

原子炉一次冷却水の放射線分解

1971年3月

日本原子力研究所

Japan Atomic Energy Research Institute

日本原子力研究所は、研究成果、調査結果などを JAERI レポートとして、つぎの4種に分けそれぞれの通し番号を付し、不定期に刊行しております。

- | | | |
|---------|--------------------------------|-------------|
| 1. 研究報告 | まとまった研究の成果あるいはその一部における重要な結果の報告 | JAERI 1001- |
| 2. 調査報告 | 総説・展望・調査の結果などをまとめたもの | JAERI 4001- |
| 3. 年報 | 研究・開発その他の活動状況などの報告 | JAERI 5001- |
| 4. 資料 | 施設の概要や手引きなど | JAERI 6001- |

このうち既刊分については「JAERI レポート一覧」にタイトル・要旨をまとめて掲載し、また新刊レポートは「研究成果要旨集」(隔月刊)で逐次紹介しています。

これらのリスト・研究報告書の入手および複写・翻訳などのご要求は、日本原子力研究所技術情報部(茨城県那珂郡東海村)に申しこんでください。

Japan Atomic Energy Research Institute publishes the nonperiodical reports with the following classification numbers:

1. JAERI 1001- Research reports
2. JAERI 4001- Survey reports and reviews
3. JAERI 5001- Annual reports
4. JAERI 6001- Manuals etc.

Requests for the above publications, and reproduction and translation should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan

原子炉一次冷却水の放射線分解

要 旨

本報告の目的は JRR-2 および JMTR の一次冷却水の放射線分解を研究し、温度、pH、溶存酸素、過酸化水素の水分解に与える効果を調べることである。

JMTR の水分解に与える温度効果は、次式で表わすことができる。

$$f_t = 2.3 - 2.6 \times 10^{-2} t$$

JRR-2 および JMTR の炉出力 1MW あたりの比分解量は、炉心の出力密度 P (kW/l) の平方根の函数として次式で表わすことができる。

$$Q = \xi \exp(-\lambda P^{1/2}) \text{ gr (H}_2\text{O) / MW} \cdot \text{hr}$$

水分解の正味の G 値は、温度 50°C、出力 50MW の JMTR では $(8.6 \pm 1.7) \times 10^{-3}$ 、JRR-2 の 10MW では $(8.8 \pm 1.8) \times 10^{-3}$ であった。

1970 年 5 月

日本原子力研究所大洗研究所

材料試験炉部

戸根弘人・山本克宗・岡川誠吾・

横内猪一郎・後村正勝

Primary Cooling Water Decomposition in Reactors

Summary

The decomposition rate of water (or heavy water) as a moderator-coolant in JRR-2 (heavy water moderated reactor) and JMTR was observed at the high power operations.

The specific heavy water decomposition rate in JRR-2 was 5 ± 0.7 (gr (D₂O)/MW·hr) at reactor power of 10MW. During 10 MW operation of JRR-2, the heavy water conditions such as pH, ionic impurities and temperature, were maintained in the following mentioned values: pH of 6.5 ± 0.5 , conductivity less than $1 \mu\text{S/cm}$, D₂O₂ concentration of 2 ± 0.5 ppm, O₂ concentration of 0.55 ± 0.15 ppm and the temperature between 47°C and 55°C.

The primary cooling water decomposition in JMTR was examined between reactor power of 1.2 MW and 50 MW. When the cooling water temperature was 50°C, the specific decomposition rate was 10.6 ± 1 (gr (H₂O)/MW·hr) at 10MW, 4.5 ± 0.5 (gr (H₂O)/MW·hr) at 50MW. During these reactor operation of JMTR, the cooling water conditions were maintained as the followings: pH of water between 5.5 and 6, conductivity less than $2 \mu\text{S/cm}$, H₂O₂ concentration 16 ± 1 ppm and O₂ concentration 14.8 ± 0.5 ppm.

The decomposition rate in JMTR much higher than that in JRR-2 accounts for increased dissolved oxygen concentration in the cooling water of JMTR. An increase in cooling water temperature favors the back reaction. As a result, the higher temperature favors lower net decomposition. The effects of temperature on water decomposition were obtained from these experiments as the following equation,

$$f_t = 2.3 - 2.6 \times 10^{-2} t$$

where f_t is the factor for temperature correlation, t is the cooling water temperature. If the water temperature is 50°C, f_t is equal to one.

When the power density of core region in JMTR and JRR-2 increased, the decrease in the specific decomposition rate was observed. At the water temperature of 50°C, the specific decomposition rate (Q) in JMTR could be expressed as the function of the square root of power density (P , kW/l) by the following equation,

$$Q = 21.5 \exp(-0.088 P^{1/2}) \text{ g(H}_2\text{O) / MW} \cdot \text{hr,}$$

and at JRR-2,

$$Q = 14.5 \exp(-0.615 P^{1/2}) \text{ g(D}_2\text{O)/MW}\cdot\text{hr.}$$

The net G -values of water decomposition in JMTR and JRR-2 were obtained by use of the absorption energy of primary cooling water and the specific decomposition rate. At the water temperature of 50°C and 50MW, the net G -value in JMTR was

$$\text{Net } G(-\text{H}_2\text{O}) = (8.6 \pm 1.7) \times 10^{-3},$$

and the net G -value of heavy water decomposition in JRR-2 was

$$\text{Net } G(-\text{D}_2\text{O}) = (8.8 \pm 1.8) \times 10^{-3},$$

at the reactor power 10MW.

May 1970

Hirohito TONE
Katsumune YAMAMOTO
Seigo OKAGAWA
Ichiro YOKOUCHI
Masakatu ATOMURA
Irradiation Section III, JMTR,
Oarai Research Establishment,
Japan Atomic Energy Research Institute

目 次

1. まえがき	1	4. 考 察	6
2. 測定方法	1	4.1 一次冷却水の吸収エネルギー	6
2.1 JRR-2 の重水分解量測定	1	4.2 温度による効果	8
2.2 JMTR の一次冷却水分解量測定	1	4.3 pH による効果	9
2.3 重水素ガスの測定法	2	4.4 出力密度と標準分解量の関係	9
2.4 過酸化水素の分析	2	4.5 水分解の正味の G 値	10
3. 測定結果	3	5. ま と め	10
3.1 JRR-2 の重水分解量	3	文 献	11
3.2 JMTR の一次冷却水分解量	4		

Contents

1. Introduction	1	rate in JMTR	4
2. Determination methods	1	4. Considerations	6
2.1 Determinations of heavy water decomposition rate in JRR-2	1	4.1 Absorption energy of primary cooling water	6
2.2 Determinations of primary cooling water decomposition rate in JMTR	1	4.2 Effects of water temperature	8
2.3 Analytical method of deuterium	2	4.3 Effects of pH	9
2.4 Analytical method of hydrogenperoxide	2	4.4 Correlation between reactor power densities and standard decomposition rate	9
3. Results	3	4.5 Net G-value of radiolytic decomposition of water	10
3.1 Heavy water decomposition rate in JRR-2	3	5. Conclusion	10
3.2 Primary cooling water decomposition		References	11

1. ま え が き

水の放射線分解は水冷型原子炉内で必ず生ずる化学的現象である。軽水または重水は、放射線分解によって水素（または重水素）および酸素を発生し、低温においては過酸化水素も生成する。発生した水素の爆発、酸素による原子炉構造材料の腐食等は、原子炉運転および保守上悪影響をおよぼす原因となる。また、重水炉においては高価な重水が放射線分解によって消失し、経済的にも大きな損失となるので、発生した重水素の再結合を行なう必要が生じている。このように、冷却水の放射線分解は原子炉にとって技術的に重要な問題点の一つである。

水の放射線分解に影響する一般的な因子、すなわち温度¹⁾、pH、電導度、不純物、溶存酸素²⁾³⁾、溶存水素、沸騰、圧力等が水分解にどのような影響を与えるかについては、多くの実験と多数の原子炉での実測によって概念的には判明した。しかし、発表された多くの資料から明らかにならないように、各因子の分解に寄与する傾向はわかっても、原子炉技術者が必要とする定量的あるいは数値的な資料が不十分であった。したがって、JRR-2 および JMTR の一次冷却水分解量の測定を行ない、測定値の検討にあたっては以上のべた各因子の影響を十分に考慮した。

