研究論文**505. 円筒燃料内照射によるラジオアイソトープの製造**

中 村 治 人*

(1968年 12月20日 受 理)

Radioisotope Production by Irradiation Inside a Cylindrical Fuel Element

By Haruto NAKAMURA

The neutron flux and energy distribution inside the cylindrical fuel of JRR-2 used for irradiation have been measured by activation method, and the results compared with those obtained by irradiation at the same position without the fuel.

Threshold detectors such as nickel and sulphur were used to measure the fast neutron flux. Gold and cobalt metal foils were used as thermal neutron monitor. In order to measure the contribution of resonance neutrons to the effective activation cross section, elements possessing different resonance neutron absorption energies were irradiated along with the flux monitors.

It was estimated that approximately 30% of the thermal neutrons were converted to fast neutrons inside the cylindrical fuel and that the fast neutron flux was 6 times as high as obtained in the absence of fuel material, but that the epithermal index was found unchanged.

I. は し が き

JRR-2 の円筒燃料内照射装置は、高い速中性子線束で照射を行う目的で設置されたものである。このような円筒燃料内で照射する方法は、イギリスの DIDO の原子炉⁽¹⁾を初め諸外国で使用されており、 $^{32}\text{S}(n, p)^{32}\text{P}$ 反応により ^{32}P を製造する場合のように、速中性子による核反応を利用して RI を製造するさいにはこの照射孔が使われている。このような照射孔は一般に炉心内に設置されるので、速中性子線束が高いと同時に熱中性子線束も高く、高い熱中性子線束が必要な場合にも利用される可能性がある。また、中性子のエネルギーの分束は一般の照射孔とかなり違った分布をしていることが予想される。すでに前報⁽²⁾において、原子炉内の異なった位置での RI の生成量の計算法について報告したが、この装置内で照射する場合には、とくに速中性子線束・熱外中性子線束・熱中性子線束のそれぞれの値を充分考慮して計算しなければならない。

本報においては、円筒燃料を使用した場合の熱中性

子線の速中性子線束への転換量を測定すると同時に、熱外中性子線束の実効放射化断面積への影響を計算する Westcott らの計算式⁽³⁾が、このような特殊な照射孔でも使用できるかどうかを検討し、さらに円筒燃料内照射装置を使用して RI を製造するさいに必要な基礎的技術情報を得た。

中性子線束の測定はすべて放射化法によった。中性子線束モニタとしては、定常生産時にも引きつづき使用できる元素を選んだ。

II. 実 験**1. 円筒燃料の形状と設置位置**

円筒燃料は第1図に示す形状で4重管となっている。Uの濃縮度は90%で重量比24%のU-Al合金をAl被覆したものである。U-Al合金の厚さは0.51mmであり、 ^{235}U の総重量は120gである。この内部に直径34mm、長さ約65cmのAlカプセルが挿入できるよう

* 日本原子力研究所(Japan At. Energy Res. Inst.)

第 1 表 中性子線束モニタ

(1) 熱中性子線束および共鳴領域中性子線束モニタ

核 反 応	タ ー ゲ ッ ト	重 量	$\sigma_0^{(5)}$ (b)	$S_0^{(6)}$	$E_{res}^{(5)}$ (eV)	G_i 実測値	G_i 計算値
$^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$	Au箔(2 mg/cm ²)	~0.5 mg	96	17.4	4.85, 59.5	1.76	1.88
$^{59}\text{Co}(n, \gamma)^{60}\text{Co}$	Co箔(10mg/cm ²)	~1 mg	36	1.74	134, 430	1.07	1.09
$^{133}\text{Cs}(n, \gamma)^{134}\text{Cs}$	CsCl	~8 μg	26	19.8	5.9, 22.5, 48	1.98	2.01
$^{191}\text{Ir}(n, \gamma)^{192}\text{Ir}$	(NH ₄) ₂ IrCl ₆	~3 μg	960	4.75	0.65, 5.35	1.40	1.25
$^{64}\text{Zn}(n, \gamma)^{65}\text{Zn}$	Zn 金属	~10 mg	0.5	1.21	2700	1.04	1.06
$^{58}\text{Fe}(n, \gamma)^{59}\text{Fe}$	Fe 金属	~5 mg	0.9	0.30		0.95	1.02

