

JAERI-Tech

97-029



## JRR-3Mの放射化学分析結果

1997年7月

吉島哲夫・田中純利

日本原子力研究所

Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、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。  
入手の問合せは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越しください。なお、このほかに財団法人原子力公済会資料センター（〒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。

This report is issued irregularly.

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

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1997

編集兼発行 日本原子力研究所  
印 刷 株高野高速印刷

JRR-3Mの放射化学分析結果

日本原子力研究所東海研究所研究炉部  
吉島 哲夫・田中 純利

(1997年6月2日受理)

JRR-3は、実験設備の性能を向上させるために1990年にJRR-3Mとして改造された。改造後のJRR-3Mは、減速材と冷却材に軽水を反射材に重水を使用する最大熱出力20MWのプールタイプの研究炉で、熱中性子束は $2 \times 10^{14} \text{n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ である。炉心構造物と燃料被覆材は、アルミニウム製である。冷却系統は、一次冷却水系、二次冷却水系、反射体重水系及びヘリウム系から構成されている。一次冷却配管系、原子炉プール並びに重水系は、ステンレス鋼製である。放射化学の主な目的は、原子炉プラントを安全に運転するための構成材の腐食性の確認と破損燃料の検出である。

本報告書は、JRR-3Mの各冷却系統の放射化学分析結果と放射性核種生成量の評価について述べたものである。

Analytical Results of Radiochemistry of the JRR-3M

Tetsuo YOSHIMURA and Sumitoshi TANAKA

Department of Research Reactor  
Tokai Research Establishment  
Japan Atomic Energy Research Institute  
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received June 2, 1997)

The JRR-3 was modified for upgrading to enhance the experimental capabilities in 1990 as JRR-3M. JRR-3M is pool type research reactor, moderated and cooled by light water with a maximum thermal power of 20MWt and a thermal neutron flux of about  $2 \times 10^{14} \text{n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ . The core internal structure and fuel cladding tube is made by aluminum alloy. The cooling systems are composed of primary cooling system, secondary cooling system, heavy water reflector system and helium gas system. The primary piping system, reactor pool and heavy water reflector system is constructed of type 304 stainless steel. The main objectives of radiochemistry are check the general corrosion of structural materials and detection of failed fuel elements for safe operation of reactor plant.

In this report analytical results of radiochemistry and evaluation of radionuclides of cooling systems in the JRR-3M are described.

**Keywords :** Water Chemistry, Radiochemistry, Research Reactor, Primary Water System, Heavy Water, Failed Fuel Detection, Fission Products, Corrosion Products

## 目 次

1.	まえがき	1
2.	冷却系統の概要	1
3.	放射化学分析法	2
3.1	全 $\beta$ ・ $\gamma$ 放射能濃度	2
3.2	$\gamma$ 線放出核種濃度	3
4.	放射化学分析結果	3
4.1	$\gamma$ 線スペクトル測定による $\gamma$ 線放出核種の同定	3
4.2	$\gamma$ 線放出核種濃度と全 $\beta$ ・ $\gamma$ 放射能濃度の変化	4
5.	分析結果の考察	5
5.1	$^{24}\text{Na}$ 濃度からの平均熱中性子束の推定	5
5.2	放射性腐食生成物濃度からアルミニウム材腐食評価	6
5.3	核分裂生成物濃度から一次冷却系内付着ウラン量の推定	8
5.4	放射性核種濃度との破損燃料検出装置の計数値との関係	10
6.	あとがき	12
	謝 辞	12
	参考文献	13

## Contents

1.	Introduction	1
2.	Outline of Reactor Cooling Systems	1
3.	Analytical Techniques of Radiochemistry	2
3.1	Gross $\beta$ ・ $\gamma$ Activity	2
3.2	Concentration of Radionuclides	3
4.	Analytical Results of Radiochemistry	3
4.1	Identification of Radionuclides by $\gamma$ -ray Spectra	3
4.2	Variation of Radionuclides and Gross $\beta$ ・ $\gamma$ Activity	4
5.	Consideration	5
5.1	Estimation of Average Thermal Neutron Fluxes from $^{24}\text{Na}$ Activity	5
5.2	Evaluation of Corrosion Rate of Aluminum from Corrosion Products	6
5.3	Deposited Uranium in Primary Cooling System from Fission Products	8
5.4	The relation between Counting Rate of Failed Fuel Detection System and Radionuclides	10
6.	Conclusions	12
	Acknowledgments	12
	References	13

## 1. まえがき

JRR-3は、1990年に熱出力10MWの天然ウラン重水減速冷却型から熱出力20MWの重水反射体付軽水減速冷却プール型のJRR-3Mとして改造され、1990年11月から定格出力での共同利用運転を開始し、安定した運転を継続してきた。改造後のJRR-3Mでは、一次冷却材は軽水を反射体には重水を重水のカバーガスとしてはヘリウムガスが使用されている。特に、一次冷却材中の $\gamma$ 線放出核種の種類と濃度は、中性子領域内の原子炉構造材の腐食の進行と破損燃料体の発生によって放出される核分裂生成物の混入によって変化する。また、反射体重水中の $\gamma$ 線放出核種濃度は、反射体構造材の腐食の進行によって変化し、重水のカバーガスであるヘリウムガス中の $\gamma$ 線放出核種濃度は、空気の混入によって変化する。このため、各冷却系統の放射化学分析は、安全な原子炉の運転を維持するのに必要である使用機器の健全性の確認、炉構造材の腐食進行や破損燃料体の発生の監視並びに原子炉の保守作業時の放射線被曝低減化対策等の一環として実施している。研究炉の内、JRR-2の重水中の放射性核種<sup>1)</sup>並びに改造前のJRR-3の重水及びヘリウム中の放射性核種<sup>2)</sup>については既に報告している。

本報告書は、改造後のJRR-3Mの運転が比較的安定に維持され各冷却系統に含まれる $\gamma$ 線放出核種濃度もほぼ安定状態に達したのを機会に各冷却系統の放射化学分析結果と $\gamma$ 線放出核種の生成量の検討結果についてまとめたものである。

## 2. 冷却系系統の概要

改造後のJRR-3Mの原子炉プールの概略図をFig. 2. 1に主な仕様をTable 2. 1に示す。JRR-3Mは、熱出力20MWの重水反射体付軽水減速冷却プール型の研究炉である。炉体部は、原子炉プール、カナル及び使用済み燃料プールから構成され、それぞれステンレス鋼製(SUS 316)のプールゲートで仕切られている。原子炉プールには、原子炉の運転による放射線の遮蔽のために上部遮蔽体が設けられ、プールの内面はステンレス鋼(SUS 316)でライニングされている。軽水が満たされたプール内には、炉心部が設置され、炉心外周部は、ベリリウム(Be)反射体とアルミニウム製(A1 5052)の重水タンクで囲まれている。燃料体は、アルミニウム(A1 5052)で被覆された濃縮度20%のウラン・アルミニウム分散型の標準型燃料要素26体、フォロワ型燃料要素6体の計32体を使用している。制御棒は、ハフニウム(Hf)製で微調整棒2本、粗調整棒4本の計6本を使用している。各冷却系統の概略図をFig 2. 2に示すが、JRR-3Mの冷却系統は、一次冷却系、反射体重水系、ヘリウム系及び二次冷却系の4系統から構成されている。また、冷却系統の主な仕様をTable 2. 2に冷却系統の主要な構成材と冷却系の管理基準値をTable 2. 3に示すが、冷却系統の水質は、水質分析や水処理によって管理基準値の範囲内で管理している。

### (1) 一次冷却系

一次冷却系は、主循環系と原子炉プール水浄化系から構成され、中性子の減速材と燃料の冷却材として約250m<sup>3</sup>の脱イオン水(純水)が使用されている。一次冷却系には、<sup>14</sup>N減衰タンク(KT2101)、一次冷却材主ポンプ(KP2101, KP2102)、熱交換器(KX2101, KX2102)等が設置され、これらがステンレス鋼製の配管系で接続されている。<sup>14</sup>N減衰タンクでは、原子炉プール水中の炉心領域で<sup>14</sup>O(n, p)

## 1. まえがき

JRR-3は、1990年に熱出力10MWの天然ウラン重水減速冷却型から熱出力20MWの重水反射体付軽水減速冷却プール型のJRR-3Mとして改造され、1990年11月から定格出力での共同利用運転を開始し、安定した運転を継続してきた。改造後のJRR-3Mでは、一次冷却材は軽水を反射体には重水を重水のカバーガスとしてはヘリウムガスが使用されている。特に、一次冷却材中の $\gamma$ 線放出核種の種類と濃度は、中性子領域内の原子炉構造材の腐食の進行と破損燃料体の発生によって放出される核分裂生成物の混入によって変化する。また、反射体重水中の $\gamma$ 線放出核種濃度は、反射体構造材の腐食の進行によって変化し、重水のカバーガスであるヘリウムガス中の $\gamma$ 線放出核種濃度は、空気の混入によって変化する。このため、各冷却系統の放射化学分析は、安全な原子炉の運転を維持するのに必要である使用機器の健全性の確認、炉構造材の腐食進行や破損燃料体の発生の監視並びに原子炉の保守作業時の放射線被曝低減化対策等の一環として実施している。研究炉の内、JRR-2の重水中の放射性核種<sup>1)</sup>並びに改造前のJRR-3の重水及びヘリウム中の放射性核種<sup>2)</sup>については既に報告している。

本報告書は、改造後のJRR-3Mの運転が比較的安定に維持され各冷却系統に含まれる $\gamma$ 線放出核種濃度もほぼ安定状態に達したのを機会に各冷却系統の放射化学分析結果と $\gamma$ 線放出核種の生成量の検討結果についてまとめたものである。

## 2. 冷却系系統の概要

改造後のJRR-3Mの原子炉プールの概略図をFig. 2.1に主な仕様をTable 2.1に示す。JRR-3Mは、熱出力20MWの重水反射体付軽水減速冷却プール型の研究炉である。炉体部は、原子炉プール、カナル及び使用済み燃料プールから構成され、それぞれステンレス鋼製(SUS 316)のプールゲートで仕切られている。原子炉プールには、原子炉の運転による放射線の遮蔽のために上部遮蔽体が設けられ、プールの内面はステンレス鋼(SUS 316)でライニングされている。軽水が満たされたプール内には、炉心部が設置され、炉心外周部は、ベリリウム(Be)反射体とアルミニウム製(Al 5052)の重水タンクで囲まれている。燃料体は、アルミニウム(Al 5052)で被覆された濃縮度20%のウラン・アルミニウム分散型の標準型燃料要素26体、フォロワ型燃料要素6体の計32体を使用している。制御棒は、ハフニウム(Hf)製で微調整棒2本、粗調整棒4本の計6本を使用している。各冷却系統の概略図をFig. 2.2に示すが、JRR-3Mの冷却系統は、一次冷却系、反射体重水系、ヘリウム系及び二次冷却系の4系統から構成されている。また、冷却系統の主な仕様をTable 2.2に冷却系統の主要な構成材と冷却系の管理基準値をTable 2.3に示すが、冷却系統の水質は、水質分析や水処理によって管理基準値の範囲内で管理している。

### (1) 一次冷却系

一次冷却系は、主循環系と原子炉プール水浄化系から構成され、中性子の減速材と燃料の冷却材として約250m<sup>3</sup>の脱イオン水(純水)が使用されている。一次冷却系には、<sup>16</sup>N減衰タンク(KT2101)、一次冷却材主ポンプ(KP2101, KP2102)、熱交換器(KX2101, KX2102)等が設置され、これらがステンレス鋼製の配管系で接続されている。<sup>16</sup>N減衰タンクでは、原子炉プール水中の炉心領域で<sup>16</sup>O(n, p)

$^{16}\text{N}$ の反応で生成されるエネルギーの高い $\gamma$ 線を放出する $^{16}\text{N}$ ( $\gamma_E=6.13\text{MeV}$ ,  $T_{1/2}=7.13\text{sec}$ )を約40秒間減衰させて炉室内の線量当量率を低減して外部被曝を防止している。また、一次冷却材は、下向流にして原子炉上部での放射線レベルを低減している。なお、一次冷却系には、破損燃料を検出するための $\gamma$ 線測定法と遅発中性子法の二系列の破損燃料検出装置(Failed Fuel Detector:以下F.F.Dと云う)が設置されている。原子炉プール水浄化系には、フィルタ(KF2061, KF2062)と混床式イオン交換樹脂塔〔陽イオン交換樹脂約800ℓ, 陰イオン交換樹脂約400ℓの計約1,200ℓのイオン交換樹脂を充填したイオン交換樹脂塔(KR2601, KR2602)〕が設置され、循環量の約1%(循環流量が約2,400m<sup>3</sup>/hrで浄化流量が約24m<sup>3</sup>/hr)の一次冷却材を常時通液し浄化してトリチウム以外の放射性物質を除去すると共に不純物を吸着除去して良好な水質状態に維持している。なお、原子炉運転中での一次冷却材の水質は、導電率を5μS/cm以下, pHを5.0~7.5の範囲に維持管理してアルミニウム製の炉心部や燃料被覆材の腐食を防止している。

### (2) 反射体重水系とヘリウム系

反射体重水冷却系では、約7m<sup>3</sup>の重水を反射材として使用し、浄化系にフィルタと混床式イオン交換樹脂塔〔陽イオン交換樹脂約12ℓ, 陰イオン交換樹脂約24ℓの計約36ℓの重水化したイオン交換樹脂を充填したイオン交換樹脂塔(KR2301, KR2302)〕が設置され、循環量の約1%(循環流量が約70m<sup>3</sup>/hrで浄化流量が約0.7m<sup>3</sup>/hr)の重水を常時通液し浄化してトリチウム以外の放射性物質を除去すると共に不純物を吸着除去して水質を良好に維持している。なお、原子炉運転中の重水の水質は、導電率を2μS/cm以下, pHを5.0~8.0の範囲に維持管理してアルミニウム製の重水タンクの腐食を防止している。

ヘリウム系では、反射体重水のカバーガスとして約7m<sup>3</sup>のヘリウムガス(He)を使用している。ヘリウム系には、重水の蒸気を除去するために凝縮器(KH2401, KH2402)が、重水(D<sub>2</sub>O)の放射線分解で発生した重水素ガス(D<sub>2</sub>)を除去するために加熱器と再結合器(KR2401)が設置されている。再結合器には、アルミナ担体(Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)に0.5wt%のパラジウム(Pd)をコーティングした脱水素系の触媒(商品名:Girdler G-63D)約7ℓが充填されている。

### (3) 二次冷却系

二次冷却系では、約800m<sup>3</sup>の濾過水を二次冷却材として使用し、冷却塔と熱交換器とを循環させて炉心で発生した熱を二基の熱交換器で熱交換し、冷却塔で熱を除去している。また、原子炉の運転中には、二次冷却系にホスホン酸系の防食剤とスライム防止剤を連続注入して炭素鋼製配管の腐食を防止している。なお、二次冷却系への補給水量を調整し、濃縮倍数を約7以下にpHを6~9の範囲に水質を管理してスケールの形成を防止し、熱交換器の熱貫流率の低下を抑制している。

## 3. 放射化学分析法

放射化学分析用の試料は、各冷却系統に付属されているサンプリングラインから採取している。また、各系統の放射化学分析法は、水・ガス管理の分析処理マニアル<sup>3)</sup>に準じて実施しているが、放射化学分析の測定方法の概略を以下に記す。

### 3.1 全 $\beta$ ・ $\gamma$ 放射能濃度

#### 3.1.1 全 $\beta$ 放射能濃度

$^{16}\text{N}$ の反応で生成されるエネルギーの高い $\gamma$ 線を放出する $^{16}\text{N}$ ( $\gamma_E=6.13\text{MeV}$ ,  $T_{1/2}=7.13\text{sec}$ )を約40秒間減衰させて炉室内の線量当量率を低減して外部被曝を防止している。また、一次冷却材は、下向流にして原子炉上部での放射線レベルを低減している。なお、一次冷却系には、破損燃料を検出するための $\gamma$ 線測定法と遅発中性子法の二系列の破損燃料検出装置(Failed Fuel Detector:以下F.F.Dと云う)が設置されている。原子炉プール水浄化系には、フィルタ(KF2061, KF2062)と混床式イオン交換樹脂塔〔陽イオン交換樹脂約800ℓ, 陰イオン交換樹脂約400ℓの計約1,200ℓのイオン交換樹脂を充填したイオン交換樹脂塔(KR2601, KR2602)〕が設置され、循環量の約1%(循環流量が約2,400m<sup>3</sup>/hrで浄化流量が約24m<sup>3</sup>/hr)の一次冷却材を常時通液し浄化してトリチウム以外の放射性物質を除去すると共に不純物を吸着除去して良好な水質状態に維持している。なお、原子炉運転中での一次冷却材の水質は、導電率を5μS/cm以下, pHを5.0~7.5の範囲に維持管理してアルミニウム製の炉心部や燃料被覆材の腐食を防止している。

### (2) 反射体重水系とヘリウム系

反射体重水冷却系では、約7m<sup>3</sup>の重水を反射材として使用し、浄化系にフィルタと混床式イオン交換樹脂塔〔陽イオン交換樹脂約12ℓ, 陰イオン交換樹脂約24ℓの計約36ℓの重水化したイオン交換樹脂を充填したイオン交換樹脂塔(KR2301, KR2302)〕が設置され、循環量の約1%(循環流量が約70m<sup>3</sup>/hrで浄化流量が約0.7m<sup>3</sup>/hr)の重水を常時通液し浄化してトリチウム以外の放射性物質を除去すると共に不純物を吸着除去して水質を良好に維持している。なお、原子炉運転中の重水の水質は、導電率を2μS/cm以下, pHを5.0~8.0の範囲に維持管理してアルミニウム製の重水タンクの腐食を防止している。

ヘリウム系では、反射体重水のカバーガスとして約7m<sup>3</sup>のヘリウムガス(He)を使用している。ヘリウム系には、重水の蒸気を除去するために凝縮器(KH2401, KH2402)が、重水(D<sub>2</sub>O)の放射線分解で発生した重水素ガス(D<sub>2</sub>)を除去するために加熱器と再結合器(KR2401)が設置されている。再結合器には、アルミナ担体(Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)に0.5wt%のパラジウム(Pd)をコーティングした脱水素系の触媒(商品名:Girdler G-63D)約7ℓが充填されている。

### (3) 二次冷却系

二次冷却系では、約800m<sup>3</sup>の濾過水を二次冷却材として使用し、冷却塔と熱交換器とを循環させて炉心で発生した熱を二基の熱交換器で熱交換し、冷却塔で熱を除去している。また、原子炉の運転中には、二次冷却系にホスホン酸系の防食剤とスライム防止剤を連続注入して炭素鋼製配管の腐食を防止している。なお、二次冷却系への補給水量を調整し、濃縮倍数を約7以下にpHを6~9の範囲に水質を管理してスケールの形成を防止し、熱交換器の熱貫流率の低下を抑制している。

## 3. 放射化学分析法

放射化学分析用の試料は、各冷却系統に付属されているサンプリングラインから採取している。また、各系統の放射化学分析法は、水・ガス管理の分析処理マニアル<sup>3)</sup>に準じて実施しているが、放射化学分析の測定方法の概略を以下に記す。

### 3.1 全 $\beta$ ・ $\gamma$ 放射能濃度

#### 3.1.1 全 $\beta$ 放射能濃度

全 $\beta$ 放射能濃度測定試料は、各冷却系統から採取した試料水の内から $1\text{cm}^3$ を $2.5\text{mm}\phi$ のステンレス鋼製試料皿に分取し、赤外線ランプで加熱して蒸発乾固して調整する。全 $\beta$ 放射能濃度は、試料採取1時間経過後にAloka社製GM自動測定装置(JDC-151)で全 $\beta$ 放射能を測定し、バックグランドを差し引き計数効率で補正して求める。

### 3.1.2 全 $\gamma$ 放射能濃度

全 $\gamma$ 放射能濃度測定試料は、各冷却系統から採取した試料水の内から $5\text{cm}^3$ を $10\text{cm}^3$ の測定用ポリエチレン製棒状瓶に分取して調整する。全 $\gamma$ 放射能濃度は、試料採取1時間経過後にウエルタイプのNaI(Tl)検出器を付けたCANBERRA社製のウエルタイプシンチレーションカウンタで全 $\gamma$ 放射能を測定し、バックグランドを差し引き計数効率で補正して求める。

### 3.2 $\gamma$ 線放出核種濃度

JRR-3M一次冷却系のサンプリングラインには、短半減期の $\gamma$ 線放出核種濃度分析用(破損燃料の発生がない正常な場合には半減期が約2.28分の $^{28}\text{Al}$ が主となる)としてCANBERRA社製シリーズ85型のGe半導体スペクトロメータが設置されている。通常の $\gamma$ 線放出核種濃度は、各冷却系統から試料水約100mLを採取してCANBERRA社製シリーズ35型のGe半導体スペクトロメータで $\gamma$ 線スペクトルを測定して求める。

## 4. 放射性化学分析結果

### 4.1 $\gamma$ 線スペクトルによる $\gamma$ 線放出核種の同定

#### 4.1.1 一次冷却水(軽水)

原子炉出力20MWの運転中に一次冷却系から採取した試料水の $\gamma$ 線スペクトルをFig. 4.1に示す。 $\gamma$ 線スペクトルを測定した結果、検出された $\gamma$ 線放出核種は、 $^{99m}\text{Tc}$ ,  $^{99}\text{Mo}$ ,  $^{137}\text{W}$ ,  $^{24}\text{Na}$ 及び $^{41}\text{Ar}$ の5核種であった。この内の $^{99m}\text{Tc}$ は、 $^{99}\text{Mo}$ の娘核種で、 $^{99}\text{Mo}$ は、炉心構造物に使用されているステンレス鋼(ボルト類)に含まれるモリブデンの放射化で生成されたものである。 $^{137}\text{W}$ は、ステンレス鋼の溶接棒に含まれるタンゲスタンの放射化で生成されたものである。一方、 $^{24}\text{Na}$ は、一次冷却水中に不純物として含まれるナトリウムの放射化 [ $^{23}\text{Na}(n, \gamma)^{24}\text{Na}$ ] 並びに速中性子と炉構造材のアルミニウムとの反跳効果 [ $^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$ ] によって生成される。一次冷却材中のナトリウム濃度は、0.5ppm以下であることから $^{24}\text{Na}$ は、主として速中性子とアルミニウムとの反跳効果によって生成されるものと推定される。 $^{41}\text{Ar}$ は、空気中に約1%含まれるアルゴンガスが一次冷却水中に溶解し、これが放射化されて生成されたものである。

