

JAERI-M
84-013

酸化リチウムの照射下トリチウム放出試験
—スweepガス・キャプセルの核・熱評価—

1984年2月

倉沢 利昌・吉田 浩・渡辺 齊
宮内 武次郎・竹下 英文・三村 謙
金田 義朗・相沢 雅夫・笹島 文雄
梅井 弘

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、お申しこしてください。なお、このほかに財団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）で複写による実費領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, 1984

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 山田軽印刷所

酸化リチウムの照射下トリチウム放出試験
—スweepガス・キャプセルの核・熱評価—

日本原子力研究所東海研究所燃料工学部

倉沢利昌・吉田 浩⁺・渡辺 齊

宮内武次郎⁺⁺・竹下英文⁺⁺・三村 謙⁺⁺

金田義朗⁺⁺・相沢雅夫⁺⁺・笹島文雄⁺⁺

梅井 弘⁺⁺

(1984年1月20日受理)

核融合炉のトリチウム増殖ブランケットへの適用をめざしたセラミックス系リチウム化合物 (Li_2O , LiAlO_2 , Li_2SiO_3 , Li_2ZrO_3 など) の研究が, 材料開発及びブランケット設計の両面から進められている。特に, 日本・米国・欧州の各国では, ブランケット操作条件を考慮したトリチウム放出特性, 材料健全性, 核・熱特性に関する試験研究の必要性が強調されている。

本研究は, 「酸化リチウム高照射試験」の一環として計画し実施したものであり, 原子炉 (熱中性子炉) による中性子照射下の Li_2O ペレットのトリチウム放出に関する性能を調べることを目的としている。

照射試験は, JRR-2 の垂直照射孔 (燃料領域 VT-10, 熱中性子束 $1.0 \times 10^{14} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$, 速中性子束 $1.0 \times 10^{12} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$) において4サイクル (昭和58年5月~8月, 実効照射時間990h) に互って行われた。本報告書は, Li_2O ペレット (直径11mm ϕ , 全長40mmL) を装荷したスweepガス・キャプセル (VOM-15Hキャプセル) における ${}^6\text{Li}(\text{n}, \alpha){}^3\text{H}$, ${}^7\text{Li}(\text{n}, \text{n}\alpha){}^3\text{H}$ 反応の反応率分布及び温度分布並びに Li_2O ペレット中の不純物に基づく誘導放射能について述べたものである。

+ 核融合研究部

++ 研究炉管理部

In-pile Test of Tritium Release from Lithium Oxide
— An Evaluation Study on Neutronics and
Thermohydraulics of Sweep Gas Capsule
Packed with Li_2O Pellets —

Toshimasa KURASAWA, Hiroshi YOSHIDA⁺, Hitoshi WATANABE,
Takejiro MIYAUCHI⁺⁺, Hidefumi TAKESHITA, Ken MIMURA⁺⁺,
Yoshiro KANEDA⁺⁺, Masao AIZAWA⁺⁺, Fumio SASAJIMA⁺⁺ and
Hiroshi UMEI⁺⁺

Department of Fuels and Materials Research,
Tokai Research Establishment, JAERI

(Received January 20, 1984)

Material development and blanket design of lithium-based ceramics such as Li_2O , LiAlO_2 , Li_2SiO_3 , Li_2ZrO_3 has been performed to study their applicability to the tritium breeding blanket of a fusion reactor. Especially, the need of the test with regard to tritium release characteristics, material integrity, and neutronics and thermohydraulics of these materials under the operating conditions of the blanket has been emphasized in Japan, US and Europe.

Tritium release characteristics of Li_2O pellets under thermal neutron flux were measured by the present work which forms a part of "Irradiation Tests of Lithium Oxide under High Neutron Flux". Irradiation was carried out in a vertical hole of the JRR-2(VT-10 in the fuel rods region, $\phi_{\text{th}}=1.0 \times 10^{14}$, $\phi_{\text{f}}=1 \times 10^{12}$ n/cm².sec), and total irradiation time was 990hrs. This report describes distributions of reaction rates of ${}^6\text{Li}(n,\alpha){}^3\text{H}$ and ${}^7\text{Li}(n,\alpha){}^3\text{H}$ and temperature of the Li_2O pellets in the sweep gas capsule as well as the effect of induced radioactivity due to impurities in the lithium oxide.

Keywords: Fusion Reactor, Blanket, Breeding Material, Lithium Oxide,
Tritium Release, Neutron Irradiation, Thermal Neutron Reactor,
Reaction Rate, Temperature Distribution, Induced Radioactivity

+ Department of Thermonuclear Fusion Research, Tokai, JAERI

++ Department of Reserach Reactor Operation, Tokai, JAERI

目 次

1. はじめに	1
2. スイープガス・キャプセルの設計条件	1
2.1 スイープガス・キャプセルの構造	1
2.2 照射試料	2
3. 熱群輸送計算コード「THERMOS」に基づくLi ₂ Oペレット内のトリチウム生成率分布及び温度分布の検討	9
4. 2次元輸送計算コード「TWOTRAN」によるLi ₂ Oペレット内の中性子束分布及び反応率分布の検討	18
5. 酸化リチウム中の不純物による誘導放射能の検討	21
5.1 揮発性の放射性核種	21
5.2 非揮発性の放射性核種	22
6. Li ₂ Oペレットの放射化分析	31
6.1 JRR-2気送管による放射化分析	31
6.2 JRR-2垂直照射孔による放射化分析	31
7. スイープガス中の気体状放射性不純物	37
8. おわりに	46
謝 辞	46
参考文献	47

Contents

1. Introduction
 2. Design criteria of the sweep gas capsule
 - 2.1 Structure of the sweep gas capsule
 - 2.2 Specimens
 3. Computation of reaction rate distribution of ${}^6\text{Li}(n,\alpha){}^3\text{H}$ and the temperature distribution in Li_2O pellets by THERMOS code
 4. Computation of neutron flux distribution and reaction rate distribution for ${}^6\text{Li}(n,\alpha){}^3\text{H}$ and ${}^7\text{Li}(n,n\alpha){}^3\text{H}$ in Li_2O pellets by TWOTRAN code
 5. Evaluation of the radioactivity produced from impurities in lithium oxide
 - 5.1 Volatile nuclides
 - 5.2 Non-volatile nuclides
 6. γ -spectrometry of neutron-irradiated Li_2O pellet
 - 6.1 Irradiation by pneumatic tube in the JRR-2
 - 6.2 Irradiation in the vertical hole in the JRR-2
 7. Gaseous radioactive impurities in the sweep gas
 8. Summary
- Acknowledgement
- References

List of Tables

Table 1	Temperature Distribution in Li_2O Pellet under Neutron Irradiation
Table 2	Unfolding Characteristics of Neutron Flux in the VT-10 Hole
Table 3	Constants for Nuclear Reaction of Impurities in Lithium Oxide Powder
Table 4	Radioactivity Produced from Impurities in Lithium Oxide Powder ---- Volatile Nuclides
Table5A	Induced Radioactivity of Impurities in Lithium Oxide Powder ---- Non-volatile Nuclides
Table5B	Induced Radioactivity of Structure Materials of the Sweep Gas Capsule(VOM-15H)

List of Figures

- Fig. 1 Construction Drawing of Sweep Gas Capsule(VOM-15H) for In-pile Test of Li_2O Pellets
- Fig. 2 Schematic Structure of VOM-15H Capsule
- Fig. 3 Effect of Gap Distance on Irradiation Temperature of Sweep Gas Capsule(VOM-15H)
- Fig. 4 JRR-2 Core Configuration and VOM-15H Capsule Position in the VT-10 Irradiation Hole
- Fig. 5 Reaction Rate Distribution of ${}^6\text{Li}(n,\alpha){}^3\text{H}$ Reaction in Li_2O Pellets
- Fig.6A Temperature Distribution in Li_2O Pellet (Case 1)
- Fig.6B Temperature Distribution in Li_2O Pellet (Case 2)
- Fig.6C Temperature Distribution in Li_2O Pellet (Case 3)
- Fig.6D Temperature Distribution in Li_2O Pellet (Case 4)
- Fig.6E Temperature Distribution in Li_2O Pellet (Case 5)
- Fig.6F Temperature Distribution in Li_2O Pellet (Case 6)
- Fig.7 Temperature Distribution at the Center of the VOM-15H Capsule
- calculated values, ○ observed values
- Fig.8A Irradiation Temperature Profiles at the Center of Li_2O Pellet in the VOM-15H Capsule
- Fig.8B Irradiation Temperature Profiles in the VOM-15H Capsule
- Fig.9A Distribution of ${}^6\text{Li}(n,\alpha){}^3\text{H}$ Reaction Rate in Li_2O Pellets irradiated in the VT-10 Hole
- Fig.9B Distribution of ${}^7\text{Li}(n,n\alpha){}^3\text{H}$ Reaction Rate in Li_2O Pellets irradiated in the VT-10 Hole
- Fig.10A γ -spectrometry of Quartz Ample Containing Li_2O Pellet(~15mg). (Neutron irradiation was performed by pneumatic tube in the JRR-2. Irradiation time; 5min, Cooling time; 27min, Thermal neutron flux; 7×10^{13} n/cm².sec)
- Fig.10B γ -spectrometry of Quartz Ample as the Blank Sample for Irradiated Li_2O Pellet. (Neutron irradiation and measurement of γ -spectrometry were the same conditions of that for Fig.10A. Cooling time; 38min)

- Fig.11A γ -spectrometry of Quartz Ampule Containing Li_2O Pellet (~15mg). (Neutron irradiation was performed by the VT-7 Hole in the JRR-2. Irradiation time; 223.6h, Cooling time; 25day, Thermal neutron flux; 3×10^{13} n/cm².sec)
- Fig.11B γ -spectrometry of the Blank Quartz Ampule. (Neutron irradiation and measurement were the same conditions of that for Fig.10A.)
- Fig.12 Schematic Flow Sheet of Experimental Apparatus for In-pile Test of Li_2O Pellets.
- Fig.13A γ -spectrometry of Sweep Gas Obtained at the Inlet of the Hood. (Sampling was performed at the end of the 1st cycle of irradiation test. Lag time after sampling was 460min.)
- Fig.13B γ -spectrometry of Sweep Gas Obtained at the Inlet of the Hood. (Lag time after sampling was 8100sec, and this sample gas was used for measurement in Fig.13A.)
- Fig.13C γ -spectrometry of Sweep Gas Obtained at the Outlet of the Catalytic Reduction Bed RX. (Lag time was ~4600sec after sampling.)
- Fig.13D γ -spectrometry of Sweep Gas obtained at the Outlet of the Molecular Sieve Bed MS-3. (Lag time was ~2500 sec after sampling.)
- Fig.14 Decay Characteristics of a Nuclide of Decay Energy of 511KeV in γ -spectrometry of Sweep Gas
- Fig.15A Decay Curves of Sweep Gas Obtained at the Inlet of the Hood.
- Fig.15B Decay Curves of Radioactive Rare Gases Produced from Fission of Natural Uranium Included in Li_2O Pellets. (Concentration of the uranium was estimated to be ~1wppm in 6.4g- Li_2O by FP- γ code (16)).

1. はじめに

酸化リチウムを核融合炉ブランケットに適用することの可能性を調べることを目的とした「酸化リチウム高照射試験」計画が、昭和53年以来JRR-2を用いて行ってきた予備的な炉内照射試験^{(1),(2)}を経て本格的な実施段階となった。この計画は、最終的には核融合炉の運転条件（温度；400～1000℃，中性子エネルギー；最大14.1MeV，リチウムの燃焼度；10%前後^{*}）における酸化リチウムのトリチウム放出特性，材料健全性，等の確証を目ざすものであるが，当面は熱中性子炉を用いた高温度（1000℃），高燃焼度（1～10%）条件下のトリチウム放出特性を把握することが目標である。

今回の照射試験は，その第1段階として最高温度750℃及び燃焼度0.24%の達成を目標とし，このためのスイープガス・キャプセルの設計・製作法，トリチウムの回収・測定法の開発及び実証並びにトリチウム安全取扱い技術の確立を目的としている。

2. スイープガス・キャプセルの設計条件

酸化リチウムの焼結ペレット（以後Li₂Oペレット）の中性子照射下におけるトリチウム放出特性の測定を目的とした本照射キャプセルの設計上の考え方は，「VOM-15Hの計画と安全評価」⁽³⁾にまとめられている。その特徴を列挙すると以下の通りである。

- (i) 照射温度を480～800℃の範囲で正確に調節することができる加熱ヒーターを内蔵するとともに熱応力，耐熱性に対する安全性の確保，
 - (ii) 高温照射下のトリチウム透過・漏洩に対する安全性の確保，
 - (iii) Li₂Oペレットで生成するトリチウムを回収するためのヘリウムガススイープ方式の採用，
 - (iv) Li₂Oペレットとインナーキャプセル構造材との接触反応の防止，
 - (v) 照射試験終了後のキャプセル解体及びLi₂Oペレットの取出し（ホットラボの遮蔽セルでの作業）の容易さの確保，
- などである。

2.1 スイープガス・キャプセルの構造

上記設計条件を考慮して製作されたスイープガス・キャプセルの構造並びに選定された構成材料の組合せをFig. 1に示す。このキャプセルの主要部分をやや模式化してFig. 2に示す。4個のLi₂Oペレットを装荷したインナーキャプセルは，熱遮蔽体（外部スペーサー）を備えたヒーターブロック内に挿入されている。インナーキャプセル壁を透過したトリチウムを閉じ込め

* INTOR；8%， DEMO；7%， STARFIRE；> 15%

1. はじめに

酸化リチウムを核融合炉ブランケットに適用することの可能性を調べることを目的とした「酸化リチウム高照射試験」計画が、昭和53年以来JRR-2を用いて行ってきた予備的な炉内照射試験^{(1),(2)}を経て本格的な実施段階となった。この計画は、最終的には核融合炉の運転条件（温度；400～1000℃，中性子エネルギー；最大14.1MeV，リチウムの燃焼度；10%前後*）における酸化リチウムのトリチウム放出特性，材料健全性，等の確証を旨とするものであるが，当面は熱中性子炉を用いた高温（1000℃），高燃焼度（1～10%）条件下のトリチウム放出特性を把握することが目標である。

今回の照射試験は，その第1段階として最高温度750℃及び燃焼度0.24%の達成を目標とし，このためのスイープガス・キャプセルの設計・製作法，トリチウムの回収・測定法の開発及び実証並びにトリチウム安全取扱い技術の確立を目的としている。

2. スイープガス・キャプセルの設計条件

酸化リチウムの焼結ペレット（以後Li₂Oペレット）の中性子照射下におけるトリチウム放出特性の測定を目的とした本照射キャプセルの設計上の考え方は，「VOM-15Hの計画と安全評価」⁽³⁾にまとめられている。その特徴を列挙すると以下の通りである。

- (i) 照射温度を480～800℃の範囲で正確に調節することができる加熱ヒーターを内蔵するとともに熱応力，耐熱性に対する安全性の確保，
 - (ii) 高温照射下のトリチウム透過・漏洩に対する安全性の確保，
 - (iii) Li₂Oペレットで生成するトリチウムを回収するためのヘリウムガススイープ方式の採用，
 - (iv) Li₂Oペレットとインナーキャプセル構造材との接触反応の防止，
 - (v) 照射試験終了後のキャプセル解体及びLi₂Oペレットの取出し（ホットラボの遮蔽セルでの作業）の容易さの確保，
- などである。

2.1 スイープガス・キャプセルの構造

上記設計条件を考慮して製作されたスイープガス・キャプセルの構造並びに選定された構成材料の組合せをFig. 1に示す。このキャプセルの主要部分をやや模式化してFig. 2に示す。4個のLi₂Oペレットを装荷したインナーキャプセルは，熱遮蔽体（外部スペーサー）を備えたヒーターブロック内に挿入されている。インナーキャプセル壁を透過したトリチウムを閉じ込め

* INTOR；8%， DEMO；7%， STARFIRE；> 15%

るために、インナーキャプセルは純アルミ製気密構造（1気圧のヘリウムガスを充填）のアウトキャプセル内に設置されている。また、キャプセル各部の温度を測定するために、 Li_2O ペレット中心部（CA-1, 2）、インナーキャプセル外周部（CA-3）及びアウトキャプセル内側（CA-4）にクロメル・アルメン熱電対を挿入している。インナー及びアウトキャプセルの気密度は、いずれも $2 \times 10^{-10} \text{ atm} \cdot \text{cm}^3 (\text{He}) / \text{sec}$ 以下となっている。

なお、キャプセル各部の製作上の公差は、次の通りである。

○ インナーキャプセル

内径 (mm) ; 11.5 ± 0.15

外径^{*} (mm) ; $(14 \pm 0.1) \pm 0.08$

○ ヒーターブロック

内径 (mm) ; 14 ± 0.1

外径 (mm) ; 23 ± 0.05

○ 外部スペーサー

内径 (mm) ; 24 ± 0.1

外径^{*} (mm) ; 36 ± 0.1

以上の寸法公差は、照射試験時の Li_2O ペレット中心温度に影響を及ぼすことが予想される。ちなみに、インナーキャプセルとヒーターブロックとの間隙において公差を考慮した場合のキャプセル内温度分布は Fig. 3(a) のようである（一次元伝熱計算コード GENGTC⁽⁴⁾ による計算結果）。キャプセル内蔵ヒーターの出力容量は約 200 W/cm であるので、Fig. 3(b) に示すように約 1/2 出力の条件で最高照射温度（ 800°C ）を達成できることが分かる。

2.2 照射試料

インナーキャプセルに装荷した4個の Li_2O ペレットは、Cerac社製の酸化リチウム粉末を出発原料として真空焼結（ 1200°C で4h）したものであり、中心部に熱電対挿入用の貫通孔（直径 1.8 mm ）を有している。各ペレットの寸法、重量を以下に記す。

#1ペレット ; $11.000 \text{ mm OD} \times 10.391 \text{ mm L}$, 1.712 g

#2ペレット ; $11.042 \text{ " } \times 10.319 \text{ "}$, 1.700 "

#3ペレット ; $11.035 \text{ " } \times 10.055 \text{ "}$, 1.740 "

#9ペレット ; $11.020 \text{ " } \times 10.694 \text{ "}$, 1.512 "

ペレットの嵩密度は、約86%TDである。⁽⁹⁾

Photo. 1は、インナーキャプセル内の装荷状態を透過X線により調べた結果を示したものである。 Li_2O ペレットとキャプセル壁との接触を防止するための白金製スペーサー並びに熱電対が観察される。

* ヒーターブロックの内径を基準とする。

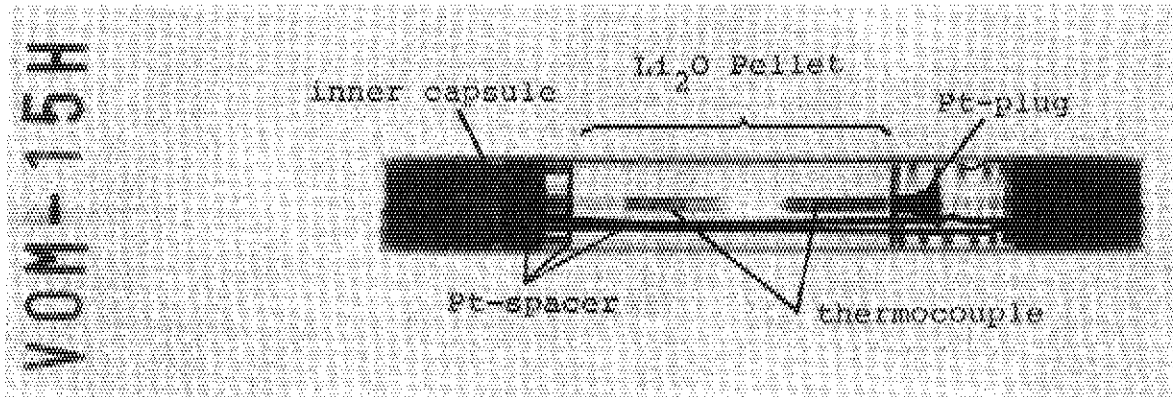
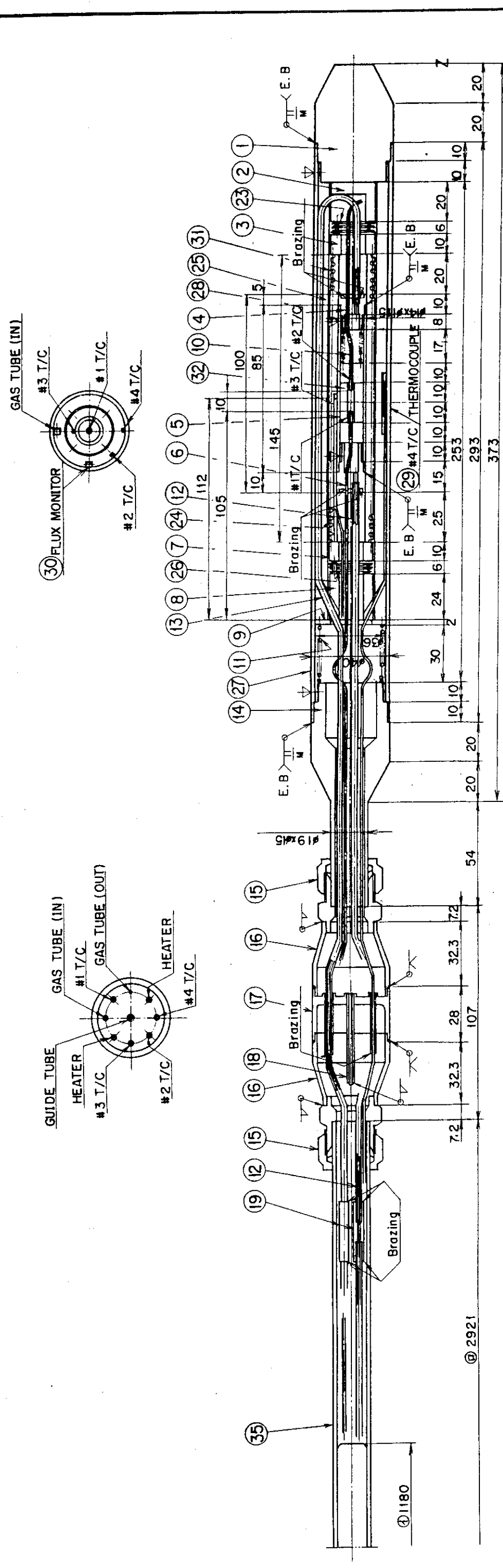
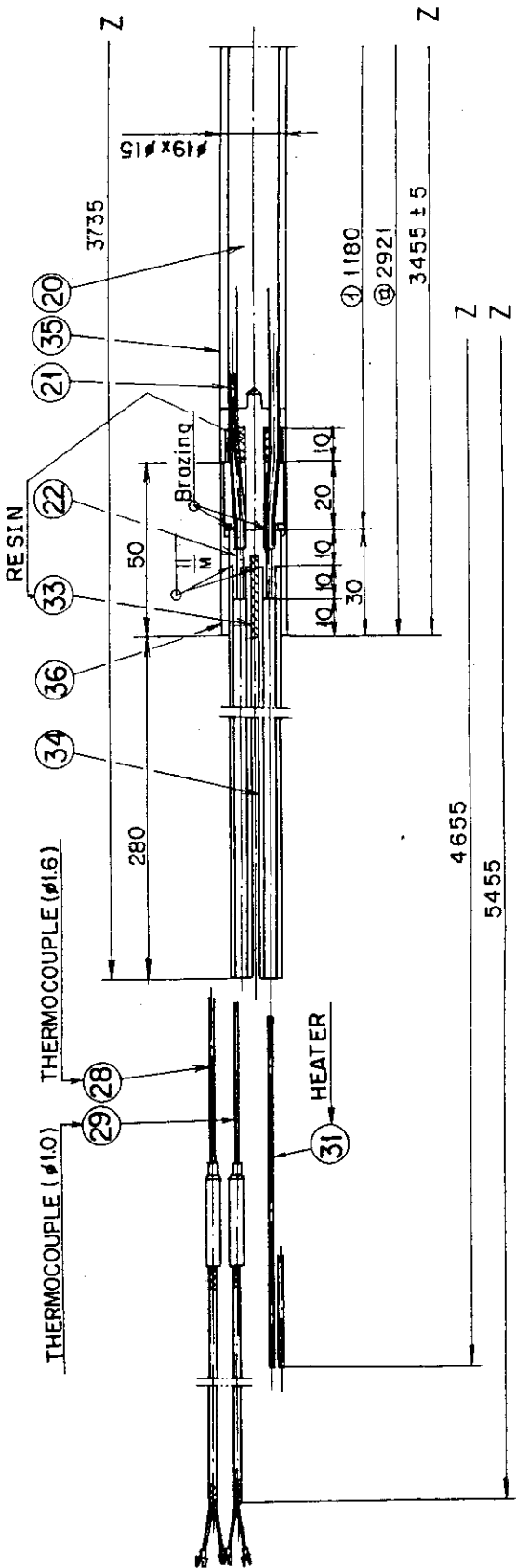


