資料

天然原子炉の可能性に対する解析

黒田 和夫*

(1976年 12月25日 受理)

Analysis of Possibility of Reactors Occurring in Nature

By Paul Kazuo KURODA

A historical account is presented of the sequence of events which led to the 1956 prediction by the author that nuclear reactors should have existed in nature approximately 2 billion years ago. Following a brief review of the natural reactor theory, some of the results from recent studies of the Oklo Phenomenon are discussed. The report consists of the following chapters: I. Introduction, II. Natural Reactor Theory, III. The Oklo Phenomenon—Models of Natural Reactors, IV. Possibility of the Graphite-type Natural Reactor, V. The Sudbury Phenomenon, and VI. Conclusion. The Chap. IV deals with the studies on the occurrence of fissionogenic xenon isotopes in the carbon-rich mineral thucholite from the Besner Mine, Parry Sound, Ontario, Canada. The thucholite contained fissionogenic xenon isotopes from ^{238}U spontaneous fission, but not from ^{235}U neutron-induced fission. The Chap. V deals with the studies of the abundance pattern of Ne, Ar, Kr and Xe in several granite samples, including the Red Rock granite from the Sudbury structure, Ontario, Canada, which, according to Dietz (1964), was formed by the impact of an asteroid about 1.7 billion years ago. No unusual concentration of fissionogenic xenon isotopes was detected in the Red Rock granite, but the observed rare gas abundance pattern resembled that in meteorites, rather than the terrestrial rare gas abundances.

KEYWORDS: Oklo Phenomenon, natural reactor, natural reactor theory, thucholite, fissionogenic xenon isotopes, rare gases, granites, Sudbury phenomenon, asteroid impact, meteorites

I. ま え が き

天然原子炉の化石がアフリカのガボン共和国オクロ鉱山で発見されたことは、フランスの原子力委員会の特別ニュース報道として1972年9月25日午後6時に発表されたが、その記録をみると次のようなことが述べられている：「このような現象が理論的に起りうるという可能性は、1956年に1人のアメリカの研究者によって指摘されていた。しかし現在まで天然ウランの同位体組成に大きな変動のあることを検出した実験例は一つもなかった」。このアメリカの研究者というのは筆者のことで、天然原子炉説を発表する前年にアメリカの市民権をとったため、この説が日本の科学者によって提出されたということにならなかったのである。しかし、原子炉を初めてつくった Fermi 教授もイタリア生れのアメリカ人であったし、筆者が日本で生れて、日本で教育を受けた者であることも間違いない事実で

あるから、天然原子炉説の起源は日本であると考えていただきたいと希望する。

筆者は木村健二郎教授の下で太平洋戦争中を含めて、1938年から1949年まで「東洋産含希元素鉱物の化学的研究」ならびに「本邦温泉の微量成分」の研究に従事していた。当時、温泉の研究などがいかにも地味で、何の役にも立たぬものと批判する人が多かったが、いまからふり返って考えてみるとこのような研究に10年間従事したことが、筆者が後になって天然原子炉の可能性を考える直接の動機となったのである。なぜかという、天然原子炉は一つの「含希元素鉱物」であるといえるし、あるいは「温泉」の一種であるとも考えることもできるからである。

さて、戦争も終って筆者は Fermi のいるシカゴ大学

* Department of Chemistry, University of Arkansas, Fayetteville, Arkansas 72701, U.S.A.

か、Seaborg のいるカリフォルニア大学に留学したいと思っっている画策してみたが、当時日本人は採用されぬとのことであったのであきらめて、1949年にミネソタ大学の分析化学教室に留学ということで渡米し、1952年になってアーカンソー大学に助教授として赴任した。

Fermi 教授は1944年に米国に帰化し、1946年にシカゴ大学の教授となったが、1954年11月29日に53歳の若さで他界された。筆者が「原子炉が天然にあったはずだ」という説を初めて正式に発表したのは1954年4月にワシントンで開かれた米国地球物理学会の年会の席上であったが、天然の原子炉の可能性について Fermi 教授の意見を直接聴く機会はついになかった。

Fermi のいわゆる「パイルの理論」の要は1947年に米国のサイエンス誌に発表された。しかし、この論文を読んだだけで原子炉の計画が誰にでも出来るようには書かれていなかった。当時、原子炉の理論の詳細はまだ米国の原子力関係の軍事秘密事項の中に含まれていたためである。しかし、1954年になると原子力工学に関する書物が発行され、これらの本の中には原子炉の計算の実例が詳しく記載されていた。そこで筆者は次の2冊の書物を購入して原子力工学の勉強を始めた。その一つは、R. Stephenson の “*Introduction to Nuclear Engineering*”, (1954), McGraw-Hill, New York. で、もう一つは R.L. Murray による同じ題名の本(Prentice-Hall, 1954)であった。これらの書物はいずれも原子力工学の参考書としては優れたものであったが、原子炉が天然に存在した可能性などという問題にはもちろん全然触れていなかった。

