ウラン-アルミニウム合金およびウラン金属板表面から放出される核分裂生成物およびウラン量の測定

橋 本 哲 夫

京都大学原子炉実験所

大阪府泉南郡熊取町野田

1972年 9月4日 受理

ウラン-アルミニウム合金板とウラン金属板を中性子照射したさいに、試料表面からアルミニウム捕集板へ捕集された核分裂生成物量およびウラン量を、Ge(Li) 検出器を用いた γ 線スペクトロメトリーおよび自雲母を検出器として用いたフィッシュントラック法で測定した。単位重量あたり存在する ^{235}U 量に換算した核分裂生成物の放出率はU 金属板のほうがU-Al 合金板よりもほぼ2.6 倍大きい結果を得たが、この値はそれぞれのウラン試料中における既知の核分裂片飛程の比に一致していた。核分裂片あたりに捕集板上に析出したウラン原子数は、(用いた熱中性子フルエンス： $8.42 \times 10^{16} \text{cm}^{-2}$) U-Al 合金板で0.28, U金属板で233の値を得た。U-Al 合金板の極端に小さな値から、Al が合金板表面上で、U 原子の放出を困難にする役割を果していることが示唆された。

1. はじめに

核分裂反応のさいに、試料表面から放出する核分裂生成物は、そのうちに希ガス元素 Kr, Xe や気化しやすいI などの放射性核種を含むため、臨界集合体燃料体系のように表面積が大きい場合、空気汚染をもたらすおそれがあり、保健物理学上からも表面積、かつ中性子あたりの核分裂生成物の放出率を求めることが必要である¹⁾。また核分裂片は大きな運動エネルギーを有しているため、核分裂性核種を含む試料表面に大きな損傷を残し、表面原子の一部は、試料表面からはじき出される。このような核分裂片あたりに関与する平均的な原子数を測定することは、絶縁物に対するフィッシュントラック生成の機構説明や核燃料、炉材料の放射線損傷などの面からも興味ある問題を数多く含んでいるが、微量物質の検出に困難があるためか、これまで研究された例は少ない²⁾。

ウラン試料表面から放出する核分裂生成物の捕集は、試料物質中の飛程を求める研究において、アルミニウム³⁾⁻⁵⁾やプラスチックフィルム⁶⁾を捕集材として用いた実験がよく行なわれており、核種の同定定量に放射化学的分離法を併用したものが多い。またウラン金属表面から捕集材上へ析出したウラン量を測定した報告もあるが⁷⁾⁻⁹⁾、析出ウラン量は、微量のものの検出が困難な α スペクトロメトリーにより行なっているうえ、関与した核分裂片の数も中性子束から計算による方法で求めており、得られた値に含まれる誤差は大

きい。

この報告では、捕集板上の核分裂生成物と析出ウラン量を簡便な方法で測定し、ウラン-アルミニウム合金板とウラン金属板について相互比較を行なった。すなわちウラン-アルミニウム合金板とウラン金属板をアルミニウム捕集板とともに、減圧下で中性子照射し、捕集板に飛び込んだ核分裂生成物を Ge(Li) 検出器を用いた γ 線スペクトロメトリーにより測定し、析出したウランの分布状態の観察ならびに定量は、白雲母を検出器として用いるフィッシュントラック法^{10),11)}で行ない、興味ある結果を得た。

2. 実 験

2.1 ウラン試料

1) ウラン-アルミニウム合金板(以下ではU-Al 合金板と記す); 濃縮ウラン(93.2%)とアルミニウムの割合が1対4の合金で(組成はほぼ UAl_4)、熱処理(温度： $600 \pm 50^\circ\text{C}$) 時間と厚さの異なる8枚の直径10 mm 円板(住友電工KK製)を使用した。析出ウラン測定のための試料は、表面研摩にアルミナ微粒子(平均粒径： 0.3μ)を含む水溶液(商品名：フジメタポリッシュ、FM4)を使用し、表面をみがいた。

2) ウラン金属板(以下ではU 金属板と記す); 厚さ0.1 mm, 直径12.7 mmの円板(Reactor Exp. Inc. 社製)で、表示純度99.890%の天然ウラン金属板をそのまま使用した。

