

本資料は 年 月 日付けで登録区分、  
変更する。

01.11.30 [技術情報室]

分置

## 炉内ループによるFP挙動試験（Ⅱ）

1984年3月

東京芝浦電気株式会社

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大字村松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

Inquiries 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)

す。  
転

載、引用等には事業団の承認が必要です。

## 炉内ループによるFP挙動試験(Ⅱ)\*

酒井拓彦**	原世悦**
住吉重夫**	小野清**
飯田式彦***	宮地延吉**

## 要 旨

FBRで破損燃料から放出されるFPの一次冷却系における挙動を調べるために、昭和57年9月より炉内核分裂生成物挙動試験ループ(FPL-Ⅱ)による照射試験を実施している。本報告書では、昨年度に引き続いて昭和58年度に行った12回の照射試験の成果について報告する。

核分裂生成物(FP)の挙動を、FPL-Ⅱの長さ25mのステンレス製ディレイラインを用い、その配管内壁へのFP沈着分布をγ線検出器で測定することにより調べた。その結果、Sr、Y、Zr、Nb、Ba、Laなどの不揮発性FPのループ内沈着挙動について以下の結果を得た。

- 1) Srの沈着は速くかつ非可逆的である。<sup>92</sup>Sr、<sup>93</sup>Sr、<sup>94</sup>Srの沈着速度定数を温度の関数として求めた。沈着過程の活性化エネルギーは $-13 \pm 1$  (KJ/g-atom)であり、Srの沈着過程は、配管表面とナトリウムの境界層におけるSrの拡散支配であることが結論された。
- 2) Yは、ナトリウム温度200℃から500℃の場合は、Srとほぼ同様な沈着挙動を示す。
- 3) Zrの沈着速度は、ナトリウム温度500℃の場合は、Srより遅く、200℃から500℃の場合は、温度依存性を示さない。
- 4) Nbはナトリウム中では沈着しない。
- 5) Baの沈着速度は、ナトリウム温度400℃の場合は、Srとほぼ等しい値を示すが温度依存性はSrと比べると小さい。

\* 本報告は東京芝浦電気株式会社が動力炉・核燃料開発事業団の委託により実施した研究の成果である。

\*\* 東京芝浦電気株式会社 総合研究所

\*\*\* 東京芝浦電気株式会社 原子力事業部

6) La の沈着速度は、ナトリウム温度 350～500℃ の場合は Ba とほぼ等しくなる。

FPL-Ⅱ に装荷されている照射試料 (UO<sub>2</sub> 粒子) の k factor (roughness factor) については、揮発性 FP の γ 線スペクトル測定結果と熱中性子束密度の値からその計算を行い、平均 0.4 の値を得た。一方、ディレイライン配管上で 2 箇所に設置した <sup>3</sup>He 比例計数管を用いた遅発中性子の測定結果から k factor を計算し、0.59 の値を得た。この揮発性 FP と熱中性子束密度および遅発中性子測定から得た k factor の差については、今後その原因を検討する必要がある。



Inpile Fission Product Behavior Test Loop (FPL-II)

Experiments (II)\*

Takuhiko SAKAI\*\* Seietsu HARA\*\* Shigeo SUMIYOSHI\*\*  
Kiyoshi ONO\*\* Norihiko HANDA\*\*\* Nobuyoshi MIYAJI\*\*

Abstract

In order to study the behavior of fission products released from failed fuel in an FBR primary cooling system, inpile fission product behavior test loop (FPL-II) experiments have been carried out from September 1982. Twelve irradiation tests were performed from September 1983 in this fiscal year.

The non-volatile fission products deposition distribution was measured with gamma ray detectors along a 25 meter long delay line piping during irradiation and after sodium drain. Deposition behavior data for several non-volatile fission products, such as Sr, Y, Zr, Nb, Ba and La, were as follows:

- 1) The Sr nuclides deposition is very rapid and irreversible. The deposition rate constants are obtained for  $^{92}\text{Sr}$ ,  $^{93}\text{Sr}$  and  $^{94}\text{Sr}$  by analyzing the deposition distribution patterns. The activation energy for the deposition process was found to be  $-13 \pm 1$  (KJ/g-atom). It is concluded that the Sr deposition rate on a stainless steel surface is controlled by the Sr nuclide diffusion through the boundary layer.

---

\* Work performed by Toshiba Corporation under contract with Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation.

\*\* Toshiba Corporation, Research and Development Center.

\*\*\* Toshiba Corporation, Nuclear Energy Group.

- 2) The deposition rate for Y nuclides is similar to the Sr deposition between 200 and 500°C sodium temperature.
- 3) The deposition rate for Zr nuclides is smaller than the Sr deposition at 500°C sodium temperature and shows no dependence on sodium temperature between 200 and 500°C.
- 4) Nb nuclides show no deposition behavior in sodium.
- 5) The deposition rate for Ba nuclides is nearly the same as the Sr deposition at 400°C sodium temperature, but shows smaller sodium temperature dependence, compared with Sr deposition.
- 6) The deposition rate for La nuclides is similar to the Ba deposition between 350 and 500°C sodium temperature.

The k factor (roughness factor), for an irradiation sample loaded in the FPL-II, was calculated using the volatile fission products gamma ray spectra and the thermal neutron flux at the irradiation section. About 0.4 average value was obtained.

The delayed neutron precursor nuclides behavior was studied by measuring the delayed neutron with  $^3\text{He}$  proportional counters at two positions on the delay line. The k factor was also calculated by using the delayed neutron counting data. An about 0.59 value was obtained. It is necessary to study the reason why different k factors are obtained.

# 目 次

1. 緒 言 .....	1
2. 炉内核分裂生成物挙動試験ループ (FPL-II) .....	3
2.1 ループの概要 .....	3
2.1.1 構成要素 .....	3
2.1.2 ナトリウムループ部 .....	3
2.2 放射線計測装置の概要 .....	4
2.2.1 $\gamma$ 線計測装置および計測方法 .....	4
2.2.2 遅発中性子検出装置 .....	6
3. 予備試験 .....	25
3.1 モックアップ試験 .....	25
3.1.1 実 験 .....	26
3.1.2 実験の結果 .....	27
3.1.3 結 言 .....	28
3.2 遅発中性子検出装置の較正試験 .....	29
4. 照射試験 .....	40
4.1 FPL-II の運転手順 .....	40
4.2 照射試験の概要 .....	41
5. 不揮発性FPの沈着挙動の解析 .....	54
5.1 $\gamma$ 線スペクトルの測定 .....	54
5.2 不揮発性FPの沈着挙動の解析モデル .....	55
5.3 Srの沈着挙動の解析 .....	60
5.4 Yの沈着挙動の解析 .....	65
5.5 Zrの沈着挙動の解析 .....	68
5.6 Nbの挙動の解析 .....	70
5.7 Baの沈着挙動の解析 .....	71
5.8 Laの沈着挙動の解析 .....	72

5.9	不揮発性 FP の沈着挙動のまとめ .....	74
5.10	結 言 .....	77
6.	揮発性 FP の $\gamma$ 線測定による k factor の算出 .....	128
6.1	結 言 .....	128
6.2	放出率の算出 .....	128
6.2.1	対象とする FP 核種 .....	128
6.2.2	放出率算出の方法 .....	129
6.3	放出率算出と k factor .....	133
6.3.1	FP の放出率 .....	133
6.3.2	k factor の算出 .....	136
6.3.3	考 察 .....	136
6.4	結 言 .....	138
7.	遅発中性子の測定結果 .....	152
7.1	結 言 .....	152
7.2	ループ定常状態時の測定結果 .....	152
7.3	ナトリウム流動停止時の測定結果 .....	153
7.4	TTR 出力降下時の測定結果 .....	154
7.5	TTR 出力降下前のナトリウムドレン時の測定結果 .....	155
7.6	解析モデル .....	156
7.7	モックアップ試験結果を考慮した解析モデル .....	158
7.8	解析モデルと実験結果の比較 .....	160
7.9	k factor の算出 .....	162
7.10	結 言 .....	164
8.	結 言 .....	183
9.	参考文献 .....	185
Appendix A	FPL-II の照射熱中性子束の算出 .....	186
B	Floppy disk lists .....	194
C	物質移動モデル .....	211



## List of Tables

2-1	Main Specifications of Inpile Fission Product Behavior Test Loop (FPL-II) .....	7
2-2	Irradiation samples specifications .....	7
2-3	Components of $\gamma$ -ray detection system module .....	8
2-4	Length, sodium volume and surface area between detection positions and FPL-II main loop .....	9
2-5	Components of delayed neutron detection system module .....	10
3-1	Delayed neutron detectors calibration test before each irradiation test .....	30
4-1	FPL-II experiments list .....	46
5-1	Calculated value of $C_d^W$ as a function of $K_d$ .....	78
5-2	Geometry correction factor for each detection position .....	78
5-3	$^{94}\text{Sr}$ deposition rate constant .....	79
5-4	$^{92}\text{Sr}$ deposition rate constant .....	80
5-5	$^{93}\text{Sr}$ deposition rate constant .....	81
5-6	$^{91}\text{Sr}$ deposition rate constant .....	81
5-7	$^{92}\text{Sr}$ deposition rate constant obtained by using $^{92}\text{Y}$ deposition distribution pattern along the delay line .....	82
5-8	$^{94}\text{Sr}$ deposition rate constant obtained by using $^{94}\text{Y}$ deposition distribution pattern along the delay line .....	83
5-9	$^{97}\text{Y}$ and $^{97}\text{Zr}$ deposition rate constant obtained by using $^{97}\text{Zr}$ deposition distribution pattern along the delay line .....	84

5-10	$^{97}\text{Y}$ and $^{97}\text{Zr}$ deposition rate constant obtained by using $^{97}\text{Nb}$ distribution pattern along the delay line .....	85
5-11	$^{142}\text{Ba}$ deposition rate constant .....	85
5-12	$^{142}\text{Ba}$ deposition rate constant obtained by using $^{142}\text{La}$ deposition distribution pattern along the delay line .....	86
5-13	$^{144}\text{La}$ deposition rate constant .....	87
5-14	Deposition rate constant of Sr isotopes .....	88
5-15	Sticking coefficient of Sr isotopes calculated by using modified mass transfer model .....	88
6-1	Fission product release fraction (%) calculated by using each FP nuclide concentration in sodium .....	139
6-2	k factor for each fission product nuclide .....	140
7-1	Delayed neutron precursor nuclides .....	165
7-2	Steady state count rates for delayed neutrons under constant loop conditions .....	166
7-3	Delayed neutron contribution ratio at each delayed neutron detector from the various part of FPL-II loop pipings .....	167
7-4	Steady state count rates for delayed neutrons under constant loop conditions and calculated data by using analytical model .....	168
7-5	k factors calculated by using delayed neutron experimental results (Exp. No.10) and analytical model .....	169

## List of Figures

2-1	Inpile Fission Product Behavior Test Loop (FPL-II) diagram .....	11
2-2	Inpile Fission Product Behavior Test Loop (FPL-II) flow diagram .....	12
2-3	Inpile Fission Product Behavior Test Loop .....	13
2-4	Uranium dioxide irradiation samples .....	14
2-5	Uranium Capsule .....	15
2-6	Y-ray detection system diagram .....	16
2-7	Y-ray detection positions and delayed neutron detection positions .....	17
2-8	Arrangement of Y-ray and DN detectors .....	18
2-9	Y-ray collimator .....	19
2-10	Y-ray detector lifter .....	20
2-11	Neutron shielding and neutron moderator for DN counter .....	21
2-12	Inner neutron shielding for DN counter .....	22
2-13	Neutron moderator and outer neutron shielding for DN counter .....	22
2-14	Delayed neutron detection system diagram .....	23
3-1	The positions where neutron detection efficiency was measured in the Mock-up test .....	31
3-2	Mock-up test equipment .....	32
3-3	Photograph of the Mock-up test equipment .....	33
3-4	Detection efficiency at the DND-1 delayed neutron detector from the delay line piping .....	34
3-5	Detection efficiency at the DND-2 delayed neutron detector from the delay line piping .....	35

3-6	Detection efficiency at each delayed neutron detector from the various part of FPL-II loop piping (from O1 to V0) .....	36
3-7	Detection efficiency at DND-1 delayed neutron detector from the whole part of FPL-II loop piping .....	37
3-8	Detection efficiency at DND-2 delayed neutron detector from the whole part of FPL-II loop piping .....	38
3-9	Delayed neutron detectors calibration test results performed before each irradiation test ....	39
4-1	FPL-II operation sequence .....	47
4-2	Experimental condition for each experiment .....	48
5-1	Gamma ray spectra (Na temp. 500°C, Na flow velocity 1.2 m/sec) .....	89
5-2	<sup>142</sup> Ba and <sup>142</sup> La deposition distribution along the delay line calculated by using analytical model .....	90
5-3	<sup>94</sup> Sr distribution along the delay line .....	91
5-4	<sup>92</sup> Sr deposition distribution along the delay line .....	95
5-5	<sup>93</sup> Sr distribution along the delay line .....	98
5-6	<sup>91</sup> Sr deposition distribution along the delay line .....	102
5-7	<sup>92</sup> Y deposition distribution along the delay line .....	104
5-8	<sup>94</sup> Y distribution along the delay line .....	107
5-9	<sup>97</sup> Zr deposition distribution along the delay line .....	110

5-10	$^{97}\text{Nb}$ distribution along the delay line .....	113
5-11	$^{142}\text{Ba}$ distribution along the delay line .....	116
5-12	$^{142}\text{La}$ deposition distribution along the delay line .....	118
5-13	$^{144}\text{La}$ distribution along the delay line .....	121
5-14	Relationship between Sr deposition rate constant and reciprocal temperature .....	123
5-15	Comparison between Sr deposition rate constant and mass transfer coefficients .....	124
5-16	Relationship between Y deposition rate constant and reciprocal temperature obtained by using $^{97}\text{Zr}$ deposition distribution pattern .....	125
5-17	Relationship between Zr deposition rate constant and reciprocal temperature obtained by using $^{97}\text{Zr}$ deposition distribution pattern .....	126
5-18	Relationship between Ba deposition rate constant and reciprocal temperature obtained by using $^{142}\text{Ba}$ and $^{142}\text{La}$ deposition distribution pattern ...	127
6-1	Fission chain (1) .....	141
6-2	Fission chain (2) .....	142
6-3	Distribution for $^{86}\text{Ba}$ concentration in sodium along the delay line .....	143
6-4	Distribution for $^{88}\text{Br}$ concentration in sodium along the delay line .....	143
6-5	Distribution for $^{89}\text{Rb}$ concentration in sodium along the delay line .....	144
6-6	Distribution for $^{90}\text{Kr}$ concentration in sodium along the delay line .....	144

6-7	Distribution for $^{136m}\text{I}$ concentration in sodium along the delay line .....	145
6-8	Distribution for $^{139}\text{Xe}$ concentration in sodium along the delay line .....	145
6-9	Distribution for $^{140}\text{Xe}$ concentration in sodium along the delay line .....	146
6-10	$^{134}\text{Te}$ distribution along the delay line .....	146
6-11	Fission product release fraction for each FP nuclide .....	147
6-12	Release fraction and fission fragment range in $\text{UO}_2$ as a function of mass .....	148
6-13	Fission fragment range in $\text{UO}_2$ as a function of mass .....	149
6-14	k factor as a function of decay constant .....	150
6-15	k factor as a function of mass .....	151
7-1	Delayed neutron count rate vs. sodium temperature (Sodium flow rate 5 $\ell/\text{min}$ , Data from Exp. No.3 to 13) .....	170
7-2	Relationship between delayed neutron count rate and TTR power .....	171
7-3	Delayed neutron count rate during flow stop test...	172
7-4	Delayed neutron count rate after TTR test scram ...	175
7-5	Delayed neutron count rate during sodium drain before TTR shut down .....	179
7-6	Delayed neutron count rate vs. flow rate for both detectors .....	180

7-7	Delayed neutron count rate and calculated value by using analytical model for both detectors during flow stop test (Exp. No. 13) .....	181
7-8	Delayed neutron count rate and calculated value by using analytical model for both detectors after TTR test scram (Exp. No. 13) .....	182

## 1. 緒 言

高速増殖炉（FBR）において万一燃料が破損した場合は、燃料ビン中に蓄積されていた核分裂生成物（FP）が一次冷却材であるナトリウム中に放出され、流動ナトリウムとともに、一次冷却系内を循環し、配管や機器内壁に沈着する。これらFPのうち、Zr, Ru, La, Ce等の不揮発性FPは、ステンレス内壁表面に沈着し易く、かつ半減期の長いものが多いために一次冷却系内に蓄積し、炉の保守点検時の作業員の被曝量を増大させる可能性がある。実験炉であるBOR-60（ソ連）では、 $^{95}\text{Zr}/^{95}\text{Nb}$ ,  $^{140}\text{Ba}/^{140}\text{La}$ 等の一次系内の放射能レベルは、放射性腐食生成物（CP）である $^{54}\text{Mn}$ のそれと同程度であると報告されている<sup>2)</sup>。しかしこれまでに不揮発性FPの沈着挙動を定量的に解析した例はほとんどない<sup>3)</sup>。そこで当社は、昭和56年に東芝教育訓練用原子炉（TTR）に炉内核分裂生成物挙動試験ループ（FPL-II）を製作して組み込み、昭和57年度より、主に不揮発性FPの沈着挙動の研究のための照射試験を開始した<sup>1)</sup>。そして前年度に引き続き、本年度も主に不揮発性FPの沈着挙動を測定するための照射試験と、沈着挙動の解析研究を継続した。

FPL-IIには、20%濃縮二酸化ウランが照射試料として装荷され、その中性子照射によるrecoilによってナトリウム中に放出されたFPが、流動ナトリウムとともにループ内を移行する。FPL-IIには、長さ25m、1/4 B sch 40（内径9.4mm）のステンレス製配管でできたディレイラインが設けられており、照射試料から移行してきた不揮発性FPが、このディレイライン配管内を通過する間に配管の内壁に沈着する。そこで内壁に沈着した不揮発性FPの放射能を、ディレイラインに沿ってγ線検出器で測定することにより、ディレイライン上のFP沈着分布を求めることができる。

本年度は、TTR 100 kW、4時間を照射1サイクルとする12回の照射試験を実施した。昭和57年度では、主にナトリウム温度と流速をパラメーターとする照射試験を実施したが、本年度は、低温度ナトリウムにおける不揮発性FP沈着挙動の温度依存性試験、照射中にナトリウム流動を停止しておき照射終了の1時間後にナトリウムの流動を再開することで、FPディケイチェーンの先行核種の影響を除いた試験、ディレイライン配管上の予熱ヒーターをOFFとして同配管上に温度勾配をつけてFPの沈着挙動を測定する試験、高酸素濃度ナトリウム中でのFP沈着挙動試験を主な試験項目として実施した。γ線の測定は、照射中、照射後、ナトリウムドレン後にそれぞれ計測点を変えて実施した。今回は、特に昭和57年度に実施した試験結果を基に、不揮発性FPのディレイライン配管中での沈着分布を求めるとと



もに、この沈着分布より、M. H. Cooperらがナトリウム中のCPの輸送沈着挙動の解析に用いたモデル<sup>4)</sup>を用いて沈着挙動の解析を行い、各FP核種の沈着速度定数を温度及び流速の関数として求めた。

FPL-Ⅱの $\gamma$ 線測定では、Br, Kr, Te, I, Xe等の揮発性FPのピークも多数検出されるが、これらのFPは高温ナトリウム中におけるループ配管壁面への吸着が非常に小さいことが知られている<sup>5)</sup>。そこで、これら揮発性FPの $\gamma$ 線計数值から、FPの照射試料表面からナトリウム中への放出率の算出を行い、更に得られた放出率の値から、FBR破損燃料検出系の感度評価で必要となるk factor (recoilモデルで算出される放出量と実際の放出量の比)を算出した。

遅発中性子(DN)放出核種のナトリウム中移行挙動は、前述したk factor値とともに、FBR破損燃料検出系の性能評価にとって重要である。そこでFPL-Ⅱのディレイライン上の2箇所<sup>6)</sup>に中性子検出器を設置し、昭和57年度と同様に本年度もFPL-Ⅱの定常運転時、ナトリウム流量変更時、流量停止時、TTR出力降下(テストスクラム)時のそれぞれにおけるDNを測定し、ナトリウム中でのDN放出核種の移行挙動も調べ、また、その計数值から、k factorの算出も行った。

## 2. 炉内核分裂生成物挙動試験ループ (FPL-II)

### 2.1 ループの概要

FPL-II の詳細はすでに報告したので、<sup>1)</sup>ここでは概要を述べるにとどめる。

#### 2.1.1 構成要素

炉内核分裂生成物挙動試験ループ (Inpile Fission Product Behavior Test Loop - 略して FPL-II) は、20%濃縮二酸化ウラン 100 g を内蔵するインパイルプラグを東芝教育訓練用原子炉 (TTR) の水平放射孔に設置した、ナトリウム量 4.8 kg のインパイルループで、インパイルプラグ、ナトリウム系、アルゴンガス系、計測制御系等の要素から構成されている。Fig 2-1 に FPL-II の構成概念図を示す。

インパイルプラグは核分裂生成物 (FP) の生成を目的とし、またナトリウム系はナトリウムの貯蔵、循環、純化を行う系統で、インパイルプラグとナトリウム系とでナトリウムループを形成している。

#### 2.1.2 ナトリウムループ部

Fig 2-2 に FPL-II のフローシートを、Fig 2-3 にナトリウム系の写真を示す。また Table 2-1 には FPL-II の主な仕様を示す。

インパイルプラグはナトリウムが流動するウランカプセルおよびナトリウム管とその外側の三重管から成る四重構造で、全長約 4 m である。ナトリウム管先端のウランカプセル内には、照射試料 (20%濃縮二酸化ウラン) がナトリウムと直接接触できるように金網製のバスケットに充填されて収納されている。この照射試料が TTR の熱中性子を受けて FP を生成し、生成の際 FP の一部が反跳現象によりナトリウム中へ放出される。Table 2-2 に照射試料の仕様を示す。また、照射試料の外観写真を Fig 2-4 に、ウランカプセルを Fig 2-5 に示す。

ナトリウム系は、インパイルプラグに接続されている純化系と実験系から形成されている。純化系でコールドトラップ温度 120°C までに純化されたナトリウムが実験系に充填される。実験系には、全長約 25 m のディレイライン配管 (外径 13.8 mm, 肉厚 2.2 mm) が設けられており、電磁ポンプによるナトリウムの流動でインパイルプラグから輸送された FP が沈着する。このディレイラインは沈着した FP から放射される  $\gamma$  線の計測が確実かつ容易にできるように格納容器内壁に沿ってらせん状に引き

廻されている。またインパイルプラグをバイパスしてナトリウムが循環できるようにバイパスラインが設けられている。

## 2.2 放射線計測装置の概要

### 2.2.1 $\gamma$ 線計測装置及び計測方法

#### 1) $\gamma$ 線計測システム

ループ配管の $\gamma$ 線は、Princeton Gamma Tech (PGT)社製とCANBERRA社製の高純度Ge半導体検出器により測定した。計測システム図をFig 2-6に示す。 $\gamma$ 線検出器からの出力は、プリアンプ、メインアンプで増幅及び波形整形を受けた後に、波高分析器によるスペクトル解析が行われる。測定されたスペクトルは、フロッピーディスク装置により磁気ディスクに記憶した。また光電ピーク等の解析結果をプリンターに出力し、また、 $\gamma$ 線スペクトルをX-Yプロッターに出力させることができる。各測定器の仕様をTable 2-3に示す。

本試験の $\gamma$ 線測定は、ループ配管に沿った2箇所で行った。本試験で用いた波高分析器は8Kのメモリーをもっており、これを4Kずつに分けて2台の検出器からの出力を各々のメモリーに入力することで、同時に2つの $\gamma$ 線スペクトルを記録した。

#### 2) $\gamma$ 線計測点

FPのナトリウム中での沈着挙動を調べるために、長さ約25mのディレイライン(1/4 B sch 40配管)上ほぼ等間隔に、11箇所の $\gamma$ 線計測点を設けた。計測点の位置(D-1~D-11)をFig 2-7に、またウランカプセル部を基点とした、各計測点までの距離とナトリウムの体積、及びナトリウムと接する配管内表面積等の値をTable 2-4に示す。 $\gamma$ 線の測定は、厚さ14cmの炭素鋼の遮蔽体の外側からFig 2-8に示す要領で遮蔽体に設置したコリメーターを通して行った。

#### 3) コリメーター

Fig 2-8に示すように、 $\gamma$ 線検出器の中心軸は、コリメーターを通してディレイライン配管と一致する必要がある。しかし、ループ本体と炭素鋼遮蔽体は異なる基礎の上に乗っており、またループ建設時の種々の較差もあるために、設計段階でコリメーター位置を正確に決めることはできない。そこで垂直方向に10cm移動可能な構造とす

るため、炭素鋼遮蔽体に10cm×25cmの長円形の穴をあけ、これにコリメーターを設置した。コリメーターの概要図をFig 2-9に示す。鉛のコリメーターにあけられた穴は、64mm×20mmのスリットである。コリメーターと配管の位置合せは、<sup>24</sup>Naのγ線を用いて最適位置を決めた後に、表ブタをボルトで遮蔽体に固定した。遮蔽体穴とコリメーターの間の空間部分には、粒状鉛を充填した。粒状鉛の充填率は約60%で、その遮蔽効果は、炭素鋼の遮蔽効果にほぼ等しい。

#### 4) 鉛遮蔽体

γ線計測の対象となるディレイライン配管内のFPは、その沈着挙動を正確に把握するため、配管背後に位置するループ配管機器からのγ線を遮蔽する必要がある。γ線計測で特に大きな妨害を与えるのはナトリウムインベントリーの大きい電磁ポンプであるが、背後に位置するディレイラインもその長さが長いので妨害はかなり大きい。そこで計測点配管の背後に鉛遮蔽体を設置することでこれらのγ線を遮蔽した。電磁ポンプからのγ線の遮蔽には厚さ5cm、大きさ25cm×20cmの鉛板を、ディレイラインからのγ線の遮蔽には、厚さ2cm、大きさ50cm×15cmの鉛板を用いた。この鉛遮蔽体を設置することで、配管背後からのγ線の量はどの計測点においても目的のγ線強度の5%以下に押えられた。

#### 5) γ線検出器駆動装置

γ線検出器は、液体窒素 Dewar と検出器ヘッドにかぶせてある鉛のシールドを含め、約35kgの重量があるが、この検出器を目的の計測点まで短時間で移動できるようにするため、Fig 2-10に示した手動式の駆動装置を製作した。

### 2.2.2 遅発中性子検出装置

FPL-IIには、ヨウ素、臭素等から放出される遅発中性子の検出装置が2台設置されている。設置箇所はディレイライン上の、ウランカプセルからの距離700cm (DND-1)と2848cm (DND-2)の位置で、検出器周囲にはFig 2-11に示すような中性子遮蔽体と中性子モデレーターが設置されている。Fig 2-12に内部中性子遮蔽体の、Fig 2-13には中性子デモレーターと外部中性子遮蔽体の設置状態を示す。

遅発中性子の検出は、格納容器の外側に設置した中性子デモレーター内に設けた検出器孔に $^3\text{He}$ 比例計数管を挿入して行った。その測定系統図をFig 2-14に示す。 $^3\text{He}$ 比例計数管からの出力パルスは、プリアンプ、リニアアンプで増幅及び波形整形され、シングルチャンネル波高分析器でノイズレベルのパルスが除去され、ノイズレベル以上の波高のパルスがリニアレトメーターとプリセットスケーラー・タイマーで計数される。リニアレトメーターの出力は2ペンレコーダーに記録される。プリセットスケーラー・タイマーでは、DND-1とDND-2の出力パルスが交互に計数され、プリントアウトされる。さらにDND-1の出力パルスは必要に応じて4Kのメモリーをもつマルチチャンネルスケーラーにより計数され、プリントアウトができる。遅発中性子検出装置の各モジュールの仕様をTable 2-5に示す。

Table 2 - 1 Main specifications of Inpile Fission Product Behavior  
Test Loop ( FPL - II )

Sodium Inventory	4.8kg
Main Structural Materials	SUS 304
Main Pipe	1/4 B Sch 40 ( Outer diameter 13.8 mm Thickness 2.2 mm
Maximum Temperature	
Inpile Plug	550°C
Experimental Loop System	600°C
Purification Loop System	350°C
Maximum Sodium Flow Rate	5 l/min
Cover Gas	Argon
Cover Gas Pressure	-1 ~ 1.9kg/cm <sup>2</sup> G
Container Size	2.6 m <sup>W</sup> × 2 m <sup>L</sup> × 2.5 m <sup>H</sup>

Table 2 - 2 Irradiation samples specifications

Irradiation Samples	UO <sub>2</sub>
Enrichment	20%
Total Weight	100 g
Size	0.5 ~ 0.6 mm $\phi$ granular

Table 2 - 3 Components of  $\gamma$ -ray detection system module

Module	Model
Detector-1	PGT. Pure Ge Detection Efficiency 10%
High Voltage Power Supply-1	CANBERRA Model 3105
High Voltage Buffer-1	NAIG Model D-133S
Pre Amplifier-1	PGT
Main Amplifier-1	CANBERRA Model 2010
BIN-1	NAIG Model D-101A
Detector-2	CANBERRA Pure Ge Detection Efficiency 10%
High Voltage Power Supply-2	CANBERRA Model 3105
High Voltage Buffer-2	NAIG Model D-133
Pre Amplifier	CANBERRA
Main Amplifier	CANBERRA Model 1413
BIN-2	ORTEC Model 401A
Peak Hight Analyzer	CANBERRA Series 80
Floppy Disk	CANBERRA Model 8662
Printer	TI Silent 700 Model 745
X-Y Plotter	YHP 7004B

Table 2 - 4 Length, sodium volume and surface area between detector positions and FPL-II main loop

	Length (cm)		Volume (cm <sup>3</sup> )		Surface area (cm <sup>2</sup> )	
		cumulative		cumulative		cumulative
Uranium Capsule	10	10	30	30	306	306
Uranium Capsule~VA-3	440	450	298	328	1298	1604
VA-3	14	464	7	335	36	1640
VA-3~D-1	30	494	21	356	89	1729
D-1~D-2	133	627	92	448	393	2122
D-2~DND-1	73	700	51	499	215	2337
DND-1~D-3	190	890	131	630	561	2898
D-3~D-4	403	1293	280	910	1189	4087
D-4~D-5	338	1631	234	1144	998	5085
D-5~D-6	403	2034	280	1424	1189	6274
D-6~D-7	338	2372	234	1658	998	7272
D-7~D-8	403	2775	280	1938	1189	8461
D-8~DND-2	73	2848	51	1989	215	8676
DND-2~D-9	185	3033	128	2117	547	9223
D-9~EMP-1	160	3193	111	2228	472	9695
EMP-1	79	3272	862	3090	2457	12152
VA-4	14	3286	7	3097	36	12188
VA-4~D-10	143	3429	99	3196	422	12610
D-10~H-1	104	3533	72	3268	307	12917
H-1	100	3633	185	3453	478	13395
H-1~D-11	187	3820	130	3583	552	13947
D-11~VA-2	131	3951	91	3674	387	14334
VA-2	14	3965	7	3681	36	14370
VA-2~Uranium Capsule	440	4405	298	3979	1298	15668
A~VA-5	40	40	28	28	118	118
VA-5	14	54	7	35	36	154
VA-5~B	209	263	145	180	617	771
E T	—		480~1500		364~899	



Table 2 - 5 Components of delayed neutron detection system module

Module	Model
$^3\text{He}$ Proportional Counter	LND Type 2521 Resolution FWHM 10% Power Supply 2,500V
Pre Amplifier	OSAKA DENPA Model PA-5PC
High Voltage Power Supply	ORTEC Model 459
Linear Amplifier	OSAKA DENPA Model MPS-1221A
Single Channel Peak Hight Analyzer	OSAKA DENPA Model MPS-1233
Linear Rate Meter	ORTEC Model 449 (DND-1) OSAKA DENPA Model MPS-1252A (DND-2)
Pre Amplifier Power Supply	OSAKA DENPA Model PS-5D
Recorder	YOKOGAWA
Preset Scalor Timer	OSAKA DENPA Model PST-11
Multichannel Scalor	NAIG Process Memory D-172 " Readout Controller D-167 " CRT Display CRT-2 HP Digital Recorder HP-5055A

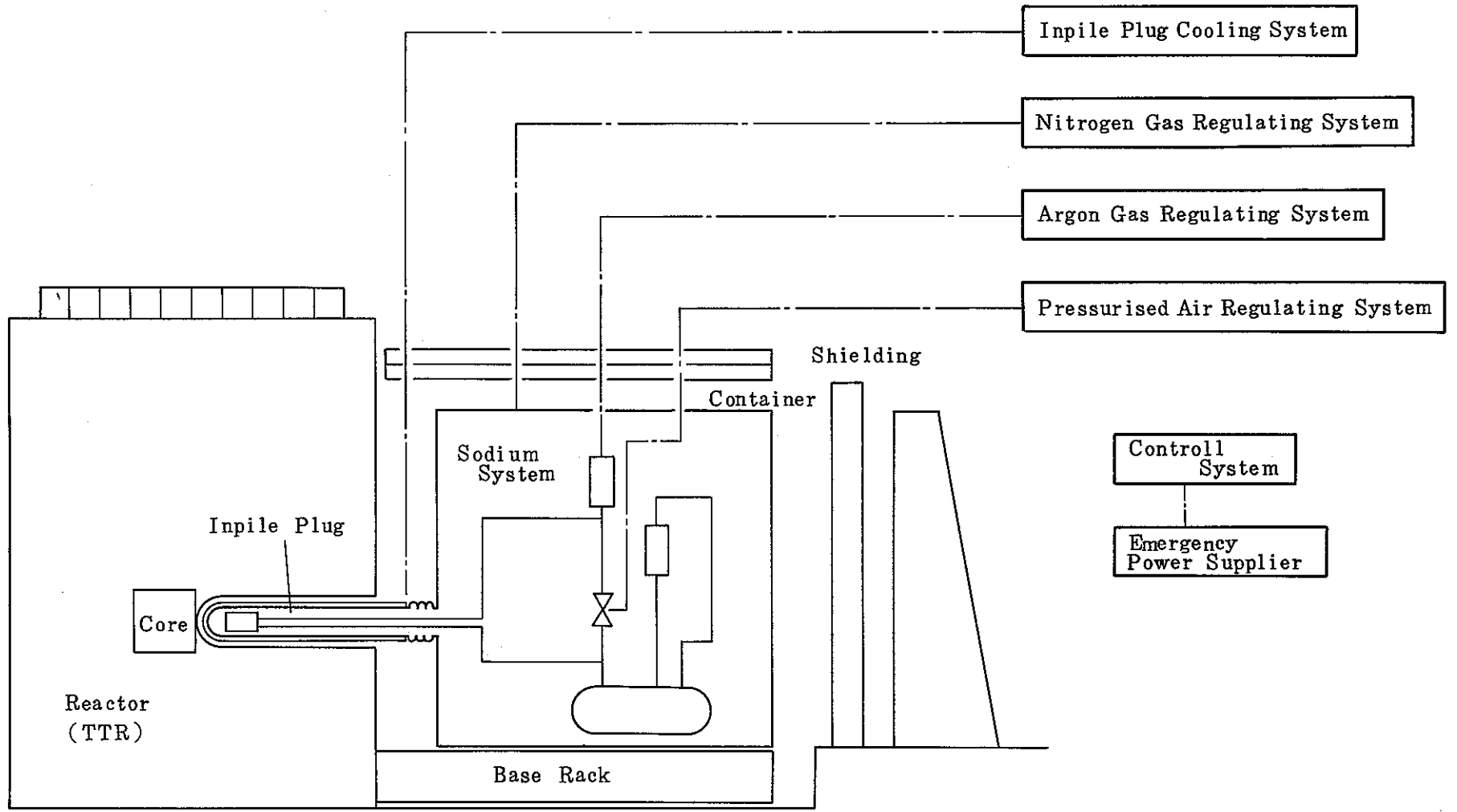
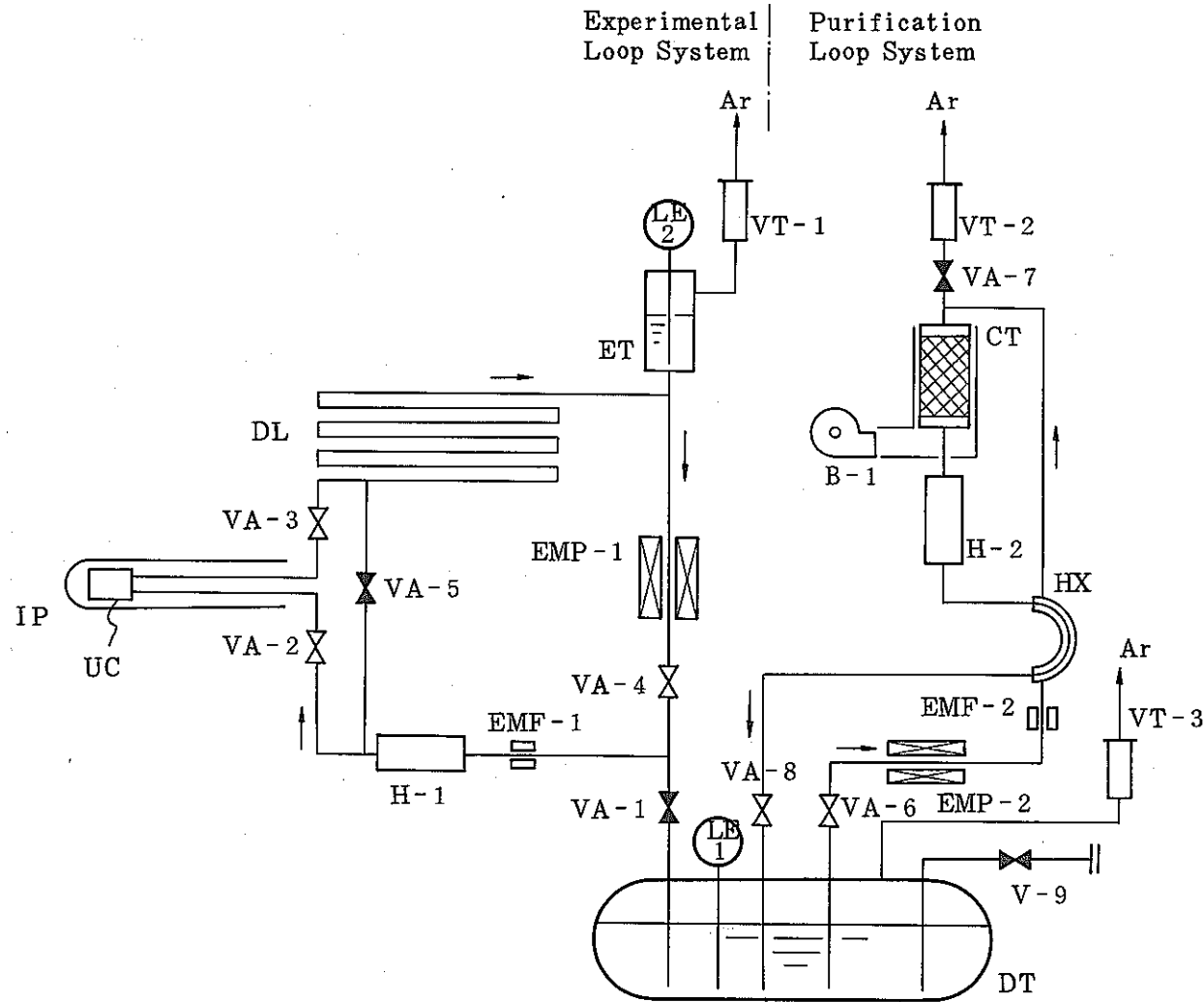


Fig 2 - 1 Inpile Fission Product Behavior Test Loop (FPL-II) diagram



Symbol	Component
DT	Dump Tank
ET	Expansion Tank
CT	Cold Trap
H	Heater
HX	Economizer
EMP	Electro-magnetic Pump
EMF	Electro-magnetic Flow Meter
VT	Vapor Trap
IP	Inpile Plug
VA	Na Valve (Air Drive)
V	Na Valve (Manual)
B	Blower
LE	Induced Type Level Meter
DL	Delay Line
UC	Uranium Capsule

Fig 2 - 2 Inpile Fission Product Behavior Test Loop (FPL-II) flow diagram

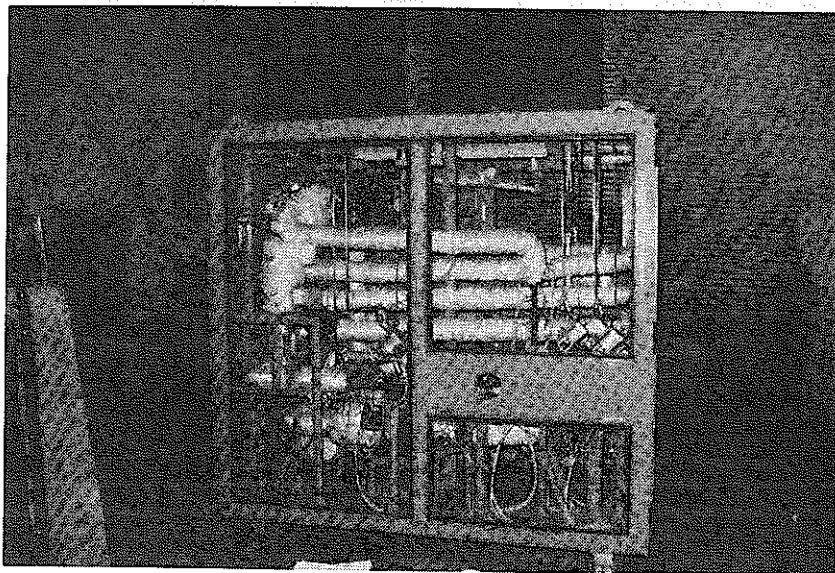


Fig 2 - 3 Inpile Fission Product Behavior  
Test Loop

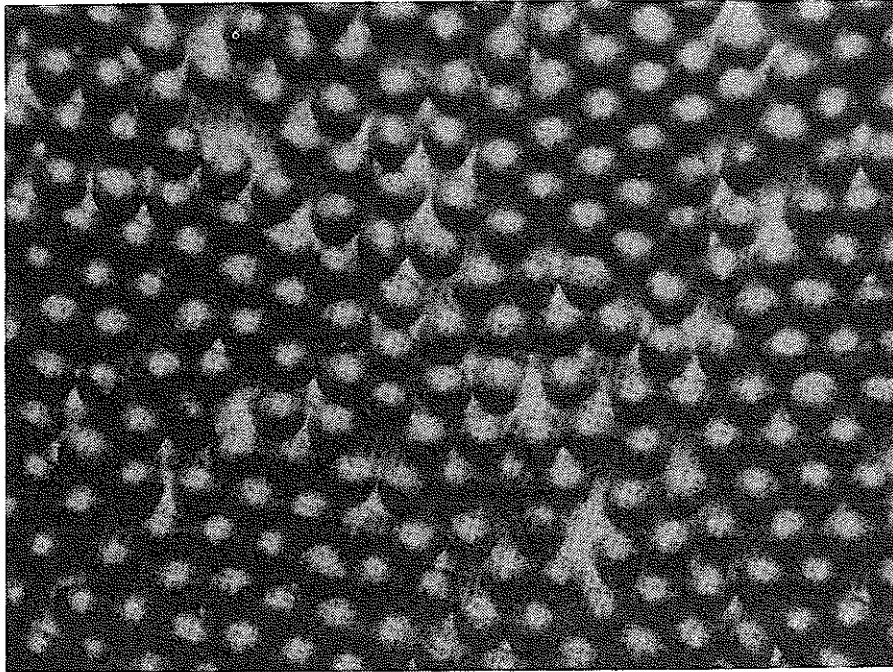


Fig 2 - 4 Uranium dioxide irradiation samples

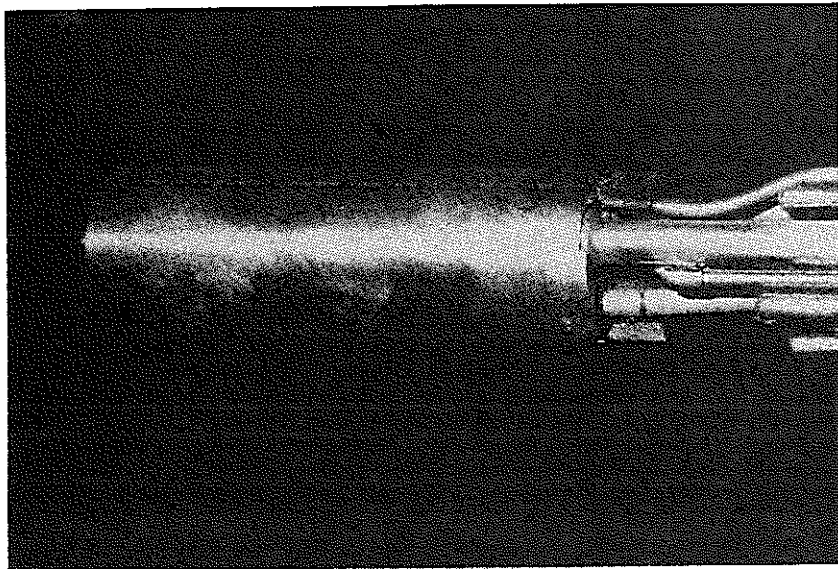


Fig 2 - 5 Uranium Capsule

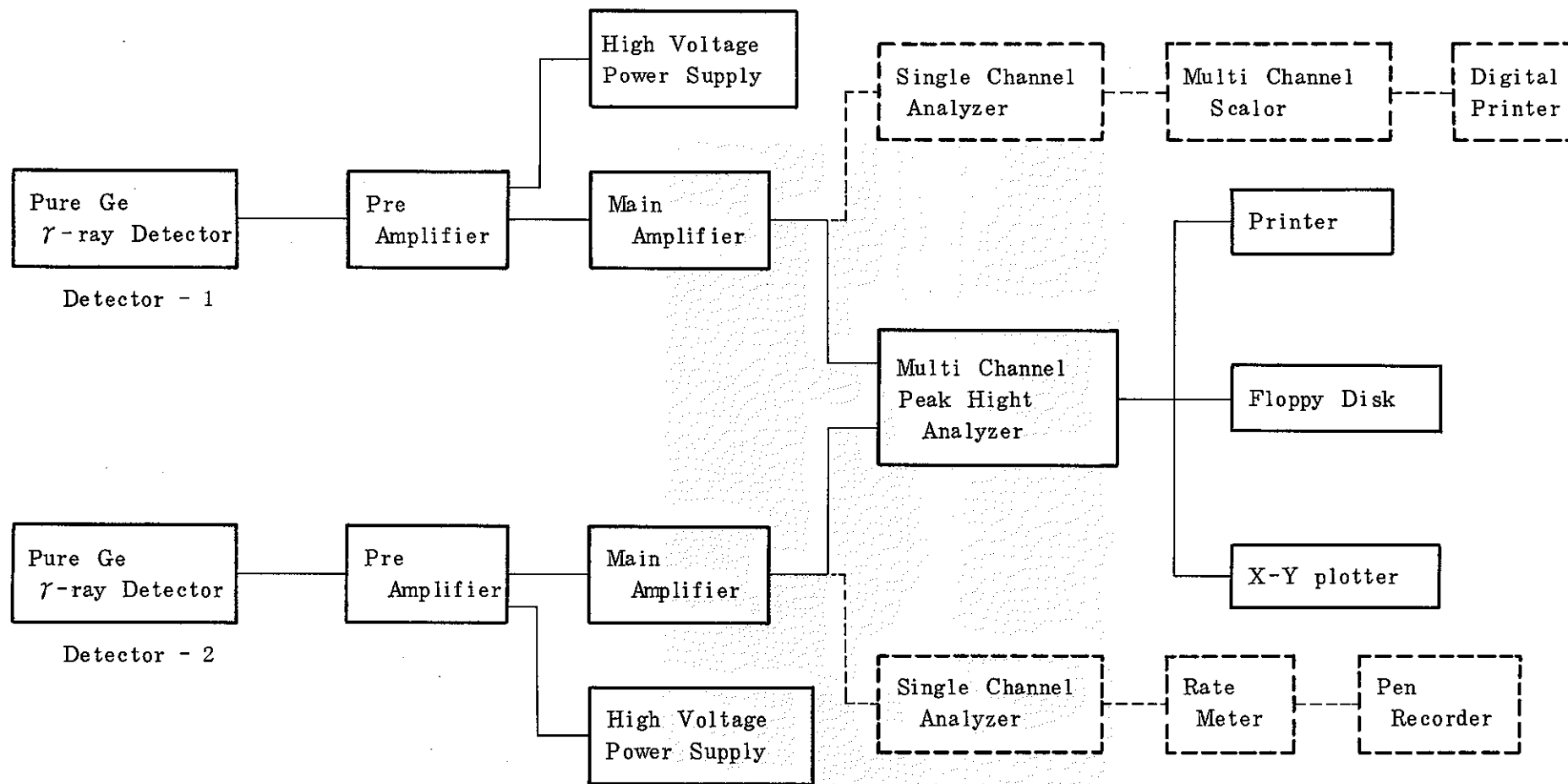
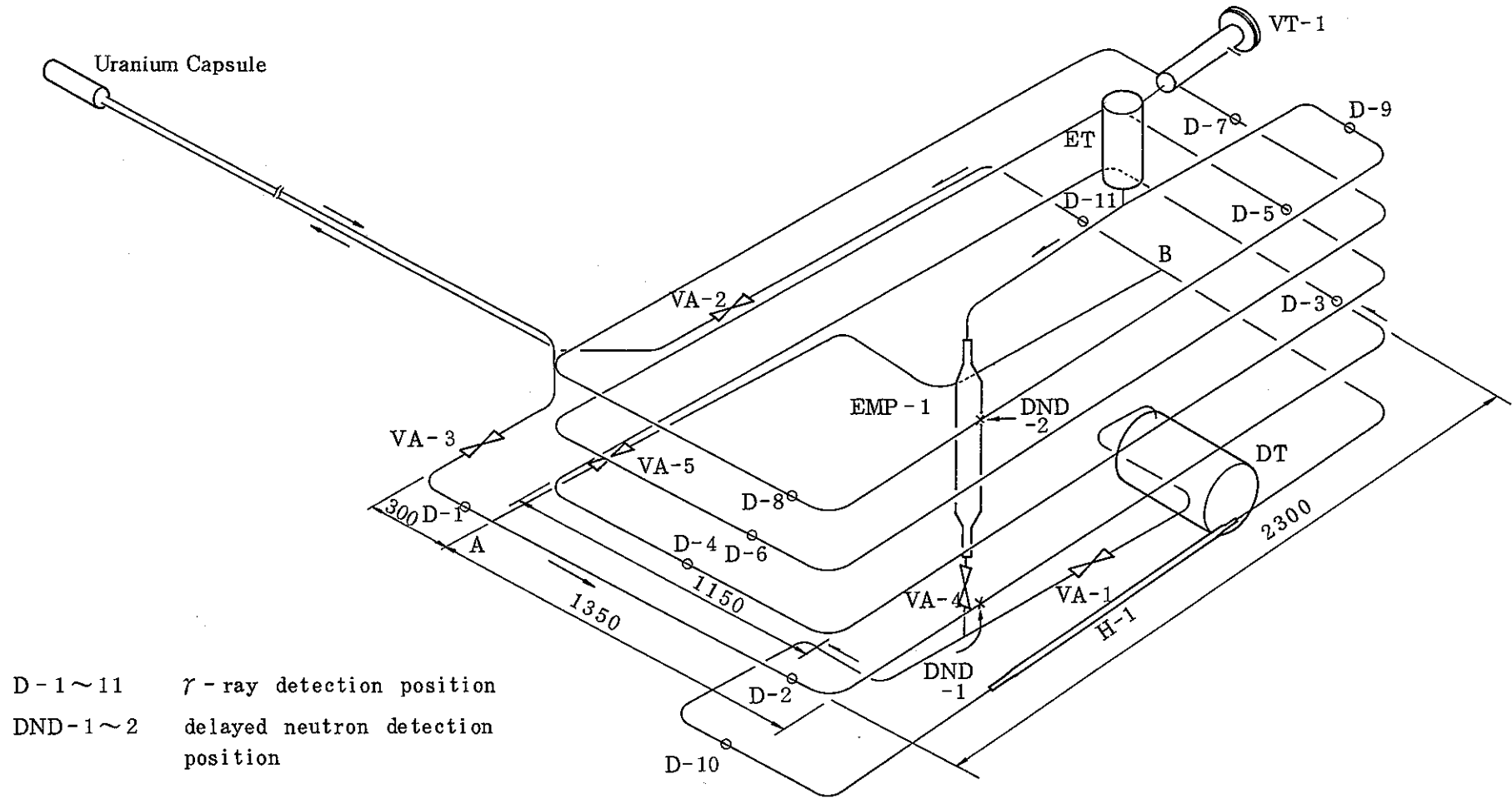


Fig 2 - 6  $\gamma$ -ray detection system diagram



D-1~11      $\gamma$ -ray detection position  
DND-1~2    delayed neutron detection position

Fig 2 - 7     $\gamma$ -ray detection positions and delayed neutron detection positions



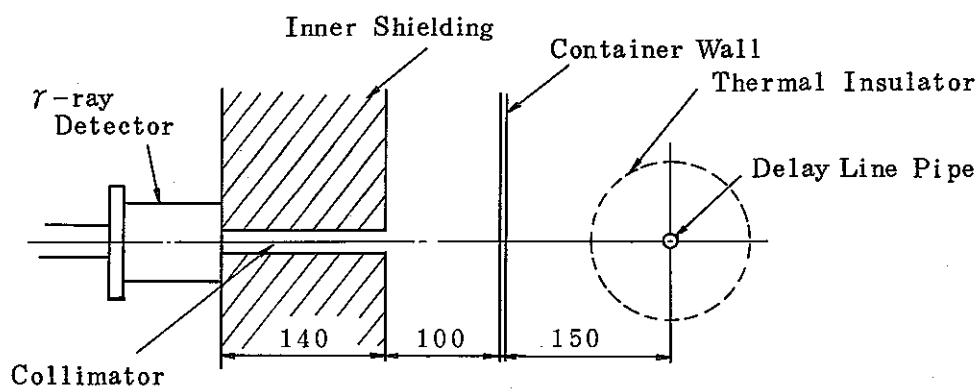
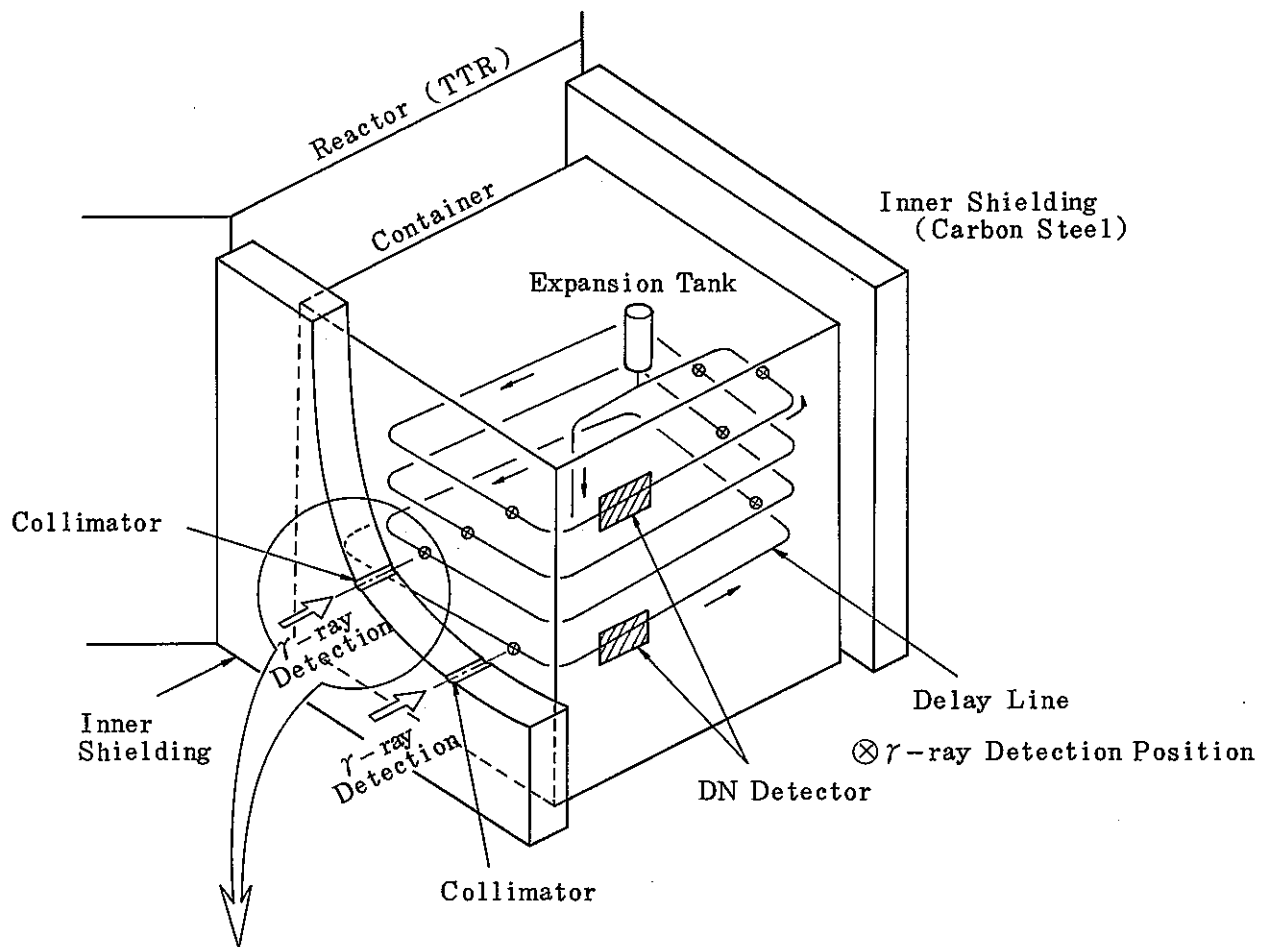


Fig 2 - 8 Arrangement of  $\gamma$ -ray and DN detectors

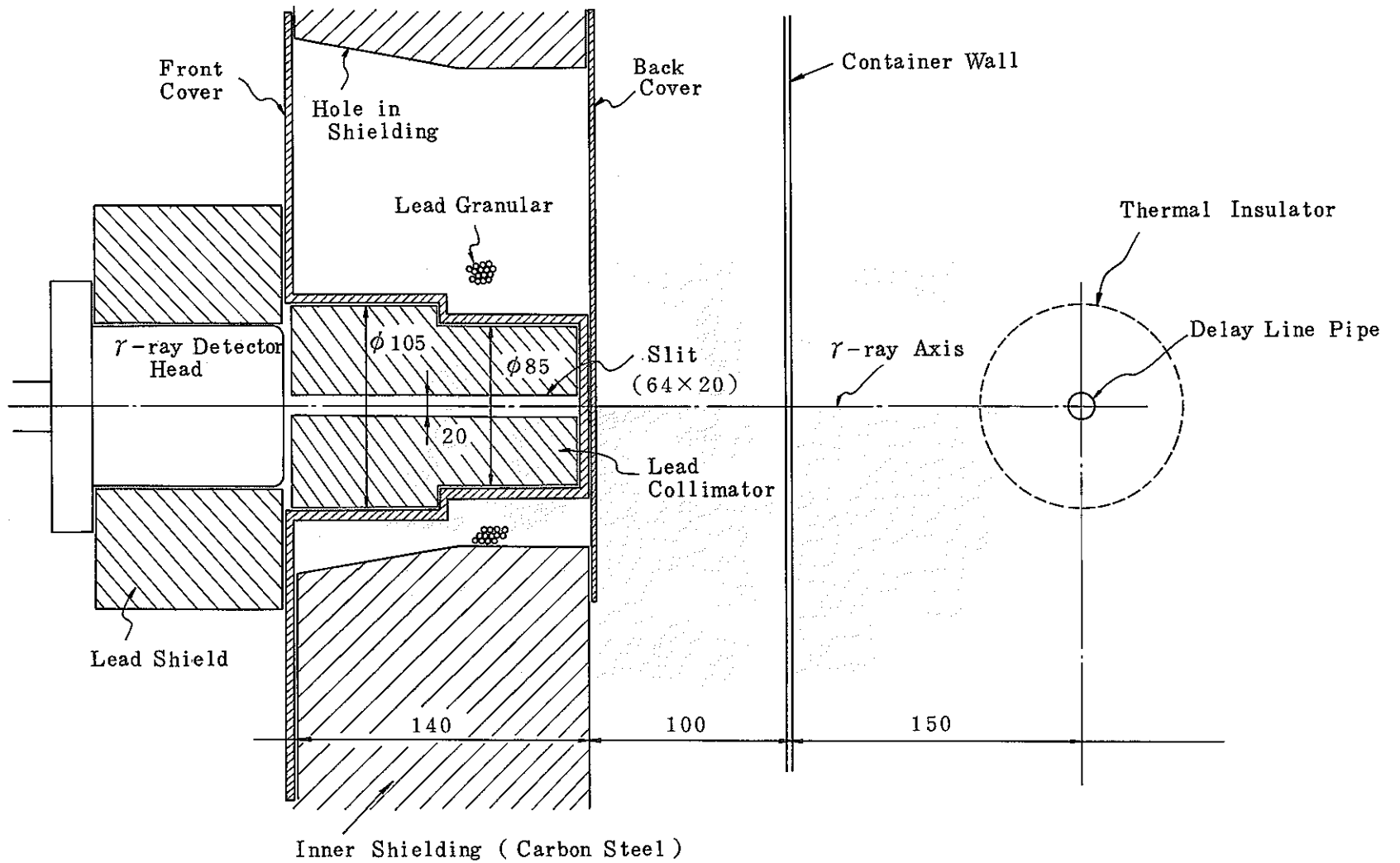


Fig 2 - 9  $\gamma$ -ray collimator

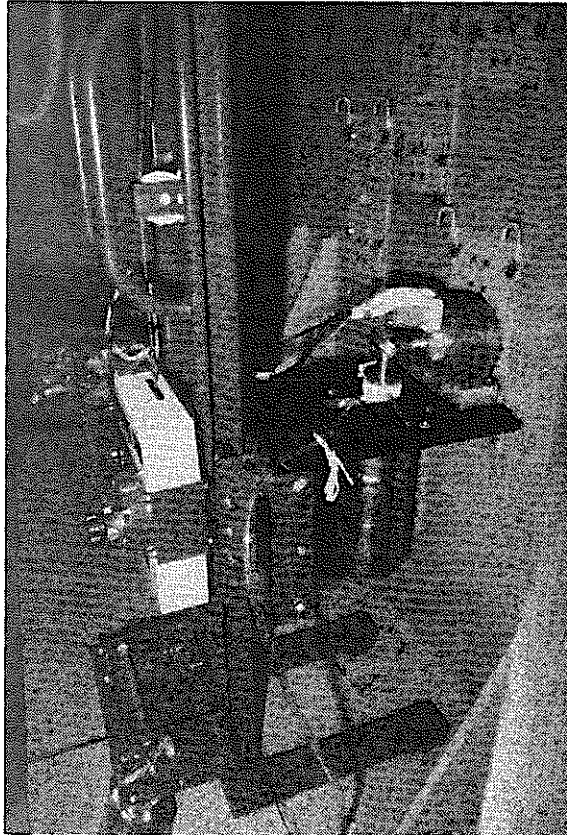


Fig 2 - 10  $\gamma$ -ray detector lifter

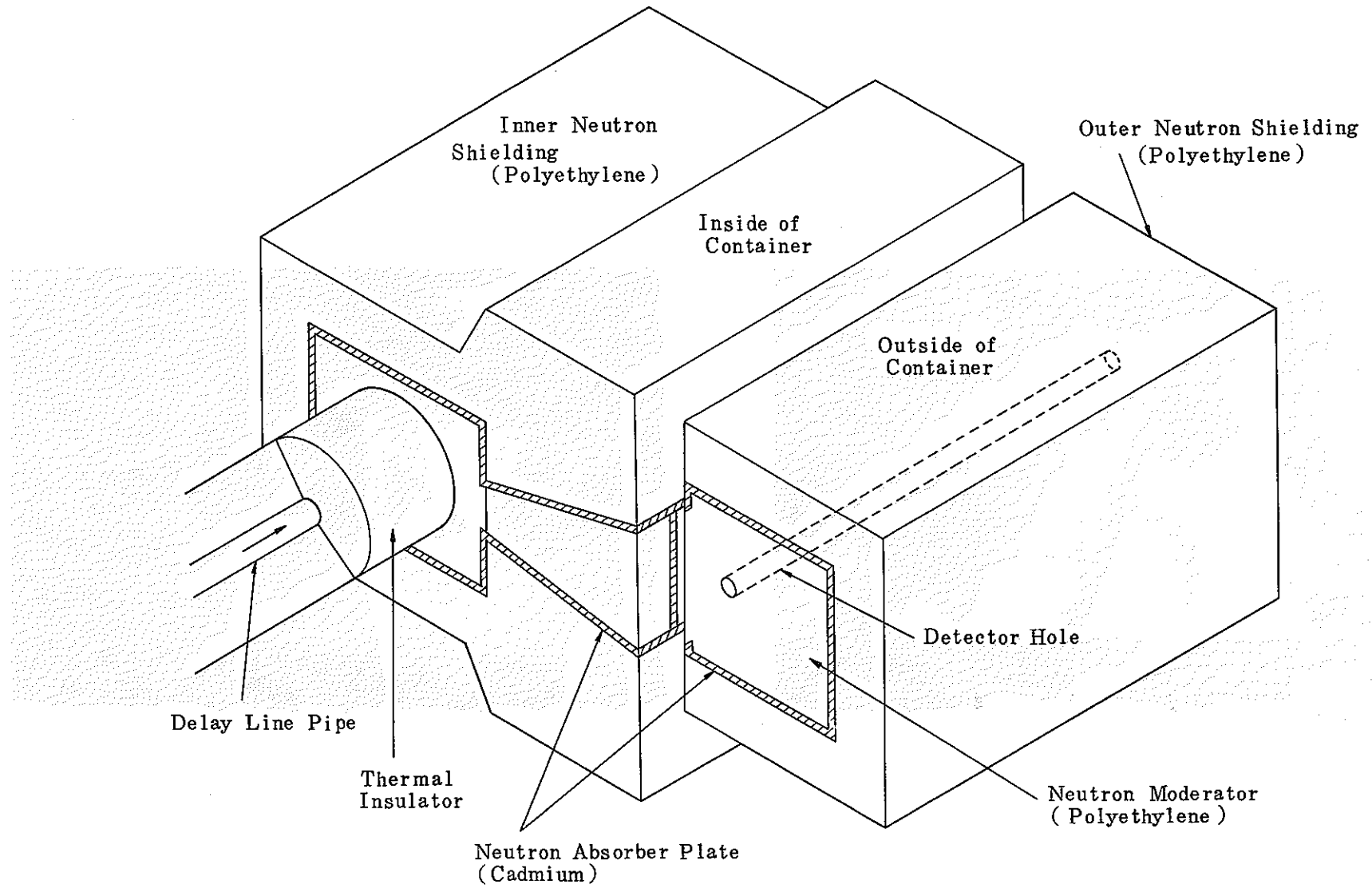


Fig 2 - 11 Neutron shielding and neutron moderator for DN counter

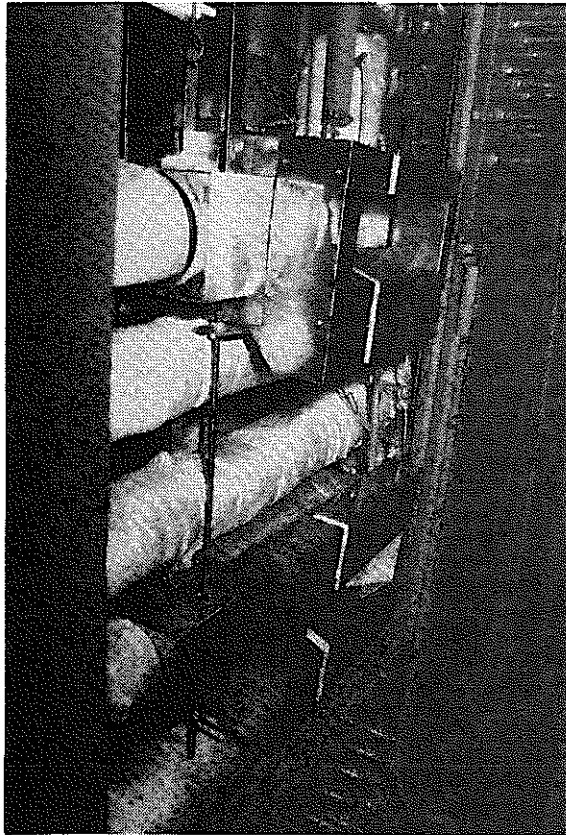


Fig 2 - 12 Inner neutron shielding

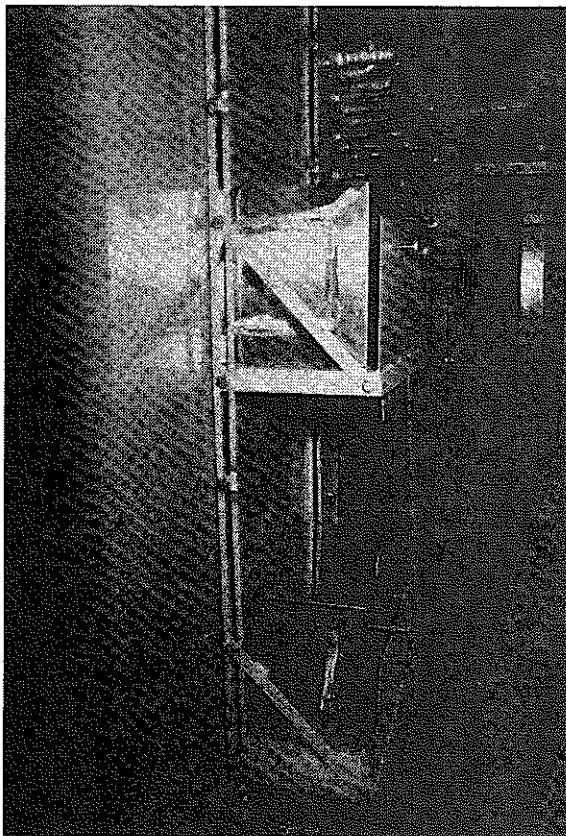


Fig 2 - 13 Neutron moderator and outer neutron shielding

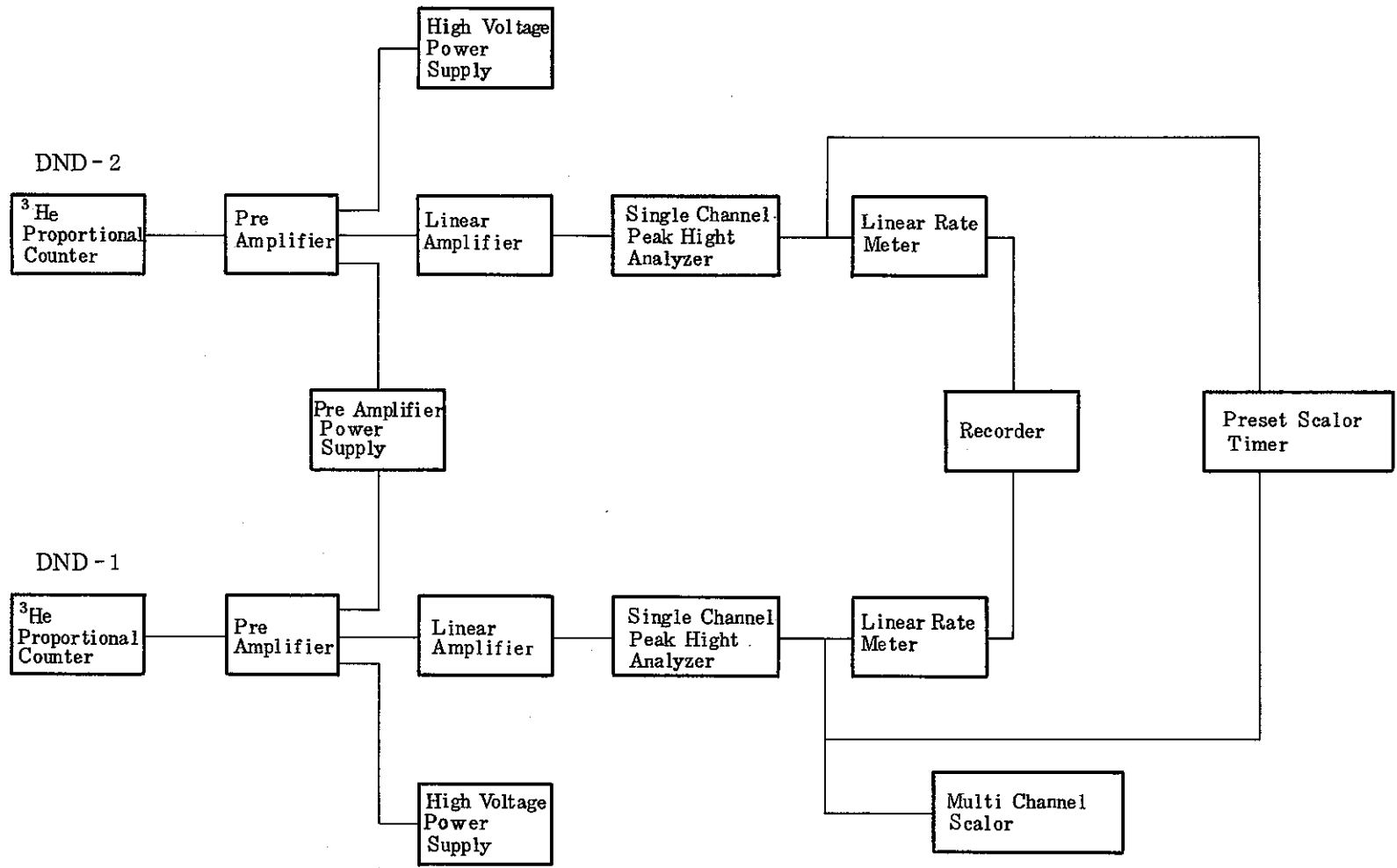


Fig 2 - 14 Delayed neutron detection system diagram

### 3. 予備試験

#### 3.1 モックアップ試験

DN検出装置は、Fig 2-11に示すように、ディレイライン配管の周囲の内部中性子遮蔽体と格納容器外側に設置された外部中性子遮蔽体及び中性子減速材（モデレーター）で構成されている。中性子遮蔽体のモデレーターは内部、外部遮蔽体ともに厚さ50mm（内部中性子遮蔽体では最も薄い部分の厚さ）のポリエチレン製で、熱中性子の吸収材には厚さ1mmのカドミウムが使用され、それらの全面がステンレス板で被覆されている。ただし、外部中性子遮蔽体と中性子モデレーターの内いずれもそれらの軸方向両端には、中性子遮蔽体がない。

ところで7章でも述べるように、本DN装置を用いて昭和57年度に実施した照射試験のDN測定データを解析した結果、ループに設置されている2台のDN検出器は、中性子に対する遮蔽が不十分で、各々の計測点（Fig 2-7のそれぞれDND-1及びDND-2に対応する）以外の場所からのDNをも計測しており、特に計測点の上下に位置するディレイライン配管からの影響が大きいことがわかった。そこで、FPL-IIのディレイライン配管部のモックアップ試験装置を製作し、Am-Be中性子源を用いて、計測点及びその上下配管に対するDN検出装置の検出効率を定量的に求めるための試験（モックアップ試験）を行った。また計測点の上下配管以外のループ配管・機器に対する検出効率の測定は次のように行った。まず中性子源を、DN検出器に対して実際のループにおける検出器と検出効率を求めたいループ配管箇所との位置関係に等しくなるように設置した後、中性子の測定を行った。次にループに対応する別の位置に中性子源を移動させて中性子の測定を行い、以下順々にこれらの操作をくり返した。Fig 3-1に、検出効率の測定を実施したループ配管に対応する箇所を黒丸で示し、参考のためにループ配管を点線で示す。尚DL-A～DL-D及びEは、モックアップ試験装置を表わす。検出効率の測定を実施した箇所は、主にディレイライン上下配管及びコーナーに相当する部分と、電磁ポンプに相当する部分（ $T_1 \sim T_3$ ）である。

### 3.1.1 実 験

#### 1) 配管のモックアップ試験装置

Fig 3 - 2 に、使用した配管のモックアップ試験装置を、Fig 3 - 3 にその写真を示す。モックアップでは、配管に沿って検出装置の中心から前後 50 cm までの間に入射する中性子の検出ができるように配管の長さを 1.2 m とした。配管には FPL - II と同様に厚さ 50 mm の保温材 (ファイナフレックス) が取付られている。FPL - II の配管は外径 13.8 mm $\phi$ 、肉厚 2.2 mm であるが、モックアップの配管は外径 21.7 mm $\phi$ 、肉厚 2.8 mm で、これは中性子源の外径が 12.7 mm $\phi$  であるため、この中性子源を内部に挿入でき、かつ肉厚が FPL - II の配管に最も近い配管としたためである。検出装置 DND - 1 及び DND - 2 の内部中性子遮蔽体と外部中性子遮蔽体・中性子モデレーターは実際にループに取付けられているものを外して、これらを DND - 1 のものは Fig 3 - 2 に示すモックアップの配管 DL - A 上に、DND - 2 のものは同じく Fig 3 - 2 の配管 DL - D 上に設置した。FPL - II ループでは、内部中性子遮蔽体と外部中性子遮蔽体・モデレーターの間には格納容器壁 (材質 SS41, 厚さ 3.2 mm) があるが、モックアップではそれに相当する鉄板は設置しなかった。

#### 2) 中性子源

中性子源には次の仕様の Am - Be 線源を用いた。

放 射 能	332.6 mCi
中性子の収量	$7.47 \times 10^5$ n/sec
平均エネルギー	約 700 KeV
形 状	円柱形
寸 法	12.7 $\phi$ $\times$ 25.4 mm

#### 3) 検出効率の測定

配管のモックアップを用いた測定は最初に DND - 1 だけに  $^3\text{He}$  比例計数管をセットし、次のような手順で行った。まず配管 DL - A 内で Fig 3 - 2 に示した中性子源設置 Na 1 (検出装置中心より左へ 500 mm) の位置に中性子源の中心がくるように中性子源を挿入し、この状態で 30 秒間中性子の計測を行った。次からは、中性子源を 50 mm ずつ右へ移動させ各中性子源設置位置である Na 2 から Na 21 に中性子源を順次設定しそれぞれ 30 秒間中性子の計測を行った。その後、Fig 3 - 2 に示す他の配管



である DL-B~DL-D 及び E についても同様に行った。

次に DND-2 についても  $^3\text{He}$  比例計数管をセットし、DND-1 と同様な測定を行った。

引き続き、Fig 3-1 に示す O1~V0 までの合計 19 箇所に対する検出効率の測定を、次のような手順で行った。まず、O1~V0 までの各点に対応する位置に順次中性子源を設置した後、DND-1 及び DND-2 検出装置に交互に  $^3\text{He}$  計数管をセットしてそれぞれ 30 秒間中性子の計測を行った。

このようにして得られたカウント数を基に、検出効率を次式により算出した。

$$\text{検出効率 (Count/n)} = \frac{\text{カウント数 (Count)}}{\text{計測時間 (sec)} \times \text{中性子の収量 (n/sec)}}$$

### 3.1.2 実験の結果

Fig 3-4 に、配管モックアップを用いて得られた各配管 (DL-A~DL-D 及び E) に対する DND-1 の検出効率を、Fig 3-5 には、同上配管に対する DND-2 の検出効率を示す。

Fig 3-4, 3-5 にみられるように、計測点及びその上下配管に対する DND-1 及び DND-2 の検出効率分布は、モックアップ試験装置の中心 (中性子源設定位置 No.11, Fig 3-2 を参照) を軸にしてほぼ左右対称である。

DND-1 において、配管 DL-D の検出効率が中央部で小さくなっているのは、DND-2 の内部中性子遮蔽体 (ポリエチレン 50mm 厚, カドミウム 1mm 厚) により遮蔽されているためである。DND-1 の検出効率は、その計測点である配管 DL-A に対して  $4.7 \times 10^{-3}$  Count/n (ピーク値) であり、配管 DL-B はその 19%, 配管 DL-C は 9.5%, 配管 DL-D は 3.1%, 配管 E は 11.4% の検出効率をもっている。

一方、DND-2 においては配管 DL-A と配管 E が DND-1 の内部中性子遮蔽体により遮蔽されているためその検出効率が小さくなっており、特に配管 E についてはポリエチレン 100mm, カドミウム 2mm で遮蔽されているためその影響が大きい。

DND-2 の検出効果は、その計測点である配管 DL-D に対して  $4.7 \times 10^{-3}$  Count/n (ピーク値) であり、配管 DL-C はその 17.6%, 配管 DL-B は 9.0%, 配管 DL-A は 3.0%, そして配管 E は 0.8% の検出効率をもっている。尚、上述したように配管 DL-A に対する DND-1 及び配管 DL-D に対する DND-2 の検出効率は、ほとんど等

しく、更にそれぞれの検出装置と相対的關係位置の等しい配管（例えば DND-1 に対する配管 DL-C と DND-2 に対する配管 DL-B）に対する検出効率は、両検出器で非常によく一致することがわかった。

O1～V0 までの 19 箇所に対する DND-1 及び DND-2 の検出効率を Fig 3-6 に示す。DND-1 と DND-2 との検出効率には、電磁ポンプ部（T1～T3）及びその出口付近（U0）を除いて、大きな差はみられない。また、位置のちがいによる検出効率の差も  $3 \times 10^{-5} \sim 6 \times 10^{-5}$  Count/n と 2 倍程度しかない。T1 と U0 点で DND-1 の検出効率が DND-2 のおおよそ 2 倍であるのは、それらの点から各検出装置までの距離の差が大きいためである。

これまでに述べてきた測定結果をもとにして得られた FPL-II ループ配管全体に対する各検出器の検出効率分布を、DND-1 については Fig 3-7 に、DND-2 については Fig 3-8 にそれぞれ示す。ここで横軸はウランカプセル先端からの距離を表わす。この図から、DND-1 はその計測点である配管 DL-A 以外にもその上下配管（配管 DL-B～D 及び配管 E）及び電磁ポンプに対して大きな検出効率をもっていることがわかる。DND-2 についても、配管 DL-D 以外に配管 DL-A～C 及び電磁ポンプに対して大きな検出効率をもっているが、配管 E に対しては前述した理由により検出効率は小さくなっている。尚電磁ポンプ部の単位長さ当りのナトリウム装荷量は配管に比べて約 15 倍大きいため、実際の検出効率は約 15 倍大きくなり、電磁ポンプ部からの影響はかなり大きいことが推定できる。

### 3.1.3 結 言

FPL-II 配管のモックアップと中性子源を用いて、ループに設置されている遅発中性子検出装置 DND-1 と DND-2 の、実験系ループに存在する中性子の検出効率を求める実験を行い、次のような結果を得た。

- (1) 外部中性子遮蔽体・中性子モデレーターの軸方向両端には中性子遮蔽体はないが、この部分から装置へ入射する中性子の量は無視できる。
- (2) DND-1 の検出効率は、その計測点である配管 DL-A に対して  $4.7 \times 10^{-3}$  Count/n（ピーク値）であり、配管 DL-B はその 19%，配管 DL-C は 9.5%，配管 DL-D は 3.1%，そして配管 E は 11.4% である。
- (3) DND-2 の検出効率は、その計測点である配管 DL-D に対して  $4.7 \times 10^{-3}$

Count/n (ピーク値)であり、配管DL-Cに対してはその17.6%、配管DL-Bは、9.0%、配管DL-Aは3.0%、そして配管Eは0.8%である。

これらの実験の結果、実験系ループ各部に対するDND-1とDND-2の検出効率を推定することが可能となった。

### 3.2 遅発中性子検出装置の較正試験

長期間に亘りかつほぼ定期的に使用する計測機器については、試験を開始する前に予め計測器の較正試験を行い、機器が再現性よくかつ正常に作動することを確認しておく必要がある。そこでDN計測機器について、照射試験開始前毎に標準中性子線源を用いた較正試験を実施した。

使用した中性子標準線源は、Ra-Be (放射能3mCi)で、これを円柱状の減速体系内に入れ( $\phi 50\text{ cm} \times 45\text{ cm h}$ )、減速体系側面に設けられた実験孔からDND-1及び2の $^3\text{He}$ 計数管を挿入し、Fig 2-14の計測系を用いて中性子計数を測定した。尚、図中のリニアアンプの後にシングルチャンネル波高分析器とマルチチャンネル波高分析器(MCA)を並列につなぎ、中性子のスペクトルも測定した。実施した較正試験の手順は以下のとおりである。

- ① 中性子線源のない状態でシングルチャンネル波高分析器のディスクリレベルを変化させ、回路ノイズがカットされるディスクリレベルの値に大きな変動がないことを確認する。
- ② 中性子線源を用い、①と同様の手順で計数値のディスクリレベルの値に対する変化を測定し、前回設定したディスクリレベル位置付近でDN計数値に大きな変動がないことを確認する。
- ③ ②の測定中、マルチチャンネル波高分析器で中性子スペクトルを測定し、以前のスペクトルと大きな変化がないことを確認する。

Table 3-1およびFig 3-9に、Exp. No 18から28の照射試験前に実施した較正試験の結果を示す。測定された中性子の計数値はほとんど変動がなく、Exp. No 18から28の間でDN検出系が正常に作動していることが確認された。

Table 3 - 1 Delayed neutron detectors calibration test  
before each irradiation test

Exp. No	Date	Count rate (cps)	
		DND - 1	DND - 2
18	83/9/16	6208.1	6211.8
19	10/15	6180.9	6274.8
20	11/05	6148.6	6202.9
21	11/26	6146.6	6241.4
22, 23	12/09	6160.2	6154.4
24	84/1/23	6094.8	6198.7
25, 26	1/27	6091.6	6049.3
"	1/30	6147.0	6245.4
27	2/10 13	6055.3	6163.4
28	2/24	6070.4	6041.1

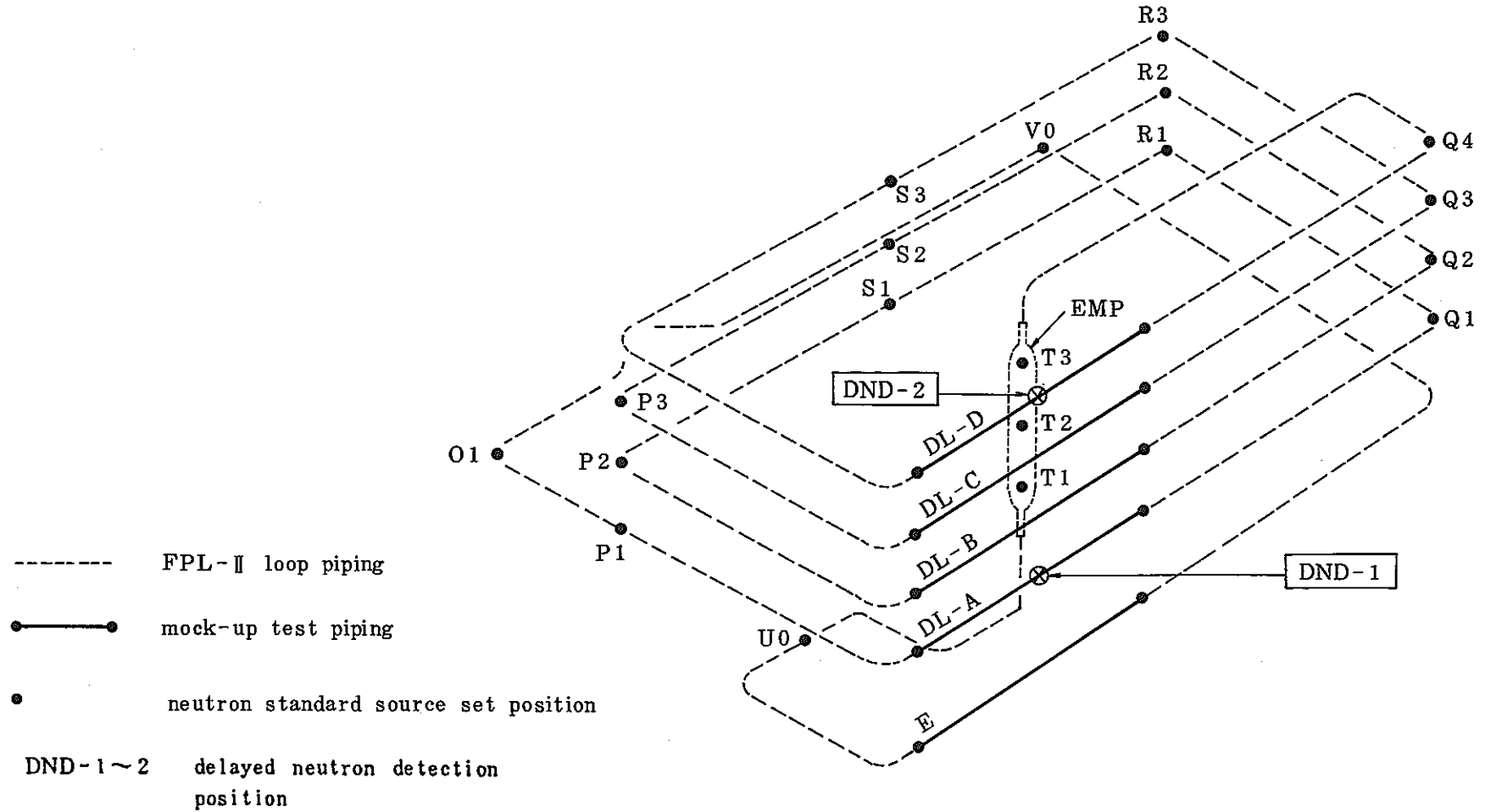


Fig. 3 - 1 The positions where neutron detection efficiency was measured in the Mock-up test

