

本資料は 年 月 日付で登録区分、
変更する。

0 1.11.30

[技術情報室]

炉内ループによるFP挙動試験 (Ⅲ)

— ループ解体検査 —

(受託研究)

1985年2月

炉内ループによるFP挙動試験(Ⅲ)

— ループ解体検査 —

**	**
酒井拓彦	住吉重夫
***	****
玉置哲男	遠藤 寛
**	
宮地延吉	

要 旨

FBRで破損燃料から放出される核分裂生成物(FP)の一次冷却系内における挙動を調べるために、昭和57年9月より昭和59年4月まで、炉内核分裂生成物挙動試験ループ(FPL-Ⅱ)を用いて33回の照射試験を実施した。今年度は長半減期FPおよび放射性腐食生成物(CP)のループ内沈着挙動を明らかにすることを目的として、FPL-Ⅱを解体し、ループから試験片を切り出して解体検査を実施した。また、これまで実施してきた照射試験結果を用いて、短半減期不揮発性FPに対する沈着挙動解析を実施した。更に、破損燃料に対する検出条件と検出方法に関する基礎的な知見を得ることを目的として、FPL-Ⅱ装荷燃料に対するk factorの評価、及び遅発中性子(DN)計数率に対する雑音信号の測定と解析を実施した。

解体検査では、試験片をγ線測定してFPおよびCPのループ内分布を求めた。 ^{95}Zr 、 ^{95}Nb 、 ^{103}Ru 、 ^{106}Rh 、 ^{137}Cs 、 ^{141}Ce 、 ^{144}Ce 等の長半減期FPのγ線ピークがループの全ての場所で検出された。Zr、Nb、RuおよびCeはループに沿って沈着量が減少する下流効果を示した。Csは、ナトリウム弁およびコールドトラップで他の部分より高い沈着挙動を示した。CPについては、 ^{54}Mn が電磁ポンプ部で検出されたが、 ^{60}Co は検出されなかった。またウランのループ内沈着分布を、放射化分析法により求めた。その結果、ウランの沈着も下流効果を示した。

* 本報告書は株式会社 東芝が、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(契約番号 590D146)。

** 株式会社東芝 総合研究所

*** 日本原子力事業株式会社 総合研究所

**** 株式会社東芝 原子力事業本部

長さ25 mのディレイライン配管に沿って測定されたr線強度分布を解析することによって、短半減期FPの沈着挙動に関し下記の結論が得られた。

(1) SrおよびYの沈着は非可逆的であり、ナトリウム温度が高い程沈着速度は速くなる。

これらFP核種の沈着過程における活性化エネルギーは 9.2 ± 0.3 (KJ/g-atom)で、沈着過程は、配管表面でのナトリウム境界層におけるFP核種の拡散過程によって支配される。

(2) ZrおよびBaの沈着過程は、ナトリウム温度が170℃から350℃の間では拡散過程によって支配されるが、350℃以上では脱着の寄与が大きくなり、実効的な沈着速度は拡散支配の場合に比較して減少する。

(3) ナトリウム中の酸素濃度は、Zrの沈着挙動に大きな影響を与え、高酸素濃度では脱着が促進される。しかし、その他のFPの沈着挙動に対する酸素濃度の影響は顕著ではない。

本研究で明らかとなった不揮発性FPの沈着挙動は以下の表のようにまとめられる。

元素	沈 着 挙 動			
	概 要	温度依存性	酸素濃度依存性	脱着の可能性
Sr	拡散支配による物質移動モデルに従う。	大(拡散支配)	影響小	小
Y	同上	同上	同上	小
Zr	350℃以下では拡散支配。	小	影響大(脱着が促進される)	あり
Nb	500℃ではNaに溶解性。	*	*	大
Ba	350℃以下では拡散支配。	中	影響小	あり
La	同上	中	同上	あり
Ru	ダウンストリーム効果。	*	*	*
Cs	均一に分布(一部の箇所の特異的に沈着)。	*	*	*
Ce	ダウンストリーム効果。	*	*	*
U	同上	*	*	*

* 本解析では明らかでない。

FPL-IIに装荷されている照射試料(UO₂粒子)のk factor (roughness factor)については、揮発性FPのr線測定結果と熱中性子束密度の値を用いて算出を行ない、平均値として0.4の値を得た。k factorが1以下の値になった理由については、今後実施される予定の照射試料の燃焼度測定結果(照射後試験)を考慮して更に検討する必要がある。

FPL-IIのDN計数率に含まれる雑音信号解析はDND信号を用いた燃料破損検出の感度を向上させるための知見を得るために行ったものである。本評価では、定常的な破損状態において生じる計数率雑音の周波数特性は白色であること、低温時には系統温度の変動が大きな雑音源となることが明らかとなった。



Inpile Fission Product Behavior Test Loop (FPL-II)
Experiments (III)*

Takuhiko SAKAI** Shigeo SUMIYOSHI** Tetsuo TAMAOKI***
Hiroshi ENDO**** Nobuyoshi MIYAJI**

Abstract

A total of thirty-three irradiation tests were carried out using the Inpile Fission Product Behavior Test Loop (FPL-II) from September 1982 through April 1984 in order to study the behavior of fission products released from failed fuel in an LMFBR primary cooling system. After the irradiation tests, the loop was cut into many pieces to measure the deposited fission products and corrosion products.

Gamma ray spectroscopy of all test pieces was obtained to investigate the fission product and corrosion product distribution along the loop. Long-lived fission products, such as ^{95}Zr , ^{95}Nb , ^{103}Ru , ^{106}Rh , ^{137}Cs , ^{141}Ce and ^{144}Ce , were detected throughout the whole loop. The Zr, Nb, Ru and Ce depositions showed some down stream effect along the loop. Cs showed higher deposition at valves and a cold trap. Corrosion products, such as ^{54}Mn , were detected at the electromagnetic pump, but ^{60}Co could not be detected throughout the loop. Uranium deposition was measured based on the activation analysis on the test pieces by using an experimental reactor. The results revealed that the uranium deposition distribution has a down stream effect.

The deposition behavior of short-lived non-volatile

-
- * Work performed by Toshiba Corporation under contract with Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation.
 - ** Toshiba Corporation, Research and Development Center.
 - *** Nippon Atomic Industry Group Co., Ltd., NAIG Nuclear Research Laboratory.
 - **** Toshiba Corporation, Nuclear Energy Group.

fission products was analyzed by using the gamma spectra along the 25 meter-long delay line during irradiation. The obtained deposition behavior for several non-volatile fission products was as follows:

- 1) Sr and Y nuclides deposition is irreversible. The activation energy for the deposition process was found to be 9.2 ± 0.3 (kJ/g-atm). The deposition of these nuclides on the stainless steel surface is controlled by the diffusion process through the boundary layer of sodium between 170 and 530°C.
- 2) The deposition rates of Zr and Ba, as same as Sr and Y, are controlled by the diffusion through the boundary layer of sodium between 170 and 350°C. At the temperature above 350°C, the effective deposition rate of Zr and Ba becomes smaller, compared with the diffusion model, due to the increasing desorption from the stainless steel surface.
- 3) The deposition behavior of Zr is strongly influenced by the oxygen concentration in sodium and the deposition rate becomes very low with the increase in the oxygen concentration.

The K factor (roughness factor) of irradiated fuel (UO₂) in the FPL-II was calculated using the volatile fission products gamma ray data and the thermal neutron flux on the fuel. The average value of K factor was about 0.4. It is necessary to examine the reason why the value was lower than 1.0. One approach is to investigate the exact value of burn-up which will be obtained from the post-irradiation test of fuel in late 1985.

In parallel with these analyses, noise signals of DN count rate were investigated to develop a sensitive fuel failure detection system. The results showed good sensitivity of DN noise.

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 γ 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. 照射試験の概要	27
4. FPL - II の解体および解体検査	35
4.1 緒 言	35
4.2 ループ配管機器の解体	35
4.3 解体部材の γ 線測定	38
4.4 ウランのループ内分布測定	43
4.5 SEMによるループ配管機器内壁表面の測定	49
4.6 除 染 試 験	51
4.7 結 言	53
5. 不揮発性FPの沈着挙動の解析	87
5.1 緒 言	87
5.2 不揮発性FPの沈着挙動の解析モデル	87
5.3 Srの沈着挙動の解析	92
5.4 Y, ZrおよびNbの沈着挙動の解析	100
5.5 Baの沈着挙動の解析	105
5.6 Laの沈着挙動の解析	107
5.7 解析モデルの検討	108
5.8 結 言	114

6.	揮発性FPの γ 線測定によるk factorの算出	179
6.1	緒言	179
6.2	放出率の算出方法	180
6.3	放出率算出とk factor	182
6.3.1	FPの放出率の算出	182
6.3.2	k factorの算出	184
6.3.3	考察	185
6.4	結言	185
7.	遅発中性子(DN)の測定結果	199
7.1	緒言	199
7.2	解析モデル	199
7.3	解析モデルと測定結果の比較	202
7.4	k factorの算出	205
7.5	DN測定結果と温度依存性	207
7.6	結言	208
8.	DN系計数率変動特性の解析	237
8.1	緒言	237
8.2	測定	238
8.2.1	雑音測定信号	238
8.2.2	測定方法	239
8.2.3	測定条件	239
8.2.4	データの概要	240
8.3	解析	241
8.3.1	解析方法	241
8.3.2	解析条件	243
8.3.3	解析結果	243
8.4	結言	248
9.	結言	287

Appendix A FPL - II の照射熱中性子束の算出

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 γ -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	List of performed FPL-II experiments	29
4-1	Gamma-ray count rate for each long-lived fission product at each loop equipment test piece (cps) ...	55
4-2	Relative gamma-ray count rate for each fission product at each loop equipment test piece	56
4-3	Results of the uranium activation analysis	57
4-4	Decontamination factor after washing by HNO_3 solution	58
4-5	Decontamination factor after etching by aqua regia ($\text{HNO}_3 + \text{HCl}$)	58
5-1	^{92}Sr deposition rate constant	115
5-2	^{94}Sr deposition rate constant	116
5-3	^{93}Sr deposition rate constant	117
5-4	^{91}Sr deposition rate constant	118
5-5	^{92}Sr deposition rate constant obtained by using ^{92}Y deposition distribution pattern along the delay line	119
5-6	^{94}Sr deposition rate constant obtained by using ^{94}Y deposition distribution pattern along the delay line	120

5-7	Deposition rate constant for Sr isotopes	121
5-8	Sticking coefficient for Sr isotopes calculated by using modified mass transfer model	122
5-9	⁹⁷ Y and ⁹⁷ Zr deposition rate constant obtained by using ⁹⁷ Zr deposition distribution pattern along the delay line	123
5-10	⁹⁷ Y and ⁹⁷ Zr deposition rate constant obtained by using ⁹⁷ Nb distribution pattern along the delay line	124
5-11	¹⁴² Ba deposition rate constant	125
5-12	¹⁴² Ba deposition rate constant obtained by using ¹⁴² La deposition distribution pattern along the delay line	126
5-13	¹⁴⁴ La deposition rate constant	127
6-1	Fission product release fraction (%) calculated by using each FP nuclide concentration in sodium...	186
6-2	k factor for each fission product nuclide	187
7-1	Delayed neutron precursor nuclides	209
7-2	Steady state count rates for delayed neutrons under constant loop conditions and calculated data by using analytical model	210
7-3	k factor calculated by using delayed neutron experimental results and analytical model	212
8-1	Thermocouples position along the FPL-II experimental loop	250
8-2	Noise measurement conditions	251
8-3	Summary of noise data	252
8-4	Mean and RMS values of typical signals in each measurement	253

8-5(a)	Normalized covariance matrix of innovation sequence of Data No. C-01, produced by eight variables AR-model	254
8-5(b)	Normalized covariance matrix of original data No. C-01	254
8-6(a)	Normalized covariance matrix of innovation sequence of Data No. C-07, produced by eight variables AR-model	255
8-6(b)	Normalized covariance matrix of original data No. C-07	255
8-7	Normalized covariance matrix of innovation sequence of Data No. C-07, produced by four variables AR-model	256
8-8	Associate matrix of four variables AR-model	256
8-9	Integrated noise power contribution ratio to DN signals in Data No. C-07	257
8-10	Decomposed variances of DND-1 and DND-2 to each noise source contribution	258

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 (FPL-II)	13
2-4	Uranium dioxide irradiation samples	14
2-5	Uranium Capsule	15
2-6	γ -ray detection system diagram	16
2-7	Photograph of FPL-II loop without insulation	17
2-8	γ -ray detection positions and delayed neutron detection positions	18
2-9	Arrangement of γ -ray and DN detectors	19
2-10	γ -ray collimator	20
2-11	γ -ray detector lifter	21
2-12	Neutron shielding and neutron moderator for DN counter	22
2-13	Inner neutron shielding for DN counter	23
2-14	Neutron moderator and outer neutron shielding for DN counter	24
2-15	Delayed neutron detection system diagram	25
3-1	Experimental condition for each experiment	31
4-1	FPL-II isometric diagram and test piece positions	59
4-2	γ -ray spectra for the loop test piece	61
4-3	Fission chain (long-lived fission product)	67

4-4	Post-operation test data; long-lived fission product deposition distribution along the FPL-II loop obtained by γ -spectra measurement	68
4-5	Post-operation test data; ^{235}U (185.7 keV) deposition distribution along the FPL-II loop obtained by γ -spectra measurement	73
4-6	^{239}U γ -ray spectra obtained by activation analysis	74
4-7	Post-operation test data; U deposition distribution along the FPL-II loop obtained by activation analysis	75
4-8	Scanning Electron Microscope (SEM) image	76
5-1	Fission chain (non-volatile fission product nuclide)	128
5-2	^{92}Sr deposition distribution along the delay line	129
5-3	^{94}Sr deposition distribution along the delay line	132
5-4	^{93}Sr deposition distribution along the delay line	136
5-5	^{91}Sr deposition distribution along the delay line	143
5-6	^{92}Y deposition distribution along the delay line	147
5-7	^{94}Y deposition distribution along the delay line	150
5-8	Relationship between Sr deposition rate constant and reciprocal absolute temperature	153

5-9	^{97}Zr deposition distribution along the delay line	156
5-10	^{97}Nb distribution along the delay line	161
5-11	Relationship between Y deposition rate constant and reciprocal absolute temperature	166
5-12	Relationship between Zr deposition rate constant and reciprocal absolute temperature	167
5-13	^{142}Ba deposition distribution along the delay line	168
5-14	^{142}La deposition distribution along the delay line	171
5-15	Relationship between Ba deposition rate constant and reciprocal absolute temperature	174
5-16	^{144}La deposition distribution along the delay line	175
5-17	Relationship between La deposition rate constant and reciprocal absolute temperature	177
6-1	Fission chain	188
6-2	Distribution of ^{86}Br concentration in sodium along the delay line	190
6-3	Distribution of ^{88}Br concentration in sodium along the delay line	191
6-4	Distribution of ^{89}Rb concentration in sodium along the delay line	192
6-5	Distribution of ^{90}Kr concentration in sodium along the delay line	193
6-6	Distribution of ^{134}Te concentration in sodium along the delay line	194

6-7	Distribution of ^{136m}I concentration in sodium along the delay line	195
6-8	Distribution of ^{139}Xe concentration in sodium along the delay line	196
6-9	Distribution of ^{140}Xe concentration in sodium along the delay line	197
7-1	Delayed neutron count rate after TTR test scram ...	213
7-2	Delayed neutron count rate calculated by using analytical model at TTR test scram in the same experimental condition as Exp. No. 19	214
7-3	Delayed neutron count rate and calculated value vs. flow rate for both detectors at the high sodium temperature (500°C) condition	215
7-4	Delayed neutron count rate and calculated value by using analytical model for both detectors during flow stop test	216
7-5	Delayed neutron count rate and calculated value by using analytical model for both detectors after TTR test scram	224
7-6	DN-count rate vs. sodium temperature (Sodium flow rate 5 l/min)	233
7-7	Relationship between calculated delayed neutron count rate by using analytical model and distribution coefficient	234
8-1	Thermocouple positions at FPL-II experimental loop	259
8-2	Block diagram of noise recording system on FPL-II signals	260

8-3	Noise data No.s obtained under stationary operating conditions (TTR: 100 Kw)	261
8-4(a)	FPL-II noise data No. C-01	262
8-4(b)	FPL-II noise data No. C-07	263
8-4(c)	FPL-II noise data No. C-19	264
8-5	An example of feedback system with noise sources	265
8-6	Flow diagram of AR analysis	266
8-7	Temperature dependence of mean and RMS values of DN count rates	267
8-8	Temperature dependence of mean count rate ratio and RMS count rate ratio of DND-1 and DND-2	268
8-9	RMS values of TE-14 and PRM-1	269
8-10	APSDs of DND-1: Flow rate = 5 l/min	270
8-11	APSDs of DND-2: Flow rate = 5 l/min	271
8-12	APSDs of DND-1: Flow rate = 1 l/min	272
8-13	APSDs of DND-2: Flow rate = 1 l/min	273
8-14	APSDs of TE-14 in Data No. C-07 and C-17	274
8-15(a)	Coherence of DND-1 and DND-2 of Data No. C-07 (by FFT method)	275
8-15(b)	Coherence of DND-1 and TE-12 of Data No. C-07	276
8-15(c)	Coherence of DND-1 and TE-14 of Data No. C-07	277
8-15(d)	Coherence of DND-1 and TE-21 of Data No. C-07	278
8-16	APSDs of DND-1 and DND-2 of Data No. C-01 decomposed to each noise source contribution	279
8-17	APSDs of DND-1 and DND-2 of Data No. C-07 decomposed to each noise source contribution	280

8-18	Decomposed APSDs of DND-1 and DND-2 of Data No. C-07 by four variables AR-model	281
8-19	The original data of No. C-07 and the innovation sequence, produced by four variables AR-model	282
8-20	Decomposed variances of DND-1 and DND-2 to each noise source contribution: Flow rate = 5 l/min	283
8-21	Decomposed variances of DND-1 and DND-2 to each noise source contribution: Flow rate = 1 l/min	284
8-22	Decomposed APSDs of DND-1 and DND-2 of Data No. C-17	285
8-23	FPL-II Noise data No. C-08	286

1. 緒 言

高速増殖炉（FBR）において、万一燃料が破損すると、FBR一次冷却系は汚染を受ける。この場合 Zr, Ru, Ba, La等の不揮発性の核分裂生成物（FP）はステンレス内壁に沈着し易く、また半減期が長いものが多いため一次冷却系内に蓄積し、FBRの保守・点検時の作業者の被曝量を増大させる可能性がある。BOR-60（ソ連の実験炉）でも $^{95}\text{Zr}/^{95}\text{Nb}$ 、 $^{140}\text{Ba}/^{140}\text{La}$ 等のFPの一次冷却系内の放射能レベルは、放射性腐食生成物（CP）である ^{54}Mn のそれと同程度であると報告されている。¹⁾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極めて少ない。²⁾このため昭和56年度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）を設置し、昭和57年9月より不揮発性FPの沈着挙動を解明することを主目的とした照射試験を開始した。³⁾昭和59年4月にはすべての照射試験を完了し、⁴⁾ひきつづき本年度はFPL-Ⅱの解体、撤去を行ない、解体部材から試験片を採取して解体試験を実施した。本報告書では、解体試験結果と、これまでに実施した照射試験のデータ解析結果を報告する。

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ている。原子炉の中性子照射により、照射試料から反跳によって流動ナトリウム中に放出されたFPは、長さ25mのディレイライン配管（内径9.4mm、SUS304製）内を移行すると共に配管内壁に沈着する。FPの崩壊に伴って放出される γ 線強度分布をディレイラインに沿って測定することにより、FPの沈着分布を求めることができる。

FPL-Ⅱでは、解体されるまでの約2年間に、TTR出力100kW、運転時間4時間を1サイクルとした33回の照射試験が実施された。これ等の照射試験ではナトリウム温度、ナトリウム流速、ナトリウム中酸素濃度を主なパラメータとした不揮発性FPのナトリウム中沈着分布が測定された。

解体検査では、ループから試験片を切り出し直接 γ 線測定することにより、主に長半減期FPのループ内沈着分布を求めた。また照射試料として粒状の焼結二酸化ウランが流動ナトリウム中に浸漬されていたが、これらのウランがループ中に移行している可能性があるため、放射化分析により、ループ中の沈着分布を測定した。更にFPの沈着挙動と関係のある壁面の微視的状态をみるために、試験片から試料を採取し、走査型電子顕微鏡（SEM）による内壁面の観察を実施した。またステンレス内壁面に沈着したFPの除染試験を実施した。

前報では、⁴⁾昭和57年度に実施した照射試験データを対象とした解析を実施したが、今回

は昭和 58 年度以降に実施した照射試験データを用い、短半減期不揮発性 FP の沈着挙動の解析を行なった。また揮発性 FP に対する r 線測定データを用い、FPL-Ⅱ 装荷燃料の表面粗さ因子 (k factor ; roughness factor) を導出した。更に遅発中性子 (DN) 測定結果からも k factor を算出し r 線測定から求めた値との比較検討を行なうと共に、DN 放出 FP 核種 (DN 先行核) のステンレス壁面への吸着挙動の温度依存性を検討した。また破損燃料検出 (FFD) システムの検出感度を向上させる信号処理技術を開発するための基礎的知見を得るために、DN 信号に含まれる雑音信号の測定と解析を実施した。

本報告では、2 章で FPL-Ⅱ の概要を述べ、3 章でこれまでに実施した照射試験の概要を述べる。更に 4 章では種々の解体検査の結果を、5 章では不揮発性 FP の沈着挙動の解析結果を、6 章では揮発性 FP の r 線測定に用いた k factor の算出結果を、7 章では DN 測定値に対する検討結果を、8 章では DN 系計数率変動特性の解析結果を述べ、9 章で結言を述べる。

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、³⁾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-Ⅱ, 略してFPL-Ⅱ) は, 20%濃縮二酸化ウラン100g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4.8kg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4m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℃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25mのディレイライン配管 (外径13.8mm, 肉厚2.2mm) 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γ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 γ 線計測装置及び計測方法

1) γ 線計測システム

ループ配管の γ 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。 γ 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、 γ 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 γ 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 γ 線スペクトルを記録した。

2) γ 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(1/4B sch 40配管)上ほぼ等間隔に、11箇所の γ 線計測点を設けた。Fig 2-7に保温材のない状態のループ写真を示し、計測点の位置(D-1~D-11)をFig 2-8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部表面積等の値をTable 2-4に示す。 γ 線の測定は、厚さ14cmの炭素鋼の遮蔽体の外側からFig 2-9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 2-9に示すように、 γ 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10 cm移動可能な構造とするため、炭素鋼遮蔽体に10 cm×25 cm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 2-10に示す。鉛のコリメーターにあけられた穴は、64 mm×20 mmのスリットである。コリメーターと配管の位置合せは、 ^{24}Na の γ 線を用いて最適位置を決めた後に、表³⁾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ため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5 cm、大きさ25 cm×20 cmの鉛板を、ディレイラインからの γ 線の遮蔽には、厚さ2 cm、大きさ50 cm×15 cm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、液体窒素デュワーと検出器ヘッドにかぶせてある鉛のシールドを含め、約35 kg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 2-11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 2-12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 2-13に内部中性子遮蔽体の、Fig 2-14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 ^3He 比例計数管を挿入して行った。その測定系統図をFig 2-15に示す。 ^3He 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ー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。リニアレー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 ~ 1.9 kg/cm ² G
Container Size	2.6 m ^W × 2 m ^L × 2.5 m ^H

Table 2 - 2 Irradiation samples specifications

Irradiation Samples	UO ₂
Enrichment	20%
Total Weight	100 g
Size	0.5 ~ 0.6 mm ϕ granular

Table 2 - 3 Components of γ -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 ³)		Surface area(cm ²)	
		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 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 Scaler Timer	OSAKA DENPA Model PST-11
Multichannel Scaler	NAIG Process Memory D-172 " Readout Controller D-167 " CRT Display CRT-2 HP Digital Recorder HP-5055A

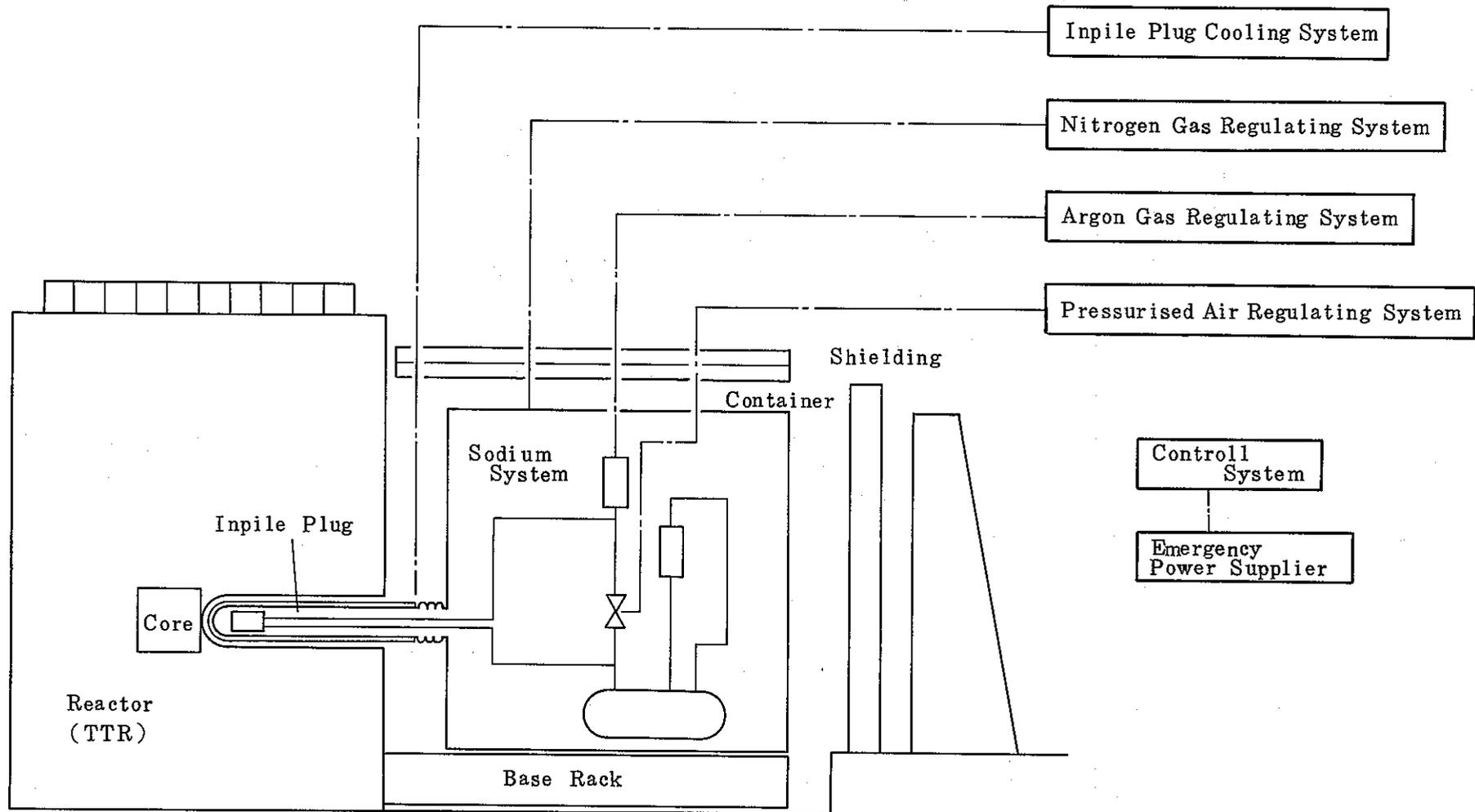


Fig 2 - 1 Inpile Fission Product Behavior Test Loop (FPL-II) diagram

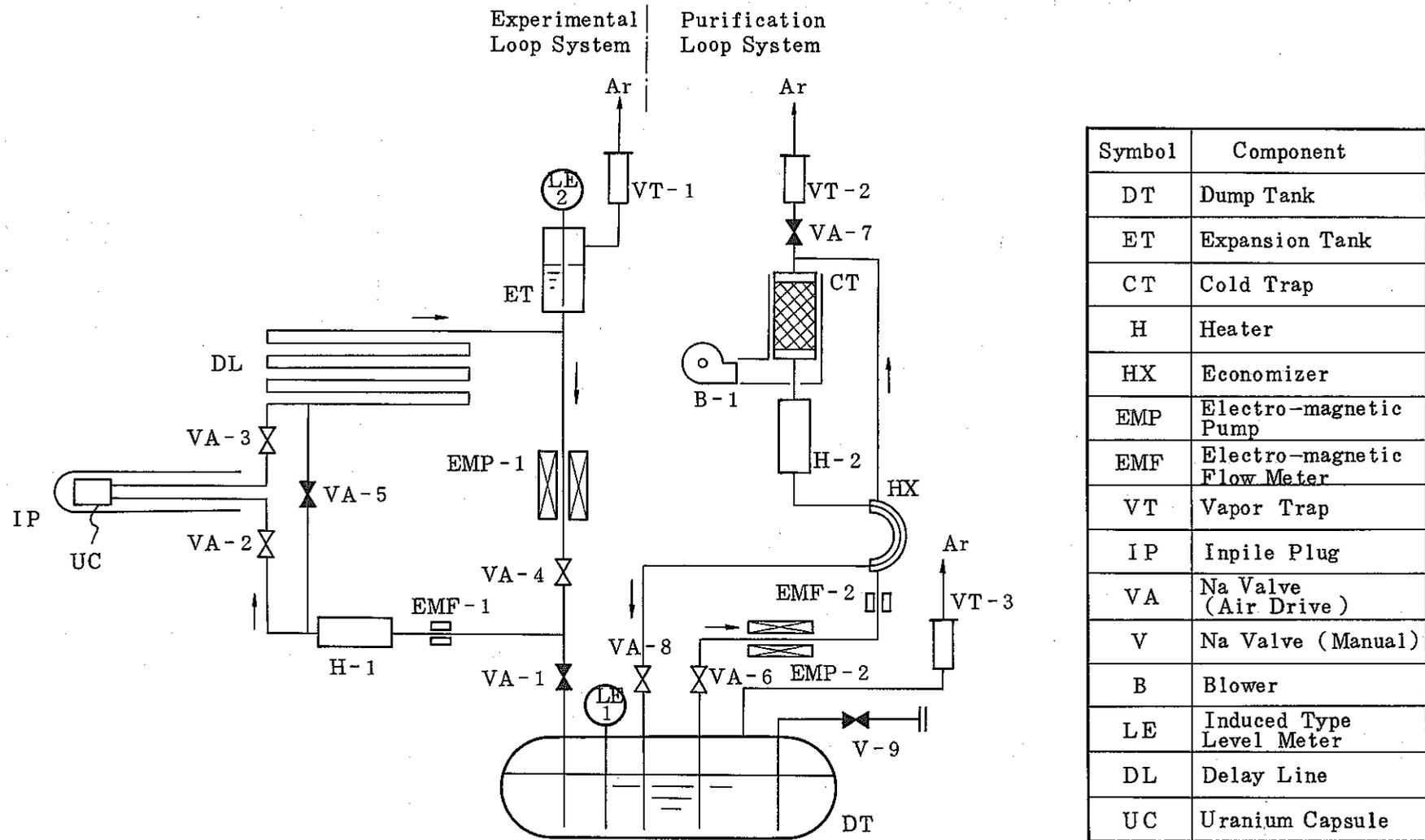


Fig 2 - 2 Inpile Fission Product Behavior Test Loop (FPL-II) flow diagram

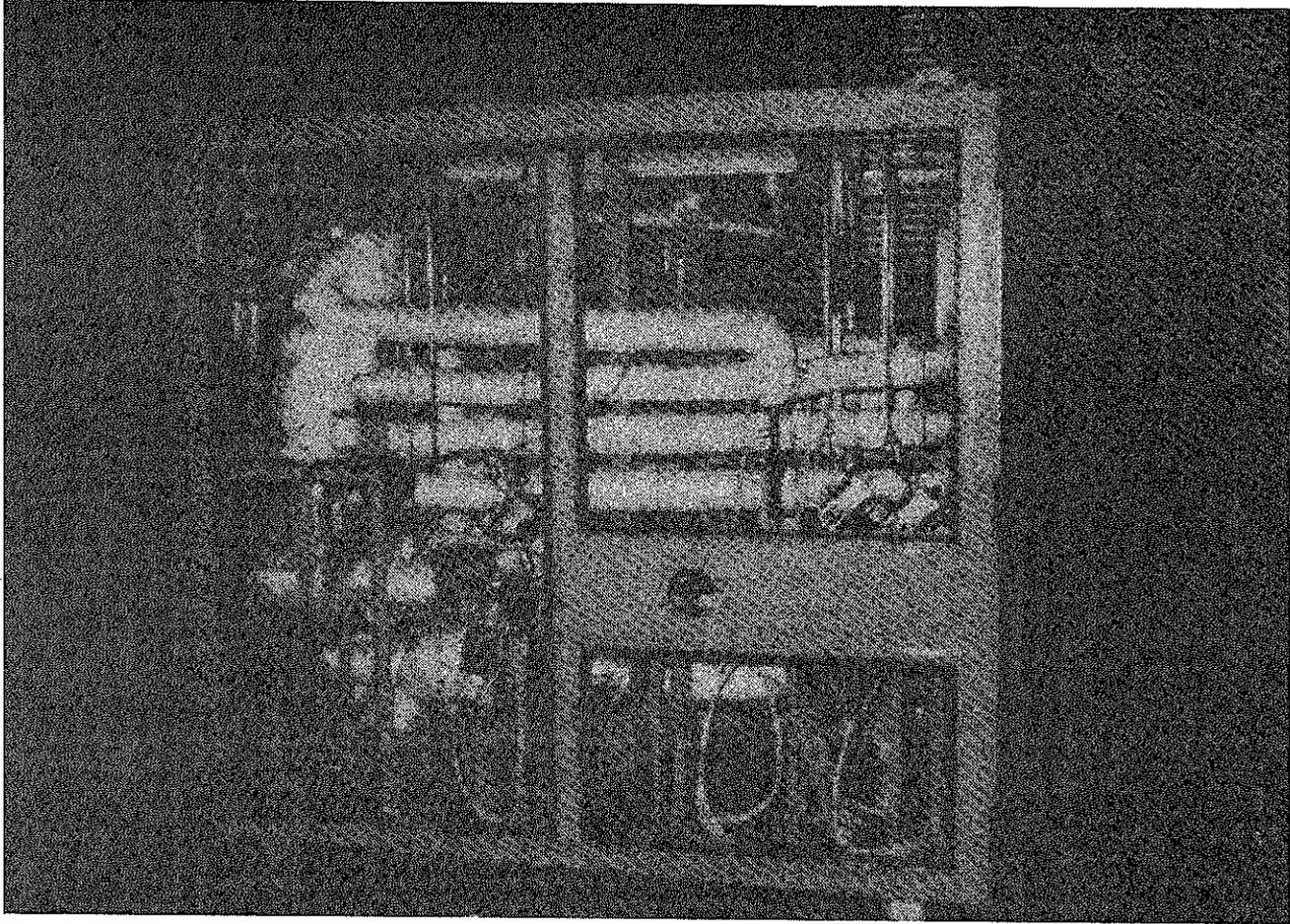


Fig 2 - 3 Inpile Fission Product Behavior Test Loop

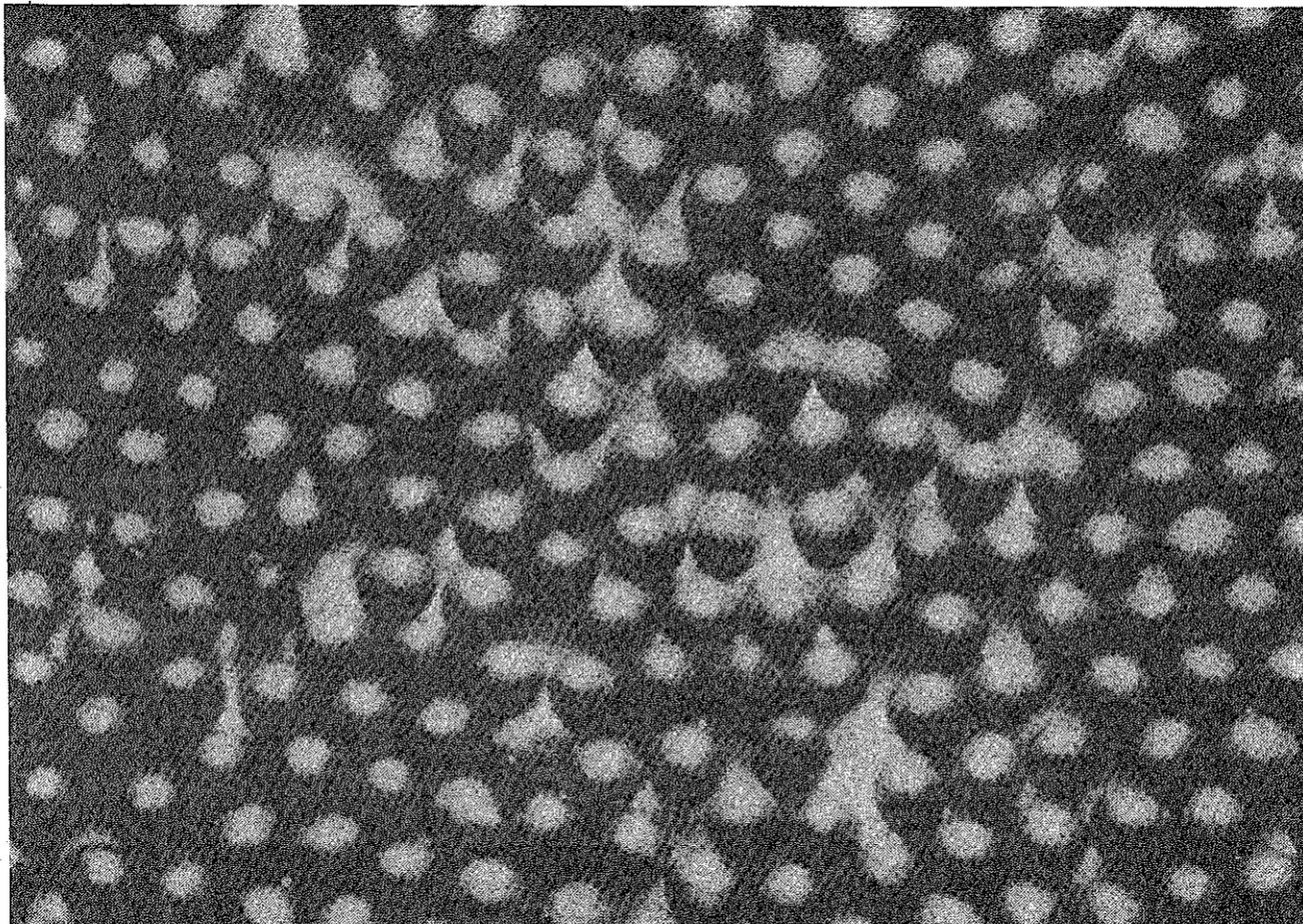


Fig 2 - 4 Uranium dioxide irradiation samples

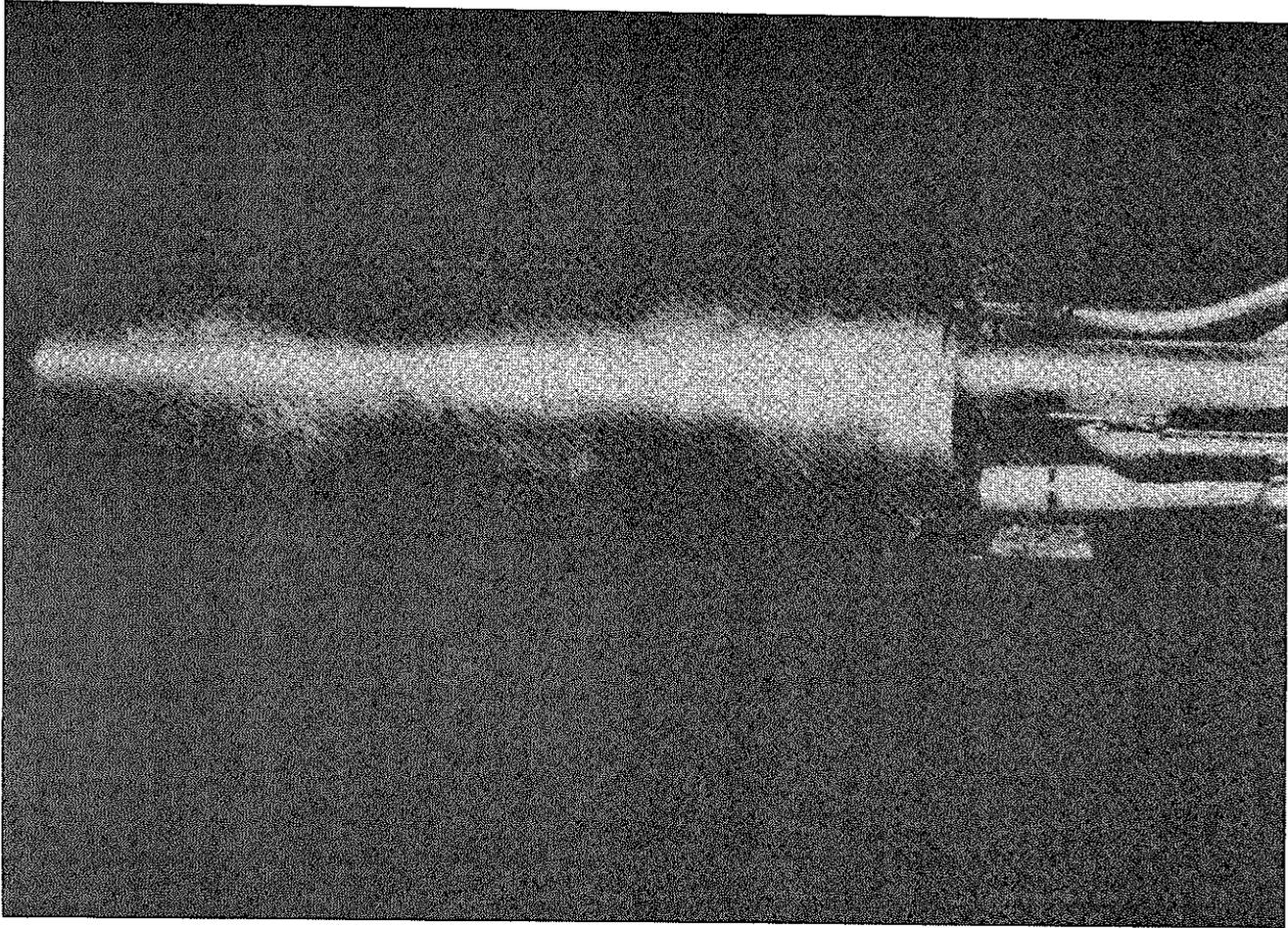


Fig 2 - 5 Uranium Capsule

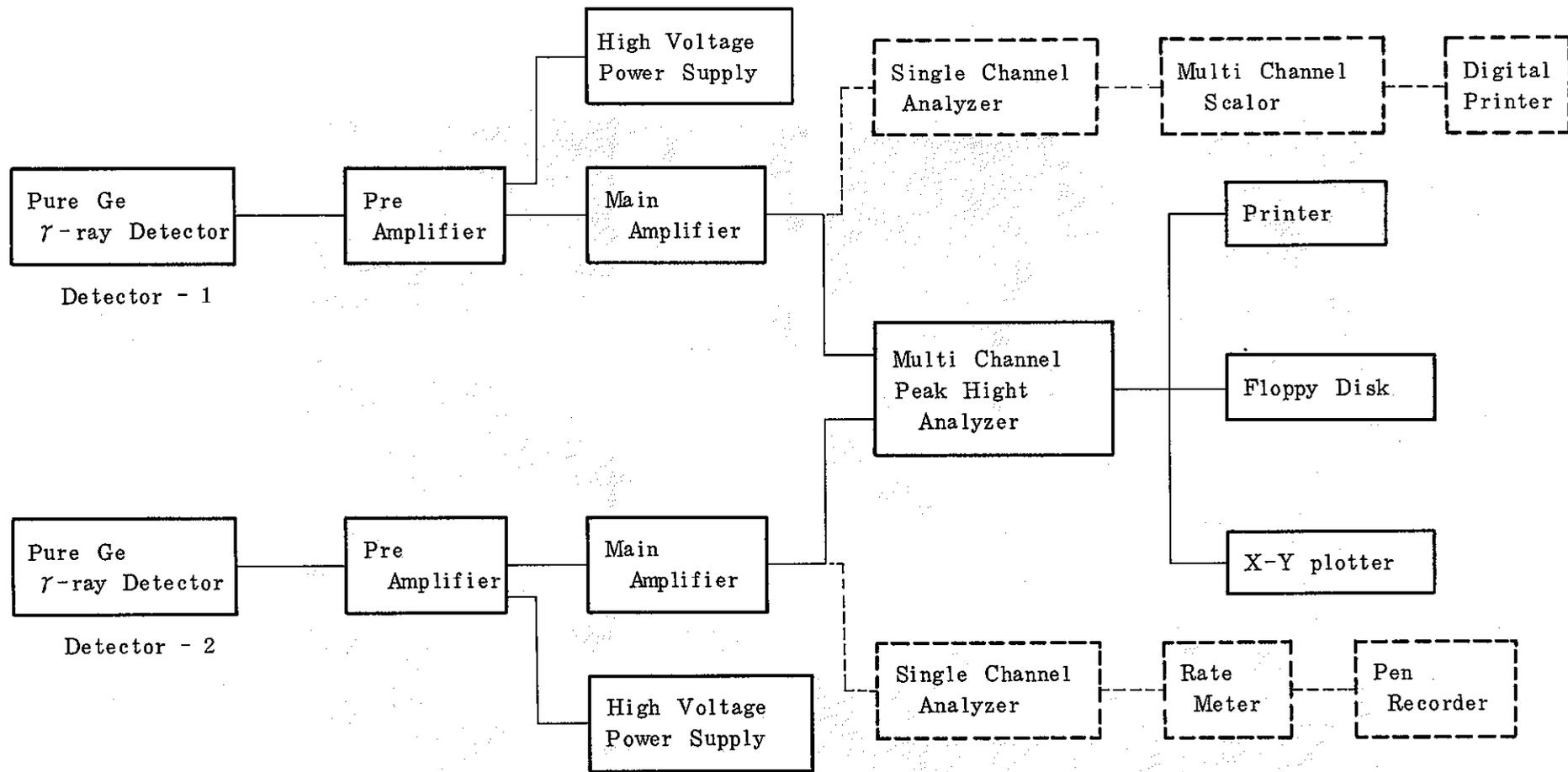


Fig 2 - 6 γ -ray detection system diagram

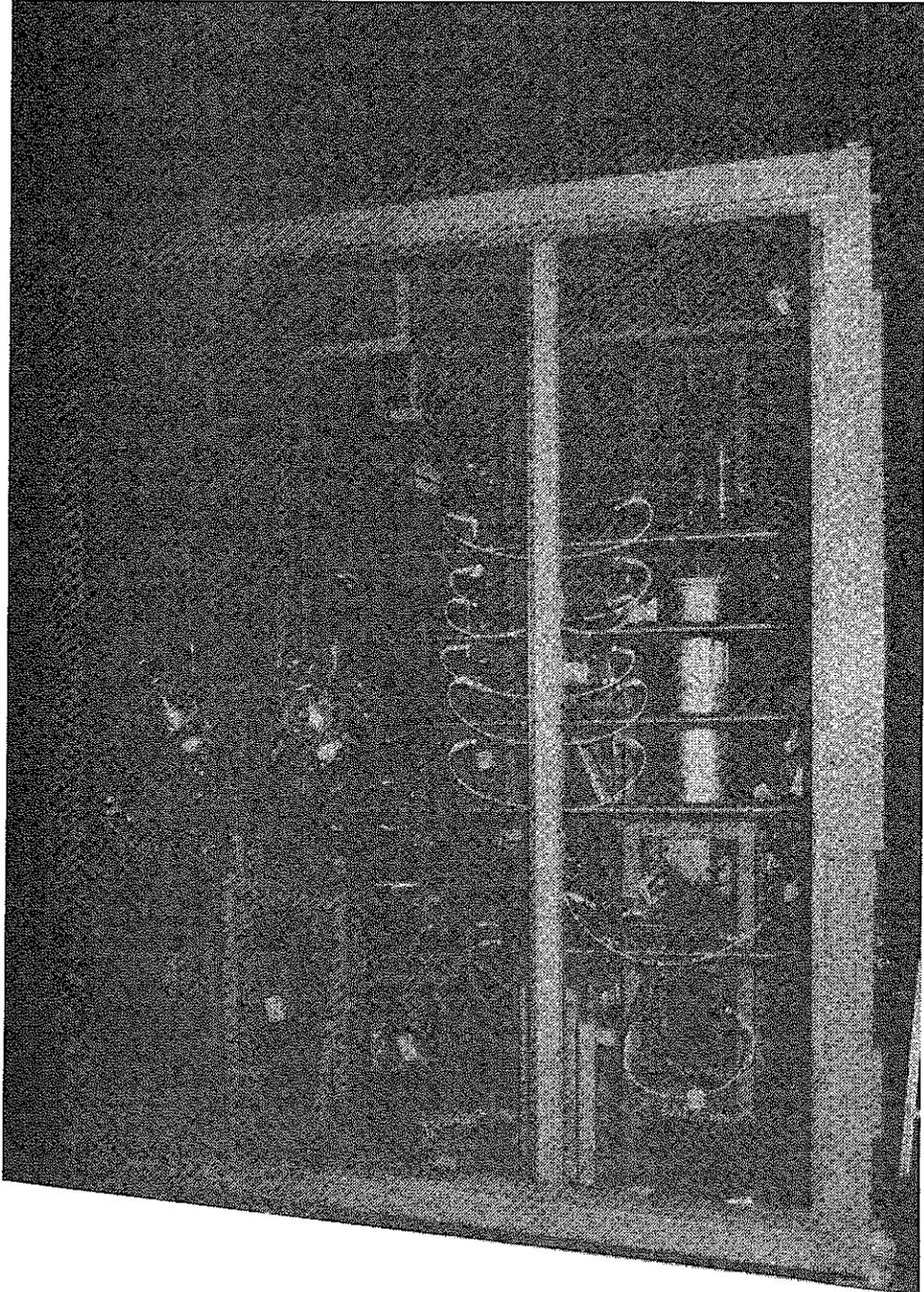
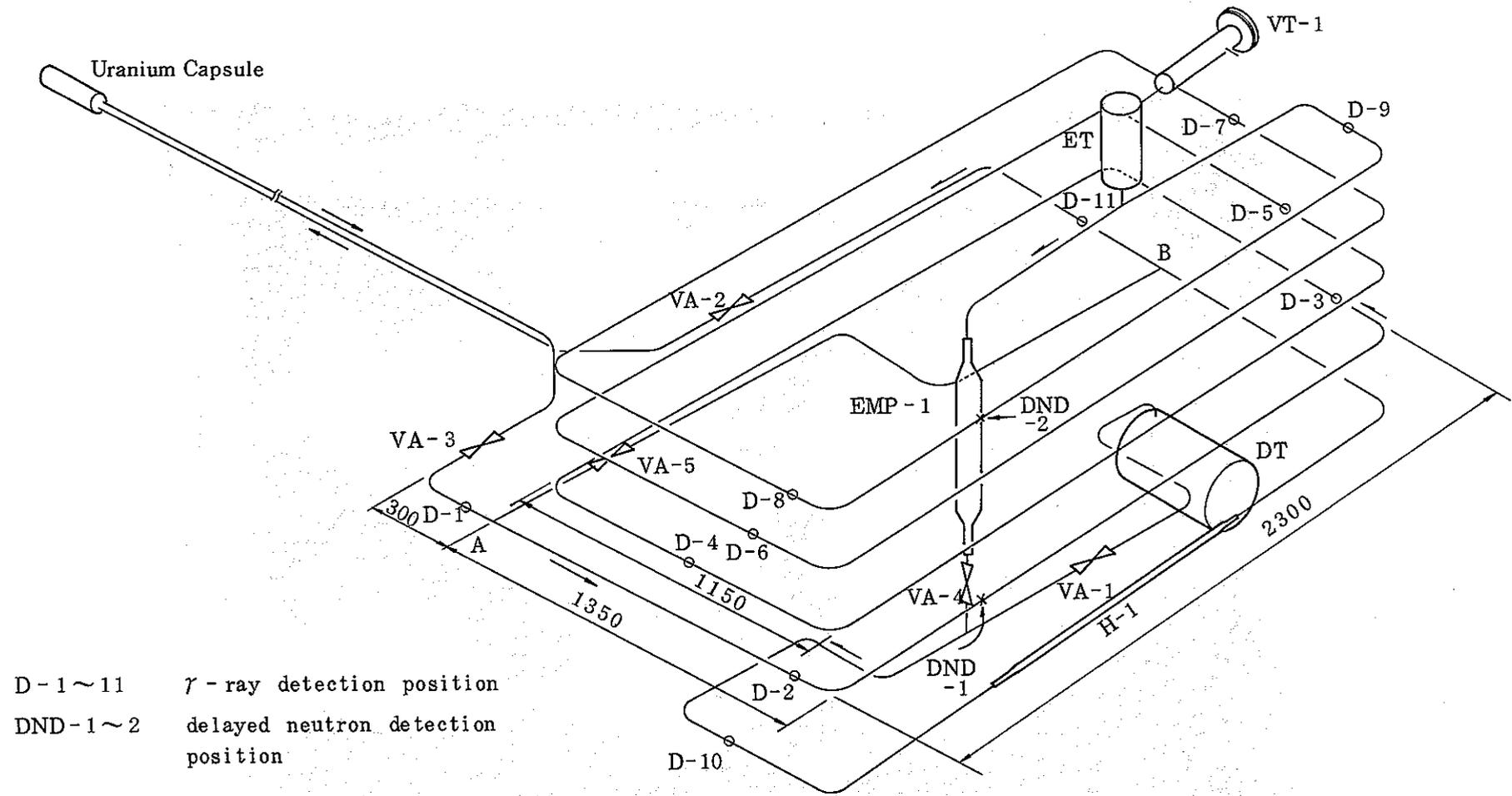


Fig 2 - 7 Photograph of FPL-II Loop
Without insulation



D-1~11 γ -ray detection position
DND-1~2 delayed neutron detection position

Fig 2 - 8 γ -ray detection positions and delayed neutron detection positions

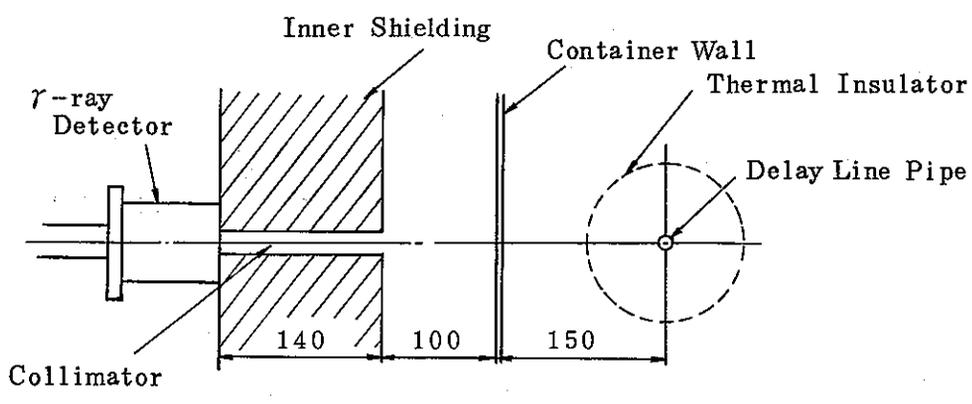
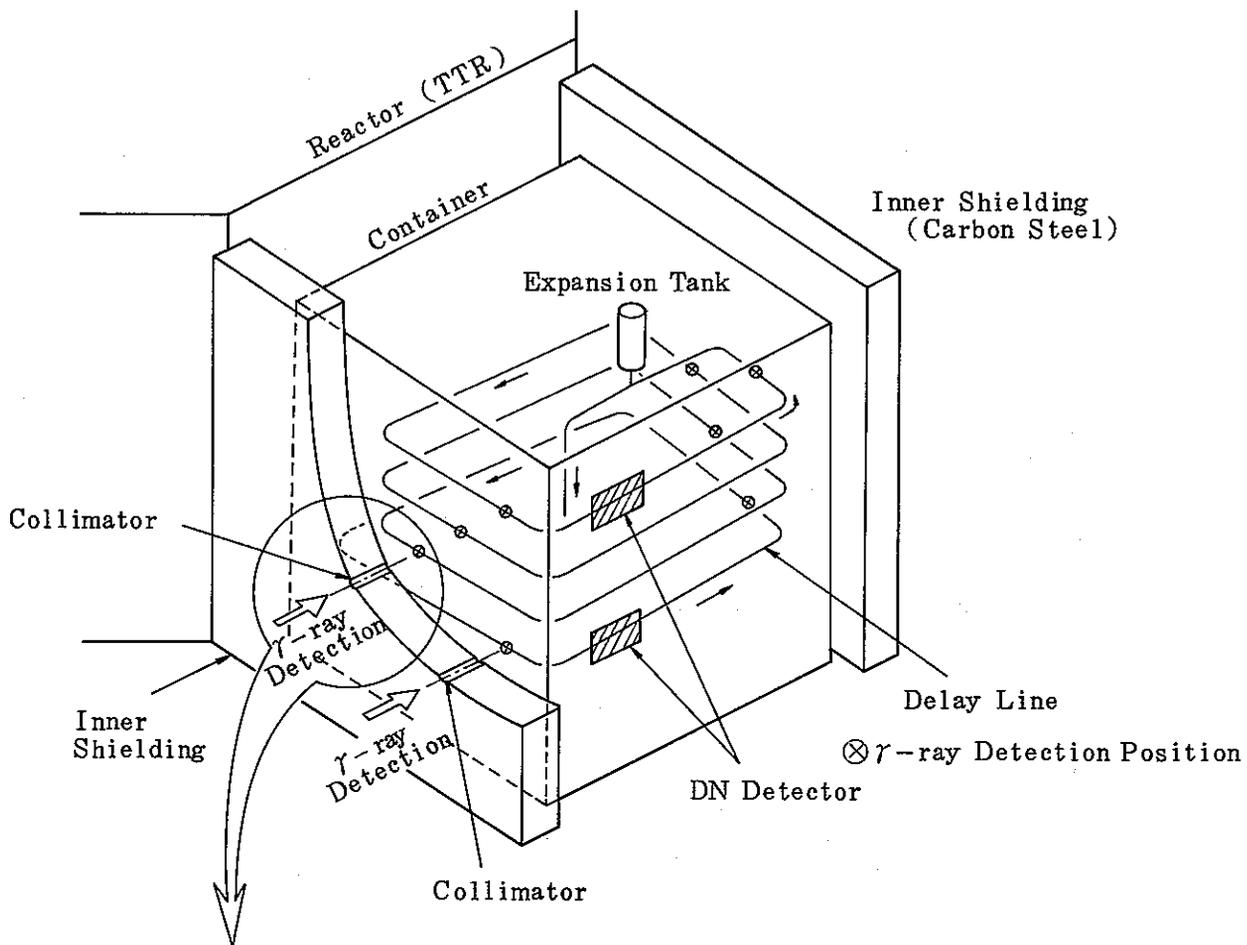


Fig 2 - 9 Arrangement of γ -ray and DN detectors

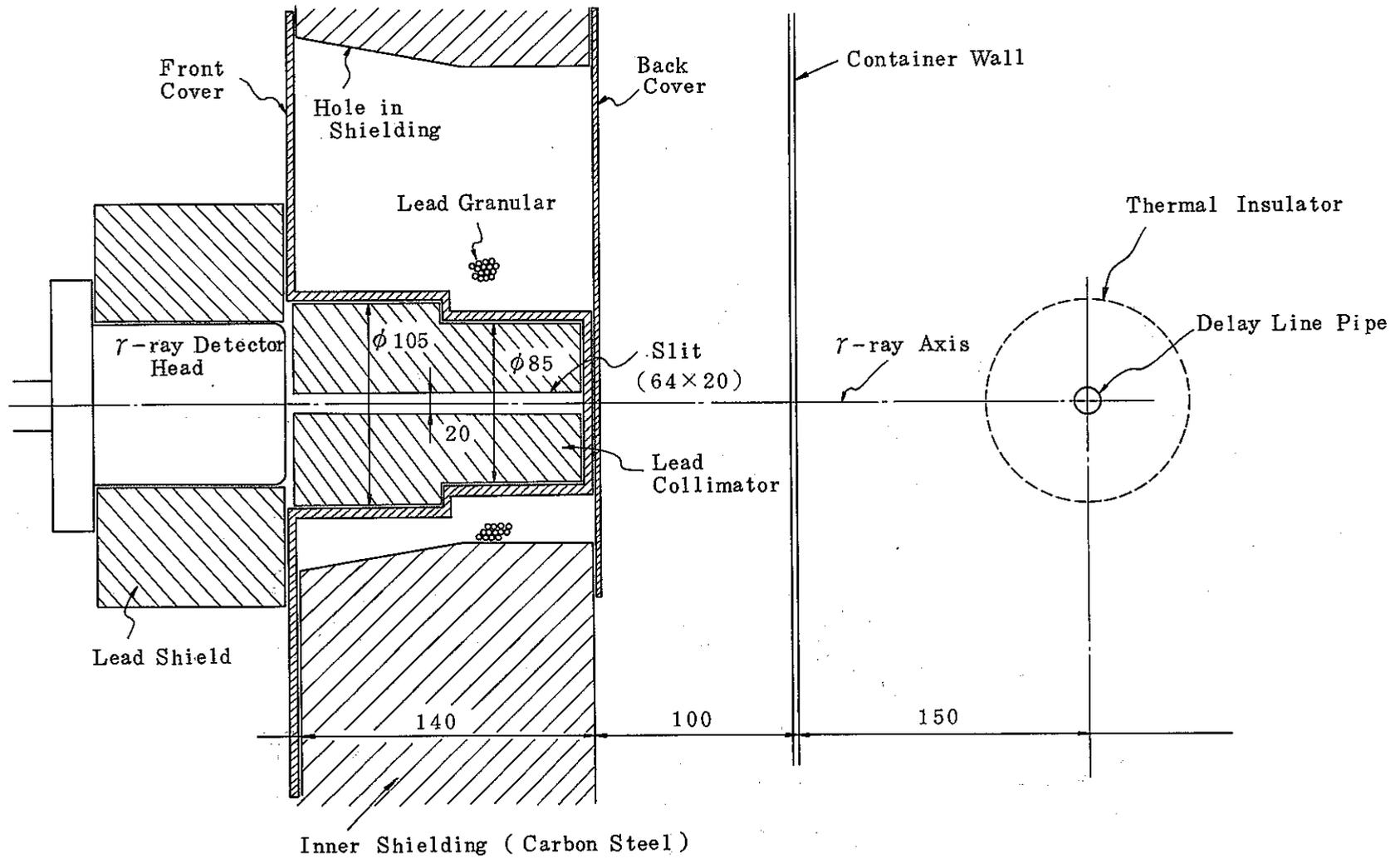


Fig 2-10 γ-ray collimator

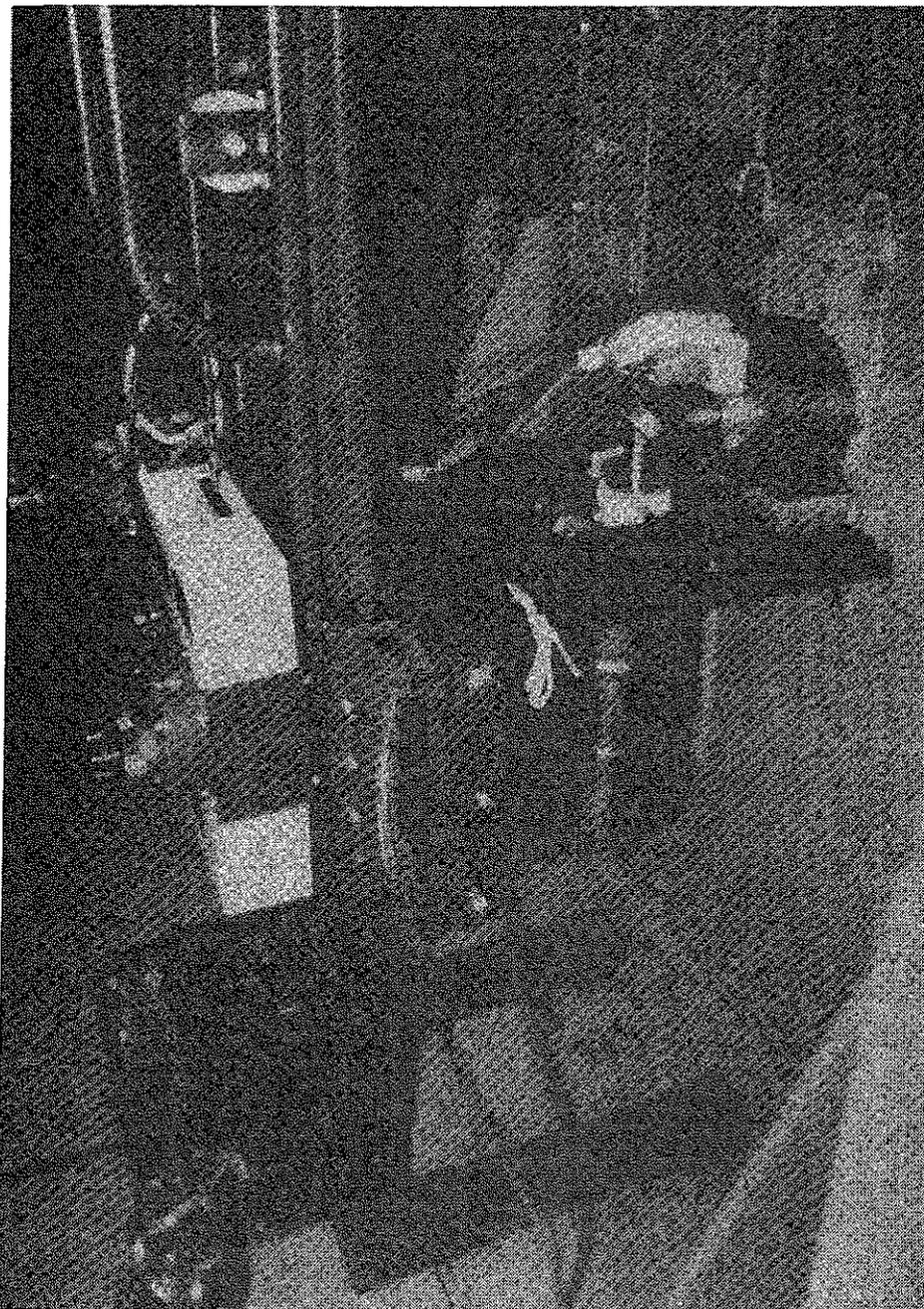


Fig 2 - 11 γ -ray detector lifter

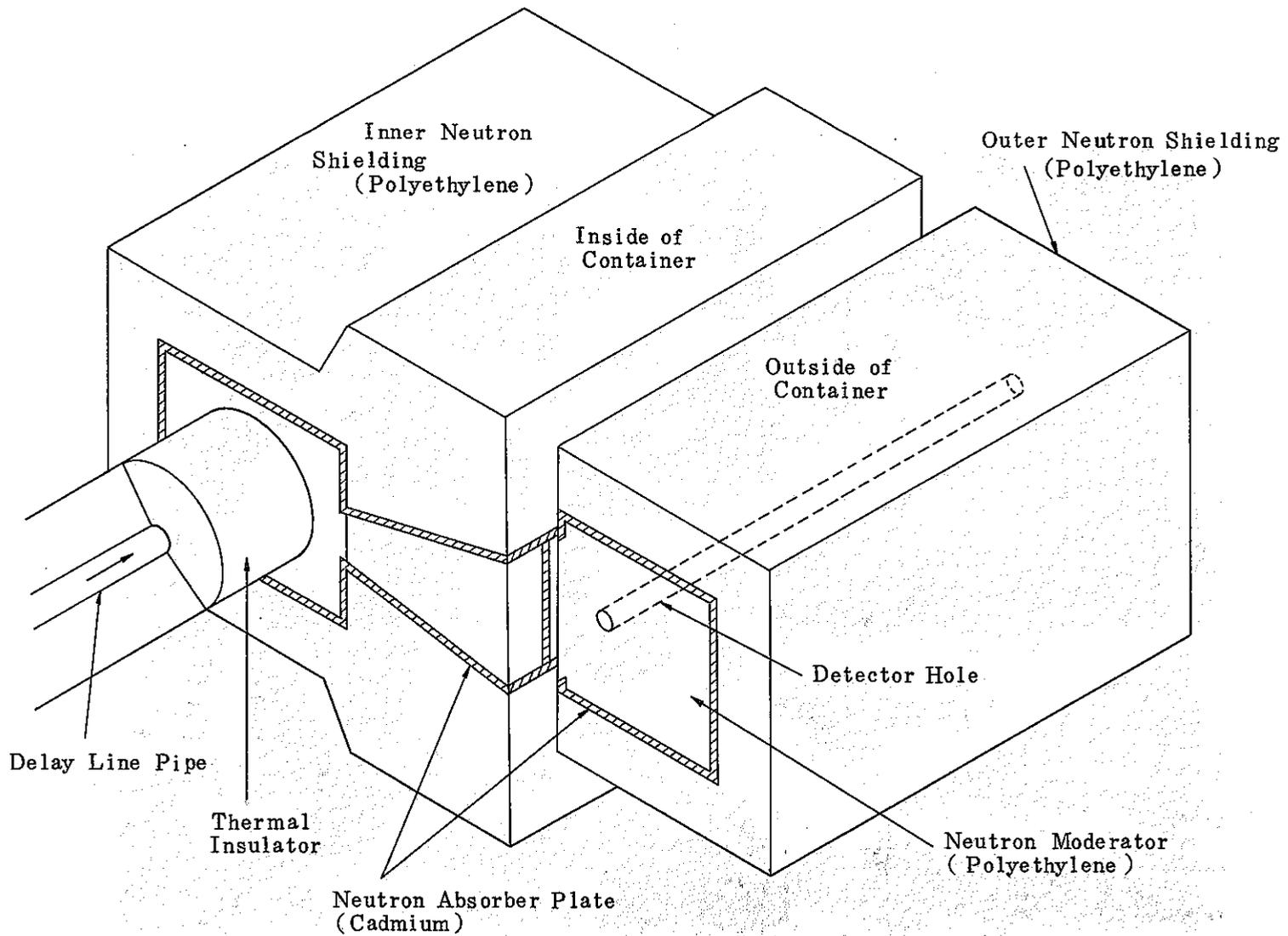


Fig 2 - 12 Neutron shielding and neutron moderator for DN counter

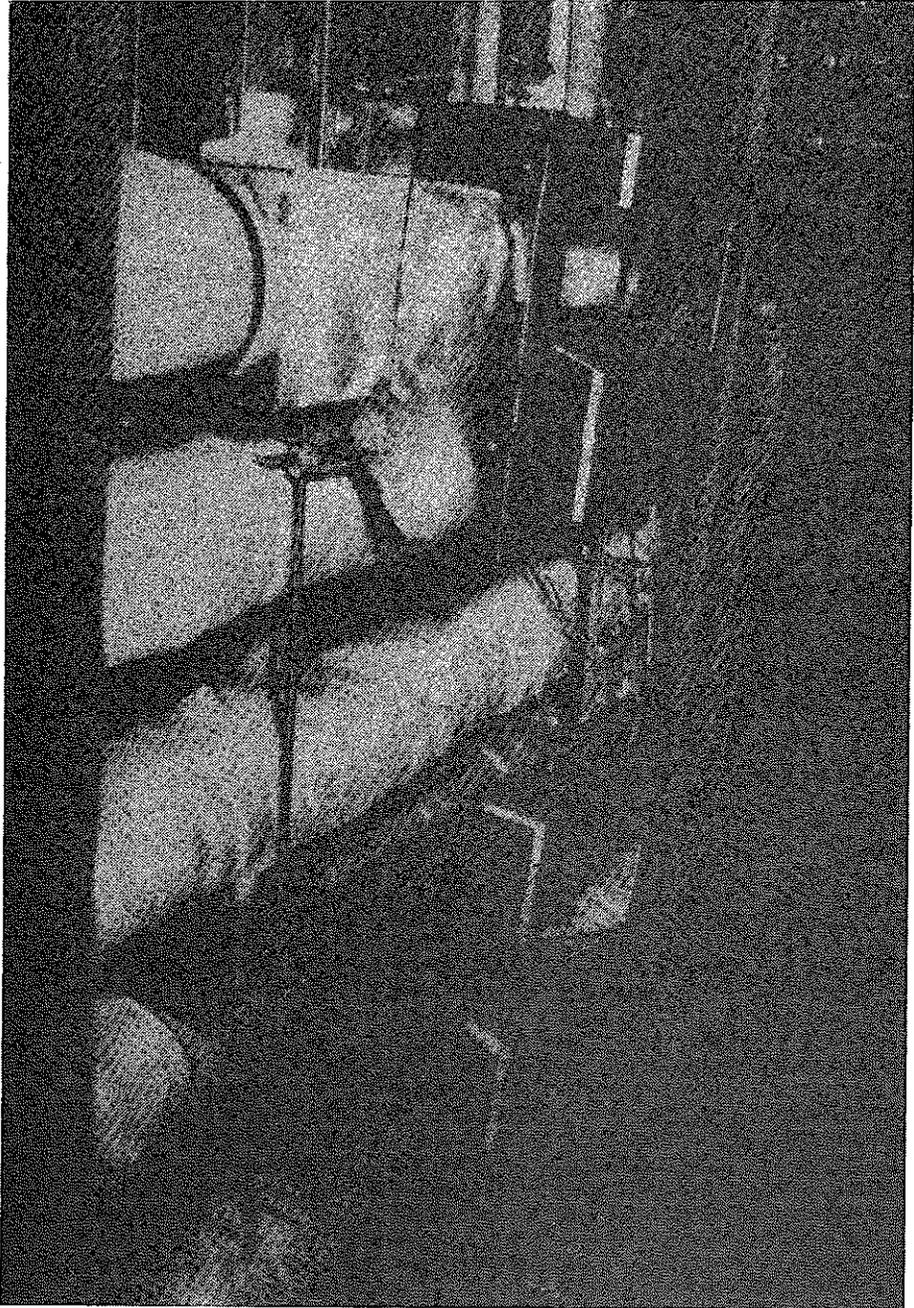


Fig 2-13 Inner neutron shielding for DN counter

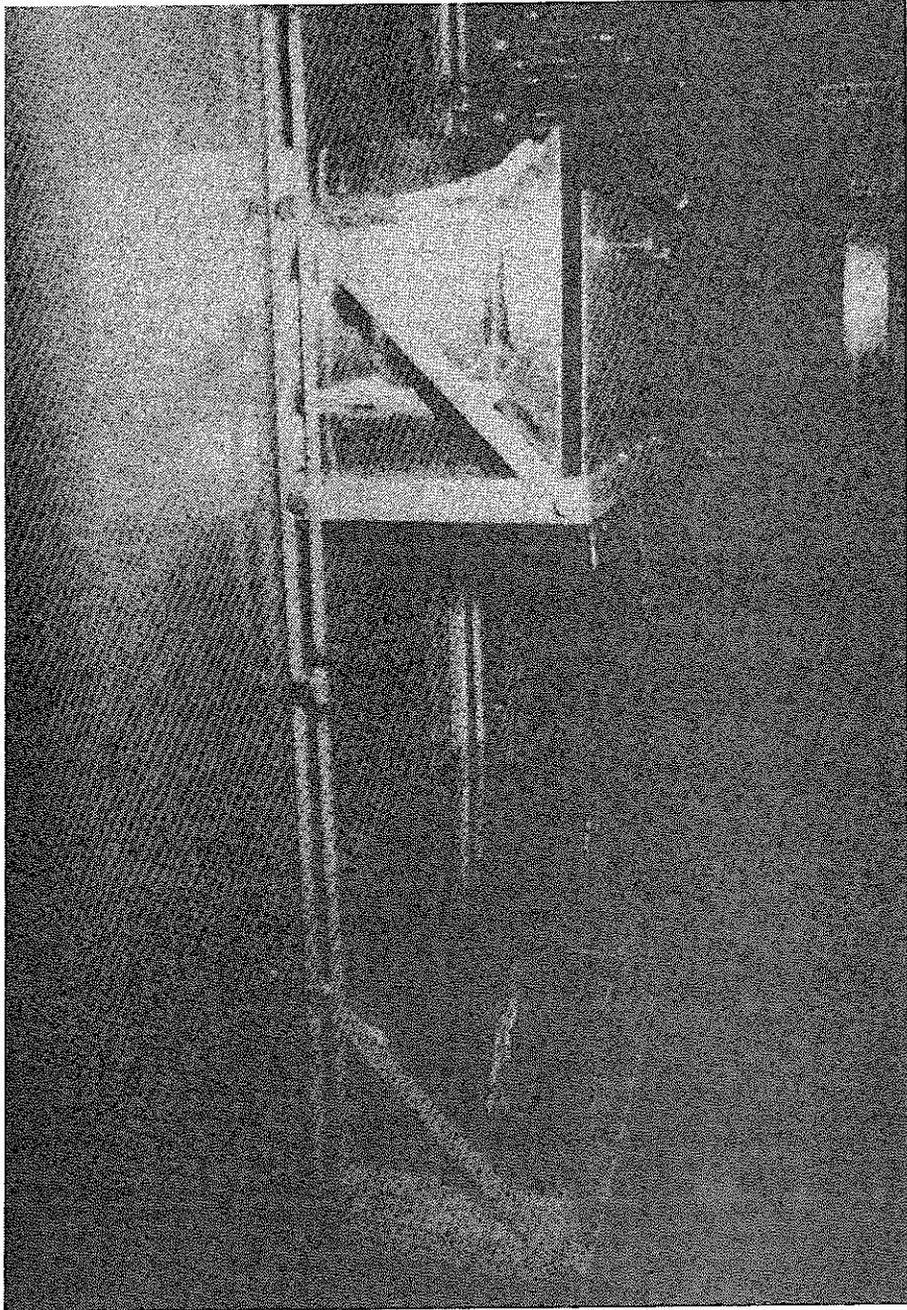


Fig 2-14 Neutron moderator and outer neutron shielding for DN counter

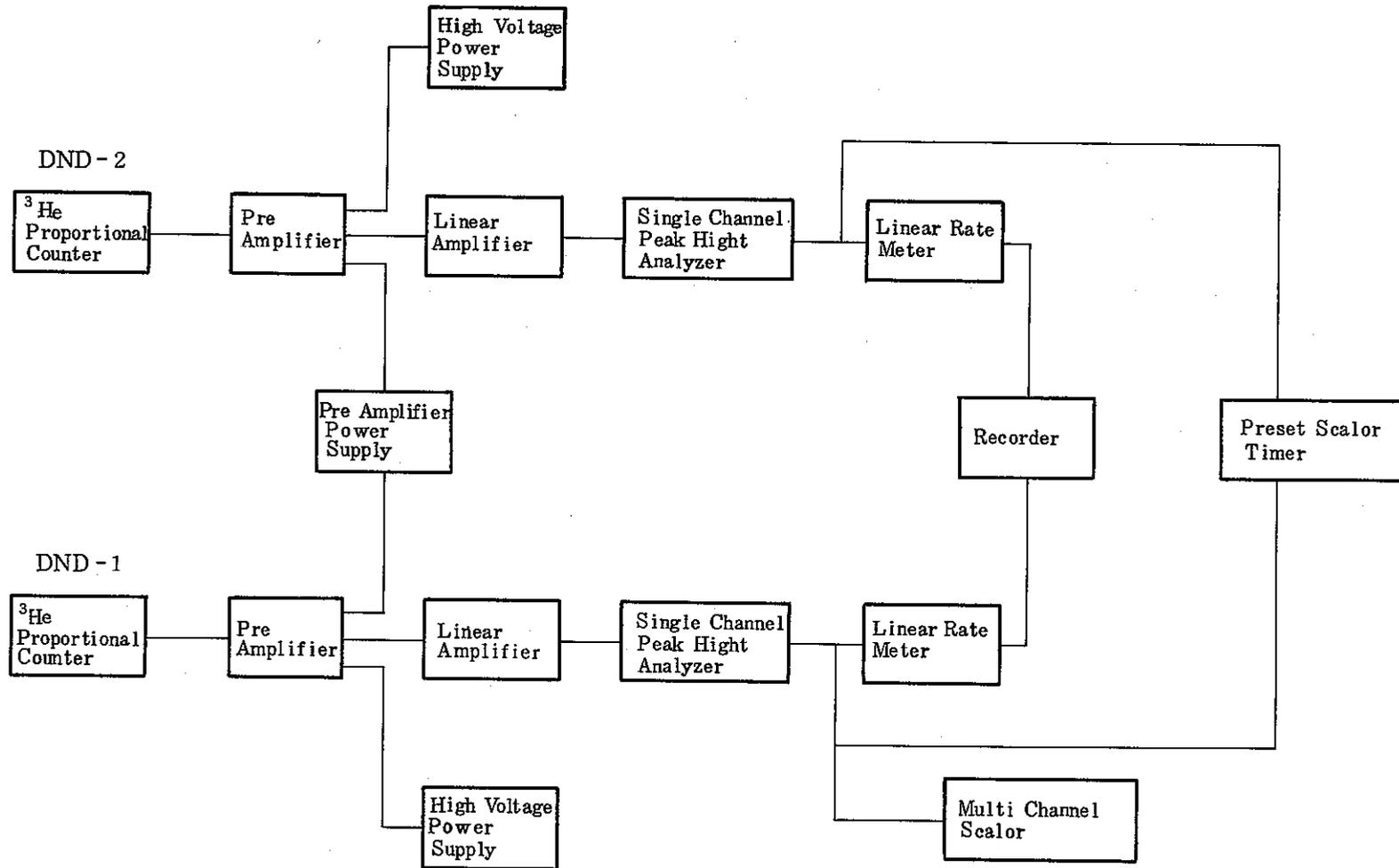


Fig 2 - 15 Delayed neutron detection system diagram

3. 照射試験の概要

「炉内ループによるFP挙動試験」の(I), (II)として, 昭和57年9月7日から59年4月24日まで33回の照射試験を実施した。試験条件をまとめてTable 3-1に示す。尚実験No. 17は, 照射実験終了後のループ配管を長時間に亘って γ 線測定した実験であるので表から除いた。実験No. 28までの実験の目的, 詳細な内容等については既に報告したので省略し^{3), 4)}, 以下に実験No. 29以降について目的, 内容等を示す。またNo. 29以降の実験のナトリウム温度, ナトリウム流量, TTR出力の照射試験中の経時変化をFig 3-1に示す。

1) 実験No. 29および30

高酸素濃度ナトリウム下での不揮発性FPの沈着挙動を測定する実験である。ナトリウム中の酸素濃度は12 ppm⁵⁾ (コールドトラップ温度200°Cのナトリウムを使用。通常の実験ではコールドトラップ温度120°C, 1 ppmの酸素濃度ナトリウムを使用)⁵⁾である。実験No. 29はナトリウム温度420°C, No. 30は270°Cで照射試験を実施した。不揮発性FPの沈着挙動に与えるナトリウム中酸素濃度の影響については第5章で詳述する。

2) 実験 No. 31

実験No. 27からNo. 30までの高酸素濃度ナトリウムに浸漬されていた照射試料の表面状態の変化を測定する実験である。表面状態が変化すればFPの放出率が変化するため, この変化をDN計測値により確認するものである。DNの計測結果は第7章で詳述するが, 以前の実験結果と比較して有意の差は認められず, 高酸素濃度ナトリウム中における照射試料の健全性が確認された。一般にウランは酸素のゲッター材料であることが知られているが, FPL-IIのように低い温度条件(最高でも530°C)と短い浸漬時間では, 照射試料は十分に健全性を保つものと考えられる。

尚本実験では, 照射試験中にナトリウムの流量を変化させてDN計測値のナトリウム流量依存性も測定した(実験No. 10, 13, 26と同様の試験)。また短半減期不揮発性FPの沈着挙動のナトリウム流量(流速)依存性を測定するために, ナトリウム配管に沿って γ 線検出器を移動して種々の計測点で γ 線計測を行なった。

3) 実験No. 32および33

不揮発性FPのナトリウム中沈着挙動の測定および脱着による再分配の可能性を測定す

る実験である。ナトリウム温度は両者とも 500°C 、ナトリウム流量は実験Na 32が $5\text{ l}/\text{min}$ （流速 $1.2\text{ m}/\text{sec}$ ）、Na 33は $1\text{ l}/\text{min}$ （ $0.24\text{ m}/\text{sec}$ ）であり、照射終了後も長時間のナトリウム循環を実施した。尚実験Na 33では、照射終了2時間後からナトリウム流量を $5\text{ l}/\text{min}$ に変化させた。これは、脱着再分配の変化を感度良く検出することを期待した実験で、仮に脱着再分配が起っていれば、低流速時（ $1\text{ l}/\text{min}$ ）にループ中に成立した不揮発性FPの急勾配な沈着分布が、ナトリウムを高速（ $5\text{ l}/\text{min}$ ）にしたことにより勾配の変化を感度よく検出できると考えたからである。実際にZrについては、沈着分布の勾配の変化を感度よく検出することができた。

以上、実験Na 29以降の照射試験について、実験の目的、詳細な内容等を述べたが、もう一度これまで実施した照射試験全体のまとめを述べる。

Table 3-1には、試験条件としてナトリウム温度、ナトリウム流量、TTR出力および照射時間、照射終了後のナトリウム循環時間を記載したが、補足説明が必要な照射試験について若干の説明を加える。

実験Na 18は、前報で述べたように⁴⁾目的の不揮発性FP核種の先行核種を除去して不揮発性FP核種の沈着挙動を測定することを目的とした実験である。

実験Na 22およびNa 25は、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不揮発性FPの沈着挙動を測定した実験である。

実験Na 27～Na 30は、高酸素濃度ナトリウム中の不揮発性FPの沈着挙動を測定した実験である。

TTRの出力降下方法は、実験Na 1～Na 8、Na 18、Na 23、Na 24、Na 26については通常の出降下法で、その他の実験はすべてテストスクラム法である。またほとんどの実験では照射試験終了後ナトリウムをドレンしているが、実験Na 9～Na 10、Na 22、Na 25についてはドレンを行わずに次の照射試験を開始している。従ってこれらの実験の場合には、ナトリウムドレン後配管の γ 線測定データはない。

Table 3 - 1 List of performed FPL-II experiments¹⁾

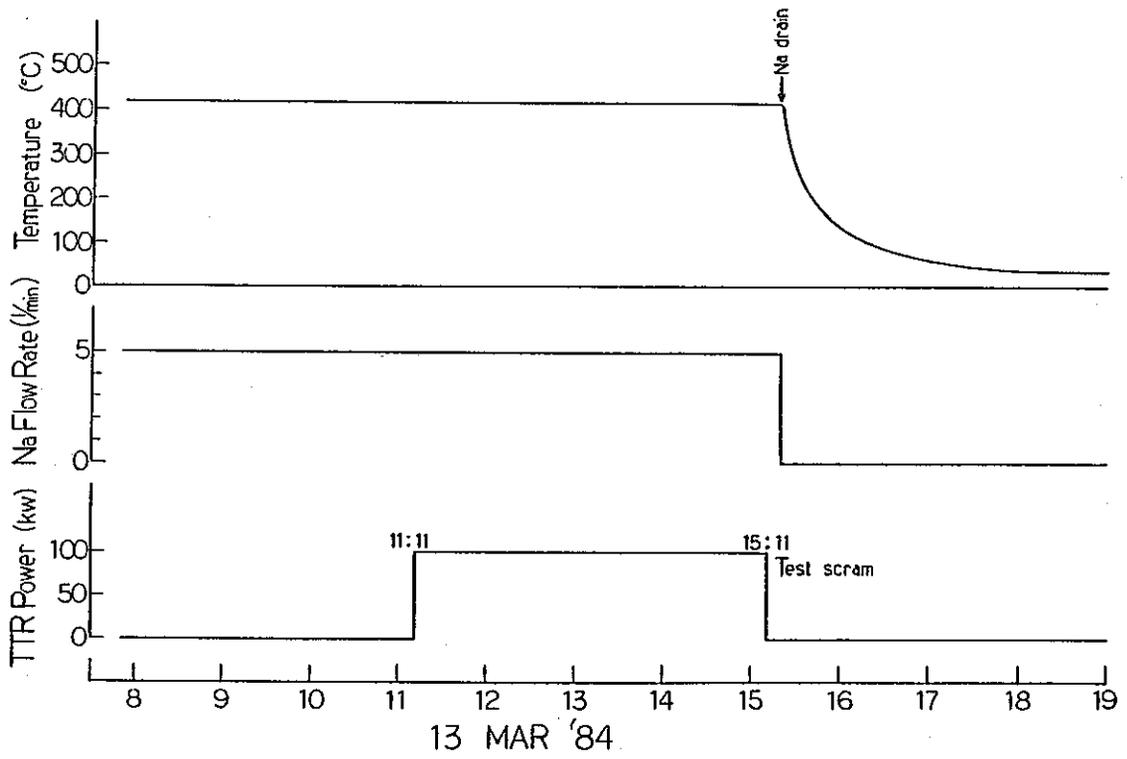
Exp No	Date	Na Temp (°C)	Na Flow Rate (ℓ/min)	TTR Power (kW)×(hr)	Type of TTR Shut Down	Duration* Time(hr)	Oxygen Concentration	Na drain or not	Remarks
1	7. Sep. 82	500	5.0	100×4	normal	0.08	1 ppm	drain	
2	9. Sep. 82	200	5.0	100×4	normal	0.17	1 ppm	drain	
3	19. Oct. 82	350	5.0	100×4	normal	0.08	1 ppm	drain	
4	21. Oct. 82	350	5.0	100×4	normal	0.10	1 ppm	drain	
5	16. Nov. 82	420	5.0	100×4	normal	0.18	1 ppm	drain	
6	25. Nov. 82	420	5.0	100×4	normal	0.10	1 ppm	drain	
7	30. Nov. 82	500	5.0	100×4	normal	0.10	1 ppm	drain	
8	7. Dec. 82	530	5.0	100×4	normal	0.08	1 ppm	drain	
9	14. Dec. 82	170	5.0	100×4.38	normal	19.97	1 ppm	no drain	
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	100×4	test scram	19.72	1 ppm	no drain	DN exp.
11	16. Dec. 82	270	5.0/2.0/5.0	100×4	test scram	1.38	1 ppm	drain	
12	25. Jan. 83	225	5.0/2.0/5.0	100×4	test scram	19.52	1 ppm	drain	
13	27. Jan. 83	500	5.0/3.8/3.2/2.1/0.6/ 0.1/0.6/2.1/3.2/3.8/ 4.6/0/2.1/0/0.6/0/4.6	100×4	test scram	2.98	1 ppm	drain	DN exp.
14	22. Feb. 83	530	1.0	100×4	test scram	0.43	1 ppm	drain	
15	1. Mar. 83	300	5.0/2.0/5.0	100×4	test scram	1.63	1 ppm	drain	IP bypass exp.
16	12. Apr. 83	530	1.0	100×3.5	test scram	18.47	1 ppm	drain	
18	20. Sep. 83	280/500	2.0/5.0	100×2	normal	47.18	1 ppm	drain	Exp. for elimination of precursor nuclide influence

Table 3 - 1 (Continued)

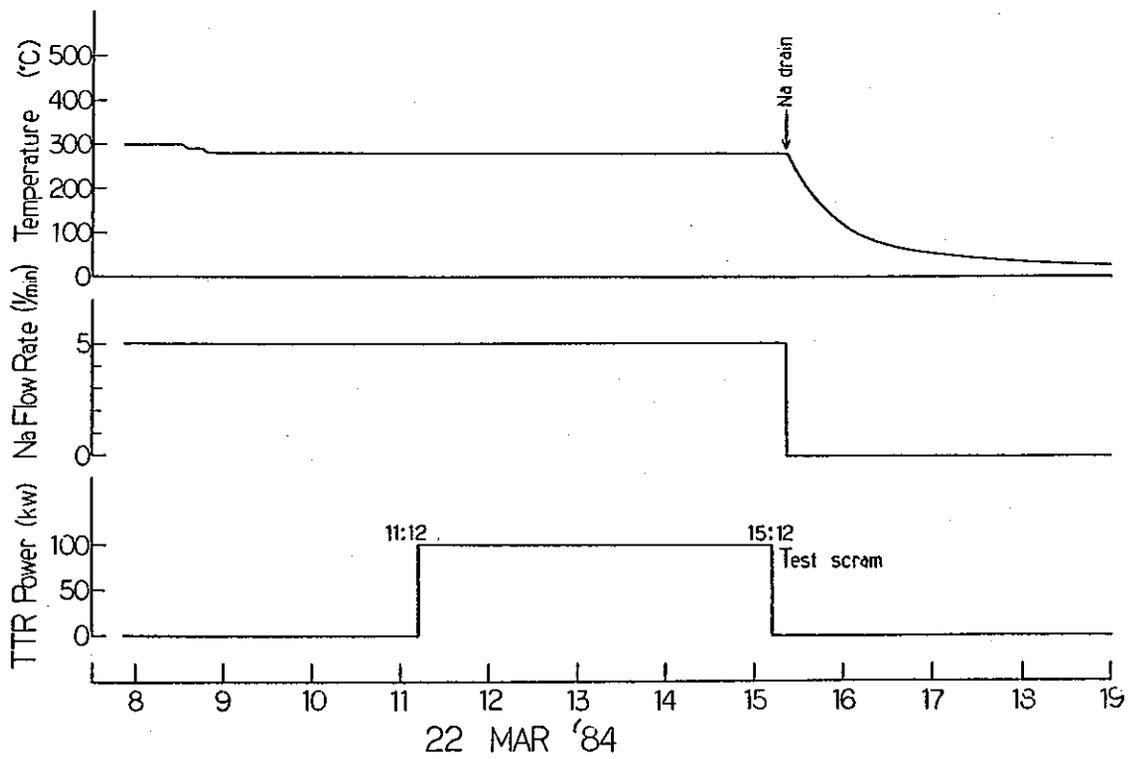
Exp. No.	Date	Na Temp (°C)	Na Flow Rate (ℓ/min)	TTR Power (kW)×(hr)	Type of TTR Shut Down	Duration* Time(hr)	Oxygen Concentration	Na drain or not	Remarks
19	18. Oct. 83	530	2.0	100×4	test scram	0.17	1 ppm	drain	
20	8. Nov. 83	170	1.0	100×4	test scram	4 2.6 5	1 ppm	drain	
21	29. Nov. 83	170	5.0	100×4	test scram	1 9.0 0	1 ppm	drain	
22	13. Dec. 83	400	1.0	100×4	test scram	4 4.9 2	1 ppm	no drain	Temp. gradient exp.
23	15. Dec. 83	500	5.0/0/4.2/0	0.1~70(kW) 100×158	normal	-0.90**	1 ppm	drain	TTR power dependence exp.
24	26. Jan. 84	270	5.0	100×4	normal	-0.00**	1 ppm	drain	
25	31. Jan. 84	300	1.0	100×4	test scram	1 9.9 2	1 ppm	no drain	Temp. gradient exp.
26	1. Feb. 84	500	5.0/0/2.5/0/1.0/ 0/5.0	100×4	normal	-0.07**	1 ppm	drain	DN exp.
27	14. Feb. 84	500	5.0	100×4	test scram	0.10	12ppm	drain	Higher oxygen exp.
28	28. Feb. 84	500	5.0/0/5.0	100×4	test scram	3 7.2 2	12ppm	drain	Higher oxygen exp.
29	13. Mar. 84	420	5.0	100×4	test scram	0.18	12ppm	drain	Higher oxygen exp.
30	22. Mar. 84	270	5.0	100×4	test scram	0.15	12ppm	drain	Higher oxygen exp.
31	27. Mar. 84	500	5.0/0/2.5/0/1.0/ 0/5.0	100×4	test scram	0.10	1 ppm	drain	DN exp.
32	17. Apr. 84	500	5.0	100×4	test scram	2 0.5 5	1 ppm	drain	
33	24. Apr. 84	500	1.0 (5.0 after irradiation)	100×4	test scram	4 0.9 8	1 ppm	drain	

* duration time of sodium circulation after TTR shut down, ** sodium drain before TTR shut down

+) Data for Exp. No 17 was omitted from this Table because FPL-II was not operated in this experiment (Only γ -ray measurement for long counting time along the loop was done).