2. 測 定 方 法

2.1 JRR-2 の重水分解量測定

JRR-2 は重水を冷却材および減速材として使用し、重水上部にはヘリウムガスをブランケットガスとして封入する。Fig. 1 に JRR-2 の He ガス循環系を示す。循環系の一部に重水素再結合器がもうけられており、重水分解によって生じた重水素ガスは He ガスと共に再結合器を通り、このとき重水素ガスは酸素との再結合によって重水となる。今、JRR-2 内の重水素ガスの質量収支を考慮すると次式が成立する。

$$\frac{d\omega}{dt} = S - \eta cu \quad (1)$$

ここで、 ω : JRR-2 内に存在する全重水素量 (l)

η : 重水素の再結合率

S : 重水分解によって発生する重水素量 (l/hr)

c : He ガス中の重水素濃度, $[l(D_2)/l(He)]$

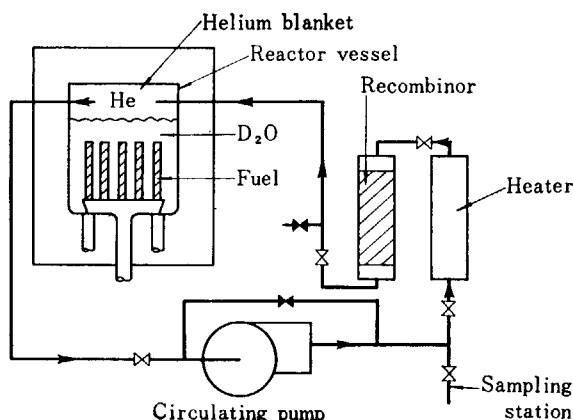


Fig. 1 The JRR-2 helium system.

u : 再結合器を通る He ガス流量, $[l(He)/hr]$.

定常状態においては (1)式は,

$$S - \eta cu = 0 \quad (2)$$

したがって、再結合器出入口の He ガス中の重水素ガス濃度を測定することによって、重水素発生量をもとめることができる。He ガス中の重水素ガスの測定法については 2.3 項に示す。

2.2 JMTR の一次冷却水分解量測定

JMTR は JRR-2 と異なり一次冷却水は 15 気圧に加圧され、炉内に He ガスなどのブランケットガスを有していない。原子炉の構造はむしろ PWR 型原子炉に類似している。Fig. 2 に一次循環系を示す。原子炉圧力容器を出た一次冷却水の一部は脱気タンクにみちびかれ、ここで 1 気圧にまで減圧される。このとき、水分解によって生じた水素ガスの大部分が放出される。脱気タンク内に放出された水素ガスは脱気入口フィルターを通して導入される空気によって希釈され、排気第 2 系統を通して炉外へ放出される。脱気タンクに入った一次冷却水は移送ポンプおよび充填ポンプによって 15 気圧に昇圧し一次系へもどされる。したがって、JMTR の水素ガスの質量収支は次のようになる。

$$\frac{dc_w}{dt} = S/V - c_o \cdot u/V - R/V \quad (3)$$

ここで、 R : 水素ガスの 1 次冷却水サンプリング系からの損失量 (l/hr)

c_w : 一次冷却水中の水素ガス濃度
 $[l(H_2)/l(H_2O)]$

S : 水素ガス発生量 $[l(H_2)/hr]$

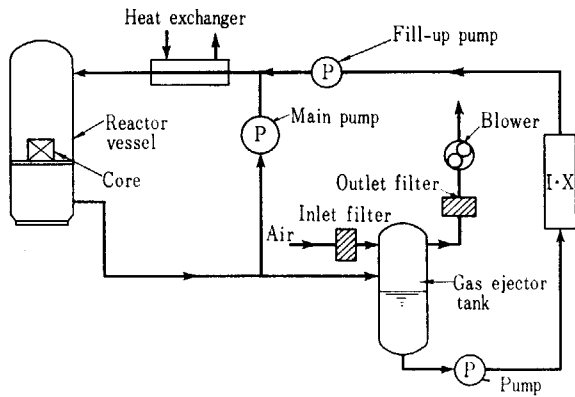


Fig. 2 JMTR schematic flow diagram.

V : 一次冷却水量 (l)

c_0 : 脱気ガス中の水素ガス濃度 [$l(H_2)/l(\text{air})$]

u : 脱ガスラインの空気流量 [$l(\text{air})/\text{hr}$].

前と同様、定常状態では一次冷却水の平均水素ガス濃度は一定となるから、水素ガス発生量は、

$$S = c_0 \cdot u \quad (4)$$

ここで、一次冷却水のサンプリング系およびオーバーフロー系からのもれによる損失項 R は系全体の一次冷却水量と比較して微量であるため無視した。水素ガス濃度 c_0 は脱気タンク出口の空気をサンプリングし、ガスクロマトグラフによって測定した。

2.3 重水素ガスの測定法

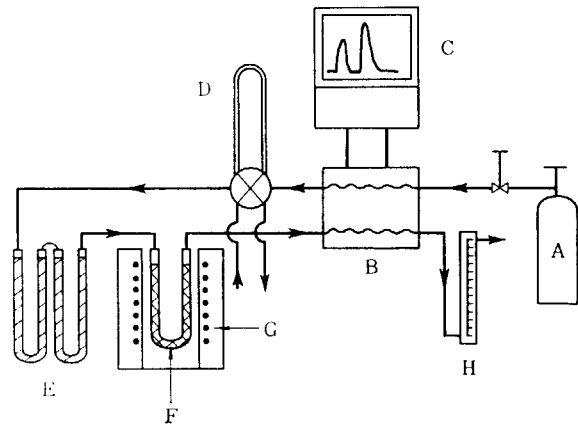
JRR-2 の重水分解量を測定するには He ガス中の重水素ガス濃度を測定する必要がある。原理的には、ガスクロマトグラフを使用することにより、簡単にしかも精度良く測定できる。しかし、He ガス中の重水素ガス測定に関しては次の2つの点でガスクロマトグラフ法による一般的方法では測定できなかった。すなわち

(1) He ガスと重水素ガスはガスクロマトグラフで一般に使用されるカラム充填剤では分離できない。このことは重水素ガスとくらべて熱伝導度差の大きい窒素ガスやアルゴンはキャリアーガスとして使用できないことを示している。

(2) He ガスと重水素ガスを分離せずに測定した場合、He ガスと重水素ガスの熱伝導が接近しているため検出感度が低下し、低濃度の重水素ガスの測定ができない。

このため、He ガス中の重水素ガスをガスクロマトグラフで測定するには重水素ガスを他の化合物に変える必要がある。

著者らは Fig. 3 に示すガスクロマトグラフと重水素ガス燃焼装置を組合せた分析装置を製作し、重水素ガスを重水に変換して分析を行なった。まず、高純度の He ガスをガスクロマトグラフのキャリアーガスとして

Fig. 3 Schematic diagram of D_2 analyzer.

A: Carrier gas storage tank (He)

B: Detector

C: Recorder

D: Sampling tube

E: MS-13X column

F: CuO_2 column

G: Heater

H: Flow meter

用い 60ml/min の流速で流す。次に、JRR-2 の He ガス循環系からサンプリングした He ガスを体積 25ml の計量管に分取したのち、MS-13X をつめた長さ 6m のカラムに通し、共存する酸素および窒素を重水素ガスと分離する。この方法では He ガスをキャリアーガスに使用しているので被測定ガス中の He ガスと重水素ガスを分離する必要はない。MS-13X のカラムによって、重水素、酸素、窒素の順に各ガスは分離される。次に、他のガスと分離した重水素ガスを 400°C に加熱した長さ 60cm の酸化銅のカラムに通して燃焼させ、重水蒸気に変えたのち熱伝導度セルで測定する。MS-13X のカラム温度は 30°C、熱伝導度セルをおさめた検知器の温度は重水蒸気の凝縮を防ぐため 150°C に保った。重水蒸気に変換することによって感度は約 30 倍増加し、He ガス中の 0.05 mole % 程度までの重水素ガスを分析することができる。

2.4 過酸化水素の分析

水の放射線分解によって過酸化水素 (H_2O_2) が生成する (重水の場合には過酸化重水素 (D_2O_2) が生成)。 H_2O_2 は Ti^{+4} イオンおよび EDTA と水に可溶性キレート化合物を生成する。このキレート化合物の構造は $[TiO(H_2O_2)Y]^{-2}$ で、365 m μ にするどい吸収波長をもっている (Y は EDTA を示す)。したがって、Ti および EDTA 試薬をサンプリングした一次冷却水に加え、生成したキレート化合物の波長 365m μ の吸光度を分光光度計で測定しその濃度をもとめた。

