

JAERI-M

4 7 7 1

JRR-2 の重水中の放射性核種

1972年 3月

鈴木義雄・根本 剛・吉島哲夫

鎌田 崇・重本雅光

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

JRR-2の重水中の放射性核種

日本原子力研究所東海研究所研究炉管理部

鈴木義雄・根本 剛・吉島哲夫

鎌田 崇・重本雅光

(1972年2月10日受理)

JRR-2の冷却材および減速材である重水中に存在する放射性核種を正確に把握することは、原子炉の安全性上非常に重要である。JRR-2の重水中の放射性核種についてはすでに一部報告されているが、本報告は放射性核種のうち、 γ 線核種を対称として、分解能のすぐれているGe(Li) γ 線検出器を用いて重水の γ 線スペクトルを測定し、これらのスペクトルから核種を同定した。さらに、代表的な核種の放射能濃度を測定した結果をまとめたものである。

検出した核種は ^{28}Al 、 ^{41}Ar 、 ^{60}Co 、 ^{51}Cr 、 ^{64}Cu 、 ^{17}F 、 ^{59}Fe 、 ^{132}I 、 ^{133}I 、 ^{134}I 、 ^{135}I 、 ^{54}Mn 、 ^{56}Mn 、 ^{27}Mg 、 ^{24}Na 、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 、 ^{187}W および ^{135}Xe の18核種である。これらの核種のうち、 ^{132}I 、 ^{133}I 、 ^{134}I 、 ^{135}I 、 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ および ^{135}Xe は陰イオン交換樹脂分離法により微量検出されているが、これらは燃料加工時に燃料表面に付着したウランの核分裂により生成した放射性核種であると推定される。その他の核種は原子炉の構造材の腐食などのため重水中に溶出した不純物の放射化により生成したものと考えられる。特に、 ^{28}Al は全体のほぼ95%近くをしめていたが、これは重水がアルミニウムの腐食生成物で微白濁している状態での測定のためである。

放射能濃度は ^{28}Al 、 ^{51}Cr 、 ^{56}Mn 、 ^{27}Mg 、 ^{24}Na および ^{187}W について求め、他の原子炉の値と比較し、さらに得られた核分裂生成物の放射能濃度から燃料加工時に燃料表面に付着したと考えられるウラン量を計算により求めた。その結果、炉心全体の付着ウラン量は約500 μg で製作仕様書の約10%であった。

Radionuclides in the JRR-2 Heavy Water

Yoshio SUZUKI, Takeshi NEMOTO, Tetsuo YOSHIJIMA

Takashi KAMATA and Masamitsu SHIGEMOTO

Div. of Research Reactor Operation, Tokai, JAERI

(Received February 10, 1972)

The gamma-ray spectra of the JRR-2 heavy water have been measured with a Ge(Li) detector, and 18 radionuclides (^{28}Al , ^{41}Ar , ^{60}Co , ^{51}Cr , ^{64}Cu , ^{17}F , ^{59}Fe , ^{132}I , ^{133}I , ^{134}I , ^{135}I , ^{54}Mn , ^{56}Mn , ^{27}Mg , ^{24}Na , $^{99\text{m}}\text{Tc}$, ^{187}W and ^{135}Xe) were detected. Identifications of the radionuclides were made by a combination of gamma-ray spectral analysis, half-time determination and chemical separation. From the identified radionuclides of fission products, the uranium contamination on the surface of the fuel cladding was estimated.

目 次

| | |
|---|----|
| 1. まえがき | 1 |
| 2. 実験方法 | 3 |
| 2.1 計測装置 | 3 |
| 2.2 Ge(Li) γ 線検出器の計数効率 | 3 |
| 2.3 重水系の概略および重水のサンプリング | 3 |
| 2.4 測定法 | 4 |
| ^{28}Al , ^{27}Mg | 5 |
| ^{24}Na , ^{51}Cr | 5 |
| ^{56}Mn | 5 |
| ^{187}W | 6 |
| F.P. | 7 |
| 2.5 放射能濃度の計算式 | 7 |
| 3. 実験結果 | 8 |
| 3.1 重水の γ 線スペクトル | 8 |
| 3.2 重水中の核種(1) | 8 |
| 1) ^{17}F , ^{64}Cu | 8 |
| 2) ^{28}Al , ^{27}Mg | 9 |
| 3) ^{24}Na | 10 |
| 4) ^{51}Cr , ^{56}Mn , ^{187}W | 10 |
| 5) ^{59}Fe , ^{60}Co | 11 |
| 3.3 重水中の核種(2) | 12 |
| 3.4 主な核種の放射能濃度 | 12 |
| 4. 考察 | 14 |
| 4.1 重水中の核種 | 14 |
| 4.2 重水中の微量F.P.について | 14 |
| 4.3 F.P.からの燃料表面付着ウラン量の指定 | 15 |
| 1) 燃料表面付着ウラン量の計算 | 15 |
| 2) 燃料表面付着ウラン量 | 16 |
| 4.4 Ge(Li) γ 線検出器について | 17 |
| 5. あとがき | 18 |

| | |
|---|----|
| 参 考 文 献 | 18 |
| 付録 A Gross β , Gross γ -Activity の減衰曲線 | 20 |
| 付録 B NaI(Tl) γ 線検出器とGe(Li) γ 線検出器による γ 線スペクトルの比較 | 20 |

1 ま え が き

重水減速冷却型原子炉では、燃料要素の破損あるいは核分裂物質を含む実験装置の破損によって重水中に核分裂生成物(F. P.)が混入し、放射能レベルが異常に高くなることは原子炉の運転上、安全性上大きな問題である。この異常を早期に検出するため、ほとんどの原子炉において破損燃料検出装置(F. F. D.)を設置している。しかし、このF. F. D.の信頼性を高めるためには原子炉の構造材・燃料被覆材の腐食、あるいは燃料要素表面に付着している微量ウラン核分裂などによる冷却水中のバックグラウンド放射能に関するデータを常に把握しておく必要がある。

一般に、バックグラウンド放射能はおおよそ次の4つの機構によって生ずるものと考えられる。

- (1) 重水が炉心領域を通過する際、重水中の酸素や重水素が熱中性子および高速中性子との核反応で放射化される — ^{16}N , ^{17}N , ^{17}F , ^3H など。
- (2) 原子炉の構造材が直接重水と接触している部分の表面元素が中性子捕獲で反跳をうけ放射性核種として重水中にとびだす。
- (3) 腐食により重水中に溶出した元素が中性子によって放射化される。あるいは構造材料が放射化され腐食により重水中に溶出する — ^{51}Cr , ^{56}Mn , ^{27}Mg , ^{60}Co など。
- (4) 燃料加工時に、燃料表面に付着している ^{235}U の中性子による核分裂でF. P.として重水中にとびだす — ^{132}I , ^{133}I , $^{85\text{m}}\text{Kr}$, ^{135}Xe などF. P.核種。

F. F. D.によって燃料破損を検出する場合、これらの機構で生成された放射性核種のうち、(1)~(3)までのバックグラウンド放射能はもちろんのこと、特に(4)の機構により重水中にとび出したF. P.は燃料破損の有無を判定する上のバックグラウンドになるため非常に重要な要素になってくる。このように、F. F. D.に対してこれらのバックグラウンド放射能の影響がどの程度かを評価するために重水中に存在する核種の種類、放射能濃度等について十分に把握しておく必要がある。

本報告はこれらのバックグラウンド放射能を解析する第一歩として、Ge(Li) γ 線検出器を用いて重水中に存在する核種を検出し同定および濃度を求めた結果である。これまでこの種の核種を測定した報告^{1)~6)}は多数あるが、いずれもNaI(Tl) γ 線検出器を用いたもので、Ge(Li) γ 線検出器を使用した測定結果はあまりみあたらない。炉出力10MW運転状態で比較的半減期の長い核種は重水をサンプリングし、 γ 線スペクトル法により核種を同定した。一方、 ^{37}F , ^{28}Al のように半減期の短い核種は炉室地下フアンルームで炉心からの時間遅れが最少になるような取出口より重水を導き、再び炉心にもどる回路を設け、重水を連続に流した状態で測定した。後者の場合、炉心からの漏洩放射能が強く、特に低エネルギー領域では精度良く光電ピークを検出することができなかった。

核種の放射能濃度の測定は、 ^{28}Al 、 ^{51}Cr 、 ^{187}W 、 ^{55}Mn 、 ^{27}Mg 、 ^{24}Na について行なった。
またカベールガス中の F. P. ($^{85\text{m}}\text{Kr}$ 、 ^{88}Kr 、 ^{135}Xe) の放射能濃度から燃料加工時に燃料表面に付着したと考えられるウラン量を計算により求めた。

2 実験方法

2.1 計測装置

Ge(Li) γ 線検出器の出力信号は原研エレクトロニクス課で製作した前置増巾器 (Model-125), 主増巾器 (Model-131A) を経て, 日立製作所製 400 チャンネル波高分析器に入り, 各チャンネルの計数値を記録した。

本実験に使用した Ge(Li) γ 線検出器は研究炉技術課で製作した有効体積 20 cc の一端開放同軸型のものである。⁷⁾ ^{60}Co γ 線 (1.332 MeV) に対するエネルギー分解能は 12 KeV である。

2.2 Ge(Li) γ 線検出器の計数効率

γ 線スペクトルから核種を定量する場合に, 測定用容器と γ 線検出器を組合わせた計数効率を求める必要がある。この計数効率を求める方法としては種々あるが, 重水のように溶液の場合は標準溶液を作製し, これを測定用容器に入れて測定する方法がもっとも適している。しかし, この標準溶液は ^{60}Co のみしか入手できなかったので, 次に述べる方法を採用した。

Ge(Li) γ 線検出器の表面より 30 mm の位置に IAEA の標準線源を置き, この位置での各標準線源に対する γ 線スペクトルを測定し, 光電ピークの全計数値と標準線源の放射能濃度から点状線源に対する計数効率曲線を求めた。次に, ^{60}Co 標準溶液 (0842 $\mu\text{Ci}/\text{ml}$) 5 ml を測定容器に入れ, その γ 線スペクトルを測定し, 1.332 MeV 光電ピークに対する計数効率を求めた。この計数効率を前に求めた点状線源の計数効率曲線で補正し, 測定用容器と γ 線検出器に対する計数効率曲線を求めた。計数効率曲線を Fig. 1 に示す。

2.3 重水系の概略および重水のサンプリング

炉心出口管 2 本から主重水ポンプ (DP-1, 2) により 2 基の重水熱交換器 (DE-1, 2) に送り込まれ, 1 本にまとまり重水タンクにもどる。主重水系と並行して重水の精製を行なうため重水溢流管から重水貯蔵タンク (DT-1) に流出した重水を補助ポンプ (DP-3) により重水精製系を通して精製する。その流量は約 30 L/min で主重水流量の 0.1 % 程度である。

精製系は DP-3 から重水精製系熱交換器 (DE-3) を経て, 重水フィルター (DF-1)

イオン交換樹脂塔 (DD-1, または DD-2) を通り, 後置フィルター (DF-2) を通って主重水ポンプの汲入側に入る。

一方, 重水のサンプリングは炉心から最少の時間で, さらに放射線被曝の少ない場所で行なり必要から, フアンルームに設置してある重水系 F. F. D. のサンプリングバルブより行なった。F. F. D. の重水流量は約 300 ml/min である。

長寿命核種を測定する場合のサンプリングはバルブ (T-4) より行なった。一方, 短寿命核種はバルブ (T-5) よりビニールホース (8 mm φ) で重水を導き, ガラス製の試料管を通過し, T-3 にもどるバイパス回路を設け重水を流した状態で測定した。なお, 炉心から試料管までの到達時間は約 2.5 min であつた。

J. R. R-2 重水系のフローシートを Fig. 2 に示す。

2.4 測定法

Ge(Li) γ 線検出器を使用して得られた γ 線スペクトルの光電ピークのエネルギーからおよその放射性核種が推定された。そこで, 次に述べるような方法により同定した。なお, () 内に示した核種はその方法を適用した放射性核種であることを示す。

- (1) 0.511 MeV の消滅輻射 γ 線は比較的短寿命の放射性核種からのものであるので, マルチスケラー・モードで減衰曲線を求め, 半減期より同定した。測定は前述のバイパス回路を使用し, 重水を 300 ml/min で流しておき, 半減期を求める時点で T-5 バルブを閉, T-2 を開にして減衰曲線を求めた (^{17}F)。また, 長寿命の 0.511 MeV 放射線については重水をポリエチレン棒状ビンに 5 ml 入れ, 測定間隔を長くしたマルチスケラー・モードで半減期を求めた (^{64}Cu)。
- (2) ^{28}Al , ^{27}Mg のように短寿命の放射性核種はサンプリングしてエネルギー, 半減期を求めることは困難である。したがって, (1) で述べたように, マルチスケラー・モードで測定した減衰曲線より半減期を求め, 同時に重水を流した状態で光電ピークの正確なエネルギーを測定し, 両方より核種を判定した (^{28}Al , ^{27}Mg)。
- (3) 比較的長寿命の核種で, かつ近接した光電ピークがなく, 面積計算が容易な核種については, サンプリングし, 得られた光電ピークのエネルギー, 半減期より判定した (^{24}Na)。
- (4) エネルギーおよびその半減期より対応核種は推定できるが, 直接測定では計数値が少なく, 精度上問題のあるものについては化学的方法により, 単体として分離した。この分離した溶液または沈澱物の γ 線スペクトルを測定し, エネルギー, 半減期より同定した (^{51}Cr , ^{56}Mn , ^{187}W)。
- (5) 抽出あるいは沈澱法などの分離する過程, または減衰曲線を求めるさいに, 目的以

外に検出される光電ピークについてはそのエネルギーを正確に求め、エネルギーだけで核種をきめた (^{59}Fe , ^{60}Co)。

- (6) 重水中の E.P. の有無は放射性ヨウ素の検出により判定した⁵⁾。すなわち、あらかじめ活性化した陽イオン交換樹脂塔、陰イオン交換樹脂塔 (10mmφ×50mm) を用意し、重水を陽イオン交換樹脂、陰イオン交換樹脂の順に流す。ヨウ素は後者の樹脂に選択的に吸着されるので、この樹脂の γ 線スペクトルを測定し得られる光電ピークのエネルギーより E.P. の有無を判定した (^{132}I , ^{134}I , ^{135}I , $^{99\text{m}}\text{Tc}$, ^{135}Xe , 注1)。
- 以上のような方針で測定したが、放射能濃度を求める場合、沈殿法あるいは抽出法によって分離する必要がある。代表的な核種の詳細な測定法を次に記す。

