

JAERI 1213

JAERI 1213

J M T R の 水 化 学

1972年2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

JMTR の 水 化 学

日本原子力研究所 大洗研究所

戸 根 弘 人・山 本 克 宗・岡 川 誠 吾
横 内 猪一郎・後 村 正 勝

1970 年 12 月 16 日 受理

要　　旨

JMTR 一次冷却水の化学的特性を知るために、JMTR の特性試験期間中、種々の分析を行なった。分析対象としては、腐食生成物、腐食に大きく影響する酸素等の溶存ガス、核分裂生成物特にヨウ素を選んだ。これらの測定値を JMTR 設計時の想定値と比較し、概して想定値が妥当であったことを確認した。また、放射性物質の濃度を計算によってある程度推定できることもわかった。 ^{24}Na についてはその生成機構に関して、多少の考察を試みた。核分裂生成物としては放射性ヨウ素が検出されたが、濃度は低く、燃料要素の表面汚染によるものと考えられる。放射性ヨウ素の濃度の求め方について若干の検討を行なった。

Water Chemistry of JMTR

Hirohito TONE, Katsumune YAMAMOTO, Seigo OKAGAWA,
Ichiro YOKOUCHI and Masakatsu ATOMURA

Oarai Research Establishment,
Japan Atomic Energy Research Institute
Oarai-machi, Higashiibaraki-gun, Ibaraki-ken

Received December 16, 1970

Summary

To know the chemical nature of JMTR primary coolant, corrosion products, dissolved gases and fission products, especially radioiodine, were measured during the characteristic test of the reactor. Values were compared with those estimated in the design of JMTR; the estimations made were found to be adequate. The formation mechanism of ^{24}Na is also discussed. Radioiodine was detected in the primary coolant; it probably resulted from the surface contamination of fuel elements.

目 次

1. まえがき	1
2. 一次冷却水循環系統	1
3. 特性試験実施工程	1
4. 分析対象および分析法	1
4.1 非放射性物質	1
4.2 誘導による放射性物質	2
4.3 全β線	2
4.4 γ線スペクトル	2
4.5 核分裂生成物	2
4.6 水中溶存ガス	2
4.7 脱気タンク出口の水素濃度	2
4.8 pH および電導度	2
5. 分析結果および考察	3
5.1 非放射性物質	3
5.2 誘導による放射性物質	3
5.3 全β線	5
5.4 γ線スペクトル	5
5.5 核分裂生成物	6
5.6 出力上昇時の放射性物質濃度の変化	7
5.7 放射性物質濃度と炉出力および冷却水温度との関係	8
5.8 一次冷却水中の溶存ガス	8
5.9 脱気タンク出口の水素濃度	8
5.10 pH および電導度	8
6. まとめ	9
文 献	9
付 錄	9
表	10
図	16

Contents

1. Introduction	1
2. Flow diagram of JMTR primary coolant	1
3. Characteristic test process	1
4. Analytical objects and methods.....	1
4.1 Non-active materials	1
4.2 Induced activities	2
4.3 Gross β -ray	2
4.4 γ -ray spectra	2
4.5 Fission products.....	2
4.6 Dissolved gases	2
4.7 Hydrogen concentration at the outlet of degassing tank	2
4.8 pH and conductivity	2
5. Results and discussion.....	3
5.1 Non-active materials	3
5.2 Induced activities	3
5.3 Gross β -ray	5
5.4 γ -ray spectra	5
5.5 Fission products.....	6
5.6 Variation of radioactive nuclides concentration at reactor power up.....	7
5.7 Effect of reactor power and water temperature on the radioactive nuclides concentration	8
5.8 Dissolved gases	8
5.9 Hydrogen concentration at the outlet of degassing tank	8
5.10 pH and conductivity.....	8
6. Conclusion	9
References	9
Appendix.....	9
Tables	10
Figures.....	16

1. まえがき

JMTR の特性試験は昭和 44 年 12 月～昭和 45 年 1 月の第 1 サイクルおよび昭和 45 年 5 月～6 月の第 2 サイクルで行なわれた。筆者らは特性試験期間中、材料試験炉部の分析班として一次冷却水等の分析を行ない、その化学的特性を調査したのでここに報告する。

JMTR の一次冷却水は 15 kg/cm^2 , 50°C の軽水であり、構造材料の腐食環境としてはあまり厳しいものではないが、一次系配管に多量に用いられているステンレス

鋼および炉心部で反射体要素などに用いられているアルミニウムについて腐食に対する知見を得ておくことは必要である。したがって分析の重点の一つは鉄、アルミニウムなど非放射性の腐食生成物および ^{59}Fe , ^{51}Cr , ^{24}Na , など腐食生成物が放射化されたものに対する分析において。また腐食に大きな影響を及ぼす溶存酸素を監視するため溶存ガスの測定も行なった。分析のもう一つの重点は放射性ヨウ素の測定におき、燃料破損事故に備えた。

2. 一次冷却水循環系統

JMTR の一次冷却水循環系統のフローシートを Fig.1 に示す。冷却水は軽水の脱イオン水であり、窒素ガスにより約 14 kg/cm^2 に加圧されている。水温は原子炉入口で 47°C 以下である。炉心部の主な構成要素は、燃料要素、ベリリウム反射体、アルミニウム反射体、制御棒、燃料フォロワー、ベリリウムフォロワーなどであり、材質は TABLE 1 に示す。

炉心部を通過した冷却水は圧力容器下部から外に出て主循環ポンプおよび主熱交換器を経て圧力容器上部から再び炉心部に戻る。この主循環系と並列に精製系があり、主循環ポンプ入口ヘッダーから、まず脱気タンクに入つて水の放射線分解により生成する水素ガスを放出する。脱気タンクを出た冷却水は移送ポンプにより加圧され、入口フィルターを通つてからイオン交換塔に入り、

腐食生成物などを取り除く。イオン交換塔を出た冷却水は出口フィルターを通つてから充填ポンプによりさらに加圧され、主熱交換器入口ヘッダーから主循環系にもどる。

イオン交換塔はカチオン交換塔とアニオン交換塔より成り、これらはそれぞれバイパスがあつて、バイパス流量を変えることによって冷却水の pH を調節することができる。

なお、一次冷却水流量は第 1 サイクルで $5750 \text{ m}^3/\text{hr}$ 、第 2 サイクルで $5900 \text{ m}^3/\text{hr}$ である。また精製系流量は $50 \text{ m}^3/\text{hr}$ であるが、イオン交換塔内の流量は最高 $25 \text{ m}^3/\text{hr}$ である。

炉心部以外の一次系配管、圧力容器の構造材料は SUS-27 および SUS-28 である。

3. 特性試験実施工程

JMTR 特性試験は昭和 44 年 12 月～昭和 45 年 1 月と、昭和 45 年 5 月～6 月の 2 回行なわれ以下、前者を第 1 サイクル、後者を第 2 サイクルと呼ぶ。特性試験の

概略工程を Fig. 2 に示す。ただし図中の炉出力は核計装による出力である。

4. 分析対象および分析法

4. 1 非放射性物質

一次冷却水中の溶存ガスを除く非放射性物質のうち、鉄、アルミニウム、ベリリウム、ウランおよび過酸化水

素の分析を行なった。鉄は一次系配管の大部分をしめるステンレス鋼の主成分であり、アルミニウムおよびベリリウムは反射体要素の材料である。したがつてこれらの元素を分析することにより、原子炉構造材料の腐食に関

する知見を得ることができる。ウランの分析は燃料破損に備えたものである。過酸化水素は水の放射線分解によって生じ、この濃度を測定することにより、JMTRにおける水の放射線分解速度を推定することができる。

分析は「JMTR の分析手順」¹³ に従がって次の方法で行なった。ただし鉄については赤外ランプを用いて 10 倍に濃縮してから分析した。

Fe	原子吸光分析
Al	オキシン抽出分光光度法
Be	ベリロンⅡ法
U	アルセナゾⅢ分光光度法
H ₂ O ₂	Ti-EDTA 法

4. 2 誘導による放射性物質

一次冷却水の activity に関する知見を得るために、核分裂生成物を除いた放射性核種として、反射体の材料である Al が放射化されて生成する ²⁴Na, および一次系配管等が発生源となって生ずる ⁵⁹Fe, ⁶⁵Ni, ⁵¹Cr, ⁵⁶Mn, ⁶⁴Cu, を主として分析した。この他に ¹⁸F, ²⁷Mg, ¹⁸⁷W, ³⁸Cl の測定も行なった。

分析法は原則として「JMTR の分析手順」¹³ に従がって次の方法で行なった。

⁵⁶ Mn	2メチルオキシン抽出γ線スペクトル法
⁶⁴ Cu	オキシン抽出γ線スペクトル法
⁵¹ Cr	DDTC, 2メチルオキシン抽出γ線スペクトル法
⁶⁵ Ni	ジメチルグリオキシム抽出γ線スペクトル法
⁵⁹ Fe	オキシン抽出γ線スペクトル法
³⁸ Cl	AgCl沈殿γ線スペクトル法

ただし、²⁴Na, ¹⁸F, ²⁷Mg および ¹⁸⁷W については次のようにして測定した。²⁴Na は一次冷却水の全 β 線の減衰曲線 (Fig. 6 参照), および 1.36 MeV と 2.75 MeV の γ 線ピークの減衰曲線 (Fig. 8 参照) から濃度を求めた。¹⁸F は第 1 サイクルでは γ 線スペクトルの 0.51 MeV のピークの減衰曲線から定量し, 第 2 サイクルではアリザリンコンプレクソン抽出分離法により定量を行なった。²⁷Mg は半減期が短かいため (9.5 分) 測定が困難であったが, γ 線スペクトルの 0.86 MeV および 1.0 MeV のピークの減衰曲線から大体の濃度を求めた。¹⁸⁷W は 0.07 MeV および 0.14 MeV の γ 線ピークの減衰曲線から定量した。

⁵⁹Fe, ⁶⁵Ni, ⁵¹Cr および ⁵⁶Mn については酸化物あるいは

は水酸化物として存在することも考えられるため, 試料水をミリポアフィルター (孔径 0.45 μ) で口過し, 可溶分と固体分にわけて分析した。TABLE 2 では可溶分を (L), 固体分を (S) と表示してある。

4. 3 全 β 線

水中の放射能強度を知るための簡便な手段として全 β 線の測定を行なった。方法は, 試料水 1mL を放射能皿にとり, 赤外線ランプで乾燥して GM 計数管で測定する方法である¹⁴。

4. 4 γ 線スペクトル

水中の放射性物質の定性および定量を簡便に行なうために γ 線スペクトルの測定を行なった。方法は試料水 5 mL をポリエチレン製棒状ビン (16φ × 86.5h) に入れ, ウエル型シンチレーションカウンター (NaI(Tl) 1 3/4"φ × 2") で γ 線波高分析を行なう方法である¹⁵。

4. 5 核分裂生成物

燃料破損事故に備えて, 核分裂生成物のうちヨウ素を重点的に測定した。分析は四塩化炭素抽出法¹⁶ と陰イオン交換樹脂に試料水を通す方法との 2 通りで行なったが, 四塩化炭素抽出法でのみ検出された。

4. 6 水中溶存ガス

水中溶存ガスについては, 真空脱気法¹⁷ により全溶存ガス量を測定し, ガスクロマトグラフにより溶存ガス中の各成分の分析を行なった。溶存酸素については Beckman 社製溶存酸素計によつても測定した。

4. 7 脱気タンク出口の水素濃度

脱気タンクでは一次冷却水と空気を接触させて水の放射線分解により生成する水素を一次系から除去しているため, 脱気タンク出口の空気中に含まれる水素濃度を監視することは, 水素による爆発を未然に防ぐ意味で安全上重要である。水素濃度の測定は, 脱気タンク出口からサッカーチューブにサンプリングし, ガスクロマトグラフにかけて行なった。

4. 8 pH および電導度

一次冷却水の pH および電導度は検出器が系内に設置されており, 常時連続的に監視されている。

5. 分析結果および考察

5. 1 非放射性物質

分析結果を TABLE 2 に示す。H₂O₂ と Al を除いていずれも極微量であり検出限界以下であった。H₂O₂ 濃度は Fig.3 に示すように炉出力 5MW 以上では 10~20 ppm であった。H₂O₂ については別の報告で詳しく述べる²⁾。Al は大体において検出限界である 0.01 ppm 近傍の濃度であり、第 2 サイクルでは 6 月 8 日と 6 月 12 日に 0.02 ppm になった。

以下に Al の濃度を 0.01 ppm として Al の腐食速度の計算を試みる。まず水中の濃度の変化は次式で示される。

$$\frac{dN}{dt} = \frac{WS}{V_w} - \frac{\epsilon QN}{V_w} \quad \dots \dots \dots (1)$$

ここで

- N : 水中の Al イオン濃度 (mg/cm³)
- t : 時間 (sec)
- W : Al の腐食速度 (mg/cm²·sec)
- S : Al の腐食面積 (cm²)
- V_w : 一次冷却水の総量 (cm³)
- Q : 精製系流量 (cm³/sec)
- ε : イオン交換樹脂交換効率

実際にはこの他にサンプリングや脱ガスによる一次冷却水の流出による変化、給水による変化、イオンの配管壁への析出による変化、などを考慮しなければならないが、これらの影響は比較的小さいと考えられるため省略した。

(1) 式は定常状態では $dN/dt=0$ であるから、腐食速度 W は次式で与えられる。

$$W = \frac{\epsilon QN}{S}$$

ここで $\epsilon \approx 1$ とし、 $Q = 25 \text{ m}^3/\text{hr} = 0.70 \times 10^4 \text{ cm}^3/\text{sec}$, $N = 0.01 \text{ ppm} = 1 \times 10^{-5} \text{ mg/cm}^3$, $S = 2.17 \times 10^6 \text{ cm}^2$ を (2) 式に代入すると、 $W = 3.3 \times 10^{-8} \text{ mg/cm}^2 \cdot \text{sec} = 0.28 \text{ mg/dm}^2/\text{day}$ となる。これは JMTR 設計時に想定していた腐食速度 5 mdd (mg/dm²/day) の約 $1/18$ である。今後照射が進むにつれて腐食速度はいくぶん大きくなることが予想されるが、5 mdd という予想は妥当であったといえる。

一方、ステンレス鋼に対しては JMTR 設計時に 0.2 mdd という腐食速度を想定していたが、(1) 式を用いて Al の場合の逆に水中の Fe 濃度を求めてみると、ステンレス鋼の腐食面積を 4145m² として約 0.1 ppm である。実際の測定値は大体において 0.001 ppm 以下で

あるから、ステンレス鋼の腐食に関してもかなり安全側に予想していたといえる。なお、第 1 サイクル開始前後では Fe 濃度がかなり高くなっているが、これは種々の作業により一次冷却水が汚れたためである。

第 2 サイクルで 2 回 Cl⁻ の分析を行なったが 6 月 8 日の分析値は 0.02 ppm で少し高い値であった。

5. 2 誘導による放射性物質

分析結果を TABLE 2, 3 および Fig. 4 に示す。以下に各々の核種について若干の考察を試みる。

1) ²⁴Na

濃度は核計装出力 50MW で $1.7 \times 10^{-2} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ であり、分析した核種の内では最も高濃度であった。

