

核データニュース通巻 100 号記念

原子力開発史上の核データこぼれ話

深井 佑造

はじめに

戦後日本の原子力開発は、いわゆる中曽根議員提案による昭和 29 年度政府予算執行から始まった。この予算執行の具体的作業であった「原子炉設計の基礎研究委員会」には筆者も参加したが、そこでは、戦前・戦中の日本での原子力研究情報は全く語られる事はなかった。かように、原子力に関する知識や情報は、全部と言っても言い過ぎでない程、米国等の戦後の原子力先進国からの導入に依存していた。現在でも、日本の原子力研究者の大部分は、戦前・戦中の時期の日本の原子力開発研究の歴史的発展については多分無知であろう。筆者は、一昨年 7 月号の原子力学会誌と、本年 6 月号の同誌「談話室」欄に、日本を含めた“中性子連鎖反応実現”のための研究開発史を発表した。これらの研究史の調査の過程では、当然、核データに関係深い情報や文献も多数見かけた。そこで、これらの資料をまとめ、日本人の研究実績を含めて、次に示した三つの独立した話を述べる事にする。特に、日本人の研究実績としては、理化学研究所（以降、理研と呼ぶ）の仁科芳雄、矢崎為一、江副博雄、木村健二郎、井川正雄の 5 名連名（以降、理研グループと呼ぶ）の研究発表が多い。なお、この拙文では敬称を省略する。

第 1 話 ^{239}Pu 発見史上での Segré の失敗

第 2 話 最重要核種 ^{235}U の核データが開示になるまで

第 3 話 理研グループは ^{232}Th 高速核分裂を発見し損なう



第1話 ^{239}Pu 発見史上での Segré の失敗

この拙文を読まれる方は研究者が多いと思われる。研究者であった筆者の経験では、自己の研究結果を振り返って見ると、「失敗した」とか「間違った」と反省する場合がある。多分、同じような思いを持っている方もあると考えられる。偉大な業績と評価された研究者の E.Segré にも、研究上で「考え違い」があったとしても別に驚く事ではなく、むしろ、「彼も人であった」という安心感を覚えるであろう。ここでは、この Segré を中心として ^{239}Pu の存在の確認と特性が確立するまでの歴史を述べる。

1.1 初めに Segré は人工放射性元素の生成実験に参加

Segré は 1905 年 2 月にイタリアで生まれ、Rome 大学物理学科で学位を得た後、同大学物理研究所で E.Fermi を中心とした E.Amaldi、O.D'Agostino、F.Rasetti の研究グループに参加して、Ra-Be 源から放出される中性子を各種の安定元素に照射し、人工放射性元素生成の実験に従事した。この Fermi グループは実験の成果をまとめて、*Proceeding of the Royal Society of London A* 誌、1934 年 9 月 1 日号に発表した。従来の荷電粒子を使用した I.Curie、F.Joliot や J.D.Cockcroft らの人工放射性元素生成の実験では、原子番号 15 までの約 10 個の元素のみ放射化されるに過ぎなかったのに反して、彼達の論文では、中性子照射で重い元素を含めて約 40~60 個の核種を放射化する事が出来た、と主張している。U への中性子照射で得られた被放射化資料内で、半減期 23 分で β 崩壊する物質は U と全く同じ化学的性質を持つ事が分かったので、これを ^{239}U であると解釈した事は ^{239}Pu 発見への初めの第一歩であった。又、半減期 10 秒、40 秒、13 分、約 1.5 時間の放射性元素が得られたと報告している。この内、半減期 13 分の放射性元素は原子番号 86 から 92 の如何なる元素にも化学的に同定する事が出来ず、原子番号 92 を超えた“超ウラン元素”であろうと述べている。日本の研究者：理研の皆川理は日本数学物理学学会誌、昭和 14 (1939) 年 12 月号に、この Fermi グループの研究結果について、次のように書いている。

即ち U が中性子を捕獲した後 β 崩壊が 2 度以上続き、結局 $Z \geq 94$ なる新元素が生ずるものと考へる事は前に述べた (筆者注：Fermi グループの主張) 様な核変換の考えから当時極めて明かな様に思はれた。

又、この皆川論文の別の箇所にも、次のように述べられている。

自然放射性元素の崩壊に於ては β 崩壊を 2 度続けた後には必ず α 崩壊に対して不安定となり、 α 粒子を放出して崩壊する事が一般に認められて居る……

1938 年末に、O.Hahn、F.Strassmann によって中性子照射による ^{235}U の核分裂反応が発見されるまでは、当時は未確認ではあったが、 ^{238}U の中性子捕獲後には β 崩壊により 93 元素や 94 元素が生成する事は関係研究者の間では何となく受け入れられていた。Hahn-Strassmann は、U への中性子照射後の放射化された物質が、初めは Ra の同位体と考えてキャリアの Ba を加えて化学処理を行った。こうした分別結晶法の結果、Ra の同位体と考える事は出来ず、この放射性物質が Ba そのものである事を明確にした。これが ^{235}U の核分裂反応の発見であった。皆川も核分裂発見後各所で実施された実験の結果を整理して、日本数学物理学会誌、昭和 15 (1940) 年 7 月号に、U の核分裂反応の直接生成物(Fission Product: FP)として、 β 崩壊の半減期 14 分の放射性 Ba と 3 時間の ^{88}Kr を挙げている。この半減期 14 分の放射性 Ba が Fermi グループによって“超ウラン元素”と「間違っ」推定された物質であると思われる。Fermi グループには Segré が属していたから、Segré も Fermi と共に自己の研究結果の間違いに気付いたと考えられる。

1.2 McMillan の実験結果に対する Segré の誤った解釈

核分裂反応が発見されると、世界中の関係研究者間では U や Th の核分裂反応についての研究に関心が集中し、1940 年中で約 100 件以上の論文が各研究機関で発表された。核分裂反応で約 200 MeV の核エネルギーが解放され、そのエネルギーの大部分は FP の運動エネルギーとして現れる事が予想された。このエネルギー値を測定するために、種々の方法が提案された。この内、California 大学 Radiation 研究所 E.McMillan が Physical Review 誌、1939 年 3 月 1 日号に発表した方法が以後の議論に関連して重要である。彼は紙に UO_3 を塗布して薄い層を作り、その両面に幾層もの薄い Al 箔を密接して置き、この資料にサイクロトロンで加速した D イオンと Li との核反応で発生した中性子を照射し、Al 箔を剥して照射 2 時間後の各層の放射能を測定した。Al 自体の中性子照射による放射能をバックグラウンドとして照射 Al 箔が持っている放射能値から差し引くと、U の核分裂反応により UO_3 層から反跳して Al 箔中で止まって集積した FP による放射能値が得られる。この放射能値の空間分布から FP の飛翔エネルギー、即ち、運動エネルギー値が求められる。ここで、 UO_3 層が極めて薄いために、核分裂で生成した全ての FP は UO_3 層から飛び出したと考えられる。こうして、化学処理をする事なく照射 U から FP を取り除く事が出来る。これは、日本原子力研究所で戦後に計画され、後に中止された“平均質炉”開発の基本概念であった。

しかし、ここでの問題は、全ての FP が飛び出して無くなったと考えられた UO_3 層も放射能を持っている、という点である。McMillan は、その放射能の半減期は約 25 分と 2 日であり、U 自体が天然に持っている α 放射能よりも非常に強いので、半減期約 25 分

を持つ物質は、既に知られている ^{239}U であると考えた。しかし、半減期約 2 日を持つ物質については明確に述べてない。そして、 UO_3 層から飛び出した FP とは異なる物質ではないかと予想していたようである。

