

JAERI-M
83-007

OWL-1 ループ1次冷却系に放出された
FPの測定

1983年3月

山本 克宗・横内猪一郎・岡川 誠吾
比佐 勇・石渡 名澄

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

JAERI-M レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。

入手の問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。なお、このほかに財團法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Section, Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1983

編集兼発行 日本原子力研究所
印 刷 日立高速印刷株式会社

OWL-1 ループ 1 次冷却系に放出された FP の測定

日本原子力研究所大洗研究所材料試験炉部

山本克宗・横内猪一郎・岡川誠吾⁺

比佐 勇・石渡名澄⁺⁺

(1983年1月19日受理)

JMTR の高温高圧炉内水ループ (OWL-1) を用いて、人工欠陥燃料照射による一連の FP 放出実験が行われ、この実験中に、ループ 1 次冷却系内に放出された FP 核種(および ^{239}Np)を測定した。

ループ 1 次冷却水中での放射性ヨウ素の化学形は主として I^- であったが、原子炉停止直後には $\text{I}^{+5}, +7(\text{IO}_3^-, \text{IO}_4^-)$ が 50 %以上になることもあった。ループ 1 次系内に挿入した金属板試料には主として ^{131}I , ^{99}Mo , ^{239}Np が付着した。FP 放出実験終了後に配管等の壁面に付着して 1 次系内に残留している ^{131}I の量と、系内水洗時の水中 ^{131}I 濃度との関係について検討した。

この他に、イオン交換樹脂塔による ^{131}I の除去効率、ループの気水分離器内での ^{131}I の気液分配、水中の FP の存在形態などについて測定を行った。また、放射性ヨウ素について、照射初期、定常運転時および冷却水条件変動時の R/B(放出速度／生成速度)と崩壊定数との関係をプロットし、人工欠陥燃料からのこれらの核種の放出について若干の考察を行った。

+ 東海研究所 環境安全研究部

++ 東海研究所 安全工学部

Measurements of Fission Products Released in Primary Cooling System of OWL-1 Loop

Katsumune YAMAMOTO, Iichiro YOKOUCHI, Seigo OKAGAWA⁺, Isamu HISA and Nasumi ISHIWATARI⁺⁺

Division of JMTR Project, Oarai Research Establishment,

JAERI

(Received January 19, 1983)

Fission products (FPs) and ^{239}Np were measured during a series of FP release experiments in a high-temperature, high-pressure in-pile water loop (OWL-1) in the JMTR at JAERI. The main chemical form of FP iodine in the loop water was I^- . Iodate sometimes became the dominant species just after reactor shutdown. Main nuclides plated out on the metal specimens which had been installed in the primary system of the loop were ^{131}I , ^{99}Mo and ^{239}Np . The relationship between the ^{131}I amount remained on the system walls and the ^{131}I concentration in the rinsing water of the loop was discussed. Removal efficiency for ^{131}I in the cleanup system, partition coefficient for ^{131}I in the steam-liquid separator and chemical states of some FPs in the loop water were also measured. R/B (release rate/birth rate) versus λ (decay constant) plots for radioiodines were obtained at the initial stage of irradiation, at the steady state of loop operation and at the fluctuation of the conditions of the loop.

⁺ Division of Environmental Safety Research, Tokai Research Establishment, JAERI

⁺⁺ Division of Nuclear Safety Research, Tokai Research Establishment, JAERI

water. A brief discussion on the slopes of the plots was presented in connection with the release tendency of radioiodines.

Keywords : In-pile Water Loop, Chemical Form, Plateout, Cleanup Efficiency, Partition Coefficient, Gamma Ray Spectrum, FP Concentration, FP Release, FP Release Rate, FP Birth Rate, Failed Fuel, Primary System

目 次

1.はじめに	1
2.OWL-1の概要	1
3.FP放出実験の概要	1
4.測定項目と測定法	2
4.1 γ線スペクトルの測定	2
4.2 FP濃度の測定	2
4.3 精製系における ¹³¹ Iの除去効率の測定	3
4.4 ループ気水分離器における ¹³¹ Iの気液分配の測定	3
4.5 1次冷却水中のFPの存在形態の測定	3
4.6 1次冷却水中の放射性ヨウ素の化学形の測定	4
4.7 金属材料へのFP付着量の測定	4
5.結果および考察	5
5.1 γ線スペクトル	5
5.2 1次冷却水中の放射性ヨウ素濃度	6
5.3 ヨウ素および希ガスのR/Bとλの関係	6
5.4 精製系における ¹³¹ Iの除去効率	7
5.5 ループ気水分離器における ¹³¹ Iの気液分配	8
5.6 1次冷却水中のFPの存在形態	9
5.7 1次冷却水中の放射性ヨウ素の化学形	10
5.8 金属材料へのFPの付着	11
6.まとめ	13
文 献	14
付録 I R/Bの計算法	16
付録 II 反跳によるFP放出例	19

Contents

1.	Introduction	1
2.	Description of OWL-1	1
3.	Description of fission product release experiments	1
4.	Analyses	2
4.1	Gamma spectrometric analysis	2
4.2	Determination of fission product concentration	2
4.3	Removal efficiency for ^{131}I in cleanup system	3
4.4	Distribution of iodine between steam and water in primary system ..	3
4.5	Chemical states of fission products in loop water	3
4.6	Chemical forms of radioiodine in loop water	4
4.7	Plateout of fission products on metal surface	4
5.	Results and discussion	5
5.1	Gamma-ray spectra	5
5.2	Concentration of radioiodines in loop water	6
5.3	Dependence of R/B for radioiodines and rare gases on decay constants	6
5.4	Removal efficiency for ^{131}I in cleanup system	7
5.5	Distribution of ^{131}I between steam and water in primary system	8
5.6	Chemical states of fission products in loop water	9
5.7	Chemical forms of radioiodine in loop water	10
5.8	Plateout of fission products on metal surface	11
6.	Conclusion	13
	References	14
	Appendix I Calculation method of R/B	16
	Appendix II Examples of fission product release by recoil mechanism	19

List of tables

Table 1 Chemical composition of specimens for FP plateout experiments

Table 2 Distribution of ^{131}I and ^{24}Na between steam and water

Table 3 Chemical states of FPs in the loop water

Table 4 Chemical forms of ^{131}I in the loop water

Table 5 Nuclear parameters for FP gases and iodines

List of figures

- Fig.1 Schematic flow diagram of OWL-1
- Fig.2 Assembly for FP plateout experiment
- Fig.3 γ -ray spectrum of the loop water at the beginning of an FP release experiment
- Fig.4 γ -ray spectrum of the loop water on the next day of reactor powerup
- Fig.5 γ -ray spectrum of the loop water in the middle of an FP release experiment
- Fig.6 γ -ray spectrum of the loop water at the end of an FP release experiment
- Fig.7 γ -ray spectrum of the loop water measured 4 days after sampling
- Fig.8 γ -ray decay curves of the loop water
- Fig.9-1 ^{131}I activity variation during an FP release experiment
- Fig.9-2 ^{131}I activity variation during an FP release experiment
- Fig.9-3 ^{131}I activity variation during an FP release experiment
- Fig.10 Activity variations of radioiodines in the loop water
- Fig.11 Variations of concentration ratios of $^{132},^{133},^{134},^{135}\text{I}$ to ^{131}I
- Fig.12 Dependence of R/B on the decay constant
- Fig.13 Dependence of R/B on the decay constant
- Fig.14 Dependence of mixed-bed demineralizer decontamination factor on ^{131}I concentration in influent

Fig.15 Relationship between ^{131}I concentrations in effluent and influent of mixed-bed demineralizer

Fig.16 Variations of activity and chemical forms of ^{131}I during reactor shutdown

Fig.17 } γ -ray spectrum of FP plateout specimen

Fig.28 }

Fig.29 Plateout activity of ^{131}I on various materials

Fig.30 Plateout activity of ^{132}Te on various materials

Fig.31 Plateout activity of ^{99}Mo on various materials

Fig.32 Plateout activity of ^{239}Np on various materials

Fig.33 Relationship between ^{131}I activities on the loop walls and in the loop water

Fig.34 Log(R/B) versus $\log\lambda$ plots for radioiodines in the primary coolant of OWL-1 contaminated with UO_2

Fig.35 Log(R/B) versus $\log\lambda$ plots for radioiodines in the primary coolant of JMTR

1. はじめに

日本原子力研究所大洗研究所の材料試験炉（JMTR）の照射装置の1つである炉内高温高圧水ループ（OWL-1）を用いて、軽水炉燃料からの核分裂生成物（FP）の放出挙動を解明するため、昭和46年以来9回にわたって人工欠陥燃料の照射実験（通称：FP放出実験）が行われてきた。この実験では、生成したFPが人工欠陥孔を通してループ1次冷却水中に放出されるため、水中の各種FP濃度、水中でのFPの存在形態、イオン交換樹脂塔での除去効率等について測定することが施設内の放射線安全上およびFP放出実験遂行上必要であった。この報告書はこれらの測定結果を整理してまとめ、若干の考察を加えたものである。ただし、FP放出実験では後に述べるように¹³¹I濃度の変化を詳細に追跡したため、本報告に述べる測定は必要最小限に止まった。したがって厳密な考察を加えるには測定データが不足している点が多い。今後上述のような実験を行う際にはこれらの点を補いつつ、より完全な解析を可能とするような測定データを収集することが望ましい。

2. OWL-1 の概要

炉内高温高圧水ループであるOWL-1については別報¹⁾に詳述したのでここでは概略のみを記す。Fig.1にフローシートを示した。OWL-1の最高使用温度、圧力はそれぞれ320°Cと14.8 MPaであるが、大部分のFP放出実験での1次冷却水条件は通常、温度250°C、圧力7.1 MPa、流量45 kg/minであった。また1次冷却水の水質は大体において、pH 6～8、導電率1 μS/cm以下、塩素イオン濃度0.1 ppm以下であり、溶存酸素濃度は沸騰水型運転時で約100 ppb、加圧水型運転時で約5 ppbであった。OWL-1 1次冷却水の全量は通常運転時で約700 lである。またOWL-1の主な構造材料はSUS 304とSUS 316（炉内管部）である。

3. FP放出実験の概要

OWL-1を用いた人工欠陥孔付燃料試料の照射実験は昭和46年の第1回実験以来合計9回にわたって行われてきた。このFP放出実験の目的は、軽水炉中での破損燃料からのFPの放出機構の解明（目的の詳細については文献1）を参照）であり、実施に当っては、測定作業が容易であることと放射線被曝評価の上で重要であるという理由により、放出FPのうち¹³¹Iに着目してループ1次冷却水中の濃度を詳細に追跡した。¹³¹I濃度の測定結果、照射試料の詳細、照射後試験の結果などは既に実験データ集として報告した^{1)～3)}。

1. はじめに

日本原子力研究所大洗研究所の材料試験炉（JMTR）の照射装置の1つである炉内高温高圧水ループ（OWL-1）を用いて、軽水炉燃料からの核分裂生成物（FP）の放出挙動を解明するため、昭和46年以来9回にわたって人工欠陥燃料の照射実験（通称：FP放出実験）が行われてきた。この実験では、生成したFPが人工欠陥孔を通してループ1次冷却水中に放出されるため、水中の各種FP濃度、水中でのFPの存在形態、イオン交換樹脂塔での除去効率等について測定することが施設内の放射線安全上およびFP放出実験遂行上必要であった。この報告書はこれらの測定結果を整理してまとめ、若干の考察を加えたものである。ただし、FP放出実験では後に述べるように¹³¹I濃度の変化を詳細に追跡したため、本報告に述べる測定は必要最小限に止まった。したがって厳密な考察を加えるには測定データが不足している点が多い。今後上述のような実験を行う際にはこれらの点を補いつつ、より完全な解析を可能とするような測定データを収集することが望ましい。

2. OWL-1 の概要

炉内高温高圧水ループであるOWL-1については別報¹⁾に詳述したのでここでは概略のみを記す。Fig.1にフローシートを示した。OWL-1の最高使用温度、圧力はそれぞれ320°Cと14.8 MPaであるが、大部分のFP放出実験での1次冷却水条件は通常、温度250°C、圧力7.1 MPa、流量45 kg/minであった。また1次冷却水の水質は大体において、pH 6～8、導電率1 μS/cm以下、塩素イオン濃度0.1 ppm以下であり、溶存酸素濃度は沸騰水型運転時で約100 ppb、加圧水型運転時で約5 ppbであった。OWL-1 1次冷却水の全量は通常運転時で約700 ℥である。またOWL-1の主な構造材料はSUS 304とSUS 316（炉内管部）である。

3. FP放出実験の概要

OWL-1を用いた人工欠陥孔付燃料試料の照射実験は昭和46年の第1回実験以来合計9回にわたって行われてきた。このFP放出実験の目的は、軽水炉中での破損燃料からのFPの放出機構の解明（目的の詳細については文献1）を参照）であり、実施に当っては、測定作業が容易であることと放射線被曝評価の上で重要であるという理由により、放出FPのうち¹³¹Iに着目してループ1次冷却水中の濃度を詳細に追跡した。¹³¹I濃度の測定結果、照射試料の詳細、照射後試験の結果などは既に実験データ集として報告した^{1)～3)}。

1. はじめに

日本原子力研究所大洗研究所の材料試験炉（JMTR）の照射装置の1つである炉内高温高圧水ループ（OWL-1）を用いて、軽水炉燃料からの核分裂生成物（FP）の放出挙動を解明するため、昭和46年以来9回にわたって人工欠陥燃料の照射実験（通称：FP放出実験）が行われてきた。この実験では、生成したFPが人工欠陥孔を通してループ1次冷却水中に放出されるため、水中の各種FP濃度、水中でのFPの存在形態、イオン交換樹脂塔での除去効率等について測定することが施設内の放射線安全上およびFP放出実験遂行上必要であった。この報告書はこれらの測定結果を整理してまとめ、若干の考察を加えたものである。ただし、FP放出実験では後に述べるように¹³¹I濃度の変化を詳細に追跡したため、本報告に述べる測定は必要最小限に止まった。したがって厳密な考察を加えるには測定データが不足している点が多い。今後上述のような実験を行う際にはこれらの点を補いつつ、より完全な解析を可能とするような測定データを収集することが望ましい。

2. OWL-1 の概要

炉内高温高圧水ループであるOWL-1については別報¹⁾に詳述したのでここでは概略のみを記す。Fig.1にフローシートを示した。OWL-1の最高使用温度、圧力はそれぞれ320°Cと14.8 MPaであるが、大部分のFP放出実験での1次冷却水条件は通常、温度250°C、圧力7.1 MPa、流量45 kg/minであった。また1次冷却水の水質は大体において、pH 6~8、導電率1 μS/cm以下、塩素イオン濃度0.1 ppm以下であり、溶存酸素濃度は沸騰水型運転時で約100 ppb、加圧水型運転時で約5 ppbであった。OWL-1 1次冷却水の全量は通常運転時で約700 lである。またOWL-1の主な構造材料はSUS 304とSUS 316（炉内管部）である。

3. FP放出実験の概要

OWL-1を用いた人工欠陥孔付燃料試料の照射実験は昭和46年の第1回実験以来合計9回にわたって行われてきた。このFP放出実験の目的は、軽水炉中での破損燃料からのFPの放出機構の解明（目的の詳細については文献1）を参照）であり、実施に当っては、測定作業が容易であることと放射線被曝評価の上で重要であるという理由により、放出FPのうち¹³¹Iに着目してループ1次冷却水中の濃度を詳細に追跡した。¹³¹I濃度の測定結果、照射試料の詳細、照射後試験の結果などは既に実験データ集として報告した^{1)~3)}。

これらのFP放出実験では、濃縮度1.5%（1例のみ2.7%）のUO₂ペレット1ヶ又は2ヶを、側面に50～500μの人工欠陥孔をあけたステンレス鋼製（1例のみジルカロイ-2製）被覆管に入れ、OWL-1の炉内管内で線出力密度約400W/cm（計算値）で照射した。1回のFP放出実験の照射日数は最短9日、最長24日、平均で約18日であった。この間に、冷却水条件の変動（以下外乱とする）時のFP放出挙動を調べるために、ループ1次冷却水に、△p（冷却水圧力の変動幅）=1 MPa（または0.2 MPa）の圧力変動、および△T（冷却水温度の変動幅）=10～150°Cの温度変動を与えた。ループ1次冷却水中の¹³¹I濃度は外乱によって変化したが、第1回から第8回までの実験では最高値はいずれも0.5 μCi/ml程度であった。また定常運転時の¹³¹I濃度は各実験間でかなり差があったが、大体10⁻³～10⁻¹ μCi/mlの範囲であった。第9回実験では予定した線出力密度が得られなかったと推定されるため、¹³¹I濃度は最高で0.01 μCi/mlであった。

4. 測定項目と測定法

4.1 γ線スペクトルの測定

OWL-1 1次冷却水などのγ線スペクトル測定用試料を、容量約20mlの低カリウムバイアル瓶（以下単にバイアル瓶と記す）に入れ、Ge(Li)検出器（ORTEC社製、分解能2.3 keV at 1333 keV）と1024チャネル・マルチチャネルアナライザー（CANBERRA社製8100型）によって測定した。以下のすべてのγ線測定にこの装置を使用した。

4.2 FP濃度の測定

(1) 直接測定法

ポリエチレン瓶に採取したループ1次水を一定量、バイアル瓶に移し、γ線測定によりFP濃度を求めた。水溶液をバイアル瓶に入れた場合のγ線の計数効率は、フランスCEA製の標準液（⁶⁰Co, ⁷⁵Se, ⁹⁵Zr, ¹³¹I, ²⁴¹Am）を用いて求めた。

希ガスは通常のサンプリング法では約1/2が水中から空気中に逃げてしまうため、水中の放射性希ガス濃度の測定は次のようにして行った。サンプリング配管の末端をバイアル瓶の中にさし込み、試料水を十分流して瓶からあふれさせ、配管を瓶から引き出した直後に瓶に蓋をした。このバイアル瓶を直接γ線測定した。この場合の試料水の体積は24.5mlであった。

(2) イオン交換膜による測定法

試料水を4.5で述べるイオン交換膜に通し、各イオン交換膜をバイアル瓶の底部に挿入してγ線測定をし、FP濃度を求めた。この場合のγ線計数効率はバイアル瓶に1mlの液体線源が入っている状態の値と等価であると仮定した。

これらのFP放出実験では、濃縮度1.5%（1例のみ2.7%）のUO₂ペレット1ヶ又は2ヶを、側面に50～500μの人工欠陥孔をあけたステンレス鋼製（1例のみジルカロイ-2製）被覆管に入れ、OWL-1の炉内管内で線出力密度約400W/cm（計算値）で照射した。1回のFP放出実験の照射日数は最短9日、最長24日、平均で約18日であった。この間に、冷却水条件の変動（以下外乱とする）時のFP放出挙動を調べるために、ループ1次冷却水に、△p（冷却水圧力の変動幅）=1 MPa（または0.2 MPa）の圧力変動、および△T（冷却水温度の変動幅）=10～150°Cの温度変動を与えた。ループ1次冷却水中の¹³¹I濃度は外乱によって変化したが、第1回から第8回までの実験では最高値はいずれも0.5 μCi/ml程度であった。また定常運転時の¹³¹I濃度は各実験間でかなり差があったが、大体10⁻³～10⁻¹ μCi/mlの範囲であった。第9回実験では予定した線出力密度が得られなかったと推定されるため、¹³¹I濃度は最高で0.01 μCi/mlであった。

4. 測定項目と測定法

4.1 γ線スペクトルの測定

OWL-1 1次冷却水などのγ線スペクトル測定用試料を、容量約20mlの低カリウムバイアル瓶（以下単にバイアル瓶と記す）に入れ、Ge(Li)検出器（ORTEC社製、分解能2.3 keV at 1333 keV）と1024チャンネル・マルチチャンネルアナライザー（CANBERRA社製8100型）によって測定した。以下のすべてのγ線測定にこの装置を使用した。

4.2 FP濃度の測定

(1) 直接測定法

ポリエチレン瓶に採取したループ1次水を一定量、バイアル瓶に移し、γ線測定によりFP濃度を求めた。水溶液をバイアル瓶に入れた場合のγ線の計数効率は、フランスCEA製の標準液（⁶⁰Co, ⁷⁵Se, ⁹⁵Zr, ¹³¹I, ²⁴¹Am）を用いて求めた。

希ガスは通常のサンプリング法では約1/2が水中から空気中に逃げてしまうため、水中の放射性希ガス濃度の測定は次のようにして行った。サンプリング配管の末端をバイアル瓶の中にさし込み、試料水を十分流して瓶からあふれさせ、配管を瓶から引き出した直後に瓶に蓋をした。このバイアル瓶を直接γ線測定した。この場合の試料水の体積は24.5mlであった。

(2) イオン交換膜による測定法

試料水を4.5で述べるイオン交換膜に通し、各イオン交換膜をバイアル瓶の底部に挿入してγ線測定をし、FP濃度を求めた。この場合のγ線計数効率はバイアル瓶に1mlの液体線源が入っている状態の値と等価であると仮定した。

(3) 抽出による放射性ヨウ素の測定法

精製系出口から採取した試料水などのようにヨウ素濃度が低い場合は、別報に述べた KI + KIO_3 混合キャリヤー法によりヨウ素を抽出濃縮してから γ 線測定を行った。⁴⁾

4.3 精製系における ^{131}I の除去効率の測定

OWL-1 の精製系のイオン交換樹脂塔の入口部と出口部から試料水を採取し、入口部は直接測定法で、出口部は抽出法でそれぞれ ^{131}I 濃度を測定した。これらの結果から次式によって ^{131}I の除去効率 (F) を求めた。

$$F = \frac{\text{精製系出口の } ^{131}I \text{ 濃度}}{\text{精製系入口の } ^{131}I \text{ 濃度}} \quad (1)$$

なお、このイオン交換樹脂塔は、カチオン樹脂 (Amberlite IR-120) 量：アニオン樹脂 (Amberlite IRA-410) 量 = 1 : 2 の混床型であり、全樹脂量は 10ℓ である。イオン交換樹脂塔にはほとんどの場合、FP 放出実験直前に未使用樹脂を装填した。また、精製系の流量は $3 \pm 0.3 \text{ kg/min}$ とした。この場合のイオン交換塔内での線流速は約 6 mm/s となる。

4.4 ループ気水分離器における ^{131}I の気液分配の測定

OWL-1 の沸騰水型運転時には、水中の ^{131}I は、炉内管入口部のヒーター管内で発生する水蒸気と共に炉内管内を流れ (Fig.1 参照)，その間に ^{131}I の一部は水蒸気の気泡内に移行する。この気液二層流は気水分離器 (遠心式) 内で気相と液相に分離される。この気水分離器による ^{131}I の気液分配を調べるために、気水分離器の液相出口と気相出口からほぼ同時にループ水を採取し、各々の ^{131}I 濃度を測定した。なお、OWL-1 の各サンプリングラインには冷却器がついているため、気水分離器気相出口の試料は凝縮水となって採取された。これらの濃度測定結果から次式により、1 次系内での ^{131}I の気液分配係数 (H) を求めた。

$$H = \frac{\text{気水分離器液相出口の } ^{131}I \text{ 濃度 (C}_l, \mu\text{Ci/ml})}{\text{気水分離器気相出口の } ^{131}I \text{ 濃度 (C}_g, \mu\text{Ci/ml 凝縮水)}} \quad (2)$$

気水分離器内では通常、非揮発性物質が微少な水滴に付着して蒸気相に移行する、いわゆる飛沫同伴現象が生ずる。飛沫同伴効果が大きいと見かけ上 H の値が小さく得られることになるため、OWL-1 の運転条件下ではほとんど揮発性がないと考えられる ^{24}Na についても ^{131}I と同時に同様の測定を行い、飛沫同伴の割合も測定した。 ^{24}Na は通常の OWL-1 の水質条件下では濃度が非常に低いので、精製系のイオン交換塔をバイパス運転としてから、0.12 g/ml Na_2SO_4 水溶液 5 ml を 1 次系内に注入して ^{24}Na を生成させた。約 2 日間イオン交換塔バイパスのままループの運転を続けた後、 ^{131}I と ^{24}Na の気液分配係数の測定を同時に行った。

4.5 1 次冷却水中の FP の存在形態の測定

OWL-1 1 次系から採取した 250~1000 ml の試料水を直ちに平均孔径 0.45μ のメンブランフ

ィルター（フィルターAとする）を用いて50ml/minの流速で沪過し、最後に数mlの純水で洗浄した。次いで沪液を、カチオン交換膜3枚（上からフィルターB, C, D）、アニオン交換膜2枚（上からフィルターE, F）の合計5枚をこの順に重ねた沪過器に、2ml/min以下の流速で通した。試料水通水後数mlの純水で洗浄し、フィルターAからFを1枚づつそれぞれ別個のバイアル瓶の底部に入れて γ 線測定を行った。なお、メンプランフィルターはMILLI-PORE社製HAWP型を、またカチオン交換膜とアニオン交換膜はそれぞれGELMAN INSTRUMENT社製アクロポアSA 6404型とSB 6407型を用いた。

イオン交換膜に通す前に、試料水を採取後直ちにしかも比較的高流速でフィルターAで沪過したのは、微粒子として存在する成分が、採取ビンや沪過器の壁面に付着したりすることをできるだけ少なくするためである。また、イオン交換膜を2枚以上用いたのは捕集効率を大きくするためである。

4.6 1次冷却水中の放射性ヨウ素の化学形の測定

ループの定常運転時および外乱付与時に炉内管入口又は炉内管出口から1次冷却水を採取し、直ちに分離操作を行い、分離後 γ 線測定により放射性ヨウ素の各化学形態の割合を求めた。化学形の測定法は主としてCastlemanの方法⁵⁾に依ったが、測定法の詳細については既報⁴⁾に述べた。

4.7 金属材料へのFP付着量の測定

(1) FP付着測定用試料

(a) 板状試料

板状試料としてTable 1に示す9種類の金属を用いた。各金属の厚さ1.0~1.2mmの板材から20mm×10mmの試験片を切り出し、as receivedまたはエメリー800番で研磨して実験に供した。試験片は、中性洗剤、水道水、イオン交換水、アセトンの順に超音波洗浄を行い、自然乾燥後重量測定をし、ホルダーに組んだ後、OWL-1の炉外テストセクション（以下炉外T/Sと記す）No.1（炉内管入口部）とNo.2（炉内管出口部）に挿入した。試験片を組んだホルダーの写真をFig.2に示した。

(b) 照射試料ハンガー

OWL-1の炉内管内で照射試料を吊り下げているパイプ（試料ハンガー：SUS 304製、長さ約7m、外径16mm、肉厚2mm）を、FP放出実験終了後に取り出して切断し、その一部をFP付着量測定用試料とした。