²⁴Na は次の 3 種の機構により生成すると考えられる。

- a) 水中に溶存する ²³Na の (n, γ) 反応による場合,
- b) ²⁷Al (n, α) ²⁴Na の反応による場合で、水中に溶けている ²⁷Al が反応して ²⁴Na となる場合, c) ²⁷Al (n, α) ²⁴Na の反応による場合で炉心部を構成する材料中の Al の反跳による場合。

それぞれの機構によってどの程度の ²⁴Na 濃度になるか以下に概算を試みた。

a) 水中に溶存する ²³Na の (n, γ) 反応による場合

一般にループをなす原子炉冷却系内で誘導により生成する放射性核種の濃度変化は近似的には次式で表わされる。

$$\frac{dn_w}{dt} = \sigma \phi N_w \cdot \frac{V_T}{V_w} - \lambda n_w - \frac{\epsilon Q}{V_w} \cdot n_w \quad \dots \dots \dots (3)$$

ここで

- n_w : 放射性核種の濃度 (個/cm³)
- t : 時間 (sec)
- σ : 放射化断面積 (cm²)
- ϕ : 热または高速中性子束 (1/sec·cm²)
- N_w : 放射化される物質の濃度 (個/cm³)
- V_T : 燃料領域中の冷却水量 (cm³)
- V_w : 一次冷却水総量 (cm³)
- λ : 崩壊定数 (1/sec)
- ε : イオン交換樹脂交換効率
- Q : 精製系流量 (cm³/sec)

(3) 式の右辺第 1 項は放射性核種の生成速度、第 2 項は崩壊による減衰速度、第 3 項は精製により減少する速度である。(1) 式の場合と同様、正確には析出などの影響を考えるべきであるが、これらの寄与は小さいと

5) ^{65}Ni

^{65}Ni の分析値は $10^{-5} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ のオーダーであった。 ^{65}Ni が ^{51}Cr や ^{66}Mn に比較して少ないのは、 ^{65}Ni の主な生成反応である $^{64}\text{Ni}(\text{n}, \gamma)^{65}\text{Ni}$ の反応で、 ^{64}Ni の存在割合が 1.16% と小さく、また放射化断面積も 2.6 barn と比較的小さいためと考えられる。なお第2サイクルでは検出限界以下 ($10^{-6} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ 以下) であった。

6) ^{59}Fe

^{59}Fe は想定値でも $2 \times 10^{-8} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ と低く、実際にも検出限界以下であった。これは ^{59}Fe の主な生成反応である、 $^{58}\text{Fe}(\text{n}, \gamma)$ において ^{59}Fe の存在割合が 0.31% と小さく、放射化断面積も 0.9 barn と小さいためである。Fe の場合には deposition の効果が他の物質より大きいことも考えられるが、一次冷却水 300 mL を口過したミリポアフィルター（孔径 0.45μ ）からは ^{59}Fe は検出できなかった。

7) ^{37}Cl

^{37}Cl の (n, γ) 反応により生成することを考えて分析したが検出されなかった。

8) ^{18}F

^{18}F については第1サイクルでは γ 線スペクトルの 0.51 MeV のピークの減衰曲線から定量し、第2サイクルではアリザリンコンプレクソン抽出分離法により定量を行なった。測定値はいづれも $10^{-4} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ のオーダーであった。 ^{18}F が比較的多いのは、JMTR の一次冷却水が窒素加圧であり、また脱気タンク内で空気と接触しているため、 ^{18}F を生成する物質である水中の N_2 および O_2 の濃度が高い（4.8 溶存ガス参照）ことに起因している。

9) ^{27}Mg

^{27}Mg は半減期が短いため (9.5m) 測定が困難であったが γ 線スペクトルの 0.86 MeV および 1.0 MeV のピークの減衰曲線から大体の濃度を求めた。想定値は $2 \mu\text{Ci}/\text{ml}$ であったが、測定値は核計装出力 50MW で $2.2 \times 10^{-2} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ であった。 ^{27}Mg は $^{27}\text{Al}(\text{n}, \text{p})^{27}\text{Mg}$ の反応で生成し、大部分は炉心部の Al からの反跳によるものと考えられる。

10) ^{187}W

^{187}W が生成することは当初予想されていなかったが、第1サイクル中核計装出力 30MW に出力上昇した頃から γ 線スペクトルの低エネルギー部にピークが現われはじめた。これらのピークの減衰曲線から求めた値は最高 $9.4 \times 10^{-3} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ であった。タングステンはステンレス鋼溶接用の電極に用いているので、これが溶接部に混入し放射化されたものと考えられる。

Wは一部固形分として水中に存在し、今回の一次冷却水の分析では固形分として検出された唯一の物質である。付録に示すように、燃料要素をハンドリングしたツールの先端部のスミヤからも検出されていることから、

一部分は比較的沈着しやすい形で存在していることが考えられる。

5. 3 全 β 線

測定結果を Fig. 4, 5, 6 および TABLE 2, 3 に示す。Fig. 4, 5 と TABLE 2, 3 に示した値はサンプリングから 30 分経過した時点での測定値である。最高値は $2 \times 10^{-2} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ であった。しかしながら ^{16}N , ^{17}N , ^{19}O , ^{28}Al など短半減期の核種が多量に含まれているため、初期の減衰は激しく、サンプリング時にはかなりの濃度であることが予想される。

減衰曲線はサンプリング後約 8 時間経過すると指数関数的減衰を示す。Fig. 6 の直線部は半減期約 15 時間であり、 ^{24}Na によるものであることを示している。したがってこの直線部を利用して ^{24}Na の濃度を求めることができる。減衰曲線の形は Fig. 6 に示すように第1サイクルと第2サイクルとで変化は認められなかった。

5. 4 γ 線スペクトル

典型的な波形を Fig. 7 に示す。 γ 線スペクトルに現われた各ピークについて以下に説明する。

1) 0.07, 0.14, 0.21 MeV のピーク

第1サイクルで 30MW に出力上昇した時にはじめて認められたピークで、サンプリング時には低エネルギー領域ではバックグラウンドが高いため判然としないが、半減期が長いため時間がたつとはっきりとしたピークになる。Fig. 9 は第1サイクルの核計装出力 50MW 時に採取した一次冷却水について γ 線スペクトルの各ピークの減衰曲線を画いたものである。これら 3 つのピークは減衰曲線が非常に類似しており、150 時間程度までは 21~27 時間の半減期で減衰し、それ以後は約 60 時間の半減期である。これらの条件を満たす核種としては ^{187}W (24 hr) と、 ^{99}Mo (67 hr) が考えられる。特に ^{187}W は第1サイクル後の燃料要素のハンドリングをしたツールの先端のスミヤから、より明確な γ 線の波形が得られており、一次冷却水中に存在することは確かである（付録参照）。また、一次冷却水 300mL を口過したミリポアフィルターを直接計数しても同様の γ 線波形が得られ、各ピークの半減期は 24 hr 前後であった。（Fig. 10 参照）

^{99}Mo については現在の段階では確かな話はできない。分離分析により確認する必要がある。

なお、 ^{187}W には 0.21 MeV というピークは本来ないが、ウェル型シンチレーターを用いたため 0.07 MeV と 0.14 MeV の sum peak がでたものと考えられる。

2) 0.32 MeV のピーク

Fig. 7 のスペクトルにはないが、100 時間程度経過して Back ground が下がると現われる。Fig. 9 に示すようにこのピークの半減期は約 30 日であり、 ^{51}Cr によるものであることがわかる。

3) 0.51 MeV のピーク

このピークは Fig. 8 に示すように半減期は初期には約 2 hr, その後は約 14 hr であった。2 hr の部分は ^{18}F (112m), 14 hr の部分は ^{64}Cu (12hr) であると考えられる。

4) 0.86 MeV のピーク

このピークは初期の減衰が速いため正確な測定が困難であるが、この部分は ^{27}Mg (9.5m) であり、後の半減期約 2.5 h の部分は ^{56}Mn (2.58hr) によるものと思われる。

5) 1.0 MeV のピーク

小さなピークであるが半減期が十数分であることから ^{27}Mg (9.5m) であると思われる。

6) 1.36 MeV のピーク

^{41}Ar (110m , 1.29MeV) と ^{24}Na (15h , 1.37MeV) との混合ピークであろう。

7) 2.75 MeV のピーク

Fig. 8 からわかるようにほぼ純粋に ^{24}Na のみのピークである。

多くの場合各ピークの減衰曲線は複雑で、単純な指數関数的曲線は得られにくい。原子炉冷却水には非常に多くの核種が含まれていて、それ自体非常に複雑なものであるからである。Fig. 8, 9 に示した曲線は、それらの内でも比較的単純なものである。

しかしながら、これらの曲線から種々の核種の濃度を概算ではあるが求めることができ、その結果を TABLE 2, 3 に示してある。他の測定法と大体一致していることがわかる。特に、 ^{24}Na については β 線計数から求めた値と非常に良い一致を示している。これは、1.36 MeV と 2.75 MeV のピークの減衰曲線がほとんどの場合半減期 15 hr の単純な曲線になり、正確な値が得られていることによるものと考えられる。

第 1, 第 2 サイクル中はサンプリングから 15 分後に試量水 5 ml の γ 線スペクトルをとり、0.51, 0.86, 1.0, 1.36 MeV の各ピークについてピーク面積から放射性物質の濃度を求めて報告した。この結果は Fig. 4, 5 および TABLE 3 に示した。ただし、各エネルギーの γ 線の放出割合はすべて 1 として計算した。

5. 5 核分裂生成物

抽出分離後の試料の γ 線スペクトルは Fig. 11 のようになった。ピークは 0.24, 0.53, 0.83 MeV にあり、0.24 MeV のピークは次第に成長して約 11 時間で最大になり、以後は減衰していく。0.53 MeV のピークは半減期が 15~20 時間であるが片対数方眼紙で直線にはのらない。0.83 MeV のピークは半減期が約 1 時間で直線的である。これらのことから 0.24 MeV のピークは ^{135}I の娘核種である ^{135}Xe によること、0.53 MeV のピ

ークは ^{133}I と ^{135}I の混合ピークであること、0.83 MeV のピークは ^{134}I によることが予想される。以下に各ピークについて簡単な考察を試みる。

1) 0.24 MeV のピーク

このピークが ^{135}Xe によるピークであるとして、その大きさの変化を計算により求めてみる。

一般的に、放射性核種 A が壊変して放射性娘核種 B が生成する場合、それぞれの核種の原子数の変化は次の式で与えられる。

$$\frac{dN_1}{dt} = -\lambda_1 N_1, \quad \frac{dN_2}{dt} = \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2 \quad \dots \quad (8)$$

ここで、 N_1, N_2 はそれぞれ時間 t における A, B の原子数であり、 λ_1, λ_2 はそれぞれ A, B の崩壊定数である。(8) 式を積分し、 $t=0$ における A, B の原子数をそれぞれ N_1^0, N_2^0 とすると、

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_1^0 (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) + N_2^0 e^{-\lambda_2 t} \quad \dots \quad (9)$$

A, B の半減期をそれぞれ T_1, T_2 とすれば(9)式は

$$N_2 = \frac{T_2}{T_1 - T_2} N_1^0 \left(e^{-\frac{0.693}{T_1} t} - e^{-\frac{0.693}{T_2} t} \right) + N_2^0 e^{-\frac{0.693}{T_2} t} \quad \dots \quad (10)$$

いま、A を ^{135}I , B を ^{135}Xe とすると、 $T_1=6.7\text{hr}$, $T_2=9.13\text{hr}$ であり、また分離分析終了時を $t=0$ とすれば、この時 $N_2^0=0$ と考えられるから(10)式は次のようになる。

$$N_2 = 3.75 N_1^0 (e^{-0.0760t} - e^{-0.103t}) \quad \dots \quad (11)$$

ここで t の単位は hr である。この式の右辺の N_1^0 に適当な値を入れれば ^{135}Xe の放射能の経時変化がわかる。Fig. 12 の曲線 a (点線) は(11)式から得た曲線であり、実測による点と良く一致している。したがって 0.24 MeV のピークは ^{135}I の娘核種である ^{135}Xe によるものであることがわかる。

2) 0.53 MeV のピーク

このピークが ^{133}I と ^{135}I との混合ピークである場合、このピークの大きさの経時変化は次のように計算によって求めることができる。

^{133}I および ^{135}I の濃度変化は近似的にそれぞれ次式で表わすことができる。

 ^{133}I について

$$\frac{dn_1}{dt} = \phi \sigma_{it} \eta_1 \frac{N}{V_w} - \lambda_1 n_1 - \frac{\epsilon Q}{V_w} n_1 \quad \dots \quad (12)$$

 ^{135}I について

$$\frac{dn_2}{dt} = \phi \sigma_{it} \eta_2 \frac{N}{V_w} - \lambda_2 n_2 - \frac{\epsilon Q}{V_w} n_2 \quad \dots \quad (13)$$

1, 2 はそれぞれ ^{133}I および ^{135}I を示す。また、

n : 放射性ヨウ素の濃度 [個/cm³]

σ_{it} : ^{235}U の核分裂断面積 [cm²]

kW から 20MW へ出力上昇し、約 2 時間後に再び 25 MW へ出力上昇しているため、平衡状態へ到達するまでの過程を正確に表わしているとはいえないが、20MW での平衡状態を得るために出力上昇後 2 時間以上を要していることがわかる。

原子炉の出力を上昇した場合、放射性物質の濃度は次式に従がって変化する³⁾。

$$h \equiv \left(1 - \frac{\varepsilon Q}{V_w} t\right) e^{-\lambda t} \dots \dots \dots \quad (22)$$

ここで

a_n : 冷却水が原子炉中を n サイクルまわった後の放射能

a_0 : 出力上昇前の冷却水中の放射能

a : 定常状態に到達した時の放射能

t : 冷却水が原子炉中を 1 サイクルまわるに要する時間

(21) 式にもとづき, $a_0 = 1.13 \times 10^{-4} \mu\text{Ci}/\text{cc}$, $a = 1.54 \times 10^{-2} \mu\text{Ci}/\text{cc}$, $Q = 0.70 \times 10^4 \text{ cm}^3/\text{sec}$, $V_w = 140 \times 10^6 \text{ cm}^3$, $t = 70.8 \text{ sec}$ とし, 核種として ^{24}Na を考えると, この場合の放射能変化は Fig. 13 の△印の曲線になり, ^{24}Na を多く含む 1.36 MeV のピークの曲線と類似している. しかしながら, 実測による曲線には ^{24}Na の他に種々の核種 ^{41}Ar などが入っていること, また冷却水が循環する過程での放射能の希釈され方の違いによって計算による曲線とは一致しない.

