

JAERI-M

4 8 7 8

ウラン-パラジウム合金箔から化学反応系へ  
放出された核分裂生成物の挙動

森山 昇, 李 漢栄\*, 佐藤章一

池添康正, 清水三郎, 小林敏明

岡本次郎, 浜ノ上熊男\*\*

徳永興公\*\*\*, 団野皓文

日 本 原 子 力 研 究 所  
Japan Atomic Energy Research Institute

ウラン-パラジウム合金箔から化学反  
 応系へ放出された核分裂生成物の挙動

日本原子力研究所高崎研究所研究部

森山 昇・李 漢 栄\*・佐藤章一

池添康正・清水三郎・小林敏明

岡本次郎・浜ノ上龍男\*\*・徳永興公\*\*\*

団野皓文

(1972年6月21日受理)

エチレンガスを、白金被覆した濃縮ウラン-パラジウム合金箔の存在でステンレス製カプセル中に入れて、原子炉照射を行った。生成する核分裂片は、運動エネルギーを核燃料内、気体反応系、カプセル器壁で失う。この過程の後で、核分裂生成物が、核燃料(ウラン合金層と白金被覆層)中、気体中および器壁上にどのように分布しているかを測定した。この測定には、200チャンネルの波高分析器とラジオガスクロマトグラフを用いた。

核燃料から脱出した核分裂片は気体中で運動エネルギーを消費し切るにもかかわらず、気体中には痕跡量の核分裂生成物が検出されたのみであった。核燃料中に残留する核分裂生成物量は計算値に近く、気体中で停止するはずの量にほぼ相当する核分裂生成物は器壁上に検出された。検出された核分裂生成物の $\gamma$ 放射能は、WayとWignerの経験式から計算される値とほぼ一致し、測定値が信頼できるものであることを示した。

実験結果は、気体化学反応系が固体核燃料の存在で気体生成物を生じるとき、核分裂片による化学反応系の除染の問題は小さいであろうことを示す。

\* 韓国原子力庁

\*\* 日本原子力研究所東海研究所原子炉化学部

\*\*\* " 高崎研究所開発室

Behavior of the Fission Products Released into Chemical  
Reactants from U-Pd Alloy Foil

Noboru MORIYAMA, Han Young Lee\*, Shoichi SATO, Yasumasa IKEZOE

Saburo SHIMIZU, Toshiaki KOBAYASHI, Jiro OKAMOTO,

Kumao HAMANOUE\*\*, Okihiko TOKUNAGA\*\*\* and Akibumi DANNO

Division of Research, Takasaki Radiation Chemistry

Research Establishment, JAERI.

(Received June 21, 1972)

Gaseous ethylene was sealed in a stainless steel capsule, in the presence of uranium-palladium alloy foil coated with platinum, and irradiated in a nuclear reactor.

Fission fragments produced lose their kinetic energy first within the nuclear fuel, then in gaseous ethylene and finally on the wall of the capsule. The distribution of the fission products was measured after energy loss in the fuel (uranium-palladium alloy fuel with platinum coating), in the ethylene gas and on the wall of the capsule. A 200-channel pulse-height analyser and a radiogaschromatograph were used for the measurement.

Only a trace amount of the fission products was detected in the ethylene gas, though the kinetic energy of the fission fragments escaping from the fuel was almost all consumed in the gas. The amount of fission products within the fuel was nearly the same as that calculated and that on the wall of the capsule was nearly equivalent to the amount presumably stopped in the gas. The sum of  $\gamma$  activities of all the fission products detected was approximately equal to that calculated from the empirical formula proposed by K. Way and E. P. Wigner, showing the reliability of the observed values.

It is indicated that the decontamination problem of a fissionochemical reaction system will be insignificant, when gaseous reactants are to form gaseous products in the presence of a solid nuclear fuel.