^{28}Al , ^{27}Mg

^{28}Al , ^{27}Mg は放射能濃度が少ないので化学的分離法による抽出が望ましい。しかし、半減期が各々 2.31 min, 9.5 min と非常に短かいので技術的に困難である。そこで、重水を一定流量で流した状態で測定したがバックグラウンドの計数率が高く精度良く測定することができなかつた。このため、棒状ポリエチレン瓶にサンプリングし、できるだけ最少の経過時間で測定し、炉心からの到達時間、測定中の減衰を補正して放射能濃度を求めた。

^{24}Na , ^{51}Cr

上の試料を約 1 hr 放置し、 ^{41}Ar , ^{28}Al , ^{27}Mg 等を減衰させたのちに ^{24}Na を測定しよう。また、 ^{51}Cr は 2~3 日後に測定時間を長くして求めた。

^{56}Mn

^{56}Mn は比較的半減期が長い (2.576 hr) ことから、直接重水を測定する方法と重水よりマンガンを抽出して測定する方法の 2 つの方法により定量した。

1) 直接法

重水 5 ml を棒状ポリエチレン瓶に入れ、それからの γ 線のスペクトルを測定した。 ^{56}Mn からの 0.847 MeV γ 線の光電ピークの計数値より定量した。

2) 抽出法⁸⁾

注 1) ^{135}I として陰イオン交換樹脂に吸着されたものが、崩壊して ^{135}Xe になる。

重水を ^{187}W と同様に前処理したのち、8-ヒドロキシキノリン溶液 (2%) 1.5 ml を加えて 1 M 水酸化ナトリウム溶液で pH を 7~10 に調整する。シアン化カリウム溶液 (10%) 1 ml を加えてから溶液の pH を 11.2~12.8 に調整する。溶液を 100 ml 分液ロートに移し、クロロホルム 10 ml を正確に加えてから 2 分間充分にふりまぜる。クロロホルム相と水相が充分にわかれたのち、クロロホルム相を 50 ml の洗浄液^{注1)} を入れた別の分液ロートに移して約 10 分間ふりまぜ、クロロホルム相と水相がわかれたのち、クロロホルム相を約 1 g の無水硫酸ナトリウムを入れた共栓三角フラスコに移し、クロロホルム相の 5 ml を棒状ポリエチレン瓶に入れ、 γ 線放射能を計数した。

 ^{187}W

重水中の ^{187}W の放射能濃度は小さく、分離せずに測定することは困難であったので、重水 100 ml より沈澱法⁸⁾により ^{187}W を抽出した。沈澱法は次のとおりである。

重水 100 ml をミリポアフィルター (0.45 μ) を用いて吸引ろ過し、沈澱はろ紙と共に硬質磁製ルツボに移し、おだやかに加熱し灰化する。硫酸水素カリウム 0.5 g を加えて融解し、冷却後塩酸 (1+1) 5 ml に溶解する。これをろ液にまぜて濃塩酸 5 ml を加えて約 5 分間煮沸し冷却する。

次に、タングステン担体溶液 (10 mg-W/ml) 2 ml と濃硝酸 10 ml を加えて湯浴上で 10 分間加熱し、黄色沈澱を遠心分離して上澄液をすてる。黄色沈澱を 2~3 滴の濃アンモニア水で加温して溶解し、水で 15 ml に希釈してから鉄担体溶液 (10 mg-Fe/ml) 3 滴を加えてかきまぜ、遠心分離して沈澱を除く。上澄液に酒石酸飽和溶液 10 滴、濃硫酸およびモリブデン担体溶液 (10 mg-Mo/ml) をそれぞれ 5 滴を加えて湯浴上におき硫化水素を 2 分間通してから遠心分離して、ろ紙 (Toyo No. 5c) を用いて沈澱をろ過する。残渣を水 2~3 ml で洗浄し、ろ液および洗液を残す。次に、濃硫酸 10 ml を加えて 10 分間湯浴上で温め、遠心分離して上澄液を除く。沈澱を 4 N 硝酸 10 ml で 1 回洗浄してから最少限の濃アンモニア水で溶解する。水 15 ml を加えてコニカルビーカーに移し、濃酢酸緩衝液 10 ml を加えて煮沸するまで加熱する。8-キノリノール溶液 (5%) 1 ml を滴下し 30 秒間煮沸してから 2~3 分間放置後、ろ紙を用いて沈澱をろ過する。沈澱を乾燥したのち、秤量し γ 線放射能を計数した。

なお、沈澱の収率はタングステン担体の添加量に対する最終量より計算した。

注 1) EDTA (2Na 塩) 溶液 (1%) 50 ml を水で 500 ml にうすめる。そして、水酸化ナトリウム溶液を用いて pH を 11~12 に調整する。使用直前にクロロホルム 10 ml とふりまぜて、クロロホルムを除いて湿ったろ紙でろ過する。

FR

JRR-2 重水中の核分裂生成物の指標としてヨウ素の検出により F.P. の存在を判定した。ヨウ素 ($^{131}\text{I} \sim ^{135}\text{I}$) は非常に少なく、直接測定では検出できないため、多量の重水よりヨウ素を分離する必要がある。このヨウ素の分離には四塩化炭素に抽出しヨウ化銀として沈澱させる方法⁸⁾、陰イオン交換樹脂に選択的に吸着させる方法⁵⁾ 等があるが今回は後者の方法により分離した。

すなわち、分析用陽イオン交換樹脂 (DIAION SK#1)、および陰イオン交換樹脂 (DIAION SA#100) をそれぞれのカラム (10 mm ϕ \times 100 mm) に 5 ml 入れ、各々 3 N 塩酸、3 N 水酸化ナトリウム 100 ml で活性化する。次に、陽イオン交換樹脂、陰イオン交換樹脂の順に接続し、重水 100 ml を約 1 ml/min の流量で流す。ヨウ素は後者の樹脂に吸着されるので、この樹脂全部を棒状ポリエチレン瓶に入れ γ 線スペクトルを測定し、光電ピークの計数値より定量した。

2.5 放射能濃度の計算式

重水中の核種の放射能濃度は炉心からサンプリング個所までの所要時間、サンプリングから測定開始までの時間および測定時間中の核種の減衰を補正し、炉心での濃度を次式で求めた。

$$A = \frac{N \times e^{\lambda t_1} \times \lambda}{V \times \eta_r \times E_f \times 3.7 \times 10^4 \times (1 - e^{-\lambda t_2})} \quad (\mu\text{Ci/ml})$$

N : 全エネルギー吸収ピークの測定時間 t_2 での計数値

V : 測定試料の容量 (ml)

η_r : 1 個の原子核壊変あたりに注目した光子が放出する割合 (%)

E_f : Ge (Li) γ 線検出器の計数効率

λ : 核種の壊変定数

t_1 : 重水が炉心からでて測定開始までに経過した時間 (sec)

t_2 : 測定時間 (sec)

3 実験結果

3.1 重水の γ 線スペクトル

10 MW 到達 216 時間後の重水を 0~1.4 MeV のエネルギー範囲で測定した結果、Fig. 3 に示す γ 線スペクトルを得た。Fig. 3 の(A), (B), (C)はサンプリング 41 min, 25 hr, 5 day 後の γ 線スペクトルである。

この γ 線スペクトルで、これまでにはつきりしなかつたいくつかの光電ピークが検出され、特に、NaI(Tl) γ 線検出器では 0.45~0.85 MeV のエネルギー範囲で 2 個のピークしか検出できなかったのに、今回の測定で 10 個のピークが検出された。

また、0~2.8 MeV の範囲で測定した γ 線スペクトルを Fig. 4 に示す。(A), (B), (C), (D)はその減衰状態を示したものである。この γ 線スペクトルで特に注目されたのは 1.8 MeV 近くに 3 本の光電ピークが検出されたことである。NaI(Tl) γ 線検出器では 1 本のピークしか現われず、 ^{24}Na の double escape peak として取扱ってきたのに比べて、より正確に光電ピークの核種を同定することができた。なお、Fig. 3, Fig. 4 で()内に示した核種はエネルギーから予想した推定核種である。

Ge(Li) γ 線検出器で得られた γ 線スペクトルのエネルギー、減衰状態を観察し、光電ピークの半減期、正確なエネルギー測定、あるいは化学的分離法による抽出などによりその対応核種を同定した。個々の詳細については次章に述べる。

なお、重水の Gross β , Gross γ の減衰曲線を付録 A に、Ge(Li) γ 線検出器と NaI(Tl) γ 線検出器を使用して得られた γ 線スペクトルの比較を付録 B に示す。

3.2 重水中の核種(1)

重水中の核種は大別して腐食生成物などにもとづくものと、 ^{235}U の F. P. の二つに大別できる。ここでは前者の腐食生成物などにもとづく核種について述べる。

(1) ^{17}F , ^{64}Cu

これらの核種は β^+ 崩壊により、0.511 MeV の消滅放射 γ 線を放出するため、得られたエネルギーだけでは同定できない。そこで、半減期、化学的分離法などによりきめなければならないが、今回は化学操作をせず半減期だけで核種を同定した。

^{17}F の測定は他の核種による影響を少なくし、精度を上げるため、原子炉運転直後(10

MW-3.5 hr)にバイパス回路のT-5バルブを閉じて、0.511 MeVの γ 線の減衰をマルチスケーラー・モードによつて追跡し、半減期を求めた。なお、マルチスケーラーの上限、下限は ^{67}Co の標準線源によりセットし、チャンネル当りの計数時間を10 secにした。

得られた減衰曲線をFig. 5に示す。計数率が少く十分な測定ができなかつたが、半減期は68 secであつた。この半減期の対応核種はエネルギー、半減期より重水中の ^{16}O (存在比99.759%)の(d, n)反応により生成した ^{17}F ($T_{1/2}=66$ sec)であると断定した。なお、この測定でかなり長い半減期の核種の存在を認めたと、測定時間が25 minであつたので長寿命の核種についての判定はできなかつた。

^{64}Cu の測定は重水をポリエチレン棒状ビンに5 ml入れ、 ^{17}F と同じ条件で減衰曲線を求めた。Fig. 6はその減衰曲線である。この曲線より求めた半減期は11.2 hrであり、 ^{64}Cu ($T_{1/2}=12.8$ hr)より半減期が短い、他に対応できる核種がないので ^{64}Cu であると判定した。なお、0.511 MeVの消滅放射 γ 線は ^{17}F 、 ^{64}Cu の他に ^{18}F ($T_{1/2}=109.7$ min)などからのものも考えられるので別の機会に再測定し、十分信頼性の高いデータを得る計画である。

(2) ^{28}Al , ^{27}Mg

炉の構造材は大部分アルミニウムから構成されているため、 ^{28}Al の存在は十分考えられるが、半減期が2.3 minと短いため明確にその存在を確認していない。 ^{17}F の測定の際、非常に大きな光電ピーク(1.781 MeV)が検出された。Fig. 7の(A)はそのときえられた γ 線スペクトルである。(B)の γ 線スペクトルは重水を停止し16 minのちに測定したものである。この2つの γ 線スペクトルで1.781 MeVの光電ピークは15 min後ではほとんど検出できず、短寿命の核種と推定された。

この1.781 MeVの光電ピークをマルチスケーラー・モードによつて追跡し求めた結果、Fig. 8の減衰曲線を得た。この曲線より半減期は2.30 minであつた。この結果、Fig. 7の γ 線スペクトルからエネルギー1.781 MeVが得られているので ^{28}Al であることが確認された。

この ^{28}Al の生成核反応は種々あるが、重水の定性分光分析および比色分析の結果、重水中にアルミニウムが3~4 $\mu\text{g}/\text{ml}$ 検出していることから主として ^{27}Al の(n, γ)反応により生成されたものと考えられる。これまで重水の γ 線スペクトルの測定で、 ^{24}Na が主成分であるとしていたが、連続流水状態での測定の結果、F. F. D.の測定器部では大部分 ^{28}Al であることが判明した。

^{27}Mg ($T_{1/2} = 9.5 \text{ min}$) は短寿命の核種であるため、化学的分離により単体として抽出することは技術的にむずかしい。このため、サンプリングしたのち、ただちに測定して減衰曲線を求めた。

Fig. 9 は ^{27}Mg からの γ 線についての減衰曲線である。(A) は 0.847 MeV γ 線の減衰状態を示したもので、このピークは ^{56}Mn ($T_{1/2} = 2.65 \text{ hr}$) からの 0.847 MeV γ 線が重なっていたため半減期により分離したものが(B)である。(C) は 1.013 MeV γ 線の減衰である。

^{27}Mg の生成は ^{27}Al の (n, p) 反応, ^{26}Mg の (n, γ) 反応などによりできるが、存在比, 放射化断面積, 重水中に溶解している Al , Mg の比を計算すると大部分 ^{27}Al の (n, p) 反応により生成されたものと推定される。

(3) ^{24}Na

重水からの γ 線スペクトル (Fig. 4 参照) で 1.370 MeV , 2.750 MeV の光電ピークはエネルギー的に ^{24}Na ($T_{1/2} = 15 \text{ hr}$, 1.3685 MeV , 2.754 MeV) であると思われるので、これらのピークのうち、 1.370 MeV γ 線の減衰曲線を求めた (Fig. 10 (A))。この曲線より求めた半減期は 14.8 hr で ^{24}Na の γ 線であると判定した。

また、 $\text{Ge}(\text{Li})$ γ 線検出器で測定した γ 線スペクトルより求めた 1.734 MeV および 2.244 MeV のピークはそれぞれ ^{24}Na の 2.754 MeV の double escape peak, および single escape peak であることが判明した。このように重水中の光電ピークのうち 1.370 , 1.734 , 2.244 , 2.750 MeV は ^{24}Na によるものである。なお, ^{24}Na は主として ^{27}Al の (n, α) 反応により生成されたものである。⁴⁾

(4) ^{51}Cr , ^{56}Mn , ^{187}W

これらの核種は長寿命であるので、重水 100 ml を使用し化学的方法により単体として取り出し核種の確認を行なった。

0.320 MeV の光電ピークは半減期から ^{51}Cr ($T_{1/2} = 27.8 \text{ day}$, 0.3198 MeV) であると判断し、JPDRの分析法⁸⁾により Cr を抽出した。この抽出液の γ 線スペクトルより求めた減衰曲線は Fig. 10 の(B) である。得られた半減期 27.8 day から 0.320 MeV の光電ピークの対応核種は ^{51}Cr であるとした。