筆者が1954年に天然原子炉説を発表した時、これに対して最も強い反対の立場をとったのは、意外にも Fermi 教授のお膝元のシカゴ大学物理学教室の若い物理学者達であった。当時のアメリカにおけるシカゴ大学、特に Fermi 教授の名声は圧倒的なものであったため、彼らの反対意見が結局アメリカ全体の核物理および核化学者の意見を代表することになったといってよかった。彼らの頭の中には次のような先入観念が深く刻み込まれていたのである：「シカゴ大学の原子炉は世界最優秀の物理学者達が、それに使われる材料物質の純度、ならびにその組立てにあたっての幾何学的配置に最高の注意を払って建設したものである。このような原子炉が天然に簡単にできるはずはない」。

このような先入観念をもって計算を行うと、「原子炉は天然においてはクリティカルにならなかった」という結論が出ることは次章に述べるとおりである。

II. 天然原子炉の理論

天然原子炉の理論の一番大切な点は、ウラン鉱床の中で起った連鎖反応が過去において「クリティカル」になったかどうかということである。「サブ・クリティカル」(sub-critical)なUの連鎖反応がU鉱物の中で起ることは、Thode や Wetherill らの研究によって1953年頃にはすでにわかっていた。それはU鉱物中の希ガス元素ゼノン(Xe)の同位体比を測定すると、 ^{238}U の自発核分裂によって出来るXeの安定同位体に、 ^{235}U の中性子による核分裂で出来るXeの安定同位体が10~20%混じっていることからわかる。したがって、天然原子炉の理論は次の2つの部分に分けて考えるべきである：(a)U鉱物中では「サブ・クリティカル」な連鎖反応が起る、(b)U鉱床中で連鎖反応が「クリティカル」になった場合が過去にあった。

しかし、最近発表された天然原子炉に関する2,3の総合報告を読んでみると、大体次のような書き方をしている：「Wetherill らは1953年に天然におけるUの連鎖反応の可能性を論じ、3年後の1956年に Kuroda は20億年ばかり前に天然に原子炉が存在した可能性を指摘した。このような“speculation”があったにもかかわらず、それは多くの科学者の注意を引くに至らなかった」。実際のところは当時多くの人(a)は起ったが、(b)は起らなかったとして、筆者の天然原子炉説に反対する立場をとったのである。それに加えて、“speculation”という英語は「思索」、「沈思」なども意味するが、「空論」、「投機」、「ヤマをかける」、「見越す」などとの区別がはっきりしないため、天然原子炉説に関連して使った場合誤解を招くことが多い。

さて、Stephenson の “*Introduction to Nuclear Engineering*” の(2-21)式によれば

$$k = \epsilon p f \eta \quad (1)$$

で、この式から求められる k の値が1より大きければ、原子炉は「クリティカル」となる。

この k の値を計算するために、原子炉が燃料(U)、中性子減速物質(モデレータ)および不純物からなるとする。そして天然原子炉の場合は、通常の水がモデレータの役割をすると考えて、燃料であるUの同位体比($^{235}\text{U} : ^{238}\text{U}$)はU鉱床の年齢の関数であるから、U鉱の化学組成がわかっているならば、人工原子炉の場合と全く同様にして k の値が計算できるはずである。

(1)式において、速い中性子による核分裂の寄与を示す ϵ の値は1.02程度であることがわかっているから

一応無視することができる。それから f の値は U 鉱の化学組成がわかっているれば、各元素に対する熱中性子断面積 (cross section) の値が Stephenson の付録第 3 表に示されているから、それから簡単に計算できる。

すなわち、Stephenson の (4-35) 式により

$$f = \frac{N_1(\sigma_a)_1}{N_1(\sigma_a)_1 + N_2(\sigma_a)_2 + \dots} = \frac{(\Sigma_a)_1}{(\Sigma_a)_1 + (\Sigma_a)_2 + \dots} \quad (2)$$

である。

p (resonance escape probability) の値は Stephenson の (4-31) 式により

$$p = \exp \left[-\frac{N_0}{\xi \Sigma_s} \int_E^{E_0} (\sigma_a)_{\text{eff}} \frac{dE}{E} \right] \quad (3)$$

で、Stephenson の 110 頁の第 4・5 図に ^{235}U 原子 1 個当りの散乱断面積 (Σ_s/N) の値と $\int_E^{E_0} (\sigma_a)_{\text{eff}} dE/E$ の値との関係が示されているから、この図から簡単に求めることができる。

ここで問題となるのは、U 鉱の組成が化学分析によって精密に決定されているものがきわめて少ないことである。文献をあさってみると約 124 の化学分析例が見つかったが、その大部分は「不完全」分析で、主成分である数種の元素の含量が報告されているだけで、特に中性子断面積の大きい希土類元素含量を正確に分析したものが少ない。そこで、筆者が Saxony の Johanngeorgenstadt 産のピッチブレンドを原子炉の計算に選んだのは、次の 2 つの理由からである：(a) 化学分析を行なったのが U.S. Geological Survey の W.F. Hillebrand で、その分析値は F.W. Clarke の “*The Data of Geochemistry*”, p. 725 (1924) に引用されている。(b) この分析によれば ThO_2 , CeO_2 , ZrO_2 , $(\text{La}, \text{Di})_2\text{O}_3$ および $(\text{Yt}, \text{Er})_2\text{O}_3$ がいずれもはっきりと “None” と記されている。

