

JAERI-Tech
98-052



原研研究炉における重水の計量管理

1998年11月

吉島哲夫・田中純利・根本傳次郎

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。

入手の間合わせは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-1195 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弘済会資料センター（〒319-1195 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 〒319-1195, Japan.

©Japan Atomic Energy Research Institute, 1998

編集兼発行 日本原子力研究所

原研研究炉における重水の計量管理

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・根本傳次郎

(1998年10月19日受理)

研究炉部では、3基の研究炉を運転管理し、減速材、冷却材及び反射材として使用するために約41トンの重水を保有している。この内、JRR-2は、出力10MWのタンクタイプの研究炉で約16トンの重水を減速材、冷却材及び反射材として使用している。JRR-3Mは、出力20MWの軽水減速・冷却プールタイプの研究炉で、約7トンの重水を反射材として使用している。JRR-4は、出力3.5MWの軽水を減速材と冷却材に使用するスイミングプールタイプの研究炉で、中性子ビーム実験設備で約1トンの重水を減速材として使用している。これらの重水は、米国、カナダ及びノルウェーから輸入している。このうちのカナダから輸入した重水は、日加原子力協定において国際規制物資としての管理が義務付けられていることから全ての重水は国際規制物資に準じた方法で厳密な計量管理を実施している。本報告書は、各炉での在庫量の変動と重水の計量管理等についてまとめたものである。

The Heavy Water Accountancy for Research Reactors in JAERI

Tetsuo YOSHIJIMA, Sumitoshi TANAKA and Denjirou NEMOTO

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

(Received October 19, 1998)

The three research reactors have been operated by the Department of Research Reactor and used about 41 tons heavy water as coolant, moderator and reflector of research reactors. The JRR-2 is a tank type research reactor of 10MW in thermal power and its is used as moderator, coolant and reflector about 16 tons heavy water. The JRR-3M is a light water cooled and moderated pool type research reactor with a thermal power of 20MW and its is used as reflector about 7.3 tons heavy water. In the JRR-4, which is a light water cooled swimming pool type research reactor with the maximum thermal power of 3.5MW, about 1 ton heavy water is used to supply fully thermalized neutrons with a neutron beam experiment of facility. The heavy water was imported from U.S.A, CANADA and Norway. Parts of heavy water is internationally controlled materials, therefore management of heavy water is necessary for materials accountancy. This report described the change of heavy water inventories in each research reactors, law and regulations for accounting of heavy water in JAERI.

Keywords : Heavy Water, Accountancy, Tritium, Primary Cooling System, Purification System Coolant, Moderator, Reflector, Ion-exchanger, Research Reactor

目 次

1. まえがき	1
2. 重水の購入と再生	1
2.1 重水の性質	1
2.2 購入重水量	1
2.3 購入重水の受入れ検査に伴う分析方法	2
2.4 回収重水の再生と精製	4
3. 重水在庫量の推移	5
3.1 重水の種類	5
3.2 未使用重水	6
3.3 回収重水	6
4. 各炉での使用経緯	6
4.1 JRR-2	6
4.2 JRR-3M	12
4.3 JRR-4	17
5. 重水の収支と今後の使用計画	17
5.1 重水の収支	17
5.2 今後の使用計画	18
6. 今後の検討課題	19
7. あとがき	19
謝辞	20
参考文献	20
Appendix-I 重水に関する法規並びに所内管理規定等	57
Appendix-II 『CANDU炉からのトリチウムの回収と貯蔵並びに環境での移動監視』	66

Contents

1. Introduction.....	1
2. The Purchase and Regeneration of Heavy Water.....	1
2.1 Features of Heavy Water.....	1
2.2 The Purchase of Fresh Heavy Water.....	1
2.3 Analytical Method of Fresh Heavy Water.....	2
2.4 Refining and Regeneration of Recovered Heavy Water.....	4
3. Change of Heavy Water Inventories.....	5
3.1 Kind of Heavy Water for Control Inventories.....	5
3.2 Change of Fresh Heavy Water Inventories.....	6
3.3 Change of Recovered Heavy Water Inventories.....	6
4. Change of Heavy Water Inventories in Each Research Reactors.....	6
4.1 JRR-2.....	6
4.2 JRR-3M.....	12
4.3 JRR-4.....	17
5. Balance of Heavy Water and Used Plan.....	17
5.1 Balance of Heavy Water.....	17
5.2 Planning to Use a Heavy Water.....	18
6. Futures Problem.....	19
7. Conclusion.....	19
Acknowledgments.....	20
References.....	20
Appendix- I The Law and Regulations for Accounting and Control of Heavy Water in JAERI.....	57
Appendix- II 『Recovery of Tritium from CANDU Reactors, Its Storage and Monitoring of Its Migration in the Environment』.....	66

1. ま え が き

研究炉部では、JRR-2、JRR-3M 及び JRR-4 の 3 基の研究炉の運転・保守管理を実施している。JRR-2 は、熱出力 10MW の濃縮ウラン重水減速冷却非均質型の研究炉で 1 次冷却重水系で減速材、冷却材及び反射材として約 16 トンの重水を使用している。改造後の JRR-3(以下「JRR-3M」と云う)は、熱出力 20MW の低濃縮ウラン軽水減速冷却プール型の研究炉で反射材として約 7.3 トンの重水を使用している。一方、JRR-4 は、熱出力 3.5MW の濃縮ウラン軽水減速冷却スイミングプール型の研究炉で照射実験設備において中性子の減速材として約 1 トンの重水を使用している。従って、3 基の原子炉で約 24 トンの重水を装荷重水として使用している。また、原子炉への補給用及び重水浄化系で使用するイオン交換樹脂の重水化用として約 0.8 トンの未使用重水並びに改造前の JRR-3(以下「JRR-3」と云う)からの回収重水約 16 トンの計約 17 トンの重水を保管管理し、研究炉部では合計約 41 トンの重水を保有している。これらの重水には、国際規制物資として管理すべき重水が含まれていることから全ての重水を国際規制物資に準じた計量管理方法で管理している。約 36 年間に渡る JRR-2 の運転が平成 8 年 12 月に終結された。その後、平成 9 年 12 月に JRR-2 の解体工事の準備作業として 1 次冷却重水系から約 5.2 トンの重水を抜き出し、JRR-3M 重水保管タンクに注入して長期保管とした。

本報告書は、JRR-2 の運転が永久に停止されたのを機会に、研究炉でのこれまでの重水の在庫量の変動と重水の計量管理等についてまとめたものである。

2. 重水の購入と再生

2.1 重水の性質

重水は、軽水と比較して減速比が大きいことから高中性子束炉や低濃縮度の燃料を使用する原子炉において冷却材、減速材及び反射材として使用されている。高濃度重水の密度は、 1.1 g/cm^3 で氷点が約 4°C と軽水よりも高いことから温度管理等に十分に注意して保管管理している。原子炉材料としての重水と軽水の主要な特性を Table 2.1 に示す。

2.2 購入重水量

研究炉部では、アメリカ、カナダ及びノルウェーの 3 国から輸入した重水を使用している。研究炉における重水の購入実績を Table 2.2 に示す。また、輸入重水の国別割合は、アメリカが約 91%、カナダが約 6%、ノルウェーが約 3% である。国別の購入割合を Table 2.3 に示す。カナダから購入した重水は、日加原子力協定で国際規制物資に指定されていることから全ての重水は国際規制物資に準じた計量管理方法で管理している。重水の購入(以下「購入重水」と云う)は、Table 2.4 に示すような購入仕様書に基づいて実施している。購入重水を受入れた場合には、受入れ検査後に技術検査調書を作成し、一般検査担当課長に報告する。重水の計量管理方法については、後に記述

するが、受入れ検査の結果及び重水を受入れた年月日、種類等を「重水移動報告書」に記入し、研究炉技術開発室長の承認を受けた後、受入れ課室長及び原子炉主任技術者に報告すると共に「重水移動報告書」に記入した事項をその都度「重水管理記録簿」に転記する。さらに、「核燃料物質・設備(重水)在庫状況変動票」に必要な事項を記入し、研究炉技術開発室長の承認を受けた後、核燃料対策室長に通知する。なお、国際規制物資である重水の計量管理は、「核原料物質、核燃料物質及び原子炉の規制に関する法律」並びにこれを受けて作成された「東海研究所国際規制物資管理規定」等で義務付けられている。重水に関する法規並びに所内管理規定等についての概要をAppendix-1に示す。

2.3 購入重水の受入れ検査に伴う分析方法

購入重水の受入れに際しては、購入仕様書に記載されている検査項目の①重量測定、②重水濃度分析、③pH、④導電率及び⑤トリチウム濃度についての受入れ検査を実施し、必要に応じて⑥不純物(B, Cd)、⑦過マンガン酸カリウム消費量及び⑧濁度について分析する。受入れ検査に伴う分析方法は「JRR-2, JRR-3における分析、処理マニュアル」²⁾及び「赤外分光光度計による重水濃度の分析」³⁾に従って実施しているが、以下に分析方法の概略を記す。

2.3.1 重水の重量測定

(1) 重量測定の意義

購入重水は、重水重量を計量後、重水濃度を測定して100%の重水量に換算した量が納入されるために重量測定を行う。

(2) 重水の重量測定方法

購入重水は、通常、容量200ℓのステンレス鋼製ドラム缶に充填されて納入される。この総重量を検定済みの台秤で計量し、ドラム缶重量を差し引いて重水量を算出し、重水濃度から100%の重水量に換算して納入重水量を確認する。

2.3.2 重水濃度の測定

(1) 重水濃度分析の意義

購入重水は、重水濃度を測定し、100%の重水量に換算して納入される。このため、濃度測定は重要であり、且つ重水の純度を確認するために分析する。

(2) 重水濃度の測定方法

重水濃度の測定方法には、赤外分光光度法、質量分析法、比重法並びに核磁気共鳴法等がある。これらの分析方法の中で赤外分光光度法が最も簡便で高濃度重水の分析精度が良い方法である。試料重水を厚さ約0.07 mmの測定セルに注入し、波数 $3,400\text{cm}^{-1}$ におけるHD0の吸光度を測定し、標準重水で作成した検量線から重水濃度を求める。

2.3.3 pHの測定

(1) pH測定の意義

研究炉では、放射化領域の炉心構造物と燃料の構成材には放射化生成物の少ないアルミニウムが使用されている。アルミニウムの腐食は、pHが5～8の範囲で進行しにくく、安定であることから購入重水のpHは、5.5～7.5の範囲としている。

(2) pHの測定方法

重水約 30 ml を 50 ml のガラスビーカーに採取し、ガラス電極 pH 計で測定する。

2.3.4 導電率の測定

(1) 導電率測定の意義

導電率は、重水の水質の良否を判定する指標となる。導電率の高い重水を重水系に補給すると浄化系イオン交換樹脂の交換能力を低下させるだけでなく不純物の混入によって放射化物を生成し、重水系内を汚染させると同時に重水の放射線分解を促進させ重水素ガスの発生量を増加させて原子炉の安全運転を阻害させることになる。このため、JRR-2 の 1 次冷却重水と JRR-3M の反射体重水の導電率は、 $1 \mu\text{ S/cm}$ 以下で管理しており、補給による希釈効果を考慮して購入重水の導電率は $5 \mu\text{ S/cm}$ 以下としている。

(2) 導電率の測定方法

重水約 30 ml を 50 ml のガラスビーカーに採取し、卓上型導電率計で測定する。

2.3.5 トリチウム濃度の測定

(1) トリチウム濃度測定の意義

大気水中のトリチウム濃度は、約 80 pCi/l (約 $3 \times 10^3\text{ Bq/ml}$)⁴⁾ で、これが平衡状態とすれば軽水中の濃度も同様なレベルと考えられる。重水は、軽水中に約 0.015% 含まれ、これを 99.75% 以上まで濃縮して原子炉級の重水を製造している。重水とトリチウムの分離係数が若干異なるが、この製造過程においてトリチウムも約 6,700 倍濃縮されるものとする。購入重水のトリチウム濃度は約 20 Bq/ml となり、水中許容濃度 (60 Bq/ml) 以下となる。しかし、重水は、管理区域内で取り扱うことから重水中のトリチウム濃度を約 $2 \times 10^3\text{ Bq/ml}$ 以下としている。

(2) トリチウム濃度の測定方法

- ① 試料重水 1 ml を 7 ml の液体シンチレータを入れた測定用バイアルに分取する。
- ② 十分に混合後トリチウム測定装置で測定してトリチウム濃度を求める。

2.3.6 不純物(B,Cd)の分析

(1) 不純物分析の意義

重水を原子炉の冷却材、減速材及び反射材として使用する場合には、不純物としてほう素 (B) やカドミウム (Cd) が含まれていないことを確認する必要がある。これらの不純物は、中性子吸収断面積が大きいために (^{10}B : 3,800 バーン、 ^{113}Cd : 20,000 バーン) 重水系に混入すると原子炉の運転が困難となる。このため、これらの不純物が購入重水に含まれていないことを仕様書に明記してある。

(2) 不純物の分析方法

(A) ほう素の分析 (クルクミン法)

- ① 試料重水 20 ml を 100 ml の白金皿に分取し、10% 水酸化ナトリウム溶液 (NaOH) 10 ml を加え加熱して蒸発乾固する。
- ② 残留物にクルクミン溶液 (クルクミン 0.125g を氷酢酸 100 ml に溶解した溶液) 3 ml を加え加熱して残留物を溶解する。
- ③ 放冷後に硫酸・氷酢酸溶液 (氷酢酸 50 ml に硫酸 50 ml を加えた溶液) 3 ml を加え良く混合し、約 15 分間放置する。
- ④ 30 ml のエチルアルコール ($\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$) を入れた 100 ml のメスフラスコに試料溶液を移し、エ

チルアルコールを標線まで加える。

- ⑤ 良く混合し、遠沈管に分取し、約3分間遠心分離して上澄液を測定セルに移す。
 - ⑥ エチルアルコールをブランクとして波数 555nm の吸光度を測定し、予め作成した検量線からほう素濃度を求める。
- (B) カドミウムの分析 (原子吸光法)
- ① 試料重水 50 ml をビーカーに分取し、濃硝酸(HNO₃) 1 ml を加え、乾固近くまで濃縮する。
 - ② 約 30 ml の水を加え煮沸するまで加熱する。
 - ③ 放冷後、50 ml のメスフラスコに移し、標線まで水を加えて分析用試料水とする。
 - ④ 原子吸光法で空気とアセチレン(C₂H₂)を燃焼ガスとし分析波長 2288 Å での吸光度を測定してカドミウム濃度を求める。

2.3.7 過マンガン酸カリウム消費量

(1) 過マンガン酸カリウム消費量分析の意義

重水中に有機物や硫化物が含まれているかを知るため重要な分析である過マンガン酸カリウム消費量は、 1×10^{-5} g/g-D₂O 以下としている。

(2) 過マンガン酸カリウム消費量の分析方法

- ① 試料重水 100 ml を 300 ml の共栓付き三角フラスコに分取し、(1+2)硫酸(H₂SO₄) 10 ml と N/80 過マンガン酸カリウム溶液(KMnO₄) 10 ml を加える。
- ② 沸騰水浴上で約 30 分間加熱する。
- ③ その後、還流冷却器を通して冷却した後三角フラスコに回収する。
- ④ 次に、N/80 シュウ酸ナトリウム溶液(Na₂C₂O₄) 10 ml を加えて約 70 °C まで加熱する。
- ⑤ 約 70 °C に加熱した状態を維持しながら N/80 過マンガン酸カリウム溶液で淡紅色になるまで逆滴定する。
- ⑥ 同量の純水で空試験を行う。
- ⑦ N/80 過マンガン酸カリウム溶液の滴定量から計算によって過マンガン酸カリウム消費量を求める。

2.3.8 濁度

(1) 濁度測定の意義

濁度は、重水中に不溶解性の不純物が混入しているかを知るため重要であり、測定して確認する。

(2) 濁度の測定方法

- ① 50 mm の測定用セルに試料重水を分取する。
- ② 純水をレファレンスとし、試料重水の濁度を濁度計で測定する。

2.4 回収重水の再生と精製

2.4.1 回収重水の再生

重水は、高価であり、且つ購入に長期間を有することから回収重水のうちで低濃度重水は再生し、装荷重水よりも濃度の高い重水は精製し再使用して重水の有効利用を図ってきた。ここで、再生重水とは、低濃度重水を水電解法で軽水を除去して重水濃度を上昇させた重水である。また、精

製重水とは、濃度的に原子炉で再使用が可能な回収重水から不純物や放射性物質(トリチウムは除去されない)を蒸留法等によって除去した重水である。昭和36年から昭和50年までの約14年間に渡って昭和電工(株)において回収重水の再生と精製を実施し、重水の有効利用を図った。回収重水の再生は、Table 2.5に示すような重水再生仕様書を添付して依頼する。再生重水を受入れた場合には、重水再生仕様書に記載されている受入れ検査後に技術検査調書を作成し、一般検査担当課長に報告する。また、受入れ検査の結果及び重水を受入れた年月日、種類等を「重水移動報告書」に記入し、研究炉技術開発室長の承認を受けた後、受入れ課室長及び原子炉主任技術者」に報告すると共に「重水移動報告書」に記入した事項をその都度「重水管理記録簿」に転記する。さらに、「核燃料物質・設備(重水)在庫状況変動票」に必要な事項を記入し、研究炉技術開発室長の承認を受けた後、核燃料対策室長に通知する。

2.4.2 再生重水の受入れ量

再生重水の受入れ検査は、再生仕様書に基づいて、①重量測定、②重水濃度分析、③pH、④導電率及び⑤トリチウム濃度について実施する。昭和電工(株)による再生重水の収支をTable 2.6に示す。昭和36年から昭和50年まで約7.7トンの回収重水の再生を行い約7.5トンの再生重水が納入された。回収重水の再生に伴う損失量は約0.45トンで平均再生収率は約98%であった。

2.4.3 回収重水の精製

回収重水には、原子炉の運転によって生成されたトリチウムが含まれるために簡単には廃棄処分ができない。このため、回収重水は、昭和電工(株)に依頼して再生と精製を行って有効利用を図ってきた。しかし、昭和50年に昭和電工(株)の再生・精製装置が老朽化等により撤去されて回収重水の再生と精製は、不可能となった。また、JRR-3から回収した重水には、昭和43年3月に発生した天然金属ウラン燃料の破損に伴い重水中にウランが微量に含まれ、再使用ができなくなった。このために、昭和55年に口径0.1 μ mの陶管フィルターと小型イオン交換樹脂塔を装備した精製装置を製作した。この精製装置でJRR-3からの回収重水約1.4トンを精製しJRR-2に転用することにより回収重水の有効利用を図った。また、JRR-3の改造工事前の準備として全ての装荷重水と回収重水を保管管理するためにJRR-3の使用済み燃料貯蔵室地階にステンレス鋼製の重水保管タンクを備えた重水保管施設を設置した。重水保管タンク内での回収重水の長期保管に備えタンクの腐食防止対策として大型ロータリエバポレータで約0.8トンの回収重水中の不純物を除去し精製した後、重水保管タンクに注入した。これらの経過をTable 2.7に示す。

3. 重水在庫量の推移

3.1 重水の種類

研究炉で使用する重水は、未使用重水、装荷重水及び回収重水の3種類に分類して管理している。未使用重水は、主として購入重水であるが、再生重水も含まれる。未使用重水は、重水浄化系で使用するイオン交換樹脂の軽水を重水で置換する作業(以下「重水化」と云う)に使用すると同時に原子炉へ補給するために保管している重水である。回収重水は、水・ガス分析用の試料水として採取した重水や原子炉の保守作業等に伴って重水系から回収された重水である。未使用重水と回収重水は、研究炉技術開発室で保管重水として管理している。装荷重水は、原子炉に装荷されて

いる重水で各炉の管理課と研究炉技術開発室において共同で管理している。

3.2 未使用重水

重水は、昭和55年まで購入して昭和50年まで回収重水の再生を行った。未使用重水在庫量の変化を Table 3.1 と Fig 3.1 に示す。未使用重水は、主として原子炉への補給重水と浄化系イオン交換樹脂の重水化用として使用した。JRR-2 では、昭和40年から昭和48年までの間に重水タンクサポートリング部から熱遮蔽軽水系へ重水が漏洩したために未使用重水を補給した。JRR-3 では、昭和43年から昭和44年にかけて発生した天然ウラン金属燃料体の破損によって1次冷却重水系に溶解した溶存ウラン除去作業に使用するイオン交換樹脂の重水化に未使用重水を使用した。また、昭和45年から昭和53年まで断続的に発生した反射体炭酸ガス系からヘリウム系への炭酸ガス漏洩に伴う重水浄化のためのイオン交換樹脂の重水化に未使用重水を使用した。昭和58年には、JRR-3 の改造工事に伴う解体準備として重水炉に適用可能なCANDECON法による原子炉の化学除染を実施した⁵⁾。CANDECON法は、カナダのCANDU炉の化学除染法として開発された低濃度の除染剤を使用し、除染後の汚染物や除染剤は、イオン交換樹脂で除去する方法である。この除去用として使用するイオン交換樹脂の重水化に約1トンの未使用重水を使用した。平成9年度末における未使用重水の在庫量は、約0.8トンとなっている。

3.3 回収重水

回収重水は、昭和50年まで昭和電工(株)の再生装置で再生並びに精製して有効利用を図ってきた。しかし、再生装置の老朽化等により昭和50年に撤去されたために再生と精製は不可能となった。このため、昭和51年以降からの回収重水は、各原子炉において保管することとなった。昭和59年には、JRR-3 の原子炉改造工事に先だって JRR-3 の1次冷却重水系内の約29トンの装荷重水を重水保管タンクへ移送した。昭和60年に完成した JRR-4 の純中性子場照射設備の重水タンクへ約1トンの重水を移動した。昭和62年には、JRR-2 の中濃縮燃料体への移行による非常冷却用設備増設に伴って JRR-3 から回収した重水の内から約6.4トンを JRR-2 へ移動した。また、平成元年には、JRR-3M の完成に伴って約7.1トンの重水を反射材として反射体重水系に装荷した。回収重水在庫量の変化を Table 3.2 と Fig 3.2 に示す。JRR-2 の解体準備作業として平成9年12月には、約5.2トンの重水を1次冷却重水系から回収し JRR-3M 重水保管施設のタンク(DT-1)に保管した。平成9年度末における回収重水の在庫量は、約21トンとなっている。

4 . 各炉での使用経緯

4.1 JRR-2

4.1.1 1次冷却重水系の概要

JRR-2は、濃縮ウラン重水減速冷却非均質型の熱出力10MW の研究炉で、炉体部は、遮蔽体の内側の熱遮蔽軽水タンク(内径約244cm で深さが約246cm の厚さ約1.27cm のアルミニウム製)に炉心タンク(内径約152cm で深さが約193cm の厚さ約1.27cm のアルミニウム製)が支持リングで吊るされた形状となっている。JRR-2では、45%中濃縮ウラン・アルミニウム分散型合金燃料を24体