 S_0 : 共鳴領域中性子の放射化断面積への影響率

(2) 速中性子線束モニタ

核 反 応	タ ー ゲ ッ ト	重 量 (mg)	$\sigma_f^{(7)}$ (mb)	$E_{eff}^{(7)}$ (MeV)	ϕ_f (n/cm ² ·s)
$^{32}\text{S}(n, p)^{32}\text{P}$	MgSO ₄	~10	60	3.9	2.7×10^{13}
$^{58}\text{Ni}(n, p)^{58}\text{Co}$	Ni 金属	~4	105	4.1	2.4×10^{13}
$^{54}\text{Fe}(n, p)^{54}\text{Mn}$	Fe 金属	~5	48	4.3	3.2×10^{13}
$^{46}\text{Ti}(n, p)^{46}\text{Sc}$	Ti 金属	~35	8	7.2	3.6×10^{13}
$^{55}\text{Mn}(n, 2n)^{54}\text{Mn}$	Mn 金属	~50	0.16	10.9	3.4×10^{13}
$^{89}\text{Y}(n, 2n)^{88}\text{Y}$	Y ₂ O ₃	~70	0.12	11.9	2.8×10^{13}

 σ_0, σ_f : 熱中性子, 速中性子に対する放射化断面積 E_{res}, E_{eff} : 共鳴, しきい値エネルギー

した。各光電ピークの計数効率⁶⁾は ^{60}Co , ^{54}Mn , ^{198}Au , ^{24}Na , ^{56}Mn , ^{140}La などを β - γ 同時計数法であらかじめ定量し, その放射能強度を用いて計数効率曲線を求め, その内挿値より決定した。

なお, $^{54}\text{Fe}(n, p)^{54}\text{Mn}$ については, 同時に熱中性子により ^{55}Fe と ^{59}Fe が生成するので, 陰イオン交換樹脂法で ^{54}Mn を Fe から分離したのち放射能測定を行なった。

Ⅲ. 結 果

1. 速中性子線束

熱中性子により金属 Mn 中の不純物が放射化されて生じた放射化学的不純物の影響を除くため, 次のような方法をとった。

同一種類の Mn を円筒燃料中および垂直照射孔(VT-4)で照射し, 得られた放射能の γ 線スペクトルを照射 Mn の重量および熱中性子束について規格化し第3図に示す。この図中0.84 MeV の ^{54}Mn の光電ピークについて, 斜線の部分を積算して ^{54}Mn の生成量を計算した。なお, VT-4 で照射した試料中の ^{54}Mn の量は円筒燃料中で照射した場合の 1/100 以下であるのでこの量は無視し, VT-4 で照射した試料の放射能はすべて Mn 中の不純物が熱中性子により放射化されて生じたものとした。

第3図 Mn モニタによる γ 線スペクトル

$^{46}\text{Ti}(n, p)^{46}\text{Sc}$, $^{89}\text{Y}(n, 2n)^{88}\text{Y}$ についても $^{55}\text{Mn}(n, 2n)^{54}\text{Mn}$ の場合と同じ方法により, 熱中性子によって生成した放射化学的不純物の影響を補正して計算した。

$^{58}\text{Ni}(n, p)^{58}\text{Co}$ については, ^{58}Co の熱中性子吸収断面積が 1.4×10^5 barn⁽⁸⁾ という大きな値であるので,

burnup の補正をしなければならない。この補正值については Hogg ら¹⁰⁾が詳細に計算して数表として報告しているので、その値を用いた。円筒燃料中および模擬燃料中での照射条件ではそれぞれ13%, 19%の補正が必要であった。

測定値に以上の補正を行なったのち、円筒燃料中の中央部の速中性子線束を計算した結果を第1表の最後の欄に示した。なお、この計算をするに当って放射化断面積は多くの研究者の測定結果を系統的にまとめた Roy らの値¹¹⁾を採用した。しきい値エネルギーと各モニタにより得られた値とは特に相互関係は見出せず、 $^{58}\text{Ni}(n, p)^{58}\text{Co}$, $^{46}\text{Ti}(n, p)^{46}\text{Sc}$ 反応により得られた中性子線束 $2.4 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$, $3.6 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ は平均値 $3.0 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ からかなりずれている。この原因については不明であり、今後中性子放射化断面積、放射能測定法について検討する必要がある。

$^{58}\text{Ni}(n, p)^{58}\text{Co}$ 反応と $^{32}\text{S}(n, p)^{32}\text{P}$ 反応により、円筒燃料照射内装置を使用した場合としない場合の速中性子線束を測定した結果を第4図に示す。また中心点における各モニタによる測定結果を平均して第2表最右欄に示す。この結果から速中性子線束は円筒燃料を使用することにより約6倍に増加することがわかった。

第4図 円筒燃料内照射装置を使用することによる中性子束分布の変化

2. 熱中性子線束および熱外中性子線束

金属 Au および Co モニタの熱中性子線に対する自己遮蔽係数は Dwork ら¹²⁾の式(1)により計算した結果99%以上であった。

$$f = 1 - \frac{9}{8} \Sigma_a t \quad (1)$$

f : 自己遮蔽係数, Σ_a : 線吸収断面積(cm^{-1})

t : 試料の厚さ(cm)

