

JAERI-Tech
2002-008



JP0250150



中性子照射により生成する鉛・ビスマス合金中の
ポロニウムの挙動に関する研究

(原子力基礎研究 H10-026)

(委託研究)

2002年3月

関本 博*・井頭 政之*・矢野 豊彦*・小原 徹*・大崎 敏郎*

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、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。
入手の問合わせは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越してください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Research Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, 319-1195, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 2002

編集兼発行 日本原子力研究所

中性子照射により生成する鉛・ビスマス合金中のポロニウムの挙動に関する研究
(原子力基礎研究 H10-026)
(委託研究)

日本原子力研究所東海研究所エネルギーシステム研究部
東京工業大学原子炉工学研究所

関本 博*・井頭 政之*・矢野 豊彦*・小原 徹*・大崎 敏郎*

(2002年1月18日受理)

ナトリウムに代わる液体金属冷却高速炉の冷却材として、また加速器駆動未臨界炉のターゲットとして、鉛・ビスマス液体合金が世界のいくつかの研究機関から提案されている。鉛・ビスマス合金はナトリウムに比べ化学的に不活性で、融点はほぼ同様に低いという利点を有する。しかし、ビスマスの中性子捕獲により α エミッターであるポロニウムを生成する。本研究は、鉛・ビスマス合金の中性子照射によって生成されたポロニウムの生成率(断面積)、合金からの放出率及び放出されたポロニウムの各種材料への吸着率を明らかにすることで、鉛・ビスマス冷却高速炉及び加速器駆動未臨界炉でのポロニウムの放出量の定量的評価のための知見を得ることを目的として行われた。

ポロニウム生成率については、東工大ペレトロン加速器を用いて高速炉体系で重要な KeV 中性子に対するビスマスの断面積を測定した。その結果、中性子捕獲断面積は JENDL 評価値の 1/2 ~ 1/3 の値が、ポロニウム生成断面積では JENDL 評価値のほぼ 1/3 の値を得た。同時に、加熱吸着試験装置の設計と動作特性試験及び α 線測定器の動作特性試験等を行い、少量の鉛ビスマス合金に中性子照射を行った後に熔融鉛ビスマス合金から放出されるポロニウムの測定方法を確立させた。

本研究は、日本原子力研究所の平成 10,11,12 年度「原子力基礎研究推進制度」の支援により実施した研究の成果である。

東海研究所：〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2-4

東京工業大学：〒152-8550 東京都目黒区大岡山 2-12-1

*東京工業大学原子炉工学研究所

Research on the Behavior of Polonium Produced in Lead-Bismuth Eutectic
Irradiated with Neutrons
(JAERI's Nuclear Research Promotion Program, H10-026)
(Contract Research)

Hiroshi SEKIMOTO*, Masayuki IGASHIRA*, Toyohiko YANO*, Toru OBARA* and Toshiro OHSAKI*

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

Research Laboratory for Nuclear Reactors
Tokyo Institute of Technology
Ohokayama, Meguro-ku, Tokyo

(Received January 18, 2002)

Lead-Bismuth Eutectic (LBE) is proposed by several research institutes as a coolant of liquid metal cooled fast reactors, instead of sodium, and a target of accelerator driven subcritical nuclear reactor systems (ADS). LBE has some advantages that it is chemically inert compared to sodium and that its melting point is low like sodium. A problem might be that bismuth produces polonium, which is an alpha emitter, by irradiation of neutrons. The purpose of the study is to get information for quantitative estimations of the release of polonium on LBE cooled fast reactors and on ADSs by making it clear about production rate of polonium (information about cross section) by neutron irradiation of LBE, release rate of the produced polonium from LBE, and adsorption rate of the polonium on various materials.

To get the information about production rate of polonium, neutron cross sections of bismuth were measured in keV energy region, which was important in fast reactors, by using the Pelletron accelerator in Research Laboratory for Nuclear Reactors, Tokyo Institute of Technology. The obtained neutron capture cross sections were from 1/2 to 1/3 of the evaluated values in JENDL and the obtained polonium production cross sections were almost 1/3 of it. At the same time, an experimental device was designed for heating and adsorption experiments and the performance was tested. The performance of alpha

This research was supported by the JAERI's Nuclear Research Promotion Program (JANP) in 1998, 1999 and 2000.

*Tokyo Institute of Technology

spectrometer was tested also. By those the method was established for the measurement of polonium released from melted LBE after neutron irradiation.

Keywords: Lead-Bismuth Eutectic, Polonium, Liquid Metal Cooled Fast Reactor, Coolant, Accelerator Driven System, ADS, Target, Alpha Particles Emitter, Contamination, Neutron Irradiation, Neutron Cross Section, Pelletron Accelerator, Bismuth, Sodium, Release Rate, Adsorption Rate

This is a blank page.

目次

1. 序論	1
2. ^{209}Bi の keV 中性子捕獲反応による α 放射核 ^{210}Po 及び $^{210\text{m}}\text{Bi}$ の生成	2
2.1 序言	2
2.2 実験方法	2
2.3 データ解析	3
2.4 結果と考察	8
2.5 結言	12
3. ビスマスから生成されるポロニウムの振る舞い	13
3.1 緒言	13
3.2 ポロニウムの生成	13
3.2.1 序言	13
3.2.2 ポロニウムについて	13
3.2.3 生成過程	19
3.2.4 鉛ビスマスへの中性子照射	22
3.2.5 ポロニウムの生成量	31
3.2.6 結言	39
3.3 鉛ビスマス溶融実験	39
3.3.1 序言	39
3.3.2 加熱吸着実験	40
3.3.3 実験装置動作確認	45
3.3.4 α 線測定	49
3.3.5 結言	56
4. 結論	57
参考文献	58

Contents

1. Introduction	1
2. Production of Alpha Emitters ^{210}Po and $^{210\text{m}}\text{Bi}$ by Neutron Capture Reaction of ^{209}Bi in keV Energy Region	2
2.1 Introductory Remarks	2
2.2 Experimental Method	2
2.3 Data Analysis	3
2.4 Results and Discussion	8
2.5 Concluding Remarks	12
3. Research on Behavior of Polonium Produce from Bismuth	13
3.1 Background	13
3.2 Production of Polonium	13
3.2.1 Introductory Remarks	13
3.2.2 Characteristics of Polonium	13
3.2.3 Production Process	19
3.2.4 Neutron Irradiation of Lead-Bismuth	22
3.2.5 Amount of Polonium Production	31
3.2.6 Concluding Remarks	39
3.3 Lead-Bismuth Melting Experiment	39
3.3.1 Introductory Remarks	39
3.3.2 Heating Adsorption Experiment	40
3.3.3 Check of Experimental Apparatus Operation	45
3.3.4 Alpha-ray Measurement	49
3.3.5 Concluding Remarks	56
4. Conclusion	57
References	58

1. 序論

最近の原子力研究の大きな流れに、放射性廃棄物の分離変換、及び小型炉の開発がある。いずれも軽水炉を中心とした原子力利用がその成長の曲がり角にさしかかっていることと関係がある。これについてここで詳しく論じるつもりはないが、前者は発電所からの放射性廃棄物がたまってきて、これを地層処分しようとするのであるが、公衆のコンセンサスを得るのに困難があり、分離変換技術により、この問題を解決ないしは軽減できないかというもとであり、後者は炭酸ガス排出を低減させるには開発途上国での原子力利用がよいとか、大型軽水炉が無理な地域での利用に小型炉がよいといったことと関係している。前者では加速器駆動未臨界炉が有望視されているが、この中性子発生のためのターゲットとして鉛ビスマスが最有力候補のひとつとなっている。また後者では小型だけでなく長寿命をセットとすると利用を増やせるということで、小型長寿命炉の開発が試みられている。このような炉は中性子経済が優れていることが必要であり、小型高速炉が有望視されているが、鉛ビスマスはここでも冷却材の最有力候補のひとつとなっている。

鉛ビスマスはスポレーション反応で多くの中性子を発生するとか、ナトリウムのように化学的には活性でなく、水や空気と反応しにくいといった特長の他、融点はナトリウム程度なのに沸点が高いとか、中性子を吸収してもナトリウムのような強いガンマ線を放射する核種を生成しないとか、散乱断面積が大きくて中性子経済に優れ、ポイド反応度係数をより負の側にシフトさせるといったような特長を有する。

一方、ナトリウムに比べ比重が大きく、冷却特性に劣るとか、腐食性であるとか、希少資源であるとか、中性子を吸収するとアルファ線を放出するポロニウムを生成するといった問題が指摘されている。比重の大きいのは設計でうまく処理できることがわかっており、現にロシアの潜水艦で80炉年もの実績を有している。ナトリウムに比べ冷却能力が劣ることに關しては確かに欠点ではあるが、大型高速増殖炉におけるほどには大きな欠点とはならない。希少資源ということに対しても、十分な資源量があり、また価格も充分経済的な設計が可能であるとされている。腐食についてはロシアの経験で酸素濃度制御により防ぐことが可能であるということがわかっているが、現在いくつもの研究所で実験が行われている。日本でも東工大の我々のグループ（文部科学省科学研究助成金）や原研で行われている。

ポロニウムの問題も炉心封じ込め型長寿命小型炉では問題にならず、むしろ核拡散抵抗性を高めるものとして歓迎されるが、それでも事故時やなんらかの理由で炉心を開ける場合には重要な問題となる。これについてはロシアやアメリカでの過去の研究があるが、かならずしも十分なものとはいえない。このようなことから、本原子力基礎研究では中性子照射により生成する鉛・ビスマス合金中のポロニウムの挙動に関する研究を行うこととした。なお、我々の後を追って、アメリカのMIT及びINEELで同様の実験が開始された。この問題はよく調べると高速中性子によるポロニウムの生成断面積そのものが殆どなく、現在使われている値が充分正しいかあやしいことがわかる。このようなことから、本研究では高速中性子によるポロニウムの生成断面積の測定も含めることとした。

2. ^{209}Bi の keV 中性子捕獲反応による α 放射核 ^{210}Po 及び $^{210\text{m}}\text{Bi}$ の生成

2.1 序言

現在、高速増殖炉(FBR) や加速器駆動未臨界システム (ADS) において、鉛 - ビスマス(Pb-Bi) 合金冷却材がその化学的不活性、低放射化材などの優れた特性から有望視されている。しかし ^{209}Bi は、

- $^{209}\text{Bi}(n, \gamma)^{210\text{g}}\text{Bi} (\beta^-: 5\text{d}) ^{210}\text{Po}$
- $^{209}\text{Bi}(n, \gamma)^{210\text{m}}\text{Bi}$

反応により、 α 放射核 $^{210}\text{Po}(T_{1/2}=138 \text{ 日})$ 及び $^{210\text{m}}\text{Bi}(T_{1/2}=300 \text{ 万年})$ を生成する。従って、FBR における Pb-Bi 冷却材の成立性を検討する上で、 ^{210}Po 及び $^{210\text{m}}\text{Bi}$ の生成量の基礎データとなる keV 中性子に対する $^{209}\text{Bi}(n, \gamma)^{210\text{g}}\text{Bi}$ 及び $^{209}\text{Bi}(n, \gamma)^{210\text{m}}\text{Bi}$ 反応断面積データは不可欠である。しかし、これらの反応断面積の測定データは乏しく、またその信頼性も乏しいのが現状である。また、これらの反応断面積は天体核物理学、そして捕獲 γ 線スペクトルと共に原子核物理学でも重要である。天体核物理学においては、 ^{209}Bi は元素合成の内の中性子の遅い捕獲反応過程(s 過程)における終端の核種として重要である。また原子核物理学では様々な核反応モデルの適合性の検討に重要なデータとなる。

本研究では入射中性子エネルギー 30keV 及び 520keV において、即発 γ 線法によって $^{209}\text{Bi}(n, \gamma)^{210\text{g}+\text{m}}\text{Bi}$ 反応断面積及び捕獲 γ 線スペクトルを測定し、放射化法によって $^{209}\text{Bi}(n, \gamma)^{210\text{g}}\text{Bi}$ 反応断面積を測定し、両断面積の差から $^{209}\text{Bi}(n, \gamma)^{210\text{m}}\text{Bi}$ 反応断面積を求めた。

2.2 実験方法

実験は、本学原子炉工学研究所の広領域線質放射線照射実験室で行った。図 2.1 は即発 γ 線による測定の際の実験配置の概略図である。ベレトロン加速器により加速されたパルス化陽子ビーム(繰り返し周波数 4MHz, パルス幅 1.5ns, 平均ビーム電流 13 μA)を銅板に蒸着させた Li ターゲットに入射させ、 $^7\text{Li}(p, n)^7\text{Be}$ 反応により平均エネルギー 11keV, 17keV, 30keV, 55keV 及び 520keV のパルス化中性子を得た。

即発 γ 線法においては、試料として直径 90mm, 厚さ 3mm の円盤状の金属 Bi を用いた。 γ 線検出器としてはコンプトン抑止型 NaI(Tl)検出器を用い、信号を波高(PH)と飛行時間(TOF)の 2 次元データとしてワークステーションに取り込んだ。測定は標準金試料との相対測定とし、試料、標準金試料及び何も試料を置かない測定を循環的に行い、実験条件の変動を緩和した。中性子発生量の測定に小型の ^6Li 検出器、中性子スペクトル測定用に大型の ^6Li 検出器を用いた。

放射化法においては、試料として直径 30mm, 厚さ 3mm の円盤状の金属 Bi を用いた。入射中性子数を測定するため、試料を 2 枚の標準金試料(直径 30mm, 厚さ 0.5mm)ではさみ、パルス化中性子を 50 時間照射した。3mm の厚さを持つ Bi 試料からの α 線スペクトルを解析するため、Monte Carlo シミュレーション計算を行い α 線検出効率を求めた。 α 線の測定には表面障壁型 Si 半導体検出器を用いた。また放射化した標準金試料からの 411.8keV γ 線の測定には高純度 Ge 検出器を用いた。

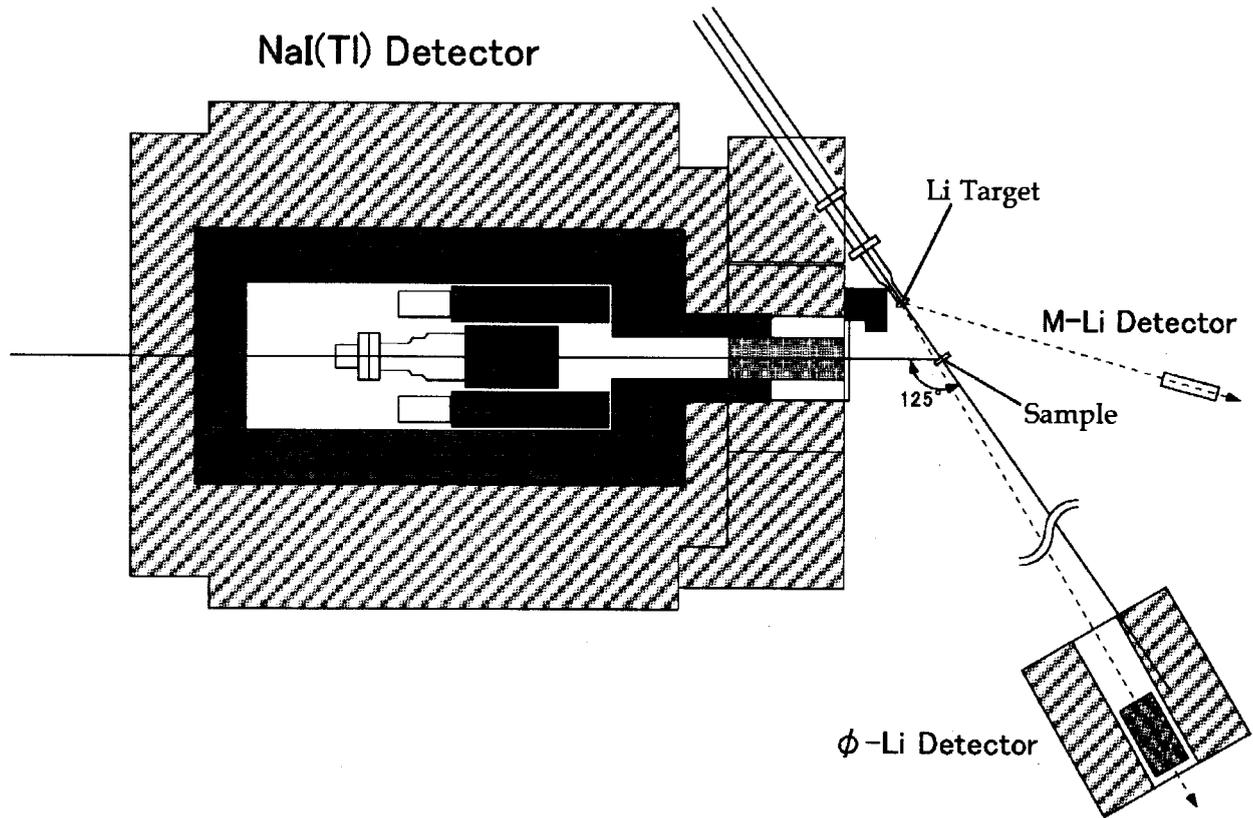


図 2.1 主な実験配置

2.3 データ解析

即発 γ 線法では、 $^{209}\text{Bi}(n, \gamma)^{210\text{g+m}}\text{Bi}$ 反応断面積及び捕獲 γ 線スペクトルを求めた。

図 2.2 は、大型 ^6Li 検出器の中性子 TOF スペクトルから得られた平均エネルギー520keVの入射中性子のエネルギースペクトルである。図 2.3 は同実験でのコンプトン抑止型 NaI(Tl)検出器の γ 線 TOF スペクトルである。図 2.3 に示す様にゲートを設定し、バックグラウンドを引き去って得られた正味の捕獲 γ 線 PH スペクトルが図 2.4 である。この PH スペクトルに波高重み法を適用して捕獲イールドを求め、 ^{197}Au の標準捕獲断面積及び ^6Li 検出器によって得た入射中性子数比を用いて中性子捕獲断面積を得た。また、アンフォールディングコード FERDOR を用いて捕獲 γ 線スペクトルを得た。