次に, ^{56}Mn については、化学的方法⁸⁾により重水中のマンガンを抽出し抽出液の γ 線

スペクトルを測定し、同時に各光電ピークの減衰曲線を求めた。

Fig. 11は抽出液の γ 線スペクトルである。4本の光電ピークが検出されエネルギーは0.847MeV(0.8469MeV), 1.810MeV(1.811MeV), 2.110MeV(2.110MeV)および1.090MeVであった。()内の値は ^{56}Mn の文献値⁹⁾である。これらのピークのうち1.090MeVを除き文献値と良く一致した。なお、マンガンと鉄がマンガンと共に入ってくる⁸⁾ことから、1.090MeVの光電ピークは ^{59}Fe ($T_{1/2}=45\text{day}$, 1.095MeV)からのものであると思われる。

また、エネルギーから判断してほぼ ^{56}Mn であるが、最終的には半減期より決定する必要がある。0.847MeV, 1.810MeVおよび2.110MeVの光電ピークの減衰を求めた結果、Fig. 12の減衰曲線を得た。この曲線より、各ピークの半減期は各々2.52hr, 2.5hr, 2.57hrであり、 ^{56}Mn の2.576hrと2%以内で一致した。以上の結果、重水中の ^{56}Mn の存在を確認した。

^{187}W はNaI(Tl) γ 線検出器による γ 線スペクトルでは全く検出できなかったが、その後、Ge(Li) γ 線検出器により0.134MeV, 0.480MeV, 0.618MeV, 0.886MeVのピークが検出されたことから存在を認め、Dresden¹⁰⁾, NRX³⁾などの原子炉でも ^{187}W が検出されている。 ^{187}W の存在を再確認するため重水中のタングステンと沈澱法により分離し⁸⁾ γ 線スペクトルから光電ピークのエネルギーおよび半減期を求めた。

Fig. 13は沈澱物の γ 線スペクトルであり、9本の光電ピークが検出された。このうち0.655MeV, 0.742MeVを除くピークは ^{187}W からのものと推定された。さらに、十分に分離されている光電ピーク0.134MeV, 0.480MeV, 0.618MeVについて減衰を測定した。Fig. 14に示したように、各光電ピークから求めた半減期は ^{187}W の半減期23.9hrに非常に良く一致した。この結果、重水中に ^{187}W が存在していることが判明した。なお、 ^{187}W の生成の過程については種々検討したが現在のところ不明である。

(5) ^{59}Fe , ^{60}Co

これらの核種は抽出あるいは減衰曲線を求めるさいに検出されたもので、いずれもエネルギーより判定した核種である。

^{59}Fe の存在は、抽出したマンガンからの γ 線スペクトルに1.090MeVのピークが検出され(Fig. 11参照)、また、マンガン抽出時に鉄がマンガンと共に入ってくる⁸⁾ことから推定した。また、 ^{60}Co は重水の減衰 γ 線スペクトル測定時に検出されたものである(Fig. 4のD)。この ^{60}Co についてはJRR-2の重水系イオン交換樹脂の分析¹¹⁾で検出されている。

以上の測定の結果、腐食生成物に起因する核種として ^{64}Cu , ^{28}Al , ^{27}Mg , ^{24}Na , ^{51}Cr , ^{56}Mn , ^{187}W , ^{59}Fe および ^{60}Co の9核種が検出されたが、主な核種は ^{28}Al , ^{56}Mn , ^{24}Na であった。

3.3 重水中の核種(2)

ここでは重水中の微量 F.P. について述べる。重水中の微量 F.P. の検出は次の理由によりヨウ素に着目し、F.P. の有無を判定した。

- (1) 全核分裂生成物よりヨウ素の分離は化学的操作が簡単であり、化学的収率が高く信頼性がある。
- (2) ヨウ素核種は核分裂収率が高い。
- (3) 半減期が 83 sec (^{136}I) から 8.05 day (^{131}I) と広範囲であることから核分裂生成物の検出に便利である。

JRR-2 においては、これまでウランの核分裂によって生成される核種の測定はあまり行なわれていなかった。今回、原子炉のカバーガスであるヘリウムの γ 線スペクトルを測定した結果、 ^{41}Ar とともに微量の $^{85\text{m}}\text{Kr}$, ^{87}Kr , ^{88}Kr , ^{135}Xe および ^{138}Xe が検出されたので、重水中のヨウ素を陰イオン交換樹脂により分離し、F.P. の存在を確認した。

Fig. 15 は陰イオン交換樹脂に吸着された核種の γ 線スペクトルであり、(A), (B) は2回分離した各々の樹脂の γ 線スペクトルである。0~1.5 MeV の範囲で20本の光電ピークが検出され、エネルギーおよび JRR-3 のイオン交換樹脂についての分析結果¹²⁾ を参考に核種を同定した。検出された核種は ^{132}I , ^{133}I , ^{134}I , ^{135}I , $^{99\text{m}}\text{Tc}$, ^{135}Xe , ^{51}Cr などであり、他に一部不明核種があった。同定した核種のうち、 ^{51}Cr を除き、他のすべての核種は F.P. である。

このように、重水の直接法による測定では不明な F.P. が陽イオン交換樹脂を通過した溶液、あるいは通過液を陰イオン交換樹脂に吸着させ、その放射能を測定することにより数倍の感度で検出できた。また、重水中の腐食生成物による放射能と F.P. とを容易に分離することができた。

3.4 主な核種の放射能濃度

10 MW 到達約 50 hr 後に前述の場所より重水をサンプリングし、主な核種の濃度を求めた。重水のサンプリング場所までの到達時間は約 2.5 min であるので、短半減期の核種は大部分減衰する。したがって、半減期数分以上のものについて測定し、主要な放射性核種の炉心での放射性濃度を求めた。結果を Table.1 に示し、他の原子炉 (CIRUS,

NRX, DRESDEN, JRR-3, JRR-4)の値も同時に掲載した。なお, JRR-4を除き, 核種の放射能濃度は炉心での濃度か, あるいはサンプリング場所での濃度が不明であり, また炉の出力もまちまちであるので単に比較するだけにとどめた。

今回の測定で特に²⁸Alからの放射能が全放射能の約95%もしめていた。これは, たまたま重水中にアルミニウムの腐食生成物が微白濁している時点での測定であり, また従来のサンプリング法と異なり連続流水状態で測定したためと考えられる。このアルミニウムの白濁現象の詳細については別の報告¹³⁾を参照されたい。

¹⁸⁷Wは従来のNaI(Tl)γ線検出器では検出されず, Ge(hi)γ線検出器で初めて検出された。放射能濃度は $2 \times 10^{-2} \mu\text{ci/ml}$ であり, 他の²⁴Na, ⁵¹Crとほぼ同じ濃度であった。その他の核種(²⁴Na, ⁵⁶Mn, ⁵¹Cr)は以前に測定した値とあまり変わらず, 各々 5.6×10^{-2} , 2×10^{-2} , $1.3 \times 10^{-2} \mu\text{ci/ml}$ であった。

4 考 察

4.1 重水中の核種

重水の γ 線スペクトルあるいは化学的分離法により単体として抽出した溶液、沈澱物の γ 線スペクトルをもとにして各光電ピークとそれに対応する核種をエネルギー、半減期より求めた。

エネルギーの測定は IAEA の標準線源によってエネルギー曲線を作成し、これによって光電ピークのエネルギーを決定した。しかし、光電ピークに対して標準エネルギーで両端を決定するとか、測定エネルギー範囲を狭くしてチャンネル当りのエネルギーを小さくするなどエネルギー精度を上げることを行なっていないので、数 KeV の誤差は見込まなくてはならない。

また、半減期はすべての光電ピークについて求めなかった。おおよそ推定できる核種は前に述べたように抽出、沈澱などにより単体として取り出し、代表的なピークについてのみ求めた。光電ピークとバックグラウンドとの区別のつかないもの、計数率が少なく面積計算上、多くの誤差を生ずる核種は測定しなかった。

Table-2 は主として腐食生成物の放射化により生成された核種を示した。()内はエネルギー値から推定した核種である。31個の光電ピークが検出されたがこれらのエネルギーに対応する核種は確定したもの、およびエネルギーより推定したものを含め次の12核種であった。

^{17}F , ^{64}Cu , ^{28}Al , ^{27}Mg , ^{24}Na , ^{51}Cr , ^{54}Mn , ^{56}Mn , ^{187}W , ^{59}Fe , ^{60}Co , ^{41}Ar

これらの核種のうち、 ^{41}Ar は、重水のカバーガスであるヘリウム中のアルゴンが重水に溶解し、炉心領域を通過するさい放射化されたものである。重水中の ^{41}Ar は水素または窒素ガスで置換することにより簡単に除去できる。 ^{17}F を除き他の核種はすべて炉構造物材(2S-A1, 52S-A1, SUS-27等)の腐食生成物に起因するものである。特に問題になるのは ^{24}Na である。F.F.D.が遅発中性子法を採用する場合、 ^{24}Na の γ 線により重水素が放出する光中性子がバックグラウンドになるので ^{24}Na の放射能濃度は常に把握する必要がある。

4.2 重水中の微量 F.P.について

炉内の微量 F.P.を検出する方法として

- (1) ヘリウムガス中のガス状 F.P.を検出する。

(2) 重水中の F.P.を検出する。

が考えられる。(1)の方法はヘリウムであるため、それ自身放射化されることなく、不純物として ^{41}Ar が存在するだけである。このため微量のガス状 F.P.の検出は ^{41}Ar を減衰させたのちに測定することにより比較的感度よく検出できる。一方(2)の方法では腐食生成物による種々の核種が存在しバックグラウンドを上昇させるために、直接測定ではほとんど検出できない。

(1)の方法で測定した結果、 $^{85\text{m}}\text{Kr}$ 、 ^{87}Kr 、 ^{88}Kr 、 ^{135}Xe 、 ^{138}Xe が検出されたので、再確認のため陰イオン交換樹脂分離法により重水中の微量 F.P.の検出をこころみた。

Table-3 に光電ピークのエネルギーにより推定した対応核種を示す。この対応核種の信頼度は減衰曲線より半減期を求めていないが、下記の理由により十分信頼できるものと確信する。

(1) カバーガスであるヘリウム中にガス状 F.P.が検出された。

(2) JRR-3 で同様に分離して得られた γ 線スペクトルと非常によく類似していた。

一方、これらの F.P.の生成源については、かりに燃料破損のない正常な炉心であるとすると、F.P.は燃料加工時に燃料表面の付着ウランの核分裂により生成したと推定できる。この F.P.は他の核種と共に FFD のバックグラウンド放射能になるので、炉の運転中に(1)または(2)の方法により常に監視し、燃料破損時の重要なデータにする必要がある。

4.3 F.P.からの燃料表面付着ウラン量の推定

カバーガスのヘリウムおよび重水中に微量の F.P.が検出されたので、燃料表面の付着ウランによるものか燃料破損によるものか推定する必要がある。測定された F.P.の放射能濃度から炉心全体でのウラン量を計算により求め、製作仕様の許容ウラン濃度以下であるかを検討した。

1) 燃料表面付着ウラン量の計算

F.P.から燃料表面付着ウラン量を計算する場合に次の仮定をした。

- i) 燃料表面にウランが一様に付着し、平均熱中性子束で照射され核分裂をする。
- ii) F.P.は 50%が燃料被覆材のアルミニウムに吸収され 50%が重水中に放出される。
- iii) 重水中に放出された F.P.はただちに一様に拡散し、系内に F.P.が沈着せず、ヘリウム系へ放出される。

以上の仮定にもとずくと F.P.の生成放射能 $A(\text{Ci})$ は次式で与えられる。

$$A = \bar{\Phi} \cdot \bar{\Sigma}_f \cdot V \cdot \frac{1}{3.7 \times 10^{10}} \cdot \frac{Y_i}{100} (1 - e^{-\lambda_i \cdot t}) \quad (1)$$

$\bar{\Phi}$: 平均熱中性子束 ($4.3 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$)

$\bar{\Sigma}_f$: 巨視的断面積 (0.789 cm^{-1})

V : 燃料体積 (U-Al 合金) (cm^3)

Y_i : 核分裂収率

λ_i : 崩壊定数

C : 燃料表面から重水中へ放出される割合 (50%)

以上の定数を(1)式に代入すると(2)式になる

$$A = 0.463 \times 10^3 \times Y_i \times V \quad (2)$$

この(2)式に測定したFPの濃度と核分裂収率を代入し、ウラン容量を求め、(3)式でウラン重量を求めた。

$$U(\text{g}) = \bar{V} \times \bar{\rho} \times \bar{X} \quad (3)$$

$\bar{\rho}$: 平均比重 (3.2424 g/cm^3)

\bar{X} : 平均ウラン濃縮度 (20.7%)

2) 燃料表面付着ウラン量

重水中の代表的なF.P. (^{131}I , ^{133}I , ^{135}I) を定量したが、分析収率、管壁等への沈着などにより、測定値の信頼性がとぼしく、付着ウラン量を計算できなかった。そこで比較的操作の簡単な方法としてヘリウム中のF.P. ($^{85\text{m}}\text{Kr}$, ^{88}Kr , ^{135}Xe) の放射能濃度から計算して求めた。

代表的なヘリウムガスの γ 線スペクトルはFig. 16 のようになり、この光電ピークの放射能濃度を求め、(2)、(3)式からウラン量を求めた。結果をTable. 4 に示す。なお、ガス状FPの全放射能濃度はヘリウムガスの容量を 20 m^3 として計算した。

Table. 4 に示したようにウラン容量は $6.2 \sim 8.1 \times 10^{-4} \text{ cm}^3$ であり、ウラン重量は(3)式から $420 \sim 540 \mu\text{g}$ である。したがって、本測定の結果、約 $500 \mu\text{g}$ 前後のウランが燃料表面に付着していると推定できる。

FPの濃度から計算で求めたウラン量を燃料板単位面積当りに換算し、製作仕様と比較した。測定時のJRR-2の炉心内燃料の構成は標準型板状燃料22本、円筒型燃料2本からなっており、各々の燃料表面積を求めると

