒体輻射エネルギーの波長分布を説明するために「便宜的に」エネルギー量子概念を導入した<sup>(170)</sup>。振動数  $\nu$  の振動子のエネルギーは連続的ではなくて、定数  $h$  と振動数  $\nu$  の積  $h\nu$  を持つエネルギー粒子 (量子) からなるとしたのである。定数  $h$  はあとで彼の名前を付けてプランク定数と呼ばれることになった。

この「便宜的な」エネルギー量子に物理的な具体性を持たせたのが A. Einstein (1879-1955) の光量子説である (1905)<sup>(171)</sup>。これが発表された 1905 年は Einstein の論文ラッシュの年で、彼は光量子説の他に特殊相対性理論、ブラウン運動の分子論的解析を報告した。彼の光量子説では振動数  $\nu$  の光はエネルギー  $h\nu$  を持つ粒子 (光量子) からなるとし、これで光電効果などが巧みに説明できた。Planck の「便宜的な」作用量子が広い物理的意味を持つようになったのである。

Bohr はこの光量子の考えを放電管の原子が出す線スペクトル系列の解

釈に適用した。Bohr 報告「第 1 部」の「§ 2. 線スペクトルの放射」では水素原子のスペクトル系列を論じている。水素原子はもっとも簡単な原子で、これを正電荷  $e$  をもつ原子核のまわりを負電荷  $e$  をもつ電子 1 個が回っているものとする。Bohr は現在では高校の物理学教科書にでも載っているような簡単な計算で、ある状態  $n$  の電子エネルギー  $W_n$  を次のように誘導した (中崎注: 現代風にするために Bohr の  $\tau$  を  $n$  になおした)。

$$W_n = \frac{2\pi^2 m e^4}{h^2 n^2} \quad (1)$$

すると電子が  $n_2$  準位から  $n_1$  準位に移動するとき放出するエネルギーは:

$$W_{n_1} - W_{n_2} = \frac{2\pi^2 m e^4}{h^2} \left( \frac{1}{n_1^2} - \frac{1}{n_2^2} \right) \quad (2)$$

これが振動数  $\nu$  の線スペクトルに変わるとき光量子の考えから:

$$W_{n_1} - W_{n_2} = h\nu \quad \text{すると} \quad \nu = \frac{2\pi^2 m e^4}{h^3} \left( \frac{1}{n_1^2} - \frac{1}{n_2^2} \right) \quad (3)$$

水素原子の線スペクトルには、すでに可視部 Balmer 系列 (1885) と赤外部 Paschen 系列 (1908) が知られていて、J. R. Rydberg (1854–1919) はこれらの Balmer 系列と Pasche 系列に対して、それぞれ式 (3) で  $n_1 = 2$ ,  $n_1 = 3$  とする実験式を提出していた。この実験式がいま Bohr によって光量子の考えから理論的に誘導されたのである。しかも式 (3) の括弧にかかっている因子 (R) の計算値  $3.1 \times 10^{15}$  は測定値  $3.290 \times 10^{15}$  と実験誤差の範囲で一致している。これは偶然とは考えられない。

Bohr はこの「第 1 部」が印刷された 1913 年 6 月に再び Rutherford 研究室へやってきた。このとき Moseley は Bohr から「第 2 部」の内容を教えてもらい議論したに違いない。彼らはすでに手紙のやり取りもしていた。この Bohr 論文「第 2 部」はこの年の「Phil. Mag.」誌 9 月号に印刷された<sup>(172)</sup>。表題「原子と分子の構造について」は第 1 報と同じであるが、副題が「原子核 1 つだけの系」となっている。11 月号に印刷されるはずの「第 3 部」の副題は「数個の原子核を含む系」である<sup>(173)</sup>。

「第 2 部」「原子核 1 つだけの系」では  $N$  個の正電荷  $e$  を持つ原子核 1 個を取り巻く  $N$  個の電子のエネルギー準位を取りあつかう。このとき Bohr は正電荷が電子で遮蔽されるとして、遮蔽定数  $\sigma_n$  を導入して原子核

の有効正電荷を  $(N - \sigma_n)e$  で表した。

これを式 (3) に入れると：

$$\nu = R(N - \sigma_n)^2 \left( \frac{1}{n_1^2} - \frac{1}{n_2^2} \right) \quad (4)$$

Moseley はおそらく Bohr と相談して特性 X 線の K 系列に対して  $n_1 = 1$ ,  $n_2 = 2$  とし, L 系列に対して  $n_1 = 2$ ,  $n_2 = 3$  とした。すると各系列の特性 X 線の振動数は次のようになる。

$$\text{K 系列: } \nu = \frac{3}{4} R(N - \sigma_n)^2 \quad \text{L 系列: } \nu = \frac{5}{36} R(N - \sigma_n)^2$$

$$\text{これらを纏めると: } \sqrt{\nu} = \text{定数} \times (N - \sigma_n) \quad (5)$$

$n$  個の電子の遮蔽定数は Bohr 論文「第 2 部」に与えられていて、これは  $\sigma_1 = 0.96$ ,  $\sigma_{16} = 7.38$  などである。Moseley は K 系列に  $\sigma_n = 1$ , L 系列に  $\sigma_n = 7.4$  を採用した。いずれにしても Bohr 理論に従うと、各原子の特性 X 線の振動数の平方根を横軸に、原子核の  $N$  を縦軸にプロットすると式 (5) に従って直線が得られるはずである。Moseley がすることはこれを実験的に証明するだけである。1 ヶ月ほどの実験のあと彼の第 1 報は Bohr 理論「第 3 部」が印刷された 1913 年「Phil. Mag.」誌 11 月号の次の 12 月号に発表された<sup>(174)</sup>。

#### 「いろいろな元素の高振動スペクトル」

報文は「理論の部」「実験の部」などと分けられてはいないが、ほぼ「実験装置」「結果」「理論」の順番に並べられている。この「理論」のところに、上に説明したような Bohr 理論の短い解説がある。この中で Moseley は原子核の正電荷  $N$  と周期表上の位置（原子番号）との関係について次のように言う。

「 $N$  は原子から原子へ常に 1 電子単位 (single electron unit) だけ増加するものと示唆される。われわれは実験からこの  $N$  は原子が周期表の上で占める位置の番号 (number) と同じではないかという見解に導かれた。すなわち原子番号 (atomic number) は H が 1, He が 2, Li が 3 などである。」「原子量  $A$  の順序が周期表の化学的な順序と矛盾する少数の例においても、化学的性質は  $N$  によって支配されると確信をもつ



て予言するものである。」

Moseley の予想はこうである。周期表上の位置 (原子番号) は原子核の正電荷すなわち原子核を取り巻く電子の数に等しい。この電子が元素の化学的性質を支配するから、これが周期表上の化学的な順序を決めると言ってよい。「装置」の部では使った装置についての簡単な説明があるが、これはもはや Bragg 型ではない。X 線検出には電離箱を使わず、Rutherford 流に写真乾板を使用した。

「この報文では X 線スペクトルを写真撮影する方法を述べる。この方法によると X 線の解析は分光学のいずれの分野よりも簡単となる。」

対陰極におかれた標的元素に陰極線が当たって発生する特性 X 線は、フェロシアン化カリウム結晶で回折分散される。Moseley は報告のなかで 12 の元素を検べ終わったというが、「表 1」にデータが挙げられているのは、原子番号 20 のカルシウムから 30 の亜鉛までの 11 元素であり、しかも原子番号 21 のスカンジウムのところは試料がないため空になっている。これら 10 元素の K 系列特性 X 線スペクトルの写真が原子番号の順番に重ねて「図 3」に示されている。これを見るとコバルト (原子番号 27, 原子量 58.97) とニッケル (原子番号 28, 原子量 58.68) のスペクトルを原子量の順に並べてはスムーズな曲線にならないことが分かる。周期表でここは前から原子量の順番に並べると、上下の元素と化学的性質が対応しなくなる場所として知られていた。こうして Moseley の実験で元素の化学的性質は原子量でなくて、原子番号で決まることが始めて確認されたことになる。

この第 1 報が印刷されているころ 1913 年 9 月に、Moseley は今までもらっていた奨学金を E. N. da C. Andrade に譲って、母の住むオックスフォードへ帰った。ここでは昔の先生オックスフォード大学教授 J. S. E. Townsend (1868-1957) の電気実験室を使わせてもらい、私費で実験を続けることにした。ただ彼はここで 10 ヶ月ほどしか仕事ができないのである。研究の結果は次の年、1914 年「Phil. Mag.」誌 4 月号に発表された<sup>(175)</sup>。表題は第 1 報と同じであり「Part 2」となっている。

この報告で始めて彼が使った実験装置が挿絵入りで詳しく説明されている。これは Rutherford 研究室の器用な実験助手 W. Kaye が協力して

作ってくれた物であろう。X線管の両脇に長さ50cmほどの太いガラス管を接続して、この中を標的試料を載せた台車が動くようにした。標的元素から発生した特性X線は、X線管に直結した鉄製の分光計に送られ、フェロシアン化カリウム結晶で回折分散してこれを写真乾板に撮影した。調べた元素はアルミニウム(原子番号13)から金(原子番号79)の間で試料が入手できた36元素である。この中でアルミニウムから銀(原子番号47)までの21元素についてはK系列のスペクトル・データが「表1」にあり、ジルコニウム(原子番号40)から金までの24元素についてはL系列のスペクトル・データが「表2」に纏められている。「図3」には、これらK、L系列スペクトルの振動数の平方根が横軸に、原子番号が縦軸にプロットしてある。両系列とも美しい直線に並んでいる。元素の中で試料集めに苦労したのは希土類元素であって、ランタン(原子番号57)からエルビウム(原子番号68)までの9元素だけを調べた。この中で5元素はその酸化物試料をCrookesから借りて使った。このころ希土類は周期表に収まりきらず厄介者と考えられていたが、このMoseleyの研究で始めて正式に元素として認められたと言えるだろう。「図3」でプロットを直線にするためには原子番号43, 61, 75の3箇所には元素をはめ込まねばならなかった。こうしてMoseley「元素の番号づけ」は未知元素の存在とその周期表での位置を予言できたのである。

パリ大学教授G. Urbain (1872-1938)は希土類分析の大家で、72番元素を発見したと思ってこれをセルチウム(celtium)と呼んでいた。1914年5月Moseleyの報告を聞いた彼は、試料をもってオックスフォードにMoseleyを訪ねた。試験してもらったところMoseleyは数時間の実験で、Urbainが数年間の努力で作った標品の中に、72番元素に相当する特性X線スペクトルが発見されないと断言した。感心したUrbainはあとでRutherfordに手紙を書いた。

「彼の法則はMendeleevのややロマンチックな元素分類を完全に科学的に正確なものに置きかえたのです。」

「Phil. Mag.」誌に原稿を送ったあと、Moseleyは母と一緒にオーストラリア旅行に出かけた。その夏の英国科学振興会で研究発表をする目的である。旅行の途中で第1次世界大戦が勃発し、帰国したMoseleyは工兵隊に

志願して8ヵ月の訓練ののち、ダーダネルス上陸作戦に参加した。第38旅団通信将校 Moseley が戦死したのは1915年8月10日である。

28歳に3ヵ月ほど足りない生涯であった。

### おわりに

Moseley が特性 X 線の研究を始めた1913年ころには、Soddy, Boltwood, Hahn を始めとする化学者の手で多くの原子壊変中間体が遊離され、その半減期、化学的性質 (周期表上の位置)、壊変の系列、順序などが詳しく調べられていた。そして Bohr 「原子と分子の構造」第1報と Moseley 「いろいろな元素の高振動スペクトル」第1報が「Phil. Mag.」誌に発表された1913年に、これら原子壊変による元素の周期表上の「場所がえ」(displacement) が Russell<sup>(176)</sup>, Soddy<sup>(177)</sup> それに Moseley の友人だった Fajans<sup>(178)</sup> の手によって「変位則」にまとめられた。