---

\* Office of Atomic Energy, Seoul, Korea (Present Address)

\*\* Division of Chemistry, Tokai, JAERI (Present Address)

\*\*\* Pilot Scale Research Station, Takasaki, JAERI (Present Address)

目 次 な し

## 1. 序 論\*

中性子の核分裂によって生じるエネルギー200MeVの80%以上に相当する165MeVは核分裂片の運動エネルギーとして与えられる。<sup>1)</sup>従って核分裂片は強力な放射線源であり、これを化学反応に直接利用できればエネルギー的に有利である。かかる見地から原子炉を直接化学反応器として使用する核分裂片化学原子炉(Fissionochemonuclear Reactor)の概念<sup>2)</sup>が提案されている。

核分裂片による化学反応の研究は、空気中の窒素の固定<sup>3)</sup>、炭酸ガスの分解<sup>4)</sup>、エチレングリコールの合成<sup>5)</sup>、ヒドラジンの合成<sup>6)</sup>の例にみられる如く諸外国では多く行なわれているが、わが国では初めての経験であるため、照射後の核分裂生成物の混入した試料を如何に安全に取扱うかということは解決を要する重要な問題点である。かかる観点からウラン燃料を化学反応系と共存させて原子炉内で一定時間照射した場合、どの程度の核分裂片がどの程度の放射能で化学反応系へ混入し、どのように挙動しているかを検討した。

## 2. 実 験

### 2.1 核分裂片線源(核燃料)

核分裂片源としてはウランとパラジウムとの合金を $2.1\mu$ の薄い箔とし、両面に $0.2\mu$ の白金を被覆した燃料を $5\text{cm}\times 5\%$ の大きさで使用した。ウランとパラジウムとの重量比は1:4であり、ウランの濃縮度は93.3%である。核分裂片の固体中の飛程は短いから、燃料が薄ければ薄いほど核分裂片が燃料外に飛出し、化学反応系にエネルギーを与えるから有効な線源となる。

### 2.2 試料の調製

前節で述べたウランとパラジウムとの合金箔をステンレス製のフレームに取付け、ステンレス製の円筒状カプセルの中心に固定した。このカプセルは内容積 $54.8\text{ml}$ 、内径 $2.3\text{cm}$ 、肉厚1%の円筒で、1端にラプチャープレート<sup>7)</sup>を、他端には気体試料導入用のノズルを有している。これに化学反応系としてのエチレンを1気圧封入して照射試料とした。

### 2.3 照 射

エチレンと核燃料とを封入したカプセルをJRR-3の水平実験孔H-2に設置してある低温化学照射装置<sup>7)</sup>で3時間照射した。照射位置の熱中性子束は $2.1\times 10^{11}\text{n/cm}\cdot\text{sec}$ である。この値はCo-59の放射化によって測定したものである。

\* 本報告の内容の一部は日本原子力学会昭和47年年会講演G-23として発表した。

## 2.4 照射後の分析

照射後のカプセルを7日間冷却後真空ライン中にてラブチャープレートを破り、テブラーポンプにてエチレンガスを捕集し、200チャンネルの波高分析器にてエチレン中に含まれる放射性核種を測定した。同時に核分裂生成物の一つである沃素-131とエチレンとの反応によって生成されると予想される沃化メチル、沃化エチル等の沃化アルキルをラジオガスクロマトグラフにより測定した。このときに使用したカラムは長さ3mのガラス製カラムで充填剤はシラン処理したセライト545に30%のシリコンオイルDC550をコーティングしたものであり、キャリアーガスとしては流速40ml/minの窒素を使用した。次にカプセル中に残留する核分裂生成物を調らべるためにカプセルの内部を0.1Nの塩酸100mlによりよく洗浄し、その10mlをポリエチレンの容器に入れて波高分析器により測定し、これによって得られるピークのエネルギーとその半減期とを検討することによって塩酸洗浄液に見出される核種を調らべた。

次に核燃料中に残留する核分裂生成物を調らべるためにこれを4mlの王水に溶解し、蒸留水を加えて10mlとし、同様にポリエチレンの容器に入れて波高分析器により測定した。