(c) 1次系配管

FP放出実験後に補修のために切り出されたOWL-1 1次系配管（主冷却器のバイパス配管：運転中は常時1次冷却水が流れている部分のSUS 304製パイプ、内径38.4mm、肉厚5.1mm）の一部を試料とした。

(2) FP 付着量の測定

(a) 板状試料

FP 放出実験終了後にループ 1 次系内を純水で洗浄した後、炉外 T/S から付着量測定用試料を取り出した。直ちにホルダーを解体し、試験片を 1 枚づつポリエチレン棒状ビン (16 mm ϕ × 86.5 mmH) に入れて γ 線測定を行った。板状試料の計数効率は、まず 1 枚の試験片を上記のように直接 γ 線測定 (A) し、次にこの試験片上の酸化皮膜を王水で溶解して一定量の溶液としてから γ 線測定を行って各核種量を求め (B)，A と B の結果を比較するという方法で求めた。

また ^{131}I の付着量を測定する際に、 ^{60}Co によるバックグラウンドが高くて直接測定法が適用できない場合は、AP-Citrox 法^{脚注)}により酸化皮膜を溶解し、この溶液から ^{131}I を四塩化炭素で抽出する方法で ^{131}I の付着量を求めた。予備実験の結果ではこの方法による ^{131}I の回収率はほぼ 100% であった。

(b) 照射試料ハンガー

FP 放出実験後に切断された試料ハンガーの一部（長さ約 50cm）をさらに金切鋸で約 1.5 cm づつ輪切りにして測定用試料を作り、秤量ビンに入れて γ 線測定を行った。リング状試料の γ 線計数効率は板状試料と同様な方法によって求めた。

(c) 1 次系配管

切り出した配管を長さ 5 cm の輪切りにし、これを縦に 3 分割してハツ橋状の試片にした。これをポリエチレン袋に入れて直接 γ 線測定を行った。 γ 線計数効率は板状試料と同様にして求めた。

5. 結果および考察

5.1 γ 線スペクトル

FP 放出実験中のループ 1 次冷却水の代表的な γ 線スペクトルを Fig.3~6 に示した。水中の FP 核種は、 ^{84}Br ($T_{1/2} = 31.8\text{ min}$)， $^{85\text{m}}\text{Kr}$ (4.4 h)， ^{88}Rb (17.8 min)， $^{99\text{m}}\text{Tc}$ (6.0 h)， ^{131}I (8.04 d)， ^{132}I (2.28 h)， ^{133}I (20.3 h)， ^{134}I (53.0 min)， ^{135}I (6.68 h)， ^{133}Xe (5.29 d)， ^{138}Cs (32.3 min) など、ハロゲン、希ガスおよびその娘核種が支配的であった。

γ 線スペクトルは 1 回の FP 放出実験中（1 運転サイクル中）でもかなり変化しており、実験初期には ^{134}I ， ^{84}Br などの γ 線ピークが目立ち、末期には ^{88}Rb ， $^{131}, 132, 133\text{I}$ ， ^{135}I のピークが相対的に大きくなかった。 ^{138}Cs は FP 放出実験を通じて、採取直後のループ水の γ 線スペクトルの中で目立つ存在であった。したがって ^{138}Cs の 1436 keV の γ 線ピークに着目することは、水冷却型原子炉用燃料の照射実験時の試料破損を早期に検出するためには有効であるように考えられる。また ^{138}Cs と実験末期の ^{88}Rb は他の核種に比べて濃度が高く、 γ 線エネルギーも大き

脚注) アルカリ過マンガン酸カリ溶液とシュウ酸一クエン酸アンモニウム溶液を用いた二段階式酸化皮膜溶解法。⁶⁾

(2) FP 付着量の測定

(a) 板状試料

FP 放出実験終了後にループ 1 次系内を純水で洗浄した後、炉外 T/S から付着量測定用試料を取り出した。直ちにホルダーを解体し、試験片を 1 枚づつポリエチレン棒状ビン (16 mm ϕ × 86.5 mmH) に入れて γ 線測定を行った。板状試料の計数効率は、まず 1 枚の試験片を上記のように直接 γ 線測定 (A) し、次にこの試験片上の酸化皮膜を王水で溶解して一定量の溶液としてから γ 線測定を行って各核種量を求め (B)，A と B の結果を比較するという方法で求めた。

また ^{131}I の付着量を測定する際に、 ^{60}Co によるバックグラウンドが高くて直接測定法が適用できない場合は、AP-Citrox 法^{脚注)}により酸化皮膜を溶解し、この溶液から ^{131}I を四塩化炭素で抽出する方法で ^{131}I の付着量を求めた。予備実験の結果ではこの方法による ^{131}I の回収率はほぼ 100% であった。

(b) 照射試料ハンガー

FP 放出実験後に切断された試料ハンガーの一部（長さ約 50cm）をさらに金切鋸で約 1.5 cm づつ輪切りにして測定用試料を作り、秤量ビンに入れて γ 線測定を行った。リング状試料の γ 線計数効率は板状試料と同様な方法によって求めた。

(c) 1 次系配管

切り出した配管を長さ 5 cm の輪切りにし、これを縦に 3 分割してハツ橋状の試片にした。これをポリエチレン袋に入れて直接 γ 線測定を行った。 γ 線計数効率は板状試料と同様にして求めた。

5. 結果および考察

5.1 γ 線スペクトル

FP 放出実験中のループ 1 次冷却水の代表的な γ 線スペクトルを Fig.3~6 に示した。水中の FP 核種は、 ^{84}Br ($T_{1/2} = 31.8\text{ min}$)， ^{85m}Kr (4.4 h)， ^{88}Rb (17.8 min)， ^{99m}Tc (6.0 h)， ^{131}I (8.04 d)， ^{132}I (2.28 h)， ^{133}I (20.3 h)， ^{134}I (53.0 min)， ^{135}I (6.68 h)， ^{133}Xe (5.29 d)， ^{138}Cs (32.3 min) など、ハロゲン、希ガスおよびその娘核種が支配的であった。

γ 線スペクトルは 1 回の FP 放出実験中（1 運転サイクル中）でもかなり変化しており、実験初期には ^{134}I ， ^{84}Br などの γ 線ピークが目立ち、末期には ^{88}Rb ， $^{131}, 132, 133\text{I}$ ， ^{135}I のピークが相対的に大きくなかった。 ^{138}Cs は FP 放出実験を通じて、採取直後のループ水の γ 線スペクトルの中で目立つ存在であった。したがって ^{138}Cs の 1436 keV の γ 線ピークに着目することは、水冷却型原子炉用燃料の照射実験時の試料破損を早期に検出するためには有効であるように考えられる。また ^{138}Cs と実験末期の ^{88}Rb は他の核種に比べて濃度が高く、 γ 線エネルギーも大き

脚注) アルカリ過マンガン酸カリ溶液とシュウ酸-クエン酸アンモニウム溶液を用いた二段階式酸化皮膜溶解法。⁶⁾

いので、ループ周辺の空間線量率に対して寄与が大きかったと思われる。

Fig.7は採取後4日経過したループ水の γ 線スペクトルである。この時点での主要な核種は ^{131}I と ^{99m}Tc であった。 ^{99m}Tc は半減期が6.0 hと短かいが、同時に存在する ^{99}Mo ($T_{1/2} = 66.2\text{ h}$)の娘核種として生成するため時間が経過すると放射平衡に達し、 ^{99}Mo の半減期で減衰した(Fig.8)。

5.2 1次冷却水中の放射性ヨウ素濃度

ループ水中の ^{131}I 濃度については、主としてループ水の温度変動等の外乱付与時に短時間間隔で試料水を採取し、数多くの測定を行った。その結果については別に報告されており^{1)~3)}、ここではその1例として第5回FP放出実験での測定結果をFig.9.1~9.3に示した。また、第5回実験での $^{131}, 132, 133, 134, 135\text{ I}$ (以下 $^{131}~^{135}\text{ I}$ と記す)濃度($\mu\text{Ci}/\text{ml}$)の測定結果をFig.10に示した。 $^{131}~^{135}\text{ I}$ の中では大体において $^{131}\text{ I}$ 濃度が最も低くまた $^{133}\text{ I}$ 濃度が最も高かった。 $^{131}\text{ I}$ に対する $^{132}~^{135}\text{ I}$ の濃度比をとると、照射日数との関係はFig.11のようになった。

5.3 ヨウ素および希ガスのR/Bと λ の関係

付録Iに示した方法で $^{131}~^{135}\text{ I}$ についてR/B(FP核種の生成速度に対する、1次冷却水中への放出速度の比)を求め、崩壊定数(λ)との関係をプロットすると、第5回FP放出実験についてFig.12が得られた。 $\log(R/B)$ と $\log \lambda$ の関係は右下りの曲線になった。原子炉起動1日後では $^{132}\text{ I}$ の点を無視すれば曲線の勾配は最も小さかった。照射時間が長くなるにつれて長半減期核種が多くなり、曲線の傾斜は次第に大きくなつた。 $^{132}\text{ I}$ は特に初期の段階で他の核種と異なる挙動を示した。

Fig.13には定常運転時と温度変動実験時の代表的な $\log(R/B)$ と $\log \lambda$ の関係を示した。ヨウ素についての曲線は定常運転時(曲線a~e, k)より温度変動時(曲線f~j)の方が傾斜が急になっており、直線と考えた場合の勾配は定常時で-0.7~-0.8、温度変動時では-1~-1.2であった。曲線a~eとkは共に定常運転時のデータであるが、a~eに比べkの場合は線出力密度(W/cm)が低かったためR/Bも小さい値となつた。しかし、それにもかかわらず勾配はa~eの場合とほぼ同じであった。一方、希ガスについては定常時のデータのみであるが、同時点におけるヨウ素のデータ(曲線k)より曲線の勾配が小さく、勾配は-0.4であった。

R/Bと λ の関係については、現在までのところ次の傾向が知られている。 UO_2 ペレットからのFP放出機構としては反跳(直接反跳とノックアウトによる二次反跳がある)と拡散が考えられており、 $\log(R/B)$ と $\log \lambda$ の関係を $\log \lambda$ を横軸にとってプロットすると、反跳支配の場合には水平な直線が、また拡散支配の場合には勾配が-1/2の直線が得られる^{7)~9)}。

しかしながら、FPヨウ素が燃料被覆管の欠陥孔から放出される場合、反跳や拡散のモデルに一致せず、 $\log(R/B)$ vs. $\log \lambda$ の勾配が-1前後になることがある^{10), 11)}。このように勾配が大きくなる現象について、Allisonらは UO_2 ペレット中の格子欠陥などへヨウ素がトラップ

されるために放出過程に遅れが生じるためであると考えた¹¹⁾。また、Brutchyは被覆管に微小な孔（直径 500μ 以下）があいた場合には、FP がペレットの表面から欠陥孔に到達するまでに時間がかかるためこの現象が起ると考えた⁹⁾。また、ヨウ素は燃料棒内で CsI のような安定な化合物を形成するために、希ガスに比べて冷却材中に放出されにくいとも考えられている¹²⁾。いずれの場合でも単なる反跳やペレット内の拡散に比べて放出過程に遅れが生ずることを意味しており、この遅れによって、放出される FP の中で占める長半減期核種の割合が大きくなり、 $\log(R/B)$ vs. $\log \lambda$ プロットの勾配が大きくなると考えられる。

上述の放出モデルや考察を基に OWL-1 で行われた一連の FP 放出実験での FP 放出挙動を厳密に解析するためには、種々のパラメータについても考慮する必要があり、現在得られているデータのみでは不十分である。しかしながら、FP 放出実験で得られたデータを極く定性的に上記の FP 放出の傾向と対応させると以下のようになると思われる。

まず Fig.12, 13 のグラフについて考えると、Fig.12 の原子炉起動から 1 日後では勾配の絶対値は 0.5 より小さく、この時点での FP 放出に対しては拡散過程に加えて人工欠陥孔近傍の UO₂ ペレット表面からの反跳の寄与がかなりあることが推測される。ただしこの時点では中性子照射の時間が短かいため、長半減期核種の生成量が短半減期核種に比較して少ないことなどの影響もあると思われる。なお、反跳による FP 放出は燃料の表面汚染および UO₂ 微粒子や溶存ウランによる系内汚染の際に観察されるはずであり、それらの場合に相当する実測データを付録 II に示した。

Fig.12 で、原子炉起動から 2 日目以後は定常運転時でも勾配が $-1/2$ より急になったが、これは放出過程が拡散支配あるいはトラップ効果等による遅延型傾向へと推移したためと思われる。また温度変動のような外乱を与えた場合、欠陥孔を通して水又は水蒸気の出入りがあるため、被覆管内に蓄積された長半減期核種が 1 次系内に放出され、 $\log(R/B)$ vs. $\log \lambda$ の勾配はより大きくなるものと考えられる。¹³¹I の場合、Fig.13 の i と j では R/B が 1 以上になっており、被覆管内に蓄積した分が温度変動に伴なって水中に放出されたことを示している。

Fig.13 で、ヨウ素より希ガスの方が勾配が小さいが、これは、希ガスの場合はトラップ効果等による時間遅れが少なく、ほぼ UO₂ ペレット内の拡散のみが律速になっているためであろうと思われる。

5.4 精製系における ¹³¹I の除去効率

各 FP 放出実験時の精製系入口 ¹³¹I 濃度とイオン交換塔による F との関係を Fig.14 に示した。F は大体において 10^{-3} 以下であり、¹³¹I はイオン交換樹脂により効率良く除去されていたと思われる。第 8 回 FP 放出実験では一時的に精製系流量を最大流量である 7.5 kg/min（通常時の 2.5 倍）としたが、この場合でも F は 4.8×10^{-4} と満足すべき値を示した。

第 4 回 FP 放出実験では、2.5 サイクル前から使用していたイオン交換樹脂をそのまま使用したが、この場合には F は最大で 0.03 になった。この場合でも 1 次冷却水の導電率は $0.15 \mu\text{S}/\text{cm}$ であり、通常の運転時と同様の低い値に保たれていた。しかし、イオン交換樹脂による放射性ヨウ素の除去効率は通水時間と共にかなり低下するというデータもあり¹³⁾、放射性ヨウ素を含む

系の精製装置ではできるだけ活性化した未使用イオン交換樹脂を使用することが望ましい。

測定した範囲では F とイオン交換塔入口濃度との関係はほぼ逆比例になり (Fig.14)、出口濃度はかなりバラツキはあるが $10^{-6} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ 程度ではほぼ一定であった (Fig.15)。しかし入口濃度が $10^{-3} \mu\text{Ci}/\text{ml}$ 以下の場合の F との関係については明らかではない。

なお、イオン交換塔出口の ^{131}I 濃度は通常かなり低いため、サンプリング時には他の高濃度部からの汚染がないように十分注意しなければならない。イオン交換塔バイパス運転時を例にすると、この場合にはイオン交換塔入口からの水がイオン交換塔をバイパスしてそのままの ^{131}I 濃度でイオン交換塔出口配管に流れ、その後主循環系に戻る。この時イオン交換塔出口配管の内壁に ^{131}I が付着し、このラインからサンプリングした時に試料水中に混入してくる。配管内の汚染は容易には流し去ることができず、例えばイオン交換塔のバイパスを解除した後 8 回のサンプリングを行なった時に合計約 30 ℥ のイオン交換塔出口水が流れてもかかわらず、バイパス前の ^{131}I 濃度に比べて 100 倍以上の高濃度を示した。

5.5 ループ気水分離器における ^{131}I の気液分配

^{131}I と ^{24}Na の気液分配係数 (H) の測定結果を Table 2 に示した。 ^{131}I の場合、 H の最高値は 8.8×10^2 、最小値は 6.5×10^2 、平均値は 3.8×10^2 であった。 H の値は同一 FP 放出実験中でもかなり変動したが、各 FP 放出実験間での違いは認められなかった。また H の値と水中の ^{131}I 濃度との関連性も認められなかった。

一方、 ^{24}Na の H 値は 3.1×10^3 と大きく、同時に測定した ^{131}I の H の約 20 倍であった。蒸気相に存在する ^{24}Na は大部分飛沫同伴によって蒸気相に移行したと考えられるので、気相の ^{131}I の大部分が飛沫同伴によって蒸気相に移行したものであるとすれば ^{131}I の H 値は ^{24}Na と同程度の値になるはずである。しかしながら ^{131}I の H 値は ^{24}Na の約 $1/20$ であった。このことから ^{131}I は、蒸気相で検出された量のうち大部分が蒸気となって気相に移行したと推測される。気相の ^{131}I のうち、飛沫同伴によって移行した割合(%)は、同時に測定した ^{24}Na の H 値を用いて次のように求めることができる。

$$\begin{aligned} \frac{C'g(I)}{Cg(I)} \times 100 &= \frac{C_1(I)}{H(\text{Na})} \times \frac{100}{Cg(I)} = \frac{H(I)}{H(\text{Na})} \times 100 \\ &= \frac{1.6 \times 10^2}{3.1 \times 10^3} \times 100 = 5.2 \% \end{aligned}$$

ここで、 $C'g$ は蒸気相での濃度のうち飛沫同伴で移行した分であり、カッコ内の I と Na はそれぞれ ^{131}I と ^{24}Na を示す。

この実験で得られた ^{131}I の H 値は JPDR での $^{133}\text{I} + ^{135}\text{I}$ についての測定結果 ($H = 100 \sim 900$)¹⁴⁾ とほぼ一致している。JPDR では BWR 型原子炉の圧力容器内で蒸気と水が分離しているのに対し、OWL-1 では 1 次系内の遠心式セパレータ内で分離が行われており、両者の間で流動条件が全く異なるにもかかわらず類似した放射性ヨウ素の気液分配係数が得られた。

Bonnevie-Svendsen らの報告¹⁵⁾によれば、Halden の HBWR での燃料破損実験では、 ^{131}I の気液分配係数が 5 前後と非常に小さい値となった。同時に測定した Zr, Nb, Ba, Cr, Co な

どのH値は200～1000であったので飛沫同伴は幾分多いが、¹³¹IのH値はこれらの核種よりかなり小さく、ほとんどが気体状ヨウ素による蒸気相への移行であるとされている。水中ヨウ素の化学形の測定結果では、気相に移行しやすいI₂や有機ヨウ素は少なかった。ただし、化学形が不明でしかもベンゼンに抽出される成分が6～20%と多く、これが蒸気相へ移行するためにH値が小さくなつたと説明されている。

後に述べるように、筆者らの実験でもI₂や有機ヨウ素と思われる成分および化学形不明の成分の合計は10%前後になったが、H値が50以下になることはなかった。ただし、各化学形態の存在比率はTable 4に示すようにかなり変動しており、¹³¹IのH値に変動が大きいのはこのような化学形態の変動に関係があるものと考えられる。

5.6 1次冷却水中のFPの存在形態

イオン交換膜を用いて存在形態を分離測定した結果の1部をTable 3に示した。FPの中では放射性ヨウ素と^{99m}Tcが主として陰イオンとして存在し、アルカリ金属およびアルカリ土類金属に属する⁸⁸Rb、⁸⁹Rb、⁹¹Sr、¹³⁷Cs、¹³⁸Cs、および¹⁴⁰Baが主として陽イオンとして存在する核種として検出された。周期律表のⅢ族元素である^{91m}Y、¹⁴⁰Laおよび¹⁴¹Ce、Ⅳ族元素の⁹⁵Zr、Ⅵ族元素の¹³²Te、Ⅷ族元素の¹⁰³Ruは不溶性のFP核種として平均孔径0.45μのメンブランフィルター上に捕集された。

しかし、超ウラン元素の²³⁹Np^{脚注)}は、Table 3に示すように第8回FP放出実験では数回の測定中すべて陽イオンとして検出されたが、第9回実験では大部分が固体分として検出された。第8回と第9回実験では1次冷却水の温度条件、水質などにほとんど差はないが、燃料試料の発熱量に数十%の違いがあった。1次冷却水中での²³⁹Npの存在形態が燃料試料の被覆管内の条件のみで決まるとはすれば発熱量の違いにより存在形態が異なることも考えられるが、この点については明らかではない。

不溶性成分として測定された核種のうち、^{91m}Yと¹⁴⁰Laは無担体の場合、ラジオコロイドをつくりやすいことが知られている。OWL-1においては、1次冷却水はほぼ中性であるため、これらの核種はラジオコロイドを形成してメンブランフィルターに吸着したか、あるいは一次冷却水中のcrud粒子に吸着してメンブランフィルター上に捕集されたものと考えられる。

²³⁹Np以外のFP核種の水中での存在形態の測定結果は一連のFP放出実験中に共通しており、一般に知られている傾向¹⁶⁾とも一致するものであった。

この実験でのイオン交換膜のイオン捕集効率はかなり高く、¹³¹Iの場合、99%以上の捕集効率であった。なお、Table 3では、¹³¹Iの1%程度が固体分や陽イオンとして存在するという結果を示している。¹³¹Iは水中の微少なcrud粒子に吸着することも考えられるので、これがフィルター上に捕集されて固体分として検出された可能性もあるが、固体分や陽イオンとして測定された¹³¹Iの大部分はフィルターへの単なる吸着に起因するものと思われる。何故なら、メンブランフィルターとカチオン交換膜を交互に数枚づつ重ねて¹³¹I水溶液を通すと、いづれのフィルター（あるいは交換膜）からも同程度の割合で¹³¹Iが検出されているからである。

注) この報告の実験では、FP核種と共に²³⁹Npも併せて測定した。

5.7 1次冷却水中の放射性ヨウ素の化学形

抽出分離法によるヨウ素の化学形の測定結果の1例をTable 4に示した。かなりの変動はあるが、定常運転時では大体80~90%が I^- として存在し、 $I^{+5,+7}$ (IO_3^- , IO_4^-), I_2 , その他(形態不明)は各々数%~十数%であった。しかし後に述べるように原子炉停止時には $I^{+5,+7}$ が50%以上になる場合もあった。

Bonnevie-Svendsen¹⁵⁾やLin¹⁷⁾は原子炉1次冷却水中での放射性ヨウ素の化学形を測定し、ヨウ素は主として I^- として存在すると報告している。しかし各化学形態の存在比率は種々の要因によって変動すると思われる。それらの要因としては、

- (1) 燃料被覆管から放出される時の化学形態
- (2) 放射線による化学形態への影響
- (3) 1次冷却水の温度
- (4) 1次冷却水中の溶存酸素濃度
- (5) 1次系構成材料との反応
- (6) 精製系イオン交換樹脂による特定化学形態に対する選択的吸着

などが考えられる。(1)については従来 I_2 の形が主体であるとされていたが、Campbellら¹²⁾はアルカリ金属ヨウ化物(主としてCsI)として放出されると主張している。(2)については、Linの実験によればヨウ素水溶液を ^{60}Co 照射すると、ヨウ素濃度が低く、pHが8以下では大部分の I^- が IO_3^- に変化するといわれる¹⁸⁾。また、(6)は1次系全体に与える影響はあまり大きくないと思われるが、イオン交換塔出口での放射性ヨウ素の化学形態は90%以上が IO_3^- であるという報告¹³⁾もなされている。

1次冷却水中のヨウ素の化学形はこれらの要因の影響が総合されて決まるため、系に外乱が加わった場合には各化学形の存在比率に変動が生ずることが予想される。しかし、1次冷却水の温度変動時には明らかな化学形の変化は観察されず、またヨウ素核種間での化学形の相異もなかった。これは、温度変動時には燃料被覆管内から新たにヨウ素が1次水中に放出されるが、このヨウ素がすでに1次水中に存在するヨウ素とほぼ同じ化学形をとっているためと考えられる。人工欠陥燃料の場合には運転初期から水又は水蒸気が欠陥孔から被覆管内に入っており、プレナム部の化学的条件が1次循環系内と類似していることが予想される。このため、 UO_2 ペレット内からプレナム部に移行したヨウ素は、ここで1次水中と同様の化学形態になることが考えられる。

一方、原子炉停止時には $I^{+5,+7}$ の割合が増加することがあった。Fig.16に示す第4回FP放出実験の終了時の測定結果では、原子炉停止による外乱に伴ない ^{131}I 濃度が上昇し、次いで $I^{+5,+7}$ の割合が増加した。 $I^{+5,+7}$ は最高58.6%に達し、この時 I^- は36.0%に減少した。原子炉停止に引き続いて行なわれたループの運転状態変更により ^{131}I 濃度はさらに上昇したが $I^{+5,+7}$ の割合は逆に減少した。

この原子炉停止時の $I^{+5,+7}$ の増加の原因として、(a)被覆管内からの $I^{+5,+7}$ の放出、および(b)放射線の影響、が考えられる。しかし(a)については、Fig.16の ^{131}I 濃度変化と $I^{+5,+7}$ の割合の変化とが一致しておらず、特にOWL-1の運転状態変更に伴なう ^{131}I 濃度の上昇時には $I^{+5,+7}$

は逆に急激に減少したことから否定される。(b)については前に述べたようにヨウ素の化学形を変える作用があるが、原子炉が停止してから $I^{+5,+7}$ の増加が顕著になったことから、放射線の種類によってヨウ素の化学形態に対する効果が異なることが予想される。原子炉停止により中性子がなくなり、透過性の放射線としては γ 線だけが存在する放射線場になった時に $I^{+5,+7}$ は急増し、炉停止直後に主要な γ 線放出源であった短半減期核種の崩壊によって γ 線が弱くなるに従って $I^{+5,+7}$ が減少したと考えられる。

この第4回FP放出実験では、定常運転時にも特に炉内管入口での $I^{+5,+7}$ が多く、炉内管入口での $I^{+5,+7}$ が約10%なのに対し、炉内管出口では20%以上を占めていた。したがって他のFP放出実験時に比べて $I^{+5,+7}$ が炉内部で生成しやすい環境にあったと思われる。核的な条件はほとんどのFP放出実験ではほぼ同じであるから、恐らく水質の相異によって $I^{+5,+7}$ が多くなったものと推測される。例えば水中に存在する1 ppbの Cu^{++} が放射線下でのヨウ素の酸化をある程度抑制し、0.03 ppbでは大部分が $I^{+5,+7}$ へ酸化されたとの報告もある¹⁸⁾。第4回FP放出実験の場合でも、炉内管入口での $I^{+5,+7}$ は炉内管出口に比べて常に少なく、炉内部を除いては $I^{+5,+7}$ に対して還元性の雰囲気になっていたことを示している。

