

高速実験炉「常陽」冷却材及びカバーガス
純度管理データベース
(MK-II炉心)
(技術報告)

2000年3月

核燃料サイクル開発機構
大洗工学センター

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村村松4番地49

核燃料サイクル開発機構

技術展開部 技術協力課

Inquires about copyright and reproduction should be addressed to:
Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184,
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)
2000

高速実験炉「常陽」冷却材及びカバーガス純度管理データベース

(MK-Ⅱ炉心)

(技術報告)

伊藤 和寛*、根本 昌明*、佐井川 拓也**、助川 一弥**

要 旨

高速実験炉「常陽」は、昭和 57 年に、照射用炉心 (MK-Ⅱ炉心) として初臨界を迎えて以来 31 サイクルの定格出力運転と 13 項目の特殊試験のための短期間運転及び 8 回の定期検査を行い、平成 9 年 12 月に MK-Ⅲ炉心への移行を開始した。この間、1 次系ナトリウムは 67 回、2 次系ナトリウムは 81 回、1 次系カバーガスは 75 回、2 次系カバーガスはオーバフロータンク及びダンプタンクから各 89 回のサンプリングを実施し、不純物濃度データを蓄積してきた。「常陽」MK-Ⅱ炉心の集大成として、これらのデータ及びこれらに関連するプラントデータについてユーザが利用できるようにデータベースとして整備した。

本データベースには、関連するプラントデータと「常陽」実機で測定した 1 次系ナトリウム及び 2 次系ナトリウム中の酸素、炭素、水素、窒素、塩素、鉄、ニッケル及びクロムを、1 次カバーガス及び 2 次カバーガス中の酸素、水素、窒素、一酸化炭素、二酸化炭素、メタン及びヘリウムの濃度を収録している。これらのデータは、ユーザが利用しやすいようにその時の炉心状態と併せて収録した。

* 核燃料サイクル開発機構 大洗工学センター 照射施設運転管理センター 実験炉部技術課

** 検査開発株式会社

JOYO Coolant Sodium and Cover Gas Purity Control Database (MK-II Core)

Kazuhiro ITO*, Masaaki NEMOTO*
Takuya SAIKAWA **, Kazuya SUKEGAWA**

ABSTRACT

The experimental fast reactor “JOYO” served as the MK-II irradiation bed core for testing fuel and material for FBR development for 15 years from 1982 to 1997. During the MK-II operation, impurities concentrations in the sodium and the argon gas were determined by 67 samples of primary sodium, 81 samples of secondary sodium, 75 samples of primary argon gas , 89 samples of secondary argon gas (the overflow tank) and 89 samples of secondary argon gas (the dump tank). The sodium and the argon gas purity control data were accumulated from in thirty-one duty operations, thirteen special test operations and eight annual inspections. These purity control results and related plant data were compiled into database, which were recorded on CD-ROM for user convenience.

Purity control data include concentration of oxygen , carbon , hydrogen , nitrogen , chlorine , iron , nickel and chromium in sodium, concentration of oxygen , hydrogen , nitrogen , carbon monoxide , carbon dioxide , methane and helium in argon gas with the reactor condition.

*Reactor Technology Section, Experimental Reactor Division, Irradiation Center,

Oarai Engineering Center, JNC

**Inspection Development Company

目 次

1. 緒言	1
2. 「常陽」の運転履歴	2
3. 「常陽」の設備概要	5
3.1 1次冷却系	5
3.2 2次冷却系	5
3.3 1次アルゴンガス系	5
3.4 2次アルゴンガス系	6
4. ナトリウム及びカバーガスの純度管理	13
4.1 1次系ナトリウム	13
4.2 2次系ナトリウム	13
4.3 1次系カバーガス	13
4.4 2次系カバーガス	14
5. サンプルング設備と方法	15
5.1 1次系ナトリウムのサンプルング	15
5.2 2次系ナトリウムのサンプルング	15
5.3 1次系カバーガスのサンプルング	16
5.4 2次系カバーガスのサンプルング	17
6. 分析方法	28
6.1 一般成分	28
6.2 放射性物質	29
7. 分析結果とその評価	33
7.1 1次系ナトリウム	33
7.2 2次系ナトリウム	33
7.3 1次系カバーガス	33
7.4 2次系カバーガス	34
8. 結言	39
(参考文献)	40
付録1 購入ナトリウムの純度規格	41
付録2 高速実験炉「常陽」純度管理データ集 (CD-ROM)	59

表リスト

表 2.1	MK-II 運転実績データ	3
表 3.1	1次主冷却系の仕様	7
表 3.2	2次主冷却系の仕様	7
表 3.3	1次アルゴンガス系統設備の仕様	7
表 3.4	2次アルゴンガス系統設備の仕様	7
表 4.1	ナトリウムの維持基準	14
表 4.2	ナトリウム及びカバーガスの純度管理目標値	14
表 7.1	1次系ナトリウム分析結果例	35
表 7.2	1次系カバーガス分析結果例	36

図リスト

図 2.1	「常陽」運転履歴	4
図 3.1	1次及び2次冷却系の概要	8
図 3.2	2次主冷却系系統図	9
図 3.3	2次ナトリウム純化系系統図	10
図 3.4	1次アルゴンガス系系統図	11
図 3.5	2次アルゴンガス系系統図	12
図 5.1	サンプリング関連設備概略フローシート	18
図 5.2	1次系ナトリウムサンプリング設備系統図	19
図 5.3	1次系ナトリウムサンプリング装置外略図	20
図 5.4	1次系ナトリウムサンプリングコイル	21
図 5.5	2次系ナトリウムサンプリング設備系統図	22
図 5.6	2次系ナトリウムサンプリング装置外略図	23
図 5.7	2次系ナトリウムサンプリングチューブ	24
図 5.8	1次アルゴンガス系サンプリング装置外略図	25
図 5.9	1次アルゴンガス系サンプリングポット	26
図 5.10	2次アルゴンガス系サンプリング装置外略図	27
図 6.1	ナトリウム中の不純物分析操作手順	31
図 6.2	カバーガスアルゴン中の不純物分析操作手順	32
図 7.1	1次ブラックング計Na温度	37
図 7.2	1次系ナトリウム中の酸素濃度の推移	38

1. 緒 言

高速実験炉「常陽」MK-II炉心は、昭和57年11月に初臨界を迎えて以来31サイクルの定格出力運転と13項目の特殊試験のための短期間運転及び8回の定期検査を行い、平成9年12月にMK-III炉心への移行を開始した。この間、1次系ナトリウム、2次系ナトリウム、1次系カバーガス及び2次系カバーガスについて、純度管理を目的に、不純物濃度を測定している。今回、MK-II炉心としての運転終了を期に「常陽」MK-II炉心の集大成として、この間に蓄積してきた1次系ナトリウム、2次系ナトリウム、1次系カバーガス及び2次系カバーガス中の不純物濃度及びこれらに関連するプラントデータについて、幅広く利活用頂くため、これらのデータベースについて報告し、公開するものである。なお、ユーザがこれらのデータ類を机上のPC環境で容易に利用できるようにCD-ROMに収録した。

2. 「常陽」の運転履歴^{1),2)}

高速実験炉「常陽」MK-I 炉心は、昭和 52 年 4 月 24 日に初臨界を達成した。引き続き、各種の性能試験・特性試験を行い、昭和 53 年 10 月から昭和 54 年 2 月にかけて MK-I 炉心第 1 期出力である 50 MWt 定格出力運転を 2 サイクル実施した。その後、MK-I 第 2 期出力で 75 MWt への出力上昇試験、性能試験を経て、昭和 55 年 2 月から昭和 56 年 12 月までに 75 MWt 定格出力での運転を 6 サイクル実施した。昭和 57 年 1 月から MK-II 炉心へ移行するための準備作業を開始し、MK-II 炉心は、昭和 57 年 11 月 22 日に初臨界を達成後、昭和 58 年 3 月 12 日に 100 MWt を達成し、同年 8 月から照射炉として定格出力による本格的な運転を開始した。

照射性能を向上するため、昭和 62 年の第 13 サイクルからはそれまでの 45 日 1 サイクルの運転日数を徐々に延長し、昭和 63 年の第 15 サイクル運転において 70 日運転を達成した。この間、31 サイクルの定格出力運転と 13 項目の特殊試験のための短期間運転及び 8 回の定期検査を行い、平成 9 年 9 月に MK-II 炉心の運転を終了し、平成 9 年 12 月に MK-III 炉心への移行を開始した。

図 2.1 に高速実験炉「常陽」の運転履歴を、表 2.1 に MK-II における各サイクルの運転期間を示す。平成 9 年 9 月の MK-II 炉心の運転終了時の累積運転時間は約 41,200 時間(MK-I からの累積は約 54,200 時間)、積算熱出力は約 3,770GWh (同 4,440GWh) に達した。

表2.1 MK-II 運転実績データ

サイクル番号	運転期間	原子炉起動回数(回)	最大熱出力(MWt)	積算熱出力*1(MWH)	当該サイクル積算熱出力*1(MWH)	積算運転時間(H)	当該サイクル運転時間(H)	定格出力運転日数(EFPD)	定検
0	1982/11/17 ~ 1983/7/31	80	100	66746	66746	1492.76	1492.76	27.811	第4回
1	1983/8/9 ~ 1983/9/30	8	100	170090	103344	2673.86	1181.10	43.060	
2	1983/10/12 ~ 1983/12/2	8	100	278330	108240	3635.26	1161.40	45.100	
3	1984/4/19 ~ 1984/6/10	9	100	383450	105120	5014.09	1178.83	43.800	
4	1984/6/25 ~ 1984/8/12	5	100	485666	102216	6135.21	1121.12	42.590	第5回
5	1984/9/3 ~ 1984/10/22	5	100	593253	107587	7274.70	1139.49	44.828	
6	1984/11/26 ~ 1985/1/12	1	100	700377	107124	8410.38	1135.68	44.635	
7	1985/2/11 ~ 1985/3/31	2	100	805372	104995	9556.21	1145.83	43.748	
7'	1985/4/17 ~ 1985/4/19	1	100	810412	5040	9623.04	66.83	2.100	
7''	1985/4/26 ~ 1985/4/27	1	30	811232	820	9658.79	35.75	0.342	
8	1985/12/2 ~ 1986/1/21	4	100	917192	105960	10830.12	1171.33	44.150	第6回
9	1986/2/12 ~ 1986/3/31	4	100	1019005	101813	11936.99	1106.87	42.422	
10	1986/4/25 ~ 1986/6/11	2	100	1125863	106858	13071.57	1134.58	44.524	
11	1986/7/4 ~ 1986/8/20	2	100	1232524	106661	14208.15	1136.58	44.442	
12	1986/9/13 ~ 1986/10/29	2	100	1335237	102713	15315.24	1107.09	42.797	第7回
12'	1986/11/13 ~ 1986/11/14	2	100	1336147	910	15351.85	36.61	0.379	
12''	1986/11/24 ~ 1986/11/26	2	50	1337457	1310	15413.78	61.93	0.546	
12'''	1986/12/3 ~ 1986/12/5	2	50	1338845	1388	15474.23	60.45	0.578	
13	1987/8/31 ~ 1987/10/31	5	100	1468923	130078	16890.35	1416.12	54.199	第8回
14	1987/11/28 ~ 1988/1/30	3	100	1611701	142778	18394.08	1503.73	59.491	
15	1988/2/29 ~ 1988/5/12	2	100	1778263	166562	20142.46	1748.38	69.401	
15'	1988/6/14	4	1	1778291	28	20167.85	25.39	0.012	
15''	~			1778304	13	20183.21	15.36	0.005	
15'''	1988/6/24			1778318	14	20199.29	16.08	0.006	
16	1988/8/2 ~ 1988/9/6	4	100	1854136	75818	21033.77	834.48	31.591	第9回
17	1989/1/18 ~ 1989/4/1	4	100	2018183	164047	22774.77	1741.00	68.353	
18	1989/5/8 ~ 1989/7/19	3	100	2182235	164052	24491.76	1716.99	68.355	
19	1989/8/15 ~ 1989/10/26	2	100	2347110	164875	26208.82	1717.06	68.698	
20	1989/11/22 ~ 1990/1/4	2	100	2443084	95974	27227.61	1018.79	39.989	第10回
20'	1990/1/17 ~ 1990/1/22	2	100	2451966	8882	27336.51	108.90	3.701	
21	1990/9/6 ~ 1990/11/18	3	100	2617175	165209	29059.05	1722.54	68.837	
22	1990/12/22 ~ 1991/3/4	2	100	2782079	164904	30772.87	1713.82	68.710	
23	1991/4/6 ~ 1991/6/1	2	100	2908907	126828	32104.62	1331.75	52.845	第11回
23'	1991/6/16 ~ 1991/6/17	1	95	2909485	578	32128.17	23.55	0.241	
23''	1991/6/29 ~ 1991/7/5	6	3	2909498	13	32222.80	94.63	0.005	
23'''	1991/9/2 ~ 1991/9/10	1	100	2926776	17278	32425.28	202.48	7.199	
24	1992/3/14 ~ 1992/5/5	9	100	3026429	99653	33598.52	1173.24	41.522	第11回
24'	1992/6/16 ~ 1992/6/17	1	99	3026827	398	33621.49	22.97	0.166	
25	1992/8/14 ~ 1992/10/22	2	100	3182465	155638	35270.37	1648.88	64.849	
25'	1992/11/25 ~ 1992/11/29	1	100	3190452	7987	35373.04	102.67	3.328	
26	1992/12/21 ~ 1993/2/2	2	100	3285283	94831	36402.29	1029.25	39.513	第11回
27	1993/2/20 ~ 1993/3/26	3	100	3357487	72204	37187.80	785.51	30.085	
28	1994/3/14 ~ 1994/3/26	6	100	3372185	14698	37405.62	217.82	6.124	
29	1994/8/23 ~ 1994/9/27	2	100	3430594	58409	38071.35*2	651.25	24.337	
29'	1995/5/7 ~ 1995/5/10	2	100	3434513	3919	38140.93	69.58	1.633	
30	1997/3/3 ~ 1997/5/20	32	100	3581571	147058	39711.23	1570.30	61.274	
31	1997/7/14 ~ 1997/9/12	3	100	3716708	135137	41117.79	1406.56	56.307	

7' サイクル (FFDL炉内試験(I))

7'' サイクル (自然循環試験)

12' サイクル (B4M照射試験)

12'' サイクル (フィードバック反応度試験(I))

12''' サイクル(" (II))

*1 JOYDASオンラインデータ

*2 第7次取替制御棒使用前検査運転の時間を含む

15' サイクル (FFD感度校正試験(I))

15'' サイクル(" (II))

15''' サイクル(" (III))

20' サイクル (反応率測定試験)

23' サイクル (第1回高線出力試験)

23'' サイクル (CR値詳細測定試験)

23''' サイクル(INTA-2試験)

24' サイクル (第2回高線出力試験)

25' サイクル (FFDL炉内試験(II))

29' サイクル (各種試験その5)

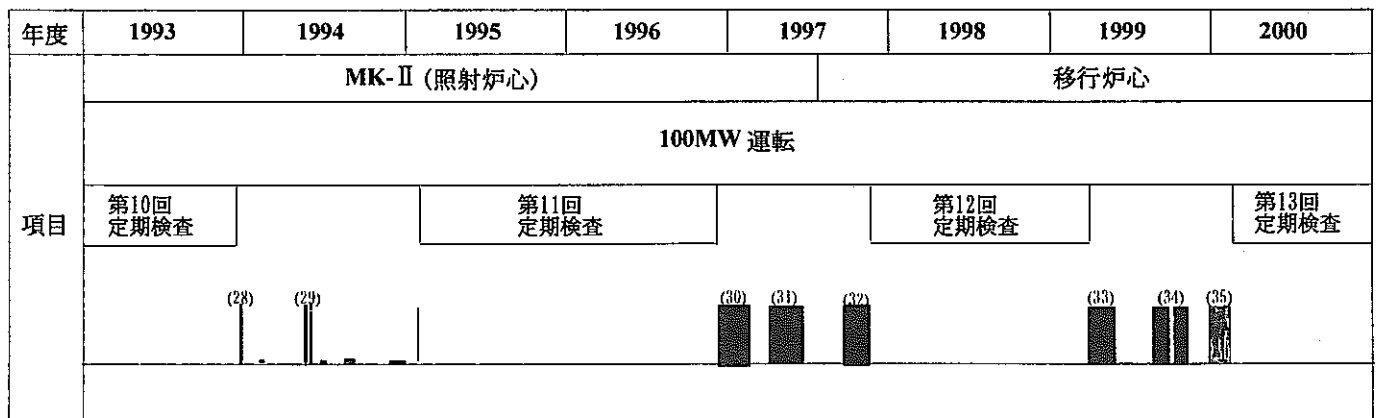
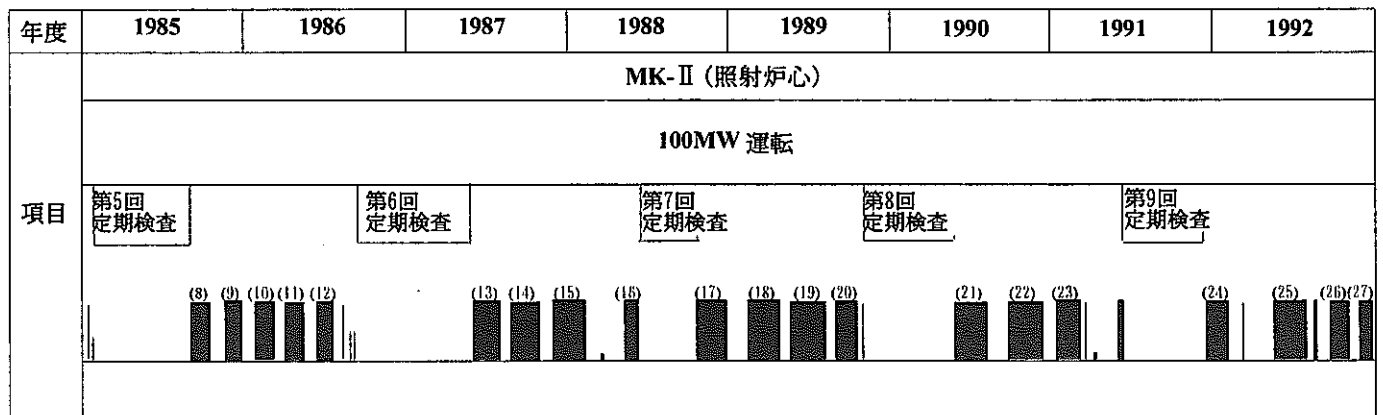
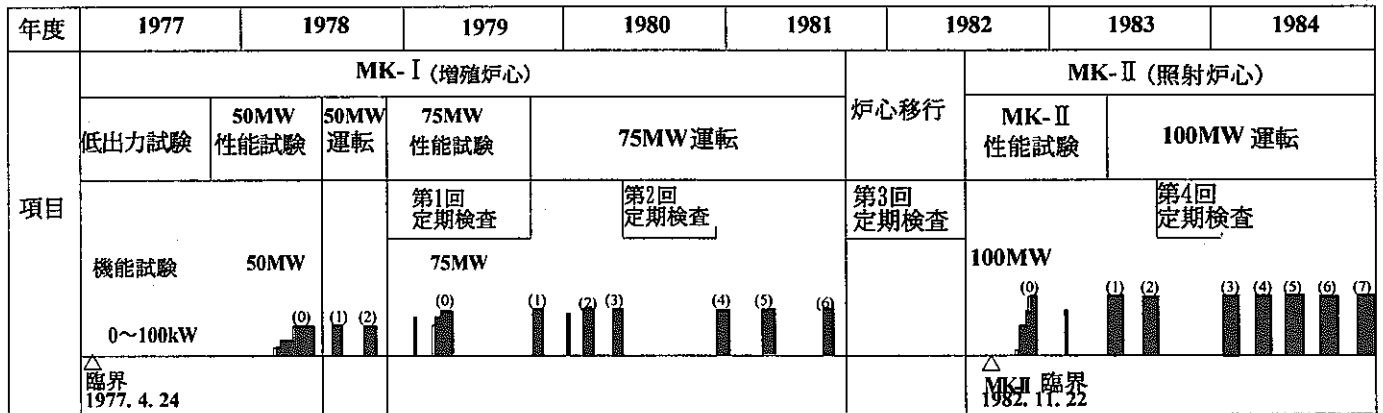