標準型板状燃料 : $1.56 \times 10^4 \text{ cm}^2$ / 本

円筒型燃料 : $7.4 \times 10^3 \text{ cm}^2$ / 本

になり炉心全体での燃料表面積は $3.58 \times 10^5 \text{ cm}^2$ である。

前述の実測値約 $500 \mu\text{g}$ から単位表面積当りの付着ウラン量は $1.25 \mu\text{g}/900 \text{cm}^2$ となり、JRR-2の製作仕様 ($10 \mu\text{g}/900 \text{cm}^2$) の12%であった。この結果、十分製作仕様を満足する値を得た。なお、本計算では燃料を新品で炉内に挿入し、付着ウランの燃焼率が進んでいないとして計算した。

この付着ウランは炉内の燃料の破損の有無を判断する重要なもので、単にF.P.が検出されたから、直ちに破損に結びつけることは危険である。このため、炉内のバックグランドF.P.を時々測定し、万一破損した時の判断資料にする必要がある。

このF.P.の検出と濃度の測定は重水の場合、 ^{24}Na 、 ^{51}Cr 、 ^{28}Al に比較してF.P.が非常に微量であるため簡単には検出できない。そこで、イオン交換分離法、抽出法などによって測定しなくてはならない。一方、ヘリウム中にはバックグランドとして ^{41}Ar のみしか存在しないため、 ^{41}Ar の減衰をまって γ 線スペクトルを測定することにより簡単に検出できる。したがって、操作の簡便さ、分析精度、検出感度などよりヘリウム中の γ 線スペクトル法が非常に有効な方法と考えられる。

4.4 Ge(Li) γ 線検出器について

これまで重水中の核種の測定はNaI(Tl) γ 線検出器を用いて測定してきたが、分解能が悪いため十分な解析ができなかった。Ge(Li) γ 線検出器は分解能が非常に良いため、従来のNaI(Tl) γ 線検出器では1個の光電ピークとして観測されたものが実は数個の光電ピークからなっていることが判明した。また各光電ピークの分離が良いため、その面積計算が容易になり、半減期を求める場合有効であった。

一方、Ge(Li) γ 線検出器は分解能がすぐれているため、燃料破損などによって放出されF.P.核種のうち、特定核種の光電ピークに注目しておれば、この検出によってF.F.D.として利用できる。しかし、実際の応用にあたっては計数効率の悪さ、バックグランドとなるFP以外の核種の問題などを解決する必要がある。

5 あとがき

今後の課題としては、重水精製系イオン交換樹脂中の長寿命核種および吸着イオンの分析をすることにより、炉構造材の腐食の状態を把握することがある。

本報をまとめるにあたり助言をいただいた本研究所研究炉技術課の浅見哲夫課長代理に感謝致します。また、本実験に使用したGe(Li) γ 線検出器および測定装置を心よく借用させていただいた研究炉技術課第1係の方々に深く感謝致します。

参 考 文 献

- 1) 谷口薫, 大田黒寛治 "JRR-2重水中の放射性核種"
 (1) 核種の決定と存在量の測定
 研究炉管理部資料 61-30(1962)
- 2) 谷口薫, 大田黒寛治 "JRR-2重水中の放射性核種"
 研究炉管理部資料 62-33(1962)
- 3) W. J. Edwards and R. C. Hawkings, "RADIOACTIVITY IN THE NRX HEAVY WATER" CRDC-1126(1962)
- 4) W. F. Merritt and Patricia Patrick, "Radionuclides Present in Cooling Water from the NRX Reactor" CRER-986(1960)
- 5) R. L. Heath, "Fission Products in Reactor Cooling Streams"
 IDO-16213(1956)
- 6) A. C. Paul, "RADIOACTIVITY IN CIRUS PRIMARY COOLANT AND MODERATOR SYSTEMS" B. A. R. C. -437(1969)
- 7) 北原種道, 他 "TLG-1-50 Progress Report No. 8" JAERI-memo 4312
 (1971)
- 8) 石渡名澄 "JPDR化学実験室の化学分析法" JAERI-1125(1966)
- 9) C. M. Lederer, J. M. Hollander and I. Perlman, "Table of Isotopes - Sixth Edition" (1967)

5 あとがき

今後の課題としては、重水精製系イオン交換樹脂中の長寿命核種および吸着イオンの分析をすることにより、炉構造材の腐食の状態を把握することがある。

本報をまとめるにあたり助言をいただいた本研究所研究炉技術課の浅見哲夫課長代理に感謝致します。また、本実験に使用したGe(Li) γ 線検出器および測定装置を心よく借用させていただいた研究炉技術課第1係の方々に深く感謝致します。

参 考 文 献

- 1) 谷口薫, 大田黒寛治 "JRR-2重水中の放射性核種"
(1) 核種の決定と存在量の測定
研究炉管理部資料 61-30(1962)
- 2) 谷口薫, 大田黒寛治 "JRR-2重水中の放射性核種"
研究炉管理部資料 62-33(1962)
- 3) W. J. Edwards and R. C. Hawkings, "RADIOACTIVITY IN THE NRX HEAVY WATER" CRDC-1126(1962)
- 4) W. F. Merritt and Patricia Patrick, "Radionuclides Present in Cooling Water from the NRX Reactor" OBER-986(1960)
- 5) R. L. Heath, "Fission Products in Reactor Cooling Streams" IDO-16213(1956)
- 6) A. C. Paul, "RADIOACTIVITY IN CIRUS PRIMARY COOLANT AND MODERATOR SYSTEMS" B. A. R. C. -437(1969)
- 7) 北原種道, 他 "TLG-1-50 Progress Report No. 8" JAERI-memo 4312 (1971)
- 8) 石渡名澄 "JPDR化学実験室の化学分析法" JAERI-1125(1966)
- 9) C. M. Lederer, J. M. Hollander and I. Perlman, "Table of Isotopes - Sixth Edition" (1967)

- 10) E. J. Brutshy, R. S. Gilbert and R. N. Osborne. "Corrosion of Materials" (1955)
- 11) H. Takayanagi, et al., "A Study of the Fuel Cladding Failures in JRR-2" JAERI-1175 (1968)
- 12) 吉島哲夫, 他 "JRR-3 イオン交換樹 中の U 核種分析" 日本原子力学会年会予稿集 (未公開, 1970)
- 13) 鈴木義雄, 他 "JRR-2 微白濁重水の化学分析と精製" JAERI-memo 4616 (1972)
- 14) 山本章, 根本剛 他 "JRR-3 における重水中の放射性核種の定量", 第1回理工学における同位元素研究発表会要旨集 (1964)
- 15) 東条隆夫, 近藤 真, 他 "原子炉冷却水中の放射性核種の Ge(Li) 検出器によるガンマ線スペクトロメトリ" JAERI-memo 4365 (1971)
- 16) B. F. Rider, J. P. Peterson, Jr. et al "A Survey and Evaluation of Thermal Fission Yield for U-235, Pu-239, U-233, and Pu-241" GEAP-5356 (1967)

付録A Gross β , Gross γ -Activity の減衰曲線

通常、原子炉では重水中の不純物あるいは核種を除去するため、イオン交換樹脂を使用して精製しているため、重水中の不純物、核種はほぼ一定に保たれている。したがって、正常な運転状態では β 線、 γ 線放射能濃度は一定の値を示している。しかし、急激な局部腐食あるいは燃料破損が起った場合、重水中の放射能濃度が急激に上昇すると予想されるのでこの監視のため、現在各サイクル毎に1~2回この濃度を測定している。この重水中の β 線、 γ 線放射能がどのような減衰を示すか不明であったのでこの減衰曲線を求めた。

測定は出力10MW運転中で重水の放射能濃度がほぼ平衡に達した時点(10MW-75hr)で測定した。 β 線については試料皿に重水1mlをとり、赤外ランプで蒸発乾固したのち、GM計数装置で測定した。 γ 線はポリエチレン棒状ビンに重水を5mlとり、NaI(Tl)シンチレーターを備えた計数装置で測定した。

測定結果をFig. A1に示す。(A)に示した γ -Activityの減衰は1hrで約 $\frac{1}{4}$ に減少し、その後は15hrの半減期で減衰していた。この15hrの半減期は ^{24}Na によるものである。また、サンプリング直後の重水は急激な減衰をしめす。その半減期は10minおよび1.45hrである。重水中に存在する ^{27}Al , ^{28}Mg , ^{56}Mn などによるものと予想される。正常な運転状態での ^{24}Na はこれまでの測定で、ほぼ一定値を示すことから、サンプリング2~3hr後の ^{24}Na をGross γ 線のバックグラウンドとし、この大小を比較することによりある程度、炉の異常を推定できる。

(B)の β -Activityは γ -Activityほど急激に減衰せず、数時間後では半減期約30hrで減衰した。

付録B NaI(Tl) γ 線検出器とGe(Li) γ 線検出器による
線スペクトルの比較

Fig. B1にGe(Li) γ 線検出器およびNaI(Tl) γ 線検出器による γ 線スペクトルを対比させて示した。この2つの γ 線スペクトルは各核種がほぼ飽和した時刻の測定結果であるが比較の都合上、Ge(Li) γ 線検出器の γ 線スペクトル(B)に合わせて、NaI(Tl) γ 線検出器の γ 線スペクトルをプロットした。

Table.1 Activity of radionuclides in heavy water of the JRR-2 and the other reactors

| Nuclide | Specific Activity ($\mu\text{Ci/ml}$) | | | | | | | | | |
|------------------|---|----------------------|----------------------|----------------------|-----------------------|----------------------|----------------------|--|--|--|
| | CIRUS (6) | NRX (3) | DRESDEN (10) | JRR-3 (14) | JRR-4 (15) | JRR-2 (1) | JRR-2 | | | |
| ^{24}Na | 4.95×10^{-3} | 1.7×10^{-2} | 3.3×10^{-4} | 1.0×10^{-4} | 1.56×10^{-3} | 2.2×10^{-2} | 5.8×10^{-2} | | | |
| ^{51}Cr | 3.24×10^{-3} | 2.2×10^{-1} | | | | | 1.3×10^{-2} | | | |
| ^{28}Al | 2.84×10^{-3} | 2.7 | | 4.1×10^{-3} | | | 3.2 | | | |
| ^{27}Mg | 3.08×10^{-3} | | | 8.0×10^{-4} | 1.13×10^{-2} | | 1.2×10^{-1} | | | |
| ^{38}Cl | 1.56×10^{-3} | | | 1.3×10^{-4} | | 1.2×10^{-3} | | | | |
| ^{64}Cu | 1.49×10^{-3} | | 2.9×10^{-2} | | | | | | | |
| ^{56}Mn | 1.06×10^{-3} | 4.0×10^{-3} | 1.8×10^{-2} | 4.1×10^{-4} | 7.2×10^{-3} | 4.1×10^{-3} | 2.0×10^{-2} | | | |
| ^{59}Fe | 1.13×10^{-5} | | | | | | | | | |
| ^{60}Co | 4.5×10^{-7} | 3.8×10^{-3} | | | | | | | | |
| ^{187}W | | 2.2×10^{-1} | 2.9×10^{-4} | | | | 4.0×10^{-3} | | | |

Table.2 Radionuclides identified in the primary cooling heavy water (1)
(corrosion products)

| Energy (MeV) (obs.) | Half Life (obs.) | Nuclide | Energy (MeV) ⁹⁾ | Half Life ⁹⁾ |
|------------------------|---------------------|---------|----------------------------|-------------------------|
| 0.054 | | | | |
| 0.070 | | W-187 | 0.072 | 23.9 hr |
| 0.134 | 24.05 hr | W-187 | 0.134 | 23.9 hr |
| 0.320 | 26.8 day | Cr-51 | 0.320 | 27.8 day |
| 0.481 | 23.75 hr | W-187 | 0.480 | 23.9 hr |
| 0.512 | 68.0 sec | F-17 | 0.511 | 66.6 sec |
| | 11.2 hr | (Cu-64) | 0.511 | 12.8 hr |
| 0.554 | | W-187 | 0.552 | 23.9 hr |
| 0.564 | | | | |
| 0.604 | | | | |
| 0.618 | 23.65 hr | W-187 | 0.619 | 23.9 hr |
| 0.655 | | | | |
| 0.662 | | | | |
| 0.687 | | W-187 | 0.686 | 23.9 hr |
| 0.727 | | | | |
| 0.745 | | | | |
| 0.774 | | W-187 | 0.773 | 23.9 hr |
| 0.835 | | (Mn-54) | 0.835 | 303.0 day |
| 0.850 | 2.52 hr | Mn-56 | 0.847 | 2.58 hr |
| | 9.7 min | Mg-27 | 0.842 | 9.5 min |
| 0.860 | | W-187 | 0.866 | 23.9 hr |
| 1.013 | 10.0 min | Mg-27 | 1.013 | 9.5 min |
| 1.100 | | Fe-59 | 1.095 | 45.0 day |
| 1.173 | | Co-60 | 1.173 | 5.26 y |
| 1.290 | | Ar-41 | 1.293 | 1.83 hr |
| 1.332 | | Co-60 | 1.332 | 5.26 y |
| 1.368 | 14.8 hr | Na-24 | 1.369 | 15.0 hr |
| 1.734 | | Na-24 | D.E.P. | |
| 1.781 | 2.3 min | Al-28 | 1.780 | 2.31 min |
| 1.816 | 2.55 hr | Mn-56 | 1.811 | 2.58 hr |
| 2.110 | 2.57 hr | Mn-56 | 2.110 | 2.58 hr |
| 2.240 | | Na-24 | S.E.P. | |
| 2.750 | | Na-24 | 2.754 | 15.0 hr |

Table.3 Radionuclides identified in the primary cooling heavy water (2)
(fission products)

| Energy (MeV) (obs.) | Half Life (obs.) | Nuclide | Energy (MeV) ⁹⁾ | Half Life ⁹⁾ |
|------------------------|---------------------|---------|----------------------------|-------------------------|
| 0.140 | | Tc-99m | 0.1427 | 6.0 hr |
| 0.250 | | Xe-135 | 0.250 | 9.2 hr |
| 0.320 | | Cr-51 | 0.3198 | 27.8 day |
| 0.511 | | Annih. | | |
| 0.530 | | I-133 | 0.530 | 21.0 hr |
| 0.571 | | | | |
| 0.675 | | I-132 | 0.672 | 2.3 hr |
| 0.778 | | I-132 | 0.7729 | 2.3 hr |
| 0.820 | | | | |
| 0.852 | | I-134 | 0.850 | 52.0 min |
| 0.888 | | I-134 | 0.890 | 52.0 min |
| 1.045 | | I-135 | 1.04 | 6.7 hr |
| 1.080 | | | | |
| 1.138 | | I-135 | 1.14 | 6.7 hr |
| 1.262 | | I-135 | 1.28 | 6.7 hr |
| 1.370 | | Na-24 | 1.368 | 15.0 hr |