5.8 金属材料へのFPの付着

5.8.1 金属試験片の γ 線スペクトル

Fig.17～28に、第8回FP放出実験後に測定した付着放射性物質の γ 線スペクトルを各金属試験片毎に示した。これらのスペクトルから、どの金属の場合も主要な付着核種は⁶⁰Coであることがわかるが、FP核種の存在も明らかに認められる。FPの中では、¹³¹I、²³⁹Np、^{99m}Tcが主な付着核種であり、この他に金属材料によって¹³²I、¹⁰³Ru、¹⁴¹Ce、¹⁴⁰Ba-¹⁴⁰Laなどが検出された。 γ 線測定が原子炉停止後1週間以上経過してから行われたにもかかわらず短半減期核種の^{99m}Tc ($T_{1/2} = 6.0$ h)と¹³²I ($T_{1/2} = 2.3$ h)が検出されたのは、各々の親核種である⁹⁹Mo ($T_{1/2} = 66.2$ h)と¹³²Te ($T_{1/2} = 78.0$ h)が存在するためである。

実験に用いた9種類の金属のうち、Incoloy 800、Ni-20 Cr およびZrについての γ 線スペクトルは、それぞれSUS 304、Ni およびZry-2の場合と類似していた。

5.8.2 各種金属材料へのFPの付着

第8回FP放出実験での各種金属試片上のFP付着量を、比較的付着量の多い核種についてFig.29～32に示した。

¹³¹Iについては、炉内管出口部ではどの金属にも大体同程度に付着していた(Fig.29)。炉内管入口部での付着量は、この実験結果では炉内管出口部に比べて少なかったが、他のFP放出実験での測定結果ではほとんど差がない場合もあり、ループ内の位置による付着量の変化についてははっきりした傾向が得られなかった。

¹³²Teは水中の濃度は¹³¹I濃度の1/1000以下(Table 3)であったが付着量は¹³¹Iと同程度であり(Fig.31)，以前から考えられていたように¹⁹⁾、ループの内壁に付着しやすいFPであると考えられる。¹³²Teが壁面に付着して残留するために、FP放出実験終了後の系内純水洗

浄時には常に洗浄水中から短半減期核種である ^{132}I が検出された²⁰⁾。また、 ^{132}Te は Ni および Ni-20 Cr に選択的に付着する傾向が見られた。現在研究が進められている溶融塩炉では FP の Te が Ni 基合金である Hastelloy N に対し粒界腐食を起すことも知られており (Te アタック)²¹⁾、Te と Ni の間にある程度親和性があるものと思われる。Edwards らの実験によれば、Ni 上への Te の吸着は、Ni の表面酸化物が $\text{Ni}(\text{OH})_2$ から NiO に変わる遷移温度 285°C の近傍 (260 ~ 275°C) で最大になる²²⁾、とされており、ループ水温度 (第 8 回 FP 放出実験時は 250°C) が上れば、 ^{132}Te の付着量が多くなることが予想される。

^{99}Mo は γ 線の放出率が小さく直接 ^{99}Mo の水中濃度や付着量を求めるのは困難であったが、娘核種である ^{99m}Tc の減衰曲線から間接的に定量することができた (Fig. 31)。その結果によると、 ^{131}I と比較した場合、水中濃度は約 1/10 であるが付着量は逆に約 10 倍であった。したがって ^{132}Te ほどではないが、やはり壁面に付着しやすい核種であると思われる。FP 放出実験終了後の系内純水洗浄時には $^{132}\text{Te}-^{132}\text{I}$ の場合と同様、常に娘核種の ^{99m}Tc が洗浄水中に検出された²⁰⁾。また用いた金属の中では Ni および Ni-20 Cr に最も付着量が多く、Ti には少なかった。

^{239}Np は水中濃度が ^{131}I の約 1/10 (Table 3) であり、付着量は ^{131}I の約 10 倍であった (Fig. 32)。これは単純に考えれば ^{99}Mo とほぼ同等の付着性があることを意味する。 ^{239}Np の場合、金属による付着量の差はあまりなく、鉄系の SUS 304 および Incoloy 800 は付着量が比較的少なかった。

これらの FP の他に ^{95}Zr , ^{103}Ru , $^{140}\text{Ba}-^{140}\text{La}$ などが検出されたが、いづれも上記の核種に比べて付着量は少なかった。この中では ^{140}Ba が Ta に吸着しやすい傾向が見られたが、他の核種は金属による付着量の差はほとんどなかった。

用いた 9 種類の金属の中では Ti が放射性腐食生成物も含めて全般に付着量が少なかったのが注目される。

5. 8. 3 ^{131}I の付着量と水中濃度との関係

^{131}I の壁面付着量を FP 放出実験後の系内の純水洗浄時の水中濃度から推定する方法について既報²⁰⁾に述べた。この推定方法では、 ^{131}I の壁面への吸着速度が水中濃度に比例し、脱着速度は付着量に比例する、という仮定のもとに、平衡時の付着量 ($M \mu\text{Ci}/\text{cm}^2$) と水中濃度 ($m \mu\text{Ci}/\text{ml}$) の関係が次式で与えられるとした。

$$M = \frac{\alpha}{\beta} \cdot \frac{V}{S} \cdot m \quad \dots \dots \dots \quad (3)$$

ここで、

α : 吸着定数 (s^{-1})

β : 脱着定数 (s^{-1})

S : 1 次系の内表面積 (cm^2)

V : 1 次系内の保有水量 (cm^3)

である。OWL-1 の場合、 $S = 4 \times 10^5 \text{ cm}^2$, $V = 7 \times 10^5 \text{ cm}^3$ であり、 $\alpha = 3.2 \times 10^{-6} \text{ s}^{-1}$, $\beta = 2.4 \times 10^{-7} \text{ s}^{-1}$ であることが実験的に求められている²⁰⁾。したがって(3)式から Fig. 33 上の

直線が得られる。

一方、FP付着量測定用の試験片をループから取出す直前に測定された¹³¹Iの水中濃度と、試験片上の¹³¹I付着量とを、第6, 8, 9回FP放出実験についてプロットするとFig.33上の各点が得られた。ただし、水中濃度と付着量はいずれもそれぞれのFP放出実験終了時刻（原子炉停止時刻）に換算した。Fig.33の実測値と計算による直線とは一致しているとはいえないが、系内に付着している¹³¹Iのおおよその量は、(3)式を用いて洗浄水中の¹³¹I濃度から推定できると思われる。しかし、Fig.33の②のように、同一FP放出実験時の測定でも¹³¹Iの付着量にかなりの差がある場合があった。これはループ内での試験片の挿入位置、試験片の種類、表面状態などの違いによると思われるが、これらの因子についてさらに詳細な検討を行うことにより実測値と計算式とがより接近し、系内残存¹³¹I量の推定が精度良くできるようになるものと思われる。

6. ま　と　め

炉内高温高圧水ループ（OWL-1）内で人工欠陥燃料を照射するという手法により一連のFP放出実験を行った。この実験によりループ1次冷却水中の¹³¹Iおよび¹³⁷Cs濃度について数多くの測定データを得ることができた^{1)~3)27)}。一方FP放出実験中に、ループ1次冷却水中の種々のFP核種の濃度、水中のFPの存在形態、9種類の金属試験片へのFPの付着等についても測定を行った。この報告では後者の測定についてデータを整理して次のような結論を得た。

- (1) ループ1次冷却水の γ 線スペクトルの中では、¹³⁸Csが、FP放出実験中のどの段階においても顕著な γ 線ピークを示した。
- (2) ヨウ素についての $\log(R/B)$ vs. $\log \lambda$ プロット (Fig.12) の傾斜は照射開始から1日後では勾配が小さかったが、2日目以後は勾配の絶対値が0.5より大きくなった。この測定実験時には、UO₂ペレットから1次冷却水中へヨウ素が放出される過程が、反跳支配から拡散支配、さらにはトラップモデル型傾向へと変化したためと考えられる。
- (3) ヨウ素の $\log(R/B)$ vs. $\log \lambda$ プロットの傾きは、ループに外乱を与えたことによってさらに大きくなり (Fig.13)，測定した範囲では勾配の絶対値は最高1.2となった。このように大きな勾配は、被覆管内に蓄積された長半減期核種が、外乱によって起る欠陥孔を通しての水又は水蒸気の移動に伴なって急激に水中に放出されたことによると考えられる。
- (4) FP放出実験時のループ1次冷却水系のイオン交換樹脂による¹³¹Iの除去効率(F)は大体において 10^{-3} 以下で除去効果は良好であった。
- (5) 1次系の気水分離器内での¹³¹Iの気液分配係数は65～900であり、かなりの変動があった。蒸気相に移行した¹³¹Iのうち、飛沫同伴による分は約5%であった。
- (6) 水中のFPの存在形態は、アルカリ金属およびアルカリ土類金属の場合はほとんど陽イオンであった。^{91m}Y, ¹⁴⁰La, ¹⁴¹Ce, ⁹⁵Zr, ¹³²Te, ¹⁰³Ruは大部分が孔径0.45μのメン

直線が得られる。

一方、FP付着量測定用の試験片をループから取出す直前に測定された¹³¹Iの水中濃度と、試験片上の¹³¹I付着量とを、第6, 8, 9回FP放出実験についてプロットするとFig.33上の各点が得られた。ただし、水中濃度と付着量はいずれもそれぞれのFP放出実験終了時刻（原子炉停止時刻）に換算した。Fig.33の実測値と計算による直線とは一致しているとはいえないが、系内に付着している¹³¹Iのおおよその量は、(3)式を用いて洗浄水中の¹³¹I濃度から推定できると思われる。しかし、Fig.33の②のように、同一FP放出実験時の測定でも¹³¹Iの付着量にかなりの差がある場合があった。これはループ内での試験片の挿入位置、試験片の種類、表面状態などの違いによると思われるが、これらの因子についてさらに詳細な検討を行うことにより実測値と計算式とがより接近し、系内残存¹³¹I量の推定が精度良くできるようになるものと思われる。

6. ま　と　め

炉内高温高圧水ループ（OWL-1）内で人工欠陥燃料を照射するという手法により一連のFP放出実験を行った。この実験によりループ1次冷却水中の¹³¹Iおよび¹³⁷Cs濃度について数多くの測定データを得ることができた^{1)~3)27)}。一方FP放出実験中に、ループ1次冷却水中の種々のFP核種の濃度、水中のFPの存在形態、9種類の金属試験片へのFPの付着等についても測定を行った。この報告では後者の測定についてデータを整理して次のような結論を得た。

- (1) ループ1次冷却水の γ 線スペクトルの中では、¹³⁸Csが、FP放出実験中のどの段階においても顕著な γ 線ピークを示した。
- (2) ヨウ素についての $\log(R/B)$ vs. $\log \lambda$ プロット (Fig.12) の傾斜は照射開始から1日後では勾配が小さかったが、2日目以後は勾配の絶対値が0.5より大きくなった。この測定実験時には、UO₂ペレットから1次冷却水中へヨウ素が放出される過程が、反跳支配から拡散支配、さらにはトラップモデル型傾向へと変化したためと考えられる。
- (3) ヨウ素の $\log(R/B)$ vs. $\log \lambda$ プロットの傾きは、ループに外乱を与えたことによってさらに大きくなり (Fig.13)，測定した範囲では勾配の絶対値は最高1.2となった。このように大きな勾配は、被覆管内に蓄積された長半減期核種が、外乱によって起る欠陥孔を通しての水又は水蒸気の移動に伴なって急激に水中に放出されたことによると考えられる。
- (4) FP放出実験時のループ1次冷却水系のイオン交換樹脂による¹³¹Iの除去効率(F)は大体において 10^{-3} 以下で除去効果は良好であった。
- (5) 1次系の気水分離器内での¹³¹Iの気液分配係数は65～900であり、かなりの変動があった。蒸気相に移行した¹³¹Iのうち、飛沫同伴による分は約5%であった。
- (6) 水中のFPの存在形態は、アルカリ金属およびアルカリ土類金属の場合はほとんど陽イオンであった。^{91m}Y, ¹⁴⁰La, ¹⁴¹Ce, ⁹⁵Zr, ¹³²Te, ¹⁰³Ruは大部分が孔径0.45μのメン

プランフィルター上に捕集された。放射性ヨウ素と ^{99m}Tc はほとんど陰イオンであった。

^{239}Np は陽イオンとして検出された場合と不溶性核種として検出された場合とがあった。

(7) 水中での放射性ヨウ素の化学形は、80～90%が I^- の形であった。燃料試料から新たにヨウ素が放出された時もほとんどの場合化学形態に大きな変化はなかった。しかし原子炉停止直後には $\text{I}^{+5,+7}$ が 50%以上になった場合もあり、主として γ 線照射に起因すると考えられる。

(8) ループ 1 次系に挿入した金属試料に付着した主な FP 核種は ^{131}I , ^{99m}Tc , ^{239}Np であった。 ^{99}Mo と ^{132}Te が Ni 系合金に、また ^{140}Ba が Ta に比較的付着しやすいという傾向が見られたが、他の核種は金属による付着量の違いは小さかった。ただし、実験に用いた金属の中では Ti が放射性腐食生成物も含めて最も付着量が少なかった。

(9) FP 放出実験後に壁面等に付着して 1 次系内に残留している ^{131}I の量は、(3)式を用いて 1 次系内水洗時の水中 ^{131}I 濃度からおおよその値を推定できると思われる。

謝 辞

本報告書に関する測定を行うに当り、東京大学の都甲泰正教授をはじめとする FP 研究会の皆様から種々適切な御助言を戴きました。ここに厚く御礼申し上げます。

本報告書に関する測定は、OWL-1 の運転を担当された原研大洗研究所材料試験炉部照射第 2 課の方々をはじめ、同部および同研究所管理部の多くの方々の御協力の下に行われました。また、これらの測定および測定結果の検討は同研究所材料試験炉部照射第 3 課の歴代課長（伊丹宏治、斎藤実、神原忠則、伊藤尚徳、青山功の各氏）および元同課分析係長の戸根弘人氏の御指導の下に行われました。ここに深く謝意を表します。

文 献

- 1) 山本克宗他：JAERI-M 8045 (1979)
- 2) 石渡名澄他：JAERI-M 8332 (1979)
- 3) 石渡名澄他：JAERI-M 9792 (1981)
- 4) 山本克宗他：JAERI-M 7801 (1978)
- 5) Castleman, A.W.Jr., *et al.* : J.inorg. nucl. Chem. **30**, 5-13, (1968).
- 6) Ayres, J.A.: " Decontamination of Nuclear Reactor and Equipment ", The Ronald Press Co., New York, (1970).
- 7) Belle, J.: "Uranium Dioxide : Properties and Nuclear Application", p.480, U.S.Govt. Printing Office, Wash., (1961).
- 8) Carroll, R.M. and Sisman, O.: Nucl. Sci. and Eng., **21**, 147-158 (1965).
- 9) Brutschy, F.J.: AECL-1265, p.4, (1961)
- 10) Kurka, G. *et al.* : Nucl. Technol., **46**, 571-581 (1979).
- 11) Allison, G.M. and Rae, H.K.: AECL-2206 (1965).

プランフィルター上に捕集された。放射性ヨウ素と ^{99m}Tc はほとんど陰イオンであった。

^{239}Np は陽イオンとして検出された場合と不溶性核種として検出された場合とがあった。

(7) 水中での放射性ヨウ素の化学形は、80～90%が I^- の形であった。燃料試料から新たにヨウ素が放出された時もほとんどの場合化学形態に大きな変化はなかった。しかし原子炉停止直後には $\text{I}^{+5,+7}$ が 50%以上になった場合もあり、主として γ 線照射に起因すると考えられる。

(8) ループ 1 次系に挿入した金属試料に付着した主な FP 核種は ^{131}I , ^{99m}Tc , ^{239}Np であった。 ^{99}Mo と ^{132}Te が Ni 系合金に、また ^{140}Ba が Ta に比較的付着しやすいという傾向が見られたが、他の核種は金属による付着量の違いは小さかった。ただし、実験に用いた金属の中では Ti が放射性腐食生成物も含めて最も付着量が少なかった。

(9) FP 放出実験後に壁面等に付着して 1 次系内に残留している ^{131}I の量は、(3)式を用いて 1 次系内水洗時の水中 ^{131}I 濃度からおおよその値を推定できると思われる。

謝 辞

本報告書に関する測定を行うに当り、東京大学の都甲泰正教授をはじめとする FP 研究会の皆様から種々適切な御助言を戴きました。ここに厚く御礼申し上げます。

本報告書に関する測定は、OWL-1 の運転を担当された原研大洗研究所材料試験炉部照射第 2 課の方々をはじめ、同部および同研究所管理部の多くの方々の御協力の下に行われました。また、これらの測定および測定結果の検討は同研究所材料試験炉部照射第 3 課の歴代課長（伊丹宏治、斎藤実、神原忠則、伊藤尚徳、青山功の各氏）および元同課分析係長の戸根弘人氏の御指導の下に行われました。ここに深く謝意を表します。

文 献

- 1) 山本克宗他：JAERI-M 8045 (1979)
- 2) 石渡名澄他：JAERI-M 8332 (1979)
- 3) 石渡名澄他：JAERI-M 9792 (1981)
- 4) 山本克宗他：JAERI-M 7801 (1978)
- 5) Castleman, A.W.Jr., *et al.* : J.inorg. nucl. Chem. **30**, 5-13, (1968).
- 6) Ayres, J.A.: " Decontamination of Nuclear Reactor and Equipment", The Ronald Press Co., New York, (1970).
- 7) Belle, J.: "Uranium Dioxide : Properties and Nuclear Application", p.480, U.S.Govt. Printing Office, Wash., (1961).
- 8) Carroll, R.M. and Sisman, O.: Nucl. Sci. and Eng., **21**, 147-158 (1965).
- 9) Brutschy, F.J.: AECL-1265, p.4, (1961)
- 10) Kurka, G. *et al.* : Nucl. Technol., **46**, 571-581 (1979).
- 11) Allison, G.M. and Rae, H.K.: AECL-2206 (1965).

- 12) Campbell, D.O. *et al.*: Nucl. Technol., **53**, 111-119 (1981).
- 13) Lin, C.C. and Younger, J.J.: Nucl. Technol. **47**, 468-476 (1980).
- 14) 原子力安全研究協会編：「核分裂生成物の放出と移行」，p.227 (1967).
- 15) Bonnevie-Svendsen, M. and Fjellestad, K.: HPR-134 (1971).
- 16) 原子力安全研究協会編：「核分裂生成物の放出と移行」，p.275-277 (1967).
- 17) Lin, C.C.: J.inorg. nucl. Chem., **42**, 1093-1099 (1980).
- 18) Lin, C.C.: *ibid.*, **42**, 1101-1107 (1980).
- 19) Eichenberg, J.D., *et al.*: WAPD-183 (1957).
- 20) YAMAMOTO, K., *et al.*: J.Nucl. Sci. Technol., **17**, 67-76 (1980).
- 21) 溶融塩炉技術研究専門委員会：日本原子力学会誌，**22**, 155-162 (1980).
- 22) Edwards, W.J. and Bateman, J.M.: AECL-5514 (1976).
- 23) Mughabghab, S.F. and Garber, D.I.: BNL-325, 3 rd ed. Vol.1 (1973).
- 24) Lederer, C.M. and Shirley, V.S.: Table of Isotopes, 7 th ed. (1978).
- 25) Meek, M.E. and Rider, B.F.: NEDO-12154-1 (1974).
- 26) Tone, H. *et al.*: JAERI 1213 (1972).
- 27) 石渡名澄他：JAERI-M 8184 (1979).

付録 I R/B の 計 算 法

R/B は次のように定義される。

$$\frac{R}{B} = \frac{\text{単位時間当たりに1次冷却水中に放出されるFP原子数}}{\text{単位時間当たりにUO}_2\text{ベレット内に生成するFP原子数}} \quad \dots \dots \dots \quad (4)$$

(4)式の B は次式から求められる。

$$B = y_i \sigma \phi N \quad \dots \dots \dots \quad (5)$$

ここで、 y_i : i 核種の核分裂収率

σ : ^{235}U の熱中性子による核分裂断面積 (cm^2)

ϕ : 热中性子束 ($\text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$)

N : ^{235}U の原子数

である。

次に、 R は時々刻々複雑に変動するものであり、正確に求めることは不可能なので、ある着目した時間内では一定であると仮定して、その時間内の平均的な値を求めることにした。

(1) 定常時における R の計算

(a) ヨウ素

1 次冷却水中の FP の物質収支から次式が成り立つ。

$$\frac{dn_i}{dt} = R - \lambda_i n_i - pn_i \quad \dots \dots \dots \quad (6)$$

ここで、 n_i : 1 次系内に放出された放射性ヨウ素 i 核種の 1 次循環系内の全原子数

λ_i : i 核種の崩壊定数 (s^{-1})

p : ヨウ素に対する精製系の精製定数 (s^{-1})

である。ただし、ヨウ素の親核種である Te からの 1 次系内でのヨウ素の生成については、

1 次水中的 Te 濃度がヨウ素に比べてかなり低いため、ここでは無視した。

1 次水中的 FP 濃度変化が小さい場合は $dn_i/dt = 0$ とすることができますから、(6)式は、

$$R - \lambda_i n_i - pn_i = 0 \quad \dots \dots \dots \quad (7)$$

よって、

$$R = (\lambda_i + p) n_i \quad \dots \dots \dots \quad (8)$$

となる。p は精製系流量と 1 次循環系の体積から求められるので、1 次水中的ヨウ素濃度から計算された n_i と共に(8)式に代入すれば R が得られる。

(b) 希ガス

希ガスの R を計算する場合にはヨウ素のように精製系で除去されることは考えなくてよいが、 ^{133}Xe や ^{135}Xe のように親核種 (^{133}I , ^{135}I) の濃度が高く、半減期が比較的長い場合には、1 次水中およびイオン交換樹脂塔内での親核種の崩壊による希ガスの生成について考慮する必要がある。このため、希ガスの場合には(6)式の代りに次式が適用される。

$$\frac{dn_2}{dt} = R + \lambda_1 n_1 + \lambda_{1c} n_{c1} - \lambda_2 n_2 \quad \dots \dots \dots \quad (9)$$

$$\frac{dn_{c1}}{dt} = p n_1 - \lambda_{1c} n_{c1} \quad \dots \dots \dots \quad (10)$$

ここで、 n_1 ：1次循環系内の親核種（ヨウ素）の原子数

n_{c1} ：イオン交換塔内の親核種（ヨウ素）の原子数

n_2 ：1次循環系内の娘核種（希ガス）の原子数

λ_1 ：親核種の崩壊定数 (s^{-1})

λ_2 ：娘核種の崩壊定数 (s^{-1})

である。定常状態では $dn_2/dt = 0$ および $dn_{c1}/dt = 0$ であるから、(9), (10)式より R は次式で得られる。

$$R = -(\lambda_1 + p) n_1 + \lambda_2 n_2 \quad \dots \dots \dots \quad (11)$$

希ガスの内 ^{135}Xe は、中性子吸収断面積が大きいが、この核反応によって ^{135}Xe が変化する割合は、

$$\frac{V}{V} \times \sigma_{\text{Xe}} \phi = \frac{1.3}{350} \times 2.65 \times 10^6 \times 10^{-24} \times 3.9 \times 10^{13} = 3.8 \times 10^{-7} (\text{s}^{-1})$$

であり、 ^{135}Xe の崩壊定数に比べて小さいので無視できる。ここで、

V ：OWL-1 炉内管内の炉心部の水量 ($V = 1.3 \ell$)

σ_{Xe} ： ^{135}Xe の中性子吸収断面積 ($2.65 \times 10^6 \text{ barn}^{23}$)

である。

なお、希ガスについてのこれらの計算を行なうに際し、ループ1次冷却系内のサージタンクの存在が1次系内の希ガスの分布に影響を与えることはないと仮定した。

(2) 非定常時におけるヨウ素の R の計算

温度変動実験時のように1次水中のFP濃度が大きく変化する場合には、ある短かい時間内で R が一定であると仮定することにより近似的に R を求めることができる。この仮定の下に(6)式を解き積分定数を C と置くと、

$$n_i = \frac{R}{\lambda_i + p} + C e^{-(\lambda_i + p)t} \quad \dots \dots \dots \quad (12)$$

となり、 $t = 0$ での n_i を n_{i0} とすると、(12)式の C は次式で与えられる。

$$C = n_{i0} - \frac{R}{\lambda_i + p} \quad \dots \dots \dots \quad (13)$$

また $t = t_1$ における n_i を n_{i1} とすると、(12), (13)式から

$$n_{i1} = \frac{R}{\lambda_i + p} + (n_{i0} - \frac{R}{\lambda_i + p}) e^{-(\lambda_i + p)t_1} \quad \dots \dots \dots \quad (14)$$

となる。したがってこの時間内での平均的な R は次式から求めることができる。

$$R = \frac{(\lambda_i + p) \{ n_{i1} - n_{i0} e^{-(\lambda_i + p)t_1} \}}{1 - e^{-(\lambda_i + p)t_1}} \quad \dots \dots \dots \quad (15)$$

なお、R/Bを計算するに当ってはTable 5に示す諸定数を用い、(5)式の σ としては $582 \times 10^{-24} \text{ cm}^2$ ²³⁾を用いた。さらに(5)式のNはFP放出実験のデータ集^{1)~3)}中のUO₂ベレットの寸法、密度、個数および濃縮度から求めた。 ϕ の値は各FP放出実験におけるフラックスモニターによる実測値を用いた。実測による ϕ の値はFP放出実験毎に多少変動があったが、(3.7~6.7) $\times 10^{13} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ の範囲であった。なお、y_iとしては累積収率(cumulative yield)²⁵⁾を用いたが、照射開始直後においては同一壊変系列に属するFPの間で平衡状態が成立していないため、y_iの値として累積収率を用いることは正確さに欠けると考えられる。しかしながらここでFPの放出についておおよその傾向を見出すことを目的としているため、照射開始直後においても累積収率を用いることができると仮定した。

付録 II 反跳によるFPの放出例

OWL-1の1次冷却水からは、燃料試料照射時以外にも少量のFPが検出される。これは、今までに行われたFP放出実験の際に少量のUO₂が水中に放出され、水の交換や精製運転にもかかわらずループ内に残存し、原子炉の運転に伴なってFPが生成されるためと考えられる。この残存UO₂は恐らく一部は水中に溶解し、残りの大部分は微粒子となって1次系の壁面に付着したり水中に懸濁したりしていると推測される。このような状態のUO₂から生成するFPは大部分が反跳によって直ちに水中に放出されるはずである。

