研究論文

65. JRR-1 で照射した酸化ウランより ^{239}Pu の単離

木村 健二郎*, 石森 富太郎*, 内藤 奎爾*,
梅沢 弘一*, 渡辺 賢寿*

Isolation of ^{239}Pu from Uranium Oxide Irradiated JRR-1

By Kenjiro KIMURA, Tomitaro ISHIMORI, Keiji NAITO,
Hirokazu UMEZAWA and Kenju WATANABE

Natural or depleted uranium targets were irradiated in JRR-1 with $10^{11}\text{n/sec}\cdot\text{cm}^2$ flux for 30~60 hr. After setting the irradiated target aside for a few months in a hot-cave, ^{239}Pu was isolated by TBP solvent extraction method from bulk of uranium and the fission products and then purified by an anion-exchange method.

It was found that ^{239}Pu thus obtained was not contaminated with uranium and ^{210}Po . However, it contained β, γ -activity of about 30 days half-life slightly.

緒 言

^{238}U の (n, γ) 反応から ^{239}U , ^{239}Np を経て, ^{239}Pu を生ずる反応は, ^{235}U の核分裂について, U を燃料とする原子炉においてもっとも重要なものである。そこで当所の原子炉, JRR-1 を用い, ウランターゲットを照射して生じたきわめて微量の ^{239}Pu を単離し, その確認を行なった。

1. ターゲット

中性子照射により ^{239}Pu を得るには, どのようなターゲットを選ぶべきかを考察するため, まず, 中性子照射による Pu 生成量および同時に生ずる核分裂生成物(以下 F.P. と略す)の放射能の量, 発熱量などの検討を行なう。

1. 中性子照射による ^{239}Pu の生成

^{238}U を中性子照射して得られる ^{239}Pu の放射能 A_{239} は

$$A_{239} = 0.693 \times N_{238} (\sigma_{238}/\sigma_{239}) (1 - e^{-\sigma_{239}\phi t}) / T_{239} \quad (1)$$

で与えられる。ここに, σ, N, ϕ, t および T は, それぞれ 中性子断面積, 原子数, 中性子密度, 照射時間 および半減期であり, 添字はそれぞれ ^{238}U および ^{239}Pu に関するものである。通例の照射では $\sigma_{239}\phi t \ll 1$ であって, A_{239} はつぎの式で与えられる。

$$A_{239} \cong 0.693 N_{238} \sigma_{238} \phi t / T_{239} \quad (2)$$

ターゲット中の U を $W\text{g}$, その同位体組成を $^{235}\text{U} = e\%$, $^{238}\text{U} = (100 - e)\%$ とすればターゲット中の ^{238}U の原子数 N_{238} は,

$$N_{238} = [W / (238 - 0.03e)] \cdot 6.02 \times 10^{23} \cdot (100 - e) / 100 \\ \cong 6.02 \times 10^{23} \cdot (1 - 0.01e) \cdot W / 238 \quad (3)$$

(3) 式ならびに $\phi = 10^{11}\text{n/sec}\cdot\text{cm}^2$, $\sigma_{238} = 2.8\text{ barn}$, $T_{239} = 7.59 \times 10^{11}\text{sec}$ を (2) 式に入れると,

$$A_{239} = 3.35 (1 - 0.01e) W t \times 10^3 \text{ (dpm)} \quad (4)$$

ただし, t および W は日および g 単位とする。(4) 式にしたがい, ϕ および W を一定として, いろいろな e 値に対して Pu 生成量と照射日数の関係を示すと第 1 図となる。 Pu 生成量は一定 e 値に対しては長く照射するほど増す。また, 一定の照射日数では e の大きいほど減少するが, $e \leq 5\%$ 以下ではほとんど一定とみなせる。

2. 照射ウランの放射能

(1) 核分裂度 (Fission Rate 以下 $F.R.$ と略記)
単位時間に起こる核分裂の数を $F.R.$ と定義すると,

$$F.R. = \sigma_{235} \phi n_{235} \text{ (fission/sec)} \quad (5)$$

* 日本原子力研究所 化学部 (Chem. Div., Japan Atomic Energy Res. Inst.)