Table.4 Activity of fission products in cover gas and deposited uranium
of fuel surface of the JRR-2

| Nuclide | Activity (uCi/cc) | Average Activity (uCi/cc) | Total Activity (uCi) | γ_i (%) ¹⁶⁾ | Volume (cm ³) |
|-------------------|-----------------------|------------------------------|-------------------------|-------------------------------|------------------------------|
| ^{85m} Kr | 2.64x10 ⁻⁴ | 2.4 x10 ⁻⁴ | 4.9 x10 ³ | 1.3 | 8.1 x10 ⁻⁴ |
| | 2.43x10 ⁻⁴ | | | | |
| | 2.21x10 ⁻⁴ | | | | |
| ⁸⁸ Kr | 6.35x10 ⁻⁴ | 5.6 x10 ⁻⁴ | 1.1 x10 ⁴ | 3.58 | 6.8 x10 ⁻⁴ |
| | 5.49x10 ⁻⁴ | | | | |
| | 5.08x10 ⁻⁴ | | | | |
| ¹³⁵ Xe | 9.39x10 ⁻⁴ | 9.2 x10 ⁻⁴ | 1.8 x10 | 6.43 | 6.2 x10 ⁻⁴ |
| | 8.74x10 ⁻⁴ | | | | |
| | 9.39x10 ⁻⁴ | | | | |
| V = | | | | | 7.1 x10 ⁻⁴ |

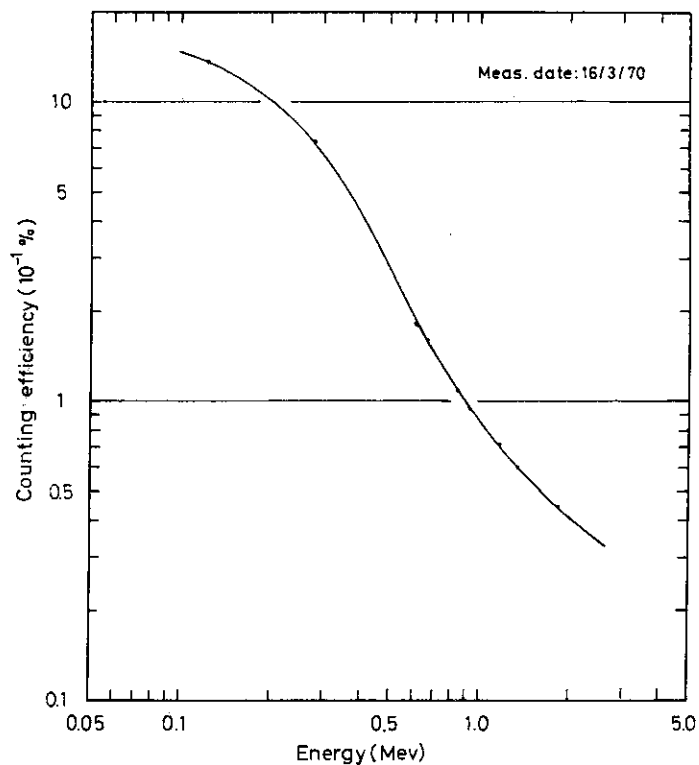


Fig.1 Counting efficiency curve for the 20 cc Ge(Li) detector with polyethylene bottle (30 mm from detector surface)

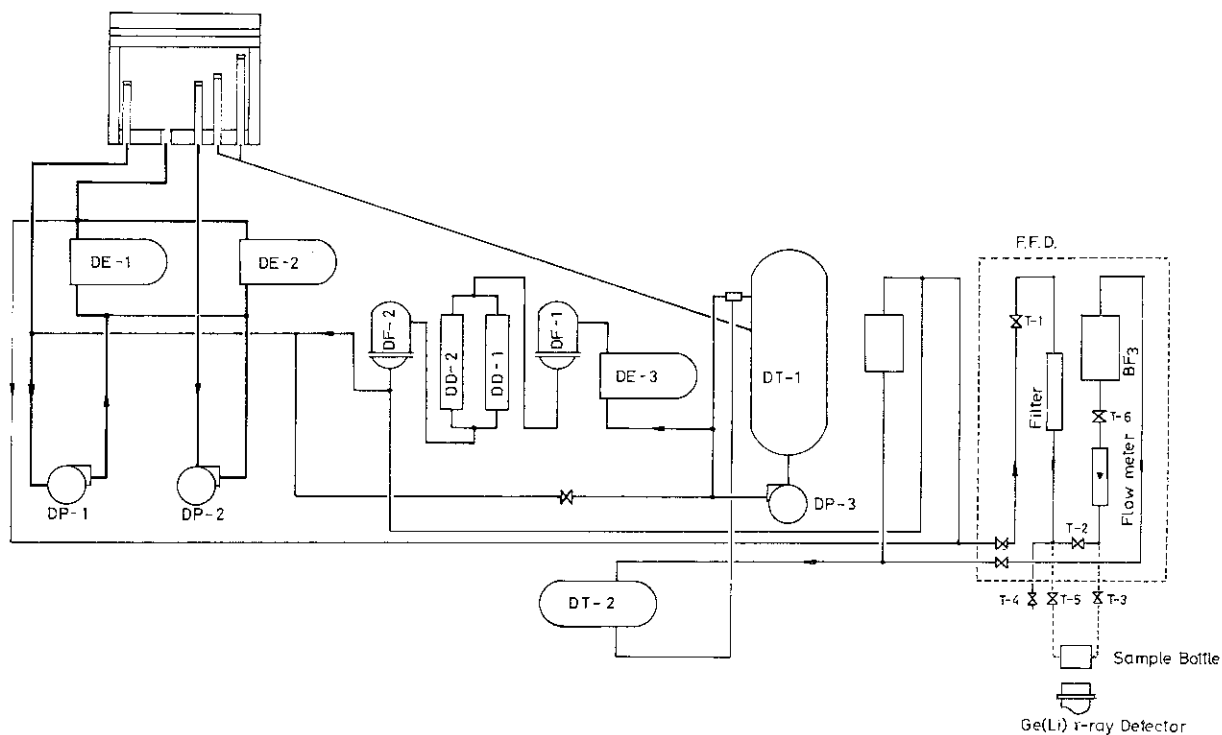


Fig.2 Flow diagram of the heavy-water system and fuel failure detector

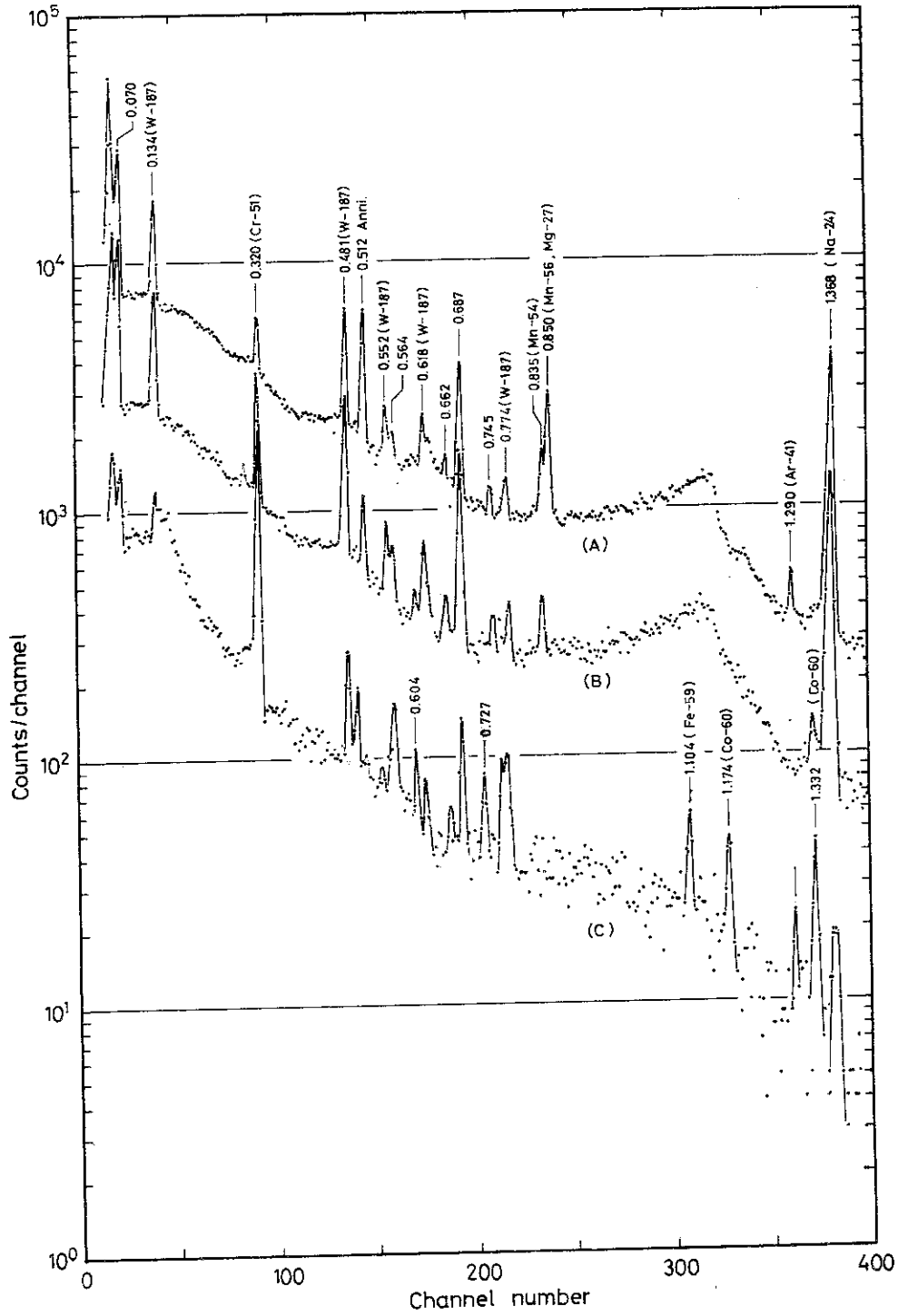


Fig.3 Gamma-ray spectra of the primary cooling heavy water (1)
 (gamma-ray energy : 0.0 - 1.45 MeV)
 Sampling time : 9:34 25/3/1970
 Live time : 2,000 sec
 (A) 41 min cooling
 (B) 25 hr cooling
 (C) 120 hr cooling

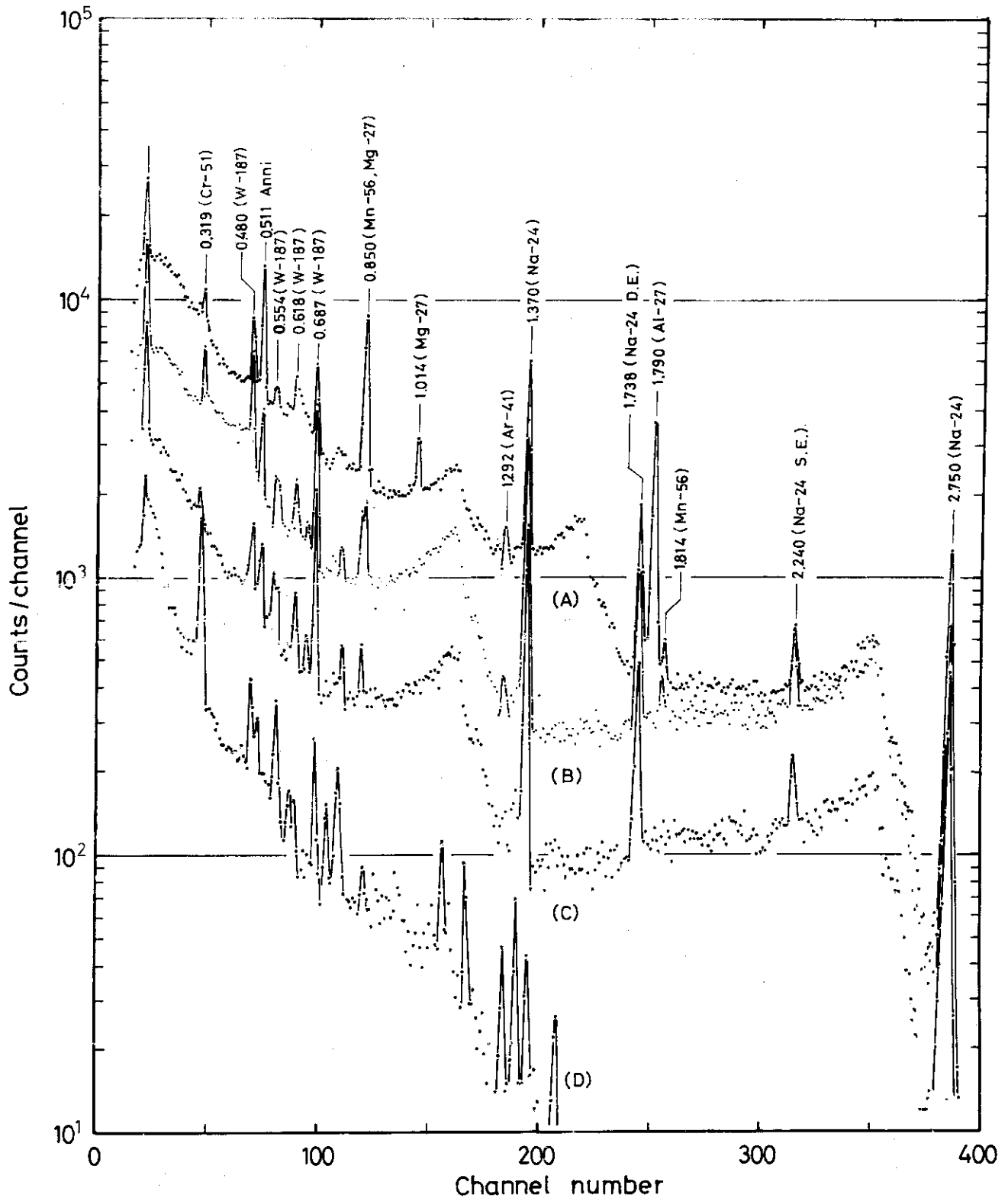


Fig.4 Gamma-ray spectra of the primary cooling heavy water (2)