放射性核種の半減期の相違によるこの曲線の変化を Fig. 14 に示した。 $a_0 = 1.0 \times 10^{-4} \mu\text{Ci}/\text{mL}$, $\alpha = 1.0 \times 10^{-2} \mu\text{Ci}/\text{mL}$ として計算した。半減期の短かい核種ほど定常状態に早く到達するが、半減期 2 hr の場合で 10 時間以上、半減期 15 hr では 20 時間以上を要する。

第2サイクルのデータで熱出力が約30MWの場合、全 β 線は $1\sim2\times10^{-2}\mu\text{Ci}/\text{ml}$ となるが、6月3, 4, 9日のデータはそれぞれの出力での値としてはかなり低い値となっている。これはサンプリングが出力上昇後短時間のうちになされたためである。

5.7 放射性物質濃度と炉出力および冷却水温度との関係

第1サイクルのデータについて各核種濃度と原子炉核計装出力との関係を Fig. 15~20 に示した。

放射性物質濃度と炉出力とは、他の条件が一定であれば式(4)または(6)から正比例の関係にある。しかしながら Fig. 15~20においてほぼ正比例に近いのは⁵⁶Mnと全β線だけであり、他は、両対数グラフで直線的であるが正比例ではない。しかも、第1サイクル前半のデータは後半のものより高い値を示し、前半と後半で直線の勾配が全く異なるものもある。

放射性物質濃度の変化に対し、原子炉構造材料の腐食速度は大きな影響を与える。また、腐食速度は冷却水温度により変化する。したがって、参考のため第1サイクル中の一次冷却水温度を Fig. 21 に示した。しかし、温度の影響も非常に複雑であり、これらのデータだけからでは何も言えない。

5. 8 一次冷却水中の溶存ガス

結果を Fig. 22, 23 および TABLE 2, 3 に示す.

全溶存ガス量は約 $30\text{mL/l}(\text{H}_2\text{O})$ であった。このうち窒素が 50 vol. %, 酸素が 30 vol. %, 水素が 20 vol. % である。窒素は一次冷却水の加圧に窒素を用いているため、また、脱ガスタンク中で一次冷却水が一気圧の空気と接するため、多量に溶存している。酸素は、窒素と同様に脱ガスタンクから入ってくるものと、水の放射線分解により生成するものとがある。水素は大部分、水の放射線分解により生成する。

JMTR の一次冷却水の放射線分解については他の報告に述べる²⁾。

5. 9 脱気タンク出口の水素濃度

分析結果を Fig. 22 に示す。大体において 1% 以下に保たれており、最高値は 1.25 vol. % であった。この値は水素の下限爆発限界である 4% より充分低く、適切な設計がなされていることを示している。

5. 10 pH および電導度

第1サイクルの一次冷却水のpHおよび電導度の変化をFig. 24に示した。pHはイオン交換塔出口で6~7、脱気タンク入口で6前後であり、脱気タンク入口の方が少し低目である。電導度は大体において $1\mu\text{S}/\text{cm}$ 以下であるが出力上昇すると脱気タンク入口電導度(一次冷却水電導度)が大きくなる傾向がある。温度および出力の上昇により腐食速度が増加するためと思われる。

6. ま と め

- 1) 概して JMTR 設計時の想定値は妥当であったといえる。例えば、一次冷却水中の放射能を設計時の想定値と実測値とで比較してみると大体において想定値が過大となっている。この中で ^{51}Cr , ^{56}Mn , ^{64}Cu , ^{65}Ni はいずれも実測値の方が大きかった。特に ^{64}Cu は濃度が高く、非放射性銅の濃度も 0.01 ppm と高かった。Cu は極微量でも Al の腐食を促進するので、できるだけ低濃度に保つようになることが望ましい。
- 2) 生成反応がよく知られており、しかも単純であれば計算により放射性物質の濃度などをある程度推定することができる。
- 3) 核分裂生成物として、放射性ヨウ素が検出されたが

$10^{-5} \mu\text{Ci}/\text{mL}$ と低濃度であり、燃料要素の表面汚染に起因するものと考えられる。

本測定を行なうに当たり多大な御協力を戴いた JMTR 運転関係の方々に深く感謝致します。本報告の作成に際し放射性廃棄物処理課阪田課長より有益な御助言を戴きました。厚く御礼申し上げます。

文 献

- 1) TONE H. et al.: JAERI-memo 3599 (1969)
- 2) TONE H. et al.: JAERI 1204 (1970)
- 3) WARD J. C.: ORNL-3152

付録 ハンドリングツール先端スミヤ

第 1 サイクル終了後燃料取出し作業を行なったが、その時用いたハンドリングツールの先端から放射能が検出された。スミヤ法によりこの放射能の解析を行なったのでその結果を報告する。燃料要素表面には沈澱性の物質が濃縮された形で付着しているので、一次冷却水の管理をする上でこの結果は大いに参考になる。

結 果

スミヤに用いた口紙について γ 線スペクトルをとると Fig. 25 のようになる。これらの各ピークについて減衰曲線をつくると Fig. 26 および Fig. 27 が得られる。短半減期の核種については Fig. 26 に示したが、最も半減期の短いピークは 0.51 MeV の約 16 hr で、 ^{64}Cu によるものと思われる。0.51 MeV のピークは次第に移動して 0.48 MeV になる。

0.07, 0.14, 0.21, 0.48, 0.63, 0.69 MeV の各ピークは半減期が 22~26 hr であり、 ^{187}W の存在を示している。0.07 および 0.14 MeV のピークにはさらに長半減期の核種も混入している。0.32 MeV のピークは半減期 26.7 d であり ^{51}Cr である。

1.31 MeV のピークは半減期 42.5 日で ^{59}Fe と考えられるが、 ^{59}Fe のもう 1 つのピークである 1.1 MeV のピークの半減期が ^{59}Fe よりはるかに長く 119 日であるため明らかではない。

これらのことから、一次冷却水中の沈澱性物質は大部分タンクステンであり、クロムを多少含む、ということができる。ただし、これらの物質の化学形は明らかではない。

List of Tables

Table 1 Main structural materials in TMTR core

- 2(a) Results of primary coolant analysis
- (b) Results of primary coolant analysis
- 3(a) Results of primary coolant analysis
- (b) Results of primary coolant analysis
- 4 Induced activities of primary coolant
- 5 Radioiodine concentrations by β -ray measuring method and γ -ray measuring method

TABLE 1 Main structural materials used in JMTR core

Fuel element	Clad Side board Adaptor	1100 Al 6061 anti-corrosion Al alloy 356 Al alloy
Be reflector	Reflector Adaptor	Be 356 Al alloy
Al reflector	Reflector	6063 Al alloy
Control element	Neutron absorber Fuel follower Be follower Connector Control rod guide	Hf same as fuel element Boron-SS board (the top of fuel follower) Be and Al Al and SS anti-corrosion Al alloy and SS

TABLE 2 (a) Results of primary coolant analysis

Analysis object	Power ①	The first cycle—The first half (December, 1969)													
		1969 11/25	12/1	12/5	12/10	12/11	12/12	12/15	16:52	12/17 18:05	12/18	12/19	12/20	12/23	12/24
Total dissolved gas (ml/m ³ H ₂ O)	48.0	0	0	0	500W	500W	500kW	5MW	10MW	10MW	10MW	10MW	20MW	30MW	30MW
Dissolved H ₂ (ml/m ³ H ₂ O) (vol. %)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.05	0.05	0.05	2.02	3.46	7.08	6.23	7.14	8.19	6.93	6.21
Dissolved O ₂ (ml/m ³ H ₂ O) (vol. %)	13.7	13.7	12.3	8.0	12.4	9.03	9.03	25.1	20.7	22.7	22.7	22.7	28.0	28.7	23.6
Dissolved N ₂ (ml/m ³ H ₂ O) (vol. %)	28.5	28.5	40.1	37.7	39.2	34.5	34.5	7.71	9.41	10.5	9.04	7.22	7.22	7.22	7.68
Degassing line H ₂ (vol. %)	34.3	71.5	59.9	61.9	54.4	52.1	52.1	47.5	48.1	43.9	43.9	43.9	41.1	41.5	47.1
Fe (ppm)	0.003	0.02	0.017		0.005	0.118	0.45			0.73	0.68	0.96	1.18	0.755	
Al (ppm)	<0.04	<0.04	<0.04	<0.04	<0.04	<0.04	<0.04	<0.04	<0.04	<0.04	<0.04	<0.04	<0.04	<0.04	<0.04
Be (ppm)	<0.02	<0.02	<0.02	<0.02	<0.02	<0.02	<0.02	<0.02	<0.02	<0.02	<0.02	<0.02	<0.02	<0.02	<0.02
U (ppm)	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1	<0.1
Total β-ray (μCi/ml)	B.G ④	B.G	B.G	B.G	B.G	1.33×10 ⁻⁴	1.94×10 ⁻³		4.5×10 ⁻³	5.38×10 ⁻³	1.23×10 ⁻²	1.35×10 ⁻²	1.9×10 ⁻²	1.3×10 ⁻²	
²⁴ Na (μCi/ml)	⑤	⑥							1.5×10 ⁻³	2.7×10 ⁻³	2.4×10 ⁻³	3.3×10 ⁻³	6.0×10 ⁻³	9.2×10 ⁻³	
⁵⁹ Fe(L)② (μCi/ml)	B.G	B.G	B.G	B.G	B.G				B.G	B.G	B.G	B.G	B.G	B.G	
⁵⁹ Fe(S)③ (μCi/ml)	B.G	B.G	B.G	B.G	B.G				B.G	B.G	B.G	B.G	B.G	B.G	
⁶⁵ Ni(L) (μCi/ml)	B.G	B.G	B.G	B.G	B.G				1.68×10 ⁻⁵	1.86×10 ⁻⁵	2.2×10 ⁻⁵	2.44×10 ⁻⁵	9.1×10 ⁻⁶		
⁶⁵ Ni(S) (μCi/ml)						B.G	B.G		B.G	B.G	B.G	B.G	B.G	B.G	
⁵¹ Cr(L) (μCi/ml)			B.G				1.17×10 ⁻⁵		6.77×10 ⁻⁵	5.49×10 ⁻⁵	8.62×10 ⁻⁵	1.37×10 ⁻⁴	8.81×10 ⁻⁵		
⁵¹ Cr(S) (μCi/ml)	⑦		B.G	B.G	B.G	2.5×10 ⁻⁵	3.0×10 ⁻⁴		6.07×10 ⁻⁵	6.04×10 ⁻⁴	1.22×10 ⁻³	2.22×10 ⁻³	1.44×10 ⁻³		
⁵⁶ Mn(L) (μCi/ml)	⑧								5.6×10 ⁻⁴	6.5×10 ⁻⁴	4.8×10 ⁻⁴				
⁵⁶ Mn(S) (μCi/ml)	⑨								B.G	B.G	B.G	B.G	B.G	B.G	
⁶⁴ Cu (μCi/ml)	⑩								3.49×10 ⁻⁴	2.76×10 ⁻⁴	5.63×10 ⁻⁴	3.15×10 ⁻⁴	1.42×10 ⁻³	3.33×10 ⁻³	1.6×10 ⁻³
¹⁸ F (μCi/ml)	⑪								9.4×10 ⁻⁴						
²⁷ Mg (μCi/ml)	⑫								3.7×10 ⁻³	4.6×10 ⁻³	5.8×10 ⁻³	9.9×10 ⁻³			
¹³³ I, ¹³⁴ I, ¹³⁵ I									B.G	B.G	B.G	B.G	B.G	B.G	

① Nuclear power ②, ③ L: soluble, S: insoluble ④ B.G: Back ground ⑤ Calculated from total β-ray decay curve ⑥ Calculated from 1.36MeV γ-ray decay curve
 ⑦ Measured after chemical separation ⑧ Calculated from 0.86MeV γ-ray decay curve ⑨ Calculated from 0.51MeV γ-ray decay curve ⑩ Calculated from 1.0MeV γ-ray decay curve

TABLE 2 (b) Results of primary coolant analysis The first cycle—The second half (January, 1970)

Analysis object	Power①	The first cycle						The second half (January, 1970)					
		1970 1/8	1/9	1/10	1/11	1/12	1/13	1/14	1/19	1/20	1/21	1/22	1/23
Total dissolved gas (ml/l H ₂ O)	0	10MW	30MW	40MW	45MW	50MW	50MW	50MW	50MW	50MW	50MW	50MW	50MW
Dissolved H ₂ (ml/l H ₂ O) (vol. %)		35.7	34.9	37.4	32.1	34.0	32.8	35.8	35.2	35.1	35.5	34.4	
Dissolved O ₂ (ml/l H ₂ O) (vol. %)		6.3	7.8	8.3	7.5	7.5	8.2	8.5	7.7	7.9	8.5	8.0	
Dissolved N ₂ (ml/l H ₂ O) (vol. %)		17.6	22.4	22.2	23.4	22.0	25.0	23.8	21.9	22.5	24.0	23.3	
Dissolved He (ml/l H ₂ O) (vol. %)		10.0	11.4	10.6	9.4	8.9	8.7	9.7	9.0	9.0	8.8	9.3	
Degassing line H ₂ (vol. %)		28.0	32.6	28.3	29.3	26.2	26.5	27.1	25.6	25.6	24.8	27.0	
Fe (ppm)		19.4	15.7	18.5	15.2	17.6	15.9	17.6	18.5	18.5	18.2	17.1	
Al (ppm)		54.4	45.0	49.5	47.3	51.8	48.5	49.1	52.5	51.9	51.2	49.7	
Be (ppm)													
U (ppm)													
Total β -ray ($\mu\text{Ci}/\text{ml}$)	5.45 $\times 10^{-6}$	1.52 $\times 10^{-3}$	1.4 $\times 10^{-2}$	1.8 $\times 10^{-2}$	1.85 $\times 10^{-2}$	2.1 $\times 10^{-2}$	2.2 $\times 10^{-2}$						
²⁴ Na ($\mu\text{Ci}/\text{ml}$)	⑤												
⁵⁹ Fe ($\mu\text{Ci}/\text{ml}$)	B. G ④												
⁶⁵ Ni (L) ② ($\mu\text{Ci}/\text{ml}$)		8.4 $\times 10^{-6}$	8.7 $\times 10^{-6}$	1.29 $\times 10^{-5}$	1.9 $\times 10^{-5}$	5.9 $\times 10^{-6}$							
⁶⁵ Ni (S) ③ ($\mu\text{Ci}/\text{ml}$)			B. G	B. G	B. G	B. G							
⁵¹ Cr ($\mu\text{Ci}/\text{ml}$)	⑦												
⁵⁶ Mn (L) ($\mu\text{Ci}/\text{ml}$)	⑧	6.99 $\times 10^{-5}$	7.26 $\times 10^{-5}$	9.11 $\times 10^{-5}$	1.01 $\times 10^{-4}$	1.02 $\times 10^{-4}$							
⁵⁶ Mn (S) ($\mu\text{Ci}/\text{ml}$)	⑨	1.01 $\times 10^{-3}$	1.2 $\times 10^{-3}$	1.34 $\times 10^{-3}$	1.84 $\times 10^{-3}$	1.48 $\times 10^{-3}$	9.84 $\times 10^{-4}$						
⁶⁴ Cu ($\mu\text{Ci}/\text{ml}$)													
¹⁸ F ($\mu\text{Ci}/\text{ml}$)	⑩	1.9 $\times 10^{-4}$											
²⁷ Mg ($\mu\text{Ci}/\text{ml}$)	⑪	6.0 $\times 10^{-3}$											
¹⁸⁷ W ($\mu\text{Ci}/\text{ml}$)	⑫	3.3 $\times 10^{-4}$	6.7 $\times 10^{-5}$										
¹³³ I ($\mu\text{Ci}/\text{ml}$)													
¹³³ I ($\mu\text{Ci}/\text{ml}$)		2.85 $\times 10^{-6}$	2.84 $\times 10^{-6}$	2.91 $\times 10^{-6}$	3.00 $\times 10^{-6}$	4.82 $\times 10^{-6}$		5.80 $\times 10^{-6}$			4.94 $\times 10^{-6}$		
¹³⁵ I ($\mu\text{Ci}/\text{ml}$)		6.15 $\times 10^{-6}$	7.20 $\times 10^{-6}$	1.01 $\times 10^{-5}$	1.04 $\times 10^{-5}$	1.10 $\times 10^{-5}$	1.80 $\times 10^{-5}$	1.25 $\times 10^{-5}$		1.24 $\times 10^{-5}$			
¹³⁵ I ($\mu\text{Ci}/\text{ml}$)			2.53 $\times 10^{-6}$	2.51 $\times 10^{-6}$	2.58 $\times 10^{-6}$	2.68 $\times 10^{-6}$	4.27 $\times 10^{-6}$	5.15 $\times 10^{-6}$		4.37 $\times 10^{-6}$			

