放射性物質の研究

序文

歴史

第 1 章．ウランとトリウムの放射能．放射性鉱物．

ベクレル線

光線の強度の測定

放射性の鉱石

第 2 章 . 新たな放射性物質

研究方法

ポロニウム，ラジウム，アクチニウム

ラジウムのスペクトル

新放射性物質の抽出

ポロニウム

純粋塩化ラジウムの調製

ラジウムの原子量の決定 [37]

ラジウム塩の性質

通常の塩化バリウムの分別

第 3 章 . 新しい放射性物質の放射線

放射線の研究方法

放射線のエネルギー

放射線の複雑な特性

磁場の作用

偏向するβ線

偏向放射線の電荷

ラジウムの偏向β線に対する電場の作用

ラジウムが放出する負電荷を持つ粒子の質量と電荷の関係

α線に対する磁場の作用

その他の放射性物質の放射線に対する磁場の影響

ラジウム放射線における偏向β線の比率

放射性物質の放射線の透過性

ラジウム線の液体誘電体に対する電離作用

放射性物質からの放射線の電離作用の様々な効果と応用

蛍光作用，発光作用

ラジウムによる発熱

新たな放射性物質の化学的作用－着色

ラジウム塩存在下での気体発生

熱ルミネッセンスの発生

放射線写真作用

生理学的作用

ラジウム線に対する温度の影響

第 4 章 . 誘導放射能

放射能の非放射性物質への伝播

閉鎖容器での放射化

誘導放射能現象における気体の役割－エマネーション

非放射性空気中における放射化固体物質の非放射化

閉鎖空間での非放射化．エマネーションの分解速度

エマネーションの性質

放射性液体と放射性溶液の放射能の変化

放射能の理論

誘導放射能のその他の形態

緩徐に進行する誘導放射能

ラジウム溶解にともなって残存する誘導放射能

放射性粉体の拡散と研究室の誘導放射能

放射性物質の作用以外による放射化

放射性物質の放射能のバリエーション．溶解の影響

熱によるラジウム塩の放射能の変化

溶解後，加熱後のラジウム塩の放射能の変動原因に関する理論的な考察

放射能現象の本質と原因

放射性物質の研究

Recherches sur les substances radioactives

Sklodowska Curie. Gauther-Villars, Imprimaeur-Libraire, Paris. 1904

本稿の目的は，著者が 4 年以上にわたって行ってきた放射性物質の研究について報告することにある．まず Becquerel 氏が発見したウランの蛍光の研究から開始した．この研究結果が非常に興味深いものであったことから，Curie 氏がその研究を中断して自分に加わった．そして協力して新たな放射性物質の抽出，その性状の研究を行った．

研究開始当初から，我々が発見，調製した物質の試料を数名の物理学者，特にまずはウラン線の発見者である Becquerel 氏に供与することが必要と考えた．これにより，他の研究者による新物質の研究を支援してきた．我々の初報後，ドイツの Giesel 氏もこの物質の調製を開始し，ドイツの研究者に試料を供与した．これらの物質は，フランス，ドイツでも市販され，このテーマの重要性はさらに増大してひとつの科学的なムーブメントとなり，特に海外で多くの論文が発表され続けている．フランスの様々な研究と海外の研究は，新たな研究テーマの常として必然的に関連するものである．問題点は，日々変化しつつある．

しかし化学的な観点から，一点だけは確実である．すなわち，新しい非常に放射性が強い物質，ラジウムが存在することである．純粋な塩化ラジウムの調製，ならびにその原子量の決定は，著者の個人的な研究の中で最重要な位置を占めている．この研究は，確実に知られている単純物質に非常に奇妙な性状を有する単純物質を加える同時に，新たな化学的研究手段を確立，正当化するものである．この方法は，物質の原子の特性のひとつと考えられる放射能に基づくもので，まさに Curie 氏と著者によるラジウムの存在の発見を可能ならしめたものである．

化学的観点から，我々が当初から投げかけている疑問が解決した暁には，物性の研究は大きな進歩を遂げることになる．いくつかの重要な点は確認されているものの，多くの問題がまだ暫定的な状態にある．これは放射能現象の複雑さ，様々な放射性物質間の差異を考慮すれば当然のことである．この物質を研究している様々な物理学者の研究報告が続々と届いており，これは互いに関連するものである．本研究の目的に沿って自身の研究成果を公表すると同時に，他の研究者の結果も明らかにすることが必要と考える．

また本稿では問題点の現状を包括的に述べることとする．本研究はパリ市立工業物理化学大学 (l'École de Physique et de Chimie industrielles de la Ville de Paris) で Schützenberger 前所長および Lauth 現所長の指導下に行ったものである．ここに同研究所の厚意に深謝するものである．

歴 史

放射能現象の発見は，レントゲン線の燐光物質，蛍光物質に対する写真効果の発見に遡る．初期の X 線管は，金属対陰極を欠くものであった．ここでは陰極線がガラス管に衝突して X 線が発生するが，ガラス壁は強い蛍光を発する．このことから，蛍光の原因が何であれ，Henri Poincaré 氏は X 線の発生は必ずしも蛍光の発生に付随しないのではないかと考えた [1].

その後まもなく，Henry 氏は黒色紙を通して硫化亜鉛の蛍光の撮影成功を報告した [2]．Niewenglowski 氏は同様に，硫化カルシウムを露光してこれに成功した [3]．さらに Troost 氏は黒色紙，厚いボール紙を通して蛍光性の人工六方晶系閃亜鉛鉱を使って明瞭な写真撮影に成功した［4］.

これらの実験は，多くの試行にもかかわらず再現できなかった．従って，硫化亜鉛，硫化カルシウムが露光下に，黒色紙を透過して印画紙を感光する目に見えない放射線を放出しているとはいえない．

Becquerel 氏は，蛍光性のウラン塩で同様の実験を行い [5]，硫酸ウラニルカリウム重塩により黒色紙を通じて写真撮影に成功した．

Becquerel 氏は，この塩は蛍光性であり，Henry, Niewenglowski，Troost 各氏の実験における硫化亜鉛，硫化カルシウムと同様にふるまうと考えた．しかしさらに実験を重ねたところ，この現象は蛍光とは無関係で，必ずしも塩を露光する必要がないことが明らかとなった．さらに，ウランおよびその化合物の中では，蛍光の有無にかかわらず，金属ウランが最も強力であることがわかった．さらに Becquerel 氏は，ウラン化合物を完全な暗所においても，黒色紙を通して写真乾板を何年にもわたって感光しうることを発見した．Becquerel 氏は，ウランとその化合物は，特別な光線，ウラン線を放出していることを認めた．そしてこの光線は，薄い金属スクリーンを透過し，帯電物質を放電することを示した．さらにウラン線は，反射，屈折，偏光することを示した．

他の物理学者 (Elster & Geitel, Kelvin 卿 , Schmidt, Rutherford, Beattie, Smoluchowski の各氏) の研究も Becquerel 氏の研究を確認，進展させている．ただし，反射，屈折，偏光については，まず Rutherford 氏が指

摘し，その後 Becquerel 氏自身も認めているようにレントゲン線と同様にこれを示さない．

第 1 章．ウランとトリウムの放射能．放射性鉱物

ベクレル線

Becquerel 氏が発見したベクレル線 (ウラン線) は，露光なしに写真乾板を感光し，厚くないものであれば固体，液体，気体を透過し，気体を通過する際にはこれを弱く帯電させる [6].

このようなウラン化合物の特性は，既知の励起作用によるものではない．この光線は自発的なものと思われ，数年にわたって完全な暗所に保存されていたウラン化合物でも，その強度が減弱しない．従って，露光による蛍光ではない．

ウラン線の自発性，恒常性は，きわめて特異な物理現象である. Becquerel 氏は, 少量のウランを数年にわたって暗所に保存していたが，写真乾板への作用はこの間全く変化がないとしている．Elster & Geitel 両氏も同様の経験から，作用が恒常性であることを見いだしている [7].

著者は, 光線の空気の導電率に及ぼす作用を利用して，ウラン線の強度を測定した．方法については後述するが，これにより実験精度の範囲，すなわち 2 ～ 3/100 の精度で光線の恒常性を示す結果を得た [8].

この測定には，粉末ウランで被覆した金属板を使用する．金属板を暗所に保管する必要はないことは，前述の観察が示す通りである．過去 5 年間，この方法で非常に多くの測定を行った．また他の物質もウラン化合物と同様の作用を持つかを知るために実験を行った [9]．Schmidt 氏は，トリウムとその化合物が同様の性質を持つことを最初に発表した．著者は同時期に行った同様の研究で同じ結果を得ており，Schmidt 氏の論文 [10] を知らずにこの研究を発表した．ウラン，トリウム，およびその化合物は，ベクレル線を放出するといえる．このような光線を放出する物質を著者は「放射性」(radioactive) と称したが [11]，この名称は以来一般的に使用されている．写真効果，電気的効果については，ベクレル線はレントゲン線に類似している．また，レントゲン線のようにあらゆる物質を透過する．しかしその透過力は著しく異なる．ウラン線，トリウム線は数 mm の固体で阻止され，空気中でも到達距離は数 cm である．少なくとも光線の一部についてはこれが言える．

多くの物理学者，特に Rutherford 氏が，ベクレル線は反射，屈折，偏光しないことを示している [12].

ウラン線，トリウム線の弱透過性は，レントゲン線そのものよりも，Sganac 氏が研究している [13] レントゲン線から発生する二次線を思わせるものである．

一方，ベクレル線は空気中を伝播する陰極線 (レーナルト線) と比較することもできる．現在ではこのような様々な比較がいずれも正しいと考えられている．

光線の強度の測定

放射性物質の作用により空気に付与される導電率を測定する方法である．この方法には，短時間で相互比較できる値が得られる利点がある．使用した装置は，基本的に平行板コンデンサー AB から成る (図 1)．粉末化した放射性物質を電極板 B に載せると，電極間の空気が帯電し，電極 B が高電圧となる．これを小さな蓄電池 P の電極の一方に接続し，他極は接地する．電極 A は，電線 CD により接地電位に維持され，2 枚の電極間に電流が流れる．電極 A の電位は，検電計 E に表示される．C で接地が断たれると，電極 A が充電され，検電計の針が振れる．その速度は電流に比例するので，これを測定できる．

しかし，電極 A の電荷を補償して検電計がゼロを指すような状態で測定することが最適である．ここで問題となる電荷は非常に小さく圧電結晶 Q により補償しうる．Q の一端は電極 A に接続し，他端は接地する．結晶片には，容器 π 上の分銅により所定の張力を加えることができる．所定の電荷を放電するようにこの張力を徐々に大きくしてゆく．このようにして，コンデンサー内の電荷と，結晶により発生する符号が反対の電荷が常に相殺するように調製する [14]．これにより一定時間内にコンデンサー内を流れる電荷の絶対値を測定することができる．測定値は，検電計の感度には依存しない．多くの測定を行った結果，一定の精度で放射能を測定できることが明らかとなった．この値は温度にほとんど依存せず，外気温の変動の影響を受けない．放射性物質の露光も無関係である．コンデンサーを流れる電流は，電極の面積に応じて増大する．コンデンサーと物質が同じなら，電流は電極間の電位，コ

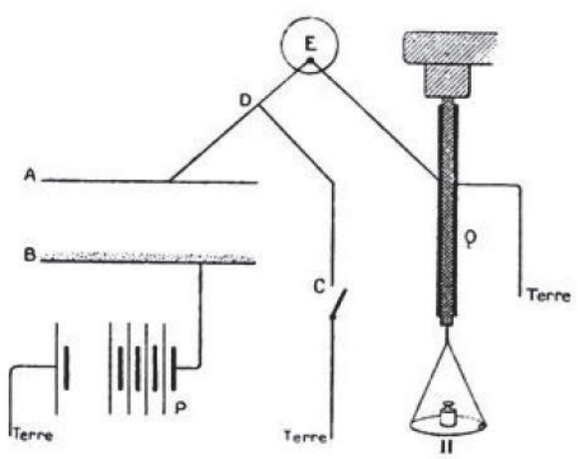

図 1

ンデンサー内のガス圧，電極間距離に応じて (距離が直径に比して一定以上大きくなければ) 増大する．しかし電位差が大きくなると，電流は事実上一定の限界値に近づく．これが飽和電流，あるいは限界電流と言われるものである．同様に，電極からの距離が十分大きくなると，電流は距離に依存しなくなる．本研究における放射能の測定は，大気圧下でこのような条件下で得られた電流値である．

例として，異なる電極間距離に対して電極間の平均電場と電流強度の関係を示す．電極 B は，金属ウラン細粉で覆い，電極 A にはガードリングがついており，検電計に接続されている．

図 2 は，大電位差の下で，電流値が一定になる様子を示す．図 3 は，スケールを変えて電位差の小さい範囲のみを示したもので，立ち上がり部分のグラフは直線で，低電位では電流値と電位差の比が一定であることが分かり，これは初期の電極間のコンダクタンスを表わしている．

このような現象の特性を示す 2 つの重要な定数が存在する．(1) 小電位差に対する初期のコンダクタンス，(2) 大電位差に対する限界電流値．ここで，放射能の測定に利用するのは，限界電流値である．

電極間の電位差に加えて，電極間には接触起電力が存在し，この 2 つの要素によって電流の作用がおこる．従って，電流強度の絶対値は，外部電位差の符号によって変化する．しかし，電位差に対する接触起電力の効果は無視しうることから，電極間の電場の向きによって電流強度は変化しない．

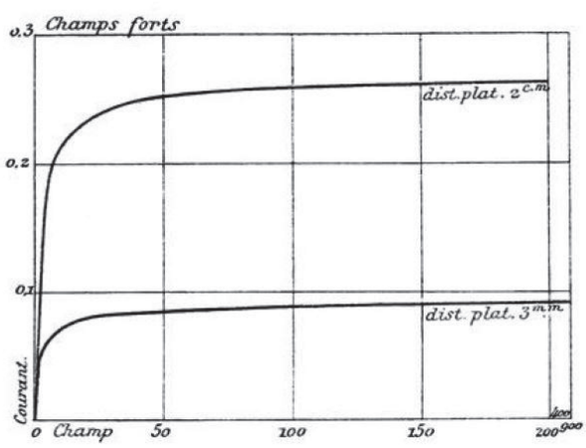

図 2

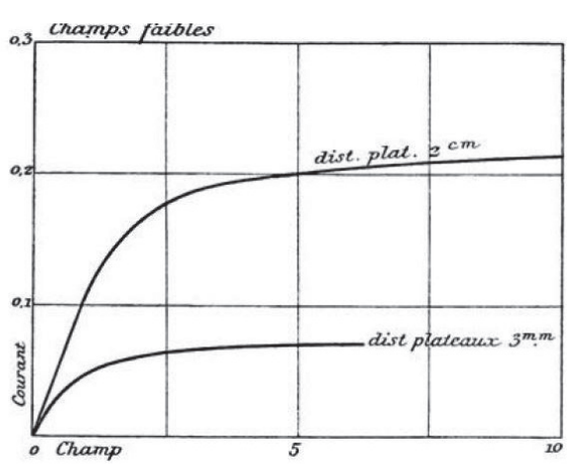

図 3

ベクレル線下の空気その他の気体の導電率については，複数の物理学者が研究があるが [15]，特に Rutherford 氏が非常に完璧な論文を著わしている [16]．

ベクレル線により気体中に生成される導電率の法則は，レントゲン線の場合に同じである．現象の機序は，両者で同じと思われる．レントゲン線，ベクレル線による気体の電離説は，現象を非常に良く説明できる．これについて述べることはせず，ここから得られる単に結果のみを示す．

(1) 気体中で毎秒発生するイオンの数は，気体が吸収する光線のエネルギーに比例する．

(2) 一定の放射線による限界電流値を得るには，まず十分な質量を用意してこの放射線が気体によって完全に吸収されるようにする必要がある．次に，イオンが生成するすべての電流を利用することが必要で，このためには電場を十分強くして，総イオン数に対するイオンの再結合の割合を十分小さくし，大部分のイオンが電流にのって電極に到達するようにする．イオン化が大きいほど，これを達成するために必要な平均電場も大きなものとなる．

最近の Townsend 氏の研究によると，この現象は気体の圧が低い場合，さらに複雑なものとなる．電位差が増すと，電流は初めは限界値に接近する．しかし電位差が一定値になると電流は電場とともに増大しはじめ，急速に非常に大きな値となる．Townsend 氏は，この増加はイオン自体によるあらたな電離によるもので，電場の作用下でイオンの速度が十分大きくなり，気体分子がイオンの衝突で破壊されて新たなイオンに分裂するようになって発生することを認めている．強電場と低圧は，この既存のイオンによる電離を促し，この現象が発生するとただちに，電流値が電極間の平均電場に応じて持続的に上昇するようになる [17]．従って，この限界電流は，イオンの強度が一定値を超えない状態でのみ得られるもので，飽和現象はイオン衝撃による電離が起こらないような電場で見られる．我々の実験はこの条件下で行った．

ウラン化合物で得られる飽和電流は，電極径 8cm，電極間距離 3cm のコンデンサーの場合，10^-11A のオーダーである．トリウム化合物の場合も同程度で，酸化ウラン，酸化トリウムの放射能は非常に類似している．

ウラニウム化合物，トリウム化合物の放射能

様々なウラン化合物で得た数字を示す．i は電流値 (A) である．

	i x 10^{11}
金属ウラン (少量の炭素を含む)	2.3
黒色酸化ウラン U^2O^5	2.6
緑色酸化ウラン U^3O^4	1.8
ウラン酸水和物	0.6
ウラン酸ナトリウム	1.2
ウラン酸カリウム	1.2
ウラン酸アンモニウム	1.3
硫酸ウラン	0.7
硫酸ウラニルカリウム	0.7
アゾ酸ウラニル	0.7
リン酸ウラン銅	0.9
オキシ硫化ウラン	1.2

ウラン化合物の厚さは，層が連続的であればほとんど影響しない．これに関する実験を示す．

	層の厚さ (mm)	i × 10^{11}
酸化ウラン	0.5	2.7
	3.0	3.0
ウラン酸アンモニウム	0.5	1.3
	3.0	1.4

ここから，ウラン線を放出する物質によるウラン線の吸収は非常に強力で，深層から放出される線はほとんど効果がないと結論できる．

トリウム化合物の実験値 [18] も記す．

(1) 層の厚さは，特に酸化物では相応の影響がある．

(2) 現象は，薄い層 (例えば 0.25mm) の場合のみ規則的である．これに対して厚い層 (6mm) の場合，特に酸化物では，数値は大きく振動する．

	層の厚さ (mm)	i × 10^{11}
酸化トリウム	0.25	2.2
	0.5	2.5
	2.5	4.7
	3.0	5.5 (平均値)
	6.0	5.5 (平均値)
硫酸トリウム	0.25	0.8

ここでは，ウラン化合物では見られなかった不規則性が認められる．6mm 厚の酸化トリウム層では，3.7 から 7.3 までの変動があった．ウラン線，トリウム線の実験によると，トリウム線はウラン線よりも透過力が強く，厚い層の酸化トリウムは薄い層よりも透過力が強い．ここに例として，厚さ 0.01mm のアルミニウム箔に対する透過率を示す．

ウラン化合物については，吸収はいずれも同じであり，このことから様々な化合物が放出する光線は同じと思われる [20]．

放射性物資		箔を透過する光線の割合
ウラン		0.18
酸化ウラン U^2O^5		0.20
ウラン酸アンモニウム		0.20
リン酸ウラン銅		0.20
	厚さ (mm)	
酸化トリウム	0.25	0.38
	0.5	0.47
	3.0	0.70
	6.0	0.70
硫酸トリウム	0.25	0.38

トリウム線の特異性については，非常に詳しい論文が発表されている．Owens 氏は [19]，電流が一定になるのは，十分長時間閉鎖した装置の場合のみで，電流強度は気流によって大きく減少すること (ウラン化合物ではこの現象はおこらない) を示した．Rutherford 氏も同様の実験を行い，トリウムとその化合物は，ベクレル線だけでなく非常に微細な粒子からなる放射線を出し，これは放出後一定時間放射性をもち，その後気流により流出すると考えている．層の厚さの影響，気流の作用などトリウム線の特性は，誘起される放射能とその近接伝播に密接に関係している．この現象は，最初にラジウムで観察されたもので，これについては後述する．

ウラン化合物，トリウム化合物の放射能は，原子の特性と思われる．Becquerel 氏は既にすべてのウラン化合物が放射性であることを見いだし，その放射能はウラン元素の存在によると結論している．またウランはその塩よりも放射性が高いことを示した [21]．著者は，ウラン化合物，トリウム化合物の観点から，様々な条件下で非常に多くの放射能測定を行った．その結果は，これらの物質の放射能は実際に原子の特性であることを示すものである．ここでは 2 つの元素の原子の存在に関連していると思われ，物理的状態の変化，化学変化によって破壊されるものではない．ウラン，トリウムをふくむ化合物，混合物は，これらの金属の比率が高いほど放射能が強く，不活性成分は不活性物質，光線の吸収物質として作用する．

原子の放射能は一般的な現象か？

前述のように，著者はウラン，トリウムの化合物以外の物質も放射性をもつかを調べた．著者は，原子の特性と考えられる放射能が，全ての物質ではなく特定の物質に備わっているということは非常に考えにくいという考えで研究を進めた．測定の結果，実際に検討した化学元素については，非常に稀なもの，仮説的なものも含め，著者の使用した測器ではいずれも金属ウランに比して 100 倍も放射能が弱いことがわかった．普遍的な元素については，数個の化合物を，稀な元素については入手しうる化合物について検討した．

元素あるいは化合物として検討した一部を示す．

(1) 容易に入手できる，あるいはやや稀な純粋な金属，類金属は，パリ市物理化学学校の Etard 氏の所蔵のものである．

(2) 以下の稀な元素：ガリウム，ゲルマニウム，ネオジム，プラセオジウム，ニオブ，スカンディウム，ガドリニウム，エルビウム，サマリウム，ルビジウム (Demarçay 氏より試料借用)，イットリウム，イッテルビウム，新しいエルビウム (Urbain 氏より試料借用) [22].

(3) 非常に多くの岩石，鉱物

測器の感度限界内で，ウラン，トリウム以外に原子の放射能を有する単純物質を発見出来なかった．リンについては，多少の付言が必要である．湿性の白リンをコンデンサーの電極間におくと，空気が導電性となる [23]．しかし，これはウランやトリウム化合物の実験のような放射性とは考えない．リンは実際にはこの条件下で酸化し, 光線を放出するが, ウランとトリウムは, 化学に変化することなく放射性である．さらにリンは，赤リンの状態でも化合物でも，放射性はもたない．

最近，Bloch 氏は，リンは空気存在下で酸化作用により，ほとんど可動性のないイオンを産生し，空気を導電性とし，水蒸気を凝結することを示した [24].