この化学分析は 19 世紀の末に行われたものであるが、最高度の信頼がおけるものと思われた。筆者にとって「分析の神様」のように思われた、Hillebrand のような大分析化学者が “None” といったら、それを信じてよいと考えたのである。第 1 表に、この U 鉱の化学組成を示す。

さて、この化学組成をもとにして、 p, f, η および k の値を地質年代の関数として計算してみると、第 2 表に示す結果が得られた。

こうして得られる結果の面白いことは、地質年代および U の濃縮度が増大するにつれて、 f と η は大きくなるが、 p の値は逆に小さくなっていくことである。

第 1 表 Johanngeorgenstadt (Saxony) 産のピッチブレンドの化学組成

UO_3	22.33	Bi_2O_3	0.75
UO_2	59.30	$\text{V}_2\text{O}_5, \text{MoO}_3, \text{WO}_3$	0.75
ThO_2	None	Alkali	0.31
CeO_2	None	SO_3	0.19
ZrO_2	None	P_2O_5	0.06
$(\text{La}, \text{Di})_2\text{O}_3$	None	As_2O_5	2.34
$(\text{Yt}, \text{Er})_2\text{O}_3$	None	He	Trace
Al_2O_3	0.20	H_2O	3.17
Fe_2O_3	0.21	SiO_2	0.50
PbO	6.39		
CuO	0.17	Total	97.93

CLARKE, F.W.: “*The Data of Geochemistry*”, p. 725 (1924), Washington, Government Printing Office による。

第 2 表 Johanngeorgenstadt (Saxony) 産のピッチブレンドについて地質年代の関数として計算した p, f, η および k の値

地質年代 (単位は百万年前) (現在)	0	700	1,000	1,400	2,100	2,800
^{235}U の濃縮度 (%)	0.7	1.3	1.6	2.3	4.0	7.0
p	0.47	0.45	0.43	0.42	0.38	0.34
f	0.93	0.95	0.96	0.97	0.98	0.99
η	1.32	1.57	1.66	1.77	1.91	1.98
k	0.58	0.67	0.69	0.72	0.71	0.67

したがって、 p, f, η の積である k の値は 14 億年前までは増大するが、その後は次第に減少していき、決して 1 より大きい値に到達しないのである。いいかえると、U 鉱床は地質年代の歴史を通じて「原子炉に近いもの」になったかも知れないが、本当にクリティカルな原子炉にはならなかったという結論となり、シカゴ大学の連中の考えと一致することになる。

ところが、もう一度よく考えてみるとこの結論は正しくないことに気が付く。なぜかという、第 2 表において k の値が 14 億年前の 0.72 から、21 億年前の 0.71 に減るのは、 p の値が 0.42 から 0.38 に減るため、もし p が変化しなかったとしたら 21 億年前の k の値は 0.71 でなく、0.79 というかなり大きな値となるはずである。第 2 表の p の値は U と水の比によって決まる値であり、この計算では U 鉱床の水の含量が地質年代を通じて不変であったと仮定している。そうすると、U の原子数が放射性壊変のために地質年代とともに減少するから、水と U の比は地質年代が若くなるにつれて増大していくことになる。ところが、このようなモ

デルはUの鉱床が実際に地球上で生成する過程を全く無視したものである。

Uの鉱床が生成するためには、Uが水によって運ばれてくる必要がある。そしてUが沈殿、濃縮した過程で水は取り除かれたはずである。したがって、天然原子炉の計算は

$$(\text{ウラン}) \cdot (\text{不純物}) \cdot n\text{H}_2\text{O}$$

というシステムを考えて、水とUの比である n を変数として取り扱うべきである。このように考えて計算をしておしてみると、第3表に示すような結果となり、「21億年ばかり前に、比較的純物の少ない天然U鉱床の中ではUの連鎖反応がクリティカルになったはずである」という結論となる。

第3表 水とUの比を変数として求めた Johann-georgenstadt 産ピッチブレンドに対する p, f, η および k の値を、U鉱床が21億年前に存在したと仮定して計算した結果

n	$\frac{1}{4}$	$\frac{1}{2}$	1	2	3	4	5	10
p	0.29	0.47	0.62	0.74	0.79	0.82	0.84	0.86
f	0.99	0.98	0.97	0.95	0.93	0.91	0.89	0.81
η	1.91	1.91	1.91	1.91	1.91	1.91	1.91	1.91
k	0.55	0.88	1.15	1.34	1.40	1.42	1.43	1.33