図2.1 「常陽」運転履歴

3. 「常陽」の設備概要

3.1 1次冷却系

1次主冷却系統設備は、図 3.1 に示すように、主中間熱交換機（IHX）、主循環ポンプ、主配管等から構成され、炉心で発生した最大100MWtの熱を主中間熱交換器を通して2次系へ伝達するものである。1次冷却系には、約130m³のナトリウムが充填されており、1次主循環ポンプにより1ループ当たり約1260m³/hの定格流量で循環されている。現行のMk-II炉心では、定格出力100MWt運転時の原子炉容器出口のナトリウム温度は約500℃、入口温度は約370℃であり、この温度差分の熱量が主IHXを介して2次主冷却系に伝達される。1次冷却系の主循環ポンプおよび主IHXは1ループに1基ずつ設置されている。1次主冷却系の仕様を表3.1に示す。

1次ナトリウム純化系は、図3.1に示すように、オーバフロータンクに接続されており、コールドトラップ、電磁ポンプ、プラグング計等から構成される。コールドトラップは、ナトリウム中の不純物の溶解度が温度低下とともに減少することを利用したもので、本機器内へ流入したナトリウムを冷却することにより、不純物を析出しナトリウムの純化を行うものである。プラグング計は、コールドトラップと同様にナトリウム中の不純物の溶解度が温度により異なることを利用したナトリウム純度測定計で、本機器内にあるオリフィスが閉塞する温度を測定するものである。1次冷却系ナトリウム中の酸素、水素等の不純物は、コールドトラップで析出・捕獲される。

3.2 2次冷却系

2次主冷却系統設備は、図 3.2 に示すように、主冷却器、主循環ポンプ、主配管等から構成され、1次主冷却系からの最大100MWtの熱を主冷却器を通して大気へ放出するものである。2次冷却系には、約70m³のナトリウムが充填されており、2次主循環ポンプにより1ループ当たり約1260m³/hの定格流量で循環されている。2次冷却系の主循環ポンプは1ループに1基、主冷却器は1ループに2基設置されている。2次主冷却系の仕様を表3.2に示す。

2次ナトリウム純化系は、図 3.3 に示すように、ダンプタンクに接続されており、コールドトラップ、電磁ポンプ、プラグング計等から構成される。2次冷却系ナトリウム中の酸素、水素等の不純物は、1次冷却系と同様にコールドトラップで析出・捕獲される。

3.3 1次アルゴンガス系

1次アルゴンガス系は、原子炉容器及び1次冷却系機器のナトリウム自由液面を覆う1次系カバーガス（アルゴンガス）の吸気・排気等を行う設備であり、図 3.4 に示すように、1次アルゴンガス系供給タンク、1次アルゴンガス系呼吸ガス圧力調整ヘッダー、1次アルゴンガス系加圧ヘッダー等から構成される。1次アルゴンガス系により1次系カ

バーガスの圧力が $100 \pm 30 \text{ mmAq}$ の範囲内になるように、吸気又は排気を行っている。1次アルゴンガス系統設備の仕様を表 3.3 に示す。また、1次アルゴンガス系には、1次カバーガス中の不純物濃度をオンラインで分析する1次系オンラインガスクロマトグラフが設置されている。

3.4 2次アルゴンガス系

2次アルゴンガス系は、2次冷却系機器のナトリウム自由液面を覆う2次系カバーガス（アルゴンガス）の吸気・排気等を行う設備であり、図 3.5 に示すように、2次アルゴンガス系供給加圧ヘッダー、2次アルゴンガス系呼吸ヘッダー、2次アルゴンガス系排気ヘッダー等から構成される。2次アルゴンガス系により2次系カバーガスの圧力が 0.2 から 0.3 kg/cm^2 の範囲内になるように、吸気又は排気を行っている。2次アルゴンガス系統設備の仕様を表 3.3 に示す。

表 3.1 1次主冷却系の仕様

原子炉からの伝熱量	100 MW t
全流量	2520 m ³ /h
ループ数	2
1ループ当たりの流量	1260 m ³ /h
運転温度 原子炉入口	約370℃
原子炉出口	500℃

表 3.2 2次主冷却系の仕様

冷却回路数	2	
徐熱量	100 MW t	
ナトリウム流量 (1ループ当たり)	1260 m ³ /h	
ナトリウム 運転温度	主中間熱交換器出口	約470℃ (100 MW時)
	主中間熱交換器入口	約340℃ (100 MW時)