この年の暮れには孤立派であるが、アイデアとそれを発表する勇気で人に抜きこんでいた Soddy が、報告のたびに「化学的に同じであるが化学的方法によって分離できない元素」と書くのに疲れてきたのを理由に、「同位体」(isotope) という言葉を作った<sup>(179)</sup>。だから Soddy の同位体の定義はこの言葉どおりである。こういう元素は原子量は違うが化学的性質で区別できなく、周期表上で「同じ位置」を占めると言うのでこう呼んだのである。

世界大戦が始まると Rutherford は潜水艦の音波探知機など戦時研究に駆り出され、共同研究者の多くも戦場へいったので原子核研究は一時中止せざるを得なかった。戦争が収まった1918年に Thomson のキャヴェンディッシュ研究所引退の話が持ち上がり、1919年の始めに彼が正式に辞めて Trinity Collge 学長に就任した。後任には誰が考えても Rutherford である。Rutherford は12年間いたマンチェスター生活に別れを告げて、1919年秋学期から所長としてキャヴェンディッシュ研究所での活動を始めた。

ここで最初に取り上げたのは、またまたお得意の  $\alpha$  粒子である。これは戦争の始まるころにすでに手を着けていたテーマで、実験結果は Marsden が1914年「Phil. Mag.」誌5月号の「 $\alpha$  粒子の水素通り抜け」と題して発表していた<sup>(180)</sup>。 $\alpha$  粒子を水素に当てると50cmもの飛跡をもつプロ

トンらしい粒子が発生した。この現象をもっと詳しく調べたのである。その結果は 1919 年「Phil. Mag.」誌に「 $\alpha$  粒子と軽い原子との衝突」と言う表題で発表された<sup>(181)</sup>。これは Rutherford の単独名になっている。彼は  $\alpha$  粒子を窒素に当てても、同じように飛跡の長い粒子が出ることを確かめ、これをプロトンだと推定した。窒素原子核から水素原子核が生じたのであるから、原子核の最初の人工的破壊ということになる。Rutherford のこれからの研究目標の大部分は、人工的に加速した各種の原子核を他の原子核に当てて原子破壊を引き起こすのに集中した。装置は次第に電気工学的にかつ大型になる。

1921 年のノーベル化学賞が Soddy に回ってきた。この年の物理学賞をもらったのは Einstein である。彼らの受賞の 2 年あと 1923 年 2 月 10 日に第 1 回ノーベル物理学賞受賞者 Röntgen が死亡した。

このころ Soddy は 1919 年から移った母校のオックスフォード大学化学教室で教えていた。この大学には 17 年間いたが同僚との争いが絶えず、大学が期待したような成績を挙げることができなかった。そのためか 1936 年に妻が死亡したのを機会に彼は 59 歳で大学を辞めてしまった。妻との間には子供がなかった。大学を辞めてしばらく内接円の幾何学に凝り、面白い定理を発見してこれを詩の形にして「Nature」誌に寄稿した<sup>(182)</sup>。この成果は幾何学者にも注目されて、幾何学の専門書コクセター「幾何学入門」(1969)にもかなりのページを割いて解説されている<sup>(183)</sup>。

Soddy はまた早くから科学者の社会的責任や良心について論評し、その無責任さや良心の欠如を激しく攻撃していた。Thomson はもちろん Rutherford までが蓄財に熱心であったが、これへの反感のためか Soddy は貨幣経済システムを非難して多くの本も書いている。たとえば「自由経済への大敵、銀行とはなにか」(1943)などである。Hahn に言わせると、要するに Soddy は独立独歩の「変人」なのである<sup>(184)</sup>。

Soddy がオックスフォード大学を辞めた 1936 年、65 歳の Rutherford はまだまだ元気だったが、次の年 1937 年 10 月に庭仕事をしていて木から落ち腹部を打ったのが原因で、5 日後の 10 月 19 日に死亡した。Soddy の方は案外に長生きして第 2 次世界大戦も切り抜け、79 歳の誕生日を祝った 20 日あとの 1956 年 9 月 22 日に死亡している。

この「写真史シリーズ」論考を書くにあたって、いつものように大阪帝国大学理学部化学科 小竹研究室の先輩 大庭成一博士, 富士写真フイルム株式会社 富士宮研究所 安達慶一, 武田薬品工業株式会社 創薬第3研究所 青野哲也の諸氏に大変お世話になった。また文献の収集では, 大阪大学附属図書館 参考係 今井義雄, 永田敏恭, 東田葉子, 中京大学附属図書館 参考係 清水守男, 田中良明の諸氏から多大の援助を賜った。この機会にこれらの皆様に厚く感謝の意を表する次第である。

## 付 録 2

「各種のリン光体から放射される不可視放射線について」

Sur les radiations invisibles émises par les corps phosphorescents

Henri Becquerel, *Compt. rend.*, **122**, 501 (1896)

前の例会で私はある種のリン光体から放射され, 光に対して不透明な各種の物質を通過する不可視放射線についての証拠を, 得るために行った実験について簡単に報告しておいた。

私はこの観察を続けているし, この現象の研究はまだ継続し発展させようと思っているが, 事態が事態だからこれまで私が得た新しい結果を今日ここに報告することにする。

私が今から報告しようとする実験は結晶性硫酸ウラニル・カリウム複塩 (sulfate double d'uranyle et de potassium) (中崎注: 硫酸ウラニル・カリウム;  $\text{UO}_2\text{SO}_4 \cdot \text{K}_2\text{SO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ ) の板状結晶から放射される放射線に関するものである。



この物はリン光が特に強くて, その持続時間は100分の1秒以下である。この物質から放射されるリン光の性質は始め父が研究し, そのあと私がこのリン光の示す興味深い特異性のある物について報告しておいた。この物質が太陽光または散光に当てられたとき, この物質から放射される放射線 (radiation) は単に黒紙を通過するだけでなく, たとえばアルミニウム板や銅箔などいろんな金属も通ることができるのは簡単に調べることができる。

そのなかで私は次のような実験を行った。「Lumière」社製臭化銀ゼラチン乾板を黒板で作った光を通さない撮り枠に入れて, この1面をアルミニウム板で覆う。この枠を直射太陽光にたとえ1日中露光しても乾板は感光

しない。ところが、外からこのアルミニウム板の上に上記のウラン塩板状晶を紙帯などで固定し、太陽光に長時間露光してから、ふつうの方法で現像すると、板状結晶の像がネガの上に黒く現れているのが分かる。臭化銀はこの板状リン光体に面したところが還元されているのである。アルミニウム板がもう少し厚いと、作用は2枚の黒紙を通過させたときより小さくなる。ウラン塩板状晶とアルミニウム板の間、または黒紙の間に約0.1mmの銅板を十字架などの形に切った物をおくと、ネガの上にこの十字架の画像がずっと明瞭に現れる。しかし、この色合いからすると、放射線はこの銅板でも通っているのが分かる。もっと薄い(0.04mm)銅箔を使った実験では、この活性放射線の減衰はずっと小さくなる。直射太陽光だけでなく、ヘリオスッタットの金属鏡から反射され、さらにプリズムや水晶レンズで屈折された太陽光に刺激されたリン光も同じ現象を与える。

私はとくに次の事実を強調したい。これは大変に重要に思えるし、はじめは予想もされなかった現象なのである。

いままでと同じ板状結晶を同じ条件で、同じような障害物を隔てて、写真乾板の上においたが、今度は光線を当てて励起することなく、暗所に放置するだけで同じ写真画像が得られたのである。この観察は次のような状況で行われた。

上記のように実験しているとき、ある物は2月26日水曜日に、またある物は2月27日木曜日に準備されたが、この季節の常として太陽が稀にしか照らないので、私は準備したこの実験を中止して、準備した乾板包にウラン塩結晶を載せたまま棚の引出しの暗所にしまっておいた。次の数日間も太陽が照らなかったので、3月1日(中崎注:日曜日)に非常に淡い像を期待して写真乾板を現像してみた。ところが期待に反してシルエットが大変に濃く現れていた。私はすぐに暗所でも作用が続いているに違いないと考えて次のような実験にとりかかった。まず不透明なボール紙箱の底に乾板をいれ、その感光面にウラン塩の板状晶を1つ載せ、その凸面が数カ所だけで感光面に触れるようにした。同じ面の上に別の板状晶を1つ薄いガラス板を隔てて載せた。これらの実験は暗室でして、箱を閉じてからこれをさらに別のボール紙箱に入れて引出しにしまった。

同じ実験はアルミニウム板で覆った撮り枠でも行った。この中に写真乾

板をいれ、その外側にウラン塩板状晶を載せて、全体をボール紙箱に入れてこれも引出しにしまった。5時間後にこれらの乾板を現像すると、今までの実験や光でリン光を発生させたときと同じように、板状晶のシルエットがネガに黒く現れた。板状晶を直接にゼラチン面においたものについては、密着させた部分と約1mm離れた部分の差はほとんど認められなかったが、差があるとするとおそらく活性放射線源からの距離の差に由来するのであろう。ガラス板の上においた板状晶の作用はほとんど減衰していないが、像は大変に美しく出ていた。最後にアルミニウム板を通すと作用はかなり弱められたが、ここでも像は大変に明瞭であった。

これらの現象が、リン光体から発生する可視光線によるものではなさそうな事を認めるのが大切である。この可視光線なら100分の1秒後には、とても弱くてなりほとんど感知できないに違いない。大変にありそうな仮説は、上記の放射線がLenardとRöntgenが研究した放射線の示す効果と大変に類似した効果を示すので、この放射線はリン光体から発生するある種の不可視放射線ではなかろうかと言うものである。そして、この放射線の寿命はこのリン光体から出る可視光線の寿命よりずっと長いとするのである。ただ、私の上述の実験はこの仮説に矛盾するところがないが、なお確言はできない。現在、私が行っている新しい実験が、この現象になにかの解明をもたらすのを期待している。

### 付 録 3

「各種のウラン塩から放射される放射線について」

Sur les radiations émises par les sels d'uranium

Henri Becquerel, *Compt. rend.*, 122, 689 (1896)

#### 1. 荷電体への作用。

前前回の科学学士院で私は各種のウラン塩から放射される不可視放射線 (radiations invisibles) が荷電体を放電する性質をもっていると報告した。私はHurmuzescu検電器 (électroscope) を使ってこの現象の研究を続け、すでに私が写真で行ったとは別に、問題の放射線がいろんな不透明体、とくにアルミニウムや銅を通過することを証明できた。白金は上記の2つの金属よりはるかに大きな吸収能を示した。また私は次のことを発見した。

放電中に検電器の金箔が次第に近寄るのを追跡すると、 $30^\circ$ 以下の角度のとき角度の変化は非常に正確に時間に比例するので、(中崎注：金箔の)接近速度いい換えれば 1 秒間に金箔が近づく角度はこの活性放射線の比強度を与えるであろう。

次に私が報告しようとするのは、ある水晶薄片に対する比吸収能の数字だけである。厚さ 5mm, 軸に直角方向で、速度は 1 秒間の秒角度であらわす。

硫酸ウラニル・カリウム複塩 (sulfate double d'uranyle et de potassium) の薄片を金箔の下におくと速度 22.50 で検電器を放電させる。この間に水晶薄片をおくと速度は 5.43 に減少し、この 2 つの数字の比は 4.15 である。

次に私は Crookes 管のリン光を放つ壁から放射される放射線が同じ水晶薄片によって同じような割合で減衰されるかを試してみた。Crookes 管の一方のガラス壁を厚さ 0.12mm アルミニウム板に替えて、これを検電器に向ける。アルミニウム板の前に直径 15mm の円穴を開けた銅板をおく。この銅板を通ると放射線は大きく減衰するから現在の実験にほとんど影響することはないだろう。誘導コイルで Crookes 管を働かせると検電器の金箔は急速に接近する。1.4 秒で約角度  $1^\circ$  だから上記の単位で表すと速度 2571.4 となる。つぎに水晶薄片を銅板の円穴におくと、金箔の落下速度は 163.63 となり、15.7 分の 1 に減少する。減衰は第 2 の場合の方が第 1 の場合よりほぼ 4 倍大きいオーダーは同じである。これらの実験が示すのはこれだけである。しかし、この観察は次のような仮説と矛盾するのではない。すなわちウラン塩の放射する光線 (rayons) と Crookes 管またはリン光を放つガラスが放射する光線の差を同じ波長でない事に求める仮説である。とはいえ 2 つの実験は条件が違うので、この差を确实とするに足りない。

