

$^{237}\text{Np}$ ターゲットを用いた $^{237}\text{Pu}$ 及び  
 $^{236}\text{Pu}$ の製造

1990年7月

出雲三四六・反田 孝美・畑 健太郎・関根 俊明  
松岡 弘充・本木 良藏・馬場 澄子\*

JAERI-Mレポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。  
入手の間合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）あて、  
お申しこみください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡  
東海村日本原子力研究所内）で複写による実費領布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.  
Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division Department  
of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokaimura, Naka-gun, Ibaraki-  
ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1990

編集兼発行 日本原子力研究所  
印刷 ニッセイエプロ株式会社

$^{237}\text{Np}$  ターゲットを用いた  $^{237}\text{Pu}$  及び  $^{236}\text{Pu}$  の製造

日本原子力研究所東海研究所アイソトープ部

出雲三四六・反田 孝美・畑 健太郎・関根 俊明

松岡 弘充・本木 良蔵・馬場 澄子\*

(1990年6月1日受理)

プルトニウムのトレーサーとして有用なアイソトープ、 $^{236}\text{Pu}$  と  $^{237}\text{Pu}$  の製造法を開発した。いずれも  $^{237}\text{Np}$  をターゲットとして、 $^{236}\text{Pu}$  は電子直線型加速器を用いた  $^{237}\text{Np}(\gamma, n)$   $^{236}\text{Np}(\beta^-)$   $^{236}\text{Pu}$  反応により、 $^{237}\text{Pu}$  はタンデム型加速器を用いた  $^{237}\text{Np}(d, 2n)$  によって各々製造した。 $^{237}\text{Pu}$  については電着法で調製した薄いターゲットを用いて励起関数を測定するとともに、 $^{237}\text{NpO}_2$  粉末を加圧成型して焼結した十分に厚いターゲットを用いて製造した。

照射後は陰イオン交換樹脂法によりターゲットである  $^{237}\text{Np}$  から  $^{236}\text{Pu}$ 、 $^{237}\text{Pu}$  を各々分離、精製した。その結果、製造した  $^{236}\text{Pu}$  の放射能は照射終了時(EOB)で 562 Bq、製品の  $\alpha$  スペクトルには 5.768 MeV 以外の  $\alpha$  線を認めず高純度であることを確認した。また、 $^{237}\text{Np}(d, xn)$  反応については  $^{236}\text{Pu}$ 、 $^{237}\text{Pu}$  及び  $^{238}\text{Pu}$  生成の励起関数を求め、その結果から Thick target yield を算出した。 $^{237}\text{Np}(d, 2n)$  反応は他の反応に比べて  $^{237}\text{Pu}$  の生成量では有利であるが放射性核種純度の面では不利であることが判明した。厚い  $^{237}\text{NpO}_2$  ターゲットを用いた  $^{237}\text{Pu}$  の製造では  $\alpha$  核種である  $^{236}\text{Pu}$ 、 $^{238}\text{Pu}$  が各々 7.8~8.4%、1.7~4.2% 程度含まれるものの、 $^{237}\text{Pu}$  の  $\gamma$  放射性核種純度は 99.9% 以上であった。2回の製造による  $^{237}\text{Pu}$  の生成量は各々、EOBで  $82 \pm 11$  KBq、 $265 \pm 21$  KBq であった。

Production of  $^{237}\text{Pu}$  and  $^{236}\text{Pu}$  with  $^{237}\text{Np}$  Targets

Mishiroku IZUMO, Takami SORITA, Kentaro HATA  
Toshiaki SEKINE, Hiromitsu MATSUOKA, Ryozo MOTOKI  
and Sumiko BABA\*

Department of Radioisotopes  
Tokai Research Establishment  
Japan Atomic Energy Research Institute  
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received June 1, 1990)

Production methods were developed for  $^{237}\text{Pu}$  and  $^{236}\text{Pu}$  which are useful Pu tracers. By using  $^{237}\text{Np}$  as target nuclide, those isotopes were produced in the  $^{237}\text{Np}(d,2n)^{237}\text{Pu}$  and  $^{237}\text{Np}(\gamma,n)^{236}\text{Np}(\beta^-)^{236}\text{Pu}$  reactions. Excitation functions were measured for the deuteron-induced reaction, the  $^{237}\text{Np}(d,xn)^{239-x}\text{Pu}(x=1,2,3)$ , and thick target yields of the Pu isotopes were estimated.

A small amount of  $^{237}\text{NpO}_2$  sealed in a quartz ampoule was used for bremsstrahlung irradiation. In the case of deuteron irradiation, thick  $^{237}\text{NpO}_2$  targets were prepared with a thickness up to  $1.0 \text{ g/cm}^2$  obtained from sintering a pressurized  $^{237}\text{NpO}_2$  or  $^{237}\text{NpO}_2\text{-Al}$  mixed powder in a disk shape with a diameter of 15 mm. Almost the same chemical procedures were applied for separation and purification of Pu out of the irradiated targets: Anion exchange was used to separate Pu, Np, U/Pa and fission products from the  $\text{NpO}_2$  dissolved in  $\text{HNO}_3$ .

Finally, 265 KBq of  $^{237}\text{Pu}$  were obtained at the end-of-bombardment with the thick  $^{237}\text{NpO}_2$  target irradiated for 17 h with a deuteron beam of 24 MeV and  $4.9 \mu\text{A}$ ; Its radio-chemical purity was found to be 99.9% for  $\gamma$ -ray emission nuclides. As for  $\alpha$ -radioactive nuclides,  $^{236}\text{Pu}$  and  $^{238}\text{Pu}$  were found to be 8.4% and 4.2%, respectively, as activity ratios

---

\* Osaka Gas Co. Ltd.

to  $^{237}\text{Pu}$ . About 560 Bq of  $^{236}\text{Pu}$  were obtained from 7.5 mg of  $^{237}\text{NpO}_2$  irradiated for 8.5 h with the bremsstrahlung produced by an electron beam of 55 MeV and 9  $\mu\text{A}$ , and no  $\alpha$ -radioactivity was found.

Keywords: Plutonium-236, Plutonium-237, Plutonium-238, Neptunium-237, Neptunium Dioxide, Excitation Function, Deuteron Irradiation, Bremsstrahlung Irradiation

## 目 次

1. 序 論 .....	1
2. $^{237}\text{Pu}$ と $^{236}\text{Pu}$ 製造に共通な化学分離プロセス .....	1
2.1 $^{237}\text{Np}$ の精製 .....	1
2.2 照射 $^{237}\text{Np}$ ターゲットからの $\text{Pu}$ の分離 .....	2
3. $^{237}\text{Np} (d, 2n)$ 反応による $^{237}\text{Pu}$ の製造 .....	3
3.1 $^{237}\text{Np} (d, xn) ^{239-x}\text{Pu}$ 反応の励起関数測定 .....	3
3.1.1 薄い $^{237}\text{Np}$ ターゲットの調製 .....	3
3.1.2 実 験 .....	4
3.1.3 結果と考察 .....	5
3.2 厚い $^{237}\text{Np}$ ターゲットの調製 .....	6
3.2.1 $^{237}\text{NpO}_2 - \text{Al}$ 混合ターゲット .....	6
3.2.2 $^{237}\text{NpO}_2$ 単一成分ターゲット .....	7
3.3 $^{237}\text{Pu}$ 製造実験 .....	8
3.3.1 実 験 .....	8
3.3.2 結果と考察 .....	9
4. $^{237}\text{Np} (r, n)$ 反応による $^{236}\text{Pu}$ の製造 .....	10
4.1 実 験 .....	10
4.2 結果と考察 .....	10
5. ま と め .....	12
参考文献 .....	13

## Content

1. Introduction .....	1
2. Chemical methods for production of $^{237}\text{Pu}$ and $^{236}\text{Pu}$ .....	1
2.1 Purification of $^{237}\text{Np}$ as a target material .....	1
2.2 Separation of Pu from irradiated $^{237}\text{Np}$ targets .....	2
3. Production of $^{237}\text{Pu}$ by the $^{237}\text{Np}(d,2n)$ reaction .....	3
3.1 Measurement of the $^{237}\text{Np}(d,xn)^{239-x}\text{Pu}$ excitation functions .....	3
3.1.1 Preparation of thin $^{237}\text{Np}$ targets .....	3
3.1.2 Experiment .....	4
3.1.3 Results and discussion .....	5
3.2 Preparation of thick $^{237}\text{Np}$ targets .....	6
3.2.1 $^{237}\text{NpO}_2\text{-Al}$ mixed target .....	6
3.2.2 $^{237}\text{NpO}_2$ target .....	7
3.3 Production of $^{237}\text{Pu}$ .....	8
3.3.1 Experiment .....	8
3.3.2 Results and discussion .....	9
4. Production of $^{236}\text{Pu}$ by the $^{237}\text{Np}(\gamma,n)$ reaction .....	10
4.1 Experiment .....	10
4.2 Results and discussion .....	10
5. Summary .....	12
References .....	13

## 1. 序 論

自然環境中における放射性核種の挙動に関する研究はますます重要になっている。なかでも長半減期のPu同位体は長期間に亘り潜在的毒性を有するため、関心が払われている。これらPu同位体の核的性質をTable. 1に示した。 $^{237}\text{Pu}$ はトレーサーとして適当な半減期45.6dを有し、かつ $\alpha$ 線に比較して測定が容易な59.6 KeVの $\gamma$ 線を放出するのでこの分野で広く使われている。

例えば生物体中での新陳代謝などの研究<sup>1)~13)</sup>、深海中における海底土と水中へのPuの分配比の測定<sup>14)</sup>などである。また、 $^{236}\text{Pu}$ は科学技術庁の環境放射能測定マニュアル「プルトニウムの分析法」の中でPu元素の化学分離効率を求めめるためのトレーサーとして指定されていることなどから利用頻度の多い核種である。我々はこれらの核種について国内における当面の需要を満たすため数100 KBq規模の製造を目的として研究開発及び製造試験を行った。

$^{237}\text{Pu}$ を生成するための核反応についてはTable. 2の右欄に示すような反応があるが、そのうちターゲットの取扱い易さ及び生成断面積が比較的大きいことから $^{237}\text{Np}(d, 2n)$ 反応を採用する事とした。この反応の励起関数についてはすでにVandenbosh<sup>15)</sup>の報告があるが、低エネルギー側のデータが不足している。そこで、反応の立ち上がり部分を含む重陽子エネルギー9~25 MeVの範囲で励起関数を測定して製造試験の基礎データとした。すなわち、励起関数を測定するための薄い $^{237}\text{Np}$ ターゲットの調製には電着法を用い、その際の最適条件を求めた。また、製造試験に用いる厚い $^{237}\text{Np}$ ターゲットの場合、数 $\mu\text{A}$ の重陽子照射に対して堅牢で、かつ重陽子の飛程に相当する厚さを有する必要があるため、加圧成型と焼結法により調製した。これらのターゲットを用いた実験とその結果を第3章で述べる。

$^{236}\text{Pu}$ については、Table. 2の左欄に示す生成反応を検討した。その結果、 $^{237}\text{Pu}$ の場合と同じ $^{237}\text{Np}$ ターゲットが使える事から $^{237}\text{Np}(r, n)$ 反応を採用し、数100 Bqの製造実験を行った。第4章にこの結果について述べる。

## 2. $^{237}\text{Pu}$ と $^{236}\text{Pu}$ 製造に共通な化学分離プロセス

### 2.1 $^{237}\text{Np}$ の精製

ターゲットの $^{237}\text{Np}$ は米国、ORNLから購入した $^{237}\text{NpO}_2$ を用いた。 $^{237}\text{Np}$ は再処理廃液から回収され、多くの場合Pu、U及びAmなどを含んでいる。従って、純粋な $^{237}\text{Pu}$ 、 $^{236}\text{Pu}$ を製造するためにはあらかじめ $^{237}\text{Np}$ を十分に精製する必要がある。我々が購入した $^{237}\text{Np}$ ターゲットの場合もU(5 ppm)、 $^{239}\text{Pu}$ (2.0 ppm)を含んでいるため、Fig. 1に示したイオン交換法<sup>16)</sup>により精製を行った。 $\text{NpO}_2$ (0.7 g)を14M硝酸10 mlに溶解、蒸発乾固のち12M塩



## 1. 序 論

自然環境中における放射性核種の挙動に関する研究はますます重要になっている。なかでも長半減期のPu同位体は長期間に亘り潜在的毒性を有するため、関心が払われている。これらPu同位体の核的性質をTable. 1に示した。 $^{237}\text{Pu}$ はトレーサーとして適当な半減期45.6dを有し、かつ $\alpha$ 線に比較して測定が容易な59.6 KeVの $\gamma$ 線を放出するのでこの分野で広く使われている。

例えば生物体中での新陳代謝などの研究<sup>1)~13)</sup>、深海中における海底土と水中へのPuの分配比の測定<sup>14)</sup>などである。また、 $^{236}\text{Pu}$ は科学技術庁の環境放射能測定マニュアル「プルトニウムの分析法」の中でPu元素の化学分離効率を求めるためのトレーサーとして指定されていることなどから利用頻度の多い核種である。我々はこれらの核種について国内における当面の需要を満たすため数100 KBq規模の製造を目的として研究開発及び製造試験を行った。