① Nuclear power ⑤ Calculated from total β -ray decay curve ⑩ Calculated from 0.51MeV γ -ray decay curve②, ③ L: soluble, S: insoluble ⑥ Calculated from 1.36MeV γ -ray decay curve ⑪ Calculated from 1.0MeV γ -ray decay curve④ B.G.: Back ground ⑦ Measured after chemical separation ⑫ Calculated from 0.14MeV γ -ray decay curve⑧ Calculated from 0.32MeV γ -ray decay curve ⑬ Millipore filter which filtered 300ml primary coolant (0.14MeV) ⑭ Calculated from 0.07MeV γ -ray decay curve⑨ Calculated from 0.86MeV γ -ray decay curve

Tables

TABLE 3 (a) Results of primary coolant analysis

Analysis object	Date	The second cycle (June, 1970)									
		1970 6/1	6/2	6/3	6/3	6/3	6/3	6/6	6/8	6/9	6/10
		Thermal power 7.8kW	31kW	31kW	780kW	7.8MW	28.6MW	34.7MW	27MW	33MW	29.5MW
Sampling time	23 : 00	10 : 00	16 : 35	15 : 47	16 : 21	19 : 23	21 : 24	15 : 05	17 : 20	9 : 35	16 : 42
Total dissolved gas (ml/l H ₂ O)										34.9	33.0
Dissolved H ₂ (ml/l H ₂ O) (vol. %)									10.2	9.1	
Dissolved O ₂ (ml/l H ₂ O) (vol. %)									29.1	27.6	
Dissolved N ₂ (ml/l H ₂ O) (vol. %)									12.1	11.7	
Degassing line H ₂ (vol. %)									34.8	35.5	
Fe (ppm)	0.007								12.6	12.2	
Al (ppm)	<0.01	<0.01							36.1	36.9	
Be (ppm)	<0.02								0.8		0.96
Cl (ppm)	<0.01										<0.001
Total β -ray ($\mu\text{Ci}/\text{m}^3$)	8 $\times 10^{-7}$	5.8 $\times 10^{-6}$	5.0 $\times 10^{-6}$	1.48 $\times 10^{-5}$	2.25 $\times 10^{-5}$	1.45 $\times 10^{-3}$	5.48 $\times 10^{-3}$	1.66 $\times 10^{-4}$	8.65 $\times 10^{-3}$	1.51 $\times 10^{-2}$	4.4 $\times 10^{-3}$
²² Na ($\mu\text{Ci}/\text{m}^3$)	(1)									1.15 $\times 10^{-2}$	1.31 $\times 10^{-2}$
⁵⁹ Fe ($\mu\text{Ci}/\text{m}^3$)											B. G
⁶⁵ Ni ($\mu\text{Ci}/\text{m}^3$)											B. G
⁵¹ Cr ($\mu\text{Ci}/\text{m}^3$)											1.82 $\times 10^{-4}$
⁵⁵ Mn ($\mu\text{Ci}/\text{m}^3$)										2.78 $\times 10^{-3}$	
⁶⁴ Cu ($\mu\text{Ci}/\text{m}^3$)											6.06 $\times 10^{-4}$
⁶⁰ Co, ⁶⁰ Co ($\mu\text{Ci}/\text{m}^3$)											B. G
¹⁸ F ($\mu\text{Ci}/\text{m}^3$)											3.6 $\times 10^{-4}$
Total radioiodine ($\mu\text{Ci}/\text{m}^3$)	②	9.55 $\times 10^{-8}$	8.06 $\times 10^{-8}$	5.3 $\times 10^{-9}$	1.27 $\times 10^{-7}$	5.11 $\times 10^{-6}$	1.18 $\times 10^{-6}$	8.35 $\times 10^{-6}$	1.32 $\times 10^{-5}$		
	③	0.51 MeV									
Total γ -ray ($\mu\text{Ci}/\text{m}^3$)											
0.86 MeV											
1.0 MeV											
1.36 MeV											

① Calculated from total β -ray decay curve② By β -ray measuring method after chemical separation③ Assuming that fraction of γ -decay is unit.

TABLE 3 (b) Results of primary coolant analysis The second cycle (June, 1970)

	Date	1970 6/12	6/13	6/16	6/17	6/18	6/19	6/20	6/22	6/23	6/24	6/25
Thermal power	31.2MW	31MW	32.2MW	31.8MW	31MW	31.8MW	32.8MW	31.5MW	31.5MW	31MW	30.8MW	
Sampling time	12 : 10	9 : 39	9 : 50	9 : 50	9 : 30	9 : 30	9 : 54	10 : 00	9 : 30	10 : 00	9 : 35	
Total dissolved gas (ml/l H ₂ O)	32.5			32.4		30.7				31.4		
Dissolved H ₂ (ml/l H ₂ O)	9.2			9.3		8.6				9.1		
(vol. %)	28.2			28.7		27.9				29.0		
Dissolved O ₂ (ml/l H ₂ O)	12.4			12.3		10.8				11.6		
(vol. %)	38.1			38.0		35.3				37.0		
Dissolved N ₂ (ml/l H ₂ O)	10.9			10.7		11.3				10.7		
(vol. %)	33.7			33.3		36.8				34.0		
Degassing line H ₂ (vol. %)				1.25				1.06				
Fe (ppm)					<0.001							
Al (ppm)	0.02				<0.01			<0.01			<0.01	
Be (ppm)												
Cl (ppm)												
Total β-ray (μCi/ml)	1.66 × 10 ⁻²	1.93 × 10 ⁻²	1.69 × 10 ⁻²	1.84 × 10 ⁻²	1.97 × 10 ⁻²	2.02 × 10 ⁻²	1.59 × 10 ⁻²	1.65 × 10 ⁻²	1.73 × 10 ⁻²	1.44 × 10 ⁻²		
²³ Na (μCi/ml)						B. G.						
⁵⁹ Fe (μCi/ml)						B. G.						
⁶⁵ Ni (μCi/ml)						3.0 × 10 ⁻⁴						
⁵¹ Cr (μCi/ml)												
⁵⁶ Mn (μCi/ml)												
⁶⁴ Cu (μCi/ml)												
⁸⁸ Co (μCi/ml)												
¹⁸ F (μCi/ml)												
³⁸ Cl (μCi/ml)												
Total Radioiodine (μCi/ml)	1.37 × 10 ⁻⁵						1.59 × 10 ⁻⁵					
0.51 MeV		2.18 × 10 ⁻⁵										
0.86 MeV		1.22 × 10 ⁻⁵			9.0 × 10 ⁻⁶							
1.0 MeV		3.9 × 10 ⁻⁵			3.6 × 10 ⁻⁵							
1.36 MeV		2.31 × 10 ⁻⁵										
		1.61 × 10 ⁻⁵			1.94 × 10 ⁻⁵							

TABLE 4 Induced activities of primary coolant

Nuclides	Activity ($\mu\text{Ci}/\text{mL}$)*	Nuclear reaction
^{16}N	9.3×10^1	$^{16}\text{O}(\text{n}_f, \text{p})^{16}\text{N}$
^{17}N	1.9×10^{-1}	$^{17}\text{O}(\text{n}_f, \text{p})^{17}\text{N}$
^{19}O	2.0×10^{-1}	$^{18}\text{O}(\text{n}, \gamma)^{19}\text{O}$
^{24}Na	3.1×10^{-1}	$^{23}\text{Na}(\text{n}, \gamma)^{24}\text{Na}, ^{27}\text{Al}(\text{n}_f, \alpha)^{24}\text{Na}$
^{27}Mg	2.0×10^0	$^{27}\text{Al}(\text{n}_f, \text{p})^{27}\text{Mg}, ^{26}\text{Mg}(\text{n}, \gamma)^{27}\text{Mg}$
^{28}Al	2.2×10^0	$^{27}\text{Al}(\text{n}_f, \gamma)^{28}\text{Al}, ^{27}\text{Al}(\text{n}, \gamma)^{28}\text{Al}$
^{31}Si	1.2×10^{-7}	$^{30}\text{Si}(\text{n}, \gamma)^{31}\text{Si}$
^{37}S	3.6×10^{-11}	$^{36}\text{S}(\text{n}, \gamma)^{37}\text{S}$
^{41}Ar	4.3×10^{-3}	$^{40}\text{Ar}(\text{n}, \gamma)^{41}\text{Ar}$
^{51}Cr	2.6×10^{-6}	$^{50}\text{Cr}(\text{n}, \gamma)^{51}\text{Cr}$
^{56}Mn	5.5×10^{-4}	$^{55}\text{Mn}(\text{n}, \gamma)^{56}\text{Mn}$
^{59}Fe	1.9×10^{-8}	$^{58}\text{Fe}(\text{n}, \gamma)^{59}\text{Fe}$
^{60}Co	1.0×10^{-7}	$^{59}\text{Co}(\text{n}, \gamma)^{60}\text{Co}$
^{64}Cu	9.0×10^{-7}	$^{63}\text{Cu}(\text{n}, \gamma)^{64}\text{Cu}$
^{65}Ni	3.5×10^{-6}	$^{64}\text{Ni}(\text{n}, \gamma)^{65}\text{Ni}$
^{66}Cu	8.3×10^{-7}	$^{65}\text{Cu}(\text{n}, \gamma)^{66}\text{Cu}$
^{71}Zn	8.0×10^{-10}	$^{70}\text{Zn}(\text{n}, \gamma)^{71}\text{Zn}$

* estimated value

TABLE 5 Radioiodine concentrations by β -ray measuring method and γ -ray measuring method

Date	Radioiodine concentration ($\mu\text{Ci}/\text{mL}$)	
	by β -ray measuring method	by γ -ray measuring method
1970. 6. 8	total 1.32×10^{-5}	^{133}I 2.1×10^{-6} ^{134}I 5.0×10^{-6} ^{135}I 1.9×10^{-6} total 9.0×10^{-6}
1970. 6. 24	total 1.39×10^{-5}	^{133}I 2.1×10^{-6} ^{134}I 5.4×10^{-6} ^{135}I 1.9×10^{-6} total 9.4×10^{-6}

List of Figures**Figure**

- 1 Flow diagram of primary coolant system of JMTR
- 2 Post-neutron test process of JMTR
- 3 H_2O_2 in primary coolant
- 4 Variation of active nuclide concentration
- 5(a) Variation of active nuclide concentration
- 5(b) Variation of active nuclide concentration
- 6 Gross β -ray decay curves of primary coolant
- 7 γ -ray spectrum of primary coolant
- 8 γ -ray decay curves of primary coolant
- 9 γ -ray decay curves of primary coolant
- 10 γ -ray spectrum of precipitates in primary coolant
- 11 γ -ray spectrum of radioiodine in primary coolant
- 12 γ -ray decay curves of radioiodine in primary coolant
- 13 Variation of γ -ray activities at power up
- 14 Variation of activity at power up
- 15 Relation between ^{65}Ni concentration and nuclear power
- 16 Relation between ^{51}Cr concentration and nuclear power
- 17 Relation between ^{56}Mn concentration and nuclear power
- 18 Relation between ^{64}Cu concentration and nuclear power
- 19 Relation between $^{133\sim 135}I$ concentration and nuclear power
- 20 Relation between β -ray activity and nuclear power
- 21 Variation of primary coolant temperature
- 22 Variation of gas concentration
- 23 Relation between dissolved oxygen concentration and nuclear power
- 24 Variation of pH and conductivity
- 25 γ -ray spectrum of the paper smeared at the end of handling tool
- 26 γ -ray decay curves
- 27 γ -ray decay curves

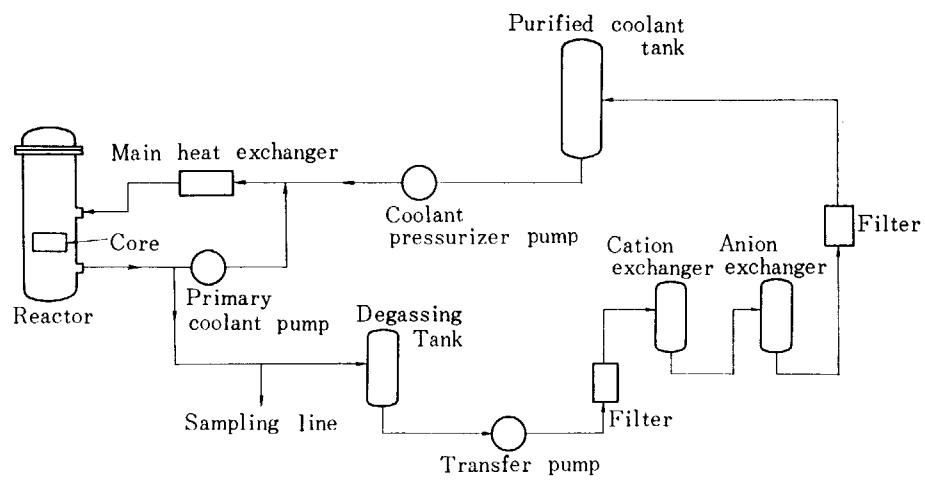


Fig. 1 Flow diagram of primary coolant system of JMTR.

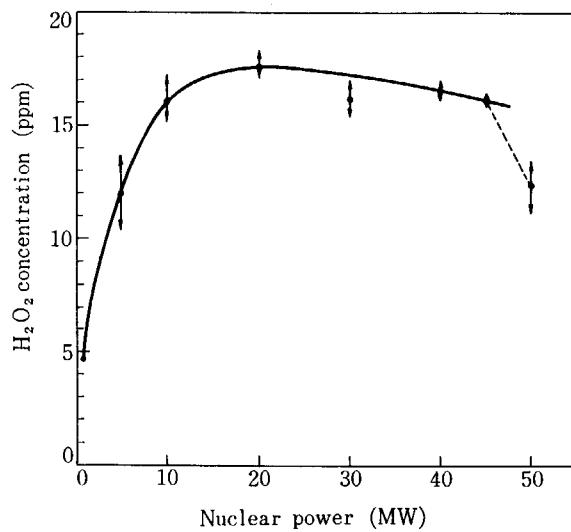


Fig. 3 H_2O_2 in primary coolant.