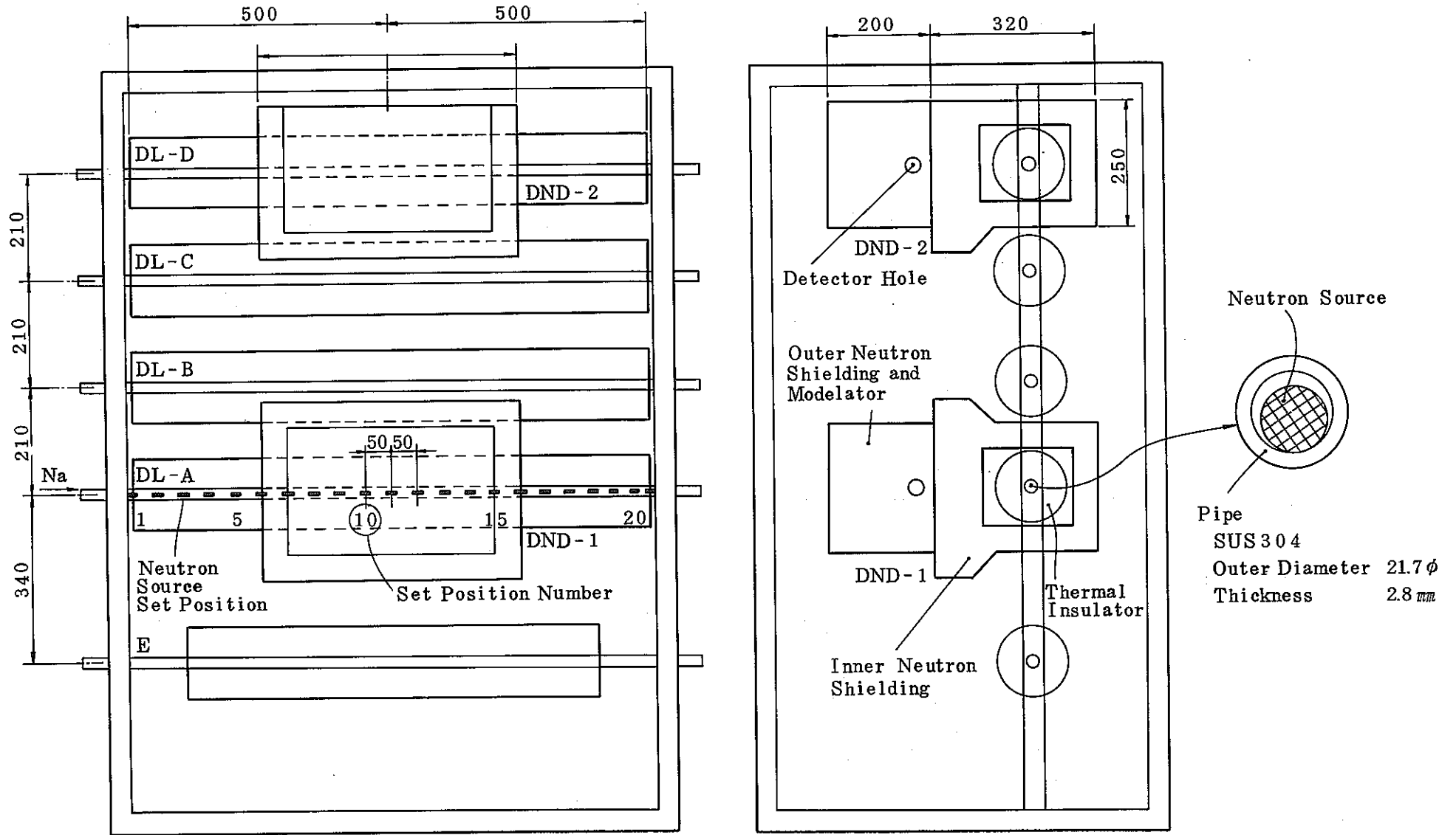


Fig. 3 - 2 Mock-up test equipment

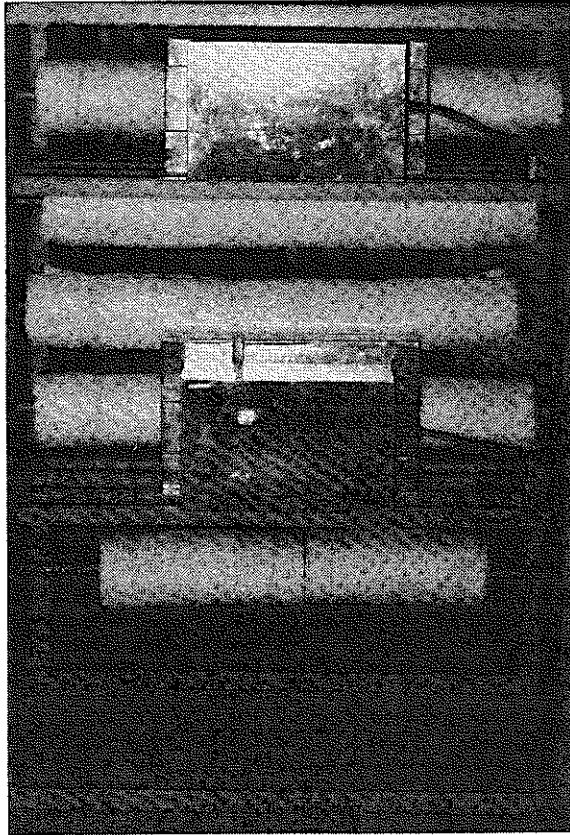


Fig. 3 - 3 Photograph of the Mock-up test equipment

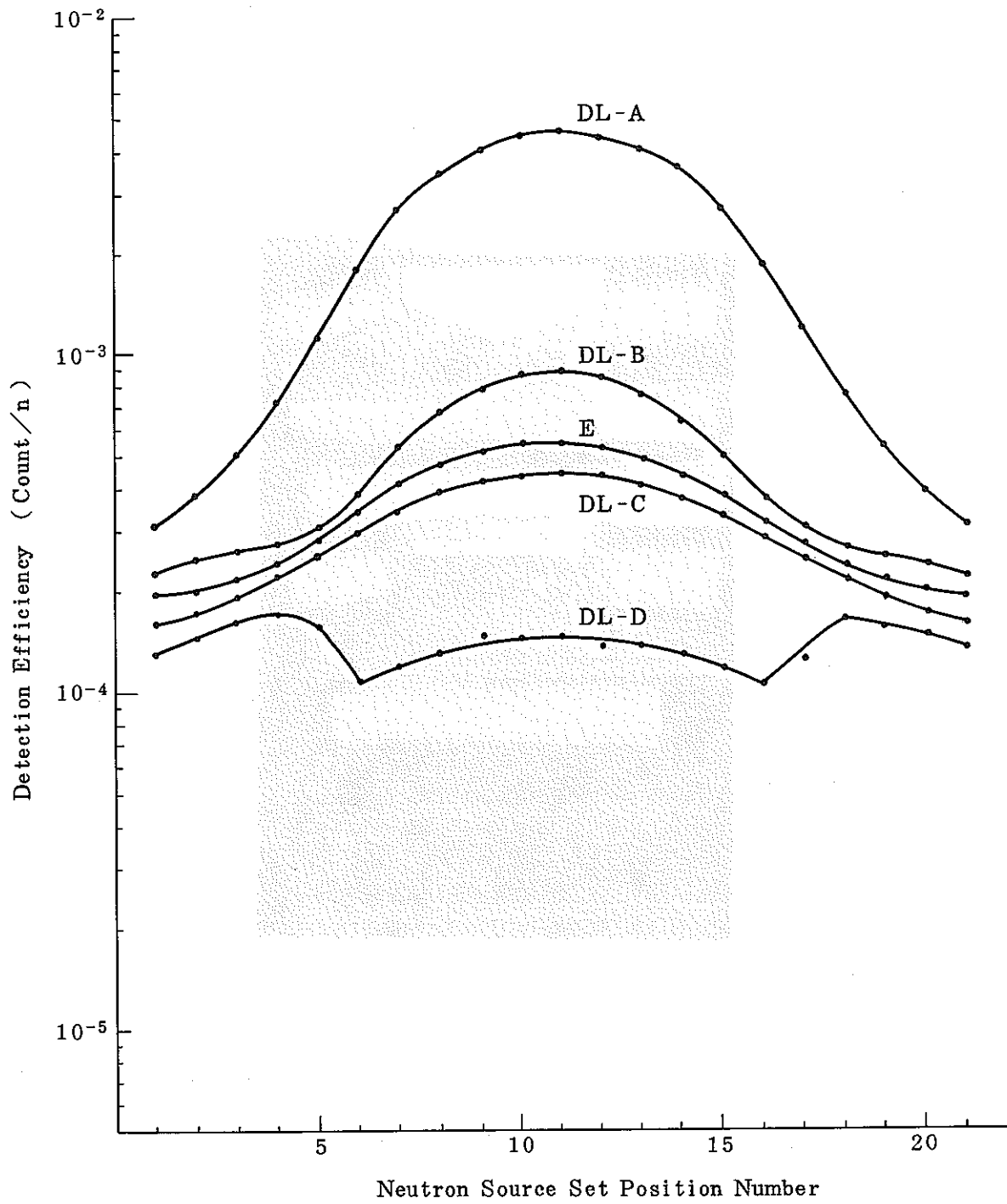


Fig. 3 - 4 Detection efficiency at the DND-1 delayed neutron detector from the delay line piping



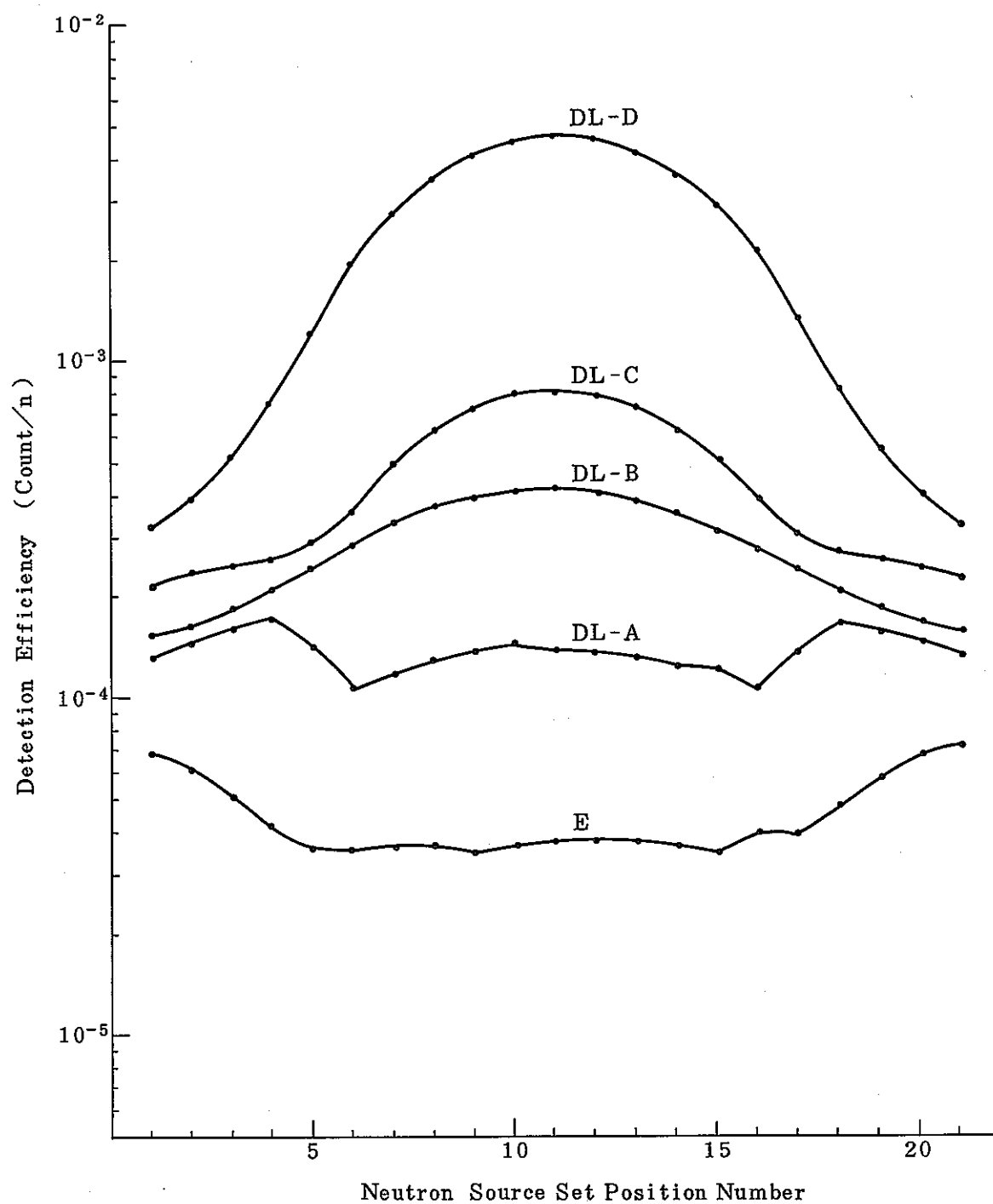


Fig. 3 - 5 Detection efficiency at the DND - 2 delayed neutron detector from the delay line piping

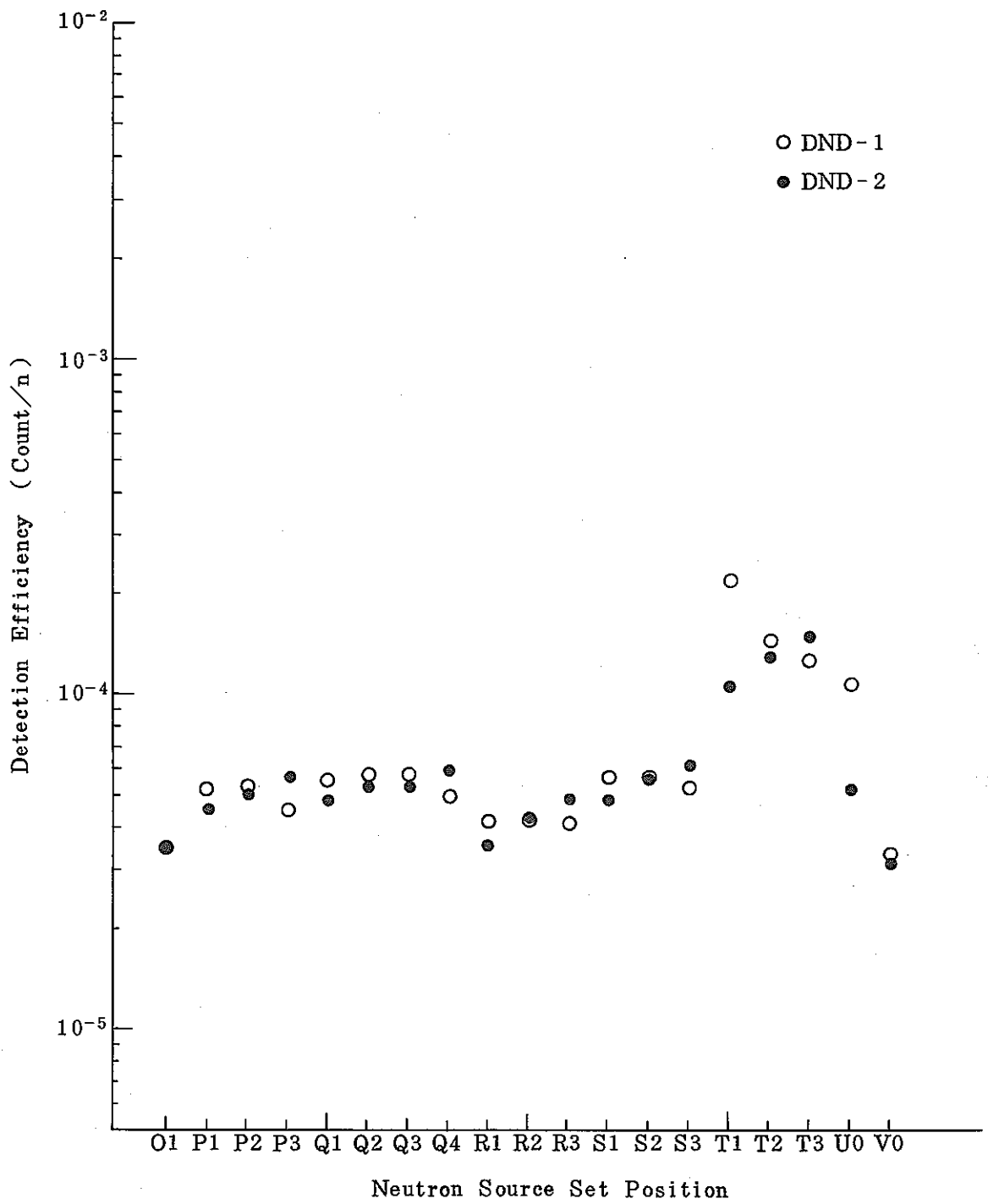


Fig. 3 - 6 Detection efficiency at each delayed neutron detector from the various part of FPL - II loop piping (from O1 to V0)

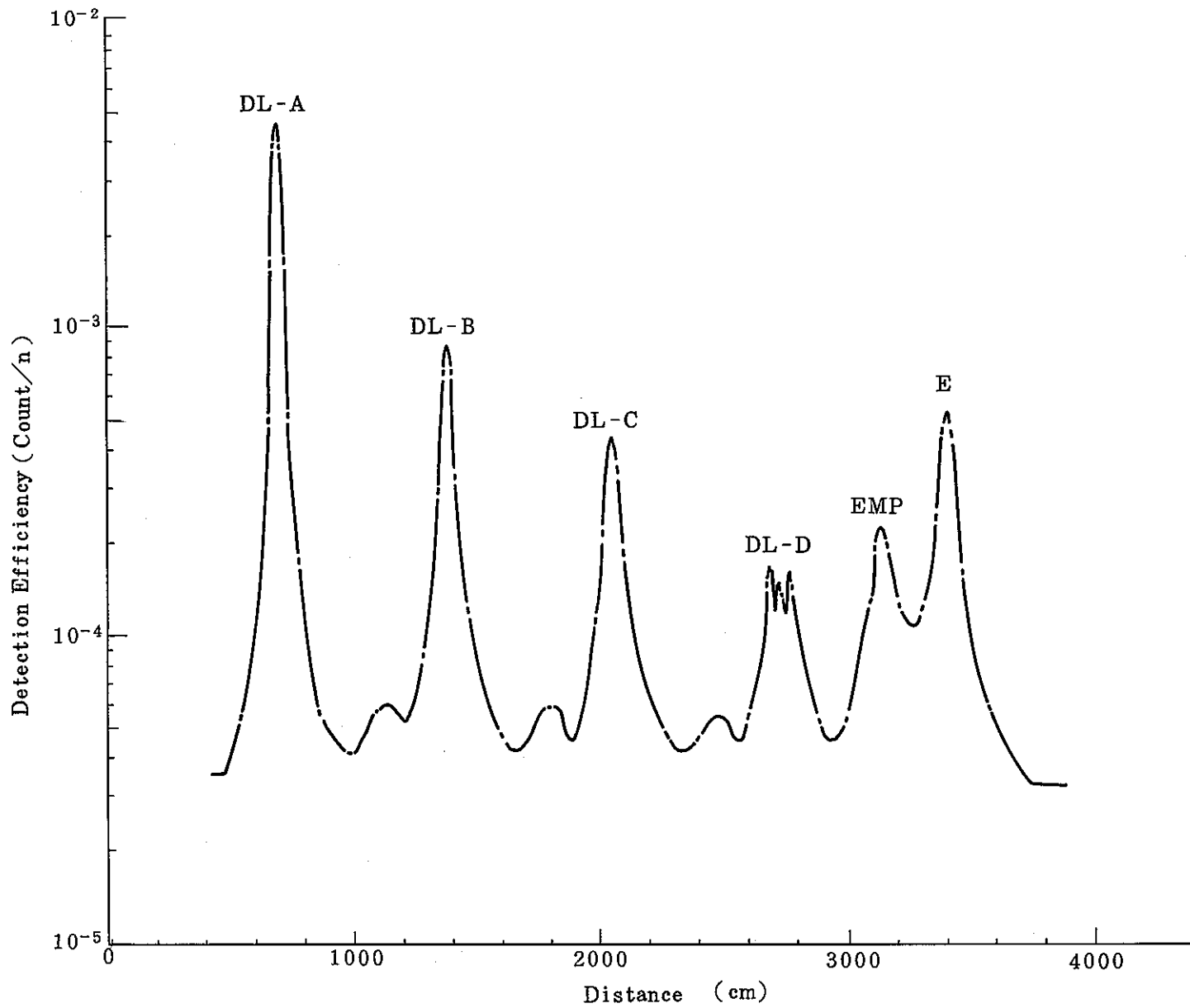


Fig. 3 - 7 Detection efficiency at DND - 1 delayed neutron detector from the whole part of FPL - II loop piping

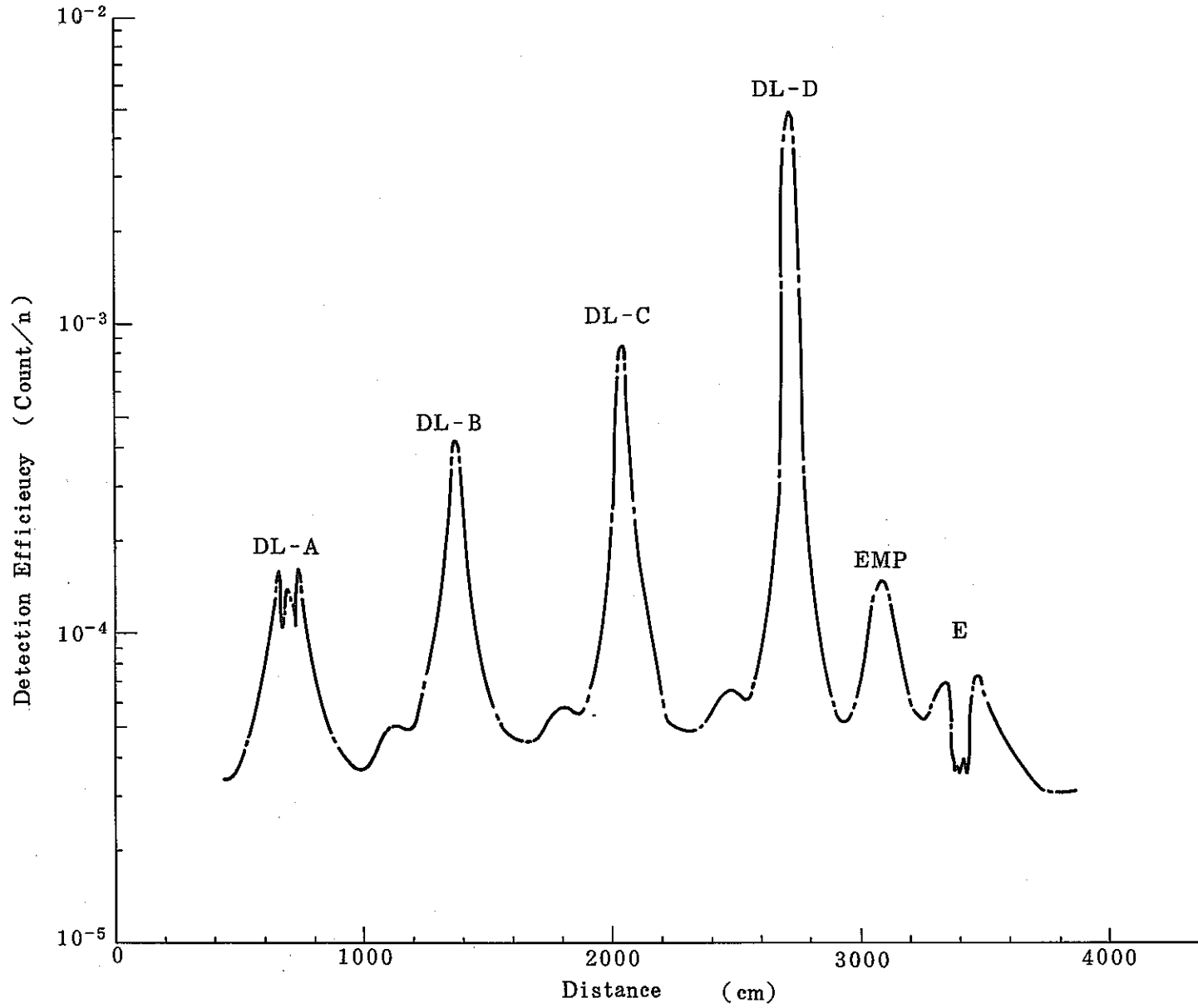


Fig. 3 - 8 Detection efficiency at DND - 2 delayed neutron detector from the whole part of FPL - II loop piping

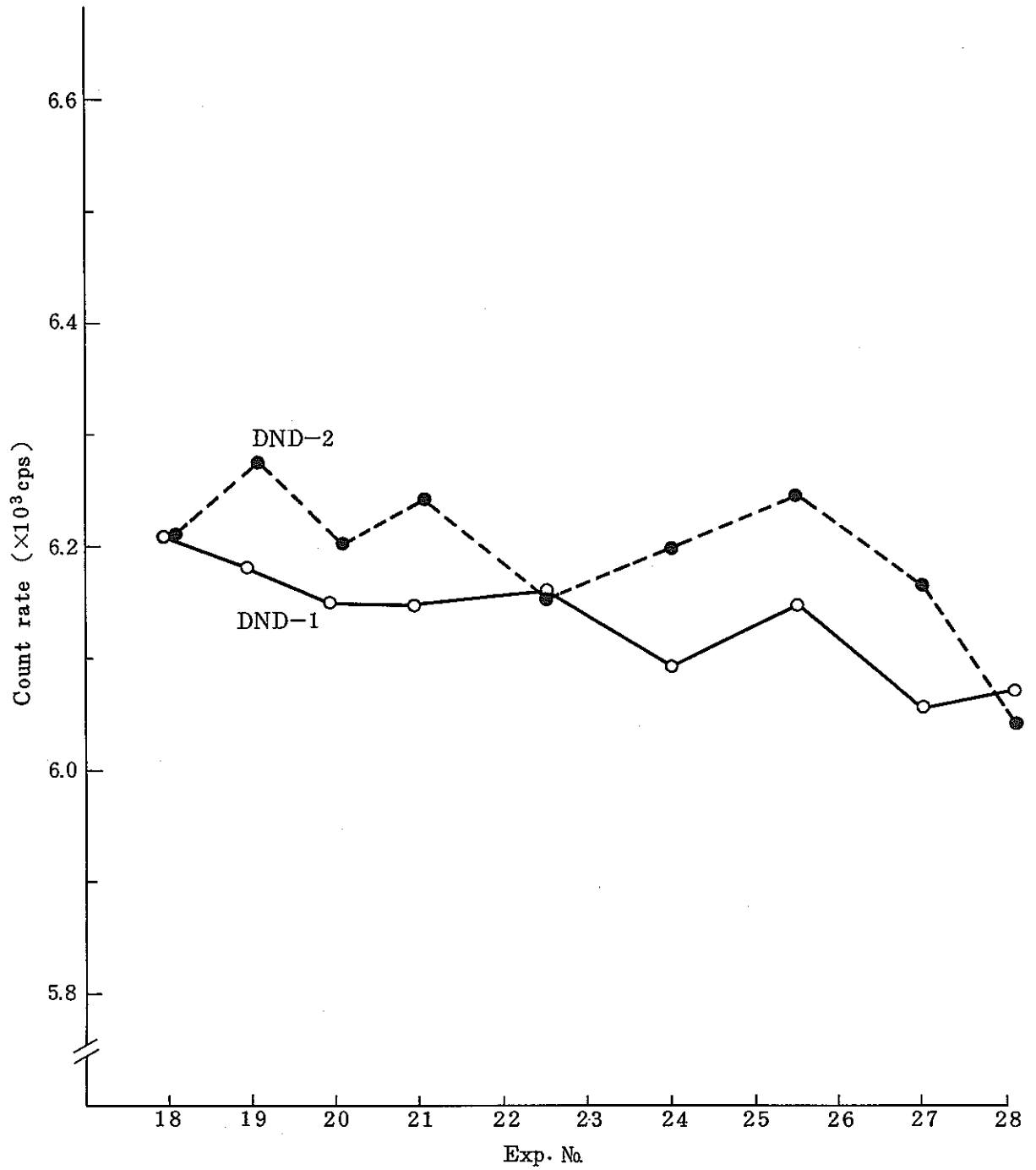


Fig. 3 - 9 Delayed neutron detectors calibration test results performed before each irradiation test

## 4. 照射試験

### 4.1 FPL-II の運転手順

FPL-II の照射試験は、ナトリウムの純化、実験系の洗浄、ナトリウムの再純化を行った後に実施した。ナトリウムの純化は、コールドトラップを $120^{\circ}\text{C}$ まで冷却して行った。また実験系の洗浄は、純化されたナトリウムをインパイルプラグを除く実験系内を温度 $300^{\circ}\text{C}$ で循環させ、実験系内の不純物をナトリウム中に溶解させることで行った。Fig 4-1 に FPL-II の運転手順を示し、以下でその概要を述べる。

#### 1) ループ内ガス置換

(1) 実験系、純化系内を新鮮なアルゴンガスで3回置換する。

#### 2) ナトリウム純化

(1) 純化系を $50^{\circ}\text{C}/30$ 分程度の割合で、 $300^{\circ}\text{C}$ まで昇温する。

(2) 純化系の導通試験を行い、導通を確認する。

(3) 純化系を真空に引いた後、ダンプタンクを加圧して、純化系にナトリウムを充填する。

(4)  $3\text{ l}/\text{min}$ の流量でナトリウムを循環し、純化系を $350^{\circ}\text{C}$ まで昇温する。

(5) コールドトラップ(CT)およびCT入口、出口配管のヒーターをOFFにする。

(6) CTブローアをONにし、CTを冷却する。

(7) ナトリウム流量を段階的に低下させて、 $0.4\text{ l}/\text{min}$ に設定する。

(8) 純化系加熱器(H-2)の温度を $10^{\circ}\text{C}/10$ 分程度の割合で下げて、CT下部温度を $120\pm 5^{\circ}\text{C}$ まで下げる。

(9) CT下部温度が $120\pm 5^{\circ}\text{C}$ で一定になった後、1時間以上ナトリウムを循環したらナトリウムをドレンする。

#### 3) 実験系洗浄

(1) インパイルプラグを除く実験系を、 $50^{\circ}\text{C}/30$ 分程度の割合で $300^{\circ}\text{C}$ まで昇温する。

(2) ナトリウム弁VA-2, VA-3を閉にする。

(3) 実験系の導通試験を行い、導通を確認する。

- (4) ダンプタンク及び実験系を真空に引いた後、ダンプタンクに加圧して、インパイルプラグを除く実験系にナトリウムを充填する。
- (5) 300°C, 3ℓ/min でナトリウムを2時間以上循環する。
- (6) ナトリウムをドレンする。
- (7) 実験系の導通試験を行い、導通を確認する。

#### 4) 照射試験

- (1) インパイルプラグ冷却系によりインパイルプラグを冷却する。
- (2) インパイルプラグを含む実験系を、50°C/30分程度の割合で300°Cまで昇温する。ただし、インパイルプラグは200°Cまで昇温する。
- (3) ダンプタンクおよび実験系を真空に引いた後、ダンプタンクに加圧して、インパイルプラグを含む実験系にナトリウムを充填する。
- (4) 主循環ループで試験流量でナトリウムを循環する。
- (5) 温度を試験温度まで50°C/30分程度の割合で昇温または降温する。このとき、ダンプタンクの温度も同時に昇温または降温する。
- (6) 試験温度になった後、照射試験を行う。
- (7) 試験終了後ナトリウムをドレンする。
- (8) 実験系の導通試験を行い、導通を確認する。
- (9) インパイルプラグにアルゴンガスを流して、ウランカプセルを95°Cまで冷却する。

#### 4.2 照射試験の概要

「炉内ループによるFP挙動試験」の(I)として、昭和57年9月7日から58年3月1日にかけて、15回の照射試験を実施しているが、試験の目的、詳細な内容等は既に報告した<sup>1)</sup>ので省略し、試験条件をまとめてTable 4-1に示す。

本年度試験研究では昭和58年9月20日から59年2月28日にかけて、11回の照射試験を実施したが、これに先だち58年4月12日には、実験No.14と同一条件で通算16回目の照射試験を実施し、また58年7月13日から8月20日にかけては、ディレイライン配管を長時間(10~24時間)γ線測定する、通算17回目の試験を実施している。これらの試験条件を、通算の試験番号に沿ってTable 4-1にまとめて示す。また実験No.16以降の試験について、ナトリウム温度、ナトリウム流量、TTR出力の経時変化をまと

めてFig 4-2に示す。尚，実験No 17はFPL-IIを運転していないので表及び図から省略した。

4.1節でも述べたように，ナトリウムはまず純化系を用いて純化した後，実験系内に充填して実験系ループ配管内壁等に付着している酸化ナトリウム等を溶解してダンプタンクにドレンした。その後再度純化系を用いて純化して実験系に充填した。充填後ナトリウム温度，流量を試験条件に設定し，温度が一定になった後，原子炉出力100kWで4時間照射した。2，3の試験の場合を除いてループは等温に保たれているが，電磁ポンプ部はコイルの発熱を押えるためブローアで冷却しており，他のループ部に比較して最大で80℃程度温度が低くなっている。

照射中及び照射後に種々の計測位置で $\gamma$ 線の測定を行った。 $\gamma$ 線の測定は2台の検出器を用いて同時に2箇所の計測点で行い，ディレイライン配管に沿って計測点を移動した。Appendix Bに実験No 16以降の試験の $\gamma$ 線測定結果を記録した磁気ディスクのリストを示す。

遅発中性子(DN)の測定は，ループの定常運転時には1～5分の測定時間で行った。ナトリウム流量停止時，あるいはTTRの出力降下時のDN計数の経時変化を測定する場合には，プリセットスクラータイマーを1秒に設定し，DND-1とDND-2の計数を1秒毎に交互に出力した。またDND-1の出力は，マルチチャンネルスクラータにも入力し，計数時間1秒で測定した。

以下に，実験No 16以降の試験内容を示す。

#### 1) 実験No 16

不揮発性FPのナトリウム中の沈着挙動の測定を目的としたもので，実験No 14のくり返し実験である。ナトリウム温度は530℃，流量は1ℓ/minであるが，実験No 14が照射終了後すぐにナトリウムをドレンしたのに対し，実験No 16では，照射終了後も約20時間ナトリウムを循環し続け，一旦壁面に沈着した不揮発性FPが再分配するかどうかを測定した。この結果の詳細は5章で述べるが，Zrは再分配が起っている可能性があることがわかった。尚，Sr, Yについては，少なくとも20時間のナトリウム循環時間では，再分配は起っていない。



## 2) 実験No.17

照射試験ではなく、実験No.16までの照射試験で放出された長半減期の不揮発性FPのディレイライン配管内壁での沈着分布を測定するために行った試験で、 $\gamma$ 線の計測時間は計測点1点につき約22時間である。この測定の結果、 $^{95}\text{Zr}/^{95}\text{Nb}$ 、 $^{103}\text{Ru}$ 、 $^{141}\text{Ce}$ の $\gamma$ 線が検出された。

## 3) 実験No.18

ウラン燃料の照射によりナトリウム中に放出される不揮発性FPは多数の種類に及ぶが、これらの不揮発性FPのうち的大部分は、核分裂により直接生成する割合が少なく、先行核種の $\beta$ 壊変により生成する割合の方が多い。従ってこれらの不揮発性FPの沈着挙動は、先行核種のナトリウム中での挙動の影響を受け、直接不揮発性FPの沈着挙動を求めることは困難である。そこで先行核種の影響を除くため、先行核種の壊変を待った後にナトリウムの流動を開始して、直接不揮発性FPの沈着挙動を測定することを試みた。Fig 4-2の2)に実験の経時変化を示す。

まず照射前にナトリウムを循環してループ全体を $500^\circ\text{C}$ の等温に保った。照射開始直前にはナトリウムの流路をバイパスさせ、ウランカプセル内のナトリウムの流量を停止させた。カプセルの予熱ヒータの容量は小さいので、カプセルの温度は急速に低下し始めたが約1時間後に $280^\circ\text{C}$ で一定に達した。この間、ループの他の部分の温度はカプセル温度に追従させて低下させた。この時のTTRの照射条件は、 $100\text{ kW}$ で2時間であった。照射終了後、カプセル内のナトリウムを1時間保持して先行核種の放射壊変を待った後、カプセル内のナトリウム流動を再開した。尚、照射終了後の1時間の保持時間は、沈着挙動を測定したい不揮発性FP（例えば、 $^{103}\text{Ru}$ 、 $^{105}\text{Ru}$ 、 $^{142}\text{La}$ 、 $^{143}\text{Ce}$ 等）の先行核種の半減期を考慮して決定した値である。流動再開時の条件は、ナトリウム温度 $280^\circ\text{C}$ 、流量は $2\text{ l/min}$ であった。 $\gamma$ 線の測定は流動再開後開始したが、2時間の照射でウランカプセル内のナトリウム中に蓄積されているはずの不揮発性FPの $\gamma$ 線ピークは検出されなかった（ $^{24}\text{Na}$ のピークと半減期の長いTe、I等の揮発性FPのピークのみが検出された）。この理由としては、不揮発性FPが照射試料表面（表面積が非常に大きい）やウランカプセル内壁表面に沈着しており、 $\gamma$ 線測定部まで移行してこないか、あるいは移行量が非常に小さいことが考えられる。そこで流動再開の17時間後に流量を $5\text{ l/min}$ に変更したが、 $\gamma$ 線スペクトル上で変化はみられなかったため、更に8時間

後に、ナトリウム温度を280℃から500℃に変化させた結果、非常に弱くではあるが、数本の不揮発性FPの $\gamma$ 線ピークを検出した。しかしこれらのピークが検出された理由については、ナトリウム温度を500℃に上昇させたためにカプセル部にたまっていた不揮発性FPがループ配管部に移行してきたものか、 $^{24}\text{Na}$ が放射壊変したことにより、コンプトン散乱による $\gamma$ 線のバックグラウンドが低下して相対的に不揮発性FPの $\gamma$ 線ピークが強くなって検出されるようになったものかは不明である。尚、照射後の合計のナトリウム流動時間は約40時間である。

#### 4) 実験No 19～21

昭和57年度の試験では、主にナトリウム流量を一定に保ち、ナトリウム温度をパラメーターとして照射試験を実施したが、<sup>1)</sup>実験No 19～21では、主に流量をパラメーターとして不揮発性FPの沈着挙動を測定した。

実験No 19では530℃、2ℓ/min、実験No 20では170℃、1ℓ/min、実験No 21では170℃、5ℓ/minである。

#### 5) 実験No 22 及び No 25

ディレイライン配管上の予熱ヒーターのみをすべてOFFとしてディレイライン配管上に温度勾配をつけ、不揮発性FPの沈着挙動に変化がみられるかどうかを測定した。両実験ともにナトリウム流量は1ℓ/minであるが、ナトリウム温度は、ウランカプセル部において実験No 22は400℃、No 25は300℃である。ディレイライン配管の入口、出口間の温度差は、実験No 22では130℃、No 25では100℃程度である。

尚、不揮発性FPの沈着挙動に与える温度勾配の影響の有無については今後の各核種毎の詳細な検討を必要とするが、 $^{92}\text{Sr}$ 、 $^{94}\text{Sr}$ の沈着挙動に関しては温度勾配の影響は明瞭には認められなかった。

#### 6) 実験No 23

DN計測値とTTR出力との相関を調べるために行った実験で、TTRの出力を0.1～100 kWまでステップ状に上昇させて、DNの計測値を測定した。TTR出力とDN計測値の間には非常に良好な直線関係が得られ(Fig. 7 - 2参照)、反跳現象がFP放出の主メカニズムであること、及びDN計測系は広範囲に亘って直線性があることが確認できた。

#### 7) 実験Na 24

昭和 57 年度試験結果の再現性を確認するために、実験Na 11 と同一のナトリウム温度条件で照射試験を実施した。ナトリウム温度は 270 °C、流量は 5 ℓ/min である。尚、本実験では、照射終了の直前にナトリウムをドレンして、ディレイライン配管内壁に吸着している DN 放出核種の吸着量を直接測定することを試みたが、ループ配管からナトリウムが完全にドレンされるのに時間がかかりすぎたため（1 分程度）、配管内壁に吸着している DN 放出核種の量を直接測定することはできなかった（7.5 項参照）。

#### 8) 実験Na 26

照射中にナトリウム流量を段階的に変化させて、DN 放出核種の計測値の流量依存性を測定することを目的とした実験で、昭和 57 年度試験の実験Na 10 及びNa 13 のくり返し実験であり、実験条件は全く同じである。実験の結果では、DN 計測値は前回のくり返し実験の結果と比べて変化は認められず（7.2 項及び Table 7 - 2, 7 - 4 参照）、ループに装荷されている照射試料表面の経年変化（表面からの FP の放出率が変化する可能性がある）が起っていないことが間接的に証明できた。また照射終了直前にナトリウムをドレンして、高温時（500 °C）での DN 放出核種の配管内壁への吸着量を直接測定することを試みたが、実験Na 24 と同様の理由により、配管内壁に吸着している DN 放出核種の量を直接測定することはできなかった（7.5 項参照）。

#### 9) 実験Na 27 及びNa 28

ナトリウム中の酸素濃度を高くして、高酸素濃度中の不揮発性 FP の沈着挙動を測定することを目的とした実験で、酸素濃度は約 12 ppm（コールドトラップ温度 200 °C のナトリウムを使用<sup>6)</sup>）である。実験Na 27 では、照射終了直後にナトリウムをドレンしてループ配管内壁に沈着した不揮発性 FP を測定したのに対し、実験Na 28 では照射終了後も 40 時間ナトリウムを循環し続け、高酸素濃度のナトリウム下で一旦配管内壁に沈着した不揮発性 FP が再分配するかどうかを測定した。

尚、不揮発性 FP の沈着挙動における酸素濃度依存性の有無については今後の各核種毎の詳細な検討を必要とするが、<sup>92</sup>Sr、<sup>94</sup>Sr の沈着挙動に関しては、酸素濃度の影響は全くみられなかった。

Table 4 - 1 FPL - II experiments list

Exp. No.	Date	Na Temp (°C)	Na Flow Rate (l/min)	TTR Power (KW)	Duration Time *
1	7. Sep '82	500	5.0	100x4h	0.08 h
2	9. Sep '82	200	5.0	100x4h	0.17 h
3	19. Oct '82	350	5.0	100x4h	0.08 h
4	21. Oct '82	350	5.0	100x4h	0.10 h
5	16. Nov '82	420	5.0	100x4h	0.18 h
6	25. Nov '82	420	5.0	100x4h	0.10 h
7	30. Nov '82	500	5.0	100x4h	0.10 h
8	7. Dec '82	530	5.0	100x4h	0.08 h
9	14. Dec '82	170	5.0/2.0/5.0/0/ 5.0	100x4.38h	19.97 h
10	15. Dec '82	500	5.3/2.5/1.0/ 0.5/1.0/2.5/ 5.0/0/2.5/0/ 1.0/0/4.2/3.6/ 5.0	100x4h	19.72 h
11	16. Dec '82	270	5.0/2.0/5.0	100x4h	1.38 h
12	25. Jan '83	225	5.0/2.0/5.0	100x4h	19.52 h
13	27. Jan '83	500	5.3/4.2/3.6/ 2.5/1.0/0.5/ 1.0/2.5/3.6/ 4.2/5.0/0/2.5/ 0/1.0/0/5.0	100x4h	2.98 h
14	22. Feb '83	530	1.0	100x4h	0.43 h
15	1. Mar '83	300	5.0/2.0/5.0 (IP bypass flow)	100x4h	1.63 h
16	12. Apr '83	530	1.0	100x3.5h	18.47 h
18	20. Sep '83	280 - 500	2.0 - 5.0	100x2h	47.18 h
19	18. Oct '83	530	2.0	100x4h	0.17 h
20	8. Nov '83	170	1.0	100x4h	42.65 h
21	29. Nov '83	170	5.0	100x4h	19.00 h
22	13. Dec '83	400	1.0	100x4h	44.92 h
23	15. Dec '83	500	5.0	0.1/0.2/0.5/1.0 /2.0/5.0/10/20/ 50/70/100x1.58h	- 0.90 h **
24	26. Jan '84	270	5.0	100x4h	0.00 h
25	31. Jan '84	300	1.0	100x4h	19.92 h
26	1. Feb '84	500	5.0/0/2.5/0/ 1.0/0/5.0	100x4h	- 0.07 h **
27	14. Feb '84	500	5.0	100x4h	0.10 h
28	28. Feb '84	500	5.0/0/5.0	100x4h	37.22 h

\* Duration time of sodium circulation after TTR shut down

\*\* Sodium drain before TTR shut down

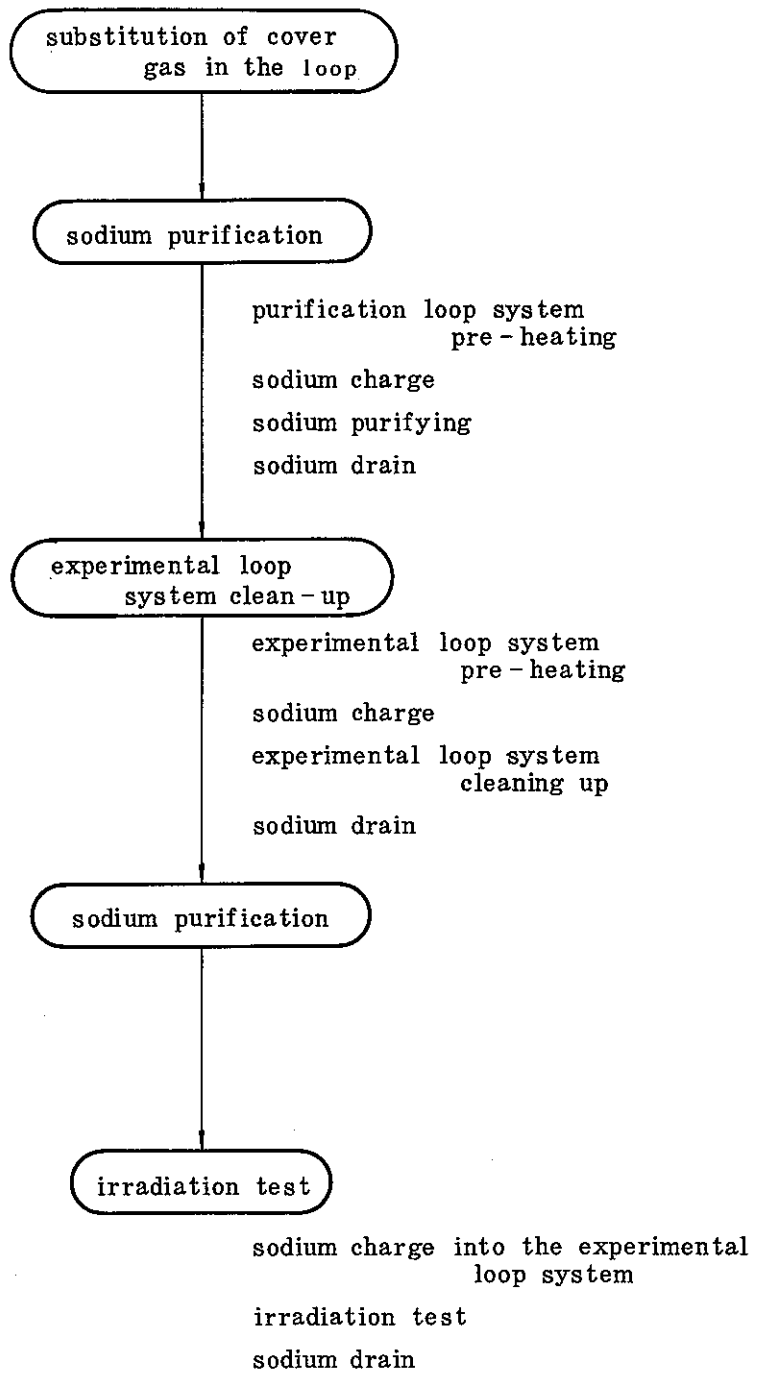


Fig 4 - 1 FPL-II operation sequence

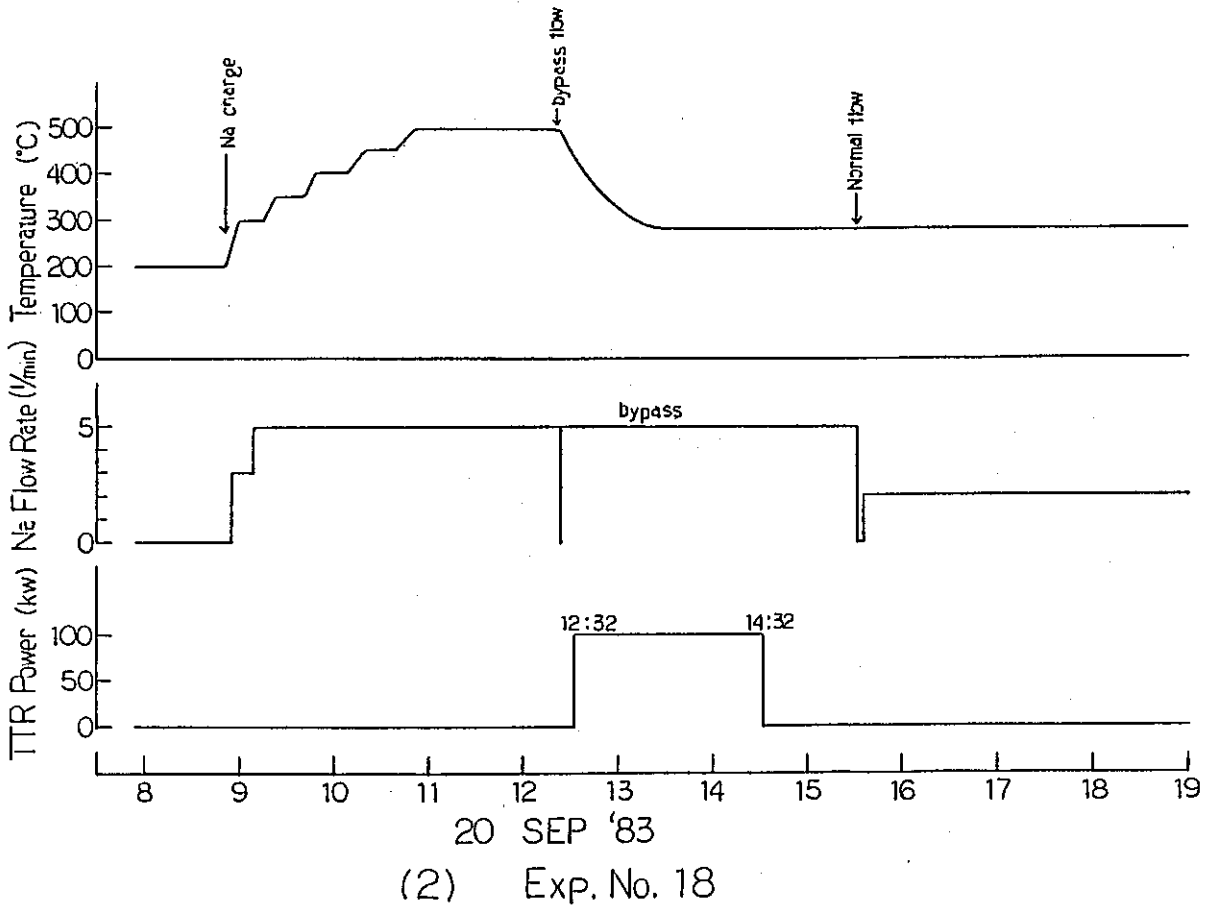
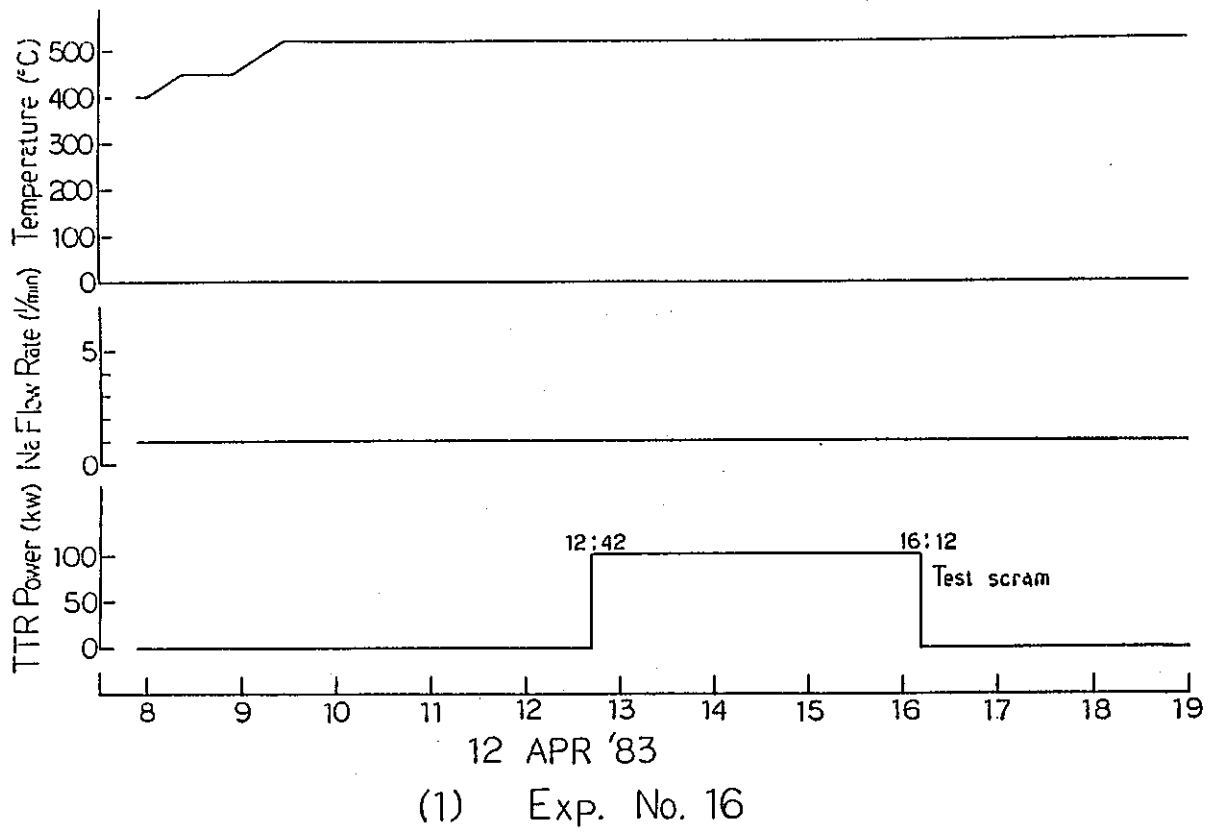


Fig. 4 - 2 Experimental condition for each experiment

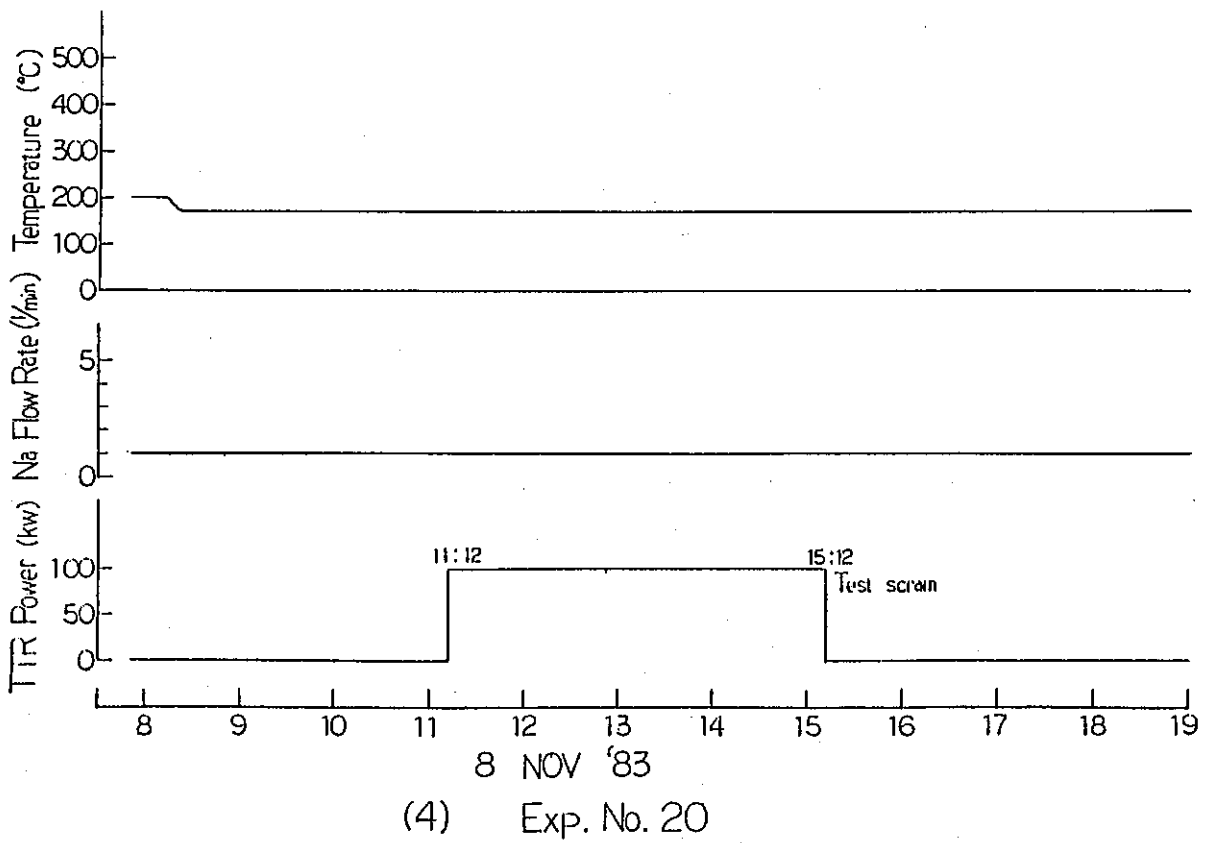
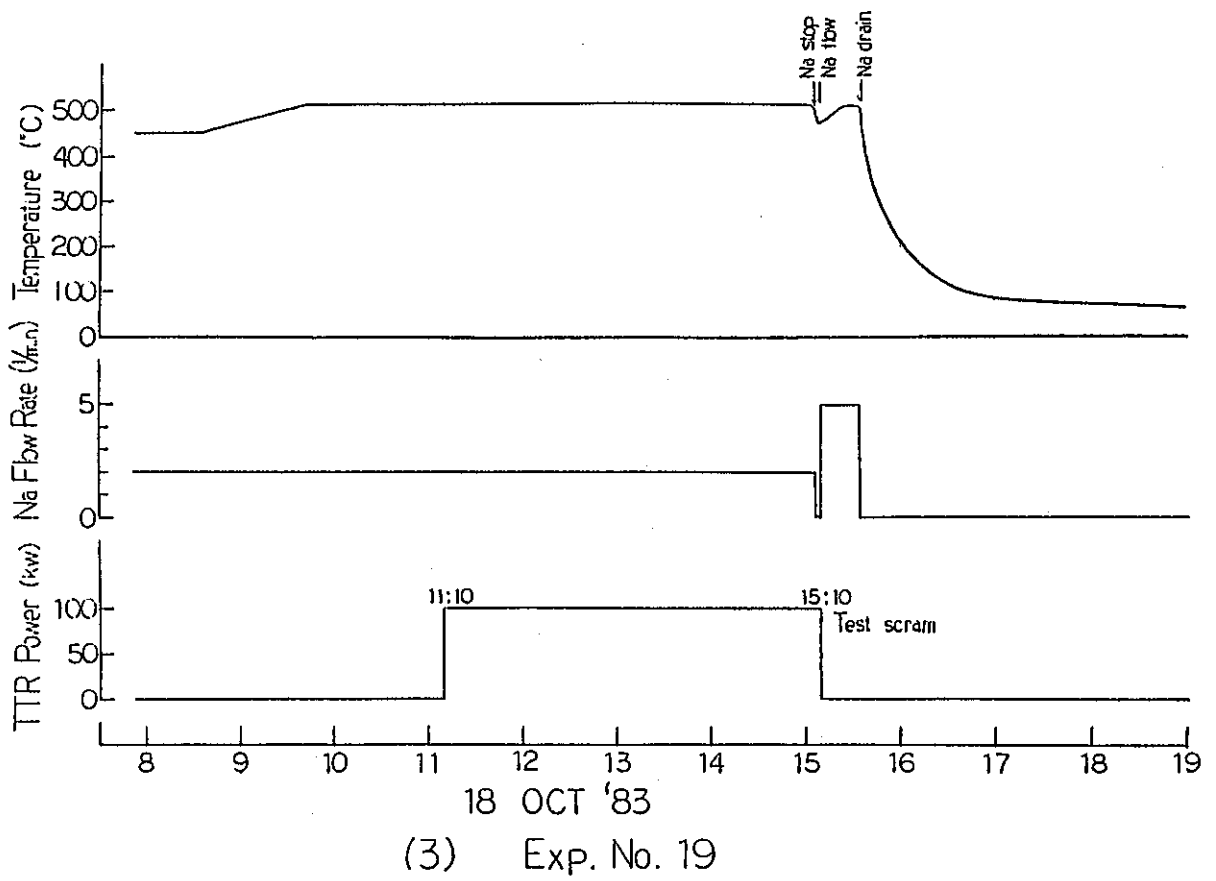


Fig. 4 - 2 (continued)

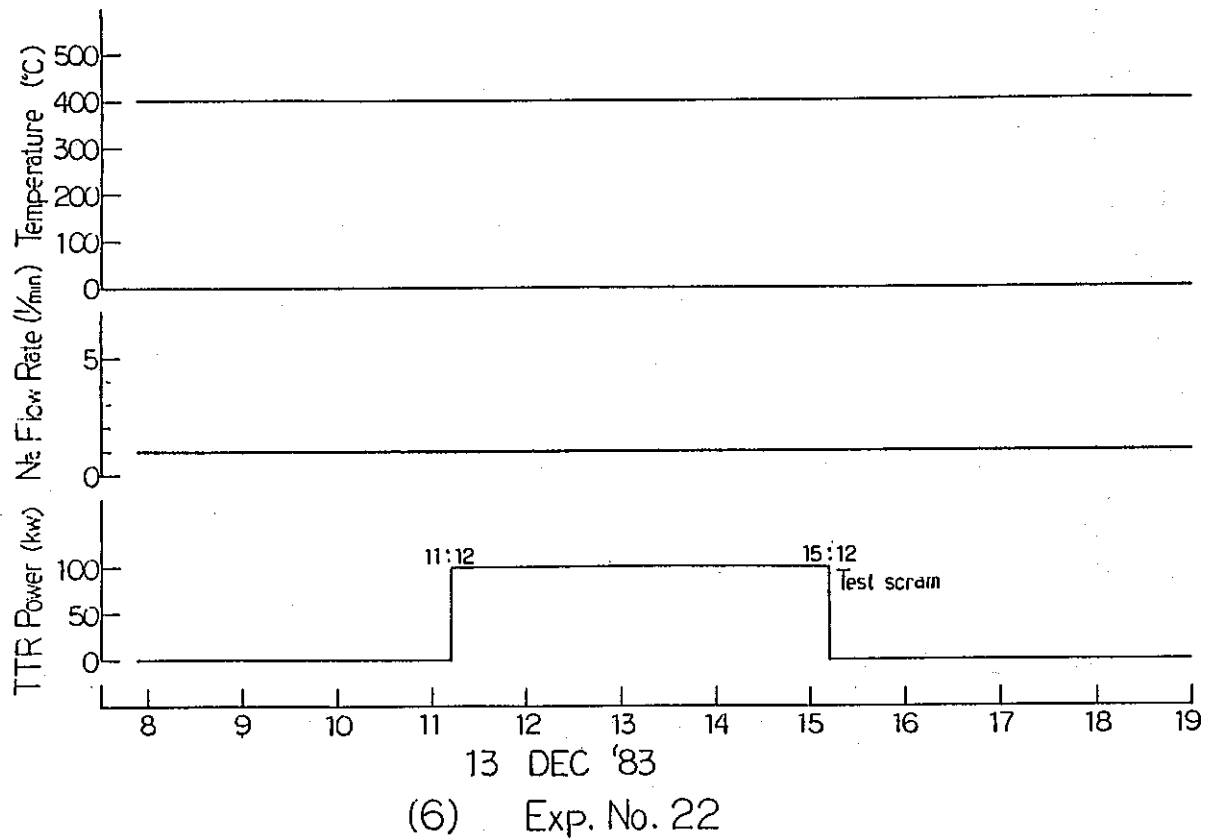
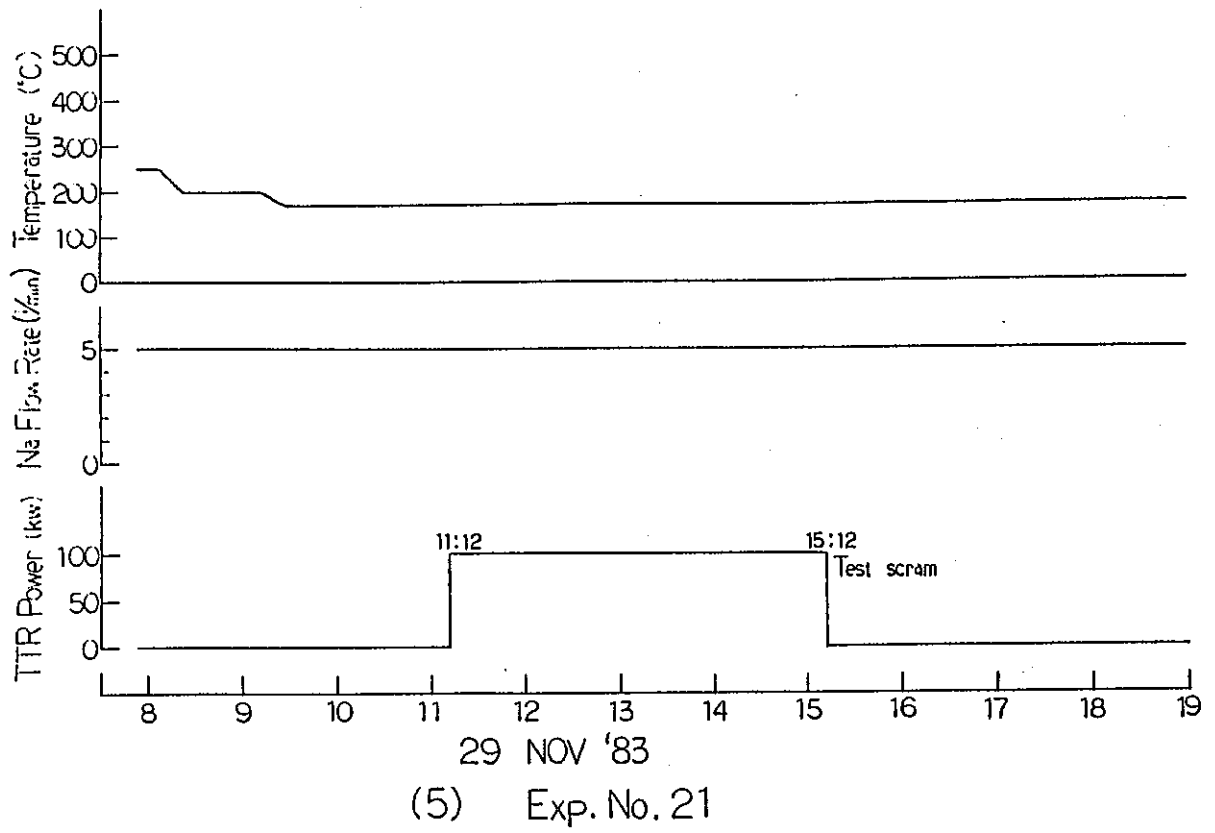


Fig. 4 - 2 ( continued )



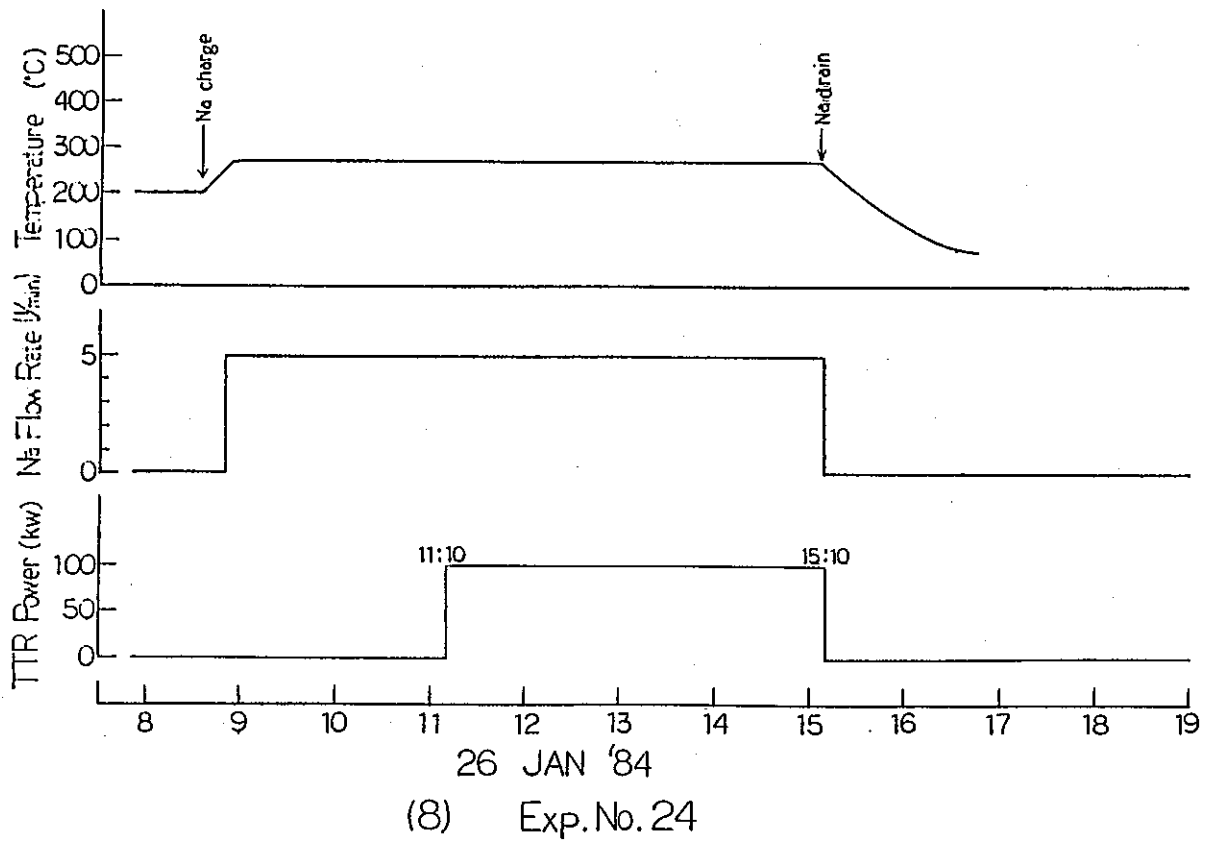
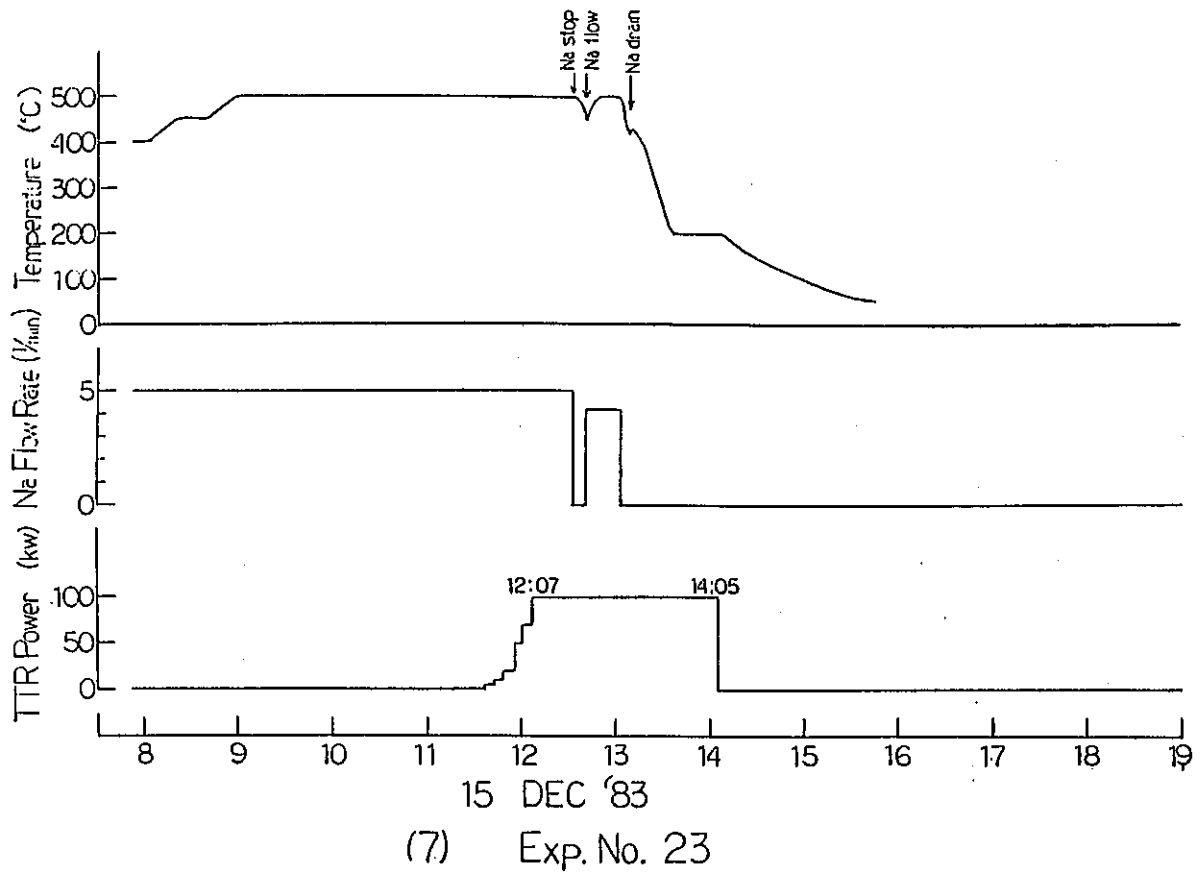


Fig. 4 - 2 (continued)

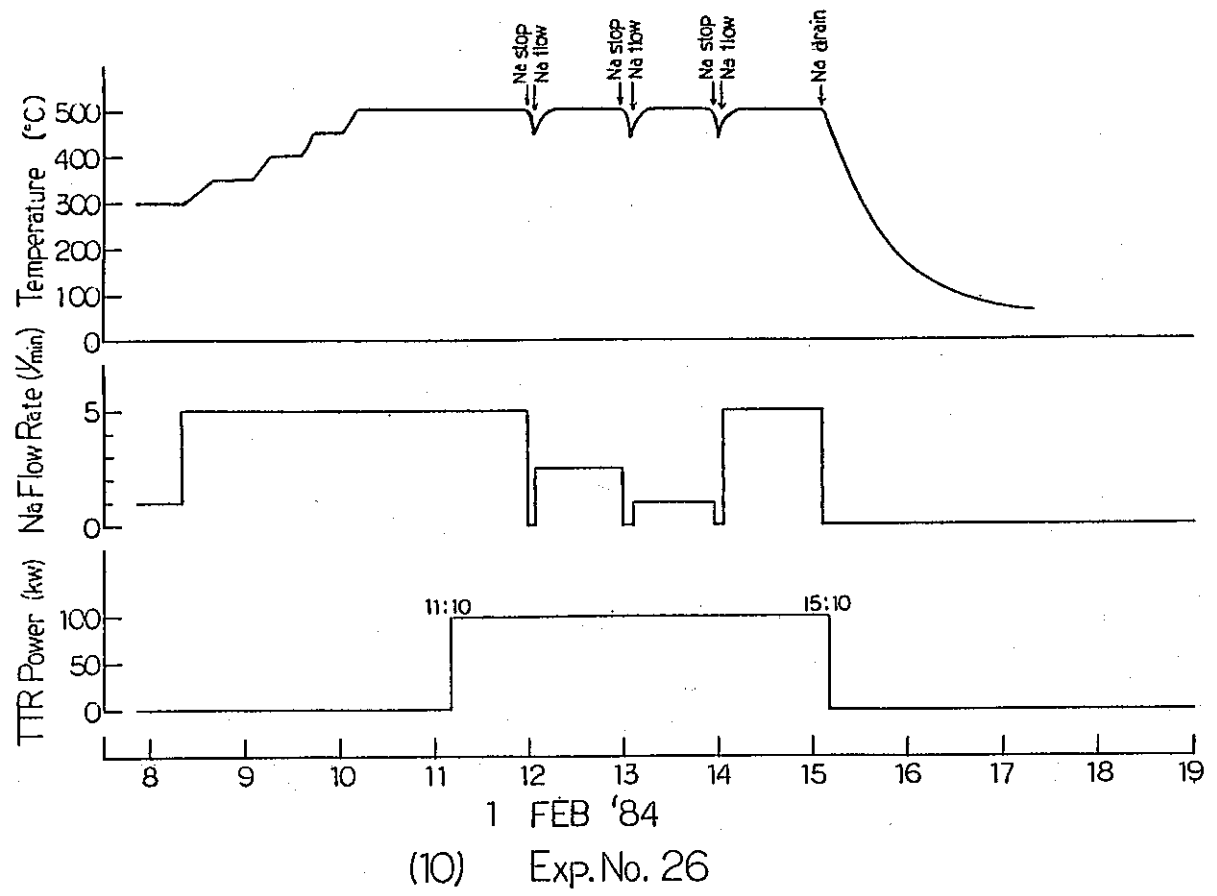
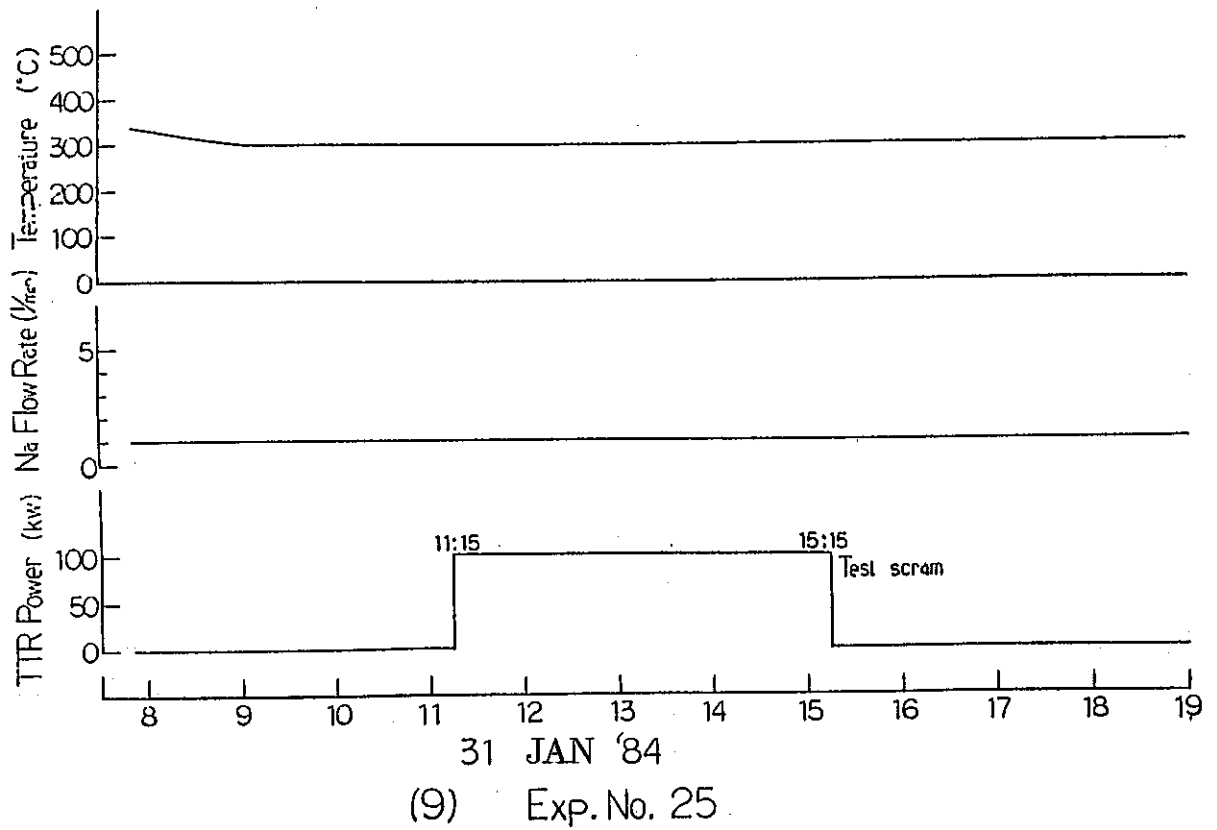


Fig. 4 - 2 (continued)

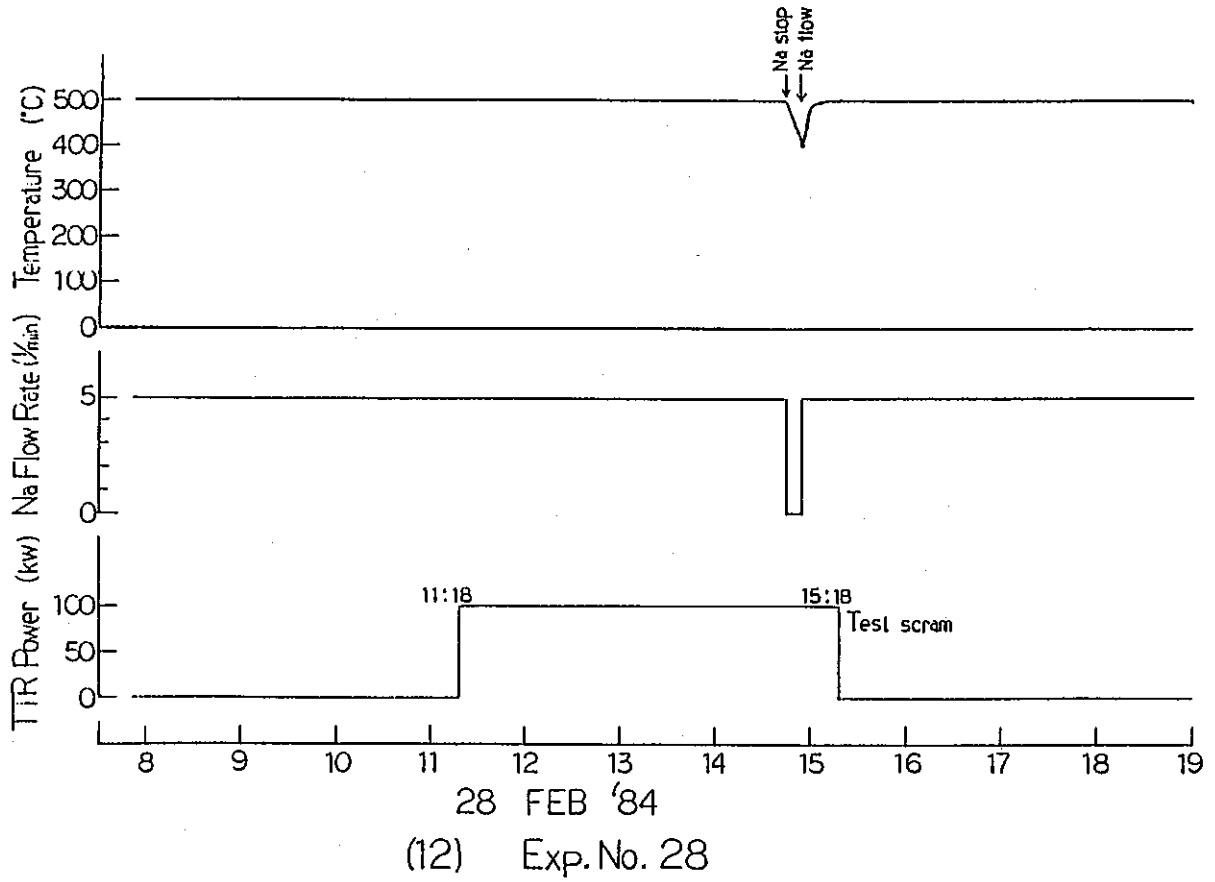
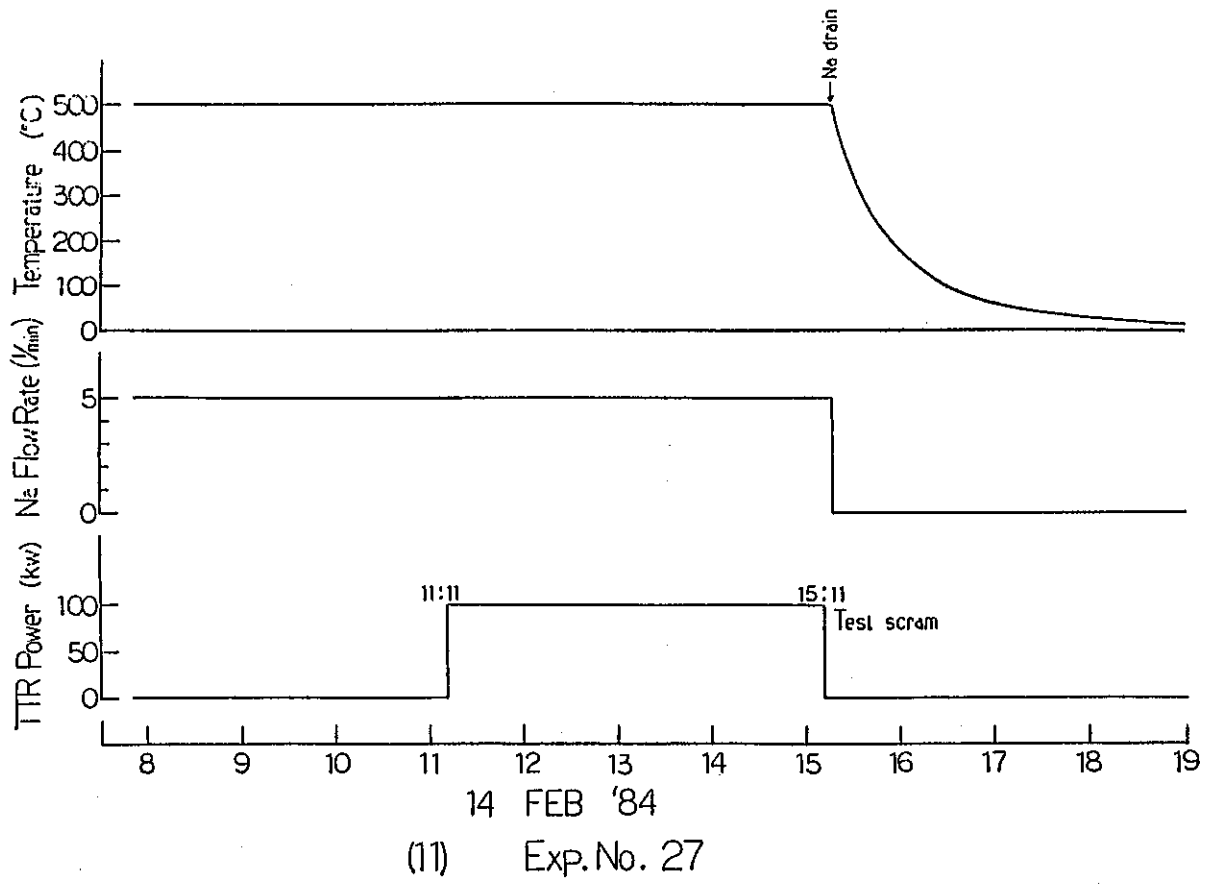


Fig. 4 - 2 (continued)

## 5. 不揮発性 FP の沈着挙動の解析

### 5.1 $\gamma$ 線スペクトルの測定

照射中及び照射後に、ディレイライン配管に沿って計測点を移動させながら $\gamma$ 線スペクトルの測定を行った。

Fig5-1 に、照射中と照射終了10分後にナトリウムをドレンした直後での800KeVから1500KeVの $\gamma$ 線スペクトルを示す。このときの実験条件はナトリウム温度500°C、流速1.2 m/secであり、計測点はD-2である。尚、 $\gamma$ 線スペクトルの測定は0KeVから2000KeVの範囲で測定を行っている。

Fig5-1のa)では、 $^{24}\text{Na}$ の1368.5 KeV及び2753.9 KeVのピーク、及び主に短半減期FPの高エネルギー $\gamma$ 線ピークに帰因するコンプトン散乱 $\gamma$ 線により、非常にバックグラウンドが高くなっているが、この高バックグラウンド下において、 $^{88}\text{Br}$ (775.2 KeV)、 $^{89}\text{Rb}$ (1031.9, 1248.1 KeV)、 $^{90}\text{Kr}$ (1118.7 KeV)、 $^{90}\text{Rb}$ (831.7 KeV)、 $^{94}\text{Rb}$ (836.9 KeV)、 $^{132}\text{Sb}$ (973.9 KeV)、 $^{134}\text{I}$ (847.0, 884.1 KeV)、 $^{136\text{m}}\text{I}$ (1313.0 KeV)、 $^{137}\text{I}$ (1218.6 KeV)、 $^{138}\text{Cs}$ (1453.9 KeV)等の揮発性FP及び、 $^{92}\text{Sr}$ (1383.9 KeV)、 $^{93}\text{Sr}$ (875.9 KeV)、 $^{94}\text{Sr}$ (1428.3 KeV)、 $^{94}\text{Y}$ (918.8 KeV)等の不揮発性FPの $\gamma$ 線ピークが非常に明瞭に検出された。<sup>7)</sup>一方Fig5-1のb)では、短半減期のFPは放射壊変のために検出されなくなっているが、 $^{134}\text{I}$ (半減期52.5分)、 $^{138}\text{Cs}$ (半減期32.2分)等の半減期の長い揮発性FPの $\gamma$ 線ピークは、 $^{24}\text{Na}$ のピークとともに完全に消失したのに対し、1383.9 KeVの $^{92}\text{Sr}$ の非常に強いピークを筆頭に、 $^{91}\text{Sr}$ (1024.3 KeV)、 $^{93}\text{Sr}$ (876.3, 888.3 KeV)、 $^{94}\text{Y}$ (918.8 KeV)、 $^{142}\text{Ba}$ (1078.5 KeV)、 $^{142}\text{La}$ (894.9 KeV)等の不揮発性FPのピークが明瞭に検出された。このことは、ナトリウム温度が500°Cの高温では、揮発性FPは、ナトリウムとともに完全にドレンされてしまうのに対し、不揮発性FPは、配管内壁に沈着して存在していることを意味する。そこで、これらの不揮発性FPのループ内沈着分布の測定結果から、次節で説明するモデルを用いて、これらFPの沈着挙動の解析を実施した。

## 5.2 不揮発性 FP の沈着挙動の解析モデル

不揮発性 FP のステンレス配管内壁表面への沈着挙動を求めるため、ディレイラインに沿って設けられた種々の計測点で  $\gamma$  線の測定を行った。本節では不揮発性 FP のナトリウム中での沈着挙動を、M.H. Cooper らが用いたナトリウム中の CP の輸送モデル<sup>4)</sup>により解析を行う。ステンレス表面に一旦沈着した FP は脱着しないと仮定すると、ナトリウム中の FP 核種 p の濃度  $C_p$  (atoms/cm<sup>3</sup>) の流れの方向に対する変化は

$$\frac{dC_p(x)}{dx} = -\frac{K_p \cdot (\ell/a) + \lambda_p}{v} C_p(x) \quad (5-1)$$

で表わされる。<sup>4)</sup>ここに、

$x$  : 照射試料からナトリウムが流れてきた距離 (cm)

$v$  : ナトリウムの流速 (cm/sec)

$\ell$  : 配管の内円周 ( $2\pi r$ ) (cm)

$r$  : 配管の内半径 (cm)

$a$  : 流路断面積 ( $\pi r^2$ ) (cm<sup>2</sup>)

$\lambda_p$  : 核種 p の放射壊変定数 (sec<sup>-1</sup>)

であり、 $K_p$  を沈着速度定数 (cm/sec) と定義する。これを解くと、

$$C_p(x) = C_{p0} \cdot e^{-\alpha_p \cdot x} \quad (5-2)$$

と解ける。ここに、

$$\alpha_p = \frac{K_p \cdot (\ell/a) + \lambda_p}{v} \quad (5-2a)$$

$C_{p0}$  : 照射試料部での核種 p の初期濃度 (atoms/cm<sup>3</sup>)

であり、 $C_{p0}$  は、ループの全長を  $L$  (cm) として、ナトリウムが数回ループを循環した後では、

$$C_{p0} = \frac{P_p}{F \cdot (1 - e^{-\alpha_p \cdot L})}$$

で表わされる。ここに、

$P_p$  : 照射試料部での単位時間当りの核種 p の放出速度 (atoms/sec)

$F$  : ナトリウム流量 (cm<sup>3</sup>/sec)

である。一方壁面の核種 p の濃度  $C_p^W(x, t)$  (atoms/cm<sup>2</sup>) は、

$$\frac{\partial C_p^W(x, t)}{\partial t} = K_p \cdot C_p(x) - \lambda_p \cdot C_p^W(x, t) \quad (5-3)$$

を満足する。これを解くと、

$$C_p^W(x, t) = \frac{K_p \cdot C_p(x)}{\lambda_p} (1 - e^{-\lambda_p \cdot t}) \quad (5-4)$$

となる。尚、 $t$  は、照射時間 (sec) である。

式 (5-4) からみられるように、壁面の濃度  $C_p^W(x, t)$  は、ナトリウム中の濃度  $C_p(x)$  と比例関係にあることがわかる。従って、不揮発性 FP のループ内分布は、(5-2)、(5-4) 式より、照射試料からの距離  $x$  に対して指数関数分布となる。しかも、ループ内分布の勾配から  $\alpha_p$  の値が求まり、(5-2a) 式より、核種  $p$  の沈着速度定数  $K_p$  の値が求まる。

ところで FP 核種は、一般に安定核種に比較してかなり過剰の中性子を含むため、 $\beta$  壊変をくり返しなが放射壊変していく。上述した例は、親核種からの放射壊変による影響が無視できるような理想的な不揮発性 FP の沈着挙動の場合であってこのような例は余りなく、ほとんどの場合 FP 核種の沈着挙動の解析には、壊変チェーンを考慮する必要がある。ただ壊変チェーンが長い連鎖で、その後端に位置する FP の挙動は、先行核種のナトリウム中での挙動の影響を複雑に受けるため、その FP の単独の挙動を解析することは困難である。そこで本節では壊変チェーンは親、娘の2代についてのみ考慮する。

娘核種を不揮発性 FP とした場合、壊変チェーンは、親核種が揮発性 FP の場合と不揮発性 FP の場合が考えられるので、それぞれの場合についてその挙動を検討する。