検電器実験はまた 11 日間暗所に放置したウラン塩薄片からの放射線と、同じ薄片をマグネシウム光で強烈に照射したときの放射線との微妙な差を証明してくれる。前者では金箔の落下速度が 20.69 であるのに光照射による励起後は 23.08 となった。

しかし、このように消された電荷がどうなったか、これらの放射線が通



過すると不導体が良導体となるのかどうかは分からない。

実験では結晶薄片 (中崎: ウラン塩) を適当に絶縁しておくで、検電器を放電させるものの、自身は荷電されないことが分かる。さらに検電器に向かって長時間この薄片をおいてもこれを荷電しない。

## 2. いろいろなウラン塩からの放射。持続性。励起性。

もし現在われわれが研究中の不可視光線の放射という現象がリン光現象なら、定まった放射線による励起が証明されねばならない。しかし、物質を暗所に保存し、これを可視光または知れる限りの不可視放射線から防護しても、絶えることなくドンドン放射が続くので、この実験は大変に困難である。15日以上経ってもウラン塩は、まだ最初の日とほとんど同じように放射線を放射している。写真乾板のうえに黒紙をおき、この上に暗所に長くおいた薄片と太陽光に曝した薄片を並べておくと、後者の方のシルエットが少しだけ前者より濃い。同じ条件でマグネシウム光もほとんど認められないほどの効果を与えるに過ぎない。硫酸ウラニル・カリウム複塩 (sulfate double d'uranyle et de potassium) の薄片を電気アーク灯またはライデン瓶の放電で得られる強い閃光で照射すると、シルエットはかなり濃くなる。それでこの現象はいかにも不可視リン光 (phosphorescence invisible) による現象のように思えるのだが、どうも可視リン光または蛍光に密接に関係しているとは言い難い。

ウランの sesquioxide (中崎注: ウラン (VI) 酸化物) 塩はリン光性であるが、私がおもしろい吸収を研究したことのある緑色の uraneux 塩 (sels verts uraneux, 中崎注: ウラン (IV) 化合物) はリン光性でも蛍光性でもない。ところが、この uraneux 硫酸塩 (sulfate uraneux, 中崎注: ウラン (IV) 化合物) は uranique 硫酸塩 (sulfate uranique, 中崎注: ウラン (VI) 化合物) と同じように行動し、同じような強度で不可視放射線を放射するのである。この他に私はおもしろい実験を紹介しようと思う。硝酸ウラン (nitrate d'urane, 中崎注: 硝酸ウラニル,  $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ) は溶液にするか結晶水の中に溶けるとリン光、蛍光を出さなくなる。この塩の結晶をとり、薄いガラス板で蓋をしたガラス試験管の中に入れて、暗所でアルコールランプで加熱した。このときアルコールランプの光が当たらないように注意する。塩は融解し、私はこれを暗所で結晶させてから、黒紙で包

んで乾板の上においた。このあいだ塩には光を当てないようにした。これでは、誰もなんの効果も現れないと期待するだろう。それは、この塩がリン光を止めた瞬間から全ての励起光を避けているからである。ところがシルエットは塩に光を当てたと同じように濃かった。しかもまた、その塩がガラス板に接している部分のシルエットが比較のために同じ乾板の上においた硫酸ウラン薄片のそれより濃かったのである。同じ乾板の上に薄いガラス板をおき、その上に硝酸ウランの結晶をいろんな面を向けておいても結果はほとんど同じであった。

私はまた硫酸ウラン (sulfate uranique), 硫酸ウラニル・カリウム複塩 (sulfate double uranico-potassium) それぞれからなる連続の面を作った。そしてこの上に水晶プリズムをとおした電気アークのスペクトルを投射した。紫外線による励起帯は蛍光によりはっきりと位置づけられた。しかし写真乾板の上のこの面のシルエットを現像してみると、これらはほとんど同じ濃さであった。これは次のことを意味する。この物質のもともと持っている放射が、励起の場所で異なる僅かな差を隠してしまったのか、または実験している面に投射されたスペクトル領域では励起が起らなかったかである。

### 3. いろんな物質による吸収。

問題の放射線がいろんな物質を通過するときに受ける吸収を定性的に調べるのは非常に容易である。それには同じ写真乾板の上にその物質の薄片または液体を入れた小ガラス管を載せ、さらにその上に硫酸ウラニル・カリウム複塩の薄片または他のウラン塩を載せればよろしい。厚さ約2mmのいろんな物質について調べた結果、私は次の事実を観察した。水は非常に透明である。大ていの溶液も同じである。金属塩の溶液、たとえば硝酸銅、塩化金、硝酸ウラン、さらに葉緑素のアルコール溶液は全て透明である。またパラフィン、型どり用のワックスも同じである。しかしウラン・ガラスはずっと不透明で、赤色ガラスも同じである。同じ厚さのアルミニウムは少し不透明である。スズはずっと不透明で、コバルト青ガラスは上記の金属などより不透明である。

他の実験で私は複屈折や偏光を調べる目的で、いろんな結晶や光学装置を使ってみたが得られた印象は余りにも淡くて、現在のところ結果は得て

いない。しかし水晶は方解石よりこの不可視光線を吸収しやすいこと、天然産のイオウはほとんど透明であることなどが分かった。

前報の終わりで私は空気と減圧空気についての実験について語り、これには大きな差がないとだけ言っておいたが、実験してみると減圧空気の方の陰画 (epreuves) が明らかに少しだけ濃いのは、空気による吸収があるのを示すのだろう。

#### 4. 屈折。

前報で私が指摘した事実はガラスを通過するときの屈折に対する証拠を提供していた。これに次の事実を加えておこう。クラウン・ガラスのプリズムの1面の上に、その端から数 mm 離れて面と平行に非常に薄い直径 1 mm のガラス管に結晶性硝酸ウランを満たした物をおく。これは不可視放射線の直線状の線源となる。プリズムの他の面を写真乾板の上におく。3日後に乾板を現像するとプリズムの底に拡がった1つの像が現れていた。これは端の像から白線で隔てられていた。この距離は同じ条件で光が与えるのと同じオーダーである。線源から写真乾板が少し離れただけで強度が大きく減衰するので、今のところ屈折率の測定はできていない。

#### 5. いろんな物質における異常性。

いろんなウラン塩は驚くほど一定に不可視放射線を放射するが、他のリン光物質では同じでない。私はすでに硫化カルシウムについてウラン塩と同じオーダーの結果を得ていたし、前報において 2mm アルミニウム板を通過しても非常に濃い印像を与えることを報告しておいた。しかし、この同じリン光体を第2の写真乾板の上におくと同じ条件でも不活性となり、これよりあと私は硫化カルシウムでなんらの印像を得ていない。また私はいろんな産地の6方晶系閃亜鉛鉱 (中崎注: 硫化亜鉛) についても同じく不成功であった。それで私はいろいろな既知の手段でこれらの物質を新しく活性化しようと試みた。私は乾板の上でこの乾板を熱することなく、これらの物質を加熱したがなんらの印像を得なかった。他の実験ではこれらの物質を  $-20^{\circ}$  に冷却したり、太陽光線やマグネシウム光で励起して、これを写真乾板の上においたが、いろいろなウラン塩だけが印像を与えた。

最後にいろんな硫化物や閃亜鉛鉱を電気火花で励起したところ、これらは強いリン光を放ったが、黒紙をとおしても (中崎注: 乾板上に) なんら

の活性も与えなかった。これらの実験中に私は科学学士院会員の Troost 氏が同じような事を観察しているのを知った。古い閃亜鉛鉱の試料は最初は強力な結果を与えたのに、次第にこれが弱くなり、しまいには全く不活性になってしまったと言う。将来の実験がこれらの奇妙な事実に説明を与えるであろう。

#### 付 録 4

##### 「金属ウランからの新しい放射線の発生」

Émission de radiations nouvelles par l'uranium métallique

Henri Becquerel, *Compt. rend.*, **122**, 1086 (1896)

数ヵ月まえに私はあるウラン塩が、その存在がいままで知られていない放射線 (radiations) を放射すること、この放射線の性質のあるものは Röntgen 氏によって研究された光線 (rayonnement) の性質に非常に類似した注目すべき特性を示すことを報告した。

このウラン塩からの放射線は、この塩が光線に当てられたときだけでなく、暗所におかれても発生する。またいろんなウラン塩の結晶はあらゆる励起光線から隔離されていても、2ヵ月以上もほとんど減衰することなくこの新しい放射線を放射し続ける。この物質を3月3日から5月3日まで光を通さないボール紙箱にいれておいて、5月3日からは鉛製の2重箱にいれて暗室から出さないようにした。そして試料を載せて箱の底に平行においた黒紙の下に、簡単な装置を使って写真乾板を挿入した。こうして、鉛を通り抜けない全ての放射線に当てないようにした。このような状況でも、この研究中の物質は活性放射線を放射し続けたのである。

暗所においたこの結晶の1片を太陽光、さらに良いのはライデン瓶の放電による電気アークに当てても、この研究中の放射線の放出をほんの少し励起するに過ぎない。しかも、この励起は数時間のうちに減衰し、物質は非常にゆっくりとしたもとの状態に戻る。

この放射線がふつうの光のように反射、屈折をすること、写真乾板の臭化銀やダゲレオタイプ銀板に沈着したヨウ化銀を分解することなどはすでに示した。またこの放射線は荷電体を放電し、ボール紙、アルミニウム、銅、白金などの光に不透明な物質を通り抜ける。この放射線が上記の物質の板を通過するときの減衰は、Crookes 管の対陰極から発生する放射線が

同じ板を通過するときの減衰より小さい。

私が試験したウラン塩は、光によってリン光を放射する物もしない物も、またそれが結晶、融解物、溶液状態であろうと、すべて同じ結果を与えた。この事から私はこの効果はこれらの塩に含まれているウラン元素の存在によるもので、金属ウランはその化合物よりずっと大きな効果を示すだろうと考えるにいたった。

実験室にながらく保存してあった市販のウラン粉末について数週間まえに実験したところ、この予想を裏付けることができた。写真効果については、ウラン塩によるものより、とくに硫酸ウラニル・カリウム複塩 (sulfate uranico-potassium) によるものよりずっと濃い画像が得られた。この結果を報告するまえに、私は学士院会員 Moissan 氏にご自身が作られた金属ウランのいくらかを提供して下さるのを待った。金属ウランに関する彼の見事な実験は今日ここで発表されるはずである。

私の実験の結果は大変に見事であった。結晶ウラン、熔融ウラン、炭化ウランが黒紙をとおして写真乾板上に与えた像は、比較のために同じ乾板の上においた硫酸ウラニル・カリウム複塩による物よりずっと濃かった。同じような差は荷電体の放電現象でも見られた。金属ウランはその塩と比較してずっと速く放電させたのである。Moissan 氏から提供を受けた熔融金属ウラン板と比較した下記の数字はその目安を与えるであろう。

最初の実験では熔融金属ウランの円板を Hurmuzescu 氏検電器 (electroscope) の金箔の下に密着させておいた。始めの電荷は金箔間隔  $20^\circ$  に相当した。これが減少する速度は秒時間—秒角度単位で平均 486 であった。次にこの金属ウラン円板と同じ大きさのボール紙円板を作り、この上に硫酸ウラニル・カリウム複塩 (sulfate double uranico-potassium) の薄片を載せ、金属ウランの代わりにおいた。この状態では金箔間隔の時間に対するカーブ (中崎注: 減衰曲線) はもはや規則正しくなく、時間に対する金箔間隔のカーブはもはや直線ではない。同じ電荷に対する放電の速度は結晶の形や、そのおき方によって 106.2 から 137.1 まで変化する。こうして金属ウランとウラン複塩の放電速度の比は 4.56 から 3.54 となる。