そこで、燃料試料が装荷されていない場合の原子炉運転中にループ1次冷却水中の放射性ヨウ素濃度を測定し、 $\log(R/B)$ と $\log\lambda$ の関係をプロットするとFig.34が得られた。但し、正確なUO₂量が不明のため、 $\log(R/B)$ の代わりに比例定数を掛けた $\log(KR/B)$ を縦軸にとった。Fig.34の $\log(KR/B)$ と $\log\lambda$ の関係はほぼ水平な直線になり、反跳モデルのR/Bと λ の関係に一致している。

同様のこととはJMTR1次冷却水中の放射性ヨウ素についてもあてはまる。JMTRの1次冷却水中にも放射性ヨウ素が検出される²⁶⁾が、これは燃料の表面汚染からでも生成し得るほどの微量である。表面汚染の場合もFPの大部分は反跳によって水中に放出されるので、 $\log(R/B)$ vs. $\log\lambda$ の勾配はほぼ水平になることが予想される。そこで1次冷却水中の放射性ヨウ素濃度を実測し、 $\log(R/B)$ と $\log\lambda$ の関係をプロットすると、Fig.35に示すようにほぼ水平に近い直線が得られた。したがってJMTRの場合、FPの放出は反跳モデルに一致しており、水中の放射性ヨウ素濃度が非常に低いこと、またその濃度がほとんど変動せずほぼ一定であることを考え合わせると、水中のFPは燃料要素表面のウラン汚染に起因すると結論づけることができる。

しかし、Fig.35の直線もわずかながら左上りの勾配をもっている。これはUO₂の微粒子が燃料被覆材（アルミニウム）の外表面に埋まり込むような形で付着していて、生成したFPの1部は水中に出るまでに多少の時間を必要とするため、と想像される。また、JMTRの場合、¹³²IのR/Bだけが他のヨウ素の1/5～1/2と小さいが、これは比較的半減期の長い親核種¹³²Teの挙動と関係があるものと考えられる。

Table 1 Chemical composition of specimens for FP plateau experiments

Material	Chemical composition (wt. %)										
	Fe	Cr	Ni	Zr	Ta	Ti	Sn	Mn	C	Si	Cu
SUS 304	Bal.	18.54	8.62	—	—	—	—	1.15	0.07	0.68	0.10
Incoloy 800	Bal.	20.70	33.23	—	—	0.36	—	0.90	0.03	0.33	0.21
Cr	0.09	99.42	—	—	—	—	—	—	0.02	0.007	< 0.01
Ni-20 Cr	0.54	19.80	77.44	—	—	—	—	1.00	0.04	1.16	—
Ni	0.02	—	Bal.	—	—	—	—	0.18	0.03	0.10	< 0.01
Zr	0.12	—	—	> 99.7	—	< 0.01	—	—	—	—	—
Zry-2	0.14	0.09	0.06	Bal.	—	< 0.01	1.42	< 0.01	0.02	0.01	< 0.01
Ta	< 0.01	< 0.01	< 0.01	—	> 99.9	< 0.01	—	—	< 0.01	< 0.01	< 0.01
Ti	0.03	—	—	—	—	> 99.9	—	—	—	—	—

Table 2 Distribution of ^{131}I and ^{24}Na between steam and water

Test number ^{a)}	1			2			6			7		
	Date of sampling	19-AUG-71	24-AUG-71	31-AUG-71	29-JUN-72	1-JUL-72	5-JUL-72	7-JUL-72	16-JUN-76	28-MAR-77	^{131}I	^{24}Na
Nuclide	^{131}I	^{131}I	^{131}I	^{131}I	^{131}I	^{131}I	^{131}I	^{131}I	^{131}I	^{131}I	^{131}I	^{24}Na
Steam quality ^{b)}	0.066	0.070	0.063	0.079	0.079	0.063	0.077	0.077	0.060	0.060	0.060	0.060
$C_g (\mu\text{Ci}/\text{kg H}_2\text{O})$	1.25×10^{-9}	1.67×10^{-9}	3.58×10^{-8}	4.07×10^{-10}	1.81×10^{-9}	6.45×10^{-10}	4.66×10^{-9}	4.68×10^{-8}	9.20×10^{-7}	2.20×10^{-9}		
$C_t (\mu\text{Ci}/\text{kg H}_2\text{O})$	1.87×10^{-7}	1.09×10^{-6}	3.07×10^{-5}	9.85×10^{-8}	1.18×10^{-7}	5.65×10^{-7}	9.98×10^{-7}	7.58×10^{-6}	1.46×10^{-4}	6.81×10^{-6}		
H ^{c)}	1.5×10^2	6.5×10^2	8.6×10^2	2.4×10^2	6.5×10	8.8×10^2	2.1×10^2	1.6×10^2	1.6×10^2	3.1×10^3		

a) Number of FP release experiment.

b) Ratio of steam flow rate to total flow rate of the coolant.

c)
$$H = \frac{C_t}{C_g} \left(\frac{\text{activity concentration in the loop water}}{\text{activity concentration in the condensed steam}} \right)$$

Table 3 Chemical states of FPs in the loop water

Nuclide	Activity on each filter ($\mu\text{Ci}/\text{ml}$ loop water) ^{a)}						Activity on each filter ($\mu\text{Ci}/\text{ml}$ loop water) ^{a)}						Activity on each filter ($\mu\text{Ci}/\text{ml}$ loop water) ^{a)}					
	8th FP release experiment			Sampled; 9:32, 10-MAR-1978			9th FP release experiment			Sampled; 9:07, 7-JUN-1980			Sampled; 14:00, 7-JUN-1980					
	MF ^{b)}	CF ^{c)}	AF ^{d)}	Total	MF	CF	AF	Total	MF	CF	AF	Total	MF	CF	AF			
⁹¹ Sr					3.87×10^{-6} (2.2%)	1.75×10^{-4} (97.9%)		1.79×10^{-4}										
⁹¹ Y	2.02×10^{-4} (~100%)			2.02×10^{-4}											2.7×10^{-7}			
⁹⁵ Zr																		
^{99m} Tc	1.79×10^{-6} (0.2%)	7.02×10^{-6} (0.9%)	8.09×10^{-4} (98.9%)	8.18×10^{-4}														
¹⁰³ Ru															3.5×10^{-7} (~100%)			
¹³¹ I	2.23×10^{-4} (0.8%)	1.28×10^{-4} (0.5%)	2.75×10^{-2} (98.9%)	2.78×10^{-2} (0.2%)	1.20×10^{-6} (0.2%)	7.17×10^{-6} (0.9%)	7.89×10^{-4} (98.9%)	7.97×10^{-4} (0.9%)	1.88×10^{-5} (0.4%)	5.17×10^{-5} (1.0%)	4.87×10^{-3} (98.6%)	4.96×10^{-3} (98.6%)			3.5×10^{-7}			
¹³² Te	5.00×10^{-6} (~100%)			5.00×10^{-6}														
¹³⁷ Cs															1.9×10^{-7} (~100%)			
¹⁴⁰ Ba	1.52×10^{-6} (3.7%)	3.91×10^{-5} (96.3%)		4.06×10^{-5}	1.18×10^{-5} (~100%)		1.18×10^{-5} (~100%)				1.45×10^{-5} (~100%)				1.45×10^{-5}			
¹⁴⁰ La	6.03×10^{-5} (~100%)			6.03×10^{-5}														
¹⁴¹ Ce															1.6×10^{-7} (~100%)			
²³⁹ Np	1.07×10^{-4} (1.9%)	5.42×10^{-3} (98.1%)		5.53×10^{-3} (~100%)	9.5×10^{-7}		9.5×10^{-7}		1.12×10^{-4} (95.6%)	5.17×10^{-6} (4.4%)	1.17×10^{-4}	1.17×10^{-4}						

a) Corrected for radioactive decay to sampling time.

b) MF means membrane filter.

c) CF means cation exchange filter.

d) AF means anion exchange filter.

Table 4 Chemical forms of ^{131}I in the loop water

No. of FP release experiment	Date of sampling	Sampling point	Chemical forms (%)			
			I^-	I_2	$\text{IO}_3^- (\text{IO}_4^-)$	others
5	12-MAR-1976	core inlet	96.1	2.3	1.2	0.4
5	12-MAR-1976	core outlet	89.2	7.9	2.1	0.8
6	8-JUN-1976	core outlet	93.2	2.8	2.7	1.3
6	10-JUN-1976	core outlet	80.6	5.1	13.3	1.0
7	17-MAR-1977	core outlet	94.9	0.1	3.2	1.8
7	25-MAR-1977	core inlet	83.0	1.7	9.1	6.2
8	9-MAR-1978	core inlet	84.0	0.3	14.8	0.9

Table 5 Nuclear parameters for FP gases and iodines

Nuclide	Half life ²⁴⁾	Decay constant (s^{-1})	Fission yield ²⁵⁾ (Cumulative yield) %
$^{85\text{m}}\text{Kr}$	4.48 h	4.30×10^{-5}	1.31
^{87}Kr	76.0 min	1.52×10^{-4}	2.54
^{88}Kr	2.84 h	6.78×10^{-5}	3.58
$^{133\text{m}}\text{Xe}$	2.19 d	3.66×10^{-6}	0.191
^{133}Xe	5.25 d	1.53×10^{-6}	6.77
$^{135\text{m}}\text{Xe}$	15.3 min	7.55×10^{-4}	1.06
^{135}Xe	9.09 h	2.12×10^{-5}	6.63
^{137}Xe	3.84 min	3.01×10^{-3}	6.13
^{138}Xe	14.2 min	8.13×10^{-4}	6.28
^{131}I	8.04 d	9.98×10^{-7}	2.84
^{132}I	2.30 h	8.37×10^{-5}	4.21
^{133}I	20.8 h	9.25×10^{-6}	6.77
^{134}I	5.26 min	2.20×10^{-4}	7.61
^{135}I	6.61 h	2.91×10^{-5}	6.41

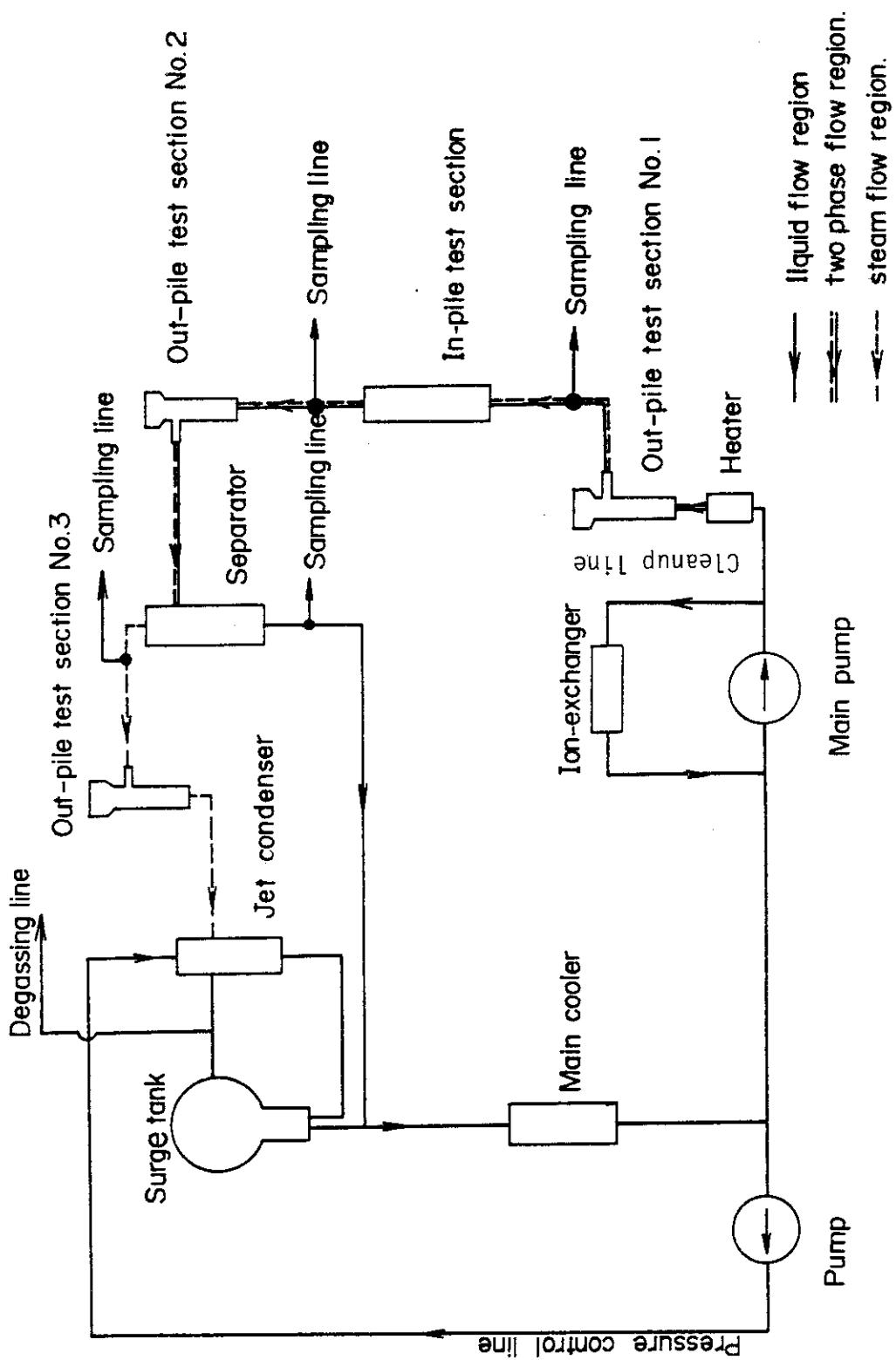


Fig.1 Schematic flow diagram of OWL-1

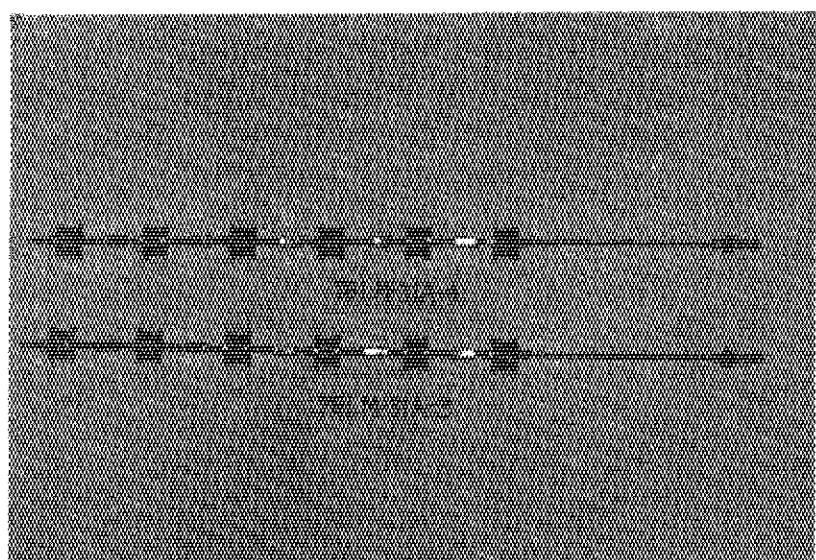


Fig.2 Assembly for FP plateout experiment

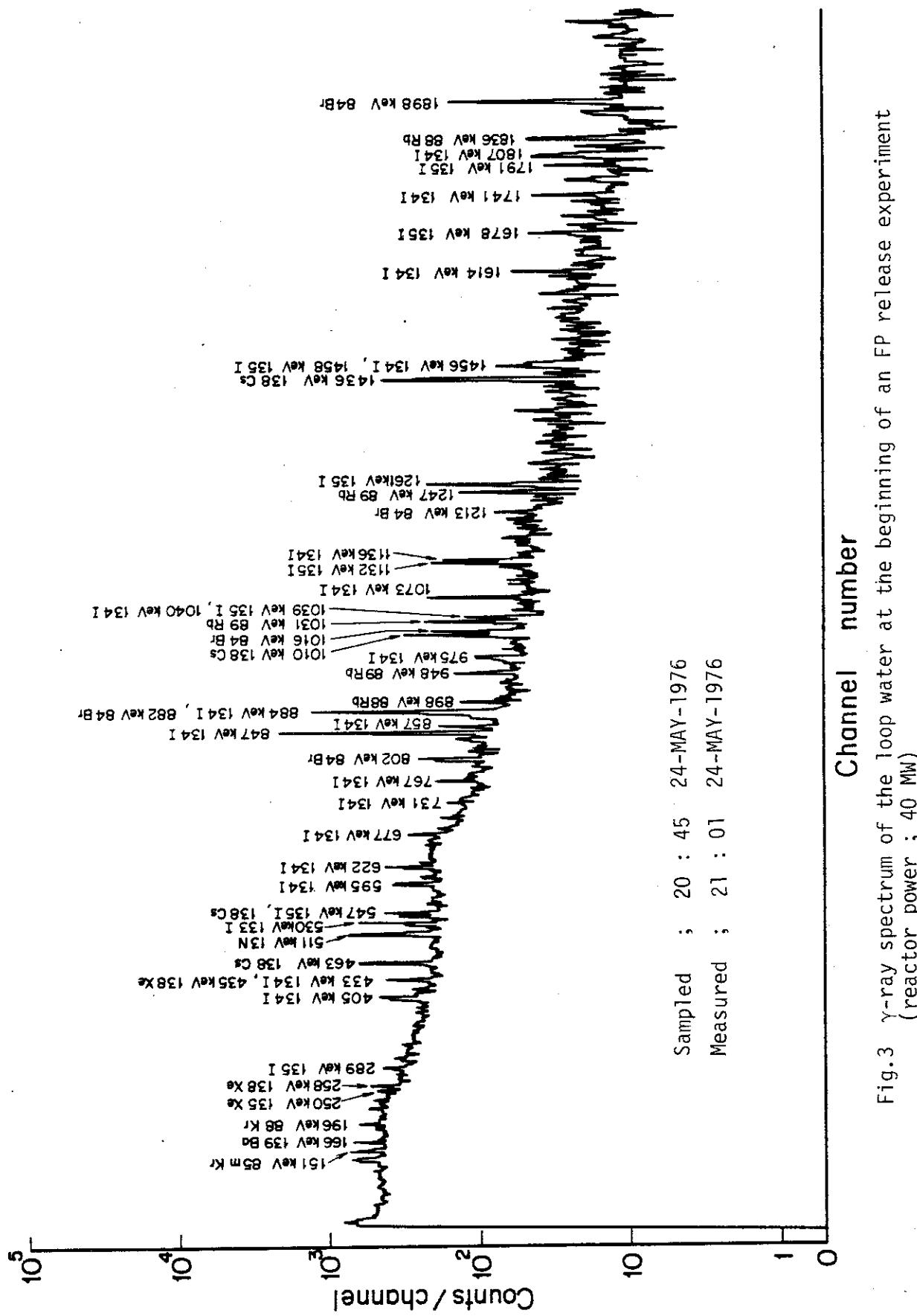


Fig.3 γ -ray spectrum of the loop water at the beginning of an FP release experiment
(reactor power ; 40 MW)

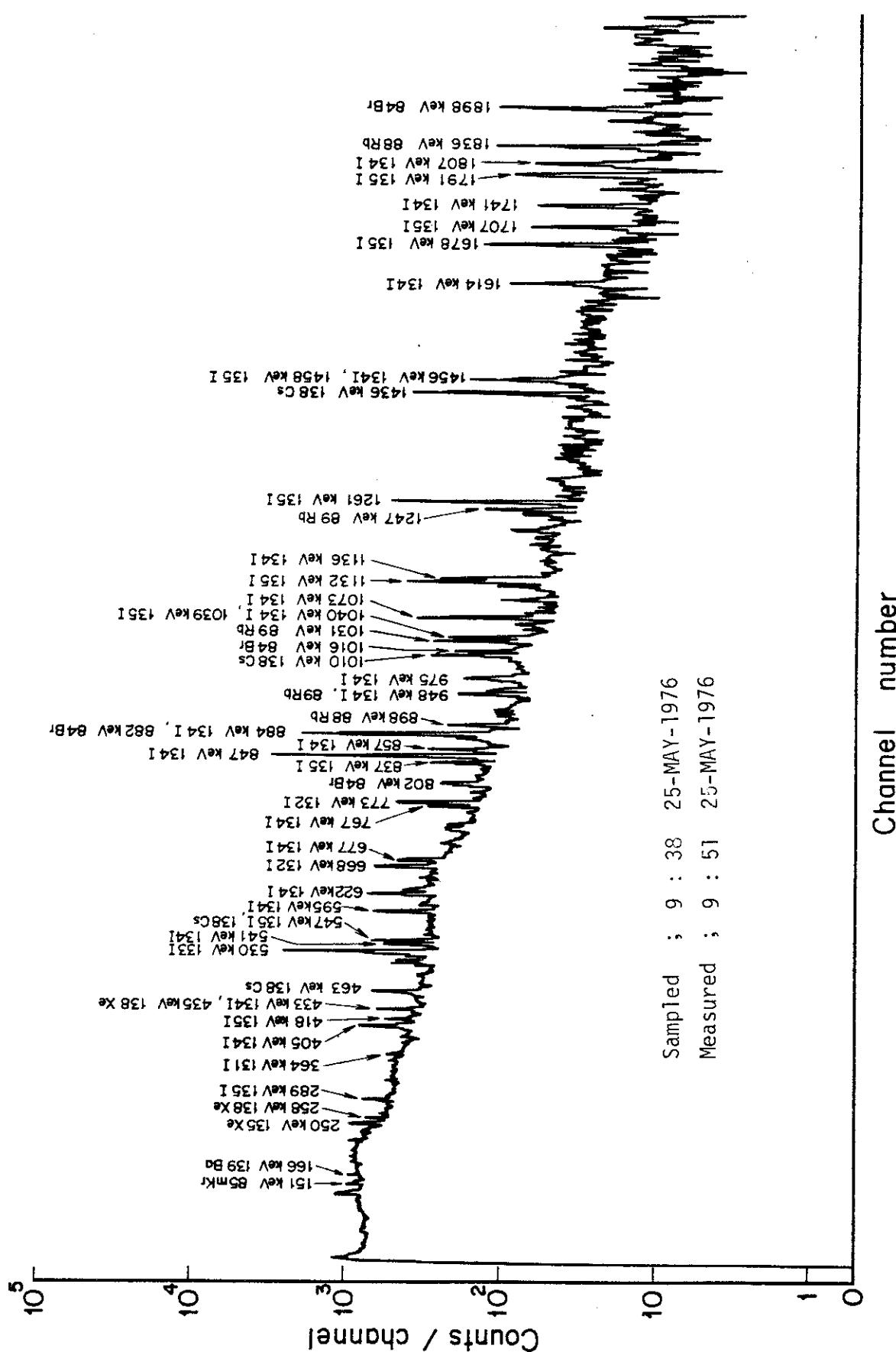
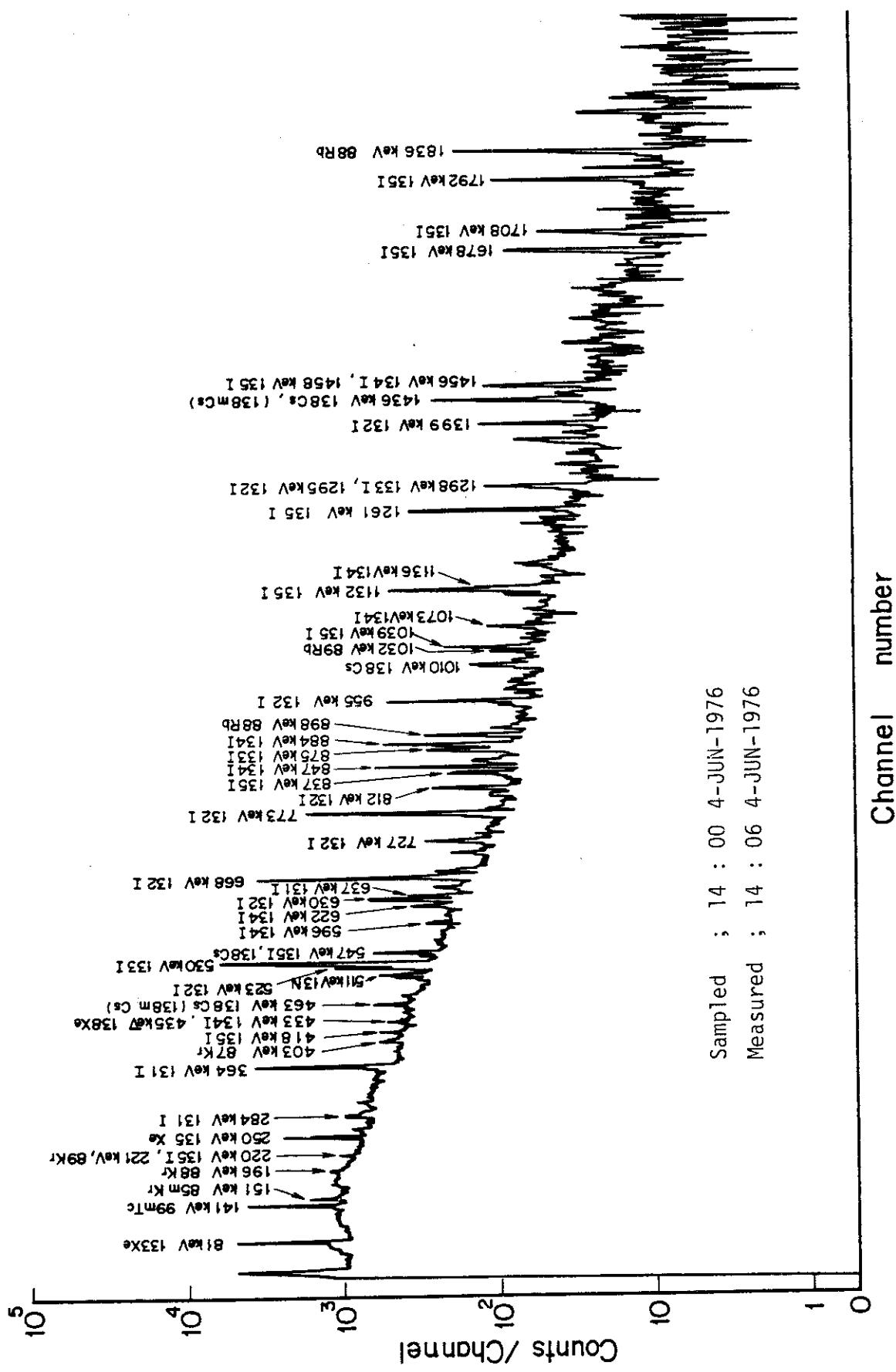
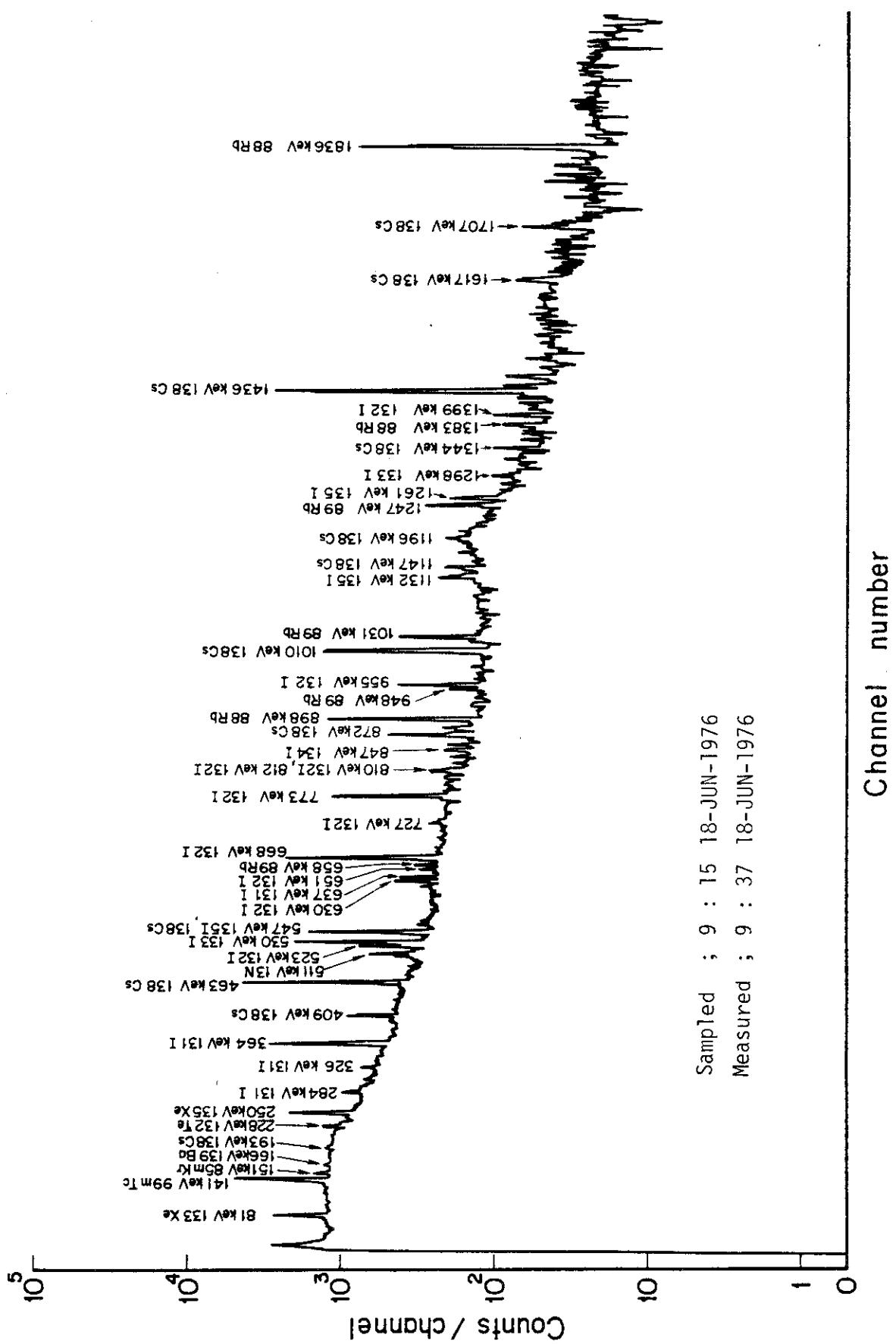