3. 測定結果

3.1 JRR-2 の重水分解量

1964年6月から1965年6月までの1年間にわたって、JRR-2の5MW、8MWおよび10MW連続運転時の重水放射線分解量を測定した。同時に重水分解に影響を与える温度、pD（軽水のpHに相当する）、電気伝導度、溶存酸素も測定した。重水分解量は定常状態において(1)式の η_{cu} を測定してもとめることができる。JRR-2のHeガス流量は350l/minで、重水素ガスの再結合率は触媒温度の変動で多少変化したが95%一定と見なしてよかった⁵⁾。測定結果をTABLE 1に示す。TABLE 1のpDは重水のD⁺イオン濃度を示している。重水のpDを測定するには重水素イオンの同位体効果を考慮し、市販のpHメータによる測定値に0.4を加えなければならない。重水の水質は一次系イオン交換樹脂によってpDが6から7の間になるようpHコントロールされ、同時に電気伝導度は1 μ V/cm以下に維持されている。

炉出力1MWあたりの重水分解量、すなわち比分解量と炉出力の相互関係をFig. 4に示す。比分解量は出力上昇にしたがって減少するが同様な傾向はJMTRの場合にもみられる。

重水中の溶存酸素濃度は原子炉運転開始前では約0.3

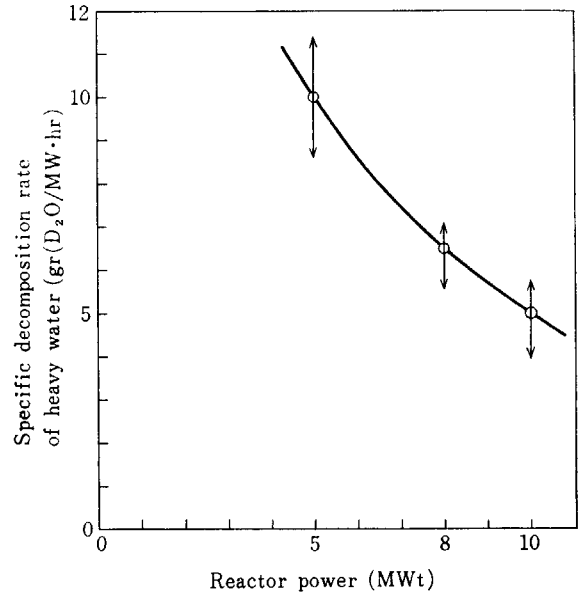


Fig. 4 Specific decomposition rate of heavy water at various reactor powers, JRR-2.

から0.4ppmであるが、運転開始後4~5時間で定常値となる。溶存酸素濃度の炉出力による依存性は特に見られず、炉出力の5~10MWの範囲では1ppm以下であった。炉内のHeガスの純度は98%以上であり外部からの酸素の溶解はないと考えられるので、重水中の酸素はその大部分が重水の分解によって生じたものと推定さ

TABLE 1. JRR-2 heavy water decomposition data

Date	Power (MW)	D ₂ O Temp. (°C)	O ₂ (ppm)	Conductivity (μ V/cm)	pD	D ₂ O ₂ (ppm)	Decomposition rate (g(D ₂ O)/MW-hr)
4-6-1964 to 4-11-1964	5	30.0~35.1	0.6~0.8	0.52~0.54	6.35~6.41	1.08~1.65	9.2~10.8
4-20-1964 to 4-25-1964	5	31.2~35.8	0.7~0.8	0.45~0.57	6.24~6.31	1.33~2.35	10.0~11.8
6-8-1964 to 6-13-1964	5	36.0~37.0	0.7~1.0	0.33~0.36	6.11~6.3	1.08~1.19	10.1~11.8
6-22-1964 to 6-27-1964	5	39.0~41.0	0.4~1.0	0.30~0.50	6.0~6.2	0.6~1.08	10.8~12.0
7-6-1964 to 7-11-1964	5	39.0~41.0	0.9~1.0	0.33~0.35	6.4~6.3	1.58~1.26	9.8~11.8
2-8-1964 to 2-13-1964	8	41.0~44.0	0.6~0.7	0.3~0.62	6.5~6.7	2.12~1.80	6.3~5.0
1-25-1965 to 1-30-1965	8	42.0~43.0	0.5~0.7	0.31~0.42	6.5~6.8	2.2~1.98	6.0~7.05
12-22-1964 to 12-24-1964	10	49.0~51.0	0.6~0.7	0.53~0.65	6.7~6.8	1.26~1.80	4.2~4.8
2-22-1965 to 2-28-1965	10	47.0~49.0	0.5~0.7	0.35~0.57	6.5~6.6	1.70~1.84	3.5~4.8
3-22-1965 to 3-28-1965	10	49.0~52.0	0.4~0.7	0.35~0.32	6.5~6.9	1.80~1.95	4.5~5.7
5-17-1965 to 5-22-1965	10	52.0~56.0	0.6~0.7	0.47~0.74	5.9~6.2	1.62~2.90	4.2~4.7
6-1-1965 to 6-5-1965	10	53.0~55.0	0.6~0.7	0.5~0.9	6.8~7.1	1.77~2.09	3.04~4.01

れる。

過酸化重水素は重水の初期分解生成物であるため、その濃度は炉出力に依存するが出力上昇にともなって飽和する傾向がみられる。Fig. 5 に過酸化重水素の炉出力による濃度変化を示す。過酸化重水素は不安定な化合物であるため、重水中の溶存イオン、有機物などと反応して分解する。重水温度が高いほど分解は促進され、精製系のイオン交換樹脂に接触してその一部が分解する。このため、過酸化重水素の濃度は原子炉の運転条件によってかなり変動する。Fig. 5 の出力上昇による飽和現象は生成した過酸化重水素と初期分解生成物の $\cdot\text{H}$ 、 $\cdot\text{OH}$ ラジカルとの反応、自己分解量の増加、出力上昇と比例して生ずる温度上昇および腐食生成物の増加と、この腐食生成物との反応による過酸化重水素の減少等によるものと考えられる。

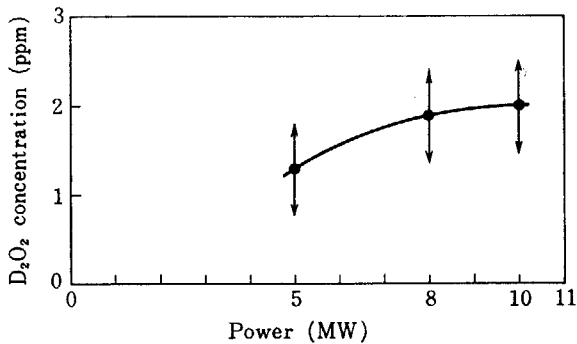


Fig. 5 Effect of reactor powers on the D_2O_2 concentrations of heavy water in JRR-2 reactor.

3.2 JMTR の一次冷却水分解量

JMTR の一次冷却水分解量を 1969 年 12 月から 1970 年 1 月まで、炉出力 1MW から 50MW の範囲について測定した。測定結果を TABLE 2 に示す。

水素発生量は一次冷却水の水質、温度、溶存酸素等に影響されるため各出力について再現性のある発生量を示すものではないが、炉出力と水素発生量の間には Fig. 6 に示す相関関係が存在する。Fig. 6 は JMTR の各出力における 1 次冷却水の分解量を緻密にしらべるため多数の測定値をすべてプロットしたもので、同一の炉出力の場合でも各測定値の水質、温度等の各因子は異なっている。水素発生量すなわち 1 次冷却水分解量と炉出力は比

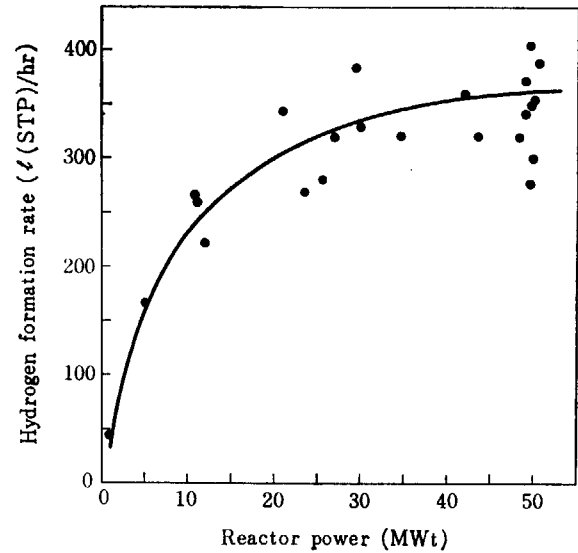


Fig. 6 Hydrogen formation rate at various reactor powers, JMTR.