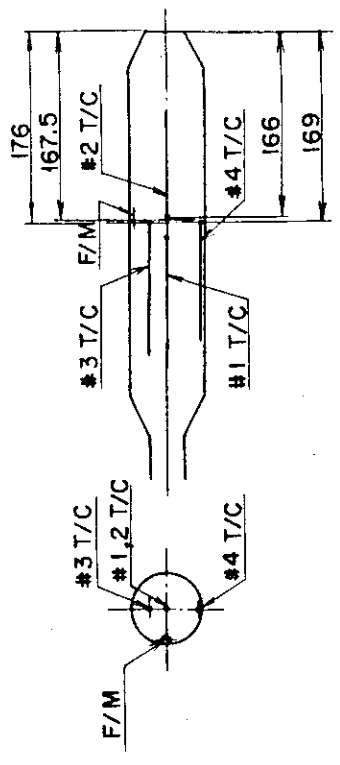
Photo. 1 Transmitted X-ray Image of VOM-15H Inner Capsule



PT. NO	DRAWG NO	NAME	NUMBER	MATERIAL	REMARKS
36	ME-28198	STOPPER	1 SET	SUS304	
35	ME-28194	PIPE	1	A1050	19 x 15
34	ME-28193	GAS TUBE	2	SUS304	6.35
33		RESIN	1 SET	EDICOAT 828	SUPPLIED BY LABORATORY
32		SPECIMEN	1	LITHIUM OXIDE	
31		SHEATHED HEATER	1	TET TYPE	#1.5
30		FLUX MONITOR	1	AL-Co	#2
29		THERMOCOUPLE	2	CA	#1.6
28		THERMOCOUPLE	2	CA	
27	MD-8986	OUTER CAPSULE	1	A1050	
26	MD-8985	REFLECTOR	1 SET	SUS304	
25	MD-8984	SAPCR	1	A1050	
24	MD-8983	HOLDER	1	SUS304	
23	MD-8982	REFLECTOR	1 SET	SUS304	
22	ME-28109	ADAPTER	1 SET	SUS304	
21	ME-28108	GAS TUBE	2	SUS304	#3 x #2
20	ME-28107	SHIELD PLUG	1	SUS304	
19	ME-28106	ADAPTER	2	SUS304	
18	ME-28105	PLUG	1	SUS304	
17	ME-28104	END PLUG	1	SUS304	
16	ME-28103	CONNECTING TUBE	2	SUS304	
15	ME-28102	SWAGE LOCK	1	SUS304	
14	ME-28101	END PLUG	1	SUS304	
13	ME-28100	GAS TUBE (IN)	1	A1050	
12	ME-28099	GAS TUBE (OUT)	1	SUS304	#3 x #2
11	ME-28098	SPRING	1	SUS304	#3 x #2
10	ME-28097	SPRING	1	INCONEL 600	
9	ME-28096	PLATE	1	INCONEL 600	
8	ME-28095	SPACER	1	SUS304	
7	ME-28094	INSULATOR	1	A1050	
6	ME-28093	END PLUG	1	AL2O3	
5	ME-28092	INNER CAPSULE	1	SUS316	
4	ME-28091	END PLUG	1	SUS316	
3	ME-28090	INSULATOR	1	SUS316	
2	ME-28089	SPACER	1	AL2O3	
1	ME-28088	END PLUG	1	A1050	



- NOTES
- Carve the capsule name on the outer capsule surface.
 - Carve cutting marks on ϕ positions.
 - Fill up helium gas (1 atm.) in the inner capsule and the outer capsule.
 - Over all straightness 0.3/373 mm
 - Clean up by 'REACTOR GRADE'



Location of thermocouples and flux monitor

Fig. 1 Construction Drawing of Sweep Gas Capsule (VOM-15H) for In-pile Test of Li₂O Pellets

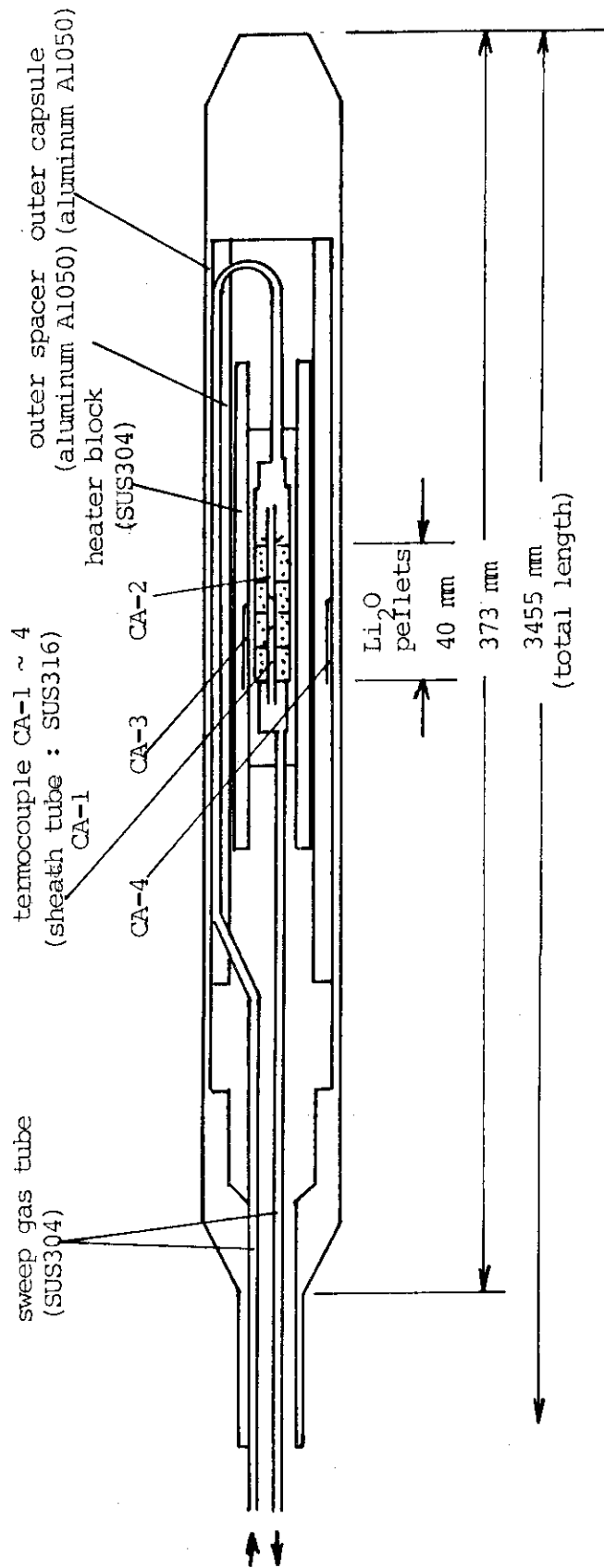
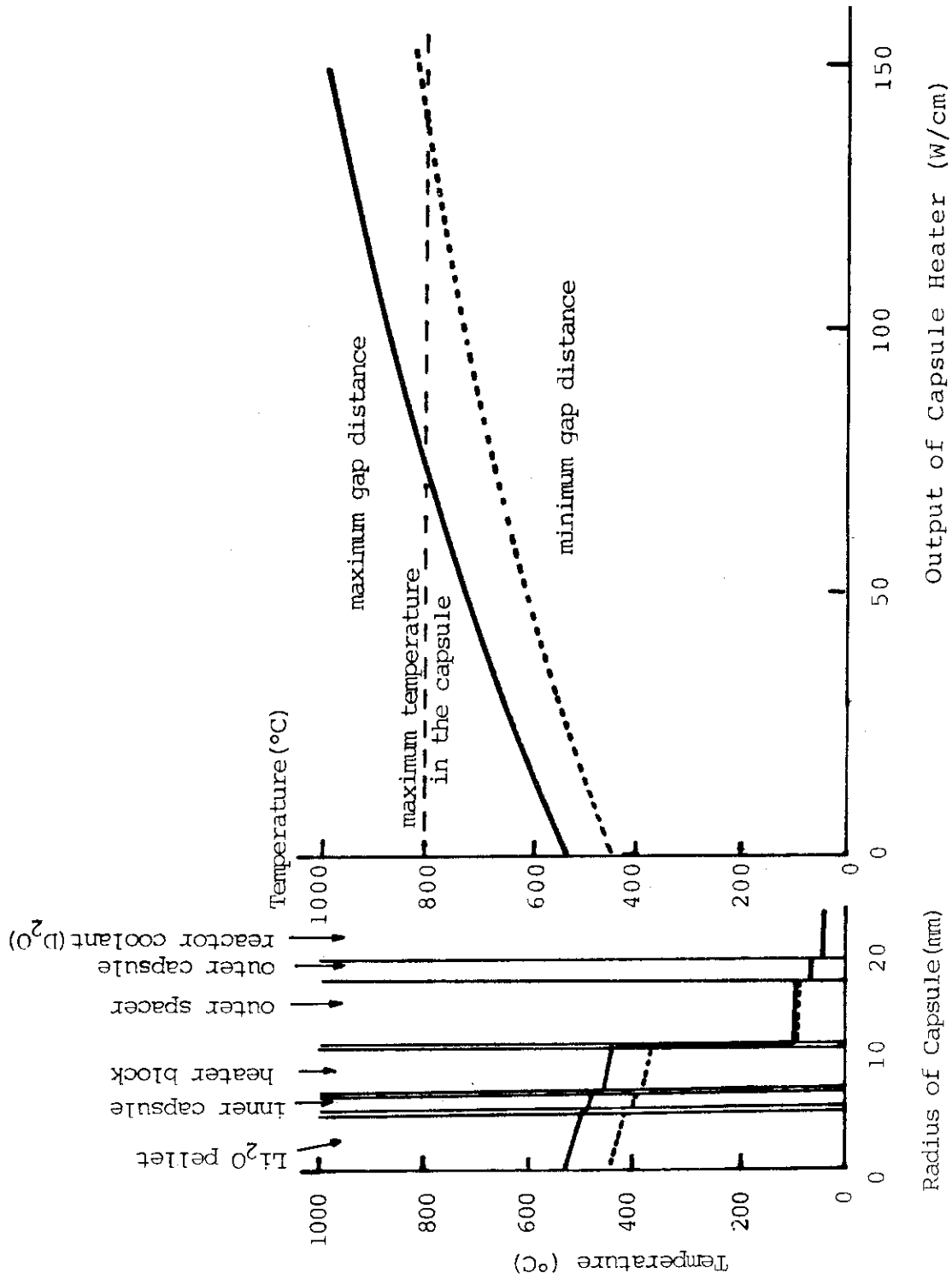


Fig.2 Schematic Structure of VOM-15H Capsule



(a) Temperature profile without heater at full power operation of JRR-2
 (b) Center temperature of Li₂O pellets with heater at full power operation of JRR-2

Fig. 3 Effect of Gap Distance on Irradiation Temperature of Sweep Gas Capsule (VOM-15H)

3. 熱群輸送計算コード「THERMOS」に基づく Li₂Oペレット内のトリチウム生成率分布及び 温度分布の検討

酸化リチウムのように熱中性子吸収断面積が大きい物質 (⁶Li では 945 b)^{*1} は、熱中性子束に対して著しい自己遮蔽効果を示す。このため、ある大きさの試料例えば Li₂Oペレットを熱中性子炉内で照射すると、ペレット内部に⁶Li(n, α)³Hの反応率分布及び温度分布が形成される。^{(1),(2)} これらは、原子炉照射下におけるトリチウムの放出特性並びに Li₂Oペレットの健全性を検討する上で重要な因子になると考えられる。

そこで、垂直照射孔 VT-10 に装荷された Li₂Oペレット内の反応率及び温度分布を評価するために、熱群輸送計算コード THERMOS⁽⁵⁾ による解析を試みた。なお、ブランケット操作条件下の中性子スペクトルは大部分 0.1 MeV 以上であり、熱中性子の寄与が小さい。このため、実際のブランケットでは原子炉照射の場合に生ずるペレット内の反応率分布や温度分布は無視できるようになると思われる。

Fig. 4 は JRR-2 の燃料領域における垂直照射孔の位置を示したもので、Li₂Oペレットを装荷したスweepガス・キャプセル(以後、照射キャプセルと呼ぶ)は炉心の外周部(垂直方向には炉心中央部)に配置されている。

Fig. 5 は、THERMOSコードにより計算した Li₂Oペレット内の⁶Li(n, α)³H反応の実効断面積 $\sigma_{n,\alpha}$ ^{*2}、有効中性子束 ϕ ^{*3}及び反応率 R^{*4}を図示したものである。ここで、それぞれの値は、Li₂Oペレットを半径方向に5分割したときの各領域の体積あたりの平均値をペレットの最外層を基準にして標準化している。有効中性子束は、熱外中性子束の寄与を考慮するために、中性子エネルギーとして $1 \times 10^{-5} \sim 0.785$ eV の範囲で評価した。また、反応率の計算に必要な中性子束歪補正係数 (depression factor $df = 0.148$) は、照射キャプセルの装荷時及び未装荷時の中性子分布の比より求めた。

Fig. 6A~6F は、照射キャプセルの加熱ヒータの出力調節範囲 (0~100 W/cm) における照射孔内の温度分布から求めた Li₂Oペレット内の温度分布を等高線で図示したものである。この計算には汎用二次元伝熱コード「TAC2D」⁽⁶⁾を用い、熱源としては⁶Li(n, α)³H反応(反応熱 132 W)^{*4}、 γ 線(発熱量 1 W/g)^{*5}及び加熱ヒータ(最大出力約 200 W/cm)を考慮した。これらの図より、Li₂Oペレットの半径方向の最大温度差はヒータの出力に無関係に、ペレット中央部(長さ方向)で約 50℃、ペレット両端部で 100℃となることが分かる。なお、加熱ヒータの出力とペレット内の温度分布との関係を Table 1 に整理しておく。

Fig. 7 は、ヒータを使用しない場合及び出力 66.0 W/cm とした場合のキャプセル内温度分布の計算値と実測値を比較したものである。ヒータ未使用時の Li₂Oペレット中心温度(実測値 465~485℃)は計算値(473.6℃)に対し約 ±10℃ の範囲で一致している。一方、ヒータ使用時の実測温度の変動幅は計算値(701.6℃)に対し ±2℃ とさらに良い一致を示すことが確かめられた。

照射下トリチウム放出試験の第1~第4サイクルにおける照射キャプセル各部の実測温度を

Fig. 8A,8Bに示す。これより、Li₂Oペレットの中心部に挿入した2本の熱電対の指示値の差は0~7℃とペレット半径方向の最大温度差の高々1/10程度であることが分かる。

なお、同上期間のJRR-2の全出力運転時間は990時間、トリチウムの総生成量(計算値)は31.2Ciである。

*1 ²³⁵Uの核分裂断面積σ_fの約1.6倍, ¹⁰B(n, α)⁷Li反応の吸収断面積の約1/4倍

*2 中性子束のマックスウェル分布及び減速領域を考慮した断面積であり、次式により計算した値である。

$$\sigma_{n,\alpha} = \frac{\int_{1 \times 10^{-5}}^{0.785} \phi(E) \sigma(E) dE}{\int_{1 \times 10^{-5}}^{0.785} \phi(E) dE}$$

*3 *2と同様に熱外中性子束を考慮に入れた次式により計算した値である。

$$\phi = \int_{1 \times 10^{-5}}^{0.785} \left\{ \phi_{th} \frac{E}{(KT)^2} \exp\left(-\frac{E}{KT}\right) + \phi_{epi} \frac{d}{E} \right\} dE$$

$$\phi_{th} = \left(\frac{\sqrt{\pi}}{2} \sigma_0 g \sqrt{\frac{293.6}{T}} \right)$$

$$\phi_{epi} = \frac{1}{(R_{cd} - F_{cd}) S_{epi} \int_{E_{cd}}^{\infty} \sigma(E) \frac{dE}{E}}$$

$$d = \frac{1}{\left\{ 1 - \frac{0.26}{1 + (2.131E)^5} \right\} \left\{ 1 + \left(\frac{4.95KT}{E} \right)^7 \right\}}$$

ここで、φ_{th} (n/cm²・sec)、φ_{epi} (n/cm²・sec)は熱及び熱外中性子束、E (eV)、K (eV/K)、T (K)はそれぞれ中性子エネルギー、ボルツマン定数、中性子温度である。その他は熱中性子束測定に用いた検出箱(金)による値であり、σ₀ (cm², v = 2200m)、σ(E) (cm²)は放射化断面積、g、R_{cd}、E_{cd}はそれぞれg因子、カドミウム比(実測値)及びカドミウム補正因子である。E_{cd}はカドミウムのカットオフエネルギー(~0.5 eV)、S_{epi}は熱外中性子に対する自己遮蔽係数である。

*4 $\hat{\phi} = 1.12 \times 10^{14}$ n/cm²・sec, d_f = 0.148, σ_{n,α} = 543 b, Li₂O 6.4g, スイープガス(He)流量 100 cm³(STP)/minとして計算した値

*5 Li₂O及び照射キャプセル構成部材1gあたりの値

Table 1 Temperature Distribution in Li₂O Pellet under Neutron Irradiation

Case 1: $\dot{Q}_H = 0.0W/cm$			Case 2: $\dot{Q}_H = 21.0W/cm$			Case 3: $\dot{Q}_H = 35.0W/cm$		
temperature range (°C)	volume (cc)	volume ratio (%)	temperature range (°C)	volume (cc)	volume ratio (%)	temperature range (°C)	volume (cc)	volume ratio (%)
465.0 - 473.6	0.321	8.66	545.0 - 552.2	0.248	6.70	595.0 - 601.1	0.202	5.46
455.0 - 465.0	0.465	12.55	535.0 - 545.0	0.449	12.12	585.0 - 595.0	0.422	11.39
445.0 - 455.0	0.582	15.73	525.0 - 535.0	0.499	13.47	575.0 - 585.0	0.499	13.47
435.0 - 445.0	0.623	16.83	515.0 - 525.0	0.610	16.47	565.0 - 575.0	0.547	14.77
425.0 - 435.0	0.717	19.37	505.0 - 515.0	0.629	16.99	555.0 - 565.0	0.606	16.38
415.0 - 425.0	0.447	12.08	495.0 - 505.0	0.582	15.72	545.0 - 555.0	0.614	16.59
405.0 - 415.0	0.262	7.08	485.0 - 495.0	0.322	8.70	535.0 - 545.0	0.378	10.20
395.0 - 405.0	0.150	4.05	475.0 - 485.0	0.183	4.93	525.0 - 535.0	0.218	5.68
385.0 - 395.0	0.089	2.39	465.0 - 475.0	0.104	2.81	515.0 - 525.0	0.118	3.17
372.1 - 385.0	0.046	1.24	455.0 - 465.0	0.067	1.80	505.0 - 515.0	0.074	2.01
			447.6 - 455.0	0.011	0.29	494.7 - 505.0	0.026	0.69
$T_{max} = 473.6 \text{ } ^\circ\text{C}$			$T_{max} = 552.2 \text{ } ^\circ\text{C}$			$T_{max} = 601.1 \text{ } ^\circ\text{C}$		
$T_{min} = 372.1 \text{ } ^\circ\text{C}$			$T_{min} = 447.6 \text{ } ^\circ\text{C}$			$T_{min} = 494.7 \text{ } ^\circ\text{C}$		
$T_{ave} = 436.6 \text{ } ^\circ\text{C}$			$T_{ave} = 513.6 \text{ } ^\circ\text{C}$			$T_{ave} = 561.5 \text{ } ^\circ\text{C}$		
Case 4: $\dot{Q}_H = 50.0W/cm$			Case 5: $\dot{Q}_H = 66.0W/cm$			Case 6: $\dot{Q}_H = 82.0W/cm$		
temperature range (°C)	volume (cc)	volume ratio (%)	temperature range (°C)	volume (cc)	volume ratio (%)	temperature range (°C)	volume (cc)	volume ratio (%)
645.0 - 651.0	0.192	5.18	695.0 - 701.6	0.212	5.73	735.0 - 750.0	0.530	14.32
635.0 - 645.0	0.410	11.07	685.0 - 695.0	0.408	11.01	725.0 - 735.0	0.444	12.00
625.0 - 635.0	0.481	13.00	675.0 - 685.0	0.447	12.09	715.0 - 725.0	0.493	13.33
615.0 - 625.0	0.527	14.24	665.0 - 675.0	0.539	14.56	705.0 - 715.0	0.528	14.27
605.0 - 615.0	0.573	15.47	655.0 - 665.0	0.555	14.98	695.0 - 705.0	0.528	14.29
595.0 - 605.0	0.593	16.01	645.0 - 655.0	0.529	14.28	685.0 - 695.0	0.513	13.86
585.0 - 595.0	0.438	11.83	635.0 - 645.0	0.498	13.45	675.0 - 685.0	0.333	9.00
575.0 - 585.0	0.244	6.58	625.0 - 635.0	0.252	6.80	665.0 - 675.0	0.157	4.52
565.0 - 575.0	0.129	3.47	615.0 - 625.0	0.136	3.68	655.0 - 665.0	0.095	2.56
555.0 - 565.0	0.079	2.15	605.0 - 615.0	0.083	2.23	645.0 - 655.0	0.062	1.68
542.6 - 555.0	0.037	0.99	591.3 - 605.0	0.044	1.19	637.8 - 645.0	0.007	0.19
$T_{max} = 651.0 \text{ } ^\circ\text{C}$			$T_{max} = 701.6 \text{ } ^\circ\text{C}$			$T_{max} = 750.0 \text{ } ^\circ\text{C}$		
$T_{min} = 542.6 \text{ } ^\circ\text{C}$			$T_{min} = 591.3 \text{ } ^\circ\text{C}$			$T_{min} = 637.8 \text{ } ^\circ\text{C}$		
$T_{ave} = 610.3 \text{ } ^\circ\text{C}$			$T_{ave} = 659.9 \text{ } ^\circ\text{C}$			$T_{ave} = 707.3 \text{ } ^\circ\text{C}$		

o Irradiation was performed at VT-10 hole in JRR-2.

o Contribution of γ -heating (1W/g-Li₂O, capsule materials) was $\sim 1/20$ of ${}^6\text{Li}(n,\alpha){}^3\text{H}$ reaction heat.