筆者がこのような計算をしていた1956年の末、当時フランス領であったアフリカ西岸のオクロ地帯で、フランスの科学者らが新しいUの鉱床を発見していたことは勿論夢にも知るよしもなかった。

Ⅲ. オクロ現象—天然原子炉のモデル

フランスの原子力研究所における「オクロ現象」研究の主任である Roger Naudet によれば、オクロ原子炉のエネルギーの総量は15,000 MW/yrに相当し、6tの ^{235}U が消費されたという⁽³⁾。これは大きな発電用原子炉が4年間に供給するエネルギーに大体相当する。オクロ原子炉の存在する Francevillian の地質構造の年齢は Rb/Sr 年代決定法により $1,740 \times 10^6 \pm 20 \times 10^6$ yr という値が得られた。一方、Durrani ら⁽⁴⁾はオクロ鉱床産の水晶のフィッシュ・トラック法による年代決定から $1,730 \times 10^6$ yr という値を得た。

オクロ原子炉のモデル計算については、フランスの原子力研究所の Ruffenach ら⁽⁵⁾と、米国のロスアラモス研究所の Cowan ら⁽⁶⁾の報告があり、その要点は Maurette⁽⁷⁾により *Annu. Rev. Nucl. Sci.* の1976年号にまとめられている。

原子炉中の中性子は、熱中性子($E_0 \cong kT$, ここに k : ボルツマン定数, T : 絶対温度), エピサーマル(epi-thermal) 中性子($E \geq 10E_0$) および速中性子($E \geq 1\text{MeV}$) の混ったものである。 ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu はすべてのエネルギーの中性子で核分裂を起すが、 ^{238}U と ^{232}Th の核分裂は速中性子のみによって起る。その結果として出来る核分裂生成物(F.P.)の分布は、山が2つある質量・収率曲線(mass-yield curve)で表わされ、その形は ^{235}U , ^{238}U , ^{239}U 等のそれぞれに特有なものであり、また中性子のエネルギーにも支配される。一方、核分裂が起っている間に中性子捕獲過程も起るから、そのためF.P.の出来る割合も変化する。したがって、質量・収率曲線の質量100~150付近に位置する元素の同位元素組成は、天然元素の組成とF.P.のそれが中性子捕獲過程によってさらに変動したものの混合物であるとみなすことができる。そこで適当な安定同位元素の組合せを選び、それらの測定値を使って計算を行い、天然原子炉の作動条件ならびに同位体の親にあたる核種の濃度を Bateman の式⁽⁸⁾を使って関係づけることができる。 ^{235}U の核分裂で出来た一つの安定なF.P.が、中性子によってさらに壊される場合を考えると、単位容積中に存在する一つのF.P.の原子数(N)は次の式によって表わされる:

$$N = \frac{N_{235} \sigma_F Y}{\sigma_c^*} [1 - \exp(-\sigma_c^* F)], \quad (4)$$

ここに、 N_{235} : ^{235}U の原子数

σ_F : ^{235}U の核分裂断面積

σ_c^* , Y : それぞれ実効捕獲断面積および

核分裂生成収率

F : 中性子フルエンス

(4)式は実際の計算を行うには不便であるから、次のように書きかえる。

(4)式における N と N_{235} の時間的変化を考慮に入れて、まず

$$\frac{dN}{dt} = N_{235} Y \sigma_F \phi - N \sigma_c \phi$$

$$\frac{dN_{235}}{dt} = N_{235} \sigma_{235} (1 - C) \phi,$$

ここに、 ϕ : 中性子束

σ_{F235} : ^{235}U の核分裂断面積

σ_{235} : ^{235}U の全断面積

C : ^{239}U が中性子を捕獲して ^{239}Pu が出来、それが α 崩壊をして出来た ^{235}U と、もともとあった ^{235}U との比を考慮に入れたファクタ

と書く。

そこで、中性子捕獲がなかった場合の原子数(N)と、中性子捕獲によって変化した原子数(ΔN)との比は次のようになる。

$$\frac{\Delta N}{N} = 1 - \frac{\ln(1/a) + \sigma_{c238}\tau}{\sigma_c\tau - \ln(1/a) - \sigma_{c238}\tau} \cdot \frac{\exp(-\sigma_{c238}\tau) - (1/a)\exp(-\sigma_c\tau)}{1/a - \exp(-\sigma_{c238}\tau)} \quad (5)$$

ここに、 τ : フルエンス

σ_{c238} : ^{238}U に対する“実効”捕獲断面積

a : $\frac{^{235}\text{U}/^{238}\text{U} \text{ の試料中における値}}{^{235}\text{U}/^{238}\text{U} \text{ の正常U中の値}}$