#### 4.1.2 原子炉プール浄化水

原子炉プール浄化系から採取した試料水の $\gamma$ 線スペクトルをFig. 4.2に示す。 $\gamma$ 線スペクトルを測定した結果、定量的に検出された $\gamma$ 線放出核種は、 $^{41}\text{Ar}$ だけであった。一次冷却水中に含まれる、 $^{99m}\text{Tc}$ ,  $^{99}\text{Mo}$ ,  $^{137}\text{W}$ 及び $^{24}\text{Na}$ 等の核種は、陽イオン状であることから浄化系のイオン交換樹脂で吸着除去される。このため、破損燃料の発生がない場合には、原子炉プール浄化水に含まれる $\gamma$ 線放出核種は、ガス状の $^{41}\text{Ar}$ だけとなる。

#### 4.1.3 反射体重水

反射体重水系から採取した試料水の $\gamma$ 線スペクトルをFig. 4.3に示す。 $\gamma$ 線スペクトルを測定

全 $\beta$ 放射能濃度測定試料は、各冷却系統から採取した試料水の内から $1\text{cm}^3$ を $2.5\text{mm}\phi$ のステンレス鋼製試料皿に分取し、赤外線ランプで加熱して蒸発乾固して調整する。全 $\beta$ 放射能濃度は、試料採取1時間経過後にAloka社製GM自動測定装置(JDC-151)で全 $\beta$ 放射能を測定し、バックグランドを差し引き計数効率で補正して求める。

### 3.1.2 全 $\gamma$ 放射能濃度

全 $\gamma$ 放射能濃度測定試料は、各冷却系統から採取した試料水の内から $5\text{cm}^3$ を $10\text{cm}^3$ の測定用ポリエチレン製棒状瓶に分取して調整する。全 $\gamma$ 放射能濃度は、試料採取1時間経過後にウエルタイプのNaI(Tl)検出器を付けたCANBERRA社製のウエルタイプシンチレーションカウンタで全 $\gamma$ 放射能を測定し、バックグランドを差し引き計数効率で補正して求める。

### 3.2 $\gamma$ 線放出核種濃度

JRR-3M一次冷却系のサンプリングラインには、短半減期の $\gamma$ 線放出核種濃度分析用(破損燃料の発生がない正常な場合には半減期が約2.28分の $^{28}\text{Al}$ が主となる)としてCANBERRA社製シリーズ85型のGe半導体スペクトロメータが設置されている。通常の $\gamma$ 線放出核種濃度は、各冷却系統から試料水約100mLを採取してCANBERRA社製シリーズ35型のGe半導体スペクトロメータで $\gamma$ 線スペクトルを測定して求める。

## 4. 放射化分析結果

### 4.1 $\gamma$ 線スペクトルによる $\gamma$ 線放出核種の同定

#### 4.1.1 一次冷却水(軽水)

原子炉出力20MWの運転中に一次冷却系から採取した試料水の $\gamma$ 線スペクトルをFig. 4.1に示す。 $\gamma$ 線スペクトルを測定した結果、検出された $\gamma$ 線放出核種は、 $^{99m}\text{Tc}$ ,  $^{99}\text{Mo}$ ,  $^{137}\text{W}$ ,  $^{24}\text{Na}$ 及び $^{41}\text{Ar}$ の5核種であった。この内の $^{99m}\text{Tc}$ は、 $^{99}\text{Mo}$ の娘核種で、 $^{99}\text{Mo}$ は、炉心構造物に使用されているステンレス鋼(ボルト類)に含まれるモリブデンの放射化で生成されたものである。 $^{137}\text{W}$ は、ステンレス鋼の溶接棒に含まれるタンゲステンの放射化で生成されたものである。一方、 $^{24}\text{Na}$ は、一次冷却水中に不純物として含まれるナトリウムの放射化 [ $^{23}\text{Na}(n, \gamma)^{24}\text{Na}$ ] 並びに速中性子と炉構造材のアルミニウムとの反跳効果 [ $^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$ ] によって生成される。一次冷却材中のナトリウム濃度は、0.5ppm以下であることから $^{24}\text{Na}$ は、主として速中性子とアルミニウムとの反跳効果によって生成されるものと推定される。 $^{41}\text{Ar}$ は、空気中に約1%含まれるアルゴンガスが一次冷却水中に溶解し、これが放射化されて生成されたものである。

#### 4.1.2 原子炉プール浄化水

原子炉プール浄化系から採取した試料水の $\gamma$ 線スペクトルをFig. 4.2に示す。 $\gamma$ 線スペクトルを測定した結果、定量的に検出された $\gamma$ 線放出核種は、 $^{41}\text{Ar}$ だけであった。一次冷却水中に含まれる、 $^{99m}\text{Tc}$ ,  $^{99}\text{Mo}$ ,  $^{137}\text{W}$ 及び $^{24}\text{Na}$ 等の核種は、陽イオン状であることから浄化系のイオン交換樹脂で吸着除去される。このため、破損燃料の発生がない場合には、原子炉プール浄化水に含まれる $\gamma$ 線放出核種は、ガス状の $^{41}\text{Ar}$ だけとなる。

#### 4.1.3 反射体重水

反射体重水系から採取した試料水の $\gamma$ 線スペクトルをFig. 4.3に示す。 $\gamma$ 線スペクトルを測定

した結果、検出された $\gamma$ 線放出核種は、 $^{56}\text{Mn}$ 、 $^{24}\text{Na}$ 及び $^{41}\text{Ar}$ の3核種であった。 $^{56}\text{Mn}$ は、重水タンクの構造材のアルミニウムの不純物である $^{55}\text{Mn}$ の放射化で生成される。 $^{24}\text{Na}$ は、一次冷却材と同様に炉構造材のアルミニウムと速中性子との反跳効果 [ $^{27}\text{Al}(\text{n}, \text{p})^{24}\text{Na}$ ] で生成される。 $^{41}\text{Ar}$ は、重水中に溶解したヘリウム中に含まれるアルゴンガス( $^{40}\text{Ar}$ )の放射化によって生成される。

#### 4.1.4 ヘリウムガス

ヘリウム系から採取したヘリウムガスの $\gamma$ 線スペクトルをFig. 4.4に示す。 $\gamma$ 線スペクトルを測定した結果、検出された $\gamma$ 線放出核種は、 $^{41}\text{Ar}$ だけであった。原子炉運転中のヘリウムガス濃度は、原則として約90 Vol%以上の濃度に維持しているが、ヘリウムガスに不純物として混入している空気中に約1%含まれるアルゴンガスの放射化によって $^{41}\text{Ar}$ が生成される。

各冷却系から検出された $\gamma$ 線放出核種とこれらの主な生成反応をTable 4.1に示す。

## 4.2 $\gamma$ 線放出核種濃度と全 $\beta$ ・ $\gamma$ 放射能濃度の変化

### 4.2.1 一次冷却材(軽水)

平成7年度の原子炉出力20MW運転時における一次冷却材中の $\gamma$ 線放出核種濃度と全 $\beta$ ・ $\gamma$ 放射能濃度の測定結果をTable 4.2に示す。全 $\beta$ 放射能濃度と全 $\gamma$ 放射能濃度は試料水採取後1時間冷却した後に測定している。全 $\beta$ 放射能濃度と全 $\gamma$ 放射能濃度との変化をFig. 4.5に $\gamma$ 線放出核種濃度の変化をFig. 4.6に示す。全 $\gamma$ 放射能濃度は、 $\gamma$ 線放出核種のバックデータとして測定しているが、試料採取1時間経過後に測定しているために短半減期の放射性核種が減衰して $\gamma$ 線放出核種の合計濃度よりも低い値となる。また、全 $\beta$ 放射能濃度は試料水を蒸発乾固後に測定するためにガス状の $^{41}\text{Ar}$ が蒸発して濃度が低下する。なお、 $^{28}\text{Al}$ は、アルミニウムの放射化 [ $^{27}\text{Al}(\text{n}, \gamma)^{28}\text{Al}$ ] で生成される短半減期の $\gamma$ 線放出核種であるために短半減期核種の測定用として一次冷却系のサンプリングラインに設置されているGe半導体スペクトロメータで測定している。この $^{28}\text{Al}$ は短半減期( $T_{1/2}=2.24\text{ M}$ )であるために安定した測定値が得られなかった。一次冷却材に含まれる $\gamma$ 線放出核種の内で主要な $\gamma$ 線放出核種である $^{24}\text{Na}$ の平均濃度は、約 $1.12 \times 10^3\text{ Bq/cm}^3$ であった。 $^{24}\text{Na}$ 濃度は、中性子領域内のアルミニウム材の接液面積と速中性子束が一定であればほぼ一定の濃度となる。 $^{41}\text{Ar}$ 濃度は、空気の溶解状態や一次冷却系統の運転状態によって変化し、平均で約 $1.94 \times 10^3\text{ Bq/cm}^3$ であった。特に、炉心部の一次冷却材は、下向流であるため空気の巻き込み量が多くなって一次冷却材中に空気が溶解しやすくなり、空気の溶解状態によって $^{41}\text{Ar}$ 濃度が変化する。一方、燃料破損の発生がない正常な場合においても一次冷却系に微量に存在するウランの核分裂によって一次冷却材中に核分裂生成物(Fission Products:以下Fp核種と云う)の微量な放射性よう素がバックグラウンドとして含まれる。燃料破損が発生した場合にはこの放射性よう素濃度が上昇する。燃料破損の発生がない正常な原子炉運転状態では放射性よう素は微量であるために主要核種である $^{24}\text{Na}$ が妨害し、試料水の $\gamma$ 線スペクトルを直接測定する方法では検出が困難である。このため、微量な放射性よう素は、後で述べるように分析用陽イオン交換膜(住友化学分析センタ製エクスピール陽イオン交換膜:NF-1)で妨害核種の $^{24}\text{Na}$ を吸着分離し、放射性よう素を分析用陰イオン交換膜(住友化学分析センタ製エクスピール:NF-3)に吸着させた後に $\gamma$ 線スペクトルを測定する方法で求めた。分析用イオン交換膜の処理後での測定結果、放射性よう素( $^{131}\text{I}$ )は検出限界濃度(約 $2.1\text{ Bq/cm}^3$ )以下で定量的には検出されなかった。

#### 4.2.2 原子炉プール浄化水

原子炉プール浄化水中の $\gamma$ 線放出核種濃度と放射能濃度の測定結果をTable 4.3に全 $\gamma$ 放射能濃度の変化をFig. 4.7に $\gamma$ 線放出核種濃度の変化をFig. 4.8に示す。原子炉プール浄化水中に含まれる $\gamma$ 線放出核種は一次冷却材に溶解したアルゴンガスが放射化されて生成された $^{41}\text{Ar}$ と核分裂生成ガス(Gaseous fission products:以下Fpガスと云う)の $^{135}\text{Xe}$ であるが、定量的に検出された $\gamma$ 線放出核種は $^{41}\text{Ar}$ だけであった。全 $\gamma$ 放射能濃度は、試料水を採取した1時間後に測定するために $^{41}\text{Ar}$ が減衰して低下する。また、全 $\beta$ 放射能濃度は、試料水を赤外線ランプで蒸発乾固後に測定するためにガス状の $^{41}\text{Ar}$ が蒸発して通常は検出限界濃度(約1.3Bq/cm<sup>3</sup>)以下となる。原子炉プール浄化水中に含まれる $^{41}\text{Ar}$ 濃度は、約 $6.56 \times 10^2$  Bq/cm<sup>3</sup>で一次冷却材中に含まれる $^{41}\text{Ar}$ 濃度の約34%程度となる。原子炉プール浄化水中で $^{41}\text{Ar}$ 濃度が低下する原因是、 $^{16}\text{N}$ 減衰タンクによる脱気と原子炉上部への気散並びに測定試料水の分取時に脱気されるためと考えられる。なお、原子炉プール浄化系の上流側と下流側との全 $\beta$ 放射能濃度比から求めた浄化系イオン交換樹脂塔の除染係数(D. F: Decontamination Factor)は、約500程度である。すなわち、原子炉プール浄化系の上流側と下流側との全 $\beta$ 放射能濃度を測定することによって浄化系イオン交換樹脂の交換能力の低下を知ることができる。

#### 4.2.3 反射体重水

反射体重水中の $\gamma$ 線放出核種濃度と放射能濃度の測定結果をTable 4.4に全 $\gamma$ 放射能濃度と全 $\beta$ 放射能濃度の変化をFig. 4.9に $\gamma$ 線放出核種濃度の変化をFig. 4.10に示す。全 $\gamma$ 放射能濃度と全 $\beta$ 放射能濃度はほぼ同程度となっている。重水中の $\gamma$ 線放出核種の平均濃度は、 $^{56}\text{Mn}$ で約 $1.48 \times 10^1$  Bq/cm<sup>3</sup>、 $^{24}\text{Na}$ で約 $9.24 \times 10^1$  Bq/cm<sup>3</sup>であった。一方、重水のカバーガスとして濃度が90Vol%以上のヘリウムガスを使用しているために反射体重水中の $^{41}\text{Ar}$ の平均濃度は、一次冷却材中の濃度の約1/70の $2.70 \times 10^1$  Bq/cm<sup>3</sup>程度であった。

#### 4.2.4 ヘリウムガス

ヘリウムガスの $\gamma$ 線放出核種濃度の測定結果をTable 4.5とFig. 4.11に示す。定量的に検出された $\gamma$ 線放出核種は、ガス状の $^{41}\text{Ar}$ だけで平均濃度で約 $1.33 \times 10^3$  Bq/cm<sup>3</sup>であった。

### 5. 分析結果の考察

#### 5.1 $^{24}\text{Na}$ 濃度からの平均熱中性子束の推定

##### 5.1.1 炉心部の平均熱中性子束の推定

炉心領域内の構造物と燃料被覆材の構成材は、アルミニウムが使用されている。一次冷却材中の $^{24}\text{Na}$ は、炉心領域内のアルミニウム材と速中性子との $^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$ の反応で生成され、反跳効果で一次冷却材中に放出されるのが主である。このため、 $^{24}\text{Na}$ 濃度は、アルミニウム材が一次冷却材と接する表面積(Table 5.1 参照)と速中性子束が一定であれば一定となる。 $^{24}\text{Na}$ 濃度の平均値を(1)式に代入して $^{24}\text{Na}$ の生成速度を求め、これを(2)式に代入して炉心領域内の平均的な速中性子束を求めてカドミニウム比から平均熱中性子束を推定する。アルミニウム材と速中性子との反跳効果で生成される一次冷却材中の $^{24}\text{Na}$ 濃度 $C_{\text{Na}}$ (Bq/cm<sup>3</sup>)は、(1)式で表される<sup>4)</sup>。

#### 4.2.2 原子炉プール浄化水

原子炉プール浄化水中の $\gamma$ 線放出核種濃度と放射能濃度の測定結果をTable 4.3に全 $\gamma$ 放射能濃度の変化をFig. 4.7に $\gamma$ 線放出核種濃度の変化をFig. 4.8に示す。原子炉プール浄化水中に含まれる $\gamma$ 線放出核種は一次冷却材に溶解したアルゴンガスが放射化されて生成された $^{41}\text{Ar}$ と核分裂生成ガス(Gaseous fission products:以下Fpガスと云う)の $^{135}\text{Xe}$ であるが、定量的に検出された $\gamma$ 線放出核種は $^{41}\text{Ar}$ だけであった。全 $\gamma$ 放射能濃度は、試料水を採取した1時間後に測定するために $^{41}\text{Ar}$ が減衰して低下する。また、全 $\beta$ 放射能濃度は、試料水を赤外線ランプで蒸発乾固後に測定するためにガス状の $^{41}\text{Ar}$ が蒸発して通常は検出限界濃度(約1.3Bq/cm<sup>3</sup>)以下となる。原子炉プール浄化水中に含まれる $^{41}\text{Ar}$ 濃度は、約 $6.56 \times 10^2$  Bq/cm<sup>3</sup>で一次冷却材中に含まれる $^{41}\text{Ar}$ 濃度の約34%程度となる。原子炉プール浄化水中で $^{41}\text{Ar}$ 濃度が低下する原因是、 $^{16}\text{N}$ 減衰タンクによる脱気と原子炉上部への気散並びに測定試料水の分取時に脱気されるためと考えられる。なお、原子炉プール浄化系の上流側と下流側との全 $\beta$ 放射能濃度比から求めた浄化系イオン交換樹脂塔の除染係数(D. F: Decontamination Factor)は、約500程度である。すなわち、原子炉プール浄化系の上流側と下流側との全 $\beta$ 放射能濃度を測定することによって浄化系イオン交換樹脂の交換能力の低下を知ることができる。

#### 4.2.3 反射体重水

反射体重水中の $\gamma$ 線放出核種濃度と放射能濃度の測定結果をTable 4.4に全 $\gamma$ 放射能濃度と全 $\beta$ 放射能濃度の変化をFig. 4.9に $\gamma$ 線放出核種濃度の変化をFig. 4.10に示す。全 $\gamma$ 放射能濃度と全 $\beta$ 放射能濃度はほぼ同程度となっている。重水中の $\gamma$ 線放出核種の平均濃度は、 $^{56}\text{Mn}$ で約 $1.48 \times 10^1$  Bq/cm<sup>3</sup>、 $^{24}\text{Na}$ で約 $9.24 \times 10^1$  Bq/cm<sup>3</sup>であった。一方、重水のカバーガスとして濃度が90Vol%以上のヘリウムガスを使用しているために反射体重水中の $^{41}\text{Ar}$ の平均濃度は、一次冷却材中の濃度の約1/70の $2.70 \times 10^1$  Bq/cm<sup>3</sup>程度であった。

#### 4.2.4 ヘリウムガス

ヘリウムガスの $\gamma$ 線放出核種濃度の測定結果をTable 4.5とFig. 4.11に示す。定量的に検出された $\gamma$ 線放出核種は、ガス状の $^{41}\text{Ar}$ だけで平均濃度で約 $1.33 \times 10^3$  Bq/cm<sup>3</sup>であった。

### 5. 分析結果の考察

#### 5.1 $^{24}\text{Na}$ 濃度からの平均熱中性子束の推定

##### 5.1.1 炉心部の平均熱中性子束の推定

炉心領域内の構造物と燃料被覆材の構成材は、アルミニウムが使用されている。一次冷却材中の $^{24}\text{Na}$ は、炉心領域内のアルミニウム材と速中性子との $^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$ の反応で生成され、反跳効果で一次冷却材中に放出されるのが主である。このため、 $^{24}\text{Na}$ 濃度は、アルミニウム材が一次冷却材と接する表面積(Table 5.1 参照)と速中性子束が一定であれば一定となる。 $^{24}\text{Na}$ 濃度の平均値を(1)式に代入して $^{24}\text{Na}$ の生成速度を求め、これを(2)式に代入して炉心領域内の平均的な速中性子束を求めてカドミニウム比から平均熱中性子束を推定する。アルミニウム材と速中性子との反跳効果で生成される一次冷却材中の $^{24}\text{Na}$ 濃度 $C_{\text{Na}}$ (Bq/cm<sup>3</sup>)は、(1)式で表される<sup>4)</sup>。

$$C_{Na} = \frac{\lambda \cdot \gamma}{V(Q/V + \lambda)} \quad (1)$$

ここで

$\lambda$ :  $^{24}Na$ の崩壊定数:  $1.28 \times 10^{-5}$  (sec $^{-1}$ )

$\gamma$ :  $^{24}Na$ の生成速度(個/sec)

Q: 净化流量:  $6.94 \times 10^3$  (cm $^3$ /sec)

V: 一次冷却材量:  $2.5 \times 10^8$  (cm $^3$ )

一次冷却水中の  $^{24}Na$  濃度  $C_{Na}$  (Bq/cm $^3$ ) は、Table 4.2 より平均で約  $1.12 \times 10^3$  Bq/cm $^3$  となる。この値を(1)式に代入して  $^{24}Na$  の生成速度  $\gamma$  (個/sec) を求めると  $8.88 \times 10^{11}$  個/sec となる。一方、反跳による  $^{24}Na$  核種の生成速度  $\gamma$  (個/sec) は、(2)式で表される。

$$\gamma = \frac{\phi_f \cdot \Sigma \cdot S_a \cdot R}{4} \quad (2)$$

ここで

$\phi_f$ : 速中性子束 (n/cm $^2$ ·sec)

$\Sigma$ : 巨視的放射化断面積:  $5.32 \times 10^{-5}$  (cm $^{-1}$ )

$S_a$ : 炉心領域内で一次冷却材と接するアルミニウム材の表面積:  $8.87 \times 10^5$  (cm $^2$ )

R: 反跳飛程:  $5.52 \times 10^{-4}$  (cm)

(2)式に数値を代入して速中性子束 ( $\phi_f$ ) を求めると  $\phi_f = 1.4 \times 10^{14}$  n/cm $^2$ ·sec となる。炉心領域内におけるカドミニウム比 (Cd Ratio =  $\phi_{th}/\phi_f$ ) は、約 2 度であるから平均熱中性子束 ( $\phi_{th}$ ) は、約  $2.7 \times 10^{14}$  n/cm $^2$ ·sec 程度と推定される。