最近の研究では，放射能はすべての物質に非常に微弱なレベルで存在することを示している [25]．この放射能を伴う非常に微弱な現象の本態は未解明である．

ウランとトリウムは，最も大きな原子量 (240, 232) をもつ元素である．両者しばしば同じ鉱石中に存在する．

放射性の鉱石

著者は自分の測器で多くの鉱石を試験した [26]．あるものは放射性で，特にピッチブレンド (瀝青ウラン鉱)，カルコライト (リン酸ウラン銅鉱)，オートナイト (燐灰ウラン鉱)，モナズ石，トール石，オレンジ石，フェルグソン石，クレーベ石などである．以下の表に，金属ウランおよび様々な鉱石による電流値を示す．

オレンジ石 (酸化トリウム鉱石) から得られる電流は，試料の厚さによって大きく変化し，0.25mm から 6mm に対して電流は 1.8 から 2.3 であった．

放射能をもつ鉱石はウランあるいはトリウムを含んでいることからこれは驚くべきことではないが，ある種の鉱物は予想外である．たとえばピッチブレンド (酸化ウラン鉱) は，金属ウランの 4 倍の放射能をもつ．カルコライト (リン銅ウラン石) は，ウランの 2 倍の放射能をもつ．オートナイト (リン灰ウラン石) はウランと同程度である．この結果は前述の，ウラン，トリウムより強い放射能を持つ鉱物は存在しないという考察に反するものである．

	$i \times 10^{11}$
ウラン	2.3
ピッチブレンド (Johanngeorgenstadt 産)	8.3
ピッチブレンド (Johachimsthal 産)	7.0
ピッチブレンド (Pzibran 産)	6.5
ピッチブレンド (Cornwallis 産)	1.6
クレーベ石	1.4
カルコライト	5.2
オートナイト	2.7
トール石 (各種)	0.1
	0.3
	0.7
	1.3
	1.4
オレンジ石	2.0
モナズ石	0.5
ゼノタイム	0.03
エシキン石	0.7
フェルグソンン石 (2 試料)	0.4
	0.1
サマルスキー石	1.1
ニオブ石 (2 試料)	0.1
	0.3
タンタル石	0.02
カルノー石 [27]	6.2

この点を明らかにするために，Debray 法によって純粋物質から人工カルコライトを調製した．これは，リン酸の中で硝酸ウランとリン酸銅を混合し，50 ～ 60 度に加熱する方法である．しばらくするとカルコライトの結晶が液体中に形成される [28]．このように得られたカルコライトは，全く通常の放射能，組成を有し，ウランの 1/2.5 の放射能を有する．

ピッチブレンド，カルコライト，オートナイトがこのような大きな放射能を持つとすると，これらの物質はウラン，トリウム，既知の簡単な物質とは異なる強力な放射能を有する少量の物質を含有している可能性が高い．そこで，通常の化学分析の方法によって，鉱石からこれを抽出しようと考えた．

第 2 章 . 新たな放射性物質

研究方法

前章に述べた放射性鉱物の研究結果は，我々 Curie 氏と著者を，ピッチブレンドから新たな放射性物質を抽出する研究に向かわせた．この仮説的な物質の特性として放射能を有すること以外は不明であったことから，研究方法もこれに基づく外なかった．このような研究に放射能を利用する方法は以下のようなものである．まず試料の放射能を測定し，化学的分離を行う．得られた物質それぞれの放射能を測定し，放射能がその一方に全て残存しているか，あるいは複数に分配されているか，その比率はどの程度かを測定する．これは，ある程度スペクトル分析で得られる結果と比較できる

が，比較可能な数値を得るには，試料をよく乾燥した固体とする必要がある．

ポロニウム，ラジウム，アクチニウム

前述の方法によるピッチブレンドの分析から，我々はこの鉱石中に化学的に異なる２つの強力な放射性物質の存在を確認した．我々が発見したポロニウム，Bémont 氏と共同で発見したラジウムである [29].

ポロニウムは，分析上はビスマス類縁物質で，分離に際してはこれに随伴する．下記の分離過程のいずれかで，ポロニウムの濃度は次第に上昇する．

(1) 真空中で硫化物を昇華させる．放射性硫化物は，硫化ビスマスよりもはるかに揮発性である．

(2) 硝酸溶液で沈澱させる．沈澱する亜硝酸塩は残存する溶解塩よりも著しく放射能が大きい．

(3) 濃塩酸溶液から硫化水素により沈澱させる．沈澱した硫化物は残存する溶解塩よりも放射能がかなり大きい．

ラジウムは，ピッチブレンドから抽出したバリウムと共存する物質である．化学反応中でもバリウムに共存し，水，アルコール水，あるいは塩酸水中の塩素溶解性の差により分離できる．我々はバリウムと塩化ラジウムを，塩化ラジウムの溶解度が塩化バリウムより小さいことを利用して，その混合物を分別晶析法により分離した．

第３の強力な放射性物質は，Debierne 氏がピッチブレンド中に特定し，アクチニウムと名づけたものである [30]．アクチニウムは，ピッチブレンド中のある種の鉄成分に随伴するもので，トリウムに類似しており，これからまだ分離できていない．アクチニウムのピッチブレンドからの分離は非常に困難で，全般的にまだ不完全である．

３つの新放射性物質は，いずれもピッチブレンド中に限りなく微量しか存在しない．この濃縮物を得るには，数トンのウラン鉱の尾鉱を処理する必要があった．主な処理は工場で行うが，その後精製，濃縮作業が必要である．我々は数千 kg の原料から，原料鉱石に比して著しく大きな放射能をもつ数 dg の物質を抽出した．当然ながら，長期間にわたり，困難かつ，費用のかかる作業であった [31].

我々の研究に続いて，他の新しい放射性物質も報告されている．一方で Giesel は，他方で Hoffmann 氏，Strauss 氏は，化学的性質が鉛に類似した放射性物質が存在する可能性があることを報告した．これについては，まだ不詳である [32].

新しい放射性物質の中で，唯一ラジウムは純粋な塩として単離されている．

ラジウムのスペクトル

最も重要なことは，新たな放射性物質が存在するという仮説をあらゆる手段で検証することであった．ラジウムの場合，スペクトル分析は最適な方法である．

Demarçay 氏には，写真撮影による発光研究で培った厳密な方法で，新しい放射性物質の検査を行う労をとられる厚意を得た．

このような碩学の支援は多大な利益であり，我々はその協力に深謝するものである．我々が自分の研究結果の解釈になお疑念があるときに，スペクトル分析で確信を得ることができた [33].

初回の放射性の弱いラジウム含有塩化バリウムの試料では，Demarçay 氏はバリウムの輝線の他に，紫外線領域に波長 λ =381.47 $\mu\mu$の輝線を発見した．その後生成したより放射能が強い試料では，381.47 $\mu\mu$の輝線はより強くなり，同時に新しい輝線が出現し，新しい輝線はバリウムと同程度の強さになった．新たな試料では，新しいスペクトルが優位となり，バリウムの３本の強い輝線は不純物の存在を示すのみとなった．この試料は，ほぼ純粋な塩化ラジウムと考えられた．最終的にさらに精製して著しく純粋な塩化物が得られ，そのスペクトルではバリウムの優位な２本の輝線が辛うじて認められるのみとなった．

以下に Demarçay 氏 [34] による，λ =500.0 ～ 350.0($\mu\mu$) におけるラジウムの主な輝線の一覧を示す．個々の輝線の強さを数値で示したが，最も強い輝線は 16 である．

λ	強度	λ	強度
482.63	10	453.35	9
472.69	5	443.61	8
469.98	3	434.06	12
469.21	7	381.47	16
468.30	14	364.96	12
464.19	4		

いずれの輝線もきれいな幅の狭いスペクトルで，381.47, 468.30, 434.06 の３本は強く，既知の輝線の中で最も強いものと比肩した．また２本の強力な雲状の帯がみとめられた．１つは対称性で 463.10 ～ 462.19 に位置し，462.75 にピークがみとめられた．２つ目はさらに強く，紫外線領域にむけて減弱するもので，446.37 に急に出現し，雲状の帯が 445.52 でピークとなって 445.34 まで続き，その後 439 まで漸減する．

発光スペクトルで，写真撮影できない屈折率が最も低い部分では，唯一の輝線は 566.6(概値) であり，482.63 よりもはるかに弱い．

スペクトルの全体像は，アルカリ土金属のそれである．これらの金属は強い輝線といくつかの雲状の帯を持つことが知られている．

Demarçay 氏によると，ラジウムはスペクトル感度が最も高い物質のひとつと思われる．ちなみに濃縮の過程から，381.47 の輝線が初めて明瞭に認められた試料のラジウム濃度は非常に低かった (おそらく 0.02/100) といえる．しかし，写真撮影されたスペクトルでラジウムの主輝線を明瞭に見るには，金属ウランの 50 倍の放射能が必要となる．高感度の検電計を使用すれば，金属ウランの 1/100 の放射能を検出できる．ラジウムの存在を検出するには，スペクトル反応よりも放射能が数千倍高感度であるといえる．

Demarçay の測定では，非常に放射能が高いポロニウム／ビスマス，アクチニウム／トリウムでは，それぞれビスマス，トリウムの輝線しか検出されていない．

ラジウムの濃縮に携わる Giesel 氏 [35] はその最近の論文で，ラジウムの臭化物は赤い炎色を示すことを示した．ラジウムの炎色スペクトルは，2 つの美しい赤色の帯，1 本の青緑色の輝線，2 本の弱い紫色の輝線を示す．

新放射性物質の抽出

最初の工程は，ウラン鉱からラジウム含有バリウム，ポロニウム含有ビスマス，アクチニウム含有稀土類を抽出することである．この 3 つの一次物質を得てから，それぞれの新放射性物質を分離する．第 2 の工程は分別法である．近接している元素を完全に分離する方法を見つけることが困難であることは知られていることから，分別法が好適といえる．さらに，元素が他の元素と痕跡状態で混在している場合，完全分離法があるとしてもこの混合物に適用することはできない．痕跡的な物質が分離操作中に失われる危険があるためである．

著者は特にラジウムとポロニウムの分離に傾注しているが，数年を経て，なお前者に成功したのみである．

ピッチブレンド高価であり，大量を処理することは諦めた．ヨーロッパでは，この鉱物はボヘミアのヨアヒムシュタールの鉱山で産出している．破砕した鉱石をソーダ石灰とともに焼き，得られた物質をまず熱湯，ついで稀硫酸で溶出させる．溶液にはピッチブレンドの有価成分であるウランが含まれている．不溶尾鉱は廃棄される．この尾鉱は放射性物質を含んでおり，その放射能は金属ウランの 4.5 倍である．鉱山を所有するオーストリア政府の御厚意で，我々の研究に尾鉱 1 トンが供与され，さらに数トンの供給が鉱山に許可された．

尾鉱の最初の処理を，研究室と同じように工場で行うことは容易ではない．Debierne 氏はこの問題を検討し，工場内での処理法を確立した．その最も重要な点は，試料を濃炭酸ナトリウム溶液で煮沸し，硫酸塩を炭酸塩に変化させることである．

尾鉱は主に硫酸鉛，石灰，珪素，アルミニウム，酸化鉄を含む．この他ほとんど全ての金属 (銅，ビスマス，亜鉛，コバルト，マンガン，ニッケル，バナジウム，アンチモン，タリウム，稀土類，ニオブ，タンタル，ヒ素，バリウムなど) が多少なりとも含まれている．ラジウムはこの混合物内に硫酸塩の状態で存在し，最も難溶性の硫酸塩である．これを溶解するには，できるだけ硫酸を除去する必要がある．このためには，まず尾鉱を通常の濃厚煮沸炭酸溶液で処理する．硫酸は鉛，アルミニウム，石灰と結合して，大部分が硫酸ナトリウムの形で溶解するので，これを水で洗い流す．同時にアルカリ性溶解により，鉛，珪素，アルミニウムが除去される．水洗した不溶成分は，通常の塩酸で処理する．この処理により，試料は完全に分解して大部分が溶解する．この溶液から，ポロニウムとアクチニウムを回収できる．前者は硫化水素により沈澱し，後者は硫化物を分離して過酸化した溶液中で，アンモニアにより沈澱する水和物中に認められる．ラジウムは不溶成分に残存する．これを水洗し，濃ソーダ石灰の煮沸溶液で処理する．少量の未反応硫酸塩が残存していれば，この処理によって硫酸バリウムと硫酸ラジウムは完全に炭酸塩に変化する．ついで試料を徹底的に水洗し，硫酸を含まない稀塩酸で処理する．溶液には，ラジウム，ポロニウム，アクチニウムが含まれる．これを濾過し，硫酸で沈澱させる．こうして石灰，鉛，鉄を含み，少量のアクチニウムを含むラジウム含有硫酸バリウムの粗製物が得られる．この溶液にはまだアクチニウム，ポロニウムが多少含まれているが，これは塩酸溶液で除去できる．

尾鉱 1 トンから，金属ウランの 30 ～ 60 倍の放射能をもつ 10 ～ 20kg の粗製硫酸塩が得られる．これをさらに精製する．そのためには，ソーダ石灰で煮沸して塩化物とする．溶液を硫酸で処理すると，少量のポロニウムを含む放射性硫化物が得られる．この溶液を濾過し，塩素で過酸化し，アンモニアで沈澱させる．

沈澱した酸化物と水和物は非常に強い放射能を有するが，これはアクチニウムによるものである．濾過した溶液をソーダ石灰により沈澱させる．沈澱したアルカリ土金属炭酸塩を水洗し，塩化物とする

この塩化物を蒸発させて乾燥し，純粋な濃塩酸で洗浄する．塩化カルシウムはほぼ完全に溶解しうるが，ラジウム含有塩化バリウムは不溶のまま残存する．こうして 1 トンの原材料から，金属ウランの約 60 倍の放射能を有する放射性塩化バリウム約 8kg が得られる．この塩化物を分別する．

ポロニウム

上述のように，処理の過程で得られる様々な塩酸溶液に硫化水素を通すことにより，ポロニウムに由来する

放射能を有する放射性硫化物の沈澱が得られる．

硫化物は主にビスマス，少量の銅，鉛を含む．鉛についてはソーダ溶液で大部分が洗浄されており，塩化物は難溶性であることからごく少量であるアンチモン，ヒ素の酸化物はソーダ中に溶解するため，酸化物にはごく少量しか認められない．非常に放射能が強い硫化物を得るために，以下の方法を用いた．硫化水素溶液により，高度酸性の塩酸溶液を沈澱させる．この条件下で沈澱する硫化物は非常に放射能が強く，これを利用してポロニウムを調製する．溶液中には，過剰の塩酸のため沈澱が不完全な物質 (ビスマス，鉛，アンチモン) が残存する．沈澱を完全なものとするため，水溶液を稀釈し，再び硫化水素で処理し，初回よりも放射能がはるかに弱い 2 回目の硫化物を得てこれを廃棄する．硫酸塩をさらに精製するため，硫酸アンモニアで洗浄して残存する微量のアンチモン，ヒ素を除去する. さらに硝酸アンモニアで洗浄し, 稀硝酸で処理する．決して完全に溶解することなく，常に多少なりとも不溶性残留物を生じるため，必要と判断すれば処理を繰り返す．溶液が少量になり，アンモニアあるいは大量の水で沈澱するようになると，いずれの場合も鉛と銅が溶液中に残存しており，後者では微量の放射性ビスマスも残存している．

酸化物あるいは亜硝酸化物の沈澱を，以下の分別法に供する．沈澱物を硝酸にとかし，充分量の沈澱を形成するまで水を加える．この操作では，沈澱の形成には時間がかかる場合があることに留意する必要がある．沈澱を上清液から分離し，これを硝酸に再溶解する．こうして得られた 2 つの液体部分に水を加えて新たに沈澱を作る．これを繰り返す．各分画は放射能に応じて再配分し，できる限り濃縮する．これにより非常に少量の試料が得られ，その放射能は著しく大きいが，それでもスペクトル分析ではビスマスの輝線しか見られない．

ポロニウムについては，残念ながらこの方法ではほとんど分離できない．前述の分別法は非常に困難で，他の湿性分別法も同様である．いずれの方法を用いても，稀酸，濃酸中に絶対不溶な化合物が非常に容易に形成される．このような化合物は，まずシアン化カリウムなどで金属状態に戻してから再溶解する必要がある．

多くの操作を行う必要があることを考えると，この状況は分別法を進める上で大きな困難となる．特にポロニウムは，ピッチブレンドから分離すると放射能が低下する物質であることから，大きな不利となる．

さらにこの放射能の低下は緩徐で，硝酸ビスマスのポロニウムの放射能が半減するには 11 ヵ月かかる．

ラジウムについてはこのような問題がない. 放射能は，常に濃縮の信頼できる指標となる．この濃縮自体にも困難はなく，研究の初期よりその進捗とともに，常にスペクトル分析で確認できた．

後述する誘導放射能が知られるようになり，ビスマスの輝線のみを呈し，放射能が漸減するポロニウムは，新元素ではなく，ピッチブレンド中のラジウムにより放射化されたビスマスと考えることが自然と思われるようになった．著者は，この考え方には疑問がある．長年にわたるポロニウムの研究で，通常のビスマス，ラジウムにより放射化されたビスマス，そのいずれにおいてもそれまで観察したことがない化学反応を経験しているからである．このような化学反応の特徴は，第 1 に前述の不溶性化合物 (特に亜硝酸塩) を著しく容易に形成すること，第 2 にポロニウム産生性ビスマスの沈澱物の硝酸溶液に水を加えて得られる沈澱物の色と性状にある．この沈澱物は白いこともあるが一般的には明るい黄色で，次第に暗赤色となる．

ビスマス以外の輝線を欠いても，スペクトル感度が小さい物質がありうるので，ビスマス以外の物質が含まれていないことは保証されない．

少量のできるだけ濃縮度の高いポロニウム性ビスマスを用意し，化学的分析，とくに金属の原子量を決定する必要があるが，この分析は前述の化学的処理が困難なため，まだ行っていない．

ポロニウムが新元素であることが示されても，これが少なくとも鉱石から分離された状態では永久に放射性でありえないことも考えられる．従って，この問題は 2 つの異なる面から考察する必要がある．(1) ポロニウムの放射能は，近傍の放射性物質に誘導された放射能であり，ポロニウムは他の物質にはない，持続性に自らを原子的に活性化する能力を有する．あるいは，(2) ポロニウムの放射能は固有のものであり，ある条件下ではこれが自然に失われ，鉱石内にある場合は持続しうる．接触による原子的賦活現象についてはなお知見に乏しく，この問題について一貫した見解を述べるには至っていない．

最近，Marckwald 氏のポロニウムに関する研究が発表された [36]．同氏はピッチブレンドの尾鉱から抽出したビスマスの塩酸溶液に純粋なビスマスのロッドを浸した．しばらくするとロッドは非常に放射性の強い沈着物で覆われ，溶液中には非放射性ビスマスのみとなった．同氏はまた，塩化スズを放射性ビスマス塩酸溶液に加えることにより，非常に放射性の高い沈着物を得た．そしてこのことから，放射性物質はテルル類似のものであるとして，これをラジオテルルと命名した．Marckwald 氏の放射性物質は，その由来ならびに高度吸収性の光線を放出することからポロニウムに等価と思われる．現状からは，この物質に新しい名称を付与することはあきらかに不要である．.

純粋塩化ラジウムの調製

我々が純粋な塩化ラジウムをラジウム含有塩化バリウムから抽出した方法は，塩化物の混合物を純水中で，ついで純塩酸を加えた水中で晶析分別法にかける方法である．これはラジウムはバリウムよりも溶解度が小さいことから，２つの塩化物の溶解度の差を利用するものである．

分別の最初の段階では，純粋な蒸留水を使用する．塩化物を溶解して沸点温度で飽和させ，覆いをした容器内で冷却して結晶化する．容器の底に美しい結晶が付着し，飽和した上清液を容易に分離できる．この溶液を蒸発，乾燥させると，得られる塩化物の放射能は結晶の 1/5 となる．こうして塩化物は２つの分画，A と B に分けられる．A は B よりもはるかに放射能が大きい．A，B それぞれに同じ操作を繰り返すと，それぞれに新たな２つの分画が生じる．

結晶化の終了時に，塩化物 A の放射能が小さい分画と，塩化物 B の放射能が大きい分画を再結合する．この２つの分画はほぼ同じ放射能をもつ．こうして３つの分画についてあらたに同じ処理を行う．

分画数はむやみに増やしてはならない．分画数が多くなると，最も溶解性が高い分画の放射能は低下する．この分画に有意の放射能が認められなくなれば，これを分別法から排除する．所望の分画数が得られたなら，最も溶解度が小さい分画 (ラジウムが最も多い分画) も排除する．

我々は分画数は一定としている．一連の操作後，１つの分画の飽和溶液を次の分画の結晶に注ぐ．しかし１つのシリーズで最も可溶性の分画が除かれた場合は，次のシリーズ後は最も可溶性の分画を新たな分画とし，最も放射能が高い結晶を排除する．この２つの操作を繰り返すことにより，非常に規則的な分別を行うことができ，分画数とそれぞれの放射能は一定となり，各分画は次の分画の約５倍の放射能をもち，放射能を持たない物質は一方に排除され (尾端)，ラジウムに富む塩化物は一方に集められる (頭端)．各分画に含まれる物質の量は必然的に減少してゆき，放射能が高い分画ほど物質の量は少なくなる．

初期は６つの分画から開始し，尾端で排除された塩化物の放射能は，ウランのわずか 0.1 であった．

このように非放射性物質が除去されてゆき，分画が小さくなると，このような低放射能の分画を除去する意義は失われてゆく．そこで，分別の尾端から分画を取り除き，それまでに収集した放射性塩化物を新たな分画として頭端に加える．この結果，以前よりもラジウムが豊富な塩化物が収集できる．これを，頭端の結晶が純粋な塩化ラジウムとなるまで繰り返す．分別法が完全に行われれば，残存する中間物質は非常な微量となる．

分別法が進み，各分画の物質量が小さくなると，冷却が急速となり分別できる溶液の体積が著しく少なくなるため結晶化による分離の効率は低下する．従って水に一定の割合で塩酸を加えるとよい．この割合は分別法が進むにつれて増やす．

塩化物の溶解性は，純水中よりも塩酸中の方が低いことから，この水の追加により溶解量が増える利点がある．さらに分離が非常に効率的になり．同じ物質から生ずる２つの分画の差が大きくなり，酸を多く含む水を使用することにより分離が完全となり，わずか３ないし４分画で処理できるようになる．物質量が問題なく操作できる程度に少量となった時点で，できるだけ早くこの方法を取り入れることが有利である．

高酸度溶液中に形成される結晶は，非常に細長い針状で，塩化バリウム，塩化ラジウムと全く同じ形状である．いずれも複屈折性である．ラジウム含有塩化バリウムの結晶は無色であるが，ラジウムの割合が多くなると，数時間で黄色調となりオレンジ色から美しいピンクに変色することもある．この着色は溶液にすると消失する．純粋な塩化ラジウム結晶には着色がないか，あるいは少なくとも直ちに着色することはない．従って，着色はバリウムとラジウムが共存するためと思われる．一定のラジウム濃度で着色が最も強くなる．この特性から，分別法の進捗を知ることができる．最も放射性の高い分画に着色が見られる間は，有意量のバリウムが含まれている．着色がなくなり，それに続く分画が着色している場合は，最初の分画は事実上純粋な塩化ラジウムであると言える．

ときに，一部は無色，一部に着色のある結晶が形成されることがある．無色の結晶を分離できるように思うが，まだ試みていない．分別法の尾端では，連続する分画の放射能の比は一定でも規則的でもないが，分別の過程に大きな問題はない．

ラジウム含有塩化バリウム水溶液をアルコールで分別沈殿させても，塩化バリウムが最初の沈澱物として得られる．この方法は初期に行ったが，これは放棄して前述のより確実な方法を採用した．しかし現在もなお，少量の塩化バリウムを含む塩化ラジウムの精製に当たって，アルコール沈殿法を使用することがある．塩化バリウムは微水溶性アルコール溶液に残存するため除去できる．

放射性物質の調製に携る Giesel 氏は，我々の最初の研究発表以来，臭化物の混合液中における晶析分別法によるバリウムとラジウムの分離を推奨している．この方法は，特に分別の初期には非常に有利であることが分かった．

どのような分別法を使用するにせよ，放射能の測定に

よりこれをモニターすることが有用である．

ラジウム化合物の溶液は，沈澱あるいは結晶化によって固体に戻すと，溶液状態が長いほど初期の放射能が弱いことに留意する必要がある．放射能はその後数ヶ月で一定値に達し，その後は変化しない．最終的な放射能は初期の 5～6 倍に及ぶ．この変動についてはまた後述するが，放射能測定の際に考慮しなくてはならない．最終的な放射能を決定できれば良いが，化学処理に際しては固体の初期の放射能を測定する方が実際的である．

高放射性物質の放射能は，それが由来する鉱石の放射能にくらべて桁違いに大きい (10^6 倍)．この放射能を冒頭に述べた方法 (図 1) で測定する場合，圧電結晶板にかける荷重をある程度以上大きくすることができない．この荷重は，我々の経験では最大 4000g で，25 静電単位の放電に相当する電気量である．我々は，放射性物質の表面積が常に同じ状態で，1～4000 の範囲で放射能を測定できる．この測定範囲を拡張するため，我々は既知の比で表面積を変化させている．平板 B の上に既知の半径の円形部分に放射性物質を置く．この条件下では，放射能は正確に表面積に比例しないので，異なる放射性表面積における放射能を比較できるよう実験的な係数を求めている．

この方法でも対処できない場合は，吸収フィルターその他，ここでは述べないその他の手段をとる必要がある．これらの方法はいずれも完全ではないが，研究を進める上では十分である．

我々は，小さな蓄電池と高感度の電位計の回路にコンデンサをつないで，コンデンサを流れる電流も測定したが，電位計の感度を頻繁に較正する必要あるため，ルチーン測定には利用しなかった．

ラジウムの原子量の決定 [37]

研究の過程で何度か，ラジウム含有塩化バリウムに含まれる金属の原子量を決定した．各処理後に新たなラジウム含有塩化バリウムを手にするたびに，できる限りその濃度を高めて，混合物の放射能のほぼ全部を含む試料 0.1～0.5g を得た．アルコールあるいは塩酸により沈澱させた数 mg の微量な塩化物をスペクトル分析に供した．

Demarçay 氏のその卓越した技術により，この僅かな試料でスペクトルを撮影可能であったため，残余試料を原子量の決定に使用した．

古典的な方法を用いて，既知量の塩化銀中の無水塩化物に含まれる塩素を測定した．対照として同様の方法で，同条件，同重量 (初期は 0.5g，後に 0.1g) のバリウムの原子量も測定した．測定結果は常に 137～138 であった．この方法は，試料が少量であっても満足な結果が得られると考えられる．

塩素による最初の 2 回の測定では，ウランよりも 230 倍, 600 倍の放射能があった. この 2 つの実験では，測定精度の範囲で，純粋な塩化バリウムと同じ値が得られた．従って，さらに放射性の高い試料で差が出ることを期待するしかなかった．次の実験は，ウランよりも約 3500 倍高放射性の塩化物で行ない，初めて微小な，しかし確実な差異が検出された．塩素中に含まれる金属の平均原子量は 140 で，これはラジウムの原子量がバリウムよりも大きいことを示すものであった．さらに強いラジウムのスペクトルを示す強力な試料を用いるとともに，得られる数値も下表に示すように漸増した (A はウランに比較した塩化物の放射能，M は原子量).