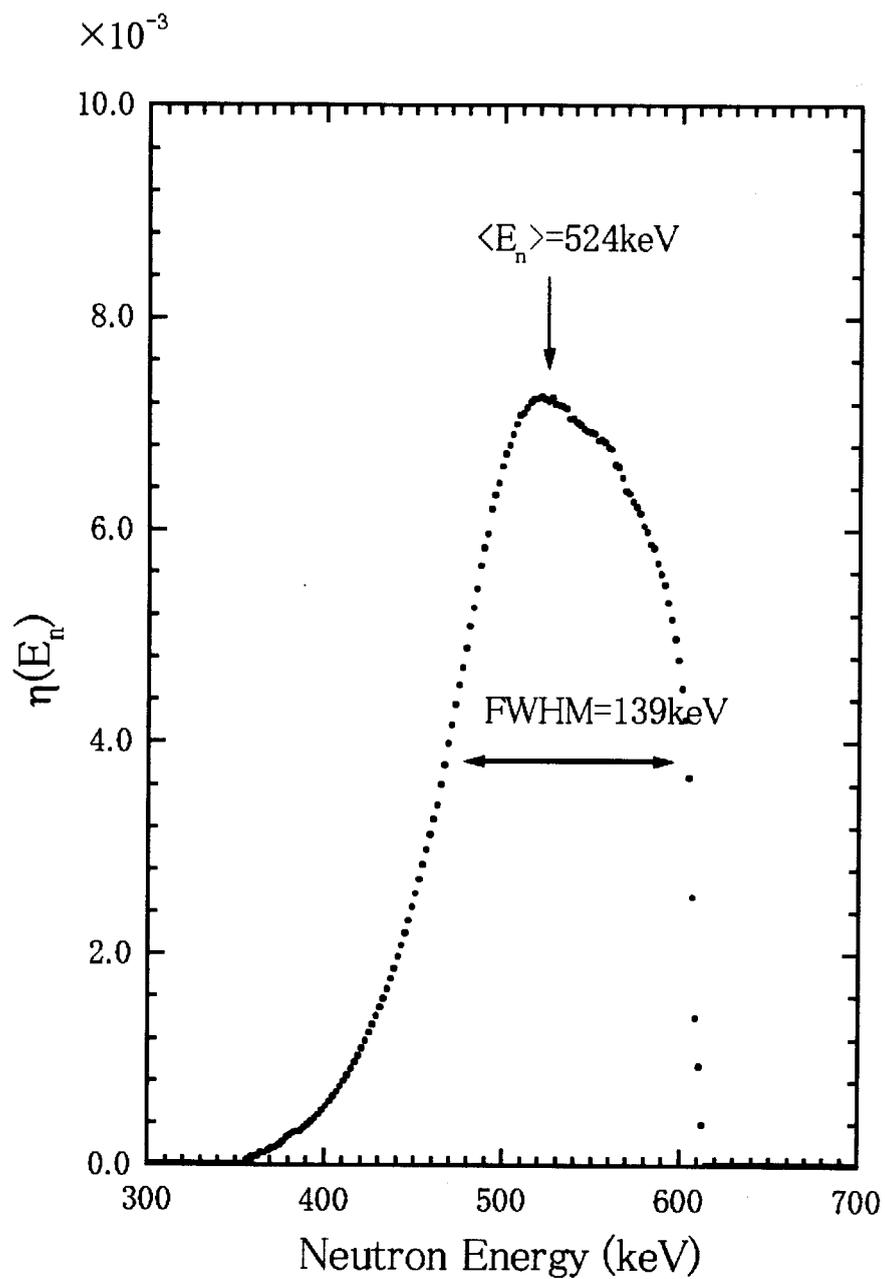


図 2.2 入射中性子スペクトル

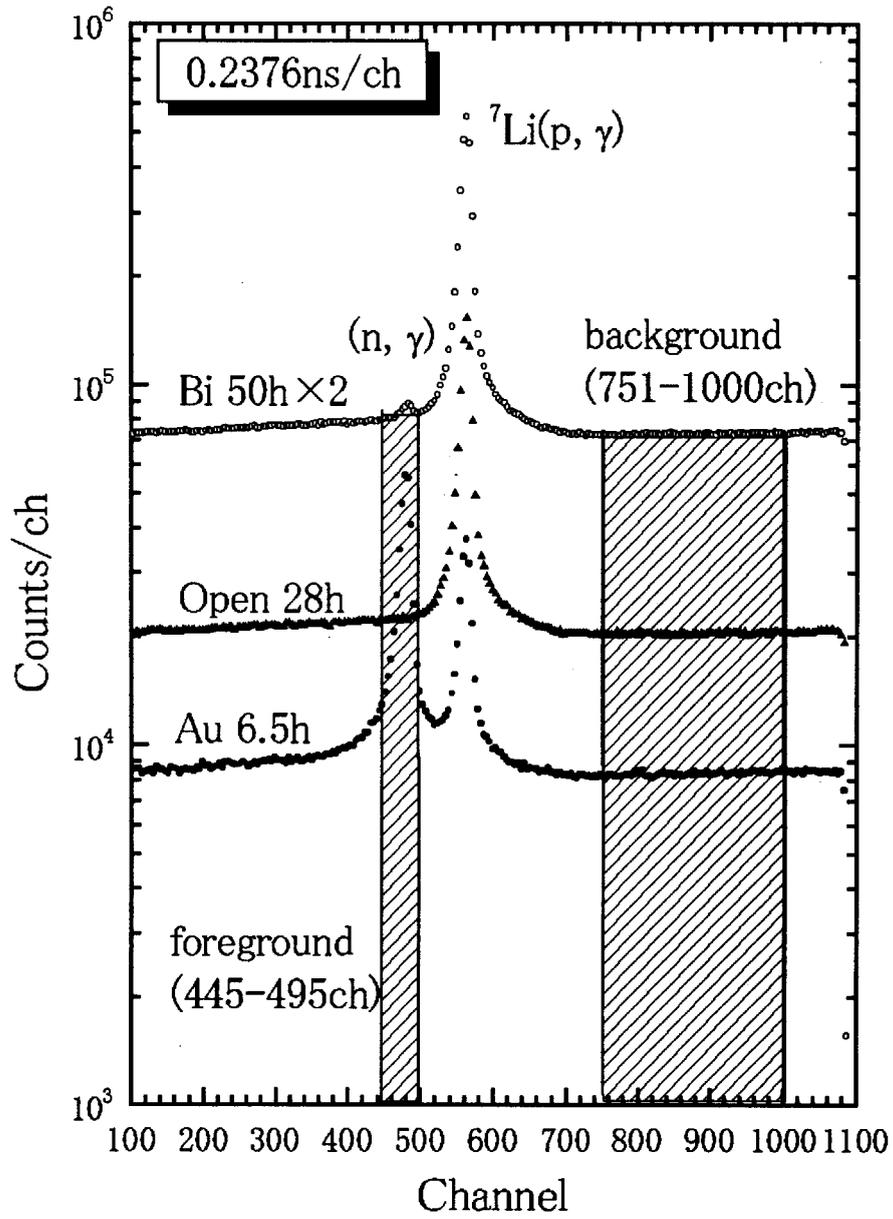


図 2.3 γ 線 TOF スペクトル

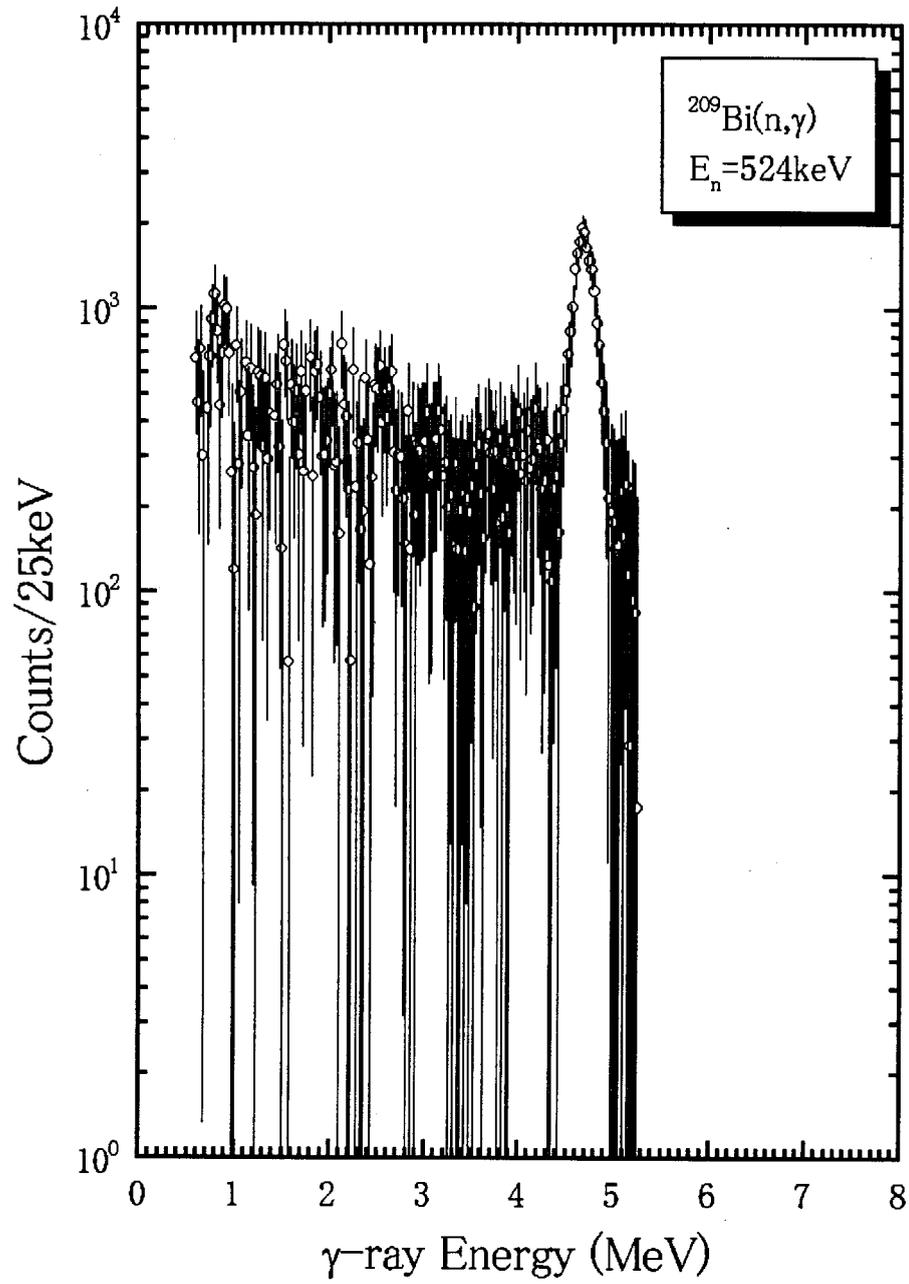


図 2.4 Bi の正味の捕獲 γ 線 PH スペクトル

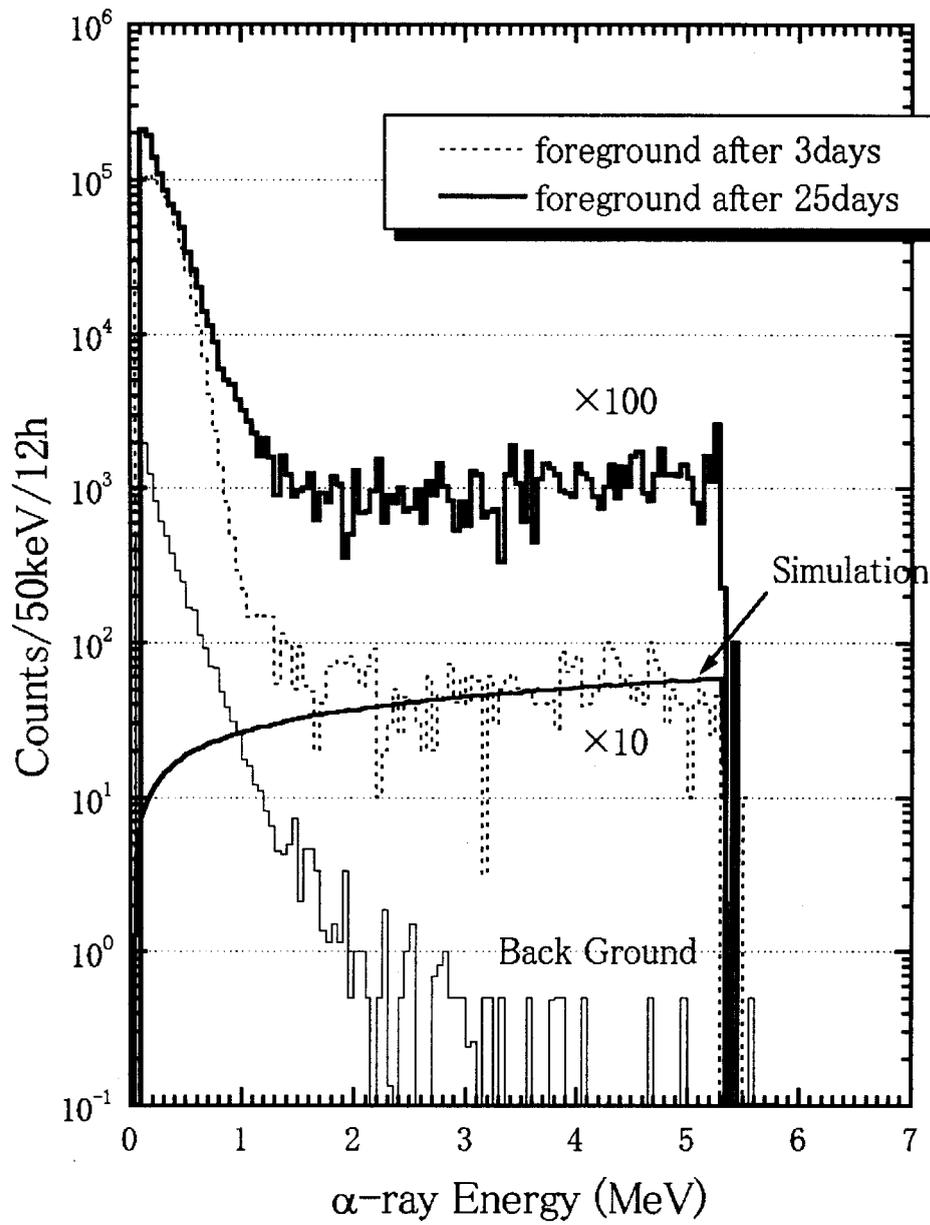


図 2.5 測定された α 線スペクトルとシミュレーション計算で得たスペクトル

放射化法では、 $^{209}\text{Bi}(n, \gamma)^{210\text{g}}\text{Bi}$ 反応断面積を求めた。図 2.5 には、放射化した Bi 試料から放出される α 線のエネルギー-PH スペクトルを、Monte Carlo シミュレーションにより計算したスペクトルと共に示す。シミュレーションで得た α 線の絶対検出効率と、金の γ 線解析で得た入射中性子数及び α 線スペクトルから上記の反応断面積を得た。

2.4 結果と考察

$^{209}\text{Bi}(n, \gamma)^{210\text{g+m}}\text{Bi}$ 反応断面積が平均中性子エネルギー 11, 17, 30, 55, 520keV に対して測定された。これらの結果を過去の測定結果及び JENDL-3.2 の評価値と共に図 2.6 に示す。ここで Present と Kawakami とあるのが我々の実験結果である。JENDL-3.2 のデータは 200keV までが共鳴領域であるので、平均化したものを載せている。今回の結果は中性子エネルギーが近い Diven 等, Macklin 等, Voignier 等の結果の及び JENDL 評価値の 1/2~1/3 の値が得られた。Macklin 等のデータは、実験において試料による中性子散乱の影響が大きく、そのバックグラウンドの為に断面積を過大評価していると考えられる。また Voignier のデータはバックグラウンドの評価が間違っており、その結果断面積を過大評価したものと考えられる。

捕獲 γ 線スペクトルを過去の報告と共に図 2.7 に示す。高エネルギー端の強いピークは、中性子エネルギーが 30keV の Kawakami スペクトルと 520keV の Present スペクトルでは後者の方が約 500keV 高エネルギー側にシフトしている。Voignier 等の結果には 4.7MeV 付近に強い 1 次遷移がみられず、低エネルギー側の強度が支配的である。これはバックグラウンドを過小評価したものと考えられる。尚、今回の結果から、ピーク部分のマルチプリシティは 0.62 と、その遷移強度は強い事が分かった。

放射化法により得た $^{209}\text{Bi}(n, \gamma)^{210\text{g}}\text{Bi}$ 反応断面積の結果を過去の測定値及び JENDL 放射化断面積ファイルの評価値と共に図 2.8 に示す。今回の結果は平均中性子エネルギー 30keV に対して $0.77 \pm 0.20\text{mb}$ 、520keV に対して $0.46 \pm 0.11\text{mb}$ と、JENDL の評価値に比べて 1/3 であった。また、即発 γ 線法の結果と合わせて $^{209}\text{Bi}(n, \gamma)^{210\text{m}}\text{Bi}$ 反応断面積を平均中性子エネルギー 30keV に対して $1.8 \pm 0.2\text{mb}$ 、520keV に対して $0.92 \pm 0.11\text{mb}$ と得た。JENDL はこれらのエネルギー付近で ground の生成がより支配的であると評価しているが、今回 ground と metastable の分岐比が逆転するという結果になった。

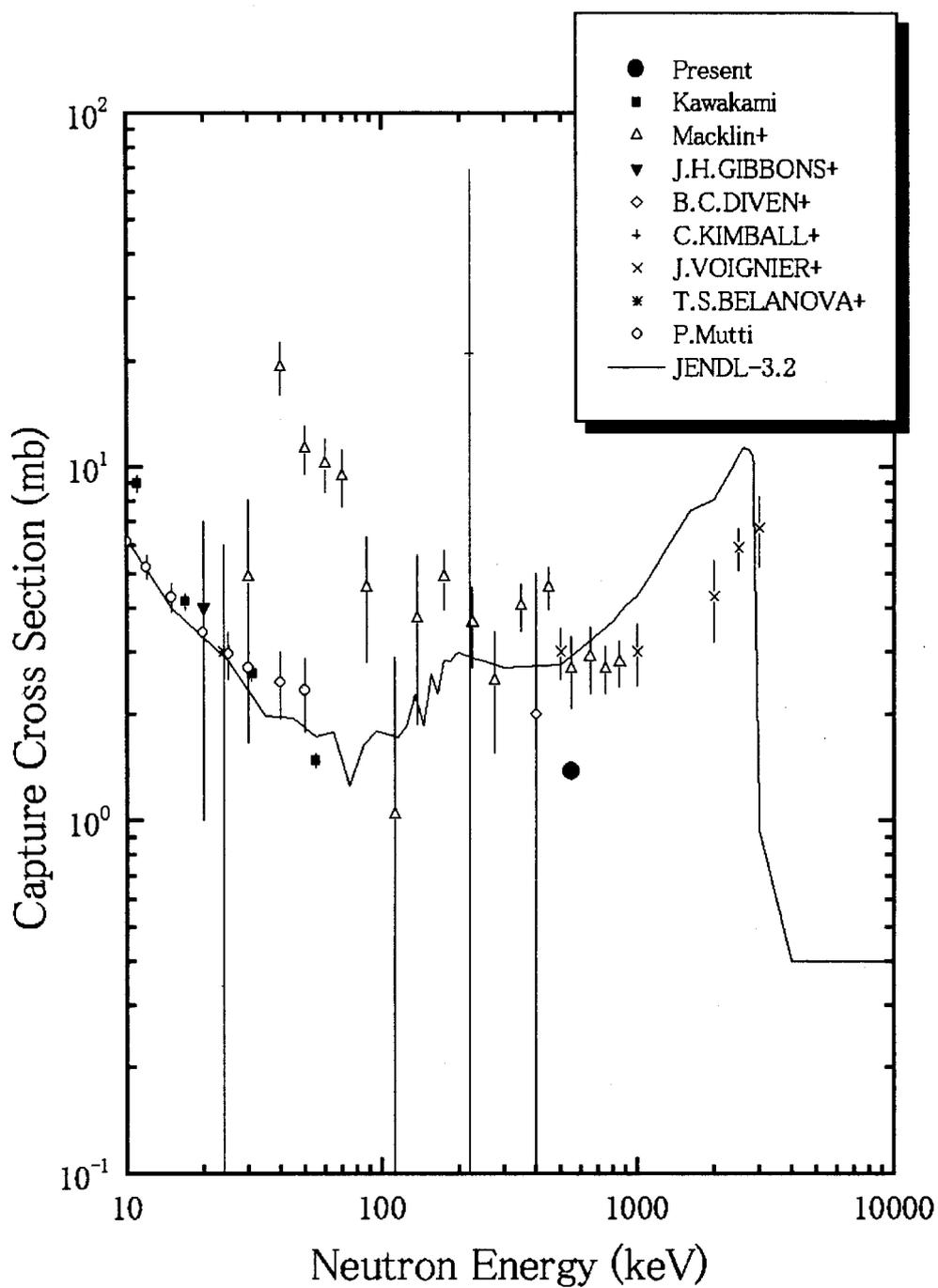


図 2.6 ^{209}Bi 中性子捕獲断面積の比較

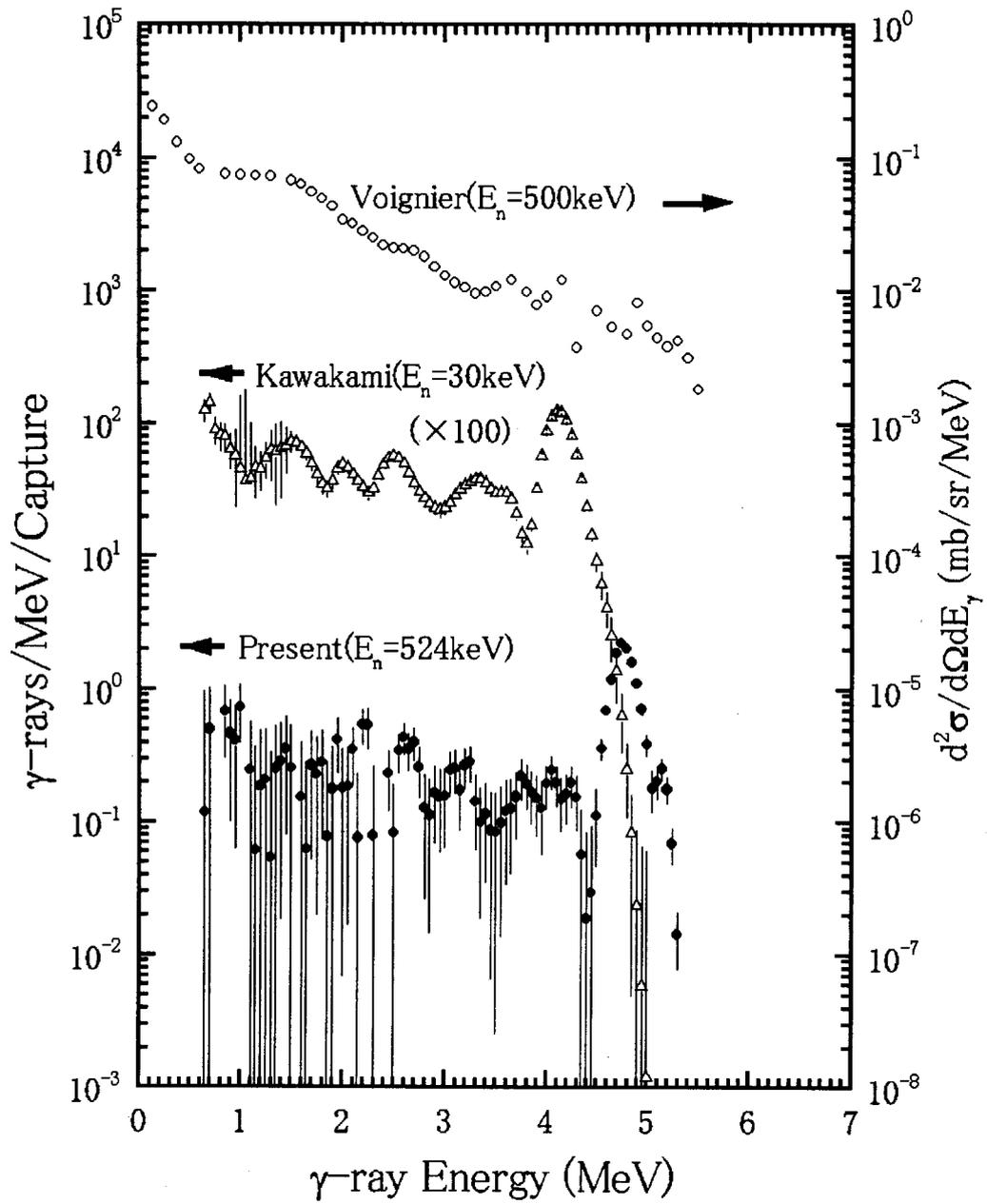


図 2.7 捕獲 γ 線スペクトル

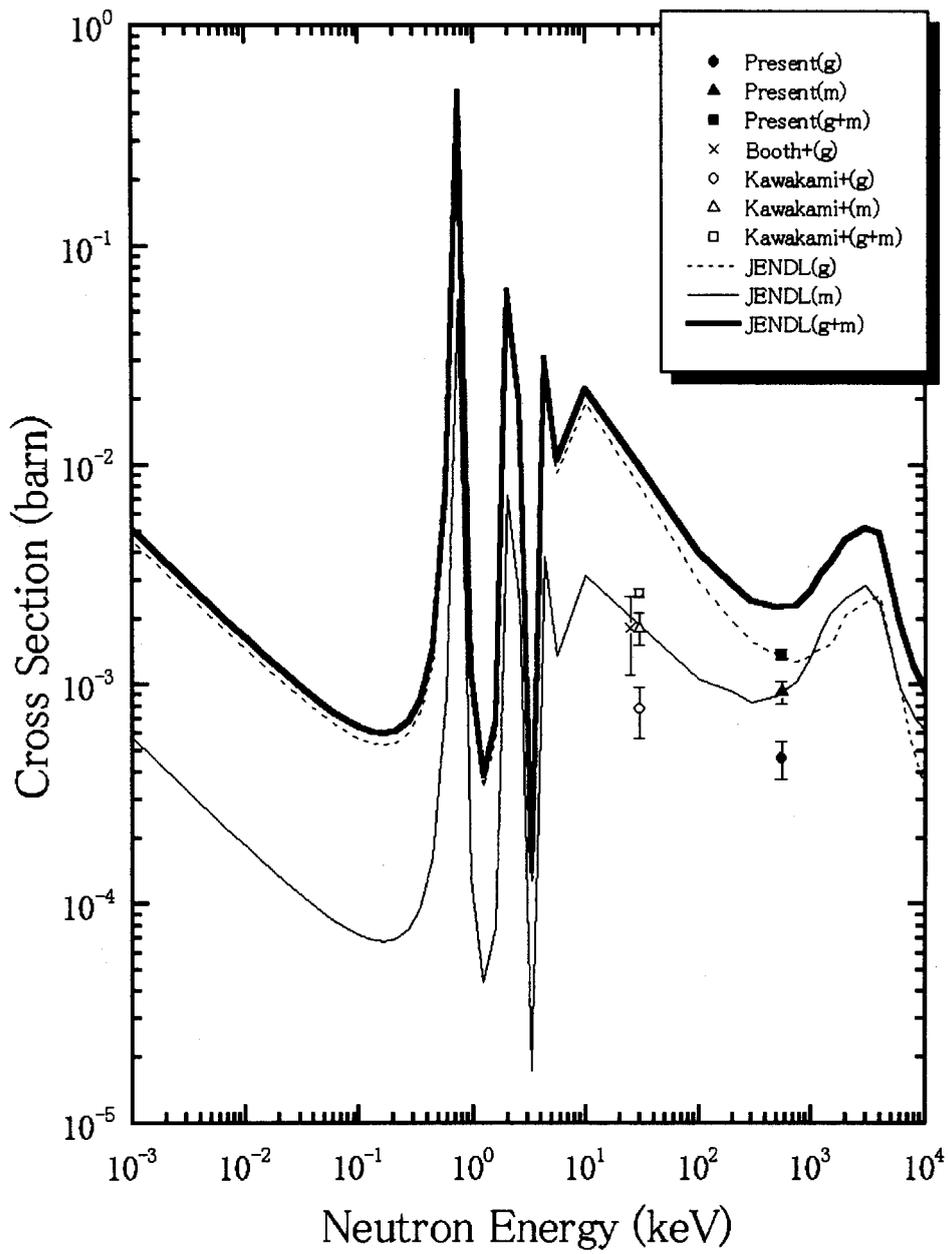


図 2.8 ^{209}Bi 放射化断面積の比較

2.5 結言

即発 γ 線法により平均中性子エネルギー11, 17, 30, 55, 520keVにおいて $^{209}\text{Bi}(n, \gamma)^{210g+m}\text{Bi}$ 反応断面積が測定され、今までの実験結果及びJENDL評価値の1/2~1/3の値が得られた。また、捕獲 γ 線スペクトルを得、捕獲状態から ^{210}Bi の0.271~0.670MeVの励起エネルギー領域の準位への強い1次遷移がある事が分かった。

放射化法により平均中性子エネルギー30keVと520keVにおいて $^{209}\text{Bi}(n, \gamma)^{210g}\text{Bi}$ 反応断面積をそれぞれ $0.77 \pm 0.20\text{mb}$ 及び $0.46 \pm 0.09\text{mb}$ と求めた。この結果と即発 γ 線法の結果から、 $^{209}\text{Bi}(n, \gamma)^{210m}\text{Bi}$ 反応断面積をそれぞれ $1.8 \pm 0.2\text{mb}$ 及び $0.92 \pm 0.11\text{mb}$ と得た。

これらの結果から、 ^{209}Bi の中性子捕獲によるPb-Bi冷却材の放射化量はこれまでの評価値の1/2~1/3になるとされ、特に ^{210}Po の生成量は ^{210m}Bi の生成量よりも小さい事が結論された。

3. ビスマスから生成されるポロニウムの振る舞い

3.1 緒言

ナトリウムに代わる液体金属冷却高速炉の冷却材として、また加速器駆動未臨界炉のターゲットとして、鉛ビスマス液体合金が世界のいくつかの研究機関から提案されている。

鉛ビスマス合金はナトリウムに比べ化学的に不活性であるが、融点はほぼ同様に低いという利点を有する。しかし、主要成分であるビスマス(天然に存在するのは安定な ^{209}Bi だけ)は中性子を吸収するとポロニウム ^{210}Po を生成する。このポロニウムは α 線を放射するので、きわめて危険であるとされ、これが鉛ビスマスを利用する際の最大の技術的課題とされている[1]。

鉛ビスマス冷却高速炉及び鉛ビスマスターゲットを用いた加速器駆動未臨界炉についての研究はこれまでも行われてきたがすべて計算による設計研究が中心であった。このため鉛ビスマス合金が中性子照射を受けた場合のポロニウムの発生の問題は重要な課題と認識されてはいたが[2][3]、実験によってその挙動を定量的に明らかにする研究はほとんど行われていなかった。

また、鉛ビスマス合金を冷却材に用いた原子炉は、旧ソ連において実績があるが、放射線防護に関する考え方が我が国と異なるため、中性子照射によって鉛ビスマス合金から発生するポロニウムの挙動について十分な知見を有しているかが必ずしも明確ではない。さらに、旧ソ連での鉛ビスマス冷却炉は熱炉であるため、鉛ビスマス合金が高速炉や加速器駆動未臨界炉に用いられたことはなく、その際のポロニウムの挙動についての正確な知見はほとんど無いものと考えられる。