### 5.1.2 反射体重水タンク内の平均熱中性子束の推定

炉心部と同様な計算によって Table 5.1 に示す重水に接する表面積と以下に示す計算条件で重水タンク内の平均熱中性子束の推定を行う。反射体重水中の  $^{24}Na$  濃度は、Table 4.5 から  $9.24 \times 10^1$  Bq/cm $^3$  で、これを(1)式に代入して  $^{24}Na$  の生成速度  $\gamma$  (個/sec) を求めると  $2.01 \times 10^9$  (個/sec) となる。また、この値を(2)式に代入して反射体重水タンク内の平均速中性子束を求めると約  $2.10 \times 10^{12}$  n/cm $^2$ ·sec となる。重水タンク内での平均的なカドミニウム比は、約 10 度であるから重水タンク内の平均熱中性子束 ( $\phi_{th}$ ) は、約  $2.1 \times 10^{13}$  n/cm $^2$ ·sec 程度と推定される。

### 計算条件

Q: 净化流量:  $1.94 \times 10^2$  (cm $^3$ /sec)

V<sub>D</sub>: 全重水量:  $6.6 \times 10^6$  (cm $^3$ )

S<sub>a</sub>: アルミニウム材の接液面積:  $1.3 \times 10^5$  (cm $^2$ )

### 5.2 放射性腐食生成物濃度からアルミニウム材の腐食評価

### 5.2.1 一次冷却材中の放射性腐食生成物(Corrosion Products:CP)の生成量

炉心部の放射化領域の構造材には、アルミニウム材(主としてAl A5052)が、非放射化領域である炉心外の配管系やタンク類には耐食性のステンレス鋼材(主としてSUS 304)が使用されている。また、熱交換器伝熱細管や原子炉プールライニング材には耐食性のステンレス鋼材(主としてSUS 316)が原子炉炉構造材として使用されている。一次冷却材中の放射性腐食生成物濃度は、原子炉炉構造材並びに使用機器の腐食や磨耗によって一次冷却材中の放出された腐食生成物が炉心内で放射化されることによって上昇する。原子炉炉構造材の磨耗による放出を無視すると全面腐食によって一次冷却材中における放射化される元素の放出率 $S_w$ (個/cm<sup>3</sup>·sec)は、(3)式で表される<sup>5)</sup>。

$$S_w = \frac{C_R \cdot S \cdot f_n \cdot f_s \cdot N_0}{V \cdot A} \quad (3)$$

ここで

$C_R$ :原子炉炉構造材の腐食率(g/m<sup>2</sup>/sec)

$S$ :一次冷却材に接する炉構造材の表面積(m<sup>2</sup>)

$f_n$ :天然存在比

$f_s$ :放射化される元素の重量比

$N_0$ :アボガドロ数:6.023×10<sup>23</sup>(個)

$V$ :一次冷却材量:2.5×10<sup>8</sup>(cm<sup>3</sup>)

$A$ :放射化される元素の原子量

また、一次冷却材中で生成される放射性腐食生成物濃度 $A_c$ (Bq/cm<sup>3</sup>)は、浄化系による除去と核種の崩壊による減衰とを考慮すると(4)式で表される。

$$A_c = \frac{K \cdot \sigma_i \cdot \phi \cdot S_w}{(\beta + \lambda)} (1 - \exp - \lambda \cdot t) \quad (4)$$

なお、原子炉の運転時間が生成核種の半減期よりも長い場合には、(5)式となる。

$$A_c = \frac{K \cdot \sigma_i \cdot \phi \cdot S_w}{(\beta + \lambda)} \quad (5)$$

ここで

$A_c$ :一次冷却材中の放射性腐食生成物濃度(Bq/cm<sup>3</sup>)

$K$ :希釈係数(放射化領域内水量/一次冷却材全量:0.2m<sup>3</sup>/250m<sup>3</sup>=8.0×10<sup>-4</sup>)

$\sigma_i$ :放射化断面積(cm<sup>2</sup>)

$\phi$ :平均中性子束( $\phi_f=1.4 \times 10^{14}$  n/cm<sup>2</sup>·sec,  $\phi_{th}=2.7 \times 10^{14}$  n/cm<sup>2</sup>·sec)

$S_w$ :放射化される元素の放出率(atoms/cm<sup>3</sup>·sec)

$\beta$ :浄化係数( $\beta=Q/V \cdot \epsilon=2.78 \times 10^{-5}$  sec<sup>-1</sup>)

$t$ :原子炉の運転時間(sec)

$\lambda$  : 崩壊定数(sec<sup>-1</sup>)

### 5.2.2 アルミニウム材の腐食に伴う一次冷却材中の放射性腐食生成物濃度

一次冷却系内で一次冷却材に接する原子炉炉構成材の表面積をTable 5.2にステンレス鋼とアルミニウム材の腐食率をTable 5.3に示す。また、アルミニウム材の化学成分をTable 5.4に、アルミニウム材の腐食によって生成される放射性腐食生成物の主な生成反応、放射化断面積、天然存在比及び崩壊定数をTable 5.5に示す。ステンレス鋼の腐食率がアルミニウム材よりも小さいことから一次冷却系内では主としてアルミニウム材の腐食によって放射性腐食生成物が生成されるものとして評価する。一次冷却系内で使用されているアルミニウム材の腐食率は一次冷却材の温度や流速によって異なるが、温度70°Cで流速が約6m/secでは約0.37mdd( $4.3 \times 10^{-7}$ g/m<sup>2</sup>/sec)の腐食率となっている<sup>6)</sup>が、炉心部の構造が複雑で温度や流速が異なることから安全側として腐食率を5mdd( $5 \times 10^{-3}$ g/10<sup>-2</sup>m<sup>2</sup>/24×3600sec=5.8×10<sup>-6</sup>g/m<sup>2</sup>/sec)とした場合の放射性腐食生成物濃度について評価する。なお、アルミニウム材の化学成分中の<sup>59</sup>Coの含有率は、アルミニウム材の種類によつても異なるが実測によれば約1.2から3.1ppm<sup>7)</sup>となっているが、ここでは約3ppmとして評価する。以上の数値を(3)、(4)及び(5)式に代入して求めた一次冷却材中の放射性腐食生成物濃度と平成6年度第3サイクル(原子炉の積算出力から求めた原子炉の運転時間約 $5.7 \times 10^7$ sec:約1.8年)に一次冷却材を採取し、測定して得られた一次冷却材中のγ線放出核種濃度をTable 5.6に示す。実測値と計算値とを比較すると<sup>60</sup>Coよりも半減期が短い<sup>51</sup>Crと<sup>54</sup>Mnとの濃度が計算値と比較的よい一致が見られた。<sup>60</sup>Coの実測値が計算値よりも低い値となった原因是、原子炉の運転は断続的でこの間の原子炉停止に伴う減衰によるものと考えられる。

## 5.3 核分裂生成物濃度から一次冷却系内付着ウラン量の推定

### 5.3.1 一次冷却系の付着ウラン

一次冷却水中のFp核種濃度は、一次冷却系の炉心タンクや燃料要素に使用されているアルミニウム材並びに反射材として使用されているのベリリウム材等に微量含まれているウランの核分裂反応によって放出され変化する。アルミニウム材には約1ppm<sup>8)</sup>、ベリリウム材には約10~42ppmのウランが含まれているとされている<sup>9)</sup>。JRR-3Mの炉心内での燃料体の接液表面積は、Table 5.1から約 $8.87 \times 10^5$ cm<sup>2</sup>でベリリウム材の接液表面積は、Table 5.2から約 $3.3 \times 10^4$ cm<sup>2</sup>となりベリリウム材の接液表面積はアルミニウム材の約4%程度となる。このことからJRR-3Mの一次冷却系での汚染ウラン量は燃料要素表面の付着ウランが支配的となる。JRR-3Mでは、UA1x-Al分散型の標準型燃料要素26体、フォロア型燃料要素6体の合計32体の燃料を使用している。この燃料要素の製作時には、微量なウランが表面汚染として付着し、これらが原子炉の運転に伴って核分裂して一次冷却材中に微量なFp核種が含まれることになる。JRR-3Mでは、破損燃料の検出は後述するように遅発中性子検出方式とガンマ線検出方式の二系列のF.F.Dで燃料破損の発生を監視している。さらに、このバックアップとして一次冷却材に可溶性の放射性よう素濃度をγ線スペクトルによって測定し燃料破損の発生を監視している。燃料破損の発生の有無を早期に検出するために必要なバックデータとして一次冷却系内の付着ウラン量を推定しておくことが重要である。

### 5.3.2 一次冷却材中の放射性よう素の放射化学分析方法<sup>10)</sup>

一次冷却材中からは、5核種の $\gamma$ 線放出核種が検出されたが、 $^{99}\text{Mo}$ ,  $^{187}\text{W}$ 及び $^{24}\text{Na}$ が陽イオン状で $^{99}\text{Tc}$ は酸化テクネシユーム( $\text{TeO}_2^-$ )の陰イオン状として存在し残りの $^{41}\text{Ar}$ がガス状の $\gamma$ 線放出核種として存在している。この中で主要な $\gamma$ 線放出核種は、 $^{24}\text{Na}$ で一次冷却材中に微量に存在するFp核種の放射性よう素の $\gamma$ 線スペクトルの測定において妨害となる。このため、微量な放射性よう素濃度は分析用陽イオン交換膜を使用して妨害となる $^{24}\text{Na}$ を分離した後に $\gamma$ 線スペクトルを測定して定量分析する方法で実施した。まず、正確に $100\text{cm}^3$ の一次冷却材を採取し、口径 $0.45\mu\text{m}$ のミリポアフィルターで試料水を吸引濾過してCRUD状の放射性腐食生成物を除去する。次に、濾液を陽イオン交換膜に通液して妨害となる陽イオン状の $^{24}\text{Na}$ を吸着除去する。陽イオン交換膜での処理液を陰イオン交換膜に通液して陰イオン状である放射性よう素を陰イオン交換膜に吸着させこれの $\gamma$ 線スペクトルを測定して放射性よう素濃度を求めた。放射性よう素の半減期、核分裂収率等をTable 5.7に示すが、イオン交換膜での分離操作に時間を要するために半減期の比較的長い $^{131}\text{I}$ が測定の対象核種となる。イオン交換膜を使用した放射化学分析結果では、放射性よう素の $^{131}\text{I}$ は、検出限界濃度(約 $2.1\text{Bq/cm}^3$ )以下であった。このため、一次冷却系内の付着ウラン量は、放射性よう素 $^{131}\text{I}$ の検出限界濃度である約 $2.1\text{Bq/cm}^3$ から計算によって推定した。

### 5.3.3 一次冷却材中の放射性よう素濃度からの付着ウランの推定量

原子炉プール水浄化系による除去と崩壊による減衰を考慮し、50%のFp核種が一次冷却材中に放出されるものと仮定すると付着ウランの原子個数 $N_{235}$ は、(6)式から求められる<sup>11)</sup>。

$$N_{235} = \frac{A_i \cdot V}{\phi_{th} \cdot \sigma_i \cdot Y_i \cdot C} \left( 1 + \frac{\beta}{\lambda_i} \right) \quad (6)$$

ここで

$A_i$ :一次冷却材中の放射性よう素濃度( $\text{Bq/cm}^3$ )

$V$ :一次冷却材量: $2.5 \times 10^8 (\text{cm}^3)$

$\beta$ :浄化係数( $\beta = Q/V \cdot \epsilon = 2.78 \times 10^{-5} \text{ sec}^{-1}$ )

$\epsilon$ :浄化効率(1)

$\lambda_i$ :崩壊定数( $^{131}\text{I}$ で $9.98 \times 10^{-7} \text{ sec}^{-1}$ )

$\phi_{th}$ :平均熱中性子束( $2.7 \times 10^{14} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ )

$\sigma_i$ :核分裂断面積( $587 \times 10^{-24} \text{ cm}^2$ ) 7)

$Y_i$ :核分裂収率( $^{131}\text{I}$ で2.84%)

$C$ :一次冷却材中へのFp核種の放出率(表面付着ウランの場合0.5)

また、付着ウランの重量 $W(\text{gr})$ は、(7)式で求められる。

$$W(\text{gr}) = \frac{N_{235} \cdot M}{A_0} \quad (7)$$

ここで

$W$ :付着ウラン重量( $\text{gr}$ )

M: ウランの質量(235)

A<sub>0</sub>: アボガドロ数( $6.023 \times 10^{23}$ 個)

$^{131}\text{I}$ の検出限界濃度の $2.1 \text{ Bq/cm}^3$ を(6)と(7)式に代入して $^{235}\text{U}$ 重量を求めるとき $2.63\text{mg}$ となり、一次冷却系内の付着ウラン量は $^{235}\text{U}$ 換算で約 $3\text{mg}$ 程度となる。燃料要素製作時においての表面付着ウランの許容率は、 $^{235}\text{U}$ 換算で $1\mu\text{g}/100\text{cm}^2$ 以下に規制されている。この許容付着ウラン率と燃料要素の接液面積から求めると $^{235}\text{U}$ 換算で約 $9\text{mg}$ のウラン量となる。上記の計算によって求めた一次冷却系内の付着ウラン量は、 $^{235}\text{U}$ 換算で約 $3\text{mg}$ となり燃料要素製作時においての表面付着ウラン率は、許容付着ウラン率の約 $1/3$ の約 $0.3\mu\text{g}/100\text{cm}^2$ 程度となった。

## 5.4 放射性核種濃度との破損燃料検出装置の計数値との関係

### 5.4.1 JRR-3MのF.F.Dの概要

原子炉運転中の破損燃料の検出方法には、<sup>12)</sup>

- ①  $\gamma$ 線測定法(Gamma emission)
- ② 遅発中性子法(Delaed-Neutron emission:DN法)
- ③ プレシピテーション法(Precipitation method)等がある。

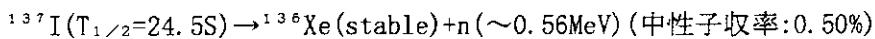
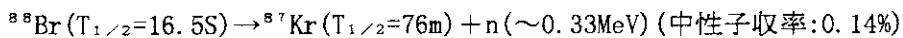
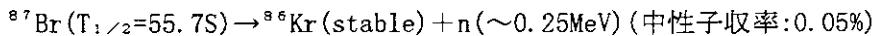
JRR-3MのF.F.Dの概略図をFig. 5.1示すが、 $\gamma$ 線測定法と遅発中性子法の二系列のF.F.Dを一次冷却系に設置して燃料破損の発生を監視すると共に放射化学分析でのFp核種分析によって燃料破損の発生を監視している。

#### 1) $\gamma$ 線測定法

JRR-3Mの $\gamma$ 線測定法の概略図をFig. 5.2に示すが、 $\gamma$ 線測定法は、炉心部からの到達時間が約38分の箇所に小型混床式イオン交換樹脂塔(陽イオン交換樹脂:300cm<sup>3</sup>, 陰イオン交換樹脂:600cm<sup>3</sup>の計900cm<sup>3</sup>)の樹脂量で浄化流量9 l/minを設置して陽イオンと陰イオン状の放射性物質やFP核種を除去した後にTable 5.8に示すFpガスのうちで1.7MeV以上の $\gamma$ 線エネルギーを放出する $^{88}\text{Kr}$ ( $T_{1/2}=2.80\text{H}$ ,  $\gamma_E=1.53\text{MeV}$ )や $^{138}\text{Xe}$ ( $T_{1/2}=14\text{M}$ ,  $\gamma_E=1.77\text{MeV}$ )の計数値をNaI(Tl)シンチレーション検出器で測定して計数値の変化から燃料破損の発生の有無を検出する方法である。 $\gamma$ 線測定法では、イオン交換樹脂の交換容量の低下に伴って吸着された放射性物質の脱着によってバックグラウンド計数値が上昇することと一次冷却材中に溶解しているイオン交換樹脂では除去されない放射性ガスの $^{41}\text{Ar}$ 濃度( $T_{1/2}=1.83\text{H}$ ,  $\gamma_E=1.293\text{MeV}$ )変化がバックグラウンド計数値の変化に寄与する。

#### 2) 遅発中性子法(DN法)

DN法は、一次冷却材中に含まれる一部のFp核種が放出する遅発中性子(Delaed-Neutron)をBF<sub>3</sub>検出器で測定して破損燃料の発生を検出する方法で概略図をFig. 5.3に示す。Fp核種のうちで以下の核種が遅発中性子を放出する(Table 5.9参照)<sup>13)</sup>。



また、Fp核種以外に8MeV以上のエネルギーを有する高速中性子と酸素の同位体であるの $^{17}\text{O}$ (存在比:0.037%)との $[^{17}\text{O}(\text{n}, \text{p})^{17}\text{N}]$ 反応によって生成される $^{17}\text{N}(T_{1/2}=4.16\text{S})$ が $^{17}\text{N} \rightarrow ^{16}\text{N}(T_{1/2}=7.13$

$S) + n$  ( $\sim 1.7 \text{ MeV}$ ) となって遅発中性子を放出するためにDN法の妨害核種となる。。この半減期の短い  $^{17}\text{N}$  を減衰させるために検出器までの到達時間を約60秒にして計測している。なお,  $^{87}\text{Br}$  ( $T_{1/2} = 55.6\text{S}$ ) の中性子収率が0.05%と少ないと  $^{88}\text{Br}$  ( $T_{1/2} = 16.5\text{S}$ ) 半減期が短いために燃料破損が発生した場合にはDN法で検出されるFp核種は, 放射性よう素の  $^{137}\text{I}$  ( $T_{1/2} = 24.5\text{S}$ ) となる。なお, エネルギーが2.23MeV以上の $\gamma$ 線と軽水中に約0.015%含まれる重水素との  $[D(\gamma, n)H]$  反応で光中性子(Photo Neutron)が放出されてDN法のバックグラウンドの計数値に寄与する。これに相当する $\gamma$ 線放出核種には, 高速中性子と酸素の同位体の  $^{16}\text{O}$  (存在比:99.759%)との  $[^{16}\text{O}(n, p)^{16}\text{N}]$  反応で生成される  $^{16}\text{N}$  ( $T_{1/2} = 16.6\text{s}$ ,  $\gamma_E: 6.13\text{MeV}, 7.11\text{MeV}$ ) と  $[^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}]$  の反応で生成される  $^{24}\text{Na}$  ( $T_{1/2} = 15.4\text{H}$ ,  $\gamma_E: 1.37\text{MeV}, 2.75\text{MeV}$ ) がある。  $^{16}\text{N}$  は, 短半減期核種であることから減衰タンクで減衰するために  $^{24}\text{Na}$  核種から放出される $\gamma$ 線と重水素との反応で発生する光中性子がDN法のバックグラウンド計数値に寄与することになる。

#### 5.4.2 放射性核種濃度とF. F. Dの計数値との関係

$\gamma$ 線測定法に設置されている小型混床式イオン交換樹脂塔の交換前後のF. F. Dの計数値と  $^{41}\text{Ar}$  濃度及び  $^{24}\text{Na}$  濃度の変化をTable 5.10に示す。また,  $\gamma$ 線測定法の計数値と  $^{41}\text{Ar}$  濃度の変化をFig. 5.4に, DN法の計数値と  $^{24}\text{Na}$  濃度の変化をFig. 5.5に示す。イオン交換樹脂塔交換後の $\gamma$ 線測定法の計数値は, 一次冷却材中に溶解している放射性ガスの  $^{41}\text{Ar}$  濃度変化と一致している。イオン交換樹脂塔の交換後での破損燃料のない場合の換算係数は, 約  $1 \times 10^3 \text{ Bq/cm}^3/\text{cps}$  から約  $5 \times 10^3 \text{ Bq/cm}^3/\text{cps}$  程度の範囲となる。燃料破損が発生した場合には, Fpガスの  $^{88}\text{Kr}$ ,  $^{138}\text{Xe}$  等が含まれてくるために計数値が上昇して換算係数が低下することになる。 $\gamma$ 線測定法に設置されている小型混床式イオン交換樹脂塔には, 約  $0.9\text{l}$  のイオン交換樹脂が使用されている。原子炉プール浄化系で使用されている混床式イオン交換樹脂塔の使用実績から樹脂の処理能力は, 約  $70\text{m}^3/\text{l-resin}$  であり小型混床式イオン交換樹脂塔の樹脂量は  $0.9\text{l}$  であるから約  $60\text{m}^3$  の水処理量となる。 $\gamma$ 線測定法に設置されている小型混床式イオン交換樹脂塔の浄化流量が約  $9\text{l/hr}$  であるから10サイクル程度の使用でイオン交換樹脂の交換容量が低下する。従って,  $\gamma$ 線測定法に使用されている小型混床式イオン交換樹脂塔の使用期間は, 約1年程度となる。樹脂の処理能力以上に小型イオン交換樹脂塔を使用した場合には, 交換容量の低下に伴って吸着されていた放射性物質が脱着されて  $\gamma$ 線測定法のバックグラウンド計数値が上昇し検出感度が低下することになる。一方, DN法の計数値には, イオン交換樹脂の交換前後では特に変化は認められず, 一次冷却材中の  $^{24}\text{Na}$  濃度変化とほぼ一致して変化し, 破損燃料のない場合の換算係数は約  $4 \times 10^2 \text{ Bq/cm}^3/\text{cps}$  から約  $6 \times 10^2 \text{ Bq/cm}^3/\text{cps}$  程度の範囲となる。燃料破損が発生した場合には, Fp核種の  $^{137}\text{I}$  が含まれてくるために計数値が上昇して換算係数が低下することになる。燃料破損の発生初期には, Fpガスの  $^{88}\text{Kr}$ ,  $^{133}\text{Xe}$ ,  $^{135}\text{Xe}$  等が一次冷却材中に放出されるために  $\gamma$ 線測定法の計数値が先に上昇し, 次に, 一次冷却材に可溶性の放射性よう素  $^{137}\text{I}$  が含まれることによってDN法の計数値が徐々に上昇する。破損規模が拡大してくると放射性よう素以外のFp核種( $^{138}\text{Cs}$ ,  $^{139}\text{Ba}$ 及び $^{88}\text{Rb}$ 等)が一次冷却材に含まれ, 全 $\beta$ ・ $\gamma$ 放射能濃度が上昇する。さらに, 破損規模が拡大してくると天然ウランから生成される  $^{239}\text{Np}$  が含まれ, これが崩壊して  $^{239}\text{Pu}$  となり $\alpha$ 汚染となる。このように燃料の破損規模によって  $\gamma$ 線測定法とDN法の計数値が変化し, 一次冷却材に含まれるFp核種の種類と濃度も異なってくる。1972年に, JRR-2において板状燃料が破損した時の経験では, バックグラウンドのウラン量( $^{235}\text{U}$ で約0.5mg)の約10倍