使用し、カドミニウム製の制御棒6本で原子炉を制御しながら原子炉を運転してきた。JRR-2の主な仕様を Table 4.1 に示す。JRR-2の冷却系は、1次冷却重水系、ヘリウム系、熱遮蔽軽水系及び2次冷却系の4系統から構成されている。1次冷却重水系では、中性子の減速材・反射材及び燃料の冷却材として非常冷却用を含めて重水約16トンの重水を使用している。1次冷却重水系には重水浄化系が付属されている。重水浄化系は、2基のフィルタと2基の混床式イオン交換樹脂塔で構成されている。イオン交換樹脂塔には、重水化済みのイオン交換樹脂約75ℓ(樹脂塔1基当たり陽イオン交換樹脂:25ℓ、陰イオン交換樹脂:50ℓ)が充填されている。重水浄化系では、重水中の不純物やトリチウム以外の放射性物質を除去して重水を浄化している。ヘリウム系では、重水のカバーガスとして約13m³のヘリウムガスが使用されている。ヘリウム系は、原子炉停止時の燃料交換作業や照射試料交換作業時には、トリチウムによる内部被曝を防止するために負圧にされて空気と置換される。原子炉運転前には、ヘリウム系のヘリウム置換作業(ヘリウムチャージ作業)を行ってヘリウム濃度を約90vol%以上まで上昇させる。JRR-2の冷却系統の概略図を Fig.4.1 に、各冷却系統の概略を Table 4.2 に示す。原子炉運転中の水質は、導電率を1μ S/cm 以下で pH を5~8の範囲で管理してアルミニウム製の炉心タンクや燃料被覆材等の腐食防止を図っている。原子炉の運転に伴って1次冷却重水系では、重水素と中性子との $D(n, \gamma)T$ の反応で約 3.7×10^4 Bq/ml/10MWD の生成率でトリチウムが生成されトリチウム濃度が上昇する。

4.1.2 重水の使用経緯

JRR-2における補給重水量、回収重水量、消費重水量及び装荷重水量の推移を Table 4.3 と Fig. 4.2 に示す。

(1) 補給重水量

JRR-2における初期装荷重水量は、約8.5トンであったが、これまでに初期装荷重水量の約8.5トンを除いて約16トン重水を補給した。補給重水量の内訳は、①昭和40年から昭和48年における熱遮蔽軽水系への重水漏洩による消費等に伴う補給が約6.5トン、②昭和62年の燃料の中濃縮化移行のための工学的安全施設の増設に伴う約6.6トンの増量及び③重水系イオン交換樹脂の重水化並びに原子炉の保守点検等の損失に伴う約3トンの合計約16トンである。

(2) 回収重水量

JRR-2での定常的な回収重水としては、①重水系イオン交換樹脂の重水化に伴う回収、②原子炉の点検保守作業に伴う回収及び③原子炉の水ガス管理としての重水の化学分析に伴う回収等がある。また、非定常的には重水系内からの重水漏洩に伴う回収がある。これらの回収重水は、不純物や軽水が混入するために再装荷ができない重水である。また、回収重水には、放射性物質のトリチウムや放射化生成物が含まれ廃棄が困難となるため保管管理となる。このため、蓄積された回収重水は昭和49年まで昭和電工(株)に依頼して再生や精製を行って有効利用を図った。しかし、昭和50年からは再生や精製が不可能となったために独自で精製装置を製作し、高濃度の回収重水は精製後再使用して有効利用を図った。炉体改修工事後からは JRR-2の運転が順調に進められ、回収量が減少したために回収重水は容量200ℓのステンレス鋼製ドラム缶に密封した状態で保管管理してきた。JRR-2において定常的な回収重水としては、重水系イオン交換樹脂の重水化回収が主で約3.5トンの重水を回収し、これを再生・精製して重水の有効利用を図った。昭和35年の臨界から

平成8年の原子炉永久停止までの年間回収量は平均で約100 kgとなる。平成9年12月には、約5.2トンの重水をJRR-3に移動し重水保管施設の重水タンク(DT-1)に保管して原子炉の解体に備えた。

(3) 消費重水量

消費重水量には、①重水漏洩事故等に伴う非定常的な消費、②重水系イオン交換樹脂の重水化による消費及び③原子炉の運転管理(使用済み燃料への付着重水、照射試料交換に伴う照射試料への付着重水及び重水のカバーガスであるヘリウムチャージに伴う消費)に伴う定常的な消費等がある。これまでの消費重水量は、約5.3トンであった。この内訳としては、昭和40年から昭和50年における熱遮蔽軽水系への重水漏洩に伴う非定常的な消費量が約3.2トン、重水系イオン交換樹脂の重水化に伴う消費量が約1.3トン及び原子炉の運転管理に伴う定常的な消費量が約0.8トンの合計約5.3トンとなる。このうち、熱遮蔽軽水系への重水漏洩による消費が約60%となる。昭和40年頃に下段プラグ支持リング外周部から炉心タンク内の重水が熱遮蔽軽水系へ漏洩することが判明して昭和43年から昭和44年にかけて下段プラグ補修工事を実施した。しかし、昭和45年から再度、重水漏洩が認められ、昭和48年5月には約10 kg/dayの漏洩率となったため⁶⁾、昭和49年から炉体改修工事を開始し昭和50年に改修工事が終了した。昭和36年から昭和44年までの年平均消費重水量は約300 kgであったが、重水漏洩が再発した昭和45年から昭和49年までの年平均消費重水量は、約500kgで約1.6倍となった。炉体改修工事後の昭和50年から平成9年までの年平均消費重水量は、約5 kgで改修工事前の約1/100となり、重水の消費量が大幅に減少した。

(4) 装荷重水量

昭和35年の初期装荷から昭和61年までの装荷重水量は、約8.5トンから約9.8トンの範囲であった。昭和62年に燃料の中濃縮化移行に際しての工学的安全施設の見直しによる非常用冷却系の増設に伴って約6.6トンの重水を増量して装荷重水量は約16トンとなった。平成8年に原子炉が完全に停止となり、平成9年12月に原子炉解体工事の準備として約5.2トンの装荷重水をJRR-3に移動し、平成9年度末における装荷重水量は約10.9トンとなっている。その後、JRR-2では、重水配管系と重水タンクを重水保管施設として整備し装荷重水を保管重水として保管管理している。

4.1.3 1次冷却重水系重水濃度変化

JRR-2の1次冷却系で使用している重水は、軽水の混入等によって90mol%以下に濃度が低下すると軽水による中性子の吸収が多くなり、原子炉の過剰反応度が低下して原子炉の運転に支障を来すことになる。このため、重水濃度は、高濃度に維持するように管理してきた。JRR-2の1次冷却重水系の重水濃度変化を Fig. 4.3 に示すが、昭和40年頃から徐々に重水濃度が低下して昭和49年の炉体改修工事開始前で約96.5mol%となった。重水濃度が低下した原因は、昭和40年の燃料孔変形及び重水漏洩修復作業、昭和42年の主熱交換器の補修、昭和43年、昭和44の炉体修復工事並びに昭和49年から開始された炉体改修工事等の工事のために実施した燃料の再装荷に伴う付着軽水(使用済み燃料プール水)の混入や燃料・照射試料交換に伴うヘリウムチャージ作業時の空気中の水分の混入等によるものと考えられる。昭和49年の炉体改修工事では、ヘリウム系を上段と下段とに分離し、炉心タンクの開放面積が最小限になるように改修した。このヘリウム系の改修によってヘリウムチャージ作業時での重水系への水分の混入量が少なくなり重水の濃度低下も緩やかになった。昭和61年の燃料の中濃縮燃料体への移行に伴って増設された非常用冷却系への重水補

給(約 6.6トン)によって重水濃度が97.4mol%に上昇し、その後、平成9年の原子炉の運転停止までの期間における濃度低下は認められなかった。

4.1.4 重水中のトリチウム濃度変化

1) 1次冷却水重水中のトリチウム濃度変化

1次冷却水重水系では、原子炉運転に伴って放射性核種が含まれる⁷⁾と同時に以下の反応でトリチウムが生成される⁸⁾。

① 重水及び軽水中の重水素と中性子との $D(n, \gamma)T$ の反応による生成

② 核燃料の Ternary Fission によって生成されたトリチウムの燃料被覆材からの漏洩

JRR-2は重水炉であることから①の反応でトリチウムが生成されるのが主である。生成されたトリチウムは、1次冷却重水浄化系のイオン交換樹脂では吸着除去されない放射性核種であり1次冷却重水中に蓄積されて徐々に濃度が上昇する。1次冷却重水系のトリチウム濃度変化を Fig. 4.4 に示すが、昭和49年の炉体改修工事に伴う運転停止並びに燃料の中濃縮化に伴う重水の増量によってトリチウム濃度が低下している。1次冷却重水のトリチウム濃度の実測値から1次冷却重水系では、約 3.7×10^4 Bq/ml/10MWD の生成率で生成されて蓄積される。平成8年12月の JRR-2 の原子炉運転の永久停止時におけるトリチウムは、約 4.2×10^7 Bq/ml である。

2) 1次冷却重水系でのトリチウムの生成量

JRR-2の炉心タンク内では、重水素と熱中性子との $D(n, \gamma)T$ 反応で(1)式によってトリチウムが生成される。

$$T(\text{Bq/cm}^3) = K \cdot \phi n_t \cdot N \cdot \sigma \cdot S \text{-----(1)}$$

ここで

K:希釈係数=炉心タンク内の重水量/全重水量=3/9=0.33

ϕn_t :炉心タンク内の平均熱中性子束= 4.68×10^{13} (n/cm²·sec)⁸⁾

N:重水素の原子数= 6.46×10^{22} (atoms)

σ :放射化断面積= $0.57\text{mb} = 5.7 \times 10^{-28}$ cm²

S:飽和係数=(1-exp- $\lambda \cdot t$)

t:原子炉の運転時間

λ :トリチウムの壊変定数(1.8×10^{-9} sec⁻¹)

年間での原子炉の稼働率を約40%とし、(1)式に数値を代入して計算すると Fig. 4.4(点線)に示す生成量となる。Fig. 4.4に示すように実測値と計算値のトリチウム濃度の上昇率は、比較的良好一致していることから、1次冷却重水中のトリチウムは、重水素と中性子との $D(n, \gamma)T$ の反応で生成されたものが主である。1次冷却重水中に含まれるトリチウムは、約12.6年の物理的半減期でソフトβ線(0.8 MeV)を放出し、³He に変化する放射性物質である。このように原子炉で使用した重水には高濃度のトリチウムが含まれるためにトリチウムによる内部被曝防止対策を十分に施して重水を取り扱っている。

4.1.5 重水浄化系イオン交換樹脂塔の重水化と積算精製量

1) 重水浄化系イオン交換樹脂塔の重水化

純水製造用のイオン交換樹脂塔は、空間速度：SV (Space Velocity : 1時間当たりの浄化流量 / イオン交換樹脂量) が約20~30、樹脂層が内径の約3~6倍として設計される。JRR-2の重水浄化系には、ステンレス鋼製のカートリッジタイプ(内径約270mm、樹脂層約1,600mm)の混床式イオン交換樹脂塔が予備を含めて2基設置され、SV 約24(1800 ℓ/hr / 75 ℓ)で使用している。1基当たりのイオン交換樹脂塔には、同当量とするために再生済み陽イオン交換樹脂約25 ℓ、陰イオン交換樹脂50 ℓの計75 ℓが1 : 2の割合で混合された状態で充填されている。再生済みのイオン交換樹脂には約50%の軽水(H₂O)が含まれ、交換基も水素基(R ≡ H⁺)と水酸基(R ≡ OH⁻)となっている。1次冷却重水系の重水濃度の低下は、原子炉の反応度を低下させて原子炉の運転に支障をきたすことになるために重水濃度はできるだけ高濃度に維持している。1次冷却重水系の重水濃度低下を防止するために重水浄化系で使用するイオン交換樹脂は、軽水(H₂O)を重水(D₂O)で置換すると同時に交換基も交換した(重水化: R ≡ H⁺+D₂O → R ≡ D⁺, R ≡ OH⁻+D₂O → R ≡ OD⁻)後に浄化系に接続して使用する。

2) 重水浄化系イオン交換樹脂塔の有効交換容量と消費交換容量

(1) 陽イオン交換樹脂塔

(a) 陽イオン交換樹脂塔の有効交換容量

使用前の陽イオン交換樹脂の交換容量は、約2.0 equivalent/ℓ (当量/ℓ)で樹脂量が約25 ℓであることから全交換容量は、約50eq となる。イオン交換樹脂をカラム法で使用した場合には、全交換容量の約1/3が有効に使用される。このため、陽イオン交換樹脂の有効な交換容量は、約17eq となる。

$$\text{陽イオン交換樹脂の有効交換容量} = 2.0 \text{ eq/ℓ} \times 25 \text{ ℓ} \times 1/3 = 17 \text{ eq}$$

(b) 陽イオン交換樹脂塔の消費交換容量

炉体改修工事前の炉心タンク内には、アルミニウム製燃料孔の腐食生成物が混入して重水の水質を悪化させたためにイオン交換樹脂塔の積算精製量が平均で約2,000 m³であった。ここでは、陽イオン交換樹脂の消費交換容量は、溶存するアルミニウム濃度で評価する。重水中のアルミニウム濃度は、オキシド抽出法の検出限界濃度である0.05 μg/ml以下であるが、上限濃度を0.05 μg/mlとして陽イオン交換樹脂の交換容量の消費量を計算によって求める。炉体改修工事前の重水浄化系イオン交換樹脂塔の積算精製量は、平均して約2,000 m³であることから除去されるアルミニウムイオン(Al³⁺)量は、

$$0.05 \mu \text{ g/ml} \times 2 \times 10^3 \times 10^6 \text{ ml} = 1.0 \times 10^2 \text{ g} \text{ となる。}$$

アルミニウムイオン(Al³⁺)の1eqは、9g(27/3=9)であるから1.0×10² g / 9g = 11eq が消費されて殆どの陽イオン交換樹脂の有効交換容量は、重水中に溶存しているアルミニウムの除去によって消費される。

(2) 陰イオン交換樹脂塔

(a) 陰イオン交換樹脂塔の有効交換容量

使用前の陰イオン交換樹脂の交換容量は、約1.2eq/ℓで樹脂量が約50ℓであることから全交換容量は、約60eqとなる。イオン交換樹脂をカラム法で使用した場合には、全交換容量の約1/3がイオン交換樹脂をカラム法で使用した場合には、全交換容量の約1/3が有効に使用される。このため、陰イオン交換樹脂の有効な交換容量は、20eqとなる。

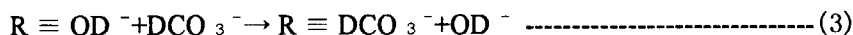
$$\text{陰イオン交換樹脂の有効交換容量} = 1.2 \text{ eq/ℓ} \times 50 \text{ ℓ} \times 1/3 = 20 \text{ eq}$$

(b) 陰イオン交換樹脂の消費交換容量

原子炉停止時の燃料や照射試料の交換作業によってヘリウム系が空気と置換されるため原子炉運転前には、ヘリウムチャージを行って90vol%以上のヘリウム濃度とする。これらの作業でヘリウム濃度が低下し、空気中の炭酸ガスが重水に溶解し(2)式の反応で陰イオンの炭酸重水素イオン(DCO₃⁻)が形成される。この炭酸重水素イオンが陰イオン交換樹脂で吸着除去されることによって陰イオン交換樹脂の交換容量が消費される。重水のpHは、約6前後でこのpH範囲で炭酸ガス(CO₂)が重水に溶解すると以下の反応で不離炭酸(D₂CO₃)が形成され、さらに解離して陰イオンの炭酸重水素イオン(DCO₃⁻)となって導電率を上昇させる。



また、炭酸重水素イオンは、陰イオン交換樹脂と(3)式ようにイオン交換して吸着除去される。



空気中には、約0.035vol%(350ppm)から約0.06vol%(600ppm)の炭酸ガスが含まれる⁹⁾。原子炉の停止中と運転中におけるヘリウム系への空気の混入量から、ヘリウム中の炭酸ガスの平均濃度は、約0.04vol%(400ppm)と考えられる。重水に対する炭酸ガスの溶解度は、ヘリウム中の炭酸ガス濃度や溶解時の温度によって異なる。ヘリウム中の炭酸ガス濃度が0.04vol%(400ppm)で原子炉運転中の水温が約50℃では、約0.4μg/mlの炭酸ガスが溶解し、(2)式によって

$$0.4 \text{ g/ml} \times \text{DCO}_3^- / \text{CO}_2 = 0.4 \times 62/44 = \text{約 } 0.56 \text{ } \mu \text{ g/ml}$$

の炭酸重水素イオンが形成されることになる。重水浄化系に使用しているイオン交換樹脂塔の積算精製量は、約2,000m³であることから除去される炭酸重水素イオン量は、

$$0.56 \text{ } \mu \text{ g/ml} \times 2 \times 10^3 \times 10^6 \text{ ml} = 1.12 \times 10^3 \text{ g} \text{ となる。}$$

炭酸重水素イオンの1当量は、62gであるから

$1, 12 \times 10^3 \text{g} / 62 \text{g} = 18 \text{eq}$ が消費されることになる。

水温やヘリウム中の炭酸ガス濃度によって炭酸ガスの溶解量が変化することを考慮すると陰イオン交換樹脂の交換容量の殆どがヘリウム中の炭酸ガスの溶解によって形成された炭酸水素イオンの除去で消費されることになる。

3) 重水浄化系イオン交換樹脂塔の重水化と積算精製量

昭和35年の原子炉の臨界から平成9年の原子炉の運転が永久停止されるまでの約36年間に23回の重水化を実施した。イオン交換樹脂塔の重水化実績を Table 4.4 に示す。この重水化作業では、樹脂塔 1 基当たり約114kg の重水を使用し、約44kg の重水が回収され、約68kg の重水が重水系への間接補給となる。重水化作業では、軽水が重水に混入して低濃度の重水回収重水が発生する。これらの低濃度重水は、トリチウム濃度が許容水中濃度 (60Bq/cm^3) 以下で再使用ができない重水であるので廃棄した。原子炉運転初期の昭和35年、36年当時の重水の使用実績が不明な重水化とこれまでの23回の重水化で約2.6トンの重水を使用したことになる。使用済みのイオン交換樹脂塔は、放射性廃棄物処理施設に運搬して保管廃棄するが、この時に 1 基当たり約34 kg の重水が付着重水として同時に保管廃棄されることになる。重水化作業で発生した低濃度重水と使用済みイオン交換樹脂塔内の付着重水は、原子炉運転による消費量として処理する。昭和35年から昭和49年の炉体改修工事開始前の原子炉停止までの精製率(積算精製量/イオン交換樹脂量)は、平均で約30 m^3/t であった。炉体改修工事終了後の昭和50年から原子炉の運転が永久停止された平成9年までの平均精製率は、約150 m^3/t と約5倍となった。これまでの重水浄化系イオン交換樹脂塔の使用実績を Table 4.5 に示す。平均精製率が向上したのは、炉体改修工事によって重水中に混入する不純物が減少したこととヘリウム系を上段と下段に分離して燃料や照射試料の交換作業による下段のヘリウム系のヘリウム濃度低下防止対策を講じたためである。重水浄化系イオン交換樹脂塔の使用期間が長期化したことによって重水化に要する重水量が減少し、重水の購入費用が大幅に減少して経済的となり、改修工事が有効であったことが確認された。

4.2 JRR-3M

4.2.1 反射体重水系の概要

JRR-3は、熱出力10MW の天然ウラン重水減速冷却型の研究炉で昭和37年9月に臨界となり昭和58年まで共同利用運転された。JRR-3では、1次冷却系に約28トンの重水が使用され、燃料には、天然ウラン金属燃料246本が使用されていた。1次冷却重水系のカバーガスとしてヘリウムが使用されていた。また、反射系は炭酸ガスで冷却される黒鉛反射材で構成されていた。昭和61年から原子炉の高性能化のため改造されて平成元年に JRR-3M として運転が再開された。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、炉体部は、原子炉プール、チャンネル及び使用済み燃料貯蔵プールから構成されている。原子炉プールには、炉心タンクと反射体重水タンク並びにベリリウム反射材が設置されている。JRR-3M では、20%濃縮度の低濃縮燃料の標準燃料型26体並びにフォロワ型燃料6体の合計32体の燃料を使用し、ハフニウム製の制御棒6本で原子炉の制御を行っている。JRR-3M の主な仕様を Table 4.6 に示す。JRR-3M の冷却系は、1次冷却水系、反射体重水系、ヘリウム系及び2次冷却系の4系統から構成されている。反射体重

水系では、JRR-3から回収した約7.3トンの重水を反射材として再使用している。反射体重水浄化系には、2基のフィルターと2基の混床式イオン交換樹脂塔が設置されている。イオン交換樹脂塔には、重水化済みのイオン交換樹脂約36ℓ（樹脂塔1基当たり陽イオン交換樹脂:12ℓ，陰イオン交換樹脂:24ℓ）が充填されている。原子炉運転時の重水浄化系では、重水中の不純物やトリチウム以外の放射性物質を除去し、重水を浄化して水質を良好に維持している。原子炉運転中の重水の水質は、導電率を $1\mu\text{ S/cm}$ 以下でpHを5~8の範囲で管理してアルミニウム製の重水タンク等の腐食を防止している。反射体重水系では、原子炉の運転に伴って重水素と中性子との反応で約 $7.4\times 10^4\text{ Bq/ml}/20\text{MWD}$ の生成率でトリチウムが生成され、トリチウム濃度が上昇して蓄積されるために重水の取り扱いには充分注意している。JRR-3Mの冷却系統の概略図をFig. 4.5に各冷却系統の概略をTable 4.7に示す。また、反射体重水系で中性子の反射材として重水を使用することによって重水タンク領域部で高い熱中性子束が得られ、R I製造の照射設備や中性子ビーム実験設備の性能が向上した。JRR-3とJRR-3Mにおける重水の使用経過について以下に述べる。

4.2.2 重水の使用経緯

JRR-3とJRR-3Mにおける補給重水量、回収重水量及び装荷重水量の推移をTable 4.8とFig. 4.6に示す。

(1) 補給重水量

JRR-3における初期装荷重水量は、約27トンであったが、これまでに約12トンの重水を補給した。主な補給重水量の内訳は、①昭和38年に発生した重水浄化系フィルタからの漏洩に伴う約0.9トンの補給、②昭和48年の燃料の UO_2 化に伴う約0.9トンの補給及び③重水系イオン交換樹脂の重水化による間接補給で約5.2トン並びに④原子炉の燃料・照射試料交換及び保守点検等の定常損失に伴う約5トンの合計約12トンの補給重水量となった。一方、JRR-3Mにおける補給重水量は、平成元年の装荷以来から平成9年までの重水系イオン交換樹脂の重水化による約86kgの間接補給だけであった。

(2) 回収重水量

JRR-3では、定常的な回収重水としては、①重水系イオン交換樹脂の重水化回収、②原子炉の点検保守作業に伴う回収及び③原子炉の水ガス管理としての重水の化学分析に伴う回収等があり、非定常的には重水漏洩に伴う回収がある。JRR-3では、約6.7トンの重水を回収しこれを再生・精製して重水の有効利用を図った。主な非定常的な回収重水としては、昭和38年に発生した重水浄化系フィルタから漏洩した約0.9トンの回収重水及び昭和44年1月から開始した1次冷却重水系溶存ウランの精製作業に伴う約0.6トンの回収重水等である。また、昭和45年から昭和53年に掛けて発生した反射体炭酸ガス系からヘリウム系への炭酸ガス漏洩に伴う重水の精製作業のためのイオン交換樹脂の重水化の約0.8トンの回収重水並びに昭和58年に実施した原子炉化学除染に伴う約0.5トンの重水化回収等の合計約3トンの重水化に伴う回収重水がある。これら以外の原子炉の運転に伴う定常的な回収重水量は約3.7トンとなる。昭和37年の原子炉の臨界から昭和57年の改造工事前の原子炉停止までの年間回収量は平均で約190kgとなる。昭和59年には、原子炉の改修工事のため約27トンの重水を重水保管タンクに回収した。平成元年には、JRR-3Mの運転準備として約7.3トンの重水を反射材として反射体重水系に充填した。JRR-3Mでの回収重水は、重水の化学分析に伴う回収と重水系イオン交換樹脂の重水化に伴う回収だけである。

