研究論文

454. JRR-3 内の R.I. の製造条件の検討

中 村 治 人*

(1966年 11月24日 受理)

Neutron Irradiation Conditions for Production of Radioisotopes in JRR-3

By Haruto NAKAMURA

The neutron flux distribution in JRR-3 was measured, and the conditions of target irradiation are discussed for cases of routine radioisotope production. The activation method was used in the measurement of neutron flux. Gold and cobalt metal foils were used as thermal neutron monitor. Threshold detectors such as nickel and sulphur were used to measure the fast neutron flux. The maximum values of the thermal and fast neutron fluxes in the pile were $2 \times 10^{13} \text{ n/sec} \cdot \text{cm}^2$ and $2 \times 10^{12} \text{ n/sec} \cdot \text{cm}^2$ respectively. The epithermal neutron flux was also measured. The yields of the principal radioisotopes, and the radiochemical impurities produced by side reactions were calculated.

I. は し が き

原子炉中性子による放射化法でラジオアイソトープ(R.I.)を製造する場合、製品の比放射能、放射化学的純度を一定規格に保つための最適照射条件を選ばなければならない。そのためには炉内の各照射位置における温度、冷却能力、中性子束、中性子エネルギー分布、可能な照射時間などを知り、それらを総合して最適な条件を選ぶ必要がある。上記の諸条件のうち照射温度は不安定なターゲットを照射する際や、Szilard-Chalmers 反応を利用してラジオアイソトープを製造する場合に必要であり、中性子束は次式より明白なようにラジオアイソトープ製品の品質のうち最も重要な比放射能を左右する。

$$S = \frac{N}{A} \sigma \phi f (1 - e^{-\lambda t_1}) e^{-\lambda t_2} \quad (2)$$

ここで、 S は比放射能(dps/g)、 N はアボガドロ数、 A は原子量、 σ は放射化断面積(10^{-24} cm^2)、 ϕ は中性子束($\text{n/sec} \cdot \text{cm}^2$)、 f は存在比、 t_1 は照射時間(sec)、 t_2 は放置時間(sec)、 λ は崩壊係数(sec^{-1})である。また上記の式の中に見られる放射化断面積(σ)は中性子のエネルギーによって変化する。とくに $^{32}\text{S}(n, p)^{32}\text{P}$ 反応の

ような吸熱反応ではしきい値以上のエネルギーの中性子のみが関係する。このような反応についてはの値は速中性子束を用い、 σ も速中性子束に対する値を使わなければならない。したがって、中性子エネルギー分布も比放射能をきめる重要な因子となってくる。

本報においては日本原子力研究所におけるラジオアイソトープ製造の主体原子炉である JRR-3 について、その中性子束分布を測定し、規定の比放射能のラジオアイソトープの定常生産に必要な条件を検討した結果を報告する。

II. 実 験

炉内中性子束の測定に用いた実験の手法はしきい値反応を含む放射化法であって、JRR-1、JRR-2 の炉内中性子束の測定に用いた方法⁽¹⁾と基本的にはかわりがなかった。以下実験の細かい条件について述べる。