の4.5mgで一次冷却重水系に設置されているDN法の計数値が約1.8倍、重水のカバーガスであるヘリウム系に設置されている $\gamma$ 線測定法の計数値が約3.4倍まで上昇した。また、1973年にはバックグラウンドのウラン量の約20倍の8.8mgでDN法の計数値が約2.6倍、ヘリウム系の $\gamma$ 線測定法の計数値が約8.9倍まで上昇した<sup>14)</sup>。JRR-2における以上の経験からJRR-3Mでは、バックグラウンドの付着ウラン量( $^{235}\text{U}$ で約3mg)の約10倍、即ち約30mgの汚染ウラン量の破損規模となった場合にはF.F.Dの計数値が上昇して燃料破損の検出が可能と考えられる。破損規模にもよるが、燃料破損の発生によって一次冷却系内がFp核種によって汚染されるとF.F.Dのバックグラウンドの計数値が上昇してその後での燃料破損の早期検出が困難となる。JRR-3MのF.F.Dには、ロケーション機能が付属されていないため破損燃料が発生した場合には、JRR-2と同様なインコアシッピング法によるロケーションを実施し、破損燃料体を早期に検出して炉心から取り出すことになる<sup>14)</sup>。インコアシッピングによる破損燃料体のロケーションは、一次冷却系を静止した状態で各々の燃料要素上部から一次冷却材を採取して全 $\gamma$ 放射能濃度とFp核種濃度(主として $^{131}\text{I}$ ,  $^{133}\text{I}$ 並びにFpガスの $^{135}\text{Xe}$ )を測定してこれらの濃度差から破損燃料体を検出する方法となる。

## 6. あとがき

一次冷却系の放射化学分析による $^{24}\text{Na}$ 濃度から炉心領域と重水タンク内における平均的な中性子束を求めることができた。また、一次冷却材中の $\gamma$ 線放出核種濃度分析の結果から求めたアルミニウム材の腐食率は、約5mdd( $6.8 \times 10^{-2}\text{mm/yr}$ )でJRR-3Mの設計で採用した値と同程度となった。重水タンクの内胴板の厚さは、約10mmであることから充分に安全側となっている。一次冷却材中のバックグラウンドとしての付着ウラン量は約3mgとなり燃料要素の表面付着ウラン率は、約0.3 $\mu\text{g}/100\text{cm}^2$ 程度と考えられる。燃料破損が検出された場合の原子炉停止直後のインコアシッピングによるロケーション作業において放射性元素濃度を精度良く測定するためには一次冷却材中の主要核種である $^{24}\text{Na}$ による妨害を除去する必要があり、この方法には今回採用したイオン交換膜による放射性核種の分離分析法が適用可能となる。原子炉運転中の原子炉冷却系の放射化学分析による炉構成材の腐食監視や破損燃料の発生監視による冷却系の汚染拡大防止対策を講ずることによって原子炉の保守・点検作業時における放射線被曝の抑制が可能となり、原子炉の運転管理や保守作業が容易となる。また、原子炉停止期間中の定期検査項目の一環として実施している放射化学分析による熱交換器や重水タンク等の使用機器の健全性の確認によって原子炉の安全且つ安定運転の維持が可能となる。なお、今後の課題としては、安全で安定な原子炉の運転を長期的に維持するためにさらに迅速で精度のよい放射化学分析方法を開発する必要があるものと考えられる。

謝寸　　舌辛

本報告書の作成に際して谷JRR-3管理課課長代理、坪長研究炉技術開発室技術管理グループリーダーから種々の助言を戴きました。また、高柳政二研究炉部次長並びに市川博喜研究炉技術開発室長から御指導を戴きましたことに対し深く感謝致します。

の4.5mgで一次冷却重水系に設置されているDN法の計数値が約1.8倍、重水のカバーガスであるヘリウム系に設置されている $\gamma$ 線測定法の計数値が約3.4倍まで上昇した。また、1973年にはバックグラウンドのウラン量の約20倍の8.8mgでDN法の計数値が約2.6倍、ヘリウム系の $\gamma$ 線測定法の計数値が約8.9倍まで上昇した<sup>14)</sup>。JRR-2における以上の経験からJRR-3Mでは、バックグラウンドの付着ウラン量( $^{235}\text{U}$ で約3mg)の約10倍、即ち約30mgの汚染ウラン量の破損規模となった場合にはF.F.Dの計数値が上昇して燃料破損の検出が可能と考えられる。破損規模にもよるが、燃料破損の発生によって一次冷却系内がFp核種によって汚染されるとF.F.Dのバックグラウンドの計数値が上昇してその後での燃料破損の早期検出が困難となる。JRR-3MのF.F.Dには、ロケーション機能が付属されていないため破損燃料が発生した場合には、JRR-2と同様なインコアシッピング法によるロケーションを実施し、破損燃料体を早期に検出して炉心から取り出すことになる<sup>14)</sup>。インコアシッピングによる破損燃料体のロケーションは、一次冷却系を静止した状態で各々の燃料要素上部から一次冷却材を採取して全 $\gamma$ 放射能濃度とFp核種濃度(主として $^{131}\text{I}$ ,  $^{133}\text{I}$ 並びにFpガスの $^{135}\text{Xe}$ )を測定してこれらの濃度差から破損燃料体を検出する方法となる。

## 6. あとがき

一次冷却系の放射化学分析による $^{24}\text{Na}$ 濃度から炉心領域と重水タンク内における平均的な中性子束を求めることができた。また、一次冷却材中の $\gamma$ 線放出核種濃度分析の結果から求めたアルミニウム材の腐食率は、約5mdd( $6.8 \times 10^{-2}\text{mm/yr}$ )でJRR-3Mの設計で採用した値と同程度となった。重水タンクの内胴板の厚さは、約10mmであることから充分に安全側となっている。一次冷却材中のバックグラウンドとしての付着ウラン量は約3mgとなり燃料要素の表面付着ウラン率は、約0.3 $\mu\text{g}/100\text{cm}^2$ 程度と考えられる。燃料破損が検出された場合の原子炉停止直後のインコアシッピングによるロケーション作業において放射性元素濃度を精度良く測定するためには一次冷却材中の主要核種である $^{24}\text{Na}$ による妨害を除去する必要があり、この方法には今回採用したイオン交換膜による放射性核種の分離分析法が適用可能となる。原子炉運転中の原子炉冷却系の放射化学分析による炉構成材の腐食監視や破損燃料の発生監視による冷却系の汚染拡大防止対策を講ずることによって原子炉の保守・点検作業時における放射線被曝の抑制が可能となり、原子炉の運転管理や保守作業が容易となる。また、原子炉停止期間中の定期検査項目の一環として実施している放射化学分析による熱交換器や重水タンク等の使用機器の健全性の確認によって原子炉の安全且つ安定運転の維持が可能となる。なお、今後の課題としては、安全で安定な原子炉の運転を長期的に維持するためにさらに迅速で精度のよい放射化学分析方法を開発する必要があるものと考えられる。

謹寸 舌辛

本報告書の作成に際して谷JRR-3管理課課長代理、坪長研究炉技術開発室技術管理グループリーダーから種々の助言を戴きました。また、高柳政二研究炉部次長並びに市川博喜研究炉技術開発室長から御指導を戴きましたことに対し深く感謝致します。

の4.5mgで一次冷却重水系に設置されているDN法の計数値が約1.8倍、重水のカバーガスであるヘリウム系に設置されている $\gamma$ 線測定法の計数値が約3.4倍まで上昇した。また、1973年にはバックグラウンドのウラン量の約20倍の8.8mgでDN法の計数値が約2.6倍、ヘリウム系の $\gamma$ 線測定法の計数値が約8.9倍まで上昇した<sup>14)</sup>。JRR-2における以上の経験からJRR-3Mでは、バックグラウンドの付着ウラン量( $^{235}\text{U}$ で約3mg)の約10倍、即ち約30mgの汚染ウラン量の破損規模となった場合にはF.F.Dの計数値が上昇して燃料破損の検出が可能と考えられる。破損規模にもよるが、燃料破損の発生によって一次冷却系内がFp核種によって汚染されるとF.F.Dのバックグラウンドの計数値が上昇してその後での燃料破損の早期検出が困難となる。JRR-3MのF.F.Dには、ロケーション機能が付属されていないため破損燃料が発生した場合には、JRR-2と同様なインコアシッピング法によるロケーションを実施し、破損燃料体を早期に検出して炉心から取り出すことになる<sup>14)</sup>。インコアシッピングによる破損燃料体のロケーションは、一次冷却系を静止した状態で各々の燃料要素上部から一次冷却材を採取して全 $\gamma$ 放射能濃度とFp核種濃度(主として $^{131}\text{I}$ ,  $^{133}\text{I}$ 並びにFpガスの $^{135}\text{Xe}$ )を測定してこれらの濃度差から破損燃料体を検出する方法となる。

## 6. あとがき

一次冷却系の放射化学分析による $^{24}\text{Na}$ 濃度から炉心領域と重水タンク内における平均的な中性子束を求めることができた。また、一次冷却材中の $\gamma$ 線放出核種濃度分析の結果から求めたアルミニウム材の腐食率は、約5mdd( $6.8 \times 10^{-2}\text{mm/yr}$ )でJRR-3Mの設計で採用した値と同程度となった。重水タンクの内胴板の厚さは、約10mmであることから充分に安全側となっている。一次冷却材中のバックグラウンドとしての付着ウラン量は約3mgとなり燃料要素の表面付着ウラン率は、約0.3 $\mu\text{g}/100\text{cm}^2$ 程度と考えられる。燃料破損が検出された場合の原子炉停止直後のインコアシッピングによるロケーション作業において放射性元素濃度を精度良く測定するためには一次冷却材中の主要核種である $^{24}\text{Na}$ による妨害を除去する必要があり、この方法には今回採用したイオン交換膜による放射性核種の分離分析法が適用可能となる。原子炉運転中の原子炉冷却系の放射化学分析による炉構成材の腐食監視や破損燃料の発生監視による冷却系の汚染拡大防止対策を講ずることによって原子炉の保守・点検作業時における放射線被曝の抑制が可能となり、原子炉の運転管理や保守作業が容易となる。また、原子炉停止期間中の定期検査項目の一環として実施している放射化学分析による熱交換器や重水タンク等の使用機器の健全性の確認によって原子炉の安全且つ安定運転の維持が可能となる。なお、今後の課題としては、安全で安定な原子炉の運転を長期的に維持するためにさらに迅速で精度のよい放射化学分析方法を開発する必要があるものと考えられる。

謝寸　　舌辛

本報告書の作成に際して谷JRR-3管理課課長代理、坪長研究炉技術開発室技術管理グループリーダーから種々の助言を戴きました。また、高柳政二研究炉部次長並びに市川博喜研究炉技術開発室長から御指導を戴きましたことに対し深く感謝致します。

参考文献

- 1) 鈴木義雄・根本剛・吉島哲夫他「JRR-2の重水中の放射性核種」, JAERI-M 4771(1972).
- 2) JAERI Internal Report, July, 1981.
- 3) JAERI Internal Report, August, 1979.
- 4) 戸根弘人・山本克宗他「JMTRの水化学」, JAERI 1213(1972).
- 5) Theodore Rockwell III:REACTOR SHIELDING DESIGN MANUAL(1956).
- 6) 川崎正之・野村末雄他「Corrosion of Aluminum in water」, JAERI-1035(1963).
- 7) 番場正男・宮坂靖彦・山口森他「重水タンクシール及び炉心上部遮蔽体の改修」(JRR-2改修工事), JAERI-M 7617(1978).
- 8) 米沢, 星:分析化学, 39, 25(1989).
- 9) JAERI Internal Report, December, 1985.
- 10) 吉島哲夫・落合政昭 他, 化学試験及び放射化学試験(原子力船「むつ」出力上昇試験報告), JAERI-M 92-002(1992).
- 11) 研究炉部, 平成元年度研究炉部年報「運転・利用と研究・技術開発」JAERI-M 89-136(1991).
- 12) IAEA, Detection and Location of Failed Fuel Elements(1968).
- 13) M. E. Meek and B. F. Rider:Compilation of Fission Products Yields, Vallecitos Nuclear Center, NEDO-12154-1(1974).
- 14) 鈴木義雄・吉島哲夫・近藤忠美他「JRR-2における破損燃料要素のロケーション」, JAERI-M 6862(1977).