** JRR-1 の中性子密度に近い値

** 中性子エネルギーに依存するが, 概算用にこの値を用いる。

$\phi = 10^{11} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$, $W = 1 \text{ g}$
第 1 図 照射による Pu 生成量

ここに σ_{235} は核分裂断面積を示す。また n_{235} は ^{235}U の原子数を示し $(6.02 \times 10^{23}) \cdot (e/100) \cdot W/235$ で近似される。したがって (5) 式は (6) 式とも書ける。

$$F.R. = 1.41 \times 10^{-2} \cdot e \cdot W \cdot \phi \text{ (fission/sec)} \quad (6)$$

(6) 式に示すように $F.R.$ は他の条件が一定ならば e に比例する。

(2) β 放射能

核分裂してから t 日後の β 放射能 $B(t)$ は次式で示される⁽¹⁾。

$$B(t) = 1.03 \times 10^{-16} \cdot t^{-1.2} \text{ (c/fission)} \quad (7)$$

T_i 日照射後 T_c 日放置した場合を考えると、(7) 式から

$$\begin{aligned} B &= 1.03 \times 10^{-16} \times F.R. \cdot \int_0^{T_i} (T_i + T_c - t)^{-1.2} dt \\ &= 5.15 \times 10^{-16} \times F.R. \cdot [T_c^{-0.2} - (T_i + T_c)^{-0.2}] \text{ (c)} \end{aligned} \quad (8)$$

(3) γ 放射能⁽²⁾

核分裂後 t 日の γ 放射能 $\Gamma(t)$ は次式で示される⁽¹⁾。

$$\Gamma(t) = 1.50 \times 10^{-6} \cdot t^{-1.2} \text{ (MeV/fission} \cdot \text{sec)} \quad (9)$$

(8) 式を求めたようにして、 T_i 日照射、 T_c 日放置後では、

$$\Gamma = 7.50 \times 10^{-6} \cdot F.R. \cdot [T_c^{-0.2} - (T_i + T_c)^{-0.2}] \text{ (MeV/sec)} \quad (10)$$

1 r あたりのエネルギー束値に $2.76 \times 10^3 \text{ erg/cm}^2 \cdot \text{r}$ を用い⁽³⁾、点線源と仮定して 1 cm の距離での照射率 $D(\Gamma)$ (r/hr) に換算すると、(10) 式はつぎのように書き直される。

$$D(\Gamma) = 1.24 \times 10^{-12} \cdot F.R. \cdot [T_c^{-0.2} - (T_i + T_c)^{-0.2}] \text{ (r/hr/at 1cm)} \quad (11)$$

(8)、(6) 式あるいは (11)、(6) 式を組合わせると、 β および γ 放射能はともに、 U の量 w 、濃縮度 e および中性子密度 ϕ に比例することがオカズ。

3. 照射中の発熱と熱除去

核分裂では 1 分裂あたり、200 MeV のエネルギーを放出し、これがすべて照射中の発熱として現われる。照射中の発熱量 Q は、つぎのように表わされる。

$$Q = 7.61 \times 10^{-12} \cdot F.R. \text{ (cal/sec)} \quad (12)$$

天然ウラン 1 g を照射するとき、 $\phi = 10^{11}$ および $10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ では、 Q はそれぞれ 7.7×10^{-3} および 0.77 cal/sec となり、前者、たとえば JRR-1 照射では冷却を必要としないが、後者、たとえば JRR-2 照射時では冷却を考えねばならぬことになろう。

4. ターゲットの選択

以上の計算に基づき、ターゲットの選択に関して考慮されるべき因子は、(1) ^{235}U の濃縮度 (2) 化学的組成 (3) 形態の 3 つである。

(1) ^{235}U の濃縮度

Pu の生成量、生成放射能、発熱のいずれの点からも濃縮度の低いことが望ましい。したがって濃縮ウランよりも天然ウランが、また天然ウランよりも劣化ウランが有利である。