既に、1938 年にイタリアから米国に移住して、McMillan と同じ Radiation 研究所で研究に従事していた Segré は、McMillan の発表の約 3 ヶ月後の Physical Review 誌、1939 年 6 月 1 日号に、McMillan の実験で照射された U の非反跳部分に残留した放射性物質の内の約 2 日の半減期を持つ物質は、半減期 23 分を持つ ^{239}U の娘核でない事を主張した。まず、半減期 23 分を持つ物質の崩壊を長時間観察しても約 2 日の半減期を持つ物質は生成しなかったと述べている。次に、この長い半減期の物質の化学性質を確認するために、McMillan の実験と同様にサイクロトロンを使用した中性子をウラン酸アンモニウムを塗布した薄い層に照射して、非反跳部分を酢酸処理した溶液から、生成した ^{239}U と残留した U を取り除き、残った溶液に Pa、Th、Ac が含まれていない事を化学的に確認した。最後の Ac 検出の工程では La をキャリアとして加えた沈澱物から 2.3 日の半減期を持つ放射性物質を得たので、これは La よりも重い希土類元素の FP であろうと推定した。この実験の方法では重い FP の飛程は短くなるので、照射 U の非反跳部分に残ってしまったと説明している。一方、 ^{239}U は崩壊して 93 元素を生成する筈である。従って、93 元素の α 崩壊時の α 粒子が検出されるのであろうが、測定出来なかったので、これは長半減期の α 崩壊元素であると考えた。この研究での Segré の結論は、半減期 23 分を持った U は長半減期の 93 元素に崩壊し“超ウラン元素”としては未だ観測されていない、という文章で結ばれている。これは、1934 年 9 月に Fermi と共に下した結論とは全く反する考えで、現在、La よりも重い希土類元素で 2.3 日程度の半減期を持つ α や β 崩壊の放射性物質の存在は確認出来ない。即ち、この Segré の研究の結果は「間違っ」たのである。所が、たった 6 日遅れで Physical Review 誌に投稿されて、この Segré の論文の次に掲載されている MIT の化学科の J.W.Irvine も全く独立に同様の結果を発表している。ここでも Segré の化学分析法と同じように、 ^{239}U が崩壊して 93 元素が生成すると予想して 93 元素と化学的に同族と予測された Re をキャリアとして加えて得た沈澱物の放射能を測定したところ、全く放射能が検出出来なかった。そこで、Irvine は、もし 93 元素が β 崩壊すると仮定すると、その半減期は 1 分以下か 7 時間以上である、と結論している。

以上のように、2 名の研究者が同時期に ^{239}U の β 崩壊以降の“超ウラン元素”を独立して否定する同様の結果を見て、この時期の研究の進展状況を昭和 15 年 7 月号の日本数学物理学会誌に皆川は次のように書いている。

尚 McMillan は極めて薄い U の層を用ひ、全ての核分裂粒子が U の層から逃げ

る得る様にして中性子の衝撃を行ひ、生ずる放射性物質の中 U の isotope の 23 min の半減期を持つ者、及半減期 2.3 days の者のみが recoil product として U の層の外に出ない事を示し、Segré はこの長い半減期の者は rare earth の性質を持つ事、及それが 23 min の半減期を持つものの放射壊変物質即ち Dauter substance (筆者注：Dauter は daughter の事であろう) でない事を示している。

更に、最後の第 5 節の(g)超ウラン元素の項にも、次のように述べている。

Segré、Irvine 等によって研究されているが超ウラン元素に帰せられる activity は今日見出されていない。

昭和 15 年 7 月号の日本数学物理学会誌に引用されている文献について、皆川・玉木の調査は昭和 15 (1940)年初頭までの範囲であると考えられる。そこで、 ^{239}Pu 発見への研究の道筋が 1939 年半ばから 1940 年の早い時期に、Segré の極めて自信に満ちた断定的な論文によって断ち切られたように見えるが、この空白の時期にも ^{239}Pu 発見への研究の努力は続けられたと思われる。それは、L.A.Turner の Physical Review 誌、1940 年 6 月 1 日号の論文に見られる。この論文は 3 月 29 日に投稿されたものであるから、断定的な Segré の発表から少なくとも数カ月は経過しているので、Turner は彼の結果を肯定していないと考えられる。Turner は “The Missing Heavy Nuclei” という題目で、地球の地殻に存在する重い核種の生成の由来を議論している。天然 U 中の ^{235}U と ^{238}U の存在比を、地球生成後の太古に強い中性子の雨が降り注いだ時期があり、その際に、 ^{238}U が多量の中性子を吸収して、

Those captured by U^{238} from U^{239} which emit beta-particles to give EkaRe²³⁹. ...
... this also is probably beta-active and produces EkaOs²³⁹ which would be expected to emit alpha-particles to give U^{235} .

と述べている。ここでは、当時は未だ ^{239}Np と ^{239}Pu は発見されていなかったもので、文中の “EkaRe²³⁹” は前者、“EkaOs²³⁹” は後者の元素を指していると考えてよい。筆者は地殻での元素の生成理由についての知識には乏しいが、Turner が主張している「太古の強い中性子の雨」については理解し難い。しかし、これによって Segré や Irvine の研究が発表された後でも、彼らの結論は関係研究者に完全に受け入れられてはいなかった事が分かるであろう。

このような研究の状況にあつて、理研グループはサイクロトロンを使用して D イオンを加速して、LiD 反応により発生した高速中性子を U_3O_8 に照射する実験を始め、得られた結果を Physical Review 誌、1940 年 6 月 15 日号に発表した。彼らの論文の結論に、「半減期 23 分の U の場合のように」という表現と共に、Segré の ^{239}U の β 崩壊以降の“超ウラン元素”の生成を自信に満ちて否定した Physical Review 誌、1939 年 6 月 1 日号を引用している事から、彼らの高速中性子の U_3O_8 への照射実験が、この問題の解決を意図

したものである事が想像出来る。しかし、その結論が

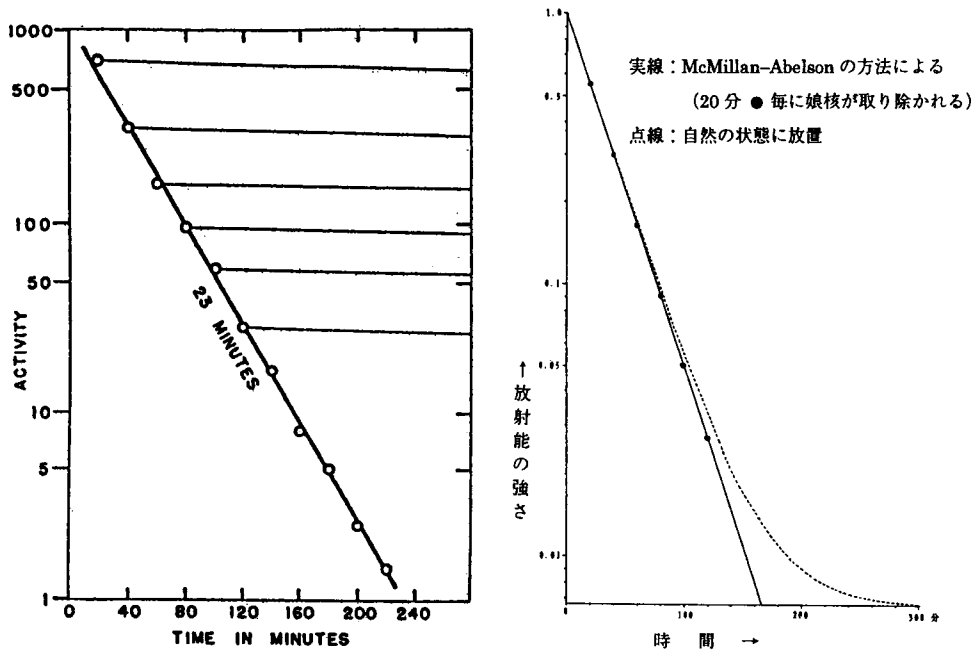
6.5 day uranium decays also into a very long-lived 93 element.