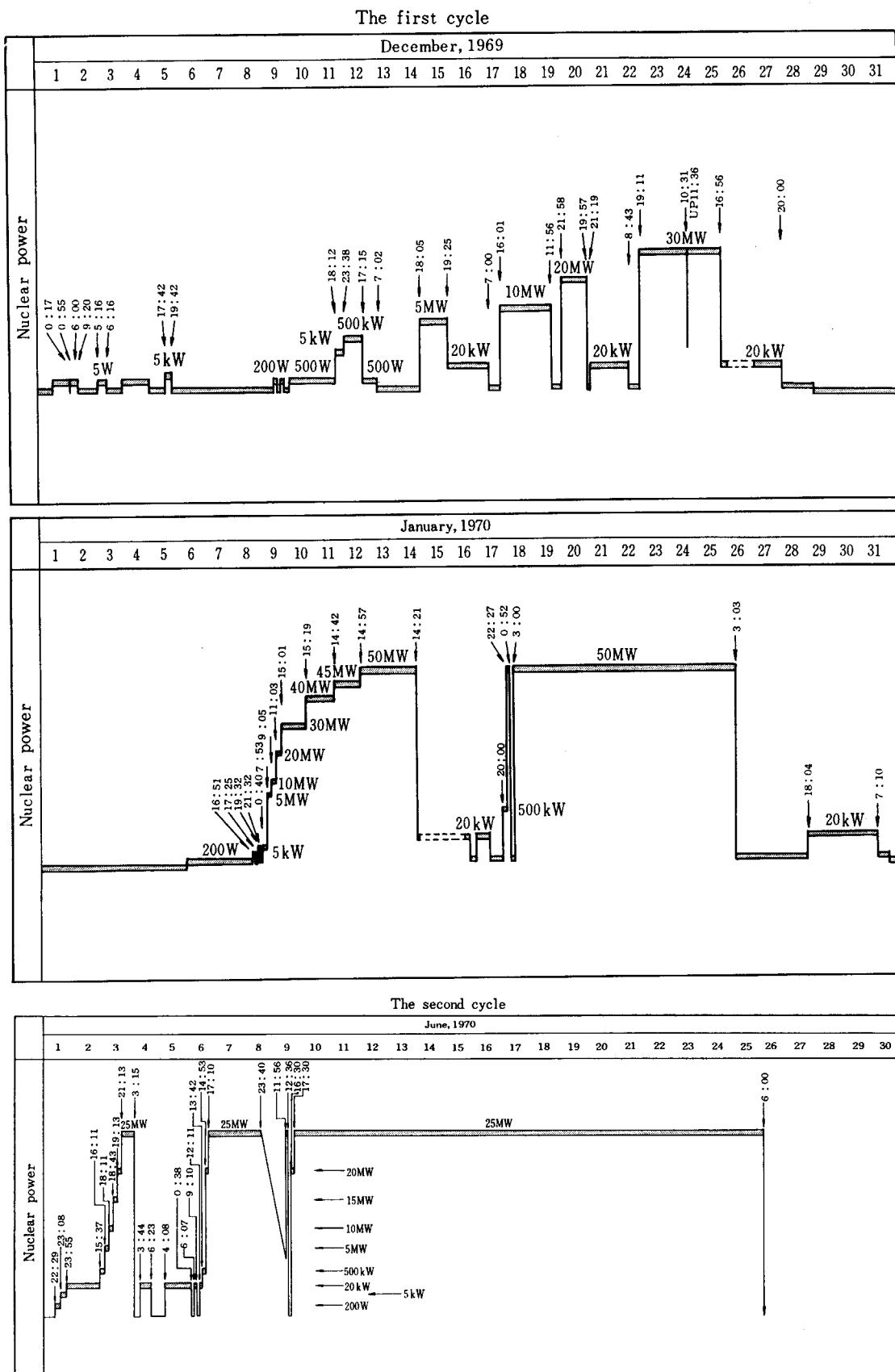


Fig. 2 Post-neutron test process of JMTR.

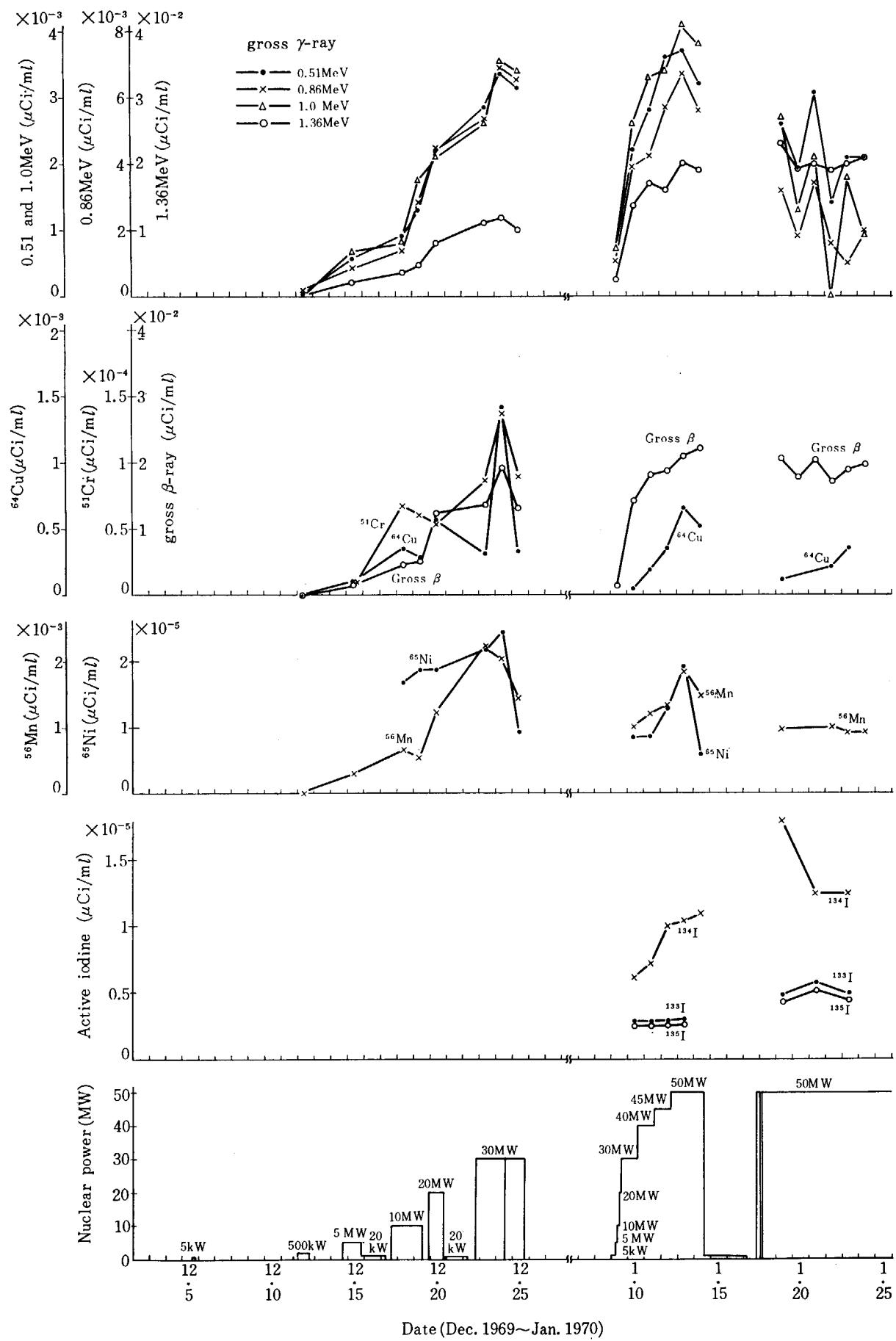


Fig. 4 Variation of active nuclide concentration.

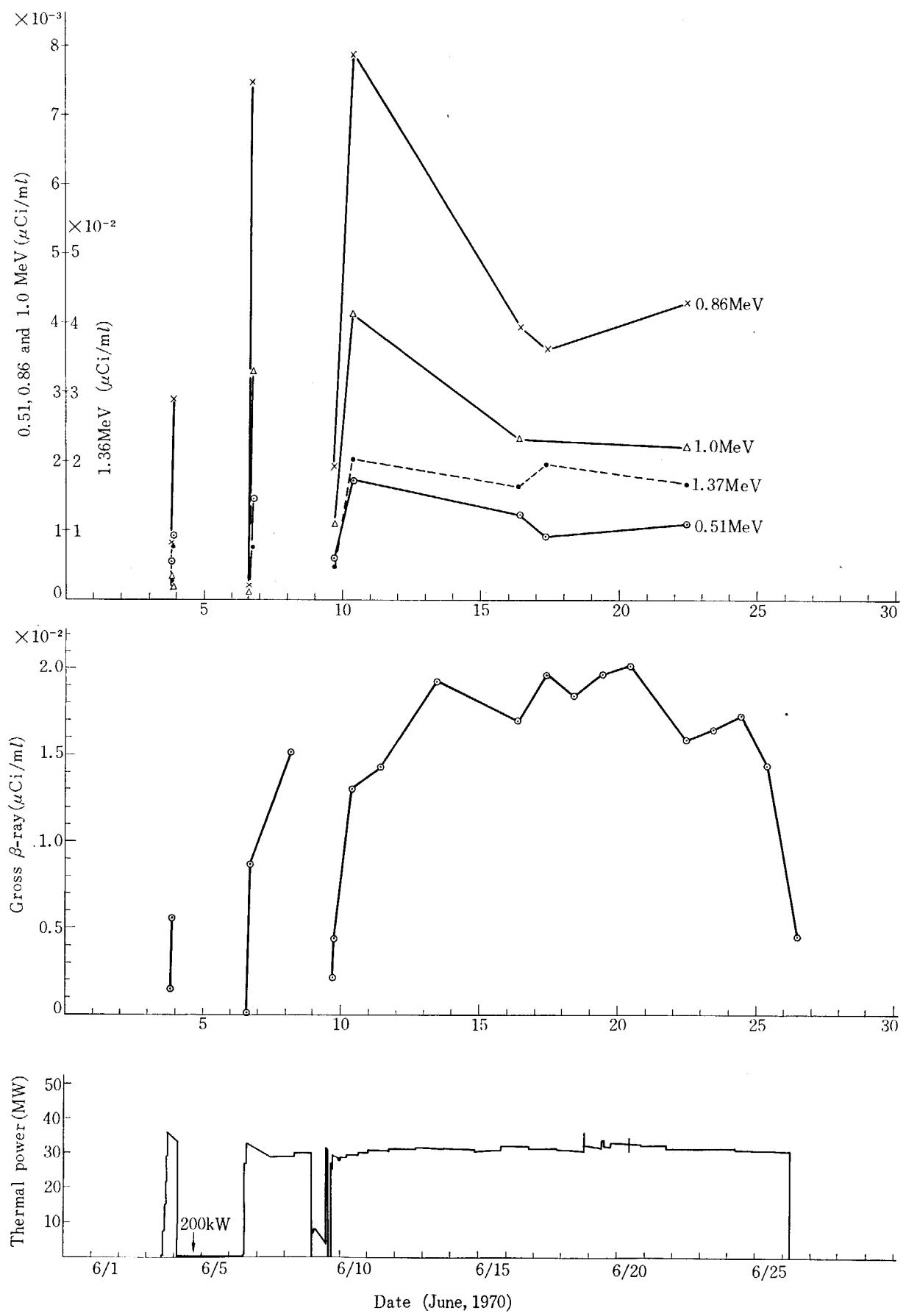
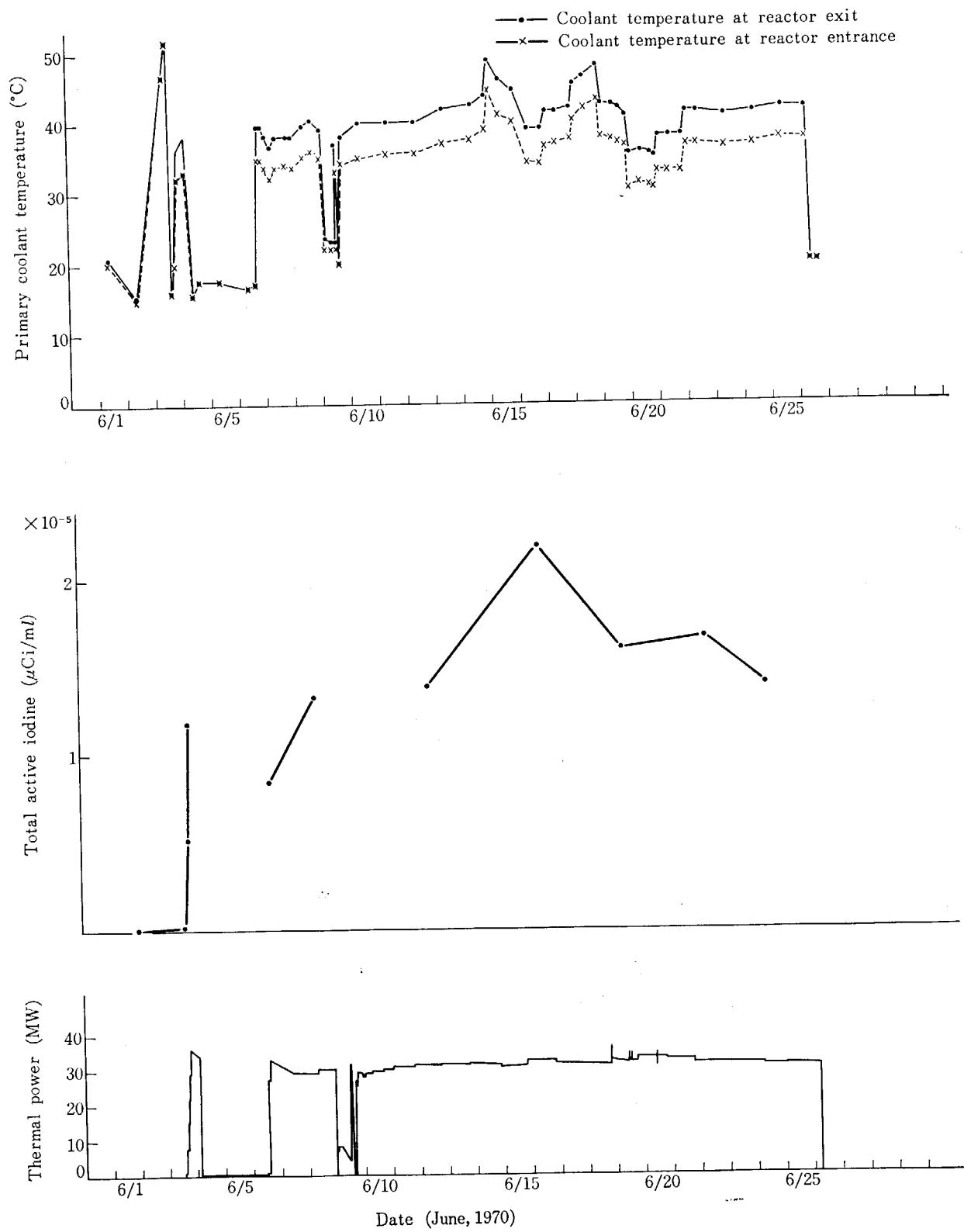


Fig. 5 (a) Variation of active nuclide concentration.