このため今後鉛ビスマス冷却高速炉の我が国での実現可能性や鉛ビスマスを加速器駆動未臨界炉のターゲットとして用いる可能性を議論するためには、ポロニウムの挙動を実験によって定量的に明らかにすることが不可欠である。

よって、本研究では、鉛ビスマス合金への中性子照射によって生成されるポロニウムの生成率、合金からの放出率及び放出されたポロニウムの各種材料への吸着率を明らかにすることで、鉛ビスマス冷却高速炉及び鉛ビスマスをターゲットとして用いた加速器駆動未臨界炉でのポロニウム放出量の定量的評価のための知見を得ることを目的とする。

3.2 ポロニウムの生成

3.2.1 序言

原子炉の冷却材や加速器駆動未臨界炉のターゲットとして鉛ビスマスを用いる場合、施設の運転中に鉛ビスマスから生成されるポロニウムの高い危険性に注意を払わなければならない。鉛ビスマス冷却炉を実現するにあたり、鉛ビスマス冷却材中に生成されるポロニウムの量を定量的に求めることは重要である。

本章では、鉛ビスマス中にポロニウムの生成される過程、鉛ビスマス試料に中性子を照射することにより試料中にポロニウムを生成させた実験、試料中のポロニウムの生成量について述べる。

3.2.2 ポロニウムについて

ポロニウムは 1898 年に Pierre と Marie Curie によって発見された。ウランとトリウム含有量から期待されるよりも高い放射能を瀝青ウラン鉱から観察したことによって発見したのである。彼らはポロニウムがビスマス含有率に対して不変であることを発見し、ビスマスとの化学的類似性に気づいた。彼らは、Marie Curie の母国ポーランドにちなんで“ポロニウム”と名付けた。

ポロニウムは以下の点でユニークな α エミッターである[4]。

- 直接安定同位体に崩壊する
- α 線以外の放射線をほとんど放出しない
- 天然にも存在し、人工的にも生成することができる
- 商業目的と同様に研究目的においても優れて明確な放射能特性を与える半減期をもつ
- ほとんどのユーザーの要求を満足させるのに十分強力な α エミッターである

3.2.2.1 ポロニウム

化学記号はPoであり、原子番号は84である。ポロニウムは放射性核種であり、天然には、トリウム系列、ウラン系列、アクチニウム系列として7核種存在する。単体 α 型(低温型)は単純立方構造、 β 型は三方晶系結晶であり、18~54℃領域では両型が存在する。いずれも灰白色で金属性電気伝導を示す。密度は、9.32 g/cm³(α 型)、9.4 g/cm³(β 型)である。融点は254℃で、沸点は962℃である。揮発しやすい。気体状態では、Po₂だけが存在する。化学的にはテルル、セレンと類似しており、物理的にはビスマス、鉛と類似する。イオン化傾向は銀より小さい。200~400℃で単体ハロゲンと反応し、PoX₄を生ずる。²¹⁰Poは α 線源として用い、また静電除去装置にも利用する[10]。

3.2.2.2 ポロニウム化合物

ポロニウムには次のような化合物がある。

- ① 酸化数-2の化合物、2. 酸化数+2の化合物、3. ポロニウム(IV)化合物、4. ポロニウム(VI)化合物である。
- ② PoH₂はきわめて不安定で、沸点は37℃である。その金属塩をポロニウム化物といい、Na₂Po·xH₂O、PbPo、HgPo(岩塩構造)などがある。
- ③ PoCl₂(赤色)、PoBr₂(紫褐色)のハロゲン化物のほか、PoS(黒色固体)がある。
- ④ PoO₂は黄色で蛍石構造(低温)と赤色で正方晶系の2型がある。500℃で分解する。水に不溶である。PoCl₄は黄色で、融点300℃、沸点390℃である。PoBr₄は赤色で、融点330℃(Br₂中)である。PoI₄は黒色で、200℃で昇華する。そのほかにCs₂PoX₆、無色のPo(SO₄)₂、2PoO₂·SO₃がある。溶液は加水分解してコロイド化し、PoO₂⁺(酸性)、PoO₃²⁻(アルカリ性)を含むという。
- ⑤ PoI₆がある。酸性溶液からの陽極蓄積物はPoO₃と推定されている。これは強力な酸化剤で、 $\text{PoO}_3 + 2e \rightarrow \text{PoO}_3^{2-}$ および $\text{PoO}_3^{2-} + 6\text{H}^+ + 4e \rightarrow \text{Po} + 3\text{H}_2\text{O}$ の標準酸化還元電位は+1.47Vおよび+0.748V(対NHE)である[10]。

鉛ビスマス中においてポロニウムはPbPoを形成する。なお、ポロニウムはビスマスと化合しBi₂Po₃を形成するが、鉛ビスマス中ではPbPoの方が安定なため、PbPoのみ存在するようである[7]。

PbPoはおおよそ325~400℃で形成され、黒い金属で、600℃で分解する結晶構造の化合物である。700℃で昇華し、沸点は1520℃である[13]。

3.2.2.3 蒸気圧、蒸発率

鉛ビスマス冷却炉を実現するにあたり、燃料交換およびメンテナンス時の炉容器の開放に伴う

カバーガスの流出、事故による冷却材の流出などを想定すると、鉛ビスマスからのポロニウムの放出過程について知見を得ることは非常に重要である。

鉛ビスマスからのポロニウムの放出を定量的に調査するための実験については第3章で詳しく述べることとし、ここでは鉛ビスマスからのポロニウムの放出過程を考察する上で重要と思われる PbPo と単体 Po の蒸気圧、蒸発率についてまとめる。

温度 T [K]における PbPo および Po の飽和蒸気圧を P_{PbPo} 、 P_{Po} [Pa]とすると、PbPo と単体 Po の飽和蒸気圧は以下のように表される。

50[K]間隔でプロットした飽和蒸気圧のグラフを図 3.1 に示す。

$$\log P_{PbPo} = -\frac{7270}{T} + 9.06 \quad [3][13] \quad (3.1)$$

913 ~ 1123 [K]

$$\log P_{Po} = -\frac{5440}{T} + 9.46 \quad [3][13] \quad (3.2)$$

711 ~ 1018 [K]

$$\log P_{Po} = -\frac{5377.8}{T} + 9.3593 \quad [4][13][14] \quad (3.3)$$

641 ~ 877 [K]

PbPo の飽和蒸気圧は、Po の飽和蒸気圧に比べかなり低いことがわかる。鉛ビスマス中でポロニウムは PbPo の形態をとり、単体の場合と比べて蒸気圧がかなり小さくなる。500℃付近で、単体のみの場合の飽和蒸気圧のおよそ数百分の一となる。

ところが、参考文献[3]によると鉛ビスマスに含まれるポロニウムのうち 99.8%が PbPo の形態、0.2%が単体 Po であり、400℃における鉛ビスマス冷却材上の蒸気分圧は、

$$P_{PbPo} = 8.10 \times 10^{-9} \text{ [Pa]}$$

$$P_{Po} = 1.07 \times 10^{-8} \text{ [Pa]}$$

となり、蒸気中のポロニウムの形態は単体のものが多くなると考えられている。

次に蒸発率についてまとめる。

温度 T [K]における PbPo および Po の蒸発率を w_{PbPo} 、 w_{Po} [$\frac{Bq}{m^2s} / \frac{Bq}{kg}$] とすると、PbPo と単体 Po の真空中の蒸発率は以下のように近似できる[3]。50[K]間隔でプロットした蒸発率のグラフを図 3.2 に示す。

$$\log w_{\text{PbPo}} = -\frac{4793}{T} + 2.476 \quad (3.4)$$

$$\log w_{\text{Po}} = -\frac{2929}{T} + 2.664 \quad (3.5)$$

飽和蒸気圧の場合と同様に PbPo の蒸発率は、Po の蒸発率に比べかなり低いことがわかる。鉛ビスマス中でポロニウムは PbPo の形態をとり、単体の場合と比べて蒸発率がかなり小さくなる。500℃付近で、単体のみの場合の蒸発率のおよそ数百分の一となる。

ところが、こちらも飽和蒸気圧の場合と同様に参考文献[3]によると、ATW バーナーにおける蒸発面面積 19.6[m²]で 400℃の鉛ビスマス冷却材上の蒸発率は、

$$w_{\text{PbPo}} = 1.65 \times 10^4 \text{ [Bq/s]}$$

$$w_{\text{Po}} = 2.99 \times 10^4 \text{ [Bq/s]}$$

となり、ポロニウムが蒸発する形態は単体としてのものが多くなると考えられる。

また、参考文献[3]では、雰囲気が大気圧になると真空中より蒸発率は低下し、およそ千分の一程度になるとしている。

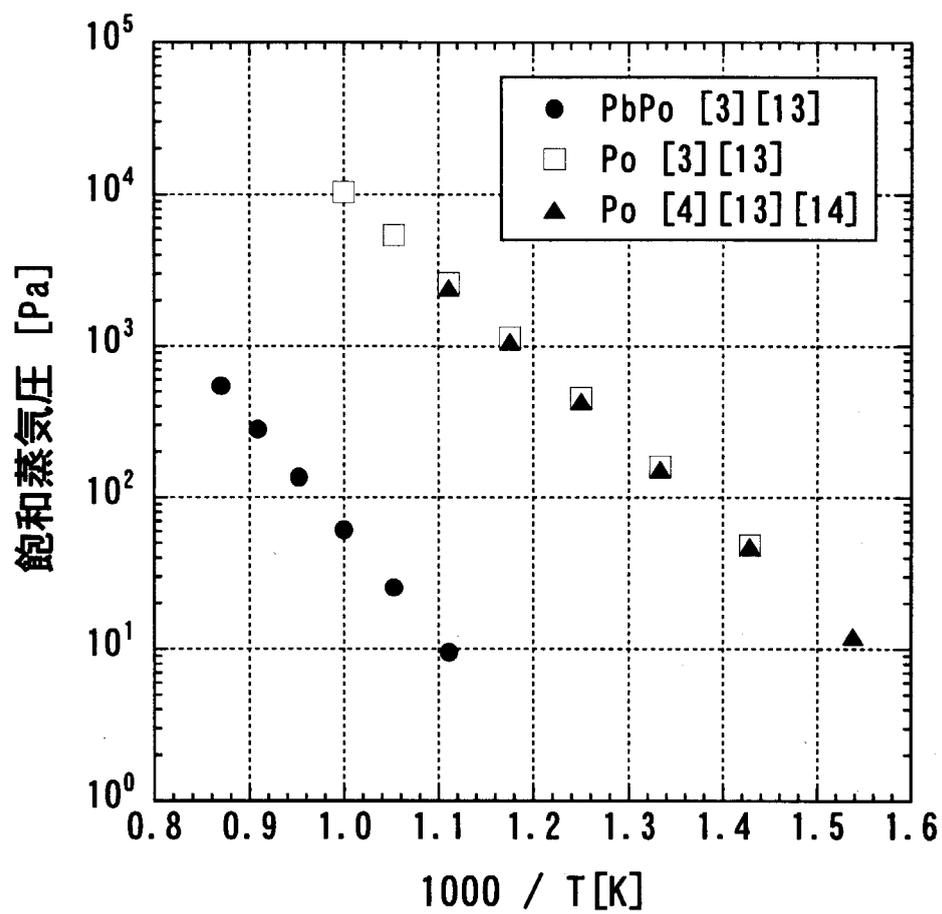


図 3.1 PbPo と Po の飽和蒸気圧

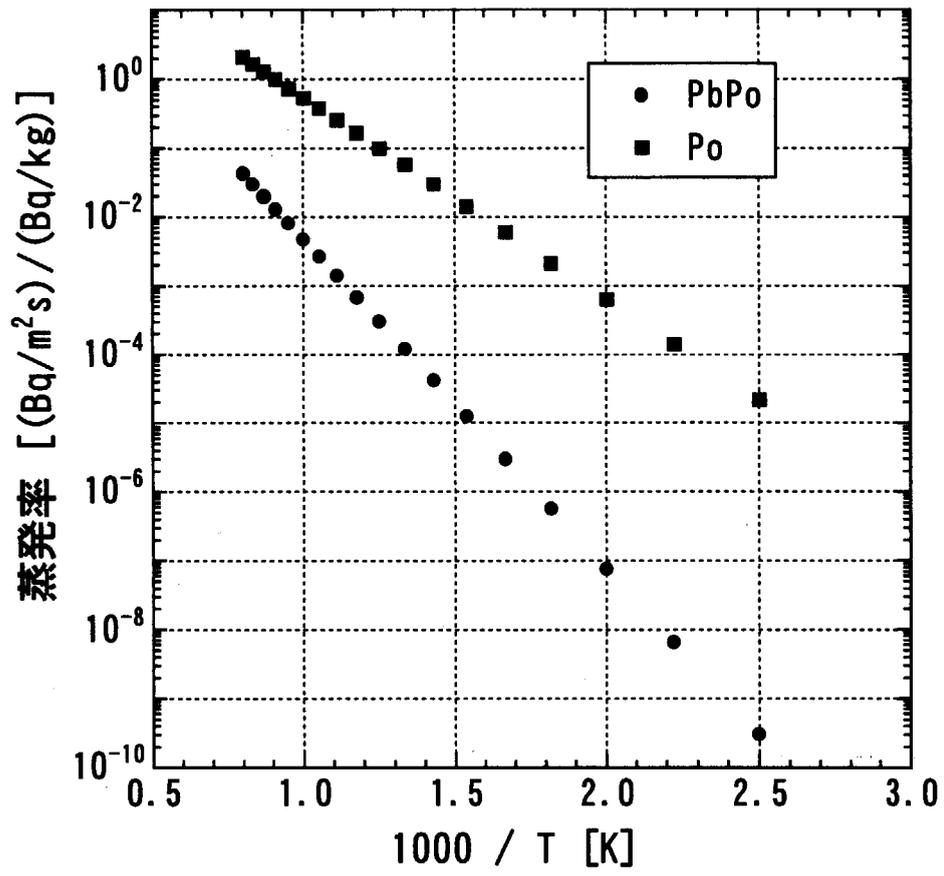


図 3.2 PbPo と Po の蒸発率

3.2.2.4 各種物質への吸着

放出後のポロニウムの挙動について調査する上で、ポロニウムの各種物質への吸着について知見を得ることは重要であると考えられる。各種物質への吸着を定量的に調査するための実験については第3章で詳しく述べることとし、ここではポロニウムの金属への吸着について述べる。

放出されたポロニウムの挙動を調査する上で大変重要な資料になると思われるポロニウムの各種金属表面および表面内部への吸着エンタルピーを表3.1、表3.2に示す[13]。

また、塩酸中のポロニウムの各種金属への吸着効率、銀の場合に最も高い値を得たということが報告されている[5]。

表3.1 ポロニウムの金属表面への吸着エンタルピー

ΔH_a° [kJ/mol]								
	実験値	計算値		実験値	計算値		実験値	計算値
Ag	-165	-124	Pd	-302	-301	Pt	-196	-238
		-232		-326			-211	
Cu	-157	-178	Ni	-220	-250		-279	
	-167			-223			-280	
	-193		Ti	-331	-334	Au	-196	-200
							-226	

表3.2 気体ポロニウムの金属表面および表面内部への吸着エンタルピー計算値

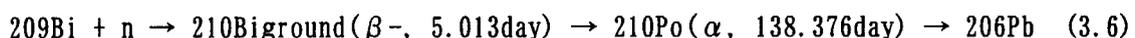
ΔH_a° [kJ/mol]					
On Al	-174.1	On Ge	-205.5	On Ta	-430.8
On Si	-219.7	In Zr	-446.5	On W	-304
In Ti	-334.5	On Nb	-337.6	On Re	-278.6
On Fe	-205.5	On Mo	-257.5	On Ir	-263.2
On Ni	-249.5	On Rh	-273.2	On Pt	-237.8
On Cu	-331.2	On Pd	-301.4	On Au	-199.6
In Cu	-177.8	On Ag	-231.9	In Pb	-157.1
On Zn	-172.8	In Cd	-127.0		

3.2.3 生成過程

本節では、鉛ピスマス中にポロニウムの生成される過程について述べる。参考資料として、ピスマスの断面積を図3.3、図3.4、図3.5に示す。

3.2.3.1 鉛ピスマス冷却炉

鉛ピスマス冷却炉においてポロニウムは以下の反応の結果生成される。



参考文献[2]では、原子炉における飽和濃度を $4\sim 40 \times 10^{10}$ [Bq/kg] としている。

この反応以外に鉛が中性子を吸収し、まずピスマスになり、上式のようにポロニウムを生成す

る経路も考えられるが、これは微量であり、ポロニウム生成量に大きな影響はもたらさないと考えられる。鉛の中性子吸収によるポロニウム生成については、第3.2.5.2節で詳しく考察する。

3.2.3.2 加速器駆動未臨界炉

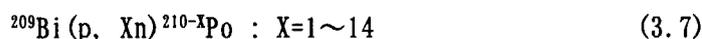
鉛ビスマスを用いた加速器駆動未臨界炉で、ポロニウムが生成される過程は、ビスマスの反応によるものと鉛の反応によるものがある。鉛を冷却材に用いる加速器駆動未臨界炉では、ポロニウムの発生量は鉛ビスマスを用いるものに比べ、千分の一の強度になる。したがって、鉛ビスマスを用いた加速器駆動未臨界炉におけるポロニウムの生成は、ビスマスの反応によるものが主となる。加速器駆動未臨界炉におけるポロニウムの主要な生成過程は以下のものが考えられる[7]。

(1) ビスマスの中性子による放射化

これは原子炉におけるポロニウムの生成と同様である。

(2) ビスマスと高エネルギー陽子の核反応

以下のようなビスマスと陽子との核反応の結果、ポロニウムが生成される。



参考文献[7]は、加速器ターゲットにおける飽和濃度を 40×10^{10} [Bq/kg]としている。

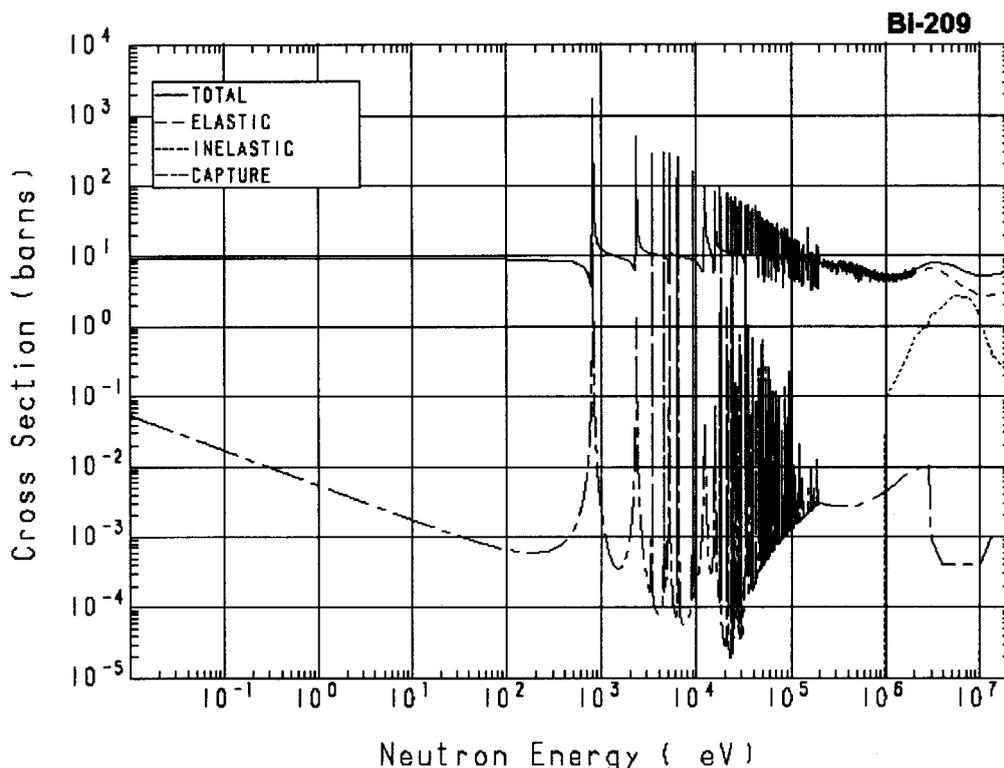


図 3.3 ビスマスの断面積 1

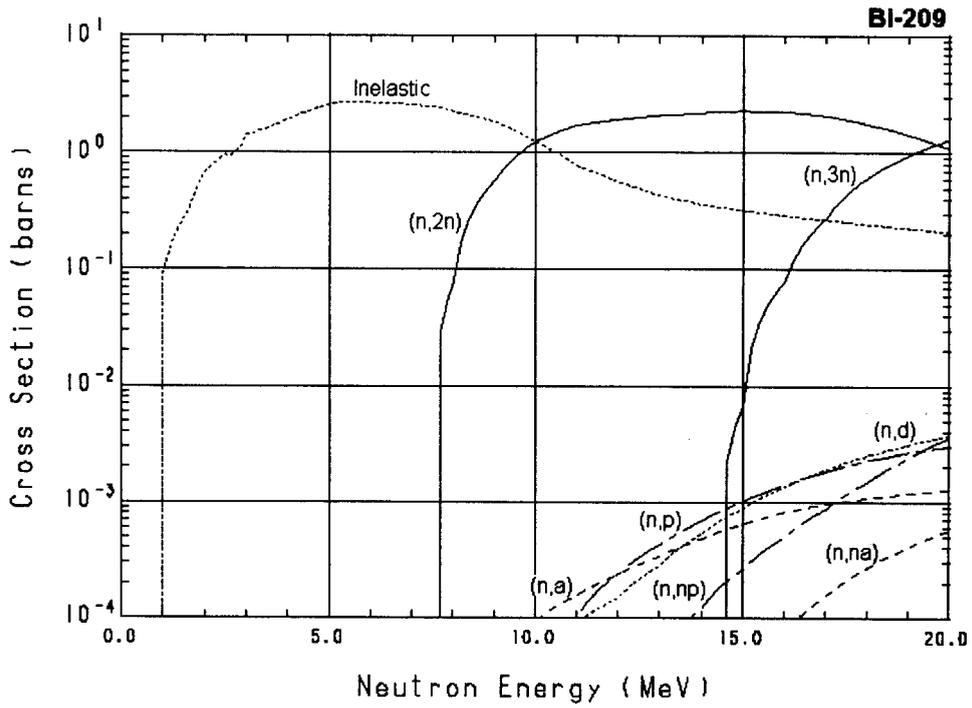


図 3.4 ビスマスの断面積 2

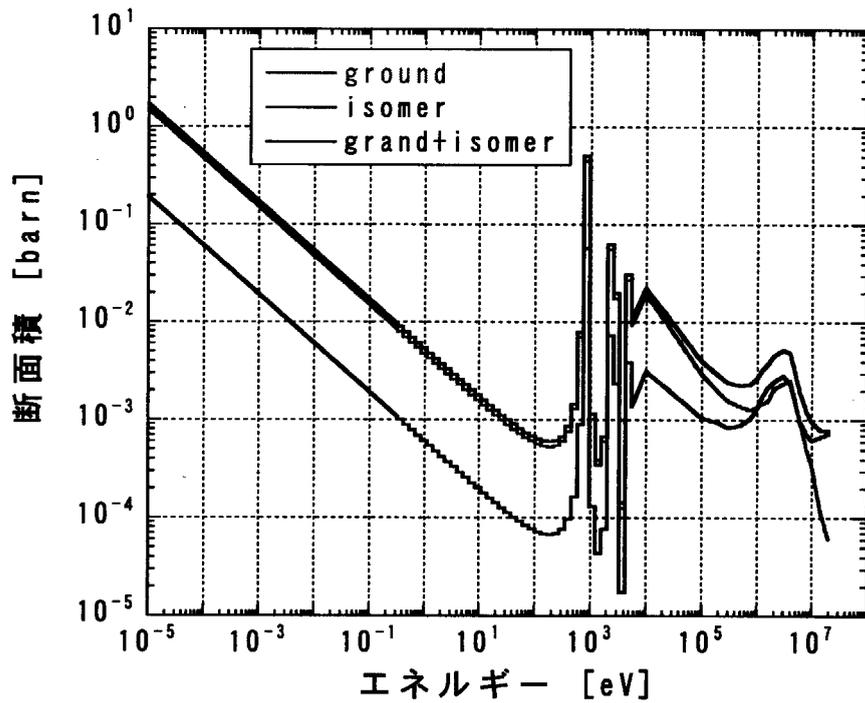


図 3.5 ビスマスの断面積 3

3.2.4 鉛ビスマスへの中性子照射

本節では、鉛ビスマスへの中性子照射について述べる。

3.2.4.1 中性子照射場の検討

鉛ビスマス試料(試料についての詳細は第3章)で述べる)に中性子を照射するにあたり、照射場として日本原子力研究所 JRR-4 中性子ビーム設備を選んだ。JRR-4 中性子ビーム設備の性能を表 3.3 に示す[6]。