1. 照 射 条 件

JRR-3 は天然ウラン重水型の原子炉であり、照射孔は第1図に示した配置になっている。すなわち、炉心タンク内に垂直照射孔3本(VR-1~3)、同心円上の

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

第1図 ターゲットの照射位置

黒鉛反射体内に垂直照射孔27本(VG-1~27), 炉心下部に水平照射孔4本(HT-1~4)があり, これらの照射孔は原子炉運転中は照射試料の出し入れはできない。したがって, 照射時間は運転時間によって規定される。原子炉運転中も自由に出し入れできる照射孔としては, 炉心内を水平に貫通している気送管2本(HP-1~2)と炉心タンクに接続線に黒鉛内に設置された水平照射孔(HR-1, -2)がある。また炉心内垂直照射孔3本と黒鉛内照射孔のうち数本とは炭酸ガスで冷却することができる。これらの照射孔のうち代表的な照射孔であるVR-1, VG-7, HP-1, HR-1, HT-1について, 定常生産のときと同じ照射位置で照射した。しかしHP-1については, 炉内中性子束の水平分布を測定するため10 cm ごとに直径2 cm 長さ5 cm の Al カプセルを直径5 mm の Al 棒につけてターゲットの中性子照射を行なった。制御棒の位置により中性子束分布は異なるが, 本実験における制御棒の位置は, 第1図中S-1~6の制御棒は完全に抜き, S-7, -10, -12, R-1, -2は約 $\frac{1}{4}$ 抜き, 残りのS-8, -11は約 $\frac{3}{4}$ を抜いて運転するJRR-3の標準運転形式に従い熱出力10 MW で2 hr 運転した。出力の上昇および下降はできるだけ早く行い, 10 MW 以下での運転による生成量への影響は1%以下とした。

2. 熱中性子および共鳴領域の中性子束分布の測定

熱中性子束は $^{59}\text{Co}(n, \gamma)^{60}\text{Co}$, $^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$ の核反応により生成する, ^{60}Co , ^{198}Au の生成量より求めた。また共鳴領域中性子束はこの2反応のCd比を測定することにより求めた。

ターゲットとして用いたCoは電着法により約10 mg/cm²の箔を作成し, それから2 mgの重量に相当する面積を切り取って用いた。金は田中貴金属(株)製金箔(厚さ2 mg/cm²)から0.5 mg 重量相当を切って用いた。この厚さでの自己遮蔽効果はつぎの近似式²⁾により計算すると1%以下である。

$$f = 1 - \frac{9}{8} \Sigma_a t \quad (2)$$

ここで, f : 自己遮蔽係数

Σ_a : 線吸収断面積(cm⁻¹)

t : 試料の厚さ(cm)

また, 各ターゲットの純度には実験前に放射化分析法を用いて検定し放射能測定実施期間中(照射終了後1~30日)99%以上の放射化学的純度を保つことを確かめておいた。

Cd比は厚さ1 mm, 直径13 mm, 高さ4 mmのCd円筒の中にCo箔および金箔を入れて照射して求めた。照射はCd円筒に入れないターゲットとCd円筒内に入れたターゲットを収めたカプセルとを交互に配置した状態で行い, おのおの生成量から内挿法により同じ照射位置での値を求め, その値からCd比を計算した。照射にさいしてはカプセル間の間隔は10 cm以上とるようにした。Cd被覆により生ずる中性子束の乱れを銅線の放射化法により求めた結果を第2図に示した。この図より明らかなように2 cm以上離せばCdによる中性子束の乱れの影響は無視できる。したがって, 10 cm以上離れた位置ではCd円筒の隣り合った位置にある試料への影響はほとんどないと考えられる。

第2図 Cd被覆による中性子束の乱れ

^{198}Au , ^{60}Co の生成量はあらかじめ β - γ 同時計数法により校正した井戸型電離箱により測定した。生成量の少ない試料については, NaI(Tl)3"φ×3"結晶または1 $\frac{1}{4}$ "φ×2"の井戸型結晶を検出器とする γ 線スペクトロメータにより測定した。

3. 速中性子束分布の測定

速中性子束分布の測定には, 一般にしい反応検出

第 1 表 中性子束測定モニタ

測定核種	核 反 応	σ_{act}	E_{eff} (MeV)	化学形	使用量	形 状
^{60}Co	$^{60}\text{Co}(n, \gamma)^{60}\text{Co}$	20+16b†	—	Co	2 mg	箔 10 mg/cm ²
^{198}Au	$^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$	96b	—	Au	0.5 mg	箔 2 mg/cm ²
^{24}Na	$^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$	0.56 mb††	8.8††	Al	500 mg	塊 状
^{32}P	$^{32}\text{S}(n, p)^{32}\text{P}$	60 mb	3.9	S	500 mg	塊 状
^{58}Co	$^{58}\text{Ni}(n, p)^{58}\text{Co}$	106 mb	4.1	Ni	100 mg	厚さ 0.5 mm
^{54}Mn	$^{54}\text{Fe}(n, p)^{54}\text{Mn}$	45 mb	4.3	Fe	2 g	厚さ 0.4 mm