$^{237}\text{Pu}$ を生成するための核反応についてはTable. 2の右欄に示すような反応があるが、そのうちターゲットの取扱い易さ及び生成断面積が比較的大きいことから $^{237}\text{Np}(d, 2n)$ 反応を採用する事とした。この反応の励起関数についてはすでにVandenbosh<sup>15)</sup>の報告があるが、低エネルギー側のデータが不足している。そこで、反応の立ち上がり部分を含む重陽子エネルギー9~25 MeVの範囲で励起関数を測定して製造試験の基礎データとした。すなわち、励起関数を測定するための薄い $^{237}\text{Np}$ ターゲットの調製には電着法を用い、その際の最適条件を求めた。また、製造試験に用いる厚い $^{237}\text{Np}$ ターゲットの場合、数 $\mu\text{A}$ の重陽子照射に対して堅牢で、かつ重陽子の飛程に相当する厚さを有する必要があるため、加圧成型と焼結法により調製した。これらのターゲットを用いた実験とその結果を第3章で述べる。

$^{236}\text{Pu}$ については、Table. 2の左欄に示す生成反応を検討した。その結果、 $^{237}\text{Pu}$ の場合と同じ $^{237}\text{Np}$ ターゲットが使える事から $^{237}\text{Np}(r, n)$ 反応を採用し、数100 Bqの製造試験を行った。第4章にこの結果について述べる。

## 2. $^{237}\text{Pu}$ と $^{236}\text{Pu}$ 製造に共通な化学分離プロセス

### 2.1 $^{237}\text{Np}$ の精製

ターゲットの $^{237}\text{Np}$ は米国、ORNLから購入した $^{237}\text{NpO}_2$ を用いた。 $^{237}\text{Np}$ は再処理廃液から回収され、多くの場合Pu、U及びAmなどを含んでいる。従って、純粋な $^{237}\text{Pu}$ 、 $^{236}\text{Pu}$ を製造するためにはあらかじめ $^{237}\text{Np}$ を十分に精製する必要がある。我々が購入した $^{237}\text{Np}$ ターゲットの場合もU(5 ppm)、 $^{239}\text{Pu}$ (2.0 ppm)を含んでいるため、Fig. 1に示したイオン交換法<sup>16)</sup>により精製を行った。 $\text{NpO}_2$ (0.7 g)を14M硝酸10 mlに溶解、蒸発乾固のち12M塩

酸 5 ml で溶解し塩酸系とした。12M塩酸を蒸発させたのち、9 M塩酸-0.1 Mヨウ化水素酸20 mlで溶解、それぞれNp (IV)、Pu (III)、U (IV)に還元した。12 M塩酸で処理した陰イオン交換樹脂カラム (DIAION SA#100, 100~200 mesh, 25 ml)にNp (IV)、U (IV)を吸着させ、Pu (III)は9 M塩酸-0.1 Mヨウ化水素酸100 mlで溶離し、除去した。カラム内に残ったヨウ化水素酸を除去するため、12M塩酸50 mlで洗浄したのち、Np (IV)は4 M塩酸50 mlで、U (IV)は0.1 M塩酸50 mlでそれぞれ溶離した。このイオン交換分離を3回くりかえし、Npに対するPuの放射エネルギーが $^{239}\text{Pu}/^{237}\text{Np}=1 \times 10^{-7}$ 以下になるまで精製した。

精製した $^{237}\text{Np}$ は4 M塩酸溶液として保存し、使用の目的に応じた液性にして用いた。

## 2.2 照射 $^{237}\text{Np}$ ターゲットからのPuの分離

精製した $^{237}\text{Np}$ をターゲットとして、 $^{237}\text{Np} (d, xn)^{239-x}\text{Pu}$ 反応の励起関数の測定、 $^{237}\text{Np} (d, 2n)^{237}\text{Pu}$ の製造及び $^{237}\text{Np} (\gamma, n)^{236}\text{Pu}$ の製造を行ったが、これら照射後の $^{237}\text{Np}$ ターゲットからのPu、核分裂生成物の分離と $^{237}\text{Np}$ の回収はいずれの場合もイオン交換法<sup>16)</sup>により行った。その分離工程をFig. 2に示す。但し、 $^{237}\text{Np}$ の回収にあたっては照射した $^{237}\text{Np}$ ターゲットの重量により試薬量、イオン交換樹脂量はそれぞれ変更した。照射後の $^{237}\text{NpO}_2$ を14 M硝酸に溶解し、核分裂生成物の担体として少量の $\text{Nd}_2\text{O}_3$ と $\text{CsCl}$ を添加した。硝酸を蒸発したのち12 M塩酸で再溶解し塩酸系としてから、Puフラクションと $^{237}\text{Np}$ フラクションの分離までは2.1節で述べた $^{237}\text{Np}$ の精製と同様に行った。分離後のPuフラクションにはPuのほか核分裂生成物、ヨウ化水素酸及びターゲット調製法によってはAlが存在する。ヨウ化水素酸を除去するため、Puフラクションを一度蒸発乾固したのち14 M硝酸数mlで再溶解した。14 M硝酸による溶解、蒸発乾固を3回以上行い、ヨウ化水素酸の除去を確認したのち再び12 M塩酸約5 mlで溶解し塩酸系とした。液性を0.5 M塩酸溶液に調製したのち、Pu (III)をPu (IV)に還元するため0.1 M塩酸ヒドロキシルアミン10 mlを加え約12時間静置した。次に塩酸ヒドロキシルアミンを除去するためほとんど乾固するまで蒸発し、9 M塩酸-0.1 M硝酸溶液10 mlで溶解した。あらかじめ12 M塩酸で処理した陰イオン交換カラム (DIAION SA#100, 100/200 mesh, 5 ml)に充填し、Pu (IV)と核分裂生成物、Alを次のようにして分離した。まず、9 M塩酸-0.1 M硝酸20 ml及び12 M塩酸で洗浄することにより核分裂生成物とAlを除去した。カラムに吸着されたPu (IV)は4 M塩酸20 mlで一度溶離したのち、約20時間静置し、カラムに残ったPuを再度4 M塩酸20 mlで溶離した。硝酸プルトニウムの化学形で利用する場合には蒸発乾固ののち5 M硝酸に再溶解し、ろ過をしてPu製品とした。

### 3. $^{237}\text{Np}$ (d, 2n) 反応による $^{237}\text{Pu}$ の製造

#### 3.1 $^{237}\text{Np}$ (d, xn) $^{239-x}\text{Pu}$ 反応の励起関数測定

##### 3.1.1 薄い $^{237}\text{Np}$ ターゲットの調製

$^{237}\text{Np}$  (d, xn)  $^{239-x}\text{Pu}$  反応の励起関数測定に必要な薄い  $^{237}\text{Np}$  ターゲットの調製を行った。調製には電着法を用い、電着量が約  $500 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  程度になる電着条件を実験的に求めた。電着法による薄い  $^{237}\text{Np}$  ターゲットの調製方法を、3.2 節で述べる厚い  $^{237}\text{Np}$  ターゲットの調製方法とともに Fig. 3 に示す。

##### (1) $^{237}\text{Np}$ 試料の調製

$^{237}\text{Np}$  は、2.1 で精製した  $^{237}\text{Np}$  溶液の一部を採取し、蒸発乾固のうち 0.1 M 塩酸で  $^{237}\text{Np}$  濃度を各々  $13 \text{ mg}/\text{ml}$ ,  $20 \text{ mg}/\text{ml}$ , 及び  $40 \text{ mg}/\text{ml}$  に調製した。これらの試料は調製の都度、その一定量を試料皿に採取し、乾固して  $\alpha$  放射能測定用と  $\gamma$  放射能測定用の試料を作製した。

##### (2) 電着セルとパッキング材

実験に用いた電着セルを Fig. 4 に示す。電着セルは硬質ガラス製の二重管とし、外管部を冷却することにより電着時の溶液温度がほぼ一定になるようにした。電着面積は  $1.76 \text{ cm}^2$  (直径  $1.5 \text{ cm}$ ) で、陽極には  $1 \text{ mm} \phi$  の白金線を用い、陰極側のパッキング材には厚さ  $20 \mu\text{m}$  の Al 箔を用いた。パッキング材はあらかじめ次のような液体トリクロロエチレン、アセトン、水、7 M 硝酸、水、アセトンの中にこの順序で浸し超音波洗浄を行って脱脂、乾燥したのち秤量した。

##### (3) 電着

電着条件を求めるため印加電圧、電極間隔及び電着時間について予備的な実験を行った。その結果、この電着セルを用いた場合、印加電圧  $700 \text{ V}$ 、電極間隔  $18 \text{ mm}$ 、及び電着時間 5 分程度であれば比較的良好な電着試料が調製可能であることが判明した。したがって、これらの条件を一定にして電解溶液の  $^{237}\text{Np}$  濃度を変えることにより電着量を調整した。 $^{237}\text{Np}$  濃度の調製は、 $5 \text{ ml}$  のイソプロピールアルコールに各濃度の  $^{237}\text{Np}$  試料溶液を  $10 \sim 60 \mu\text{l}$ 、水を  $20 \sim 40 \mu\text{l}$  の範囲で混合することにより行った。電着完了の判定は電解溶液の黄色が消失して透明になり、 $^{237}\text{Np}$  のほとんどが電着面に移ったことを目視するとともに電流密度が一定になった時点とした。電着完了後の電解溶液を試料皿に回収、乾燥し  $^{237}\text{Np}$  の測定を行い電着収率を求めた。電着収率はほとんどの場合 95% 以上であった。 $^{237}\text{Np}$  電着試料は赤外線ランプで乾燥後、電気炉で  $500 \text{ }^\circ\text{C}$ 、15 分間仮焼した。照射可能なターゲットとしての評価は仮焼後にスミヤ法による  $\alpha$  線測定を行い剥離の程度で判断した。

電着実験においては電解質濃度と電流密度、電解時間と電流密度の変化を調べ電着量との関係を考察した。代表的な電解質濃度での電流密度の変化を Fig. 5 に示す。電着の良否と量は陰極である Al パッキング表面の酸化膜の存在によって大きく影響されると考えられる。非水

系では酸化膜の完全な除去が不可能であるためほとんど電着されない。このため少量の水を加え、水の電解により酸化膜を除去し、同時に  $^{237}\text{Np}$  が金属 Al 表面で  $\text{Np}^+ + \text{e}^-$  反応により電着するようにした。水の量は電着量に応じて、20～40  $\mu\text{l}$  の範囲で加え電解質濃度を調整した。その結果、 $^{237}\text{Np}$  の電着量 220～450  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$  では電流密度 6～11  $\text{mA}/\text{cm}^2$ 、450～680  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$  で 10～16  $\text{mA}/\text{cm}^2$ 、及び 680～1360  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$  では 15～22  $\text{mA}/\text{cm}^2$  の電流密度を得ることにより仮焼後でも剥離の生じない電着が可能であった。しかしながら、1360  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$  以上の実験では電着表面の厚さが不均一になり、仮焼後の表面は剥離する傾向が目立った。

#### (4) 電着量と厚さの測定

##### (i) 電着量の測定

Al バッキングに電着された  $^{237}\text{Np}$  の量は重量法で秤量するとともに、 $^{237}\text{Np}$  の放出する 86.5 KeV の  $\gamma$  線 (分岐比 0.126) 強度測定により定量した。測定は Coaxial 型 Ge (Li) 検出器と ORTEC 製 MCA 7800 型を用いて行い、検出器の計数効率を標準線源  $^{109}\text{Cd}$ ,  $^{139}\text{Ce}$ ,  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{241}\text{Am}$  (以上, LMRI 製)  $^{133}\text{Ba}$  (TRC 製) により校正した。

##### (ii) 厚さの均一性

電着量 680  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$  のターゲットについて、 $^{237}\text{Np}$  の放出する  $\alpha$  線 (4.77 MeV) の強度分布を測定し電着体の厚さの均一性を検討した。 $^{237}\text{Np}$  の酸化物中での 4.77 MeV  $\alpha$  線の飛程は 10  $\text{mg}/\text{cm}^2$  以上あるので吸収による減衰は少く、スリットを通して検出した  $\alpha$  線の強度分布はほぼ正確に厚さの分布を示すと考えられる。このことから  $\alpha$  線の強度分布は次の 2 つの方法で測定した。一つは、直径 2 mm の穴をあけたセルロイドを  $\alpha$  線サーベイメータに取付け、この穴をターゲットの中心線に添って移動、測定する方法である。他方は、 $\alpha$  線用トラック検出器 CR 30 をターゲットに接触させ、ターゲット直上の 0.4×0.6 mm の四角形の中にできたトラック数を計数する方法である。いずれの方法もほぼ同様の傾向を示したがサーベイメータによる方法は誤差が大きいためトラック検出法の方が適当である。トラック検出法による  $\alpha$  線計数率の平均値からのずれを Fig. 6 に示す。ターゲットの中央部分が薄く、周辺部が厚い傾向が見られるが、ビームが照射される中央部分で  $\pm 3\%$  以内であり励起関数測定においては無視し得る不均一度と判断した。