もっと良いおき方は検電器の外側で、装置のカバーをはずして、そこに適当な入口を備えた板で蓋をした金属円筒をおき、検体を軸の銅球の上に

おくのである。すると放電は時間と比例し、金箔間隔  $10^\circ$  に相当する電荷の放電速度は金属ウランで 78.75、硫酸ウラニル・カリウム複塩で 21.53 となったから、比は 3.65 となる。

私はこの新しい現象を研究中だが、私の信じるところによると、これは金属がある種の不可視リン光 (phosphorescence invisible) 現象を呈する最初の例で、これを指摘するのは興味のないことではないだろう。

## 付 録 5

### 「ウランの放射能」

#### Radio-activity of Uranium

William Crookes, *Proc. Roy. Soc.*, **66**, 409–22 (1899–1900)

1. Henri Becquerel 氏の研究はいろんなウラン化合物がいわゆる「放射能」(radio-activity) なる性質を持つことを明らかにした。すなわち、これらから放射される放射線 (rays) はふつうの光に対して不透明とされる物体を通過して写真感光板に作用するのである。また検電器の近くにおくとこれを放電させ磁場で曲げられる。これらの放射線は現在「ベクレル線 (rays)」とか「ウラン放射線」とか呼ばれている。

2. Curie 夫妻による途方もない放射能を持つポロニウムおよびラジウムの発見から、ウランの示す放射能はあるいは、これらの物質のどれかの極く少量の含有によるのかも知れないとも考えられた。しかし Curie 夫人は「*Revue Générale des Sciences*」1899 年 1 月号で次のように言っている。「これはありそうにない。それと言うのも、もしそうならいろんな種類のウラン化合物は大きく違った放射能を示すはずである。しかし、いろんな種類の金属ウランおよびいろんな出所からの酸化物、塩について多くの研究をした結果、同じ化合物についての放射能の間に大きな差を認めなかった。」

また Curie 夫人は別の報告で次のように言う (原注 1)。「写真感光板 (photographic plates) に作用する放射線の性質はウランおよびトリウムの特性である。」「これらの金属の外的条件は全く二次的に作用するに過ぎない。」「ウランおよびトリウムその物が活性なのである。」

3. ラジウムの発見が告げられ、それが「見たところほとんど純粹のバリウムの性質を備えている」と報告されたとき (原注 2)、私はすぐにいる

んな産地からのバリウム鉱石について試験してみたら、これからかなりの量のラジウムが検出できるのではなかろうかと考えた。この考えにしたがって次の鉱物の試料を写真感光板の上に載せた。試料と感光面との間には1枚の黒紙をおいた。もしあったとしても放射性物質の量は極めて微量であろうから、感光板には48時間作用させることにした。

重晶石 (Barytes, Heavy Spar) (中崎注: 硫酸バリウム)

ハンガリー産 (試料3種)

Cumberland 産 (8種)

Westmorland 産 (1種)

Cumberland 産 (美しい結晶1種)

Derbyshire 産 (3種)

Arkendale 産 (1種)

Hartz 産 (1種)

スコットランド産 (2種)

アイルランド産 (2種)

Northumberland 産 (2種)

Arran 産 (1種)

Cherbourg 産 (1種)

産地不明, 美しい結晶のサンプル (数種)

毒重土石 (Whitherite) (中崎注: 炭酸バリウム)

Lancashire 産 (1種)

Cumberland 産 (4種)

Northumberland 産 (1種)

これらの鉱物はどれも感光板の上に何らの作用もおよぼさなかった。

4. このようにバリウム鉱物では否定的な結果を得たので、私は戸棚にある全ての鉱物に当たってみることにした。これらはかなりのコレクションで多くの美しい結晶の物もあった。大きな感光板の上に黒紙を敷き、その上に鉱物をできるだけ詰めて並べ、その名前とおいた場所を正確に記録した。これらを全くの暗所に48時間放置した。次が活性の順に並べた活性鉱石のリストである。

1. Pitchblende

9. Broggerite

- |               |                 |
|---------------|-----------------|
| 2. Uranite    | 10. Monazite    |
| 3. Autunite   | 11. Xenotime    |
| 4. Orangite   | 12. Arrhenite   |
| 5. Thorite    | 13. Sipilite    |
| 6. Euxenite   | 14. Fergusonite |
| 7. Sumarskite | 15. Chalcilite  |
| 8. Alvite     | 16. Hielmite    |

これらの鉱物はすべてウランかトリウムを含んでいるのが分かるだろう。

5. ピッチブレンドがもっとも活性な鉱物である。しかし活性は部分によって違う。Cornwall産ピッチブレンドから1片を切取り表面を磨いた。この面に感光板を当てて24時間してから現像した。印像はこの鉱物の構造をきれいに写し出した。ピッチブレンドの小部分だけが黒い印像を、放射能のあまりない部分は中間調を、長石、水晶、黄鉄鉱など放射能の全くないところは透明であった(図版5を見よ)(原注3)。産地の違うピッチブレンドの活性は大きく違った。

6. Arendal産のorangiteの大きな結晶を平に研磨し、上面と側面を磨いた。セルロイドフィルムに傷をつけてこれを折り曲げ、半分は側面に半分は上面に押し付けた。72時間露出してから現像すると、結晶のどの面からの印像の強度に差はなかった。また1つの面の中でも印像は一様で、表面の割れ目の場所には印像がなかった。

鉱物と感光板の間には薄いセルロイド板をおいて同じ実験を繰り返したが、結果はまえとほとんど同じであった。

7. 大ざっぱに言ってピッチブレンドの作用(中崎注:放射能)はこの鉱物に中のウランの割合に比例する。ウランの含有量の違うピッチブレンドの微粉で実験してみた。内径2分の1インチの厚い鉛管を1インチに切り、下方の口をカードでふさぐ。それぞれ $U_3O_8$  43%および $U_3O_8$  12%のピッチブレンドの粉末を詰めて、黒紙に包んだ感光板の上におき、これらを120時間全くの暗所に放置した。現像してみると43%鉱物粉末の下の点の黒さは12%鉱物粉末の下の点より少なくとも3倍は濃かった。

次に鉛管を4分の1インチと2インチに切って2つの鉛セルを作った。これらを43%鉱物粉末で完全に満たし、48時間感光板に作用させた。現



像すると2点において黒さの差はまず認められなかった。これは作用が活性物質の厚い層を通過できないことを示している。結果において4分の1インチも2インチも同じなのである。鉛管の底のカードの代わりに薄いガラス板を貼り付けても差は認められなかった。同じ鉛管4本にピッチブレンド粉末を詰めて、これらを1枚の感光板の上に並べた。24時間目に第1を、48時間目に第2を、72時間目に第3をはずし、最後の鉛管は96時間目までおいておいた。感光板を現像すると印像の強度は露出の長さによって変わった。大体、時間に比例し時間を倍にすると倍の黒さになった。

8. 比較するのに便利のように数個のガラス・セルを作った。これらは径も深さも4分の3インチで封じることができしコルクで栓もできる。試料のラジオグラフ (radiograph) を撮りやすく確実にするための装置を作った。厚さ2mm、長さ6½インチ、幅2⅛インチの鉛板に直径1インチの円穴を数個あけた。この鉛板の下にずっと薄い鉛箔 (assay foil) をおき、これには上と中心を同じくして直径4分の3インチ弱の円穴をあけた。これでガラス・セルは上の穴は自由に通るが、下の穴は抜けなくてその場所に収まる。鉛板と感光面が触れるのを防ぐために鉛板の下に薄いセルロイド板を固定し、これには鉛板と同じ位置に穴をあけた。鉛板の左上隅に短い鋼鉄ピンがあり、これを感光板に押し付けてガラス・セルとの位置関係を印刻する。鉛板とセルロイド板は貼り付けて、この全体を浅い木製皿の中に入れる。これには光を通さない蓋がしてある。木製皿の底に感光板を上を向けて入れ、この上に鉛枠を載せ、この中に放射能物質のセルを入れる。セルの位置は注意して記録しておく。

9. Curie 夫妻が発見した珍しいラジウムとポロニウム化合物を作る目的で、私は「Stirling」化学会社 Tyrer 氏に頼んでピッチブレンド半トンを経済的に処理してもらった。その操作の各段階で沈澱とロ液を検査する必要があり、その記録のために作用が変化しない物質を満たした標準セルと比較することにした。多くの試験の結果、私は純粋にしやすく放射能の強い硝酸ウラン結晶をこれに選んだ。この時の観察の結果がこの報告の主題である。

10. 次のウラン化合物をガラス・セルにいれ、7つの穴のある鉛枠に収めて同時に試験した。

1. Moissan 氏からの金属ウラン
2. 硝酸ウラン (uranium nitrate),  $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$
3. 酢酸ウラン (uranium acetate) (中崎注:  $\text{UO}_2(\text{C}_2\text{H}_3\text{O}_2) \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ )
4. 硫酸第 1 ウラン (uranium persulphate) (中崎注:  $\text{UO}_2\text{SO}_4 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ )
5. 硫酸第 2 ウラン (uranium protosulphate)
6. 酸化ウラン (緑)  $\text{UO}_2 \cdot 2\text{UO}_3$
7. 酸化ウラン (黒)  $\text{UO}_2 \cdot \text{UO}_3$

これらの物質を 24 時間感光板に作用させた結果, もっとも作用の少ない金属ウラン以外は, どれも作用に大きな差は認められなかった。

11. 標準品として硝酸ウラン (uranium nitrate) の最純品を作るために, 市販のこの塩の数ポンドを精製した。始めにエーテルに溶かし (§ 13) 次に再結晶した。これらの多くの操作の後に結晶をガラス・セルに入れこれを標品とした。驚いたことに 24 時間も感光板に当てたのに現像してみると, 全く印象がなかったのである。

12. そこで私は次のような実験で, あるウラン化合物には強力な放射能があるのに, 他の物にはそれが無いのは, ある種の物理的, 化学的条件の差による物かどうかを確かめることにした。

市販の硝酸ウランを使って次のようにした。

- (1) その少量を過剰の硝酸に溶かし, 湯浴上で蒸発乾固した。これを粉末にしてセルに入れた。
- (2) 同じ量のウラン塩をアルコールに溶かし, 湯浴上で蒸発乾固した。できたオレンジ色の糊状 (pasty) の物を粉にして, セルに入れた。
- (3) (1) と同じように処理したが, 水と硝酸の過剰を蒸発しなかった。
- (4) 少量のサンプルを湯浴上でしばらく加熱し, 完全に乾燥させてから粉にしてセルに入れた。
- (5) ガラス・セルに 50 グレイン (中崎注: 1 grain = 0.0648g) を入れ, 湯浴上で約 75°C に加熱して, これが結晶水に溶けるまでにした。
- (6) ガラス・セルの中の 50 グレインを砂皿の上で約 230°C に加熱す

る。結晶水は飛んでしまい塩は融けた。冷却すると後に硬い黄色のガラス状の塊が残った。

(7) 同じ塩の同じ量を分解が始まるまで、230℃より少し上に加熱した。

(8) 同じ量のサンプルをもっと強く加熱して、硝酸塩の約半分が分解するまでにした。

(9) 同じ量を完全に分解するまで加熱した。

(10) 以上の実験に使ったと同じ市販の硝酸ウランを、標準品としてガラス・セルに入れた。

これらの10個のセルを鉛枠にいれ24時間感光板に作用させた。現像するとNo. 9だけが少し強いだけで、残りの印像には大きな差は認められなかった。このようにして実験する塩が始め活性であったら、このウラン化合物の放射能は物理的、化学的条件によって全くと言ってよいほど影響を受けないらしい。しかし不活性のウラン塩から出発すると同じ実験をしても、この性質を持つようにはどうしてもできなかった。