#### 1) 親核種が揮発性 FP でナトリウムが高温の場合

Rb-Sr, Cs-Ba の FP チェーンの場合がこれに相当する。親核種の半減期が照射時間に比較して充分短い (5分以内) 場合には、親核種のナトリウム中濃度は、照射開始後すみやかに放射平衡に到達する。従って親核種のステンレス表面への吸着が無視できるナトリウムが高温の場合については、親核種はナトリウムの流れに沿って放射壊変でのみ減少していくため、次式が成立する。尚、親、娘核種をそれぞれ  $p, d$  の添字で表わす。

$$\frac{d C_p(x)}{d x} = -\frac{\lambda_p}{v} C_p(x)$$

これより

$$C_p(x) = C_{p0} \cdot e^{-\beta_p \cdot x}$$

ここで、

$$\beta_p = \lambda_p / v$$

$$C_{p0} = \frac{P_p}{F \cdot (1 - e^{-\beta_p \cdot L})}$$

一方娘核種については、

$$\frac{dC_d(x)}{dx} = -\frac{K_d \cdot (\ell/a) + \lambda_d}{v} C_d(x) + \frac{\lambda_p}{v} C_p(x) \quad (5-5)$$

が成り立つ。これを解いて

$$C_d(x) = \frac{C_{p0} \cdot \beta_p}{\alpha_d - \beta_p} (e^{-\beta_p \cdot x} - e^{-\alpha_d \cdot x}) + C_{d0} \cdot e^{-\alpha_d \cdot x} \quad (5-6)$$

となる。ここに、

$$\alpha_d = \frac{K_d \cdot (\ell/a) + \lambda_d}{v}$$

$$C_{d0} = \left\{ \frac{C_{p0} \cdot \beta_p}{\alpha_d - \beta_p} (e^{-\beta_p \cdot L} - e^{-\alpha_d \cdot L}) + \frac{P_d}{F} \right\} / (1 - e^{-\alpha_d \cdot L})$$

である。ここに

$P_d$  : 照射試料部での娘核種  $d$  の放出速度 (atoms/sec)

一方娘核種  $d$  の壁面の濃度  $C_d^W(x, t)$  (atoms/cm<sup>2</sup>) は、

$$\frac{\partial C_d^W(x, t)}{\partial t} = K_d \cdot C_d(x) - \lambda_d \cdot C_d^W(x, t) \quad (5-7)$$

が成り立つ。これを解いて、

$$C_d^W(x, t) = \frac{K_d \cdot C_d(x)}{\lambda_d} (1 - e^{-\lambda_d \cdot t}) \quad (5-8)$$

であり、壁面の濃度  $C_d^W(x, t)$  とナトリウム中の濃度  $C_d(x)$  は比例関係になる。しかし娘核種のループ内の分布は、指数関数分布にはならない。

## 2) 親核種が不揮発性 FP の場合

親核種の沈着挙動が無視できないため、娘核種の挙動は非常に複雑となる。親核種のループ内分布は、(5-2), (5-4) 式より

$$C_p(x) = C_{p0} \cdot e^{-\alpha_p \cdot x} \quad (5-2b)$$

$$C_p^W(x, t) = \frac{K_p \cdot C_p(x)}{\lambda_p} (1 - e^{-\lambda_p \cdot t}) \quad (5-4b)$$

一方娘核種の場合は、(5-5), (5-7) 式より、

$$\frac{dC_d(x)}{dx} = -\frac{K_d \cdot (\ell/a) + \lambda_d}{v} C_d(x) + \frac{\lambda_p}{v} C_p(x) \quad (5-9)$$

$$\frac{\partial C_d^W(x, t)}{\partial t} = K_d \cdot C_d(x) - \lambda_d \cdot C_d^W(x, t) + \lambda_p \cdot C_p^W(x, t) \quad (5-10)$$

が成立する。これを解くと、

$$C_d(x) = \frac{C_{po} \cdot \beta_p}{\alpha_d - \alpha_p} (e^{-\alpha_p \cdot x} - e^{-\alpha_d \cdot x}) + C_{do} \cdot e^{-\alpha_d \cdot x} \quad (5-11)$$

$$C_d^W(x, t) = \frac{K_p \cdot C_p(x) + K_d \cdot C_d(x)}{\lambda_d} (1 - e^{-\lambda_d \cdot t}) + \frac{K_p \cdot C_p(x)}{\lambda_p - \lambda_d} \times (e^{-\lambda_p \cdot t} - e^{-\lambda_d \cdot t}) \quad (5-12)$$

となる。親核種が不揮発性 FP の場合には、娘核種のナトリウム中の濃度は壁面の濃度とは比例関係ではなくなる。

しかし親核種が 1 分以上の半減期の不揮発性 FP であり、娘核種の独立核分裂収率が親核種に比較して 5 % 以下と非常に小さい場合には、娘核種の沈着分布は、親核種の沈着分布をほぼそのまま表わすことが結論される。但し、この結論は、壁面に沈着した FP は全く脱着せず、壁面に沈着している親核種の放射壊変で生成する娘核種も壁面にとどまって脱着しないものと仮定した場合に成立する。この例として、以下の節で解析を行う  $^{92}\text{Sr}/^{92}\text{Y}$ ,  $^{94}\text{Sr}/^{94}\text{Y}$ ,  $^{97}\text{Zr}/^{97}\text{Nb}$ ,  $^{142}\text{Ba}/^{142}\text{La}$  等の FP チェーンの場合がある。例えば  $^{94}\text{Sr}/^{94}\text{Y}$  の場合、 $^{94}\text{Sr}$  単独でも挙動を求めることができるが、 $^{94}\text{Y}$  のループ内沈着分布から、Y が壁面から脱着を起こさないという仮定の元に、親核種である  $^{94}\text{Sr}$  の沈着挙動を求めることができるわけである。

以下に  $^{142}\text{Ba}/^{142}\text{La}$  を例にとって証明する。ただし、仮に  $K_d = 0$  (核種は沈着性でないことを意味する) の場合であっても、壁面に沈着している親核種の放射壊変で生成する娘核種はナトリウムに溶解せずに壁面にとどまっていると仮定した。まず、 $K_d$  の値に対する娘核種の沈着分布を推定するため  $K_p = 0.04$  (次節で述べる Sr, Ba の沈着速度定数はこの程度の大きさの値である) とし、照射時間を照射試験の時間に合せて 4 時間とし、 $^{142}\text{Ba}$  と  $^{142}\text{La}$  の FP チェーンについて  $K_d$  をパラメーターとして (5-12) 式により、照射直後の  $C_d^W(x, t)$  の値を計算した。その結果を親核種の  $C_p^W(x, t)$  の値とともに Fig 5-2 に示す。また Table 5-1 には、 $\gamma$  線計測位置の範囲 ( $x = 627 \sim 3033$  cm) に近い、 $x = 500, 1500, 3000$  とループ終端部  $x = 5734$  cm 位置での  $C_d^W(x, t)$  の値を示す。この結果、次のことがわかる。



- ①  $K_d=0$  のときの  $C_d^W$  の沈着勾配は、 $C_p^W$  の勾配と一致する ( $C_d^W/C_p^W$  の比は  $x$  に無関係に一定)。
- ②  $K_d$  の値が  $K_p$  と同じか大きい場合 ( $K_d=0.04, 0.1$  の場合),  $C_d^W/C_p^W$  の比はループ全長に亘り 2% 以内で一致する。
- ③  $x=500$  での  $C_d^W/C_p^W$  の比は、 $K_d$  の値の変化 ( $K_d=0\sim 0.1$ ) に対して 2% 以内で一致する。
- ④  $x=1500$  での  $C_d^W/C_p^W$  の比は、 $K_d$  の値の変化に対し 4% 以内で一致する。
- ⑤  $x=3000$  での  $C_d^W/C_p^W$  の比は、 $K_d=0.04 (=K_p)$  の場合を基準にして、 $K_d=0.001$  のときにその差は 18% と最大になるが、 $K_d=0.02$  ではその差は 8% と小さくなる。

次に参考のため  $K_p=0.03, 0.02, 0.01$  と変化させて、同様の計算を行った結果、次のようなことがわかった。

- ⑥  $x=500$  での  $C_p^W/C_d^W$  の比の変動幅は、 $K_p$  が小さくなる程大きくなる傾向にあるが、 $K_p=0.01$  の場合でも、 $K_d$  の値の変化 ( $K_d=0\sim 0.1$ ) に対し最大 6% である。
- ⑦  $x=1500$  での  $C_p^W/C_d^W$  の比の変動幅は、 $K_p$  の値にほとんど依存せず、4% 以内である。
- ⑧  $x=3000$  での  $C_p^W/C_d^W$  の比の変動幅は、 $K_p$  の値が小さくなる程小さくなる傾向を示し、その最大変動幅は、 $K_p=0.03$  の場合で 10%、 $K_p=0.01$  の場合は 5% と非常に小さくなる。

このように  $\gamma$  線計測位置の範囲で  $C_d^W$  と  $C_p^W$  の比が  $K_d$  の値に無関係にほぼ一定になることから、(i) 親核種は半減期が 1 分以上の不揮発性 FP、(ii) 娘核種の独立核分裂収率は親核種のそれに比べて 5% 以下と小さい、(iii) 沈着した親核種の放射壊変で生成する娘核種は脱着しない、という条件がそろっている場合には、娘核種の沈着分布は親核種の沈着分布を表わすことが結論された。

### 5.3 Sr の沈着挙動の解析

#### 1) 測定可能な Sr 同位体の検討

FP 核種の中で Sr の放射性同位体としては、 $^{87m}\text{Sr}$ 、 $^{89}\text{Sr}$ 、 $^{90}\text{Sr}$ 、 $^{91}\text{Sr}$ 、 $^{92}\text{Sr}$ 、 $^{93}\text{Sr}$ 、 $^{94}\text{Sr}$ 、 $^{95}\text{Sr}$ 、 $^{96}\text{Sr}$ 、 $^{97}\text{Sr}$ 、 $^{98}\text{Sr}$ 、 $^{99}\text{Sr}$  などの核種が存在する。このうち、 $^{87m}\text{Sr}$ 、 $^{89}\text{Sr}$ 、 $^{90}\text{Sr}$  は半減期が長く、 $\gamma$ 線を放出しないかあるいは $\gamma$ 分岐率が低いため、 $\gamma$ 線を検出することはできない。 $^{91}\text{Sr}$ 、 $^{92}\text{Sr}$ 、 $^{93}\text{Sr}$ 、 $^{94}\text{Sr}$  は核分裂収率も高く、非常に高い分岐率で $\gamma$ 線を放出する。しかも放出する $\gamma$ 線エネルギー位置の近辺には他の FP の $\gamma$ 線の強いピークが存在しないので、Sr の沈着挙動を求めるのに最適である。 $^{95}\text{Sr}$ 、 $^{96}\text{Sr}$ 、 $^{97}\text{Sr}$ 、 $^{98}\text{Sr}$ 、 $^{99}\text{Sr}$  は、核分裂収率が低くなり半減期が短くなるため $\gamma$ 線の測定が困難である。そこで、 $^{91}\text{Sr}$ 、 $^{92}\text{Sr}$ 、 $^{93}\text{Sr}$ 、 $^{94}\text{Sr}$  について沈着挙動の解析を行う。尚、 $^{94}\text{Sr}$  は先行核種の影響が少なく一番解析がし易いため、まず $^{94}\text{Sr}$  の沈着挙動から述べる。

#### 2) $^{94}\text{Sr}$ の沈着挙動

$^{94}\text{Sr}$  は、1428.3 KeV に非常に強い $\gamma$ 線を放出する。<sup>7)</sup>そこでこのピークを用いて $^{94}\text{Sr}$  の沈着挙動の解析を行う。

$^{94}\text{Sr}$  は半減期が 74.1 秒のため、照射終了後 10 数分で減衰する。そこで $^{94}\text{Sr}$  の沈着挙動の解析には、照射中の $\gamma$ 線スペクトルを用いた。尚、実験 No 10, 13, 15 は照射中にナトリウム流量を短時間毎に変化させているので、 $^{94}\text{Sr}$  の沈着挙動は流量変化の影響を受けるため、これらの実験結果を除き、実験 No 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, 11, 12, 14, 16 の 12 回の照射試験について求めた。Fig 5 - 3 に 12 回の照射試験で得られた $^{94}\text{Sr}$  のループ内分布を統計誤差とともに示す。横軸はウランカプセルからの距離  $x$  を表わし、たて軸は、計数率 (cps) を表わす。計数率には、Table 5 - 2 に示す D - 2 ~ 9 までの検出器位置におけるジオメトリー及び $\gamma$ 線エネルギーによる検出効率の補正を行っている。しかし、 $^{94}\text{Sr}$  は半減期が 74.1 秒のため照射開始後約 10 分でその生成量は飽和に達するので、放射壊変補正はしていない。

Fig 5 - 3 でみられるように、 $^{94}\text{Sr}$  のループ内分布は、距離  $x$  に対して明瞭に指数関数分布をしているのが認められる。以下に質量数 94 の FP チェーンを構成する FP 核種について、半減期及び核分裂収率の値を示す。<sup>7), 8)</sup>

	$^{94}\text{Kr}$	$\longrightarrow$	$^{94}\text{Rb}$	$\longrightarrow$	$^{94}\text{Sr}$	$\longrightarrow$	$^{94}\text{Y}$	$\longrightarrow$	$^{94}\text{Zr}$
半減期	0.20 sec		2.73 sec		74.1 sec		19.0 min		(stable)
核分裂収率	0.26 %		1.60 %		4.15 %		0.39 %		

上記 FP チェーンのデータより,  $^{94}\text{Sr}$  の先行核種である  $^{94}\text{Kr}$  及び  $^{94}\text{Rb}$  は, 半減期が短く, かつ核分裂収率が低いことがわかる。従って前節で述べた解析モデルで示されるようにこれらの先行核種の  $^{94}\text{Sr}$  の沈着挙動に与える影響は非常に小さく,  $^{94}\text{Sr}$  はループ内で指数関数分布をしているものと結論される。

Fig. 5 - 3 の沈着分布を最小 2 乗法で fitting を行い, その勾配から前節で述べた解析モデルの未知数である沈着速度定数  $K$  ( $\text{cm}/\text{sec}$ ) の値を求めた。Fig. 5 - 3 に最小 2 乗 fitting の結果も合せて直線で示す。尚, 実験 No 2, 9, 11, 12 では計測点が 2 点しかないが, 実験 No 3 ~ 8 の結果で示されるように,  $^{94}\text{Sr}$  は指数関数分布となるので, 計測点が 2 点の場合でも, 2 点間を結んで得られる直線は意味をもち, その勾配から沈着速度定数  $K$  を求めることができる。得られた  $^{94}\text{Sr}$  の沈着速度定数の値  $K$  を Table 5 - 3 にナトリウム温度及び流速毎にまとめて示す。ナトリウムの流速条件は, 実験 No 2 ~ 8 は  $1.2\text{m}/\text{sec}$  (流量  $5.0\text{ l}/\text{min}$ ), 実験 No 9, 11, 12 は  $1.2\text{m}/\text{sec}$  及び  $0.48\text{m}/\text{sec}$  ( $2.0\text{ l}/\text{min}$ ), 実験 No 14, 16 は  $0.24\text{m}/\text{sec}$  ( $1.0\text{ l}/\text{min}$ ) である。

これらの解析の結果から次のことがわかった。

- (i) 流速が一定の条件では,  $^{94}\text{Sr}$  はナトリウムが高温程沈着速度が速くなる。
- (ii) 温度が一定の条件では,  $^{94}\text{Sr}$  は流速が速い程沈着速度が速くなる。

尚 (i) の結論は, Fig. 5 - 3 において高温程沈着分布の勾配が急になることから推定できる。また, (ii) の結論は, 沈着速度定数  $K$  が流速の関数であることを示唆している (5.9 項で詳述する)。尚 Fig. 5 - 3 において流速が遅くなる程沈着分布の勾配が急になるのが認められるが, これは沈着分布の勾配を表わす  $\alpha$  (式 (5-2a) で定義) の中に流速  $v$  が逆数の形で含まれているためである。

### 3) $^{92}\text{Sr}$ の沈着挙動

$^{92}\text{Sr}$  は,  $1383.9\text{ KeV}$  に非常に強い  $\gamma$  線を放出する。そこでこのピークを用いて  $^{92}\text{Sr}$  の沈着挙動の解析を行う。

$^{92}\text{Sr}$  は半減期が 2.7 時間であるので照射終了後もその  $\gamma$  線は長時間に亘って検出される。しかも照射終了後は短半減期の FP が減衰しているので, 照射中よりも SN 比の

よいデータが得られる。そこで  $^{92}\text{Sr}$  の沈着挙動の解析には、照射終了後ナトリウムをドレンした後に測定した  $\gamma$  線スペクトルを用いた。但し、実験No 14 と 16 はナトリウム流速が  $0.24\text{ m/sec}$  (流量  $1\ \ell/\text{min}$ ) と小さく短半減期FPの影響が小さいため、照射中の  $\gamma$  線スペクトルをも用いた。また、実験No 9, 10, 11, 12, 13, 15 は照射中にナトリウム流量を変化させて実験を行っているので、これらの実験結果は除き、実験No 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 14, 16 の9回の照射試験について  $^{92}\text{Sr}$  の沈着分布を求めた。Fig 5-4 に9回の照射試験で得られた  $^{92}\text{Sr}$  のループ内沈着分布を統計誤差とともに示す。横軸、たて軸は Fig 5-3 と同じである。計数率には検出効率等の補正を行っているが、更に  $^{92}\text{Sr}$  は半減期が長い<sup>7),8)</sup>ため、すべての計数率は、照射終了直後の時点に壊変補正をしている。

Fig 5-4 でみられるように、実験No 14, 16 の結果を除いてナトリウム流速が  $1.2\text{ m/sec}$  の場合の  $^{92}\text{Sr}$  のループ内沈着分布は、 $^{94}\text{Sr}$  でみられたような直線的(指数関数)分布にならない(尚、ナトリウム流速が  $0.24\text{ m/sec}$  の場合には、直線的分布が得られた)。これは、 $^{92}\text{Sr}$  の先行核種の影響を強く受けているためと考えられる。そこで以下に質量数92のFPチェーンを構成するFP核種について半減期及び核分裂収率の値を示す。

	$^{92}\text{Br}$	$\longrightarrow$	$^{92}\text{Kr}$	$\longrightarrow$	$^{92}\text{Rb}$	$\longrightarrow$	$^{92}\text{Sr}$	$\longrightarrow$	$^{92}\text{Y}$	$\longrightarrow$	$^{92}\text{Zr}$
半 減 期	0.365sec		1.84sec		4.54 sec		2.71 hr		3.53 hr		(stable)
核分裂収率	0.02 %		1.52 %		3.31 %		1.10 %		0.01 %		

上記FPチェーンのデータより、 $^{92}\text{Sr}$  は、核分裂により直接生成するものと揮発性FPである  $^{92}\text{Br}$ ,  $^{92}\text{Kr}$ ,  $^{92}\text{Rb}$  の放射壊変で生成するものがあるが、その大部分(約81%)が親核種である  $^{92}\text{Rb}$  の放射壊変で生成する。しかも  $^{92}\text{Rb}$  は半減期が4.54秒であるため、ナトリウム流速が  $1.2\text{ m/sec}$  の場合には、ウランカプセル部から一番近い  $\gamma$  線計測位置に到達するまでの5.2秒の間に  $1/2.2$  しか減衰しないので  $^{92}\text{Sr}$  の沈着挙動に大きな影響を与えることになる。そこで(5-6), (5-8)式を用い、 $K_d$  をパラメータとして非線型最小2乗法により実験値と解析モデルのfittingを行った。図中には、fittingの結果を実線で示し、解析で得られた沈着速度定数の値Kを、Table 5-4にナトリウム温度及び流速毎にまとめて示す。尚、図中に示したfittingの結果は、実験データと非常によく一致しているので、本解析モデルが  $^{92}\text{Sr}$  のループ内沈着挙動を充分によく表わしていることがわかる。またTable 5-4に示されたK値は、先行核種の影響を取り除いた、純粋に  $^{92}\text{Sr}$  のみの沈着挙動を表わす値であるが、この値をTable

5-3の $^{94}\text{Sr}$ のK値と比較すると、ナトリウム温度及び流速毎に、非常によく一致した。このことからSrの沈着挙動については同位体効果が全くないことがわかる。

#### 4) $^{93}\text{Sr}$ の沈着挙動

$^{93}\text{Sr}$ は多数の $\gamma$ 線ピークを放出するが、他のFPの $\gamma$ 線からの妨害が比較的少ない、590.2及び875.9KeVの2本の $\gamma$ 線ピークを用いて $^{93}\text{Sr}$ の沈着挙動の解析を行う。<sup>7)</sup>

$^{93}\text{Sr}$ は半減期が7.5分であるため、照射終了後にループ内分布を求めるのは困難である。そこで $^{93}\text{Sr}$ の沈着挙動の解析には、照射中の $\gamma$ 線スペクトルを用いた。尚、実験No 9, 10, 11, 12, 13, 15は照射中にナトリウム流量を変化させて実験を行っているので、 $^{93}\text{Sr}$ の沈着挙動は流量変化の影響を受けていると考えられる。しかも上記実験では、照射中は計測点は2点で固定して計測しているため、 $^{94}\text{Sr}$ のように短半減期でかつ先行核種の影響が無視できる特殊な場合を除いて、不揮発性FPの沈着挙動の解析には使用できない。そこで今後実験No 9, 10, 11, 12, 13, 15の実験結果は、特別の場合を除いて挙動解析の対象としないことにした。また実験No 2は照射中の計測点は2点で固定して計測しているため、挙動解析の対象から除外し、実験No 3, 4, 5, 6, 7, 8, 14, 16の8回の照射試験について $^{93}\text{Sr}$ のループ内沈着分布を求めた。Fig 5-5に8回の照射試験で得られた $^{93}\text{Sr}$ のループ内沈着分布を統計誤差とともに示す。たて軸の計数率には検出効率及び壊変の補正を行っている。 $^{93}\text{Sr}$ の沈着分布は $^{92}\text{Sr}$ の場合と同様に指数関数分布にはならず、先行核種の影響を強く受けている。以下に質量数93のFPチェーンを構成する核種の半減期及び核分裂収率の値を示す。<sup>7), 8)</sup>

	$^{93}\text{Kr}$	$\longrightarrow$	$^{93}\text{Rb}$	$\longrightarrow$	$^{93}\text{Sr}$	$\longrightarrow$	$^{93}\text{Y}$	$\longrightarrow$	$^{93}\text{Zr}$
半減期	1.29 sec		5.85 sec		7.5 min		10.2hr		$1.5 \times 10^6$ year
核分裂収率	0.52 %		2.97 %		2.78 %		0.10 %		0.0003 %

上記FPチェーンのデータより、 $^{93}\text{Sr}$ は、3.49:2.78の比で先行核種である $^{93}\text{Rb}$ の放射壊変で生成する方が多いことがわかる。そこで $^{92}\text{Sr}$ の場合と同様に(5-6)、(5-8)式を用い、 $K_d$ をパラメーターとして非線型最小2乗法により実験値と解析モデルのfittingを行った。図中には、fittingの結果を実線で示し、解析で得られた沈着速度定数の値Kを、Table 5-5にナトリウム温度、流速及び $\gamma$ 線エネルギー毎にまとめ示す。全体的に875.9KeVのデータの方が低目の値を示す。図中に示したfitting

の結果は、実験データと非常によく一致することがわかった。Table 5-5 の K 値を他の Sr 同位体の K 値と比較すると、ナトリウム温度が高い 500, 530°C の場合はお互いによく一致するが、350, 420°C の場合には、 $^{93}\text{Sr}$  の値の方が高目の傾向を示す。これは 590.2 及び 875.9 KeV の 2 本の  $\gamma$  線ピークは、他の FP からの妨害が少ないとはいえ、10~20% 程度の妨害を受けているためと考える。尚、0.24 m/sec の流速条件の場合は、590.2 KeV の解析結果は  $^{92}\text{Sr}$ ,  $^{94}\text{Sr}$  の 0.24 m/sec の場合の結果とよく一致した。

### 5) $^{91}\text{Sr}$ の沈着挙動

$^{91}\text{Sr}$  は半減期が 9.48 時間であるため、照射中には  $^{91}\text{Sr}$  の  $\gamma$  線は強くは検出されないが、照射終了後ナトリウムをドレンするか、終了後もナトリウムを循環しながら短半減期の FP が減衰した後で、かなりの強度で多数のピークが検出される。そこで中でも  $\gamma$  線強度の高い 749.8 と 1024.3 KeV の 2 本の  $\gamma$  線ピークを用いて照射終了後の場合について  $^{91}\text{Sr}$  のループ内分布を求めた。

Fig 5-6 の 1), 2) の図は、ナトリウム温度 350°C, 流速 1.2 m/sec (流量は 5ℓ/min) の実験 Na 3 における、それぞれ 749.8 及び 1024.3 KeV の場合のループ内分布を示す。 $^{91}\text{Sr}$  はループ全体にほぼ均一に分布している。これは、先行核種である  $^{91}\text{Rb}$  の影響を強く受けているためである。以下に質量数 91 の FP チェーンを構成する核種の半減期及び核分裂収率の値を示す。

	$^{91}\text{Br}$	$\longrightarrow$	$^{91}\text{Kr}$	$\longrightarrow$	$^{91}\text{Rb}$	$\longrightarrow$	$^{91}\text{Sr}$
半 減 期	0.54 sec		8.57 sec		58.7 sec		9.48 hr
核分裂収率	0.42 %		3.09 %		2.23 %		0.17 %

上記データに示されるように、 $^{91}\text{Sr}$  は、5.74 : 0.17 の比で大部分が  $^{91}\text{Rb}$  の放射壊変で生成することがわかる。Rb は半減期が 58.7 秒で配管に吸着しにくいいためループ内に均一に分布し、そのため娘核種である  $^{91}\text{Sr}$  もループ内に均一に分布することになる。尚、ナトリウム流速が 1.2 m/sec の場合には、ナトリウム温度に無関係に実験 Na 3 とほぼ同一のループ内分布が得られた。このような分布データから、(5-6), (5-8) 式を用いて  $K_d$  をパラメーターとして非線型最小 2 乗法により実験値とモデルの fitting を行ったが、計算は収束せず、解を得ることはできなかった。

一方 0.24 m/sec の流速の実験 No. 14 と 16 の場合には、ナトリウムがループ（全長 57.4 m）を 1 循環するのに約 240 秒かかりこの間に  $^{91}\text{Rb}$  は約 1/16 に減衰するため、 $^{91}\text{Rb}$  の影響はかなり小さくなる。Fig 5-6 の 3), 4), 5), 6) に、実験 No. 14, 16 で得られた  $^{91}\text{Sr}$  のループ内分布を  $\gamma$  線ピーク毎に示す。これらの図は、 $^{92}\text{Sr}$ 、 $^{93}\text{Sr}$  の流速条件 1.2 m/sec の場合の分布によく似ている。そこで、これらの図について、(5-6)、(5-8) 式による沈着挙動の解析を行い、 $^{91}\text{Sr}$  のナトリウム流速が 0.24 m/sec の場合の沈着速度定数 K の値を求めた。図中には解析結果を実線で、また Table 5-6 には、得られた K の値を示す。この結果によると、実験値はある程度バラツキがあるが、fitting の状態はかなりよいことがわかる。また K 値については、実験 No. 14 の方が 16 より若干大きな値を示したが、 $^{91}\text{Sr}$  の 0.24 m/sec の流速条件における K 値は、同一条件における  $^{92}\text{Sr}$ 、 $^{93}\text{Sr}$ 、 $^{94}\text{Sr}$  の K 値とほぼ一致し、同位体間で沈着挙動に差がないことが示された。

本解析に用いたモデルは、一旦ステンレス表面に沈着した不揮発性 FP は脱着しないという仮定を設けている。そこで、脱着がおこるかどうかを確認するため、実験 No. 16 において、照射終了後もナトリウムを約 20 時間循環させて、 $\gamma$  線ピークの計数率（壊変補正を施した後の値）の変化を測定する実験を行った。その結果、 $^{91}\text{Sr}$  の計数率に経時変化は認められなかった（Fig 5-6 参照）。一方実験 No. 14 では、実験 No. 16 と同一条件で照射試験を行い、照射終了後すぐにナトリウムをドレンして配管の  $\gamma$  線測定を行っているので両実験で得られた  $^{91}\text{Sr}$  の計数率の比較を行った。尚、実験 No. 14 と 16 は照射時間が異なっているのでこの違いを考慮した結果、両実験の計数率はほぼ一致した。これらの検討の結果、 $^{91}\text{Sr}$  は少なくとも 20 時間のナトリウム循環時間では、脱着は起っていないことが結論された。

#### 5.4 Y の沈着挙動の解析

##### 1) 測定可能な Y 同位体の検討

FP 中の Y の放射性同位体としては、 $^{89\text{m}}\text{Y}$ 、 $^{90\text{m}}\text{Y}$ 、 $^{90}\text{Y}$ 、 $^{91\text{m}}\text{Y}$ 、 $^{91}\text{Y}$ 、 $^{92}\text{Y}$ 、 $^{93}\text{Y}$ 、 $^{94}\text{Y}$ 、 $^{95}\text{Y}$ 、 $^{96}\text{Y}$ 、 $^{97\text{m}}\text{Y}$ 、 $^{97}\text{Y}$ 、 $^{98}\text{Y}$ 、 $^{99}\text{Y}$  など非常にたくさんの核種が存在する。このうち  $^{89\text{m}}\text{Y}$  から  $^{91}\text{Y}$  までについては、 $\gamma$  線を放出しないか  $\gamma$  分岐率の低い  $\gamma$  線しか放出せず、かつ FP チェーンの後半に位置するために独立核分裂収率が低く、Y 自身の沈着挙動を解析するには不適當である。 $^{92}\text{Y}$  から  $^{95}\text{Y}$  までは、半減期が長く、かつ分

岐率の高い $\gamma$ 線を放出するので、照射中あるいは照射後に $\gamma$ 線ピークが検出されるが、独立核分裂収率が低いこと、Yは沈着性の強いSrの娘核種でありかつY自身も沈着傾向が強いと考えられることなどのため、これらの $\gamma$ 線を利用して求められる沈着分布は親核種であるSrの沈着挙動を求めている可能性が強い。このことを確認するため、明瞭に $\gamma$ 線ピークが検出される $^{92}\text{Y}$ と $^{94}\text{Y}$ の $\gamma$ 線データを用いて解析を試みた。その結果を次項以下で述べる。一方 $^{96}\text{Y}$ は、半減期が9.6秒と若干短い、FPチェーンの先頭に近いところに位置し、また独立核分裂収率も高く、 $\gamma$ 線データによる<sup>7)</sup>と1750.7 KeVに非常に $\gamma$ 分岐の高いピークを放出するので、Yの沈着挙動を求めるのに最適であると考えた。しかし、 $\gamma$ 線測定の結果では1750.7 KeVのピークは非常に弱くしか検出されなかったため、沈着挙動を求めることはできなかった。 $^{97\text{m}}\text{Y}$ から $^{99}\text{Y}$ の核種については、FPチェーンの先頭付近に位置するため核分裂収率が再び小さくなって生成量も小さくなり、更に半減期も4秒以下と短くなるため、 $\gamma$ 線測定でもピークを検出することはできなかった。これらの検討の結果、Y単独の沈着挙動を求めることは困難と考える。尚、前述したように、参考のため次項以下に $^{92}\text{Y}$ 及び $^{94}\text{Y}$ の $\gamma$ 線測定結果を示す。

## 2) $^{92}\text{Y}$ の $\gamma$ 線測定結果

$^{92}\text{Y}$ は前述の $^{92}\text{Sr}$ 項のFPチェーンのデータで示したように、核分裂収率が0.01%と非常に小さい。また $^{92}\text{Y}$ の親核種の $^{92}\text{Sr}$ は半減期が2.7時間と長いため、 $^{92}\text{Y}$ の $\gamma$ 線の測定で得られるループ内分布は、5.2節の2)の項で述べた、半減期の長い、不揮発性FP - 不揮発性FPのチェーンの場合に相当し、親核種である $^{92}\text{Sr}$ の沈着挙動を表わす。 $^{92}\text{Y}$ は934.5 KeVにかなり強い $\gamma$ 線を放出し、半減期が3.5時間と長いので、このピークを用い、またS/N比のよい照射終了後の $\gamma$ 線スペクトルを用いて $^{92}\text{Y}$ のループ内分布を求めた。分布を求めた実験は、 $^{92}\text{Sr}$ の場合と全く同様に、実験No. 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 14, 16の9回の照射試験である。Fig 5-7に $^{92}\text{Y}$ の $\gamma$ 線測定で求めたループ内分布を統計誤差とともに示す。統計誤差は $^{92}\text{Sr}$ に比べるとかなり大きい。ループ内分布は $^{92}\text{Sr}$ の場合に非常によく似ている。尚、計数率には、計測点における検出効率の差による補正の他に、 $^{92}\text{Sr}$ の放射壊変で生成してくる量と $^{92}\text{Y}$ の放射壊変で減少していく量を考慮した壊変補正を施した。この $^{92}\text{Y}$ の $\gamma$ 線によって得られたループ内分布を $^{92}\text{Sr}$ のループ内分布とみなし、今まで述べてきた解析方法により、沈着速度定数を求めた。fittingの結果を図中に実線で、またKの値をTable 5-7に



示す。これらのK値と $^{92}\text{Sr}$ の分布から求めたK値を比較した結果、流速 $1.2\text{m}/\text{sec}$ の場合には、 $^{92}\text{Y}$ から求めたK値の方が全般的に10%程大きな値を示し、流速 $0.24\text{m}/\text{sec}$ の場合は逆に $^{92}\text{Y}$ から求めた方が小さな値を示すことがわかった。しかし10%の範囲で両者の値が一致することからこの差は実験誤差と考えられ、 $^{92}\text{Y}$ の分布は、 $^{92}\text{Sr}$ の沈着分布を表わしていることが結論される。

不揮発性FPの沈着挙動を推定する上でもう一つ重要なことは、一旦ステンレス内壁表面に沈着したFPが脱着を起こして再分配するかどうかという点である。 $^{92}\text{Y}$ は半減期が3.5時間と比較的長く、また2.7時間の半減期の $^{92}\text{Sr}$ から生成してくる分があるため、照射終了後もかなりの時間に亘って $\gamma$ 線ピークを検出することができる。そこで $^{91}\text{Sr}$ の項で述べたように、実験No 16において、照射終了後20時間ナトリウムを循環させて $^{92}\text{Y}$ の計数率の経時変化を測定した結果、その計数率の経時変化は認められなかった。また $^{91}\text{Sr}$ の場合と同様に実験No 14と16の計数率の比較を行った結果、両者の実験結果はほぼ一致した。これらの検討の結果、 $^{92}\text{Y}$ は少なくとも20時間のナトリウム循環時間の間では、脱着は起っていないことが結論された。

### 3) $^{94}\text{Y}$ の $\gamma$ 線測定結果

$^{94}\text{Y}$ のループ内分布は、 $^{92}\text{Y}$ と同様の理由により、先行核種である $^{94}\text{Sr}$ のループ内分布を表わしていることを実験データから説明する。 $^{94}\text{Y}$ は $918.8\text{KeV}$ に非常に強い $\gamma$ 線を放出するのでこのピークを用いてループ内分布を求め<sup>7)</sup>。 $^{94}\text{Y}$ の半減期は19分であるので、照射中の $\gamma$ 線スペクトルを用いた。分布を求めた実験は、実験No 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 14, 16の9回の照射試験である。Fig 5-8に $^{94}\text{Y}$ の $\gamma$ 線測定で求めたループ内分布を統計誤差とともに示す。データにかなりのバラツキはあるが、どの実験の場合でも、ほぼ指数関数分布をしているのが認められる。そこで、 $^{94}\text{Y}$ の $\gamma$ 線測定によって得られたループ内分布を $^{94}\text{Sr}$ のループ内分布とみなして、これまで述べてきた方法により沈着速度定数を求めた。この値をTable 5-8に示す。このK値と $^{94}\text{Sr}$ の沈着分布から求めたK値を比較した結果、両者は10%の誤差でよく一致した。このことから、 $^{94}\text{Y}$ の沈着分布は、 $^{94}\text{Sr}$ の沈着分布を表わしていることが結論される。尚、 $^{94}\text{Y}$ は前述したように19分の半減期のため、照射終了後の長時間に亘るナトリウムの循環実験において、 $^{94}\text{Y}$ の $\gamma$ 線からYの脱着が起るかどうかを測定することはできなかった。

## 5.5 Zr の沈着挙動の解析

### 1) 測定可能な Zr 同位体の検討

FP 核種の中で Zr の放射性同位体としては、 $^{93}\text{Zr}$ 、 $^{95}\text{Zr}$ 、 $^{97}\text{Zr}$ 、 $^{98}\text{Zr}$ 、 $^{99}\text{Zr}$ 、 $^{100}\text{Zr}$ 、 $^{101}\text{Zr}$  などの核種が存在する。このうち  $^{95}\text{Zr}$  は半減期が 65.5 日と非常に長いため、EBR-II や BOR-60<sup>2)</sup> などの FBR 実験炉ではかなり強い強度で検出された。FPL-II でもナトリウムドレン後の長時間の測定では  $^{95}\text{Zr}$  の  $\gamma$  線ピークが検出されるが、強度が弱いため沈着挙動の解析に使用できるデータは得られなかった。その他の同位体についても  $^{97}\text{Zr}$  を除いては、半減期が短かったり、 $\gamma$  線を放出しないかまたは  $\gamma$  分岐率が小さいため、沈着挙動の解析に使用できるデータは得られなかった。 $^{97}\text{Zr}$  については、独立核分裂収率がかなり高いことと、 $\gamma$  分岐率が高い  $\gamma$  線を放出するので、照射終了後にかなり強い強度で検出された。そこで以下の項では  $^{97}\text{Zr}$  の沈着挙動について述べる。

### 2) $^{97}\text{Zr}$ の沈着挙動

Zr は、Y の娘核種である。以下に質量数 97 の FP チェーンを構成する核種の半減期<sup>7), 8)</sup> 及び核分裂収率の値を示す。

	$^{97}\text{Rb}$	$\longrightarrow$	$^{97}\text{Sr}$	$\longrightarrow$	$^{97}\text{Y}$	$\longrightarrow$	$^{97}\text{Zr}$	$\longrightarrow$	$^{97}\text{Nb}$
半減期	0.172 sec		0.40 sec		3.70 sec		16.8 hr		72.2 min
核分裂収率	0.03 %		1.73 %		3.18 %		1.00 %		0.01 %

上記データに示されるように、 $^{97}\text{Zr}$  は、4.94 : 1.00 の割合で、Zr の親核種である  $^{97}\text{Y}$  から放射壊変により生成してくる方が圧倒的に多い。しかし  $^{97}\text{Y}$  の半減期は 3.7 秒と比較的短いため、ナトリウムが照射試料から  $\gamma$  線計測点に到達するまでに、充分の量の  $^{97}\text{Zr}$  が生成してくる。従って、 $^{92}\text{Y}$  や  $^{94}\text{Y}$  の場合と異なり、 $^{97}\text{Zr}$  のループ内分布は親核種である  $^{97}\text{Y}$  と  $^{97}\text{Zr}$  の沈着挙動の組み合わせの結果をみていることになる。従って、 $^{97}\text{Zr}$  のループ内分布の結果を、(5-11)、(5-12) 式を用い、Y と Zr の沈着速度定数  $K_p$ 、 $K_d$  をパラメーターとして非線型最小 2 乗法により解析モデルとの fitting を行うことにより、 $^{97}\text{Y}$  と  $^{97}\text{Zr}$  の沈着速度定数を同時に求めることができる。

上記 FP チェーンのデータより、 $^{97}\text{Zr}$  の半減期は 16.8 時間であるので、照射終了後ナトリウムをドレンした後に測定した S/N 比のよい  $\gamma$  線スペクトルを用いて、 $^{97}\text{Zr}$  のループ内沈着分布を求めた。分布を求めた実験は、実験 No. 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 14, 16 の 9 回の照射試験である。Fig 5-9 に  $^{97}\text{Zr}$  のループ内沈着分布を統計誤差とともに示

す。統計誤差はあまり大きくない。これらのデータを元にして、前述した方法により、 $^{97}\text{Y}$ と $^{97}\text{Zr}$ の沈着速度定数の値をそれぞれ求めた。その結果を Table 5-9 に示す。尚、図中には fitting の結果を実線で示す。fittingの結果は、実験値と非常によく一致した。得られた $^{97}\text{Y}$ と $^{97}\text{Zr}$ のK値を、SrのK値と比較した結果、次のようなことがわかった。

①  $^{97}\text{Y}$ の沈着速度定数は、200℃の場合を除いてSrの沈着速度定数とかなりよく一致する。

②  $^{97}\text{Zr}$ の沈着速度定数は、200～530℃の範囲でほとんど温度依存性を示さず、ナトリウムの流速が1.2m/secの条件では $2.2 \times 10^{-2}$  cm/sec程度の値である。

これらの結果から、YはSrと同じような沈着メカニズムによりステンレス表面に沈着するのに対し、Zrは、SrやYと異なった沈着メカニズムが支配しているものと推定する。

$^{91}\text{Sr}$ 、 $^{92}\text{Y}$ の項で述べたように、半減期が長い不揮発性FPの場合には、照射終了後も長時間ナトリウムを循環し続けることにより、一旦ステンレス表面に沈着した不揮発性FPが脱着するかどうかを測定することができる。そこで $^{91}\text{Sr}$ のときと同様に実験No 16の実験結果について考察を加える。尚、 $^{97}\text{Zr}$ の743.4 KeVのピークは、不幸にも揮発性FP (Te-134等)の $\gamma$ 線と重なるため、揮発性FPが溶解してループ中に存在するナトリウム循環中については、 $^{97}\text{Zr}$ の $\gamma$ 線ピークの計数率の経時変化を測定することができない。そこで、照射中の条件は全く同じ(照射時間は異なる)で照射後のナトリウム循環時間が異なる実験No 14と16のナトリウムドレン後の測定結果について両者の比較を行った。その結果実験No 16の方が14の結果より50%程高い計数率を示したが、照射時間はNo 16の方が13%程短い。従ってこの結果から、実験No 16では、照射後のナトリウムの循環により、上流側の配管内壁面に沈着していた $^{97}\text{Zr}$ の一部が脱着して下流側に流れ、新たに沈着した可能性があることが推定される。

尚、(5-1)式で定義した沈着速度定数は、FPの内壁表面への沈着過程における、拡散、吸着、脱着等の種々の素反応の収支を表わしていると考えられる。従ってこれまでに求めた $^{97}\text{Zr}$ の沈着速度定数には、すでに脱着の効果も含まれており、 $^{97}\text{Zr}$ の配管への沈着量の推定を行う場合などには、この沈着速度定数は十分に意味をもつ値であると考えられる。また沈着速度定数に与える脱着の影響が大きいため、 $^{97}\text{Zr}$ の沈着速度定数の温度依存性は、Srの場合と大きく異なった結果を与えたものと考えられる。

## 5.6 Nbの挙動の解析

### 1) 測定可能なNb同位体の検討

FP核種の中でNbの放射性同位体は $^{93m}\text{Nb}$ ,  $^{95}\text{Nb}$ ,  $^{95m}\text{Nb}$ ,  $^{97m}\text{Nb}$ ,  $^{97}\text{Nb}$ ,  $^{98m}\text{Nb}$ ,  $^{98}\text{Nb}$ ,  $^{99m}\text{Nb}$ ,  $^{99}\text{Nb}$ ,  $^{100}\text{Nb}$ ,  $^{101}\text{Nb}$ ,  $^{102}\text{Nb}$ ,  $^{104}\text{Nb}$ ,  $^{105}\text{Nb}$ などの核種が存在する。このうち $^{95}\text{Nb}$ は半減期が36.5日と長く、半減期の長い $^{95}\text{Zr}$ の壊変生成物であるため、前記の実験炉でも非常に強い強度で検出されている。しかし、FPL-IIでは $^{95}\text{Zr}$ と同様に長時間測定ではピークが検出されるが、強度が弱く沈着挙動の解析に使用できるデータは得られなかった。その他の同位体についても $^{97}\text{Nb}$ を除いては、半減期が短かかったり、 $\gamma$ 線を放出しないかまたは $\gamma$ 分岐率が小さいため、ループ内分布を求めることはできなかった。 $^{97}\text{Nb}$ については、 $\gamma$ 分岐率が高い $\gamma$ 線を放出するので、照射終了後にかなり強い強度で検出された。そこで以下の項では $^{97}\text{Nb}$ の $\gamma$ 線測定結果について述べる。

### 2) $^{97}\text{Nb}$ の $\gamma$ 線測定結果

$^{97}\text{Nb}$ は、657.9 KeVにかなり強い $\gamma$ 線を放出する。<sup>7)</sup>半減期は72.2分であり、かつ大部分の $^{97}\text{Nb}$ が $^{97}\text{Zr}$ の壊変で生成するため、S/N比のよい照射終了後ナトリウムドレン後の $\gamma$ 線スペクトルを用いて $^{97}\text{Nb}$ のループ内分布を求めた。分布を求めた実験は、実験No. 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 14, 16の9回の照射試験である。Fig 5-10に $^{97}\text{Nb}$ のループ内分布を統計誤差とともに示す。尚実験No. 16については、照射終了後ナトリウム循環中に測定した $\gamma$ 線スペクトルの結果を用いてループ内分布を求めたものであるが、この場合には明確な沈着挙動を示さなかった。そこで $^{97}\text{Zr}$ の場合と同様に流動ナトリウム中に溶解している揮発性FPの妨害の可能性を調べた結果、<sup>7)</sup> $^{97}\text{Nb}$ のピークを妨害するようなFPは存在せず、657.9 keVの $\gamma$ 線ピークは $^{97}\text{Nb}$ のものであることがわかった。この結果、Nbはナトリウム中に溶解性であることが結論された。

ところでFig 5-10でわかるように、実験No. 16以外の実験では、 $^{97}\text{Nb}$ は $^{97}\text{Zr}$ と非常によく似たループ内沈着分布を示す。これは、実験No. 16以外の実験では、照射終了後すみやかにナトリウムドレンしているので、 $^{97}\text{Zr}$ に比較して短半減期の $^{97}\text{Nb}$ が、短時間(ナトリウムドレン後約3時間)のうちに $^{97}\text{Zr}$ と放射平衡に到達するためである。そこで実験No. 2~14については、 $^{97}\text{Nb}$ のループ内分布を $^{97}\text{Zr}$ のループ内分布とみなし、 $^{97}\text{Zr}$ の場合の解析方法により、 $^{97}\text{Y}$ 及び $^{97}\text{Zr}$ の沈着速度定数の値をそれぞれ求めた。その結果をTable 5-10に示す。またFig 5-10中には、fittingの結果

を実線で示す。fitting の結果は実験値と非常によく一致した。 $^{97}\text{Nb}$  の  $\gamma$  線測定から得られた  $^{97}\text{Y}$  及び  $^{97}\text{Zr}$  の K 値と、 $^{97}\text{Zr}$  の沈着分布から求めた K 値を比較した結果、両者は、 $^{97}\text{Y}$  の  $200^\circ\text{C}$  の場合を除いて非常によく一致した。

## 5.7 Ba の沈着挙動の解析

### 1) 測定可能な Ba 同位体の検討

FP 核種の中で Ba の放射性同位体としては、 $^{137\text{m}}\text{Ba}$ ,  $^{139}\text{Ba}$ ,  $^{140}\text{Ba}$ ,  $^{141}\text{Ba}$ ,  $^{142}\text{Ba}$ ,  $^{143}\text{Ba}$ ,  $^{144}\text{Ba}$ ,  $^{145}\text{Ba}$ ,  $^{146}\text{Ba}$  などの核種が存在する。このうち  $^{140}\text{Ba}$  は半減期が 12.8 日と長く、BOR-60 などの実験炉でもかなりの強度で検出される。 $^{140}\text{Ba}$  は半減期が 12.8 日と長く、BOR-60 などの実験炉でもかなりの強度で検出される。<sup>2)</sup> FPL-II ではナトリウムドレン後の長時間測定により  $^{140}\text{Ba}$  及びその娘核種である  $^{140}\text{La}$  の  $\gamma$  線ピークが検出されるが、強度が弱く、沈着挙動の解析には使用できない。 $^{140}\text{Ba}$  以外の同位体のうち、 $^{139}\text{Ba}$  は、165.8 KeV に非常に強い強度の  $\gamma$  線を放出するが、FP チェーンの終端に位置し、かつ Ba の先行核種はすべて揮発性 FP のため、これらの核種の影響を受けて、Ba の単独の沈着挙動を求めることは困難である。尚、 $^{142}\text{Ba}$  は、 $\gamma$  分岐率の高い  $\gamma$  線を多数放出し、かつ核分裂収率も高いので、 $^{142}\text{Ba}$  についてその沈着挙動の解析を行う。

### 2) $^{142}\text{Ba}$ の沈着挙動の解析

$^{142}\text{Ba}$  は、 $\gamma$  分岐率の高いピークを多数放出するが、他の FP の  $\gamma$  線の妨害を受けるものが多い。その中で 255.1 KeV の  $\gamma$  線ピークは、<sup>7)</sup> 比較的妨害を受けにくいピークであるので、このピークを用いて  $^{142}\text{Ba}$  の沈着挙動の解析を行う。

$^{142}\text{Ba}$  は、半減期が 10.65 分の FP である。従って照射終了後には短時間で減衰してしまいうので、沈着挙動の解析には、照射中の  $\gamma$  線スペクトルを用いた。ループ内沈着分布を求めた実験は、実験 No. 3, 4, 5, 6, 7, 8, 16 の 7 回の照射試験である。Fig 5-11 に 7 回の照射試験で得られた  $^{142}\text{Ba}$  のループ内沈着分布を統計誤差とともに示す。図にみられるように、 $^{142}\text{Ba}$  はループ内においてほぼ指数関数分布をしているのが認められる。これは先行核種の影響をほとんど受けていないためである。以下に質量数 142 の FP チェーンを構成する核種の半減期及び核分裂収率の値を示す。<sup>7), 8)</sup>

	$^{142}\text{Xe}$	$\longrightarrow$	$^{142}\text{Cs}$	$\longrightarrow$	$^{142}\text{Ba}$	$\longrightarrow$	$^{142}\text{La}$	$\longrightarrow$	$^{142}\text{Ce}$
半 減 期	1.24 sec		1.68 sec		10.65 min		92.5 min		(stable)
核分裂収率	0.38 %		2.38 %		3.07 %		0.10 %		

上記 FP チェーンのデータに示すとおり、 $^{142}\text{Ba}$  の沈着が指数関数分布を示したことは、 $^{142}\text{Ba}$  の独立核分裂収率が高いことと、先行核種の半減期が 2 秒以下と短いことによるものと考えられる。そこでこれらのループ内分布を最小 2 乗法で fitting を行い、その勾配から沈着速度定数  $K$  ( $\text{cm}/\text{sec}$ ) の値を求めた。図中に最小 2 乗 fitting の結果を直線で示し、得られた  $K$  値を Table 5-11 にナトリウム温度及び流速毎にまとめて示す。得られた  $\text{Ba}$  の沈着速度定数の  $K$  値と  $\text{Sr}$  の  $K$  値を比較した結果、次のようなことがわかった。

①  $^{142}\text{Ba}$  の沈着速度定数は、 $350\sim 530^\circ\text{C}$  の間で温度依存性は小さく、ナトリウム流速が  $1.2\text{m}/\text{sec}$  の場合で、 $3.5\times 10^2\text{cm}/\text{sec}$  程度である。

②  $\text{Sr}$  の  $K$  値と  $\text{Ba}$  の  $K$  値は  $400^\circ\text{C}$  の時にはほぼ一致する。

以上述べたように、 $\text{Ba}$  の沈着挙動は、 $\text{Ba}$  と同属である  $\text{Sr}$  の沈着挙動とは若干異なることがわかった。

## 5.8 La の沈着挙動の解析

### 1) 測定可能な La 同位体の検討

FP 核種の中で La の放射性同位体としては、 $^{140}\text{La}$ ,  $^{141}\text{La}$ ,  $^{142}\text{La}$ ,  $^{143}\text{La}$ ,  $^{144}\text{La}$ ,  $^{145}\text{La}$ ,  $^{146}\text{La}$ ,  $^{147}\text{La}$ ,  $^{148}\text{La}$  などの核種が存在する。このうち、 $^{140}\text{La}$  は、 $\text{Ba}$  の項でも述べたように  $^{140}\text{Ba}$  の娘核種であり、EBR-II や BOR-60 等の FBR 実験炉でかなり強い強度で検出される核種である。<sup>2)</sup> 上記同位体のうち、 $^{142}\text{La}$  は、 $\gamma$  分岐率の高い  $\gamma$  線を放出するので、照射終了後にかなり強い強度で検出された。また  $^{144}\text{La}$  もかなり高い  $\gamma$  分岐率の  $\gamma$  線を放出し、照射中にかなり強い強度で検出された。そこでこの 2 核種について、 $\gamma$  線測定結果を以下に述べる。

### 2) $^{142}\text{La}$ の $\gamma$ 線測定結果

$^{142}\text{La}$  は  $^{142}\text{Ba}$  の項で示したように、そのほとんどの部分が  $^{142}\text{Ba}$  の放射壊変で生成する。しかも  $^{142}\text{Ba}$  は 10.7 分の半減期であるため、 $^{142}\text{La}$  のループ内分布は、 $^{92}\text{Y}$  の場合と同様に  $^{142}\text{Ba}$  のループ内分布を表わすと考える。

$^{142}\text{La}$  は、<sup>7)</sup>  $641.2\text{KeV}$  に非常に強い  $\gamma$  線を放出する。また半減期は 92.2 分であるため、 $^{142}\text{La}$  のループ内分布の測定には、 $S/N$  比のよい照射終了後の  $\gamma$  線スペクトルを用いた。分布を求めた実験は、実験 No. 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 14, 16 の 9 回の照射試

験である。Fig 5-12 に  $^{142}\text{La}$  のループ内分布を統計誤差とともに示す。このようにして求められた  $^{142}\text{La}$  のループ内分布を  $^{142}\text{Ba}$  のループ内分布とみなし、 $^{142}\text{Ba}$  の場合の解析法により  $^{142}\text{Ba}$  の沈着速度定数の値を求めた。その結果を Table 5-12 に示す。図中には、fitting の結果を実線で示す。実験データ点は、 $^{142}\text{Ba}$  から求めた場合よりも誤差が小さく、実験データの確度は高くなっており、また fitting の結果は実験値と非常によく一致した。 $^{142}\text{La}$  の  $\gamma$  線測定から得られた K 値と  $^{142}\text{Ba}$  の沈着分布から得られた K 値を比較した結果、両者はかなりよく一致した。従って質量数 142 の FP チェーンの場合のように、親核種である  $^{142}\text{Ba}$  の沈着挙動が余り正確に求められない場合、娘核種の  $\gamma$  線測定結果を利用して、親核種の沈着挙動を求めることが可能である。

### 3) $^{144}\text{La}$ の沈着挙動の解析

$^{144}\text{La}$  は、397.3 KeV にかなり強度のある  $\gamma$  線を放出する<sup>7)</sup>。しかもこの付近に大きく妨害する  $\gamma$  線はないので、このピークを用いて  $^{144}\text{La}$  の沈着挙動の解析を行う。

$^{144}\text{La}$  は半減期が 39.9 秒であるので、照射終了後 2 分も経過すると減衰して  $\gamma$  線ピークは検出されなくなる。そこで  $^{144}\text{La}$  の沈着挙動の解析には、照射中の  $\gamma$  線スペクトルを用いた。 $^{144}\text{La}$  の沈着分布は、実験 No 3, 4, 5, 6, 7, 8, 16 の 7 回の照射試験について求めた。尚、実験 No 2 では、2 点の計測点でのみ  $\gamma$  線スペクトルを計測しているが、参考のために、この場合もループ内分布を求めた。その結果を統計誤差とともに Fig 5-13 に示す。

以下に質量数 144 の FP チェーンを構成する核種の半減期及び核分裂収率の値を示す。<sup>7), 8)</sup>

	$^{144}\text{Xe}$	$\longrightarrow$	$^{144}\text{Cs}$	$\longrightarrow$	$^{144}\text{Ba}$	$\longrightarrow$	$^{144}\text{La}$	$\longrightarrow$	$^{144}\text{Ce}$
半 減 期	1.15 sec		1.00 sec		11.9 sec		39.9 sec		284.5 day
核分裂収率	0.006 %		0.28 %		3.95 %		1.15 %		0.063 %

上記データに示されるように、 $^{144}\text{La}$  は、4.24 : 1.15 の割合いで La の親核種である  $^{144}\text{Ba}$  の放射壊変で生成してくる方が多い。しかし  $^{144}\text{Ba}$  の半減期は 11.9 秒であるので、ナトリウム流速が 1.2 m/sec の場合、ディレイライン後端に位置する D-9 の計測点までナトリウムが到達する 25.3 秒の間に、 $^{144}\text{Ba}$  の約 3/4 は壊変して  $^{144}\text{La}$  が生成してくることになる。そこで、 $^{97}\text{Zr}$  の項でも述べたように、 $^{144}\text{La}$  のループ内沈着分布を用いて、 $^{144}\text{Ba}$  及び  $^{144}\text{La}$  の沈着速度定数を (5-11), (5-12) 式の非線型最小 2 乗法による fitting により同時に求めることを試みた。しかし最小 2 乗法の収束性が

悪く、かつ  $^{144}\text{La}$  の実験結果が大きな統計誤差を含んでいるため、得られた沈着速度定数は、50%の誤差を含んでいる結果となった。しかも分布図からわかるように、 $^{144}\text{La}$  は図中でほぼ直線状に分布している。従って  $^{144}\text{La}$  の場合には非線型最小2乗法による fitting は不可能であることがわかった。尚、Fig 5-2 でも見られるように、親、娘核種の沈着挙動が似ている場合は、娘核種の沈着分布は親核種の沈着分布とほぼ一致する。 $^{144}\text{Ba}$  の親核種である  $^{144}\text{Cs}$  は1秒の半減期のため、Csの影響は受けず  $^{144}\text{Ba}$  は指数関数分布になると推定する。従ってその娘核種の  $^{144}\text{La}$  も指数関数分布になると考える。そこでこれらの実験結果を指数関数分布で近似して、 $^{144}\text{La}$  の沈着速度定数の値として求め、Table 5-13に示す。この値をTable 5-12の値と比較した結果、かなりよく両者の値が一致することがわかった。厳密にはTable 5-13の値は、 $^{144}\text{Ba}$  と  $^{144}\text{La}$  の沈着挙動の重ね合せた結果を示しているが、前述したように  $^{144}\text{Ba}$  の半減期が短いため、 $^{144}\text{La}$  の沈着挙動も十分にこの値の中に反映されていると考えられ、LaはBaと非常によく似た沈着挙動を示すことが結論される。

## 5.9 不揮発性 FP の沈着挙動のまとめ

### 1) Sr の沈着挙動の温度依存性及び沈着メカニズム

Sr 同位体の沈着速度定数  $K$  の温度依存性を調べた。Table 5-14に、これまでに得られた  $^{92}\text{Sr}$ ,  $^{93}\text{Sr}$ ,  $^{94}\text{Sr}$  の沈着速度定数の平均値をまとめて示す。また Fig 5-14にこれら  $K$  の Arrhenius plot を示す。絶対温度の逆数  $1/T$  と  $\ln(K)$  の間にはほとんど直線関係が得られた。この直線の勾配から、ナトリウム流速が  $1.2 \text{ m/sec}$ ,  $0.48 \text{ m/sec}$  の両条件で、沈着の活性化エネルギーが  $-13 \pm 1 \text{ (KJ/g-atom)}$  と求められた。

沈着速度定数  $K$  は、円管における物質移動係数  $k_L \text{ (cm/sec)}$  と直接比較することができる。Treybalによると、円管内境界層中の拡散支配による物質移動係数は、以下の形で与えられる。<sup>9)</sup>

$$k_L = 0.023 \cdot \text{Re}^{0.83} \cdot \text{Sc}^{0.33} \cdot D/d \quad (5-13)$$

ここで、 $\text{Re}$ ,  $\text{Sc}$  はそれぞれレイノルズ数(—), シュミット数(—)で、 $D$  は拡散係数 ( $\text{cm}^2/\text{sec}$ ),  $d$  は円管の内径 ( $\text{cm}$ ) である。

ところで、Sr の  $K$  と  $k_L$  を比較する場合、ナトリウム中の Sr の拡散係数である (5-13) 式中の  $D$  の値が必要であるが、これまでに  $D$  の値の報告例はない。尚、液体ナト



リウム<sup>10)</sup>の自己拡散係数は、Nachtriebにより報告されている。また Cooper らにより、Ba のナトリウム中での拡散係数が報告されている<sup>11)</sup>。一方、分子半径  $r$  (cm) とナトリウムの粘性係数  $\mu$  ( $\text{g}/\text{cm}^3/\text{sec}$ ) を使い、以下に示す Stokes - Einstein の式を用いて拡散係数を推定することができる。

$$D = k \cdot T / 6 \pi \mu r \quad (5-14)$$

ここに、 $k$  はボルツマン定数 ( $\text{erg}/\text{K}$ )、 $T$  は絶対温度 ( $\text{K}$ ) である。そこで Sr はナトリウム中では  $\text{Sr}^{2+}$  イオンの形で存在すると仮定し、Sr の拡散係数を、 $1.3 \times 10^{-8} \text{ cm}$  の  $\text{Sr}^{2+}$  イオン半径を用いて (5-14) 式により計算した。Fig 5-15 に流速  $1.2 \text{ m}/\text{sec}$  の場合の Sr の沈着速度定数  $K$  ( $\text{cm}/\text{sec}$ ) と前述の 3 方法によって計算した拡散係数を用いて (5-13) 式により計算した物質移動係数  $k_L$  ( $\text{cm}/\text{sec}$ ) の温度依存性を示す。この結果、実験から算出された沈着速度定数と物質移動係数はおおむね一致した。特に、ナトリウムの自己拡散係数を用いて算出された物質移動係数と  $\text{Sr}^{2+}$  イオン半径を用いて Stokes - Einstein の式により算出した拡散係数を用いて算出された物質移動係数の温度依存性の勾配は、沈着速度定数の勾配と非常によく一致した。これらの結果より、Sr のステンレス表面への沈着は、液体ナトリウム中の拡散支配の物質移動でよく説明できることがわかり、Sr の沈着速度は、配管とナトリウム間の境界層を通過する Sr 核種の拡散によって支配されていることが結論された。

次に、上記拡散支配モデルと実験で得られた沈着速度定数とを一致させるために、 $K = S \cdot k_L$  の関係で物質移動係数を補正する沈着係数  $S$  (dimensionless) を算出した。物質移動係数  $k_L$  は、 $\text{Sr}^{2+}$  のイオン半径を用いて計算される拡散係数  $D$  を使い、式 (5-13) より計算した。このようにして算出された沈着係数  $S$  の値を、ナトリウム温度及び流速毎にまとめて Table 5-15 に示す。算出された  $S$  の値は、 $0.4 \sim 0.6$  の間でよく一致し、しかもナトリウム温度、流速に無関係であることがわかった。この結果から、本解析モデルは、大型 FBR プラント内における Sr の沈着挙動の推定に充分有用であることが結論された。

## 2) Y の沈着挙動の温度依存性

$^{97}\text{Zr}$  及び  $^{97}\text{Nb}$  の沈着分布から、 $^{97}\text{Y}$  の沈着挙動が求められた。そこで Y の沈着速度定数  $K$  の温度依存性を調べた。Fig 5-16 に  $K$  の Arrhenius plot を示す。絶対温度の逆数  $1/T$  と  $\ln(K)$  の関係はほとんど直線であった。また図中には、Sr 沈着速度定数の温度依存性を破線で示したが、Y の沈着速度定数は、 $200 \sim 530^\circ\text{C}$  の間で、非常に

よく Sr の沈着速度定数と一致することがわかった。Y は Sr の娘核種であり、沈着のメカニズムは、Sr と非常によく似ていると考える。

### 3) Zr の沈着挙動の温度依存性

Zr 沈着速度定数 K の温度依存性を調べた。尚、5.5 項でも述べたように、照射終了後長時間のナトリウム循環実験において、脱着による Zr の再分配が起っている可能性があることから、ここで述べる Zr の沈着速度定数は脱着現象を含むみかけの沈着速度と定義できる。Fig. 5 - 17 に K の Arrhenius plot を示す。K の値は、200 ~ 500 °C の間でほとんど温度依存性を示さないことがわかる。図中には Zr 沈着速度定数の最小 2 乗法で得られた回帰直線を実線で、また参考のため Sr 沈着速度定数の温度依存性を破線で示す。このように Sr と Zr の沈着挙動には大きな差があり、ナトリウムが高温では、Sr の沈着速度の方が大きく、逆に低温 (200 °C) では Zr の沈着速度の方が大きい結果となった。また Zr の脱着による再分配の可能性があることから、Sr と Zr では沈着メカニズムに大きな差があることが推定される。

### 4) Ba の沈着挙動の温度依存性

Ba 沈着速度定数 K の温度依存性を調べた。Fig 5 - 18 に Arrhenius plot を示す。図中には、 $^{142}\text{La}$  の沈着分布から得られた  $^{142}\text{Ba}$  の沈着速度定数の値も示す。Ba の沈着速度は、350 ~ 530 °C の間ではほとんど温度依存性を示さず、200 °C において、沈着速度が小さくなる傾向を示しているが、200 ~ 350 °C の間に測定点を得られていないことと、200 °C 以下にも測定点がないため、温度依存性の正確な傾向が得られなかった。尚、参考のため、図中に Ba 沈着速度定数の最小 2 乗法で得られた回帰直線を実線で、また Sr 沈着速度定数の温度依存性を破線で示す。この結果、400 °C の前後では、Ba の沈着速度は、Ba と同属である Sr と同程度であるが、ナトリウムが低温 (200 °C) では、Ba の沈着速度の方が大きい結果が得られた。尚、Ba の脱着の可能性については、 $^{140}\text{Ba}$  等の長半減期 FP の沈着分布のナトリウム循環時の経時変化を解析する必要がある。

尚、La については、Ba と同様の沈着挙動を示すと考えられるので、詳細な考察は省略する。

## 5.10 結 言

これまでの解析により, Sr, Y, Zr, Nb, Ba, La の各 FP 核種の沈着挙動が明らかになった。これらをまとめると次のようになる。

- 1) Sr の沈着は速くかつ非可逆的であり, ナトリウム温度が高い程速い。 $^{92}\text{Sr}$ ,  $^{93}\text{Sr}$ ,  $^{94}\text{Sr}$  の沈着速度定数が温度の関数として求まり, 同位体間でその値は非常によく一致した。その沈着過程の活性化エネルギーは  $-13 \pm 1$  (KJ/g-atom) となり, Sr の沈着過程は, 配管内壁表面とナトリウムとの境界層中での Sr の拡散により支配される。
- 2) Y は, ナトリウム温度が 200 から 500°C の間で, Sr とほぼ等しい沈着挙動を示した。
- 3) Zr については, 照射終了後長時間のナトリウム循環実験において, 沈着していた Zr の脱着が起こり, Zr の再分配が起っている可能性のあることがわかった。尚, 脱着現象を含む Zr のみかけの沈着速度定数は, ナトリウム温度が 200°C から 500°C の場合で温度依存性を示さず, 500°C においては, Sr の沈着速度より小さい。
- 4) Nb は沈着挙動を示さず, ナトリウムに溶解性である。
- 5) Ba の沈着速度は, ナトリウム温度が 400°C において Sr とほぼ等しい値を示すが, その温度依存性は同属である Sr に比べて小さい。
- 6) La の沈着速度は, 350~500°C の間で Ba とほぼ等しくなる。

尚, 不揮発性 FP の沈着挙動を推定する上でもう一つ重要な点は, Zr のところで述べたように, 脱着による再分配が起っているかどうかということである。従って今後は, 高酸素濃度ナトリウム中の不揮発性 FP の沈着挙動の解明と, 一旦壁面に沈着した不揮発性 FP の脱着による再分配の可能性の検討を行う必要がある。

Table 5-1 Calculated value of  $C_d^W$  as a function of  $K_d$

$K_d$ (cm/sec)	$C_d^W$ (atoms/cm <sup>2</sup> )			
	x=500	x=1500	x=3000	x=5734
0	$3.29 \times 10^{-3}$	$7.87 \times 10^{-4}$	$9.23 \times 10^{-5}$	$1.86 \times 10^{-6}$
$1.0 \times 10^{-5}$	$3.29 \times 10^{-3}$	$7.93 \times 10^{-4}$	$9.74 \times 10^{-5}$	$6.92 \times 10^{-6}$
$1.0 \times 10^{-4}$	$3.30 \times 10^{-3}$	$8.03 \times 10^{-4}$	$1.08 \times 10^{-4}$	$1.71 \times 10^{-5}$
$1.0 \times 10^{-3}$	$3.31 \times 10^{-3}$	$8.08 \times 10^{-4}$	$1.12 \times 10^{-4}$	$1.94 \times 10^{-5}$
$1.0 \times 10^{-2}$	$3.32 \times 10^{-3}$	$8.16 \times 10^{-4}$	$1.10 \times 10^{-4}$	$8.46 \times 10^{-6}$
$2.0 \times 10^{-2}$	$3.34 \times 10^{-3}$	$8.18 \times 10^{-4}$	$1.04 \times 10^{-4}$	$3.62 \times 10^{-6}$
$4.0 \times 10^{-2}$	$3.36 \times 10^{-3}$	$8.13 \times 10^{-4}$	$9.66 \times 10^{-5}$	$1.99 \times 10^{-6}$
$1.0 \times 10^{-1}$	$3.36 \times 10^{-3}$	$7.97 \times 10^{-4}$	$9.33 \times 10^{-5}$	$1.88 \times 10^{-6}$

Table 5-2 Geometry correction factor for each detection position

Detection position	Correction factor
D-2	1.00 (normalize)
D-3	0.943
D-4	1.19
D-5	1.01
D-6	1.27
D-7	0.980
D-8	0.917
D-9	0.880

Table 5-3 <sup>94</sup>Sr deposition rate constant

Na Temp (°C)	Exp. No.	Na Flow Velocity (m/sec)	Deposition Rate Constant (cm/sec)
170	9	1.20	$8.25 \times 10^{-3}$
200	2	1.20	$1.57 \times 10^{-2}$
225	12	1.20	$1.42 \times 10^{-2}$
270	11	1.20	$1.52 \times 10^{-2}$
350	3	1.20	$2.75 \times 10^{-2}$
	4	1.20	$2.94 \times 10^{-2}$
420	5	1.20	$3.62 \times 10^{-2}$
	6	1.20	$3.38 \times 10^{-2}$
500	7	1.20	$3.81 \times 10^{-2}$
530	8	1.20	$4.42 \times 10^{-2}$
170	9	0.48	$4.82 \times 10^{-3}$
225	11	0.48	$6.98 \times 10^{-3}$
270	12	0.48	$9.64 \times 10^{-3}$
530	14	0.24	$1.08 \times 10^{-2}$
	16	0.24	$1.02 \times 10^{-2}$

Table 5-4  $^{92}\text{Sr}$  deposition rate constant

Na Temp (°C)	Exp. No	Na Flow Velocity (m/sec)	Deposition Rate Constant (cm/sec)
200	2	1.20	$1.41 \times 10^{-2}$
350	3	1.20	$2.63 \times 10^{-2}$
	4	1.20	$2.84 \times 10^{-2}$
420	5	1.20	$3.48 \times 10^{-2}$
	6	1.20	$3.29 \times 10^{-2}$
500	7	1.20	$3.76 \times 10^{-2}$
530	8	1.20	$4.25 \times 10^{-2}$
	14	0.24	$1.30 \times 10^{-2}$
	16 <sup>*1</sup>	0.24	$1.37 \times 10^{-2}$
	16 <sup>*2</sup>	0.24	$1.12 \times 10^{-2}$

\*1 during irradiation

\*2 after irradiation

Table 5 - 5 <sup>93</sup>Sr deposition rate constant

Na Temp (°C)	Exp. No	Na Flow Velocity (m/sec)	Deposition Rate Constant (cm/sec)	
			590.2 KeV	875.9 KeV
350	3	1.20	$3.39 \times 10^{-2}$	$2.80 \times 10^{-2}$
	4	1.20	$3.68 \times 10^{-2}$	$3.05 \times 10^{-2}$
420	5	1.20	$3.70 \times 10^{-2}$	$3.67 \times 10^{-2}$
	6	1.20	$3.75 \times 10^{-2}$	$3.48 \times 10^{-2}$
500	7	1.20	$4.20 \times 10^{-2}$	$3.76 \times 10^{-2}$
530	8	1.20	$4.27 \times 10^{-2}$	$3.95 \times 10^{-2}$
	14	0.24	$1.19 \times 10^{-2}$	$9.40 \times 10^{-3}$
	16	0.24	$1.21 \times 10^{-2}$	$8.84 \times 10^{-3}$

Table 5 - 6 <sup>91</sup>Sr deposition rate constant

Na Temp (°C)	Exp. No	Na Flow Velocity (m/sec)	Deposition Rate Constant (cm/sec)	
			749.8 KeV	1024.3 KeV
530	14	0.24	$1.03 \times 10^{-2}$	$1.01 \times 10^{-2}$
	16	0.24	$9.75 \times 10^{-3}$	$8.64 \times 10^{-3}$

Table 5-7  $^{92}\text{Sr}$  deposition rate constant obtained by using  
 $^{92}\text{Y}$  deposition distribution pattern along the delay line

Na Temp (°C)	Exp. No	Na Flow Velocity (m/sec)	Deposition Rate Constant (cm/sec)
200	2	1.20	$1.87 \times 10^{-2}$
350	3	1.20	$2.90 \times 10^{-2}$
	4	1.20	$3.34 \times 10^{-2}$
420	5	1.20	$3.75 \times 10^{-2}$
	6	1.20	$3.70 \times 10^{-2}$
500	7	1.20	$4.27 \times 10^{-2}$
530	8	1.20	$4.55 \times 10^{-2}$
	14	0.24	$1.02 \times 10^{-2}$
	16	0.24	$9.80 \times 10^{-3}$



Table 5-8  $^{94}\text{Sr}$  deposition rate constant obtained by using  
 $^{94}\text{Y}$  deposition distribution pattern along the delay line

Ne Temp (°C)	Exp. No.	Na Flow Velocity (m/sec)	Deposition Rate Constant (cm/sec)
200	2	1.20	$1.66 \times 10^{-2}$
350	3	1.20	$2.30 \times 10^{-2}$
	4	1.20	$2.41 \times 10^{-2}$
420	5	1.20	$2.95 \times 10^{-2}$
	6	1.20	$2.75 \times 10^{-2}$
500	7	1.20	$3.27 \times 10^{-2}$
530	8	1.20	$3.78 \times 10^{-2}$
	14	0.24	$9.38 \times 10^{-3}$
	16	0.24	$8.81 \times 10^{-3}$

Table 5-9  $^{97}\text{Y}$  and  $^{97}\text{Zr}$  deposition rate constant obtained by using  
 $^{97}\text{Zr}$  deposition distribution pattern along the delay line

Na Temp (°C)	Exp. No	Na Flow Velocity (m/sec)	Deposition Rate Constant (cm/sec)	
			$^{97}\text{Y}$	$^{97}\text{Zr}$
200	2	1.20	$4.75 \times 10^{-3}$	$2.01 \times 10^{-2}$
350	3	1.20	$2.11 \times 10^{-2}$	$2.17 \times 10^{-2}$
	4	1.20	$1.96 \times 10^{-2}$	$2.18 \times 10^{-2}$
420	5	1.20	$3.01 \times 10^{-2}$	$2.11 \times 10^{-2}$
	6	1.20	$3.85 \times 10^{-2}$	$2.01 \times 10^{-2}$
500	7	1.20	$3.20 \times 10^{-2}$	$2.39 \times 10^{-2}$
530	8	1.20	$4.60 \times 10^{-2}$	$2.19 \times 10^{-2}$
	14	0.24	$1.70 \times 10^{-2}$	$6.11 \times 10^{-3}$
	16	0.24	$1.57 \times 10^{-2}$	$5.51 \times 10^{-3}$

Table 5-10  $^{97}\text{Y}$  and  $^{97}\text{Zr}$  deposition rate constant obtained by using  $^{97}\text{Nb}$  distribution pattern along the delay line

Na Temp (°C)	Exp. No	Na Flow Velocity (m/sec)	Deposition Rate Constant (cm/sec)	
			$^{97}\text{Y}$	$^{97}\text{Zr}$
200	2	1.20	$1.15 \times 10^{-2}$	$1.61 \times 10^{-2}$
350	3	1.20	$2.16 \times 10^{-2}$	$2.04 \times 10^{-2}$
	4	1.20	$2.40 \times 10^{-2}$	$2.07 \times 10^{-2}$
420	5	1.20	$3.12 \times 10^{-2}$	$1.97 \times 10^{-2}$
	6	1.20	$4.20 \times 10^{-2}$	$1.91 \times 10^{-2}$
500	7	1.20	$3.70 \times 10^{-2}$	$1.96 \times 10^{-2}$
530	8	1.20	$4.86 \times 10^{-2}$	$1.68 \times 10^{-2}$
	14	0.24	—————	$7.76 \times 10^{-3}$

Table 5-11  $^{142}\text{Ba}$  deposition rate constant

Na Temp (°C)	Exp. No	Na Flow Velocity (m/sec)	Deposition Rate Constant (cm/sec)
350	3	1.20	$4.02 \times 10^{-2}$
	4	1.20	$2.96 \times 10^{-2}$
420	5	1.20	$2.84 \times 10^{-2}$
	6	1.20	$3.49 \times 10^{-2}$
500	7	1.20	$3.97 \times 10^{-2}$
530	8	1.20	$3.15 \times 10^{-2}$
	16	0.24	$1.31 \times 10^{-2}$

Table 5-12  $^{142}\text{Ba}$  deposition rate constant obtained by using  
 $^{142}\text{La}$  deposition distribution pattern along the delay line

Na Temp (°C)	Exp. No	Na Flow Velocity (m/sec)	Deposition Rate Constant (cm/sec)
200	2	1.20	$1.79 \times 10^{-2}$
350	3	1.20	$2.70 \times 10^{-2}$
	4	1.20	$2.86 \times 10^{-2}$
420	5	1.20	$3.28 \times 10^{-2}$
	6	1.20	$3.18 \times 10^{-2}$
500	7	1.20	$2.92 \times 10^{-2}$
530	8	1.20	$2.99 \times 10^{-2}$
	14	0.24	$9.78 \times 10^{-3}$
	16	0.24	$6.79 \times 10^{-3}$

Table 5-13  $^{144}\text{La}$  deposition rate constant

Na Temp (°C)	Exp. No	Na Flow Velocity (m/sec)	Deposition Rate Constant (cm/sec)
200	2	1.20	$1.59 \times 10^{-2}$
350	3	1.20	$2.26 \times 10^{-2}$
	4	1.20	$2.10 \times 10^{-2}$
420	5	1.20	$3.48 \times 10^{-2}$
	6	1.20	$2.68 \times 10^{-2}$
500	7	1.20	$2.87 \times 10^{-2}$
530	8	1.20	$2.95 \times 10^{-2}$
	16	0.24	$6.64 \times 10^{-3}$

Table 5 - 14 Deposition rate constant of Sr isotopes

( x 10<sup>-2</sup> cm/sec)

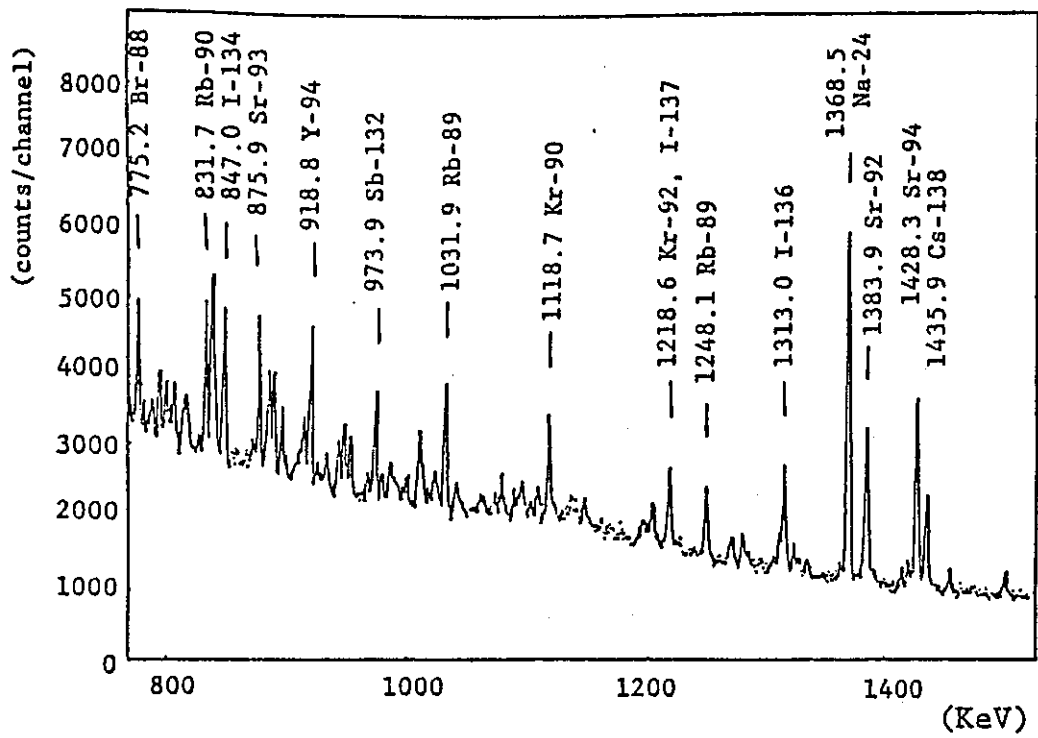
Tem - perature \ Flow Velocity	1.2 m/sec			0.48 m/sec
	Sr-92	Sr-93	Sr-94	Sr-94
170 °C	—	—	0.83	0.48
200	1.4	—	1.6	—
225	—	—	1.4	0.70
270	—	—	1.5	0.96
350	2.7	3.4	2.9	—
420	3.4	3.7	3.5	—
500	3.8	4.2	3.8	—
530	4.3	4.3	4.4	—

Table 5 - 15 Sticking coefficient of Sr isotopes

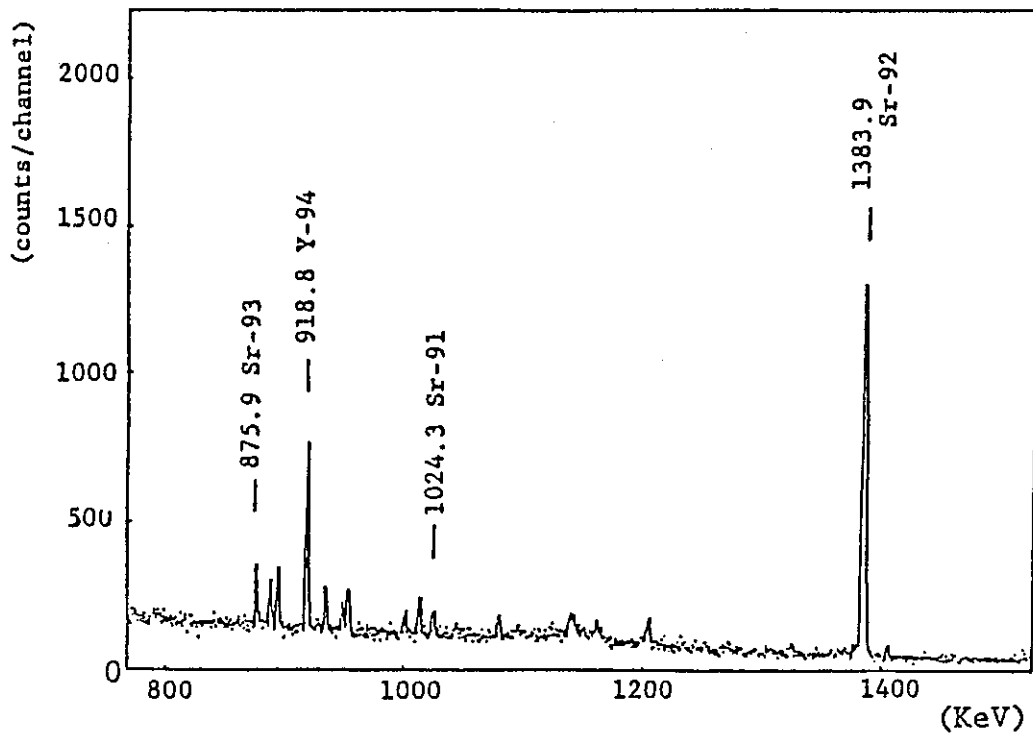
calculated by using modified mass

transfer model (dimensionless)

Tem - perature \ Flow Velocity	1.2 m/sec			0.48 m/sec
	Sr-92	Sr-93	Sr-94	Sr-94
170 °C	—	—	0.38	0.47
200	0.55	—	0.61	—
225	—	—	0.49	0.52
270	—	—	0.43	0.58
350	0.58	0.71	0.60	—
420	0.57	0.63	0.59	—
500	0.52	0.58	0.52	—
530	0.54	0.54	0.56	—



(a) During irradiation



(b) After sodium drain

Fig. 5 - 1 Gamma ray spectra (Na temp. 500 °C,  
Na flow velocity 1.2 m/sec)

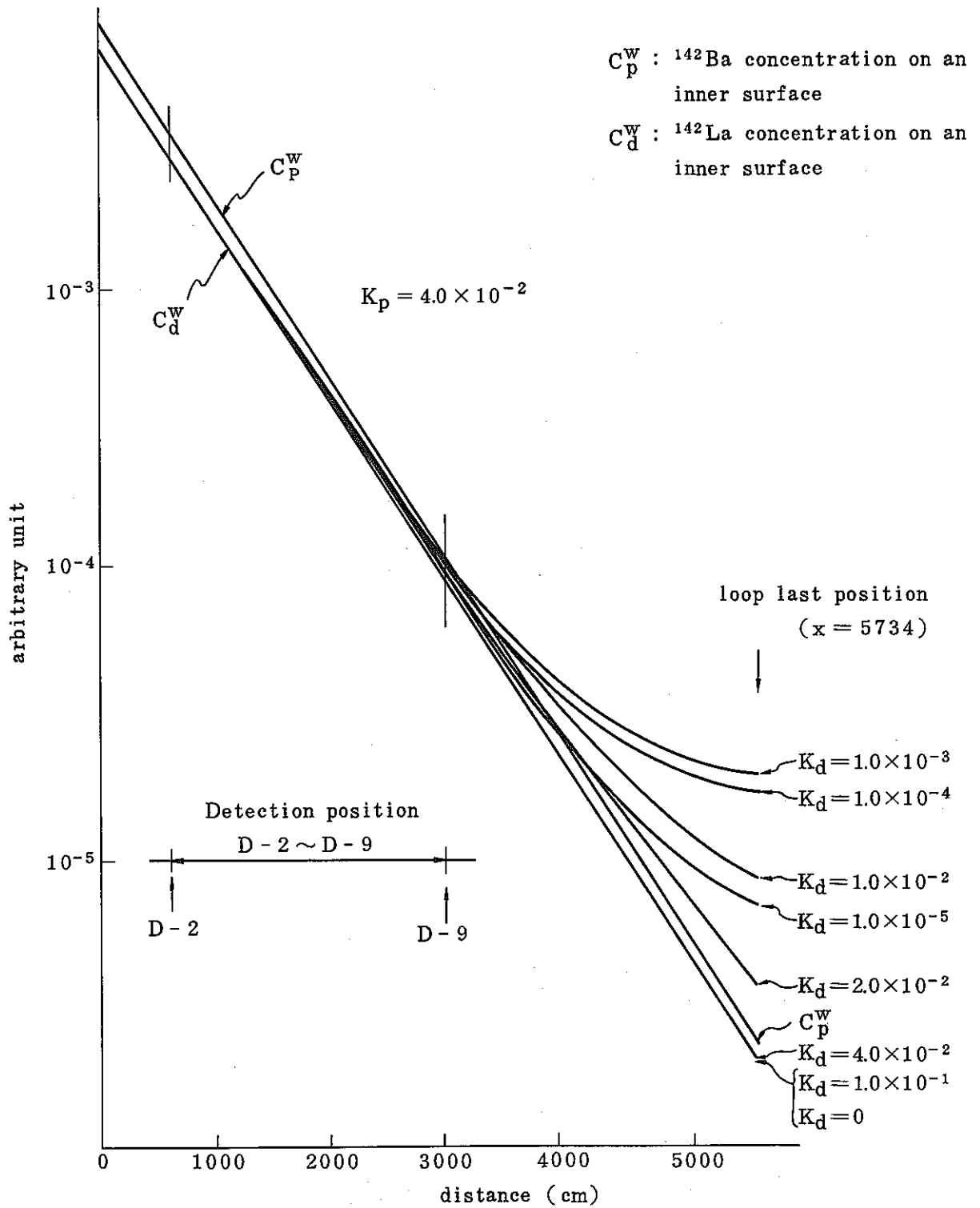
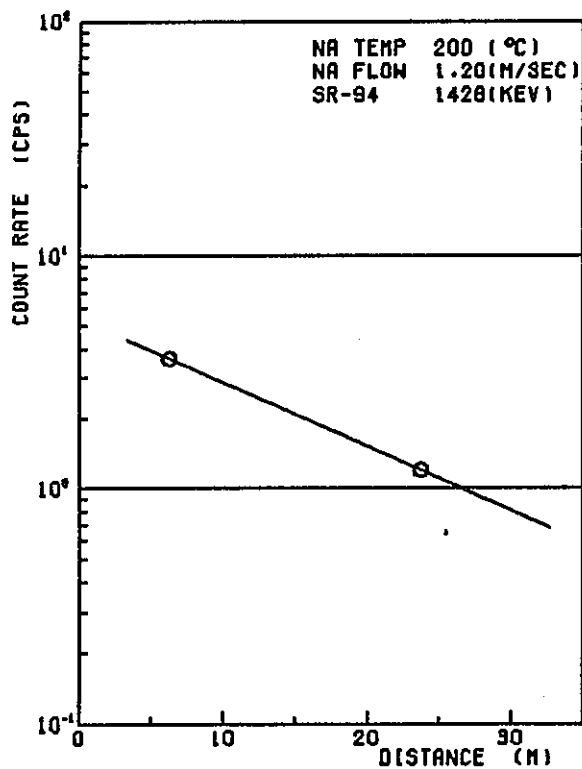
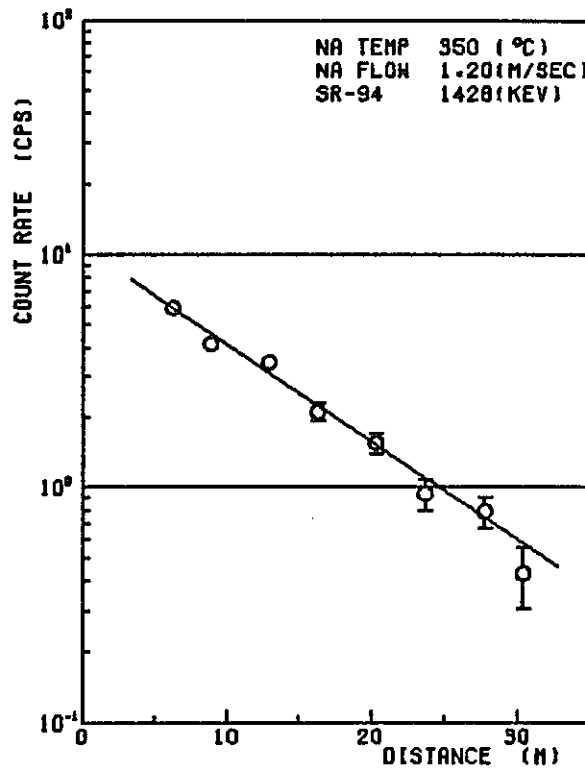


Fig. 5 - 2  $^{142}\text{Ba}$  and  $^{142}\text{La}$  deposition distribution along the delay line calculated by using analytical model