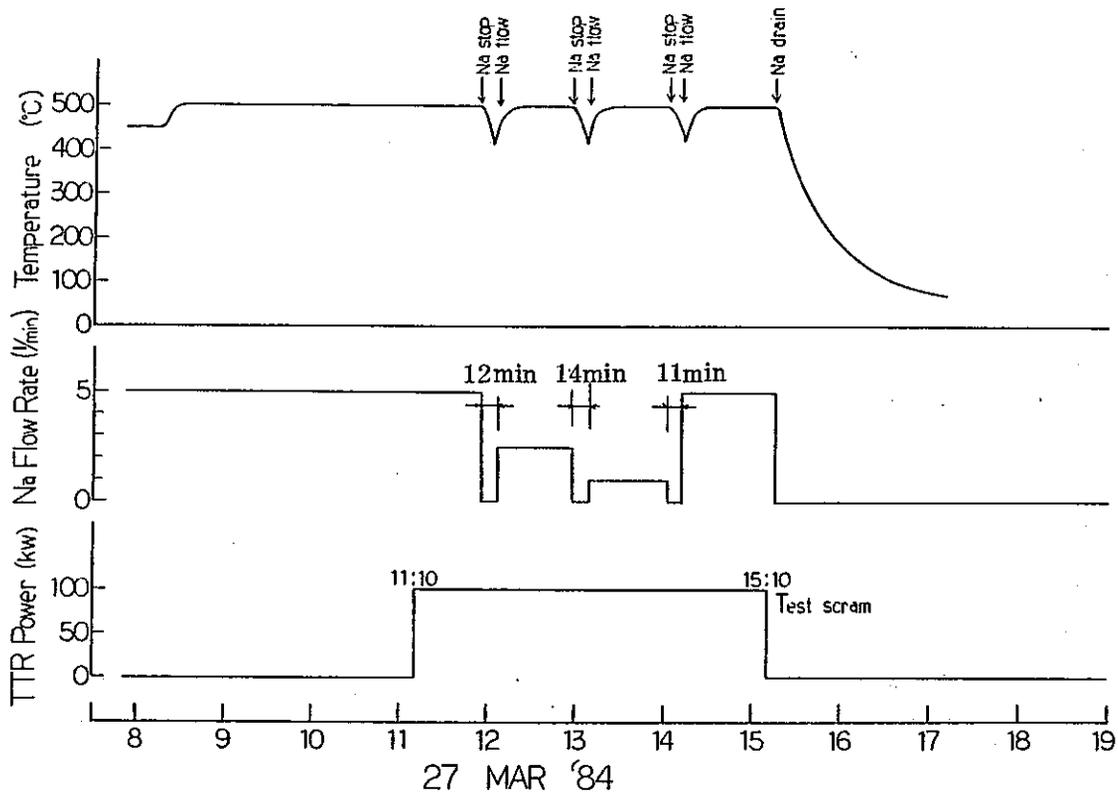


1) Experimental Condition Exp. No. 29

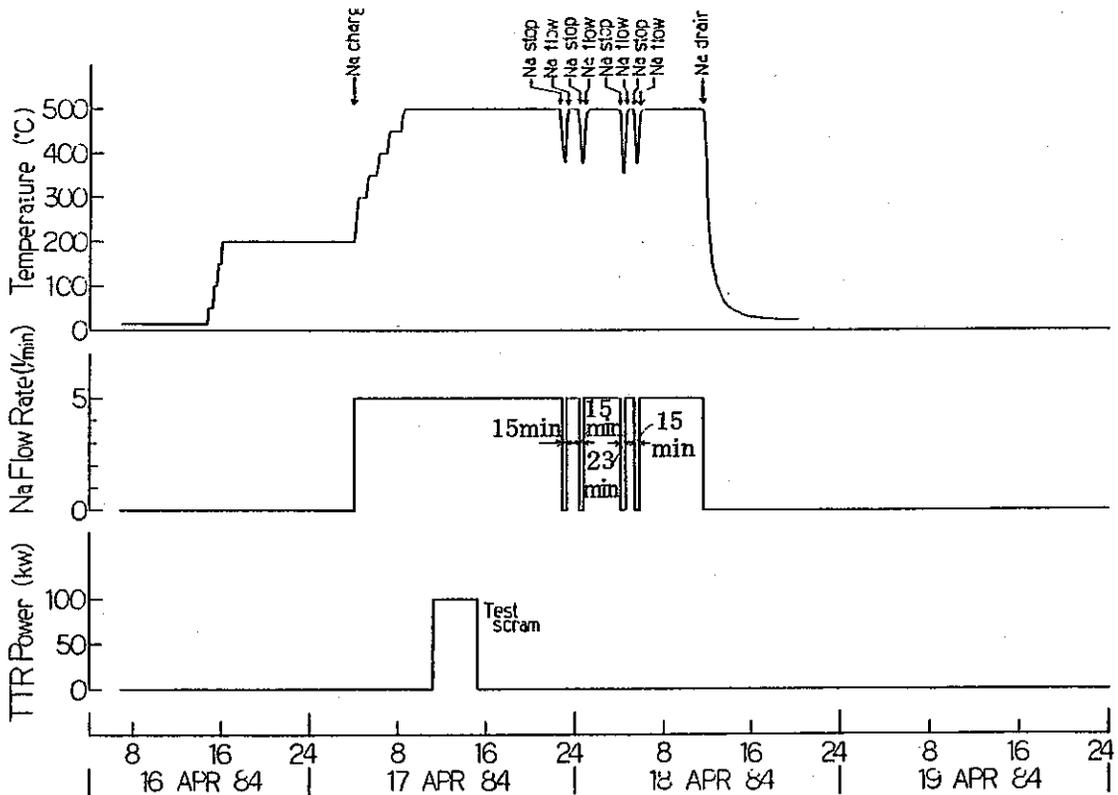


2) Experimental Condition Exp. No. 30

Fig 3 - 1 Experimental condition for each experiment

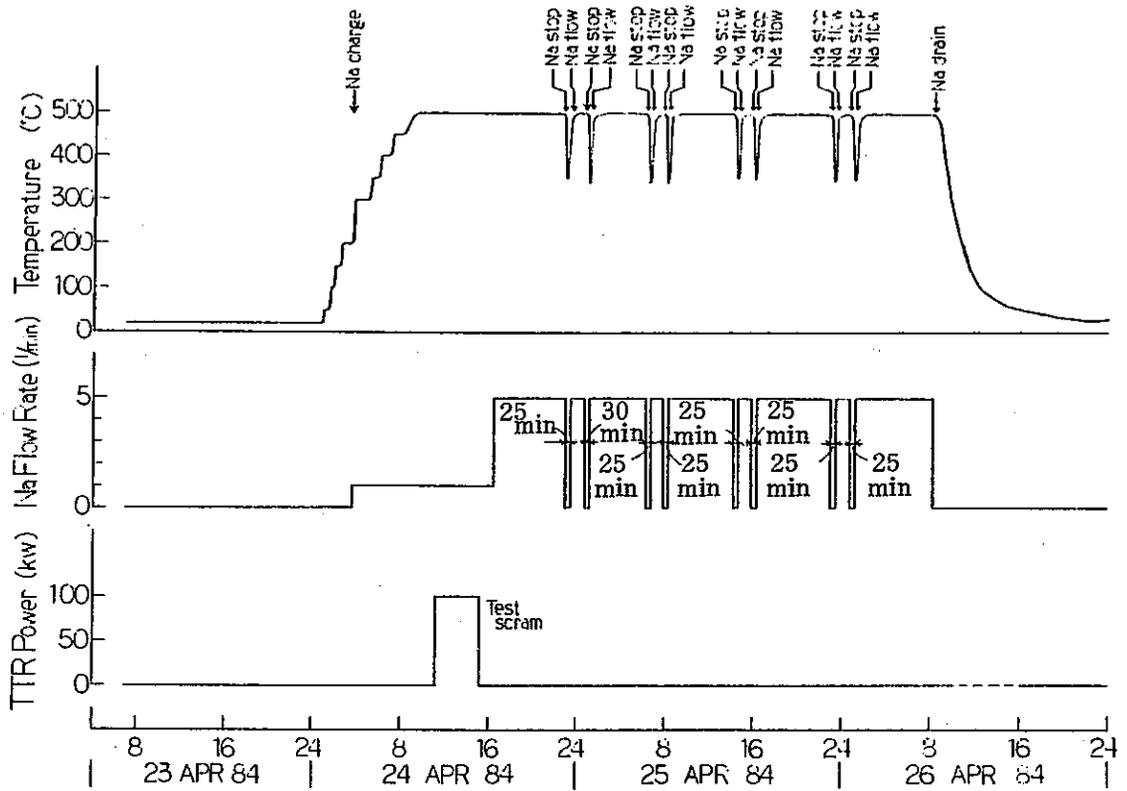


3) Experimental Condition Exp.31



4) Experimental Condition Exp.32

Fig 3 - 1 (continued)



5) Experimental Condition Exp. 33

Fig 3 - 1 (continued)

4. FPL - II の解体及び解体検査

4.1 緒 言

FPL - II は、昭和59年4月末をもってすべての照射試験を終了したので解体撤去されることになった。そこで解体部材から試験片を採取して、種々の解体試験を実施した。

まず選択した試験片の γ 線測定によるFPおよびCPのループ内沈着分布を求めた。この測定により、照射試験では沈着挙動が得られていないCe、Ru等の長半減期FP核種の沈着挙動を求めることができるばかりでなく、照射試験中には測定することができなかったループ配管部や機器内壁への種々の放射性核種の沈着状態を求めることができる。

次に放射化分析法によりウランのループ内沈着分布を求めた。照射試験の結果(6章で述べる)ではループに装荷したウランの健全性が保たれているという結果が得られているが、どの程度のウランがループ中に移行しているか、またどんな沈着分布を示すかを検出感度が高くかつ分析法が簡便な放射化分析法により求めた。

ループ内壁は高温の流動ナトリウムに約900時間さらされていた。そこで、ループ内壁面を走査型電子顕微鏡(SEM)で測定し、腐食の程度、あるいは堆積物の有無等を観察した。

FBRプラントの被曝低減化のうえから、プラント内壁に沈着した放射性核種の除染は非常に重要な手段である。そこで解体部材を用い、硝酸および王水(硝酸+塩酸)でそれぞれ除染を行ない、どのような核種がどの程度除染されるかを測定した。

4.2 ループ配管機器の解体

1) 解体工事の概要

FPL - II は Fig 2 - 1 に示すように、ナトリウムループ部およびこれに付属する、格納容器、遮蔽体、計測制御系、各種ガス系等の付属設備より構成されている。そこでこれらの設備を汚染系(ナトリウムループ部およびアルゴンガス系)と非汚染系に分類し、まず非汚染設備の解体から作業を開始した。そして非汚染設備の大部分が解体撤去された後、汚染設備の解体に移った。ナトリウムループ部の解体では、汚染拡大を防止する観点からこれらを取り囲むようにビニールハウスを設置し、この中で解

体作業を行なった。更にビニールハウスには局所排気装置をつけてハウス内の換気を行ない、発生したダストをすみやかに排気するようにした。一方ナトリウム配管の切断には、油圧による押し切り法を採用した。本方法によれば、配管切断面は完全に押しつぶされるために、配管内壁に付着しているFPおよびナトリウムはほとんど配管の外に放出されない。従って本方法は汚染拡大の防止と内部被曝防止の観点から極めて安全性が高い方法である。このように慎重に解体作業を進め、約40日間でループの解体撤去を完了した。

尚ループ内に装荷されていたナトリウムはダンプタンクにドレンされている。そこで、タンクに付属するナトリウム配管部で切断した後、切断配管部にステンレス製のキャップの開口端とナトリウム配管を溶接することにより、ナトリウムをダンプタンク内に封入した。またウランカプセルは、ナトリウム配管部を押し切り切断した後、切断口を溶接密封し、カプセル内部の酸化防止処置を施した。

2) 試験片の採取位置

試験片の大きさは、解体部材の γ 線測定を考慮して原則として長さ10cmとした。そこでループ解体に先立ち、保温材をはずしたループ配管に対してナトリウムの流れに沿って10cm毎に印をつけて4桁の数字で番号付けを行ない、解体片がループのどの部分から採取したかがわかるようにした。そして解体試験に使用する試験片は、なるべくループ全体から平均的に採取するようにした。Fig 4-1にFPL-II実験系と純化系ループの俯瞰図と試験片を採取した位置を示す。ナトリウムの流れに沿って採取した試験片は以下のとおりである。

TE-1~3はインパイルナトリウム出口配管部、TE-4はナトリウム弁(VA-3)、TE-5~23は全長25mのディレイライン配管部、TE-24は電磁ポンプ(EMP)、TE-25はVA-4でループの中で一番温度の低い部分、TE-26はVA-4から主加熱器(H-1)間の配管部、TE-27は主加熱器、TE-28~30は主加熱器からインパイルナトリウム入口配管部、TE-31は膨張タンク(ET)、TE-32は膨張タンクに付属したベーパートラップ(VT-2)である。またTE-33はダンプタンク(DT)、TE-34はダンプタンクとベーパートラップ(VT-3)間のアルゴンガス系配管、TE-35はVT-3、TE-36は、VT-3からアルゴンガス系への配管である。

一方純化系からは以下のように試験片を採取した。TC-1は、純化系電磁ポンプで、電磁ポンプ入口配管、出口配管と電磁ポンプ部の3つの配管各10cmからなる。TC-2は中間熱交換器を通過した後の配管部、TC-3はコールドトラップ(CT)、TC-4は、再度熱交換器を通過した後の配管部である。

3) 試験片の採取方法

試験片の長さは γ 線測定を考慮して原則として10cmとした。そこでまず試験片を含む配管はその両側に余裕をみた配管位置で押し切りによりループから切断分離した後、自動油圧ノコにより両端を完全に切断して10cmの長さの試験片を採取した。また機器については、機器に付属するナトリウム配管部で一旦押し切りによりループから切断分離した後、試験片を採取する位置で自動油圧ノコにより輪切り切断して試験片を採取した。切断した試験片は両端をガムテープ等でシールした後、ビニールシートに包んで γ 線測定用の試料とした。

尚、後述するウラン分布の測定、あるいは走査型電子顕微鏡観察に用いる試験片は、上記方法とは別の方法で調製した。調製方法は各々の項で詳述する。

4) ナトリウムの付着状態

試験片を採取したナトリウム配管部では、ナトリウムは内壁にうっすらと付着しているのが認められたが、ほぼ完全にドレンされていた。膨張タンクは底部に2~3mm程度の厚さにナトリウムが付着しているのが認められた。電磁ポンプでもナトリウムが内壁にうっすらと付着している程度でほぼ完全にドレンされていた。コールドトラップでは、酸化ナトリウムを析出させるためのステンレスメッシュにかなりの量のナトリウムが付着していたが正確な量はわからない。純化系の中間熱交換器は、内管、外管ともにナトリウムで完全に閉ソクしていた。またダンプタンクに付属したナトリウム配管のすべて(4本)は、タンクから30cm程の間に亘りナトリウムにより閉ソクしているのが認められた。ナトリウムは照射試験終了後すみやかにダンプタンクにドレンし、更に導通試験を実施してナトリウムが完全にドレンされたことを確認しているので、何故にナトリウム配管が閉ソクしていたのかは不明である。尚、ベーパートラップは解体していないので、その中のナトリウムの付着状態は不明である。

4.3 解体部材の γ 線測定

1) γ 線スペクトルの測定結果

採取したすべての試験片に対し、直接外側から γ 線スペクトルを測定した。測定には、照射試験の場合と同様に Fig 2 - 6 に示す計測システムを用いた。試験片の放射能はかなり弱いため、試験片を囲むように鉛ブロックを積んでバックグラウンドを下げようとしたが、測定を行なった場所のバックグラウンドが高いため（主に ^{60}Co ）、試験片内壁に沈着している ^{60}Co とバックグラウンドの ^{60}Co を区別することができなかつた。

Fig 4 - 2 の 1) ~ 6) に代表的な試験片の γ 線スペクトル図を示す。

Fig 4 - 2 の 1) は インパイルナトリウム配管 (TE-2) の γ 線スペクトルである。この試験片はウランカプセルから 120cm の距離にあたる部分である。検出された FP は低エネルギー側から、⁶⁾ ^{144}Ce (133.5KeV), ^{141}Ce (145.4KeV), ^{103}Ru (497.3 KeV), ^{106}Rh (511.8, 621.8 KeV), ^{137}Cs (661.6KeV), ^{144}Pr (696.4 KeV), ^{95}Zr (724.2, 756.7 KeV), ^{95}Nb (765.8KeV) 等で、他に強度の弱いピークも数本検出された。また、185.7KeV に ^{235}U のピークがかなり強い強度で検出された。更に 834.8KeV に ^{54}Mn が、1173.2 および 1332.5KeV に ^{60}Co のピークが検出されたが、これらは配管内壁に沈着した CP のピークというよりは、ステンレス配管が中性子照射により放射化された誘導放射能であると考えられる。

1460.9KeV のピークは、バックグラウンドの ^{40}K によるものである。Fig 4 - 2 の 2) は膨張タンク (TE-31) の γ 線スペクトルである。TE-2 で検出されたピークがほとんど検出されたが、各々のピークの強度比は TE-2 の場合と若干異なっている。膨張タンクは TE-2 に比較してかなり下流側に位置しており、各 FP のナトリウム中での挙動に差があるため、各々の核種のピーク強度比が異なる結果になったと考えられる。CP の ^{54}Mn は検出されなかつた。 ^{60}Co のピークは検出されたが、これはバックグラウンドの影響によるものである。尚膨張タンクは実験系ループの主要ナトリウム循環経路から枝分れした位置にある (Fig 2 - 2 および 4 - 1 参照) にもかかわらず、各種 FP および ^{235}U がかなりの強度で検出された理由としては、ナトリウム循環中にナトリウム中の FP が枝分れの細い配管を通過して膨張タンクまで拡散するメカニズムが考えられるが、詳細は不明である。3) は電磁ポンプ (TE-24) の γ 線スペクトルである。検出された FP のピークおよび ^{235}U のピークは TE-2 の

の場合と全く同じであるが、 ^{54}Mn のピークがかなりの強度で検出された。この理由については、電磁的影響あるいは電磁ポンプ部におけるナトリウム流動状態の違い（配管部との違い）等が考えられるが詳細は不明である。但し電磁ポンプ部で ^{54}Mn が特異な沈着挙動を示したことは、 ^{54}Mn の捕獲除去の立場から興味ある結果である。次に4)は主加熱器(TE-27)の γ 線スペクトルである。これまでのFPおよび ^{235}U のピークに加えて ^{54}Mn のピークが非常に弱くではあるが検出された。尚 ^{60}Co のピークはバックグラウンドである。5)はダンプタンク(TE-33)の γ 線スペクトルである。これまでの機器で検出されたFPおよび ^{235}U のピークに加えて、 ^{125}Sb (427.9, 600.6, 635.9 KeV)および ^{22}Na (1274.5 KeV)のピークが検出された。またこれまでのスペクトルと比較して ^{137}Cs (661.6 KeV)のピークの強度比が相対的に高くなっている。6)は純化系のコールドトラップ(TC-3)の γ 線スペクトルであり、 ^{137}Cs のピークがどのFPよりも極端に強く検出された。更にダンプタンクで検出された ^{125}Sb のピークもかなりの強度で検出された。コールドトラップはループ中一番低温度の部分であり(通常120°C)、しかも接触表面積を大きくするためにステンレス製のメッシュが多数挿入されているため、 ^{137}Cs が選択的に捕獲されたものと考えられる。一方 ^{125}Sb も揮発性FPに分類される核種であるため、 ^{137}Cs と同様の理由によりコールドトラップで捕獲されたものと考えられる。 ^{235}U のピークは検出されてはいるが非常に弱い。尚解体工事の前に各機器の表面線量率を外側から測定した。その結果、コールドトラップが一番高く0.12 mR/hr、続いてダンプタンクの0.02 mR/hrであり、その他の機器は0.01 mR/hr以下であった。コールドトラップの線量率には、捕獲された ^{137}Cs が大きく寄与している。

2) FPのループ内沈着分布

ループ配管から採取した試験片の γ 線測定結果を基に、検出された ^{144}Ce 、 ^{141}Ce 、 ^{103}Ru 、 ^{106}Rh 、 ^{137}Cs 、 ^{144}Pr 、 ^{95}Zr および ^{95}Nb (エネルギー順)の8核種のループ内沈着分布を求める。Fig 4-3にこれらFP核種のFPチェーンを⁷⁾図示する。尚 ^{106}Rh (半減期29.8秒)は ^{106}Ru (半減期366.5日、 γ 線を放出しない)と放射平衡に達しており、 ^{106}Rh の沈着分布はその先行核種である ^{106}Ru の沈着分布を表わす。また $^{144}\text{Ce}/^{144}\text{Pr}$ および $^{95}\text{Zr}/^{95}\text{Nb}$ も放射平衡に達している。

Fig 4-4にこれらFPのループ内沈着分布の結果を示す。横軸はウランカプセル

からの距離 (γ 線測定した試験片のループ上での位置), 縦軸は γ 線の計数率を示す。純化系は実験系とダンプタンクでのみ連ながっているため、純化系内の沈着分布は、実験系の後に示した。尚今回の γ 線測定では、FP の沈着の絶対量は測定していないため、配管と幾何学的検出効率が異なる膨張タンク、電磁ポンプ等の形状が複雑な機器の沈着量はこの図には記載していない。以下に各 FP 核種の沈着分布を概説する。

Fig 4 - 4 の 1) は ^{144}Ce のループ内沈着分布図である。ナトリウムの流れに沿って沈着量が減少する下流効果が現われているが、全体的な沈着分布の傾向 (図中に実線で示した) に比較すると、ナトリウム弁 (VA-3 および VA-4), 主加熱器 (MH) で沈着量が低く、逆に VA-4 の下流側の配管 (TE-26, ナトリウム循環試験中はループの中で一番低温の部分) で全体より高めの沈着量を示した。一方純化系では、電磁ポンプ本体の部分で実験系の配管部と同程度の沈着量を示したが、その他の純化系の沈着量は実験系に比較して $1/10 \sim 1/100$ 程度であり、純化系電磁ポンプ部での沈着量が突出しているのが特徴的である。

Fig 4 - 4 の 2) は ^{141}Ce のループ内沈着分布図である。この場合も下流効果がみられるが、その勾配 (図中に実線で示した) は ^{144}Ce 程急でなく、下流効果が小さいことを示す。主加熱器は全体の沈着分布よりかなり低い値を示した。純化系試験片の測定では、 ^{141}Ce のピークは検出されなかった。

Fig 4 - 4 の 3) は ^{103}Ru の沈着分布図である。 ^{103}Ru の場合は ^{144}Ce と同様に曲線上 (実線で図中に示した) のループ内分布が得られたが、主加熱器は全体の沈着分布よりかなり低い値を示した。純化系については ^{103}Ru のピークは検出されなかった。

Fig 4 - 4 の 4) は ^{106}Rh の沈着分布図であるが、前述のようにこの図は親核種である ^{106}Ru の沈着分布を表している。 ^{106}Rh の場合も ^{103}Ru と同様に曲線状 (実線) のループ内分布が得られた。実験系ループでは、ナトリウム弁 (VA-4) において特に高い沈着量を示した。純化系内の沈着量は、実験系内沈着量の $1/2 \sim 1/5$ 程度である。

Fig 4 - 4 の 5) は ^{137}Cs の沈着分布図である。実験系、純化系ともに沈着量はほぼ等しく、しかも明白なる下流効果は認められず、ループ全体に亘ってほぼ均一な分布を示した。尚ナトリウム弁 (VA-3 および VA-4) においては、ループ内平均に比較して約 3 倍の高い沈着量を示した。

Fig 4 - 4 の 6) は ^{144}Pr の沈着分布図である。 ^{144}Pr は ^{144}Ce と放射平衡にある

ため、 ^{144}Ce とほとんど同じループ内分布を示した。

Fig 4 - 4 の 7), 8) は ^{95}Zr の沈着分布図であり、エネルギーの異なる 2 本のピークについてそれぞれループ内分布を求めた。ループ内沈着分布のパターンは両者でよく一致した。Zr の場合も明瞭な下流効果を示した。またナトリウム弁 (VA-3 および VA-4) において沈着量が平均値の約 2 倍になっているのが認められた。純化系は実験系に比べて $1/10 \sim 1/100$ と沈着量は非常に小さい。

Fig 4 - 4 の 9) は ^{95}Nb の沈着分布図である。前述したように ^{95}Nb は先行核種である ^{95}Zr と放射平衡にあるため、 ^{95}Zr の沈着分布とほとんど一致した。

尚、これら FP 核種のループ内沈着分布は、これまで実施してきた照射試験における種々の実験条件下 (ナトリウム温度、流速およびナトリウム中酸素濃度をパラメーターとした照射実験) での各 FP の沈着挙動の重ね合せを表わしていることになるので、これらのループ内分布から各 FP 核種の沈着挙動を定量的に求めることは困難である。尚 FPL - II のデータから、 ^{144}Ce 、 ^{103}Ru 、 ^{106}Rh 、 ^{95}Zr および ^{95}Nb のループ内分布は、ほとんど同じような沈着パターンを示すことがわかった。

3) ^{235}U のループ内沈着分布

試験片の γ 線測定の結果、 ^{235}U の γ 線ピーク (185.7 keV)⁶⁾ がほとんどすべての試験片で検出された。そこでこのピークを用いて ^{235}U のループ内沈着分布を求めた。その結果を Fig 4 - 5 に示す。 ^{235}U も FP 核種の場合と同様に下流効果を示した。一方純化系では、電磁ポンプ部で実験系の最下流に位置する配管部と同程度の沈着量を示したが、他の配管部は実験系配管部の $1/10$ 程度の沈着量であった。尚 ^{235}U の全体的なループ内分布は、ある機器に対して特異な沈着挙動を示すようなことなく、配管、機器の別なくほぼ一様に沈着する傾向を示した。

4) 各種機器内壁への沈着挙動

Table 4 - 1 に膨張タンク (TE-31)、実験系電磁ポンプ (TE-24)、ダンプタンク (TE-33)、コールドトラップ (TC-3) およびベーパートラップ (TE-32、TC-5 および TE-35) のループ内各種機器の γ 線測定結果をまとめて示す。

検出された核種は、配管部測定の場合と同様に、 ^{144}Ce 、 ^{141}Ce 、 ^{235}U 、 ^{103}Ru 、 ^{106}Rh 、 ^{137}Cs 、 ^{144}Pr 、 ^{95}Zr および ^{95}Nb の 9 核種である。前述したように電磁ポンプ (TE-24) では ^{54}Mn が、ダンプタンク (TE-33) では ^{22}Na が検出されたの

でこの結果も表中に示した。また上記機器については、側壁に沿って測定位置を移動して γ 線スペクトルの測定を実施したのでその結果も合せてTable 4-1に示す。尚、例えばTE-33-1Uは、ダンプタンク上方のカバーガス部を、TC-3-1Mはコールドトラップ内に挿入されているステンレスメッシュを測定した結果を表わす。ところで幾何学的検出効率はそれぞれ機器により異なるため、得られた計数率を機器毎に比較することはできないが、同一機器の中で測定位置をかえた実験では幾何学的検出効率がほぼ等しいので、膨張タンク(TE-31)の場合を除いて測定位置毎に互いに比較することが可能である。この観点に立つと、それぞれの機器の中でも測定位置により各FP核種の沈着挙動がかなり異なることがわかる。例えば電磁ポンプ部(TE-24)では、他の部分に比較して底部ですべての核種の沈着量が2~10倍の大きな値を示した。特に ^{144}Ce 、 ^{141}Ce 、 ^{235}U は約10倍、 ^{95}Zr 、 ^{95}Nb は約4倍の差があることがわかった。またダンプタンク(TE-33)は、右サイド、中間部および左サイドで沈着量にかなりの差がみられた。尚ダンプタンクカバーガス部の測定では、 ^{106}Rh 、 ^{137}Cs 、 ^{95}Zr および ^{95}Nb のピークのみが検出されたが強度は非常に弱く、ナトリウムが存在する下部に比べて1/10~1/100であった。コールドトラップ(TC-3)は、ナトリウム純化中には上部と底部で約20°Cの温度差があったが、検出されたFPの強度には測定位置による差はほとんどなかった。またコールドトラップメッシュについても上、中および底部ではほとんど差がみられなかった。ベーパートラップは、Csがわずかに検出された程度で、VT-1~3のどれについても他のFP核種は検出されなかった。尚膨張タンク(TE-31)は底部に近い胴体部を輪切り切断した後、上部および中間部は側壁の外側から γ 線測定を行なったのに対し、底部は底部内壁面を直接検出器に向けて測定を行なったため幾何学的検出効率が大きく異なっており、互いの計数率の値を比較することはできなかった。

次に各機器における各種FPおよび ^{235}U の沈着挙動を比較するため、 ^{95}Nb の計数率を内部標準として各種FPおよび ^{235}U の相対的な強度の算出を試みた。その結果をTable 4-2にまとめて示す。膨張タンク(TE-31)では、 ^{144}Ce と ^{235}U が底部において中間部より約2倍の沈着量を示したが、その他のFPについてはほぼ等しい値を示した。電磁ポンプ(TE-24)では、他の測定位置に比べて底部において、 ^{144}Ce 、 ^{235}U 、 ^{103}Ru および ^{144}Pr が約2倍の沈着量を示した。ダンプタンク(TE-33)では測定位置による差はあまり現われていない。尚ダンプタンクカバー

ガス部の測定において、中間部の測定結果が大きい値を示したが、この部分は γ 線強度が弱く、かつ測定されたデータも100%に近い統計誤差を含むため、統計学的にどの程度有意の差があるか不明である。その他の機器については、測定位置による差は現われなかった。

次にこれらFP核種の相対値を各機器毎に比較する。 ^{144}Ce は、電磁ポンプおよびダンプタンクで沈着量が少なく、コールドトラップで多いことがわかった。 ^{235}U は電磁ポンプで少なくコールドトラップで多い結果となったが、コールドトラップメッシュの測定では ^{235}U のピークは検出されていない。 ^{106}Rh は、電磁ポンプで少なく他の機器では同程度の値であった。 $^{137}_{54}\text{Cs}$ は圧倒的にコールドトラップで多く、また電磁ポンプでは少ない結果であり、両者の差は約200倍にも達した。この結果から、コールドトラップが $^{137}_{54}\text{Cs}$ の補獲除去にかなり有効であることが示された。 ^{95}Zr は ^{95}Nb の先行核種であり ^{95}Nb と放射平衡に達しているためどの機器についてもほぼ等しい値となった。上記のようにNbの沈着量に対する相対値で比較した場合には、電磁ポンプでは、ZrとNbを除いた他のFPの沈着量は他の機器よりも低い結果となった。しかし逆にいえば、ZrおよびNbが電磁ポンプにおいてかなり選択的に沈着している可能性もある。このような議論はZrやNbの沈着挙動が各機器において一様(特異な沈着挙動を示さない)であるという仮定のうえになされているため、これ以上詳細な検討は不可能であり、沈着量の絶対値を算出することが必要であろう。そして絶対量の算出がなされれば、各機器毎に各核種の沈着挙動の差を議論することができるだけでなく、機器と配管との沈着挙動の差も議論することが可能となる。

4.4 ウランのループ内分布測定

FPL-IIには前述したように粒状の焼結二酸化ウランが照射試料として装荷されており、流動ナトリウム中に浸漬されている。6章で述べるように、照射試料から放出されたFPの γ 線測定の結果では、照射試料に経年変化はみられず、照射試料の健全性が保たれていることが結論されているが、極く微量のウランがループ中に移行している可能性があるため、どの程度のウランがナトリウム中に移行し、どのように沈着分布を示すかを測定した。

1) ウラン定量分析法の検討

ウランの定量分析法では、定量するウラン量に応じて種々の方法が知られている。定量の場合は重量法を用い、少量の場合は酸化還元滴定法や比色分析法が、また微量の場合は、ポーログラフィー、電解分析法、X線分析法などが適当である。更に超微量の場合はフッ化ナトリウムに混ぜて蛍光体を合成して行なう蛍光分析法があり、 $10^{-8} \sim 10^{-9}$ g のウランが定量可能といわれる。また中性子照射による放射化分析法では、約 10^{-12} g のウランの定量が可能という報告もある。⁸⁾

今回の場合、微量あるいは極微量である可能性があること、特種な分析機器を必要としないこと、化学分離などの複雑な前処理を必要としないことなどから、簡便でしかも感度の高い放射化分析法を用いることとした。しかし不純物が共存する場合、不純物も中性子により放射化されるため、目的元素の放射能との強度比が問題となる。

今回の分析の場合、ウランはステンレス配管内壁に沈着していること、ナトリウムが共存していること等から、これら不純物の影響を検討した。この結果、ステンレスが共存すると放射能の妨害が大きくなる可能性があるため配管内壁を洗浄してウランをステンレスから分離することにした。しかし分離液中にはナトリウムも溶出してくるため、このナトリウムの影響についても検討した。ウランの放射化分析法では、ウラン中の同位体である ^{238}U (n, γ) ^{239}U の β 壊変で生成する ^{239}Np の放射能を利用する方法と、 ^{235}U (n, F) の核分裂反応により生成する FP のうちの適当な核種を利用する方法が一般的であったが、 γ 線スペクトロメトリ技術の進歩により、⁶⁾ 前述した ^{239}U の 74.67 KeV の γ 線を利用する方法が開発された。本方法によれば、⁶⁾ ^{239}U の半減期が 23.5 分と短いため、短時間の中性子照射で十分な放射能強度が得られ、また照射時間が短いため不純物の放射化量が少なく、それだけ妨害する放射能量も低く押えられて相対的にウランの感度が高くなる。従って本方法によれば、分離液中にウランと共存するナトリウムの放射化量も充分低く押えられ、ほとんど妨害しないことが推定されるため、 ^{239}U の γ 線ピークを用いる方法で放射化分析を行なうこととした。

尚放射化分析では、目的元素の含有量が既知の標準試料を用い、これと未知試料を同一条件で照射し、その放射能を比較する比較法が一般的であるので、今回は標準試料を用いた比較法により定量分析を行なった。

2) 試験片の選択および調製

放射化分析の対象とする試験片は、以下のような基準で12片を選択した。インパイルナトリウム出口配管部でのウランの沈着挙動は、ウランカプセルのすぐ下流側に位置するため非常に重要である。そこで、まずこの部分の配管、TE-1、TE-2、TE-3の3片を選択した。続いてディレイライン配管部からほぼ等間隔にTE-8とTE-18の2片を選択した。また膨張タンク(ET)については、底部に近い胴体部分を1cm幅程度に輪切りにした試験片を用いた。電磁ポンプ(EMP)についても、中間部付近を1cm幅程度に輪切りにした試験片を用いたが、電磁ポンプは二重管構造になっているため、内管と外管を各々試験片として選択した。次にナトリウムバルブ(VA-4、Fig 4-1参照)と主加熱器(H-1)の間の配管(TE-26)を選択した。尚前項でも述べたように、この部分は照射試験中にはループの中で一番低い温度の部分であった。続いて主加熱器であるが、これも中間部を10cm幅で輪切りにした試験片(TE-27)を用いた。実験系ループの最後としてインパイルナトリウム入口配管部の手前の配管(TE-30)を選択した。一方純化系ループでは、主要機器であるコールドトラップ(CT)を選択したが、この場合も、膨張タンクの場合と同様に、底部に近い胴体部分を1cm幅に輪切りにしたものを試験片とした。これらの試験片の調製では、自動油圧ノコによる輪切り切断方法を用いた。Table 4-3に、試料番号と試験片の番号との対応をまとめて示す。

3) 照射試料の調製

前項で述べたように、照射試料の調製には、試験片内壁に沈着したウランを溶出させるための簡単な前処理操作が必要である。試験片内壁を洗浄する溶液としては、水、硝酸、塩酸等が考えられる。内壁に沈着しているウランは配管表面に二酸化ウラン(FPL-IIには二酸化ウランが装荷されている)の形で化学吸着している可能性があることから、水によるウランの溶出では不十分である。塩酸ではステンレス配管が腐食されて、Fe、Cr、Ni、Co等の構造材の構成要素が溶出してくること、更に塩酸中のClが中性子照射により放射化されてウランの分析に妨害を与えること等から不適當である。硝酸はステンレスを腐食せず、ウランの溶出には充分であることから、硝酸が最適であると結論した。そこで、配管状の試験片については開口部の一端に栓をした後、試験片内に2倍に希釈した硝酸(8規定硝酸)を満たし、1.5時間放置してウランを溶出させた後、内容積50mlのポリエチレンビンに移し、更に試験

片内壁の洗浄液も集めて試料溶液とした。一方、ループ機器から採取した試験片については、底の浅いシャーレの中に試験片を入れ、前記と同濃度の硝酸を満たして同様に1.5時間放置した後、50mlのポリエチレンビンに洗浄液と一緒に集めて試料溶液とした。照射には、これら試料溶液から10mlを分取した溶液（照射試料）を用いた。

尚、試料溶液はほとんど無色透明であったが、膨張タンクの試料溶液は黒く懸濁していた。

標準試料には、316.8 μ gの天然ウランを含む10mlの水溶液を使用した。

4) 試料の照射および γ 線の測定

10ml分取した照射試料の入ったポリエチレンビン（ポリエチレン製）に入れ、立教大学原子力研究所の原子炉（TRIGA炉）の熱中性子束密度 5×10^{11} ($\text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$)の照射孔内に挿入して5分間照射した。

照射終了後、照射カプセルから取り出した照射試料溶液を5分間冷却して短半減期の放射性物質を減衰させ、 ^{239}U （半減期23.5分）の γ 線（74.67KeV）を約20cmの距離をおいて5分間計測した。使用した γ 線検出器は、特に低エネルギーの γ 線検出に適しているキャンベラ社製のGe半導体検出器で、マルチチャンネルアナライザーもキャンベラ社製のシリーズ40型である。尚照射試料と検出器の距離20cmは、マルチチャンネルアナライザーのデッドタイムが20%以上にならずかつ計数率ができるだけ高くなるようにして決定したものである。

Fig 4-6に、標準試料と試料Na 1（TE-1）の γ 線スペクトルを示す。たて軸は計数率の対数値、横軸はチャンネル数（ γ 線エネルギーに対応）を表わす。760チャンネルのピークが ^{239}U の74.67KeVのピークである。

γ 線スペクトル測定の結果、①標準試料の γ 線スペクトルは ^{239}U のピーク以外のチャンネルの計数率（バックグラウンド）が低いのに対し、試料Na 1のスペクトルはバックグラウンドレベルが標準試料に比べて約10倍高い、②試料Na 1のスペクトルでは ^{239}U のピーク以外にかなり多数のピークが検出された（その一端は、Fig 4-6中の790チャンネル付近に現われている）、③試料Na 1のバックグラウンドレベルは短時間で低下する、等のことがわかった。このような結果から、Fig 4-6中の両スペクトルのバックグラウンドレベルの差は、試料Na 1中に含まれる不純物（ナトリウム

あるいはステンレス構成元素)の影響によるものではなく(前記不純物の放射化生成物は半減期が長い),両試料に含まれる ^{235}U の濃縮度の差(標準試料は天然ウランで ^{235}U の濃度は0.7%,試料No.1は20%濃縮ウランで, ^{235}U の濃度は約30倍標準試料より大きい)によると結論した。すなわち試料No.1のスペクトルの ^{239}U のピーク以外は ^{235}U の核分裂により生成した短半減期FPのピークであり,このFPピークのコンプトン散乱によりバックグランドレベルが高くなったものと推定される。尚,短半減期FPの γ 線ピークおよび高いバックグランドレベルは, ^{239}U のピークの妨害とならず,本分析法で充分ウランの定量が可能であることがわかった。

5) 結 果

測定の結果をTable 4-3にまとめて示す。表中の補正係数は,照射試料(10 ml)と試料溶液(照射試料は試料溶液から10 ml分取したものをを用いた)との容積比を表わす。また表面積は,試験片の内壁表面積を表わす。

ここで各照射試料の計数率を C_{ri} (cps),標準試料の計数率を C_{rs} (cps)とし,補正係数を F_i (-)とすると,試料溶液中の全ウラン量 M_{ui} (μg)は,

$$M_{ui} = \left\{ \frac{C_{ri}}{C_{rs}} \cdot 316.8 \times 0.993 \times \frac{1}{0.8} \right\} \cdot F_i$$

で求められる。ここに316.8は標準試料中の天然ウラン量(μg),0.993は天然ウラン中の ^{238}U の濃度,0.8は試料溶液に含まれるウラン中の ^{238}U の濃度である。このようにして算出された試料溶液中のウラン量を表中の第6欄に示す。この値を表面積で割ることによりウランの試験片内壁表面での沈着密度($\mu\text{g}/\text{cm}^2$)が算出された。

この結果を基に,FPL-IIループ内のウランの沈着分布をFig 4-7に示す。横軸はFig 4-5と同様にウランカプセルからの距離(m),たて軸はウランの沈着密度($\mu\text{g}/\text{cm}^2$)を示す。ループ機器を除いた配管部(TE-1,2,3,8,18,26,30)の沈着密度は,TE-26のデータを除いて,図中に実線で引いたように非常に明瞭なダウンストリーム効果を示した。これに比べて,膨張タンク(ET),電磁ポンプ(EMP)内管と外管,主加熱器(MH)および純化系のコールドトラップ(CT)では沈着密度は配管部に比べてかなり小さくなった。ETはナトリウムの流路から枝分れした位置にあるために沈着密度が低いと考えられ,CTも実験系に入っておらず,純化系と実験系はダンプタンク(DT)でのみ連結されていて,DTにド

レンされたウランがCTに沈着するためにCTでの沈着密度は低いと考えられる。EMP, MHについては機器内部でのナトリウムの流れの状態等が沈着挙動に影響を与えてこのように低い値を示したものと考えられるが、詳細な理由は不明である。次にFig 4-7の分布をFig 4-5と比較した。この結果、配管部についてはループ内沈着分布はかなりよく一致した。

以上の結果から、ループ中に移行したウラン量の概算を行なった。ループ配管部については全7点の沈着密度の平均にループ配管内表面積を掛けて求め、EMPについては内管、外管の沈着量の平均値に内表面積を、ET, MHはそれぞれの値に内表面積を掛けて求めた。その結果、純化系を除いた実験系内の沈着ウラン量は、二酸化ウランに換算して0.28gと算出された。ところで純化系およびダンプタンク内ドレンナトリウム中のウラン量は、不確定な要素が多いため精度の高い計算をすることはできないが、多日に見積って実験系内の沈着ウラン量と等しいと仮定すれば、ループ中に移行した全二酸化ウラン量は0.56gと算出される。尚前述したように6章での解析から、装荷ウランに経年変化(装荷ウラン量の変動)がないことが結論されているが、この方法により求められる装荷量変動の精度は非常に悪いため、0.56gの変化はこの精度の中にかくれてしまい表には現れてこないものと推定される。

6) 結 言

FPL-IIの解体試験片を用いて、その内壁に沈着しているウランの放射化分析を行ない、ウランのループ内沈着分布を求めた。その結果、インバイルナトリウム配管部では、沈着密度は $19.4 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ となり、ループ全体に亘り非常に明瞭なダウンストリーム効果を示した。一方膨張タンク、電磁ポンプ、主加熱器では、配管部より $1/2 \sim 1/5$ の低い沈着密度を示した。またコールドトラップでは、配管部の $1/10$ 以下の沈着密度を示したが、これは、純化系が実験系と切り離されて運転されていることによると考えられる。本方法で得られたループ内分布を、 γ 線測定で得られた ^{235}U のループ内沈着分布と比較した結果、両者は非常によく一致した。また本方法で得られたウランのループ内沈着分布の結果を用いて装荷ウラン燃料からのウランのループ中への全移行量を概算した。その結果移行量は0.56g(二酸化ウラン換算)と推定される。

4.5 SEMによるループ配管機器内壁表面の測定

1) 試料の調製

走査型電子顕微鏡 (Scanning Electron Microscope, SEM) 測定用の試料片は、次に述べる試験片からその一部を切り出した。尚、これらの試料片の内壁写真と比較するため、内壁表面がナトリウムにさらされていない1/4BのSUS304配管からも試料片を切り出した。試料番号と切り出した試験片は以下のとおりである。(Fig 4-1参照)。

試料No 1	ナトリウムにさらされていない配管内壁
No 2	インバイルプラグ出口ナトリウム配管内壁 (TE-2)
No 3	ディレイラインナトリウム配管内壁 (TE-8)
No 4	” (TE-17)
No 5	膨張タンク (ET) の底部に近い胴体部内壁 (TE-31)
No 6	電磁ポンプ (EMP) 中間部の内管外壁 (TE-24)
No 7	” 外管内壁 (TE-24)
No 8	VA-4 と主加熱器の間のナトリウム配管内壁 (TE-26)
No 9	主加熱器 (MH) 内壁 (TE-27)
No 10	主加熱器と VA-2 の間のナトリウム配管内壁 (TE-30)
No 11	コールドトラップ (CT) の底部に近い胴体部内壁 (TC-3)

試料片は次のようにして調製した。まず、1/4Bおよび1/2Bの細い配管については、金ノコにより幅6~8mm程度の輪切りにした。続いて水による超音波洗浄を行なった後、ビューラー社製の低速マイクロカッターのダイヤモンドホイールによりカッティングオイルを使用しながら輪切り方向と直角方向に切断して、6~8mm四方のSEM用試料片を切り出した。試料に付着しているオイルをアセトンで2回洗浄した後、風乾した。また膨張タンク等の機器については、自動油圧ノコにより幅6~8mm程度の輪切りにした後、金ノコにより輪切り方向と直角方向に切断して6~8mm四方の試料片を切り出した。更に本試料片は水による超音波洗浄を行なった後、アセトンで2回洗浄して同様に風乾した。

切り出した試料片の肉眼観察では、膨張タンクおよび電磁ポンプ以外は同じような銀灰色を呈していた。膨張タンクについては、黒灰色を呈しており、また電磁ポンプは、内管外壁、外管内壁の両面で、ナトリウムの流れ方向に沿って数条の線条痕が認

められた。

調製した試料片は $\phi 10\text{mm} \times 10\text{mmh}$ の真ちゅう製の試料ホルダーに銀ペーストで固定した。電顕の試料室に試料をセットする前に予め真空ポンプにより10分間銀ペースト中の溶剤を除去する操作を行なった。

2) 測定結果

試料の測定には、日本電子製のJSM-T20型走査電子顕微鏡を使用した。

測定により得られた電顕写真をFig 4-8の1)~11)に示す。各試料毎に測定条件を以下に示す。試料番号は、インパイル出口からナトリウムの流れに沿ってならべ、純化系のコールドトラップは最後に示した。

Fig 4-8 1) 試料No 1。×1000, ×5000ともに試料を回転し、面に対して斜め上方からの測定。

2) 試料No 2。×1000は垂直上方からの測定。

×5000は斜め上方からの測定。

3) 試料No 3。×1000, ×5000ともに斜め上方からの測定。

以下、試料番号とFig 4-8のカッコ内番号は一致する。また以下のどの試料についても、倍率は×1000, ×5000で、かつ斜め上方からの測定である。

これらの電顕写真は各配管機器にそれぞれ特徴のある結果が得られた。1)のナトリウムにさらされていない面の電顕写真では、結晶粒界による鋭い山状の部分が認められるが、その他の試料の電顕写真では、表面に堆積物がおおっているように見える。特に試料No 4の5000倍の写真では表面に堆積物によるとみられる細い凹凸が明瞭に認められた。一方試料No 5の膨張タンクの写真では、1000倍において平行に多数の線条痕が認められ、更に5000倍の写真では輪かくの不明瞭な無定形に近い粒子状のものが無数に堆積しているのが認められた。試料No 6, 7はそれぞれ電磁ポンプの内管外壁および外管内壁の写真である。No 6の1000倍の写真では、多数の線条痕が認められ、5000倍の写真では、線条痕の縁に無定形に近い粒子状のものが無数に堆積しているのが認められている。No 7の外管でも、No 6と同様に1000倍の写真では多数の線条痕が認められるが、堆積物の形状は、No 6よりも更に不明瞭であった。No 10はコールドトラップの写真で、1000倍、5000倍ともに多数の互いに平行な線条痕が認められたが、あまり明瞭なる堆積物は認められなかった。

尚全体的にいえることは、配管の一部から切り出した試験片の内壁は結晶粒界が明瞭に現われているのに対し、膨張タンク、電磁ポンプ、コールドトラップの内壁写真では必ず線条痕が認められるということである。これは配管と各機器で製造方法が異なるためと考えられ、前記した各機器は、旋盤による内壁の加工が施されているために線条痕が必ずみえるものと推定される。尚FPL-Ⅱはナトリウムに約900時間程度しかさらされていないため、結晶粒界はどの場合も健全性を保っており、粒界の削れ、欠けあるいは腐食等は全く認められなかった。

4.6 除染試験

FBRプラント機器内壁に沈着した放射性核種の除染は、被曝低減化の観点から非常に重要である。そこで今回は、FPL-Ⅱ解体部材を用いて、長半減期の不揮発性FPを対象として除染試験を実施した。まず沈着挙動を把握するために、ステンレスをほとんど腐食しない濃硝酸を用いて内壁面を浸漬洗浄してどの程度FPが除染されるかを調べた。次に、ステンレス配管内壁を王水（濃硝酸と濃塩酸を1対3の割合で混合した溶液）によるエッチングを行ない、一般にいわれているステンレス構造材中への沈着FPの拡散浸透を確認する実験を行なった。尚除染試験の対象とした試験片として、ホットレグからTE-3およびTE-27（主加熱器）の2片を、コールドレグからTE-26を選択した。TE-26は、電磁ポンプから主加熱器の間の配管部であるが、ナトリウム流動時には電磁ポンプコイルを冷却する目的でブローで冷却しているために電磁ポンプ配管も冷却されており、従ってポンプ以降の配管部がループ中で一番低温部分になっている。除染処理後に試験片の外側からγ線の測定を行ない、除染の程度を以下の式で定義した除染係数によって表わした。

$$f_d = \frac{Cr_1}{Cr_2}$$

ここに、 Cr_1 は除染前の計数率、 Cr_2 は除染後の計数率であり、除染されやすければ f_d の値は大きくなる。例えば、90%除染されれば f_d は10となり、100%除染されれば f_d は無窮大となる。

1) 硝酸による除染試験

試験片は配管の内側に2倍に希釈した濃硝酸（8規定）を満たして約1.5時間放置

した後、内部を水洗して更に水中で超音波洗浄し、 γ 線測定を行なった。その結果を Table 4 - 4 に示す。この結果、除染前の試験片の測定で検出された ^{141}Ce 、 ^{235}U および ^{144}Pr の γ 線は全く検出されなかったため表から除いた。これらの核種はステンレス内壁面にルーズに沈着していたものと考えられるが、沈着量が最初から少なかった核種であるので、検出限界以下まで除染されたという表現が適当である。尚上記核種以外でも除染後には検出されなくなった核種があるので、表中には無限大の表示を使用せず、* の表示を用いた。

Table 4 - 4 によると、ホットレグの TE-3 では、除染前に検出された核種のうち ^{141}Ce 、 ^{235}U 、 ^{144}Pr を除くすべてが除染されずに検出された。このうち、 ^{144}Ce は除染係数として約 70、 ^{137}Cs で 40、 ^{95}Zr 、 ^{95}Nb で 30 前後であったが Ru は (^{106}Rh は 30 秒で短半減期であるため、 ^{106}Rh の挙動はその先行核種の ^{106}Ru の挙動を示す) 両者ともに 1 桁の除染係数であった。また TE-27 では、 ^{106}Rh 、 ^{95}Zr および ^{95}Nb のピークが検出されたが、除染係数は ^{106}Rh で 2 であり、 ^{95}Zr 、 ^{95}Nb は TE-3 と同じように約 30 であった。一方コールドレグの TE-26 では、 ^{106}Rh で 4 であり、 ^{95}Nb は約 100 であった。尚 ^{106}Rh のピークは 511.8KeV であり、ポジトロンアニヒレーションの 511.0KeV のピーク (1.2MeV 以上の γ 線ピークが存在するときに検出されるピークで、バックグラウンドの γ 線の存在下でこのピークが検出されることがある) と重なってしまい、両者を区別することがむずかしいため、 ^{106}Rh の除染係数はもっと小さくなると推定される。

尚以上の結果から、コールドレグでは 8 規定硝酸による浸漬処理により、ほとんどの FP 核種の 100% に近い除染が可能であることがわかった。一方、ホットレグにおいても、濃硝酸により ^{144}Ce で 98% 以上、 $^{95}\text{Zr}/^{95}\text{Nb}$ で 97% の沈着 FP の除染が可能であることがわかったが、Ru についてはあまり除染されなかった。尚 FPL-II のループ配管・機器は 500℃ 程度の温度のナトリウムで約 900 時間しか浸漬されていないため、沈着した FP の構造材中への拡散による浸入はあまり進んでいないものと考えられる。

2) 王水による除染試験

試験片配管は内側に王水を満たして所定の時間 (数分間) 放置して内壁をエッチングした後、内部を水洗して更に水中で超音波洗浄した。次いでメタノールで洗浄後風

乾した後、重量を測定してエッチング前後の重量差から研磨された内壁の厚さを次式により算出した。

$$E_s = \frac{\Delta W}{\rho \cdot S}$$

ここに、 E_s は研磨された厚さ (cm), ΔW は重量変化量 (g), ρ はステンレスの密度 (g/cm^3), S は内壁表面積 (cm^2) である。尚本方法では内壁面は一様にエッチングされるとしている。尚試験片のエッチングを行なう前に非放射性的の試験片を用いてエッチング時間と研磨量の関係を求める試験を実施したが、反応時の泡の発生程度、内壁表面状態の違い、エッチング中の温度変化等が微妙に反応速度に影響を与えるため、コールド試験の結果は目安程度にしかならず、実際には、試験片についてその度にエッチング前後の重量差を測定して上式から研磨量を算出した。エッチング後ステンレス内壁に除染されずに残留しているFPの量を γ 線で測定した。その結果を研磨量とともにTable 4-5に示す。尚研磨量は試験片によってそれぞれまちまちであるが、これは反応時間をすべて一定にしたにもかかわらず、前述したような理由により反応速度が一定でなかったことによると考えられる。

エッチングの結果、主加熱器(TE-27)では、 3.7μ の研磨で完全にすべてのFPのピークが検出されなくなった。一方TE-3では、 2.7μ の研磨では ^{106}Rh が20前後の除染係数であるが ^{95}Zr および ^{95}Nb では100~250の値を示した。前記したように ^{106}Rh は511.0KeVのピークと重なり、 ^{106}Rh のピーク強度を正確に測定することができなかつたので、 ^{106}Rh の除染係数値がどの程度信頼がおけるデータであるかは不明である。 ^{95}Zr および ^{95}Nb については、 7.1μ の研磨後でもそのピークが検出されたが除染係数は200~500であり、これ以上の研磨は必要ないと思われる。尚FPL-IIは前述したように短時間しかナトリウムに浸漬されていないために、ある程度容易にFPの除染ができたものと思われる。

4.7 結 言

FPL-IIの解体部材から試験片を採取して、種々の解体試験を実施した。

選択した試験片の γ 線測定を行ない、ループ内における長半減期FP核種の沈着分布を求めた。その結果、 ^{144}Ce , ^{141}Ce , ^{103}Ru , ^{106}Rh , ^{137}Cs , ^{144}Pr , ^{95}Zr および ^{95}Nb のループ内沈着分布が求められた。そして、Ce, Ru, ZrおよびNbは非常に

顕著な下流効果を示した。Cs は、ナトリウム弁およびコールドトラップで特異な沈着挙動を示した。 ^{235}U のピークも検出されたが、放射性腐食生成物 (CP) については、 ^{54}Mn が電磁ポンプおよび主加熱器で検出されただけで、 ^{60}Co は検出されなかった。

放射化分析法により U のループ内沈着分布を求めた。その結果 FP と同様に下流効果を示した。沈着密度はウランカプセルの直後の配管内壁において $19.4\ \mu\text{g}/\text{cm}^2$ であった。

ループ内壁面は高温の流動ナトリウムに約 900 時間さらされていた。そこで解体部材から試験片を選択し、その内壁面を SEM で観察した。その結果、すべての機器で製造過程 (旋盤加工) においてできたとみられる線条痕が認められた。また配管部では結晶粒界がどの場合も明瞭にみえ、腐食等による粒界の欠けやけずれなどはみられなかった。またどの場合も表面が堆積物でおおわれているのが観察された。

FBR プラントの被曝低減化のうえから、プラント内壁に沈着した放射性核種の除染は非常に重要な手段である。そこで解体部材のうちホットレグから 2 片、コールドレグから 1 片の試験片を選択して除染試験を実施した。その結果、8 N 硝酸による浸漬洗浄により、コールドレグではほとんどすべての FP 核種が除染された (検出限界以下になった)。ホットレグでも 30 前後の除染係数が得られた。次にホットレグ配管を王水によりエッチングした結果、3~4 μ の研磨により、ほとんどすべての FP 核種がほぼ 100% 除染された。

Table 4 - 1 Gamma-ray count rate for each long-lived fission product at each loop equipment test pieces (cps)

Location	Test Piece No	¹⁴⁴ Ce 133.5KeV	¹⁴¹ Ce 145.4KeV	²³⁵ U 185.7KeV	¹⁰³ Ru 497.3KeV	¹⁰⁶ Rh 511.8KeV	¹³⁷ Cs 661.6KeV	¹⁴⁴ Pr 696.4KeV	⁹⁵ Zr 724.2KeV	⁹⁵ Zr 756.7KeV	⁹⁵ Nb 765.8KeV	Other Peaks
ET-TOP	TE-31-1	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	/
ET-CENTER	TE-31-2	7.66-1 ⁺⁾	6.13-2	9.90-2	1.61-2	7.04-2	8.46-2	4.17-2	1.64-1	1.79-1	7.10-1	
ET-BOTTOM	TE-31-3	1.33+1	5.99-1	1.42+0	1.28-1	6.21-1	4.76-1	3.35-1	1.14+0	1.39+0	5.35+0	
EMP-TOP1	TE-24-1	2.65+0	3.40-1	1.60-1	1.40-1	2.20-1	5.15-2	1.04-1	1.38+0	1.62+0	6.43+0	1.19-1*
EMP-TOP2	TE-24-2	2.90+0	4.36-1	2.34-1	1.04-1	2.49-1	5.42-2	1.21-1	1.20+0	1.44+0	5.94+0	1.58-1
EMP-CENTER	TE-24-3	2.52+0	2.32-1	1.90-1	6.77-2	2.00-1	9.40-2	9.23-2	1.00+0	1.19+0	5.02+0	1.16-1
EMP-BOTTOM	TE-24-4	1.98+1	1.33	1.31	5.34-1	1.28+0	2.59-1	8.04-1	4.17+0	4.91+0	1.93+1	1.81-1
DT-RIGHT	TE-33-1	1.56+0	7.23-2	2.75-1	6.35-2	3.74-1	2.14+0	1.55-1	4.30-1	5.51-1	2.09+0	3.38-2**
DT-CENTER	TE-33-2	8.59-1	1.30-1	2.07-1	—	2.86-1	1.63+0	9.44-2	3.14-1	3.64-1	1.45+0	4.11-2
DT-LEFT	TE-33-3	9.69-1	5.99-2	2.07-1	3.08-2	2.70-1	1.71+0	8.77-2	3.13-1	3.75-1	1.50+0	3.46-2
DT-UPPER-RIGHT	TE-33-1U	8.31-3	—	—	—	9.31-3	6.21-3	—	8.51-3	7.51-3	2.95-2	/
DT-UPPER-CENTER	TE-33-2U	—	—	—	—	1.26-2	5.30-3	—	—	—	6.00-3	
DT-UPPER-LEFT	TE-33-3U	—	—	8.10-3	—	1.01-2	6.10-3	—	4.50-3	3.60-3	1.64-2	
CT-TOP	TC-3-1	3.34+0	—	5.25-1	—	4.58-1	6.26+1	2.25-1	4.61-1	5.35-1	2.10+0	/
CT-BOTTOM	TC-3-2	3.38+0	—	5.50-1	—	5.01-1	6.47+1	2.17-1	4.27-1	5.15-1	2.01+0	
CT-MESH-TOP	TC-3-1M	4.88-2	—	—	—	1.84-2	9.22-1	—	7.52-3	1.50-2	4.07-2	/
CT-MESH-CENTER	TC-3-2M	5.48-2	—	—	—	2.47-2	1.21+0	—	1.26-2	1.54-2	5.36-2	
CT-MESH-BOTTOM	TC-3-3M	5.49-2	—	—	—	2.10-2	1.26+0	—	9.19-3	1.19-2	5.25-2	
VT-1 (ET)	TE-32	—	—	—	—	—	4.20-3	—	—	—	—	/
VT-2 (CT)	TC-5	—	—	—	—	—	9.01-3	—	—	—	—	
VT-3 (DT)	TE-35	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	

* ⁵⁴Mn peak 834.8KeV, ** ²²Na peak 1274.5KeV, — can not be detected, +) count rate (cps)

Table 4 - 2 Relative gamma-ray count rate for each fission product at each loop equipment test piece

(normalize ^{95}Nb count rate as 1.00)

Location	Test Piece No.	^{144}Ce	^{141}Ce	^{235}U	^{103}Ru	^{106}Rh	^{137}Cs	^{144}Pr	^{95}Zr	^{95}Zr	^{95}Nb	other
ET-TOP	TE-31-1	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	/
ET-CENTER	TE-31-2	1.08+0	8.63-2	1.39-1	2.27-2	9.92-2	1.19-1	5.87-2	2.31-1	2.52-1	1.00 ^{+))}	
ET-BOTTOM	TE-31-3	2.49+0	1.12-1	2.65-1	2.39-2	1.16-1	8.90-2	6.26-2	2.13-1	2.60-1	#	
EMP-TOP1	TE-24-1	4.12-1	5.29-2	2.49-2	2.18-2	3.42-2	8.01-3	1.62-2	2.15-1	2.52-1	1.00	1.85-2*
EMP-TOP2	TE-24-2	4.88-1	7.34-2	3.94-2	1.75-2	4.19-2	9.12-3	2.04-2	2.02-1	2.42-1	#	2.66-2
EMP-CENTER	TE-24-3	5.02-1	4.62-2	3.78-2	1.35-2	3.98-2	1.87-2	1.84-2	1.99-1	2.37-1	#	2.31-2
EMP-BOTTOM	TE-24-4	1.03+0	6.89-2	6.79-2	2.77-2	6.63-2	1.34-2	4.17-2	2.16-1	2.54-1	#	9.38-3
DT-RIGHT	TE-33-1	7.46-1	3.46-2	1.32-1	3.04-2	1.79-1	1.02+0	7.42-2	2.06-1	2.64-1	1.00	1.62-2**
DT-CENTER	TE-33-2	5.92-1	8.97-2	1.43-1	—	1.97-1	1.12+0	6.51-2	2.17-1	2.51-1	#	2.83-2
DT-LEFT	TE-33-3	6.46-1	3.99-2	1.38-1	2.05-2	1.80-1	1.14+0	5.85-2	2.09-1	2.50-1	#	2.31-2
DT-UPPER-RIGHT	TE-33-1U	2.82-1	—	—	—	3.16-1	2.11-1	—	2.88-1	2.55-1	1.00	/
DT-UPPER-CENTER	TE-33-2U	—	—	—	—	2.10+0	8.83-1	—	—	—	#	
DT-UPPER-LEFT	TE-33-3U	—	—	4.94-1	—	6.16-1	3.72-1	—	2.74-1	2.20-1	#	
CT-TOP	TC-3-1	1.59+0	—	2.50-1	—	2.18-1	2.98+1	1.07-1	2.20-1	2.55-1	1.00	/
CT-BOTTOM	TC-3-2	1.68+0	—	2.74-1	—	2.49-1	3.22+1	1.08-1	2.12-1	2.56-1	#	
CT-MESH-TOP	TC-3-1M	1.20+0	—	—	—	4.52-1	2.27+1	—	1.85-1	3.69-1	1.00	/
CT-MESH-CENTER	TC-3-2M	1.02+0	—	—	—	4.61-1	2.26+1	—	2.35-1	2.87-1	#	
CT-MESH-BOTTOM	TC-3-3M	1.05+0	—	—	—	4.00-1	2.40+1	—	1.75-1	2.27-1	#	

* ^{54}Mn peak 834.8KeV, ** ^{22}Na peak 1274.5KeV, — can not be detected, +) normalize

Table 4 - 3 Results of the uranium activation analysis

Location	Sample No	Peak Counts	Count Rate(cps)	Correction Factor	U(μg)	Surface Area(cm^2)	U Deposition ($\mu\text{g}/\text{cm}^2$)
Standard Sample	STD	33356	119.7	—	316.8	—	—
TE-1	S-1	19923	72.8	2.39	571.6	29.5	19.4
TE-2	S-2	19145	69.8	2.23	511.3	26.3	19.4
TE-3	S-3	20423	74.7	2.33	571.8	30.7	18.6
TE-8	S-4	14787	53.6	2.53	445.5	28.3	15.7
TE-18	S-5	16809	61.1	2.38	477.7	29.5	16.2
TE-31(ET)	S-6	1349	4.84	4.15	66.0	33.5	1.97
TE-24(EMP Inner Pipe)	S-7	6593	23.7	2.36	183.7	23.5	7.82
TE-24(EMP Outer Pipe)	S-8	2044	7.34	3.15	76.0	25.4	2.99
TE-26	S-9	13965	50.6	3.20	531.9	23.6	22.5
TE-27(MH)	S-10	2438	8.93	4.54	133.2	49.1	2.71
TE-30	S-11	11239	40.6	2.03	270.8	26.9	10.1
TC-3 (CT)	S-12	457.1	1.64	3.79	20.4	35.8	0.57

Table 4 - 4 Decontamination factor after washing by HNO₃ solution

Sample		¹⁴⁴ Ce	¹⁰³ Ru	¹⁰⁶ Rh	¹³⁷ Cs	⁹⁵ Zr (724.2KeV)	⁹⁵ Zr (756.7KeV)	⁹⁵ Nb
+1)	TE-3	6 8.2	4.2 2	2.1 0	4 3.5	3 3.6	3 3.3	2 9.6
H. L.	TE-27	*	*	1.6 7	*	3 3.5	3 9.7	2 5.4
+2)	TE-26	*	*	3.9 9	*	*	*	1 0.2

+1) H. L. : Hot Leg

+2) C. L. : Cold Leg

* gamma ray peak was not detected after decontamination experiments
¹⁴¹Ce, ²³⁵U and ¹⁴⁴Pr were not also detected after decontamination experiments

Table 4 - 5 Decontamination factor after etching by aqua regia (HNO₃+HCl)

Sample		Etching Depth	¹⁴⁴ Ce	¹⁰³ Ru	¹⁰⁶ Rh	¹³⁷ Cs	⁹⁵ Zr (724.2KeV)	⁹⁵ Zr (756.7KeV)	⁹⁵ Nb
Hot Leg Piping	TE-3	2.7 μm	*	*	1 8.6	*	9 9.0	2 27	2 63
		7.1 μm	*	*	1 1.8	*	1 75	2 77	5 29
Main Heater	TE-27	3.7 μm	*	*	*	*	*	*	*

* gamma ray peak was not detected after etching experiments

⊗ TE: Test Pieces from Experimental Loop System

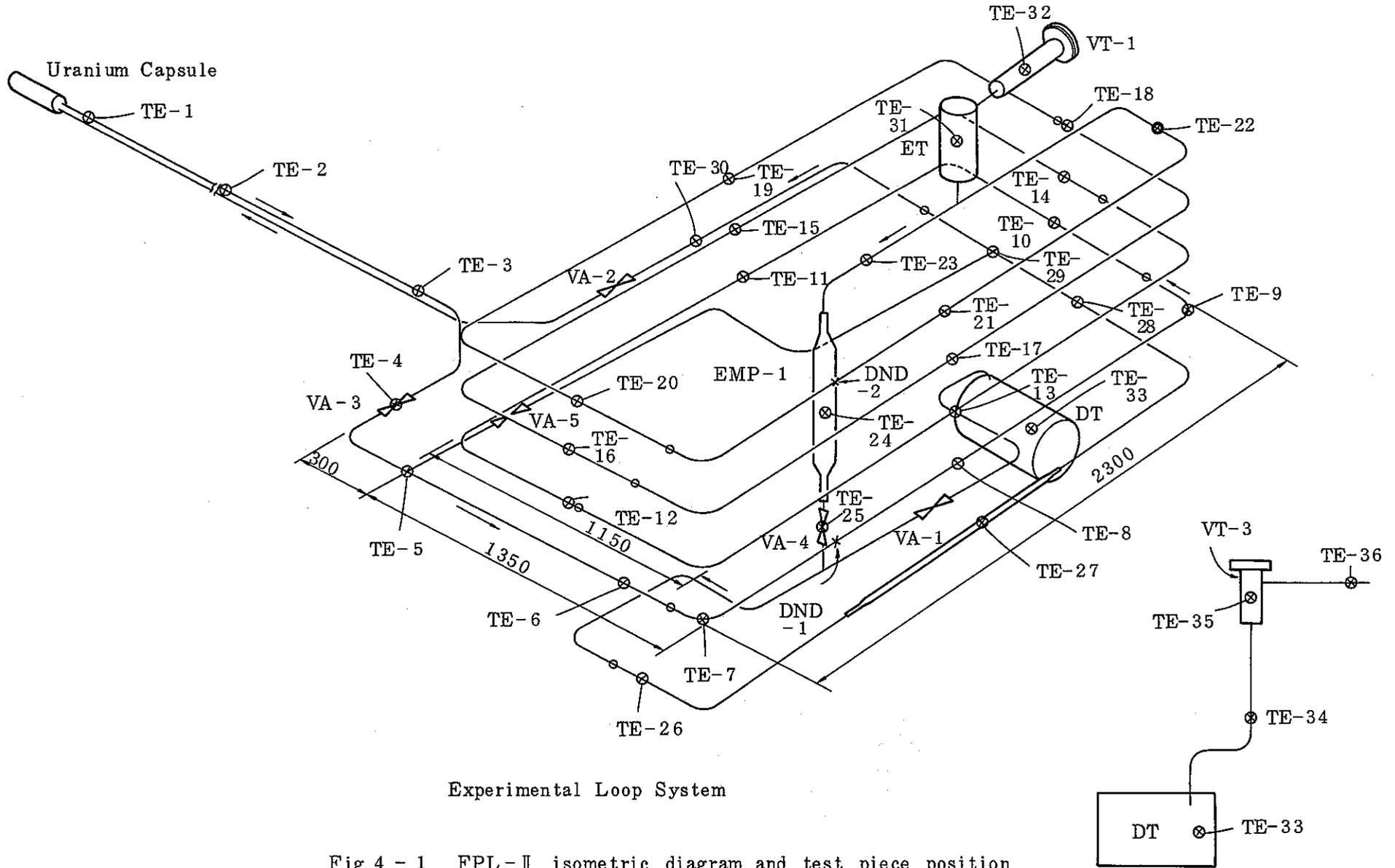
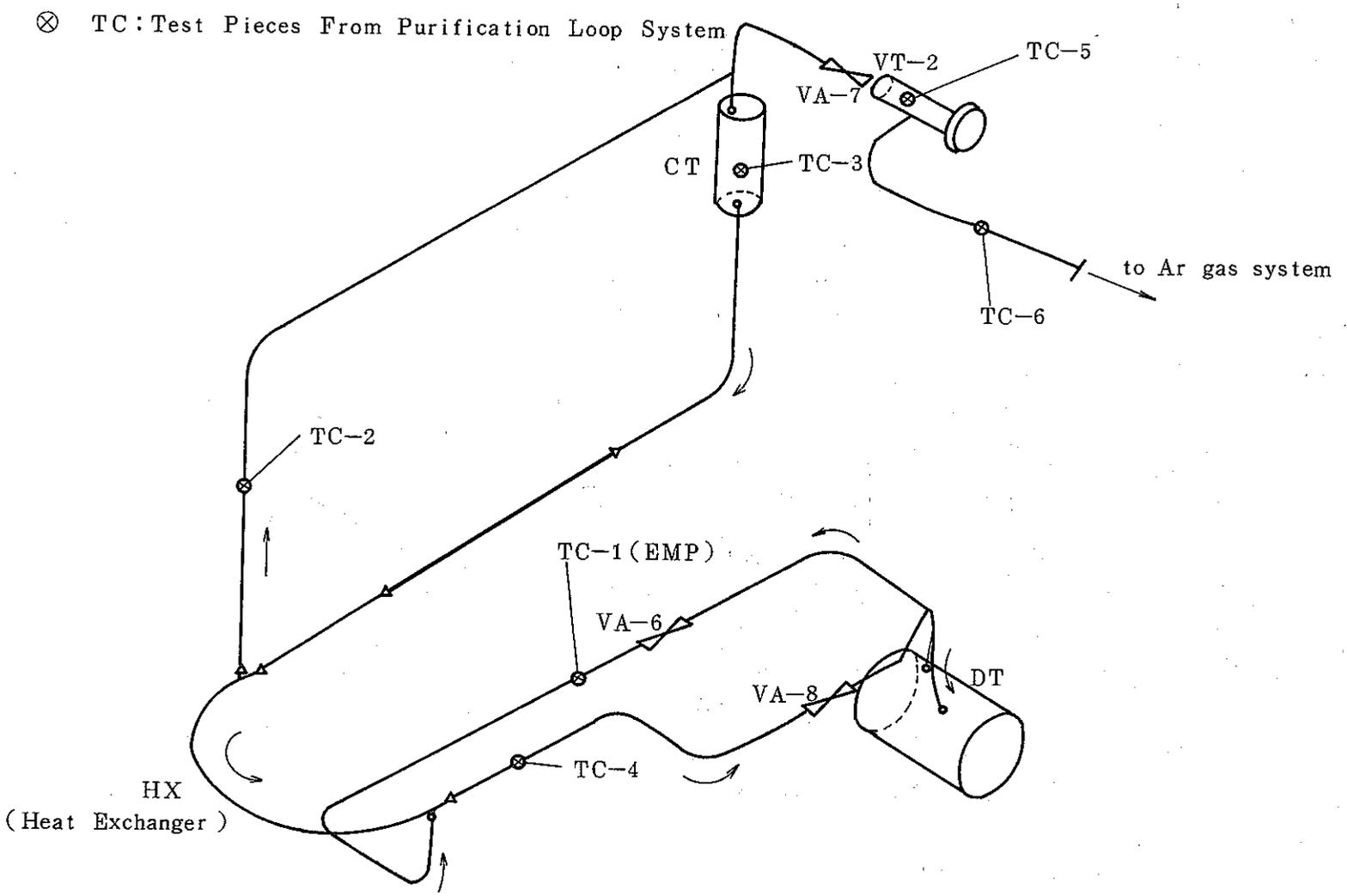
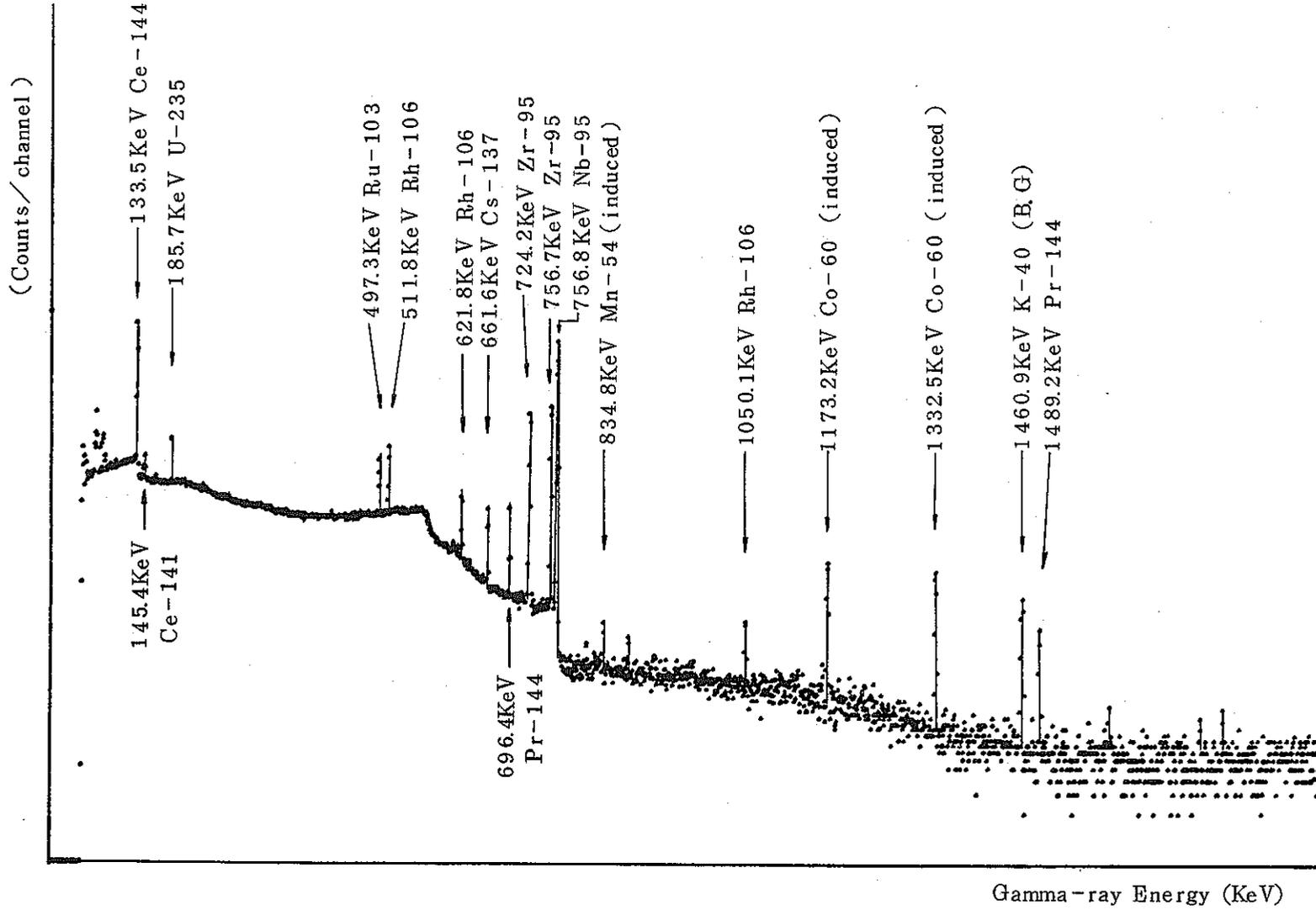


Fig 4 - 1 FPL-II isometric diagram and test piece position



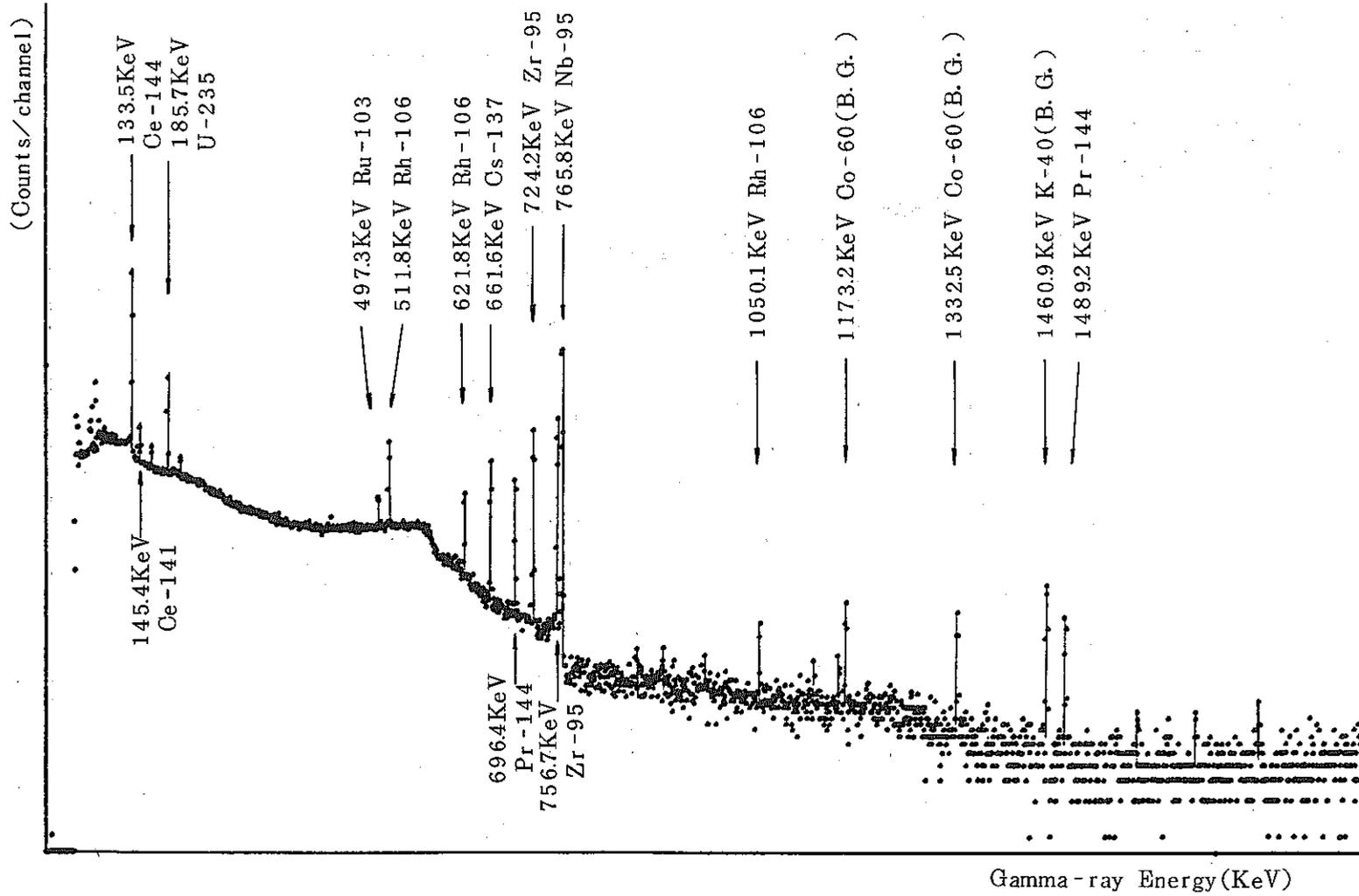
Purification Loop System

Fig 4 - 1 (continued)



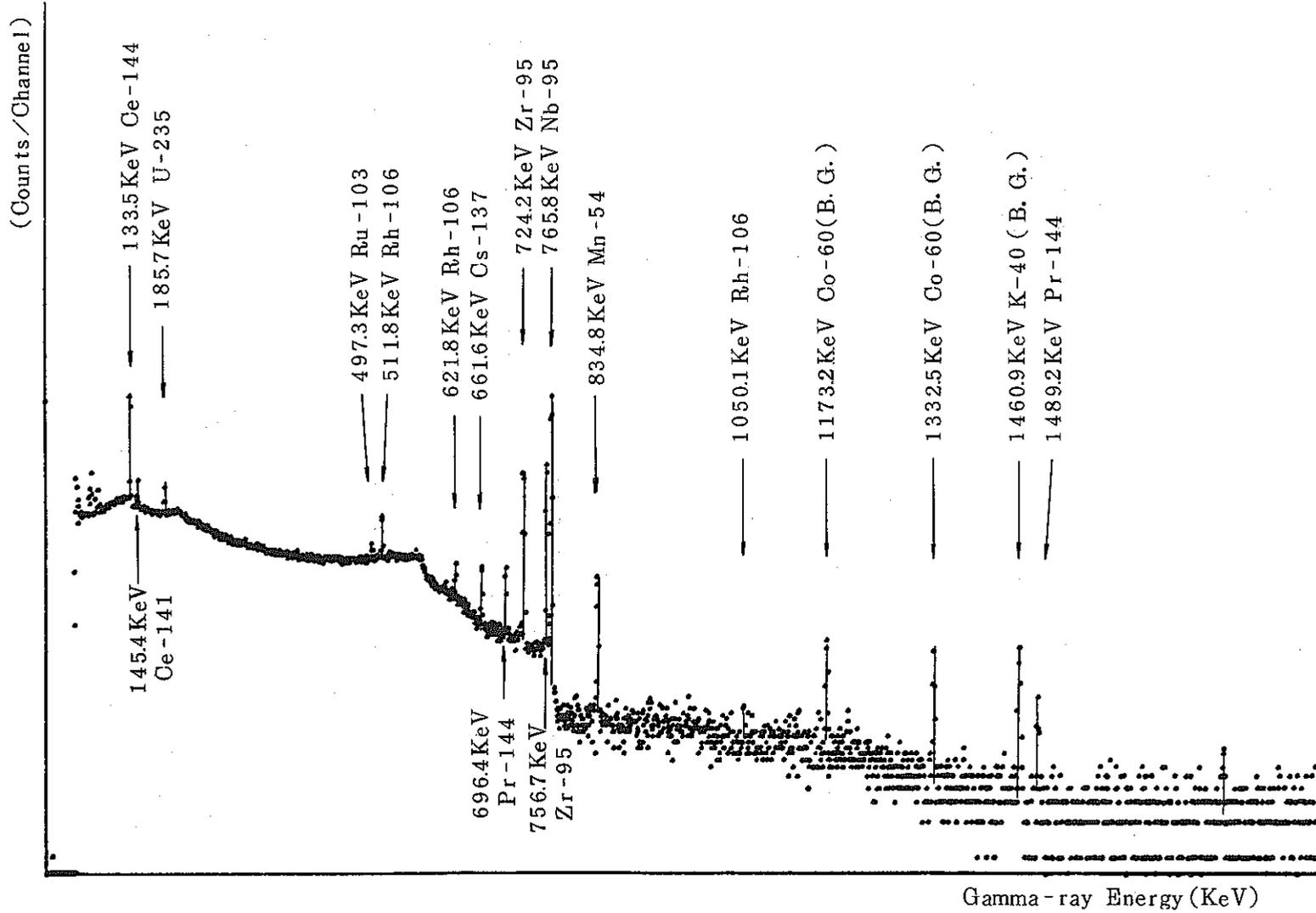
1) Inpile sodium pipe (TE-2, counting time 54000 sec)

Fig 4 - 2 γ -ray spectra for the loop test piece



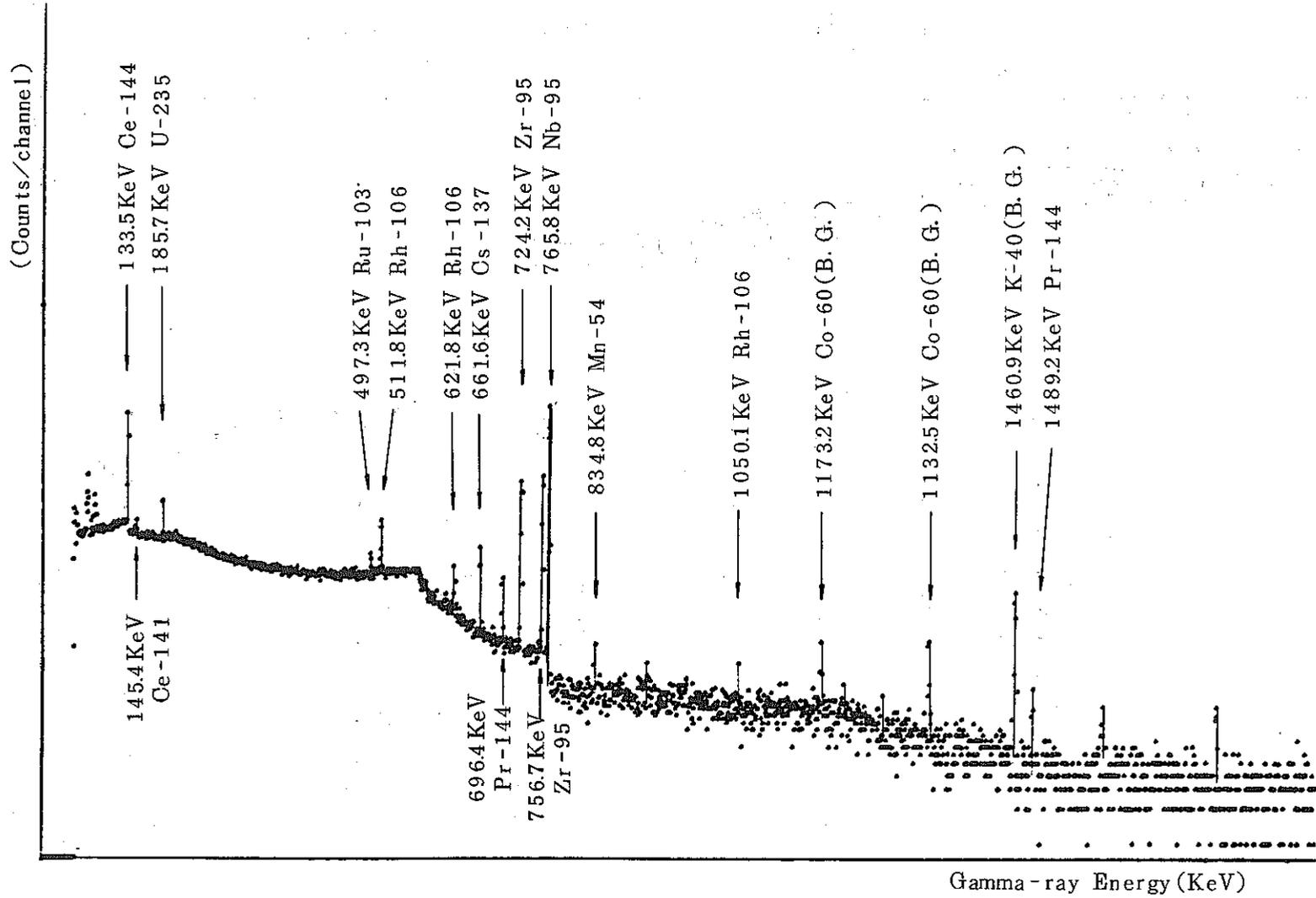
2) Expansion Tank (TE-31, Counting time 10000 sec)

Fig 4 - 2 (Continued)