表 3.3 JRR-4 中性子ビーム設備の性能

	熱中性子モード	熱中性子モード
	I	II
熱中性子束 (< 0.53 eV) [n/cm ² sec]	2.0×10 ⁹	6.5×10 ⁸
熱外中性子束 (0.53 eV ~ 10 keV)	9.0×10 ⁸	3.2×10 ⁷
速中性子束 (> 2.6 MeV)	3.6×10 ⁵	5.0×10 ⁴
カドミ比	2.5	13.5
ガンマ線量 [Sv/h]	3.6	0.7

鉛ビスマス合金は高速炉の冷却材として提案されており、本来なら高速中性子に対するポロニウムの生成率を定量化するべきである。

しかし、高速中性子に対するビスマスの中性子吸収断面積はまだ不確定なものであり、鉛ビスマス中に生成されるポロニウムを評価するには不十分である。まずはよく知られたビスマスの熱中性子に対する中性子断面積を用い、ポロニウムの生成量を評価することにし、熱中性子が多く含まれる照射場を選んだ。

次に中性子束密度の大きさであるが、炉心近くでの照射では中性子束密度が大きすぎるため、一瞬の照射で大量のポロニウムが生成してしまう恐れがある。また、中性子束密度が小さすぎると、一定量のポロニウムを生成させるのに多くの時間を費やしてしまう。

以上の条件を考慮し、日本原子力研究所 JRR-4 中性子ビーム設備熱中性子モード I を照射場として選んだ。熱中性子モード I における中性子スペクトルを図 3.6 に示す。

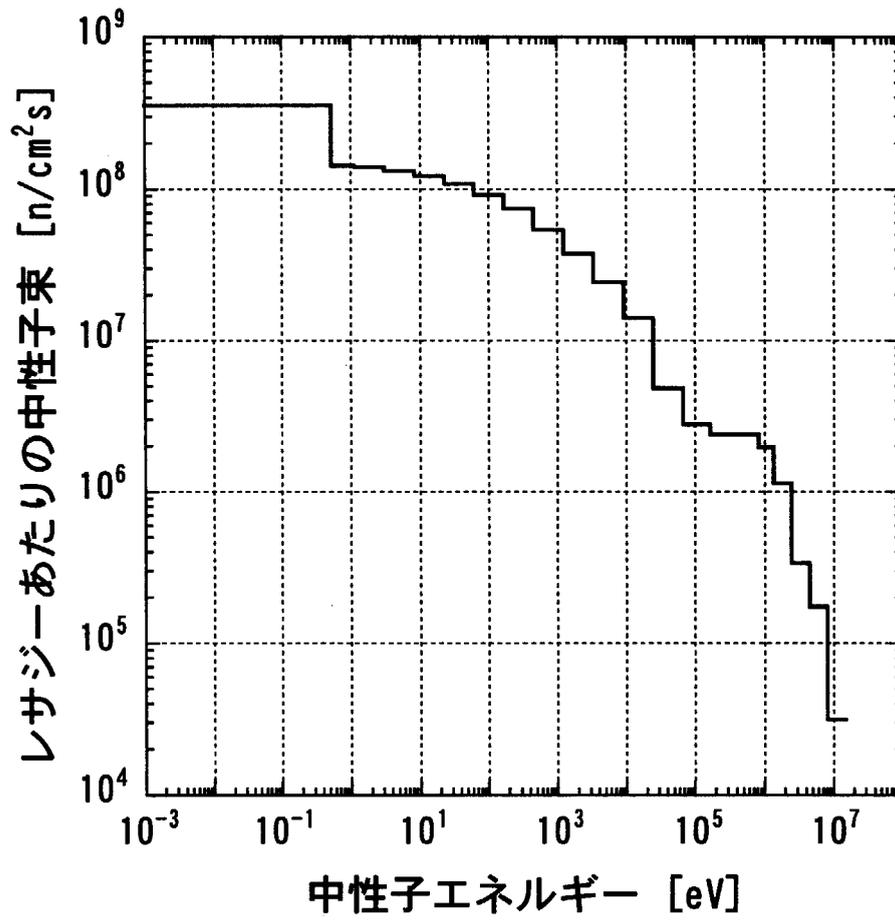


図 3.6 熱中性子モード I における中性子スペクトル

3.2.4.2 鉛ビスマス試料内部の中性子束の変化の予測

鉛ビスマスは散乱断面積が大きいため、自己遮蔽の効果が大きくなる。そのため、試料内部で中性子束が小さくなり、試料全体への均一な照射が困難なことが予想される。

そこで、日本原子力研究所モンテカルロ中性粒子輸送計算コード MVP を用い、試料内部の中性子束の変化を予測した。

鉛ビスマスは半径 1.1 [cm]、高さおよそ 0.75 [cm] の円柱形にモデル化し、その周りを厚さ 0.135 [cm] で囲むアルミナ製のつぼも計算のモデルに加えた。また、試料は円周方向に回転している。計算モデルを図 3.7 に示す。

計算では、つぼも含めた試料内部の中性子束の変化および鉛ビスマス内部の平均中性子束、試料中の中性子束分布求めた。結果を図 3.8、図 3.9 に示す。

予想通り、試料中心部ほど中性子束が小さくなっていることが分かる。また、つぼも数%ではあるが中性子を遮蔽していることが分かる。鉛ビスマス内部では中性子束が照射中性子束のおよそ 91%程度になることが分かった。

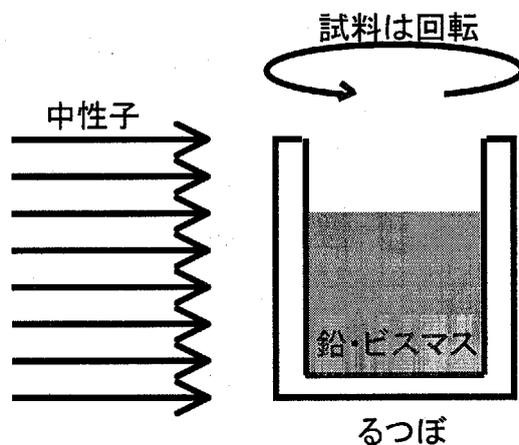


図 3.7 MVP 計算モデル

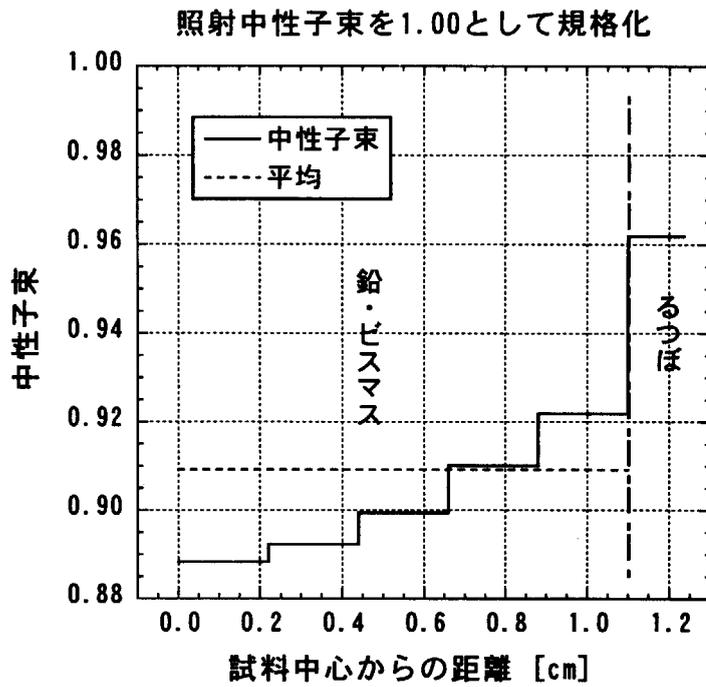


図 3.8 試料内部の中性子束の変化

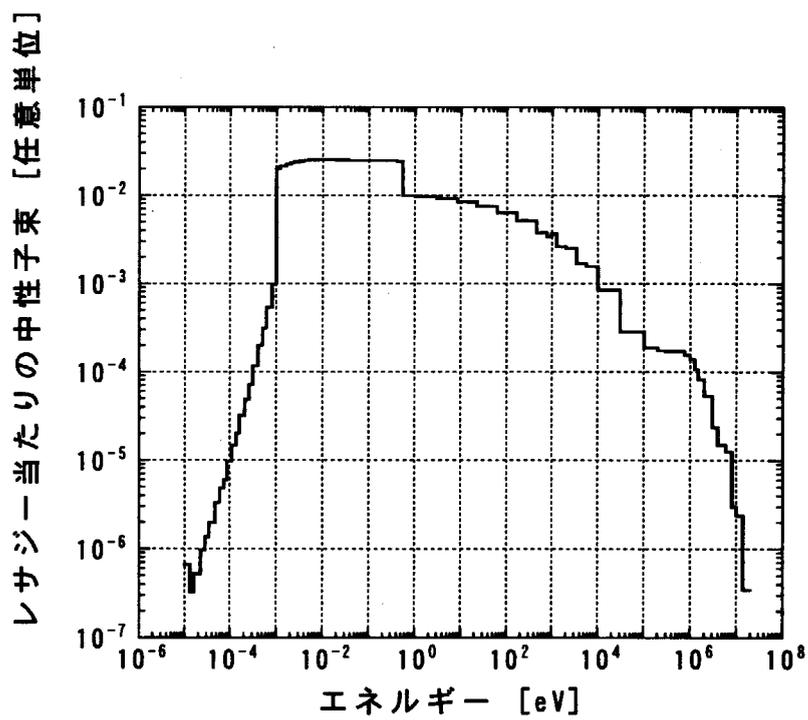


図 3.9 試料内部の中性子スペクトル

3.2.4.3 鉛ビスマスおよびるつぼの放射化の予測

鉛ビスマス試料に中性子を照射したときに生成されるのは、ポロニウムだけではない。照射直後の試料の放射能が大きすぎると非常に危険であり、取り扱いも困難になる。中性子照射量を検討する上においても試料の放射化の予測はたいへん重要である。中性子照射に先立ち、鉛ビスマスおよびるつぼの放射化について予測検討した。放射化の予測についてはアイソトープ手帳[12]を参考にした。照射は1時間で行うとし、予測した放射能は照射直後の値である。

鉛ビスマス(Pb:Bi=44.5:55.5)の質量は30[g]である。これは純度99.9999%の鉛とビスマスを混合し、熔融させ合金化して製造したものである。不純物として、鉛には、Bi、Ti、Cu、Cd、Agが、ビスマスには、Pb、Cu、Ag、Cd、(Tl、Fe、Ni)が混入している。不純物の量は厳密には特定できないので最大値 10^{-6} (括弧内の不純物は 10^{-7})の比で混入していると仮定した。

照射量は 5.0×10^{12} [n/cm²]として、放射性核種の生成量を求めた。鉛ビスマス中に生成される放射性核種の予測結果を表3.4に示す。表に示す²¹⁰Poの生成量は²¹⁰Biのすべてが一瞬で²¹⁰Poに崩壊すると仮定して求めた参考値である。

表3.4 鉛ビスマス中に生成される放射性核種

核種	²⁰⁹ Pb	²¹⁰ Bi	²¹⁰ Po	²⁰⁴ Tl	⁶⁴ Cu
半減期	3.253h	5.013d	138.4d	3.78y	127.0h
生成量 [Bq]	2.56×10^6	9.18×10^3	3.32×10^2	4.38×10^{-3}	6.61×10^1
放射線	β	α, β, γ	α, γ	β, γ	β, γ
核種	¹⁰⁷ Cd	^{111m} Cd	¹¹⁵ Cd	¹⁰⁸ Ag	^{110m} Ag
半減期	6.50h	48.6m	53.5h	2.37m	249.8d
生成量 [Bq]	2.83×10^{-1}	2.29×10^0	2.46×10^{-1}	4.59×10^3	6.24×10^{-2}
放射線	β, γ	γ	β, γ	β, γ	β, γ
核種	⁵⁵ Fe	⁵⁹ Fe	⁶⁵ Ni		
半減期	2.73y	44.50d	2.520h		
生成量 [Bq]	9.47×10^{-5}	5.99×10^{-5}	7.85×10^{-2}		
放射線	γ	β, γ	β, γ		

るつぼはアルミナ製であり、その成分と構成比を表3.5に示す。構成比の和が100%になっていないのは、メーカーの説明によると、るつぼにより構成比にばらつきがあり正確に定量できないためとのことである。るつぼの質量は数個の平均をとり、5.2450[g]とした。また、密度は2.4[g/cc]である。るつぼ中に生成される放射性核種の予測結果を表3.6に示す。

照射直後の鉛ビスマスの放射能は問題となるものではないことが分かった。

表3.5 るつぼの成分構成比

成分	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	CaO	Na ₂ O	K ₂ O	MgO
構成比 [%]	63	31	0.72	0.96	2.75	3.75	0.1

表 3.6 るつぼ中に生成される放射性核種

核種	^{31}Si	^{28}Al	^{55}Fe	^{59}Fe
半減期	2.622h	2.241m	2.73y	44.50d
生成量 [Bq]	3.65×10^4	6.21×10^6	1.50×10^0	9.55×10^{-1}
放射線	β, γ	β, γ	γ	β, γ
核種	^{45}Ca	^{24}Na	^{42}K	^{27}Mg
半減期	163.8d	15.02h	12.36h	9.462m
生成量 [Bq]	2.45×10^0	9.38×10^4	1.88×10^4	4.38×10^2
放射線	β, γ	β, γ	β, γ	β, γ

^{28}Al の生成量が多いようであるが、半減期が短いため数十分の冷却により放射能はほとんどなくなる。また、懸念していた ^{24}Na 、 ^{31}Si 、 ^{42}K の生成量も問題になるほどではないことが分かった。

試料放射化の予測に万全を期すため、日本原子力研究所モンテカルロ中性粒子輸送計算コード MVP で 3.2.4.2 節と同様のモデルを用い重要と思われる核種の生成量を計算した。先の予測では考慮されなかった、るつぼや鉛ビスマスの形状や自己遮蔽および中性子散乱の効果を考慮に入れている。照射量は上述の予測と同じ 5.0×10^{12} [n/cm²] とした。照射は δ 関数的に行うと仮定した。予測結果を表 3.7 に示す。

ポロニウムの生成量を安全側に評価するため、中性子を捕獲した ^{209}Bi は全て ^{210}Bi ground になると仮定した。上述の予測と同様、表中に示す ^{210}Po の生成量は ^{210}Bi のすべてが一瞬で ^{210}Po に崩壊すると仮定して求めた参考値である。なお、第 3.2.5 節で、試料中のポロニウム生成量を精密に評価しているが、そこでは ^{210}Bi ground と ^{210}Bi isomer の分岐を考慮している。

表 3.7 生成される放射性核種(MVP で予測)

核種	^{210}Bi	^{210}Po	^{24}Na	^{28}Al
半減期	5.013d	138.4d	15.02h	2.241m
生成量 [Bq]	1.31×10^4	4.75×10^2	9.88×10^4	1.17×10^8
放射線	α, β, γ	α, γ	β, γ	β, γ

先の予測に比べると ^{28}Al の生成量が多いようであるが、これは放射性核種が δ 関数的に生成されると仮定したためである。しかし、この程度の量だと上述の予測と同様に数十分の冷却により放射能はほとんどなくなる。

他の核種については、先の予測と同程度である。放射化予測の正当性が確認できた。

3.2.4.4 鉛ビスマスへの中性子照射

日本原子力研究所 JRR-4 中性子ビーム設備において行った鉛ビスマス試料への中性子照射について述べる。

中性子をビスマスに吸収させポロニウムを生成するのが目的だが、ポロニウムの生成量を評価するため試料には金線およびカドミウムカバー付き金線を取り付け、同時に中性子束の測定も行った(図 3.10)。

試料はファンの取り付けられた弥七(図 3.11)と呼ばれる容器に入れる。弥七に入った試料は、ビーム室の上から通じている管の中を通し、ビーム照射口正面に置かれる(図 3.12、図 3.13)。管

の中に空気を流すことにより弥七を回転させ、試料への均一な照射を目指した。照射中の試料は外部から監視することができ、回転の様子なども観察できる。

中性子照射は3個の試料それぞれ独立に行った。照射時間は、表 3.3 を参考にし、3個の試料に最大で 50、100、500[Bq]程度のポロニウムを生成させることを想定し、それぞれ連続で 5、10、50[*min*]とした。

裸の金線とカドミウムカバー付き金線一本ずつを一組とし、5、10分照射用の試料には一組、50分照射用の試料には二組を取り付けた。照射後の金線の放射能の測定は β - γ 同時係数法で行い、測定器はプラスチックシンチレーション β 線検出器と NaI(Tl)シンチレーション γ 線検出器を使った対向型の β - γ 同時係数測定器を用いた。

照射中性子の測定結果を表 3.8 に示す。

表 3.8 照射中性子束測定結果

照射時間 [<i>min</i>]	カドミ比	熱中性子束 [<i>n/cm</i> ² <i>sec</i>]	熱中性子フルエンス [<i>n/cm</i> ²]
5	6.484	1.587×10^9	4.733×10^{11}
10	7.267	1.714×10^9	1.028×10^{12}
50	7.084	1.674×10^9	5.021×10^{12}

5分照射した試料は照射時に回転がうまく行われなかった。そのため、金線への照射にばらつきが起これ熱中性子束の大きさに影響が出たものと思われる。50分照射した試料から得た熱中性子束の値が10分照射した試料から得たものより小さいのは、試料に取り付けたカドミウムの量が多いため、中性子束が小さくなったためと考えられる。熱中性子束の値は、原研で行われた他の実験結果と比較して、ほぼ適当な値であることを確認した。

また、50分照射した試料の γ 線を Ge 半導体検出器で測定した。測定は試料上面側、底面側の2通りで行った。結果を図 3.14 に示す。

γ 線はほぼ全てのエネルギーで底面側から出ているものの方が多く、 γ 線のほとんどが、鉛ビスマスからではなく、るつぼから出ているものと考えられる。

測定したスペクトルから、るつぼ中の²⁴Na、⁴²Kの存在が確認できた。図から読み取れるほど大きなものではないが、²⁴Naからのシングルエスケープピーク、ダブルエスケープピークは確認できた。⁴²Kについてはピークらしきものはあるが、それがシングルエスケープピークやダブルエスケープピークなのかは断定できなかった。