(gamma-ray energy : 0.0 - 2.80 MeV)

Sampling time : 9:34 25/3/1970

Live time : 3,000 sec

(A) 5 min cooling (C) 24.4 hr cooling

(B) 3.3 hr cooling (D) 121 hr cooling

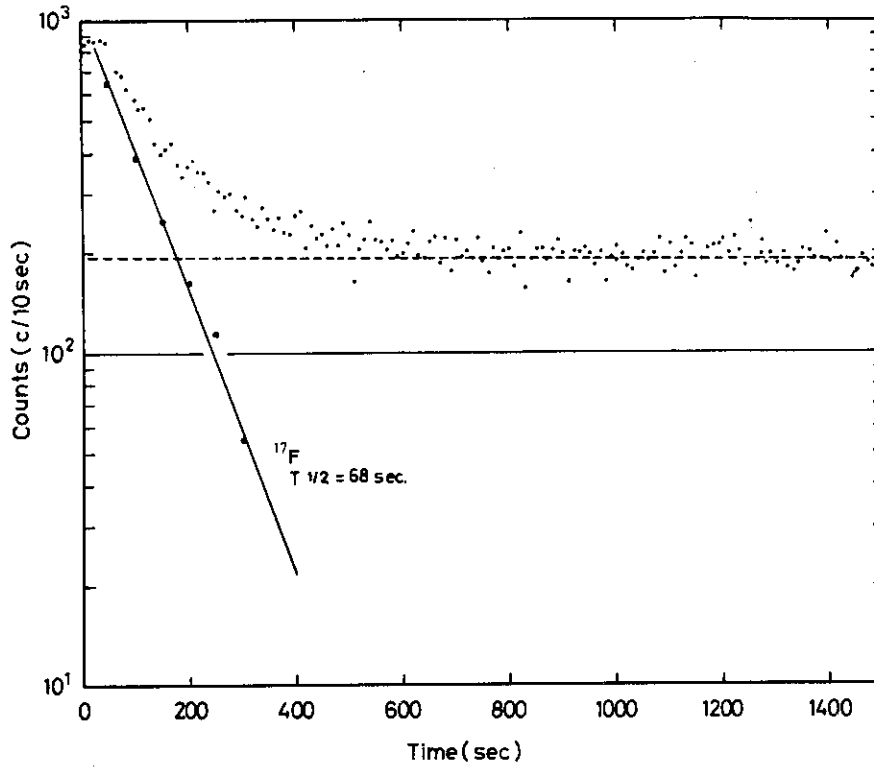


Fig. 5 Decay plot for the 0.511 MeV gamma-ray of ^{17}F

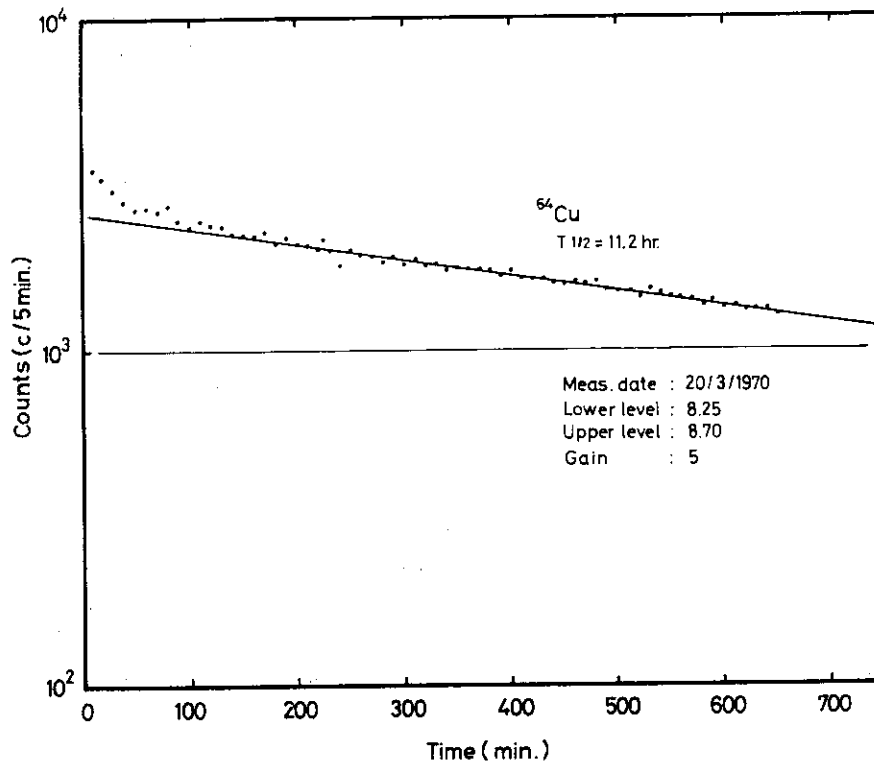


Fig. 6 Decay plot for the 0.511 MeV photopeak (2)

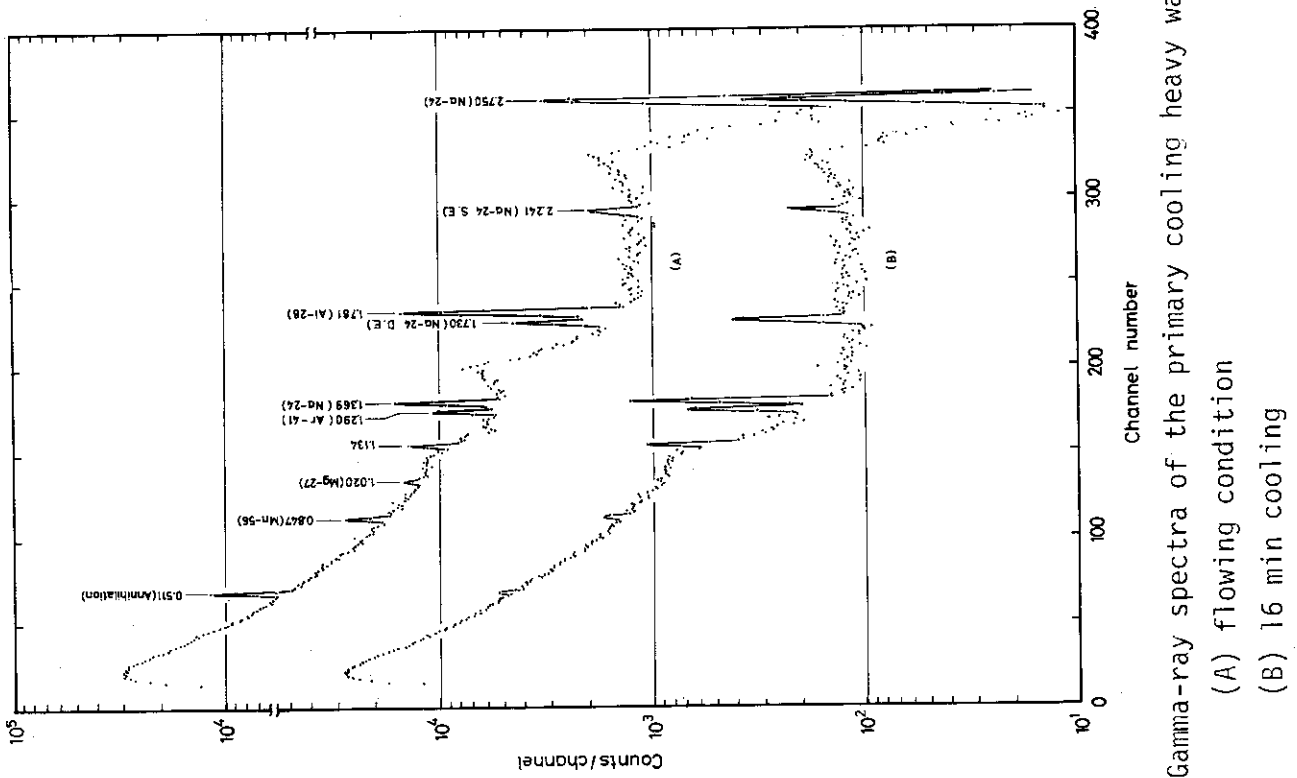


Fig.7 Gamma-ray spectra of the primary cooling heavy water(3) (A) flowing condition (B) 16 min cooling

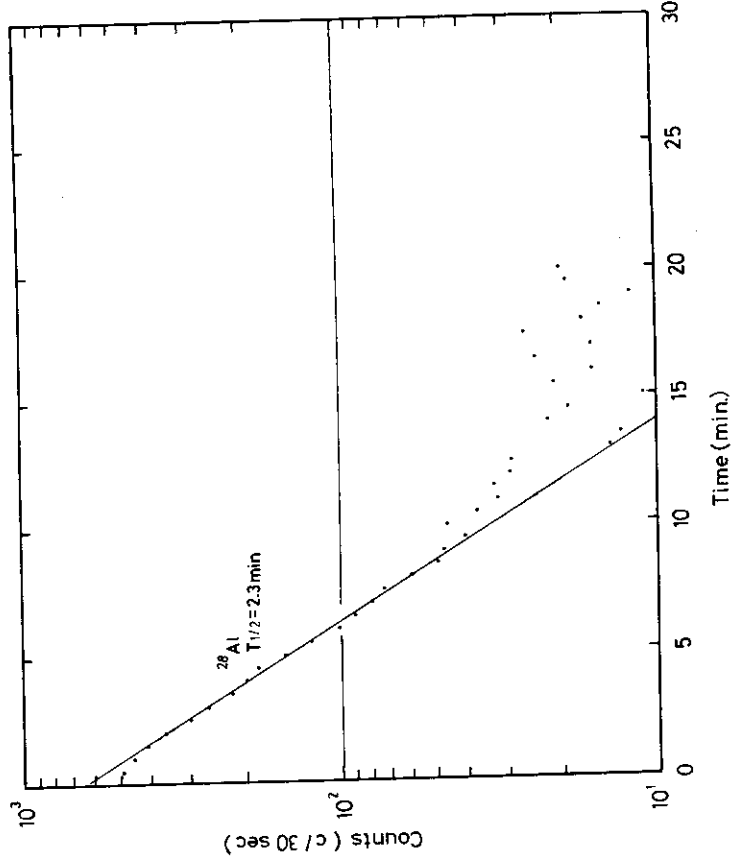


Fig.8 Decay plot for the 1.778 MeV gamma-ray of ^{28}Al

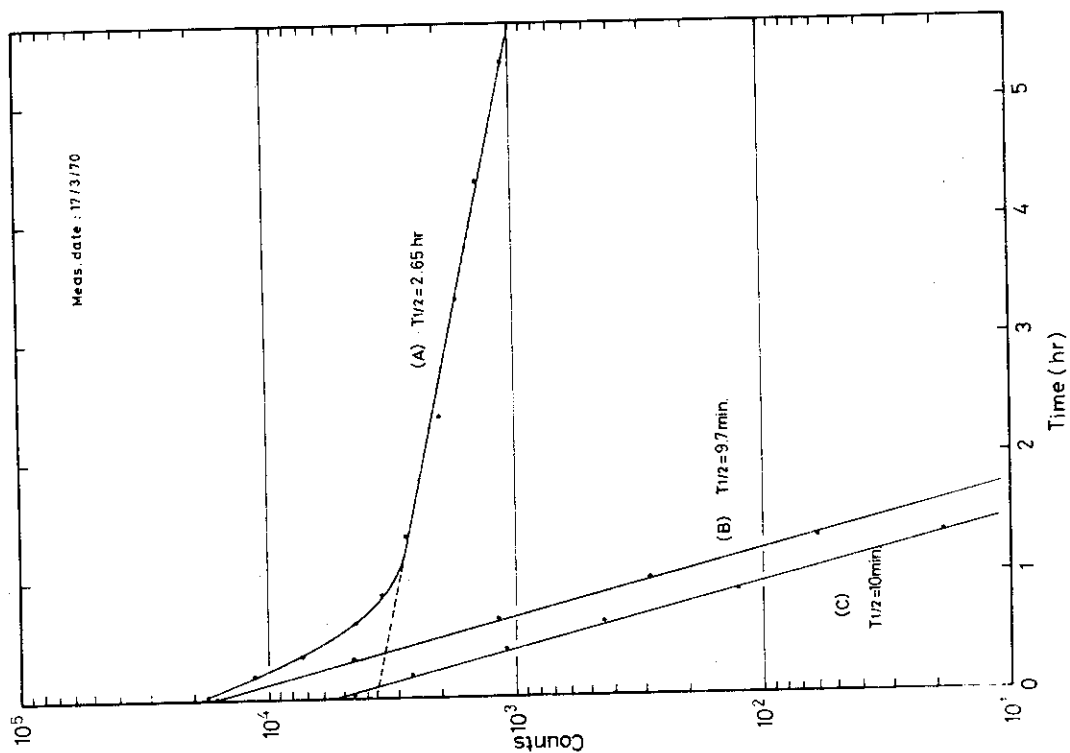


Fig.9 Decay plots for the photopeaks
 (A) ^{56}Mn (0.847 MeV) + ^{27}Mg (0.842 MeV)
 (B) ^{27}Mg (0.842 MeV)
 (C) ^{27}Mg (1.013 MeV)