という事であるから、McMillan の Physical Review 誌、1939 年 3 月 1 日号で問題になった 2.3 日の半減期を持つ放射性物質に、更に 6.5 日の半減期の 93 元素の存在が加わる事になり、むしろ問題は複雑になってしまったという状況になった。

1.3 McMillan による問題の解決 — Segré への反論

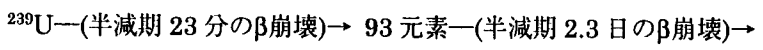
McMillan は Carnegie Institution of Washington から移って来た P.H. Abelson と共に、この問題の解決に乗り出した。先ず、 $(\text{NH}_4)_2\text{U}_2\text{O}_7$ の薄い層にコロジオンの層を密着した資料にサイクロトロンからの中性を照射した。2.3 日の半減期の放射能はコロジオンには全く認められず、 $(\text{NH}_4)_2\text{U}_2\text{O}_7$ にのみ存在した。即ち、U の核分裂により反跳した FP を含むコロジオンには 2.3 日の半減期の放射能はなかった。次に、Cd で被覆した薄い U と被覆のない U を同時に中性子照射した。FP から生じた放射能は、この U 資料には大きな相違があったが、半減期 23 分と 2.3 日の放射能の比は 2 つの U 資料については殆ど差はなかった。これは 23 分と 2.3 日の半減期の放射能が ^{238}U の中性子吸収という同じ源から発生する事を示している。Abelson は Washington での実験でも 2.3 日半減期の放射性物質が希土類元素ではないという研究結果を得ていたが、更に、この Berkeley でも McMillan と共同して、照射された U の薄い層から 2.3 日半減期の放射性物質を精製して取り出して化学的性質を検討した。それが酸化剤の中では弗化水素では沈澱しない等の化学処理によって希土類元素ではないと分かった。McMillan が前回発表した 1939 年 3 月 1 日号では、照射 U の非反跳部分の放射能が 23 分と 2.3 日の半減期を示した事を報告しているので、化学的に同定されている半減期 23 分の ^{239}U のみを照射 U の非反跳部分から抽出する事は容易であり、これを弗化水素で溶解して SO_2 を飽和するまで加えてナトリウム酢酸ウラニルを作る。作られた直後は 2.3 日半減期の放射性物質は含んでいない（これが化学的には U 元素でない事は分かっている）。この溶液に 20 分毎に 6 回、毎回ごとに同量の Ce を加えて生成した沈澱物を、ろ過して溶液から取り除き、元の溶液の放射能を測定すると、その崩壊曲線は次頁の左図のように綺麗な 23 分の半減期の曲線を示した。これは、 ^{239}U の β 崩壊により 2.3 日半減期の 93 元素が生成した事を証明した結果で、Ce を加えて生成した沈澱物が 2.3 日半減期の 93 元素に相当し、これが取り除かれた残りの溶液は 23 分の半減期の綺麗な崩壊曲線を示したのである。

筆者は、23 分半減期の先行核から 2.3 日半減期の娘核が生成するとして放射能の強さの減衰の様子を計算した。次頁の右図に結果を掲げたが、この図の点線が照射 U の非反跳部分を自然の状態で放置した場合の放射能である。この点線の初期の曲がり具合から 23 分半減期、約 200 分を経過した後の曲がり具合から 2.3 日半減期が読み取れる。そし



て、McMillan-Abelson の実験のように、20 分毎に、その時点で生成した娘核の全量を 6 回取り除いた場合の放射能の強さの減衰の様子を計算した結果を、同じ右図に実線で示した。この実線が左図の実験による 23 分の半減期の綺麗な崩壊曲線に相当し、全く同じ結果を示した。こうした計算によっても、 ^{239}U の β 崩壊により 2.3 日半減期の 93 元素が生成した事が確認出来る。

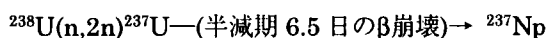
かようにして、McMillan は 2.3 日半減期の放射性物質が La よりも重い希土類元素の FP と断定した Segré の結論を覆して、 ^{239}Pu 発見へ向かっての



という崩壊系列の一部を確立した。そして、McMillan は化学的に同定出来た 93 元素を、太陽系の天王星：Uranus の外側にある海王星：Neptune から neptunium：Np と命名した。Np を発見した McMillan-Abelson の研究は Physical Review 誌、1940 年 6 月 15 日号に発表されている。

所が、この McMillan-Abelson の Physical Review 誌の論文の 3 頁前には、理研グループの U への高速中性子照射から生成した 6.5 日の半減期の 93 元素の存在を示唆した発表がある。理研グループが論文を Physical Review 誌に投稿したのが 5 月 3 日で、McMillan-Abelson の投稿日が 5 月 27 日であるから、McMillan は理研グループの研究

内容を知らなかった。しかし、McMillan としては 2.3 日の半減期の 93 元素を解明した以上、6.5 日の半減期の 93 元素についても解明せざるを得なかったと考えられる。ここで、McMillan は D イオンを 16 MeV に加速して Be に衝突発生した中性子を U に照射した所、化学処理するまでもなく照射後 U から半減期 7.0 ± 0.2 日の放射能が観察された。照射直後の化学処理では 23 分と 2.3 日の半減期の放射能が、照射後 2~3 時間の処理では 7 日の減衰のみが見られた。又、8 MeV の D イオンで実験をすると、半減期 7 日の放射能は観察されなかった。これらの結果から照射済み U の半減期 7 日の放射能は高速中性子照射によるものと推定された。入射する中性子と U 資料の間にパラフィンと Cd を用いて、熱中性子を遮断すると半減期 7 日の放射能のみが得られた。この McMillan の研究結果は *Physical Review* 誌、1940 年 7 月 15 日号に発表された。こうして、理研グループは、



の発見者として原子核研究の歴史に残る事になった。勿論、理研グループは自身の実験が ^{238}U の (n,2n) 反応である事を理解していた。この反応は 6.18 MeV のしきい値を持ち、それ以上の高速エネルギー中性子照射によってのみ生起するので、Segré の 8 MeV しか加速しない D イオン照射実験では、しきい値以上の高速エネルギー中性子照射にならないので、その照射済み U 資料には半減期 6.5 日の放射能は発生しなかった。

1.4 McMillan の転出と Segré の復帰

その後、McMillan は“超ウラン元素”の研究に G.T.Seaborg、J.W.Kennedy、A.C.Wahl の協力を求めた。1940 年半ば過ぎからの研究はサイクロトロンで D イオンを加速して直接 U_3O_8 に照射する実験が主になり、得られた新元素は約 2 日の半減期を持った放射性物質であった。従って、この際の反応は $^{238}\text{U}(d,2n)^{238}\text{Np}$ 、 $^{235}\text{U}(d,n)^{236}\text{Np}$ 、 $^{235}\text{U}(d,2n)^{235}\text{Np}$ の可能性があった。この内、 ^{238}Np のみが約 2 日の半減期で β 崩壊をする。そして、この半減期を持った放射性核種の 93 元素の娘核は α 放射体であり、この α 放射体は U と Np から化学分離された ^{238}Pu であった。この研究は、同じ表題を持つ“Radioactive Element 94 from Deutrons on Uranium”として、*Physical Review* 誌に 1941 年 1 月 28 日と 3 月 7 日に投稿された。この 2 件の論文の内、3 月 7 日投稿の論文の著者には McMillan の名はない。それは 1940 年 12 月始めに McMillan は MIT で研究されていた国防研究委員会のマイクロ波の仕事へ転出したからである。3 月 7 日投稿の研究は、この α 放射体元素の化学同定法を具体的に述べた内容で *ultramicrochemical method* と言われて、Seaborg により確立された。そして、Seaborg は、海王星：Neptune から更に外側にあ