### 3.1.2 実 験

#### (1) 重陽子線照射

$^{237}\text{Np}$  ( $\text{d}, \text{x n}$ )  $^{239-x}\text{Pu}$  反応の励起関数を測定するため、3.1.1 項で調製した薄い  $^{237}\text{Np}$  ターゲットと Al 箔 ( $\sim 55 \text{mg}/\text{cm}^2$ ) を交互に並べたスタックターゲットを使用した。Al 箔は重陽子エネルギーを減衰させるためのもので、これにより一回の照射で複数のエネルギー値に対して核反応断面積を測定できる。照射には原研、タンデム型加速器を用い、2 組のスタックターゲットを照射した。1 組は 18 MeV で 10 時間 (ビーム電流 0.5  $\mu\text{A}$ )、もう 1 組は 25 MeV で 11 時間 (ビーム電流 1.0  $\mu\text{A}$ ) の重陽子照射を行った。25 MeV で照射したスタックターゲットの構成と入射エネルギーを Fig. 7 に示す。Al 箔及び  $^{237}\text{NpO}_2$  中での重陽子エネルギー損

失は計算コード「OSCAR」<sup>17)</sup>により算出した。

## (2) Pu の分離と測定

照射1ヶ月後、スタックターゲットを解体し、試料8ヶそれぞれについて2.2で述べた方法によりPuの分離を行った。化学分離を行う前にターゲット中の<sup>237</sup>Puを定量した。また、分離工程毎のPuフラクションの収率を求めた。 $\alpha$ と $\gamma$ の放射能測定試料は各工程で採取し、 $\alpha$ 線測定試料の場合はステンレス製円盤(25mm $\phi$ )に高周波加熱法で均一に焼付けた。また、 $\gamma$ 線測定試料の場合は酢酸ビニール膜に滴下、乾燥し表面をスコッチテープでマスキングした。 $\alpha$ 線の測定にはORTEC社製、表面障壁型Si検出器を用い、 $\gamma$ 線の測定には同社製、低エネルギー光子検出用Ge(Li)半導体検出器(LEPS)を用いた。両検出器にそれぞれ同社製の波高分析器MCA 7800型を用いてそれぞれのスペクトルを測定した。また、各検出器の計数効率はあらかじめ標準線源で校正した。分離後の各Puフラクションにつき<sup>236</sup>Puと<sup>238</sup>Puの値は $\alpha$ 線測定によって求め、<sup>237</sup>Puの値は $\gamma$ 線測定によって求めた。また、ターゲット中には<sup>237</sup>Np(n, p)反応により<sup>237</sup>Uが生成する可能性があり<sup>237</sup>Puと同一の59.5 KeVの $\gamma$ 線を放出する。そこで<sup>237</sup>Uが放出する20.8 KeVの $\gamma$ 線を計測して<sup>237</sup>Puと<sup>237</sup>Uとを区別した。

### 3.1.3 結果と考察

<sup>237</sup>Np(d, xn)<sup>239-x</sup>Pu反応の<sup>236</sup>Pu, <sup>237</sup>Pu, 及び<sup>238</sup>Puの励起関数の測定結果をFig. 8に示す。9.4 MeV以下の重陽子エネルギーで照射したターゲット中にはPu同位体は検出されず、いずれの反応もクーロン障壁エネルギー(~12 MeV)より2 MeV程度低い10 MeV附近から起っている。各反応の断面積は重陽子エネルギーの増加と共に最大値に達した後、ゆるやかに減少する、いわゆる直接反応機構に特有な形を示している。なお<sup>238</sup>Puの励起関数曲線は、<sup>238</sup>Puの $\alpha$ 計数値が極めて少なかったため誤差の大きいものとなった。<sup>237</sup>Puを生ずる(d, 2n)反応の断面積は、重陽子エネルギー14~23 MeVの範囲ではVandenbosch<sup>15)</sup>が報告している値の3分の2程度である。同報文には断面積が記載されているだけで、それを求めた実験の詳細がわからないので本報との不一致が何に起因するのか不明である。

この励起関数と、<sup>237</sup>NpO<sub>2</sub>ターゲット中での重陽子の飛程を用いてPu同位体のThick target yieldを計算した結果をFig. 9に示す。励起関数の形から予想できるとおり、入射エネルギーの増加とともにThick target yieldも急激に増加している。<sup>236</sup>Puと<sup>238</sup>Puの混合の割合は重陽子エネルギー25 MeVまではエネルギーが高くなるほど増加する。<sup>236</sup>Puと<sup>238</sup>Puの混合割合を抑制し、<sup>237</sup>Puの生成量を得るためには重陽子エネルギー20 MeV以下で照射することが適当であると考えられる。

<sup>237</sup>PuのThick target yieldと生成放射能比 $\frac{{}^{236}\text{Pu} + {}^{238}\text{Pu}}{{}^{237}\text{Pu}}$ を他の反応系である<sup>235</sup>U( $\alpha$ , 2n)<sup>18)</sup>, <sup>238</sup>U(<sup>3</sup>He, 4n)<sup>19)-21)</sup>と比較してTable. 3に示す。

<sup>237</sup>Puの生成量の点では<sup>237</sup>Np(d, 2n)反応が最も有利であるが放射性核種の純度では不利であることが明らかになった。この反応系の場合、<sup>236</sup>Puは<sup>237</sup>Np(d, 3n)<sup>236</sup>Puと、<sup>237</sup>Np(d, p2n)<sup>236</sup>Np  $\xrightarrow[22.5\text{h}]{\beta^-(50\%)}$  <sup>236</sup>Puとの2つの系で生成する。同様に<sup>238</sup>Puも<sup>237</sup>Np(d, n)

$^{238}\text{Pu}$  と,  $^{237}\text{Np}$  (d, p)  $^{238}\text{Np} \xrightarrow[50.8\text{ h}]{\beta^- (100\%)} ^{238}\text{Pu}$  との系で各々生成する。一般に, 重陽子で引き起こされる核反応では, 陽子を放出する確率が高いことが知られている。この反応系についても (d, p) 及び (d, p 2n) 反応の断面積がVandenboschにより測定されており<sup>15)</sup>それによると, 本実験で測定した  $^{238}\text{Pu}$  生成量の大部分と,  $^{236}\text{Pu}$  生成量の約2分の1は陽子放出反応を経由していることになる。従って,  $^{236}\text{Np}$  と,  $^{238}\text{Np}$  が各々  $^{236}\text{Pu}$ ,  $^{238}\text{Pu}$  に崩壊し終わらない, 照射後できるだけ早い時点でターゲットからPuの分離を行うことにより  $^{236}\text{Pu}$  と  $^{238}\text{Pu}$  の混入率を数10%減らすことが可能である。

### 3.2 厚い $^{237}\text{Np}$ ターゲットの調製

#### 3.2.1 $^{237}\text{NpO}_2$ -Al 混合ターゲット

$^{237}\text{NpO}_2$  に対する重陽子の飛程を計算コード「OSCAR」を用いて算出した。 $^{237}\text{NpO}_2$  のみに対する飛程及び  $^{237}\text{NpO}_2$  に Al を 30%, 50% 混合した場合の飛程を Fig.10 に示す。厚いターゲットの調製にあたっては, 照射ビームの直径が約 5 mm φ であるためターゲットの直径を 15 mm φ と定めた。2.1 で精製した  $^{237}\text{NpO}_2$ , 0.7 g をペレットに成型した場合, その飛程は 400 mg/cm<sup>2</sup> で, 重陽子エネルギー 15.5 MeV に対応する。しかしながら, ペレットの厚さは 0.7 ~ 0.8 mm 程度で, このような極めて薄いペレットを成型, 焼結する際に取扱上の困難が予想された。そこで  $^{237}\text{NpO}_2$  0.7 g に最少限の Al 粉末を混合したターゲットの調製を行うべく予備実験を行った。実験では  $^{237}\text{NpO}_2$  の代わりに, U, Pu と化学的, 物理的性質が似ていて混合酸化物燃料の製造でも模擬試験に用いられている  $\text{CeO}_2$  (比重: 7.3 g/cm<sup>3</sup>, 融点: 1950 °C) を用い, これに Al を混合して模擬物質とした。

$\text{CeO}_2$  (200 mesh) と Al 粉末を各々 0 ~ 100% の範囲で混合し, いずれの場合も合計重量は 1 g とした。また, 混合時には粉末飛散防止のため数滴のエチルアルコールを添加した。成型圧はあらかじめの 0.7 ~ 2.4 ton/cm<sup>2</sup> で試験を行い, 2.1 ton/cm<sup>2</sup> でペレットの成型を行った。つづいて He 気流中で Al の融点 (660 °C) まで昇温して焼結し, 放冷した。混合率と焼結前後の硬度を Fig. 11 に示す。硬度測定には定圧荷重硬度計を用いた。ここで硬度 100 の場合は試験体がペレットの形状をとどめているものの硬度計の針先が試験体に接触すると同時に割れる程度の硬さに相当し, 硬度 25 では鉛板, 硬度 5 では 1 円硬貨に相当する。模擬物質を用いた予備実験の結果,  $^{237}\text{NpO}_2$  に Al 粉末を 10 ~ 30% 程度混合し, 2.1 ~ 2.4 ton/cm<sup>2</sup> で成型後, He 気流中で Al の融点相当に加熱する方法で, 厚い  $^{237}\text{NpO}_2$ -Al 混合ターゲットを調製することとした。ターゲット調製の各工程は次のとおりである (Fig. 3)。

**硝酸塩変換:** 2.1 節で述べた方法により精製した Np (IV) 4 M 塩酸溶液 50 ml を濃縮, 蒸発乾固したのち, 14 M 硝酸約 5 ml で溶解, 蒸発乾固を 3 回行い, 最終的に 4 M 硝酸 4 ml で再溶解し  $^{237}\text{Np}(\text{NO}_3)_4$  とした。これを白金ルツボに移して再び蒸発乾固した。乾固物の重量は 1.2 g で潮解性であった。

**酸化:** 乾固した  $^{237}\text{Np}(\text{NO}_3)_4$  を白金ルツボに入れたまま小型電気炉内で加熱, 酸化した。

加熱温度は段階的に昇温し、800°Cで1時間加熱のち徐々に降温した。90°Cで水分の蒸発、270°Cで窒素酸化物の黄褐色の気体発生が始まり約400°Cまで続いた。酸化後の $^{237}\text{NpO}_2$ の重量は0.7gで、緑色を基調に一部黄褐色の混っている粉体であった。

**$^{237}\text{NpO}_2$ とAl粉末混合：** $^{237}\text{NpO}_2$ とAl粉末の混合操作にはビニール製簡易グローブボックスを用いた。白金ルツボ内の $^{237}\text{NpO}_2$ (0.7g)をメノウ乳ばちに移し、Al粉末(0.3g)を加えたのち数滴のエチルアルコールを加え注意深く均一に混合した。

**ペレット成型：** $^{237}\text{NpO}_2$ とAl粉末の混合物を金型に移し、金型全体をビニールシートで密封した状態で2.1ton/cm<sup>2</sup>で加圧成型した。成型後のペレットは直径15mm、厚さ約1.5mm以下、表面は黄黒色で割れ及び欠損などは見られなかった。成型後の $^{237}\text{NpO}_2$ -Al混合ターゲットをPhoto. 1に示す。

**焼結：**成型したターゲットをステンレス皿(30mmφ)に入れ、円筒ロート状の石英管(内径4cm、長さ25cm)内に挿入したのち、全体を開閉式管状電気炉内に置いた。石英管の一方からHeガスを導入(0.5ℓ/min)し、他端は排気側としてフィルターに接続した。焼結の温度は段階的に660°Cまで昇温したのち徐々に放冷した。焼結後のターゲット表面は灰黒色で、中央部分にアルコール脱気時に発生したと思われる小さな亀裂が観察されたが使用上、特に支障の生ずるものではなかった。

以上の方法で調製したターゲット全体の重量は0.99g、混合比は $^{237}\text{NpO}_2$  70%、Al 30%であった。このターゲットにつきFig. 10に示したように重陽子の飛程を算出した。照射エネルギー20MeVの場合、 $^{237}\text{NpO}_2$ に対する飛程は620mg/cm<sup>2</sup>であるが、 $^{237}\text{NpO}_2$ -Al 30%混合ターゲットに対する飛程は約500mg/cm<sup>2</sup>である。今、このターゲット中に占める $^{237}\text{NpO}_2$ は約400mg/cm<sup>2</sup>で、20MeVの重陽子がこのターゲットで損失するエネルギーは17.6MeVである。それゆえ、残留エネルギーは2.4MeVとなる。一方、 $^{237}\text{Np}(d, 2n)$ 反応におけるしきい値は3.3MeVと算出されることから、残留エネルギー2.4MeVによる $^{237}\text{Pu}$ 生成反応は起らないことになる。従って、このターゲットはThick targetとみなすことができる。

ターゲット組成による重陽エネルギーとThick target yieldの計算結果をFig. 12に示す。重陽子エネルギー20MeVの照射による、このターゲットのThick target yieldは約20KBq/μAhと推定した。このターゲットは1回目の $^{237}\text{Pu}$ 製造実験に用いた。