更にこれらの測定によって得られるピークのうち、12日後には $^{140}\text{Ba}$ - $^{140}\text{La}$ による1.60 MeVのフォトピークを、また $^{140}\text{Ba}$ - $^{140}\text{La}$ が減衰した152日後には $^{95}\text{Zr}$ - $^{95}\text{Nb}$ による0.77 MeVのフォトピークを定量することによって核分裂生成物の放射能を測定した。波高分析にあたってはCo-60, Cs-137, Hg-203の標準線源を用いて各エネルギーにおけるフォトピークの大きさと放射能の関係を求め、 $^{140}\text{Ba}$ - $^{140}\text{La}$ および $^{95}\text{Zr}$ - $^{95}\text{Nb}$ の放射能を求めた。

## 4. 実験結果

### 4.1 化学反応系に混入した核分裂生成物

化学反応系であるエチレン中に放出された放射性核種を波高分析器で測定した結果を第1図に示す。図から明らかな如く90KeVの位置にピークが1個認められるのみで核種としてはエネルギーから推定してXe-133(半減期5.3日), Nd-147(半減期11.3日), Pd-109(半減期13.6時間)などが考えられるが、半減期およびXeのみが気体であることを考慮すると、このピークはXe-133であると思われる。しかしながら放射能としては問題にならず、従って化学反応系に混入する核分裂生成物は殆んどないといってよい。

続いてラジオガスクロマトグラフによって沃化メチル、沃化エチル、沃化プロピル、沃化ブチルの各化合物の滞留時間に相当する時間の沃素-131(0.36MeV)の放射能測を行なったが、放射能は検出されなかった。

### 4.2 カプセル内に残存した核分裂生成物

カプセル内を洗浄した塩酸水溶液を同じく波高分析器にて測定した結果を第2図に示す。これらのフォトピークの減衰を調らべ、エネルギーと半減期とから推定される核種は $^{140}\text{Ba}$ - $^{140}\text{La}$ (1.60MeV),  $^{95}\text{Zr}$ - $^{95}\text{Nb}$ (0.77MeV),  $^{132}\text{Te}$ - $^{132}\text{I}$ (0.67MeV)  $^{131}\text{I}$ (0.36MeV)などである。

### 4.3 核燃料内に留まつた核分裂生成物

核燃料を王水に溶解した試料を波高分析器で測定した結果を第3図に示す。明らかに塩酸洗浄液に含まれている核種とウラン-パラジウム合金溶解液に含まれている核種はほぼ同一であることがわかる。

### 4.4 核分裂生成物の放射能

波高分析器により測定した $^{140}\text{Ba}-^{140}\text{La}$ のフォトピークを定量することにより核分裂生成物の全放射能を求めることができる。<sup>8)9)</sup> 12日後の値を求めると $1.5 \times 10^{-6}$  Ciとなった。また、 $^{140}\text{Ba}-^{140}\text{La}$ のフォトピークが減衰した152日後に $^{95}\text{Zr}-^{95}\text{Nb}$ のフォトピークから同様に全放射能を求めてみた。この場合、 $^{95}\text{Zr}-^{95}\text{Nb}$ のフォトピークは $^{95}\text{Zr}$ と $^{95}\text{Nb}$ との両者が寄与しているから、それぞれの寄与を求める必要がある。即ち $^{95}\text{Zr}$ および $^{95}\text{Nb}$ の割合はその数をそれぞれ $N_1, N_2$ 、崩壊定数をそれぞれ $\lambda_1, \lambda_2$ 、とすると、最初 $^{95}\text{Nb}$ は存在しないから

$$\frac{N_2}{N_1} = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \{ 1 - e^{-(\lambda_2 - \lambda_1)t} \}$$

で与えられる。ここで $t$ は照射後の経過時間である。152日後の $N_2/N_1$ を求めると0.88となり、 $^{140}\text{Ba}-^{140}\text{La}$ の場合と同様にして全放射能を求めると $8.4 \times 10^{-7}$  Ciとなった。