(2) 化学的組成

種々のウラン化合物の中で、どのような化学的組成のものがターゲットとして適するかは、照射中の試料の安定性および化学処理の容易さによって決定される。通常化学処理は、試料を溶解して溶媒抽出法またはイオン交換法によって処理するから、溶解の容易な試料が望ましい。この 2 点から種々のウラン化合物を検討すれば、ウラン酸化物または合金が有利であることが結論される。

(3) 形態

照射によって発熱を伴うから、固体試料が望ましい。また熱除去の容易なように、ペレットまたは合金状であることが望ましい。試料を粉末状で取扱うことは熱除去が困難であるばかりなく、照射した試料を溶解する際に飛散しやすく危険である。

以上の結果、ターゲットとして劣化ウランまたは天然ウランの酸化物ペレットが適当であることが結論される。酸化物ペレットの唯一の難点は、熱伝導度の不良なことであるので、中性子束の高い場合は冷却を充分に行なうことが必要である。

5. ターゲットの調整および照射

ターゲットとして天然ウランまたは劣化ウラン*の酸化粉末を用いた。すでに述べたように、試料は粉末よりもペレットの方が熱伝導の観点から望ましいのであるが、JRR-1では中性子束が平均 $2 \times 10^{11} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ と低く、とくに熱除去を考慮することもないので粉末のまま使用した。3～5gの試料をパイレックス・ガラス管中に真空溶封し、アルミニウム製試料管 (30 mmφ×100mm 長) に入れて照射した。溶封ガラス管と試料管との間隙には、アルミニウムハクをつめて、溶封ガラス管の緩衝に利するとともに、熱伝導の向上をはかった。照射は普通4週照射を行なった。ここで1週照射とは、約40kW×15hrの照射 (平均中性子束 $2 \times 10^{11} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$) を意味する。(2)式を用いれば、1週照射は $4.2 \times 10^3 \text{ dpm/g.u.}$ 、または $3.0 \times 10^{-2} \mu\text{g/gu}^{**}$ の ^{239}Pu の生成に相当する。

II. 化学的分離および精製

JRR-1で照射された試料は、2～3ヶ月放置し、生じた ^{239}Np がほぼ完全に ^{239}Pu に変じ、また同時に生成した F.P. の放射能が下がるのをまって、常法のように溶媒抽出法により、 ^{239}Pu を大部分のウランおよび F.P. から分離したのち、さらにイオン交換法で精製を行なった。

1. 溶媒抽出法による F. P. および U からの Pu の分離

(1) 溶媒抽出法の概要

Purex 法⁽⁴⁾ として知られている TBP^{***} 抽出による使用済み核燃料再処理の方法にならって Pu を単離した。

照射ターゲットを硝酸に溶解してその酸度を調節したのち、亜硝酸ナトリウムを加えて Pu を4価に保つ。

TBP-ケロシン溶液との向流抽出により、この溶液から U および Pu を取り出し、F.P. を残す。

この際、十分に抽出操作を行なえば Pu(IV) も U(VI) とともに TBP 相に抽出されるが、たとえば連続抽出法ではある程度 U(VI) と Pu(IV) を分別抽出し得ることを見出した。また、U(VI) の大部分が抽出される程度で一応抽出をやめると、大部分の Pu(IV) と E.P. を含む水溶液が得られるから、これから Pu(IV) を取り出す方法も簡単に行なえる。