る太陽系惑星冥王星：Pluto から、この 94 元素を plutonium：Pu と命名したと後に述べている。但し、1941 年 1 月 28 日と 3 月 7 日に投稿された論文は戦時下の自主的な発表保留に従っていて、戦後の 1946 年 4 月 1 日-15 日合併号に公表されている。かように、最初に Pu として化学的に同定されたのは、 ^{238}Pu であって ^{239}Pu ではない。

McMillan と同じ Radiation 研究所に所属していた Segré は、この時期には Seaborg との共同で U と Th の高速核分裂による FP 生成を研究し、理研グループの研究結果の追試等を Physical Review 誌、1941 年 1 月 15 日号に発表している。そして、1941 年初めには再び“超ウラン元素”の研究に戻った。この復帰の動機と経緯については、次節に詳細に述べる事にして、1941 年 5 月 29 日に Physical Review 誌に投稿された ^{239}Pu を直接化学的に確認した Kennedy-Seaborg-Segré-Wahl の研究について述べよう。彼らの研究の目的は ^{239}Pu の熱中性子による核分裂反応の確認であった。全重量 1.2 Kg の硝酸ウラニルを大きなパラフィン塊中に分散配置し、これをサイクロトロン of Be ターゲットの後方に密接して置き、約 1.2 μA 、16 MeV の D イオンを 2 日間連続して Be ターゲットに照射して発生した中性子により ^{238}U (硝酸ウラニルを構成している) から ^{239}Np の生成を最初に意図した。生成した ^{239}Np は前述した McMillan-Abelson の方法により照射済み硝酸ウラニルから化学抽出された。そして、 ^{239}Np の崩壊による ^{239}Pu の生成を待ち、Seaborg-Wahl-Kennedy の ultramicrochemical method (1941 年 3 月 7 日の投稿論文) で、 ^{239}Np に混合している α 放射体が Pu 元素である事を化学的に同定した。こうして、この物質が ^{239}Pu である事が明かにされたので、 $^{239}\text{U} \rightarrow ^{239}\text{Np} \rightarrow ^{239}\text{Pu}$ の全崩壊系列が完全に解明された事になる。更に、この実験で得られた微量の ^{239}Pu と天然 U の ^{235}U とをサイクロトロンを使用して得られた中性子を十分に減速させて照射して核分裂率を比較する事によって、熱中性子による ^{239}Pu の核分裂反応は ^{235}U の場合よりも大きい事を見出した。前と同様に、勿論、この論文は戦後の同誌、1946 年 10 月 1 日-15 日合併号に公表されている。

1.5 Fermi の思惑と ^{239}Pu の大量入手への道

^{239}Pu 発見は Manhattan Project の開発目標設定に重大な影響を与えた。米国の原爆開発史は前節までに参考にしたような公表学術文献から調査する事が出来ない、当時の軍事上の機密として非公開であった特別の資料に依存せざるを得ない。日本では、東京工業大学山崎正勝教授のグループの昭和 59~61 年度文部省科学研究費補助金による開発史研究がある。その一部である拓殖大学日野川静枝教授の「原爆開発初期におけるプルトニウム爆弾構想の推移」から必要な点を、この節では簡単に紹介する。

この時期、Fermi は L.Szilard と共に Columbia 大学と国防研究委員会との契約に従っ

て、天然 U 黒鉛系による連鎖反応実現の研究に従事していた。1940 年 12 月、その Fermi のもとに Segré が訪ねて来て、将来の研究についての議論が行われ、天然 U による連鎖反応が実現すれば、多量の ^{239}Pu の入手が可能になるという点で意見が一致した。直ちに Fermi は ^{239}Pu の特性研究を Segré に勧めた。Segré とすれば、単独では研究する事が出来ないので、12 月 16 日、Segré は Columbia 大学で同大学の G.B.Pegram、Radiation 研究所所長 E.O.Lawrence と Fermi の 4 人の会合で、この研究の合意を得て、Radiation 研究所に戻り、1941 年初頭に Seaborg らと共に ^{239}Pu の研究に従事した。1941 年 6 月末に、Radiation 研究所と科学研究開発局との間の研究契約が正式に成立した。Radiation 研究所では、5 月 29 日に ^{239}Pu の熱中性子核分裂断面積が ^{235}U の 1.7 倍、高速中性子核分裂断面積が 3.4 倍であるという成果を得た。成果は Lawrence によって、A.H.Compton が長であったアカデミー委員会に逐一報告され、同委員会の 7 月 11 日付の報告書には Pu 爆弾の開発構想が明確に示される事になった。この構想を受けて 1941 年 12 月 9 日、国防研究委員会委員長 J.B.Conant、科学研究開発局局長 V.Bush と Compton の非公式会談で、国家プロジェクトに Pu 爆弾開発を取り入れ、その一環として Columbia 大学で進行中の天然 U による連鎖反応研究をも組み込む方策を決定した。こうして、翌日には Pu 研究の責任者は Lawrence から Compton に移った。そして、連鎖反応研究を将来の動力源とする構想は放棄され、この研究は Pu 爆弾開発の前段階の研究に位置付けられ、これと U 爆弾を開発する 2 つの路線が設定された。1942 年 6 月 17 日に Bush-Conant は、大統領に原爆開発の現状を報告すると同時に、この開発への軍の本格的な関与の決定を迫った。大統領の認可が得られて、6 月 18 日、技術本部長の J.C.Marshall 大佐は、本部内に新組織 Manhattan Project を設置し、9 月 17 日 L.R.Groves 准将が責任者に任命された。Groves は Pu 爆弾をより有望な兵器と考え、この開発に注力する事にし、Columbia 大学の Fermi らを Chicago 大学の Compton が所長であった冶金研究所に移し、天然 U 黒鉛減速の連鎖反応系：CP-1 の建設が開始され、12 月 2 日、世界で初めての連鎖反応に成功した。

1.6 この話のおわりに

前節に述べたように、Fermi は自分が世界で始めて成功させた CP-1 の開発目標が Pu 生産のための研究用の中性子源である事を明確に理解していた。Columbia 大学と国防研究委員会との契約による天然 U 黒鉛系の連鎖反応実現のための自分の研究が、1941 年 11 月 1 日に期限切れになる事を知っており、しかも、この期間 1941 年 8 月には自分の手で建設した Columbia pile の k_{∞} が 0.89 を達成するという成果を挙げていた点から考えると、自分が手掛けている連鎖反応研究を更に続けたいと希望していたとしても不思議

ではないであろう。従って、1940年12月のSegréとの議論は極めて有効で、Segréに ^{239}Pu の特性研究を積極的に勧めたに違いない。連鎖反応実現のための研究目的がFermiと全く対照的なのが、W.Heisenbergの指導で実行された独自の原子力開発である。Heisenbergは1947年8月16日号のNature誌に、1940年夏にC.V.von Weizsäckerが ^{238}U の中性子吸収によって最終的に核分裂性を持つ ^{239}Pu が生成する事実を理論的に理解していた事を述べており、(日本でも、 ^{239}Pu の事を当時の核物理関係者は知っていた事を筆者も一昨年7月号の原子力学会誌に指摘しておいた)、独自の天然U重水減速の連鎖反応系の開発は推進用の動力源であり、1942年夏から炉心での熱伝達問題の検討が独海軍の技術専門家との間で実施された事が述べられている。終戦直後の火力発電システムの状況はタービン入口温度が 500°C 以上であった事実と当時の米国のPu生産炉の炉内温度が 200°C を超えていないという技術的経験から、Fermiは自分の手で実現した連鎖反応の応用で発電用動力炉が実現するのは耐熱炉材料開発に長時間を要し、それは1946年からでも、20~30年の年月を必要とする未来の夢であると、1946年5月16日に、Pittsburghで開催されたWestinghouse生誕100年記念講演会で予言している。このFermiの予言が外れた事は、1951年12月20日のEBR-1炉による世界初の原子力発電の成功によっても明らかである。