表 3.3 1次アルゴンガス系統設備の仕様

ループ数	1
ループ形式	貫流式
カバーガス圧力	100 ± 30 mmA q

表 3.4 2次アルゴンガス系統設備の仕様

ループ数	1
ループ形式	貫流式
カバーガス圧力	0.2 ~ 0.3 kg/cm ² G

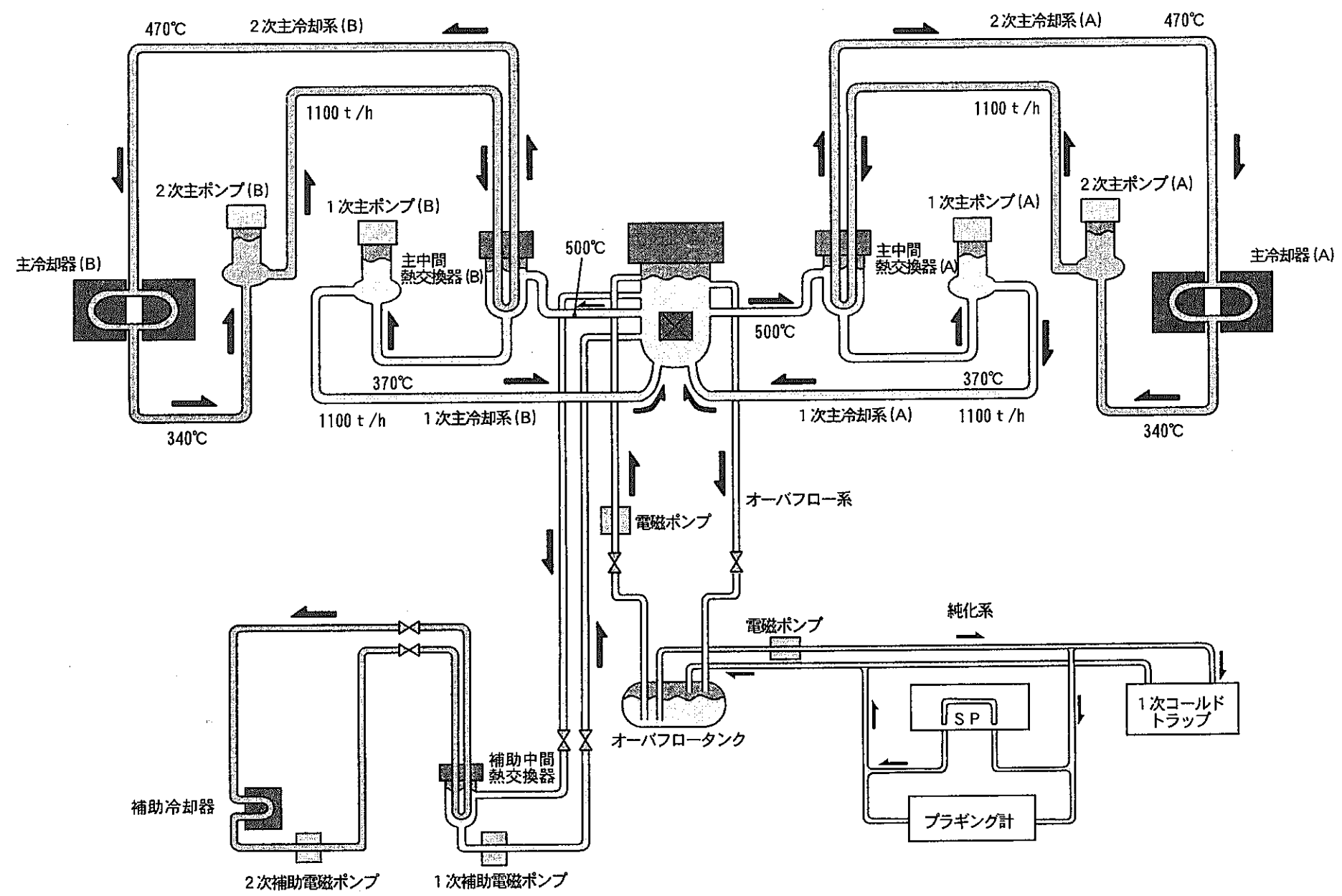


図 3.1 1次及び2次冷却系の概要

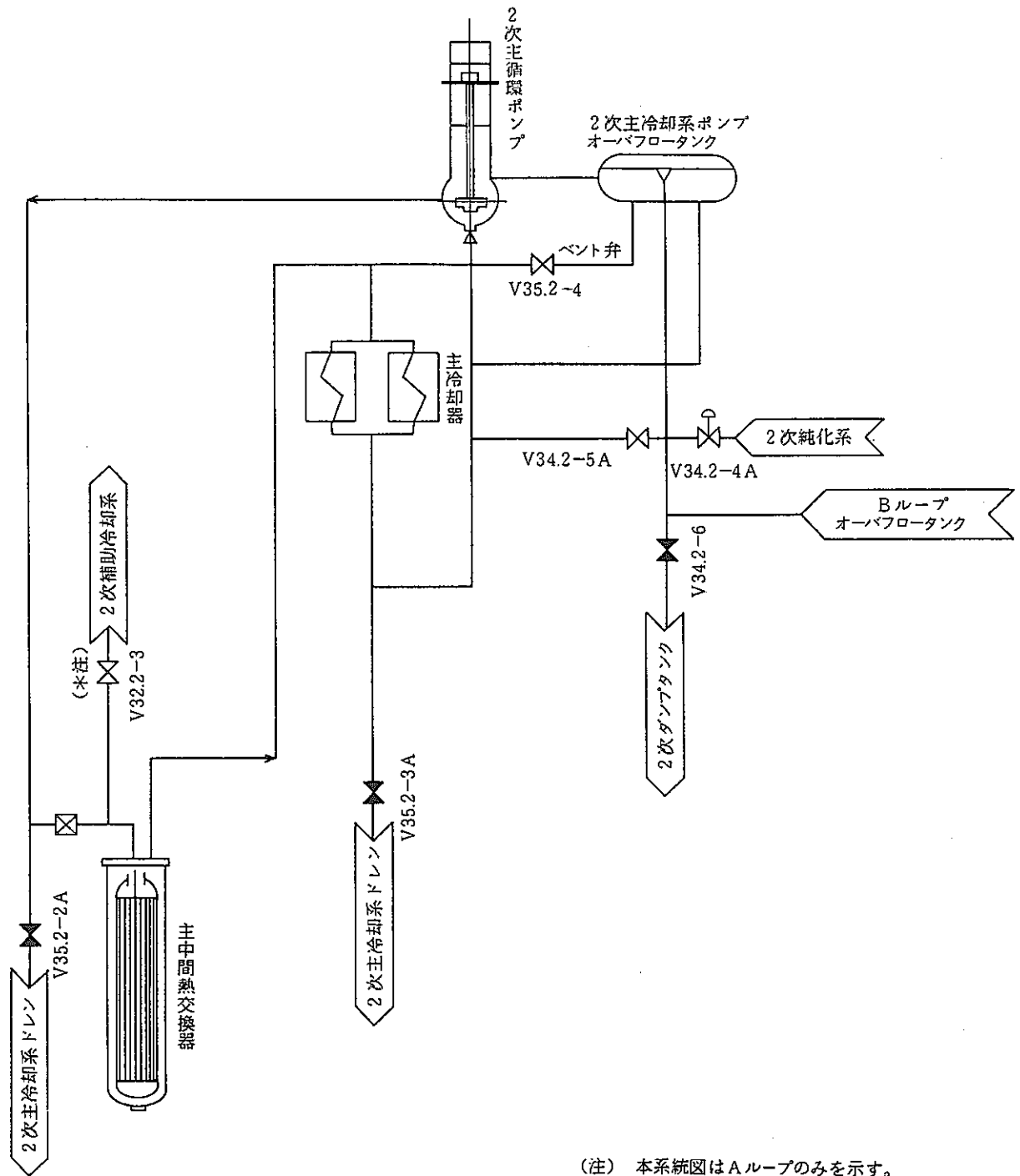


図 3.2 2次主冷却系系統図

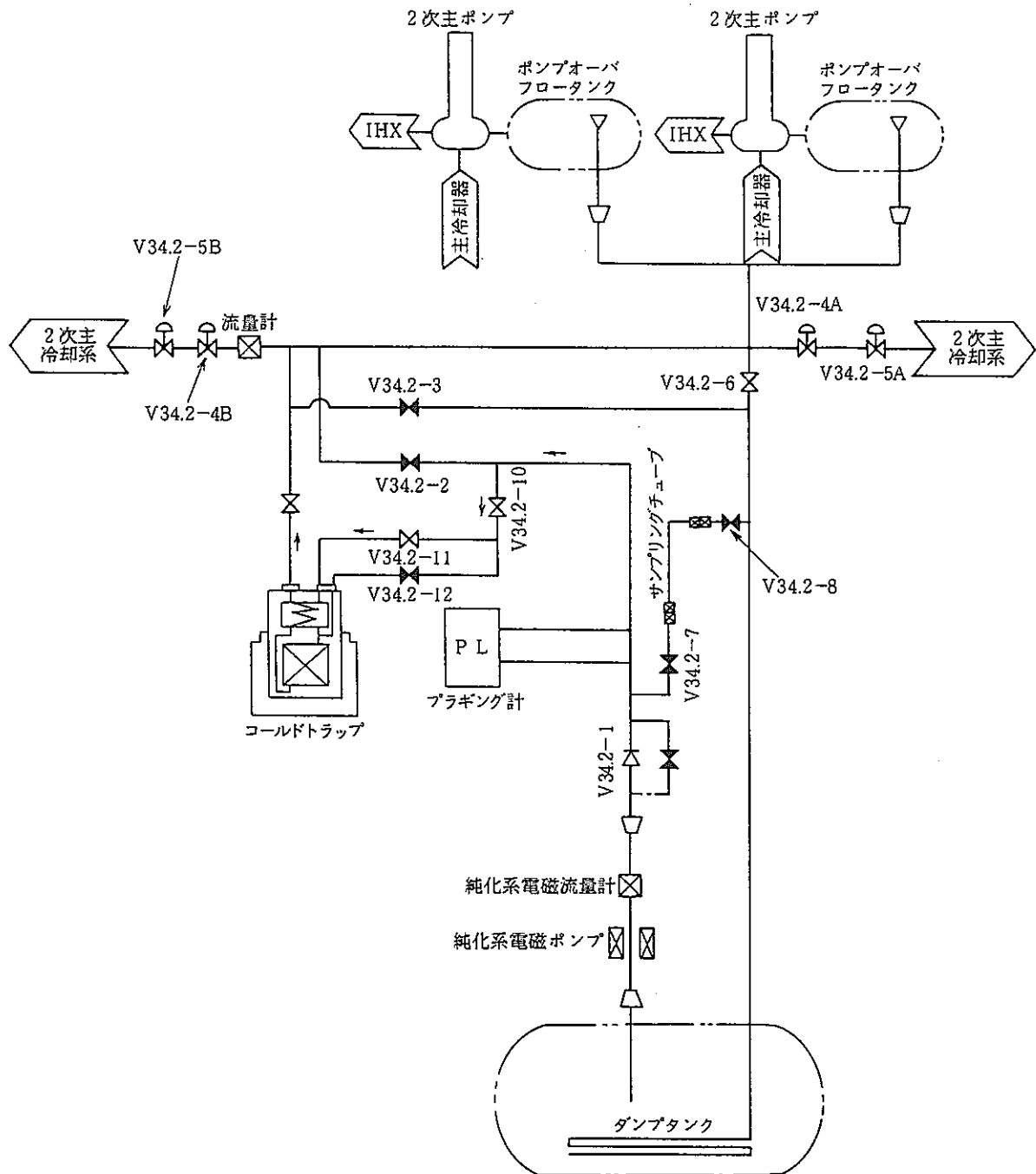


図 3.3 2次ナトリウム純化系系統図

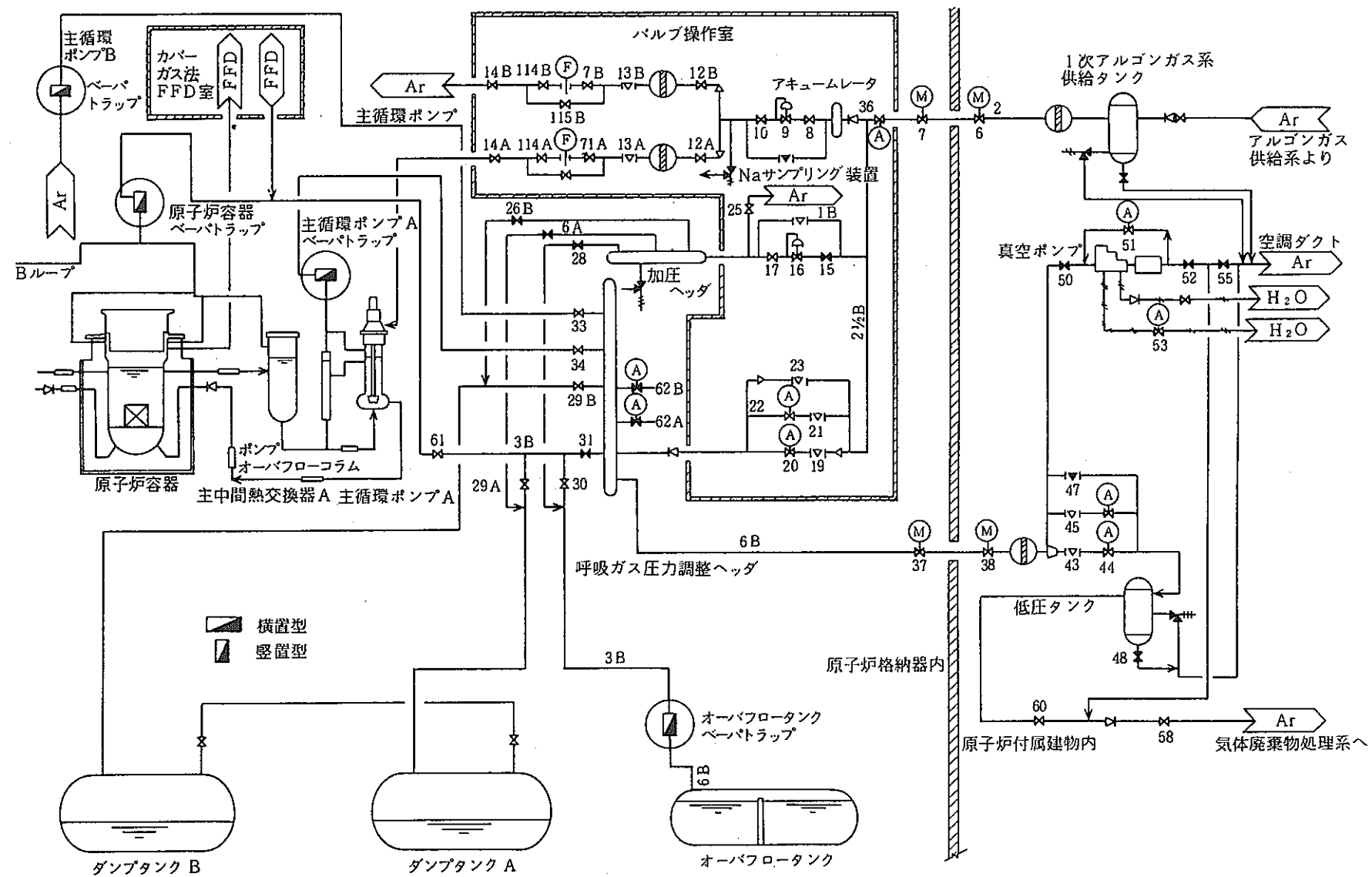


図 3.4 1次アルゴンガス系系統図

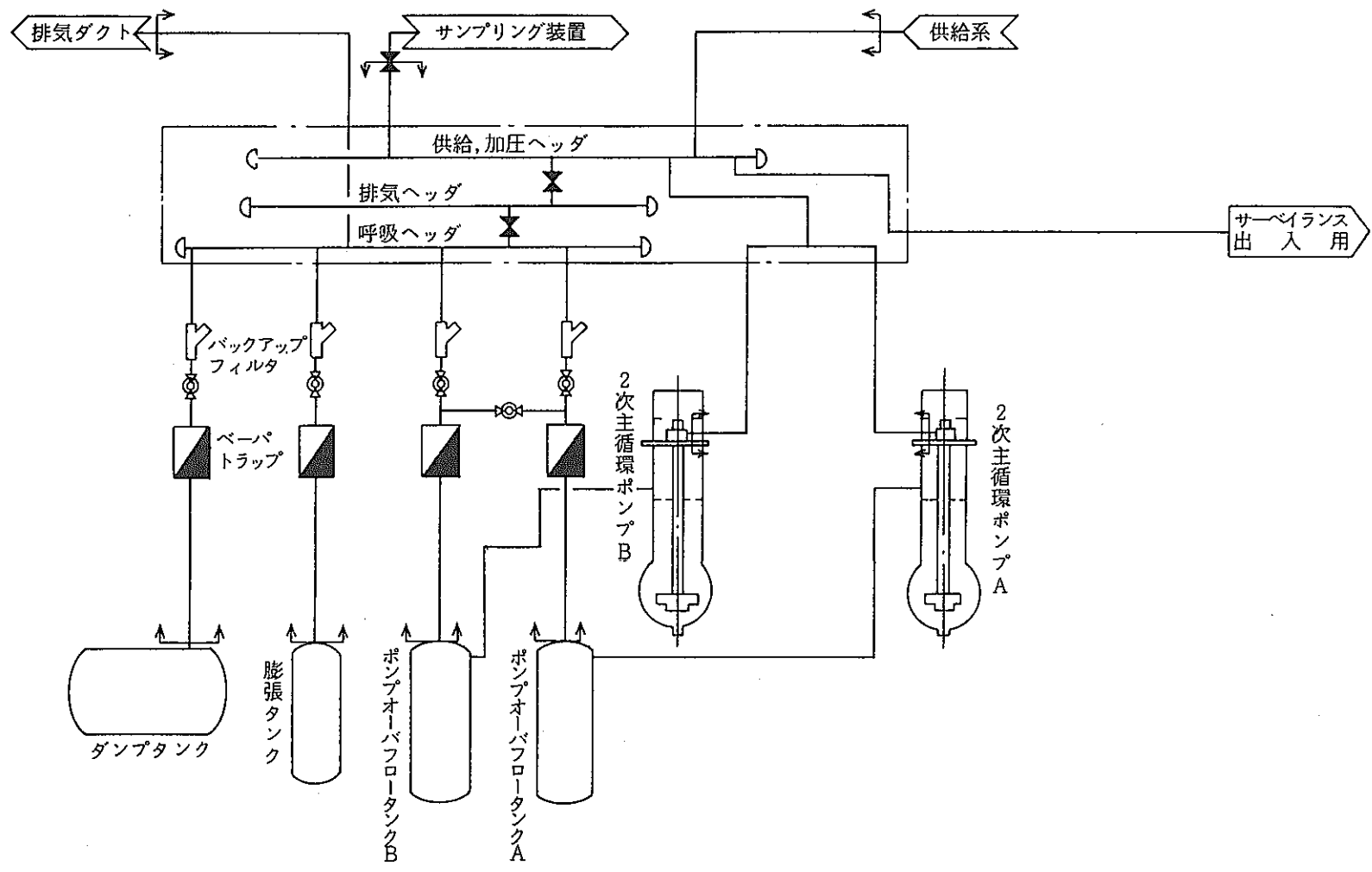


図 3.5 2次アルゴンガス系系統図

4. ナトリウム及びカバーガスの純度管理

ナトリウムを冷却材とする高速炉では、冷却系機器、配管、燃料被覆管材等の材料腐食や質量移行減少を極力抑制し、空気の混入等を早期に検出するため、ナトリウムやカバーガスに含まれる酸素、水素等の不純物をできるだけ低濃度で管理することが必要である。

4.1 1次系ナトリウム

ナトリウムの純度を維持・管理するため、これらに関する運転制限値（維持基準）あるいは自主的な管理目標値を定め、プラグギング計やサンプリング分析により監視している。このうち、酸素については保安規定でプラグギング温度の維持基準を 200℃（アイケルバーガーの式¹⁾で酸素濃度約 10 p p m に相当）に目標値を 150℃に定めている。コールドトラップもこの温度を維持するため 150℃以下で運転している。プラグギング計による連続監視に加えて、定期的なサンプリング分析でもナトリウム中の不純物濃度を測定し、純度管理を行っている。表 4.1 及び表 4.2 に1次系ナトリウムの維持基準及び1次系ナトリウム中の不純物の純度管理目標値を示す。純度管理目標値は、酸素がプラグギング温度の維持基準に相当する 10 p p m、その他の元素は、ナトリウム受け入れ時の純度規格等としている。

4.2 2次系ナトリウム

1次冷却系ナトリウムと同様にナトリウムの純度を維持・管理するため、これらに関する運転制限値（維持基準）あるいは自主的な管理目標値を定め、プラグギング計やサンプリング分析により監視している。このうち、酸素については保安規定でプラグギング温度の維持基準を 225℃（アイケルバーガーの式²⁾で酸素濃度約 20 p p m に相当）に目標値を 150℃に定めている。コールドトラップもこの温度を維持するため 150℃以下で運転している。プラグギング計による連続監視に加えて、定期的なサンプリング分析でもナトリウム中の不純物濃度を測定し、純度管理を行っている。表 4.1 及び表 4.2 に2次系ナトリウムの維持基準及び2次系ナトリウム中の不純物の純度管理目標値を示す。純度管理目標値は、酸素がプラグギング温度の維持基準に相当する 20 p p m、その他の非鉄元素は、1次系ナトリウムの管理目標値の約 2 倍、金属元素が1次系ナトリウムの管理目標値と同一としている。

4.3 1次系カバーガス

1次系カバーガスは、1次系ナトリウムの純度を維持・管理し、空気等の混入を早期に検知するため、これらに関する自主的な管理目標値を定め、サンプリング分析等により監視している。表 4.2 に1次系カバーガス中の不純物の純度管理目標値を示す。純度管理目標値は、通常分析値よりも若干高めの値としている。

4.4 2次系カバーガス

2次系カバーガスは、2次系ナトリウムの純度を維持・管理し、空気の混入を早期に検知するため、これらに関する自主的な管理目標値を定め、サンプリング分析等により監視している。表 4.2 に2次系カバーガス中の不純物の純度管理目標値を示す。純度管理目標値は、1次系カバーガスの約2倍程度の値としている。

表 4.1 ナトリウムの維持基準

	1次系	2次系
ブラギング温度	200℃ (150℃)	225℃ (150℃)

() 内は目標値

表 4.2 ナトリウム及びカバーガスの純度管理目標値

	成分	管理目標値	
		1次系	2次系
ナトリウム	O	10 Wt.ppm 以下	20 Wt.ppm 以下
	C	30 Wt.ppm 以下	50 Wt.ppm 以下
	H	5 Wt.ppm 以下	10 Wt.ppm 以下
	N	50 Wt.ppm 以下	なし
	Cl	30 Wt.ppm 以下	50 Wt.ppm 以下
	Fe	10 Wt.ppm 以下	10 Wt.ppm 以下
	Ni	5 Wt.ppm 以下	5 Wt.ppm 以下
	Cr	5 Wt.ppm 以下	5 Wt.ppm 以下
アルゴンガス	O ₂	30 Vol.ppm 以下	50 Vol.ppm 以下
	H ₂	20 Vol.ppm 以下	30 Vol.ppm 以下
	N ₂	2500 Vol.ppm 以下	5000 Vol.ppm 以下
	CO	10 Vol.ppm 以下	20 Vol.ppm 以下
	CO ₂	20 Vol.ppm 以下	30 Vol.ppm 以下
	CH ₄	10 Vol.ppm 以下	20 Vol.ppm 以下
	He	なし	なし

5. サンプルング設備と方法

高速実験炉「常陽」では、定期的に1次系ナトリウム、2次系ナトリウム、1次系カバーガス及び2次系カバーガスをサンプルングし、冷却系の純度管理およびプラントの運転管理を目的として、それぞれの不純物の濃度分析を実施している。

サンプルング設備は図5.1に示すように(1)1次系ナトリウムサンプルング設備、(2)2次系ナトリウムサンプルング設備、(3)1次系カバーガスサンプルング設備、(4)2次系カバーガスサンプルング設備(オーバフロータンクおよびダンプタンク)に大別できる。

以下に、サンプルングの設備と方法の概要を示す

5.1 1次系ナトリウムのサンプルング

1次系ナトリウムサンプルング設備は、1次ナトリウム純化系のコールドトラップのバイパス回路上に設置されている。

サンプルング設備の系統図およびサンプルング装置の概略図を図5.2、図5.3にそれぞれ示す。

ナトリウムサンプラーは図5.4に示すように全長1630mm、外径φ10.5mmのステンレス管を3回巻いたサンプルング管で、装置の小型化および放射線遮蔽を考慮してコイル型になっている。サンプルングコイルは、外径φ250mm、高さ250mmのたて形円筒ポット内に、スウェッジロック継手により接続され、継手部より万一のナトリウム漏洩の監視用の漏洩検出器が取り付けられている。サンプルングコイル用ポットのまわりはドーム形遮蔽体で放射線を遮蔽している。

サンプルング方法は、サンプルングポット内とナトリウム出入口配管を予熱ヒータにより所定の時間予熱後、1次純化系流量を $2\text{m}^3/\text{h}$ 増加させコールドトラップの差圧(コールドトラップ入口弁を絞る。)によってサンプルングコイルにナトリウムを流す。約48時間経過後、ナトリウムフローを止め、加圧ヘッダからアルゴンガスをサンプルングコイルに吹き付けて、ナトリウムを冷却固化する。ナトリウムサンプラーの取り出しは、1次系ナトリウムが放射化されているため放射能(主に ^{24}Na)の減衰の後、グローブボックスを取付け、アルゴンガス雰囲気内で行われる。

5.2 2次系ナトリウムのサンプルング

2次系ナトリウムサンプルング設備は、2次系ナトリウム純化系電磁ポンプ出口側および2次系ダンプタンクとオーバフロータンクの戻り配管を結ぶ経路に設置されている。

サンプルング設備の系統図およびサンプルング装置の概略図を図5.5、図5.6にそれぞれ示す。ナトリウムサンプラーを収納するサンプルングボックスは450W×700L×750Hmm

のステンレス鋼板でできている。ボックスの前面は扉開閉用ハンドルで180°開閉可能な扉となっており周囲に保温材が取り付けられている。サンプラーの下には漏洩ナトリウム受皿があり、受皿の底部にはサンプリングチューブに沿って漏洩検出器が取り付けられ、万一のナトリウム漏洩に備えている。さらにボックスの底部にはシースヒータがあってサンプリングチューブを予熱できるようになっている。サンプリングチューブは、図5.7に示すように外径約16mmでナトリウムの充填を確実にするためU字型をしている。ナトリウムの出入口配管との接続は、スウェッジロックにて行われている。

サンプリング方法は、サンプリングボックスとナトリウム出入口配管を予熱ヒータにより所定の時間予熱後、サンプリング出入口弁を全開とし純化系流量を2m³/h増加させサンプリングラインをナトリウムで約24時間フラッシングした後、サンプリング出口弁を閉じナトリウムフローを止める。空気置換後ボックスの前面扉を開け軸流ブロワにより空気を吹き付けて、ナトリウムを冷却固化する。室温まで冷却した後、スウェッジロック部からサンプリングチューブを外し、両端にスウェッジロックプラグをして密封する。

5.3 1次系カバーガスのサンプリング

1次アルゴンガス系サンプリング設備は、FFDコンプレッサ吐出側から分岐し、コンプレッサ吸込側へ戻る配管途中に設置されている。

1次アルゴンガス系サンプリング装置の概略図を図5.8に示す。

サンプリング装置は、原子炉建家操作室（オペフロ）床面に埋め込まれており、サンプリングポットはカバーガスの放射化および燃料被覆管破損時におけるカバーガスの放射能汚染等を考慮して、鉛遮蔽体下部につり下げられている。サンプリングポットとカバーガス配管との接続はクイックコネクタ継手構造で床上部から解除ピンにより容易にクイックコネクタの接続が外せるようになっている。サンプリングポットは、サンプルガスが洩れないようベローズバルブが使用され、バルブ用開閉金具で接合され弁遠隔操作シャフトにより開閉される。遮蔽プラグ底部には、シール用Oリングが取り付けられ、万一クイックコネクタ等よりカバーガスが洩れた場合でも、床面上に漏洩しない構造になっている。さらに、装置の床面には放射線モニター用配管と置換用アルゴン配管が接続され、漏洩の監視および雰囲気のパージに使用されている。

サンプリング方法は、ナトリウム分析棟であらかじめ熱処理（100℃で4時間空焼し、ポット内をアルゴンガスでパージを実施）した、図5.9に示すサンプリングポットを装着し、遮蔽プラグをセットした後、サンプルラインの出入口弁およびサンプリングポットの出入口弁を開とし、FFDコンプレッサの吐出圧によってポット内に炉容器のカバーガスを流す。約2時間フラッシングした後、サンプルラインの出口弁を閉としFFDカバーガス流量の増加確認（ポット内にカバーガスを充填）後、サンプルライン入口弁、サンプリングポット出入口弁を全閉としサンプリングする。サンプリングポットの取り出し

は⁴¹Arの放射能を減衰させた後、床上部から解除ピンを押しクイックコネクタの接続を外し、サンプリングポット周囲の雰囲気アルゴンガスでパージ後、遮蔽体と共にサンプリングポットを引き上げる。

5.4 2次系カバーガスのサンプリング

2次アルゴンガス系サンプリング設備は、図 5.1 に示すように2次系のオーバフロータンク及びダンプタンクのベーパートラップ後段に設置されたノズルから直接サンプリングできるよう、サンプリング装置が設置されている。サンプリング装置の概略図を図 5.10 に示す。

サンプラーは全長 404mm、外径φ50.8mm ステンレス製円筒型容器で両端にはニードルバルブが各1個取り付けられている。サンプリング容器とカバーガス配管との接続はクイックコネクタ継手構造になっており、サンプリング容器を容易に取り出すことが可能である。

サンプリング方法は、1次系同様ナトリウム分析棟であらかじめ熱処理されたサンプリング容器を装着し、容器の出入口ニードルバルブを開け、流量が1リットル/minになるよう装置の弁で調節し、約2時間フラッシング後、容器の出口ニードルバルブを閉め、それぞれのタンク圧力で充填する。フラッシング時のガスは主冷却機建家空調設備の排気ダクトへ排気される。