A	M	
3500	140	ラジウムのスペクトルは非常に微弱
4700	141	
7500	145.8	ラジウムのスペクトルは強力だが，バリウムのスペクトルが遙かに優位
10^6 オーダー	173.8	両者のスペクトルがほぼ同程度
	225	バリウムのスペクトルは痕跡的

A 列の値は概値である．高度の放射性物質の放射能の評価には，後述のようにいくつかの理由で困難がある．

前述の処理の結果, 1902 年 3 月, 塩酸ラジウム 0.12g を手にし，Demarçay 氏の厚意でスペクトル分析を行うことができた．同氏の見解では，塩酸ラジウムは十分純粋であるが，なおバリウムの 3 本の主輝線が明瞭に認められるとのことであった．

この塩化物を使って 4 回連続で測定した結果を以下に示す．

	無水塩化ラジウム	塩化銀	重量
I	0.1150	0.1130	220.7
II	0.1148	0.1119	223.0
III	0.11135	0.1086	222.8
IV	0.10925	0.10645	223.1

そこで著者はこの塩化物をさらに精製し，より高純度の物質を得ることに成功し，そのスペクトルではバリウムの 2 本の主要輝線が非常に弱く認められた．Demarçay 氏は，バリウムのスペクトルの感度を考慮して，精製塩化物は「いかなる機序でも原子量を左右し得ないような程度の微量バリウム」しか含まれていないと結論した．著者は，この精製塩化ラジウムで，以下のように 3 回の測定を行った．

	無水塩化ラジウム	塩化銀	重量
I	0.09192	0.08890	225.3
II	0.08936	0.08627	225.8
III	0.08839	0.08589	224.0

平均値は 225 である．これは，ラジウムが 2 価の元素で塩化物の化学式が $RaCl_2$ とし，銀と塩素の原子量が Ag=107.8, Cl=35.4 として上記と同じように計算したものである．

これらの実験から，ラジウムの原子量は Ra=225 となる．これは 1 単位の範囲で正確と考える．

秤量には，1/20mg の精度で完全に調整した Curie 式非周期性天秤を使用した．この天秤は直読式で，非常に短時間で秤量できる．このことは，天秤内に乾燥剤を置いても徐々に吸湿する無水塩化ラジウム／バリウムの秤量には必須の条件である．試料は白金製るつぼに入れて秤量した．このるつぼは長年使用しており，その重量は操作中に 1/10mg の範囲で変動しないことを確認している．

結晶化により得られた水和塩化物をるつぼに入れ，炉で熱して無水塩化物とする．実験によれば，塩化物を数時間 100℃に置いても，その重量は変化せず，200℃，数時間でも同様である．このようにして得られた無水塩化物は，完全な最終物質といえる．

この問題に関する一連の測定結果は以下の通り：塩化物 (1dg) を 55℃の炉で乾燥し，無水リン酸乾燥剤の上に置く．すると非常に緩徐に重量が減少する (12 時間で 3mg) ことから，なお水分を含むことがわかる．塩化物を炉に戻して 100℃に熱した．この操作により，塩化物の重量は 6.3mg 減じた．炉の中に 3 時間 15 分置くと，さらに 2.5mg 減少した．100～200℃，45 分では 0.1mg 減少し，125 度，30 分では減量しなかった．その後，150℃，30℃で 0.1mg 減量した．最後に 200℃，4 時間加熱し，0.15mg 減量した．この全工程中，るつぼの変化は 0.05mg であった．

個々の原子量測定後に，ラジウムは以下の方法で塩化物に還元した．すなわち測定後，過剰の硝酸ラジウム，硝酸銀を含む液体に高純度塩酸を加え，塩化銀を濾過して除去する．過剰な塩酸を加えて，数回蒸発，乾燥させる．この方法で，硝酸は完全に除去される．

試料中の塩化銀は常に放射性で発光していた．試料中の銀を定量することにより，有意量のラジウムが生成されていないことを確認した．このために，るつぼ中の溶融塩化銀を，亜鉛による分解で塩酸から発生する水素で還元した．洗浄後，金属銀を含むるつぼを秤量した．1 つの実験で，再生した塩化ラジウムの重量は操作前と同じであることを確認した．また別の実験では，洗浄水がすべて蒸発するまで待たずに次の工程を開始した．

これらの実験は直接実験ほどの精度はないが，大きな間違いがないことを確認することができた．

ラジウムは化学的にアルカリ土金属であり，バリウムよりも大きな同族元素である．

その原子量によれば，メンデレーエフの元素表で，アルカリ土金属としてバリウムの次に位置し，既にウラン，トリウムのある列にある．

ラジウム塩の性質

ラジウム塩 (塩化，硝酸，炭酸，硫酸) は，固体状態ではそれぞれバリウム塩と同じ外観であるが，いずれのラジウム塩も時間が経つと着色する．

ラジウム塩は，いずれも暗所で発光する．

化学的性質については，ラジウム塩はそれぞれ対応するバリウム塩に非常に良く似ている．塩化ラジウムは塩化バリウムより水溶性が低いが，硝酸塩はほぼ同程度である．

ラジウム塩は自発的持続的な熱源である．

純粋な塩化ラジウムは常磁性をもつ．その比磁化率 K(磁場に対する単位当りの磁気モーメント) は，P. Curie 氏と C. Chéneveau がこの両氏が開発した装置で測定されている [38]．これは水と比較して測定し，空気の磁気作用を補正したものである．

$K = 1.05 \times 10^{-6}$

純粋な塩化バリウムは反磁性体で，その比磁化率は

$K = -0.40 \times 10^{-6}$

また前記の結果に一致して，約 17％の塩化ラジウムを含むラジウム含有塩化バリウムは反磁性で，その磁化率は

$K = -0.20 \times 10^{-6}$ [39]

通常の塩化バリウムの分別

我々は，市販の塩化バリウムが我々の測器で検出限界の少量の塩化ラジウムを含んでいないかを確認した．このため，もし塩化ラジウムが含まれていれば濃縮されることを期待して大量の市販塩化バリウムを分別した．

市販の塩化バリウム 50kg を水に溶解し，溶液を硫酸を含まない塩酸で沈澱させ, 20kg の塩化物沈澱を得た．これを水に溶かし，塩酸で部分的に沈殿させ，沈澱塩化物 8.5kg を得た．

この塩化物をラジウム含有塩化バリウムの場合と同じ分別法にかけ，頭端の最難溶性分画に得られた塩化物 10g を除去した．この塩化物は，我々の測器では全く放射性を示さなかった．すなわちラジウムを含まず，バリウムの供給源となった鉱石の成分を含まなかった．

第 3 章 . 新しい放射性物質の放射線

放射線の研究方法

放射性物質が放出する放射線の研究には，これが持つあらゆる性質を利用できる．すなわち写真乾板への作用，空気を電離して導電性を付与する作用，ある種の物質に蛍光を発生させる作用などである．これらを簡

略にするため，放射線写真法，電気的方法，蛍光法と略述することにする．

初めの２つは，ウラン線研究の初期から利用されている．蛍光法は，ウラン，トリウムのような放射能が弱い物質では有意の蛍光を生じないことから，新しい強力な放射性物質にのみ適用できる．電気的方法は唯一正確な強度測定に利用できる．他の２つは主に質的評価に適しており，おおまかな強度だけが測定できる．３つの方法で得られた結果は，概略の比較が可能な程度で，全く比較できないこともある．写真乾板，電離ガス，蛍光板は，いずれも放射線のエネルギーを吸収して別のエネルギー (化学エネルギー，イオンエネルギー，光エネルギー) に変換する受容装置である．いずれの受容装置も，その性状に応じて放射線の一部を吸収する．後述するように放射線は複雑で，様々な受容装置が吸収する放射線は量的にも質的も異なる．最後に，受容装置が吸収したエネルギーがすべて期待する形に変換されることは確実でもなければ確率的でもない．エネルギーの一部は場合によって熱，二次放射線に変換され，所期の現象の生成に利用されることもされないこともあり，あるいは所期と異なる化学反応を起こすこともある．このように受容装置の目的に応じた有用性は，受容装置の特性に本質的に依存する．

それぞれラジウム，ポロニウムを含む２つの放射性資料を比較してみる．ここで両者は，図１に示す装置では同等の放射能を示すものとする．それぞれを薄いアルミ箔で覆うと，後者は前者にくらべて放射性が減ずる．また後者が十分厚い場合，あるいは蛍光板と２つの放射性物質にある程度距離を持たせると，試料を蛍光板の下に置いても，蛍光板が十分厚く，物質との距離がある程度あれば同様である．

放射線のエネルギー

どのような方法であれ，新しい放射性物質の放射線エネルギーは，ウラン，トリウムのそれにくらべて非常に大きい．例えば，近距離で写真乾板は瞬時に感光されるが，ウランやトリウムでは 24 時間の露光を要する．蛍光板は，新しい放射性物質では強く発光するが，ウラン，トリウムでは微かに発光するのみである．空気の電離作用も，約 106 倍強い．しかし冒頭に記した電気的方法 (図 1) でウランの放射線強度を評価することはほとんど不可能である．例えばウランの場合，平板電極間の空気層でほとんど吸収され，限界電流は 100V に達する．しかし強力な放射性物質では事情が異なる．ラジウムの放射線の一部は，コンデンサーと金属電極板を強く透過し，電極間の空気の電離に全く利用されない．さらに，設定可能な範囲の電圧で限界電流を得られない場合もある．例えば高放射能のポロニウムでは，100 ～ 500V の範囲でも電流はやはり線形に増加する．従って，単意的であるという実験条件が満たされず，得られた数値を総放射線の値とは見なすことができず，その意味で概算値でしかない．.

放射線の複雑な特性

多くの物理学者 (Becquerel 氏 , Meyer & von Schweidler 両氏 , Giesel 氏 , Villard 氏 , Rutherford 氏 , Curie 夫妻) の研究は，放射性物質の放射線が非常に複雑であることを示している．Rutherford 氏の命名により，α，β，γ と表記する３種の放射線を区別することが適切である．

(1) α 線は，その大部分を占めると思われる非常に透過性が弱い放射線である．吸収物質による法則が特徴的である．磁場の作用は非常に弱く，初期は磁場に不応と考えられていた．しかし強力な磁場の下では，α 線は僅かに偏向する．この偏向は陰極線の場合と同様であるがその方向は反対で，その点で Crookes 管の陽極線と同じである．

(2) β 線は，全体として α 線よりも吸収が少ない．磁場によって同様に，陰極線と同じ方向に偏向する．

(3) γ 線は透過性で，磁場に不応あり，レントゲン線に類似している．この種の放射線は，β 線と同じようにその透過性が非常に大きく変化する．

以下の様な実験を考える．ラジウム R を鉛ブロック P に作った小さな深い空洞の底に置く (図 4)．幅の狭い直線状の放射線がこのセルから放出される．その周囲に，図と直交する方向に裏から手前に向かう均一な強い磁場をかける．これにより３種類の放射線 α，β，γ が分離される．弱い γ 線は，偏向することなく直進する．β 線は，陰極線のように偏向し，この図の面内で様々な半径をもつ弧状の軌跡を描く．セルを写真乾板 AC の上に置けば，BC の部分は β 線を受けて感光する．最後に α 線は，僅かに偏向する強力な放射線となり，空気で速やかに吸収される．α 線はこの図の面内で大きな半径の曲線を描き，その方向は β 線と反対である．

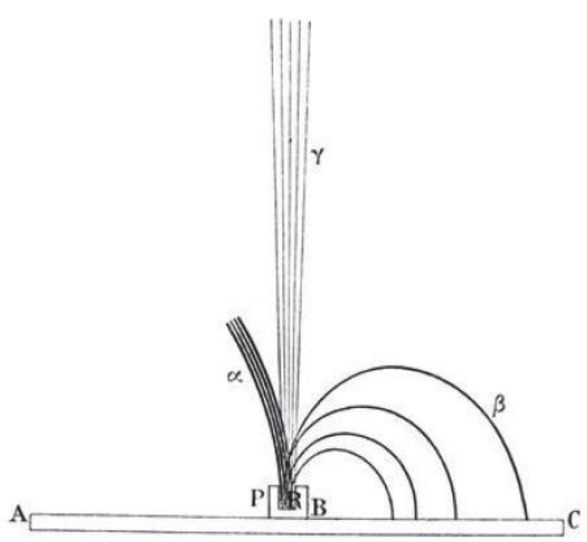

図 4

セルを薄いアルミ箔 (0.1mm) で覆うと，α線は大幅に抑制され，β線は軽度に抑制され，γ線は有意の吸収を示さない．

この実験は，このような形では行っていないが，以下の実験で様々な放射線に対する磁場の作用が認められる．

磁場の作用

放射性物質から放出される放射線は，陰極線，レントゲン線と同じ特性を多く持つことがわかっている．

陰極線もレントゲン線も，空気を電離し，写真乾板に作用し，蛍光を発生させ，反射しない．しかし，陰極線は磁場によって偏向し，負の電荷を有する点でレントゲン線と異なる．

放射性物質が放出する放射線に磁場が作用する事実は，Giesel, Meyer and von Schweidler, Becquerel の各氏によりほぼ同時に発見された [40]. 彼らは，放射性物質の放射線が磁場によって陰極線と同方向に偏向することを認めており，これはβ線によるものである．

Curie 氏は，ラジウムの放射線には 2 つの全く異なる種類があり，ひとつは磁場によって容易に偏向し (β線)，他は磁場の影響を受けないことを示した (α線，γ線．全体として非偏向線と名づけた)[41].

Becquerel 氏は，我々が用意したポロニウムの試料では陰極線様の放射線を観察しなった．一方，Giesel 氏は同氏が用意したポロニウムの試料で，磁場の影響を初めて観察した．我々のポロニウムの試料では，いずれにおいても陰極線の放出は見られていない．

Giesel 氏のポロニウムは，新たに調製した場合のみ陰極線様の放射線を放出しており，後述する誘導放射能の現象によるものと思われる．

以下の実験では，ラジウムの放射線の一部 (のみ) が容易に偏向する放射線 (β線) であることが示される．この実験は，電気的方法により行った [42].

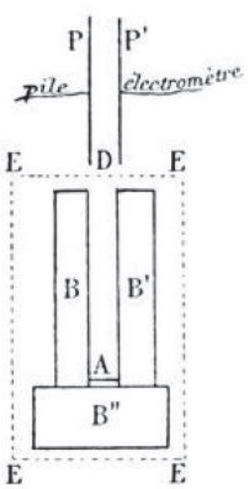

図 5

放射性物質は，電極 P，P' 間で AD 方向に放射線を放出する（図 5)．電極 P は 500V の電位に保たれ，P' は電位計と圧電結晶に接続されている．ここで，放射線の影響下で流れる電流強度を測定する．EEEE の領域全体には，この図と垂直方向に磁場をかけることができる．放射線がわずかでも偏向すれば，電極間を通過しないため，電流は抑制される．放射線が通過する領域は鉛塊 B, B', B" と電磁石の鉄芯で囲まれており，放射線が偏向すると鉛塊 B, B' で吸収される．

測定値は基本的に，放射性物質 A とコンデンサーの入口部 D の距離 AD に依存する．AD が十分大きければ (7cm 以上)，コンデンサーに到達するラジウム線のほとんど (約 90％) が，強度 2500 単位の磁場により偏向，抑制される．この放射線はβ線である．距離 AD が 65mm 以下の場合，放射線の一部が磁場で偏向される．2500 単位の磁場で既に完全に偏向されるため，磁場を 2500 から 7000 に増強しても，抑制される放射線の比率は増加しない．

磁場によって抑制されない放射線の割合は，放射性物質とコンデンサーの距離 AD が小さいほど大きくなる．距離が短くなると，偏向しやすい放射線は，全体の非常に小部分を成すのみとなる．

従って透過性放射線は，大部分が陰極線 (β線) のような偏向する放射線である．

前述の実験系で，この磁場の範囲ではα線に対する磁場の作用はほとんど観測できなかった．線源から短距離の位置で偏向しないようにみえる非常に強力な放射線はα線である．遠距離の位置で偏向しない放射線はγ線である．

放射線を吸収板 (アルミニウムあるいは黒色紙) でフィルターすると，これを通過する放射線はほとんどが磁場で偏向する．従って，フィルターを使用するとほとんどすべての放射線が磁場によってコンデンサー内で抑制され，少量のγ線のみが残る．α線は，フィルターで吸収される．

線源とコンデンサーの距離が十分遠い場合，偏向しにくい放射線をほぼ抑制するには，1/100mm 厚のアルミ箔で十分である．短距離 (34mm, 51mm) の場合は，同様の効果を得るには 1/100mm 厚のアルミ箔 2 枚が必要である．

放射能が大きく異なる 4 つのラジウム含有物質 (塩化物，炭酸化合物) で同様の測定を行ったところ，結果はほぼ同様であった．

いずれの試料でも，磁場で偏向する放射線 (β線) は，放射線全体の小部分に過ぎず，空気導電性の原因となる総放射線の測定への寄与は小さいと思われる．

ポロニウムの放射線は，電気的方法で測定可能である．

ポロニウムとコンデンサーの距離 AD を変化させる時，距離が十分遠いと電流は観測されない．ポロニウムを近づけると，一定の距離 (今回の実験では 4cm) で観測されるようになり，その後急速に大きな放射線となる．ポロニウムを接近させると電流は漸増する．この条件下で，磁場は有意の作用を示さない．ポロニウムの放射線は，空間的に非常に制限されており，空気中ではこれを囲む厚さ数 cm の被覆をほとんど超えない．

上述の実験の意義については，重要な一般的制約に留意が必要である．ここで磁場により偏向する放射線の比率という場合，コンデンサー内に電流を誘起しうる放射線のみが対象となる．Becquerel 線の反応体として，蛍光作用，写真作用を利用すれば，この比率は恐らく異なったものとなるであろう．放射線強度の測定は通常，使用した測定法の範囲内でのみ意味を持つからである．

ポロニウムの放射線は，α 線の類である．前述の実験で，これに対する磁場の影響は全く認められなかったが，実験系がこのようなものであることから，僅かな偏向は検出できない．

放射線写真法による実験は，前述の結果を追認するものであった．ラジウムを線源とし，一次線に平行，磁場に垂直な写真乾板上に，磁場の作用により偏向されたもの，されないものが，非常に明瞭な 2 本の光線として記録できた．偏向されたものは β 線である．α 線はほとんど偏向されず，偏向されない γ 線と混在する．

偏向する β 線

Giesel 氏，Meyer & von Schweidler 両氏の実験では，放射性物質の放射線は，磁場によって少なくとも部分的に，陰極線のように偏向する．Becquerel 氏は，磁場の影響を放射写真法で研究している [43]．実験装置を図 4 に示す．ラジウムを鉛製セル P に入れ，これを黒色紙にくるんだ写真乾板 AC の感光面上に置く．この全体を電磁石の電極間に置く．磁場の方向は，図の面に直交する．

磁場が図の裏に向かうとすると，弧状の経路を描いて戻ってくる放射線が乾板の BC 部分に垂直に当たる．これは β 線である．

Becquerel 氏は，印画が幅広い帯となり，連続スペクトルであることから，この偏向放射線が無限の異なる偏向度をもつ放射線から成ることを示した．ゼラチン感光面に様々な吸収フィルター (紙，ガラス，金属) を置くと，スペクトルの一部が抑制され，最も偏向度が強い放射線，すなわち弧状の軌跡の半径が最も小さい放射線が抑制される．それぞれのフィルターについて，乾板上の印画の開始点の距離が異なるが，フィルターの吸収が強いほどこの距離は大きくなる．

偏向放射線の電荷

陰極線は，Perrin 氏が示したように負に帯電している [44]．さらに Perrin，Lenard 両氏が示したように，陰極線の電荷は，接地した金属被覆や，絶縁板に流れる [45]．陰極線が吸収される場所では，負の電荷が連続的に放出される．我々は，ラジウムの β 線でも同様であることを見いだした．ラジウムの偏向 β 線は，負に帯電している [46]．

放射性物質をコンデンサーの電極板の一方に置き，この電極を金属で接地する．他方の電極は検電計に接続し，これが放射性物質が放出する放射線を受光，吸収する．放射線が荷電していれば，検電計に連続的な電流が検出される．この実験を空気中で行うと放射線の電荷は検出されないが，この実験系は感度が低い．電極間の空気が放射線により導電性になると検電計はもはや絶縁されていないため，強い電荷しか検出できない．

放射線源を薄い金属スクリーンで覆って α 線が実験に影響しないようにすれば，結果は変わらない [47]．放射線が検電計に接続したファラデーシリンダー内を通過するようにして，空気中で実験を繰り返したが行ったが，これ以上の結果は得られなかった．

上述の実験から，放射性物質からの放射線の電荷は小さいことが明らかである [48]．

放射線を吸収するコンデンサーで少量の電流を観測するには，コンデンサーが電気的に充分絶縁されていることが必要である．このためには，これを完全な真空内に置くか，あるいは良好な誘電体で囲うかして空気から隔離する必要がある．我々は後者を採用した．

導電体の板 MM は金属棒で検電計に接続されている (図 6)．板と棒は，絶縁体 iiii に覆われており，これ全体が電気的に接地された金属筐体 EEEE で囲われている．金属板の一面にある絶縁体 pp と金属被覆は非常に薄い．この面を，鉛容器内のラジウム含有塩化バリウム R からの放射線に曝露する [49]．ラジウムからの放射線は，金属被覆と絶縁体 pp を透過し，金属板 MM で吸収される．この金属板から，負電荷が連続的，定常的に放出され，これを検電計で観測し，圧電結晶で測定する．

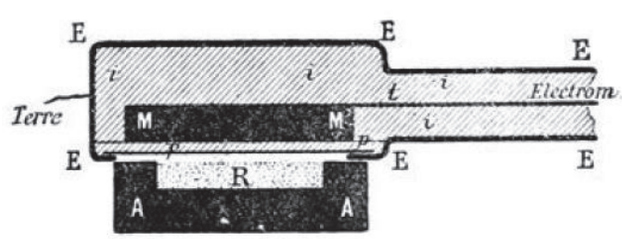

図 6

こうして得られる電流は非常に小さい．放射能が強いラジウム含有塩化バリウムは，面積 2.5cm^2，厚さ 0.2cm で，10^{-11}A 程度の電流が得られる．放射線は 0.01mm 厚のアルミ箔，0.3mm 厚のエボナイトを通過して金属板 MM で吸収される．我々は，金属板 MM に鉛，銅，亜鉛，絶縁体にはエボナイト，ケロシンを試みたが，いずれも結果は同じであった．

線源 R を遠ざけたり，放射能が弱い物質を使用すると，電流は減少する．

金属板 MM を，空気を満たし外部を絶縁体で覆ったファラデーシリンダーに替え，シリンダーの開口部を薄い絶縁板 pp で塞ぎ，この面を線源に向けても，結果は同じであった．

最後にこれとは逆に，絶縁物資内にラジウムを入れた鉛容器を検電計につなぎ，この全体を接地した金属筐体に封入して実験した (図 7)．

この条件下で，検電計により，ラジウムが陽電荷を帯びていること，その大きさは最初の実験の負電荷に等しいことが分かった．ラジウムの放射線は薄い誘電体 pp を透過し，内部の導電体に負電荷を与える．