(3) 消費重水量

JRR-3の原子炉運転で重水を消費する項目は、JRR-2とほぼ同様でこれまでに約3.5トンの重水が消費された。この内訳としては、①重水系イオン交換樹脂の重水化に伴う消費量が約1.2トン及び②原子炉の運転管理に伴う定常的な消費量が約2.3トンの合計約3.5トンとなる。一方、JRR-3Mでは、90vol%以上のヘリウムガスをカバーガスとして使用し、さらに密封した状態で反射材として重水を使用しているために燃料交換や照射試料交換等に伴う定常損失はなく重水系イオン交換樹脂の重水化に伴う消費重水量だけである。

(4) 装荷重水量

JRR-3では、昭和36年の初期装荷から昭和57年の原子炉運転停止までの装荷重水量は、約28トン前後であった。昭和59年に原子炉の改造工事に伴う準備作業として全ての装荷重水を重水保管タンクに移送した。また、平成元年には、JRR-3Mの運転準備としてJRR-3から回収した重水約7.3トンを反射体重水系に再装荷した。JRR-3Mの反射体重水系はヘリウムガスを充填した密封状態で使用されているため装荷重水量は殆ど変化せず約7.3トンが維持されている。

4.2.3 JRR-3の1次冷却重水系とJRR-3Mの反射体重水系の重水濃度の変化

JRR-3の1次冷却重水系の重水濃度が低下すると原子炉の過剰反応度が低下して原子炉の運転に支障を来すことになるため重水濃度は高濃度に維持するように管理した。JRR-3での初期装荷時の重水濃度は、99.75mol%であったが、昭和57年の改造に伴う原子炉運転停止時には、99.55mol%まで低下した。約20年間の原子炉運転によって約0.2mol%の低下であり、年平均約0.01mol%の低下率で1次冷却重水系の維持管理が良好であったことを示している。また、JRR-3Mの反射体重水系の重水濃度低下は殆ど見られず約99.44mol%前後であり、反射体重水系の管理は良好に維持されている。JRR-3とJRR-3Mの重水の濃度変化をFig. 4.7に示す。

4.2.4 反射体重水中のトリチウム濃度変化と生成量

1) 反射体重水中のトリチウム濃度変化

改造前のJRR-3では、1次冷却水として約27トンの重水が使用され、約 3×10^4 Bq/ml/10MWDの生成率でトリチウムが生成された。原子炉の改造工事に伴う解体前に実施した原子炉化学除染後の昭和58年8月におけるトリチウム濃度は、約 3.3×10^7 Bq/mlであった。一方、原子炉改造後のJRR-3Mの反射体重水系でのトリチウム濃度変化はFig. 4.8に示すように実測値から約 7.2×10^4 Bq/ml/20MWDの生成率となっている。定格出力での年間の運転時間は、平均で約160日であるから年間の生成率は、約 1.2×10^7 Bq/ml/年(約0.3mCi/ml/年)となる。

2) 反射体重水でのトリチウムの生成量

反射体重水系では、原子炉運転に伴って放射性核種が含まれる¹⁰⁾と同時にトリチウムが生成される。改造炉の反射体重水系で使用する重水は、改造前のJRR-3から回収した重水を再使用して有効利用した。このために、反射体重水系で生成されるトリチウム濃度〔T D₂O(Bq/cm³)〕は、(4)式から計算される。

$$T D_2 O(Bq/cm^3) = C_0 \times \exp(-\lambda \cdot t) + K \cdot \phi_{th} \cdot N_D \cdot \sigma_{act} \cdot S \text{ -----(4)}$$

ここで

C_0 :初期装荷重水のトリチウム濃度(2.50×10^7 Bq/cm³)

K :希釈係数(重水タンク内の重水量/全重水量= $3.6 \text{ m}^3/6.630 \text{ m}^3=0.53$)

ϕ_{th} :平均熱中性子束: 5.5×10^{13} (n/cm²·sec)⁸⁾

N_D :重水素の個数: 6.6×10^{22} (個/cm³)

σ_{act} :放射化断面積: 0.57 mb ($5.7 \times 10^{-28} \text{ cm}^2$)

λ :トリチウムの壊変定数: 1.8×10^{-9} (sec⁻¹)

t :原子炉の運転時間(sec)

S :飽和係数:($1-\exp(-\lambda \cdot t)$)

原子炉の運転時間と反射体重水タンク内のトリチウム生成量との関係を Fig. 4. 8に示す。

年間での原子炉の稼働率を約50%とし、(4)式に数値を代入して計算すると Fig. 4. 8(点線)に示す生成量となる。Fig. 4. 8に示すように実測値と計算値のトリチウム濃度の上昇率は、比較的良好一致し、平成10年3月末における反射体重水系のトリチウム濃度は、約 1×10^8 Bq/ml (約2.7 mCi/ml) となっている。将来、反射体重水系の重水は、重水保管施設の重水保管タンク内で保管管理することになる。重水保管タンク設備の許可申請では、重水保管設備で重水漏洩事故が発生した場合のトリチウムによる内部被曝評価は、トリチウム濃度を約 2×10^8 Bq/ml (約 5 mCi/ml) で計算している。従って、重水保管施設で保管する重水のトリチウム濃度は、 2×10^8 Bq/ml 以下にしなければならない。仮に、トリチウム濃度を約 1.8×10^8 Bq/ml (約4.5 mCi/ml) で交換するものとするとならば年間 7サイクルの運転として年間の生成率から、反射体重水の交換時期は約6年後の平成16年頃になる。交換用の重水としては、現在重水保管タンク内で保管中の高濃度重水が再使用できる。

4. 2. 5 重水浄化系イオン交換樹脂塔の重水化と積算精製量

1) ヘリウム系への炭酸ガスの漏洩

改造前の JRR-3のヘリウム系は、上段と下段に分離され燃料交換作業や照射試料交換作業に伴うヘリウム濃度の低下は少ない。しかし、昭和45年2月に RI 冷却系からヘリウム系に炭酸ガスが漏洩してヘリウム中の炭酸ガス濃度が最高で約2 vol%まで上昇した。また、昭和46年1月から4月にかけて RI 冷却系の垂直照射孔からヘリウム系に炭酸ガスが漏洩してヘリウム中の炭酸ガス濃度が平均で約0.5vol%まで上昇した¹¹⁾。昭和49年6月には反射体冷却系のアルミニウムパッキンの劣化により炭酸ガスがヘリウム系に漏洩してヘリウム中の炭酸ガス濃度が約500ppm まで上昇した¹²⁾。ヘリウム系に漏洩した炭酸ガスは、ヘリウム精製系を運転して活性炭で吸着除去し、炭酸ガスが重水中に溶解して形成された陰イオン状の炭酸重水素イオン(DCO₃⁻)はイオン交換樹脂で吸着除去して重水を精製した。ヘリウム系に漏洩した炭酸ガスは、重水に溶解して炭酸重水素イオン(DCO₃⁻)等を形成し浄化系イオン交換樹脂の精製能力を急激に劣化させ重水化に大量の重水を必要とし不経済となる。

2) 陰イオン交換樹脂

(a) 陰イオン交換樹脂の有効交換容量

使用前の陰イオン交換樹脂交換容量は、約1.2eq/ℓ 程度で樹脂量が約50 ℓ であることから全交

換容量は、約60eq となる。イオン交換樹脂をカラム法で使用した場合には、全交換容量の約1/3がイオン交換樹脂をカラム法で使用した場合には、全交換容量の約1/3が有効に使用される。このため、陰イオン交換樹脂の有効な交換容量は、20eq となる。

$$\text{陰イオン交換樹脂の有効交換容量} = 1.2\text{eq/l} \times 50\text{l} \times 1/3 = 20\text{eq}$$

(b) 陰イオン交換樹脂の消費交換容量

改造前の JRR-3の重水浄化系イオン交換樹脂塔の平均積算精製量は、約2,000m³であった。昭和45年2月に RI 冷却系からヘリウム系に炭酸ガスが漏洩してヘリウム中の炭酸ガス濃度が最高で約2 vol%まで上昇した。このため、イオン交換樹脂の積算精製量は、通常の約1/10の200m³から376m³まで低下した。ヘリウム中の炭酸ガスが重水に溶解して炭酸重水素イオンが形成される。ヘリウム中の炭酸ガス濃度が約0.5 vol%(5,000ppm)で原子炉運転中の水温が約50℃では、約5μg/mlの炭酸ガスが溶解し、(2)式によって

$$5\mu\text{g/ml} \times \text{DCO}_3^-/\text{CO}_2 = 5 \times 62/44 = \text{約 } 7\mu\text{g/ml}$$

の炭酸重水素イオンが形成されることになる。重水浄化系に使用しているイオン交換樹脂塔の積算精製量は、約200m³であることから除去される炭酸重水素イオン量は、

$$7\mu\text{g/ml} \times 2 \times 10^2 \times 10^6\text{ml} = 1.4 \times 10^3\text{g}$$

となる。

炭酸重水素イオンの1当量は、62g であるから

$$1.4 \times 10^3\text{g} / 62\text{g} = 23\text{eq}$$

が消費されることになる。

ヘリウム系に炭酸ガスが混入すると重水に溶解し炭酸重水素イオンを形成して陰イオン交換樹脂の交換容量が消費されることで重水化が多くなり、重水が大量に消費され不経済となる。

3) 重水浄化系イオン交換樹脂塔の重水化と積算精製量

JRR-3では、昭和36年から昭和58年の改造の伴う原子炉の運転停止まで35基のイオン交換樹脂の重水化を実施した。この重水化作業では、樹脂塔1基当たり約115kgの重水を使用し、約40kgの重水が回収され、約75kgの重水が重水系への間接補給となる。JRR-3では、35基のイオン交換樹脂塔の重水化によって約5.2トンの重水を使用した。また、使用済みイオン交換樹脂塔は、1基当たり約34kgの重水が付着重水として保管廃棄されるため約1.2トンの重水が重水化作業で消費されたことになる。JRR-3でのイオン交換樹脂塔の重水化実績を Table 4.9 に示す。一方、JRR-3Mでは、臨界後からこれまでに反射体用のイオン交換樹脂塔の重水化は3基だけで約230kgの重水を使用した。JRR-3Mでの重水系イオン交換樹脂塔の重水化の実績を Table 4.10 に示す。JRR-3Mでの重水化実績が少ない理由は、使用重水量が約7.3トンと少なく、かつ、ヘリウムガスを充填した密封状態で使用され、重水の導電率が常に1μS/cm以下で管理されているためである。JRR-3でのイオン交換樹脂塔の使用実績を Table 4.11 に、JRR-3Mでのイオン交換樹脂塔の使用実績を

Table 4.12 に示す。JRR-3でのイオン交換樹脂塔使用実績は、昭和37年から昭和58年の改造に伴う原子炉停止までの精製率は、約 $3\text{m}^3/\ell \sim 85\text{m}^3/\ell$ であった。この理由は、RI 炭酸ガス系と反射体炭酸ガス系からヘリウム系へ漏洩した炭酸ガスが重水に溶解し、重水の水質を悪化させたためである。一方、JRR-3M でのイオン交換樹脂塔の精製率は、約 $473\text{m}^3/\ell$ であった。これは、反射体重水系のカバーガスに濃度90vol%以上のヘリウムを使用し密封状態で運転していることから重水の水質が良好に維持されるためである。

4. 3 JRR-4

4. 3. 1 JRR-4の概要

JRR-4は、熱出力3.5MW の軽水減速冷却スイミングプール型の研究炉で、原子炉は、通常 No. 1 プール内に設置され、1次冷却水として軽水を使用している。JRR-4では、90%濃縮度の高濃縮板状燃料20体の燃料を使用し、ボロン入りステンレス製の制御棒7本で原子炉の制御を行い運転している。JRR-4の主な仕様を Table 4.13 に示す。JRR-4の冷却系は、1次冷却水系と2次冷却系の2系統から構成されている。1次冷却水系では、中性子の減速材及び燃料の冷却材として約 470m^3 の軽水を使用し、プール水精製系が付属されている。プール水精製系では、約540 ℓ (樹脂塔1基当たり陽イオン交換樹脂:180 ℓ 、陰イオン交換樹脂:360 ℓ)のイオン交換樹脂を充填した混床式イオン交換樹脂塔を使用して一次冷却水を精製している。2次冷却系では、約 100m^3 の濾過水を2次冷却水として使用し、原子炉で発生した熱を除去している。JRR-4の冷却系の概略図を Fig. 4.9 に各冷却系統の概略を Table 4.14 に示す。原子炉運転中の水質は、導電率を $1\mu\text{S}/\text{cm}$ 以下でpHを5.0~7.5の範囲で水質管理してアルミニウム製の炉心タンクや燃料被覆材等の腐食防止を図っている。No. 1プール内の炉心タンク側には、照射実験設備として重水タンクが設置されている。この重水タンク内には、中性子の減速材用として約1トンの重水が注入されている。また、重水のカバーガスとしてヘリウムが使用されているが、重水タンク内での発熱が少なく熱除去が必要でないことから循環系は設けられていない。

4. 3. 2 重水の使用経緯

JRR-4での初期装荷量は、約268 kgであったが、昭和60年に照射実験設備の性能を向上するために重水タンクを改造して重水量を約1トンに増量した。重水は、重水タンク内で密封状態で使用されていることから消費されず補給を必要としなかった。JRR-4における補給重水量、回収重水量及び装荷重水量の推移を Table 4.15 と Fig. 4.10 に示すが、平成9年度における装荷重水量は約1トンであった。

5. 重水の収支と今後の使用計画

5. 1 重水の収支

昭和42年12月に水均質臨界炉から移管された重水を含めて約51トンの受け入れ総量であった。原子炉の運転に伴う消費や重水の再生・精製に伴う損失並びにその他の計量誤差や重水濃度の分析誤差等による損失として約9.7トンが消費されたことになる。研究炉部における総重水量の収支を Table 5.1 に示す。原子炉の運転に伴う消費としては、JRR-2では、熱遮蔽軽水系への重

水漏洩量が、JRR-3では、天然ウラン金属燃料の破損に伴う重水中の溶存ウラン除去作業及び炭酸ガス漏洩に伴う重水浄化作業に使用する重水系イオン交換樹脂の重水化での消費であった。昭和50年のJRR-2炉体改修工事後からは重水の消費量は激減したために昭和56年以降からは重水の購入を中止し、保管重水を有効に使用して経費削減に努めた。更に、JRR-2においての燃料の中濃縮化への移行時に設置された非常用冷却設備で使用する約6.6トン、改造後のJRR-3M反射体重水系で使用する約7.2トン及びJRR-4の重水タンクで使用する約1トンの計約15トンの重水はJRR-3から回収した重水を有効に利用することによって約15億円もの大幅な経費の削減が可能となった。

5.2 今後の使用計画

JRR-2は、原子炉運転の使命を十分に達成したことから平成8年12月19日に永久に運転が停止され解体工事が開始された。JRR-2の解体工事第1段階として、原子炉停止後約1年後の平成9年12月に装荷重水約16トンの内から約5.2トンの重水をJRR-3の重水保管タンク(DT-1)へ移送した。重水移送後の研究炉部における全重水保有量をTable 5.2に示す。全重水保有量の中で貯蔵品として計上されている重水は、未使用重水と重水保管施設(DT-2、3、4、5及び6)内で保管管理している高濃度重水の約15トンである。残りの約26トンの重水は、資産としての価値がなく使用済み重水で減速材物質として数量だけの管理となっている。

5.2.1 未使用重水

未使用重水の在庫量は、770kgで、この内の約300kgはJRR-4の改造で設置される中性子ビーム設備(BNCT)の減速材として使用する。残りの約470kgはJRR-3M反射体重水浄化系のイオン交換樹脂の重水化用として使用する計画である。

5.2.2 回収重水

回収重水の在庫量は、約21トンで、この内のJRR-3から回収し重水保管施設の重水タンク(DT-2、3、4、5及び6)内で保管管理している約15トンの高濃度重水は、反射体重水系の交換用として再使用する。また、JRR-4の約260kgの回収重水は、濃度が約99.44mol%と高いためにJRR-3M反射体重水系の交換用として再使用が可能であることから今後、JRR-3Mに移動して保管する。重水保管タンク(DT-1、8)内並びにドラム缶で保管管理している約6トンの低濃度重水は、再使用ができないためにこれらの重水の処分について調査検討を進めていく方針である。

5.2.3 装荷重水

(1) JRR-2の装荷重水

JRR-2から約5.2トンの重水をJRR-3Mへ移動した後の残りの約11トンの装荷重水は、重水系を重水保管施設に改造して保管している。この保管重水は、約97.4mol%の濃度でJRR-3M反射体重水系での再使用ができない重水である。また、この保管重水には、約 4.2×10^7 Bq/mlのトリチウムが含まれていることから廃棄処分ができず処分について調査検討を進めていく方針である。

(2) JRR-3Mの装荷重水

JRR-3Mでは、反射材として約7.3トンの重水を原子炉プール内の重水タンクに注入して使用している。万一、この重水タンクが損傷した場合には、軽水が混入して濃度が低下する危険性がある。また、この重水のトリチウム濃度が、約 1.8×10^8 Bq/ml(約4.5mCi/ml)まで上昇した場合には交換しなければならない。購入重水を入手するには、長期間の日数と高額で購入費用を必要とす

ることから交換用の重水として JRR-3から回収した約15トンの高濃度重水は長期保管する。

(3) JRR-4の装荷重水

JRR-4では、約1トンの重水を照射設備で減速材として使用しているが、照射設備の改造によって不要となる。この重水の濃度は約99.55 mol%と高いために今後回収し JRR-3M に移動して JRR-3M 反射体重水系の交換用として保管する。

6. 今後の検討課題

今後の検討課題としては、JRR-2では、原子炉の運転停止に伴って発生した約18トンの余剰重水の処分が、JRR-3M では、反射体重水のトリチウム濃度の上昇に伴う重水の交換がある。反射体重水の交換は、現在保管している高濃度重水を再使用することによって解決される。これまでに蓄積された低濃度の回収重水量と JRR-2の運転停止に伴って発生した余剰重水量を Table 6.1 に示すが約18トンとなる。この余剰重水の重水濃度は、約70mol%から約97.4mol%の範囲で JRR-3M 反射体重水系の重水濃度よりも低濃度であることから JRR-3M での再使用はできず、かつ、トリチウム濃度が、約 4×10^7 Bq/ml と高いことから希釈廃棄ができない重水である。国内では、重水からのトリチウム抽出プラントが存在しないことから高濃度にトリチウムを含む重水の処分は不可能である。また、これらの余剰重水は、JRR-2の解体工事を安全に進捗させるため平成12年までに JRR-2以外の施設に移動しなければならないために現在処分についての検討を進めている。余剰重水の処分方法としては① JRR-3M の重水保管施設を改造し保管量を増量して JRR-3M に移送して保管する方法、②余剰重水の外国への輸送並びに③核融合炉の研究開発の一環としての重水中からのトリチウム抽出装置の設置の3案について検討している。①と②案の何れにしても処分に多額の費用を必要とする。また、③案では、約数十億円以上の費用が必要と考えられる。余剰重水の処分方法として①を採用した場合には、JRR-3重水保管施設の改造費以外に高濃度にトリチウムを含む重水の長期的な保管管理を必要とすることから重水保管施設の維持管理費並びに人件費が必要となってくる。また、②を採用した場合には、今後 JRR-3M で使用する重水量だけの保管管理となり重水保管施設の改造費や維持管理費並びに人件費が軽減される。従って、第②案の余剰重水の外国への輸送が最良な方法と考えられる。なお、③案による重水からのトリチウム抽出方法の参考として

『AECL-6544 (1979,JULY) : Recovery of Tritium from CANDU Reactors, Its Storage and Monitoring of Its Migration in the Environment』

の文献から主として、重水からのトリチウムの回収並びに貯蔵についての要約を APPENDIX-II に示す。

7. あとがき

研究炉部における重水の計量管理として、主としてこれまでの重水の使用経緯と今後の検討事項についてまとめた。今後の検討事項としては、JRR-2運転の永久停止に伴って発生した余剰重水を平成12年までに処分しなければならない。研究炉部として早急な対策が必要であり、現在鋭意

検討中である。本報告書は、大量な重水の購入や重水の計量管理業務を実施する際の参考になれば幸いである。なお、平成10年4月に研究炉部の組織改正によって研究炉技術開発室は研究炉技術管理室に変更されたが、本報告書は、組織改正前の平成9年末までの資料をまとめたことから本文では研究炉技術開発室として記述した。

謝 辞

本報告書をまとめるに当たって、種々の御指導と助言を頂きました研究炉部高橋次長、前市川研究炉技術開発室長及び前坪研究炉技術開発室技術管理グループリーダーに厚く感謝致します。

参考文献

- 1) 日本化学学会編,「化学便覧・応用編」(1965年8月)
- 2) JAERI Internal Report, August, 1979
- 3) JAERI Internal Report, November,1995
- 4) 松平 寛通, "Isotope News"(1986)
- 5) 研究炉管理部,「研究炉・ホットラボの運転と技術管理」(昭和58年度), JAERI-M84-215(1984)
- 6) 研究炉管理部,「研究炉・ホットラボの運転と技術管理」(昭和48年度), JAERI-M 5845(1974)
- 7) 鈴木義男, 根本剛, 吉島哲夫他,「JRR-2の重水中の放射性核種」, JAERI-M 4771(1972)
- 8) JAERI Internal Report ,June, 1996
- 9) 用水廃水便覧編集委員会編: 用水廃水便覧 (改訂二版) , (1973)
- 10) 吉島哲夫, 田中純利,「JRR-3M の放射化学分析結果」, JAERI-M 97-029(1997)
- 11) 研究炉管理部,「研究炉・ホットラボの運転と技術管理」(昭和45年度), JAERI-M 4752(1972)
- 12) 研究炉管理部,「研究炉・ホットラボの運転と技術管理」(昭和49年度), JAERI-M 6245(1975)

Table 2.1 Feature of heavy water

項 目	重 水 (D ₂ O)	輕 水 (H ₂ O)
存在比	0.0139	99.9849
分子 量	20.028	18.016
最大密度(g/cm ³)	1.106(11.2℃)	1.000(4℃)
冰 点(℃) (STP)	3.81	0
沸 点(℃) (STP)	101.43	100
熱中性子巨視的吸收斷面積(cm ⁻¹)	4×10^{-5}	2.2×10^{-2}
熱中性子巨視的輸送斷面積(cm ⁻¹)	0.395	2.10
熱中性子巨視的散亂斷面積(cm ⁻¹)	0.349	1.49
熱中性子巨視的減速斷面積(cm ⁻¹)	0.178	1.38
減速比	2,100	70

Table 2.2 The purchase of fresh heavy water

納入年月日	JRR-2 (100% D ₂ Okg)	JRR-3 (100% D ₂ Okg)	単価 (万円/kg)	供給国
35.09	9,017.80			U.S.A
36.09.09	300.50			U.S.A
36.12.19		27,186.00		U.S.A
36.12.20	226.80			U.S.A
37.05.25		2,265.00		U.S.A
37.05.31	226.80			U.S.A
38.11.29	226.80			U.S.A
38.12.05		1,132.16		U.S.A
41.10.07	226.80			U.S.A
42.12.18		227.00		U.S.A
45.07.15		226.31	2.5	U.S.A
46.08.09		452.82	2.6	U.S.A
46.11.12		452.68	2.5	U.S.A
47.05.27		226.30	3.1	U.S.A
48.03.28		199.86	3.1	NORWAY
48.03.31		452.90	2.7	U.S.A
48.09.12		452.96	2.3	U.S.A
49.03.11		452.95	2.3	U.S.A
50.03.31		226.46	4.0	U.S.A
50.12.19		453.20	3.7	NORWAY
51.05.24		459.31	4.0	CANADA
51.11.26		453.20	3.8	NORWAY
52.12.05		269.65	5.0	NORWAY
53.07.14		905.19	3.8	CANADA
54.03.20		1,134.99	4.0	CANADA
55.03.05		601.45	5.7	CANADA
56.03.31		659.46	5.0	U.S.A
小計	10,225.50	38,889.85		
合計	49,115.35			