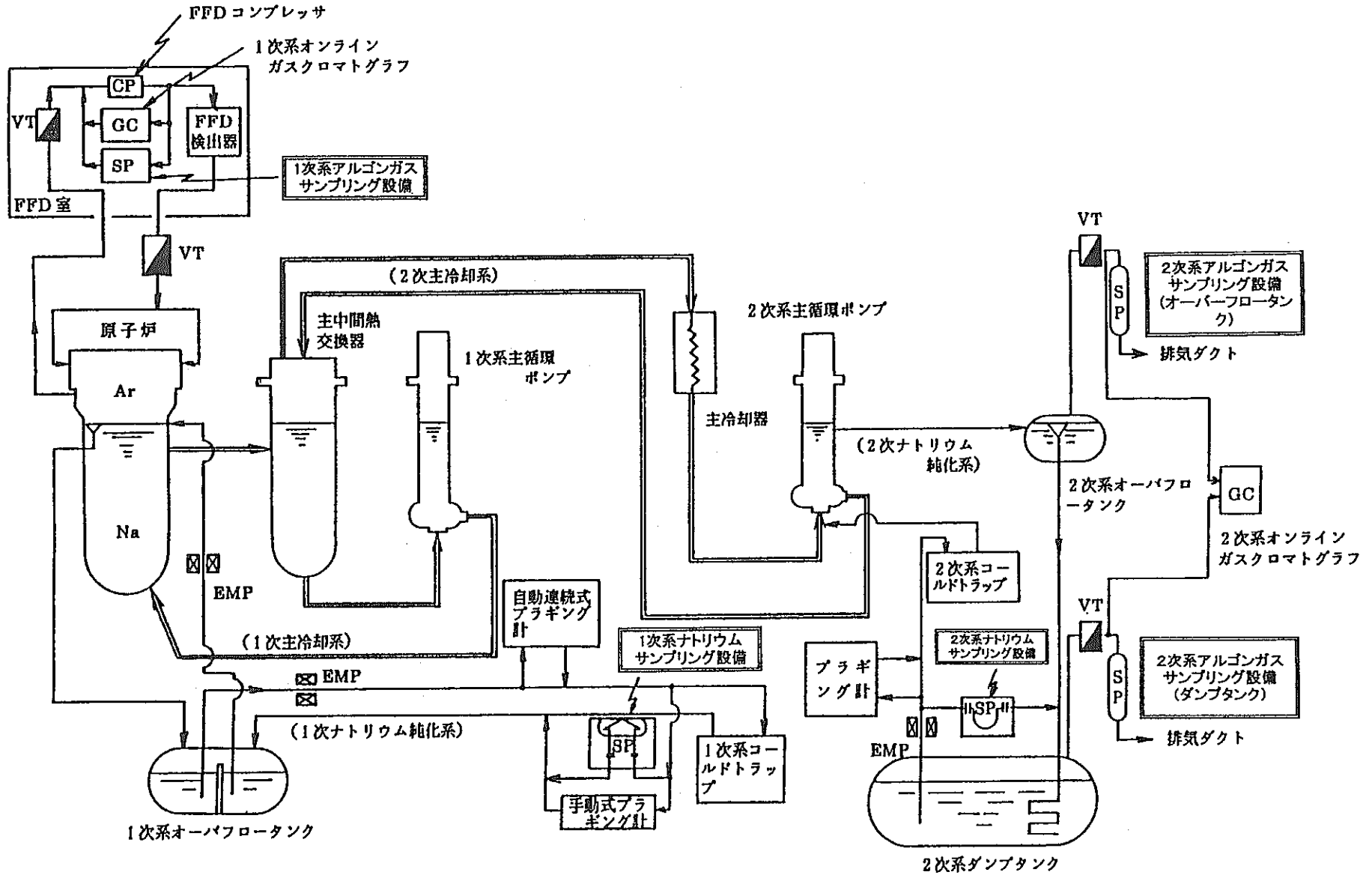


図 5.1 サンプルング関連設備概略フローシート

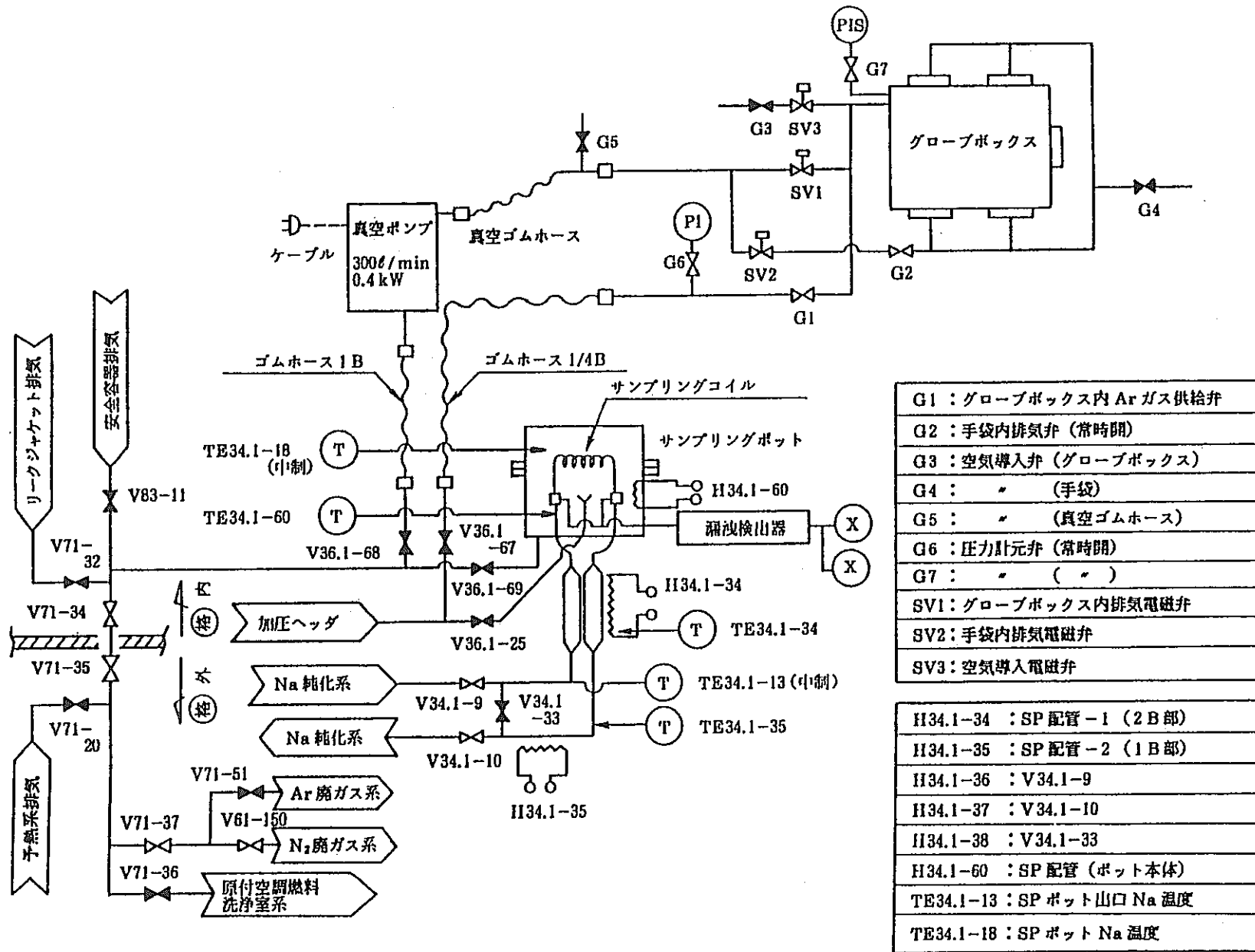


図 5.2 1次系ナトリウムサンプリング設備系統図

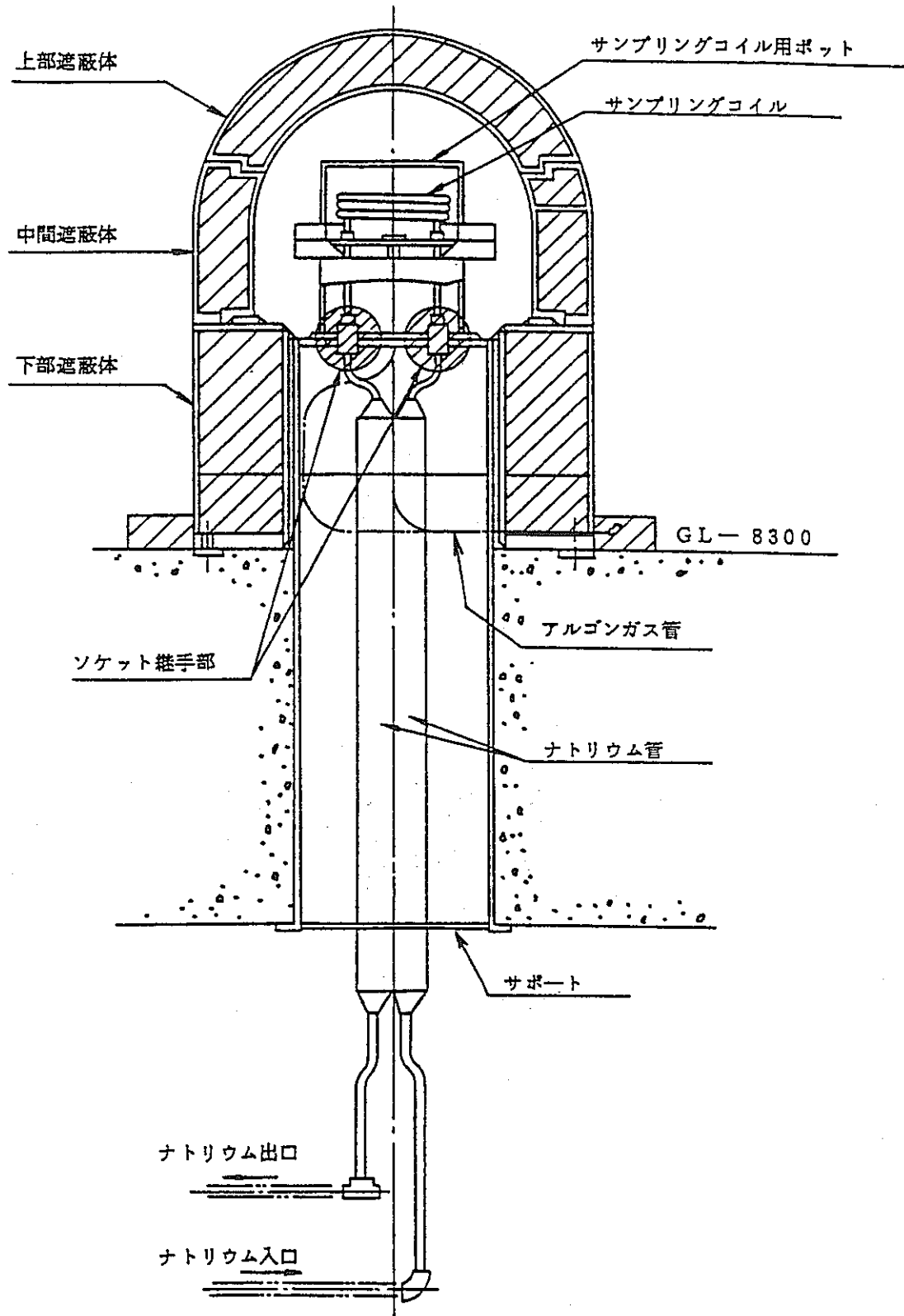


図 5.3 1次系ナトリウムサンプリング装置外略図

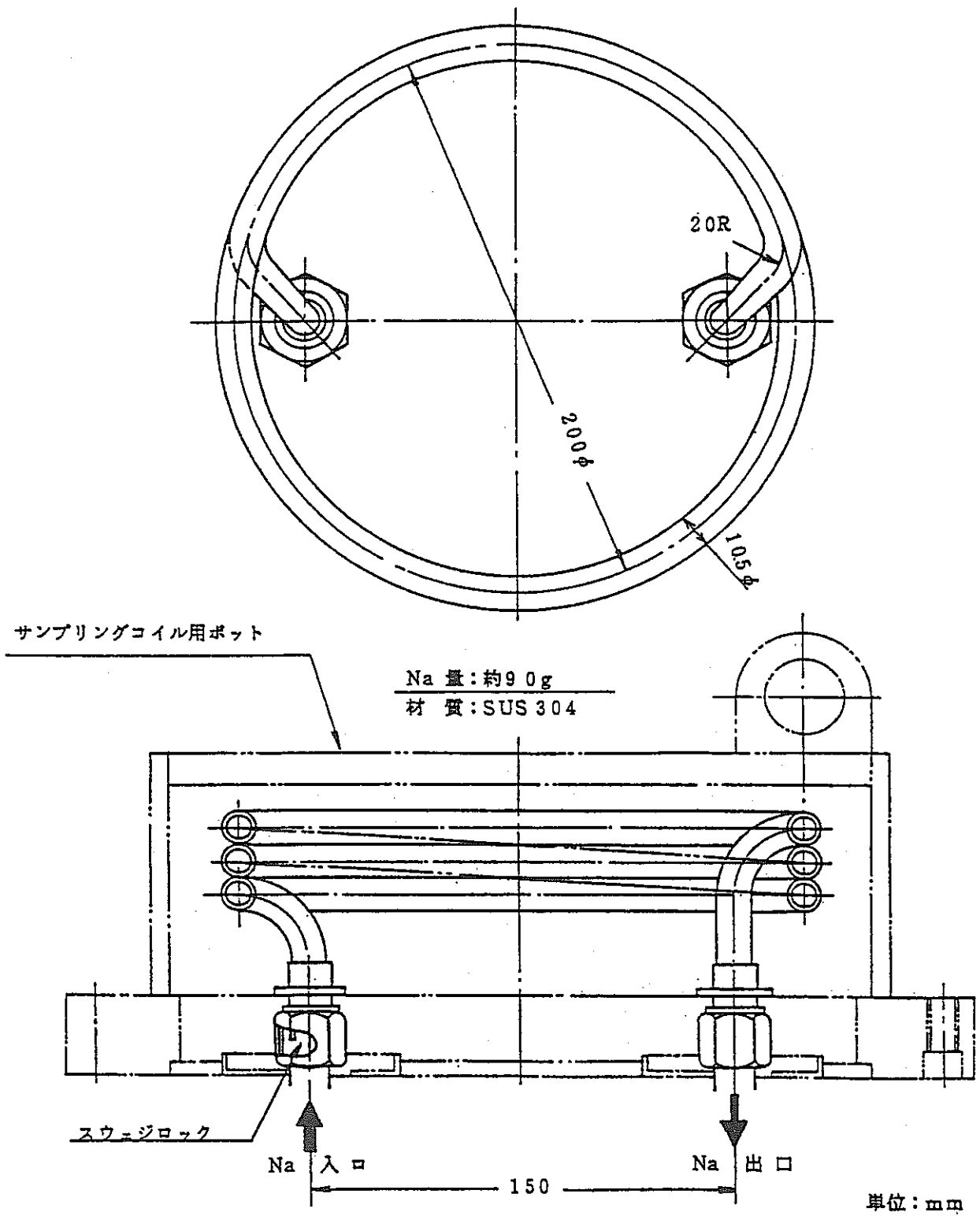


図 5.4 1次系ナトリウムサンプリングコイル

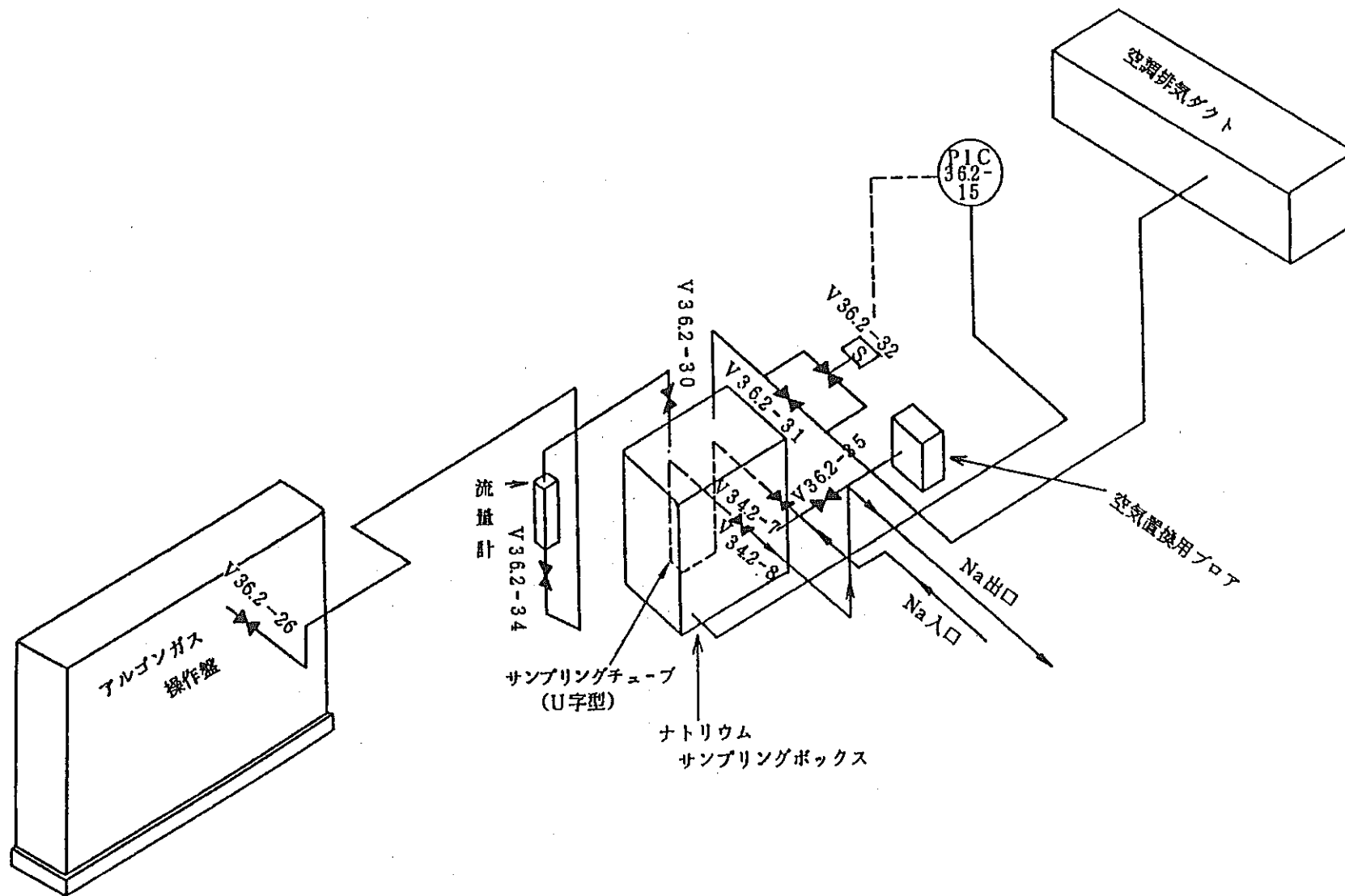


図 5.5 2次系ナトリウムサンプリング設備系統図

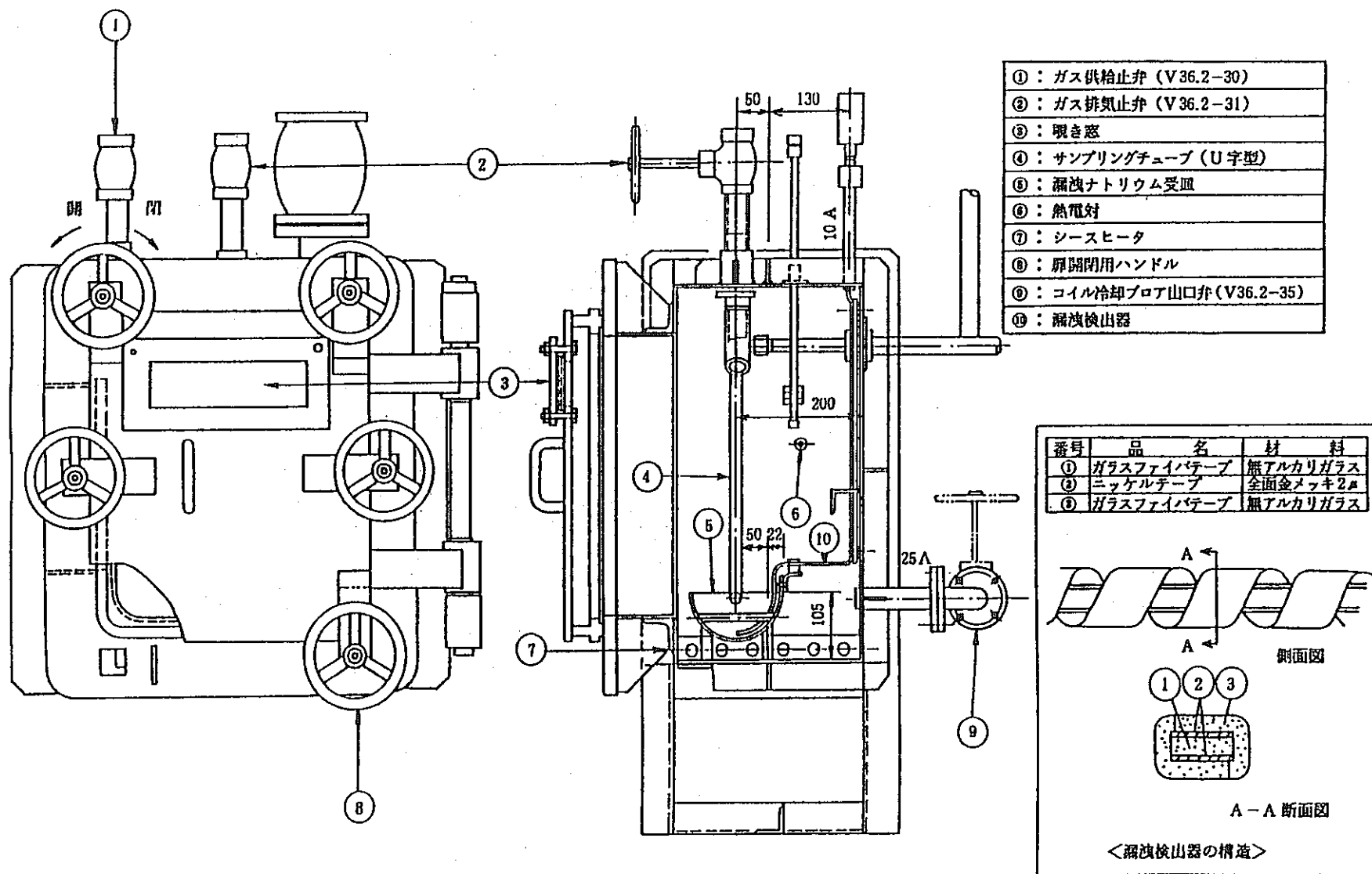


図 5.6 2次系ナトリウムサンプリング装置外略図