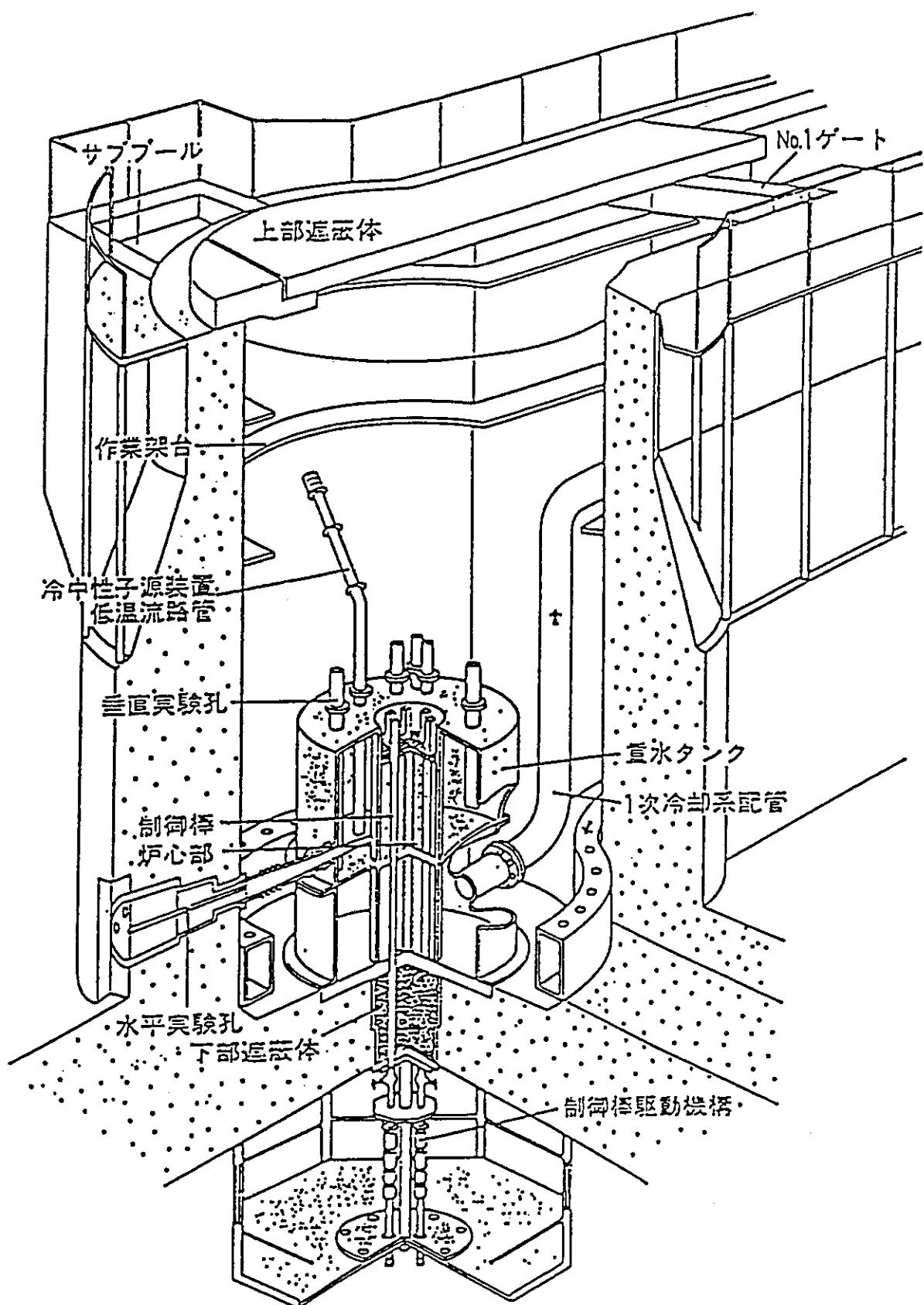


Fig. 2.1 Cutaway view of the JRR-3M reactor core tank

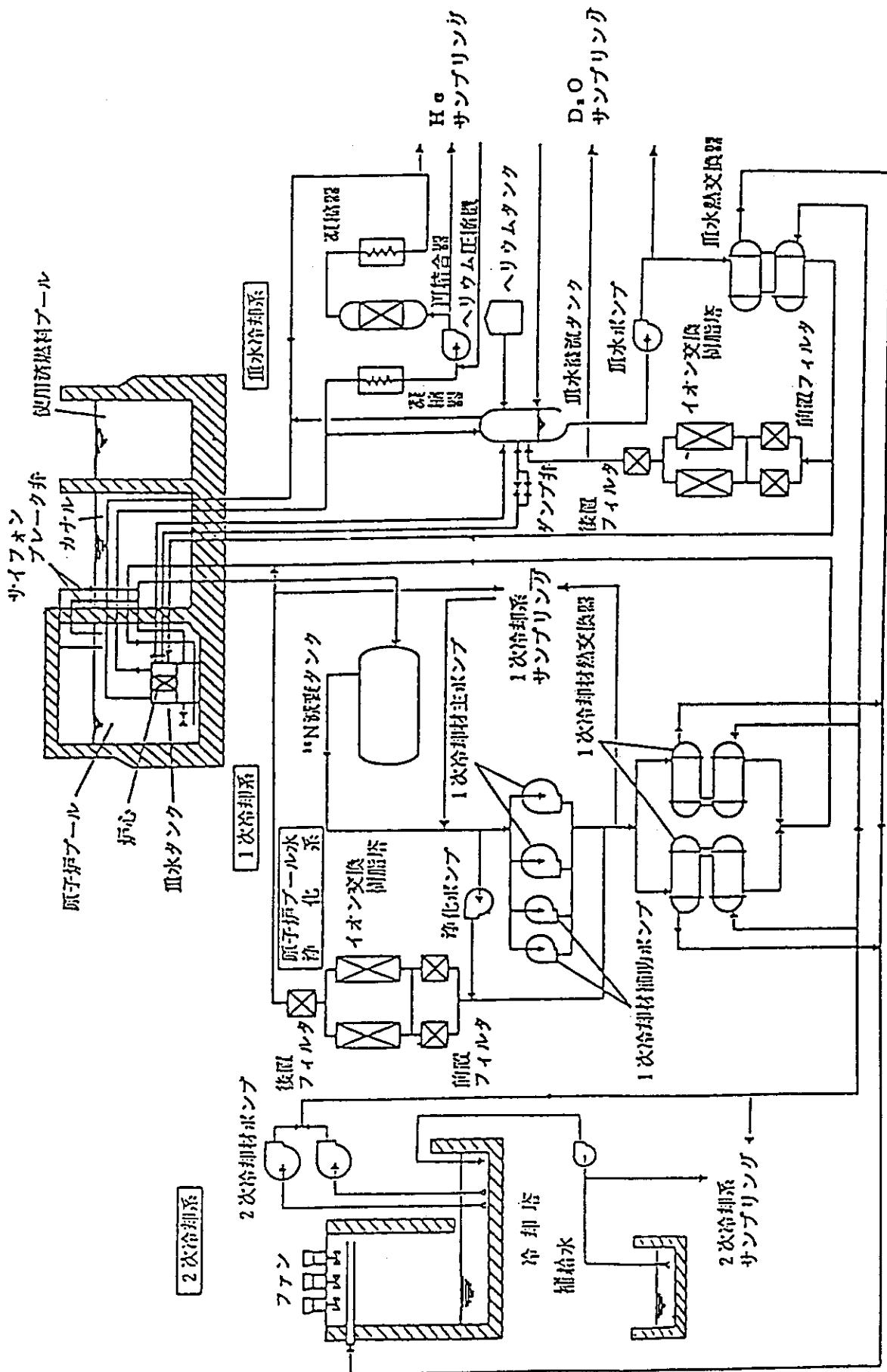


Fig. 2.2 Schematic flow diagram of the JRR-3M cooling systems

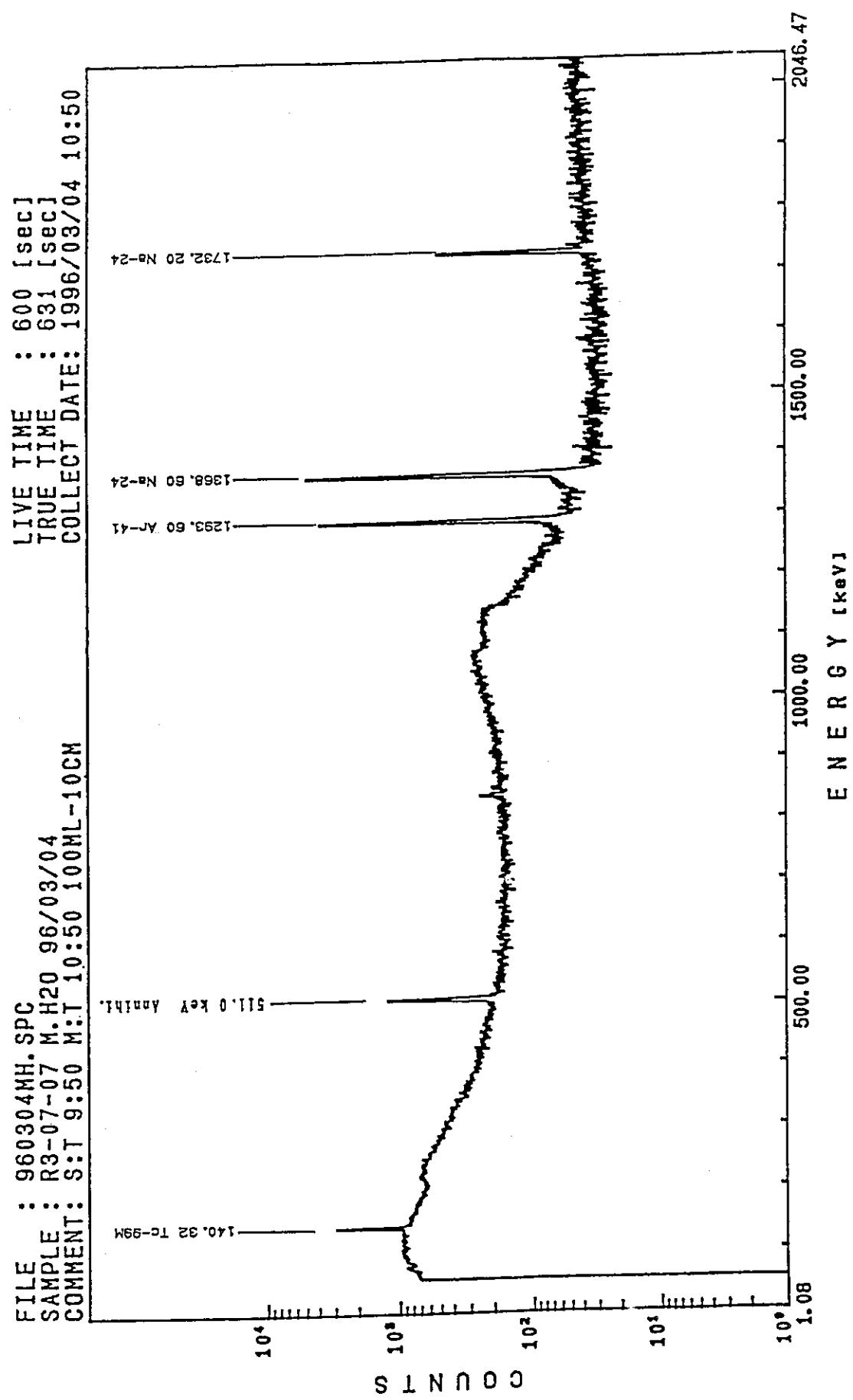


Fig. 4.1 Gamma-ray spectrum of the primary cooling water

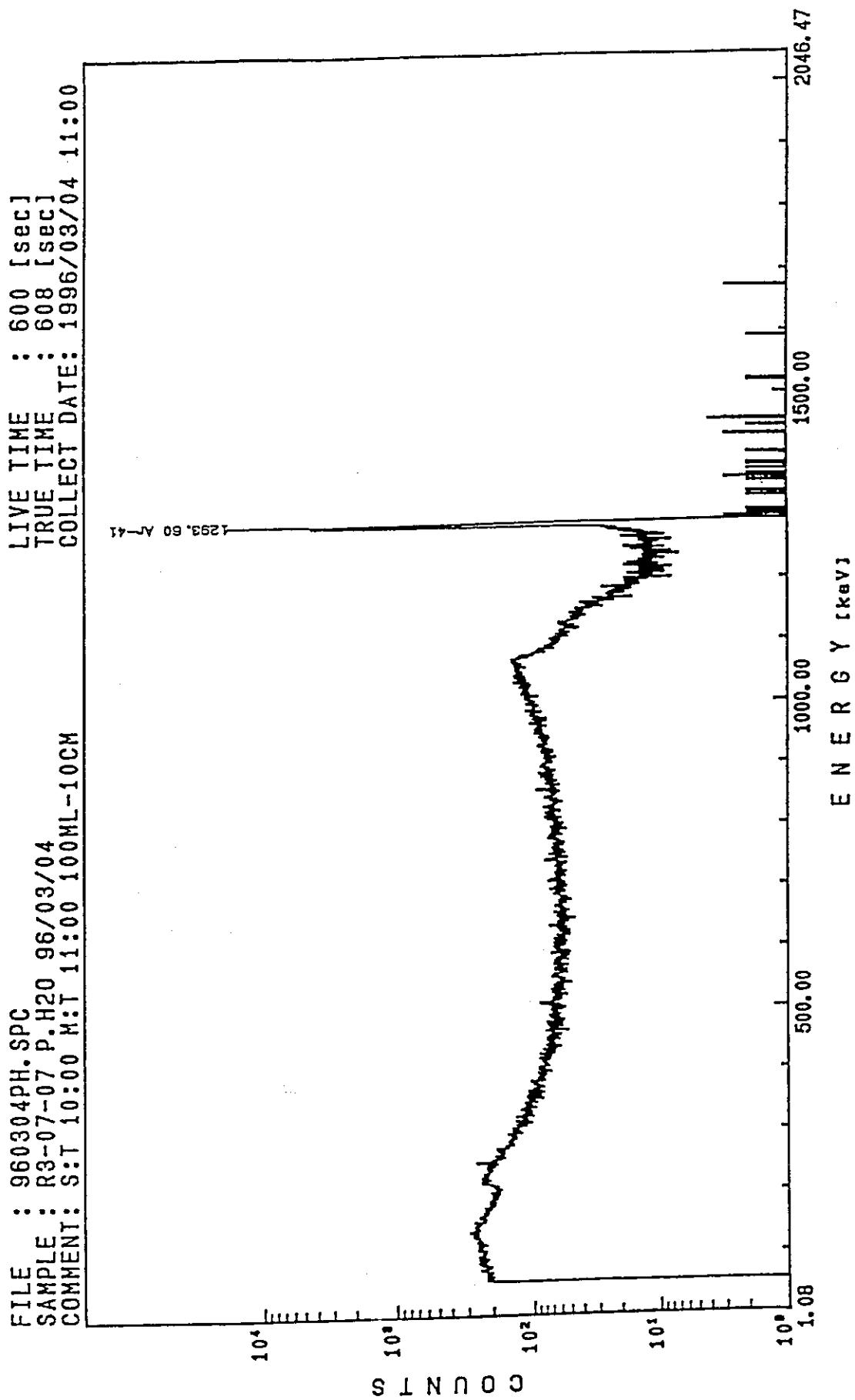


Fig. 4.2 Gamma-ray spectrum of the demineralized water

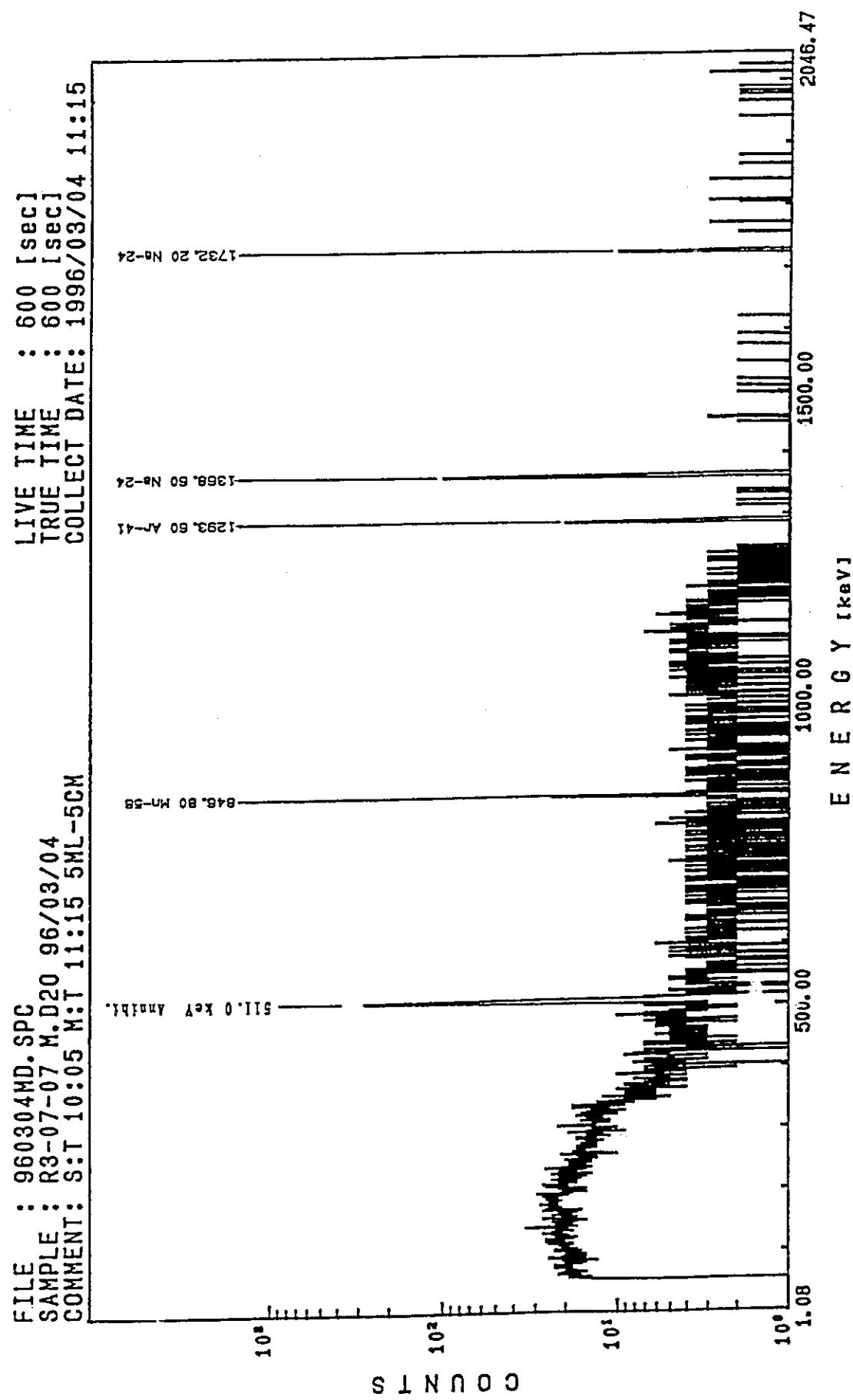


Fig. 4.3 Gamma-ray spectrum of the heavy water

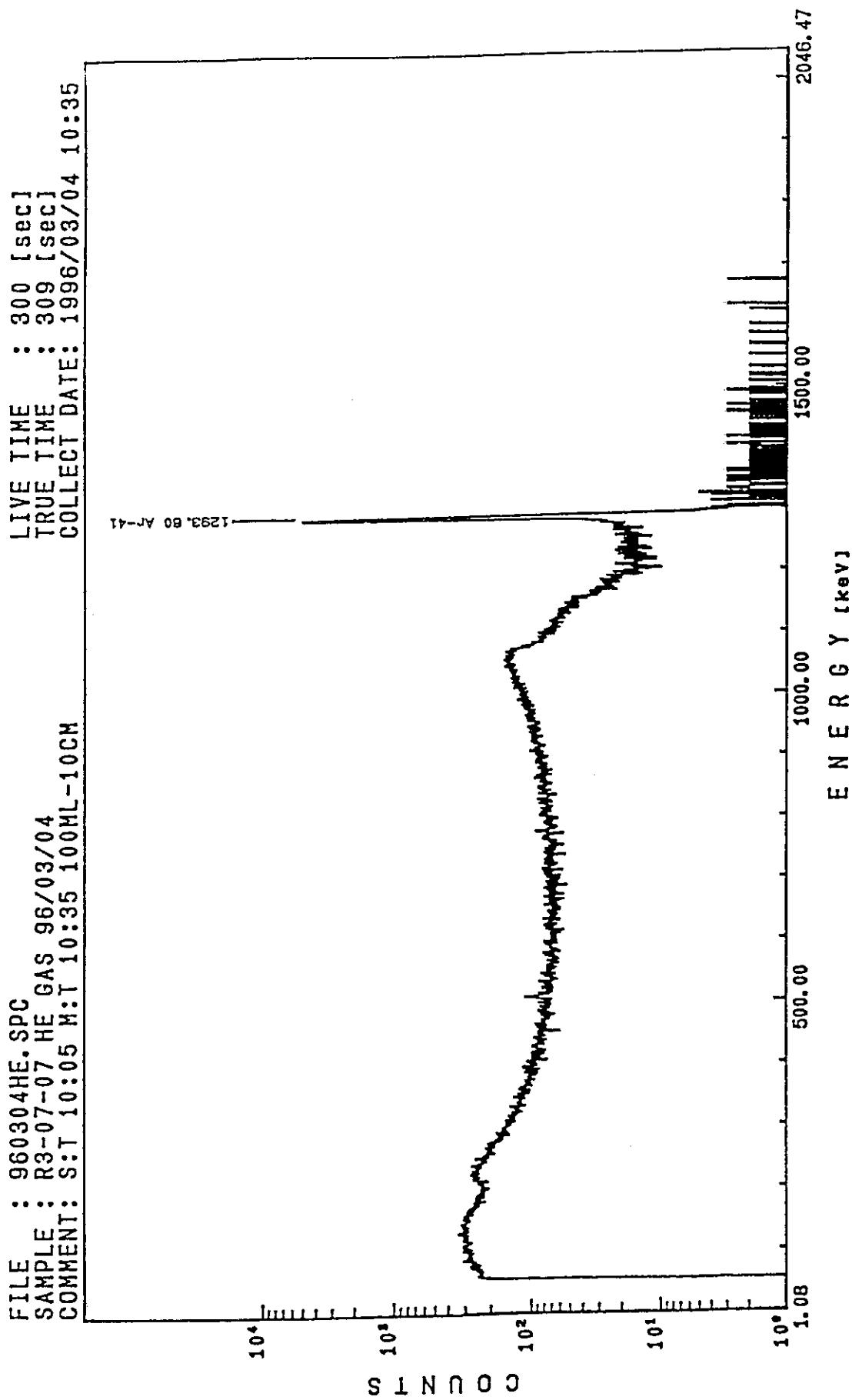
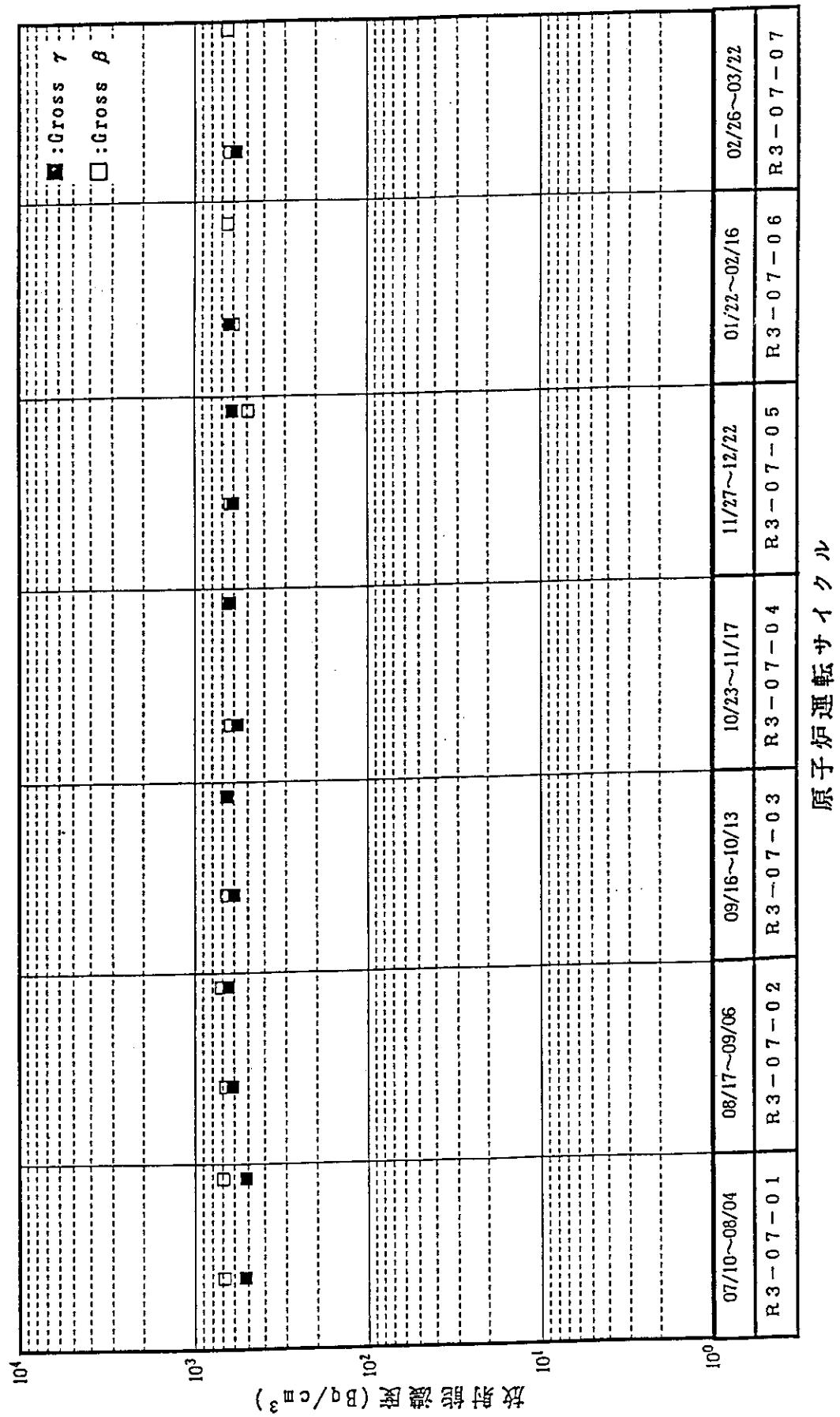


Fig. 4.4 Gamma-ray spectrum of the helium gas

Fig. 4.5 Variation of Gross  $\beta + \gamma$  activity of the primary cooling water