他にもいくつかのエネルギーでピークが見られたが、核種は特定できなかった。

しかし、全体の放射能は問題となるものではないことが確認できた。

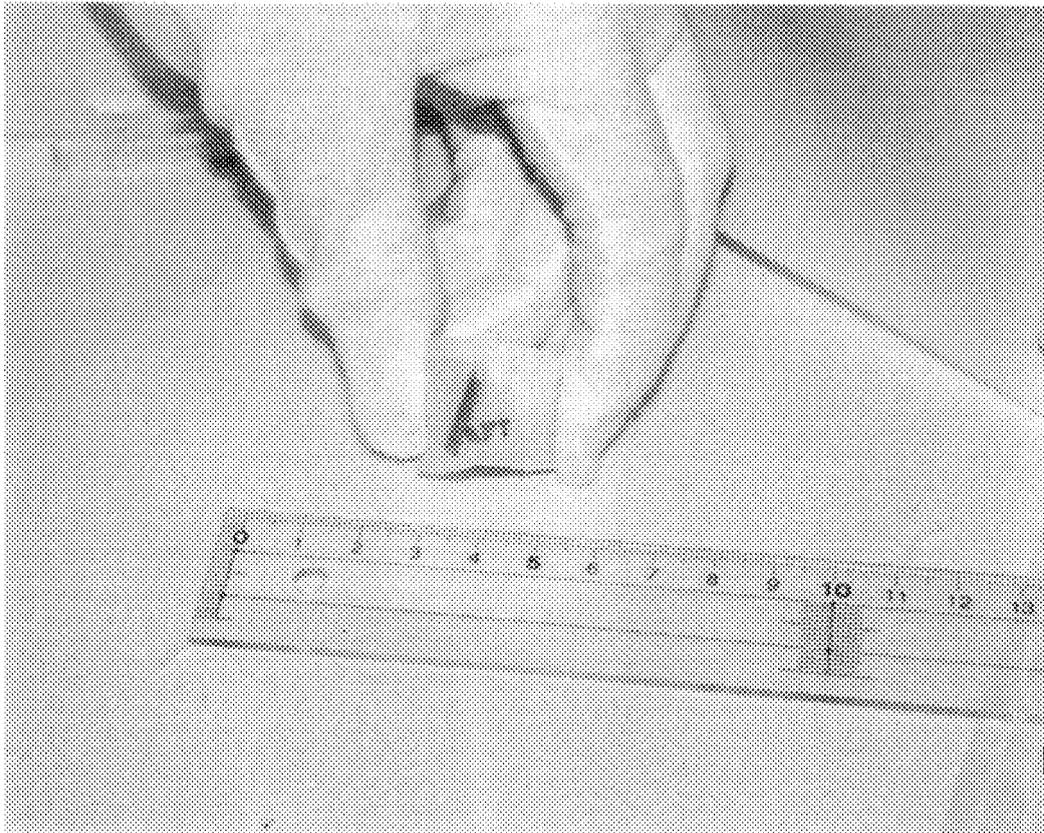


図 3.10 金線を取り付けた試料

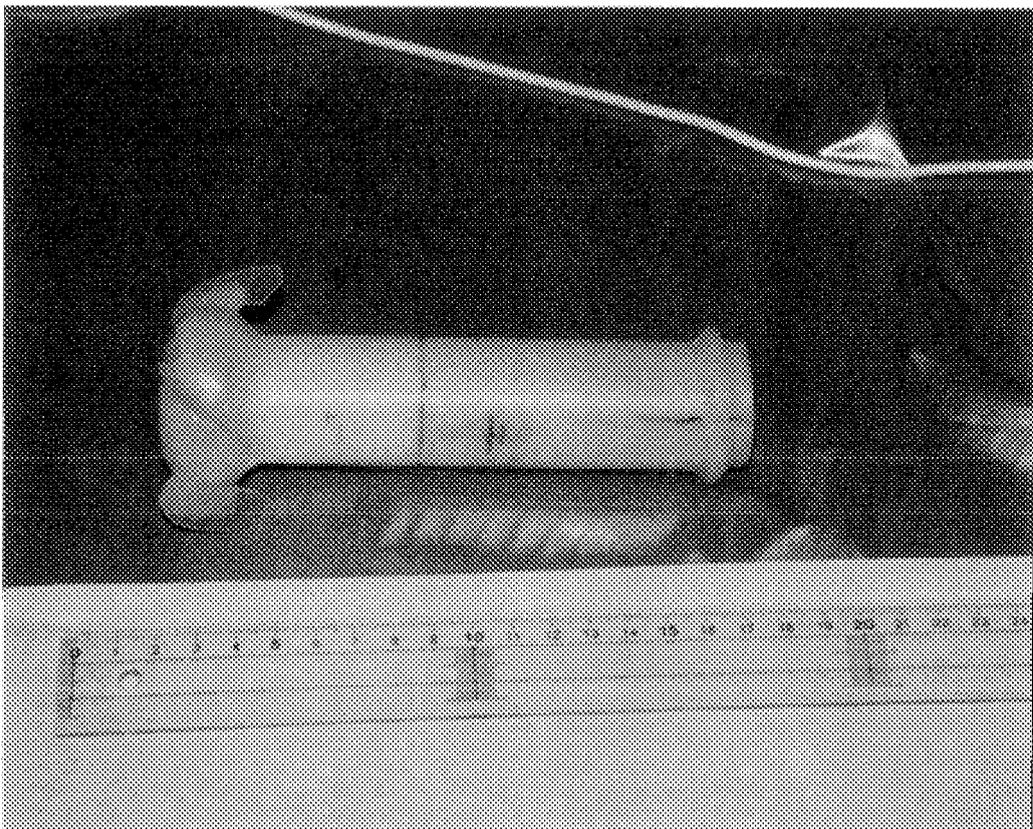


図 3.11 弥七

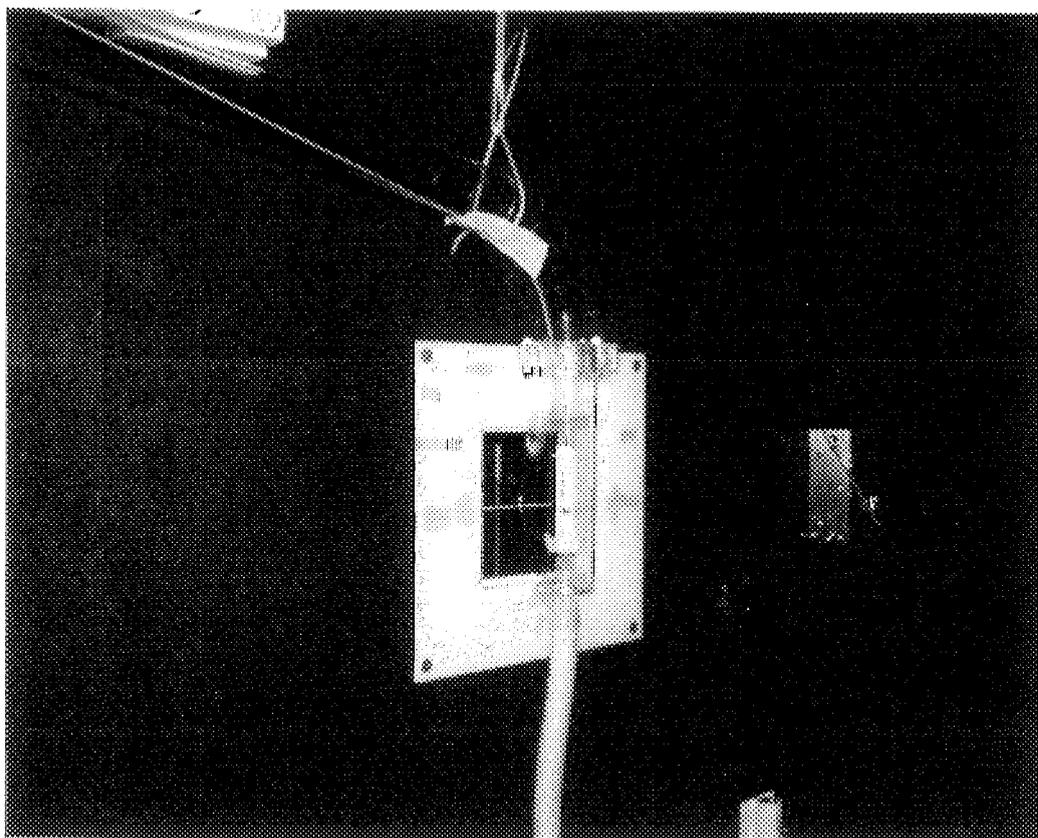


図 3.12 中性子ビーム照射口

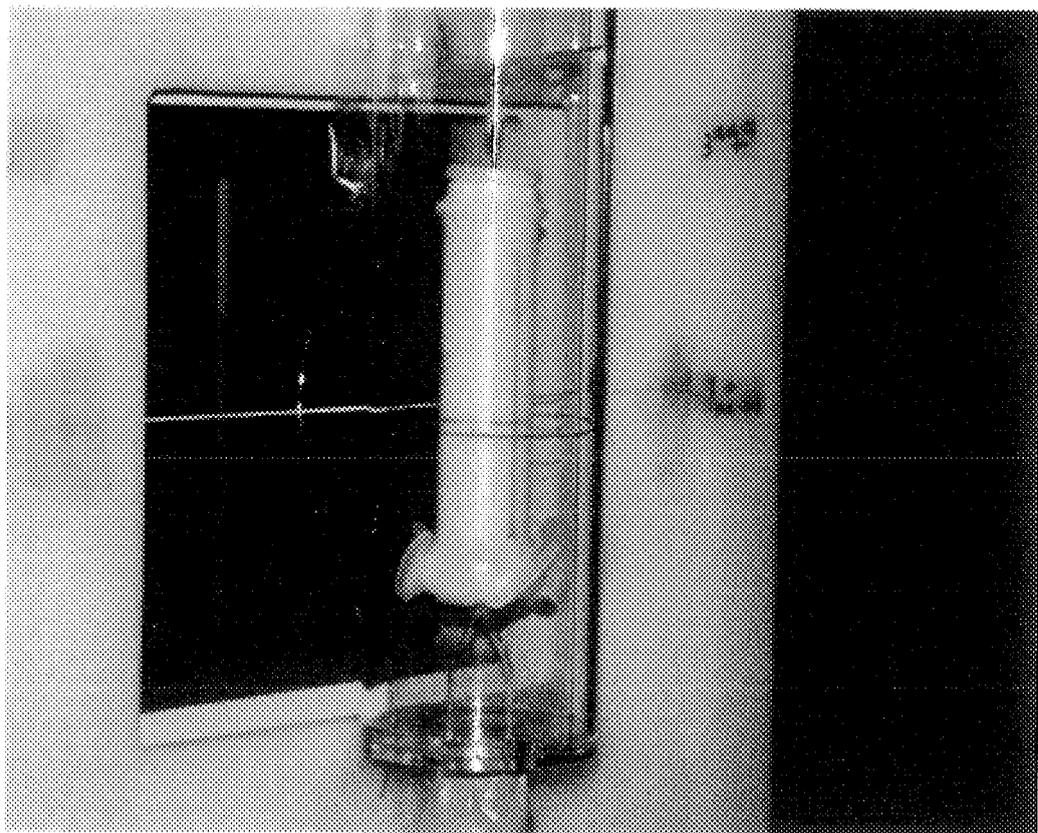


図 3.13 試料への照射の様子

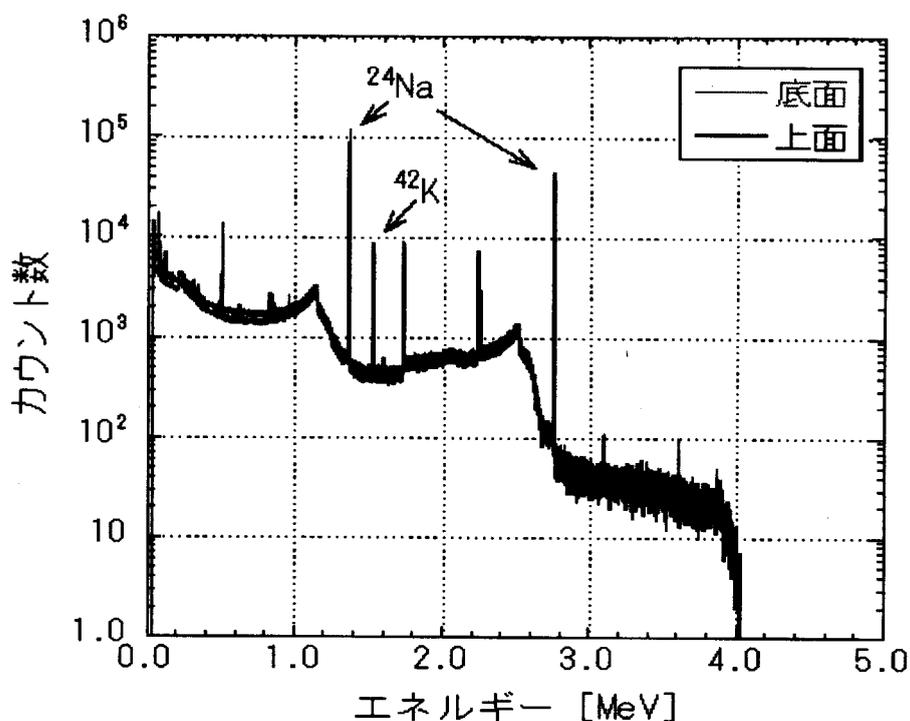


図 3.14 るつばから放出される γ 線

3.2.5 ポロニウムの生成量

ここでは、照射中および照射後のポロニウムの生成量、数量の変化について述べる。

3.2.5.1 ビスマス中でのポロニウム量の変化

(1) 照射中のポロニウムの生成量

中性子を照射している鉛ビスマス中でのポロニウムの生成量は ^{210}Bi の生成および ^{210}Bi から ^{210}Po への崩壊、 ^{210}Po から ^{206}Pb への崩壊を考えれば計算できる。この計算には以下の変数および定数を用いた。

Φ	:	中性子束	[n/cm ² s]
N_0	:	^{209}Bi の数密度	[1/cm ³]
σ_0	:	^{209}Bi の中性子捕獲断面積	[cm ²]
λ_1	:	^{210}Bi の崩壊定数	[1/s]
λ_2	:	^{210}Po の崩壊定数	[1/s]
t	:	中性子照射からの経過時間	[s]
$N_1(t)$:	時間 t での ^{210}Bi の数密度	[1/cm ³]
$N_2(t)$:	時間 t での ^{210}Po の数密度	[1/cm ³]

^{210}Bi の変化を表す微分方程式は以下ようになる。

$$\frac{dN_1(t)}{dt} = \sigma_0 \Phi N_0 - \lambda_1 N_1(t) \quad (3.8)$$

$t=0$ で $N_1(0)=0$ となるので、式(2.8)を解くと

$$N_1(t) = \frac{\sigma_0 \phi N_0}{\lambda_1} (1 - e^{-\lambda_1 t}) \quad (3.9)$$

となる。

また、 ^{210}Po の変化を表す微分方程式は以下のようにになる。

$$\begin{aligned} \frac{dN_2(t)}{dt} &= \lambda_1 N_1(t) - \lambda_2 N_2(t) \\ &= \sigma_0 \phi N_0 (1 - e^{-\lambda_1 t}) - \lambda_2 N_2(t) \end{aligned} \quad (3.10)$$

$t=0$ で $N_2(0)=0$ となるので、式(3.10)を解くと

$$N_2(t) = \sigma_0 \phi N_0 \left[\frac{1}{\lambda_2} + \frac{e^{-\lambda_1 t}}{\lambda_1 - \lambda_2} - \frac{\lambda_1 e^{-\lambda_2 t}}{\lambda_2 (\lambda_1 - \lambda_2)} \right] \quad (3.11)$$

となる。

照射時間を T [s] とすると、照射直後の ^{210}Bi と ^{210}Po の数密度は以下のようにになる。

$$\begin{aligned} N_1^* &= N_1(T) \\ &= \frac{\sigma_0 \phi N_0}{\lambda_1} (1 - e^{-\lambda_1 T}) \end{aligned} \quad (3.12)$$

$$\begin{aligned} N_2^* &= N_2(T) \\ &= \sigma_0 \phi N_0 \left[\frac{1}{\lambda_2} + \frac{e^{-\lambda_1 T}}{\lambda_1 - \lambda_2} - \frac{\lambda_1 e^{-\lambda_2 T}}{\lambda_2 (\lambda_1 - \lambda_2)} \right] \end{aligned} \quad (3.13)$$

(2) 照射後のポロニウムの生成量

中性子照射後も ^{210}Bi から ^{210}Po への崩壊があるためポロニウムの量は増加する。

中性子照射後の鉛ピスマス中でのポロニウムの生成量は ^{210}Bi から ^{210}Po への崩壊および ^{210}Po から ^{206}Pb への崩壊を考えれば計算できる。この計算にはさらに以下の変数を用いた。

t'	:	中性子照射後からの経過時間	[s]
$N_1'(t)$:	時間 t' での ^{210}Bi の数密度	[1/cm ³]
$N_2'(t)$:	時間 t' での ^{210}Po の数密度	[1/cm ³]

^{210}Bi の変化を表す微分方程式は以下ようになる。

$$\frac{dN_1'(t')}{dt'} = -\lambda_1 N_1'(t') \quad (3.14)$$

$t'=0$ で $N_1'(0)=N_1^*$ となるので、式(3.14)を解くと

$$N_1'(t') = N_1^* e^{-\lambda_1 t'} \quad (3.15)$$

となる。

また、 ^{210}Po の変化を表す微分方程式は以下ようになる。

$$\begin{aligned} \frac{dN_2'(t')}{dt'} &= \lambda_1 N_1'(t') - \lambda_2 N_2'(t') \\ &= \lambda_1 N_1^* e^{-\lambda_1 t'} - \lambda_2 N_2'(t') \end{aligned} \quad (3.16)$$

$t'=0$ で $N_2'(0)=N_2^*$ となるので、式(3.16)を解くと

$$N_2'(t') = \frac{\sigma_0 \phi N_0}{\lambda_2 (\lambda_1 - \lambda_2)} \left[\lambda_1 e^{-\lambda_2 t'} - \lambda_2 e^{-\lambda_1 t'} + \lambda_2 e^{-\lambda_1 (t'+T)} - \lambda_1 e^{-\lambda_2 (t'+T)} \right] \quad (3.17)$$

となる。

したがって、式(3.16)は以下ようになる。

$$\frac{dN_2'(t')}{dt'} = \frac{\lambda_1 \sigma_0 \phi N_0}{\lambda_1 - \lambda_2} \left[e^{-\lambda_2 t'} - e^{-\lambda_1 t'} + e^{-\lambda_1 (t'+T)} - e^{-\lambda_2 (t'+T)} \right] \quad (3.18)$$

式(3.18)が0になる時間がすなわちポロニウムの量が最大になる時間である。その時間 T_{\max} を求めると以下ようになる。

$$T_{\max} = \frac{1}{\lambda_1 - \lambda_2} \ln \frac{1 - e^{-\lambda_1 T}}{1 - e^{-\lambda_2 T}} \quad (3.19)$$

よって、照射後のポロニウム最大量は次式で表される。

$$\begin{aligned} N_{2\max} &= N_2'(T_{\max}) \\ &= \frac{\sigma_0 \phi N_0}{\lambda_2 (\lambda_1 - \lambda_2)} \left[\lambda_1 e^{-\lambda_2 T_{\max}} - \lambda_2 e^{-\lambda_1 T_{\max}} + \lambda_2 e^{-\lambda_1 (T_{\max} + T)} - \lambda_1 e^{-\lambda_2 (T_{\max} + T)} \right] \end{aligned} \quad (3.20)$$

これまで展開してきた数式を用い、実際に中性子照射を行った鉛ビスマス試料中のポロニウム量の変化を計算した。照射時間は、5、10、50 分間の 3 通りである。計算条件を表 3.9 に示す。

中性子束の値は、金線への照射によって求めた結果と MVP により求めた試料内部の平均中性子束の結果を考慮して与えた。 ^{209}Bi の数密度は実際の試料の値を用いた。断面積は参考文献[15]の Activation file 96 と MVP で計算した試料中の中性子束分布とを用い算出した。崩壊定数は参考文献[16]から与えた。結果を図 3.15、図 3.16、図 3.17 に示す。

なお、ポロニウムの量が最大になるのは、5、10、50 分間の照射を行った試料が、それぞれ 24.90、24.89、24.88 日後であることが分かった。

表 3.9 ポロニウム生成量計算条件

中性子束(50 分)	$\Phi=1.522 \times 10^9$ [n/cm ² s]
中性子束(10 分)	$\Phi=1.558 \times 10^9$ [n/cm ² s]
中性子束(5 分)	$\Phi=1.443 \times 10^9$ [n/cm ² s]
^{209}Bi の数密度	$N_0=1.679 \times 10^{22}$ [1/cm ³]
$^{210}\text{Bi}_{\text{ground}}$ 生成断面積	$\sigma_0=34.6 \times 10^{-27}$ [cm ²]
^{210}Bi の崩壊定数	$\lambda_1=1.600 \times 10^{-6}$ [1/s]
^{210}Po の崩壊定数	$\lambda_2=5.798 \times 10^{-8}$ [1/s]

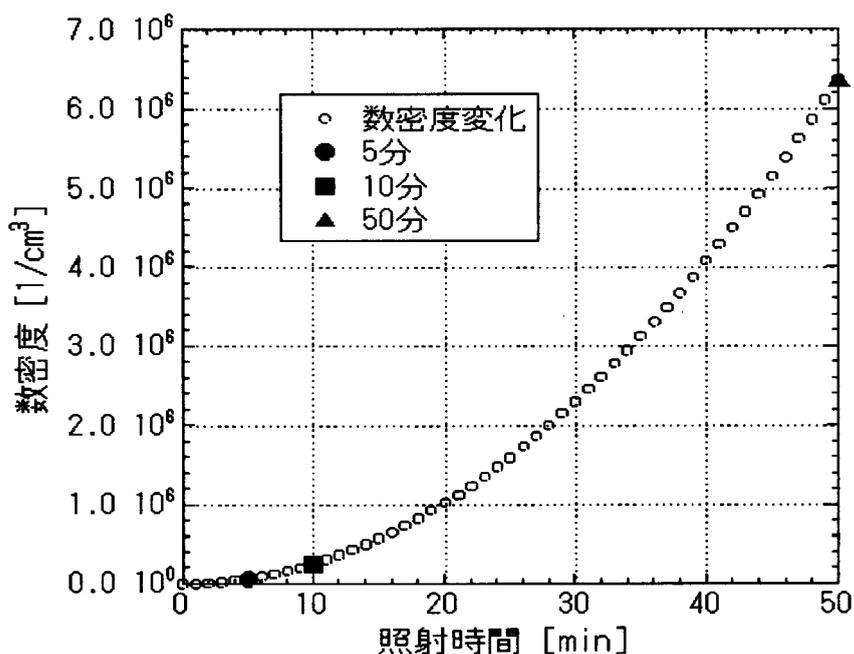


図 3.15 照射中のポロニウム量の変化

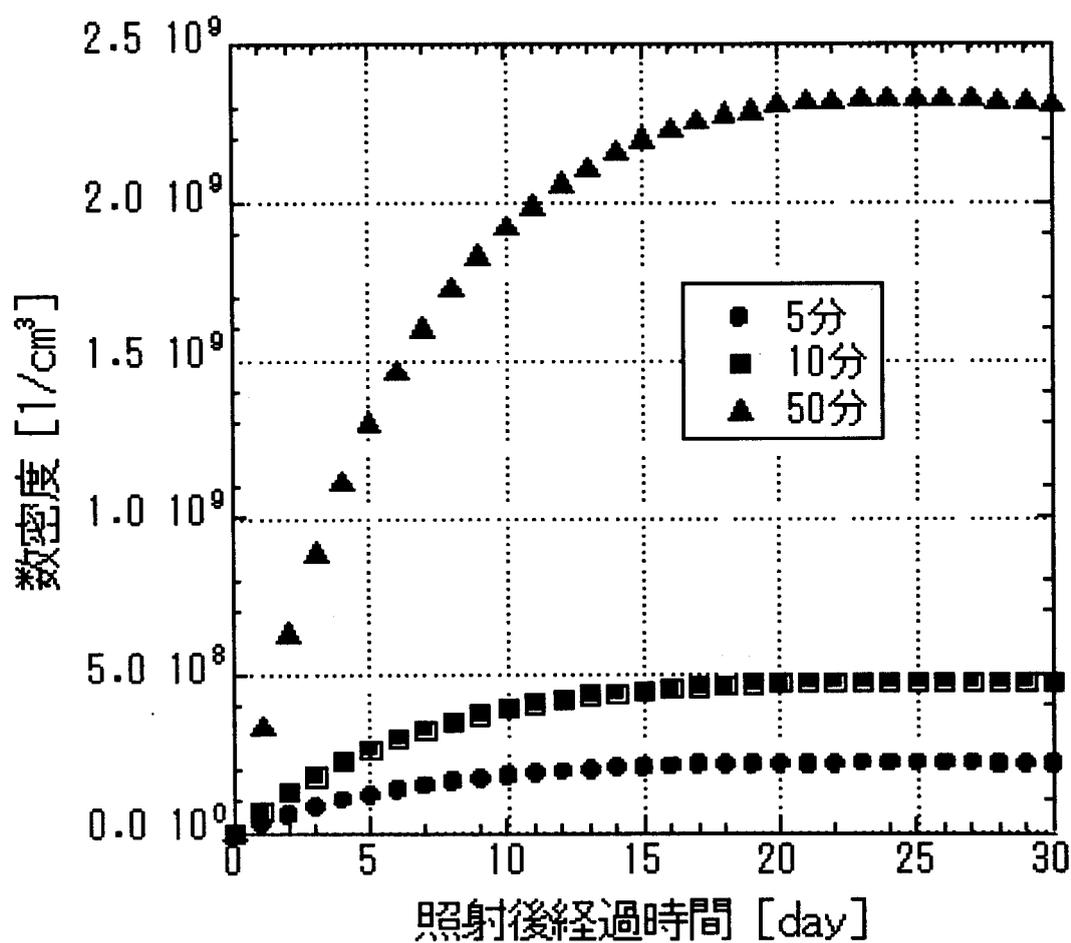


図 3.16 照射後のポロニウム量の変化(1ヶ月)

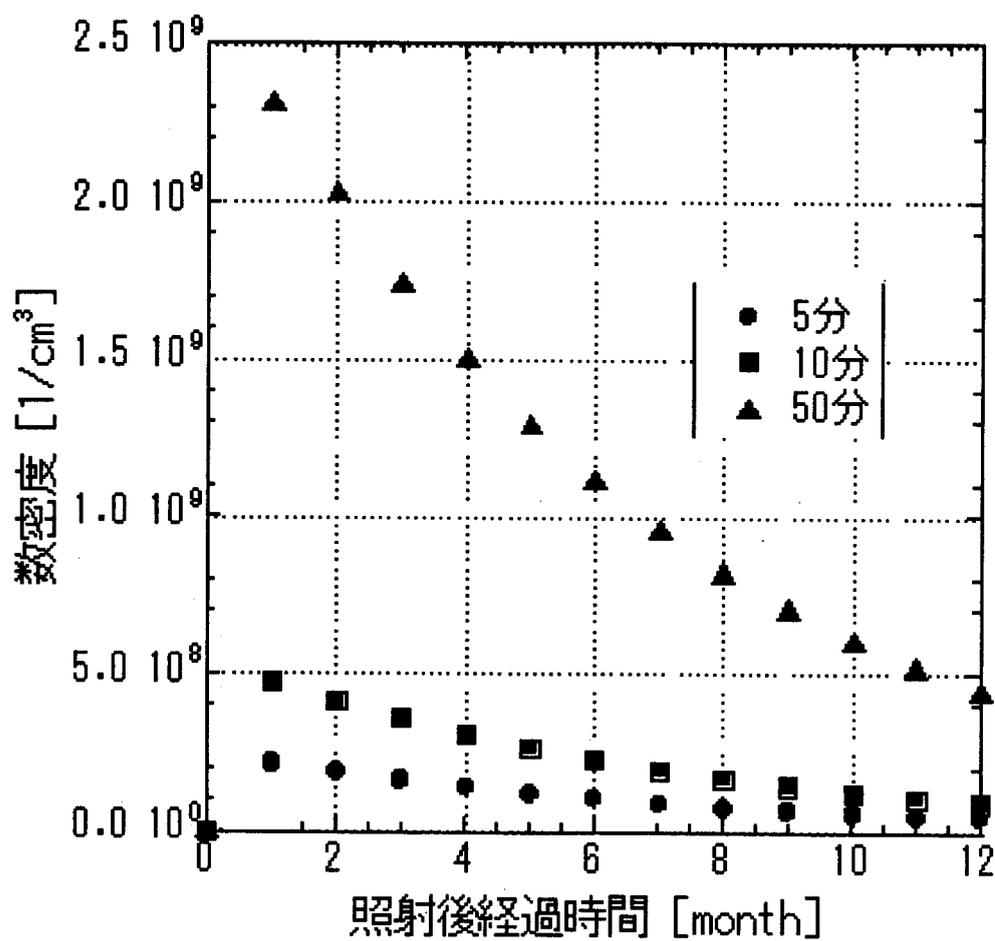


図 3.17 照射後のポロニウム量の変化(1年)

3.2.5.2 鉛を考慮した鉛ビスマス中でのポロニウム量の変化

前節で行ったポロニウム量の変化の計算では、鉛ビスマス中の鉛の存在は考慮に入れていない。しかし、鉛が中性子を吸収することでビスマスが生成されるので、鉛からポロニウムが生成することも考えられる。

そこで、本節では鉛も考慮に入れた鉛ビスマス中でのポロニウム量の変化を求めた。

計算に用いた核種の系列を図 3.18 に示す。この系列は参考文献[15]に吸収断面積が記載されている核種をもとに構成した。

n 番目の核種に関する方程式は次のように書ける。

$$\frac{dN_n}{dt} = -(\lambda_n + \sigma_{a,n}\phi)N_n + \sum_m S_{m,n}N_m \quad (3.21)$$

ここで、

N_n	:	n 番目の核種の数密度	[1/cm ³]
λ_n	:	n 番目の核種の崩壊定数	[1/s]
$\sigma_{a,n}$:	n 番目の核種の中性子捕獲断面積	[cm ²]
Φ	:	中性子束	[n/cm ² s]
$S_{m,n}$:	m 番目から n 番目の核種の生成率	[1/s]

式 3.21 を 4 次のルンゲクッタ法を用い、前節の計算と同様、実際に照射した試料について計算した。

なお、²⁰⁴Pb は、ポロニウムの生成に寄与しないため、計算では考慮していない。計算条件を表 3.10 に示す。照射時間は、5、10、50 分間の 3 通りである。結果は前節で得られた図 3.15、図 3.16、図 3.17 とほぼ同様なものとなった。数値は 6 桁まで一致した。