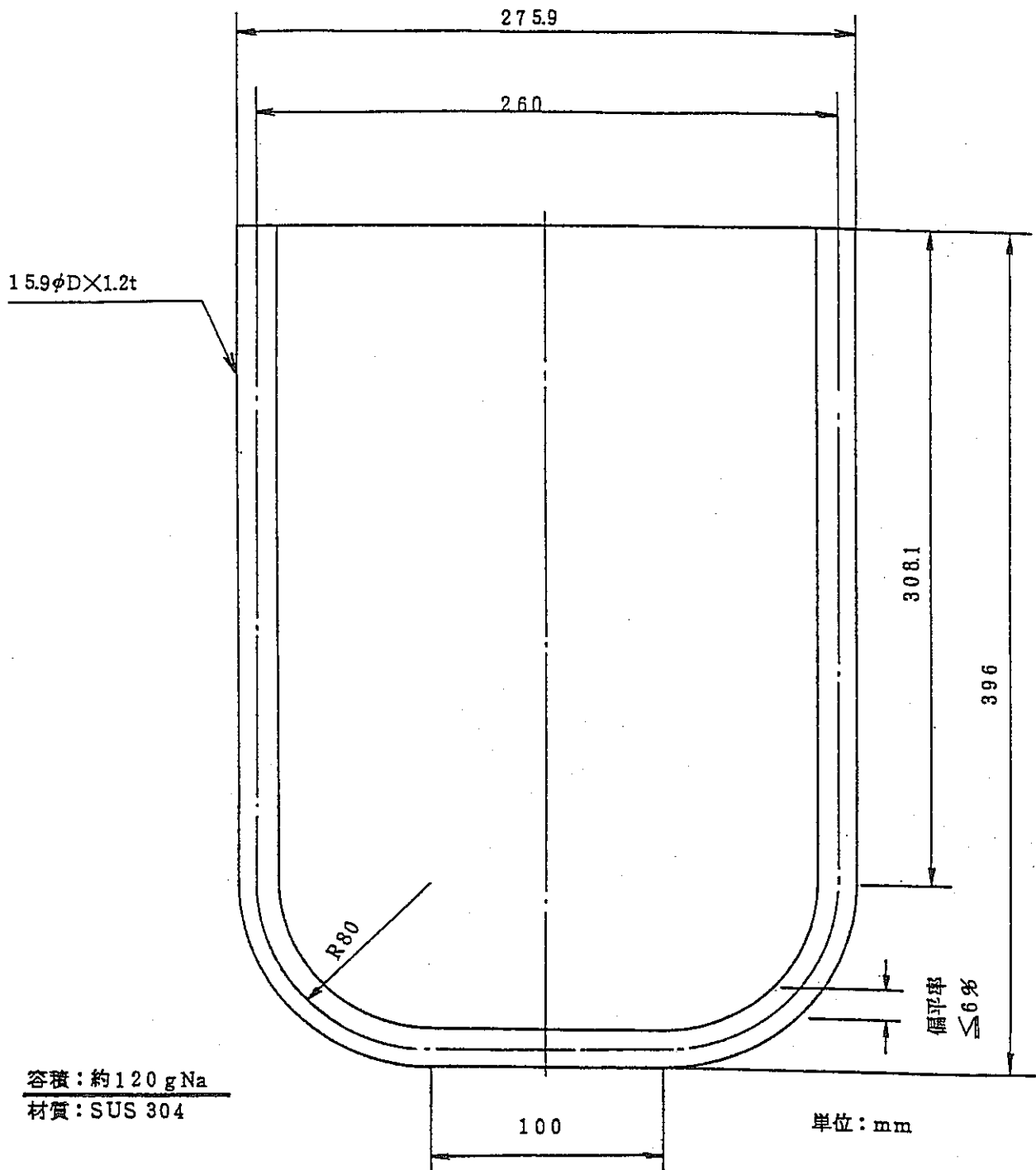


図 5.7 2次系ナトリウムサンプリングチューブ

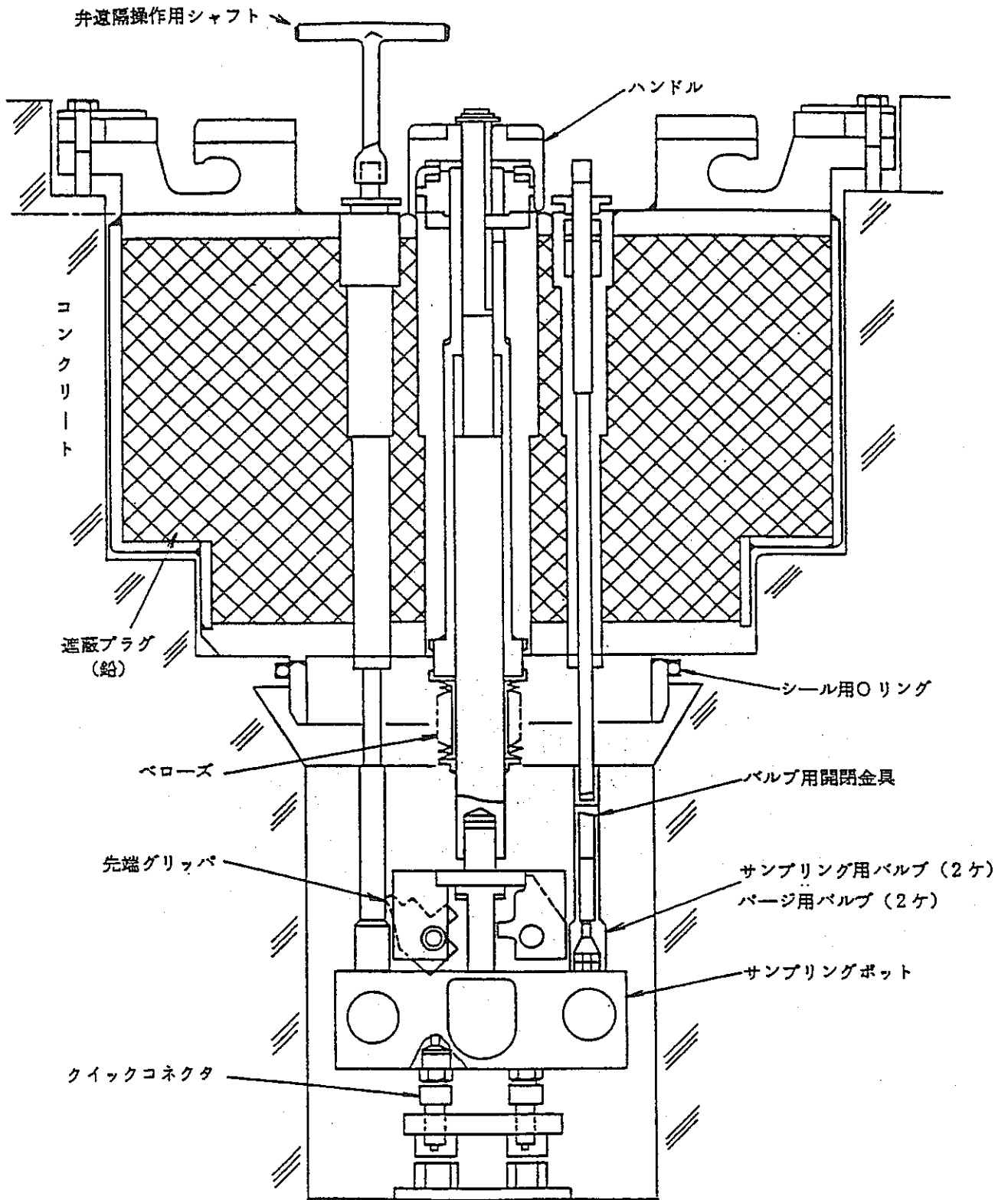


図 5.8 1次アルゴンガス系サンプリング装置外略図

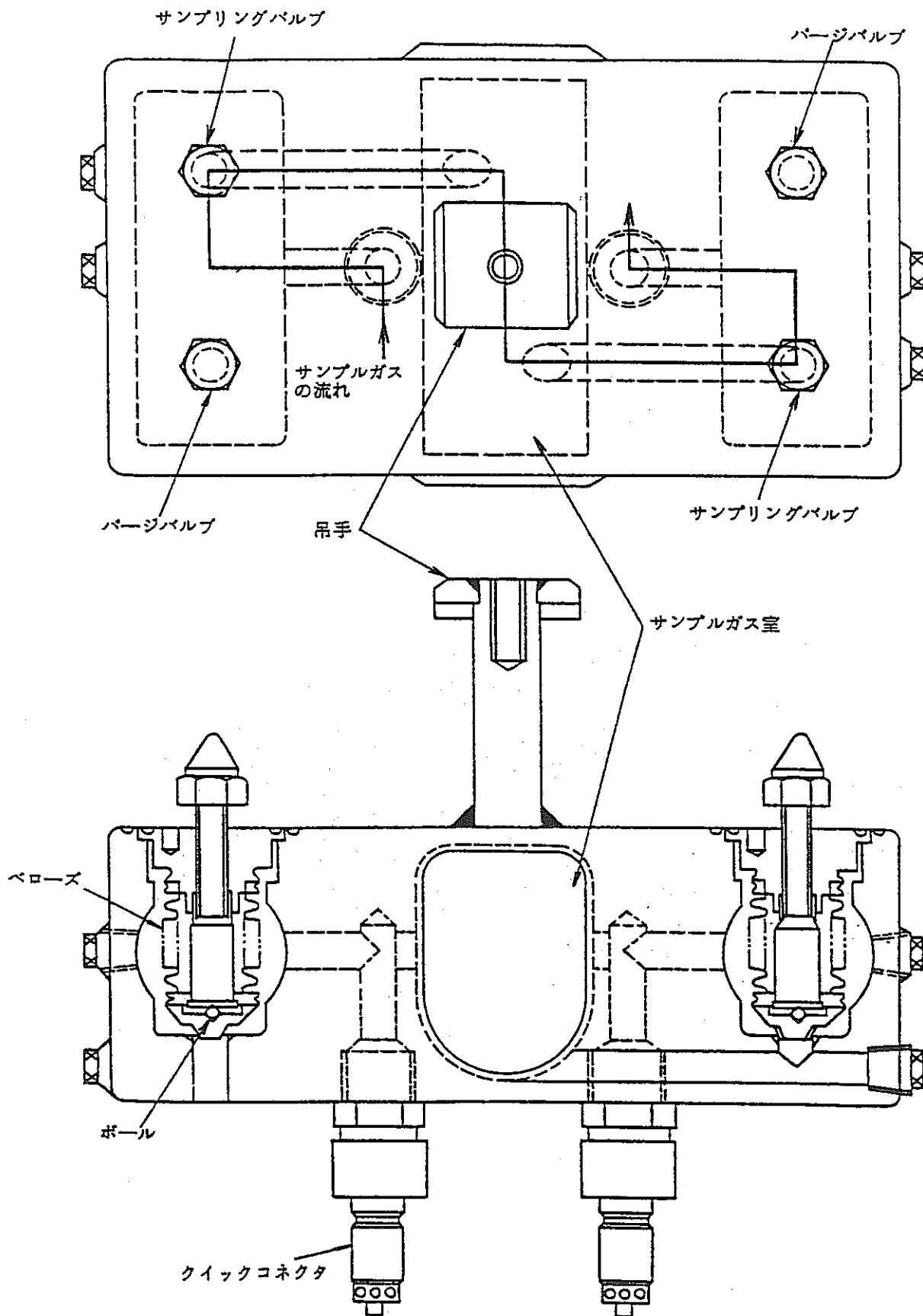


図 5.9 1次アルゴンガス系サンプリングポット

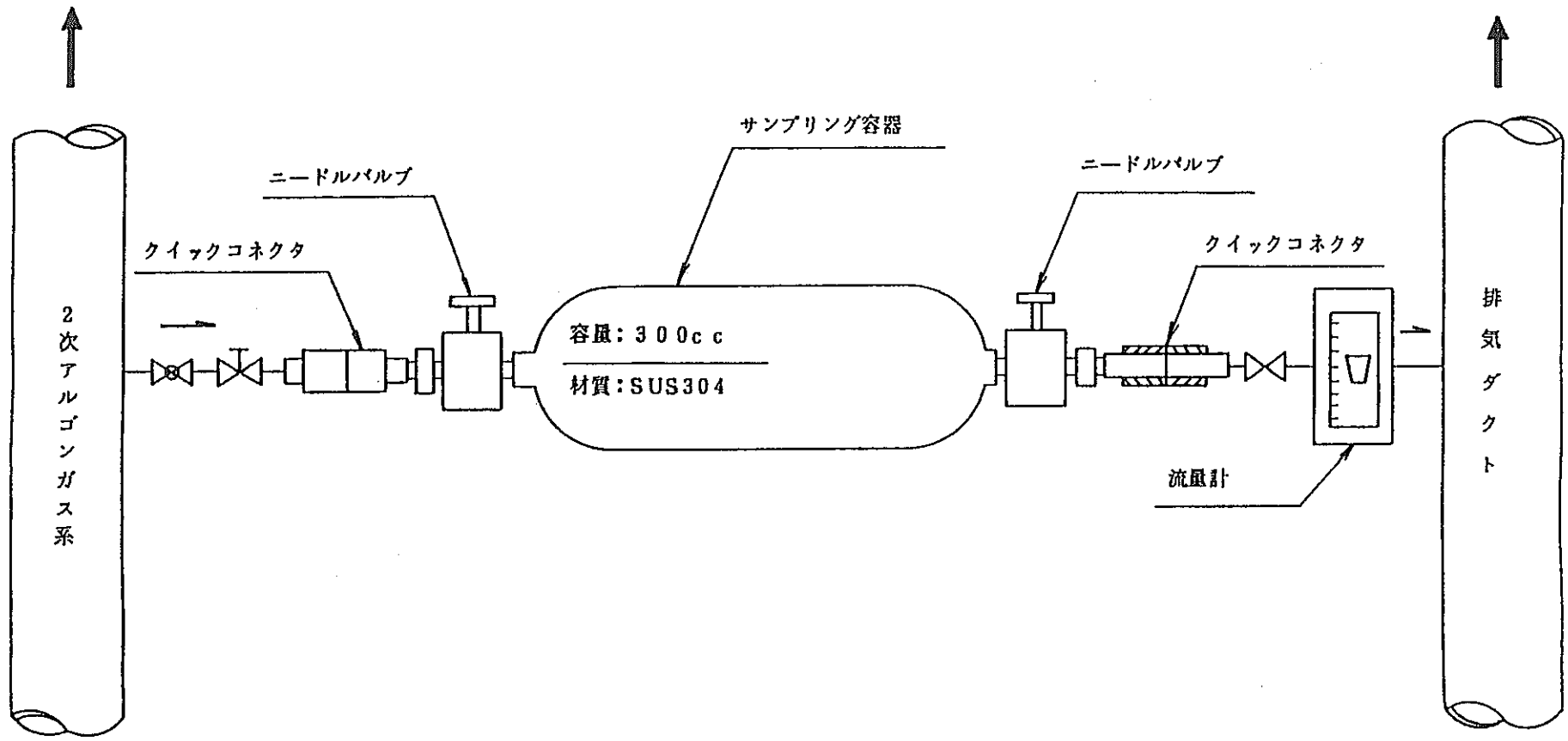


図 5. 10 2次アルゴンガス系サンプリング装置外略図

6. 分析方法

高速実験炉「常陽」においてサンプリングしたナトリウムおよびカバーガスの分析は、ナトリウム分析棟で実施される。

ナトリウムに関しては、各成分毎に指定された位置から分析試料を分取し、図 6.1 に示す操作を経て各成分の濃度を測定している。なお、1次系ナトリウムと2次系ナトリウムの濃度測定方法は同一である。