### 3.2.2 $^{237}\text{NpO}_2$ 単一成分ターゲット

$^{237}\text{NpO}_2$ -Al混合ターゲットによる $^{237}\text{Pu}$ 製造の場合、適切な混合比でなければThick targetとなり得ず、収量の低下はもとより、実験結果を評価する上でも不正確なものとなる。また、照射時にはAlの融解も含めてターゲットの健全性に留意せざるを得ず、化学分離においても多量のAlを除去する必要があり必ずしも適当でない。このため $^{237}\text{NpO}_2$ のみによる厚いターゲットの調製を行うこととした。

$^{237}\text{NpO}_2$ (ORNL製)1.5gを新たに購入し、 $^{237}\text{NpO}_2$ -Al混合ターゲットから分離回収した $^{237}\text{NpO}_2$ 、約0.5gを加えて2.1節で述べた方法により精製した。 $^{237}\text{NpO}_2$ 単一成分ターゲット

ト調製法をFig. 3に示した。Al 粉の混合操作を除いて  $^{237}\text{NpO}_2\text{-Al}$  混合ターゲットの調製法とはほぼ同様である。焼結は空気雰囲気中で  $800^\circ\text{C}$  下で行った。(3.3.1項に後述するように焼結温度は照射後のターゲットの溶解に影響する。このためこの後に実施した  $^{237}\text{Pu}$  製造時のターゲットについては焼結温度を  $600^\circ\text{C}$  とした。)  $^{237}\text{NpO}_2$  単一成分ターゲットは直径 15mm, 厚さ約 2mm, 重量 1.89g で表面は黄土色でセラミック状の光沢を有していた。ターゲットの厚さは  $1070\text{ mg/cm}^2$  であり, Fig. 10 より得られる重陽子エネルギー 24 MeV に対する飛程  $830\text{ mg/cm}^2$  よりも十分に厚いターゲットであった。照射した重陽子エネルギー 24 MeV に対する Thick target yield はFig.12 から約  $50\text{ KBq}/\mu\text{Ah}$  と推定した。このターゲットは2回目の  $^{237}\text{Pu}$  製造実験に用いた。

### 3.3 $^{237}\text{Pu}$ 製造実験

#### 3.3.1 実験

##### (1) 重陽子線照射

3.2節で調製した厚い  $^{237}\text{NpO}_2$  ターゲットを用いて  $^{237}\text{Pu}$  製造実験を行った。重陽子線照射には原研, タンデム型加速器を用いた。各ターゲットはAl箔 ( $100\ \mu\text{m}$ ) で包み, 専用の照射ホルダーに取付けて真空中で照射した。各々の照射条件は次のとおりであった。

	$^{237}\text{NpO}_2\text{-Al}$ 混合ターゲット	$^{237}\text{NpO}_2$ 単一成分 ターゲット
重陽子エネルギー ( MeV )	20.3	24
照射時間 ( h )	8	17
全照射量 ( c )	$1.15 \times 10^{-2}$	$1.76 \times 10^{-2}$
( $\mu\text{Ah}$ )	3.2	4.9

照射後のターゲットは短寿命核分裂生成物を減衰させるため各々, 約2週間冷却したのち化学分離を行った。

##### (2) $^{237}\text{NpO}_2\text{-Al}$ 混合ターゲットの分離と測定

照射した  $^{237}\text{NpO}_2\text{-Al}$  混合ターゲットからの Pu の分離は2.2節で述べた方法により行った。 $^{237}\text{NpO}_2$  の量は2.1の精製の場合と同じであるため試薬量, 陰イオン交換カラムの容量はほぼ同様に行った。照射後のターゲット表面は, ビーム照射された部分に限ってAl箔とターゲットが癒着しており, 照射中のターゲット温度がAlの融点近くまで達したものと推定された。また, 照射前に比べてターゲット全体がもろくなっていたが, Alの偏析などは観察されなかった。分離操作においてAlの存在は特に障害とならず, Alは核分裂生成物と同じフラクションに回収した。各フラクションの  $\alpha$ ,  $\gamma$  放射能測定試料の調製とその測定は3.1.2項の(2)の場合と同様に行った。

##### (3) $^{237}\text{NpO}_2$ 単一成分ターゲットの分離と測定

照射した  $^{237}\text{NpO}_2$  単一成分ターゲットからの Pu の分離は2.2節でのべた方法により行った。



$^{237}\text{NpO}_2$ の量が約1.9 gと多いため、これに応じた試薬量を用いるとともに、陰イオン交換樹脂量も精製時の約1.5倍とした。放射能測定試料の調製とその測定は3.1.2項の(2)の場合と同様に行った。照射後のターゲット表面は、ビーム照射された部分を中心に放射状のクラックが入り、照射中の除熱が不十分であったと思われる。14M硝酸によるターゲットの溶解は極めて困難であったが、過酸化水素水を添加しながら還流溶解した。溶解には約8時間を要したが、この原因はターゲット焼結時の温度(800°C)が高く、セラミックス状になったためと考えられる。

この製造実験で回収した $^{237}\text{Pu}$ は利用者の要望により、0.5M塩酸溶液1.0 mlに調製して供給した。

### 3.3.2 結果と考察

#### (1) $^{237}\text{NpO}_2$ -Al 混合ターゲットによる製造実験

製造実験の結果をTable. 4に示す。表中の計算値はFig.9のThick target yieldから求めた。 $^{237}\text{Pu}$ について、計算値(96 KBq)と実験値( $82 \pm 11$  KBq)は誤差内で一致していない。実験値の誤差は放射能測定と化学分離工程で見積られたもののみで、重陽子の電流値の誤差など照射に関する部分は考慮されていない。また、計算値はターゲット中で $^{237}\text{NpO}_2$ とAl粉末が均一に混合していることを前提に求めた値であるが、完全な均一混合を保證することは困難である。これらのことを考慮すれば実験値と計算値とのずれは合理的な範囲内にあると考えられる。この製造実験における $^{237}\text{Pu}$ の生成量はEOBで $82 \pm 11$  KBq、化学収率は81%であった。不純物として、 $\alpha$ 核種では $^{236}\text{Pu}$ 、 $^{238}\text{Pu}$ が各々7.8%、1.8%、 $\gamma$ 核種では $^{95}\text{Zr}$ が0.05%程度含まれていた。従って、 $^{237}\text{Pu}$ の $\gamma$ 放射性核種の純度は99.9%以上であった。

#### (2) $^{237}\text{NpO}_2$ 単一成分ターゲットによる製造実験

製造実験の結果をTable. 4に示した。その結果、 $^{237}\text{Pu}$ の生成量ではFig. 9から求めた計算値(245 KBq)と実験値( $265 \pm 21$  KBq)は誤差の範囲内で一致した。 $^{236}\text{Pu}$ と $^{238}\text{Pu}$ の計算値と実験値は各々、誤差内で一致していないが3.1.3項でのべた $^{238}\text{Pu}$ の励起関数の誤差、各々の生成反応機構が複雑に重複することを考慮すれば、双方の値はほぼ妥当なものと評価した。

この実験における化学収率は75.3%であった。不純物として $\alpha$ 核種では $^{236}\text{Pu}$ 、 $^{238}\text{Pu}$ が各々8.4%、4.2%、 $\gamma$ 核種では $^{95}\text{Zr}$ が0.09%程度含まれていた。 $^{237}\text{Pu}$ の $\gamma$ 放射性核種の純度は99.9%以上であった。

## 4. $^{237}\text{Np}(\gamma, n)$ 反応による $^{236}\text{Pu}$ の製造

### 4.1 実験

#### (1) ターゲット調製

2.1 節で述べた方法で精製した  $^{237}\text{Np}$  原液の一部を採取し、液性を 4 M 硝酸溶液に変換したのち  $^{237}\text{Np}$  7.5 mg に相当する量を石英アンブル（外径 4 mm，内径 3 mm）に分取した。注意深く蒸発乾固したのち、電気炉で加熱して  $^{237}\text{Np}(\text{NO}_3)_4$  を  $^{237}\text{NpO}_2$  に変換し、石英アンブルに封入した。照射には同一試料を 2 ケ調製し、専用の照射容器（A1 製，外径 15 mm，内径 13 mm，長さ 45 mm）に密封し、照射試料とした。

#### (2) 制動放射線照射

$^{237}\text{Np}(\gamma, n)^{236}\text{Pu}$  製造の試料の照射には、原研の電子直線加速器を用い、電子入射エネルギー 55 MeV，平均電流 9  $\mu\text{A}$  で 8.5 時間照射した。 $^{237}\text{Np}$  試料の照射に先立ち、照射位置における  $\gamma$  線、中性子線の線束密度と各々の強度分布を求めるため同一照射条件で金箔（13 mm  $\phi$ ，20  $\mu\text{m}$ ）を 1 時間照射した。照射後、 $^{197}\text{Au}(\gamma, n)$  による  $^{196}\text{Au}$  ( $T_{1/2} : 6.2 \text{ d}$ )， $^{197}\text{Au}(\gamma, 2n)$  による  $^{195}\text{Au}$  ( $T_{1/2} : 183 \text{ d}$ ) 及び  $^{197}\text{Au}(n, \gamma)$  による  $^{198}\text{Au}$  ( $T_{1/2} : 2.7 \text{ d}$ ) を各々測定した。 $^{237}\text{Np}$  照射試料は、 $^{237}\text{Np}(\gamma, n)$  反応で生成した  $^{236}\text{Np}$  ( $T_{1/2} : 22 \text{ h}$ ) が  $\beta^-$  崩壊によって  $^{236}\text{Pu}$  に壊変し、かつ  $^{237}\text{Np}(\gamma, f)$  反応による核分裂生成物の放射能を減少させるため約 30 日間冷却した。

#### (3) Pu の分離と測定

照射後の試料は 2.2 節で述べた方法により Pu の分離を行った。イオン交換樹脂による  $^{236}\text{Pu}$  の分離効率及び核分裂生成物の除染係数を求めるため各フラクションの  $\alpha$ ， $\gamma$  放射能測定試料を採取した。測定試料の調製及び測定は 3.1.2 項の(2)で述べた方法と同様に行った。

### 4.2 結果と考察

$^{237}\text{Np}$  ターゲットの照射位置における  $\gamma$  線と中性子線の強度分布は、同一条件で照射した金箔（13 mm  $\phi$ ）を 2  $\times$  2 mm 片の格子状に切断し、各片の  $^{196}\text{Au}$ ， $^{198}\text{Au}$  を定量したのち等高曲線を作成して求めた。その結果、 $\gamma$  線の照射位置はターゲットの中心から 5 mm 程ずれていたことが確認された。このため  $^{236}\text{Pu}$  製造に使用した  $^{237}\text{NpO}_2$  ターゲットに照射された実際の  $\gamma$  線強度を正確に把握することは困難であった。そこで、金箔全体に生成している  $^{196}\text{Au}$  の放射エネルギーから平均の  $\gamma$  線束密度  $\bar{\phi}_\gamma$  を求め、この照射による  $^{236}\text{Pu}$  の生成放射エネルギーを推定した。すなわち、 $R(\gamma, n)$  反応における次の近似式を用いた。

$$R(\gamma, n) \approx \bar{\phi}_\gamma \sigma_{\text{int}}(\gamma, n)$$

ここで  $\sigma_{\text{int}}$  は  $(\gamma, n)$  反応の励起関数  $\sigma(E)$  を用いて  $\sigma_{\text{int}} = \int_{E_{\text{th}}}^{E_{\text{max}}} \sigma(E) dE$  で表わされる。  $E_{\text{th}}$  はこの反応のしきい値エネルギー、  $E_{\text{max}}$  は制動放射線の最大エネルギーである。この結果、  $^{197}\text{Au}(\gamma, n)$  反応の  $\sigma_{\text{int}}(E) = 2190 \text{ mb}^{22)}$  によって求めた  $\bar{\phi}_\gamma$  は  $9.1 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1} \text{ MeV}^{-1}$  で、この  $\bar{\phi}_\gamma$  と  $^{237}\text{Np}(\gamma, n)$  反応の  $\sigma_{\text{int}}(\gamma, n) = 1085 \text{ mb}^{22)}$  から算出した  $^{236}\text{Pu}$  の生成放射エネルギーは EOB で 211 Bq であった。

照射試料を化学分離し、回収した  $^{236}\text{Pu}$  は EOB で 562 Bq、化学収率は 91.5% であった。それ故、分離前のターゲットに生成していた  $^{236}\text{Pu}$  は EOB で 614 Bq で、この値は事前に行った計算値に比べ約 3 倍であった。この相違は、金箔全体の放射エネルギーから求めた  $\bar{\phi}_\gamma$  の値は、実際の照射ターゲットの照射条件と必ずしも一致していないためであると考えられる。

精製回収した  $^{236}\text{Pu}$  の  $\alpha$  線スペクトラムを Fig. 13 に示す。  $^{236}\text{Pu}$  以外の  $\alpha$  核種は検出されず、  $^{238}\text{Pu}/^{236}\text{Pu}$  の放射能比は検出限界の  $1 \times 10^{-4}$  以下であった。  $^{236}\text{Pu}$  をトレーサーとして用いる場合、一試料あたりの使用量は数 Bq 程度であるため放射性核種の純度は重要であるが、ここで得られた  $^{236}\text{Pu}$  は量、純度ともに適当なものであった。