**Fig. 5(b)** Variation of active nuclide concentration.

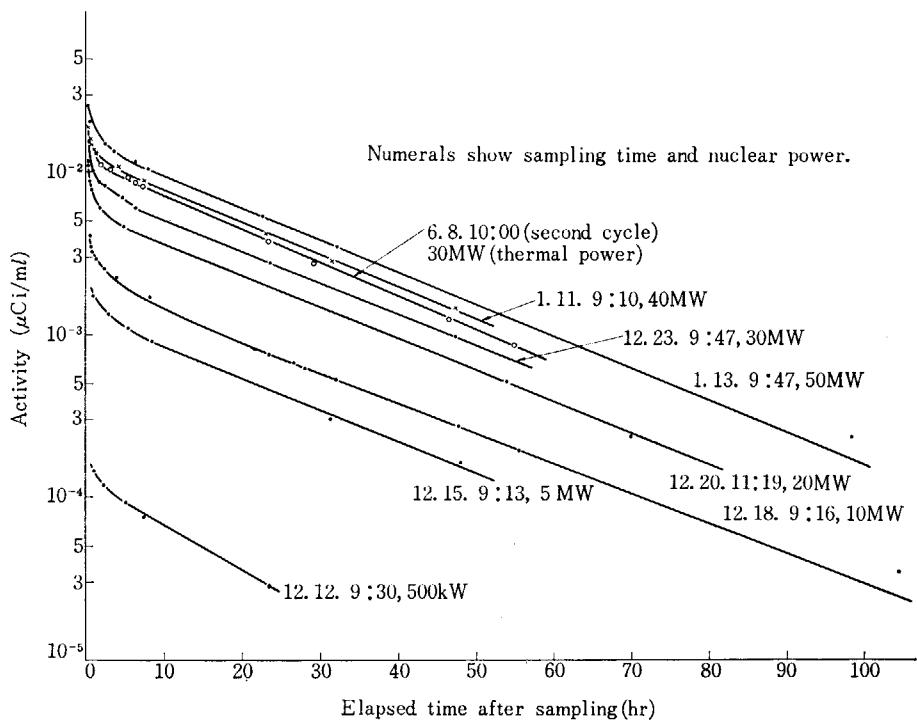


Fig. 6 Gross β -ray decay curves of primary coolant.

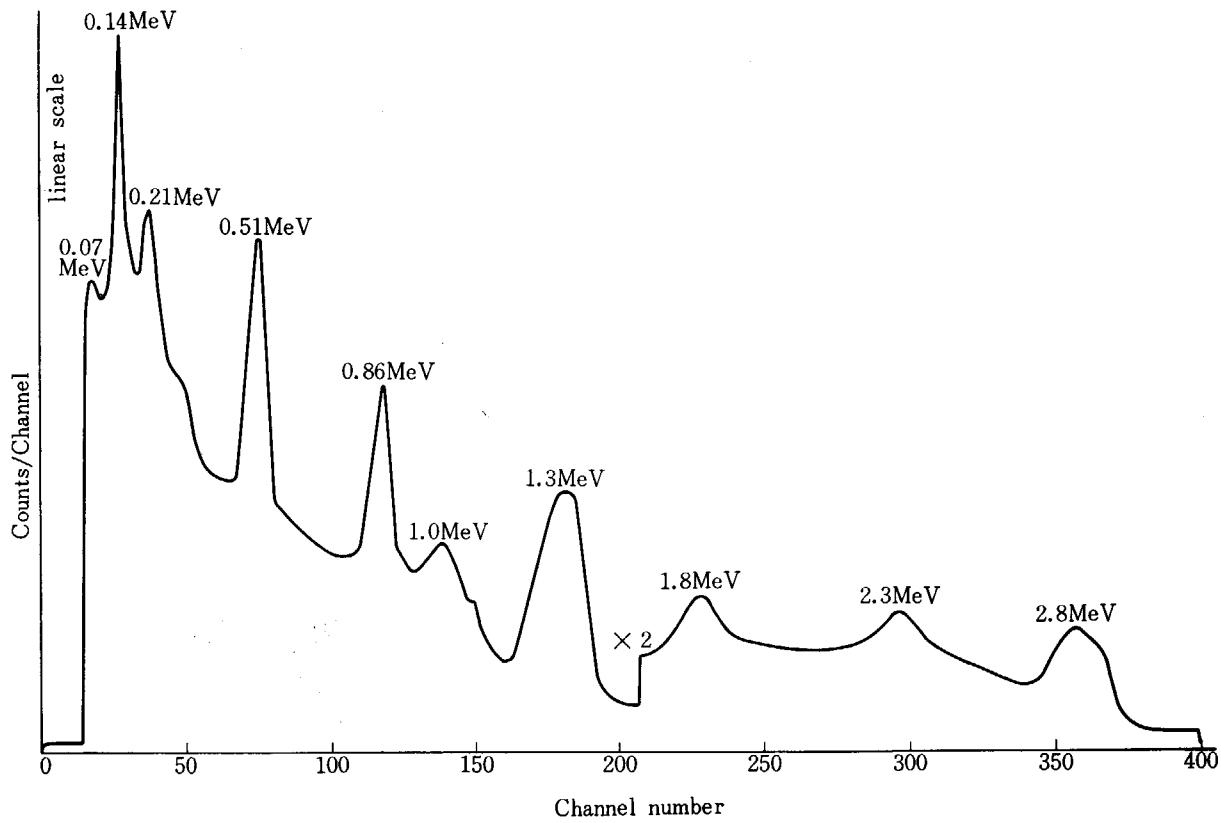


Fig. 7 γ -ray spectrum of primary coolant.

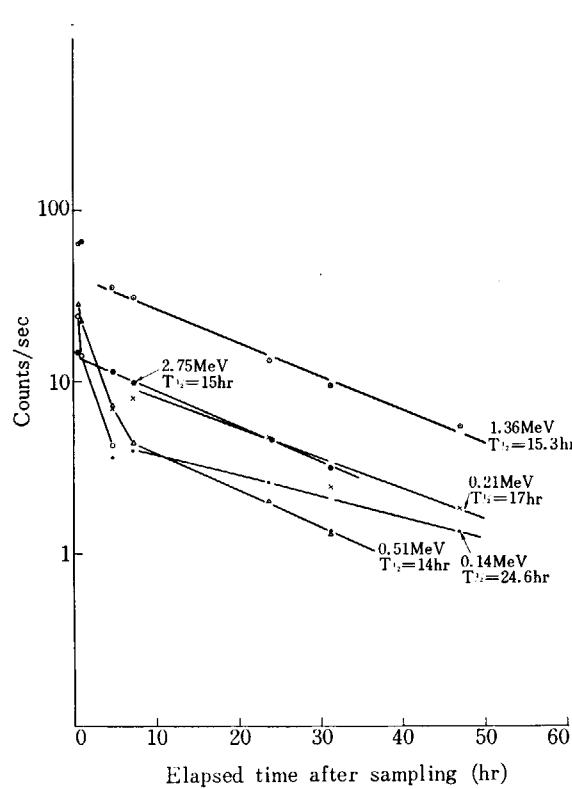


Fig. 8 γ -ray decay curves of primary coolant.
sampling time: 1970.1.10. 09 : 25
nuclear power : 30MW