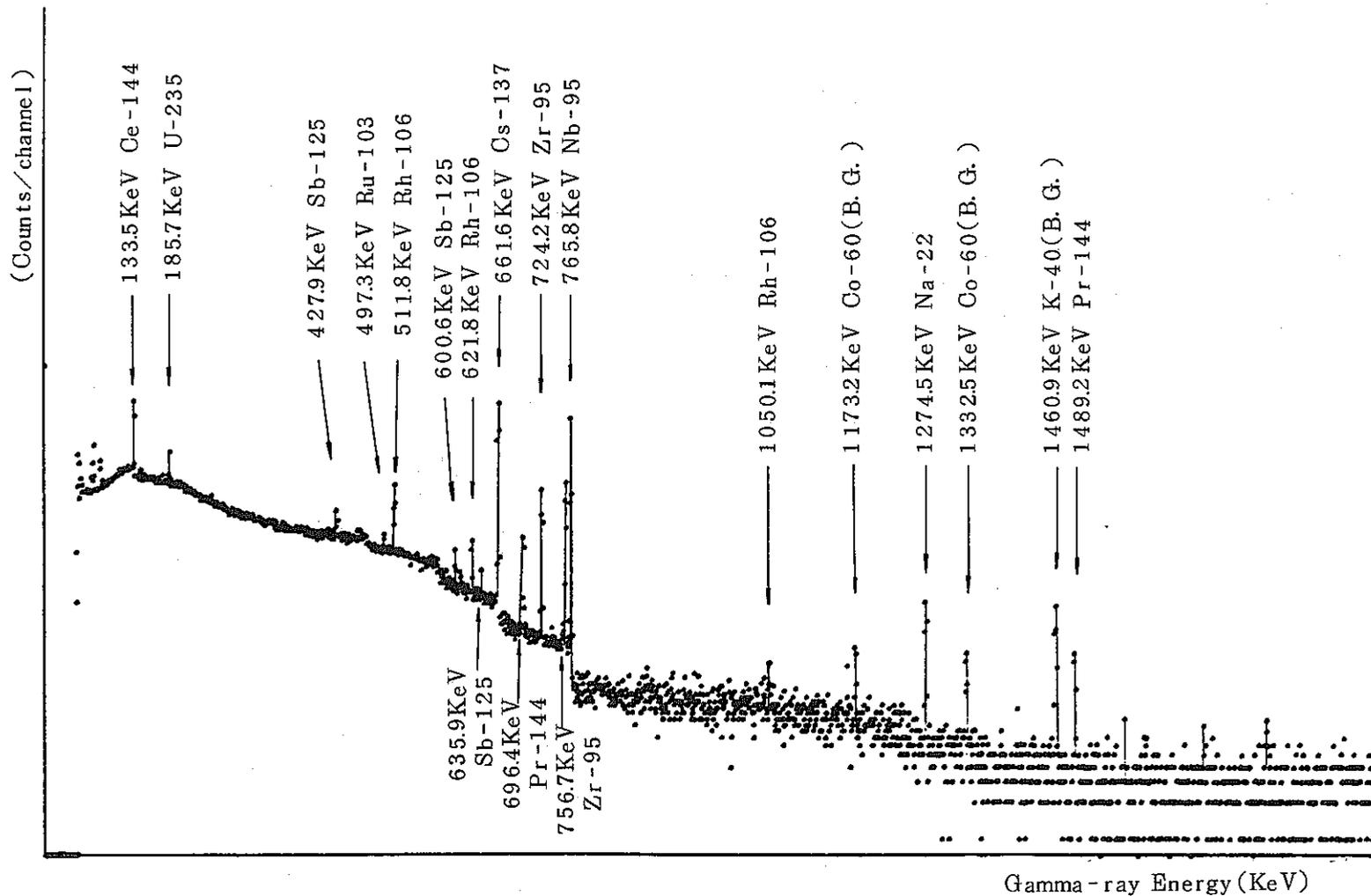
3) Electro-Magnetic Pump (TE-24, Counting time 10000 sec)

Fig 4 - 2 (Continued)



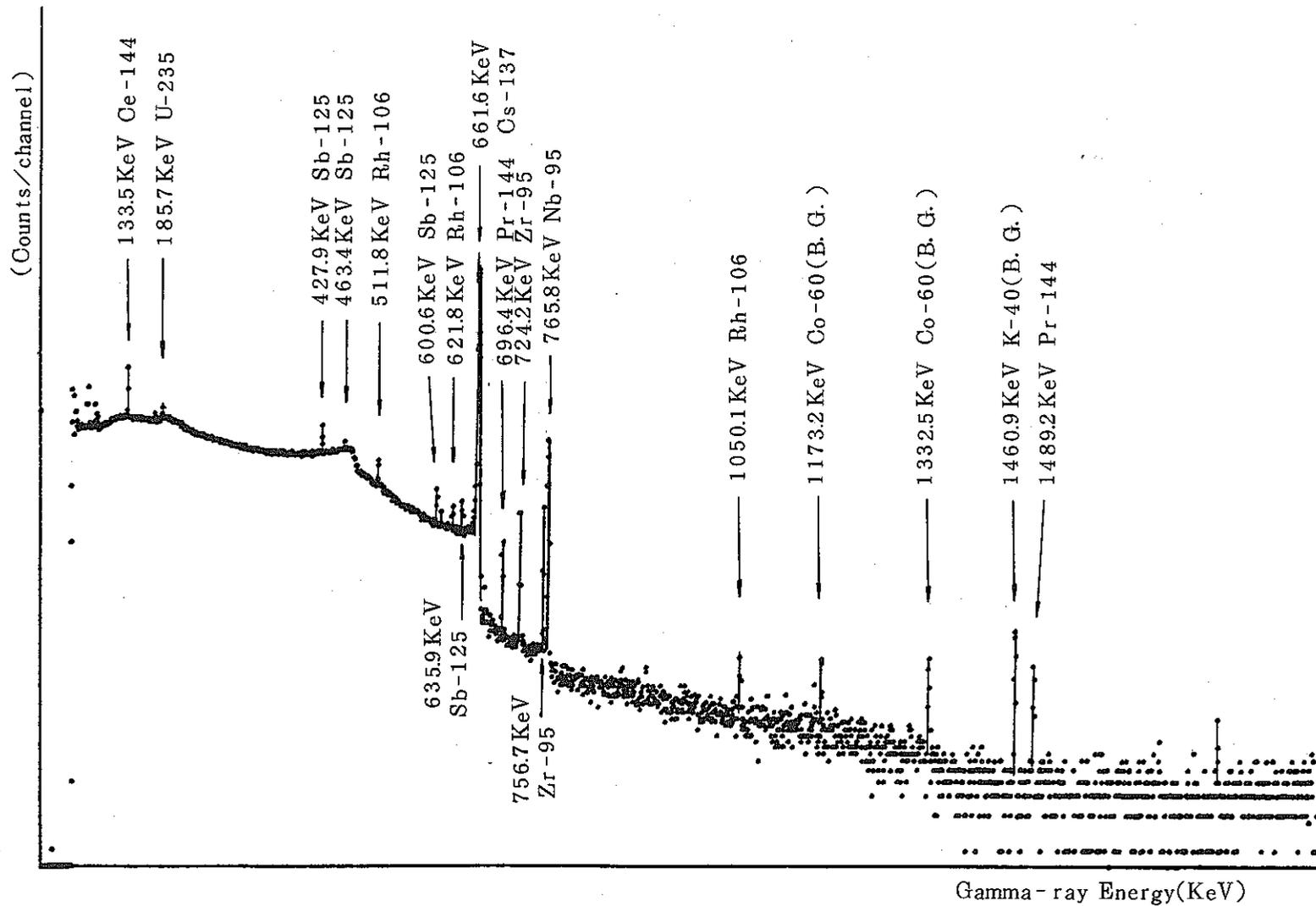
4) Main Heater (TE-27, Counting time 54000 sec)

Fig 4 - 2 (Continued)



5) Damp Tank (TE-33, Counting time 10000 sec)

Fig 4 - 2 (Continued)



6) Cold Trap (TC-3, Counting time 10000 sec)

Fig 4 - 2 (Continued)

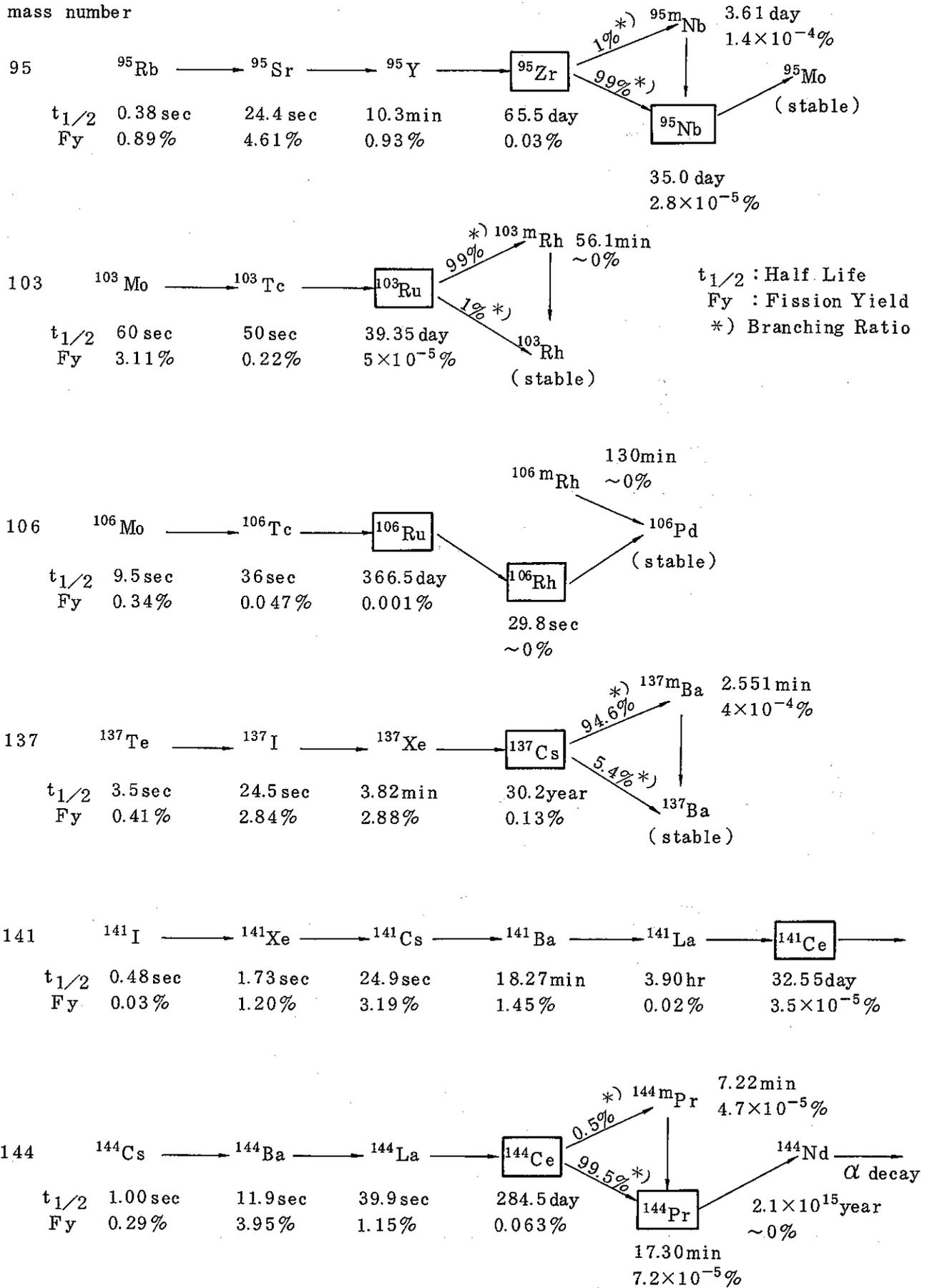
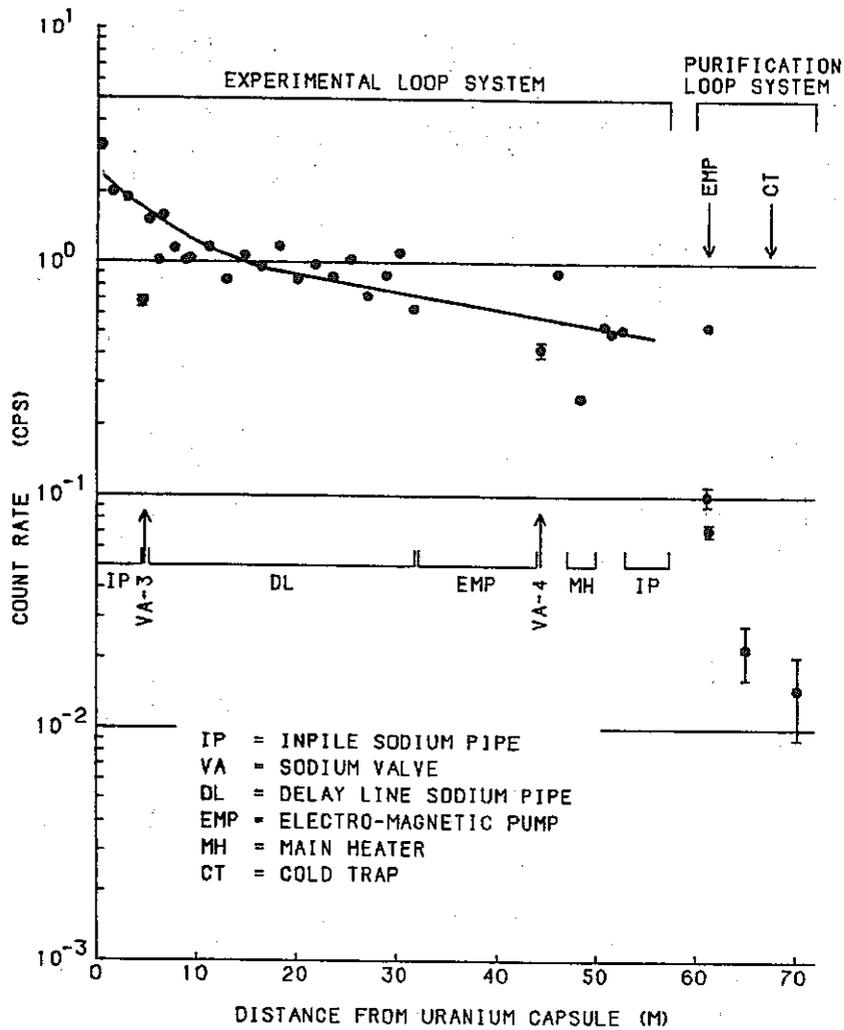
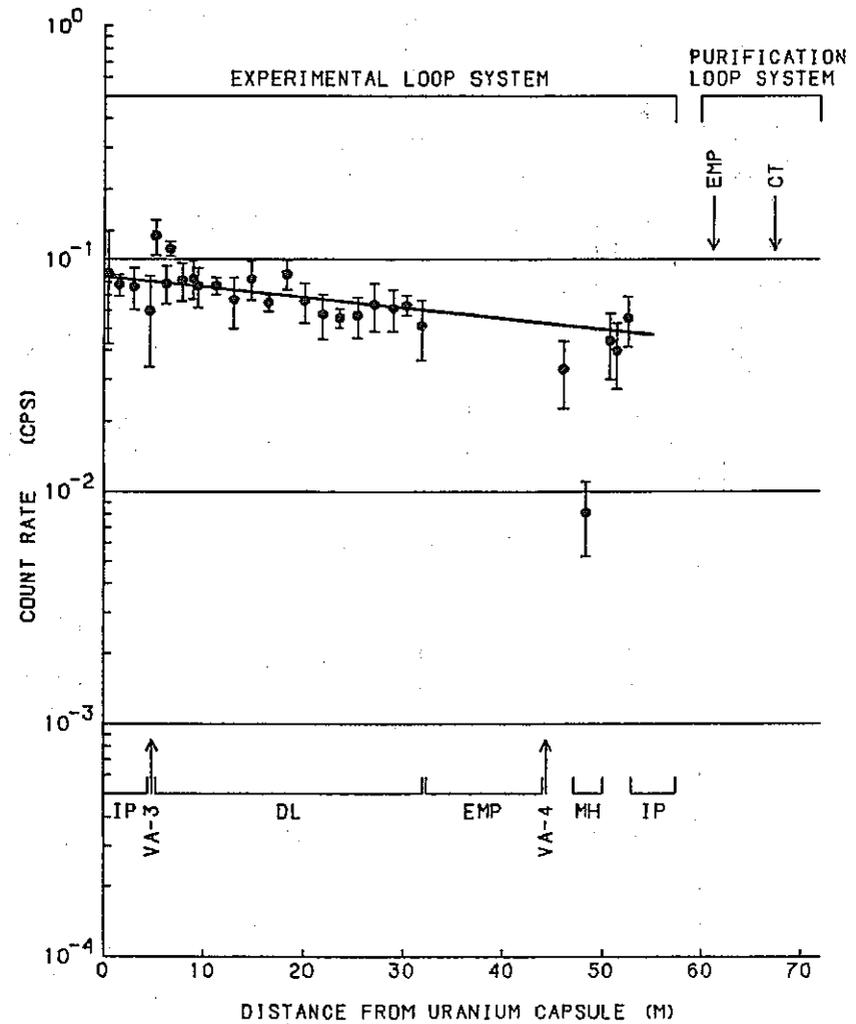


Fig 4 - 3 Fission chain (long-lived fission product) ⁷⁾

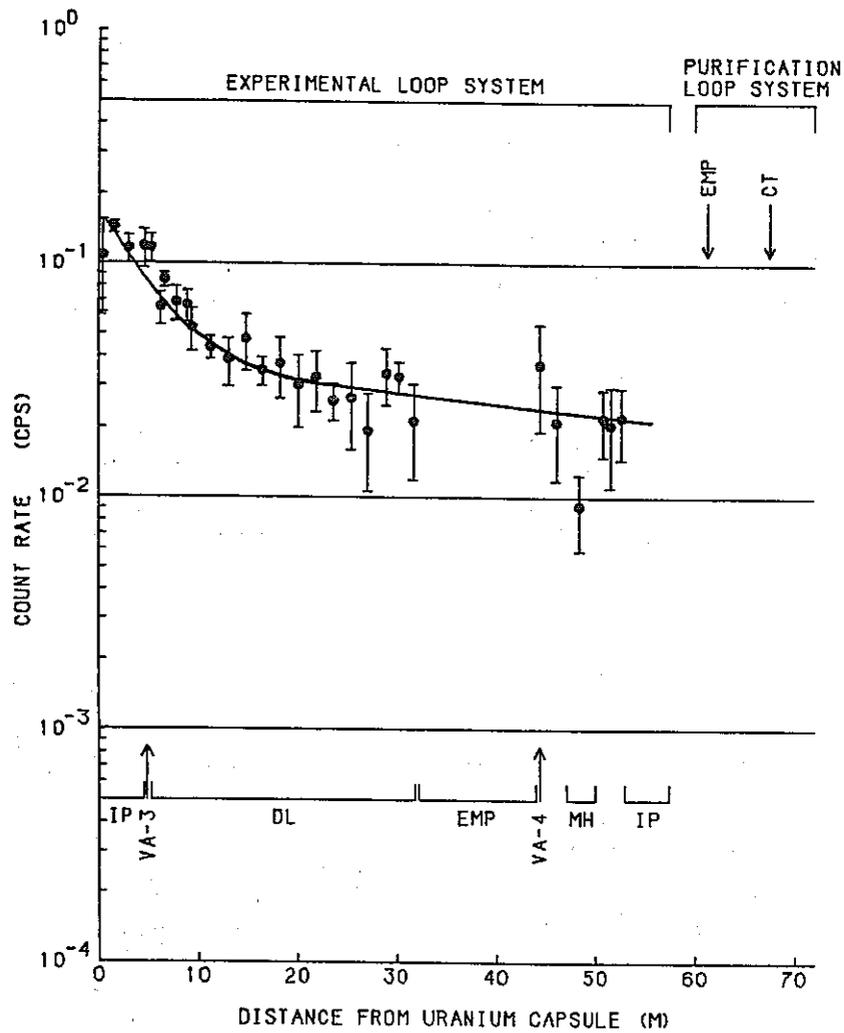


1) CE-144 (133.5KEV)

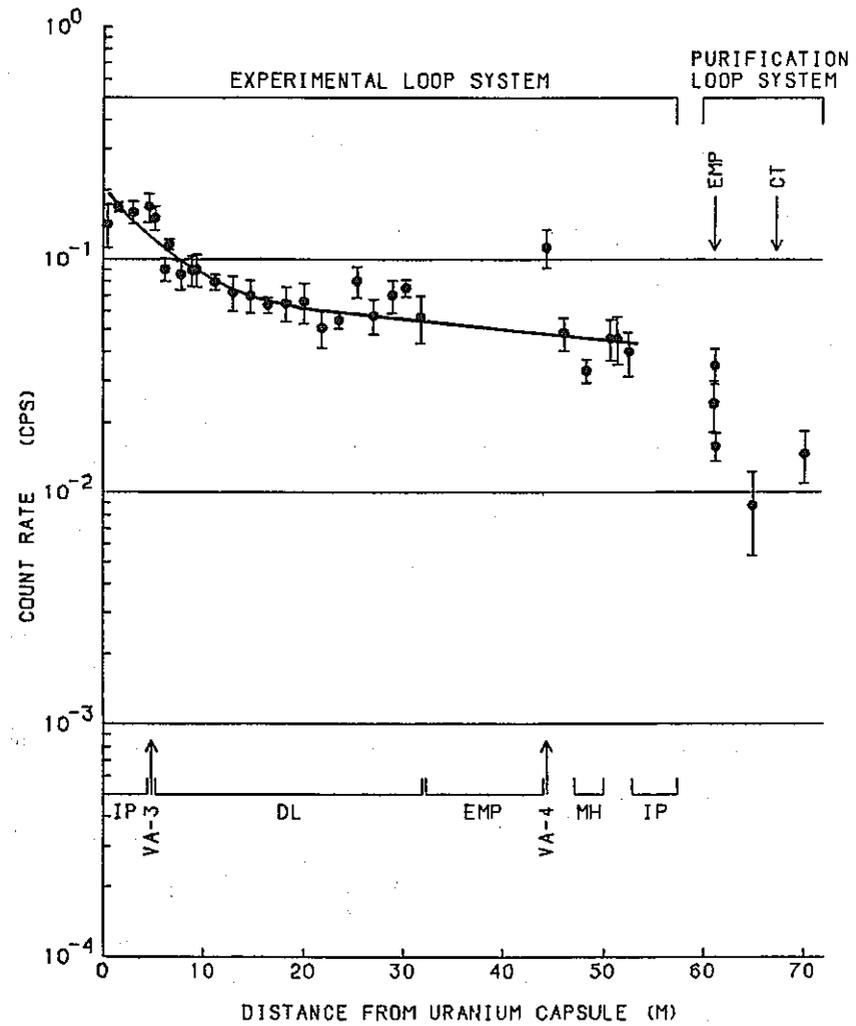


2) CE-141 (145.4KEV)

Fig 4 - 4 Post-operation test data; long-lived fission product deposition distribution along the FPL-II loop obtained by γ -spectra measurement

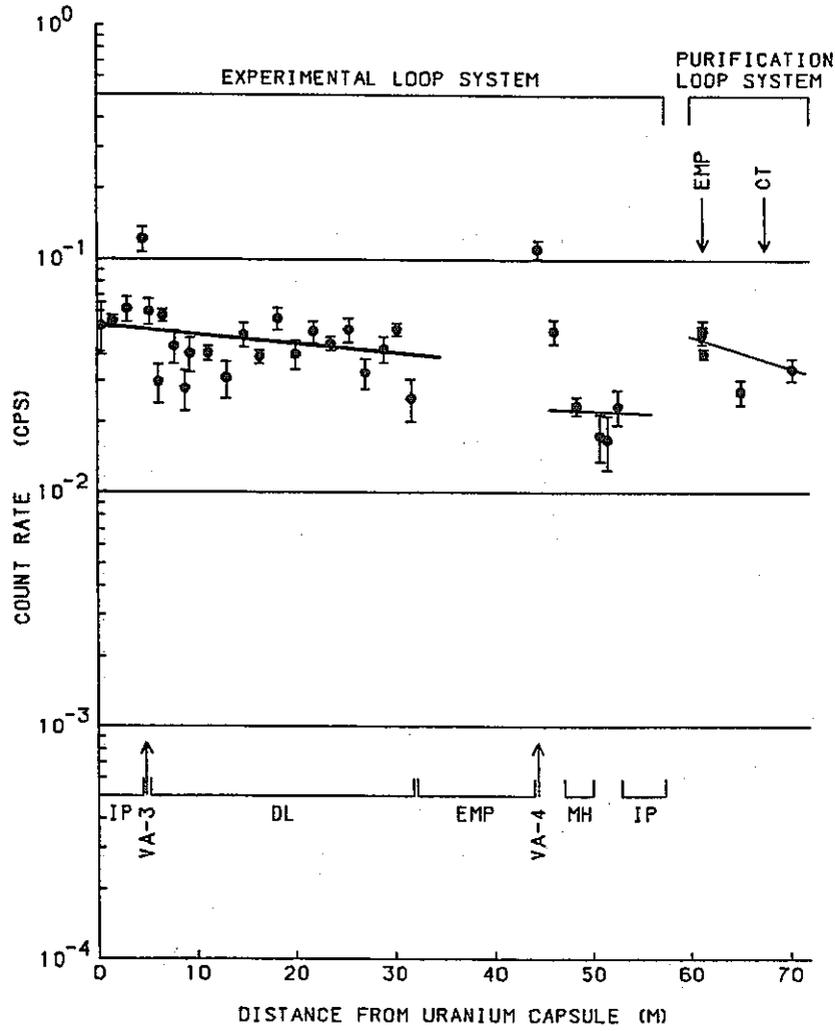


3) RU-103 (497.3KEV)

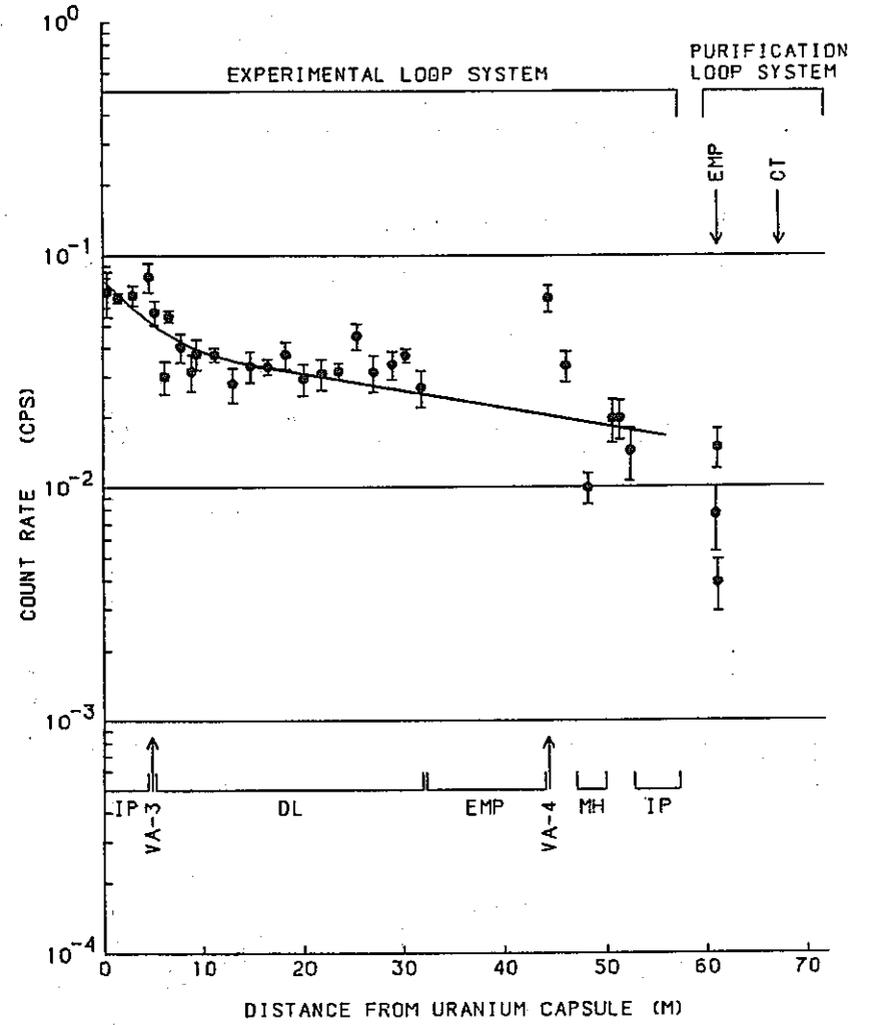


4) RH-106 (511.8KEV)

Fig 4 - 4 (continued)

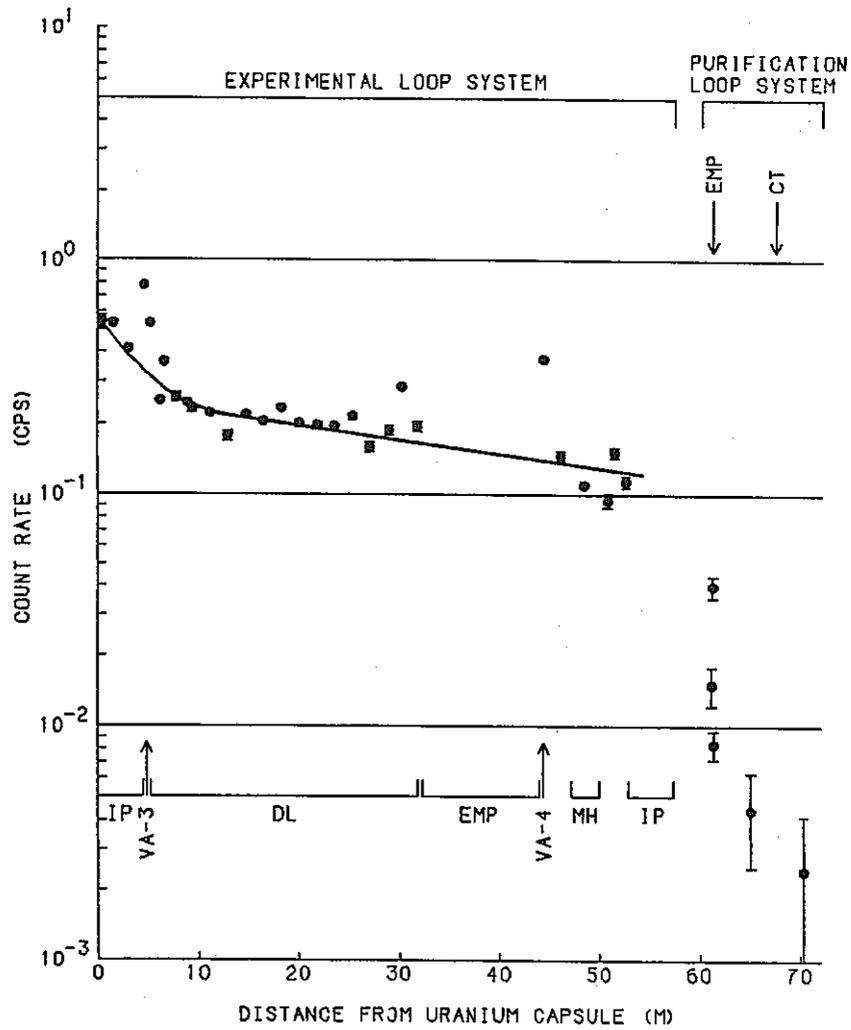


5) CS-137 (661.6KEV)

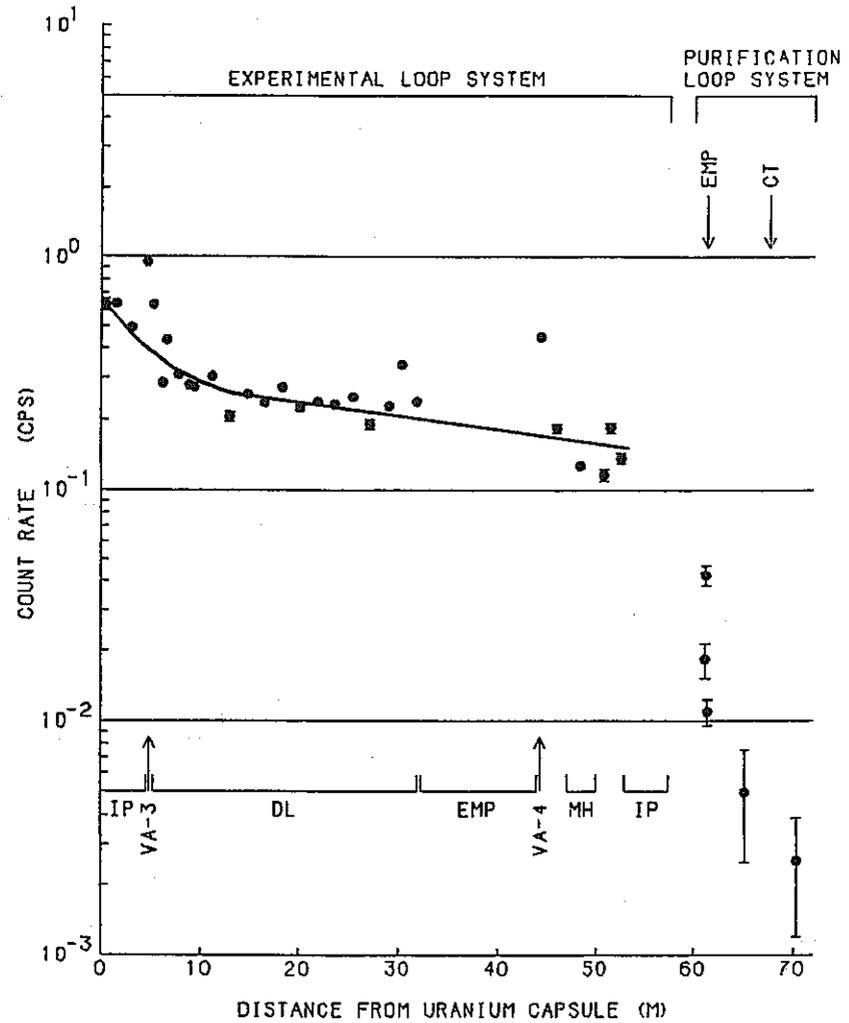


6) PR-144 (696.4KEV)

Fig 4 - 4 (continued)

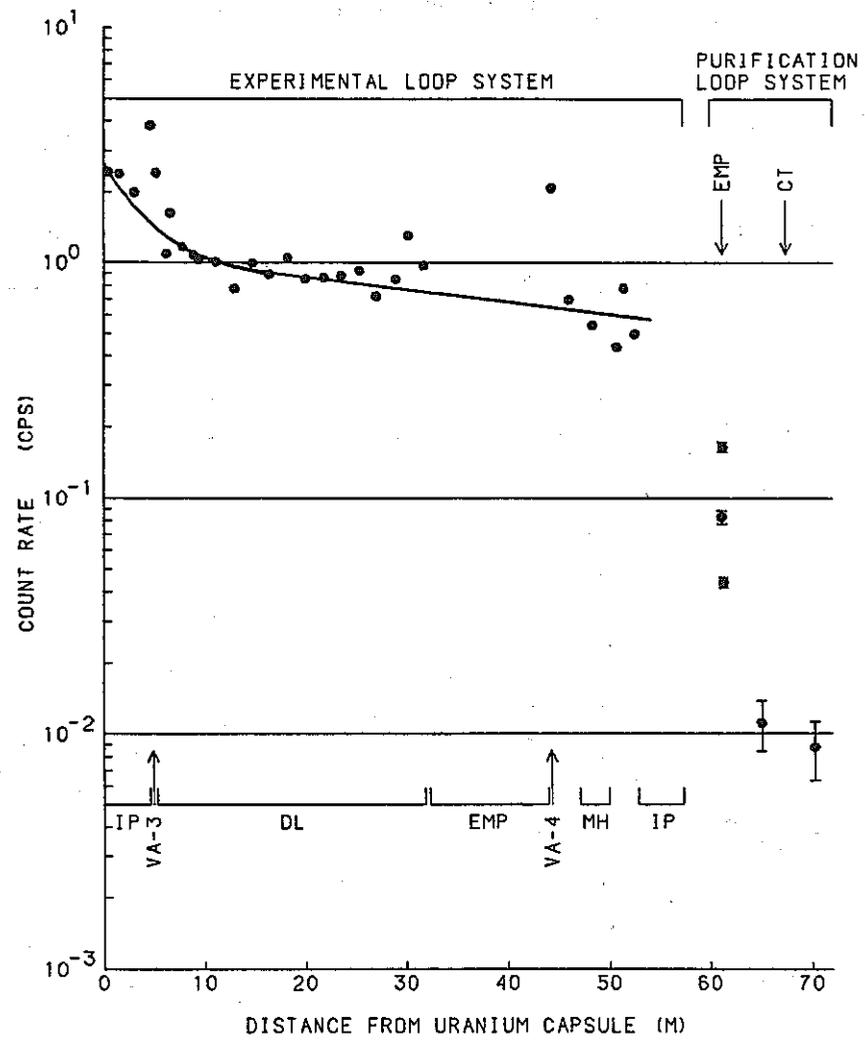


7) ZR-95 (724.2KEV)



8) ZR-95 (756.7KEV)

Fig 4 - 4 (continued)



9) NB-95 (765.8KEV)

Fig 4 - 4 (continued)

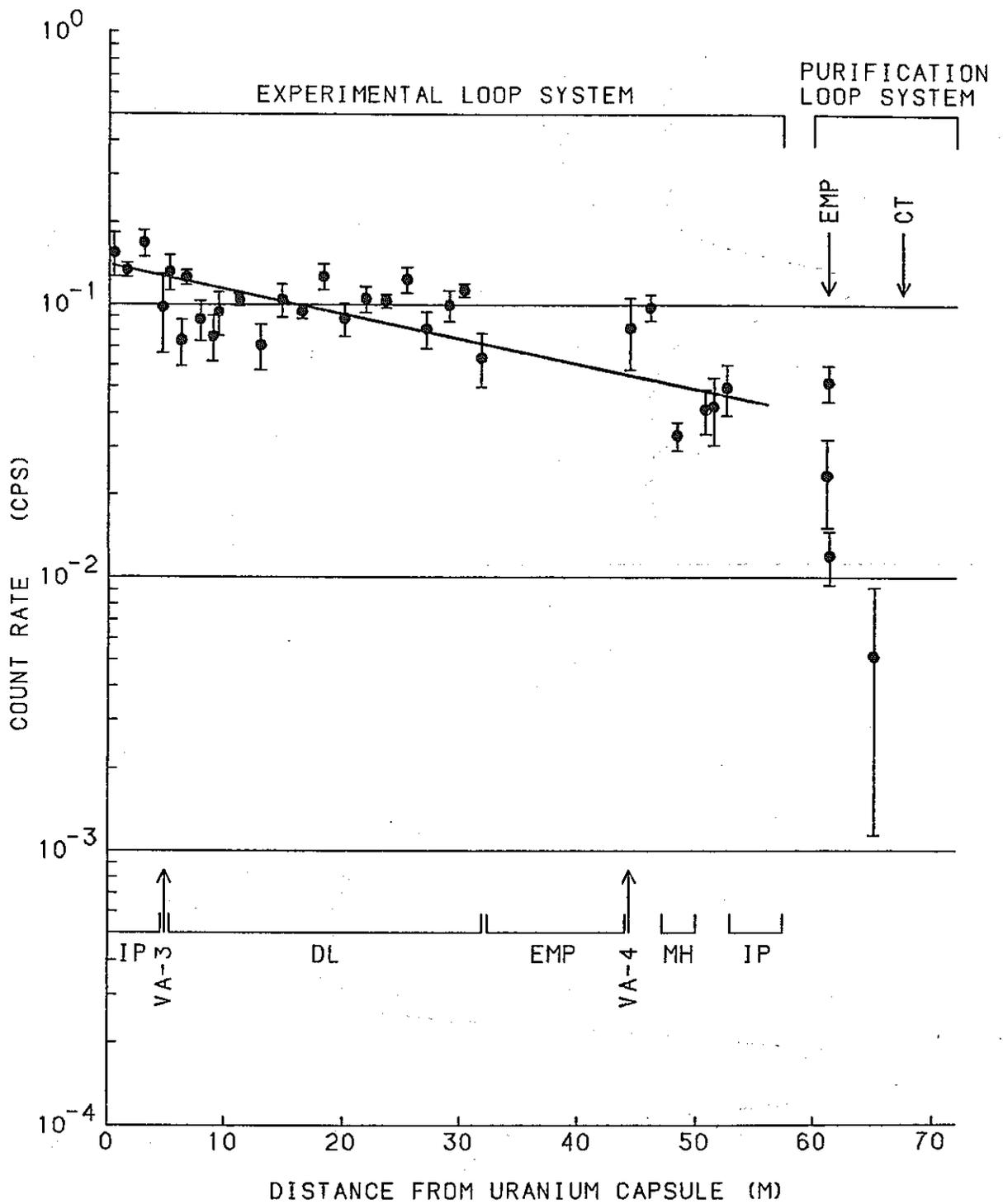
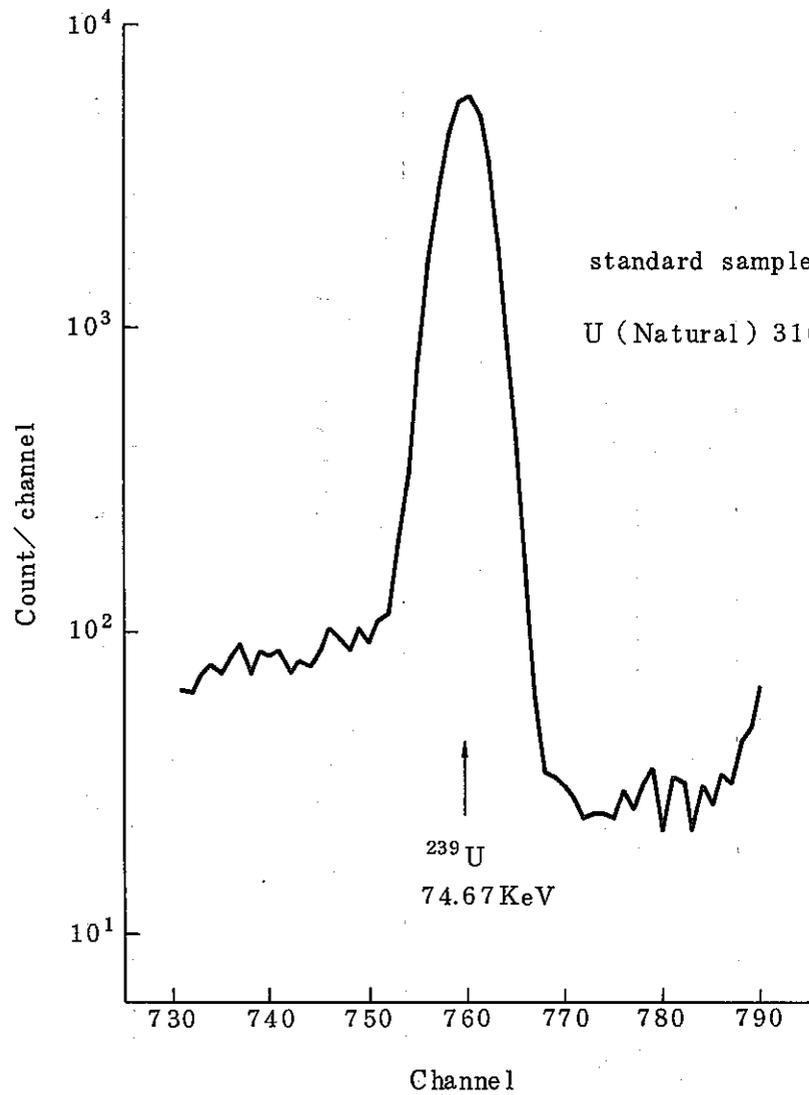
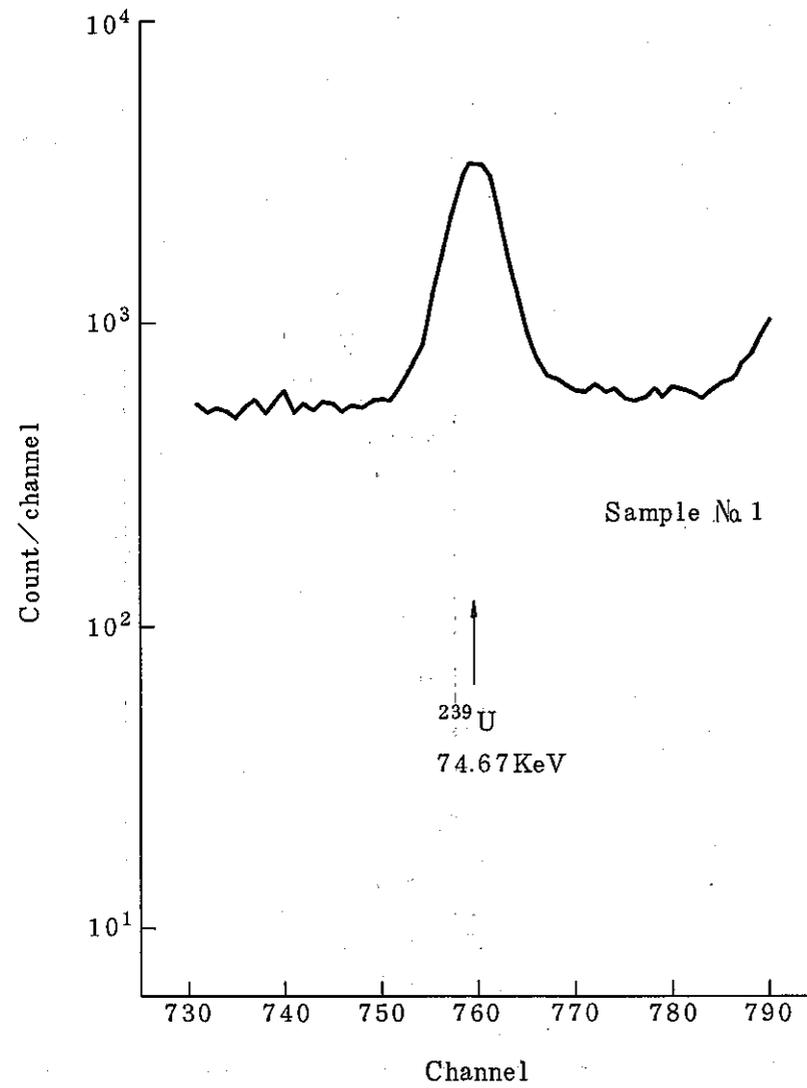


Fig 4 - 5 Post-operation test data ; ^{235}U (185.7 KeV) deposition distribution along the FPL - II loop obtained by γ -spectra measurement



1) Standard sample



2) Sample No 1

Fig 4 - 6 ²³⁹U γ -ray spectra obtained by activation analysis

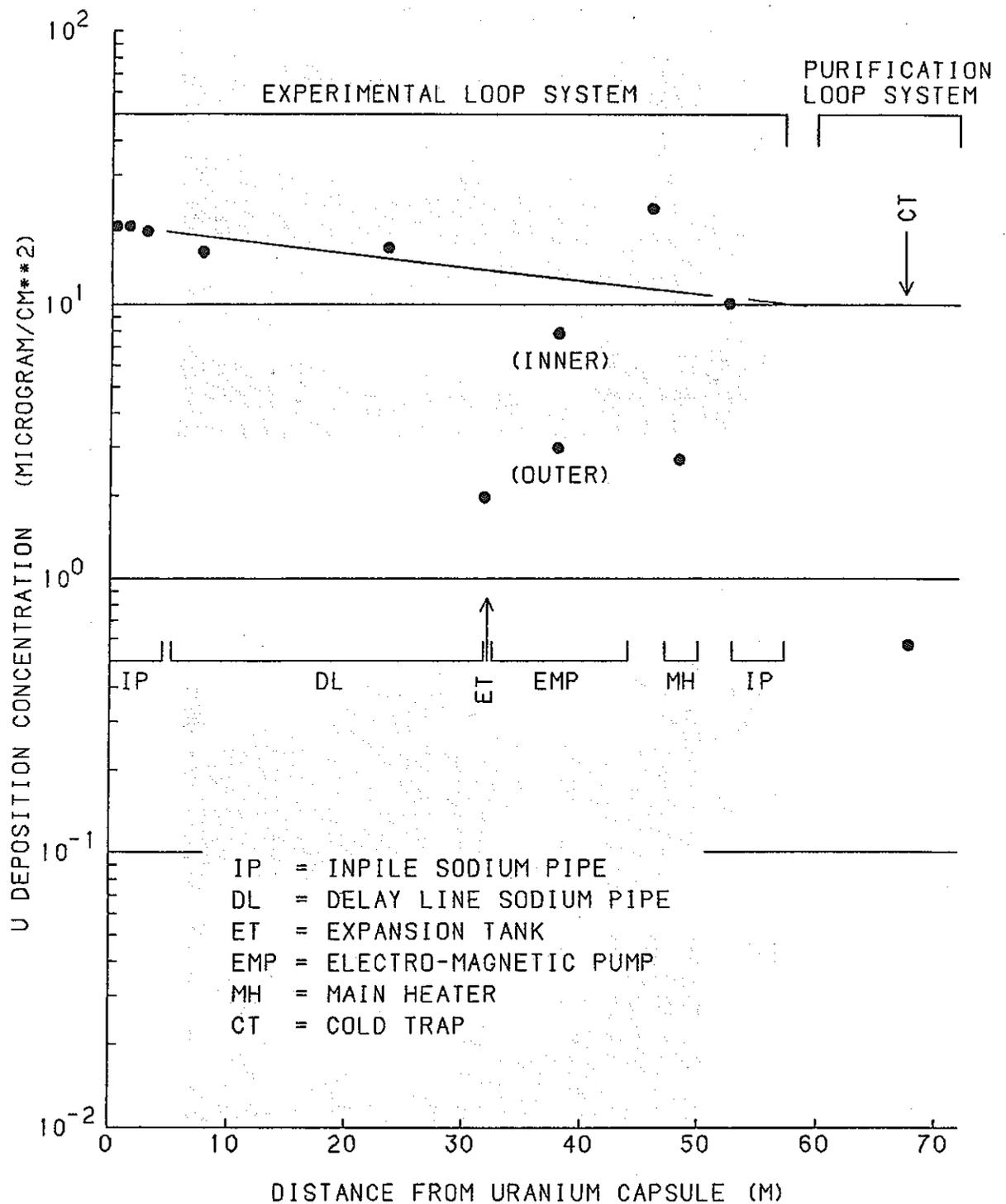
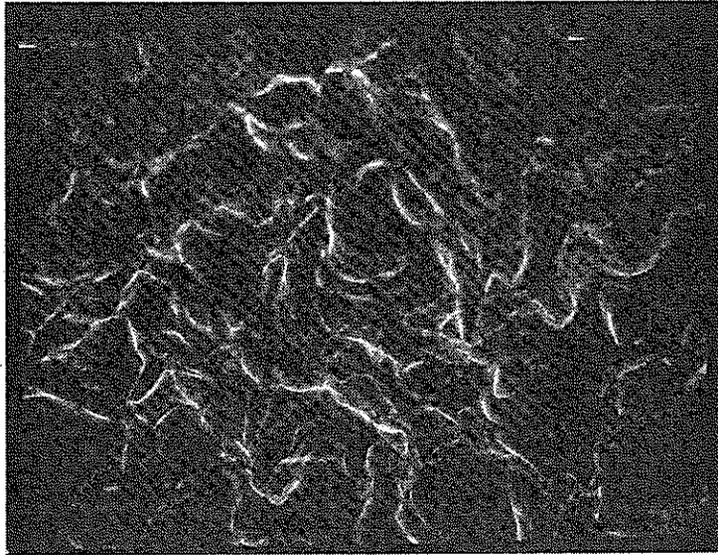
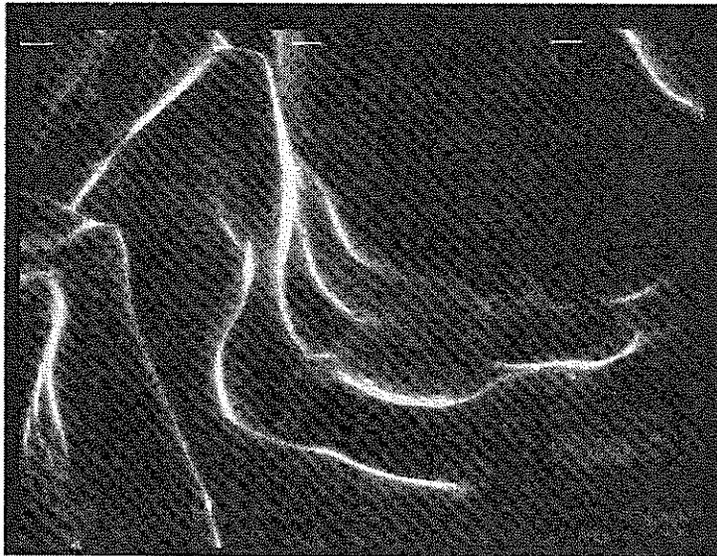


Fig 4 - 7 Post operation test data ; U deposition distribution along the FPL - II loop obtained by activation analysis



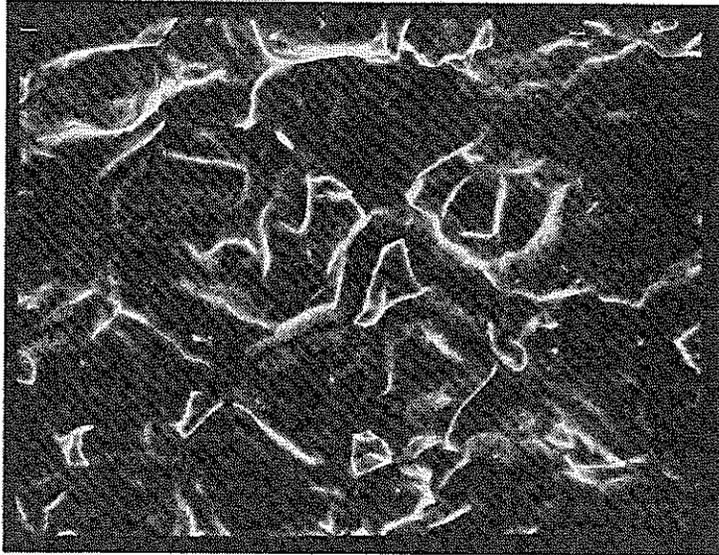
× 1000



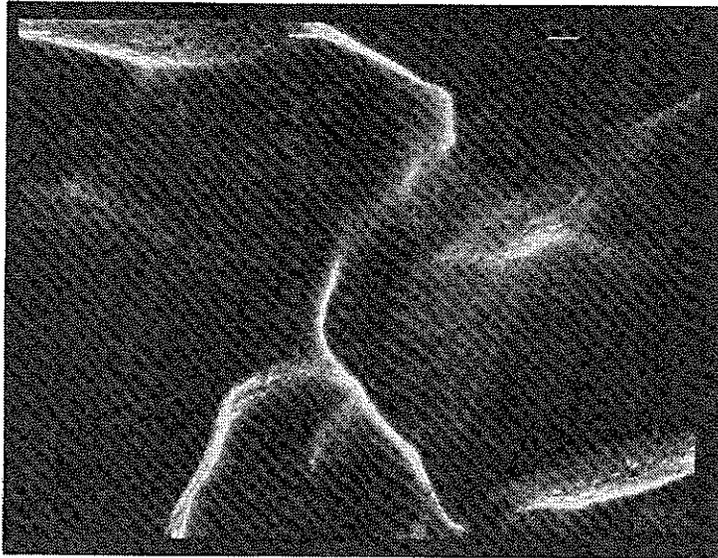
× 5000

1) Sample No 1
(non-exposed to sodium)

Fig 4 - 8 Scanning Electron Microscope (SEM) image



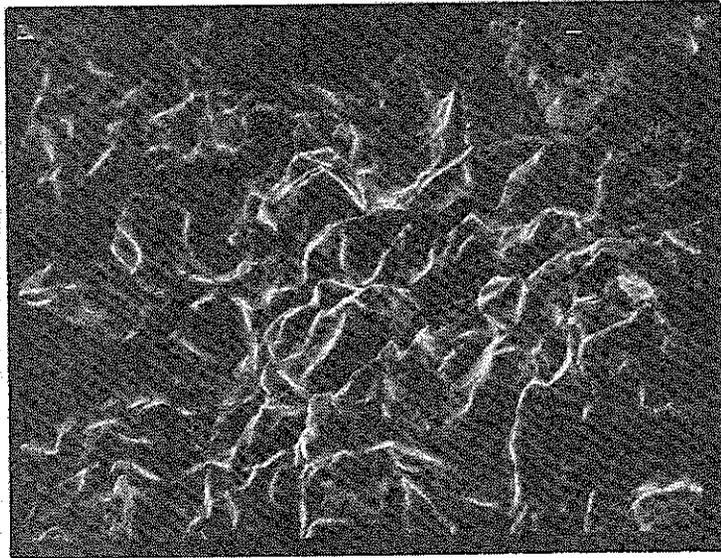
× 1000



× 5000

2) Sample No 2 (TE-2)

Fig 4 - 8 (continued)



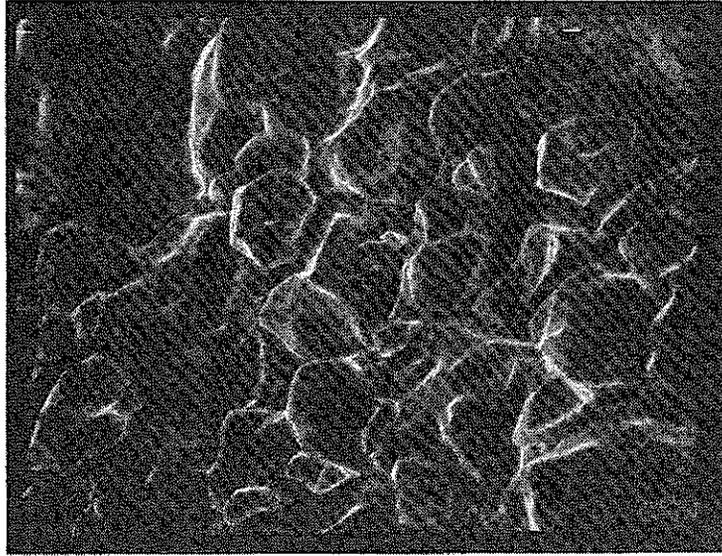
× 1000



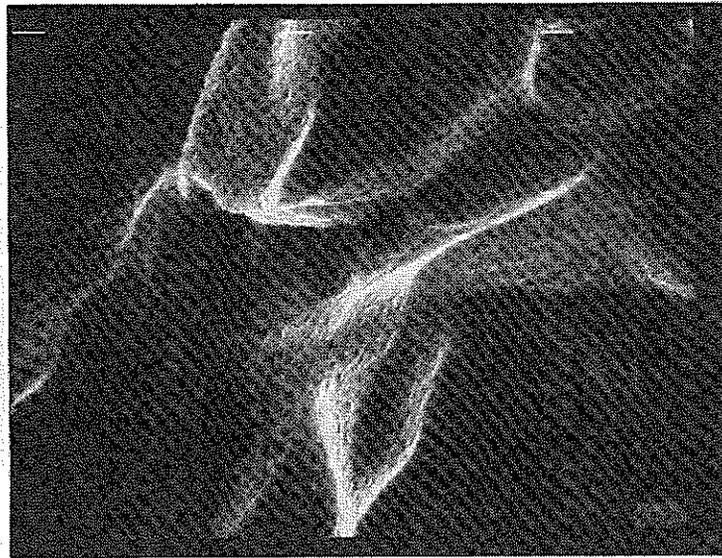
× 5000

3) Sample № 3 (TE-8)

Fig 4 - 8 (continued)



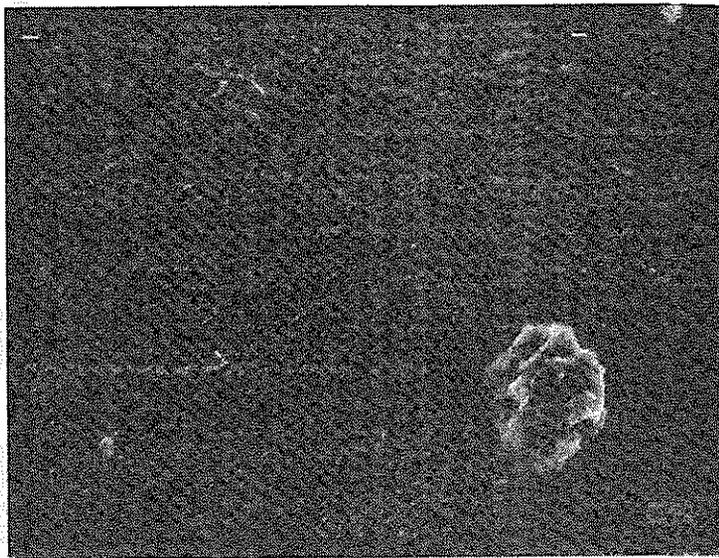
× 1000



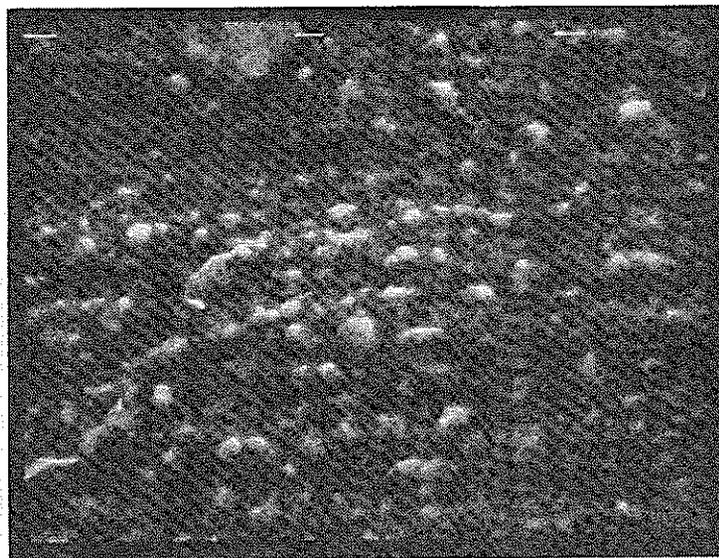
× 5000

4) Sample No. 4 (TE-17)

Fig 4 - 8 (continued)



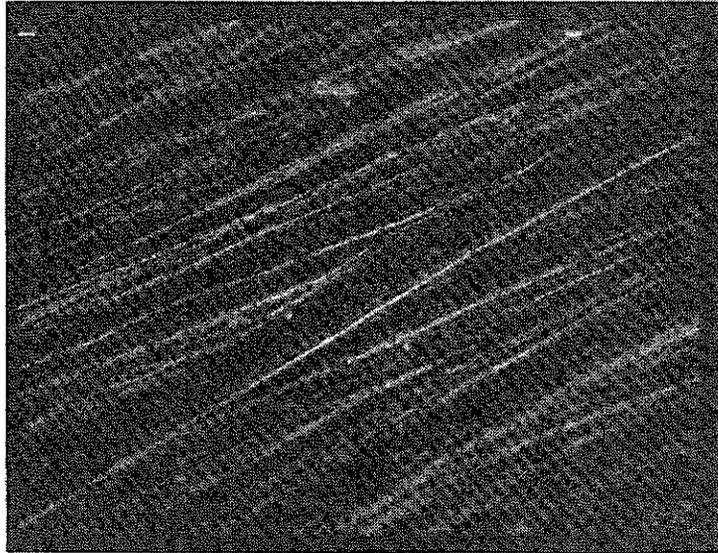
× 1000



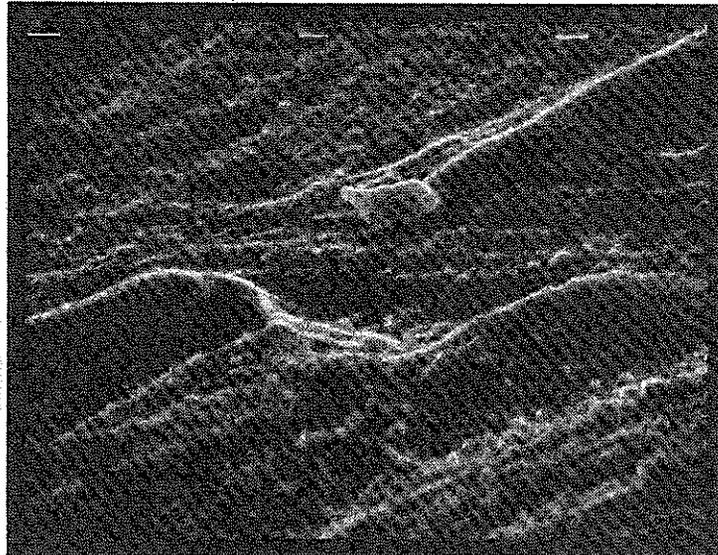
× 5000

5) Sample No 5 (TE-31, ET)

Fig 4 - 8 (continued)



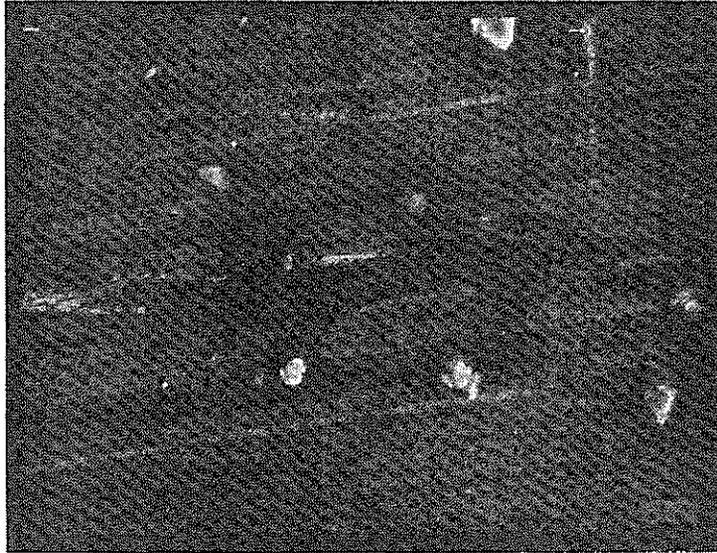
× 1000



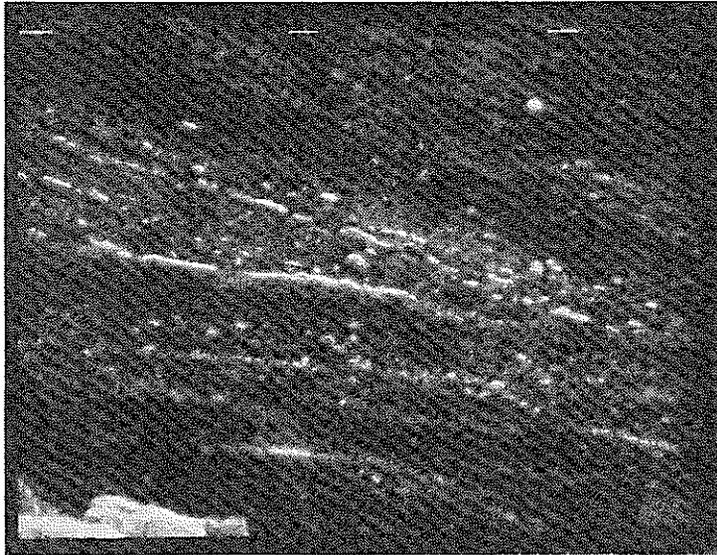
× 5000

6) Sample No 6
(TE - 24, EMP Inner Pipe)

Fig 4 - 8 (continued)



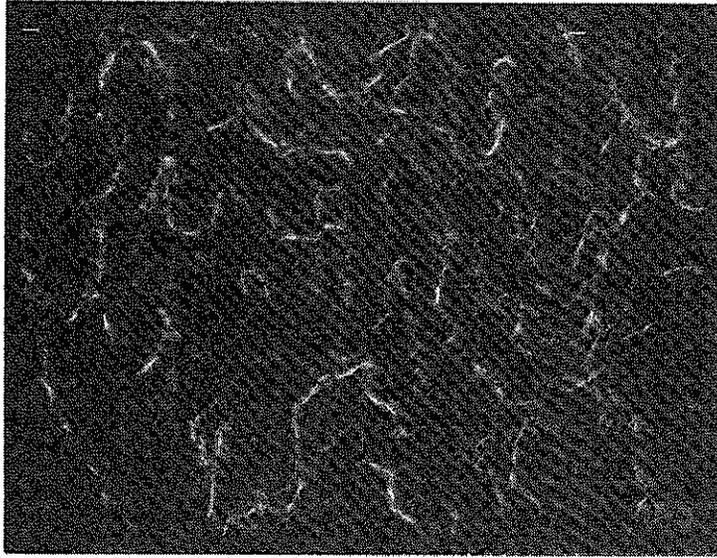
× 1000



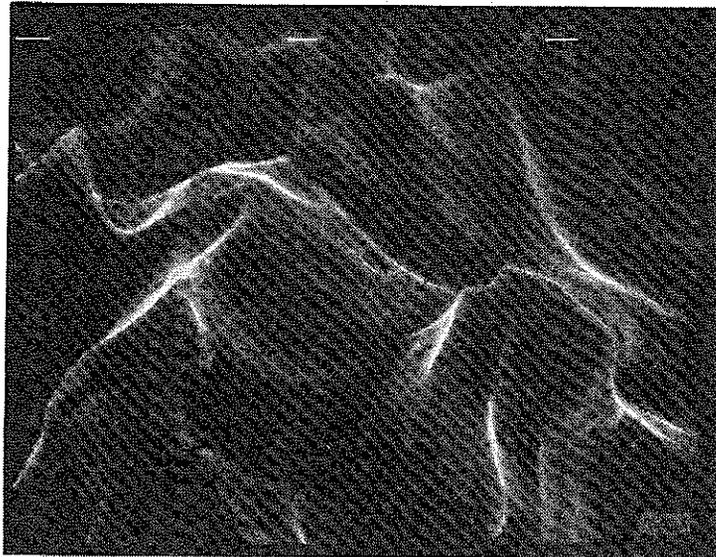
× 5000

7) Sample No 7
(TE-24, EMP Outer Pipe)

Fig 4 - 8 (continued)



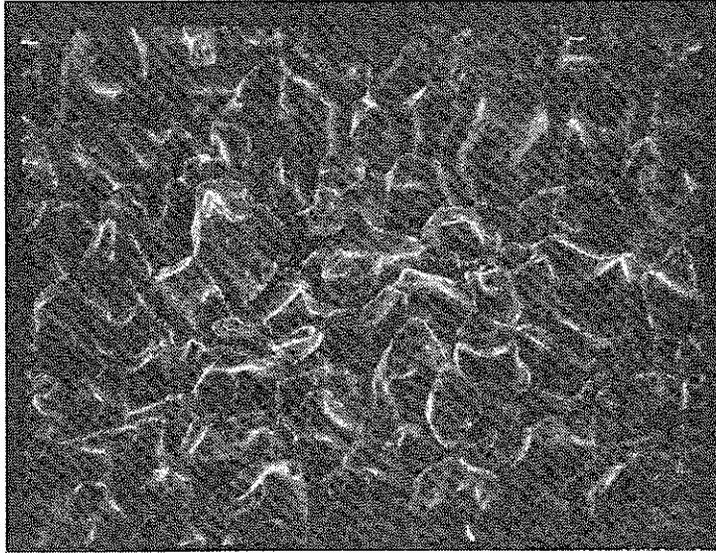
× 1000



× 5000

8) Sample No. 8 (TE - 26)

Fig 4 - 8 (continued)



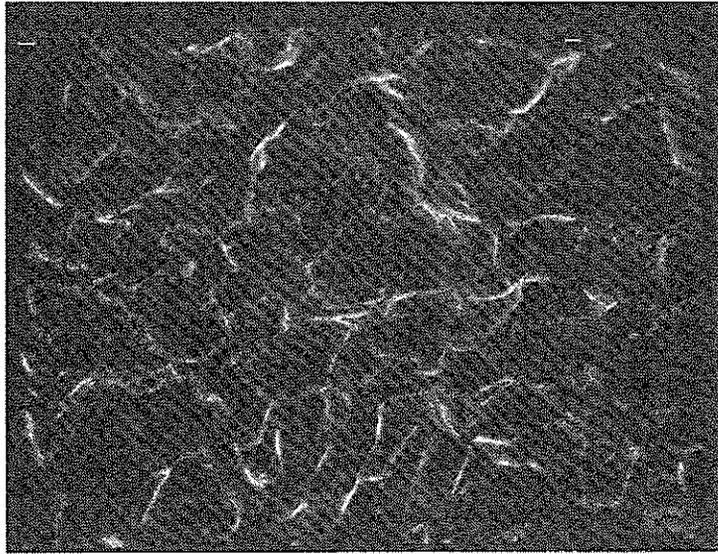
× 1000



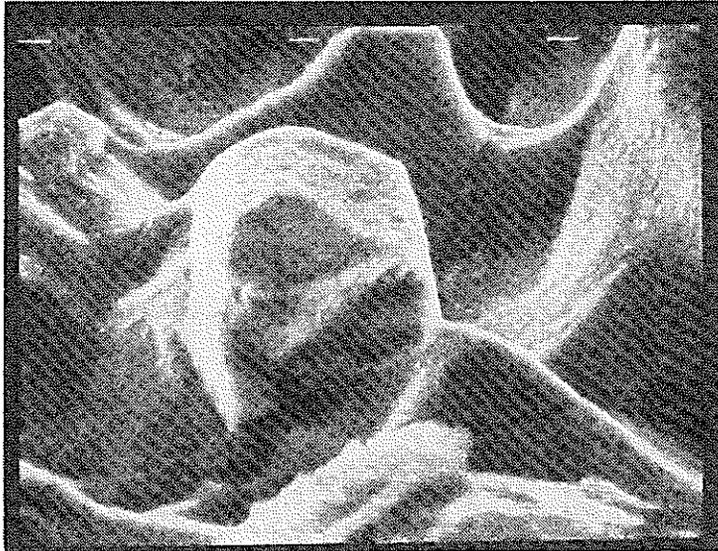
× 5000

9) Sample No 9 (TE-27, MH)

Fig 4 - 8 (continued)



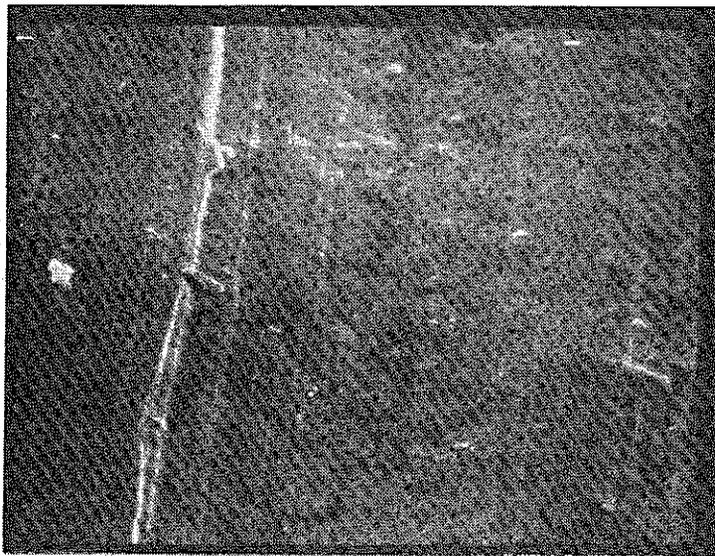
× 1000



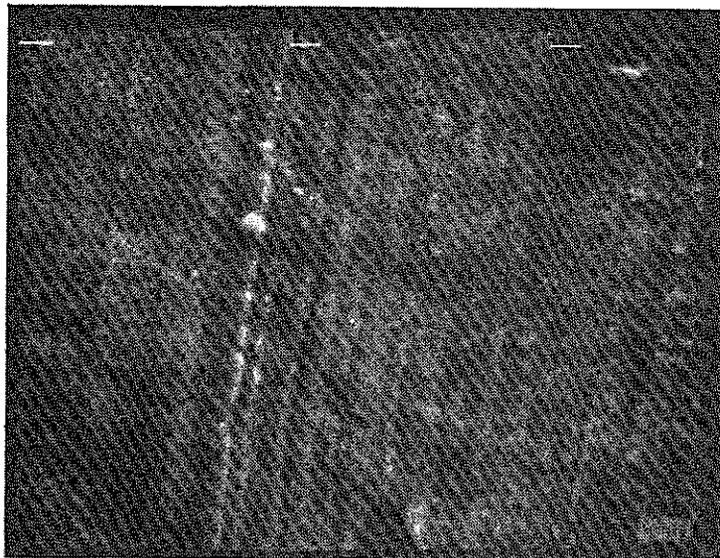
× 5000

10) Sample No 10 (TE-30)

Fig 4 - 8 (continued)



× 1000



× 5000

11) Sample No 11 (TC - 3, CT)

Fig 4 - 8 (continued)

5. 不揮発性FPの沈着挙動の解析

5.1 緒言

照射試料から熱中性子照射によりナトリウム中に放出されたFPのうち、特に不揮発性FPは、流動ナトリウムとともに輸送されて2.5m長のディレイライン配管内壁に沈着する。この沈着した不揮発性FPの放出する γ 線を、ディレイライン配管に沿って設置されたコリメーターを通して、照射中、照射後ナトリウム循環中およびナトリウムドレン後に、2台のGe半導体検出器を用いて測定して、各不揮発性FPのループ内沈着分布を求めた。このループ内分布を拡散支配の物質移動モデルを適用した輸送モデルにより解析し、沈着速度を表わす沈着速度定数を求めた。第1回の照射試験から最終試験まで33回の照射試験を実施してきたが、実験No.16までの照射試験の解析結果は前報⁴⁾で報告してあるので、今回は、実験No.17からの照射試験について解析を行ない、結果を報告する。前報と同様に、解析の対象とした核種は、1日以内の半減期を有し、かつ γ 線強度が強くて他のFPの γ 線の妨害を受けにくい、以下に示す11種の不揮発性FP核種である。すなわち、 ^{91}Sr 、 ^{92}Sr 、 ^{93}Sr 、 ^{94}Sr 、 ^{92}Y 、 ^{94}Y 、 ^{97}Zr 、 ^{97}Nb 、 ^{142}Ba 、 ^{142}La 、 ^{144}La の11核種である。尚FP核種はいわゆるFissinチェーンをつくっており、目的の不揮発性FP核種はその先行核種のナトリウム中での挙動の影響を受ける。そこでFig 5-1に、上記11核種が存在する質量数のFissinチェーン⁷⁾を示す。目的核種には目印をつけ、また、半減期および ^{235}U の核分裂で直接生成する率(Fissin yield, %)を同時に示す。尚核分裂収率は、すべてのFP核種の収率を加え合せると、200%となる量であり、1回の核分裂で生成する割合を%で表わした数字である。

以下の節から、各核種について沈着挙動の解析結果を示す。

尚以下の節ではナトリウムの流量を流速で表わすが、これはディレイライン配管(内径9.4mm)部での流速を意味し、流量5 l/minは流速1.2 m/secに、1 l/minは0.24 m/secに対応する。

5.2 不揮発性FPの沈着挙動の解析モデル

不揮発性FPのナトリウム中での沈着挙動を、前報で述べたM.H.Cooperらの輸送モデル⁹⁾を用いて解析する。

配管内壁に一旦沈着したFPは脱着しないと仮定すると、ナトリウム中のFP核種の濃度 C_p (atoms/cm³) は流れの方向に対して、

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

と書ける。⁹⁾これを解いて、

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

となる。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/cm³)

K_p : 核種 p の沈着速度定数 (cm/sec)

x : 照射試料部からナトリウムが流れてきた距離 (cm)

ℓ : 配管の内円周 ($2\pi r$) (cm)

r : 配管の内半径 (cm)

a : 流路断面積 (πr^2) (cm²)

v : ナトリウムの流速 (cm/sec)

λ_p : 核種 p の壊変定数 (sec⁻¹)

である。一方壁面の核種 p の濃度 $C_p^w(x, t)$ (atoms/cm²) は、

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

より、

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

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、本モデルによれば、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になる。従って不揮発性FP核種のループ内分布は、(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。しかもループ内沈着分布の勾配から(5-2)式中の α_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、Fig 5-1に示すようにFissionチェーンを形成している。(5-2)、(5-4)式で示した例は、先行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系での不揮発性FPの沈着挙動の場合であって、ほとんどの場合FP核種の沈着挙動の解析には、先行核種の挙動を考慮する必要がある。しかし、長いFissionチェーンの後端に位置するFP核種の挙動は、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核種単独の挙動を解析することは困難となる。そこで本節では、Fissionチェーンは、親・娘の2代についてのみ考慮する。娘核種を解析の対象とする不揮発性FP核種とした場合、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解析モデルを検討する。尚今後の議論の関係から、娘核種の沈着パターンを親核種のナトリウム中挙動の違いによって4種類に大別しておくことと便利である。そこで、前述した親核種の影響が無視できる場合を沈着パターンAと名付け、親核種が揮発性FPの場合を沈着パターンBとする。更に親核種が不揮発性FPの場合は、親核種の半減期の長短により、沈着パターンC、Dに分け、以下に各パターンについて解析モデルを述べる。

1) 親核種が揮発性FP核種の場合(沈着パターンB)

Rb - Sr, Cs - BaのFissionチェーンがこれに相当する。

親核種の半減期が照射時間(通常4時間)に比較して充分短い(数分以内)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。従って親核種の配管内壁への吸着挙動^{*)}を無視すると、親核種(添字pで表わす)のナトリウム中の流れ方向に対する変化は放射壊変でのみ減少していくから、

$$\frac{dC_p(x)}{dx} = -\frac{\lambda_p}{v} C_p(x) = -\beta_p \cdot C_p(x) \quad (5-5)$$

となり、これを解いて、

$$C_p(x) = C_{p0} \cdot e^{-\beta_p \cdot x} \quad (\beta_p = \lambda_p / v) \quad (5-5a)$$

である。従って娘核種(添字dで表わす)の流れ方向のナトリウム中濃度Cd(x)の変

*) 揮発性FPの壁面への付着は一般に物理吸着であり、また吸・脱着はナトリウム温度¹⁰⁾に対して可逆的であって不揮発性FPの付着(沈着)とは異なるので、揮発性FPの場合には、吸着ということばを使用する。

化は,

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

より, これを解いて,

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

となる。ここに,

$$\alpha_d = \frac{K_d \cdot (\ell/a) + \lambda_d}{v} \quad (5-6a)$$

C_{d0} : 照射試料部での核種 d の初期濃度 (atoms/cm³)

である。また壁面の濃度 $C_d^w(x, t)$ については,

$$\frac{\partial C_d^w(x, t)}{\partial t} = K_d \cdot C_d(x) - \lambda_d \cdot C_d^w(x, t)$$

より, これを解いて,

$$C_d^w(x, t) = \frac{K_d \cdot C_d(x)}{\lambda_d} \cdot (1 - e^{-\lambda_d \cdot t}) \quad (5-7)$$

となる。

この場合には, 娘核種のループ内分布は指数関数とならないが, 壁面の濃度 $C_d^w(x, t)$ は, ナトリウム中の濃度 $C_d(x)$ と比例関係になる。

尚データ解析は次のようにして行なう。ループ内分布について, K_d をパラメータとして非線型最小 2 乗法により (5-7) 式の $C_d^w(x, t)$ と実測値のあてはめを行ない, 最適な K_d を求める。

2) 親核種が不揮発性 FP 核種の場合 (沈着パターン C)

親核種については, ナトリウム中および壁面の濃度 $C_p(x)$ および $C_p^w(x, t)$ は,

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

$$C_p^w(x, t) = \frac{K_d \cdot C_d(x)}{\lambda_d} (1 - e^{-\lambda_p \cdot t})$$

一方娘核種については,

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

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

これを解いて、

$$C_d(x) = \frac{C_{p0} \cdot \beta_p}{\alpha_d - \alpha_p} \cdot (e^{-\alpha_p \cdot x} - e^{-\alpha_d \cdot x}) + C_{d0} \cdot e^{-\alpha_d \cdot x} \quad (5-8)$$

$$C_d^w(x, t) = \frac{K_p \cdot C_p(x) + K_d \cdot C_d(x)}{\lambda_d} \cdot (1 - e^{-\lambda_d \cdot t}) + \frac{K_p \cdot C_p(x)}{\lambda_p - \lambda_d} \cdot (e^{-\lambda_p \cdot t} - e^{-\lambda_d \cdot t}) \quad (5-9)$$

となる。この場合には娘核種のループ内分布は指数関数とならず、壁面の濃度もナトリウム中濃度と比例関係ではなくなる。

データの解析は、1)と同様に、 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(5-9)式と実測値のあてはめを行なう。

尚前報で証明したように、⁴親核種が30秒以上の半減期をもつ不揮発性FPで、かつ核分裂により直接生成する娘核種の量が、親核種の放射壊変で生成する量の5%以下であるならば、娘核種の沈着挙動は、親核種の沈着挙動で決定されてしまう。但しこの場合、壁面に沈着していた親核種の放射壊変で生成してきた娘核種も壁面から脱着しないという仮定が成立する場合である。そこで、この沈着パターンをDとする。尚以下に述べるNbの場合には、壁面に沈着していたZrから放射壊変で生成してくるNbは、壁面から脱着してナトリウム中に溶解することが推定された。

3) 沈着パターンのまとめ

これまで述べてきたように、不揮発性FPは、その先行核種のナトリウム中の挙動によってほぼ4つの沈着パターンに分類できることがわかったので、この節においてそれらをまとめて示す。

① 沈着パターンA

先行核種のナトリウム中での挙動が無視できる場合。次節以下に述べる、⁹⁴Srがこの例に近いが、厳密には⁹⁴Srは先行核種⁹⁴Rbの影響を若干受けるので、本文中では、⁹⁴Srの沈着挙動は、先行核種の影響を考慮して解析している。

② 沈着パターン B

先行核種が揮発性 FP (沈着挙動を示さない) の場合。次節以下に述べる, ^{92}Rb - ^{92}Sr , ^{142}Cs - ^{142}Ba 等がこの例に相当する。

③ 沈着パターン C

先行核種が短半減期 (30 秒以下) の不揮発性 FP の場合。次節以下に述べる, ^{97}Y - ^{97}Zr , ^{144}Ba - ^{144}La がこの例に相当する。娘核種のループ内沈着分布は, 先行核種と娘核種の沈着分布の重ね合せったものとなり, 娘核種の沈着分布から, 先行核種および娘核種の沈着速度定数が求められる。

④ 沈着パターン D

先行核種が長半減期 (30 秒以上) の不揮発性 FP の場合。次節以下に述べる, ^{92}Sr - ^{92}Y , ^{94}Sr - ^{94}Y , ^{142}Ba - ^{142}La 等がこの例に相当する。娘核種のループ内沈着分布は, 先行核種のループ内沈着分布をそのまま表わす。

この例の場合には, γ 線測定ができないような (例えば γ 線強度が低い) 核種の沈着挙動を, 娘核種の γ 線測定結果から求めることが可能となるが, 自分自身の沈着挙動は明らかにならない。

5.3 Sr の沈着挙動の解析

前報⁴⁾でも述べたように, Sr の沈着挙動解析の対象とした同位体は, ^{91}Sr , ^{92}Sr , ^{93}Sr , ^{94}Sr の 4 核種である。更に 5.2 節でも述べたように, 親, 娘の両核種が沈着性の場合には, 娘核種の沈着挙動は親核種の沈着挙動で決定されてしまうので, ^{92}Y および ^{94}Y の γ 線測定結果より解析されたデータは, 各々親核種である ^{92}Sr および ^{94}Sr の沈着挙動としてこの節に記載する。記載の順序は, ^{92}Sr , ^{94}Sr , ^{93}Sr , ^{91}Sr , ^{92}Sr (^{92}Y), ^{94}Sr (^{94}Y) とし, まず ^{92}Sr の解析結果から述べる。尚前報⁴⁾で報告した実験 No. 16 までの解析結果は省略する。

1) ^{92}Sr の沈着挙動 (沈着パターン B)

^{92}Sr は 1383.9 KeV に非常に強い γ 線⁶⁾を放出する。そこでピークを用いて ^{92}Sr の沈着挙動の解析を行なう。また ^{92}Sr は半減期が 2.7 時間であるので, 沈着挙動の解析には短半減期 FP が減衰して照射中よりも S/N 比がよくなった照射終了後の γ 線測定データを用いる。⁶⁾

沈着挙動の解析の対象とした実験は、実験No 19, 20, 21, 22, 24, 25, 27, 28, 29, 30, 32, 33の12回の照射試験である。尚実験No 22 および 25 はディレイライン配管に温度勾配をつけた実験(以下温度勾配実験という)、実験No 27 から 30 までは高酸素濃度ナトリウムを使用した実験(以下高酸素濃度実験という)である。

Fig 5 - 2 に、得られた ^{92}Sr のループ内沈着分布をナトリウム温度およびナトリウム流速順に示す。横軸はウランカプセルからの距離 x を表わし、縦軸は計数率を表わす。計数率は放射壊変による補正を行なっている。また各計測値の統計誤差も同時に示す。Fig 5 - 1 に示されるように、 ^{92}Sr は全体成量の 8.1.5% が親核種である ^{92}Rb の放射壊変で生成するので、沈着パターン B に属する。そこで親核種(揮発性)の放射壊変を考慮した(5-6)および(5-7)式を用い、 K_d をパラメータとして非線型最小 2 乗法により実験結果(ループ内沈着分布)と解析モデルのあてはめを行ない、最適あてはめを与える K_d の値を求めた。図中にはあてはめの結果を実線で示す。実験値と解析結果はどの実験についても非常によく一致している。また解析で得られた沈着速度定数 K_d の値を、前報の解析結果も含めてまとめて Table 5 - 1 に示す。前述したように実験No 22 および 25 は温度勾配実験、実験No 27 から 30 は高酸素濃度実験であるが、通常の実験と比較して顕著な差は認められなかった。

これらの解析結果から、「流速が一定条件では、Sr の沈着速度はナトリウムが高温度速くなる」という前報と全く同一の結論が得られた。

2) ^{94}Sr の沈着挙動(沈着パターン B)

^{94}Sr は、1428.3KeV に非常に強い γ 線を放出する。そこでこのピークを用いて ^{94}Sr の沈着挙動の解析を行なう。 ^{94}Sr は半減期が 74.1 秒のため、沈着挙動の解析には照射中の γ 線測定データを用いる。また沈着挙動の解析の対象とした実験は、No 19, 20, 21, 22, 24, 25, 28, 29, 30, 31, 32, 33 の 12 の照

*) Fig 5 - 1 によれば、 ^{92}Sr は、核分裂により直接生成する分(収率 1.1%)と、先行核種である ^{92}Rb の放射壊変で生成する分(収率は、 ^{92}Rb とそれ以前の核種を加え合せて 4.85%)がある。従って ^{92}Rb から生成してくる割合は、 $4.85 / (1.1 + 4.85) = 0.815$ で 8.1.5% と算出される。以下に示す核種についての記述も全くこれと同じ方法で算出した。

射試験である。実験No. 22および25は温度勾配実験、No. 28, 29, 30は高酸素濃度実験である。また実験No. 31では、照射中にナトリウムの流量を変化させている。尚⁹²Srの解析データがある実験No. 27は、マルチ波高分析器のトラブルにより照射中のデータがないために⁹⁴Srの解析結果はない。

Fig 5-3に、得られた⁹⁴Srのループ内沈着分布を統計誤差とともにナトリウム温度およびナトリウム流速順に示す。横軸、縦軸はFig 5-2と同じである。⁹⁴Srは全生成量の30.9%が親核種である⁹⁴Rbの放射壊変で生成するだけで、大部分は核分裂で直接生成する。しかも⁹⁴Rbの半減期は短い(2.73秒)ので、⁹⁴Rbの影響は更に小さくなる。しかし厳密に解析を行なうと親核種の影響を考慮する必要がある。そこで沈着パターンBに属するとして⁹⁴Rbの放射壊変を考慮した(5-6)および(5-7)式を用い、 K_d をパラメーターとして非線型最小2乗法により実験結果と解析モデルのあてはめを行ない、最適あてはめを与える K_d の値を求めた。図中にはあてはめの結果を実線で示す。実験値と解析結果はどの実験についてもかなりよく一致している。⁹²Srの場合と同様に、⁹⁴Srの沈着速度定数 K_d の値を前報の解析結果も含めて⁴⁾Table 5-2に示す。⁹²Srの場合と同様に温度勾配実験(実験No. 22および25)と高酸素濃度実験(実験No. 28, 29, 30)の結果は、通常の場合の実験結果と顕著な差はなく、特にナトリウム中の高濃度酸素はSrの沈着挙動に大きな影響を与えないことが推定される。尚、ナトリウム流速が1.2m/secの場合の⁹²Srと⁹⁴Srの同一ナトリウム温度における K_d 値を比較すると両者はかなりよく一致するのがみとめられる。一方流速が0.24m/secの場合は、全般的に⁹⁴Srの K_d 値の方が⁹²Srの K_d 値よりも若干低い傾向を示したが、その差はそれ程大きくない。

3) ⁹³Srの沈着挙動(沈着パターンB)

⁹³Srは多数の γ 線ピークを放出するが、他のFPの γ 線からの妨害が比較的少ない590.2および875.9KeVの2本の γ 線ピークを用いて⁶⁾⁹³Srの沈着挙動の解析を行なう。⁹³Srは半減期が7.5分であるため、⁶⁾沈着挙動の解析には照射中の γ 線測定データを用いる。沈着挙動の解析の対象とした実験は、No. 19, 20, 21, 22, 24, 25, 28, 29, 30, 31, 32, 33の12の照射試験である。

Fig 5-4に、得られた⁹³Srのループ内沈着分布を統計誤差とともに γ 線エネルギー、ナトリウム温度およびナトリウム流速順に示す。横軸、縦軸はFig 5-2と同

じである。^{*)} ^{93}Sr も全生成量の55.7%が親核種の ^{93}Rb の放射壊変で生成するので、沈着パターンBに属する。そこで、 ^{93}Rb の放射壊変を考慮した(5-6)および(5-7)式を用い、前述の方法により実験値と解析モデルのあてはめを行ない最適なあてはめを与える沈着速度定数 K_d 値を求めた。図中にはあてはめの結果を実線で示す。実験値と解析結果はよく一致している。沈着速度定数 K_d 値を前報⁴⁾の解析結果も含めてまとめてTable 5-3に示す。 ^{93}Sr の場合も温度勾配実験および高酸素濃度実験の結果は通常の条件の実験結果と大差がない。 ^{93}Sr の K_d 値を ^{92}Sr および ^{94}Sr の K_d 値と比較すると、ナトリウム流速が1.2m/secの場合には、3者の K_d 値は各温度において互いにかなりよく一致し、一方0.24m/secの場合には、 ^{93}Sr の K_d 値はむしろ ^{92}Sr の K_d 値に近いことがわかった。これらの結果から、前報と同様に Sr ⁴⁾の沈着挙動は、親核種のナトリウム中の挙動の影響を取り除いた後においては同位体による差がないことが示された。