1951年“超ウラン元素の発見”に対してSeaborgとMcMillanの2名に化学ノーベル賞が贈られた。この話の舞台回しを演じたSegréの名前は、ここには無い。しかし、彼は“超ウラン元素”と全く関係のない“反陽子の発見”に対してO.Chamberlainと共に物理ノーベル賞の栄誉を1959年に受けている。



第2話 最重要核種 ^{235}U の核データが開示になるまで

各種核データの収集・評価・編集・配布等は、当核データ・センターの業務の内容であるから、この業務に関連した歴史は既に周知の事と思うが、ここでは、“素人”の強みで、特別な核種であるUに関して敢えて触れる事を容赦願いたい。

2.1 核データ収集・評価・編集等の歴史的発展上でのUの問題

1932年J.Chadwickが中性子を発見して以降、原子核物理の分野では研究を推進するために、過去に得られた各種の核データ値を知りたいという要請が強くなった。筆者が知る限りでは、この要求に答えた初めの調査はCornell大学のH.A.BetheによりReviews

of Modern Physics 誌、1937年4月号に掲載された論文にある。この論文の表 XXVII に 75 核種の中性子反応断面積が、単位は 10^{-24} cm^2 で、中性子エネルギー：thermal、resonance、fast 別に掲載されている。“barn”という単位は戦時中に防諜の立場から提案されたもので、当時は 10^{-24} cm^2 の使用が普通であった。しかし、ここでは、“barn” = “b” を用いる事にする。表 XXVII には、U (勿論、天然ウラン) の熱中性子に対する全反応断面積として 43 b という現在の 2.6 倍という大きな値が示されている。U の核分裂現象の発見以前で関心が低かったとはいえ、かなりな大きな値である。出典が明らかにされていないので原因は明確ではないが、表 XXVII の注記に「希土類元素の純度が低く、Gd、Sm、Eu 等が不純物として含まれている可能性がある」と書いてあるので、これが原因で高い値を示したのであろう。

戦前・戦中の多くの研究者によって得られた各種元素の中性子反応断面積の収集・編集作業は Chicago 大学の冶金研究所 (世界で初めて成功した連鎖反応装置：CP-1 が設置されていた研究所) で、H.H.Goldsmith、H.W.Ibser によって 1945 年に実施された。成果は Manhattan Project の各所の研究所での原子炉の設計や各種の研究に利用された。彼らの収集・編集の成果は Reviews of Modern Physics 誌、1947年10月号に、“Neutron Cross Section of the Elements A Compilation” という表題で、BNL へ異動した Goldsmith、Wisconsin 大学へ異動した Ibser と MIT の B.T.Feld によって公表された。この文献には U に関連した反応断面積は全く記載されていない。この改訂版が同誌、1950年7月号に、BNL-Wisconsin 大学併任の R.A.Adair によって発表されている。これには U の全反応断面積について中性子エネルギー 30~300 MeV のデータの記載がある。この範囲のエネルギーのデータでは原子炉は勿論原爆の設計にも全く役に立たないであろう。この時期と思われるが、米国 AEC に Neutron Cross Section Advisory Group が設置された。Group は 12 名で構成され 1949 年から BNL に所属していた D.J.Hughes が主査である。Advisory Group による収集・編集の結果は 1952 年 5 月 15 日に AECU-2040 report として公刊された。1952 年 4 月 7 日、米国 AEC は ^{235}U と ^{238}U の熱中性子反応断面積値を正式に公表した。その値を次に示す。

$$^{235}\text{U}; \sigma_a=650 \text{ b}, \sigma_f=549 \text{ b}, \sigma_c=101 \text{ b}, \nu=2.5 \pm 0.1$$

$$^{238}\text{U}; \sigma_a=2.80 \text{ b}.$$

この公表を受けて、AECU-2040 には中性子エネルギーを関数とした U の全反応断面積のデータが掲載されている。この AECU-2040 の改訂第 2 版が有名な BNL-325 Neutron Cross Sections で 1955 年 7 月 1 日に公刊されている。以後、各種元素の中性子反応断面積の収集・評価・編集・公刊の業務は BNL の担当となった。

2.2 ^{235}U の熱中性子核分裂反応断面積値の歴史の変遷

戦前では天然 U から ^{235}U を同位体分離する事は極めて困難であった。即ち、純粹の ^{235}U についての断面積測定は実質的には出来なかった。「 ^{235}U の σ_f は未だ測定されていない」と、日本数学物理学会誌、昭和 14(1939)年 12 月号に玉木英彦は述べている。しかし、一方では低濃縮 ^{235}U を核燃料と想定した連鎖反応体系の計算が行われているので、何らかの評価方法はあったのである。

1938 年 12 月に U 核分裂反応が発見されると間もなく、米国に滞在していた N.Bohr は核分裂反応は天然 U に 0.7%しか含まれない ^{235}U のみに因るという事を 1939 年 2 月 7 日に *Physical Review* 誌に投稿した。この事実を確認するために Minnesota 大学の A.O.Nier と Columbia 大学の E.T.Booth らは、イオン化した天然 U を質量分析器に通す事によって各構成元素を Ni 板に分離して蒸着させ、これらをイオン電離箱の電極として用い、サイクロトロンからの中性をパラフィンで減速させた後に、この電極を照射して核分裂数を計測した。電極資料は 2 組の ^{235}U と ^{238}U の対であったが、明らかに ^{235}U 資料のみに核分裂数が計測された。彼らは、Bohr-Wheeler の核分裂理論に従って測定結果を評価して、 ^{235}U の σ_f 値は 400~500 b になると報告している。この始めて推定した ^{235}U の σ_f 値を掲載しているのは *Physical Review* 誌、1939 年 3 月 15 日号である。

戦前、 ^{235}U の σ_f を評価した文献は、日本数学物理学会誌、昭和 14(1939)年 12 月号の玉木の論文であり、これが目についた唯一の方法である。先ず、玉木は断面積が Breit-Wigner の公式で与えられると仮定する。複合核の準位が密集している核分裂反応の場合には、*Nature* 誌、1939 年 3 月 15 日号の Bohr, R.Peierls, G.Placzek の方法に従って、断面積は Breit-Wigner 式の多数項の加え合わせで計算出来るとして次の式を導いた。

$$\sigma_f = \delta\pi\lambda^2\Gamma_n' \frac{\Gamma_f}{\Gamma} \frac{2\pi}{d}, \quad \delta = 1; i = 0 \quad \delta = 1/2; i > 0$$

ここで、 λ は reduced neutron wave length、 d は準位の間隔、 Γ_n' は玉木によると“残留核が励起されていない様な中性子放出だけに因る partial width”、 i は残留核の角運動量である。玉木は ^{235}U に近い種々の原子核の測定データ等から、 $\Gamma_f/\Gamma \sim 1$ 、 $d \sim 20$ eV、 $\Gamma_n' \sim 10^{-4}$ eV と評価して、 $\sigma_f = 500 \sim 1000$ b と計算した。

この他、根拠は明確ではないが、独では W.Heisenberg が σ_f 値として 400 b を用いて原子炉の計算をしていた事を Operation Epsilon (第二次大戦後、原子力開発に参加した数人の指導的研究者が降伏した独から英国の Cambridge の近くの Farm Hall に移送・収容され、1945 年の 6 月から 12 月にかけて尋問された。その口述の内容をまとめた報

告書)に記載されている。又、1946年10月にMITで開催された原子力セミナーで、R.D.Evansが1941年以前の文献を参照して平均値として、 $\sigma_f = 500 \text{ b}$ であると述べている。