TBP 抽出液をヒドラジン含有希硝酸で処理すると、Pu(IV) は Pu(III) に還元されて水相にうつるが、共存するウランの大部分は有機相にとどまる。

(2) バッチ法

第2図に5段の場合を例示した操作によって向流抽

出を行ない抽出諸条件を検討し、ついで実験室向きの分離法を研究した。

0 : 有機相, A : 水相, □ 生成物

第2図 バッチ法による5段向流抽出

電磁カクハンが行なえるように設計した分液ロートを使用した。分液ロートをポリエチレン袋に封じ、たとえ分液ロートが破損しても汚染が拡大しないように留意した。

a. 硝酸濃度の影響

第3, 4図は TBP 20% における U(VI), Pu(IV) および F.P. の代表として Zr, Y および Ru の分配比 (k_d) の水相硝酸濃度に対する依存性を示す⁽⁵⁾⁽⁶⁾。ここで第3図は0.001～0.5 MU(VI)の分配を、第4図はトレーサー濃度における各元素の分配を示している。これらの図から明かなように、Pu の抽出率、F.P. の汚染除去率 D.F. ^{***} などは硝酸濃度によって影響される。

第3図 20% TBP と HNO_3 の間の U の分配

* 当所上田隆三氏によれば、0.4% ^{235}U といわれ、また化学形は U_3O_8 である。

** ^{239}Pu の比放射能 $1.38 \times 10^5 \text{ dpm}/\mu\text{g}$ で換算

*** Tri-*n*-butylphosphate

*** Decontamination factor, 以下 D.F. と略す。

第 4 図 20% TBP-HNO₃ 間の U, Pu, Zr, Y および Ru の分配

第 4 図の Pu(IV) 曲線は、およそ 2~9 N の酸濃度範囲で、~5 N に最大を示し、左右に対称な凸曲線となっている。それで便宜上、低酸度側の半弦の両端 2 N および 5 N をえらんで以下実験した。また F.P. による汚染については第 4 図から、酸度が低いと Ru の汚染がふえ、Zr のそれが減少することが予想される。

b. TBP 濃度の影響

TBP 濃度がまると、U, Pu およびほとんどの F.P. の分配比は大きくなる。それで他の条件が一定ならば U もしくは Pu を抽出するに要する抽出段数は TBP 濃度が増すと減少するが、同時に F.P. も有機相に移りやすくなり、したがって D.F. 値が低くなる。第 3, 4 図の k_d 値を用いると U の初濃度を 1 M/l、水相と有機相の比を 1、硝酸濃度 2 N、25℃ の条件で、つぎの計算値が得られる。

% TBP	所要抽出段数†
20	7
40	4

† Pu の 99% 以上を回収するに必要な段数

c. 実験

有機相にうつる F.P. の種類と、抽出時の酸性度の関係を γ スペクトルで調べた結果はつぎのようである。

第 5 図(a), (b), (c) はそれぞれ照射した酸化ウラン硝酸溶液と、それを 2 N および 4 N 硝酸濃度から 20% TBP 抽出で得た U-Pu 抽出液の γ スペクトルを示す。

第 5 図(a) 原液 (U+Pu+F.P.)

第 5 図(b) 2 N HNO₃ より 20% TBP による抽出液

第 5 図(c) 4 N HNO₃ 溶液より 20% TBP による抽出液

ただし、縦軸は任意目盛である。(b)図では ⁹⁵Zr-⁹⁵Nb および ¹⁰³Ru のピークが見られるが (c)図では ¹⁰³Ru のピークが見られない。

第 1 表は照射ウラン溶液にバッチ向流抽出法を適用して TBP 抽出を行なった際の γ 放射体の分布を示す。

第1表 バッチ式抽出過程における
γ放射能分布

実験番号	I	II	III	IV
NaNO_2	-	+	+	+
% TBP	40	40	20	20
N, HNO_3	2	2	2	5
A-1	1.6×10^8	1.5×10^8	3.4×10^8	2.8×10^8
A-2	1.1×10^7	1.3×10^7	2.3×10^7	2.2×10^7
A-3	1.2×10^6	1.3×10^6	1.9×10^6	1.8×10^6
A-4	-	-	4.3×10^5	3.3×10^5
A-5	-	-	2.6×10^5	1.8×10^5
0-5	-	-	2.5×10^5	8.2×10^4
0-4	-	-	6.2×10^4	5.8×10^4
0-3	7.0×10^3	7.8×10^3	5.1×10^4	3.6×10^4
0-2	1.2×10^6	9.2×10^5	3.9×10^4	3.4×10^4
0-1	1.0×10^6	5.6×10^5	1.2×10^5	8.4×10^4
S-1	6.3×10^5	4.9×10^5	2.9×10^5	1.8×10^5
S-2	2.0×10^5	4.8×10^5	6.4×10^4	1.1×10^5