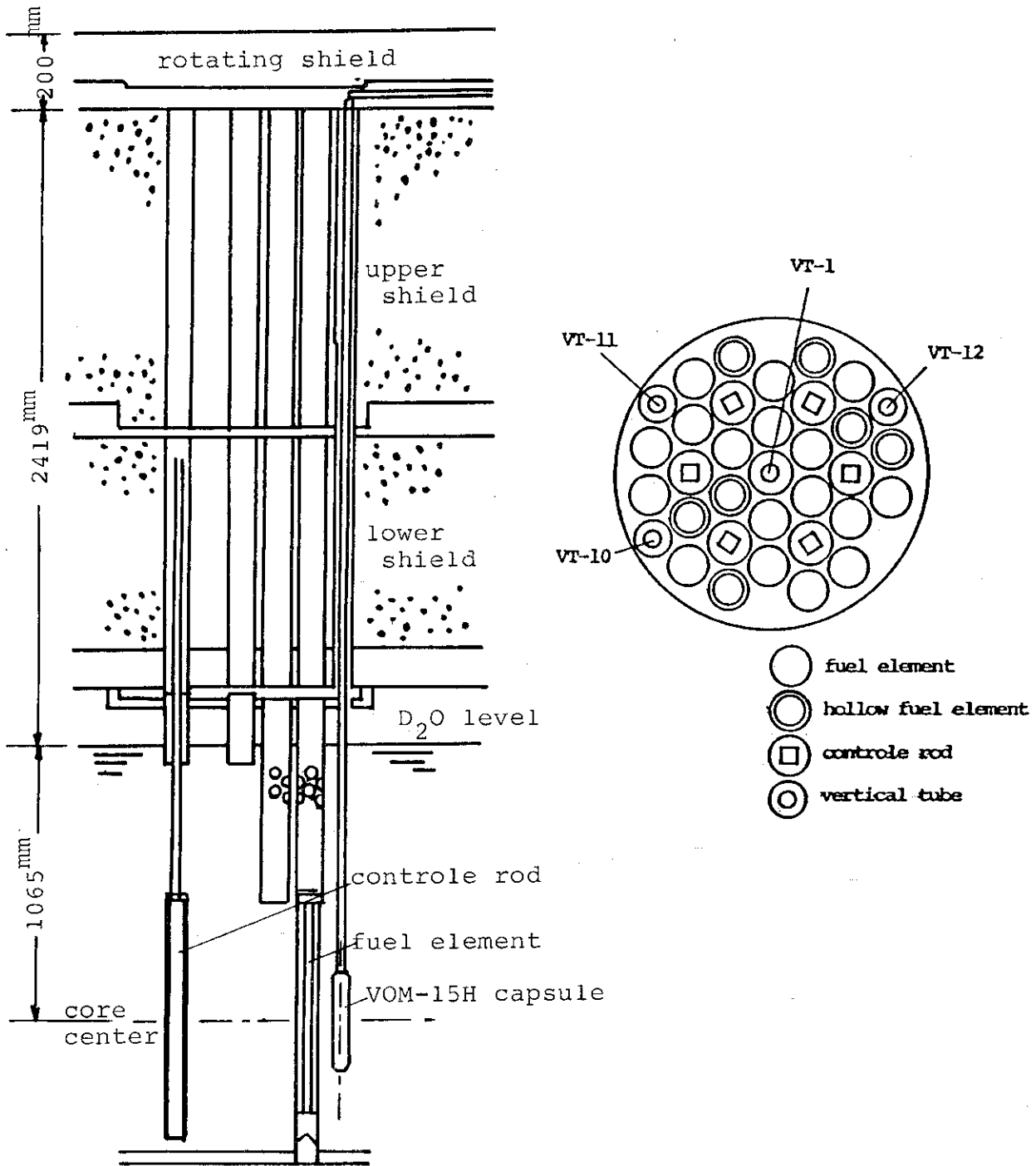


Fig. 4 JRR-2 Core Configuration and VOM-15H Capsule Position in the VT-10 Irradiation Hole

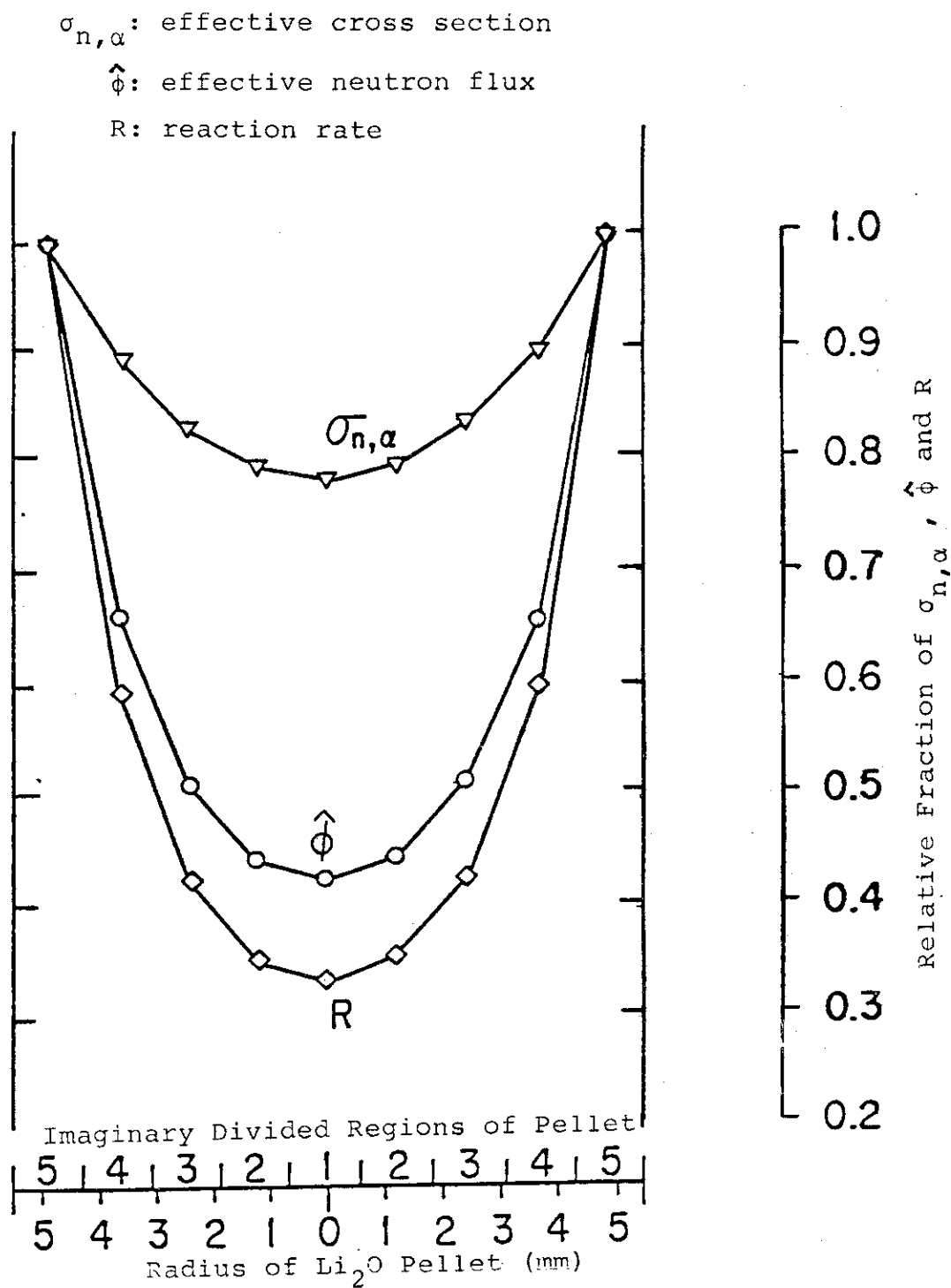


Fig. 5 Reaction Rate Distribution of ${}^6\text{Li}(n,\alpha){}^3\text{H}$ Reaction in Li_2O Pellet

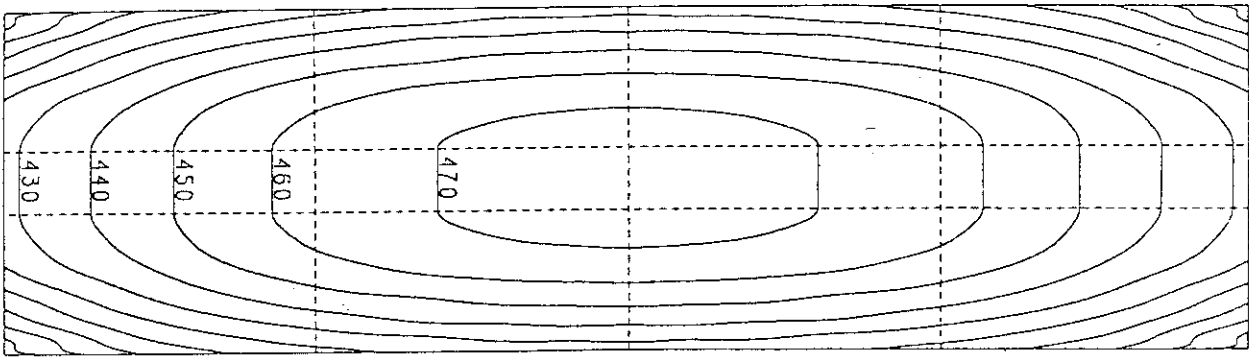


Fig. 6A Temperature Distribution in Li_2O Pellet (Case 1)

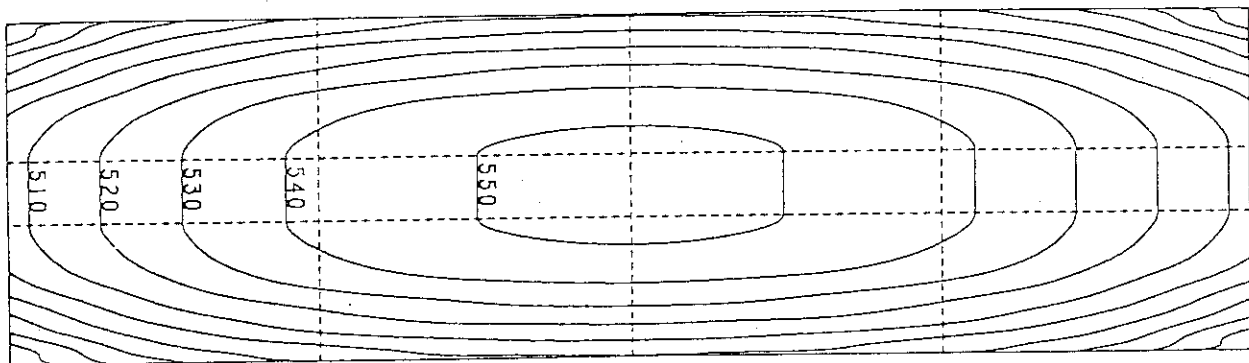


Fig. 6B Temperature Distribution in Li_2O Pellet (Case 2)

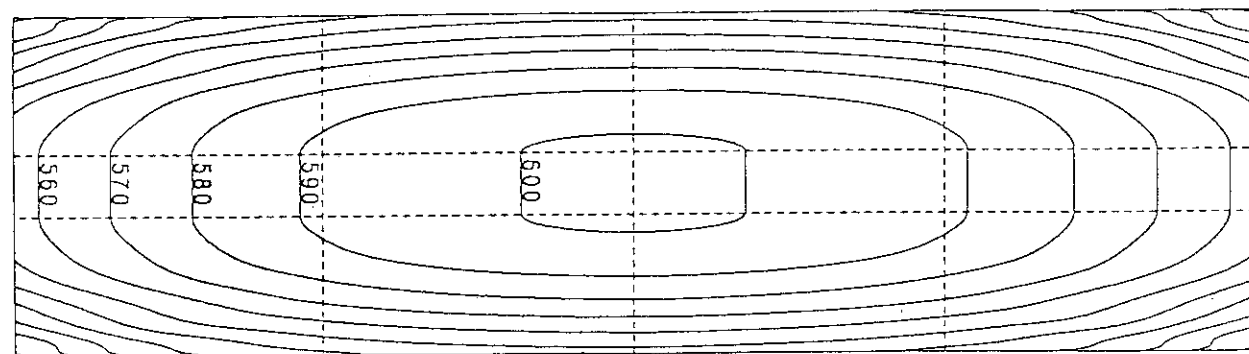


Fig. 6C Temperature Distribution in Li_2O Pellet (Case 3)

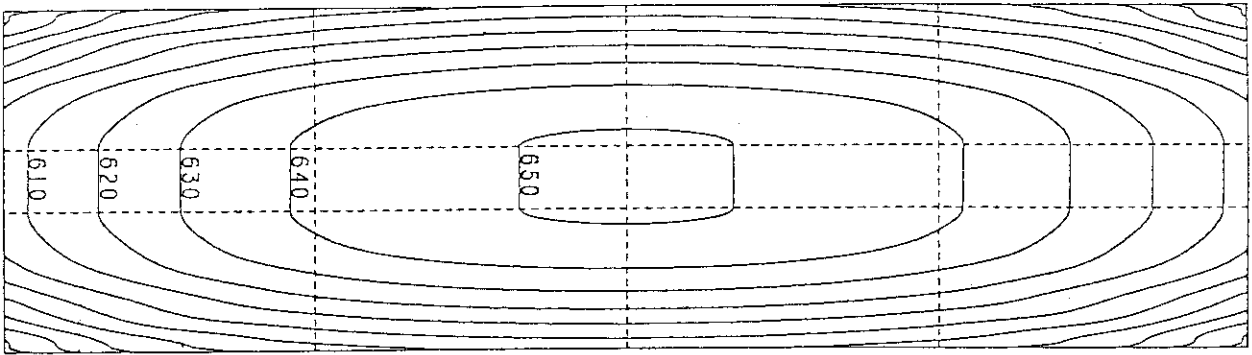


Fig. 6D Temperature Distribution in Li₂O Pellet (Case 4)

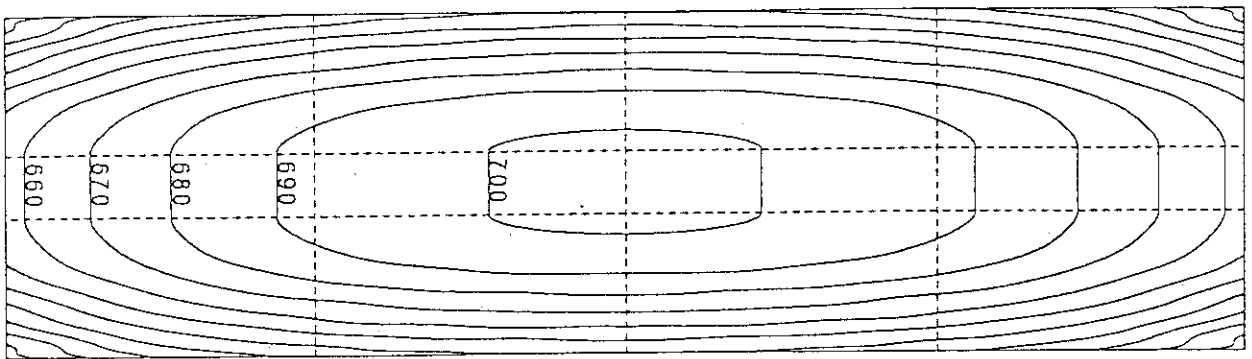


Fig. 6E Temperature Distribution in Li₂O Pellet (Case 5)

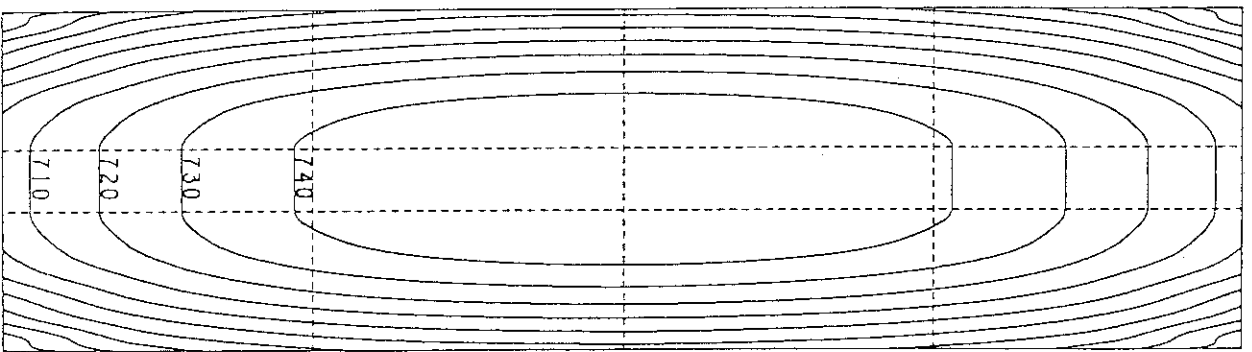


Fig. 6F Temperature Distribution in Li₂O Pellet (Case 6)

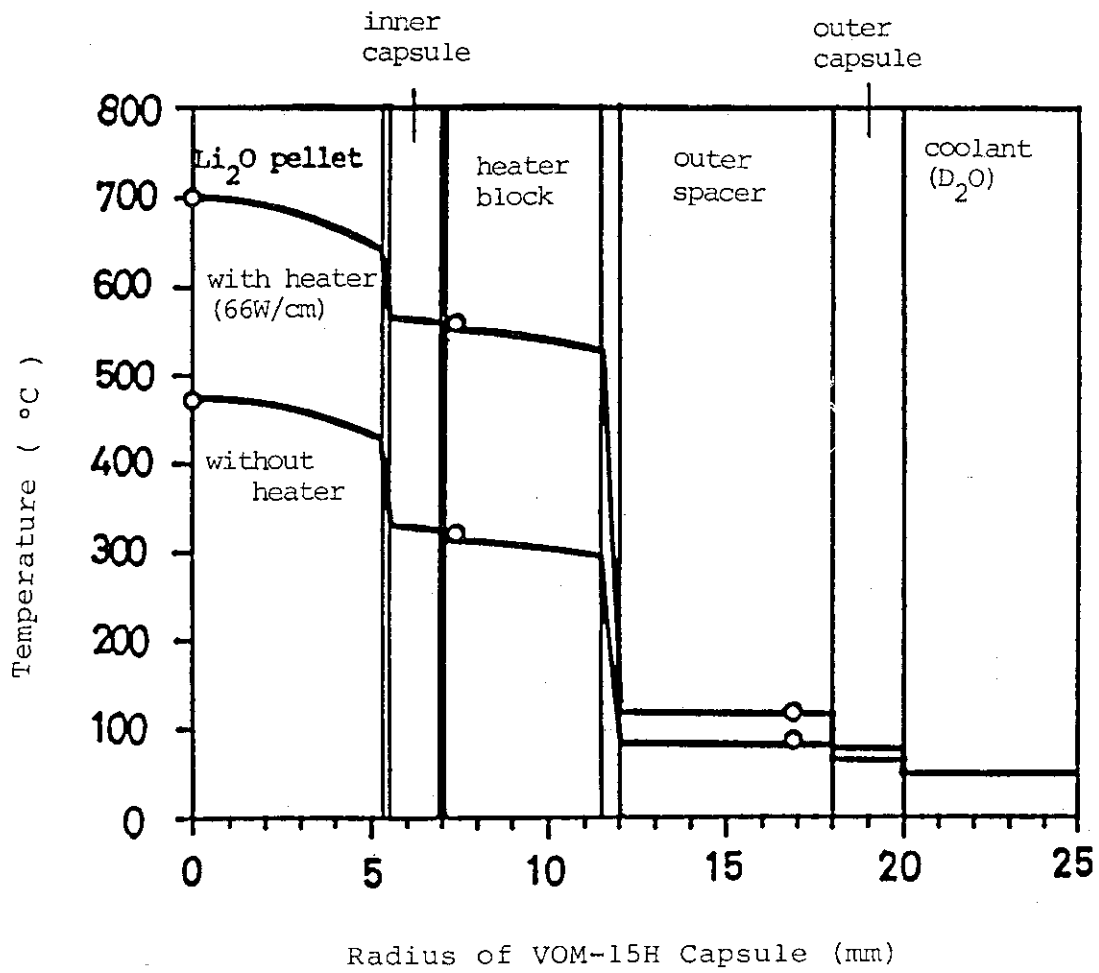


Fig.7 Temperature Distribution at the Center Face of the VOM-15H Capsule
 ——— calculated values, O observed values

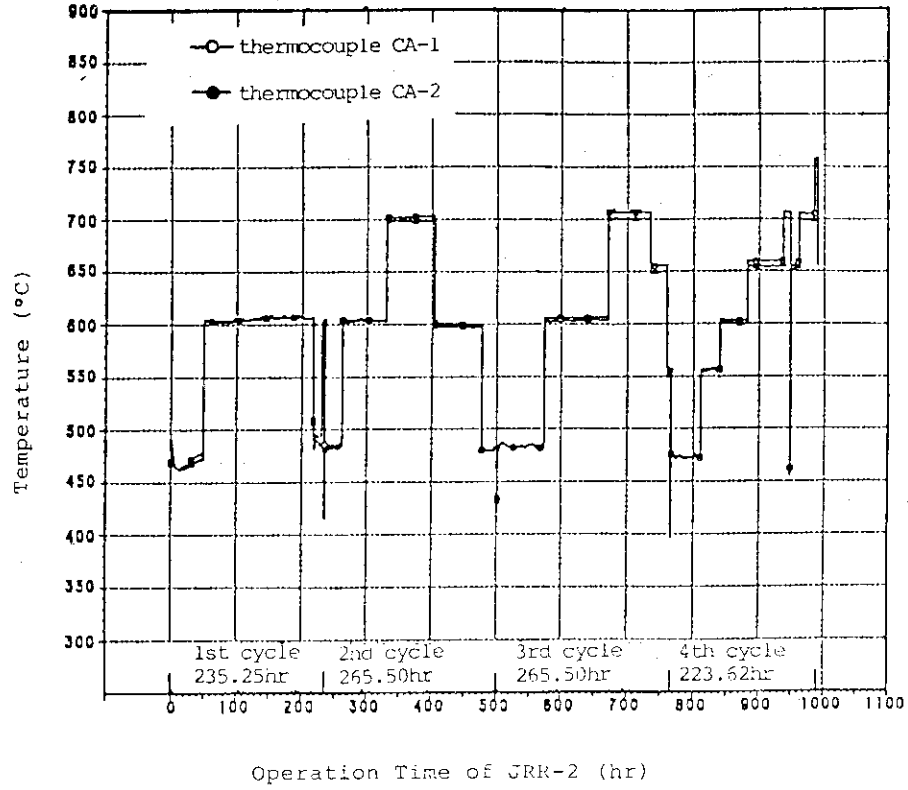


Fig. 8A Irradiation Temperature Profiles at the Center of Li_2O pellet in the VOM-15H Capsule