## 5. ま と め

環境におけるPuの分布、あるいは生物系におけるPuの挙動を研究するため、トレーサーとして用いられる $^{236}\text{Pu}$ と $^{237}\text{Pu}$ の製造試験を行った。

いずれも $^{237}\text{Np}$ をターゲットとし、 $^{237}\text{Pu}$ の生成には $^{237}\text{Np}(d, 2n)$ 反応を利用した。最初に電着法で調製した薄いターゲットを用いてこの反応の励起関数を測定した。照射には原研、タンデム加速器を用い、重陽子エネルギー25 MeVまでの範囲で照射したのち陰イオン交換樹脂を用いてPuを分離、測定し、 $^{237}\text{Np}(d, xn)^{239-x}\text{Pu}$ 反応で生成する $^{236}\text{Pu}$ 、 $^{237}\text{Pu}$ 及び $^{238}\text{Pu}$ の励起関数を測定した。その結果、これらの反応は10 MeV付近から起こり始め、各反応の断面積は重陽子エネルギーの増加と共に最大値に達するいわゆる直接反応に特有な形を示した。また、この反応は $^{237}\text{Pu}$ の生成量が他の反応系に比較して有利であるものの $^{236}\text{Pu}$ 、 $^{238}\text{Pu}$ の混入は不可避で純度的に不利であることが判った。次に、 $^{237}\text{NpO}_2$ による厚いターゲットの調製を検討した。 $^{237}\text{NpO}_2$ (0.7 g)にAl粉末(0.3 g)を混合し、加圧成型ののち焼結した $^{237}\text{NpO}_2$ -Al混合ターゲットと、 $^{237}\text{NpO}_2$ 単一成分ターゲット(1.9 g)を調製した。いずれのターゲットもタンデム加速器で重陽子照射を行い、Puを分離、回収した。その結果、EOBにおける $^{237}\text{Pu}$ の生成量は $^{237}\text{NpO}_2$ -Al混合ターゲットで $82 \pm 11$  KBq、 $^{237}\text{NpO}_2$ 単一成分ターゲットで $265 \pm 21$  KBqであった。この値は、励起関数から求めた各々のThick target yield 96 KBq、245 KBqとほぼ一致した。

一方、 $^{236}\text{Pu}$ の生成には $^{237}\text{Np}(\gamma, n)^{236}\text{Np}(\beta^-)^{236}\text{Pu}$ 反応を利用した。精製した $^{237}\text{Np}$ ターゲット約7.5 mgを石英アンプルに封入し、電子直線加速器で入射エネルギー55 MeV、平均電流9  $\mu\text{A}$ で8.5時間照射したのち、陰イオン交換樹脂を用いて $^{236}\text{Pu}$ を分離、回収した。その結果、EOBにおける $^{236}\text{Pu}$ の生成量は614 Bq、化学収率は91.5%であった。製品中には $^{236}\text{Pu}$ 以外の $\alpha$ 核種は検出されず、 $^{238}\text{Pu}/^{236}\text{Pu}$ の放射能比は検出限界以下であった。

今後、Puの分布、挙動に関する研究がより広範に進められる中で、 $^{236}\text{Pu}$ と $^{237}\text{Pu}$ のトレーサー利用は必然的に増加することが予想される。特に $^{237}\text{Pu}$ はEC壊変核種で $\alpha$ 壊変の分岐比は0.002%<sup>23)</sup>と極めて少ないことから、高純度の $^{237}\text{Pu}$ トレーサーを調製すれば人体に投与して代謝系を調べることもできるのではないかと思われる。従って、 $^{236}\text{Pu}$ 、 $^{238}\text{Pu}$ 等の $\alpha$ 放射性核種を含まない純度の高い $^{237}\text{Pu}$ の製造を検討することは意義あるものと考えられる。

## 参 考 文 献

- 1) R. Todd and R. Logan, *Int. J. Appl. Radiat. Isotop.* 19, 141 (1968).
- 2) R. Fukai, IAEA-163, p.90 (1974).
- 3) R. Todd and R. Logan, *Int. J. Appl. Radiat. Isotop.* 17, 253 (1966).
- 4) J. H. Martin, Chapelcross annual report PG-Report-705 (1966); *ibid.* PG-Report-771 (1967).
- 5) I. C. Nelson, A. J. Haverfield and W. W. Schultz, Pacific Northwest Laboratory annual report BNWL-714, p. 5. 24 (1968); W. J. Bair, I. C. Nelson and D. H. Willard, *ibid.* BNWL-1050. (Pt.1), p. 3. 17 (1969).
- 6) H. Smith, I. V. Chapman and C. G. Marlow, *Nature* 222, 676 (1969)
- 7) H. Smith and I. V. Chapman, *Nature* 223, 642 (1969).
- 8) D. Ramsden and D. A. Waite, "Assessment of Radioactive Contamination in Man", p. 65, Vienna, IAEA (1972).
- 9) D. J. Silvester, "Radiopharmaceuticals and Labeled Compounds", Vol. I, p.197, Vienna, IAEA (1973).
- 10) D. A. Brown, ORO-4700-1 (1974).
- 11) W. J. Bair, D. H. Willard, I. C. Nelson and A. C. Case, *Health Phys.* 27, 392 (1974).
- 12) E. K. Duursma and P. Parsi, IAEA-163, p. 94 (1974).
- 13) A. A. Moghissi and M. W. Carter, *Health Phys.* 28, 825 (1975).
- 14) 笠井篤, 関根敬一, 今井利夫, 柳瀬信夫, 上野 隆, 第22回日本保健物理学会, A 24 (1987)
- 15) R. Vandenbosch, UCRL-3858 (1957), Cited in K.-H. Hellwege, "Landolt-Börnstein, Numerical Data and Functional Relationships in Science and Technology, Vol. 5, Part b" (Springer-Verlag, 1973)。
- 16) H. Natsume, H. Umezawa, S. Okazaki, T. Suzuki, T. Sonobe and S. Usuda, *J. Nucl. Sci. Technol.* 9, 737 (1972).
- 17) K. Hata and H. Baba, JAERI-M 88-184 (1988).
- 18) I. L. Jenkins and A. G. Wain, *Int. J. Appl. Radiat. Isotopes* 22, 429 (1971).
- 19) K. Hata, H. Baba, H. Umezawa, T. Suzuki and T. Nozaki, *Int. J. Appl. Radiat. Isotopes* 27, 713 (1976).
- 20) K. Komura, M. Sakanoue and N. Yanase, *J. Nucl. Sci. Technol.* 17, 647 (1980).

- 21) J. Aaltonen, M. Haaparanta, M. Kulha and O. Taivainen, J. Radioanal. Chem. 64, 73 (1981)
- 22) B. L. Berman, Atom. Data Nucl. Data Tables 15. 319 (1975).
- 23) E. Browne and R. B. Firestone, Table of Radioactive Isotopes (Wiley, New York, 1986).

Table 1 Nuclear data of Pu isotopes

Isotope	Half-life	Type of decay	Major radiation (MeV)	
			( $\gamma$ ), ( $\beta$ )	( $\alpha$ )
$^{232}\text{Pu}$	34.1 m	EC, $\alpha$		6.54, 6.60
$^{233}\text{Pu}$	20.9 m	EC, $\alpha$	0.2354 ( $\gamma$ )	6.30
$^{234}\text{Pu}$	8.8 h	EC, $\alpha$		6.15 6.20
$^{235}\text{Pu}$	25.3 m	EC, $\alpha$		5.85
$^{236}\text{Pu}$	2.85 y	$\alpha$		5.72 5.77
$^{237}\text{Pu}$	45.1 d	EC, $\alpha$	0.0595 ( $\gamma$ )	5.36
$^{238}\text{Pu}$	87.7 y	$\alpha$		5.46 5.50
$^{239}\text{Pu}$	$2.41 \times 10^4$ y	$\alpha$		5.14 5.16
$^{240}\text{Pu}$	$6.56 \times 10^3$ y	$\alpha$		5.12 5.17
$^{241}\text{Pu}$	14.4 y	$\beta^-$ , $\alpha$	0.0201 ( $\beta^-$ )	4.89
$^{242}\text{Pu}$	$3.76 \times 10^5$ y	$\alpha$		4.90
$^{243}\text{Pu}$	4.95 y	$\beta^-$	0.5780 ( $\beta^-$ )	
$^{244}\text{Pu}$	$8.26 \times 10^7$ y	$\alpha$		4.59
$^{245}\text{Pu}$	10.5 h	$\beta^-$	0.9380 ( $\beta^-$ )	
$^{246}\text{Pu}$	10.85 d	$\beta^-$	0.1500 ( $\beta^-$ )	
			0.2550	

Taken from Table of Radioactive Isotopes (1986)

Table 2 Nuclear reaction for  $^{236}\text{Pu}$  and  $^{237}\text{Pu}$  production

$^{236}\text{Pu}$ production		$^{237}\text{Pu}$ production	
Target	Nuclear reaction	Target	Nuclear reaction
[1] $^{237}\text{Np}$	$(\gamma, n)$	[1] $^{237}\text{Np}$	$(p, n)$
[2]	$(d, 3n)$	[2]	$(d, 2n)$
[3]	$(d, p2n\beta^-)$	[3] $^{235}\text{U}$	$(^3\text{He}, n)$
[4] $^{233}\text{U}$	$(\alpha, n)$	[4]	$(\alpha, 2n)$
[5]	$(\alpha, p\beta^-)$	[5] $^{238}\text{U}$	$(^3\text{He}, 4n)$
[6] $^{235}\text{U}$	$(\alpha, 3n)$	[6]	$(\alpha, 5n)$
[7]	$(\alpha, p2n\beta^-)$		
[8]	$(d, n\beta^-)$		
[9] $^{238}\text{U}$	$(p, 3n\beta^-)$		
[10]	$(d, 4n\beta^-)$		

Table 3 Yield and radiochemical purity of  $^{237}\text{Pu}$  in various reactions

Reaction	Projectile Energy (MeV)	$^{237}\text{Pu}$ Yield (KBq/100 $\mu\text{Ah}$ )	$\frac{^{236}\text{Pu} + ^{238}\text{Pu}}{^{237}\text{Pu}}$
$^{235}\text{U} + ^4\text{He}$	30	$2.0 \times 10^2$	0.002
$^{238}\text{U} + ^3\text{He}$	38	$2.0 \times 10^2$	0.039
$^{237}\text{Np} + d$	15	$1.4 \times 10^3$	0.070
$^{237}\text{Np} + d$	25	$4.8 \times 10^3$	0.160



Table 4 Experimental and calculated yields of Pu isotopes at E.O.B.  
in the irradiation of thick targets of NpO<sub>2</sub> with deuteron beams

Target	Projectile energy and current	Irradiation time	Experiment		Calculation		
			Yield (KBq)	$\frac{^{236}\text{Pu}, ^{238}\text{Pu}}{^{237}\text{Pu}}$	Yield (KBq)	$\frac{^{236}\text{Pu}, ^{238}\text{Pu}}{^{237}\text{Pu}}$	
<sup>237</sup> NpO <sub>2</sub> - Al	20.3 MeV 3.2 μA	8.0 h	<sup>237</sup> Pu	82.0 ± 11	<sup>237</sup> Pu	96	
			<sup>236</sup> Pu	6.42 ± 0.13	<sup>236</sup> Pu		
			<sup>238</sup> Pu	1.46 ± 0.03	<sup>238</sup> Pu		
<sup>237</sup> NpO <sub>2</sub>	24.0 MeV 4.9 μA	17.0 h	<sup>237</sup> Pu	265.0 ± 21	<sup>237</sup> Pu	245	
			<sup>236</sup> Pu	22.2 ± 0.44	<sup>236</sup> Pu	> 31	
			<sup>238</sup> Pu	11.1 ± 0.38	<sup>238</sup> Pu	> 5.4	
							0.126
							0.022