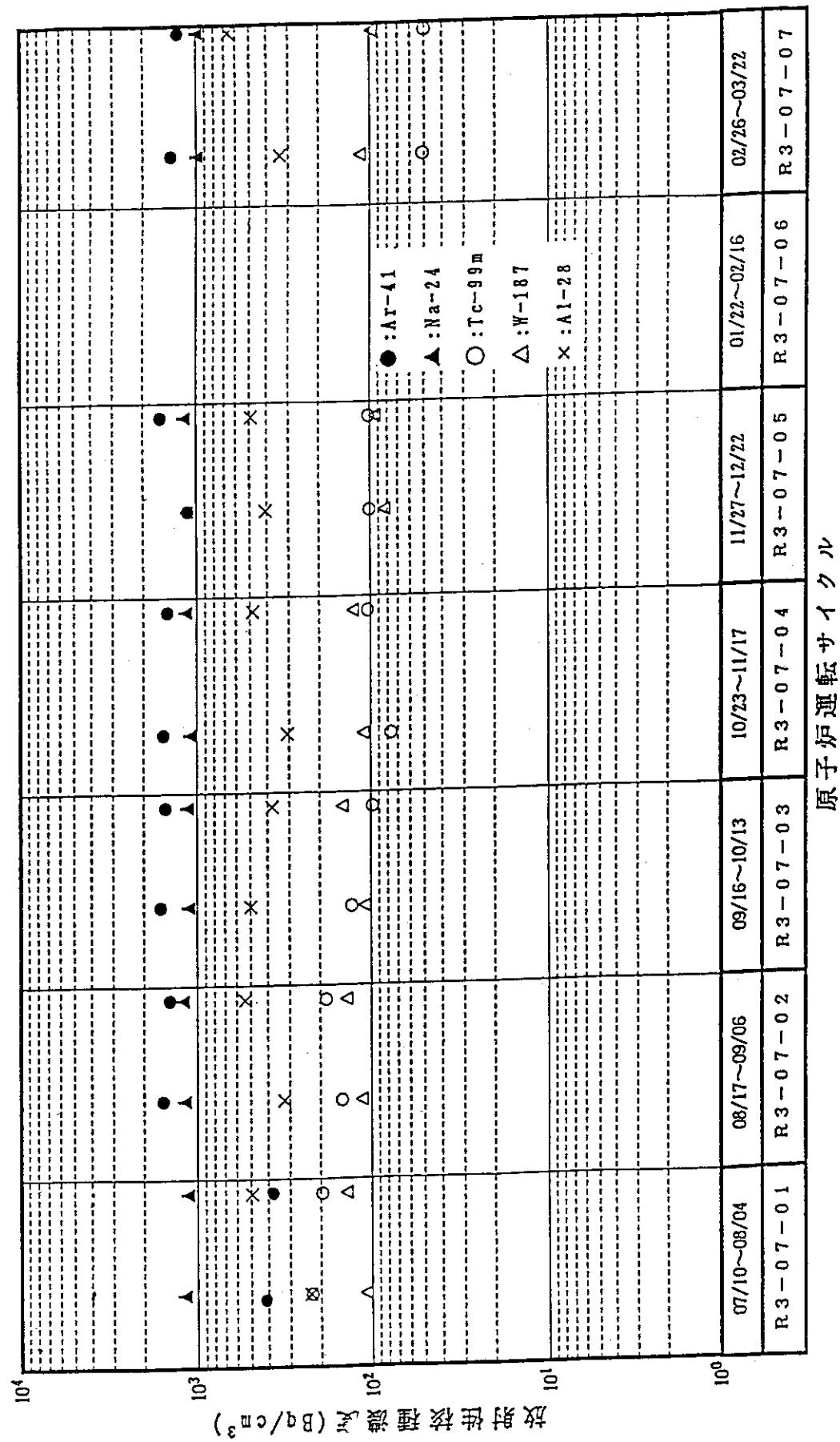
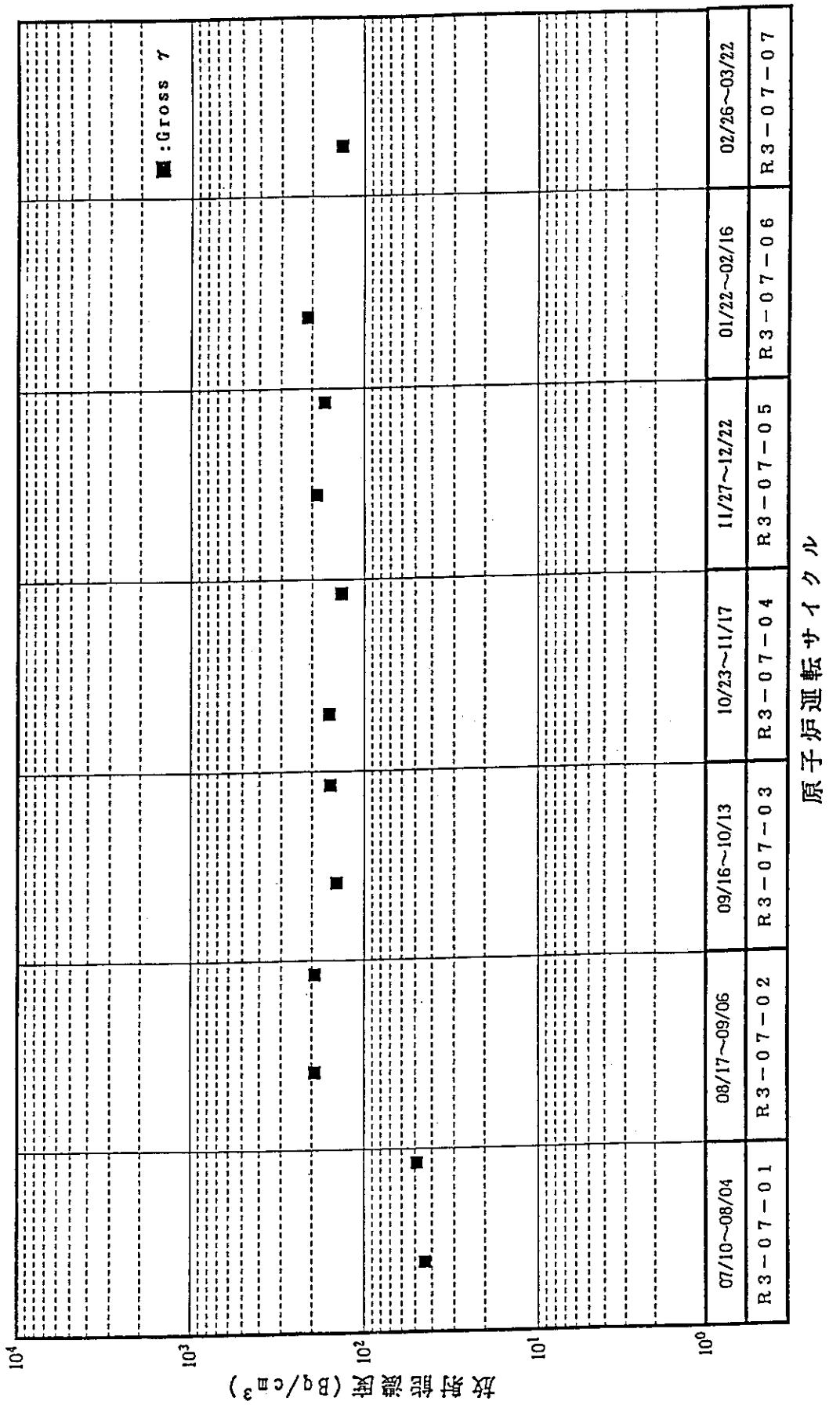


Fig. 4.6 Variation of radionuclides of the primary cooling water

Fig. 4.7 Variation of Gross  $\gamma$  activity of the demineralized water

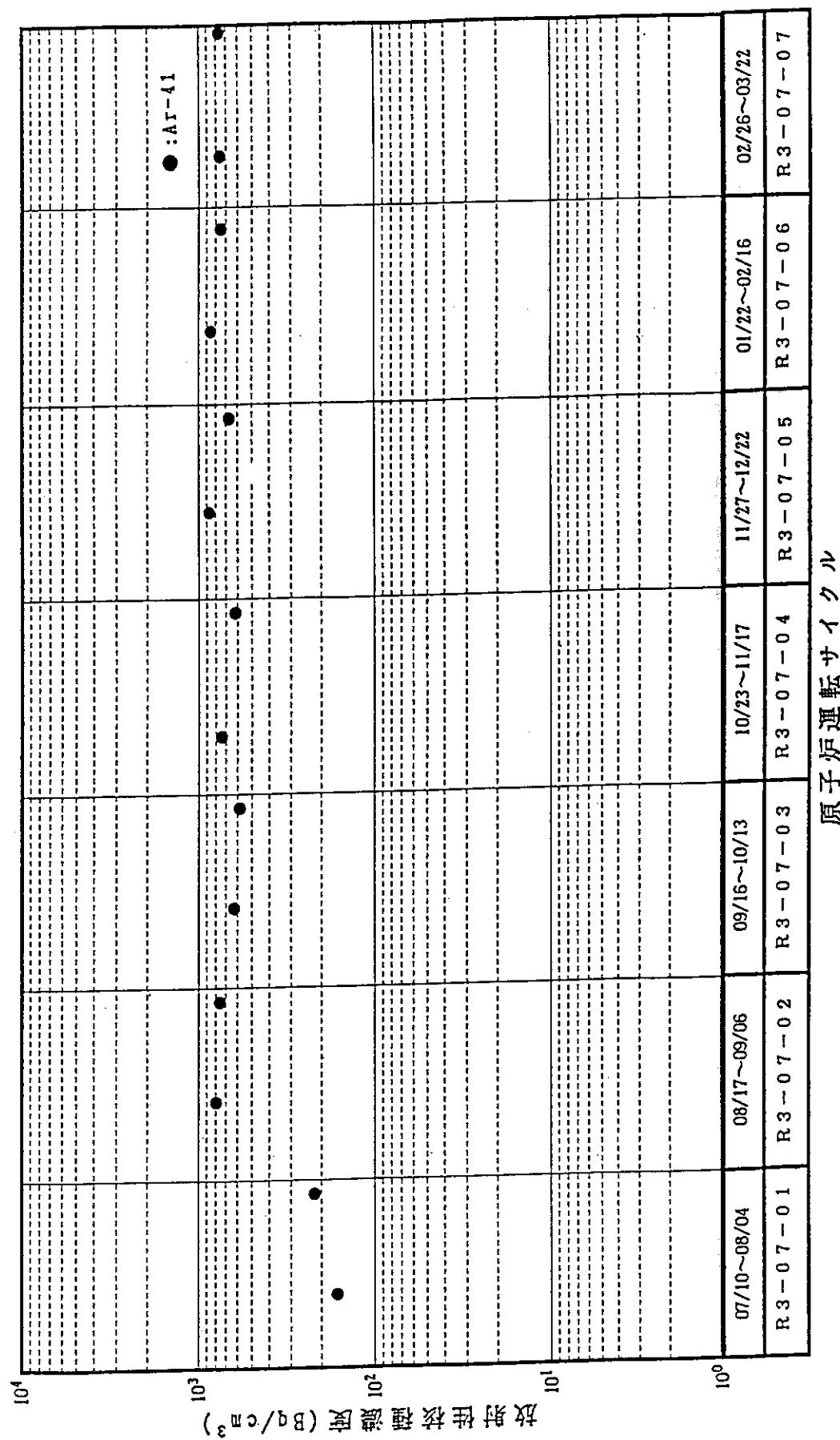
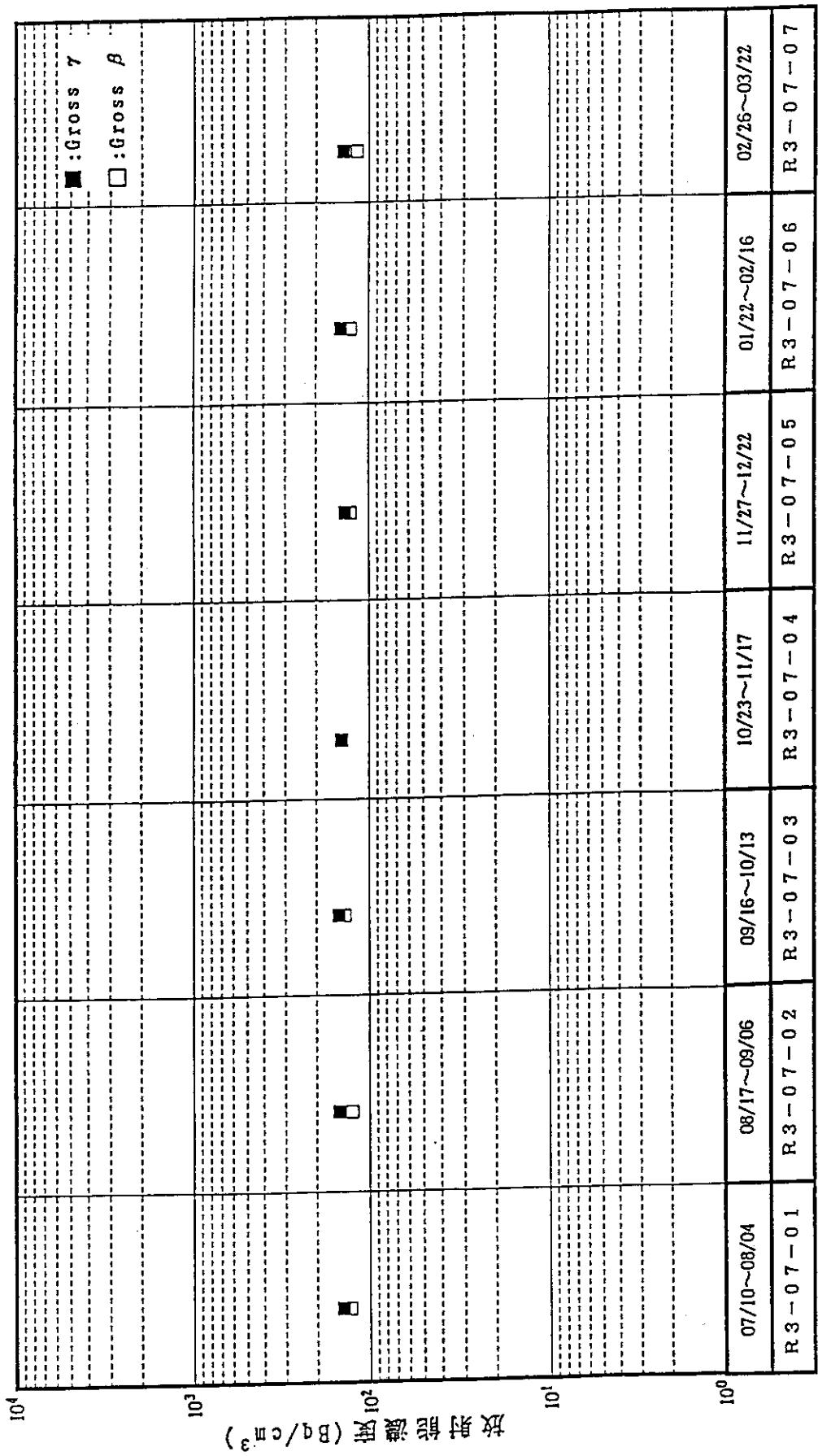