† BNL-325⁽³⁾ †† CRC-1003⁽⁶⁾

器(Threshold detector)として用いられる速中性子による放射化断面積が大きい。 $^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$, $^{32}\text{S}(n, p)^{32}\text{P}$, $^{58}\text{Ni}(n, p)^{58}\text{Co}$, $^{54}\text{Fe}(n, p)^{54}\text{Mn}$ を用いた。ターゲットとしては横沢化学(株)の金属 Al, 粉末状鉄, Johnson Matthey 社製金属 Ni, 関東化学(株)特級イオウを用いた。放射化分析による検出結果では Al 中に約 3 ppm の Na が検出されたが, そのほかのターゲットについては測定期間中(照射終了後 7~21 日)99%以上の放射化学的純度が保たれることが確かめられた。第 1 表に各ターゲットの使用量, 放射化断面積などを記載した。

^{58}Co , ^{54}Mn , ^{24}Na の生成量の測定にはあらかじめ校正した NaI(Tl) 3"φ×3" 結晶または 1¼"φ×2" の井戸型結晶を検出器とする γ 線スペクトロメータを用いた。 ^{54}Mn については ^{55}Fe が同時に生成するので, 陰イオン交換樹脂法で化学分離を行なったのちに測定した。また ^{32}P については, 昇華法でイオウを除いたのちに, 標準試料により校正した G.M. 管で測定した。同時に生成する ^{38}P の影響を除くために Al 吸収板(110 mg/cm²)で弱 β 線を除いて測定し, 減衰曲線の測定により ^{32}P であることを確認した。これらの測定法による誤差は 10% 以内であると考えられる。

II. 結 果

1. 熱中性子束と共鳴領域の中性子束

比放射能の計算式(1)式より ^{60}Co , ^{198}Au の測定値を使って VR-1, VG-7, HP-1 の中性子束を計算した結果を第 3, 4 図に示す。放射化断面積の値としては ^{59}Co については 36 b, ^{197}Au については 96 b という値⁽³⁾を採用した。この図より明らかなように, ^{60}Co , ^{198}Au により求めた中性子束の値が異なっている。これは共鳴領域の中性子束に起因するものである。このエネルギー領域の中性子束についての Westcott らの報告⁽⁴⁾によれば, 原子炉中性子による実効放射化断面積($\hat{\sigma}$)は次式で表わされる。

$$\hat{\sigma} = \sigma_0(g + rs) \quad (3a)$$

第 3 図 HPI の中性子束分布

$$\hat{\sigma} = \sigma_0(g + r\sqrt{T/T_0}s_0) \quad (3b)$$

この式において, σ_0 は 2,200 m/sec 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 , ^{197}Au に対しては $g=1.00$ ⁽⁵⁾ 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。

$$s = \left(\frac{4}{\pi} \frac{T}{T_0} \right)^{1/2} \frac{\Sigma'}{\sigma_0} = \sqrt{T/T_0} s_0 \quad (4)$$

(3b)式において $r\sqrt{T/T_0}$ は熱外係数(Epithermal index)⁽⁶⁾であり, 共鳴領域中性子束の熱中性子束に対する相対比を表わすものである。 s_0 については, 多くの核種について報告⁽⁶⁾があり, 熱外係数より容易に $\hat{\sigma}$ を求め生成量を計算することのできる便利な値である。そこで本報においては, 共鳴領域の中性子束を表わす