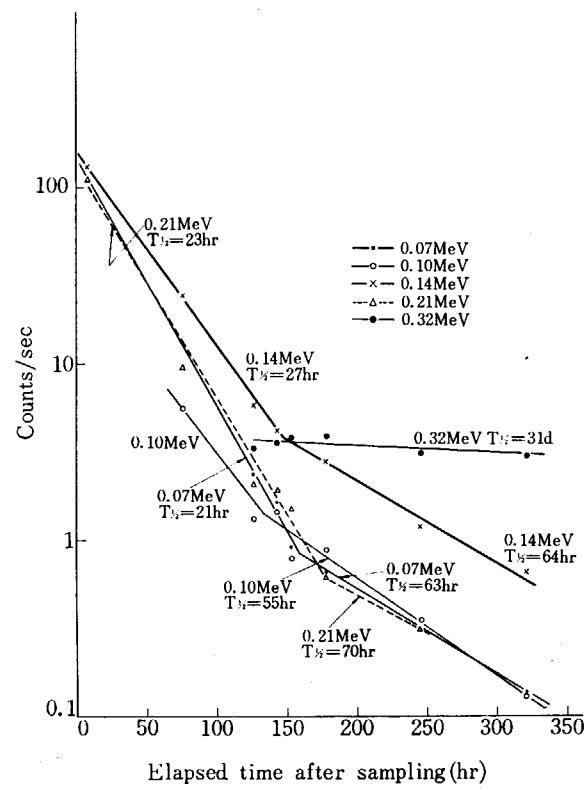


Fig. 9 γ -ray decay curves of primary coolant.
sampling time: 1970.1.14. 9 : 32

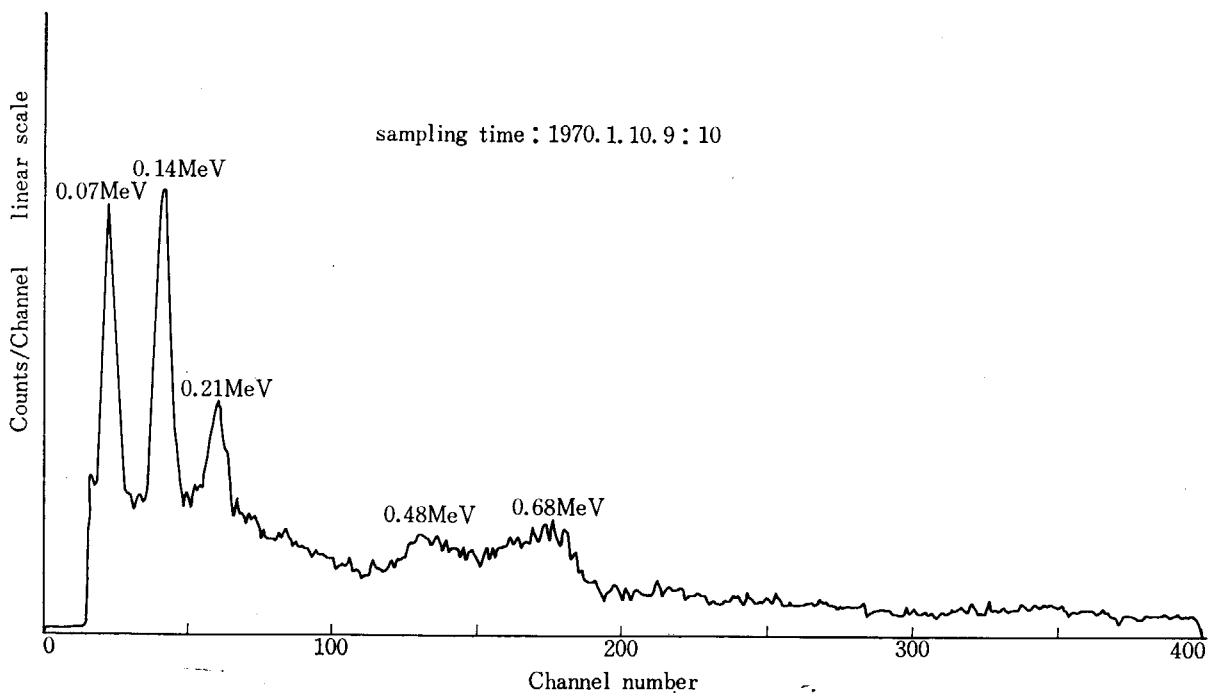
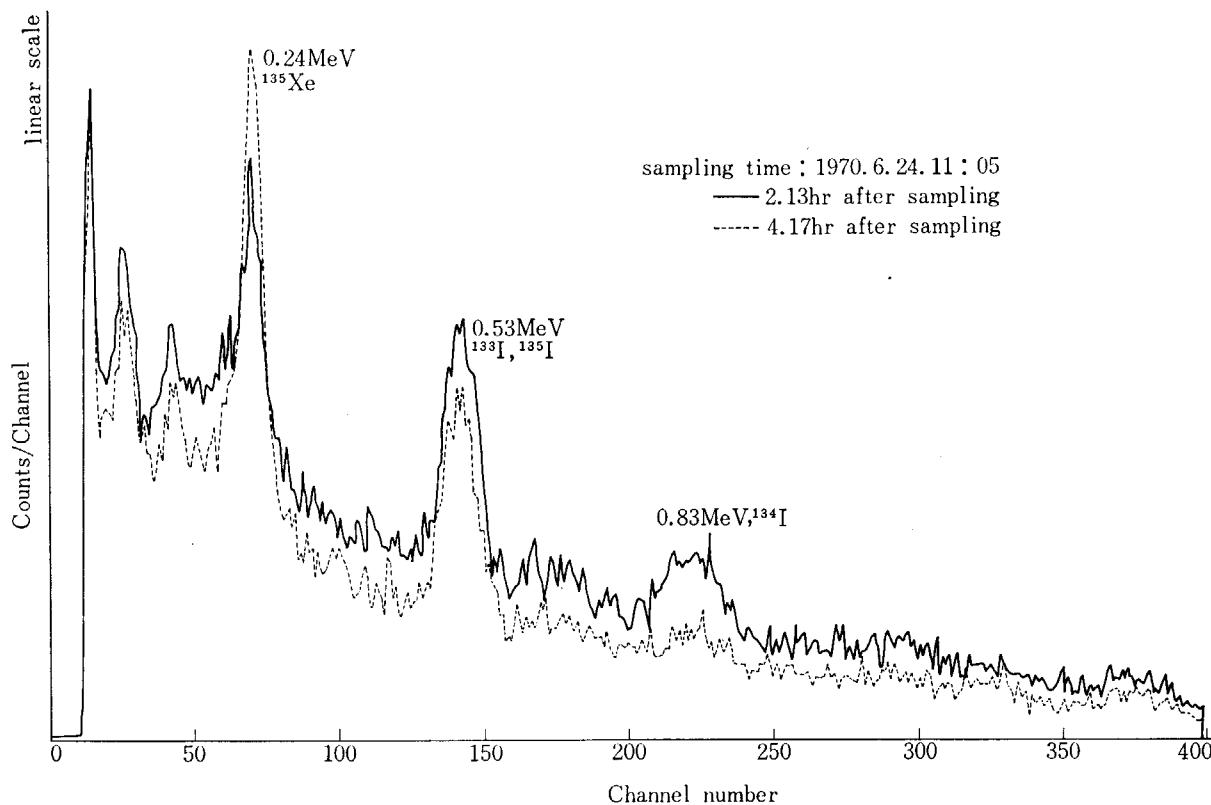
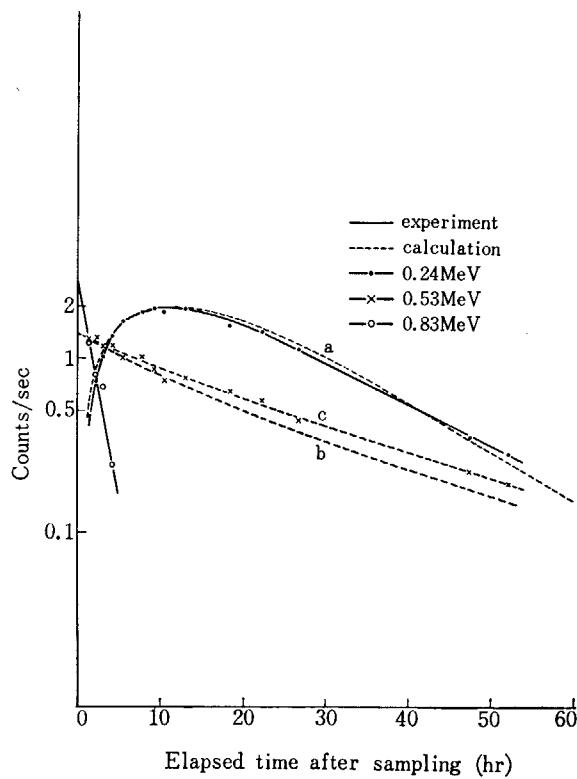
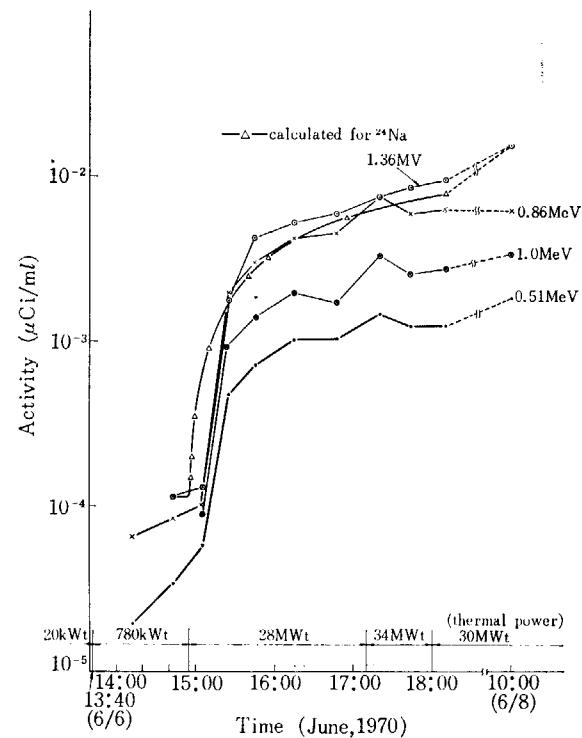
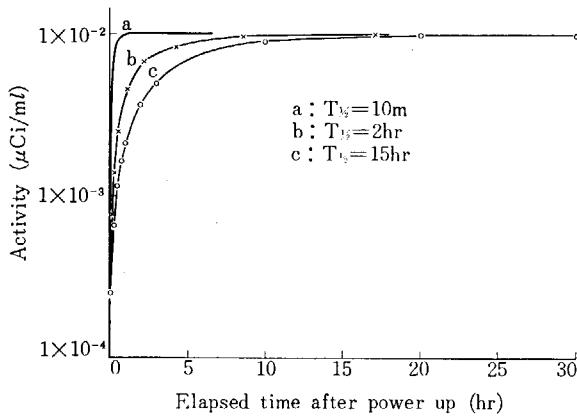
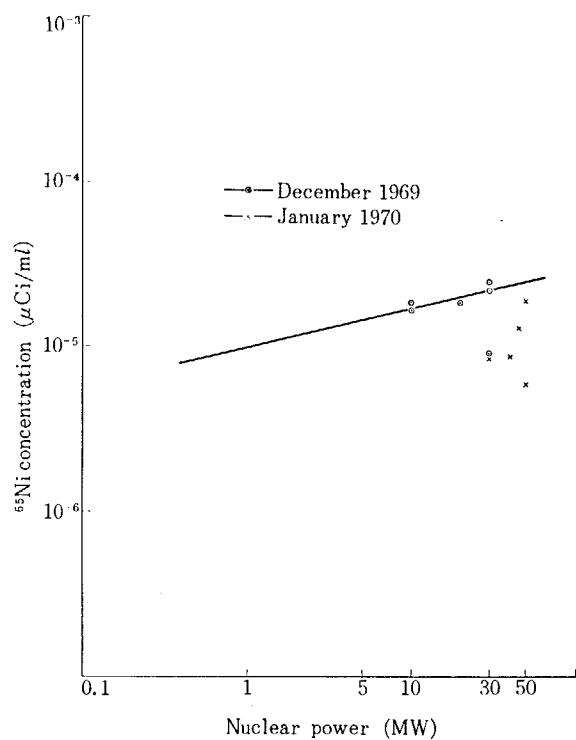
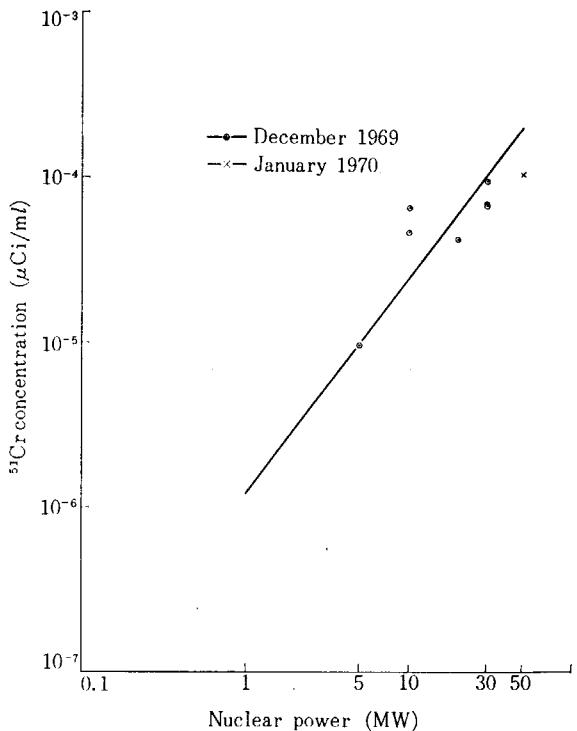
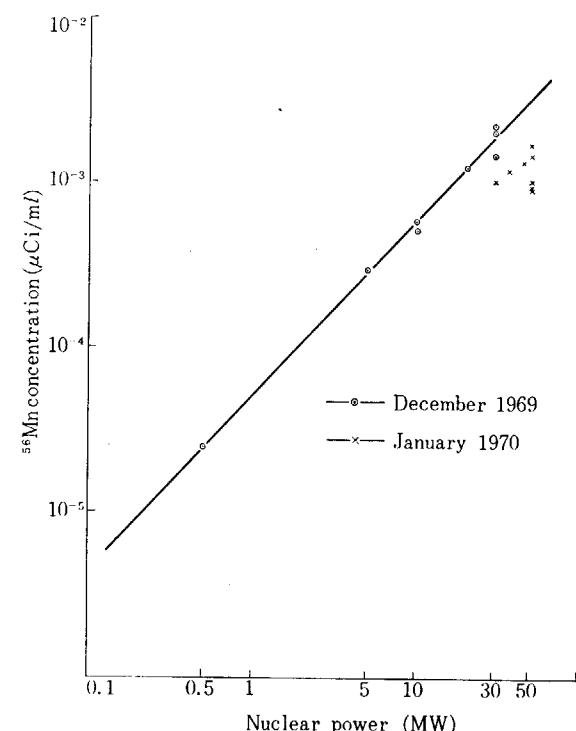


Fig. 10 γ -ray spectrum of precipitates in primary coolant.

Fig. 11 γ -ray spectrum of radioiodine in primary coolant.Fig. 12 γ -ray decay curves of radioiodine in primary coolant.

sampling : 1970. 6. 24. 11 : 05

Fig. 13 Variation of γ -ray activities at power up.

**Fig. 14** Variation of activity at power up.**Fig. 15** Relation between ^{65}Ni concentration and nuclear power.**Fig. 16** Relation between ^{51}Cr concentration and nuclear power.**Fig. 17** Relation between ^{56}Mn concentration and nuclear power.

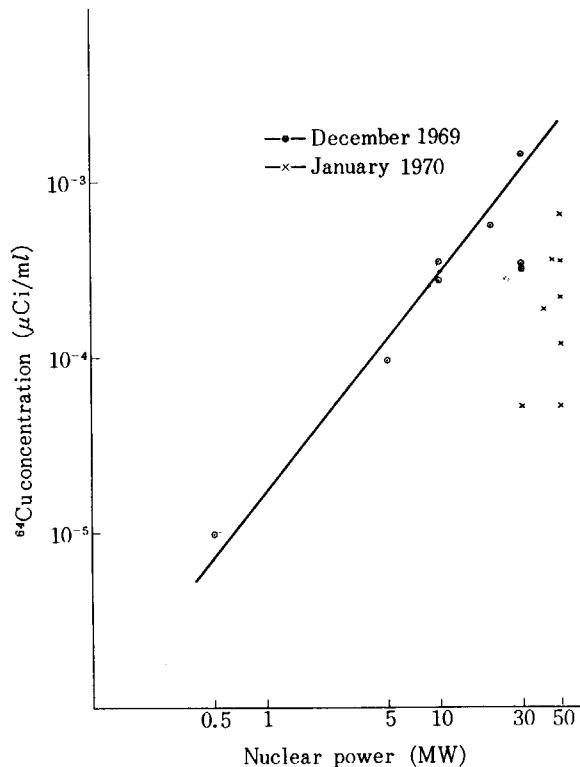


Fig. 18 Relation between ^{64}Cu concentration and nuclear power.

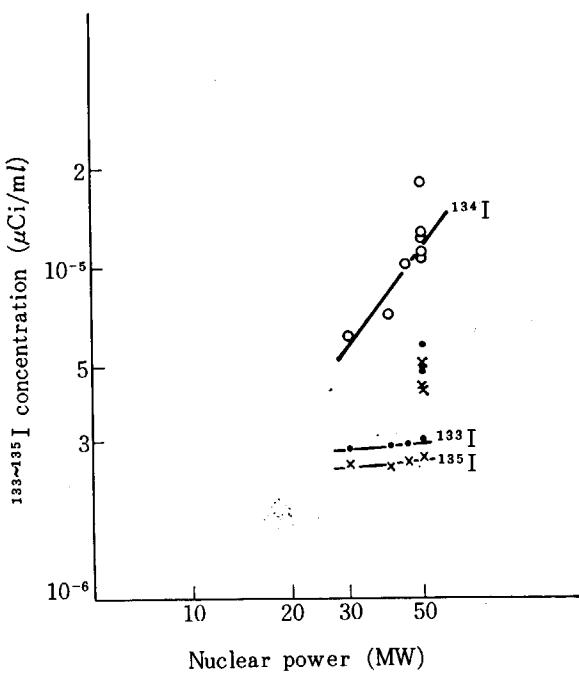


Fig. 19 Relation between $^{133-135}\text{I}$ concentration and nuclear power.

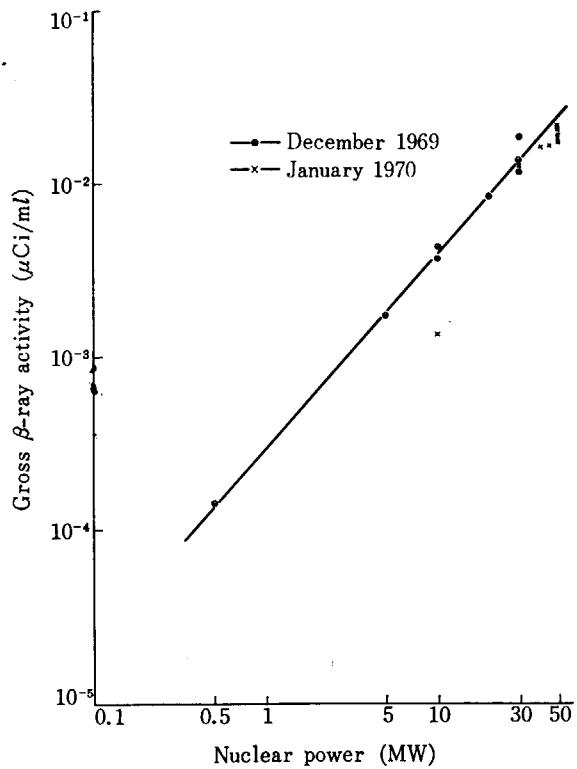


Fig. 20 Relation between β -ray activity and nuclear power.

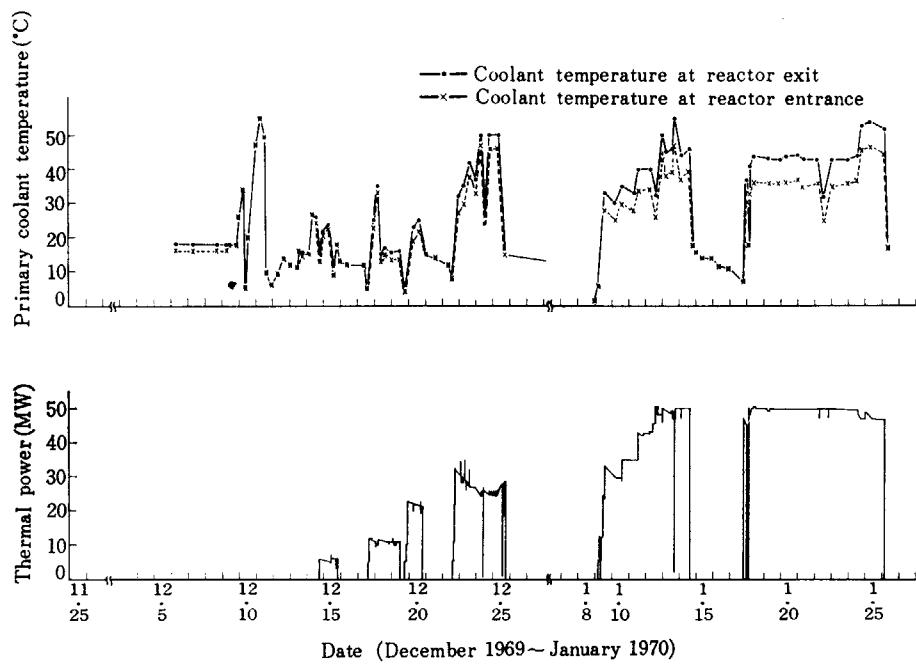


Fig. 21 Variation of primary coolant temperature.