Fig.4 γ -ray spectrum of the loop water on the next day of reactor powerup

Fig. 5 γ -ray spectrum of the loop water in the middle of an FP release experiment

Fig.6 γ -ray spectrum of the loop water at the end of an FP release experiment

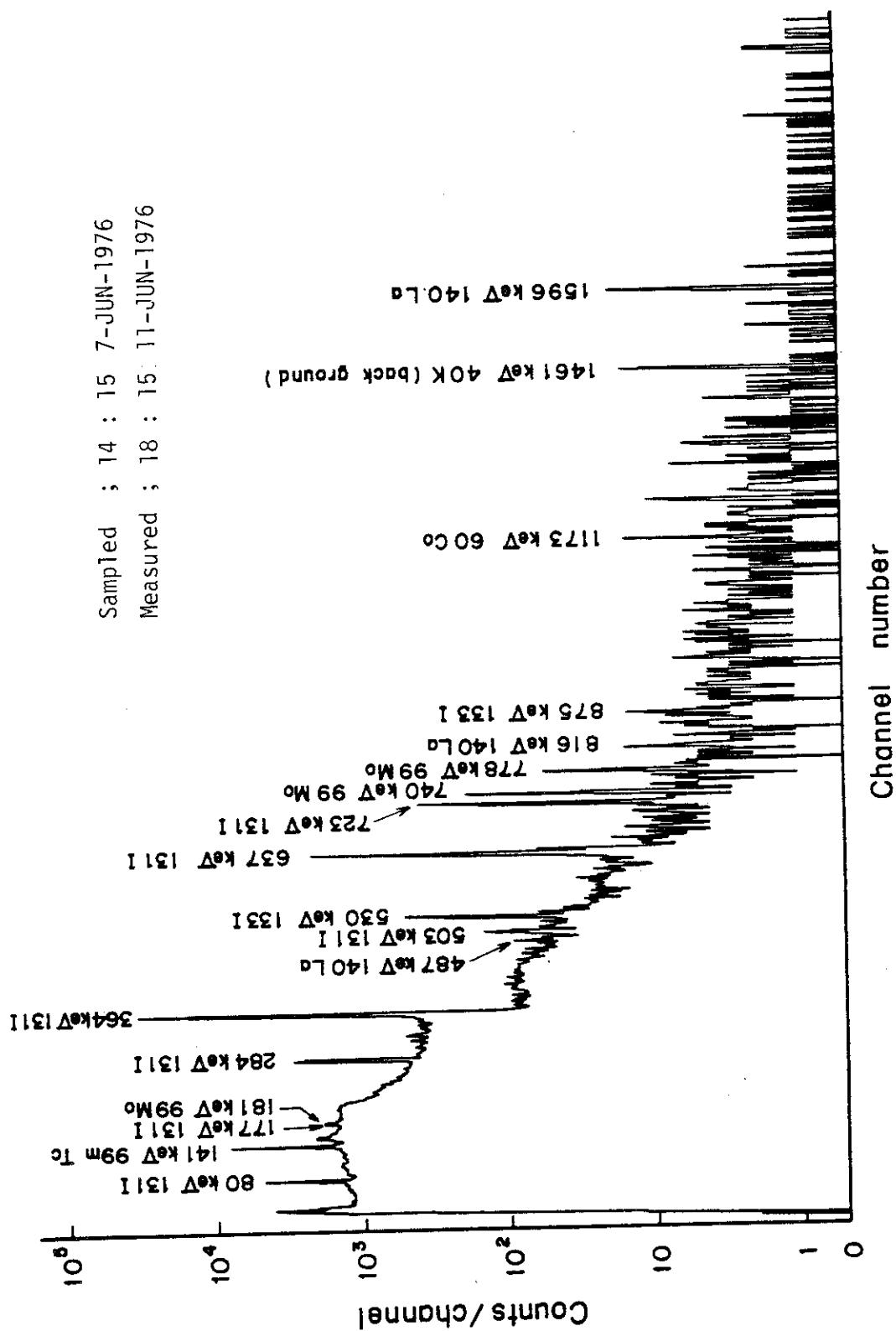
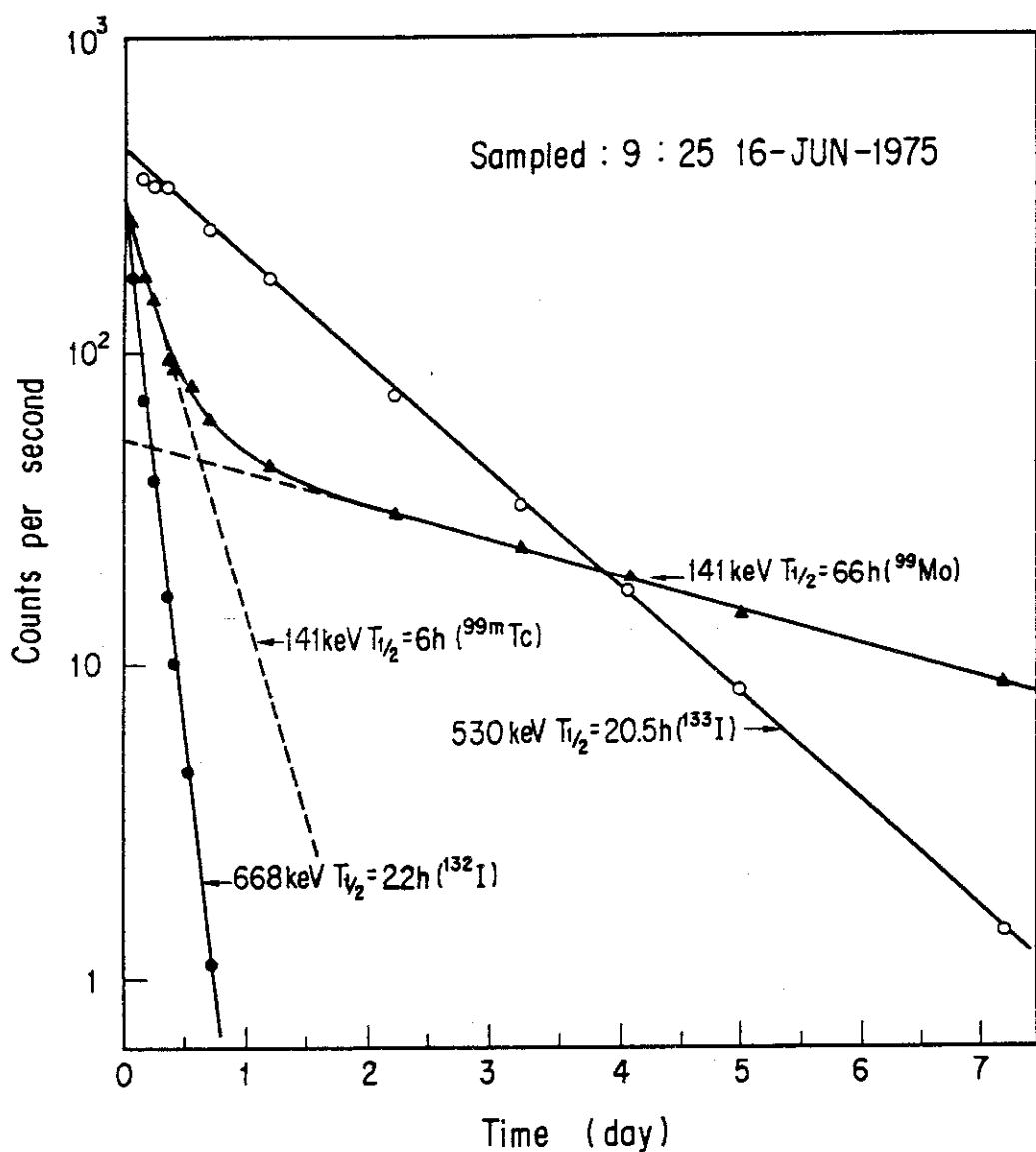


Fig.7 γ -ray spectrum of the loop water measured 4 days after sampling

Fig.8 γ -ray decay curves of the loop water

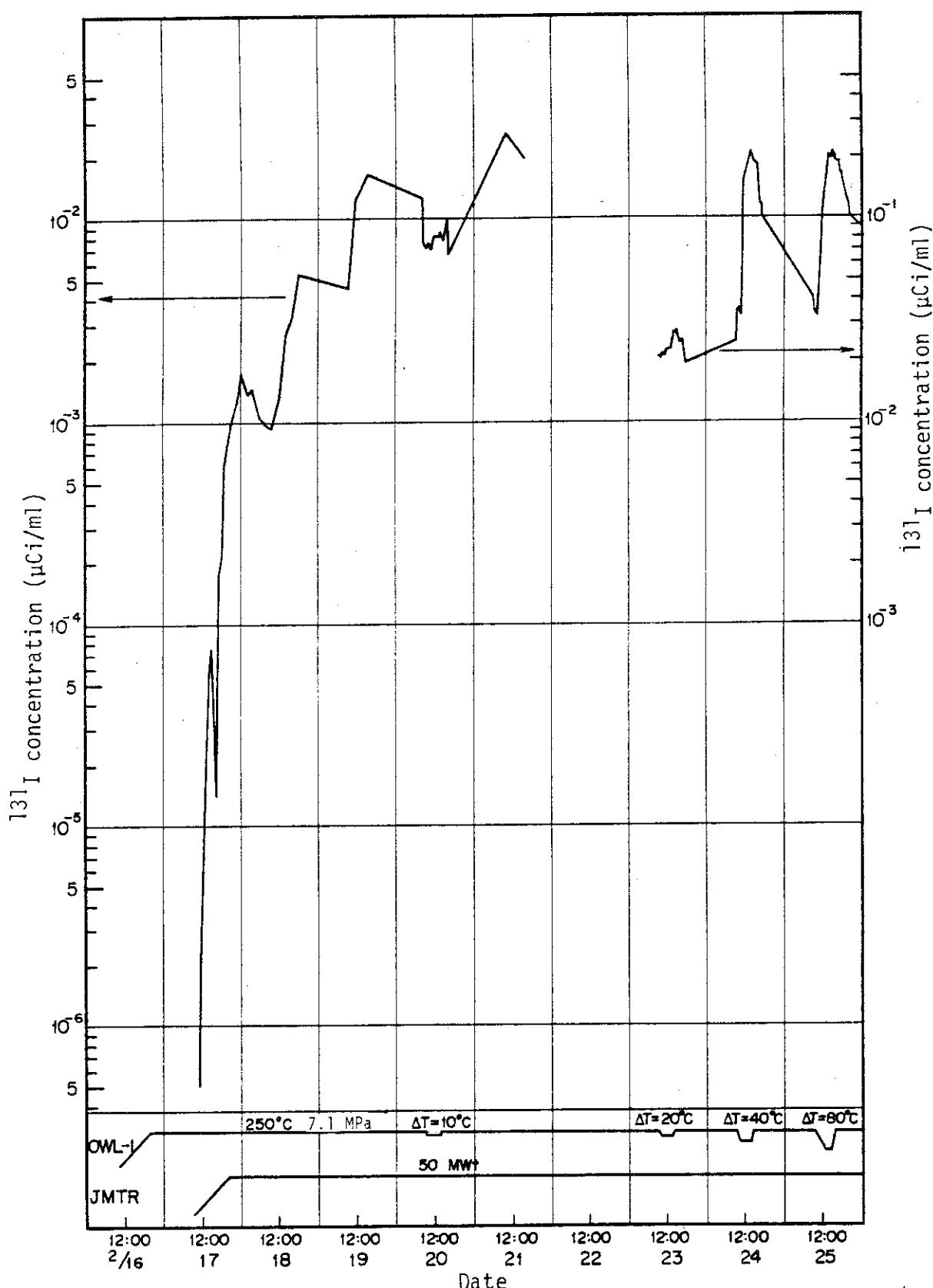


Fig. 9-1 ^{131}I activity variation during an FP release experiment (the 5th FP release experiment, Feb.~Mar. 1976)

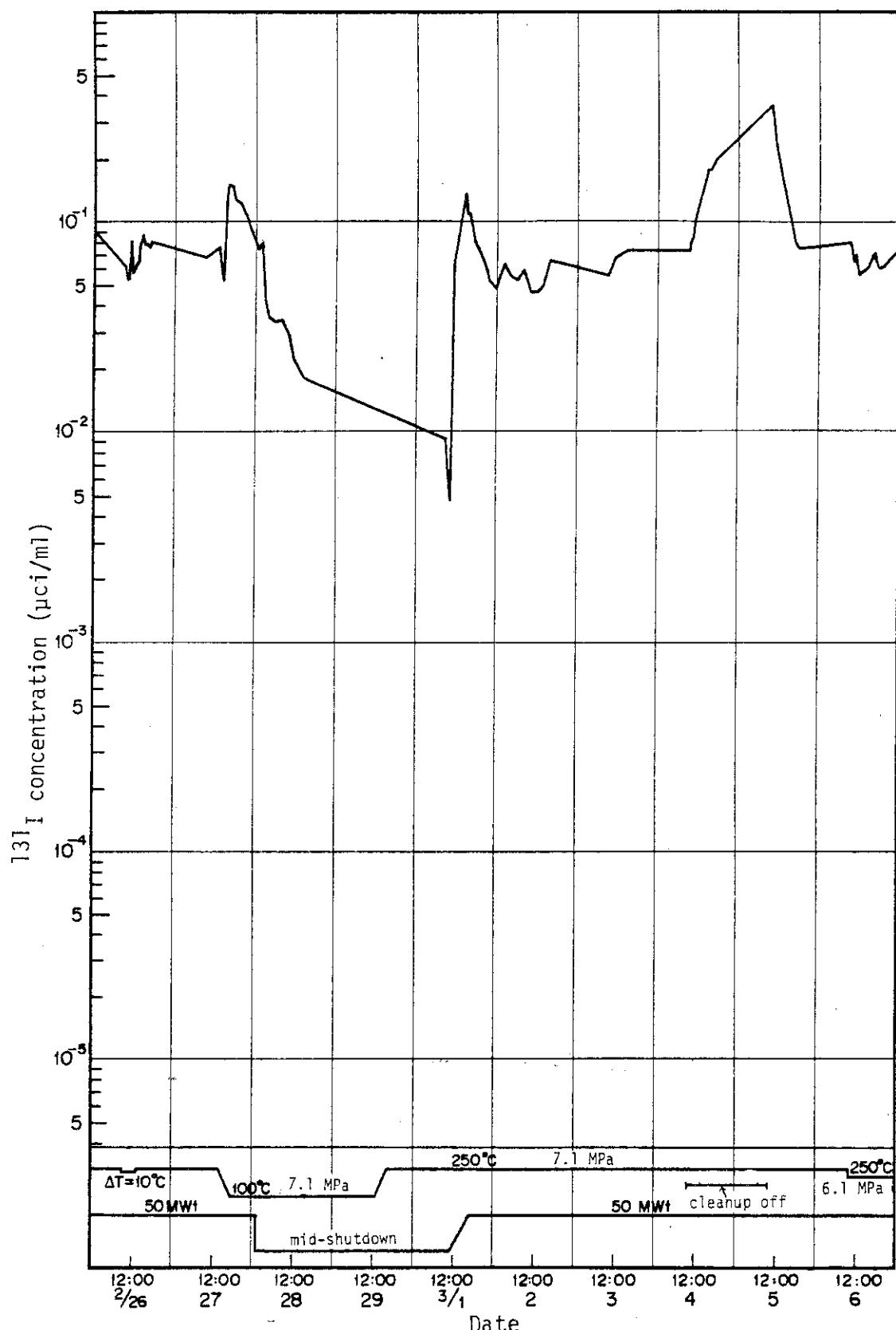


Fig.9-2 ^{131}I activity variation during an FP release experiment (the 5th FP release experiment, Feb.~Mar. 1976)

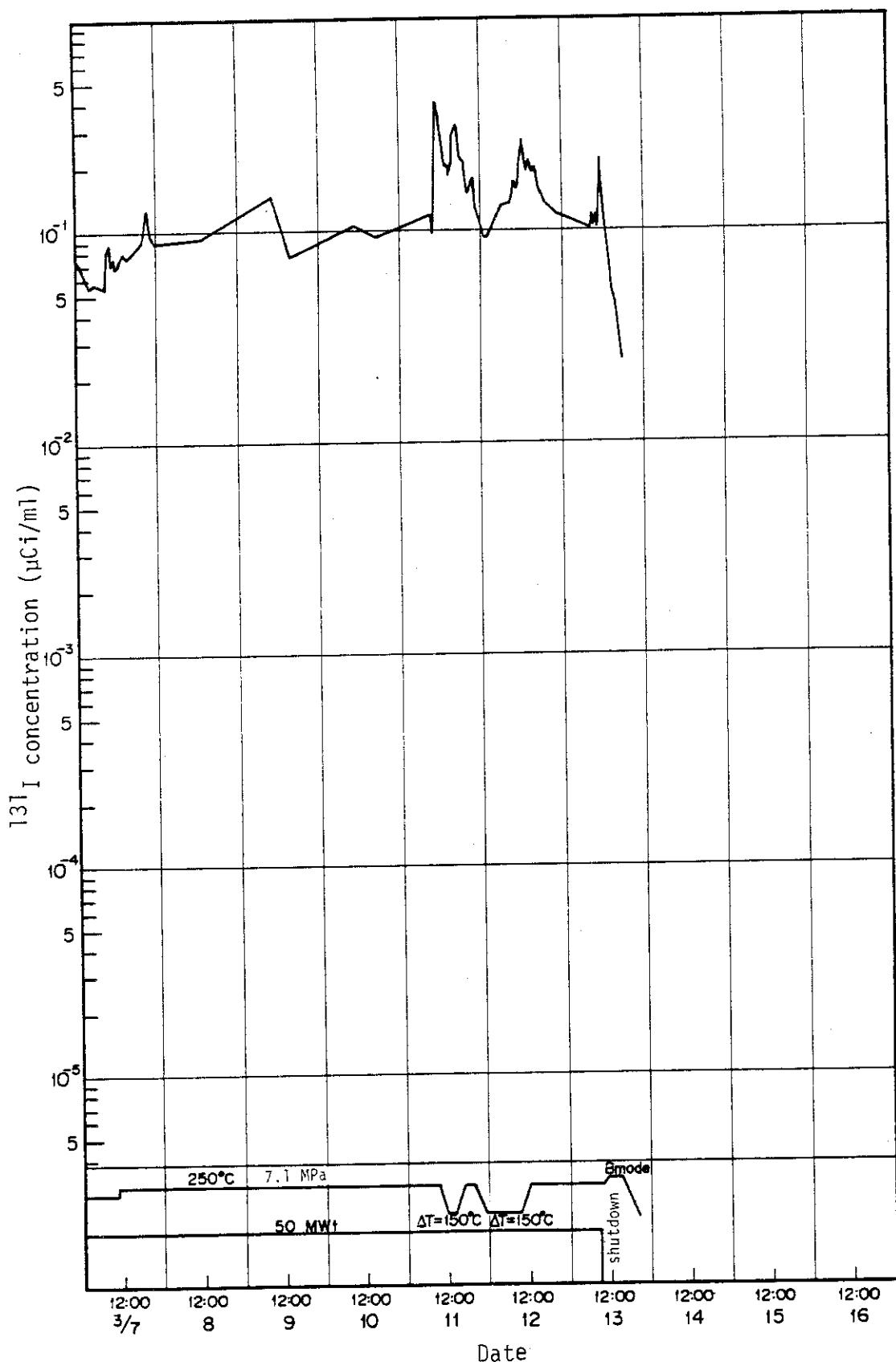
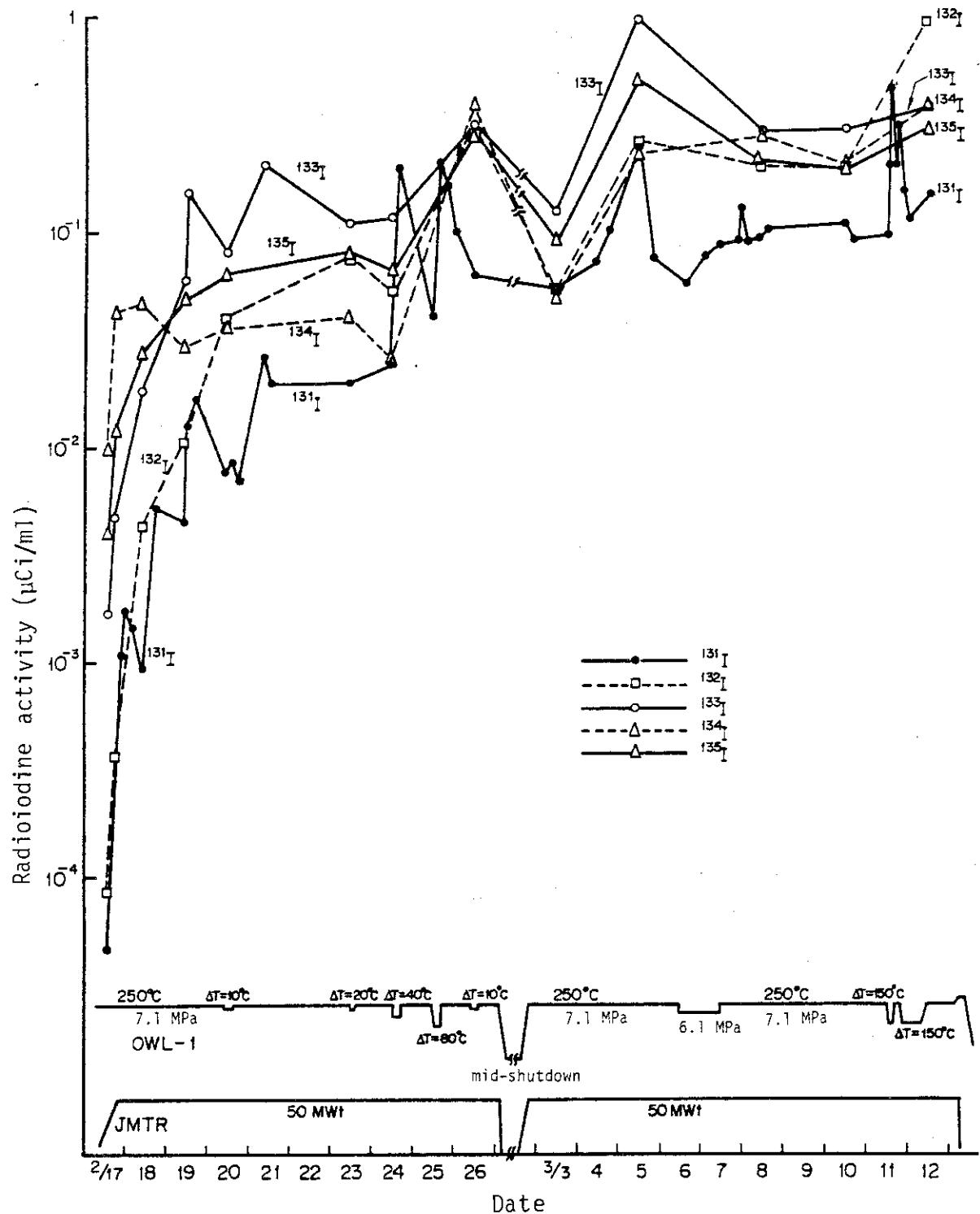