α 線は非常に薄い物質でほぼ完全に吸収され，この実験には寄与しない．この方法は，同じく非常に透過性が低いポロニウム線の電荷の研究には不適である．α 線のみを放出するポロニウムでは電荷を観測できていないが，前述の理由によりこの実験から結論を導くことはできない．

このように，ラジウムの偏向性 β 線は，陰極線と同様に電荷を持つ．しかし，これまで物質に結びつかない電荷の存在は認められていない．従って，ラジウムの偏向性 β 線の研究に当たっては陰極線の場合と同じ理論を利用する必要がある．W. Crookes 卿が提唱し，その後 J. J. Thomson 氏が発展，完成させたこの弾道理論によると，陰極線は陰極から放射される著しく細かい負に荷電した粒子から成る．ラジウムも同様に負に荷電した粒子を空間中に放出していると思われる．

薄い固体の完全な絶縁被覆内にあるラジウム試料は，非常に高電位に荷電されているはずである．弾道理論によると，周囲の導電体との電位差が充分大きくなり，放出された電荷の移動を抑制して放射線源に戻るようになるまで電位は上昇する．

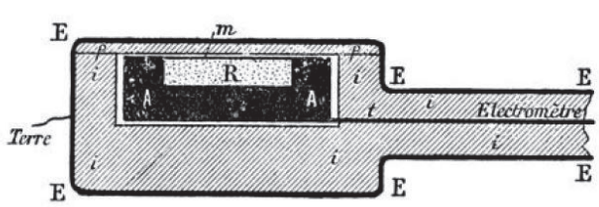

図 7

ここに述べた実験は，偶然に行ったものである．強い放射能を持つラジウムが，ガラス管内に長期間封入されていた．ガラス管を開封するため，我々はガラスナイフを使ってガラスに線を入れたところ，明らかなスパーク音が聞え，拡大鏡で観察したところ，線を入れて菲薄化した部分でガラスがスパークで破断していた．この現象は，過負荷状態のライデン瓶の破断に正に相当するものである．

別のガラス管でも同様の現象が見られた．さらに，スパーク音の瞬間，ガラス管を手にしていた Curie 氏は指に放電のショックを感じた．

ある種のガラスは良好な絶縁体である．ラジウムを絶縁ガラス管に封入しておくと，ガラス管はある時点で自然に破裂するであろう．

ラジウムは，自発的に荷電する初の物質である．

ラジウムの偏向 β 線に対する電場の作用

ラジウムの偏向 β 線は，陰極線に類似しており，陰極線と同様に電場より偏向する．すなわち負に荷電した粒子を空間に高速で射出した場合のようにふるまう．この偏向現象の存在は，Dorn 氏 [50], Becquerel 氏 [51] によりそれぞれ示されている．

コンデンサーの 2 枚の電極間の空間を放射線が通過することを考える．放射線の向きは電極に平行とする．電極間に電場があると，放射線はコンデンサー I 内の全経路において均一な電場の作用を受ける．これによって放射線は陽極側に偏向して放物線を描く．電場外に出ると，その時点での放物線の接線方向に直進する．放射線は，その本来の方向と垂直方向の写真乾板に当たる．電場がゼロの時と一定値の時にそれぞれ乾板上に印画を記録し，本来の光線と偏向した光線が当たる点の距離を偏向値 δ として求める．平面とコンデンサーの距離，すなわち電場の範囲を h とすると，簡単な計算により，移動する粒子の質量 m，その電荷 e，速度 v，電場強度 F について，

$$\delta = \frac{eFl(\frac{l}{2}+h)}{mv^2}$$

Becquerel 氏の実験で，δ の近似値が得られる．

ラジウムが放出する負電荷を持つ粒子の質量と電荷の関係

質量 m，負電荷 e の粒子が速度 v で，その初速に直交する均一な電場内に放出されるとき，この粒子は電場に垂直な平面内で，その初速で半径 ρ の円弧を描く．電場を H とすると，以下の関係がある．

同じ半径に対して，電気的偏向 δ，磁場中の円弧の半径 ρ を同じ直径に対し

$$\mathrm{H}\rho = \frac{m}{e}v$$

て測定し，この 2 つの実験から速度 v に対する e/m 比を求めた．

この問題に最初の示唆を与えたのは Becquerel 氏の実験である．これによると，e/m 比の概値として 10^7 絶対電磁単位，v については 1.6×10^{10} が得られる．この数字は，陰極線についても同じオーダーである．

この問題については，Kaufmann 氏 [52] による正確な実験がある．これは非常に細いラジウム線に，初期光線に垂直な方向の均一な電場，磁場を同時に作用させたものである．初期光線に垂直に最上部に置いた写真乾板への印画は円弧を描き，その各点は不均一な初期光線のそれぞれに相当する．最も高速な放射線は，透過性が最も高く，偏向が最も少ないものであった．

Kaufmann 氏の実験から，陰極線よりも明らかに高速なラジウム線では，速度が増大すると e/m 比が減少することがわかる．

J. J. Thomson & Townsend 両氏 [53] の研究から，放射線を構成する移動粒子が，電気分解における水素原子に等しい電荷 e を有すること，この電荷は全ての放射線で同じであること分かる．従って，粒子の質量 m は速度が増大すると増加すると結論できる．

理論的には，運動する電荷の速度が変化するためにはエネルギーが必要であることから，粒子の慣性はまさに運動する電荷の状態に起因すると考えられる．言い換えれば，粒子の慣性は電磁気的なものであり，粒子の質量は少なくともその一部は見かけの質量あるいは電磁気的質量である．Abraham 氏 [54] はさらに，粒子の質量はすべて電磁気的質量であるとしている．この理論で速度 v に対する質量 m を計算すると，v が光速に近づくと m は無限大に近づき，v がより小さい時は m は一定値に漸近する．Kaufmann 氏の実験結果はこれに一致するもので，運動する小荷電物質の動態メカニズムの基礎となりうる点で非常に重大である [55]．Kaufmann 氏の実験による e/m と v の関係を示す．

e/m (電磁単位) × 10^7	v (cm/sec) × 10^{10}	
1.865	0.7	陰極線
1.31	2.36	ラジウム線
1.17	2.48	
0.97	2.59	
0.77	2.72	
0.63	2.83	

Kaufmann 氏は，この実験と理論の比較から，比較的遅い速度のラジウム線における e/m 比の上限は，陰極線に同じであると結論している．

Kaufmann 氏の最も完全な実験は，我々が提供した純粋塩化ラジウムの細粉を使って行われたものである．

この実験によると，ラジウムの β 線は，光速に非常に近い速度を有する．このような放射線が非常に大きな透過性を有することは理解しうるところである．

α 線に対する磁場の作用

最近 Rutherford 氏 [56] は，強力な磁場あるいは電場中で，ラジウムの α 線が，高速な陽電荷粒子と同じように僅かに偏向すると報告した．Rutherford 氏の実験の結論では，α 線の速度は 2.5×10^9 cm/sec 程度で，e/m 比は 6×10^3，偏向 β 線の 10^4 倍である．後述ように，この結論は既知の α 線の性質に一致するもので，少なくとも部分的にこの放射線の吸収法則を説明しうる．

Rutherford 氏の実験は，Becquerel 氏によっても確認された．また Becquerel 氏はさらに，ポロニウム線が磁場中でラジウムの α 線と同様にふるまうこと，磁場強度が同じならば同じ円弧を描くことを示した．また Becquerel 氏の実験では，α 線は磁気的なスペクトルを作らず，すべて等しく偏向される均一な放射線としてふるまうことも示されている [57]．

Des Coudres 氏は，真空中でラジウムの α 線の，電場および磁場中の偏向を測定した．これによると，放射線の速度は 1.65×10^9 cm/sec，e/m 比 6400 電磁単位であった [58]．従って α 線の速度は，光の約 1/20 である．e/m 比は電気分解における水素の e/m=9650 と同程度のオーダーである．各粒子の電荷が電気分解のおける水素原子に等しいとすると，この粒子の質量も水素原子と同程度と結論できる．

既に見たように，陰極線と最も遅いラジウム β 線の e/m 比は 1.865×10^7 である．これは電気分解で得られる値の約 2000 倍である．負に荷電した粒子の電荷が水素原子と同じであるとすると，比較的低速な粒子の限界質量は水素原子の約 1/2000 となる．

従って，β 線を作る粒子は α 線よりもずっと小さく，速度が速い．これから，β 線の方が透過性が高いことが首肯できる．

その他の放射性物質の放射線に対する磁場の影響

我々はラジウムが，陽極線類似の α 線，陰極線類似の β 線，透過性で非偏向性の γ 線を放出することを見てきた．ポロニウムは α 線のみを放出する．その他の放射性物質については，アクチニウムはラジウム同様に見えるが，ラジウムほど研究が進んでいない．その他の弱い放射性物質については，ウラン，トリウムが，α 線と偏向 β 線を放出することが知られている (Becquerel 氏，Rutherford 氏)．

ラジウム放射線における偏向 β 線の比率

前述のように，放射線源から遠ざかると β 線の比率は増加する．しかし β 線が単独で現れることはなく，常に γ 線が存在する．ラジウム線に非常に透過性が高い

非偏向性放射線が存在することは，Villard 氏 [59] が初めて報告した．この放射線は電気的方法で測定される放射線のごく小部分を占めるのみで，我々の初期の実験ではその存在に気づかなかったため，遠距離では偏向放射線のみ存在すると誤認していた．

図 5 に示すような装置を使った電気的方法による実験により多くの結果が得られている．ラジウムとコンデンサーを隔てるのは周囲の空気のみである．放射線源とコンデンサーの距離を d とする．第 2 行の数字は，各距離において磁場がない時に得られる電流を 100 とするとき，磁場が作用した場合の残存電流を示す．この方法では，α 線の偏向はほとんど観測できないことから，この数字は α 線と γ 線を足したものの比率と考えられる．

遠距離では α 線は存在しないことから，非偏向放射線は γ 線のみである．

短距離での実験結果：

d (cm)	3.4	5.1	6.0	6.5
非偏向放射線の％	74	56	33	11

遠距離での実験結果．上述の実験よりもかなり放射性が高い線源を使用している．

d (cm)	14	30	53	80	98	124	157
非偏向放射線の％	12	14	17	14	16	14	11

ある程度の距離以降は，非偏向放射線の比率がほぼ一定することがわかる．2 つの極端な実験の電流値の比が 660:10 であったことを考えれば，第 2 行の数字の不規則性についてはあまり気に留める必要はない．測定は線源距離 1.57m まで実施しているが，現在ではさらに遠距離まで可能である．

次の実験は，ラジウムを非常に細いガラス管に封入し，コンデンサーの下に電極と平行に置いて測定したものである．放射線は一定の厚さのガラスと空気を透過してコンデンサーに到達する．

d(cm)	2.5	3.3	4.1	5.9	7.5	9.6	11.3	13.9	17.2
非偏向放射線の％	33	33	21	16	14	10	9	9	10

前記の実験のように，距離が遠くなると第 2 行の数字は一定値に近づくが，前記にくらべて短距離で漸近している．これは α 線が，β 線，γ 線にくらべてガラスにより強く吸収されるためである．

また別の実験では，薄いアルミ箔 (0.01mm 厚) が，主に α 線を吸収することが示された．線源をコンデンサーから 5cm の距離に置き，磁場を作用させると，β 線以外の放射線の比が 71％となった．同じ線源をアルミ箔で覆い，距離は同じにすると，α 線はアルミ箔に吸収される結果，放射線はほぼ完全に磁場によって偏向した．吸収フィルターとして紙を使用しても同じ結果が得られた．

ラジウムの放射線の大部分は，おそらく主にその表面から放出される α 線である．線源物質の厚さを変化させると，電流強度が増加する．この増加は放射線全体としては厚さに比例しない．この現象は α 線よりも β 線に顕著であり，線源の厚さの増加とともに β 線の比率が増加する．線源をコンデンサーから 5cm の距離に置くと，放射層の厚さ 0.4mm で，層放射線量は 28，β 線の比率は 29％であった．放射層を 2mm 厚，すなわち 5 倍にすると，層放射線量は 102，β 線比率は 45％となった．すなわちこの距離における総放射線量は 3.6 倍，偏向 β 線は 5 倍となる．

前述の実験は電気的方法によるものであった．放射線写真法では，一部の結果が表面的にはこれに矛盾する．Villard 氏は，磁場の影響を受けたラジウム線を積み重ねた写真乾板で受光する実験を行った．非偏向性の透過性 γ 線は，全ての乾板を透過してそれぞれに痕跡を残す．偏向 β 線は，1 枚目の乾板にのみ痕跡を残す．これは β 線の透過性が低いためである．

我々の実験結果はこれと異なり，空気中を伝播する放射線は，最大距離で偏向 β 線の約 9/10 が観測され，線源を小さなガラス管内に封入しても同様であった．Villard 氏の実験では，透過性 β 線は，最初の固体障壁で四方八方に散乱されて光線の形を失うため，1 枚目の乾板以降には記録を残さない．我々の実験でも，ラジウムから放出されてガラス管を透過した放射線は，おそらくガラスにより散乱されているが，ガラス管が非常に小さいため，これ自体の表面が偏向 β 線源となり，ガラス管から遠く離れたところでもこれを観測できたものである．

Crookes 管からの陰極線は，非常に薄いフィルター (0.01mm 厚アルミ箔) しか透過できない．フィルターに垂直に入射する放射線は四方八方に散乱される．しかし，薄いフィルターの場合，散乱はそれほど影響せず，入射放射線の延長上に出射放射線が得られる [60]．

偏向性 β 線も同様にふるまうが，同じフィルター厚の偏向実験では変化がずっと少ない．Becquerel 氏の実験では，ラジウムの (比較的低速で) 非常に強く偏向する β 線は，0.1mm 厚のアルミ箔で強く散乱された．しかし透過性で，偏向性が弱い放射線 (高速の陰極線) は，フィルターが放射線に対して傾いていても，歪むことなく，あきらかな散乱なく同じフィルターを透過した．高速の β 線は，ずっと厚い (数 cm) ケロシンを散乱することなく透過し，磁場で弯曲した放射線も透過した．フィルターが厚いほど吸収は大きくなり，新たなより透過性の大きい放射線群も散乱するため，偏向放射線の変化は大きくなる．

空気も，これを透過するラジウムのβ線を散乱し，特に強く変更する放射線では顕著であるが，同じ厚さの固体よりもずっと軽度である．このため，ラジウムの偏向β線は空気中でも遠距離まで到達する．

放射性物質の放射線の透過性

放射線物質に関する研究の最初期から，これらが放出する放射線の様々なフィルターによる吸収に注目してきた．この問題に関する最初の報告 [61] では，ウラン線，トリウム線の相対的透過性についていくつかの数値を挙げた．Rutherford 氏は，特にウラン線を研究し [62]，これが不均一であることを示した．Owens 氏は，トリウムについて同様の結論を得ている [63]．強い放射性物質が発見されると直ちに，様々な物理学　者 (Becquerel，Meyer and von Schweidler, Curie, Rutherford の各氏) がその放射線の透過性を研究した．初期の観測では，放射線の不均一性が採り上げられ，これは放射性物質に共通する一般的現象と思われたが [64]，我々はそれぞれ固有の透過性を持つ一連の放射線があることを見出した．この問題はさらに，放射線が物質を透過することにより，その性質がどの程度変化するかも研究する必要があり，測定値はそれぞれ使用する実験装置によってのみ正確な意味を有することから，さらに複雑になる．

このような点に留意しつつ，様々な実験を総合して結果全体を概観する．

放射性物質が放出する放射線は，空気，真空中を伝播する．この伝播は直線的である．このことは，放射線不透過性の物体を，線源と受容装置である写真乾板あるいは蛍光板の間に置くと，明瞭な陰影が得られることから証明できる．線源は受容装置との距離に比して充分小さいものとする．Becquerel 氏の様々な実験 [65] が，ウラン，ラジウム，ポロニウムの放射線が直線的に伝播することを示している．

放射線が伝播する線源からの距離は興味深いところである．我々は，空気中で数 m 離れたところでラジウム線を観測できることを見いだした．電気的測定では，2 ～ 3m の距離でもコンデンサーの空気への作用が認められた．蛍光作用，写真作用についても，同距離で同程度の効果が見られた．空気による吸収に加えて，受容装置に対する作用は距離の二乗に反比例して減弱することから，これらの実験は非常に強力な放射線源でのみ可能である．このラジウムから遠距離を伝播する放射線には，陰極線と非偏向性放射線が含まれる．しかし，前述の実験によれば偏向線が大部分を占める．一方，放射線の大部分 (α線) については，空気中の伝播距離は約 7cm に限られる．

我々は，小さなガラス管に封入したラジウムでいくつかの実験を行った．このガラス管から出る放射線は，一定距離の空気を通過してコンデンサーが受光し，ここで通常の電気的方法で電離作用が測定される．線源とコンデンサーの距離を変化させ，コンデンサー内の飽和電流 i を測定する．以下に結果を示す．

d (cm)	i	$(i \times d^2) \times 10^{-3}$
10	127	13
20	38	15
30	17.4	16
40	10.5	17
50	6.9	17
60	4.7	17
70	3.8	19
100	1.65	17

一定の距離以降では，放射線強度はコンデンサーまでの距離の二乗に反比例して変化する．

ポロニウム線は，放射線源から 4 ～ 6cm までしか空気中を伝播しない．

固体フィルタによる放射線吸収についても，ラジウムとポロニウムには根本的な差異がある．ラジウム線は厚い固体を透過でき，数 cm の鉛，ガラスも透過する [66]．厚い固体を通過する放射線は著しく透過性が高く，実際的には完全に吸収することは不可能である．しかしこのような放射線は全体のごく一部で，大部分は薄い固体で吸収できる．

ポロニウムの放射線は非常に吸収性が高く，非常に薄い固体フィルターしか通過しない．

以下に，0.11mm 厚アルミ箔による吸収値の例を示す．アルミ箔は，放射性物質の上に密接して置き，アルミ箔を透過する直接放射線を電気的方法 (図 1) で測定した．いずれの場合も飽和電流が得られた．放射線源の強度は，ウランを単位として表示したものである．

	a	アルミ箔を通過する放射線の割合
塩化バリウム	57	0.32
臭化バリウム	43	0.30
塩化バリウム	1200	0.30
硫酸バリウム	5000	0.29
硫酸バリウム	10000	0.32
金属ポロニウム／ビスマス		0.22
ウラン化合物		0.20
トリウム化合物 (薄層)		0.38

本研究の冒頭でウラン化合物，トリウム化合物について示した通り，性状，強度の異なる放射性物質でも非常に類似した結果が得られる．放射線の全体量，吸収フィルターを考慮して様々な放射性物質を透過性の高い順に並べると以下のようになる : トリウム，ラジウム，ポロニウム，ウラン．

この結果は，Rutherford 氏がこの件について発表している論文と同様である [67]．

Rutherford 氏はさらに，吸収物質が空気の場合もこの順序は変わらないことを見いだしている．しかしこ

の順序は決して絶対的なものではなく，フィルターの性状，厚さによって変化しうる．

経験上，吸収則はポロニウムとラジウムで大きく異なり，ラジウムについては３種類の放射線について個別に考える必要がある．

ポロニウムについては，我々のもとにある試料は α 線以外を放出しないので，α 線の研究に適している．最近調製した高放射性のポロニウムを利用して，初めて一連の実験を行った．ポロニウムは，透過した物質が厚いほど吸収性が大きいことを見いだした [68]．この吸収則は，既知の放射線とは異なる特異なものである．

我々は，以下のような設定で導電性測定装置で測定した．

コンデンサーの２つの電極 PP および P'P' は水平で，接地した金属筐体 BBBB 内にある (図 8)．放射性物質 A は，厚い金属の箱 CCCC 内にあって，金属メッシュ T を透過してコンデンサー内の空気に作用する．メッシュを透過した放射線は，電流の生成にのみ利用され，電場はメッシュの位置で消失する．線源とメッシュの距離 AT は可変である．電極間の電場は電池による．検電計および圧電結晶により電流を測定する．線源 A の上に様々なフィルターを置き，距離 AT を変化させることにより，空気中を通過する放射線の吸収を測定できる．

ポロニウムの実験結果は以下の通り：

一定の距離 AT(4cm 以上) では，電流は流れず，放射線はコンデンサーを通過しない．距離 AT を短縮すると，突然コンデンサー内を放射線が通過するようになり，わずかな距離短縮で非常に小さな電流から大電流まで得られるようになる．その後は，線源をメッシュ T に近づけるにつれて電流は確実に増加する．

放射性物質を 1/100mm 厚のアルミ箔で覆う場合，

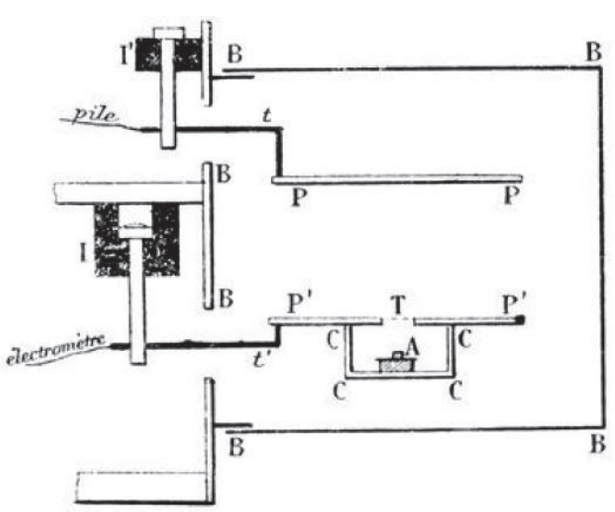

図 8

AT が長いほどアルミ箔による吸収は大きい．

アルミ箔の上にもう 1 枚アルミ箔を重ねると，それぞれが放射線の一部を吸収するが，２枚目の方が 1 枚目より吸収率が大きく，従ってより多くの放射線を吸収する．

次表では，第 1 行はポロニウムとメッシュ T の距離，第２行は 1 枚のアルミ箔による吸収 (％)，第３行は同じアルミ箔２枚を重ねた場合である．

距離 AT	3.5	2.5	1.9	1.45	0.5
1 枚のアルミ箔の透過率 (％)	0	0	5	10	25
2 枚のアルミ箔の透過率 (％)	0	0	0	5	0.7

この実験で，電極 P と P' の距離は 3cm である．アルミ箔を間置すると，近傍よりも遠いところで放射線強度の減弱率が大きくなる．

この効果は，前述の数字よりも大きい．

例えば 0.5cm と 1cm の間の放射線のみを集めれば，さらに大きな透過性が得られるであろう．実際，電極 P を P' から 0.5cm の位置に置くと，アルミ箔からの放射線は 47％ (AT=0.5cm) となり，２枚の電極間では初期の放射線の 5％となる．

最近このポロニウムで２回目の実験を行ったが，その放射能は３年を経て明らかに低下していた．

前回の実験では，ポロニウムは亜硝酸塩の状態であったが，最近は亜硝酸塩がシアン化カリウムと結合して粒状金属となっている．

ポロニウムの放射線の基本的に同じ性状を持つことが分かり，幾つかの新たな結果を得た．以下は，４枚の非常に薄いアルミ箔を重ねたフィルターを通した放射線の比率を異なる距離 AT に対して測定したものである．

距離 AT (cm)	0	1.5	2.6
フィルター通過後の放射線 (％)	76	66	39

同様に，フィルタが吸収する放射線の割合は通過する物質が厚くなると増加するが，この現象が起こるのは距離 AT が一定値以上の場合のみであることを見いだした．この距離がゼロの時 (ポロニウムはすべてコンデンサーの外側あるいは内側でメッシュに接している)，幾つかの同じフィルターを重ねると，それぞれが同じ割合の放射線を吸収する．すなわち放射線強度はそれが通過する物体の厚さに応じて指数関数的に減少し，均質な放射線はフィルター通過後もその性状は変化しない．

以下，この実験の数値的な結果を示す．

距離 AT が 1.5cm の時，薄いアルミ箔は受光した放射線の 51％を透過させるが，同じフィルターをもう 1 枚置くと，34％となる．

一方．AT がゼロのとき，2 枚の同じフィルターは，受光した放射線の同じ割合を透過させ，これは 71％なので，前述の場合より大きくなる．ここで，距離 AT がゼロで，非常に薄いフィルターを重ねる場合，各フィルターが受光した放射線を透過させる比率は以下のようになる．

非常に薄い銅フィルター 9 枚	非常に薄いアルミニウムフィルター 7 枚
0.72	0.69
0.78	0.94
0.75	0.95
0.77	0.91
0.70	0.92
0.77	0.93
0.69	0.91
0.79	
0.68	