Fig. 4.8 Variation of radionuclides of the demineralized water



原子炉運転サイクル

Fig. 4.9 Variation of Gross  $\beta$  •  $\gamma$  activity of the heavy water

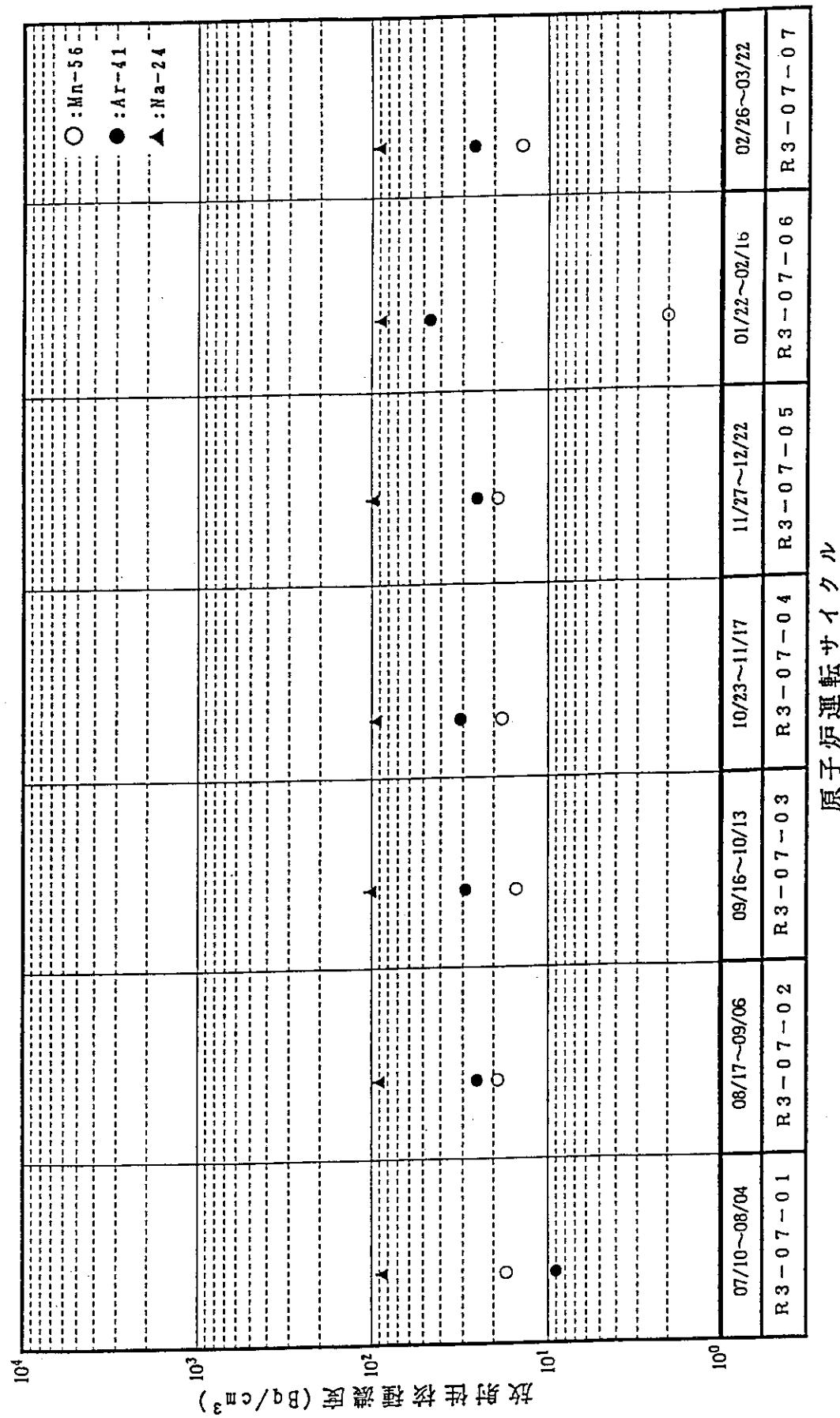


Fig. 4.10 Variation of radionuclides of the heavy water

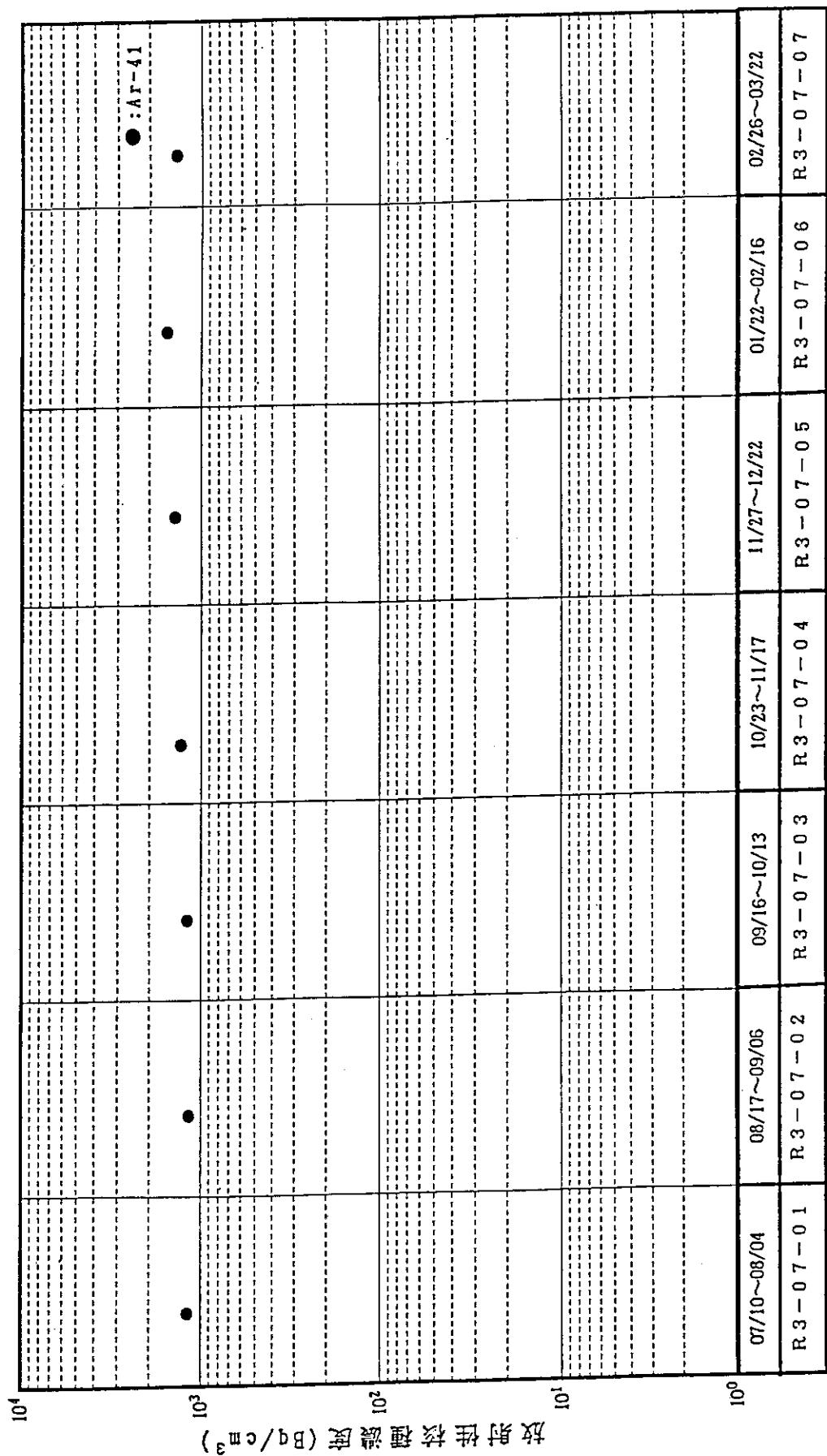


Fig. 4.11 Variation of radionuclides of the helium gas

原子炉運転サイクル

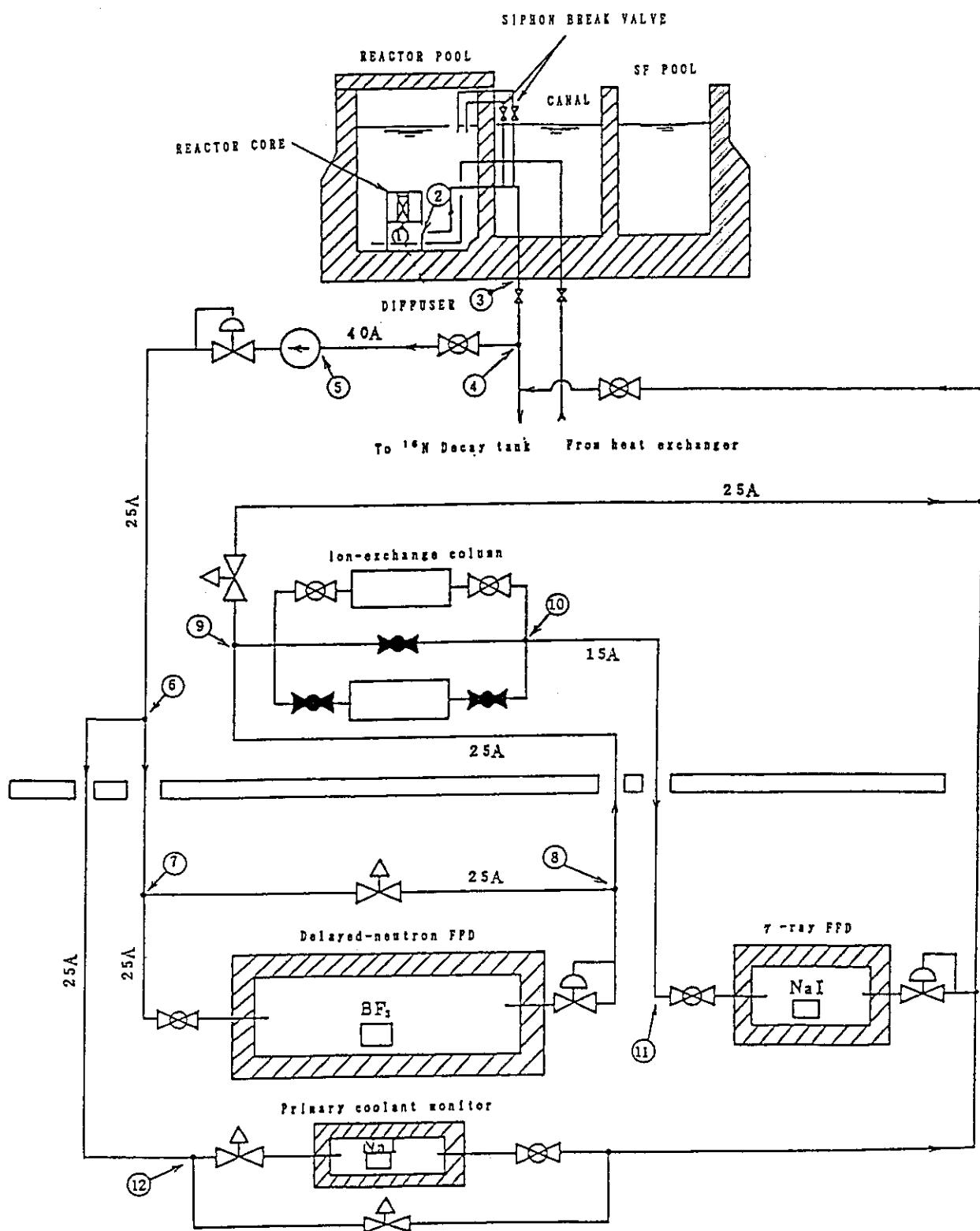


Fig. 5.1 Schematic diagram in JRR-3M F.F.D

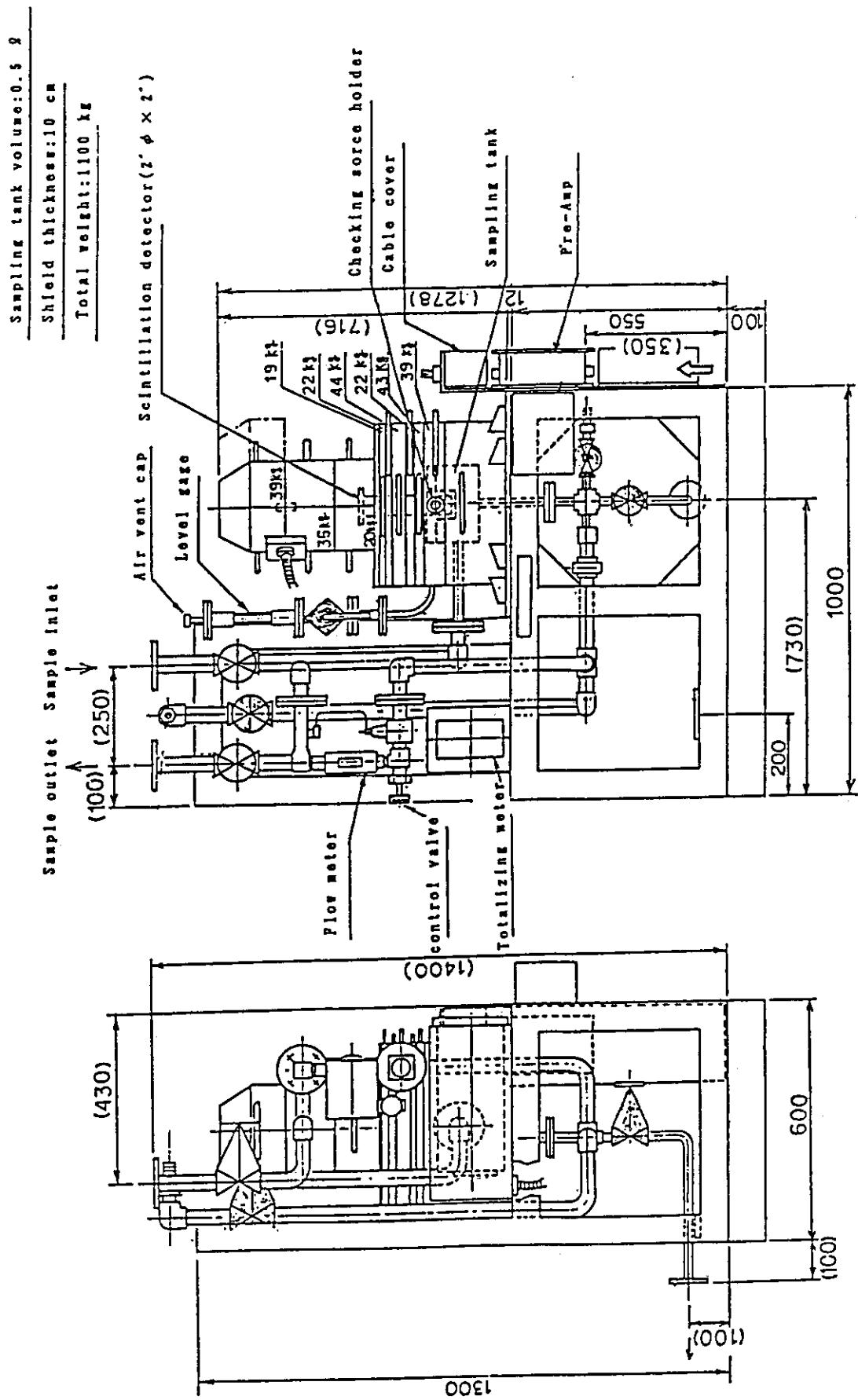


Fig. 5.2  $\gamma$  ray method F.F.D in JRR-3M

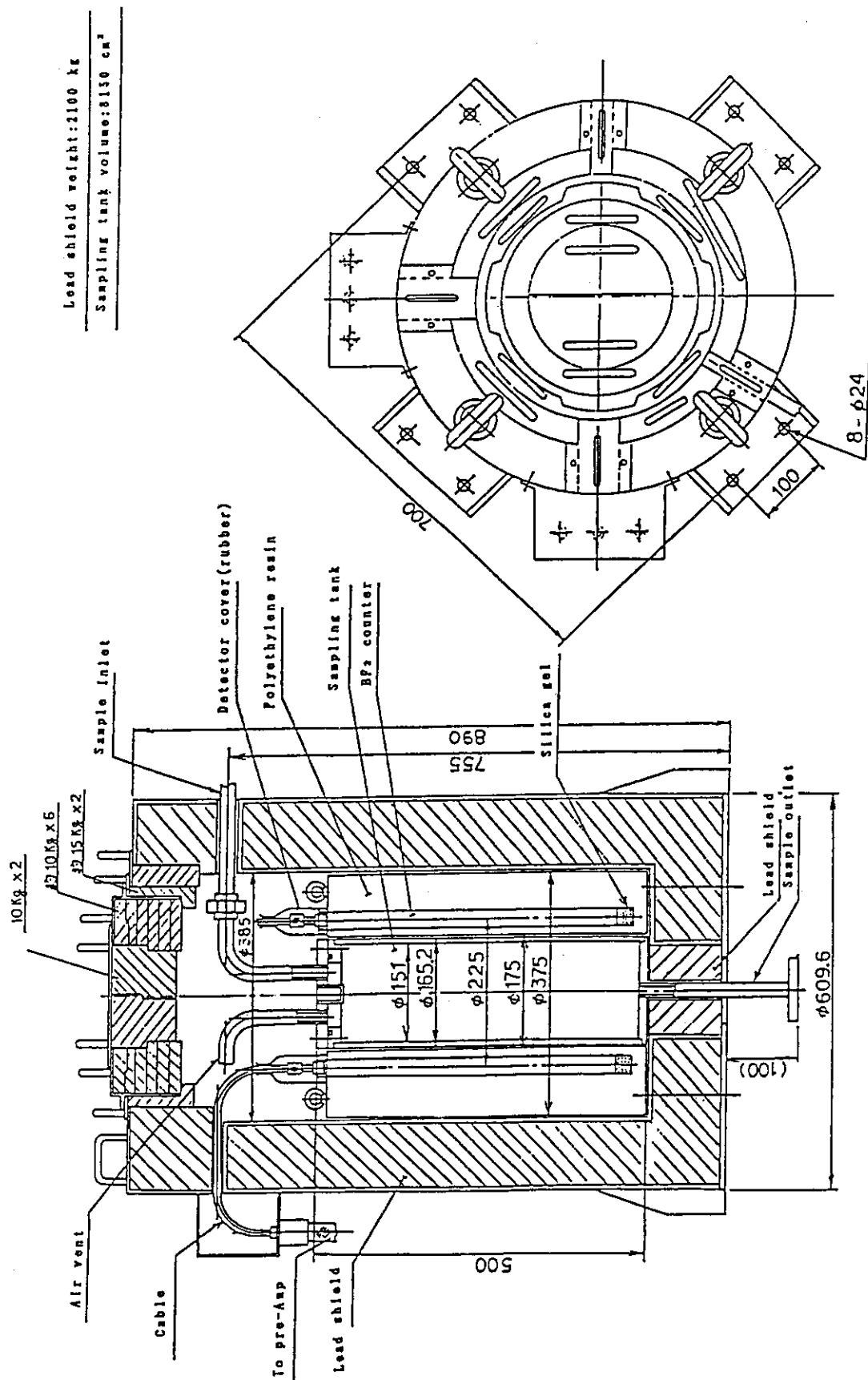
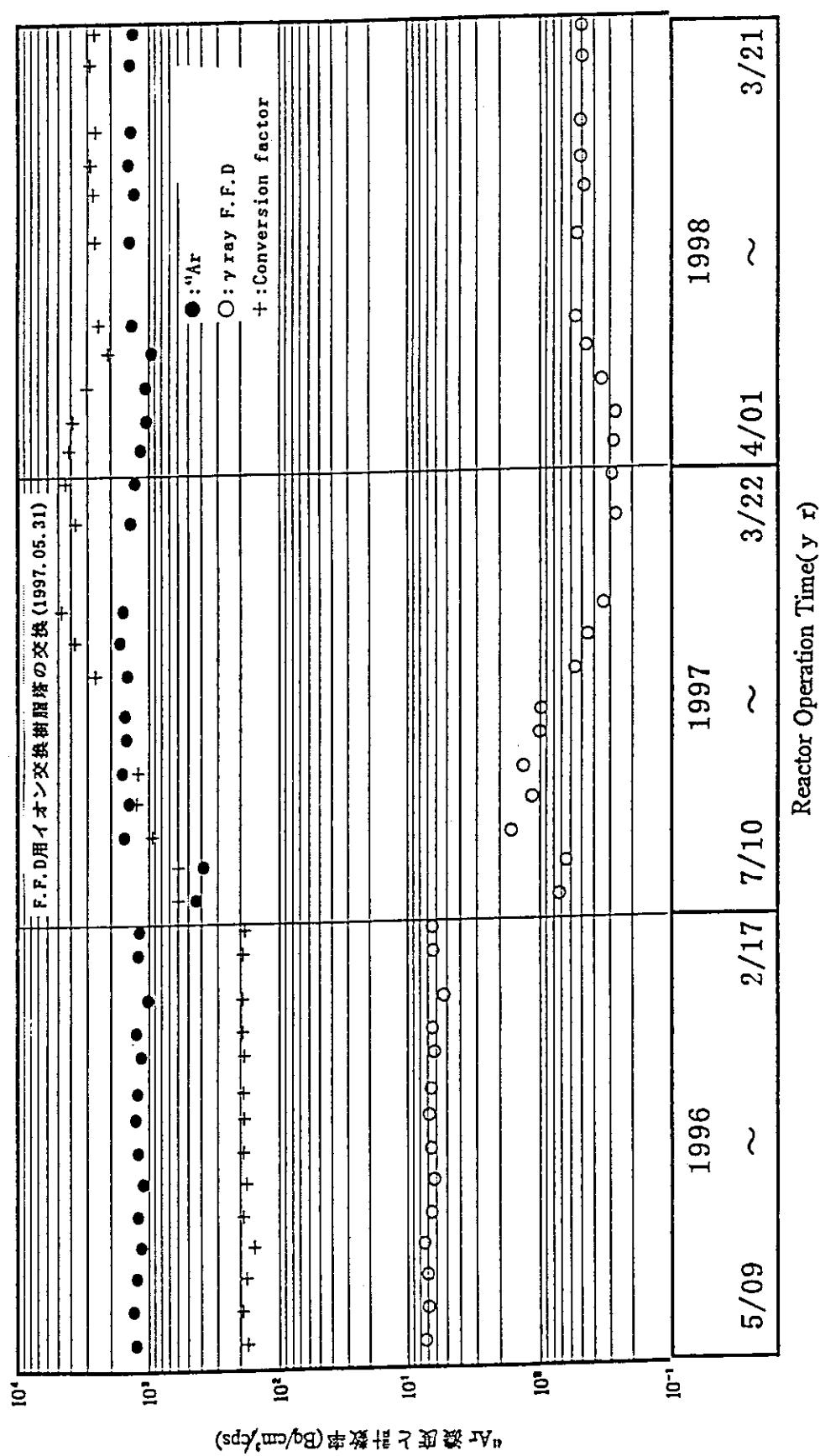


Fig. 5.3 DN method F.F.D in JRR-3M

Fig. 5.4 Variation of  $^{41}\text{Ar}$  and Counting-rates of  $\gamma$  ray method F.F.D

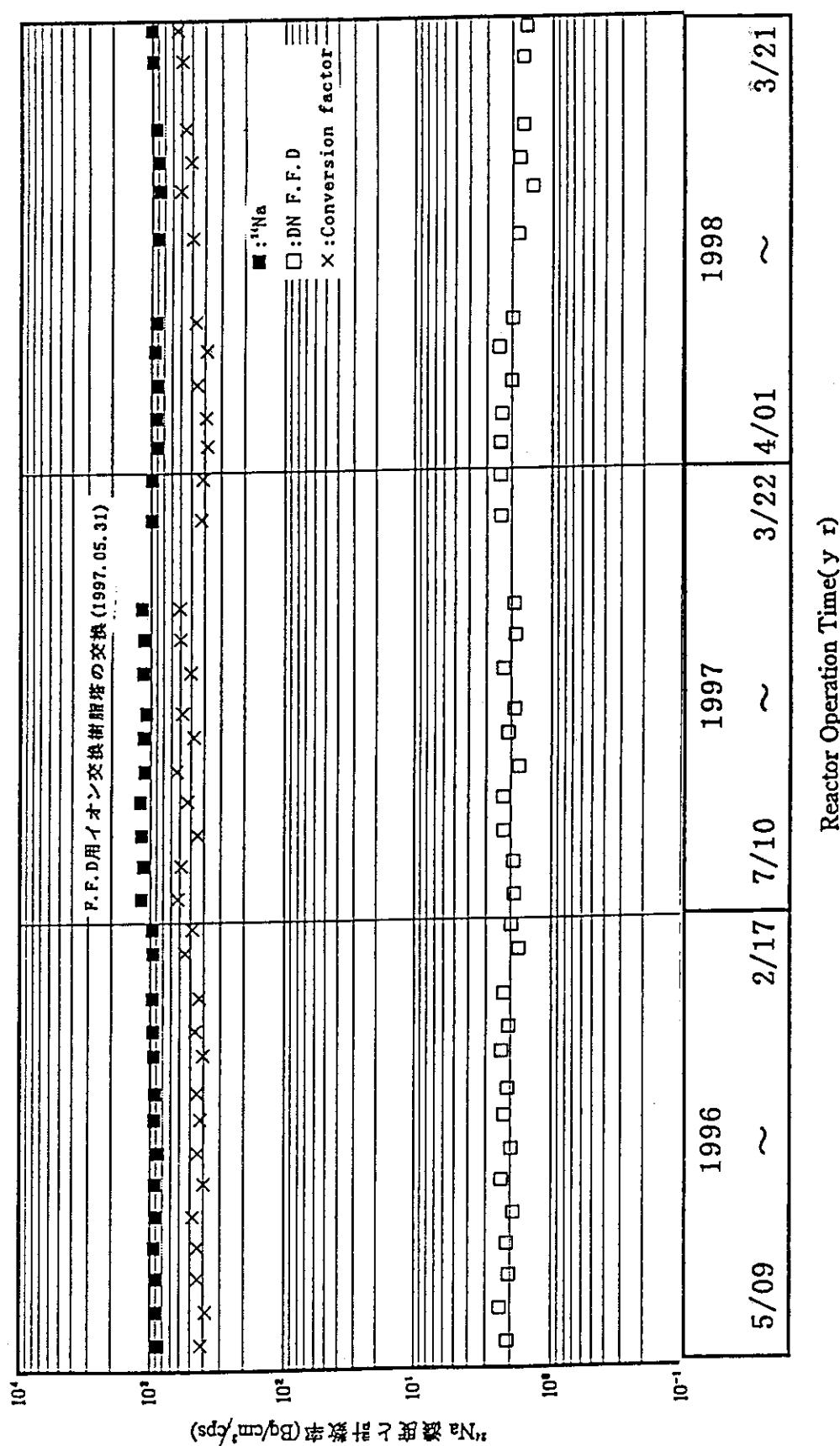
Fig. 5.5 Variation of  $^{24}\text{Na}$  and Counting-rates of DN method F.F.D

Table 2.1 The main features of the JRR-3M

項目	仕 様
形 式	重水反射付軽水減速冷却プール型
熱 出 力	20 MW
中 性 子 束	熱中性子束: $2 \times 10^{14}$ n/cm <sup>2</sup> ·sec
燃 料 体	20%低濃縮標準燃料: 26体 20%低濃縮フォロア燃料: 6体
制 御 棒	ハフニウム製 微調整棒 2本 粗調整棒 4本
一次冷却水系	軽水(純水: 約 250 m <sup>3</sup> )
反 射 体 系	重水: 約 7 m <sup>3</sup>
カバーガス系	ヘリウムガス: 約 7 m <sup>3</sup>
二次冷却水系	二次冷却水(濾過水: 約 800 m <sup>3</sup> )

Table 2.2 Specifications of Water chemistry of the JRR-3M cooling systems

系 統	主 な 仕 様
一次冷却系	<ul style="list-style-type: none"> <li>◎ 一次冷却水 軽水:約250m<sup>3</sup>(純水) 循環量:約2,400m<sup>3</sup>/hr</li> <li>◎ 凈化系 混床式イオン交換樹脂塔:2基 樹脂量:陽イオン交換樹脂 400ℓ 陰イオン交換樹脂 800ℓ 淨化流量:約24m<sup>3</sup>/hr(循環流量の約1%)</li> </ul>
反射体重水系	<ul style="list-style-type: none"> <li>◎ 反射体重水 重水:約7m<sup>3</sup> 循環量:約70m<sup>3</sup>/hr</li> <li>◎ 凈化系 混床式イオン交換樹脂塔:2基(重水化済み) 樹脂量:陽イオン交換樹脂 12ℓ 陰イオン交換樹脂 24ℓ 淨化流量:約0.7m<sup>3</sup>/hr(循環流量の約1%)</li> </ul>
ヘリウム系	<ul style="list-style-type: none"> <li>◎ ヘリウムガス:約7m<sup>3</sup> 循環量:約10m<sup>3</sup>/hr 再結合器:触媒約7ℓ(Girdler G-63D)</li> <li>◎ 凈化方法:ヘリウムガス置換方法</li> </ul>
二次冷却水系	<ul style="list-style-type: none"> <li>◎ 保有水量:約700m<sup>3</sup>(滲過水) 循環量:約3,000m<sup>3</sup>/hr 補給水量:約26m<sup>3</sup>/hr</li> <li>◎ 水処理:防食剤、スライム防止剤連続注入</li> </ul>

Table 2.3 Specifications of the JRR-3M cooling systems

冷却系統	使用材料と管理基準値
一次冷却系	<p>◎ 使用材料</p> <p>炉内構造物:アルミニウム材 燃料体:アルミニウム材 プールライニング材:ステンレス鋼材 N-16減衰タンク:ステンレス鋼材 配管、タンク、機器類:ステンレス鋼材</p>
	<p>◎ 管理基準値</p> <p>導電率:5 <math>\mu</math>S/cm以下 pH:5.0~7.5</p>
反射体重水系	<p>◎ 使用材料</p> <p>重水タンク:アルミニウム材 重水溢流タンク:ステンレス鋼材 配管、タンク、機器類:ステンレス鋼材</p>
	<p>◎ 管理基準値</p> <p>重水濃度:高濃度に維持 導電率:2 <math>\mu</math>S/cm以下 pH:5~8</p>
ヘリウム系	<p>◎ 使用材料</p> <p>ヘリウムタンク:ステンレス鋼材 配管、機器類:ステンレス鋼材</p>
	<p>◎ 管理基準値</p> <p>ヘリウム濃度:90Vol%以上 重水素濃度:2Vol%以下</p>
二次冷却水系	<p>◎ 使用材料</p> <p>熱交換器:ステンレス鋼材 配管類:炭素鋼材</p>
	<p>◎ 管理基準値</p> <p>pH:6~9 濃縮倍数:7以下</p>