戦前・戦中に最も一般的に考えられた評価法は、 ^{238}U は核分裂は起こさないとして、天然Uの σ_f 値を0.7%で割る方法である。日本数学物理学会誌、昭和15(1940)年7月号に、皆川理は「遅い中性子に対する値は ^{238}U に就いて計算したのであるから、 ^{235}U がeffectiveとすると天然Uの σ_f 値を140倍しなければならぬ」と述べている。京都帝国大学の荒勝文策が昭和20(1945)年7月21日、旧海軍委託「F研究」の第1回会合に提出した資料には、天然Uの σ_f 値を濃縮度で割算する方法を提案している。当時の一般に認められていた天然Uの σ_f 値はColumbia大学のH.L.Anderson、E.T.Booth、J.R.Dunning、E.Fermi、G.N.Glasoe、F.G.Slackによる測定で、Physical Review誌、1939年3月1日号の2b、同誌、1939年5月1日号所載のBooth-Dunning-Slackの3bという測定値があり、日本では昭和20(1945)年6月23日に $2.9 \pm 0.2 \text{ b}$ という測定値を記載した荒勝研究室の非公開の報告書がある。これらを考慮すると、 ^{235}U の σ_f 値は280~420bになる。W.E.Stephensも1945年秋にPennsylvania大学で開催された核分裂についてのセミナーで $420 \pm 100 \text{ b}$ を提案している。

2.3 謎の核種： ^{236}U の存在問題

やや話は変わるが、Princeton大学のL.A.TurnerはPhysical Review誌、1940年1月15日号掲載の論文“The Nonexistence of Transuranic Elements”で、「 ^{236}U が ^{238}U や ^{235}U と同じように安定元素と考えられるのに、この元素が存在しない事に当惑している」と述べている。更に、同誌、1940年6月1日号の“The Missing Heavy Nuclei”では、「一見して、 ^{236}U の非存在は異常なように見える。…… ^{236}U の寿命を 10^5 年とすれば、仮に、 ^{236}U が元々 ^{238}U と同量存在していたと考えると、地殻の岩石の年齢が 2×10^9 年の程度であれば、既に消滅してしまったのであろう」と書いている。現在の知識では、 ^{236}U の α 崩壊の半減期は 2.342×10^7 年で、地球に存在する元素は太陽系が生成した約80億(8×10^9)年前に当時の宇宙空間から集積されたと考えられているので、半減期と太陽系生成の時期との2桁程度の差では、地殻に未だ微量に存在してもよい筈で、Turnerが指摘した理由では地殻内の ^{236}U の非存在性は説明出来ない。唯、ここで言える事は、当時では、 ^{236}U の非存在性は問題になっていたが、その正確な原因は全く解っていなかったという点である。これは、次の問題に関連している。

核分裂が発見されて僅か半年後には、天然Uを用いた連鎖反応系に対する臨界質量を計算する方法がF.Perrinによって提案されている。その後の殆どの臨界計算での中性子

平衡関係の発生項は、U の中性子捕獲の効果を無視して（核分裂反応断面積）＝（吸収反応断面積）としている。熱中性子捕獲反応断面積を無視する事は悪い近似であると現在の知識からは考えられるが、当時は U の熱中性子捕獲反応を正確に把握していなかった。²³⁸U による共鳴中性子吸収反応は実験的にも理解されていて、U の熱中性子捕獲反応は共鳴吸収の延長上にあると考えていた。Science 誌、1947 年 1 月 10 日号所載の E.Fermi が書いた“Elementary Theory of Chain-reacting Pile”には、次のような語句がある。ここでは、小林稔訳の「原子核物理学」から必要な部分を引用する。

熱中性子に対しては共鳴および分裂吸収の両方が重要である。… σ_f および σ_r をエネルギー kT の中性子に対する分裂および共鳴吸収の断面積とし、… ウラニウムに吸収されるすべての熱中性子の中 $\sigma_f/(\sigma_f+\sigma_r)$ の割合だけが分裂を起す。

これは天然 U についての η 値を説明している語句で、明らかに、 σ_r は ²³⁸U による共鳴吸収の延長上にある熱中性子吸収反応のみを想定して、天然 U の構成元素である ²³⁵U の熱中性子の捕獲効果は考慮されていない。これらから、当時は ²³⁵U が熱中性子を捕獲すると γ 線を放出して ²³⁶U 原子核を生成する事を理解していなかったと考えられる。

Turner が探していた ²³⁶U は ²³⁵U の熱中性子捕獲によってのみ入手出来る事が確認されるのは、²³⁵U が天然 U から大量に同位体分離される事が可能になる 1950 年代以降の時代からで、Stephens の 1945 年秋の核分裂についてのセミナーでも ²³⁶U の存在を含めて、その半減期の正しい値の発表はない。²³⁶U についての信頼性のある初めての発表は、ANL の A.Ghiorso、J.W.Brittain、W.M.Manning と California 大学の G.T.Seaborg による Physical Review 誌、1951 年 4 月 2 日号掲載の論文 “The Uranium Isotope U²³⁶” である。この文献によると、1943 年に LASL で R.R.Wilson、D.Williams、E.Segré らが ²³⁵U の熱中性子吸収の際の核分裂反応との競争過程として目に見える程度の捕獲反応があり、その結果 ²³⁶U の生成があり、それが α 崩壊する筈であるという予測を立てていた。この核分裂反応との競争過程として ²³⁶U の生成があるという予測については、日本でも似たような考え方が、それより数年早い時期の日本数学物理学会誌、昭和 15(1940) 年 7 月号に皆川が述べているので、その部分を下に引用する。²³⁵U の熱中性子核分裂反応が起こる物理現象の説明として、

…… 従って遅い中性子の衝撃に依って生ずる励起に対して ²³⁶ は fission probability が radiation probability より大きい事が予期される。

とある。即ち、これは励起した ²³⁶U は必ずしも核分裂へ進むという訳ではないという事を予想していると見る事が出来よう。Wilson-Williams-Segré らの提案を受けて、1944 年 2 月に冶金研究所の H.Anderson、D.Nagle が ²³⁶U から放出されたと考えられる α 粒子の検出を試み、崩壊半減期を測定し下限値として 3×10^6 年を得たが、これは失敗であっ

た。少し後の 1945 年 1 月に、LASL では Williams、P.Yuster が濃縮した ^{235}U を原子炉で照射した資料から質量分析器を用いて ^{236}U を検出した。Ghiorso-Brittain-Manning-Seaborg の論文でも同様に濃縮した ^{235}U を原子炉で照射し、約 3×10^7 年の α 崩壊半減期を得、予期していたように β 崩壊はない事を確認した。続いて、ANL の A.H.Jaffey、A.Hirsch、H.Diamond、J.Mech が Physical Review 誌、1951 年 11 月 15 日号に、現在の確定されている半減期に近い 2.46×10^7 年の測定値を報告している。

かようにして、 ^{236}U の存在が 1950 年代まで確認されなかった理由は、 ^{236}U は決して地殻には存在する事がなく、天然 U からの同位体分離によって得られる ^{235}U を多量の熱中性子で照射する事によってのみ得られるという事実による。更に、 α 崩壊半減期が極めて長いために多量の ^{236}U がなければ、その存在が確認出来なかったという理由がある。

2.4 この話のおわりに

おわりに当たって、 ^{235}U の熱中性子に対する核分裂反応断面積の値を、歴史的に提案された順に、表 1 にまとめた。多くの測定値を基にした信頼性のある現在の値は 500 b を超えている。表から、昔の値は 玉木の計算を除いて 500 b を超える値は殆どない事が分かる。玉木の所属していた理研では連鎖反応を実現しようと意図した計画（即ち、旧陸軍委託「に号研究」）があり、核分裂物質として、米・英・独が天然 U を用いた場合とは異なって、日本では、濃縮した ^{235}U の使用に拘っていた。その理由は、玉木の計算された ^{235}U の高い核分裂断面積値にあったのかも知れない。しかし、この理由は飽くまで筆者の推測であって、現存している資料等により確認された訳ではない。なお、冒頭に述べた戦後日本の最初の臨界計算に対する公式作業「原子炉設計の基礎研究委員会」では、1952 年 4 月 7 日の米国 AEC から開示されたデータを用いている。