Table 2.3 The purchaing reta of fresh heavy water

供給国	U.S.A	CANADA	NORWAY	合計
購入量	44,638.50	3100.94	1,375.91	49,115.35
割合(%)	90.89	6.31	2.80	100.00

単位：100% D₂Okg

Table 2.4 Specifications of fresh heavy water

1. 概要	
(1) 用途：JRR-2,3の減速、冷却材	
(2) 使用条件：原子炉用	
(3) 納入場所：JRR-3	
(4) 希望納期：平成**年**月**日	
2. 納入重水の仕様	
(1) 重水濃度：99.75mol%以上	
(2) pH：6.5～7.5	
(3) 導電率：5μS/cm以下	
(4) トリチウム濃度：0.05μCi/cm ³ (1.85×10 ³ Bq/cm ³)以下	
(5) 不純物(Cd, B等)：検出されないこと	
3. 納入数量：***lbs	
4. 検査	
受入れ検査項目	検査方法
(1) 重水の重量：	台秤
(2) 重水濃度：	赤外分光光度計
(3) pH：	ガラス電極pH計
(4) 導電率：	卓上型導電率計
(5) トリチウム濃度：	液体シンチレーションカウンター
5. 支給品：なし	
6. 提出書類	
重水の分析結果(重水及びドラム缶重量を含む)証明書：5部	

Table 2.5 Specifications for regenerated heavy water

1. 数量	
(1) 支給重水量	**** kg
(2) 重水濃度	**.** wt%
(3) 百分換算重水量	**** kg
(4) 再生収率	**.** %
(5) 納入再生重水量(100%)	**** kg
(6) 支給重水明細	
(7) 重水収支表を添付のこと	
2. 納入条件	
(1) 重水濃度	: 99.78 wt%以上
(2) pH	: 6.0~7.0
(3) 導電率	: 5 μ S/cm以下

Table 2.6 Income and outgo of regenerated heavy water

再 生 出					受 入				
年 月 日	数 量 (kg)	濃 度 (wt%)	100%換算 (kg)	積 算 量 (kg)	年 月 日	数 量 (kg)	濃 度 (wt%)	100%換算 (kg)	積 算 量 (kg)
36.07.29	120.00	99.00	118.80	118.80	36.12.14	106.60	99.70	106.28	106.28
36.12.14	100.00	97.00	97.00	215.80	37.05.30	86.60	99.70	86.34	192.62
37.10.29	182.20	97.20	177.10	392.90	38.02.19	159.10	99.75	158.70	351.32
38.04.16	792.40	96.30	763.08	1,155.98	38.08.12	339.75	99.75	338.90	690.22
					38.10.23	232.50	99.75	231.92	922.14
38.08.12	50.22	99.10	49.77	1,205.75	38.11.19	44.68	99.75	44.57	966.71
38.11.19	206.50	98.50	203.40	1,409.15	39.02.20	168.80	99.75	168.38	1,135.09
38.12.17	98.60	98.90	97.52	1,506.67	39.03.30	87.49	99.75	87.27	1,222.36
39.01.末	179.10	81.00	145.07	1,651.74	39.11.26	123.89	99.82	123.67	1,346.03
39.01.末	28.90	83.00	23.99	1,675.73	39.11.26	20.61	99.82	20.57	1,366.60
39.06.04	137.10	98.40	134.91	1,810.64	39.11.29	218.50	99.87	218.30	1,584.90
39.06.04	148.00	77.90	115.29	1,925.93					
40.03.17	45.65	99.40	45.38	1,971.31	40.05.22	40.85	99.88	40.77	1,625.67
40.03.17	26.85	98.00	26.31	1,997.62	40.05.22	23.60	99.88	23.55	1,649.22
40.05.27	193.00	97.96	189.06	2,186.68	40.08.08	169.70	99.90	169.53	1,818.75
40.11.16	47.60	98.82	47.04	2,233.72	41.02.10	143.20	99.90	143.02	1,961.77
40.11.16	72.30	98.68	71.35	2,305.07					
40.11.16	41.80	98.38	41.12	2,346.19					
40.11.16	224.30	71.78	156.56	2,502.75	41.04.09	178.12	99.90	177.95	2,139.72
40.11.16	209.23	34.35	66.95	2,569.70					
41.02.10	54.80	93.83	51.42	2,621.12	41.07.12	90.62	99.90	90.52	2,230.24
41.02.10	55.20	93.83	51.79	2,672.91					
41.07.12	225.40	99.53	224.34	2,897.25	41.10.13	201.80	99.90	201.62	2,431.86
41.12.27	75.30	92.74	69.83	2,967.08	42.03.06	61.49	99.92	61.45	2,493.31
42.02.18	209.63	97.74	204.89	3,171.97	42.05.19	183.30	99.91	183.13	2,676.44
42.04.28	53.50	76.90	41.14	3,213.11	42.07.14	43.79	99.91	43.75	2,720.19
42.04.28	43.40	39.50	17.14	3,230.25					
43.02.06	195.50	99.15	193.84	3,424.09	43.04.10	210.00	99.88	209.75	2,929.94
43.02.06	204.40	99.15	202.66	3,626.75	43.04.19	216.30	99.89	216.06	3,146.00
43.02.06	218.30	99.15	216.44	3,843.19	43.04.30	174.30	99.93	174.18	3,320.18
43.02.06	218.40	99.15	216.54	4,059.73	43.06.28	145.00	99.85	144.78	3,464.96
43.04.	219.40	95.48	209.48	4,269.21	43.06.28	225.80	99.78	225.30	3,690.26
43.04.	188.00	84.40	158.67	4,427.88					
					43.08.28	98.40	99.82	98.22	3,788.48
43.09.	150.00	99.15	148.73	4,576.61	43.11.11	125.30	99.97	125.26	3,913.74
43.09.	139.20	99.15	138.02	4,714.63	43.11.11	150.10	99.93	150.00	4,063.74
43.09.	21.30	99.15	17.98	4,732.61					
43.09.	195.20	99.15	193.54	4,926.15	43.11.11	99.40	99.05	98.46	4,162.20
43.09.	47.90	99.15	47.49	4,973.64	43.11.11	199.00	99.05	197.11	4,359.31
43.09.	56.90	99.15	56.42	5,030.06					
44.08.08	223.60	99.12	221.63	5,251.69					
44.08.29	202.29	92.56	187.24	5,438.93					
44.08.29	200.00	38.42	72.84	5,511.77	44.10.02	221.10	98.98	218.84	4,578.15
44.08.29	119.10	97.45	116.06	5,627.83	44.12.05	150.10	99.95	150.02	4,728.17
44.08.29	149.60	81.64	122.13	5,749.96	45.01.14	151.30	99.91	151.16	4,879.33
44.08.29	201.90	41.51	83.80	5,833.76	45.03.03	181.15	99.95	166.07	5,045.40
45.01.14	72.90	72.90	71.26	5,905.02	45.03.31	66.10	99.80	66.00	5,111.40
45.09.04	70.20	95.21	66.84	5,971.86					
45.09.04	111.60	96.41	107.59	6,079.45	45.11.07	150.90	99.91	150.76	5,262.16
47.02.04	211.40	94.21	199.16	6,278.61	45.11.07	166.18	99.59	165.49	5,427.65
47.02.04	170.60	95.84	163.50	6,442.11	45.11.07	141.44	99.64	140.93	5,568.58
47.02.04	138.70	98.29	236.33	6,578.44	45.12.10	187.40	99.91	187.25	5,755.83
47.02.04	140.00	99.35	139.09	6,717.53	47.02.08	201.20	96.48	194.12	5,949.95
47.02.04	70.00	96.66	67.66	6,785.19	47.02.08	153.40	95.39	146.33	6,096.28
47.02.04	63.88	84.11	53.73	6,838.92	47.02.08	131.00	98.33	128.81	6,225.09
47.02.24	201.20	96.48	194.12	7,033.04	47.02.08	136.70	99.23	135.65	6,360.74
47.04.13	153.40	95.39	146.33	7,179.37	47.02.08	150.10	96.86	145.39	6,506.13
47.04.29	150.10	92.93	139.49	7,318.86	47.02.08	17.20	88.34	15.19	6,521.32
47.05.31	80.00	99.73	79.78	7,398.64	47.03.30	150.00	99.93	149.89	6,671.21
48.03.27	101.80	96.39	98.13	7,496.77	47.05.31	155.10	99.95	155.00	6,826.21
48.03.27	24.00	98.59	23.66	7,520.43	47.06.30	50.00	99.68	49.84	6,876.05
48.03.27	145.03	22.08	32.02	7,552.45	47.09.20	16.40	99.84	16.37	6,892.42
48.03.27	103.10	96.02	99.00	7,651.45	48.04.24	208.16	96.21	200.27	7,092.69
48.03.27	83.80	92.58	77.57	7,729.02	48.06.27	83.50	99.94	83.45	7,176.14
48.04.24	22.38	52.65	11.78	7,740.80	50.12.11	114.30	99.97	114.27	7,290.41
合 計	8,688.06		7,740.80	7,740.80	合 計	7,351.32		7,290.41	7,290.41

再生損失量=再生出積算量-再生受入積算量=7,740.80-7,290.41=450.39kg
 平均再生収率=再生受入積算量/再生出積算量=7,290.41/7,740.80=94.18%

Table 2.7 Purification of recovered heavy water

年	昭和47年3月	昭和55年8月	昭和59年8月
項目	回収重水精製装置の設置	回収重水精製装置の製作	回収重水精製装置の購入
整備の概要	原子炉から回収した重水には放射性物質特に高濃度のトリチウムが含まれ、廃棄不能であることからドラム缶で保管した。回収重水のうちで濃度の高い重水中からトリチウム以外の放射性物質や不純物を除去することで再利用でき経済的である。濃度の高い重水の有効利用を図るために蒸留式の精製装置をJRR-3炉室地下室に設置した。	JRR-3の回収重水には、燃料破損によって溶出したウランが微量に含まれるために、JRR-2への転用ができなかった。この回収重水中の微量ウランを除去するために口径0.1 μ mの陶管製フィルタと小型の混床式イオン交換樹脂塔を装備した精製装置を化学除染試験用のテストループ兼用として製作して精製試験を行った。	JRR-3の改造に伴い原子炉からの回収重水等は新設する重水保管施設の重水タンク内で長期間に渡って保管管理することとなった。長期保管中での重水保管タンク等の腐食防止対策としてイオン交換樹脂方式で精製不能な回収重水を精製する必要があり、減圧蒸留方式の精製装置を購入した。
備考	この精製装置で約760kgの高濃度の回収重水を精製し、JRR-2で再利用して有効利用を図った。この精製装置は、老朽化したために昭和52年に撤去した。	JRR-3の回収重水を使用して精製試験を実施した結果、不純物やウランが除去され、良好な結果が得られた。JRR-3から回収した重水約1,400kgを精製し、JRR-2に転用して有効利用を図った。	購入した精製装置を使用して約520kgの回収重水を精製した。JRR-2での使用予定以外の全ての重水は重水保管タンク室に新設した保管タンクに移送して長期保管とした。また、昭和63年に本精製装置を使用してJRR-4の回収重水約270kgを精製して有効利用を図った。

Table 3.1 Fresh heavy water inventories

年度	期首在庫量	受 入 れ		払 出 し		期末在庫量	備 考
		購 入	精製・再生	補 給	その他		
35							
36							
37							
38							
39							
40							
41							
42							
43	1,135	0	798	233	98	1,602	
44	1,602	0	764	1,030	98	1,238	
45	1,238	226	833	1,445	188	664	
46	664	906	1,238	1,252	750	806	重水精製装置の設置
47	806	879	434	918	68	1,133	
48	1,133	906	284	1,510	0	813	
49	813	226	0	374	0	665	重水の再生・精製中止
50	665	453	114	259	0	973	
51	973	913	8	439	0	1,455	
52	1,455	270	0	940	0	785	
53	785	2,040	50	299	0	2,576	
54	2,576	602	11	145	0	3,044	
55	3,044	659	0	1,096	0	2,607	
56	2,607	0	0	9	0	2,598	
57	2,598	0	0	48	0	2,550	
58	2,550	0	0	1,095	0	1,455	
59	1,455	0	0	0	0	1,455	
60	1,455	0	0	9	0	1,446	
61	1,446	0	0	3	0	1,443	
62	1,443	0	0	205	0	1,238	
63	1,238	0	0	0	0	1,238	
01	1,238	0	0	91	0	962	
02	962	0	0	0	0	962	
03	962	0	0	0	0	962	
04	962	0	0	116	19	827	
05	827	0	0	0	5	822	
06	822	0	0	0	0	822	
07	822	0	0	0	0	822	
08	822	0	0	0	0	822	
09	822	0	38	86	7	767	JRR-3重水化

Table 3.2 Recovered heavy water inventories

年 度	期首在庫量	受 入 れ			払 出 し			期末在庫量
		炉心回収	その他	小 計	再生・精製	その他	小 計	
35								
36								
37								
38								
39								
40								
41								
42								
43	1,143	347	113	460	436	157	593	1,010
44	1,010	850	331	1,181	875	640	1,515	676
45	676	570	27	597	689	22	711	562
46	562	328	783	1,111	954	73	1,027	646
47	646	254	0	254	696	170	866	34
48	34	325	0	325	33	72	105	254
49	254	196	0	196	0	33	33	417
50	417	422	0	0	0	0	0	839
51	839	405	0	405	301	22	323	921
52	921	125	0	125	0	0	0	1,046
53	1,046	178	8	186	0	49	49	1,183
54	1,183	127	1	128	0	8	8	1,303
55	1,303	156	0	156	0	12	12	1,447
56	1,477	33	0	33	0	0	0	1,480
57	1,480	42	0	42	0	0	0	1,522
58	1,522	554	0	554	0	0	0	2,076
59	2,076	28,711	0	28,711	505	182	687	30,100
60	30,100	39	0	39	1,008	0	1,008	29,131
61	29,131	10	1	11	0	0	0	29,142
62	29,142	0	0	0	6,369	0	6,369	22,773
63	22,773	42	0	42	0	0	0	22,815
01	23,083	21	37	58	7,126	3	7,129	16,012
02	16,012	0	0	0	0	0	0	16,012
03	16,012	0	0	0	0	0	0	16,012
04	16,012	29	47	76	0	0	0	16,088
05	16,088	0	0	0	0	0	0	16,088
06	16,088	86	0	86	0	0	0	16,144
07	16,144	0	0	0	0	0	0	16,144
08	16,144	37	0	37	0	0	0	16,181
09	16,181	5,213	32	5,245	0	49	49	21,377

Table 4.1 Specifications of the JRR-2

項 目	仕 様
原子炉の形式	濃縮ウラン重水減速・冷却タンク型
炉 心 部	重水タンク：厚さ：13cm アルミニウム製 内径：152cm, 深さ：193cm 熱遮蔽タンク：厚さ：13cm アルミニウム製 内径：244cm, 深さ：246cm
遮 蔽 体	重コンクリート：厚さ：約 190cm
最 大 熱 出 力	1 0 M W
最大中性子束	熱中性子束： 1.3×10^{14} n/cm ² ·sec 速中性子束： 6×10^{13} n/cm ² ·sec
燃料体	45%中濃縮燃料：24体
制御棒	ステンレス製被覆カドミウム製 微調整棒：1本 粗調整棒：5本
冷却系統	一次冷却系（重水） ヘリウム系（He） 熱遮蔽系（純水） 二次冷却系（濾過水）

Table 4.2 Outline of the JRR-2 cooling systems

項 目	仕 様
一次冷却重水系	重水冷却系：約 9m ³ (D ₂ O) 非常用冷却系：約 6m ³ (D ₂ O) 循環流量：約 1,360m ³ /h 精製系 精製流量：約 1.8m ³ /h 樹脂量(混床)：Cation:25 ℓ, Anion:50 ℓ 水質管理基準値 重水濃度：97mol% 導電率：1 μ S/cm 以下 p H：5 ~ 8
ヘリウム系	ヘリウムガス：約 13m ³ 循環流量： A zone:約 150 ℓ /min B zone:約 300 ℓ /min 再結合器：触媒約 12 ℓ (Girdler G-63D) 管理基準値 ヘリウム濃度：90vol%以上 重水素濃度：0.5vol%以下
熱遮蔽軽水系	軽水：約 9m ³ (純水) 循環流量：約 25m ³ /h 精製系 精製流量：約 1.2m ³ /h 樹脂量(混床)：Cation:25 ℓ, Anion:50 ℓ 水質管理基準値 導電率：1 μ S/cm 以下 p H：5 ~ 8
二次冷却水系	濾過水：約 230m ³ 循環流量：約 810m ³ /h 水質管理基準値 p H：6 ~ 9,濃縮倍数：3 以下

Table 4.3 Heavy water inventories of the JRR-2

年度	期首装荷量	補給重水量	回収重水量	消費重水量	期末装荷量	備 考
35		8,529	0	0	8,529	初期装荷
36	8,529	377	277	122	8,507	
37	8,507	565	317	242	8,513	
38	8,513	221	227	6	8,501	
39	8,501	327	193	125	8,510	
40	8,510	482	156	331	8,505	熱遮蔽軽水系への重水漏洩
41	8,505	496	303	246	8,452	
42	8,452	989	300	689	8,452	重水系熱交換器故障・補修
43	8,452	675	275	320	8,532	
44	8,532	583	243	325	8,547	下段プラグ改修工事終了
45	8,547	907	150	619	8,685	重水系熱交換器交換
46	8,685	785	175	488	8,807	熱遮蔽軽水系への重水漏洩
47	8,807	884	244	483	8,964	熱遮蔽軽水系への重水漏洩
48	8,964	624	71	513	9,004	炉体補修工事開始
49	9,004	92	41	192	8,863	炉体補修工事
50	8,863	248	75	128	8,908	炉体補修工事終了
51	8,908	219	40	89	8,998	
52	8,998	355	49	69	9,235	
53	9,235	27	18	20	9,224	
54	9,224	0	13	21	9,190	
55	9,190	534	8	61	9,655	大型炉更新前トリウム除染
56	9,655	0	7	0	9,648	
57	9,648	0	7	0	9,641	重水系熱交換器故障・補修
58	9,641	56	11	34	9,652	
59	9,652	181	13	0	9,820	
60	9,820	9	39	0	9,790	
61	9,790	3	10	34	9,749	
62	9,749	6,553	0	0	16,302	中濃縮燃料への移行・増量
63	16,302	0	42	25	16,235	
01	16,235	112	61	34	16,252	
02	16,252	0	0	0	16,252	
03	16,252	0	0	0	16,252	
04	16,252	116	59	34	16,275	
05	16,275	0	0	0	16,275	
06	16,275	0	52	53	16,170	大型炉故障
07	16,170	0	0	0	16,170	
08	16,170	0	30	0	16,140	
09	16,140	0	5,244	0	10,896	JRR-3へ移動
積算		24,949	8,750	5,303		

計算上の装荷量 = 積算補給量 - (積算回収量 + 積算消費量) = 10,896 kg

Table 4.4 Deuterization of ion-exchange resin of the JRR-2 heavy water purification system

No.	重水化		使用重水量 (kg)	回収重水量 (kg)	塔内重水量* (kg)	備 考
	塔 名	実施期日				
1		35.09.**	---	---	---	
2		36.09.26	---	---	---	
3	DD-2	37.07.09	---	---	---	
4	DD-1	39.09.16	166	106	60	
5	DD-2	40.12.09	106	44	62	
6	DD-1	41.09.27	---	---	---	
7	DD-2	42.04.27	107	41	66	
8	DD-1	42.09.09	100	34	66	
9	DD-2	43.01.12	119	54	65	
10	DD-1	43.11.27	105	40	65	
11	DD-2	44.07.09	125	57	68	
12	DD-2	45.04.28	111	37	74	
13	DD-1	46.04.23	102	34	68	
14	DD-2	47.03.22	102	36	66	
15	DD-1	47.12.25	99	32	67	
16	DD-2	49.05.29	93	38	55	R-1に変更
17	DD-2	50.10.01	106	33	73	
18	DD-1	53.02.22	120	38	82	
19	DD-2	55.08.06	JRR-3のR-13と共に重水化			R-12
20	DD-1	58.05.18	JRR-3の化学除染用 R-14, 15, 16と共に重水化			R-17
21	DD-2	58.06.03	JRR-3の化学除染用 R-22, 27と共に重水化			R-28
22	DD-2	01.07.19	112	40	72	R-29
23	DD-2	05.01.21	116	38	78	R-30
	合 計		1,789	702	1,087	
	平 均		112 kg/基	44 kg/基	68 kg/基	

* : 塔内の重水は、イオン交換樹脂を一次系に接続後補給重水となる。
(塔内イオン交換樹脂量：陽イオン交換樹脂25t, 陰イオン交換樹脂50tの計75t)

Table 4.5 Spent ion-exchange resin cartridges of the JRR-2 heavy water purification system

No.	重水化		使用期間	精製量 (m^3)	備考
	塔名	期日			
1		35.09.	---	---	
2		36.09.26	---	---	
3	DD-2	37.07.09	39.04.16~40.09.18	---	
4	DD-1	39.09.16	40.09.18~41.06.06	3,198	
5	DD-2	40.12.09	41.06.06~42.01.05	2,183	
6	DD-1	41.09.27	42.01.05~42.08.21	2,145	
7	DD-2	42.04.27	42.08.21~43.01.08	1,227	
8	DD-1	42.09.09	43.01.08~43.10.16	2,111	
9	DD-2	43.01.12	43.10.16~44.06.02	1,434	
10	DD-1	43.11.27	44.06.02~45.02.02	3,284	
11	DD-2	44.07.09	45.02.02~46.04.05	6,760	途中で切換え、記録なし
12	DD-2	45.04.28	46.04.05~46.11.01	2,110	
13	DD-1	46.04.23	46.11.01~47.10.02	2,880	
14	DD-2	47.03.22	47.10.02~48.09.25	5,043	48.2.2積算流量計取付け
15	DD-1	47.12.25	48.09.25~49.09.02	1,778	49.12~51.5 R2改造工事
16	DD-2	45.05.29	49.09.02~50.09.22 53.02.06~55.04.11	63 11,593	カートリッジ型に改造、R-1へ 詰め替え 合計 11,656
17	DD-1	50.10.01	50.10.01~53.02.06	6,470	新カートリッジ R-3
18	DD-1	53.02.22	55.04.11~58.03.30	9,009	カートリッジ R-2(積算計調整)
19	DD-2	55.08.06	58.03.30~61.06.06	12,181	カートリッジ R-12
20	DD-1	58.05.18	60.02.01~60.03.25 61.11.10~01.06.27	1,498 12,133	カートリッジ R-17(R3化除用) 合計 13,631 m^3
21	DD-2	58.06.03	01.06.27~04.11.02	12,691	カートリッジ R-28(R3化除用)
22	DD-1	01.07.19	04.11.02~		カートリッジ R-29 5353.5~
23	DD-2	05.01.21			カートリッジ R-30