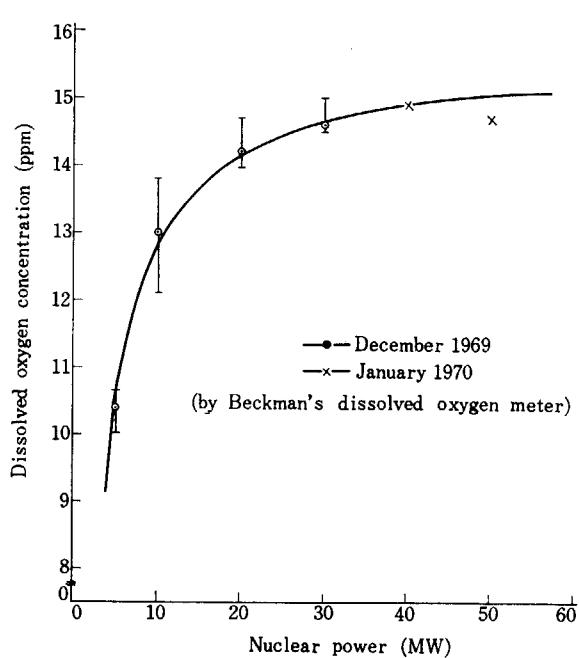
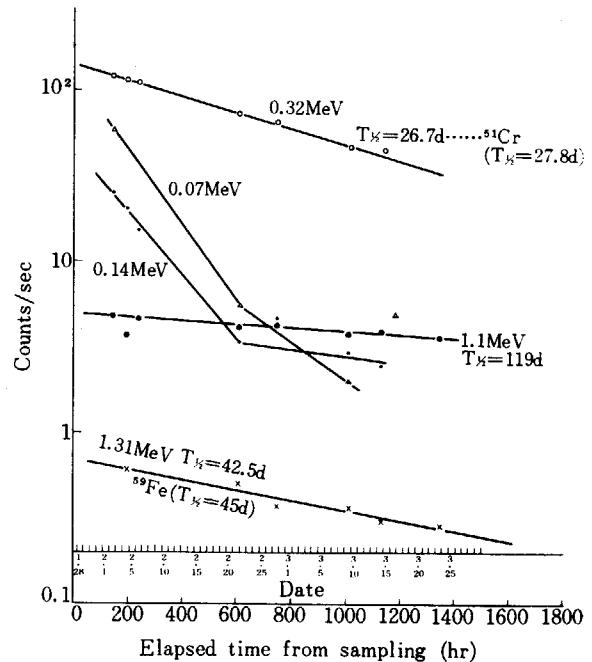


Fig. 23 Relation between dissolved oxygen concentration and nuclear power.

Fig. 27 γ -ray decay curves.
smeared at the end of handling tool
1970.1.27. 11:30

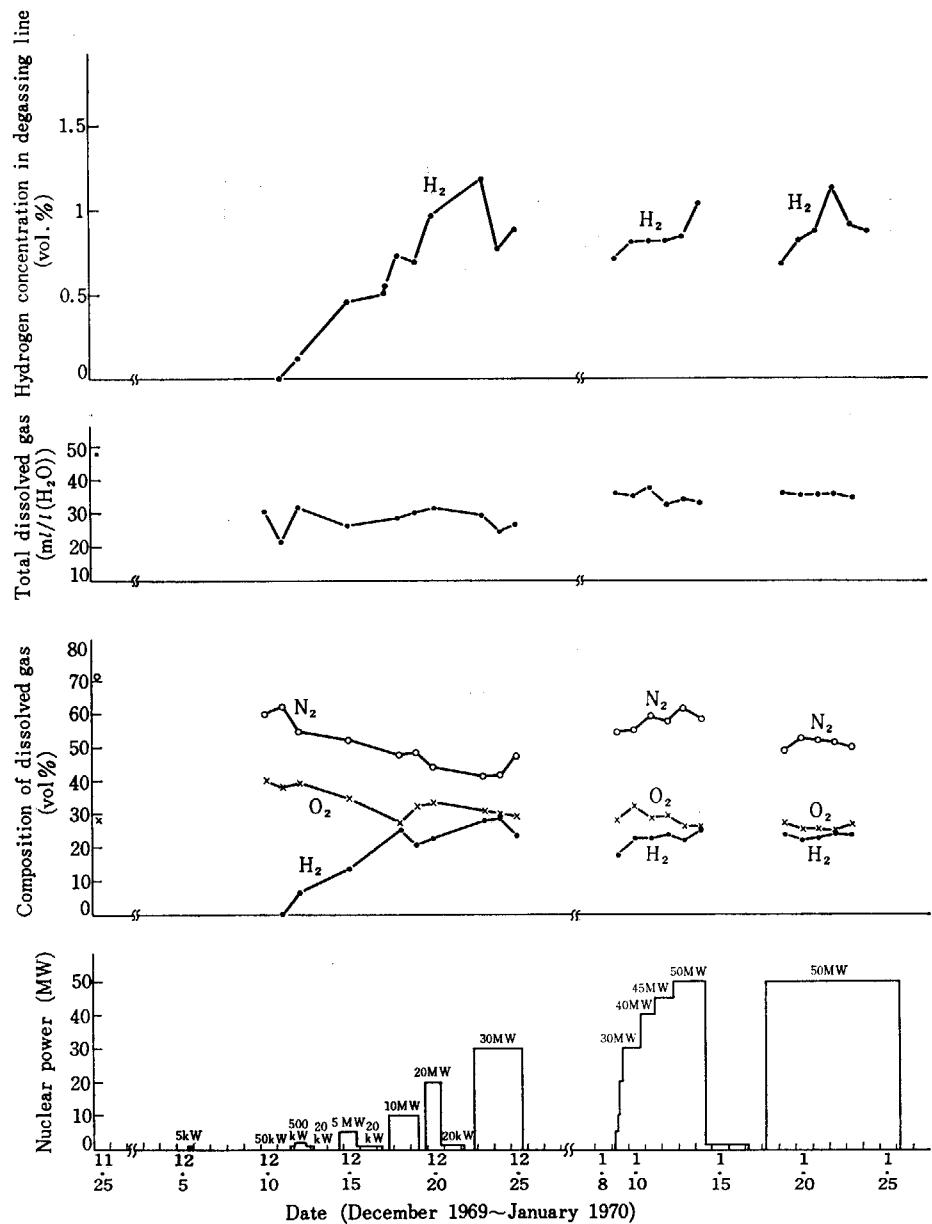


Fig. 22 Variation of gas concentration.

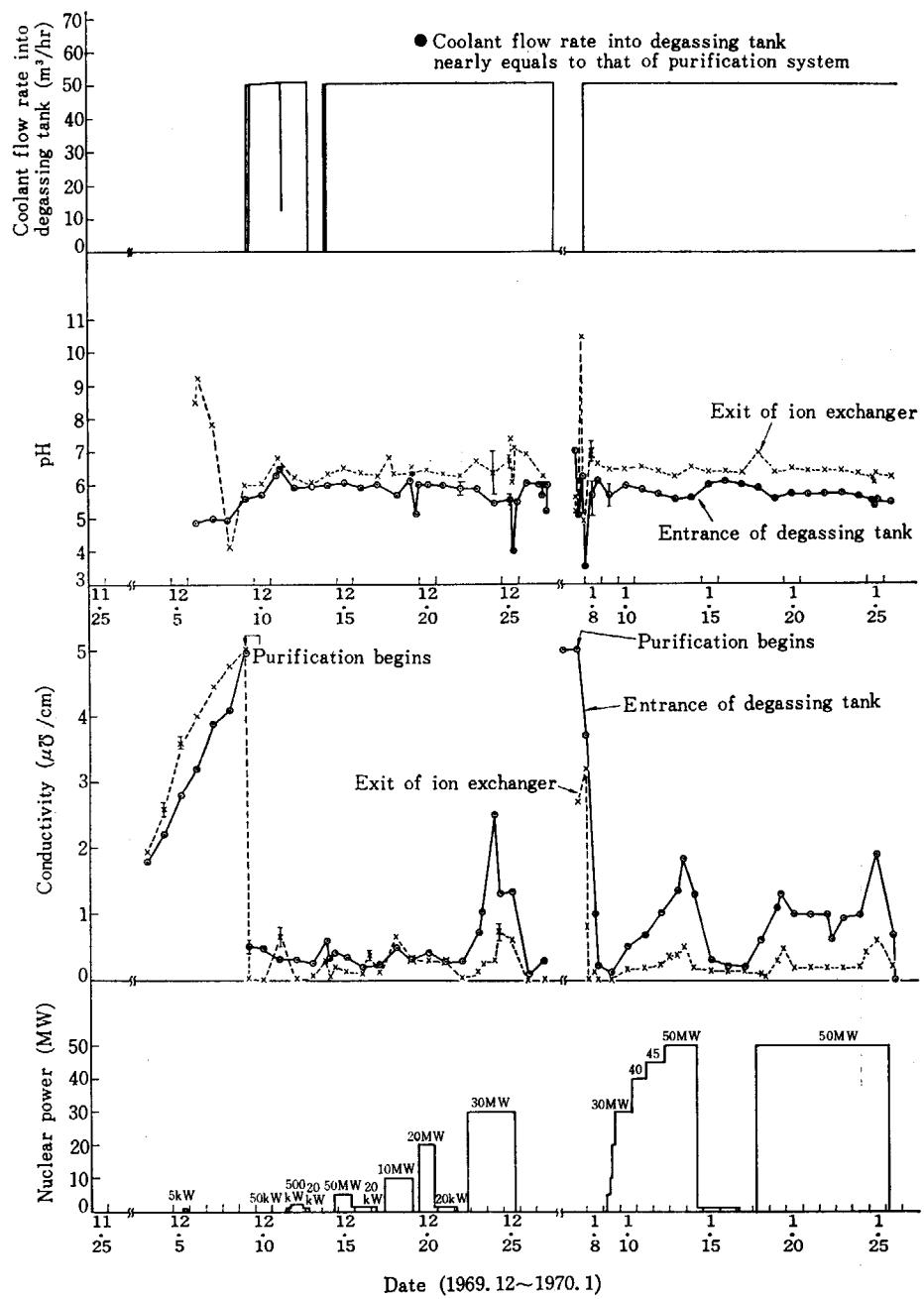


Fig. 24 Variation of pH and conductivity.

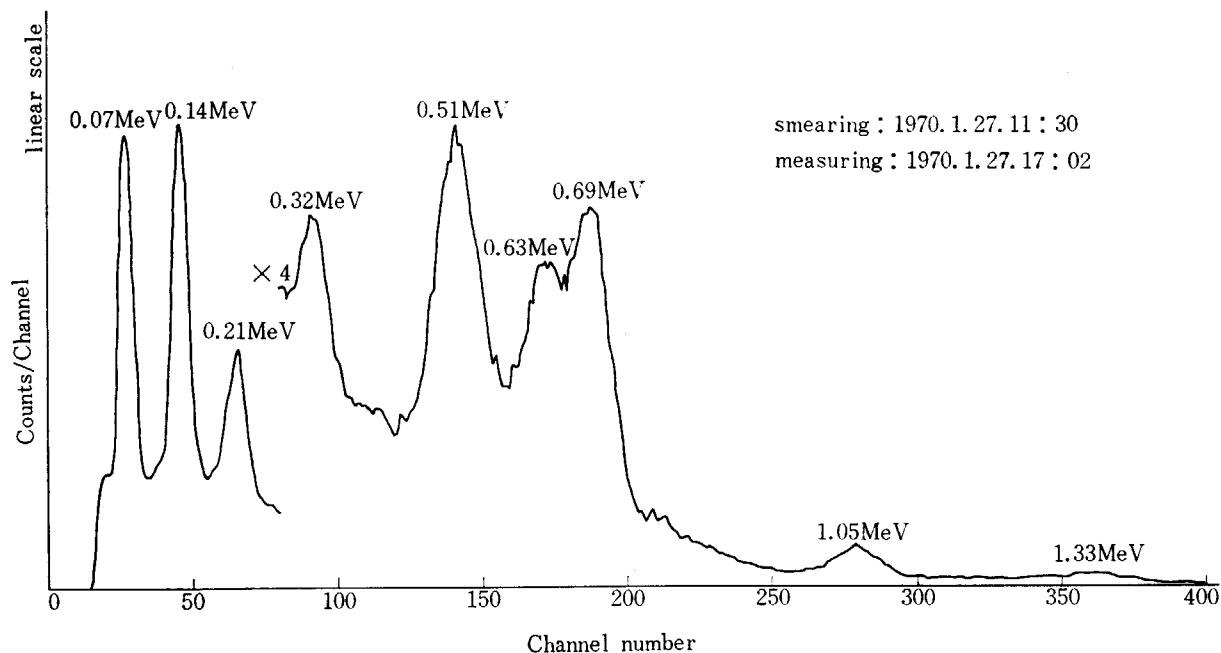


Fig. 25 γ -ray spectrum of the paper smeared at the end of handling tool.

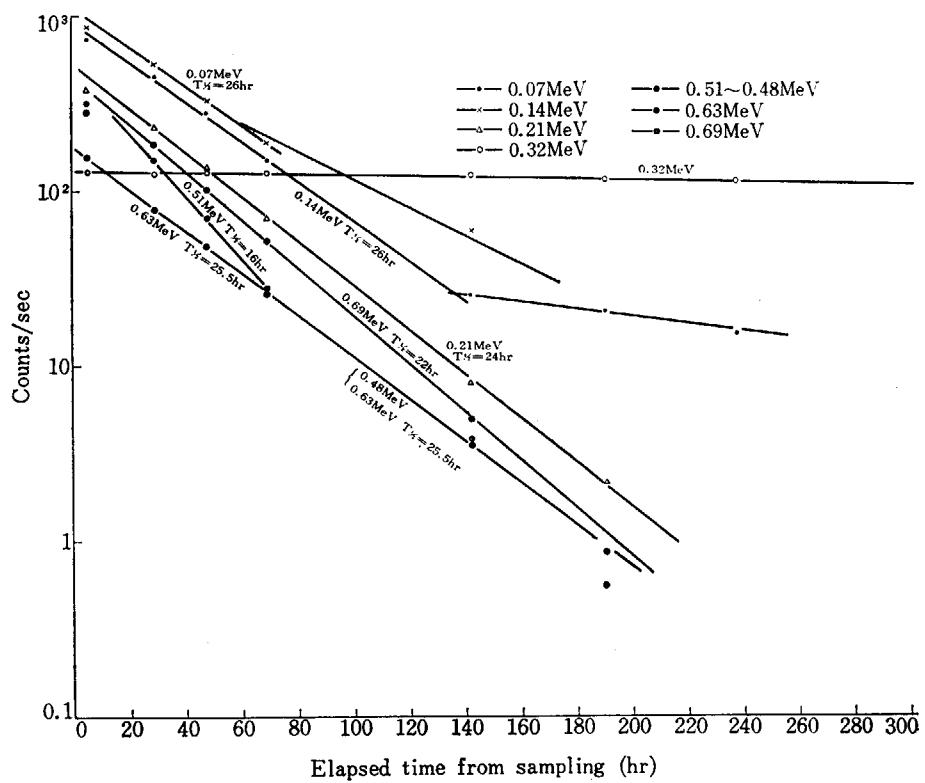


Fig. 26 γ -ray decay curves.
smeared at the end of handling tool 1970. 1. 27. 11:30