## 5. 考 察

### 5.1 核燃料の外に放出された核分裂生成物の全体に対する割合

ウラン-235が核分裂を起こしたとき、核分裂片が何個燃料の外に飛出し、何個燃料内および白金被覆内に留るかを検討する。

核分裂片のエネルギーまたは飛程として、平均化したものを考え、そのエネルギーの損失過程は $E_r/E_0 = (1 - \beta)^X$  ( $X = 1.72 - 0.214\beta$ ,  $\beta = r/R$ )

$E_r$  : 飛距離  $r$  における核分裂片のエネルギー

$E_0$  : 核分裂時の核分裂片のエネルギー

$r$  : 飛距離

$R$  : 核分裂片の飛程

の式<sup>10)</sup>に従うとして、平板状燃料であるウラン-パラジウム合金箔および白金被覆内に留まる核分裂片と燃料外に飛出る核分裂片との割合を求めると、燃料外に飛出る核分裂片の数は全体の75%である。<sup>11)</sup>

第2図と第3図に示される $^{140}\text{Ba}-^{140}\text{La}$ のフォトピークを定量して、生成した全核分裂片のうち燃料外に飛出した核分裂片の割合を知ることができる。この値は全体の58%である。

上記の計算は核分裂片を平均化して計算したものであり、これを $^{140}\text{Ba}-^{140}\text{La}$ の如き重核分裂片に補正して計算すると第1表の如く70%となり、実測値とおおよそ近い値となる。

Table 1. Distribution of Fission Products (%)

	U-Pd	Pt	Outside
Calculated	22	8	70
Observed	42		58

Table 2. Activity ( $\gamma$ /sec)

Time After Irradiation	12 Days	152 Days
Nuclide Analysed	$^{140}\text{Ba}-^{140}\text{La}$	$^{95}\text{Zr}-^{95}\text{Nb}$
Observed	$5.6 \times 10^5$	$3.1 \times 10^4$
Calculated*	$5.5 \times 10^5$	$8.7 \times 10^4$

$$* 1.9 \times 10^{-6} t^{-1.2} \gamma / \text{sec} \cdot \text{fission}$$

t: days after irradiation

## 5.2 核分裂生成物の放射能

核分裂生成物の放射能, 特に $\gamma$ 線による放射能についてはK. WayおよびE.P.Wignerにより次の如き式<sup>12)</sup>が提案されており, この式は2倍程度の精度で確かであるとされている。

$$1.9 \times 10^{-6} \times t^{-1.2} \text{ photon/sec} \cdot \text{fission}$$

ここにtは照射後の経過日数である。

熱中性子束, ウラン-235の数, 核分裂断面積および照射時間の積から核分裂数を求めて上式を計算すると12日後は $5.5 \times 10^5 \gamma/\text{sec}$ となり, 152日後は $2.6 \times 10^4 \gamma/\text{sec}$ となる。

実験結果から得られた値は12日後で $1.5 \times 10^5 \text{ Ci}$ で, 152日後は $8.4 \times 10^{-7} \text{ Ci}$ であり, 1崩壊当り1個の光子を放出すると仮定すれば12日後で $5.6 \times 10^5 \gamma/\text{sec}$ , 152日後で $3.1 \times 10^4 \gamma/\text{sec}$ となり計算値とよく一致する。この結果を第2表に示す。



## 6. 結 論

以上の実験事実から考えて、原子炉内照射によって生じた核分裂片の60%がウラン-パラジウム燃料の外に放出されている。エチレンを線量計とした筆者らの実験<sup>13)</sup>、即ち全く同じ条件で、核分裂片によってエチレンから生成する水素を測定した実験によると、燃料の外に飛出した核分裂片のエネルギーの100%近くがエチレンに吸収されていると考えられる。即ち燃料から飛出した核分裂片は殆んどエチレン中で止められてしまい、核分裂エネルギーをもったままカプセル壁を直撃する確率はほとんどない。しかしながら燃料から放出された核分裂生成物の殆んど総てが、エチレンを取除いたカプセル内に見出されたということは、核分裂片の有する正電荷のために、エチレン中でエネルギーを失った後、エチレン中には留まらず、カプセルの器壁に付着していると結論できる。