Table 4.6 Specifications of the JRR-3M

項 目	仕 様
原子炉の形式	重水反射体付軽水減速冷却プール型
炉 心 部	炉心：等価直径約 60cm,高さ：約 75cm 重水タンク：内径：0.5m,外径：2m 高さ：1.6m
最大熱出力	20MW
最大中性子束	熱中性子束：約 3×10^{14} n/cm ² ·sec 速中性子束：約 2×10^{14} n/cm ² ·sec
燃 料 体	20%低濃縮標準燃料：26体 20%低濃縮フオロフ燃料：6体
制 御 棒	ハフニウム製 微調整棒：2本 粗調整棒：4本
冷 却 系 統	一次冷却系（純水） 反射体系（重水） ヘリウム系（He） 二次冷却系（濾過水）

Table 4.7 Outline of the JRR-3M cooling systems

項 目	仕 様
一次冷却系	軽水：約 250m ³ (純水) 循環流量：約 2,400m ³ /h 精製系 精製流量：約 1.6m ³ /h 樹脂量(混床):Cation:400 ㏩ ,Anion:800 ㏩ 水質管理基準値 導電率：5 μ S/cm 以下 p H：5.0 ~ 7.5
反射体重水系	重水：約 7m ³ 循環流量：約 70m ³ /h 精製系 精製流量：約 0.6m ³ /h 樹脂量(混床)：Cation:12 ㏩ ,Anion:24 ㏩ 水質管理基準値 重水濃度：99.44mol% 導電率：2 μ S/cm 以下 p H：5.0 ~ 8.0
ヘリウム系	ヘリウムガス：約 7m ³ 循環流量：約 10m ³ /h 再結合器：触媒約 7 ㏩ (Girdler G-63D) 管理基準値 ヘリウム濃度：90vol%以上 重水素濃度：2vol%以下
二次冷却水系	濾過水：約 700m ³ 循環流量：約 3,000m ³ /h 水質管理基準値 p H：6 ~ 9 濃縮倍数：7 以下

Table 4.8 Heavy water inventories of the JRR-3 and JRR-3M

年度	期首装荷量	補給重水量	回収重水量	消費重水量	期末装荷量	備 考
37		28,179	543	0	27,636	初期装荷
38	27,636	1,515	1,113	50	27,988	重水フィルターから漏洩
39	27,988	1,375	450	34	28,879	
40	28,879	149	203	34	28,791	
41	28,791	512	553	68	28,682	
42	28,682	414	355	68	28,673	
43	28,673	258	193	832	27,906	
44	27,906	860	607	117	28,042	ウラン除去・重水化
45	28,042	560	420	427	27,755	溶存炭酸ガス除去・重水化
46	27,755	467	153	410	27,659	溶存炭酸ガス除去・重水化
47	27,659	181	45	19	27,776	
48	27,776	907	182	284	28,217	UO ₂ 燃料への移行・増量
49	28,217	282	155	45	28,299	
50	28,299	0	44	97	28,158	UO ₂ 燃料冷却管折損
51	28,158	250	102	321	27,985	重水精製系樹脂塔改修
52	27,985	570	65	90	28,400	溶存炭酸ガス除去・重水化
53	28,400	272	160	109	28,403	溶存炭酸ガス除去・重水化
54	28,403	145	114	95	28,339	
55	28,339	557	148	279	28,469	回収重水の精製
56	28,469	9	26	34	28,418	
57	28,418	40	35	111	28,312	
58	28,312	1,039	543	365	28,443	原子炉化学除染・重水化
59	28,443	324	28,698	69	0	回収重水精製・重水抜き
60	0	0	0	0	0	原子炉改造工事開始
61	0	0	0	0	0	原子炉改造工事
62	0	0	0	0	0	原子炉改造工事
63	0	0	0	0	0	原子炉改造工事
01	0	7,268	0	2	7,266	改造炉反射体系へ充填
02	7,266	0	0	0	7,266	
03	7,266	0	0	0	7,266	
04	7,266	0	0	0	7,266	
05	7,266	0	9	0	7,257	
06	7,257	0	4	0	7,253	
07	7,253	0	0	0	7,253	
08	7,253	0	7	0	7,246	
09	7,246	86	27	5	7,300	イオン交換樹脂の重水化
積算		46,219	34,954	3,965		

計算上の装荷量 = 積算補給量 - (積算回収量 + 積算消費量) = 7,300 kg

Table 4.9 Deuterization of ion-exchange resin of the JRR-3 heavy water purification system

No.	重水化		使用重水量 (kg)	回収重水量 (kg)	塔内重水量* (kg)	備考
	塔名	実施期日				
1	DD-1	37.09.28	---	---	---	
2	DD-1	38.07.30	330	229	101	
3	DD-2	39.11.24	183	97	86	
4	DD-1	40.09.28	144	52	92	
5	DD-2	41.04.22	181	85	96	
6	DD-1	41.08.23	138	50	88	
7	DD-1	42.09.19	133	41	92	
8	DD-1,2	42.12.22	243	72	171	
9	DD-1,2	43.05.14	258	71	187	
10	DD-1,2	44.05.26	286	103	183	
11	DD-2	45.11.19	187	92	95	
12	DD-1,2	46.02.12	237	48	189	
13	DD-1	46.03.01	123	40	83	
14	DD-2	46.12.23	137	45	92	
15	DD-1	48.07.27	155	54	101	
16	DD-2	49.02.28	133	39	94	
17	DD-2	49.06.12	143	52	91	
18	DD-1	49.10.02	139	44	95	
19	DD-1,2	51.10.19	226	63	163	R-4,5
20	DD-1	52.07.20	125	45	80	R-6
21	DD-2	53.06.21	134	55	79	R-7
22	DD-1	53.12.13	133	56	77	R-8
23	DD-2	54.07.18	130	51	79	R-9
24	DD-1,2	55.05.07	208	52	156	R-10,11
25	DD-1	55.08.06	212	51	161	R-13
26		58.05.18	220	43	177	化学除染用
27		58.05.31	223	47	176	化学除染用
28		58.06.03	227	71	156	化学除染用
29		58.06.03	197	45	152	化学除染用
	合計		5,185	1,793	3,392	
	平均		115kg/基	40kg/基	75kg/基	

* : 塔内重水はイオン交換樹脂を一次系に接続後補給重水となる。

(塔内イオン交換樹脂量: 陽イオン交換樹脂25t, 陰イオン交換樹脂50tの計75t)

Table 4.10 Deuterization of ion-exchange resin of the JRR-3M heavy water purification system

No.	重水化		使用重水量 (kg)	回収重水量 (kg)	塔内重水量* (kg)	備考
	塔名	実施期日				
1	KR-2301,2	H2.02.03	142	28	114	
2						
	合計		142	28	114	
	平均		71kg/基	14kg/基	57kg/基	

* : 塔内重水はイオン交換樹脂を反射体系に接続後補給重水となる。

(塔内イオン交換樹脂量: 陽イオン交換樹脂12t, 陰イオン交換樹脂24tの計36t)

Table 4.11 Spent ion-exchange resin cartridges of the JRR-3 heavy water purification system

No.	重水化		使用期間	精製量 (m^3)	備考
	塔名	期日			
1	DD-2	37.09.28	使用せず	データ無し	旧カートリッジタイプ
2	DD-1	38.07.30	38.09.10~39.11.20	データ無し	旧カートリッジタイプ
3	DD-2	39.11.24	39.11.25~40.09.28	データ無し	旧カートリッジタイプ
4	DD-1	40.09.28	40.10.01~41.07.07	2,084	流体移送タイプ
5	DD-2	41.04.22	41.07.07~41.08.30 42.05.15~42.08.14	1,584	旧カートリッジタイプ
6	DD-1	41.08.23	41.08.30~42.05.10 42.08.14~42.09.14	2,208	以下流体移送タイプ
7	DD-1	42.09.19	42.09.25~42.12.01	847	
8	DD-1 DD-2	42.12.22	42.12.22~43.03.11 43.03.11~43.04.25	871 468	
9	DD-1 DD-2	43.05.14	43.05.15~44.01.24 44.01.24~44.05.20	3,440 1,066	
10	DD-1 DD-2	44.05.26	45.10.12~46.01.27 46.02.03~46.02.06 44.05.27~45.10.12	1,196 3,233	46.02~46.07までHe系に 反射体系CO ₂ ガス漏洩
11	DD-2	45.11.19	46.01.27~46.02.03	216	
12	DD-1 DD-2	46.02.12	46.02.13~46.02.27 46.03.29~46.09.17	376 1,425	
13	DD-1	46.03.01	46.09.17~48.03.23	3,862	
14	DD-2	46.12.23	48.03.23~48.09.12 49.01.21~49.03.01	1,184 721	
15	DD-1	48.07.27	48.09.12~49.01.21 49.06.08~49.08.10	1,606 1,374	
16	DD-2	49.02.28	49.03.01~49.06.08	1,251	49.06 He系にCO ₂ ガス漏洩
17	DD-2	49.06.12	49.08.10~50.08.19	3,825	
18	DD-1	49.10.02	50.08.25~51.04.22	1,173	樹脂塔改造のため取出し
19	DD-1 DD-2	51.10.19	51.12.01~52.09.09 52.09.09~53.03.23	2,718 3,286	新カートリッジタイプ (R-4) 新カートリッジタイプ (R-5)
20	DD-1	52.07.20	53.03.23~53.11.13	3,042	新カートリッジタイプ (R-6)
21	DD-2	53.06.21	53.11.13~54.06.20	3,551	新カートリッジタイプ (R-7)
22	DD-1	53.12.13	54.06.20~55.04.12	2,952	新カートリッジタイプ (R-8)
23	DD-2	54.07.18	55.04.14~55.05.16	668	新カートリッジタイプ (R-9)
24	DD-1 DD-2	55.05.07	55.05.26~55.11.17 55.11.17~57.11.11	2,007 6,401	新カートリッジタイプ (R-10) 新カートリッジタイプ (R-11)
25	DD-1	55.08.06	56.04.17~58.03.25	1,414	新カートリッジタイプ (R-13)
26		58.05.18	化学除染用		R-14, 15, 16, 17
27		58.05.31	化学除染用		R-18, 19, 20, 23
28		58.06.03	化学除染用		R-21, 24, 25, 26
29		58.06.03	化学除染用		R-22, 27, 28

Table 4.12 Spent ion-exchange resin cartridges of the JRR-3M heavy water purification system

樹脂塔名	使用期間	使用年数	積算精製量 (m ³)	精製量 (m ³ /t)	備 考
No.2 KR2302	~8.10.18 (~08-02)	8	0~ 17,032	473	貫流点 以上
No.1 KR2301	8.10.18~ (08-03~)		0~		
平 均					

運転手引上での管理値：浄化流量：0.4~0.8m³/hr, 導電率：浄化系入口で2μ S/cm以下

Table 4.13 Specifications of the JRR-4

項 目	仕 様
原子炉の形式	軽水減速・冷却スイミングプール型
炉 心 部	炉心タンク：アルミニウム製円筒型 外径：上部：1.5m, 下部：83cm 最大炉心寸法：約 60cm × 65cm × 67cm
プール	No.1 プール：水量約 400 % No.2 プール：水量約 600 %
最大熱出力	3 . 5 MW
最大中性子束	熱中性子束：6 × 10 ¹³ n/cm ² ·sec 速中性子束：1.3 × 10 ¹³ n/cm ² ·sec
燃 料 棒	90%ウラン・アルミニウム合金燃料：20 体
制 御 棒	ボロン入りステンレス製 微調整棒：1本 粗調整棒：4本 後備安全棒：2本
冷却系統	一次冷却系（純水） 二次冷却系（濾過水）

Table 4.14 Outline of the JRR-4 cooling systems

項 目	仕 様
一次冷却系	No.1 プール : 約 400m ³ (純水) 循環流量 : 約 420m ³ /h 精製系 精製流量 : 約 10m ³ /h 樹脂量(混床) : Cation180: 1 , Anion360: 1 No.2 プール : 約 600m ³ (純水) 水質管理基準値 導電率 : 1 μ S/cm 以下 p H : 5 ~ 8
二次冷却水系	濾過水 : 約 100m ³ 循環流量 : 約 432m ³ /h

Table 4.15 Heavy water inventories of the JRR-4

年 度	期首装荷量	補給重水量	回収重水量	消費重水量	期末装荷量	備 考
42						
43						
44						
45						
46						
47						
48						
49		268	0	0	268	49年から移管替え
50	268	0	0	0	268	
51	268	263	263	0	268	重水回収・再充填
52	268	0	0	0	268	
53	268	0	0	0	268	
54	268	0	0	0	268	
55	268	0	0	0	268	
56	268	0	0	0	268	
57	268	0	0	0	268	
58	268	0	0	0	268	
59	268	0	0	0	268	
60	268	1,008	268	0	1,008	重水炉改造・増量
61	1,008	0	0	0	1,008	
62	1,008	0	0	0	1,008	
63	1,008	0	0	0	1,008	回収重水精製
01	1,008	8	15	0	1,001	炉水トリウム濃度調査
02	1,001	0	0	0	1,001	
03	1,001	0	0	0	1,001	
04	1,001	0	0	0	1,001	
05	1,001	0	0	0	1,001	
06	1,001	0	0	0	1,001	
07	1,001	0	0	0	1,001	
08	1,001	0	0	0	1,001	
09	1,001	0	0	0	1,001	
積算		1,547	546	0		

計算上の装荷量=積算補給量-(積算回収量+積算消費量)=1,001kg

Table 5.1 Income and outgo of heavy water from research reactors

受け入れ総量		払い出し総量	
1. 総購入量	49,115	1. 未使用重水量	767
2. 水均から移管	1,906	2. 回収重水量	21,377
		3. 装荷重水量	19,197
		JRR-2装荷重水	(10,896)
		JRR-3装荷重水	(7,300)
		JRR-4装荷重水	(1,001)
		4. 総損失量	9,680
		原子炉運転に伴う消費量	(9,230)
		回収重水再生に伴う損失量	(450)
	51,021		51,021

Table 5.2 Heavy water inventories for research reactors

(平成9年度末現在)

種 別	容器番号	NET (kg)	重水濃度 (wt%)	100% D ₂ O (kg)	放射濃度 (Bq/cm ³)	備 考
JRR-2	保管重水	11,157.21	97.66	10,896.13	約4×10 ⁷ 注1)	JRR-2 保管重水
	装荷重水	7,332.46	99.56	7,300.35	約1×10 ⁸ 注2)	JRR-3 M装荷重水
	未使用重水	450.28 5.60 40.03 49.30 222.70	99.85 99.48 99.83 99.80 99.85	449.60 5.57 39.96 49.20 222.37	約2×10 ⁷ 約2×10 ⁷ 約2×10 ⁷ 約2×10 ⁷ 約2×10 ⁷	JRR-3 M補給用 重水濃度計校正用 JRR-3 M補給用 JRR-3 M補給用 JRR-3 M補給用
JRR-3 M	回収重水	5,403.36 2,593.60 1,257.30 2,020.60 5,012.00 3,769.20 1,011.10 21.00 179.50 164.23 66.47 78.10 37.00	97.70 99.56 99.55 99.50 99.56 99.57 72.20 95.93 95.98 99.81 98.62 96.70 70.26	5,279.08 2,582.19 1,251.64 2,010.49 4,989.94 3,752.99 730.01 20.15 172.28 163.92 65.55 75.52 26.00	約4×10 ⁷ 約2×10 ⁷ 約2×10 ⁷ 約2×10 ⁷ 約2×10 ⁷ 約2×10 ⁷ 約3×10 ⁷ 約5×10 ⁷ 約3×10 ⁷ 約2×10 ⁷ 約2×10 ⁷ 約2×10 ⁷ 約3×10 ⁷	JRR-2 回収重水 JRR-3 M補給用 JRR-3 M補給用 JRR-3 M補給用 JRR-3 M補給用 JRR-3 M補給用 JRR-3 回収(低濃度) JRR-3 回収(低濃度) JRR-2 回収(低濃度) 精製重水(JRR-3M使用可) 重水回収(低濃度) JRR-2 回収(低濃度) JRR-4 装荷重水
JRR-4	装荷重水	1,005.43	99.59	1,001.31	約2×10 ⁷ 注3)	JRR-4 装荷重水
	回収重水	196.70 61.80	99.44 99.44	195.60 61.45	約2×10 ⁶ 約2×10 ⁶	JRR-4 補給用 JRR-4 補給用
内 訳	未使用重水	767.91		766.70		
	装荷重水	19,495.10		19,197.79		
	回収重水	21,871.96		21,119.76		
合 計(kg)		42,134.97		41,084.25		

注1)1996.11.07に採取, 注2)1997.03.07に採取, 注3)1996.04.24に採取

Table 6.1 Surplus heavy water from the stop of the JRR-2

(平成9年度未現在)

種 類 別	容 器 番 号	NET (Kg)	重 水 濃 度 (wt%)	100% D ₂ O (Kg)	トリチウム濃度 (Bq/cm ³)	備 考
JRR-2	保管施設内	11,157	97.66	10,896	約 4×10 ⁷	JRR-2 保管重水
JRR-3M	DT-1	5,404	97.70	5,279	約 4×10 ⁷	JRR-2 移動重水
	DT-8	1,011	72.20	730	約 3×10 ⁷	JRR-3 回収(低濃度)
	DRUM 14193	21	95.93	20	約 4×10 ⁷	JRR-3 回収(低濃度)
	DRUM 7853	180	95.98	172	約 3×10 ⁷	JRR-2 回収(低濃度)
	DRUM 6993	66	98.62	66	約 2×10 ⁷	重水化回収(低濃度)
	DRUM 12152	78	96.70	76	約 3×10 ⁷	JRR-2 回収(低濃度)
DRUM 8750	37	70.26	26	約 3×10 ⁷	JRR-2 回収(低濃度)	
合 計 (Kg)		17,954		17,265		