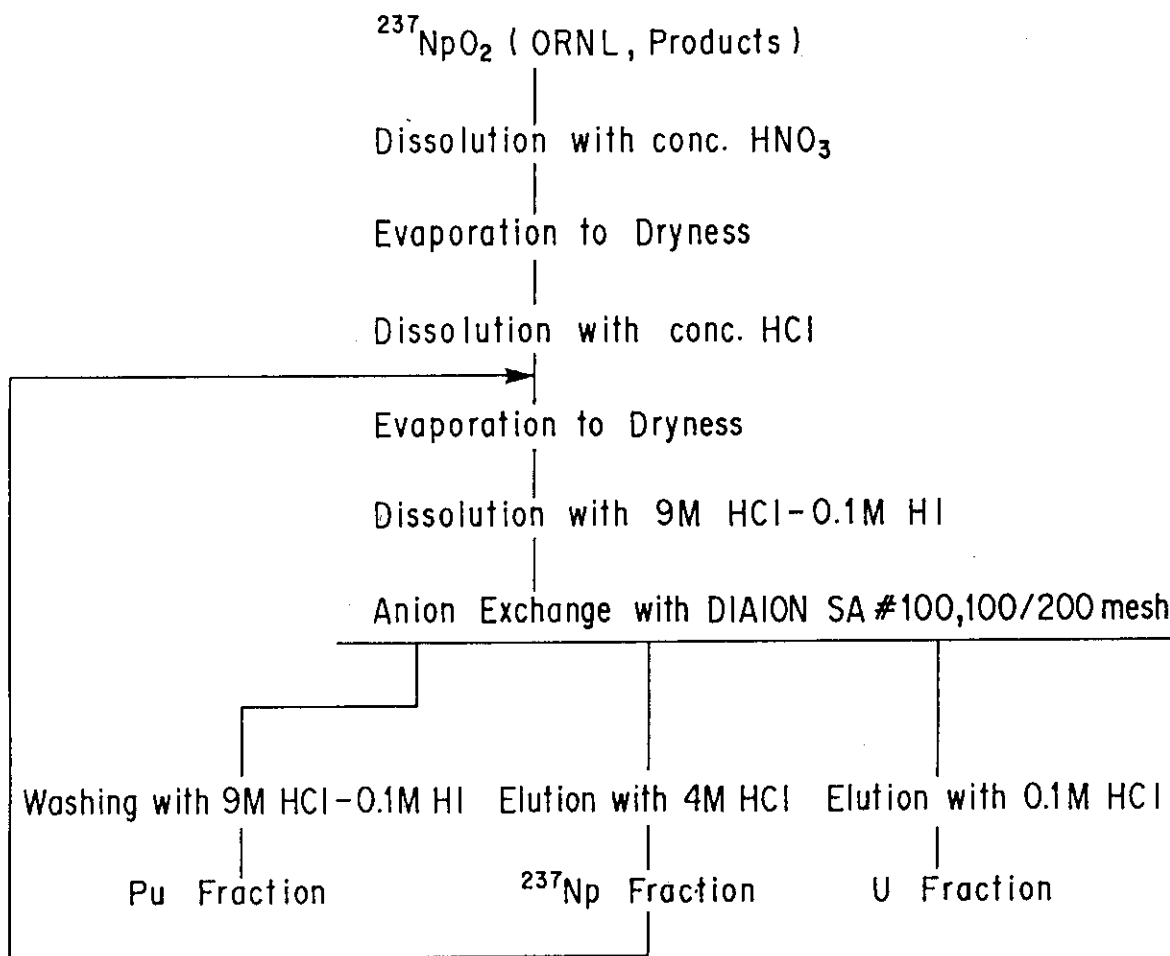


Fig. 1 Flow diagram of the chemical process for the purification of  $^{237}\text{Np}$

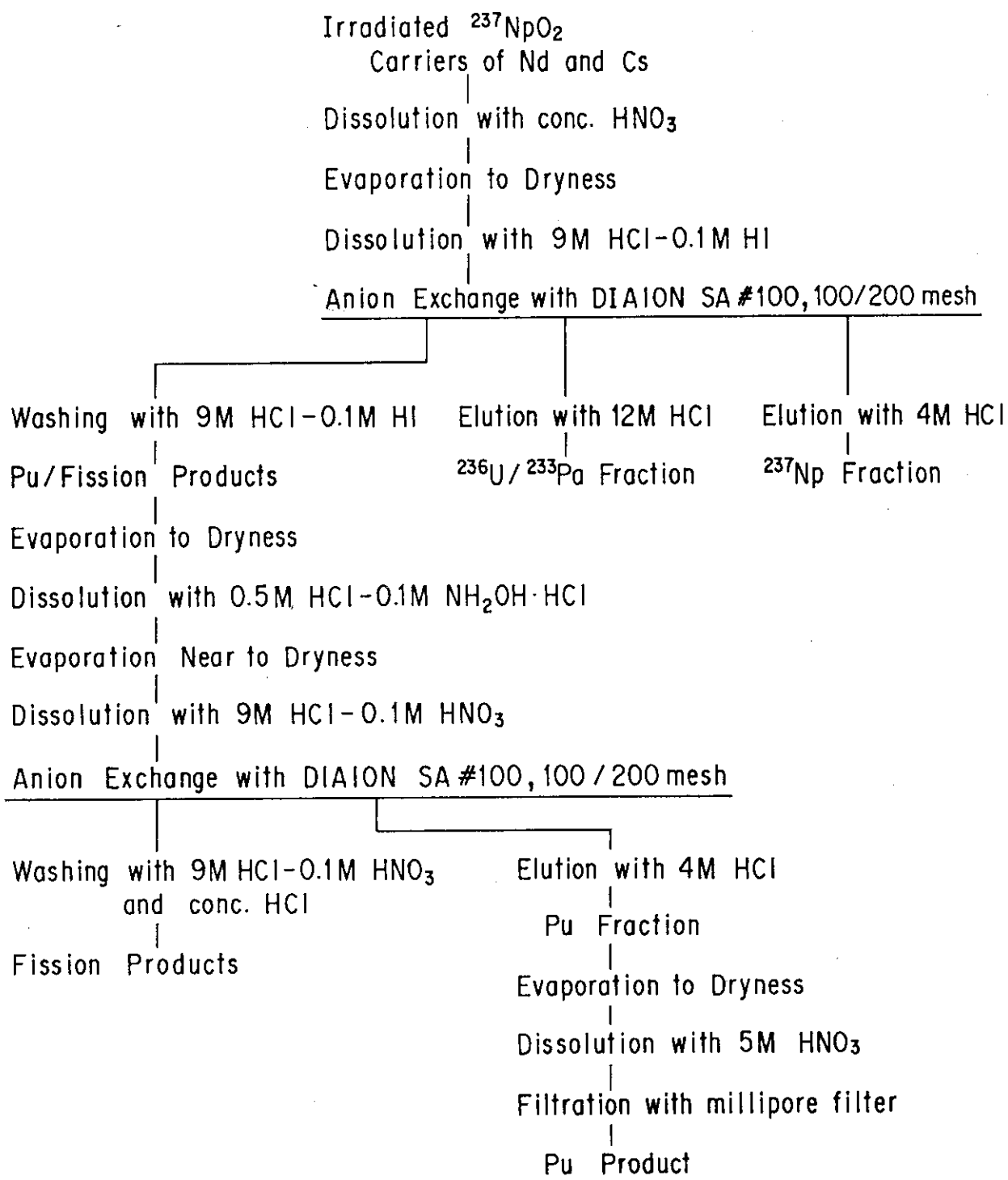


Fig. 2 Flow diagram of the chemical process for the separation of Pu from  $^{237}\text{NpO}_2$  targets irradiated with bremsstrahlung or deuterons

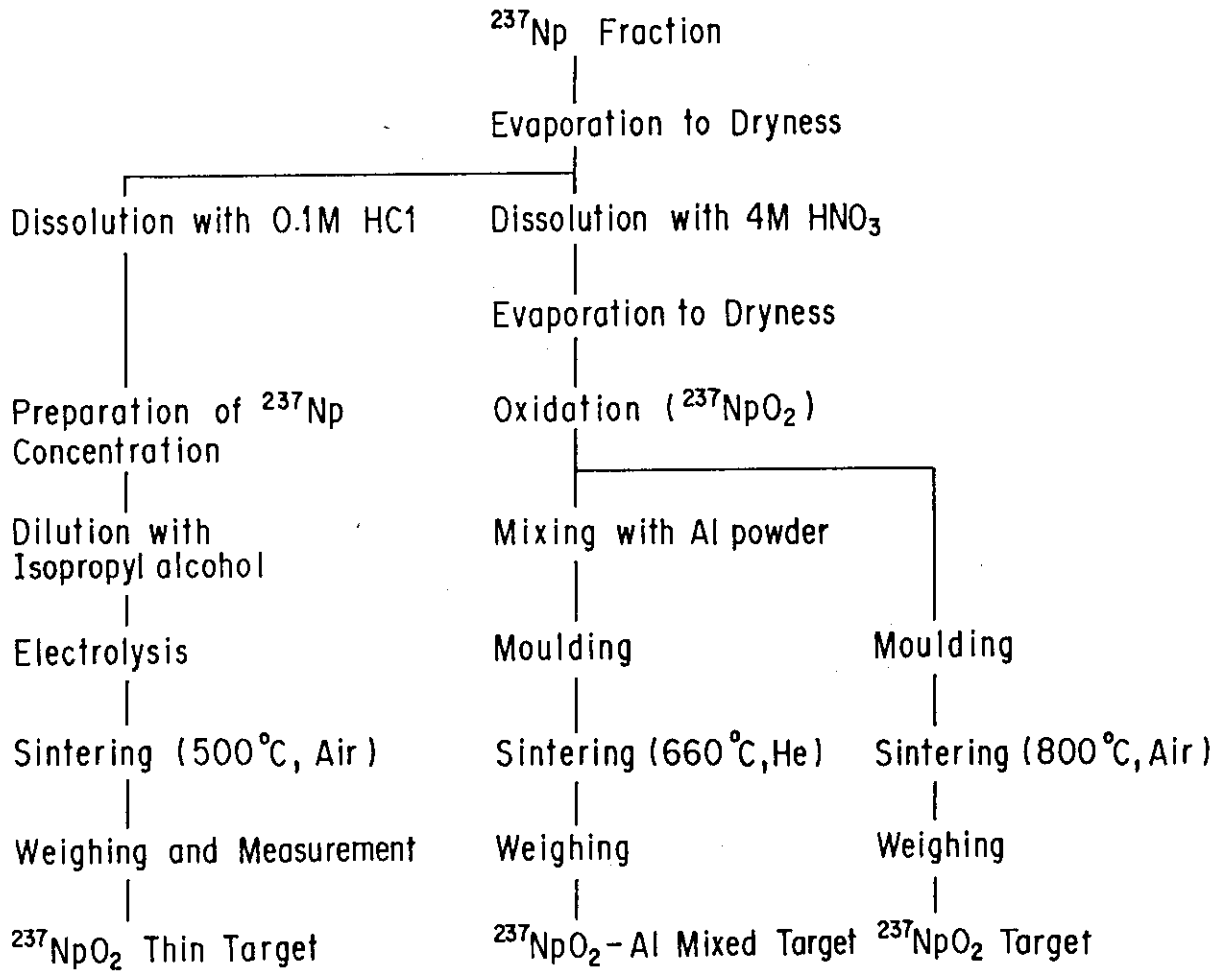


Fig. 3 Preparation of thin and thick targets of  $^{237}\text{NpO}_2$  for deuteron irradiation