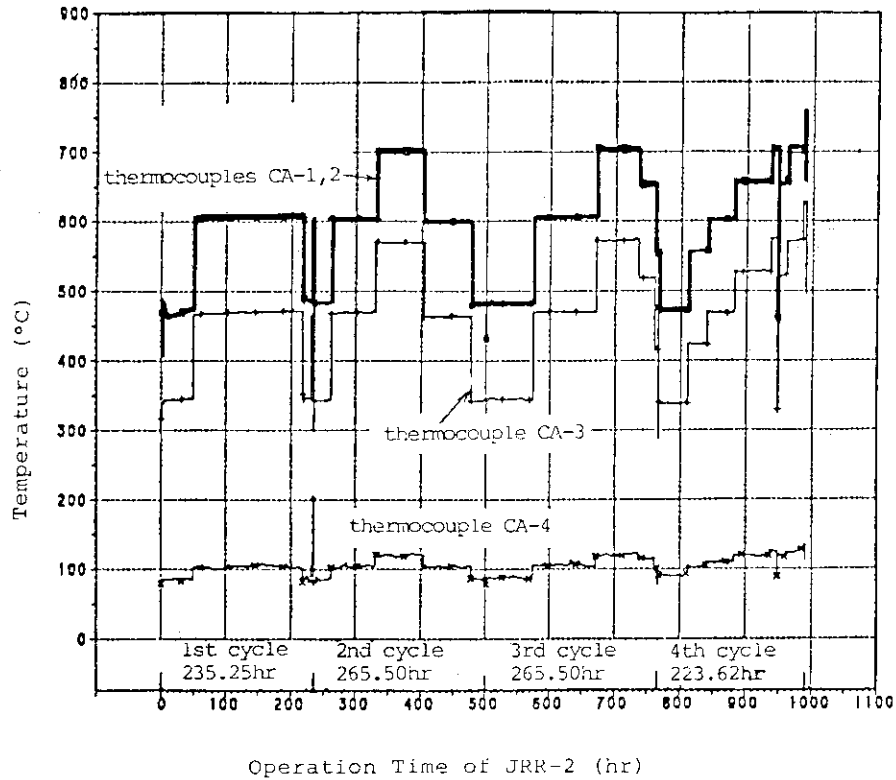


Fig.8B Irradiation Temperature Profiles in the VOM-15H Capsule

4. 2次元輸送計算コード「TWOTRAN」によるLi₂Oペレット内の中性子束分布及び反応率の検討

前章では熱群輸送計算コード「THERMOS」を用いて照射キャプセル内の核・熱条件を評価した。ここでは、2次元輸送計算コード「TWOTRAN」⁽⁷⁾により計算した中性子束分布及び反応率分布並びに中性子束モニターを用いて実測したVT-10の中性子束分布について検討する。

Table 2は、照射キャプセル未装荷状態における中性子束分布の計算結果と実測値をまとめたものである。表では中性子エネルギー範囲を4つの領域に分けて示しているが計算上のエネルギーメッシュは27群である。各領域のエネルギー範囲が若干異なっているため両者の厳密な比較はできない。しかし、⁶Li(n, α)³H反応に関して重要な低エネルギー範囲に着目すると、TWOTRANによる評価は $1 \times 10^{-5} \sim 0.1229 \text{ eV}$ の範囲でやや過大であり、 $0.1229 \sim 9.12 \times 10^3 \text{ eV}$ でやや過小となる傾向が見られる。なお、中性子束の測定に用いたモニターの核反応は次の14種類である；²⁷Al(n, α)²⁴Na, ²⁷Al(n, P)²⁷Mg, ⁵⁴Fe(n, P)⁵⁴Mn, ⁵⁶Fe(n, P)⁵⁶Mn, ⁵⁸Fe(n, γ)⁵⁹Fe, ⁵⁹Co(n, γ)⁶⁰Co, ⁶³Cu(n, γ)⁶⁴Cu, ⁴⁶Ti(n, P)⁴⁶Sc, ⁴⁷Ti(n, P)⁴⁷Sc, ⁴⁸Ti(n, P)⁴⁸Sc, ¹¹⁵In(n, n')^{115m}In, ¹⁹⁷Au(n, γ)¹⁹⁸Au (以上は厚み0.5mmのカドミウム箔付き), ⁵⁸Ni(n, P)⁵⁸Co (カドミウム箔なし) 及び¹⁹⁷Au(n, γ)¹⁹⁸Au (同)。

Fig. 9A, 9Bは、TWOTRANによって求めた中性子束のエネルギースペクトル及び空間的 (VT-10の垂直及び水平方向) 分布に基づいて計算したLi₂Oペレット内の⁶Li(n, α)³H, ⁷Li(n, nα)³Hの反応率を等高線で描いたものである。各反応の実効断面積としてはENDF/B-IVのデータ⁽⁸⁾を使用した。Fig. 9Aより(n, α)反応の分布は、ペレット半径方向については表面近傍において急激な勾配となること、軸方向についてはほぼ一様であるが両端部で大きな勾配を生ずることが分かる。半径方向における分布は本計算コードによる中性子エネルギースペクトルが幾分低エネルギー側に偏ることから生ずるいわゆる熱中性子束の自己遮蔽効果である。一方、(n, nα)反応は、Fig. 9Bに見られるようにペレット両端部を含めて複雑な分布を示すが、全体としては極めて1に近い平坦な分布となることが注目される。

つぎに、本研究で使用した計算コードの違いによる反応率の差異を調べてみよう。

Li₂Oペレットの体積平均の反応率 $R (= \int \sigma \Phi \phi \text{ dE})$ を以下に示す。

- THERMOS (エネルギー範囲 $E = 1 \times 10^{-5} \sim 0.785 \text{ eV}$)

$$R = 9.00 \times 10^{-9} \quad ; \quad {}^6\text{Li}(n, \alpha){}^3\text{H}$$

- TWOTRAN (エネルギー範囲 $E = 1 \times 10^{-5} \sim 1 \times 10^7 \text{ eV}$)

$$R = 5.743 \times 10^{-9} \quad ; \quad {}^6\text{Li}(n, \alpha){}^3\text{H}$$

$$R = 2.139 \times 10^{-13} \quad ; \quad {}^7\text{Li}(n, n\alpha){}^3\text{H}$$

これらより、TWOTRANによる反応率はTHERMOSによる値の約60%とかなり低目となることが分かる。これはTWOTRANコードではLi₂Oペレット内の中性子束歪補正係数が過小に評価されるためと考えられる。しかし、本計算コードはLi₂Oペレット内の反応率分布を2次元的に把握できる点でTHERMOSコードよりも優れているので、今後VT-10におけるLi₂Oペレットの核熱特性の評価コードとして計算モデルの適正化などの作業を進める予定である。

なお、上記計算結果から、(n, nα)の反応率は(n, α)の1/1000以下であることが分かる。

Table 2 Unfolding Characteristics of Neutron Flux in the VT-10 Hole

calculated value *1		observed value *2	
energy range (eV)	flux(n/cm ² .sec)	energy range (eV)	flux(n/cm ² .sec)
1x10 ⁻⁵ ~ 0.1229	1.10x10 ¹⁴	~ 0.1	8.2x10 ¹³
0.1229 ~ 9.12x10 ³	6.51x10 ¹³	0.1 ~ 10 ⁵	1.02x10 ¹³
9.12x10 ³ ~ 1.05x10 ⁶	1.33x10 ¹³	10 ⁵ ~ 10 ⁶	5.9x10 ¹²
1.05x10 ⁶ ~ 1.0x10 ⁷	3.03x10 ¹²	10 ⁶ ~ 1.8x10 ⁷	1.45x10 ¹²

*1. calculated by TWOTRAN code *2. measured with 14 kinds of flux monitors

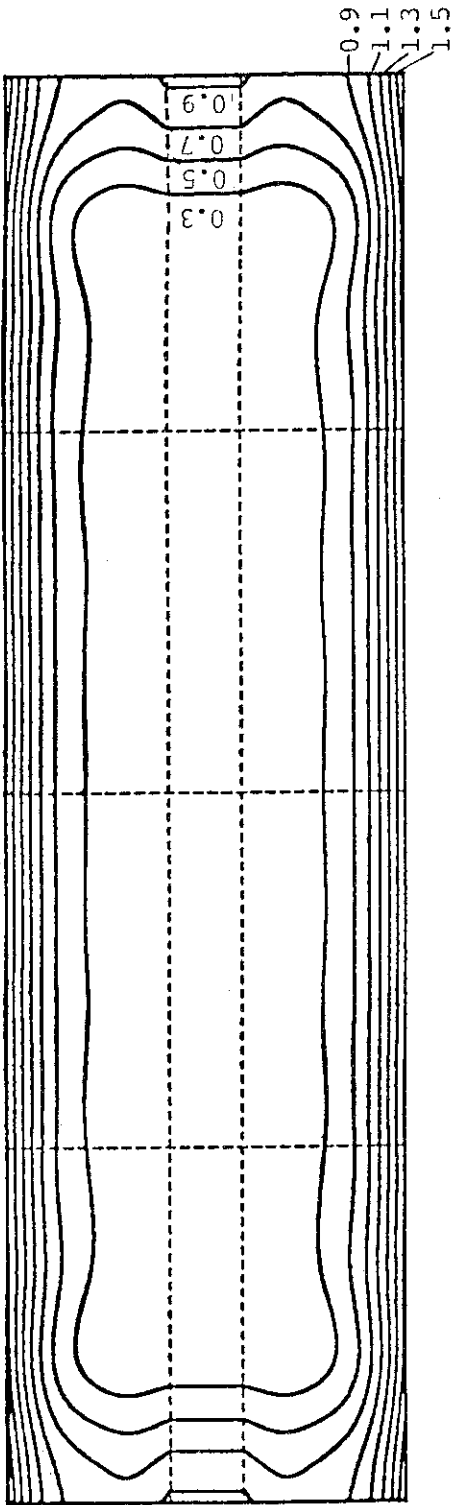


Fig.9A Distribution of ${}^6\text{Li}(n,\alpha){}^3\text{H}$ Reaction Rate in Li_2O Pellets irradiated in the VT-10 Hole

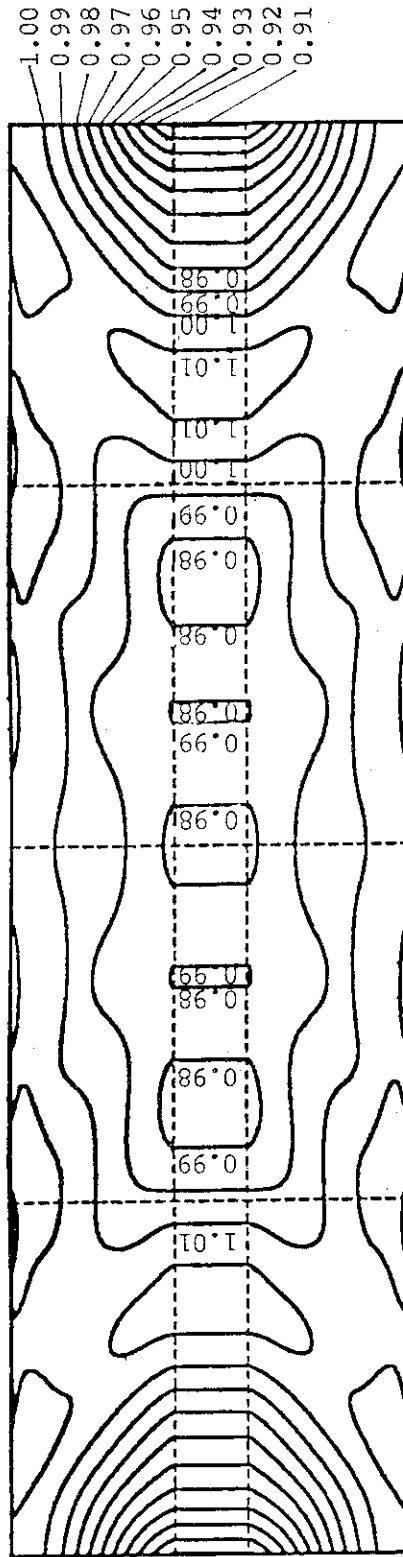


Fig.9B Distribution of ${}^7\text{Li}(n,n\alpha){}^3\text{H}$ Reaction Rate in Li_2O Pellets irradiated in the VT-10 Hole

5. 酸化リチウム中の不純物による誘導放射能の検討

市販の酸化リチウムにはNa, K, Ca, Mg, Al, C, Cu, Fe, Mn, Si, Pbなどの不純物が含まれており、その種類や濃度は酸化リチウムの原料鉱石(リシア輝石 $\text{LiAl}(\text{SiO}_3)_2$, リシア雲母 $\text{KLiF} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 3\text{SiO}_2$, 葉長石 $\text{Li}_2\text{O} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 8\text{SiO}_3$)やそれらの精錬・精製工程の違いによって異なる。酸化リチウムを中性子照射した場合には、これらの不純物に基づく気体状の放射性核種が生成しスweepガス中に混入することが考えられる。従って、中性子照射下におけるトリチウムの放出特性を測定するためには、不純物に由来する誘導放射能の影響を十分に把握しておく必要がある。

そこで、本照射試験用として製造した Li_2O ペレットの原料粉末について以下のような誘導放射能の検討を試みた。

5.1 揮発性の放射性核種

(1) 計算条件

原料粉末中の不純物⁽⁹⁾として濃度が比較的高いNa(0.066 wt%), K(0.111 wt%), Ca(0.029 wt%), Pb(0.008 wt%)に着目し、気体状の放射性核種が生成する核反応を検討した。中性子照射条件としては、JRR-2の燃料領域照射孔VT-10(熱中性子束 $1.0 \times 10^{14} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$, 速中性子束 $1.0 \times 10^{12} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$)と同一条件とした。ただし、 ${}^6\text{Li}(n, \alpha){}^3\text{H}$ 反応については、熱外中性子束 ($6.4 \times 10^{-4} \sim 0.785 \text{ eV}$) を考慮した実効中性子束 ($1.12 \times 10^{14} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$) 並びにVT-10における中性子束歪補正係数(0.148)を適用した。

(2) 計算モデル

前記不純物に対応する安定核種⁽¹⁰⁾が中性子吸収によって放射性核種に変化し、これがさらに自然崩壊すると仮定する。この場合の放射性核種の生成量N(原子数)は、照射時間をt(sec)とすると次式で与えられる。

$$N = \frac{N_0 \phi \sigma (e^{-\phi t} - e^{-\lambda t})}{\lambda - \phi \sigma}$$

いま、 $\phi \sigma \ll \lambda$, $\phi \sigma t \ll 1$ と仮定すると、

$$\begin{aligned} N &\approx \frac{N_0 \phi \sigma}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t}) \\ &\approx N_0 \phi \sigma \cdot t \cdot \left(1 - \frac{\lambda t}{2}\right) \end{aligned} \quad (1)$$

ここで、 N_0 は安定核種の原子数(atom)、 ϕ と σ はそれぞれ熱中性子束($\text{n/cm}^2 \cdot \text{sec}$)、熱中性子吸収断面積(barn)、 λ は放射性核種の崩壊定数(sec^{-1})である。

これらの放射性核種がスweepガス中にすべて放出されたとした場合の放射能A(Ci)は、照

射後の経過時間を T (sec) とすると(1)式より,

$$A = \frac{N \lambda \cdot e^{-\lambda T}}{3.7 \times 10^{10}}$$

$$\approx \frac{N_0 \phi \sigma \cdot t \cdot \lambda \cdot e^{-\lambda T}}{3.7 \times 10^{10}} \quad (2)$$

ただし、上式の導出において $\lambda t / 2 \ll 1$, 放射性核種が Li_2O ペレットからスイープガス中へ移行する時間は半減期より十分に短い, と仮定した。

(3) 線量率の計算法

放射性核種を含むスイープガスが配管 (SUS 304) を通過するときの配管表面における γ 線の線量率 D (mR / hr) は次式により計算した。

$$D = \frac{1}{d} \tan^{-1} \frac{\ell}{d} \cdot \sum_{i=1}^{19} R_i A_i \times 10^3 \quad (3)$$

ここで、 d は配管中心からの距離 (= 0.01 m), ℓ は配管長さ (= 2 m), R_i は核種 i の線量率換算係数, A_i は配管の単位長さ当りの放射能 (C_i) である。

一方、制動放射による X 線の線量率の計算においては、照射線量率定数 (RHM 値) を β 線と同一エネルギーの光子に関する定数の $1/1000$ と仮定した。⁽¹⁾

以上の核反応に關与する定数並びに照射線量率定数を Table 3 に示す。

(4) 計算結果

Table 4 は、照射時間 8.64×10^4 秒、照射後の経過時間 0 ~ 3000 秒における放射能と配管表面の線量率を示したものである。これより、照射直後 $T = 0$ における不純物核種の放射能としては ^6He が大部分を占めるが、 $T = 12 \sim 400$ 秒においては ^{23}Ne が最も多くなることが分かる。トリチウム ^3H に対する不純物の全放射能の比は、照射後 1 分、5 分、10 分の各時間についてそれぞれ約 $1/30$, 約 $1/1800$, 約 $1/6600$ となる。トリチウム放出試験装置の電離箱に至るまでのスイープガスの滞留時間は 3 ~ 7 分程度であるので、トリチウム濃度の測定に及ぼす不純物の影響は十分小さいと言える。

一方、配管表面における γ 線の線量率 (制動 X 線の寄与を含む) は、照射キャプセル出口部 ($T = 6$ sec) 及びフード入口部 ($T = 60$ sec) においてそれぞれ 3.5 mR/hr, 5.6×10^{-2} mR/hr である。キャプセル出口部 ~ フード入口部の配管が JRR-2 の炉頂構造材 (厚み 5 cm 以上のアルミ製覆い) の下部に設置されていることを考慮すると、この線量率はさらに低い値となる。

5.2 非揮発性の放射性核種

本試験では、トリチウム放出実験の終了後、 Li_2O ペレットの照射後試験 (ペレット内に残存した ^3H 及び He の定量, ペレットの微細組織の観察, など) が計画されている。照射キャプセ

ルの解体、 Li_2O ペレットの取出し作業とともにこれらの試験を円滑に実施するためには、それぞれの残留放射能レベルを把握しておかねばならない。

(1) Li_2O ペレットの残留放射能

原料粉末中の不純物として前記成分の他に、Al, Si, Mn, Fe, Ni, Cuがそれぞれ0.01wt%含まれるとし、その他の計算条件は前述の通りとする。ただし、照射時間は4サイクルの合計(1062h)*とした。Table 5 Aに計算結果を示す。これより、30日冷却後の主要放射性核種は、 ^{45}Ca , ^{55}Fe , ^{58}Co であり、全放射能は0.12mCiと比較的少ない。

(2) 照射キャプセルの残留放射能

ここでは、インナーキャプセル(SUS 316, 重量71g)及びヒーターブロック(SUS 304, 重量302g)に着目し、それぞれの材料における構成成分を次の通りとする。

○ インナーキャプセル

Cr 16 wt%, Ni 12 wt%, Mn 2 wt%, Mo 2 wt%, Si 1 wt%, Co 0.2 wt%,
Fe 66.8 wt%

○ ヒーターブロック

Cr 18 wt%, Ni 8 wt%, Mn 2 wt%, Si 1 wt%, Co 0.2 wt%, Fe 70.8 wt%

なお、各成分の同位体濃度は天然の存在比を基準とし、熱中性子に対する歪補正係数(depression factor)は、SUS 316, SUS 304のいずれについても0.45と仮定した。計算結果をTable 5 Bに示す。30日冷却後の主要核種は ^{51}Cr であり、残留放射能の合計は122Ciとなる。キャプセルの解体作業は、ホットラボの施設を利用して行う必要があることが分かる。

* JRR-2の事情による1時的な運転停止があったため、実効照射時間は990hに減少した。

Table 3 Constants for Nuclear Reaction of Impurities in Lithium Oxide Powder

nuclide	abundance ratio (%)	nuclear reaction	product	half life	cross section σ_{th} (mb) σ_f (mb)	RHM value *	RHM value of bremsstrahlung
6Li	7.5	$^6Li(n,\alpha)^3Li$	3H	12.33y	5.43×10^3	0.0	0.00003
6Li	7.5	$^6Li(n,p)^6He$	6He	0.808s	- 39	0.0	0.00146
^{16}O	99.76	$^{16}O(n,p)^{16}N$	^{16}N	7.13s	0.5×10^{-3}	1.590	0.00203
^{16}O	99.76	$^{16}O(n,2n)^{15}O$	^{15}O	2.03m	- 5.3×10^{-6}	0.584	0.00084
^{17}O	0.038	$^{17}O(n,p)^{17}N$	^{17}N	4.17s	- 0.6×10^{-6}	0.018	0.00152
^{18}O	0.204	$^{18}O(n,p)^{18}N$	^{18}N	0.63s	- 0.1×10^{-6}	0.0	0.00003
3He	1.38×10^{-4}	$^3He(n,p)^3H$	3H	12.33y	4.72×10^6	0.0	0.0
^{23}Na	100	$^{23}Na(n,p)^{23}Ne$	^{23}Ne	37.6s	- 1.5	0.092	0.00167
^{23}Na	100	$^{23}Na(n,\alpha)^{20}F$	^{20}F	11.0s	- 0.765	0.805	0.00197
^{39}K	93.26	$^{39}K(n,p)^{39}Ar$	^{39}Ar	269y	- 20	0.0	0.00032
^{39}K	93.26	$^{39}K(n,\alpha)^{36}Cl$	^{36}Cl	$3.0 \times 10^5 y$	4.3 13	0.0	0.00038
^{41}K	6.73	$^{41}K(n,p)^{41}Ar$	^{41}Ar	1.83h	- 2.1	0.655	0.00062
^{41}K	6.73	$^{41}K(n,\alpha)^{38}Cl$	^{38}Cl	37.2m	- 0.76	0.680	0.00138
^{40}Ca	96.46	$^{40}Ca(n,\alpha)^{37}Ar$	^{37}Ar	35.0d	2.5 13	0.0	0.0
^{42}Ca	0.647	$^{42}Ca(n,\alpha)^{39}Ar$	^{39}Ar	269y	- 2.7	0.0	0.00032
^{44}Ca	2.09	$^{44}Ca(n,\alpha)^{41}Ar$	^{41}Ar	1.83h	- 3.3×10^{-5}	0.655	0.00062
^{46}Ca	3.5×10^{-3}	$^{46}Ca(n,\alpha)^{43}Ar$	^{43}Ar	5.4m	- 3.0×10^{-7}	0.0	0.0
^{206}Pb	24.1	$^{206}Pb(n,\alpha)^{203}Hg$	^{203}Hg	46.8d	- 2.7	0.172	0.00014
^{208}Pb	52.3	$^{208}Pb(n,\alpha)^{205}Hg$	^{205}Hg	5.2m	- 1.58	0.003	0.00080