注) JRR-2保管施設からの抜き取り作業と回収重水の混合作業等によってNET重量、重水濃度及びトリチウム濃度が変動する。

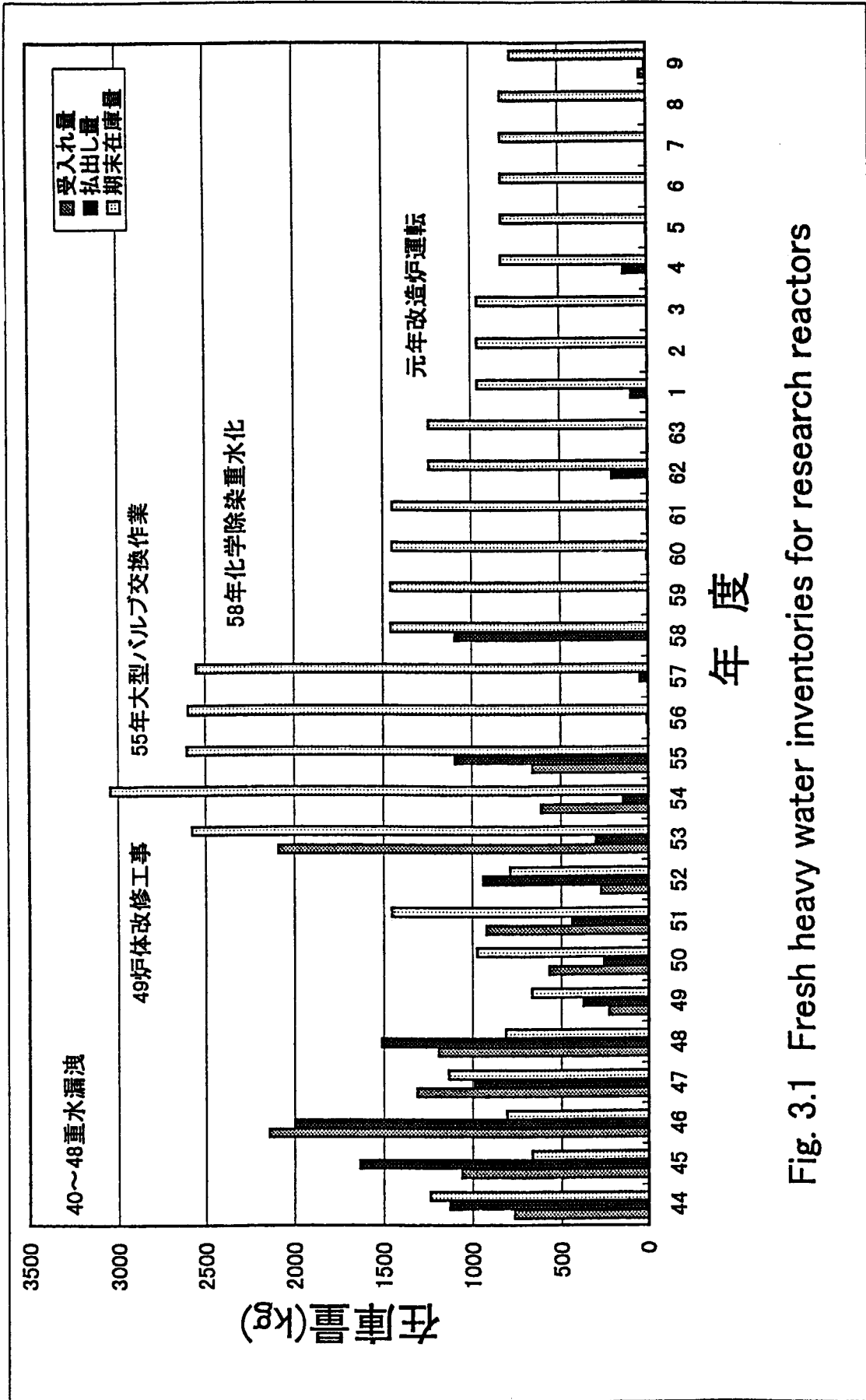


Fig. 3.1 Fresh heavy water inventories for research reactors

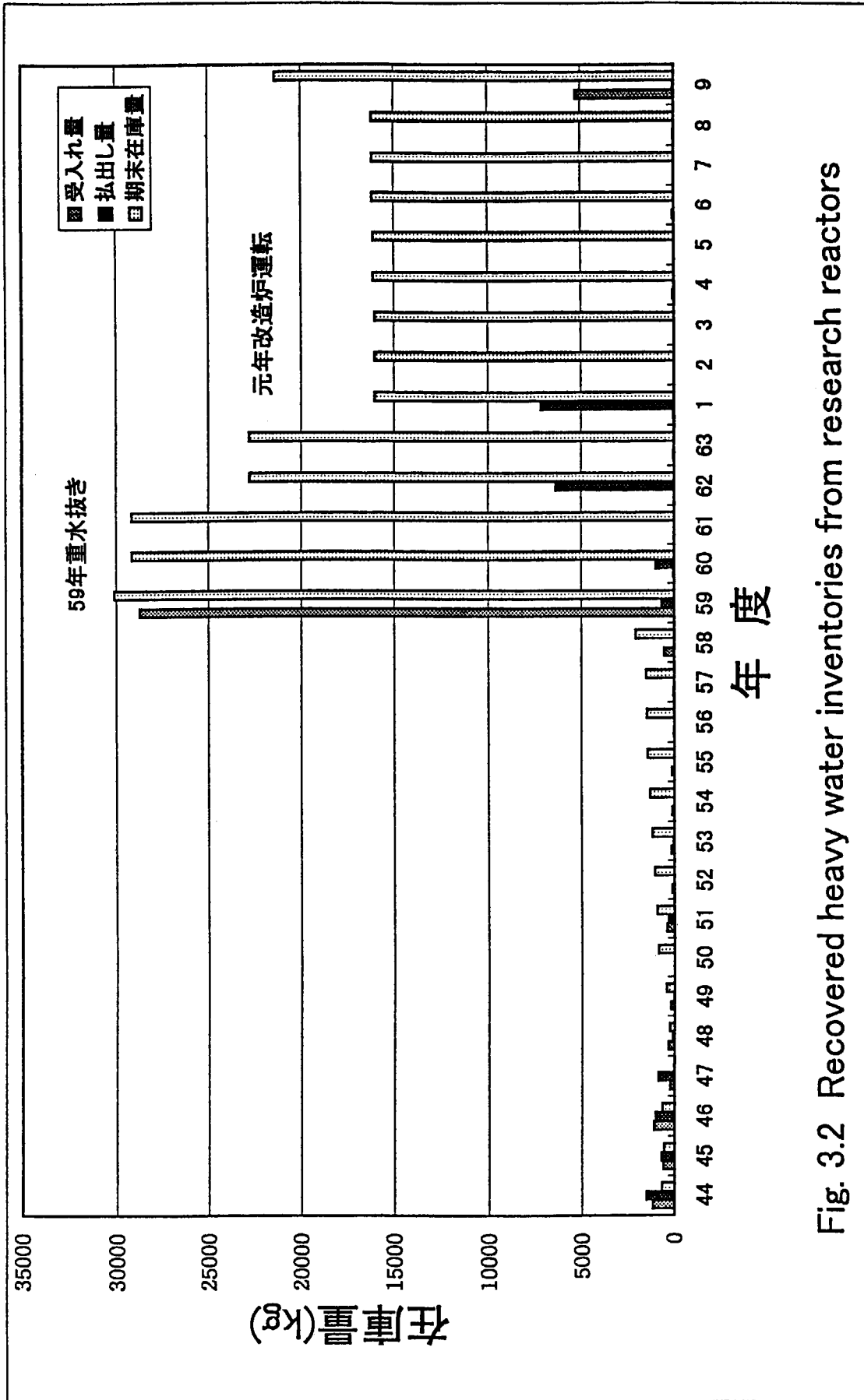


Fig. 3.2 Recovered heavy water inventories from research reactors

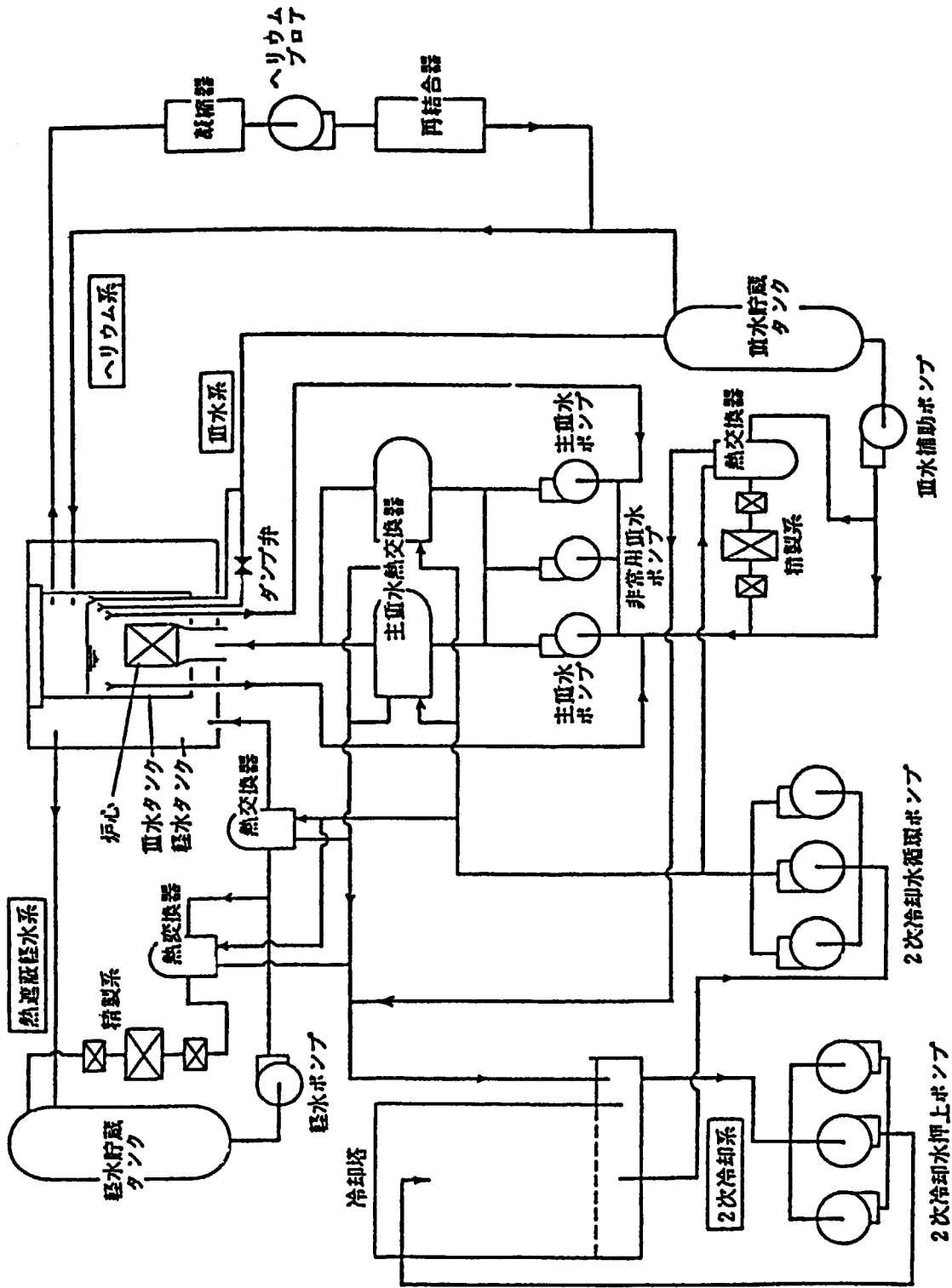


Fig. 4.1 Schematic flow diagram of the JRR-2 cooling systems

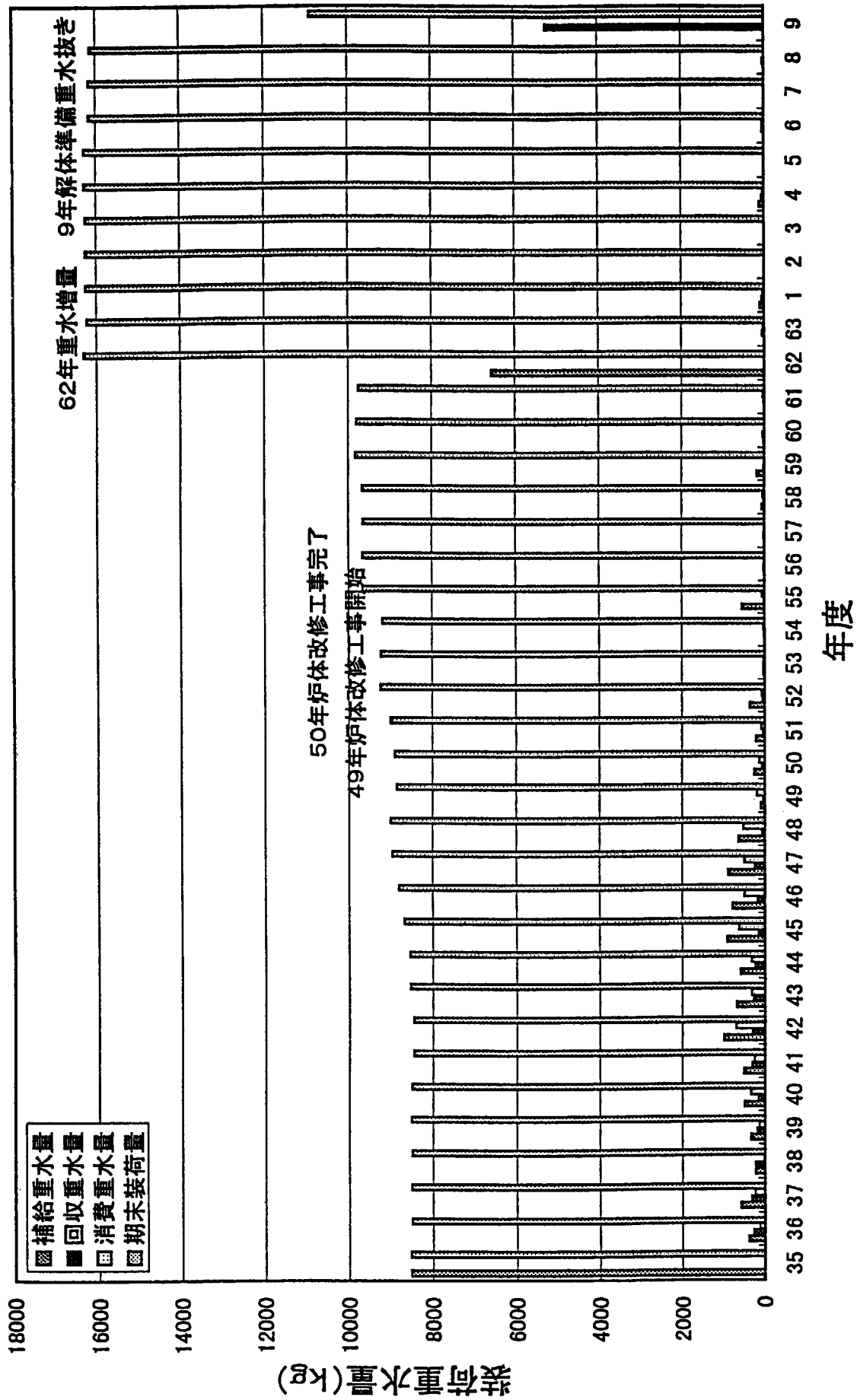


Fig. 4.2 Heavy water inventories in the JRR-2

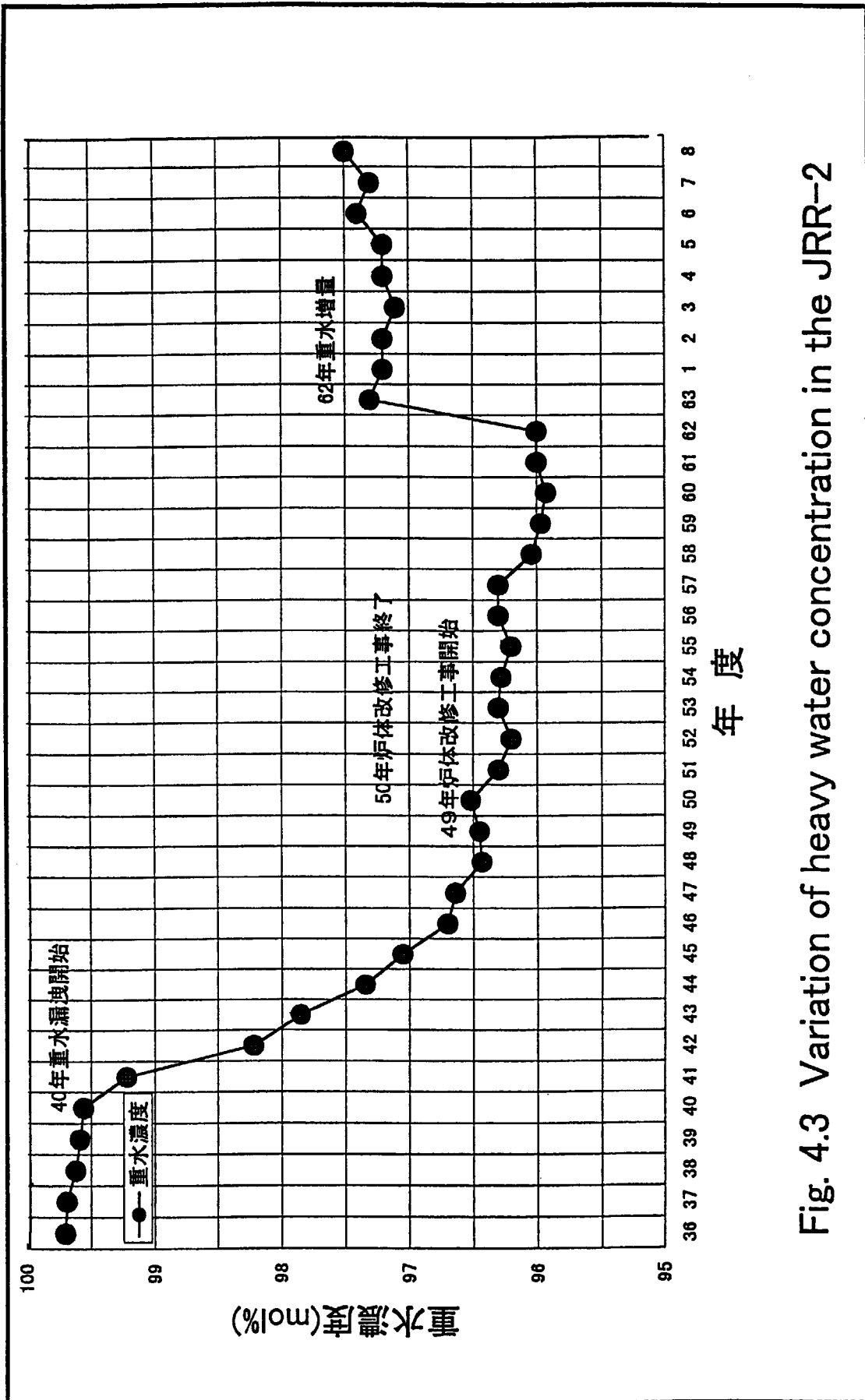


Fig. 4.3 Variation of heavy water concentration in the JRR-2

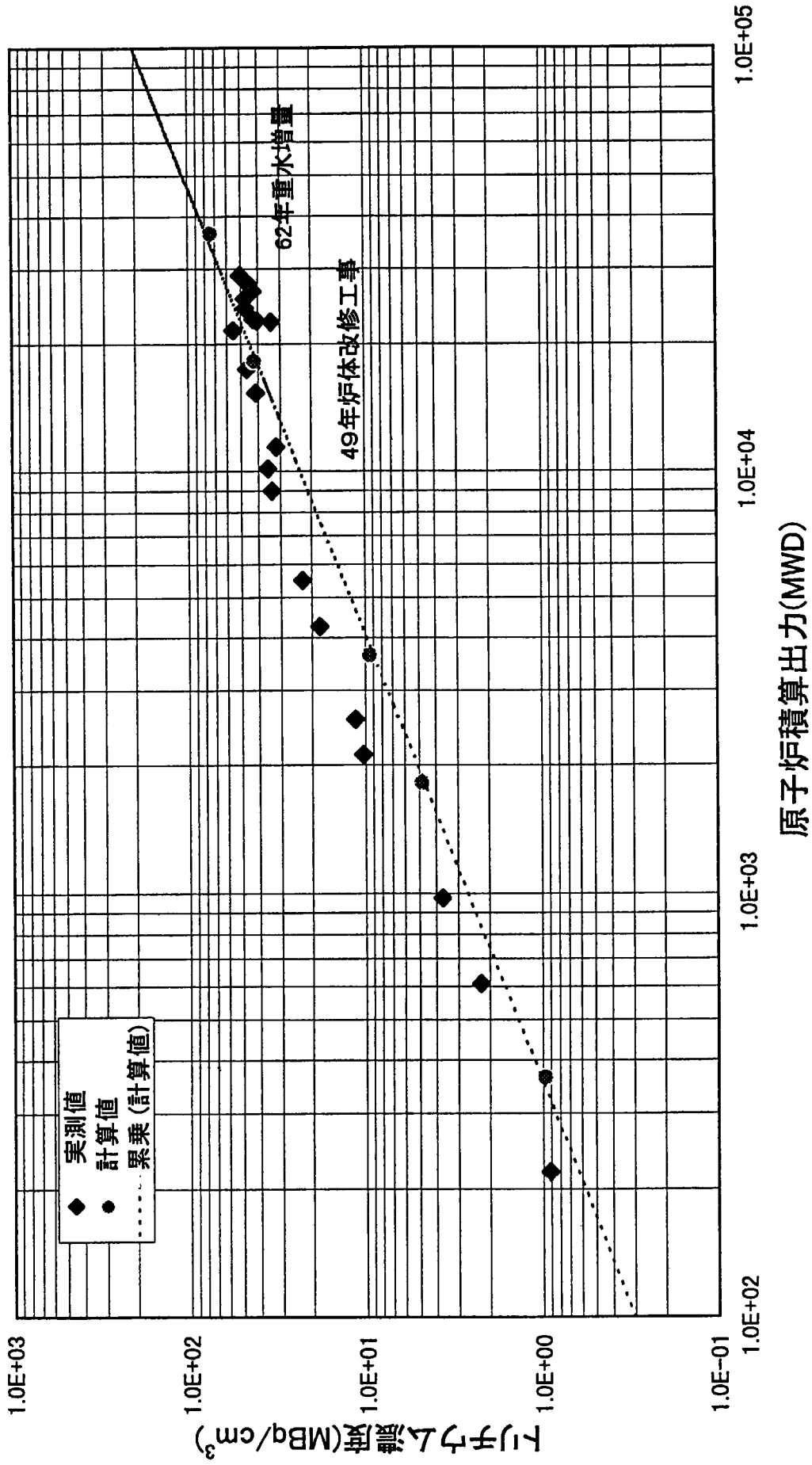


Fig. 4.4 Relation ship of tritium concentration to integrated power of the JRR-2

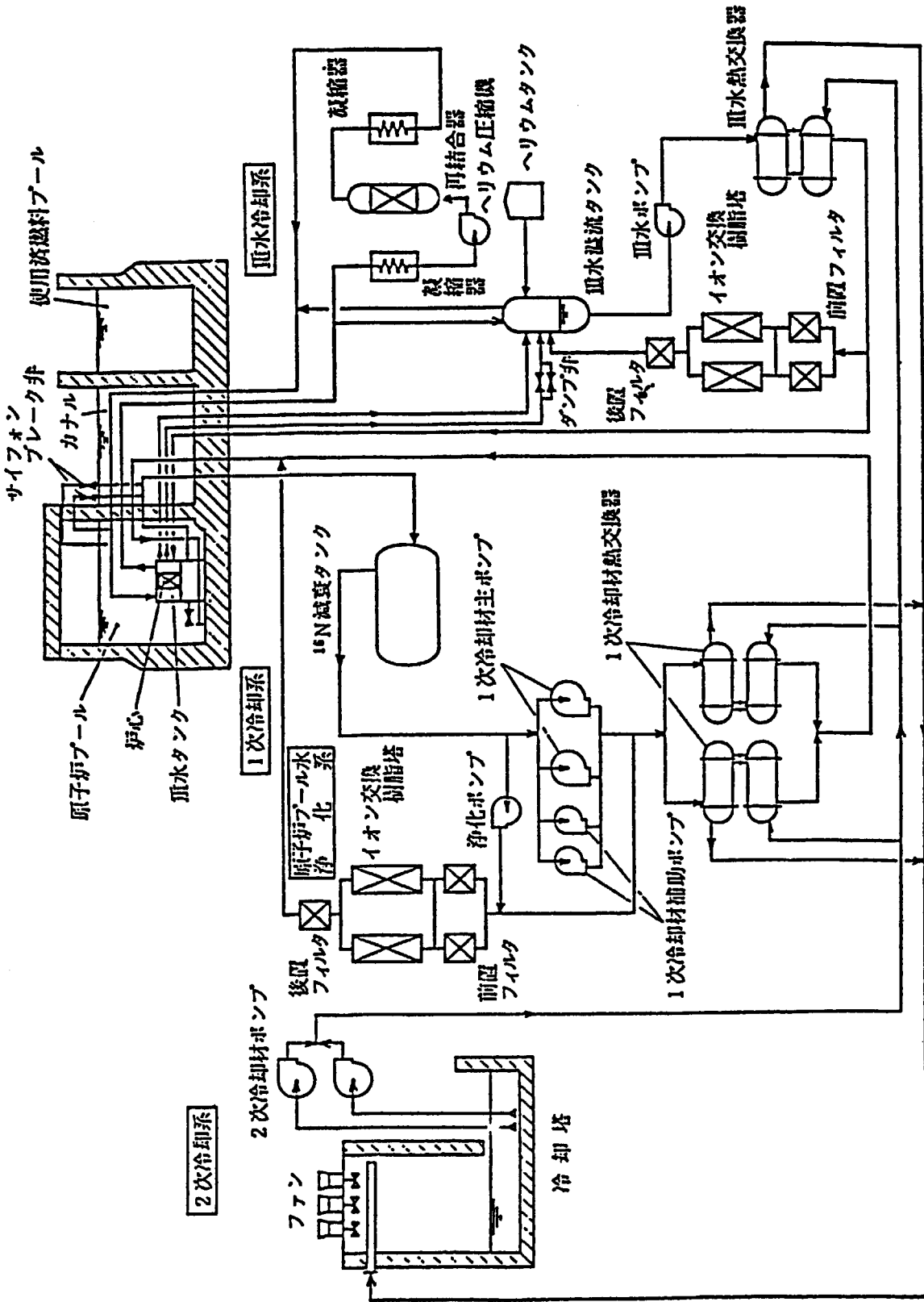


Fig. 4.5 Schematic flow diagram of the JRR-3M cooling systems

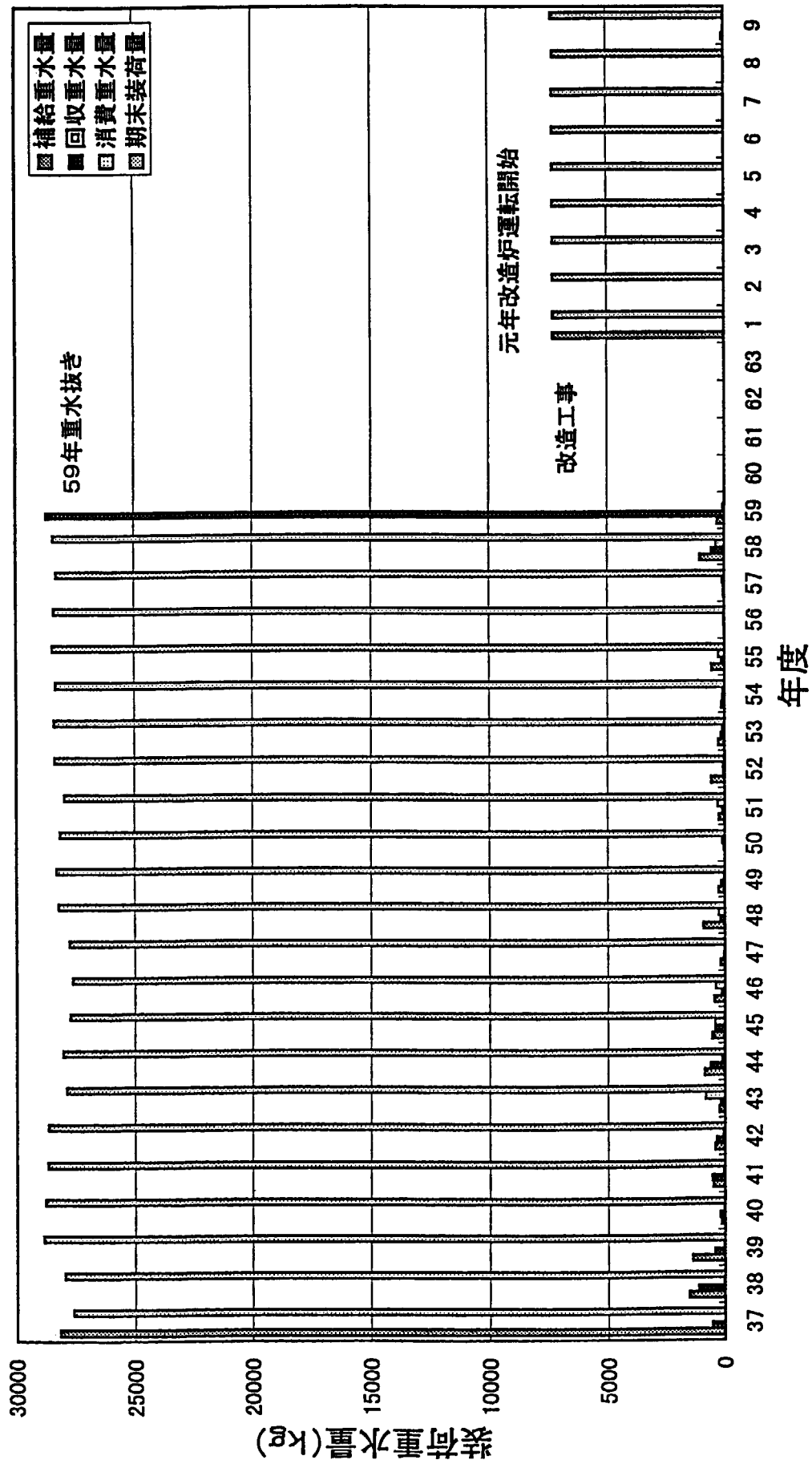


Fig. 4.6 Heavy water inventories in the JRR-3, JRR-3M

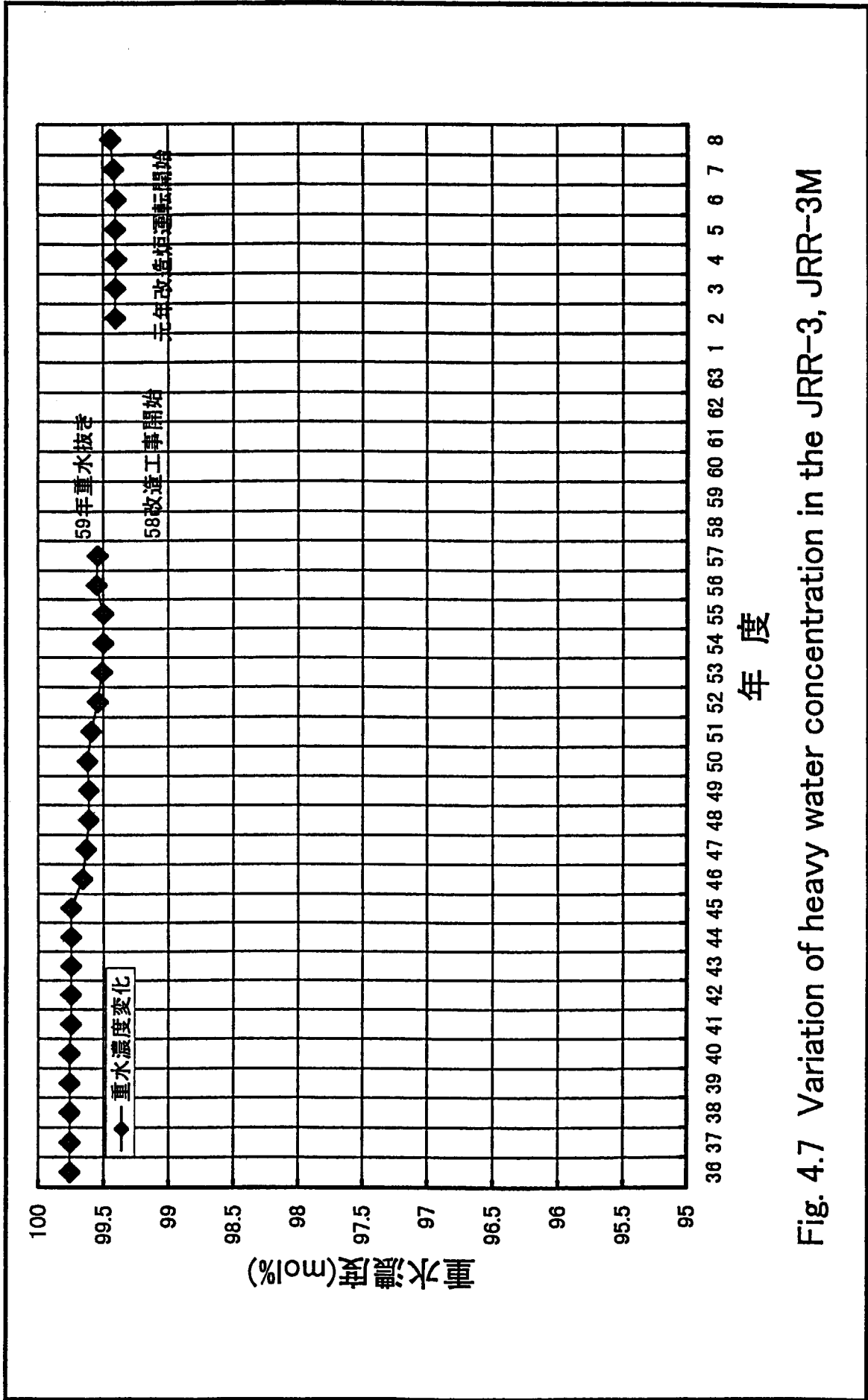


Fig. 4.7 Variation of heavy water concentration in the JRR-3, JRR-3M

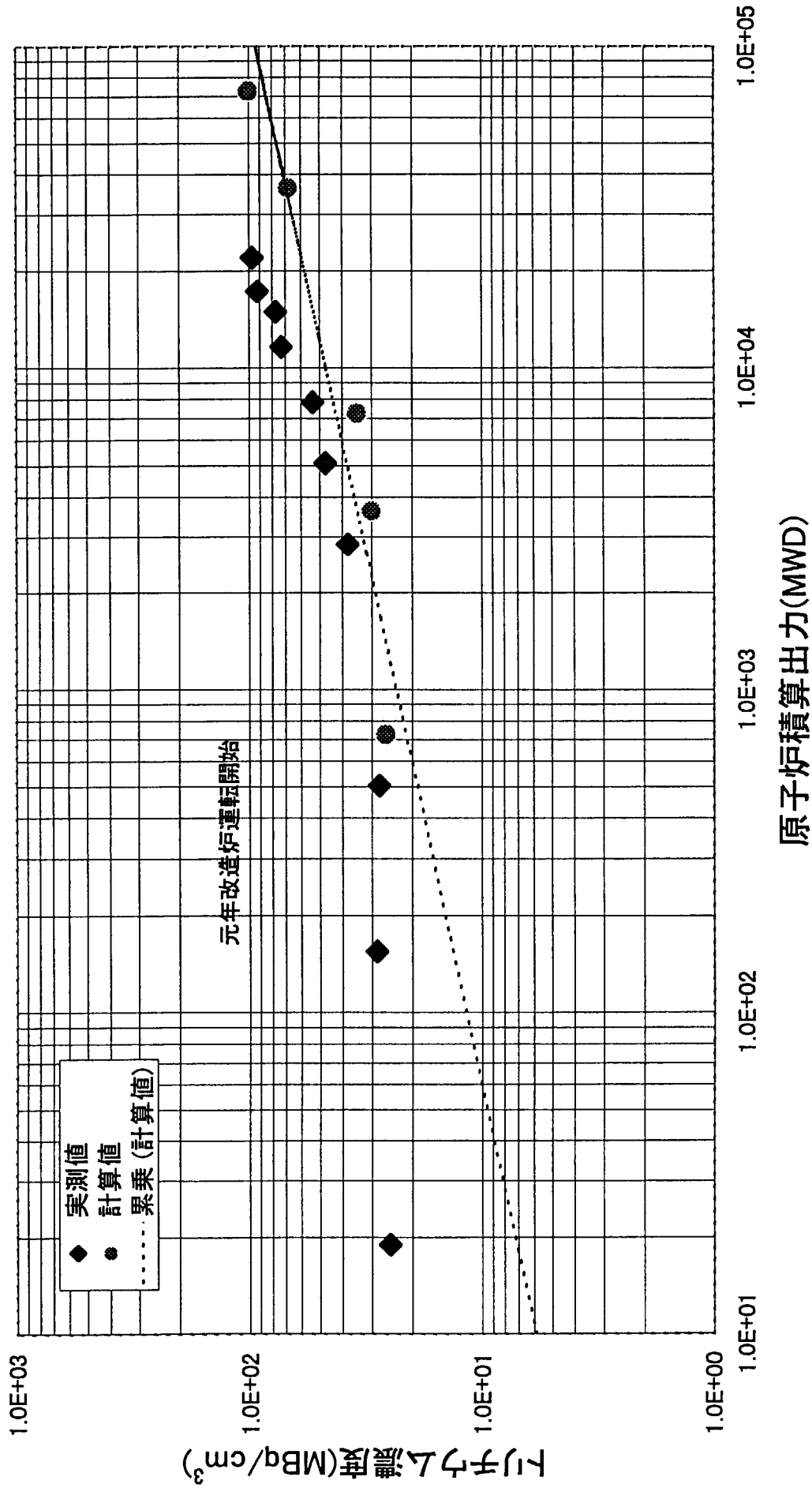


Fig. 4.8 Relation ship of tritium concentration to integrated power of the JRR-3M

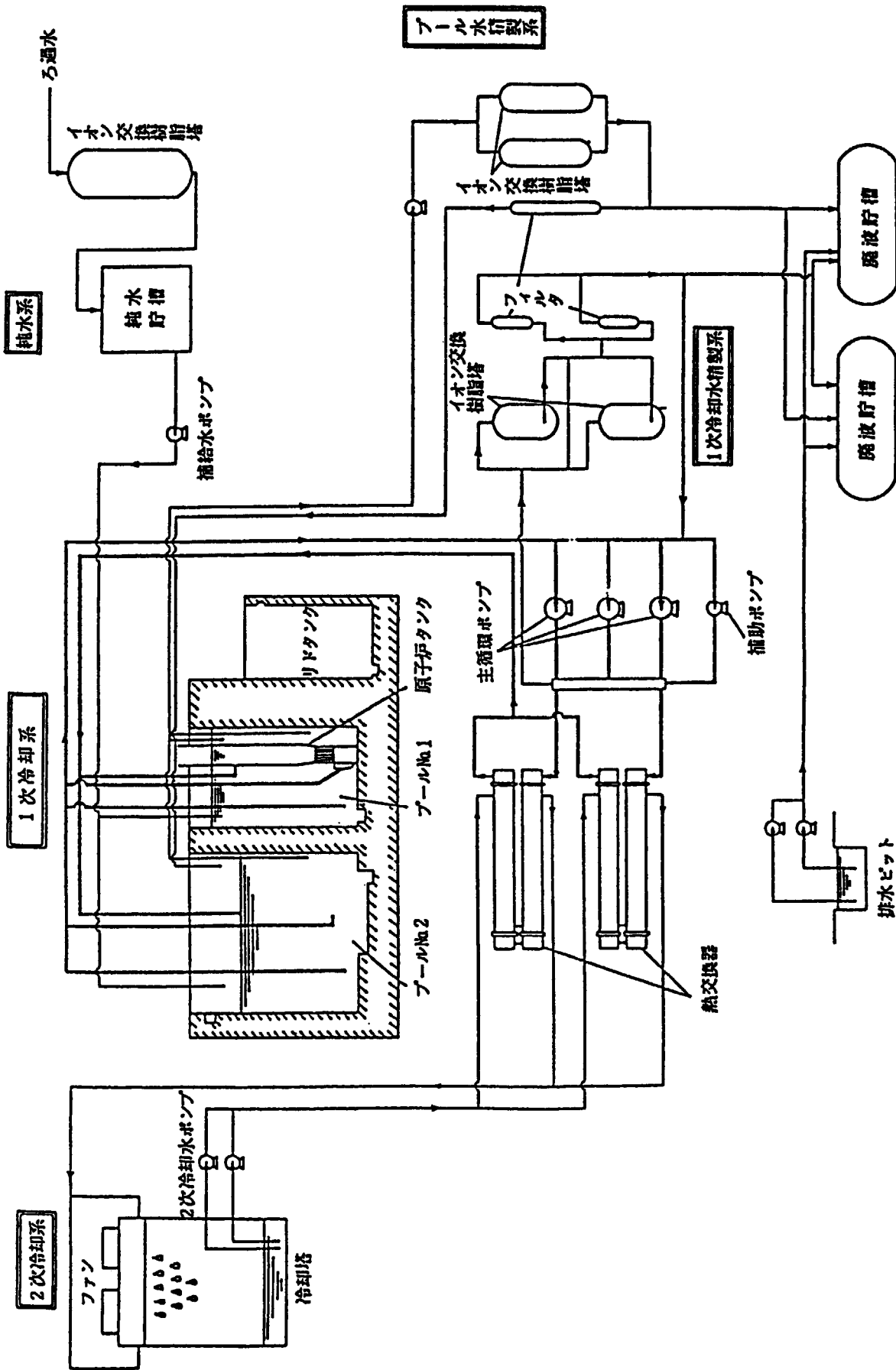


Fig. 4.9 Schematic flow diagram of the JRR-4 cooling systems

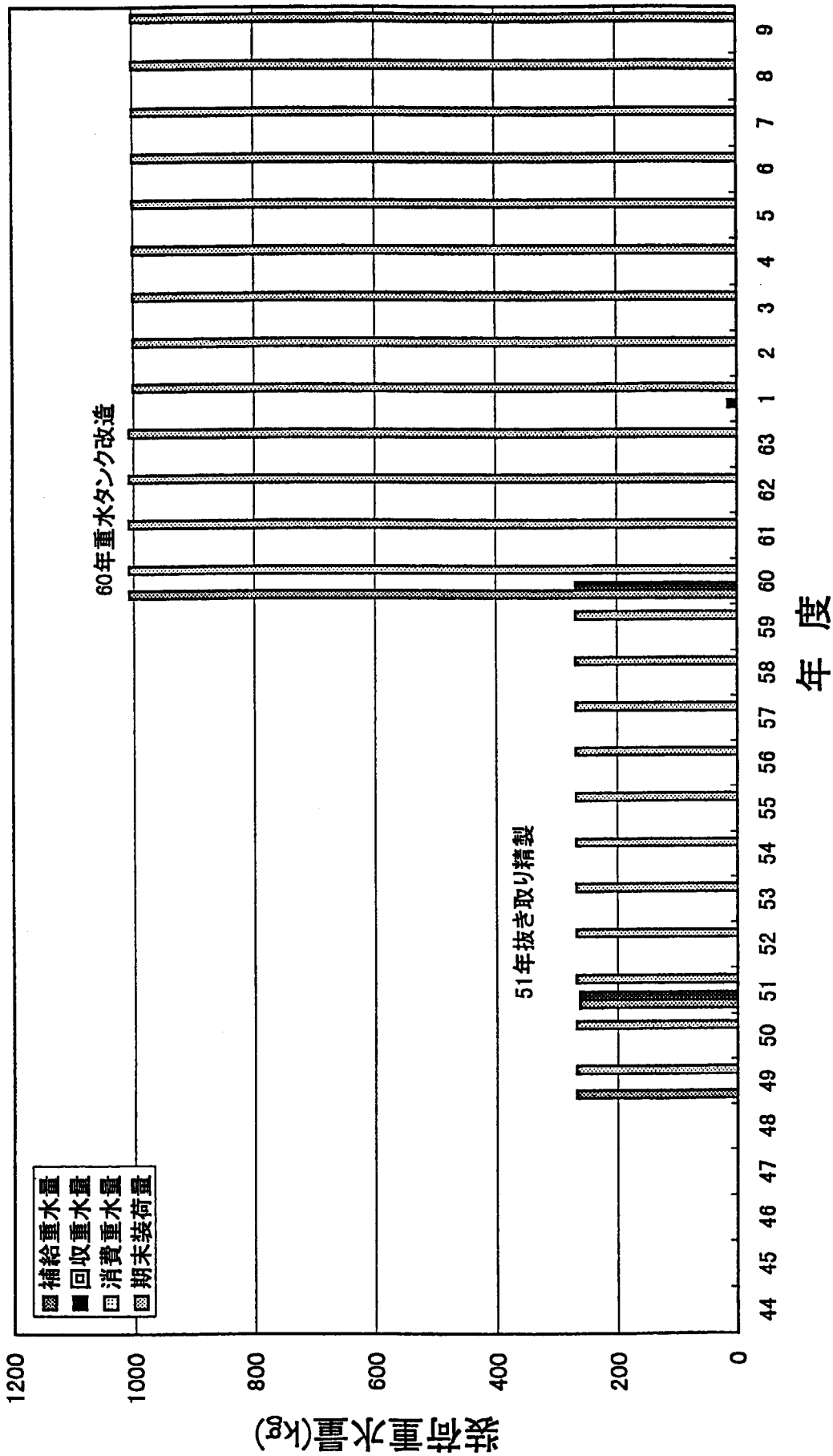


Fig. 4.10 Heavy water inventories in the JRR-4

Appendix - I

1. 重水に関する法規並びに所内管理規定等

1.1 重水管理の法規等

研究炉では、重水を原子炉の冷却材、減速材及び反射材として使用しており、これらの重水には、国際規制物資である重水が含まれていることから以下に記すような国の法規制並びに所内管理規定に従って管理している。重水計量管理に関する法規並びに管理規定の概略について以下に記述する。「核原料物質、核燃料物質及び原子炉の規制に関する法律」(以下『炉規法』と云う)第 61 条の 8 第 1 項の規定に基づいて、「東海研究所国際規制物資計量管理規定」が昭和 52 年 12 月 7 日 52 達第 65 号として通達されたことによって重水の計量管理方法は、従来の方法から変更された。国際規制物資として規制される重水は、『炉規法』の第 2 条第 9 項の国際約束に基づき日加原子力協定においてカナダで生産された重水だけとなっている。国際規制物資である重水を使用する場合には、『炉規法』の第 61 条の 5 第 1 項の規定に基づき国際規制物資の使用の変更を届け出なければならない。重水の計量管理に係る法規と管理規定等についてのフローチャートを Table A1-1 に示す。

1.2 記録

重水を原子炉の冷却材及び減速材として使用している場合には、『炉規法』第34条並びに炉設置運転規則第6条で運転記録として冷却材及び減速材の純度並びに毎日の補給量の記録が義務付けられている。国際規制物資である重水を使用する場合には、国際規制物資の使用に関する規則第4条第1項の10号で受渡、損失及び廃棄等の計量管理記録が義務付けられている。

1.3 報告・立入検査等