2・2 中性子照射用試料の作製

2・2・1 核分裂生成物検出用試料

ウラン試料板を0.1mm厚さの高純度金属アルミニウム板(純度:99.999%以上)よりなる捕集板で両側よりはさみ合わせ、これをさらにうすいアルミニウムハクで包んだものを1組とし、9組をいっしょにして中性子測定用金バクとともに、石英キャプセル中に減圧封入した。このキャプセルをさらにショック吸収材の綿とともに気送管照射用ポリエチレンキャプセルに封入した。

2・2・2 放出ウラン検出用試料

表面をみがいた U-Al 合金板(厚さ0.5mm, 2時間熱処理済み)と U 金属板試料各1個を使い, Al 捕集板と U 試料板とがじかにふれないように5mm径の穴をあけた0.25mm厚さの白雲母スペーサーを中間におき, これをうすいアルミニウムハクで包んだ。核分裂片通過により二次的に放出されるウラン原子の場合, 表面より飛び出る運動エネルギーは, あまり大きくないことが予想されるので, 中間に存在する空気層で阻止または減衰されるのを防ぐために, 真空度 10^{-2} ~ 10^{-3} Torr のもとに石英キャプセル中に真空封入した。

2・3 中性子照射

核分裂生成物検出用試料の照射は, 京都大学原子炉(KUR)の圧気輸送管 No. 2(カドミ比:5.8)で5,000kW運転時に10秒間行なった。このときの中性子フルエンスは金バク放射化法により $2.44 \times 10^{14} \text{cm}^{-2}$ の値を得た。また放出ウラン検出用試料の照射は, 熱中性

子の多い個所を選び KUR 黒鉛設備の A カラムで黒鉛柱1mの個所(カドミ比:800)で73時間行なった。このときの中性子フルエンスは $8.42 \times 10^{16} \text{n/cm}^2$ であった。

2・4 Al 捕集板上の放射性核種の検出測定

照射済みの試料を約2日間冷却させたあと, 試料の開封および捕集板とりはずし操作をドラフト中に行なった。Al 捕集板中に捕集された核分裂生成物の γ 線スペクトロメトリーは, ORTEC 製2ccの Ge(Li)半導体検出器と日立製400チャンネル波高分析器を用いて行なった。なお半導体検出器の検出効率, IAEA の標準線源を用いて求めた¹²⁾。

捕集板上へ析出したウラン量の測定は, 量が多い場合には α スペクトロメトリーで行なえるが, 当実験の場合にはこの方法は析出ウラン量のごく少なく, 満足いく結果を与えなかった。ここではごくうすく析出した微量ウランの検出定量にとくに有利な白雲母を用いたフィッシュントラック法を用いた。ウラン試料からとりはずした Al 捕集板と白雲母板を接着テープではり合わせ, これを中性子束測定用の金バクとともに圧気輸送管 No. 2 で10秒間再中性子照射を行ない, 数日間冷却ののち取りはずした白雲母板を48%フッ化水素酸溶液(室温)で1時間エッチング処理し, 捕集板上のウランの核分裂で生じた白雲母上のフィッシュントラックを大きくした。フィッシュントラックの観察および計数は, 光学顕微鏡(400~600倍)および顕微鏡写真(一視野: $9.3 \times 10^{-2} \text{mm}^2$)約10枚中のトラックを数え, 熱中性子束, 核分裂反応断面積などの値を用

Fig. 1 Gamma ray spectrum of fission products obtained from Al-collector at 44 hours after neutron irradiation together with U-Al target. (Gamma ray energies are in keV.)

Table 1 Fission products activities in aluminium collectors obtained from neutron induced fission of thick uranium targets at 44 hours after irradiation

Sample	Thickness (mm)	Thermal treatment (hr)	Fission products activity ($\times 10^{-16} \mu\text{Ci}/\text{cm}^2$ neutron)										
			^{133}Xe	^{135}Xe	^{131}I	^{132}I	^{133}I	$^{99\text{m}}\text{Tc}$	$^{91\text{m}}\text{Y}$	^{97}Zr	^{97}Nb	^{132}Te	^{143}Ce
U-Al-1	1.0	1	3.7	5.1	1.1	2.3	5.6	7.3	1.4	5.8	5.6	3.7	4.4
U-Al-2	1.0	2	3.8	6.4	1.0	2.6	5.1	7.1	1.8	6.7	6.0	3.6	5.5
U-Al-3	0.5	0	3.5	6.2	1.3	2.6	4.9	6.8	2.5	4.9	5.4	3.3	4.9
U-Al-4	0.5	1	3.3	5.8	1.0	3.2	4.5	6.3	2.1	5.0	6.1	3.4	4.9
U-Al-5	0.5	2	3.0	5.8	0.9	2.4	4.7	6.8	2.4	5.0	5.4	3.4	4.2
U-Al-6	0.2	0	3.2	5.6	1.1	2.1	4.1	6.0	1.2	4.7	4.9	3.3	4.4
U-Al-7	0.2	1	3.3	5.5	0.9	1.8	5.1	6.4	1.9	3.9	5.5	3.3	5.3
U-Al-8	0.2	2	3.3	5.4	1.0	2.7	4.7	6.4	1.1	5.3	4.5	3.0	4.4
U-Metal	0.1	0	0.32	0.53	0.14	0.02	0.58	0.55	0.1	0.45	0.50	0.29	0.40