4) ^{91}Sr の沈着挙動(沈着パターンB)

^{91}Sr は半減期が9.48時間であるため、⁶⁾照射中には ^{91}Sr の γ 線は強くは検出されないが、照射終了後短半減期FPが減衰した後において、かなりの強度で多数の γ 線ピークが検出される。そこで γ 線強度が強くかつ他のFPの γ 線ピークの妨害が少ない749.8と1024.3KeVの2本の γ 線ピークを用いて⁶⁾ ^{91}Sr の沈着挙動の解析を行なう。

Fig 5-5の1), 9)に、実験No 27のナトリウム温度500°C, 流速1.2m/sec(高酸素濃度実験)における、それぞれ749.8および1024.3KeVの場合のループ内沈着分布を示す。 ^{91}Sr はループ全体にほぼ均一に分布している。これは前報でも述べたように⁴⁾ ^{91}Sr の先行核種の影響を強く受けているためである。Fig 5-1の質量数91のFPチェーンの部分で示されるように、^{*)} ^{91}Sr は全生成量の97.1%と大部分が親核種の ^{91}Rb からの放射壊変で生成しかつ ^{91}Rb は半減期が58.7秒で配管に吸着しにくいためループ内にほぼ均一に分布し、そのため娘核種である ^{91}Sr もループ内に均一に分布することになる。ナトリウム流速が1.2m/secの場合には、ナトリウム温度に無関係にFig 5-5の1)および9)とほぼ同一のループ内分布が得られた。実験No 27の分布データから、(5-6), (5-7)式を用いて前述した方法によ

*) ^{92}Sr の項の脚註参照。

り K_d 値を求めた結果、Table 5-4 に示すように得られた K_d 値はほぼ 100% の誤差を持っていることがわかった。従ってこのような大きな誤差を有する K_d 値は余り意味がないので、ナトリウム流速が 1.2 m/sec の実験は ^{91}Sr の解析の対象から除いた。一方流速 0.24 m/sec の場合には、ナトリウムがループ (全長約 57.4 m^{*}) を 1 循環するのに約 240 秒かかりこの間に ^{91}Rb は約 1/16 に減衰するため ^{91}Rb の影響はかなり小さくなる。そこで流速 0.48 m/sec の実験 No. 19 および 0.24 m/sec の実験 No. 20, 22, 25, 33 について沈着挙動の解析を行ない、沈着速度定数 K_d 値を求めた。Fig 5-5 に ^{91}Sr のループ内沈着分布と統計誤差および解析結果を実線で示し、また Table 5-4 に前報の結果も含めて K_d 値をまとめて示す。尚実験値のうち特にナトリウム温度が低温の実験 No. 20 (170°C) の場合は統計誤差が非常に大きく、余り信頼性の高いデータは得られなかった。また実験 No. 20 および 33 については、照射終了後のナトリウム循環中とナトリウムドレン後について各々 ^{91}Sr の沈着速度定数 K_d を求め、脱着による ^{91}Sr の再分配が起っているかどうかを確認した。実験 No. 20 および 33 ではともに照射終了後 40 時間ナトリウム循環を行なったが、両実験ともにナトリウム循環中とドレン後で K_d 値に差が余りなく、この結果少なくとも 40 時間の範囲で Sr の脱着による再分配は起っていないことが結論された。

5) ^{92}Y の γ 線測定結果から求めた ^{92}Sr の沈着挙動 (沈着パターン D)

^{92}Y は全生成量の 99% 以上が親核種の ^{92}Sr の放射壊変で生成し、また ^{92}Sr は沈着性で半減期が 2.7 時間と長いので、5.2 節の解析モデルによる沈着パターン D に相当し、 ^{92}Y のループ内分布は ^{92}Sr のループ内分布を表わすことが結論される。そこで ^{92}Y の γ 線測定結果を用いて上記解析モデルによる結論が正しいかどうかの確認を行なった。

^{92}Y は 934.5 KeV にかなり強い γ 線を放出し、半減期は 3.5 時間⁶⁾ で、半減期 2.7 時間の ^{92}Sr の放射壊変により生成してくるので、このピークを用いかつ S/N 比のよい照射終了後の γ 線スペクトルを用いて ^{92}Y のループ内分布を求めた。解析の対象

*) Table 2-4 ではループ全長は 44.05 m であるが、ここでは、ループ全体がディレイライン配管 (内径 0.94 cm) と同じ配管できているとみなし、循環系内ナトリウム量 (3979 cm³) を前記配管断面積 (0.69 cm²) で割った値を全長とした。

とした実験は、 ^{92}Sr と同様に実験No 19, 20, 21, 22, 24, 25, 27, 28, 29, 30, 32, 33の12の照射試験である。

Fig 5 - 6 に ^{92}Y の γ 線測定で求めたループ内沈着分布を統計誤差とともに示す。統計誤差は ^{92}Sr に比べるとかなり大きい、沈着分布は ^{92}Sr の場合と非常によく似ている。尚計数率には、 ^{92}Sr の放射壊変で生成してくる量と ^{92}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}Y のループ内分布を ^{92}Sr のループ内分布とみなし、前述した解析方法により沈着速度定数 K_d 値を求めた。Fig 5 - 6 中にてはめの結果を実線で示し、得られた解析値の K_d を前報の結果を含めて⁴⁾まとめて Table 5 - 5 に示す。これらの K_d 値と ^{92}Sr の分布から求めた K_d 値を比較した結果、両者はかなりよく一致し、 ^{92}Y の沈着分布は ^{92}Sr の沈着分布と一致するという解析モデルから得られた結論が正しいことが証明された。

また照射終了後のナトリウム循環中の測定データから、 ^{92}Y の脱着による再分配が起っているかどうか確認した結果、少なくとも40時間の循環中には脱着は起っていないことが結論された。

6) ^{94}Y の γ 線測定結果から求めた ^{94}Sr の沈着挙動 (沈着パターン D)

^{94}Y のループ内分布は、 ^{92}Y と同様、沈着パターン D に相当し ^{94}Sr のループ内分布を示すと考えられる。 ^{94}Y は 918.8 KeV に非常に強い γ 線を放出するのでこのピークを用いてループ内分布を⁶⁾求める。 ^{94}Y の半減期は19分であるので照射中の γ 線スペクトルをデータ解析に用いる。解析の対象とする実験は、実験No 19, 20, 21, 22, 24, 25, 28, 29, 30, 32, 33の11の照射試験である。

Fig 5 - 7 に ^{94}Y の γ 線測定で求めたループ内沈着分布を統計誤差とともに示す。 ^{94}Y のループ内沈着分布は ^{94}Sr の沈着分布と非常によく似ている。この ^{94}Y のループ内分布を ^{94}Sr のループ内分布とみなし、前述した解析方法により沈着速度定数 K_d 値を求めた。Fig 5 - 7 中にてはめの結果を実線で示し、得られた解析値の K_d を前報の結果を含めて⁴⁾まとめて Table 5 - 6 に示す。これらの K_d 値と ^{94}Sr の分布から求めた K_d 値と比較した結果、 ^{94}Y から求めた値の方が全般的に小さい値を示したがその差は余り大きくなく、 ^{94}Y の沈着分布も親核種である ^{94}Sr の沈着分布と一致することがわかった。

7) Sr の沈着挙動のまとめ

前報と同様に Sr 同位体の沈着速度定数 K_d の温度依存性を調べた。その結果 (Arrhenius プロット) を各 Sr 同位体毎に Fig 5 - 8 に示す。掲載した Sr 同位体の順序は、 ^{92}Sr , ^{94}Sr , ^{93}Sr , ^{91}Sr , ^{92}Sr (^{92}Y), ^{94}Sr (^{94}Y) である。尚原則としてナトリウム流速が 1.2 m/sec (白丸) と 0.24 m/sec (黒丸) の場合の K_d 値を図示したが、 ^{94}Sr については 0.48 m/sec (⊗印) の場合も図示し、一方 ^{91}Sr は 0.24 m/sec の場合のみを図示した。まず ^{92}Sr の Arrhenius プロットでは、流速 1.2 m/sec および 0.24 m/sec の場合に各々の流速において K_d 値が絶対温度の逆数に対して非常によい直線関係にあることがわかった。 ^{92}Sr の沈着速度定数の温度依存性を示す直線を各々の流速について図中に実線で示す。

前報でも述べたようにこの直線の勾配から沈着の活性化エネルギーの算出を行なう。一般に反応速度は Arrhenius 式で表わされる。すなわち沈着速度定数 K は、

$$K = K_0 \cdot \exp(-E_0/RT)$$

となる。ここで、 K_0 は頻度因子 (cm/sec), E_0 は活性化エネルギー (J/g-atom), R は気体定数 (J/deg/g-atom), T は絶対温度 (K) である。そこで直線の勾配をもとに $R = 8.32$ として E_0 を算出し、 9.2 ± 0.3 (KJ/g-atom) の値を得た。この値は、前報の値と比較するとやや低目である。

尚本図中には、高酸素濃度実験 (実験 No. 27 ~ 30) および温度勾配実験 (実験 No. 22 および 25) の解析結果も図示されているが、温度依存性を示す直線上に乗っており、ナトリウム中の高濃度酸素およびループ配管上の温度勾配は、Sr の沈着挙動に何らの影響も与えないことが結論された。参考のため ^{92}Sr の沈着速度定数の温度依存性を表わす直線を、他の同位体の Arrhenius プロット図中に実線で示す。 ^{94}Sr の 1.2 m/sec の場合には、 ^{92}Sr の温度依存性を表わす実線と非常によい一致を示しているが、0.24 m/sec の場合には全般的に ^{94}Sr の値の方が小さくなった。そこで参考のため ^{94}Sr の 0.24 m/sec の場合の温度依存性を破線で示す。また ^{94}Sr の 0.48 m/sec の場合の温度依存性も破線で示す。 ^{93}Sr の場合には、1.2 m/sec, 0.24 m/sec とともに実線で示した ^{92}Sr の温度依存性とかなりよい一致を示した。一方 ^{91}Sr の場合には実線で示した ^{92}Sr の温度依存性とは一致せず、かなり低目の値になった。Table 5 - 7 に Sr の沈着速度定数をまとめて示す。

4) 前報でも述べたように沈着速度定数Kは、円管における物質移動係数 k_L (cm/sec)と直接比較することができる。Treybal¹¹⁾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、次式で与えられる。

$$k_L = 0.023 \cdot Re^{0.83} \cdot Sc^{0.33} \cdot D/d \quad (5-10)$$

ここで、Re, Scは各々レイノルズ数(-), シュミット数(-)で、Dは拡散係数(cm^2/sec), dは円管の内径(cm)である。またRe, Scは、ナトリウムの粘性係数 μ (g/cm/sec)および密度 ρ (g/cm³)を用いて、

$$Re = \frac{v \cdot d}{\mu/\rho} \quad (5-10a)$$

$$Sc = \frac{\mu}{\rho \cdot D} \quad (5-10b)$$

で表わされる。ここにvはナトリウムの流速(cm/sec)である。前報でも述べたようにDとしてはStokes-Einstein¹²⁾の式を用いるのが妥当である。すなわち

$$D = \frac{k \cdot T}{6\pi\mu r} \quad (5-11)$$

で、kはボルツマン定数(erg/K), Tは絶対温度(K), rは拡散する物質の半径(cm)である。そこで前報と同様に⁴⁾rとしてSr²⁺のイオン半径である 1.3×10^{-8} (cm)の値を用いて(5-11)式よりDを計算し、更に(5-10a)および(5-10b)式によってRe, Scを計算し、最後に(5-10)式により k_L を計算して、実験で得られた沈着速度定数Kと一致させるための補正係数である沈着係数S(-)を、 $K = S \cdot k_L$ の関係式から算出した。算出されたSの値を各Sr同位体および流速毎にTable 5-8に示す。この結果、算出されたSの値は、ナトリウム温度および流速にほとんど無関係に一定の値をとることがわかった。このことから、Srの沈着速度は、配管内壁近傍のナトリウム中境界層を通過するSr核種の拡散によって支配されていることが結論される。

5.4 Y, Zr および Nb の沈着挙動の解析

前報でも述べたように⁴⁾ Yには、それ自身の沈着挙動を解析するための適当な同位体がない。そこで、⁹⁷Zr および ⁹⁷Nb のループ内分布から、その先行核種である ⁹⁷Y の沈着挙動を解析する。尚、Zr には ⁹⁷Zr 以外に適当な核種がない。また Nb にも ⁹⁷Nb 以外に適当な核種がなく、Zr および Nb の沈着挙動は、各々 ⁹⁷Zr および ⁹⁷Nb のループ内分布より求める。

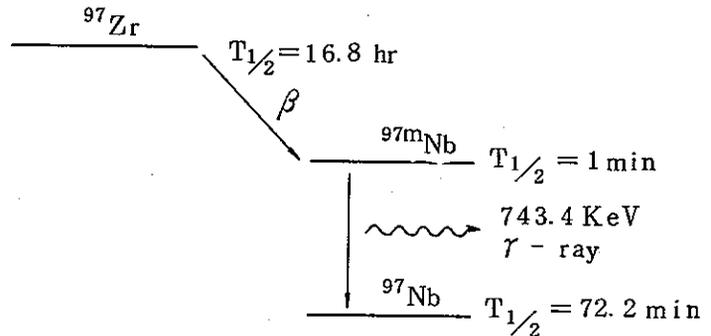
1) ⁹⁷Y および ⁹⁷Zr の沈着挙動の解析 (沈着パターン C)

Fig 5 - 1 のフィッシュンチェーンにみられるように、⁹⁷Zr は全生成量の 83.2 %^{*)}が、Zr の親核種である ⁹⁷Y の放射壊変で生成する。ところで ⁹⁷Y は半減期が 3.7 秒のため⁶⁾、ナトリウムが照射試料から γ 線計測点に到達するまでに充分の量の ⁹⁷Zr が生成してくるので沈着パターン C に属する。従って ⁹⁷Zr のループ内分布は、⁹⁷Y と ⁹⁷Zr の沈着挙動の組み合せた結果を示していると考えられ、⁹⁷Zr のループ内分布から、Y と Zr の沈着挙動の解析を行なうことができる。尚 ⁹⁷Y は、解析に適当な γ 線を放出しない。

⁹⁷Zr は 743.4 KeV⁶⁾ にかなり強い γ 線を放出する。そこでこのピークを用いて ⁹⁷Y および ⁹⁷Zr の沈着挙動の解析を行なう。⁹⁷Zr は半減期が 16.8 時間⁶⁾であるので、沈着挙動の解析には短半減期 FP が減衰して S/N 比が向上した照射終了後の γ 線測定データを用いる。沈着挙動の解析の対象とした実験は、実験 No 19, 20, 21, 22, 24, 25, 27, 28, 29, 30, 32, 33 の 12 の照射試験である。⁹⁷Zr のループ内沈着分布を統計誤差とともに Fig 5 - 9 にナトリウム温度、流速をパラメーターとして示す。尚参考のために実験 No 16 の結果も示す。図中実験 No 21, 32, 20, 33, 16 では同一の実験 No で 2 種類のループ内分布の図があるが、これは、ナトリウム循環中とナトリウムドレン後の γ 線測定結果を示すためである。例えば実験 No 32 および 16 については、ナトリウム循環中のデータの方が、ナトリウムドレン後のデータより全般的に計数率が高く、かつ実験点の勾配もゆるやかである。そこで、743.4 KeV のピークについて、他の FP (特にナトリウムに溶解して存在する半減期が 1 時間以上の揮発性 FP) の γ 線による妨害を検討したが⁶⁾、該当する核種は ⁹⁷Zr 以外にない結果となった。そこでこの γ 線の素状について調査した結果、743.4 KeV ピークは右図の ⁹⁷Zr の放射壊変図に

*) ⁹²Sr の項の脚註参照

示したように、 ^{97}Zr の β 壊変で生成した半減期1分の $^{97\text{m}}\text{Nb}$ が、基底状態の ^{97}Nb に遷移するときに放出される γ 線であることがわかった。



すなわち前報でも述べたように⁴⁾ Nbは高温のナトリウム中では溶解性であることから、壁面に沈着していた ^{97}Zr の β 壊変で生成した $^{97\text{m}}\text{Nb}$ が、寿命(半減期1分)の間に壁

面を離れてナトリウム中に溶解しながら743.4 KeVの γ 線を放出するために、ナトリウム循環中とドレン後で、計数率の差および実験点の勾配に差が生じたものと推定される。一方、実験No 20, 21のような低温ナトリウムの実験では(ともに170℃)、ナトリウム循環中とドレン後で計数率および実験点の勾配に差がなく、以下に述べる解析結果でも、循環中とドレン後で ^{97}Zr の沈着速度定数に差がなかったことから、ナトリウム温度が170℃であれば、 ^{97}Zr から放射壊変で生成した $^{97\text{m}}\text{Nb}$ は、少なくとも寿命期間中には脱着を起こさず壁面にとどまって移動しないことが推定される。

尚、Fig 5-9を覗めると、特に実験No 28, 33の結果が注目される。実験No 28は、高酸素濃度実験(12 ppm)のナトリウム循環中およびドレン後の γ 線測定データを同時に1つの図に示したものであるが、その他のループ内分布と顕著に異なり、ループ全体にほぼ均一に分布している図が得られた。これは明らかにナトリウム中の高濃度酸素が ^{97}Zr の沈着挙動に非常に大きな影響を与えていると考えられ、Zrの脱着による再分配が顕著に起っていることが推定される。また前報でも指摘したように⁴⁾、低酸素濃度ナトリウム(1 ppm, 通常の実験条件)中でも前記例のように顕著ではないがZrの脱着による再分配の可能性はある。例えば実験No 16の右側の図(Fig 5-9の18))と実験No 33の右側の図(Fig 5-9の16))を比較した場合、両者ともにナトリウムドレン後の測定結果であるが、実験点の勾配に顕著な差がみられる。実験No 16は、照射終了後18.5時間ナトリウムを流速0.24m/secで循環させた後ナトリウムをドレンして測定したのに対し、実験No 33では、照射中は流速0.24m/secで実験

Na 16と同一の条件であったが、照射終了後に流速を 1.2 m/sec としかつ循環時間を 41 時間としてナトリウムドレン後に γ 線測定を行なっている。ナトリウムの循環時間を延長し、かつ流速を速めることによりループ内分布の平坦化が進行したことから、 Zr の脱着による再分配は明らかに起っていると結論される。

上述したように ^{97}Zr の挙動は Sr のようには単純でないことが結論されたが、実効的な沈着速度定数を求めることは、それなりに意味があると考えられるので、沈着した FP は脱着が起らないと仮定した前記解析モデルを用いて、 ^{97}Zr の実効的な沈着速度定数を求めた。すなわち、 ^{97}Y と ^{97}Zr の沈着速度定数 K_p 、 K_d をパラメータとし、(5-8)、(5-9) 式を用い、非線型最小 2 乗法により実験結果と解析モデルのあてはめを行ない、最適あてはめを与える K_p 、 K_d の値を求めた。Fig 5-9 中にはあてはめの結果を実線で示す。実験値と解析結果は、どの実験についても非常によく一致した。実験 Na 28 は、 ^{97}Zr がループに均一に分布しているので解析はできない。解析で得られた ^{97}Y と ^{97}Zr の沈着速度定数を Table 5-9 に前報の結果を含めてまとめ示す。尚流速が 0.24 m/sec の場合、 ^{97}Y の沈着速度定数を考慮した非線型の最小 2 乗法では収束解が求まらない。 ^{97}Y は半減期が 3.7 秒であり、流速が 0.24 m/sec の場合には、照射試料部で生成した ^{97}Y が流動ナトリウムによって最初の計測点に到達するまでに 27 秒かかるため十分に減衰している。従って ^{97}Y の影響を無視して、(5-2) 式による線型の最小 2 乗法により ^{97}Zr の沈着速度定数のみを求めたために、 ^{97}Y の沈着速度定数の解析解は記載していない。この表からも、前述したような ^{97}Zr の沈着挙動の特異性が読みとれる。

尚 Fig 5-9 の実験 Na 30 において黒丸で表わされている点は、解析結果 (実線) とかなりずれている。この点は、ナトリウムドレン直後の配管を測定した結果であるが、743.4 KeV の γ 線ピークは、半減期 42 分の揮発性 FP である ^{134}Te のピークと重なる。⁶⁾ しかも実験 Na 30 は高酸素濃度実験であることから、温度 270°C で高酸素濃度の場合には、Te の一部は壁面に吸着することが推定される (実験 Na 24 ではこのような現象はみられない)。従って Te の吸着挙動もナトリウム中の高濃度酸素のために影響を受けることが推定される。

2) ^{97}Nb の γ 線測定結果から求めた ^{97}Y および ^{97}Zr の沈着挙動 (沈着パターン D)

^{97}Nb は 657.9 KeV にかなり強い γ 線を放出する。⁶⁾ 半減期は 72.2 分であり、99% 以

上が ^{97}Zr (半減期 16.8 時間) の壊変で生成するため、S/N 比のよい照射終了後の γ 線測定データを用いて ^{97}Nb のループ内分布を求めた。Fig 5 - 10 に ^{97}Nb のループ内分布を統計誤差とともに示す。ループ内分布を求めた実験は、 ^{97}Zr の場合と全く同じである。更に実験 No 21, 32, 20, 33 では、 ^{97}Zr と同様にナトリウム循環中とドレン後の γ 線測定結果をそれぞれ別々に求めた。また参考のために前報で報告した⁴⁾ 実験 No 16 について、ナトリウム循環中とドレン後の測定結果を示す。

前報において Nb はナトリウムに溶解性であるという結論を得たが、⁴⁾ 実験 No 16, 32, 33 のナトリウム循環中とドレン後でループ内分布が大きく異なることとループ中にほぼ均一に分布することから、今回の照射試験でも同様の結論を得た。尚、実験 No 32, 33 のナトリウム循環中のループ内分布において、照射試料部から 25 m の距離から以降で計数率が上昇しているのがみとめられる。しかしこの理由については不明である。

Nb は高温ナトリウム中で溶解性であるが、ナトリウムをループからドレンした後では、壁面に沈着している ^{97}Zr の放射壊変でのみ生成してくるため (^{97}Zr の方が半減期が長い)、ナトリウムドレン後のループ内分布のデータは、親核種である ^{97}Zr のループ内分布を示していると考えられる。そこで、 ^{97}Nb のループ内分布を ^{97}Zr の沈着分布とみなし (沈着パターン D)、 ^{97}Zr と同様の方法で、 ^{97}Y および ^{97}Zr の沈着速度定数の算出を行なった。解析結果を Table 5 - 10 に示す。実験 No 28, 32 と実験 No 16 のナトリウム循環中のデータについては解析は行なわなかった。また高酸素濃度実験の実験 No 28 では、循環中とドレン後の計数率を 1 つの図中に同時に示したが、両者の間に差がほとんどないことがわかった。このことから、高温ナトリウム中においても高濃度酸素下では、壁面に沈着していた ^{97}Zr から放射壊変で生成した Nb は、壁面にとどまっていたり少なくとも脱着は起っていないと考えられる。同様な傾向は、通常酸素濃度で低温ナトリウム中 (170 °C) の Nb についてもみられ、循環中およびドレン後で計数率に差がなく (Fig 5 - 10 の 1) 参照)、かつ両者の沈着速度定数の解析値にも差がないことがわかった (Table 5 - 10 参照)。従って Nb は低温ナトリウムおよび高酸素濃度ナトリウム中においては、少なくとも壁面に沈着した ^{97}Zr から生成してきた ^{97}Nb はそのまま壁面にとどまっていると結論される。しかし、上記条件下において、Nb それ自身が沈着挙動を示すかどうかについては、 ^{97}Nb のループ内分布からは結論は得られず、Fission チェーンの前頭に位置する適当な Nb の

同位体を選択してその沈着挙動を解析することが必要である。

3) Yの沈着挙動のまとめ

^{97}Zr および ^{97}Nb の沈着分布から求められた ^{97}Y の沈着速度定数の温度依存性を示す Arrhenius プロットを Fig 5 - 11 に示す。尚、 ^{97}Zr から得られた ^{97}Y の沈着速度定数と ^{97}Nb から得られた ^{97}Y の結果を別々に示す。また図中には ^{92}Sr の沈着速度定数の温度依存性を実線で示す。Zr から求めた ^{97}Y の温度依存性は、高温程大きな値を示す傾向は現われているが、データはかなりばらついている。一方 Nb から求めた ^{97}Y では、一部のデータで大きくはずれるものがあるが、図中に点線で示したように、Sr の温度依存性をほぼ平行移動した形の直線状の温度依存性の関係が得られた。

尚データの誤差が大きいために詳細な沈着挙動に関する議論は不可能であるが、この図からみる限りでは、Y の沈着挙動も Sr と同様に、拡散支配であると推定される。

4) Zr の沈着挙動のまとめ

Fig 5 - 12 に、 ^{97}Zr の沈着速度定数の温度依存性を示す Arrhenius プロットを示す。参考のために ^{97}Nb から得られた ^{97}Zr の沈着速度定数の温度依存性も示す。

更に図中には ^{92}Sr の沈着速度定数の温度依存性を実線で示す。

尚白丸は流速 1.2 m/sec のデータ、黒丸は 0.24 m/sec のデータである。流速が 1.2 m/sec の場合、得られた沈着速度定数は ^{92}Sr の場合とは余りよく一致しないが、350 °C 以下では、200 °C の点を除いて破線に示すように ^{92}Sr の温度依存性と平行な直線上に点が乗ることがわかった。すなわち、350 °C 以下の温度では、Zr の脱着による再分配は起っていないものと推定され、特に 170 °C の実験で、ナトリウム循環中の γ 線測定の数率に経時変化がみられないことから推定できる (Fig 5 - 9, 1), 2) 参照)。

複雑な Zr の沈着挙動をまとめると以下のようになる。

- ① 350 °C 以下の低温ナトリウム中では、顕著な脱着による再分配は起ってはず、拡散支配の沈着挙動を示す。
- ② 350 °C 以上では、脱着による再分配が起こり、ループ内の沈着分布はナトリウム循環時間の増加に伴い、平坦化する。
- ③ ナトリウム中の高濃度酸素 (12 ppm) は、Zr の沈着挙動に大きな影響を与え、脱着による再分配の速度も大きくなる。

以上述べたように Zr はナトリウム温度，酸素濃度等の因子により特異な沈着挙動を示すことが結論された。

5) Nb の挙動のまとめ

^{97}Nb のループ内分布からは，直接に Nb のナトリウム中の沈着挙動を求めることはできないが，間接的な事実から Nb の挙動についてまとめると以下のとおりである。

- ① 高温ナトリウム中では Nb は溶解性である。
- ② 低温ナトリウム中では溶解性ではなくなり，壁面に沈着した Zr の放射壊変で生成する Nb は，壁面にとどまっている。
- ③ 高酸素濃度ナトリウム中でも，②と同様の挙動をすることが推定される。

以上述べたように Nb も，ナトリウム温度，酸素濃度等の因子により特異的な挙動を示すが，Nb のナトリウム中の沈着挙動を求めるには， ^{97}Nb 以外の同位体を用いるか，Nb を親核種とする適当な娘核種を用いて解析を行なう必要がある。

5.5 Ba の沈着挙動の解析

前報でも述べたように⁴⁾，Ba の沈着挙動解析の対象とした同位体は， ^{142}Ba である。

更に 5.2 節で述べたように，親，娘の両核種ば沈着性の場合には娘核種の沈着挙動は親核種の沈着挙動を表わすので（沈着パターン D）， ^{142}La の γ 線測定結果より ^{142}Ba の沈着挙動を求めてこの節に記載する。

1) ^{142}Ba の沈着挙動（沈着パターン B）

^{142}Ba は γ 分岐率の高いピークを多数放出するが，他の FP の γ 線の妨害を受けるものが多い。その中で 255.1 KeV の γ 線ピーク⁶⁾ は比較的妨害を受けにくいので，このピークを用いて ^{142}Ba の沈着挙動の解析を行なう。

^{142}Ba は半減期が 10.65 分である⁶⁾ので，沈着挙動の解析には，照射中の γ 線スペクトルを用いた。沈着挙動の解析の対象とした実験は，実験 Na 19, 20, 21, 22, 24, 25, 28, 29, 30, 32, 33 の 11 の照射試験である。

Fig 5 - 13 に，得られた ^{142}Ba のループ内沈着分布を統計誤差とともにナトリウム温度および流速をパラメータとして示す。統計誤差の非常に大きなデータとなっている。 ^{142}Ba は全生成量の 47.3% が親核種である ^{142}Cs の放射壊変で生成する。

そこで沈着パターンBに属するとして、 C_s の影響を考慮して ^{142}Ba の沈着速度定数を求めた。Fig 5 - 13中にてはめの結果を実線で示す。またTable 5 - 11に、Baの沈着速度定数の値を前報の解析結果も含めてまとめて示す。得られた沈着速度定数は非常に大きな誤差を有している。実験No 28, 29, 30は高酸素濃度実験であるが、得られた沈着速度定数は他の通常の実験で得られた沈着速度定数と大差なく、ナトリウム中の高濃度酸素はBaの沈着挙動に大きな影響を与えないことが結論された。

2) ^{142}La の γ 線測定結果から求めた ^{142}Ba の沈着挙動(沈着パターンD)

^{142}La は全生成量の98.3%が親核種である沈着性の ^{142}Ba からの放射壊変で生成するため、 ^{142}La のループ内分布は、沈着パターンDに属し、 ^{142}Ba のループ内分布を表わすことが結論される。そこで、 ^{142}La の γ 線測定結果を用いて ^{142}Ba の沈着挙動の解析を行なう。

^{142}La は641.2KeVに非常に強い γ 線を放出し、半減期が92.5分であるため、このピークを用いかつS/N比のよい照射終了後の γ 線スペクトルを用いて、 ^{142}La のループ内沈着分布を求めた。解析の対象とした実験は、実験No 19, 20, 21, 22, 24, 25, 27, 28, 29, 30, 32, 33の12の照射試験である。Fig 5 - 14に ^{142}La の γ 線測定で得られたループ内沈着分布を統計誤差とともに示す。統計誤差は ^{142}Ba と比較するとかなり小さく、沈着分布も ^{142}Ba と非常に類似している。この ^{142}La のループ内分布を ^{142}Ba のループ内分布とみなし、前述した解析方法によって ^{142}Ba の沈着速度定数を求めた。

Fig 5 - 14中にてはめの結果を実線で示し、得られた沈着速度定数の値を前報の結果も含めてまとめてTable 5 - 12に示す。これらの速度定数を ^{142}Ba の γ 線測定で得られた結果と比較すると、両者はかなりよく一致した。これにより ^{142}La の場合も、 ^{142}Ba の沈着分布を表わしていることが証明された。

3) Baの沈着挙動のまとめ

Fig 5 - 15に ^{142}Ba の沈着速度定数の温度依存性を表わすArrheniusプロットを示す。参考のために ^{142}La から得られた ^{142}Ba の沈着速度定数の温度依存性も示す。更に図中には ^{92}Sr の沈着速度定数の温度依存性を実線で示す。尚白丸は流速1.2m/secのデータ、黒丸は0.24m/secのデータである。 ^{142}Ba から得られたデータは誤差が非常に大きい、 ^{92}Sr の温度依存性とかなりよく一致している。

一方 ^{142}La から得られたデータのうち流速 1.2 m/sec のデータは誤差も小さく、点群もある傾向をもって並んでいる。図中の ^{92}Sr の温度依存性の実線と 350°C 以下の温度では完全に一致している。但し、 420°C 以上では上記実線から外れているのがわかる。すなわち ^{97}Sr の場合と同様に 350°C 以下では沈着は拡散支配となるが、 350°C 以上では脱着による再分配の過程が重要な役割を果すようになり、拡散支配の沈着速度よりも実効的な沈着速度が小さくなるものと考えられる。

5.6 La の沈着挙動の解析

前報でも述べたように、 ^{144}La の沈着挙動解析の対象とした同位体は、 ^{144}La である。そこで ^{144}La の γ 線測定結果を用いて La の沈着挙動の解析を行なう。

1) ^{144}La の沈着挙動

^{144}La は 397.3 KeV にかなり強い γ 線を放出する。そこでこのピークを用いて ^{144}La の沈着挙動の解析を行う。

^{144}La は半減期が 39.9 秒であるので、沈着挙動の解析には、照射中の γ 線スペクトルを用いた。沈着挙動の解析の対象とした実験は、実験 No. 21, 24, 28, 29, 30, 31, 32 のナトリウム流速が 1.2 m/sec の 7 個の照射試験である。尚 ^{144}La の 397.3 KeV のピークは、低流速になると他の FP 核種の妨害を強く受けるため、解析は 1.2 m/sec の流速の実験に限定した。

Fig 5 - 16 に、得られた ^{144}La のループ内沈着分布を統計誤差とともにナトリウム温度順に示す。 ^{144}La は、全生成量の 73% が親核種である ^{144}Ba の放射壊変で生成する。 ^{144}Ba は半減期が 11.9 秒であるため、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 23.5 秒の間に、 ^{144}Ba の $3/4$ が壊変して ^{144}La が生成する。そこで ^{144}Ba が沈着性であることから沈着パターン C に属するとして ^{144}Ba および ^{144}La の沈着速度定数 K_p , K_d をパラメーターとし、Zr の場合と同様に (5 - 8), (5 - 9) 式を用いて非線型最小 2 乗法により解析結果と実験結果のあてはめを行なった。しかし計算の結果、収束性が悪く、また ^{144}La の実験値が非常に大きな統計誤差を含んでいるため、得られた K_p , K_d 値は 100% 近い誤差を含む結果となった。そこで、 ^{144}Ba の沈着速度定数の K_p には ^{142}Ba の解析で得られた値を用い、 ^{144}La の K_d のみをパラメーターとして、(5 - 8), (5 - 9) 式を用いて解析を実施した。その結果を Table 5 - 13 に示す。

得られた沈着速度定数は非常に大きな誤差を含んでいるが、Baの沈着速度定数と余り差のない結果が得られた。また実験No. 28, 29, 30の高酸素濃度実験の K_d 値は、通常の酸素濃度の実験の K_d 値と大差なく、ナトリウム中の高濃度酸素はLaの沈着挙動に大きな影響を与えないことが結論された。

2) Laの沈着挙動のまとめ

Fig 5 - 17に ^{144}La の沈着速度定数の温度依存性を表すArrheniusプロットを示す。参考のために ^{92}Sr の沈着速度定数の温度依存性を実線で示す。

^{144}La の K_d 値は、 ^{92}Sr の値とよく一致するものもあるが、170℃の場合は、 ^{92}Sr より小さい値を示した。得られたデータの精度があまりよくないために正確な議論はできないが、ナトリウムが高温程沈着速度が大きくなる傾向は明瞭に現われている。尚、前記したように ^{144}La のピークは、他のFPの妨害を受け易いため、精度の良い沈着分布データを得るためには、大型計算機によるγ線スペクトル解析（ピーク解析）等の数学的テクニックを利用して、ピークを分離する操作が必要であろう。

5.7 解析モデルの検討

5.6節までに述べてきたようにSrについては、170から530℃の温度範囲で拡散律速による解析モデルが適用できることがわかったが、Zr, Nb, Ba, Laについてはナトリウム温度が300℃以下の低温では拡散律速による解析モデルが適用できるが、高温になると脱着現象が明瞭に現われるようになり、拡散律速モデルではその沈着挙動を完全に表わすには不適當であることがわかった。そこで、FPの吸、脱着を考慮したモデルにより、Zr, Ba等のFP核種の沈着挙動を定性的に検討する。まず物質移動モデルを述べ、次に物質移動モデルを基本としたFPの輸送モデルを述べて、最後に考察を行なう。

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 ($\text{atoms}/\text{cm}^2/\text{sec}$) は、熱伝達のア
ナロジーによる物質移動モデルより、¹¹⁾

$$j = S \cdot k_L \cdot (\bar{C} - C_s) \quad (5-12)$$

で表わされる。ここに、

\bar{C} : ナトリウムのパルクな流れ中のFP核種の濃度 (atoms/cm^3)

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

k_L : 物質移動係数 (cm/sec)

S : 沈着 (スティッキング) 係数 (dimension less, Table 5-8 に示されて
いる係数)

で表わされ、 k_L は (5-10) 式と同じである。

2) FP核種のナトリウム中での輸送モデル

前記物質移動モデルを基本として、FP核種の壁面への吸、脱着現象を輸送モデル
に導入する。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濃度分布を示す。 j , \bar{C} ,

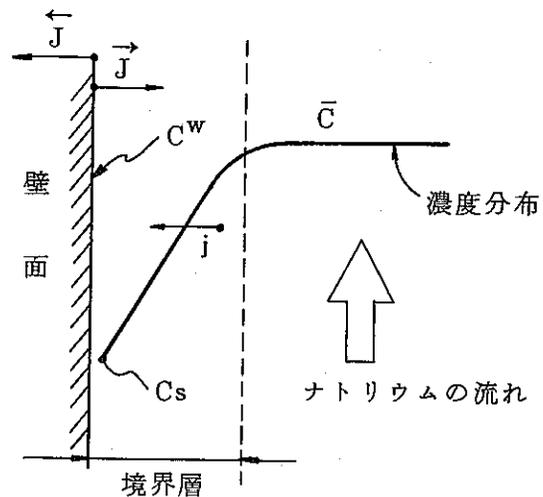
C_s は前記で定義したパラメ
ターである。

ここで新たに \overleftarrow{J} , \overrightarrow{J} , C^w の
新しいパラメーターを導入する。

\overleftarrow{J} は、FPが壁面に吸着する
速度を、 \overrightarrow{J} は、FPが壁面から
脱着する速度を表わし、それぞ
れ以下のように書ける (Lang-
muir モデル)。吸着速度 \overleftarrow{J}
($\text{atoms}/\text{cm}^2/\text{sec}$) は、

$$\overleftarrow{J} = \overleftarrow{k} \cdot C_s \quad (5-12a)$$

脱着速度 \overrightarrow{J} ($\text{atoms}/\text{cm}^2/\text{sec}$) は、



$$\vec{J} = \vec{k} \cdot C^W \quad (5-12b)$$

ここで,

\overleftarrow{k} : 吸着速度定数 (cm/sec)

\overrightarrow{k} : 脱着速度定数 (sec⁻¹)

C^W : 壁面のFP核種の濃度 (atoms/cm²)

であり, j , \overleftarrow{J} , \overrightarrow{J} の間には, 次の関係が成立する。

$$j = \overleftarrow{J} - \overrightarrow{J} \quad (5-12c)$$

これをナトリウム中FPの輸送現象に適用すると,

$$\frac{d\bar{C}}{dt} = -\frac{\ell}{a} j - \lambda \cdot \bar{C} \quad (5-13)$$

ここで, $\ell = 2\pi r$, $a = \pi r^2$ (r は円管の半径), λ は壊変定数である。 \bar{C} のループに沿った濃度変化は, ナトリウムの流れ方向のみであるから, その方向を x とすると上式は,

$$\frac{d\bar{C}(x, t)}{dt} = \frac{\partial \bar{C}(x, t)}{\partial t} + \frac{\partial \bar{C}(x, t)}{\partial x} \cdot \frac{dx}{dt} \quad (5-13a)$$

とかける。ここで短半減期のFPの場合に限って議論をすると, 短半減期FPの放射能は照射開始後すみやかに飽和に達するから, 上式の $\partial \bar{C} / \partial t = 0$ とおけて, \bar{C} は x のみの関数となり,

$$\frac{d\bar{C}(x)}{dx} = -\frac{\ell}{av} j - \frac{\lambda}{v} \bar{C}(x), \quad \left(\frac{dx}{dt} = v\right) \quad (5-14)$$

となる。一方壁面の濃度 $C^W(x, t)$ は,

$$\frac{\partial C^W(x, t)}{\partial t} = \overleftarrow{J} - \overrightarrow{J} - \lambda \cdot C^W(x, t) = j - \lambda C^W(x, t) \quad (5-15)$$

となるが, 短半減期FPのみを考慮すれば壁面の濃度もすみやかに飽和に到達するから $\partial C^W / \partial t = 0$ となり, 上式から

$$j = \lambda \cdot C^W(x) \quad (5-16)$$

が導びかれる。(5-12a), (5-12b)式を代入し, (5-16)式と組み合わせ

ると,

$$C^W(x) = \frac{\overleftarrow{k}}{\lambda + \overrightarrow{k}} \cdot C_S(x) \quad (5-17)$$

となり, K^W なる定数を導入して,

$$C^W(x) = K^W \cdot C_S(x) \quad (5-17a)$$

と書く。ここに,

$$K^W = \frac{\overleftarrow{k}}{\lambda + \overrightarrow{k}} \quad (5-17b)$$

である。そこで (5-12), (5-14), (5-17a) 式を連立させて $C_S(x)$ を消去すると,

$$\frac{d\bar{C}(x)}{dx} = -\frac{\lambda}{v} \left\{ \frac{S \cdot k_L \cdot K^W}{\lambda \cdot K^W + S \cdot k_L} \cdot (\ell/a) + 1 \right\} \cdot \bar{C}(x) \quad (5-18)$$

となる。そこで,

$$\alpha' = \frac{\lambda}{v} \left\{ \frac{S \cdot k_L \cdot K^W}{\lambda \cdot K^W + S \cdot k_L} \cdot (\ell/a) + 1 \right\} \quad (5-18a)$$

とおくと, (5-18) 式は,

$$\frac{d\bar{C}(x)}{dx} = -\alpha' \cdot \bar{C}(x) \quad (5-19)$$

となり, $x=0$ (照射試料部) での初期濃度を \bar{C}_0 (atoms/cm³) として,

$$\bar{C}(x) = \bar{C}_0 \cdot e^{-\alpha' \cdot x} \quad (5-20)$$

と解けて, (5-2) 式と全く同じ形になる。

一方壁面の濃度 $C^W(x)$ は, (5-12), (5-16), (5-17a) から $C_S(x)$ を消去して,

$$C^W(x) = \frac{S \cdot k_L \cdot K^W}{\lambda \cdot K^W + S \cdot k_L} \cdot \bar{C}(x) \quad (5-21)$$

となる。この係数を分配係数 K_a (cm) と定義すると,

$$C^W(x) = K_a \cdot \bar{C}(x) \quad (5-21a)$$

となる。

3) 上記モデルと沈着速度定数との関係

これまで述べてきた沈着速度定数 K (cm/sec) は, (5-1) 式より,

$$\frac{dC(x)}{dx} = -\frac{K \cdot (\ell/a) + \lambda}{v} C(x) = -\alpha \cdot C(x) \quad (5-22)$$

で表わされた。この α を (5-18a) 式で定義された α' と比較して整理すると,

$$K = \lambda \cdot \left\{ \frac{S \cdot k_L \cdot K^W}{\lambda \cdot K^W + S \cdot k_L} \right\} \quad (5-23)$$

という関係になることがわかる。ここで特に問題となるのは, FPの脱着挙動についてである。そこで(5-23)式に以下の近似を導入したときに沈着速度定数 K が k_L , K^W , λ , \vec{k} , \overleftarrow{k} 等を用いてどのように書き表わされるかを検討する。尚, k_L , \vec{k} , \overleftarrow{k} はともに温度 T (K) の関数であり, 吸着, 脱着が素反応であるとすれば, \vec{k} , \overleftarrow{k} はともに, Arrhenius 型の

$$\vec{k}(T) = \vec{k}_0 \cdot \exp\left(-\frac{\vec{E}}{RT}\right) \quad (5-24a)$$

および,

$$\overleftarrow{k}(T) = \overleftarrow{k}_0 \cdot \exp\left(-\frac{\overleftarrow{E}}{RT}\right) \quad (5-24b)$$

と書ける。ここに \vec{k}_0 , \overleftarrow{k}_0 は頻度因子, \vec{E} , \overleftarrow{E} はそれぞれの反応速度の活性化エネルギーである。しかし, ナトリウム中FPの \vec{k} , \overleftarrow{k} の値は求められていない。

従って, FPのナトリウム中での沈着挙動を定量的に解析するためには, 未知の \overleftarrow{k}_0 , \vec{k}_0 , \overleftarrow{E} , \vec{E} の値を求める必要がある。

① $\overleftarrow{k} \gg \lambda$, k_L , \vec{k} の場合

この条件は, 吸着速度が非常に速い場合に成立する。上記条件であれば, (5-17b) 式より $K^W \gg 1$ となるから, この関係を (5-23) 式に代入すると,

$$K \cong \lambda \cdot \left\{ \frac{S \cdot k_L(T)}{\lambda + (S \cdot k_L(T)/K^W)} \cong S \cdot k(T) \right\} \quad (5-24c)$$

となり, 拡散支配モデルと一致する。すなわち沈着速度は拡散律速モデルに従うことになる。尚 Table 5-8 に示されるように, S は 0.7 程度の値である。

② $\lambda \gg \vec{k}$ の場合

この条件は, 脱着速度が非常に小さい場合に成立する。このときには,

(5-17b)式より $K^W \cong \overleftarrow{k}/\lambda$ と書けるから、これを(5-23)式に代入すると、

$$K \cong \frac{S \cdot k_L(T) \cdot \overleftarrow{k}(T)}{\overleftarrow{k}(T) + S \cdot k_L(T)} \quad (5-24d)$$

となる。尚、 $\overleftarrow{k} \gg k_L$ ならば、①の場合と同様に $K \cong S \cdot k_L(T)$ となる。

S_r の沈着挙動は、①あるいは②の $\overleftarrow{k} \gg k_L$ の場合に相当する。しかし \overleftarrow{k} が k_L と同程度である場合には、 K の値を用いて $\overleftarrow{k}(T)$ を上式により算出することができる (k_L は(5-10)式から算出可能)。

③ $\lambda \ll \overrightarrow{k}$ の場合

この場合は、脱着速度が非常に大きいことを意味し、高温ナトリウム中での揮発性FP (Br, Kr, I, Xe等) の挙動に相当する。このときには、(5-17b)式より $K^W \cong \overleftarrow{k}(T)/\overrightarrow{k}(T)$ となるから、 $\overrightarrow{k}(T)$, $\overleftarrow{k}(T)$ を書き直して、

$$K^W \cong \frac{\overleftarrow{k}_0 \cdot \exp(-\overleftarrow{E}/RT)}{\overrightarrow{k}_0 \cdot \exp(-\overrightarrow{E}/RT)} = \overline{k}_0 \cdot \exp(-\overline{E}/RT) \quad (5-24e)$$

と書けるから、 \overline{k}_0 , \overline{E} を新しいパラメーターとすればよい。ここに、

$$\overline{k}_0 = \frac{\overleftarrow{k}_0}{\overrightarrow{k}_0}, \quad \overline{E} = \overleftarrow{E} - \overrightarrow{E} \quad (5-24f)$$

である。

これまででは、近似が可能であった例を述べてきたが、実際の場合には、このように簡単にはいかない。しかし上記検討の結果から、Zr, Ba等の沈着速度定数 K の温度依存性について、次のような定性的な解析が行なえる。

まず、Zrについてであるが、ナトリウム温度が300℃以下では(200℃の例を除く)、沈着速度定数の点が拡散律速を示す直線状に乗ることから、低温ナトリウム中では、上記近似の①あるいは②の $\overleftarrow{k} \gg k_L$ が成立しており、一方、ナトリウム温度が300℃以上になるにつれて \overrightarrow{k} の値が大きくなるために、拡散律速モデルからはずれるものと考えられる。尚前記した(5-14)式から(5-16)式は、 λ がかなり大きい(半減期が数分までの)核種にのみあてはまるから、 ^{97}Zr のようにループ系内全体が放射平衡に到達していないような核種の場合には(5-14)式が成立しないため、上記の議論は厳密にはあてはまらない。

一方、 ^{142}Ba の場合には半減期が10.65分と比較的短いため、照射中に放射平衡に到達し、(5-14)式以下の議論がすべてあてはまることになる。

そこで、Fig 5 - 15 の ^{142}La から得られた ^{142}Ba の流速 1.2 m/sec での沈着速度定数の温度依存性を示す点群を用いて (5 - 17b), (5 - 23) 式を書き直して、

$$K(T) = \lambda \cdot \left\{ \frac{S \cdot k_L(T) \cdot K^W(T)}{\lambda \cdot K^W(T) + S \cdot k_L(T)} \right\}$$

$$K^W(T) = \frac{\overleftarrow{k}_0 \cdot \exp\left(-\frac{\overleftarrow{E}}{RT}\right)}{\lambda + \overrightarrow{k}_0 \cdot \exp\left(-\frac{\overrightarrow{E}}{RT}\right)}$$

未知数の S , \overleftarrow{k}_0 , \overleftarrow{E} , \overrightarrow{k}_0 , \overrightarrow{E} の 5 つの変数をパラメーターとして非線型の最小 2 乗法による解析を行なうことにより、これら 5 つのパラメーターの値が求まる可能性がある。

5.8 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 は、530 °C から 170 °C の間でその沈着挙動は拡散支配である。
- ② Y も Sr とほぼ等しい沈着挙動を示す。
- ③ Zr は、350 °C 以下の低温ではその沈着挙動は拡散支配であるが、高温になるにつれて脱着による再分配の寄与が大きくなり、実効的な沈着速度は小さくなる。更にナトリウム中の高濃度酸素により脱着による再分配の寄与が非常に大きくなる。
- ④ Nb は、高温のナトリウムに溶解性であるが、低温度および高濃度酸素中ではナトリウムへの溶解性は減少する。
- ⑤ Ba は、350 °C 以下の低温ではその沈着挙動は拡散支配であるが、高温になるにつれて脱着による再分配の寄与が大きくなり、実効的な沈着速度が小さくなるが、再分配による寄与率は Zr 程大きくない。
- ⑥ La は、Ba とほぼ等しい沈着挙動を示す。

尚、今回の照射試験で特に問題となったのは、ナトリウム中の高酸素濃度実験であるが、解析の結果大きな影響を受けたのは Zr と Nb のみであり、他の FP 核種では、低酸素濃度のときとほとんど差がない結果となった。

Table 5 - 1 ^{92}Sr deposition rate constant

Na Flow (m/sec)	Na Temp (°C)	Exp. No	Deposition Rate Constant (cm/sec)
1.20	170	21	$(1.43 \pm 0.10) \times 10^{-2}$
	200	2	$(1.81 \pm 0.07) \times 10^{-2}$
	270	24	$(2.26 \pm 0.07) \times 10^{-2}$
		30*	$(2.09 \pm 0.06) \times 10^{-2}$
	350	3	$(2.90 \pm 0.07) \times 10^{-2}$
		4	$(3.10 \pm 0.07) \times 10^{-2}$
	420	5	$(3.78 \pm 0.21) \times 10^{-2}$
		6	$(3.61 \pm 0.31) \times 10^{-2}$
29*		$(3.35 \pm 0.09) \times 10^{-2}$	
500	7	$(4.20 \pm 0.10) \times 10^{-2}$	
	27*	$(4.04 \pm 0.08) \times 10^{-2}$	
	28*	$(3.90 \pm 0.10) \times 10^{-2}$	
	32	$(4.25 \pm 0.10) \times 10^{-2}$	
530	8	$(4.55 \pm 0.09) \times 10^{-2}$	
0.48	530	19	$(2.11 \pm 0.07) \times 10^{-2}$
0.24	170	20	$(2.77 \pm 0.21) \times 10^{-3}$
	300	25**	$(5.92 \pm 0.18) \times 10^{-3}$
	400	22**	$(8.67 \pm 0.22) \times 10^{-3}$
	500	33	$(1.16 \pm 0.05) \times 10^{-2}$
	530	14	$(1.26 \pm 0.03) \times 10^{-2}$
16 ⁺		$(1.31 \pm 0.10) \times 10^{-2}$	
16 ⁺⁺		$(1.21 \pm 0.04) \times 10^{-2}$	

- * higher oxygen concentration experiment
- ** temperature gradient experiment
- + measured during irradiation
- ++ measured after irradiation

Table 5 - 2 ⁹⁴Sr deposition rate constant

Na Flow (m/sec)	Na Temp (°C)	Exp. No	Deposition Rate Constant (cm/sec)
1.20	170	21	$(1.32 \pm 0.07) \times 10^{-2}$
	200	2	$(1.76 \pm 0.07) \times 10^{-2}$
	270	24	$(2.20 \pm 0.10) \times 10^{-2}$
		30*	$(1.96 \pm 0.10) \times 10^{-2}$
	350	3	$(3.08 \pm 0.16) \times 10^{-2}$
		4	$(3.43 \pm 0.38) \times 10^{-2}$
	420	5	$(3.75 \pm 0.22) \times 10^{-2}$
		6	$(4.07 \pm 0.16) \times 10^{-2}$
29*		$(3.25 \pm 0.14) \times 10^{-2}$	
500	7	$(4.46 \pm 0.40) \times 10^{-2}$	
	28*	$(3.83 \pm 0.18) \times 10^{-2}$	
	31	$(3.91 \pm 0.25) \times 10^{-2}$	
	32	$(4.11 \pm 0.18) \times 10^{-2}$	
530	8	$(4.60 \pm 0.32) \times 10^{-2}$	
0.60	500	31	$(2.34 \pm 0.27) \times 10^{-2}$
0.48	170	9	$(5.17 \pm 0.75) \times 10^{-3}$
	225	11	$(7.34 \pm 0.60) \times 10^{-3}$
	270	12	$(9.66 \pm 1.13) \times 10^{-3}$
	530	19	$(1.85 \pm 0.21) \times 10^{-2}$
0.24	170	20	$(2.04 \pm 0.23) \times 10^{-3}$
	300	25	$(5.48 \pm 0.43) \times 10^{-3}$
	400	22	$(7.87 \pm 0.63) \times 10^{-3}$
	500	31	$(9.14 \pm 1.65) \times 10^{-3}$
		33	$(1.04 \pm 0.11) \times 10^{-2}$
530	14	$(1.10 \pm 0.22) \times 10^{-2}$	
	16	$(9.68 \pm 1.22) \times 10^{-3}$	

* higher oxygen concentration experiment

** temperature gradient experiment

Table 5 - 3 ⁹³Sr deposition rate constant

Na Flow (m/sec)	Na Temp (°C)	Exp. No.	Deposition Rate Constant (cm/sec)	
			590.2 KeV	875.9 KeV
1.20	170	21	$(1.30 \pm 0.30) \times 10^{-2}$	$(1.35 \pm 0.26) \times 10^{-2}$
	270	24	$(2.38 \pm 0.17) \times 10^{-2}$	$(2.31 \pm 0.26) \times 10^{-2}$
		30*	$(2.19 \pm 0.12) \times 10^{-2}$	$(1.94 \pm 0.23) \times 10^{-2}$
	350	3	$(3.39 \pm 0.16) \times 10^{-2}$	$(2.80 \pm 0.32) \times 10^{-2}$
		4	$(3.68 \pm 0.18) \times 10^{-2}$	$(3.05 \pm 0.26) \times 10^{-2}$
	420	5	$(3.70 \pm 0.18) \times 10^{-2}$	$(3.67 \pm 0.46) \times 10^{-2}$
		6	$(3.75 \pm 0.17) \times 10^{-2}$	$(3.48 \pm 0.40) \times 10^{-2}$
29*		$(3.46 \pm 0.17) \times 10^{-2}$	$(2.61 \pm 0.26) \times 10^{-2}$	
500	7	$(4.20 \pm 0.24) \times 10^{-2}$	$(3.76 \pm 0.51) \times 10^{-2}$	
	28*	$(3.79 \pm 0.18) \times 10^{-2}$	$(3.10 \pm 0.31) \times 10^{-2}$	
	31	$(3.86 \pm 0.44) \times 10^{-2}$	$(3.36 \pm 0.50) \times 10^{-2}$	
	32	$(3.72 \pm 0.17) \times 10^{-2}$	$(3.46 \pm 0.23) \times 10^{-2}$	
530	8	$(4.27 \pm 0.20) \times 10^{-2}$	$(3.95 \pm 0.56) \times 10^{-2}$	
0.60	500	31	$(2.30 \pm 0.32) \times 10^{-2}$	$(1.76 \pm 0.29) \times 10^{-2}$
0.48	530	19	$(2.49 \pm 0.19) \times 10^{-2}$	$(1.76 \pm 0.23) \times 10^{-2}$
0.24	170	20	$(2.57 \pm 0.22) \times 10^{-3}$	$(2.85 \pm 0.52) \times 10^{-3}$
	300	25**	$(6.19 \pm 0.25) \times 10^{-3}$	$(5.49 \pm 0.51) \times 10^{-3}$
	400	22**	$(9.14 \pm 0.35) \times 10^{-3}$	$(7.47 \pm 0.59) \times 10^{-3}$
	500	31	$(1.18 \pm 0.16) \times 10^{-2}$	$(7.75 \pm 1.40) \times 10^{-3}$
		33	$(1.21 \pm 0.06) \times 10^{-2}$	$(9.25 \pm 0.85) \times 10^{-3}$
530	14	$(1.19 \pm 0.05) \times 10^{-2}$	$(9.40 \pm 0.88) \times 10^{-3}$	
	16	$(1.21 \pm 0.03) \times 10^{-2}$	$(8.84 \pm 0.52) \times 10^{-3}$	

* higher oxygen concentration experiment

** temperature gradient experiment

Table 5 - 4 ^{91}Sr deposition rate constant

Na Flow (m/sec)	Na Temp (°C)	Exp. No.	Deposition Rate Constant (cm/sec)	
			749.8 KeV	1024.3 KeV
1.20	500	27*	$(1.66 \pm 1.11) \times 10^{-2}$	$(1.65 \pm 1.09) \times 10^{-2}$
0.48	530	19	$(1.62 \pm 0.34) \times 10^{-2}$	$(1.68 \pm 0.32) \times 10^{-2}$
0.24	170	20 ⁺ 20 ⁺⁺	$(2.38 \pm 2.48) \times 10^{-3}$	$(2.91 \pm 2.00) \times 10^{-3}$ $(5.42 \pm 3.16) \times 10^{-3}$
	300	25**	$(5.21 \pm 1.24) \times 10^{-3}$	$(5.46 \pm 1.08) \times 10^{-3}$
	400	22**	$(5.34 \pm 1.22) \times 10^{-3}$	$(6.15 \pm 0.97) \times 10^{-3}$
	500	33 ⁺ 33 ⁺⁺	$(7.66 \pm 1.17) \times 10^{-3}$ $(1.04 \pm 0.40) \times 10^{-2}$	$(9.27 \pm 1.16) \times 10^{-3}$ $(9.18 \pm 2.35) \times 10^{-3}$
	530	14 16	$(1.03 \pm 0.07) \times 10^{-2}$ $(9.75 \pm 0.53) \times 10^{-3}$	$(1.01 \pm 0.06) \times 10^{-2}$ $(8.64 \pm 0.35) \times 10^{-3}$

* higher oxygen concentration experiment

** temperature gradient experiment

+ measured during sodium circulating

++ measured after sodium drain

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

Na Flow (m/sec)	Na Temp (°C)	Exp. No	Deposition Rate Constant (cm/sec)
1.20	170	21	$(1.37 \pm 0.50) \times 10^{-2}$
	200	2	$(1.87 \pm 0.19) \times 10^{-2}$
	270	24	$(2.31 \pm 0.17) \times 10^{-2}$
		30*	$(2.16 \pm 0.17) \times 10^{-2}$
	350	3	$(2.90 \pm 0.10) \times 10^{-2}$
		4	$(3.34 \pm 0.12) \times 10^{-2}$
	420	5	$(3.75 \pm 0.16) \times 10^{-2}$
6		$(3.70 \pm 0.14) \times 10^{-2}$	
29*		$(3.32 \pm 0.16) \times 10^{-2}$	
500	7	$(4.27 \pm 0.22) \times 10^{-2}$	
	27*	$(4.05 \pm 0.22) \times 10^{-2}$	
	28*	$(3.07 \pm 0.46) \times 10^{-2}$	
	32	$(3.90 \pm 0.38) \times 10^{-2}$	
530	8	$(4.55 \pm 0.24) \times 10^{-2}$	
0.48	530	19	$(2.06 \pm 0.14) \times 10^{-2}$
0.24	170	20	$(4.73 \pm 1.17) \times 10^{-4}$
	300	25**	$(5.64 \pm 0.92) \times 10^{-3}$
	400	22**	$(7.82 \pm 1.00) \times 10^{-3}$
	500	33	$(1.05 \pm 0.14) \times 10^{-3}$
	530	14	$(1.02 \pm 0.12) \times 10^{-2}$
16		$(9.80 \pm 1.30) \times 10^{-3}$	

* higher oxygen concentration experiment

** temperature gradient experiment

Table 5 - 6 ^{94}Sr deposition rate constant obtained by using ^{94}Y deposition distribution pattern along the delay line

Na Flow (m/sec)	Na Temp (°C)	Exp. No.	Deposition Rate Constant (cm/sec)
1.20	170	21	$(1.01 \pm 0.15) \times 10^{-2}$
	200	2	$(1.87 \pm 0.05) \times 10^{-2}$
	270	24	$(1.85 \pm 0.20) \times 10^{-2}$
		30*	$(1.83 \pm 0.18) \times 10^{-2}$
	350	3	$(2.51 \pm 0.09) \times 10^{-2}$
		4	$(2.62 \pm 0.10) \times 10^{-2}$
	420	5	$(3.16 \pm 0.11) \times 10^{-2}$
6		$(2.96 \pm 0.10) \times 10^{-2}$	
29*		$(2.69 \pm 0.27) \times 10^{-2}$	
500	7	$(3.48 \pm 0.41) \times 10^{-2}$	
	28*	$(4.24 \pm 0.44) \times 10^{-2}$	
	32	$(4.06 \pm 0.37) \times 10^{-2}$	
530	8	$(3.99 \pm 0.46) \times 10^{-2}$	
0.48	530	19	$(2.01 \pm 0.53) \times 10^{-2}$
0.24	170	20	$(4.74 \pm 4.97) \times 10^{-4}$
	300	25	$(3.33 \pm 0.69) \times 10^{-3}$
	400	22	$(5.47 \pm 0.92) \times 10^{-3}$
	500	33	$(7.56 \pm 1.63) \times 10^{-3}$
	530	14	$(1.14 \pm 0.41) \times 10^{-2}$
16		$(1.09 \pm 0.20) \times 10^{-2}$	

* higher oxygen concentration experiment

** temperature gradient experiment

Table 5 - 7 Deposition rate constant for Sr isotopes

(dimension = $1 \times 10^{-2} \text{cm/sec}$)

F. V. (m/sec)	0.24					0.48			
Temp. (°C)	170	300	400	500	530	170	225	270	530
⁹¹ Sr	0.265	0.534	0.575	0.913	0.970	—	—	—	1.65
⁹² Sr	0.277	0.592	0.867	1.16	1.26	—	—	—	2.11
⁹³ Sr	0.271	0.584	0.831	1.02	1.06	—	—	—	2.13
⁹⁴ Sr	0.204	0.548	0.787	0.977	1.03	0.517	0.734	0.966	1.85

F. V. (m/sec)	0.60	1.20						
Temp (°C)	500	170	200	270	350	420	500	530
⁹² Sr	—	1.43	1.81	2.18	3.00	3.70	4.23	4.55
⁹³ Sr	2.03	1.33	—	2.35	3.23	3.65	3.73	4.11
⁹⁴ Sr	2.34	1.32	1.76	2.20	3.26	3.91	4.16	4.60

F. V. = Flow Velocity

Table 5 - 8 Sticking coefficient for Sr isotopes calculated by using modified mass transfer model
(dimensionless)

F. V. (m/sec)	0.24					0.48			
Temp (°C)	170	300	400	500	530	170	225	270	530
⁹¹ Sr	0.46	0.51	0.40	0.49	0.49	—	—	—	0.47
⁹² Sr	0.48	0.56	0.60	0.63	0.64	—	—	—	0.60
⁹³ Sr	0.47	0.56	0.58	0.55	0.54	—	—	—	0.61
⁹⁴ Sr	0.35	0.52	0.55	0.53	0.52	0.50	0.54	0.58	0.53

F. V. (m/sec)	0.60	1.20						
Temp (°C)	500	170	200	270	350	420	500	530
⁹² Sr	—	0.65	0.70	0.61	0.63	0.64	0.60	0.61
⁹³ Sr	0.51	0.60	—	0.66	0.68	0.63	0.53	0.55
⁹⁴ Sr	0.59	0.60	0.68	0.62	0.69	0.68	0.59	0.61

F. V. = Flow Velocity

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

Na Flow (m/sec)	Na Temp (°C)	Exp. No	Deposition Rate Constant (cm/sec)		Na Circulating Time after TTR Shut Down
			^{97}Y	^{97}Zr	
1.20	170	21*	$(6.60 \pm 6.30) \times 10^{-3}$	$(1.06 \pm 0.48) \times 10^{-2}$	19.00 (hr)
		21**	$(6.84 \pm 3.95) \times 10^{-3}$	$(1.11 \pm 0.30) \times 10^{-2}$	
	200	2**	$(4.75 \pm 3.33) \times 10^{-3}$	$(2.01 \pm 0.25) \times 10^{-2}$	0.17
		24**	$(1.20 \pm 0.49) \times 10^{-2}$	$(1.56 \pm 0.27) \times 10^{-2}$	0.00
	270	30**	$(1.78 \pm 0.57) \times 10^{-2}$	$(1.72 \pm 0.26) \times 10^{-2}$	0.15
		3**	$(2.11 \pm 0.29) \times 10^{-2}$	$(2.17 \pm 0.12) \times 10^{-2}$	0.08
	350	4**	$(1.96 \pm 0.28) \times 10^{-2}$	$(2.18 \pm 0.13) \times 10^{-2}$	0.10
		5**	$(3.01 \pm 0.48) \times 10^{-2}$	$(2.11 \pm 0.14) \times 10^{-2}$	0.18
420	6**	$(3.85 \pm 0.70) \times 10^{-2}$	$(2.01 \pm 0.16) \times 10^{-2}$	0.10	
	29**	$(3.35 \pm 0.81) \times 10^{-2}$	$(1.70 \pm 0.20) \times 10^{-2}$	0.18	
500	7**	$(3.20 \pm 0.58) \times 10^{-2}$	$(2.39 \pm 0.18) \times 10^{-2}$	0.10	
	27**	$(1.90 \pm 0.43) \times 10^{-2}$	$(8.09 \pm 1.73) \times 10^{-3}$	0.10	
	28*, +	—	—	37.22	
	32*	$(1.50 \pm 0.34) \times 10^{-2}$	$(6.35 \pm 3.24) \times 10^{-4}$	20.55	
	32**	$(2.70 \pm 0.76) \times 10^{-2}$	$(1.15 \pm 0.25) \times 10^{-2}$		
530	8**	$(4.60 \pm 1.05) \times 10^{-2}$	$(2.19 \pm 0.18) \times 10^{-2}$	0.08	
0.48	530	19**	$(2.91 \pm 2.98) \times 10^{-2}$	$(9.70 \pm 0.89) \times 10^{-3}$	0.17
0.24	170	20*	—	$(2.63 \pm 0.67) \times 10^{-3}$	42.65
		20**	—	$(2.66 \pm 0.62) \times 10^{-3}$	
	300	25*, ×	—	$(2.69 \pm 0.76) \times 10^{-3}$	19.92
	400	22*, ×	—	$(4.15 \pm 0.72) \times 10^{-3}$	44.92
	500	33*	—	$(8.30 \pm 2.47) \times 10^{-4}$	40.98 °
33**		—	$(1.73 \pm 0.26) \times 10^{-3}$		
530	14**	$(1.70 \pm 3.13) \times 10^{-2}$	$(6.11 \pm 0.74) \times 10^{-3}$	0.43	
	16*	—	$(3.58 \pm 0.27) \times 10^{-3}$		
	16**	$(1.57 \pm 8.48) \times 10^{-2}$	$(5.11 \pm 0.49) \times 10^{-3}$		18.47

* measured during sodium circulating, ** measured after sodium drain
+ higher oxygen concentration experiment, × temperature gradient experiment
° sodium flow rate changed from 0.24 to 1.2m/sec after TTR shut down
— data can not be analyzed

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

Na Flow (m/sec)	Na Temp (°C)	Exp. Na	Deposition Rate Constant (cm/sec)		Na Circulating Time after TTR Shut Down
			^{97}Y	^{97}Zr	
1.20	170	21* 21**	$(1.41 \pm 0.59) \times 10^{-2}$ $(1.08 \pm 0.34) \times 10^{-2}$	$(8.72 \pm 3.65) \times 10^{-3}$ $(7.77 \pm 2.35) \times 10^{-3}$	19.00 (hr)
	200	2**	$(1.15 \pm 0.27) \times 10^{-2}$	$(1.61 \pm 0.16) \times 10^{-2}$	0.17
	270	24** 30** +	$(7.37 \pm 4.81) \times 10^{-3}$ $(1.48 \pm 0.53) \times 10^{-2}$	$(2.02 \pm 0.31) \times 10^{-2}$ $(1.88 \pm 0.26) \times 10^{-2}$	0.00 0.15
	350	3** 4**	$(2.16 \pm 0.29) \times 10^{-2}$ $(2.40 \pm 0.42) \times 10^{-2}$	$(2.04 \pm 0.12) \times 10^{-2}$ $(2.07 \pm 0.16) \times 10^{-2}$	0.08 0.10
	420	5** 6** 29** +	$(3.12 \pm 0.99) \times 10^{-2}$ $(4.20 \pm 1.08) \times 10^{-2}$ $(3.40 \pm 0.78) \times 10^{-2}$	$(1.97 \pm 0.29) \times 10^{-2}$ $(1.91 \pm 0.20) \times 10^{-2}$ $(1.91 \pm 0.18) \times 10^{-2}$	0.18 0.10 0.18
	500	7* 27** + 28** + 32*	$(3.70 \pm 1.29) \times 10^{-2}$ $(1.72 \pm 0.62) \times 10^{-2}$ ————— —————	$(1.96 \pm 0.29) \times 10^{-2}$ $(7.25 \pm 2.78) \times 10^{-3}$ ————— —————	0.10 0.10 37.22 20.55
	530	8**	$(4.86 \pm 2.73) \times 10^{-2}$	$(1.68 \pm 0.35) \times 10^{-2}$	0.08
	0.48	530	19**	$(4.86 \pm 14.4) \times 10^{-2}$	$(8.92 \pm 0.13) \times 10^{-3}$
0.24	170	20* 20**	————— —————	$(1.41 \pm 0.64) \times 10^{-3}$ $(2.62 \pm 0.56) \times 10^{-3}$	42.65
	300	25** x	—————	$(4.52 \pm 0.99) \times 10^{-3}$	19.92
	400	22** x	—————	$(3.75 \pm 0.66) \times 10^{-3}$	44.92
	500	33* 33**	————— —————	————— $(9.61 \pm 2.61) \times 10^{-4}$	40.98 ^o
	530	14** 16* 16**	————— ————— —————	$(7.66 \pm 0.65) \times 10^{-3}$ ————— $(3.62 \pm 0.22) \times 10^{-3}$	0.43 18.47

* measured during sodium circulating, ** measured after sodium drain
+ higher oxygen concentration experiment, x temperature gradient experiment
^o sodium flow rate changed from 0.24 to 1.2m/sec after TTR shut down
————— data can not be analyzed.

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

Na Flow (m/sec)	Na Temp (°C)	Exp. No	Deposition Rate Constant (cm/sec)
1.20	170	21	$(1.92 \pm 0.81) \times 10^{-2}$
	270	24	$(2.14 \pm 0.96) \times 10^{-2}$
		30*	$(1.79 \pm 0.87) \times 10^{-2}$
	350	3	$(4.02 \pm 0.71) \times 10^{-2}$
		4	$(2.96 \pm 0.77) \times 10^{-2}$
	420	5	$(2.84 \pm 0.43) \times 10^{-2}$
		6	$(3.49 \pm 0.45) \times 10^{-2}$
29*		$(4.28 \pm 1.12) \times 10^{-2}$	
500	7	$(3.97 \pm 0.39) \times 10^{-2}$	
	28*	$(3.85 \pm 0.66) \times 10^{-2}$	
	32	$(5.02 \pm 1.02) \times 10^{-2}$	
530	8	$(3.15 \pm 0.23) \times 10^{-2}$	
0.48	530	19	$(1.46 \pm 0.72) \times 10^{-2}$
0.24	170	20	$(1.76 \pm 2.43) \times 10^{-3}$
	300	25**	$(9.85 \pm 4.34) \times 10^{-4}$
	400	22**	$(5.66 \pm 2.86) \times 10^{-3}$
	500	33	$(9.77 \pm 4.80) \times 10^{-3}$
	530	16	$(1.31 \pm 0.22) \times 10^{-2}$

* higher oxygen concentration experiment

** temperature gradient experiment

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

Na Flow (m/sec)	Na Temp (°C)	Exp. No.	Deposition Rate Constant (cm/sec)
1.20	170	21	$(1.36 \pm 0.31) \times 10^{-2}$
	200	2	$(1.79 \pm 0.15) \times 10^{-2}$
	270	24	$(2.28 \pm 0.18) \times 10^{-2}$
		30*	$(2.45 \pm 0.20) \times 10^{-2}$
	350	3	$(2.70 \pm 0.13) \times 10^{-2}$
		4	$(2.86 \pm 0.10) \times 10^{-2}$
	420	5	$(3.28 \pm 0.11) \times 10^{-2}$
		6	$(3.18 \pm 0.14) \times 10^{-2}$
29*		$(3.21 \pm 0.12) \times 10^{-2}$	
500	7	$(2.92 \pm 0.12) \times 10^{-2}$	
	27*	$(3.00 \pm 0.10) \times 10^{-2}$	
	28*	$(2.95 \pm 0.31) \times 10^{-2}$	
	32	$(3.49 \pm 0.28) \times 10^{-2}$	
530	8	$(2.99 \pm 0.12) \times 10^{-2}$	
0.48	530	19	$(1.68 \pm 0.10) \times 10^{-2}$
0.24	170	20	$(1.74 \pm 1.12) \times 10^{-3}$
	300	25**	$(4.07 \pm 1.39) \times 10^{-3}$
	400	22**	$(7.39 \pm 1.70) \times 10^{-3}$
	500	33	$(7.09 \pm 1.22) \times 10^{-3}$
	530	14	$(9.78 \pm 1.14) \times 10^{-3}$
16		$(6.79 \pm 0.91) \times 10^{-3}$	

* higher oxygen concentration experiment

** temperature gradient experiment

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

Na Flow (m/sec)	Na Temp (°C)	Exp. No	Deposition Rate Constant (cm/sec)
1.20	170	21	$(8.57 \pm 0.97) \times 10^{-3}$
	200	2	$(1.58 \pm 0.41) \times 10^{-2}$
	270	24	$(2.43 \pm 0.58) \times 10^{-2}$
		30*	$(1.31 \pm 0.16) \times 10^{-2}$
	350	3	$(2.38 \pm 0.13) \times 10^{-2}$
		4	$(2.27 \pm 0.11) \times 10^{-2}$
	420	5	$(3.41 \pm 0.22) \times 10^{-2}$
		6	$(2.57 \pm 0.16) \times 10^{-2}$
		29*	$(2.27 \pm 0.95) \times 10^{-2}$
	500	7	$(2.79 \pm 0.59) \times 10^{-2}$
28*		$(4.27 \pm 1.83) \times 10^{-2}$	
530	32	$(3.82 \pm 1.39) \times 10^{-2}$	
	8	$(2.97 \pm 0.67) \times 10^{-2}$	

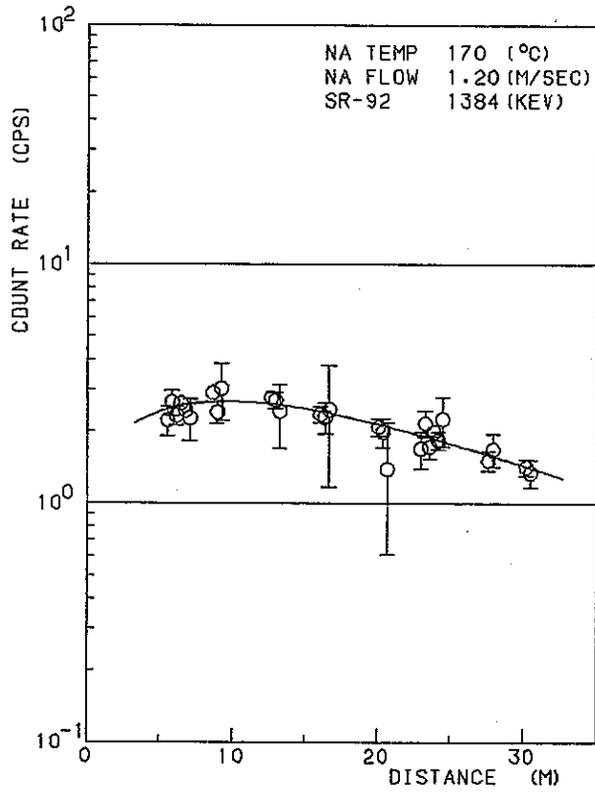
* higher oxygen concentration experiment

mass number

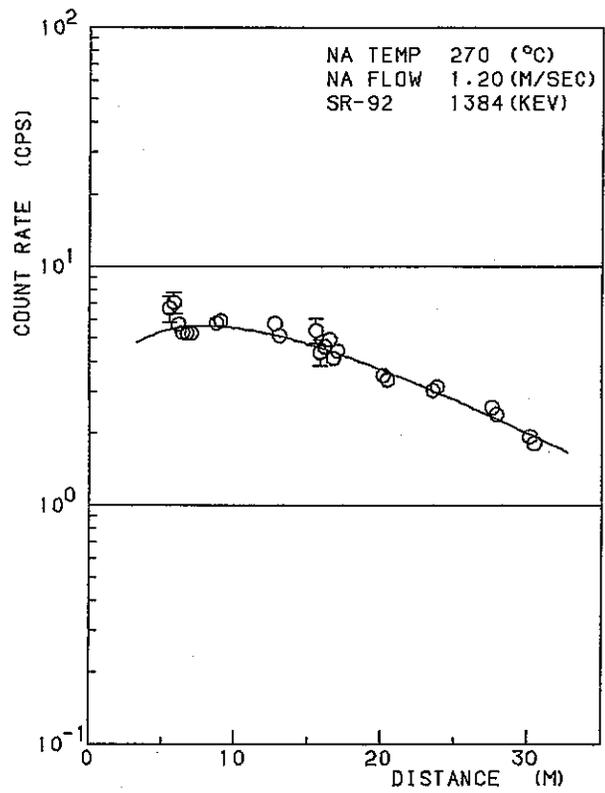
$t_{1/2}$: half life
 Fy : fission yield
 (independent)

91	^{91}Br	\longrightarrow	^{91}Kr	\longrightarrow	^{91}Rb	\longrightarrow	^{91}Sr	\longrightarrow	
$t_{1/2}$	0.54 sec		8.57 sec		58.7 sec		9.48 hr		
Fy	0.42%		3.09%		2.23%		0.17%		
92	^{92}Br	\longrightarrow	^{92}Kr	\longrightarrow	^{92}Rb	\longrightarrow	^{92}Sr	\longrightarrow	^{92}Y
$t_{1/2}$	0.365 sec		1.84 sec		4.54 sec		2.71 hr		3.53 hr (stable)
Fy	0.02%		1.52%		3.31%		1.10%		0.01%
93	^{93}Kr	\longrightarrow	^{93}Rb	\longrightarrow	^{93}Sr	\longrightarrow	^{93}Y	\longrightarrow	^{93}Zr
$t_{1/2}$	1.29 sec		5.85 sec		7.5 min		10.2 hr		1.5×10^6 yr
Fy	0.52%		2.97%		2.78%		0.10%		0.0003%
94	^{94}Kr	\longrightarrow	^{94}Rb	\longrightarrow	^{94}Sr	\longrightarrow	^{94}Y	\longrightarrow	^{94}Zr
$t_{1/2}$	0.20 sec		2.73 sec		74.1 sec		19.0 min		(stable)
Fy	0.26%		1.60%		4.15%		0.39%		
97	^{97}Rb	\longrightarrow	^{97}Sr	\longrightarrow	^{97}Y	\longrightarrow	^{97}Zr	\longrightarrow	^{97}Nb
$t_{1/2}$	0.172 sec		0.40 sec		3.70 sec		16.8 hr		72.2 min
Fy	0.03%		1.73%		3.18%		1.00%		0.01%
142	^{142}Xe	\longrightarrow	^{142}Cs	\longrightarrow	^{142}Ba	\longrightarrow	^{142}La	\longrightarrow	^{142}Ce
$t_{1/2}$	1.24 sec		1.68 sec		10.65 min		92.5 min		(stable)
Fy	0.38%		2.38%		3.07%		0.10%		
144	^{144}Xe	\longrightarrow	^{144}Cs	\longrightarrow	^{144}Ba	\longrightarrow	^{144}La	\longrightarrow	^{144}Ce
$t_{1/2}$	1.15 sec		1.00 sec		11.9 sec		39.9 sec		284.5 day
Fy	0.006%		0.28%		3.95%		1.15%		0.063%

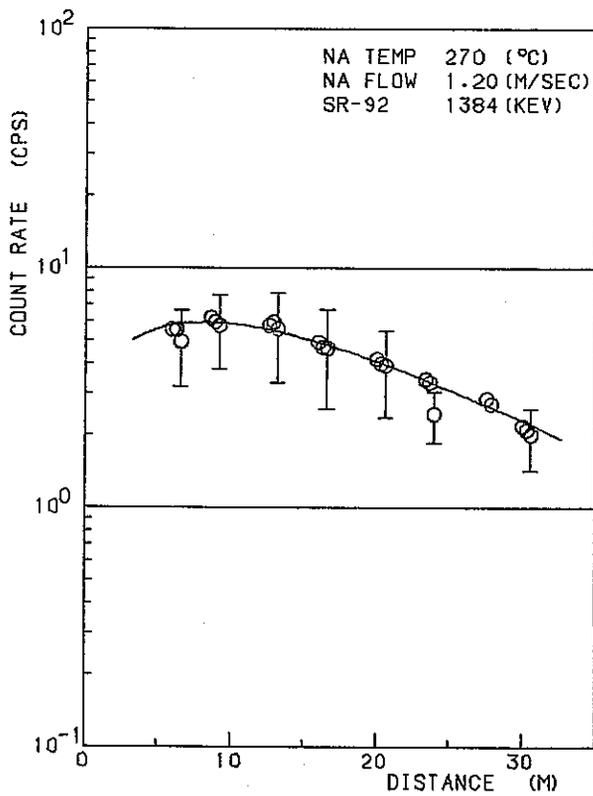
Fig 5 - 1 Fission chain (non-volatile fission product nuclide)⁷⁾



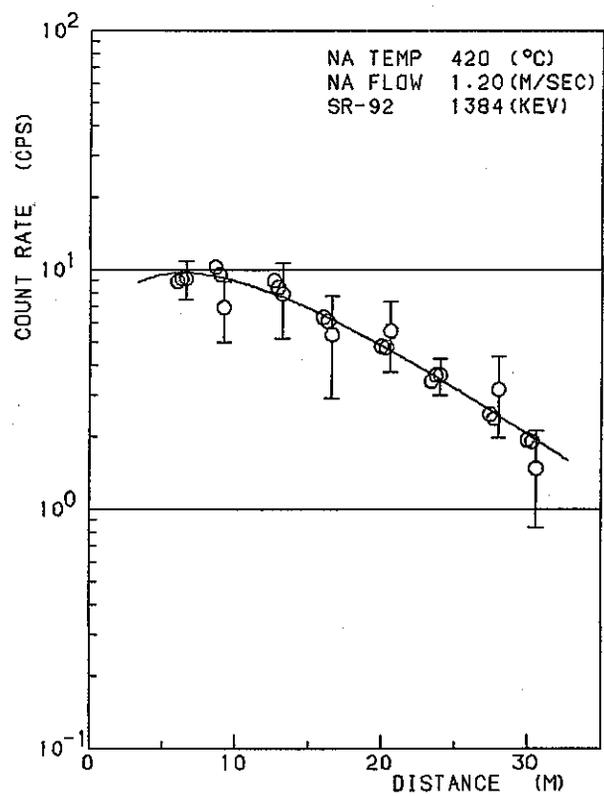
1) EXP. NO. 21



2) EXP. NO. 24

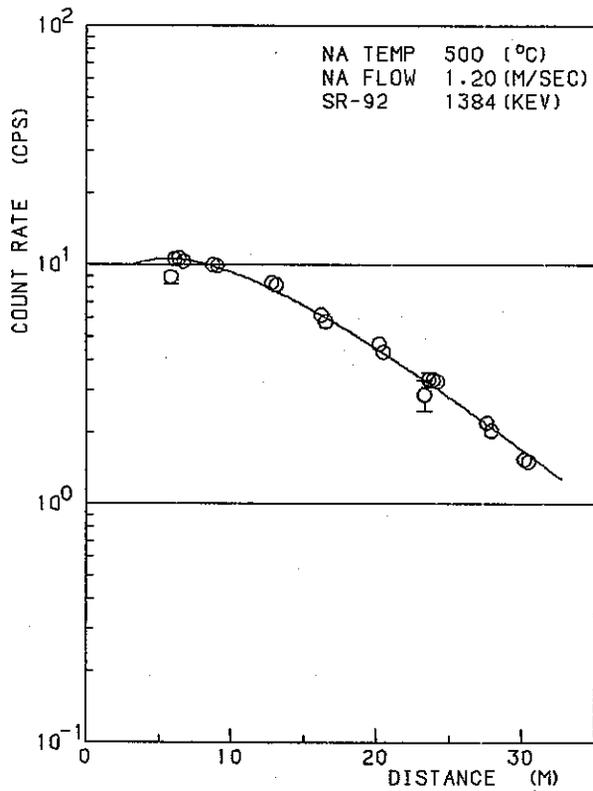


3) EXP. NO. 30

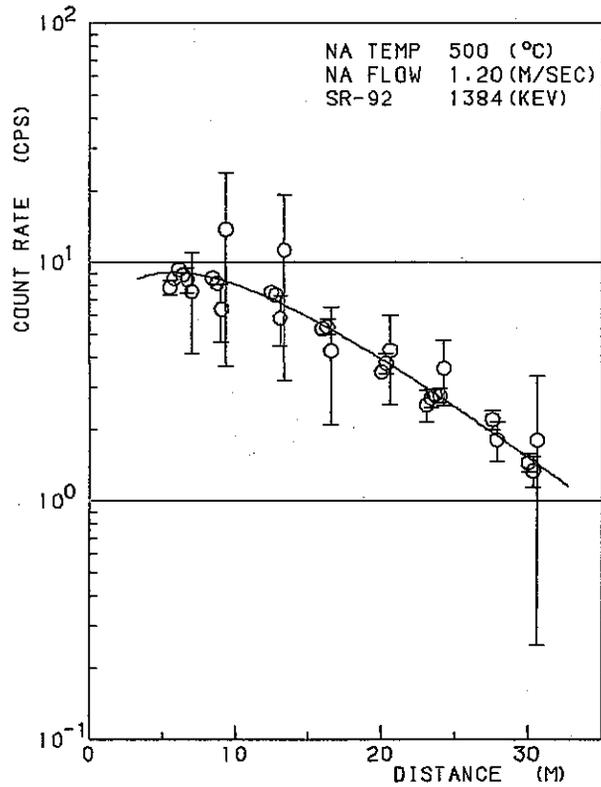


4) EXP. NO. 29

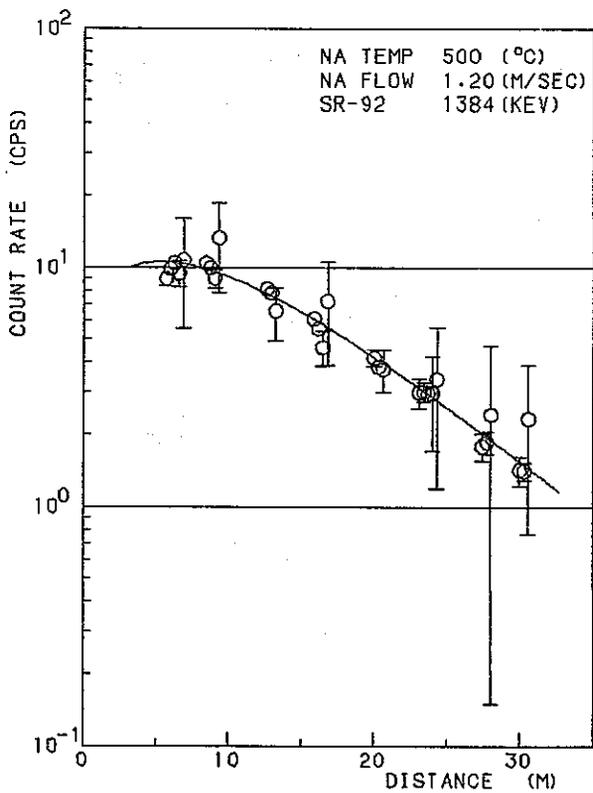
Fig 5 - 2 ⁹²Sr deposition distribution along the delay line



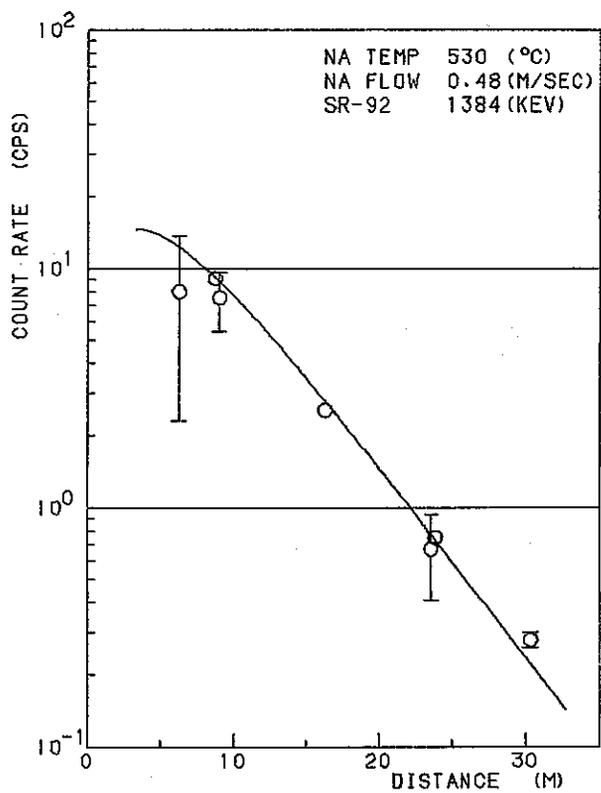
5) EXP. NO. 27



6) EXP. NO. 28

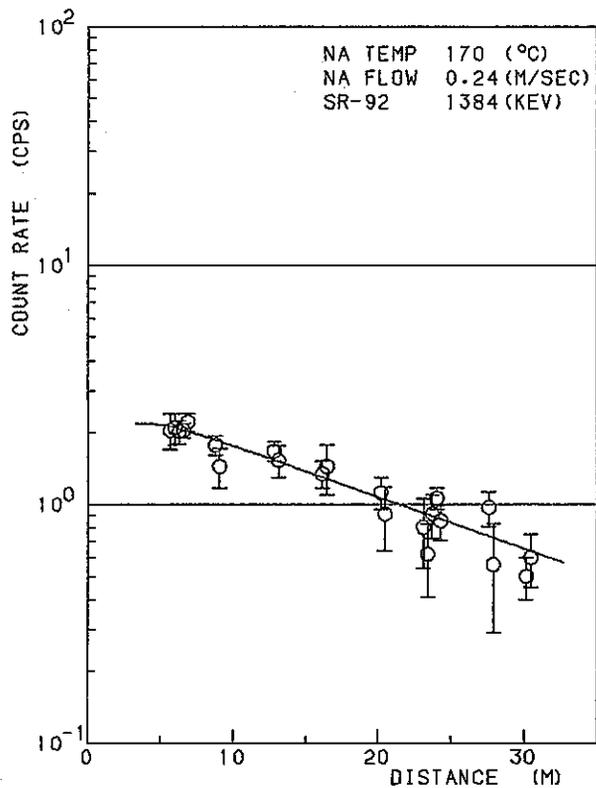


7) EXP. NO. 32

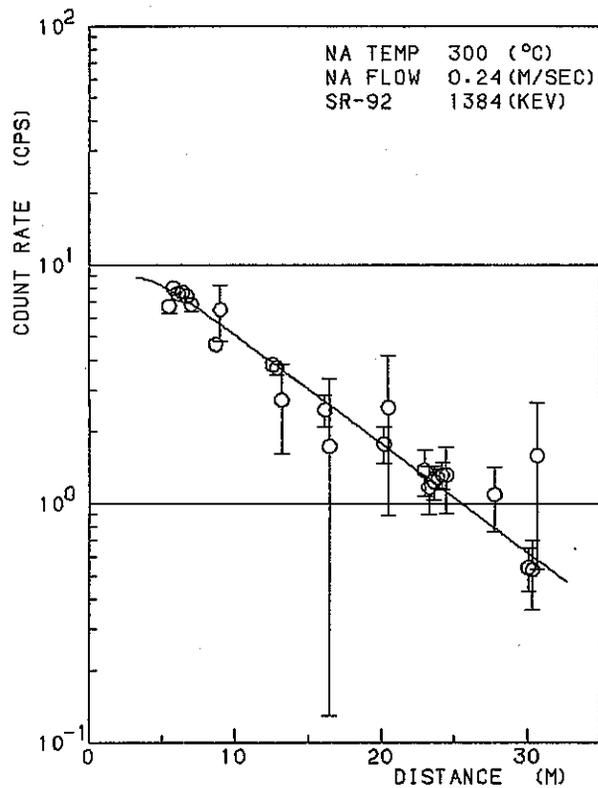


8) EXP. NO. 19

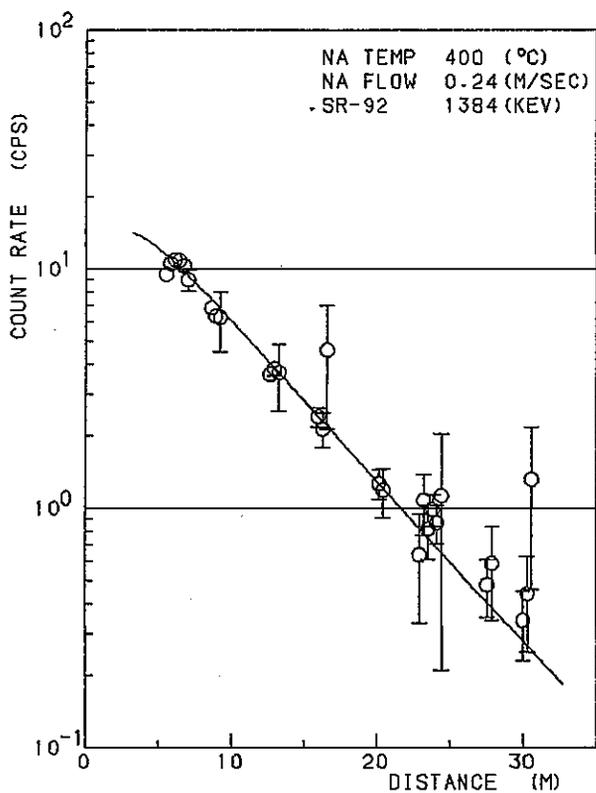
Fig 5 - 2. (continued)



