

# 固体材料中のプルトニウム 239 からのアルファ線による水の分解に関する実験的研究

## (1) 固体材料粉末から放出されたアルファ線のエネルギースペクトル

Experimental Studies on Water Radiolysis by Alpha Rays from Plutonium 239 in Solid Materials

### (1) The Energy Spectrum of Alpha Rays emitted from the Solid Material Powder

\*永石 隆二<sup>1</sup>, 伊藤 辰也<sup>1</sup>, ディプリート デビット<sup>2</sup>, フェリンジャー アンドリュウ<sup>2</sup>

<sup>1</sup>日本原子力研究開発機構, <sup>2</sup>サバンナリバー国立研究所

1F 事故から 10 年以上経過した燃料デブリの保管では $\alpha$ 線による水の分解の重要性が増しているが、 $\alpha$ 放出核種が固体材料中に存在していると、核種から放出した $\alpha$ 線は材料中で減速して、材料から逃れた $\alpha$ 線エネルギーはより低く連続となる。このエネルギースペクトルは材料の種類やサイズによって異なり、これは水の分解 G 値のパターンや大きさに影響を及ぼすため、 $\alpha$ 線分解を研究するには、このスペクトルを測定・評価する必要がある。本研究では、Pu-239 を含む固体材料の粉末を用いて、この粉末からの $\alpha$ 線のスペクトルを測定した。そのスペクトルから $\alpha$ 線の線エネルギー付与 (LET) を評価して、これを核種が水中の溶存種である場合の値と比較した。

**キーワード:** プルトニウム 239, 固体材料,  $\alpha$ 線, 線エネルギー付与 (LET), 水の放射線分解, 線質 (LET) 効果

## 1. 緒言

1F 事故での燃料デブリを模擬した燃焼計算 (燃料) と放射化計算 (材料) を組み合わせた $\alpha \cdot \beta \cdot \gamma$ 線に対する崩壊熱の評価によると<sup>[1]</sup>, 全崩壊熱への $\alpha$ 線の寄与は事故初期には 5% 未満であったが、 $\beta$ 線と $\gamma$ 線を放出する短寿命の核種 (主に FP) が急激に減少するため、10 年以上経過した現在では 20% 程度となり、分子生成物の H<sub>2</sub> と H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> の生成しやすさ (線質 (LET) 効果<sup>[2]</sup>) と相まって、 $\alpha$ 線による水の分解の重要性は増している。しかし、水中の溶存種の場合と異なり、 $\alpha$ 放出核種が固体材料中に存在していると、材料表面から放出された (逃れた)  $\alpha$ 線だけが水の分解に関与する。さらに、 $\alpha$ 線は材料中で透過距離に応じて減速して、連続エネルギーを有することとなる。従って、この $\alpha$ 線による水の分解を定量的に議論するには、このスペクトルを測定/評価する必要がある。

そこで本研究では、水の $\alpha$ 線分解の実験的研究の第一歩として、単一エネルギー・高比放射能で $\alpha$ 線を放出する Pu-239 を含んだ固体材料の粉末を用いて、この粉末からの $\alpha$ 線のスペクトルを測定して、その LET を評価した。

## 2. 実験

実験は米国サバンナリバー国立研究所 (SRNL) で行った。Pu-239 ( $E_{\alpha}=5.244$  MeV,  $A_{239}=2.30 \times 10^9$  Bq/g-Pu) を含む固体材料には、Pu 酸化物 (PuO<sub>2</sub>), 及び Pu 塩を溶解したものと材料との均一混合物を用いた。また、今回使用した Pu-239 には、ほぼ同じ  $E_{\alpha}$  をもつ Pu-240 ( $E_{\alpha}=5.255$  MeV,  $A_{240}=8.43 \times 10^9$  Bq/g-Pu) が一定割合含まれている。

ふるい等で一定範囲の粒径とした材料の粉末を SUS 製の平皿 (硬貨地板) 上に薄層で塗布して、平面シリコン (PIPS) 検出器のアルファ分光計システムで、粉末から放出された $\alpha$ 線のエネルギースペクトルを測定した。

## 3. 結果・考察

図 1 に 0.5  $\mu$ m 未満から 100  $\mu$ m の PuO<sub>2</sub> 粒子粉末から放出された $\alpha$ 線のエネルギースペクトルの測定例を示す。比較のために、Pu を電着で平皿上に塗布した結果を併せて示す。電着した Pu での単一ピークは Pu-239 から放出された $\alpha$ 線の  $E_{\alpha}$  に対応するが、PuO<sub>2</sub> ではその  $E_{\alpha}$  から 0 までの連続エネルギーを有していることが分かる。測定例では、エネルギー範囲が 2-6 MeV であった (実線) ため、2 MeV 未満の低エネルギー側を外挿した (点線)。

PuO<sub>2</sub> のスペクトルはエネルギー 0 まで到達しているが、これは $\alpha$ 線の一部に粒子外に放出されずに粒子中で止まったものがあることを示している。(線形) 衝突阻止能 (エネルギー制限のない LET) の評価<sup>[3]</sup>から、PuO<sub>2</sub> 中の飛程の最大値は約 12  $\mu$ m となり、12  $\mu$ m 以上のサイズ (直径) の粒子では $\alpha$ 線の一部が粒子外に放出されないことになる。また、そのスペクトルの平均エネルギーは約 4 MeV であったが、これは $\alpha$ 線が粒子中の平均 4  $\mu$ m 程度の深さから放出されたことを示している。

### 参考文献

- [1] 永石隆二ら, 水化学部会セッション「デブリ性状把握と放射線分解挙動評価」, 原子力学会 2017 年秋の大会, 1F\_PL04 (2017) 他.
- [2] A.O. Allen, "Radiation Chemistry of Water and Aqueous Solutions", D. Van Nostrand (1961).
- [3] ICRU Report 49, "Stopping Powers and Ranges for Protons and Alpha Particles", ICRU, Bethesda, MD, USA (1993).

\*Ryuji Nagaishi<sup>1</sup>, Tatsuya Ito<sup>1</sup>, David DiPrete<sup>2</sup>, Andrew P. Fellinger<sup>2</sup>. <sup>1</sup>Japan Atomic Energy Agency, <sup>2</sup> Savannah River National Laboratory

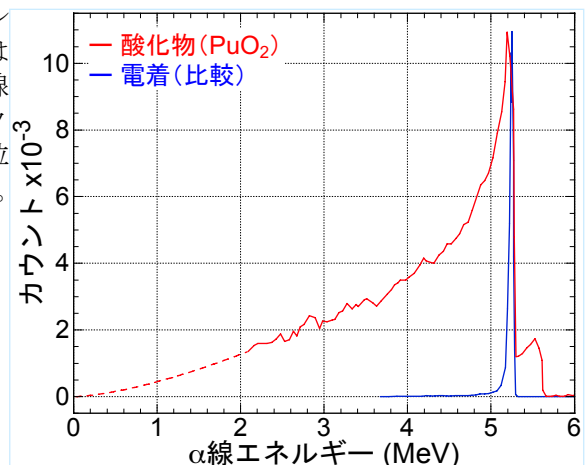


図 1 PuO<sub>2</sub> からの $\alpha$ 線エネルギースペクトル測定例 (データ平均化, エネルギー補正)