Composition of targets;

U-Al alloys: 93.2% enriched U and Al (20 weight %U)

U-Metal : natural U

Neutron fluence: $2.44 \times 10^{14} \text{cm}^{-2}$ いて、ウラン原子数を算出した¹⁰⁾。

3. 結果と考察

3.1 捕集板中の核分裂生成物の γ 線スペクトルと放射能強度

原子炉中性子照射後44時間冷却した Al 捕集板より得た γ 線スペクトルの 1 例を Fig. 1 に示す。見出されたすべてのホットピークは、ウランの核分裂生成物にもとづくものであり、Al 捕集板の放射化によるものは見られなかった。これら核分裂生成物のホットピーク面積を Covell¹³⁾ 法によって求め、既知のデータを使って、ウラン試料の単位表面積あたり、かつ熱中性子あたり放出した核分裂生成物の放射能強度を Table 1 に示した。ここで得られた核種以外のものについては、Table 1 の核種の値をもとにして、核分裂収率や半減期などを考慮すれば、計算により照射後幾日目の放射能強度を容易に求めることができよう¹⁴⁾。

U 金属板の場合、U-Al 合金板にくらべて各核種の捕集量は、ほぼ10分の1の値を示しているが、単位重量あたりに存在する ^{235}U 原子あたりに換算すると U 金属板のほうが 2.6 倍多い核分裂生成物の放出を示していることになる。この値は、核分裂生成物の U 金属³⁾ と U-Al 合金⁵⁾ 中における飛程の比にほぼ一致している。すなわち ^{91}Y の場合その比は 2.44 (飛程; U 金属: 11.54 mg/cm^{2 3)}, U-Al 合金: 4.73 mg/cm^{2 3)}, ^{141}Ce の場合の飛程の比 2.87 (飛程; U 金属: 8.56 mg/cm^{2 3)}, U-Al 合金: 2.98 mg/cm^{2 3)}) となり、他

の核種は両者の範囲内にはいっていることが計算でき、この実験で得た値 2.6 との一致は良い。

また U-Al 合金の場合、試料の厚さや熱処理時間の影響はほとんど受けておらず、得られた核分裂生成物の放出量は、ほぼ一定の値を示している。

3.2 捕集板への析出ウラン量

ウラン試料と Al 捕集板を、核分裂生成物捕集の場合のように密着して照射すると、試料の接触による捕集板へのウランの付着が避けられず、純粋に核分裂片の飛び出しに伴って放出するウラン量の評価が不可能になる。事実、U 金属板試料に密着した捕集板のみをふたたび原子炉照射したとき得られた捕集板の γ 線スペクトルには Fig. 2 に示すような、 $^{238}\text{U}(n, \gamma)^{239}\text{U} \xrightarrow{\beta^-} ^{239}\text{Np} \xrightarrow{\beta^-}$ 反応にもとづく ^{239}Np が検出され、多量の ^{239}U の析出が検出される。また U-Al 合金板の場合には、はずした Al 捕集板と白雲母を再照射して得た白雲母上のフィッシュントラックの分布状態は、Fig. 3 に示すように、多量の塊状ウランの析出がみられ、U-Al 試料の外周が密度の高いトラックの存在によりはっきり認められる。

このような接触によるウランの付着をさけるため、白雲母のスペーサーを、表面をみがいた U-Al 合金板と Al 捕集板の間にはさんで照射したところ、塊状ウランの析出は見られず、ほぼ均一な分布を有するウランの析出が捕集板上に生じたことが、フィッシュントラックの観察からわかった。Fig. 4 にこのようにし

Fig. 2 Gamma ray spectrum of ^{239}Np and fission products obtained from Al-collector which was re-irradiated in reactor after the removal of U-metal target. (Gamma ray energies are in keV.)