したがって、ポロニウムの生成量に対する鉛の影響はほとんどないことが分かった。

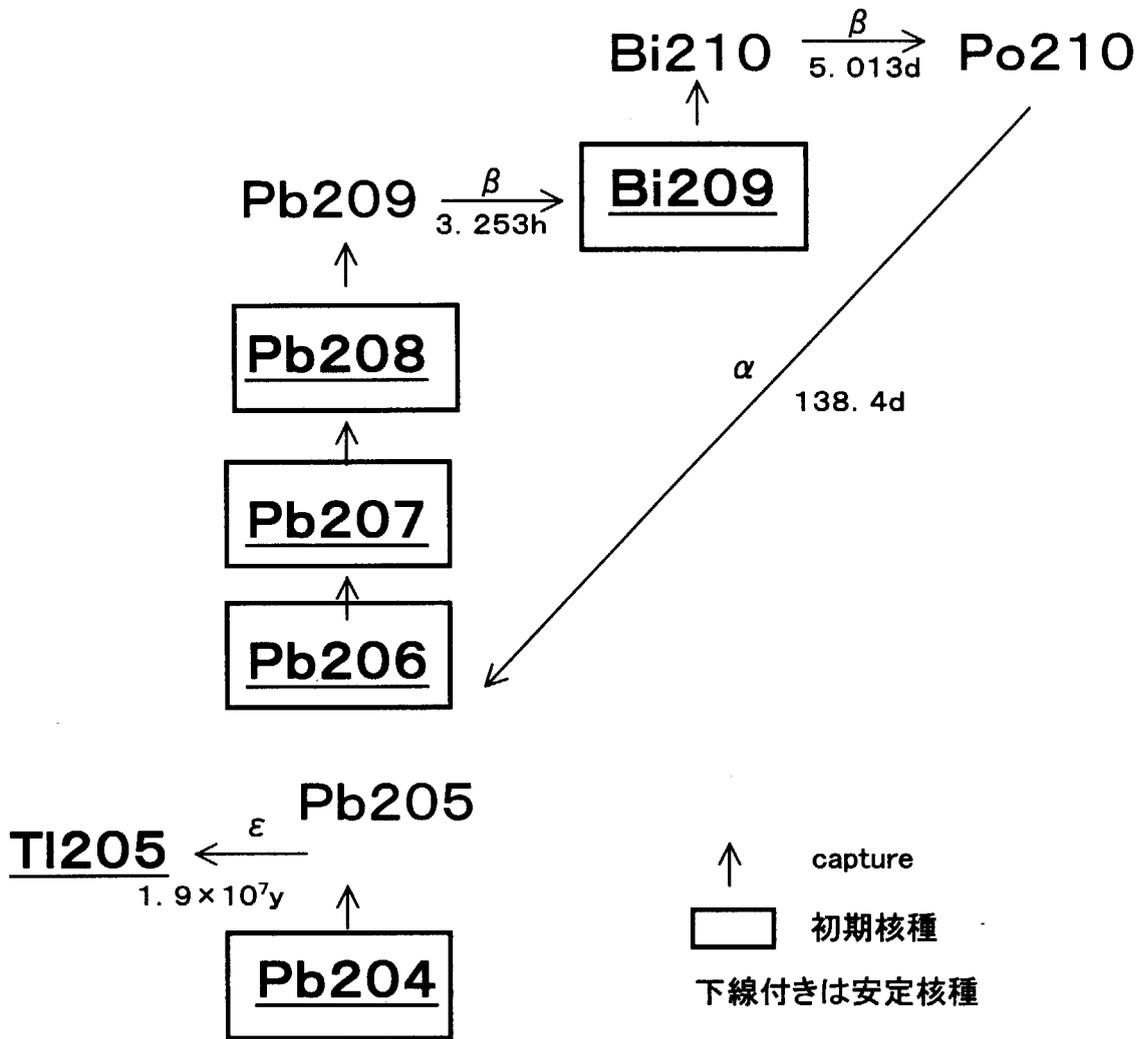


図 3.18 鉛ビスマスの中性子吸収および崩壊系列

表 3.10 ポロニウム生成量計算条件(ルンゲクッタ法)

中性子束 [n/cm ² s]			
1.522 × 10 ⁹			
数密度 [1/cm ³]			
²⁰⁶ Pb	3.273 × 10 ²¹	²⁰⁷ Pb	3.001 × 10 ²¹
²⁰⁸ Pb	7.103 × 10 ²¹	²⁰⁹ Pb	0.000
²⁰⁹ Bi	1.679 × 10 ²²	²¹⁰ Bi	0.000
²¹⁰ Po	0.000		
中性子捕獲断面積 [cm ²]			
²⁰⁶ Pb	2.714 × 10 ⁻²⁶	²⁰⁷ Pb	6.312 × 10 ⁻²⁵
²⁰⁸ Pb	4.439 × 10 ⁻²⁸	²⁰⁹ Bi	3.000 × 10 ⁻²⁶
崩壊定数 [1/s]			
²⁰⁹ Pb	5.919 × 10 ⁻⁵	²¹⁰ Bi	1.600 × 10 ⁻⁶
²¹⁰ Po	5.798 × 10 ⁻⁸		

3.2.5.3 鉛ビスマス中のポロニウム生成量

前々節、前節の計算結果をまとめ、5、10、50分間中性子照射を行った鉛ビスマス試料それぞれに含まれるポロニウムの総量の変化を求めた。

結果を図 3.19 に示す。なお、5、10、50 分間の照射を行った試料中のポロニウムの量が最大になるのは、先ほども述べた通り、それぞれ 24.90、24.89、24.88 日後であり、ポロニウムの最大量はそれぞれ 36.8、79.4、387.8[Bq]であった。

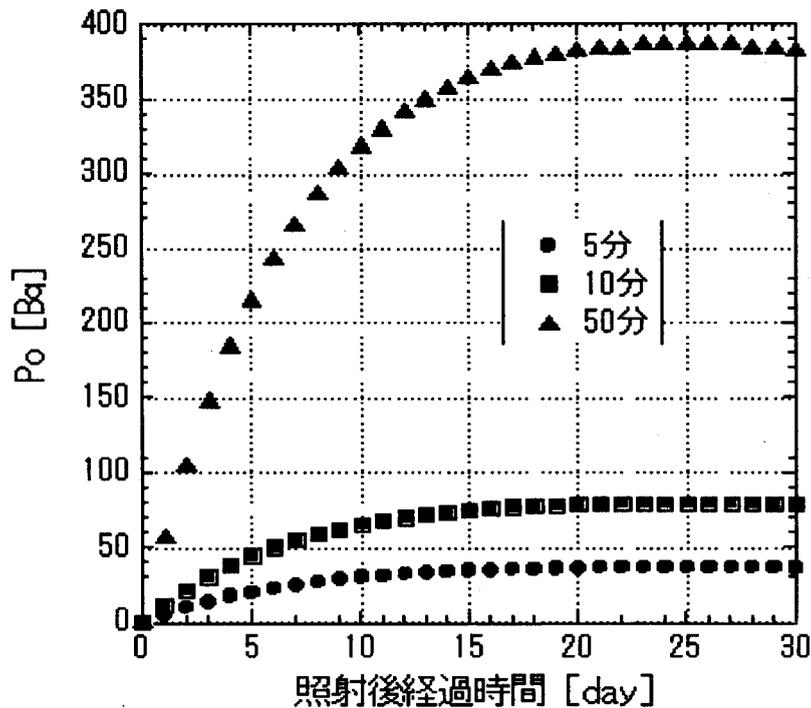


図 3.19 照射後の試料中の全ポロニウム量の変化

3.2.6 結言

本章ではまず、ポロニウムの性質、生成過程について述べた。鉛ビスマス試料へ中性子を照射するに先立ち、中性子照射場の検討および選定、中性子照射後の試料の放射化についての十分な予測を行った。鉛ビスマス試料に中性子を照射し、ポロニウムを生成した。同時に金線にも中性子を照射し、試料への照射熱中性子束を計測した。最後に、試料中のポロニウムの生成量を求めた。

3.3 鉛ビスマス熔融実験

3.3.1 序言

鉛ビスマス冷却炉を実現するにあたり、燃料交換およびメンテナンス時の炉容器の開放に伴うカバーガスの流出、事故による冷却材の流出などを想定すると、鉛ビスマスからのポロニウムの

放出過程、放出されたポロニウム挙動について定量的な知見を得る必要がある。

本章では、鉛ビスマス中に生成されたポロニウムの振る舞いおよびポロニウムの放出過程、放出されたポロニウムの挙動について調査および評価をするために設計した実験装置、さらにポロニウムの放出率および各種材料への吸着率の定量化に関する実験について述べる。

3.3.2 加熱吸着実験

本節では、鉛ビスマス中に生成されたポロニウムの振る舞いについて調査するための実験装置および手順について述べる。

3.3.2.1 加熱吸着実験装置および実験手順

(1) 加熱吸着実験装置

本研究を行うにあたり、鉛ビスマス中に生成されたポロニウムの振る舞いおよびポロニウムの放出過程、放出されたポロニウムの挙動について調査するため、さらにポロニウムの放出率および各種材料への吸着率を定量化するための加熱吸着実験装置を設計した。加熱吸着実験装置を図 3.20 に示す。

次に実験装置の機能について述べる。加熱吸着実験装置概略図を図 3.21 に示す。本実験装置には、上部と下部に計 2 個の真空理工製赤外線イメージ炉が搭載されている。赤外線イメージ炉は高エネルギー密度の赤外線ランプを熱源とした、ふく射加熱炉である。金コーティングした水冷アルミニウム反射面に赤外線を反射させることにより高温ゾーンを短時間に高精度に実現できる。

装置内には、上下 2 個所にサンプルホルダーがある。装置下部のホルダーは、主に鉛ビスマス試料を設置するためのものである。試料上部のホルダーには、ポロニウムの各種材料への吸着率を評価するための試料が設置できるようになっている。

上下サンプルホルダーには、それぞれ赤外線イメージ炉制御用の熱電対がセットされており、簡易的に試料温度も測定することができる。また、モニター用の熱電対がさらに 1 本セットされている。

上下の試料はそれぞれ独立に、室温から 1000℃程度の範囲で、加熱することができる。ただし、一方の試料を加熱するとその影響でもう一方の試料も加熱されてしまう。影響は一方を 700℃に加熱したとき他方が 70℃ぐらいになる程度である。

温度コントローラーに任意の昇温スケジュールを組み込むことができ、ほぼスケジュールどおりの昇温を実現できる。ただし、自然冷却以上の速度では降温できない。

装置内の雰囲気は、不活性ガスや、ロータリーポンプで真空(およそ 1[Pa])に保つことができる。本実験では、不活性ガスとしてアルゴン、ヘリウムを準備した。装置内の雰囲気は、フィルターを通して排気できるようになっている。フィルター取り付け部の概略図を図 3.22 に示す。

(2) 実験手順

(2-1) ポロニウム放出量、放出率の評価

- ① 中性子を照射した鉛ビスマス試料を加熱溶解させ、合金から雰囲気中にポロニウムを放出させる
- ② 装置内の雰囲気を排気することでポロニウムをフィルターにトラップする
- ③ フィルターからの α 線をカウントすることで、鉛ビスマスからのポロニウム放出量、放出率等を評価する

(2-2) 吸着率の評価

- ① 中性子を照射した鉛ビスマス試料を加熱熔融させ、合金から雰囲気中にポロニウムを放出させる
- ② 装置内にセットした材料へポロニウムを吸着させる
- ③ 材料へ吸着したポロニウムの α 線をカウントすることで、ポロニウムの材料への吸着傾向、吸着率を評価する

実験は、鉛ビスマス試料加熱温度および加熱保持時間、装置内雰囲気、雰囲気圧力、排気時間、フィルターの種類、被吸着材料、被吸着材料温度等をいろいろと変化させながら行う。

3.3.2.2 フィルターの選定

α エミッターであるポロニウムをフィルターで捕集し、フィルターの α 線を計測することで、ポロニウムの量を定量化する。しかし、 α 線は飛程が短いため、フィルター内部に捕集されると α 線が計測できない恐れがある。

そこで、本実験に適したフィルターを検討、選定した。

濾過の機構は次のように分類される[19]。

- (1) 清澄濾過(clarificate filtration)：主として濾材内部の毛細管の壁に物理的、化学的な力が作用し、粒子が付着する内部濾過作用を利用して行う。
- (2) 濾滓濾過(cake filtration)：主として濾材の表面で機械的に固体粒子を捕集する表面濾過作用を利用して行う。

フィルターは、上記の捕集機構上、次のように分類される。

- (1) デプスフィルター：フィルター内部で固形物を捕集。厚手の濾紙、ガラス繊維濾紙、濾過板などがこれにあたる。
- (2) スクリーンフィルター：フィルター表面で固形物を捕集。メンブランフィルターや、孔径の小さい濾紙、薄い濾紙などがこれにあたる。

本研究では、 α エミッターの特性上、スクリーンフィルターであるメンブランフィルターを使用することにし、5種類の孔径 0.10[μ m]のメンブランフィルターを準備した。以下に、それぞれの簡単な説明を述べる。

- (1) セルロース混合エステルタイプ：主に水系の粒子除去、濾過滅菌や微生物/微粒子試験に用いられる。各種試験分野から製薬、飲料、醸造、化学などの工業濾過分野にいたるまで広く除粒子、滅菌濾過に使用されている。
- (2) ポリカーボネートタイプ：特殊な製造法により造られた、均一な円筒状の直孔を持つスクリーンタイプのメンブランフィルターである。表示径の孔が空いているため、微粒子検査や微生物の顕微鏡観察・計数に適している。
- (3) PTFE タイプ：四フッ化エチレン樹脂のみから造られた多孔質のフィルム上フィルターである。メンブランフィルターとしての孔径の均一性、表面捕集性、繊維の非離脱性などの特性を有している。耐薬品性に優れているため、有機溶媒、酸、アルカリの粒子除去、微生物除去、濾過滅菌および気体の濾過に使用される。
- (4) サポート PTFE タイプ：サポート PTFE タイプは、ポリプロピレンネットを裏打ちし、扱いやすくなっている。
- (5) 親水性 PTFE タイプ：水系・有機溶媒系が共に使える PTFE メンブランフィルターである。

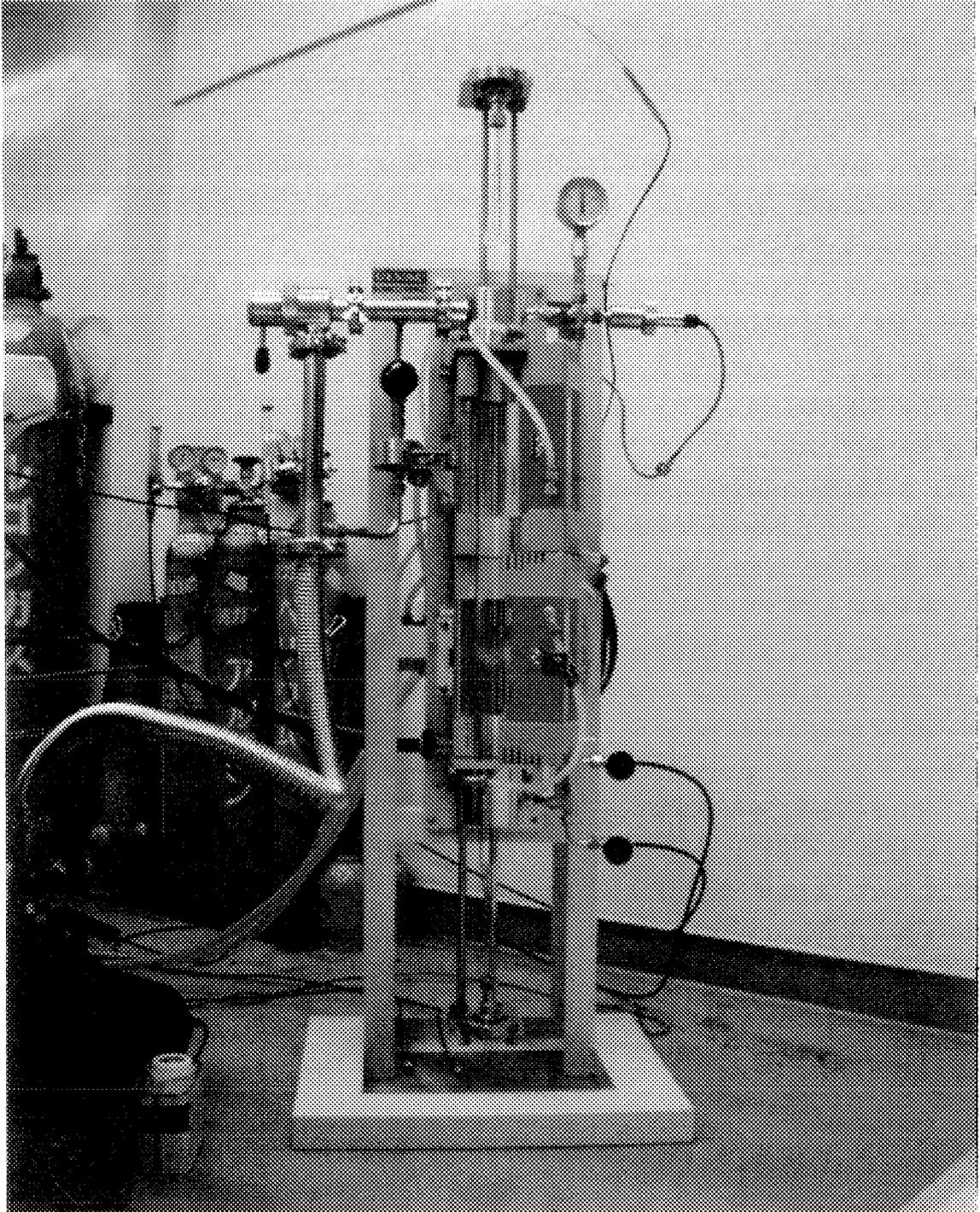


図 3.20 加熱吸着実験装置

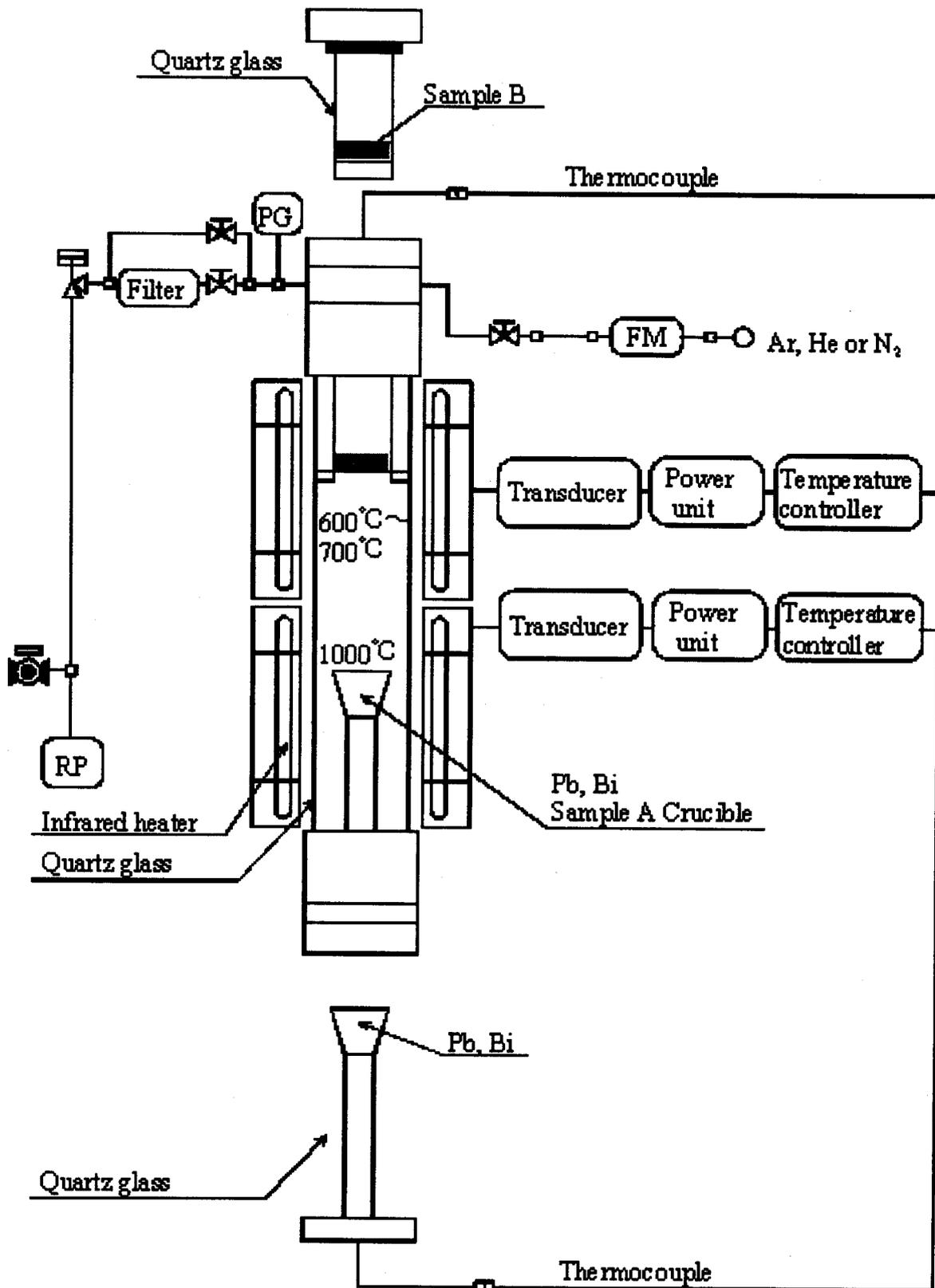


图 3.21 加熱吸着実験装置概略図

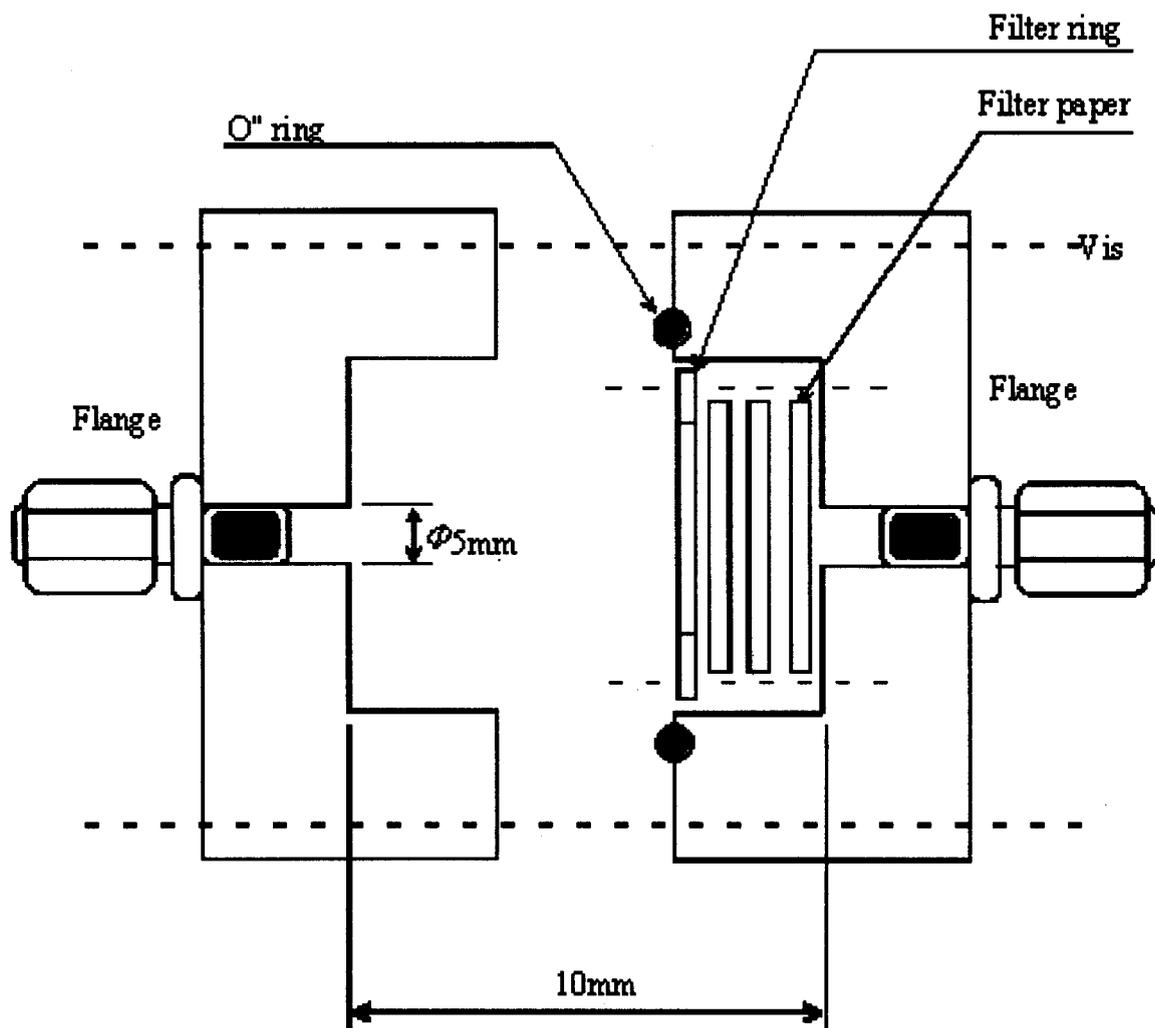


図 3.22 フィルター取り付け部概略図

3.3.3 実験装置動作確認

実験装置動作確認のため、試料の加熱試験を行った。ここでは、加熱試験のための準備、加熱試験で製作した鉛ビスマス試料について述べる。

3.3.3.1 るつぼの選定

加熱試験に使用するるつぼの選定について述べる。

当初、本研究ではプラチナるつぼを使用するつもりであった。しかし、鉛ビスマスの加熱試験を行った結果、腐食または合金化のためか、るつぼが溶け、穴が開いてしまった。

次に鉛ビスマスに対する耐食性を考慮し、独自に設計した石英ガラスるつぼを用いて、加熱試験を行ってみた。しかし、石英と鉛ビスマス膨張率の違いのためか、鉛ビスマスの凝固時に石英ガラスに亀裂が入り破損してしまった。