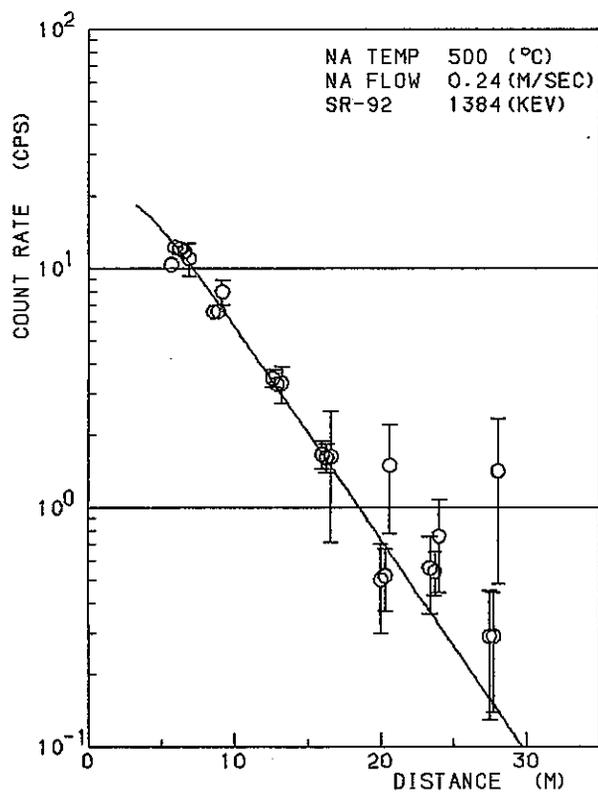
9) EXP. NO. 20



10) EXP. NO. 25

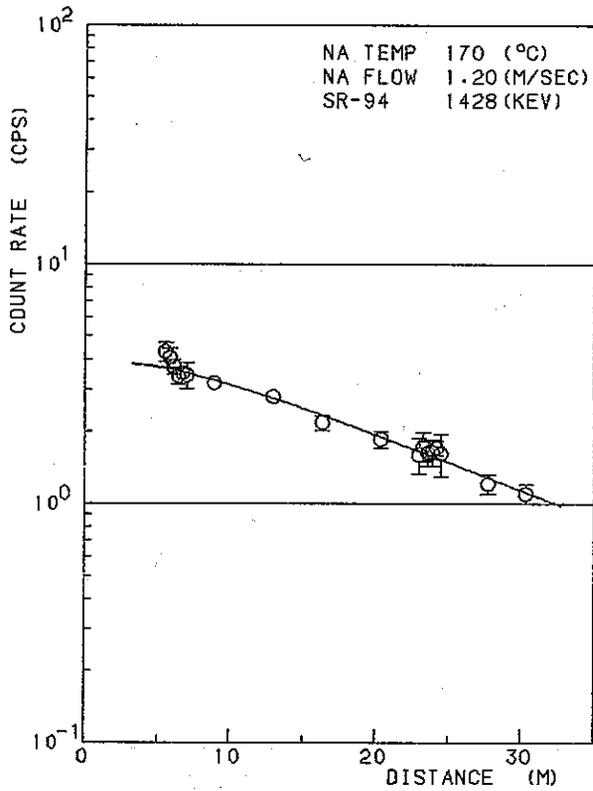


11) EXP. NO. 22

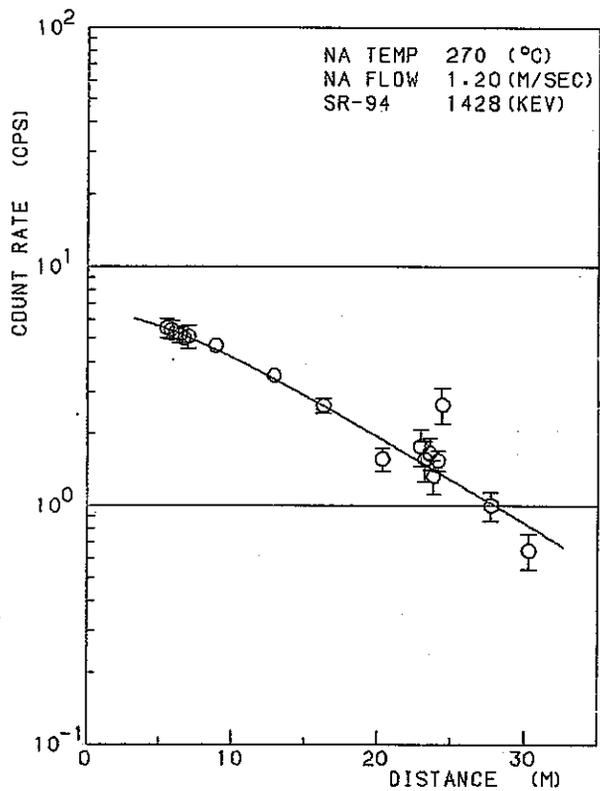


12) EXP. NO. 33

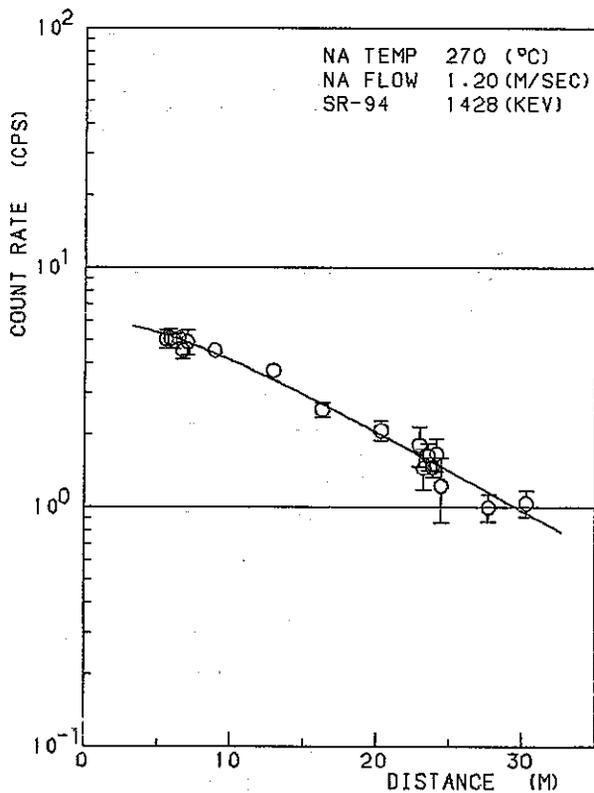
Fig 5 - 2 (continued)



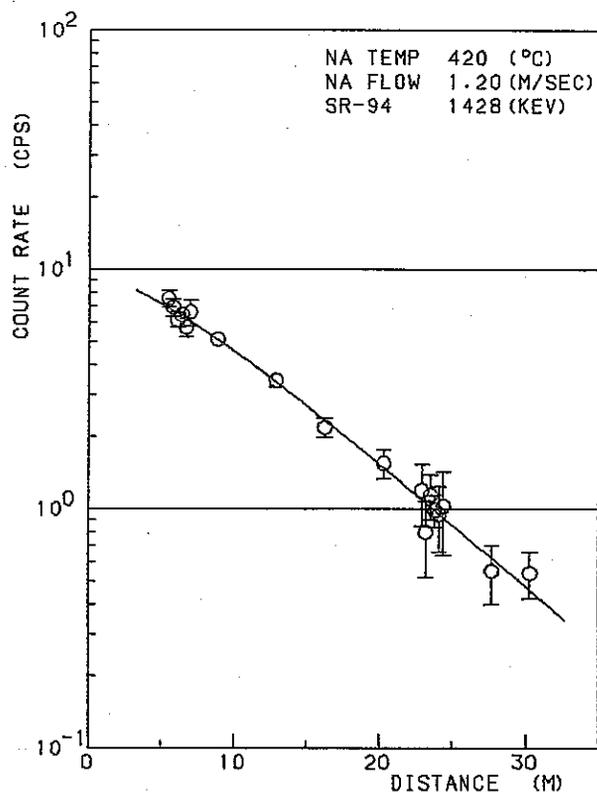
1) EXP. NO. 21



2) EXP. NO. 24

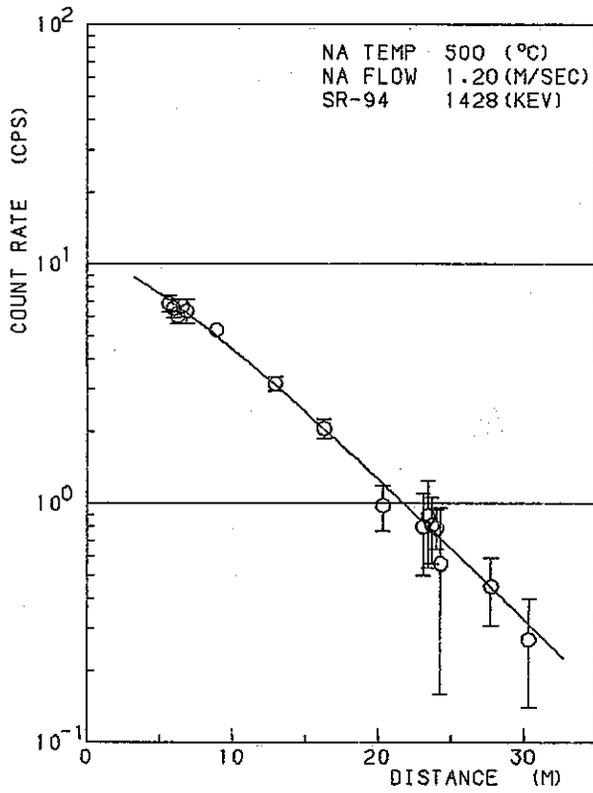


3) EXP. NO. 30

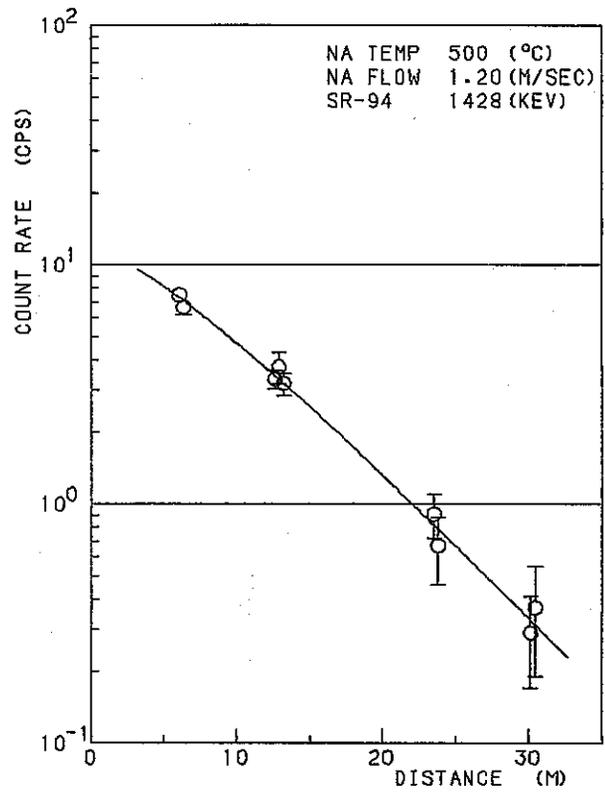


4) EXP. NO. 29

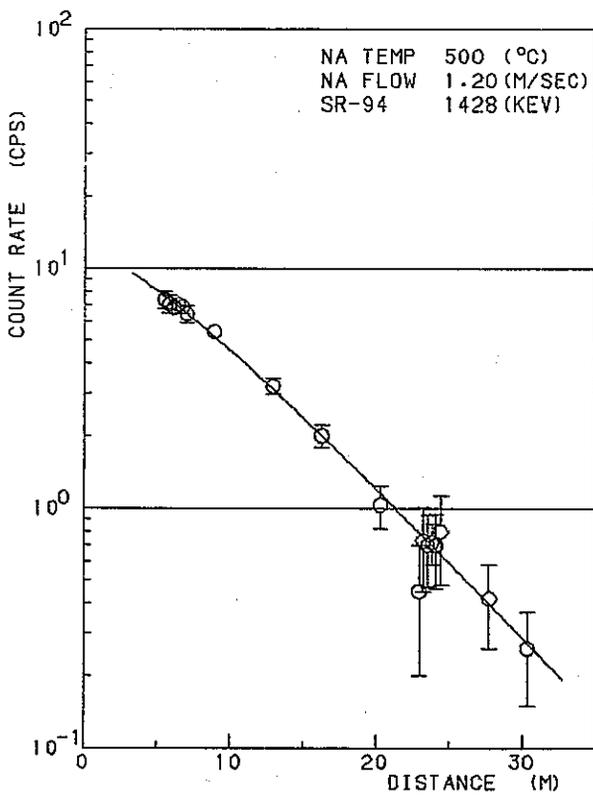
Fig 5 - 3 ⁹⁴Sr deposition distribution along the delay line



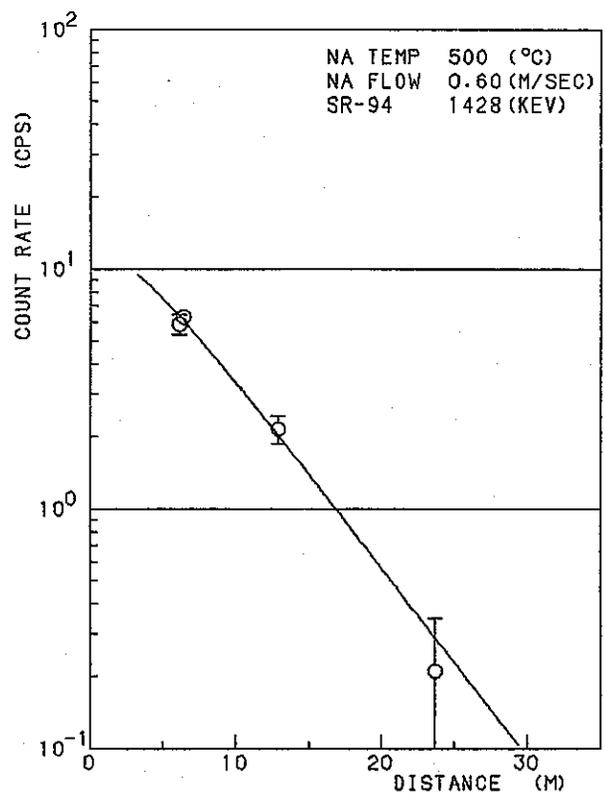
5) EXP. NO. 28



6) EXP. NO. 31

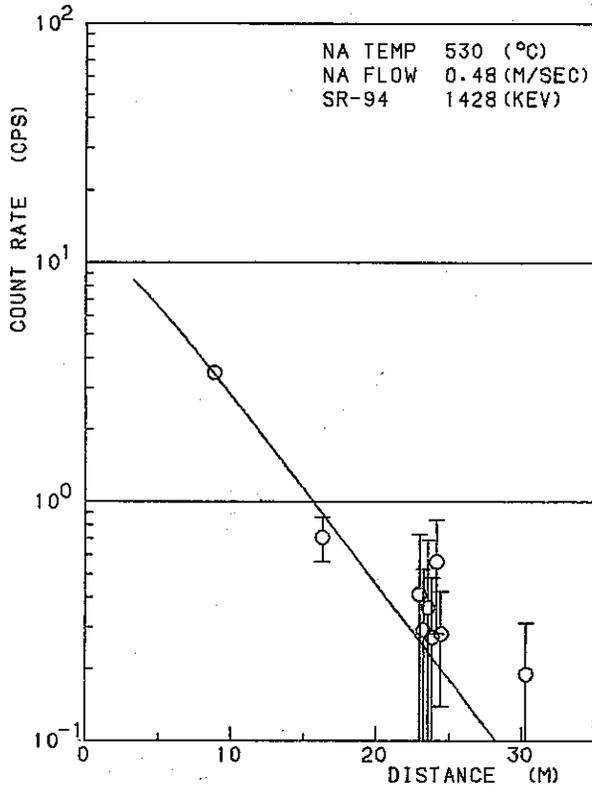


7) EXP. NO. 32

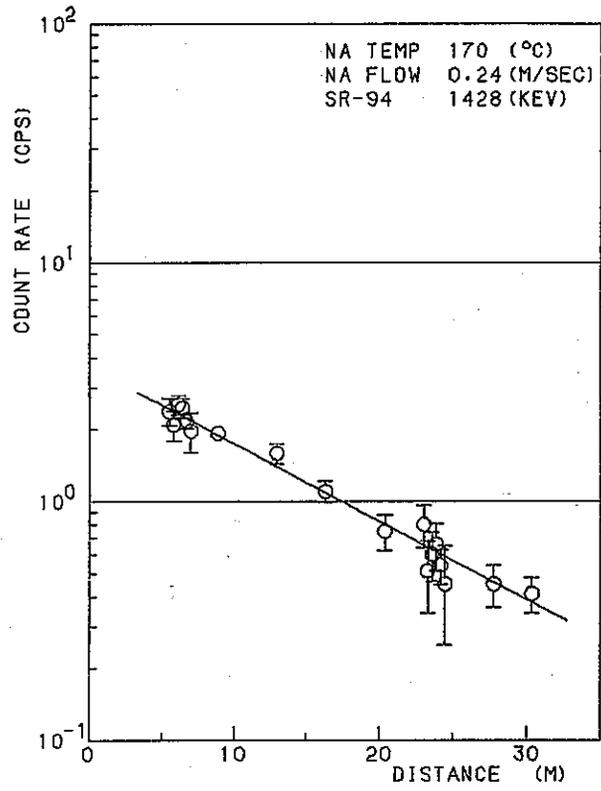


8) EXP. NO. 31

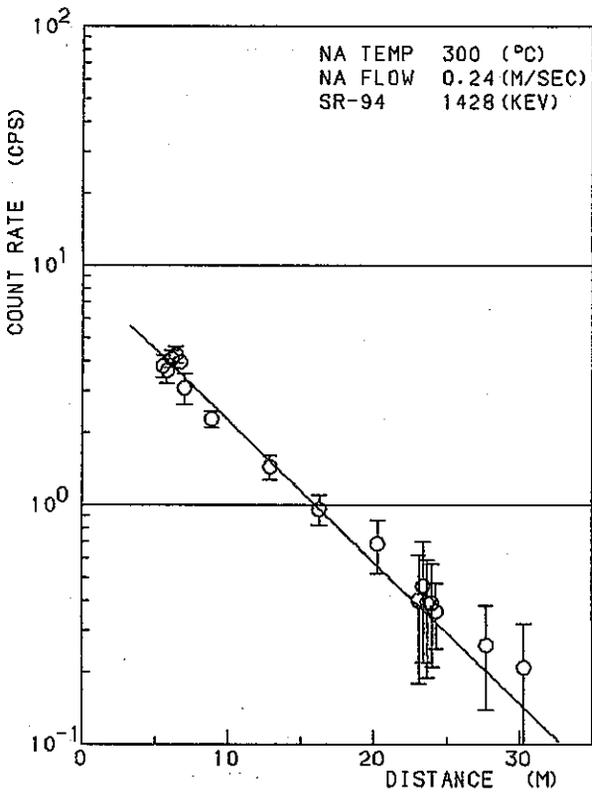
Fig 5 - 3 (continued)



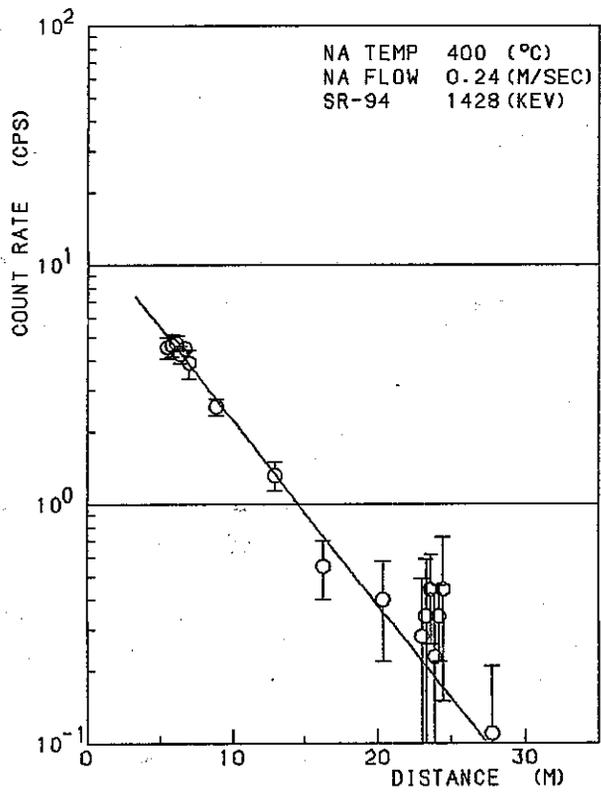
9) EXP. NO. 19



10) EXP. NO. 20

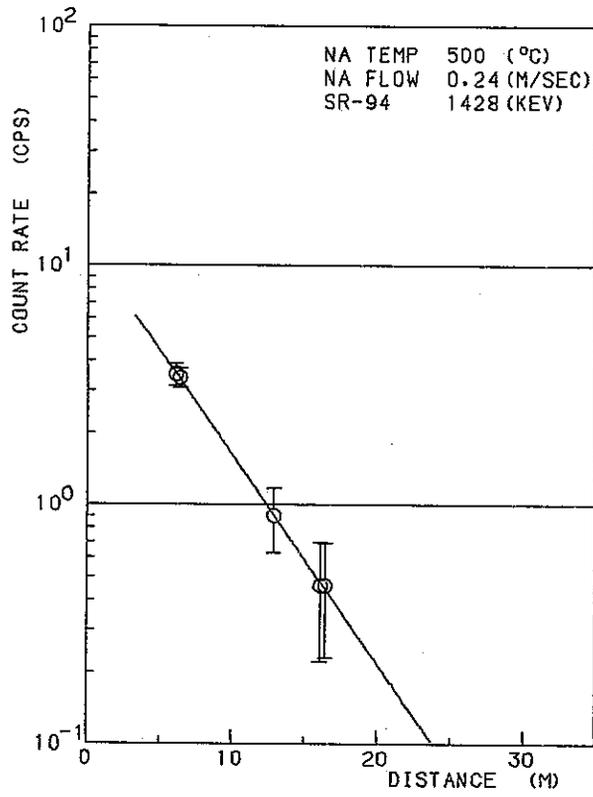


11) EXP. NO. 25

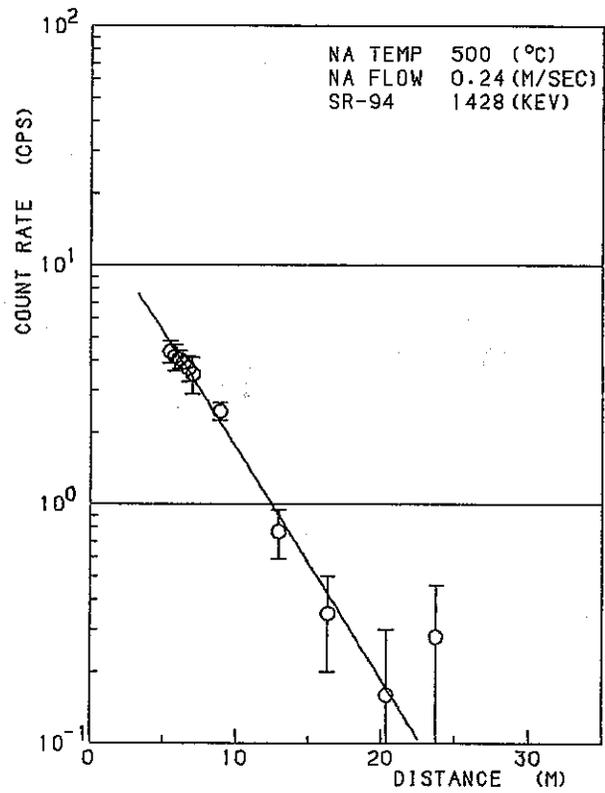


12) EXP. NO. 22

Fig. 5 - 3 (continued)

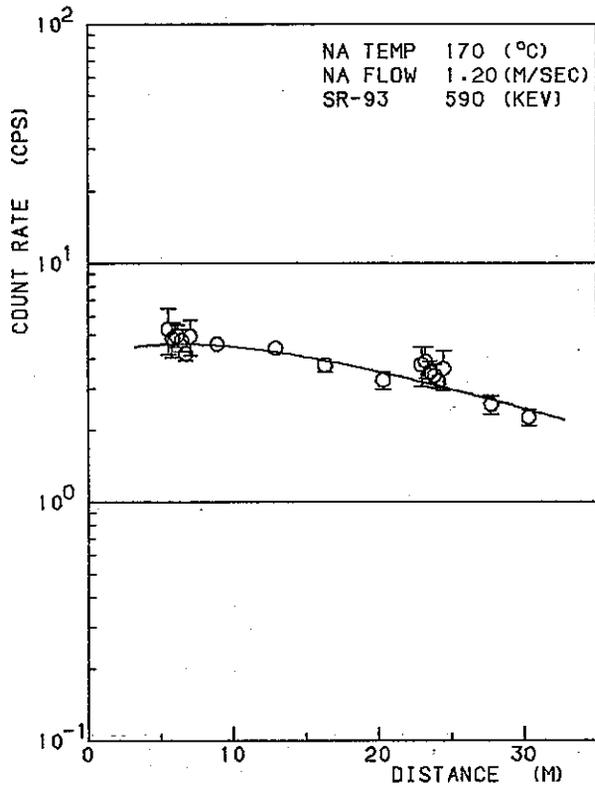


13) EXP. NO. 31

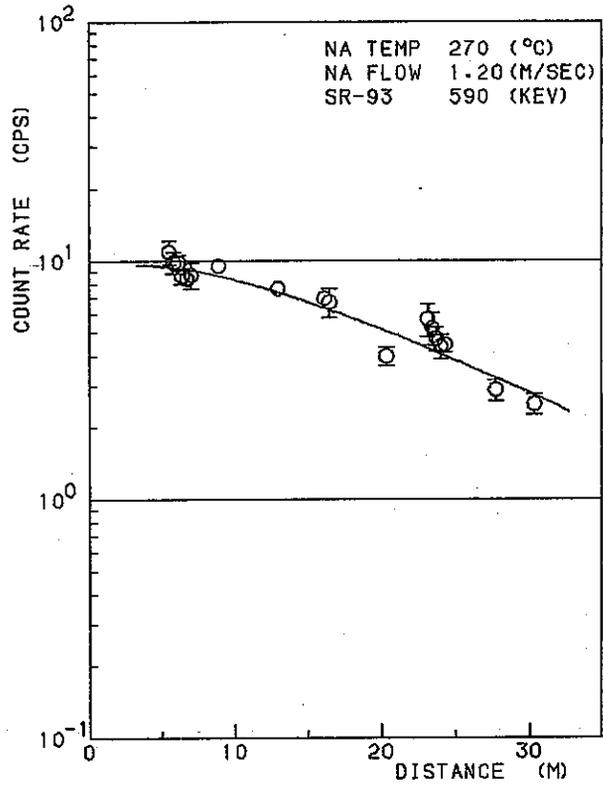


14) EXP. NO. 33

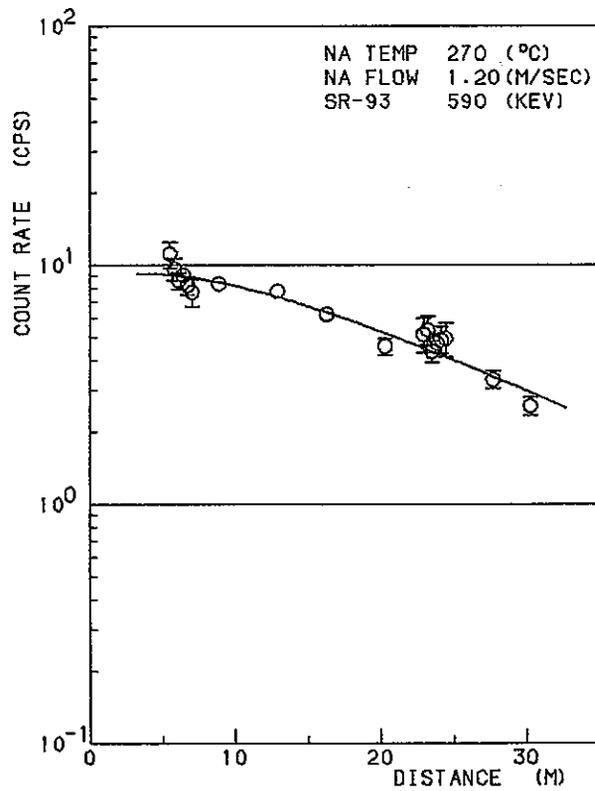
Fig 5 - 3 (continued)



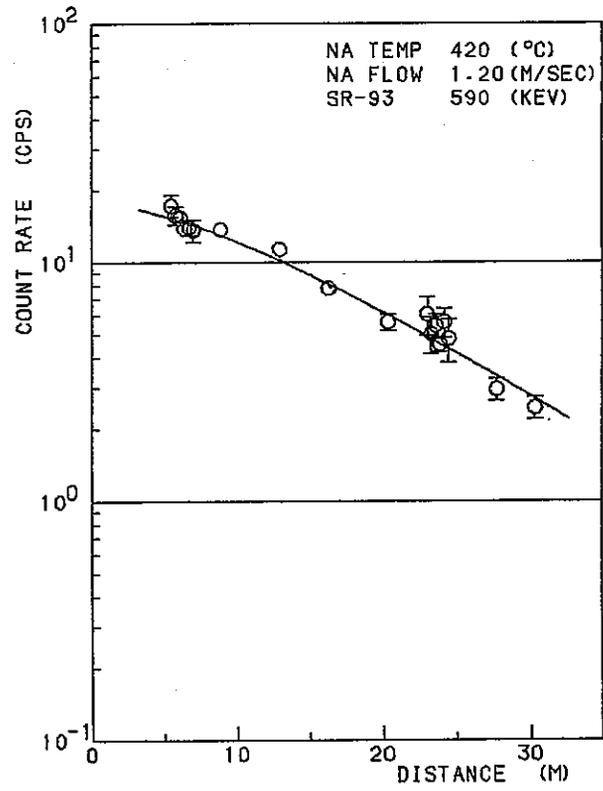
1) EXP. NO. 21



2) EXP. NO. 24

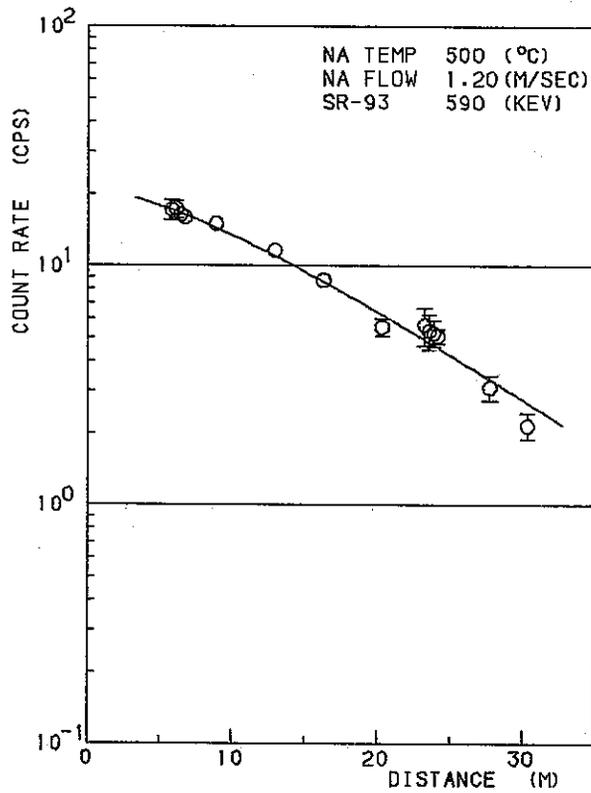


3) EXP. NO. 30

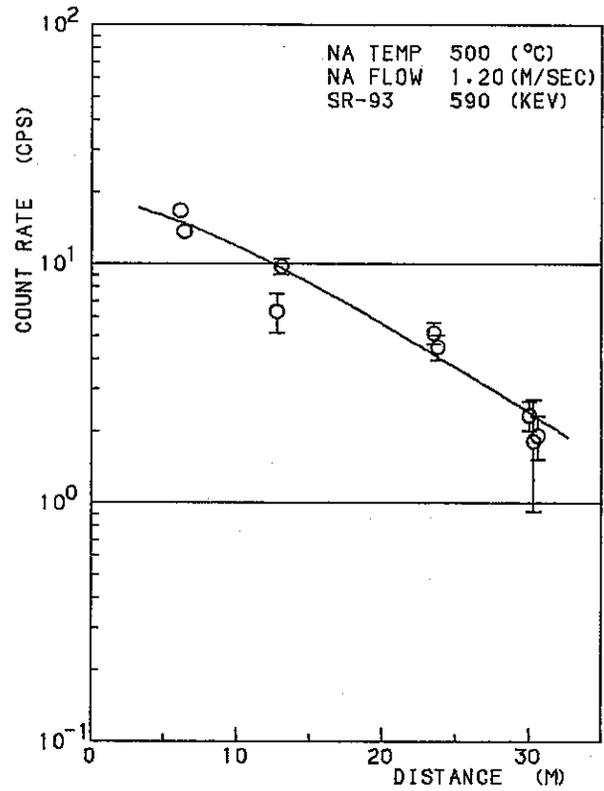


4) EXP. NO. 29

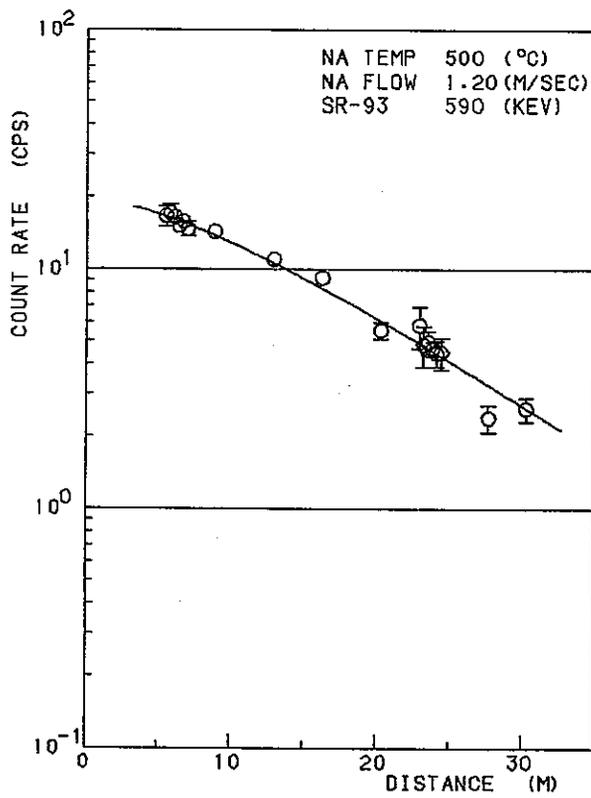
Fig 5 - 4 ⁹³Sr deposition distribution along the delay line



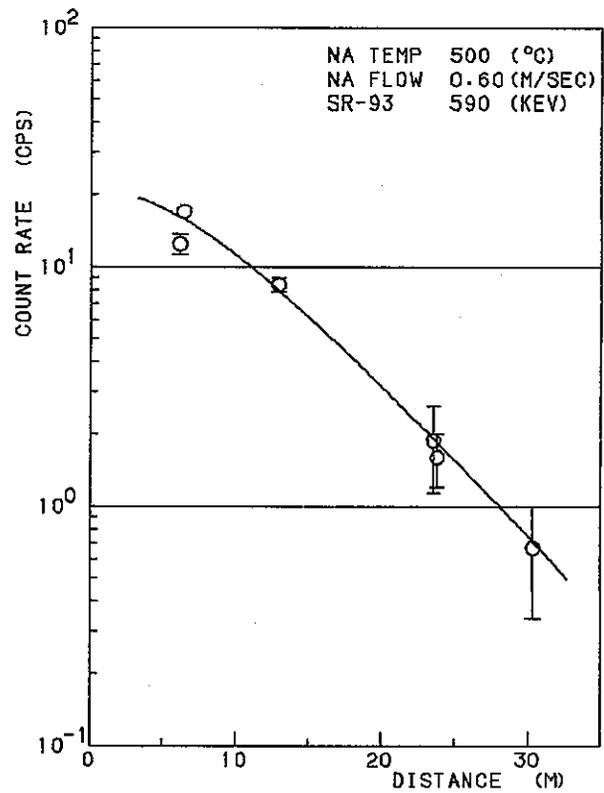
5) EXP. NO. 28



6) EXP. NO. 31

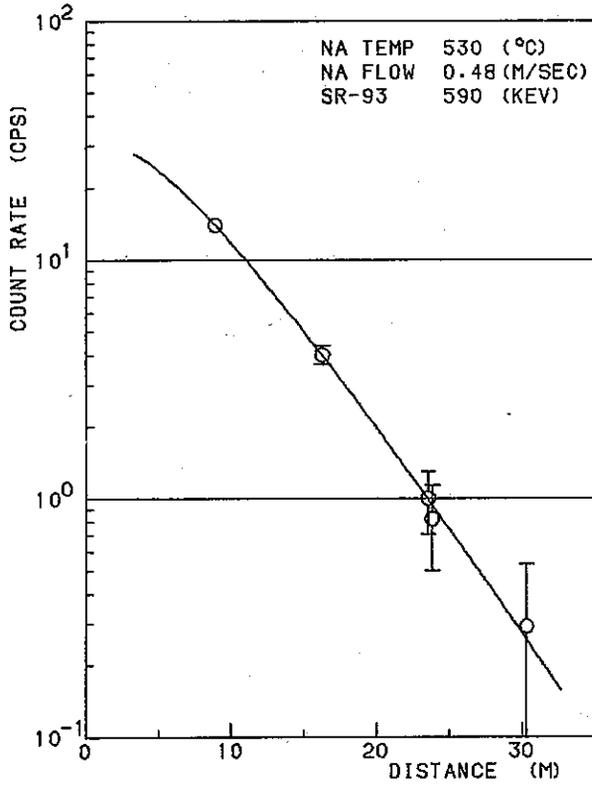


7) EXP. NO. 32

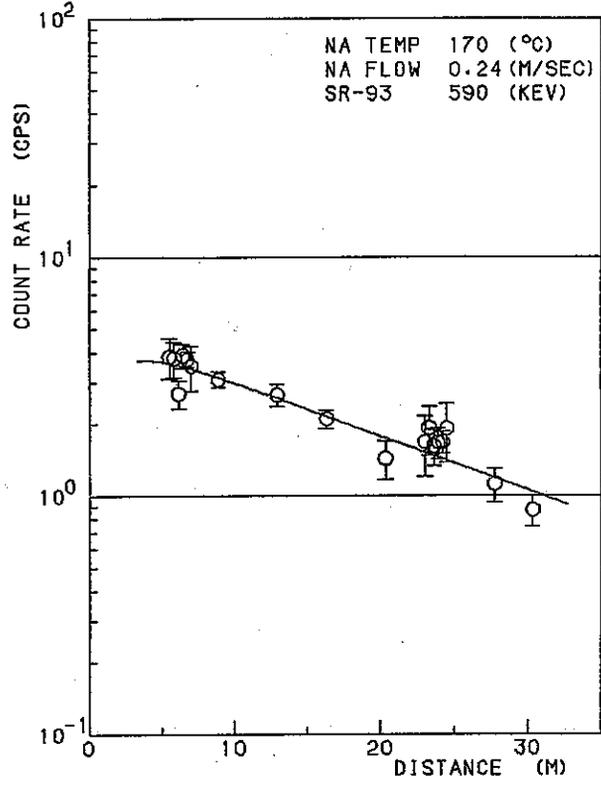


8) EXP. NO. 31

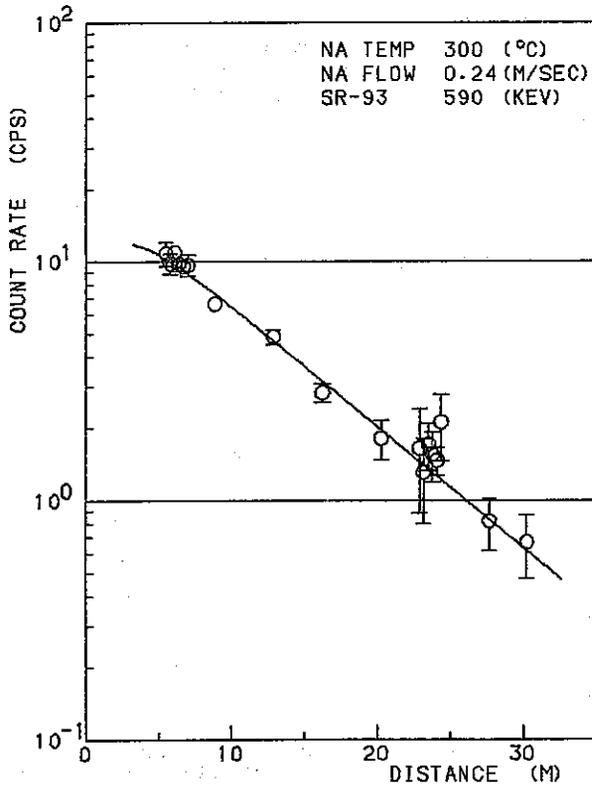
Fig 5 - 4 (continued)



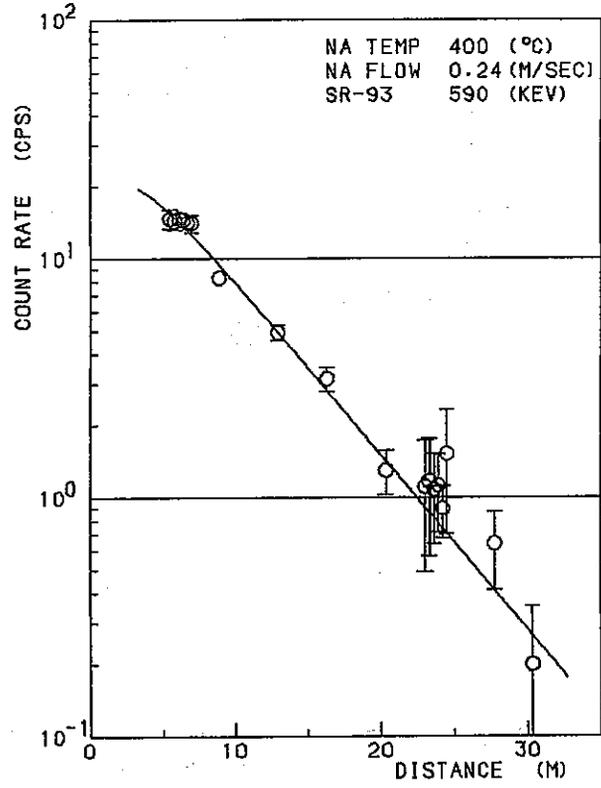
9) EXP. NO. 19



10) EXP. NO. 20

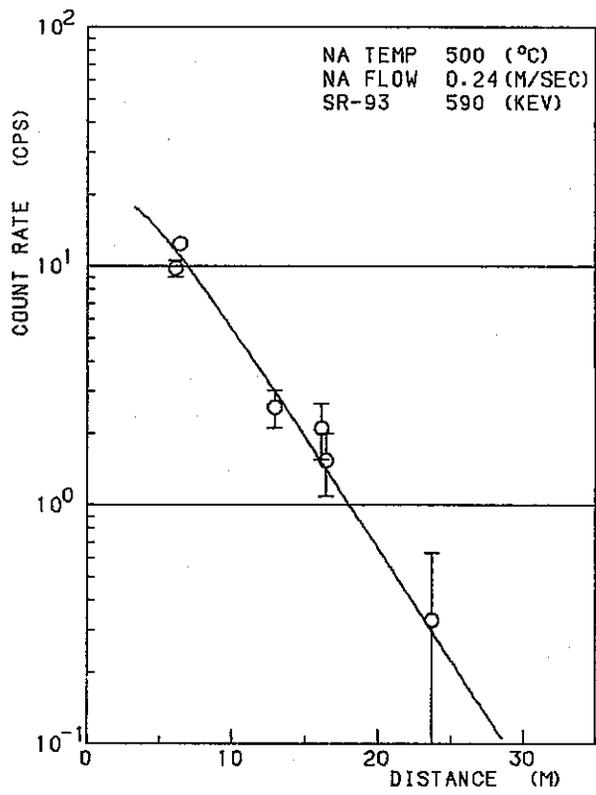


11) EXP. NO. 25

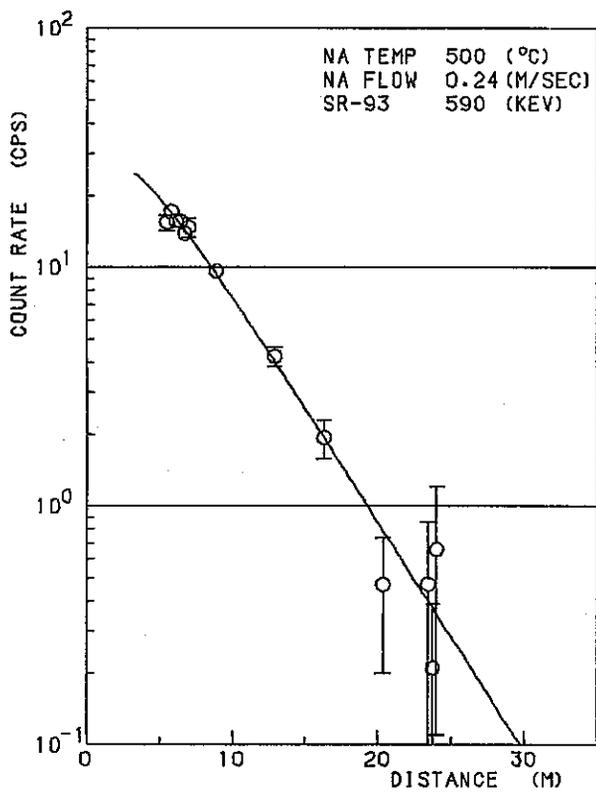


12) EXP. NO. 22

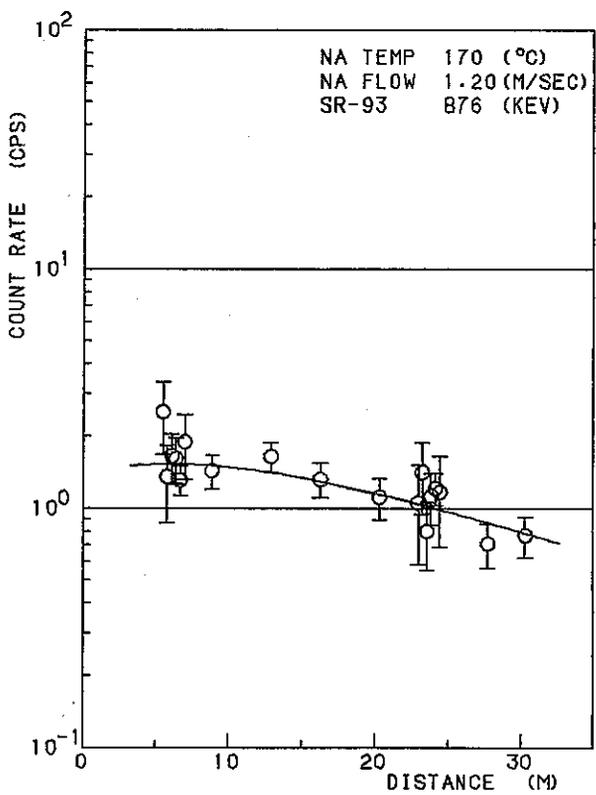
Fig 5 - 4 (continued)



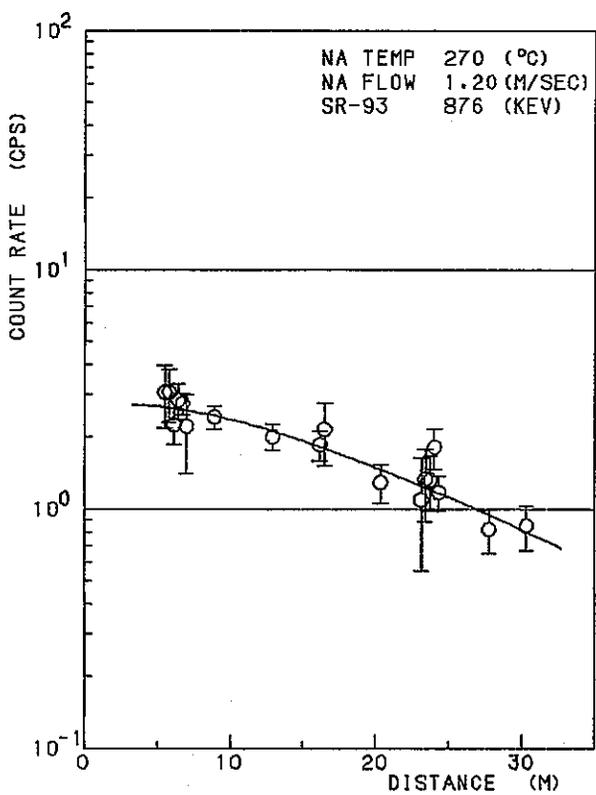
13) EXP. NO. 31



14) EXP. NO. 33

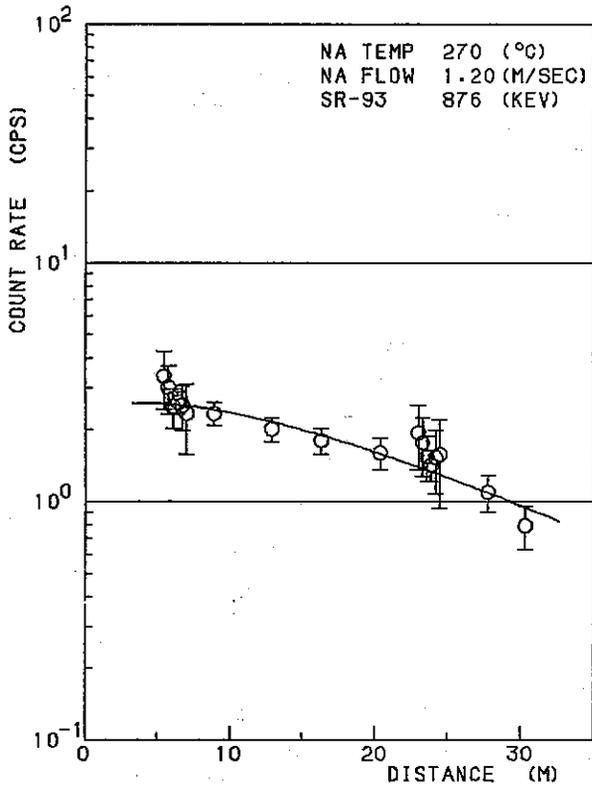


15) EXP. NO. 21

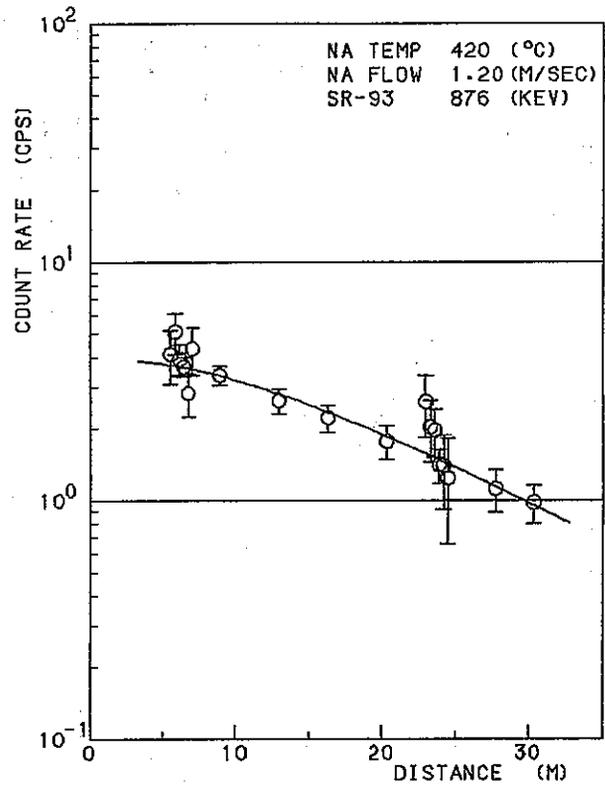


16) EXP. NO. 24

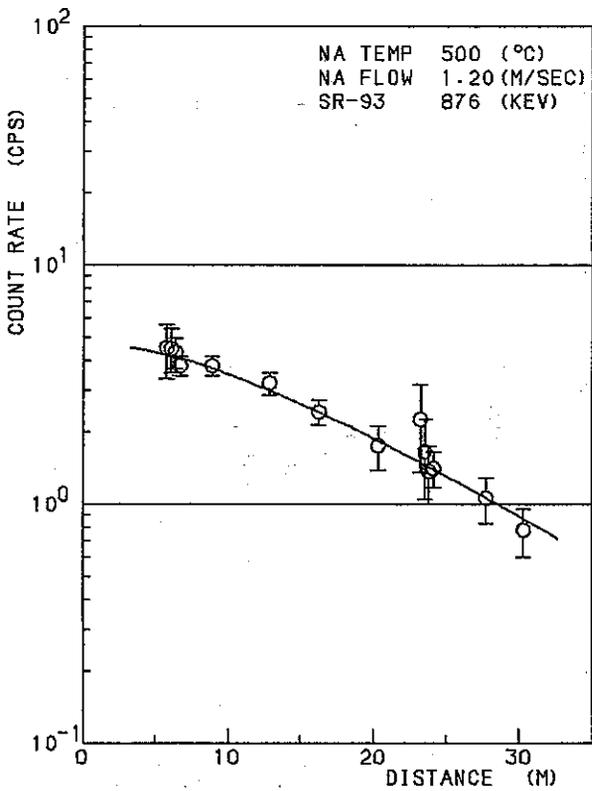
Fig 5 - 4 (continued)



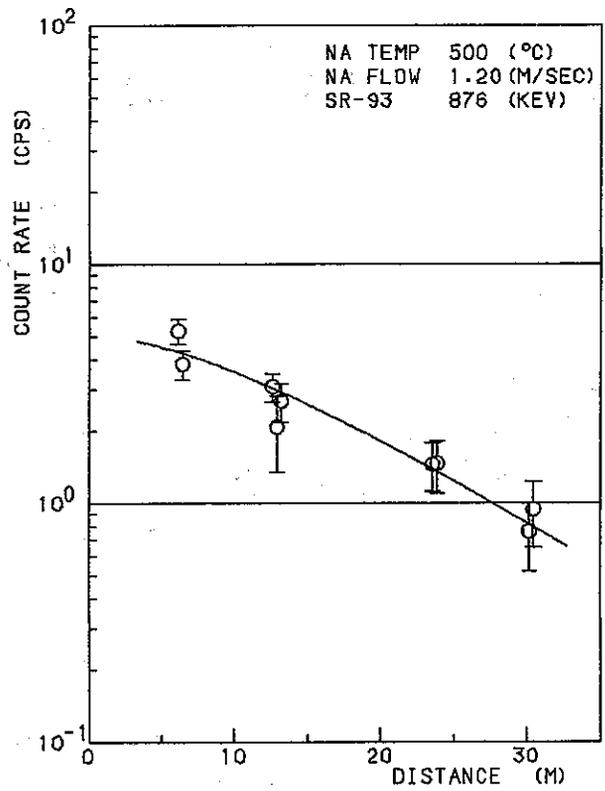
17) EXP. NO. 30



18) EXP. NO. 29

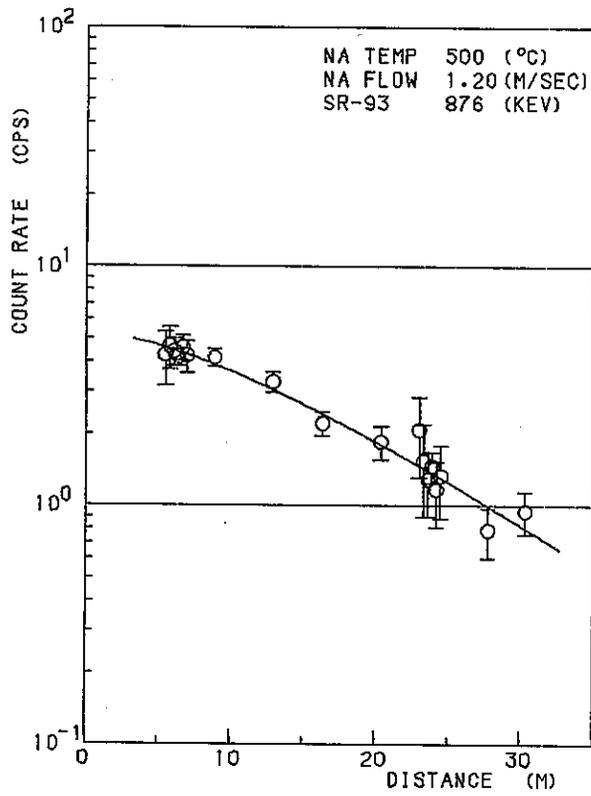


19) EXP. NO. 28

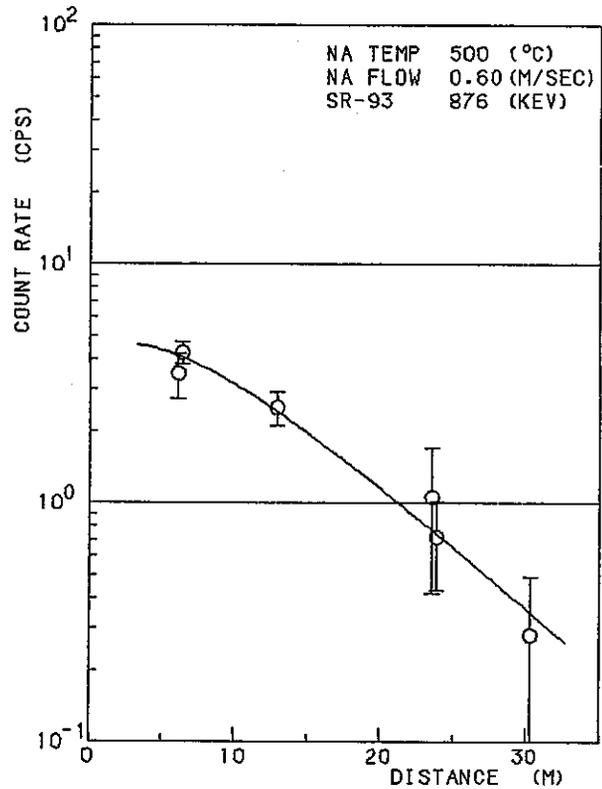


20) EXP. NO. 31

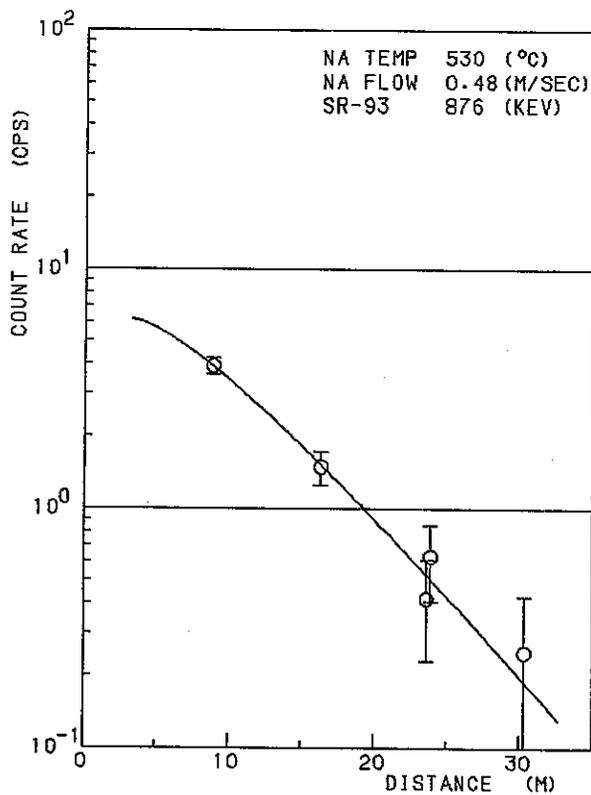
Fig 5 - 4 (continued)



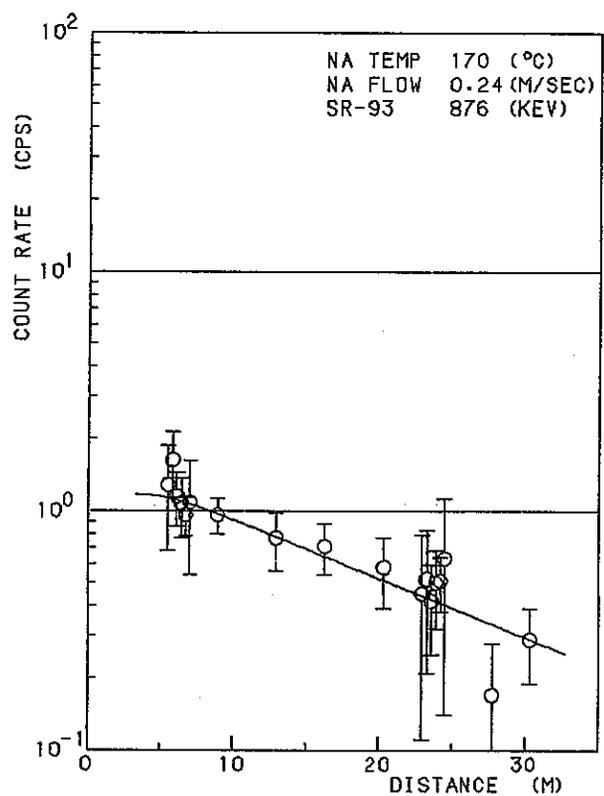
21) EXP. NO. 32



22) EXP. NO. 31

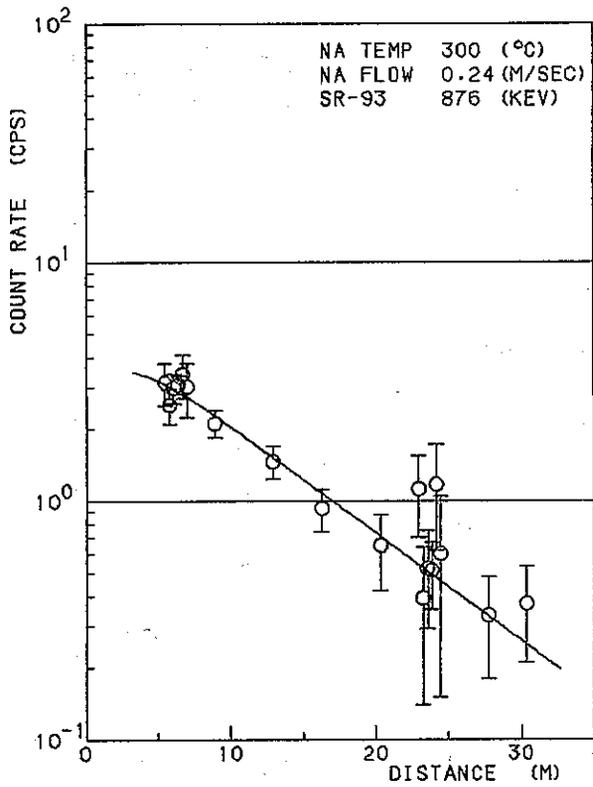


23) EXP. NO. 19

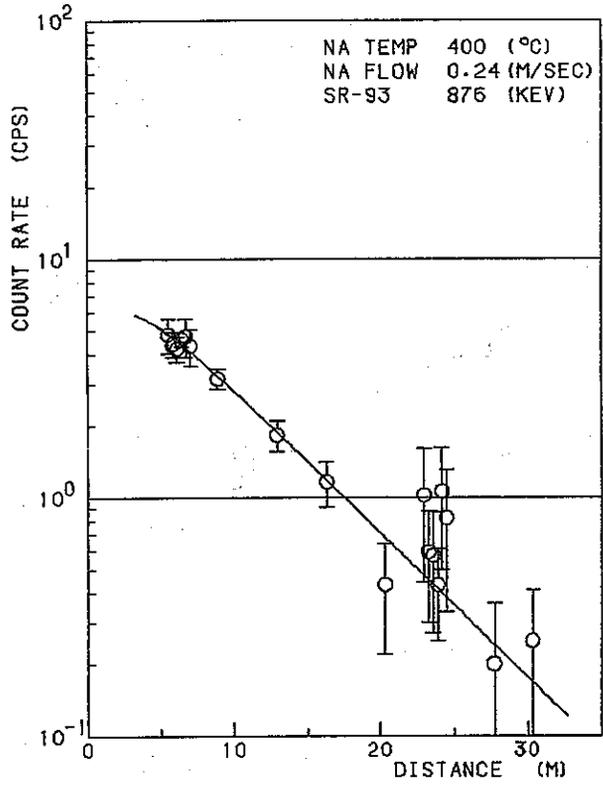


24) EXP. NO. 20

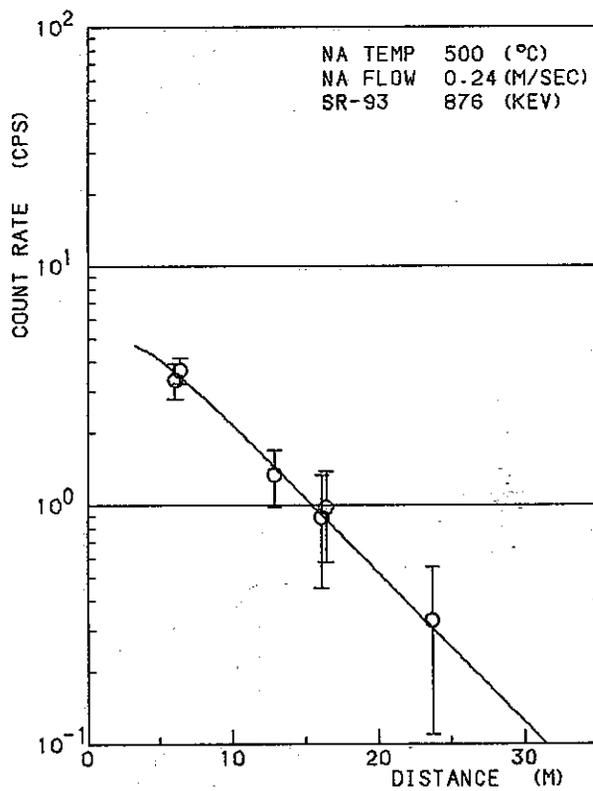
Fig 5 - 4 (continued)



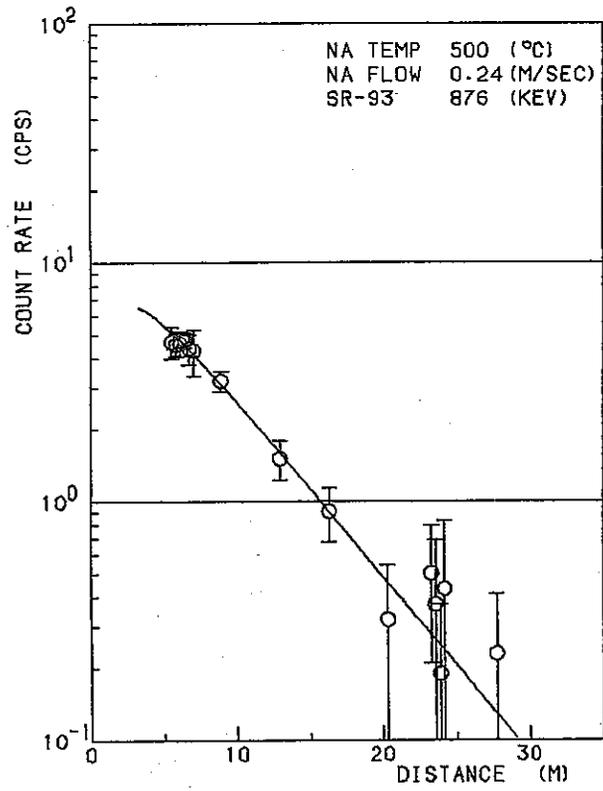
25) EXP. NO. 25



26) EXP. NO. 22

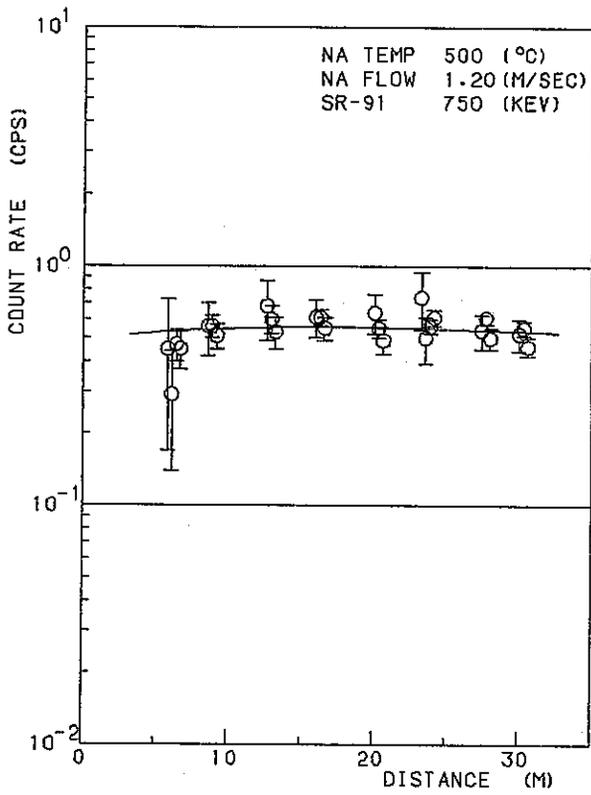


27) EXP. NO. 31

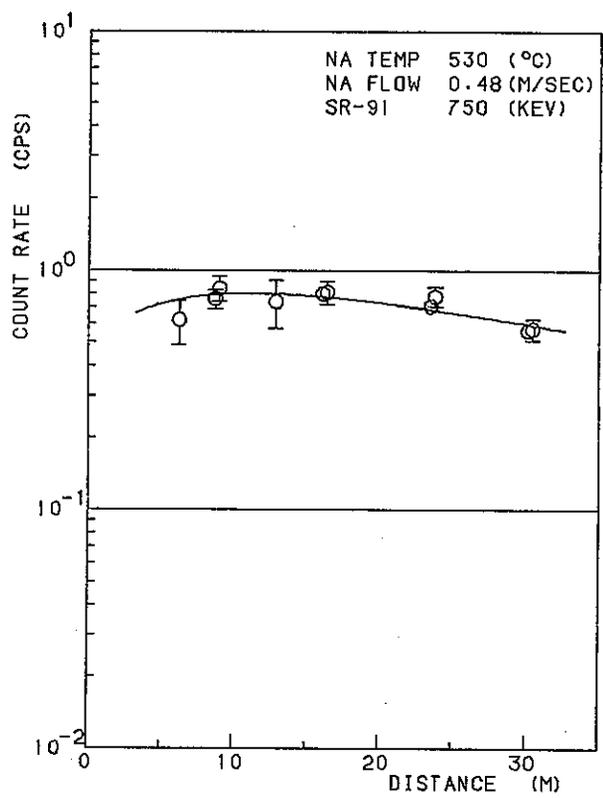


28) EXP. NO. 33

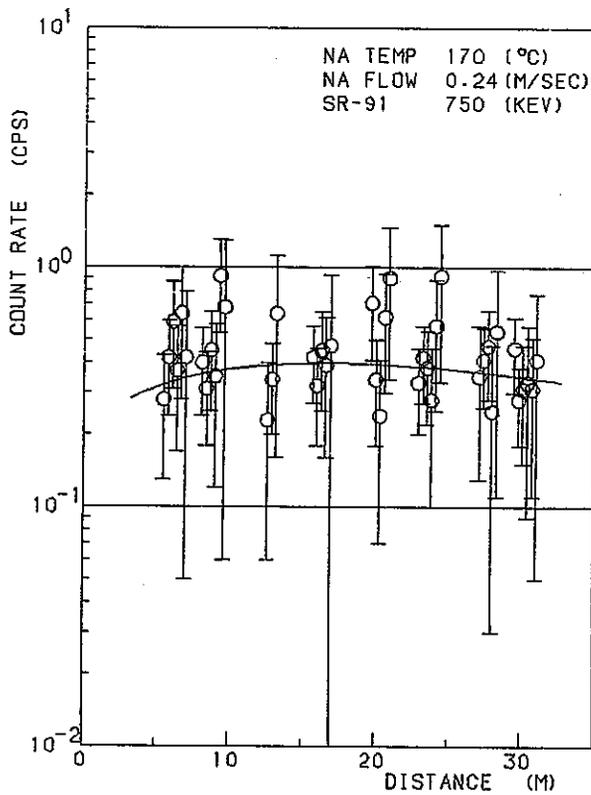
Fig 5.- 4. (continued)



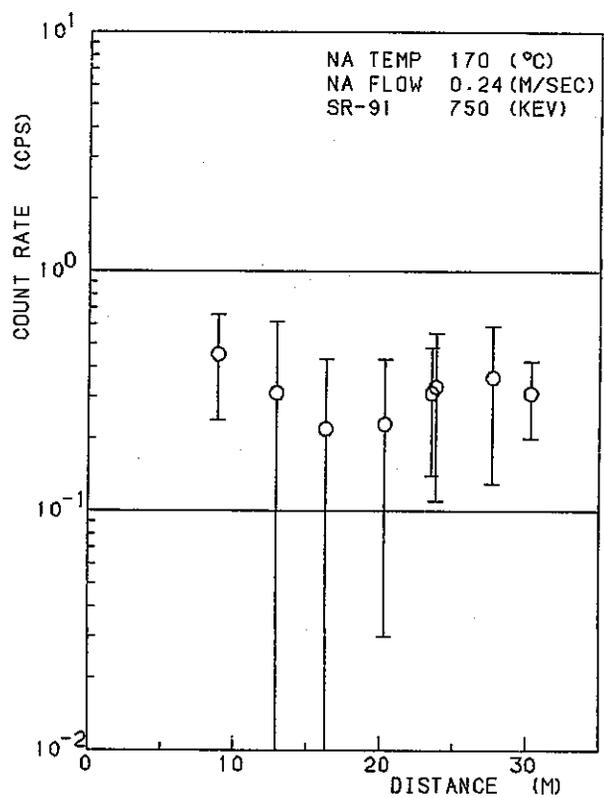
1) EXP. NO. 27



2) EXP. NO. 19

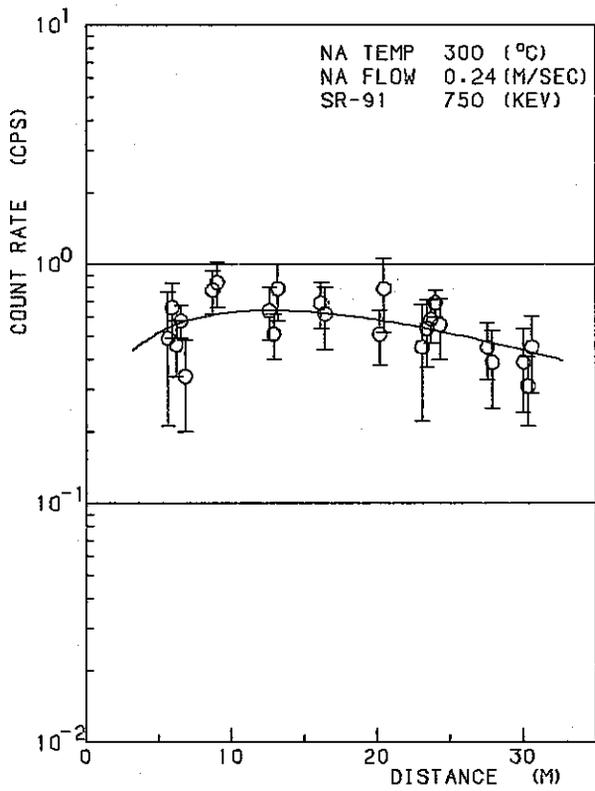


3) EXP. NO. 20

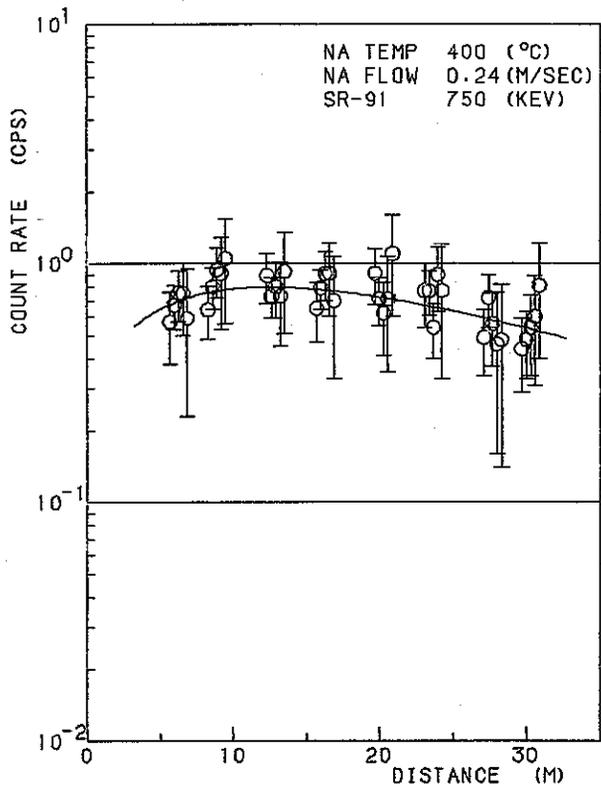


4) EXP. NO. 20

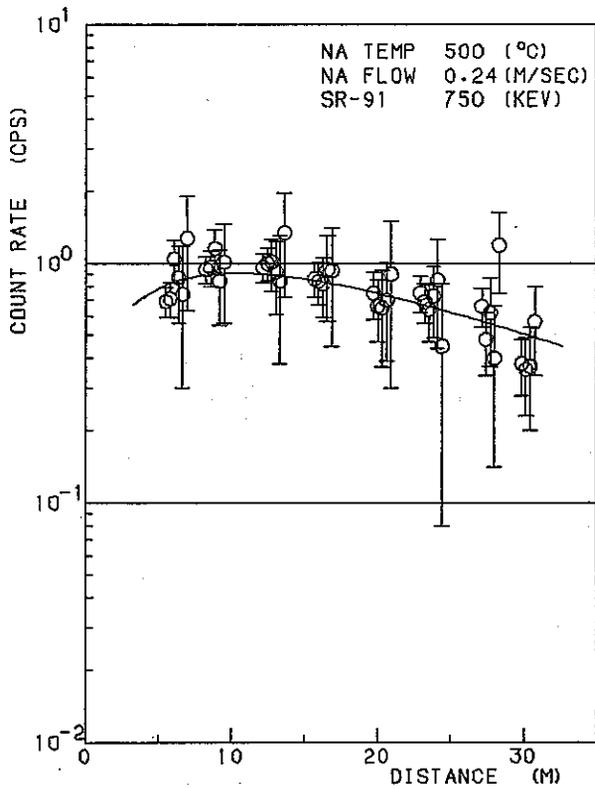
Fig 5 - 5 ⁹¹Sr deposition distribution along the delay line



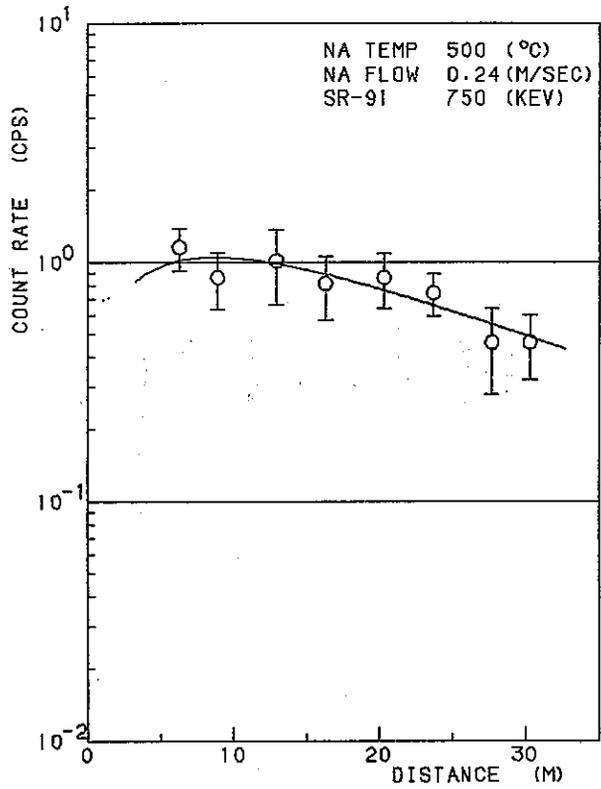
5) EXP. NO. 25



6) EXP. NO. 22

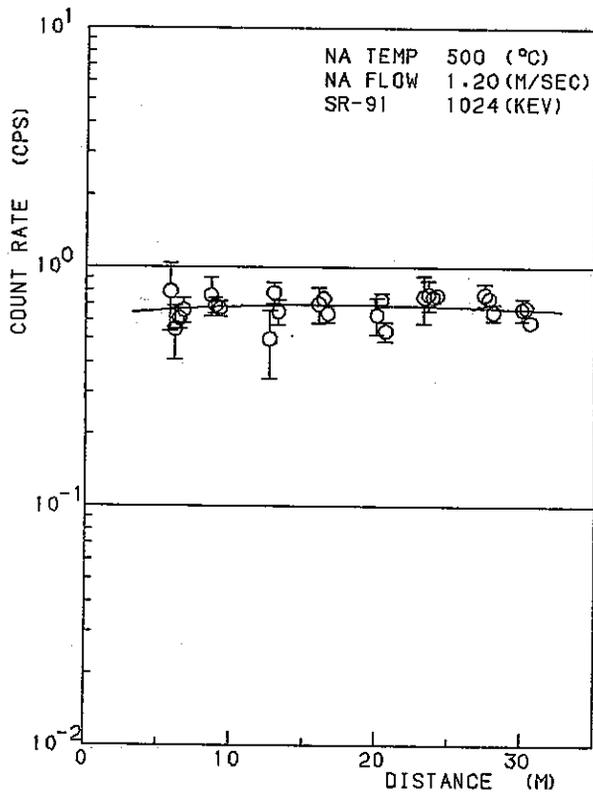


7) EXP. NO. 33

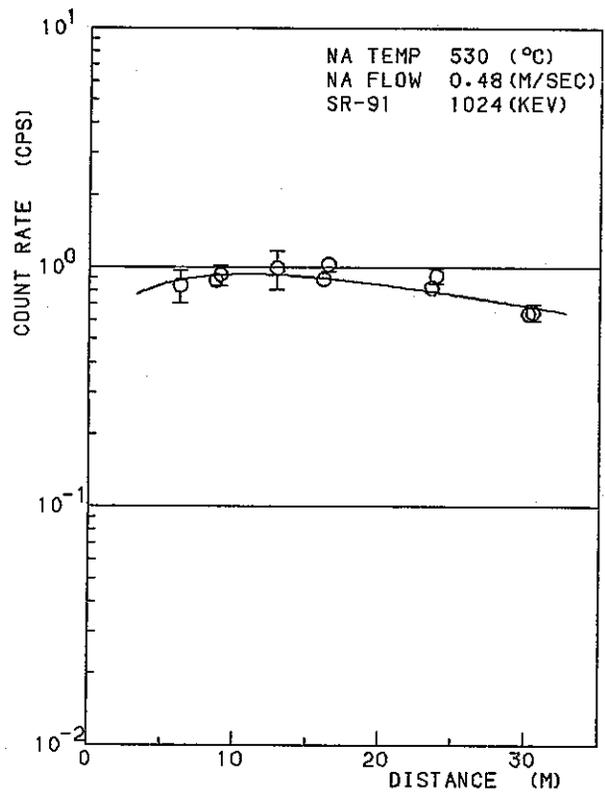


8) EXP. NO. 33

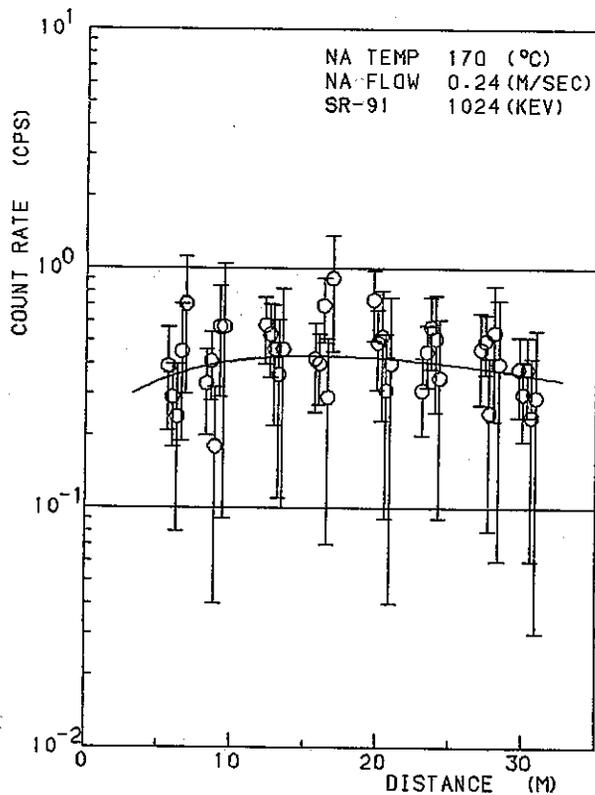
Fig 5 - 5 (continued)



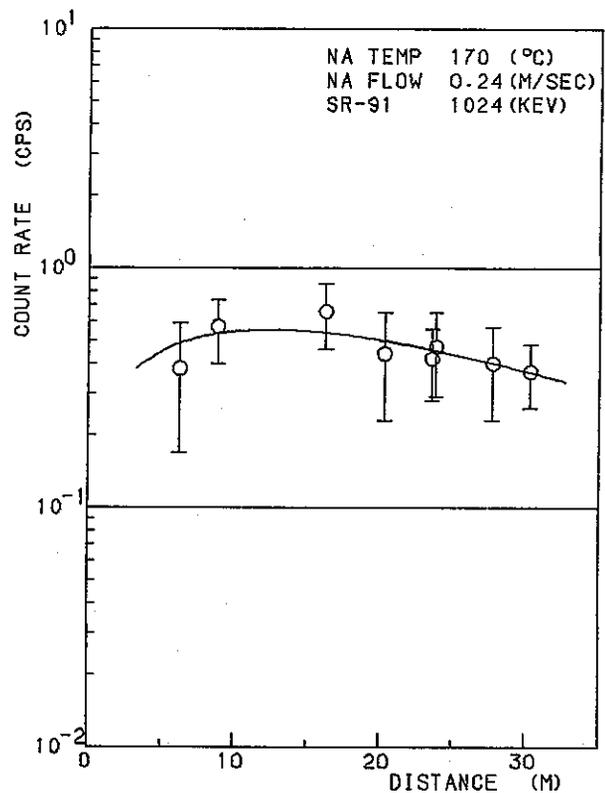
9) EXP. NO. 27



10) EXP. NO. 19

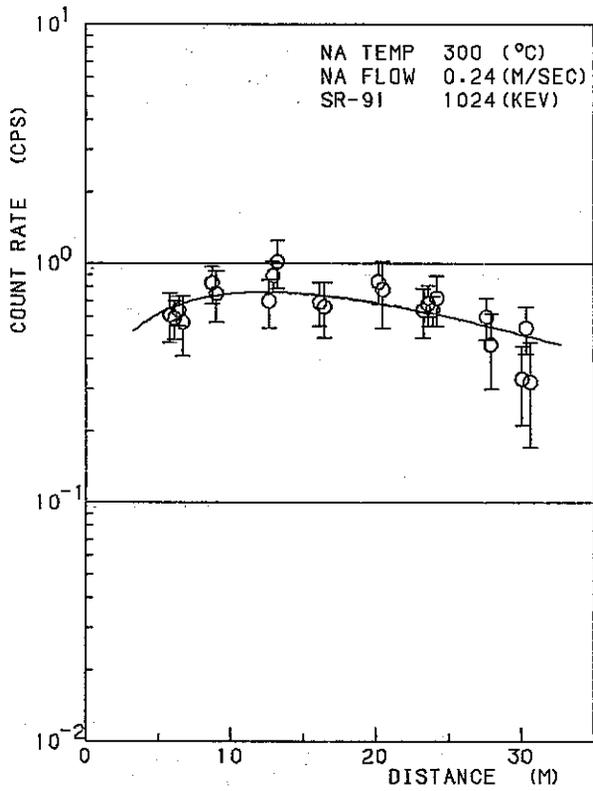


11) EXP. NO. 20

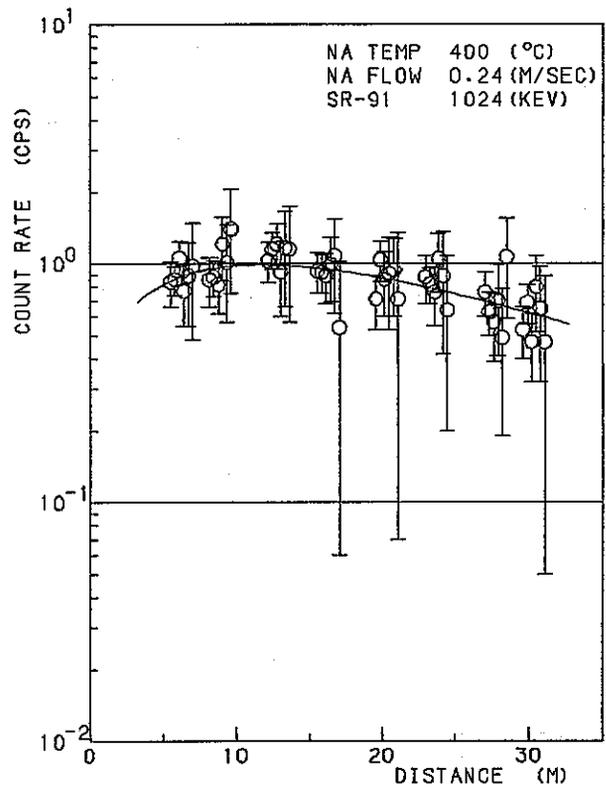


12) EXP. NO. 20

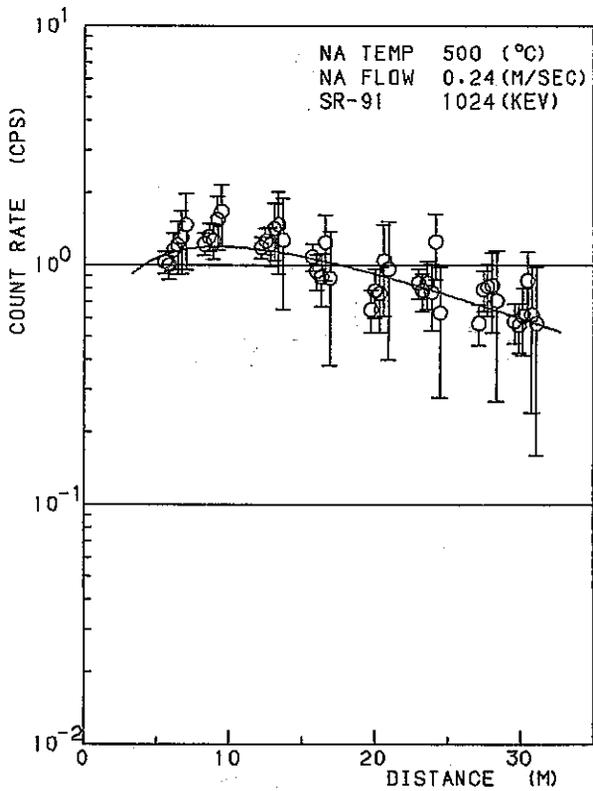
Fig 5 - 5 (continued)