であって、 a は次式で表わされる。

$$a = \exp[-\sigma_{235}(1-C)\tau] \exp[\sigma_{c238}\tau] \quad (6)$$

これらの式を使って Ruffenach ら⁽⁵⁾は3つの希土類元素(Nd, Gd, Sm), Ruの3つの同位体, Pbの3つの同位体およびUの2つの同位体の合計19の同位体を使って、測定値と矛盾しないような値を図式的に求めるという方法により、オクロ原子炉の作動条件を計算した。その結果によれば、オクロ鉱床でおきた核分裂の大部分は ^{235}U によるもので、 ^{238}U と ^{239}Pu の核分裂の占める割合は全体のそれぞれ3%と4%であることがわかった。

^{239}Pu の核分裂の占める割合は、その値から原子炉の作動時間(duration)を計算することができるため極めて重要である。それは ^{239}Pu の半減期が24,000 yrという、かなり大きな値だからである。原子炉の作動時間(δ)を求めるには、半減期が δ の値に比較的近いような放射性元素を選んで計算をする必要がある。

Ruffenach ら⁽⁵⁾は ^{239}Pu (半減期24,000 yr)と ^{99}Tc (半減期213,000 yr)を使った。この両者はともに ^{99}Ru に壊変し、直接 ^{99}Tc あるいは ^{99}Ru の中性子捕獲によって ^{100}Ru となる。その計算の結果、 ^{239}Pu 法からは $\delta=600,000$ yrという値が得られ、 ^{99}Tc 法からは $\delta=1,400,000$ yrという値が得られた。しかし後者の値はRuに対する σ_c の値が正確に知られていないことと、Ruが原子炉内にとどまっていなかった可能性があるため、あまり信頼のおけないものとみなされる。

Cowan ら⁽⁶⁾は、オクロ鉱床の22個の試料の全U、 ^{235}U 、 ^{142}Nd 、 ^{143}Nd 、 ^{144}Nd 、 ^{145}Nd 、 ^{146}Nd 、 ^{148}Nd 、 ^{150}Nd 、 ^{232}Th および ^{209}Bi 含量の測定値から、次のパラメータを計算した。

- ① 原子炉の年齢(t_0)
- ② 原子炉の作動時間(δ)

③ 熱中性子のフルエンス(τ)

④ 作動中の天然原子炉における共鳴中性子と熱中性子の数との比(R)

⑤ ^{235}U による中性子捕獲と ^{235}U の核分裂過程との比(C)。

彼らがパラメータを決める計算に使った断面積の値を第4表に示す。

第4表 Cowan らがオクロ原子炉のモデル計算に使った断面積の値

	熱中性子 (Thermal)		共鳴中性子 (Resonance)		核分裂スペクトル中性子 (Fission spectrum)	
	n, γ	n, f	n, γ	n, f	n, γ	n, f
^{232}Th	7.4	0	83	0	0	0
^{234}U	100	0	700	0	0	0
^{235}U	100	580	144	280	0.19	1.29
^{236}U	5.6	0	370	0	0.17	0.36
^{237}Np	180	0	800	0	0	0
^{238}U	2.7	0	280	0	0.12	0.16
^{239}Pu	271	742	180	300	0.13	1.83
^{240}Pu	290	0	8,000	0	0.16	0
^{99}Ru	19	—	340	—	0	—
^{104}Ru	0.47	—	4.6	—	0	—
^{142}Nd	19	—	0	—	0	—
^{143}Nd	285	—	100	—	0	—
^{144}Nd	4	—	5	—	0	—
^{145}Nd	49.7	—	362	—	0	—
^{146}Nd	1.3	—	3	—	0	—
^{148}Nd	2.5	—	16	—	0	—
^{150}Nd	1.2	—	17	—	0	—

Cowan らの行なった計算⁽⁶⁾はダイナミック・モデリング(Dynamic Modelling)と呼ばれ、原子炉中におけるUの出入を考慮した複雑なモデルを使った計算を行っている。原子炉の化石中に ^{235}Th と ^{209}Bi が存在するのは次のような核反応が起るためである。

第5表に Cowan らの計算の結果を示す。このようにして求めた $t_0=(1.84 \pm 0.07) \times 10^8$ yr という値は Rb/Sr 法で求めた Francevillian 地質構造の年齢であ

る $(1.74 \pm 0.02) \times 10^9$ yr によく一致している。

第 5 表 Cowan らによるオクロ原子炉の
モデル計算の一例

試料	t_0 (10^3 yr)	δ (10^5 yr)	τ (10^{21} n·cm $^{-2}$)	R	C
401	1.80	2.83	1.46	0.015	0.45
404	1.77	1.97	0.96	0.032	0.68
433	1.70	1.40	1.70	0.026	0.72
1177	1.81	2.95	1.38	0.037	0.74
1178	1.85	≥ 5.30	1.39	0.028	0.59
1179	1.76	2.73	1.53	0.032	0.72
1181	1.92	1.38	1.88	0.009	0.35
1182	1.90	3.60	1.89	0.011	0.38
1183	1.87	1.54	1.93	0.015	0.47
1185	1.89	2.46	1.79	0.024	0.59
1186	1.94	1.71	1.70	0.013	0.39
1187	1.91	2.62	1.66	0.024	0.56
平均値	$(1.84 \pm 0.07) \times 10^3$ yr	$(2.29 \pm 0.70) \times 10^5$ yr	—	—	—