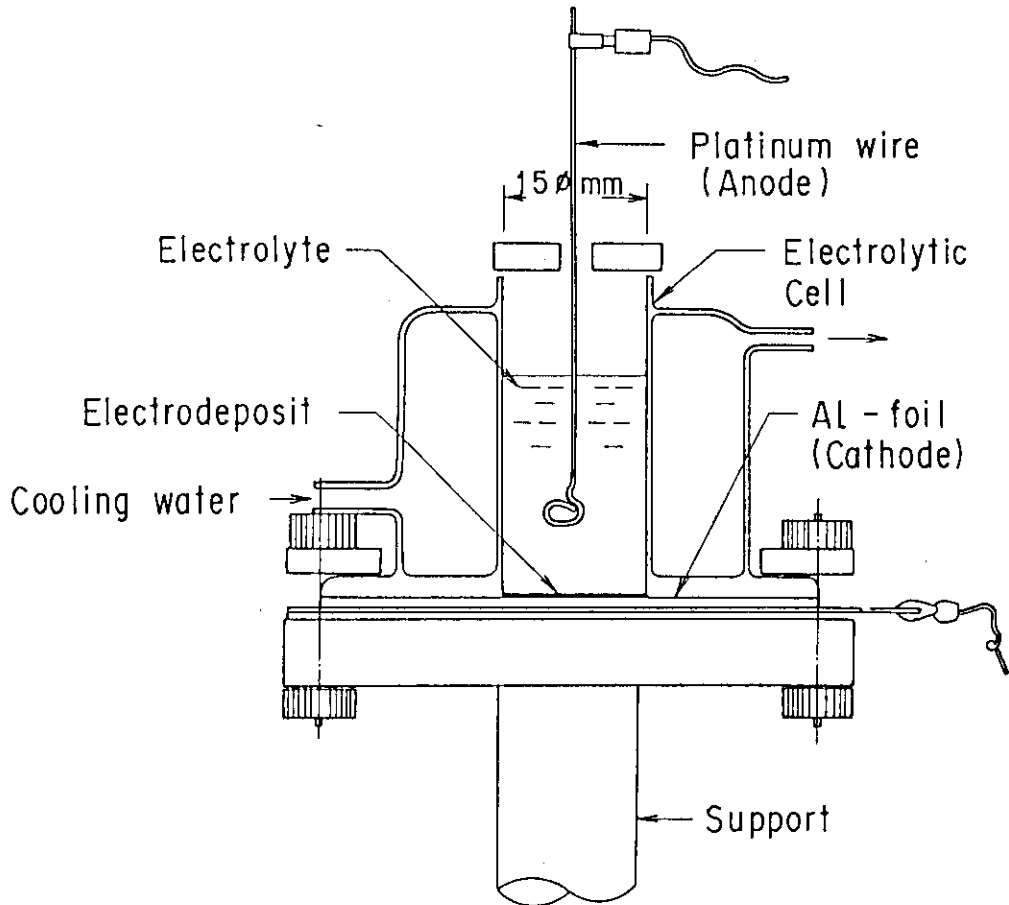
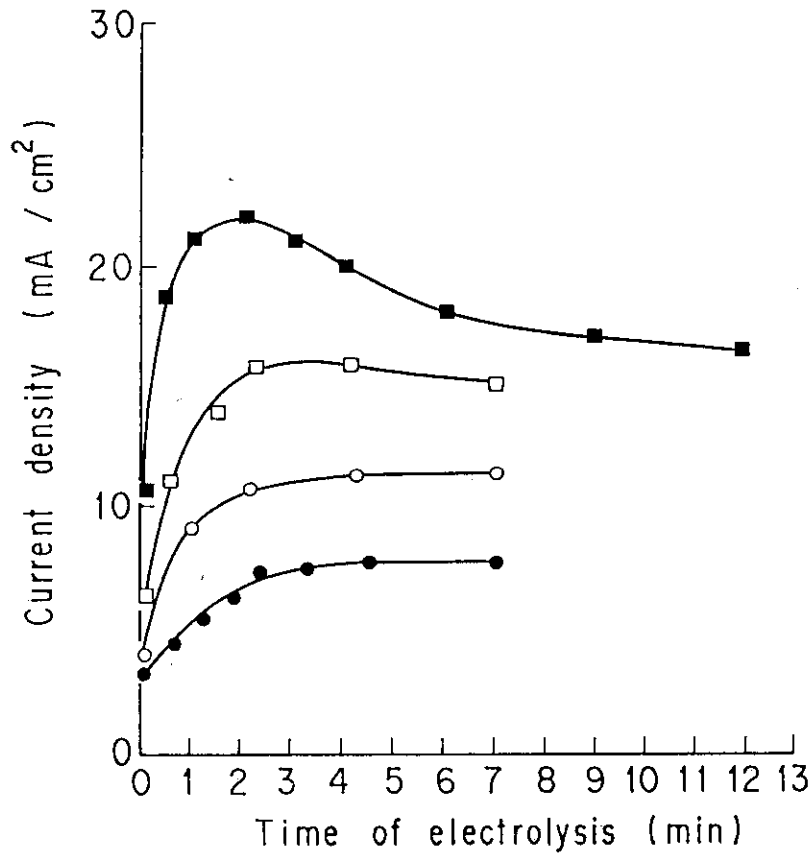


Fig. 4 Structure of the electrolytic cell used for preparation of thin  $^{237}\text{NpO}_2$  targets



	Electrolyte concentration (%)	Amount of electrodeposition ( $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ )
—■—	2.20	1360
—□—	1.47	680
—○—	0.99	450
—●—	0.74	220

Fig. 5 Effect of electrolyte concentration on the current density and the resulting amount of  $\text{NpO}_2$

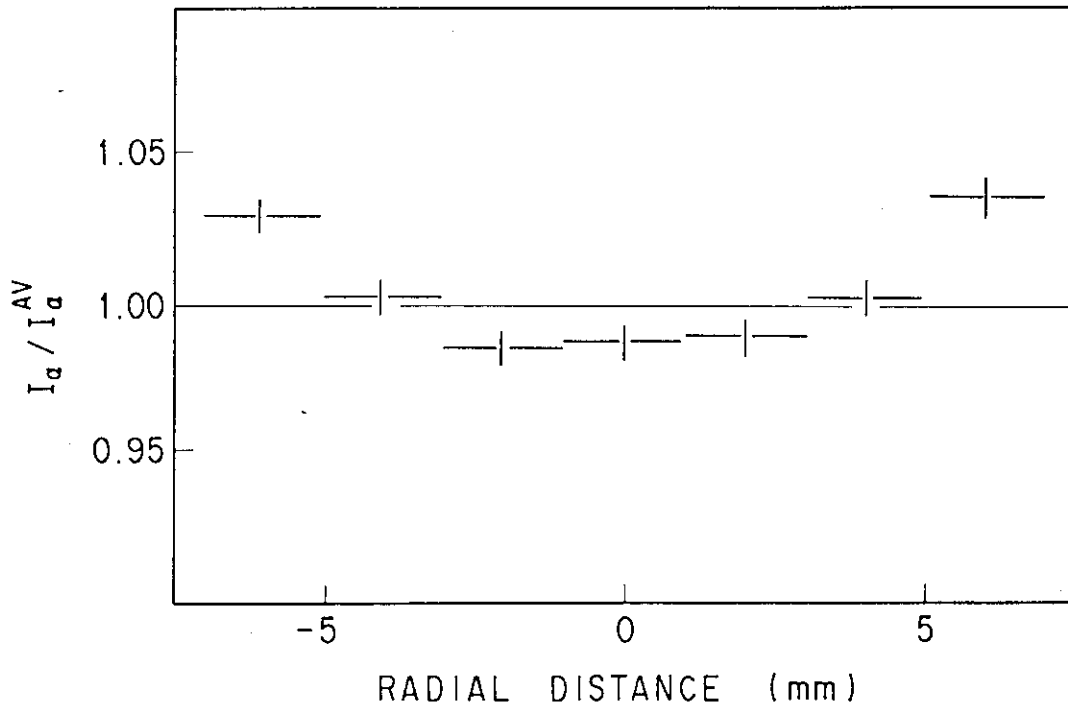


Fig. 6 Scan of a activity over the  $^{237}\text{Np}$  electrodeposited on an aluminum disk along a radial direction.

$I_\alpha$ :  $\alpha$  count,  $I_\alpha^{AV}$ : average of  $I_\alpha$ 's.

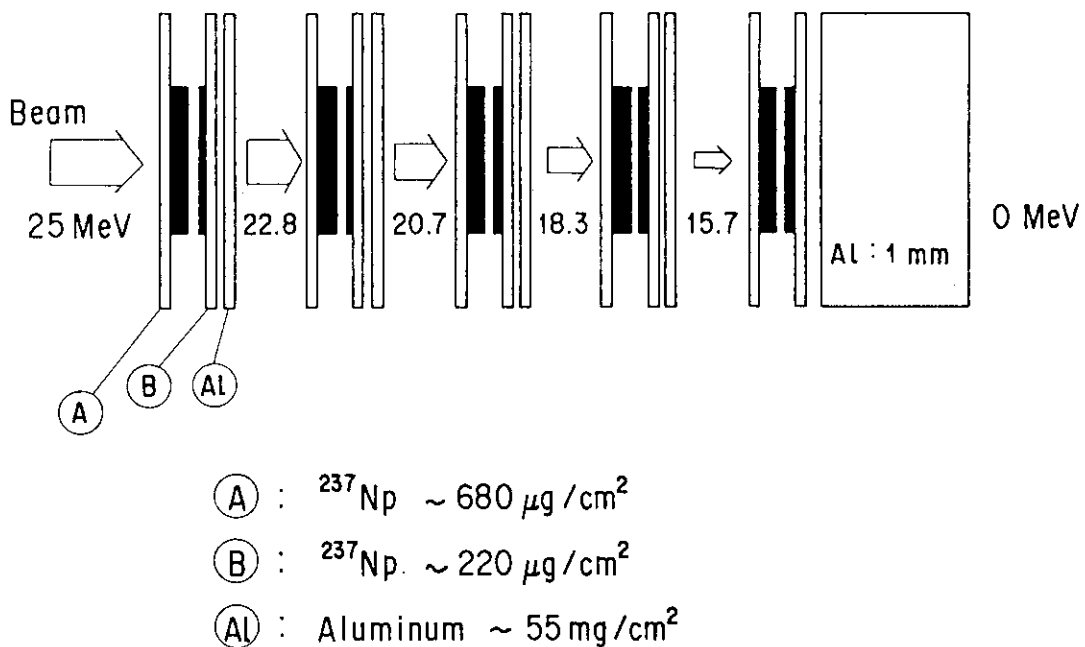


Fig. 7 Target assembly for measurement of the excitation function of the  $^{237}\text{Np} + d$  reaction.

The deuteron energy incident to each  $^{237}\text{NpO}_2$ -target surface is given for a primary energy of 25 MeV.

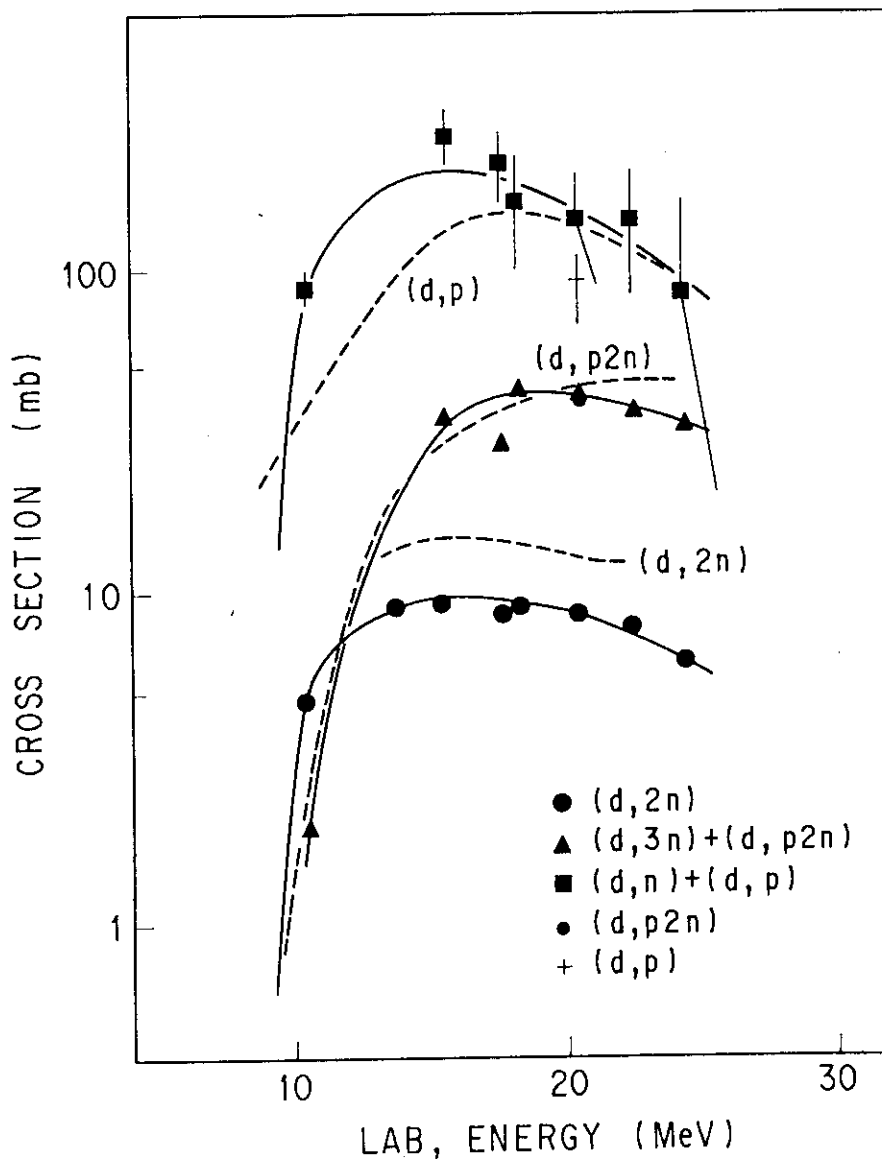


Fig. 8 Formation cross sections of plutonium isotopes and neptunium isotopes in the  $^{237}\text{Np} + d$  reaction. Solid lines connect the present experimental points to guide the eye, and dotted lines show the results by Vandebosch<sup>15)</sup>.



