研究論文

564. ウラン-アルミニウム合金およびウラン
酸化物中の核分裂片の飛程

佐伯正克*, 石森富太郎*

(1972年 2月25日 受理)

*Ranges of Fission Fragments in Uranium-Aluminium
Alloys and Uranium Oxides*

By Masakatsu SAEKI and Tomitaro ISHIMORI

The mean ranges of 6 fission fragments (^{91}Y , ^{95}Zr , ^{99}Mo , ^{132}Te , ^{140}Ba and ^{141}Ce) have been determined in U-Al alloys (4.66, 16.20, 20.15 % U), UO_2 and U_3O_8 by radiochemical measurement. The results obtained are shown below in mg/cm^2 units.

	U-Al alloy (% U)			Uranium oxide	
	4.66	16.20	20.15	UO_2	U_3O_8
^{91}Y	4.10 ± 0.18	4.65 ± 0.03	4.73 ± 0.17	8.90 ± 0.09	8.21 ± 0.10
^{95}Zr	3.73 ± 0.63	4.44 ± 0.07	4.26 ± 0.41	9.22 ± 0.12	8.04 ± 0.08
^{99}Mo	4.10 ± 0.13	3.99 ± 0.06	3.90 ± 0.14	8.70 ± 0.08	7.74 ± 0.10
^{132}Te	3.65 ± 0.09	3.78 ± 0.41	3.66 ± 0.03	7.17 ± 0.07	6.40 ± 0.10
^{140}Ba	3.43 ± 0.03	3.24 ± 0.06	3.17 ± 0.15	6.67 ± 0.06	6.17 ± 0.06
^{141}Ce	3.39 ± 0.10	3.19 ± 0.11	2.98 ± 0.25	6.58 ± 0.08	5.56 ± 0.08

I. 緒言

^{235}U の熱中性子核分裂で生ずる分裂片の飛程は、種の媒体中で研究されている。金属ウラン中の飛程は厚いターゲット法で Niday⁽¹⁾ および Panontin & Sugarman⁽²⁾ により、Al 中の値は薄いターゲット法で Alexander ら⁽³⁾ その他多くの研究者⁽⁴⁾ によって測定されている。しかし、U-Al 合金中の飛程についての報告はない。ウラン酸化物中の飛程は、 UO_2 については主に希ガス核分裂生成物の放出をもとに得られた値⁽⁵⁾⁽⁶⁾ があり、 U_3O_8 については計算値の記載⁽⁷⁾ はあるが実験値の報告はない。

本報では、U濃度を変えた3種 U-Al 合金、 UO_2 および U_3O_8 試料中の飛程を厚いターゲット-厚いキャッチャ法で6個の核分裂片について測定した結果を示すとともに、従来報告された値とも比較検討を加えた。

II. 方法の概要

飛程の測定方法は、薄いターゲット法と厚いターゲット法の2通りに大別される。薄いターゲット法は飛程より非常に薄いターゲットを用い、キャッチャである気体中あるいは金属中の飛程を求める方法であり、飛程の広がり(range dispersion)に対する知見を得ること⁽⁸⁾⁻⁽¹¹⁾ もできる。

厚いターゲット法は、飛程より厚いターゲットを用いてターゲット中の飛程を求める方法である。飛程より厚いキャッチャを用いる場合、厚いターゲット-厚いキャッチャ法と呼ばれ、平均飛程を求める一般的方法である。この方法の特徴は、反跳する核分裂片の通過しなければならぬ界面は最小であり、反跳原子が受ける界面での straggling は最少となることである。U-Al 合金中やウラン酸化物中の平均飛程を得るのには最も適した方法と考えられる。

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

飛程(R)は次式で与えられる。

$$R = 2 \cdot W \cdot A_e \cdot \beta / (A_e + A_t) \quad (1)$$

ここで, W : ターゲットの厚さ(mg/cm^2)