共鳴領域中性子線束については、Jacks ら¹³⁾が Au その他の金属箔の厚さと Cd 比との関係を実測して報告している。この報告から本実験に用いた Au 箔の共鳴領域中性子に対する自己遮蔽係数を計算すると90%であることがわかったので、この値で補正した。

また、Au モニタについては、 $^{198}\text{Au}(n, \gamma)^{199}\text{Au}$ 反応により ^{199}Au が生成する。この反応の放射化断面積は $2.6 \times 10^4 \text{ barn}$ である。 ^{199}Au と ^{198}Au の放射能比を本実験の照射条件に従って計算すると約0.2であった。

$$\frac{A_2}{A_1} = \frac{\phi \sigma_1 \{ (1 - e^{-\lambda_2 t}) - \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - (\lambda_1 + \phi \sigma_1)} \{ e^{-(\lambda_1 + \phi \sigma_1)t} - e^{-\lambda_2 t} \} \}}{\lambda_1 \{ 1 - e^{-(\lambda_1 + \phi \sigma_1)t} \}} \quad (2)$$

A_1, A_2 : $^{198}\text{Au}, ^{199}\text{Au}$ の放射能 (mCi/g)

ϕ : 熱中性子束 ($\text{n/cm}^2 \cdot \text{s}$)

λ_1, λ_2 : $^{198}\text{Au}, ^{199}\text{Au}$ の崩壊係数 (sec^{-1})

t : 照射時間 (sec)

σ_1 : $^{198}\text{Au}(n, \gamma)^{199}\text{Au}$ の放射化断面積 (cm^2)

あらかじめ ^{199}Au の井戸型電離箱に対する測定効率を求め、各照射位置での ^{199}Au の含有量をそれぞれ(2)式から計算により求めて ^{199}Au による影響を補正した。

Westcott の報告によれば、原子炉中性子の共鳴領域での中性子エネルギー分布は $1/E$ 分布で近似でき、有効放射化断面積 $\hat{\sigma}$ の次の式で表わされる。

$$\hat{\sigma} = \sigma_0 (g + r \sqrt{T/T_0} \cdot S_0) \quad (3)$$

ここで、 σ_0 は $2,200 \text{ m/s}$ の中性子に対する放射化断面積、 g は放射化断面積の $1/v$ 法則からのズレを表わす値で、 ^{59}Co および ^{197}Au に対して g は $1.0^{(6)}$ である。 $r \sqrt{T/T_0}$ は熱外係数(Epithermal index)であり、共鳴領域中性子線束の熱中性子線束に対する相対比を表わすものである。 S は熱中性子温度(T)と共鳴領域での平均放射化断面積(Σ')との関数で次式で表わされる。

$$S = \sqrt{\frac{4}{\pi} \cdot \frac{T}{T_0} \cdot \frac{\Sigma'}{\sigma_0}} = \sqrt{T/T_0} \cdot S_0 \quad (4)$$

ここで、 T_0 は 293.6°K である。 S_0 は共鳴領域中性子の放射化断面積への影響率を表わしており、Westcott らの報告の値⁽⁶⁾を採用し第1表に示した。

ここで、熱中性子に対する放射化断面積 σ_0 を用いて計算した見掛け上の中性子線束 $\hat{\phi}$ と熱中性子線束 ϕ

との間には次の関係が成り立つ。

$$\hat{\phi} = \frac{\hat{\phi}}{\phi_0} \phi = \phi (g + r\sqrt{T/T_0} \cdot S_0) \quad (5)$$

^{59}Co および ^{197}Au についてそれぞれ(5)式から2つの式が得られる。この2つの式の連立方程式を解くことにより、熱外係数は次式で表わされる。

$$r\sqrt{T/T_0} = (1-R)/(S_{0\text{Au}} \cdot R - S_{0\text{Co}}) \quad (6)$$

$$R = \hat{\phi}_{\text{Co}} / \hat{\phi}_{\text{Au}}$$

(6)式に $\hat{\phi}_{\text{Au}}$, $\hat{\phi}_{\text{Co}}$ の実測値を代入して熱外係数を求め、この値を(5)式に代入して熱中性子線束を計算して第2表に記載した。なお、表中 VT-4 の熱外係数はあらかじめ実測された ^{198}Au の Cd 比から次の式により計算した値である。

$$r\sqrt{T/T_0} = (R_{\text{Cd}}[S_0 + 1/K] - S_0)^{-1} \quad (7)$$

ここで、 R_{Cd} は Cd 比、 K は Cd 被覆の厚さによって変わる値で、本実験において使用した 1 mm の Cd の厚さの場合 K は 2.29⁽³⁾である。