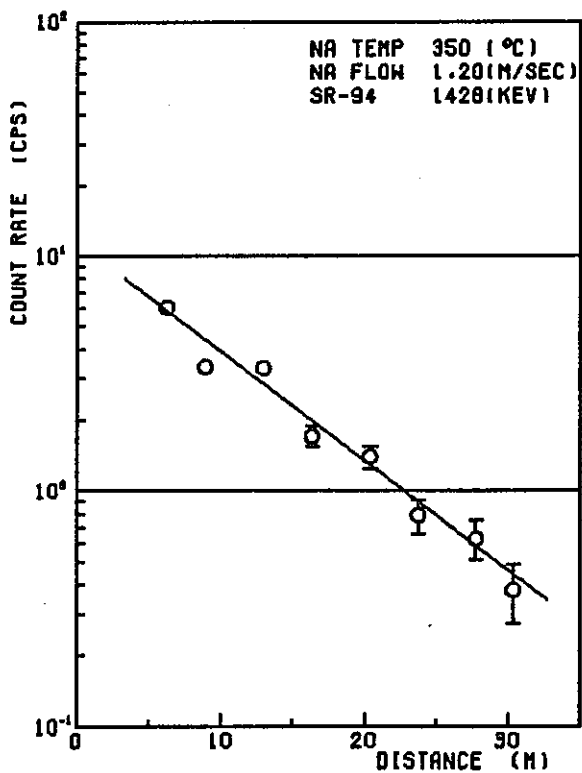




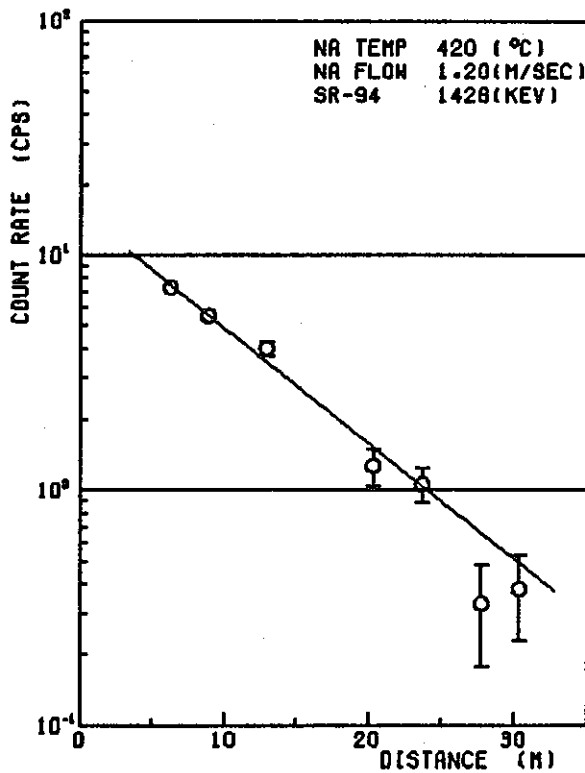
1) EXP. NO. 2



2) EXP. NO. 3

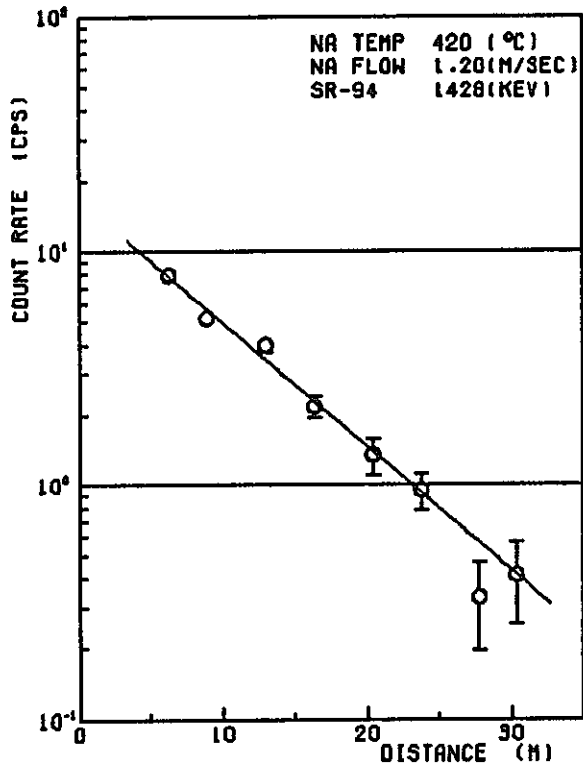


3) EXP. NO. 4

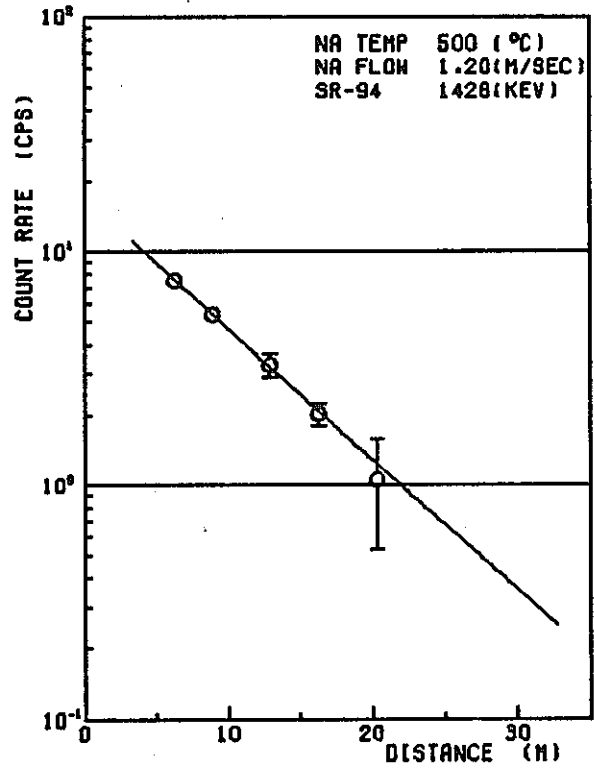


4) EXP. NO. 5

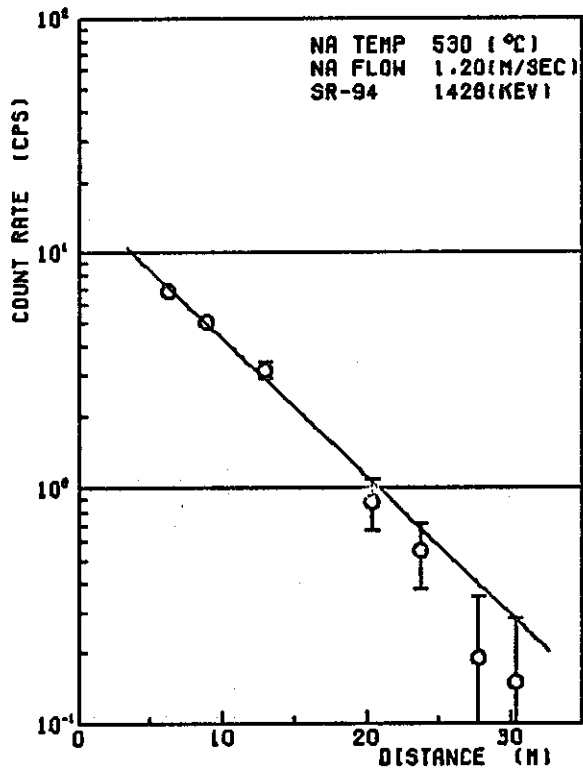
Fig. 5 - 3 <sup>94</sup>Sr distribution along the delay line



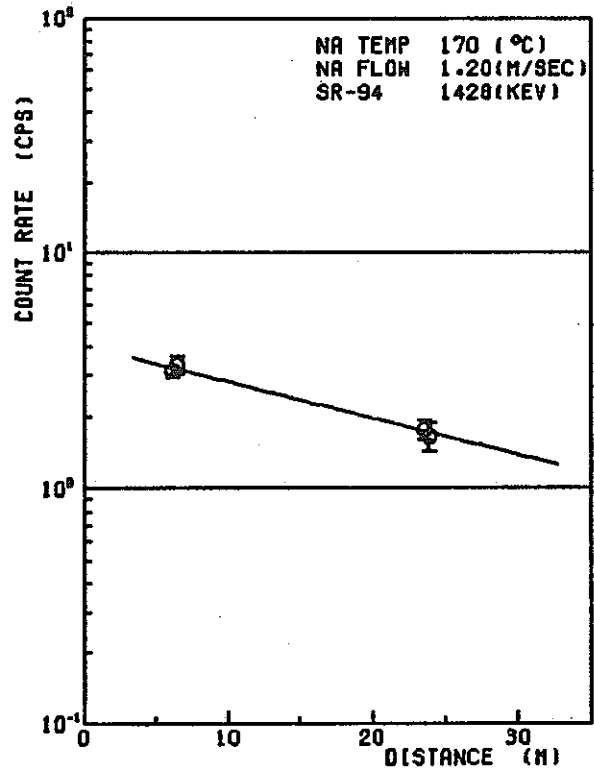
5) EXP. NO. 6



6) EXP. NO. 7

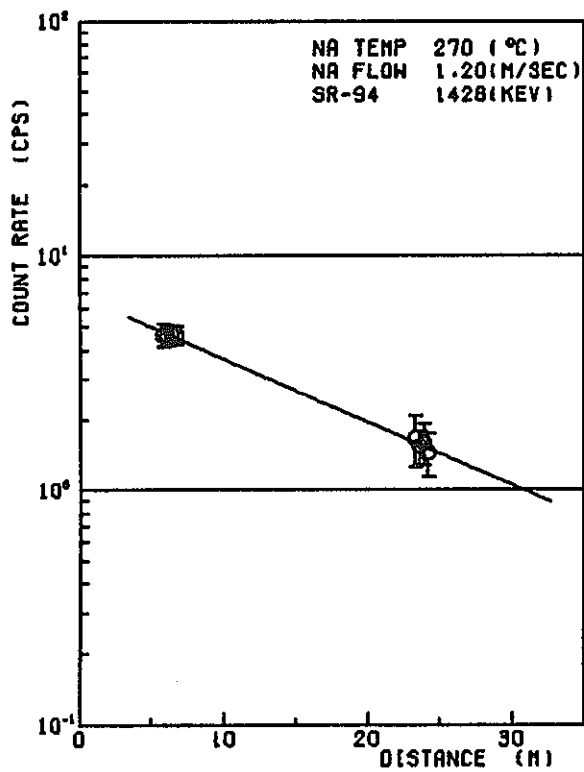


7) EXP. NO. 8

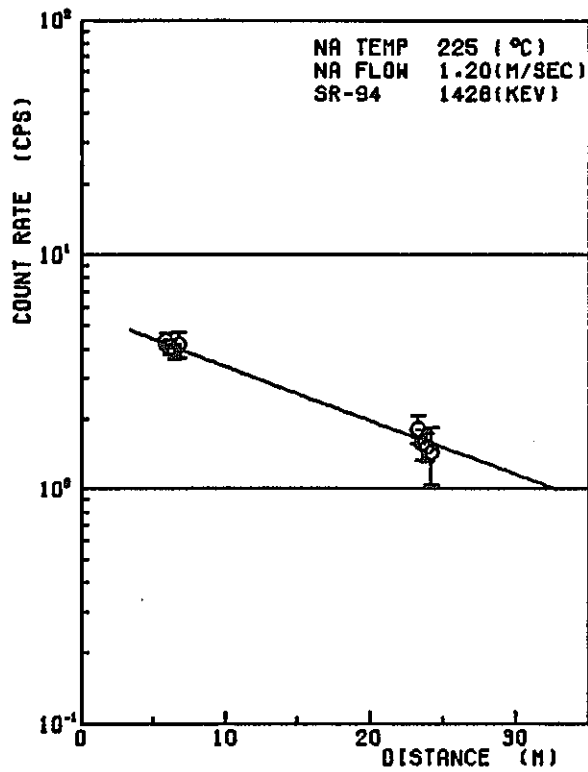


8) EXP. NO. 9

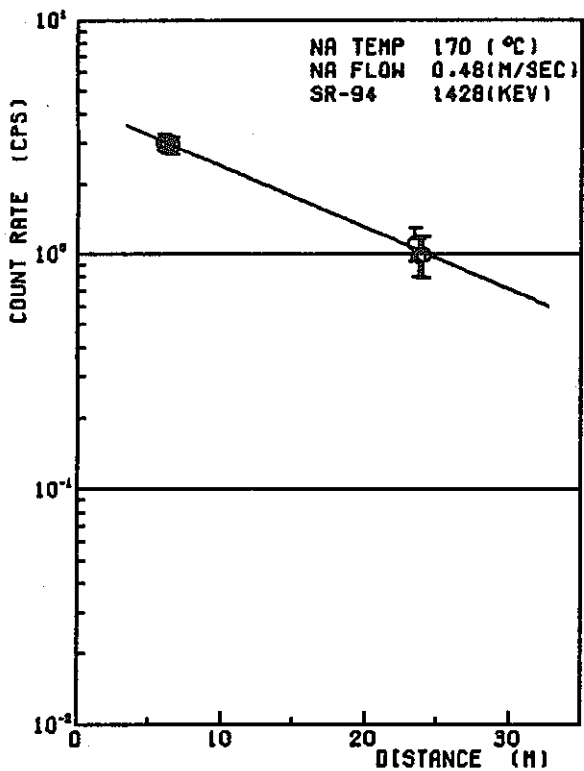
Fig. 5 - 3 (continued)



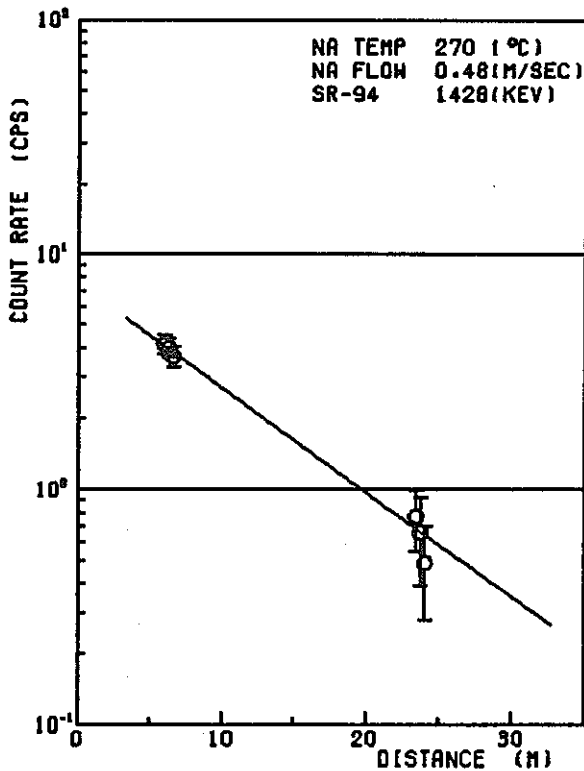
9) EXP. NO. 11



10) EXP. NO. 12

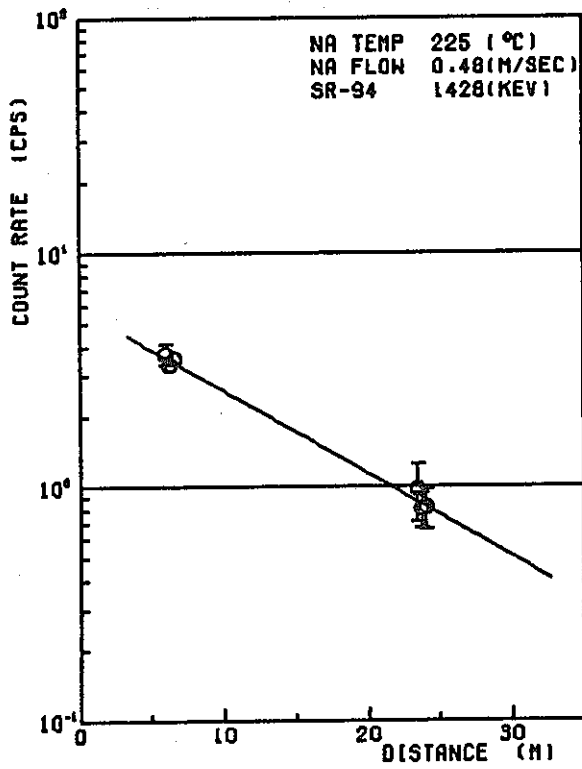


11) EXP. NO. 9

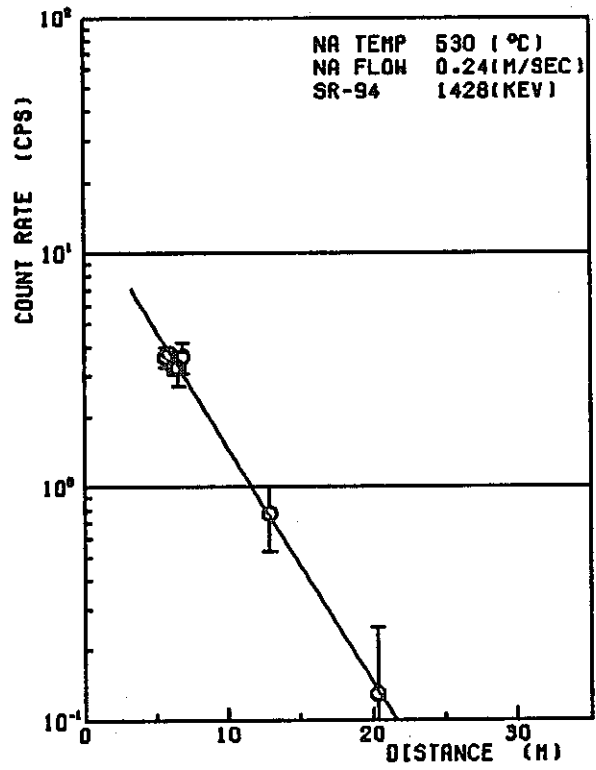


12) EXP. NO. 11

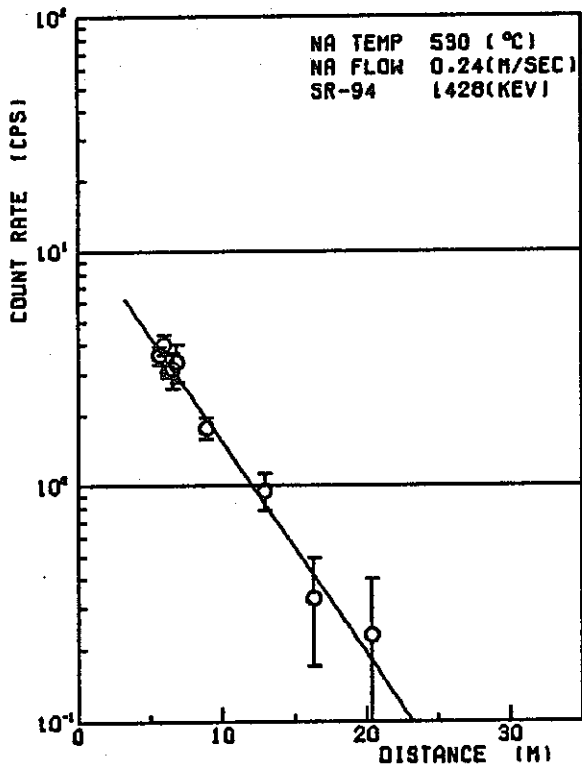
Fig. 5 - 3 (continued)



13) EXP. NO. 12

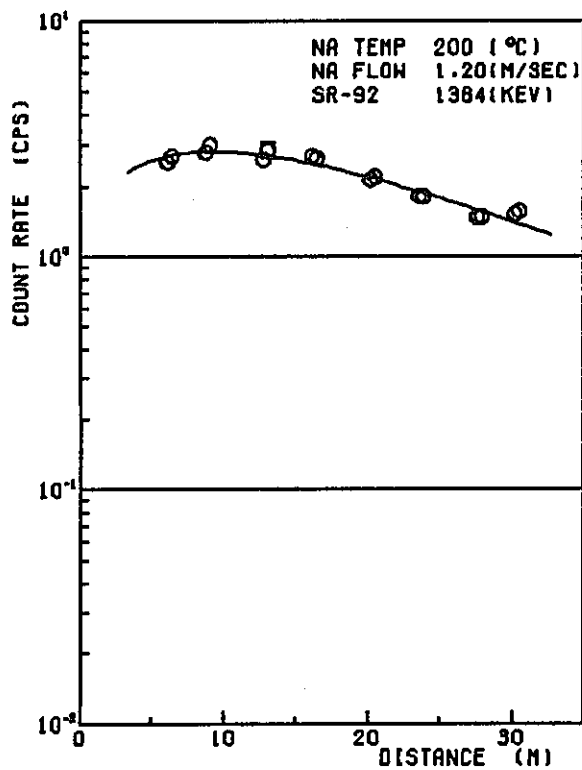


14) EXP. NO. 14

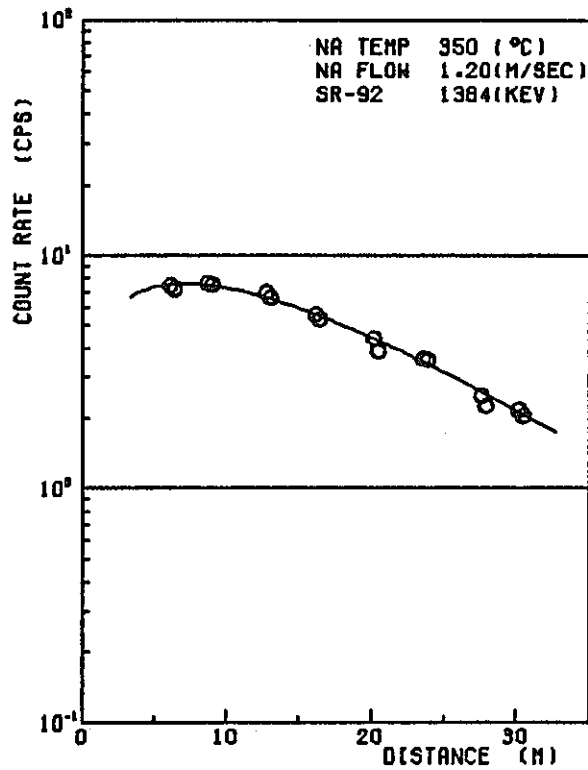


15) EXP. NO. 16

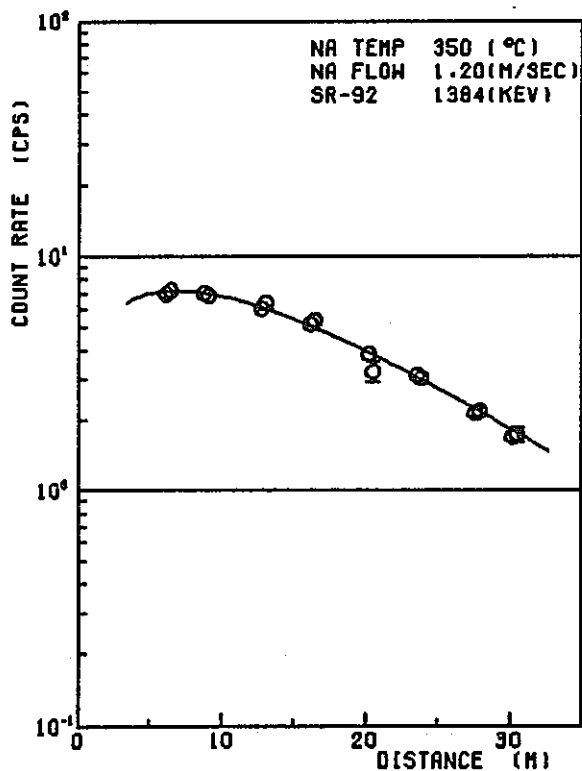
Fig. 5 - 3 (continued)



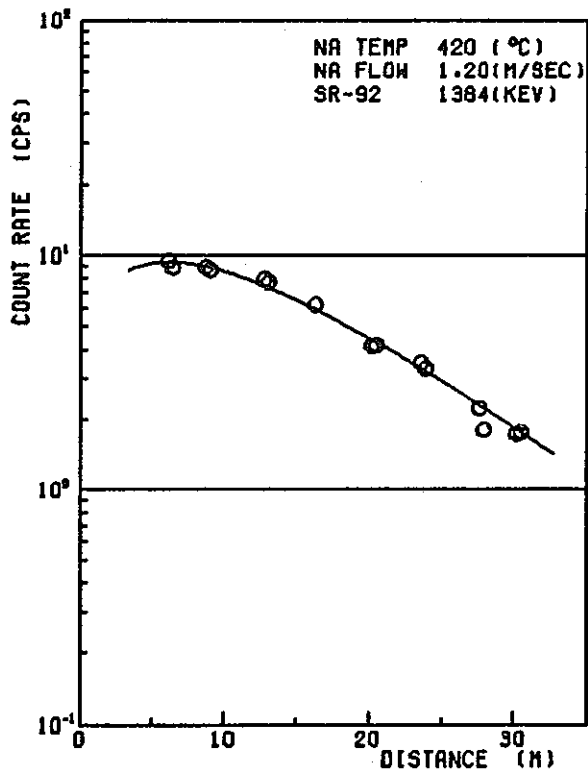
1) EXP. NO. 2



2) EXP. NO. 3

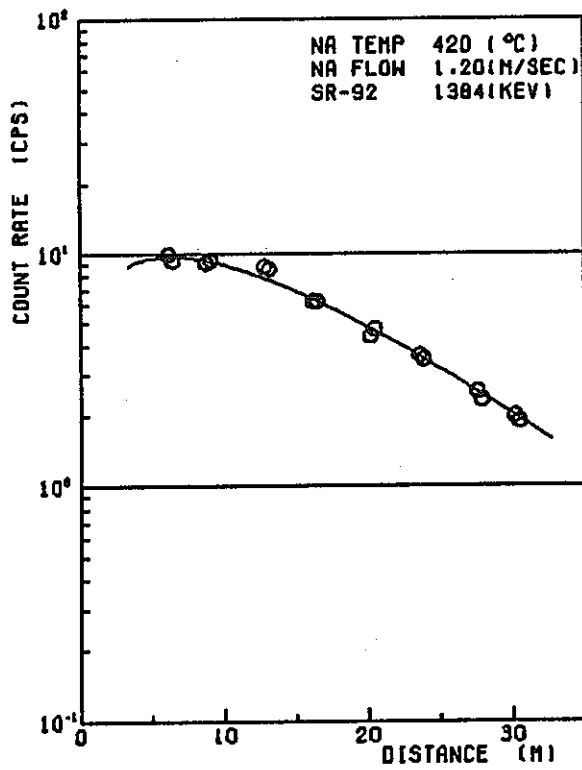


3) EXP. NO. 4

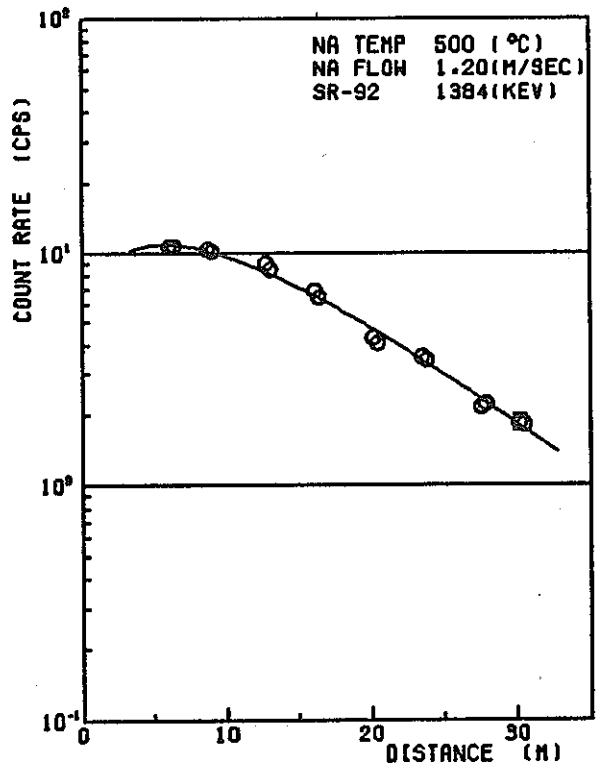


4) EXP. NO. 5

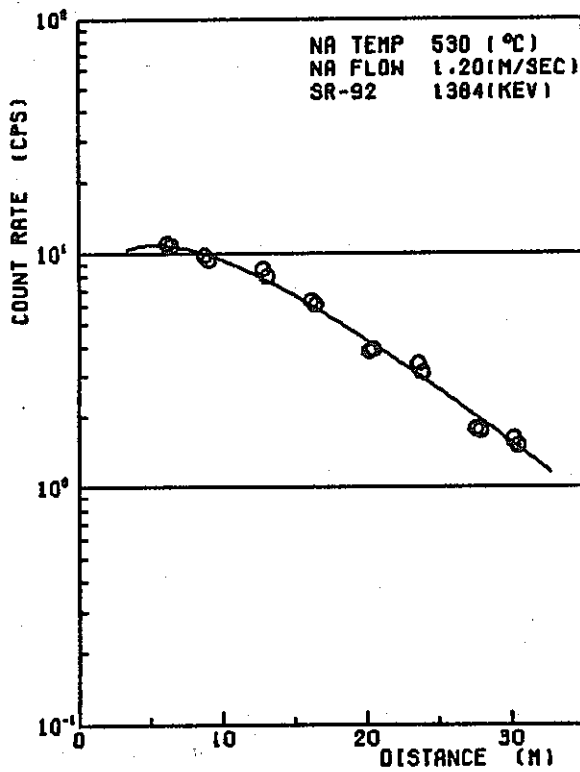
Fig. 5 - 4 <sup>92</sup>Sr deposition distribution along the delay line



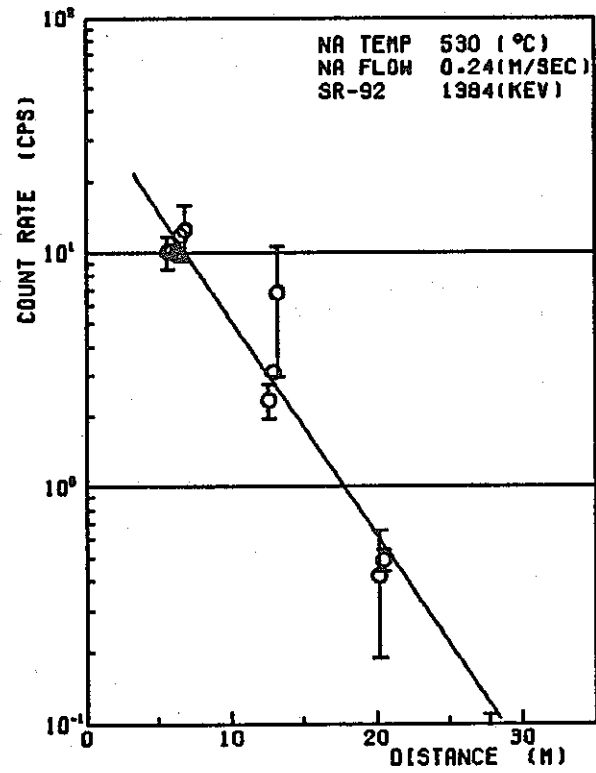
5) EXP. NO. 6



6) EXP. NO. 7

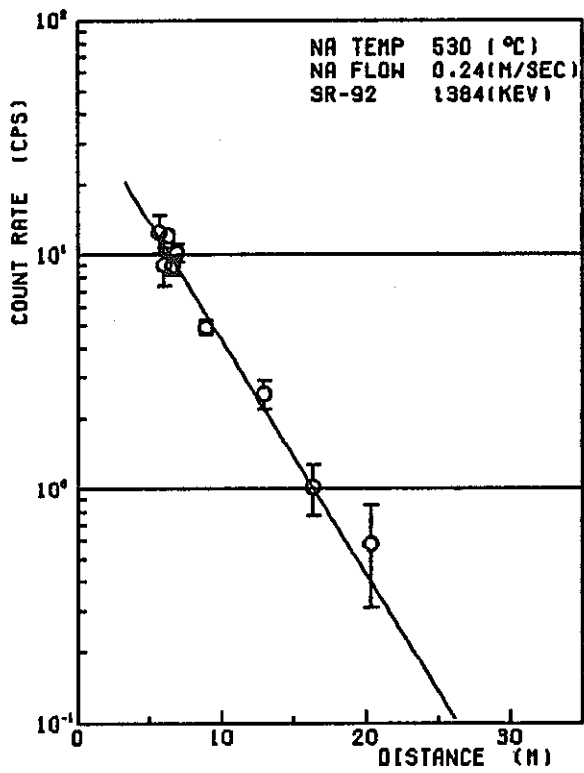


7) EXP. NO. 8

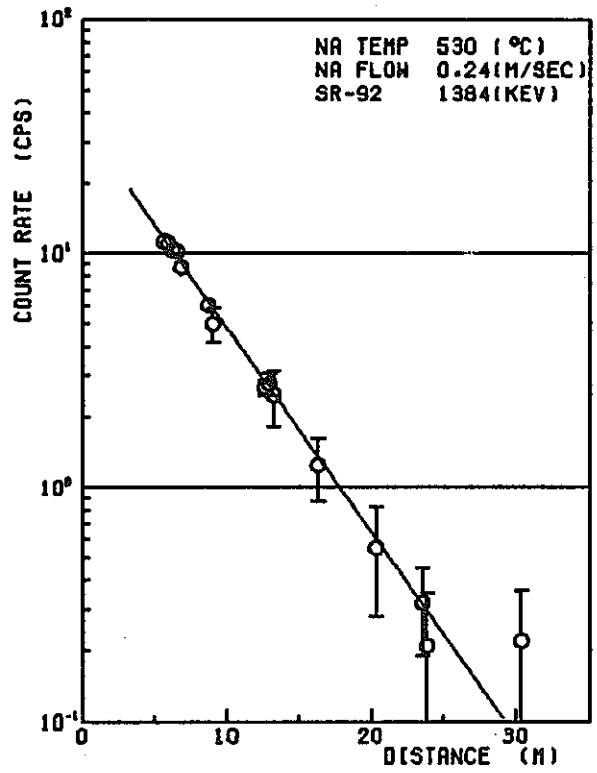


8) EXP. NO. 14

Fig. 5 - 4 (continued)

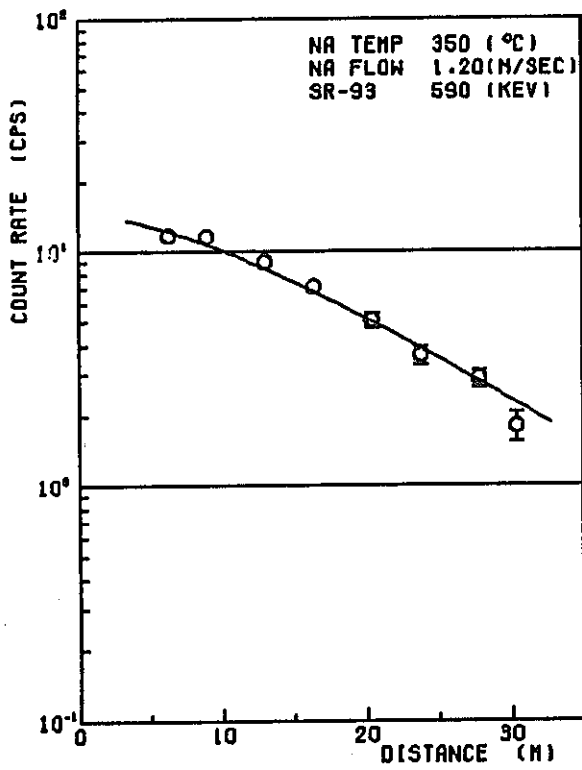


9) EXP. NO. 16

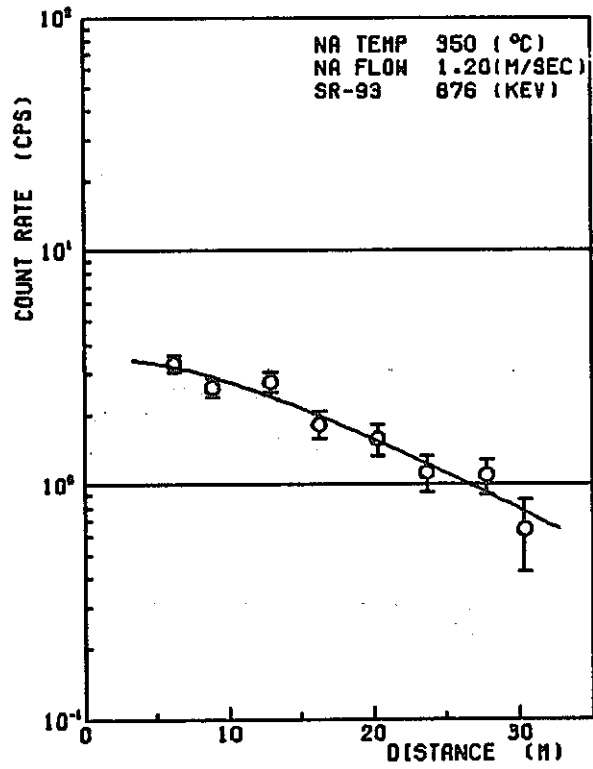


10) EXP. NO. 16

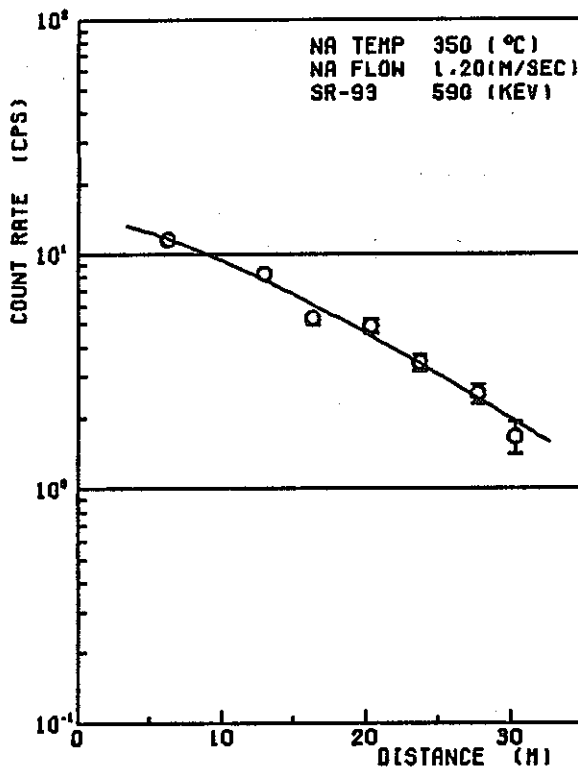
Fig. 5 - 4 (continued)



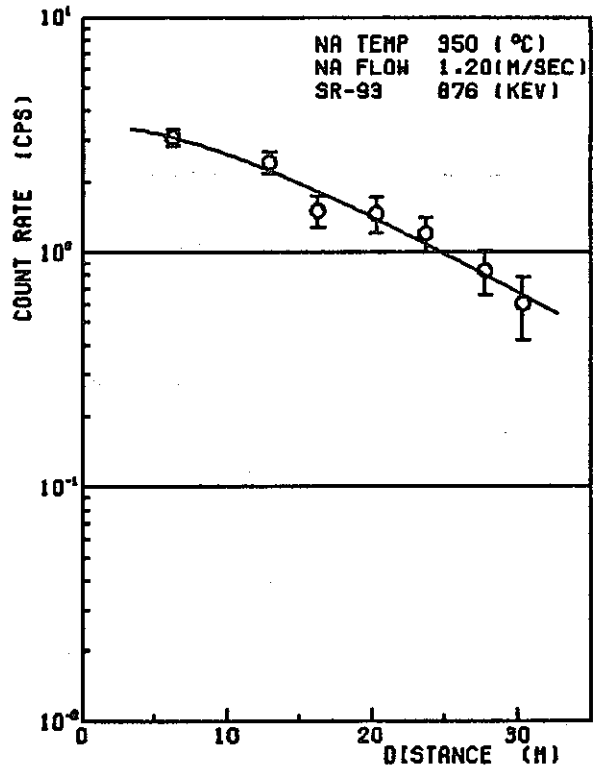
1) EXP. NO. 3



2) EXP. NO. 3



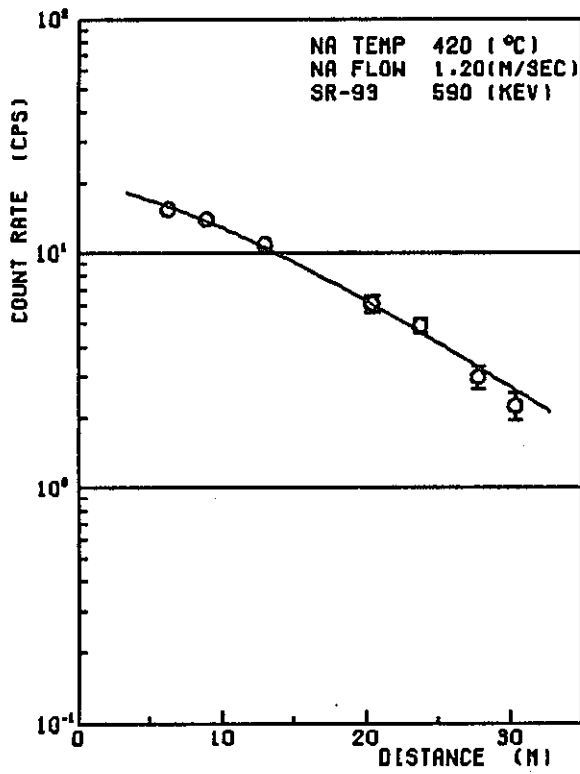
3) EXP. NO. 4



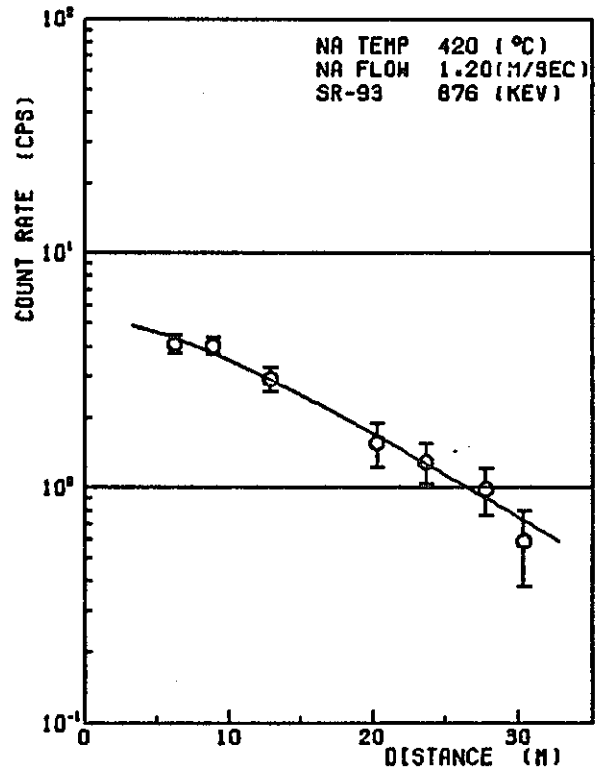
4) EXP. NO. 4

Fig. 5 - 5 <sup>93</sup>Sr distribution along the delay line

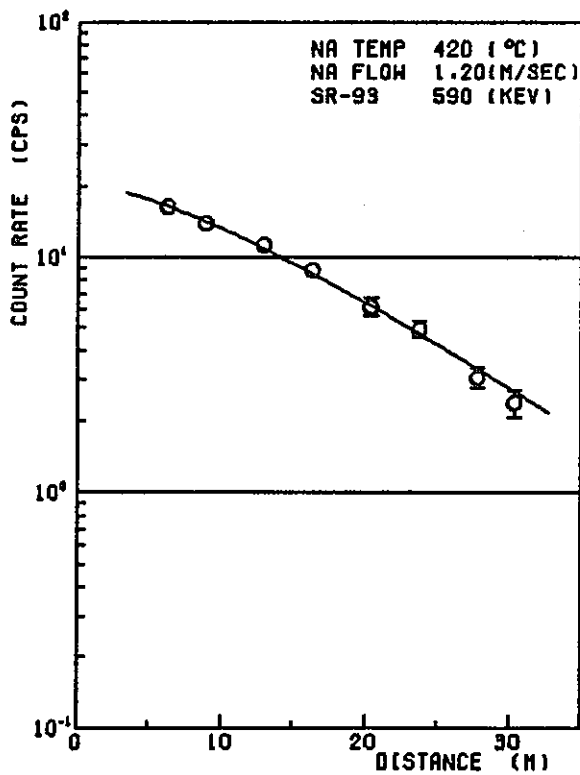




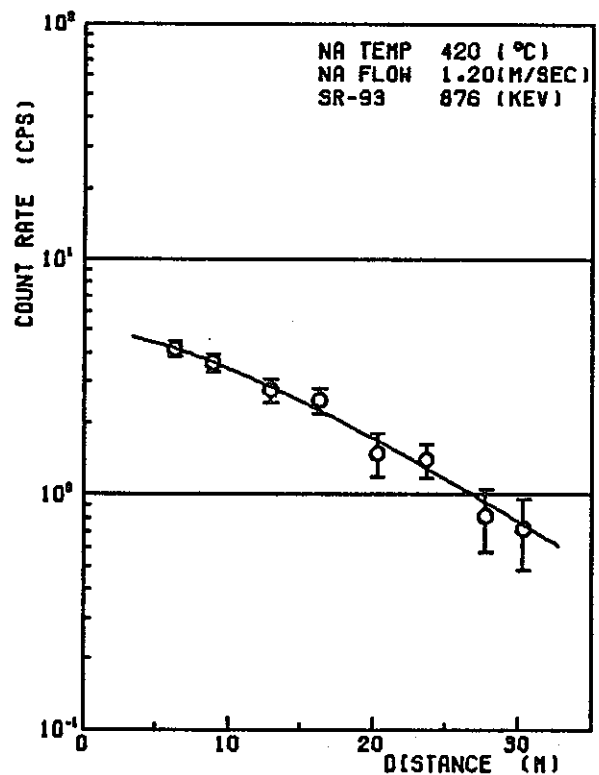
5) EXP. NO. 5



6) EXP. NO. 5



7) EXP. NO. 6



8) EXP. NO. 6

Fig. 5 - 5 (continued)

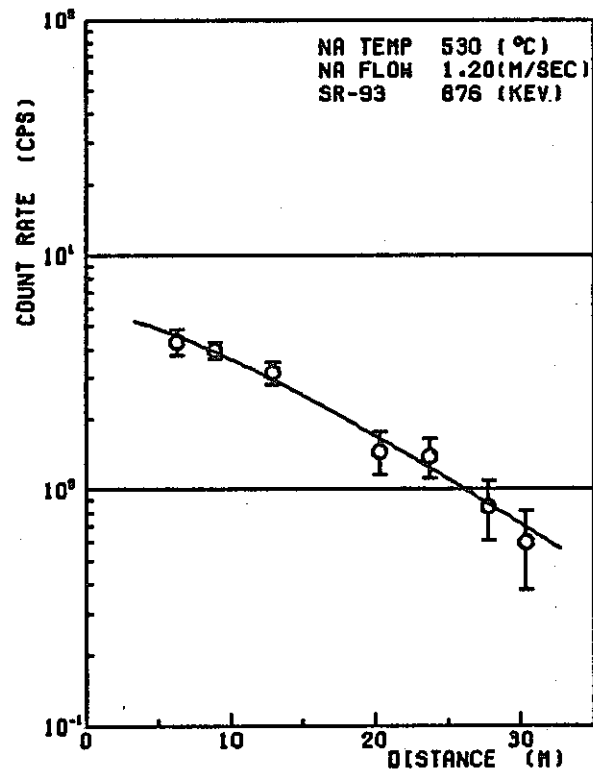
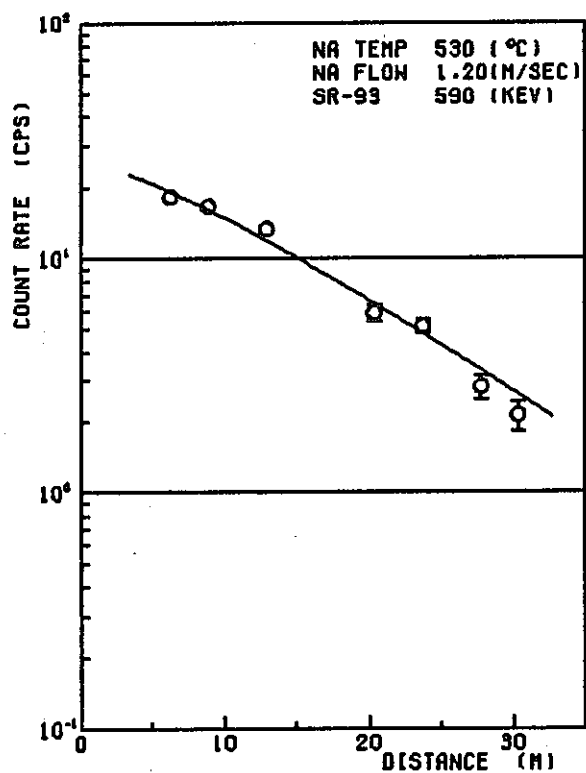
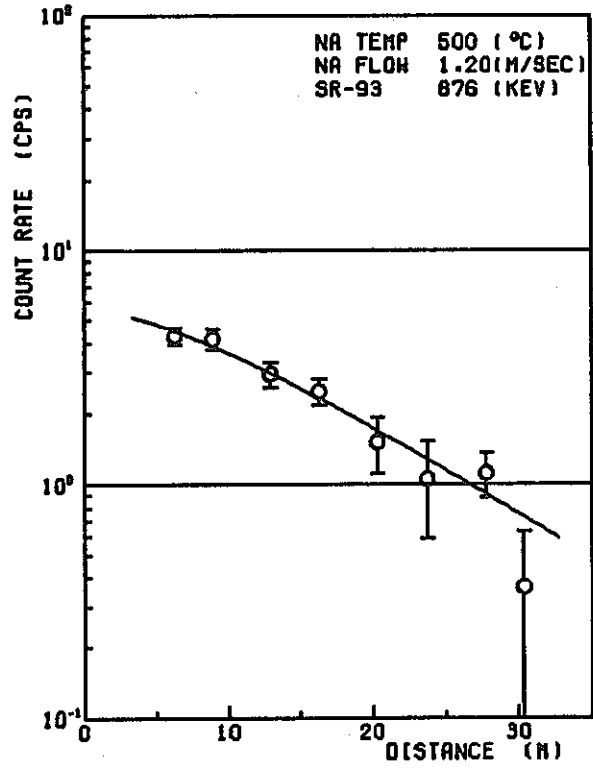
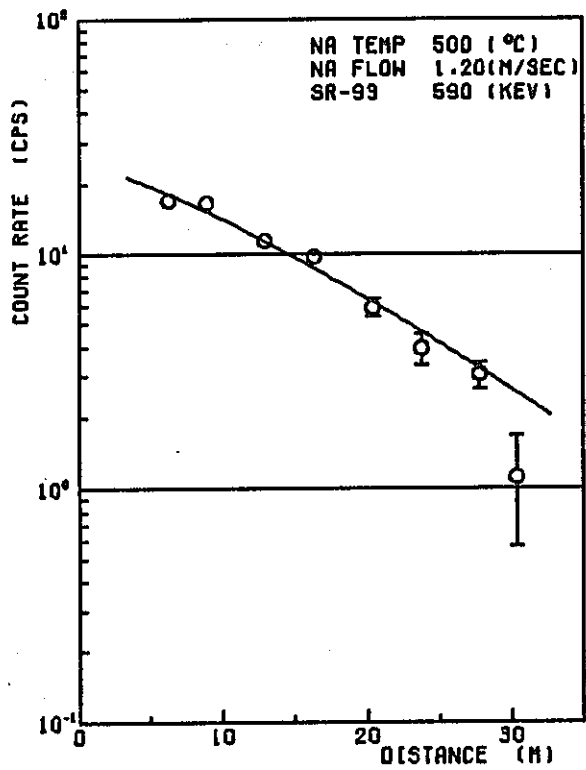
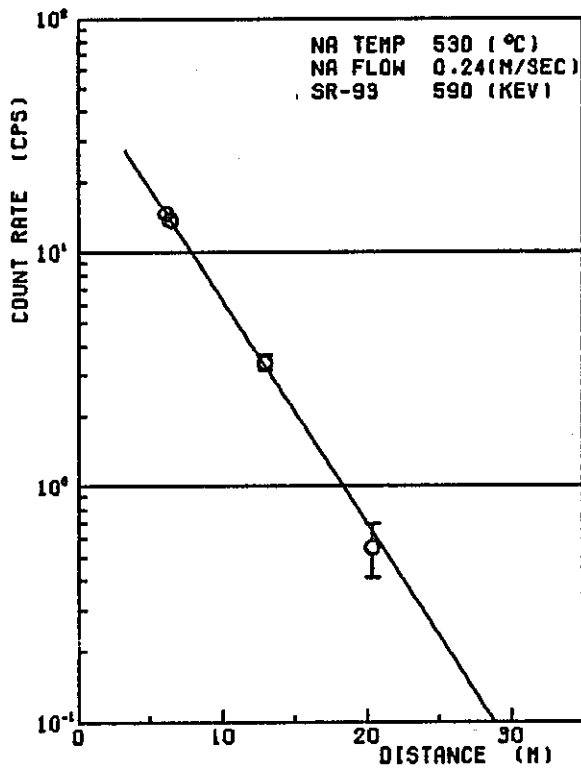
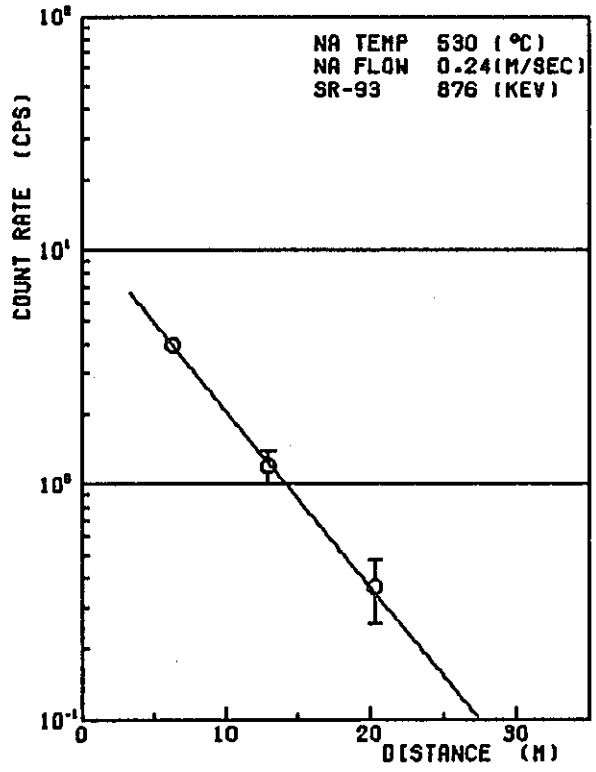


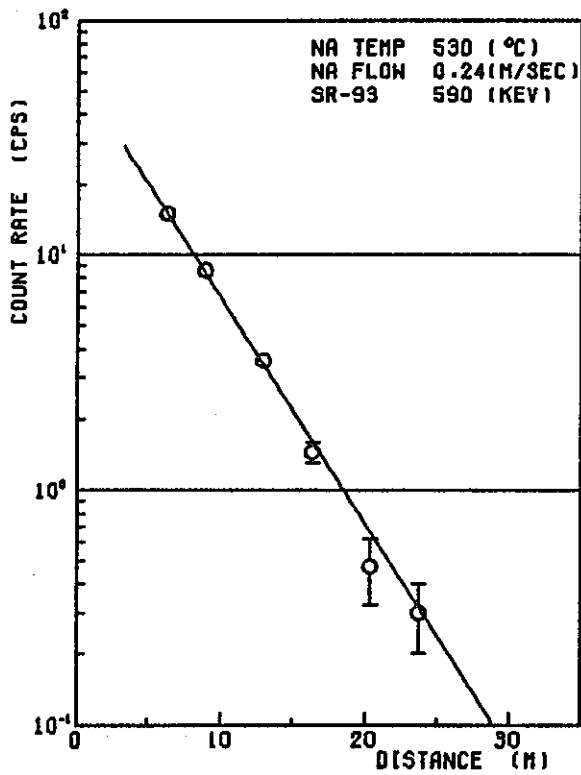
Fig. 5 - 5 (continued)



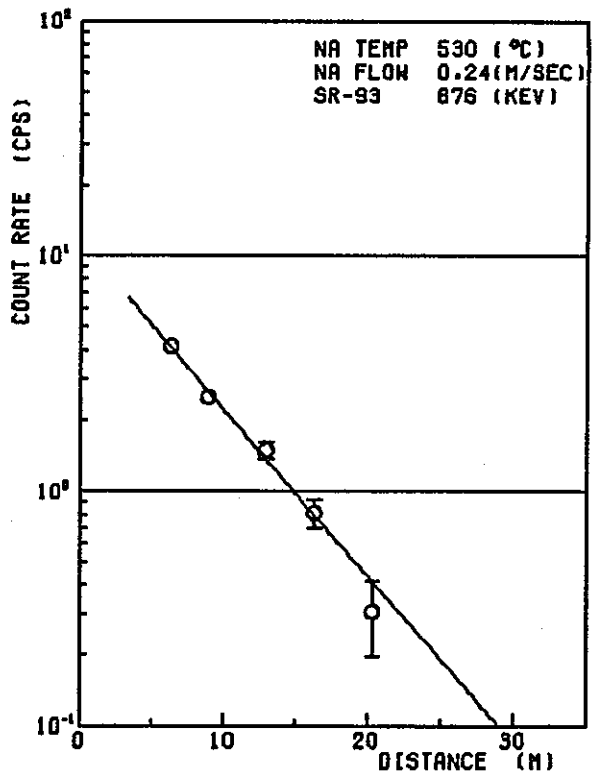
13) EXP. NO. 14



14) EXP. NO. 14

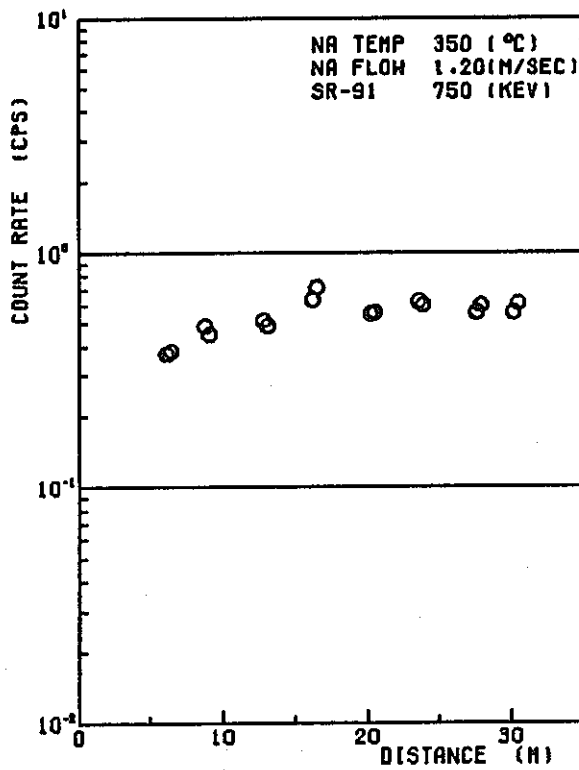


15) EXP. NO. 16

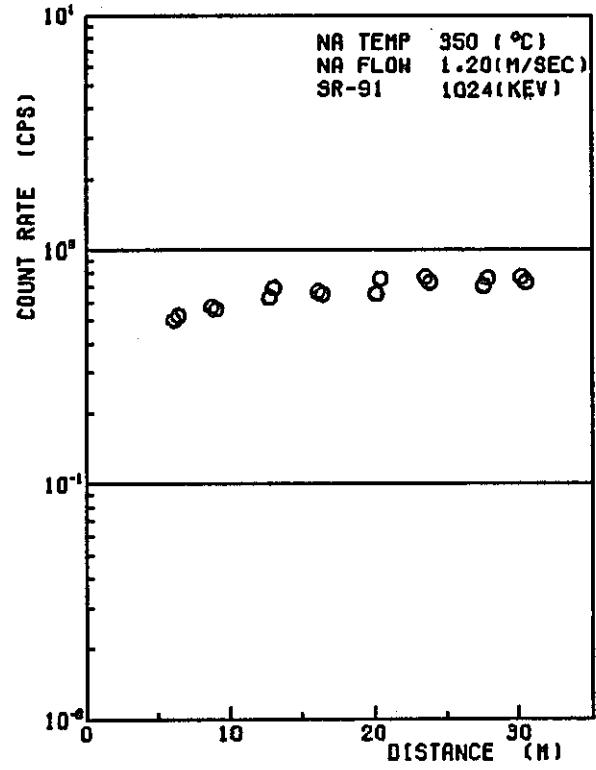


16) EXP. NO. 16

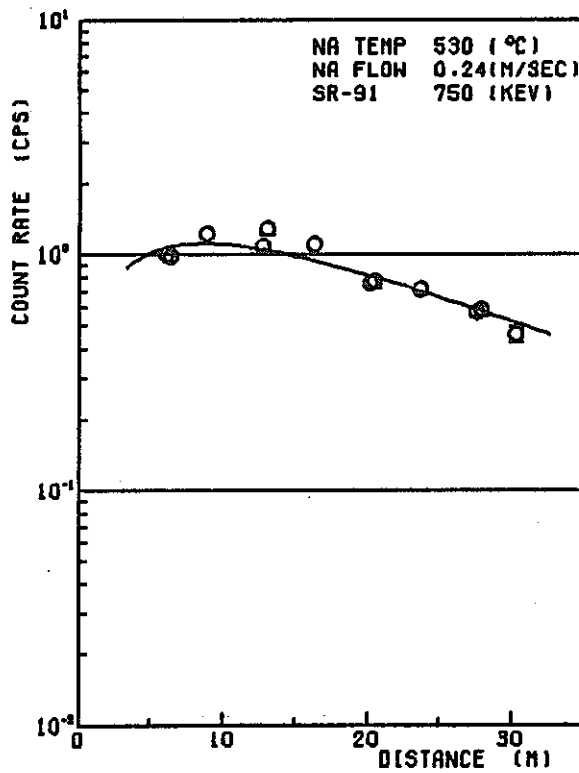
Fig. 5 - 5 (continued)



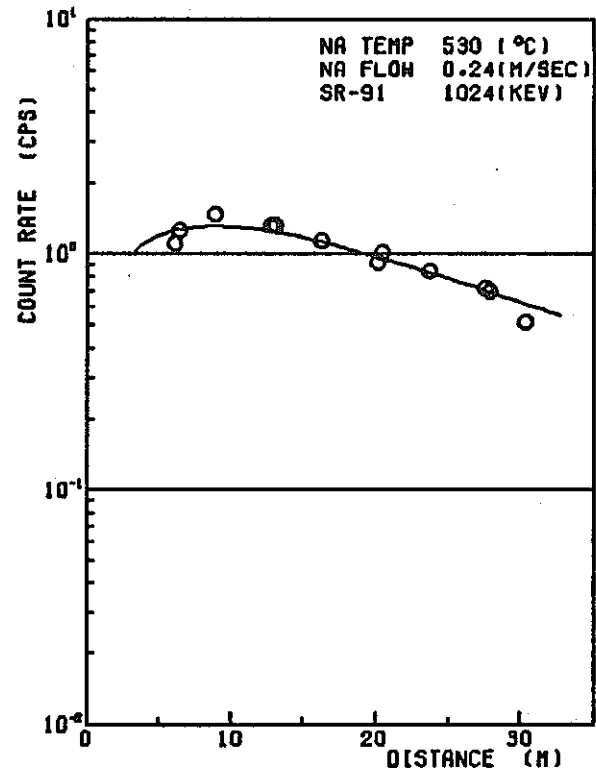
1) EXP. NO. 3



2) EXP. NO. 3

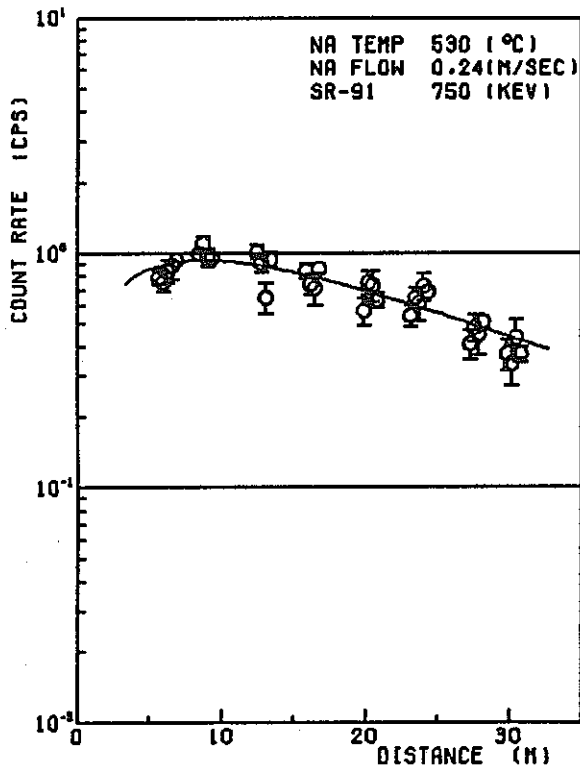


3) EXP. NO. 14

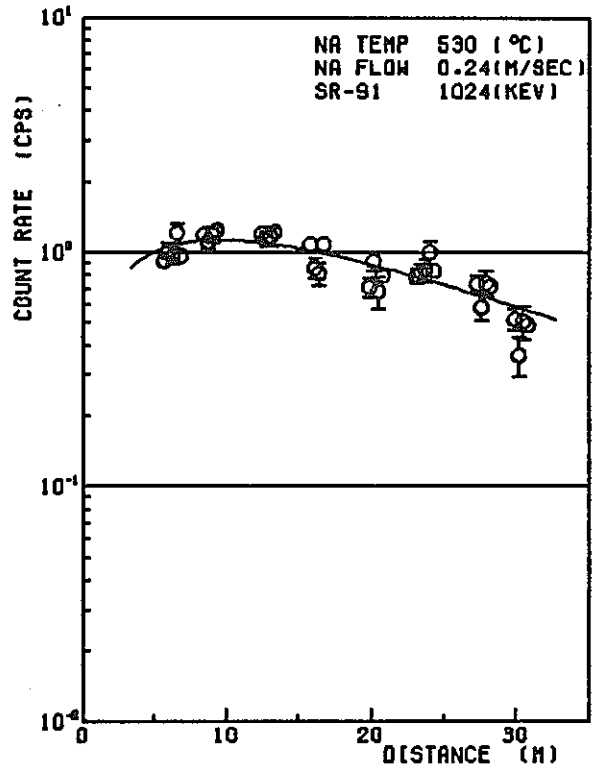


4) EXP. NO. 14

Fig. 5 - 6 <sup>91</sup>Sr deposition distribution along the delay line

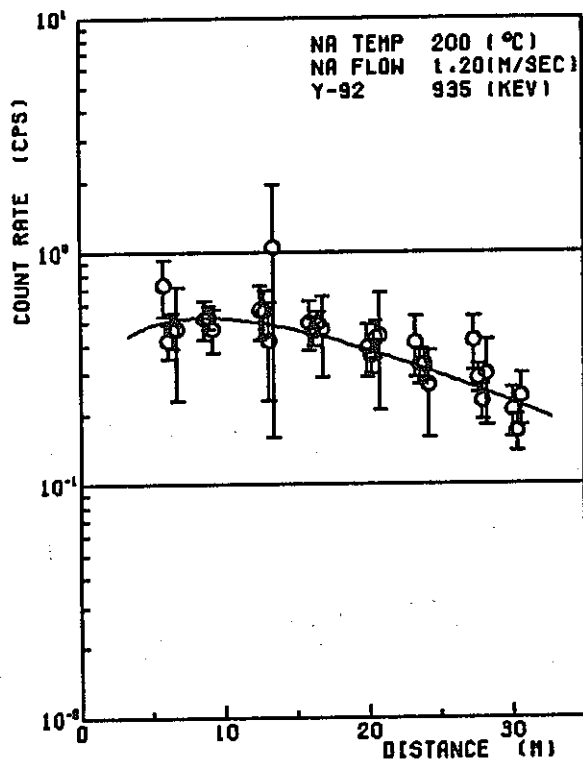


5) EXP. NO. 16

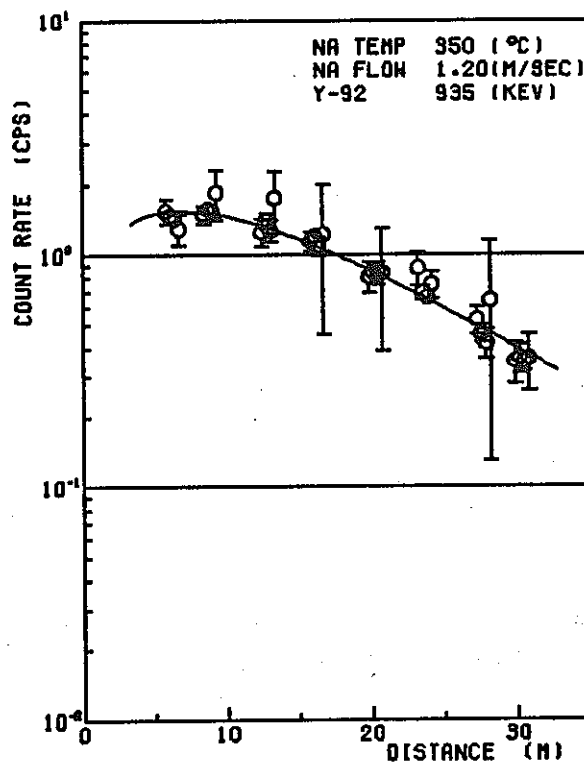


6) EXP. NO. 16

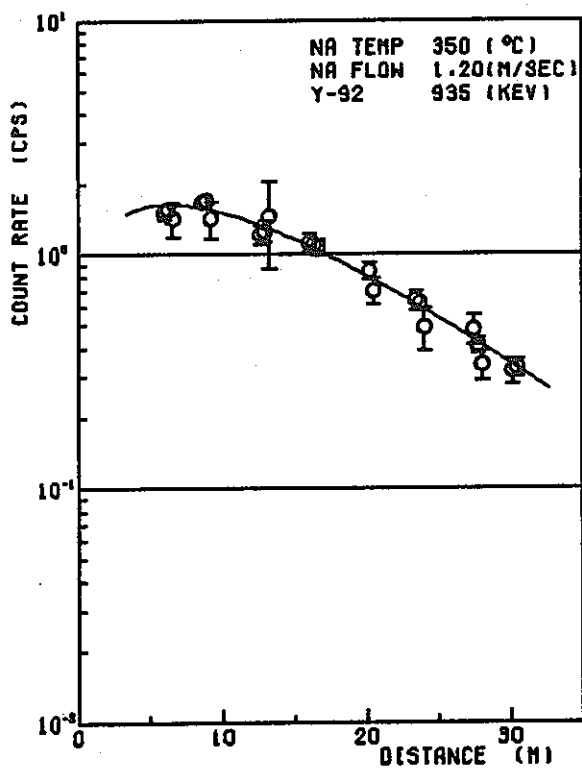
Fig. 5 - 6 (continued)



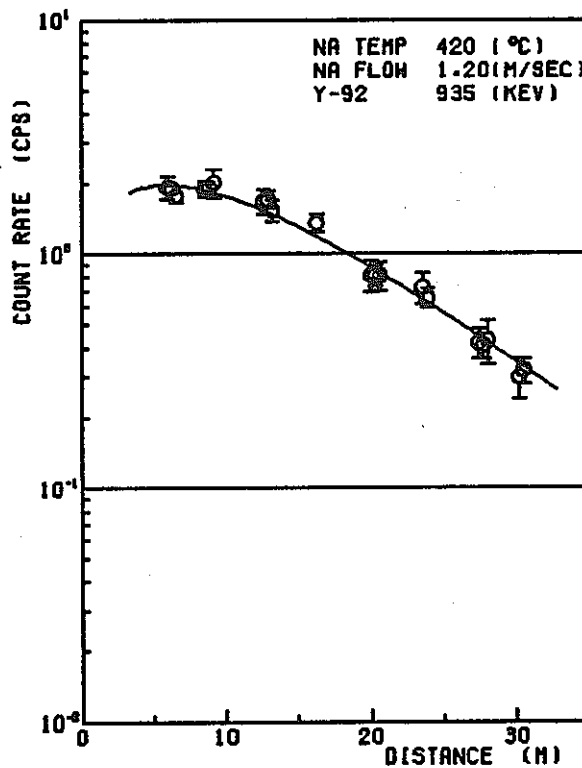
1) EXP. NO. 2



2) EXP. NO. 3

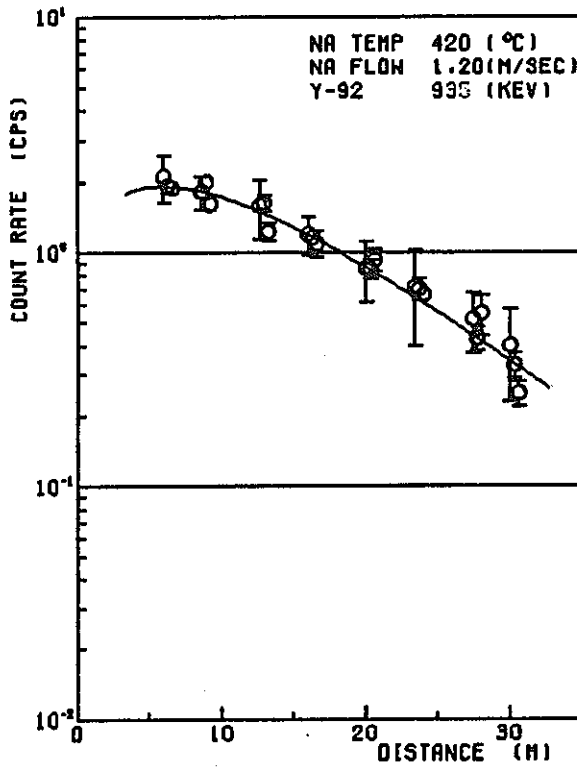


3) EXP. NO. 4

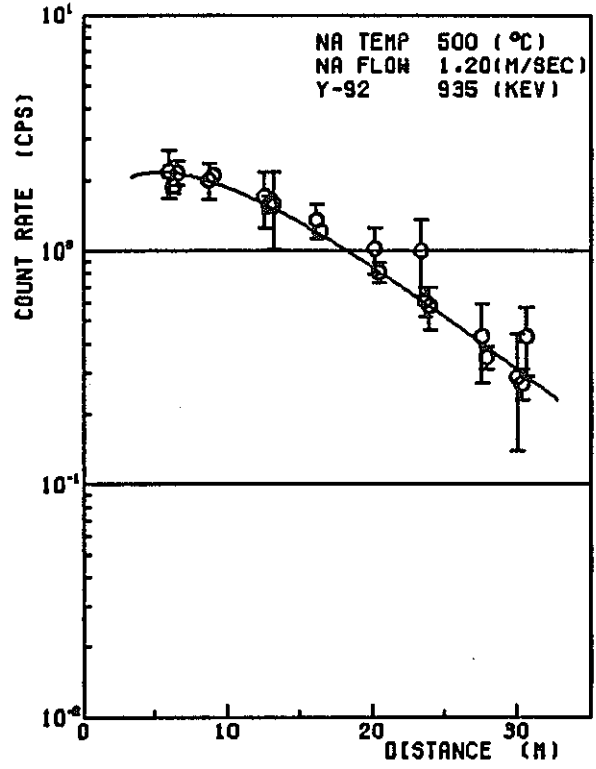


4) EXP. NO. 5

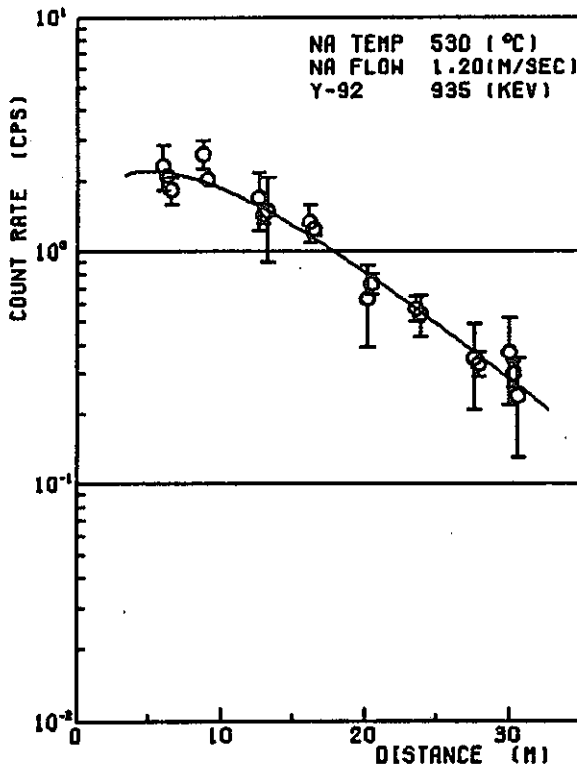
Fig. 5 - 7 <sup>92</sup>Y deposition distribution along the delay line



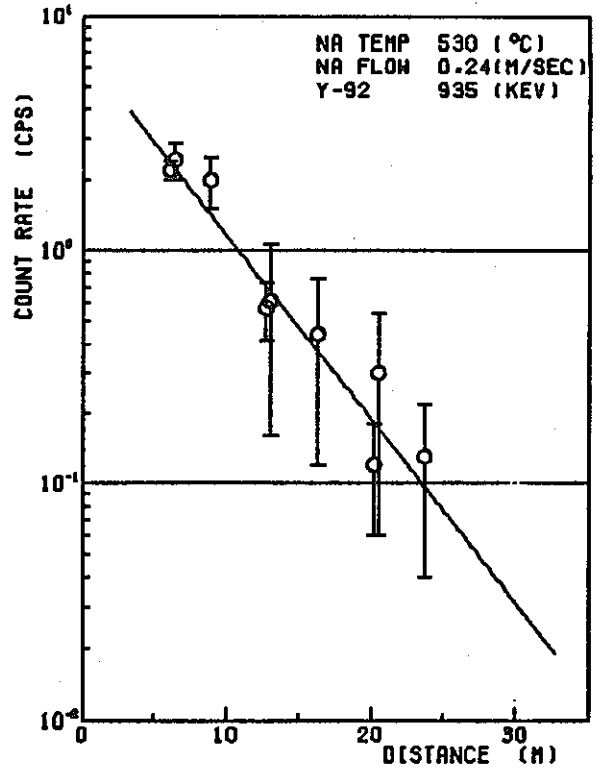
5) EXP. NO. 6



6) EXP. NO. 7

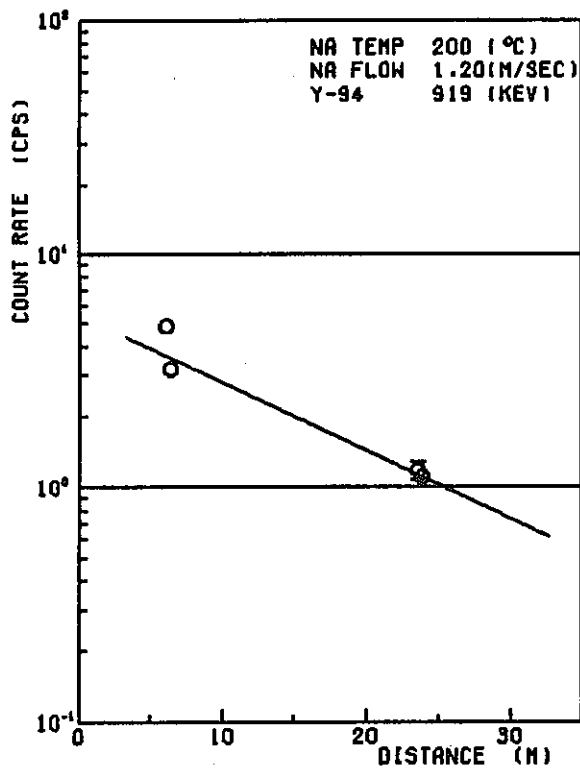


7) EXP. NO. 8

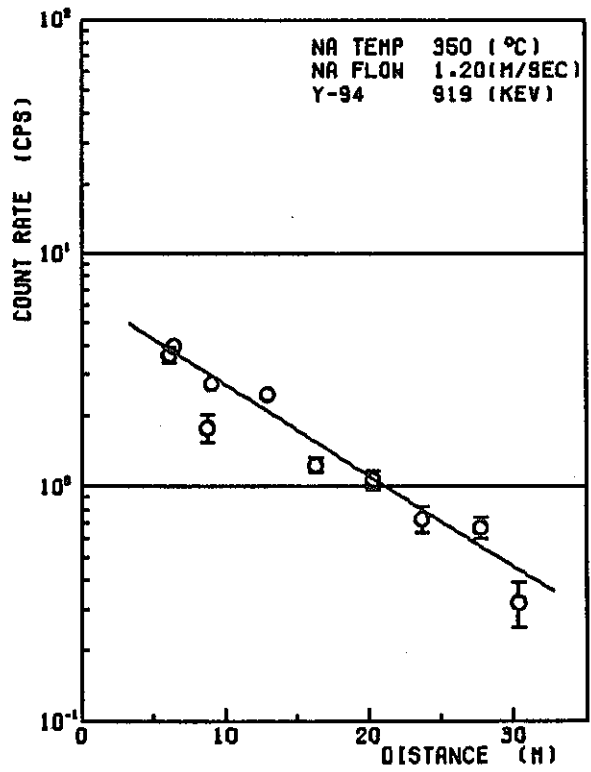


8) EXP. NO. 14

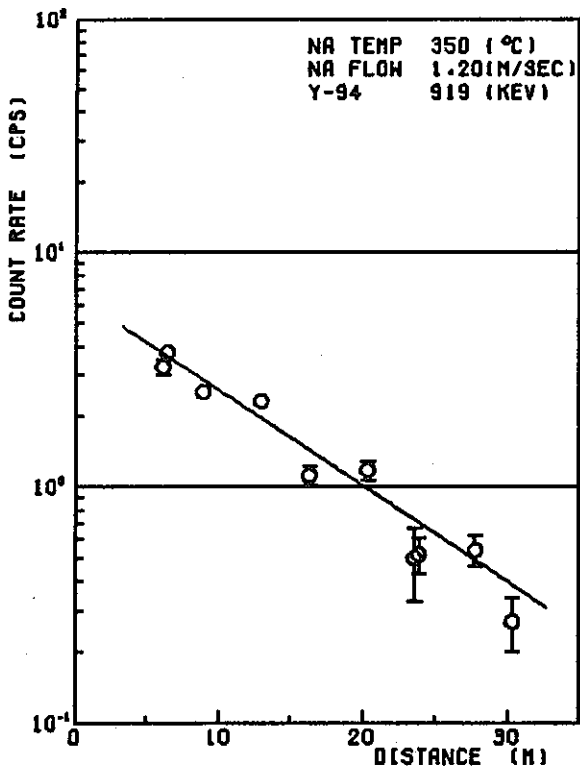
Fig. 5 - 7 (continued)



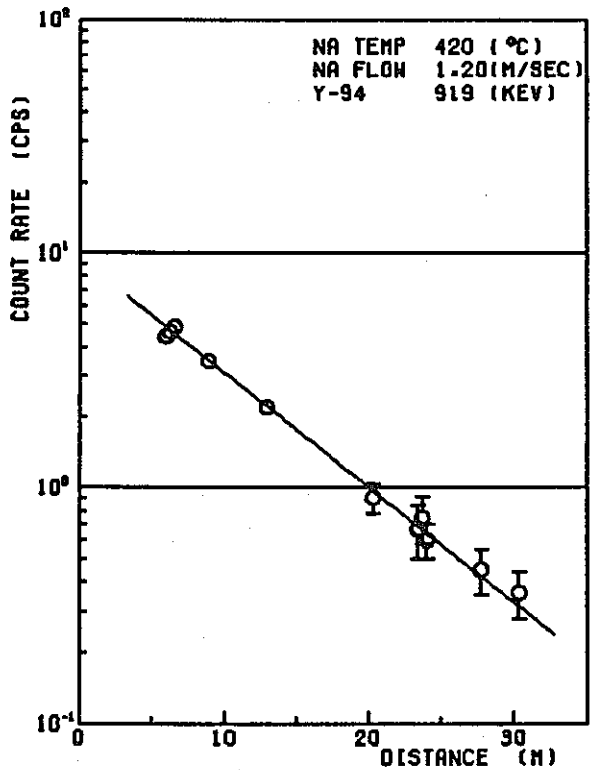
1) EXP. NO. 2



2) EXP. NO. 3



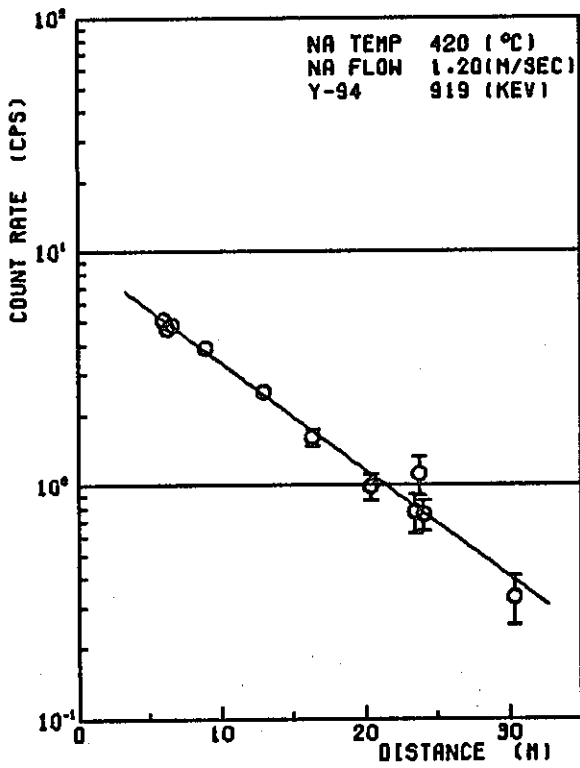
3) EXP. NO. 4



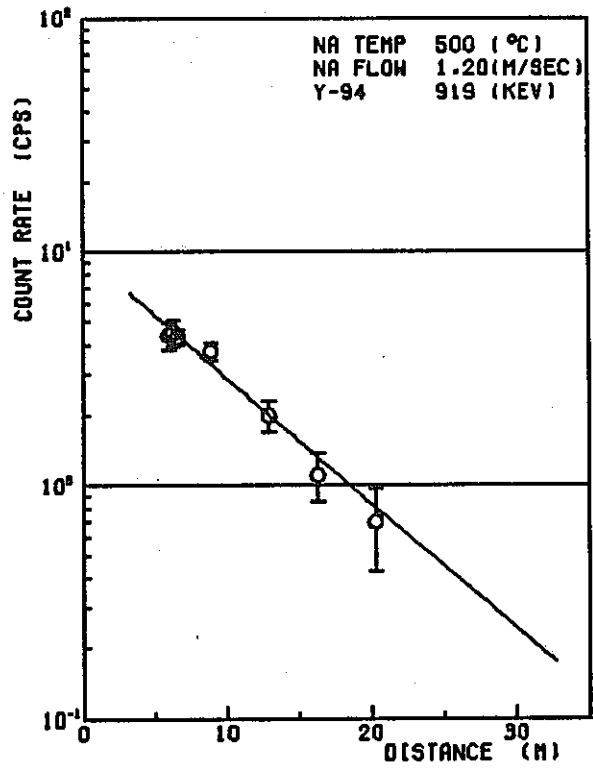
4) EXP. NO. 5

Fig. 5 - 8 <sup>94</sup>Y distribution along the delay line

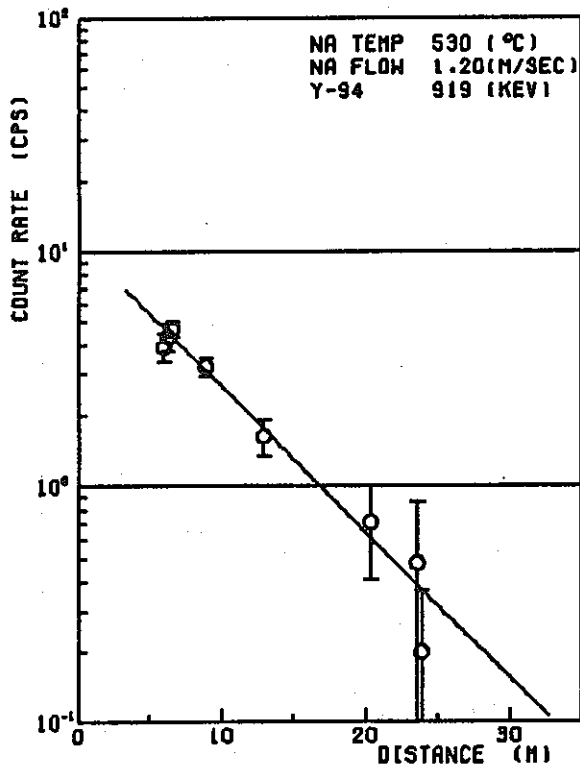




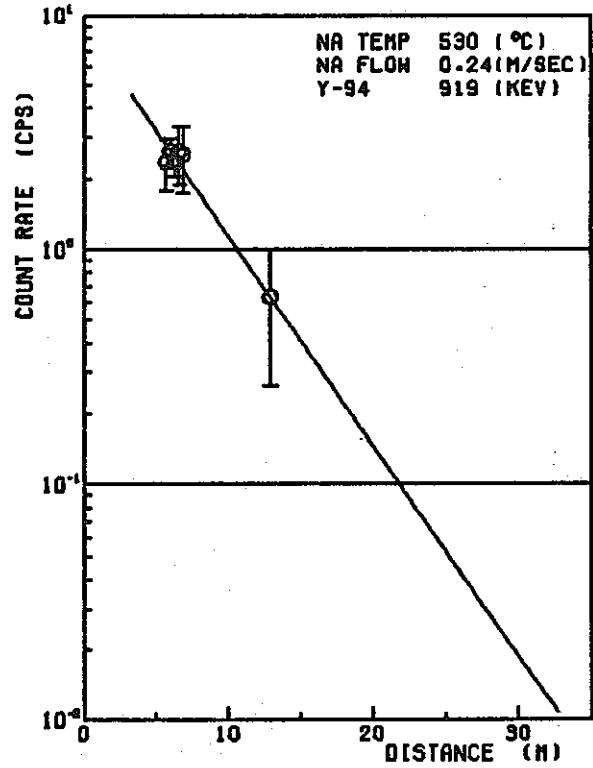
5) EXP. NO. 6



6) EXP. NO. 7

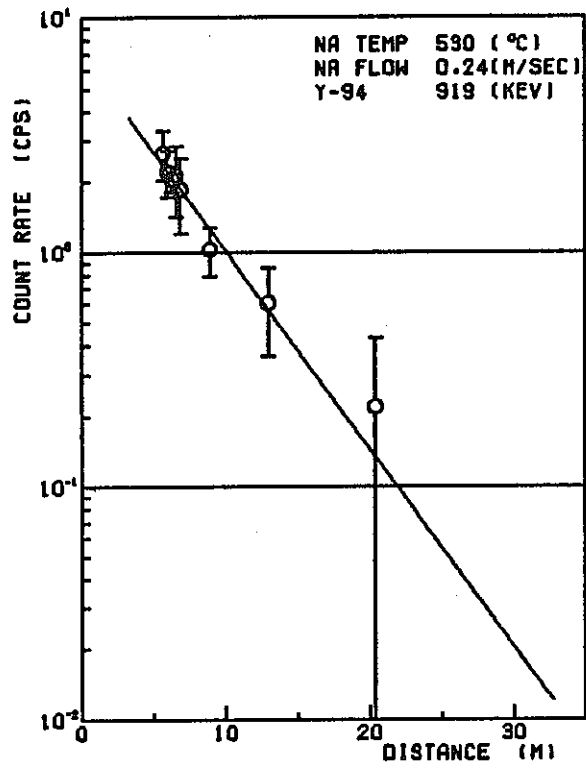


7) EXP. NO. 8



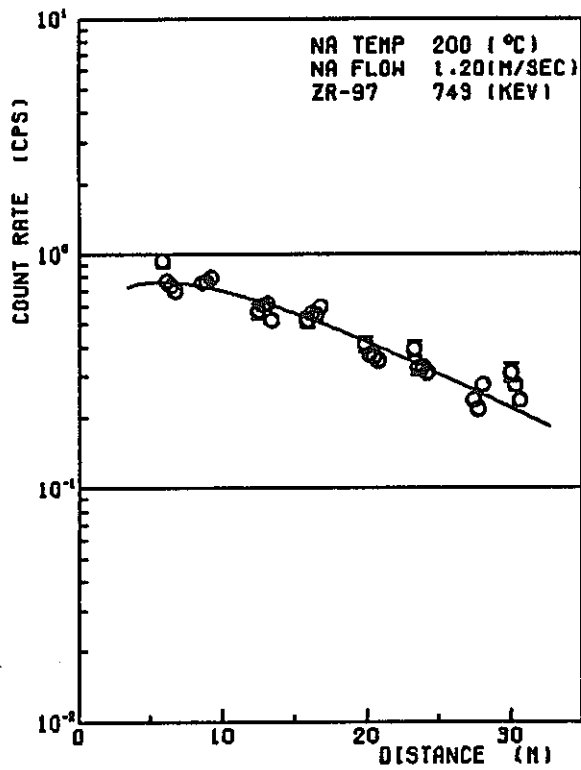
8) EXP. NO. 14

Fig. 5 - 8 (continued)