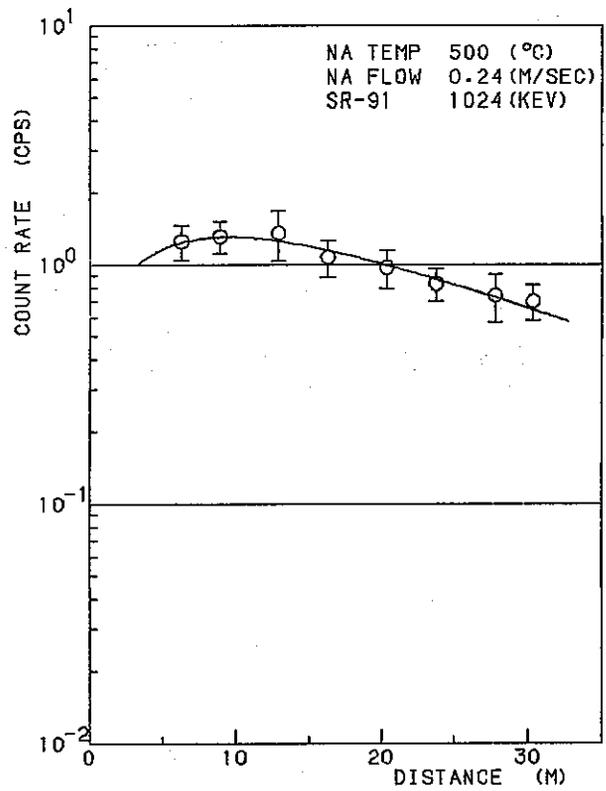
13) EXP. NO. 25



14) EXP. NO. 22

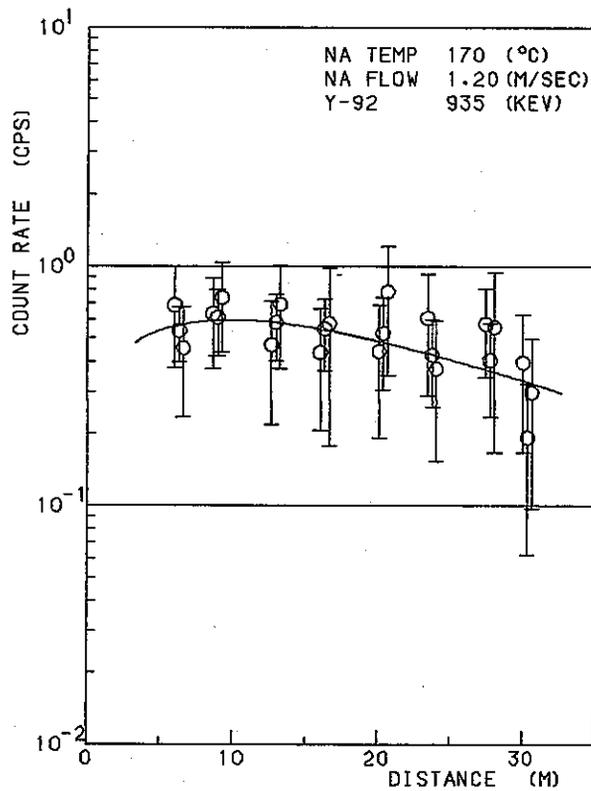


15) EXP. NO. 33

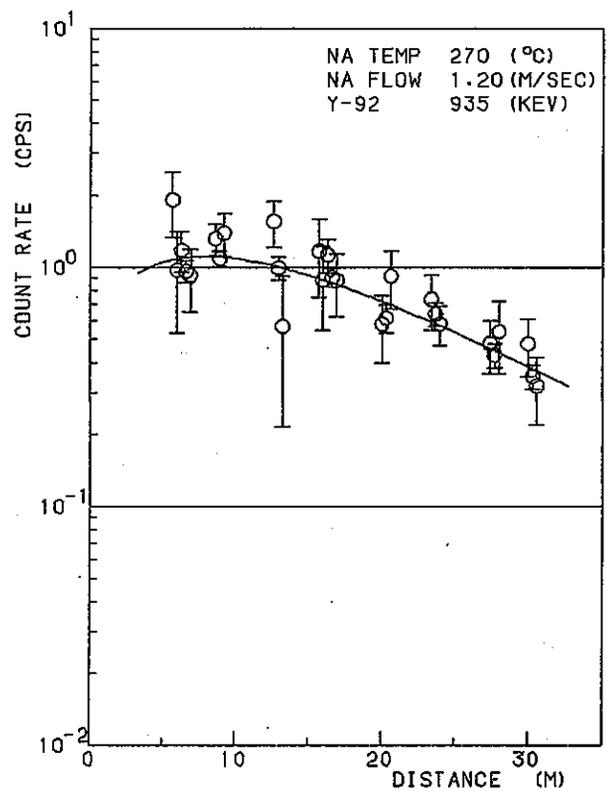


16) EXP. NO. 33

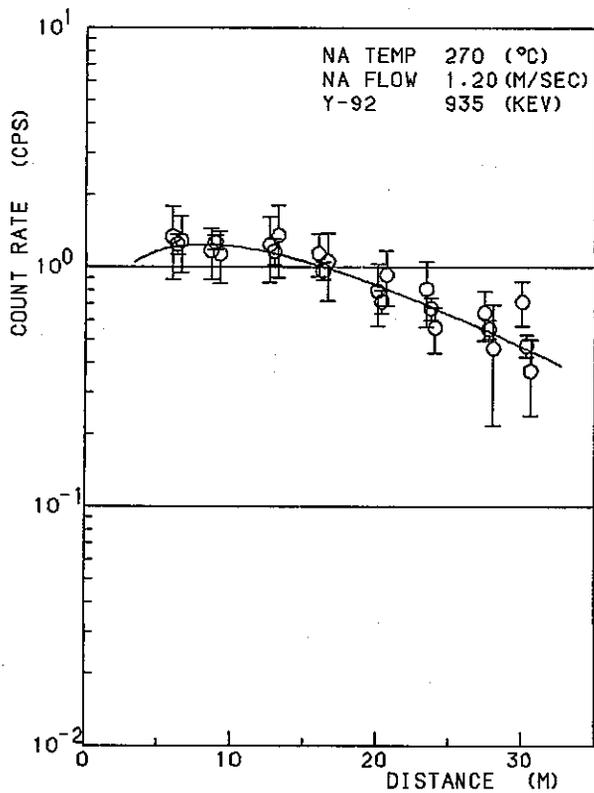
Fig 5 - 5 (continued)



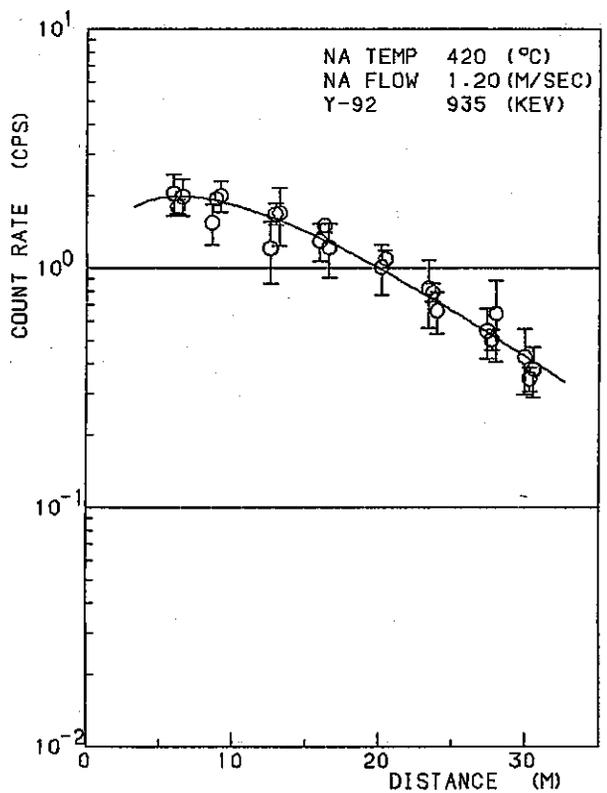
1) EXP. NO. 21



2) EXP. NO. 24

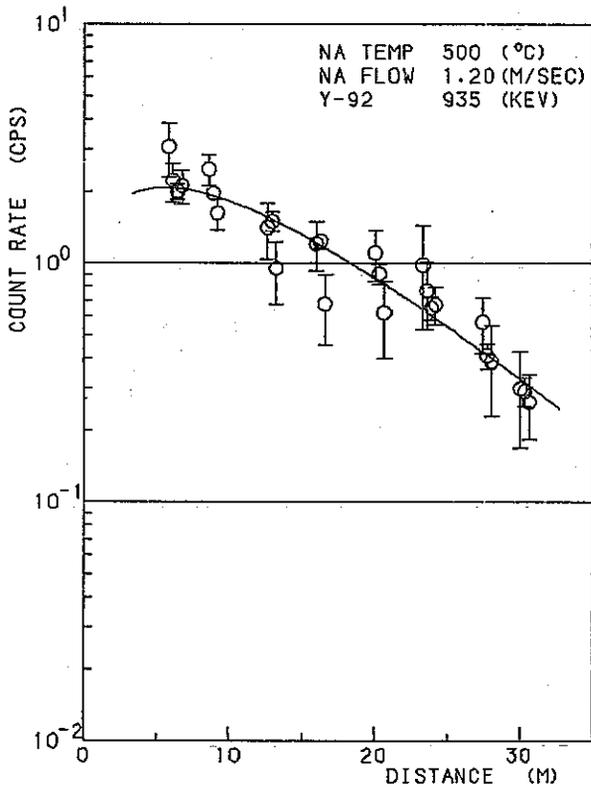


3) EXP. NO. 30

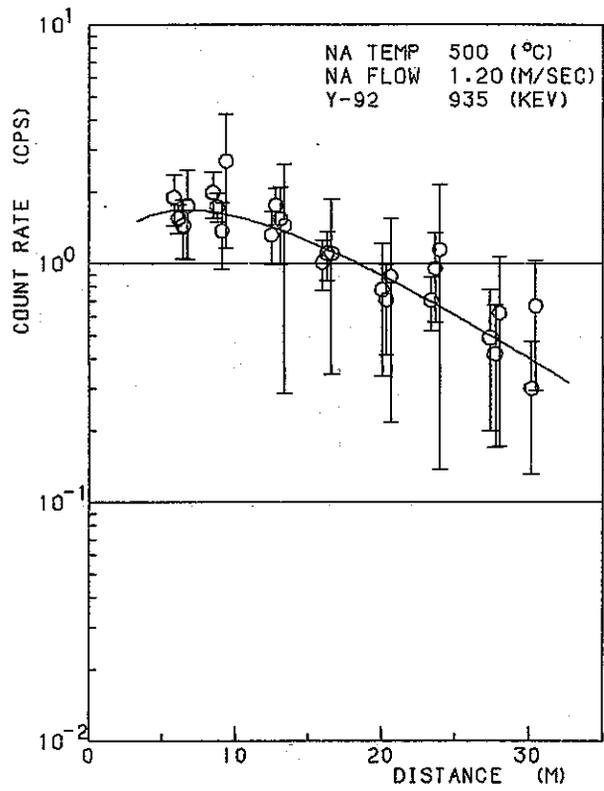


4) EXP. NO. 29

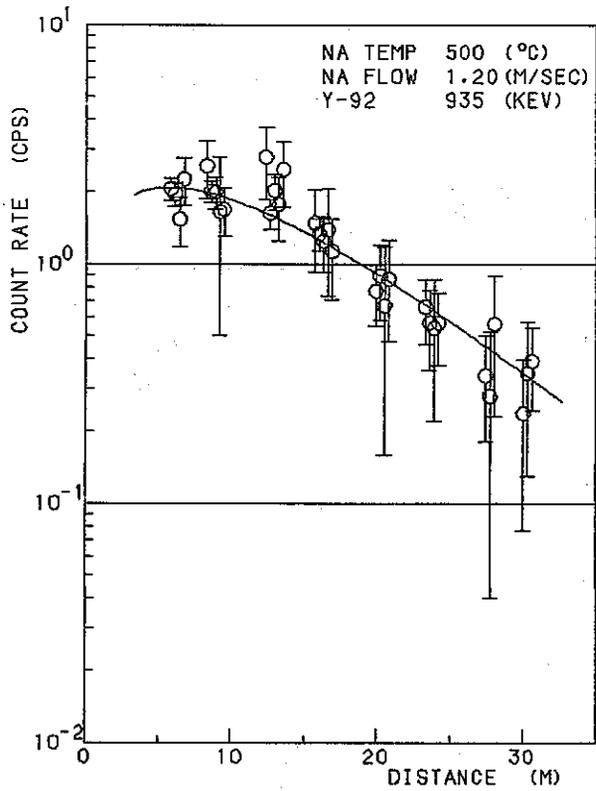
Fig 5 - 6 ⁹²Y deposition distribution along the delay line



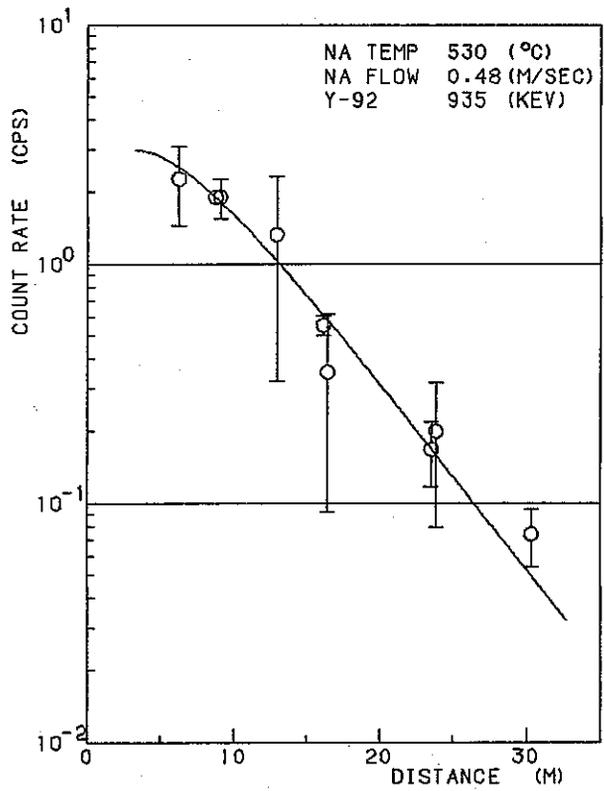
5) EXP. NO. 27



6) EXP. NO. 28

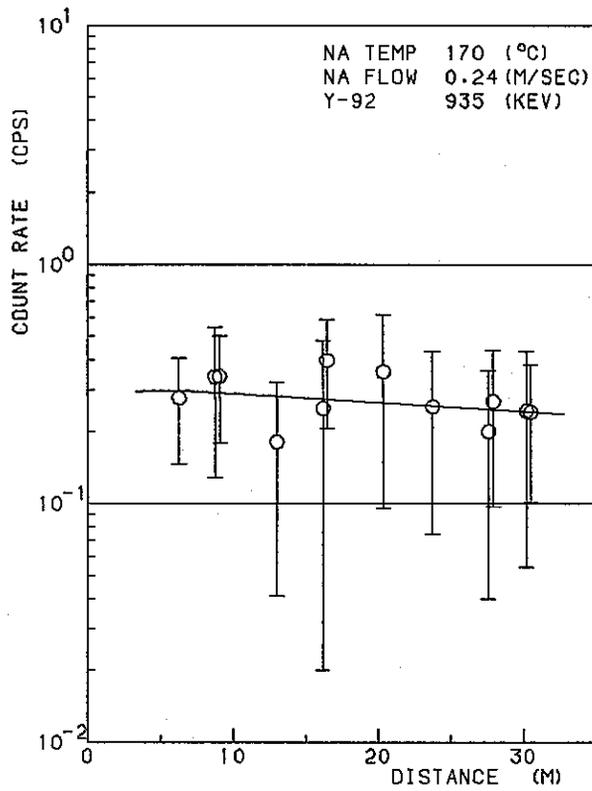


7) EXP. NO. 32

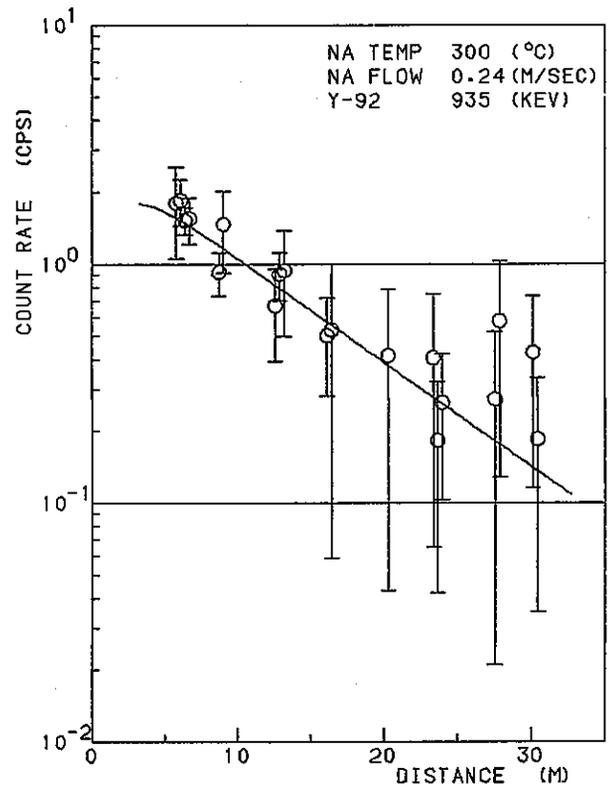


8) EXP. NO. 19

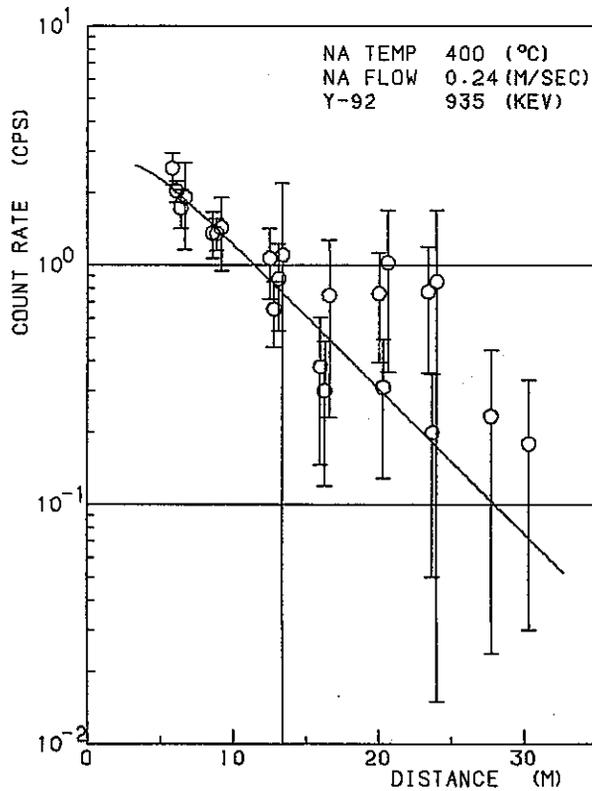
Fig 5 - 6 (continued)



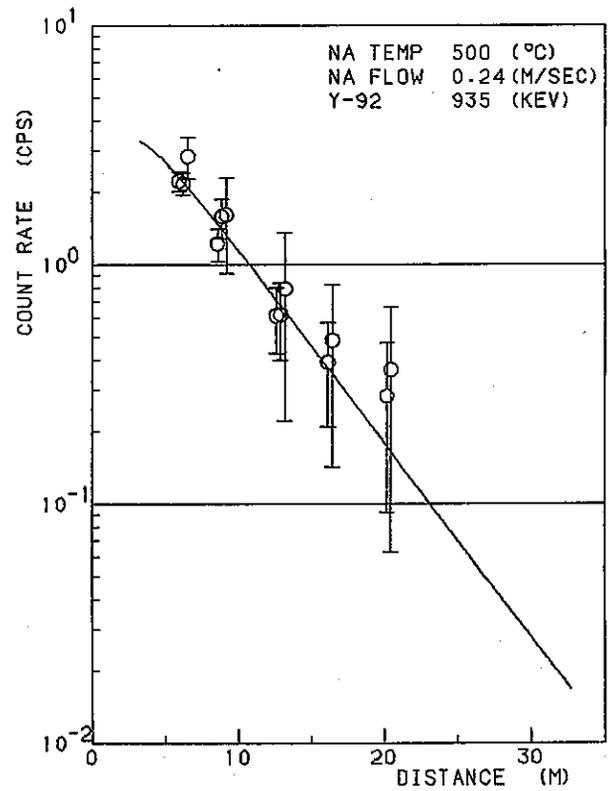
9) EXP. NO. 20



10) EXP. NO. 25

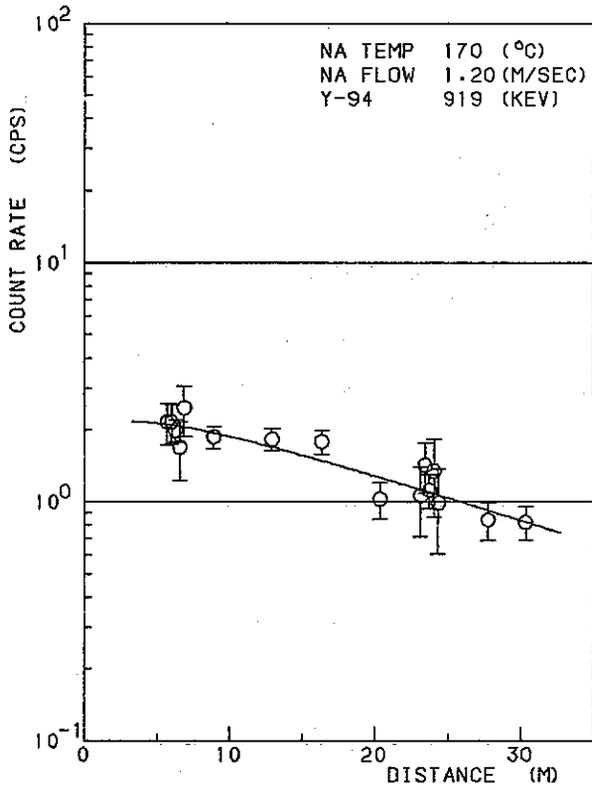


11) EXP. NO. 22

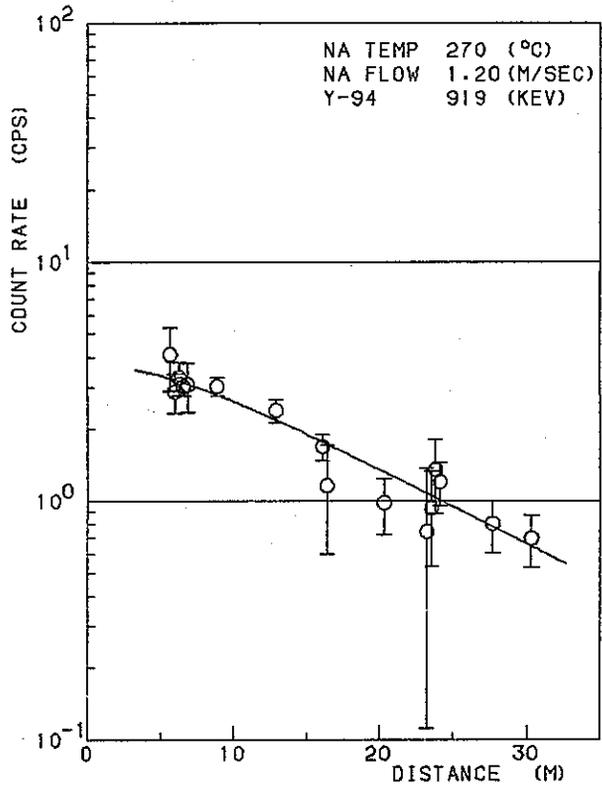


12) EXP. NO. 33

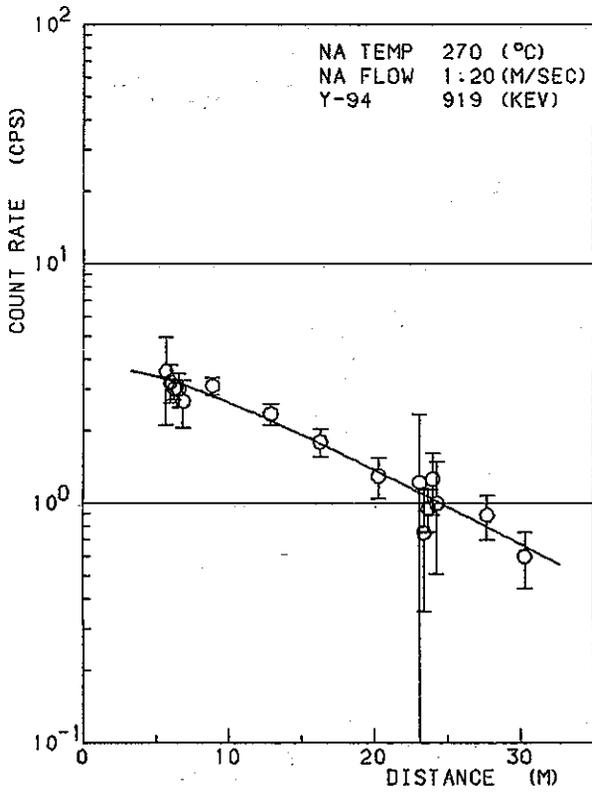
Fig 5 - 6 (continued)



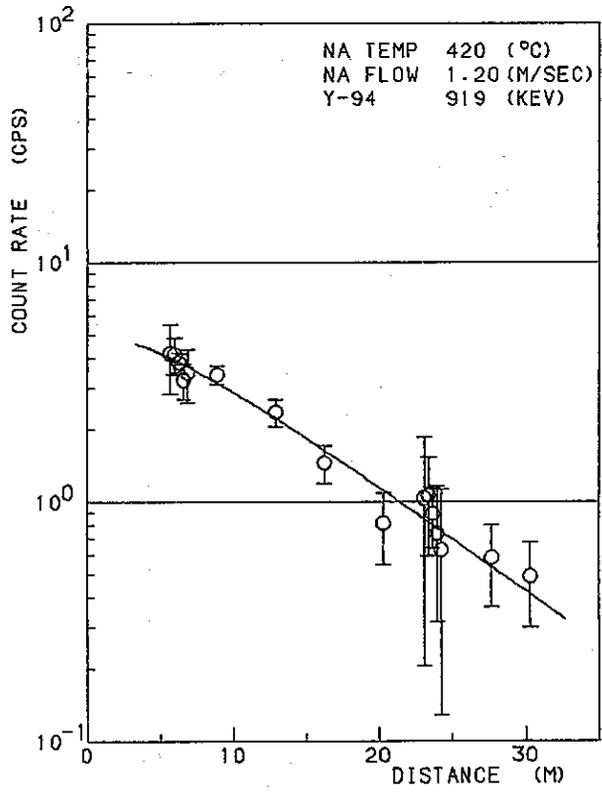
1) EXP. NO. 21



2) EXP. NO. 24

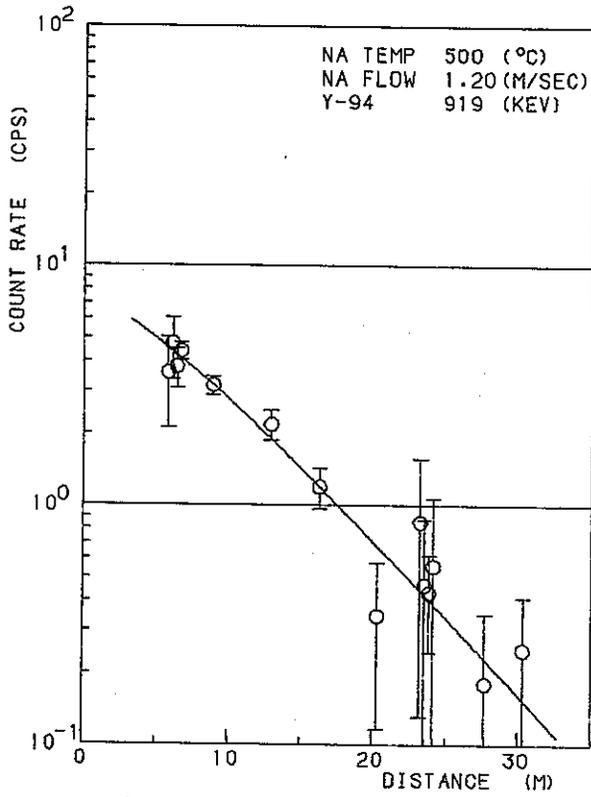


3) EXP. NO. 30

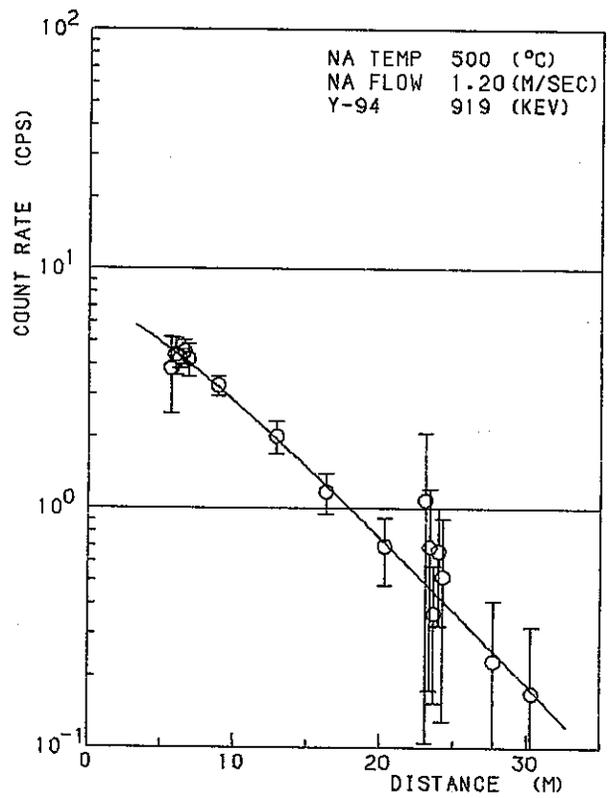


4) EXP. NO. 29

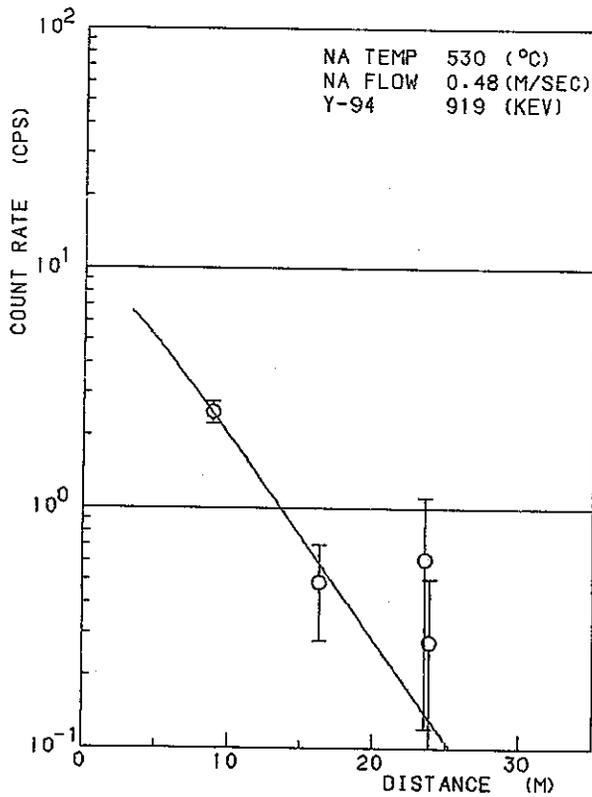
Fig 5 - 7 ⁹⁴Y deposition distribution along the delay line



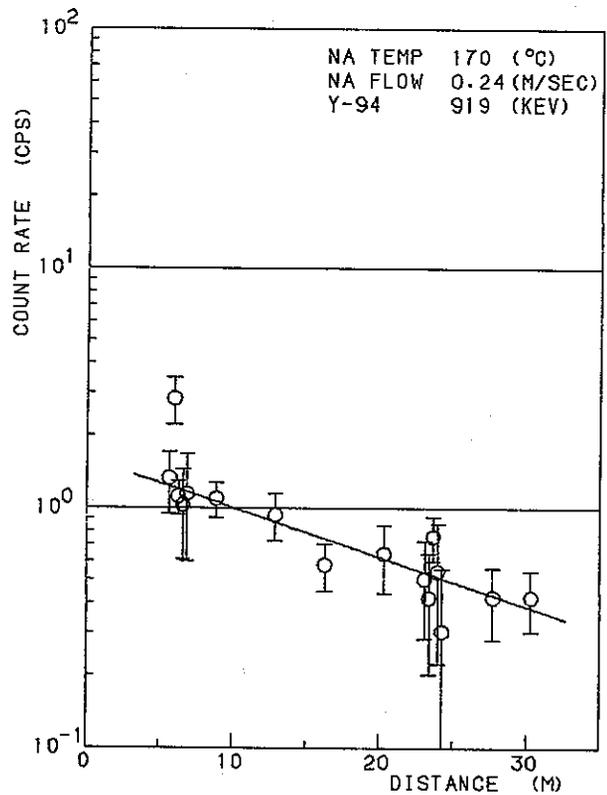
5) EXP. NO. 28



6) EXP. NO. 32

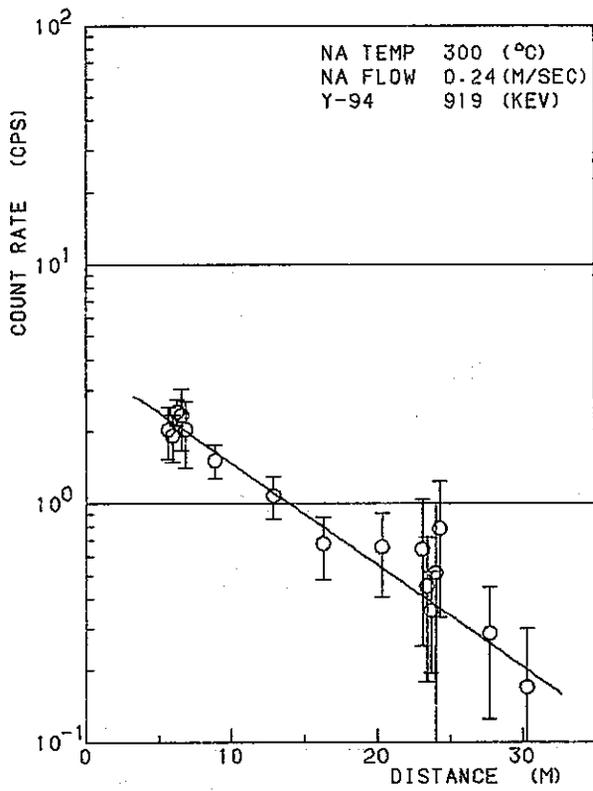


7) EXP. NO. 19

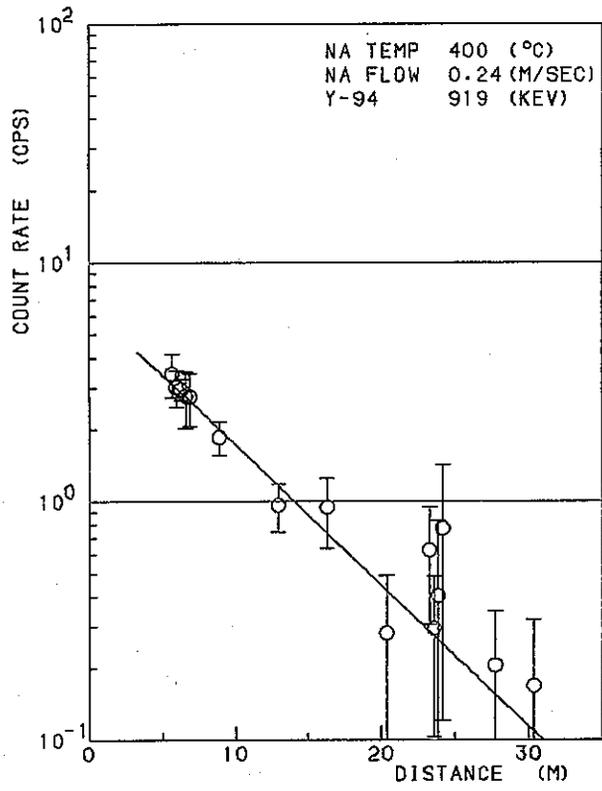


8) EXP. NO. 20

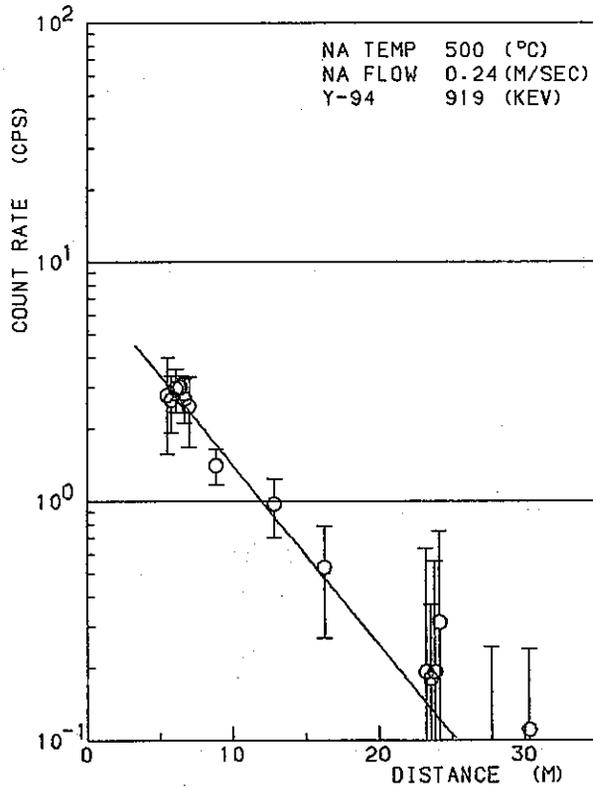
Fig 5 - 7 (continued)



9) EXP. NO. 25

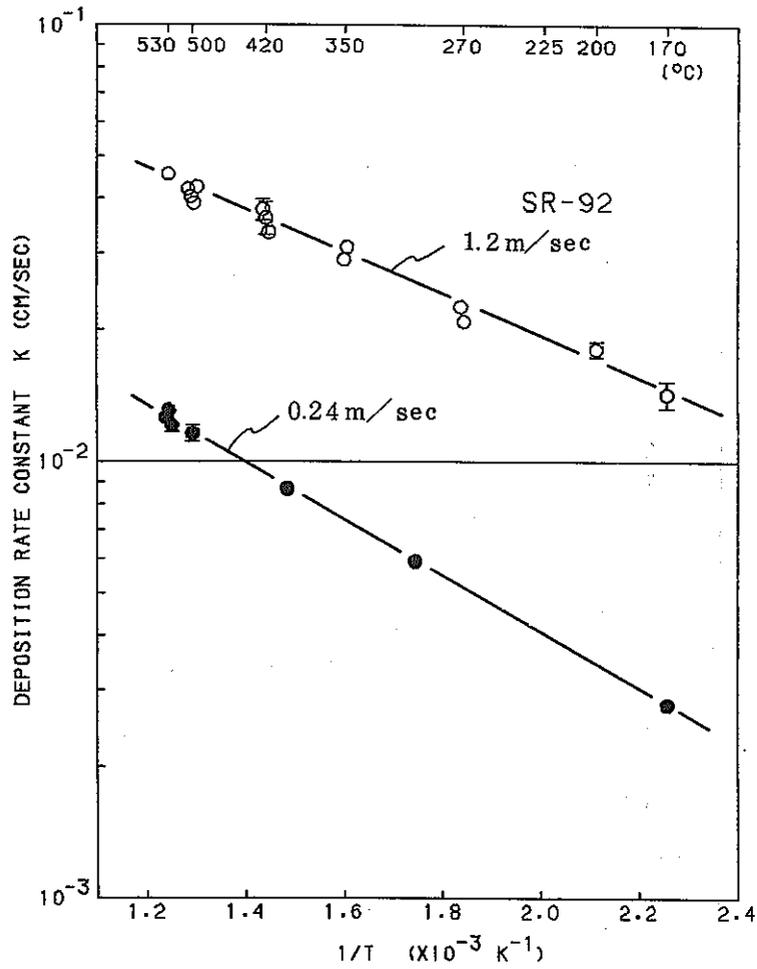


10) EXP. NO. 22

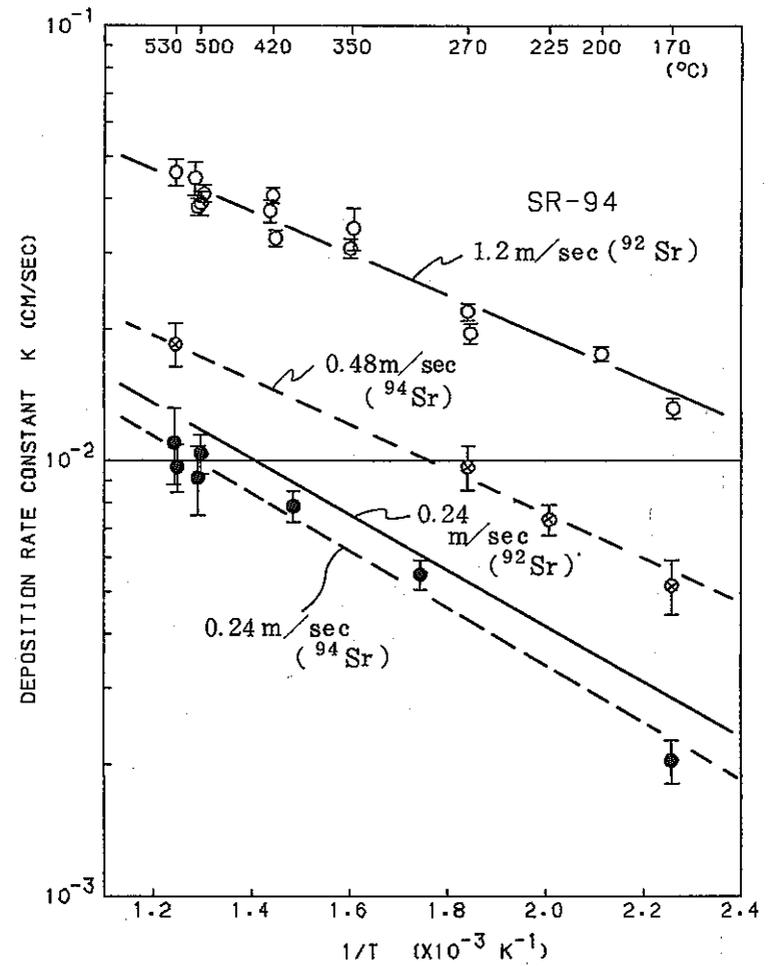


11) EXP. NO. 33

Fig 5 - 7 (continued)

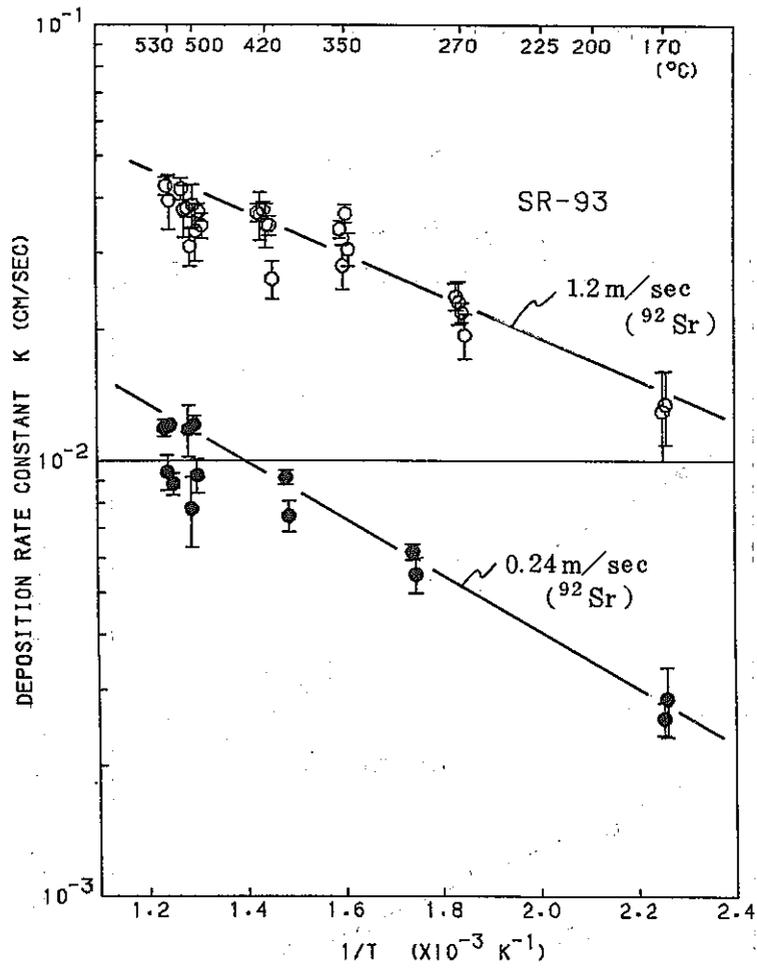


1) ⁹²Sr

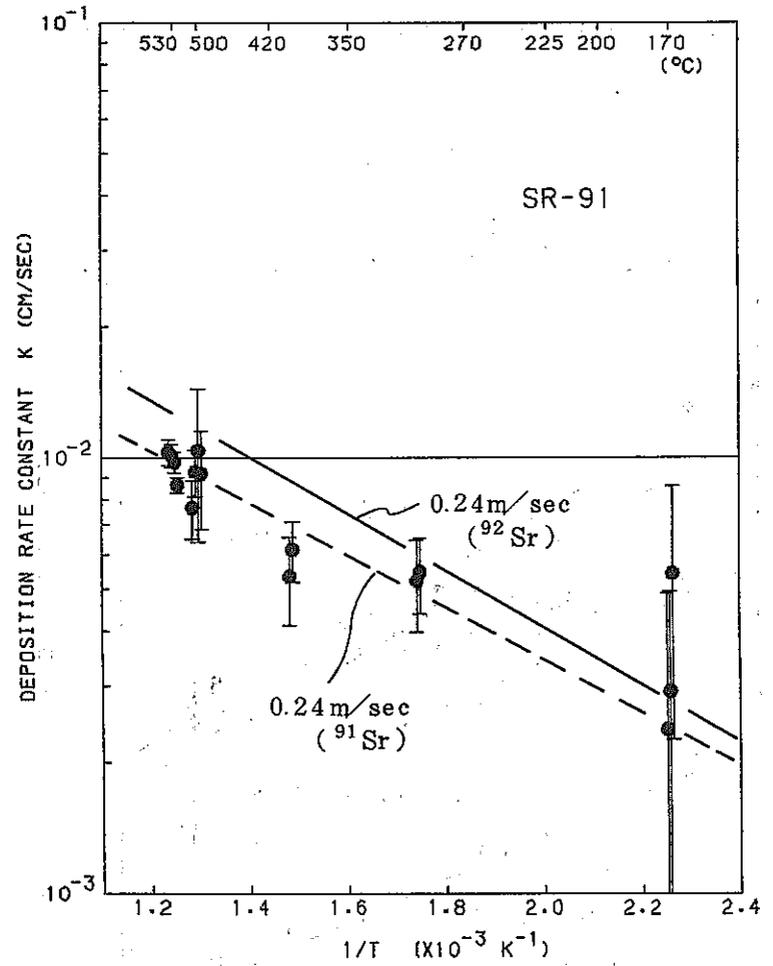


2) ⁹⁴Sr

Fig 5 - 8 Relationship between Sr deposition rate constant and reciprocal absolute temperature

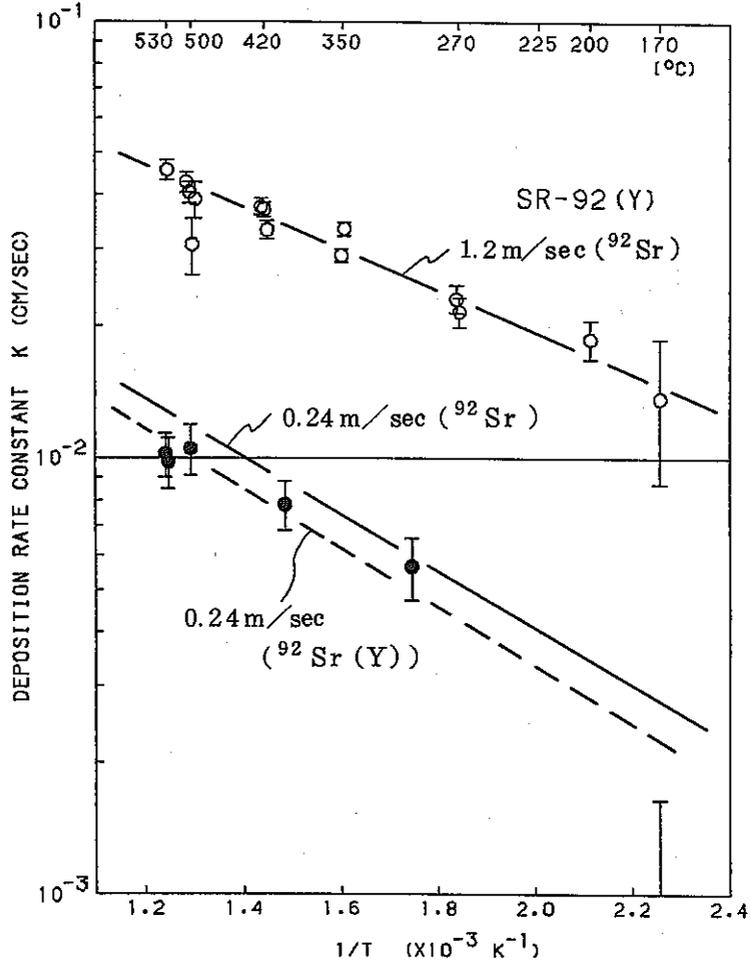


3) ⁹³Sr

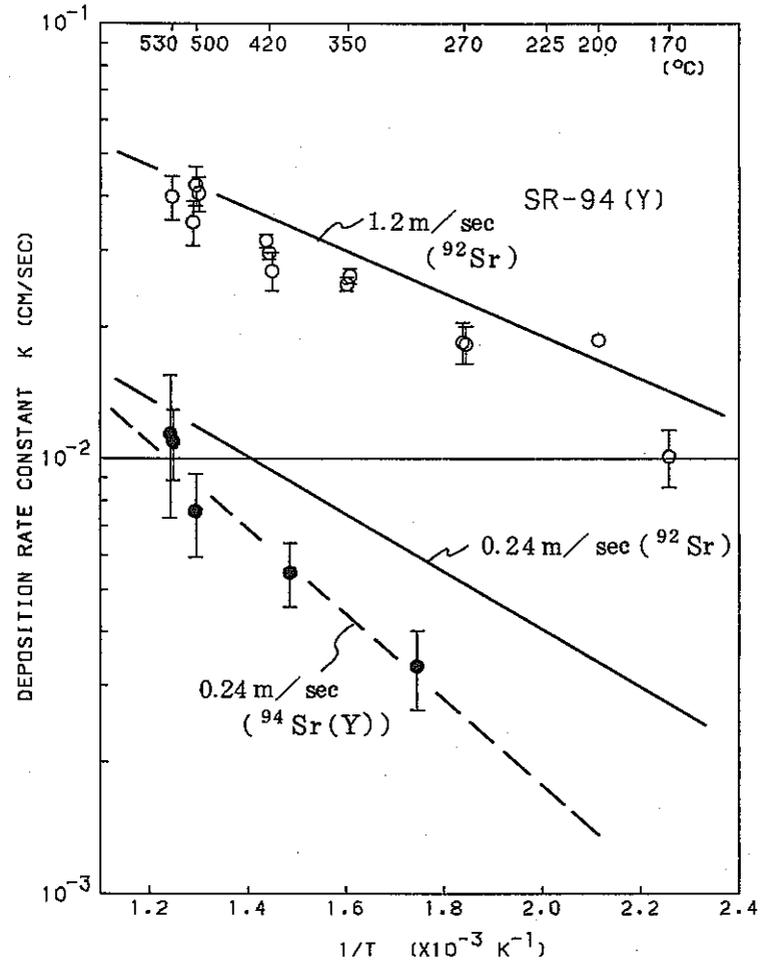


4) ⁹¹Sr

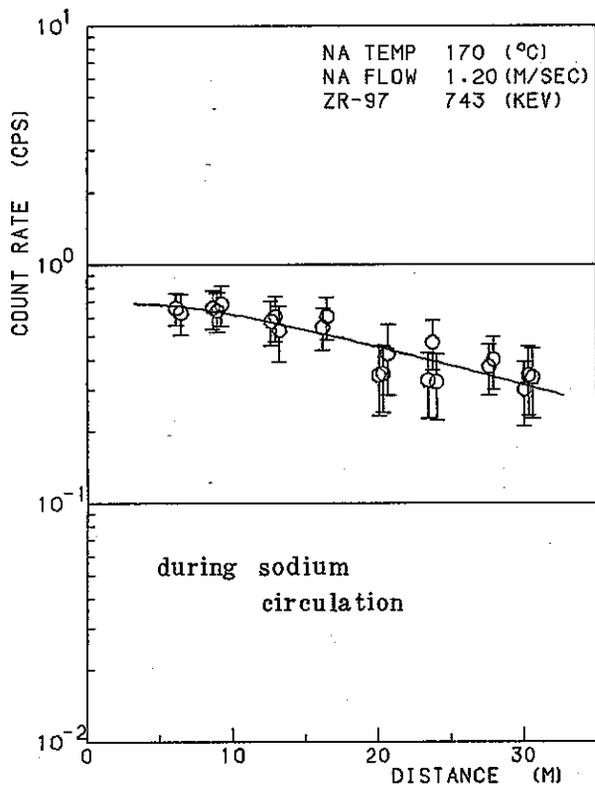
Fig 5 - 8 (continued)



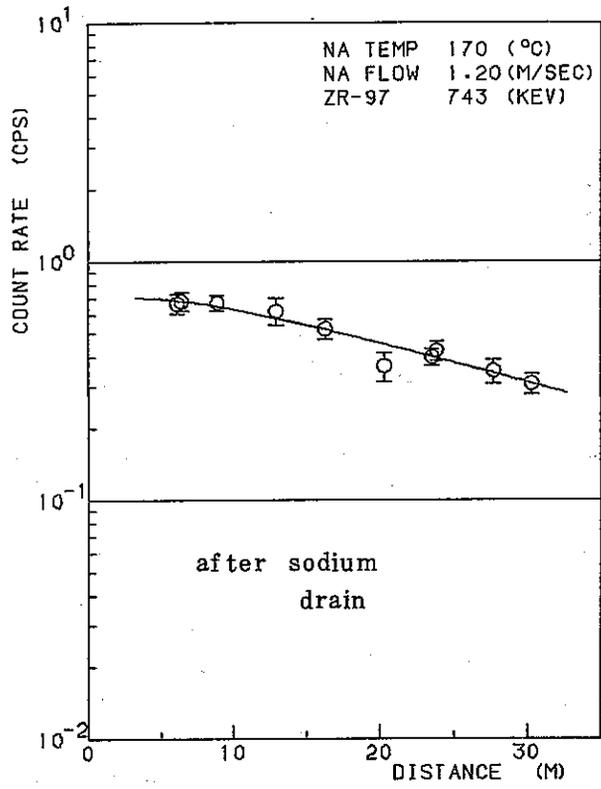
5) ^{92}Sr obtained by using ^{92}Y deposition distribution pattern



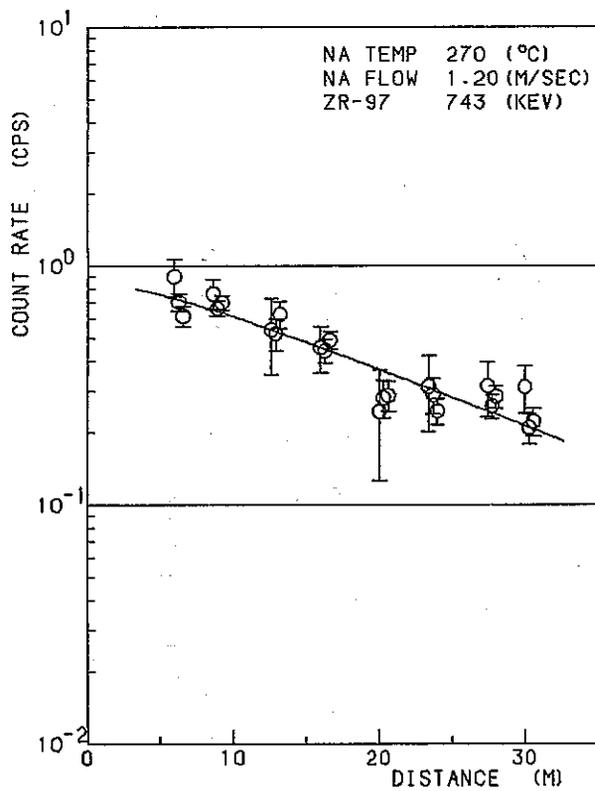
6) ^{94}Sr obtained by using ^{94}Y deposition distribution pattern



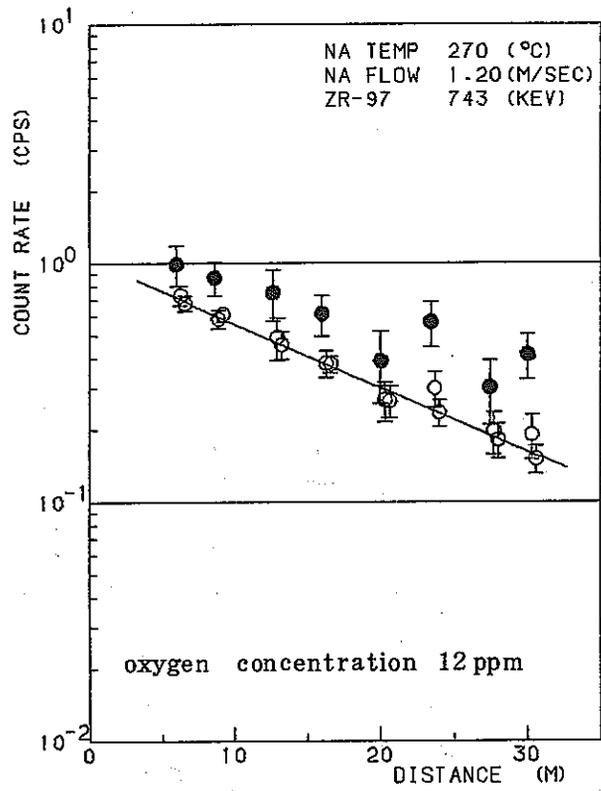
1) EXP. NO. 21



2) EXP. NO. 21

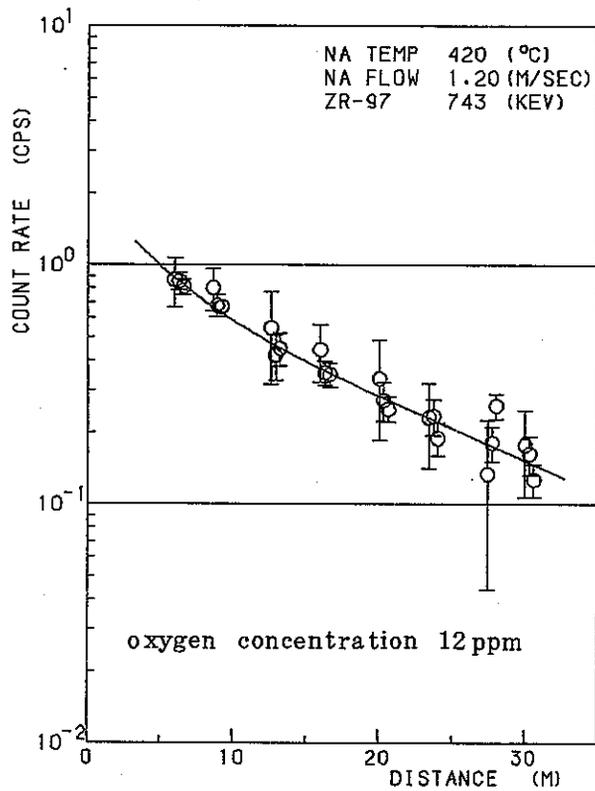


3) EXP. NO. 24

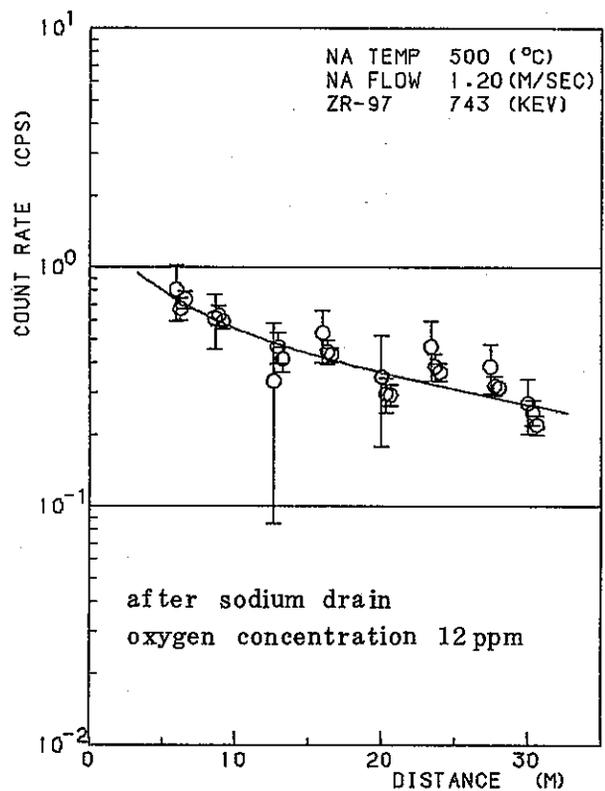


4) EXP. NO. 30

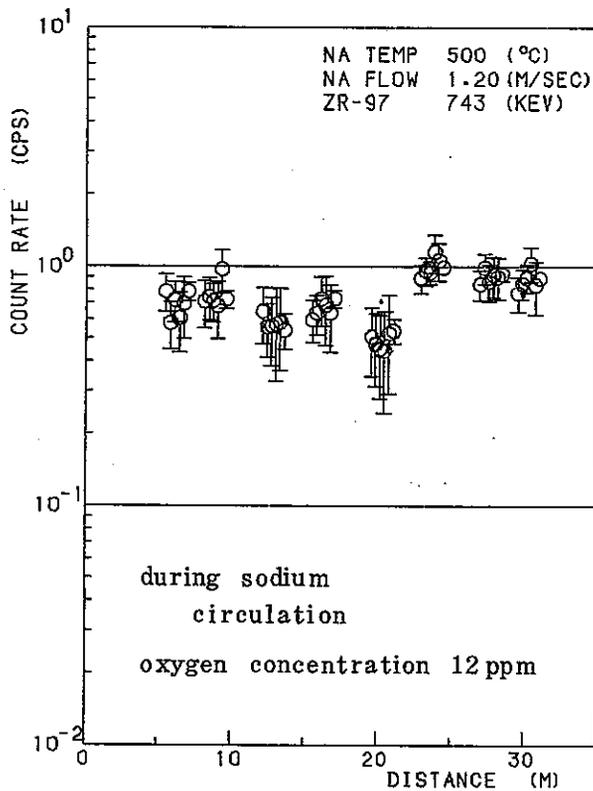
Fig 5 - 9 ⁹⁷Zr deposition distribution along the delay line



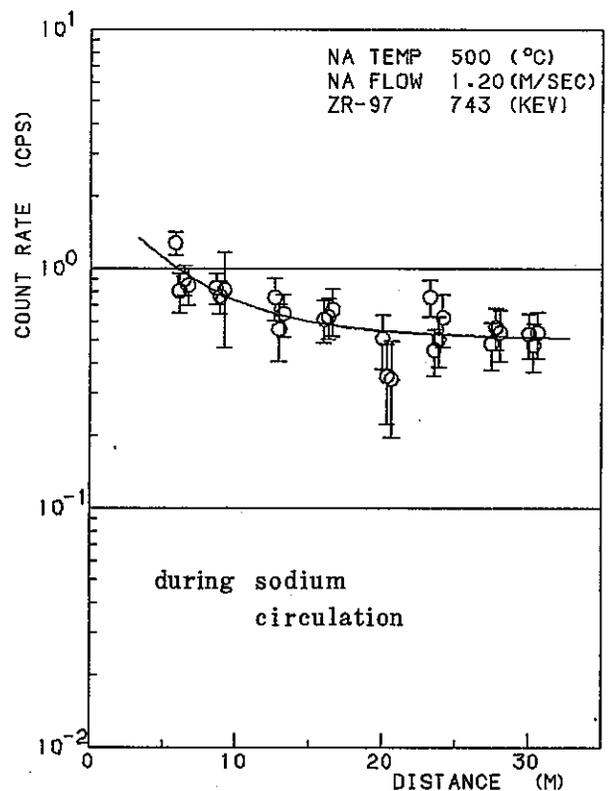
5) EXP. NO. 29



6) EXP. NO. 27

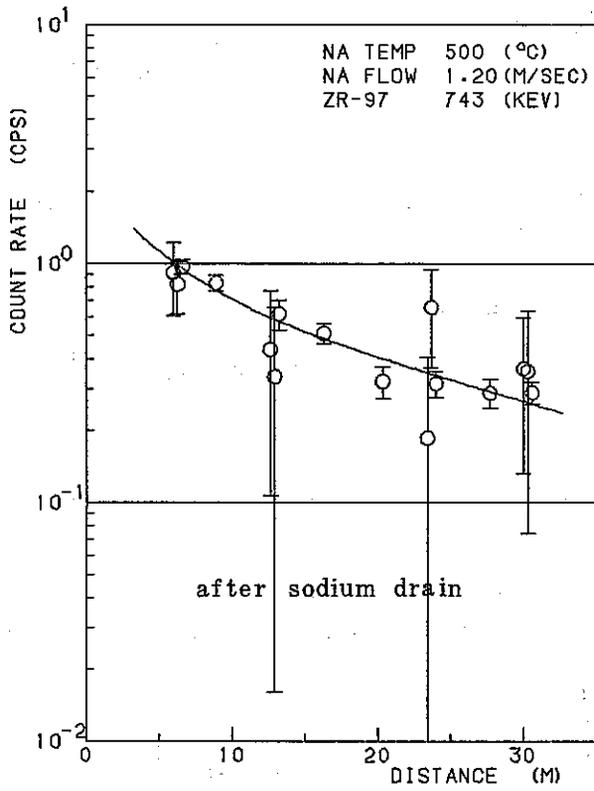


7) EXP. NO. 28

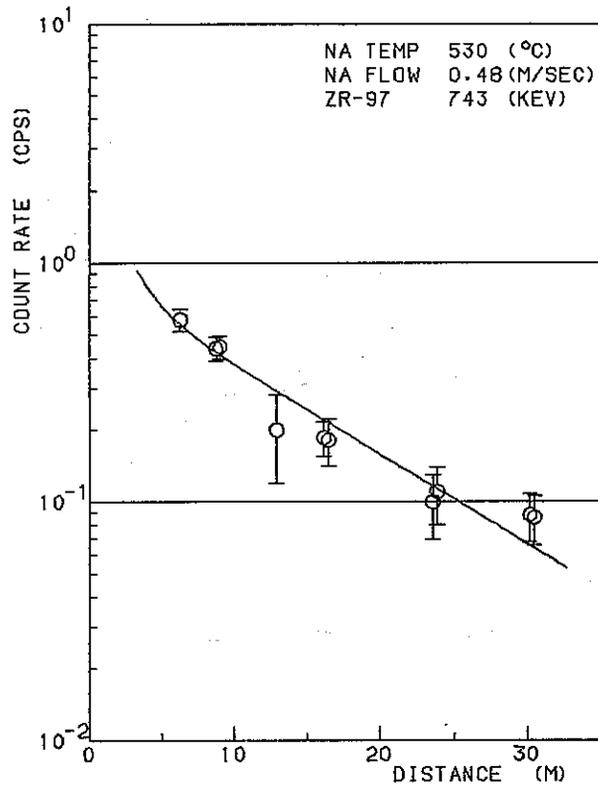


8) EXP. NO. 32

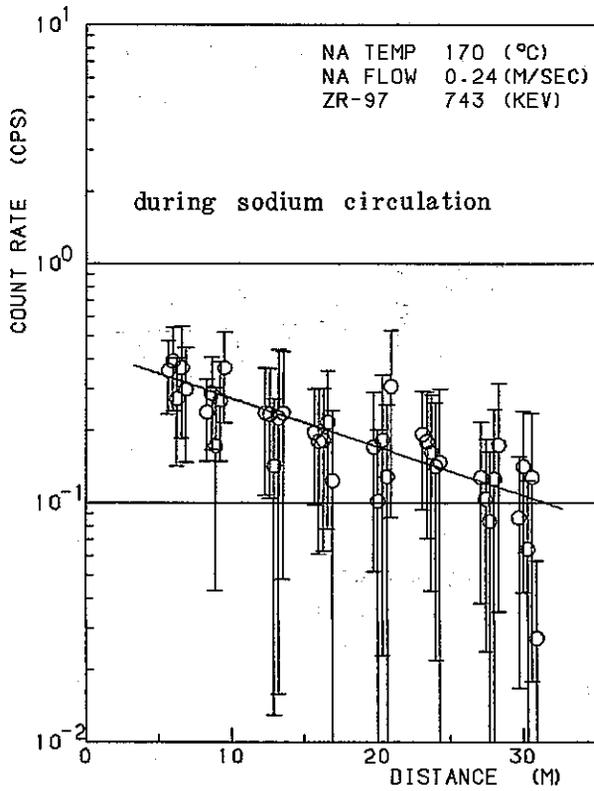
Fig 5 - 9 (continued)



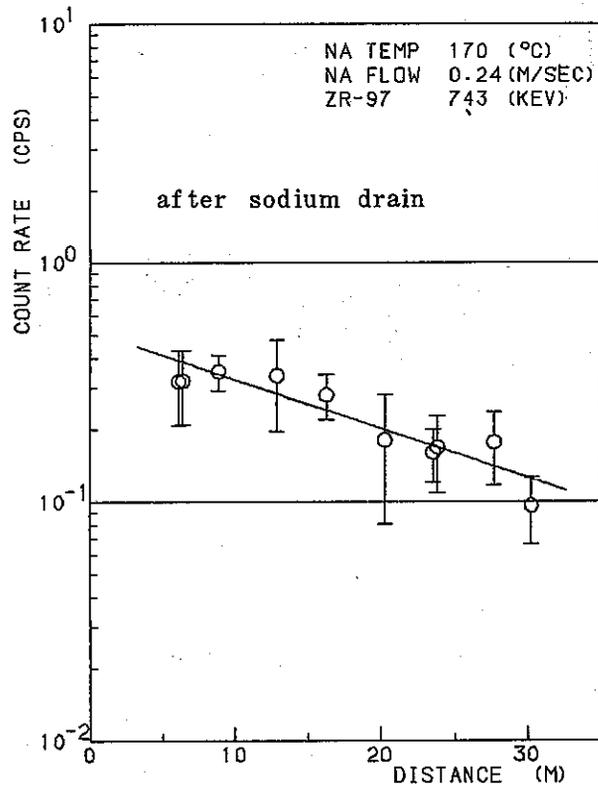
9) EXP. NO. 32



10) EXP. NO. 19

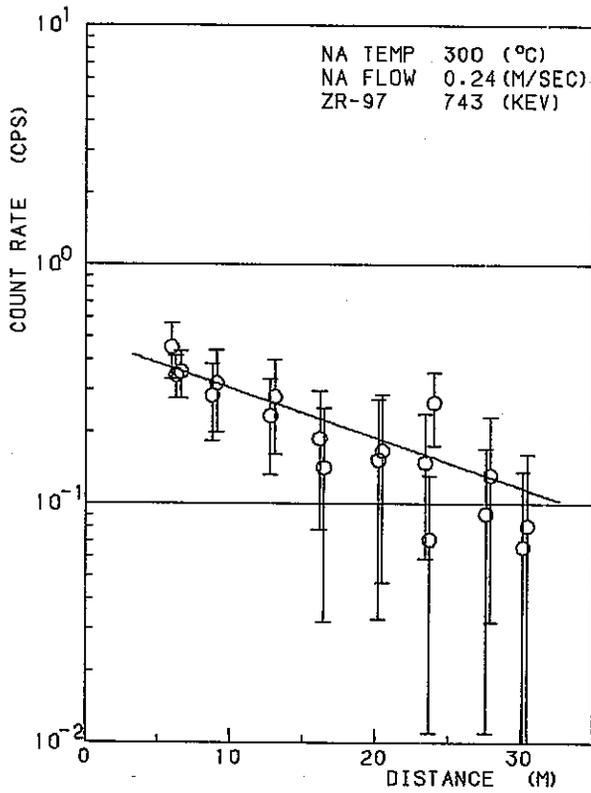


11) EXP. NO. 20

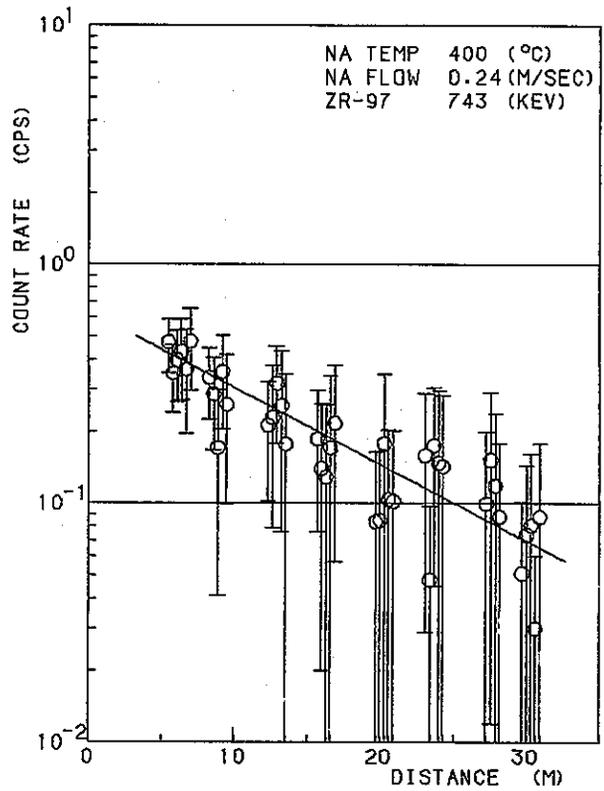


12) EXP. NO. 20

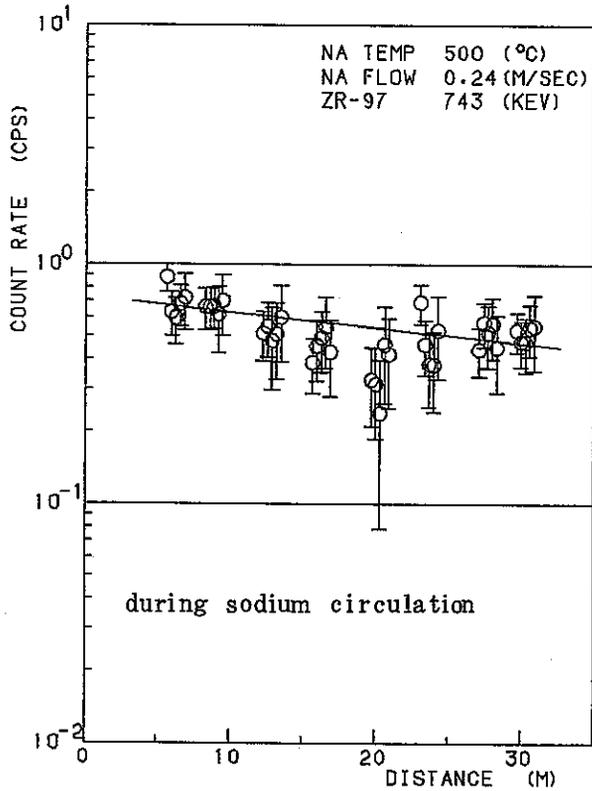
Fig 5 - 9 (continued)



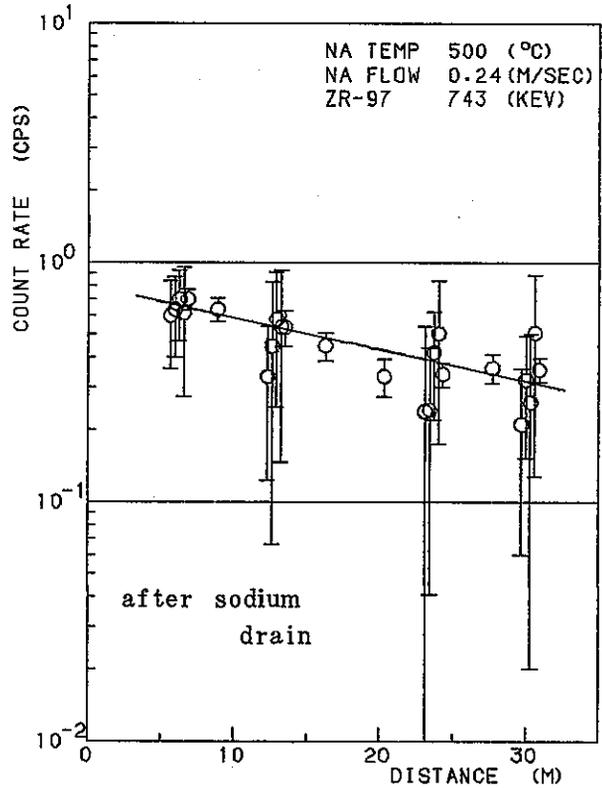
13) EXP. NO. 25



14) EXP. NO. 22

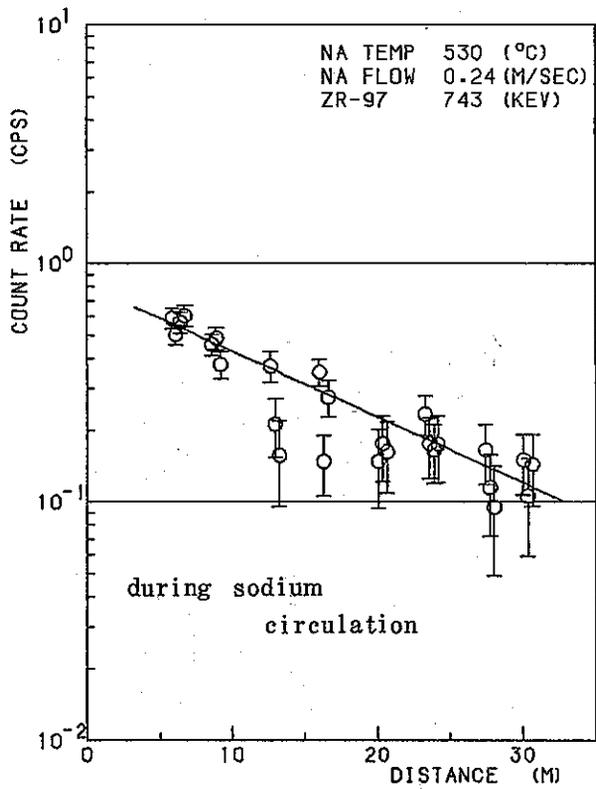


15) EXP. NO. 33

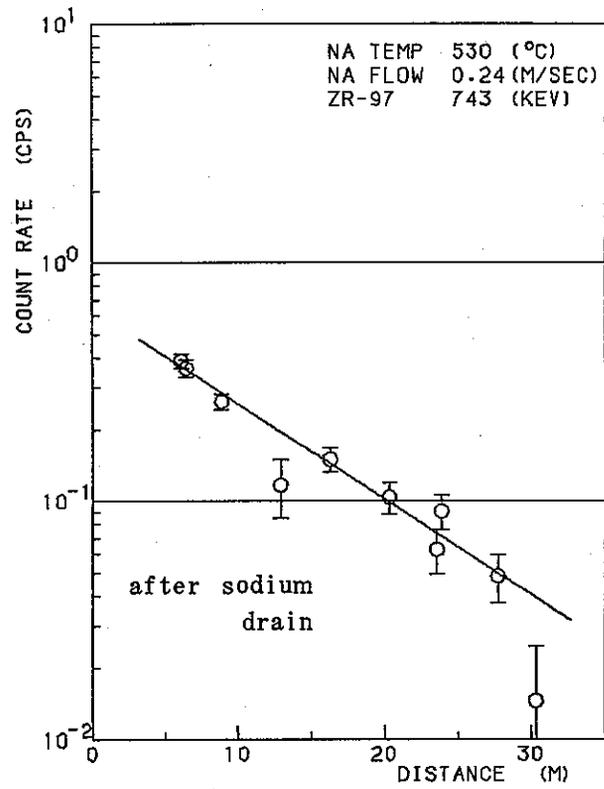


16) EXP. NO. 33

Fig 5 - 9 (continued)

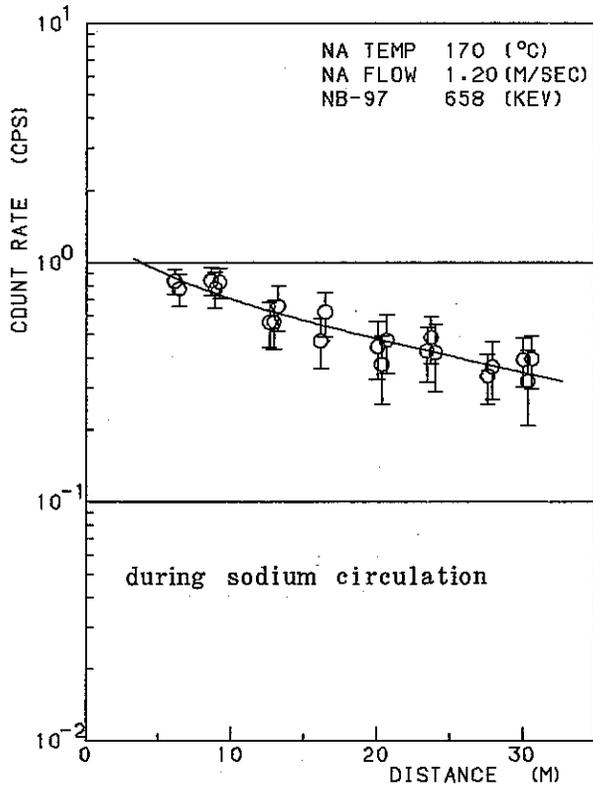


17) EXP. NO. 16

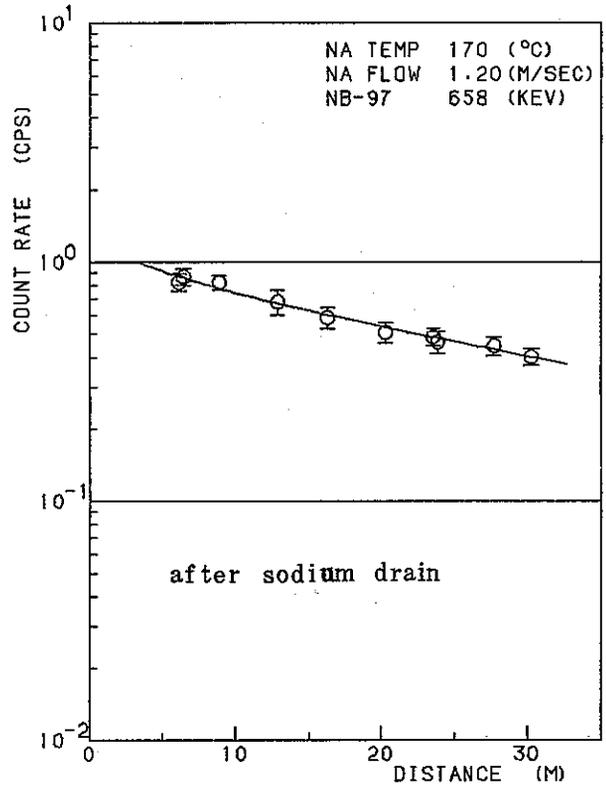


18) EXP. NO. 16

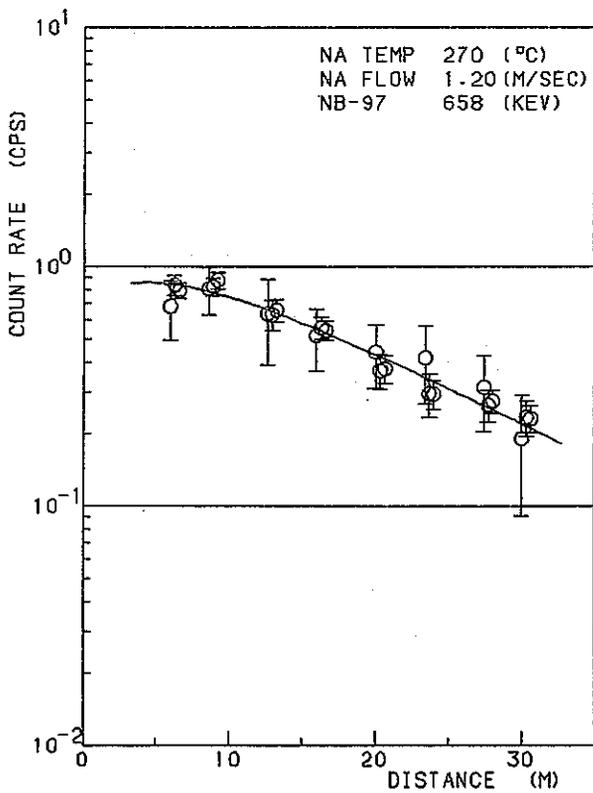
Fig 5 - 9 (continued)



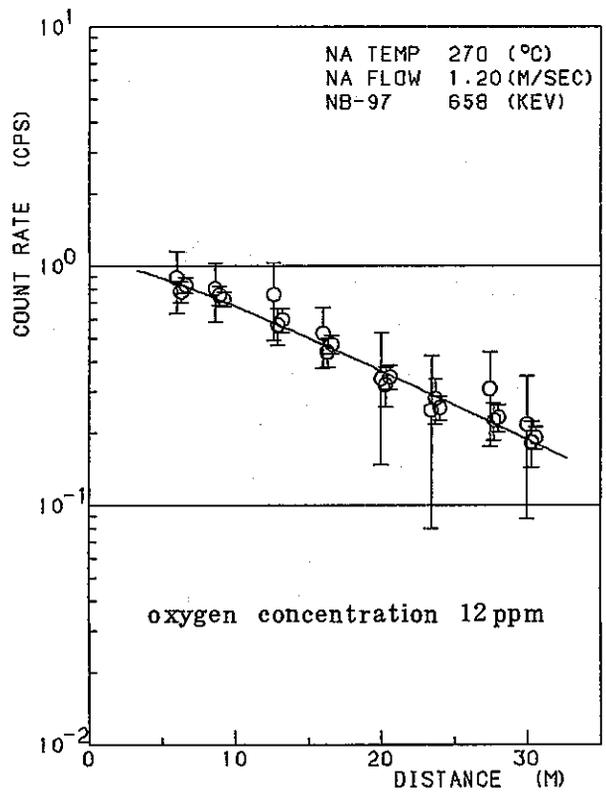
1) EXP. NO. 21



2) EXP. NO. 21

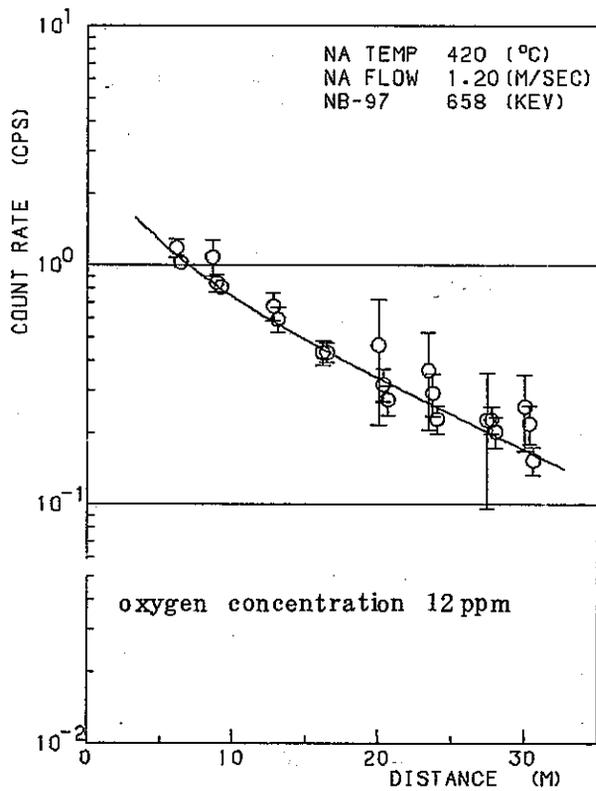


3) EXP. NO. 24

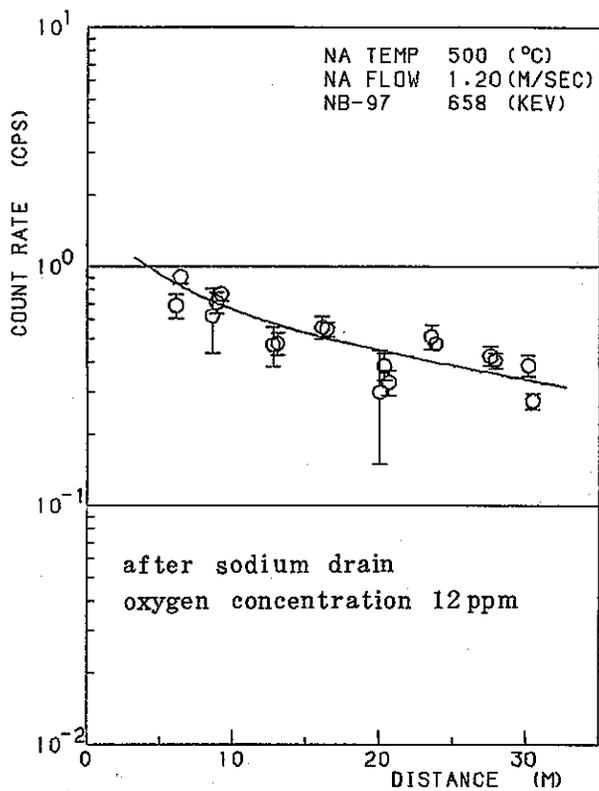


4) EXP. NO. 30

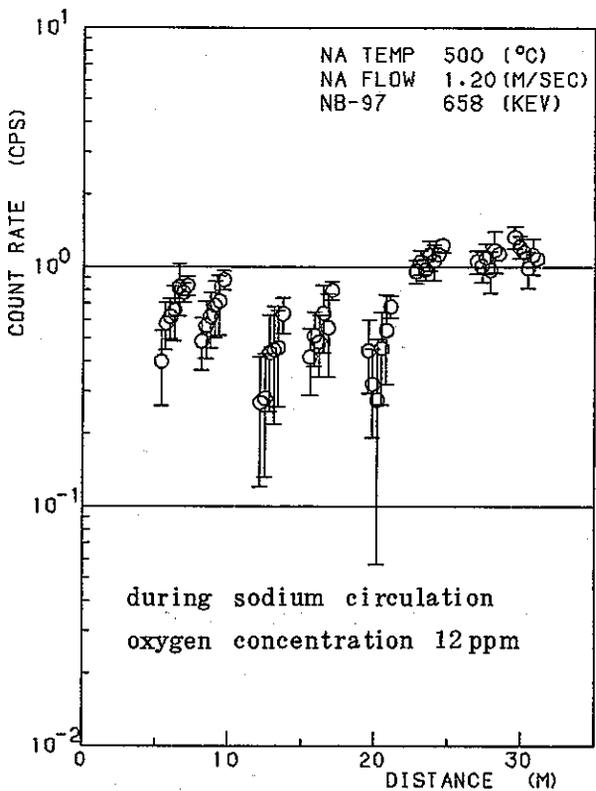
Fig 5 - 10 ⁹⁷Nb distribution along the delay line