第2表 中性子束および熱外係数

	熱中性子束 (n/cm ² ・s)	熱外係数	速中性子束 (n/cm ² ・s)
円筒燃料	5.2×10^{13}	0.051	3.0×10^{13}
模擬燃料	7.8×10^{13}	0.059	5.0×10^{12}
VT-4	1.9×10^{13}	0.0024	1.5×10^{11}

熱中性子線束は、第2表に示すように円筒燃料を使用することにより、 7.8×10^{13} n/cm²・s から 5.2×10^{13} n/cm²・s に減少する。これに反して熱外係数はほとんど変化しないことがわかった。このことは熱中性子線束、共鳴領域中性子線束は減少するが、このエネルギー領域でのエネルギー分布は円筒燃料を使うことにより顕著な変化を示さないことを示している。

共鳴領域中性子の実効放射化断面積への影響を補正する Westcott の関係式が、円筒燃料中で照射する場合にも成り立つとすれば、VT-4 および円筒燃料中で照射したそれぞれのモニタの比放射能の間には次の関係式が成り立つ。

$$\frac{A_i}{A_v} = \frac{\phi_i}{\phi_v} \cdot \frac{G_i}{G_v} \quad (8)$$

$$G_i \equiv g + (r\sqrt{T/T_0})_i \cdot S_0 \quad (9)$$

$$G_i = \frac{A_i}{A_v} \cdot \frac{\phi_v}{\phi_i} G_v \quad (10)$$

ここで、 A は比放射能(mCi/g)、 ϕ は熱中性子線束(n/cm²・s)、 i, v はそれぞれ円筒燃料中および垂直実験

孔(VT-4)で得られる値を示す。ここで、Co および Au により得られた実測値 $(r\sqrt{T/T_0})_i = 0.051$, $(r\sqrt{T/T_0})_v = 0.0024$, $\phi_v/\phi_i = 0.36$ の値を(9)式に代入して得られた計算値(G_i)と、各モニタについて得られた A_i/A_v の値を(10)式に代入して得られた G_i の実測値を第1表に合わせて記載して比較した。 ^{192}Ir を除いて、共鳴エネルギーに関係なく測定誤差 10% 以内でよく一致した。したがって、Westcott の式を使って円筒燃料内照射装置中の中性子に対する実効放射化断面積を計算できることが明らかとなった。

IV. む す び

円筒燃料内照射装置を使用することにより、熱中性子線束の約1/3が速中性子線束に変換する。その結果速中性子線束はこの装置を使わない場合の約6倍に増加する。このことから、 $^{32}\text{S}(n, p)^{32}\text{P}$, $^{58}\text{Ni}(n, p)^{58}\text{Co}$, $^{54}\text{Fe}(n, p)^{54}\text{Mn}$ 反応により、 ^{32}P , ^{58}Co , ^{54}Mn などの製造には有用な照射法である。

熱中性子線束はこの装置により約30%減少するが、熱外係数はほとんど変化しない。また、共鳴中性子線束による実効放射化断面積への影響は Westcott らの式を使って補正することができる。

本研究に当り多大なご援助をいただいた日本原子力研究所研究炉管理部宮坂靖彦氏に深く感謝する。また終始ご指導をいただいた RI 製造部柴田長夫博士、天野 恕博士に感謝する。

— 参 考 文 献 —

- (1) JACKSON, R.F.: *Proc. Int. Conf. Peaceful Uses Atomic Energy, A/Conf.*, 7/P/123, (1965).
- (2) 中村治人: 本誌, 9[9], 524~529 (1967).
- (3) WESTCOTT, C.H., WALKER, W.H., ALEXANDER, T.K.: *A/Conf.*, 15/P/202, (1958).
- (4) 宮坂靖彦, 高柳 弘: 私信, (1966).
- (5) HUGHES, D.J., SCHWARTZ, R.B.: *BNL-325*, 2nd Ed., (1958).
- (6) WESTCOTT, C.H.: *CRRP-960*, (1960).
- (7) ROY, J.C., WAWTON, J.J.: *CRC-1003*, (1960).
- (8) HOGG, C.H., WEBER, L.D., YATES, E.C.: *IDO-16744*, (1962).
- (9) DWORK, J., HOFMANN, P.L., HURWITZ, H., Jr., et al.: *KAPL-1262*, (1955).
- (10) JACKS, G.M.: *DP-608*, (1961).