様々な加熱冷却条件で試したがどうしても石英ガラスが破損してしまうので、モリブデン容器、タンタル容器、既製のアルミなるつぼを用いて鉛ビスマス加熱試験を行った。これらのるつぼはどれも加熱試験への使用に耐える結果となったが、コストを考慮し既製のるつぼを本研究で使用することにした。使用するるつぼの成分、物性値は第 3.2.4.3 節で述べている。

3.3.3.2 鉛ビスマス合金試料製作

実験装置動作確認として、鉛ビスマス合金試料を製作した。

純度 99.9999% の鉛およびビスマスペレット(直径 3~4[mm]程度の小球)を前節で述べたアルミなるつぼに入れ、実験装置で加熱溶解させ鉛ビスマス合金を製作した。本研究で使用した鉛ビスマス合金は共晶(融点 124℃)となる混合比(Pb:Bi=44.5:55.5)で製作し、室温(固体)での密度は 10.5[g/cm³]である[18]。製作した鉛ビスマス合金試料を図 3.23 に示す。

鉛ビスマス合金製作を確認するため合金の融解、凝固時の温度変化を測定した。温度は熱電対を試料中心に挿入し測定した。30 分間で室温から 150℃まで加熱し、60 分間で 150℃から室温まで冷却した。温度変化測定結果を図 3.24 に示す。昇温時鉛ビスマス合金の温度は 127℃で数分間一定になり融解した。また、降温時温度ははじめ 120℃に下がってから、123℃まで上がりそこで数分間一定になり凝固した。

融点はほぼ文献値[18]通りの値が得られ、鉛ビスマスの製作が確認できた。

3.3.3.3 試料温度較正

熱電対を試料に挿入して温度を測定していると、測定のたびに熱電対を交換しなければならない。そこで、るつぼ底部の温度を測定している電気炉制御用の熱電対の指示温度から試料内部の温度を推定できるよう温度較正を行った。測定結果を表 3.11、図 3.25 に示す。

温度較正は試料底部温度を電気炉で制御し、そのときの試料内部温度を測定することで行った。また、温度測定は昇温時、降温時の 2 通りで行った。試料内部温度は、昇温時、降温時とも同じ結果となった。温度差は測定範囲ではそれほど大きなものではなく(最大 5℃)、試料底部温度を制御することで内部温度を十分制御できるものと考えられる。

表 3.11 試料底部温度と内部温度の関係

試料底部温度 [°C]	試料内部温度 [°C]
125	130
150	155
200	204
300	302
400	400
500	498
600	595

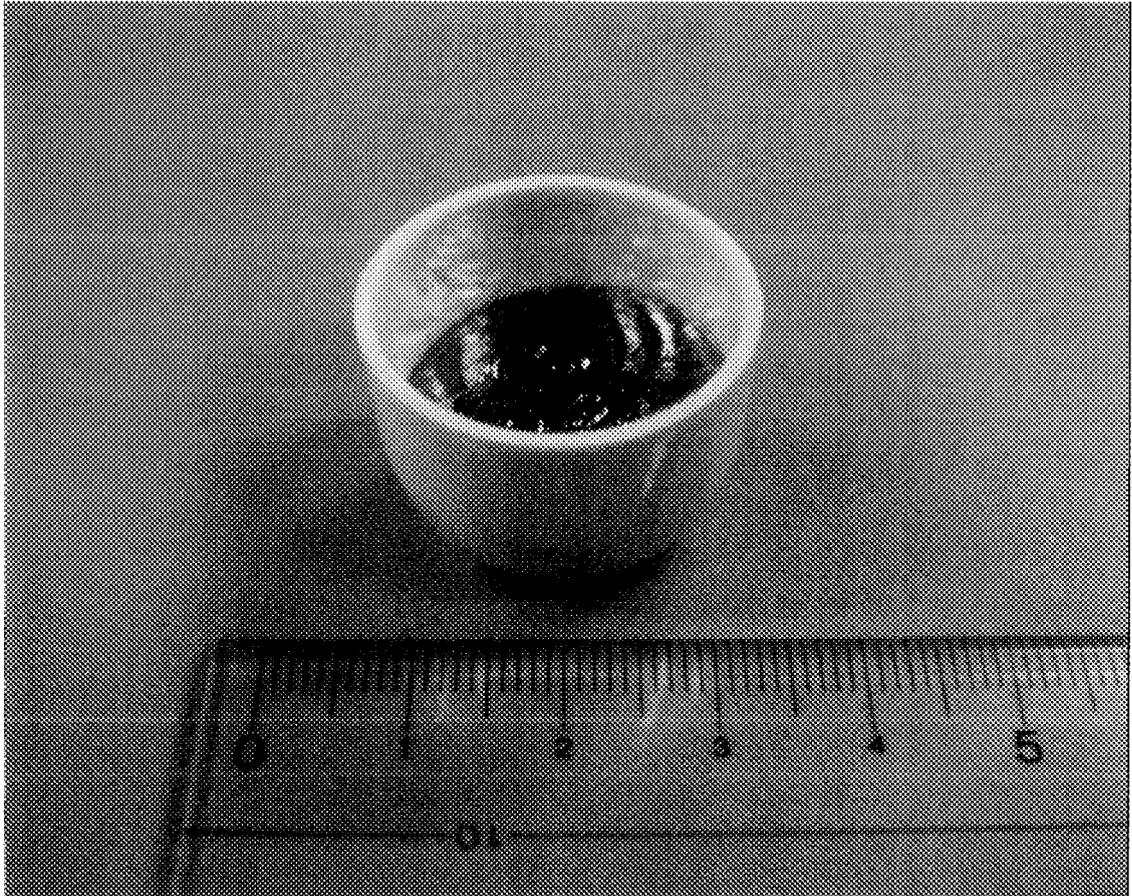


図 3.23 鉛ビスマス試料

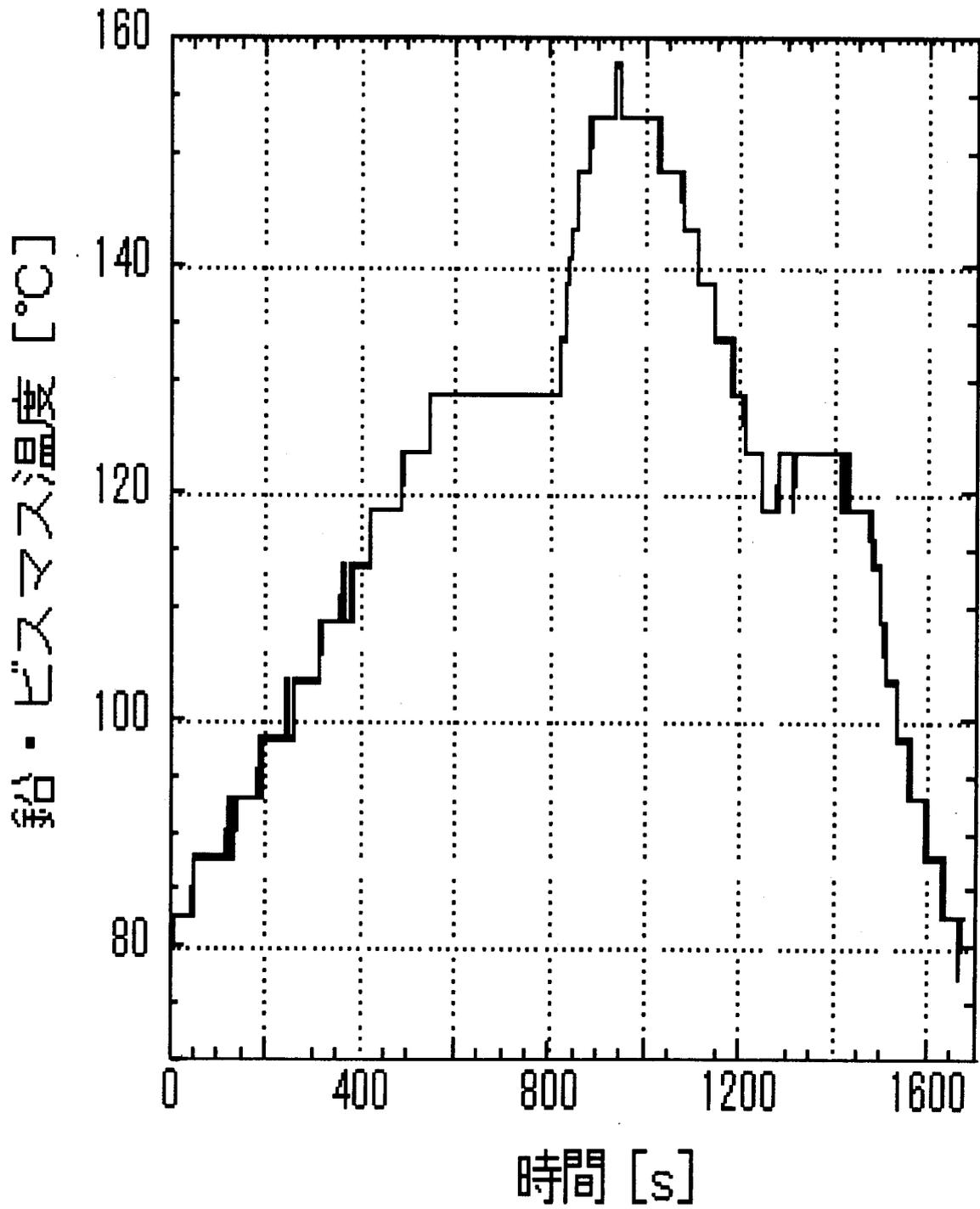


図 3.24 鉛ビスマス試料の融点

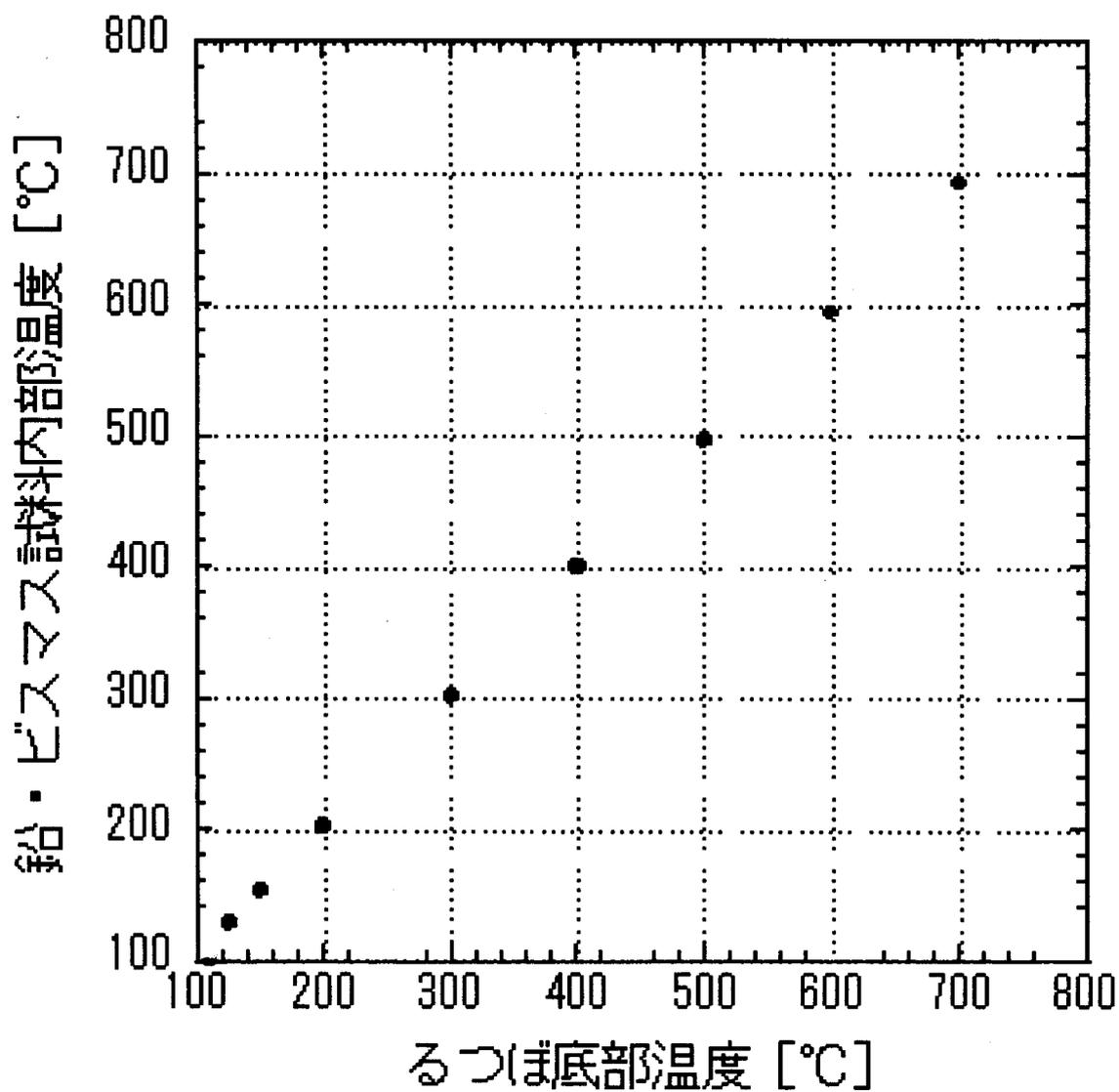


図 3.25 鉛ビスマス試料温度較正

3.3.4 α 線測定

ここでは、ポロニウムから放出される α 線測定について述べる。

本研究で取り扱うポロニウムは、 ^{210}Po である。 ^{210}Po から放出される α 線のエネルギーを表 3.12 に示す。また、 α 線以外の放射線のエネルギーを表 3.13 に示す[16]。

表 3.12 ^{210}Po から放出される α 線のエネルギー

[keV]	[%]
4516.57	0.00107
5304.38	100

表 3.13 ^{210}Po から放出されるガンマ線のエネルギー

[keV]	[%]
803.13	0.00106

^{210}Po から放出される α 線のエネルギーはほとんど全てが 5.3[MeV]であり他種の放射線は比較的放出されないので、非常に明確な α 線測定が期待できるだろう。

3.3.4.1 α 線検出器

本研究では、 α 線検出器として EG&G ORTEC 社製 Si 検出器を使用する。検出器は真空チャンパー内にあり、 α 線測定時の空気によるエネルギーの減衰を抑えている。 α 線検出器はパソコンで制御し、測定したデータもパソコンに取り込む。 α 線測定システムを図 3.26 に、 α 線検出器を図 3.27 に、真空チャンパー内の様子を図 3.28 に、また、 α 線検出器系統図を図 3.29 に示す。

α 線検出器の性能確認試験として 9 個のディテクターの測定効率を測定した。 α 線源には、 ^{241}Am 標準線源を用いた。測定条件を表 3.14 に、測定結果を表 3.15 に示す。

ディテクター II3 を用いた場合の測定結果を、 ^{241}Am の α 粒子測定結果の一例として、図 3.30 に示す。測定条件は表 3.14 と同様である。

表 3.14 α 線測定条件

線源半径	2.5 [mm]
検出器半径	12.0 [mm]
検出器と線源の距離	23.4 [mm]
測定時間	10.0 [min]

表 3.15 α 線検出効率

ディテクター	検出効率 [%]	ディテクター	検出効率 [%]
GG3	96.1	II1	95.5
GG4	98.0	II2	95.9
GG5	96.0	II3	98.7
HH2	97.8	II4	97.0
HH4	97.1		