Ⅳ. グラファイト型天然原子炉の可能性

Fermi が 1942 年 12 月にシカゴ大学で初めて組み立てた原子炉は天然 U・グラファイト型のもので、それに使われたのは 50 t の U と 500 t のグラファイトであった。炭素原子の中性子吸収断面積は通常の水のそれに比較して小さい値であるから、グラファイトをモデルレータにした場合は濃縮 U を使う必要がなく、天然 U でもクリティカルな連鎖反応が起る。したがって、炭素含量の高い U 鉱物で大きな鉱床をつくるものがあれ

ば、それが天然原子炉となる可能性がある。このようなことを初めて考えたのは Orr⁽⁹⁾ で、彼は 1949 年にカナダのオンタリオ州バリサウンドにあるベスナー鉱山に産するツコ石という鉱物の中の ^{235}U 含量を測定した。ツコ石の主成分は Th, U, C, H, O であるから、Th-U-C-H-O-lite=thucholite という名がつけられている。この鉱物は通常ベグマタイト鉱床の中に(大きなもので)親指大の結晶として産する。これが Fermi が組み立てたシカゴ大学の原子炉 1 号のような大きな鉱床をつくる可能性はないと考えられる。Orr はこの鉱物から U を抽出してその同位元素組成を測ったところ、 $\pm 6\%$ の実験誤差の範囲で $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比は通常の U と同じであったと報告した。

ツコ石の中で U の連鎖反応が実際に起ったかどうかということは、鉱物の中から希ガス元素 Xe を抽出してその同位体組成を測定すればわかるはずである。もし鉱物が天然原子炉となっていたとすれば、その中には ^{235}U の中性子照射によって出来た核分裂 Xe の安定同位元素 ^{131}Xe , ^{132}Xe , ^{134}Xe および ^{136}Xe の過剰が含まれているはずである。この実験は 1965 年に筆者の研究室で当時大学院学生であった Bogard, Rowe, Manuel の 3 人によって行われた¹⁰⁾。その結果、ベスナー鉱山のツコ石の中には核分裂 Xe の同位体が含まれるが、それは ^{235}U の核分裂によるものではなく、ほとんど純粋な ^{238}U の自発核分裂生成物であることがわかった。したがって、ツコ石のような鉱物はグラファイト型天然原子炉にならなかったという結論となったが、Bogard らのデータを検討してみると、この鉱物の中に含まれる Xe は、地球の大気中の Xe と隕石中

第 6 表 カナダのオンタリオ州バリサウンドのベスナー鉱山産の
ツコ石中に含まれる過剰の核分裂 Xe の原子数の比

(^{136}Xe の原子数を 6.00 と仮定し、それに対する値を示す)

Xe の抽出温度 (°C)	^{131}Xe	^{132}Xe	^{134}Xe	^{136}Xe
550	0.47 $\pm$ 0.04	2.96 $\pm$ 0.28	4.99 $\pm$ 0.40	(6.00)
700	0.44 $\pm$ 0.04	3.57 $\pm$ 0.15	5.02 $\pm$ 0.18	(6.00)
850	0.40 $\pm$ 0.05	3.58 $\pm$ 0.20	4.39 $\pm$ 0.30	(6.00)
1,000	0.37 $\pm$ 0.03	3.57 $\pm$ 0.06	4.97 $\pm$ 0.13	(6.00)
1,200	0.41 $\pm$ 0.01	3.57 $\pm$ 0.03	5.22 $\pm$ 0.06	(6.00)
1,400	0.40 $\pm$ 0.01	3.57 $\pm$ 0.04	4.99 $\pm$ 0.04	(6.00)
1,600	0.42 $\pm$ 0.01	3.57 $\pm$ 0.07	4.96 $\pm$ 0.12	(6.00)
1,800	0.42 $\pm$ 0.02	3.57 $\pm$ 0.14	5.11 $\pm$ 0.21	(6.00)
合 計	0.43 $\pm$ 0.02	3.57 $\pm$ 0.12	5.06 $\pm$ 0.17	(6.00)
^{235}U の核分裂による生成比	0.455 $\pm$ 0.02	3.57 $\pm$ 0.06	4.99 $\pm$ 0.17	(6.00)
^{235}U の核分裂による生成比	2.72	4.07	7.49	(6.00)

に含まれる Xe の中間の同位体組成を持っているらしいことがわかった。これは大変面白いことであるが、なぜそのような Xe がツコ石の中に含まれているかという説明は当時つかなかった。最近、筆者の研究室でベスナー鉱山産のツコ石に含まれる Xe の同位体比の精密な再測定が行われた⁽¹¹⁾。その結果から計算したツコ石中の核分裂 Xe 同位体の存在量の比は第 6 表に示すように、²³⁸U の自発核分裂によって生成する ¹³¹Xe, ¹³²Xe, ¹³⁴Xe, ¹³⁶Xe の比によく一致している。