従って核分裂片を気相放射線化学の線源として用いる場合、反応物質も気相である限り(核分裂片と化学的に反応した生成物は除外して考えてよければ)、反応系を安全に取扱うことができ、除染の必要は少ないであろう。

## 7. 謝 辞

本研究を行なうに当って、放射線化学研究委員会化学用原子炉分科会(会長 東大 大島恵一教授)の委員の方々から種々有益な助言を得ました。就中東北大学塩川考信教授からはいろいろと御教示を受けました。ここに記して感謝の意を表します。

また、この研究は著者の一人李漢榮がIAEA 留学生として原研滞在中に行なった研究の一部であり、この滞在を可能ならしめたIAEA、日本海外技術協力事業団、日本原子力研究所ならびに原所屬である韓国原子力庁に感謝します。

## 文 献

- 1) S. Glasstone and A. Sesonske ; Nuclear Reactor Engineering, D. Van Nostrand Company, Inc., p. 16 (1963)
- 2) M. Steinberg ; Adv. in Nucl. Sci. and Tech. 1, 248 (1962)
- 3) M. Steinberg ; Chem. Eng. Progr. 62 (9), 105 (1966)
- 4) P. Harteck and S. Dondes ; J. Chem. Phys. 26, 1727 (1957)
- 5) A. K. Wiebe, W. P. Connor and G. A. Kinzer ; Nucleonics 19 (2), 50 (1961)
- 6) C. P. Fritsch, M. R. Gustavson, J. H. Cusack and R. I. Miller ; Chem. Eng. Progr. 57 (3), 37 (1961)
- 7) 大島恵一, 下沢亮介, 佐藤章一, 森山 昇, 助川友英, 山崎弥三郎, 平田実穂, 石井敏雄 ; JAERI-memo 2833 "低温化学照射装置の設計計算" (1967)
- 8) H. F. Hunter and N. E. Ballou ; Nucleonics 9 (11), C-2 (1951)
- 9) 木村健二郎 ; 放射線データブック, 地人書館, p. 130 (1958)

- 10) J.H. Cusack and P.A. King, AGN-8196 'Fissionochemical Development Program', Aug. 1966., vol. I. Chap II
- 11) 佐藤章一, 森山 昇, 池添康正, 清水三郎, 小林敏明, 山崎弥三郎, 団野皓文;  
JAERI-M 4717 "核分裂片のエネルギー損失と化学反応系中の核分裂片線量率"  
(1972)
- 12) K. Way and E.P. Wigner ; Phys. Rev. 73 1318 (1948)
- 13) 池添, 佐藤, 森山, 岡本, 浜ノ上, 徳永, 清水, 小林, 団野 ; 日本原子力学会  
昭和47年年会講演 "エチレン線量計による核分裂片線量の測定", I-37