非常に薄いフィルターを使って密着して重ねることが難しいことを考えると，各列の数値は一定と考えてよい．アルミニウム列の最初の値だけが，それ以下よりも吸収が大きいことを示している．

ラジウムの α 線は，ポロニウム線と同じようにふるまう．これらの放射線は，より偏向度が大きい β 線を磁場によって除去することにより単独に扱うことができる． γ 線は α 線ほど重要でないと思われるが，これは放射線源からある程度の距離ととらないと扱えない．この実験結果を以下に示す．0.1mm 厚アルミ箔を透過する放射線量を測定した．フィルターは常に線源の上方の短い距離で同じ位置にある．図 5 の装置を使用して，コンデンサー内に発生する電流を，距離 AD を変えて，フィルターの有る場合，無い場合で測定した．

距離 AD	6.0	5.1	3.4
アルミニウムが透過する放射線 (%)	3	7	24

ここでもアルミニウムが最も多く吸収される放射線が空気中で最も遠くに伝播する．これも，ラジウムの吸収される α 線成分とポロニウム線の大きな共通点である．

これに対して，偏向 β 線，非偏向透過性 γ 線は性質が異なる．様々な物理学者，特に Meyer, von Schweidler 両氏は，ラジウム線全体を考えると，その透過性は，レントゲン線と同じように通過する物質が厚いほど強くなることを示している [69]．この様な実験には， α 線は非常に薄いフィルターでも事実上抑制されてしまうことからほとんど関与しない．透過するのは大なり小なり偏向される β 線，レントゲン線類似の γ 線である．

以下に著者が行った実験結果を示す．ラジウムはガラス管に封入した．ガラス管からの放射線は 30cm の空気層を通過して 1.3mm 厚のガラス板に当たる．1 枚目は受光した放射線の 49％を透過し，2 枚目は 84％，3 枚目は 85％であった．

また別の実験では，ガラス管に封入したラジウムを，コンデンサーから 10cm の距離に置いた．同一の 0.115mm 厚鉛フィルターをガラス管の上に置いた．

一連のフィルターによる放射線の透過率は以下の通り．

0.40	0.60	0.72	0.79	0.89	0.92	0.94	0.94	0.97

4 枚の 1.5mm 厚鉛フィルターの場合，各フィルターの透過率は以下の通り．

0.09	0.78	0.84	0.82

これらの実験から，通過する鉛の厚さが 0.1mm から 6mm に増加すると，放射線の透過性は増大することがわかる．

このような実験条件下では，1.8mm 厚鉛フィルターを，受光放射線の 2％が透過する．5.3mm 厚では 0.4％である．また 1.5mm 厚鉛フィルター通過後の放射線は，陰極線様の偏向放射線を多く含んでいる．従ってこれらの放射線は，空気中を長距離伝播するのみならず，鉛のような厚い高吸収性物質も透過する．

0.01mm 厚アルミ箔によるラジウム線の吸収を図 2 の装置で検討した．アルミ箔は線源から常に同じ距離に置き，コンデンサーの距離 AD は可変とする．得られる結果は 3 種の放射線が重ね合わさったものとなる．距離が遠い場合，透過性放射線が優位となり，吸収は弱い．短距離の場合， α 線が優位となり，線源が近いほど吸収は弱くなる．中等度の距離では，吸収は最大，透過は最小となる．

距離 AD	7.1	6.5	6.0	5.1	3.4
アルミニウムを透過する放射線 (%)	91	82	58	41	48

しかし，いくつかの実験では α 線と偏向 β 線の間に類似が指摘されている．Becquerel 氏は，固体フィルターによる β 線の吸収が線源とフィルターの距離に応じて増加し，図 4 のように放射線に磁場を作用させると，線源に接するフィルターの方が同じフィルターを写真乾板に置く場合よりも大きな磁気効果を示すことを見いだした．フィルターと線源の距離によるフィルターの吸収性の変化は， α 線に類似している．Meyer, von Schweidle 両氏は，これを蛍光法で証明した．Curie 氏と著者は，同じ事実を電気法で観測した．この現象が発生する条件については未検である．しかし，ラジウムをガラス管に封入し，これをそれ自体をアルミ箔で覆ったコンデンサーから充分遠距離に置くと，フィルターが線源，コンデンサーのいずれに接していても結果は同じで，同じ電流が得られる．

α 線の研究から，一定速度で撃ち出した物体が障害物に当たってその強い力を失うふるまいに似ていると考えるようになった [70]．しかし α 線は Becquerel 氏が以下の実験で示したように，直線状に伝播する．放射

線を放出するポロニウムを，厚紙に空けた非常に狭い空洞に入れる．これにより線状の線源が得られる．直径 1.5mm の銅線を線源から 4.9mm の位置に平行に置く．写真乾板を 8.65mm の位置に平行に置く．10 分間露光すると，銅線の陰影が，予測される通りの大きさで，その両側に線源の幅に応じた細い半影を伴う陰影として明瞭に得られる．銅線にアルミ箔を 2 枚重ねて置いても光線はこれを透過する．

このように，この光線は完全な幾何学的陰影を作る放射線である．アルミニウムによる実験で，この光線がフィルター通過時も散乱されないこと，フィルターからレントゲン線のような二次線を，少なくとも認識できるほどは発生しないことが示されている．

α 線は，Crookes 氏のスピンサリスコープによる非常に優れた実験でも認められている [71]．この装置は，硫化亜鉛の蛍光板の前に，ワイヤの先端にラジウム塩の粒を載せて置いたものである．ラジウム粒とフィルターの距離は例えば 0.5mm と非常に短く，ラジウムに面する蛍光面を拡大鏡で観察する．ここでは，蛍光板上に雨のように連続的に明滅する輝点が，満天の星空のように見える．ラジウムに近い部位では輝点が密で，中等度の距離では連続的に発光する．この現象は気流に影響されず，真空中でも発生する．ラジウムと蛍光板の間に非常に薄いフィルターをおくだけでこの現象は抑制される．従ってこの現象はラジウムの最も吸収されやすい α 線によるものと思われる．

それぞれの輝点は，単独の粒子の衝突によるものと想像できる．この目視法により，我々は初めて原子と同じオーダーの大きさの粒子の個々の作用を観察できる現象を手にしたのである．

輝点の様子は，星や高輝度の微小物体が網膜上に鮮明な像を結ばず回折像を作るのと同じで，非常に小さな輝点が単一原子の衝突により生じるとする考え方に良く一致するものである．

透過性非偏向性 γ 線は，全く異なる性質を持ち，レントゲン線に類似している．同様な性質をもつ透過性の低い放射線は，粒子線に隠されてしまう可能性があるため，これがラジウム線に含まれていないという保証はない．

放射性物質の放射線がいかに複雑かということを見てきたが，さらにこのような放射線が物質で単に吸収されるだけなのか，何か変質するのかを調べる必要があることが研究の困難を増すことになる．

この問題についてはほとんど知られていない. しかし，ラジウム線が陰極線様の放射線，レントゲン線様の放射線を含むことを認めるなら，フィルターを通過するときに変質することが予想される．以下の事が知られている．(1)Crookes 管からの陰極線は，アルミニウム窓 (Lenard の実験) を通過すると強く散乱し，通過後は速度が低下する．0.01mm 厚のアルミニウムを通過すると 1.4×10^{10}cm の速度が 10% 減じる [72]．(2) 陰極線は，障害物に衝突するとレントゲン線を発生する．(3) レントゲン線は，固体に衝突すると，2 次線を発生しその一部は陰極線である [73]．

従って，類似性から，前述の現象はすべて放射性物質の放射線についてもその存在が予想される．

Becquerel 氏は，ポロニウム線をアルミニウムフィルターに通過させる実験で，二次線の発生も，陰極線への変質も観察していない [74]．

フィルター交換法により，ポロニウム線の変質を検討した．2 枚のフィルター E1, E2 を重ねて放射線を通過させるとき，フィルターにより放射線が変質しなければ，その順序は無関係である．逆にフィルターにより放射線が変質するならば，その順序は無関係ではない．例えば，放射線が鉛を通過することにより，吸収性がより大きな放射線に変質し，アルミニウムはこのような作用を発揮しないとすれば，鉛－アルミニウムの場合はアルミニウム－鉛よりも暗くなる．レントゲン線はこれに相当する．

著者の実験では，プルトニウム線でこの現象が発生した．使用した装置を図 8 に示す．ポロニウムは CCCC 内に置き，非常に薄い吸収フィルターを金属メッシュ T の上に置いた．

フィルター	厚さ (mm)	電流
アルミニウム	0.01	17.9
真鍮	0.005	
真鍮	0.005	6.7
アルミニウム	0.01	
アルミニウム	0.01	150
錫	0.005	
錫	0.005	125
アルミニウム	0.01	
錫	0.005	13.9
真鍮	0.005	
真鍮	0.005	4.4
錫	0.005	

この結果から，放射線は固体フィルターを通過すると変質することがわかる．これは，2 枚の同一金属フィルターを重ねると，1 枚目は 2 枚目よりも吸収が少なく見えることに一致する．またこのことから，フィルターによる変質効果は，フィルターと線源の距離が遠いほど大きくなると思われる．この点は確認しておらず，変質の詳細については未検である．

著者は，同様の実験を高放射性のラジウム塩でも行った．その結果は陰性であった．すなわち，フィルターの順序を変えても，透過する放射線の強度には有意の変化が見られなかった．使用したフィルターは以下の通りである．

	厚さ (cm)		厚さ (mm)
アルミニウム	0.55	白金	0.01
〃	0.55	鉛	0.1
〃	0.55	錫	0.005
〃	1.07	銅	0.05
〃	0.55	真鍮	0.005
〃	1.07	真鍮	0.005
〃	0.15	白金	0.01
〃	0.15	亜鉛	0.05
〃	0.15	鉛	0.1

鉛－アルミニウム系は，アルミニウム－鉛系よりもやや暗かったが，その差は小さなものであった．

この方法で，ラジウム線に明らかな変質は検出できなかった．しかし，Becquerel 氏は様々な放射線写真法で，ラジウム線を照射した固体フィルターからの散乱線，二次線の非常に強い作用を観測している．二次線という点では，これが最も強い物質は鉛と思われる．

ラジウム線の液体誘電体に対する電離作用

Curie 氏は，ラジウム線とレントゲン線が空気と同じように液体誘電体に作用し，一定の導電性を付与することを示した [75]．この実験を以下に示す (図 9)．

実験対象の液体を金属容器 CDEF に入れ，薄い銅管 AB を浸す．この 2 つの金属が電極となる．容器を小さな電池につないで一定の電位に保ち，他極は接地する．AB を検電計に接続する．電流を液体中に流し，電流値を測定する圧電液晶により検電計をゼロに維持する．接地された銅管 MNM'N' は電流が空気中に漏電しないようにする保護管となる．ラジウム含有バリウム塩を容れたガラス容器を管 AB の底部に置く．放射線はガラス管と金属管の壁を透過して液体に作用する．ラジウムは，壁 DE の下にガラス容器を置くことによっても作用させられる．

レントゲン線を扱う場合は，DE を透過した放射線を使用する．

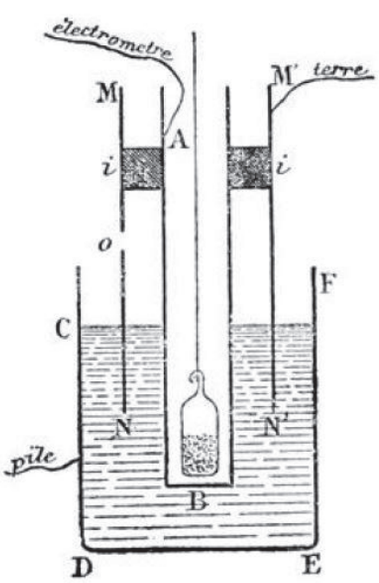

図 9

全ての液体誘電体において，ラジウム線，レントゲン線による導電性の上昇が認められるが，液体自体の導電性は放射線の効果を隠蔽しない程度に低い必要がある．

Curie 氏は，ラジウム線，レントゲン線のいずれにおいても同程度の効果を認めた．

同じ装置で空気その他の気体に対するベクレル線の影響を調べると，電流値は電極間の電位差が数 V まではこれに比例することがわかった．しかしさらに高い電位では，電流の増加は次第に緩徐となり，100 ボルトで飽和する．

同じ装置，同じ高放射性物質で液体を調べると，ふるまいは異なった．電流は 0 ～ 450V の範囲で比例し，電極間距離が 6mm 以下でも同様であった．同一条件下で，ラジウム塩の放射線によって様々な液体に惹起される導電性を検討した．

以下の表に導電性を示す（ $\times 10^{-14}$ mho /cm^3 ，mho は ohm の逆数)．

硫化炭素	20
石油エーテル	15
アミレン	14
塩化炭素	8
ベンジン	4
液化空気	1.3
ワセリン油	1.6

液体と気体は同様にふるまうと思われるが，液体では気体にくらべてより高い電圧まで電流と電圧が比例する．気体との類似性から，より弱い放射線を使うことによりこの比例性の下限を低くすることが可能と思われる．この予想は実験により実証できる．放射性物質には，最初の実験よりも 1/150 弱いものを使用した．電圧が 50, 100, 200, 400V の時，電流はそれぞれ 109, 185, 255, 335 であった．電圧を 2 倍にする毎に電流は大きく変化するが，比例性は失われている．

試験した液体の一部は，一定温度下で放射線の作用から防護すれば，ほぼ完全な誘電体である．このようなものには，液化空気，石油エーテル，ワセリン油，アミレンなどがある．従って，放射線の影響を試験することは非常に容易である．ワセリン油は，石油エーテルに比べて放射線の影響をずっと受けにくい．この 2 つの炭化水素の差異は，おそらくその揮発性の差によるものとして良いであろう．液化空気は，容器内で一定時間沸騰させると，単にそのままの場合よりも放射線に対する感受性が増加し，導電性は 1/4 大きくなる．Curie 氏は，アミレン，石油エーテルに対する放射線の影響を，10 度，-17 度で試験したところ，放射線による導電性は，10 度から -17 度に変化させても 1/10 しか減少しなかった．

液体の温度を変化させる実験では，ラジウムを室温，

液体と同じ温度においたが，結果は同じであった．

これは，ラジウムの放射線が温度により変化せず，液化空気の温度でも同じであることによる．この事実は，測定により直接証明されている．

放射性物質から出る放射線の電離作用の様々な効果と応用

新しい放射線物質の放射線は，空気を強く電離する．ラジウムによって，陰極線，レントゲン線と同様に飽和水蒸気を容易に凝結させることができる．新たな放射性物質が放出する放射線の影響下では，一定電位差のある 2 枚の金属導体間の火花距離が増加する．すなわち，放射線の作用により火花が飛びやすくなる．この現象は，最も透過性の高い放射線の作用による．実際，ラジウムを 2cm 厚の鉛で覆うと，全放射線のうちここを通過する放射線の割合は非常に小さいが，ラジウムの火花に対する作用は大きく減じる．

2 枚の金属導体の一方を接地，他方は良く絶縁された検電計に接続し，その近傍の空気を放射性物質の作用で導電性にすると，検電計の針は恒久的に振れる．これにより，空気と 2 つの金属が構成する電池の起電力 (空気で隔てられた 2 つの金属の接触起電力) を測定できる．この測定法は，Kelwin 卿らがウラン線について利用した方法である [76]．同様の手法は，Perrin 氏もレントゲン線の電離作用を利用している [77]．

放射性物質は，大気電気の研究にも利用できる．放射性物質を薄いアルミニウムの箱に封入し，検電計に接続した金属棒の一端に接続する．金属棒周囲の空気が帯電し，棒は周囲の空気の電位を持つようになる．この結果，一般に大気電気の研究に利用される Kelwin 卿の火炎装置，水流装置をラジウムで置換できる [78]．

蛍光作用，発光作用

新たな放射性物質の放射線は，ある種の物質に蛍光を発生させる Curie 氏と著者は，シアン化白金バリウム層にアルミ箔を通してポロニウムを作用させて，この現象を初めて発見した．ラジウム含有バリウムでも同様の実験に成功している．強い放射性物質を使用すると，その蛍光は非常に美しい．

ベクレル線によって，多くの物質が燐光あるいは蛍光を発生する．Becquerel 氏はウラン塩，ダイアモンド，ピッチブレンドなどでこれを研究している．Bary 氏は，通常光，レントゲン線の下で蛍光を発するアルカリ塩，アルカリ土金属が，ラジウム塩でも蛍光を発することを示した [79]．ラジウムの近傍では，紙，木綿，ガラスなども蛍光を発する．様々なガラスの中でも，チュニジアガラスは特に発光が強い．金属は発光しないようである．

シアン化白金バリウムは，放射性物質の放射線を蛍光法で研究するに当たって最適な物質である．ラジウム線の効果は，距離 2m 以上に及ぶ．蛍光性の硫化亜鉛は非常に高輝度であるが，放射線照射後もしばらく発光している欠点がある．

吸収フィルターでラジウムを蛍光板から隔てても，ラジウムによる蛍光は発生する．シアン化白金バリウムの蛍光は，体内でも観察できる．しかし蛍光板をラジウムの近くに置き，フィルターを何も使わない時に蛍光は最も強くなる．いずれの種類の放射線も蛍光を発生しうると思われる．

ポロニウムの作用を見るには，フィルターを全く使用しないかあるいは非常に薄いフィルターのみとして蛍光板と線源をできるだけ近づける必要がある．

放射性物質の曝露した蛍光物質の輝度は，次第に減弱する．同時に蛍光物質は変化する．以下に例を示す．

ラジウム線は，シアン化白金バリウムを，発光性の弱い褐色の物質に変換する (レントゲン線で認められ，Villard 氏が記載しているものに類似している)．硫酸カリウムウラニルは黄色に変色する．変化したシアン化白金バリウムは，露光により部分的に再生する．紙に載せたシアン化白金バリウム層の下にラジウムを置くと発光する．これを暗所に置いておくとシアン化白金は変化し，その輝度は大きく低下する．しかしこれを光に当てると部分的に回復し，暗所で再び発光する．このようにして，蛍光物質と放射性物質を使用して，長時間燐光を発する燐光物質と同様の効果を実現できた．

ラジウムの作用で蛍光を発するガラスは，褐色あるいは紫色に変色し，同時に蛍光が減弱する．この変化したガラスを加熱すると，脱色すると同時に発光する．この処理後，ガラスは変化前と同程度の蛍光性を回復する．

硫化亜鉛に充分長時間ラジウムを作用させると，徐々に消耗して，ラジウム，通常光いずれの下でもその燐光を失う．

ダイアモンドは，ラジウムの作用で燐光性となり，輝度が非常に低い模造ダイヤを鑑別できる．

全てのラジウム含有バリウム化合物は，自然発光性である [80]．無水ハロゲン化塩は，特に協力に発光する．この発光は明るい昼光下では見えないが，薄暗い部屋やガス灯照明下では容易に認められる．暗所での少量の放射性物質の発光は，本を読める程度に強力である．通常の燐光物質では物質全体から発光するが，この場合は主に表面の一部から発光する．放射性物質は，湿度が高いとラジウム含有物質は発光性を失うが，乾燥させると回復し (Giesel 氏)，輝度は保たれて見える．ガラス管に封入して暗所に保存した弱い放射性物質の発光性に，あきらかな変化はみられず，非常に放射能

が強く輝度の明るいラジウム含有塩化バリウムでは，数ヶ月で光の色が変化してより紫がかり，輝度が低下する．同時に物質に一定の変化が見られる．塩を水に溶解して乾燥すると，再びもとの輝度が回復する．

ラジウム含有率の高いラジウム含有バリウム塩の溶液も発光性である．これは，それ自体は発光性でない白金カプセルに溶液を容れると，微かに発光することからもわかる．

ラジウム含有バリウム塩の溶液中に結晶があると，この結晶は溶液自体よりも強く発光するため，単独で発光しているようにみえる．

Giesel 氏は，ラジウム含有バリウムのシアン化白金化合物を調製した．この塩が結晶化すると，通常のシアン化白金バリウムのような外観で非常に高輝度となる．しかし，塩は自然に徐々に褐色調になり，結晶は二色性となる．この状態で放射能は増強するが，塩の輝度は大きく減弱する [81]．Giesel 氏が調製したシアン化白金ラジウムは，さらに急速に変化する．ラジウム化合物の成分は，初の自発的発光物質である．

ラジウムによる発熱

ごく最近，Curie, Laborde 両氏は，ラジウム塩が自発的かつ連続的な熱源であることを発見した [82]．この熱の放出により，ラジウム塩は周囲の温度よりも高温に維持される効果がある．また温度は，物質の断熱性に依存する．この温度上昇は，2 本の通常の水銀温度計でおおまかに実験できる．2 つの同じ断熱容器を使用した．そのひとつに，純粋な臭化ラジウム 7dg を含むガラス管を入れ，他方に非放 z 線物質 (例えば塩化バリウム) を含む同じガラス管を入れる．それぞれの温度計の水銀溜まりをガラス管の近傍におき，容器内の温度を表示する．断熱開口部は，木綿で閉鎖した．温度平衡が得られたところで，ラジウムの容器は他よりも常に高い値を示した．その差は 3℃であった．

ラジウムが放出する熱量は，ブンゼン氷熱量計で測定できる．ラジウム塩をいれたガラス管をこの熱量計に入れると，持続的な熱供給が観測され，これはラジウムを除去するとただちに停止する．調製後長期間を経たバリウム塩の測定では，ラジウム 1g 当り毎時約 80cal であった．従ってラジウムは 1 時間で自重と同量の氷を溶かすだけの熱を放出していることになる．ラジウム 1 グラム原子 (225g) は，毎時 18,000cal を放出し，これは水素 1 グラム原子 (1g) の燃焼による熱に匹敵する．このような大きな熱は，特にラジウムの状態が年余にわたって変化しないことを考えると，通常の化学反応では説明できない．熱の放出は，ラジウム原子自体の非常に緩徐な変化によると考えられるかも知れない．とすれば，原子の形成，変化に関わるエネルギー量は，相当な大きさであり，我々が知るところを凌ぐものである．

様々な温度におけるラジウムの発熱量は，これで液化した気体を沸騰させ，気体放出量を測定することによっても測定できる．この実験は，塩化メチル (-21℃) で行うことができる．Dewar，Curie 両氏は，液化酸素 (-180℃) と液化水素 (-252℃) でこれを行った．特に後者は実験に好適である．液化水素をいれた試験管 A を断熱真空容器に入れる (図 10)．開放管 t を開くと，気体が水を満たした目盛つき試験管 E に収集される．試験管 A と断熱装置を，液体水素槽 H' に浸す．

この条件下で，試験管 A に気体はない．臭化ラジウム 7dg をいれたガラス管を試験管の液体窒素内にいれると，連続的に気体が発生し，1 分間に 73cm^3 の気体が収集された．

調製直後のラジウム塩の発熱は比較的少ない. しかし，熱発生は持続的に増加し，1 ヵ月後の現在も定常値に達していない．ラジウム塩を水に溶かし，溶液をガラス管に封入すると，溶液の発熱は初期は少ないが，漸増して 1 ヵ月後に一定となる．従って，熱量の発生率は同じ塩の固体と同じである．

ガラス管内のラジウム塩の熱をブンゼン氷熱量計で測定すると，ラジウムの透過線光線の一部は，吸収されずにガラス管と熱量計を透過する．ガラス管を 2mm 厚の鉛箔で覆うことにより，この光線が相当量のエネルギーを運ぶかを調べることができる．この条件下では，発生熱量が 4% 増加することがわかった．従って，透過放射線の形で放出されるエネルギーは無視し得ないものと言える．

新たな放射性物質の化学的作用－着色

強力な放射性物質が放出する放射線は，一定の化学変化をもたらすと思われる．ラジウム含有物質の放射線は，ガラスや陶器に変色作用をもつ [83]．

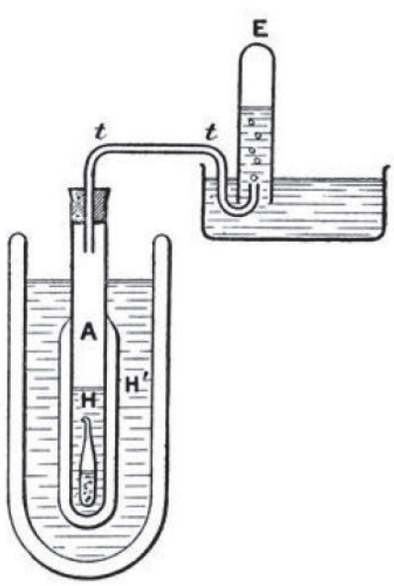

図 10

ガラスの変色は,通常褐色あるいは紫色で非常に強い.これはガラスの本体に発生し，ラジウムを除去しても持続する．すべてのガラスは程度の差はあれ着色し，鉛の存在は必須ではない．この事実は，最近知られている長期間使用後のX線管のガラスが着色する現象に対比できる.