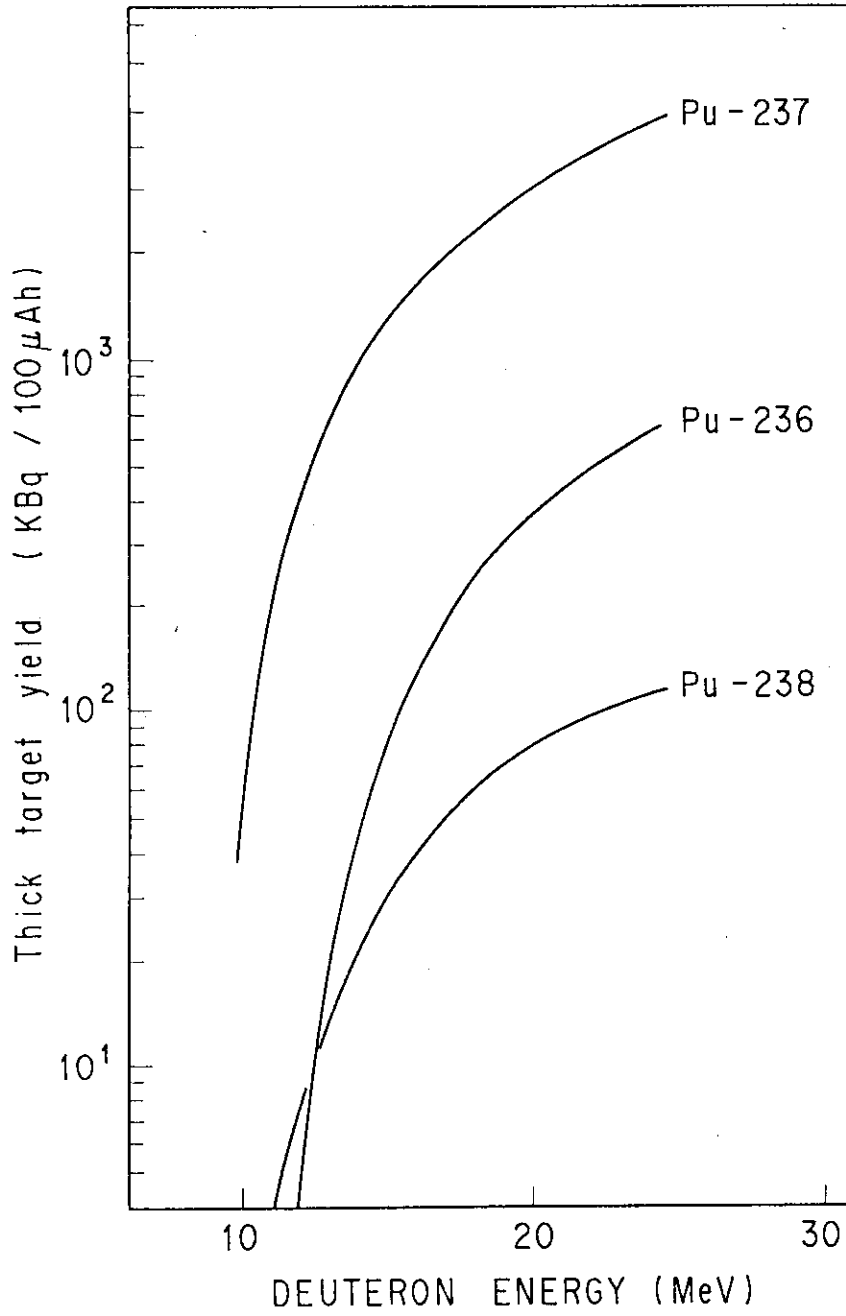


Fig. 9 Calculated thick target yields of Pu isotopes in the  $^{237}\text{Np} + d$  reaction.

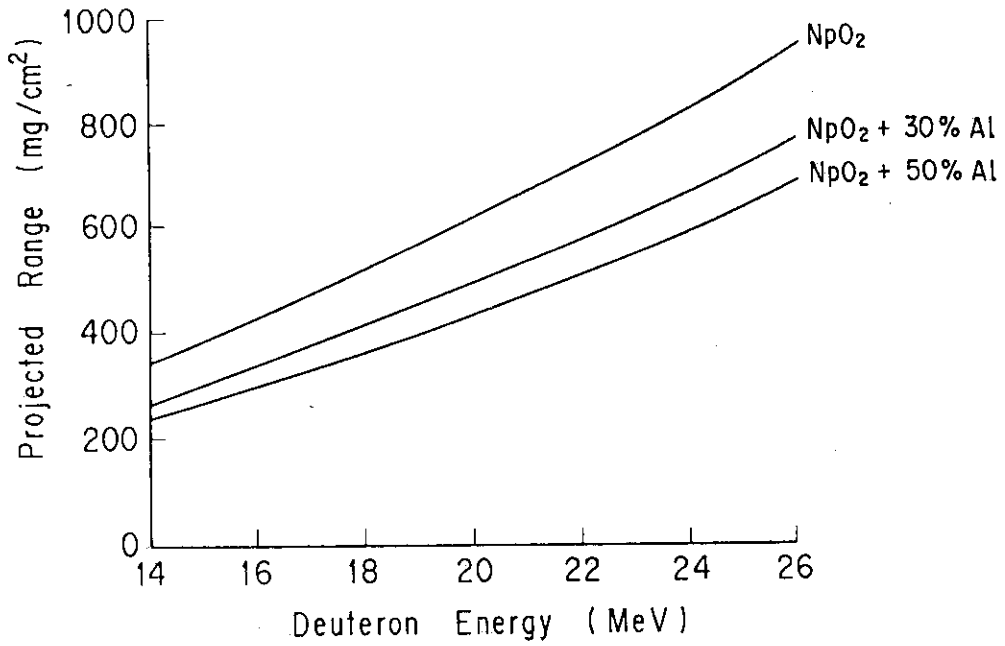


Fig. 10 Range of deuteron in NpO<sub>2</sub>-Al mixed targets and a NpO<sub>2</sub> target

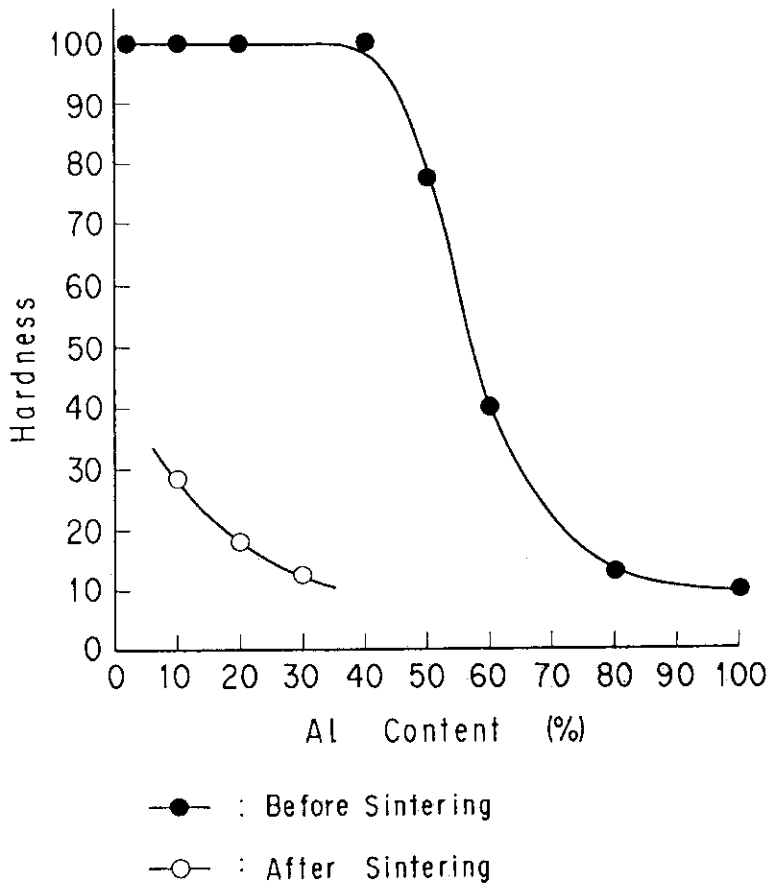


Fig. 11 The hardness of CeO<sub>2</sub>-Al mixture before and after sintering as a function of aluminum content. CeO<sub>2</sub> was used instead of NpO<sub>2</sub>

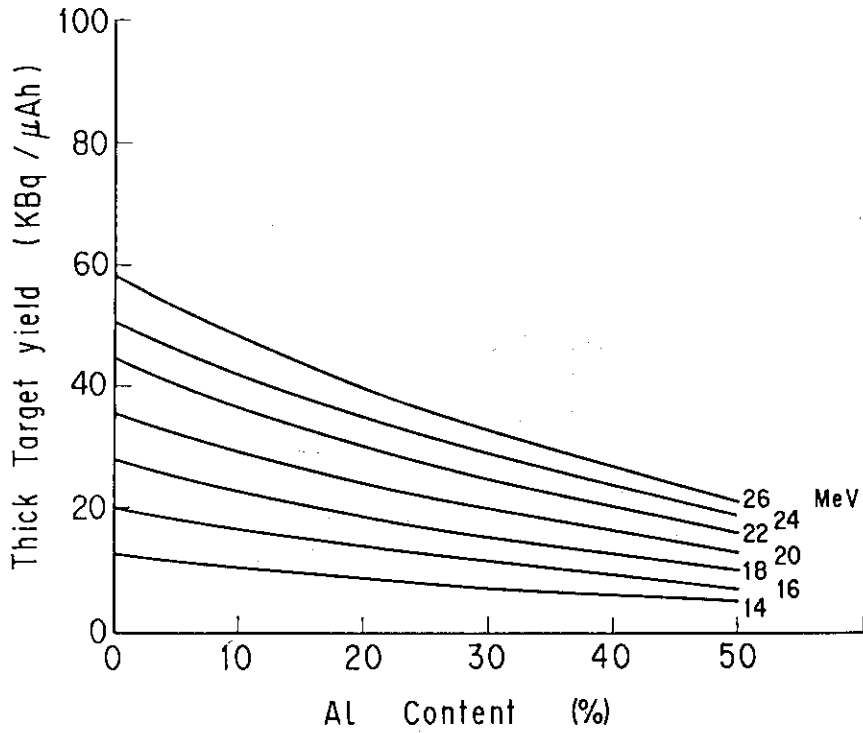


Fig. 12 The calculated thick target yield of  $^{237}\text{Pu}$  in the irradiation of a  $^{237}\text{NpO}_2\text{-Al}$  mixed target with deuterons. The  $^{237}\text{Pu}$  yield is given as a function of aluminum content for various bombarding energies.

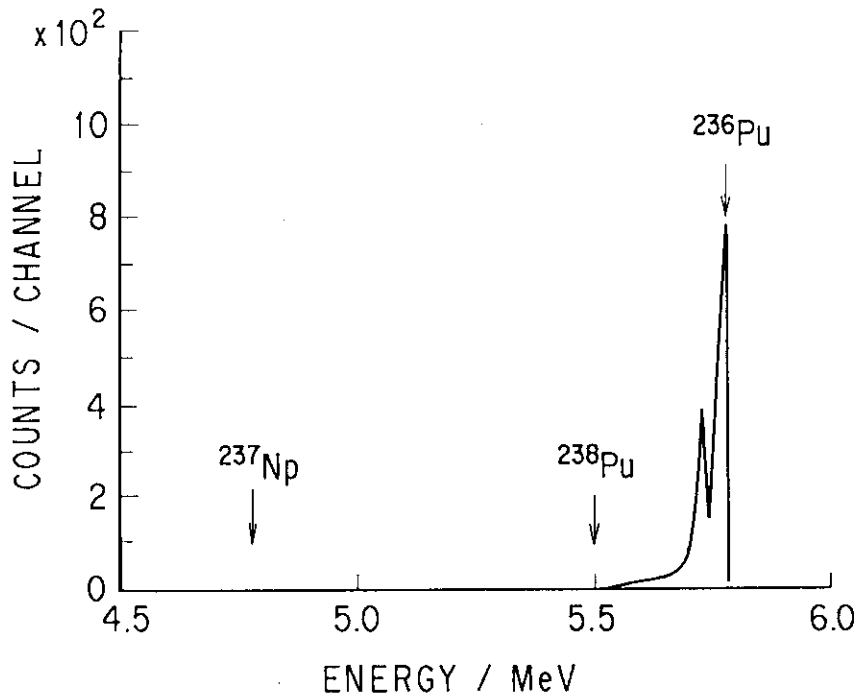


Fig. 13  $\alpha$ -spectrum of the  $^{236}\text{Pu}$  product

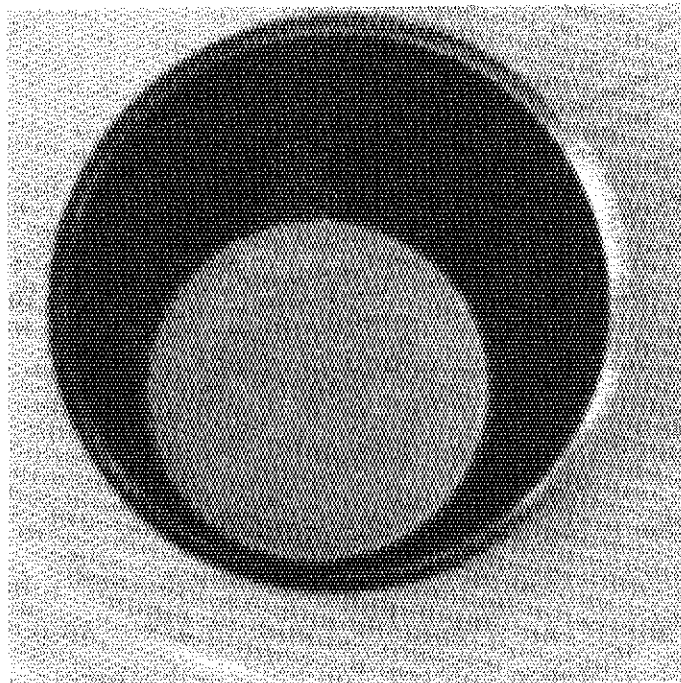


Photo. 1 A view of the  $^{237}\text{NpO}_2\text{-Al}$  mixed target after moulding