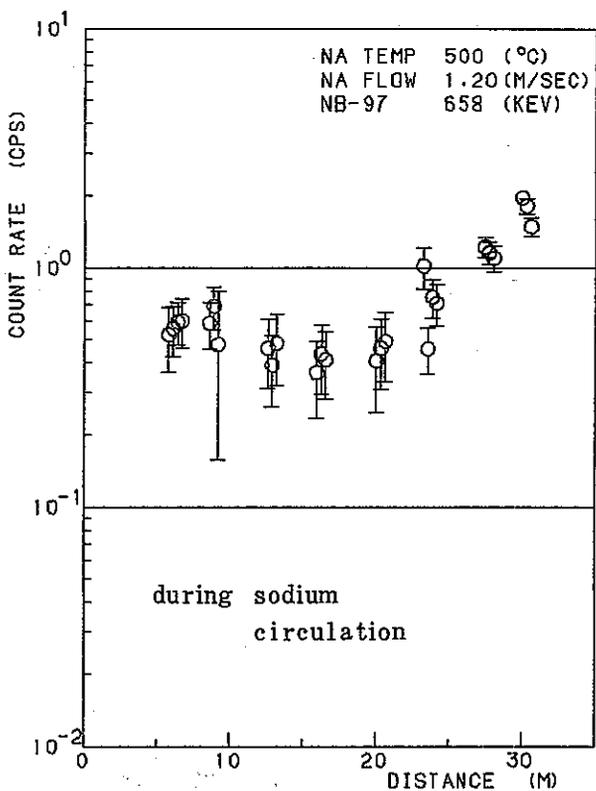
5) EXP. NO. 29



6) EXP. NO. 27

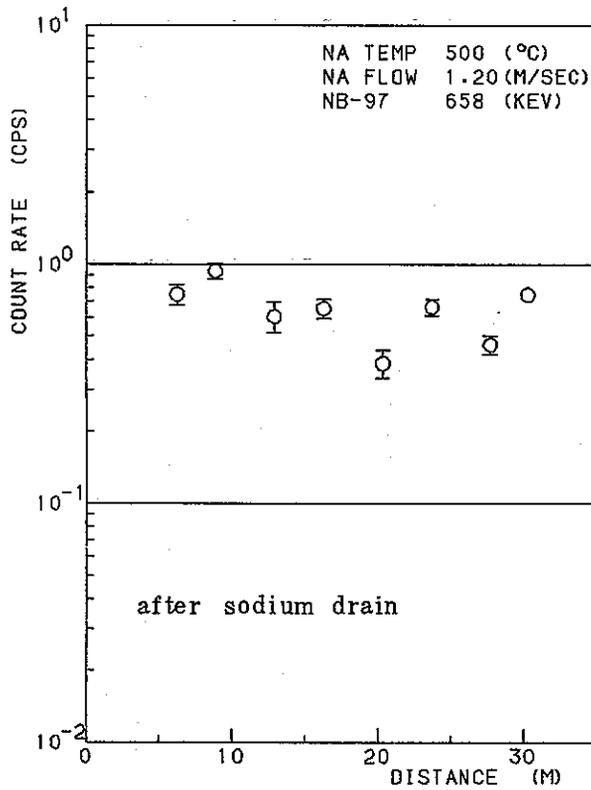


7) EXP. NO. 28

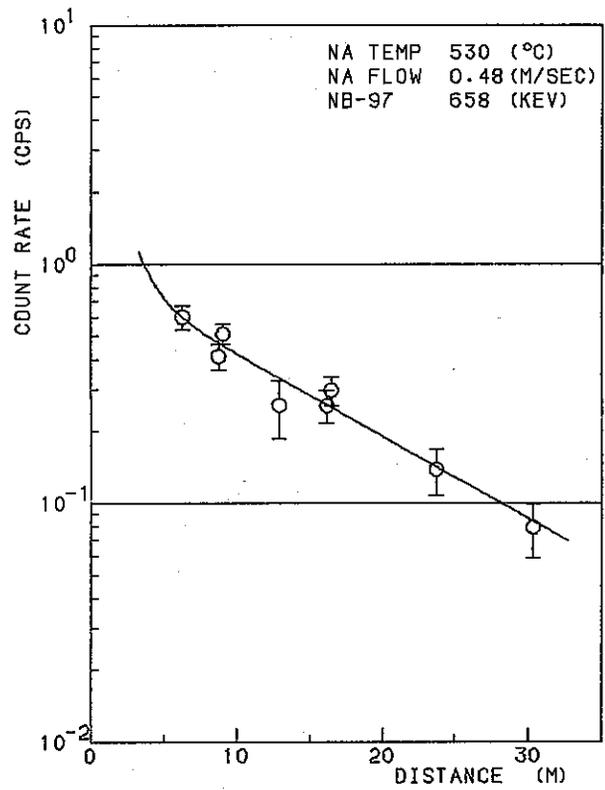


8) EXP. NO. 32

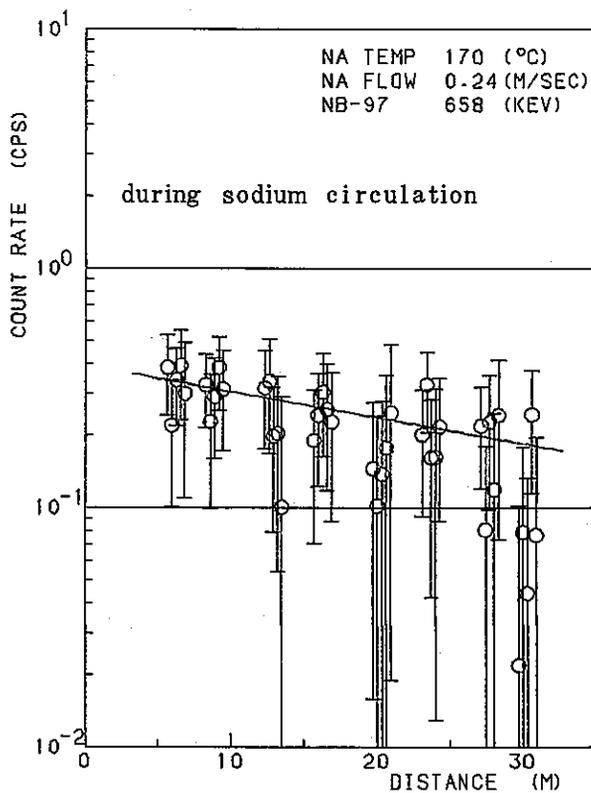
Fig 5 - 10 (continued)



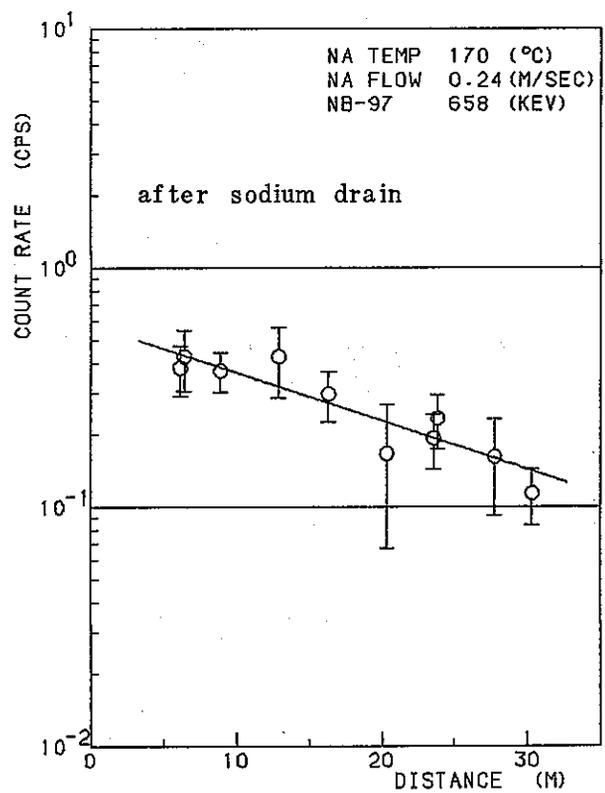
9) EXP. NO. 32



10) EXP. NO. 19

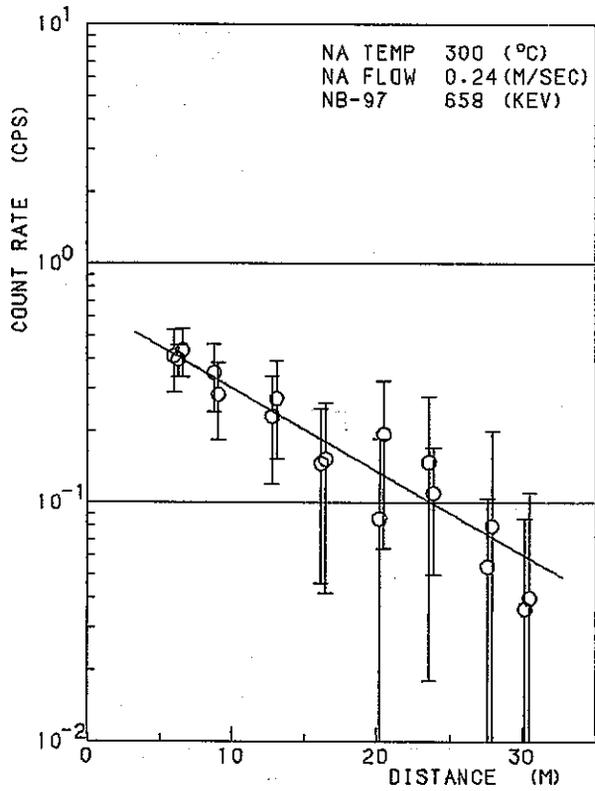


11) EXP. NO. 20

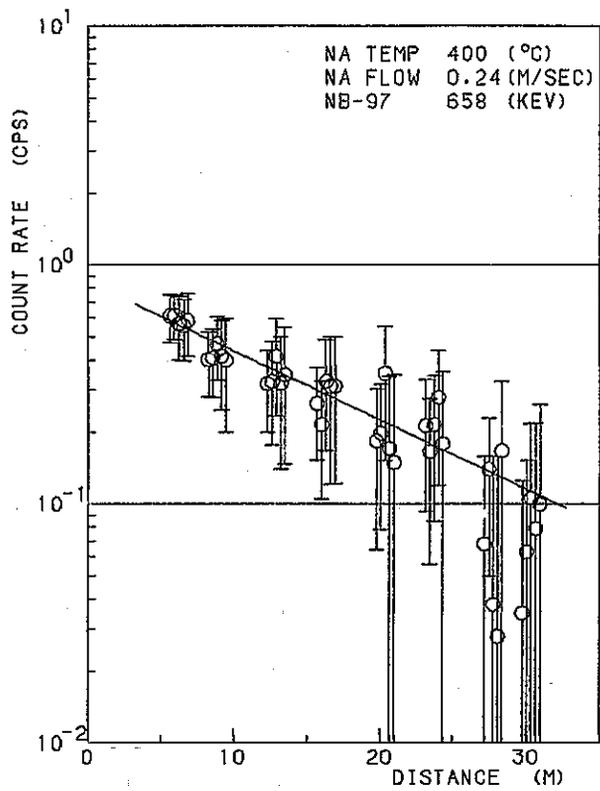


12) EXP. NO. 20

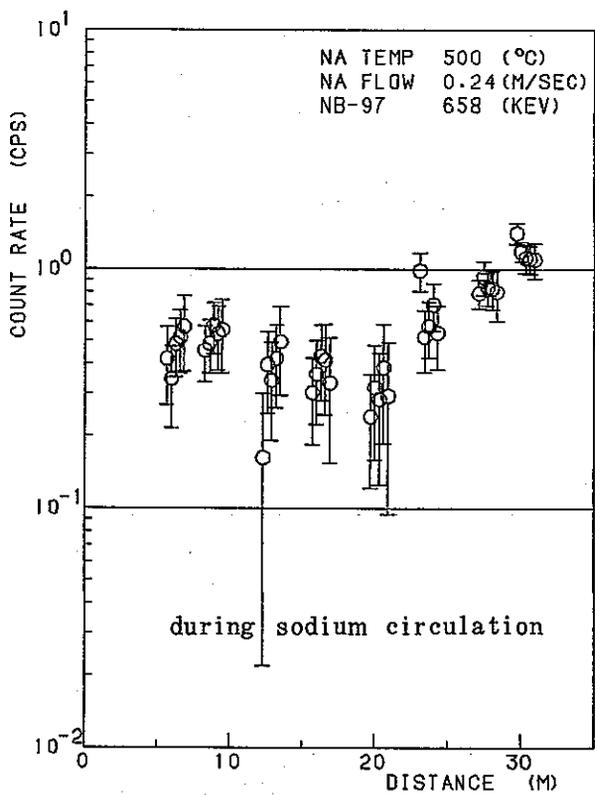
Fig 5 - 10 (continued)



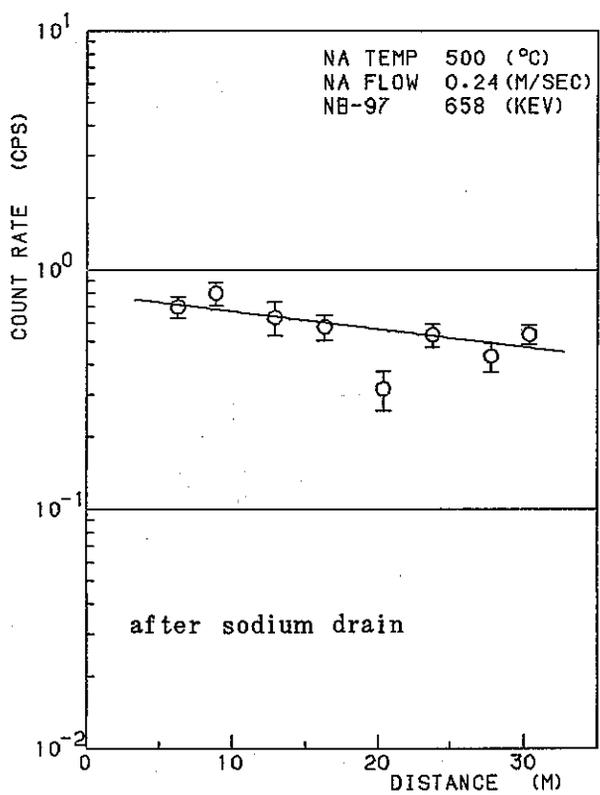
13) EXP. NO. 25



14) EXP. NO. 22

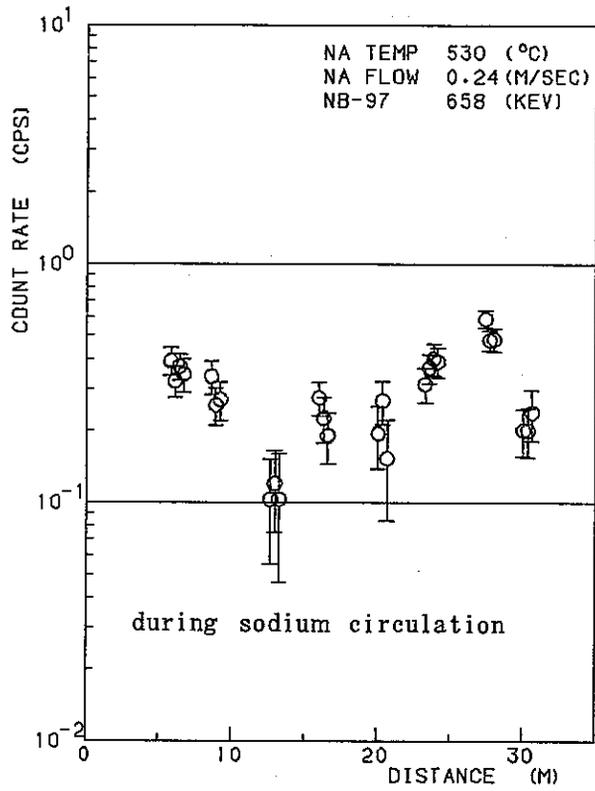


15) EXP. NO. 33

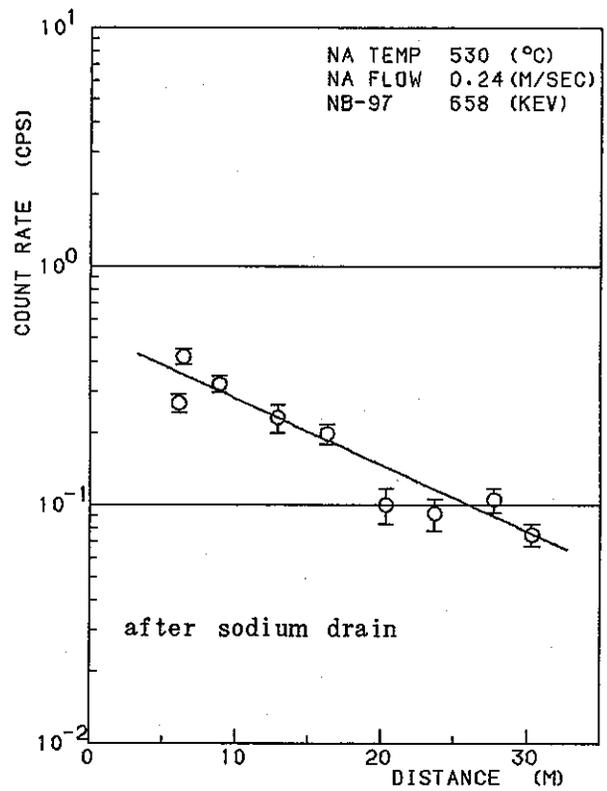


16) EXP. NO. 33

Fig 5 - 10 (continued)

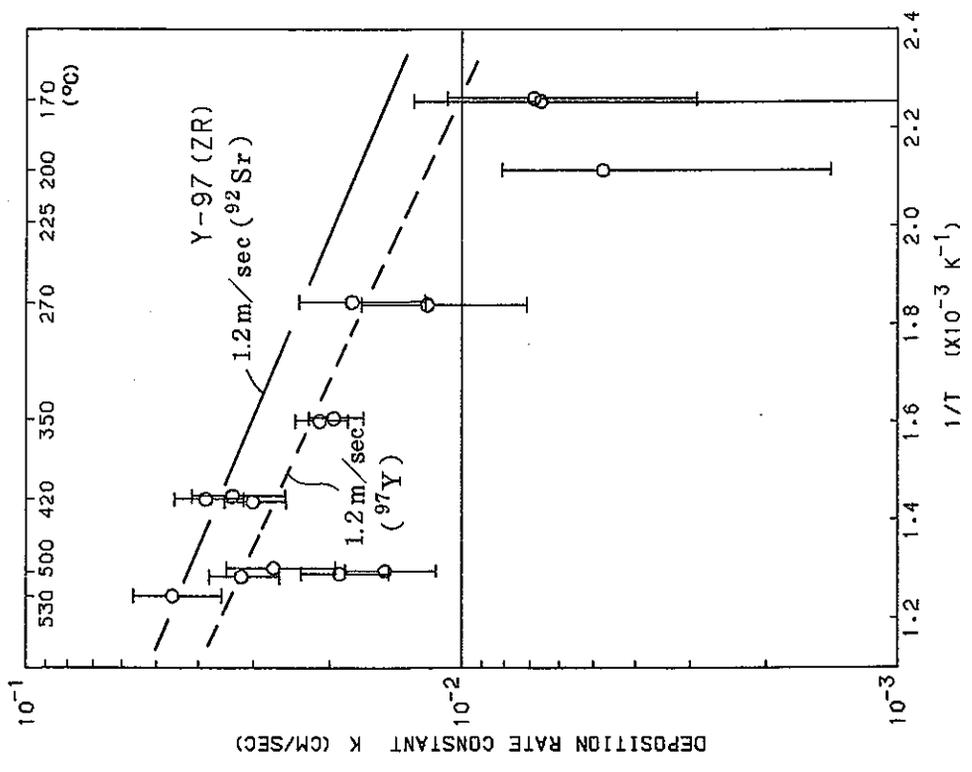


17) EXP. NO. 16

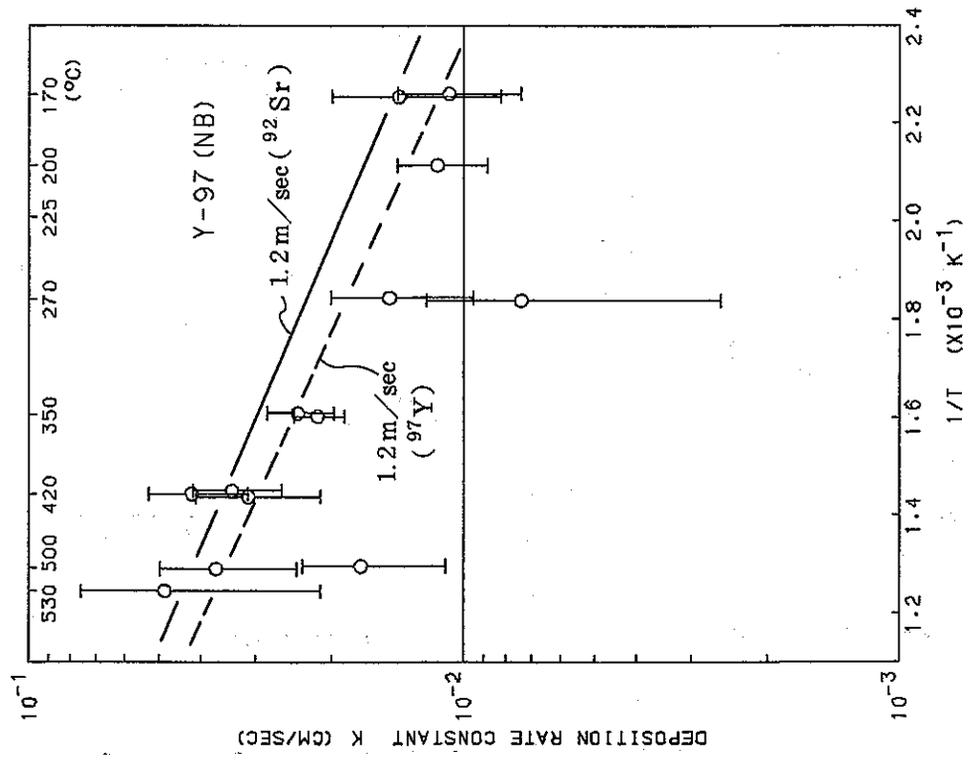


18) EXP. NO. 16

Fig 5 - 10 (continued)

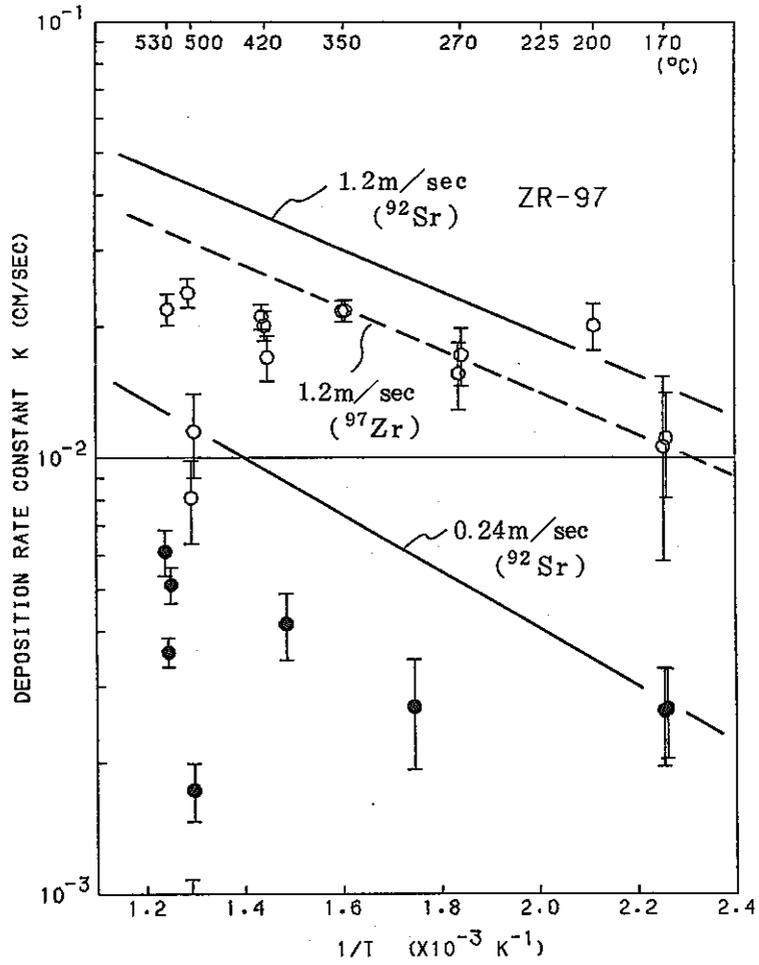


1) ⁹⁷Zr deposition distribution pattern

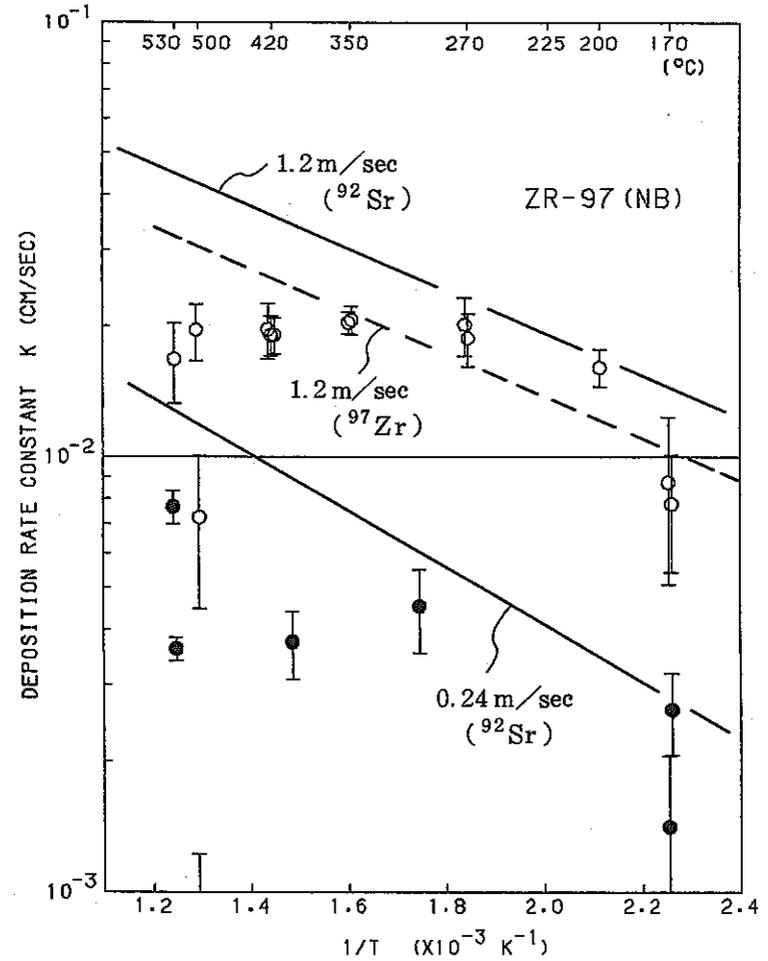


2) ⁹⁷Nb distribution pattern

Fig 5 - 11 Relationship between Y deposition rate constant and reciprocal absolute temperature

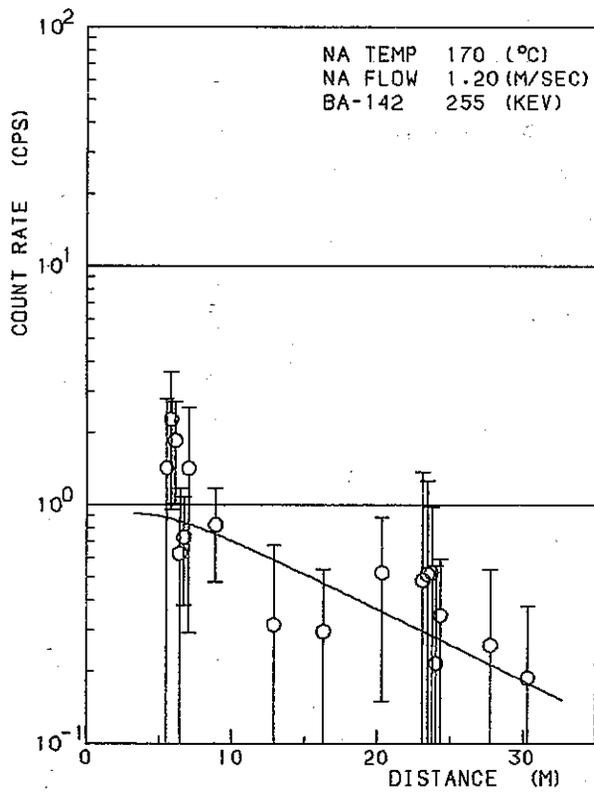


1) ⁹⁷Zr

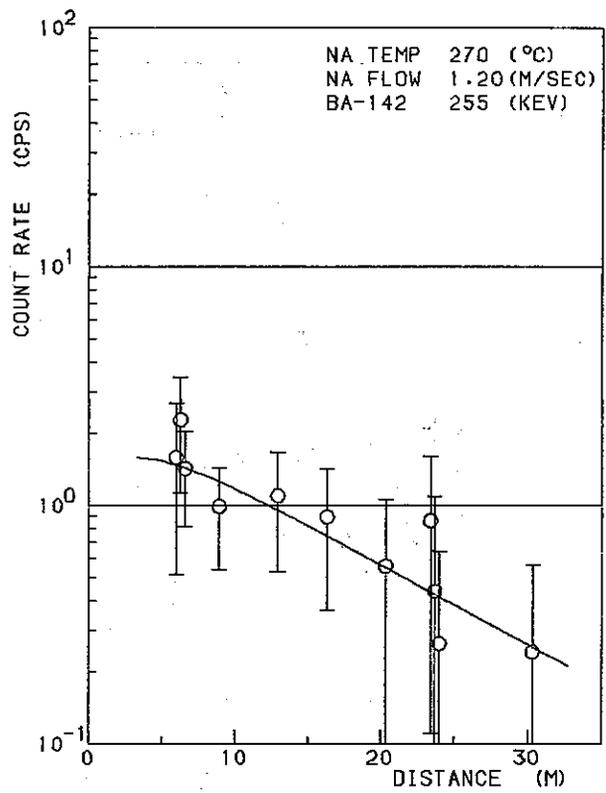


2) ⁹⁷Zr obtained by using ⁹⁷Nb distribution pattern

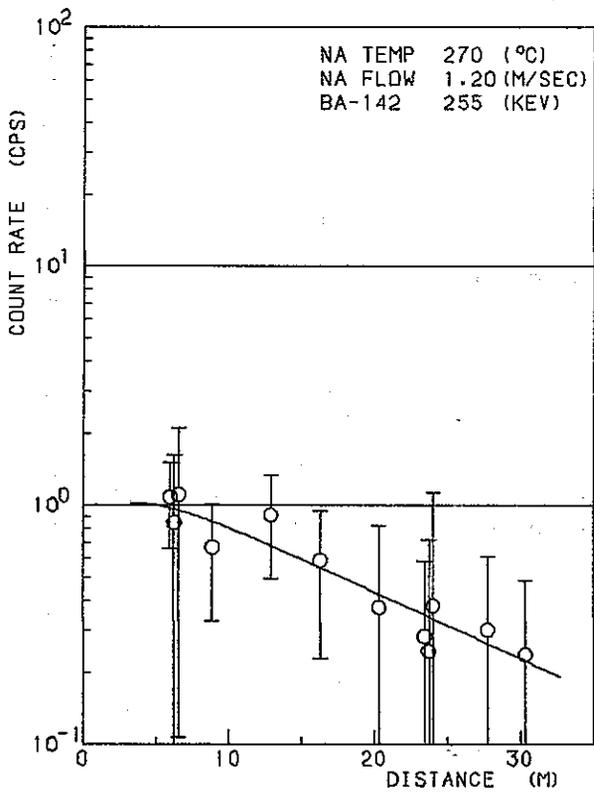
Fig 5 - 12 Relationship between Zr deposition rate constant and reciprocal absolute temperature



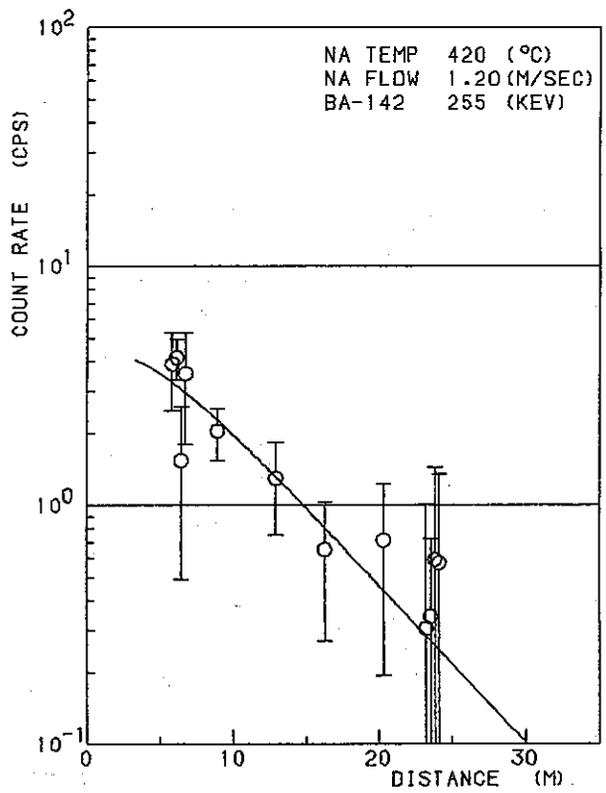
1) EXP. NO. 21



2) EXP. NO. 24

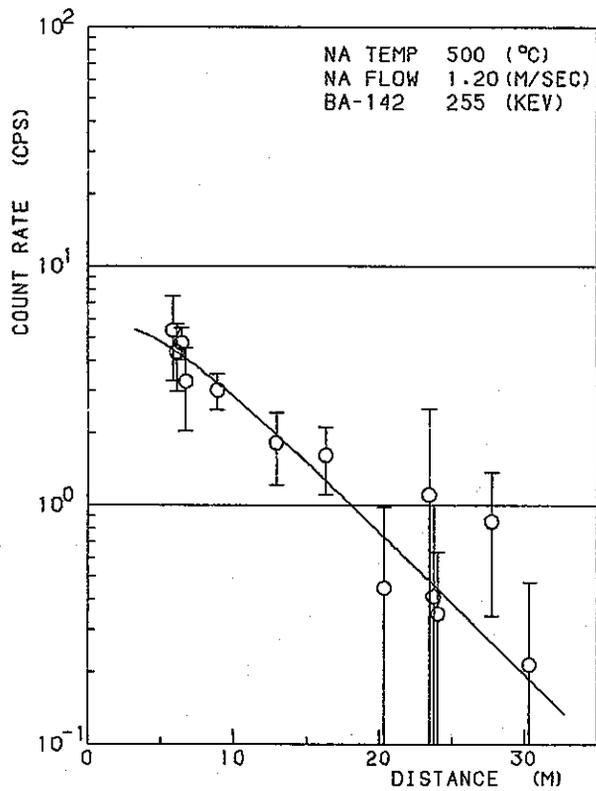


3) EXP. NO. 30

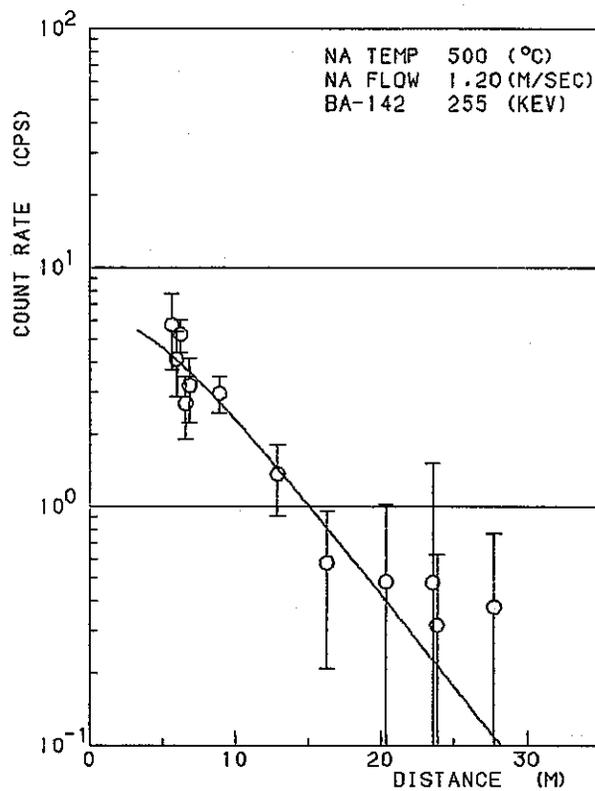


4) EXP. NO. 29

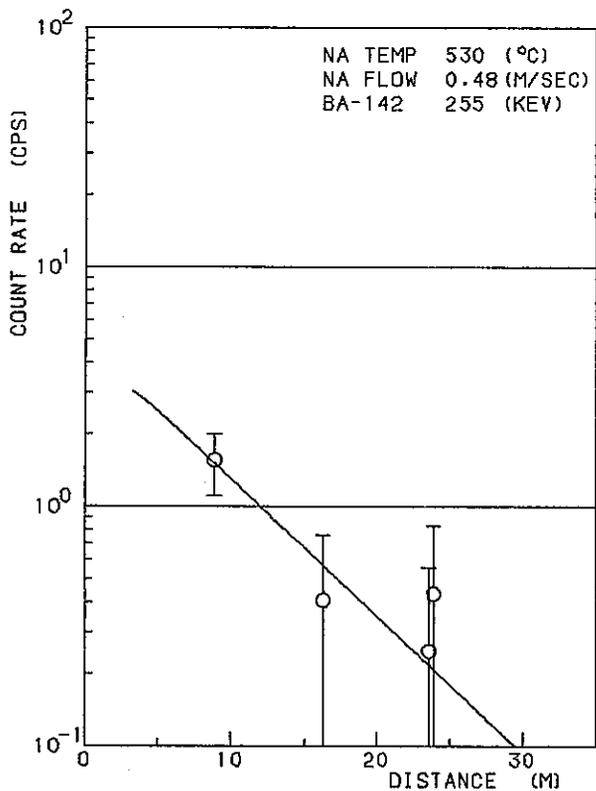
Fig 5 - 13 ¹⁴²Ba deposition distribution along the delay line



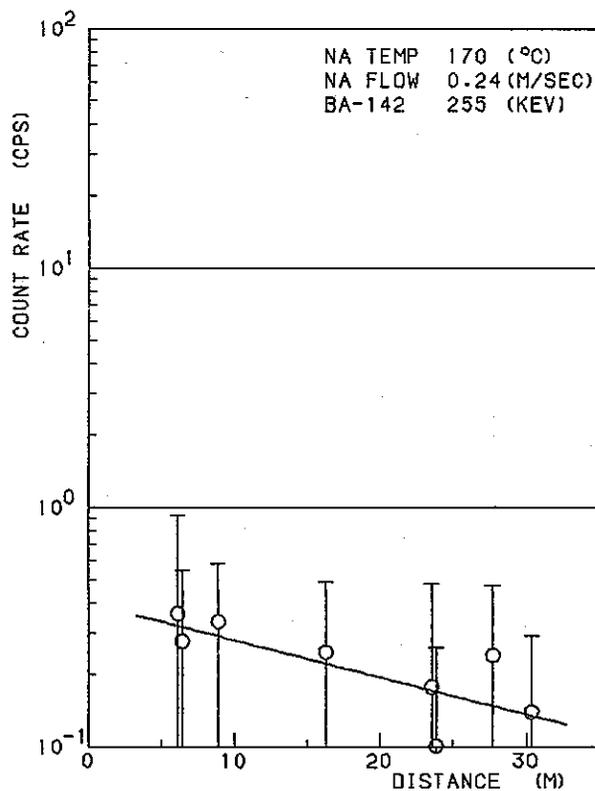
5) EXP. NO. 28



6) EXP. NO. 32

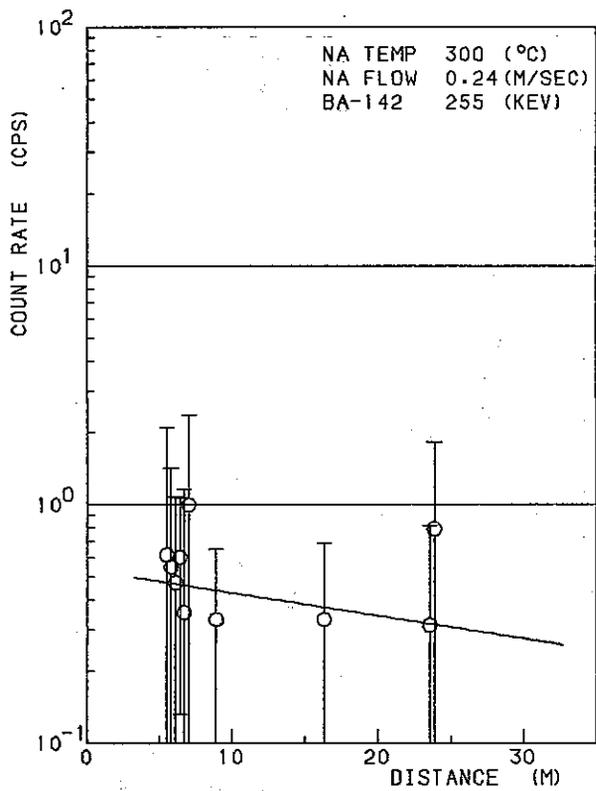


7) EXP. NO. 19

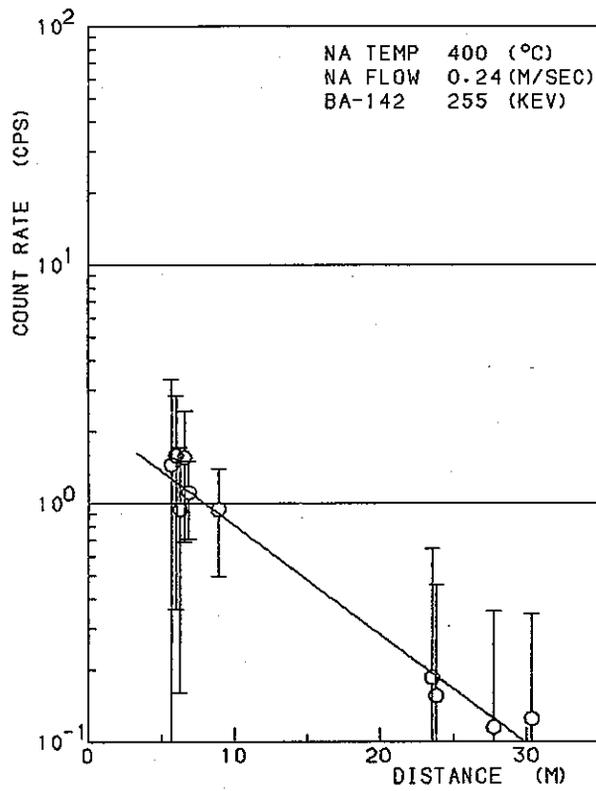


8) EXP. NO. 20

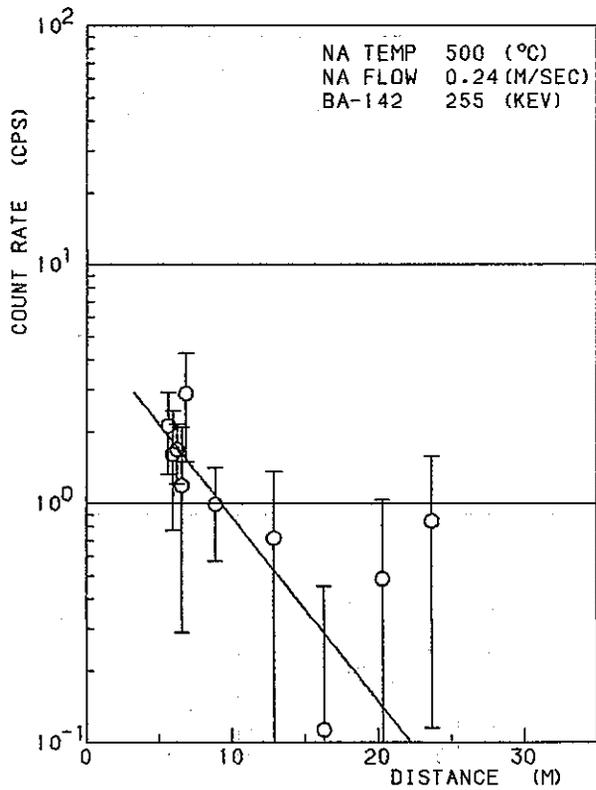
Fig 5 - 13 (continued)



9) EXP. NO. 25

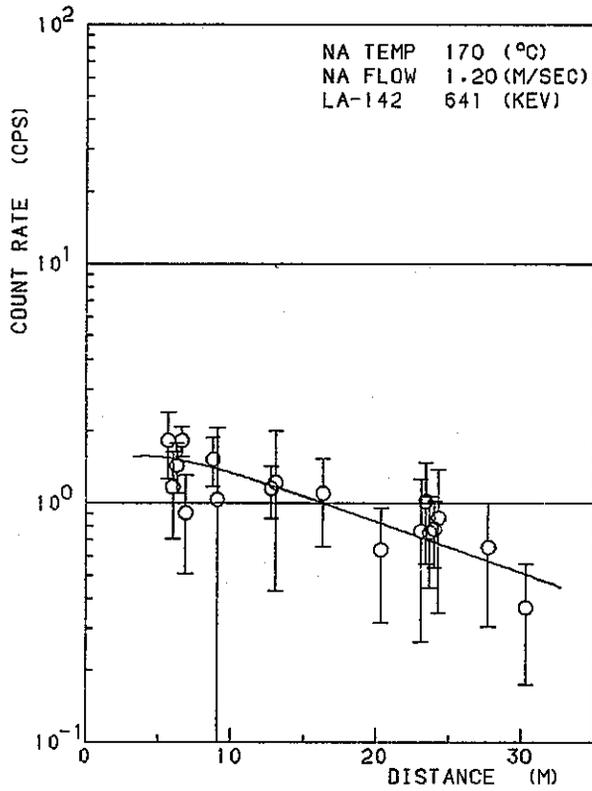


10) EXP. NO. 22

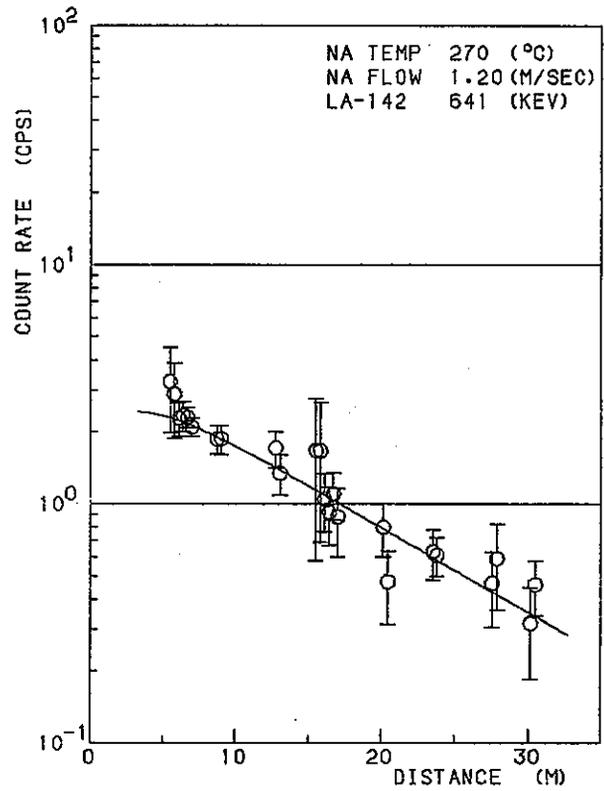


11) EXP. NO. 33

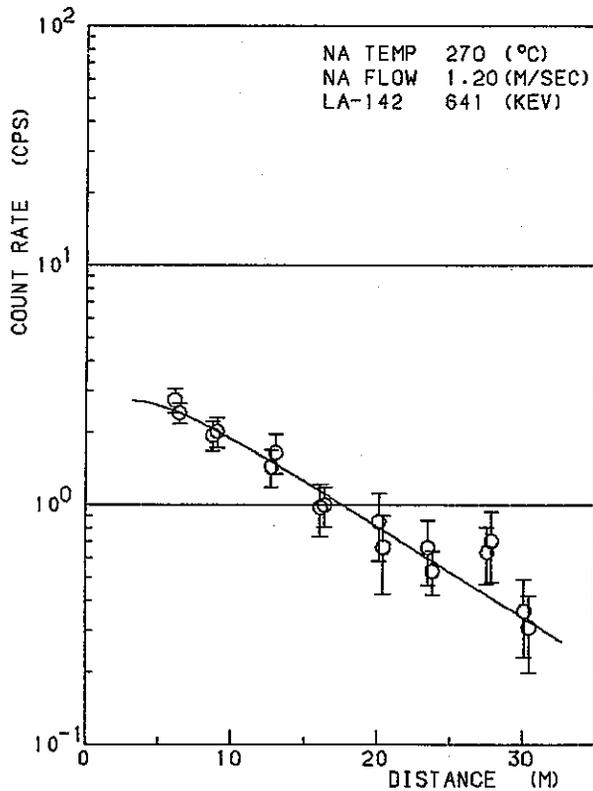
Fig.5 - 13 (continued)



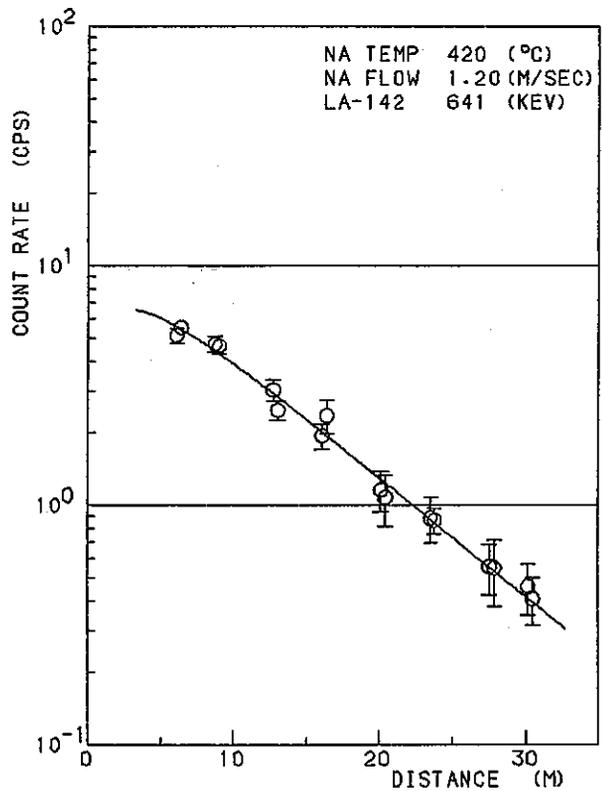
1) EXP. NO. 21



2) EXP. NO. 24

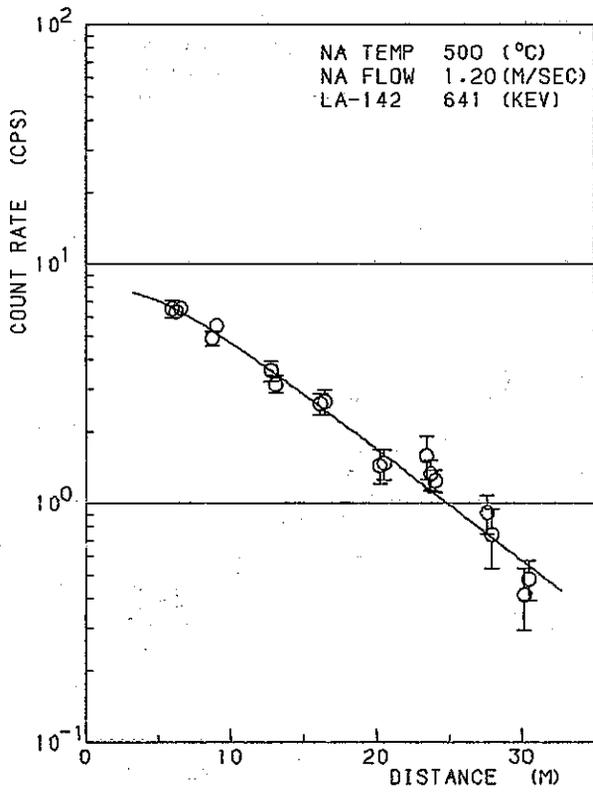


3) EXP. NO. 30

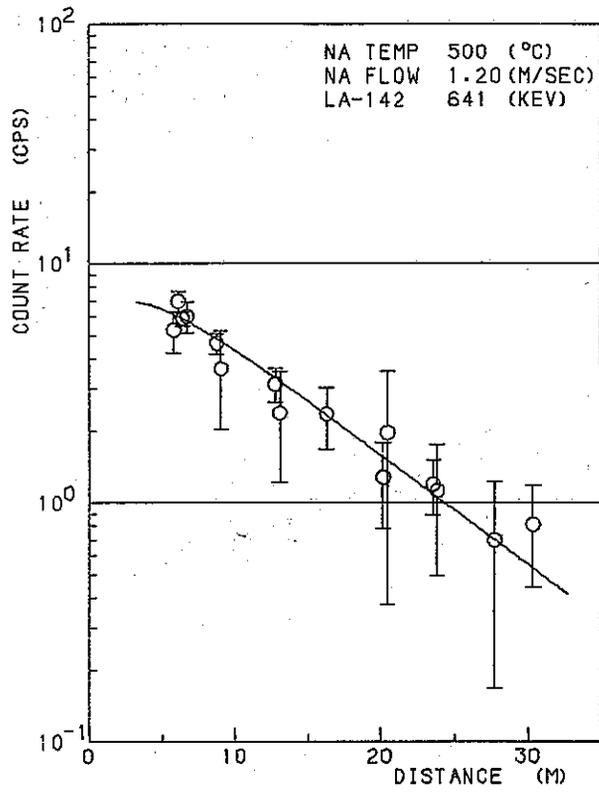


4) EXP. NO. 29

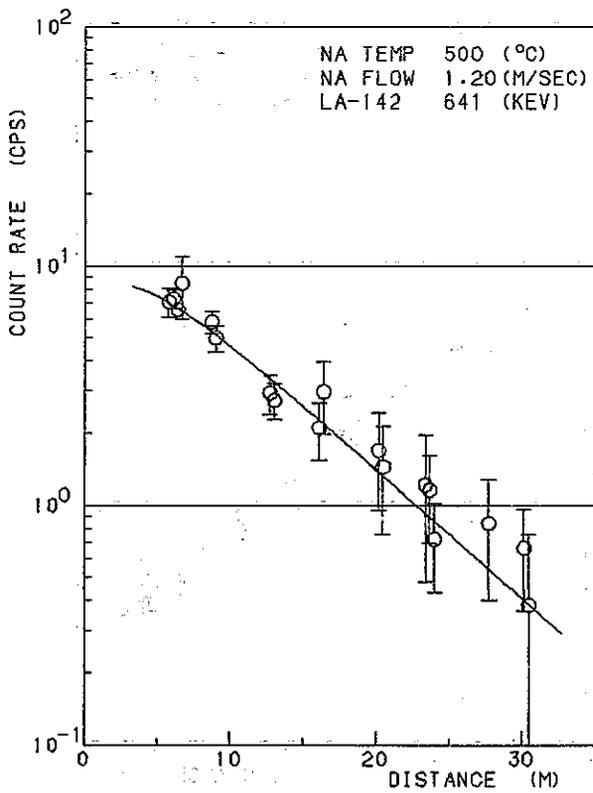
Fig 5 - 14 ¹⁴²La deposition distribution along the delay line



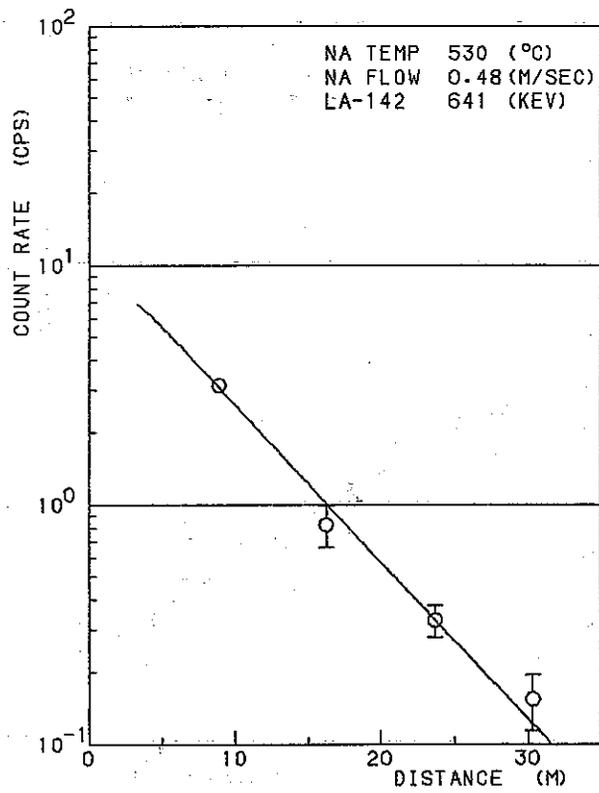
5) EXP. NO. 27



6) EXP. NO. 28

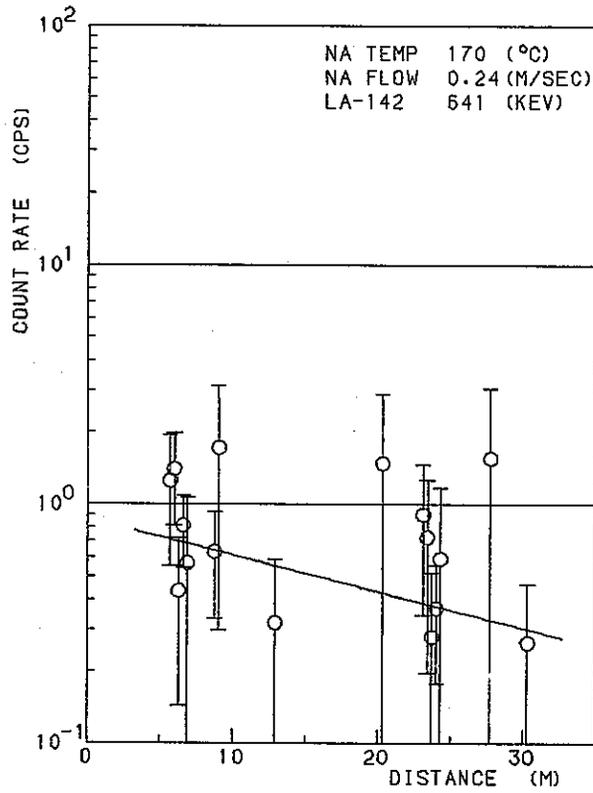


7) EXP. NO. 32

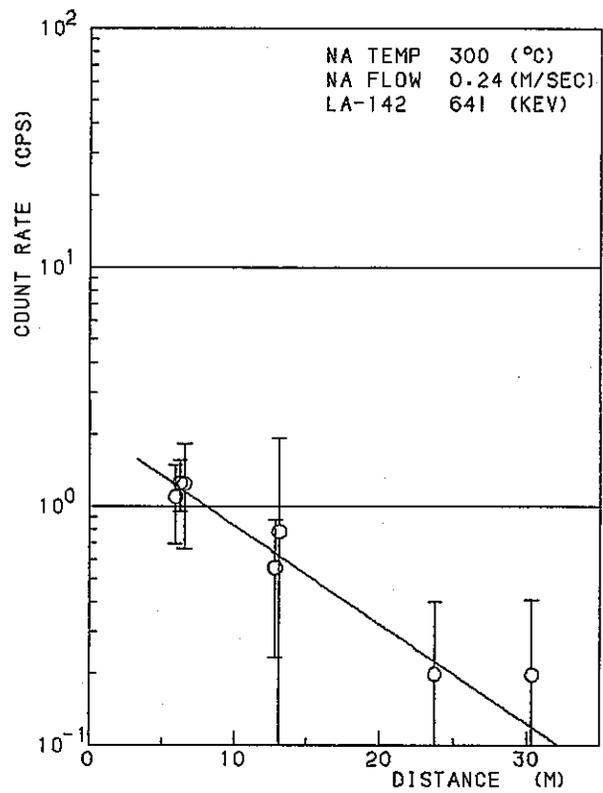


8) EXP. NO. 19

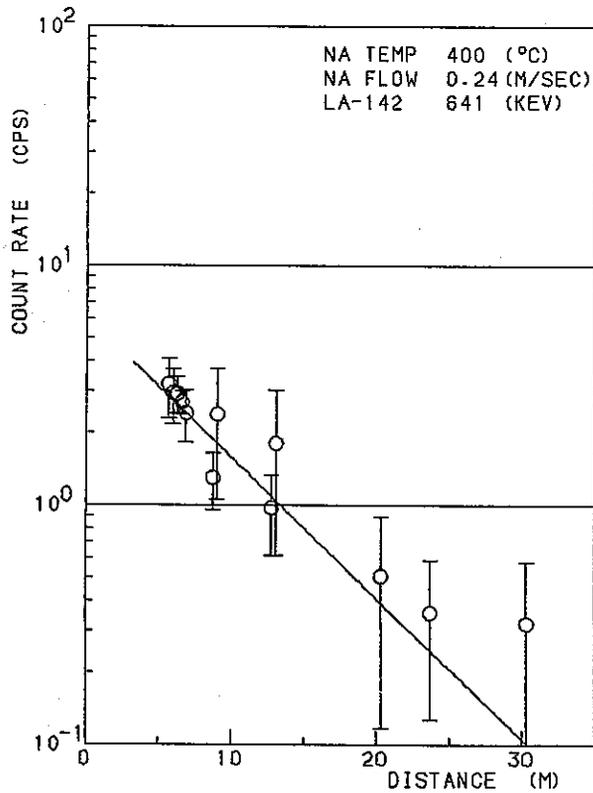
Fig 5 - 14 (continued)



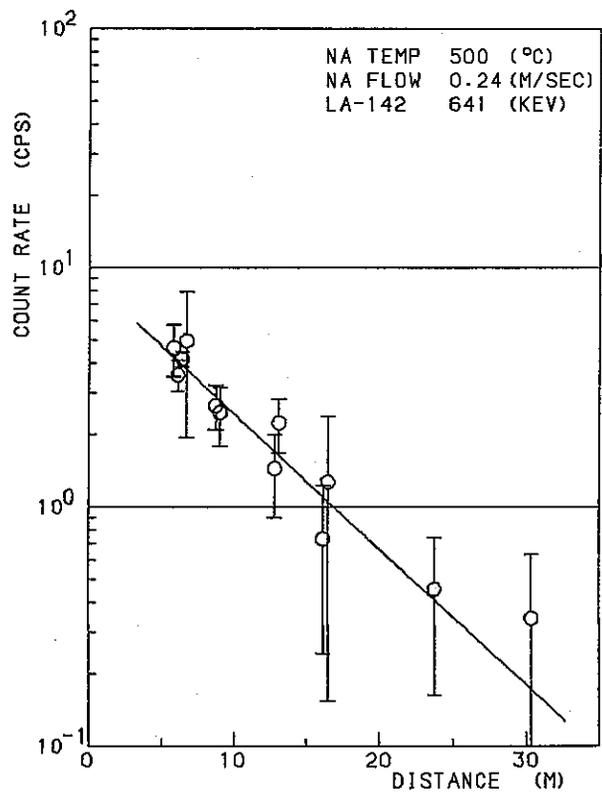
9) EXP. NO. 20



10) EXP. NO. 25

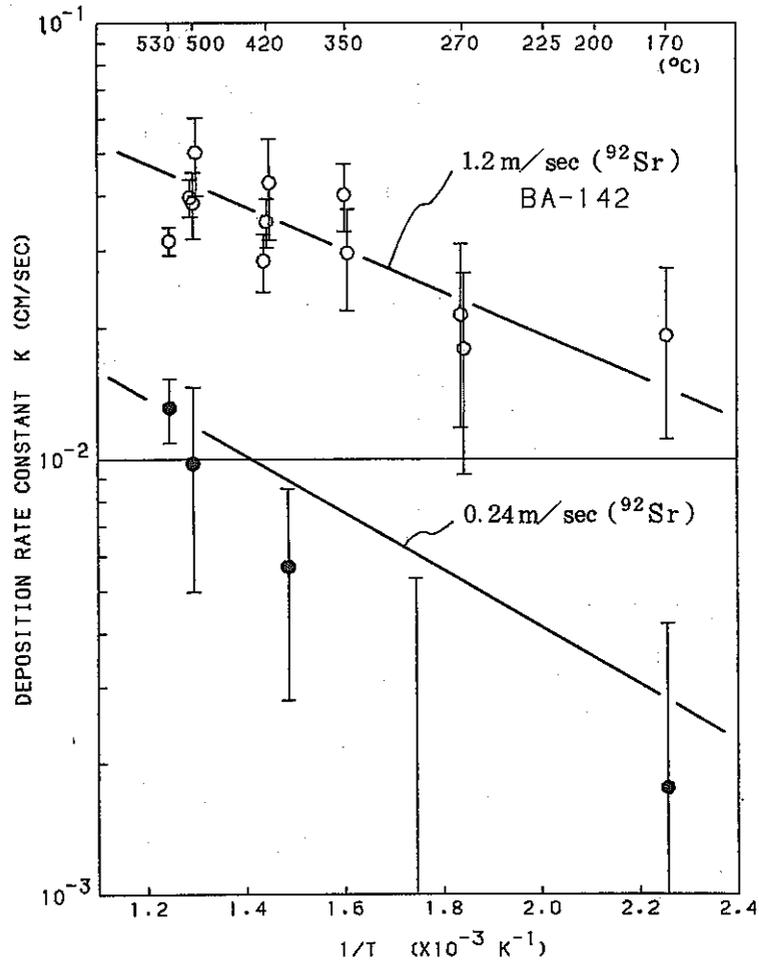


11) EXP. NO. 22

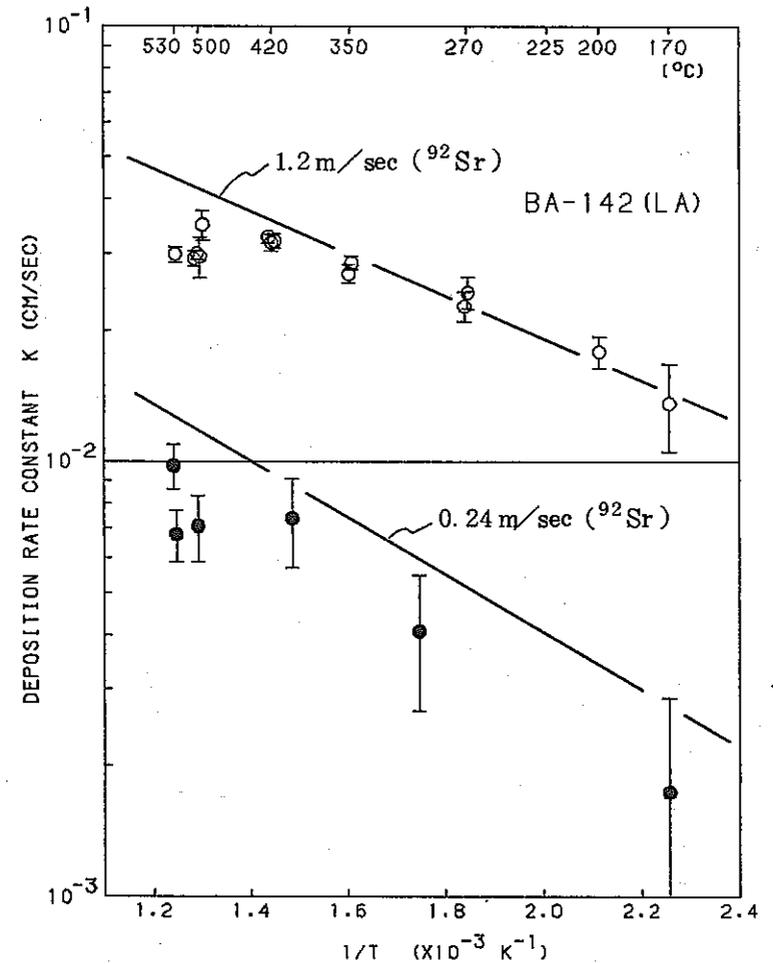


12) EXP. NO. 33

Fig 5 - 14 (continued)

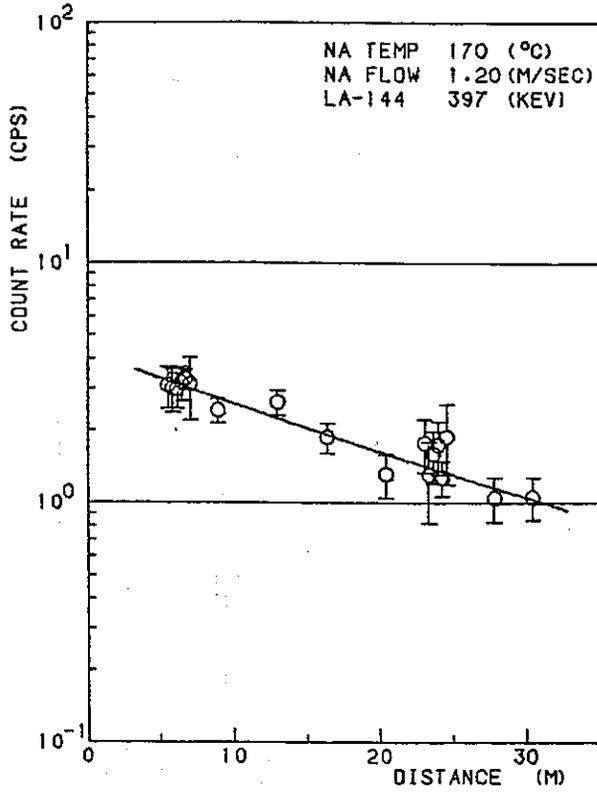


1) ¹⁴²Ba

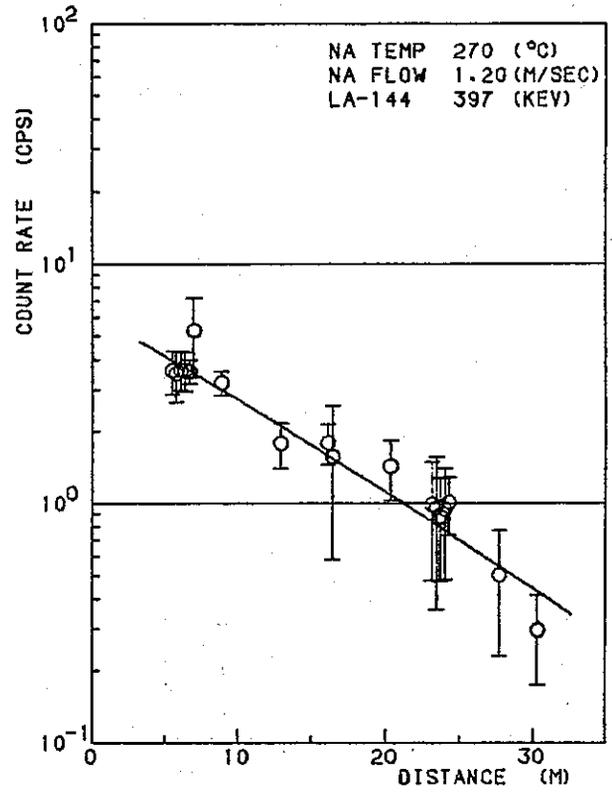


2) ¹⁴²Ba obtained by using ¹⁴²La deposition distribution pattern

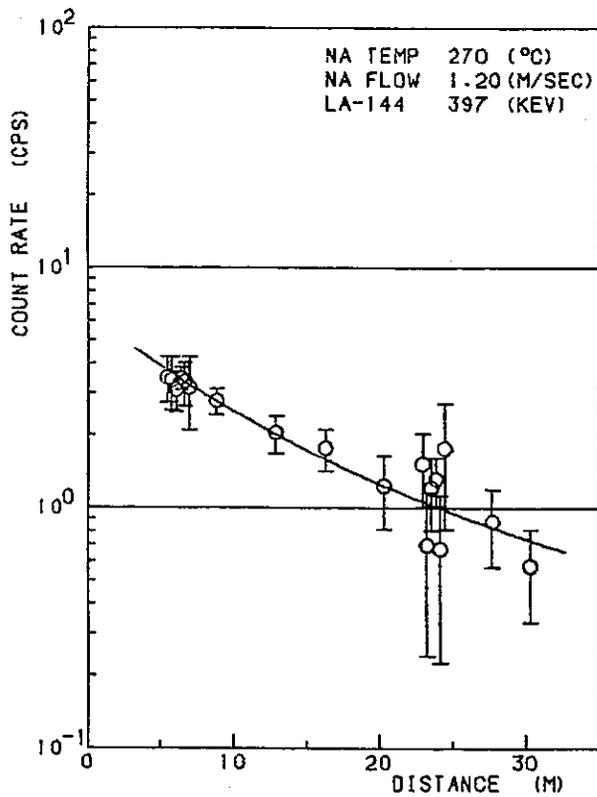
Fig 5 - 15 Relationship between Ba deposition rate constant and reciprocal absolute temperature



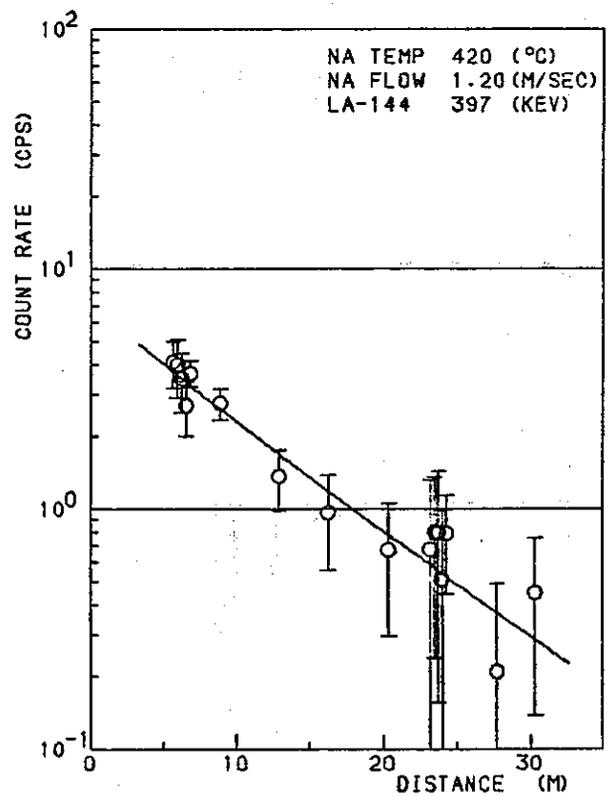
1) EXP. NO. 21



2) EXP. NO. 24

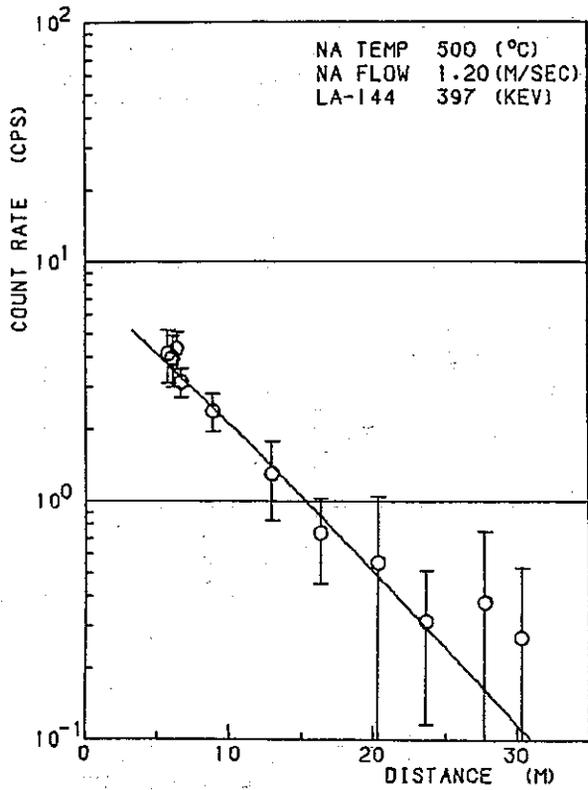


3) EXP. NO. 30

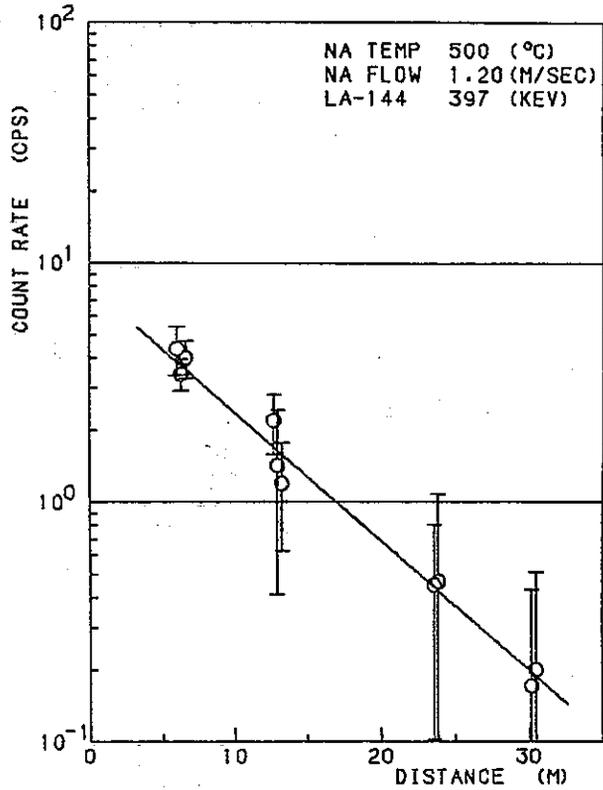


4) EXP. NO. 29

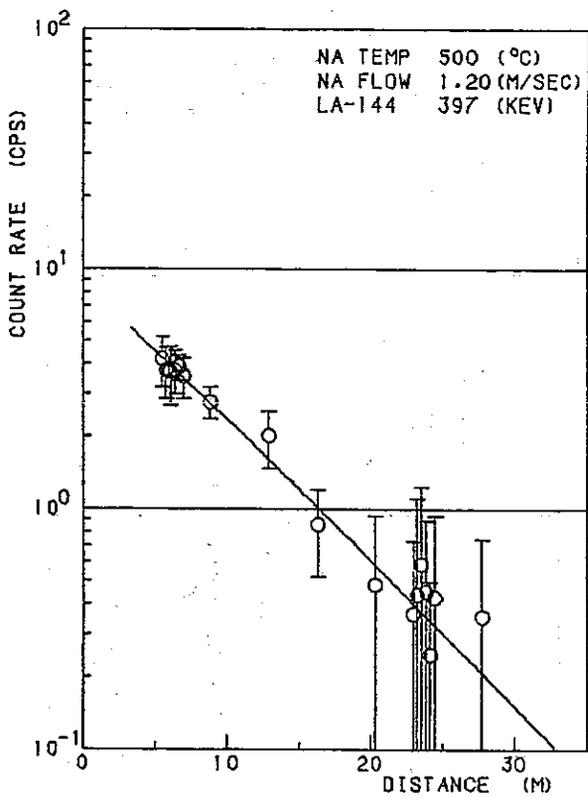
Fig 5 - 16 ^{144}La deposition distribution along the delay line



5) EXP. NO. 28



6) EXP. NO. 31



7) EXP. NO. 32

Fig 5 - 16 (continued)

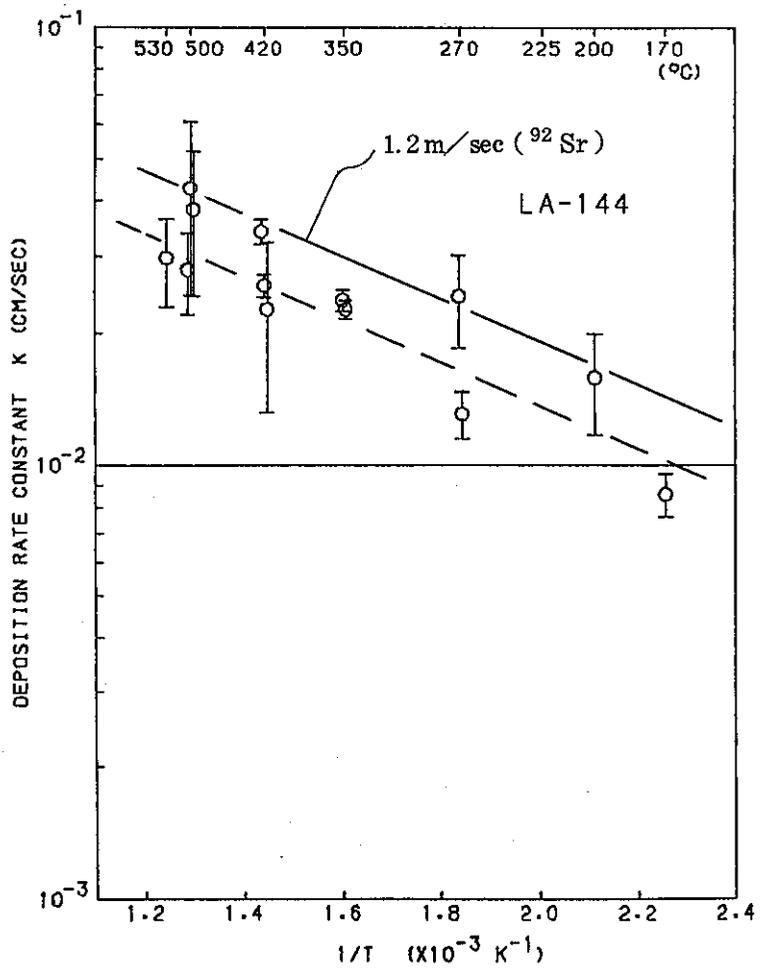


Fig 5 - 17 Relationship between La deposition rate constant and reciprocal absolute temperature

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、 $0.5 \sim 0.6 \text{ mm } \phi$ の粒状の 20%濃縮二酸化ウラン 100g 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にはじき出されナトリウム中に混入する。この FP の生成速度と照射試料体外への放出速度の比 (放出率) 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反跳モデルから算出される放出率との比 (k 因子または roughness factor と呼ばれる) は、高速増殖炉における燃料破損時に冷却材中に放出される FP の量を推定する上に必要不可欠な値である。

そこで前報⁴⁾と同様に、揮発性 FP である ^{86}Br 、 ^{88}Br 、 ^{89}Rb 、 ^{134}Te 、 $^{136\text{m}}\text{I}$ と希ガス FP である ^{90}Kr 、 ^{139}Xe 、 ^{140}Xe の 8 核種を対象とし、これら FP の吸着挙動^{*}が無視できる¹⁰⁾高温ナトリウム (300°C 以上) での照射実験 (実験 No 22, 28, 32, 33) の測定結果をもとにして、FP の放出率および k 因子を求め、それらの値の評価を行なった。

更に、得られた結果を前報の結果⁴⁾と比較し、長時間流動ナトリウムにさらされていた照射試料表面に経年変化が発生しているかどうかを検討するとともに、これまでに実施した 4 回の高酸素濃度実験 (実験 No 27, 28, 29, 30 で、酸素濃度は 12 ppm、通常の実験では 1 ppm) により、FP の放出率および k 因子に変化が現われたかどうかを検討した。尚参考のため、Fig 6-1 に前記した FP 8 核種の Fission Chain に関するデータ⁷⁾を示す。

上記 8 核種は、半減期が 13.6 秒の短半減期 ^{140}Xe から 42 分の ^{134}Te までの広い範囲に亘っている。そこで半減期と k 因子との相関関係から照射試料部におけるスタグナントフローの有無 (スタグナントフローがある場合には、半減期が短い核種程、またナトリウムの減量が遅い程 k 因子は小さい値になることが予想される) についても評価を行なった。

*) 揮発性および希ガス FP の壁面への付着は一般に物理吸着であり、また吸・脱着はナトリウム温度¹⁰⁾に対して可逆的であって不揮発性 FP の付着 (沈着) 挙動とは異なるので、揮発性および希ガス FP の付着は吸着ということばを使用する。

6.2 放出率の算出方法

FP 核種はフィッションチェーンを形成しているが、上記の 8 核種はフィッションチェーンの先頭あるいは 2 番目に位置しているので (^{89}Rb および ^{134}Te については、チェーンの先頭に位置する核種の半減期が短いので無視する)、対象 FP を娘核種として壊変チェーンは親→娘核種の 2 代についてのみ考慮する。

親核種 p のナトリウム中濃度 C_p (atoms/cm^3) の流れ方向に対する変化は、壁面への吸着が無視できる場合には放射壊変でのみ減衰していくから、照射試料部からの距離を x (cm) とすると、

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

で表わされる。ここで

λ_p : 親核種の壊変定数 (sec^{-1})

v : ナトリウムの流速 (cm/sec)

である。これを解くと、

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

ここに、 C_{p0} は照射試料部における濃度 (atoms/cm^3) で、生成量が飽和に達している場合はループの全長を L (cm) として、

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

と表わされる。ここに、

F : ナトリウムの流量 (cm^3/sec)

P_p : 親核種の照射試料からの放出速度 (atoms/sec)

であり、 P_p は、

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

と表わされる。ここに、

F_r : 核分裂速度 (atoms/sec)

F_{Yp} : 親核種の蓄積核分裂収率 (—)

R_f : 放出率 (—)

である。

娘核種のナトリウム中濃度 C_d (atoms/cm³) の流れ方向の変化は,

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

で表わされる。ここで,

λ_d : 娘核種の壊変定数 (sec⁻¹)

η : 親核種から娘核種への壊変の分岐率 (-)

である。これを解くと,

$$C_d(x) = \frac{\beta_p \cdot \eta \cdot C_{p0}}{\beta_d - \beta_p} (e^{-\beta_p \cdot x}) + C_{d0} \cdot e^{-\beta_d \cdot x}$$

である。 C_{d0} は照射試料部における娘核種の濃度 (atoms/cm³) で,

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

である。ここで,

P_d : 娘核種の照射試料からの放出速度 (atoms/sec)

であり, P_d は,

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

である。ここに,

F_{Yd} : 娘核種の独立核分裂収率 (-)

である。ここで親, 娘核種の放出率 R_f が同じであるとする, $C_d(x)$ は,

$$C_d(x) = R_f \cdot \left[\frac{\beta_p}{\beta_d - \beta_p} \cdot \frac{\eta \cdot F_r \cdot F_{Yp}}{F \cdot (1 - e^{-\beta_p \cdot L})} \left\{ (e^{-\beta_p \cdot x} - e^{-\beta_d \cdot x}) + \frac{e^{-\beta_p \cdot L} - e^{-\beta_d \cdot L}}{1 - e^{-\beta_d \cdot L}} \cdot e^{-\beta_d \cdot x} \right\} + \frac{F_r \cdot F_{Yd}}{F \cdot (1 - e^{-\beta_d \cdot L})} \cdot e^{-\beta_d \cdot x} \right] \quad (6-1)$$

となる。また核分裂速度 F_r は,

$$F_r = \frac{m}{M} \times 6.02 \times 10^{23} \times \epsilon \cdot \sigma \cdot \phi \quad (6-2)$$

で計算される。ここに,

- m : 照射試料の重量 (g)
 M : " の分子量 (g)
 ϵ : ^{235}U の濃縮度 (—)
 σ : ^{235}U の熱中性子に対する核分裂反応断面積 (cm^2)
 ϕ : 熱中性子束 ($\text{n}/\text{cm}^2/\text{sec}$)

である。

(6-1)式において未知の数は R_f であるので、ループ内の娘核種のナトリウム中濃度分布を、 R_f をパラメーターとして(6-1)式をもとに最小2乗法によるフィッティングを行なうことにより、 R_f の最適値を求めることができる。

尚、Fission Chain の先頭に位置する ^{136}mI の場合は、親核種の濃度を0とすることにより上記と同様に求められる。

6.3 放出率算出と k factor

6.3.1 FP の放出率の算出

ディレイラインにおける γ 線計測により、各 FP 核種の計数率 C_{rd} (cps) を求めた。計数率には、計測点での幾何学的検出効率および Ge 検出器間の検出効率の相違(計測には2台の Ge 検出器を用いている)を補正し、また計測開始時刻の相違による生成量の差を、全て4時間照射した照射終了直後の値に衰変補正した。放出率の算出に用いた照射実験は、前述したように、ナトリウム温度が 300°C 以上の実験 Na 22 (ナトリウム温度 400°C , 流速 0.24 m/sec), Na 28 (500°C , 1.2 m/sec), Na 32 (500°C , 1.2 m/sec), Na 33 (500°C , 0.24 m/sec) の4実験である。

各 FP 核種および各計測点で得られた計数率 $C_{rd}(x)$ (cps) を用いて、次式によりナトリウム中の FP 核種の濃度 $C_d(x)$ (atoms/cm^3) を求めた。

$$C_d(x) = C_{rd}(x) \times \frac{3.7 \times 10^4}{f_\gamma(E) \cdot f_e(E) \cdot V \cdot \lambda_d} \quad (6-3)$$

ここで、

$C_{rd}(x)$: エネルギー E (KeV) のウランカプセルからの距離 x の計測点における γ 線の計数率 (cps)

$f_\gamma(E)$: エネルギー E (KeV) の γ 分岐率 (—)

$f_e(E)$: エネルギー E (KeV) の γ 線に対する検出効率 ($\text{cps} \cdot \text{cm} / \mu\text{Ci}$)

V : ディレイラインの単位長さ当りのナトリウム体積 (cm^3/cm)

λ_d : 娘核種の壊変定数 (sec^{-1})

である。計算を行なううえで $f_e(E)$ は γ 線計測体系のモックアップと ^{152}Eu の標準線源から求めた式 $f_e(E) = \exp[8.25 - 0.914 \times \ln(E) + 0.0211 \times \{\ln(E)\}^2]$ を用い $V = 0.694 (cm^3/cm)$, ループの全長 $L = 5734 (cm)$ である。また, (6-2) 式中の熱中性子束 ϕ は, Appendix で述べるようにナトリウム温度が $500^\circ C$ では $7.84 \times 10^9 (cm^{-2} \cdot sec^{-1})$ を, $400^\circ C$ では 7.53×10^9 の値を用い, 従って (6-2) 式で算出される核分裂速度 F_r は, $500^\circ C$ で $F_r = 2.03 \times 10^{11} (atoms/sec)$, $400^\circ C$ では $F_r = 1.95 \times 10^{11}$ である。

上記 (6-3) 式で算出した $C_d(x)$ の各核種毎のループ内分布を Fig 6-2 ~ 6-9 に示す。 ^{89}Rb および ^{134}Te の場合を除いて, 実験 Na 22 と 33 のループ内分布は, 他の実験と比較して核種毎にそれぞれ勾配が急になっているが, これはナトリウム流速が $0.24 m/sec$ (他の場合は $1.2 m/sec$) と遅いためである。このループ内分布を R_f をパラメーターとして (6-1) 式を用いた最小 2 乗法によるフィッティングを行ない, R_f の最適値を求めた。Fig 6-2 ~ 6-9 中に実線でフィッティング関数を示す。フィッティング関数は実験値と非常によい一致を示した。Table 6-1 に最適結果を与える FP の放出率 R_f の値を核種および実験 Na 毎にそれぞれ示し, これらの結果について若干の考察を行なう。

まず放出率 R_f 値とナトリウム流速の相関関係について考察する。 ^{86}Br , ^{88}Br では流速が遅い方が R_f 値は小さい値を示し, ^{90}Kr , ^{139}Xe では逆の傾向を示したが, その他の核種では R_f 値と流速の間に明瞭な相関関係を示さなかった。従って, 放出率と流速の間にはほとんど相関関係はないと考えられる。また実験 Na 28 は高酸素濃度ナトリウムを使用した実験であるが, どの核種についても顕著な放出率の差は得られておらず, ナトリウム中の高濃度酸素は照射試料表面からの FP の放出挙動に何の影響も与えていないことが推定される。更に実験 Na 22 から Na 33 までの間にほぼ 10 回の照射試験を実施したが, この間でも放出率の経年変化はほとんどみられず, また

*) Table 2-4 ではループ全長は $4405 cm$ であるが, ここでは, ループ全体がディレイライン配管 (内径 $0.94 cm$) と同じ配管できているとみなし, 循環系内全ナトリウム量 ($3979 cm^3$) を前記配管断面積 ($0.69 cm^2$) で割った値を全長とした。

6.3.3 考 察

前報でも k factor が何故に 1 より小さいかその理由について種々検討したが、⁴⁾可能性のあるものをまとめると以下のようになる。

すなわち、²⁴Na の放射化量から算出した熱中性子束は、実際より小さいのではないかと、という点である。これの原因としては、

- a. ナトリウムはウランカプセルの先端部を選択的に流れて照射試料をカプセルの後部に押しつけるため、照射試料が後端部に偏在する。
- b. ナトリウムを放射化させる熱中性子スペクトルとウランを核分裂させる熱中性子スペクトルが異なる。

が考えられる。a. については前報でも検討しており、⁴⁾可能性としては充分考えられ、アクリルで製作したウランカプセルのモックアップを用いた水流動試験結果では、a. の現象が認められている。また b. についても可能性は充分あると考えられるが、いずれにしても、照射試料の照射後試験による燃焼度の測定結果が得られたならば、これらの問題は解決すると考えられる。尚、前述したモックアップ試験では、主に目視による水流動試験を実施したが、スタグナントフローの存在や、冷却材が流れない dead space の存在を確認することができなかった。従って、熱中性子束が ²⁴Na の放射化量から算出した値とほぼ等しい値が得られたならば、流動状態の問題か、あるいは何らかの理由で照射試料表面からの FP 放出が阻止されているものと考えざるを得なくなり、今後の更なる検討が必要となる。

6.4 結 言

γ線計測により得た揮発性および希ガス FP のナトリウム中濃度をもとに、FPL-Ⅱの放出率と k factor の算出を行ない、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 (400~500℃)、流速 (0.24, 1.2 m/sec) に関係なく一定である。
- (2) FP の放出率はその質量数に依存し、軽い FP (質量数 90 弱) で 0.85%、重い FP (質量数 140 弱) では 0.51% であった。この放出率の質量数に対する依存度は反跳現象による依存度とほぼ一致した。
- (3) 実験で求めた放出率と反跳モデルで算出される放出率の比 (k factor) を算出した結果、質量数に対する依存性はほとんどなく、 0.43 ± 0.01 という値が得られた。

k factor が 1 より小さい理由については、照射試料の照射後試験の結果を待って更に検討を加える必要がある。

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

Nuclide	Half life	Exp. No 22	Exp. No 33	Exp. No 28	Exp. No 32	Average (this work)	Average (ref 4)
		400°C 0.24m/sec	500°C 0.24m/sec	500°C 1.2m/sec	500°C 1.2m/sec		
⁸⁶ Br	55 sec	0.85±0.04	0.86±0.04	0.91±0.06	0.96±0.06	0.90±0.04	0.91±0.04
⁸⁸ Br	16 sec	0.51±0.03	0.50±0.03	0.60±0.03	0.62±0.03	0.56±0.03	0.51±0.02
⁸⁹ Rb	15.2min	0.80±0.02	0.86±0.02	0.81±0.03	0.83±0.02	0.83±0.03	0.78±0.03
⁹⁰ Kr	32.3 sec	0.94±0.02	0.91±0.03	0.69±0.02	0.76±0.02	0.83±0.02	0.78±0.02
¹³⁴ Te	42 min	0.49±0.04	0.59±0.02	0.52±0.04	0.58±0.04	0.55±0.04	0.47±0.08
^{136m} I	46 sec	0.67±0.02	0.66±0.03	0.70±0.02	0.70±0.03	0.68±0.03	0.69±0.08
¹³⁹ Xe	39.7 sec	0.57±0.02	0.55±0.02	0.37±0.02	0.42±0.03	0.48±0.03	0.50±0.02
¹⁴⁰ Xe	13.6 sec	0.47±0.06	0.48±0.09	0.49±0.08	0.55±0.08	0.50±0.09	0.37±0.04