Table 4.1 Radionuclides detected from the JRR-3M cooling systems

	核種名	半減期	$\gamma$ 線エネルギー(KeV)	主な生成反応
一 次 冷 却 水	Al-28	2.24 H	1778.9	$^{27}\text{Al}(\text{n}, \gamma)^{28}\text{Al}$
	Tc-99m	6.02 H	140.50	$^{98}\text{Mo} \rightarrow ^{99m}\text{Tc}$
	W-187	23.9 H	479.51, 685.72	$^{186}\text{W}(\text{n}, \gamma)^{187}\text{W}$
	Mo-99	66.2 H	181.09, 739.47	$^{98}\text{Mo}(\text{n}, \gamma)^{99}\text{Mo}$
	Na-24	15 H	1368.59, 2753.98	$^{27}\text{Al}(\text{n}, \alpha)^{24}\text{Na}$
	Ar-41	1.83 H	1293.49	$^{40}\text{Ar}(\text{n}, \gamma)^{41}\text{Ar}$
	Cr-51	27.7 D	320.08	$^{50}\text{Cr}(\text{n}, \gamma)^{51}\text{Cr}$
	Mn-54	312.5 D	834.83	$^{54}\text{Fe}(\text{n}, \text{p})^{54}\text{Mn}$
	Co-60	5.26 Y	1173.21, 1332.49	$^{59}\text{Co}(\text{n}, \gamma)^{60}\text{Co}$
淨化水	Ar-41	1.83 H	1293.49	$^{40}\text{Ar}(\text{n}, \gamma)^{41}\text{Ar}$
反射 体 重 水	Mn-56	2.587 H	846.75, 1810.67	$^{55}\text{Mn}(\text{n}, \gamma)^{56}\text{Mn}$
	Na-24	15 H	1368.59, 2753.98	$^{27}\text{Al}(\text{n}, \alpha)^{24}\text{Na}$
	Ar-41	1.83 H	1293.49	$^{40}\text{Ar}(\text{n}, \gamma)^{41}\text{Ar}$
ヘリウム	Ar-41	1.83 H	1293.49	$^{40}\text{Ar}(\text{n}, \gamma)^{41}\text{Ar}$

Table 4.2 Measured values of radionuclides of the primary cooling water

サイクル 番号	測定 年月日	—				合計	$\gamma$ 放射能濃度 $\text{Bq}/\text{cm}^3$
		Tc-99m	W-187	Ar-41	Na-24		
0 1	95.07.20	$2.24 \times 10^2$	$1.08 \times 10^2$	$4.37 \times 10^2$	$1.17 \times 10^3$	$2.27 \times 10^2$	$2.17 \times 10^3$
	95.08.03	$1.95 \times 10^2$	$1.41 \times 10^2$	$3.83 \times 10^2$	$1.13 \times 10^3$	$4.93 \times 10^2$	$2.34 \times 10^3$
0 2	95.08.24	$1.49 \times 10^2$	$1.14 \times 10^2$	$1.56 \times 10^3$	$1.17 \times 10^3$	$3.20 \times 10^2$	$3.31 \times 10^3$
	95.09.07	$1.84 \times 10^2$	$1.40 \times 10^2$	$1.43 \times 10^3$	$1.20 \times 10^3$	$5.37 \times 10^2$	$3.49 \times 10^3$
0 3	95.09.28	$1.30 \times 10^2$	$1.09 \times 10^2$	$1.61 \times 10^3$	$1.11 \times 10^3$	$4.98 \times 10^2$	$3.46 \times 10^3$
	95.10.12	$9.78 \times 10^1$	$1.48 \times 10^2$	$1.51 \times 10^3$	$1.13 \times 10^3$	$3.74 \times 10^2$	$3.76 \times 10^3$
0 4	95.10.30	$7.74 \times 10^1$	$1.11 \times 10^2$	$1.55 \times 10^3$	$1.09 \times 10^3$	$3.05 \times 10^2$	$3.13 \times 10^3$
	95.11.16	$1.04 \times 10^2$	$1.27 \times 10^2$	$1.47 \times 10^3$	$1.15 \times 10^3$	$4.80 \times 10^2$	$3.33 \times 10^3$
0 5	95.12.08	$1.01 \times 10^2$	$8.30 \times 10^1$	$1.69 \times 10^3$	$1.13 \times 10^3$	$4.04 \times 10^2$	$3.41 \times 10^3$
	95.12.21	$1.02 \times 10^2$	$9.87 \times 10^1$	$1.60 \times 10^3$	$1.17 \times 10^3$	$4.90 \times 10^2$	$3.46 \times 10^3$
0 6	96.02.01	欠		測			
	96.02.15						
0 7	96.03.04	$5.11 \times 10^1$	$1.14 \times 10^2$	$1.40 \times 10^3$	$9.93 \times 10^2$	$3.34 \times 10^2$	$2.89 \times 10^3$
	96.03.21	$4.98 \times 10^1$	$9.83 \times 10^1$	$1.28 \times 10^3$	$9.92 \times 10^2$	$6.62 \times 10^2$	$3.08 \times 10^3$
平均		$1.22 \times 10^2$	$1.16 \times 10^2$	$1.33 \times 10^3$	$1.12 \times 10^3$	$4.27 \times 10^1$	$3.15 \times 10^3$
							$6.41 \times 10^2$
							$6.00 \times 10^2$

Table 4.3 Measured values of radionuclides of the demineralized water

サイクル番号	測定年月日	原子炉ボール淨化水( $\beta\text{q}/\text{cm}^3$ )		
		Ar-41	全 $\beta$ 放射能濃度	全 $\gamma$ 放射能濃度
0 1	95.07.20	$1.62 \times 10^2$	<1.27	$4.36 \times 10^1$
	95.08.03	$2.19 \times 10^2$	<1.27	$4.91 \times 10^1$
0 2	95.08.24	$7.96 \times 10^2$	<1.27	$1.92 \times 10^2$
	95.09.07	$7.58 \times 10^2$	<1.20	$1.67 \times 10^2$
0 3	95.09.28	$6.28 \times 10^2$	<1.23	$1.44 \times 10^2$
	95.10.12	$5.85 \times 10^2$	<1.27	$1.57 \times 10^2$
0 4	95.10.30	$7.38 \times 10^2$	<1.27	$1.59 \times 10^2$
	95.11.16	$6.21 \times 10^2$	<1.27	$1.36 \times 10^2$
0 5	95.12.08	$8.73 \times 10^2$	<1.31	$1.88 \times 10^2$
	95.12.21	$6.70 \times 10^2$	<0.94	$1.69 \times 10^2$
0 6	96.02.01	$8.54 \times 10^2$	<1.30	$2.12 \times 10^2$
	96.02.15	$7.48 \times 10^2$	<1.21	---
0 7	96.03.04	$7.59 \times 10^2$	<1.25	$1.36 \times 10^2$
	96.03.21	$7.67 \times 10^2$	<1.21	---
平均		$6.56 \times 10^2$	<1.24	$1.46 \times 10^2$

Table 4.4 Measured values of radionuclides of the heavy water

サイクル 番号	測定 年月日	反 Mn - 5 6	反 Ar - 4 1	身寸 Na - 2 4	合計	全β放射能濃度 水 $\gamma$ (Bq/cm <sup>3</sup> )	全γ放射能濃度
0 1	95.07.20 95.08.03	$1.70 \times 10^1$ — — —	$8.62 \times 10^0$ — — —	$8.63 \times 10^1$ — — —	$1.12 \times 10^2$ — — —	$1.29 \times 10^2$ — — —	$1.42 \times 10^2$ — — —
0 2	95.08.24 95.09.07	$1.91 \times 10^1$ — — —	$2.45 \times 10^1$ — — —	$8.98 \times 10^1$ — — —	$1.33 \times 10^2$ — — —	$1.26 \times 10^2$ — — —	$1.49 \times 10^2$ — — —
0 3	95.09.28 95.10.12	$1.52 \times 10^1$ — — —	$2.85 \times 10^1$ — — —	$1.01 \times 10^2$ — — —	$1.45 \times 10^2$ — — —	$1.38 \times 10^2$ — — —	$1.49 \times 10^2$ — — —
0 4	95.10.30 95.11.16	$1.76 \times 10^1$ — — —	$3.05 \times 10^1$ — — —	$9.36 \times 10^1$ — — —	$1.42 \times 10^2$ — — —	$1.44 \times 10^2$ — — —	$1.44 \times 10^2$ — — —
0 5	95.12.08 95.12.21	$1.91 \times 10^1$ — — —	$2.52 \times 10^1$ — — —	$9.76 \times 10^1$ — — —	$1.42 \times 10^2$ — — —	$1.28 \times 10^2$ — — —	$1.37 \times 10^2$ — — —
0 6	96.02.01 96.02.15	$2.07 \times 10^0$ — — —	$4.55 \times 10^1$ — — —	$8.82 \times 10^1$ — — —	$1.36 \times 10^2$ — — —	$1.27 \times 10^2$ — — —	$1.45 \times 10^2$ — — —
0 7	96.03.04 96.03.21	$1.35 \times 10^1$ — — —	$2.59 \times 10^1$ — — —	$9.04 \times 10^1$ — — —	$1.30 \times 10^2$ — — —	$1.17 \times 10^2$ — — —	$1.40 \times 10^2$ — — —
平均		$1.48 \times 10^1$	$2.70 \times 10^1$	$9.24 \times 10^1$	$1.34 \times 10^2$	$1.30 \times 10^2$	$1.44 \times 10^2$

Table 4.5 Measured values of radionuclides of the helium gas

サイクル 番号	測定 年月日	$\text{ヘリウム}$ (Bq/cm <sup>3</sup> )
0 1	95.07.20	$1.20 \times 10^3$
	95.08.03	---
0 2	95.08.24	$1.17 \times 10^3$
	95.09.07	---
0 3	95.09.28	$1.20 \times 10^3$
	95.10.12	---
0 4	95.10.30	$1.31 \times 10^3$
	95.11.16	---
0 5	95.12.08	$1.42 \times 10^3$
	95.12.21	---
0 6	96.02.01	$1.58 \times 10^3$
	96.02.15	---
0 7	96.03.04	$1.40 \times 10^3$
	96.03.21	---
平均		$1.33 \times 10^3$

Table 5.1 Surface area of aluminium in core tank and heavy water tank

系 統	構 造 物	接液面積 (cm <sup>2</sup> )
炉心タンク	1. 燃 料 体 (1) 標準型	$7.03 \times 10^6$
	(2) フオロア型	$1.67 \times 10^5$
	2. 炉心タンク	$1.68 \times 10^4$
	計	$8.87 \times 10^5$
重水タンク	重水タンク内側	$1.30 \times 10^6$

Table 5.2 Surface area of reactor material in primary cooling system

機 器 名	材 料	接液面積 (cm <sup>2</sup> )
燃料・炉心構造物等	Al A5052	$2.7 \times 10^6$
配管・炉心支持物等	SUS 304, 316	$3.9 \times 10^7$
制御棒	ハフニウム	$3.2 \times 10^4$
ベリリウム反射体	Be	$3.3 \times 10^4$

Table 5.3 Aluminium and stainless steel corrosion rates in primary cooling system

構 造 材	腐 食 率	
	mm/day	g/m <sup>2</sup> /sec
ステンレス鋼	0.2	$2.3 \times 10^{-7}$
アルミニウム	5.0	$5.8 \times 10^{-6}$

Table 5.4 Chemical composition of type 5052 Al

種 類	化 學 成 分 (Wt%)								
	Si	Fe	Cu	Mn	Mg	Cr	Zn	Co	Al
Al 5052	0.13	0.20	0.05	0.05	2.50	0.25	0.05	$2 \times 10^{-4}$	Bal.

Table 5.5 Formation and microscopic cross section of radionuclides

核種名	Al中の組成 (wt%)	存在比 (%)	原子量	主な生成反応	放射化断面積 (barn)	半減期	崩壊定数 (sec <sup>-1</sup> )
Cr-51	Cr-50 (0. 25)	4. 31	51. 99	$^{50}\text{Cr}(\text{n}, \gamma)^{51}\text{Cr}$	15. 9	27. 7 D	$2. 90 \times 10^{-7}$
Mn-54	Fe-54 (0. 20)	5. 84	55. 85	$^{54}\text{Fe}(\text{n}, \text{p})^{54}\text{Mn}$	0. 386	312. 5 D	$2. 57 \times 10^{-8}$
Fe-59	Fe-58 (0. 20)	0. 31	55. 85	$^{58}\text{Fe}(\text{n}, \gamma)^{59}\text{Fe}$	1. 15	44. 6 D	$1. 80 \times 10^{-7}$
Co-60	Co-59 ( $2 \times 10^{-4}$ )	100	58. 93	$^{59}\text{Co}(\text{n}, \gamma)^{60}\text{Co}$	17	5. 26 Y	$4. 17 \times 10^{-9}$
Zn-65	Zn-64 (0. 05)	48. 89	65. 38	$^{64}\text{Zn}(\text{n}, \gamma)^{65}\text{Zn}$	0. 78	243. 8 D	$3. 29 \times 10^{-8}$

Table 5.6 Measured and calculated values of radionuclides  
in primary cooling water

$\gamma$ 線放出核種	放射性腐食生成物濃度 (Bq/cm <sup>3</sup> )		
	実測値 (94/08/12)	計算値	算定値
Cr-51	$9.6 \times 10^{-1}$	$9.8 \times 10^{-1}$	
Mn-54	$1.7 \times 10^{-2}$	$1.2 \times 10^{-2}$	
Co-60	$3.7 \times 10^{-2}$	$5.4 \times 10^{-2}$	

Table 5.7 Fission yields of radioiodine

Nuclide	Half Life	Decay constant $\lambda_i (\text{sec}^{-1})$	Fission yields $Y_i (\%)$
$^{131}\text{I}$	8.041 D	$9.98 \times 10^{-7}$	2.84
$^{132}\text{I}$	2.285 H	$8.43 \times 10^{-5}$	4.21
$^{133}\text{I}$	20.8 H	$9.26 \times 10^{-6}$	6.77
$^{134}\text{I}$	52.6 M	$2.20 \times 10^{-4}$	7.61
$^{135}\text{I}$	6.585 H	$2.92 \times 10^{-5}$	6.41

Table 5.8 High gamma-ray emission rate of Fission Products

Nuclide	Half Life	$\gamma$ ray emission rate (%)
$^{88}\text{Kr}$	2.84 H	2.03(4.6), 2.04(3.8), 2.2(13.5), 2.39(35)
$^{138}\text{Xe}$	14.17 M	1.77(16.7), 2.0(5.35), 2.02(12.3)

Table 5.9 Delayed-neutron emission rate of Fission Products

Nuclide	Half Life	Decay constant $\lambda_i (\text{sec}^{-1})$	Fission yields $Y_i (\%)$	DN emission rate (%)
$^{87}\text{Br}$	76 M	$1.24 \times 10^{-2}$	2.17	0.25 (2.3)
$^{88}\text{Br}$	16.6 S	$4.18 \times 10^{-2}$	2.2	0.33 (6)
$^{137}\text{I}$	24.5 S	$2.83 \times 10^{-2}$	3.5	0.56 (6)

Table 5.10 Variation of  $^{41}\text{Ar}$ ,  $^{24}\text{Na}$  and F.F.D counting rate

サイクル	測定月日	$\text{Ar-41}$ 濃度 ( $\text{Bq}/\text{cm}^3$ )	$\gamma$ 線FFD (cps)	換算係数 ( $\text{Bq}/\text{cm}^3/\text{cps}$ )	$\text{Na-24}$ 濃度 ( $\text{Bq}/\text{cm}^3$ )	DN. FFD (cps)	換算係数 ( $\text{Bq}/\text{cm}^3/\text{cps}$ )
R3-06-01	94.05.19	$1.26 \times 10^3$	7.21	$1.75 \times 10^2$	$8.70 \times 10^2$	2.08	$4.18 \times 10^2$
	94.06.02	$1.31 \times 10^3$	6.91	$1.90 \times 10^2$	$9.07 \times 10^2$	2.36	$3.84 \times 10^2$
R3-06-02	94.06.24	$1.24 \times 10^3$	6.96	$1.78 \times 10^2$	$9.07 \times 10^2$	2.05	$4.42 \times 10^2$
	94.07.07	$1.15 \times 10^3$	7.35	$1.56 \times 10^2$	$9.32 \times 10^2$	2.11	$4.42 \times 10^2$
R3-06-03	94.07.28	$1.22 \times 10^3$	6.50	$1.88 \times 10^2$	$9.07 \times 10^2$	1.90	$4.77 \times 10^2$
	94.08.11	$1.11 \times 10^3$	6.25	$1.78 \times 10^2$	$9.25 \times 10^2$	2.33	$3.97 \times 10^2$
R3-06-04	94.09.29	$1.22 \times 10^3$	6.56	$1.86 \times 10^2$	$8.73 \times 10^2$	1.98	$4.41 \times 10^2$
	94.10.13	$1.27 \times 10^3$	6.82	$1.86 \times 10^2$	$9.36 \times 10^2$	2.22	$4.22 \times 10^2$
R3-06-05	94.11.01	$1.23 \times 10^3$	6.56	$1.88 \times 10^2$	$9.25 \times 10^2$	2.08	$4.45 \times 10^2$
	94.11.17	$1.15 \times 10^3$	6.19	$1.86 \times 10^2$	$9.40 \times 10^2$	2.32	$4.05 \times 10^2$
R3-06-06	94.12.06	$1.25 \times 10^3$	6.46	$1.93 \times 10^2$	$9.51 \times 10^2$	2.06	$4.62 \times 10^2$
	94.12.20	$1.02 \times 10^3$	5.28	$1.93 \times 10^2$	$9.69 \times 10^2$	2.25	$4.31 \times 10^2$
R3-06-07	95.02.06	$1.22 \times 10^3$	6.40	$1.91 \times 10^2$	$9.55 \times 10^2$	1.74	$5.49 \times 10^2$
	95.02.16	$1.19 \times 10^3$	6.46	$1.84 \times 10^2$	$9.62 \times 10^2$	1.98	$4.86 \times 10^2$
R3-07-01	95.07.20	$4.37 \times 10^2$	0.73	$5.99 \times 10^2$	$1.17 \times 10^3$	1.88	$6.22 \times 10^2$
	95.08.03	$3.87 \times 10^2$	0.65	$5.95 \times 10^2$	$1.13 \times 10^3$	1.91	$5.92 \times 10^2$
R3-07-02	95.08.24	$1.56 \times 10^3$	1.65	$9.45 \times 10^2$	$1.17 \times 10^3$	2.24	$4.46 \times 10^2$
	95.09.07	$1.43 \times 10^3$	1.15	$1.24 \times 10^3$	$1.20 \times 10^3$	2.26	$5.31 \times 10^2$
R3-07-03	95.09.28	$1.61 \times 10^3$	1.33	$1.21 \times 10^3$	$1.11 \times 10^3$	1.74	$6.38 \times 10^2$
	95.10.12	$1.51 \times 10^3$	1.01	$1.49 \times 10^3$	$1.13 \times 10^3$	2.09	$4.78 \times 10^2$
R3-07-04	95.10.30	$1.55 \times 10^3$	0.99	$1.57 \times 10^3$	$1.09 \times 10^3$	1.88	$5.80 \times 10^2$
	95.11.16	$1.47 \times 10^3$	0.56	$2.63 \times 10^3$	$1.15 \times 10^3$	2.27	$5.07 \times 10^2$
R3-07-05	95.12.08	$1.69 \times 10^3$	0.45	$3.76 \times 10^3$	$1.13 \times 10^3$	1.87	$6.04 \times 10^2$
	95.12.21	$1.60 \times 10^3$	0.34	$4.71 \times 10^3$	$1.17 \times 10^3$	1.91	$6.13 \times 10^2$
R3-07-06	96.02.01	---	0.35	---	---	2.03	---
	96.02.15	---	0.25	---	---	2.09	---
R3-07-07	96.03.04	$1.40 \times 10^3$	0.27	$3.70 \times 10^3$	$9.93 \times 10^2$	2.36	$4.21 \times 10^2$
	96.03.21	$1.28 \times 10^3$	0.29	$4.41 \times 10^3$	$9.92 \times 10^2$	2.40	$4.13 \times 10^2$
R3-08-01	96.04.12	$1.16 \times 10^3$	0.28	$4.14 \times 10^3$	$9.14 \times 10^2$	2.39	$3.82 \times 10^2$
	96.04.23	$1.05 \times 10^3$	0.27	$3.89 \times 10^3$	$9.21 \times 10^2$	2.35	$3.92 \times 10^2$
R3-08-02	96.05.23	$1.06 \times 10^3$	0.35	$3.03 \times 10^3$	$9.16 \times 10^2$	2.01	$4.56 \times 10^2$
	96.06.06	$9.60 \times 10^2$	0.46	$2.09 \times 10^3$	$9.44 \times 10^2$	2.46	$3.84 \times 10^2$
R3-08-03	96.09.25	$1.36 \times 10^3$	0.55	$2.47 \times 10^3$	$9.22 \times 10^2$	1.97	$4.68 \times 10^2$
R3-08-04	96.11.14	$1.43 \times 10^3$	0.54	$2.65 \times 10^3$	$9.01 \times 10^2$	1.81	$4.98 \times 10^2$
R3-08-05	96.12.06	$1.31 \times 10^3$	0.48	$2.73 \times 10^3$	$8.75 \times 10^2$	1.42	$6.13 \times 10^2$
	96.12.18	$1.46 \times 10^3$	0.51	$2.86 \times 10^3$	$9.02 \times 10^2$	1.76	$5.13 \times 10^2$
R3-08-06	97.01.30	$1.40 \times 10^3$	0.51	$2.64 \times 10^3$	$9.38 \times 10^2$	1.66	$5.65 \times 10^2$
	97.02.14	$1.29 \times 10^3$	0.53	$2.43 \times 10^3$	$9.38 \times 10^2$	2.12	$4.42 \times 10^2$
R3-08-07	97.03.07	$1.41 \times 10^3$	0.49	$2.88 \times 10^3$	$9.85 \times 10^2$	1.66	$5.93 \times 10^2$
	97.03.19	$1.33 \times 10^3$	0.50	$2.66 \times 10^3$	$1.01 \times 10^3$	1.57	$6.43 \times 10^2$