A_t, A_e : 注目している核分裂片のターゲット

およびキャッチャ中の放射能強度

β : edge effect に対する補正係数で

$\beta = a \cdot b / \{a \cdot b + (a+b)t\}$ で与えられる⁽²⁾。

a, b : ターゲットの縦と横の長さ

t : 長さの単位で表わしたターゲットの厚さ

本報では U-Al 合金の場合, edge effect に対して補正を行なったが³, ウラン酸化物ターゲットは Al 板中にはめこみ(Fig. 2 参照)この効果の影響を避けた。

Ⅲ. 実 験

1. ターゲットおよびターゲット集合体

(1) U-Al 合金系集合体

U-Al 合金は住友電工(株)製のものを使用した。厚さ 5mm ほどのブロックを圧延して 80~180 μ の箔とし, 表面を鏡状に研磨してターゲットとした。U-Al 合金中の U には偏析がある⁽¹²⁾といわれているので, ターゲットを切り出したすぐ近くを使用して U 濃度を求めた。ターゲットの厚さは面積-重量法およびマイクロメータによる測定の方法によった。

キャッチャとバックグラウンド測定用ブランク箔には市販の Al 箔を用いた。

ターゲット箔の U 濃度と厚さ, および用いた Al 箔の厚さを Table 1 に示す。

Table 1 Concentration of U in U-Al alloy and thickness of U-Al alloy targets, catcher and blank foil

	Concn. of U (% U)	Thickness	
		mg/cm^2	μ
Targets	4.66 ± 0.02	28.82 ± 0.39	106.5 ± 2.3
	16.20 ± 0.14	21.12 ± 0.62	83.0 ± 2.3
	20.15 ± 0.14	54.9 ± 2.0	180 ± 5
Catcher and blank foil (Al)		5.65 ± 0.01	~ 21

ターゲット箔の大きさは $1.0 \times 2.0 \text{ cm}$ で, $2.5 \times 2.5 \text{ cm}$ の Al 箔を 2 つ折りにしたキャッチャ箔で挟んだ。このほか Fig. 1 に示すようにキャッチャ箔と同じ大きさのブランク箔も含めて, $1.4 \times 4.0 \text{ cm}$ 厚さ 1 mm の 2

A: Guard foil (thick Al foil)
B: Blank foil
C: Catcher foil
T: Target foil (U-Al alloy)
W: Al wire (to tighten up all of the foils)

Fig. 1 Diagram of the target assembly (U-Al alloy targets)

枚の Al 板で挟み, ターゲット集合体とした。

(2) ウラン酸化物系集合体

UO_2 および U_3O_8 微粉末を $1 \text{ t}/\text{cm}^2$ に加圧してペレットとした後焼結した。焼結後の密度は UO_2 が理論密度の約 94%, U_3O_8 が約 85% であった。ペレットの表面を研磨してターゲットとした。研磨後の厚さは約 1 mm であった。

UO_2 の O/U 比は, 空气中で 750°C に加熱して U_3O_8 に酸化した後の重量変化から求め, 2.045 ± 0.002 であった。研磨後のペレットの両側を切り落して厚さ 1 mm の Al 板にはめこみ, キャッチャ箔およびブランク箔と Fig. 2 のように組み合わせターゲット集合体とした。

A: Guard foil (thick Al foil)
BA: Al blank foil
BN: Ni blank foil
CA: Al catcher foil
CN: Ni catcher foil
T: Uranium oxide target (UO_2 or U_3O_8)
AN: Al nut and bolt (to tighten up the target and the foils)

Fig. 2 Diagram of the target assembly (UO_2 and U_3O_8 targets)

用いたキャッチャ箱は前述の Al 箔と Ni 箔(厚さ 12.6mg/cm²)である。ターゲットの重量は UO₂ が約 1.7g, U₃O₈ が約 1g であった。

2. 照射および化学分離

ターゲット集合体は石英アンブルに減圧封入し、U-Al 合金試料は JRR-2 気送管(7×10¹³n/cm²・sec)で20min間、ウラン酸化物試料は JRR-4 の T パイプ(3×10¹³n/cm²・sec)で2min間照射した。