第4図 垂直照射孔の中性子束分布

方法として熱外係数を採用することとした。この値はCd比より次式により求めることができる。

$$r\sqrt{T/T_0} = (R_{Cd}(s_0 + 1/K) - s_0)^{-1} \quad (5)$$

ここで、KはCd被覆の厚さによって変わる値であり、

本実験において使用した1 mmのCdの厚さの場合は $K=2.29^{(4)}$ である。金については $s_0=17.3$ 、Coについては $s_0=1.74$ である⁽⁵⁾。各照射孔について(3b), (5)式により計算した実効放射化断面積を求め、この値を使って熱中性子束、熱外係数(Epithermal index)を第2表に示した。

2. 速中性子束分布

速中性子束の表わし方として、核分裂中性子エネルギー分布をもった中性子束として表わし、本報における実験結果の解析に際しては、速中性子による実効放射化断面積としてRoyらの値⁽⁷⁾を採用した。第3, 4図に各ターゲットによって求めた速中性子束分布を示してある。また各照射孔のもっとも速中性子束の高い部分での値を第2表にまとめた。これらのうち多くの研究者の報告があり、本実験においても実験値が多いNi, イオウ試料より得られた値の平均値を計算し同表に示した。

IV. 考 察

前述の結果から明かなように、中性子束の分布は原子炉の中央が高く中央から離れるにつれて減少している。また、JRR-2, JRR-1⁽⁸⁾に比較して単位出力当たり得られる最高中性子束は低く、熱中性子束に対する速中性子束の割合も小さい。これはJRR-3が天然ウラ

第2表 各照射孔の中性子束の最高値

(a) 熱中性子束、熱外係数

照射孔	$^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$				$^{59}\text{Co}(n, \gamma)^{60}\text{Co}$				平均値	
	R_{Cd}	$r\sqrt{T/T_0}$	σ	ϕ	R_{Cd}	$r\sqrt{T/T_0}$	σ	ϕ	$r\sqrt{T/T_0}$	ϕ
VR-1	3.8	0.015	122	1.83×10^{13}	30	0.016	37.0	1.85×10^{13}	0.016	1.84×10^{13}
HP-1	3.5	0.017	124	2.32×10^{13}	20	0.022	37.3	2.02×10^{13}	0.020	2.17×10^{13}
HR-1	7.5	0.0069	106	2.20×10^{12}	60	0.0077	36.5	2.07×10^{12}	0.0073	2.19×10^{12}
VG-7	1.4×10^2	3.3×10^{-4}	97	1.90×10^{12}	1.2×10^3	3.8×10^{-4}	36.0	1.90×10^{12}	3.5×10^{-4}	1.90×10^{12}
HT-1	—	—	96	3.60×10^{11}	—	—	36.0	3.90×10^{11}	—	3.8×10^{11}

ϕ : 熱中性子束(n/sec·cm²), σ : 実効放射化断面積(barn), $r\sqrt{T/T_0}$: 熱外係数(Epithermal index), R_{Cd} : Cd比

(b) 速中性子束(n/sec·cm²)

照射孔	$^{32}\text{S}(n, p)^{32}\text{P}$	$^{58}\text{Ni}(n, p)^{58}\text{Co}$	$^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$	$^{54}\text{Fe}(n, p)^{54}\text{Mn}$	平均値†
VR-1	6.0×10^{11}	5.1×10^{11}	6.4×10^{11}	—	5.6×10^{11}
HP-1	1.2×10^{12}	1.2×10^{12}	1.7×10^{12}	1.6×10^{12}	1.2×10^{12}
HR-1	1.6×10^{10}	1.8×10^{10}	—	—	1.7×10^{10}
VG-7	1.1×10^9	1.2×10^9	2.2×10^9	—	1.3×10^9
HT-1	8.7×10^7	—	—	—	8.7×10^7