* exposure rate constant of γ ray and X ray [R.m²/hr.ci]

Table 4 Radioactivity Produced from Impurities in Lithium Oxide Powder ---- Volatile Nuclides

REACTION AND PRODUCT	HALF LIFE	Activity (Ci)													
		T= 0 S T= 1 S T= 2 S T= 3 S T= 4 S T= 5 S T= 6 S T= 7 S T= 8 S T= 9 S													
6-LI(N,A)3-H	12.33 Y	7.245E-01	7.245E-01	7.245E-01	7.245E-01	7.245E-01	7.245E-01	7.245E-01	7.245E-01	7.245E-01	7.245E-01	7.245E-01	7.245E-01	7.245E-01	7.245E-01
6-LI(N,P)6-HE	0.808 S	1.512E+04	6.441E+03	2.719E+03	1.153E+03	4.889E+02	2.073E+02	8.792E+01	3.729E+01	1.581E+01	6.705E+00				
16-O(N,P)16-N	7.13 S	1.461E-01	1.325E-01	1.203E-01	1.091E-01	9.901E-02	8.984E-02	8.152E-02	7.396E-02	6.711E-02	6.090E-02				
16-O(N,2N)15-O	2.03 M	9.064E-05	9.012E-05	8.961E-05	8.910E-05	8.860E-05	8.810E-05	8.760E-05	8.710E-05	8.660E-05	8.611E-05				
17-O(N,P)17-N	4.17 S	1.142E-07	9.668E-08	8.187E-08	6.934E-08	5.872E-08	4.973E-08	4.211E-08	3.566E-08	3.020E-08	2.558E-08				
18-O(N,P)18-N	0.63 S	6.761E-07	2.250E-07	7.488E-08	2.492E-08	8.293E-09	2.760E-09	9.185E-10	3.057E-10	1.017E-10	3.385E-11				
3-HE(N,P)3-H	12.33 Y	1.821E-07	1.821E-07	1.821E-07	1.821E-07	1.821E-07	1.821E-07	1.821E-07	1.821E-07	1.821E-07	1.821E-07	1.821E-07	1.821E-07	1.821E-07	1.821E-07
23-NA(N,P)23-NE	37.6 S	7.146E-02	7.015E-02	6.887E-02	6.761E-02	6.638E-02	6.516E-02	6.397E-02	6.281E-02	6.166E-02	6.053E-02				
23-NA(N,A)20-F	11.0 S	1.246E-01	1.170E-01	1.098E-01	1.031E-01	9.681E-02	9.090E-02	8.535E-02	8.014E-02	7.524E-02	7.065E-02				
39-K(N,P)39-AR	269 Y	3.892E-09	3.892E-09	3.892E-09	3.892E-09	3.892E-09	3.892E-09	3.892E-09	3.892E-09	3.892E-09	3.892E-09	3.892E-09	3.892E-09	3.892E-09	3.892E-09
41-K(N,P)41-AR	1.83 H	9.770E-12	9.770E-12	9.770E-12	9.770E-12	9.770E-12	9.770E-12	9.770E-12	9.770E-12	9.770E-12	9.770E-12	9.770E-12	9.770E-12	9.770E-12	9.770E-12
41-K(N,A)38-CL	3.0E5 Y	3.800E-05	3.799E-05	3.799E-05	3.798E-05	3.798E-05	3.798E-05	3.798E-05	3.797E-05	3.797E-05	3.796E-05				
40-CA(N,A)37-AR	35.0 D	4.059E-05	4.057E-05	4.056E-05	4.055E-05	4.054E-05	4.052E-05	4.051E-05	4.050E-05	4.049E-05	4.047E-05				
42-CA(N,A)39-AR	269 Y	9.290E-13	9.290E-13	9.290E-13	9.290E-13	9.290E-13	9.290E-13	9.290E-13	9.290E-13	9.290E-13	9.290E-13	9.290E-13	9.290E-13	9.290E-13	9.290E-13
44-CA(N,A)41-AR	1.83 H	4.726E-11	4.726E-11	4.725E-11	4.725E-11	4.724E-11	4.724E-11	4.723E-11	4.723E-11	4.722E-11	4.722E-11				
46-CA(N,A)43-AR	5.4 M	1.463E-14	1.460E-14	1.457E-14	1.454E-14	1.451E-14	1.447E-14	1.444E-14	1.441E-14	1.438E-14	1.435E-14				
206-PB(N,A)203-HG	46.8 D	3.877E-09	3.877E-09	3.877E-09	3.877E-09	3.877E-09	3.877E-09	3.877E-09	3.877E-09	3.877E-09	3.877E-09	3.877E-09	3.877E-09	3.877E-09	3.877E-09
208-PB(N,A)205-HG	5.2 M	6.380E-05	6.366E-05	6.352E-05	6.338E-05	6.324E-05	6.310E-05	6.296E-05	6.282E-05	6.268E-05	6.254E-05				
TOTAL OF IMPURITY		1.512E+04	6.441E+03	2.719E+03	1.153E+03	4.892E+02	2.076E+02	8.815E+01	3.750E+01	1.602E+01	6.898E+00				
RATIO OF IMPURITY TO 3-H		2.087E+04	8.849E+03	3.753E+03	1.592E+03	6.752E+02	2.865E+02	1.217E+02	5.176E+01	2.211E+01	9.521E+00				
DOSE RATE AT SURFACE OF SAMPLING GAS TUBE (MR/HR)		2.354E+02	1.016E+02	4.471E+01	2.045E+01	1.004E+01	5.516E+00	3.498E+00	2.549E+00	2.063E+00	1.779E+00				
BREMSSTRAHLUNG		2.319E+02	9.833E+01	4.170E+01	1.769E+01	7.504E+00	3.185E+00	1.353E+00	5.765E-01	2.468E-01	1.069E-01				
GAMMA RAY		3.560E+00	3.269E+00	3.002E+00	2.758E+00	2.535E+00	2.331E+00	2.144E+00	1.973E+00	1.816E+00	1.673E+00				

(continue)

REACTION AND PRODUCT	HALF LIFE	Activity (Ci)												
		T= 110 S	T= 120 S	T= 130 S	T= 140 S	T= 150 S	T= 160 S	T= 170 S	T= 180 S	T= 190 S	T= 200 S			
6-LI(N,A)3-H	12.33 Y	7.245E-01	7.245E-01	7.245E-01	7.245E-01	7.245E-01	7.245E-01	7.245E-01	7.245E-01	7.245E-01	7.245E-01	7.245E-01	7.245E-01	7.245E-01
6-LI(N,P)6-HE	0.808 S	1.577E-37	2.966E-41	5.578E-45	1.049E-48	1.974E-52	3.712E-56	6.983E-60	1.313E-63	2.471E-67	4.647E-71			
16-O(N,P)16-N	7.13 S	3.314E-06	1.254E-06	4.742E-07	1.794E-07	6.785E-08	2.566E-08	9.708E-09	3.672E-09	1.389E-09	5.255E-10			
16-O(N,N)15-O	2.03 M	4.847E-05	4.579E-05	4.325E-05	4.086E-05	3.860E-05	3.646E-05	3.445E-05	3.254E-05	3.074E-05	2.904E-05			
17-O(N,P)17-N	4.17 S	1.308E-15	2.482E-16	4.709E-17	8.933E-18	1.695E-18	3.215E-19	6.100E-20	1.157E-20	2.196E-21	4.165E-22			
18-O(N,P)18-N	0.63 S	1.859E-59	3.098E-64	5.161E-69	8.600E-74	1.433E-78	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0			
3-HE(N,P)3-H	12.33 Y	1.821E-07	1.821E-07	1.821E-07	1.821E-07	1.821E-07	1.821E-07	1.821E-07	1.821E-07	1.821E-07	1.821E-07			
23-NA(N,P)23-NE	37.6 S	9.405E-03	7.822E-03	6.505E-03	5.410E-03	4.499E-03	3.742E-03	3.112E-03	2.588E-03	2.152E-03	1.790E-03			
23-NA(N,A)20-F	11.0 S	1.216E-04	6.478E-05	3.450E-05	1.837E-05	9.783E-06	5.209E-06	2.774E-06	1.477E-06	7.867E-07	4.189E-07			
39-K(N,P)39-AR	269 Y	3.892E-09	3.892E-09	3.892E-09	3.892E-09	3.892E-09	3.892E-09	3.892E-09	3.892E-09	3.892E-09	3.892E-09			
39-K(N,A)36-CL	3.0E5 Y	9.770E-12	9.770E-12	9.770E-12	9.770E-12	9.770E-12	9.770E-12	9.770E-12	9.770E-12	9.770E-12	9.770E-12			
41-K(N,P)41-AR	1.83 H	3.756E-05	3.752E-05	3.748E-05	3.744E-05	3.740E-05	3.736E-05	3.732E-05	3.728E-05	3.724E-05	3.720E-05			
41-K(N,A)38-CL	37.2 M	3.922E-05	3.910E-05	3.898E-05	3.886E-05	3.874E-05	3.862E-05	3.850E-05	3.838E-05	3.826E-05	3.814E-05			
40-CA(N,A)37-AR	35.0 D	5.499E-06	5.499E-06	5.499E-06	5.499E-06	5.499E-06	5.499E-06	5.499E-06	5.499E-06	5.499E-06	5.499E-06			
42-CA(N,A)39-AR	269 Y	9.290E-13	9.290E-13	9.290E-13	9.290E-13	9.290E-13	9.290E-13	9.290E-13	9.290E-13	9.290E-13	9.290E-13			
44-CA(N,A)41-AR	1.83 H	4.672E-11	4.667E-11	4.662E-11	4.657E-11	4.652E-11	4.647E-11	4.642E-11	4.637E-11	4.633E-11	4.628E-11			
46-CA(N,A)43-AR	5.4 M	1.156E-14	1.132E-14	1.108E-14	1.084E-14	1.061E-14	1.039E-14	1.017E-14	9.954E-15	9.743E-15	9.537E-15			
206-PB(N,A)203-HG	46.8 D	3.877E-09	3.877E-09	3.877E-09	3.877E-09	3.877E-09	3.877E-09	3.877E-09	3.877E-09	3.877E-09	3.877E-09			
208-PB(N,A)205-HG	5.2 M	4.997E-05	4.887E-05	4.780E-05	4.675E-05	4.572E-05	4.472E-05	4.373E-05	4.277E-05	4.183E-05	4.091E-05			
TOTAL OF IMPURITY		9.711E-03	8.065E-03	6.713E-03	5.598E-03	4.675E-03	3.910E-03	3.274E-03	2.746E-03	2.307E-03	1.941E-03			
RATIO OF IMPURITY TO 3-H		1.340E-02	1.113E-02	9.266E-03	7.727E-03	6.453E-03	5.397E-03	4.519E-03	3.790E-03	3.184E-03	2.679E-03			
DOSE RATE AT SURFACE OF SAMPLING GAS TUBE (MR/HR)		1.143E-02	9.332E-03	7.749E-03	6.513E-03	5.526E-03	4.726E-03	4.071E-03	3.531E-03	3.084E-03	2.712E-03			
BREMSSTRAHLUNG		4.055E-04	3.765E-04	3.528E-04	3.333E-04	3.171E-04	3.037E-04	2.926E-04	2.834E-04	2.757E-04	2.694E-04			
GAMMA RAY		1.102E-02	8.955E-03	7.396E-03	6.179E-03	5.209E-03	4.422E-03	3.778E-03	3.248E-03	2.808E-03	2.443E-03			

(continue)

REACTION AND PRODUCT	HALF LIFE	Activity (Ci)													
		T= 10 S	T= 20 S	T= 30 S	T= 40 S	T= 50 S	T= 60 S	T= 70 S	T= 80 S	T= 90 S	T= 100 S				
6-LI(N,A)3-H	12.33 Y	7.245E-01	7.245E-01	7.245E-01	7.245E-01	7.245E-01	7.245E-01	7.245E-01	7.245E-01	7.245E-01	7.245E-01	7.245E-01	7.245E-01	7.245E-01	
6-LI(N,P)6-HE	0.808 S	2.844E+00	5.349E-04	1.006E-07	1.892E-11	3.560E-15	6.696E-19	1.259E-22	2.369E-26	4.456E-30	8.382E-34	1.619E-04	6.123E-05	2.315E-05	8.761E-06
16-O(N,P)16-N	7.13 S	5.525E-02	2.090E-02	7.906E-03	2.991E-03	1.131E-03	4.279E-04	1.619E-04	6.123E-05	2.315E-05	8.761E-06	5.431E-05	5.749E-05	5.431E-05	5.131E-05
16-O(N,2N)15-O	2.03 M	8.562E-05	8.089E-05	7.641E-05	7.219E-05	6.819E-05	6.442E-05	6.086E-05	5.749E-05	5.431E-05	5.131E-05	4.816E-05	4.501E-05	4.186E-05	3.871E-05
17-O(N,P)17-N	4.17 S	2.166E-08	4.109E-09	7.796E-10	1.479E-10	2.806E-11	5.323E-12	1.010E-12	1.916E-13	3.635E-14	6.896E-15	1.277E-11	1.877E-16	3.128E-21	5.212E-26
18-O(N,P)18-N	0.63 S	1.127E-11	1.877E-16	3.128E-21	5.212E-26	8.685E-31	1.447E-35	2.411E-40	4.018E-45	6.695E-50	1.116E-54	1.821E-07	1.821E-07	1.821E-07	1.821E-07
3-HE(N,P)3-H	12.33 Y	1.821E-07	1.821E-07	1.821E-07	1.821E-07	1.821E-07	1.821E-07	1.821E-07	1.821E-07	1.821E-07	1.821E-07	1.821E-07	1.821E-07	1.821E-07	1.821E-07
23-NA(N,P)23-NE	37.6 S	5.943E-02	4.942E-02	4.110E-02	3.418E-02	2.843E-02	2.364E-02	1.966E-02	1.635E-02	1.360E-02	1.131E-02	9.770E-12	9.770E-12	9.770E-12	9.770E-12
23-NA(N,A)20-F	11.0 S	6.634E-02	3.532E-02	1.881E-02	1.002E-02	5.334E-03	2.841E-03	1.513E-03	8.056E-04	4.290E-04	2.284E-04	1.277E-11	1.877E-16	3.128E-21	5.212E-26
39-K(N,P)39-AR	269 Y	3.892E-09	3.892E-09	3.892E-09	3.892E-09	3.892E-09	3.892E-09	3.892E-09	3.892E-09	3.892E-09	3.892E-09	3.892E-09	3.892E-09	3.892E-09	3.892E-09
39-K(N,A)36-CL	3.0E5 Y	9.770E-12	9.770E-12	9.770E-12	9.770E-12	9.770E-12	9.770E-12	9.770E-12	9.770E-12	9.770E-12	9.770E-12	9.770E-12	9.770E-12	9.770E-12	9.770E-12
41-K(N,P)41-AR	1.83 H	3.796E-05	3.792E-05	3.788E-05	3.784E-05	3.780E-05	3.776E-05	3.772E-05	3.768E-05	3.764E-05	3.760E-05	3.756E-05	3.752E-05	3.748E-05	3.744E-05
41-K(N,A)38-CL	37.2 M	4.046E-05	4.034E-05	4.021E-05	4.009E-05	3.996E-05	3.984E-05	3.971E-05	3.959E-05	3.947E-05	3.935E-05	3.923E-05	3.911E-05	3.899E-05	3.887E-05
40-CA(N,A)37-AR	35.0 D	5.499E-06	5.499E-06	5.499E-06	5.499E-06	5.499E-06	5.499E-06	5.499E-06	5.499E-06	5.499E-06	5.499E-06	5.499E-06	5.499E-06	5.499E-06	5.499E-06
42-CA(N,A)39-AR	269 Y	9.290E-13	9.290E-13	9.290E-13	9.290E-13	9.290E-13	9.290E-13	9.290E-13	9.290E-13	9.290E-13	9.290E-13	9.290E-13	9.290E-13	9.290E-13	9.290E-13
44-CA(N,A)41-AR	1.83 H	4.721E-11	4.716E-11	4.711E-11	4.706E-11	4.701E-11	4.696E-11	4.691E-11	4.687E-11	4.682E-11	4.677E-11	4.672E-11	4.667E-11	4.662E-11	4.657E-11
46-CA(N,A)43-AR	5.4 M	1.432E-14	1.402E-14	1.372E-14	1.343E-14	1.315E-14	1.287E-14	1.260E-14	1.233E-14	1.207E-14	1.181E-14	1.155E-14	1.129E-14	1.103E-14	1.077E-14
206-PB(N,A)203-HG	46.8 D	3.877E-09	3.877E-09	3.877E-09	3.877E-09	3.877E-09	3.877E-09	3.877E-09	3.877E-09	3.877E-09	3.877E-09	3.877E-09	3.877E-09	3.877E-09	3.877E-09
208-PB(N,A)205-HG	5.2 M	6.240E-05	6.103E-05	5.969E-05	5.838E-05	5.709E-05	5.584E-05	5.461E-05	5.341E-05	5.224E-05	5.109E-05	4.992E-05	4.875E-05	4.758E-05	4.641E-05
TOTAL OF IMPURITY		3.025E+00	1.064E-01	6.804E-02	4.740E-02	3.510E-02	2.711E-02	2.153E-02	1.741E-02	1.424E-02	1.173E-02	9.516E-03	7.814E-03	6.512E-03	5.310E-03
RATIO OF IMPURITY TO 3-H		4.175E+00	1.469E-01	9.391E-02	6.543E-02	4.845E-02	3.742E-02	2.972E-02	2.403E-02	1.966E-02	1.619E-02	1.331E-02	1.091E-02	8.916E-03	7.311E-03
DOSE RATE AT SURFACE OF SAMPLING GAS TUBE (MR/HR)		1.588E+00	6.983E-01	3.331E-01	1.697E-01	9.327E-02	5.567E-02	3.604E-02	2.508E-02	1.853E-02	1.431E-02	1.131E-02	9.166E-03	7.516E-03	6.266E-03
BREMSSTRAHLUNG		4.744E-02	2.287E-03	1.515E-03	1.107E-03	8.703E-04	7.200E-04	6.172E-04	5.425E-04	4.857E-04	4.411E-04	4.066E-04	3.821E-04	3.576E-04	3.331E-04
GAMMA RAY		1.541E+00	6.960E-01	3.316E-01	1.686E-01	9.240E-02	5.495E-02	3.542E-02	2.454E-02	1.804E-02	1.387E-02	1.091E-02	8.916E-03	7.311E-03	6.266E-03

(continue)

REACTION AND PRODUCT	HALF LIFE	Activity (Ci)												
		T= 300 S	T= 400 S	T= 500 S	T= 600 S	T= 700 S	T= 800 S	T= 900 S	T= 1000 S	T= 2000 S	T= 3000 S			
6-LI(N,A)3-H	12.33 Y	7.245E-01	7.245E-01	7.245E-01	7.245E-01	7.245E-01	7.245E-01	7.245E-01	7.245E-01	7.245E-01	7.245E-01	7.245E-01	7.245E-01	7.245E-01
6-LI(N,P)6-HE	0.808 S	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
16-0(N,P)16-N	7.13 S	3.152E-14	1.890E-18	1.134E-22	6.799E-27	4.078E-31	2.446E-35	1.467E-39	8.799E-44	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
16-0(N,2N)15-0	2.03 M	1.644E-05	9.305E-06	5.267E-06	2.981E-06	1.688E-06	9.552E-07	5.407E-07	3.061E-07	1.033E-07	3.490E-09	3.490E-12	0.0	0.0
17-0(N,P)17-N	4.17 S	2.516E-29	1.520E-36	9.180E-44	5.545E-51	3.349E-58	2.023E-65	1.222E-72	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
18-0(N,P)18-N	0.63 S	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
3-HE(N,P)3-H	12.33 Y	1.821E-07	1.821E-07	1.821E-07	1.821E-07	1.821E-07	1.821E-07	1.821E-07	1.821E-07	1.821E-07	1.821E-07	1.821E-07	1.821E-07	1.821E-07
23-NA(N,P)23-NE	37.6 S	2.833E-04	4.483E-05	7.096E-06	1.123E-06	1.777E-07	2.813E-08	4.452E-09	7.046E-10	6.947E-18	6.850E-26	0.0	0.0	0.0
23-NA(N,A)20-F	11.0 S	7.683E-10	1.409E-12	2.584E-15	4.738E-18	8.689E-21	1.593E-23	2.922E-26	5.359E-29	2.305E-56	0.0	0.0	0.0	0.0
39-K(N,P)39-AR	269 Y	3.892E-09	3.892E-09	3.892E-09	3.892E-09	3.892E-09	3.892E-09	3.892E-09	3.892E-09	3.892E-09	3.892E-09	3.892E-09	3.892E-09	3.892E-09
39-K(N,A)36-CL	3.0E5 Y	9.770E-12	9.770E-12	9.770E-12	9.770E-12	9.770E-12	9.770E-12	9.770E-12	9.770E-12	9.770E-12	9.770E-12	9.770E-12	9.770E-12	9.770E-12
41-K(N,P)41-AR	1.83 H	3.682E-05	3.643E-05	3.605E-05	3.567E-05	3.530E-05	3.493E-05	3.456E-05	3.420E-05	3.079E-05	2.771E-05	0.0	0.0	0.0
41-K(N,A)38-CL	37.2 M	3.698E-05	3.585E-05	3.475E-05	3.369E-05	3.266E-05	3.166E-05	3.069E-05	2.975E-05	2.181E-05	1.599E-05	0.0	0.0	0.0
40-CA(N,A)37-AR	35.0 D	5.499E-06	5.499E-06	5.499E-06	5.499E-06	5.499E-06	5.499E-06	5.499E-06	5.499E-06	5.499E-06	5.499E-06	5.499E-06	5.499E-06	5.499E-06
42-CA(N,A)39-AR	269 Y	9.290E-13	9.290E-13	9.290E-13	9.290E-13	9.290E-13	9.290E-13	9.290E-13	9.290E-13	9.290E-13	9.290E-13	9.290E-13	9.290E-13	9.290E-13
44-CA(N,A)41-AR	1.83 H	4.579E-11	4.531E-11	4.484E-11	4.437E-11	4.391E-11	4.345E-11	4.299E-11	4.254E-11	3.829E-11	3.447E-11	0.0	0.0	0.0
46-CA(N,A)43-AR	5.4 M	7.700E-15	6.217E-15	5.020E-15	4.053E-15	3.272E-15	2.642E-15	2.133E-15	1.722E-15	2.028E-16	2.387E-17	0.0	0.0	0.0
206-PB(N,A)203-HG	46.8 D	3.876E-09	3.876E-09	3.876E-09	3.876E-09	3.876E-09	3.876E-09	3.876E-09	3.876E-09	3.876E-09	3.876E-09	3.876E-09	3.876E-09	3.876E-09
208-PB(N,A)205-HG	5.2 M	3.276E-05	2.624E-05	2.101E-05	1.682E-05	1.347E-05	1.079E-05	8.639E-06	6.918E-06	7.502E-07	8.134E-08	0.0	0.0	0.0
TOTAL OF IMPURITY		4.120E-04	1.583E-04	1.099E-04	9.598E-05	8.898E-05	8.405E-05	8.013E-05	7.687E-05	5.903E-05	4.947E-05	0.0	0.0	0.0
RATIO OF IMPURITY TO 3-H		5.686E-04	2.186E-04	1.516E-04	1.325E-04	1.228E-04	1.160E-04	1.106E-04	1.061E-04	8.148E-05	6.828E-05	0.0	0.0	0.0
DOSE RATE AT SURFACE OF SAMPLING GAS TUBE (MR/HR)		1.136E-03	8.461E-04	7.734E-04	7.432E-04	7.242E-04	7.098E-04	6.977E-04	6.870E-04	6.046E-04	5.417E-04	0.0	0.0	0.0
BREMSSTRAHLUNG		2.428E-04	2.385E-04	2.377E-04	2.376E-04	2.375E-04	2.374E-04	2.374E-04	2.374E-04	2.374E-04	2.372E-04	2.371E-04	0.0	0.0
GAMMA RAY		8.929E-04	6.076E-04	5.357E-04	5.056E-04	4.867E-04	4.724E-04	4.603E-04	4.496E-04	3.674E-04	3.047E-04	0.0	0.0	0.0