一方カバーガスに関しては、図 6.2 に示す操作を経て各成分の濃度を測定している。なお、1次系カバーガスと2次系カバーガスの濃度測定方法は同一である。

6.1 一般成分

6.1.1 ナトリウム

(1) O (酸素) 分析

分析法：真空蒸留分離中和滴定法

概要：サンプルからナトリウムを溶出法（溶出温度約120℃）により分取した後、真空蒸留法により蒸発除去し、酸化ナトリウムを蒸留残渣として分離する。蒸留残渣を純水で溶解し、生成する水酸化ナトリウムを塩酸標準溶液で中和滴定し、間接的に酸素を定量する。

(2) C (炭素) 分析

分析法：湿式酸化ガスクロマトグラフ法

概要：サンプルからナトリウムを押出法により分取した後、低圧水蒸気により分解し、生成塩を硫酸で中和する。これを蒸発乾固した後、湿式酸化剤を加えて加熱し炭素を酸化する。生成する二酸化炭素をコールドトラップに捕集した後、キャリアガス(He)でガスクロマトグラフに導入して定量する。

(3) N (窒素) 分析

分析法：ケルダール蒸留分離イオンクロマトグラフ法

概要：サンプルからナトリウムを押出法により分取した後、30%の水酸化ナトリウム溶液で滴下分解する。これを純水で希釈し、アルゴンガスを通しながら加熱して窒素化物の加水分解により生成したアンモニアを希塩酸溶液に捕集する。捕集溶液をイオンクロマトグラフへ導入し窒素を定量する。

(4) H (水素) 分析

分析法：アマルガム還流法

概要：清浄な反応容器内にナトリウムアマルガムを入れ、内部に高純度アルゴンガスを満すサンプルからナトリウムを押出法により分取した後、反応容器内のアマルガムに溶解する。

これを380℃に加熱し、水素化合物の分解により放出された水素ガスをガ

スクロマトグラフへ導入し水素を定量する。

(5) C1 (塩素) 分析

分析法：イオン交換分離イオンクロマトグラフ法

概要：サンプルからナトリウムを押出法により分取した後、低圧水蒸気により分解する。分解溶液は陽イオン交換樹脂を通してナトリウムと分離する。この分離液をイオンクロマトグラフへ導入し塩素を定量する。

(6) 微量金属成分 (Fe, Cr, Ni, Mo, Mn, Co,) 分析

分析法：真空蒸留分離フレイムレス原子吸光法 (又は真空蒸留分離 ICP-MS 法)

概要：酸素分析 (上記 1.) 後の溶液に混酸 (塩酸+硝酸) を加えて金属成分を溶解し、原子吸光法または ICP-MS 法により各金属成分を定量する。

6.1.2 カバーガス

分析対象は、N₂, O₂, CO, CO₂, H₂, CH₄, He である。

分析法：ガスクロマトグラフ法

概要：サンプルガスをガス導入装置でガスクロマトグラフに導入し、各成分のクロマトグラムを記録測定して定量する。

6.2 放射性物質

6.2.1 ナトリウム

(1) 核種分析

分析対象は²²Na, ^{110m}Ag である。

分析法：γ線計測法

概要：サンプルからナトリウムを溶出法により分取した後、低圧水蒸気により分解し、生成塩を硝酸で中和して酸性溶液とする。

この酸性液溶をゲルマニウム半導体検出器でγ線計測することにより定量する。

(2) ³H分析

分析法：β線計測法

概要：サンプルからナトリウムを押出法により分取した後、30%の水酸化ナトリウム溶液で滴下分解し、発生する水素ガスを加熱した酸化銅を通してトリチウム水とし冷却捕集する。また、試料分解液は塩酸で中和した後、加熱蒸留することによりナトリウム塩とトリチウム水を分離する。二つの捕集水に液体シンチレータを加え、液体シンチレーションカウンタでβ線計測してトリチウムを定量する。

6.2.2 カバーガス

(1) ^3H 分析

分析法： β 線計測法

概要：サンプルからガスを分取して、キャリアガス（He）とともに加熱した酸化銅を通し、トリチウム水として冷却捕集する。この捕集液に液体シンチレータを加え、液体シンチレーションカウンタで β 線計測してトリチウムを定量する。

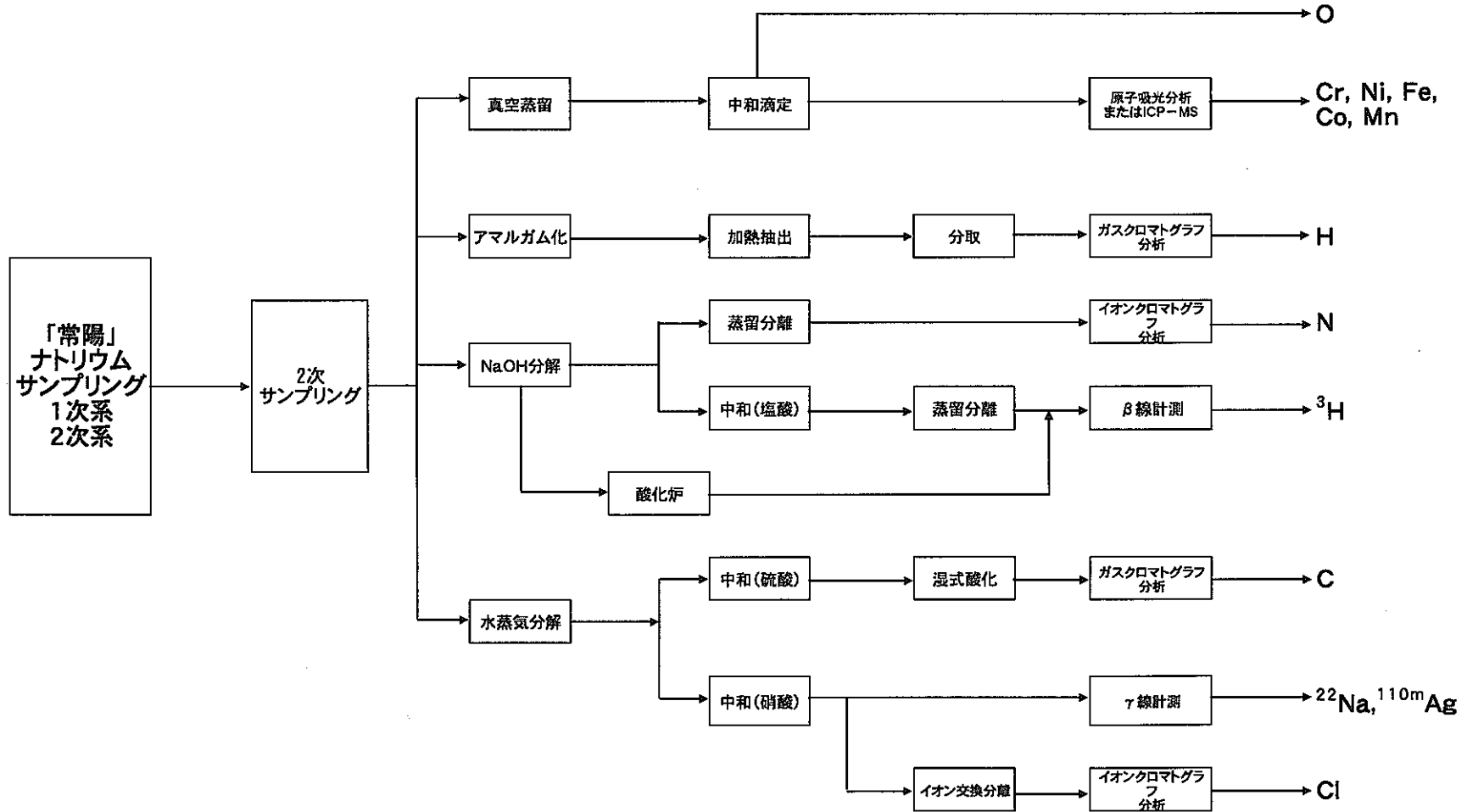


図6.1 ナトリウム中の不純物分析操作手順

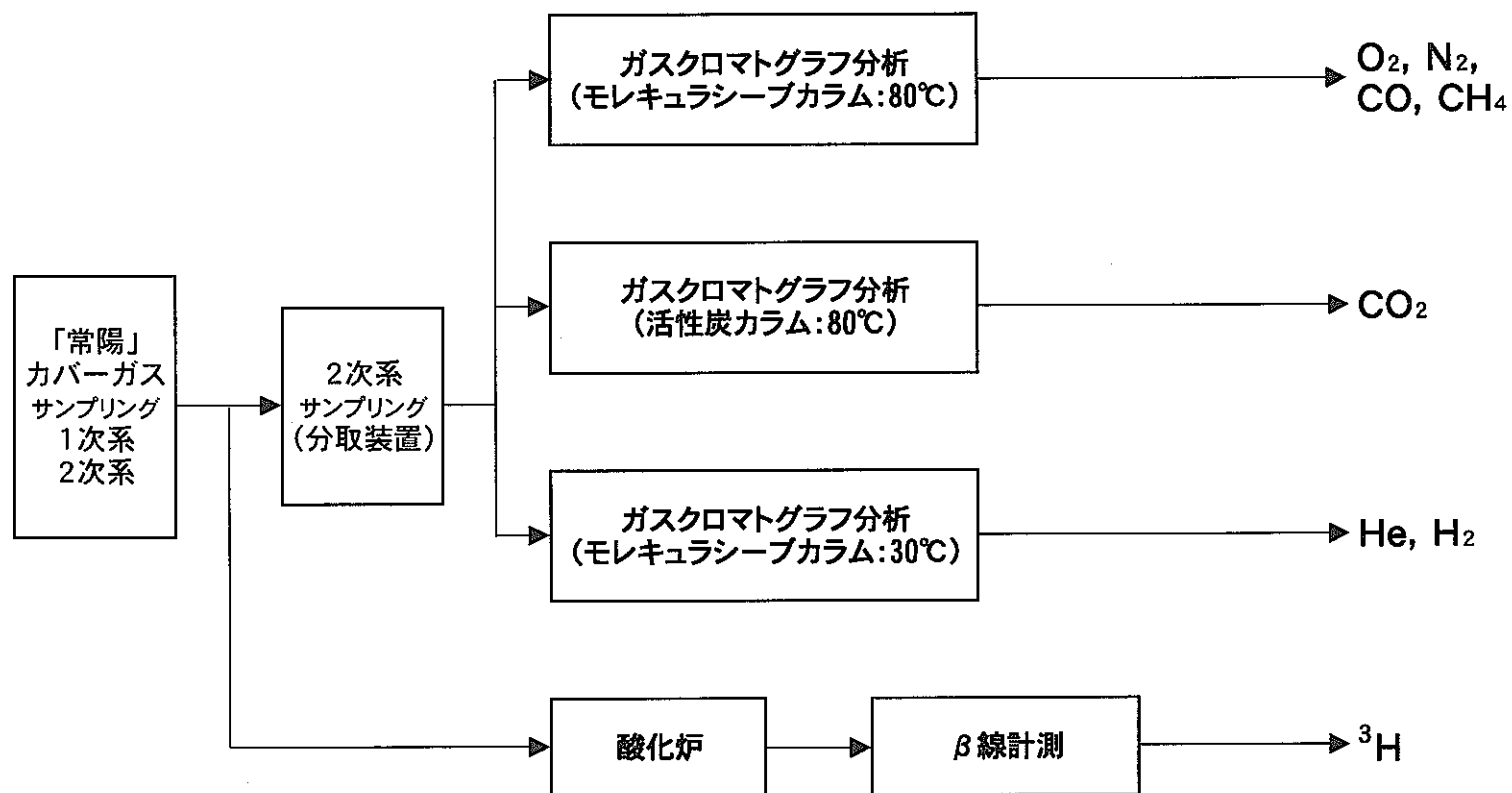


図6. 2 カバールガスアルゴン中の不純物分析操作手順

7. 分析結果とその評価

MK-II 炉心第1サイクルから第31サイクル及びその間の停止期間中に、「常陽」データ処理システム (JOYDAS) ⁴⁾にて採取した1次系、2次系のナトリウム流量、ナトリウム温度及びコールドトラップ温度並びに1次カバーガス中不純物濃度、1次ナトリウムプラギング温度及び原子炉熱出力のデータ及びそのグラフをCD-ROMに収録した。例として1次ナトリウムプラギング温度を図7.1に示す。また、この間、1次系ナトリウムを67回、2次系ナトリウムを81回、1次系カバーガスを75回、2次系カバーガスをオーバフロータンクから89回ダンプタンクから89回サンプリングし、ナトリウム又はカバーガス中の不純物を分析した。これらのデータ及びグラフをCD-ROMに収録した。分析結果の一例として、1次系ナトリウム及び1次系カバーガスを表7.1及び表7.2に、1次系ナトリウム中の酸素濃度の推移を図7.2に示す。表には、そのサンプリング時のプラント運転状態を示し、図には原子炉の出力を示し、プラントの様々な状態における不純物濃度を確認できるようにした。

7.1 1次系ナトリウム

1次系ナトリウムの分析結果は、全て管理目標値を満足していた。酸素濃度は約1から7wt. ppm程度で管理目標値である10wt. ppmを全て下回っていた。ただし、MK-II 炉心初期は、比較的高く特に第12サイクル運転後の燃料交換時(1987年)には、6.8ppmとなっている。これは、燃料交換によって新燃料表面に付着した酸素が冷却系内に持ち込まれることなどが原因として考えられており、かつ、この期間は、コールドトラップの圧力損失が増大したため、コールドトラップの運転温度を管理目標値の範囲内で上昇させたためである¹⁾。この後、新型コールドトラップを設置し、第16サイクルに運転目標値である120℃に達し、その後安定して純化を継続している。その他の元素についても、管理目標値を満足していた。なお、塩素については、1987年5月から分析法を塩化銀比濁法からイオンクロマト法に変更したため、検出下限値が低下している。また、トリチウム濃度は、新型のコールドトラップ設置後、減少している。

7.2 2次系ナトリウム

2次系ナトリウムの分析結果は、全て管理目標値を満足していた。酸素濃度は1から5wt. ppm程度で管理目標値である20wt. ppmを全て下回っていた。その他の元素についても、管理目標値を満足していた。なお、塩素については、1次系と同様、分析法を変更したため、検出下限値が低下している。

7.3 1次系カバーガス

1次系カバーガスの分析では、水素及びメタンがしばしば管理目標値を越す濃度を示している。

水素、メタンの濃度上昇は、燃料交換時にアルコールで洗浄したグリッパーがナトリ

ウム内に挿入されるため、アルコールの残留分が炉内に混入し、これが熱分解して上昇すると考えられている。

1988年1月の分析では酸素濃度が管理目標値を上回ったが、これは、酸素と窒素の濃度比が空気成分とよく一致することから、サンプリング時におけるサンプラー内への空気の混入が原因と考えられる。また、窒素のみが上昇するという現象が見られるが、これは、燃料交換等で系統内に空気が混入し、その後、酸素がナトリウムと反応して酸化物を形成するため、カバーガス層には酸素単体として存在しないためである。

その他の元素は全て管理目標値を満足していた。

なお、運転中のHe濃度が高いのは、制御棒にベント型を採用しているためⁱⁱ⁾、運転中に $B^{10}(n, \alpha)$ 反応により生成されたHeがカバーガス中に移行するためである。

7.4 2次系カバーガス

2次系カバーガスの分析結果は、水素を除き管理目標値を満足していた。

水素濃度の上昇時には、窒素濃度の上昇が確認され、酸素濃度の上昇が確認されてないことから、系統内に何らかの原因で湿分や空気が混入し、そのうちの酸素成分がナトリウムに吸収されて、水素や窒素の濃度が上昇したと考えられる。