† ^{32}P , ^{58}Co の生成量より得た結果の平均値。

ンを使用し、かつ JRR-2, JRR-1 にくらべて燃料体により分散していることによるものである。このような炉を使用すると、多量試料を照射することはできるが比放射能は比較的低いものとなる。第5図は熱中性子束と(速中性子束)(熱中性子束)との関係を示す図である。この図より、炉心においては中性子エネルギー分布は比較的一定であるが、反射体内部の同一実験孔内においては熱中性子の減少とともに速中性子の割合は減少することがわかる。このことは熱中性子により生成する反応としきい値反応が同時に進行する反応を利

第5図 照射位置による中性子エネルギー分布の変化

用したとき、炉心内では照射位置により両反応による生成量の比率は変化しないが、反射体内部においてはこの比率が変化することを示している。また速中性子モニタの種類により測定値が異なるが、これは主に中性子エネルギー分布が核分裂中性子エネルギー分布からずれていることによるものと考えられる。

以上の実験結果から、原子炉を使って製造する代表的な R.I. について照射孔とその生成量を計算して第3表に示す。比放射能の高い R.I. を得るためにはできるだけ中性子束の高い位置で照射しなければならない。しかし、すべてのターゲットを同じ位置で照射することはできないので、以上の資料をもとにもっとも有効な照射条件を選ぶ必要がある。またターゲット自身が含む不純物元素による放射化学的不純物のほか、元素自身の副反応により生ずる不純物がある。これらの生成反応が主反応(目的反応)と異なった中性子エネルギーでおきる場合は、目的反応に合った中性子エネルギー分布の場所で照射しなければならない。例えば、表中 ^{32}P などの速中性子による反応が目的の場合は速中性子束の多い VR 孔を選ばなければならない。熱中性子成分の多い照射孔である VG 孔, HT 孔で照射したときは生成量が少ないばかりでなく、熱中性子により生成する ^{33}P などの不純物が多くなる。

また ^{198}Au 中の ^{199}Au については、 $^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$ 反応が共鳴領域に大きな放射化断面積を持つ。一方、

第3表 R.I. の比放射能と副成 R.I. (c/g Target element)

核種	VR-1	HP-1	HR-1	VG-1	HT-1	照射時間 (hr)	中性子
^{24}Na	5.8	6.7	0.64	0.61	0.12	40	Thermal
^{64}Cu	13	15	1.4	1.3	0.27	40	Thermal
	0.2	0.3	0.01	4×10^{-4}	—		Epithermal
(^{65}Ni)	1.6×10^{-5}	3.4×10^{-5}	4.7×10^{-7}	3.1×10^{-8}	2.4×10^{-9}		Fast(n, p)
^{198}Au	110	125	12	11	2.3	130	Thermal
	34	46	1.7	0.27	—		Epithermal
(^{199}Au)	8.6	10	0.096	0.086	0.003		Thermal (double capture)
^{60}Co	0.36	0.42	0.040	0.038	0.0076	130	Thermal
	0.01	0.02	0.001	2×10^{-5}	—		Epithermal
(^{59}Fe)	3.7×10^{-6}	8.0×10^{-6}	1.1×10^{-7}	8.5×10^{-8}	5.7×10^{-7}		Fast(n, p)
^{55}Fe	2.4×10^{-3}	2.8×10^{-3}	0.26×10^{-3}	0.25×10^{-3}	0.05×10^{-3}	130	Thermal
^{59}Fe	1.1×10^{-3}	1.3×10^{-3}	0.13×10^{-3}	0.12×10^{-3}	0.024×10^{-3}		Thermal
(^{54}Mn)	5.6×10^{-6}	1.2×10^{-5}	1.7×10^{-7}	1.3×10^{-8}	8.7×10^{-10}		Fast(n, p)
^{32}P	3.7×10^{-3}	8.0×10^{-3}	0.12×10^{-3}	8.7×10^{-6}	0.59×10^{-6}	130	Fast(n, p)
(^{33}P)	0.02×10^{-3}	0.02×10^{-3}	0.002×10^{-3}	1.9×10^{-6}	0.38×10^{-6}		Thermal(n, p)
(^{35}S)	4.1×10^{-3}	0.46×10^{-3}	0.46×10^{-3}	0.44×10^{-3}	8.7×10^{-6}		Thermal