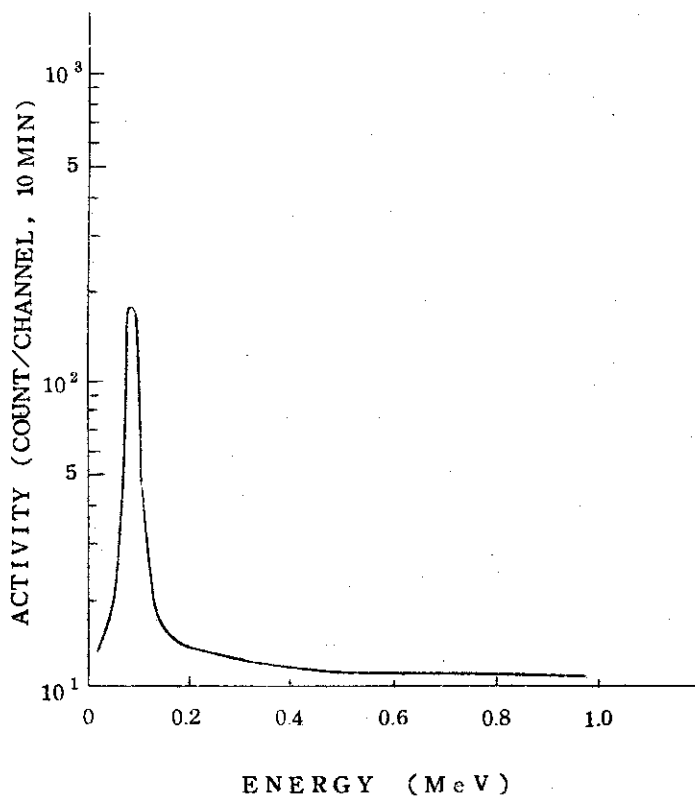


Fig.1 Pulse Height Analysis of  
Fission Products in Gas  
Phase  
7 days after irradiation