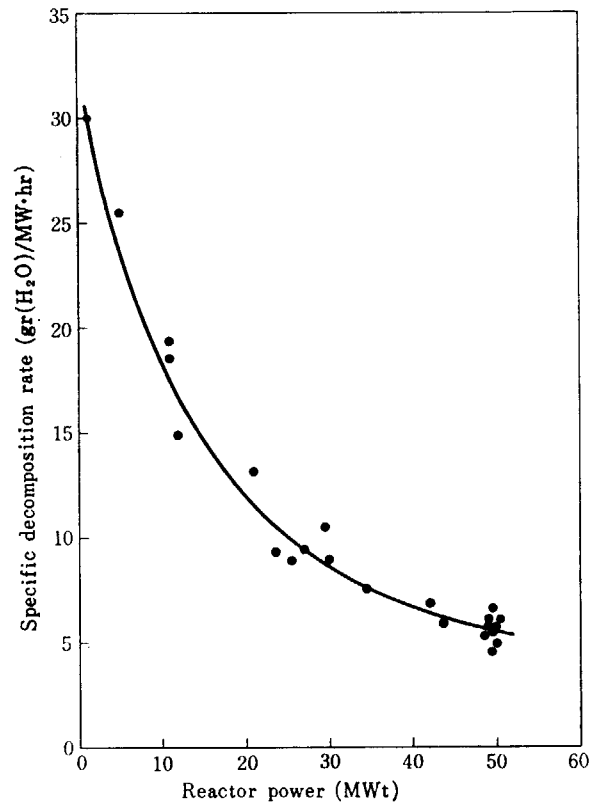


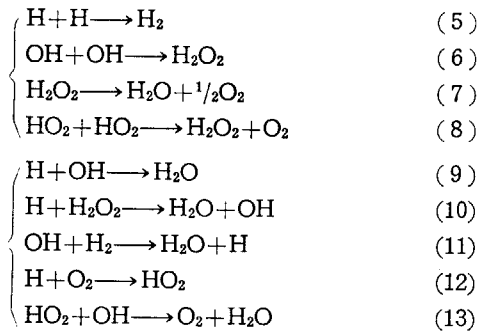
Fig. 7 Specific decomposition rate at various reactor powers, JMTR.

TABLE 2. JMTR water decomposition data

Power (MWt)	Cooling water temp. outlet ($^{\circ}\text{C}$)	O_2 (ppm)	Conductivity ($\mu\text{U}/\text{cm}$)	pH	H_2O_2 (ppm)	Decomposition rate ($\text{g}(\text{H}_2\text{O})/\text{MW}\cdot\text{hr}$)
1.2	9	7.7	0.4~0.5	6 ~6.5	4.7	30.1
5.2	24	10.3	0.4~0.5	6 ~6.5	12 \pm 1.5	25.6
10	14~16	13	0.4~0.5	5.5~6.3	16 \pm 1	18.5~19.5
20	25~26	14.2	0.4~0.5	6 ~6.5	17.5 \pm 0.5	9.3~13.1
30	29~34	14.5	0.7~2.5	5 ~5.5	16.2 \pm 1	7.5~9
40	40~41	14.8	0.7~2	5.5~6	16.5 \pm 0.5	6~7
50	35~46	15	0.6~2	5.5~6	12.5 \pm 1.2	4.5~6.5

例していない。一次冷却水の比分解量と炉出力の関係を図 7 に示す。図 6 から当然予想されることであるが比分解量は炉出力上昇にともなって低下する。このような傾向は JRR-2 と同様 (図 4) である。したがって炉出力増加または出力密度の増加によって比分解量が減少する現象は、この種の原子炉に共通な現象であると推定される。BWR についても同様な現象が生ずることを BORAX-IV の測定値⁷⁾が示している。

水の放射線分解に寄与する吸収エネルギーは炉の出力に比例する。したがって一次冷却水の初期分解量は出力に比例して増加する。しかし、正味の分解量は次の(5)から(8)式で表される分解反応と、(9)から(13)式の逆反応によって決まる。



分解反応速度は炉出力に比例し、逆反応速度は発生した水素、酸素、過酸化水素の濃度に依存する。最後には、分解反応によるガス発生量と逆反応によるガス消費量とが等しい定常状態に達する。したがって、出力密度の増加にともなって比分解量が減少する現象は、出力上昇にともなって増加した酸素、水素、過酸化水素が逆に、(9)から(13)式に示す逆反応を促進するためであると考えられる。

JMTR の溶存酸素濃度は JRR-2 のそれと比較して非常に大きい。この原因は脱気タンク (図 2) において一次冷却水は一気圧の空気と接触し、脱気タンク出口の一次冷却水は空気飽和に近い状態となっている。水温 35°C の空気飽和 (全圧 1 気圧) における溶存酸素濃度は 7 ppm である。この 7 ppm の溶存酸素に、更に炉心での水分解によって発生した酸素が加わり 13~15 ppm という高い溶存酸素濃度となる。溶存酸素濃度の増加が水分解量を増加させることは、多くの研究によって実証されている。炉出力 10MW における JMTR の比分解量は JRR-2 の比分解量 (出力 10MW) の約 4 倍である。図 8 に各炉出力における溶存酸素の濃度変化を示す。

酸素と同様、過酸化水素濃度も JRR-2 に比べて非常に高い。各炉出力における過酸化水素の測定値を図 9 に示す。過酸化水素濃度は炉出力 20MW までは増加したが、20MW 以上では減少する傾向がみられた。pH、電導度などの水質条件が JRR-2 とほとんど同一であるにもかかわらず、過酸化水素濃度が非常に高い原因は溶存酸素によるものと推定される。

JMTR の高い溶存酸素濃度のため(12)式の反応によ

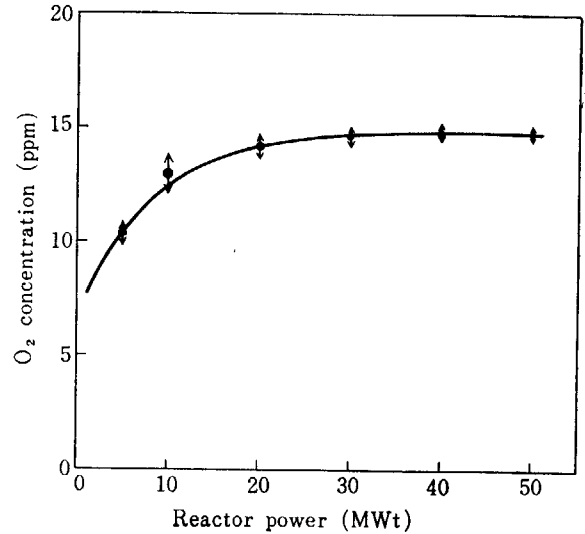


Fig. 8 Reactor power vs oxygen concentrations, JMTR.

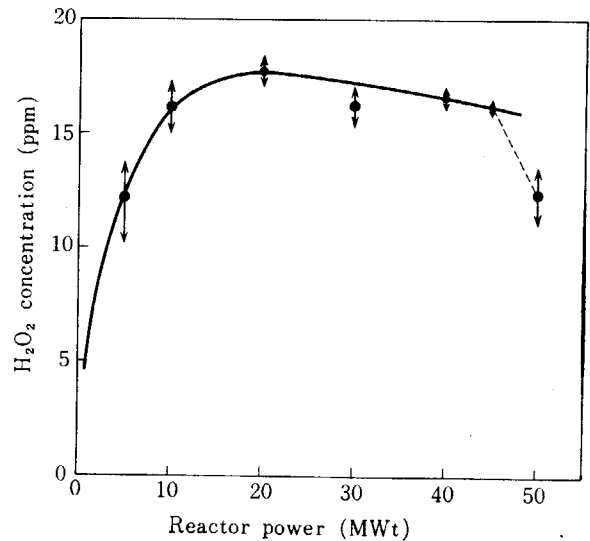


Fig. 9 Reactor power vs H₂O₂ concentrations, JMTR.