こうして、私が始めに予想したように、ウランとその化合物の性質とされる放射能はこの元素の固有の性質ではなくて、これから分離できる何か別の物質の中にあるのは明らかである。このように写真的に不活性な硝酸ウランを再結晶で作るのに成功したので、私は市販のこの塩の数ポンドから出発して、これからこの活性体 (active body) を分離するもっとも簡便な手段を見つける実験を開始した。

13. 栓付きシリンダーの中に結晶硝酸ウラン1ポンドを入れ、この上にエチルメチルエーテル (methylated ether) (比重0.72) 1ポンドを加えた。振りまぜると塩はすぐ溶けて数時間のうちに結晶は全部なくなり、シリンダーの底には1000液量グレイン (中崎注: 1 fluidgrain = 0.054ml) の重い水溶液が沈澱した。水層とエーテル層を分離し、水層はエーテルを除くために蒸発乾固した。エーテル層は自然蒸発に委せた。エーテルに溶ける部分と溶けない部分の同量をガラス・セルに入れ、塩を溶かすのに十分な希硝酸を加えて、それぞれを湯浴上で蒸発乾固した。乾燥できたらこの2つのガラス・セルと出発物の硝酸ウランを入れたガラス・セルを24時間感光板の上に放置した。現像してみるとエーテルに溶けない部分の作

用は非常に強いが、出発物の硝酸塩はその半分しかなく、エーテルに溶けた塩からは何らの作用も検出できなかった。

エーテルに溶けない部分は、これを硝酸と共に蒸発乾固してから水より再結晶すると、外観ではふつうの硝酸ウランと区別できない。エーテルに溶ける物もこれを蒸発乾固し、希硝酸と加熱してから再結晶すると、これもまた元の硝酸塩と同じ外観を呈した。

14. エーテルに溶けない部分からの結晶性硝酸ウランをもう一度エーテルで抽出した。大部分は溶けたが底に少量の重い水溶液が沈んだ。エーテルに溶けた部分は前の実験と同じように、ほとんど放射能を示さなかったが、この第2の抽出でも溶けない部分は強い活性を示した。この第2回目の抽出で溶けない部分は第1回目の抽出で溶けない部分の約2倍の活性を示した。これはエーテルは硝酸ウランその物をよく溶かすのに、放射能をもつ物質の方は溶かさなことを示している。

15. エーテルに溶けない方の硝酸ウランを次のように分別再結晶にかけた。冷却して約4分の3が析出するまで水を蒸発する。この操作に使ったビーカーをNo. 1と呼ぶ。結晶化が済んだら、母液をビーカーNo. 2に入れる。少量の水をNo. 1に入れ温めて結晶を溶かす。No. 2を少し蒸発する。両方のビーカーはこれを放置して結晶化させる。冷却してからNo. 2からの母液をビーカーNo. 3に移し、No. 1からの母液はNo. 2に移す。No. 1の結晶に少量の水を加えて溶かす。3つのビーカーは温めて別べつに結晶化させる。この操作を硝酸ウランが無くなるまでか、テストして操作が完了としたと判断できるまで続けた。

16. 操作の結果がどうなったかをテストした。ビーカーNo. 1の結晶の一部をとり乾燥してガラス・セルに入れた。最後のビーカーNo. 3の母液の一部を蒸発乾固してから結晶させて、これもガラス・セルに入れた。これら2つのガラス・セルを並べて感光板の上におき、24時間作用させた。現像してみるとNo. 1硝酸塩の下には印像は見えず、分別結晶の一方の端からの硝酸塩(中崎注: No. 3)の下の印像は黒くて濃かった。

17. これらのセルから結晶をとり、灼熱して緑色酸化物としてセルにもどした。感光板でテストすると、灼熱しない元と同じであった。このように活性物質は母液の方に集まるのである。

18. 写真テストに多量の試料は必要ではない。私は5区分 No. 10, 9, 8, 7, 6 の中のもっとも活性の大きな部分からそれぞれ小滴をとり、これらをふつうの顕微鏡スライドの上に並べた。小滴を結晶化させてから、このスライドを感光板の上においた。24時間後にもっとも活性な No. 10 から強い印像が得られた。次に No. 9 から少し弱い印像, No. 8 から弱い印像が得られ, No. 7 ではほとんど見えず, No. 6 からは全く印像が出なかった。これら5つの結晶スポットを含むスライドの上に別のスライドを載せて、両方をカナダ・バルサムで貼り合わせ、顕微鏡スライドのように固定した。バルサムが乾いてから、スライドを感光板の上に載せた。24時間で濃さの順番の美しい印像が得られた。

19. 硝酸ウランの市販品には2種類がある。1つは「ふつう品」で、1つはいわゆる「純品」である。聞くところによると「純品」は、この「ふつう品」を再結晶して作るのだと言う。そこでこれら2種類の硝酸塩を購入して写真感光板の上でテストしてみたところ、「ふつう品」は「純品」に較べて少なくとも2倍は活性が大きかった。

20. 次に全く不活性な硝酸ウランを作る目的で実験を始めた。エーテルに溶ける方の塩の約半ポンドを数回再結晶して、その度に母液と分けた。最初とあと2回の結晶 (No. 1, 2, 3) をガラス・セルにいれ、7日間感光板の上に放置した。

現像してみると No. 1 のところには印像がなく、No. 2 のところで辛うじて見える印像が、そして No. 3 では少し強い印像が見えた。

21. 別の実験ではウランから活性体を分離することをした。硝酸ウランは少し加熱すると融解し、しばらくして黒ずみ、亜硝酸ガスが発生する。最後に全体が半液体となり流れなくなる。ここで加熱を止め全体を水に入れる。分解しなかった硝酸ウランは溶け去り、塩基性硝酸塩が溶けずに残る。この塩基性硝酸ウランは橙黄色で、硝酸によく溶けてふつうの硝酸ウランとなる。この分割法では活性体が次第に塩基物の方に集まった。ただし、この方法は再結晶法と較べて完全でなくやり難いから、これ以上には追求しなかった。

しかし、以上で私は硝酸ウランの放射能は塩基性硝酸塩の側に集まり、反対の端の硝酸塩は活性が劣ることを証明できたのである。

22. エーテルに不溶のフラクションから作った活性の非常に強い硝酸ウランを水に溶かし、過剰のアンモニア水を加えると、黄色のウラン酸アンモニウム (ammonium uranate, 中崎注:  $(\text{NH}_4)_2\text{U}_2\text{O}_7$ ) が沈澱した。

ロ液は蒸発乾固し硝酸と加熱した。この黄色の沈澱とロ液の残渣をガラス・セルにいれ、感光板の上に載せた。24 時間作用させてから現像すると、全ての放射能はウラン酸アンモニウムにあって、他の物にはなかった。この事実は活性体はアンモニア水で沈澱し、その過剰には溶けないことを示している。

23. 活性硝酸ウランの別のロットを過剰の炭酸アンモニウムと共に水に溶かした。始めにできる沈澱は再びほとんど完全に溶けるが、あとに少量の淡褐色のフワフワした不溶の沈澱物を残した。これは温めるとアルミナのように固まった。よく洗浄して乾燥し、ガラス・セルにいれた。沈澱のロ液の方は炭酸アンモニウムを蒸発して追い出すと黄色の沈澱が沈下した。これをロ過、洗浄し乾燥してからガラス・セルにいれた。これらの沈澱を 24 時間鉛枠の中において露出した。現像すると、炭酸アンモニウムに溶けない沈澱が濃い黒色の印像をすぐに与えるのに、炭酸アンモニウム溶液 (中崎注: ロ液) から析出させた塩にはほとんど印像が見えなかった。

24. 炭酸アンモニウムに溶けない沈澱の活性が、余りに強かったので別の実験を始め、ここでは感光板に 1 時間だけ作用させた。現像すると印像は 24 時間露出ほどではなかったが黒く出た。そこで 5 分間だけ感光板の上においたところ、これでも作用は明瞭でふつうの硝酸ウランを 24 時間おいたように濃かった。

これらの実験から活性体はウランとは別に存在すると判明した。また感光板の上に薄いガラスまたはセルロイドをおいて、この上に沈澱を載せたままのロ紙を乾燥させておき、重りで押し付けて放置すると、印像はガラス・セルを使ったときと同じくらい短時間に現れた。

25. しかし、放射活性物質は炭酸アンモニウムに全く溶けないわけでもない。ウランから分離した非常に活性の大きな沈澱を希塩酸に溶かし、この上に過剰の炭酸アンモニウムを加えた。沈澱は鉄があるために濃い褐色を呈したが、これを乾燥してからテストした。ロ液の方は煮沸すると炭酸アンモニウムが揮発して少量の沈澱が析出した。これをロ紙の上に集め、

前の沈澱と(中崎注:感光板の上に)並べてテストした。感光板を現像すると、これらの沈澱からの印像はほぼ同じ濃さであった。褐色の沈澱の方はこれを冷却して、ごく希い塩酸で浸出したところ、鉄が他の物より早く溶け出して残渣の色はずっと淡くなった。この色の淡い残渣は鉄を除く前の物と同じ活性を示した。これから鉄の存在はこの物質の活性には影響しないのが分かる。

26. このようにして、いままで考えられたウランとその塩の放射能は、ウラン元素本来の性質ではなくて、異物 (foreign body) (原注 4) の存在によるのだと確実に証明できたので、この異物の性質を忍耐深く研究する必要に迫られた。ピッチブレンドからは数種の放射活性体が抽出され新種と主張されているが、私の新しく発見した UrX がこれら先行の活性物質に近い性質をもっているかどうかを調べるための実験を新しく始めた。

27. まずポロニウムから調べた。薄いセルロイド板を写真感光板の上に載せ、さらにこの上に厚さ 0.05mm アルミニウム箔を載せた。この 2 重層の上にそれぞれ塩基性硝酸ポロニウムと活性 UrX を入れたガラス・セルをおいた。24 時間作用させてから現像した。UrX のあった下に黒い円形印像が見えた。放射線はガラス、セルロイド、アルミニウムを通過したのである。ところが硝酸ポロニウムの下には何の印像も検出できなかった。アルミニウム箔を除いて実験を繰り返し、露出を 2 時間 15 分だけにした。現像すると UrX はよく作用していたが、ポロニウムは作用の痕跡も残さなかった。

28. このポロニウムの行動は奇妙で発表されたところと違う (原注 5)。そこで私は硝酸ポロニウムの少量を薄いゼラチン・カプセルに入れて感光板の上に 8 時間おいたが、現像しても印像の痕跡も見つけれなかった。同じ硝酸ポロニウムを時計皿にいれ、この上に感光面を下に向けた感光板を載せた。こうすると硝酸ポロニウムからの放射線が直接に当たるであろう。感光板の上には鉛板をおいて感光板が時計皿の縁に押し付けられるようにした。24 時間露出してから現像すると強い作用がみられ、硝酸ポロニウムの塊が盛り上がった場所にあたる中央の作用がもっとも強く、縁に行くに従って弱くなった。時計皿の内側に曝された感光板全体に明瞭な作用がみられたのに縁のところでは急になくなった。これらは以前の結果を裏

付けるものである。すなわちポロニウムからの放射線は、ガラス、アルミニウム、鉛を通過できるラジウムや UrX からの物とは性質が違う。

29. ポロニウムと UrX を画然と区別する別の性質はその揮発性である。Curie 夫妻らは最初ピッチブレンドの昇華でポロニウムを得ていた。あとで彼らはこの性質をビスマスとの分離に利用した。硫化ポロニウムと硫化ビスマスは昇華管の別のところに蒸着したのである。放射能の強い UrX 化合物に 1 滴の硫酸を加えてから吹管炎の中で灼熱した。しかし感光板でテストしたところ、この処理で放射能の減少は見られなかった。この実験は温度を上げて数回繰り返したが結果はいつも同じであった。

30. ポロニウムは酸性溶液中で硫化水素で沈澱を与える。ところが UrX の酸性、中性溶液はこの試薬で沈澱を与えない。これから私の UrX はポロニウムでないと言ってよいだろう。