ここに A-1~A-5 および 0-1~0-5 は第2図に示したフラクションを示し、S-1 および S-2 は第6図に示したような操作で TBP 相をスクラップして得た逆抽出液を示す。第1表中 I, II は3段向流抽出の結果であって、A-4, A-5, 0-5, 0-4 は存在しない。第2表は照射しない通常の硝酸ウラン溶液に Pu を加えた合成試料を3段または5段バッチ向流抽出方式で TBP 抽出を行なった場合の Pu の抽出を示す。

O : 有機相

S : 逆抽出液相 (0.3M NH_2NH_2 , 0.1M HNO_3)

第6図 Pu 逆抽出操作

第2表からわかるように 40% TBP, 約 2N 硝酸の条件では3段で90%程度の Pu が U とともに TBP 相に抽出される。一方 20% TBP を使うと5段抽出を行なっても 16% Pu が抽出されるにすぎない。したがっ

第2表 TBP による Pu の抽出率

実験番号	U (g/ml)	TBP (%)	HNO_3 (N)	向流抽出段数	Pu added (dpm)	Pu recovered (dpm)	Pu yield (%)
1	0.15	40	2.2	3	10400	9420	90
2	0.23	20	2.4	5	10000	1600	16

† Pu recovered はイオン交換により精製された Pu の値をもとにして、イオン交換、ストリッピングの収率から推定した。

て Purex 法のように Pu を U とともに TBP 相に抽出するためには 40% TBP がよい。同時に 20% TBP を用い、U だけを抽出して大部分の Pu を F.P. とともに水相に残す、少なくとも実験室的にはよい方法も見出されたわけである。

TBP 相より Pu の逆抽出については、上述の関係から 20% TBP の場合は考えなくてよい。40% TBP からは 0.3M ヒドラジン、0.1M 硝酸をふくむ 2M 硝酸アンモニウムで第6図に従って逆抽出すると 96% Pu が回収されることを確かめた。

(3) 連続法

バッチ法では段数が多すと、抽出操作が複雑になることは第2図からも容易にわかる。さらに6段および7段の向流抽出では、それぞれ36および49回の抽出を行なうことになり混乱を生ずる。またその操作中にγ線をあびる機会が多く、ことに将来、JRR-2 で照射したウラン処理では実用にならない。

第7図は10g以下のウランターゲットを処理する目的で考案された実験室

用パルス抽出装置である。まず U, Pu を抽出すべき酸性溶液を、ガラス目皿③で区切られた筒に④および⑤を通して、最上段の③のやや下まで入れる。ついで TBP を④から加え、③をパルサーとゴム管でつなぎ、パルスのたすけで TBP の小滴を水溶液を通して上昇させる。TBP は水溶液の上にたまり、④からあふれる。

写真1はこの装置を実際に使っているところ

第7図 連続抽出装置

ろを示す。ここでは、抽出装置2個が組合わされているが、分液ロートリザーバーからの20% TBP が照射ウラン溶液を入れた上の装置に滴下され、上述のようにして U または Pu を抽出し、側管からあふれる。これを2N 硝酸を入れた下の装置に注加し、ここで同様にして TBP 相にまぎ