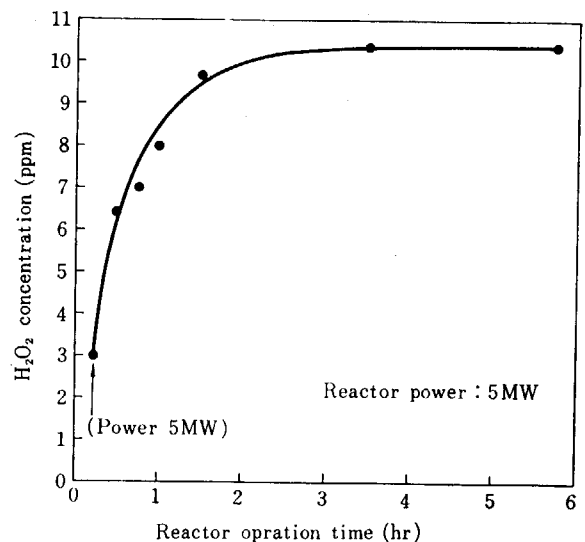


Fig. 10 H₂O₂ formation rate at reactor operation time, JMTR.

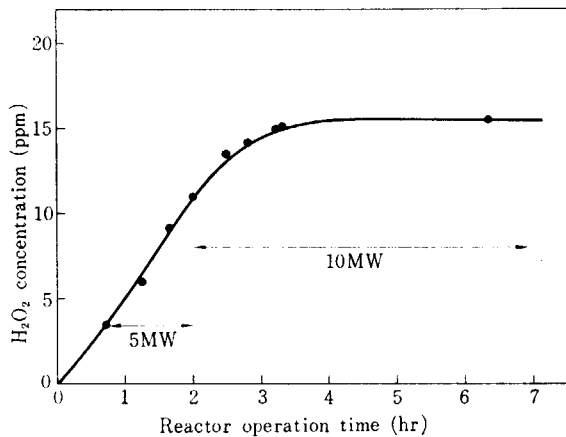


Fig. 11 H_2O_2 formation rate at reactor power-up from 5MW to 10MW, JMTR.

4. 考

4.1 一次冷却水の吸収エネルギー

一次冷却水の分解は放射線のエネルギー吸収によって生ずる。炉運転時に水分解に寄与する放射線の種類とその吸収エネルギーの検討を行ない、炉内における水分解の正味の G 値を得るための資料とする。

JRR-2 および JMTR のような非均質型原子炉では燃料物質が被覆材でおおわれているので、核分裂生成物は被覆材を透過して外にとびだすことはなく、核分裂生成物からの β 線も大部分が被覆材で吸収される。したがって、非均質型原子炉では主として γ 線と高速中性子によって、一次冷却水は分解されると考えてよい⁶⁾。高速中性子は水分子を直接には分解しないが、重水または軽水で減速される過程で水分子の水素原子または重水素原子と衝突して陽子または重陽子を生ずる。この陽子はイオン化密度も大きく水分子を分解するに必要なエネルギーを有している。したがって、高速中性子による水分解では、大部分は二次的な陽子または重陽子による分解と見てよい。熱中性子による水の分解は、重水炉ではそのエネルギーが低いためほとんどないと考えてよいが、軽水炉では $H(n, \gamma)D$ 反応によって γ 線および反跳核 D が放出されるので、この反跳核および γ 線によって水は分解される。しかしながら核反応断面積が小さいので熱中性子による水分解は無視できる。次に、各放射線による吸収エネルギーの検討を行なう。

4.1.1 高速中性子による吸収エネルギー

^{235}U 原子 1 ケの核分裂によって平均 2.5 ケの速中性子と 190MeV のエネルギーが放出される。このうち速中性子の運動エネルギーは 5MeV である。したがって、核分裂によって生じた速中性子が一次冷却水中で減速し

って HO_2 ラジカルの存在量が増加する。このため(8)式の反応による過酸化水素の発生速度が増加し、その濃度が増加する。溶存酸素および過酸化水素の濃度を JRR-2 のそれと比較すると、両物質とも JRR-2 の約 15 倍となっている。Fig. 10, Fig. 11 は炉運転経過時間に対する過酸化水素の濃度変化の測定結果である。Fig. 10 は炉出力 5MW の場合で、5MW 到達後約 3 時間で過酸化水素濃度は定常値となる。Fig. 11 は 5MW で 80 分間運転したのち炉出力が 10MW に上昇したときの濃度変化である。

察

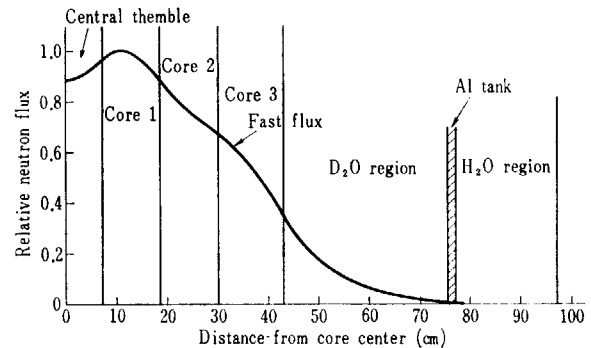


Fig. 12 Fast neutron flux distributions for the 24 elements core (radial), JRR-2.

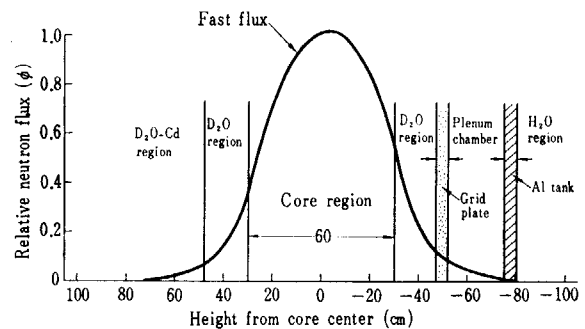


Fig. 13 Fast neutron flux distribution for the 24 elements core (axial), JRR-2.

て熱中性子となる比率を知れば、減速過程で一次冷却水に吸収されるエネルギーを知ることができる。Fig. 12, Fig. 13 は JRR-2 炉心の水平および垂直方向の高速中性子束分布の測定値である。

水平方向での、重水タンク部(重水領域の境界)の速中性子束の相対値は 0.015 である。垂直方向については下部で 0.01, 上部で 0.005 である。重水タンクの水平方向および垂直方向の表面積の比率を考慮して、重水中で減速される高速中性子の割合の平均をもとめると、99

%である。なお、JRR-2 の燃料領域 (Fig. 12 の core region) のヘルミー年令は 138.87cm^2 、バックリング (Buckling) は 0.00246 である。

これより、速中性子のもれて出ない確率を考慮すると速中性子の 71% が燃料領域で減速し、残りの 28% が燃料領域をとりまく重水領域で減速して、そのエネルギーを重水に与えることになる。参考のために JRR-2 の炉心部の概略図を Fig. 14 に示す。

速中性子の 99% が JRR-2 の重水中で減速して熱中性子となるとき、1MW で1時間あたりの重水の吸収エネルギーは $6 \times 10^{20} (\text{MeV}/\text{MW}\cdot\text{hr})$ である。

JMTR の場合は直径 300cm の炉圧力容器の中心部に $38 \times 53 \times 75\text{cm}$ の直方体炉心がおかれている (Fig. 15)。したがって、圧力容器内の一次冷却水からの速中性子のもれて出ない確率は、幾何学的位置から考えて JRR-2 よりも高いが、G 値の計算では、一次冷却水の吸収エネルギー

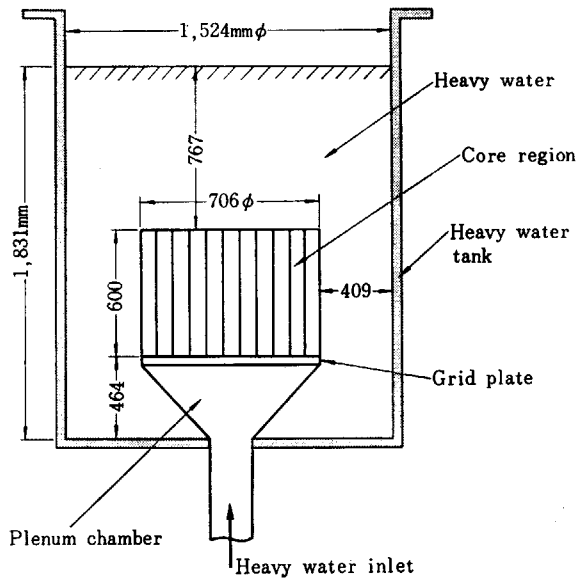


Fig. 14 Schematic diagram of JRR-2 heavy water tank.