1日以上放置した後、試料を解体してターゲット箔、キャッチャ箱およびブランク箱中の ⁹¹Y, ⁹⁵Zr, ⁹⁹Mo, ¹³²Te, ¹⁴⁰Ba および ¹⁴¹Ce の6核種を同一試料から次のように放射化学的に逐次分離した。

各核種の担体約 50 mg を加えた塩酸溶液(硝酸少量を含む)に溶解後、希硫酸を加え硫酸の白煙を生ずるまで加熱した。残留物に塩酸を加えて加熱溶解し、不溶の硫酸バリウムを分離後常法にて精製した。上澄液を4Nの塩酸溶液とし、二酸化イオウの飽和水と塩酸ヒドラジンで Te を金属に還元して分離した。母液に水酸化ナトリウムを加え Y, Zr および Ce を水酸化物として分離後、TBP(リン酸トリ-*n*-ブチル)-硝酸および塩酸系溶媒抽出法⁽¹³⁾で3元素を相互分離精製した。水酸化物を分離した後の溶液に硫化アンモニウム水溶液を加えて硫酸々性とし、Mo を硫化物として分離後精製した。

化学収率はすべて重量法(BaSO₄, Te 金属, Y₂O₃, ジルコニウムマンデル酸塩⁽¹⁴⁾, CeO₂ およびモリブデンオキシ塩⁽¹⁵⁾)によって求め、Mo(化学収率10~50%)以外は高収率であった。

3. 放射能測定と飛程の算出

⁹⁵Zr, ⁹⁹Mo, ¹³²Te, ¹⁴⁰Ba および ¹⁴¹Ce 試料の測定は 3"×3"NaI(Tl)シンチレータ付256チャンネル波高分析器によるγ線スペクトロスコーピーによった。⁹⁹Mo と ¹³²Te の測定には NaI(Tl)シンチレーションカウンタによるγ線測定も併用した。⁹¹Y 試料には ⁹⁵Zr と ¹⁴¹Ce の混入の可能性があるが、その影響を避けるため109.51mg/cm²の Al 吸収板を用いてガスフローカウンタで測定した。得た放射能強度に化学収率の補正

および必要に応じブランクの補正をしたのち、(1)式で飛程を算出した。

IV. 結果と考察

U-Al合金中の飛程をTable 2に、UO₂およびU₃O₈中の飛程を文献値と共に Table 3に示す。

これらの結果は2~3回の実験の平均値である。誤差には化学収率やターゲット厚の測定など実験全体に起因する誤差を含むよう、各実験値の間の標準偏差をつけた。したがって、放射能測定の統計誤差による値よりもかなり大きな値となっている。

UO₂とU₃O₈中の飛程の測定には、Alより両酸化物により密度が近く、したがって界面での straggling のより少ないと考えられる Ni をキャッチャ箱に使用して Al キャッチャ箱との比較を試みた。軽核側では、Ni 箔で得た飛程が Al 箔で得た飛程より僅かに大きかったが、重核側ではこのような系統性は見られなかった。Table 3に示した結果は両キャッチャで得た飛程の平均値である。

Alexander & Gazdik⁽²⁰⁾は、飛程(*R*)は核分裂片が最初に持っているエネルギー(*E*)との間に次の関係がほぼ成立することを示した。

$$R = K \cdot E^{2/3} \quad (2)$$

ここで、*K*: 核分裂片の質量数の関数となると考えた。

しかし、Frank⁽¹⁸⁾は水素から U までの11種類の物質中の飛程について(2)式により*K*を求め、その標準偏差は小さくて飛程の実験誤差以内であり、核分裂片の質量数の関数と考えなくてもよいことを示した。

Frank の *E*を用いて、本報の結果から得た*K*の値を Table 4に示す。表から明らかなように、*K*は実験誤差の範囲内で核分裂片の質量数に無関係にその媒体中で一定の値となる。

UO₂中の飛程は Belle & Jones⁽⁶⁾および Hermans⁽⁵⁾によって報告されており、両者の結果はかなりよく一致している。本報の結果と比較すると、軽核側ではよく一致しているが、重核側ではかなり大きな開き