Giesel氏は，結晶化したハロゲン化塩，アルカリ金属(岩塩，シルビン[訳注：岩塩中の塩化カリウム]) が，ラジウムの影響下で陰極線と同じく着色することを報告している．また同氏は，アルカリ塩をナトリウム蒸気内に置いても同様の着色が見られるという [84].

著者は，Le Catelier氏の厚意で提供された既知の成分の様々なガラスの着色を検討した．着色に大きな差はなく，全般に紫色，黄色，褐色，灰色であった．アルカリ金属の存在と関係があるように思える.

純粋なアルカリ塩結晶では，より多彩，鮮明な着色が見られた. もともと白い塩が, 青, 緑, 黄, 褐色などになった.

Becquerel氏は，ラジウムの作用で白燐が赤リンになることを示している.

紙はラジウムの作用で変質，着色する．脆くなってぼろぼろぼろになり，最後は穴のあいた篩のようになる.

一定状況下では，高度の放射性物質の近傍でオゾンが発生する．ラジウムを封入したガラス管から発生する放射線が，その通過経路にオゾンを作ることはない．しかし，ガラス管を開放すると強いオゾン臭を発する．一般にオゾンは，空気とラジウムの間に直接の交通がある場合に発生する．非常に細い管による交通でも充分である．オゾンの産生は，後述する誘導放射能の伝播に関連すると思われる.

ラジウム含有化合物は,それ自体の放射線の影響下で,時間とともにあきらかに変化する．上述のように，初期には無色のラジウム含有塩化バリウム結晶は，次第に黄色，オレンジ色，時にピンクに着色する．この変色は，水に溶解すると消失する．ラジウム含有塩化バリウムは，塩素の酸化化合物を生成する．臭化物は臭素を放出する．このような緩徐な変化は，一般に固体物質の調製後しばらくして認められ，同時に外観，色調も変化して黄色調，紫色調になる．放出される光も紫色調になる.

純粋なラジウム塩も，バリウムに含まれるラジウムと同様に変化すると思われる．しかし，酸性溶液にいれた塩化物結晶は，ラジウムを豊富に含む塩化ラジウム結晶が強く着色するような時間でも変色しない.

ラジウム塩存在下での気体発生

臭化ラジウム溶液は，連続的に気体を放出している [85]. これはおもに水素と酸素で,その組成は水に近い.ラジウムの存在下で水の分解が起こっているものと考えられる.

ラジウムの固体塩(塩化物，臭化物) も同様に気体を放出する．この気体は固体塩の小孔を充満し，塩を溶解するとかなり大量に放出される水素, 酸素, 炭酸ガス, ヘリウムが認められ，スペクトルには未知の輝線も存在する [86].

キュリー氏は，この気体の発生による2つのアクシデントを経験している．乾燥した固形臭化ラジウムをほとんど満杯に封入した薄いガラス管が，調製2ヵ月後に軽度の加熱により爆発した．おそらく気体の内圧によるものである.

別件では，調製から長期間経った塩化ラジウムを入れたガラス管が，比較的非常に高度の真空が維持された容器に接続されていた．ガラス管を急速に300℃に加熱したところ爆発した．ガラス管は破損し，塩は飛散した．爆発時にガラス管内に有意の圧はなかった．ラジウム塩を除去した同条件下で装置を加熱したが，爆発はなかった.

これらの実験から，調製後長期間を経たラジウム塩の加熱は危険であること，長期間ガラス管に密封しておくことも危険であることがわかる.

熱ルミネッセンスの発生

フッ素のようなある種の物質は,加熱すると発光する.これを熱ルミネッセンスという．その輝度は時間が経つと消失するが，熱によって再び発光する性質は火花で回復し，ラジウムの作用でも同様である．すなわちラジウムは，これらの物質の熱ルミネッセンスを回復させる [87]. フッ素を加熱すると，発光して変化する．その後ラジウムを作用させると，逆方向に変化して再び発光するようになる.

同様の現象が,ラジウム線を当てたガラスに発生する.この場合もガラスが変質し，ラジウム線の作用で発光する．この変質は，徐々に増強する変色でわかる．ガラスを加熱すると，逆方向の変質が起こって着色は消失し，同時に発光する．これは化学変化と思われ，発光はこれに関連するものである．この現象は一般的なもので，ラジウム線による発光と放射性物質の発光は，発光物質の化学的あるいは物理的変化と必然的に関連している.

放射線写真作用

新たな放射性物質の放射線写真作用は，非常に強力である．しかし，この作用はポロニウムとラジウムでは全く異なる. ポロニウムは,非常に短距離でのみ作用し,固体フィルターにより減弱する. 薄いフィルター(1mm厚ガラス) でも容易に抑制できる．ラジウムは，かなり遠距離でも作用する．ラジウムの放射線写真作用は

空気中で 2m 以上でも観察され，線源がガラス管に封入されていても同様である．このような条件下で作用する放射線は β 線と γ 線である．様々な物質の透過性が異なるため，レントゲン線の場合と同じように様々な物体の放射線写真をとることができる．金属は，非常に透過性が高いアルミニウムを除いて一般に不透過性である．筋肉と骨の透過度に明らかな差はない．距離を大きく離して非常に小さな線源を使用すると，非常に細かい写真が得られる．美しい放射線写真を得るには，磁場により β 線を除去して γ 線のみを利用すると非常に有利である．β 線は物体を透過するが，ある程度拡散してボケの原因となる．これを除去するには，撮影時間を長くする必要があるが結果は改善される．財布のような被写体の撮影では，ガラス管に封入したラジウム塩数 cg を写真乾板から 1m の距離に置き，その全面に被写体を置くことにより 1 日を要する．線源と乾板の距離を 20cm とすると，1 時間で撮影できる．線源の直近に乾板をおくと直ちに露光する（図 11）．

生理学的作用

ラジウムの放射線は，表皮に作用を及ぼす．これは Walkhoff 氏が観察し，Giesel 氏，その後 Becquerel, Curie 両氏により確認されている [88].

高放射性のラジウム塩をいれたセルロースあるいはゴムのカプセルを皮膚面に置くと，ただちに，あるいは一定時間後に皮膚の発赤が起こる．これには，作用が弱いほど，作用時間が短いほど長くかかる．作用部位に赤い斑点が出現し，皮膚の局所変化がおこり，火傷のようになる．水疱をみる場合もある．曝露が長いと，潰瘍が形成され長期にわたり難治性である．Curie 氏は実験で，比較的弱い放射性物質を，自らの腕に 10 時間作用させた．直ちに発赤が出現し，その後創面が形成されて治癒に 4 ヵ月を要した．表皮は限局性に破壊され，非常に緩徐に痛みを伴って健常状態に復したが，顕著な瘢痕を残した．30 分間曝露後のラジウム火傷は 15 日後に発生し，水疱を形成して 15 日間で治癒した．わずか 8 分の曝露による別の火傷は，2 ヵ月後に発赤が出現したが軽微であった．

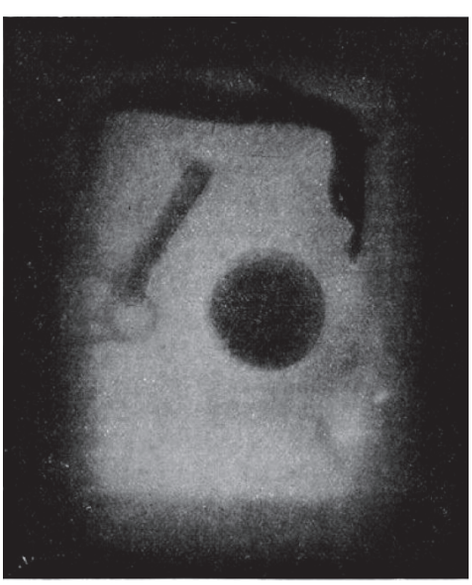

図 11. ラジウムによる放射線写真

ラジウムの皮膚への作用は金属を通してもは発生するが減弱する．作用を避けるためには，鉛箔に包むほか，長時間使用しないようにする必要がある．ラジウムの皮膚への作用は, Saint-Louis 病院の Danlos 医師が，レントゲン線，紫外線療法と並ぶある種の皮膚疾患の治療法として研究している．この観点からラジウムには有望な結果が得られている．ラジウムの作用で部分的に破壊された表皮は健常状態に回復する．ラジウムの作用は通常の光線よりも強く，レントゲン線よりも扱いが容易である．効果のを直ちに確認できないため，適用条件の研究には多少の期間を要する．

Giesel 氏は，ラジウムの植物の葉に対する作用について述べており，葉は黄化して枯れる．

Giesel 氏はまた目に対する作用を発見した [89]．暗所で放射性物質を閉じた眼あるいは側頭部に近接させると，目に光覚をおぼえる．この現象は，Himstedt, Nagel 両氏が研究している [90]. これらの物理学者は，目の媒体がラジウムの作用ですべて蛍光を発し，これが光覚となると説明している．盲目でも，正常網膜であればラジウムの作用に反応するが，網膜が異常な場合は光覚をおぼえない．

ラジウムの放射線は，微生物のコロニー形成を抑制，阻害するが，この作用は強いものではない [91].

最近 Danysz 氏は，ラジウム線が脊髄，脳に強く作用することを示した．1 時間の作用後，実験動物に麻痺を生じ，数日後に死亡した [92].

ラジウム線に対する温度の影響

放射性物質からの放射線が温度によりどのように変化するかについては，ほとんど知られていない．Curie 氏は，ラジウム含有塩化バリウムをいれたガラス管を液化空気内に置いた [93]．この状態でも放射性物質の発光は持続する．ガラス管を低温槽から取り出すと，室温ではさらに明るくなる．液化空気の温度で，ラジウムは硫酸カリウムウラニルの蛍光を励起し続ける．Curie 氏は電気的測定により，線源から一定距離で測定した放射線強度は，室温でも液化空気内でも変わらないことを示した．この実験で，ラジウムは一端を閉鎖したガラス管の底部に置いた．放射線は，開端から出て空気中を一定距離通過してコンデンサーに入る．コンデンサー内の空気に対する放射線の作用を，ガラス管を空気中においた場合，一定の高さまで液化空気に浸した場合で測定した．結果はいずれも同じであった．

ラジウムを高温に置いても, その放射能は変わらない．

ラジウム含有塩化バリウムを融解しても (約 800℃), 放射性，発光性である．しかし，高温で長時間加熱すると，一過性に放射能が減弱する．この減弱は非常に大きく, 全放射線の 75% におよぶ．この部分的減弱は, 透過性放射線よりも吸収性放射線に優位で，後者は有意に抑制される．時間とともに加熱前の強度，成分が回復する．これには約 2 ヵ月を要する．

第 4 章 . 誘導放射能

放射能の非放射性物質への伝播

放射性物質の研究の中で，Curie 氏と著者は，ラジウム塩の近傍に一定時間置いた物質はすべてそれ自体が放射能をもつことに気づいた [94]．この問題に関する我々の初報では，もともと非放射性であった物質が獲得する放射能が，これらの物質の表面に落ちる放射性塵によるものではないことを証明した．現在は確実となっているこの事実は，ここに示す全ての実験で，特に非放射性物質に発生する放射能が，この物質をラジウムの作用から遠ざけると消失するという法則から証明されている．

我々は，発見したこの新しい現象を誘導放射能と命名した．

同論文では，誘導放射能の基本的な性質を明らかにした．我々は様々な放射化された物質の断片試料をラジウム塩の近傍に置き，その放射能を電気的方法で測定して以下の事実を得た．

(1) ラジウムの作用に曝露した試料の放射能は，経時的に増加して一定値に漸近する．

(2) ラジウムの作用で放射化され，その後この作用から除去された試料の放射能は，数日で消失する．この誘導放射能は，時間とともにゼロに漸近する．

(3) すべての条件が同じであれば，様々な試料に同じ放射性物質により誘導される放射能は試料によらない．ガラス，紙，金属は同じ強度を示す．

(4) 異なる放射性物質により同じ試料に誘導される放射能は，放射性物質が強力であるほど高度である．

その後まもなく Rutherford 氏は，トリウム化合物が誘導放射能現象を惹起しうることを報告した [95]．Rutherford 氏は，前述と同じ法則を発見し，さらに負に荷電した物質がより強力に放射化されるという重要な事実を発見した．また酸化トリウムが通過した空気が，約 10 分間にわたってあきらかな導電性を維持することも発見した．この状態の空気は，誘導放射能を非放射性物質，特に特に負に荷電した物質に付与する．Rutherford 氏は，トリウム化合物，特に酸化物が, 気流に乗って運ばれる陽に荷電した放射性エマネーションを放射するとしてこれを説明している．このエマネーションは，誘導放射能を惹起する．Dorn 氏は，Rutherford 氏が酸化トリウムで行った実験をラジウム含有バリウム塩で再現した [96].

Debierne 氏は，アクチニウムが近傍の物質に非常に強力な誘導放射能を付与することを示した [97]．トリウムの場合と同様，気流による放射能の伝播が大きい．

誘導放射能には非常に多彩な側面があり，開放空間でラジウムの近傍の物質を放射化する場合は不規則な結果となる．これに対して Curie 氏，Debierne 両氏は，閉鎖容器中では非常に規則的な結果が得られることを見いだし，閉鎖空間で研究を行った [98].

閉鎖容器での放射化

誘導放射能は，閉鎖容器中でより強力，より確実に認められる．放射性物質を小さなガラス管 a に入れ，その中ほど o で開放する (図 12)．様々な板 A, B, C, D, E を容器内に置き，1 日曝露して放射性とする．同じ大きさ，異なる性状の，鉛，銅，アルミニウム，ガラス，エボナイト，蝋，ボール紙，ケロシンの板の放射能はいずれも同じであった．板の一面の放射能は，反対側の自由空間が大きいため, 反対面の放射能より大きかった．

この実験を, 完全に閉鎖したガラス管で繰り返したが, 放射能は全く誘導されなかった．

ラジウムからの放射線は，誘導放射能の生成に直接関わるわけではない．従って，この実験で厚い鉛板 PP で遮蔽されている板 D は B, E ほど放射化されない．

放射能は，放射性物質から放射化される物体まで，空気を介して近接伝播する．非常に細い毛細管でもこれを通して遠くまで伝播する．

誘導放射能は，放射化する放射性塩を固体から溶液に代えても，非常に強力かつ確実である．

液体は，誘導放射能を容易に獲得する．例えば，放射性塩の溶液を容れた閉鎖空間内の容器に入れた純水は

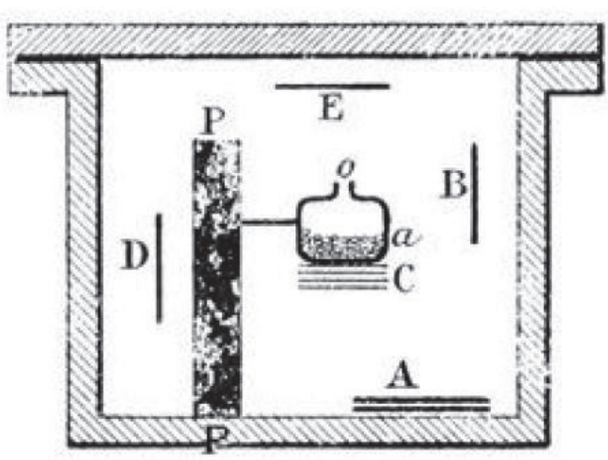

図 12

放射性になる．

ある種の物質をこの放射化容器内に入れると発光する (燐光物質，蛍光物質，ガラス，紙，木綿，水，塩水溶液)．燐光性の硫化亜鉛は，特に明るく光る．しかし，これらの発光物質の放射能は，同じ条件下で放射化される発光しない金属，その他の物質と同じである．

閉鎖容器中で放射化した物質は，いずれも経時的に放射能が増加し，同じ賦活物質，同じ実験装置を使う限り，常に同じ一定値に達する．

誘導放射能の上限値は，放射化容器内の気体 (空気，水素，炭酸ガス) の状態，圧とは無関係である

同じ閉鎖空間における誘導放射能の上限は，ラジウム溶液の量にのみ依存し，またこれに比例すると考えられる．

誘導放射能現象における気体の役割－エマネーション

ラジウムの固体塩あるいは溶液をいれた閉鎖空間内の気体は放射性である．この放射能は，気体を管で吸引して試験管に収集しても持続する．試験管の壁自体が放射性となり，暗所で発光する．試験管の放射能，発光はいずれ完全に消失するが，非常に緩徐で，1 ヶ月後もなお残存している．

研究の初期，Curie 氏と著者は，ピッチブレンドを加熱して強い放射性気体を抽出した．しかし，前述の実験のようにこの気体はいずれ完全に消失する [99].

このように，トリウム，アクチニウム，誘導放射能は，いずれも気体を介して，近接伝播により放射性物質から容器の壁へ伝播し，気体を容器から除去すると，賦活能も気体とともに消失する．放射性物質の放射能を電気的方法で測定すると (図 1)，電極間の空気は等しく放射性になっている．しかし，電極間に電流を流すと，電流の低下が認められないことから，電極間の放射能は固体ラジウムの放射能とは無関係であることがわかる．

トリウムの場合は大きく異なる．これは開放コンデンサーを使用しているときに，トリウム化合物の放射能測定における不規則性に気づいたのであるが，この場合トリウム近傍の空間の放射能がトリウム自体の放射能にくらべて強いため，空気中のわずかな電流により電流強度が大きく変動する．

この効果は，アクチニウムではさらに顕著である．高放射性のアクチニウム化合物は，気流を線源に向けると放射能が大きく低減する．

放射性エネルギーは，このように気体中に特別な形で内含される．Rutherford 氏によると，ある種の放射性物質は恒常的に，エマネーションという放射性気体を放出している．この気体は，それが拡散する空間中に存在する物質を放射性にする性質を有する．エマネーションを放出する物質には，ラジウム，トリウム，アクチニウムがある．

非放射性空気中における放射化固体物質の非放射化

放射化容器内で充分な時間ラジウムにより放射化された固体は，容器から取りだして非放射性空気中におくと，指数関数的に非放射化される．この率はすべての物質について同じで，以下の式で表わされる [100].

$$I = I_0(ae^{-\frac{t}{\theta_1}} - (a-1)e^{-\frac{t}{\theta_2}})$$

ここで I_0 は，試料を容器から取りだした時点での放射線の初期強度，I は時刻 t における強度，a は係数で a=4.20，θ_1，θ_2 は時定数．θ_1=24204 秒，θ_2=1860 秒．2～3 時間後に 2 項目の指数関数の I への影響は小さくなり，この式は実質的に単純な指数関数となる．非放射化の法則がこのようなものである時，放射線強度は 28 分で半減する．この法則は，ラジウムにより放射化された固体の非放射性空気中での非放射化に特徴的なものと考えられる．

アクチニウムにより放射化された固体は，開放空間で前述の式に類似の指数関数則に従って非放射化するがやや遅い [101].

トリウムにより放射化された固体は，より緩徐に非放射化され，放射線強度は 11 時間で半減する [102].

閉鎖空間での非放射化．エマネーションの分解速度 [103]

ラジウムの作用で放射化され，その後作用が除去された閉鎖空間は，開放空間よりも緩徐に非放射化する．例えば，一定時間ラジウム塩溶液と交通させて内部に放射能をもたせたガラス管をランプで封印し，非放射化の過程でガラス壁から放出される放射線を測定する．

非放射化の法則は指数関数的で，以下の式で正確に表わされる．

$$I = I_0 e^{-\frac{t}{\theta}}$$

ここで I_0: 初期の放射線強度，I: 時刻 t における放射線強度，θ : 時定数 $4{,}970 \times 10^5$ 秒

放射線強度は 4 時間で半減する．

この非放射化は，実験条件 (容器の大きさ，壁の性状，気体の正常，放射化の期間など) が同じなら絶対的に不変である．

この実験で，壁の放射能を維持しているのは気体に蓄積した放射線エネルギーである．実際，容器を排気すると，壁は急速に非放射化され，放射線強度は 28 分で半減する．容器内の放射性空気を通常の空気で置換

しても同じ結果となる．

このように，4 日間で半減する非放射化は，気体中に蓄積した放射線エネルギーの消失に特徴的である．Rutherford 氏の表現を借りれば，ラジウムエマネーションは，4 日で半減する時間の関数に従って自然消失する．

トリウムエマネーションは性質が異なり，より急速に消失する．その放射化能は，約 1 分 10 秒で半減する．

アクチニウムエマネーションは，さらに急速に消失し，数秒間で半減する．

Elster，Geitel 両氏は，大気中に放射性物質により放出されるエマネーションに類似したものが非常に少量存在することを示した．空気中に金属ワイヤを張って負に帯電させると，このエマネーションの影響で放射化される．地面に挿入したガラス管に吸入された空気は，エマネーションにより荷電する [104]．このエマネーションの由来は未だ不明である．

ミネラルウォーターから抽出した空気は，エマネーションを含んでいるが，海や川の水にはほとんど含まれない．

エマネーションの性質

Rutherford 氏によると，放射性物質のエマネーションは，これから放出される放射性気体である．実際ラジウムエマネーションは多くの点で通常の気体と同様にふるまう．

2 つのガラス容器を連結し，その一方にエマネーションを入れ，他方には入れずにおくと，エマネーションは 2 つ目の容器に拡散し，平衡に達するとエマネーションは通常の気体と同じように 2 つの容器に分れている．2 つの容器の温度が同じならば，エマネーションはその容積に比例して分配される．温度が異なる場合は，Mariotte & Gay-Lussac の法則に従って分配される．この結果を確認するには，分配前後で第 1 の容器の放射線を測定すれば良い．この放射線は，容器中のエマネーションの量に比例する．しかし，エマネーションの拡散が平衡に達するまでに一定時間を要する場合は，実験の計算上の正確を期するためには，エマネーションの経時的な破壊を考慮する必要がある [105]．

ラジウムエマネーションは，細い管内を気体拡散の法則に従って拡散し，その拡散係数は炭酸ガス程度である [106]．

Rutherford，Soddy 両氏は，ラジウム，トリウムのエマネーションが，液化可能な気体と同じように液化空気の温度で凝結することを示した [107]．エマネーションを含む空気は，液化空気に浸したコイル管を通過する際にその放射能を失う．エマネーションはコイル中に凝結して残留し，コイルを加熱すると気体状態に戻る．ラジウムエマネーションは -150℃で，トリウムエマネーションは -100 ～ -150℃で凝結する．

以下の実験を行った．大小 2 つの閉鎖ガラス容器を，栓のついた細い管で互いに連結する．これにラジウムで放射化された気体を充填し，発光する．小さい容器を液化空気に浸すと，その内部のエマネーションは全て凝結する．一定時間後，2 つの容器を分離し，栓を閉める．小さな容器を液化空気から取り出す．すると放射能は全て小さな容器に存在する．確認するためには，2 つの容器の燐光を観察するだけでよい．大きな容器はもはや発光しないが，小さな容器は初期よりもさらに明るくなる．2 つの容器の壁に硫化亜鉛を塗布しておけば，この実験は特にきれいである．

しかし，ラジウムエマネーションが液化ガスのようなものであるならば，冷却による凝結温度は空気中に含まれるエマネーションの量の関数であるはずであるが，これについては報告がない．

エマネーションは，通常の気体が非常に緩徐に流れる様な条件下でも，固体中の非常に小さな穴や裂け目をいとも簡単に通過することは注目すべきことである．

最後に，エマネーションは，ガラス管内に密閉しておくと自然に崩壊する点で通常の気体と異なる．現時点でエマネーションについて我々が知る所は，このような放射線的な特徴のみで，特徴的なスペクトルの有無，圧力などについては確立されていない．

しかし最近，Ramsay，Soddy 両氏は，ラジウムから得られた気体のスペクトルに，ラジウムエマネーションに属するとされる新たな輝線を報告している．彼らはまた，ラジウムからの気体がヘリウムを含むこと，そしてこれがラジウムエマネーション存在下で自然発生することを見いだした [108]．この重要な結果が確認できれば，エマネーションが不安定な気体であること，ヘリウムはこの気体の崩壊物質であることが確認できるであろう．

ラジウム，トリウムのエマネーションは，様々な強力な化学物質の影響を受けないようにみえるが，その理由について Rutherford，Soddy 両氏は，アルゴン族の気体との類似性を指摘している [109]．

放射性液体と放射性溶液の放射能の変化

あらゆる液体は，放射化容器にいれると放射性になる．この液体を容器から取りだして開放空間に置くと，周囲の気体，固体にその放射能を放出して速やかに非放射化する．放射性液体を閉鎖容器に入れておくと，より緩徐に非放射化し，閉鎖容器中に封入された放射性気体と同じように放射能は 4 日で半減する．これは，放射性エネルギーが，(エマネーションのような) 気体中に保存されると同様に，液体中に保存されることで

説明できる．

ラジウム塩溶液も，部分的には同様にふるまう．まず閉鎖容器中に一定時間置かれたラジウム塩溶液は，平衡状態では，同じ容器中の純水よりも放射能が強くならないことは注目すべきことである．ラジウム溶液を容器から取りだし，底の広い容器に入れて開放空間に置くと，放射能は空間にひろがり，溶液はなおラジウムを含むが多少なりとも非放射性となる．この非放射化された溶液を，閉鎖フラスコ中に封入すると，2 週間程度で再び上限まで放射能が復活する．一方，空気中で非放射性化されたラジウムを含まない放射化液体は，閉鎖容器に入れても放射能が復活しない．

放射能の理論

以下，Curie，Debierne 両氏による，著者がここに述べたいかなる仮説からも独立な，誘導放射能に関する実験結果を包括する一般的な理論を示す [110].