表 1 ^{235}U の熱中性子に対する核分裂反応断面積値（単位：barn）

提案者	年代	断面積値	USAEC開示後	断面積値
Nier-Boothら	1939-3-15	400~500	1952-4-7	549
玉木	1939-12	500~1000	現在	585
皆川(荒勝)ら	戦時中	280~420		
Heisenberg	戦時中	400		
Stephens	1945年秋	420±100		
Evans	1946-10	500		

◇ ◆ ◇

第3話 理研グループは²³²Th 高速核分裂を発見し損なう

優れた研究実績を挙げるためには、先進的な実験設備が必要であると考えている研究者は一般には多い。戦前の理研は米国等に比較しても劣ることのない先進的な実験設備であるサイクロトロン（通称：小型、磁極直径 26 インチ）を所有し、世界的にも評価された研究業績を挙げていた。しかし、この Th 高速核分裂の研究に関する限り、当時のありふれた簡単な実験手段であった Ra-Be 中性子源には負けてしまった。

3.1 理研グループが高速中性子による研究を始めた背景

当時の核物理学研究の主な目標は原子核変換にあった。荷電粒子を利用した人工放射性原子核の生成を経て、Ra-Be 中性子源の中性子による核変換時代に入り、しかも Fermi を中心にして、彼らの発見した熱中性子による原子核の容易な放射性捕獲による核変換研究も一段落ついた。次は、当然、高速中性子を原子核に照射して如何なる変換が生ずるのか？、が研究の中心になった。この時代に理研グループが登場する。1930 年に、米国 California 大学の E.O.Lawrence と S.M.Livingston がサイクロトロンを考案し、この装置が高いエネルギーで強い強度を持つ高速中性子源となった。理研では仁科芳雄の指導の下に、磁極直径 26 インチ、23 ton のサイクロトロンが建設され完成し、1938

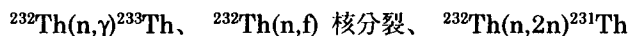
表 2 理研グループの研究成果発表の一覧

発表誌	題目
Nature, 142 , 874(1938)	Artificial Production of Uranium Y from Thorium
Nature, 144 , 547(1939)	Fission of Thorium by Neutrons
Nature, 146 , 24(1940)	Fission Products of Uranium produced by Fast Neutrons
Phys.Rev., 57 , 1182(1940)	Induced β -Activity of Uranium by Fast Neutrons
Phys.Rev., 58 , 660(1940)	Fission Products of Uranium by Fast Neutrons
Phys.Rev., 59 , 323(1941)	Fission Products of Uranium by Fast Neutrons
Phys.Rev., 59 , 677(1941)	Fission Products of Uranium by Fast Neutrons
Z.Phys., 119 , 195(1941)	Fission Products of Uranium by Fast Neutrons

年には 2.6~3.0 MeV、20~50 μ A の D イオン・ビームが定常的に得られるようになった。この特性は Lawrence のサイクロトロンと比較しても遜色がなかった。この小型サイクロトロンを駆使して、理研グループは表 2 に示すように、高速中性子による研究成果を次々に発表している。表 2 に示した論文の内、この話に係するものは上部の 2 件である。

3.2 高速中性子による Th の核変換

1938 年 3 月から、理研グループは小型サイクロトロンを使用して D イオンを 3 MeV に加速して天然 Li ターゲットに衝て、発生した高速中性子を Th に照射し、その核変換を観察した。一般に、種々のエネルギーを持つ中性子を Th に照射すると、現在では、



の 3 種の核反応がある事が分かっているが、当時は、 $^{232}\text{Th}(n,\gamma)^{233}\text{Th}$ 反応のみが既知であった。Nature 誌、1938 年 11 月 12 日号に理研グループは、彼らの核変換研究の結果を発表している。そこでは、異なった半減期を持つ 2 つの放射性物質を観察した事を述べている。1 つは既知であった 26 分の半減期を持つ放射性物質： ^{233}Th で、もう 1 つの半減期は 24.5 時間であった。後者の放射性物質は、U 鉱石に通常見出される ^{235}U の自然 α 崩壊によって生成した ^{231}Th ：当時は UY 元素と呼んでいたが、この 24.6 時間の半減期を持つ放射性物質が生成したと、理研グループは断定した。この研究によって、理研グループは $^{232}\text{Th}(n,2n)^{231}\text{Th}$ の発見者として後世に残る事になった。ここで注意すべきは、この中性子照射実験の結果として、

three isomers of a radium isotope ^{229}Ra (<1 min., 15 min. and about 4 hours).

も観察されたと述べ、これは既に発表された研究結果の追試であると理研グループは考えていた。後に分ったのであるが、これは Th 高速核分裂反応で発生した FP であった。しかし、この時点では理研グループは気付いていなかった。

1938 年 11 月 12 日の理研グループの発表後、僅か 1 ヶ月半後に Meitner-Strassmann-Hahn による U の核分裂反応の発見があった。続いて、Nature 誌、1939 年 2 月 11 日号に、L.Meitner, O.R.Frisch が “Disintegration of Uranium by Neutrons: a New Type of Nuclear Reaction” を発表した。この論文は、理研グループが付加的に観察し、 ^{229}Ra 等と思った放射性物質は FP で、U と同様に Th の核分裂反応が起こったという推測を述べている。その後、連名者の Frisch は実験を直ちに行い、同誌、1939 年 2 月 11 日号の supplement に “Physical Evidence for the Division of Heavy Nuclei under Neutron Bombardment” という論文を、1 週間後に単独で投稿している。ここで、Frisch は「中性子源をパラフィンで囲む事では効果を出せなかった点を除いて、幾分効果は減少したが、Th は U と同じような結果を示した実験であった。…… Th 中に生成される放射性物質についてはパラフィンを使用する事による効果は見い出せなかった点を覚えておくべ

きである」と述べている。即ち、U 核分裂反応は熱中性子によるが、Th 核分裂反応は高速中性子によるものである事を示した。この発表で Th 高速核分裂反応の発見の栄誉は Frisch の手に落ちた。その後、約半年の間に理研グループは、Th 高速核分裂反応に対して小型サイクロトロンによる実験を続けた。同じような研究発表: E. Bretscher, L.G. Cook の Nature 誌、1939 年 4 月 1 日号、及び Meitner の同誌、同年 4 月 15 日号掲載の結果について、理研グループは彼らは核分裂反応の FP について正確な化学的同定を与えていないとして、多くの FP の結果を“Fission of Thorium by Neutron”という題目で、Nature 誌、1939 年 9 月 23 日号に公表している。少し後の話になるが、Physical Review 誌、1941 年 1 月 15 日号には E. Segré, G.T. Seaborg が、Th 高速核分裂反応の FP について、自分達の結果を理研グループの Nature 誌、1939 年 9 月 23 日号の結果と比較しているので、この理研グループの FP 研究も広く認められていたと考えられる。

しかし、理研グループは、1938 年 3 月の以前から Th の核変換について研究し、しかも、核分裂反応の FP と後に考えられた放射能に気付いていたにも拘らず、その観察からは核分裂反応自体には考えが及ばず、先に Frisch に発見された事を悔しく思っている事が、この Nature 誌、1939 年 9 月 23 日号の論文の表題に、わざわざ“Fission of Thorium by Neutron”と名付けた事からも感じられる。それでは、この Nature 誌に述べられた理研グループの反省と悔しさの混じった言い訳を、次に紹介しよう。