表 7. 1 1次系ナトリウム分析結果例

試料番号	試料採取日	試料採取条件	温度条件		分析結果										
			C/T温度	PL温度	wt. ppm								Bq/g Na		
					O	C	H	N	Cl	Fe	Ni	Cr	³ H	^{110m} Ag	²² Na
58-04	S.58 7/31 8/2	100MW 第1サイクル 原子炉起動前	127	126 128	3.1	5.1	0.09	<0.2	1.3	0.11	<0.04	0.014	1.6×10 ²	—	4.1×10 ³
58-05	S.58 10/25 10/27	100MW 第1サイクル 定格運転中	126	127 137	1.9	2.5	0.08	0.4	1.1	0.08	<0.04	0.03	9.3×10 ²	—	5.9×10 ³
58-06	S.58 11/14 11/16	100MW 第1サイクル 定格運転中	125	132 125	1.7	2.0	0.08	0.3	<1.0	0.04	<0.04	0.009	1.1×10 ²	—	—
58-07	S.58 12/7 12/9	100MW 第2サイクル 原子炉停止後	126	123 126	1.9	4.5	0.07	0.2	1.1	0.04	<0.04	0.008	1.6×10 ³	1.8 ×10 ⁰	7.0×10 ³
58-08	S.59 3/17 3/19	10次主ポンプ 試運転時	193	178 176	3.9	<2.0	0.20	0.2	1.0	0.03	<0.04	0.008	2.6×10 ³	—	5.9×10 ³
59-01	S.59 4/11 4/13	100MW 第3サイクル 原子炉起動前	135	128 130	2.4	2.0	0.05	0.2	1.2	0.04	<0.04	0.011	1.9×10 ²	—	5.6×10 ³
59-02	S.59 4/30 5/2	100MW 第3サイクル 原子炉起動後	126	128 110	2.0	<2.0	0.06	0.3	1.2	0.02 0.10	<0.04	0.004 0.019	3.7×10 ¹	—	6.3×10 ³
59-03	S.59 5/20 5/22	100MW 第3サイクル 定格運転中	126	129 125	4.8	2.9	0.09	0.5	1.7	0.02	<0.04	0.005	7.8×10 ¹	—	6.3×10 ³
59-04	S.59 6/22 6/24	100MW 第3サイクル 終了後 燃交中	152	138 142	2.4	<2.0	0.08	<0.2	<1.0	0.07	<0.04	0.01	2.0×10 ²	—	6.7×10 ³
59-05	S.59 7/7 7/9	100MW 第4サイクル 原子炉起動後	134	135 125	1.9	<2.0	0.12	0.3	1.4	0.12	<0.04	0.034	7.0×10 ¹	2.8 ×10 ²	7.0×10 ³
59-07	S.59 8/26 8/28	100MW 第4サイクル 終了後 燃交中	127	124 123	1.5	<2.0	0.22	<0.2	1.9	0.05	<0.04	0.004	3.4×10 ²	2.6 ×10 ²	7.8×10 ³
59-09	S.59 9/29 10/1	100MW 第5サイクル 定格運転中	126	119 128	3.2	3.6	0.11	0.2	1.3	0.04	<0.04	0.013	7.8×10 ²	4.1 ×10 ²	8.5×10 ³
59-10	S.59 11/25 11/27	100MW 第5サイクル 終了後 燃交中	147	144 140	1.2	4.3	0.17	<0.2	<1.0	0.06 0.23	0.05	0.010	1.5×10 ²	3.1 ×10 ²	8.1×10 ³

表 7. 2 1 次系カバークラス分析結果例

試料番号	試料採取日	試料採取条件	分 析 結 果							
			vol. ppm							Bq/Ncc
			O ₂	H ₂	N ₂	CO	CO ₂	CH ₄	He	³ H
58-05	S. 58 8/8	100MW 第1サイクル 原子炉起動前	<1.4	31.1	255	<3.6	<5.7	15.8	32.7	1.2 × 10 ¹
58-06	S. 58 8/15	100MW 第1サイクル 原子炉起動後	<1.4	29.6	153	<3.6	<5.7	7.5	446	6.3 × 10 ⁰
58-07	S. 58 9/2	100MW 第1サイクル 定格運転中	<1.4	54	63.9	<3.6	<5.7	11.2	924	1.1 × 10 ¹
58-08	S. 58 9/24	100MW 第1サイクル 終了前(50MW)	<1.4	30.4	70.6	<3.6	<5.7	3.7	804	1.5 × 10 ¹
58-09	S. 58 9/28	100MW 第1サイクル 原子炉停止後	<1.4	18.1	84.6	<3.6	<5.7	1.6	655	4.1 × 10 ⁰
58-10	S. 58 10/13	100MW 第2サイクル 原子炉起動前	<1.4	15.8	106	<3.6	<5.7	19.1	61.5	2.4 × 10 ¹
58-11	S. 58 10/19	100MW 第2サイクル 原子炉起動後	<1.4	27.6	82.9	<3.6	<5.7	3.1	370	3.7 × 10 ⁰
58-12	S. 58 11/7	100MW 第2サイクル 定格運転中	<1.4	34.4	52.1	<3.6	<5.7	3.8	6.5	1.0 × 10 ¹
58-13	S. 58 11/25	100MW 第2サイクル 原子炉停止前	<1.4	32.4	43.7	<3.6	<5.7	4.1	559	2.7 × 10 ⁰
58-14	S. 58 12/7	100MW 第2サイクル 原子炉停止後	<1.4	128	21.9	<3.6	<5.7	27.4	23.9	5.9 × 10 ¹
58-15	S. 59 3/2	第 4 回 定 検 中 (GL-8200)	<1.4	19	543	<3.6	<5.7	<1.0	0.63	2.4 × 10 ⁰
58-16	S. 59 3/21	第 4 回 定 検 中	4.4	10.9	415	<3.6	<5.7	19.9	4.6	7.4 × 10 ¹
58-17	S. 59 3/21	第 4 回 定 検 中	7.8	12.9	433	<3.6	<5.7	20.2	4.5	3.5 × 10 ¹
59-01	S. 59 4/13	100MW 第3サイクル 原子炉起動前	<1.4	230	444	<3.6	<5.7	39.1	11.4	3.6 × 10 ¹
59-02	S. 59 5/2	100MW 第3サイクル 原子炉起動後	5.43	30.3	211	<3.6	<5.7	5.10	198	8.9 × 10 ⁰
59-03	S. 59 5/22	100MW 第3サイクル 定格運転中	5.63	37.4	85.4	<3.6	<5.7	5.41	317	9.3 × 10 ⁰
59-04	S. 59 6/25	100MW 第3サイクル 終了後燃交中	<1.4	30.2	237	<3.6	<5.7	22.8	26.8	3.6 × 10 ¹
59-05	S. 59 7/3	100MW 第4サイクル 原子炉起動後	<1.4	61.7	139	<3.6	<5.7	2.60	152	9.3 × 10 ⁰
59-06	S. 59 7/24	100MW 第4サイクル 定格運転中	<1.4	35.5	70.8	<3.6	<5.7	4.72	259	1.7 × 10 ¹

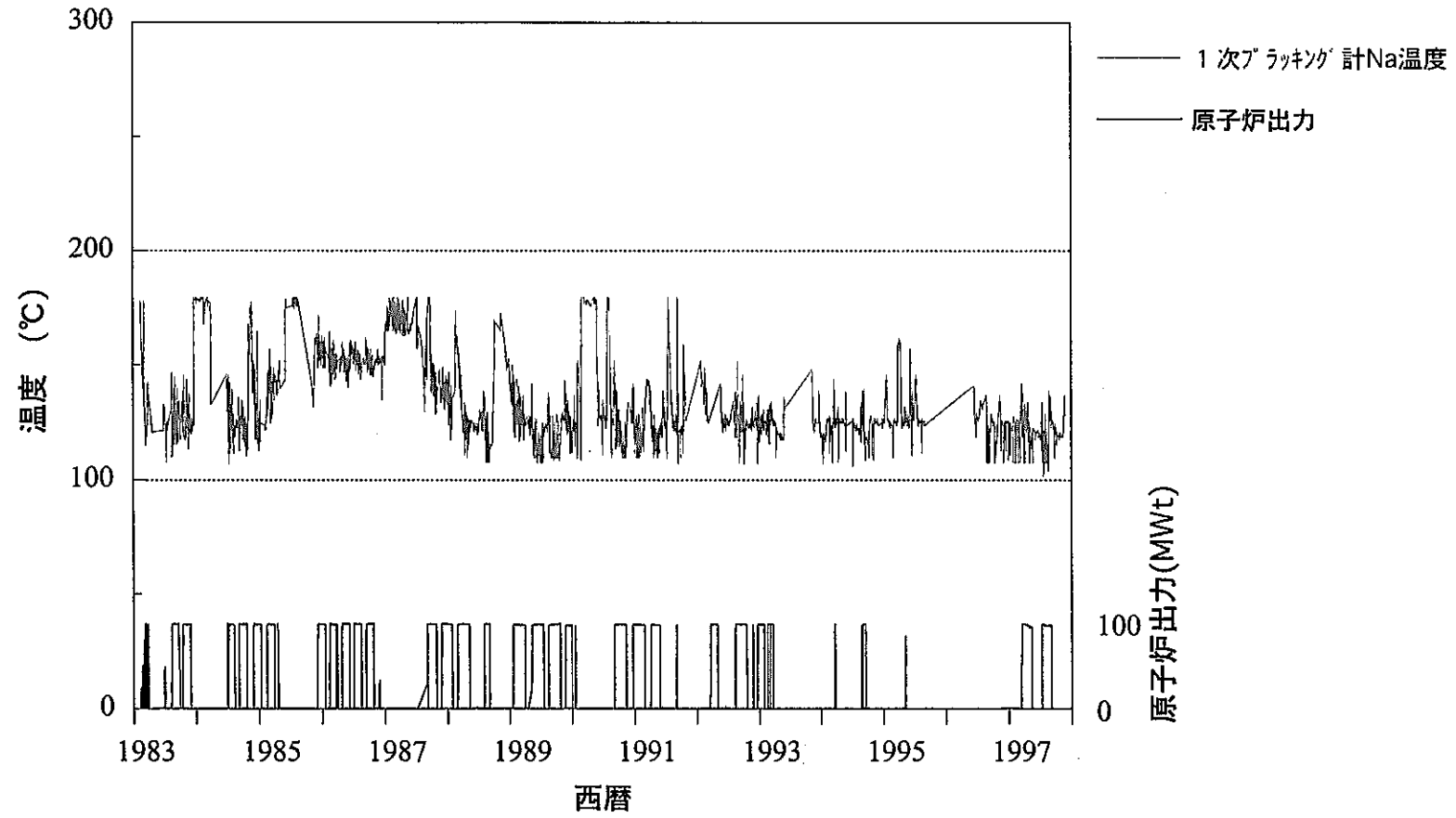


図7.1 1次プランキング計Na温度

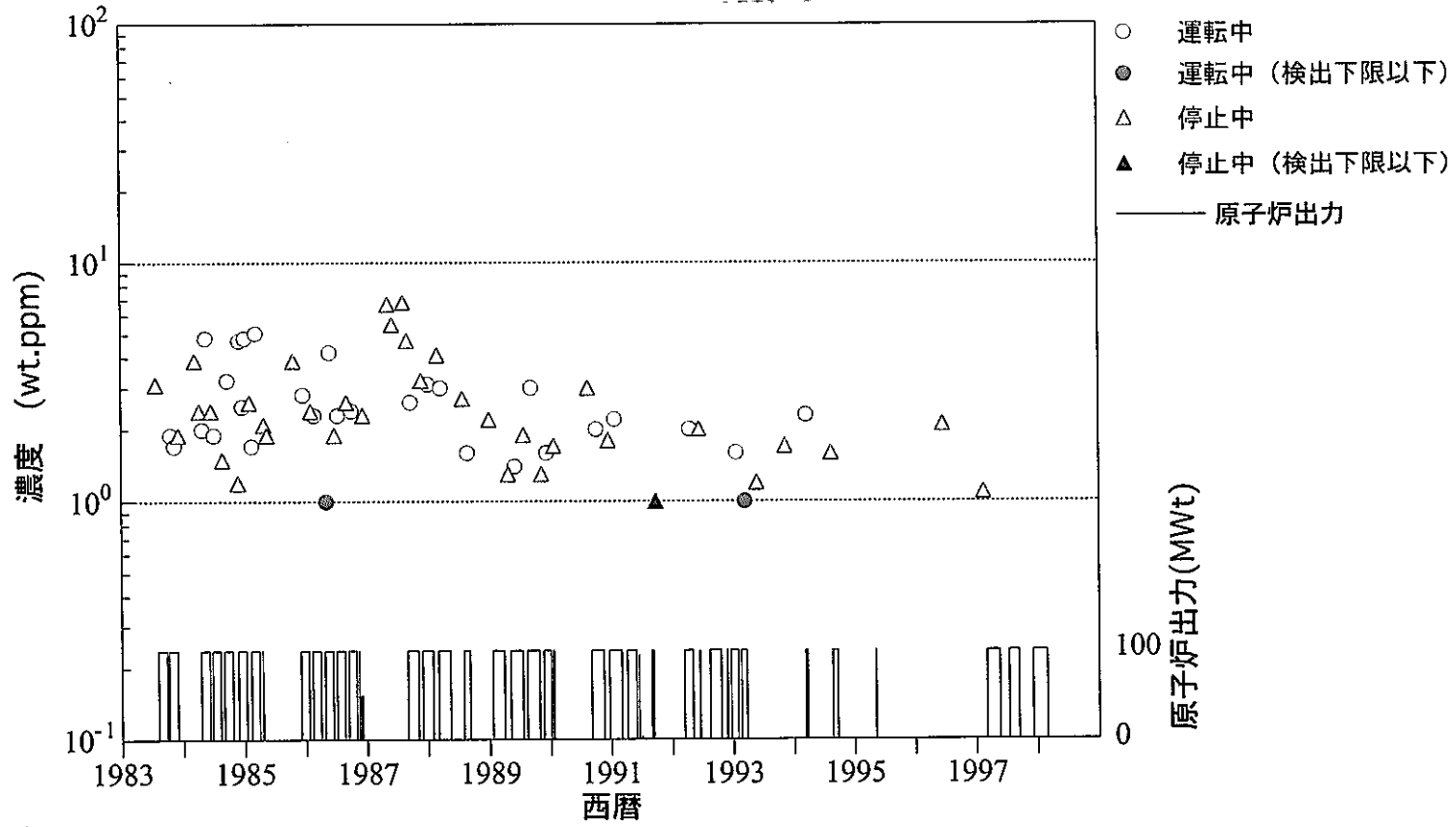


図7.2 1次系ナトリウム中の酸素濃度の推移

8. 結言

「常陽」MK-II 炉心の集大成として、MK-II 炉心の不純物分析値を、多くのユーザーが利用できるようなデータベースとして整備した。

データベースは、1次系ナトリウム及び2次系ナトリウムについて、酸素、炭素、水素、窒素、塩素、鉄、ニッケル及びクロムを、1次系カバーガス及び2次系カバーガスについて酸素、水素、窒素、一酸化炭素、二酸化炭素、メタン及びヘリウムの濃度及び関連するプラントデータをまとめた。これらは、ユーザが利用しやすいように表形式でデータをまとめ、データ類を机上のPC環境で容易に利用できるようなCD-ROMに収録した。

純度管理データは、1次系カバーガス中の水素及びメタンが管理目標値をしばしば上回った他、2次系カバーガス中の水素濃度が1度管理目標値を上回ったが、その他のカバーガス中の不純物は管理目標値を満足していた。1次系ナトリウム及び2次系ナトリウム中の不純物は全て管理目標値を満足していた。

「常陽」のデータは国内の数少ない高速炉の実機データであり、我が国の高速炉開発の現状をふまえると、これらの純度管理に関するデータは大変貴重である。本データベースは、今後、高速炉の燃料設計の開発等に、幅広く活用されることが期待される。

参考文献

- (1) 動力炉・核燃料開発事業団大洗工学センター実験炉部編, 特集「常陽」20周年, 動燃技報, No.104, p.3~10(1997)
- (2) 動力炉・核燃料開発事業団大洗工学センター実験炉部編, 「常陽」小特集, 動燃技報, No.61, p.3~13 (1997)
- (3) R. L. Eichelberger, et al, AI-AEC-12955(1970)
- (4) 動力炉・核燃料開発事業団大洗工学センター実験炉部編, 特集「常陽」20周年, 動燃技報, No.104, p.11~29 (1997)
- (5) 宮川俊一, 他: 「常陽」MK II 制御棒の開発と使用実績の評価, PNC TN9410 97-068, (1997)

付録 1

購入ナトリウムの純度規格

第2章 購入ナトリウムの純度規格

2.1 一般

本章は購入ナトリウムの純度規格について記載する。

本規格は、規格値を定量的に評価する材料が現段階では不足していたことなどにより、分析法小委員会の暫定案である。

2.2 純度規格

純度規格（暫定案）を表2.2.1 に示す。

純度規格の対象とはならないが、品質確認のため購入時に定量を行う元素もあるので、これらを含む購入時定量すべき元素を表2.2.2 に示す。

純度規格及び定量すべき元素は以下の諸点が個々の元素について検討、反映されてまとめられたものである。

(1) 動燃事業団大洗工学センターのナトリウム施設、及び高速実験炉「常陽」の購入ナトリウムの純度規格及び購入時分析の実績。

以上の調査結果を付録1 に示した。

(2) 高速実験炉「常陽」のナトリウム純度管理分析の実績や純度管理に関する運転経験。

(3) ナトリウム製造技術及び製造実績。

(4) プラント運用上からの購入ナトリウムに対する要求事項。

(5) 現状でのナトリウム分析法の定量下限値。

(6) 原型炉「もんじゅ」のナトリウム購入に関する現状及び計画。

以下に表2.2.1 及び表2.2.2 の内容を決定する際の各元素に対する検討内容を示す。

表2.2.1 購入ナトリウムの純度規格（暫定案）

元 素	純 度 規 格	備 考
酸素	30wt ppm, または別に定める値	適用は本文2.2.1 節 (1)項参照
炭素	30wt ppm	遊離炭素
水素	5wt ppm, または別に定める値	適用は本文2.2.1 節 (3)項参照
塩素	30wt ppm	
カリウム	300wt ppm	
カルシウム	10wt ppm	
リチウム	10wt ppm	
ウラン	0.01wt ppm (目標値)	本文2.2.2 節(8)項参照

表2.2.2 購入ナトリウムの分析対象元素

元 素	定 量 法	備 考
酸素	真空蒸留分離・中和滴定法 真空蒸留分離・原子吸光法	
炭素	湿式酸化・ガスクロマトグラフ法 湿式酸化・マンメトリー法 乾式酸化・ガスクロマトグラフ法	遊離炭素 遊離炭素 全炭素
水素	アマルガム化・加熱抽出・ガスクロマトグラフ法 真空加熱抽出・定容測圧法	
塩素	水蒸気分解・塩化銀比濁法	
カリウム	水蒸気分解・原子吸光法（フレイムレス法） 水蒸気分解・原子吸光法（フレイム法）	
カルシウム	水蒸気分解・原子吸光法（フレイムレス法） 水蒸気分解・原子吸光法（フレイム法）	
リチウム	水蒸気分解・イオン交換分離・炎光光度法 水蒸気分解・原子吸光法 水蒸気分解・アルコール抽出・原子吸光法	
ウラン	水蒸気分解・アルセナゾⅢ・吸光光度法 同位体希釈法	付録2 参照
窒素	水酸化ナトリウム溶液分解・インドフェノール・吸光光度法	規格値なし
ほう素	水蒸気分解・メチレン青-ジクロロエタン抽出・吸光光度法 水蒸気分解・エタノール抽出・クルクミン・吸光光度法	規格値なし
カドミウム	水蒸気分解・ジチゾン抽出・原子吸光法 水蒸気分解・DDTC抽出・原子吸光法 水蒸気分解・ランタン共沈分離・原子吸光法	規格値なし