31. 多くの推論から UrX はラジウムでないと考えられるが、これがラジウムでないと結論づけるのは容易ではない。ラジウムの発見者はその化学的性質のいくつかを報告しているが、この多くで UrX とラジウムは全く違っている。たとえば、硫酸ラジウムは水や酸に溶けないが、UrX は希硫酸の中によく溶けて透明溶液を与える。ラジウム塩は硫化アンモニウムやアンモニアで沈澱しないと言われているが、UrX はこの両方で沈澱を与える。

32. スペクトルが問題点に決定的な決着をつけてくれるかも知れないと考えた。それはラジウム、ポロニウムともに私が専門とする紫外部で明確な特有スペクトルを与えるからである。Demarçay 氏は波長 3649.6 と 4826.3 の間のラジウムの主要スペクトル線のリストを発表している（原注 6）。3814.7 が非常に強く、4683.0, 4340.6, 3649.6 の強度がそれに続く。彼は 3814.7 がラジウム含量の少ないところで最初に出てきたと言うのでこれに注目している。しかし私の UrX 化合物のどれにもこの線の痕跡が発見できなかった。しかも私はラジウムを含むと分かっている物でこの線の写真が撮れなかったのである。この原因は私のラジウム化合物がずっと弱い (weak) のにあった。Demarçay 氏はウランより 60 倍活性なラジウム化合物でもこの線がほとんど見えなかったと言っている。私のラジウム化合物は写真感光板への作用から考えて、これよりずっと弱かった



のであろう。

33. ポロニウムでも同じことが言える。ポロニウムで私は紫外領域に強い数本のスペクトル線を認めた。しかし私の UrX 化合物のスペクトルの中には、このどれも発見できなかった。私が検出できた線は次の物質に起因した。

白金 (電極から)

ウラン

カルシウム

アルミニウム

この他に空気からの数本の強い線、および判定困難な多数の弱い線が検出できた。

34. スペクトル実験ではラジウムと UrX との差がつけられなかったので、次にこれらを発光スペクトル・テスト (radiant matter test) にかけたら、なにか情報が得られるかも知れないと考えた。この手法はイットリウム希土類に応用して大いに成果が挙げだったのである。もっとも活性の強い UrX の少量を電極を備えたガラス管にいれて、加熱しながら強く排気した。同時にラジウムのリン光を放つ化合物を真空ガラス管に封入し、これも加熱しながら排気した。完全に排気してからこれらに強い誘導スパーク (induction spark) を飛ばした。UrX 化合物は美しい青色に発光した。分光器ではこの発光スペクトルの中に不連続な線は検出できなかった。同じ誘導スパークでラジウム化合物は明るいバラ色に発光し、分光器では赤—オレンジ領域に光がかたまり、極く弱いレモン色のバンドがあった。これは、おそらく不純物のイットリウムの痕跡による物であろう。

35. 強力なラジウム化合物と UrX 化合物を入れたガラス・セルと、次硝酸ポロニウム (polonium sub-nitrate) を入れた紙皿とを背景の白紙の前に並べた。この前に写真カメラを据え感光板にポロニウム, UrX, ラジウム化合物全部の像が入るようにし、全体を暗室に 5 日間放置した。現像するとラジウムはそのガラス・セルともに写っていたが、ポロニウムの像は痕跡もなかった。これはポロニウムからの放射線がガラスを通過できないという以前からの観察を裏付けるものである。ラジウムと UrX からの放射線はガラスやその他の媒体を自由に通過する (§28)。

36. ピッチブレンドから新しく第 3 の放射活性体の存在が発表された。A. Debierne 氏は「*Comptes Rendus*」誌 1899 年 10 月 16 日号, 1900 年 4 月 2 日号にアクチニウム (Actinium) と名付けたある放射活性体を報告している。始め彼はアクチニウムはチタンの主要な分析的性質を示すと言っていたが, あとで全ての反応でチタンとは似ていないと言っている。Debierne 氏はこの新物質の多くの反応を報告していて, これらがある点ではラジウムに似ていると言う。しかし彼はアクチニウムがまだ十分に濃縮した形で得られていないから, これらの反応が確実にこの新物質による物かどうか確言できない見なしている。むしろ彼はこれらの反応は共沈 (retention) によるものと思うべきだと信じている。たとえば硫酸バリウムに対する酸化鉄のようである。彼はまた自分の得たもっとも活性な物は化学反応やスペクトル分析の結果から, トリウムがその主成分だと言っている。しかしアクチニウムがその全ての反応でトリウムに近いかどうかは確かではないという。

37. そこでトリウム化合物が活性体と不活性体に分離できるかどうかを知るための実験を始めた。硫酸トリウムの濃厚溶液を硫酸で少し酸性にして, 沸点までに徐じょに加熱した。硫酸塩が多量に析出したので, これを熱いうちに口過した。沈澱物は冷水に溶かし, これを再び加熱するとまた硫酸塩が沈澱した。分別結晶と同じように組織的に結晶化の母液を次の結晶に加えるようにし, この操作を数回繰り返したあとで (中崎注: 分離の) 「頭」と「尾」をテストした。これらのフラクションからの溶液の少量を蒸発乾固してから吹管炎で強く灼熱した。この残渣をガラス・セルに入れて 72 時間感光板と作用させた。現像したところ, これらのフラクションからの印像には何らの差も検出できなかった。次に私はウランのところの説明したと同じように (§ 15) 硝酸トリウムの分別結晶を試みた。ここでは硝酸トリウムの濃厚水溶液が数日間も過冷却のままできて, 急に全体が固まるという困難に遭遇した。しかし数週間ののちに, 6 フラクションに分けることができ, その最初と最後の物についてテストした。感光板に 120 時間作用させてから現像すると, 最初の端 (結晶の方) の作用は非常に弱かったが, あとの端 (母液の方) は約 3 倍の濃さの印像を与えた。これはトリウムからでも活性体が分離できることを示すものである。硝酸トリウ

ムをトン単位で製造しているベルリン市 Knöfler 氏のご好意で化学的に純粋だという特製の硝酸トリウムを戴いた。これから作ったトリア (中崎注: 酸化トリウム) は感光板でテストすると, 120 時間で弱い印像しか与えなかった。

38. これらの放射性物質に関する現在のわれわれの知識の段階では, 広い心と言うよりも少し懐疑的な気持ちでいた方が安全であろう。われわれは, これらの物質を主として写真的または電氣的なテストで判別している。これらのテストは非常に鋭敏で, もっとも鋭敏なテストとして知られているスペクトル分析でやっと検出できるほどの微量でも, 放射活性体は大きな値を与える。ふつうの化学物質は其中で沈澱がおこると, 別に自身が難溶性でなくても, とともに沈澱する性質のあることはよく知られているから, UrX は言うにおよばずラジウムもアクチニウムも, あとで分かってみるとその化学性質が似てもつかない元素の真似をするようになるのは驚くに当たらない。たとえば UrX は希硫酸の中によく溶けて, 私の信じるところによると可溶性の硫酸塩を与える。ところが塩化バリウムをそれに混ぜて硫酸塩として沈澱させると, 沈澱した硫酸塩および硫酸バリウムの口液の中にも強い放射能がいつも検出されたのである。私の以前の研究の中から同じ例を挙げてみよう。現在はイットリウムとサマリウムとして知られるようになった元素の化学的性質について最初の予想は現実と全くかけ離れていた。この間違いの原因の 1 つは全く現在われわれが直面しているのと同じ妨害によるものであった。それは, ふつうの化学法則からは起こるはずもない, 沈澱と共沈してその中に取り込まれる性質に起因するのである。また極端に鋭敏な発光スペクトル・テストにも原因がある。サマリウムではカルシウムの中の  $2.5 \times 10^6$  分の 1 が検出できるし, イットリウムでは  $10^6$  倍の異物の中に検出できる。

39. また, これらの放射活性体のラジオグラフによるテストでは, 別の事情も留意する必要がある。すなわち写真法以外による元素の存否に関するテストは瞬間に反応するかしないかのどちらかであって, テストの真偽を疑う争点のマージンは比較的狭い。

しかし写真法は積算的 (cumulative) である。望遠鏡で見えないほど暗い星の写真を撮るのに天文学者は充分長い露出を与えればよい。現像する

と星が現れる。同じように放射性鉍物，沈澱では 1 時間で作用がなくても，24 時間では作用があるかも知れない。1 日の露出で何も出なかったら 1 週間続けければよい。私のもっとも活性な UrX 化合物はスペクトルに現れるほどの新元素 (real matter) は含んでいないかも知れないが，写真感光板の上では 5 分間で強い印象を与えるほどに強力である。それなら 1 時間，1 日，1 週間してやっと作用が現れるこの化合物の中の新元素の含量はどんなに小さいのであろうか？

#### 原 注

(原注 1) M. and Mme Curie, *Comptes Rendus*, vol. 127, p. 175; *Chem. News*, vol. 78, p. 49, July 29, 1898.

(原注 2) M. and Mme Curie and M. Bémont, *Comptes Rendus*, vol. 127, p. 1215; *Chem. News*, vol. 79, p. 1, January 3, 1899.

(原注 3) 図版 5 の説明。

第 1 図. ピッチブレンドの磨いた面の昼光写真

第 2 図. 同じ面を暗所で撮ったラジオグラフ (radiograph)。放射線を出している部分 (白色) を示している (中崎注: 陽画)。明るいところはピッチブレンドで，暗いところは長石，水晶，黄鉄鉍などである (85 を見よ)。

(原注 4) 分かりやすくするために，この新物質に名前が必要である。もっと確実になるまで，私はウランの中の未知物質という意味で，仮に UrX と名付けようと思う。

(原注 5) 「ポロニウム化合物からの放射線はシアノ白金酸バリウムを発光させる。」「実験にあたっては，この活性物質の上に極めて薄いアルミニウム板をおき，この上にシアノ白金酸バリウムの薄い層をおく；暗所でこの活性物質の上のシアノ白金酸バリウムは弱く発光する。」(M. and Mme. Curie and M. Bémont, *Comptes Rendus*, vol. 127, p. 1215; *Chem. News*, vol. 79, p. 1) 「ポロニウム線は感光板に作用する。われわれが硫化ポロニウムと名付けた物質は 3 分間だけでよい印象を与えた。30 秒でも明らかな反応がある。」(Mme. Curie, *Revue Générale des Sci.*, January 30, 1899; *Chem. News.*, vol. 79, p. 77) この同じ報告の中で著者たちはポロニウム化合物のリン光を励起する能力を説明したあとで次のように言う。「この物質からの放射線はアルミニウムを通過したあと，この上においたシアノ白金酸バリウムリン光を励起したのである。」以上の引用からポロニウム放射線はアルミニウム，ガラス，セルロイドの薄板で全くは止められないのだと考えて当然であろう。

(原注 6) *Comptes Rendus*, vol. 124, p. 716; *Chem. News*, vol. 80, p. 259.