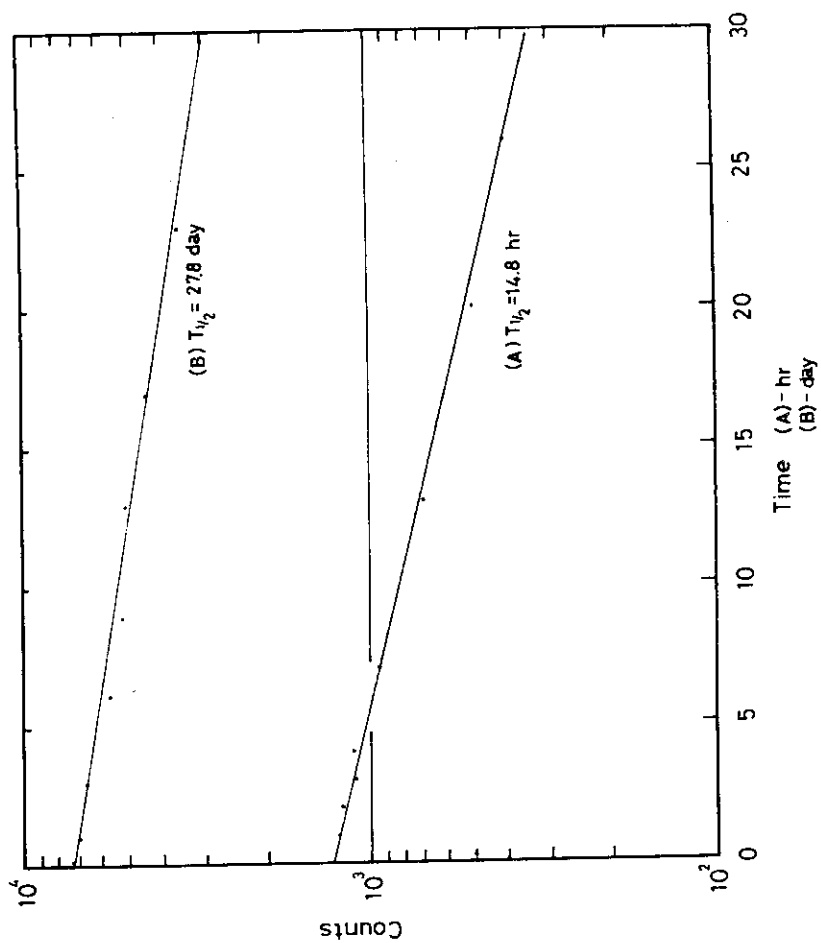


Fig.10 Decay plots for the 0.320 MeV and 1.368 MeV gamma-rays
 (A) ^{24}Na (1.368 MeV)
 (B) ^{51}Cr (0.320 MeV)

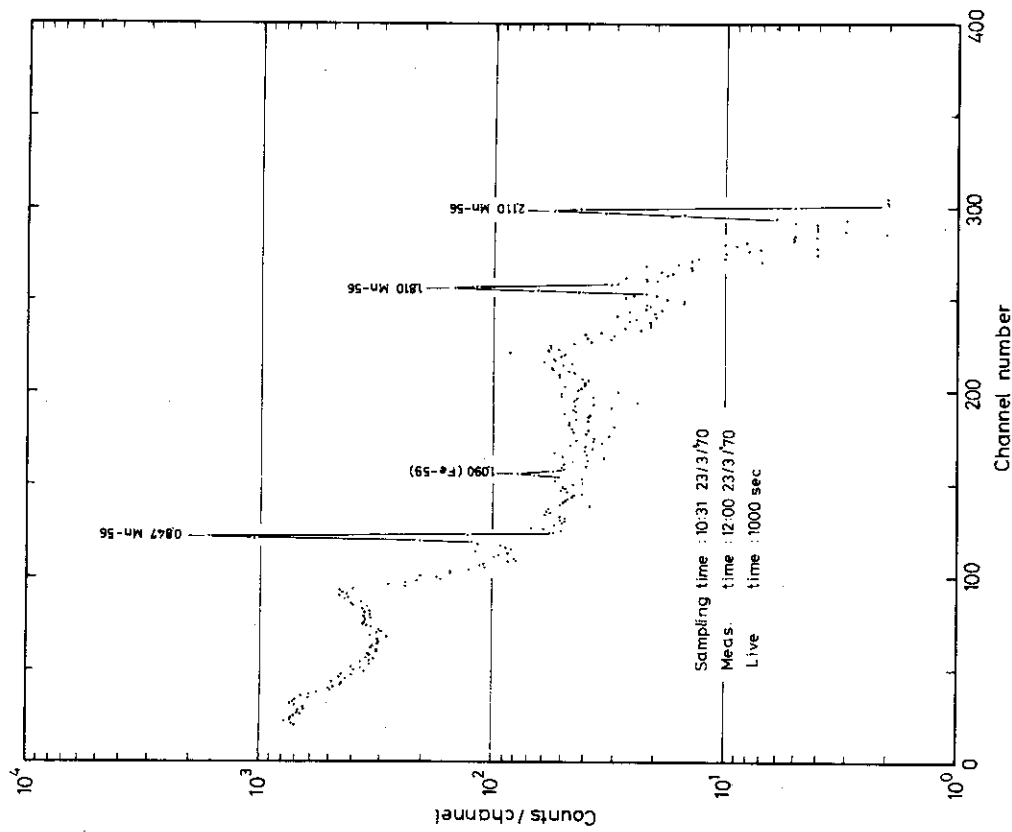


Fig.11 Gamma-ray spectrum of manganese separated from the heavy water by extraction method

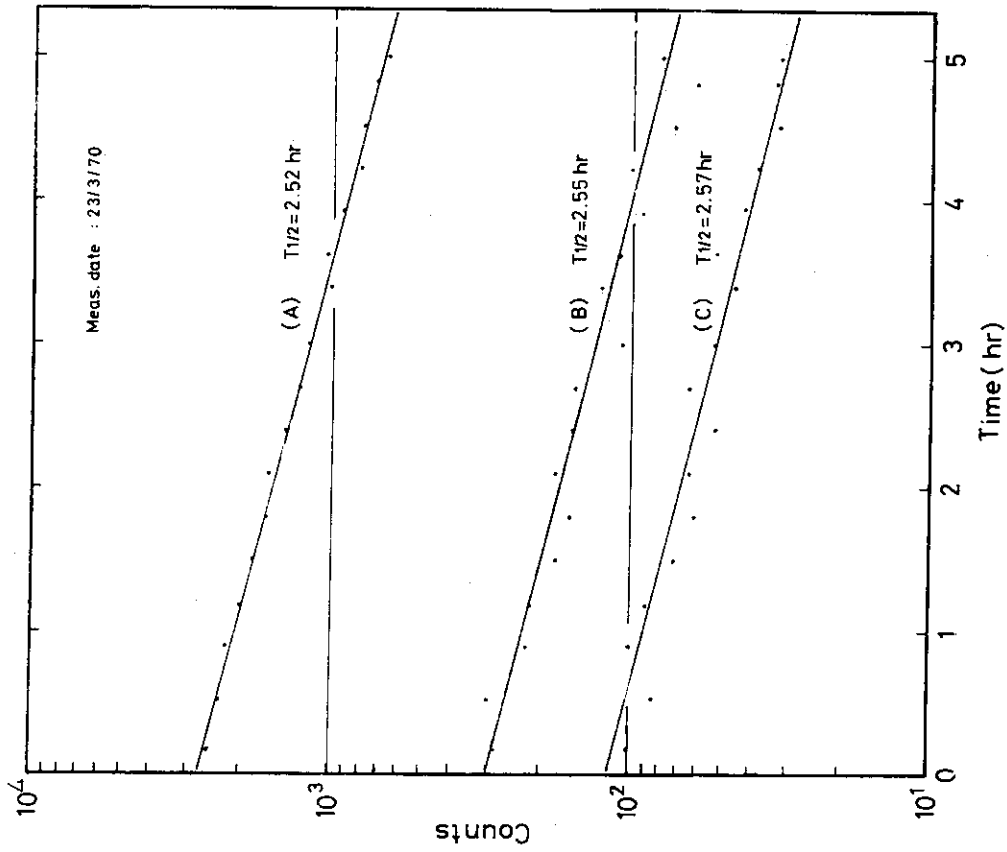


Fig.12 Decay plots for the photopeaks

- (A) ^{56}Mn (0.847 MeV)
- (B) ^{56}Mn (1.810 MeV)
- (C) ^{56}Mn (2.110 MeV)

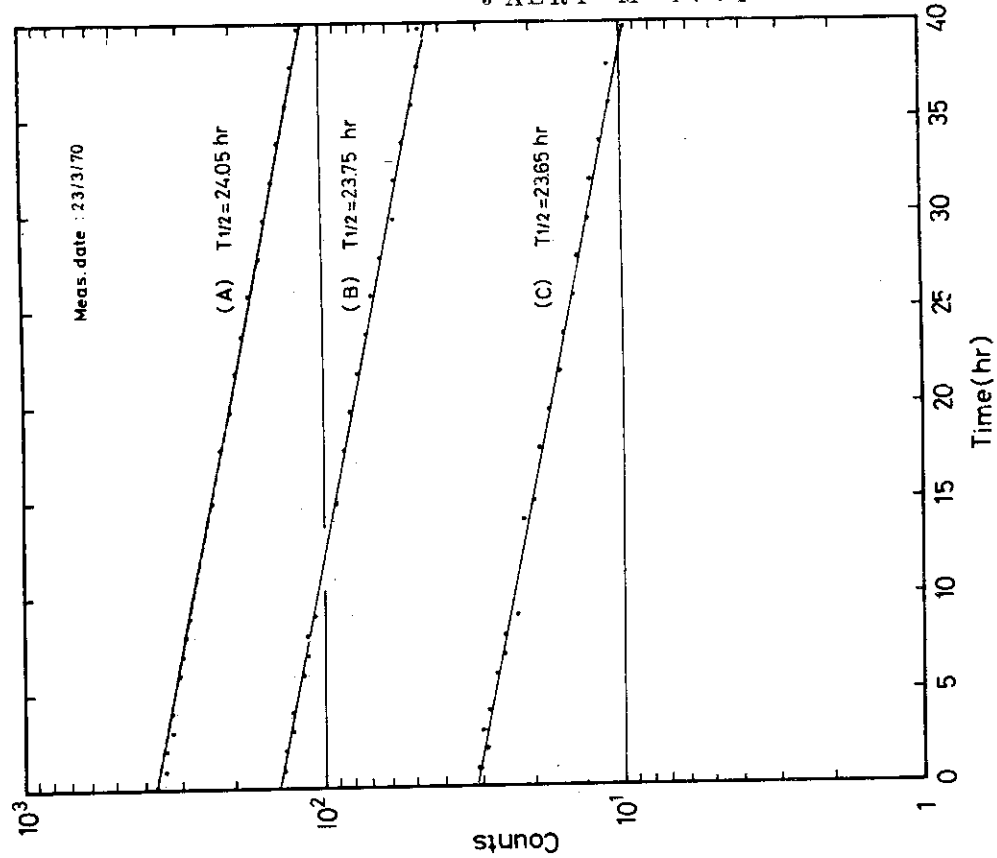


Fig.14 Decay plots for the photopeaks

- (A) ^{187}W (0.134 MeV)
- (B) ^{187}W (0.480 MeV)
- (C) ^{187}W (0.618 MeV)

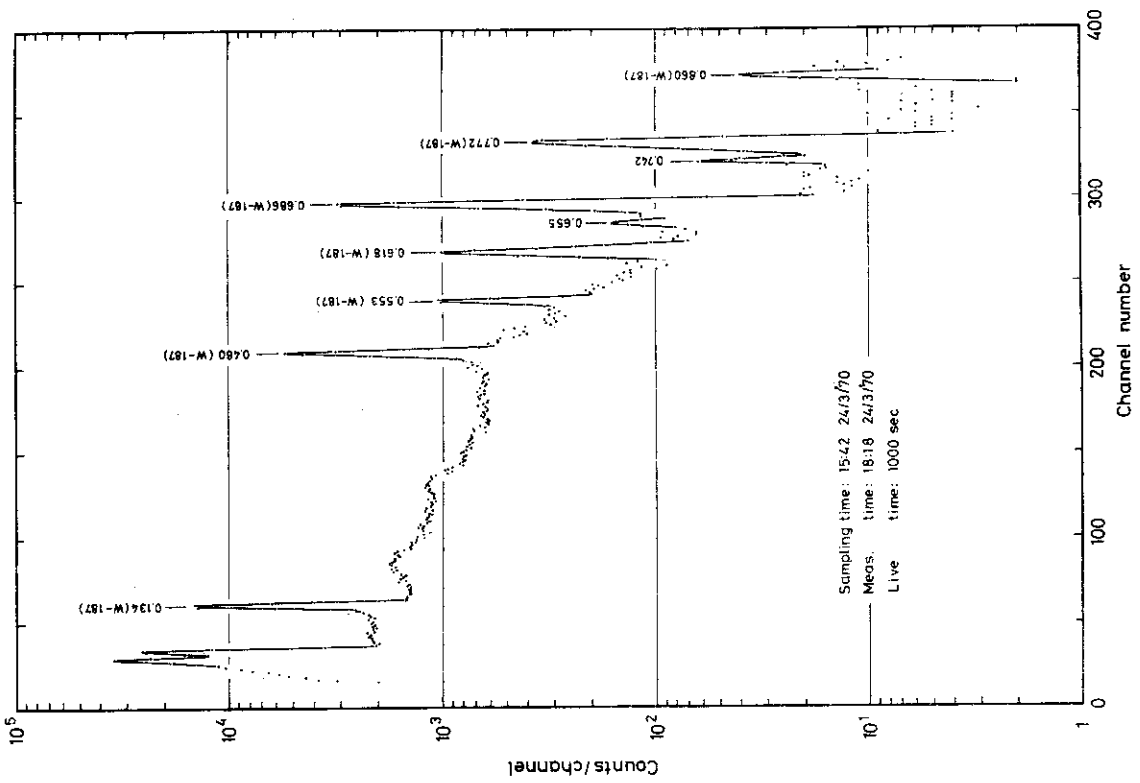


Fig.13 Gamma-ray spectrum of tungstene separated from the heavy water by precipitation method