Table 5A Induced Radioactivity of Impurities in Lithium Oxide Powder ---- Non-volatile Nuclides

NUCLIDE	COOLING TIME (DAYS)													
	0	1	2	3	10	20	30	40	50	60	70	80	90	100
24M-NA	2.14E-02	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
24-NA	2.87E-02	9.48E-03	3.11E-03	1.03E-03	4.25E-07	6.51E-12	9.31E-17	1.38E-21	2.05E-26	3.03E-31	4.50E-36	6.66E-41	9.91E-46	1.46E-50
28-AL	9.57E-04	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
31-SI	1.50E-05	2.59E-08	4.49E-11	7.78E-14	3.66E-33	8.97E-61	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
40-K	5.87E-12	5.87E-12	5.87E-12	5.87E-12	5.87E-12	5.87E-12	5.87E-12	5.87E-12	5.87E-12	5.87E-12	5.87E-12	5.87E-12	5.87E-12	5.87E-12
42-K	2.82E-03	7.37E-04	1.93E-04	5.04E-05	4.20E-09	6.27E-15	9.40E-21	1.39E-26	2.08E-32	3.10E-38	4.63E-44	6.90E-50	1.03E-55	1.54E-61
43-Ca	2.81E-04	2.70E-04	2.60E-04	2.33E-04	1.85E-04	1.20E-04	7.92E-05	5.19E-05	3.40E-05	2.23E-05	1.46E-05	9.57E-06	6.27E-06	4.11E-06
47-CA	2.51E-07	1.68E-07	1.13E-07	7.54E-08	4.57E-09	8.34E-11	1.52E-12	2.77E-14	5.05E-16	9.23E-18	1.67E-19	3.06E-21	5.57E-23	1.02E-24
49-CA	6.26E-05	3.44E-54	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
56-MN	1.64E-02	2.60E-05	4.11E-08	6.51E-11	1.62E-30	1.61E-58	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
55-FE	1.13E-05	1.13E-05	1.13E-05	1.13E-05	1.12E-05	1.12E-05	1.11E-05	1.10E-05	1.09E-05	1.09E-05	1.08E-05	1.07E-05	1.06E-05	1.05E-05
59-FE	3.02E-06	2.98E-06	2.93E-06	2.73E-06	2.60E-06	2.22E-06	1.91E-06	1.63E-06	1.40E-06	1.20E-06	1.03E-06	8.80E-07	7.57E-07	6.48E-07
65-NI	3.44E-05	5.25E-08	7.98E-11	1.21E-13	2.29E-33	1.52E-61	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
58-CO	3.28E-05	3.25E-05	3.23E-05	3.06E-05	2.98E-05	2.71E-05	2.45E-05	2.23E-05	2.02E-05	1.83E-05	1.66E-05	1.51E-05	1.37E-05	1.24E-05
64-CU	6.04E-03	1.65E-03	4.49E-04	1.22E-04	1.37E-08	3.11E-14	7.06E-20	1.60E-25	3.63E-31	8.23E-37	1.87E-42	4.24E-48	9.57E-54	2.18E-59
66-CU	1.08E-03	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
205-PB	1.63E-14	1.63E-14	1.63E-14	1.63E-14	1.63E-14	1.63E-14	1.63E-14	1.63E-14	1.63E-14	1.63E-14	1.63E-14	1.63E-14	1.63E-14	1.63E-14
207M-PB	4.48E-06	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
209-PB	1.56E-07	1.01E-09	6.51E-12	4.21E-14	1.99E-29	2.55E-51	3.26E-73	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0

Table 5B Induced Radioactivity of Structure Materials of the Sweep Gas Capsule (VOM-15H)

o Inner Capsule (SUS316)

NUCLIDE	COOLING TIME (DAYS)													
	0	1	2	3	10	20	30	40	50	60	70	80	90	100
31-SI	4.98E-02	8.62E-05	1.49E-07	2.59E-10	1.22E-29	2.99E-57	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
51-CR	4.49E+01	4.37E+01	4.28E+01	3.89E+01	3.49E+01	2.73E+01	2.12E+01	1.66E+01	1.29E+01	1.01E+01	7.83E+00	6.10E+00	4.78E+00	3.70E+00
55-CR	1.14E+00	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
56-MN	1.09E+02	1.73E-01	2.74E-04	4.33E-07	1.08E-26	1.07E-54	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
55-FE	2.52E+00	2.52E+00	2.52E+00	2.52E+00	2.51E+00	2.51E+00	2.49E+00	2.47E+00	2.45E+00	2.43E+00	2.41E+00	2.39E+00	2.37E+00	2.35E+00
59-FE	6.77E-01	6.67E-01	6.60E-01	6.12E-01	5.81E-01	4.97E-01	4.26E-01	3.65E-01	3.14E-01	2.70E-01	2.31E-01	1.97E-01	1.69E-01	1.45E-01
60M-CO	2.22E+01	8.82E-41	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
60-CO	7.85E-01	7.85E-01	7.85E-01	7.85E-01	7.85E-01	7.85E-01	7.79E-01	7.79E-01	7.73E-01	7.73E-01	7.68E-01	7.68E-01	7.62E-01	7.62E-01
65-NI	1.38E+00	2.10E-03	3.19E-06	4.85E-09	9.14E-29	6.07E-57	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
58-CO	4.37E-01	4.33E-01	4.29E-01	4.07E-01	3.97E-01	3.60E-01	3.26E-01	2.96E-01	2.69E-01	2.44E-01	2.22E-01	2.01E-01	1.82E-01	1.65E-01
93M-MO	8.13E-03	7.45E-04	6.77E-05	6.20E-06	3.27E-13	1.32E-23	5.30E-34	2.13E-44	8.59E-55	3.46E-65	1.39E-75	5.00E-85	0.0	0.0
93-MO	3.48E-04	3.48E-04	3.48E-04	3.48E-04	3.48E-04	3.48E-04	3.48E-04	3.48E-04	3.48E-04	3.47E-04	3.47E-04	3.47E-04	3.47E-04	3.47E-04
93M-NB	1.50E-06	1.54E-06	1.57E-06	1.83E-06	1.91E-06	2.32E-06	2.73E-06	3.13E-06	3.54E-06	3.93E-06	4.36E-06	4.77E-06	5.17E-06	5.57E-06
99-MD	9.78E-01	7.62E-01	5.91E-01	4.63E-01	8.13E-02	6.82E-03	5.68E-04	4.74E-05	3.96E-06	3.31E-07	2.76E-08	2.31E-09	1.93E-10	1.61E-11
99M-TC	9.72E-01	8.30E-01	6.54E-01	5.10E-01	8.99E-02	7.51E-03	6.26E-04	5.22E-05	4.36E-06	3.63E-07	3.04E-08	2.54E-09	2.12E-10	1.77E-11
99-TC	3.63E-07	3.69E-07	3.75E-07	3.80E-07	3.95E-07	3.98E-07	3.99E-07	3.99E-07	3.99E-07	3.99E-07	3.99E-07	3.99E-07	3.99E-07	3.99E-07

o Heater Block (SUS304)

NUCLIDE	COOLING TIME (DAYS)													
	0	1	2	3	10	20	30	40	50	60	70	80	90	100
31-SI	2.12E-01	3.66E-04	6.25E-07	1.10E-05	5.18E-29	1.27E-56	C.0	C.0	C.0	C.0	C.0	C.0	C.0	C.0
51-CR	2.15E+02	2.09E+02	2.05E+02	1.86E+02	1.67E+02	1.30E+02	1.01E+02	7.92E+01	6.16E+01	4.81E+01	3.74E+01	2.92E+01	2.29E+01	1.77E+01
55-CR	5.46E+00	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
56-MN	4.64E+02	7.35E-01	1.16E-03	1.84E-06	4.60E-26	4.57E-54	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
55-FE	1.13E+01	1.13E+01	1.13E+01	1.13E+01	1.12E+01	1.12E+01	1.12E+01	1.11E+01	1.10E+01	1.09E+01	1.08E+01	1.07E+01	1.06E+01	1.06E+01
59-FE	3.04E+00	2.60E+00	2.96E+00	2.75E+00	2.61E+00	2.23E+00	1.92E+00	1.64E+00	1.41E+00	1.21E+00	1.04E+00	8.85E-01	7.61E-01	6.52E-01
60M-CO	9.46E+01	3.75E+00	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
60-CO	3.34E+00	3.34E+00	3.34E+00	3.34E+00	3.34E+00	3.34E+00	3.31E+00	3.21E+00	3.29E+00	3.29E+00	3.27E+00	3.27E+00	3.24E+00	3.24E+00
65-NI	3.90E+00	5.94E-03	9.03E-06	1.37E-08	2.59E-28	1.72E-56	C.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
58-CO	1.24E+00	1.23E+00	1.22E+00	1.15E+00	1.13E+00	1.02E+00	9.25E-01	8.40E-01	7.63E-01	6.91E-01	6.28E-01	5.70E-01	5.17E-01	4.69E-01

6. Li₂Oペレットの放射化分析

Li₂Oペレットの不純物組成は、原料粉末のそれとは異なるものと考えられる。これは、ペレットの製造過程（圧粉体の成形や真空加熱焼結）あるいは照射キャプセルの組立過程などにおける不純物の揮発や新たな混入が起こり得るからである。そこで、トリチウム放出試験用として製造した同一ロットのLi₂Oペレットの一部を用いて放射化分析を行い、スイープガス中に混入する恐れのある不純物についてさらに検討した。

6.1 JRR-2 気送管による放射化分析

Fig. 10A, 10Bは、Li₂Oペレット約15mg（石英アンプルに真空封入）をJRR-2の気送管（反射体領域熱中性子束 7×10^{13} n/cm²・sec）で5分間照射した場合の試料（Li₂Oを封入したままの石英アンプル、冷却時間27min）及びブランク試料（石英アンプルのみ、冷却時間38min）のγ線スペクトル分析（検出器 Ge(Li)半導体、波高分析器ORTEC 4096 ch）の結果を示したものである。両図を比較すれば明らかなように、Li₂Oから生成した主要な放射性核種は¹⁸F（γ線エネルギー511keV、半減期109.8min）である。¹⁸Fは、⁶Li(n, α)³H反応により生成した³HとLi₂O中の¹⁶Oとの核反応¹⁶O(t, n)¹⁸Fに基づくものと推定される⁽¹²⁾（この核種の挙動については、次章においてなお検討する）。その他の核種として²⁴Na、⁵⁴Mnなどが認められるが、これらは石英中の不純物からも生成することが考えられるものである。

6.2 JRR-2 垂直照射孔による放射化分析

Fig. 11A, 11Bは、Li₂Oペレット約15mg（石英アンプルに真空封入）をJRR-2の垂直照射孔VT-7（反射体領域、熱中性子束 3×10^{13} n/cm²・sec）で223.6時間照射（冷却時間25day）した場合のγ線スペクトル分析（検出器Ge(Li)半導体、波高分析器CAMBERA 4096 ch）の結果を示したものである。試料（Fig. 11A, Li₂Oペレットを封入したままの石英アンプル）及びブランク試料（Fig. 11B, 石英アンプルのみ）のいずれにおいても、⁹⁵Zr、⁹⁵Nb、¹⁰³Ru、¹³¹I、¹⁴⁰Ba、¹⁴⁰La及び¹⁴¹Ce（Kr, Xeは冷却期間中に減衰）が検出されている。これらの放射性核種は、ウランの核分裂生成物であり、Li₂Oペレット及び石英中にウランが含まれていることを示唆している。ちなみに、¹⁴⁰La（半減期40.27h）に着目して推定した（²³⁵Uの核分裂断面積 $\sigma_f = 370$ barns, 天然ウラン中の²³⁵Uの存在比0.0072）ウラン量は、Li₂Oペレット及び石英アンプルについてそれぞれ約0.9 wppm、約0.012 wppmであった。酸化リチウム中のウラン量に関する定量的な研究はほとんどなされていないが、アルミナやマグネシア、シリカなどに微量のウランが含まれていることは良く知られた事実である⁽¹³⁾。従って、酸化リチウムの原料鉱石に由来するウランが酸化リチウム中に不純物として残留することは十分に考えられることである。

以上の放射化分析において興味ある事実は、Na, K, Ca, Pbに基づく気体状の放射性核種 (Table 4 参照) がまったく検出されていないことである。この理由として次の二つの事柄が考えられる。即ち、 Li_2O 中の不純物濃度が真空焼結過程で原料粉末のそれより低減している (Naの減少が報告されている⁽⁹⁾) こと並びに照射後の冷却期間 (Fig. 10A ; 27 min, Fig. 11 A ; 25 day) 中の減衰である。

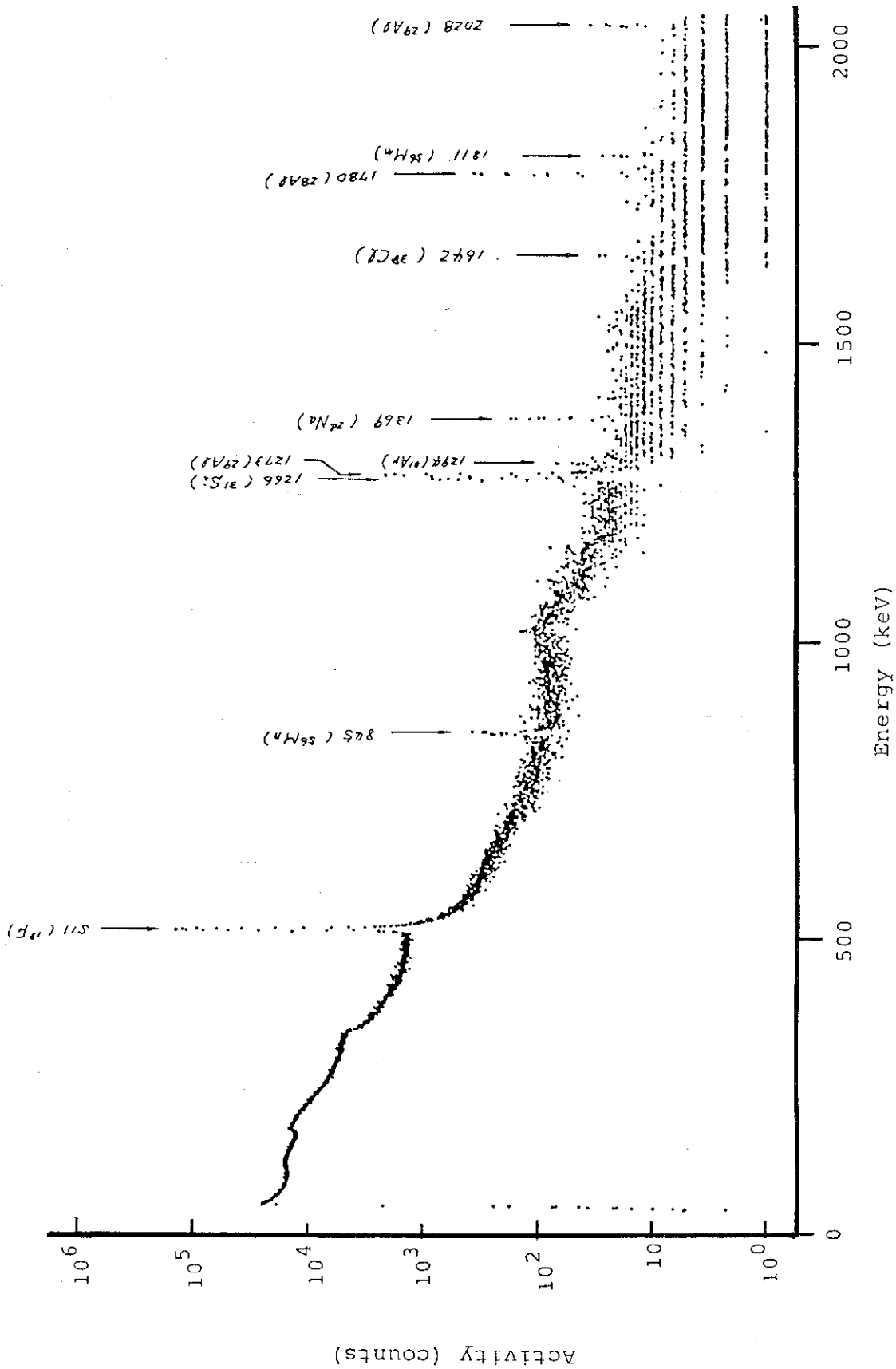


Fig.10A γ -spectrometry of Quartz Ampule Containing Li_2O Pellet (~15mg). (Neutron irradiation was performed by pneumatic tube in the JRR-2. Irradiation time; 5min, Cooling time; 27min, Thermal neutron flux; 7×10^{13} n/cm².sec)

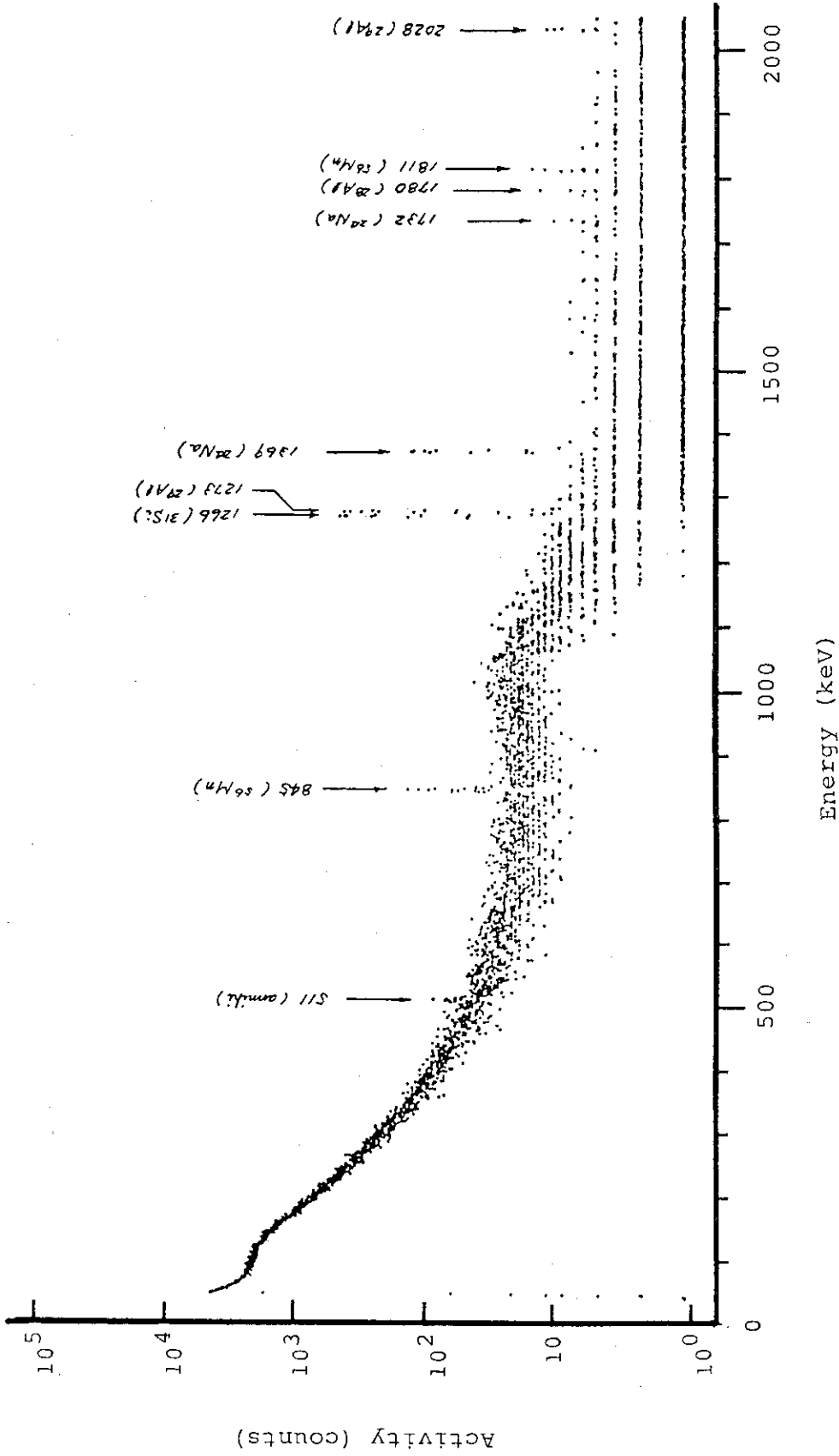


Fig.10B γ -spectrometry of Quartz Ample as the Blank Sample for Irradiated Li_2O Pellet. (Neutron irradiation and measurement of γ -spectrometry were the same conditions. of that for Fig.10A. Cooling time; 38min)