個々のラジウム原子は，そのエネルギーがどこに由来するかは問わないとして，連続的かつ定常的なエネルギー源である．ラジウム内に蓄えられた放射性エネルギーは，2 つ方法で放出される．(1) 放射線による (荷電放射線あるいは非荷電放射線として)，(2) 伝導による (気体や液体により近接伝播して周囲の物質に．エマネーションの放出，誘導放射能への変換).

放射線，伝導による放射能エネルギーの喪失は，放射性物質内に蓄積されるエネルギーが大きいほど増加する．前述の 2 つの喪失がラジウムによる持続的な放射能によって補償されるとき，厳密な平衡状態が保たれる．

この考え方は，熱現象に類似している．物質内で何らかの理由で持続的，定常的な熱の放出が発生すると，放射，伝導による熱の喪失と，持続的な熱の供給が均衡するまで，物質内に熱が蓄積して温度は上昇する．

一般に，一定の特殊な条件を除けば，放射能は固体中を近接伝播しない．溶液をガラス管に密封すると，放射能の喪失のみが残り，溶液の放射能は高値となる．

逆に，溶液を開放容器に入れると，放射能の近接作用，すなわち伝導による喪失が大きくなり，平衡状態に達すると，溶液の放射能は非常に弱くなる．

開放空間においた固体ラジウム塩の放射能はめだって低下しない．これは，伝導による放射能の伝播が固体中のものではなく，誘導放射能を生成する非常に薄い表面のみであるためである．実際，同じ塩の溶液では，誘導放射能の現象がより強力に観察される．固体塩では，放射エネルギーは塩の内部に蓄積され，主に放射線により放出される．逆に，塩を数日間水に溶かしておくと，放射線エネルギーは水と塩の間に分配され，蒸溜によってこれを分離すると，水に大きな放射能が分布し，固体の放射能は溶解前よりもずっと少なくなる (10 ～ 15 分の 1)．その後固体塩は，徐々にもとの放射能を回復する．

さらに，ラジウム自体の放射能の少なくとも大部分が，エマネーションとして放出される放射エネルギーを介するものであると仮定することにより，先述の仮説を解明できると考えられる．

個々のラジウム原子は，持続的かつ定常的なエマネーション源であると考えることができる．この形のエネルギーは，徐々にベクレル線の放射線エネルギーに変換される．この変換の速度は，蓄積するエマネーションの量に比例する．

ラジウム溶液を容器に封入すると，エマネーションが容器内，壁の表面に広がる．ここで放射線の変換が起こり，溶液はベクレル線しか放出しないが，放射線はいわば外部化される．逆に固体ラジウムでは，エマネーションは容易に脱出できないため蓄積し，そこでベクレル線に変換される．この放射線は大きな値になる [111].

この放射能に関する仮説が一般的なものであれば，すべての放射性物質がエマネーションを放出すると考えざるをえない．現在これは，ラジウム，トリウム，アクチニウムについて確認されている．アクチニウムは，固体でも莫大な放射線を放出する．ウラン，ポロニウムは，ベクレル線は放出するがエマネーションは放出しないように思える．これらの物質は，前述の放射性物質のように真空中で誘導放射能を生成することがない．この事実は，前述の仮説に大きく矛盾する．もしウラン，ポロニウムがエマネーションを放出してそれが非常に急速に破壊されているとすれば，このエマネーションの結果を空気や周囲の物質の誘導放射能で観測することは難しいであろう．この仮説は，ラジウム，トリウムのエマネーションが半減する時間が 5000 対 1 であることを考えるとあり得なことではない．ある種の条件では，ウランが誘導放射能を生成することを観察できるかも知れない．

誘導放射能のその他の形態

ラジウムにより放射化された固体の開放空間での非放射性化の法則によれば，放射能は 1 日後にはほとんど検出されなくなる．

しかしある種の物質，セルロイド，ケロシン，ゴムなどは例外である．これらの物質を充分長く放射化すると，法則よりも緩徐に非放射性化する．これらの物質は，エマネーションの形で放射能エネルギーを取込み，これを誘導放射能として周囲に放出して徐々に失ってゆく．

緩徐に進行する誘導放射能

全ての物体について，これを放射化容器に数ヶ月いれておくと生成される全く異なる種類の誘導放射能が観察される．この物体を容器から取り出すと，通常の法則に従って放射能は非常に小さくなるまで減弱する(半時間で半減する)．しかし，放射能が初期値の約1/20,000まで減弱すると，もはや減弱しなくなるか，あるいは減弱が著しく遅くなり，時には増加することもある．我々は，6ヵ月以上残存放射能を保持している銅，アルミニウム，ガラスの試料を有している．

この誘導放射能は，通常のものと全く異なるように見え，ずっと緩徐に変化する．

このタイプの誘導放射能は，生成にも消失にも相応の時間を要する．

ラジウム溶解にともなって残存する誘導放射能

ラジウムを含む放射性鉱石を処理してラジウムを抽出する過程でまだ初期の段階では，化学的分離法を行なうが，放射能が一方にのみ存在し，他方は全く非放射性である状態となる．これにより，ウランよりも数百倍も放射能が大きい物質が分離され，その一方で完全に非放射性の銅, アンチモン, ヒ素などが得られる．鉄，鉛など他の物質は，決して完全な非放射性にはならない．放射性物質がより濃縮されてくると状況は変化し，いかなる化学的分離法でも完全に非放射性の物質は得られなくなる．すべての分離物質が，多少なりとも放射能を有する．

誘導放射能の発見後，Giesel氏はまず通常の非放射性ビスマスを高放射能のラジウム溶液中にいれて放射化を試みた[112]．これにより放射性ビスマスが得られたことから，ピッチブレンドから抽出されたポロニウムは，ピッチブレンドに含まれるラジウムの近傍で放射化されたビスマスであると結論している．

著者も，ビスマスをラジウム含有塩溶液に入れて放射化されたビスマスを調製した．

この実験で難しいところは，溶液からラジウムを非常に慎重に除去する必要がある点である．ごく微量のラジウムでも物質1gを高度に放射化するに充分であることを考えると，放射性物質を完全に洗浄，精製できるとは考えられない．しかし精製を繰り返すと放射性物質の放射能は減弱してゆく．これは微量のラジウムが実際に除去されているためなのか，あるいはこのような条件下で誘導された放射能が化学変化を受けるためか，そのいずれかである．

しかし著者の結果では，ラジウムの分離後も放射化が持続していることは確実と思われる．硝酸溶液を水で沈澱させて放射化したビスマスの硝酸塩を分画するとき，非常に慎重に精製すると，ポロニウムのようにより放射性の高い分画が先に沈澱する．

逆に精製が不充分な場合は，放射化ビスマスとともに痕跡的なラジウムが残存する．このようにして，分画により高純度でウランの2000倍の放射能をもつ放射化ビスマスを手にすることができた．このビスマスの放射能は経時的に減少するが，同じ物質の慎重に分画した部分は，約3年経った現在も 放射能がほとんど減じていない．

この放射能は，ウランの150倍である．

鉛，銀もラジウム溶液中で放射化した．このようにして得られた誘導放射能は多くの場合経時的に減少しないが，放射化物質の一連の化学変化にはさらされる．

Debierne氏 は，バリウムをアクチニウム溶液に入れてこれを放射化した[113]．この放射性バリウムは，様々な化学変化を経て放射能を維持し，その放射能は安定な原子特性をもつと考えられる．放射化した塩化バリウムは，ラジウム含有塩化バリウムと同様に，より放射能の高い部分は水や稀塩酸に難溶性である．乾燥した塩化物は自発発光し，そのベクレル線はラジウム含有塩化バリウムに類似している．Debierne氏は，ウランの1000倍放射能が強い放射化バリウムを得た．しかし，このバリウムは，スペクトル分析でラジウムのいずれの強い輝線も示さず，ラジウムの性状をすべて備えているわけではない．

放射性物質の溶解における物質の放射化については，全体的な研究が必要である．実験の条件によって，多少なりとも安定な誘導放射能をもつ物質が得られると思われる．このような条件下における誘導放射能は，活性化容器中で距離を置いた状態で長期間放射化することにより緩徐に得られる放射能とおそらく同じものであろう．誘導放射能が，原子の化学的性質にどの程度影響を及ぼすのか，またその影響は一過性なのか永続性なのかという点が問題である．

遠隔的に放射化された物質の化学的研究は，放射化が非常に薄い表面に限定され，化学変化する物質が非常に少量であるため，困難になる．

誘導放射能は，ある種の物質をウラン溶液中に置いても獲得できる．Debierne氏の実験のように，ウラン，バリウムを含む溶液に硫酸を加えると，沈澱する硫酸バリウムは放射能を持ち，同時にウラン塩は放射能の一部を失う．Becquerel氏は，この操作を数回繰り返すことにより，ほとんど放射能をもたないウランを得た. この事から, この操作により金属ウランとは異なる，ウランに放射能を付与している放射性物質をウランから分離できたとも考えられる．しかし，数ヶ月後にウランはもとの放射能を回復し，逆に沈澱硫酸バリウムは獲得した放射能を失うことからこれは否定される．

トリウムでも同様の現象が見られる．Rutherford氏

は，トリウム塩溶液をアンモニアで沈澱させ，溶液を分離して蒸発，乾燥させた．これにより少量の非常に放射能の高い残渣が得られ，沈澱したトリウムの放射能は以前より低下した．Rutherford 氏はこの放射性残渣をトリウム X と命名した．トリウム X は時間とともに放射能が低下し，トリウムの放射能は回復する [114].

溶液の誘導放射能については，様々な物質のふるまいが異なり，放射性を得やすいものと得にくいものがあるように思われる．

放射性粉体の拡散と研究室の誘導放射能

高放射能物質の研究にあたって，繊細な測定を行うには細心の注意が必要である．化学研究室の様々な器材，物理学実験に使用する器材は早晩放射性となり，黒色紙を透過して写真乾板を感光する．塵埃，室内の空気，衣類は放射性となる．室内の空気も導電性となり，我々の研究室ではこれが喫緊の問題となっており，もはや隔離された機器はない．

従って，放射性塵埃の拡散，誘導放射能現象を回避すべく可能な限り細心の注意が必要である．

化学分析機器は，決して物理研究室に持ち込んではならない．可能な限り放射性物質を不必要に置かないようにしなければならない．本研究の開始以前，静電気の研究では，様々な機器を金属シリンダーで保護した絶縁された電線で接地して，外部の電気的影響から電線を保護するようにしていた．放射性物質の研究では，この方法は全く無効である．空気が導電性であるため，電線とシリンダー間の絶縁は不良で，電線とシリンダー間の起電力は不可避で，シリンダーが空気中に電流を発生して検電計の針を振らせる．全ての接続線を，例えばケロシンなど絶縁物質で満たしたシリンダー内に入れて空気から絶縁するようにしている．検電計を厳重に閉鎖することも有用である．

放射性物質の作用以外による放射化

放射性物質の作用以外による誘導放射能の生成を試みた．

Villard 氏は [115]，ビスマス片を Crookes 管の対陰極として陰極線をこれに作用させた．このビスマスは放射性となったが，実際のところ極めて微弱で，写真乾板を感光するために 8 日を要する程度であった．

MacLennan 氏は，様々な塩に陰極線を作用させ，軽度加熱した．これにより塩は陽に帯電した物質を放電する性質を獲得した [116].

この種の研究は非常に興味深い．既知の物質を使って非放射性物質に大きな放射能を付与できるのであれば，ある種の物質が自発的な放射能をもつ理由を発見できるかもしれない．

放射性物質の放射能のバリエーション．溶解の影響

前述のように，ポロニウムの放射能は経時的に減少する．この減少は緩徐で，試料により速度は異なるようにはみえる．ある硝酸ポロニウムビスマス試料の放射能は，11 ヵ月で半減し，33 ヵ月で 95% 失われた．別の試料も同程度であった．

亜硝酸で処理した金属ポロニウムビスマスの試料の放射能は，調製後はウランの 100,000 倍であったが，現在は 2000 倍程度である．この放射能の経時的に測定では，6 ヵ月で 67% の低下が見られた．

化学反応が放射能の減衰を促進することはない．急速な化学反応でも，一般に放射能の大きな消失はおこらない．

ポロニウムと異なり，ラジウム塩の放射能は恒久的で，数年断っても大きな減衰はない．

固体ラジウム塩では，初期の放射能は一定せず，調製時後に増強し，約 1 ヵ月で一定の上限値に達する．溶液の場合はこの逆である．調製直後は，非常に放射能が高いが，開放空間に置いておくと急速に低下し，初期よりかなり低い一定値に落ち着く．この放射能のバリエーションは，Giesel 氏が初めて報告した [117]．この現象は，エマネーションの観点からよく説明できる．溶液の放射能減衰は，エマネーションが空気中に散逸して消失することによる．この減衰は，溶液を密封容器にいれておくとずっと小さくなる．開放空間で放射能が減衰した溶液は，密封容器中で放射能を回復する．溶解後に固体に戻した塩の放射能増加期間は，固体ラジウム中にエマネーションが再び蓄積される期間である．

この問題に関する実験を示す．

ラジウム含有塩化バリウム溶液を，開放空間中に 2 時間おくと放射能は 1/300 になる．

この溶液を密封容器にいれ，容器を開いて溶液を別の容器に移して放射能を測定した．

直後の放射能	67
2 時間後	20
2 日後	0.25

開放空気中に置いたラジウム含有塩化バリウム用的をガラス管に密封し，ガラス管からの放射能を測定した．結果は以下の通りである．

直後の放射能	27
2 時間後	61
3 時間後	70
4 時間後	81
7 時間後	100
11 時間後	100

調製後の固体塩の放射能は,溶解時間が長いほど低い.高放射能成分は溶媒に移動する．以下に，上限値 800 の塩化物を一定時間溶液中に置き，乾燥後直ちに測定した放射能を示す.

放射能の上限値	800
溶解，乾燥直後	440
5 時間後	120
18 時間後	130
32 時間後	114

溶解塩は，時計皿で覆っただけの容器に入れた.

同じ溶解塩を 2 つ用意し, 密封容器に 13 時間置いた. 1 つは他方の 8 倍高濃度とした.

高濃度溶液，乾燥後	200
低濃度溶液，乾燥後	100

塩の非放射化は，溶媒の割合が多いほど顕著になり，液体に移行する放射性エネルギーが多くなり，飽和する液体の体積が大きくなり，より多くの空間を満たすようになる．異なる初期放射能をもつ 2 つの試料は，初期は全く異なる速度で放射能が増加するが，1 日後には等しくなり，その後上限まで全く同じように増加してゆく.

溶液を稀釈すると, 塩の非放射化は非常に急速になる. これは以下の実験で示される．3 つの同じラジウム塩を等量の水に溶解する．第 1 の溶液 a は開放空間に 1 時間置いてから乾燥する．第 2 の溶液 b は 1 時間気流にさらしてから乾燥する．第 3 の溶液 c は開放空間に 13 日間おいてから乾燥する．この 3 つの塩の初期の放射能は以下の通りである.

溶液 a	145.2
溶液 b	141.6
溶液 c	102.6

この塩の放射能の上限は約 470 である．このように 1 時間後には大部分の作用が現れている．さらに溶液 b では 1 時間気流を流して気泡を発生させても，ほとんど影響がない．溶液中の塩の割合は 0.5% である.

エマネーションの形の放射線エネルギーは，固体ラジウムから空気中に移行しにくい．固体ラジウムから液体への移行も同様である．硫酸ラジウムをまる 1 日水と攪拌しても，その放射能は開放空間中に放置した硫酸ラジウム溶液と同じである.

ラジウム塩を真空に置くと，マネーションはすべて消失する．しかし，6 日間真空においた塩化ラジウムは変化しなかった．この実験から，塩の放射能はその内部のエネルギーによるもので，真空にしても除去しえないことがわかる.

溶解におけるラジウムの放射能喪失は，吸収性放射線よりも透過性放射性放射線において優位である．以下に例を示す.

放射能の上限値 470 に達した塩化ラジウムを溶解し，1 時間放置する．その後乾燥し，電気的方法で初期放射能を測定する．初期の放射線量は上限放射線の 0.3 であった．放射性物質を 0.01mm 厚のアルミ箔で覆うと，このフィルタを通過する放射線は同じフィルタを通過する上限放射線の 0.17 であった.

塩を溶液の状態で 13 日間放置すると，初期放射線は総上限放射線の 0.22 で，0.01mm 厚アルミ箔を通過する放射線は上限放射線の 0.13 であった.

いずれの場合も，溶解後の初期放射線の上限放射線に対する割合は，総放射線は 0.01mm 厚アルミ箔を通過する放射線の 1.7 倍であった.

さらに，溶解後乾燥するにあたって，完全に固体でも液体でもない中途半端な状態の時期は不可避である. また水を速やかに除くためには，加熱も不可避である.

この 2 つの理由から，物質が溶液状態から固体状態に移行する際，真の初期放射能を求めることはほとんど不可能である．前述の実験では，等量の放射性物質を等量の水に溶解し，できる限り同じ条件で 120～130℃以上には加熱しないようにして溶液を蒸発させた（図 13).

固体ラジウム塩の放射能が，溶液の乾燥乾燥直後から上限値に達するまでの法則を研究した．下記の表に，経時的な放射線強度を示した．上限値を 100 とし，時間は放射線物質を乾燥した時点を起点としている．表Ⅰ (図 13，曲線Ⅰ) は総放射線量，表Ⅱ (図 13, 曲線Ⅱ) は透過線放射線のみである (3cm 厚の空気, 0.01mm 厚のアルミニウム透過後).

表Ⅰ		表Ⅱ	
時間	強度	時間	強度
0	21	0	1.3
1	25	1	19
3	44	3	43
5	60	6	60
10	78	15	70
19	93	23	86
33	100	46	94
67	100		

この他にもいくつか同様の測定を行ない，互いに完全には一致しなかったが, グラフの全体の形は同じであった．一定の結果を得ることは困難であるが，放射能の回復には 1 ヵ月以上を要し，溶解の影響を最も強く受けるのは最も透過性の高い放射線であることが明らかとなった.

総放射線量の初期値は上限値の 21% であるが，3cm 厚の空気，0.01mm 厚のアルミニウムを透過した放射線の強度は上限値のわずか 1% である

溶解後に乾燥したラジウム塩は，固体のまま放射能が上限値に達するまで充分な時間放置した塩と同等の誘導放射能を有する (従って，同等のエマネーションを

放出する)．しかしこの両者の放射能は,非常に異なる．例えば，前者は後者の 1/5 である．

熱によるラジウム塩の放射能の変化

ラジウム含有化合物を加熱すると，エマネーションを放出して放射能が失われる．加熱が強いほど，時間が長いほど，放射能の減少は大きい．130℃で 1 時間加熱すると総放射線量の 10% が失われる．一方，400℃，10 分ではほとんど変化がない．赤熱状態で数時間加熱すると 77% が失われる．
加熱による放射能減少は，吸収性放射線よりも透過性放射線で大きい．数時間の加熱で総放射線量の 77% が失われる場合も，3cm 厚の空気と 0.1mm 厚のアルミニウムを透過する放射線についてはほとんど (99%) が失われる．塩化ラジウム塩を数時間，約 800℃で溶解すると，0.3mm 厚アルミニウムを透過する放射線の 98% が失われる．長時間，強力な加熱後には，透過線放射線は事実上存在しないといえる．

ラジウム塩が加熱により放射能を失う場合，この放射能の減少は持続しない．常温に戻すと放射能は自然に一定の上限値まで回復する．この上限値は，少なくとも塩化ラジウムについては，加熱前の値よりも大きいという興味深い事実を見いだした．例を挙げると，固体状態で調整し，上限値に達したラジウム含有塩化バリウム試料の総放射線量は 470 であるが，0.01mm 厚アルミニウムを通過する放射線は 157 である．この試料を数時間赤熱すると，2 ヵ月後に総放射線の上限値 690 に達するが，0.01mm アルミニウム透過放射線は 227 である．総放射線量とアルミニウムを透過する放射線は，それぞれ 690/470，227/156 の割合で増加する．この 2 つの比は基本的に同じで 1.45 である（図 14）．

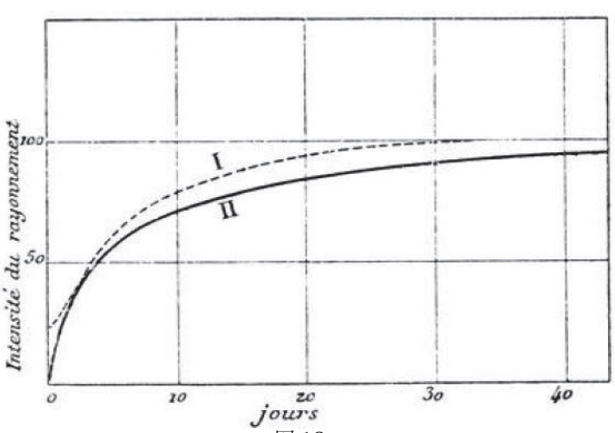

図 13

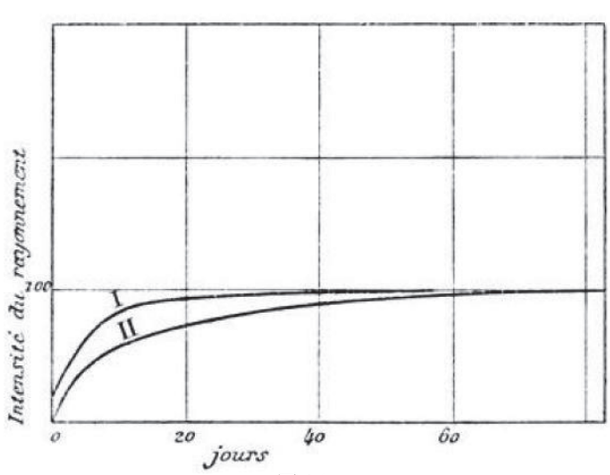

図 14

上限値 62 に達した固体状態で調製したラジウム含有塩化バリウム試料を数時間加熱し，溶融した物質を粉末化すると，この新しい物質は上限値 140 となり，これは固体を加熱せずに乾燥した場合の 2 倍以上である

加熱後のラジウム含有化合物の放射能増加の法則を検討した．以下に 2 つの測定値を示す．表 I , II の数値は，加熱終了後の経時的な放射線強度を上限値 100 として示したものである．表 I (図 14，グラフ 1) は，ラジウム含有塩化バリウムの総放射線量，表 II (図 3，グラフ II) はラジウム含有硫酸バリウムの透過性放射線量 (3cm 厚空気，0.01mm 厚アルミニウム通過後) である．いずれも 7 時間赤熱後である．

表 I		表 II	
時間 (日)	強度	時間 (日)	強度
0	16.2	0	0.8
0.6	25.4	0.7	13
1	27.4	1	18
2	38	1.9	26.4
3	46.3	6	46.2
4	54	10	55.5
6	67.5	14	64
10	84	18	71.8
24	9	27	81
57	100	36	91
		50	95.5
		57	99
		84	100

この他にも何回か測定を行ったが，溶液からの回復に関しては，一定の結果が得られなかった．

加熱したラジウム含有物質を溶解すると，加熱の効果は持続しない．強度 1800 の 2 つの同じ物質の試料について，一方を強く加熱すると放射能は 670 まで低下した．この時点で溶解し，20 時間その状態に置いた 2 つの試料では，固体状態での初期値が非加熱試料 460，加熱試料 420 で，これらの間にあきらかな差はなかった．