我々は放射化した Th から一部の Ba や La を検出していた。Meitner-Strassmann-Hahn が Th の人工放射能の研究で見出し、後に、Hahn-Strassmann や他の研究者が U や Th の FP と同定した原子核の半減期に関する知識の殆ど全てを手に入れていた。勿論、これらの内、一部については我々の実験結果とは正確には一致していなかった。しかし、我々の関心は放射性物質（筆者注：超ウラン元素のような）に向いていたので、キャリアの Bi や Pb と硫化水素によって塩酸溶液から沈澱させるという幾つかの分析法に密接に沿っていたわけではなかった。我々は、この物質の化学的同定に多くの時間を費やした。その化学的特性を突きとめる事は容易ではなかったが、それに関連した核反応を理解する事は更に困難であった。化学的特性から、“超 U 的な元素”か、或いは Bi よりも軽い元素のいずれかが含まれている事を密かに理解をしてはいたが、当時、それらの内のどちらかであるかを容認するのは困難であった。しかしながら、その後、Hahn-Strassmann の核分裂発見があって、少なくとも、この問題の理解は原理的には容易になった。

3.3 この話のおわりに

前節の理研グループの反省と言い訳は、Th 高速核分裂の概念の立証の不幸が自分ら

のグループの放射化学的分析技術の欠如に原因があった事を認めたものである。その後は分析技術の向上に努め、その成果は表 2 に示したように、U 高速核分裂反応の FP に関する数多くの研究発表になって現れたと思う。しかし、Fermi でも核分裂後の FP に気付く事がなく、それらを超 U 元素と置いていたという事実もあるので、この点から理研グループの研究水準を批判すべきではない。むしろ、理研グループを含めて多くの国内外の研究者によって得られた膨大な核データが整理されて、現在、広い範囲のエネルギーを持つ中性子による Th 核変換の詳細な核データ値が得られたと考えるべきである。ここでは、当時では得られていなかった詳細核データ値を利用して理研グループが Th 高速核分裂を発見し損なった理由を再検討して見たい。

広範囲のエネルギー（一応、ここでは 15 MeV 以下とする）を持つ中性子を用いて Th を照射すると、前に示した Th の 3 種の核反応の反応断面積は、ほぼ次のようになる。

$^{232}\text{Th}(n,\gamma)^{233}\text{Th}$: 熱領域では 7.4 b で、ほぼ $1/v$ 則に従い、15 MeV で 1.5 mb となる。

$^{232}\text{Th}(n,f)$ 核分裂 : しきい値は約 1.3 MeV で、1.6~6 MeV の範囲では約 140 mb になり、断面積値は増加し始め、15 MeV で 400 mb となる。

$^{232}\text{Th}(n,2n)^{231}\text{Th}$: しきい値は 6.5 MeV で、6.8~15 MeV の範囲では 1000~2000 mb を示し、11 MeV で 2000 mb の最高値を持つ。

広範囲のエネルギーを持つ中性子による照射済み Th 資料は上の反応の結果、種々の半減期を持つ放射性物質の混合物として関係研究者の手に入る。この資料を化学的に処理・分析して、種々の半減期を解析・検討する事によって、当時の研究者は、如何なる反応が起こったのかについて判断していたと考えられる。

当時は既に ^{233}Th は十分に知られていたから、問題は核分裂と (n,2n) 反応の 2 つに絞られるであろう。一般的に、上に示した反応断面積の入射中性子エネルギー依存性から、照射中性子のエネルギーが高い方にシフトしていれば、(n,2n) 反応の方が核分裂反応よりも大きく現れる筈である。そこで、Frisch と理研グループの場合について、照射中性子のエネルギー・スペクトルを予想して、その照射済み資料の放射能の形態を予想・検討して見る。各種の中性子源のエネルギー・スペクトルを評価するのは、それらの専門家であれば容易な事であるが、この点については筆者は素人で正確・詳細な情報を入手していない。ここの文書は科学史の分野に属するから、正確・詳細なスペクトルを用いた検討は意味がない。そこで、ここでは大雑把なスペクトルを定性的に考える。

(1) Frisch の場合 : Ra-Be 中性子源の中性子は $^9\text{Be}(\alpha,n)^{12}\text{C}$ 反応で発生する。この場合の中性子エネルギーは 5.3 MeV であるが、入射 α 粒子エネルギーが 4.8 MeV を超えると、low-energy neutron continuum と言われる $^9\text{Be}(\alpha,\alpha')^9\text{Be}^* \rightarrow ^9\text{Be} + n$ の反応に

より、約 1 MeV 以下のエネルギーを持つ中性子が発生する (6.7×10^{-17} 秒の短時間で ${}^8\text{Be}$ は 2 個の α 粒子に break up する)。かようにして、Ra-Be 中性子源から発生する多くの中性子は (n,2n) 反応のしきい値以下のエネルギーを持っているから、照射済み資料には 24.5 時間の半減期を持つ ${}^{231}\text{Th}$ が混合する事は少なく、放射能の殆どは FP であったと推定される。そこで、この時期の Frisch の研究環境と照射済み資料の関係は簡単に次表に示せるであろう。

表 3 Frisch の研究環境と照射済み資料の関係

照射核種	パラフィン付き Ba-Be 源(熱中性子)	パラフィン無し Ra-Be 源(高速中性子)
天然 U	FP 生成 \Leftrightarrow ${}^{235}\text{U}$ 核分裂	FP 生成 \Leftrightarrow (${}^{235}\text{U} + {}^{238}\text{U}$) 核分裂
Th	${}^{232}\text{Th}(n,\gamma){}^{233}\text{Th}$ のみ	FP 生成 \Leftrightarrow ${}^{232}\text{Th}$ 核分裂

表の上段は Meitner-Strassmann-Hahn の U 核分裂反応発見の研究環境であり、この研究グループの Meitner の共同研究者である Frisch が上段の成果である FP と殆ど同じ放射性物質を照射済み資料中に見出せば、直ちに Th 高速核分裂であると理解しよう。

- (2) 理研グループの場合：サイクロトロンによる中性子発生は ${}^7\text{Li}(d,n){}^8\text{Be}$ 反応による。この反応は常に基底状態の ${}^8\text{Be}$ にのみ遷移するのではなく、励起した複合核 ${}^8\text{Be}^*$ は基底状態の場合より低いエネルギーの中性子を放出して励起した ${}^8\text{Be}^*$ の状態になり、その後励起した ${}^8\text{Be}^*$ は γ 線を放出し基底状態の ${}^8\text{Be}$ になる場合もある。このように中性子放出は複雑な経路を持っているので、得られる照射中性子のエネルギー・スペクトルを予想する事は難しい。そこで、ここでは簡単に基底状態に遷移する ${}^7\text{Li}(d,n){}^8\text{Be}$ 反応による中性子のエネルギー 13.3 MeV のみを検討対象とする。この照射中性子による Th の核分裂断面積は 0.3 b で、(n,2n) 反応の断面積は 1.6 b であるから、理研グループの場合の照射済み Th 資料の放射能には半減期 24.5 時間を持つ ${}^{231}\text{Th}$ が FP の約 5.3 倍も混在していた事になる。即ち、この事は、理研グループが Th の (n,2n) 反応を発見したのは容易であっても、同時に、高速核分裂概念の立証が出来なかったのは量的には不思議ではなかったという事実、を示している。

科学の目的は“自然の姿”の解明にあると言われている。しかし、“自然”は、必ず

しも科学の持つ先端的な方策によってのみ“本当の姿”を見せるとは限らない。当時では、理研のサイクロトロンは最先端の実験道具であったが、その方法では発見出来ずに、旧式の道具であった Ra-Be 中性子源によってのみ発見された Th の高速核分裂現象は、その典型的な一例であったと筆者は思っている。



ここでの3つの話は研究論文ではないので、気軽に読み飛ばして欲しいと思って書いた。従って、読み辛く無いように文中には参考のための引用文献は省略した。拙文を読まれた方で部分的に詳細な内容を知りたい向きには個別に引用文献をお知らせ致します。

1999-9-1 記