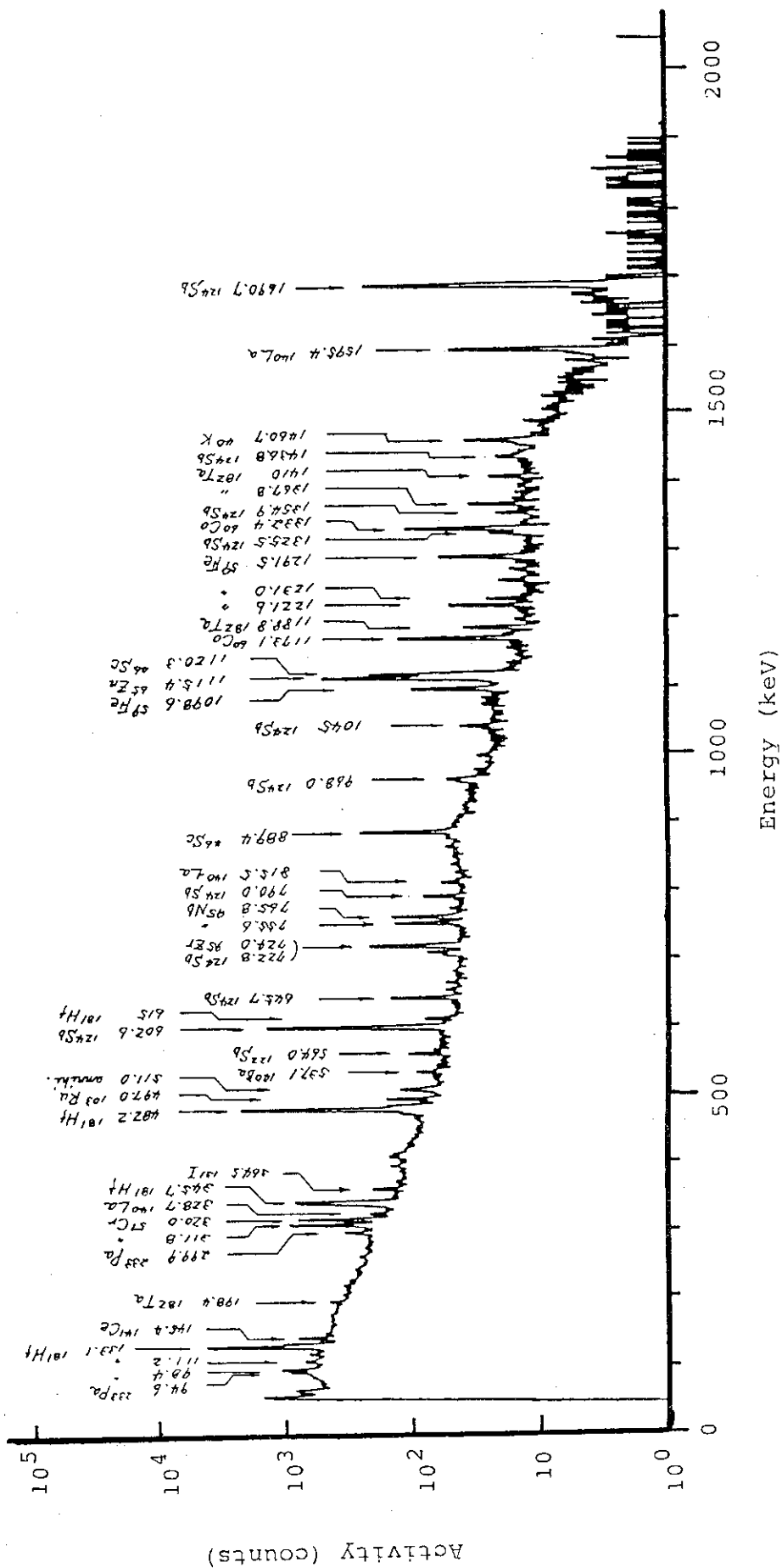


Fig.11A γ -spectrometry of Quartz Ampule Containing Li_2O Pellet (~15mg). (Neutron irradiation was performed by the VT-7 Hole in the JRR-2. Irradiation time; 223.6h, Cooling time; 25day, Thermal neutron flux; 3×10^{13} n/cm².sec)

7. スイープガス中の気体状放射性不純物

照射下トリチウム放出試験の第1サイクル(原子炉の起動後約265h)において、試験装置(Fig. 12)の各部よりガスサンプラー(体積100 cm³, アルミ製)を用いてスイープガスを採取し、 γ 線スペクトル分析を行った。試験装置の詳細は別報^{(3),(14)}に譲る。

Fig. 13 A は、フード入口部(Fig. 12 参照, HG-3の前)の試料ガス(採取後460 sec, 試験装置内のスイープガス滞留時間60 sec)の分析結果を示したものである。放射化分析の結果から予想されたように、⁸⁷Kr(半減期76.3 min), ¹³⁵Xe(9.17h), ^{135m}Xe(15.6min)及び⁸⁹Rb(15.6 min), ¹³⁸Cs(33.4min)などのウランの核分裂生成物が認められる。しかし、Li₂Oペレット中に含まれると予想される不純物(Na, K, Ca, Pb)に基づく気体状の放射性核種(Table 4 参照)は、既述の通り試料ガス採取後の減衰のために検出できない。図中の⁴¹Ar(1.83h)は、キャプセル組立時の残留空気に含まれるAr [⁴⁰Ar(n, γ)⁴¹Ar]もしくはLi₂O中のK [⁴¹K(n, p)⁴¹Ar]及びCa [⁴⁴Ca(n, α)⁴¹Ar]により生成したものと考えられるが、この測定結果のみではその生成源を確定できない。一方、ウランの核分裂生成物であるBr, I, Baなどの核種も検出されていない。これらは吸着性が高い気体であり、照射キャプセルからフード入口部に至る配管系において吸着されたものと推察される。

次に、試料ガス中の放射性核種の減衰特性を確認するために、試料採取後8100秒において再測定した結果をFig. 13 Bに示す。これより前記の放射性核種の大部分は検出限界以下に減衰し、比較的長寿命の¹³⁵Xe, ¹⁸F及び⁴¹Arが主要放射能として残ることが分かる。

Fig. 13 C, 13 Dは、それぞれ触媒還元塔RXの出口部(スイープガス滞留時間120 sec前後)及びモレキュラーシーブ塔MS-3の出口部(スイープガス滞留時間400~500 sec)で採取した試料ガスの γ 線スペクトルを示す。この測定では、試料ガスの採取後約2500~4600秒の時間経過があるために、フード入口部の試料ガス中に見られた核種の大部分は検出限界以下に減衰している(Fig. 14C中の1460 keVの位置の核種並びにFig. 15 D中で¹³⁸Csが検出される理由は現在のところ不明である)。しかし、¹³⁵Xeのような希ガスが触媒還元塔やモレキュラーシーブ塔を通過し電離箱IC-1~3に到達することは明らかである。従って、これらの電離箱における放射性の不純物気体の濃度を求めるためには、スイープガス中に放出された放射性希ガスの減衰特性を把握しなければならない。

ところで、Fig. 13 A~13 Cの各図において、エネルギー511 keVの位置に明瞭なピークが認められる。これは、例えば³¹Siや⁶⁴Cu, ⁶⁶Cuなど β^+ 崩壊をする核種の消滅放射線のエネルギーと等しい。このような崩壊核種はウランの核分裂生成物には存在しないこと、電子対を創生するような高エネルギーの γ 線がスイープガス中には検出されていないこと、並びにLi₂Oペレットを中性子照射すると⁶Li(n, α)³H及び¹⁶O(t, n)¹⁸F反応により¹⁸Fが生成すること(Fig. 10A, 11A)を考慮すると、¹⁸Fがスイープガス中に移行している可能性が高い。このピークの半減期特性をFig. 14に示す。図中の白丸印はスイープガスに関する実測値、破線は γ 線スペ

クトル分析器の511 keVのエネルギー位置におけるバックグラウンド(4.8 cps ± 5%)を表わす。両者を差引きした正味の減衰速度は黒丸印及び直線で表わされる。これより、分析器の統計的な誤差を考慮した半減期は82~120分と求められる。以上の考察から、Fig. 13中の各図における511 keVのピークは ^{18}F によるものと判断できる。

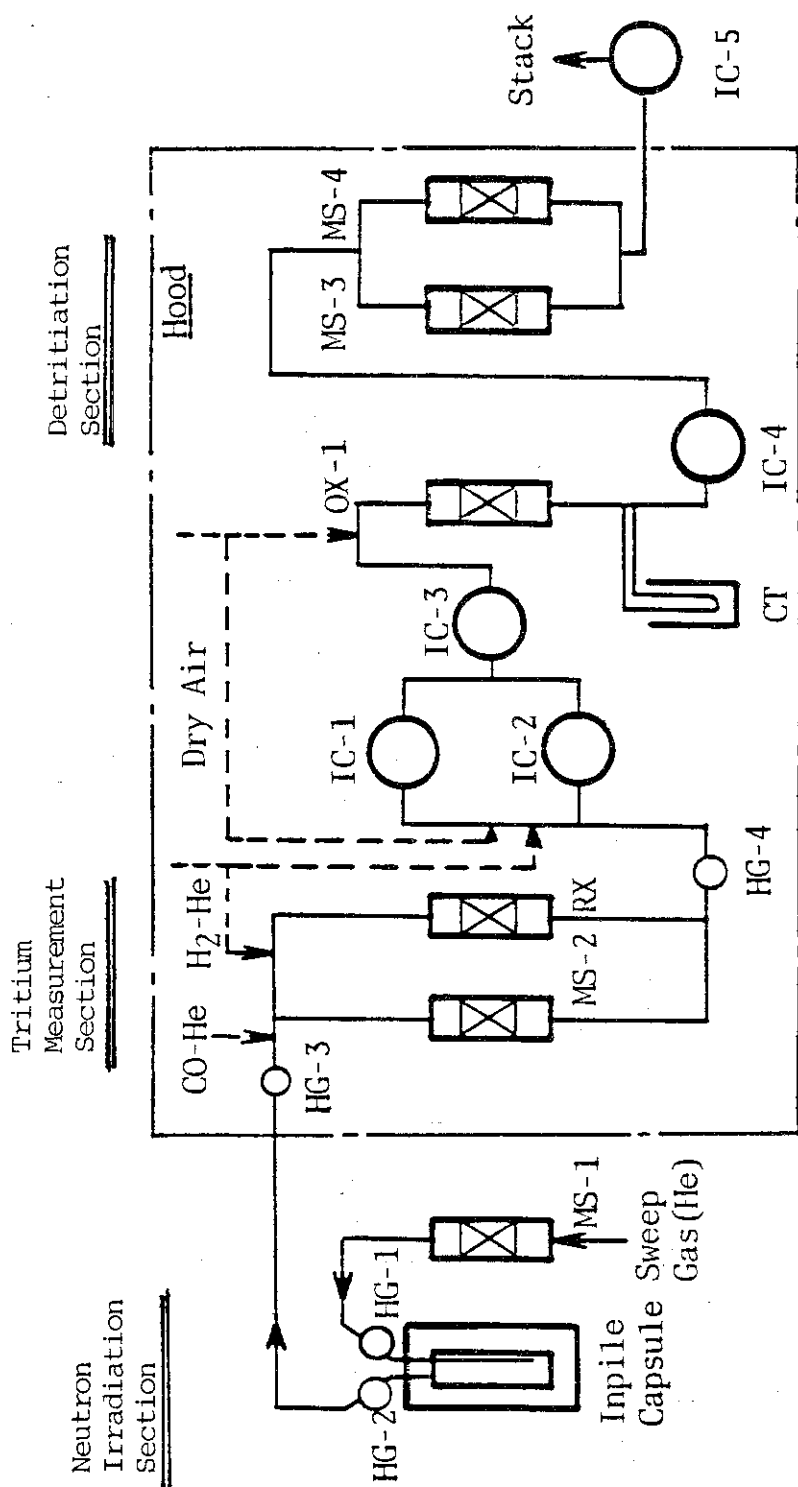
ハロゲン気体である ^{18}F のこのような挙動は、ブランケット系(特に、触媒による酸化・還元工程を含むトリチウム回収システム)の設計において問題となる可能性があるので注意を要しよう。

Fig. 15Aは、フード入口部で採取した試料ガスについて求めたKr, Xe及びArの減衰曲線である。 ^{135}Xe と ^{41}Ar については試料ガス採取後12.6時間の時点で測定した放射能に基づいて算出した値である。(Kr+Xe)については、次図(Fig. 15B)に示す放射能比(Kr+Xe)/ ^{135}Xe を用いて計算したものである。これらの減衰曲線より、トリチウム濃度測定部(Fig. 12参照)の任意の個所における希ガスの放射能濃度を見積ることができる。例えば電離箱IC-1, 2における濃度は、スイープガスの滞留時間を3~5分とすると $1.7 \times 10^{-4} \sim 9.3 \times 10^{-5} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ となる。これは、 Li_2O ペレットから放出されるトリチウム濃度(計算値 $5.25 \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$)の0.003~0.002%に相当し、本試験の目的から見ると無視できる値である。

Fig. 15Bは、 Li_2O ペレット(6.4g)中に天然ウラン(1 wppm)が含まれている場合の ^{135}Xe の放射能濃度及びKr, Xeの ^{135}Xe に対する放射能比の時間変化を計算⁽¹⁵⁾により求め図示したものである。^{*1} この計算では実効中性子束を $1.3 \times 10^{13} \text{ n}/\text{cm}^2 \cdot \text{sec}$ 、照射時間を265.5時間とし、ウランの核分裂生成物による放射能が放射平衡に達しているとした。また生成した核分裂生成物は直ちにスイープガス中に移行すると仮定している。なお、Fig. 15A, 15Bを用いて推定した Li_2O ペレットのウラン含有量^{*2}は約8 wppmと放射化分析の結果(約1 wppm)と異なっている。この差異の原因としては、スイープガスのサンプリングの際の精度を含めた γ 線スペクトル分析上の誤差、 Li_2O ペレット中のウラン量のバラツキ、中性子照射条件の違いなど幾つかの要因が挙げられるが、明らかではない。

*1 計算結果の詳細は、JAERI-M 83-204⁽¹⁴⁾を参照されたい。

*2 インナーキャプセル構成部材中のウランを 0.01 wppm ⁽¹³⁾、核分裂生成物の構成部材中の飛程を $6.6 \mu\text{m}$ 、この範囲で生成した希ガスの1/2がスイープガス中に直接放出されると仮定した場合の(Kr+Xe)の濃度は、生成後5分で約 $2 \times 10^{-8} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ である。



MS-1~4 ; Molecular Sieve Bed
 RX-1 ; Catalytic Reduction Bed
 OX ; Catalytic Oxidation Bed
 CT ; Liq.N₂ Trap
 IC-1~5 ; Ionization Chamber
 HG-1~4 ; Hygrometer

Fig.12 Schematic Flow Sheet of Experimental Apparatus for In-pile Test of Li₂O Pellets.

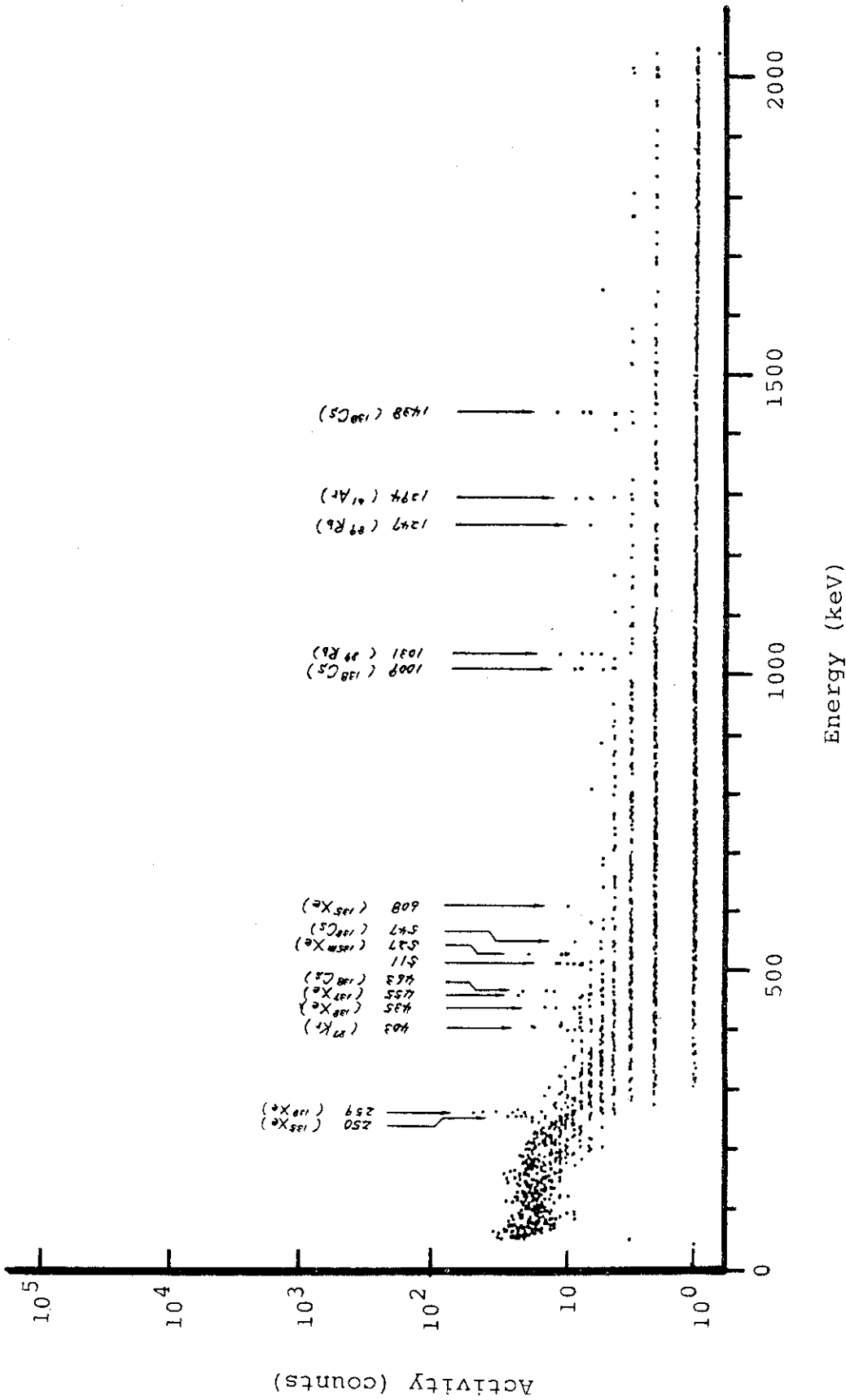


Fig.13A γ -spectrometry of Sweep Gas Obtained at the Inlet of the Hood. (Sampling was performed at the end of the 1st cycle of irradiation test. Lag time after sampling was 460sec.)

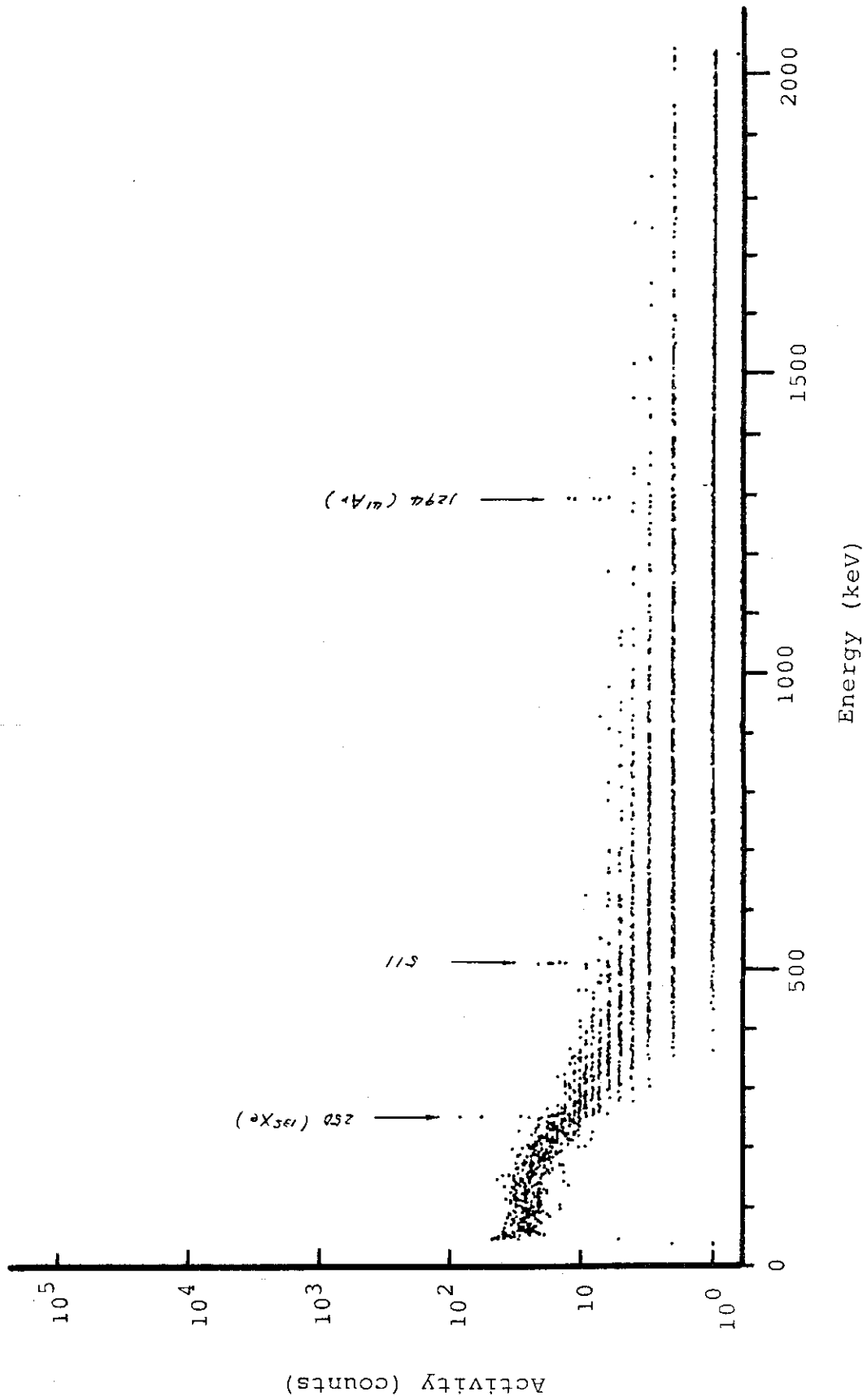


Fig.13B γ -spectrometry of Sweep Gas Obtained at the Inlet of the Hood. (Lag time after sampling was 8100sec, and this sample gas was used for measurement in Fig.13A.)