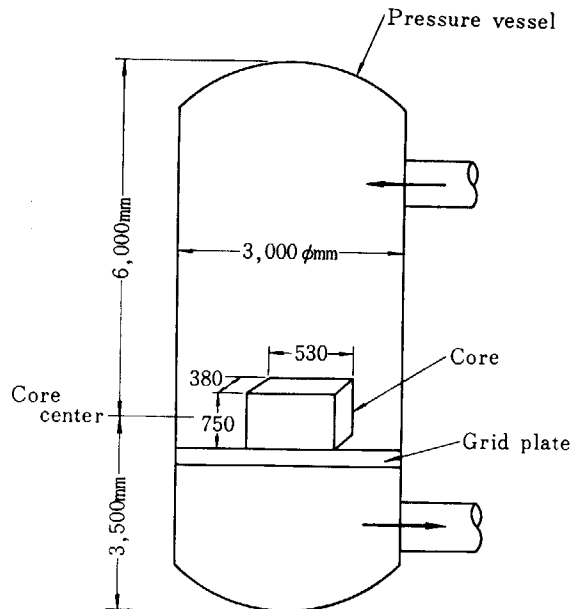


Fig. 15 Schematic diagram of JMTR pressure vessel.

ギーは近似的に JRR-2 と同じであると仮定しても大きな誤差は生じない。

4.1.2 γ 線による吸収エネルギー

原子炉運転時に炉心から放出される γ 線の大部分は、核分裂即発 γ 線と、短半減期核分裂生成物からの γ 線である。

^{235}U の1核分裂あたり放出される即発 γ 線のエネルギーは、 $7.4 \pm 0.8\text{MeV}$ 、短半減期核分裂生成物からの γ 線エネルギーは $5.5 \pm 0.5\text{MeV}$ である。

この γ 線の一部は Al, Be, ステンレス鋼などの構造材に吸収され、他の一部は炉外へもれ出る。残りの γ 線が一次冷却水に吸収される。一時冷却水に吸収される γ 線エネルギーをもとめるため、JMTR の 5W 運転時に炉心周辺の一次冷却水内の γ 線量率分布を測定した。測定結果を Fig. 16 に示す。Fig. 16 は Fig. 17 の炉心表面の点AからZ方向の γ 線量率分布で、線量率は炉出力 1MW、1時間あたりに換算した値で示した。Fig. 17 は JMTR の炉心および周辺要素との位置関係を示す概略図である。

一次冷却水の γ 線吸収エネルギーは次式からもとめることができる。

$$E = K\rho \int R dV \quad (14)$$

ここで、 E : 1次冷却水の γ 線吸収エネルギー ($\text{eV}/\text{MW}\cdot\text{hr}$)

ρ : 水の密度 (g/ml)

R : 水中の線量率 ($\gamma/\text{MW}\cdot\text{hr}$)

V : 炉心周辺の一次冷却水体积 (ml)

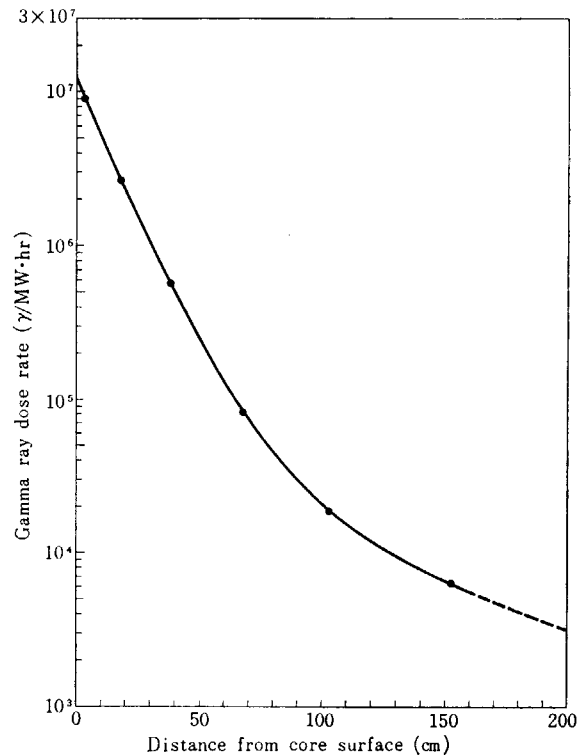


Fig. 16 Gamma dose rate distribution from JMTR core surface in water, (Vertical).

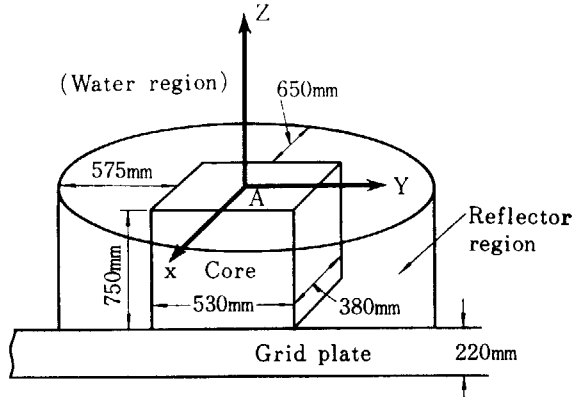


Fig. 17 Schematic diagram of JMTR core and reflector.

K : 換算係数 ($93/1.6 \times 10^{-12} = 5.8 \times 10^{13} \text{eV/g} \cdot \gamma$).
ここで、一次冷却水内の平均線量率 (\bar{R}) を次のように定義すると、

$$\bar{R} = \frac{\int R dV}{\int dV} \quad (15)$$

(14)式は(16)式に書きかえることができる。

$$E = K \rho \bar{R} \int dV = K \rho \bar{R} V \quad (16)$$

(15)式において、 x, y 方向 (Fig. 17) の γ 線分布が均一と仮定すると (実測値は炉心表面部を除いて、この仮定を十分満足していた)、 \bar{R} は(17)式よりもとめることができる。

$$\bar{R} = \frac{\iiint R dx dy dz}{\iiint dx dy dz} = \frac{\int R dz}{\int dz} \quad (17)$$

JMTR の炉心側面は Be, Al, ステンレス鋼からなる厚さ 575 から 650mm の反射体がとりまき、下部には厚さ 220mm のステンレス鋼の格子板が存在する (Fig. 17). このため、一次冷却水の γ 線吸収の大部分は炉心内部と炉心上部の冷却水領域で起こる。 γ 線量率は水層 120 cm で $1/10^3$ に減衰する (Fig. 16). したがって、炉心上部については厚さ 120cm の水層内の γ 線吸収エネルギーをもとめれば十分である。(17)式によってもとめた \bar{R} は $1.25 \times 10^8 (\gamma/\text{MW} \cdot \text{hr})$ で、このとき吸収エネルギーの計算値は $6.15 \times 10^{20} (\text{MeV}/\text{MW} \cdot \text{hr})$ である。炉心内の γ 線量率分布からもとめた \bar{R} は $1.01 \times 10^8 (\gamma/\text{MW} \cdot \text{hr})$ 、炉心内の 1 次冷却水体积は $9.1 \times 10^4 \text{ml}$ で、その吸収エネルギーは $5.33 \times 10^{20} (\text{MeV}/\text{MW} \cdot \text{hr})$ である。この結果、JMTR の一次冷却水の全 γ 線吸収エネルギーは $1.15 \times 10^{21} (\text{MeV}/\text{MW} \cdot \text{hr})$ となる。炉出力 1MW の放出 γ 線エネルギーは $1.57 \times 10^{21} (\text{MeV}/\text{MW} \cdot \text{hr})$ である。したがって、JMTR では核分裂によって発生する γ 線エネルギーの 73% が一次冷却水に吸収される。

次に JRR-2 の γ 線吸収エネルギーを計算する。JRR-2 の炉心表面の線量率は $7.75 \times 10^6 (\gamma/\text{MW} \cdot \text{hr})$ である。重水の密度は 1.1 であるが、 γ 線の減衰については軽水と同一と考えてよいから、減衰率については JMTR の測定結果を使用できる。炉心周辺の重水反射体の厚さ