Fig.9-3 ^{131}I activity variation during an FP release experiment (the 5th FP release experiment, Feb.-Mar. 1976)



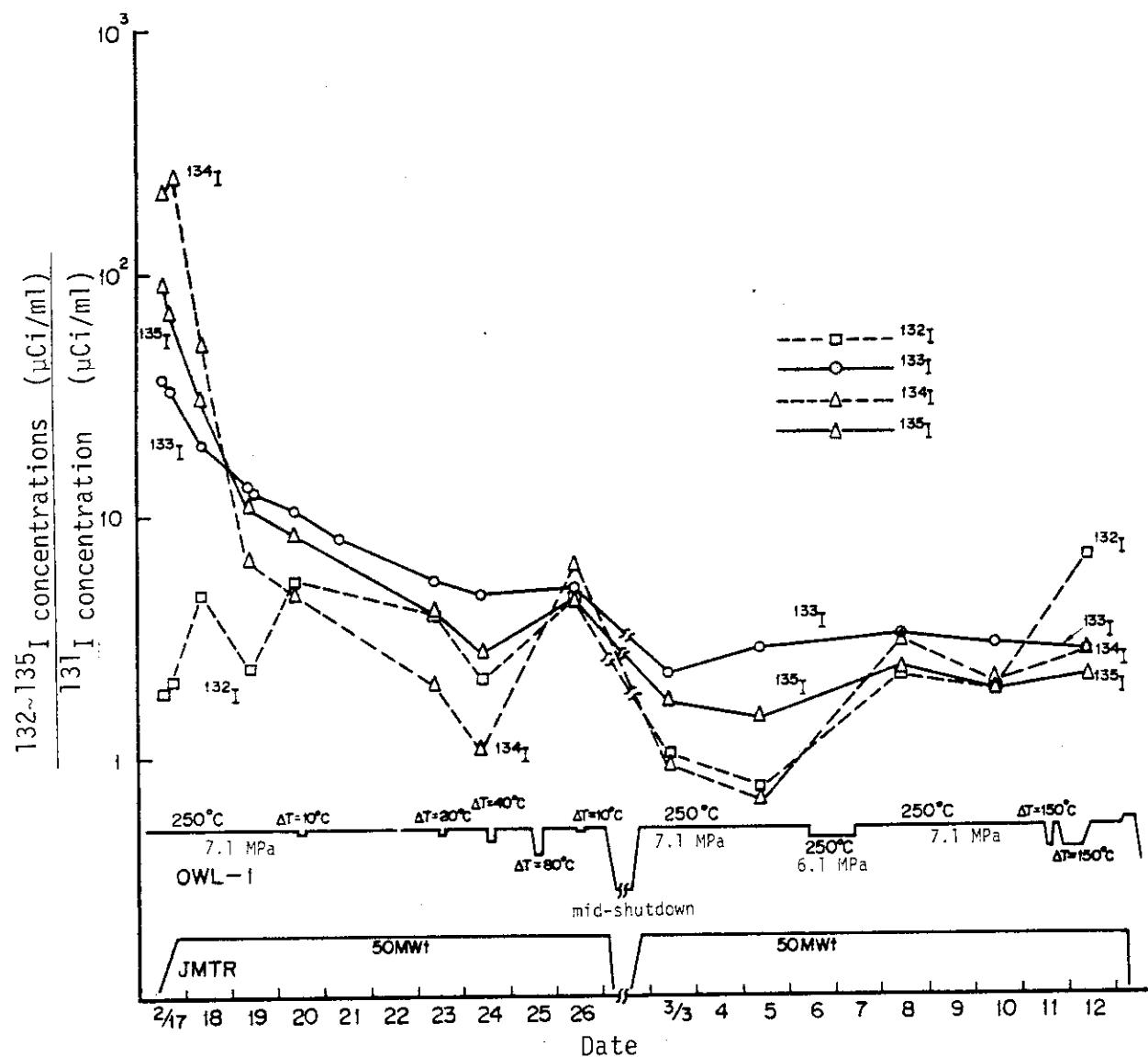


Fig.11 Variations of concentration ratios of $^{132-135}\text{I}$ to ^{131}I
(the 5th FP release experiment, Feb.-Mar. 1976)

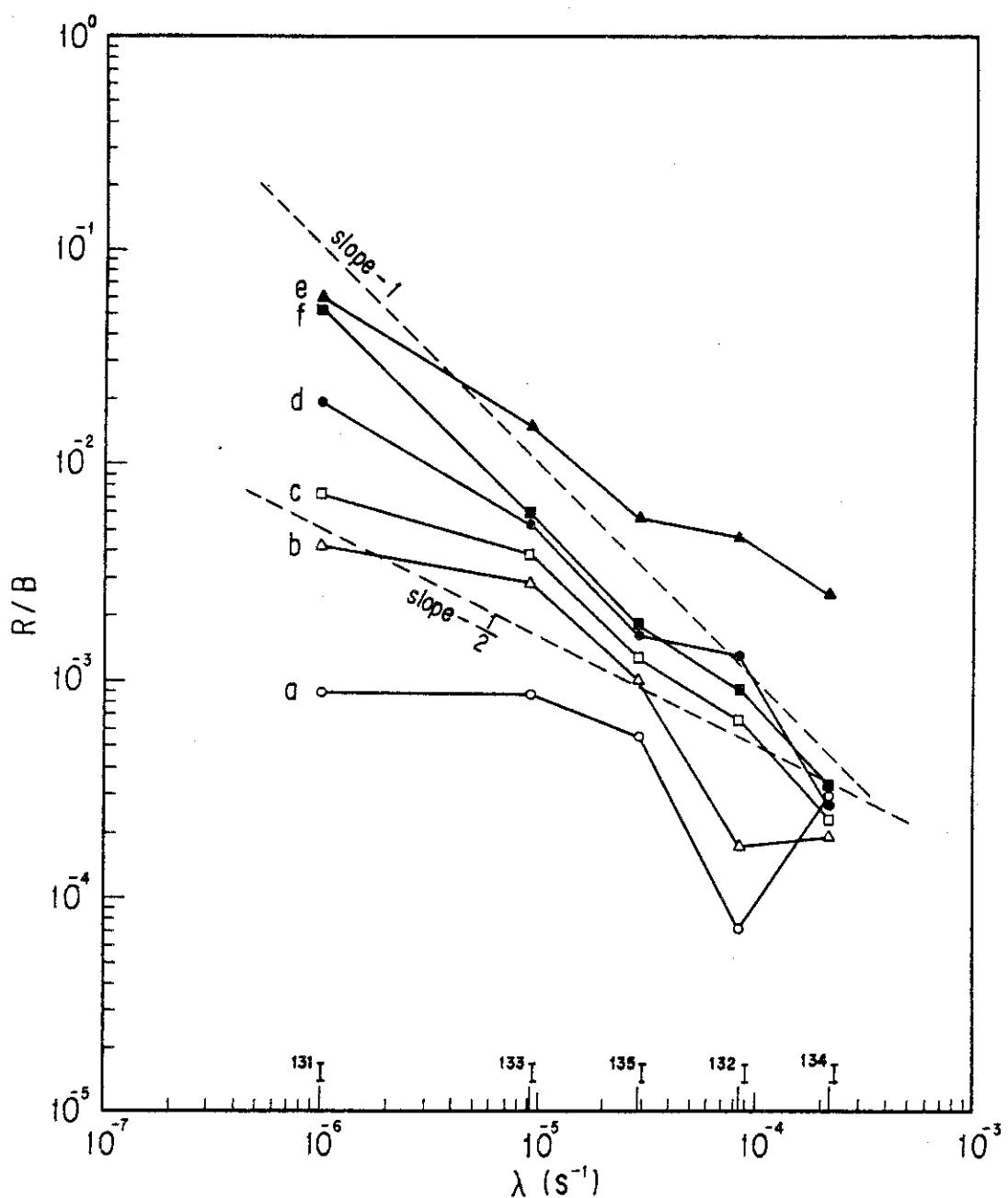


Fig.12 Dependence of R/B on the decay constant
(the 5th FP release experiment, Feb.-Mar.1976)

- | | |
|-------------------------|--------------------------|
| a : 1 day from powerup | d : 6 days from powerup |
| b : 2 days from powerup | e : 9 days from powerup |
| c : 3 days from powerup | f : 13 days from powerup |

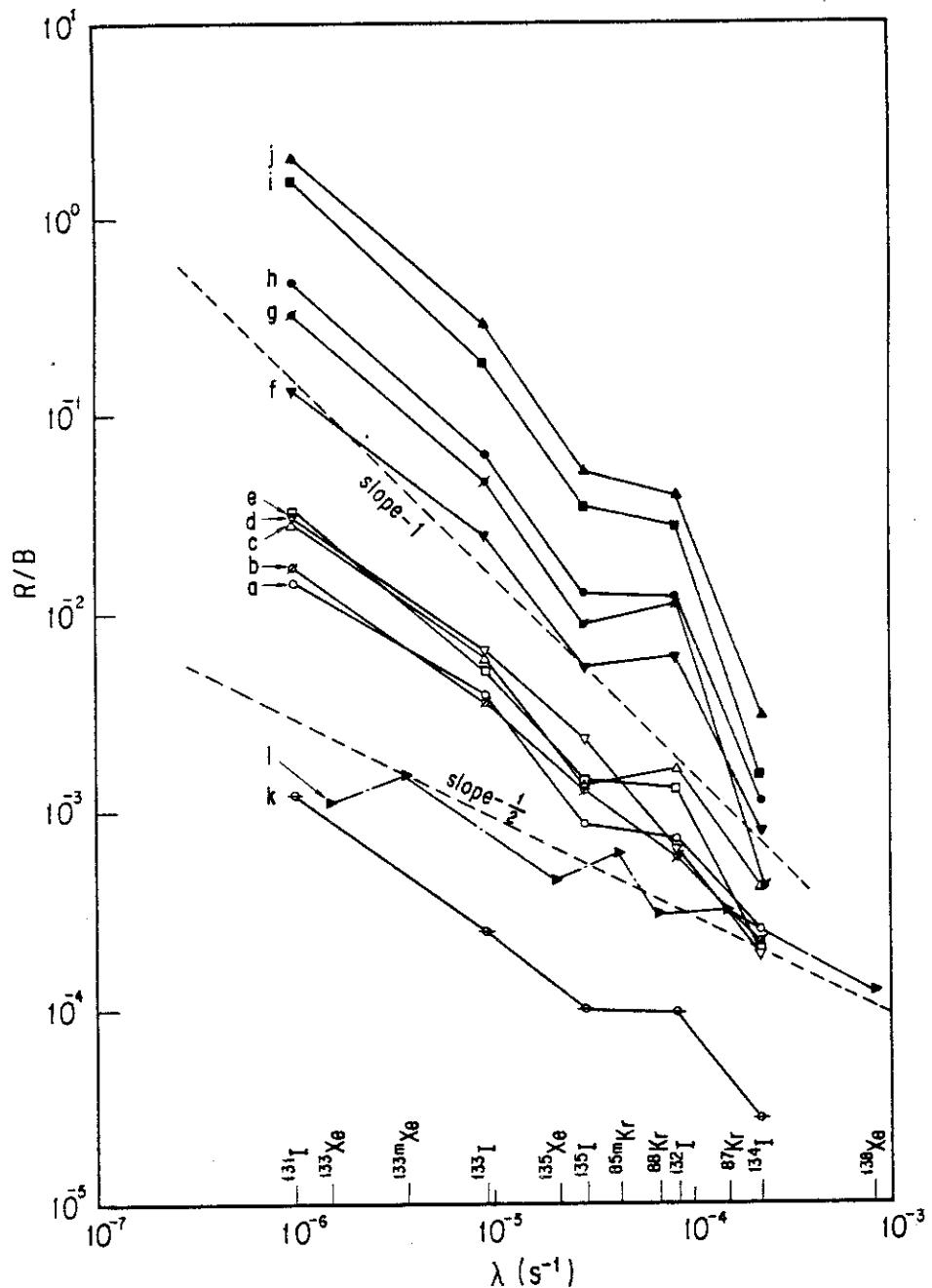


Fig.13 Dependence of R/B on the decay constant

Sampling time

a : 9:44, 31-MAY-1976	g : 10:15, 11:15, 11-JUN-1976
b : 9:25, 16-JUN-1975	h : 14:00, 15:30, 4-JUN-1976
c : 9:16, 11-JUN-1976	i : 16:00, 17:00, 4-JUN-1976
d : 9:36, 8-MAR-1978	j : 15:30, 16:00, 4-JUN-1976
e : 9:30, 25-MAR-1977	k, l : 9:10, 7-JUN-1980
f : 9:15, 10:15, 11-JUN-1976	

a-e,k : iodines under steady state operation

f-j : iodines under fluctuation of the temperature of the loop water

l : rare gases under steady state operation

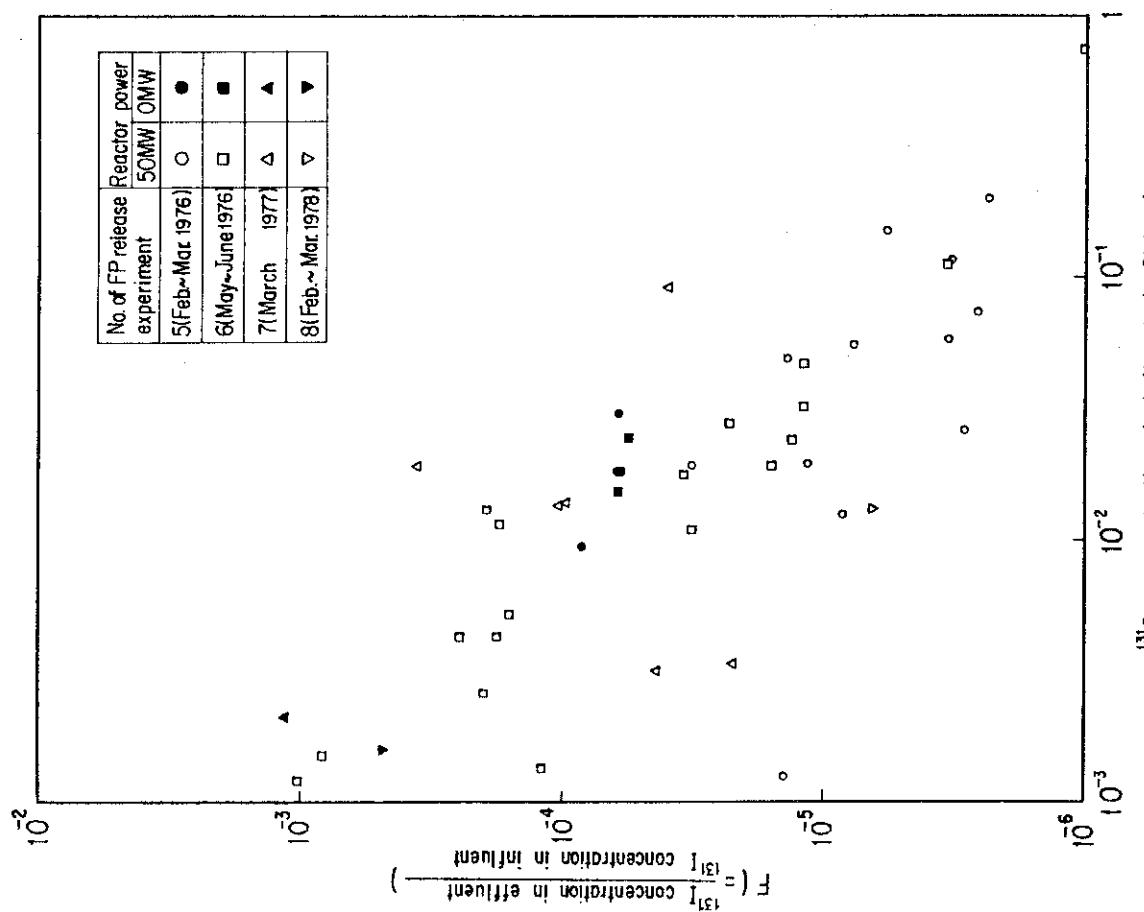


Fig. 14 Dependence of mixed-bed demineralizer decontamination factor on $[^{131}\text{I}]$ concentration in influent

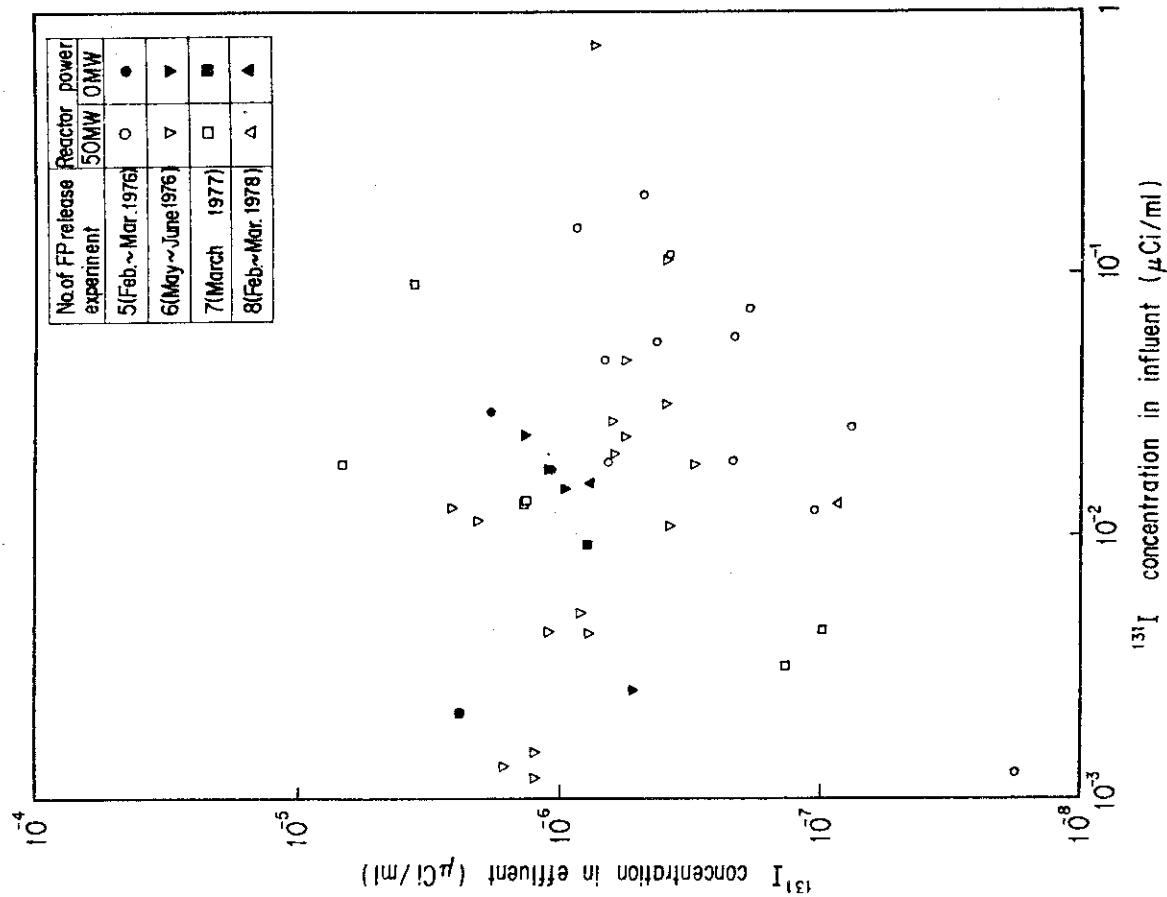


Fig. 15 Relationship between $[^{131}\text{I}]$ concentrations in effluent and influent of mixed-bed demineralizer

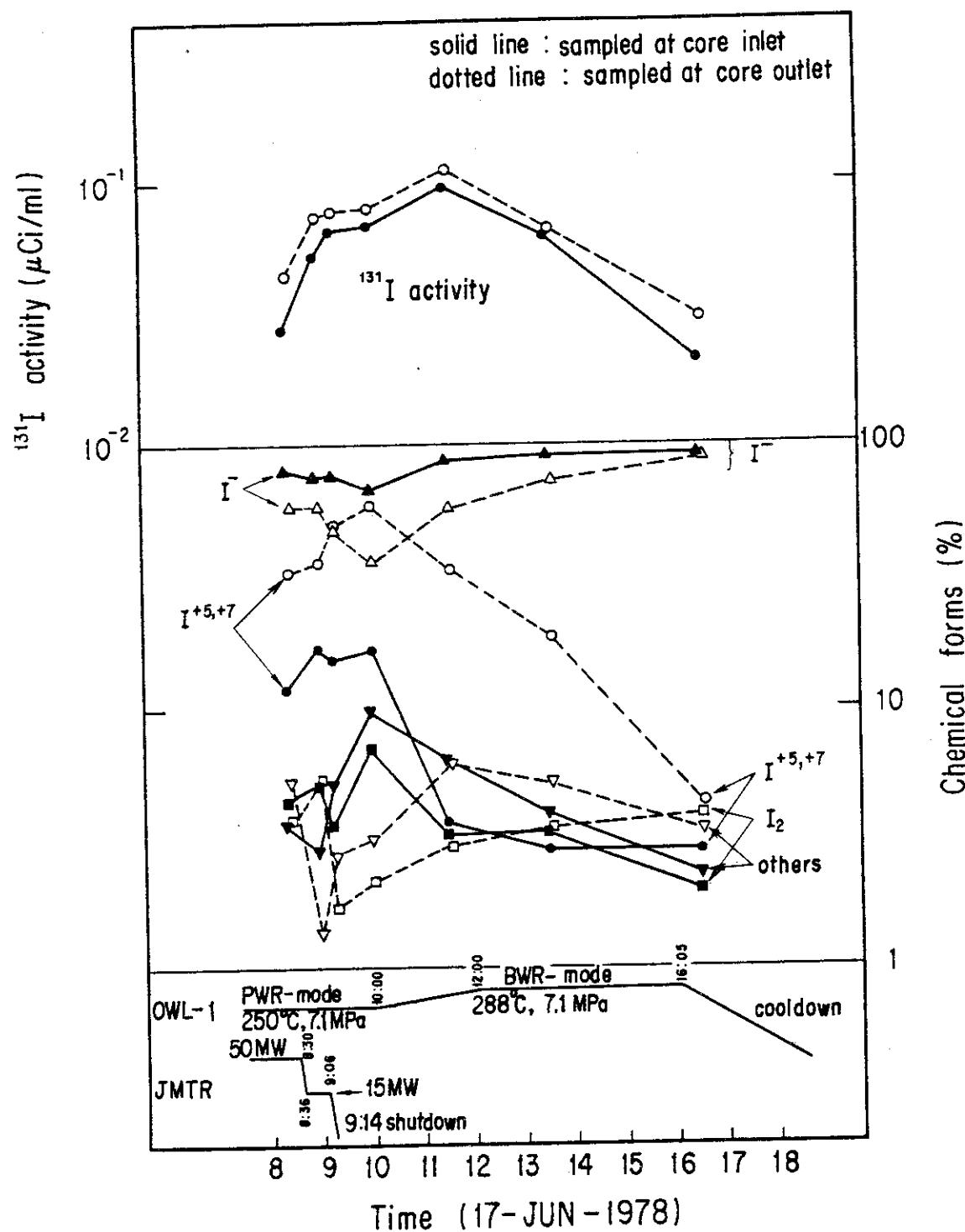


Fig.16 Variations of activity and chemical forms of ^{131}I during reactor shutdown