写真 1 連続抽出装置

れこんだ F.P. をスクラブし去り、あふれた TBP をビーカーにとる模様を示している。この装置で得られる TBP 抽出液中の U, Pu および F.P. の濃度の変化は第8図に示したとおりである。初期には U が抽出されてその濃度は急減する。その辺から Pu の抽出が始まり、およそ 100 ml から 200 ml までのフラクションには U に比して Pu が濃縮され、実際上は2個のフラクションから Pu をとれば都合よいことがわかる。この際の γ 放射体の D.F. は 10^2 程度である。また、この分別抽出は上述バッチ法で述べた分別抽出の結果とも一致する。ただはじめの溶液が多量のアルミニウムを含むと第8図の Pu のピークはずっと左に移り、ウランとの分別ができなくなるようである。一方、 γ 放射体による抽出液の汚染は、最初高く後に低くなる傾向はあるが、その変化はきわめてゆるやかである。

TBP 相よりの Pu の逆抽出操作はバッチ法に準ずる。

水相: 7.5 ml U 初濃度 0.886 mol/l

第8図 連続抽出における U, Pu および γ 放射能の変化

2. イオン交換による ^{239}Pu の精製

(1) 精製法の概要

TBP 抽出で得られた Pu 水溶液は、なお不純物として相当量の U, E.P. を含むので、Ryan ら⁽⁷⁾ のイオン交換法によって精製する。

Pu を含む水溶液は濃硝酸を加えて硝酸濃度を約 9N に調節し、亜硝酸ナトリウムを加えたのち陰イオン交換樹脂柱に通す。Pu(IV) は樹脂に吸着されるが U および F.P. は通過する。樹脂に吸着された Pu は希硝酸、5% ヒドロキシルアミン溶液で溶離する。

すでに大部分の F.P. を除いてあるので操作は放射能のない場合のそれに準ずる。陰イオン交換樹脂は、Dowex 1X-8, 200~400 mesh を使用した。

(2) 実験

第9図は陰イオン交換樹脂 Dowex 1X-8 と硝酸の間の Pu(IV) の分解平衡を示す。> 3 N 硝酸範囲は Ryan, *et al.*⁽⁷⁾ の値であり、< 3 N 硝酸範囲は著者の一人、梅沢⁽⁸⁾ がバッチ法で得た測定値である。3 mm ϕ $\times$ 70 mm 長のカラムを用いた実験では約 9 N 硝酸から Pu(IV) が完全に吸着することは確認されたが、希硝酸による Pu(IV) の溶離は平衡データからの予期と異り不充分であった。第10図はその溶離の様態を示す。第9図 Dowex 1 と HNO_3 0.3 N 硝酸では少しず

実線: Ryan and Wheelwright⁽⁷⁾
点線: Umezawa

第9図 Dowex 1 と HNO_3 0.3 N 硝酸での Pu(IV) の配分

樹脂: Dowex 1X-8, 200~400 mesh
カラム: 3 mm ϕ $\times$ 70 mm

第10図: Pu の溶離

つ溶出してくるが、1夜放置後溶離を再開するとふたたび溶離率をます。これは溶離速度がおそいためか、加水分解生成物を生じたためか現在のところ明らかでない。したがって第10図に示したようにヒドロキシルアミンにより Pu(II) に還元して溶離することが望ましい。しかしこの方法でも7%程度の Pu が樹脂に残ることは第3表に示すとおりである。

3. 回収率および汚染除去率

(1) Pu 回収率

Ⅱ-1. およびⅡ-2. で述べた方法を組合わせて第4表に示した3種の単離法が考えられた。このうち、第3法がもっとも実用的である。基礎的な第1, 2法について Pu の回収率を調べた結果を第5表に示す。

第5表中、回収率60~65%は0.3N硝酸80~100mlにより陰イオン交換樹脂から溶出されるフラクションをとり、ふたたび約9N硝酸溶液から陰イオン交換樹

第3表 陰イオン交換における Pu 回収率

樹脂; Dowex 1X-8, 100~200 mesh
カラム; 5 mmφ×60 mm

実験番号	吸着	溶離	Pu added (dpm)	Pu recovered (dpm)	Pu yield (%)
1	7~10N HNO ₃ (NaNO ₂)		5600		
		0.1N HNO ₃ (80 ml) 5% NH ₂ OH (10 ml)		4100 1060	73 19
2	7~10N HNO ₃ (NaNO ₂)		3700		
		0.1N HNO ₃ (80 ml) 5% NH ₂ OH (10 ml)		2950 506	80 14