は約 40cm であるから (Fig. 14)、重水層 40cm までの平均線量率 ($\bar{R} = 2.32 \times 10^6 \gamma/\text{MW} \cdot \text{hr}$) を用いて重水反射体領域の吸収エネルギーを計算すると、 $3.1 \times 10^{20} (\text{MeV}/\text{MW} \cdot \text{hr})$ である。

JRR-2 炉心内の \bar{R} は $6.45 \times 10^7 (\gamma/\text{MW} \cdot \text{hr})$ 、重水体積比率は 90.3%、炉心体積は $2.36 \times 10^5 \text{ml}$ である。したがって、炉心部内の重水の γ 線吸収エネルギーは $7.97 \times 10^{20} (\text{MeV}/\text{MW} \cdot \text{hr})$ となる。したがって、JRR-2 の重水の全 γ 線吸収エネルギー $1.1 \times 10^{21} (\text{MeV}/\text{MW} \cdot \text{hr})$ は 1MW あたり発生する γ 線エネルギーの 70% である。

4.2 温度による効果

水の放射線分解は温度の影響を受ける。放射線による水の初期分解速度は吸収エネルギーのみに比例し、温度には関係しない。すなわち、水分解の初期収率は温度にほとんど影響されないか、または非常に小さい。しかし、生成したラジカルおよび分子生成物相互の反応、すなわち (9) から (13) 式の逆反応速度は温度上昇によって促進される。この結果、温度上昇によって正味の水分解量は減少する。JMTR の一次冷却水温度と分解量の測定結果を Fig. 18 に示す。一次冷却水温度が 50°C の比分解量を温度に関する標準分解量 [$Q(50)$] と定義すると、

$$Q(50) = Q(t)/f; \quad (18)$$

ここで、 $Q(t)$: 温度 t の比分解量 ($\text{g}/\text{MW} \cdot \text{hr}$)

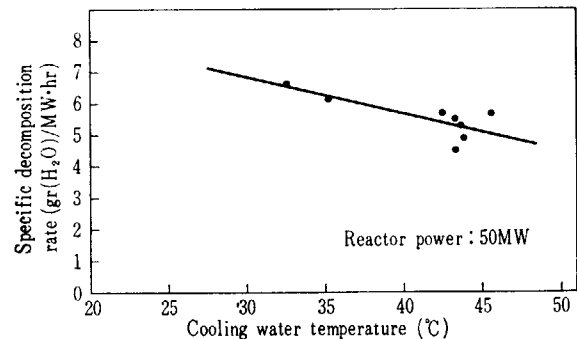
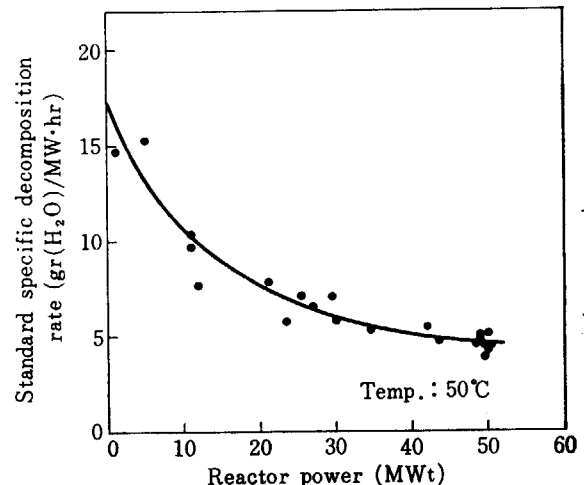


Fig. 18 Specific decomposition rate as function of cooling water temperature of 50MW, JMTR.

Fig. 19 Corrected specific decomposition rate of water temperature of 50°C vs reactor power, JMTR.

f_t : 水分解の温度補正係数.

f_t は測定結果より,

$$f_t = 2.3 - 2.6 \times 10^{-2}t \quad (19)$$

(19)式の 2.3 は水温 0°C の温度補正係数である. JMTR の比分解量(Fig.7)を温度 50°Cの標準分解量で表わすと Fig.19 となる.

4.3 pH による効果

JRR-2 および JMTR の水分解量を比較検討する場合, 両原子炉の pH 値が異なるため pH による水分解係数を考慮しなければならない.

一次冷却水の放射線分解に対する pH の効果については限られた資料しかない. BWR の pH と発生ガス量の相互関係⁹⁾の実測値にもとずいて, 各 pH 値の水分解係数をもとめ Fig.20 に示した. Fig.20 では pH 7 の分解量を基準とし, 各 pH の分解量と pH 7 の分解量の比率を pH 補正係数と定義した. 酸性領域で分解量は急速に増加するが, pH が7以上のアルカリ領域では分解量は減少する. しかし酸性領域で見られる急速な減少は起らない. 酸性領域で pH の補正係数が1より大であるということは H⁺ イオンが水分解を促進していることを示している. すなわち, H⁺ イオンが水分解の中間生成物と反応して分解反応を促進するか, または逆反応を減じようとする作用をするためである. この場合, 放射線によって活性化された水分子 H₂O*, あるいはスプール(spur)内に存在する・H および・OH ラジカル等の中間生成物と H⁺ イオンが次のように反応する.

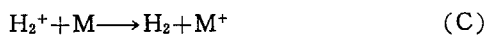
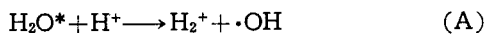


Fig.20 は BWR について得られた資料であるが, H⁺ イオンが(A), (B), (C)の各式で示される反応をするならば, 原子炉の型式および運転条件によって反応量の

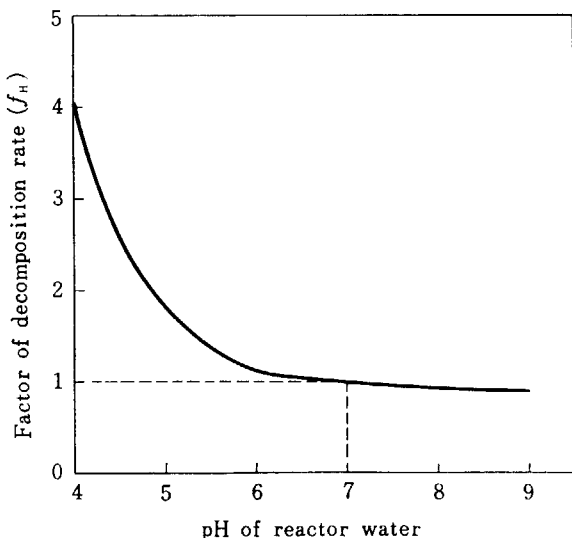


Fig. 20 The effect of pH on water decomposition.

絶対値は変化するが, 相対値である pH 補正係数は変わらないと推定される. したがって, Fig.20 は JRR-2 および JMTR についても適用できると考えてよい.

今, 温度と pH の両補正を考慮し, 温度 50°C, pH 7 での比分解量を一次冷却水の標準分解量と定義し, Q(7, 50)で表わすと,

$$Q(7, 50) = Q(pH, t) / f_t \cdot f_H \quad (20)$$

ここで, Q(pH, t): 任意の pH と温度における一次冷却水の水分解量 (g(H₂O)/MW・hr)

f_H : pH の補正係数(Fig.20)

f_t : 温度補正係数((19)式).

4.4 出力密度と標準分解量の関係

原子炉の熱出力が同一であっても炉心の大きさによって出力密度は異なる. したがって, 比分解量の解析においては炉心の出力密度で議論したほうが合理的である.

測定値をもとに, 標準分解量と出力密度 P との関係を検討した結果, 標準分解量 Q(7, 50) は次式で表わすことができる.

$$Q(7, 50) = \xi \exp(-\lambda P^{1/2}) \quad (21)$$

ここで, ξ, λ : 定数,

P: 炉心の出力密度 (kW/l).