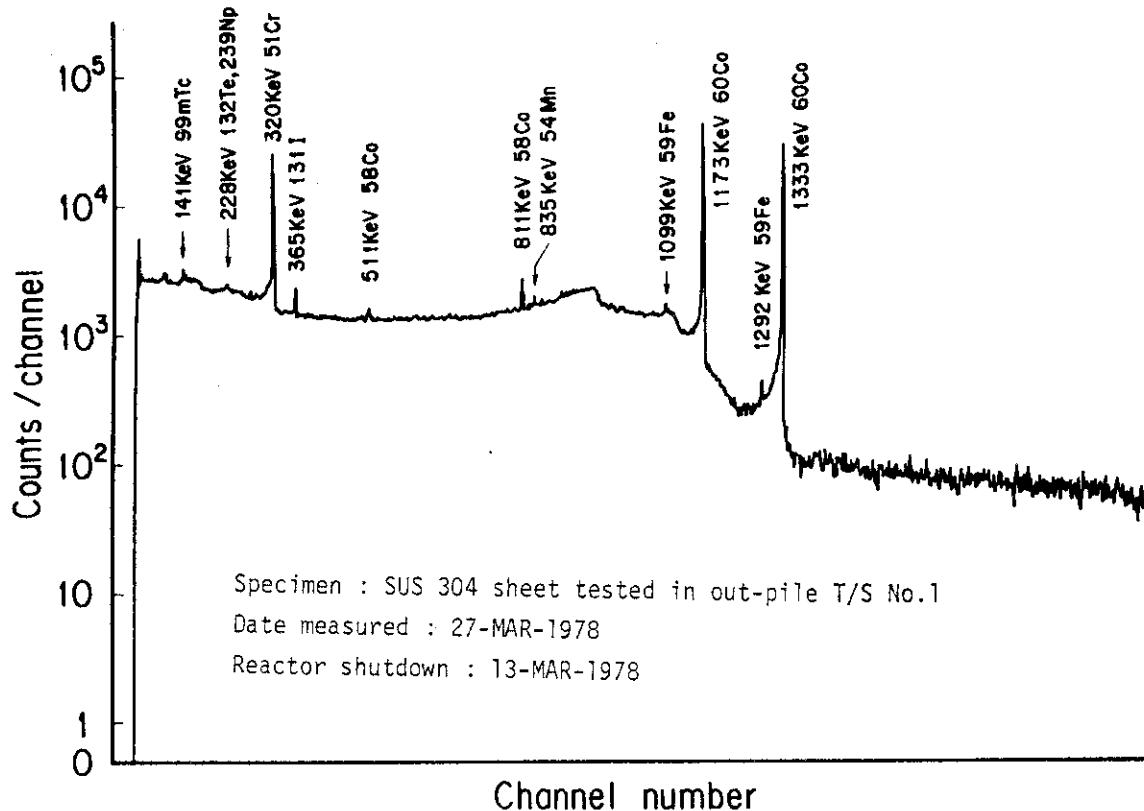


Fig.17 γ -ray spectrum of FP plateout specimen

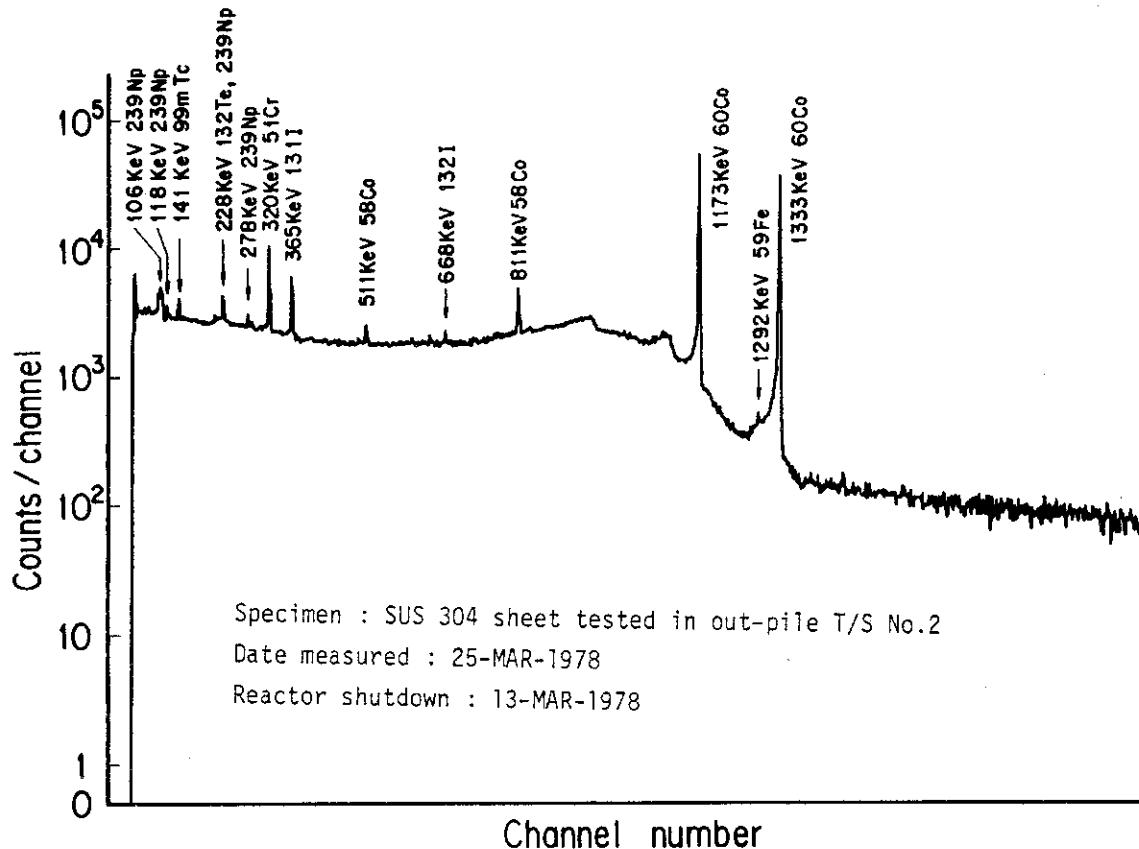


Fig.18 γ -ray spectrum of FP plateout specimen

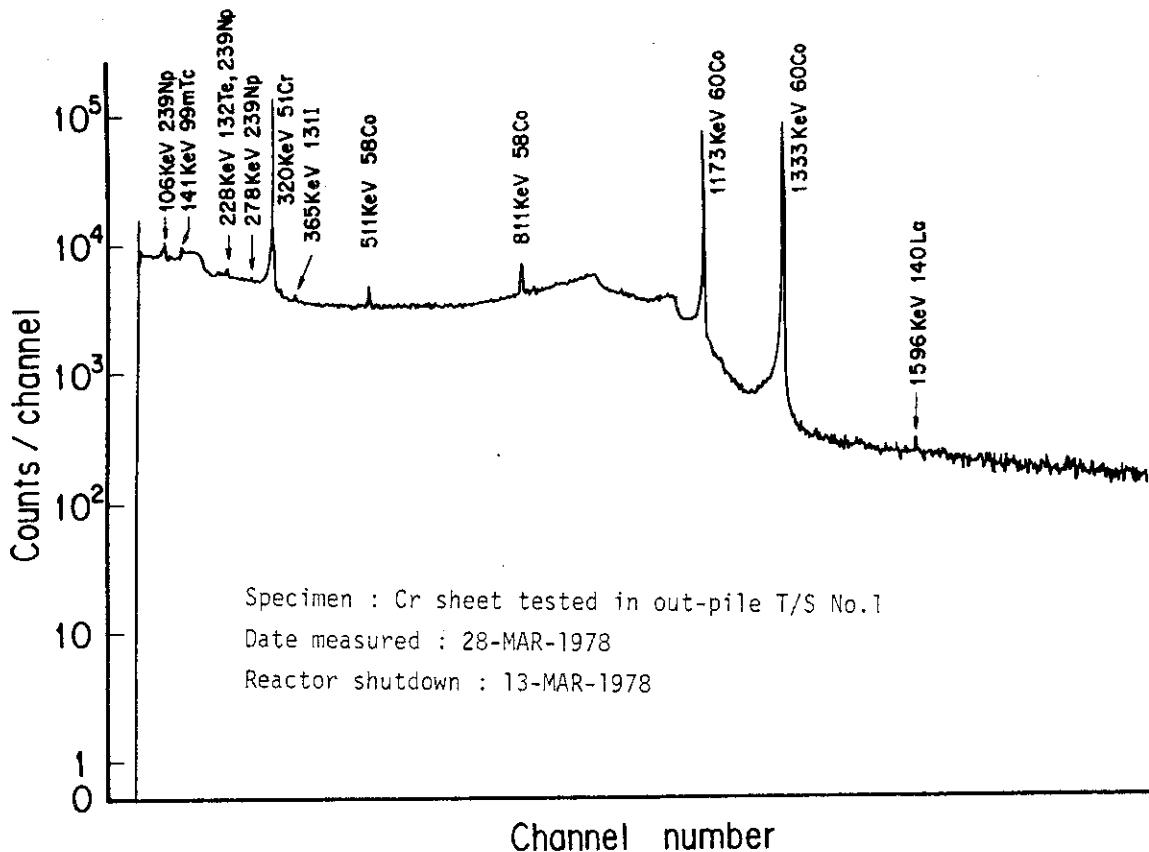


Fig.19 γ -ray spectrum of FP plateout specimen

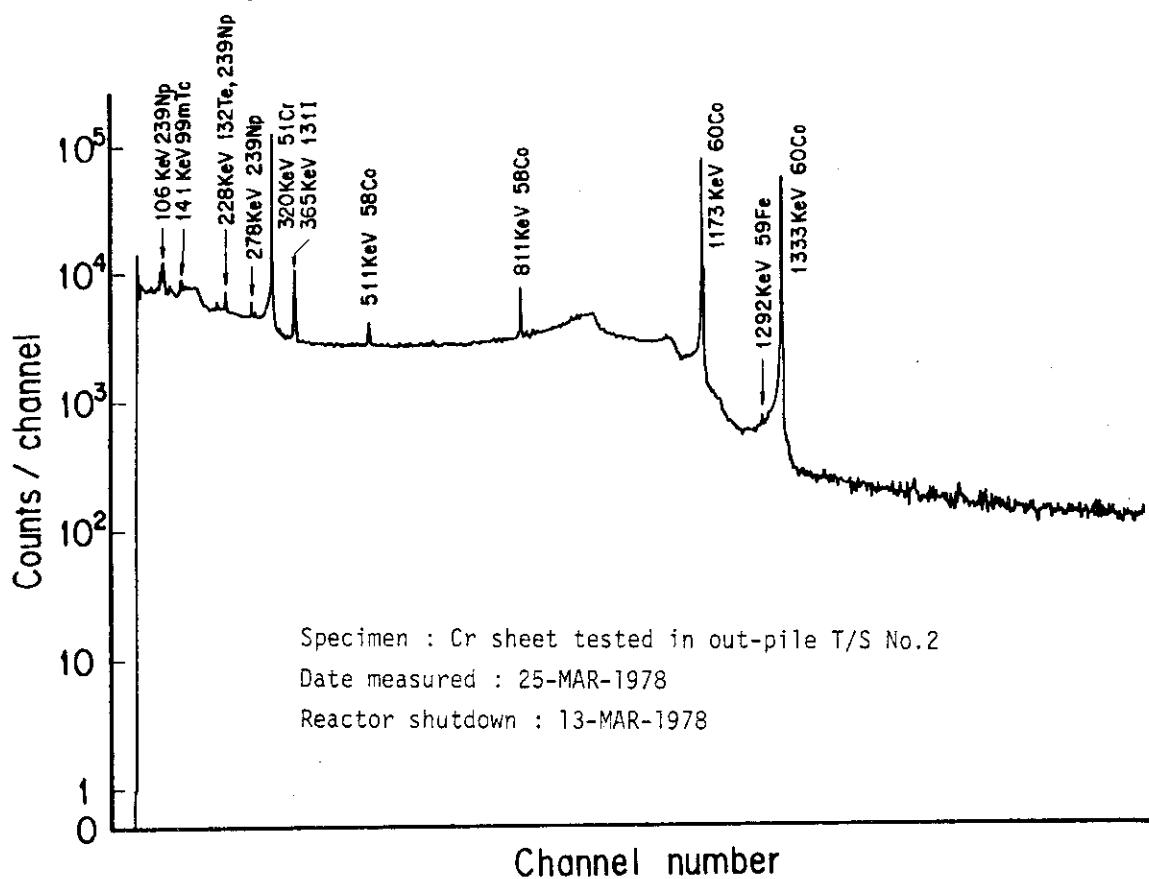
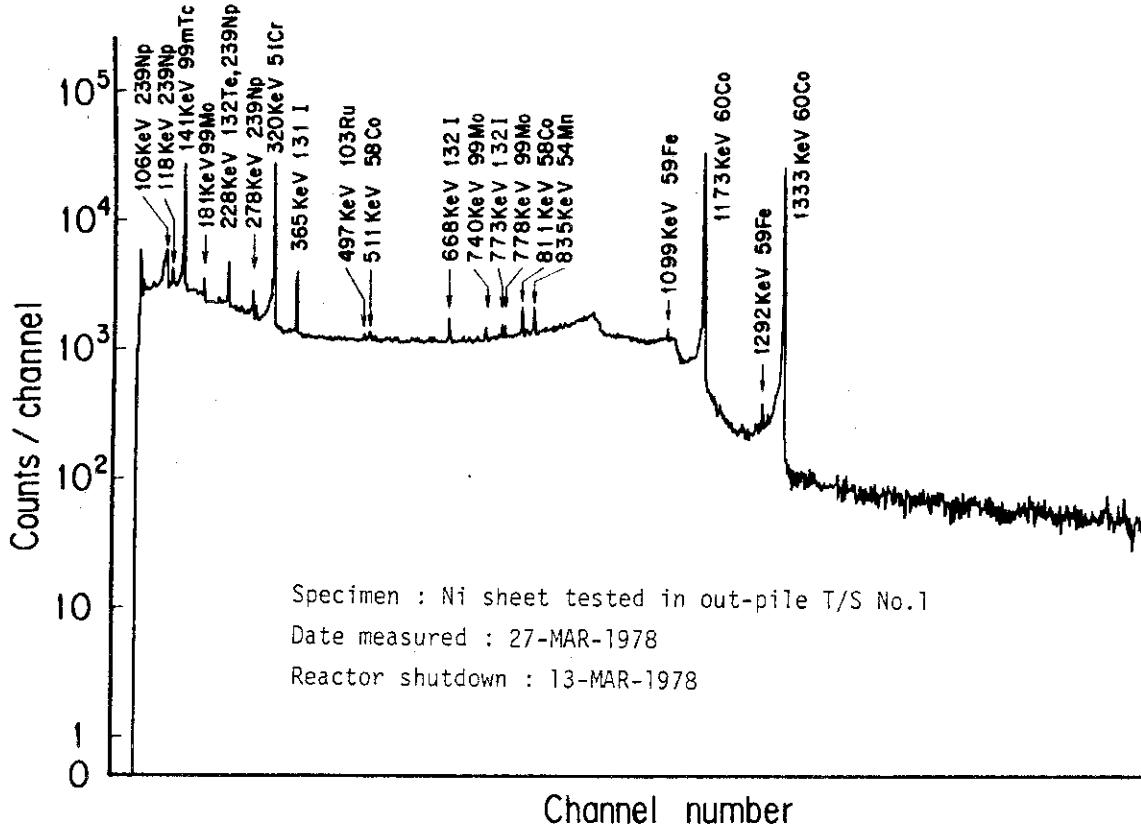
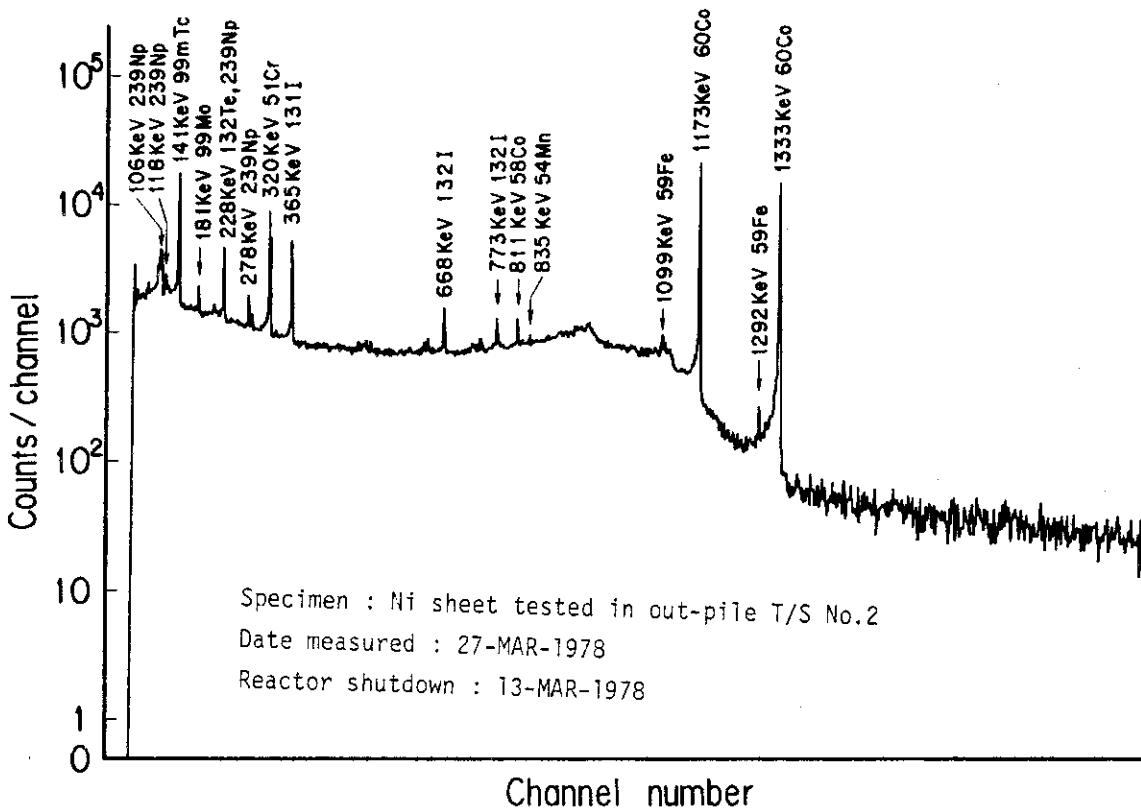


Fig.20 γ -ray spectrum of FP plateout specimen

Fig.21 γ -ray spectrum of FP plateout specimenFig.22 γ -ray spectrum of FP plateout specimen

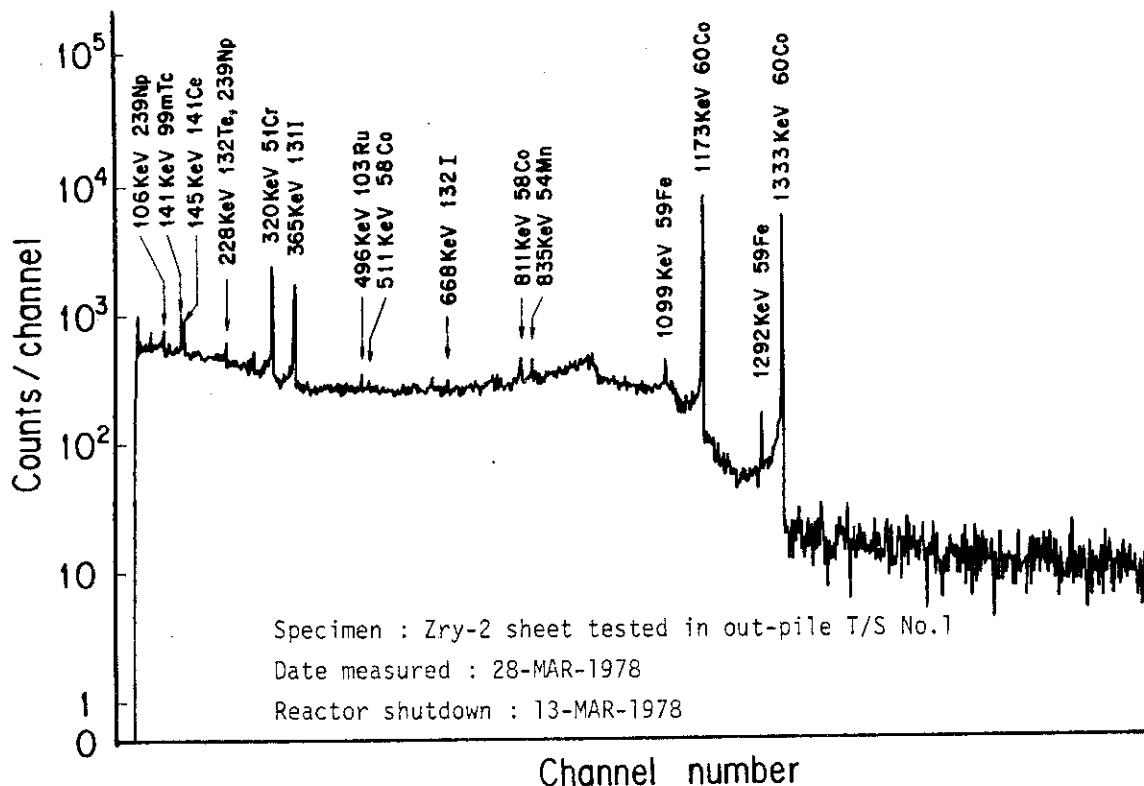


Fig.23 γ -ray spectrum of FP plateout specimen

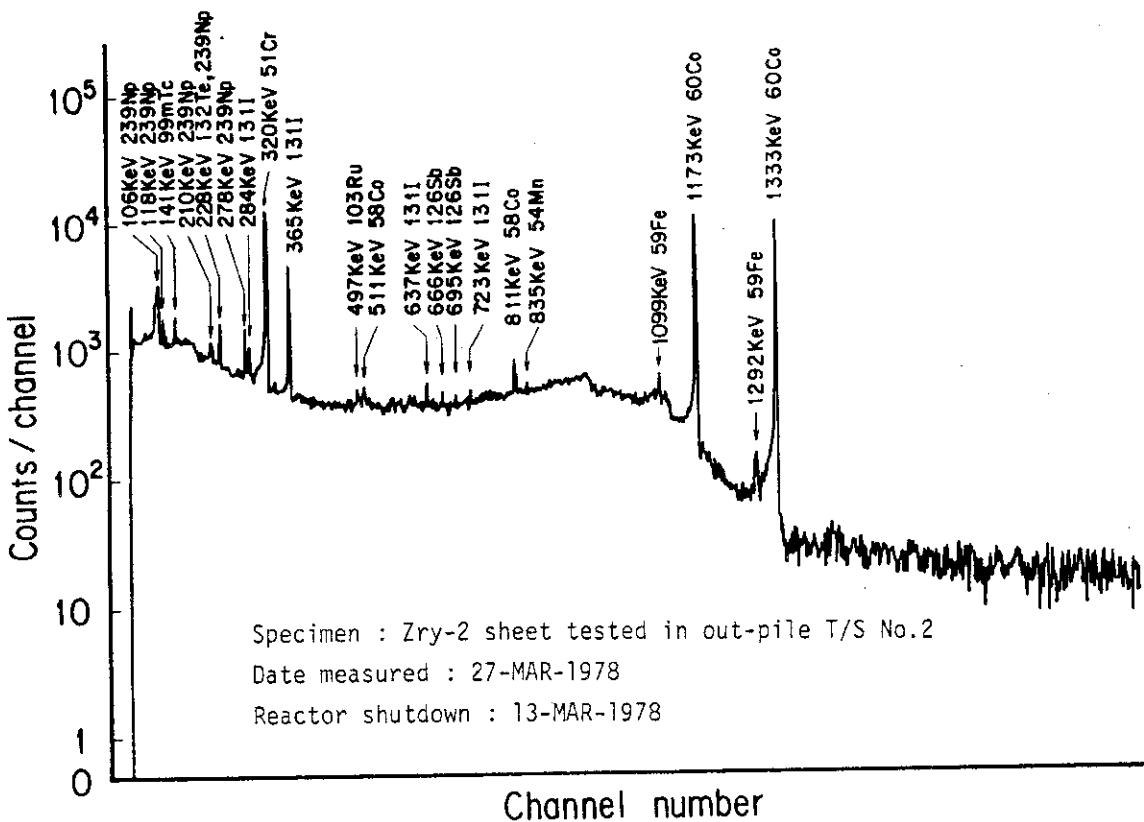
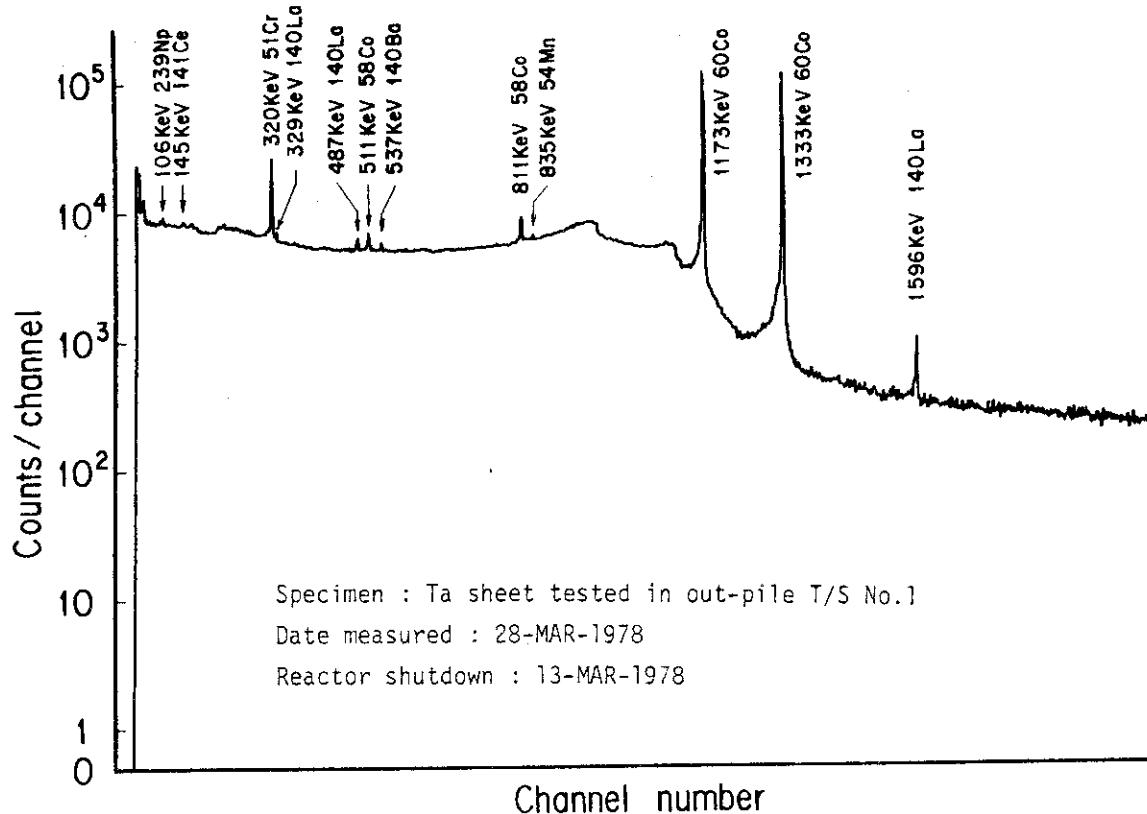
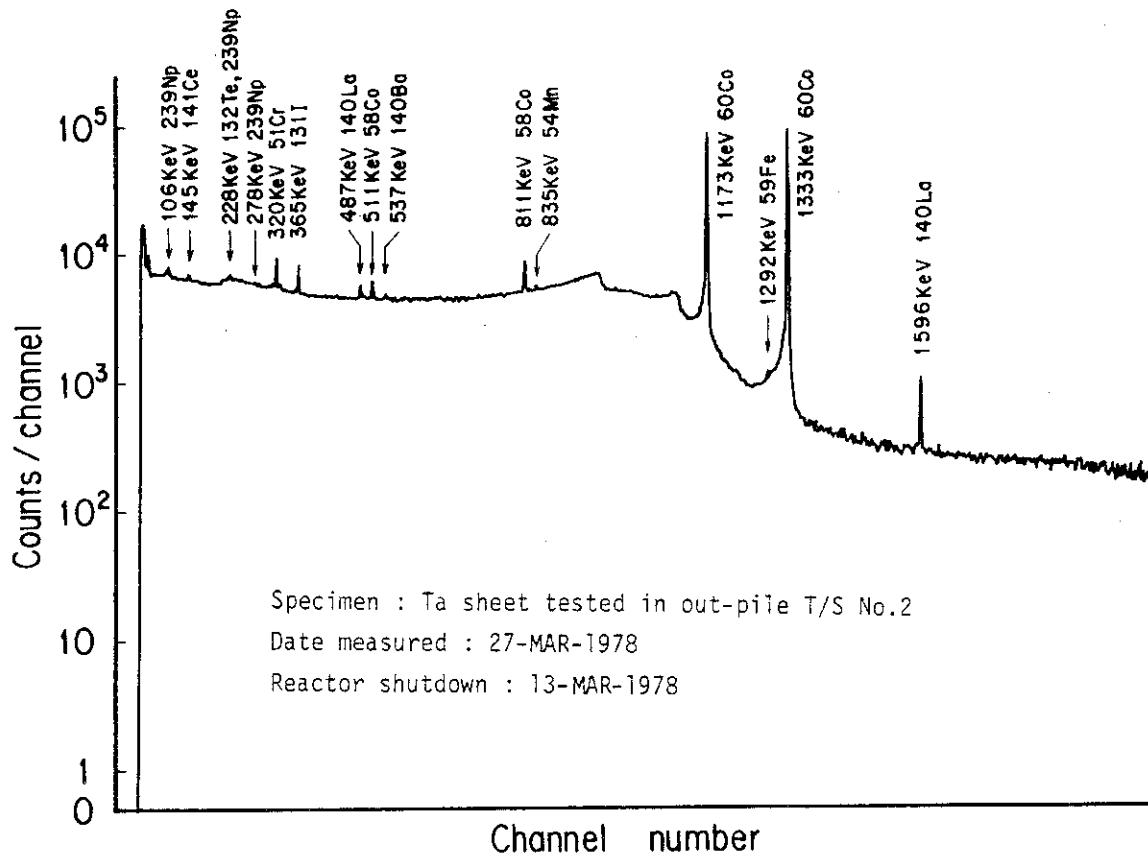
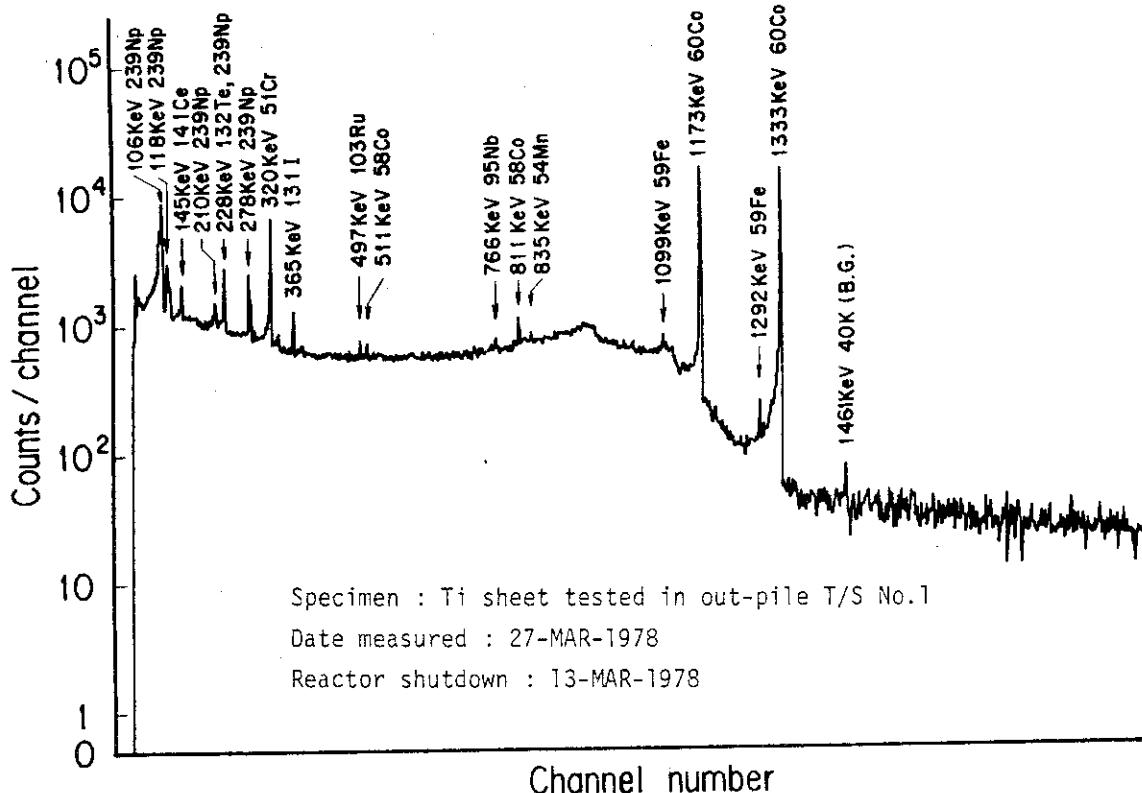
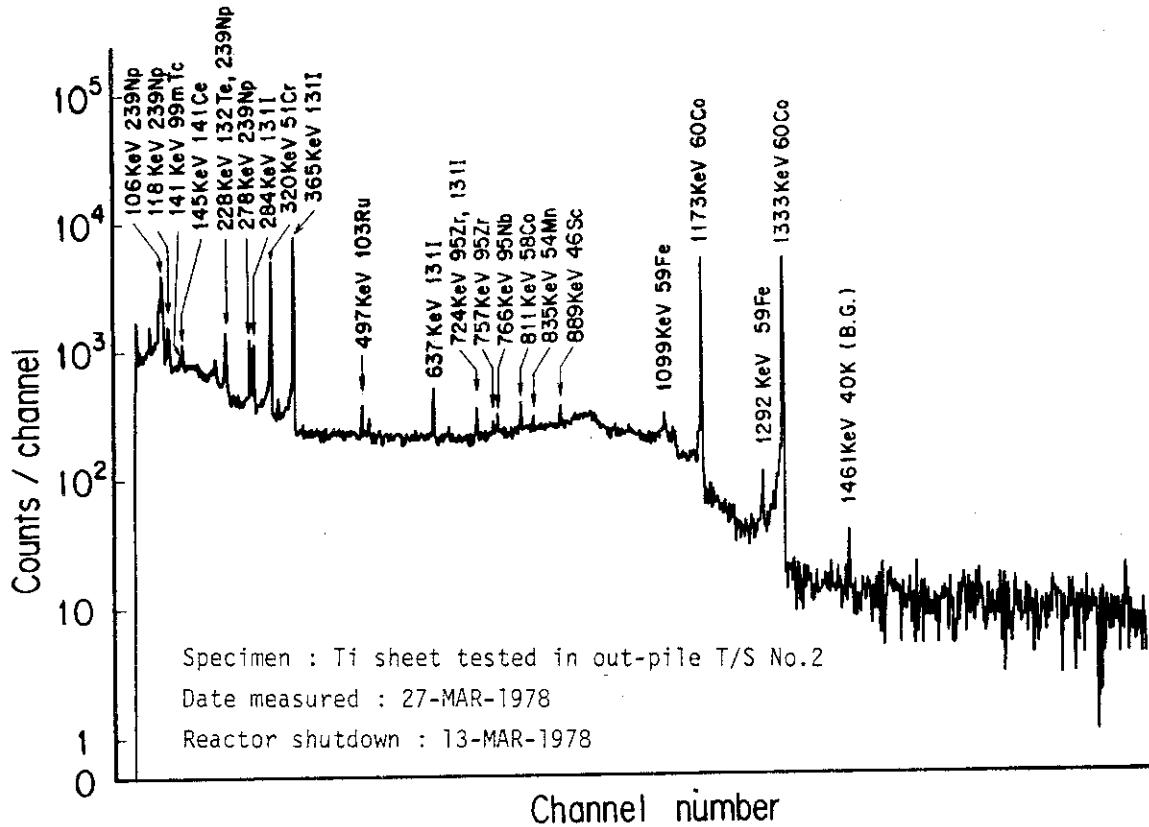