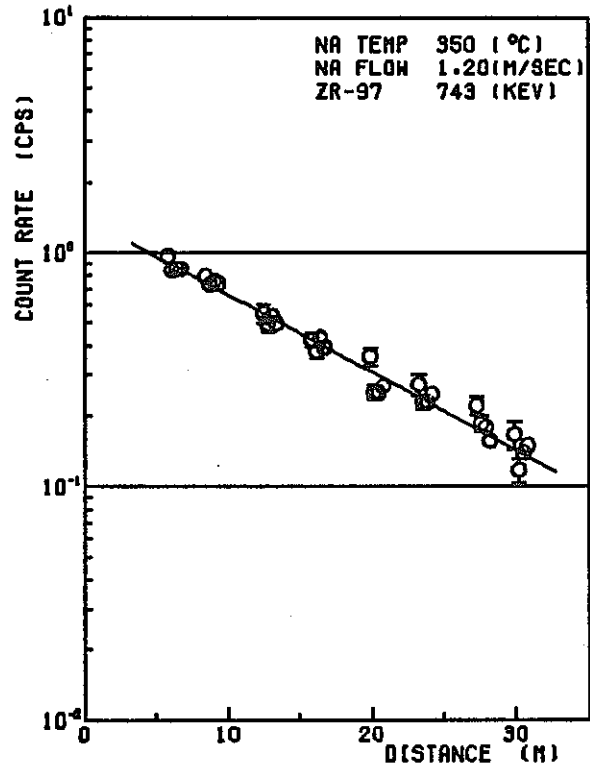


9) EXP. NO. 16

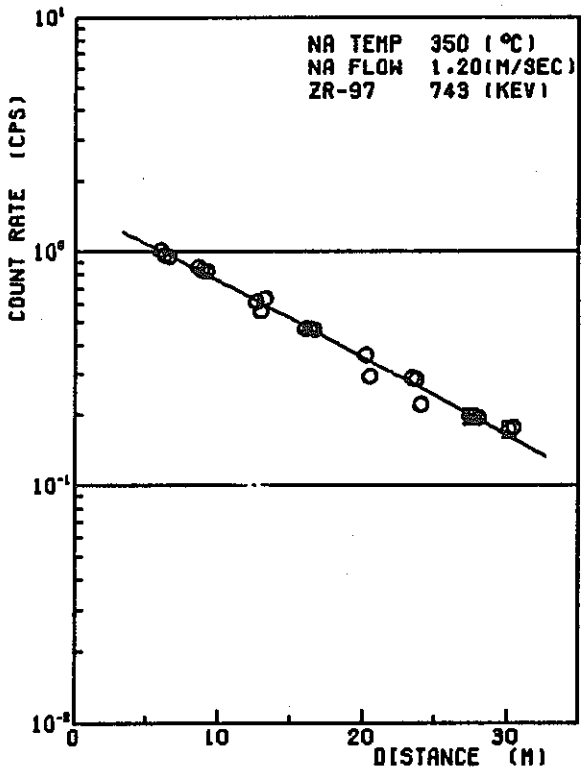
Fig. 5 - 8 (continued)



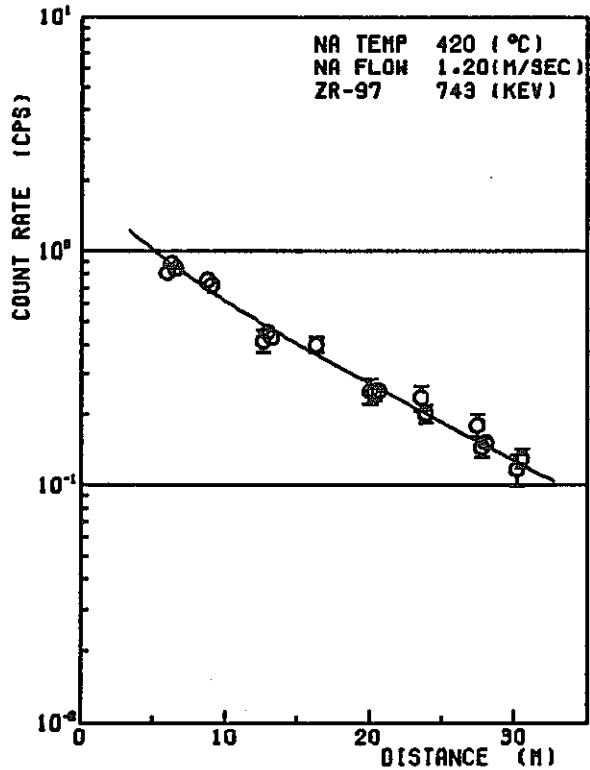
1) EXP. NO. 2



2) EXP. NO. 3

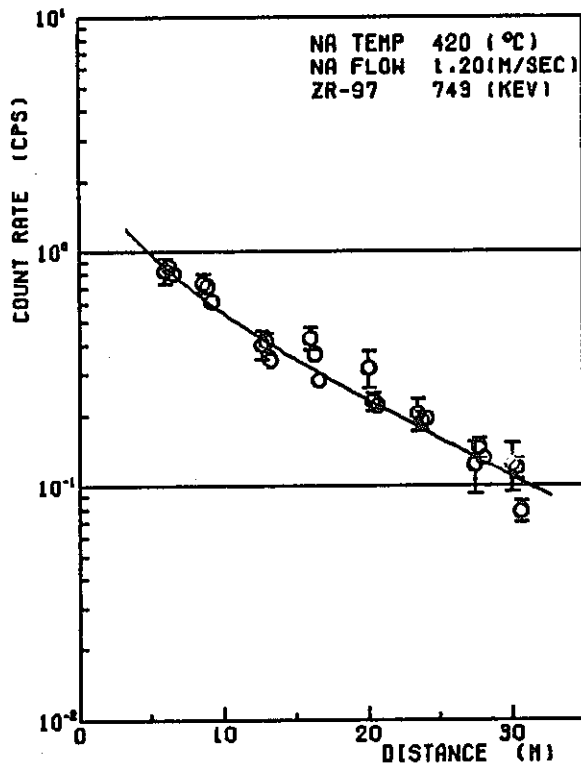


3) EXP. NO. 4

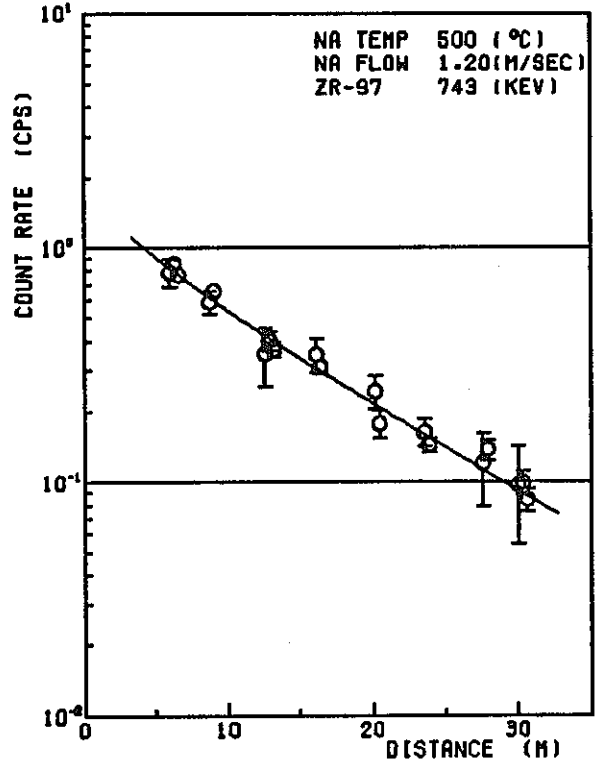


4) EXP. NO. 5

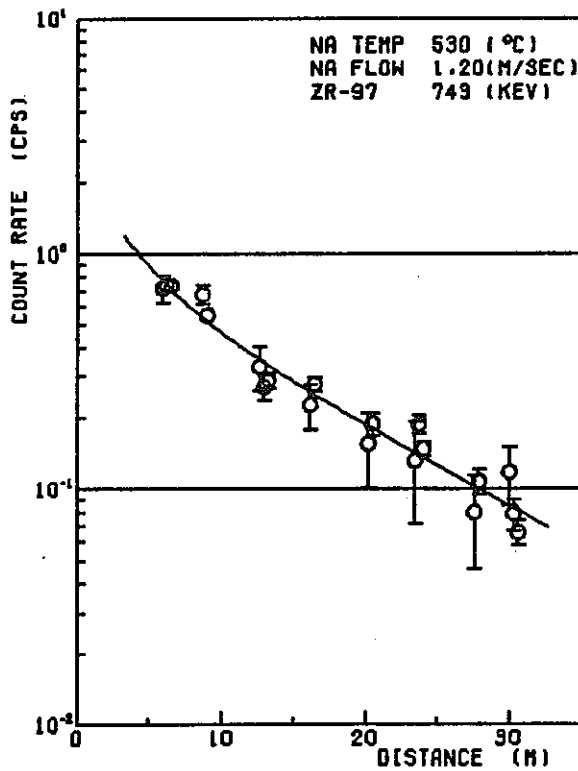
Fig. 5 - 9 <sup>97</sup>Zr deposition distribution along the delay line



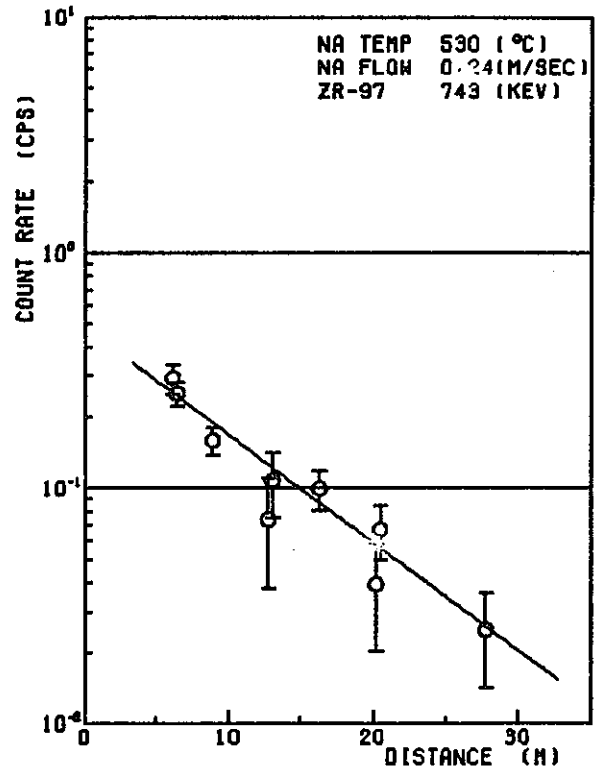
5) EXP. NO. 6



6) EXP. NO. 7

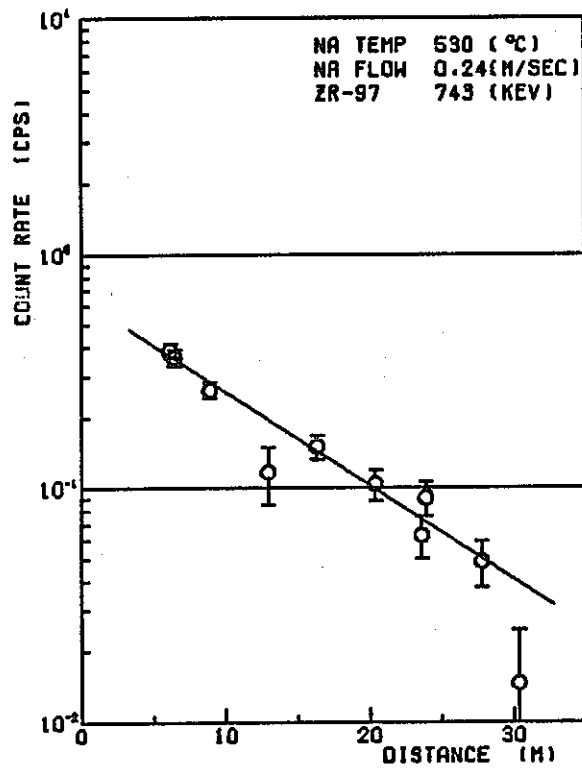


7) EXP. NO. 8



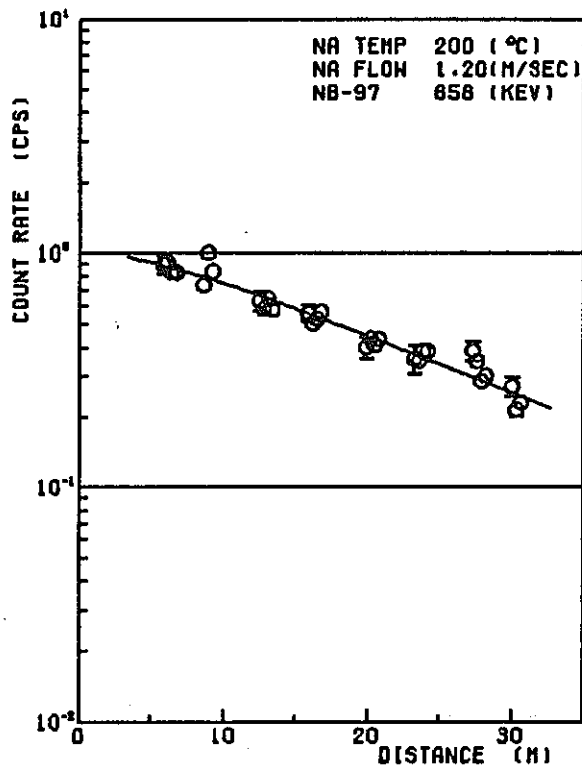
8) EXP. NO. 14

Fig. 5 - 9 (continued)

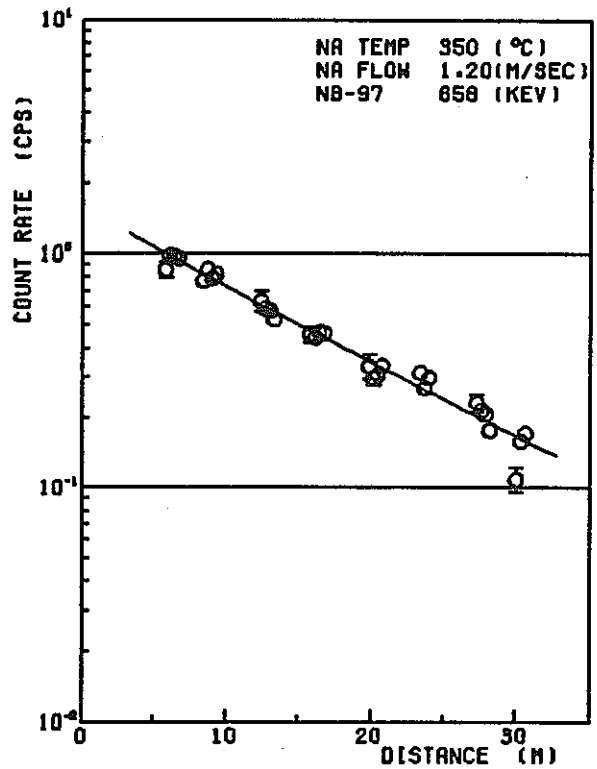


9) EXP. NO. 16

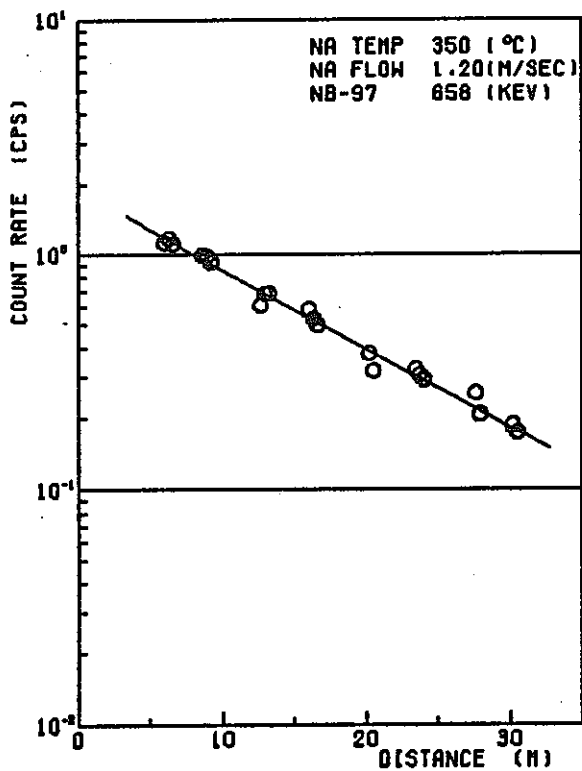
Fig. 5 - 9 (continued)



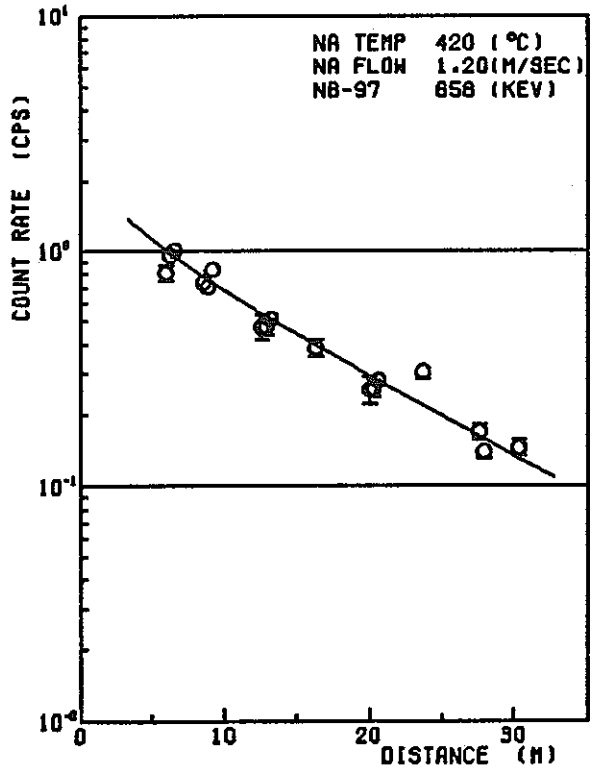
1) EXP. NO. 2



2) EXP. NO. 3

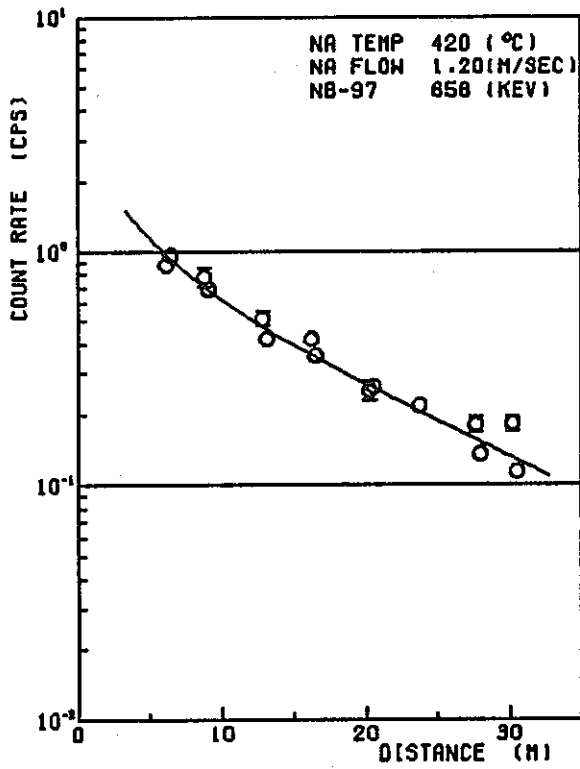


3) EXP. NO. 4

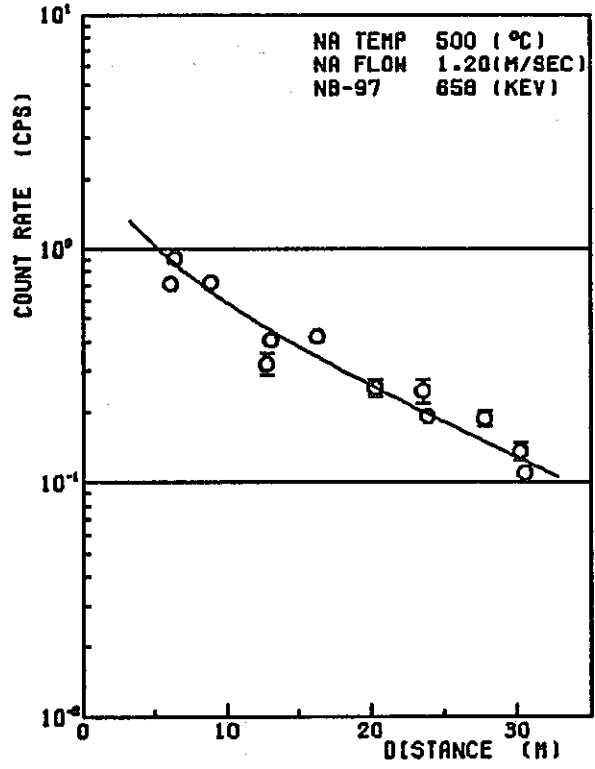


4) EXP. NO. 5

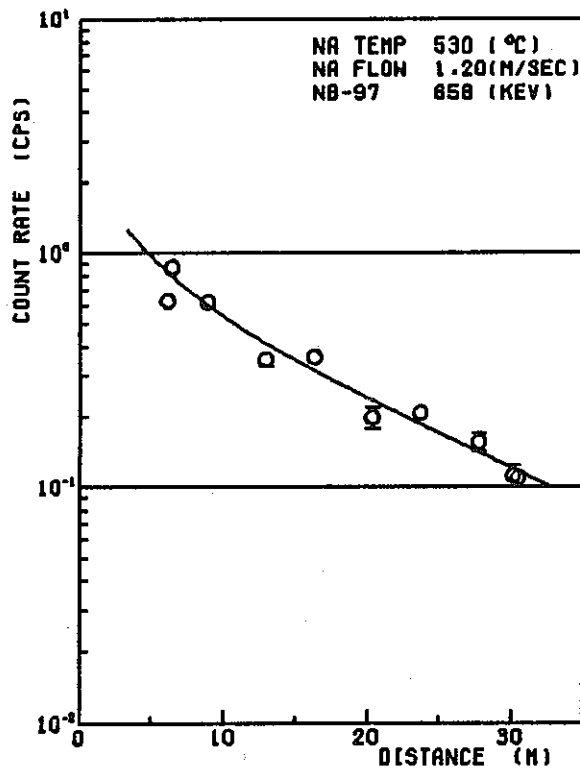
Fig. 5 - 10 <sup>97</sup>Nb distribution along the delay line



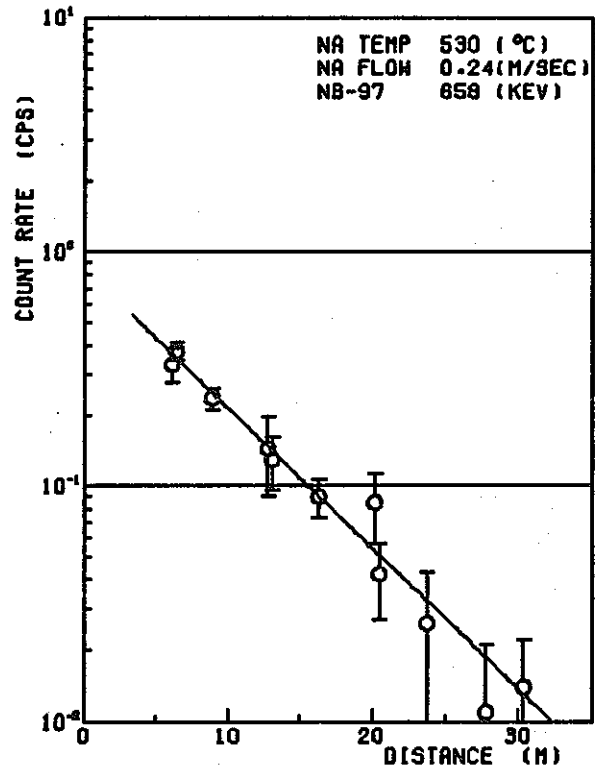
5) EXP. NO. 6



6) EXP. NO. 7

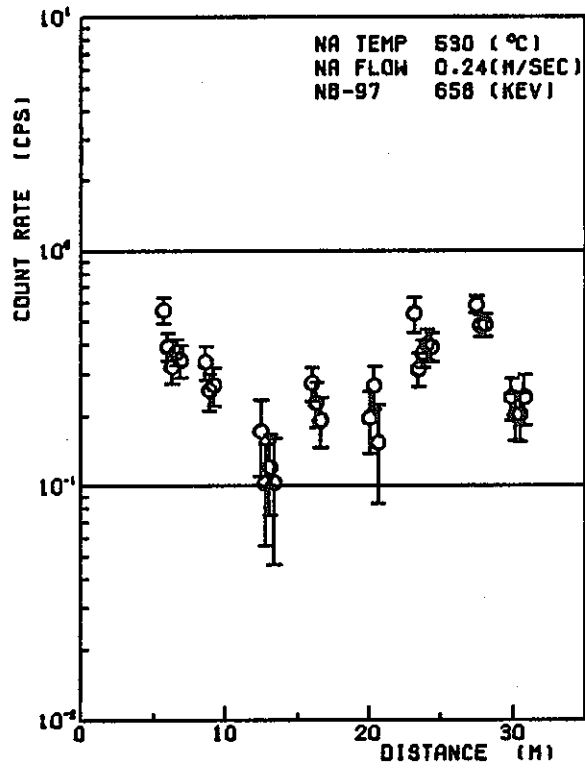


7) EXP. NO. 8



8) EXP. NO. 14

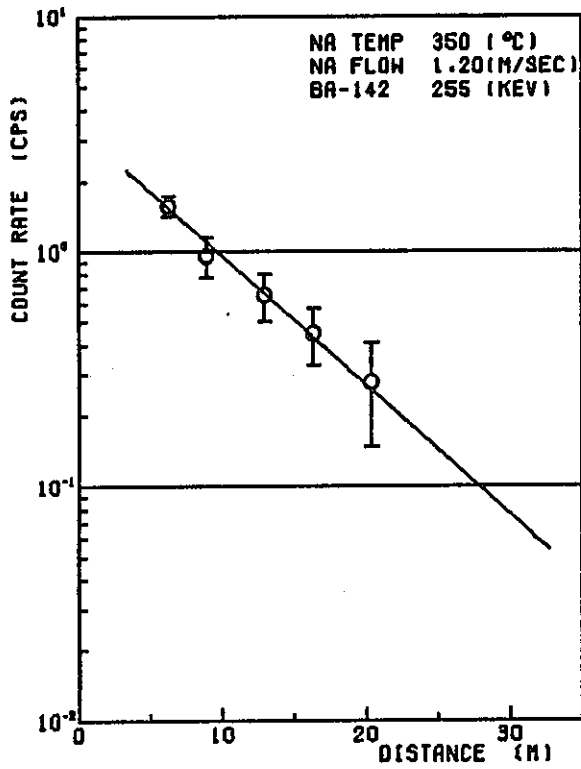
Fig. 5 - 10 (continued)



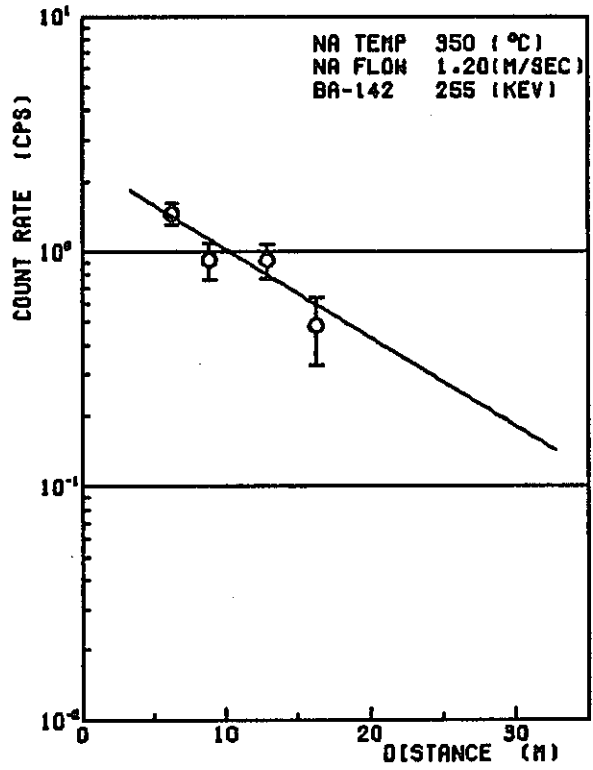
9) EXP. NO. 16

Fig. 5 - 10 (continued)

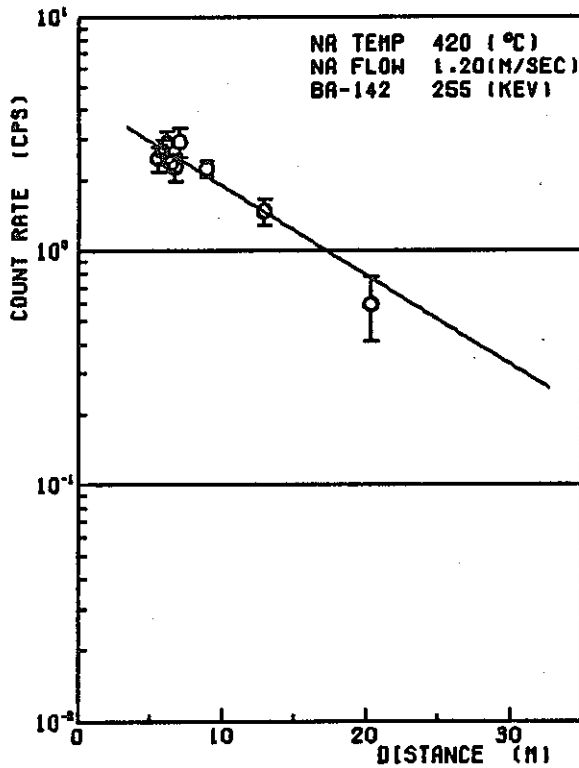




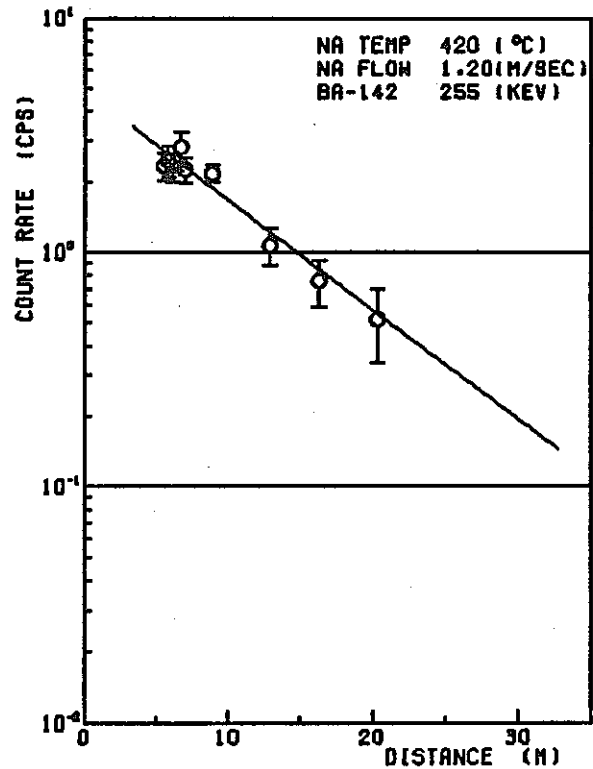
1) EXP. NO. 3



2) EXP. NO. 4

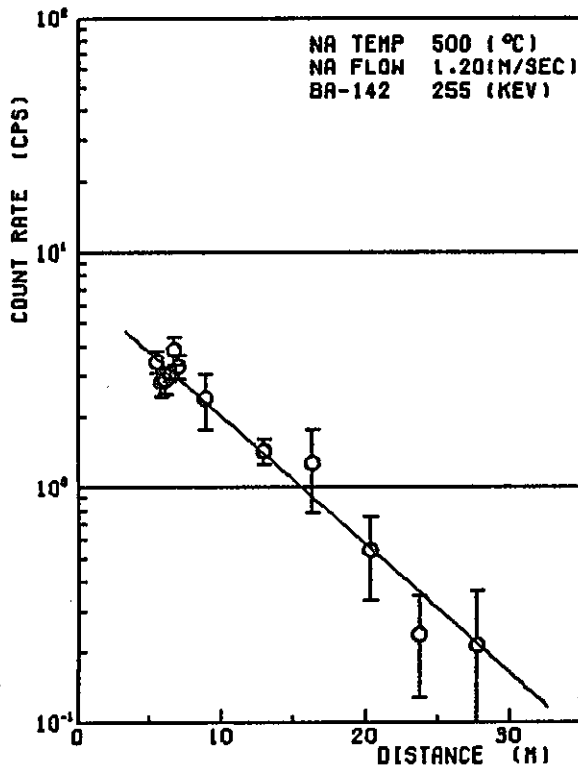


3) EXP. NO. 5

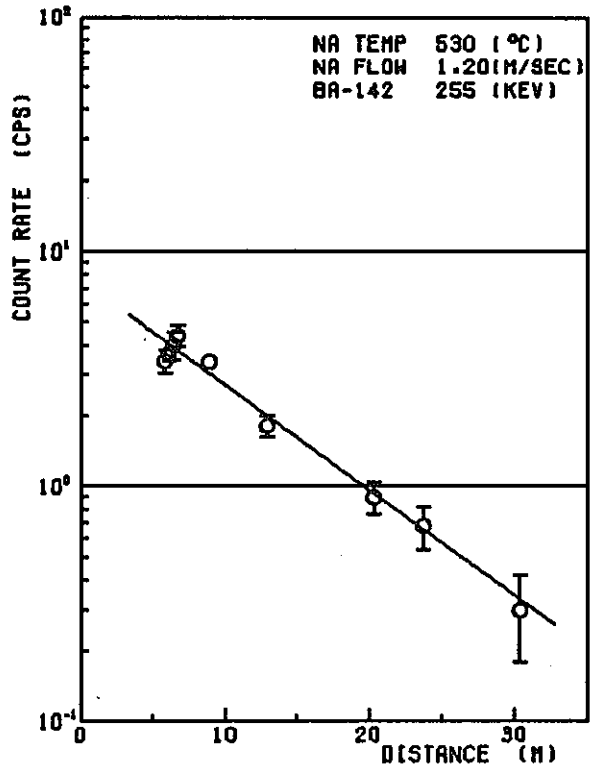


4) EXP. NO. 6

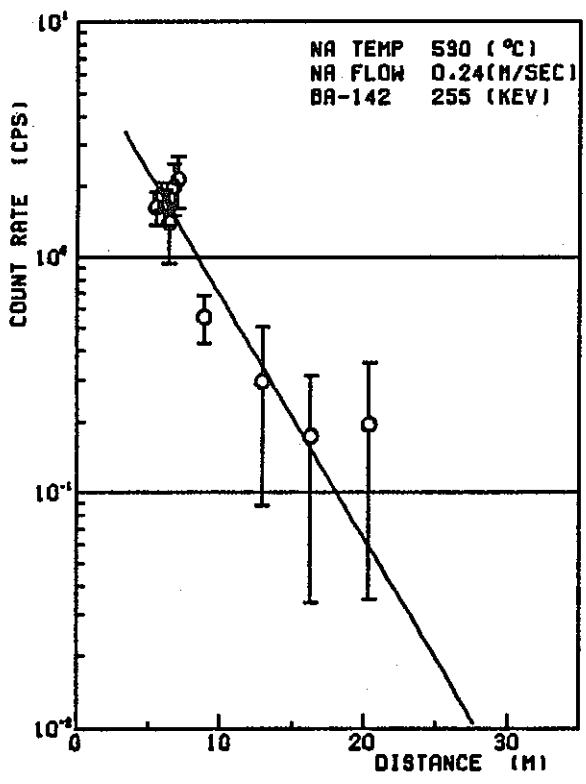
Fig. 5 - 11  $^{142}\text{Ba}$  distribution along the delay line



5) EXP. NO. 7

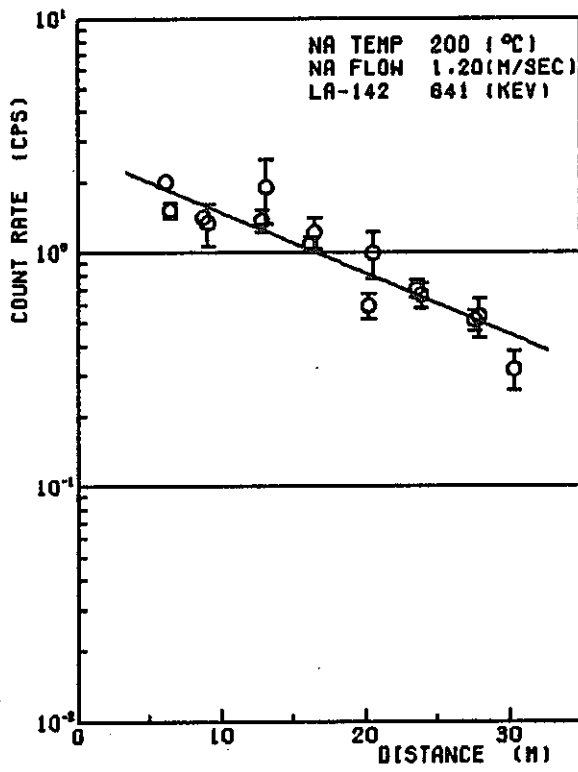


6) EXP. NO. 8

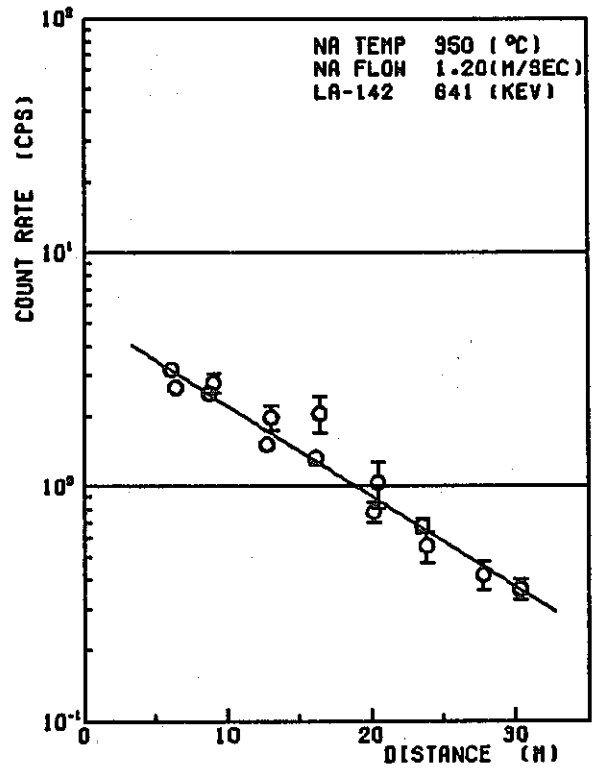


7) EXP. NO. 16

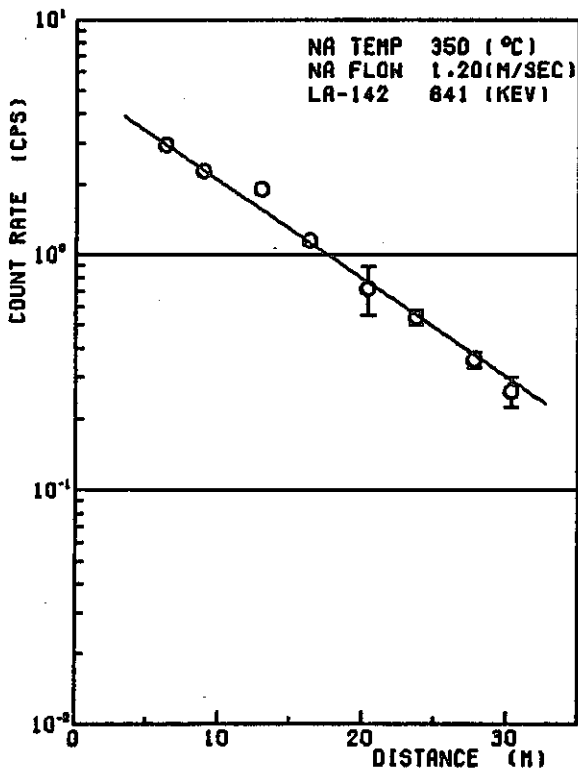
Fig. 5 - 11 (continued)



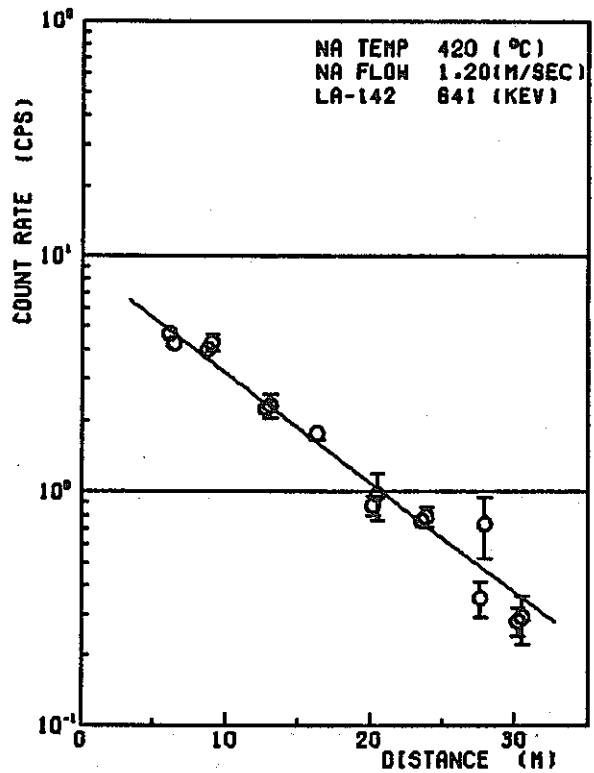
1) EXP. NO. 2



2) EXP. NO. 3

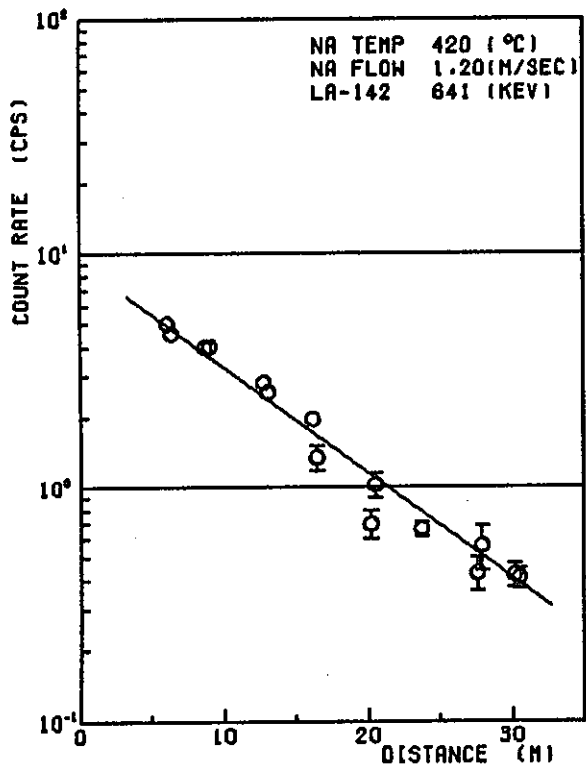


3) EXP. NO. 4

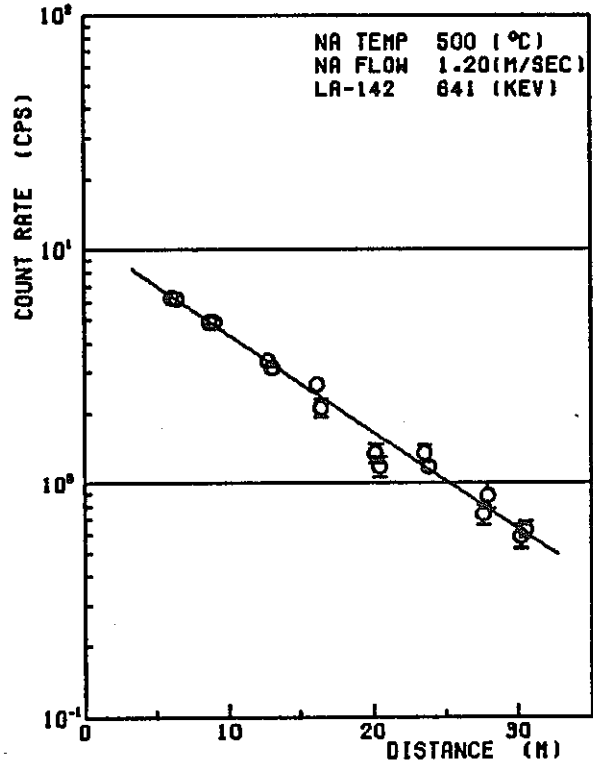


4) EXP. NO. 5

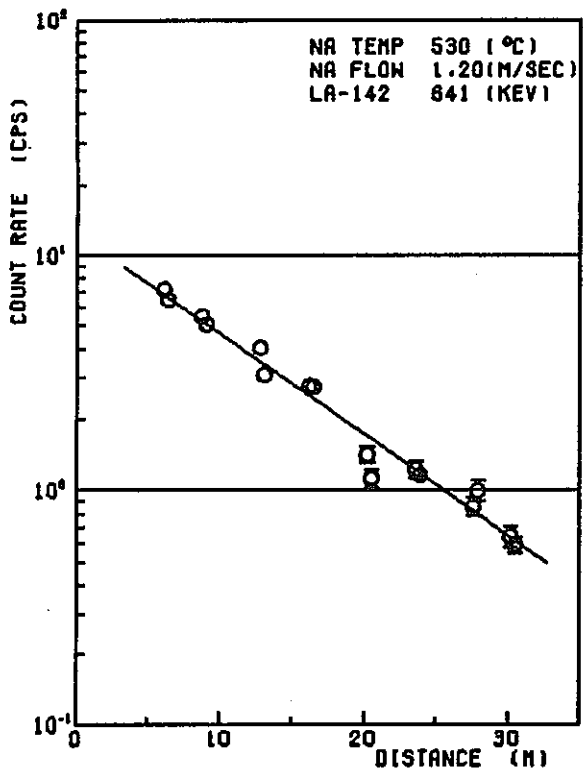
Fig. 5 - 12 <sup>142</sup>La deposition distribution along the delay line



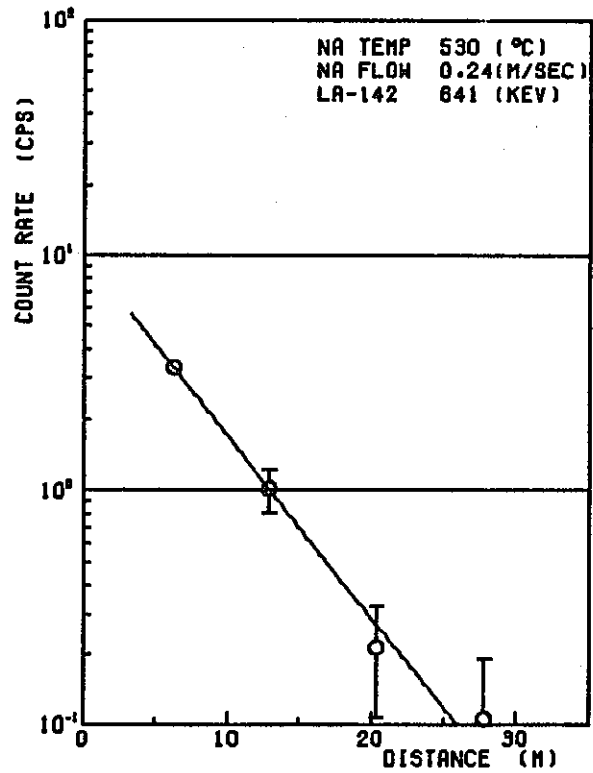
5) EXP. NO. 6



6) EXP. NO. 7

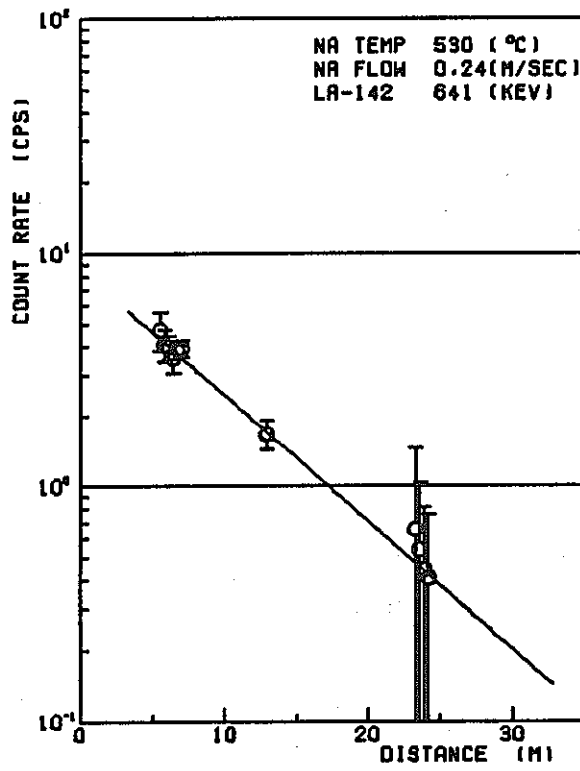


7) EXP. NO. 8



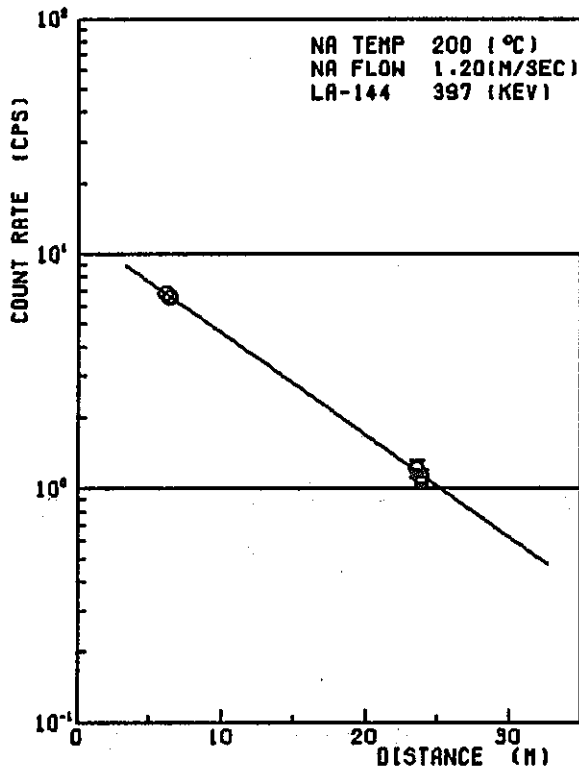
8) EXP. NO. 14

Fig. 5 - 12 (continued)

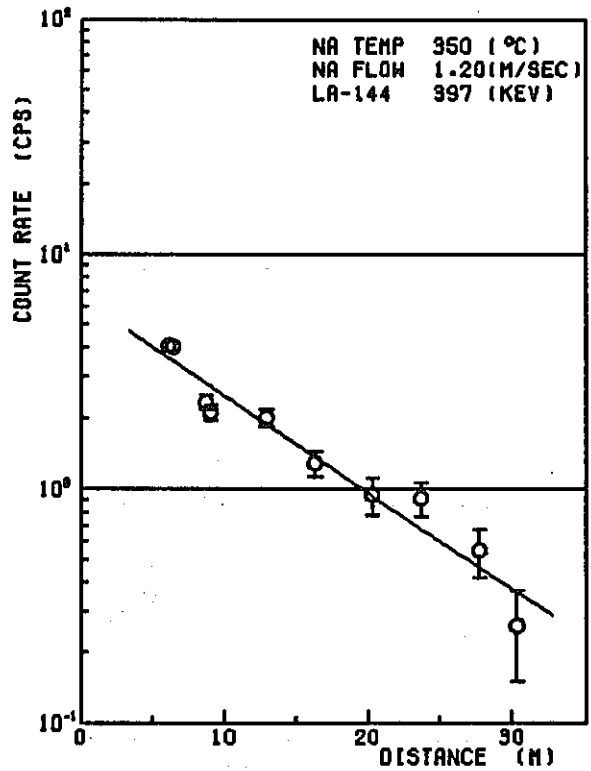


9) EXP. NO. 16

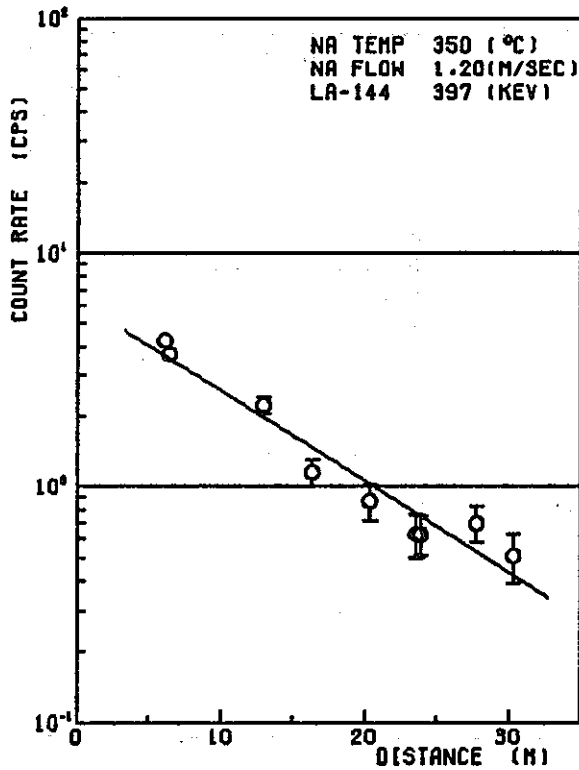
Fig. 5 - 12 (continued)



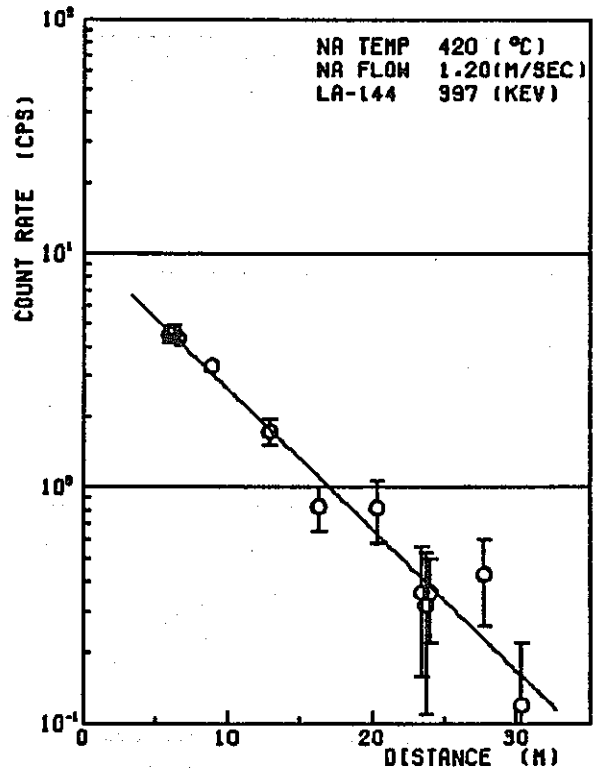
1) EXP. NO. 2



2) EXP. NO. 3

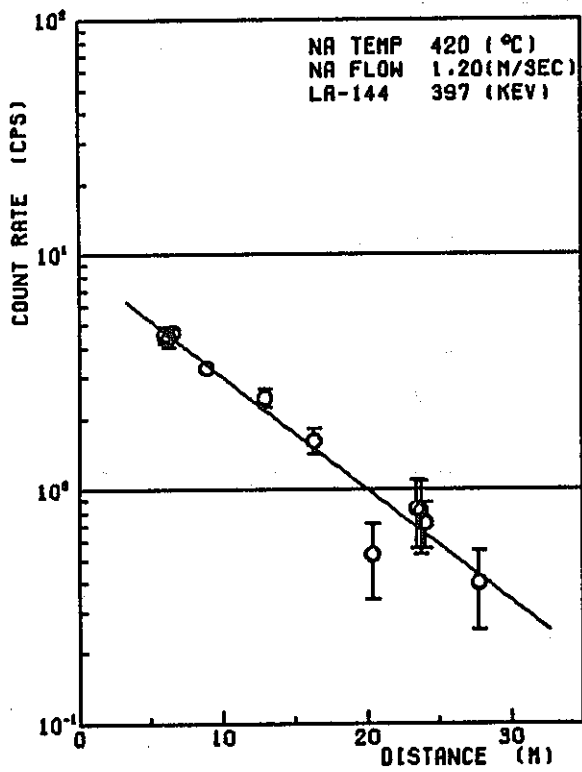


3) EXP. NO. 4

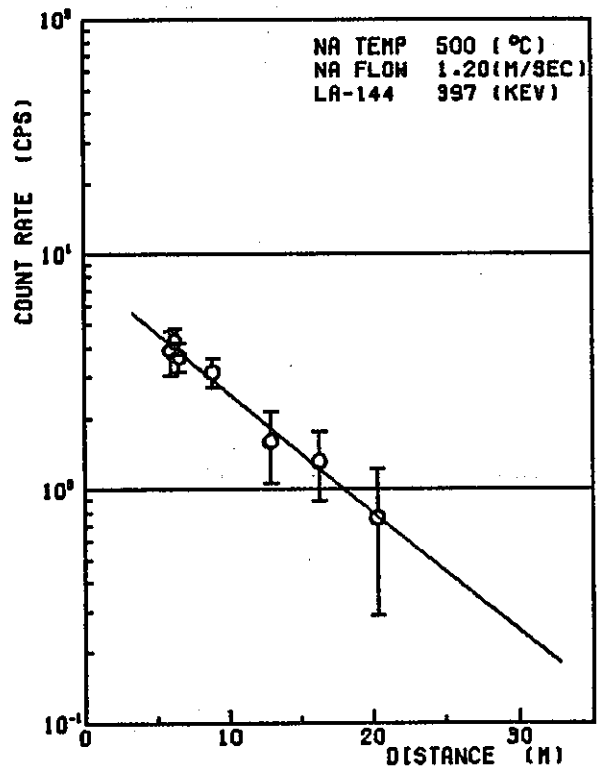


4) EXP. NO. 5

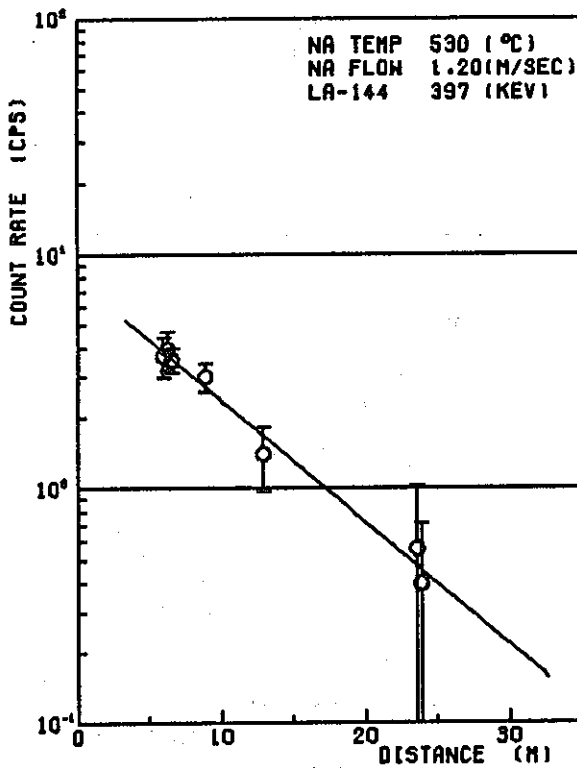
Fig. 5 - 13 <sup>144</sup>La distribution along the delay line



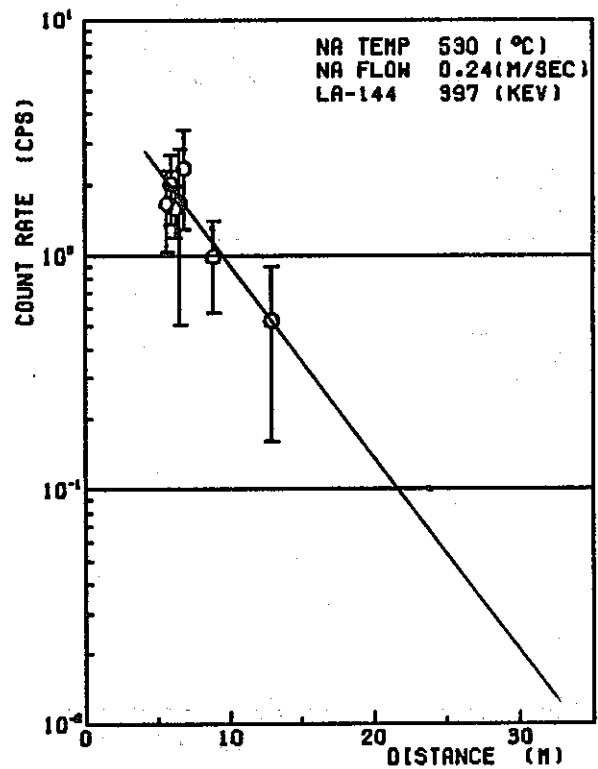
5) EXP. NO. 6



6) EXP. NO. 7



7) EXP. NO. 8



8) EXP. NO. 16

Fig. 5 - 13 (continued)

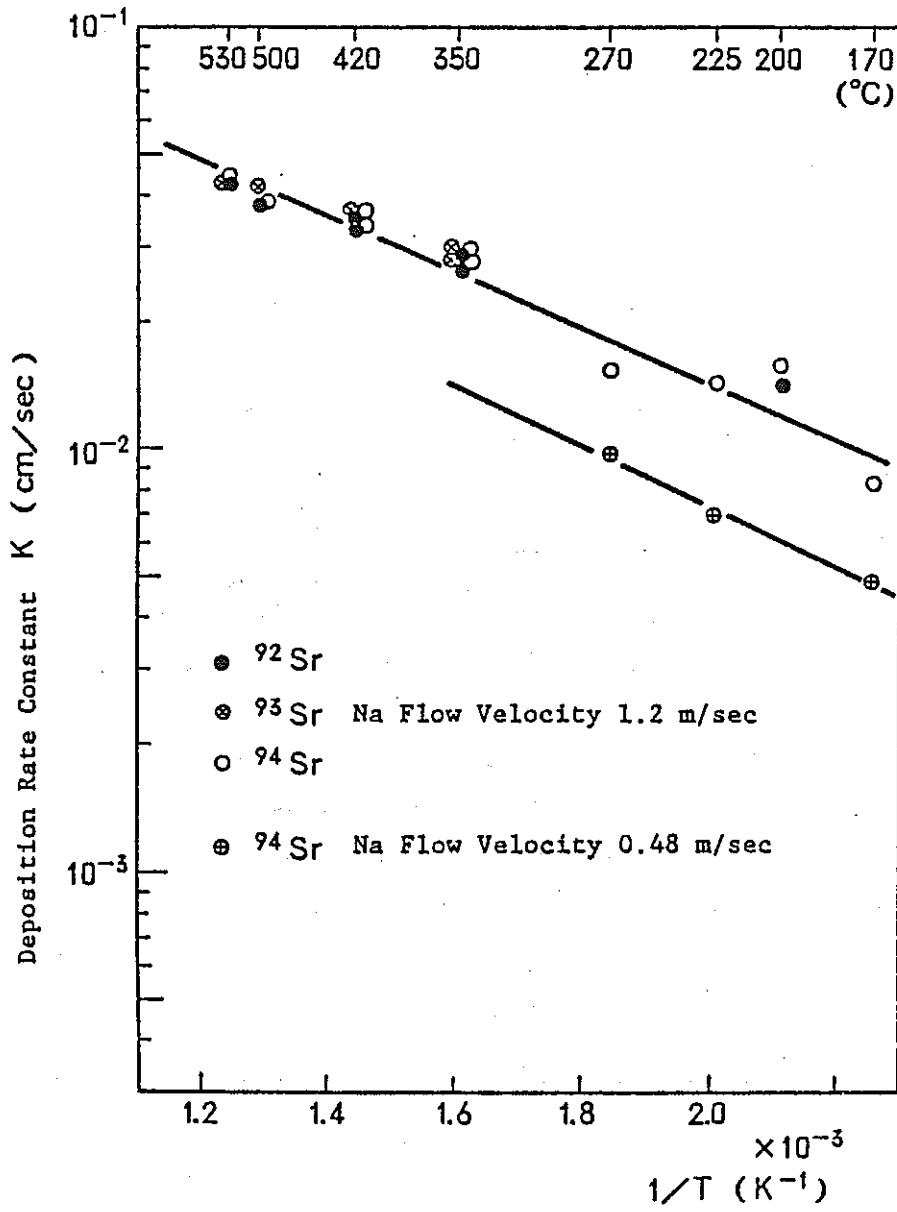


Fig. 5 - 14 Relationship between Sr deposition rate constant and reciprocal temperature



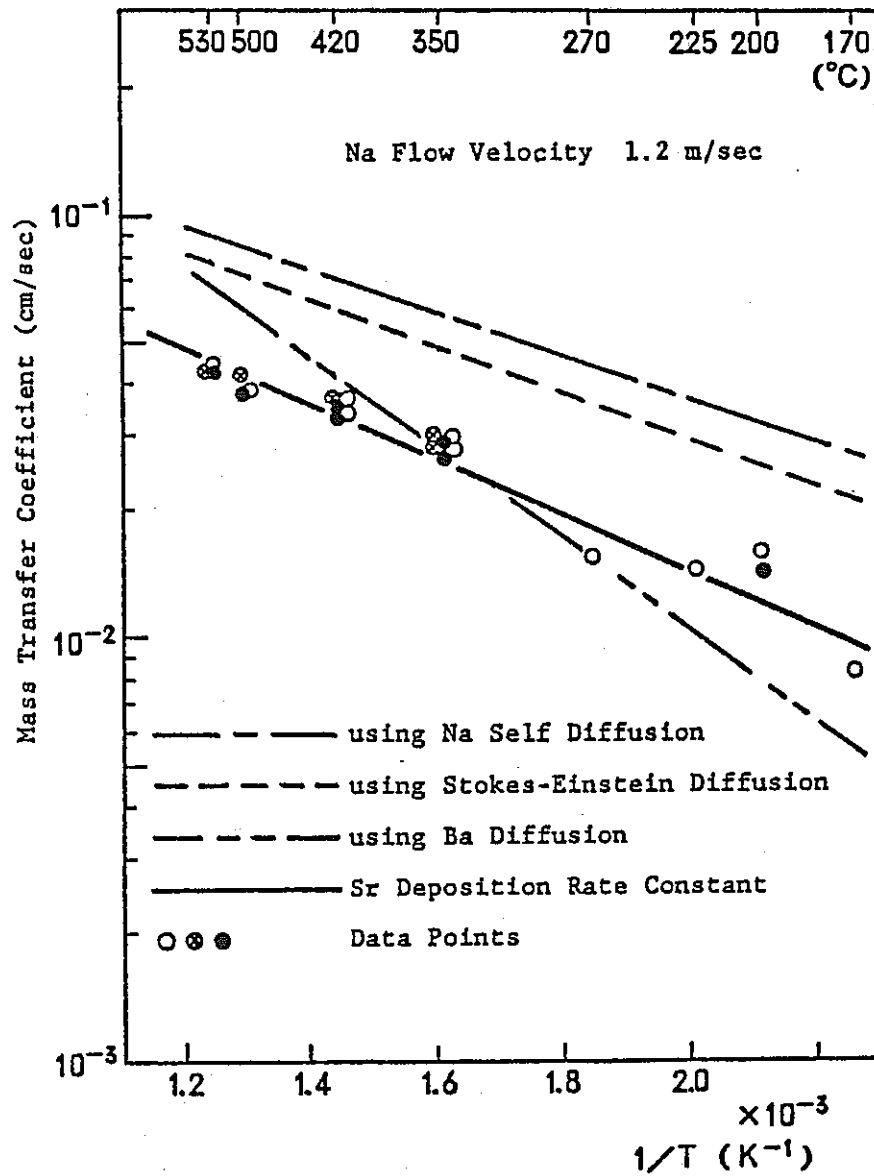


Fig. 5 - 15 Comparison between Sr deposition rate constant and mass transfer coefficients

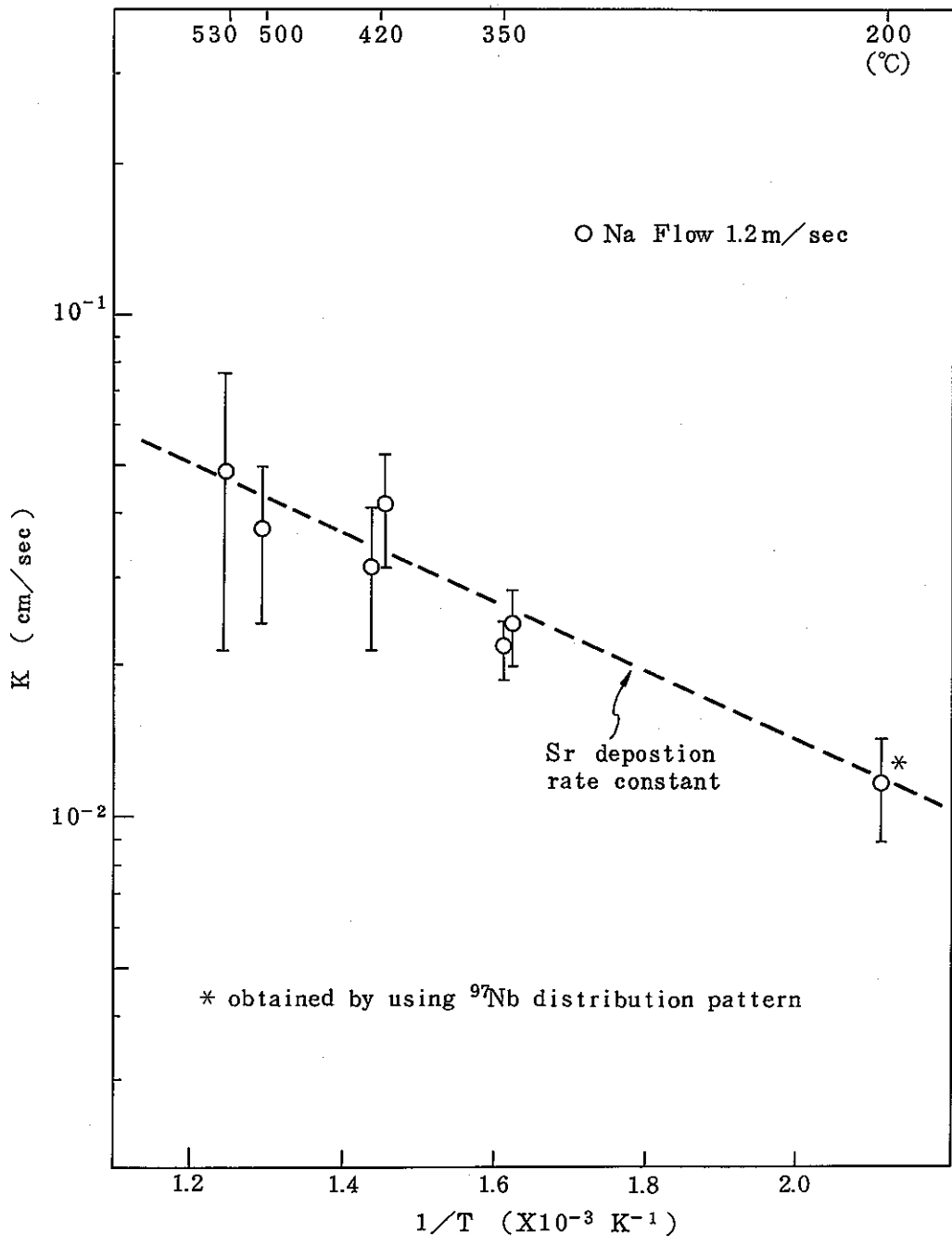


Fig. 5 - 16 Relationship between Y deposition rate constant and reciprocal temperature obtained by using  $^{97}\text{Zr}$  deposition distribution pattern

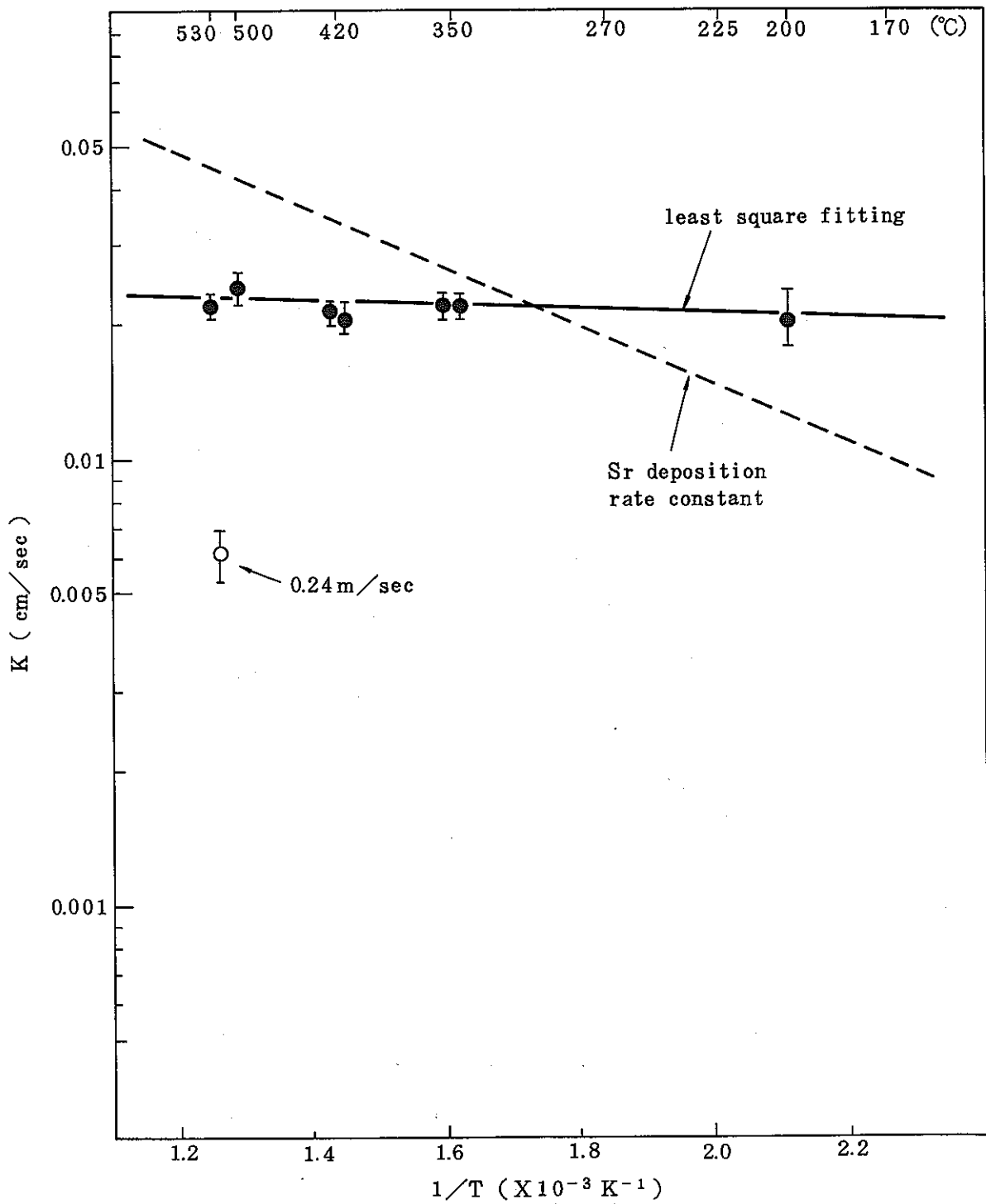


Fig. 5 - 17 Relationship between Zr deposition rate constant and reciprocal temperature obtained by using  $^{97}\text{Zr}$  deposition distribution pattern

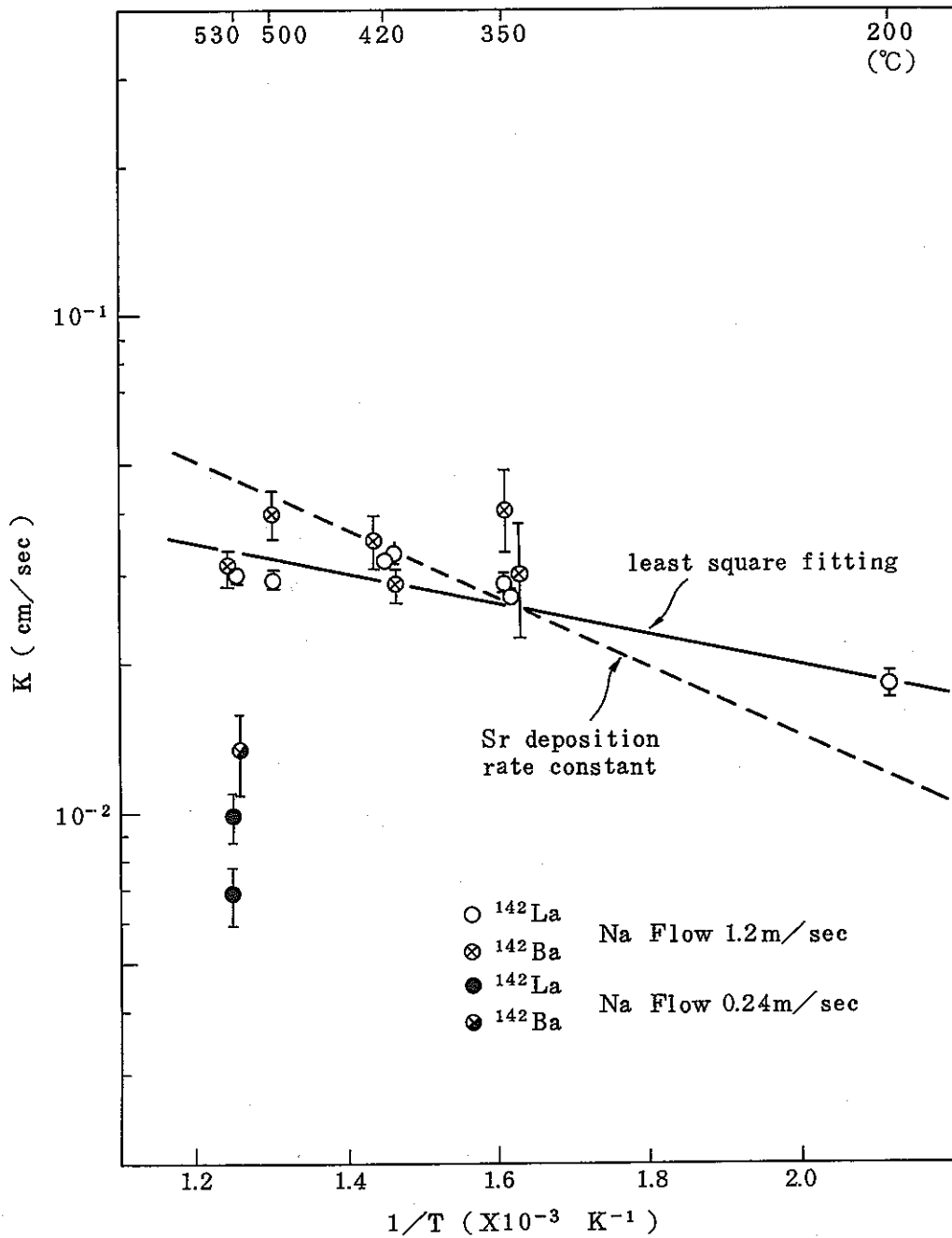


Fig. 5 - 18 Relationship between Ba deposition rate constant and reciprocal temperature obtained by using  $^{142}\text{Ba}$  and  $^{142}\text{La}$  deposition distribution pattern

## 6. 揮発性 FP の $r$ 線測定による k factor の算出

### 6.1 緒 言

FPL-II の照射試料には 0.5~0.6 mm $\phi$  の粒状の 20% 濃縮二酸化ウラン 100 g が使用されている。この照射試料が TTR 熱中性子の照射により核分裂を起し、核分裂生成物 (FP) が生成する。このとき、FP の一部は反跳現象により照射試料体外へはじき出され、ナトリウム中へ混入する。この FP の生成速度と照射試料体外への放出速度の比、すなわち FP の放出率を知ることは、FPL-II の照射実験で得られたデータを評価する上で重要である。また、実験で得られた放出率と計算により予想される放出率との比 (k factor あるいはラフネス factor と呼ばれる) を知ることは、高速増殖炉における燃料破損時に冷却材中へ放出される FP の量を推定する上で必要不可欠である。

そこで、照射実験により得たナトリウム中の FP の放射能濃度をもとに、FP の放出率を算出した。放出率算出の対象とした FP は、ナトリウム温度 420~530 $^{\circ}\text{C}$ 、流量 5  $\ell/\text{min}$  及び 1  $\ell/\text{min}$  の照射実験で検出された揮発性 FP である  $^{86}\text{Br}$ 、 $^{88}\text{Br}$ 、 $^{89}\text{Rb}$ 、 $^{134}\text{Te}$ 、 $^{136\text{m}}\text{I}$  と希ガス FP である  $^{90}\text{Kr}$ 、 $^{139}\text{Xe}$ 、 $^{140}\text{Xe}$  の 8 核種である。計算の結果、FP の放出率はその質量数に依存し、質量数 90 弱の軽い FP の放出率は  $0.80 \pm 0.02\%$ 、質量数 140 弱の重い FP の放出率は  $0.48 \pm 0.02\%$  であった。これらの値は反跳モデルに基づく計算により予想される放出率の  $0.40 \pm 0.01$  倍である。

### 6.2 放出率の算出

#### 6.2.1 対象とする FP 核種

FP の放出率は原子炉照射中のディレイラインにおける FP のナトリウム中濃度から照射試料部のナトリウム中 FP 濃度を算出し、その濃度をもとに求める。このときループ機器配管への FP の吸着が無視できる場合には、FP の濃度はナトリウムの流れ方向に対して放射壊変のみで減少するため、照射試料部における FP の濃度はその半減期を考慮するだけで求まる。揮発性及び希ガス FP の配管内壁への吸着はナトリウム温度 250 $^{\circ}\text{C}$  以上では無視できることから、放出率の算出には、ナトリウム温度 250 $^{\circ}\text{C}$  以上の実験 No. 5. 6. 7 及び 16 の照射試験データを用いることにし、また計算の対象とする FP も、揮発性及び希ガス FP のなかから選ぶことにした。

\* 揮発性 FP の吸・脱着はナトリウム温度に対して可逆的である。そこで、揮発性 FP の場合は、吸着ということばを使用する。

核分裂により発生したFPは $\beta$ 壊変を繰返し、いわゆるフィッションチェーンを形成する。そのため、フィッションチェーン後半のFP核種のループ内濃度は、先行核種の壊変の影響を複雑に受ける。そこで、(i)先行核種の影響の少ないフィッションチェーンの先頭に近い核種であること、また計算を簡略化するため、(ii)原子炉照射中に生成量が飽和していること(半減期15分以下の核種)、更に(iii)照射試験データにおいて他のFPの $\gamma$ 線の影響が少なくかつ十分な $\gamma$ 線強度をもっていること、を選定条件とした。この結果、揮発性FPでは $^{86}\text{Br}$ ,  $^{88}\text{Br}$ ,  $^{89}\text{Rb}$ ,  $^{136\text{m}}\text{I}$ , また希ガスFPでは $^{90}\text{Kr}$ ,  $^{139}\text{Xe}$ ,  $^{140}\text{Xe}$ が適当であった。またFPの放出率と半減期との相関関係の有無(照射試料部におけるスタグナントフローの有無)を調べるため、半減期が42分と長い $^{134}\text{Te}$ についても放出率の算出を行った。これら8核種のフィッションチェーンをFig 6-1及び6-2に示す。尚、フィッションチェーンには、半減期が1秒以下で、かつ蓄積収率が0.05%以下のFPは放出率の計算上無視できるので示していない。

## 6.2.2 放出率算出の方法

### 1) 短半減期FPの算出方法

$^{134}\text{Te}$ を除く7核種の放出率算出法について示す。放出率の算出は対象とするFP核種を娘核種として親→娘核種のチェーンを考慮して行う。

親核種のナトリウム中濃度 $C_p(\text{atoms}/\text{cm}^3)$ の流れ方向に対する変化は、照射試料部からの距離を $x$ とすると、

$$\frac{dC_p(x)}{dx} = -\frac{\lambda_p}{v} C_p(x)$$

で表わされる。ここで、

$\lambda_p$ : 親核種の壊変定数(1/sec)

$v$ : ナトリウムの流速(cm/sec)

である。これより、親核種のナトリウム中濃度 $C_p(x)$ は

$$C_p(x) = C_{p0} \cdot e^{-\lambda_p \frac{x}{v}}$$

である。C<sub>p0</sub> は照射試料部における濃度で、生成量が飽和に達している場合は、ルー  
ブの全長を L (cm) とすると、

$$C_{p0} = \frac{P_p}{F \cdot (1 - e^{-\lambda_p \frac{L}{v}})}$$

である。ここで、

P<sub>p</sub> : 親核種の放出速度 (atoms/sec)

F : ナトリウム流量 (cm<sup>3</sup>/sec)

であり、放出速度 P<sub>p</sub> は、

$$P_p = F_r \cdot F_{Yp} \cdot R_f$$

である。ここで、

F<sub>r</sub> : 核分裂速度 (atoms/sec)

F<sub>Yp</sub> : 親核種の蓄積収率(-)

R<sub>f</sub> : 放出率(-)

である。

娘核種のナトリウム中濃度 C<sub>d</sub> (atoms/cm<sup>3</sup>) の流れ方向に対する変化は

$$\frac{dC_d(x)}{dx} = -\frac{\lambda_d}{v} C_d(x) + \frac{\lambda_p}{v} \varepsilon \cdot C_p(x)$$

で表わされる。ここで、

λ<sub>d</sub> : 娘核種の壊変定数 (1/sec)

ε : 親核種から娘核種への壊変の分岐率(-)

である。これより、娘核種のナトリウム中濃度 C<sub>d</sub>(x) は、

$$C_d(x) = \frac{\lambda_p \cdot \varepsilon \cdot C_{p0}}{\lambda_d - \lambda_p} (e^{-\lambda_p \frac{x}{v}} - e^{-\lambda_d \frac{x}{v}}) + C_{d0} \cdot e^{-\lambda_d \frac{x}{v}}$$

である。C<sub>d0</sub> は照射試料部における娘核種の濃度で、

$$C_{d0} = \frac{\frac{\lambda_p \cdot \varepsilon \cdot C_{p0}}{\lambda_d - \lambda_p} (e^{-\lambda_p \frac{L}{v}} - e^{-\lambda_d \frac{L}{v}}) + \frac{P_d}{F}}{1 - e^{-\lambda_d \frac{L}{v}}}$$

である。ここで、

P<sub>d</sub> : 娘核種の放出速度 (atoms/sec)

であり、放出速度  $P_d$  は、

$$P_d = F_r \cdot F_{Yd} \cdot R_f$$

である。ここで、

$F_{Yd}$  : 娘核種の独立収率(-)

である。したがって、娘核種のナトリウム中濃度  $C_d(x)$  は、親核種と娘核種の放出率が同じであるとすると、

$$C_d(x) = \frac{\lambda_p}{\lambda_d - \lambda_p} \cdot \frac{e \frac{F_r \cdot F_{Yp} \cdot R_f}{F}}{1 - e^{-\lambda_p \frac{L}{v}}} \left\{ (e^{-\lambda_p \frac{x}{v}} - e^{-\lambda_d \frac{x}{v}}) + \frac{e^{-\lambda_p \frac{L}{v}} - e^{-\lambda_d \frac{L}{v}}}{1 - e^{-\lambda_d \frac{L}{v}}} e^{-\lambda_d \frac{x}{v}} \right\}$$

$$+ \frac{F_r \cdot F_{Yd} \cdot R_f}{F} \frac{1}{1 - e^{-\lambda_d \frac{L}{v}}} e^{-\lambda_d \frac{x}{v}}$$

$$= C_{d1}(x) + C_{d2}(x) \quad \dots\dots\dots (6-1)$$

となる。この式の第一項  $C_{d1}(x)$  は親核種の壊変により生成した娘核種の濃度である。したがって、娘核種の濃度に対する核分裂により直接生成した娘核種の濃度の比は  $C_{d2}(x)/C_d(x)$  で、これは計算により求まる。

今、ディレイラインでの  $\gamma$  線計測により得られた距離  $x$  における娘核種のナトリウム中濃度を  $A(x)$  (atoms/cm<sup>3</sup>) とすると、核分裂により直接生成した娘核種の濃度  $A_F(x)$  (atoms/cm<sup>3</sup>) は、

$$A_F(x) = A(x) \frac{C_{d2}(x)}{C_d(x)} \quad \dots\dots\dots (6-2)$$

である。このディレイラインにおける核分裂により生成した娘核種の濃度  $A_F(x)$  をもとに、次式において  $\chi^2$  が最も小さくなるような照射試料部における濃度  $A_{F0'}$  を  $A_{F0}$  (atoms/cm<sup>3</sup>) とする。

$$\chi^2 = \sum_i \frac{1}{\sigma_{x_i}^2} (A_F(x_i) - A_{F0'} \cdot e^{-\lambda_d \frac{x_i}{v}})^2 \quad (6-2a)$$

$A_F(x_i)$  : 距離  $x_i$  における核分裂により直接生成した娘核種の濃度  
(atoms/cm<sup>3</sup>)

$\sigma_{x_i}$  : 上記濃度  $A_F(x_i)$  の標準偏差 (atoms/cm<sup>3</sup>)



この濃度  $A_{F0}$  は、(6-1)式の第二項  $Cd_2(x)$  の  $x=0$  における濃度であるから、

$$A_{F0} = \frac{F_r \cdot F_{Yd} \cdot R_f}{F} \cdot \frac{1}{1 - e^{-\lambda_d \frac{L}{v}}}$$

である。これより、放出率  $R_f$  は、

$$R_f = A_{F0} (1 - e^{-\lambda_d \frac{L}{v}}) \frac{F}{F_r \cdot F_{Yd}} \dots\dots\dots (6-3)$$

となる。

尚、チェーンの先頭の核種である  $^{136m}\text{I}$  の場合は、親核種の濃度を 0 とすれば同様に求まる。

## 2) 長半減期 FP の算出方法

半減期が 4.2 分と比較的長い  $^{134}\text{Te}$  の放出率の算出方法について示す。 $^{134}\text{Te}$  の先行核種は、Fig 6-2 のフィッションチェーンに示すように、 $^{134}\text{Sb}$  である。この  $^{134}\text{Sb}$  の半減期は 10.4 秒と  $^{134}\text{Te}$  のそれに比べて非常に短く、また蓄積収率が 0.469 % と  $^{134}\text{Te}$  の独立収率 6.299 % の 1/13 以下であるため、 $^{134}\text{Te}$  のナトリウム中の蓄積量  $N_c$  (dps) は次式で近似できる。

$$N_c = F_r \cdot F_{Yc} \cdot R_f \cdot (1 - e^{-\lambda \cdot t})$$

ここで、

$F_r$  : 核分裂速度 (atoms/sec)

$F_{Yc}$  :  $^{134}\text{Te}$  の蓄積収率 (-)

$R_f$  : 放出率 (-)

$\lambda$  :  $^{134}\text{Te}$  の壊変定数 (1/sec)

$t$  : 照射時間 (sec)

一方、 $^{134}\text{Te}$  の半減期はナトリウムの 1 循環時間 (48~240 秒) に比べて非常に長いので、 $^{134}\text{Te}$  はディレイラインに均一に分布する。ディレイラインにおける  $^{134}\text{Te}$  のエネルギー  $E$  (KeV) の  $\gamma$  線の計数率の平均値を  $\bar{C}_r$  (cps) とすると、 $^{134}\text{Te}$  のナトリウム中量  $N_e$  (dps) は次式で与えられる。

$$N_e = \bar{C}_r \cdot \frac{3.7 \times 10^4}{f_r(E) \cdot f_e(E) \cdot V} \cdot V_T$$



である。計算には、 $f_e(E)$ については $\gamma$ 線計測体系のモックアップと $^{152}\text{Eu}$ 標準線源を用いて求めた値 $f_e(E) = \text{Exp}(8.25 - 0.914 \times \ell_n(E) + 0.0211 \times \ell_n(E)^2)$ を、 $V$ には $V = 0.694$ を用いた。また、(6-3)式においてループの全長 $L$ は $5734(\text{cm})$ 、核分裂速度 $F_r$ は $2.05 \times 10^{11}(\text{atoms/sec})$ (熱中性子束は $7.9 \times 10^9(\text{n/cm}^2 \cdot \text{sec})$ 、Appendix Aに算出法を示す)とした。