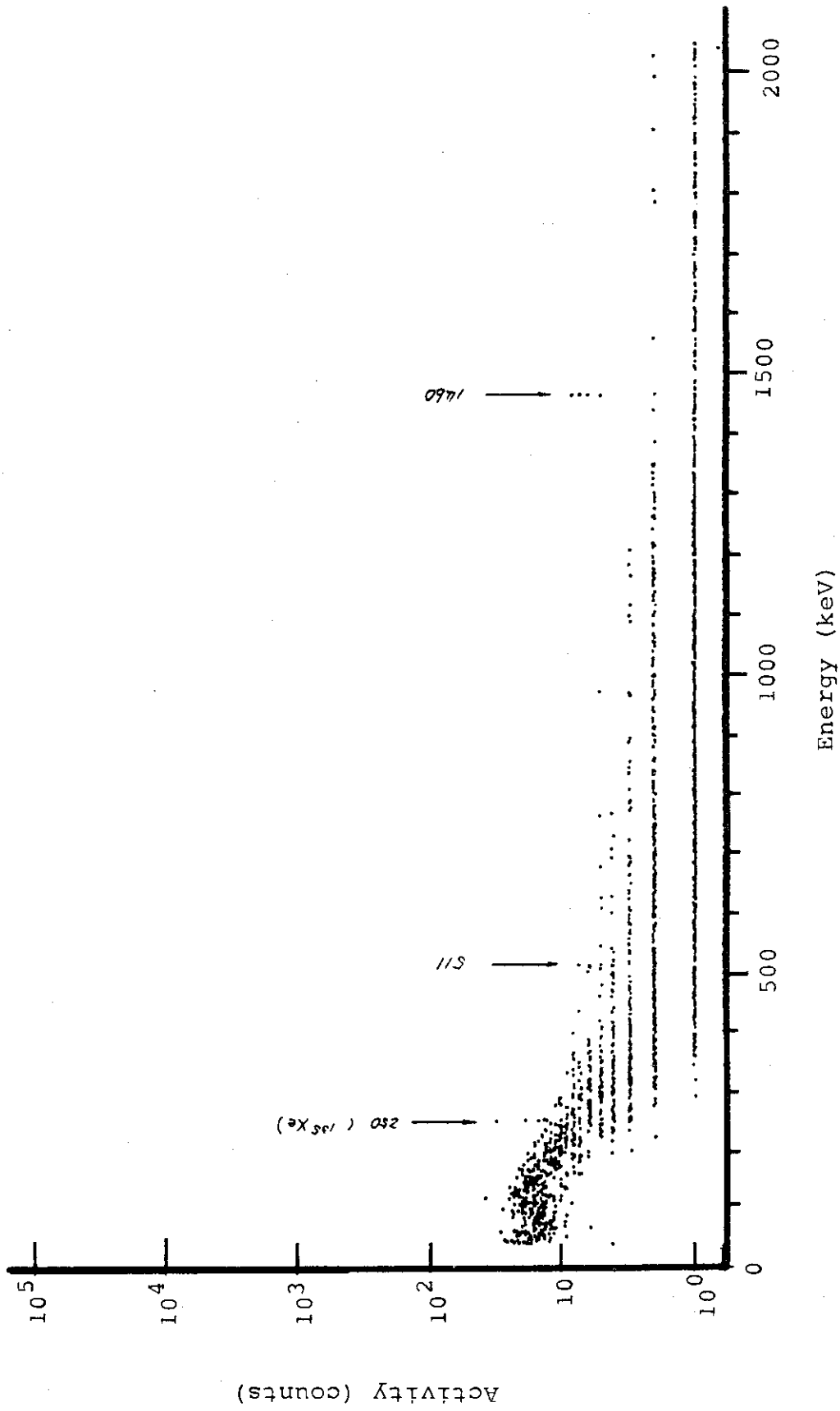


Fig.13C γ -spectrometry of Sweep Gas Obtained at the Outlet of the Catalytic Reduction Bed RX. (Lag time was ~4600sec after sampling.)

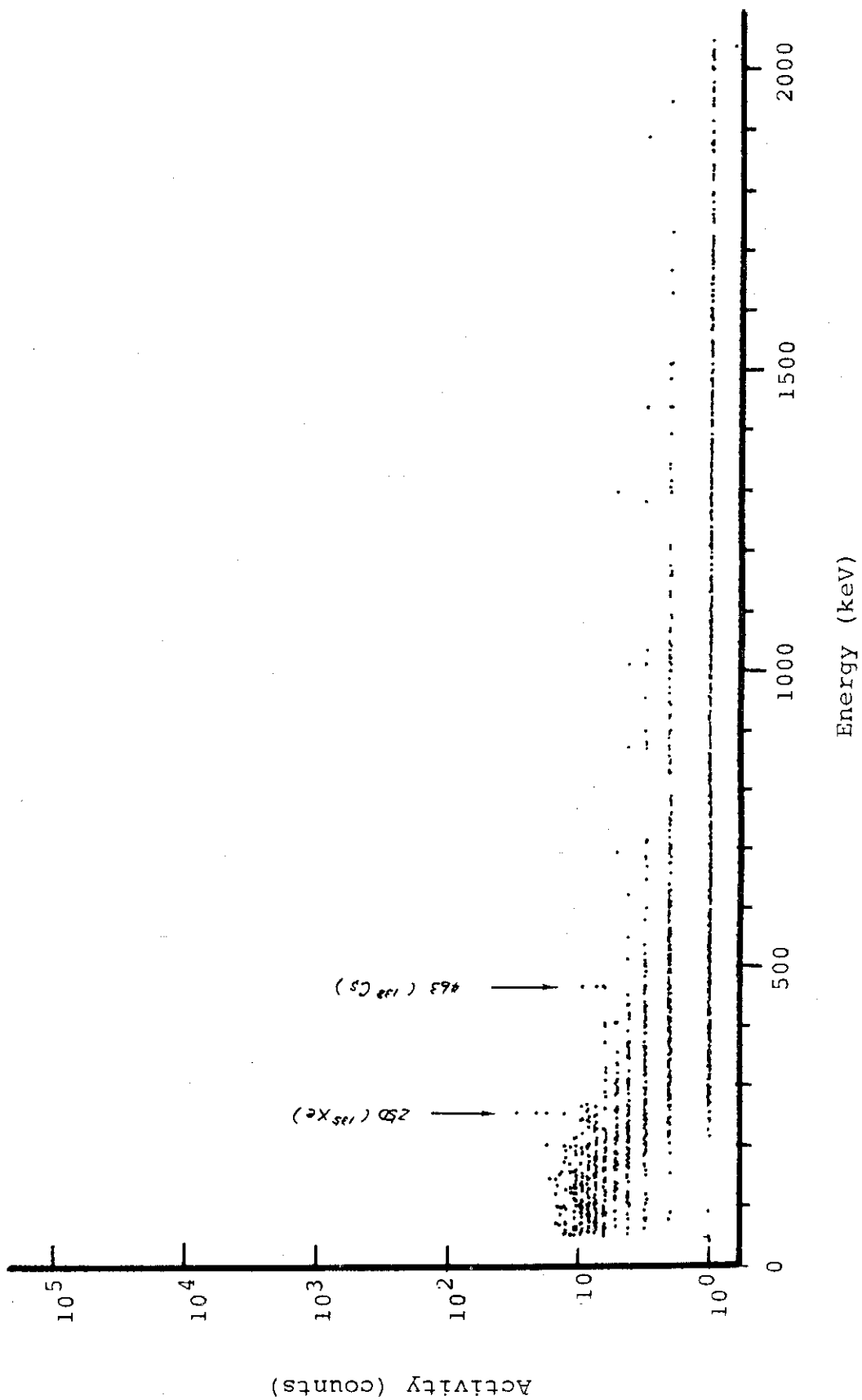


Fig.13D γ -spectrometry of Sweep Gas obtained at the Outlet of the Molecular Sieve Bed MS-3. (Lag time was ~2500 sec after sampling.)

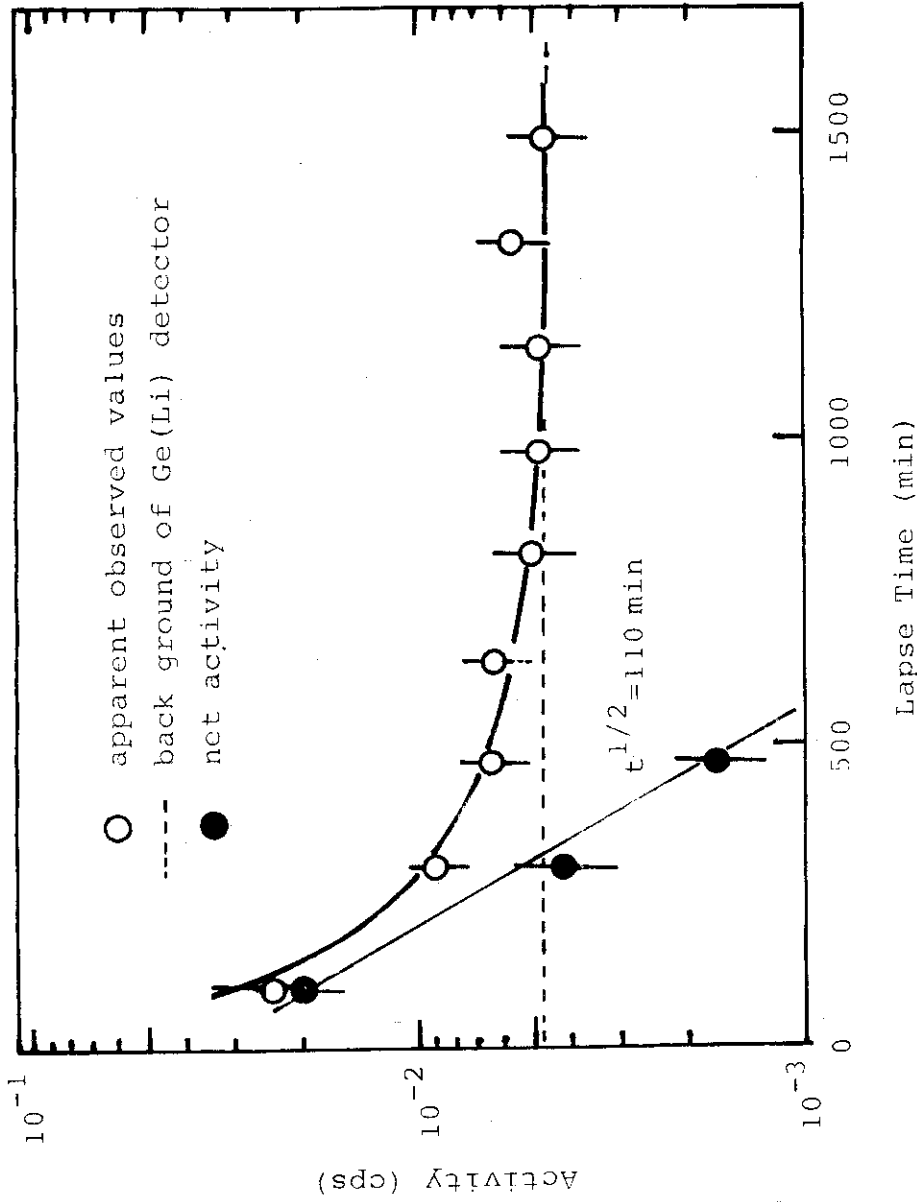


Fig.14 Decay Characteristics of a Nuclide of Decay Energy of 511KeV in γ -spectrometry of Sweep Gas

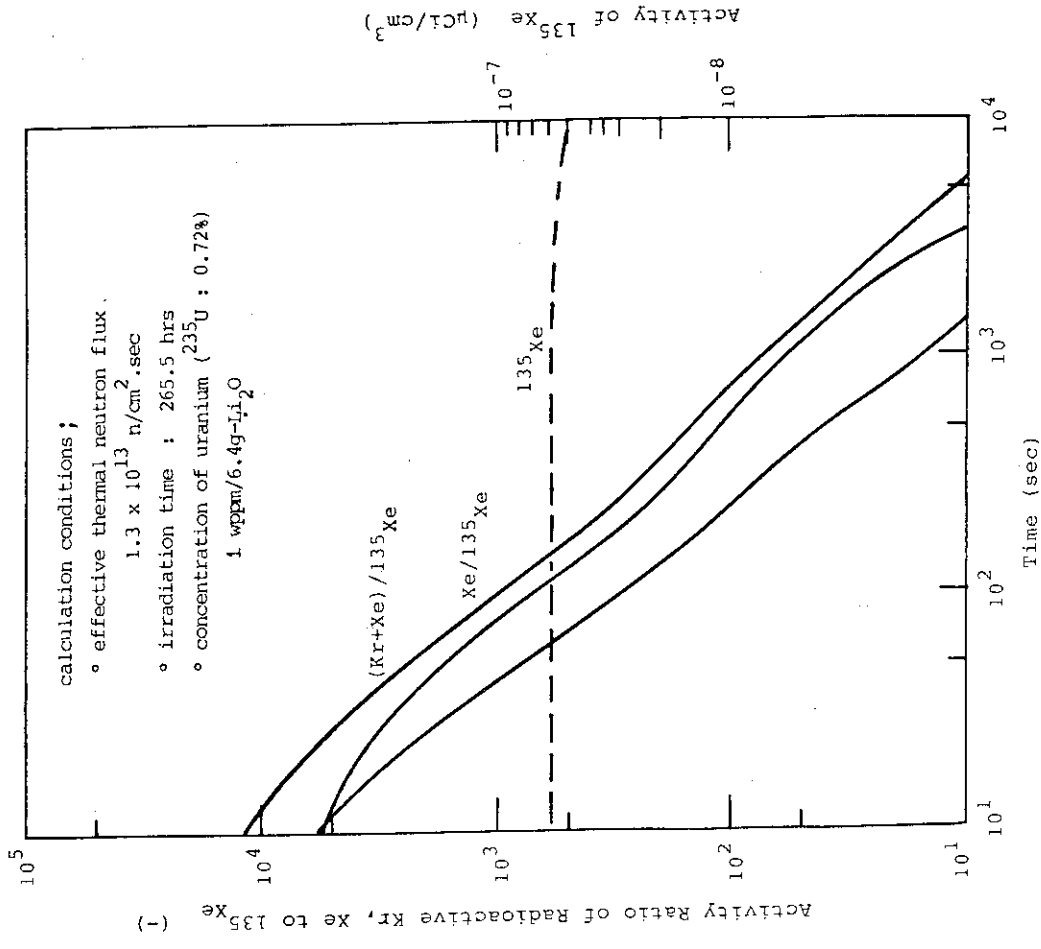


Fig.15A

Decay Curves of Sweep Gas Obtained at the Inlet of the Hood.

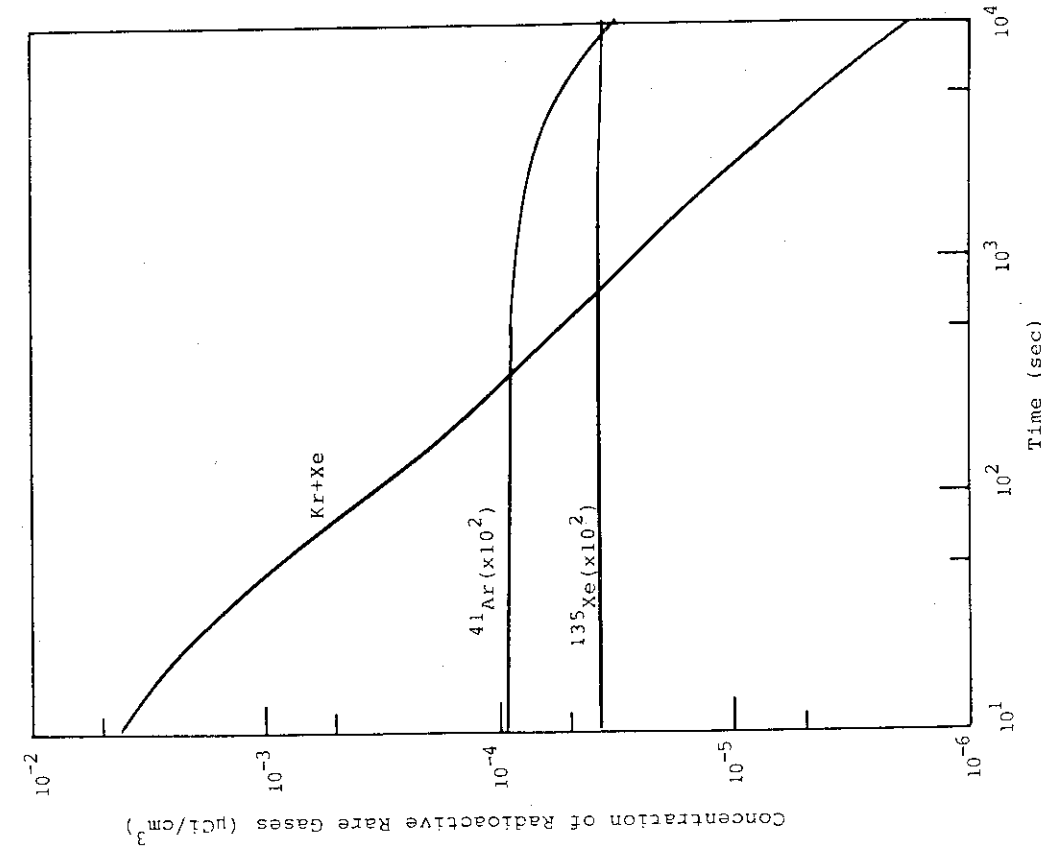


Fig.15B

Decay Curves of Radioactive Rare Gases Produced from Fission of Natural Uranium Included in Li_2O Pellets. (Concentration of the uranium was estimated to be $\sim 1\text{wppm}$ in $6.4\text{g-Li}_2\text{O}$ by FP- γ code (16) .

8. お わ り に

酸化リチウムペレットの熱中性子照射下(高温下)におけるトリチウムの放出特性試験を主目的とした今回のスweepガス・キャプセルVOM-15Hは、以下の事項を基本設計条件とした。

- (i) 最高照射温度 750℃の達成
- (ii) 照射温度(480~750℃)の正確な制御
- (iii) 全リチウムに対する ${}^6\text{Li}$ の燃焼度0.24% (実効熱中性子フルエンス 6×10^{19} nvt, 照射時間 990 h)の達成
- (iv) トリチウム(総生成量約 31 Ci)の連続ガススweep方式の確立
- (v) トリチウムの透過・漏洩に対する安全性の確保

本照射キャプセルは、4サイクルの照射試験を通じてこれら設計条件を十分に満足するとともに原子炉(JRR-2)の起動・停止に伴う大きな温度変化並びに温度サイクルに対し高い信頼性を有することが実証された。これらの結果は、次年度に予定されているより広範囲の照射試験(最高温度 1000℃, 照射サイクル 8回)のためのキャプセルの設計・製作に反映される。

なお、本研究では、 ${}^6\text{Li}$ の熱中性子に対する著しい自己遮蔽効果を考慮した Li_2O ペレット内の反応率分布、温度分布並びに酸化リチウム中の不純物に基づく誘導放射能について検討・評価を試みた。今後の照射試験において、これら評価方法の妥当性及び精度についてさらに吟味改善していく予定である。

謝 辞

本試験は、JRR-2において実施されたものであり、JRR-2管理課、放射線管理課第2課の多くの方々の協力を得た。また、照射試料としての Li_2O ペレットについては燃料物性研究室高橋正氏の助力を頂いた。さらに、燃料工学部岩本多實部長、核融合研究部小幡行雄部長、トリチウム技術研究室成瀬雄二室長には種々有益な助言を頂いた。

本報告書を作成するにあたり、これら諸氏に心からの謝意を表す。

8. お わ り に

酸化リチウムペレットの熱中性子照射下(高温下)におけるトリチウムの放出特性試験を主目的とした今回のスweepガス・キャプセルVOM-15Hは、以下の事項を基本設計条件とした。

- (i) 最高照射温度 750℃の達成
- (ii) 照射温度(480~750℃)の正確な制御
- (iii) 全リチウムに対する ${}^6\text{Li}$ の燃焼度0.24% (実効熱中性子フルエンス 6×10^{19} nvt, 照射時間 990 h)の達成
- (iv) トリチウム(総生成量約 31 Ci)の連続ガススweep方式の確立
- (v) トリチウムの透過・漏洩に対する安全性の確保

本照射キャプセルは、4サイクルの照射試験を通じてこれら設計条件を十分に満足するとともに原子炉(JRR-2)の起動・停止に伴う大きな温度変化並びに温度サイクルに対し高い信頼性を有することが実証された。これらの結果は、次年度に予定されているより広範囲の照射試験(最高温度 1000℃, 照射サイクル 8回)のためのキャプセルの設計・製作に反映される。

なお、本研究では、 ${}^6\text{Li}$ の熱中性子に対する著しい自己遮蔽効果を考慮した Li_2O ペレット内の反応率分布、温度分布並びに酸化リチウム中の不純物に基づく誘導放射能について検討・評価を試みた。今後の照射試験において、これら評価方法の妥当性及び精度についてさらに吟味改善していく予定である。

謝 辞

本試験は、JRR-2において実施されたものであり、JRR-2管理課、放射線管理課第2課の多くの方々の協力を得た。また、照射試料としての Li_2O ペレットについては燃料物性研究室高橋正氏の助力を頂いた。さらに、燃料工学部岩本多實部長、核融合研究部小幡行雄部長、トリチウム技術研究室成瀬雄二室長には種々有益な助言を頂いた。

本報告書を作成するにあたり、これら諸氏に心からの謝意を表す。

参 考 文 献

1. S. Nasu, et al., "Thermal Neutron Flux Distribution Inside and Outside Li_2O Pellets", J. Nucl. Mater., 88, 193 (1980).
2. S. Nasu, et al., "Temperature Distribution in Li_2O Pellets under Neutron Irradiation", J. Nucl. Mater., 91, 121 (1980).
3. 渡辺 斉, 他, "酸化リチウム高照射試験(1) VOM-15H の計画と安全評価", JAERI-M 82-136 (1982).
4. Hall C. Roland, "GENGTC, A One Dimensional CEIR Computer Program for Capsule Temperature Calculation in Cylindrical Geometry", ORNL-TM-1942 (1967).
5. 伊勢 武治, 他, "熱群炉定数作成コード THERMOS-MUG", JAERI-memo 4394 (公開) (1971).
6. S. S. Clark and J. F. Petersen, "TAC2D A General Purpose Two-Dimensional Heat Transfer Computer Code", GA-9262 (1969).
7. K. Tsuchihashi, et al., "SRAC: JAERI Thermal Reactor Standard Code System for Reactor Design and Analysis" JAERI 1285 (1983).
8. D. Garber, "ENDF/B Summary Documentation", BNL-NCS-17541 (ENDF-201), 2nd. Edition (1975).
9. 高橋 正, 他, "酸化リチウム (Li_2O) の焼結" JAERI-M 7518 (1978).
10. C. Michael Leader, et. al, "Table of Isotopes - Seventh Edition", John Wiley & Son, Inc., New York (1978).
11. 江藤 秀雄, 他, "放射線の防護", 改訂二版, P277~278, 丸善(株), 東京 (1972).
12. H. Kudo et al., "Recoil ranges of 2.73 MeV Tritons and yields of ^{18}F produced by the $^{16}\text{O}(t,n)^{18}\text{F}$ reaction in neutron-irradiated lithium compounds containing oxygen", J. Chem. Phys., 72, 3049 (1980).
13. "Natural Contamination Radionuclide Detection System", INIS-mf-6530, CLLT/IMPR, P63 (1981).
14. 吉田 浩, 他, "酸化リチウムの照射下トリチウム放出試験 - トリチウムの除去とモニタリング -", JAERI-M 83-204 (1983).
15. 笹本 宣雄, 他, "核分裂生成物による γ 線スペクトル計算コード FP- γ ", JAERI-memo 3776 (公開), (1969).