## 付 録 6

「ウランの放射性について」

Sur la radio-activité de l'uranium

Henri Becquerel, *Compt. rend.*, **133**, 977-80 (1901)

私はウランおよびその各種の塩から出る自然発生的で恒久的な放射線について報告しておいたが、そのあとである条件のもとでは、これらの物質からの放射能は不変ではないことが判明した。中でも Giesel 氏はある処理をするとウランの標品は活性が弱くなると言っているし、W. Crookes 卿は分別結晶によって不活性な硝酸ウラン (nitrate d'urane) を得ている。

私も 1900 年に Debierne 氏の手法で行った実験で同じ経験をしたことを思い出した (原注 1)。活性溶液の中である不活性の硫酸塩を沈澱させると、沈澱と共に活性物質が取り込まれるのである。少量の塩化バリウムを含む塩化ウラン (chlorure d'uranium) の実験で、バリウムを硫酸塩として沈澱させると、沈澱物は強く放射活性であり、ウランとバリウムのある比ではウランよりずっと活性にすることができた。このとき口液から回収したウラン塩は弱くなっていた。18 回操作を繰り返して私は非常に弱い活性しか持たないウラン塩を得た。生成物が次第に弱くなって行くのは検電器または薄いガラスを隔てた写真印像によって測った。写真での効果は検電器での効果より速く減衰するようである。

サンプルは全て活性の大きな塩化物または酸化物で保存した。W. Crookes 卿およびここで説明した私の観察から、ウランの活性はおそらく少量の非常に活性の強い化合物によるもので、ウラン自身は不活性であるかも知れないと考えてもよいようである。そうは言っても市販のある 1 つのウラン塩の放射能は、その産地およびあとの処理のいかんに係わらず同じである。これを考えに入れると上記の仮説は少しありそうでなくなる。

もしウラン塩の活性が実際に減少しているのだとすると、それは時間が経つにつれて元の放射能を取りもどすのだと考えねばならない。これがそうに違いないと考えさせる別に理由がある。

放射活性物質には Curie 夫妻と Debierne 氏によって詳しく研究された誘導放射性 (radioactivité induite) という現象がある。この効果は放射活性の混合物および不活性の混合物の中でも同じように発生するに違いない

から、誘導が働くと混合物の活性はかなりのあいだ自然に増大し、ある極大に達するに違いない。そのうえ放射化されたバリウム (baryum radifère) 沈澱は沈澱させられてから、ある時間その活性がかなり増大するのが知られている。以上のような予想はウランについても実験で確かめられた。18 ヶ月まえに作られた放射能が減少しているサンプルについて実験してみると、予想したようにこれらのサンプルの全てはほとんど同じ活性になっているのが分かった。これらの比較は検電器で絶縁体に電荷を通させる速度で測るか、薄いガラスをとおしてゼラチン臭化銀感光板に写真露出させて測った。このように失われた放射能は自然に復活していたのである。これと反対に以前はウランより活性であったはずの硫酸バリウムの沈澱は完全に不活性になっていた。活性あるいは誘導された物質の特性であるこの放射能の消失はバリウムが本来ウランに備わった恒久的の活性部分を取り込んでいなかった事を示している。このことは、もともとウランに備わっている活性の存在を強く証拠づけるものであるが、以上の操作では分離できなかつた他の非常に活性の物質とウランが強く結び付いていないと証明した訳ではない。ではどんなメカニズムでこの一時的に減少した放射能が復活したのであろうか？

ある種の自己誘導 (auto-induction) 仮説が活性、不活性の混合また、ときにはその化合物にまで適用できるかも知れない。しかし、これが純粋な物質で起こると言うなら、これは一種の原子転換 (transformation moléculaire) に他ならない。

これまでわれわれを導き、また観察された事実の多くと矛盾しないような次の仮説を紹介するのも興味なくはないだろう。私はすでにあるアイデアを表明している。曲げられる (中崎注: 磁場で) 陰極線と同じ放射線が、X線によく似た曲げられない放射線の放射を引き起こすのなら、この自然発生的な放射は匂い物質の蒸発に較べられると言うのである。放射性現象はこのよく知られた現象に類似してくる。このとき発散するエネルギーは活性物質その物からくるが、この時の重量の減少は余りに小さくて観測にかからないであろう。

J. J. Thomson のある仮説によると粒子 (particules) には大きさの違う 2 種類があり、一方は他方の千分の 1 ほどである。発生するとき小さい方

は負の電荷を持ち、物体を通過できるほどの莫大な速度をもっている。大きい方の粒子は電解イオンほどの重さで、ずっと小さい速度で動き物体を通過できないし、ある種の気体のように振舞う。電氣的に正の物以外の上に沈着し、この沈着した物質で例の誘導放射能という現象の説明がつくかも知れないし、いろんな固体の上の放射誘導体の本性の説明ができるかも知れない。この沈着物がこんどはさらに、ガラスを通過できるより小さな粒子に分裂して、放射誘導に見られる曲げられる、曲げられない放射線を与えるのであろう。この原子分裂 (subdivision moléculaire) によって誘導放射能はガラス壁をとおして拡散していく。

またある種の放射物質が溶解すると、その誘導能が増大するのを説明するのに、溶液の中で分子の一部からイオンが発生する現象で説明してよいかも知れない。しかし誘導放射を引き起こすエマネーション (émanation) をふつうの気体と較べることはできない。Curie 氏の実験によると密閉容器の中の活性物質と器壁の誘導物の間の平衡は活性物質の量の関数であって、蒸気圧と比較できるような現象ではないからである。

この覚書を終わるに当たって、私は最後に液体空気の温度で行った次の実験に触れておきたい。私はウランの放射能はこの温度でなんら変化を受けないと結論しておいた (原注 2)。このとき手に入れた少量の液体空気が底をついたので、この結論の正しさを積極的に支持できなかったが、私の同僚 d'Arsonval の好意でまた液体空気が載けて、この欠を補うことができた。前の覚書で説明したように検電器で測定すると、0.1mm アルミニウム板を通過するウラン放射線の強度は、液体空気の温度でも 0.01 弱減少した以外は常温とほとんど変わりが無いのを観察した。この差は実験誤差による物であろう。すでに説明しておいたように、冷えたウランの周りの空気が放射線のより吸収されやすい部分を止めるのかも知れない。

#### 原 注

(原注 1) *Comptes rendus*, vol. 130, p. 1584; vol. 131, p. 137.

(原注 2) *Comptes rendus*, vol. 133, p. 199.

## 付 録 7

## 「放射性物質について」

## Sur les corps radio-actifs

P. Curie & Mme. Curie, *Compt. rend.*, **134**, 85-87 (1902)

最近の覚書の中で Becquerel 氏は放射能現象の本質について、いくつかの仮説を公表した。次にわれわれは、これまで自分たちの研究を導いてきたアイデアについて述べようと思う。どんな物理学研究においても欠かせない仮説を、その極めて一般的な形で開陳しておくのも意義あることだと思う。

われわれは自分たちの研究の最初から放射能を物質の原子的性質 (propriété atomique) だと考えてきた。この仮説は放射性元素の研究方法を築くものとして充分である (原注1)。

放射性物質のそれぞれの原子は1つのエネルギーの恒久的源泉 (source constante d'énergie) としての役割をもつ。放射性物質がどこからそのエネルギーを獲得するのかについて正確に規定しなくても、この仮説からわれわれは実験で確かめることのできるいろんな事実を導くことができる。ウラン、トリウム、ラジウムそれにおそらくポロニウムについても、これらの放射性物質を元と同じ化学的、物理的状态にもどしてやれば、その放射能は厳密に元と同じであり、この放射能は時間と共に変化しないと言うのは多年にわたるわれわれの実験から確かめられた (原注2)。

ある種の実験を誤って解釈すると、ラジウムの放射能は部分的に失われると考えかねない。すなわち放射化された塩 (sel radifère) を溶かしてから乾燥状態にもどすと、その放射能はかなり減少するのが知られている。しかし実験の条件によって長かったり短かったりするが (たとえば20日後)、次第にその放射能は元にもどるのである。また同じように放射化された塩を長く赤熱し、これを室温にもどすと放射能は赤熱の前より少なくなっている。しかし、これも次第に自然にもとの活性にもどる (たとえば10日後)。この2つの場合、放射能の一時的減少は主として透過性放射線についてである。ラジウム塩は赤熱すると誘導放射を引き起こす能力の大部分を失うが、溶液状態を通過させてやるだけでこの性質は復活する。しかし、この問題についてはまだ多くの研究をしなければならない。われわ



これは放射能現象で生成するエネルギーの量について何も知らないし、それがどんな法則にしたがって発生するのか、またそれが放射性物質の物理的、化学的状态で変化するのも知らない。この放射能エネルギーの起原について正確に理解しようと思えば、いろんな推測が可能であるが、次の2つの極めて一般的な仮説に纏められるであろう。(1) 放射性原子はその発生するエネルギーをポテンシャル・エネルギーとして保持している。(2) 放射性原子はある「メカニズム」であって、その出すエネルギーを外界からその度に引き出すのである。

始めの仮説によると放射性物質のポテンシャル・エネルギーはしまいに枯渇してしまうはずである。しかし多年にわたる経験から現在までのところ変化はないと分かっている。もし、たとえば Crookes や J. J. Thomson に従って陰極線からの放射線が物質 (matériel) だとすると、放射性原子は変換 (transformation, 中崎注: 原子変換) の途中だと見なさねばならない。これを証明するための現在までの実験は否定的な結果しか与えていない。4 ヶ月しても活性物質の重さに変化はないし、そのスペクトルにも変化は観測されていないのである。

Perrin 氏と Becquerel 氏の理論は同じく原子変換説 (transformation atomique) である (原注 3)。Perrin 氏はそれぞれの原子を惑星系になぞらえて、これから負荷電の粒子が脱出できるとしている。Becquerel 氏は誘導放射能を原子の段階的で全体的な崩壊 (dislocation) として説明している。さて前に述べた第 2 の仮説では放射能物質をエネルギー変換装置 (transformateurs d'énergie) と見なすのである。エネルギーは Carnot 原理に逆らって、外部媒体の熱を借入れ、これはまたその分だけ冷えるであろう。これは (中崎注: 外部媒体) はさらに、未知の源泉たとえばわれわれのまだ知らないある放射線からこれを貰うのかも知れない。われわれは自分を取り巻く外界についてほとんど知るところがないと言ってよいだろう。われわれの知識は直接的にせよ間接的にせよ自分の感覚を刺激する現象に限られているからである。

未知の現象を研究するに当たってわれわれは、まず極めて一般的な仮説を立て経験の助けを借りて一步一步と前進していく。この組織的なやり方は確実ではあるが必然的に遅い。反対に現象のメカニズムに特定の大胆な

仮説を立てることもできる。この手法はある実験を示唆する役に立ちイメージを使うからより抽象的でない考えを進めるのに役立つ。それと違ってわれわれには、経験と合致する複雑な理論をア priori に考える望みはない。精密な仮説はまず確実に誤りの部分と真実の部分を含んでいる。後者（中崎注：真理の方）があるとすれば、これだけがさらに一般的な命題の一部となり、われわれはいつの日かそれに帰るのである。

### 原 注

(原注1) Mme. Curie, *Revue générale des Sciences*, 1899年1月30日号

(原注2) しかしポロニウムだけは例外である。その放射能は時間と共にゆっくりと減少する。この物質は放射性ビスマスの一種で、これが新物質を含んでいるかはまだ証明されていない。ポロニウムはいろんな点で他の放射性物質と違っている。これは磁場で曲げられる放射線を出さないし、誘導放射も引き起こさない。

(原注3) J. Perrin, *Revue scientifique*, 1901年2月; H. Becquerel, *Comptes rendus*, 1901年12月9日

### 文 献 と 注

〔文献「略号」と番号は(上)に引き続いて使用する〕

- (66) 中崎昌雄「活動写真への道—Muybridge, Marey, Edison」中京大学「教養論叢」第34巻, 第3号(通巻104号) 811 (1993)
- (67) *Compt. rend.*, 122, 74 (1896)
- (68) *Compt. rend.*, 122, 76 (1896)
- (69) *Compt. rend.*, 122, 134 (1896)
- (70) *Compt. rend.*, 122, 150 (1896)
- (71) *Compt. rend.*, 122, 159 (1896)
- (72) 「レントゲン線の歴史」p. 33.
- (73) 「付録1」§12.
- (74) *Revue générale des sciences pures et appliquées*, 7, 52 (1896); O. Lodge, *J. Chem. Soc.*, 101, 2005 (1912) (以下に「ベクレル追悼記」と略す)
- (75) 「ベクレル追悼記」p. 2039; 「DSB」1, 557.
- (76) 「ベクレル追悼記」p. 2040; 「DSB」1, 555.
- (77) 中崎昌雄「重クロム酸ゼラチン法による写真印画と写真印刷」中京大学「教養論叢」第37巻, 第2号(通巻111号) 347 (1995); *Compt. rend.*, 10, 469 (1840)
- (78) 中崎昌雄「初期カラー写真手法の開拓者たち(上)」中京大学「教養論叢」第35巻, 第4号(通巻109号) (以下に中崎「初期カラー写真(上)」と略す) 1048