なお、ベスナー鉱山のあるバリーサウンド地帯に隕石の落下によって出来たと思われる直径 1.5 mile ばかりの火山の火口に似た地質構造が存在する。したがって、ツコ石に含まれる隕石に似た同位体組成を持つ Xe はこの地帯に実際に落下した隕石に起因するものかもしれない。

V. サドベリー現象

カナダのオンタリオ州のサドベリー (Sudbury) 地帯に直径 30 mile ばかりの、いわゆるサドベリー地質構造がある。Dietz⁽¹²⁾ によれば、これは直径 4 km のアステロイドの落下に伴う衝突によって出来たものである。この現象によって放出されたエネルギーは 3×10^{29} erg で、第 7 表に示すように「オクロ現象」のエネルギーよりも遙かに大きい。そして「サドベリー現象」が起きたのが「オクロ現象」とほとんど同時代の 17 億年前である。

第 7 表 種々の現象に伴うエネルギー放出量の比較

	時	推定エネルギー量 (erg)	文献
(1) 20 kt 原子爆弾	1945 年 8 月	8×10^{20}	(a)
(2) 浅間山の爆発	1938 年 6 月 7 日	1.7×10^{20}	(b)
(3) オクロ現象	(1.74 ± 0.02) $\times 10^9$ yr 前	5×10^{24}	(c)
(4) サドベリー現象	1.72×10^9 yr 前	3×10^{29}	(d)

(a) FRIEDLANDER, G., KENNEDY, J.W., MILLER, J.M.: "Nuclear and Radiochemistry", p. 493 (1955), John Wiley, New York.

(b) MINAKAMI, T.: Bull. Earthquake Res. Inst., Univ. Tokyo, 20, 65~92 (1942).

(c) ²³⁵U 消費量推定 6 t から計算した値。

(d) DIETZ, R.S.: J. Geol., 72, 412~434 (1964).

筆者は数年前にこの「サドベリー現象」がアステロイドの衝突でなく、地下における天然原子炉の大爆発によるものではないかという考えをいただき、北米大陸各

地産の火成岩の中に含まれる希ガスの同位元素組成を測定する研究を始めた。もし「サドベリー現象」が核爆発によるものであるなら、その中に核分裂 Xe および核分裂 Kr の過剰が含まれているはずである。その結果⁽¹³⁾は期待に反して、サドベリー地帯で採集した花コウ岩中に含まれる核分裂で出来た Xe および Kr の量は、岩石中の U の自発核分裂によって出来たとして充分説明でき、他の地帯で採集した岩石との著しい差異は認められなかった。しかし、これらの岩石中の Ne, Ar, Kr および Xe の含量を比較してみると、第 8 表に示すようにサドベリー地帯で採集した Red Rock 花コウ岩中における希ガス元素の存在量比は、隕石中のそれによく似ており、地球大気中の含量の比とは違うものであるという結果が得られた。これは「サドベリー現象」がアステロイドの衝突で出来たという Dietz の説を支持するように思われる。

第 8 表 北米各地産花コウ岩、大気および隕石中における希ガス元素存在量比の比較

	Ne/Xe	³⁶ Ar/Xe	Kr/Xe
(1) 隕石			
Murray	18	18	0.63
Renazzo	16	18	0.38
Murchison	35	60	0.59
(2) 花コウ岩			
Red Rock (サドベリー地帯)	23	25	0.37
Carney Lake (ミシガン)	2,300	1,526	9.3
Wausau (ウィスコンシン)	...	...	30
Westerly (ロード・アイランド)	715	399	18
(3) 地球の大気	208	362	13

VI. むすび

19 世紀の有名な物理学者 Hermann von Helmholtz は、「新しい考えの創始者は……原則として、なぜ彼のいうことを他の人達が理解してくれないかということを見出すことの方が、新しい真理を発見することよりも遙かに困難である事実に気が付くものである」といったそうであるが、これは天然原子炉説の場合にもあてはまるような気がする。筆者が 1956 年に「原子炉が 20 億年ばかり前に天然に存在した」という説⁽¹⁾⁽²⁾を発表した時、これをまじめに取り上げた人は誰もなかった。

さて、ここに天然原子炉研究の初期の歴史から始めて、その現況までをまとめてみたが、自然科学研究の面白い点は新しいアイディアや発見が、いつどこで起きるかが全然予期できないことである。したがって、この方面の研究が将来どのように発展するかを、ここで推測する代わりに、われわれが毎日のように見てい