上記方法で得た $A$ を用い、(6-1)、(6-2)式より核分裂により直接生成した娘核種のナトリウム中の濃度 $A_F$ を算出した。Fig 6-3~9に $A_F$ のディレイラインにおける分布を示す。ナトリウム流速が $1.2\text{m/sec}$ の実験5、7及び8では、その分布はほとんど差がみられない。実験16はナトリウム流速が $0.24\text{m/sec}$ と遅いため、その分布の勾配が大きくなっている。この $A_F$ のループ内分布の値を元に、(6-2a)式で定義した $\chi^2$ の値が最小になるように $A_{F0}$ を選んで得られたループ内の最適結果をそれぞれの図中に、実験5については実線で、実験7は一点鎖線、実験8は二点鎖線、そして実験16は破線で示す。また上記方法で得られた各FPの $A_{F0}$ の値を元に、(6-3)式からFPの放出率を計算し、その結果をTable 6-1に示す。尚、放出率の誤差には娘核種の独立収率の誤差を含めてある。

## 2) 長半減期FPの放出率

ディレイラインにおける $^{134}\text{Te}$ の分布をFig 6-10に示す。 $^{134}\text{Te}$ は半減期が42分でナトリウムの1循環時間に比べて非常に長いため、各実験においてほぼ均一に分布しており、各実験間にも大きな差はみられない。各実験における $^{134}\text{Te}$ の計数率の平均値 $C_r$ を以下に示す。

実験No	$C_r$ (cps)
5	$1.76 \pm 0.12$
7	$1.45 \pm 0.13$
8	$1.66 \pm 0.13$
16	$1.67 \pm 0.11$

※ 平均値は全て次式で求めている。

$$\bar{x} \pm \sigma_{\bar{x}} = \frac{\sum(x_i/\sigma_i^2)}{\sum(1/\sigma_i^2)} \pm \sqrt{1/\sum(1/\sigma_i^2)}$$

この平均値を用いて(6-4)式で求めた<sup>134</sup>Teの放出率をTable 6-1に示す。尚、(6-4)式において、 $F_r = 2.05 \times 10^{11}$ ， $F_{Yc} = 0.0694$ ， $f_r(E) = 0.191$ ， $f_e(E) = \text{Exp}(8.25 - 0.914 \times \ln(E) + 0.0211 \times \ln(E)^2) = 27.23$ ， $V = 0.694$ ， $V_T = 3979$ を用いた。

<sup>134</sup>Teの放出率は0.42～0.51%である。

### 3) FPの放出率のまとめ

Table 6-1に示したFPの放出率を核種毎にFig 6-11に示す。各FPの放出率には実験条件の相違による差はみられず、放出率は誤差範囲内で同じである。次に、各FPの放出率の平均値と質量数との関係をFig 6-12に示す。今回放出率算出の対象としたFPは、質量数90弱の軽いFPと質量数140弱の重いFPに大別され、軽いFP、重いFP毎に放出率の値はかなりよく一致した。ただ<sup>88</sup>Brだけが軽いFPの平均放出率の1/1.5程度の小さな値になったが、この理由はわからない。

<sup>88</sup>Brを除いた軽いFPと重いFPとの放出率の間には質量数の相違による差がみられる。軽いFPの放出率の平均値(<sup>88</sup>Brを除く)は $0.80 \pm 0.02\%$ 、重いFPのそれは $0.48 \pm 0.02\%$ で、軽いFPの放出率が、重いFPの1.67倍となっている。質量数に対する放出率の依存の度合をFig 6-12に実線で示す。

一方、反跳モデルによる理論的なFPの放出率は次の式で与えられる。

$$R_{fc} = \frac{S \cdot R}{4V} \dots\dots\dots (6-5)$$

ここで、

S：照射試料の幾何学的表面積 ( $cm^2$ )

V： " の体積 ( $cm^3$ )

R：反跳されたFPの飛程 ( $cm$ )

である。これによると、FPの放出率は反跳されたFPの飛程に依存する。反跳されたFPの飛程とその質量との関係については、Fig 6-13に示すような結果が報告されている。この結果によると、質量数が90弱では反跳飛程は8  $\mu m$ 、140弱では4.5  $\mu m$ で、質量数が小さいほど反跳は長くなる。この質量数に対する反跳飛程を、放出率と質量数との関係が示されたFig 6-12に破線で示す。この図より、質量数に対するFPの放出率と反跳飛程の依存性が殆んど同じであることがわかる。これは、FPL-IIにおける照射試料からのFPの放出が反跳現象によるものであることを示している。

### 6.3.2 k factor の算出

$\gamma$ 線計測により得たFPの放出率と計算により予想される放出率との比  $R_f/R_{fc}$  (k factor) を求める。

FPL-IIの照射試料は平均粒径が  $590\ \mu\text{m}$  の球形に近い粒状であるが、直径  $590\ \mu\text{m}$  の球形として放出率を求める。照射試料が半径  $r\ (\text{cm})$  の球形の場合、(6-5)式は次のようになる。

$$R_{fc} = \frac{3R}{4r}$$

今、軽いFPの反跳飛程を  $8\ \mu\text{m}$ 、重いFPの反跳飛程を  $4.5\ \mu\text{m}$  とすると、放出率はそれぞれ  $2.03\%$ 、 $1.14\%$  となる。この放出率を用いて求めたk factor を Table 6-2に示す。

軽いFPのk factor は  $0.23\sim 0.41$ 、重いFPでは  $0.30\sim 0.57$  である。このk factor を各FPの壊変定数に対してプロットした結果を Fig 6-14 に示す。この図によると、壊変定数の相違によるk factor の差はほとんどみられない。次に質量数に対してプロットした結果を Fig 6-15 に示す。 $^{88}\text{Br}$  を除く軽いFPと重いFPの間には質量数の相違による大きな差はみられない。 $^{88}\text{Br}$  を除いた軽いFPのk factor の平均値は  $0.40 \pm 0.01$  で、重いFPのそれは  $0.43 \pm 0.02$  である。また、 $^{88}\text{Br}$  を除いた7核種の平均のk factor は  $0.40 \pm 0.01$  である。

### 6.3.3 考 察

$\gamma$ 線の計測により求めたナトリウム中のFP濃度をもとに算出したFPの放出率はFPの質量数に依存し、その依存の傾向が反跳モデルによるFPの質量依存の傾向とほぼ一致した。この結果から、FPL-IIにおける照射試料からのFPの放出は、反跳現象によるものであると考える。しかし、FPの放出が反跳現象による場合、照射試料の実際の表面積が幾可学的表面積より大きいため、k factorは、通常1より大きい値となる。実際に、原研に設置されていたナトリウムインパイルループ(SIL)の結果では  $3.5\sim 17$  という値が報告されている。<sup>13)</sup>しかし、今回のFPL-IIで得られた値は  $0.40 \pm 0.01$  であった。

k factor が1より小さくなる要因としては、大きく分けて次の三つが考えられる。

(1) FPの発生量が少ない

その原因として

- a. 熱中性子束が小さい
- b. 照射試料の一部がその収納部であるウランカプセルから流出した
- c. 照射試料の熱中性子に対する自己遮蔽

(2) FPの放出量が少ない

その原因として

- a. 照射試料の一部が固まっていて、照射試料とナトリウムとの接触面積が小さい

(3) FPのナトリウム中濃度を小さめに評価した

その原因として、

- a. 計数率からFPの濃度へ変換するとき用いた検出効率の値が大きい

ここで、(1)のbと(2)のaは現実的には考えにくい。また(3)のaの検出効率であるが、熱中性子束を求めるときに同じ検出効率算出の式を用いているので、k factor を求めるときには検出効率の影響は相殺される。したがって、検出効率はk factor が1より小さくなる直接の原因とはならない。次に、残る(1)のaの熱中性子束であるが、照射試料部における熱中性子束は $^{24}\text{Na}$ の放射化量から算出しているため、その値は照射試料部における平均的な値である。一方、ウランカプセル(内側長さ82mm)が設置されている位置における熱中性子束の分布は、FPLを設置する前に行った測定の結果では、ウランカプセルの先端と後端では後端が先端の1/3程度になっている。したがって、照射試料が後端側に偏在すれば熱中性子束が小さくなり、FPの発生量が少なくなることが考えられる。

上述したように、k factorが1より小さい原因の1つとして熱中性子束が考えられるが、これについては今後詳細な検討が必要である。

## 6.4 結 言

$\gamma$ 線計測により得た揮発性及び希ガスFPのナトリウム中濃度をもとに、FPL-Ⅱの照射試料の放出率を算出した。そして、次のような結果を得た。

- (1) 照射試料からの各FPの放出率は、ナトリウム温度(420~530℃)、流量(1~5ℓ/min)に関係なく一定である。
- (2) 放出率はFPの質量数に依存し、質量数90弱の軽いFPで $0.80 \pm 0.02\%$ 、140弱の重いFPでは $0.48 \pm 0.02\%$ であった。
- (3) 放出率の質量数に対する依存の割合が、反跳されたFPの飛程の質量数に対する依存の割合とほぼ一致し、FPL-ⅡにおけるFPの放出は反跳現象によるものであることが確認された。
- (4)  $\gamma$ 線計測により得たFPの放出率と反跳モデルによる放出率との比 $R_f/R_{fc}$ (k factor)は、軽いFPで $0.40 \pm 0.01$ 、重いFPでは $0.43 \pm 0.02$ で全体では $0.40 \pm 0.01$ である。

k factor について1より小さい $0.40 \pm 0.01$ という値を得たが、何故1より小さいのか今後詳細な検討を行う予定である。

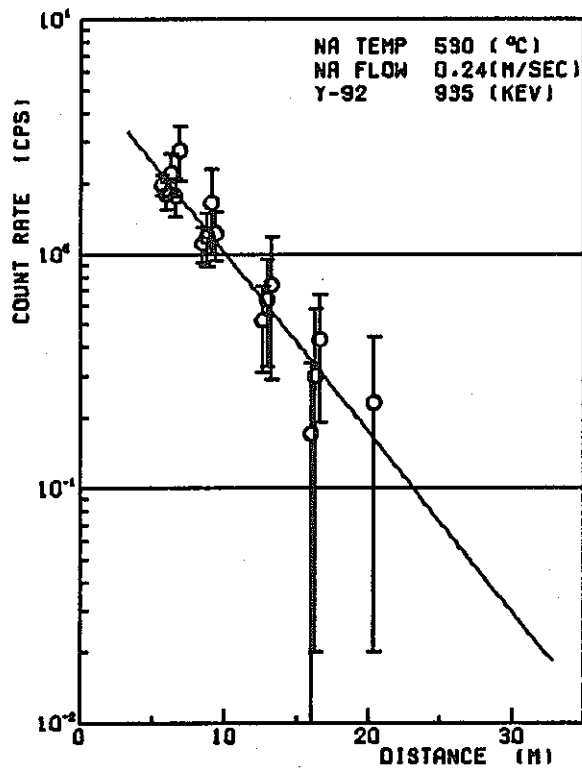
Table 6-1 Fission product release fraction (%) calculated by using each FP nuclide concentration in sodium

Nuclide	Half life	Exp. No 5	7		8		16		Average
			420 °C 5 l/min	500 °C 5 l/min	530 °C 5 l/min	530 °C 1 l/min			
<sup>86</sup> Br	55 s	0.99 ± 0.10	0.95 ± 0.09	0.96 ± 0.09	0.81 ± 0.07	0.91 ± 0.04			
<sup>88</sup> Br	16 s	0.54 ± 0.04	0.52 ± 0.04	0.57 ± 0.05	0.44 ± 0.04	0.51 ± 0.02			
<sup>89</sup> Rb	15.2 m	0.81 ± 0.05	0.75 ± 0.05	0.79 ± 0.05	0.75 ± 0.05	0.78 ± 0.03			
<sup>90</sup> Kr	32.3 s	0.78 ± 0.03	0.76 ± 0.03	0.74 ± 0.03	0.82 ± 0.03	0.78 ± 0.02			
<sup>136m</sup> I	46 s	0.75 ± 0.18	0.69 ± 0.16	0.72 ± 0.17	0.62 ± 0.14	0.69 ± 0.08			
<sup>139</sup> Xe	39.7 s	0.48 ± 0.03	0.49 ± 0.04	0.45 ± 0.03	0.58 ± 0.04	0.50 ± 0.02			
<sup>140</sup> Xe	13.6 s	0.49 ± 0.09	0.32 ± 0.07	0.40 ± 0.09	0.33 ± 0.06	0.37 ± 0.04			
<sup>134</sup> Te	42 m	0.51 ± 0.17	0.42 ± 0.14	0.49 ± 0.16	0.49 ± 0.16	0.47 ± 0.08			



Table 6-2 k factor for each fission product nuclide

Nuclide	Release Fraction (%)		k factor (-)
	Measured	Calculated	
<sup>86</sup> Br	0.91 ± 0.04	2.03	0.45 ± 0.02
<sup>88</sup> Br	0.51 ± 0.02		0.25 ± 0.01
<sup>89</sup> Rb	0.78 ± 0.03		0.38 ± 0.02
<sup>90</sup> Kr	0.78 ± 0.02		0.38 ± 0.01
<sup>136m</sup> I	0.69 ± 0.08	1.14	0.61 ± 0.07
<sup>139</sup> Xe	0.50 ± 0.02		0.44 ± 0.02
<sup>140</sup> Xe	0.37 ± 0.04		0.33 ± 0.04
<sup>134</sup> Te	0.47 ± 0.08		0.41 ± 0.07



9) EXP. NO. 16

Fig. 5 - 7 (continued)

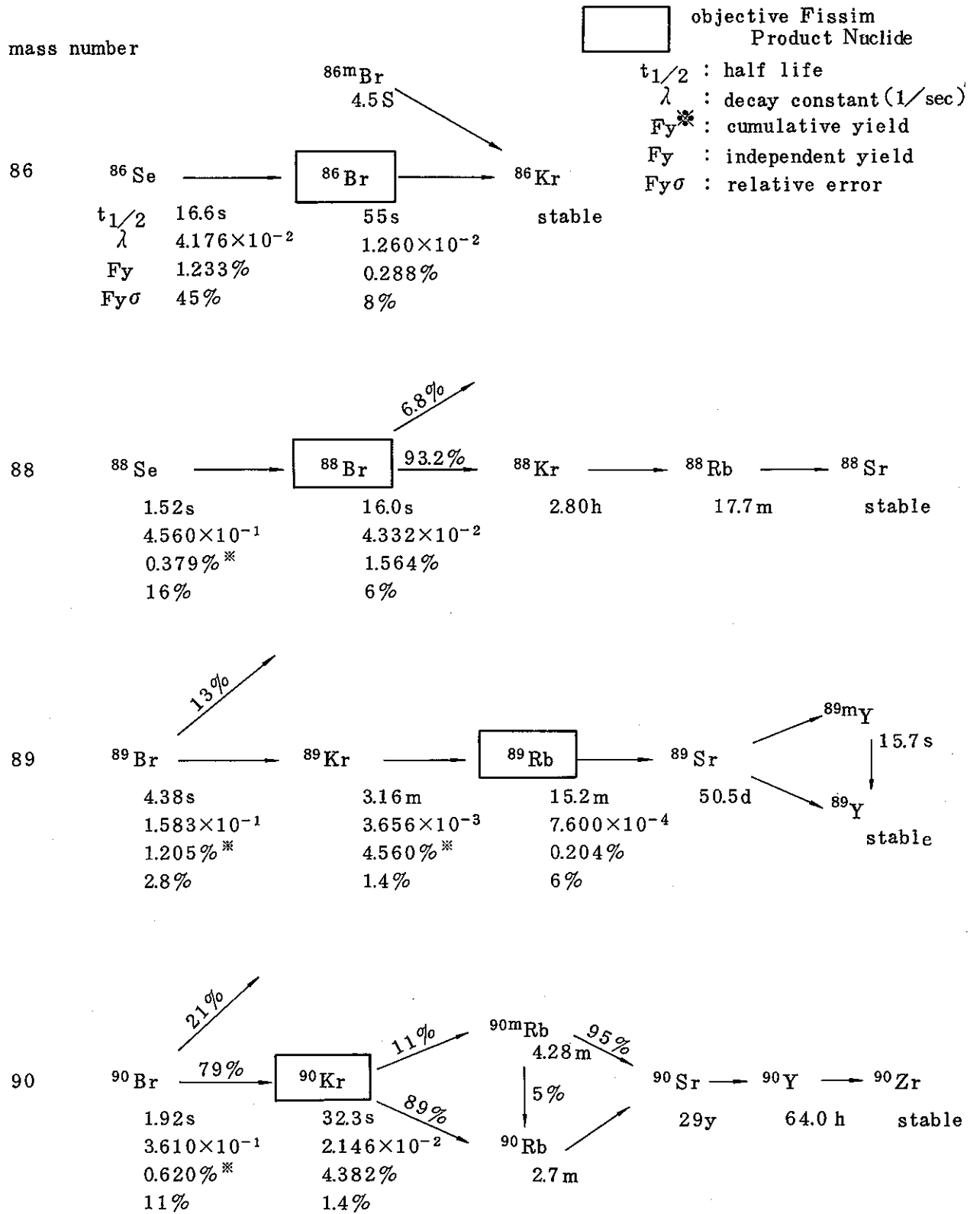


Fig. 6 - 1 Fission chain (1)

mass number

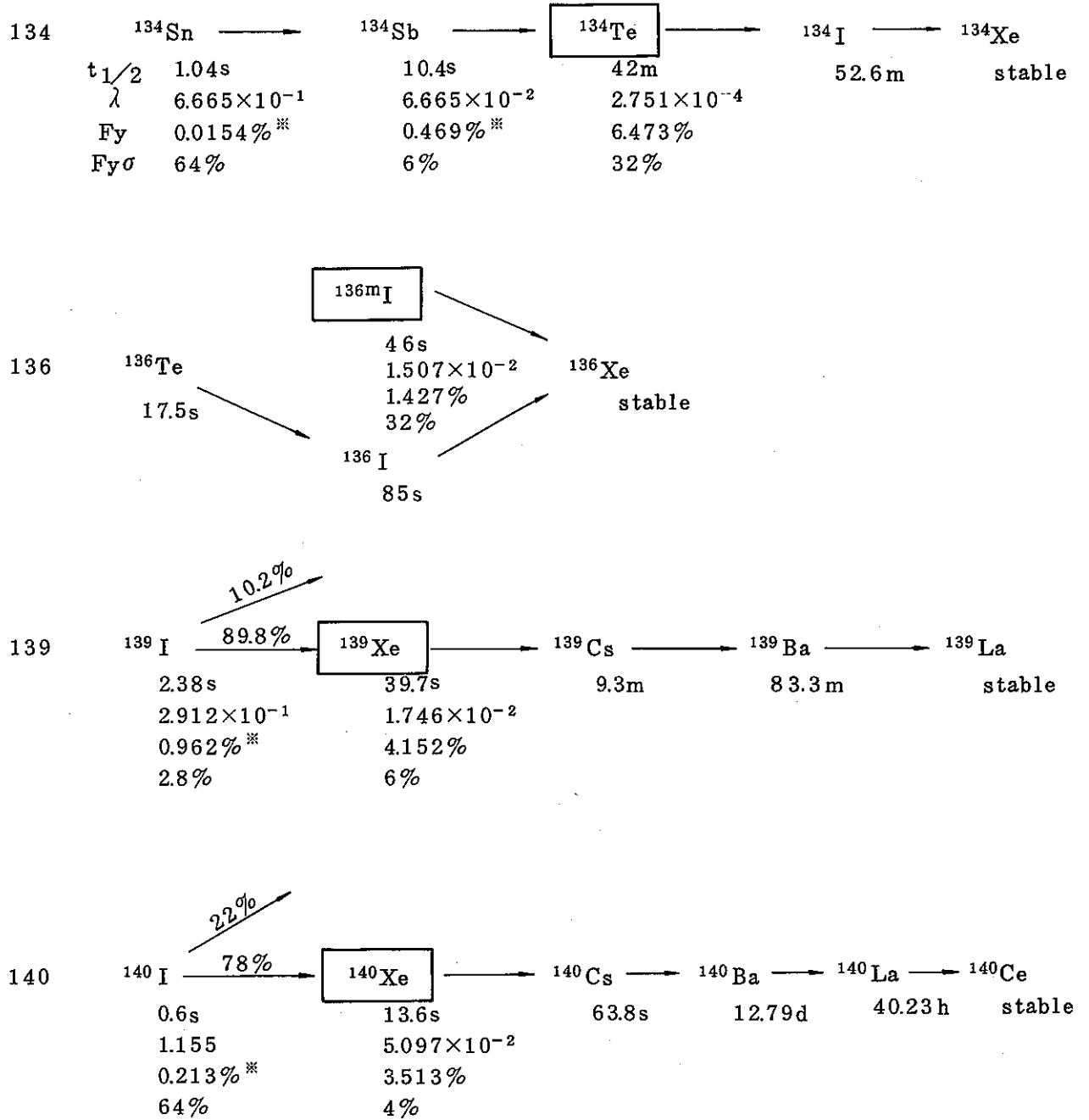


Fig. 6 - 2 Fission chain (2)

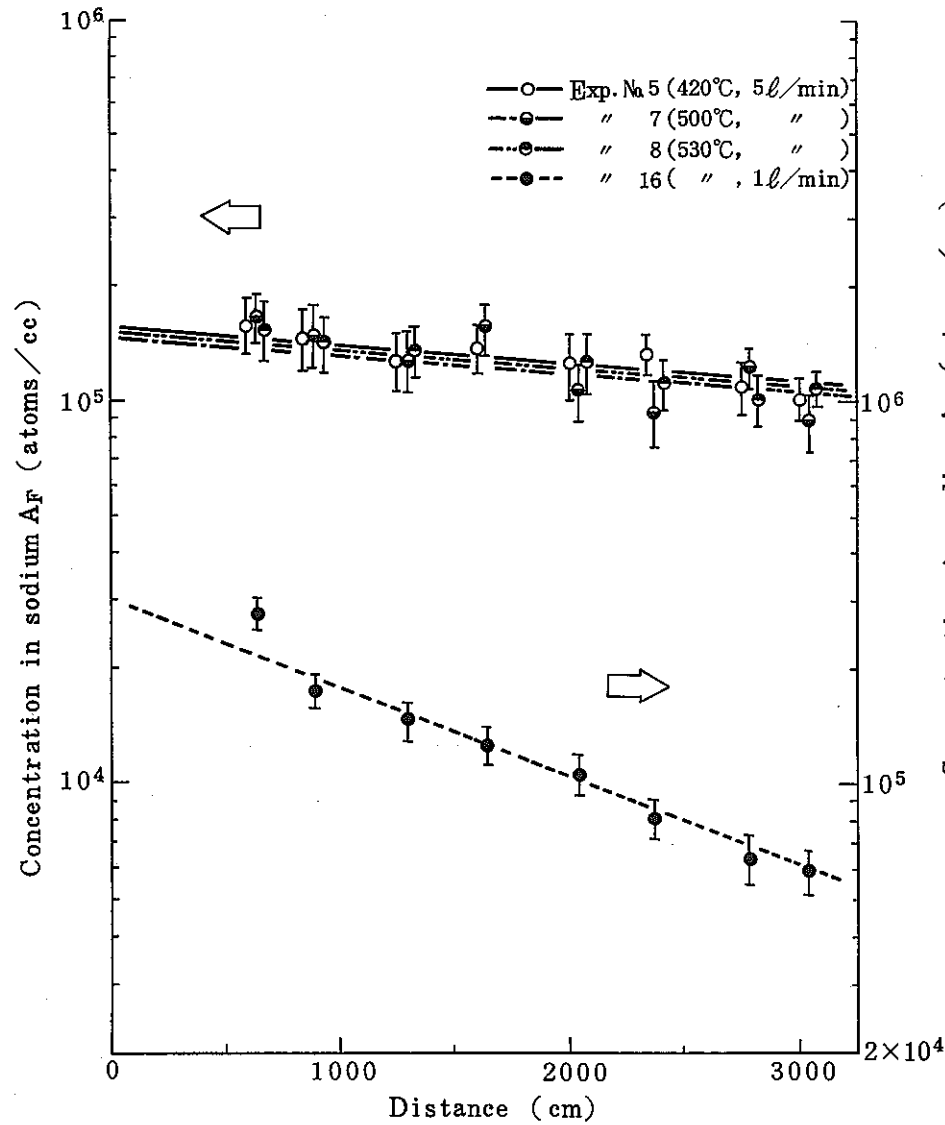


Fig. 6 - 3 Distribution for <sup>86</sup>Br concentration in sodium along the delay line

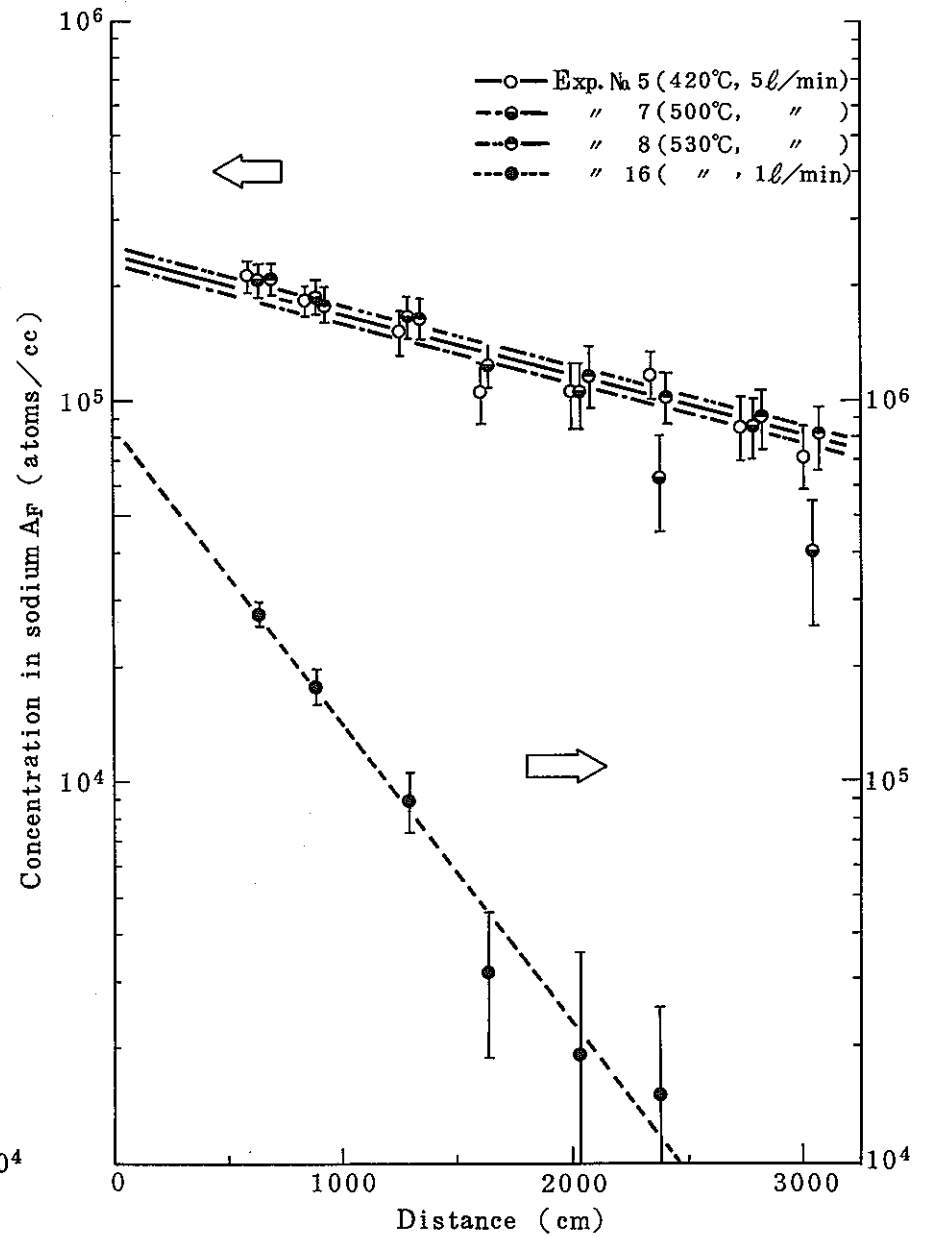


Fig. 6 - 4 Distribution for <sup>88</sup>Br concentration in sodium along the delay line

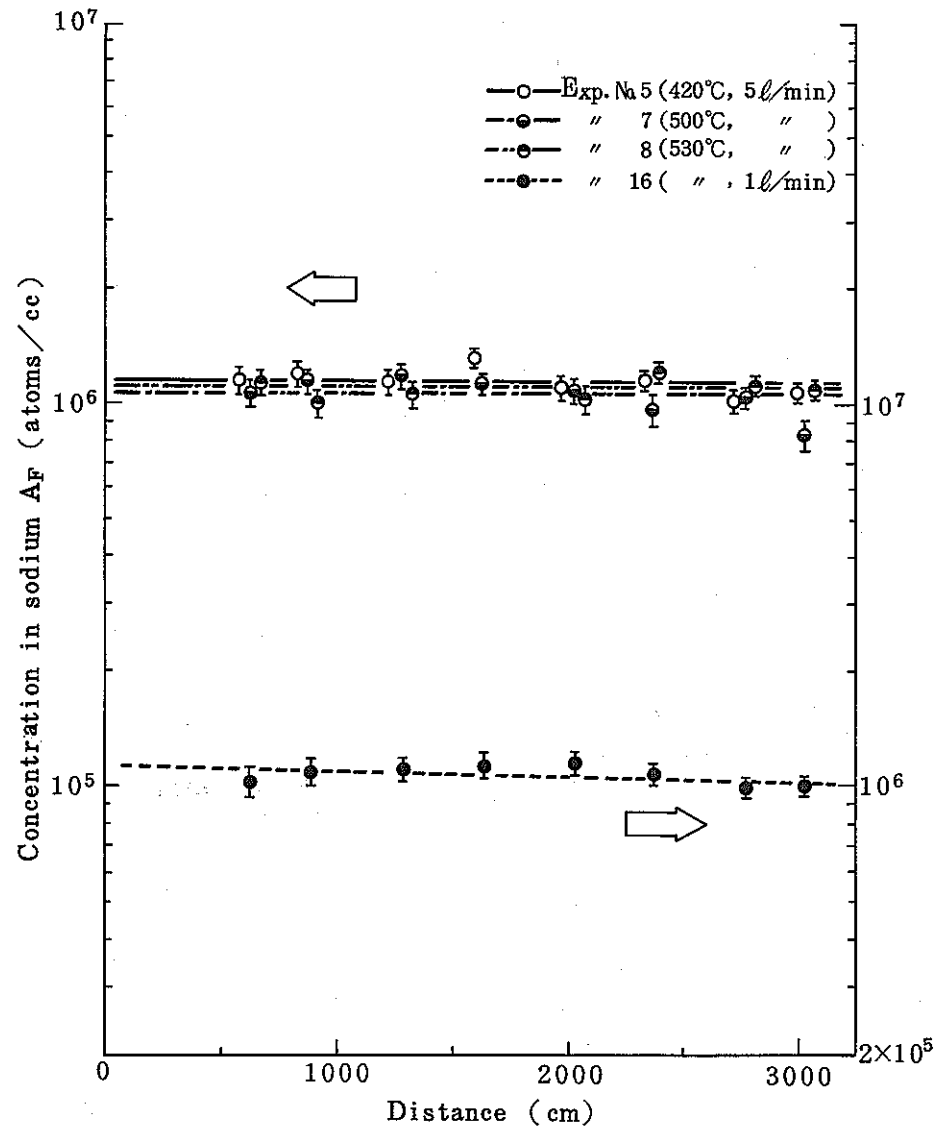


Fig. 6 - 5 Distribution for <sup>89</sup>Rb concentration in sodium along the delay line

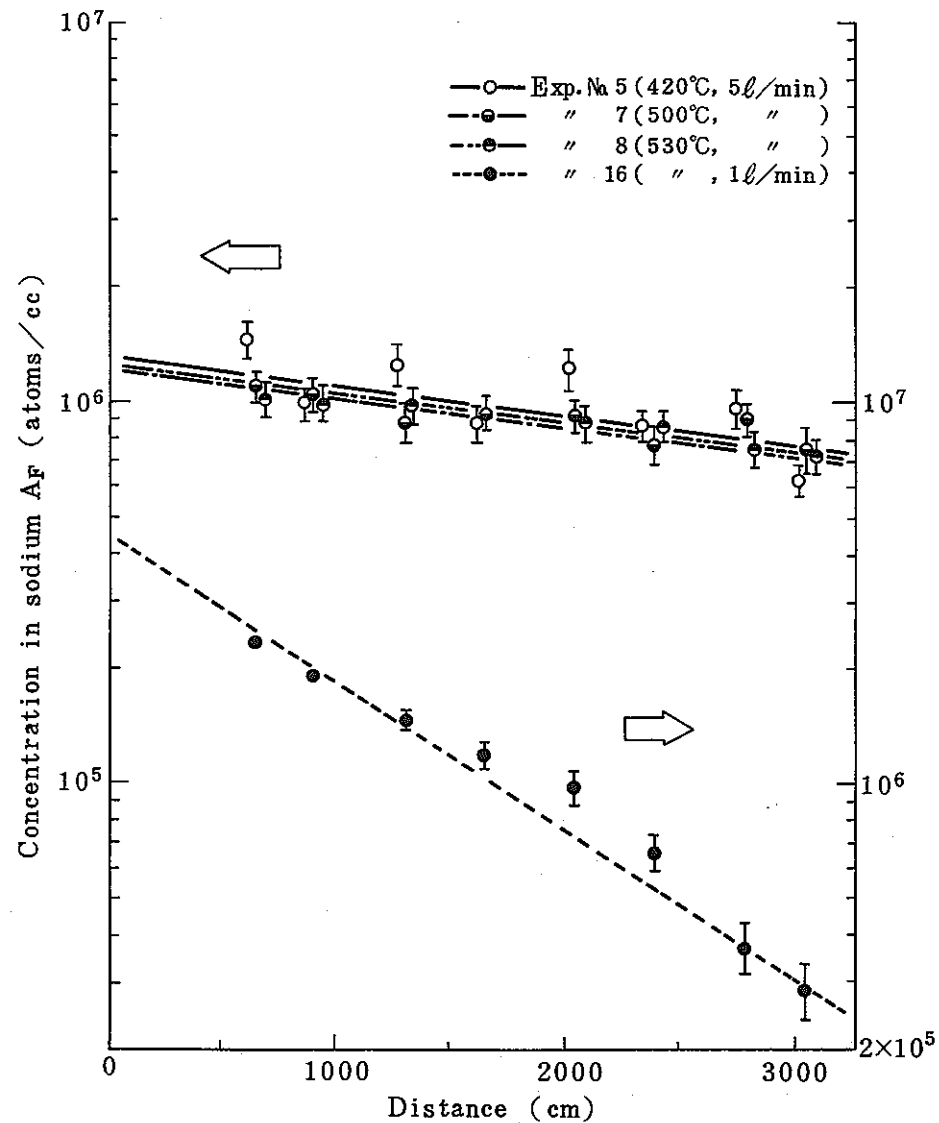


Fig. 6 - 6 Distribution for <sup>90</sup>Kr concentration in sodium along the delay line

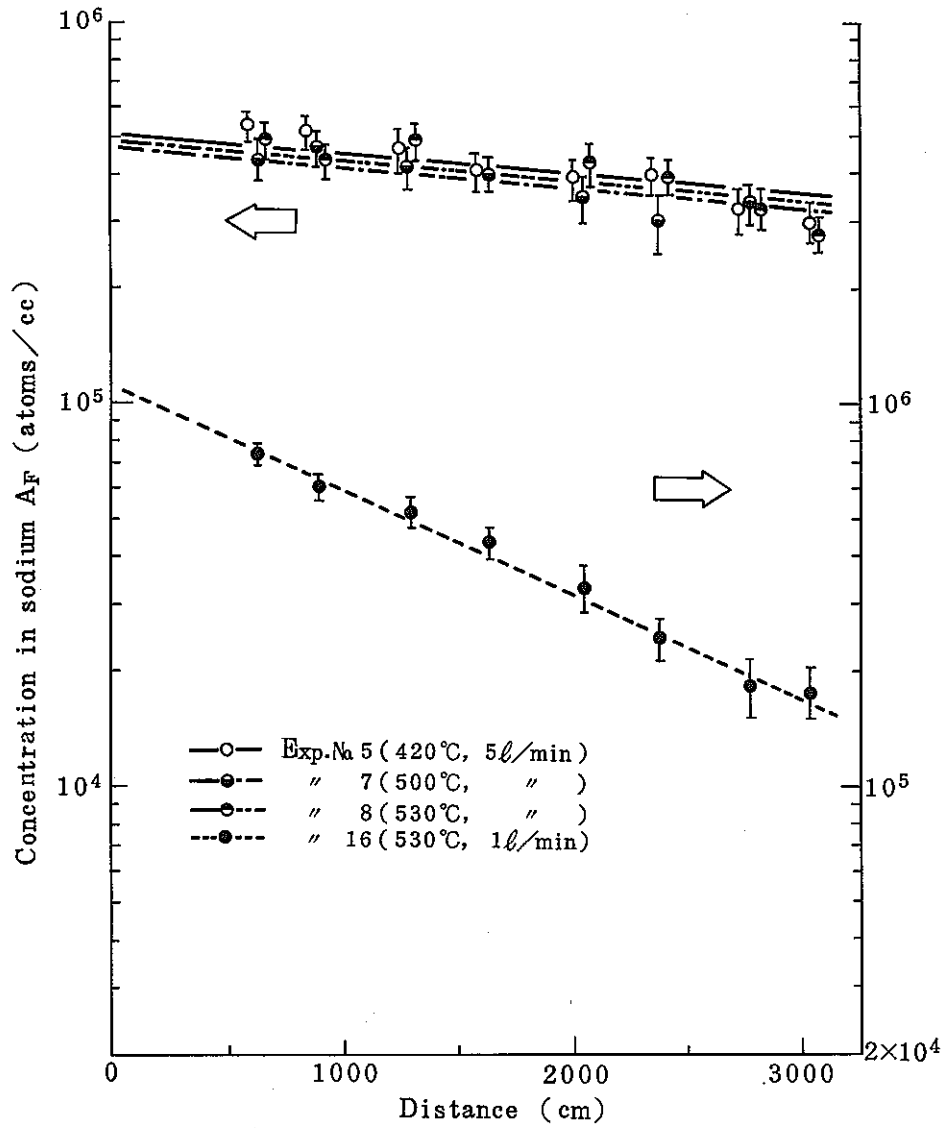


Fig. 6 - 7 Distribution for  $^{136m}\text{I}$  concentration in sodium along the delay line

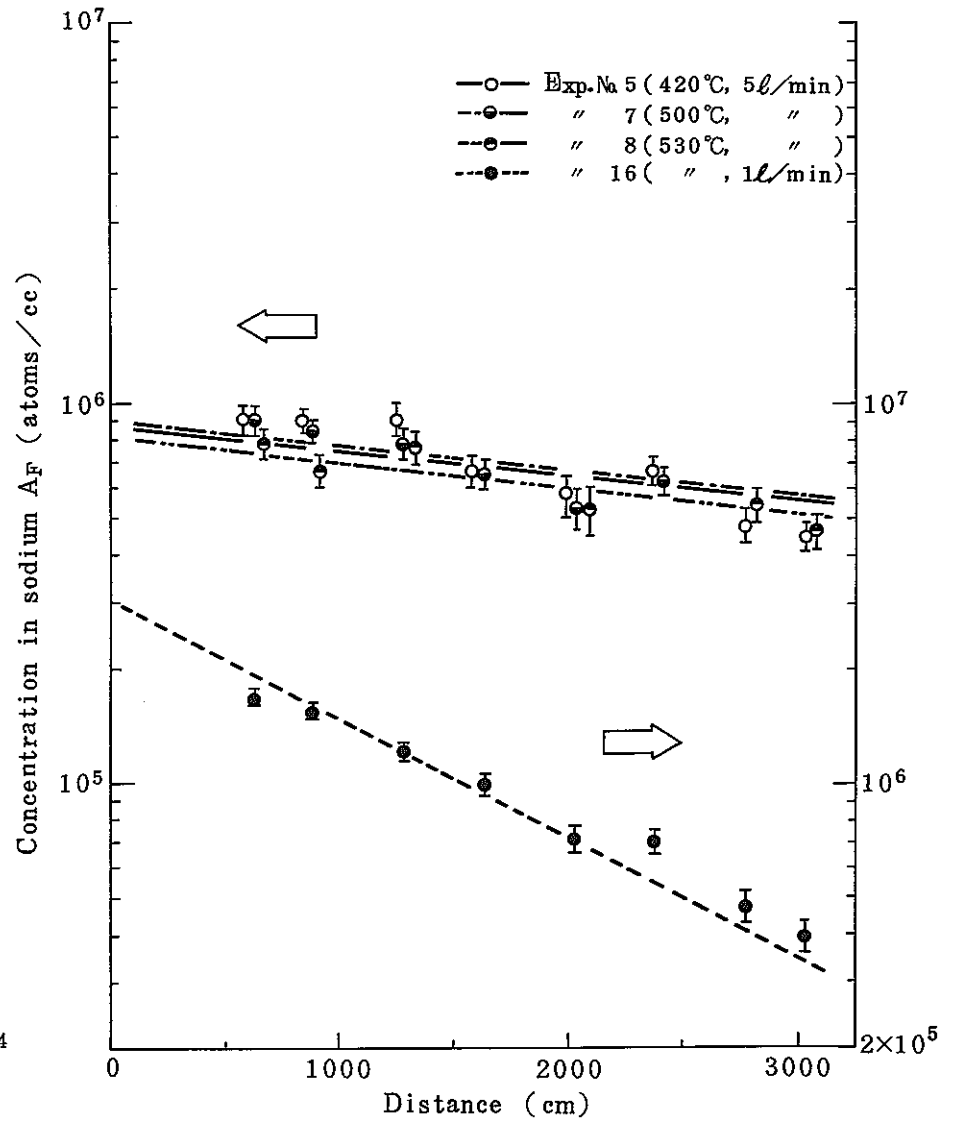


Fig 6 - 8 Distribution for  $^{139}\text{Xe}$  concentration in sodium along the delay line

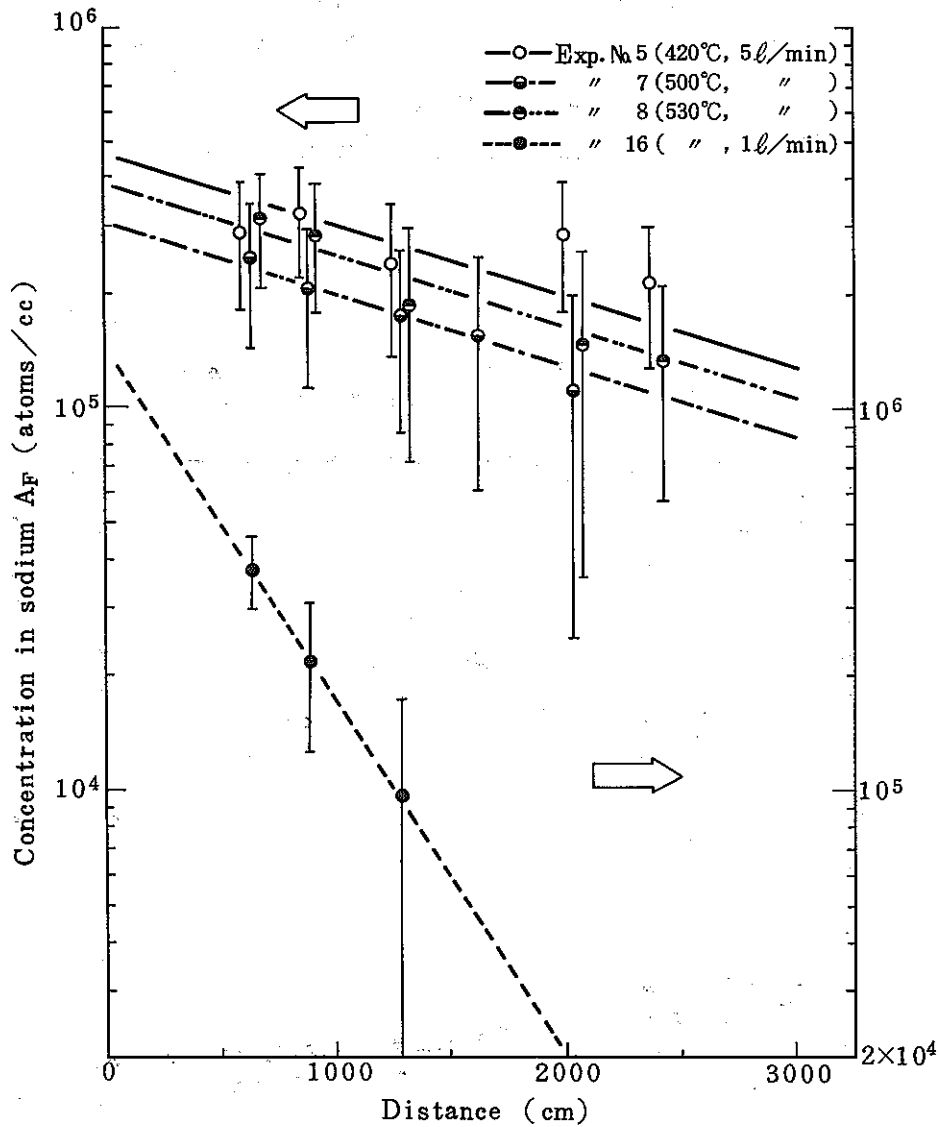


Fig. 6 - 9 Distribution for  $^{140}\text{Xe}$  concentration in sodium along the delay line

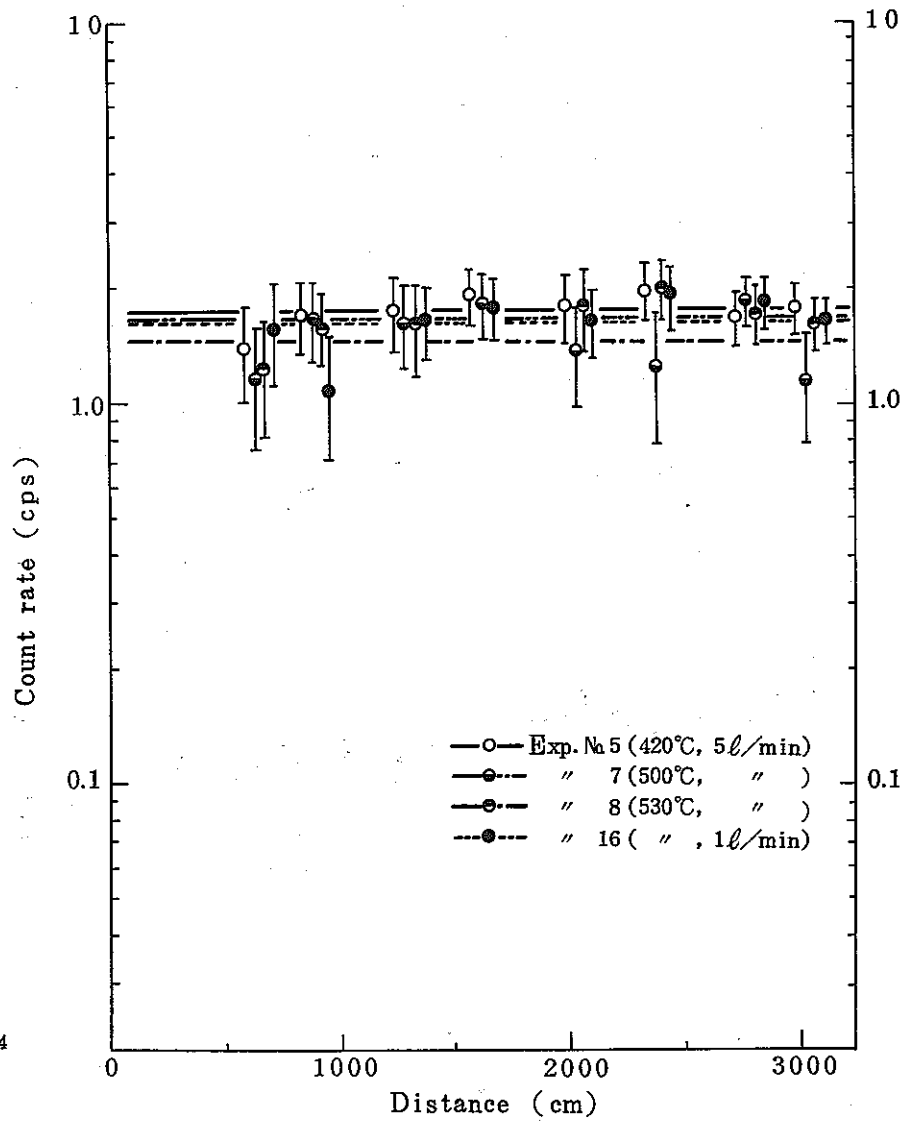


Fig. 6 - 10  $^{134}\text{Te}$  distribution along the delay line



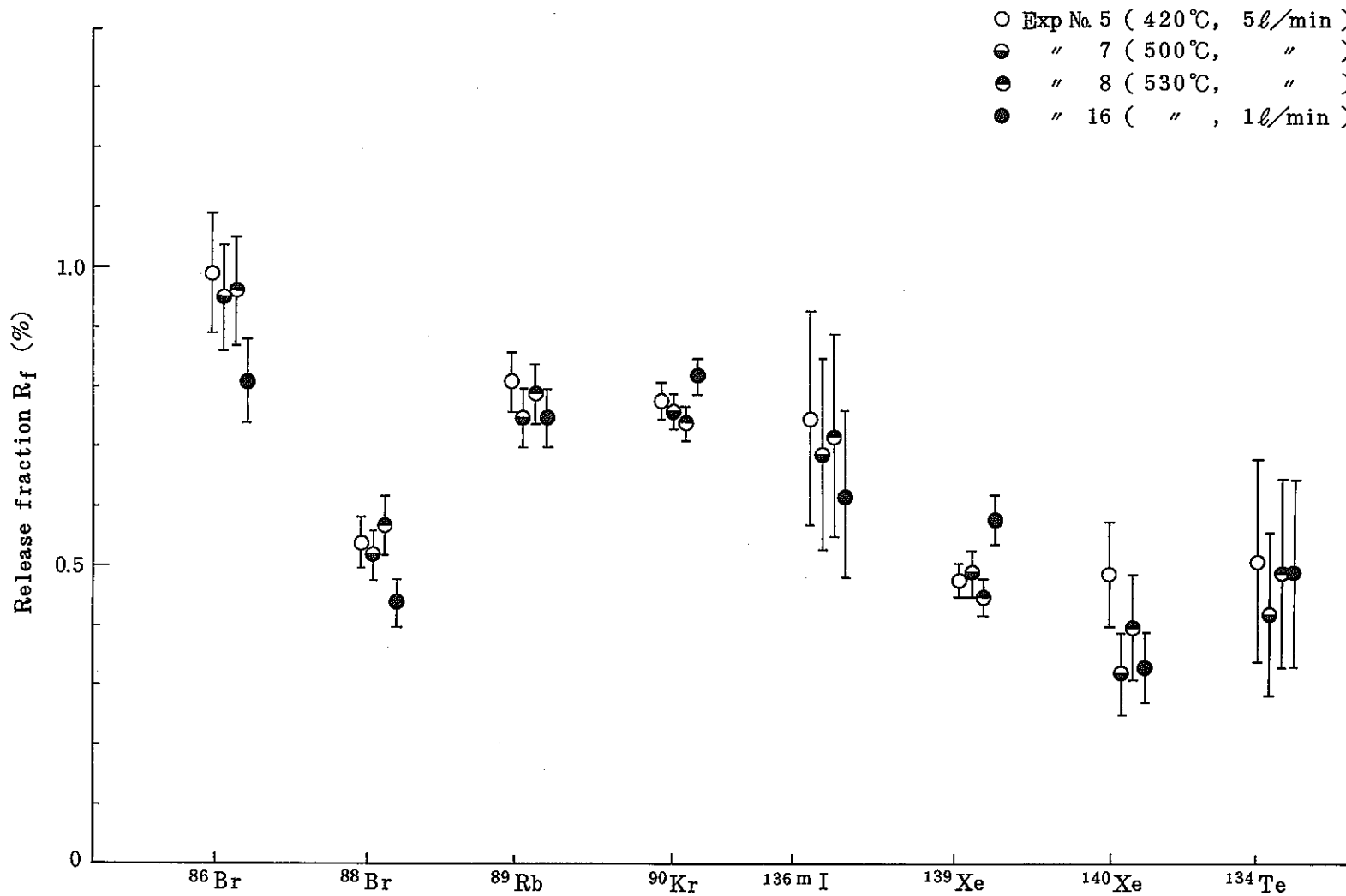


Fig. 6 - 11 Fission product release fraction for each FP nuclide

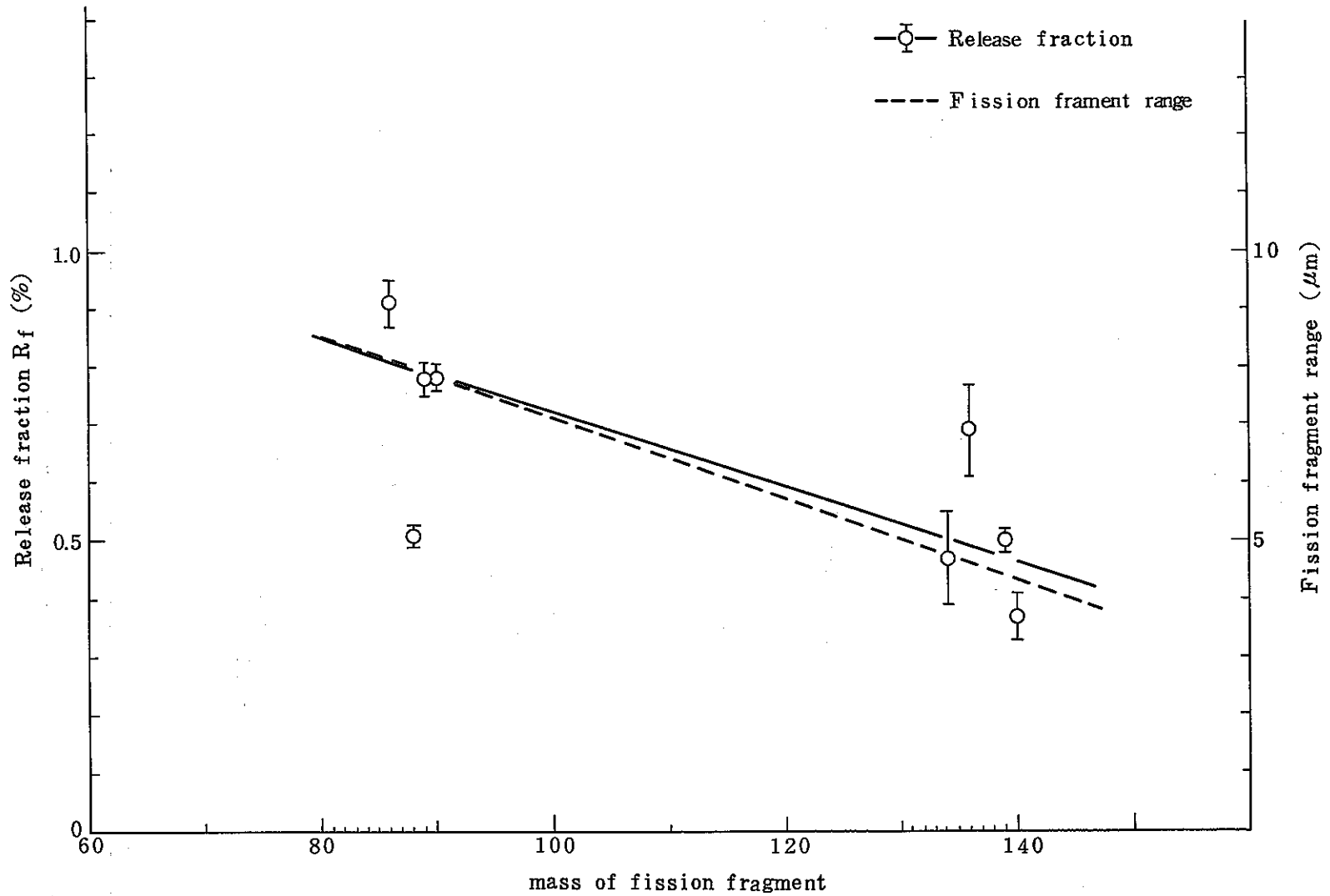


Fig. 6-12 Release fraction and fission fragment range in  $\text{UO}_2$  as a function of mass

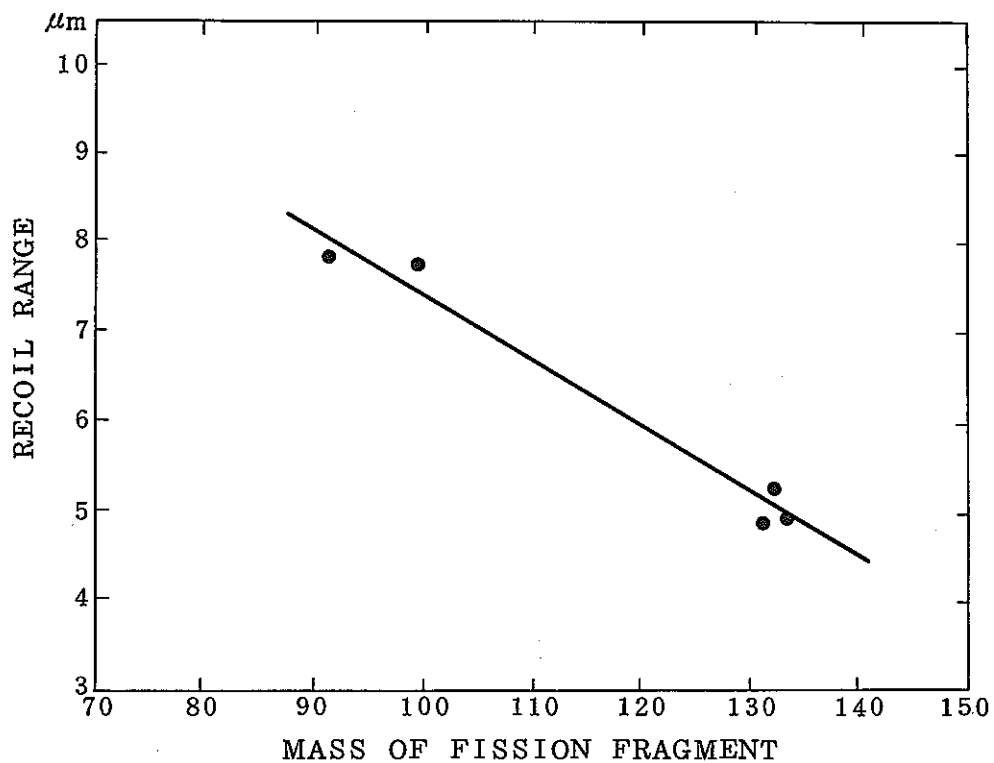


Fig. 6-13 Fission fragment range in  $\text{UO}_2$  as a function of mass<sup>12)</sup>

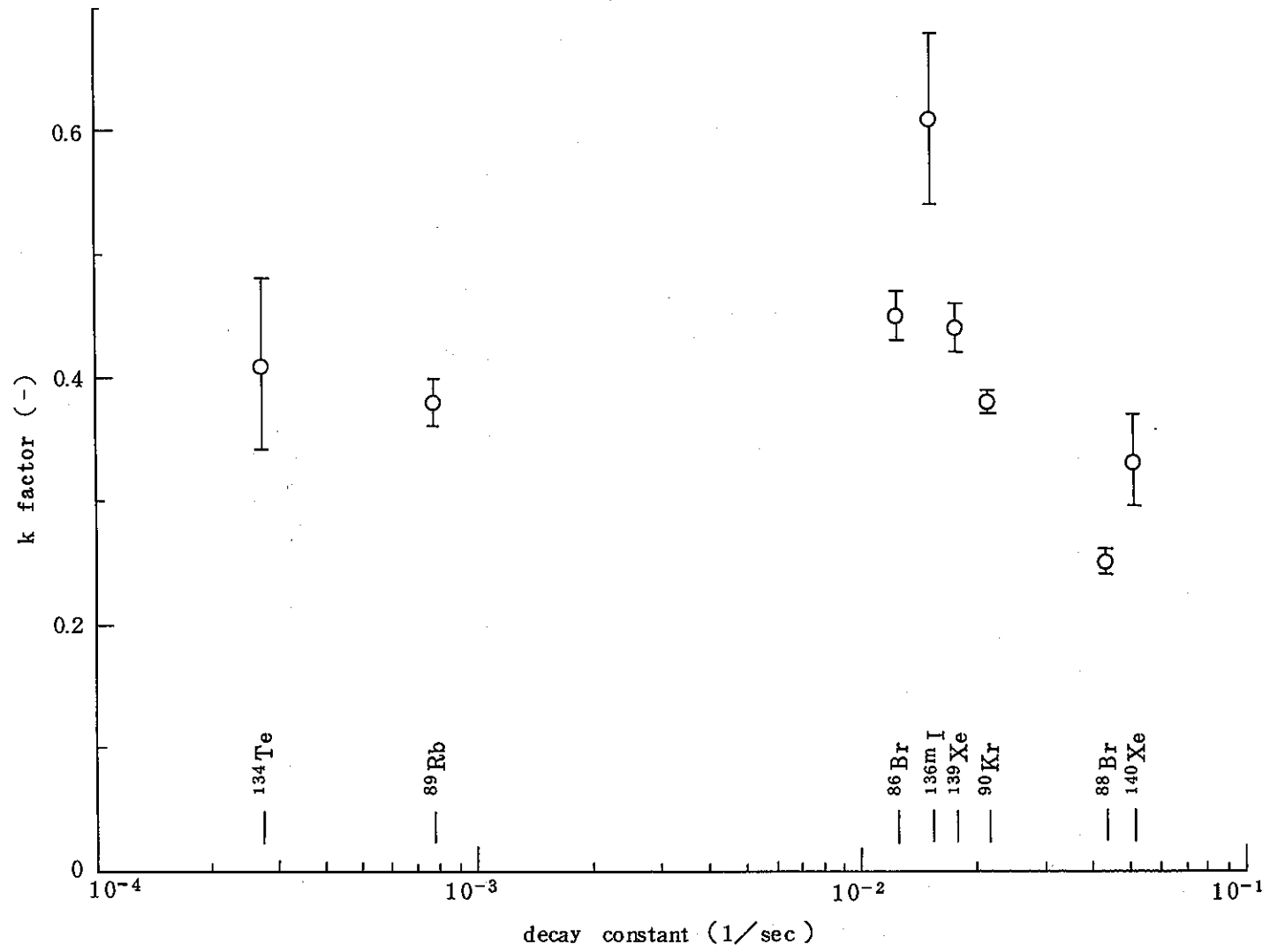


Fig. 6-14 k factor as a function of decay constant

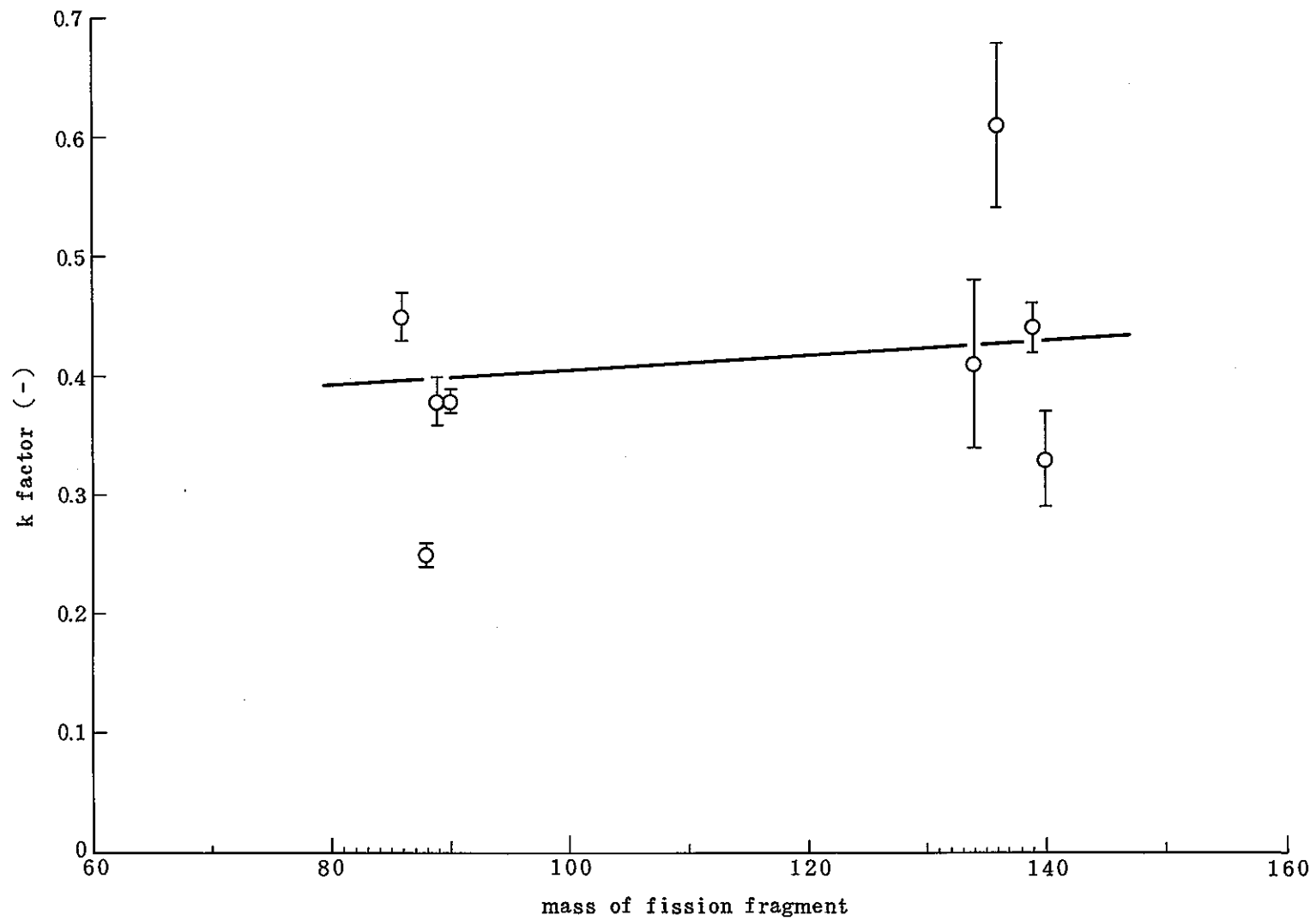


Fig. 6 - 15 k factor as a function of mass

## 7. 遅発中性子の測定結果

### 7.1 緒 言

遅発中性子 (DN) 放出核種 (以下 DN 核種と略記する) のナトリウム中での移行挙動は、高速炉の破損燃料検出系の性能評価にとって重要である。そこでディレイライン上の 2 箇所に設置されている DN 検出器を用い、前回の試験と同様に、FPL-II の定常<sup>1)</sup>運転時、ナトリウム流量変化時、流量停止及び TTR shut down 時にそれぞれ DN を測定し、前回の試験に引き続き、ナトリウム中での DN 核種の移行挙動を調べた。今回 DN の測定を行った実験は、実験 No. 16 及び 19~28 の 11 回の照射試験であるが、DN 核種の移行挙動の解析は、57 年度に実施した照射試験の結果について実施し、また、3.1 章で述べたモックアップ試験の結果を考慮した。

尚、<sup>87</sup>Br、<sup>137</sup>I 等の DN 核種は、半減期の長さ別に 5 つのグループに分類される。そこで、各グループに属する核種名及び平均の半減期を、 $10^4$  fission で生成する DN 核種から放射される DN 数の合計の値<sup>14)</sup>とともに Table 7-1 に示す。一般に DN 核種の半減期は 1 分以下で非常に短い。

### 7.2 ループ定常状態時の測定結果

2 章でも述べたように、DN の計測点は、ディレイライン配管上ループ先端のウランカプセルから 700 cm 及び 2848 cm の距離の 2 点である。2 点間の距離は 2148 cm であり両計測点での計測値を比較することにより、DN 核種のステンレス面への吸着挙動等が推定できる。尚、両計測点間の時間遅れは、ナトリウム流量が 5 ℓ/min の場合は 17.9 秒、2 ℓ/min の場合は 44.8 秒、1 ℓ/min の場合は 89.6 秒である。

ループが定常状態で運転されている場合の DND-1 及び DND-2 の測定値の結果を実験 No. 16 以降について Table 7-2 にまとめて示す。尚、FPL-II を運転していない状態における TTR 100 kW 出力時の DND-1 及び DND-2 の計測点における中性子バックグラウンドは、それぞれ 33.8 cps 及び 7.3 cps である。そこで Table 7-2 の値はこのバックグラウンド値を差し引いてある。尚、出力が 100 kW 以下の場合には、バックグラウンドは出力に比例するとして補正をした。

実験 No. 27, 28 では、コールドトラップ温度が 200 °C のナトリウムを使用して照射試験を行ったが、DN 計測値は照射試験開始当時の値と大きな差はなく、照射開始当初か

ら現在にいたるまでFPの放出率に変化がないこと、すなわち照射試料表面の状態に余り変化がないことが推定される。

また昭和57年度の照射試験の場合にも述べたように<sup>1)</sup>、ナトリウム温度が低下するにつれて、DN計数値が低下するのが認められる。流量が5ℓ/minの条件におけるDN計数率の温度依存性をFig 7-1に示す。ナトリウム温度の低下による計数率の低下は、DN核種の照射試料表面からの放出率の温度依存性、照射試料表面及び配管内壁表面へのDN核種の吸着の増大などの理由により起っているものと考えられる。尚、DND-1とDND-2の計数率の比は、DN核種の配管内壁への吸着挙動を推定する上で非常に重要な値であるが、後述するように計測点以外からのDNをも計測しているために検出感度が悪く、ナトリウム温度が230℃以下にならないと、両者の比の変化は顕著には現われなかった(Table 7-4 実験№9~12 参照)。

実験№23においては、TTRの出力を0.1 kWからステップ状に100 kWまで変化させて、DN計数率のTTR出力依存性を測定した。この結果をFig 7-2に示す。この結果、本試験に使用したDN検出系は0.1 kWから100 kWのTTR出力の広範囲に亘り完全に直線性が成立していること及び、反跳現象がFP放出の主メカニズムであることが示された。

### 7.3 ナトリウム流動停止時の測定結果

昭和57年度の照射試験に引き続いて、実験№23, 26, 28においてループの定常運転時に、ナトリウムの流動を停止させ、配管内に留まっているDN核種の壊変の経時変化を測定した。

中性子の測定は、プリセットスケラータイマーによりDND-1とDND-2の計数値を1秒間隔で交互に1秒ずつ測定した。その結果をFig 7-3に各実験毎に示す。左端のたて軸の目盛はDND-1の計数率を、右端のたて軸はDND-2の計数率を示す。

5.0 → 0 ℓ/minの場合のDND-1の測定において、流量停止直後に短半減期核種の壊変による急激な勾配が顕著にみられるのに対し、2.5 → 0, 1.0 → 0 ℓ/minと流量が低下するにつれて、流量停止後の勾配はゆるやかになるのが認められる。これは流量低下に伴い、短半減期のFPがDND-1の計測点に到達する前に壊変してしまうためである。尚、実験№28は、酸素濃度の高いナトリウム(コールドトラップ温度200℃のナトリウム、酸素濃度12 ppm)<sup>6)</sup>を使用しているが、通常のナトリウム(コールドトラップ温度120℃、酸素濃度1 ppm)を使用している実験№23あるいは26の結果と比較し

てほとんど差がないことがわかる。このことから、500°Cの温度のナトリウム中では、12ppm程度の酸素は、DN核種の挙動に影響を及ぼさないものとする。

#### 7.4 TTR 出力降下時の測定結果

実験№19, 20, 21, 22, 25, 27, 28において、TTRの出力降下をテストスクラムで行い、ループのナトリウムを循環させた状態でDN計数の経時変化を測定した。

中性子の測定は、7.3項と同様の方法で、DND-1とDND-2ともに1秒間隔で交互に1秒間ずつ測定した。その結果をFig 7-4に各実験毎に示す。尚、実験№19は後述するように特別な試験を行っているので、マルチチャンネルスケラ- (MCS) 2台によりDND-1及びDND-2の各々の計数値を0.4秒の計測時間で連続的に測定した。また、実験№21では、プリンターの調子が悪く、DND-1の計数値のみが出力された。

実験№19及び20の結果を除いて、ナトリウム流量が5ℓ/minの条件の場合には、テストスクラムしてから6秒後にDND-1の計数値が、また24秒後にDND-2の計数率が急激に落ちるのが認められ、流量が1ℓ/minの場合には、約30秒後及び110秒後に、DND-1及びDND-2の計数率がそれぞれ降下を開始するのが認められる。

これらの現象は、以下のように説明できる。ナトリウム中のDN核種の平衡状態は、ループを一循環してきたナトリウムに照射試料部で一定量のFPが放出追加されることにより成立しているが、炉出力の急激な降下によりFPの放出が0となるため、計数率が急激に落ちると考えられる。またスクラム停止時のDN計数率の経時変化は、5ℓ/minの流量の場合、ナトリウム温度に関係なく、ほとんど同じ傾向を示しており(実験№21と27及び28)、ナトリウム中のDN核種の組成は温度に余り関係しないことが結論され、昭和57年度に実施したナトリウムの流動停止の実験結果からも、同じ結論が得られている。<sup>1)</sup>

尚、TTRテストスクラム時の経時変化の測定において、計測点外のディレイライン配管各部からのDNをも計測している可能性のあることは、以下のような事実から推定できる。すなわち、実験№27に例をとると、DND-2の計数率の経時変化の場合、急激に計数率が低下する点(スクラム停止25秒後)までは一定の計数率を示さなければならぬにもかかわらず、スクラム停止6秒後のDND-1の計数率が急激に低下を開始する当りから、DND-2の計数率も低下を開始していることである。そのため3.1項のモックアップ試験を実施することになった訳であるが、モックアップ試験に用いられ



た中性子標準線源は、700KeVにピークをもつものに対し、DNは450KeVにピークをもつため、中性子スペクトルが異なる。そこで実験№19においてDN核種を用いて、ループ配管・機器からのDNの応答を測定することを試みた。試験方法は以下のとおりである。TTRのテストスクラム停止の5分前にナトリウムの流動を停止する。これによりウランカプセル内にFPが蓄積されるとともに、ループ配管・機器内のナトリウム中に存在するDN核種は放射壊変により減衰する。テストスクラムの後、約25秒経過してからナトリウムの流動を再開した。Fig 7-4中の実験№19の場合、時間は流動再開からの時間を表わす。得られた結果は、モックアップ試験の結果(Fig 3-7, 8参照)と似ているが、DND-1の計数率の場合、一番高いピークと次のピークの比が、モックアップの試験の場合の比より大きく、DN検出装置遮蔽体のDNに対する遮蔽能力は、モックアップ試験で用いた中性子線源の中性子に対する遮蔽能力より大きいことが示された。これは、中性子スペクトルの違いによるものと考えられ、DNの方がエネルギーが低いだけ遮蔽能力が大きくなると考えられる。尚、本試験で得られたピークの半値幅がFig 3-7で得られたピークの半値幅に比べて広いのは、流動を再開したときにウランカプセル部から流出したFPを蓄積したナトリウムの塊が完全な点状線源ではなく、ある広がりをもっているためと考える。また、DND-1の計数率の例の場合、30秒を経過すると、それ以降、明瞭なピークが検出されなくなる。これは、ナトリウムが電磁ポンプ、メインヒーター、ウランカプセル等を通過する際に、バルクのナトリウムとの混合が起こり、FPを含むナトリウム領域が分散して広がるためと考える。尚、流動再開後50秒付近で計数率が極小になっているが、これは、5ℓ/minの場合のナトリウムのループ内一循環時間に一致する。

## 7.5 TTR出力降下前のナトリウムドレン時の測定結果

実験№24と26において、TTR出力降下の前にナトリウムをドレンし、配管内壁に吸着しているDN核種からのDNを計測することを試みた。その結果をFig 7-5に示す。しかし、ナトリウムがループから完全にドレンされるまでに時間がかかること(30秒以上)、さらにDN検出装置の遮蔽能力が十分でないこと等のため、経時変化においてどの部分が吸着しているDN核種からの中性子であるか区別することができなかった。

## 7.6 解析モデル

ナトリウム中の DN 核種の挙動を定量的に把握するためには、DN 核種のナトリウム中の挙動をモデル化する必要がある。

DN 核種を前述したグループ群に分けて以後論ずることとする。Appendix C で述べるように、ナトリウム中の DN 核種の  $i$  グループの濃度  $\bar{C}_i$  (atoms/cm<sup>3</sup>) は、

$$\bar{C}_i(x) = \bar{C}_{i0} \cdot e^{-\alpha_i \cdot x} \quad (7-1)$$

で表わされる。ここに

$x$  : ウランカプセルからループに沿った距離 (cm)

$\bar{C}_{i0}$  : DN 核種グループ  $i$  の照射試料部での初期濃度 (atoms/cm<sup>3</sup>)

で、 $\alpha_i$  は

$$\alpha_i = \frac{\lambda_i}{v} \{ K_{ai} \cdot (\ell/a) + 1 \}$$

一方、壁面の濃度  $C_i^W(x)$  (atoms/cm<sup>2</sup>) は、

$$C_i^W(x) = K_{ai} \cdot \bar{C}_i(x) \quad (7-2)$$

である。ここに、

$K_{ai}$  : DN 核種グループ  $i$  の分配係数

$\lambda_i$  : DN 核種グループ  $i$  の壊変定数

$v$  : ナトリウム流速 (cm/sec)

$\ell$  : 配管の円周長 ( $2\pi r$ ; cm), ( $r$  は配管の内半径)

$a$  : 配管の断面積 ( $\pi r^2$ ; cm<sup>2</sup>)

である。分配係数の  $K_{ai}$  は (7-2) 式で定義したように、ナトリウム中の濃度と壁面の比を表わす。

計測点で計測される DN 計測値  $C_{rj}(x_j)$  (cps) は ( $j$  は DND-1 と 2 の区別を表わす),

$$C_{rj}(x_j) = \sum_{i=1}^5 f_j \cdot \eta_i \cdot \lambda_i \cdot \{ V \cdot \bar{C}_i(x_j) + S \cdot C_i^W(x_j) \} \quad (7-3)$$

となる。ここで  $x_j$  は DND-1 及び DND-2 までの距離を表わし、 $V, S$  はそれぞれ検出器が見込む領域内に入るナトリウムの体積及び壁面の表面積である。また  $f_j$  は検出効率、 $\eta_i$  は DN 放出率を示す。ここで  $V = \pi r^2 \ell_d$ ,  $S = 2\pi r \ell_d$  とし、 $\ell_d$  を検出器の見込む領域の長さとし、(7-1), (7-2) を用いて (7-3) 式を整理し、 $\bar{C}_{i0}$  に Appendix C の (C-8) 式を適用すると、

$$C_{rj}(x_j) = f_j \cdot \pi r \cdot \ell_d \cdot \sum_{i=1}^5 \frac{\lambda_i \cdot \eta_i \cdot P_i}{F \cdot (1 - e^{-\alpha_i \cdot L})} \cdot e^{-\alpha_i \cdot x_j} \cdot \{r + 2K_{ai}\} \quad (7-4)$$

となる。ここで  $F$  は流量 ( $cm^3/sec$ )、 $L$  はループの全長、 $P_i$  は FP の放出速度 (atoms/sec) で、 $P_i$  は、放出率  $R_{fi}$  (dimensionless)、核分裂収率  $Y_i$  (atoms/fission)、核分裂速度  $F_r$  (fission/sec) を用いて、

$$P_i = R_{fi} \cdot Y_i \cdot F_r$$

で表わされる。これらをまとめて書き直すと、

$$C_{rj}(x_j) = f_{rj} \cdot \sum_i \frac{\lambda_i \cdot Q_i \cdot R_{fi}}{F \cdot (1 - e^{-\alpha_i \cdot L})} \cdot K_{ai}' \cdot e^{-\alpha_i \cdot x_j} \quad (7-4a)$$

となる。ここに  $f_{rj} = f_j \cdot \pi r \cdot \ell_d$ 、 $K_{ai}' = r + 2K_{ai}$  であり、 $Q_i = \eta_i \cdot Y_i \cdot F_r$  で、Table 7-1 中の DN 放出数に相当するものである。

この式を用いて、ナトリウム流量停止時及び TTR 出力降下 (テストスクラム) 時の DN 計数率の経時変化を表わすと次のようになる。

#### 1) ナトリウム流動停止時

ナトリウム流動を停止した場合、配管中に存在するグループ  $i$  の DN 核種は、壊変定数に従って減衰していく。したがって、

$$C_{rj}(x_j, t) = f_{rj} \cdot \sum_i \frac{\lambda_i \cdot Q_i \cdot R_{fi}}{F \cdot (1 - e^{-\alpha_i \cdot L})} \cdot K_{ai}' \cdot e^{-\alpha_i \cdot x_j} \cdot e^{-\lambda_i \cdot t} \quad (7-5)$$

である。尚、 $t$  は流動停止からの経過時間を表わす。

#### 2) TTR スクラム時

TTR スクラム停止時には、階段状の計数値の経時変化が得られることが予想される。TTR がスクラムした瞬間からナトリウム中への FP の放出が 0 となるから、照射試料部での FP の初期濃度は、定常運転時の  $C_{i0}$  から  $\bar{C}_{i0} \cdot e^{-\alpha_i \cdot L}$  に変化する。すなわち、スクラム後の初期濃度は、ナトリウムがループ内を一循環した後に放射壊変せずに戻ってきた分のみとなる。したがって計数率の経時変化は、ループの一循環時間を  $t_1$ 、ナトリウムが照射試料部から計測点までの到達時間を  $t_{2j} (=x_j/v)$ 、循環回数を  $n$  とすると、

$$\left. \begin{aligned}
 C_{rj}(x_j, t) &= f_{rj} \cdot \sum_i \frac{\lambda_i \cdot Q_i \cdot R_{fi}}{F \cdot (1 - e^{-\alpha_i \cdot L})} \cdot K_{ai}' \cdot e^{-\alpha_i \cdot x_j} \quad (0 \leq t \leq t_{2j}) \\
 C_{rj}(x_j, t) &= f_{rj} \cdot \sum_i \frac{\lambda_i \cdot Q_i \cdot R_{fi}}{F \cdot (1 - e^{-\alpha_i \cdot L})} \cdot K_{ai}' \cdot e^{-\alpha_i \cdot x_j} \cdot e^{-\alpha_i \cdot nL} \\
 &\quad (t_{2j} + (n-1)t_1 \leq t \leq t_{2j} + nt_1)
 \end{aligned} \right\} (7-6)$$

である。

## 7.7 モックアップ試験結果を考慮した解析モデル

前述した解析モデルは、遮蔽が完全に理想的な検出装置を用いて DN を測定した場合にのみ適用可能であり、本 FPL-II の DN 検出装置では、適用不可能である。例えば高温のナトリウム中で DN 核種のステンレス表面への吸着が無視できる場合、流量が 5 ℓ/min の定常状態では、前記解析モデルによると、DND-1 と DND-2 の計数率の比は 5.96 と計算されるが、実験結果ではその比は 2.1 前後であり、解析結果と大きく異なる。そこで前記解析モデルにモックアップ試験で得られた結果を考慮する必要がある。

3.1 項で述べたモックアップ試験では、飛び飛びの点で検出効率の測定を行った。したがって測定点間の検出効率は、以下のような指数関数で補間した。すなわち、ウランカプセルから  $x$  の距離にある配管部に対する DN 検出装置の検出効率は、

$$f_{j,k}(x) = B_{j,k} \cdot e^{\beta_{j,k} \cdot x} \quad (x_k \leq x \leq x_{k+1}) \quad (7-7)$$

である。ここに  $j$  は DND-1 と DND-2 の区別を、 $k$  は区間を意味する。ところで  $x$  の距離にある微小長さ  $dx$  中に存在する DN 核種からの DN 放出速度  $dA$  は、(7-1)、(7-2) 式を用いて、

$$dA = \pi r \cdot \sum_i \frac{\lambda_i \cdot Q_i \cdot R_{fi}}{F \cdot (1 - e^{-\alpha_i \cdot L})} \cdot K_{ai}' \cdot e^{-\alpha_i \cdot x} \cdot dx$$

で求められる。この微小領域中の DN 核種から放出される DN による各検出装置の計数率は、各 DN 検出装置毎に、 $f_{j,k}(x) \cdot dA$  で求められるから、ループ全体に分布した DN 核種からの計数率は、全体を積分することにより、各 DN 検出装置毎に、

$$C_{rj} = \pi r \cdot \sum_i \frac{\lambda_i \cdot Q_i \cdot R_{fi}}{F \cdot (1 - e^{-\alpha_i \cdot L})} \cdot K_{ai}' \cdot \int_0^L f_{j,k}(x) \cdot e^{-\alpha_i \cdot x} dx \quad (7-8)$$

となる。参考のため、ナトリウム流動が定常状態でかつ高温時 (DN 核種の配管内壁へ

の吸着が無視できて、 $K_{ai}=0$ ) の各 DN 検出装置の計数率に対するループ配管各部からの DN の寄与率の計算値を、ナトリウム流量毎に Table 7-3 に示す (DL-A 等の位置については、Fig 3-1 参照)。

尚、これらの値は次式で算出される。区間  $k$  ( $x_k \leq x \leq x_{k+1}$ ) から各 DN 検出装置に与える計数率  $C_{rj,k}$  (cps) は、

$$C_{rj,k} = \pi r^2 \cdot \sum_i \frac{\lambda_i \cdot Q_i \cdot R_{fi}}{F \cdot (1 - e^{-\alpha_i \cdot L})} \cdot \int_{x_k}^{x_{k+1}} f_{j,k}(x) \cdot e^{-\alpha_i \cdot x} dx$$

で表わされる。ここで DN 核種の放出率を核種の区別なく一定の  $R_f$  とすると、前記の寄与率は、

$$\frac{C_{rj,k}}{C_{rj}} = \frac{\sum_i \frac{\lambda_i \cdot Q_i}{(1 - e^{-\alpha_i \cdot L})} \int_{x_k}^{x_{k+1}} f_{j,k}(x) \cdot e^{-\alpha_i \cdot x} dx}{\sum_i \frac{\lambda_i \cdot Q_i}{(1 - e^{-\alpha_i \cdot L})} \int_0^L f_{j,k}(x) \cdot e^{-\alpha_i \cdot x} dx}$$

で算出される。尚、上記計算において、 $\lambda_i, Q_i$  は Table 7-1 の壊変定数及び DN 放出数を用い、 $L=5734 \text{ cm}$  である。 $f_{j,k}(x)$  はモックアップ試験で算出された値を用い、 $\alpha_i = \lambda_i/v$  で  $v$  はナトリウムの流速である。寄与率の計算には大型計算機を用いた。Table 7-3 でみられるように、DND-1 については、計測点 (DL-A) からの寄与は、全体の計数率に対し、流量  $5 \text{ l/min}$  では  $59.7\%$ 、 $2.5 \text{ l/min}$  では  $62\%$ 、 $1 \text{ l/min}$  では  $66.9\%$ 、 $0.5 \text{ l/min}$  では  $73.5\%$  と流量が下がるにつれて大きくなるのが認められる。また DL-B からの寄与は、 $5 \text{ l/min}$  で  $5.3\%$  が、 $0.5 \text{ l/min}$  で  $3.3\%$  と小さくなり、電磁ポンプからの寄与は  $5 \text{ l/min}$  で  $6\%$  が、 $0.5 \text{ l/min}$  では  $0.4\%$  と非常に小さくなった。一方 DND-2 では計測点 (DL-D) からの寄与は、全体の計数率に対し、流量が  $5.0$ 、 $2.5$ 、 $1.0$ 、 $0.5 \text{ l/min}$  においてそれぞれ  $22.1$ 、 $21.0$ 、 $14.4$ 、 $6.2\%$  と減少するのが認められ、 $0.5 \text{ l/min}$  の流量では、DL-A からの寄与が  $18.3\%$  と一番大きいことがわかった。以下にナトリウム流動停止時及び TTR テストスクラム時の経時変化の解析モデルを示す。

1) ナトリウム流動停止時

計数率  $C_{rj}$  は時間の関数となるから、(7-4)式は、

$$C_{rj}(t) = \pi_r \cdot \sum_i \frac{\lambda_i \cdot Q_i \cdot R_{fi}}{F \cdot (1 - e^{-\alpha_i \cdot L})} \cdot K_{ai}' \cdot e^{-\lambda_i \cdot t} \int_0^L f_{j,k}(x) \cdot e^{-\alpha_i \cdot x} dx \quad (7-9)$$

となる。ここで、 $t$  は流動停止後の経過時間 (sec) である。

2) TTR スクラム時

(7-6)式より、テストスクラム後の経過時間  $t$  (sec) を用いて、

$$C_{rj}(t) = \pi_r \cdot \sum_i \frac{\lambda_i \cdot Q_i \cdot R_{fi} \cdot K_{ai}'}{F \cdot (1 - e^{-\alpha_i \cdot L})} \cdot \left\{ \int_0^{x_t} f_{j,k}(x) \cdot e^{-\alpha_i \cdot (x + (n+1)L)} dx + \int_{x_t}^L f_{j,k}(x) \cdot e^{-\alpha_i \cdot (x + nL)} dx \right\} \quad (7-10)$$

となる。ここに、 $x_t$  はスクラムの影響により DN 計数率が急激に変化する点の位置を表わし、 $x_t = v \cdot t - nL$  ( $n = \text{Integer}(L/vt)$ ) である。

## 7.8 解析モデルと実験結果の比較

1) ループの定常状態及び流量依存性の実験結果と解析モデルの比較

(7-8)式を用いて計算された DND-1 と DND-2 の計数率の比 ( $C_{r1}/C_{r2}$ ) を Table 7-4 に実験 No 3 から 16 までの照射試験の結果とともに示す。この比は、

$$\frac{C_{r1}}{C_{r2}} = \frac{\sum_i \frac{\lambda_i \cdot Q_i}{(1 - e^{-\alpha_i \cdot L})} \cdot \int_0^L f_{1,k}(x) \cdot e^{-\alpha_i \cdot x} dx}{\sum_i \frac{\lambda_i \cdot Q_i}{(1 - e^{-\alpha_i \cdot L})} \cdot \int_0^L f_{2,k}(x) \cdot e^{-\alpha_i \cdot x} dx}$$

で表わされる。尚、本計算中  $K_{ai} = 0$  とし (DN 核種の吸着挙動は無視する)、また DN 核種毎の放出率はすべて等しく  $R_f$  で表わされるとしている。

上記の計算結果は、270°C 以上の実験結果に対してかなりよく合うことがわかる。一方実験 No 10, 13 は、500°C のナトリウム温度条件で流量を 5.0 ~ 0.5 ℓ/min までステップ状に変化させて DN 計測値の流量依存性を測定した。流量依存性における実験結果と解析モデルとの比較は、以下のとおりである。流量が 5 ℓ/min のとき実験値は、2.11 に対し、解析値は 2.20 である。流量が低下するにつれ両者の大小関係は逆転し、

0.5 ℓ/min の場合には、実験値が 4.32 に対し解析値は 3.91 である。この原因についてはもう少し検討する余地があるが、モックアップ試験の結果を考慮した解析モデルは、実験結果をかなりよく説明できることがわかった。

そこで流量依存性の実験結果を DND-1 と DND-2 のそれぞれについて Fig 7-6 に示す。実験点は実験 No 10 の結果であるが、DND-1 については実験 No 13 の結果も図示した。尚、実験 No 13 の DND-2 の計数値は、原因不明のトラブルにより異常に低い値を示すため (Table 7-4 参照)、図示していない。図中に示した実線は、(7-8) で定義された式のうち、 $K_{ai}=0$  とし、実験 No 10 の流量 5 ℓ/min の条件での DND-1 の実験結果を  $C_{r1}$  と等しくなるように  $R_f$  を選んで算出された  $C_{r1}$  及び  $C_{r2}$  の流量依存性を表わす。実験結果と解析値は非常によく一致した。尚、詳細に結果を検討すると、DND-1 の低流量側で実験値が解析値より高目の値になっているのに対し、DND-2 は、低流側で両者はほとんど一致するが、高流量側では解析値の方が実験値より高目の値になることがわかった。

## 2) DN測定結果と温度依存性

Fig 7-1 に示すように、ナトリウム温度の低下とともに DN 計測値が低下する。これは DN 核種の吸着挙動によると考えられる。この吸着挙動のため、DND-1 と DND-2 の計数率の比も変化すると考えられるが、Table 7-4 でみられるように、5 ℓ/min の流量条件の場合、両者の比は 270~500 °C の間では 2.05 前後で大きな変化はみられなかった。225 °C 以下になるとこの比が変化し始め、225 °C で 2.78 になった。一方、2 ℓ/min の条件の場合も同様で、270 °C までは両者の比は 2.27 前後であるが、225、170 °C となるにつれそれぞれ 2.43、3.45 となった。このように DND-1 と DND-2 の計数値の比は、計測点以外のループ配管・機器からの DN をも計測しているために、DN 核種の吸着挙動の変化に対する検出感度が低く、ナトリウム温度が 225 °C 以下にならないと、両者の比に顕著な変化が現われなかったものと考えられる。