(1994)

- (79) 中崎昌雄「Hermann W. Vogel と増感色素の発見—パンクロ乾板への道」中京大学「教養論叢」第33巻, 第3号(通巻100号) 569 (1992)
- (80) *Compt. rend.*, **79**, 185 (1874)
- (81) 「ベクレル追悼記」 p. 2033; 「DSB」 **1**, 558.
- (82) 「DSB」 **3**, 503; キュリー夫人著, 渡辺訳「ピエル・キュリー伝」白水社, 昭和17年10月.
- (83) ロマー「放射能」 pp. 117-23.
- (84) 「ベクレル追悼記」 p. 2034.
- (85) *Compt. rend.*, **122**, 312 (1896)
- (86) *Compt. rend.*, **122**, 385 (1896)
- (87) 「ベクレル追悼記」 p. 2036.
- (88) *Compt. rend.*, **75**, 296 (1872)
- (89) 「ベクレル追悼記」 p. 2036.
- (90) 中崎「初期カラー写真(上)」 p. 1053; 「DSB」 **8**, 387.
- (91) 和訳: 古典叢書「放射能」 p. 39; 英訳: ロマー「放射能」 p. 8.
- (92) 「ベクレル追悼記」 p. 2042.
- (93) 和訳: 古典叢書「放射能」 p. 43; 英訳: ロマー「放射能」 p. 10.
- (94) 中崎昌雄「現存する世界最初の『写真』—Niépce ヘリオグラフとその『左右問題』」中京大学「教養論叢」第28巻, 第1号(通巻78号) 1 (1987)
- (95) 中崎昌雄「F. S. Archer『コロジオン法』発表(1851年)をめぐって—新しいガラス写真時代の始まり」中京大学「教養論叢」第30巻, 第1号(通巻86号) 8 (1989)
- (96) 中崎「初期カラー写真(上)」 p. 1048.
- (97) 中崎昌雄「Talbot『写真印刷』発明と晩年の研究—動力, アッシリア学, 植物学, 数学, 天文学」中京大学「教養論叢」第31巻, 第4号(通巻93号) 1545 (1991)
- (98) *Compt. rend.*, **65**, 505 (1867)
- (99) *Compt. rend.*, **122**, 559 (1896)
- (100) *Compt. rend.*, **122**, 689 (1896); 英訳: ロマー「放射能」 p. 13.
- (101) *Compt. rend.*, **122**, 762 (1896)
- (102) *Compt. rend.*, **122**, 1086 (1896); 和訳: 古典叢書「放射能」 p. 50; 英訳: ロマー「放射能」 p. 19.
- (103) 「DSB」 **9**, 450; W. Ramsay, *J. Chem. Soc.*, **101**, 477 (1912)
- (104) *Compt. rend.*, **122**, 1088 (1896)
- (105) エーヴ・キュリー著, 川口, 河盛, 杉, 本田訳「キュリー夫人伝」白水社, 昭和13年10月; 「DSB」 **3**, 497.
- (106) R. Reid, *Marie Curie* (Mentor Book) New American Library Inc., New York,

- 1975, p. 39.
- (107) *Compt. rend.*, **126**, 1101 (1898); 和訳: 古典叢書「放射能」p. 55; 英訳: Alfred Romer, *Radiochemistry and the Discovery of Isotopes* (Classics of Science Ser., vol. 6) (以下にロマー「放射化学」と略す) Dover Pub. Inc., New York, 1970, p. 65.
- (108) *Ann. Phys.*, (3) **65**, 141 (1898); *Compt. rend.*, **126**, 1264 (1898)
- (109) *Compt. rend.*, **127**, 175 (1898); 和訳: 古典叢書「放射能」p. 59; 英訳: ロマー「放射化学」p. 68.
- (110) *Compt. rend.*, **127**, 1215 (1898); 英訳: ロマー「放射化学」p. 71.
- (111) コットン著, 杉訳「キュリー家の人々」(岩波新書) 岩波書店, 1964年10月, p. 46.
- (112) *Compt. rend.*, **127**, 1218 (1898); 英訳: ロマー「放射化学」p. 74.
- (113) *Compt. rend.*, **135**, 161 (1902)
- (114) *Compt. rend.*, **129**, 593 (1899); **130**, 906 (1900)
- (115) 「DSB」**13**, 362.
- (116) 小山慶太「ケンブリッジの天才科学者たち」(新潮選書) 新潮社, 1995年11月.
- (117) *Phil. Mag.* (5) **42**, 392 (1896); 古典叢書「放射能」p. 1.
- (118) *Phil. Mag.* (5) **43**, 241 (1897)
- (119) *Phil. Mag.* (5) **44**, 422 (1897)
- (120) *Proc. Cambr. Phil. Soc.*, **9**, 401 (1898)
- (121) *Compt. rend.*, **121**, 1130 (1895)
- (122) *Phil. Mag.* (5) **44**, 293 (1897); **46**, 528 (1898); **48**, 547 (1899)
- (123) *Phil. Mag.*, (5), **47**, 1 (1899)
- (124) *Phil. Mag.*, (5) **48**, 360 (1899)
- (125) *Phil. Mag.*, (5) **49**, 1 (1900); ロマー「放射能」p. 25.
- (126) *Phil. Mag.*, (5) **49**, 161 (1900); ロマー「放射能」p. 38.
- (127) *Compt. rend.*, **129**, 714 (1899)
- (128) 「DSB」**12**, 504; 「DNB」**1951-1960**, 904.
- (129) *Proc. Roy. Soc.*, **66**, 409 (1899-1900)
- (130) *J. Chem. Soc.*, **81**, 321 (1902); ロマー「放射能」p. 87.
- (131) ウィークス「元素発見史」p. 750.
- (132) *Compt. rend.*, **133**, 977 (1901)
- (133) *Compt. rend.*, **128**, 771 (1899); **129**, 912, 996 (1899); **130**, 206 (1900)
- (134) *Compt. rend.*, **130**, 1583 (1900); **131**, 137 (1900)
- (135) *Compt. rend.*, **134**, 85 (1902)
- (136) *J. Chem. Soc.*, **81**, 837 (1902); ロマー「放射能」p. 124.
- (137) *J. Chem. Soc.*, **81**, 860 (1902)

- (138) *Phil. Mag.*, (6) 4, 370 (1902)
- (139) *Phil. Mag.*, (6) 4, 569 (1902); 和訳: 古典叢書「放射能」p. 101; §9のみ再録: ロマー「放射能」p. 149.
- (140) *Phil. Mag.*, (6) 5, 177 (1903)
- (141) *Phil. Mag.*, (6) 5, 441 (1903)
- (142) *Phil. Mag.*, (6) 5, 445 (1903)
- (143) *Phil. Mag.*, (6) 5, 561 (1903)
- (144) *Phil. Mag.*, (6) 5, 576 (1903); ロマー「放射能」p. 167; 和訳: 古典叢書「放射能」p. 123.
- (145) *Compt. rend.*, 136, 673 (1903); 英訳: ロマー「放射能」p. 167; 和訳: 古典叢書「放射能」p. 143.
- (146) *Nature*, 68, 206 (1903); ロマー「放射能」p. 171.
- (147) *Phil. Trans. Roy. Soc., A*, 204, 169 (1905); ロマー「放射能」p. 175.
- (148) 「ラザフォード伝」p. 110.
- (149) ハーン著, 山崎訳「オットー・ハーン自伝」(以下に「オットー・ハーン自伝」と略す) みすず書房, 1977年9月.
- (150) *Phil. Mag.*, (6) 12, 348 (1906)
- (151) *Phil. Mag.*, (6) 17, 281 (1909)
- (152) *Chem. News*, 87, 241 (1903)
- (153) *Proc. Roy. Soc., A*, 82, 495 (1909); 和訳: 物理学史研究刊行会編「原子模型」(物理学古典叢書, 第9巻)(以下に古典叢書「原子模型」と略す) 東海大学出版会, 1970年7月, p. 49.
- (154) *Phil. Mag.*, (6) 7, 237 (1904); (6) 11, 769 (1904); 和訳: 物理学史研究刊行会編「原子構造論」(物理学古典叢書, 第10巻)(以下に古典叢書「原子構造論」と略す) 東海大学出版会, 1969年3月, p. 31.
- (155) *Phil. Mag.*, (6) 21, 669 (1911); 古典叢書「原子模型」p. 95.
- (156) *Phil. Mag.*, (6) 7, 445 (1904); 和訳: 古典叢書「原子構造論」p. 29.
- (157) *Phil. Mag.*, (6) 24, 453 (1912)
- (158) *Ann. Phys.*, 38, 473 (1912)
- (159) *Ann. Phys.*, 41, 971 (1913); 和訳: 化学の原典「構造化学」p. 1.
- (160) *Phys. Z.*, 14, 1075 (1913)
- (161) 「DSB」8, 50.
- (162) G. M. Caroe, *William Henry Bragg, Man and Scientist*, Cambridge Univ. Press, 1978; G. M. キャロー著, 山科・山科訳「ウィリアム・ヘンリー・ブラッグ」アグネ社, 1985年4月.
- (163) *Proc. Camb. Phil. Soc.*, 17, Part 1, 43 (1912)
- (164) *Proc. Roy. Soc., A*, 88, 428 (1913); 和訳: 化学の原典「構造化学」p. 13.
- (165) *Proc. Tokyo Math.-Phys. Soc.*, 7, 60 (1913)

- (166) *Nature*, **73**, 365 (1906); *Phil. Mag.*, (6) **17**, 739 (1909); **21**, 270 (1911); **22**, 396 (1911)
- (167) ヤッフエ著, 竹内訳「モーズリーと周期律」(現代の科学, 第48巻) 河出書房新社, 1972年4月.
- (168) *Phil. Mag.*, (6) **26**, 210 (1913)
- (169) *Phil. Mag.*, (6) **26**, 1 (1913); 和訳: 古典叢書「原子構造論」p. 161.
- (170) *Ann. Phys.*, (4) **4**, 553, 564 (1901)
- (171) *Ann. Phys.*, (4) **17**, 132 (1905); (4) **20**, 199 (1906)
- (172) *Phil. Mag.*, (6) **26**, 476 (1903)
- (173) *Phil. Mag.*, (6) **26**, 857 (1903)
- (174) *Phil. Mag.*, (6) **26**, 1025 (1903); 和訳: 古典叢書「原子模型」p. 145; 日本化学会編「化学の原典」第8巻「元素の周期系」(以下に化学の原典「元素の周期系」と略す) 東京大学出版会, 1976年6月, p. 77.
- (175) *Phil. Mag.*, (6) **27**, 703 (1914); 和訳: 古典叢書「原子模型」p. 156; 化学の原典「元素の周期系」p. 89.
- (176) *Chem. News*, **107**, 49 (1913) (1月31日)
- (177) *Chem. News*, **107**, 97 (1913) (2月28日); ロマー「放射化学」p. 219; 古典叢書「放射能」p. 173; *Chem. News*, **107**, 168 (1913); 古典叢書「放射能」p. 191.
- (178) *Phys. Z.*, **14**, 131 (1913); ロマー「放射化学」p. 198; *Phys. Z.*, **14**, 136 (1913); ロマー「放射化学」p. 207.
- (179) *Nature*, **92**, 399 (1913-14)
- (180) *Phil. Mag.*, (6) **27**, 824 (1914)
- (181) *Phil. Mag.*, (6) **37**, 537, 562, 571, 581 (1919)
- (182) *Nature*, **137**, 1021 (1936); **138**, 958 (1936); **139**, 62, 77 (1937)
- (183) コクセター「幾何学入門」明治図書, 1965年9月, pp. 17, 339; H. S. M. Coxeter, *Introduction to Geometry*, John Wiley & Sons, New York, 1969, pp. 15, 92.
- (184) 「オットー・ハーン自伝」p. 83.