第4表 Pu 単離諸法

第5表 Overall の回収率

方法	試料	U (g)	TBP (%)	HNO ₃ (N)	向流抽出段数	Pu 回収率 (イオン交換2回) (%)
1	合成試料A	1.5	40	2.2	3	65
	照射試料A	1.5	40	2.8	3	65
2	合成試料B	4.6	20	2.4	5	60
	照射試料B	4.8	20	2.4	5	65
	照射試料C	4.3	20	5.4	5	65

脂に Pu を吸着させたのち、80~100 ml, 0.3 N 硝酸で溶離して精製する場合の実験値であって、還元剤ヒドロキシルアミン溶液を用いて溶離させるときは回収率は約90%に達する。

(2) 汚染除去率

溶媒抽出過程での D.F. は酸濃度, TBP 濃度, 抽出段数などに支配されることは上述した。20% TBP, 2N 硝酸からのバッチ向流抽出5段, あるいは連続抽出で100~200 ml 抽出液をとる方式では、ともに 10² 程度

の D.F. を示す。イオン交換過程での D.F. は 10^3 程度である。ただし、最後に微量残る β, γ 放射能はイオン交換を繰返しても除けない。

II. 放射化学的純度

得られた Pu の放射化学的純度を確認するために、(1) α エネルギー (2) β, γ による汚染 (3) ウランによる汚染をチェックした。

1. α エネルギーの測定

^{239}Pu は半減期 24,360 年で α 崩壊する。したがって試料の α 放射能の減衰率から半減期を測定して同定を行なうことは一般に困難であるので、 α エネルギーの測定によって同定を行なう。 ^{239}Pu の α エネルギーはつぎのとおりである。

5.147 MeV (72.5%) 5.134 MeV (16.8%)

5.096 MeV (10.7%)⁽⁹⁾

(1) 原子核乾板による飛跡の測定*

精製した Pu 試料, ^{239}Pu 標準試料** および ^{210}Po 試料について得られた α 飛跡のヒストグラムを第11図に示す。試料 I, II, III はそれぞれ精製した Pu 硝酸溶液を誘導炉で加熱して白金板上に焼付けたものである。また、 ^{210}Po は α エネルギーが ^{239}Pu に近いので比較のために測定した。

α 飛跡の測定には原子核乾板 Fuji ET2 E15 μ を用い、24時間密着露出した。現象はD19を使用して20℃で10分処理した。 α の飛跡はそれぞれ約 100 個の顕微鏡で観察した。

第11図から明らかなように、3 個の Pu 試料のヒストグラムは ^{239}Pu 標準試料のヒストグラムときわめてよく一致し、 ^{210}Po のそれとは明らかに区別することができる。したがって α の飛跡の測定から得られた試料が ^{210}Po でないことがほぼ確認され、得られた ^{239}Pu 試料の α 放射能が減衰しないことも一致する。

(2) α スペクトロメトリー**

グレイウェッジ型 α 波高分析器を用いて分離精製した Pu 試料のグレイウェッジパターンを求めた結果を写真2に示す。写真2の横軸は α エネルギー、縦軸は強度を対数値で示す。また使用した波高分析器の分解能は 60~70 keV である。図から明らかなようにグレイウェッジパターンは単一エネルギーを示した。このエネルギーを決定するために、さらに U を添加した試料のグレイウェッジパターンを写真3に示す。写真3では新たに 2 本のスペクトル線の生ずるのが認められるが、これは ^{238}U および ^{234}U の α エネルギー、4.195 および 4.768 MeV に対応する。したがってこれから