Fig. 3 Fission track pattern on muscovite sheet obtained from Al-collector which was contacted directly with U-Al target during the collection of fission products. (Neutron fluence used to a set of muscovite and Al-collector was $4.2 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$.)

て得たフィッシュントラックの写真を示す。

U-Al 合金板の場合、図からもわかるように非常に均一なウランの析出が見られたが、U金属板では、ス

5mm
(A)-1

50μ (A)-2

50μ (B)

Fig. 4 Typical fission tracks on muscovite sheets obtained from Al-collectors which were placed indirectly on U-Al (A) and U-metal targets (B) during collection of uranium and fission products. ((A)-1 is given in original scale. (A)-2 and (B) are given in microscopic scale.)

ペーサーを使用した場合でもなお少量の小さな塊状ウランの析出が生じていることが星状トラックの存在からわかる。これは U 金属表面が酸化しており、核分裂片の通過にともないこの酸化されたウランが小塊となって試料表面から飛び出し、捕集板に析出するのであろう。同様なウラン金属からの塊状ウランの析出が、カーボンフィルム捕集材上で、電子顕微鏡により観察されている⁹⁾。

捕集板上に析出したウラン原子は、大きな運動エネルギーを有する核分裂片のウラン試料中の通過にとまなうノックオン過程あるいは局所的加熱による蒸発がおもな原因と考えられている⁹⁾。この観点から通過した核分裂片 1 個あたりに析出したウラン原子数を求めることはたいへん興味深い。この実験で、ウラン析出に参与した核分裂片はすべて捕集板中にはいりこんでいるので（白雲母中の FP の飛程は 20μ 以下であるので 0.25mm の白雲母スペーサーの厚さは、 5mm 径の穴以外の個所の核分裂片を阻止するのに十分である）¹⁵⁾ 前述の γ 線スペクトロメトリーを利用し、捕集板へ飛び込んだ核分裂片の総数 F_T を次式により求めることができる。

$$F_T = F_p \cdot t_i \quad (1)$$

ここで t_i は中性子照射時間であり、 F_p は毎秒あたり捕集板へ飛び込む核分裂片の数で次式で求められる。

$$F_p = 2 \cdot A_i / Y_i \cdot M_i \cdot G_i \cdot B_i \cdot (1 - e^{-\lambda_i t_i}) \cdot e^{-\lambda_i t_d} \quad (2)$$

ここで A_i , Y_i , M_i , G_i , B_i , λ_i , t_d はそれぞれ核分裂生成物 i の γ 線スペクトルでのホットピーク面積、核分裂収率¹⁶⁾、計数時間、検出器の計数効率、ホットピークエネルギーへの壊変の分岐比、壊変定数、および照射終了から計数開始までの時間をあらわしている。

上式を用いて、 γ 線スペクトルから ^{131}I (364.5keV)

と ^{132}Te (228keV) のホットピークを選び、この両者から核分裂片総数 F_T 値を求めたところ Table 2 に示すようにほぼ一致した値が得られた。フィッシュントラック法で求めた析出ウラン量と F_T 値とから、核分裂片 1 個あたりに捕集板へ析出したウラン原子数を算出した結果を Table 2 に示しておいた。これからわかるように核分裂片あたりに析出したウラン原子の数は、U-Al 合金板と U 金属板とで著しい差異を示している。U 金属板の値は Rogers ら⁹⁾ の値に近いが、低い値を得た U-Al 合金板の場合、これまでにこのような報告は見られず比較できない。

Rogers ら⁹⁾ によるとこの実験に用いた熱中性子フルエンス ($8.42 \times 10^{16}/\text{cm}^2$) ではすでに捕集板への析出現象と捕集板からの再放出現象の間には平衡が成立しているという。したがって U-Al 合金板の析出ウランの少ないことは、濃縮ウランより成るため平衡値が低い側にずれていることにより一部は説明つくが、他の原因も考慮に入れねばならない。

1 つの原因としては U-Al 合金で使われている Al が、合金表面上で酸化されており、酸化膜の形成が生じた結果、この層が運動エネルギーの低いウラン原子の飛び出しを阻止するのではないかと考えられる。

いずれにしても核分裂片とともに放出されるウラン原子は、ウラン試料の表面層から出ておりそれらごく薄い層のものが大部分であろう。実際ステンレス板上にうすく電着したウラン試料を捕集板とともにほぼ同様な熱中性子束で照射したとき、核分裂片あたり $300 \sim 1,000$ 個のウラン原子が Al 捕集板に析出しており¹⁷⁾、この実験におけるウラン金属板の結果と類似した値を得ている。