$^{198}\text{Au}(\pi, \gamma)^{198}\text{Au}$ 反応はほとんど熱中性子のみにより生成し共鳴吸収がほとんどない。このような場合は Cd 被覆して共鳴中性子束の高い VR 孔または HP 孔で照射すれば、比較的比放射能が高く ^{198}Au を含まない ^{198}Au を得ることができる。

本研究の実施にあたってご協力下さった日本原子力研究所 R.I. 製造部四方英治博士, 山林尚道氏, 久保田益充氏, 高橋智子氏の諸氏, および JRR-3 管理課の諸氏に深謝する。また, 結果のまとめに際してご指導いただいた天野 恕博士, 吉原賢二博士にも厚く感謝する。

— 参 考 文 献 —

- (1) 柴田長夫, 天野 恕, 四方英治, 他: 第 5 回日本アイソトープ会議報文集, B/P & C-8, (1963).
- (2) J. DWORK, *et al.*: KAPL-1262, (1955).
- (3) D.J. HUGHES, R.B. SCHWARTZ: BNL-325, 2nd Ed. (1958).
- (4) C.H. WESTCOTT, W.H. WALKER, T.K. ALEXANDER: A/Conf., 15/P/202, (1958).
- (5) C.H. WESTCOTT: CRRP-960, (1960).
- (6) T.A. EASTWOOD: Int. J. Appl. Radiat. Isotop., 17, 17 (1966).
- (7) J.C. ROY, J.J. WAWTON: CRC-1003. (1960).

☆ 本 誌 投 稿 の 手 引 ☆

- 一般投稿は研究論文・技術報告・資料を原則とし, 必ず会員の資格を要する。
- 内容はオリジナルものに限り, 刷上り 6 頁以内は無料(有料頁は 1 頁当たり実費約 5,000 円著者負担)とする。和文は「会誌」に, 欧文は Journal に掲載される。欧文の場合は修文・添削にとくに十分な考慮を要する。
- 掲載範囲は, 原子力研究に関連する凡ゆる部門を含め, とくに限定しない。
- 執筆にあたっては投稿規程に従い, 所定の原稿用紙を使用する(欧文は, 適宜に厚手のタイプ用紙に 2 段送り, 1 枚約 25 行にタイプする。)和・欧文とも所定の原稿表紙を添付する。図面はそのまま製版できるよう必ず墨入れトレースする。
- 投稿希望者は事務局へ連絡すれば, 原稿用紙(30 枚綴 1 部 100 円下別), 投稿規程が送付される。
- 和・欧文を問わず表題・抄録・所属機関名などを和・英両文で適確に書いて添付する。
- 別に締切り日は設けない。原稿受理次第「受

理通知」を本人に送る。原稿は当該分野担当の査読委員の査読に回わり, 次回以後の編集委員会において採否を審議する。査読通過および掲載巻号は決定次第通知される。

- 論文は査読通過後受理順に掲載される。(掲載まで欧文約 3～4 ヶ月, 和文約 5～6 ヶ月)
- 掲載論文 1 篇につき 30 部まで無料で別刷が贈られる(30 部以上希望の時は, 1 部につき, 100 部標準で 4 頁以内 50 円, 5～8 頁 60 円の実費負担)。
- 査読・審議の結果, 内容・文章の短縮・修正, または図面トレースの書直しを要求されたり, 時には掲載を遠慮いただく場合があるので, 予めご了承ください。

特に欧文の修文・添削についてはすべて著者負担とする。(和訳を要求される場合もある)

- 返却原稿は 6 ヶ月以内に再提出なき場合は撤回とみなされる。
- ショートノート・談話室の各欄は, 随時, 随意に気軽な寄稿を歓迎する。
- その他, 詳細は事務局へお問い合わせ下さい。