## 3) ナトリウム流動停止時の実験結果との比較

Fig 7-7 に、実験 No 13 の 4.64 ℓ/min から流動を停止したときの経時変化とともに (7-9) 式から計算された解析結果を実線で示す。尚、(7-9) 式中  $K_{ai}=0$  とし、 $t=0$  のときの計算値と流量の定常状態時での DND-1 の計測値が等しくなるように未知数である  $R_f$  を決めた (破線は (7-5) 式から計算された結

果で、実験結果とは余りよく合わない)。DND-1 の場合、解析値はほぼ完全に一致しているといえる。一方 DND-2 は、流動停止直後は両者のずれが大きいですが、それ以降は両者ともにほぼ完全に一致することがわかり、本解析モデルが実験結果とよく合うことが示された。

#### 4) TTR スクラム時の実験結果との比較

Fig 7-8 に、実験 No. 13 の TTR テスト スクラム時 (流量は 4.64 ℓ/min) の経時変化を、(7-10) 式から計算された結果 (実線) とともに示す。尚、(7-10) 式中  $K_{ai} = 0$  とし、 $t=0$  のときの計算値と流量の定常状態時での DND-1 の計測値が等しくなるように未知数  $R_f$  を決めた (破線は (7-6) 式から計算された結果で、実験値とは全く合わない)。DND-1 の場合、実験値と解析値はほぼ完全に一致しているといえる。一方 DND-2 は、スクラム停止直後の数秒間 (DND-1 の計数值にスクラム停止の影響が未だ現われていない期間) は実験値と解析値のずれがかなりあるが、それ以降は両者はほぼ完全に一致することがわかり、本解析モデルが実験結果と非常によく合うことが示された。

尚、Fig 7-8 において、第 1 循環目のスクラムによる計数率の急激な変化は明瞭に現われているのに対し、第 2 循環目以降はその変化点が明瞭には現われなくなっている。この理由は、流動ナトリウムが電磁ポンプ、ヒーター、ウランカプセル等の主要配管より太い配管部を通過する際にバルクのナトリウムとの混合が起これ、ディレイライン配管中のピストンフローがくずれ、スクラムによる計数率の変化点が不明瞭になるためと考えられる。

### 7.9 k factor の算出

これまでの DN の測定結果の評価では、主に解析モデルと実験結果の相対的な比較を行ってきたが、6 章でも述べた k factor の算出には、解析モデルと実験結果の絶対値について比較する必要がある。

k factor,  $k_{fi}$  (dimensionless) は、recoil model により計算された理論的放出率  $R_{fci}$  (dimensionless) と実験で得られる放出率  $R_{fi}$  (dimensionless) との比で表わされる。すなわち、

$$k_{fi} = R_{fi} / R_{fci}$$



である。そこで以下で行う計算を簡単にすため  $k_{fi}$ ,  $R_{fi}$ ,  $R_{fci}$  はすべて DN 核種に無関係に一定であるとする、上式は添字  $i$  をはずして

$$k_f = R_f / R_{fc}$$

となり、上式から計算される  $R_f$  を (7-8) 式に代入すると、

$$C_{rj} = \pi r \cdot \sum_i \frac{\lambda_i \cdot Q_i \cdot R_{fc} \cdot k_f}{F \cdot (1 - e^{-\alpha_i \cdot L})} \cdot K_{ai}' \cdot \int_0^L f_{j,k}(x) \cdot e^{-\alpha_i \cdot x} dx$$

となる。そこでこの  $C_{rj}$  を実験 Na10 の高温ナトリウム時の DND-1 及び DND-2 の実験結果と等しいと置いて流量  $F$  毎に  $k_f$  の算出を試みた。このときナトリウムは高温なので DN 核種の吸着は無視できる。したがって上式を  $K_{ai} = 0$  として書き直すと、

$$\left. \begin{aligned} C_{rj} &= \pi r^2 \cdot \frac{R_{fc} \cdot k_f}{F} \sum_i \frac{\lambda_i \cdot Q_i}{1 - e^{-\alpha_i \cdot L}} \cdot \int_0^L f_{j,k}(x) \cdot e^{-\alpha_i \cdot x} dx \\ \alpha_i &= \lambda_i / v \end{aligned} \right\} (7-11)$$

である。ここで、 $r = 0.47 \text{ cm}$ ,  $L = 5734 \text{ cm}$  である。また DN 核種は Br から I まで軽い FP と重い FP に分かれて分布しているので、 $R_{fc}$  は 6 章で述べた軽い FP と重い FP の平均値である 0.0159 を用いた。また  $Q_i$  は Table 7-1 に示す DN 放出数に相当するものであるが、FPL-II の照射試料の核分裂速度は 6 章でみられるように  $2.05 \times 10^{11}$  (fission/sec) であるので、表中の値を  $2.05 \times 10^7$  倍 (表中の値は核分裂速度が  $10^4$  fission の場合の DN 放出数) した値をもって  $Q_i$  とする。尚、積分部分はモックアップ試験で得られた検出効率の値を用い、大型計算機により計算を行った。このようにして算出された  $k$  factor の流量及び検出器毎の結果を Table 7-5 に示す。この結果は各々が非常によく一致し、平均すると 0.59 程度の値になることがわかった。尚、6 章で述べたように、一般に  $k$  factor は 1 より大きくなることが知られているので、1 以下の  $k$  factor が得られた理由を今後検討する必要があるが、6 章の揮発性 FP の  $\gamma$  線測定結果よりも大きな  $k$  factor が得られた点についても、今後検討の余地があると思われる。但し、本 DN 検出装置の検出効率が Am-Be の中性子線源を用いて測定されており、DN の中性子スペクトルと異なっていることから、このスペクトルの違いも  $k$  factor の差に現われていると考える。

## 7.10 結 言

破損燃料検出系の性能評価にとって重要である遅発中性子(DN)放出核種の移行挙動を、ループに設置された2台のDN検出器で測定した。しかし本装置は、中性子に対する遮蔽能力が不十分のため、計測点以外のループ配管・機器からのDNをも計測していることがわかったので、中性子標準線源を用いてモックアップ試験を実施し、ループ各部から各検出装置計数率へのDNの寄与を定量的に求めた。このモックアップ試験の結果を考慮した解析モデルを作り、ナトリウム流動の定常状態時、流動停止時、TTR出力降下(テストスクラム)時における実験結果と解析結果の比較を行った結果、両者は非常によく一致した。また本解析モデルを用いることにより、DN計数率のナトリウム流量依存性を非常によく説明できることもわかり、本解析モデルがFPL-II DN測定結果の解析に充分適用可能であることがわかった。

次にDN核種のループ内吸着挙動をナトリウム温度を変えて測定した。その結果、DN計数率はナトリウム温度の低下とともに減少し、500℃の計数率に比較して270℃では1/1.7、170℃では1/4.7となった。一方、2箇所のDN検出装置のDN計数率の比から、DN核種のナトリウム中のステンレス内壁表面への吸着挙動を推定した。その結果、ナトリウム温度が500から270℃までは両者の計数率の比は一定でほとんど変化がなかったが、225℃になるとその比は大きくなり(下流側の計数率の減少率が大きくなる)、170℃ではその比は更に大きくなり、225℃以下になるとステンレス内壁面への吸着量が無視できなくなるという結果を得た。

上記した解析モデルとDN測定結果を用いて、照射試料からナトリウム中へのFPの放出量に関するk factorの算出を行い、平均0.59の値を得た。この値は、揮発性FPのγ線測定結果から得られた値より大きい。k factorは1より大きくなることが知られているので、今後は、k factorが1より小さくなった理由及びDNの測定とγ線の測定で得られたk factorの値に差が生じた理由について検討する必要がある。

Table 7-1 Delayed neutron precursor nuclides<sup>14)</sup>

Group	Half life (Average)	Emission Rate <sup>*</sup>	Delayed Neutron Precursor Nuclides
1	55.7 sec	5.1	<sup>87</sup> Br
2	24.6 sec	23.2	<sup>136</sup> Te, <sup>137</sup> I, <sup>141</sup> Cs
3	15.9 sec	12.4	<sup>88</sup> Br
4	5.2 sec	31.4	<sup>89</sup> Br, <sup>93</sup> Rb, <sup>138</sup> I, <sup>87</sup> Se, <sup>137</sup> Te
5	2.2 sec	53.7	<sup>90</sup> Br, <sup>94</sup> Rb, <sup>139</sup> I, <sup>85</sup> As, <sup>135</sup> Sb <sup>88</sup> Se

\* Emission Rate/10<sup>4</sup> fission

Table 7-2 Steady state count rates for delayed neutrons under constant loop conditions

Exp. No.	Na Temp (°C)	TTR Power (KW)	Na Flow Rate (l/min)	Count rate (CPS)	
				DND-1	DND-2
16	530	5	1.0	77.1	21.7
		100		1527.4	500.3
19	530	5	2.0	115.1	41.9
		100		2145.1	818.6
20	170	5	1.0	7.1	1.3
		100		142.8	32.9
21	170	5	5.0	46.1	13.0
		100		864.5	271.7
22	400	5	1.0	77.2	22.3
		100		1518.5	449.8
23	500	0.1	5.0	3.62	1.36
		0.2		7.39	2.93
		0.5		18.6	7.43
		1		76.8	14.5
		2		73.9	29.1
		5		184.4	73.9
		10		369.2	146.0
		20		734.8	295.0
		50		1784.7	728.9
		70		2467.4	1018.6
		100		3415.9	1456.0
		4.2	3234.1	1353.6	
24	270	5	5.0	121.5	54.2
		100		2306.5	1039.7
25	300	5	1.0	56.4	14.4
		100		1093.8	296.3
26	500	5	5.0	179.2	75.3
				3385.7	1443.0
		100	2.5	2369.7	936.2
			1.0	1552.8	435.1
		5.0	3323.2	1419.7	
27	500	5	5.0	178.6	77.5
		100		3262.9	1496.6
28	500	5	5.0	181.7	82.5
				3420.8	1574.3
		100		3388.6	1552.1

Table 7-3 Delayed neutron contribution ratio at each delayed neutron detector from the various part of FPL-II loop pipings

Flow Rate position	5.0 l/min		2.5 l/min		1.0 l/min		0.5 l/min	
	DND-1	DND-2	DND-1	DND-2	DND-1	DND-2	DND-1	DND-2
DL-A (DN1)	59.70%	8.34%	62.03%	9.17%	66.89%	12.18%	73.53%	18.28%
DL-B	5.28	6.90	4.97	6.88	5.07	8.64	3.30	7.66
DL-C	1.91	6.46	1.79	6.43	1.39	6.13	0.58	3.51
DL-D (DN2)	0.61	22.12	0.55	21.04	0.30	14.42	0.10	6.19
DL-E (Heater)	1.39	0.42	0.97	0.31	0.27	0.11	0.05	0.03
EMP	5.96	10.94	4.75	9.35	1.81	4.54	0.44	1.55
Other parts	25.15	44.82	24.94	46.82	24.27	53.98	22.00	12.78
Total	100.0%	100.0%	100.0%	100.0%	100.0%	100.0%	100.0%	100.0%

Table 7-4 Steady state count rates for delayed neutrons under constant loop conditions and calculated data by using analytical model

Exp No.	Sodium Condition		Count Rates (cps) <sup>+) )</sup>		DND-1/DND-2 Ratio	
	Temp (°C)	Flow Rate (ℓ/min)	DND-1	DND-2 <sup>*)</sup>	Experimental Results	Calculated value
16	530	1.0	1527	500	3.05	2.87
14	"	1.0 <sup>**)</sup>	1492	373	4.00	"
10	500	5.3	3491	1687	2.07	2.19
7	"	5.0	—	1747	—	2.20
10	"	"	3436	1631	2.11	"
13	"	"	3440	1256 <sup>?)</sup>	2.74 <sup>?)</sup>	"
13	"	4.64	3367	1342 <sup>?)</sup>	2.51 <sup>?)</sup>	2.23
10	"	4.2	3273	1539	2.13	2.26
13	"	3.84	3195	1216 <sup>?)</sup>	2.63 <sup>?)</sup>	2.28
10	"	3.6	3052	1428	2.14	2.30
13	"	3.24	2916	1103 <sup>?)</sup>	2.64 <sup>?)</sup>	2.31
10	"	2.5	2471	1124	2.20	2.33
13	"	2.14	2232	810 <sup>?)</sup>	2.76 <sup>?)</sup>	2.36
10	"	1.0	1543	508	3.04	2.87
13	"	0.64	1206	249 <sup>?)</sup>	4.84 <sup>?)</sup>	3.53
10	"	0.50	1045	242	4.32	3.91
13	"	0.14	241	35.4 <sup>?)</sup>	6.81 <sup>?)</sup>	4.55
5	420	5.0	3444	1672	2.06	2.20
6	"	"	3260	1609	2.03	"
3	350	5.0	3119	1014 <sup>?)</sup>	3.08 <sup>?)</sup>	2.20
4	"	"	2846	—	—	"
15	300	5.0	2654	1312	2.02	2.20
15	"	2.0	1586	693	2.29	2.37
11	270	5.0	2054	1010	2.03	2.20
11	"	2.0	1104	486	2.27	2.37
12	225	5.0	1333	624	2.14	2.20
12	"	2.0	590	243	2.43	2.37
9	170	5.0	730	263	2.78	2.20
9	"	2.0	261	75.6	3.45	2.37

- +) After correction of neutron background caused by neutron leak from TTR  
\*) corrected value for detection efficiency  
\*\*) Flow rate is smaller than 1.0 ℓ/min  
?) DND-2 counter trouble

Table 7-5 k factor calculated by using delayed neutron experimental results (Exp. No 10) and analytical model

Flow rate	DND-1		DND-2	
	DN count rate	k factor	DN count rate	k factor
5.0 <i>l</i> /min	3436 cps	0.574	1631 cps	0.601
2.5	2471	0.573	1124	0.610
1.0	1543	0.600	508	0.568
0.5	1045	0.637	242	0.578
Average		0.596		0.589

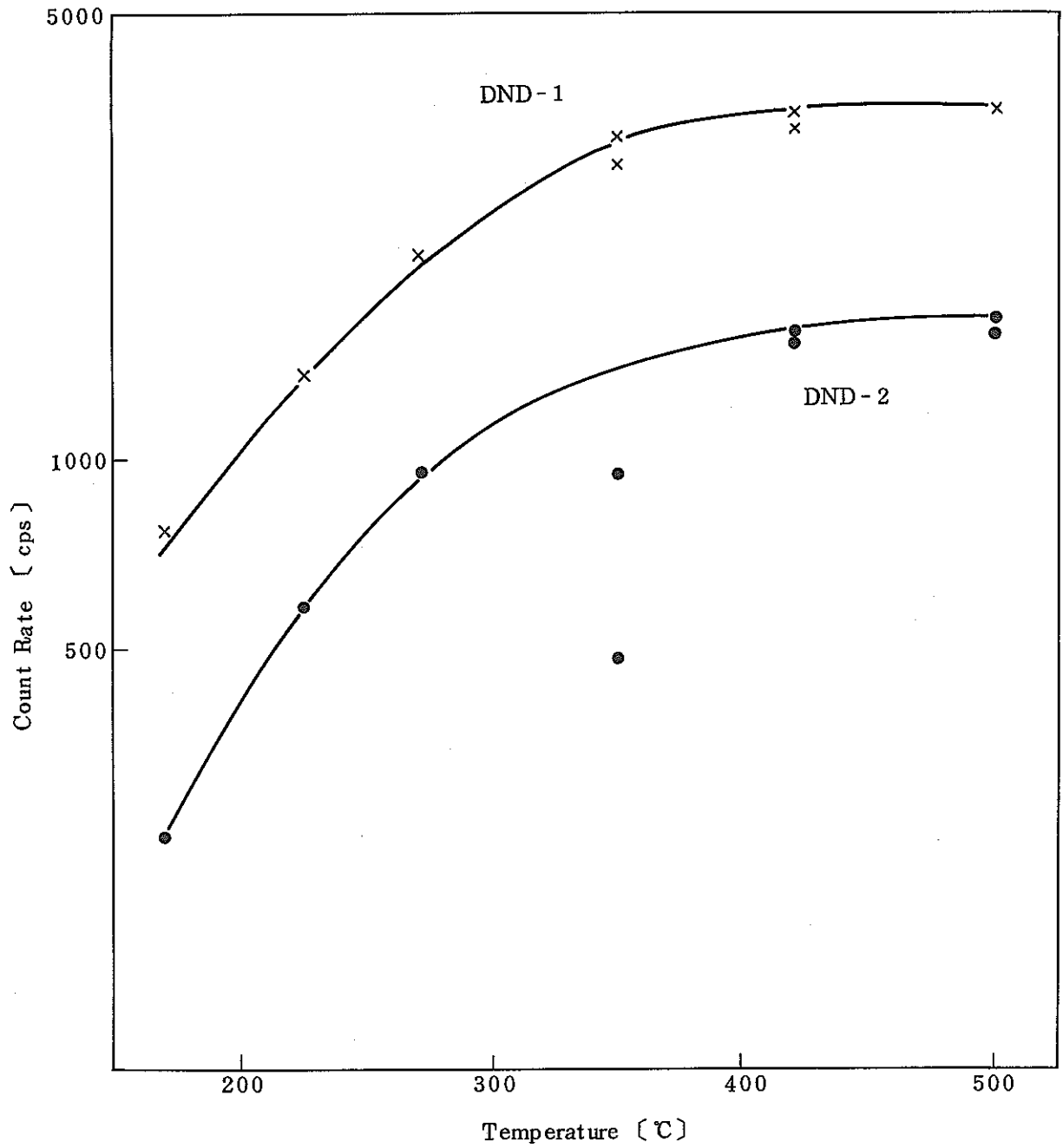


Fig. 7 - 1 DN-count rate vs. sodium temperature (Sodium flow rate 5 l/min, Data from experiments 3 to 13)



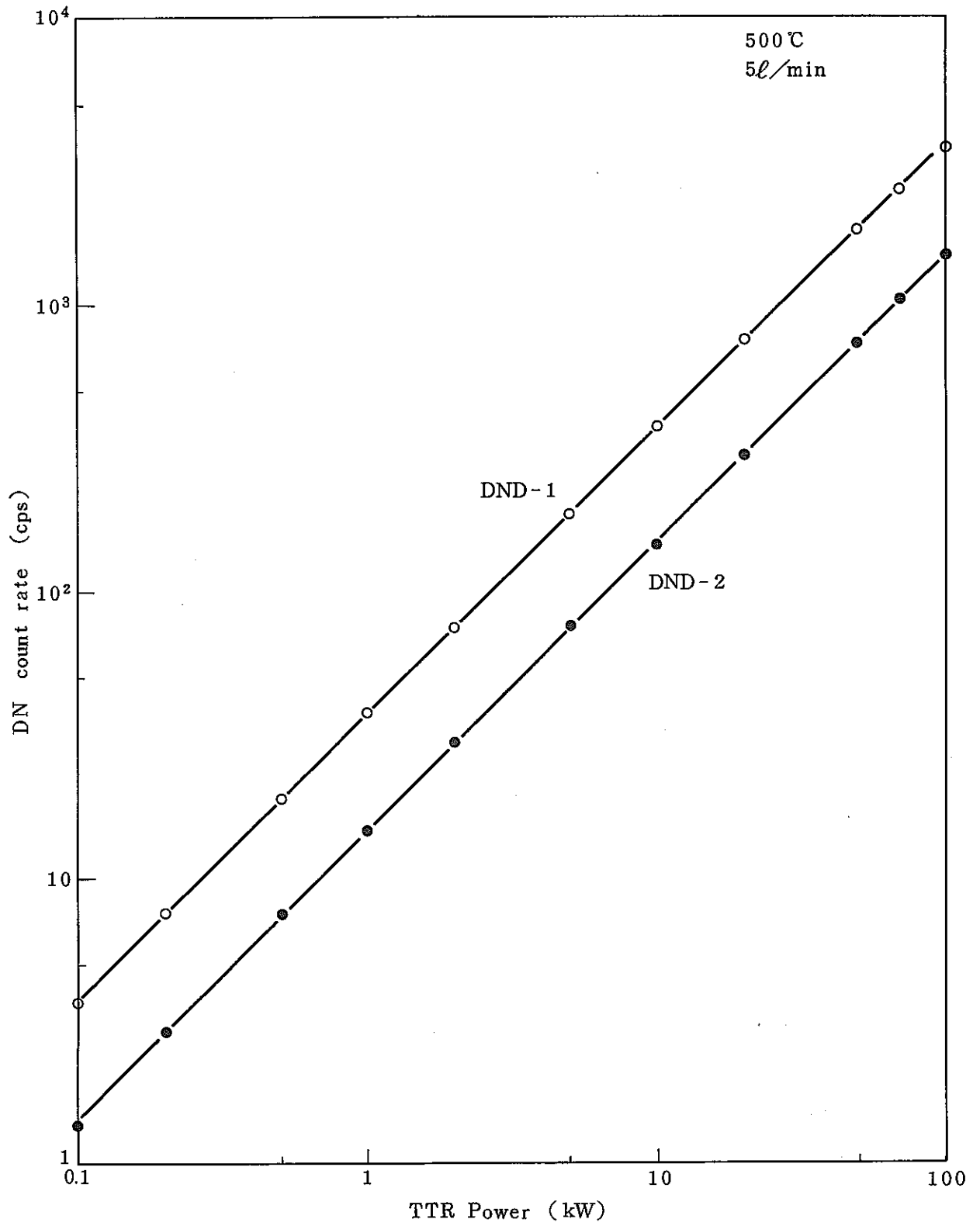
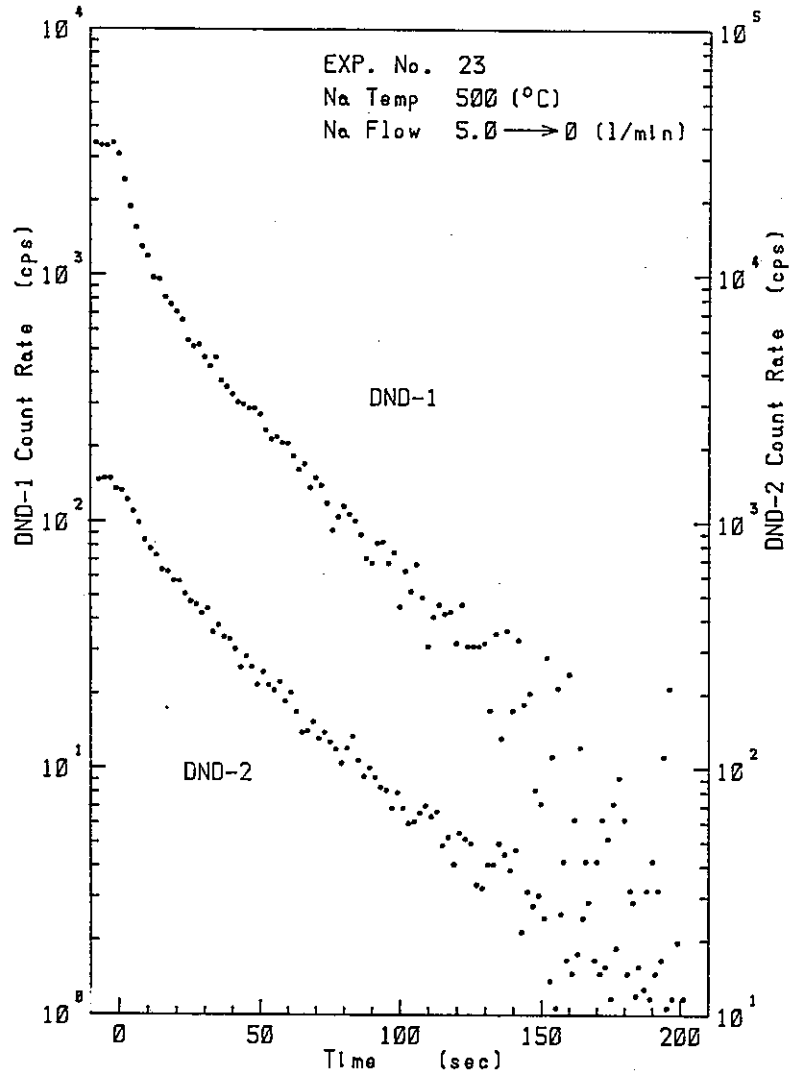
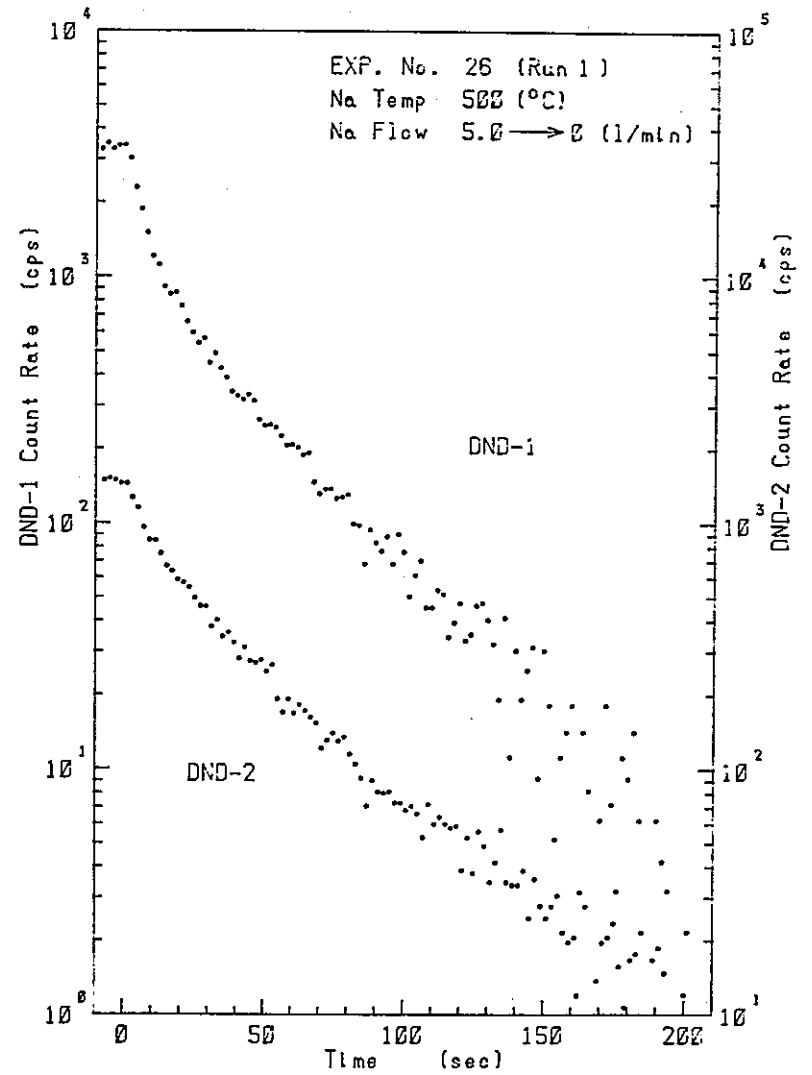


Fig. 7 - 2 Relationship between delayed neutron count rate and TTR power

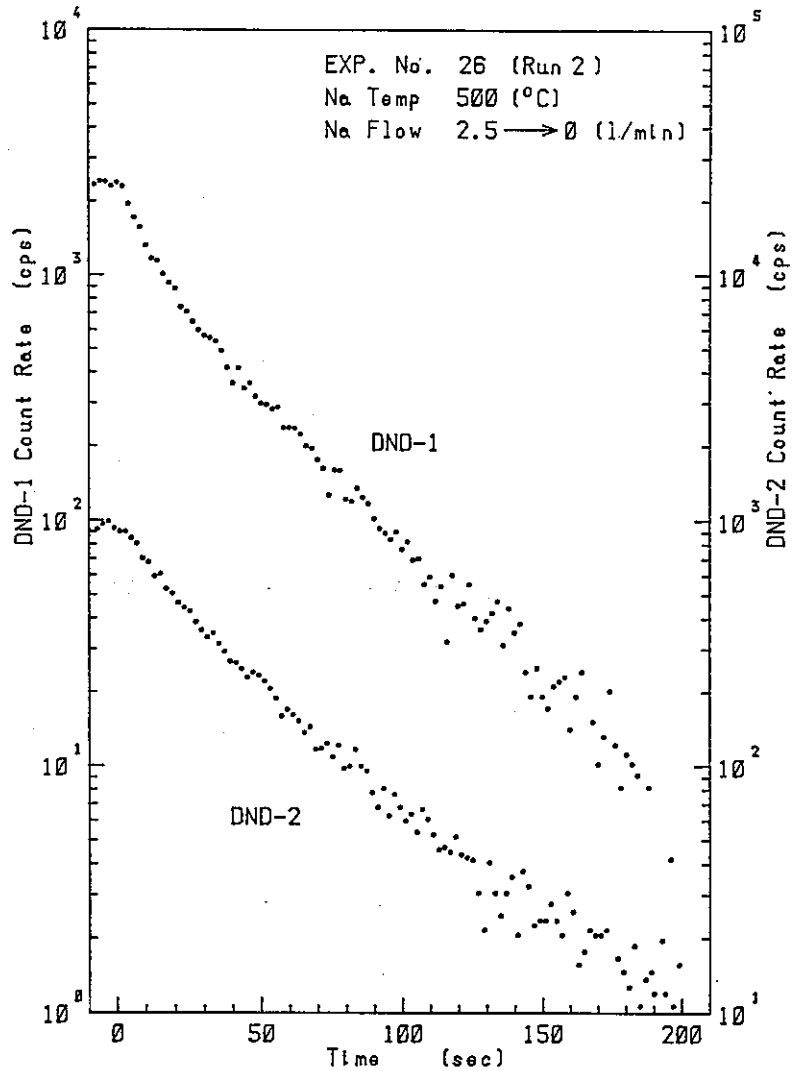


1) Exp. No. 23

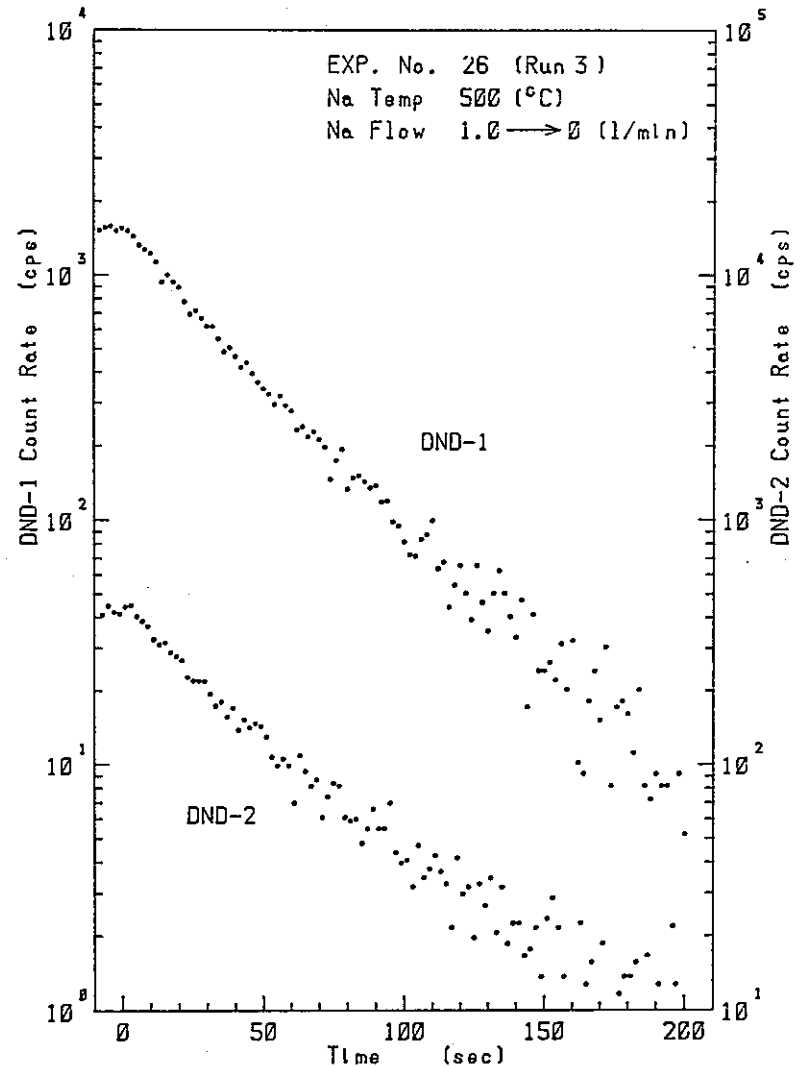


2) Exp. No. 26 (Run 1)

Fig. 7 - 3 Delayed neutron count rate during flow stop test

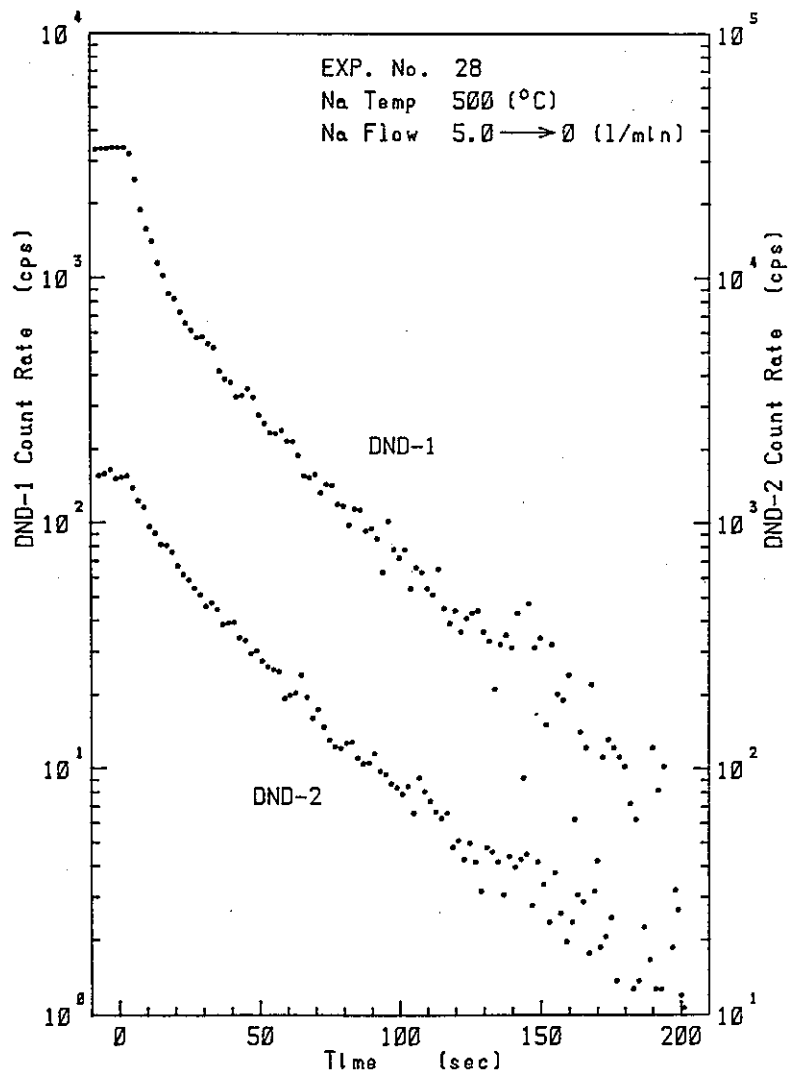


3) Exp. No. 26 (Run 2)



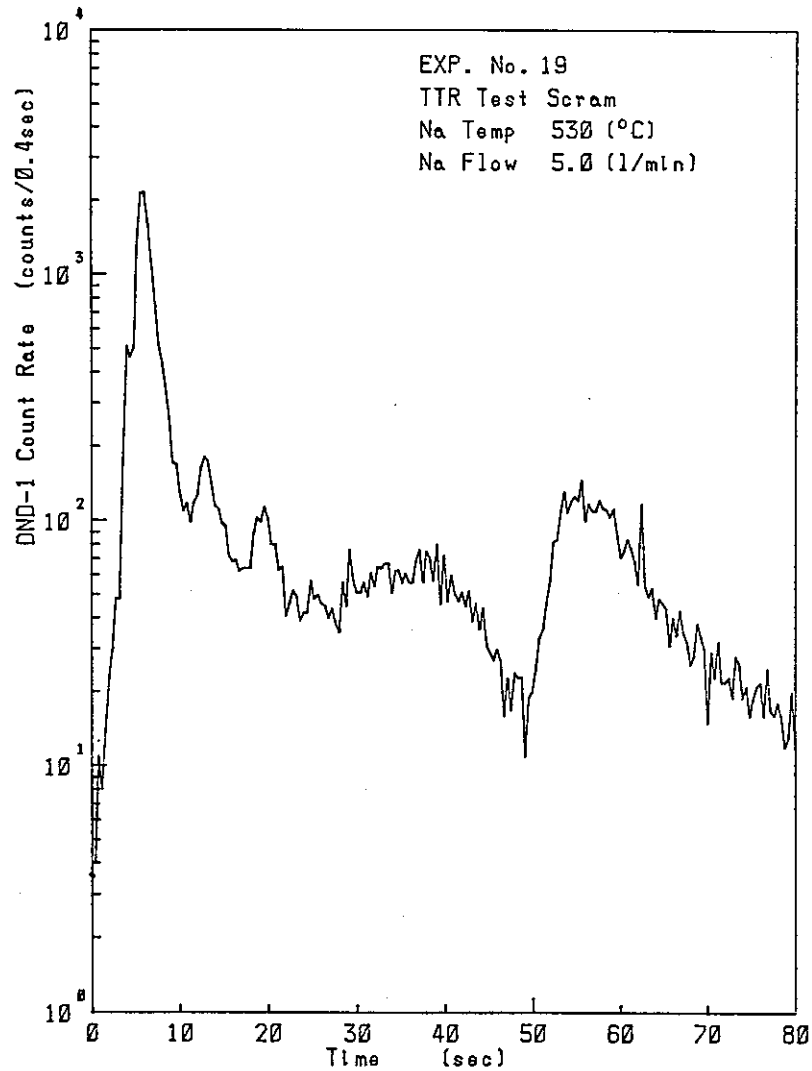
4) Exp. No. 26 (Run 3)

Fig. 7 - 3 (continued)

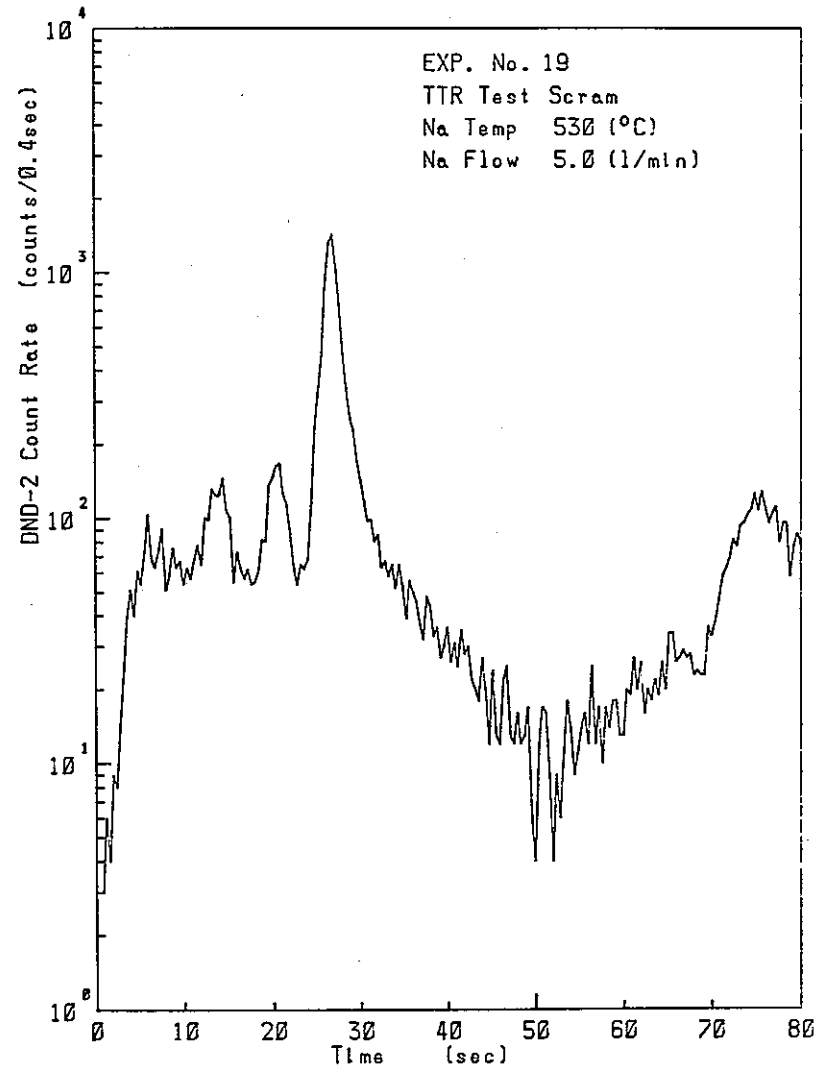


5) Exp. No. 28

Fig. 7 - 3 (continued)

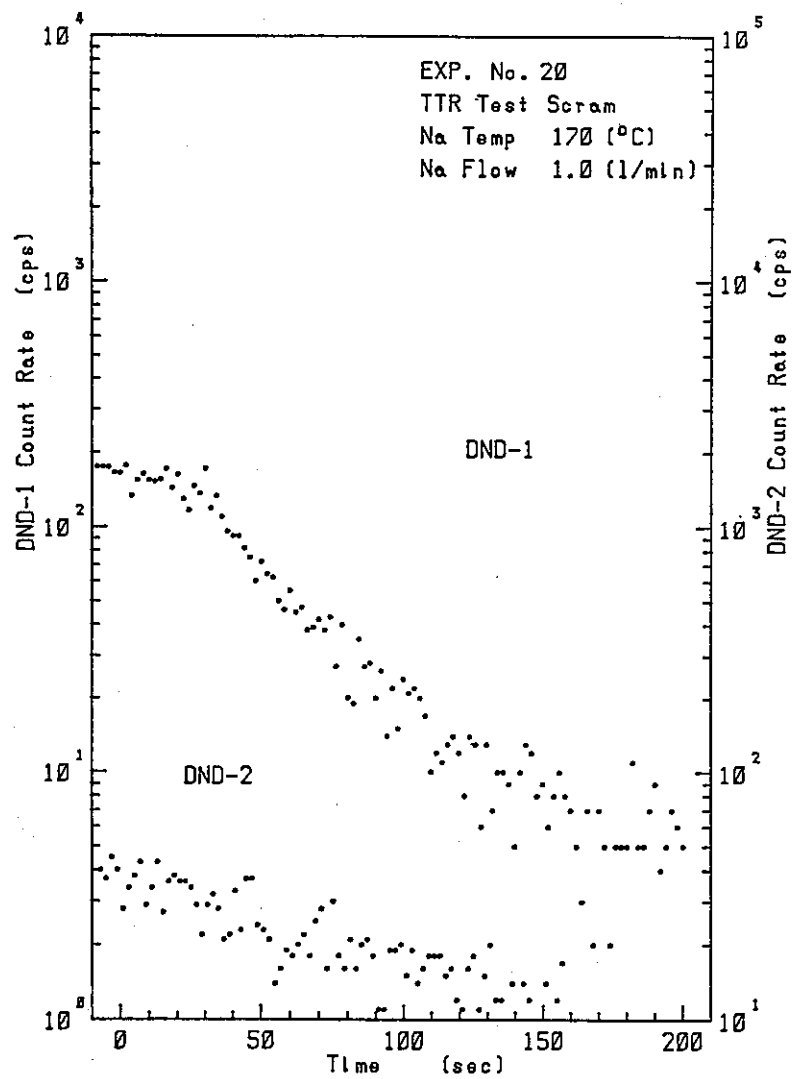


1) Exp. No. 19 (DND - 1)

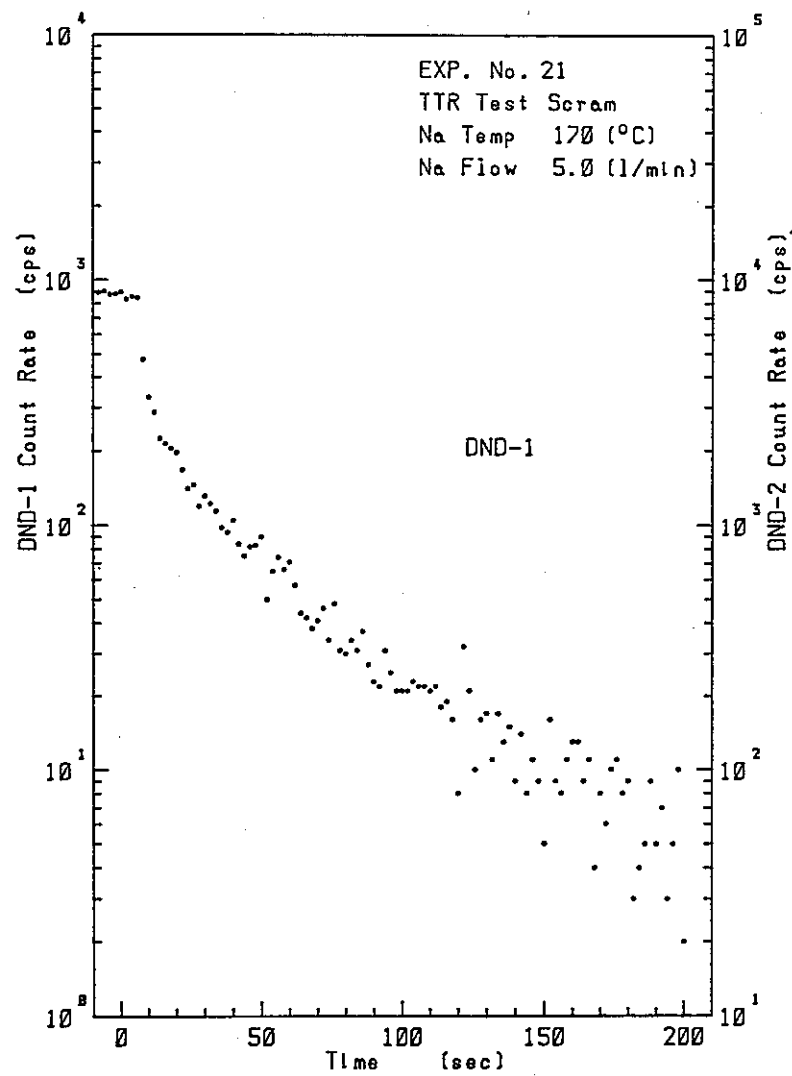


2) Exp. No. 19 (DND - 2)

Fig. 7 - 4 Delayed neutron count rate after TTR test scram

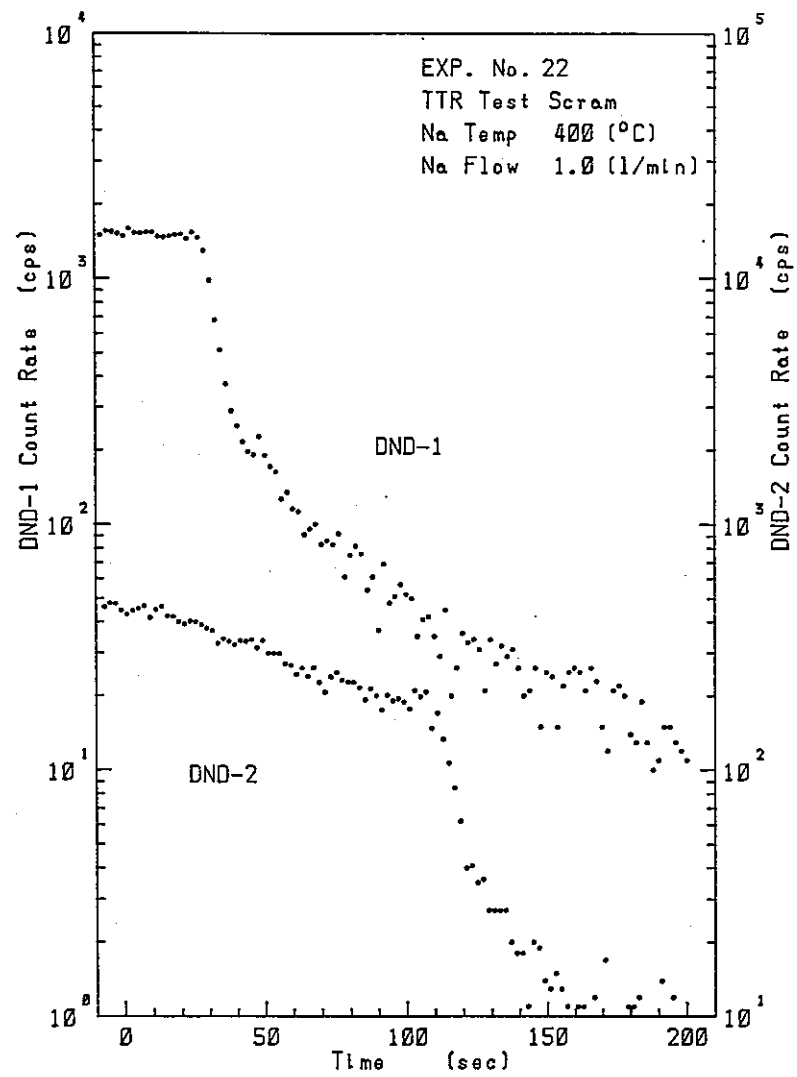


3) Exp. No. 20

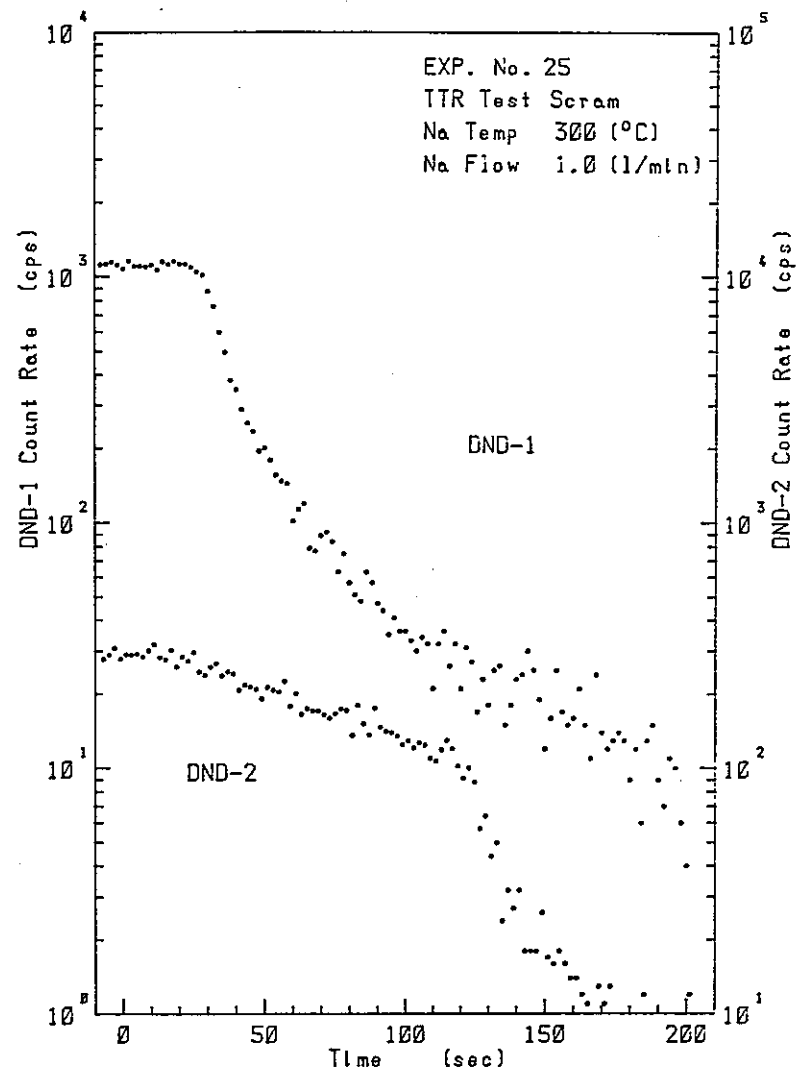


4) Exp. No. 21

Fig. 7 - 4 (continued)

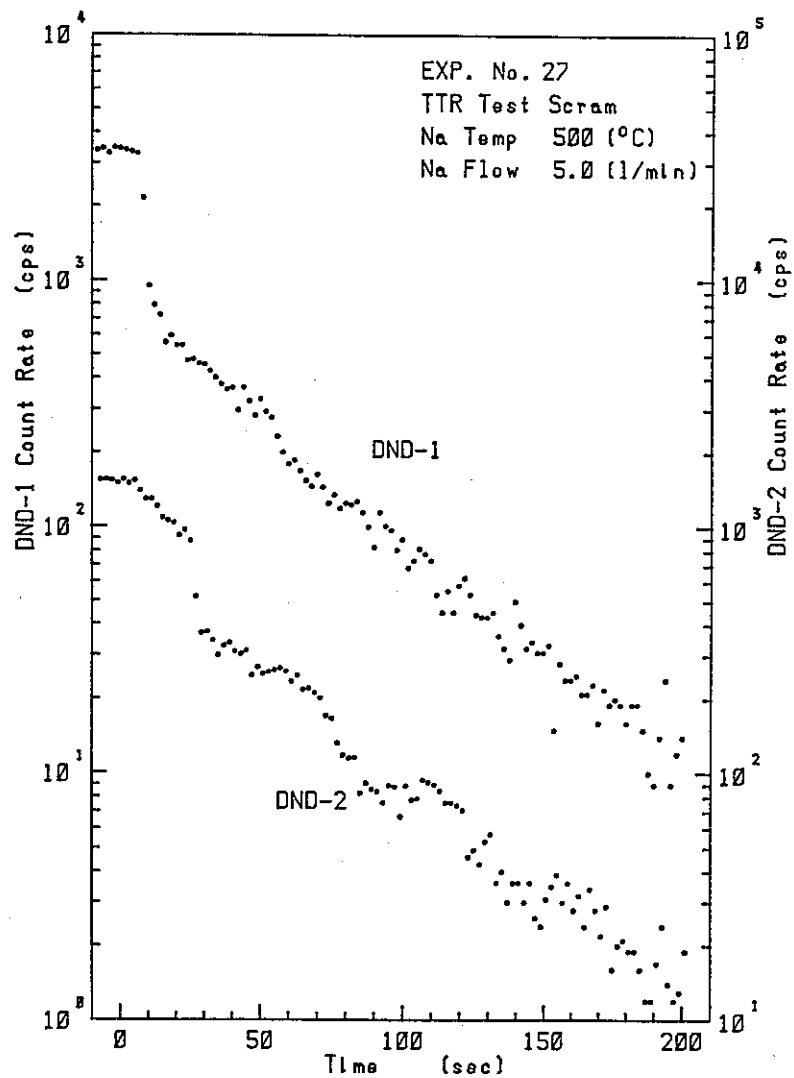


5) Exp. No. 22

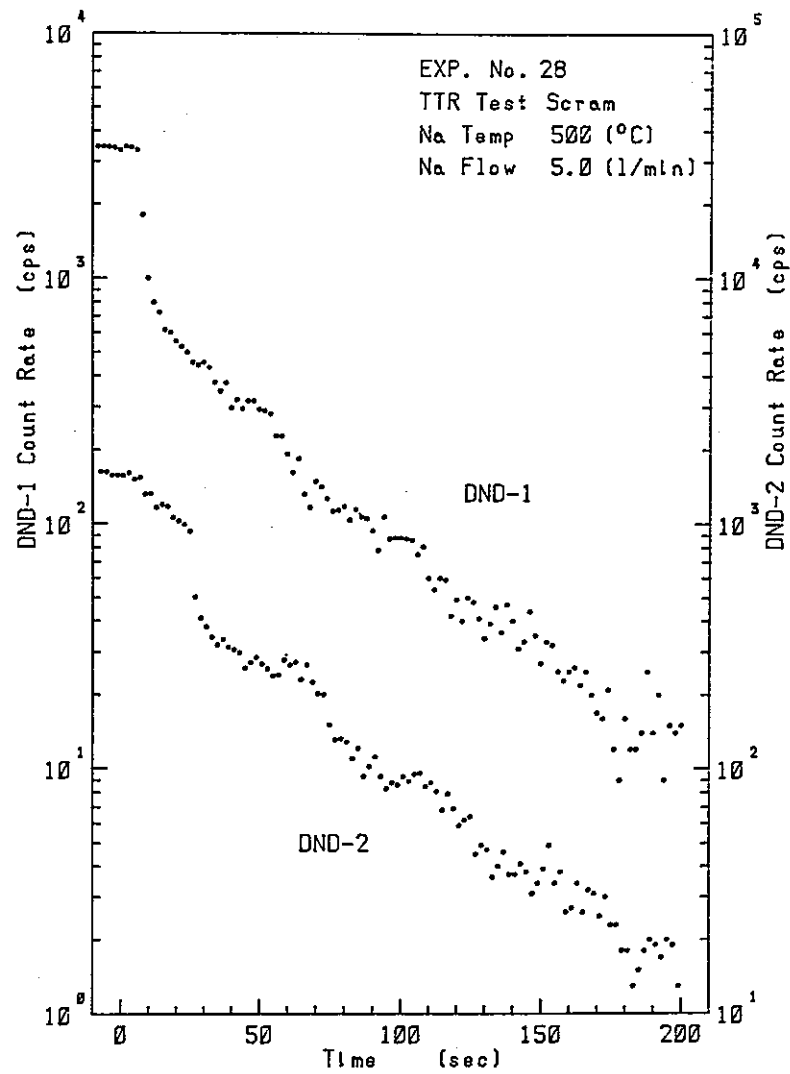


6) Exp. No. 25

Fig. 7 - 4 (continued)



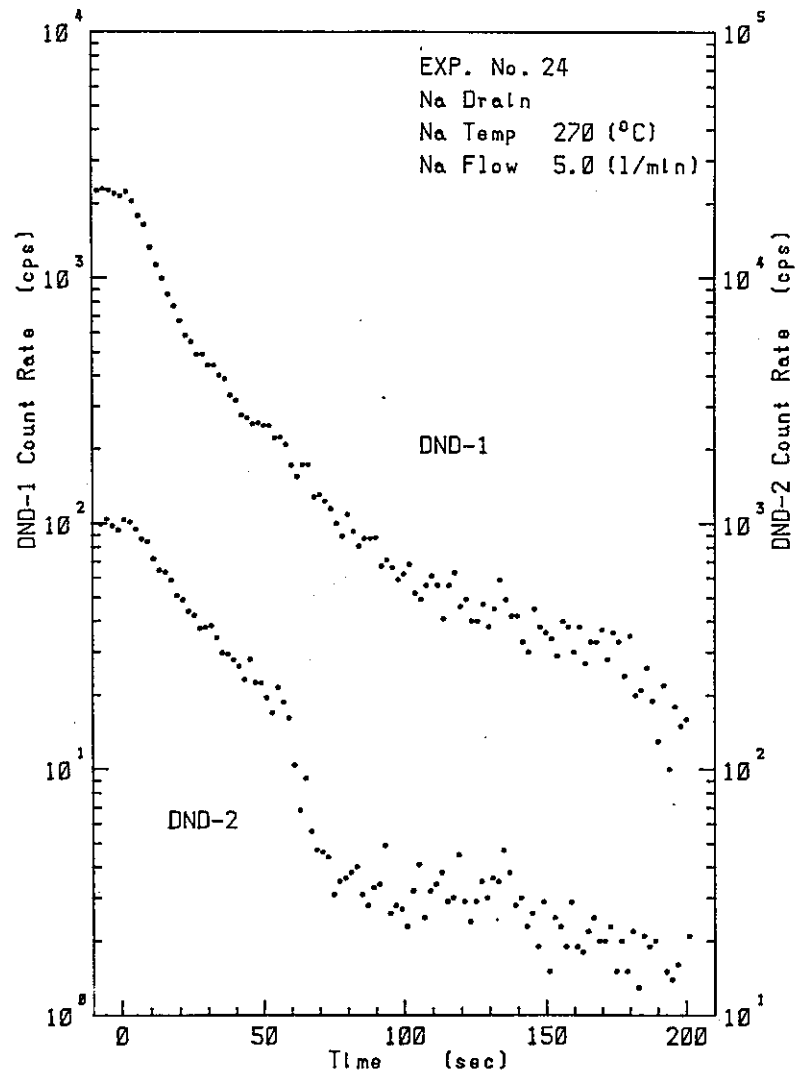
7) Exp. No. 27



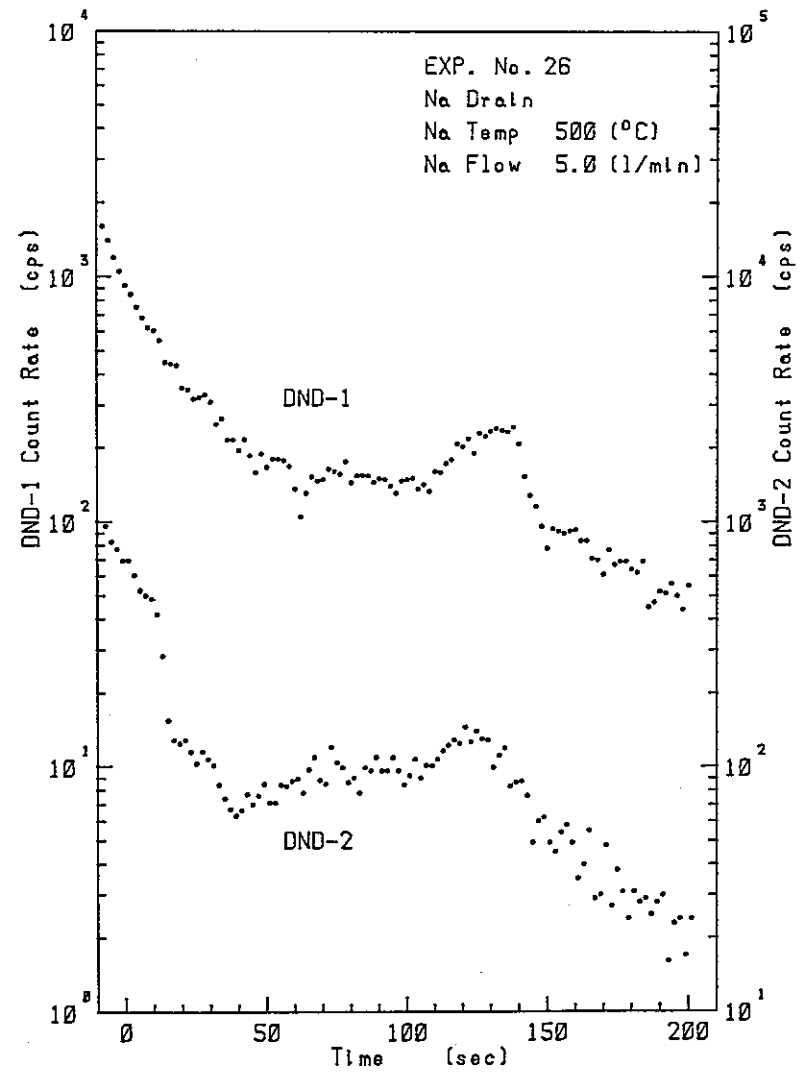
8) Exp. No. 28

Fig. 7 - 4 (continued)





1) Exp. No. 24



2) Exp. No. 26

Fig. 7 - 5 Delayed neutron count rate during sodium drain before TTR shut down

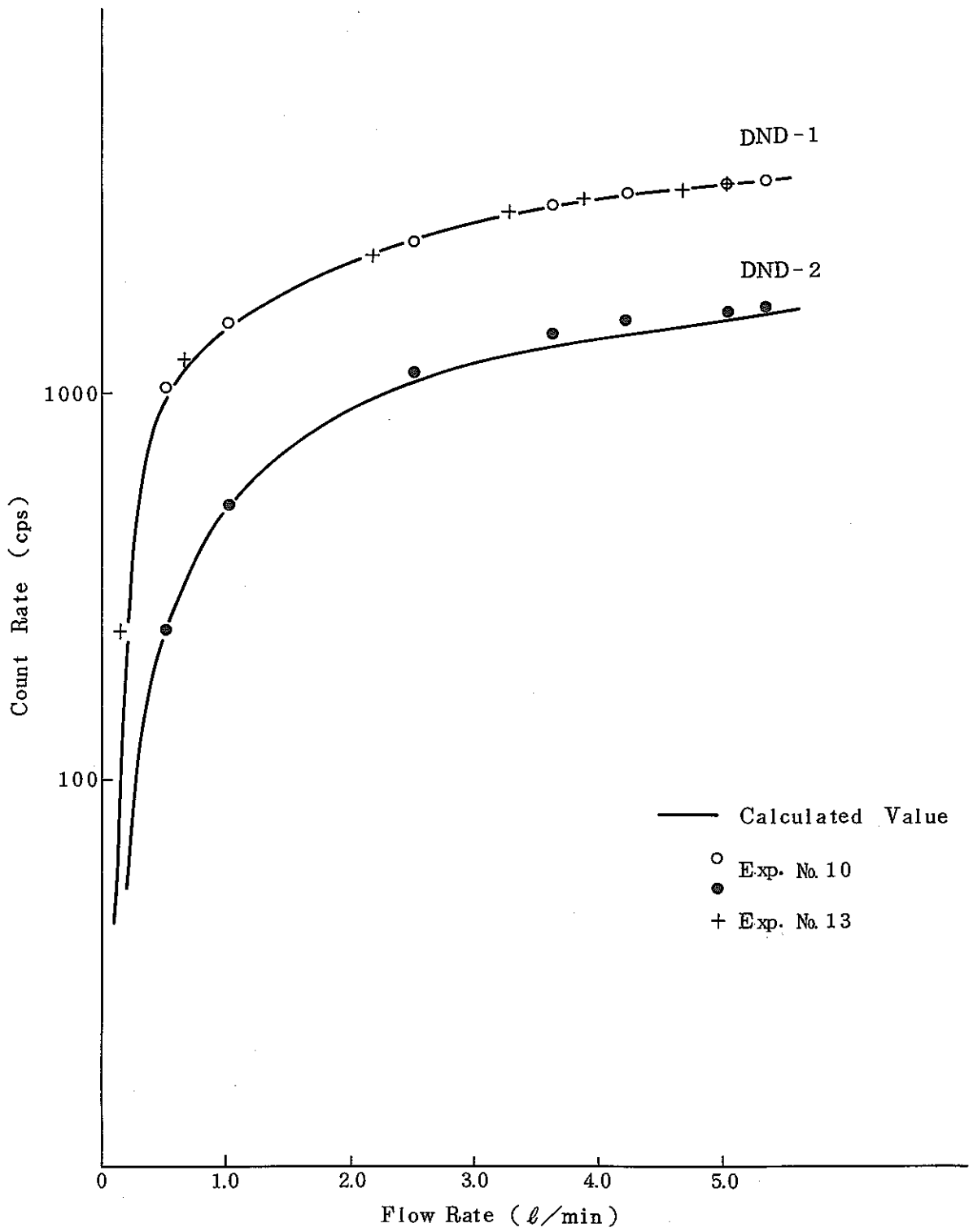


Fig. 7 - 6 Delayed neutron count rate vs. flow rate for both detectors

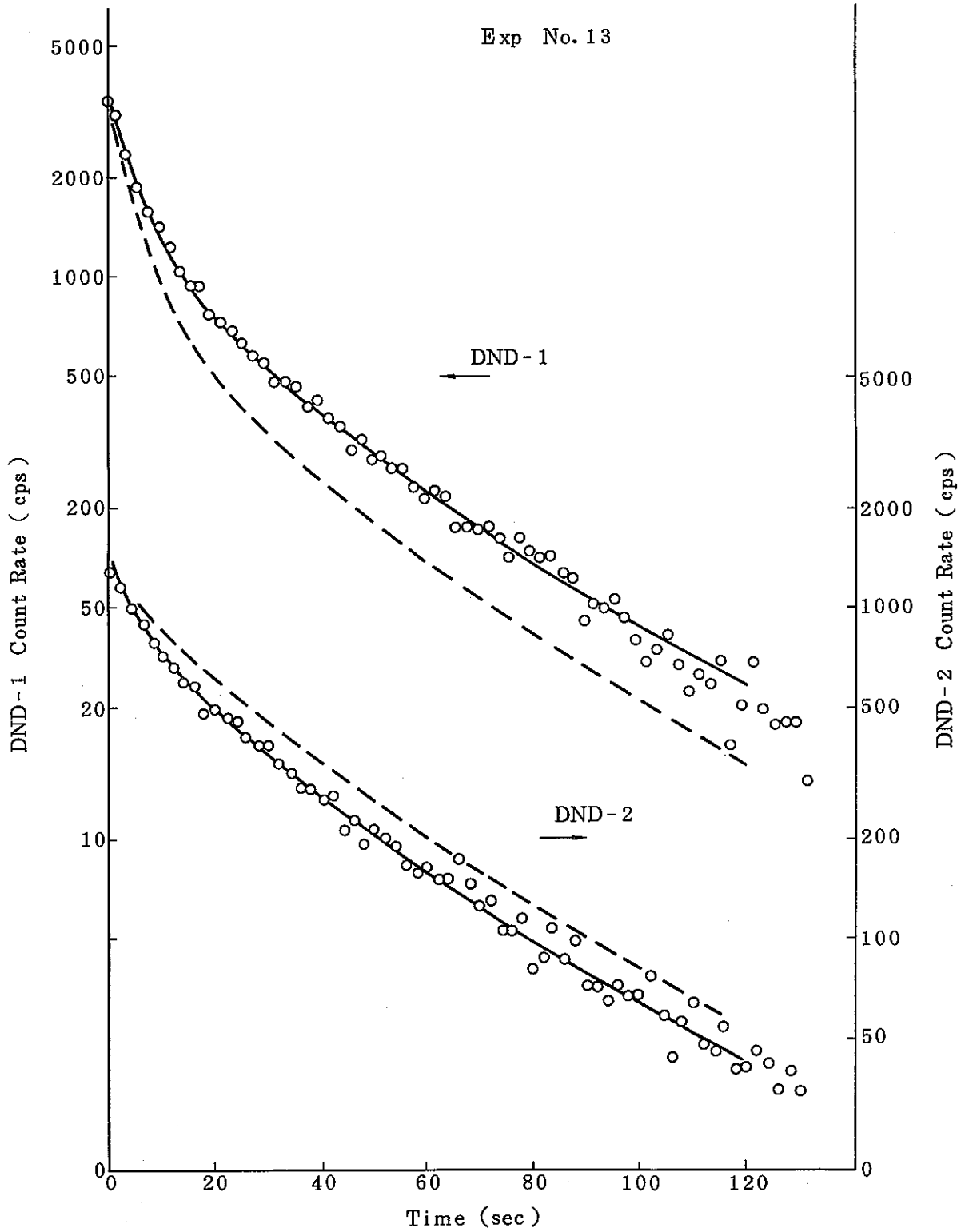


Fig. 7 - 7 Delayed neutron count rate and calculated value by using analytical model for both detectors during flow stop test

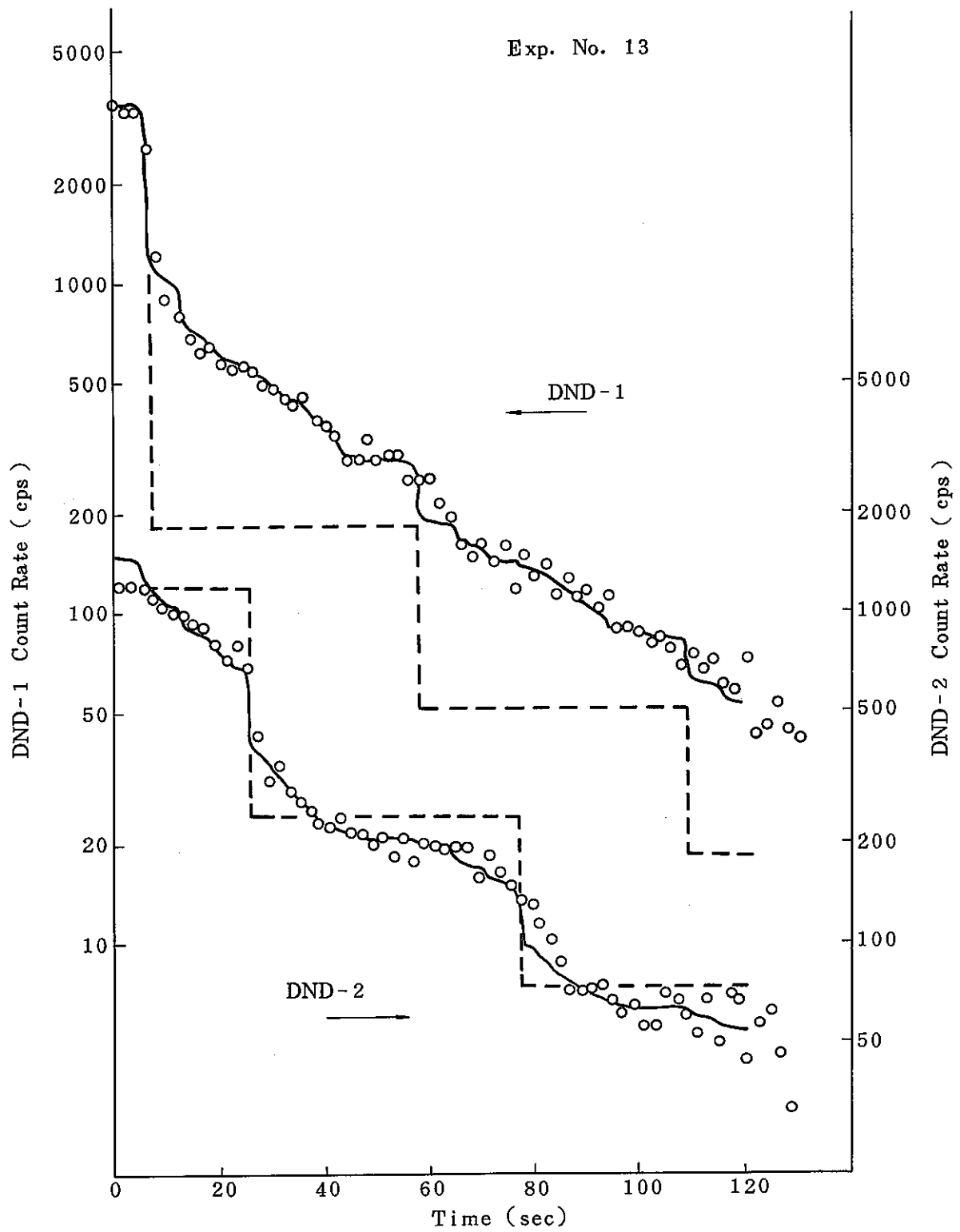


Fig. 7 - 8 Delayed neutron count rate and calculated value by using analytical model for both detectors after TTR test scram

## 8. 結 言

20%濃縮二酸化ウラン100gをウランカプセル内に装荷した炉内核分裂生成物挙動試験ループ(FPL-II)を使用してナトリウム中不揮発性FP及び遅発中性子放出FPの挙動を調べる実験を、昭和57年度より実施してきた。そして昭和57年度は15回、本年度は12回の照射試験を実施し、ナトリウム温度、ナトリウム流速をパラメーターとし、さらに本年度はナトリウム中の酸素濃度をパラメーターとして、放射線測定データを収集した。この間に測定された $\gamma$ 線スペクトル数は4Kのものが1500に達する膨大な量である。

これまでの不揮発性FPの沈着挙動の解析の結果、Sr, Y, Zr, Nb, Ba, Laのナトリウム中での挙動がほぼ明らかになった。各核種の沈着挙動は以下のとおりである。

1) Srの沈着は非可逆的である。しかも高温程沈着速度は大きい。

$^{92}\text{Sr}$ ,  $^{93}\text{Sr}$ ,  $^{94}\text{Sr}$ のループ内沈着分布から、沈着速度定数がそれぞれ求められた。各同位体の沈着速度定数はよく一致し、同位体効果は認められない。Srの沈着速度定数のArrheniusプロットから、沈着過程の活性化エネルギーが $-13 \pm 1$  (KJ/g-atom)と算出され、Srの沈着速度は、配管内壁近傍のナトリウム中に存在する境界層中のSrの拡散過程により支配されることが結論された。

2) Yは、Srとほぼ同一の沈着挙動を示し、その沈着速度定数は、200°Cから500°Cのナトリウム温度範囲でほぼ完全にSrの値と一致した。

3) Zrについては、一旦沈着したZrの脱着が起っている可能性があることがわかった。尚、脱着現象を含むZrのみかけの沈着速度定数は、200°Cから500°Cの場合で温度依存性を示さず、高温のナトリウム中では、Srの沈着速度より小さい。

4) Nbは、高温のナトリウム中では沈着挙動を示さない。

5) Baは、ナトリウム温度が400°C付近でSrと同程度の沈着速度を示すが、沈着速度定数の温度依存性はSrに比べて小さい。

6) Laは、Baとほとんど同一の沈着挙動を示す。

以上述べてきたように、不揮発性FPの主な核種について、その沈着挙動がほぼ明らかになった。今後は、高酸素濃度ナトリウム中の沈着挙動及び、一旦壁面に沈着したFPの脱着挙動を明らかにしていく必要がある。このように不揮発性FPの沈着挙動が明らかになったことにより、大型FBRプラント内FPの沈着分布及びその線量率等の評価が可能になると思われる。

FPL-IIの $\gamma$ 線測定により、上記不揮発性FPの他に、Br, Kr, I, 等の揮発性FPの $\gamma$

線も非常に強く明瞭に多数が検出される。これらの $\gamma$ 線ピークのうち、 $^{86}\text{Br}$ 、 $^{88}\text{Br}$ 、 $^{90}\text{Kr}$ 、 $^{89}\text{Rb}$ 、 $^{134}\text{Te}$ 、 $^{136\text{m}}\text{I}$ 、 $^{139}\text{Xe}$ 、 $^{140}\text{Xe}$ の8核種を選び、照射試料部表面からナトリウム中へのFPの放出率を求め、さらに、recoilモデルで計算される放出率との比(k factor)を算出した。その結果、得られたk factorは、質量数及び核種にほとんど依存せず、ほぼ0.4という値であった。

破損燃料検出系の性能評価にとって重要である遅発中性子(DN)放出核種の移行挙動をループに設置された2台のDN検出器で測定した。2箇所の測定位置におけるDN計数率の比から、DN核種のナトリウム中の移行挙動を推定した。その結果、ナトリウム温度が270℃までは、ほとんどステンレス表面への吸着はみとめられなかったが、225℃になると下流側の計数率の減少率が大きくなり、170℃ではこの減少率がさらに大きくなった。このことから、225℃以下で、DN核種のステンレス表面への吸着速度が無視できなくなり、さらに低温になるにつれて吸着速度が増すという結果が得られた。一方DN計数率を用いて、前述したk factorの値を算出し、0.59という値を得たが、この値は、揮発性FPの $\gamma$ 線測定結果から得られた値より大きくなった。一般にはk factorは1より大きいことが知られているので、今後、これらの点を検討する必要がある。

## 9. 参 考 文 献

- 1) 酒井拓彦, 原 世悦, 他: " 炉内ループによるFP挙動試験(受託研究) "  
SJ 201 83-05 (1983)
- 2) N.V. Krasnoyarov et al: CONF-760503 pp. 30-34 (1976)
- 3) 酒井拓彦, 小野 清, 他: " SILの放射性物質の挙動解析(受託研究) "  
SJ 201 79-06 (1979)
- 4) M.H. Cooper and G.R. Taylor: " A transport model for radioactive corrosion product deposition in an LMFBR ", Nucl. Eng. Des., 52, 246 (1975)
- 5) 三塚哲正, 他: " インパイルループによるNa中核分裂生成物の挙動研究 "  
東芝レビュー, 34巻, 4号 (1979)
- 6) R.L. Eichelberger: " Solubility of oxygen in liquid sodium: a recommended expression ", AI-AEC-12685 (1968)
- 7) C.M. Lederer et al: " Table of Isotopes ", seventh edition, John Willey & sons, inc., New York (1978)
- 8) R.F. Rider: " Compilation of fission product yields ", NEDO-12154-3(A) (1979)
- 9) R.E. Treybal: " Mass transfer operations ", McGraw-Hill, New York (1965)
- 10) N.H. Nachtrieb: " Self diffusion in liquid metals ", Advan. Phys., 16, 309 (1967)
- 11) M.H. Cooper and G.R. Taylor: " Adsorption and diffusion of  $^{137m}\text{Ba}$  from Na- $^{137}\text{Cs}$  solution ", Trans. Am. Nucl. Soc., 12, 57 (1969)
- 12) B.G. Childs, " Fission product effects in uranium dioxide ", Jour. Nucl. Mat., 9, No.3 (1963)
- 13) 宮沢 他: " 破損燃料検出系の破損信号評価法の開発 ", SJ 201 82-18(1) (1982)
- 14) T. Izak-Biran and S. Amiel, Nucl. Sci. and Eng., 57, 117 (1975)

## Appendix A FPL-IIの照射熱中性子束の算出

### A.1 緒言

炉内核分裂生成物挙動試験ループ (FPL-II)のインパイルプラグ先端部 (主にウランカプセル)を流れるナトリウムは、東芝教育訓練用原子炉 (TTR)の熱中性子の照射により放射化され、 $^{24}\text{Na}$ が生成する。 $^{24}\text{Na}$ の半減期は15時間で、ナトリウムがループを1回循環するのに要する時間 (48~480秒)に比べて非常に長いため、 $^{24}\text{Na}$ はディレイライン等の主循環ループに均一に分布している。そこで、ディレイライン部で計測された $^{24}\text{Na}$ の放射能からその生成量を求め、この生成量をもとにTTR定格出力 (100 kW)時におけるウランカプセル部の熱中性子束を算出した。その結果、TTR定格出力時におけるウランカプセル部の熱中性子束は $7.9 \times 10^9 \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ であった。この値は、FPL-Iの照射済二酸化ウランの $\gamma$ 線計測により得た熱中性子束 $9.5 \times 10^9 \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ と同程度である。

### A.2 熱中性子束の算出

#### i) 照射実験により得られた $^{24}\text{Na}$ の生成量

$^{24}\text{Na}$ の生成量の計算には、実験3, 4 (Na温度 $350^\circ\text{C}$ , 流量 $5 \text{ l/min}$ ), 実験5, 6 (同 $420^\circ\text{C}$ ,  $5 \text{ l/min}$ ), 実験7 (同 $500^\circ\text{C}$ ,  $5 \text{ l/min}$ ), 実験8 (同 $530^\circ\text{C}$ ,  $5 \text{ l/min}$ )および実験14, 16 (同 $530^\circ\text{C}$ ,  $1 \text{ l/min}$ )で得られた $^{24}\text{Na}$ の1368.5 KeVの $\gamma$ 線ピークの計数率を用いた。ディレイラインと $\gamma$ 線計測点D-2~D-9で計測した $\gamma$ 線スペクトルより $^{24}\text{Na}$ の1368.5 KeVの $\gamma$ 線ピークの計数率を求めた。尚、この計数率は、4時間にわたった照射が終了した時点に壊変補正した値である。Fig. A-1及びA-2にディレイラインにおける $^{24}\text{Na}$ の分布を示す。横軸の距離はウランカプセルからの距離である。

$^{24}\text{Na}$ の生成量は、ディレイラインにおける1368.5 KeVの $\gamma$ 線ピークの計数率の平均値を $\bar{C}_r$ とすると、次式で与えられる。

$$N_e = \bar{C}_r \times \frac{3.7 \times 10^4}{f_r \cdot f_e \cdot V} V_T$$

ここで、



Ne :  $^{24}\text{Na}$  の生成量 ( dps )

$f_r$  : 1368.5 KeV の  $\gamma$  線 の分岐率 ( - )

$f_e$  : 1368.5 KeV の  $\gamma$  線 に対する検出効率 ( cps · cm /  $\mu\text{Ci}$  )

V : ディレイラインの単位長さ当りのナトリウム体積 (  $\text{cm}^3 / \text{cm}$  )

$V_T$  : 主循環ループ部のナトリウム体積 (  $\text{cm}^3$  )

である。

$f_r = 1.0$  ,  $f_e = 15.64^*$  ( cps · cm /  $\mu\text{Ci}$  ) ,  $V = 0.694$  (  $\text{cm}^3 / \text{cm}$  ) ,  $V_T = 3979$  (  $\text{cm}^3$  ) を代入して求めた  $^{24}\text{Na}$  の生成量を Table A-1 の第 6 欄に示す。

照射実験により得られた  $^{24}\text{Na}$  の生成量は  $3.84 \times 10^8 \sim 4.63 \times 10^8$  ( dps ) である。

## ii) 計算上の $^{24}\text{Na}$ の生成量

ウランカプセル内のナトリウムが熱中性子により一様に照射されるとすると,  $^{24}\text{Na}$  の生成量  $N_c$  ( dps ) は次式で与えられる。

$$N_c = N_0 \cdot \sigma \cdot \phi ( 1 - e^{-\lambda \cdot t} )$$

ここで,

$N_0$  : 照射される  $^{23}\text{Na}$  の原子数 ( atoms )

$\sigma$  :  $^{23}\text{Na} ( n, \gamma ) ^{24}\text{Na}$  反応断面積 (  $\text{cm}^2$  )

$\phi$  : 熱中性子束 ( n /  $\text{cm}^2 \cdot \text{sec}$  )

$\lambda$  :  $^{24}\text{Na}$  の壊変定数 ( 1 / sec )

t : 照射時間 ( sec )

である。また  $^{23}\text{Na}$  の原子数  $N_0$  は,

$$N_0 = 6.02 \times 10^{23} \frac{\rho \cdot V_I}{M}$$

である。ここで,

$\rho$  : ナトリウムの密度 ( g /  $\text{cm}^3$  )

$V_I$  : 照射されるナトリウムの体積 (  $\text{cm}^3$  )

M : ナトリウムの分子量 ( g )

である。

---

注\*)  $\gamma$ 線計測体系のモックアップと  $^{152}\text{Eu}$  標準線源を用いて求めた値。

ナトリウム温度 350 °C, 420 °C, 500 °C および 530 °C で, 4 時間中性子照射を行った場合の  $^{24}\text{Na}$  の生成量  $N_c$  (dps) を, 熱中性子束  $\phi$  を未知数とし,

$$\rho = 0.864 (350^\circ\text{C}), 0.851 (420^\circ\text{C}), 0.832 (500^\circ\text{C}), 0.824 (530^\circ\text{C})$$

$$V_T = 30$$

$$M = 22.99$$

$$\sigma = 5 \times 10^{-25}$$

$$\lambda = 1.283 \times 10^{-5}$$

$$t = 1.44 \times 10^4$$

を代入して計算すると,  $5.75 \times 10^{-2} \phi (350^\circ\text{C}) \sim 5.47 \times 10^{-2} \phi (530^\circ\text{C})$  である。計算の結果を Table A-1 の第 7 欄に示す。

### iii) 熱中性子束の算出

照射実験により得られた  $^{24}\text{Na}$  の生成量  $N_e$  と計算により求めた生成量  $N_c$  は本来等しいため  $N_e = N_c$  である。 $N_c = N_c' \cdot \phi$  とすると熱中性子束  $\phi$  は,  $\phi = N_e / N_c'$  で求まる。この方法により求めた熱中性子束を Table A-1 の 8 欄と Fig. A-3 に示す。

ウランカプセル部の熱中性子束は実験 4 ~ 実験 16 では  $7.74 \times 10^9 \sim 7.99 \times 10^9$  n/cm<sup>2</sup>·sec の範囲内にあるが, 実験 3 だけは  $6.67 \times 10^9$  n/cm<sup>2</sup>·sec と小さい。実験 4 ~ 実験 16 の平均値をとると, ウランカプセル部の熱中性子束を  $7.9 \times 10^9$  n/cm<sup>2</sup>·sec である。

尚  $^{23}\text{Na}$  の核反応では, 中性子エネルギーが 3 KeV 付近に, (n,  $\gamma$ ) 反応の共鳴ピークが存在することが知られている。<sup>\*1)</sup> この共鳴ピークの核反応断面積は 0.245 barn である。前述したように, 熱中性子に対する (n,  $\gamma$ ) の核反応断面積は 0.5 barn である。ところで TTR 照射孔内の中性子スペクトルは正確には求められていないが, 3 KeV の共鳴中性子を含む中速中性子束は熱中性子束の約 1/4 であることが知られている。<sup>\*2)</sup> そこで, この中速中性子束をすべて 3 KeV の共鳴エネルギーを持った中性子であると仮定すると, 核反応断面積が熱中性子の約 1/2 であることから, 熱中性子により生成する  $^{24}\text{Na}$  の量に対して約 1/8 の生成量の寄与を与える。しかし 3 KeV の共鳴ビ

---

\*1) D. I. Garber and R. R. Kinsey: "Neutron cross sections", BNL 325  
Third Edition, Volume II (1976)

\*2) 東芝レビュー 16 巻, 9号 (1961)

ーク以外の中，高速中性子に対する（ $n, \gamma$ ）の核反応断面積は数 mbarn から 100 mbarn 程度であるため，上記の値が上限値である。従って， $^{23}\text{Na}$  の（ $n, \gamma$ ）により生成する  $^{24}\text{Na}$  の中，高速中性子による寄与は，熱中性子による寄与の 12 % 程度であって圧倒的に熱中性子により生成する量が多いことになり， $^{24}\text{Na}$  の生成に対する中，高速中性子の寄与は無視し， $^{24}\text{Na}$  はすべて熱中性子により生成したものと仮定してさしつかえないものと考えられる。

### A.3 結 言

照射実験で得た  $^{24}\text{Na}$  の放射能をもとに，TTR の定格出力（100 kW）時におけるウランカプセル部の熱中性子束を算出した結果，熱中性子束は  $7.9 \times 10^9 \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$  であった。これまでに，インパイルプラグを設置した状態でのウランカプセル部における熱中性子束を求めた例としては，FPL-II の設置直前に解体・撤去した FPL-I の照射済二酸化ウランの  $\gamma$  線計測により求めた例がある<sup>\*</sup>。FPL-II と FPL-I では，ウランカプセルの形状，寸法に大きな相違はなく，インパイルプラグ内の設置位置も同じである。この計測の結果では，ウランカプセル部における熱中性子束は  $9.5 \times 10^9 \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$  であった。今回得た熱中性子束は，この値と同程度である。

---

注\*) 東芝社内報

TableA - 1 Thermal neutron flux

Exp No	Na Temp. (°C)	Na Flow (ℓ/min)	Na Dens. $\rho$ (g/cm <sup>3</sup> )	Count Rate $\bar{C}_r$ (cps)	Production Rate Ne(dps)	Production Rate Nc(dps)	T.Neutron Flux. $\phi$ (n/cm <sup>2</sup> ·sec)
3	350	5	0.864	28.29 ± 0.20	3.84 × 10 <sup>8</sup>	5.75 × 10 <sup>-2</sup> $\phi$	6.67 × 10 <sup>9</sup>
4				33.07 ± 0.21	4.49 × 10 <sup>8</sup>		7.80 × 10 <sup>9</sup>
5	420	5	0.851	33.21 ± 0.19	4.50 × 10 <sup>8</sup>	5.64 × 10 <sup>-2</sup> $\phi$	7.99 × 10 <sup>9</sup>
6				33.04 ± 0.18	4.48 × 10 <sup>8</sup>		7.94 × 10 <sup>9</sup>
7	500	5	0.832	32.00 ± 0.21	4.34 × 10 <sup>8</sup>	5.51 × 10 <sup>-2</sup> $\phi$	7.87 × 10 <sup>9</sup>
8	530	5		31.90 ± 0.19	4.33 × 10 <sup>8</sup>	5.47 × 10 <sup>-2</sup> $\phi$	7.92 × 10 <sup>9</sup>
14		1	0.824	31.19 ± 0.41	4.23 × 10 <sup>8</sup>		7.74 × 10 <sup>9</sup>
16				31.50 ± 0.21	4.27 × 10 <sup>8</sup>		7.82 × 10 <sup>9</sup>