しかし,これらの試料を充分な時間溶液状態に置かず，例えば溶解後ただちに乾燥すると，非加熱試料は加熱試料よりも放射能があきらかに大きくなる．すなわち，溶解状態で加熱効果が失われるには一定の時間が必要と思われる．強度 3200 の物質を加熱すると，わずか 1030 になった．この物質と非加熱物質をそれぞれ溶解し，いずれもただちに乾燥した．非加熱物質の強度は 1450，加熱物質は 760 であった．

固体ラジウム塩では，誘導放射能の産生能は加熱によ

り強く影響される．ラジウム化合物を加熱すると，常温よりも多くのエマネーションを放出する．しかし，常温に戻すと，その放射能が加熱前よりも低下するのみならず，誘導能もあきらかに低下する．加熱後，物質の放射能は増加し，元の値を超えることすらある．誘導能も部分的に回復する．しかし長時間の赤熱後には，ほとんどすべての誘導能が失われ，その後も自発的に回復することはない．ラジウム塩のもとの誘導能は，これを水に溶解して 120℃のオーブンで乾燥すると回復する．従って焼灼は，ラジウム塩を高温に熱しない固体よりもエマネーションを発生しにくい物理的状態にする効果があり，この結果，加熱前よりも高い上限放射能を持つようになる．加熱前の物理的状態に戻すには，水に溶解し，150℃を超えない温度で乾燥すれば充分である．

この問題についていくつか数値例を示す．

ここで a は，強度 1600 のラジウム含有炭酸バリウムの試料を銅板にのせて密封容器に入れて求めた上限誘導放射能である．

非加熱物質について a=100 とすると，以下のようになる．

加熱 1 日後	a=3.3
4 日後	a=7.1
10 日後	a=15
20 日後	a=15
37 日後	a=15

物質の放射能は，加熱で 90% 減少したが，1 ヵ月ではもとの値に回復した．以下は，強度 3000 のラジウム含有塩化バリウムによる同様の実験である．測定方は前述の実験に同じである．

非加熱物質の誘導能を a=100 とすると，3 時間赤熱した後の誘導能は以下の通りであった．

加熱 2 日後	2.3
5 日後	7.0
11 日後	8.2
18 日後	8.2
溶解，150℃で乾燥した非加熱物質	92
溶解，150℃で乾燥した加熱物質	105

溶解後，加熱後のラジウム塩の放射能の変動原因に関する理論的な考察

ここに述べたことは，ラジウムはエマネーションの形でエネルギーを産生し，エマネーションが放射線エネルギーに変換されるという仮説で，部分的には説明できる．ラジウム塩を溶解すると，それが産生するエマネーションが溶液外に拡散し，線源外に放射能をもたらす．溶液が蒸発すると，固体塩はほとんどエマネーションを含まないので放射能はそれほど強くなくなる．塩の中に徐々にエマネーションが蓄積し，ラジウムのエマネーション産生が，外部気流とベクレル線への変換による損失を相殺すると，その放射能は上限値に達する．

ラジウム塩を加熱すると，塩外のエマネーション産生率が大きく増加し，誘導放射能現象は常温のときよりも強くなる．しかし常温に戻すと，溶解した場合と同じように誘導放射能現象は消失し，エマネーションはほとんどなくなり，放射能は非常に小さくなる．固体塩内にエマネーションが蓄積すると，放射能は増大する．

ラジウムは一定のエマネーション流を放出し，その一部は外部に失われるが，一部はラジウム自体の内部でベクレル線に変換されると思われる．ラジウムを赤熱すると，その誘導能はほとんど失われる．いいかえれば, 外部へのエマネーション放出は減少する. この結果, ラジウム自体の内部で利用されるエマネーションの割合が大きくなり，放射能の上限値はさらに大きくなる．

溶解あるいは加熱された固体ラジウム塩の放射能増加の法則を理論的に示す．各時点におけるラジウムの放射線強度は，ラジウム内に存在するエマネーションの量 q に比例するとする．各時点におけるエマネーションは次の式に従って失われる

$$q = q_0 e^{-\frac{t}{\theta}} \qquad (1)$$

ここで q_0 は起点におけるエマネーション量，θ は時定数 4.97×10^5 秒．

また，Δ はラジウムのエマネーション生成率で，一定と仮定する．ここでエマネーションが周囲の空間に散逸しない場合を考える．この場合, 生成されたエマネーションはすべてラジウム内で放射線の生成に利用される．さらに式 (1) から,

$$\frac{dq}{dt} = -\frac{q_0}{\theta} e^{-\frac{t}{\theta}} = -\frac{q}{\theta}$$

従って，平衡状態ではラジウムは次式のように一定量のエマネーション Q を含み,

$$\Delta = \frac{Q}{\theta} \qquad (2)$$

ラジウムの放射線は Q に比例する．

ラジウムがそのエマネーションを外部に失う場合を考える．これはラジウム化合物を溶解するか，あるいは加熱することで得られる．平衡が崩れ，ラジウムの放射能は減少する．しかし，エマネーション消失の原因が除去されると (物質を固体に戻したり，加熱を停止すると), エマネーションは再びラジウム内に蓄積する．このとき，流量率 Δ が破壊率 q/ θ を上回る期間がある．これは

$$\frac{dq}{dt} = \Delta - \frac{q}{\theta} = \frac{Q-q}{\theta}$$

すなわち

$$Q - q = (Q - q_0)e^{-\frac{t}{\theta}} \qquad (3)$$

ここで q_0 は t=0 におけるラジウム内にあるエマネーションの量.

式 (3) により，平衡状態にあるラジウムにおいて，ある時点で含まれる量 q に対するエマネーション量 Q の過剰分は，エマネーションの自然消失の法則と同じく，指数関数的に経時的に減少する．ラジウムの放射線はエマネーションの量に比例し，現時点の強度に対する限界強度の過剰分は，同じ法則により経時的に減少する．この過剰分は，約 4 日で半減する.

上記の理論は，外部の気流によるエマネーションの消失を無視しているため不完全である．さらにこれが経時的にどのように変化するかを知ることは難しい．実験結果をこの不完全な理論に照らすと，満足な一致は得られない．しかし，この理論は部分的には正しいと思われる．現時点での放射能に対する上限値の過剰分が 4 日で半減する法則から，10 日間加熱した後の回復経過を概算できる．溶解後の放射能回復については，この法則は一定期間について概ね妥当と思われ，乾燥後 2～3 日で回復が始り 10～15 日持続する．この現象はもっと複雑で，この理論では，透過性放射線が吸収性放射線よりも高率に抑制されるかについては説明できない.

放射能現象の本質と原因

放射性物質の研究の最初期，これらの物質の性状がまだほとんど未知であった頃から，その放射線の自発性は物理学者の大きな関心事であった．我々の放射性物質に関する知識がさらに進歩した現在では，非常に強力な放射性物質，ラジウムを単離する方法を手にしている．ラジウムの顕著な性質を利用することにより，放射性物質が放出する放射線の徹底した研究が可能となった．これまで研究された様々な放射線は，Crookes 管から発生する陰極線，レントゲン線，カナール線などに類似している．これらはまた，レントゲン線から発生する二次線にみられる放射線や [118]，誘導放射能を獲得した物質の放射線にも類似している．しかし，放射線の性質の理解が進んだ現在も，自発的放射能の成因についてはなお不明で，我々にとって謎と驚異のままである.

自発的な放射能物質，特になによりもラジウムは，エネルギー源である．エネルギーの流出を，我々はベクレル線，化学反応，発光現象，持続的な熱放出などとして知ることができる.

エネルギーが放射性物質内で生成されているのか，あるいは外部のエネルギー源から移入されるのかという点は，しばしば問題となる．これら 2 つの考え方に基づく多くの仮説があるが，未だ実験的に確認されたものはない.

放射能エネルギーは，長期間にわたる燐光現象のように，事前に蓄えられて徐々に放出されると思われる．放射能エネルギーの放出は，進化の過程にある放射性物質の原子の性状の変換によるものと想像できる．ラジウムの持続性熱放出は，この仮説を支持するものである．この変換は，質量の減少，放射線を構成する物質粒子の放出を伴う．エネルギー源を, 重力エネルギーに求めることもなお可能である．さらに，空間には未知の放射線が常に飛び交っており，これが放射性物質を通過するときに制止されて放射能エネルギーに変換されることも考えられる.

このような様々な考え方について，数々の賛否両論があり，これらの仮説を実証する実験の多くが否定的な結果に終わっている．ウラン，ラジウムの放射能エネルギーは，現在のところ枯渇しないように思われ，経験的には経時的にかなり変動する．Demarçay 氏は，精製塩化ラジウムの試料を 5 ヵ月毎にスペクトル装置で測定し，スペクトルに変化を認めなかった．スペクトル中に認められるバリウムの残存を示す輝線は，この間増強しなかった．従って，この間ラジウムはバリウムに変換されていないと言える.

Heydweiller 氏は，ラジウム化合物の質量変化を報告しているが [119]，まだ確認された事実ではない.

Elster，Geitel 両氏は，ウランの放射能が，深さ 850 mの坑道内で変化しないことを示しており，この深さの土壌が仮説的な一次放射線によるウランの放射化を変化させないことがわかる.

我々は，仮説的な一次放射線が太陽に由来し，地球を通過する際にその一部が吸収される可能性を考え，ウランの放射能を日中と深夜で測定したが，2 つの測定に差は見られなかった．最新の研究では，ラジウムの原子変換説が有力である．この仮説は，放射能研究の初期より提示されているものである [120]．ラジウムエマネーションは，ラジウム原子崩壊の産物のひとつの気体であると考える Rutherford 氏が，この説を積極的に唱えている．Ramsay, Soddy 両氏の最近の実験は，エマネーションは不安定な気体で，崩壊してヘリウムを生成することを示している．一方，ラジウムの持続的な発熱は，通常の化学反応では説明できず，おそらくは原子の変換に由来するのであろう.

最後に，新たな放射性物質は常にウラン鉱石に発見されていることを思い起したい．我々は市販のバリウムを探索したが徒労に終わった (12 頁参照)．ラジウムの存在は，ウランの存在に関連しているように見える．ウラン鉱石は，アルゴン，ヘリウムを含んでおり，これはおそらく偶然ではない．これらの異なる物質が同じ鉱石に共存することは，その中のあるものの存在が他の生成に必要であることを示唆するものである.

しかし，ラジウムの原子変換の考え方を支持する事実

は，別の解釈も可能であることに留意する必要がある．ラジウム原子が変換するのではなく，原子自体は安定だが周囲の環境 (隣接する原子あるいは真空中のエーテル) が作用して原子変換を来たすことも考えられる．この仮説ではラジウム自体は破壊されないが，元素の変換の可能性に連なるものである．

[1] *Revue générale des Sciences*, 30 janvier 1896.

[2] *Comptes rendus*, t. CXXII, p. 312.

[3] *Comptes rendus*, t. CXXII, p. 386.

[4] *Comptes rendus*, t. CXXII, p. 564.

[5] Becquerel, *Comptes rendus*, 1896 (plusieurs Notes).

[6] Becquerel, *Comptes rendus*, 1896 (plusieurs Notes).

[7] Becquerel, *Comptes rendus*, t. CXXVIII, p. 771.—Elster et Geitel, *Beibl.*, t. XXI, p. 455.

[8] Mme Curie, *Revue générale des Sciences*, janvier 1899.

[9] Schmidt, *Wied. Ann.*, t. LXV, p. 141.

[10] Mme Curie, *Comptes rendus*, avril 1898.

[11] P. Curie et Mme Curie, *Comptes rendus*, 18 juillet 1898.

[12] Rutherford, *Phil. Mag.*, janvier 1899.

[13] Sagnac, *Comptes rendus*, 1897, 1898, 1899 (plusieurs Notes).

[14] On arrive très facilement à ce résultat en soutenant le poids à la main et en ne le laissant peser que progressivement sur le plateau n, et cela de manière à maintenir l'image de l'électromètre au zéro. Avec un peu d'habitude on prend très exactement le tour de main nécessaire pour réussir cette opération. Cette méthode de mesure des faibles courants a été décrite par M. J. Curie dans sa thèse.

[15] Becquerel, *Comptes rendus*, t. CXXIV, p. 800, 1897.—Kelwin, Beattie et Smolan, *Nature*, t. LVI, 1897.—Beattie et Smoluchowski, *Phil. Mag.*, t. XLIII, p. 418.

[16] Rutherford, *Phil. Mag.*, janvier, 1899.

[17] Townsend, *Phil. Mag.*, 1901, 6e série, t. I, p. 198.

[18] Mme Curie, *Comptes rendus*, avril 1898.

[19] Owens, *Phil. Mag.*, octobre 1899.

[20] Rutherford, *Phil. Mag.*, janvier 1900.

[21] Becquerel, *Comptes rendus*, t. CXXII, p. 1086.

[22] Je suis très reconnaissante aux savants cités plus haut, auxquels je dois des échantillons qui ont servi pour mon étude. Je remercie également M. Moissan qui a bien voulu donner pour cette étude de l'uranium métallique.

[23] Elster et Geitel, *Wied. Ann.*, 1890.

[24] Bloch, *Société de Physique*, 6 février 1903.

[25] Mac Lennan et Burton, *Phil. Mag.*, juin 1903.—Strutt, *Phil. Mag.*, juin 1903.—Lester Cooke, *Phil. Mag.*, octobre 1903.

[26] Plusieurs échantillons de minéraux de la collection du Muséum ont été obligeamment mis à ma disposition par M. Lacroix.

[27] La carnotite est un minerai de vanadate d'urane récemment découvert par Friedel et Cumenge.

[28] Debray, *Ann. de Chim. et de Phys.*, 3e série, t. LXI, p. 445

[29] P. Curie et Mme Curie, *Comptes rendus*, juillet 1898.—P. Curie, Mme Curie et G. Bémont, *Comptes rendus*, décembre 1898.

[30] Debierne, *Comptes rendus*, octobre 1899 et avril 1900.

[31] Nous avons de nombreuses obligations envers tous ceux qui nous sont venus en aide dans ce travail. Nous remercions bien sincèrement MM. Mascart et Michel Lévy pour leur appui bienveillant. Grâce à l'intervention bienveillante de M. le professeur Suess, le gouvernement autrichien a mis gracieusement à notre disposition la première tonne de résidu traitée (provenant de l'usine de l'État, à Joachimsthal, en Bohème). L'Académie des Sciences de Paris, la Société d'Encouragement pour l'Industrie nationale, un donateur anonyme, nous ont fourni le moyen de traiter une certaine quantité de produit. Notre ami, M. Debierne, a organisé le traitement du minerai, qui a été effectué dans l'usine de la Société centrale de Produits chimiques. Cette Société a consenti à effectuer le traitement sans y chercher de bénéfice. A tous nous adressons nos remerciments bien sincères. Plus récemment, l'Institut de France a mis à notre disposition une somme de 20000^{fr} pour l'extraction des matières radioactives. Grâce à cette somme, nous avons pu mettre en train le traitement de 5^{t} de minerai.

[32] Giesel, *Ber. deutsch. chem. Gesell.*, t. XXXIV, 1901, p. 3775.—Hoffmann et Strauss, *Ber. deutsch. chem. Gesell.*, t. XXXIII, 1900, p. 3126.

[33] Tout récemment, nous avons eu la douleur de voir mourir ce savant si distingué, alors qu'il poursuivait ses belles recherches sur les terres rares et sur la spectroscopie, par des méthodes dont on ne saurait trop admirer la perfection et la précision. Nous conservons un souvenir ému de la parfaite obligeance avec laquelle il avait consenti à prendre part à notre travail.

[34] Demarçay, *Comptes rendus*, décembre 1898, novembre 1899 et juillet 1900.

[35] Giesel, *Phys. Zeitschrift*, 15 septembre 1902.

[36] *Berichte d. deutsch. chem. Gesell.*, juin 1902 et décembre 1902.

[37] Mme Curie, *Comptes rendus*, 13 novembre 1899, août 1900 et 21 juillet 1902.

[38] *Société de Physique*, 3 avril 1903.

[39] En 1899, M. St. Meyer a annoncé que le carbonate de baryum radifère était paramagnétique (*Wied. Ann.*, t. LXVIII). Cependant M. Meyer avait opéré avec un produit très peu riche en radium, et ne contenant probablement que 1/1000 de sel de radium. Ce produit aurait dû se montrer diamagnétique. Il est probable que ce corps contenait une petite impureté ferrifère.

[40] Giesel, *Wied. Ann.*, 2 novembre 1899.—Meyer et von Schweidler, *Acad. Anzeiger Wien*, 3 et 9 novembre 1899.—Becquerel, *Comptes rendus*, 11 décembre 1899.

[41] P. Curie, *Comptes rendus*, 8 janvier 1900.

[42] P. Curie, *Comptes rendus*, 8 janvier 1900.

[43] Becquerel, *Comptes rendus*, t. CXXX, p. 206, 372, 810.

[44] *Comptes rendus*, t. CXXI, p. 1130. *Annales de Chimie et de Physique*, t. II, 1897.

[45] Lenard, *Wied. Ann.*, t. LXIV, p. 279.

[46] M. et Mme Curie, *Comptes rendus*, 5 mars 1900.

[47] A vrai dire, dans ces expériences, on observe toujours une déviation à l'électromètre, mais il est facile de se rendre compte que ce déplacement est un effet de la force électromotrice de contact qui existe entre le plateau relié à l'électromètre et les conducteurs voisins; cette force électromotrice fait dévier l'électromètre, grâce à la conductibilité de l'air soumis au rayonnement du radium.

[48] Le dispositif du cylindre de Faraday n'est pas nécessaire, mais il pourrait présenter quelques avantages dans le cas où il se produirait une forte diffusion des rayons par les parois frappées. On pourrait espérer ainsi recueillir et utiliser ces rayons diffusés, s'il y en a.

[49] L'enveloppe isolante doit être parfaitement continue. Toute fissure remplie d'air allant du conducteur intérieur jusqu'à l'enveloppe métallique est une cause de courant dû aux forces électromotrices de contact utilisant la conductibilité de l'air sous l'action du radium.

[50] Dorn, *Abh. Halle*, mars 1900.

[51] Becquerel, *Comptes rendus*, t. CXXX, p. 819.

[52] Kaufmann, *Nachrichten d. k. Gesell. d. Wiss. zu Gœttingen*, 1901, Heft 2.

[53] Thomson, *Phil. Mag.*, t. XLVI, 1898.—Townsend, *Phil. Trans.*, t. CXCV, 1901.

[54] Abraham, *Nachrichten d. k. Gesell. d. Wiss. zu Gœttingen*, 1902, Heft 1.

[55] Quelques développements sur cette question ainsi qu'une étude très complète des centres matériels chargés (électrons ou corpuscules) et les références des travaux relatifs se trouvent dans la Thèse de M. Langevin.

[56] Rutherford, *Physik. Zeitschrift*, 15 janvier 1903.

[57] Becquerel, *Comptes rendus* des 26 janvier et 16 février 1903.

[58] Des Coudres, *Physik. Zeitschrift.*, 1er juin 1903.

[59] Villard, *Comptes rendus*, t. CXXX, p. 1010.

[60] Des Coudres, *Physik. Zeitschrift*, novembre 1902.

[61] Mme Curie, *Comptes rendus*, avril 1898.

[62] Rutherford, *Phil. Mag.*, janvier 1899.

[63] Owens, *Phil. Mag.*, octobre 1899.

[64] Becquerel, *Rapports au Congrès de Physique*, 1900.—Meyer et von Schweidler, *Comptes rendus de l'Acad. de Vienne*, mars 1900 (*Physik. Zeitschrift*, t. I, p. 209).

[65] Becquerel, *Comptes rendus*, t. CXXX, p. 979 et 1154.

[66] M. et Mme Curie, *Rapports au Congrès* 1900.

[67] Rutherford, *Phil. Mag.*, juillet 1902.

[68] Mme Curie, *Comptes rendus*, 8 janvier 1900.

[69] Meyer et von Schweidler, *Physik. Zeitschrift*, t. I, p. 209.

[70] Mme Curie, *Comptes rendus*, 8 janvier 1900.

[71] *Chem. News*, 3 avril 1903.

[72] Des Coudres, *Physik. Zeitschrift*, novembre 1902.

[73] Sagnac, *Thèse de doctorat*.—Curie et Sagnac, *Comptes rendus*, avril 1900.

[74] Becquerel, *Rapports au Congrès de Physique*, 1900.

[75] P. Curie, *Comptes rendus de l'Académie des Sciences*, 17 février 1902.

[76] Lord Kelwin, Beattie et Smolan, *Nature*, 1897.

[77] Perrin, *Thèse de doctorat*.

[78] Paulsen, *Rapports au Congrès de Physique*, 1900.—Witkowski, *Bulletin de l'Académie des Sciences de Cracovie*, janvier 1902.

[79] Bary, *Comptes rendus*, t. CXXX, 1900, p. 776.

[80] Curie, *Soc. de Physique*, 3 mars 1899.—Giesel, *Wied. Ann.*, t. LXIX, p. 91.

[81] Giesel, *Wied. Ann.*, t. LXIX, p. 91.

[82] Curie et Laborde, *Comptes rendus*, 16 mars 1903.

[83] M. et Mme Curie, *Comptes rendus*, t. CXXIX, novembre 1899, p. 823.

[84] Giesel, *Soc. de Phys. allemande*, janvier 1900.

[85] Giesel, *Ber.*, 1903, p. 347.—Ramsay et Soddy, *Phys. Zeitschr.*, 15 septembre 1903.

[86] Ramsay et Soddy, *loc. cit.*

[87] Becquerel, *Rapports au Congrès de Physique*, 1900.

[88] Walkhoff, *Phot. Rundschau*, octobre 1900.—Giesel, *Berichte d. deutsch. chem. Gesell.*, t. XXIII.—Becquerel et Curie, *Comptes rendus*, t. CXXXII, p. 1289.

[89] Giesel, *Naturforscherrersammlung*, München, 1899.

[90] Himstedt et Nagel, *Ann. der Physik*, t. IV, 1901.

[91] Aschkinass et Caspari, *Ann. der Physik*, t. VI, 1901, p. 570.

[92] Danysz, *Comptes rendus*, 16 février 1903.

[93] Curie, *Société de Physique*, 2 mars 1900.

[94] M. et Mme Curie, *Comptes rendus*, 6 novembre 1899.

[95] Rutherford, *Phil. Mag.*, janvier et février 1900.

[96] Dorn, *Abh. Naturforsch. Gesell. Halle*, juin 1900.

[97] Debierne, *Comptes rendus*, 30 juillet 1900; 16 février 1903.

[98] Curie et Debierne, *Comptes rendus*, 4 mars 1901.

[99] P. Curie et Mme Curie, *Rapports au Congrès de Physique*, 1900.

[100] Curie et Danne, *Comptes rendus*, 9 février 1903.

[101] Debierne, *Comptes rendus*, 16 février 1903.

[102] Rutherford, *Phil. Mag.*, février 1900.

[103] P. Curie, *Comptes rendus*, 17 novembre 1902.

[104] Elster et Geitel, *Physik. Zeitschrift*, 15 septembre 1902.

[105] P. Curie et J. Danne, *Comptes rendus*, 2 juin 1903.

[106] P. Curie et J. Danne, *Comptes rendus*, 2 juin 1903.

[107] Rutherford et Soddy, *Phil. Mag.*, mai 1903.

[108] Ramsay et Soddy, *Physikalische Zeitschrift*, 15 septembre 1903.

[109] *Phil. Mag.*, 1902, p. 580; 1903, p. 457.

[110] Curie et Debierne, *Comptes rendus*, 29 juillet 1901.

[111] Curie, *Comptes rendus*, 26 janvier 1903.

[112] Giesel, *Société de Physique de Berlin*, janvier 1900.

[113] Debierne, *Comptes rendus*, juillet 1900.

[114] Rutherford et Soddy, *Zeitschr. für physik. Chemie.*, t. XLII, 1902, p. 81.

[115] Villard, *Société de Physique*, juillet 1900.

[116] Mac Lennan, *Phil. Mag.*, février 1902.

[117] Giesel, *Wied. Ann.*, t. LXIX, p. 91.

[118] Sagnac, *Thèse de doctorat*.—Curie et Sagnac, *Comptes rendus*, avril 1900.

[119] Heydweiller, *Physik. Zeitschr.*, octobre 1902.

[120] Mme Curie, *Revue générale des Sciences*, 30 janvier 1899.

[121] Rutherford et Soddy, *Phil. Mag.*, mai 1903.