る太陽それ自身が、最もすばらしい広義の天然原子炉の一つであることを付記して筆をおくことにする。

— 参 考 文 献 —

- (1) KURODA, P.K.: *J. Chem. Phys.* **25**, 781; 1295 (1956).
- (2) *idem.*: "The Oklo Phenomenon", *Proc. Symp. Libreville*, 23~27, June 1975, 479~487 (1975), IAEA, Vienna.
- (3) COWAN, G.A.: *Sci. Amer.*, 36~37 (1976).
- (4) DURRANI, S.A., KHAZAL, K.A.R., MALIK, S.R., FREMLIN, J.H., HENDRY, G.L.: 前出 (2), p. 207~222.
- (5) RUFFENACH, J.C., MENES, J., LUCAS, M., HAGEMANN, R., NIEF, G.: *ibid.*, p. 371~384.
- (6) COWAN, G.A., BRYANT, E.A., DANIELS, W.R., MAECK, W.J.: *ibid.*, p. 341~356.
- (7) MAURETTE, M.: *Annu. Rev. Nucl. Sci.*, **26**, 319~50 (1976).
- (8) BATEMAN, H.: *Proc. Cambridge Philosophical Soc.*, **15**, 423 (1910).
- (9) ORR, J.B.: *Phys. Rev.*, **76**, 155 (1949); **79**, 401 (1950).
- (10) BOGARD, D.D., ROWE, M.W., MANUEL, O.K., KURODA, P.K.: *J. Geophys. Res.*, **70**, 703~708 (1965).
- (11) KURODA, P.K., SHERRILL, R.D.: *Geochem. J.*, in press, 1976.
- (12) DIETZ, R.S.: *J. Geol.*, **72**, 412~434 (1964).
- (13) KURODA, P.K., SHERRILL, R.D., JACKSON, K.C.: *Geochem. J.*, in press, 1976.

◎既刊・専門委員会成果報告書◎ ▲は品切れ

1. ▲原子炉物理実験。(臨界実験専門委編)
A 5 判, 244 p. (1968. 8 月再版), コロナ社。
2. ▲「高速炉技術」研究専門委員会成果報告書。
(1968. 11. A 4 判, 3 分冊)
(1) 高速炉におけるドブラー係数の研究の現状
(2) 高速炉燃料のスウェリング研究の現状
(3) 高速炉用液体 Na 技術の基礎
3. ▲核燃料の臨界安全。
(「核燃料臨界安全性」研究専門委編)
B 5 判, 365 p. (1969. 4.), 原安協発行。
4. ▲「高速炉 Na 技術」特別専門委員会成果報告書。
A 4 判, 266 p. (1969. 7.)
5. ▲パルス炉調査報告。
(「パルス炉設計」研究専門委編)
A 4 判, 96 p. (1970. 3.)
6. ▲高速増殖炉技術の現状。
(高速炉パネル討論会講演・討論集)
B 5 判, 92 p. (1970. 11.)
7. ▲「放射線微視的效果」研究専門委員会報告書。
B 5 判, 151 p. (1971. 2.)
8. ▲繰返し型高速パルス炉総合調査報告。
(「パルス炉開発利用」研究専門委編)
A 4 判, 114 p. (1971. 3.)
9. ▲ナトリウムの流動伝熱に関する調査研究。
(「高速炉 Na 技術」特別専門委編)
A 4 判, 322 p. (1971. 7.)
10. 原子炉システムの最適化技術。
(「原子炉システム最適化技術」研究専門委編)
A 4 判, 104 p. (1972. 1.)
定価 2,000 円 (会員 1,200 円)。(〒160 円)
11. ▲トリチウム：その性質と挙動。
(「トリチウム」研究専門委編)
A 4 判, 190 p. (1972. 10.)
定価 3,000 円 (会員 2,000 円)。
12. ▲高速炉用燃料集合体の流動伝熱に関する調査研究。
(「高速炉 Na 技術」特別専門委編)
A 4 判, 436 p. (1972. 6.)
13. ▲相変化を伴うナトリウムの伝熱流動。
(「高速炉 Na 技術」特別専門委編)
A 4 判, 208 p. (1973. 3.)
14. ▲ナトリウム冷却高速増殖炉。
(「高速増殖炉」研究専門委編)
A 4 判, 106 p. (1974. 2.)
15. 高速増殖炉技術の最近の進歩。
(「高速増殖炉」研究専門委編)
A 4 判, 290 p. (1975. 6.)
定価 4,000 円 (会員 3,000 円)。(〒200 円)
16. ▲環境被曝線量評価。
(「環境被曝線量評価」研究専門委編)
B 5 判, 276 p. (1975. 9.)
定価 4,000 円 (会員 3,000 円)。(〒200 円)
17. 炉中性子研究の現状と今後の課題。
(「炉中性子利用」研究専門委編)
B 5 判, 250 p. (1976. 3.)
定価 3,000 円 (会員 2,000 円)。(〒200 円)
18. 核融合研究の進歩と動力炉開発への展望。
(「核融合炉調査」研究専門委編)
B 5 判, 575 p. (1976. 8.)
定価 8,000 円 (会員 6,000 円)。(〒300 円)
19. ホットラボの設計と管理。
(「ホットラボ」研究専門委員会編)
B 5 判, 122 p. (1976. 9.)
定価 2,500 円 (会員 1,500 円)。(〒210 円)

◎ご希望の方は学会事務局へ。