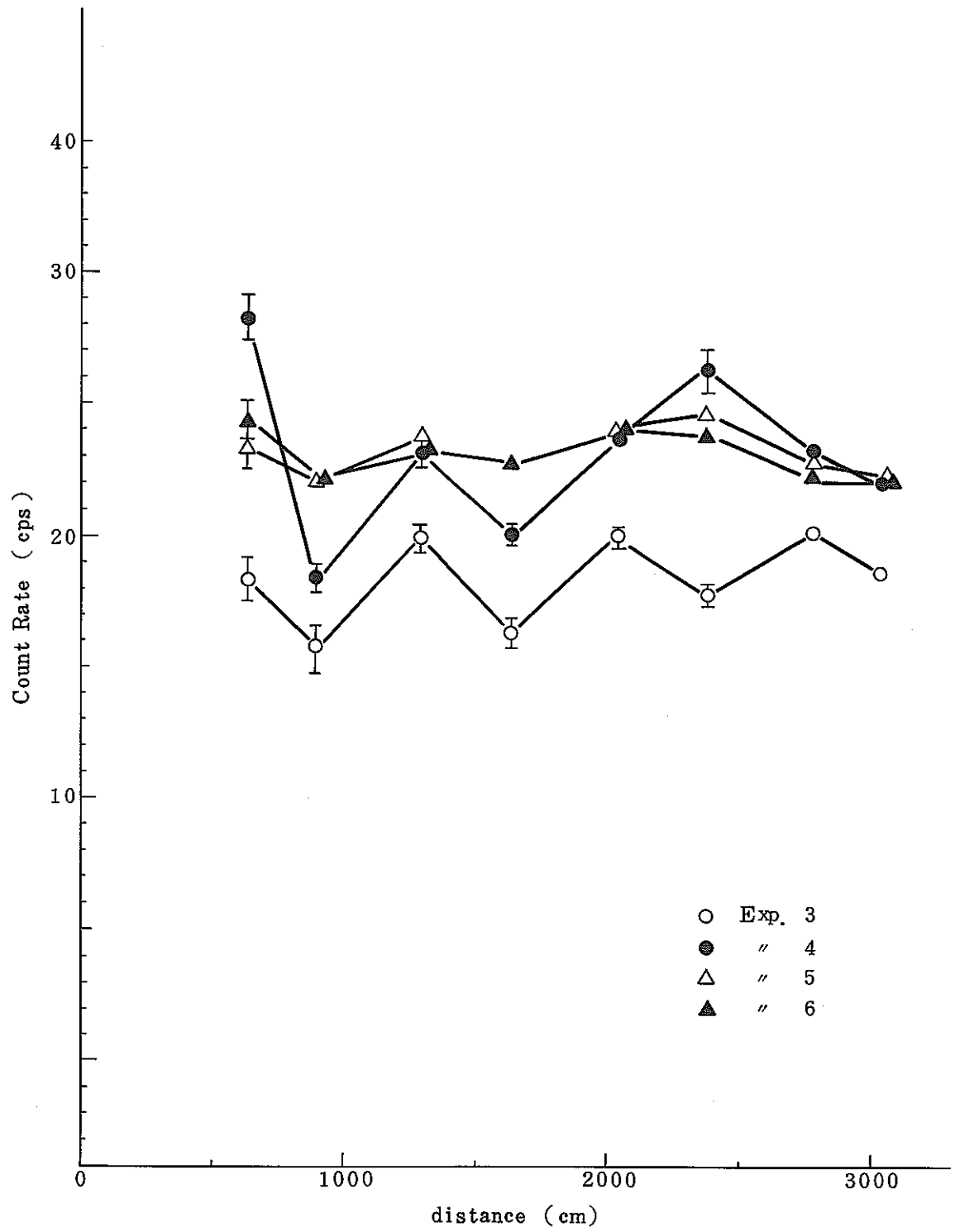


Fig. A - 1  $^{24}\text{Na}$  distribution along the delay line

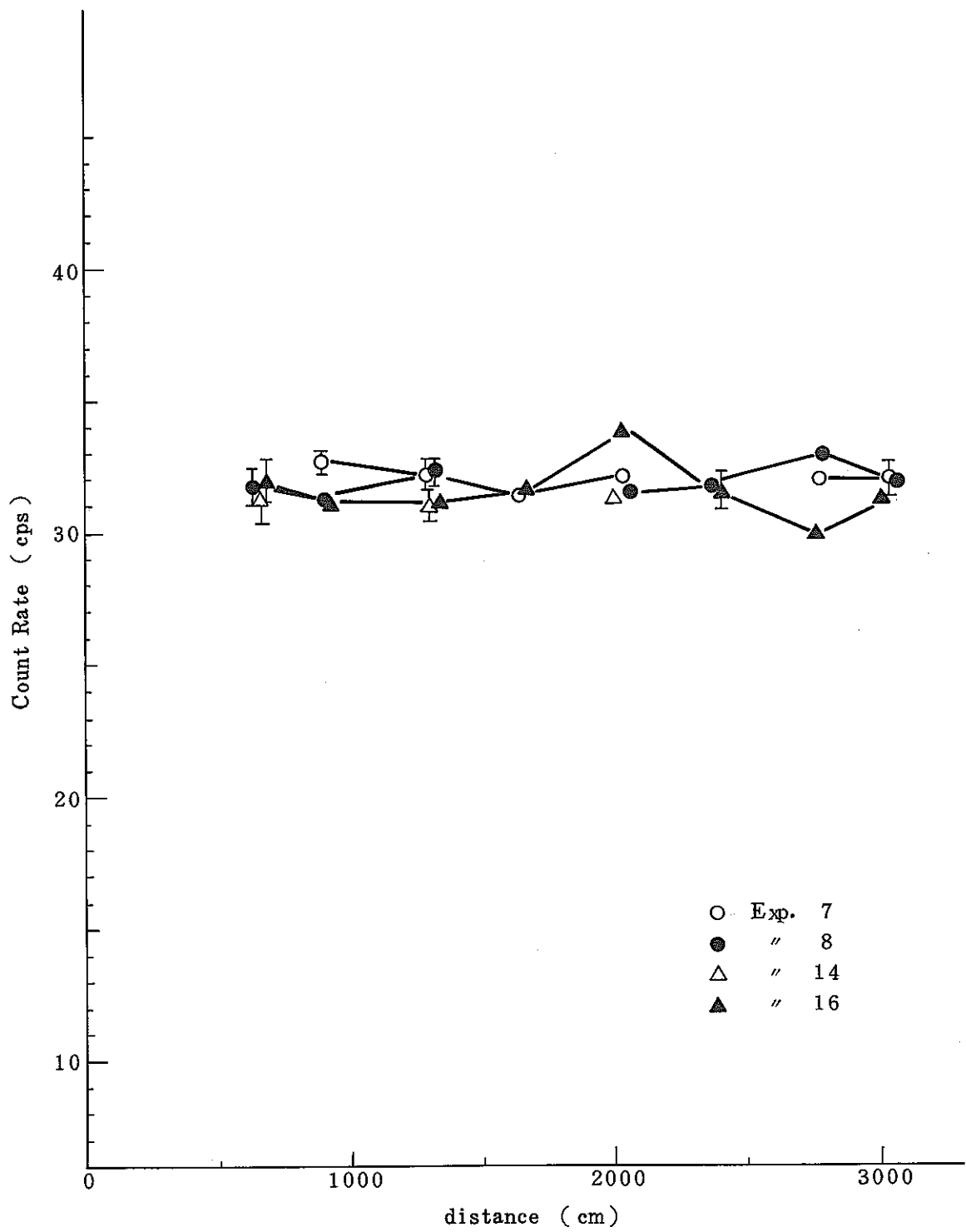


Fig. A - 2  $^{24}\text{Na}$  distribution along the delay line

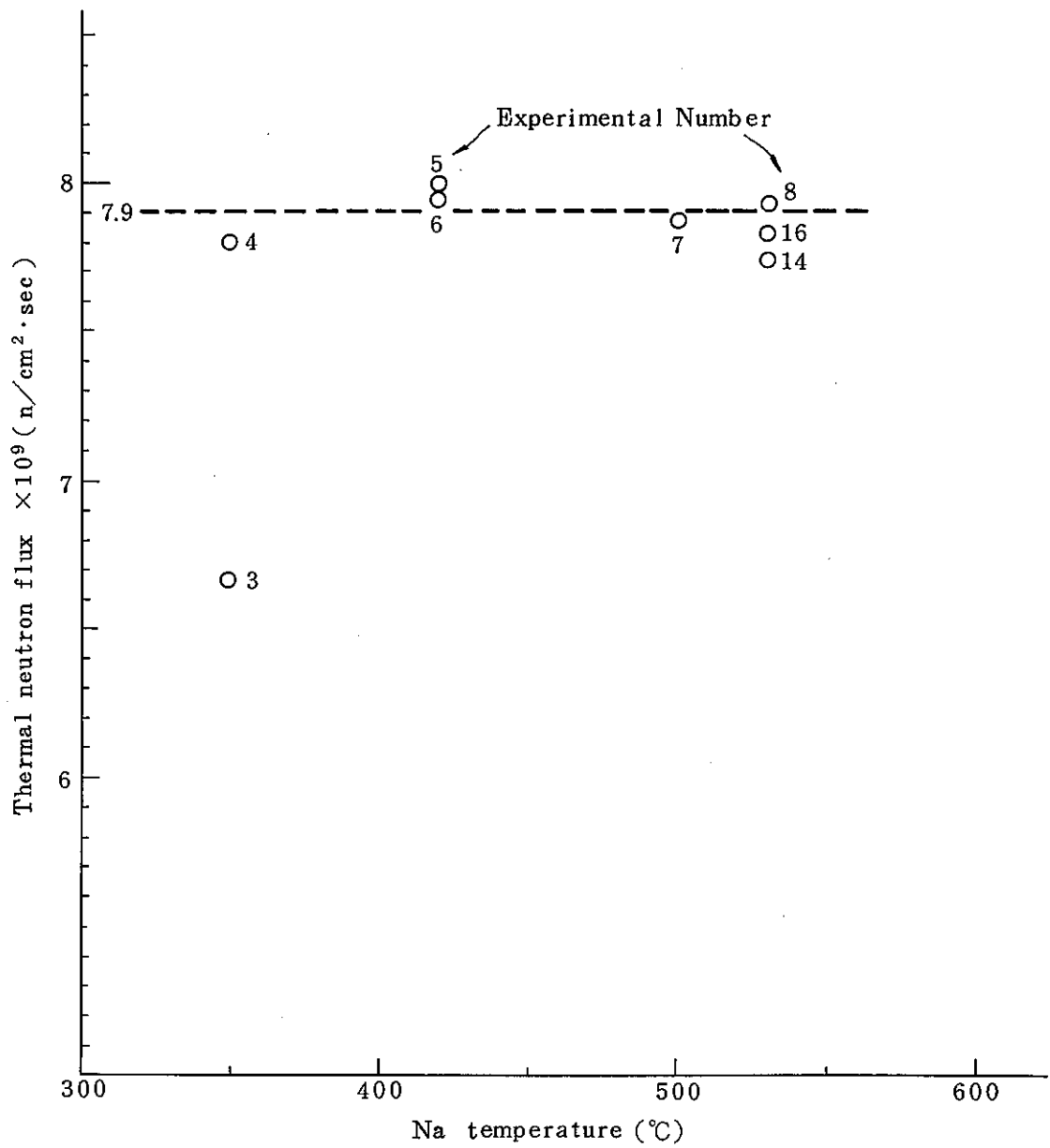


Fig. A - 3 Thermal neutron flux calculated by using <sup>24</sup>Na gamma-ray spectra

Appendix B Floppy disk lists

EXP NO. 14 ( NA TEMP. 530°C , NA FLOW RATE (LITER/MIN )

DISK NO. 21000

TAG NO.	DATA I.D.	DETECTOR POSITION	DATE	START TIME	COUNT TIME
21000	NA CIRCUL. BEFORE IRR.	0-2	12 APR 83	09:16	5000
21100	NA CIRCUL. BEFORE IRR.	0-7	12 APR 83	09:16	5000
21001	TTR 100KW 530°C 1L/M	0-2	12 APR 83	12:42	300
21101	TTR 100KW 530°C 1L/M	0-7	12 APR 83	12:42	300
21002	TTR 100KW 530°C 1L/M	0-2	12 APR 83	12:51	300
21102	TTR 100KW 530°C 1L/M	0-7	12 APR 83	12:51	300
21003	TTR 100KW 530°C 1L/M	0-2	12 APR 83	12:59	300
21103	TTR 100KW 530°C 1L/M	0-7	12 APR 83	12:59	300
21004	TTR 100KW 530°C 1L/M	0-2	12 APR 83	13:07	600
21104	TTR 100KW 530°C 1L/M	0-7	12 APR 83	13:07	600
21005	TTR 100KW 530°C 1L/M	0-2	12 APR 83	13:21	600
21105	TTR 100KW 530°C 1L/M	0-7	12 APR 83	13:21	600
21006	TTR 100KW 530°C 1L/M	0-2	12 APR 83	13:34	1800
21106	TTR 100KW 530°C 1L/M	0-7	12 APR 83	13:34	1800
21007	TTR 100KW 530°C 1L/M	0-4	12 APR 83	14:09	1800
21107	TTR 100KW 530°C 1L/M	0-9	12 APR 83	14:09	1800
21008	TTR 100KW 530°C 1L/M	0-6	12 APR 83	14:45	1800
21108	TTR 100KW 530°C 1L/M	0-3	12 APR 83	14:45	1800

DISK NO. 21200

TAG NO.	DATA I.D.	DETECTOR POSITION	DATE	START TIME	COUNT TIME
21019	TTR STOP 530°C 1L/M	0-4	12 APR 83	18:35	3600
21119	TTR STOP 530°C 1L/M	0-7	12 APR 83	18:35	3600
21019	TTR STOP 530°C 1L/M	0-2	12 APR 83	19:42	3600
21119	TTR STOP 530°C 1L/M	0-7	12 APR 83	19:42	3600
21020	TTR STOP 530°C 1L/M	0-4	12 APR 83	20:51	3600
21120	TTR STOP 530°C 1L/M	0-9	12 APR 83	20:51	3600
21021	TTR STOP 530°C 1L/M	0-6	12 APR 83	21:59	3600
21121	TTR STOP 530°C 1L/M	0-3	12 APR 83	21:59	3600
21022	TTR STOP 530°C 1L/M	0-8	13 APR 83	23:10	3600
21122	TTR STOP 530°C 1L/M	0-5	13 APR 83	23:10	3600
21023	TTR STOP 530°C 1L/M	0-2	13 APR 83	00:19	3600
21123	TTR STOP 530°C 1L/M	0-7	13 APR 83	00:19	3600
21024	TTR STOP 530°C 1L/M	0-4	13 APR 83	01:30	3600
21124	TTR STOP 530°C 1L/M	0-9	13 APR 83	01:30	3600
21025	TTR STOP 530°C 1L/M	0-6	13 APR 83	02:52	3600
21125	TTR STOP 530°C 1L/M	0-3	13 APR 83	02:52	3600
21026	TTR STOP 530°C 1L/M	0-8	13 APR 83	03:58	3600
21126	TTR STOP 530°C 1L/M	0-5	13 APR 83	03:58	3600

DISK NO. 21300

DISK NO. 21100

TAG NO.	DATA I.D.	DETECTOR POSITION	DATE	START TIME	COUNT TIME
21009	TTR 100KW 530°C 1L/M	0-8	12 APR 83	15:19	1800
21109	TTR 100KW 530°C 1L/M	0-5	12 APR 83	15:19	1800
21010	TTR 100KW 530°C 1L/M	0-2	12 APR 83	15:53	300
21110	TTR 100KW 530°C 1L/M	0-7	12 APR 83	15:53	300
21011	TTR 100KW 530°C 1L/M	0-2	12 APR 83	16:03	300
21111	TTR 100KW 530°C 1L/M	0-7	12 APR 83	16:03	300
21012	TTR STOP 530°C 1L/M	0-2	12 APR 83	16:12	300
21112	TTR STOP 530°C 1L/M	0-7	12 APR 83	16:12	300
21013	TTR STOP 530°C 1L/M	0-2	12 APR 83	16:20	300
21113	TTR STOP 530°C 1L/M	0-7	12 APR 83	16:20	300
21014	TTR STOP 530°C 1L/M	0-2	12 APR 83	16:29	600
21114	TTR STOP 530°C 1L/M	0-7	12 APR 83	16:29	600
21015	TTR STOP 530°C 1L/M	0-2	12 APR 83	16:42	1200
21115	TTR STOP 530°C 1L/M	0-7	12 APR 83	16:42	1200
21016	TTR STOP 530°C 1L/M	0-2	12 APR 83	17:05	1200
21116	TTR STOP 530°C 1L/M	0-7	12 APR 83	17:05	1200
21017	TTR STOP 530°C 1L/M	0-2	12 APR 83	17:29	3600
21117	TTR STOP 530°C 1L/M	0-7	12 APR 83	17:29	3600

TAG NO.	DATA I.D.	DETECTOR POSITION	DATE	START TIME	COUNT TIME
21027	TTR STOP 530°C 1L/M	0-2	13 APR 83	05:05	3600
21127	TTR STOP 530°C 1L/M	0-7	13 APR 83	05:05	3600
21028	TTR STOP 530°C 1L/M	0-4	13 APR 83	06:11	3600
21128	TTR STOP 530°C 1L/M	0-9	13 APR 83	06:11	3600
21029	TTR STOP 530°C 1L/M	0-6	13 APR 83	07:17	3600
21129	TTR STOP 530°C 1L/M	0-3	13 APR 83	07:17	3600
21030	TTR STOP 530°C 1L/M	0-8	13 APR 83	08:27	3600
21130	TTR STOP 530°C 1L/M	0-5	13 APR 83	08:27	3600
21031	TTR STOP 530°C 1L/M	0-2	13 APR 83	09:32	3600
21131	TTR STOP 530°C 1L/M	0-7	13 APR 83	09:32	3600
21032	NA DRAIN	0-2	13 APR 83	10:43	3600
21132	NA DRAIN	0-7	13 APR 83	10:43	3600
21033	NA DRAIN	0-4	13 APR 83	11:51	3600
21133	NA DRAIN	0-9	13 APR 83	11:51	3600
21034	NA DRAIN	0-6	13 APR 83	12:58	3600
21134	NA DRAIN	0-3	13 APR 83	12:58	3600
21035	NA DRAIN	0-8	13 APR 83	14:06	3600
21135	NA DRAIN	0-5	13 APR 83	14:06	3600

DISK NO. 21400

TAG NO.	DATA I.D.	DETECTOR POSITION	DATE	START TIME	COUNT TIME
21036	NA DRAIN	0-2	13 APR 83	15:14	3600
21136	NA DRAIN	0-7	13 APR 83	15:14	3600



Appendix B (continued)

EXP NO. 17 ( FPL-2 NO OPERATION )

DISK NO. 22888

TAG NO.	DATA I.D.	DETECTOR POSITION	DATE	START TIME	COUNT TIME
22888	FPL-2 D-3 PGT	D-3	13 JUL 83	15:08	80000
22881	BACK GROUND-1	B-1	14 JUL 83	14:10	70000
22882	FPL-2 D-9 PGT	D-9	15 JUL 83	11:58	80000
22883	BACK GROUND-2	B-2	15 JUL 83	10:33	20000
22884	FPL-2 D-5 PGT	D-5	19 JUL 83	13:27	80000
22885	FPL-2 D-7 PGT	D-7	20 JUL 83	13:27	80000
22886	FPL-2 D-2 PGT	D-2	21 JUL 83	14:08	80000
22887	FPL-2 D-8 PGT	D-8	22 JUL 83	12:35	80000
22888	BACK GROUND-3	B-3	22 JUL 83	11:04	20000
22889	FPL-2 D-6 PGT	D-6	10 AUG 83	12:50	80000
22810	FPL-2 D-4 PGT	D-4	11 AUG 83	11:33	80000
22811	BACK GROUND-4	B-4	12 AUG 83	10:19	80000
22812	FPL-2 D-10 PGT	D-10	12 AUG 83	11:52	19000
22813	FPL-2 D-10 PGT	D-10	17 AUG 83	14:44	80000
22814	FPL-2 D-11 PGT	D-11	19 AUG 83	12:19	80000
22815	BACK GROUND-5	B-5	20 AUG 83	12:02	80000

Appendix B (continued)

EXP NO. 13 ( NA TEMP. 280°C , NA FLOW RATE 2-SLITER/MIN )

DISK NO. 23000

TAG NO.	DATA I.D.	DETECTOR POSITION	DATE	START TIME	COUNT TIME
23000	NA CIRCUL. (BYPASS)	D-2	20 SEP 83	12:47	7200
23100	NA CIRCUL. (BYPASS)	D-7	20 SEP 83	12:47	7200
23001	NA CIRCUL. 280°C 2L/M	D-2	20 SEP 83	15:34	600
23101	NA CIRCUL. 280°C 2L/M	D-7	20 SEP 83	15:34	600
23002	280°C 2L/M	D-2	20 SEP 83	15:48	600
23102	280°C 2L/M	D-7	20 SEP 83	15:48	600
23003	280°C 2L/M	D-2	20 SEP 83	16:02	3600
23103	280°C 2L/M	D-7	20 SEP 83	16:02	3600
23004	280°C 2L/M	D-4	20 SEP 83	17:11	3600
23104	280°C 2L/M	D-9	20 SEP 83	17:11	3600
23005	280°C 2L/M	D-6	20 SEP 83	18:16	3600
23105	280°C 2L/M	D-3	20 SEP 83	18:16	3600
23006	280°C 2L/M	D-8	20 SEP 83	19:27	3600
23106	280°C 2L/M	D-5	20 SEP 83	19:27	3600
23007	280°C 2L/M	D-2	20 SEP 83	20:37	3600
23107	280°C 2L/M	D-7	20 SEP 83	20:37	3600
23008	280°C 2L/M	D-4	20 SEP 83	22:47	3600
23108	280°C 2L/M	D-9	20 SEP 83	22:47	3600

DISK NO. 23200

TAG NO.	DATA I.D.	DETECTOR POSITION	DATE	START TIME	COUNT TIME
23018	280°C 5L/M	D-8	21 SEP 83	14:18	3600
23118	280°C 5L/M	D-5	21 SEP 83	14:18	3600
23019	280°C 5L/M	D-2	21 SEP 83	15:17	3600
23119	280°C 5L/M	D-7	21 SEP 83	15:17	3600
23020	500°C 5L/M	D-2	21 SEP 83	19:59	3600
23120	500°C 5L/M	D-7	21 SEP 83	09:59	3600
23021	500°C 5L/M	D-4	21 SEP 83	21:11	3600
23121	500°C 5L/M	D-9	21 SEP 83	21:11	3600
23022	500°C 5L/M	D-6	21 SEP 83	22:21	3600
23122	500°C 5L/M	D-3	21 SEP 83	22:21	3600
23023	500°C 5L/M	D-8	21 SEP 83	23:34	3600
23123	500°C 5L/M	D-5	21 SEP 83	23:34	3600
23024	500°C 5L/M	D-2	22 SEP 83	00:44	3600
23124	500°C 5L/M	D-7	22 SEP 83	00:44	3600
23025	500°C 5L/M	D-4	22 SEP 83	01:55	3600
23125	500°C 5L/M	D-9	22 SEP 83	01:55	3600
23026	500°C 5L/M	D-6	22 SEP 83	03:02	3600
23126	500°C 5L/M	D-3	22 SEP 83	03:02	3600

DISK NO. 23100

TAG NO.	DATA I.D.	DETECTOR POSITION	DATE	START TIME	COUNT TIME
23009	280°C 2L/M	D-6	21 SEP 83	00:06	3600
23109	280°C 2L/M	D-3	21 SEP 83	00:06	3600
23010	280°C 2L/M	D-8	21 SEP 83	01:22	3600
23110	280°C 2L/M	D-5	21 SEP 83	01:22	3600
23011	280°C 2L/M	D-2	21 SEP 83	04:05	3600
23111	280°C 2L/M	D-7	21 SEP 83	04:05	3600
23012	280°C 2L/M	D-4	21 SEP 83	05:17	3600
23112	280°C 2L/M	D-9	21 SEP 83	05:17	3600
23013	280°C 2L/M	D-6	21 SEP 83	06:29	3600
23113	280°C 2L/M	D-3	21 SEP 83	06:29	3600
23014	280°C 2L/M	D-8	21 SEP 83	07:38	3600
23114	280°C 2L/M	D-5	21 SEP 83	07:38	3600
23015	280°C 2L/M	D-2	21 SEP 83	10:55	3600
23115	280°C 2L/M	D-7	21 SEP 83	10:55	3600
23016	280°C 2L/M	D-4	21 SEP 83	12:01	3600
23116	280°C 2L/M	D-9	21 SEP 83	12:01	3600
23017	280°C 2L/M	D-6	21 SEP 83	13:06	3600
23117	280°C 2L/M	D-3	21 SEP 83	13:06	3600

DISK NO. 23300

TAG NO.	DATA I.D.	DETECTOR POSITION	DATE	START TIME	COUNT TIME
23027	500°C 5L/M	D-8	22 SEP 83	04:16	3600
23127	500°C 5L/M	D-5	22 SEP 83	04:16	3600
23028	500°C 5L/M	D-2	22 SEP 83	05:46	3600
23128	500°C 5L/M	D-7	22 SEP 83	05:46	3600
23029	500°C 5L/M	D-4	22 SEP 83	07:04	3600
23129	500°C 5L/M	D-9	22 SEP 83	07:04	3600
23030	500°C 5L/M	D-6	22 SEP 83	09:13	3600
23130	500°C 5L/M	D-3	22 SEP 83	09:13	3600
23031	500°C 5L/M	D-8	22 SEP 83	10:28	3600
23131	500°C 5L/M	D-5	22 SEP 83	10:28	3600
23032	500°C 5L/M	D-2	22 SEP 83	11:33	3600
23132	500°C 5L/M	D-7	22 SEP 83	11:33	3600
23033	500°C 5L/M	D-4	22 SEP 83	12:43	3600
23133	500°C 5L/M	D-9	22 SEP 83	12:43	3600
23034	NA DRAIN	D-2	22 SEP 83	13:49	3600
23134	NA DRAIN	D-7	22 SEP 83	13:49	3600

Appendix B (continued)

EXP NO. 18 ( continued )

DISK NO. 23488

TAG NO.	DATA I.D.	DETECTOR POSITION	DATE	START TIME	COUNT TIME
23835	NA DRAIN	D-4	22 SEP 83	14:56	3600
23135	NA DRAIN	D-9	22 SEP 83	14:56	3600
23836	NA DRAIN	D-4	22 SEP 83	16:00	3600
23136	NA DRAIN	D-3	22 SEP 83	16:00	3600
23837	NA DRAIN	D-8	22 SEP 83	17:04	3600
23137	NA DRAIN	D-5	22 SEP 83	17:04	3600
23838	NA DRAIN	D-2	22 SEP 83	18:09	3600
23138	NA DRAIN	D-7	22 SEP 83	18:09	3600

Appendix B (continued)

EXP NO. 19 ( NA TEMP. 530°C , NA FLOW RATE 2LITER/MIN )

DISK NO. 24000

TAG NO.	DATA I.D.	DETECTOR POSITION	DATE	START TIME	COUNT TIME
24000	NA CIRCUL. BEFORE IRR.	D-2	18 OCT 83	09:10	2300
24100	NA CIRCUL. BEFORE IRR.	D-7	18 OCT 83	09:10	2300
24001	TTR 100KW 530°C 2L/M	D-2	18 OCT 83	11:13	300
24101	TTR 100KW 530°C 2L/M	D-7	18 OCT 83	11:13	300
24002	TTR 100KW 530°C 2L/M	D-2	18 OCT 83	11:19	300
24102	TTR 100KW 530°C 2L/M	D-7	18 OCT 83	11:19	300
24003	TTR 100KW 530°C 2L/M	D-2	18 OCT 83	11:28	300
24103	TTR 100KW 530°C 2L/M	D-7	18 OCT 83	11:28	300
24004	TTR 100KW 530°C 2L/M	D-2	18 OCT 83	11:36	600
24104	TTR 100KW 530°C 2L/M	D-7	18 OCT 83	11:36	600
24005	TTR 100KW 530°C 2L/M	D-2	18 OCT 83	11:50	600
24105	TTR 100KW 530°C 2L/M	D-7	18 OCT 83	11:50	600
24006	TTR 100KW 530°C 2L/M	D-2	18 OCT 83	12:04	1000
24106	TTR 100KW 530°C 2L/M	D-7	18 OCT 83	12:04	1000
24107	TTR 100KW 530°C 2L/M	D-9	18 OCT 83	12:40	1000
24108	TTR 100KW 530°C 2L/M	D-3	18 OCT 83	13:13	1000
24109	TTR 100KW 530°C 2L/M	D-5	18 OCT 83	13:55	1000
24110	TTR 100KW 530°C 2L/M	D-7	18 OCT 83	14:29	1000

DISK NO. 24100

TAG NO.	DATA I.D.	DETECTOR POSITION	DATE	START TIME	COUNT TIME
24111	TTR STOP 530°C 5L/M	D-7	18 OCT 83	15:11	300
24112	NA DRAIN	D-7	18 OCT 83	15:27	3600
24113	NA DRAIN	D-9	18 OCT 83	16:31	3600
24114	NA DRAIN	D-3	18 OCT 83	17:36	3600
24115	NA DRAIN	D-5	18 OCT 83	18:37	3600
24116	NA DRAIN	D-7	19 OCT 83	10:56	3600
24117	NA DRAIN	D-9	19 OCT 83	11:57	3600
24118	NA DRAIN	D-3	19 OCT 83	13:01	3600
24119	NA DRAIN	D-5	19 OCT 83	14:03	3600
24120	NA DRAIN	D-2	19 OCT 83	15:25	3600
24121	NA DRAIN	D-4	19 OCT 83	16:30	3600

Appendix B (continued)

EXP NO. 29 ( NA TEMP. 170°C , NA FLOW RATE. 1LITER/MIN )

DISK NO. 25000

TAG NO.	DATA I.D.	DETECTOR POSITION	DATE	START TIME	COUNT TIME
25000	NA CIRCUL. BEFORE IRR.	D-2	8 NOV 83	09:54	3600
25100	NA CIRCUL. BEFORE IRR.	D-7	8 NOV 83	09:54	3600
25001	TTR 100KW 170°C 1L/M	D-2	8 NOV 83	11:12	300
25101	TTR 100KW 170°C 1L/M	D-7	8 NOV 83	11:12	300
25002	TTR 100KW 170°C 1L/M	D-2	8 NOV 83	11:21	300
25102	TTR 100KW 170°C 1L/M	D-7	8 NOV 83	11:21	300
25003	TTR 100KW 170°C 1L/M	D-2	8 NOV 83	11:29	300
25103	TTR 100KW 170°C 1L/M	D-7	8 NOV 83	11:29	300
25004	TTR 100KW 170°C 1L/M	D-2	8 NOV 83	11:38	600
25104	TTR 100KW 170°C 1L/M	D-7	8 NOV 83	11:38	600
25005	TTR 100KW 170°C 1L/M	D-2	8 NOV 83	11:51	600
25105	TTR 100KW 170°C 1L/M	D-7	8 NOV 83	11:51	600
25006	TTR 100KW 170°C 1L/M	D-2	8 NOV 83	12:03	1800
25106	TTR 100KW 170°C 1L/M	D-7	8 NOV 83	12:03	1800
25007	TTR 100KW 170°C 1L/M	D-4	8 NOV 83	12:38	1800
25107	TTR 100KW 170°C 1L/M	D-9	8 NOV 83	12:38	1800
25008	TTR 100KW 170°C 1L/M	D-6	8 NOV 83	13:11	1800
25108	TTR 100KW 170°C 1L/M	D-3	8 NOV 83	13:11	1800

DISK NO. 25200

TAG NO.	DATA I.D.	DETECTOR POSITION	DATE	START TIME	COUNT TIME
25018	TTR STOP 170°C 1L/M	D-6	8 NOV 83	17:00	1800
25118	TTR STOP 170°C 1L/M	D-3	8 NOV 83	17:00	1800
25019	TTR STOP 170°C 1L/M	D-8	8 NOV 83	17:38	1800
25119	TTR STOP 170°C 1L/M	D-5	8 NOV 83	17:38	1800
25020	TTR STOP 170°C 1L/M	D-10	8 NOV 83	18:14	1800
25120	TTR STOP 170°C 1L/M	D-11	8 NOV 83	18:14	1800
25021	TTR STOP 170°C 1L/M	D-2	8 NOV 83	18:48	3600
25121	TTR STOP 170°C 1L/M	D-7	8 NOV 83	18:48	3600
25022	TTR STOP 170°C 1L/M	D-4	8 NOV 83	19:56	3600
25122	TTR STOP 170°C 1L/M	D-9	8 NOV 83	19:56	3600
25023	TTR STOP 170°C 1L/M	D-6	8 NOV 83	21:05	3600
25123	TTR STOP 170°C 1L/M	D-3	8 NOV 83	21:05	3600
25024	TTR STOP 170°C 1L/M	D-8	8 NOV 83	22:12	3600
25124	TTR STOP 170°C 1L/M	D-5	8 NOV 83	22:12	3600
25025	TTR STOP 170°C 1L/M	D-10	8 NOV 83	23:21	3600
25125	TTR STOP 170°C 1L/M	D-11	8 NOV 83	23:21	3600
25026	TTR STOP 170°C 1L/M	D-2	9 NOV 83	02:30	3600
25126	TTR STOP 170°C 1L/M	D-7	9 NOV 83	02:30	3600

DISK NO. 25100

TAG NO.	DATA I.D.	DETECTOR POSITION	DATE	START TIME	COUNT TIME
25009	TTR 100KW 170°C 1L/M	D-8	8 NOV 83	13:44	1800
25109	TTR 100KW 170°C 1L/M	D-5	8 NOV 83	13:44	1800
25010	TTR 100KW 170°C 1L/M	D-10	8 NOV 83	14:18	1800
25110	TTR 100KW 170°C 1L/M	D-11	8 NOV 83	14:18	1800
25011	TTR 100KW 170°C 1L/M	D-2	8 NOV 83	14:52	300
25111	TTR 100KW 170°C 1L/M	D-7	8 NOV 83	14:52	300
25012	TTR 100KW 170°C 1L/M	D-2	8 NOV 83	15:01	300
25112	TTR 100KW 170°C 1L/M	D-7	8 NOV 83	15:01	300
25013	TTR STOP 170°C 1L/M	D-2	8 NOV 83	15:12	300
25113	TTR STOP 170°C 1L/M	D-7	8 NOV 83	15:12	300
25014	TTR STOP 170°C 1L/M	D-2	8 NOV 83	15:21	300
25114	TTR STOP 170°C 1L/M	D-7	8 NOV 83	15:21	300
25015	TTR STOP 170°C 1L/M	D-2	8 NOV 83	15:29	600
25115	TTR STOP 170°C 1L/M	D-7	8 NOV 83	15:29	600
25016	TTR STOP 170°C 1L/M	D-2	8 NOV 83	15:42	1800
25116	TTR STOP 170°C 1L/M	D-7	8 NOV 83	15:42	1800
25017	TTR STOP 170°C 1L/M	D-4	8 NOV 83	16:20	1800
25117	TTR STOP 170°C 1L/M	D-9	8 NOV 83	16:20	1800

DISK NO. 25300

TAG NO.	DATA I.D.	DETECTOR POSITION	DATE	START TIME	COUNT TIME
25027	TTR STOP 170°C 1L/M	D-4	9 NOV 83	03:38	3600
25127	TTR STOP 170°C 1L/M	D-9	9 NOV 83	03:38	3600
25028	TTR STOP 170°C 1L/M	D-6	9 NOV 83	04:50	3600
25128	TTR STOP 170°C 1L/M	D-3	9 NOV 83	04:50	3600
25029	TTR STOP 170°C 1L/M	D-8	9 NOV 83	06:08	3600
25129	TTR STOP 170°C 1L/M	D-5	9 NOV 83	06:08	3600
25030	TTR STOP 170°C 1L/M	D-10	9 NOV 83	07:10	3600
25130	TTR STOP 170°C 1L/M	D-11	9 NOV 83	07:10	3600
25031	TTR STOP 170°C 1L/M	D-2	9 NOV 83	10:09	3600
25131	TTR STOP 170°C 1L/M	D-7	9 NOV 83	10:09	3600
25032	TTR STOP 170°C 1L/M	D-4	9 NOV 83	11:10	3600
25132	TTR STOP 170°C 1L/M	D-9	9 NOV 83	11:10	3600
25033	TTR STOP 170°C 1L/M	D-6	9 NOV 83	12:36	3600
25133	TTR STOP 170°C 1L/M	D-3	9 NOV 83	12:36	3600
25034	TTR STOP 170°C 1L/M	D-8	9 NOV 83	13:40	3600
25134	TTR STOP 170°C 1L/M	D-5	9 NOV 83	13:40	3600
25035	TTR STOP 170°C 1L/M	D-10	9 NOV 83	15:01	3600
25135	TTR STOP 170°C 1L/M	D-11	9 NOV 83	15:01	3600

Appendix B (continued)

EXP NO. 29 ( continued )

DISK NO. 25400

TAG NO.	DATA I.D.	DETECTOR POSITION	DATE	START TIME	COUNT TIME
25036	TTR STOP 170°C 1L/M	D-2	9 NOV 83	17:41	3600
25136	TTR STOP 170°C 1L/M	D-7	9 NOV 83	17:41	3600
25037	TTR STOP 170°C 1L/M	D-4	9 NOV 83	18:51	3600
25137	TTR STOP 170°C 1L/M	D-9	9 NOV 83	18:51	3600
25038	TTR STOP 170°C 1L/M	D-6	9 NOV 83	19:57	3600
25138	TTR STOP 170°C 1L/M	D-3	9 NOV 83	19:57	3600
25039	TTR STOP 170°C 1L/M	D-8	9 NOV 83	21:08	3600
25139	TTR STOP 170°C 1L/M	D-5	9 NOV 83	21:08	3600
25040	TTR STOP 170°C 1L/M	D-10	9 NOV 83	22:14	3600
25140	TTR STOP 170°C 1L/M	D-11	9 NOV 83	22:14	3600
25041	TTR STOP 170°C 1L/M	D-2	10 NOV 83	01:53	3600
25141	TTR STOP 170°C 1L/M	D-7	10 NOV 83	01:53	3600
25042	TTR STOP 170°C 1L/M	D-4	10 NOV 83	03:01	3600
25142	TTR STOP 170°C 1L/M	D-9	10 NOV 83	03:01	3600
25043	TTR STOP 170°C 1L/M	D-6	10 NOV 83	04:08	3600
25143	TTR STOP 170°C 1L/M	D-3	10 NOV 83	04:08	3600
25044	TTR STOP 170°C 1L/M	D-8	10 NOV 83	05:16	3600
25144	TTR STOP 170°C 1L/M	D-5	10 NOV 83	05:16	3600

DISK NO. 25500

TAG NO.	DATA I.D.	DETECTOR POSITION	DATE	START TIME	COUNT TIME
25045	TTR STOP 170°C 1L/M	D-10	10 NOV 83	06:23	3600
25145	TTR STOP 170°C 1L/M	D-11	10 NOV 83	06:23	3600
25046	TTR STOP 170°C 1L/M	D-2	10 NOV 83	08:50	3600
25146	TTR STOP 170°C 1L/M	D-7	10 NOV 83	08:50	3600
25047	NA DRAIN	D-2	10 NOV 83	10:00	3600
25147	NA DRAIN	D-7	10 NOV 83	10:00	3600
25048	NA DRAIN	D-4	10 NOV 83	11:07	3600
25148	NA DRAIN	D-9	10 NOV 83	11:07	3600
25049	NA DRAIN	D-6	10 NOV 83	12:27	3600
25149	NA DRAIN	D-3	10 NOV 83	12:27	3600
25050	NA DRAIN	D-8	10 NOV 83	13:39	3600
25150	NA DRAIN	D-5	10 NOV 83	13:39	3600
25051	NA DRAIN	D-10	10 NOV 83	15:22	3600
25151	NA DRAIN	D-11	10 NOV 83	15:22	3600
25052	NA DRAIN	D-2	10 NOV 83	16:30	3600
25152	NA DRAIN	D-7	10 NOV 83	16:30	3600

Appendix B (continued)

EXP NO. 21 ( NA TEMP. 170°C , NA FLOW RATE. 5LITER/MIN )

DISK NO. 26000

TAG NO.	DATA I.D.	DETECTOR POSITION	DATE	START TIME	COUNT TIME
26000	NA CIRCUL. BEFORE IRR.	D-2	29 NOV 83	09:20	6000
26100	NA CIRCUL. BEFORE IRR.	D-7	29 NOV 83	09:20	6000
26001	TTR 100KW 170°C 5L/M	D-2	29 NOV 83	11:12	300
26101	TTR 100KW 170°C 5L/M	D-7	29 NOV 83	11:12	300
26002	TTR 100KW 170°C 5L/M	D-2	29 NOV 83	11:20	300
26102	TTR 100KW 170°C 5L/M	D-7	29 NOV 83	11:20	300
26003	TTR 100KW 170°C 5L/M	D-2	29 NOV 83	11:28	300
26103	TTR 100KW 170°C 5L/M	D-7	29 NOV 83	11:28	300
26004	TTR 100KW 170°C 5L/M	D-2	29 NOV 83	11:38	600
26104	TTR 100KW 170°C 5L/M	D-7	29 NOV 83	11:38	600
26005	TTR 100KW 170°C 5L/M	D-2	29 NOV 83	11:51	600
26105	TTR 100KW 170°C 5L/M	D-7	29 NOV 83	11:51	600
26006	TTR 100KW 170°C 5L/M	D-2	29 NOV 83	12:04	1800
26106	TTR 100KW 170°C 5L/M	D-7	29 NOV 83	12:04	1800
26007	TTR 100KW 170°C 5L/M	D-4	29 NOV 83	12:40	1800
26107	TTR 100KW 170°C 5L/M	D-9	29 NOV 83	12:40	1800
26008	TTR 100KW 170°C 5L/M	D-6	29 NOV 83	13:14	1800
26108	TTR 100KW 170°C 5L/M	D-3	29 NOV 83	13:14	1800

DISK NO. 26100

TAG NO.	DATA I.D.	DETECTOR POSITION	DATE	START TIME	COUNT TIME
26009	TTR 100KW 170°C 5L/M	D-8	29 NOV 83	13:48	1800
26109	TTR 100KW 170°C 5L/M	D-5	29 NOV 83	13:48	1800
26010	TTR 100KW 170°C 5L/M	D-10	29 NOV 83	14:21	1800
26110	TTR 100KW 170°C 5L/M	D-11	29 NOV 83	14:21	1800
26011	TTR 100KW 170°C 5L/M	D-2	29 NOV 83	14:54	300
26111	TTR 100KW 170°C 5L/M	D-7	29 NOV 83	14:54	300
26012	TTR 100KW 170°C 5L/M	D-2	29 NOV 83	15:02	300
26112	TTR 100KW 170°C 5L/M	D-7	29 NOV 83	15:02	300
26013	TTR STOP 170°C 5L/M	D-2	29 NOV 83	15:12	300
26113	TTR STOP 170°C 5L/M	D-7	29 NOV 83	15:12	300
26014	TTR STOP 170°C 5L/M	D-2	29 NOV 83	15:21	300
26114	TTR STOP 170°C 5L/M	D-7	29 NOV 83	15:21	300
26015	TTR STOP 170°C 5L/M	D-2	29 NOV 83	15:29	600
26115	TTR STOP 170°C 5L/M	D-7	29 NOV 83	15:29	600
26016	TTR STOP 170°C 5L/M	D-2	29 NOV 83	15:42	1800
26116	TTR STOP 170°C 5L/M	D-7	29 NOV 83	15:42	1800
26017	TTR STOP 170°C 5L/M	D-4	29 NOV 83	16:20	1800
26117	TTR STOP 170°C 5L/M	D-9	29 NOV 83	16:20	1800

DISK NO. 26200

TAG NO.	DATA I.D.	DETECTOR POSITION	DATE	START TIME	COUNT TIME
26018	TTR STOP 170°C 5L/M	D-6	29 NOV 83	16:57	1800
26118	TTR STOP 170°C 5L/M	D-3	29 NOV 83	16:57	1800
26019	TTR STOP 170°C 5L/M	D-8	29 NOV 83	17:33	1800
26119	TTR STOP 170°C 5L/M	D-3	29 NOV 83	17:33	1800
26020	TTR STOP 170°C 5L/M	D-10	29 NOV 83	18:07	1800
26120	TTR STOP 170°C 5L/M	D-11	29 NOV 83	18:07	1800
26021	TTR STOP 170°C 5L/M	D-2	29 NOV 83	18:40	3600
26121	TTR STOP 170°C 5L/M	D-7	29 NOV 83	18:40	3600
26022	TTR STOP 170°C 5L/M	D-4	29 NOV 83	19:46	3600
26122	TTR STOP 170°C 5L/M	D-9	29 NOV 83	19:46	3600
26023	TTR STOP 170°C 5L/M	D-6	29 NOV 83	20:57	3600
26123	TTR STOP 170°C 5L/M	D-3	29 NOV 83	20:57	3600
26024	TTR STOP 170°C 5L/M	D-8	29 NOV 83	22:04	3600
26124	TTR STOP 170°C 5L/M	D-5	29 NOV 83	22:04	3600
26025	TTR STOP 170°C 5L/M	D-10	29 NOV 83	23:11	3600
26125	TTR STOP 170°C 5L/M	D-11	29 NOV 83	23:11	3600
26026	TTR STOP 170°C 5L/M	D-2	30 NOV 83	00:17	3600
26126	TTR STOP 170°C 5L/M	D-7	30 NOV 83	00:17	3600

DISK NO. 26300

TAG NO.	DATA I.D.	DETECTOR POSITION	DATE	START TIME	COUNT TIME
26027	TTR STOP 170°C 5L/M	D-4	30 NOV 83	01:25	3600
26127	TTR STOP 170°C 5L/M	D-9	30 NOV 83	01:25	3600
26028	TTR STOP 170°C 5L/M	D-6	30 NOV 83	02:32	3600
26128	TTR STOP 170°C 5L/M	D-3	30 NOV 83	02:32	3600
26029	TTR STOP 170°C 5L/M	D-8	30 NOV 83	03:41	3600
26129	TTR STOP 170°C 5L/M	D-5	30 NOV 83	03:41	3600
26030	TTR STOP 170°C 5L/M	D-10	30 NOV 83	05:28	3600
26130	TTR STOP 170°C 5L/M	D-11	30 NOV 83	05:28	3600
26031	TTR STOP 170°C 5L/M	D-2	30 NOV 83	06:52	3600
26131	TTR STOP 170°C 5L/M	D-7	30 NOV 83	06:52	3600
26032	TTR STOP 170°C 5L/M	D-4	30 NOV 83	08:03	3600
26132	TTR STOP 170°C 5L/M	D-9	30 NOV 83	08:03	3600
26033	TTR STOP 170°C 5L/M	D-6	30 NOV 83	09:19	3600
26133	TTR STOP 170°C 5L/M	D-3	30 NOV 83	09:19	3600

Appendix B (continued)

EXP NO. 21 ( continued )

DISK NO. 26400

TAG NO.	DATA I.D.	DETECTOR POSITION	DATE	START TIME	COUNT TIME
26034	NA DRAIN	0-2	30 NOV 83	10:21	3600
26134	NA DRAIN	0-7	30 NOV 83	10:21	3600
26035	NA DRAIN	0-4	30 NOV 83	11:31	3600
26135	NA DRAIN	0-9	30 NOV 83	11:31	3600
26036	NA DRAIN	0-6	30 NOV 83	12:37	3600
26136	NA DRAIN	0-3	30 NOV 83	12:37	3600
26037	NA DRAIN	0-8	30 NOV 83	13:44	3600
26137	NA DRAIN	0-5	30 NOV 83	13:44	3600
26038	NA DRAIN	0-10	30 NOV 83	14:50	3600
26138	NA DRAIN	0-11	30 NOV 83	14:50	3600
26039	NA DRAIN	0-2	30 NOV 83	15:58	3600
26139	NA DRAIN	0-7	30 NOV 83	15:58	3600



Appendix B (continued)

EXP NO. 22 ( NA TEMP. 400°C , NA FLOW RATE 1LITER/MIN )

DISK NO. 27800

TAG NO.	DATA I.O.	DETECTOR POSITION	DATE	START TIME	COUNT TIME
27800	NA CIRCUL. BEFORE IRR.	D-2	13 DEC 83	09:52	7200
27100	NA CIRCUL. BEFORE IRR.	D-7	13 DEC 83	09:52	7200
27001	TTR 100KW 400°C 1L/M	D-2	13 DEC 83	11:12	300
27101	TTR 100KW 400°C 1L/M	D-7	13 DEC 83	11:12	300
27002	TTR 100KW 400°C 1L/M	D-2	13 DEC 83	11:20	300
27102	TTR 100KW 400°C 1L/M	D-7	13 DEC 83	11:20	300
27003	TTR 100KW 400°C 1L/M	D-2	13 DEC 83	11:20	300
27103	TTR 100KW 400°C 1L/M	D-7	13 DEC 83	11:20	300
27004	TTR 100KW 400°C 1L/M	D-2	13 DEC 83	11:36	600
27104	TTR 100KW 400°C 1L/M	D-7	13 DEC 83	11:36	600
27005	TTR 100KW 400°C 1L/M	D-2	13 DEC 83	11:50	600
27105	TTR 100KW 400°C 1L/M	D-7	13 DEC 83	11:50	600
27006	TTR 100KW 400°C 1L/M	D-2	13 DEC 83	12:03	1800
27106	TTR 100KW 400°C 1L/M	D-7	13 DEC 83	12:03	1800
27007	TTR 100KW 400°C 1L/M	D-4	13 DEC 83	12:30	1800
27107	TTR 100KW 400°C 1L/M	D-9	13 DEC 83	12:30	1800
27008	TTR 100KW 400°C 1L/M	D-6	13 DEC 83	13:12	1800
27108	TTR 100KW 400°C 1L/M	D-3	13 DEC 83	13:12	1800

DISK NO. 27280

TAG NO.	DATA I.O.	DETECTOR POSITION	DATE	START TIME	COUNT TIME
27018	TTR STOP 400°C 1L/M	D-6	13 DEC 83	16:47	1800
27118	TTR STOP 400°C 1L/M	D-3	13 DEC 83	16:47	1800
27019	TTR STOP 400°C 1L/M	D-8	13 DEC 83	17:26	1800
27119	TTR STOP 400°C 1L/M	D-5	13 DEC 83	17:26	1800
27020	TTR STOP 400°C 1L/M	D-10	13 DEC 83	17:59	1800
27120	TTR STOP 400°C 1L/M	D-11	13 DEC 83	17:59	1800
27021	TTR STOP 400°C 1L/M	D-2	13 DEC 83	18:37	3600
27121	TTR STOP 400°C 1L/M	D-7	13 DEC 83	18:37	3600
27022	TTR STOP 400°C 1L/M	D-4	13 DEC 83	19:45	3600
27122	TTR STOP 400°C 1L/M	D-9	13 DEC 83	19:45	3600
27023	TTR STOP 400°C 1L/M	D-6	13 DEC 83	20:52	3600
27123	TTR STOP 400°C 1L/M	D-3	13 DEC 83	20:52	3600
27024	TTR STOP 400°C 1L/M	D-8	13 DEC 83	22:02	3600
27124	TTR STOP 400°C 1L/M	D-5	13 DEC 83	22:02	3600
27025	TTR STOP 400°C 1L/M	D-10	13 DEC 83	23:17	3600
27125	TTR STOP 400°C 1L/M	D-11	13 DEC 83	23:17	3600
27026	TTR STOP 400°C 1L/M	D-2	14 DEC 83	02:30	3600
27126	TTR STOP 400°C 1L/M	D-7	14 DEC 83	02:30	3600

DISK NO. 27100

TAG NO.	DATA I.O.	DETECTOR POSITION	DATE	START TIME	COUNT TIME
27009	TTR 100KW 400°C 1L/M	D-8	13 DEC 83	13:46	1800
27109	TTR 100KW 400°C 1L/M	D-5	13 DEC 83	13:46	1800
27010	TTR 100KW 400°C 1L/M	D-10	13 DEC 83	14:20	1800
27110	TTR 100KW 400°C 1L/M	D-11	13 DEC 83	14:20	1800
27011	TTR 100KW 400°C 1L/M	D-2	13 DEC 83	14:53	300
27111	TTR 100KW 400°C 1L/M	D-7	13 DEC 83	14:53	300
27012	TTR 100KW 400°C 1L/M	D-2	13 DEC 83	15:01	300
27112	TTR 100KW 400°C 1L/M	D-7	13 DEC 83	15:01	300
27013	TTR STOP 400°C 1L/M	D-2	13 DEC 83	15:12	300
27113	TTR STOP 400°C 1L/M	D-7	13 DEC 83	15:12	300
27014	TTR STOP 400°C 1L/M	D-2	13 DEC 83	15:20	300
27114	TTR STOP 400°C 1L/M	D-7	13 DEC 83	15:20	300
27015	TTR STOP 400°C 1L/M	D-2	13 DEC 83	15:28	600
27115	TTR STOP 400°C 1L/M	D-7	13 DEC 83	15:28	600
27016	TTR STOP 400°C 1L/M	D-2	13 DEC 83	15:40	1800
27116	TTR STOP 400°C 1L/M	D-7	13 DEC 83	15:40	1800
27017	TTR STOP 400°C 1L/M	D-4	13 DEC 83	16:15	1800
27117	TTR STOP 400°C 1L/M	D-9	13 DEC 83	16:15	1800

DISK NO. 27380

TAG NO.	DATA I.O.	DETECTOR POSITION	DATE	START TIME	COUNT TIME
27027	TTR STOP 400°C 1L/M	D-4	14 DEC 83	03:38	3600
27127	TTR STOP 400°C 1L/M	D-9	14 DEC 83	03:38	3600
27028	TTR STOP 400°C 1L/M	D-6	14 DEC 83	04:46	3600
27128	TTR STOP 400°C 1L/M	D-3	14 DEC 83	04:46	3600
27029	TTR STOP 400°C 1L/M	D-8	14 DEC 83	05:54	3600
27129	TTR STOP 400°C 1L/M	D-5	14 DEC 83	05:54	3600
27030	TTR STOP 400°C 1L/M	D-10	14 DEC 83	07:00	3600
27130	TTR STOP 400°C 1L/M	D-11	14 DEC 83	07:00	3600
27031	TTR STOP 400°C 1L/M	D-2	14 DEC 83	10:00	3600
27131	TTR STOP 400°C 1L/M	D-7	14 DEC 83	10:00	3600
27032	TTR STOP 400°C 1L/M	D-4	14 DEC 83	11:11	3600
27132	TTR STOP 400°C 1L/M	D-9	14 DEC 83	11:11	3600
27033	TTR STOP 400°C 1L/M	D-6	14 DEC 83	12:20	3600
27133	TTR STOP 400°C 1L/M	D-3	14 DEC 83	12:20	3600
27034	TTR STOP 400°C 1L/M	D-8	14 DEC 83	13:27	3600
27134	TTR STOP 400°C 1L/M	D-5	14 DEC 83	13:27	3600
27035	TTR STOP 400°C 1L/M	D-10	14 DEC 83	14:35	3600
27135	TTR STOP 400°C 1L/M	D-11	14 DEC 83	14:35	3600

Appendix B (continued)

EXP NO. 22 (continued)

DISK NO. 27488

TAG NO.	DATA I.D.	DETECTOR POSITION	DATE	START TIME	COUNT TIME
27036	TTR STOP 400°C ILM	D-2	14 DEC 83	17:29	3600
27136	TTR STOP 400°C ILM	D-7	14 DEC 83	17:29	3600
27037	TTR STOP 400°C ILM	D-4	14 DEC 83	18:36	3600
27137	TTR STOP 400°C ILM	D-9	14 DEC 83	18:36	3600
27038	TTR STOP 400°C ILM	D-6	14 DEC 83	19:43	3600
27138	TTR STOP 400°C ILM	D-3	14 DEC 83	19:43	3600
27039	TTR STOP 400°C ILM	D-8	14 DEC 83	20:49	3600
27139	TTR STOP 400°C ILM	D-5	14 DEC 83	20:49	3600
27040	TTR STOP 400°C ILM	D-10	14 DEC 83	22:16	3600
27140	TTR STOP 400°C ILM	D-11	14 DEC 83	22:16	3600
27041	TTR STOP 400°C ILM	D-2	15 DEC 83	01:10	3600
27141	TTR STOP 400°C ILM	D-7	15 DEC 83	01:10	3600
27042	TTR STOP 400°C ILM	D-4	15 DEC 83	02:17	3600
27142	TTR STOP 400°C ILM	D-9	15 DEC 83	02:17	3600
27043	TTR STOP 400°C ILM	D-6	15 DEC 83	03:24	3600
27143	TTR STOP 400°C ILM	D-3	15 DEC 83	03:24	3600
27044	TTR STOP 400°C ILM	D-8	15 DEC 83	04:30	3600
27144	TTR STOP 400°C ILM	D-5	15 DEC 83	04:30	3600

DISK NO. 27500

TAG NO.	DATA I.D.	DETECTOR POSITION	DATE	START TIME	COUNT TIME
27045	TTR STOP 400°C ILM	D-10	15 DEC 83	05:38	3600
27145	TTR STOP 400°C ILM	D-11	15 DEC 83	05:38	3600
27046	TTR STOP 400°C ILM	D-2	15 DEC 83	06:44	3600
27146	TTR STOP 400°C ILM	D-7	15 DEC 83	06:44	3600

Appendix B (continued)

EXP NO. 23 ( NA TEMP. 500°C , NA FLOW RATE 0-5LITER/MIN )

DISK NO. 28000

TAG NO.	DATA I.D.	DETECTOR POSITION	DATE	START TIME	COUNT TIME
28000	500°C 5L/M BEFORE IRR.	D-2	15 DEC 83	08:50	3600
28100	500°C 5L/M BEFORE IRR.	D-9	15 DEC 83	08:50	3600
28001	TTR 100KW 500°C 5L/M	D-2	15 DEC 83	12:07	600
28101	TTR 100KW 500°C 5L/M	D-9	15 DEC 83	12:07	600
28002	TTR 100KW 500°C 5L/M	D-2	15 DEC 83	12:20	600
28102	TTR 100KW 500°C 5L/M	D-9	15 DEC 83	12:20	600
28003	TTR 100KW 500°C 4.2L/M	D-2	15 DEC 83	12:41	600
28103	TTR 100KW 500°C 4.2L/M	D-9	15 DEC 83	12:41	600
28004	TTR 100KW 500°C 4.2L/M	D-2	15 DEC 83	12:53	600
28104	TTR 100KW 500°C 4.2L/M	D-9	15 DEC 83	12:53	600
28005	TTR 100KW NA DRAIN	D-2	15 DEC 83	13:21	600
28105	TTR 100KW NA DRAIN	D-9	15 DEC 83	13:21	600
28006	TTR 100KW NA DRAIN	D-2	15 DEC 83	13:34	600
28106	TTR 100KW NA DRAIN	D-9	15 DEC 83	13:34	600
28007	TTR STOP NA DRAIN	D-2	15 DEC 83	14:05	600
28107	TTR STOP NA DRAIN	D-9	15 DEC 83	14:05	600
28008	TTR STOP NA DRAIN	D-2	15 DEC 83	14:18	600
28108	TTR STOP NA DRAIN	D-9	15 DEC 83	14:18	600

Appendix B (continued)

EXP NO. 24 ( NA TEMP. 270°C , NA FLOW RATE. 5LITER/MIN )

DISK NO. 29000

TAG NO.	DATA I.D.	DETECTOR POSITION	DATE	START TIME	COUNT TIME
29000	270°C 5L/M BEFORE IRR.	0-2	26 JAN 84	09:40	3600
29100	270°C 5L/M BEFORE IRR.	0-7	26 JAN 84	09:40	3600
29001	TTR 100KW 270°C 5L/M	0-2	26 JAN 84	11:10	300
29101	TTR 100KW 270°C 5L/M	0-7	26 JAN 84	11:10	300
29002	TTR 100KW 270°C 5L/M	0-2	26 JAN 84	11:18	300
29102	TTR 100KW 270°C 5L/M	0-7	26 JAN 84	11:18	300
29003	TTR 100KW 270°C 5L/M	0-2	26 JAN 84	11:26	300
29103	TTR 100KW 270°C 5L/M	0-7	26 JAN 84	11:26	300
29004	TTR 100KW 270°C 5L/M	0-2	26 JAN 84	11:34	600
29104	TTR 100KW 270°C 5L/M	0-7	26 JAN 84	11:34	600
29005	TTR 100KW 270°C 5L/M	0-2	26 JAN 84	11:47	600
29105	TTR 100KW 270°C 5L/M	0-7	26 JAN 84	11:47	600
29006	TTR 100KW 270°C 5L/M	0-2	26 JAN 84	12:00	1800
29106	TTR 100KW 270°C 5L/M	0-7	26 JAN 84	12:00	1800
29007	TTR 100KW 270°C 5L/M	0-4	26 JAN 84	12:36	1800
29107	TTR 100KW 270°C 5L/M	0-9	26 JAN 84	12:36	1800
29008	TTR 100KW 270°C 5L/M	0-6	26 JAN 84	13:19	1800
29108	TTR 100KW 270°C 5L/M	0-3	26 JAN 84	13:19	1800

DISK NO. 29200

TAG NO.	DATA I.D.	DETECTOR POSITION	DATE	START TIME	COUNT TIME
29019	NA DRAIN	0-6	26 JAN 84	16:25	600
29119	NA DRAIN	0-3	26 JAN 84	16:25	600
29020	NA DRAIN	0-8	26 JAN 84	16:43	600
29120	NA DRAIN	0-5	26 JAN 84	16:43	600
29021	NA DRAIN	0-2	26 JAN 84	16:56	2400
29121	NA DRAIN	0-7	26 JAN 84	16:56	2400
29022	NA DRAIN	0-4	26 JAN 84	17:41	2400
29122	NA DRAIN	0-9	26 JAN 84	17:41	2400
29023	NA DRAIN	0-6	26 JAN 84	18:24	2400
29123	NA DRAIN	0-3	26 JAN 84	18:24	2400
29024	NA DRAIN	0-8	26 JAN 84	19:08	2400
29124	NA DRAIN	0-5	26 JAN 84	19:08	2400
29025	NA DRAIN	0-2	27 JAN 84	09:35	3600
29125	NA DRAIN	0-7	27 JAN 84	09:35	3600
29026	NA DRAIN	0-4	27 JAN 84	10:41	3600
29126	NA DRAIN	0-9	27 JAN 84	10:41	3600
29027	NA DRAIN	0-6	27 JAN 84	11:47	3600
29127	NA DRAIN	0-3	27 JAN 84	11:47	3600

DISK NO. 29100

TAG NO.	DATA I.D.	DETECTOR POSITION	DATE	START TIME	COUNT TIME
29009	TTR 100KW 270°C 5L/M	0-8	26 JAN 84	13:44	1800
29109	TTR 100KW 270°C 5L/M	0-3	26 JAN 84	13:44	1800
29010	TTR 100KW 270°C 5L/M	0-10	26 JAN 84	14:19	1800
29110	TTR 100KW 270°C 5L/M	0-11	26 JAN 84	14:19	1800
29011	TTR 100KW 270°C 5L/M	0-2	26 JAN 84	15:03	301
29111	TTR 100KW 270°C 5L/M	0-5	26 JAN 84	15:03	301
29012	NA DRAIN 270°C 5L/M	0-2	26 JAN 84	15:12	60
29112	NA DRAIN 270°C 5L/M	0-5	26 JAN 84	15:12	60
29013	NA DRAIN 270°C 5L/M	0-2	26 JAN 84	15:13	60
29113	NA DRAIN 270°C 5L/M	0-5	26 JAN 84	15:13	60
29014	NA DRAIN	0-2	26 JAN 84	15:17	300
29114	NA DRAIN	0-5	26 JAN 84	15:17	300
29015	NA DRAIN	0-2	26 JAN 84	15:26	300
29115	NA DRAIN	0-5	26 JAN 84	15:26	300
29016	NA DRAIN	0-10	26 JAN 84	15:34	600
29116	NA DRAIN	0-11	26 JAN 84	15:34	600
29017	NA DRAIN	0-2	26 JAN 84	15:51	600
29117	NA DRAIN	0-7	26 JAN 84	15:51	600
29018	NA DRAIN	0-4	26 JAN 84	16:10	600
29118	NA DRAIN	0-9	26 JAN 84	16:10	600

DISK NO. 29300

TAG NO.	DATA I.D.	DETECTOR POSITION	DATE	START TIME	COUNT TIME
29028	NA DRAIN	0-8	27 JAN 84	13:01	3600
29128	NA DRAIN	0-5	27 JAN 84	13:01	3600
29029	NA DRAIN	0-10	27 JAN 84	14:12	3600
29129	NA DRAIN	0-11	27 JAN 84	14:12	3600

Appendix B (continued)

EXP NO. 25 ( NA TEMP. 300°C , NA FLOW RATE. 1LITER/MIN )

DISK NO. 30000

TAG NO.	DATA I.D.	DETECTOR POSITION	DATE	START TIME	COUNT TIME
30000	300°C ILM BEFORE IRR.	D-2	31 JAN 84	10:47	1251
30100	300°C ILM BEFORE IRR.	D-7	31 JAN 84	10:47	1251
30001	TTR 100KW 300°C ILM	D-2	31 JAN 84	11:15	300
30101	TTR 100KW 300°C ILM	D-7	31 JAN 84	11:15	300
30002	TTR 100KW 300°C ILM	D-2	31 JAN 84	11:23	300
30102	TTR 100KW 300°C ILM	D-7	31 JAN 84	11:23	300
30003	TTR 100KW 300°C ILM	D-2	31 JAN 84	11:31	300
30103	TTR 100KW 300°C ILM	D-7	31 JAN 84	11:31	300
30004	TTR 100KW 300°C ILM	D-2	31 JAN 84	11:40	600
30104	TTR 100KW 300°C ILM	D-7	31 JAN 84	11:40	600
30005	TTR 100KW 300°C ILM	D-2	31 JAN 84	11:53	600
30105	TTR 100KW 300°C ILM	D-7	31 JAN 84	11:53	600
30006	TTR 100KW 300°C ILM	D-2	31 JAN 84	12:07	1800
30106	TTR 100KW 300°C ILM	D-7	31 JAN 84	12:07	1800
30007	TTR 100KW 300°C ILM	D-4	31 JAN 84	12:44	1800
30107	TTR 100KW 300°C ILM	D-9	31 JAN 84	12:44	1800
30008	TTR 100KW 300°C ILM	D-6	31 JAN 84	13:18	1800
30108	TTR 100KW 300°C ILM	D-3	31 JAN 84	13:18	1800

DISK NO. 30200

TAG NO.	DATA I.D.	DETECTOR POSITION	DATE	START TIME	COUNT TIME
30018	TTR STOP 300°C ILM	D-2	31 JAN 84	18:58	3600
30118	TTR STOP 300°C ILM	D-7	31 JAN 84	18:58	3600
30019	TTR STOP 300°C ILM	D-4	31 JAN 84	19:57	3600
30119	TTR STOP 300°C ILM	D-9	31 JAN 84	19:57	3600
30020	TTR STOP 300°C ILM	D-6	31 JAN 84	21:05	3600
30120	TTR STOP 300°C ILM	D-3	31 JAN 84	21:05	3600
30021	TTR STOP 300°C ILM	D-8	31 JAN 84	22:12	3600
30121	TTR STOP 300°C ILM	D-5	31 JAN 84	22:12	3600
30022	TTR STOP 300°C ILM	D-10	31 JAN 84	23:18	3600
30122	TTR STOP 300°C ILM	D-11	31 JAN 84	23:18	3600
30023	TTR STOP 300°C ILM	D-2	1 FEB 84	00:27	10800
30123	TTR STOP 300°C ILM	D-7	1 FEB 84	00:27	10800
30024	TTR STOP 300°C ILM	D-4	1 FEB 84	03:37	3600
30124	TTR STOP 300°C ILM	D-9	1 FEB 84	03:37	3600
30025	TTR STOP 300°C ILM	D-6	1 FEB 84	04:50	3600
30125	TTR STOP 300°C ILM	D-3	1 FEB 84	04:50	3600
30026	TTR STOP 300°C ILM	D-8	1 FEB 84	06:00	3600
30126	TTR STOP 300°C ILM	D-5	1 FEB 84	06:00	3600

DISK NO. 30100

TAG NO.	DATA I.D.	DETECTOR POSITION	DATE	START TIME	COUNT TIME
30009	TTR 100KW 300°C ILM	D-2	31 JAN 84	13:53	1800
30109	TTR 100KW 300°C ILM	D-7	31 JAN 84	13:53	1800
30010	TTR 100KW 300°C ILM	D-10	31 JAN 84	14:26	1800
30110	TTR 100KW 300°C ILM	D-11	31 JAN 84	14:26	1800
30011	TTR 100KW 300°C ILM	D-2	31 JAN 84	14:59	300
30111	TTR 100KW 300°C ILM	D-7	31 JAN 84	14:59	300
30012	TTR 100KW 300°C ILM	D-2	31 JAN 84	15:08	300
30112	TTR 100KW 300°C ILM	D-7	31 JAN 84	15:08	300
30013	TTR STOP 300°C ILM	D-2	31 JAN 84	15:16	300
30113	TTR STOP 300°C ILM	D-7	31 JAN 84	15:16	300
30014	TTR STOP 300°C ILM	D-2	31 JAN 84	15:24	300
30114	TTR STOP 300°C ILM	D-7	31 JAN 84	15:24	300
30015	TTR STOP 300°C ILM	D-2	31 JAN 84	15:31	600
30115	TTR STOP 300°C ILM	D-7	31 JAN 84	15:31	600
30016	TTR STOP 300°C ILM	D-2	31 JAN 84	15:44	1800
30116	TTR STOP 300°C ILM	D-7	31 JAN 84	15:44	1800
30017	TTR STOP 300°C ILM	D-4	31 JAN 84	16:20	1800
30117	TTR STOP 300°C ILM	D-9	31 JAN 84	16:20	1800

DISK NO. 30300

TAG NO.	DATA I.D.	DETECTOR POSITION	DATE	START TIME	COUNT TIME
30027	TTR STOP 300°C ILM	D-10	1 FEB 84	07:06	3600
30127	TTR STOP 300°C ILM	D-11	1 FEB 84	07:06	3600
30028	FROM 300°C TO 500°C SLM	D-2	1 FEB 84	08:13	7200
30128	FROM 300°C TO 500°C SLM	D-7	1 FEB 84	08:13	7200

Appendix B (continued)

EXP NO. 26 ( NA TEMP. 500°C , NA FLOW RATE. 1-5LITER/MIN )

DISK NO. 31000

TAG NO.	DATA I.D.	DETECTOR POSITION	DATE	START TIME	COUNT TIME
31000	500°C 5L/M BEFORE IRR.	D-2	1 FEB 84	10:24	1000
31100	500°C 5L/M BEFORE IRR.	D-7	1 FEB 84	10:24	1000
31001	NA DRAIN	D-2	1 FEB 84	15:10	1000
30101	NA DRAIN	D-5	1 FEB 84	15:10	1000
30002	NA DRAIN	D-2	1 FEB 84	15:40	1000
30102	NA DRAIN	D-5	1 FEB 84	15:40	1000
30003	NA DRAIN	D-2	1 FEB 84	16:14	1000
30103	NA DRAIN	D-5	1 FEB 84	16:14	1000

EXP NO. 27 ( NA TEMP. 500°C , NA FLOW RATE. 5LITER/MIN )

DISK NO. 32000

TAG NO.	DATA I.D.	DETECTOR POSITION	DATE	START TIME	COUNT TIME
32000	TTR 100KW 500°C 5L/M	D-2	14 FEB 84	14:35	1799
32100	TTR 100KW 500°C 5L/M	D-7	14 FEB 84	14:35	1799
32001	TTR STOP 500°C 5L/M	D-2	14 FEB 84	15:11	300
32101	TTR STOP 500°C 5L/M	D-7	14 FEB 84	15:11	300
32002	NA DRAIN	D-2	14 FEB 84	15:20	300
32102	NA DRAIN	D-7	14 FEB 84	15:20	300
32003	NA DRAIN	D-2	14 FEB 84	15:30	600
32103	NA DRAIN	D-7	14 FEB 84	15:30	600
32004	NA DRAIN	D-4	14 FEB 84	15:44	600
32104	NA DRAIN	D-9	14 FEB 84	15:44	600
32005	NA DRAIN	D-6	14 FEB 84	15:59	600
32105	NA DRAIN	D-3	14 FEB 84	15:59	600
32006	NA DRAIN	D-8	14 FEB 84	16:13	600
32106	NA DRAIN	D-5	14 FEB 84	16:13	600
32007	NA DRAIN	D-2	14 FEB 84	16:27	3000
32107	NA DRAIN	D-7	14 FEB 84	16:27	3000
32008	NA DRAIN	D-4	14 FEB 84	17:22	3000
32108	NA DRAIN	D-9	14 FEB 84	17:22	3000

DISK NO. 32100

TAG NO.	DATA I.D.	DETECTOR POSITION	DATE	START TIME	COUNT TIME
32009	NA DRAIN	D-6	14 FEB 84	18:15	3000
32109	NA DRAIN	D-3	14 FEB 84	18:15	3000
32010	NA DRAIN	D-8	14 FEB 84	19:00	3000
32110	NA DRAIN	D-5	14 FEB 84	19:00	3000
32011	NA DRAIN	D-2	15 FEB 84	09:00	7200
32111	NA DRAIN	D-7	15 FEB 84	09:00	7200
32012	NA DRAIN	D-4	15 FEB 84	11:12	7200
32112	NA DRAIN	D-9	15 FEB 84	11:12	7200
32013	NA DRAIN	D-6	15 FEB 84	13:16	7200
32113	NA DRAIN	D-3	15 FEB 84	13:16	7200
32014	NA DRAIN	D-8	15 FEB 84	15:24	7200
32114	NA DRAIN	D-5	15 FEB 84	15:24	7200
32015	NA DRAIN	D-10	15 FEB 84	17:27	3600
32115	NA DRAIN	D-11	15 FEB 84	17:27	3600

Appendix B (continued)

EXP NO. 29 ( NA TEMP. 500°C , NA FLOW RATE 5LITER/MIN )

DISK NO. 33000

TAG NO.	DATA I.D.	DETECTOR POSITION	DATE	START TIME	COUNT TIME
33000	500°C 5L/M BEFORE IRR.	D-2	28 FEB 84	08:52	7200
33100	500°C 5L/M BEFORE IRR.	D-7	28 FEB 84	08:52	7200
33001	TTR 100KW 500°C 5L/M	D-2	28 FEB 84	11:18	300
33101	TTR 100KW 500°C 5L/M	D-7	28 FEB 84	11:18	300
33002	TTR 100KW 500°C 5L/M	D-2	28 FEB 84	11:26	300
33102	TTR 100KW 500°C 5L/M	D-7	28 FEB 84	11:26	300
33003	TTR 100KW 500°C 5L/M	D-2	28 FEB 84	11:33	300
33103	TTR 100KW 500°C 5L/M	D-7	28 FEB 84	11:33	300
33004	TTR 100KW 500°C 5L/M	D-2	28 FEB 84	11:41	600
33104	TTR 100KW 500°C 5L/M	D-7	28 FEB 84	11:41	600
33005	TTR 100KW 500°C 5L/M	D-2	28 FEB 84	11:54	1800
33105	TTR 100KW 500°C 5L/M	D-7	28 FEB 84	11:54	1800
33006	TTR 100KW 500°C 5L/M	D-4	28 FEB 84	12:31	1800
33106	TTR 100KW 500°C 5L/M	D-9	28 FEB 84	12:31	1800
33007	TTR 100KW 500°C 5L/M	D-6	28 FEB 84	13:04	1800
33107	TTR 100KW 500°C 5L/M	D-3	28 FEB 84	13:04	1800
33008	TTR 100KW 500°C 5L/M	D-8	28 FEB 84	13:37	1800
33108	TTR 100KW 500°C 5L/M	D-5	28 FEB 84	13:37	1800

DISK NO. 33200

TAG NO.	DATA I.D.	DETECTOR POSITION	DATE	START TIME	COUNT TIME
33018	TTR STOP 500°C 5L/M	D-8	28 FEB 84	17:58	1800
33118	TTR STOP 500°C 5L/M	D-5	28 FEB 84	17:58	1800
33019	TTR STOP 500°C 5L/M	D-10	28 FEB 84	18:30	1800
33119	TTR STOP 500°C 5L/M	D-11	28 FEB 84	18:30	1800
33020	TTR STOP 500°C 5L/M	D-2	28 FEB 84	19:05	3600
33120	TTR STOP 500°C 5L/M	D-7	28 FEB 84	19:05	3600
33021	TTR STOP 500°C 5L/M	D-4	28 FEB 84	20:11	3600
33121	TTR STOP 500°C 5L/M	D-9	28 FEB 84	20:11	3600
33022	TTR STOP 500°C 5L/M	D-6	28 FEB 84	21:18	3600
33122	TTR STOP 500°C 5L/M	D-3	28 FEB 84	21:18	3600
33023	TTR STOP 500°C 5L/M	D-8	28 FEB 84	22:23	3600
33123	TTR STOP 500°C 5L/M	D-5	28 FEB 84	22:23	3600
33024	TTR STOP 500°C 5L/M	D-10	28 FEB 84	23:28	18000
33124	TTR STOP 500°C 5L/M	D-11	28 FEB 84	23:28	18000
33025	TTR STOP 500°C 5L/M	D-2	29 FEB 84	02:52	3600
33125	TTR STOP 500°C 5L/M	D-7	29 FEB 84	02:52	3600
33026	TTR STOP 500°C 5L/M	D-4	29 FEB 84	03:59	3600
33126	TTR STOP 500°C 5L/M	D-9	29 FEB 84	03:59	3600

DISK NO. 33100

TAG NO.	DATA I.D.	DETECTOR POSITION	DATE	START TIME	COUNT TIME
33009	TTR 100KW 500°C 5L/M	D-10	28 FEB 84	14:11	1800
33109	TTR 100KW 500°C 5L/M	D-11	28 FEB 84	14:11	1800
33010	TTR 100KW 500°C 0L/M	D-2	28 FEB 84	14:45	300
33110	TTR 100KW 500°C 0L/M	D-7	28 FEB 84	14:45	300
33011	TTR 100KW 500°C 0L/M	D-2	28 FEB 84	14:52	300
33111	TTR 100KW 500°C 0L/M	D-7	28 FEB 84	14:52	300
33012	TTR 100KW 500°C 5L/M	D-2	28 FEB 84	15:05	300
33112	TTR 100KW 500°C 5L/M	D-7	28 FEB 84	15:05	300
33013	TTR STOP 500°C 5L/M	D-2	28 FEB 84	15:18	300
33113	TTR STOP 500°C 5L/M	D-7	28 FEB 84	15:18	300
33014	TTR STOP 500°C 5L/M	D-2	28 FEB 84	15:26	600
33114	TTR STOP 500°C 5L/M	D-7	28 FEB 84	15:26	600
33015	TTR STOP 500°C 5L/M	D-2	28 FEB 84	15:38	1800
33115	TTR STOP 500°C 5L/M	D-7	28 FEB 84	15:38	1800
33016	TTR STOP 500°C 5L/M	D-4	28 FEB 84	16:13	1800
33116	TTR STOP 500°C 5L/M	D-9	28 FEB 84	16:13	1800
33017	TTR STOP 500°C 5L/M	D-6	28 FEB 84	16:44	1800
33117	TTR STOP 500°C 5L/M	D-3	28 FEB 84	16:44	1800

DISK NO. 33300

TAG NO.	DATA I.D.	DETECTOR POSITION	DATE	START TIME	COUNT TIME
33027	TTR STOP 500°C 5L/M	D-6	29 FEB 84	05:06	3600
33127	TTR STOP 500°C 5L/M	D-3	29 FEB 84	05:06	3600
33028	TTR STOP 500°C 5L/M	D-8	29 FEB 84	07:01	3600
33128	TTR STOP 500°C 5L/M	D-5	29 FEB 84	07:01	3600
33029	TTR STOP 500°C 5L/M	D-10	29 FEB 84	08:14	3600
33129	TTR STOP 500°C 5L/M	D-11	29 FEB 84	08:14	3600
33030	TTR STOP 500°C 5L/M	D-2	29 FEB 84	09:21	7200
33130	TTR STOP 500°C 5L/M	D-7	29 FEB 84	09:21	7200
33031	TTR STOP 500°C 5L/M	D-4	29 FEB 84	11:31	3600
33131	TTR STOP 500°C 5L/M	D-9	29 FEB 84	11:31	3600
33032	TTR STOP 500°C 5L/M	D-6	29 FEB 84	12:37	3600
33132	TTR STOP 500°C 5L/M	D-3	29 FEB 84	12:37	3600
33033	TTR STOP 500°C 5L/M	D-8	29 FEB 84	13:46	3600
33133	TTR STOP 500°C 5L/M	D-5	29 FEB 84	13:46	3600
33034	TTR STOP 500°C 5L/M	D-10	29 FEB 84	14:56	3600
33134	TTR STOP 500°C 5L/M	D-11	29 FEB 84	14:56	3600
33035	TTR STOP 500°C 5L/M	D-2	29 FEB 84	17:00	3600
33135	TTR STOP 500°C 5L/M	D-7	29 FEB 84	17:00	3600

Appendix B (continued)

EXP NO. 28 ( continued )

DISK NO. 33400

TAG NO.	DATA I.D.	DETECTOR POSITION	DATE	START TIME	COUNT TIME
33036	TTR STOP 500°C 5L/M	D-4	29 FEB 84	18:06	3600
33136	TTR STOP 500°C 5L/M	D-9	29 FEB 84	18:06	3600
33037	TTR STOP 500°C 5L/M	D-6	29 FEB 84	19:16	3600
33137	TTR STOP 500°C 5L/M	D-3	29 FEB 84	19:16	3600
33038	TTR STOP 500°C 5L/M	D-8	29 FEB 84	20:21	3600
33138	TTR STOP 500°C 5L/M	D-5	29 FEB 84	20:21	3600
33039	TTR STOP 500°C 5L/M	D-10	29 FEB 84	21:26	3600
33139	TTR STOP 500°C 5L/M	D-11	29 FEB 84	21:26	3600
33040	TTR STOP 500°C 5L/M	D-2	29 FEB 84	22:32	3600
33140	TTR STOP 500°C 5L/M	D-7	29 FEB 84	22:32	3600
33041	TTR STOP 500°C 5L/M	D-4	29 FEB 84	23:48	3600
33141	TTR STOP 500°C 5L/M	D-9	29 FEB 84	23:48	3600
33042	TTR STOP 500°C 5L/M	D-6	1 MAR 84	00:56	3600
33142	TTR STOP 500°C 5L/M	D-3	1 MAR 84	00:56	3600
33043	TTR STOP 500°C 5L/M	D-8	1 MAR 84	02:03	3600
33143	TTR STOP 500°C 5L/M	D-5	1 MAR 84	02:03	3600
33044	TTR STOP 500°C 5L/M	D-10	1 MAR 84	03:09	3600
33144	TTR STOP 500°C 5L/M	D-11	1 MAR 84	03:09	3600

DISK NO. 33500

TAG NO.	DATA I.D.	DETECTOR POSITION	DATE	START TIME	COUNT TIME
33045	NA DRAIN	D-2	1 MAR 84	04:40	7200
33145	NA DRAIN	D-7	1 MAR 84	04:40	7200
33046	NA DRAIN	D-4	1 MAR 84	06:47	7200
33146	NA DRAIN	D-9	1 MAR 84	06:47	7200
33047	NA DRAIN	D-6	1 MAR 84	08:53	7200
33147	NA DRAIN	D-3	1 MAR 84	08:53	7200
33048	NA DRAIN	D-8	1 MAR 84	11:00	7200
33148	NA DRAIN	D-5	1 MAR 84	11:00	7200
33049	NA DRAIN	D-10	1 MAR 84	13:17	7200
33149	NA DRAIN	D-11	1 MAR 84	13:17	7200
33050	NA DRAIN	D-2	1 MAR 84	15:25	7200
33150	NA DRAIN	D-7	1 MAR 84	15:25	7200



## Appendix C 物質移動モデル

本文でも述べたように、ナトリウム中のFP核種の挙動を定量的に把握するため、ナトリウム中のFPの挙動のモデル化を行う。

一般にFP核種はナトリウム中の挙動の違いから、ガス状FP (Kr, Xe), 揮発性FP (Br, Rb, Te, I, Cs等)及び不揮発性FP (Zr, Ba, La, Ce等)に分類される。遅発中性子を放出する先行FP核種は、Br, I等の揮発性FPである。

そこで、揮発性FPの挙動について以下にモデル化を行う。

### C.1 物質移動モデル

FPのナトリウム中での挙動は、拡散律速の物質移動によって支配されていると考えられる。すなわち、ナトリウム中に放出されたFPは、ナトリウムのバルクな流れと配管内壁面との間に存在する境界層を拡散によって移動して壁面に到達する。この拡散による物質の移動速度は、流速が速い程、またバルクのナトリウム中のFP濃度と壁面近傍のナトリウム中のFP濃度の差が大きい程大きくなる。これらのFPが単位面積当りに移動する速度  $j$  (atoms/cm<sup>2</sup>/sec) は、熱伝達のアナロジーによる物質移動モデルより、

$$j = k_L (\bar{C} - C_s) \quad (C-1)$$

で表わされる。ここに、

$\bar{C}$  : ナトリウムのバルクな流れの中のFP核種の濃度 (atoms / cm<sup>3</sup>)

$C_s$  : 壁面近傍におけるナトリウム中のFP核種の濃度 (atoms / cm<sup>3</sup>)

$k_L$  : 物質移動係数 (cm/sec)

で表わされる。ここで  $k_L$  は、Treybal により<sup>9)</sup>

$$k_L = 0.023 \cdot Re^{0.83} \cdot Sc^{0.33} \cdot D/d \quad (C-2)$$

と表わされる。ここに、 $Re$ ,  $Sc$  はそれぞれ無次元数のレイノルズ数及びシュミット数であり、 $D$  は、ナトリウム中のFP核種の拡散係数 (cm<sup>2</sup>/sec),  $d$  は、円管の直径である。 $Re$ ,  $Sc$  は、ナトリウムの粘性係数  $\mu$  及び密度  $\rho$  を用いて、

$$Re = \frac{v \cdot d}{\mu/\rho}$$

$$Sc = \frac{\mu}{\rho \cdot D}$$

である。尚、 $v$  はナトリウムの流速である。

## C.2 揮発性FPのナトリウム中での輸送モデル

揮発性FPは、ナトリウムの温度変化により、壁面への吸・脱着が可逆的に起ることが知られている。従って、この現象を物質移動モデルにとり入れることにする。吸・脱着過程を説明する図を右に示す。

図中に示した曲線は、円管内の流れに直角方向のナトリウム中FPの濃度分布を示す。 $j$ 、 $\bar{C}$ 、 $C_s$ は、(C-1)式で定義したパラメーターである。

ここで新たに $\overleftarrow{j}$ 、 $\overrightarrow{j}$ 、 $C^w$ のパラメータを導入する。 $\overleftarrow{j}$ は、FPが壁面に吸着する速度を、 $\overrightarrow{j}$ は壁面から脱着する速度を表わし、それぞれ以下のように書ける。吸着速度 $\overleftarrow{j}$  (atoms/cm<sup>2</sup>/sec)は、

$$\overleftarrow{j} = \overleftarrow{k} \cdot C_s \quad (C-3)$$

脱着速度 $\overrightarrow{j}$  (atoms/cm<sup>2</sup>/sec)は、

$$\overrightarrow{j} = \overrightarrow{k} \cdot C^w \quad (C-4)$$

ここで、

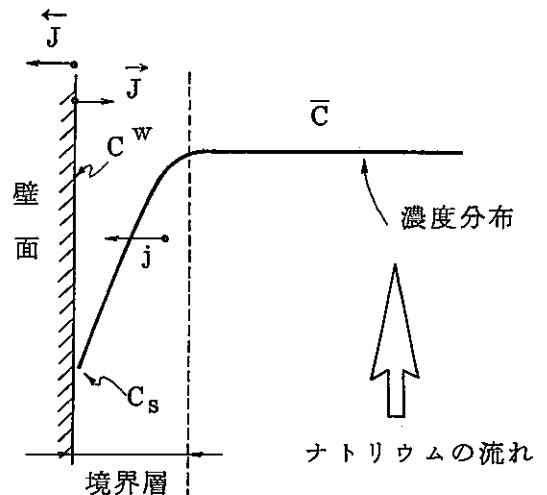
$\overleftarrow{k}$  : 吸着速度定数 (cm/sec)

$\overrightarrow{k}$  : 脱着速度定数 (sec<sup>-1</sup>)

$C^w$  : 壁面のFP核種の濃度 (atoms/cm<sup>2</sup>)

である。 $j$ 、 $\overleftarrow{j}$ 、 $\overrightarrow{j}$ の間には、次の関係が成立する。

$$j = \overleftarrow{j} - \overrightarrow{j} \quad (C-5)$$



このモデルを，ナトリウム中のFPの輸送現象に適用すると，

$$\frac{d\bar{C}}{dt} = -\frac{\ell}{a} j - \lambda \cdot \bar{C} \quad (C-6)$$

ここに， $\ell = 2\pi r$ ， $a = \pi r^2$  ( $r$ は円管の半径)であり， $\lambda$ はFP核種の壊変定数 ( $\text{sec}^{-1}$ )である。 $\bar{C}$ のループに沿った濃度変化は，ナトリウムの流れの方向のみであるから，その方向を $x$ とすると，(C-6)式は，

$$\frac{d\bar{C}(x, t)}{dt} = \frac{\partial \bar{C}(x, t)}{\partial t} + \frac{\partial \bar{C}(x, t)}{\partial x} \cdot \frac{dx}{dt} \quad (C-7)$$

となる。ここで，FPは短半減期であるとする，照射開始後放射能は短時間で飽和に達するから(C-7)式は， $\partial \bar{C} / \partial t = 0$ とおけて， $\bar{C}$ は $x$ のみの関数となり，

$$\frac{d\bar{C}(x)}{dx} = -\frac{\ell}{av} j - \frac{\lambda}{v} \bar{C}(x), \quad \left(\frac{dx}{dt} = v\right) \quad (C-8)$$

となる。一方壁面の濃度 $C^W$ は，

$$\frac{\partial C^W(x, t)}{\partial t} = j - \lambda \cdot C^W(x, t)$$

が成立するが，壁面の濃度も短時間で飽和に達するから $\partial C^W / \partial t = 0$ となり，

$$j = \lambda \cdot C^W(x) \quad (C-9)$$

が導びかれる。(C-5)式に(C-3)，(C-4)式を代入し，(C-9)式と組み合せると，

$$C^W(x) = \left\{ \bar{k} / (\lambda + \bar{k}) \right\} \cdot C_s(x) = K^W \cdot C_s(x) \quad (C-10)$$

となる。そこで，(C-1)，(C-8)，(C-10)式を連立させて $C_s(x)$ を消去すると，

$$\frac{d\bar{C}(x)}{dx} = -\frac{\lambda}{v} \left\{ \frac{k_L \cdot K^W}{\lambda \cdot K^W + k_L} \cdot (\ell/a) + 1 \right\} \bar{C}(x) \quad (C-11)$$

となる。ここで，

$$\alpha = \frac{\lambda}{v} \left\{ \frac{k_L \cdot K^W}{\lambda \cdot K^W + k_L} \cdot (\ell/a) + 1 \right\} \quad (C-12)$$

とおくと、( C - 11 ) 式は、

$$\frac{d\bar{C}(x)}{dx} = -\alpha \cdot \bar{C}(x)$$

となり、 $x=0$  (燃料部) での初期濃度  $\bar{C}_0$  ( atoms/cm<sup>3</sup> ) を用いて、

$$\bar{C}(x) = \bar{C}_0 \cdot e^{-\alpha \cdot x} \quad (C-13)$$

と解け、ナトリウム中の FP 濃度は、ループに沿って指数分布となることが推定される。

一方壁面の濃度は、

$$C^W(x) = \frac{k_L \cdot K^W}{\lambda \cdot K^W + k_L} \cdot \bar{C}(x) \quad (C-14)$$

となる。この係数を分配係数  $K_a$  ( cm ) と定義すると、

$$C^W(x) = K_a \cdot \bar{C}(x) \quad (C-15)$$

となり、また ( C - 12 ) 式の  $\alpha$  も、

$$\alpha = \frac{\lambda}{v} \{ K_a \cdot (\ell/a) + 1 \} \quad (C-16)$$

という簡単な形に書くことができる。

尚、 $\bar{C}_0$  は次のようにして求められる。初期濃度  $\bar{C}_0$  は、燃料から放出された FP と、ループ終端から燃料部に流入する FP の和で表わされるから、

$$\bar{C}_0 = \bar{C}(L) + P/F \quad (C-17)$$

ここで、 $L$  はループの全長、 $P$  は FP の放出速度 ( atoms/sec )、 $F$  は流量 ( cm<sup>3</sup>/sec ) である。上式に  $\bar{C}(L) = \bar{C}_0 \cdot e^{-\alpha \cdot L}$  を代入して  $\bar{C}_0$  について解くと、

$$\bar{C}_0 = P/F \cdot (1 - e^{-\alpha \cdot L}) \quad (C-18)$$

が成立する。