- 注1) 各元素に対する定量頻度は、元素の重要度などによって異なり、購入仕様書などで指定されるものとする。
これは、高速増殖炉で使用されるナトリウムが大量であり、分割して製造されるためである。
- 注2) 本表中の各元素に対する定量法は、現状で実施されている方法を示したものであり、購入ナトリウムの分析にあたってどの方法を探るかは、発注者と受注者の協議によるものである。
また、これらの定量方法は、定量法の改良などによって将来変わらうものである。

2.2.1 非金属元素

(1) 酸素

①「常陽」の購入ナトリウムの規格は1次系、2次系とも30wt ppm以下で、これに対する購入時分析の結果は、1次系4.5wt ppm（動燃分析値）、2次系5.5 wt ppm（動燃分析値）であった。

②ナトリウム中の酸素濃度は、プラント運転中に機器や配管の材料の腐食に影響を与え、腐食生成物を発生させる。炉心材料が炉内照射により放射化され、ナトリウム中の酸素濃度が高いとそれが腐食されて腐食生成物として溶出しやすくなり、機器や配管の内面に付着することによって保守時の被曝量の増大につながる。

従って腐食生成物の発生を抑制するためには、プラント運転中の酸素濃度をできる限り低く抑えることが望ましい。酸素濃度2wt ppmが10wt ppmになると、腐食生成物発生量は2wt ppm時の3倍以上になると評価されている。

③一方、ナトリウム中酸素濃度は、材料の自己融着や摩耗に影響を与え、酸素濃度が低いほど起りやすいとされている。しかしながら、該当箇所（ポンプ軸受、弁等）への表面硬化材の適切な選択により対策は可能である。

④ナトリウム中の酸素は、運転中にコールドトラップで純度を管理できる。購入ナトリウムはプラントの初期純化時に精製されるが、この際のコールドトラップの運用法には後述するように、いくつかの方法が考えられ、これによって購入ナトリウムに対する要求が異なる。また、初期純化時には購入ナトリウム中の酸素濃度だけでなく、機器配管の酸化被膜として存在する酸素などの他の要因についても考慮する必要がある。

⑤製造実績

国内の2つのナトリウムメーカーにおける製造実績は3～15wt ppm及び10wt ppm以下であった。

これらのうち②及び③はプラント運転中の問題であり、プラント運転中は④に示したように管理されるので、②及び③の点から購入ナトリウムの酸素濃度に対する要求は強くない。

④の点からは次の2つの考え方がある。

(a) プラントの初期純化を本設のコールドトラップを用いて行う場合で初期

純化時の酸素捕獲量がコールドトラップ寿命に与える影響が大きい場合、規格を設ける。

この場合の規格は「常陽」の30wt ppm以下を採用する。

この値は①、⑤から、現状技術で問題なく製造できると考えられる。

- (b) プラントへのナトリウム初期充填時、仮設タンクなどを用いて低温チャージを行えるか、あるいはプラントの初期純化時に仮設コールドトラップを用いることができる場合、または初期純化に本設コールドトラップを用いる場合であっても、本設コールドトラップの容量が十分にとれ、初期純化時の酸素捕獲量がコールドトラップ寿命に与える影響が小さい場合、前記(a)に示した規格値30wt ppmを下限として、規格を許容される範囲でさらにゆるくしてもよい。

この場合の規格は別に定めることとする。(規格を定めない場合もある。)

これら2つの考え方の選択は、プラント設計に際し、仮設タンクや仮設コールドトラップを設けること、あるいは本設コールドトラップの容量に余裕をとることなどが、プラントに与えるインパクトを考慮して行われる。

以上の規格を満たす品質であることを確認するために購入時分析を実施する。

(2) 炭素

①「常陽」の購入ナトリウムの規格は1次系、2次系とも30wt ppm以下で、購入時分析の結果は1次系、2次系とも5.5wt ppm(動燃分析値)であった。

②ナトリウム中の炭素濃度(遊離炭素)は、プラント構成材料の脱浸炭による機械的強度変化に影響をあたえる。これは特に蒸気発生器伝熱管などの薄肉管の強度保持の点で重要となる。

③ナトリウム中の炭素のコールドトラップによる捕獲については、その挙動が明確になっていない。

④プラント運転中、回転プラグ、機械式ポンプなどからのオイル混入を監視する必要がある。

⑤国内の2つのナトリウムメーカーによる製造実績は3~10wt ppm及び15wt ppmであった。

②、④からプラント運転中の材料の脱浸炭への影響を減らし、オイルリーク検出のためにバックグラウンドを下げる意味で購入ナトリウムに規格値を定める必要がある。

注1)

規格値は「常陽」の規格を採用し30wt ppm以下とする。この値は①及び⑤から現状技術で問題なく製造できる。

以上の規格を満たす品質であることを確認するために購入時分析を実施する。

〔注〕

1. この規格は遊離炭素に対するものである。

(3) 水素

①「常陽」の規格は1次系、2次系とも5wt ppm以下で、これに対する購入時分析の結果は1次系 0.26wt ppm（動燃分析値）、2次系0.3wt ppm（動燃分析値）であった。

②ナトリウム中の水素は運転中にコールドトラップで純度を管理できる。

③一次系ナトリウム中の水素濃度及びコールドトラップでの水素捕獲量がトリチウム分布に影響する。

④プラント運転中に蒸気発生器での水リークを検出するため、二次系では水素濃度変化を監視する必要がある。二次系ナトリウム中のバックグラウンドを下げ、検出感度を向上させるため、運転中のコールドトラップ制御温度はできる限り低くすることが望ましい。

⑤国内2つのナトリウムメーカーによる製造実績は0.1～1.4wt ppm及び1wt ppm以下であった。

プラント運転中にコールドトラップで純度を管理できるので、③、④の点からの購入ナトリウムに対する要求は②の点からの要求に対して強くない。水素についての購入ナトリウムの規格に対する要求は、主として②のコールドトラップ負荷となる点からである。

これについては酸素の場合と全く同様であり、規格を設ける場合下限値は5wt ppmとする。この規格を満たす品質であることを確認するために購入時分析を

実施する。

(4) 塩素

- ①「常陽」の規格は1次系、2次系とも30wt ppm以下で、購入時分析の結果は1次系 1.1wt ppm(動燃分析値)、2次系2.6wt ppm(動燃分析値)であった。
- ②ナトリウム中の塩素はプラント構成材料の腐食の要因となることが考えられるが、現在までの経験では通常濃度(30wt ppm)以下では問題となっていない。
- ③ナトリウム中の塩素のコールドトラップによる捕獲については、その挙動が明確になっていない。
- ④国内の2つのナトリウムメーカーによる製造実績は、3~6wt ppm、及び10wt ppm以下であった。

以上から、プラント運転中の塩素濃度は購入時のものが維持され、材料に与える影響を考慮して、購入ナトリウムに規格を設ける。

規格は「常陽」の規格を採用し30wt ppm以下とする。

この規格を満たす品質であることを確認するために購入時分析を実施する。

(5) ほう素

- ①「常陽」の規格は1次系、2次系とも4wt ppm以下で、分析値は1次系0.07wt ppm(動燃分析値)、2次系0.24wt ppm(東曹分析値)であった。
- ②ほう素は中性子吸収材である。核熱設計上は数wt ppm以下であれば、問題ない。
- ③ほう素は $^{10}\text{B}(n, 2\alpha)^3\text{H}$ 等の反応でトリチウムの生成源となる。
トリチウムは構造物を拡散し、一部は環境中に移行するためその発生量を抑制する必要があるが、購入ナトリウム中のほう素が数wt ppm以下であれば、炉心、制御棒からの発生量が支配的となる。設計上は数wt ppm以下であれば問題ない。
- ④プラント運転中のコールドトラップによる捕獲について明確でないため、購入ナトリウムの純度が維持されると考える。
- ⑤国内2つのナトリウムメーカーによる製造実績は0.5wt ppm以下、及び1wt ppm以下であった。

①、⑤から購入ナトリウムに規格を設けなくとも、②や③に示される核熱的やトリチウム生成の点から問題となる濃度以下のナトリウムが製造可能と判断される。但し、品質上の情報を得るため、購入時分析を実施することが望ましい。

(6) けい素

- ①「常陽」の規格は1次系10wt ppmで分析結果は1wt ppm（動燃分析値）であった。
- ②濃度が高い場合、プラント運転中に燃料表面や中間熱交換器伝熱管表面に付着し、圧損を増加させることが知られている。
- ③国内のナトリウムメーカーによる製造実績は1～9wt ppmであった。

②に示す問題は①や③に示される濃度では問題とならないので、規格を設ける必要はない。

購入時分析を実施する必要はない。

(7) 窒素

- ①窒素に対して「常陽」の規格および購入時分析の結果はない。
- ②プラント運転中、高温領域で窒素濃度が高い場合、オーステナイト系ステンレス鋼の窒化の要因となる。
- ③プラント運転中、空気雰囲気及び窒素ガス冷却系などの他システムからのリークを^{注1)}監視する必要がある。
- ④「常陽」の運転時の管理目標は1次系で50ppm以下であり、これに対しプラン^{注2)}ト運用中の分析値は十分小さい値である。

以上から窒素濃度は④に示されるように小さい値であり、この状態では材料の窒化、他システムからのリークとも問題にならない。従って購入ナトリウムに対する規格は設ける必要がない。但し、購入時分析を実施することが望ましい。

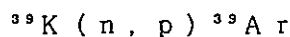
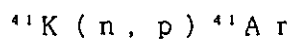
〔注〕

1. 「常陽」では他系統からのリークに対しカバーガスを分析し、管理している。
2. 「常陽」の運転経験では、燃料交換作業などでナトリウム中の窒素濃度が変わることがあるが、通常0.2wt ppm以下に対し、最大変化しても0.3wt ppm程度にしかならない。

2.2.2 金属元素

(1) カリウム

- ①「常陽」の規格は1次系、2次系とも1000wt ppm以下であり、購入時分析の結果は1次系、2次系とも50wt ppm以下（動燃分析値）であった。
- ②ナトリウム中に多量にカリウムが入ると、冷却材であるナトリウムの熱伝導率に影響をあたえる。カリウム濃度1000wt ppmで熱伝導率が約1%低下する。
- ③カリウムは中性子により放射性アルゴンとなり被曝評価の対象となる。「もんじゅ」では設計上、カリウムからの生成量をカリウム濃度を300wt ppmとして評価している。



- ④国内のナトリウムメーカーによる製造実績は22～74wt ppmである。

③に示す理由から、購入ナトリウムに規格を設ける必要がある。規格は設計に
注1)
 使用した300wt ppm以下とする。

この規格を満たす品質であることを確認するために購入時分析を実施する。

〔注〕

1. カリウムはナトリウムと化学的性質が似ているため、精製工程でこれらを分離するのは困難である。従って原料塩の段階からカリウム濃度を抑える必要があり、規格に合致した品質のものを得るためには、実績のある原料塩を使用するなどの注意が必要である。

(2) カルシウム

- ①「常陽」の規格は1次系、2次系とも10wt ppm以下で、購入時分析の結果は1次系で4.8wt ppm（動燃分析値）、2次系で2.1wt ppm（動燃分析値）であった。
- ②酸化カルシウム（CaO）として低温部に沈着するので、カルシウム濃度が高い場合コールドトラップの負荷となる。しかし、10wt ppm程度では問題とならない。
- ③国内2つのナトリウムメーカーによる製造実績は1～5wt ppm、及び2wt ppm以下であった。

④ナトリウムはナトリウムとカルシウムの混合塩の熔融塩電解から分離・精製される。従って、ナトリウム中のカルシウムの濃度を管理することは、品質管理上必要である。

④に示す理由から購入ナトリウムに規格を設ける。規格は「常陽」の規格値を採用し10wt ppm以下とする。

この規格を満たす品質であることを確認するために購入時分析を実施する。

(3) リチウム

①「常陽」の規格は1次系10wt ppm以下で、購入時分析の結果は1wt ppm以下（動燃分析値）であった。

②リチウムは ${}^6\text{Li}(n, \alpha){}^3\text{H}$ 等の反応でトリチウムの生成源となる。

設計上、購入ナトリウムに含まれるリチウムからのトリチウム生成量をリチウム濃度10wt ppmとして評価している。

③プラント運転中のコールドトラップによる捕獲については、明確になっていない。

④国内のナトリウムメーカーによる製造実績は0.5wt ppm以下であった。

②、③に示す理由から、規格を設ける必要がある。規格は②の評価に使用した10wt ppm以下とする。

この規格を満たす品質であることを確認するために購入時分析を実施する。

(4) カドミウム

①「常陽」の規格は1次系で5wt ppm以下であり、購入時分析の結果は1次系で1wt ppm以下（動燃分析値）であった。

②カドミウムは熱中性子吸収材である。

核熱設計上は数wt ppm以下であれば問題ない。

③国内のナトリウムメーカーによる製造実績は0.1wt ppm以下である。

「常陽」の実績や製造実績から、規格を設けなくとも核熱設計上問題となるカドミウム濃度以下のものが製造可能と判断される。

但し、品質確認のため購入時分析を実施することが望ましい。

(5) クロム, マンガン, 鉄, ニッケル, モリブデン, 銅

①各元素についての「常陽」の規格（1次系）及び購入時分析の結果（動燃分析値）、国内のナトリウムメーカーの製造実績を以下に示す。

(単位 wt ppm)			
元素	規格	分析値（1次系 / 2次系）	製造実績
クロム	1	0.005 / 0.006	0.2以下
マンガン	2	0.01	0.1以下～1
鉄	5	0.04 / 0.04	1以下～2
ニッケル	1	0.01以下 / 0.01以下	0.2以下
モリブデン	1	0.02以下	0.2以下
銅	10	0.007	0.1以下

②これらの元素の大部分はプラント構成材料に含まれており、これらが炉心部においては中性子照射により放射化し、ナトリウム中に溶出して腐食生成物となる。

「常陽」の実績や製造実績から、購入ナトリウムに含まれるこれらの元素の量は比較的少ないこと、腐食生成物についてはナトリウム中に含まれる元素が放射化するよりも、炉心構成材料が放射化し、溶出するものの方が支配的であることから、購入ナトリウムに規格を設ける必要はない。

購入時分析は実施する必要はない。

(6) マグネシウム

①「常陽」の規格は1次系20wt ppm以下で、購入時分析の結果は0.97wt ppm（動燃分析値）であった。

②プラント運転中に酸化物として沈着し、マグネシウム濃度が高い場合コールドトラップの負荷となる。

③製造実績は国内2つのナトリウムメーカーのうち的一方で1～2wt ppmであった。

②に示す点は①や③の濃度では問題とならないので購入ナトリウムに規格を設

ける必要はない。

購入時分析を実施する必要はない。

(7) アルミニウム

①「常陽」の規格は1次系10wt ppm以下で、購入時分析の結果は0.04 wt ppm (動燃分析値)であった。

②国内のナトリウムメーカーによる製造実績は1wt ppm以下であった。

規格を設けなくとも、十分低いアルミニウム濃度のナトリウムが製造できると判断される。

(8) ウラン

①「常陽」の規格は1次系0.05wt ppm以下で購入時分析の結果は0.001wt ppm以下(動燃分析値、同位体希釈法)であった。

②プラント運転中に破損燃料検出システム(FPDシステム)のバックグラウンドになり、濃度が高いとFPDシステムの検出感度が低下する。「もんじゅ」では感度評価に0.01wt ppmを使用している。

③冷却材中のウランは炉心を通過する際に核反応を起こし、反応生成物が冷却材によって運ばれるので、遮蔽設計上冷却材中のウラン濃度を制限する必要がある。

設計上、冷却材中のウラン量を0.01wt ppmで評価している。

④国内のナトリウムメーカーによる製造実績例は0.01wt ppm以下(水蒸気分解・アルセナゾⅢ・吸光光度法)であった。

⑤ナトリウム中のウランに対する定量法の定量下限値は水蒸気分解・アルセナゾⅢ・吸光光度法の場合、現状で0.003~0.01wt ppm(4.4.5節④項 備考3及び4参照)であり、同位体希釈法では0.001wt ppmである。

②や③に示す理由から購入ナトリウムに規格を設ける必要がある。

規格値については以下の点を考慮し、目標値として0.01wt ppm以下とする。

(a) 上記②③の点からは購入ナトリウム中のウラン濃度は0.01wt ppm以下が要求される。この値は製造ロットにより部分的に0.01wt ppmを上回るも

のがあっても購入量に対する平均値として満足されればよい。

このためには、定量法の定量下限が0.01wt ppmよりも十分低い値であることが条件となる。

現在実施されている水蒸気分解・アルセナゾⅢ・吸光光度法の定量下限値は0.003～0.01wt ppm程度であり、定量下限が0.01wt ppmに近い場合、平均値として目標値0.01wt ppm以下を満たしていることを確認するのに問題を生じる恐れがある。

付録2に示した同位体希釈法を用いれば、十分な定量下限値を得ることができる。但し、この場合には分析実施機関に制約がある。

- (b) 製造・精製の面からは、これらの工程においてウランを除去する技術が現状ではないので、購入ナトリウム中のウラン濃度は原料塩などに左右される。

このため、「常陽」の例のように結果として0.01wt ppmを下回るものが製造される場合もあるが、製造者として0.01wt ppmを保証するのは困難である。

(9) ナトリウム

- ①「常陽」の購入ナトリウムの規格及び購入時分析の結果はない。
- ②ナトリウムは本来分析すべき主成分であるが、現状の分析技術では高速増殖炉で使用する高純度（例えば99.95%以上）のナトリウムを正確に定量することは困難である。
注1)

以上により、ナトリウム主成分の直接的な確認手段がないので、ナトリウムに対する規格値を設けても、あまり意味がない。

参考値程度にナトリウムの純度を算出する場合は、ナトリウム以外の不純物量の総和を100%から減じた値とすればよい。

〔注〕

1. ナトリウムの直接的な分析法として、例えばJIS K 1453「金属ナトリウム分析方法」があるが、この方法は工業薬品としてのナトリウムの分析法で、

空気雰囲気下で行うものであり、炭酸ガスの影響などで原子炉級ナトリウムの分析には適用できない。

付録 2

高速実験炉「常陽」純度管理データ集
(CD-ROM)