Table 2 Fission fragments ranges in U-Al alloys (mg/cm²)

Nuclide Concn. of U in U-Al alloy(% U)	⁹¹ Y	⁹⁵ Zr	⁹⁹ Mo	¹³² Te	¹⁴⁰ Ba	¹⁴¹ Ce
4.66	4.10±0.18	3.73±0.63	4.10±0.13	3.65±0.09	3.43±0.03	3.39±0.10
16.20	4.65±0.03	4.44±0.07	3.99±0.06	3.78±0.41	3.24±0.06	3.19±0.11
20.15	4.73±0.17	4.26±0.41	3.90±0.14	3.66±0.03	3.17±0.15	2.98±0.25

Table 3 Fission fragments ranges in UO_2 and U_3O_8 (mg/cm^2)

Nuclide Target		^{85}Kr	^{87}Kr	^{91}Y	^{95}Zr	^{99}Mo	^{131}Xe
UO_2	this work			8.90 ± 0.09	9.22 ± 0.12	8.70 ± 0.08	
	ref. (6)	9.4 ± 0.5	9.3 ± 0.5	$8.6 \pm 0.3^\dagger$		8.5 ± 0.2	5.4 ± 0.2
U_3O_8	this work			8.21 ± 0.10	8.04 ± 0.08	7.74 ± 0.10	
	ref. (7)	$10.0^\dagger$					
Nuclide Target		^{132}Te	^{133}Xe	^{135}Xe	^{140}Ba	^{141}Ce	
UO_2	this work	7.17 ± 0.07			6.67 ± 0.06	6.58 ± 0.08	
	ref. (6)	5.8 ± 0.3	5.4 ± 0.2	5.3 ± 0.3			
U_3O_8	this work	6.40 ± 0.10			6.17 ± 0.06	5.56 ± 0.08	
	ref. (7)						

 † Range for ^{91}Sr ‡ Range for medium light fragment**Table 4** Values of K for the results of this work

Nuclide Target	^{91}Y	^{95}Zr	^{99}Mo	^{132}Te	^{140}Ba	^{141}Ce	Mean
4.66 % U-Al	0.194	0.176	0.193	0.205	0.212	0.212	0.199 ± 0.013
16.20 % U-Al	0.220	0.209	0.188	0.212	0.200	0.199	0.205 ± 0.011
20.15 % U-Al	0.223	0.201	0.183	0.205	0.196	0.186	0.199 ± 0.013
UO_2	0.420	0.434	0.409	0.402	0.412	0.411	0.415 ± 0.010
U_3O_8	0.388	0.379	0.364	0.359	0.381	0.347	0.370 ± 0.014

がある。(2)式により Belle & Jones の結果から K を求めると軽核側では 0.420 ± 0.018 となり、本報の6点の平均 0.415 ± 0.010 とよく一致するが、重核側では 0.310 ± 0.009 となる。したがって、全体を平均すると 0.365 ± 0.057 となり大きな標準偏差を持つ。これは重核側の飛程になんかの系統的誤差が入っていて小さすぎるためではないかと考えられる。

Segré & Wiegand⁽⁷⁾ は U_3O_8 中の軽核についての飛程として $10.0 \text{ mg}/\text{cm}^2$ を計算している。しかし、この値はU金属中の値と同程度の数値であり、本報の結果と比較すると約20%大きい。

Frank⁽¹⁸⁾ はさらに $R/E^{2/3}$ を $A/Z^{1/2}$ に対して目盛ると直線関係が得られることを報告している。 $\text{Al}^{(11)}$, $\text{Ni}^{(17)}$, $\text{Zr}^{(18)}$, $\text{W}^{(19)}$, $\text{Au}^{(20)}$ および $\text{U}^{(2)}$ 中の飛程と本報の結果を用いて得た $R/E^{2/3}$ の $A/Z^{1/2}$ に対する関係を Fig. 3 に示す。最小2乗法による結果は $R/E^{2/3} = 0.03723 + 0.02011 A/Z^{1/2}$ となり、Frank の結果とよく一致した。 UO_2 , U_3O_8 および3種類の濃度の U-Al