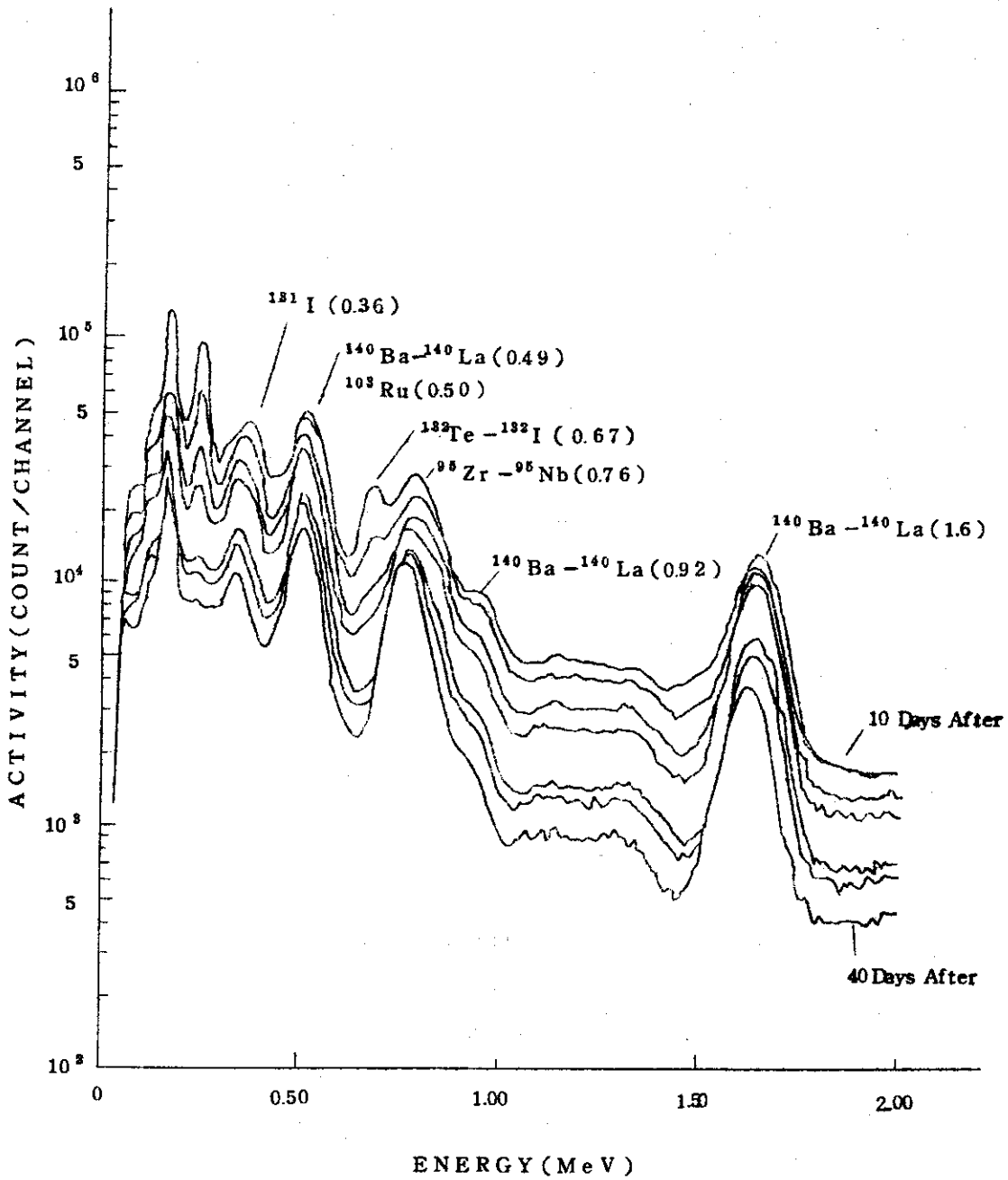


Fig.2 Pulse Height Analysis of Fission Products on Vessel Wall

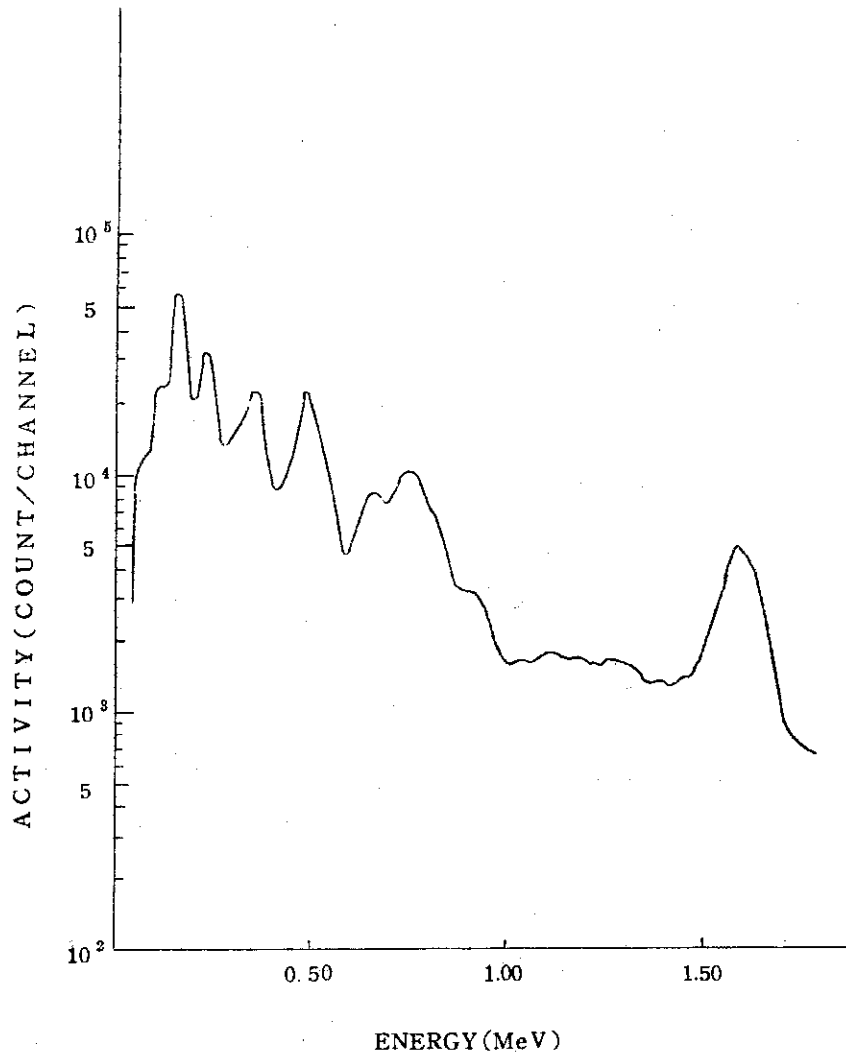


Fig.3 Pulse Height Analysis of Fission Products Remained inside of Fuel Foil  
12 days after irradiation