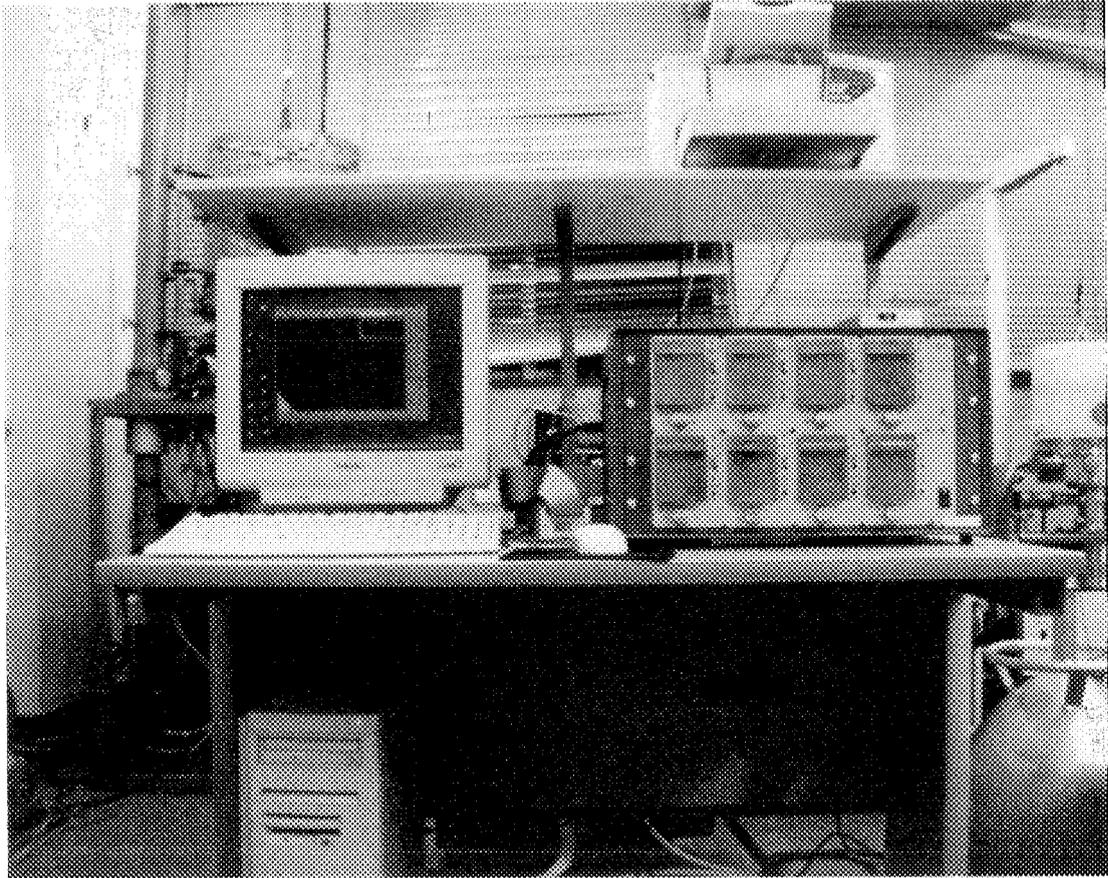


図 3.26 α 線測定システム

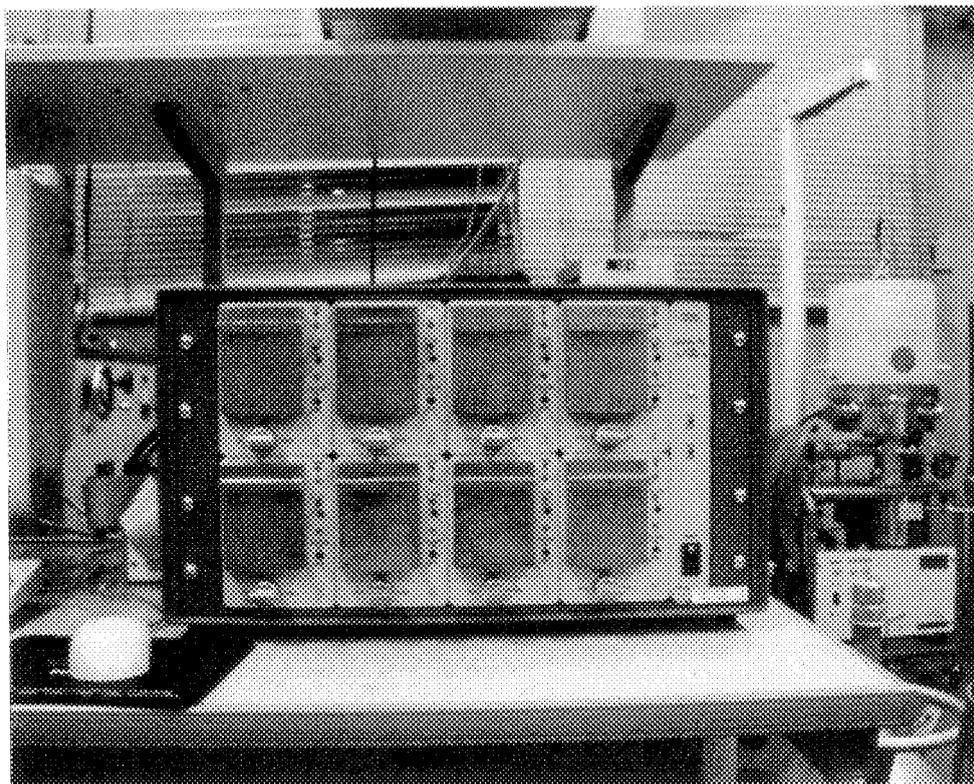


図 3.27 α 線検出器

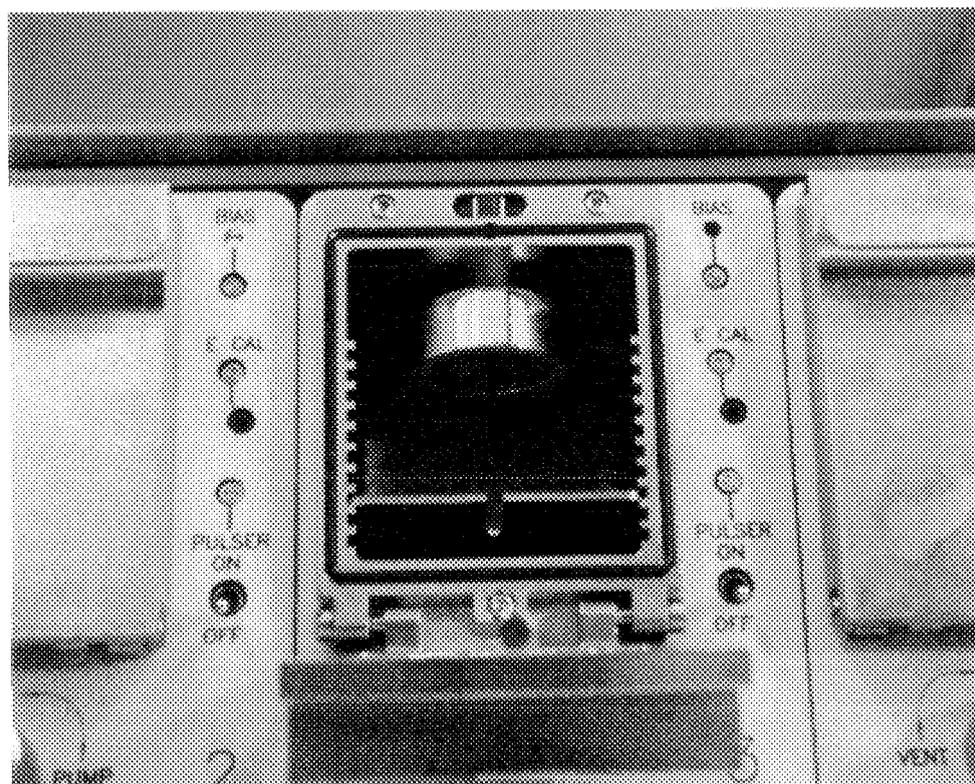


図 3.28 真空チャンバー

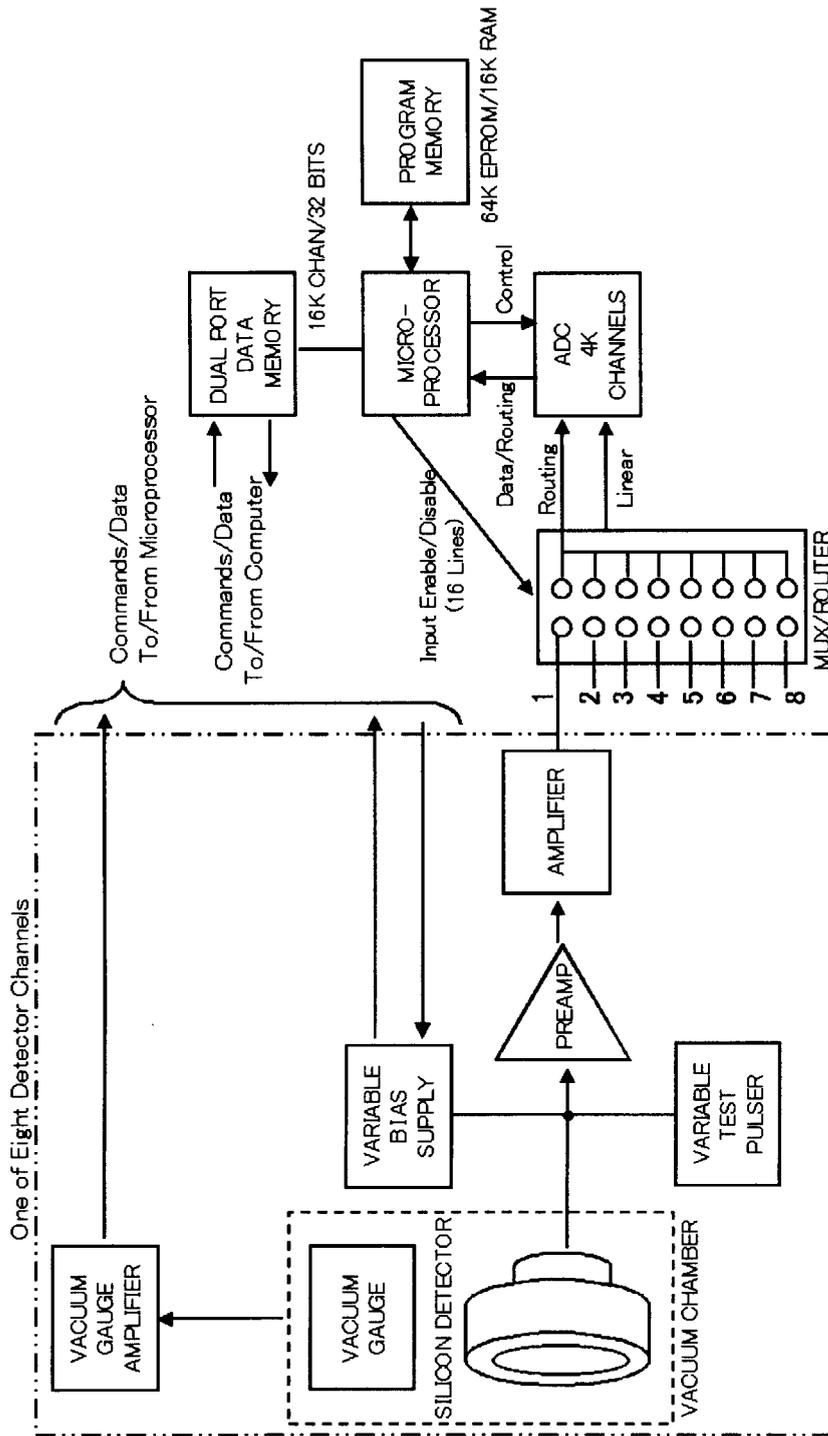
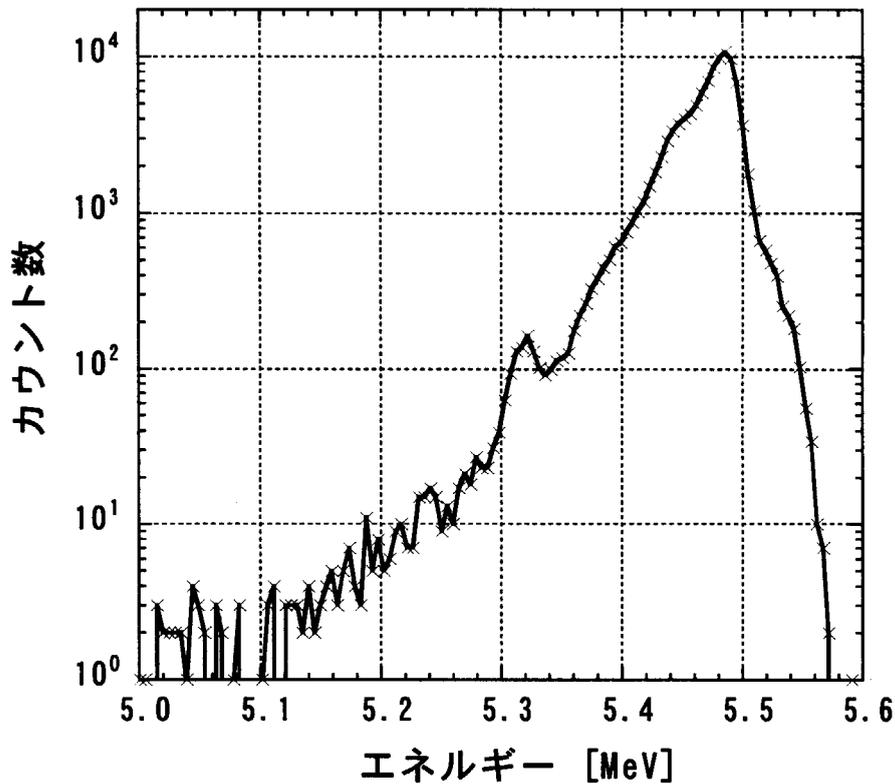


図 3.29 α 線検出器系統図

図 3.30 ^{241}Am α 粒子のスペクトル

3.3.4.2 フィルター上のポロニウム量の推定

本実験では、放出され、フィルターまたは各種材料に吸着したポロニウムの量を定量的に求めることが目的である。

そのためには、フィルター上にトラップされたポロニウムの α 線を測定し、そのカウント数からフィルター上のポロニウムの量を測定率から逆算しなければならない。

本節では、測定率を求める方法について述べる。

(1) 立体角

線源と検出面が平行に向かい合う円(2つの円の中心を通る直線は円に垂直)の場合、立体角から測定率を求めることができる[9]。

測定率 Ω は、次のように表される。

$$\Omega = S \int_0^{\infty} \exp(-xZ) \frac{1}{x} J_1(x) J_1(xS) dx \quad (3.22)$$

ここで、

$$S = \frac{R_d}{R_s}$$

$$Z = \frac{d}{R_s}$$

$$J_1(x) = \frac{1}{\pi} \int_0^\pi \cos(\theta - x \sin \theta) d\theta$$

R_s	:	線源半径
R_d	:	検出器半径
d	:	検出器と線源の距離

上記の式を用い測定率を計算した。ポロニウムから出る α 線はランダムな方向に直線的に飛び、検出器内で α 線のエネルギーは減衰しないと仮定した。計算には、実際の α 検出器のディテクター半径と ^{241}Am 標準線源の半径を用いた。計算条件を表3.16、計算モデルを図3.31に示す。結果を図3.32に示す。

図3.32には、第3.3.4.1節で、測定したディテクターII3の α 線測定率も示す。線源半径、検出器半径、測定時間等の測定条件は、表3.14と同様であるが、線源と検出器の距離を変化させ測定率を求めた。

(2) モンテカルロ法

上述の立体角を用いた方法は、検出器や線源が単純な円形の場合しか使用できない。各種材料にポロニウムを吸着させた場合など、線源の形が複雑になることも予想される。そこで、モンテカルロ法を用いた測定率の算出も検討した。

計算手順としては、まず、線源上に P_0 をランダムに発生させる。そこから α 線をランダムに放出させる。検出面に入射したものをカウントし、放出させた α 線の総数で割ることで測定率を算出する。

計算が正しく行われるかを確認するため、立体角と同様なモデル、条件を用い測定率を計算した。また、立体角の場合と同様に、ポロニウムから出る α 線はランダムな方向に直線的に飛び、検出器内で α 線のエネルギーは減衰しないと仮定した。結果は立体角の場合と5桁の精度で一致し、モンテカルロ計算で測定率の算出ができることを確かめた。

表 3.16 α 線測定率計算条件

線源半径	$R_s = 2.5$ [mm]
検出器半径	$R_d = 12.0$ [mm]

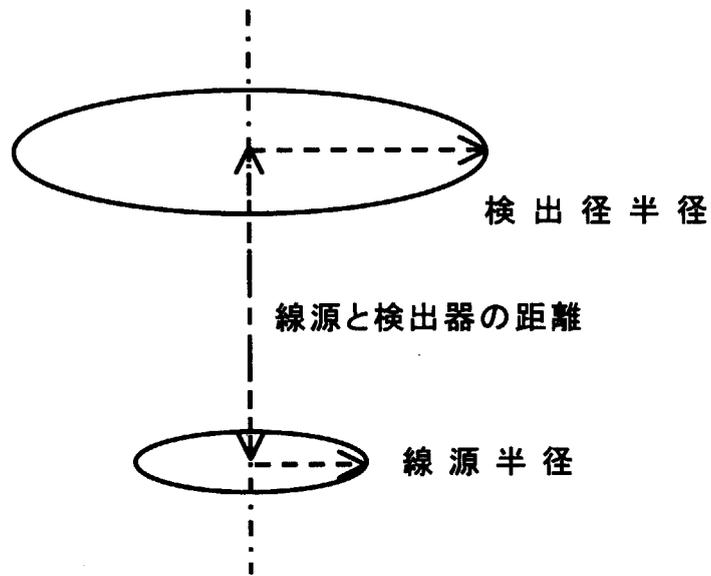


図 3.31 測定率計算モデル

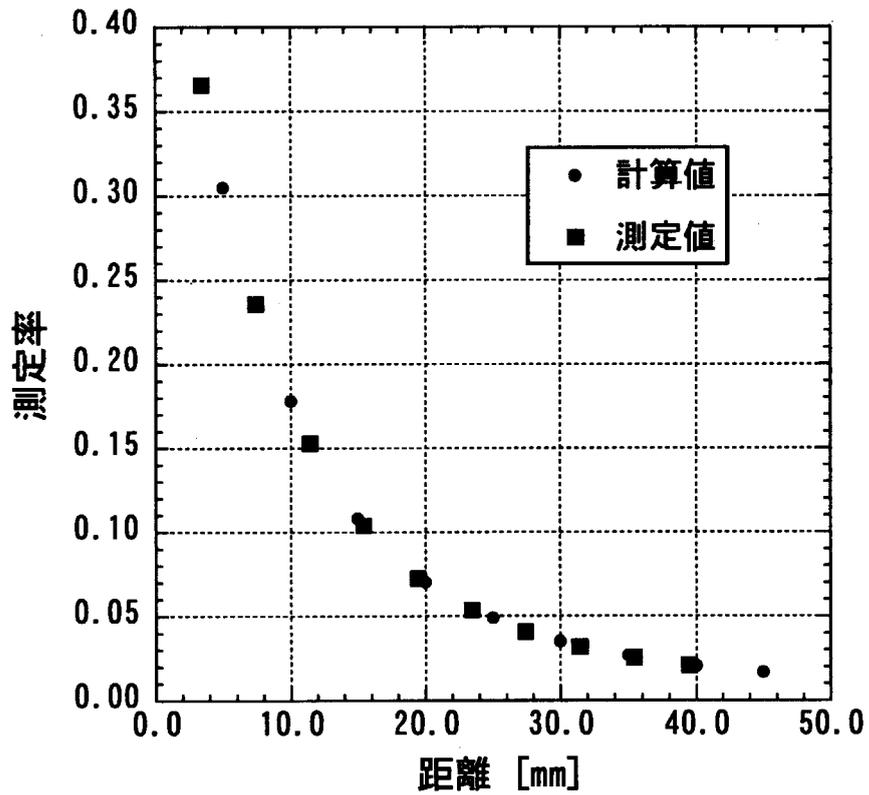


図 3.32 α 線測定率

3.3.5 結言

本章ではまず、鉛ビスマス中に生成されたポロニウムの振る舞いを評価するために設計した加熱吸着実験装置、実験手順について述べた。実験に使用するフィルターおよびるつぼの選定を行った。実験装置動作確認試験として、鉛ビスマス合金試料を鉛とビスマスの混合物を加熱し熔融することで製作した。 α 線検出器の性能試験を行った。最後に、 α 線測定結果からポロニウムの量を推定する手順を確立した。

4. 結論

^{209}Bi の keV 中性子捕獲反応による α 放射核 ^{210}Po 及び $^{210\text{m}}\text{Bi}$ の生成に関して、即発 γ 線法により平均中性子エネルギー 11, 17, 30, 55, 520keV において $^{209}\text{Bi}(n, \gamma)^{210\text{g+m}}\text{Bi}$ 反応断面積が測定され、今までの実験結果及び JENDL 評価値の 1/2~1/3 の値が得られた。また、捕獲 γ 線スペクトルを得、捕獲状態から ^{210}Bi の 0.271~0.670MeV の励起エネルギー領域の準位への強い 1 次遷移がある事が分かった。さらに放射化法により平均中性子エネルギー 30keV と 520keV において $^{209}\text{Bi}(n, \gamma)^{210\text{g}}\text{Bi}$ 反応断面積をそれぞれ $0.77 \pm 0.20\text{mb}$ 及び $0.46 \pm 0.09\text{mb}$ と求めた。この結果と即発 γ 線法の結果から、 $^{209}\text{Bi}(n, \gamma)^{210\text{m}}\text{Bi}$ 反応断面積をそれぞれ $1.8 \pm 0.2\text{mb}$ 及び $0.92 \pm 0.11\text{mb}$ と得た。これらの結果から、 ^{209}Bi の中性子捕獲による Pb-Bi 冷却材の放射化量はこれまでの評価値の 1/2~1/3 になるとされ、特に ^{210}Po の生成量は $^{210\text{m}}\text{Bi}$ の生成量よりも小さい事が結論された。

ビスマスから生成されるポロニウムの振る舞いの検討に関して、まず鉛ビスマス試料へ中性子を照射するに先立ち、中性子照射場の検討および選定、中性子照射後の試料の放射化についての十分な予測を行った。鉛ビスマス試料に中性子を照射し、ポロニウムを生成した。同時に金線にも中性子を照射し、試料への照射熱中性子束を計測した。試料中に生成されたポロニウムの量を求めた。さらに、鉛ビスマス中に生成されたポロニウムの振る舞いを評価するために設計した加熱吸着実験装置、実験手順について述べた。実験に使用するフィルターおよびるつぼの選定を行った。実験装置動作確認試験として、鉛ビスマス合金試料を、鉛とビスマスの混合物を加熱し溶解することで製作した。 α 線検出器の性能試験を行った。 α 線測定結果からポロニウムの量を推定する手順を確立した。

本研究が開始されたとき、日本においても、世界においてもポロニウムに関する関心はいまひとつであり、どこからも研究計画は出されていなかった。しかし、その後の鉛ビスマス冷却に関する研究の高まり、特にスポレーション反応のターゲットとしての研究開発の急激な進展は、ポロニウムの振る舞いに関する研究の必要性をより切実なものとし、アメリカでは既に具体的な実験が開始された。日本においても原研において研究が開始されようとしており、我々への研究協力の呼びかけがある。我々も今までの成果を原研等の研究等に反映させていきたいと考えている。

参考文献

- [1] 関本 博 : 注目を集めてきた鉛系冷却材, 原子力 eye, Vol. 45, No. 9, pp. 70-75, 1999
- [2] Pankratov D.V., Efimov E.I., Bolhovitinov V.N., Kouranov V.D., Bugreev M.I. : Polonium Problem in Nuclear Power Plants with Lead-Bismuth as a Coolant, State scientific center of Russian Federation, Institute of Physics and Power Engineering
- [3] Ning Li, E. Yefimov, D. Pankratov : Polonium Release from an ATW Burner System with Liquid Lead-Bismuth Coolant, Los Alamos National Laboratory, 1998
- [4] Harvey V. Moyer et al. : POLONIUM, United States Atomic Energy Commission, TID-5221, 1956
- [5] T. Karali, S. Olmez, G. Yener : Study of Spontaneous Deposition of ^{210}Po on Various Metals and Application for Activity Assessment in Cigarette Smoke, Appl. Radiat. Isot., Vol. 47, No. 4, pp. 409-411, 1996
- [6] 研究炉利用ハンドブック改訂第2版, 日本原子力研究所東海研究所, 1999
- [7] 高野 秀機, 滝塚 貴和, 北野 照明 : 熔融金属鉛・ビスマス技術における腐食、水反応、ポロニウム揮発率及びBi資源量の調査・検討, 日本原子力研究所, JAERI-Review, 2000-14, 2000
- [8] 横尾 健司, 鳥居 義也, 鯉淵 薫, 市村 茂樹, 大浦 博文, 笹島 文雄, 前島 猛, 茂垣 隆久, 関根 勝則, 高橋 秀武 : 医療照射における熱中性子束測定技術, 日本原子力研究所, JAERI-M, 94-058, 1994
- [9] ニコラス ツルファニディス : 放射線計測の理論と演習 上巻 基礎編, 現代工学社, 1986
- [10] 理化学辞典 第5版, 岩波書店, 1998
- [11] 東京天文台編 : 理科年表, 丸善
- [12] 社団法人 日本アイソトープ協会 : アイソトープ手帳, 丸善
- [13] Ekkehard Fluck : Gmelin Handbook of Inorganic and Organometallic Chemistry 8th Edition, Springer-Verlag
- [14] ROBERT C. BRASTED : COMPREHENSIVE INORGANIC CHEMISTRY VOLUME EIGHT, D. VAN NOSTRAND
- [15] Keiichi SHIBUYA, Tsuneo NAKAGAWA, Hidemitsu SUGANO : CURVES AND TABLES OF NEUTRON CROSS SECTIONS IN JENDL-3.2 PARTII (Z=51-100), Japan Atomic Energy Research Institute, JAERI-Data/Code 97-003 (PartII), 1997
- [16] Edgardo Browne, Richard B. Firestone : Table of Radioactive Isotopes, WILEY-INTERSCIENCE
- [17] NUCLEAR ENGINEERING HANDBOOK, McGRAW-HILL, 1958
- [18] Metals Handbook TENTH EDITION Volume 2 Properties and Selection : Nonferrous Alloys and Special-Purpose Materials, ASM, 1990
- [19] ADVANTEC 濾紙・科学機器総合カタログ 1999-2000, アドバンテック東洋, 1998

国際単位系 (SI) と換算表

表1 SI基本単位および補助単位

量	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質質量	モル	mol
光度	カンデラ	cd
平面角	ラジアン	rad
立体角	ステラジアン	sr

表3 固有の名称をもつSI組立単位

量	名称	記号	他のSI単位による表現
周波数	ヘルツ	Hz	s ⁻¹
力	ニュートン	N	m·kg/s ²
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m ²
エネルギー, 仕事, 熱量	ジュール	J	N·m
工率, 放射束	ワット	W	J/s
電気量, 電荷	クーロン	C	A·s
電位, 電圧, 起電力	ボルト	V	W/A
静電容量	ファラド	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジーメンズ	S	A/V
磁束	ウェーバ	Wb	V·s
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ²
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A
セルシウス温度	セルシウス度	°C	
光束	ルーメン	lm	cd·sr
照射度	ルクス	lx	lm/m ²
放射能	ベクレル	Bq	s ⁻¹
吸収線量	グレイ	Gy	J/kg
線量等量	シーベルト	Sv	J/kg

表2 SIと併用される単位

名称	記号
分, 時, 日	min, h, d
度, 分, 秒	°, ', "
リットル	l, L
トン	t
電子ボルト	eV
原子質量単位	u

1 eV=1.60218×10⁻¹⁹J
1 u=1.66054×10⁻²⁷kg

表4 SIと共に暫定的に維持される単位

名称	記号
オングストローム	Å
バーン	b
バル	bar
ガール	Gal
キュリー	Ci
レントゲン	R
ラド	rad
レム	rem

1 Å=0.1nm=10⁻¹⁰m
1 b=100fm²=10⁻²⁸m²
1 bar=0.1MPa=10⁵Pa
1 Gal=1cm/s²=10⁻²m/s²
1 Ci=3.7×10¹⁰Bq
1 R=2.58×10⁻⁴C/kg
1 rad=1cGy=10⁻²Gy
1 rem=1cSv=10⁻²Sv

表5 SI接頭語

倍数	接頭語	記号
10 ¹⁸	エクサ	E
10 ¹⁵	ペタ	P
10 ¹²	テラ	T
10 ⁹	ギガ	G
10 ⁶	メガ	M
10 ³	キロ	k
10 ²	ヘクト	h
10 ¹	デカ	da
10 ⁻¹	デシ	d
10 ⁻²	センチ	c
10 ⁻³	ミリ	m
10 ⁻⁶	マイクロ	μ
10 ⁻⁹	ナノ	n
10 ⁻¹²	ピコ	p
10 ⁻¹⁵	フェムト	f
10 ⁻¹⁸	アト	a

(注)

- 表1-5は「国際単位系」第5版, 国際度量衡局1985年刊行による。ただし, 1eVおよび1uの値はCODATAの1986年推奨値によった。
- 表4には海里, ノット, アール, ヘクタールも含まれているが日常の単位なのでここでは省略した。
- barは, JISでは流体の圧力を表わす場合に限り表2のカテゴリーに分類されている。
- EC閣僚理事会指令では bar, barnおよび「血圧の単位」mmHgを表2のカテゴリーに入れている。

換算表

力	N(=10 ⁵ dyn)	kgf	lbf
	1	0.101972	0.224809
	9.80665	1	2.20462
	4.44822	0.453592	1

粘度 1Pa·s(N·s/m²)=10P(ポアズ)(g/(cm·s))

動粘度 1m²/s=10⁴St(ストークス)(cm²/s)

圧	MPa(=10bar)	kgf/cm ²	atm	mmHg(Torr)	lbf/in ² (psi)
力	1	10.1972	9.86923	7.50062×10 ³	145.038
	0.0980665	1	0.967841	735.559	14.2233
	0.101325	1.03323	1	760	14.6959
	1.33322×10 ⁻⁴	1.35951×10 ⁻³	1.31579×10 ⁻³	1	1.93368×10 ⁻²
	6.89476×10 ⁻³	7.03070×10 ⁻²	6.80460×10 ⁻²	51.7149	1

エネルギー・仕事・熱量	J(=10 ⁷ erg)	kgf·m	kW·h	cal(計量法)	Btu	ft·lbf	eV
	1	0.101972	2.77778×10 ⁻⁷	0.238889	9.47813×10 ⁻⁴	0.737562	6.24150×10 ¹⁸
	9.80665	1	2.72407×10 ⁻⁶	2.34270	9.29487×10 ⁻³	7.23301	6.12082×10 ¹⁹
	3.6×10 ⁶	3.67098×10 ⁵	1	8.59999×10 ⁵	3412.13	2.65522×10 ⁶	2.24694×10 ²⁵
	4.18605	0.426858	1.16279×10 ⁻⁶	1	3.96759×10 ⁻³	3.08747	2.61272×10 ¹⁹
	1055.06	107.586	2.93072×10 ⁻⁴	252.042	1	778.172	6.58515×10 ²¹
	1.35582	0.138255	3.76616×10 ⁻⁷	0.323890	1.28506×10 ⁻³	1	8.46233×10 ¹⁸
	1.60218×10 ⁻¹⁹	1.63377×10 ⁻²⁰	4.45050×10 ⁻²⁶	3.82743×10 ⁻²⁰	1.51857×10 ⁻²²	1.18171×10 ⁻¹⁹	1

1 cal= 4.18605J (計量法)
= 4.184J (熱化学)
= 4.1855J (15°C)
= 4.1868J (国際蒸気表)
仕事率 1 PS(仏馬力)
= 75 kgf·m/s
= 735.499W

放射能	Bq	Ci
	1	2.70270×10 ⁻¹¹
	3.7×10 ¹⁰	1

吸収線量	Gy	rad
	1	100
	0.01	1

照射線量	C/kg	R
	1	3876
	2.58×10 ⁻⁴	1

線量当量	Sv	rem
	1	100
	0.01	1

中性子照射により生成する鉛・ヒスマス合金中のポロニウムの挙動に関する研究 (原子力基礎研究 H10-026) (委託研究)

R100

古紙配合率100%
白色度70%再生紙を使用しています