Fig.24 γ -ray spectrum of FP plateout specimen

Fig.25 γ -ray spectrum of FP plateout specimenFig.26 γ -ray spectrum of FP plateout specimen

Fig.27 γ -ray spectrum of FP plateout specimenFig.28 γ -ray spectrum of FP plateout specimen

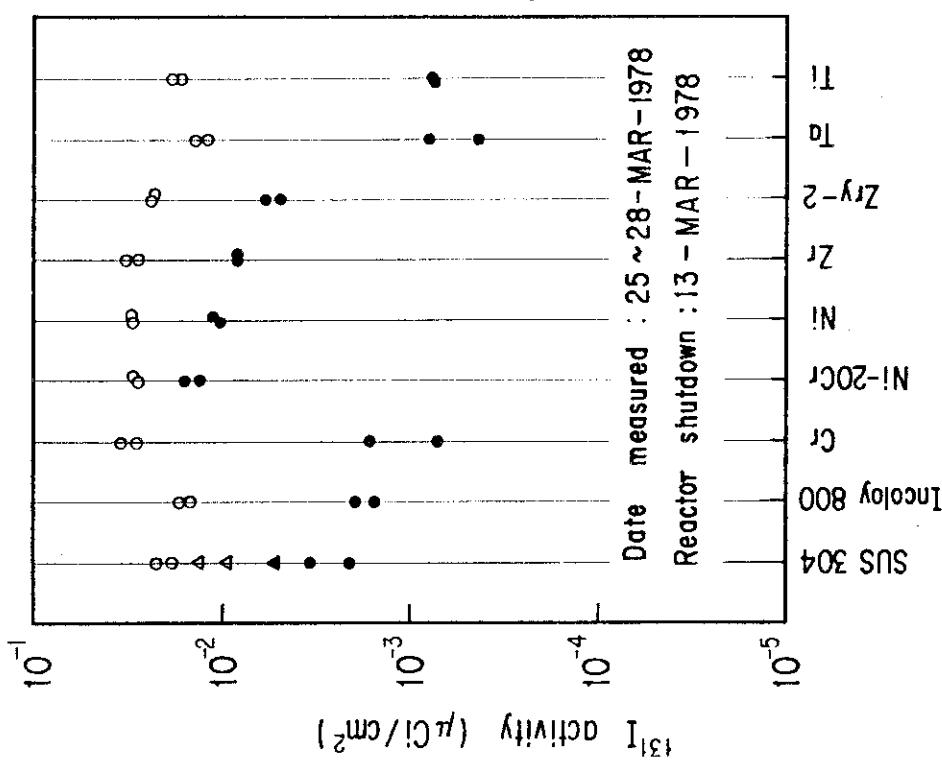


Fig.29 Plateout activity of ^{131}I on various materials
 ● : out-pile test section No.1
 ○ : out-pile test section No.2
 △ : hanger for irradiated specimen
 ▲ : pipe of OWL-1 primary system

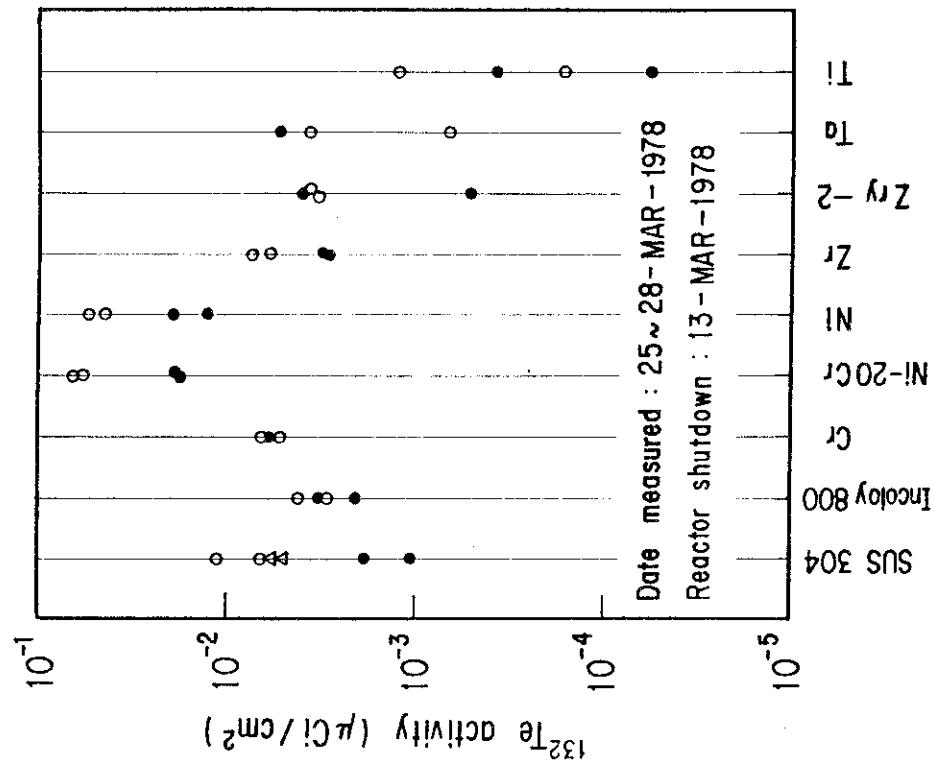
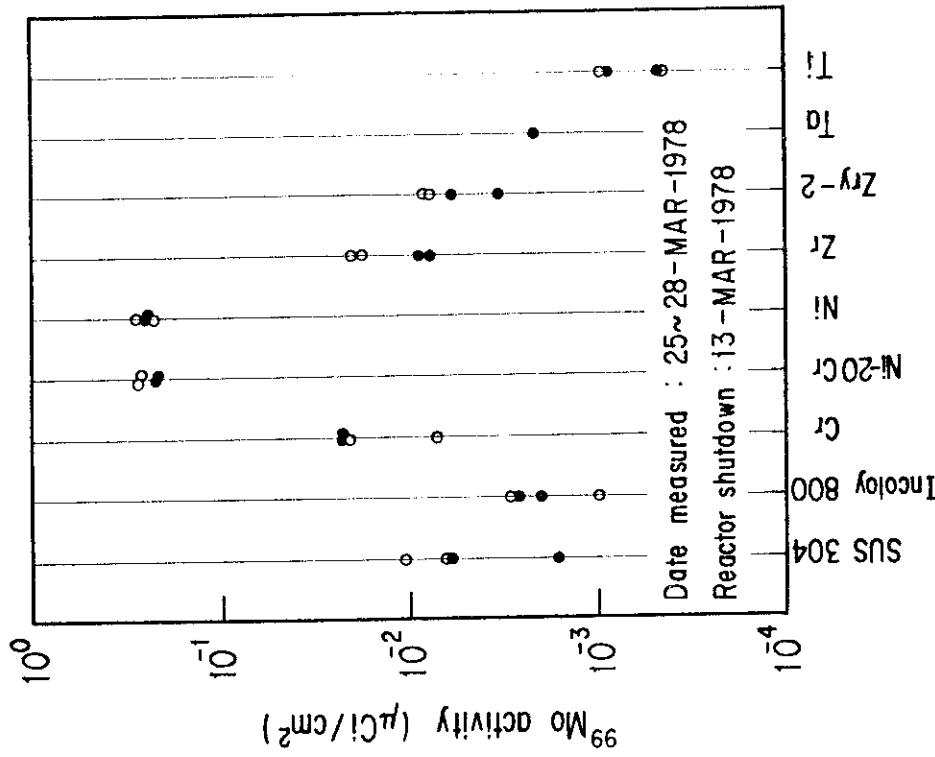
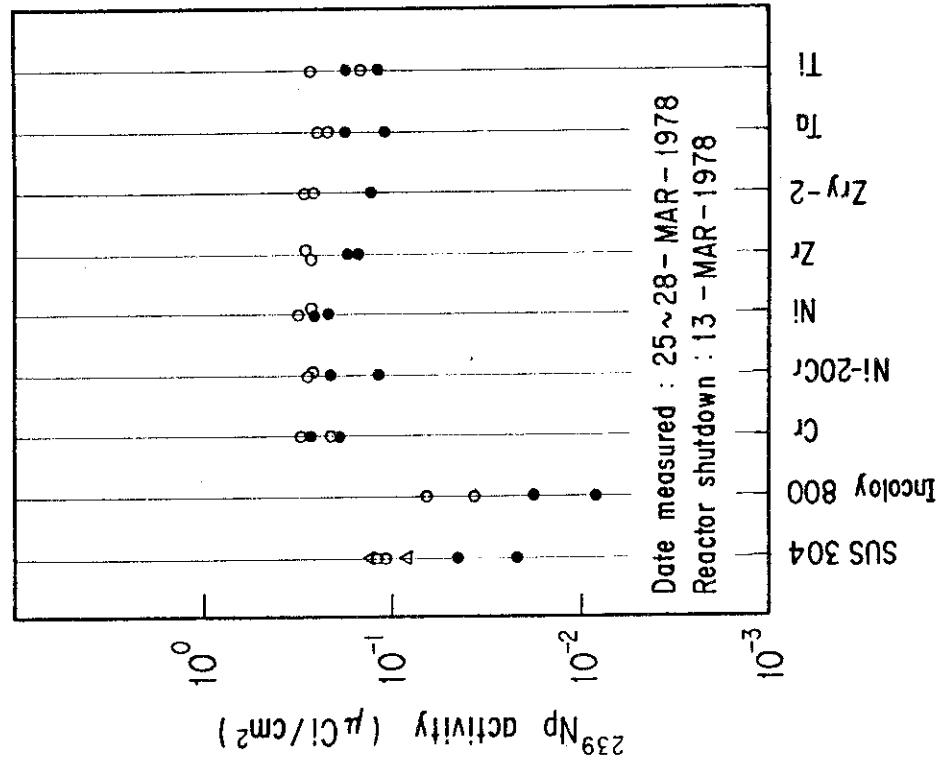


Fig.30 Plateout activity of ^{132}Te on various materials
 ● : out-pile test section No.1
 ○ : out-pile test section No.2
 △ : hanger for irradiated specimen

Fig.31 Plateout activity of ^{99}Mo on various materials

- : out-pile test section No.1
- : out-pile test section No.2
- △ : hanger for irradiated specimen

Fig.32 Plateout activity of ^{239}Np on various materials

- : out-pile test section No.1
- : out-pile test section No.2
- △ : hanger for irradiated specimen

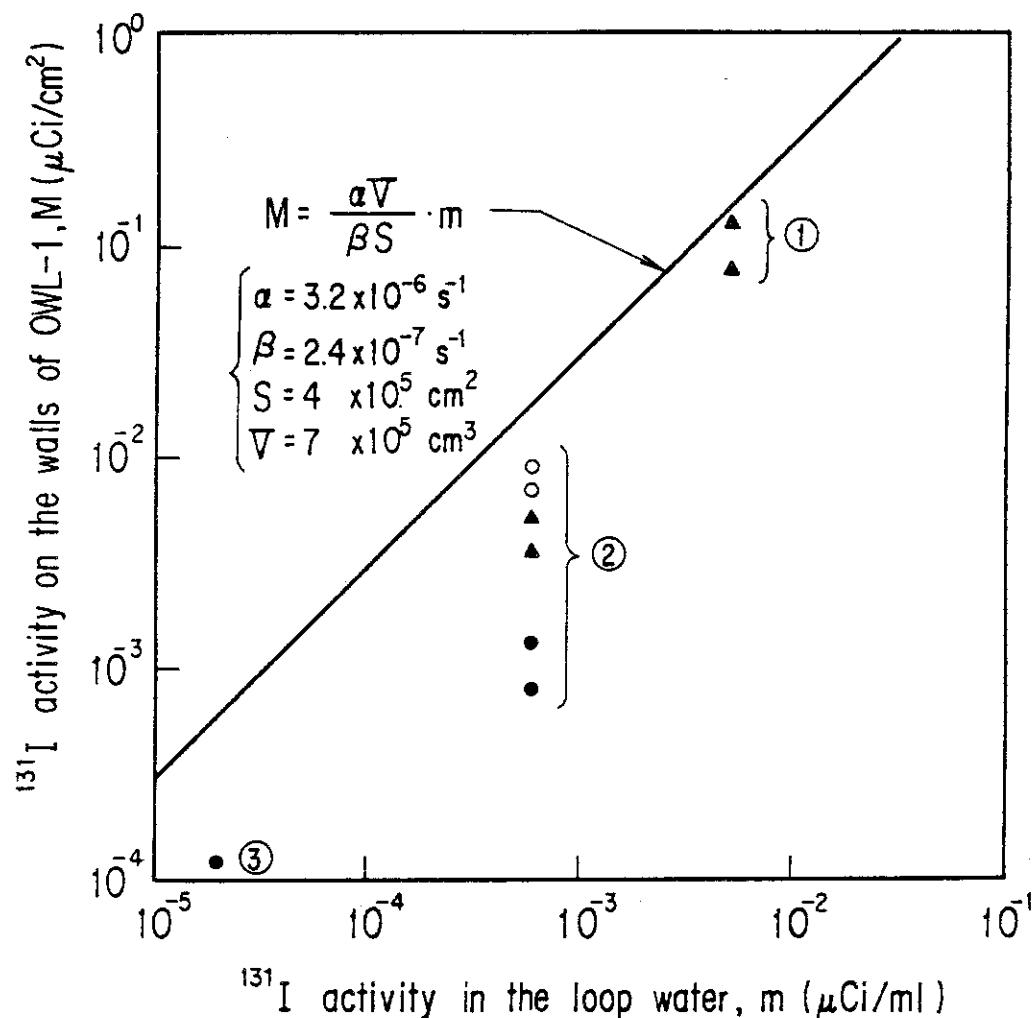


Fig.33 Relationship between ^{131}I activities on the loop walls and in the loop water

- ① : measured in June 1976
- ② : measured in March 1978
- ③ : measured in June 1980
- α : adsorption constant
- β : desorption constant
- S : inner surface area of OWL-1
- V : water inventory in OWL-1
- : out-pile test section No.1
- : out-pile test section No.2
- ▲ : hanger for irradiated specimen

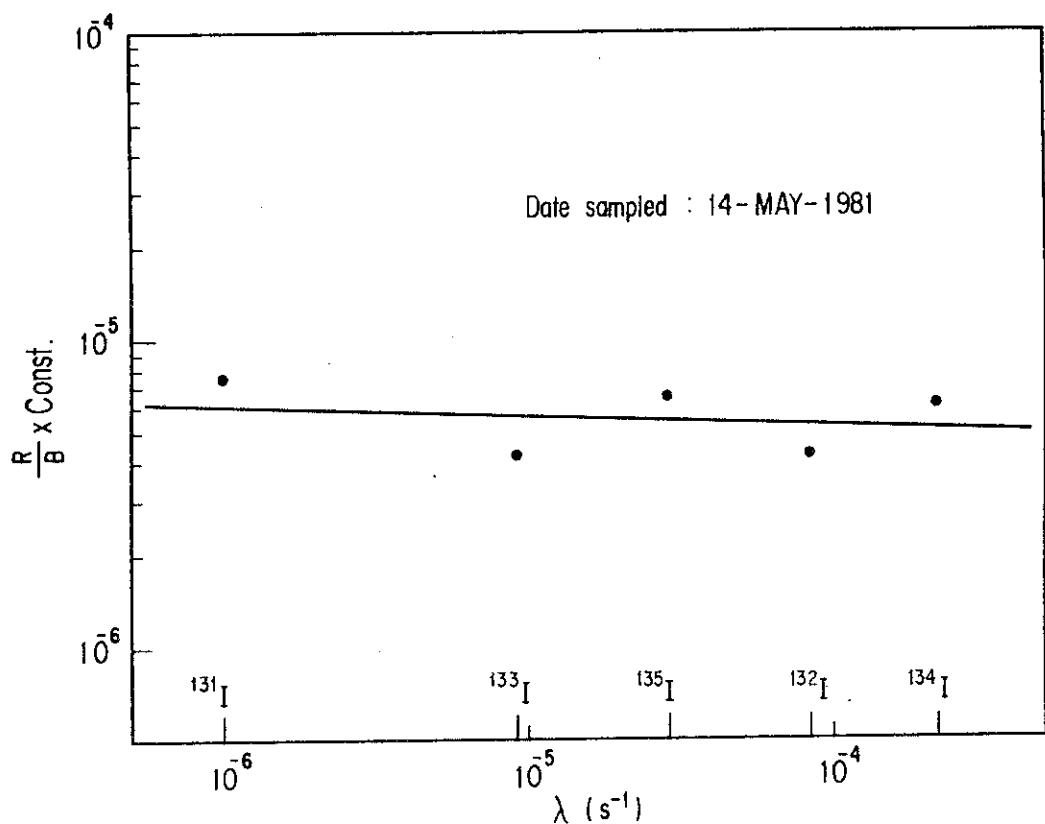


Fig.34 Log(R/B) versus $\log\lambda$ plots for radioiodines in the primary coolant of OWL-1 contaminated with UO_2

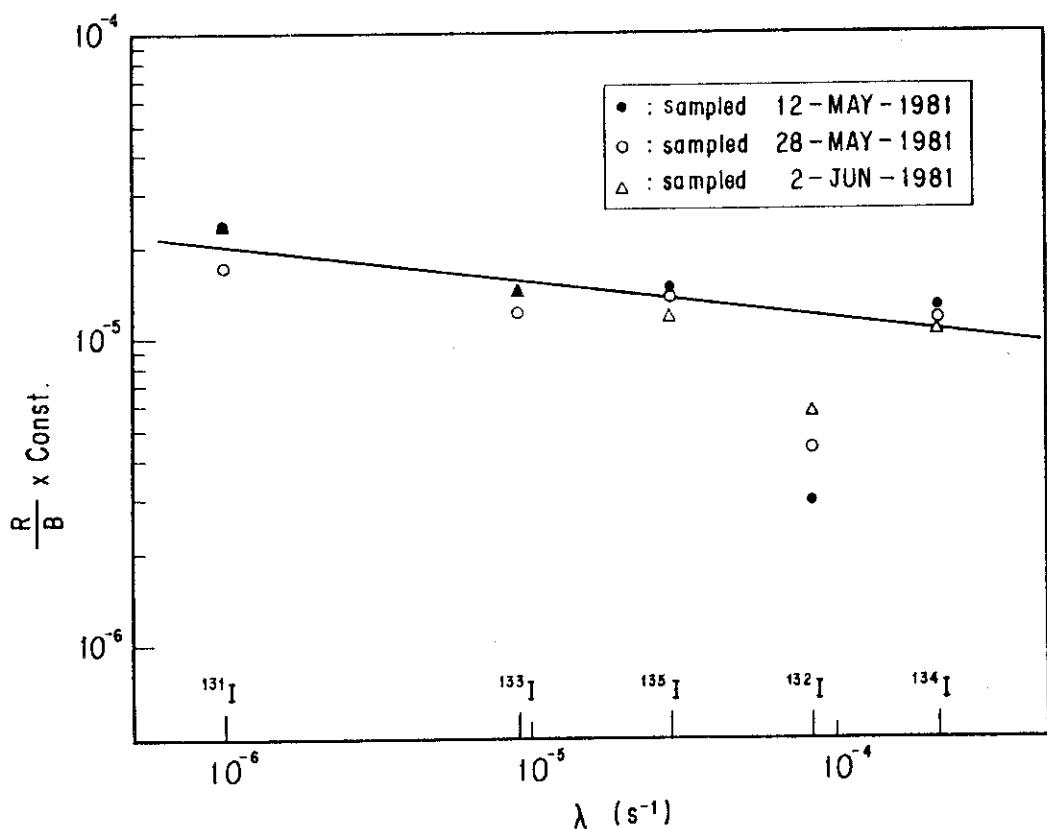


Fig.35 Log(R/B) versus $\log\lambda$ plots for radioiodines in the primary coolant of JMTR