Fig. 3 Values of $R/E^{2/3}$ in various materials plotted as a function of $A/Z^{1/2}$ for the thermal neutron fission of ^{235}U

* A は原子量, Z は原子番号である。混合物に対しては $A/Z^{1/2} = \sum n_i A_i / \sum n_i Z_i^{1/2}$ で算出される。 n_i は混合物構成元素のモル分率である。

合金中の値ともによく直線上にのり、結果が妥当な値であることを示している。

U-Al 合金の圧延は日本原子力研究所の小川 豊博士に、 UO_2 および U_3O_8 のペレット作製と UO_2 の O/U 比測定とは三菱金属鉱業の石井 保博士にご助力いただいた。ここに厚く感謝いたします。

— 参 考 文 献 —

- (1) NIDAY, J.B.: *Phys. Rev.*, **121**[5], 1471~1483 (1961).
- (2) PANONTIN, J.A., SUGARMAN, N.: *J. Inorg. Nucl. Chem.*, **25**, 1321~1342 (1963).
- (3) ALEXANDER, J.M., GAZDIK, M.F.: *Phys. Rev.*, **120**[3], 874~886 (1960).
- (4) NAKAHARA, H.: *TID-23365*, (1966); ARAS, N.K., *et al.*: *Nucl. Phys.*, **69**, 337~361 (1965); その他。
- (5) HERMANS, M.E.A., *et al.*: "Power Reactor Experiments", Vol. 1, 225~245 (1962), IAEA.
- (6) BELLE, J., JONES, L.J.: *WAPD-PWR-PM*

- M 904*, (1956).
- (7) SEGRÉ E., WIEGAND, C.: *Phys. Rev.*, **70** [11], 808~811 (1946).
- (8) KATCOFF, S., *et al.*: *ibid.*, **74**[6], 631~638 (1948).
- (9) PETRZHAK, K.A., *et al.*: *Sov. Phys. JETP*, **11**[6], 1244~1247 (1960).
- (10) BROWN, F., OLIVER, B.H.: *Can. J. Chem.*, **39**, 616~627 (1961).
- (11) 佐伯正克, 石森富太郎: 日化第24年会講演予稿集, 2 巻, 663 (1971).
- (12) 橋谷 博: 私 信.
- (13) ISHIMORI, T., KOBAYASHI, Y.: *J. Nucl. Sci. Technol.*, **2**[3], 108~111 (1965).
- (14) KUMINS, C.A.: *Anal. Chem.*, **19**[6], 376~377 (1947).
- (15) SCADDEN, E.M., BALLOU, N.E.: *NAS-NS-3009*, (1960).
- (16) FRANK, P.W.: *WAPD-BT-30*, 47~52 (1964).
- (17) FULMER, C.B.: *ORNL-2320*, (1957).
- (18) SMITH, E.R., FRANK, P.W.: *WAPD-TM-198*, (1959).
- (19) ALMODÓVAR, I., *et al.*: *J. Inorg. Nucl. Chem.*, **29**, 2831~2837 (1967).

原子炉工学講座

石森富太郎 (日本原子力研究所 原子炉研修所所長) 編 全6巻

本講座は、日本原子力研究所において、過去十余年間、原子力産業に従事する第一線技術者養成のための研修講義内容を、数回にわたる改訂推敲を重ねて刊行するもので、各巻いづれも原研の最高スタッフにより執筆されている。

- 1 原子核工学基礎 第5回配本
- 2 放射線防護 A 5判248頁・¥2000
- 3 原子炉物理 第6回配本
- 4 燃・材料 A 5判400頁・¥2700
- 5 熱工学・構造設計 A 5判248頁・¥2000
- 6 計装制御 A 5判248頁・¥2000 / 近刊

培風館

〒102 東京・九段南4-3-12 振替東京 44725 TEL (262) 5256