第 11 図 α 飛跡による ^{239}Pu の同定

試料の α エネルギーを求めると、 $5.152 \text{ MeV} \pm 30 \text{ keV}$ となり、これは ^{239}Pu の α エネルギー 5.147 MeV (72.5%) とよく一致する。よって α スペクトロメトリーの測定からは試料は ^{239}Pu のみを含むことが結論される。

* この項、竹腰英子、中村永子両氏の測定

** イギリスよりの輸入品

*** この項、立教大学道家忠義助教授の測定

写真 2 Pu のグレイウェッジパターン
(左の細い線は基線)

写真 3 Pu+U のグレイウェッジパターン
(左の細い線は基線)

2. β , γ に対する汚染度

すでに述べたようにイオン交換分離を繰返しても除き得ない β , γ 放射能が極く微量残存する。この放射能は最大エネルギー 2.0~2.5 MeV の β 線, 50~60 および 80~90 keV の γ 線であって, ともに半減期は 20~30 日であるので同一核種によるものと思われる。短寿命のためやがては消滅するが, 精製直後では α の 1 cpm に対し約 10 cpm の γ 放射能が認められた。

3. U による汚染度

得られた Pu はきわめて多量の U から分離されたので, 不純物としてはウランの混在する確率ももっとも多い。したがって得られた Pu 溶液の U の含量を, (1) 比色分析 (2) 放射化分析 によって調べた。

(1) 比色分析法

比色分析法としては過酸化水素* を用いた。この結果, 試料溶液中の U は過酸化水素法では検出し得なかった。したがって, 過酸化水素法の感度から計算して, 試料中の U 濃度は $100 \mu\text{g}/\text{ml}$ 以下であると結論される。一方この試料の α 放射能は 2×10^4 dpm/ml であるから, 比色分析から求めた U による汚染度は α 崩壊数比として, 0.4% 以下である**。

(2) 放射化分析法

ウランを含む試料を中性子で照射し, 放射化分析を行なうと ^{239}U (半減期 23.5 min) の強い放射能が現われ

る。 α の放射能約 10^3 dpm を含む試料を JRR-1 で中性子照射したが ^{239}U のピークは認められなかった。JRR-1 照射での ^{239}U の検出限界は $2 \times 10^{-3} \mu\text{g}$ と考えられるので放射化分析からもウランによる汚染度きわめて小さいと結論される。

終りに臨み, ご配慮下さった柿原幸二氏, α 線測定をして下さった立教大学道家忠義助教授ならびに竹腰英子氏に厚くお礼申上げる。また 中村永子, 鈴木敏夫両氏には実験を手伝っていただいたことを深く感謝する。

(1960年 5月30日 受理)

— 参 考 文 献 —

- (1) K. WAY, E. P. WIGNER : *Phys. Rev.*, **73**, 318 (1948).
- (2) R. L. KOONTZ, A. A. JANETT : *Nucleonics*, **12**, No. 6, 26 (1954).
- (3) J. MOTEFF : *APEX-134*, (1953).
- (4) F. L. CULLER : *Geneva Conf. Paper*, P/822 (1955); J. R. FLANARY : *ibid.*, P/539; F. R. BRUCE : *ibid.*, P/719; H. A. C. MCKAY : *ibid.*, P/441
- (5) K. NAITO : *Bull. Chem. Soc. Japan*, **33**, 363 (1960).
- (6) H. A. C. MCKAY, *et al.* : *J. Inorg. Nucl. Chem.*, **4**, 100, 304, 315 (1957); K. KIMURA : unpublished.
- (7) J. R. RYAN, E. J. WHEELRIGHT : *2nd Geneva Conf. Paper*, P/1915 (1958).
- (8) H. UMEZAWA : unpublished.
- (9) D. STROMINGER, *et al.* : *Rev. Modern Phys.*, No. 4 (1958).

* U の分析にはより鋭敏な比色法が知られているがもっとも簡便に行なえる過酸化水素法を用いた。

** U $100 \mu\text{g}/\text{ml}$ は α 放射能として 74 dpm/ml に対応する。