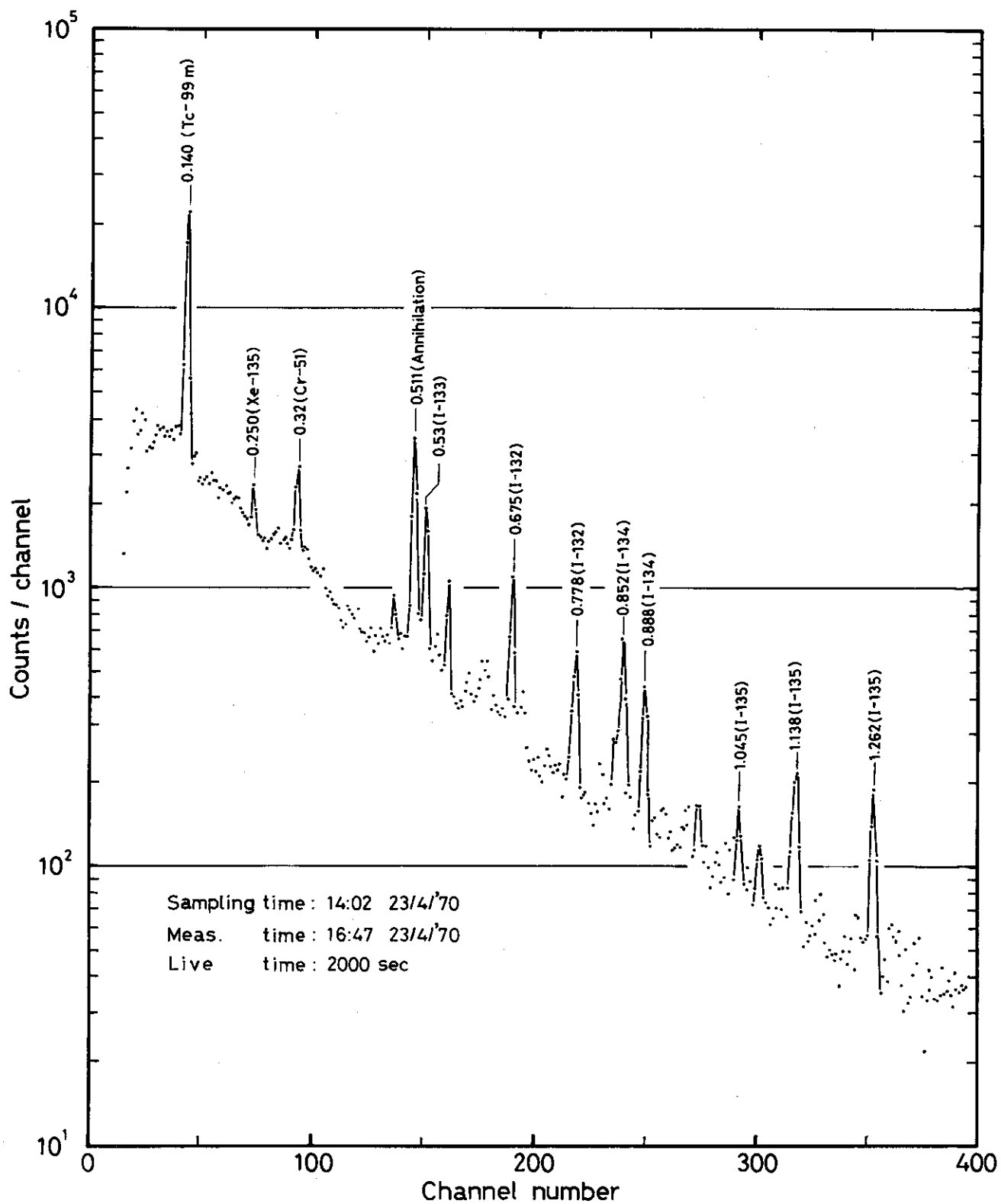


Fig.15 Gamma-ray spectrum of fission products separated from the heavy water by anion resin bed

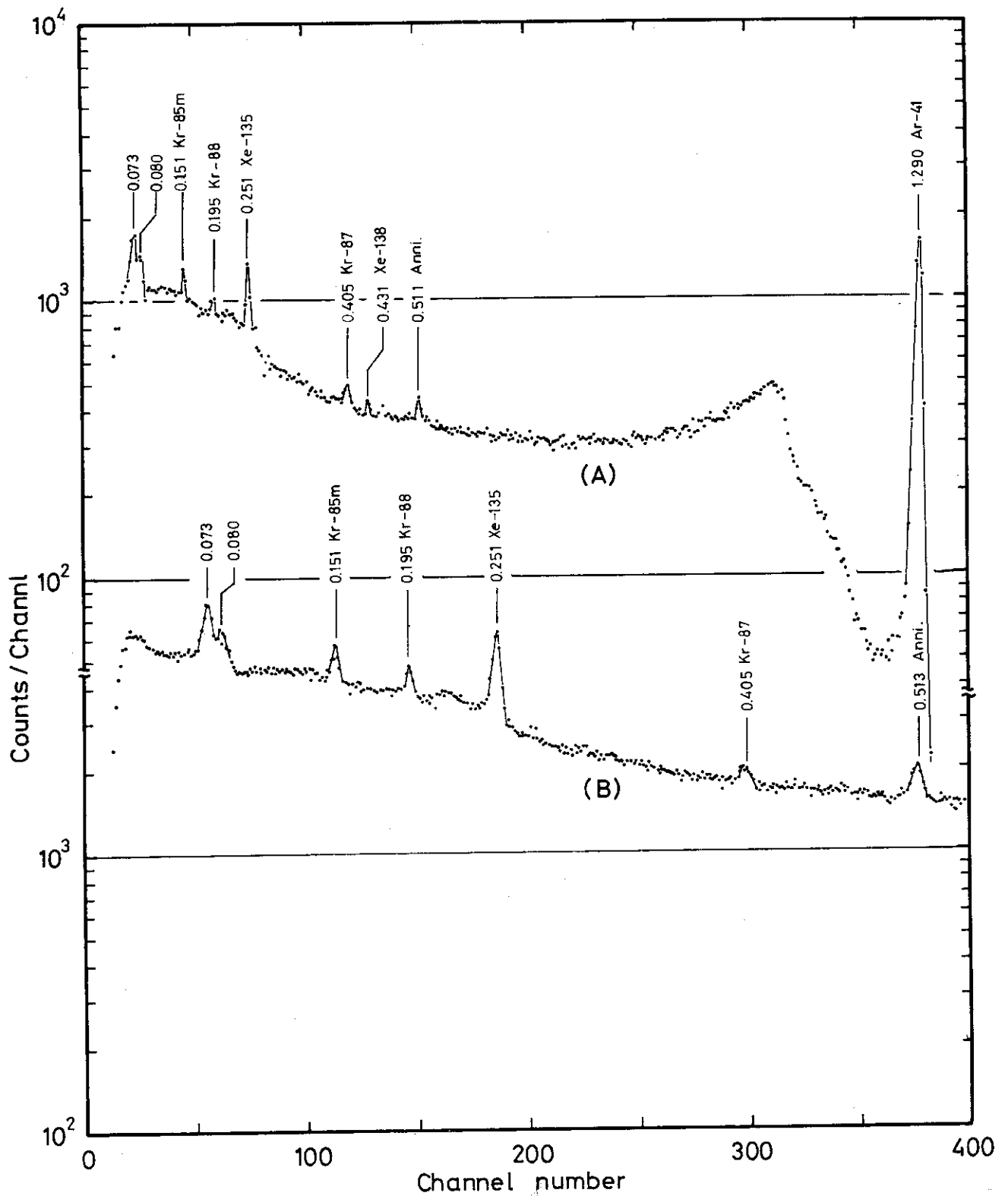


Fig.16 Gamma-ray spectra from reactor cover gas (helium gas)
 (A) gamma-ray energy 0.0 MeV - 1.35 MeV
 (B) gamma-ray energy 0.0 MeV - 0.55 MeV

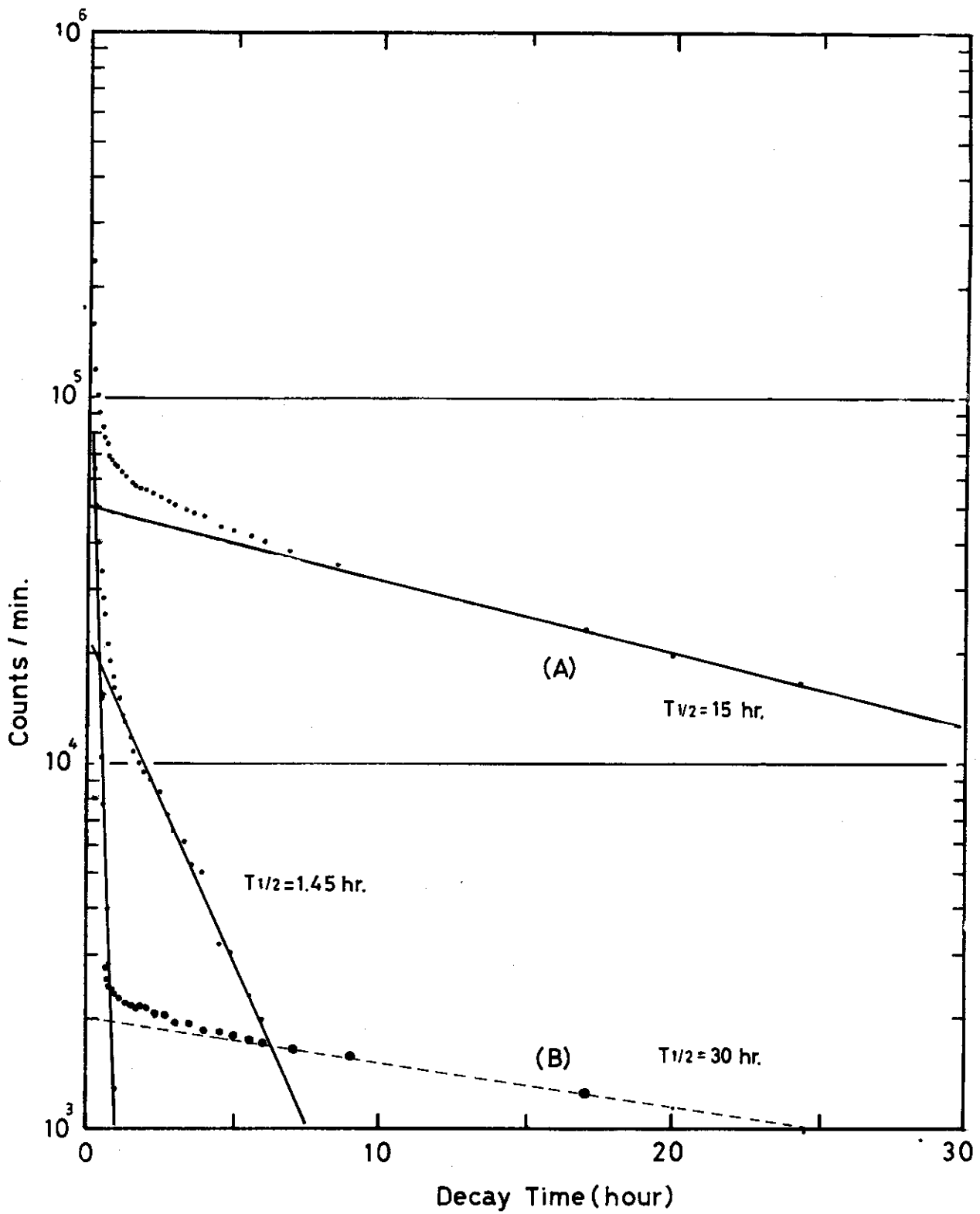


Fig.A1 Decay plots of the activities in the primary cooling heavy water

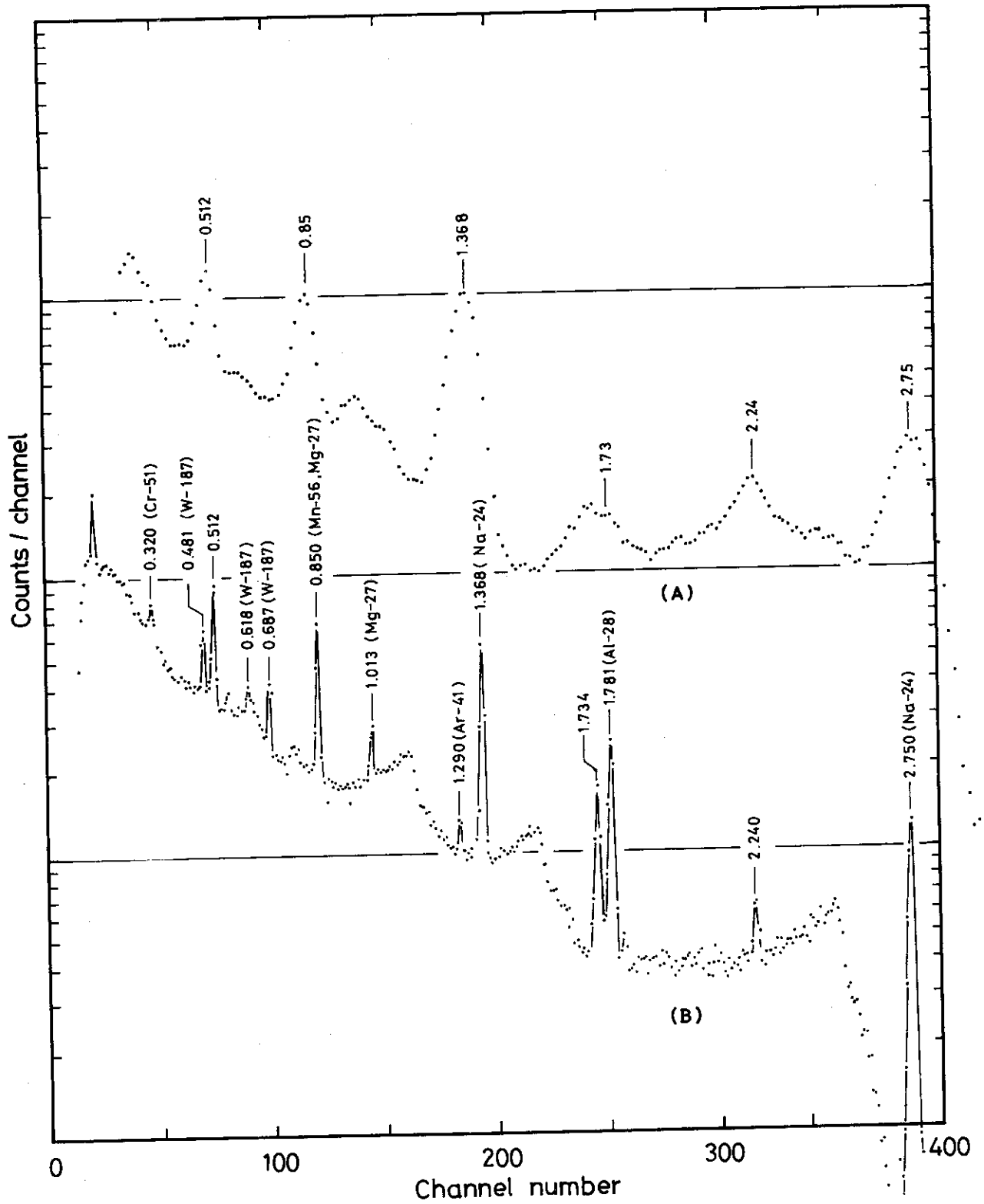


Fig.B1 Gamma-ray spectra from the primary cooling heavy water measured with NaI(Tl) detector and Ge(Li) detector
 (A) NaI(Tl) detector
 (B) Ge(Li) detector