国際規制物資である重水の使用者は、『炉規法』の第 67 条及び「核原料物質、核燃料物質及び原子炉の規制に関する法律施行令」(以下『炉規施行令』と云う)第 22 条では、国際規制物資の在庫量の確認の実施、受払いに関する計画並びに在庫及び増減の状況の報告が課せられている。『炉規法』の第 68 条第 1 項及び第 4 項では、立入検査において国際規制物資に関する帳簿、書類の検査及び必要な試料の取去をさせられる。

1.4 罰則

許可を受けないで国際規制物資を使用した者は『炉規法』の第 79 条第 15 項で 30 万円以下の罰金に処せられる。届出をしないで国際規制物資を廃棄した者は『炉規法』の第 80 条第 2 項で 20 万円以下の罰金に処せられる。東海研究所における国際規制物資の計量管理に関しては、『炉規法』の第 61 条の 8 第 1 項の規定に基づいて、「東海研究所国際規制物資計量管理規定」を定め、これによって計量管理が義務付けられている。国際規制物資でない重水(非国際規制物資)は、「東海研究所非国際規制物資計量管理規程」並びに「東海研究所国際規制物資等計量管理規則」によって計量管理が義務付けられている。原子炉において重水を減速材として使用する場合に

は、『炉規法』の第 22 条の第 1 項の規定に基づいて定められた「保安規定(東海研究所原子炉施設保安規定)」で重水の管理について定めている。更に、JRR-2 と JRR-3M の「本体施設運転手引」には重水の計量管理方法が定められている。

2. 重水の計量管理方法

2.1 重水の計量管理

研究炉技術開発室では、重水の収支を 100%の重水量として「重水管理記録簿」に記載して管理している。重水の受入れ、受払間差異、移動、払出し、廃棄及び損耗等が生じた場合には、「東海研究所国際規制物資計量管理規定」並びに「東海研究所非国際規制物資計量管理規程」に従って、「核原料物質・設備(重水等)在庫状況変動票」に必要な事項を記入し、計量管理統括者と計量管理者の承認を得たのち安全管理室核燃料対策室長に通知している。また、「東海研究所国際規制物資等計量管理規則」では、研究炉で使用している重水の計量管理統括者は、研究炉部長、計量管理者は、研究炉技術開発室長となっている。研究炉で使用している重水については、「東海研究所原子炉施設保安規定」を受けて、JRR-2 と JRR-3M の「本体施設運転手引」の中の重水の計量管理の項で計量管理方法が定められている。以下に「JRR-3M 本体施設運転手引」に定められている重水の計量管理方法について記す。

2.1.1 重水の管理

(1) 重水の受け入れ

水・ガス係は、購入重水や再生重水を JRR-3M 管理課に受入れる場合は、重量、濃度及びその他必要な検査を行い、その結果及び重水を受入れた年月日、種類等を「重水移動報告票」(Table A1-2 参照)に記入し、研究炉技術開発室長の承認を得たのち JRR-3M 管理課長及び原子炉主任技術者に報告する。また、重水を所外及び施設外から受け入れた場合には、「核原料物質・設備(重水等)在庫状況変動票」(Table A1-3参照)に必要な事項を記入し、研究炉技術開発室長の承認を得たのち核燃料対策室長に通知する。

(2) 重水の貯蔵

水・ガス係は、重水を所定の場所に貯蔵し、装荷重水以外の重水(未使用重水、回収重水)は、ステンレス製のドラム缶等に密封して保管する。ただし、少量の重水を一時的に使用する場合にはポリエチレン製容器に密封して保管する。

(3) 重水の補給及び回収

水・ガス係は、重水を回収した後にはその重量、濃度及びその他必要な事項を検査し、その結果及び重水を補給又は回収した年月日等を「重水移動報告票」に記入し、研究炉技術開発室長の承認を得たのち JRR-3M 管理課長及び原子炉主任技術者に報告する。

(4) 重水の払出し及び廃棄

1) 払い出す場合

水・ガス係は、JRR-3M 管理課から重水を払出す場合には、払出し重量、理由等「重水移動報告票」に記入し、研究炉技術開発室長の承認を得たのち、JRR-3M 管理課長及び原子炉主任技術者に報告する。また、重水を所外及び施設外に払出す場合には、「核原料物質・設備(重水等)在庫状況

変動票」に必要な事項を記入し、研究炉技術開発室長の承認を得たのち核燃料対策室長に通知する。

2) 廃棄する場合

水・ガス係は、重水を廃棄する場合には、廃棄量、理由等「重水移動報告票」に記入し、研究炉技術開発室長の承認を得たのち、JRR-3M 管理課長及び原子炉主任技術者に報告する。また、重水を所外及び施設外に廃棄する場合には、「核原料物質・設備(重水等)在庫状況変動票」に必要な事項を記入し、研究炉技術開発室長の承認を得たのち核燃料対策室長に通知する。

(5) 計量誤差及び損耗があった場合

水・ガス係は、重水の混合等による計量誤差及び装荷重水等の損耗等が生じた場合には、重量、理由を「重水移動報告票」に記入し、研究炉技術開発室長の承認を得たのち、JRR-3M 管理課長及び原子炉主任技術者に報告する。また、計量誤差及び損耗が生じた場合には、「核原料物質・設備(重水等)在庫状況変動票」に記入し、研究炉技術開発室長の承認を得たのち、核燃料対策室長に通知する。