ウラン試料の提供ならびに実験中に種々の助言をいただいた当実験所の玉井忠治氏、神田啓治氏、嵯峨根

Table 2 Ejection of uranium atoms by one fission fragment from the surface of uranium samples

Uranium target	Number of fission fragments injected into Al-collector	Uranium atoms deposited on Al-collector	Number of U atoms knocked out by one fragment
U-Al Alloy (0.5mm in thickness)	$(^{131}\text{I}) \quad 7.00 \times 10^{12}$ $(^{132}\text{Te}) \quad 7.56 \times 10^{12}$ Average 7.28×10^{12}	2.04×10^{12}	0.28
U Metal (0.1mm in thickness)	$(^{131}\text{I}) \quad 5.84 \times 10^{11}$ $(^{132}\text{Te}) \quad 6.28 \times 10^{11}$ Average 6.06×10^{11}		
		1.41×10^{14}	233

Applied thermal neutron fluence: $8.42 \times 10^{16} \text{cm}^{-2}$

俊光氏, および小林捷平氏に, また一部手伝っていた近畿大学理工学部, 小林良彦氏, 日立製作所原子力開発部の川本広行氏に深く感謝いたします。

文 献

- 1) 玉井, 橋本, 川本, 嵯峨根, 神田: KURRI-TR, 印刷中
- 2) N.Riehl: *Kerntechnik*, **3**, 518 (1961)
- 3) J.B.Niday: *Phys. Rev.*, **121**, 1471 (1961)
- 4) J. A. Panontin, N.Sugarman: *J. Inorg. Nucl. Chem.*, **25**, 1321 (1963)
- 5) 佐伯, 石森: 日本原子力学会誌, **14**, 278(1972)
- 6) J.Scobie, R.D.Scott, R.Wellum: *Radiochimica Acta*, **13**, 119 (1970)
- 7) B.V.Ershler, F.S.Lapteva: *J. Nucl. Energy*, **4**, 471 (1957)
- 8) M.D.Rogers, J. Adam: *J. Nucl. Materials*, **6**, 182 (1962)
- 9) M.D.Rogers: *ibid.*, **15**, 65 (1965)
- 10) 橋本, 岩田, 林: 分析化学, **19**, 1538 (1970)
- 11) T.Hashimoto: *Anal. Chim. Acta*, **56**, 347 (1971)
- 12) K.Kobayashi, T.Hashimoto, I.Kimura: *J. Nucl. Sci. Tech.*, **8**, 492 (1971)
- 13) D.F.Covell: *Anal. Chem.*, **31**, 1785 (1959)
- 14) H.F.Hunter, N.E.Ballou: *Nucleonics*, **9**, (5) c-2 (1951)
- 15) R.L.Fleischer, P.B.Price, R.M.Walker: *Science*, **149**, 383 (1965)
- 16) F.L.Lisman, R.M.Abernathey, W.J.Maeck, J.E.Rein: *Nucl. Sci. Engineering*, **42**, 191 (1970)
- 17) 橋本, 小林: 第16回放射化学討論会, 新潟(1972)

Abstract

Determination of Fission Products and Uranium Atoms Ejected from the Surface of Uranium-Aluminium Alloys and Uranium Metals

Tetsuo HASHIMOTO

Research Reactor Institute, Kyoto University,
Kumatori-cho, Sennan-gun, Osaka

The amounts of fission products and uranium on an aluminium collector, which was placed near to U-Al alloys and U metals during the neutron irradiation, were determined by gamma ray spectrometry using a Ge(Li) detector and by fission tracks on a muscovite.

The ejection rate of FP against ^{235}U atom in unit weight from U metals was evaluated to about 2.6 times higher value compared to U-Al alloys. This result was attributed to the difference of fission fragment ranges in these materials, which have been reported previously by two works.

From the amounts of uranium and the total number of fission fragments on the collector, the uranium atoms knocked out by one fragment (applied thermal neutron fluence: $8.42 \times 10^{16} \text{cm}^{-2}$) were calculated to 0.28 and 233 for U-Al alloys and U metals, respectively. The great difference between two materials implies that aluminium in U-Al alloys plays a very important role to retard the ejection of uranium atoms from the surface.

(Received September 4, 1972)