(21)式の各定数を JMTR についてもとめると,

$$Q(7, 50) = 21.5 \exp(-0.088 P^{1/2}) \quad (22)$$

JRR-2 については,

$$Q(7, 50) = 14.5 \exp(-0.165 P^{1/2}) \quad (23)$$

JMTR, JRR-2 の P^{1/2} 対 Q(7, 50) の関係を Fig.21 に示した. JMTR と JRR-2 の標準分解量の差は同位体効果によるものではなく⁹⁾¹⁰⁾, 約 15 倍も異なる溶存酸

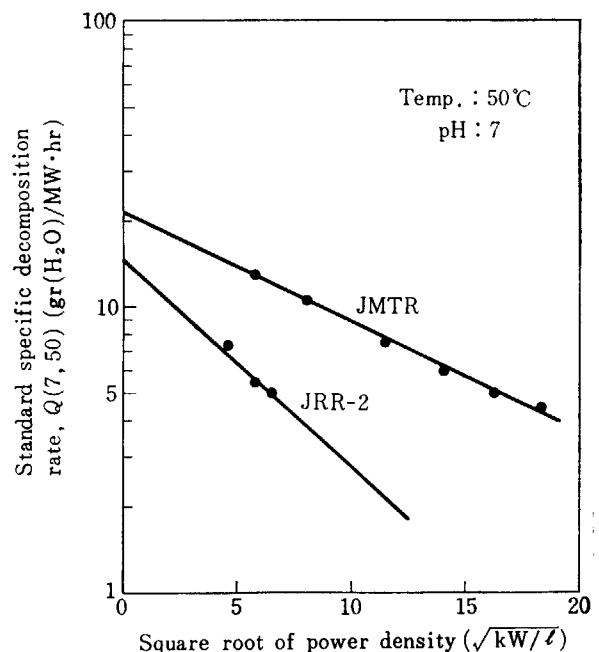


Fig. 21 Q(7, 50) as function of square root of power density (P^{1/2}), JMTR, JRR-2.

素によるためである。

4.5 水分解の正味の G 値

水の初期分解の G 値は 3.8 である¹¹⁾。すなわち、100 eV の吸収エネルギーによって 3.8 個の水分子が分解する。しかし、(9)から(13)式の逆反応によって分解生成物の一部は水にもどる。このため、水分解の正味の G 値は初期分解の G 値より小さな値となる。

原子炉技術者にとって重要なのは、初期分解の G 値ではなく正味の G 値である。すなわち、一次冷却水分

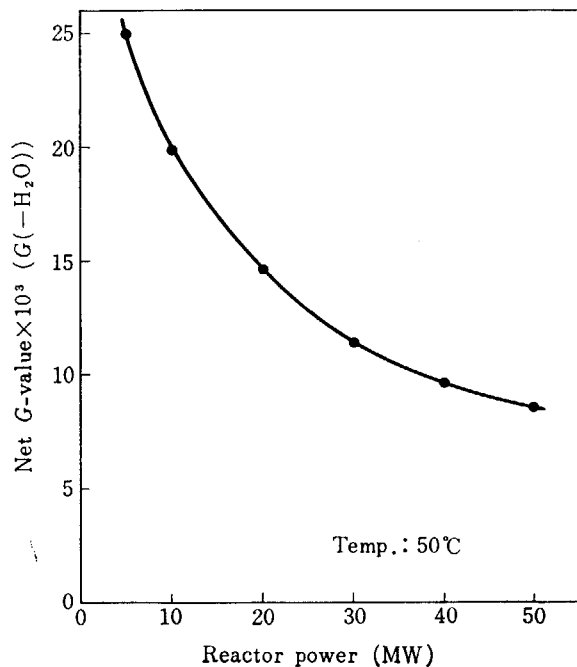


Fig. 22 Net G-value of water decomposition as function of reactor power, JMTR.

解の正味の G 値と吸収エネルギーを知れば、一次冷却水の分解量を計算によってもとめることができる。

炉出力 1MW, 1時間あたりの一次冷却水の吸収エネルギーは JMTR で 1.75×10^{21} (MeV/MW·hr), JRR-2 では 1.7×10^{21} (MeV/MW·hr) である。一次冷却水温度が 50°C における JMTR, JRR-2 の水分解の正味の G 値を炉出力の函数として Fig. 22, Fig. 23 に示した。JMTR の水分解の正味の G 値は、50MW において、

$$\text{Net-G}(-\text{H}_2\text{O}) = 8.6 \times 10^{-3} \pm 20\%$$

JRR-2 の 10MW においては、

$$\text{Net-G}(-\text{D}_2\text{O}) = 8.8 \times 10^{-3} \pm 20\%$$

であった。水の初期分解の G 値は炉出力に影響されないで、JMTR の 50MW では初期分解量の約 99.8% が逆反応によって、もとの水に再結合することになる。

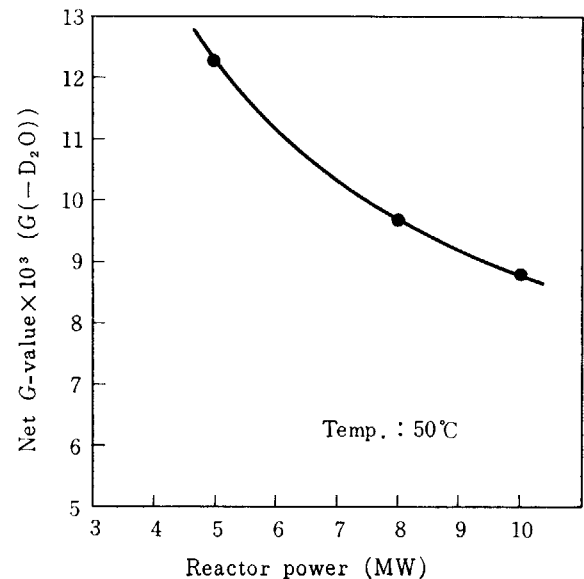


Fig. 23 Net G-value of heavy water decomposition as function of reactor power, JRR-2.

5. ま と め

原子炉内の水の放射線分解量を知ることは原子炉工学上、非常に重要な問題である。再結合器を設計する場合、十分な安全度をもって水分解量を推定すればよいが、実験的ならずけがない場合にはある程度の不安が残ることはさげられない。また、水分解による水素ガス発生は原子炉の運転管理上、困難な問題を生ずる場合がある。JRR-2 の垂直実験孔内の重水が分解して、実験孔上部の気相中の重水素濃度が 50% を越えたことが経験された。このように、原子炉内においては局部的に水素ガスが高濃度に蓄積する危険性が存在する。

原子炉内では水分解に影響する因子が多く、1つの原子炉において測定された分解量を他の原子炉に適用することが困難であった。その最大の原因は、高速中性子と γ 線の混合照射⁸⁾をうけた場合の水分解の正味の G

値が不明であったためである。Fig. 22 および Fig. 23 に示す正味の G 値は pH 7, 水温 50°C の値であるが、他の条件での G 値を得るには(19)式および Fig. 20 の補正係数を用いればよい。一次冷却水の吸収エネルギーは原子炉の型によって異なるが、水冷炉の炉心構造が基本的には、JRR-2 および JMTR と類似していることを考慮すれば、JMTR で得られた値と比較して大差はないと推定される。再結合器の設計⁹⁾などの場合には、核分裂によって放出される速中性子および γ 線の水による吸収率が 100%であると仮定して水分解量を計算すれば、一層安全側で設計することになる。

水分解に対する酸素の効果を定量的にもとめることはできなかったが、JRR-2 と JMTR の酸素濃度と水分解量とを比較することによって、近似的にその効果を推定

できる。

終りに、本測定を行なうにあたり多大の御援助および御便宜をいただいた JRR-2 および JMTR の運転関係の皆様方に深く感謝いたします。

References

- 1) ANL-5004, March(1953).
- 2) HOCKANADEL C. J.: *J. Phys. Chem.* **56**, 575 (1952).
- 3) JOHNSON E. R., ALLEN, A. O.: *J. Am. Chem. Soc.* **74**, 4174(1952).
- 4) TONE H.: *Nucl. Engng (Japan)*, **10**, No. 3, 65(1964).
- 5) TONE H.: *J. Atomic Energy Soc. Japan*, **7**, 58 (1965).
- 6) ALLEN A. O.: *J. Phys. Chem.*, **56**, 575(1952).
- 7) WHITHAM G. K. and SMITH R. R.: Proc. 2nd UN Intern. Conf. Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva, 7, 436(1958).
- 8) ALLEN A. O.: ORNL-130, Oct. 11(1949).
- 9) COATSWORTH K., COLLINSON E., DAINTON F. S.: *Trans Faraday Soc.*, **56**, 1008(1960).
- 10) KUPPERMANN A.: *Nucleonics*, **19**, 38(1961).
- 11) ALLEN A. O.: *Radiation Research*, **1**, 85(1954).