2.1.2 月末在庫量の報告

水・ガス係は、「重水移動報告票」に記入した事項をその都度「重水管理記録簿」(Table A1-4 参照)に転記する。毎月末に「重水管理記録簿」をもとに、「重水保管明細簿」(Table A1-5 参照)を作成し、研究炉技術開発室長の承認を得たのち核燃料対策室長に通知する。また、研究炉で使用した後の重水には、高濃度のトリチウムが含まれていることから重水を大量に所内で移動する場合には、「東海研究所 放射性物質等事業所内運搬規則」に従って実施する。重水の計量管理は、この運転手引に定める他、「東海研究所国際規制物資計量管理規定」、「東海研究所非国際規制物資計量管理規程」及び「東海研究所国際規制物資等計量管理規則」の定めにより行うものとする。

Table A1-1(1) The law for the regulations of heavy water control(1)

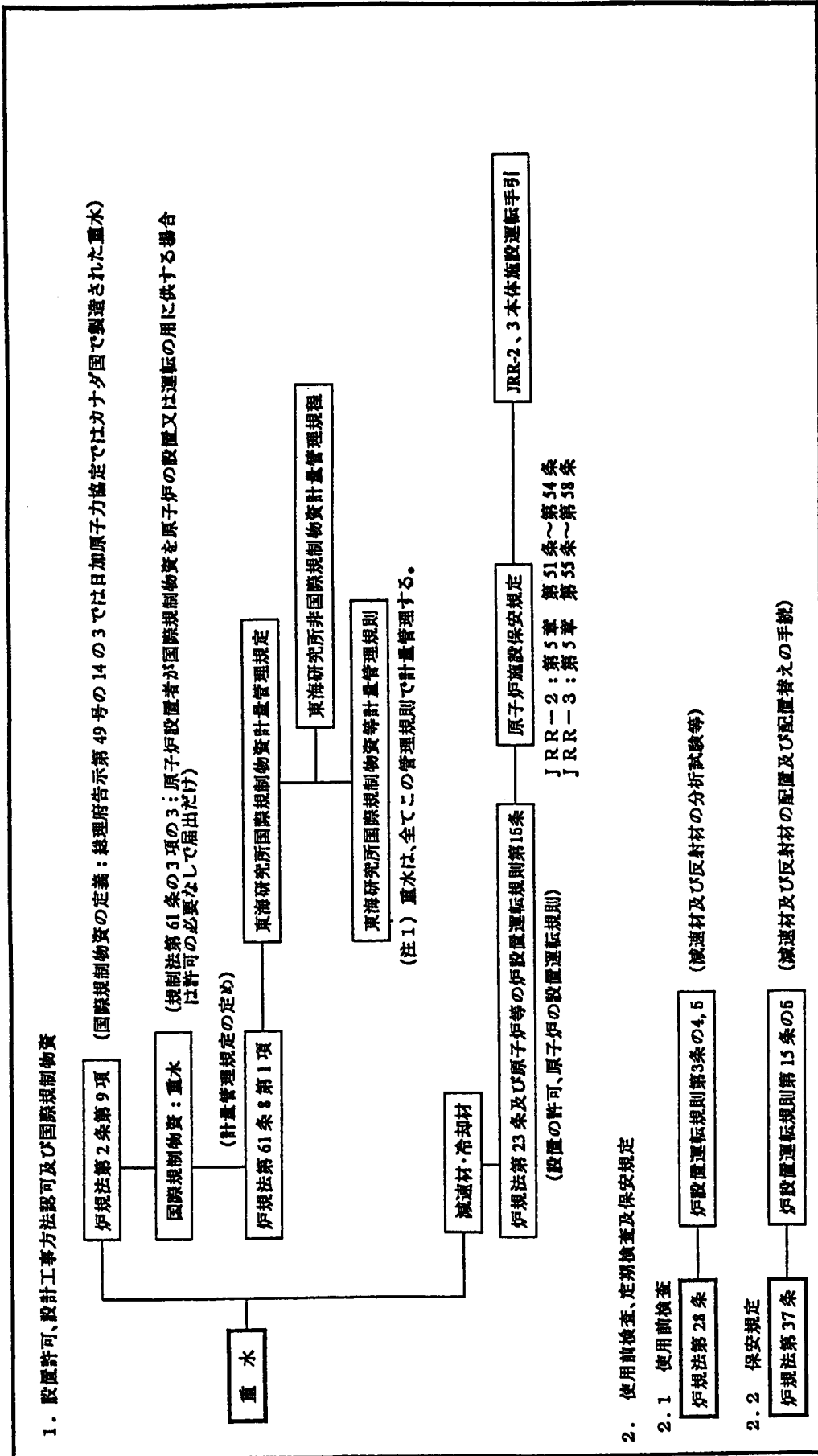


Table A1-1(2) The law for the regulations of heavy water control(2)

3. 記録
 (1) 減速材・冷却材としての記録 炉設置運転規則 第6条第1項 (記録)
 炉規法第34条 ———— 炉設置運転規則第6条
 (冷却材の温度、圧力及び流量、冷却材及び減速材の純度並びに補給量)

記録事項	記録すべき場合	保存期間
二 運転記録 原子炉本体の入口及び出口における冷却材の温度、圧力及び流量 原子炉に使用している冷却材及び減速材の純度並びにこれらの毎日の補給量	運転中1時間ごと 毎日1回	10年間 10年間

- (2) 国際規制物資としての記録 国際規制物資の使用に関する規則第4条第1項の10号

国規物規則 ———— 国規物規則第4条第1項の10号

記録事項	記録すべき場合	保存期間
(1) 減速材物質の相手方別の受渡数量及び受渡しの原因 (2) 減速材物質の事故損失その他の損失の数量及び理由 (3) 減速材物質の廃棄の数量及び方法 (4) 減速材物質の在庫の状況 (5) 減速材物質の在庫量	受渡しの都度 損失の都度 廃棄の都度 在庫状況の変化の都度 毎月1回	10年間 10年間 10年間 10年間

(原子炉等の設置、運転等に関する規則第6条1項の第4号から削除して国際規制物資の使用に関する規則(総理府令第50号)第4条第1項の10号の適用)

4. 報告等
 炉規法第67条 ———— 炉規制施行令第22条 (国際規制物資の使用者：国際規制物資の在庫量の確認、受払い計画、増減の確認)
5. 立入検査等
 炉規法第68条第1、第4項 (国際規制物資の帳簿、書類の検査及び必要な試料の収去)
6. 罰則
 炉規法第77条 (許可を受けないで原子炉を設置した者：3年以下の懲役又は100万円以下の罰金)
 炉規法第79条第15項 (許可を受けないで国際規制物資を使用した者：30万円以下の罰金)
 炉規法第80条第2項 (届出をしないで国際規制物資を廃棄した者：20万円以下の罰金)

Table A1-3 Heavy water inventory change record

核原料物質・設備等(重水等)在庫状況変動票 ④

[変動元課室 (— 移動先課室) — 核燃料対策室 — 変動元課室]

変動年月日	平成 年 月 日			変動元 計量管理統括者	④	
	課 室	ACA	*1 KMP	JOB	計量管理者	担 当 者
変動元					④	④ 〇
移動先**					④	④ 〇

行	品 目	バッチ名又は 個別同定番号	供給国	数 量 *3	変動	相手側 *4
1						
2						
3						
4						
5						

- * 1 品目が重水のときのみ記入する。
- * 2 所内移動のときのみ記入、押印する。
- * 3 核原料物質及び重水についてはグラム単位の重量、重水以外の設備等については個数を記入する。
- * 4 所外受払のときのみ記入する。
- * 5 購入のときは、納入業者及び契約番号を記入する。

本件について 通知を受けました。 同意します。

平成 年 月 日

核燃料対策室長 _____ ④

*5 記 事	
--------------	--

Table A1-5 Stored heavy water inventory record

<u>重水保管明細簿 (正)</u>										
伝票 No.		<input type="checkbox"/> JRR-2 <input checked="" type="checkbox"/> JRR-3 <input type="checkbox"/> JRR-4							研究炉技術開発室	
		平成 ** 年 * 月 ** 日 現在							室長	G・L
区分	容器No	重量 (Kg)			濃度	100%換算 重水量 (Kg)	トリチウム	p H	Cond	備考
		GROSS	TARE	NET	Wt (%)		(Bq/ml)			
未 使 用	購 入 重 水									
	小計									
重 水	再 生 ・ 精 製 重 水									
	小計									
合計										
回 収 重 水										
	合計									

研究炉技術開発室保管

Appendix - II

AECL-6544 (1979, JULY)

RECOVERY OF TRITIUM FROM CANDU REACTORS, ITS STORAGE AND
MONITORING OF ITS MIGRATION IN THE ENVIRONMENT

『CANDU 炉からのトリチウムの回収と貯蔵並びに環境での移動監視』

1. まえがき

この報告書は、1978年ウイーンの IAEA で開催されたトリチウムの放出と廃棄物取扱い技術の会議のために準備した三種類の報告書をまとめたものである。Ontario Hydro では、研究炉と CANDU 炉の運転によるトリチウムの取扱いと監視についての経験がある。本報告書は、この二つ機関におけるトリチウムについての管理や情報について共同で調査した結果をまとめた。

2. CANDU 炉におけるトリチウムの生成

CANDU 炉では、重水中の重水素、ホウ素及びトリチウムの中性子反応と燃料の三重核分裂によってトリチウムが生成される。重水素の中性子捕獲では、約 2.4 kCi/MWe (89 TBq/MWe)、三重核分裂では 20 Ci/MWe のトリチウムが生成され、トリチウムを含む重水の形(DTO)として多く存在する。Pickering GS"A"(PGS)の減速材と冷却材の平均トリチウム濃度は、各々約 16 Ci/kg (15mCi/ml) と 0.5 Ci/kg (0.5 mCi/ml) であるが、重水の損失と補給を考慮した平衡濃度は、減速材で約 40 Ci/kg (36 mCi/ml) と冷却材で 2 Ci/kg (2 mCi/ml) となる。また、理論的な平衡濃度は、減速材で約 65 Ci/kg (59 mCi/ml) と冷却材で 2.5 Ci/kg (2.3 mCi/ml) となり、減速材中のトリチウム濃度は冷却材よりも高く、濃度比は約 26 である。

3. 原子炉からのトリチウム放出

原子炉内で生成されたトリチウムは、空気中にトリチウムを含む重水分として放出され、放出制限値 (DEL) は、公衆の被曝が年間 0.5 rem/a を越えないように設定されている。Ontario Hydro では、原子炉の運転によるトリチウム放出量を放出制限値の 1% 以下で放出するように設計している。PGS から大気中と水中へのトリチウムの放出は低く、放出制限値の 1% 以下である。主なトリチウムの放出源は、減速材の重水で、大気中のトリチウムの 90% が減速材から発生している。

4. 重水炉からのトリチウムの回収

重水からのトリチウムの回収は、DTO と D₂ との触媒交換で DT と D₂O を製造する方法とトリ

トリチウムを含んだ重水(D₂O/DTO)を電気分解してガス状(D₂/DT と O₂)にした水素同位体を低温水素蒸留してトリチウムを分離して濃縮する方法が最も有望と思われる。重水炉からのトリチウムの回収は、一般的に二つの分離プロセスから構成される。最初のプロセスでは、重水からトリチウムを分離し濃縮して高い比放射能のトリチウム水素ガスに転換する。次に、ガス状の D₂/DT/T₂を低温水素蒸留してトリチウムを高濃度に濃縮して貯蔵する方法が最も経済的で実際的なプロセスである。重水からトリチウムを回収する転換プロセスとしては以下の方法がある。

◎水蒸気・水素交換法：VPCE(Vapor-phase Catalytic Exchange)

トリチウムを含む重水蒸気を D₂で D₂/DT の混合物として交換する方法。

◎電解法：DE(Direct Electrolysis)

トリチウムを含む重水を電解法で D₂/DT にする方法。

◎電解法+水・水素交換法：CECE(Combined Electrolysis-Catalytic Exchange)

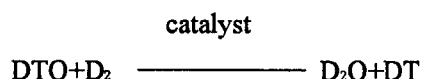
重水中のトリチウムを D₂/DT で交換してトリチウムを濃縮する方法。

◎水・水素交換法と低温水素蒸留法：LPCE(Liquid-Phase Catalytic Exchange) + CD(Cryogenic Distillation)

トリチウムを含む重水を D₂と D₂/DT との混合物にする方法と重水からトリチウムを回収するために水素同位体の低温水素蒸留法との組み合わせる方法。これらのプロセスの概要を以下に記述する。

4.1 水蒸気・水素交換法(VPCE)と低温水素蒸留法(CD)との組み合わせ

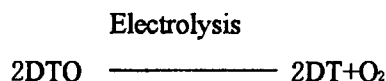
このプロセスはフランスのCEAで開発された。スイスのスルサンブラザース(株)がこのプロセスのライセンスを持っていてフランスのグルノーブルに小さなプラントを建設した。このプロセスは、D₂O/DTO を水蒸気化して低温水素蒸留装置からの D₂ガスと触媒相で直接接触させ以下の交換を促進させる。



このプロセスでは、幾つかの蒸発器、触媒層及び凝縮器等が十分な脱トリチウムを達成させるために必要である。トリチウムを含む重水素から酸素、窒素及びその他の不純ガスを除去し精製してそれから低温水素蒸留系に供給される。低温水素蒸留塔でトリチウムが除去された重水素ガスはVPCEに戻されて再循環される。トリチウムが除去された重水蒸気は、凝縮されて原子炉へ戻される。

4.2 電解法(DE)と低温水素蒸留法(CD)との組み合わせ

トリチウムを含む重水は、原子炉から電解セルに供給され、酸素ガスと D₂/DT ガスに分解される。



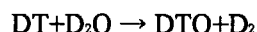
Electrolysis



精製された D_2/DT ガスは、低温水素蒸留系に供給される。重水素ガスは電解セル内で発生した酸素と再結合されてトリチウムが除去された重水は原子炉に戻される。

4.3 電解法と水・水素交換法との組み合わせ(CECE)

CECE法はCRLNのAEC Lで開発された。このプロセスでは、疎水性触媒を使用して重水素とトリチウムの交換を促進させる。トリチウムを含む重水は、原子炉から触媒カラムに供給されそして下方に流れて電解セルで発生した D_2/DT ガスは向流で上昇する。



トリチウム濃縮液は、触媒カラム底部の電解セルに集められ、電解セルで濃縮された D_2/DT ガスの一部はトリチウムを抽出するために低温水素精留装置に送られる。電解セル内では、重水素ガスがトリチウムよりも優先的に発生するためセル内の溶液にトリチウムが濃縮される。低温水素精留カラムでトリチウムから分離された重水素ガスは、電解セルからの酸素と再結合され、トリチウムが除去された重水となって原子炉に戻される。

4.4 水・水素交換法(LPCE)と低温水素蒸留法(CD)との組み合わせ

LPCE法でのトリチウムの除去は、液相にトリチウムを含む重水が残る他はVPCE法と類似している。AEC Lで開発された疎水性触媒は、重水からトリチウムを迅速に転換されるためにフランスのCEAで開発された触媒に代わって使用された。LPCE法は、単純で低温低圧での運転であることから漏洩のない装置を早く作ることができる。そして、トリチウム濃度は、原子炉から供給される濃度以上に増加しないために安全である。CECE法は、複雑で原子炉から供給される濃度より本質的に高い濃度のトリチウム水を取り扱うことになる。CECE法は、軽水からの低濃度トリチウムを回収する方法として非常に有利である。AEC Lでは、LPCE法とCECE法についてラボラトリスケールでの評価を行い、パイロットプラントスケールでのデモンストレーションを計画中である。直接電解法は、LPCE法よりも複雑で、トリチウムを含む重水には適用されていないし、まだ立証されていない。VPCE法は、立証されているが、しかし、蒸留や凝縮等での高温での複雑な繰り返しを必要とする欠点がある。

5. 濃縮トリチウムの貯蔵

5.1 ガス状トリチウムの貯蔵

濃縮されたトリチウムは、ガスコンテナでトリチウムガスとして貯蔵できる。この方法は、短期間で回収できる貯蔵に適していて米国とフランスで現在使用されている。コンテナは、300シ

リーズオーステナイト系ステンレス鋼, ニッケル-クロム合金, 錫と錫コーティング鋼等の金属で作られ、高圧で設計され、圧力逃がし装置が使用されている。

5.2 金属水素化物としてのトリチウムの固定化と貯蔵

トリチウムガスは、金属水素化物の形で貯蔵できる。幾つかの金属は、トリチウムと反応してトリチウム化することが知られている。ジルコニウム水素化物は、他の金属水素化物より非常に安定で発火しない。トリチウム化ウランは、短期間のトリチウム貯蔵に使用される。

5.3 セメントによるトリチウム水の固化

ポルトランドセメントにトリチウム水を加えた場合、カルシウムシリケートの結晶構造内にトリチウムが入ってカルシウムヒドロキシド $[\text{Ca}(\text{OH})_2]$ とカルシウムシリケート水素化物の安定な形として存在する。Ontario Hydro での経験では、50℃以上の生石灰では結晶水が除去されることが見いだされた。セメントが水に晒された場合には、化学交換によってセメントからトリチウムが浸出される。この貯蔵方法は、回収プロセスで発生する濃縮トリチウム水を廃棄物にするのに最適である。この方法は、トリチウム水を取扱うための広大な貯蔵場所を必要とするが、金属水素化トリチウム貯蔵方法と比較するとトリチウムの回収はできないが、長期間の貯蔵に適している。

This is a blank page.

国際単位系 (SI) と換算表

表1 SI基本単位および補助単位

量	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質質量	モル	mol
光度	カンデラ	cd
平面角	ラジアン	rad
立体角	ステラジアン	sr

表3 固有の名称をもつSI組立単位

量	名称	記号	他のSI単位による表現
周波数	ヘルツ	Hz	s ⁻¹
力	ニュートン	N	m·kg/s ²
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m ²
エネルギー, 仕事, 熱量	ジュール	J	N·m
工率, 放射束	ワット	W	J/s
電気量, 電荷	クーロン	C	A·s
電位, 電圧, 起電力	ボルト	V	W/A
静電容量	ファラド	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジーメンズ	S	A/V
磁束	ウェーバ	Wb	V·s
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ²
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A
セルシウス温度	セルシウス度	°C	
光束	ルーメン	lm	cd·sr
照度	ルクス	lx	lm/m ²
放射能	ベクレル	Bq	s ⁻¹
吸収線量	グレイ	Gy	J/kg
線量当量	シーベルト	Sv	J/kg

表2 SIと併用される単位

名称	記号
分, 時, 日	min, h, d
度, 分, 秒	°, ', "
リットル	l, L
トン	t
電子ボルト	eV
原子質量単位	u

1 eV = 1.60218 × 10⁻¹⁹ J
 1 u = 1.66054 × 10⁻²⁷ kg

表4 SIと共に暫定的に維持される単位

名称	記号
オングストローム	Å
バ	b
バール	bar
ガリ	Gal
キュリー	Ci
レントゲン	R
ラド	rad
レム	rem

1 Å = 0.1 nm = 10⁻¹⁰ m
 1 b = 100 fm² = 10⁻²⁸ m²
 1 bar = 0.1 MPa = 10⁵ Pa
 1 Gal = 1 cm/s² = 10⁻² m/s²
 1 Ci = 3.7 × 10¹⁰ Bq
 1 R = 2.58 × 10⁻⁴ C/kg
 1 rad = 1 cGy = 10⁻² Gy
 1 rem = 1 cSv = 10⁻² Sv

表5 SI接頭語

倍数	接頭語	記号
10 ¹⁸	エクサ	E
10 ¹⁵	ペタ	P
10 ¹²	テラ	T
10 ⁹	ギガ	G
10 ⁶	メガ	M
10 ³	キロ	k
10 ²	ヘクト	h
10 ¹	デカ	da
10 ⁻¹	デシ	d
10 ⁻²	センチ	c
10 ⁻³	ミリ	m
10 ⁻⁶	マイクロ	μ
10 ⁻⁹	ナノ	n
10 ⁻¹²	ピコ	p
10 ⁻¹⁵	フェムト	f
10 ⁻¹⁸	アト	a

(注)

- 表1-5は「国際単位系」第5版, 国際度量衡局 1985年刊行による。ただし, 1 eV および 1 uの値はCODATAの1986年推奨値によった。
- 表4には海里, ノット, アール, ヘクタールも含まれているが日常の単位なのでここでは省略した。
- barは, JISでは流体の圧力を表わす場合に限り表2のカテゴリーに分類されている。
- EC閣僚理事会指令では bar, barn および「血圧の単位」mmHgを表2のカテゴリーに入れている。

換算表

力	N (=10 ⁵ dyn)	kgf	lbf
	1	0.101972	0.224809
	9.80665	1	2.20462
	4.44822	0.453592	1

粘度 1 Pa·s(N·s/m²) = 10 P(ポアズ)(g/(cm·s))
 動粘度 1 m²/s = 10⁴ St(ストークス)(cm²/s)

圧	MPa (=10 bar)	kgf/cm ²	atm	mmHg(Torr)	lbf/in ² (psi)
	1	10.1972	9.86923	7.50062 × 10 ³	145.038
力	0.0980665	1	0.967841	735.559	14.2233
	0.101325	1.03323	1	760	14.6959
	1.33322 × 10 ⁻⁴	1.35951 × 10 ⁻³	1.31579 × 10 ⁻³	1	1.93368 × 10 ⁻²
	6.89476 × 10 ⁻³	7.03070 × 10 ⁻²	6.80460 × 10 ⁻²	51.7149	1

エネルギー・仕事・熱量	J (=10 ⁷ erg)	kgf·m	kW·h	cal(計量法)	Btu	ft·lbf	eV
	1	0.101972	2.77778 × 10 ⁻⁷	0.238889	9.47813 × 10 ⁻⁴	0.737562	6.24150 × 10 ¹⁸
	9.80665	1	2.72407 × 10 ⁻⁶	2.34270	9.29487 × 10 ⁻³	7.23301	6.12082 × 10 ¹⁹
	3.6 × 10 ⁶	3.67098 × 10 ⁵	1	8.59999 × 10 ⁵	3412.13	2.65522 × 10 ⁶	2.24694 × 10 ²⁵
	4.18605	0.426858	1.16279 × 10 ⁻⁶	1	3.96759 × 10 ⁻³	3.08747	2.61272 × 10 ¹⁹
	1055.06	107.586	2.93072 × 10 ⁻⁴	252.042	1	778.172	6.58515 × 10 ²¹
	1.35582	0.138255	3.76616 × 10 ⁻⁷	0.323890	1.28506 × 10 ⁻³	1	8.46233 × 10 ¹⁸
	1.60218 × 10 ⁻¹⁹	1.63377 × 10 ⁻²⁰	4.45050 × 10 ⁻²⁶	3.82743 × 10 ⁻²⁰	1.51857 × 10 ⁻²²	1.18171 × 10 ⁻¹⁹	1

1 cal = 4.18605 J (計量法)
 = 4.184 J (熱化学)
 = 4.1855 J (15 °C)
 = 4.1868 J (国際蒸気表)
 仕事率 1 PS (仏馬力)
 = 75 kgf·m/s
 = 735.499 W

放射能	Bq	Ci
	1	2.70270 × 10 ⁻¹¹
	3.7 × 10 ¹⁰	1

吸収線量	Gy	rad
	1	100
	0.01	1

照射線量	C/kg	R
	1	3876
	2.58 × 10 ⁻⁴	1

線量当量	Sv	rem
	1	100
	0.01	1