Table 6 - 2 k factor for each fission product nuclide

Nuclide	Release fraction (%)		k factor (-)
	measured	calculated	
⁸⁶ Br	0.90 ± 0.04	2.03	0.44 ± 0.02
⁸⁸ Br	0.56 ± 0.03		0.28 ± 0.01
⁸⁹ Rb	0.83 ± 0.02		0.41 ± 0.01
⁹⁰ Kr	0.83 ± 0.02		0.41 ± 0.01
¹³⁴ Te	0.55 ± 0.04	1.14	0.48 ± 0.04
^{136m} I	0.68 ± 0.03		0.60 ± 0.03
¹³⁹ Xe	0.48 ± 0.03		0.42 ± 0.03
¹⁴⁰ Xe	0.50 ± 0.09		0.44 ± 0.09

mass number

 objective Fission Product Nuclide

$t_{1/2}$: half life
 λ : decay constant (1/sec)
 Fy^* : cumulative yield
 Fy : independent yield
 $Fy\sigma$: relative error

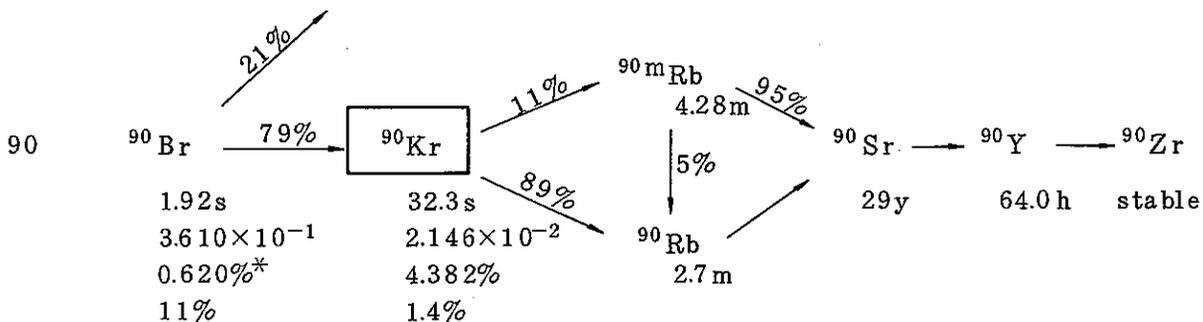
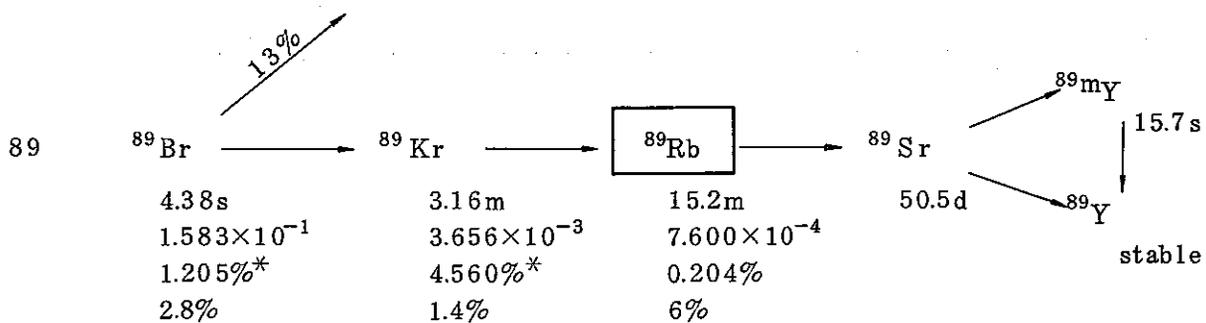
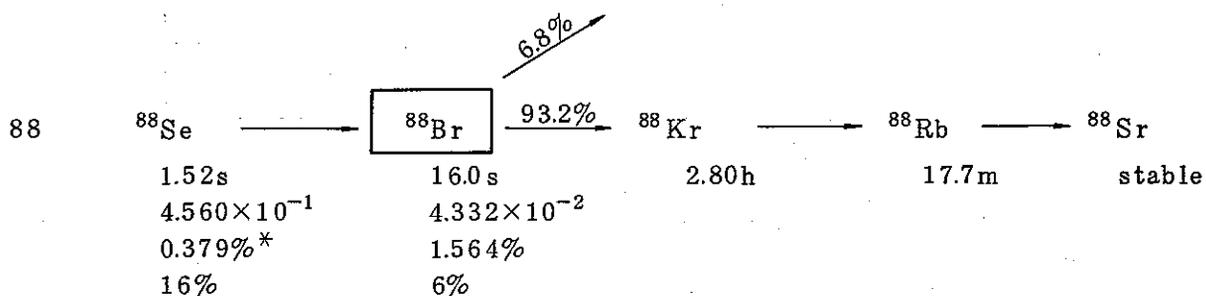
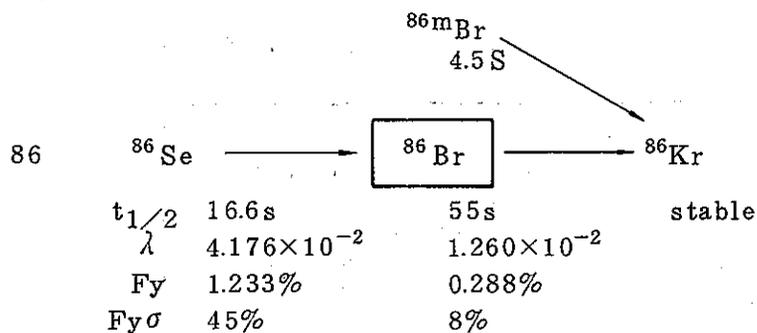


Fig 6 - 1 Fission chain ⁷⁾

mass number

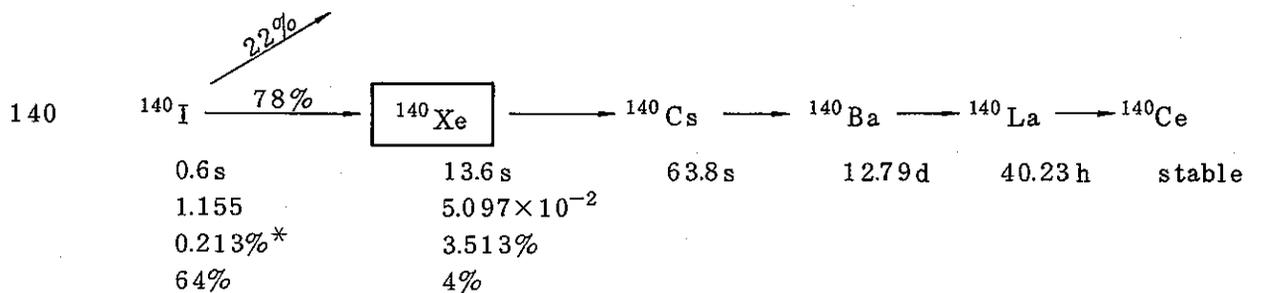
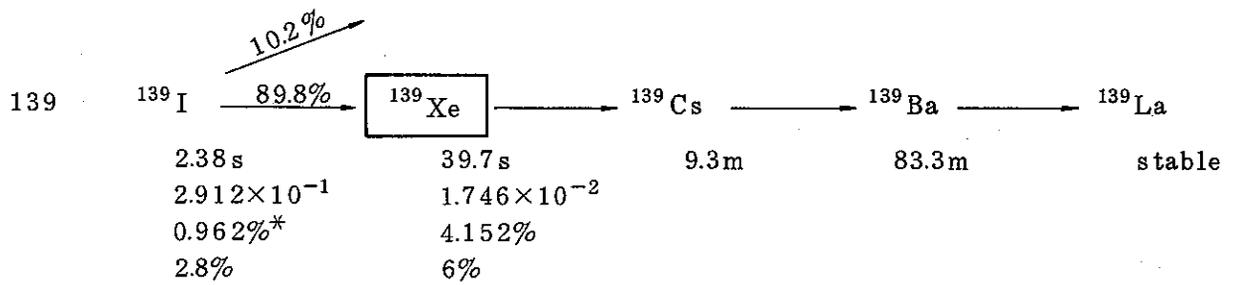
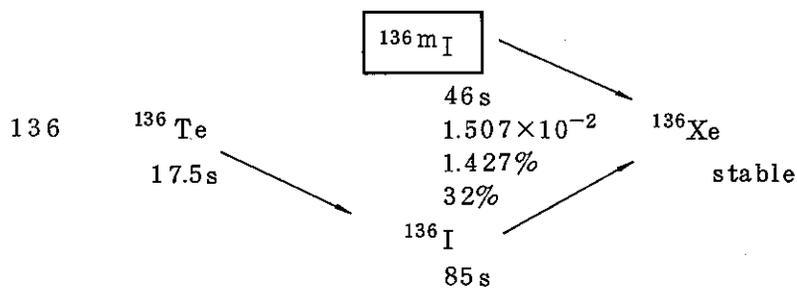
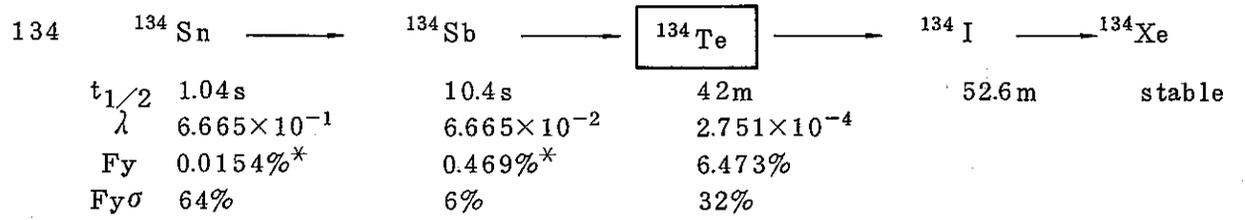
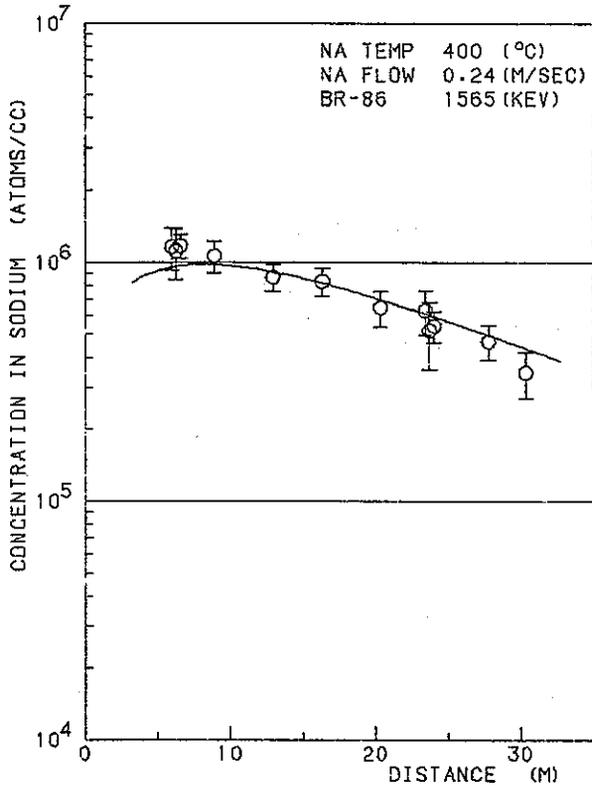
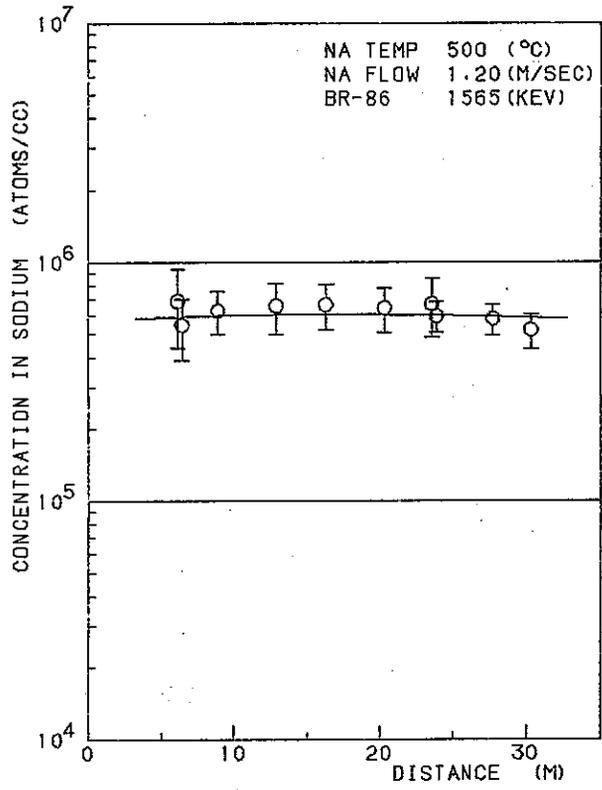


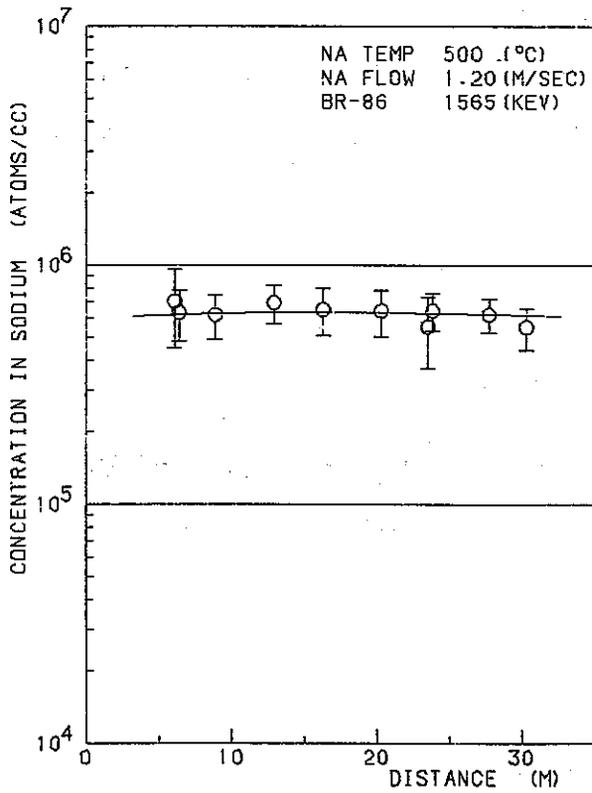
Fig 6 - 1 (continued) ⁷⁾



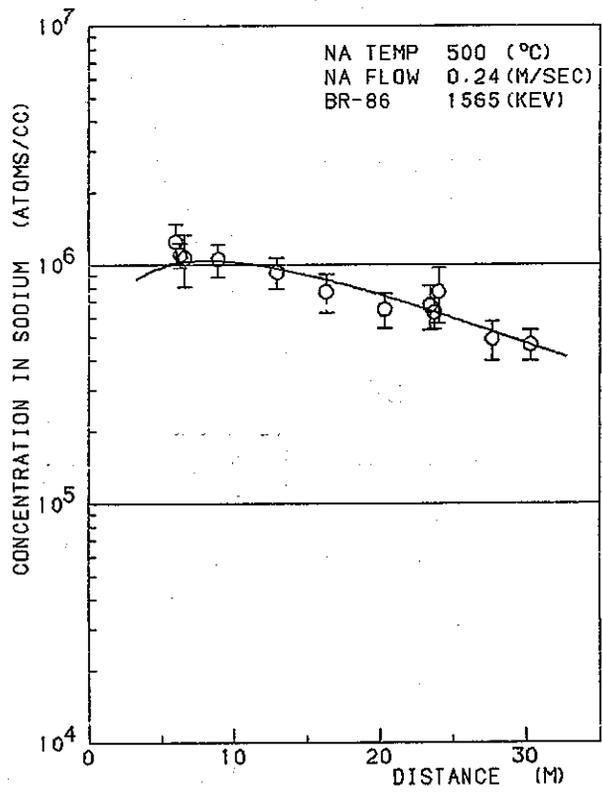
1) EXP. NO. 22



2) EXP. NO. 28

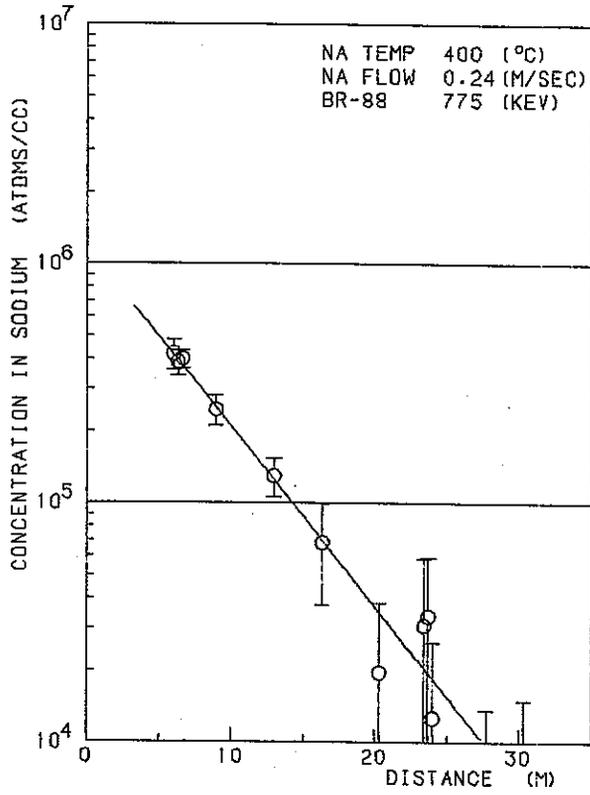


3) EXP. NO. 32

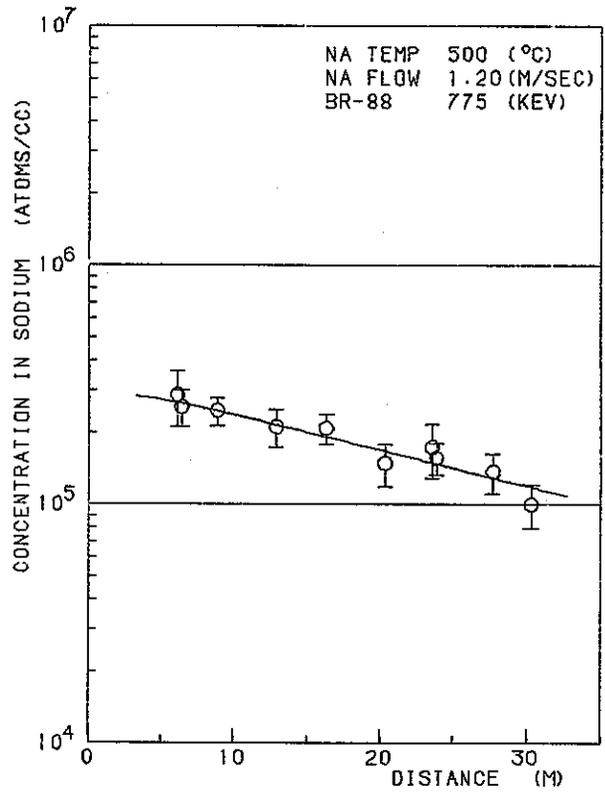


4) EXP. NO. 33

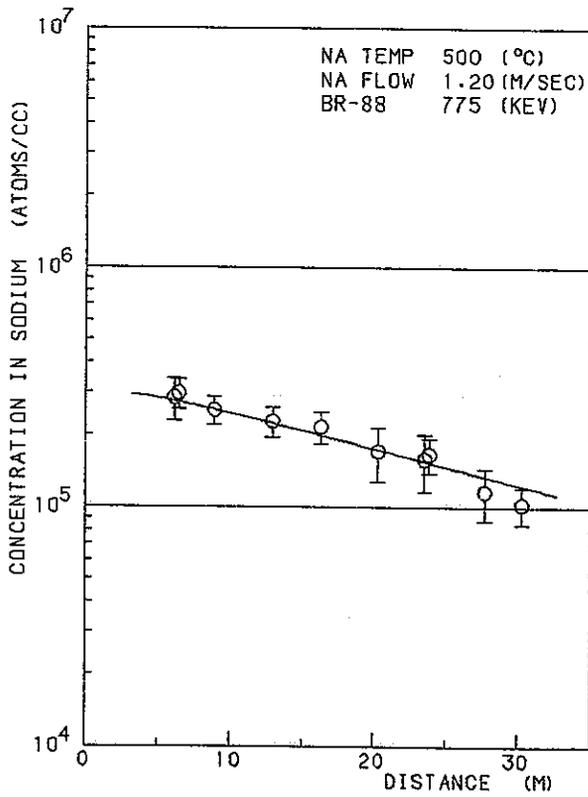
Fig 6 - 2 Distribution of ⁸⁶Br concentration in sodium along the delay line



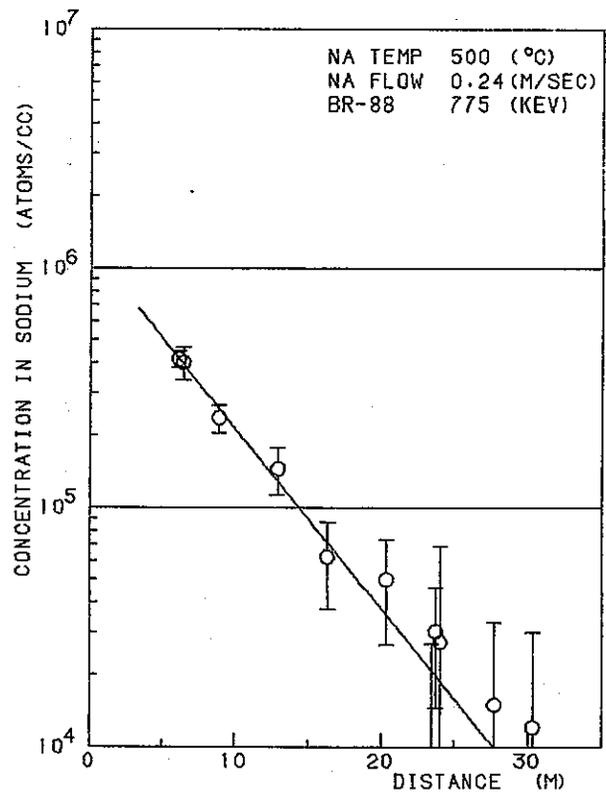
1) EXP. NO. 22



2) EXP. NO. 28

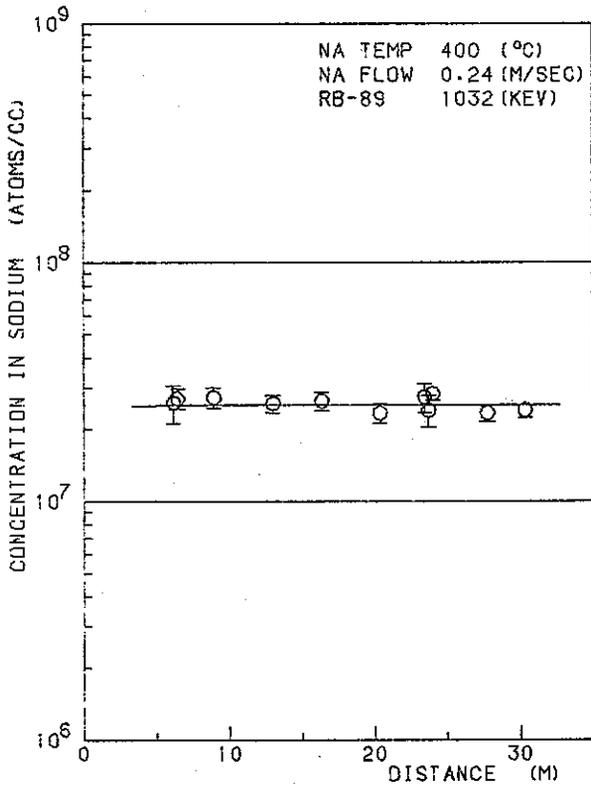


3) EXP. NO. 32

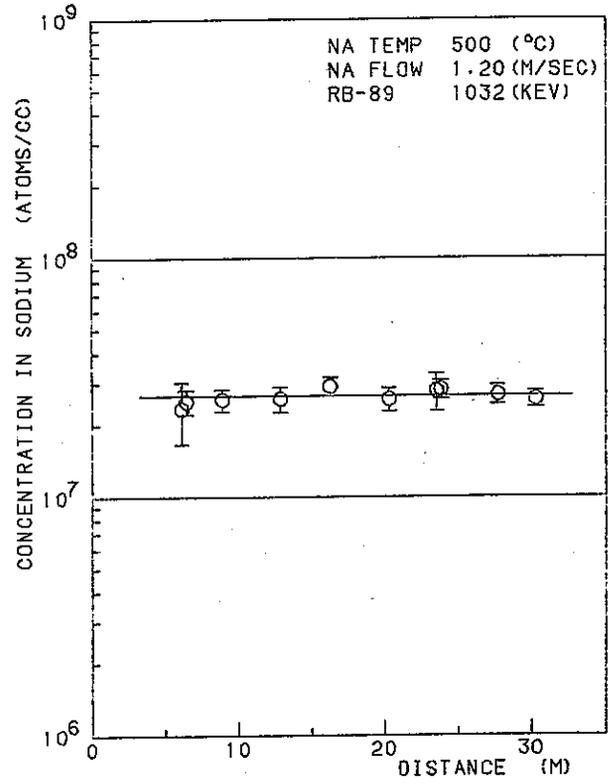


4) EXP. NO. 33

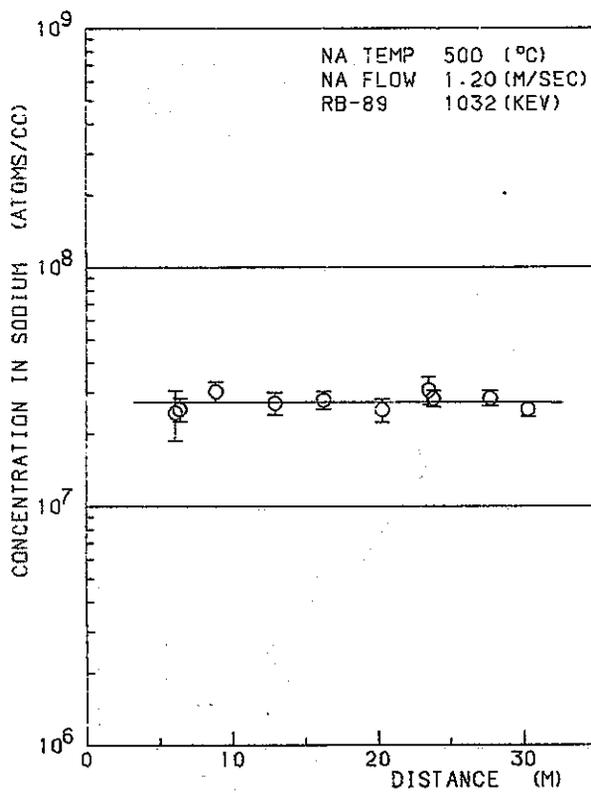
Fig 6 - 3 Distribution of ⁸⁸Br concentration in sodium along the delay line



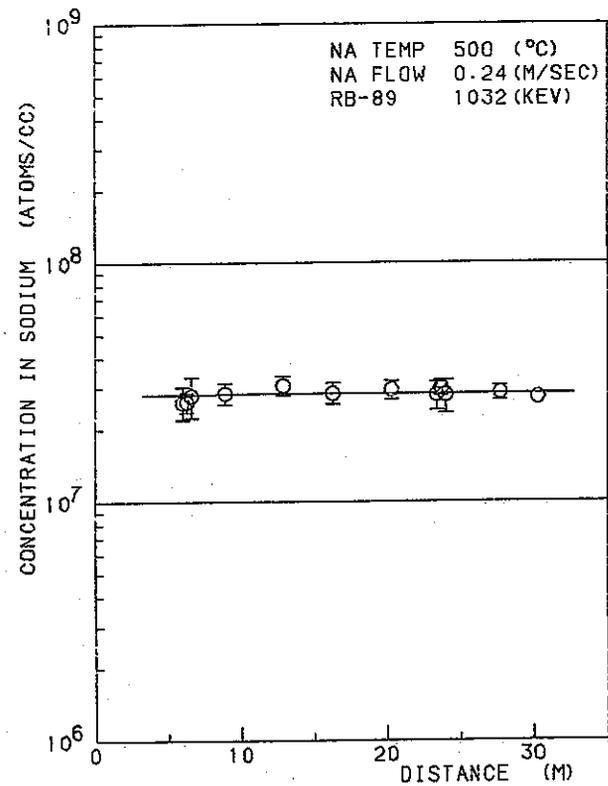
1) EXP. NO. 22



2) EXP. NO. 28

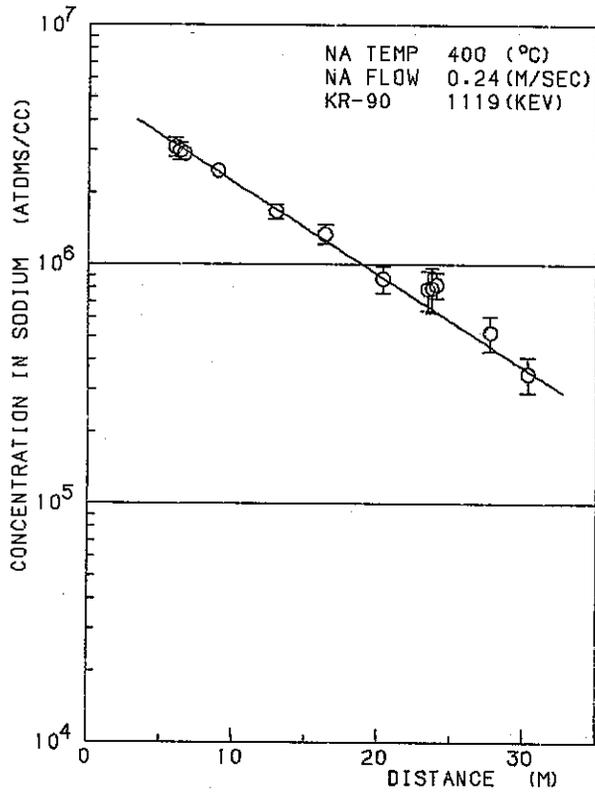


3) EXP. NO. 32

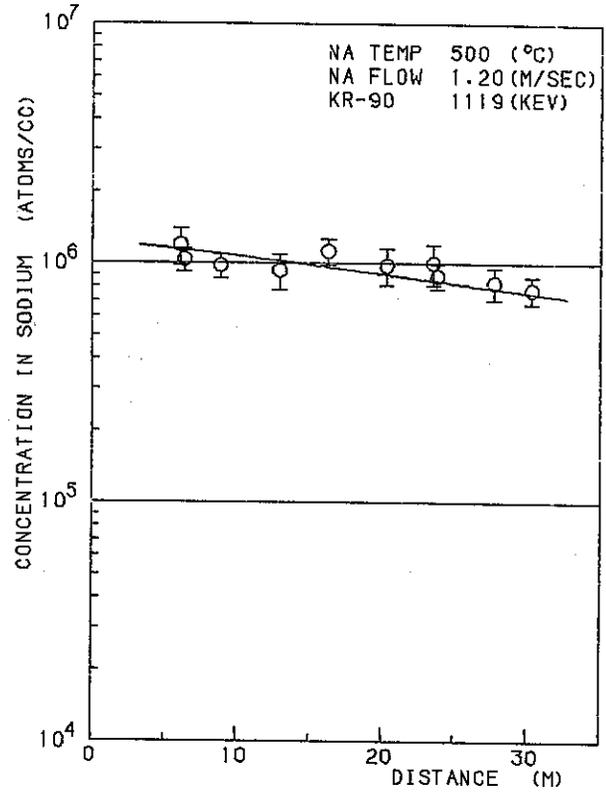


4) EXP. NO. 33

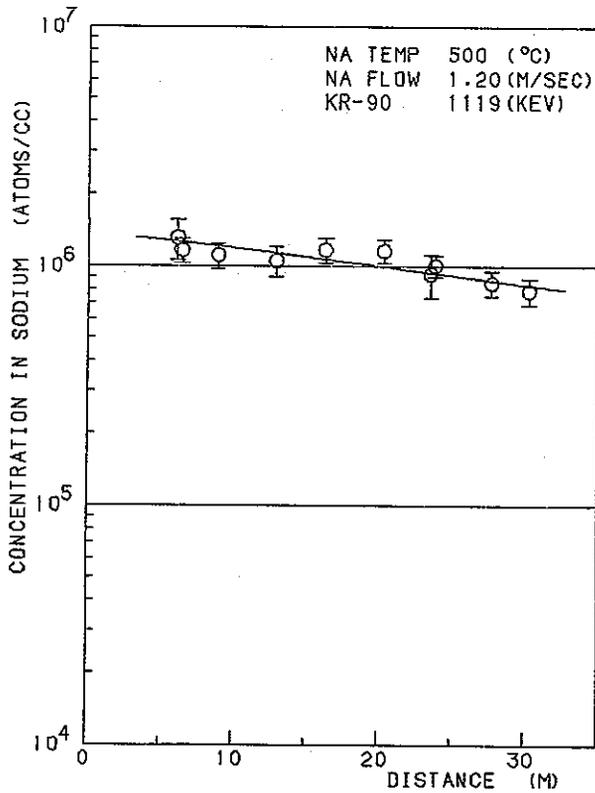
Fig 6 - 4 Distribution of ⁸⁹Rb concentration in sodium along the delay line



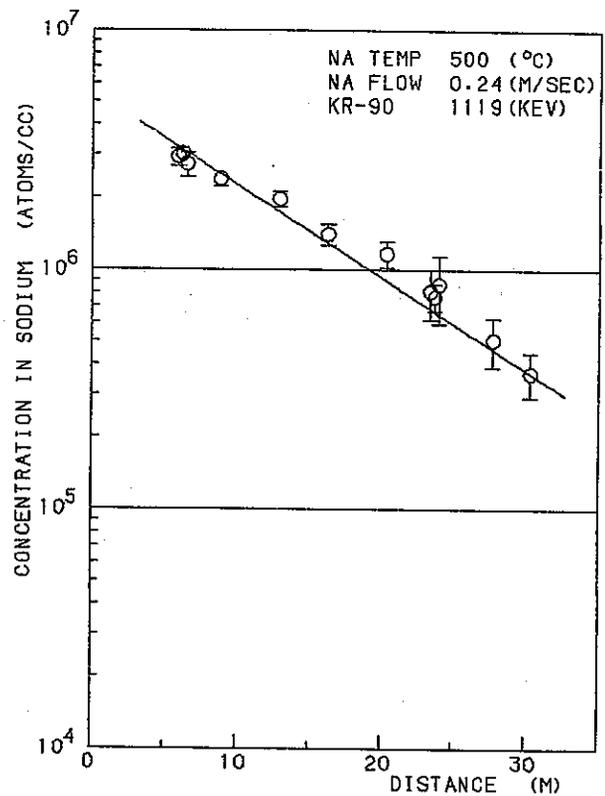
1) EXP. NO. 22



2) EXP. NO. 28

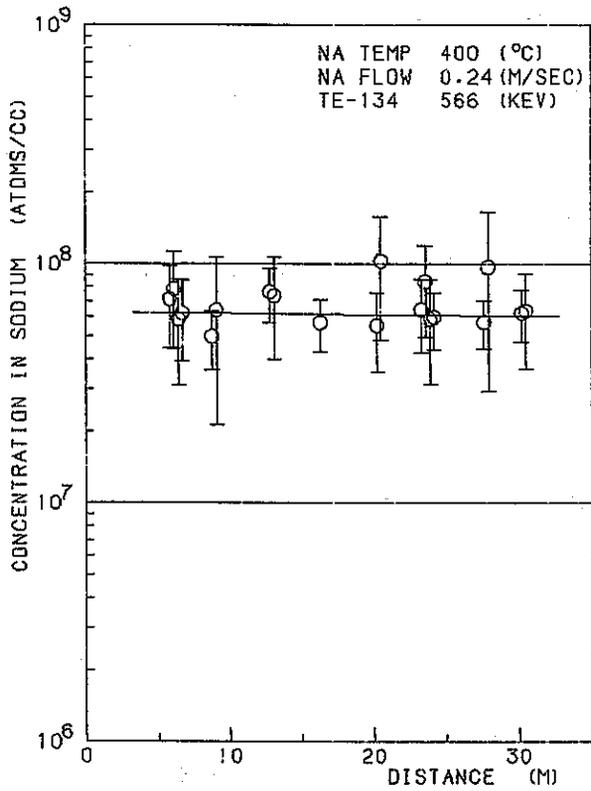


3) EXP. NO. 32

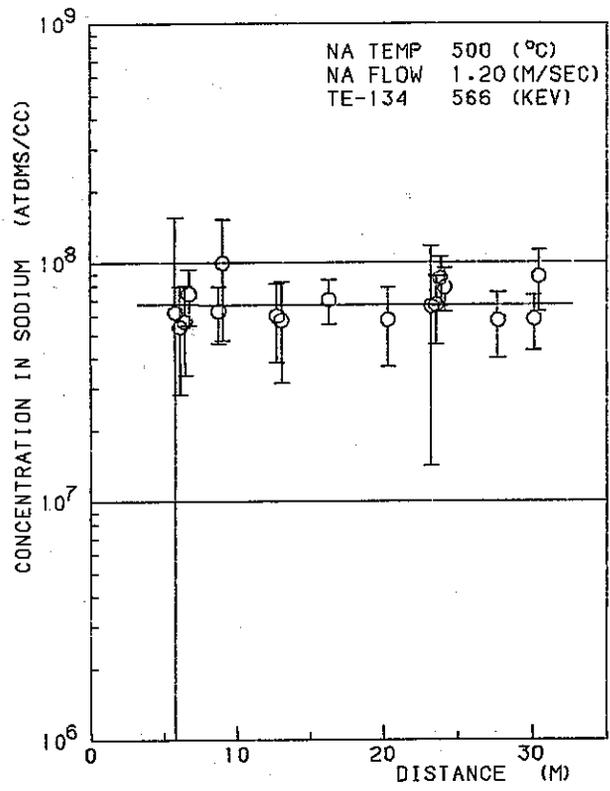


4) EXP. NO. 33

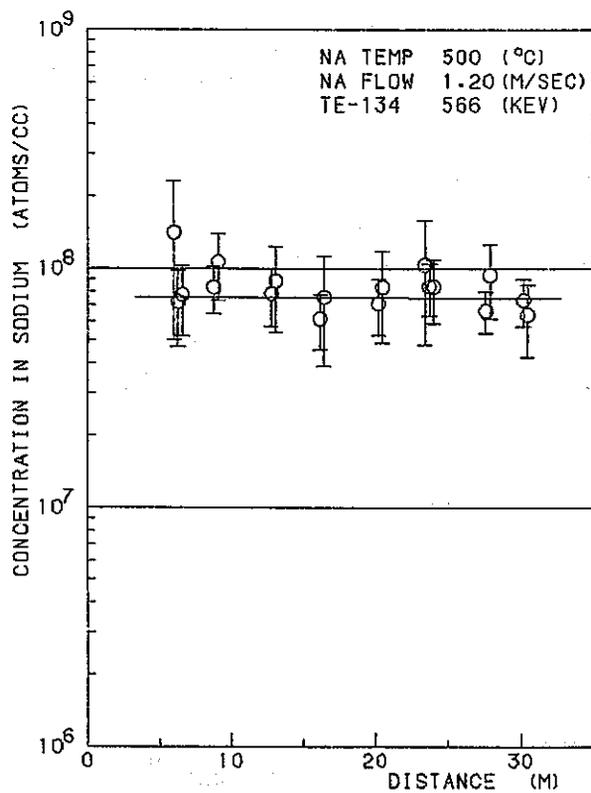
Fig 6 - 5 Distribution of ⁹⁰Kr concentration in sodium along the delay line



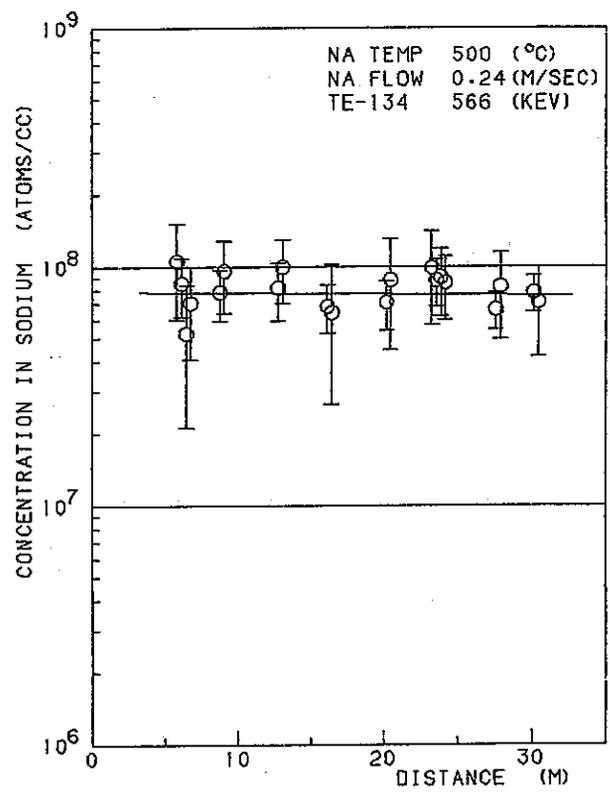
1) EXP. NO. 22



2) EXP. NO. 28

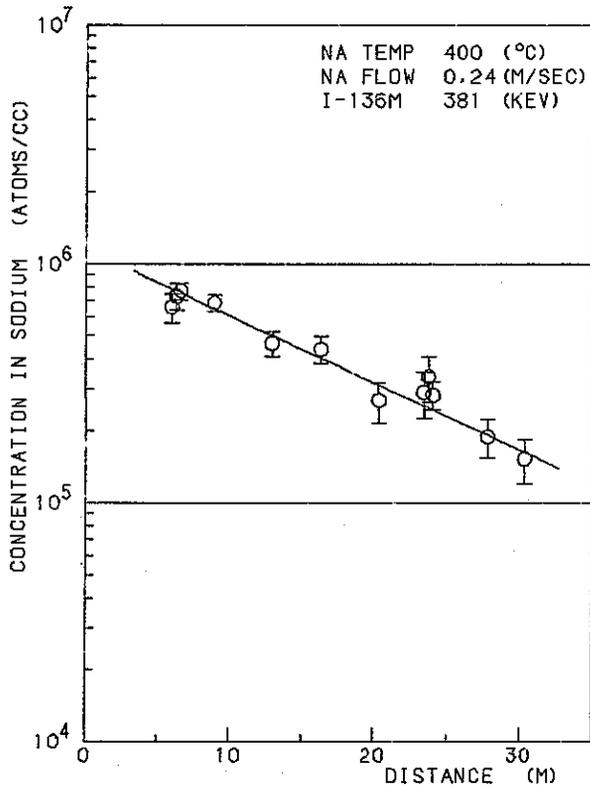


3) EXP. NO. 32

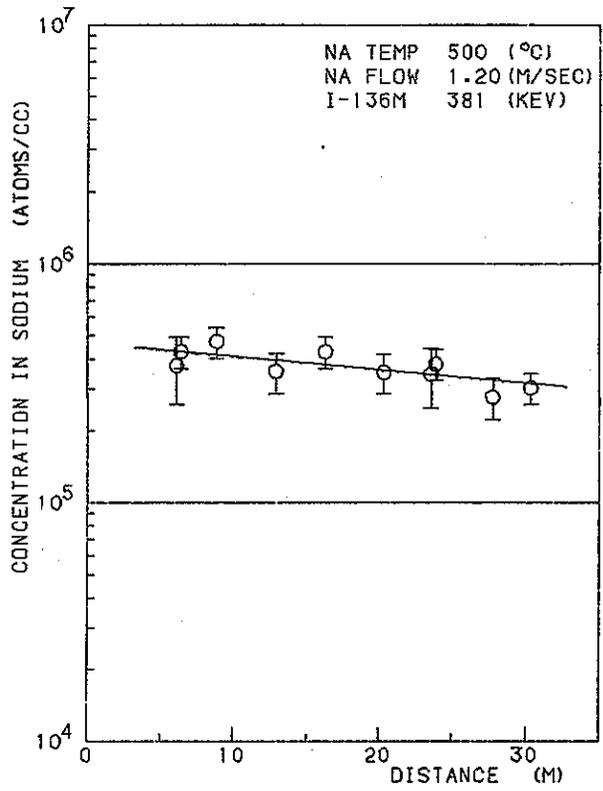


4) EXP. NO. 33

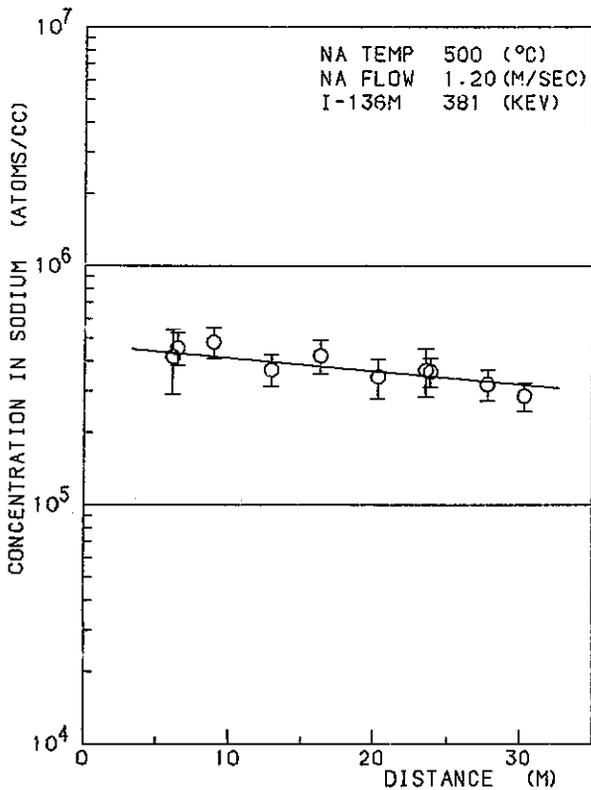
Fig 6 - 6 Distribution of ^{134}Te concentration in sodium along the delay line



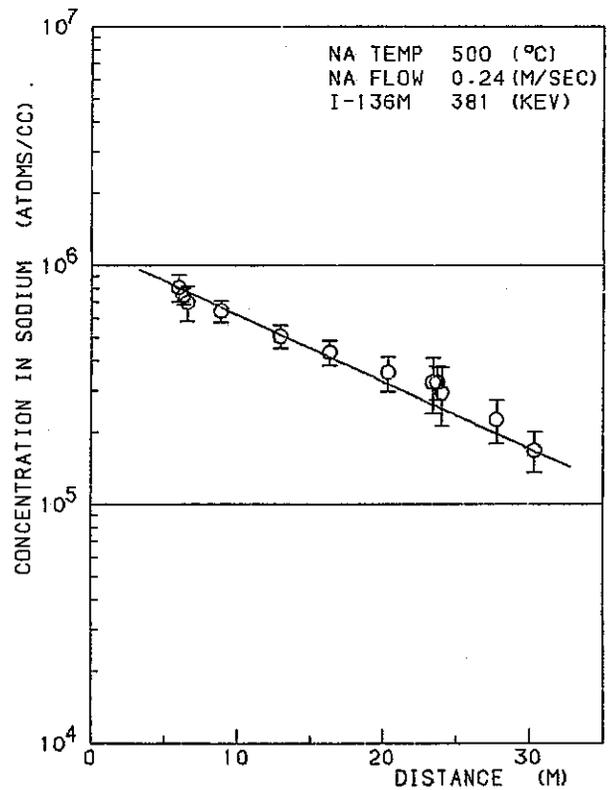
1) EXP. NO. 22



2) EXP. NO. 28

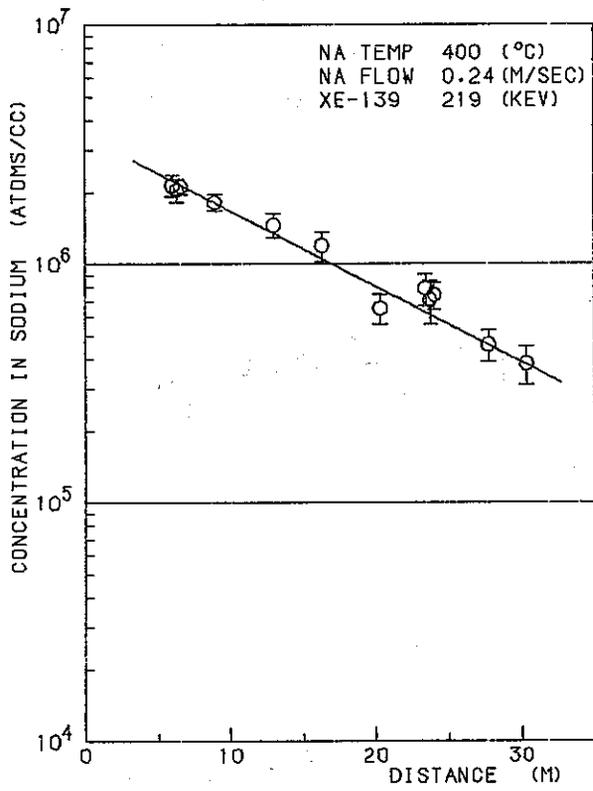


3) EXP. NO. 32

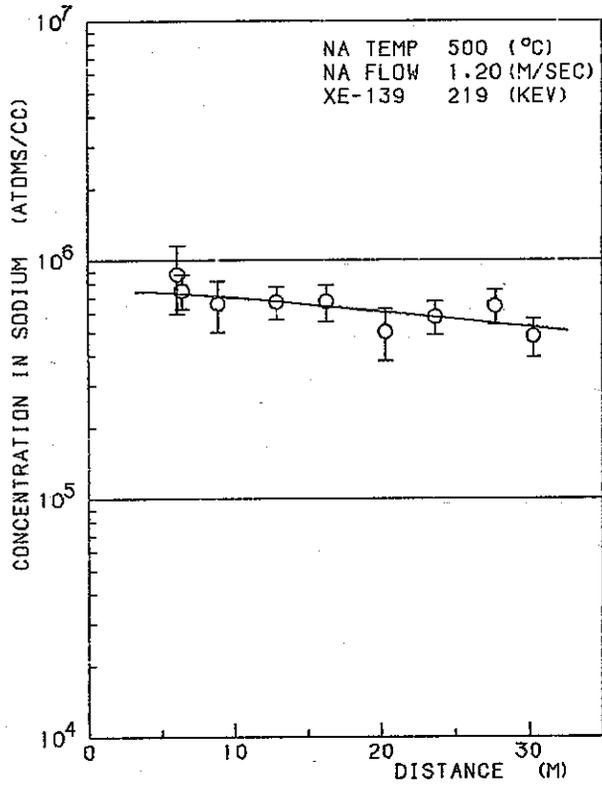


4) EXP. NO. 33

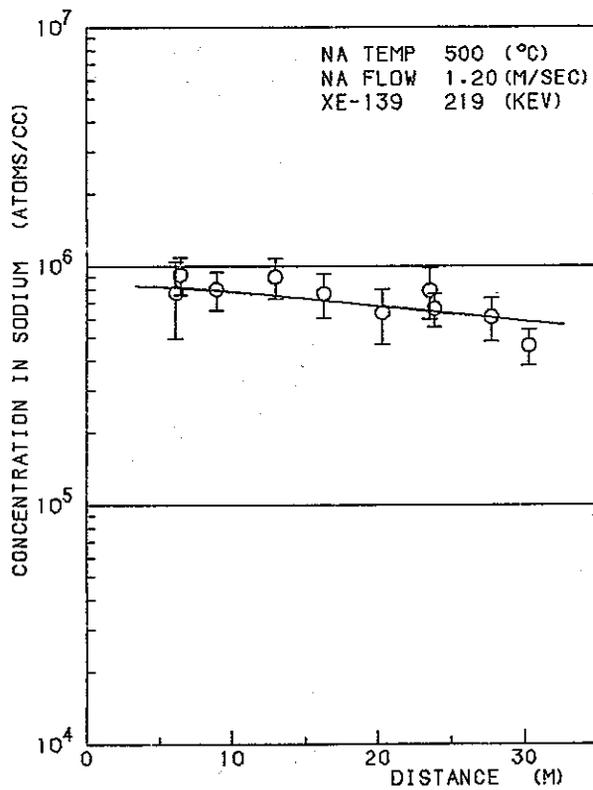
Fig 6 - 7 Distribution of ^{136m}I concentration in sodium along the delay line



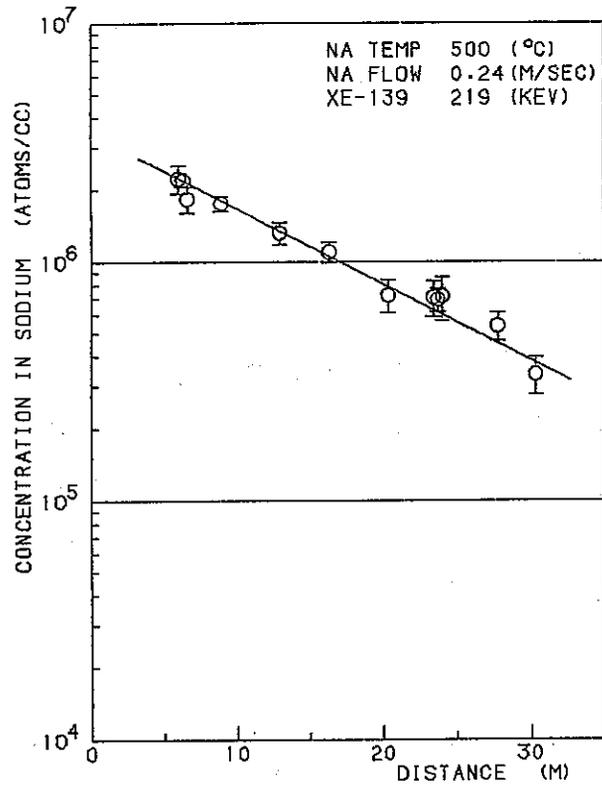
1) EXP. NO. 22



2) EXP. NO. 28

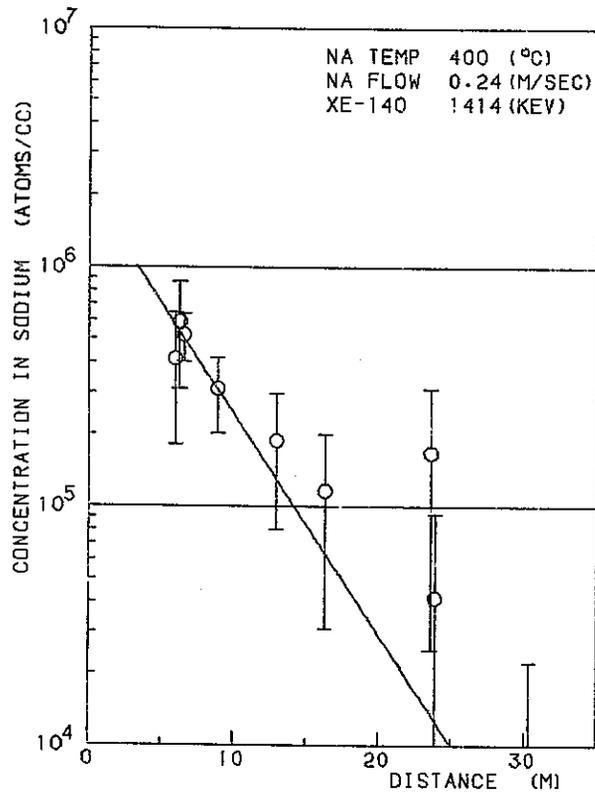


3) EXP. NO. 32

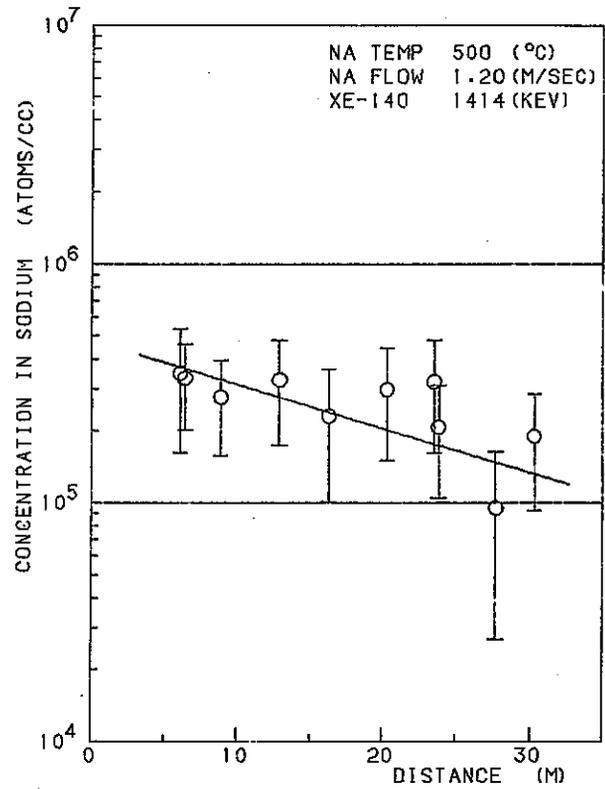


4) EXP. NO. 33

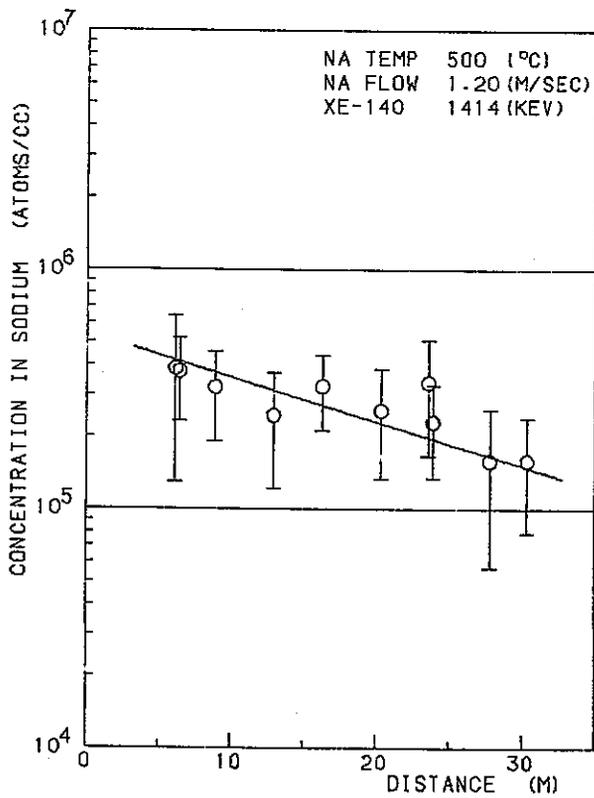
Fig 6 - 8 Distribution of ¹³⁹Xe concentration in sodium along the delay line



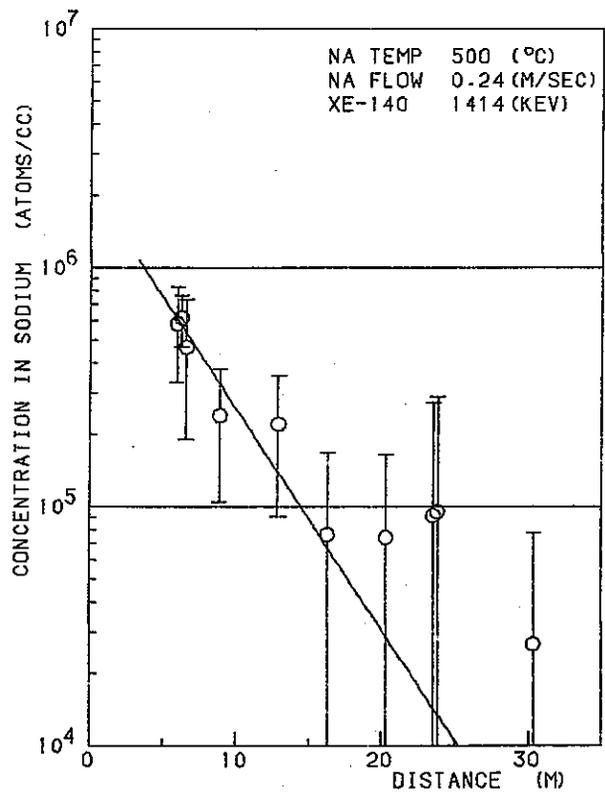
1) EXP. NO. 22



2) EXP. NO. 28



3) EXP. NO. 32



4) EXP. NO. 33

Fig 6 - 9 Distribution of ¹⁴⁰Xe concentration in sodium along the delay line

7. 遅発中性子 (DN) 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非常に重要である。そこでディレイライン上の 2 箇所に DN 検出器を設置して、これまでに FPL-II の定常運転時、ナトリウム流量変化時、流量停止時および TTR 出力降下時に DN を測定し、ナトリウム中の DN 核種の移行挙動を調べた。^{3), 4)} 尚本 DN 装置は遮蔽が不十分なため、計測点以外からの DN も計測していることがわかった。そこで前年度に DN 検出装置のモックアップを製作し、計測点以外の配管・機器に対する中性子の検出効率を測定する試験 (モックアップ試験) を実施し、⁴⁾ その試験結果を考慮した解析モデルを作成して DN 測定結果との比較を行ない、本解析モデルを用いることにより、DN 測定結果をかなりよく説明できることを明らかにした。⁴⁾ しかし詳細な点については測定結果と解析モデルに差があることがわかり、また、DN 核種のループ内壁への吸着挙動については全く考察を行なっていなかったため、今回は解析モデルの見直しを行ない、DN 核種の吸着挙動を含めたナトリウム中での移行挙動のまとめを行なう。

尚 ^{87}Br 、 ^{137}I 等の DN 核種は、半減期の長さにより 5 つのグループに大別される。そこで、各グループ毎に、平均半減期、核種名、および FPL-II 照射試料の核分裂速度である 2.03×10^{11} (atoms/sec) で生成する DN 核種から放射さえる DN 放出速度の値を Table 7-1 に示す。¹⁴⁾ 一般に DN 核種の半減期は一分以下と非常に短い。

7.2 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、挙動のモデル化を行なう。尚 DN 核種は、前述したグループ群に分けて論ずることとする。

前報でも述べたように、⁴⁾ ナトリウム中の DN 核種の i グループの濃度 $\bar{C}_i(x)$ (atoms/cm³) 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 i グループの照射試料部での初期濃度 (atoms/cm³)

で、 α_i は、

$$\alpha_i = \frac{\lambda_i}{v} \{ K_{ai} \cdot (\ell/a) + 1 \} \quad (7-1a)$$

と表わされる。 K_{ai} は分配係数 (cm) で、壁面の濃度 $C_i^W(x)$ (atoms/cm²) と $\bar{C}_i(x)$ を用いて次式で定義される関数であり、

$$K_{ai} = \frac{C_i^W(x)}{\bar{C}_i(x)} \quad (7-1b)$$

である。また \bar{C}_{i0} は、

$$\bar{C}_{i0} = \frac{R_{fi} \cdot Y_i \cdot F_r}{F(1 - e^{-\alpha_i \cdot L})} \quad (7-1c)$$

である。ここに、

- λ_i : DN核種 i グループの壊変定数 (sec⁻¹)
- v : ナトリウムの流速 (cm/sec)
- ℓ : 円管の内円周長 ($2\pi r$; cm) (r は円管の半径)
- a : 円管の断面積 (πr^2 ; cm²)
- R_{fi} : DN核種の照射試料からナトリウム中への放出率 (-)
- Y_i : 核分裂収率 (-)
- F_r : 核分裂速度 (atoms/sec)
- F : ナトリウム流量 (cm³/sec)
- L : ループ全長 (cm)

である。

尚分配係数 K_{ai} は、DN核種の壁面への吸着挙動^{*)}を表わす値で、温度と流速の関数であり、ナトリウム温度が高温でDN核種の吸着が無視できる場合には $K_{ai} \cong 0$ である。

2箇所¹⁰⁾の計測点で計測されるDNの計測値 $C_{rj}(x_j)$ (cps) は (j は DND-1 と DND-2 の区別を表わし、 $j=1$ か 2 である)、

$$C_{rj}(x_j) = \sum_{i=1}^5 f_j \cdot \eta_i \cdot \lambda_i \cdot \{ v \cdot C_i(x_j) + S \cdot C_i^W(x_j) \} \quad (7-2)$$

となる。ここで、

*) 6章でも述べたように、揮発性FPの壁面への付着現象には、吸着という言葉を使用する。¹⁰⁾

- x_j : ウラン燃料から各計測点までの距離 (cm)
 V : 検出器が見込むループ配管領域内のナトリウム体積 (cm³)
 S : " " " の表面積 (cm²)
 f_j : 検出効率 (counts/n)
 η_i : DN先行核種の β 壊変に伴ってDNが放出される割合 (-)

である。ここで、検出器が見込む領域内配管の長さを l_d (cm) とすると、 $V = \pi r^2 l_d$ 、 $S = 2\pi r l_d$ であるから (r は配管の内半径)、上式 (7-2) は、(7-1c) 式を用いて整理すると、

$$C_{rj}(x_j) = \pi r \cdot \sum_{i=1}^5 \frac{\lambda_i \cdot Q_i \cdot R_{fi}}{F \cdot (1 - e^{-\alpha_i \cdot L})} \cdot (r + 2K_{ai}) \cdot f_j \cdot l_d \cdot e^{-\alpha_i \cdot x_j} \quad (7-3)$$

となる。ここで、

$$Q_i = \eta_i \cdot Y_i \cdot F_r$$

であり、 Q_i (n/sec) は、Table 7-1 中の DN 放出数に相当する。

ところで 7.1 の緒言でも述べたように、FPL-II に設置されていた DN 検出器は、計測点以外のすべてのループ配管、機器に対して検出効率をもっていることがわかっている。すなわち、(7-3) 式中の $f_j \cdot l_d \cdot e^{-\alpha_i \cdot x_j}$ は、計測点以外のループに対する検出効率を考慮して書き直す必要があり、2つの検出器の計数率 C_{rj} (cps) は、前報⁴⁾より

$$C_{rj} = \pi r \cdot \sum_{i=1}^5 \frac{\lambda_i \cdot Q_i \cdot R_{fi}}{F \cdot (1 - e^{-\alpha_i \cdot L})} \cdot (r + 2K_{ai}) \cdot \sum_{k=1}^N \int_{x_k}^{x_{k+1}} f_{jk}(x) \cdot e^{-\alpha_i \cdot x} dx \quad (7-4)$$

で表わされる。ここで、

k : ループの領域 (N はループの全領域数)

x_k, x_{k+1} : それぞれ領域 k の先端および後端のウラン燃料部からの距離 (cm)

$f_{jk}(x)$: 領域 k のループ部に対する検出器 j の検出効率 (counts/n)

であり、 $f_{jk}(x)$ は、前年度に実施したモックアップ試験で得られた値であり、またウラン燃料部からの距離 x の関数である。

以下にナトリウム流動停止および TTR 出力降下 (テストスクラム) 時の計数率の経時変化を表わす解析モデルを示す。尚以下の議論では、DN 核種のウラン燃料からの放出率は核種の別に無関係に R_f で等しいとする。

1) ナトリウム流動停止時

流動を停止した場合，DN核種は壊変定数に従って減衰していくので，

$$C_{rj}(t) = \pi r \cdot R_f \cdot \sum_{i=1}^5 \frac{\lambda_i \cdot Q_i}{F \cdot (1 - e^{-\alpha_i \cdot L})} \cdot (r + 2K_{ai}) \cdot e^{-\lambda_i \cdot t} \cdot \sum_{k=1}^N \int_{x_k}^{x_{k+1}} f_{jk}(x) \cdot x e^{-\alpha_i \cdot x} \cdot dx \quad (7-5)$$

となる。ここで， t は流動停止後の経過時間 (sec) である。

2) TTRテストスクラム時

DN核種の壁面への吸着が無視できない場合 ($K_{ai} \neq 0$) には，テストスクラム時のDN計数率の経時変化を解析的に解くことはできない。なぜならば，(7-4)式は，流動が定常状態のときのみ成立するからである。

但し吸着が無視できる場合 ($K_{ai} \cong 0$) には経時変化を解析的に解くことができ，計数率の経時変化は， $K_{ai} = 0$ として，

$$C_{rj}(t) = \pi r^2 \cdot R_f \cdot \sum_{i=1}^5 \frac{\lambda_i \cdot Q_i}{F \cdot (1 - e^{-\alpha_i \cdot L})} \cdot \left\{ \sum_{k=1}^{k_t} \int_{x_k}^{x_t} f_{jk}(x) \cdot e^{-\alpha_i \cdot (x + (n+1)L)} dx + \sum_{k=k_t}^N \int_{x_t}^{x_{k+1}} f_{jk}(x) \cdot e^{-\alpha_i \cdot (x + nL)} dx \right\} \quad (7-6)$$

となる。ここで， t はテストスクラム後の経過時間 (sec) である。また 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， $x_t = vt - nL$ ($n = \text{Integer}(vt/L)$) である。尚， k_t は， x_t をその中に含む領域を表わし， n は，テストスクラム後のナトリウムのループ内循環数である。

7.3 解析モデルと測定結果の比較

前記した(7-4)～(7-6)式で計算されるDN計数率の値は，DN測定結果とある程度よく一致することを前報⁴⁾において述べた。しかし詳細に両者の値を比較すると，本質的に食い違いがあることがわかった。その主な原因は，モックアップ試験で使用したAm-Be中性子線源の平均中性子エネルギー(約700KeV)とDNの平均中性子エネルギー(約430KeV)が異なることによるものと考えられる。すなわち，エネルギーが異なることにより，DN検出器に付属した中性子遮蔽体の遮蔽能力が異なるためである。そこで，実験No.19(DNの点状線源をつくってナトリウムを流動させた実験⁴⁾)の測定結果をもとに，モックアップ試験で算出した(7-4)～(7-6)式中の $f_{jk}(x)$ の値の見

直しを行なうことにする。

参考のために Fig 7-1 に実験 No. 19 の測定結果を、Fig 7-2 にモックアップ試験で得られた $f_{jk}(x) \cdot e^{-\alpha_i \cdot x}$ (DN 核種の流動に伴う放射壊変を考慮している) の計算結果を各検出器毎に図に示す。この両者の結果を比較すると、主な相異点は(i)図中には各々数本のピークが検出されているが、そのピークの線幅が両者の間で非常に異なる。(ii)一番高いピークとその他のピークの計数率比が両者の結果で異なる、の2点であることがわかった。このうち(i)については、前報でも述べたように流動実験で作った DN の線源が完全な点状でなくある広がりをもっているためと考えられる⁴⁾。一方(ii)については、DN 検出器に付属した中性子遮蔽体の遮蔽能力が、DN 中性子に対しては、(中性子エネルギーが低い)モックアップ試験の場合よりも約2倍程大きいためと考えられた。そこで、計測点以外の場所の検出効率である $f_{jk}(x)$ の値をモックアップ試験で得られた値の約1/2としたところ、解析モデルと測定結果は前報の場合よりも更によく一致することがわかった。以下に修正した $f_{jk}(x)$ の値を用いて得られた解析モデルの結果と測定結果の比較を行なう。

1) ループの定常状態および流量依存性の実験結果と解析モデルの比較

Table 7-2 に、これまでの照射試験で得られた DN 測定実験のうち、ループの定常状態時の DND-1 および 2 の計測結果を、ナトリウム温度および流量毎にまとめて示す。また DND-1 と 2 の計数率の比も示す。この比は、DN 核種のナトリウム中での吸着挙動を表わす指標となる。そこで、まず吸着挙動を無視し ($K_{ai} = 0$)、種々の DN 核種のウラン燃料からの放出率はすべて等しく R_f で表わされているとして、解析モデルによる計数率の比 (C_{r1} / C_{r2}) を表中に示す。尚この比は、(7-4) 式から、

$$\frac{C_{r1}}{C_{r2}} = \frac{\sum_{i=1}^5 \frac{\lambda_i \cdot Q_i}{(1 - e^{-\alpha_i \cdot L})} \cdot \sum_{k=1}^N \int_{x_k}^{x_{k+1}} f_{1k}(x) \cdot e^{-\alpha_i \cdot x} dx}{\sum_{i=1}^5 \frac{\lambda_i \cdot Q_i}{(1 - e^{-\alpha_i \cdot L})} \cdot \sum_{k=1}^N \int_{x_k}^{x_{k+1}} f_{2k}(x) \cdot e^{-\alpha_i \cdot x} dx}$$

で表わされる。

上記の解析モデルによる比は、270 °C 以上のナトリウム温度の実験結果とよく一致した。しかし 225 °C 以下では、実験結果の方が解析結果より大きな値を示し、DN 核種のステンレス壁面への吸着挙動による影響が計数率の比に現われていることがわかる。

尚, ナトリウム温度が500℃の場合には特に種々のナトリウム流量の状態でのDN計測値の流量依存性を測定している。そこで, 解析モデルの流量依存性を実験結果と比較した。その結果, DND-1と2の計測値の比の流量依存性は, 解析モデルと実験値でかなりよく一致することがわかった。(Table 7-2参照) また計測値の流量依存性を解析モデルによる計算値の流量依存性と比較した結果をFig 7-3に示す。この図では, 実験値はナトリウム温度が500℃以上の照射試験の結果を示しており, また解析モデルのあてはめでは, (7-4)式中の $K_{ai} = 0$ とし, すべてのDN核種は等しく R_f として, 実験No.10におけるDND-1の5ℓ/minの計測値から求めた R_f を基準として, DND-1および2の計測値の推定値である C_{r1} , C_{r2} の流量依存性を算出している。この結果, 0.5ℓ/minの流量以下の場合を除いて, DND-1およびDND-2の計測値ともに, 実験値と解析値が非常によく一致した。従って本解析モデルはFPL-IIのDNの測定結果を非常によく説明できることがわかった。尚, 0.5ℓ/min以下の低流量の場合には両者の一致が悪くなっているが, この理由としては(7-4)式中の検出効率の値 $f_{jk}(x)$ が正確に求まっていないためと考えられる。

2) ナトリウム流動停止時の実験結果と解析モデルの比較

Fig 7-4に, 実験No.9, 10, 13, 23, 26, 28, 31の照射実験時において, 種々の流量におけるナトリウム流動停止時のDND-1および2の計測値の経時変化を, 解析モデルによる計算結果(実線)とともに示す。解析モデルによる計算では(7-5)式中の $K_{ai} = 0$ とし, $t = 0$ (t は流動停止からの経過時間)のときの計算値と各実験における流量が定常状態時でのDND-1の計測値が等しくなるように R_f を決めた後, (7-5)式により $C_{r1}(t)$, $C_{r2}(t)$ を算出したものである。解析値は実験No.9の場合を除いてほぼ完全に実験値と一致した。実験No.9以外は, ナトリウム温度が500℃の実験である。尚実験No.9は170℃での実験であり, 前述した計算仮定の $K_{ai} = 0$ が成立していないため, DND-1の計測値を基準にして解析値を求めた場合には, DND-2の計測値は解析値と全く一致しないことになる。またDND-1の計測値と解析値の経時変化についても若干の差があり, これも壁面に吸着したDN核種からのDNが, 計測値に影響を与えているためと考えられる。

3) TTRテストスクラム時の実験結果と解析モデルの比較

Fig 7-5 に、実験No. 10, 11, 12, 13, 14, 15, 16, 20, 21, 22, 25, 27, 28, 29, 30, 31, 32, 33 の照射実験において、TTRテストスクラム時におけるDND-1および2の計測値の経時変化を、解析モデルによる計算結果(実線)とともに、ナトリウム流量および温度毎にまとめて示す。解析モデルによる計算では、(7-6)式中、 $t=0$ のときの計算値と各実験における流量が定常状態でのDND-1の計算値が等しくなるように R_f を決めた後、(7-6)式により $C_{r_1}(t)$ 、 $C_{r_2}(t)$ を算出したものである。解析値は、DND-1および2ともに 400°C 以上のナトリウム温度の場合、ナトリウム流量に関係なく計測値とほぼ完全に一致した。尚ナトリウム温度が 300°C 以下の場合には、解析値と実験値のずれが大きくなるが、これは(7-6)式が $K_{ai}=0$ のときのみ成立する式だからであり、DN核種の吸着挙動による影響が、ナトリウム温度が 300°C 以下で顕著に現われていることがわかる。

尚、Fig 7-5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どの実験結果でも明瞭に現われているが(低温ナトリウムの実験では解析モデルの場合程実験値の値に急激な変化はみられない。吸着による影響と考えられる)、第2循環目以降は実験値においてその変化点が明瞭には現われなくなっている。これは、流動ナトリウムが電磁ポンプ、ヒータ、ウランカプセル等のディレイライン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り、ディレイライン配管部で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。

尚本解析モデルは高温ナトリウムにおけるテストスクラム時のDN計数率の経時変化をほぼ完全に再現できることがわかり、以上1)~3)までの解析モデルと実験値の比較から、本解析モデルはFPL-IIのDN計測結果を非常によく説明できることが証明された。

7.4 k factor の算出

これまでのDN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、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。

これまでの議論で、DN核種のウラン燃料からの放出率は、核種の別なく R_f で一定で

あるとしてきた。そこで k factor の算出にも同じ議論を用いる。反跳モデルで計算される DN 核種の平均の放出率を R_{fc} とすると、k factor k_f は、

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

となる。そこで高温ナトリウム時の DND-1 および 2 の実験結果から、各ナトリウム流量毎に k_f の算出を行なった。このとき $k_{ai} = 0$ とし、各実験における計測値を C_{rje} とすると、(7-4)式より、

$$k_f = C_{rje} / \left\{ \pi r^2 \cdot \frac{R_{fc}}{F} \sum_{i=1}^5 \frac{\lambda_i \cdot Q_i}{(1 - e^{-\alpha_i \cdot L})} \cdot \sum_{k=1}^N \int_{x_k}^{x_{k+1}} f_{jk}(x) \cdot e^{-\alpha_i \cdot x} dx \right\}$$

$$\alpha_i = \lambda_i / v \quad (7-7)$$

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 から重い FP まで分布しているので、 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 放出速度を表わす、 500°C の高温ナトリウムの実験において、上式で算出された k factor の値を流量毎に Table 7-3 に示す。この結果、多少の違いはあるが、流量 $0.5 \ell/\text{min}$ 以上では k factor は $0.55 \sim 0.60$ の間に大部分が入ることがわかった。尚 $0.14 \ell/\text{min}$ の場合には DND-1 および 2 の計測値から算出された k factor は、他の実験結果の値の約 2 倍となっている。この理由としては、このような低流量の場合、電磁流量計の精度あるいは読み取り誤差等が影響しているものと考えられる。

このように $0.5 \ell/\text{min}$ の流量以上では、k factor は実験および流量に関係なく、 0.57 前後の値になったことから、DN の測定からは、k factor は 0.57 であると結論された。尚 6 章でも述べたように、k factor は 1 以上であることが知られているので、1 以下になった理由を今後とも検討する必要があるが、6 章で得られた k factor の値 0.4 より大きな値が得られたことについて以下に定性的な検討を試みる。

7.3 節において、DN 検出器の DN に対する検出効率、Am-Be 中性子線源から求めた検出効率と異なることを述べた。すなわち DN の中性子スペクトルは Am-Be 線源の

*) Table 2-4 ではループ全長は 4405 cm であるが、ここではループ全体がディレイライン配管 (内径 0.94 cm) と同じ配管でできているとみなし、循環系内全ナトリウム量 (3979 cm^3) を前記配管断面積 (0.69 cm^2) で割った値を全長とした。

スペクトルより低エネルギー側であり、同一厚さのポリエチレンに対する中性子エネルギーの減速率は、DNの方がよいことになり、熱中性子に対する効率も高いことになる。従って、計測点におけるDNに対する検出効率は、Am-Be線源を用いて得られた検出効率よりかなり高いことが推定される。すなわち検出効率が高いということは、それだけナトリウム配管中に存在するDN核種は少なくてよいことになり、k factorも小さい方向になることが結論される。しかし今後は定量的な検討を進めることが必要であろう。

7.5 DN測定結果と温度依存性

Fig 7-6に、DN計数率とナトリウム温度との関係を示す。また同図中にはDND-1/DND-2の比の温度依存性も示す。尚ナトリウム流量は5ℓ/minである。

この図から、DND-1およびDND-2の計数率は、500℃の場合を基準にして420℃で下がり始めており、170℃では、500℃のときの1/4.3程度になっている。(Table 7-2参照)一方、DN核種のステンレス壁面への吸着挙動により、DND-1とDND-2の計数率の比も変化すると考えられるが、その変化は非常にゆるやかで、270℃までは2.55前後で500℃の場合とほとんど差がなく、225℃以下になってはじめて比の値が増加する結果となった(Fig 7-6およびTable 7-2参照)。

これらの実験結果と解析モデルを比較するため、(7-4)式を用い、解析値 C_{r1} 、 C_{r2} および C_{r1}/C_{r2} の温度依存性を算出した。このときに、各核種の分配係数 K_{ai} は差がなく一定の K_a であるとし、 K_a をパラメータとした。従って(7-4)式は、

$$C_{rj} = \pi r (r + 2K_a) \cdot \sum_{i=1}^5 \frac{\lambda_i \cdot Q_i \cdot R_f}{F \cdot (1 - e^{-\alpha_i \cdot L})} \cdot \sum_{k=1}^N \int_{x_k}^{x_{k+1}} f_{jk}(x) \cdot e^{-\alpha_i \cdot x} dx$$

となる。この式中 R_f は、500℃の場合の放出率の値を用いた。その結果をナトリウムの流量毎にFig 7-7に示す。また各図中には、DND-1、DND-2、DND-1/DND-2の実験結果を矢印でそれぞれ記入した。この結果、ナトリウム流量に関係なく、DND-1の計数率の温度依存性から得られた分配係数の値が一番大きく、次いでDND-2の計数率で、一番小さいのがDND-1/DND-2の比であった。このように3つの実験結果から求めた分配係数がそれぞれ非常に違った値を示すということは、この解析モデルが実状に合っていないことを示すものと考えられる。その最大の理由は、本解析モデルには、照射試料表面へのDN核種の吸着挙動(照射試料の表面積は、1000cm²におよぶ)

は考慮されていないことがあげられる。すなわち、照射試料部での吸着があるために DND-1 の計数率は、ナトリウム温度の変化に鋭敏に反応するものと考えられる。しかもナトリウム中の DN 核種の分布は、照射試料部での吸着挙動により理論的な分布からずれるために、DND-1/DND-2 の比も理論値からずれるものと考えられる。

従ってこれらの検討から、DN の測定結果の解析には、照射試料部での DN 核種の吸着挙動を定量的に把握することが必要であろう。また上記の計算では分配係数を DN 核種の別なく K_a で一定であるとおいたが、厳密には K_{ai} は (5-21) および (5-21a) 式で定義されたものであって種々のパラメーターの関数であり、しかも DN 核種毎にそれぞれ異なった値をとるべき係数であることがわかる。そこで今後は、 K_{ai} の本質を見直して、ミクロ的な視野から解析モデルを検討する必要がある。

7.6 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) 放出核種のナトリウム中移行挙動を、ループに設置された 2 台の DN 検出器を用いて測定した。本装置は、中性子に対する遮蔽能力が不十分なため、計測点以外のループ配管・機器からの DN ををも計測していることがわかったので、中性子線源を用いたモックアップ試験により、ループ各部からの 2 台の検出装置計数率への DN の寄与を定量的に求めた。しかし中性子線源と DN の中性子エネルギーが異なるためにモックアップ試験で得られた DN 寄与率は実験結果と合わない部分がありこの値の見直しを行なって、修正した。この DN 寄与率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、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モデルの比較を行なった結果、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がわかり、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。

この解析モデルを用い、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 の算出を行ない、平均 0.57 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ので、この差について定性的な検討を試みた。またこの解析モデルを用い、分配係数をパラメーターとして、DN 計数率の温度依存性の解析を行ったが、実験結果と解析結果はあまりよく一致しなかった。これは、DN 核種の照射試料表面への吸着挙動が大きな影響を与えているためと考えられ、今後照射試料表面への吸着挙動を考慮したモデルを作って解析する必要があることが結論された。

Table 7 - 1 Delayed neutron precursor nuclides¹⁴⁾

Group	Half life (Average)	Emission Rate* (n/sec)	Delayed Neutron Precursor Nuclides
1	55.7sec	1.05×10^8	⁸⁷ Br
2	24.6sec	4.76×10^8	¹³⁶ Te, ¹³⁷ I, ¹⁴¹ Cs
3	15.9sec	2.54×10^8	⁸⁸ Br
4	5.2sec	6.44×10^8	⁸⁹ Br, ⁹³ Rb, ¹³⁸ I, ⁸⁷ Se, ¹³⁷ Te
5	2.2sec	1.10×10^9	⁹⁰ Br, ⁹⁴ Rb, ¹³⁹ I, ⁸⁵ As, ¹³⁵ Sb, ⁸⁸ Se

* Emission Rate/ 2.03×10^{11} Fission Rate

Table 7 - 2 Steady state count rates for delayed neutrons under constant loop conditions and calculated data by using analytical model

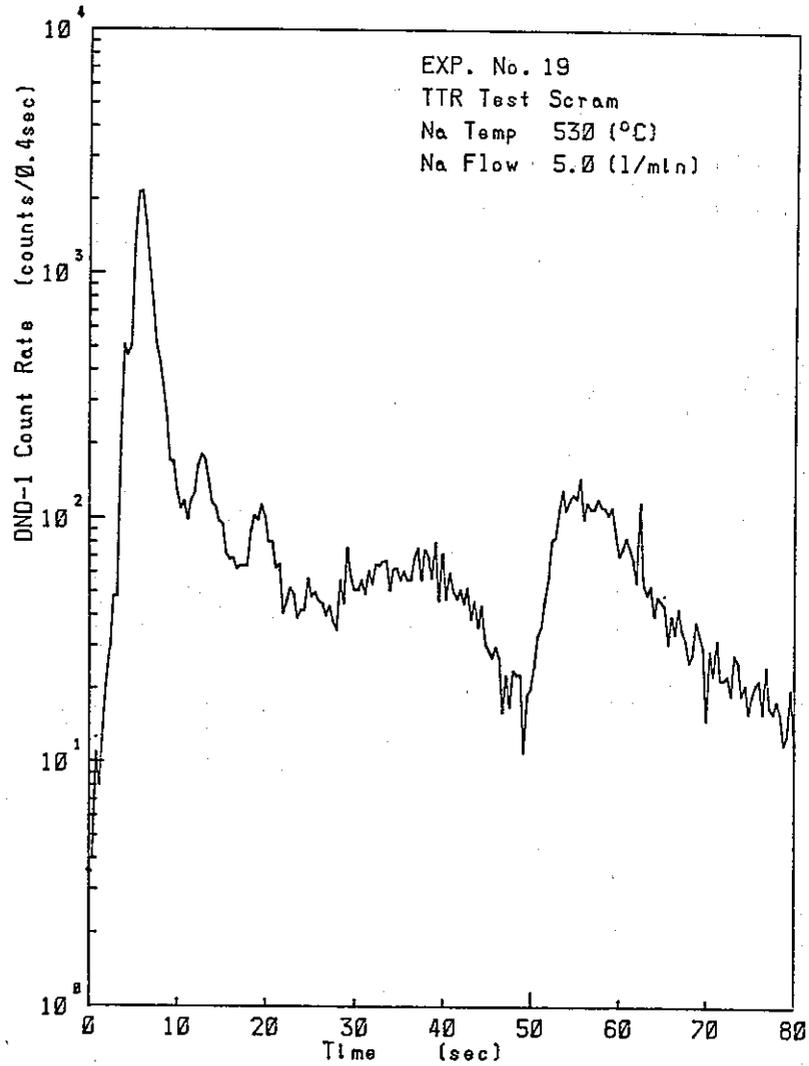
Sodium Condition		Exp. No	Count Rates (cps)		DND-1/DND-2 Ratio	
Temp (°C)	Flow Rate (ℓ/min)		DND - 1	DND - 2	Experimental Results	Calculated Value
530	2.0	19	2145	756	2.84	2.84
	1.0	16	1527	403	3.79	3.75
		14	1492	373	4.00	
500	5.3	10	3491	1361	2.57	2.51
	5.0	10	3436	1315	2.61	2.55
		13	3440	1256	2.74	
		23	3416	1256	2.72	
		26	3354	1235	2.72	
		27	3263	1292	2.53	
		28	3405	1349	2.52	
		31	3376	1338	2.52	
		32	3410	1349	2.53	
	4.64	13	3367	1342	2.51	2.59
	4.2	10	3273	1241	2.64	2.64
		23	3234	1168	2.77	
	3.84	10	3195	1216	2.63	2.67
	3.6	10	3052	1152	2.65	2.69
	3.24	13	2916	1103	2.64	2.72
	2.5	10	2471	907	2.73	2.77
		26	2370	808	2.93	
		31	2431	901	2.70	
	2.14	13	2232	810	2.76	2.81
	1.0	10	1543	410	3.77	3.75
26		1553	372	4.18		
31		1464	355	4.13		
33		1608	410	3.92		
0.64	13	1206	249	4.84	5.11	
0.50	10	1045	191	5.48	5.99	
0.14	13	241	35.4	6.81	7.21	

Table 7 - 2 (continued)

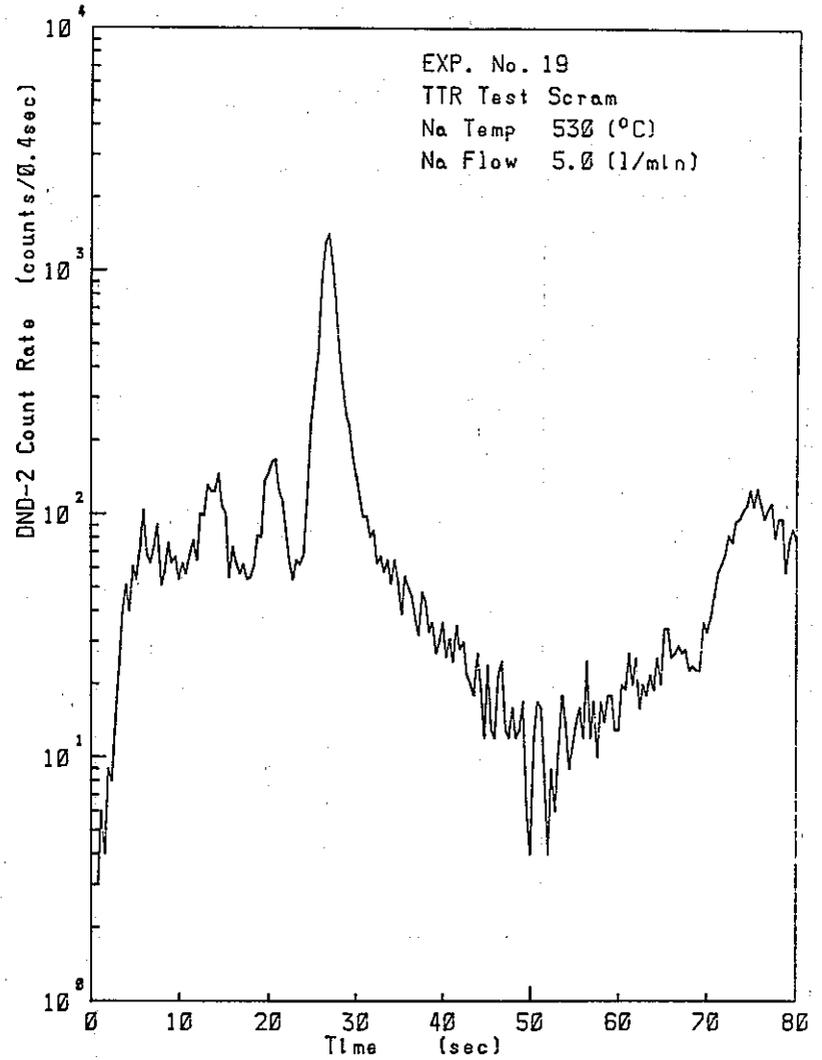
Sodium Condition		Exp. No	Count Rates (cps)		DND-1/DND-2 Ratio	
Temp(°C)	Flow Rate (ℓ/min)		DND-1	DND-2	Experimental Results	Calculated Value
420	5.0	5	3444	1348	2.55	2.55
		6	3260	1298	2.51	
		29	3333	1321	2.52	
400	1.0	22	1519	385	3.95	3.75
300	5.0	15	2654	1058	2.51	2.55
	2.0	15	1586	559	2.84	2.84
	1.0	25	1094	252	4.34	3.75
270	5.0	11	2054	815	2.52	2.55
		24	2307	894	2.58	
30		2027	818	2.48		
	2.0	11	1104	392	2.82	2.84
225	5.0	12	1333	503	2.65	2.55
	2.0	12	590	196	3.01	2.84
170	5.0	9	730	212	3.44	2.55
		21	865	231	3.75	
	2.0	9	261	61.0	4.28	2.84
	1.0	20	151	23.9	6.33	3.75

Table 7 - 3 k factor calculated by using delayed neutron experimental results and analytical model

Sodium Condition		Exp. No.	DND - 1		DND - 2	
Temp. (°C)	Flow Rate (ℓ/min)		Count Rate (cps)	k factor	Count Rate (cps)	k factor
500	5.3	10	3491	0.579	1361	0.568
	5.0	10	3436	0.579	1315	0.565
		13	3440	0.580	1256	0.540
		23	3416	0.576	1256	0.540
		26	3354	0.565	1235	0.531
		27	3263	0.550	1292	0.555
		28	3405	0.574	1349	0.580
		31	3376	0.569	1338	0.575
		32	3410	0.575	1349	0.580
	4.64	13	3367	0.580	1342	0.600
	4.2	10	3273	0.584	1241	0.580
		23	3234	0.577	1168	0.546
	3.84	13	3195	0.591	1216	0.602
	3.6	10	3052	0.581	1152	0.591
	3.24	13	2916	0.584	1103	0.601
	2.5	10	2471	0.568	907	0.577
		26	2370	0.545	808	0.514
		31	2431	0.559	901	0.574
	2.14	13	2232	0.561	810	0.572
	1.0	10	1543	0.581	410	0.579
26		1553	0.585	372	0.525	
31		1464	0.551	355	0.501	
33		1608	0.605	410	0.566	
0.64	13	1206	0.580	249	0.611	
0.50	10	1045	0.599	191	0.654	
0.14	13	241	1.12	35.4	1.19	

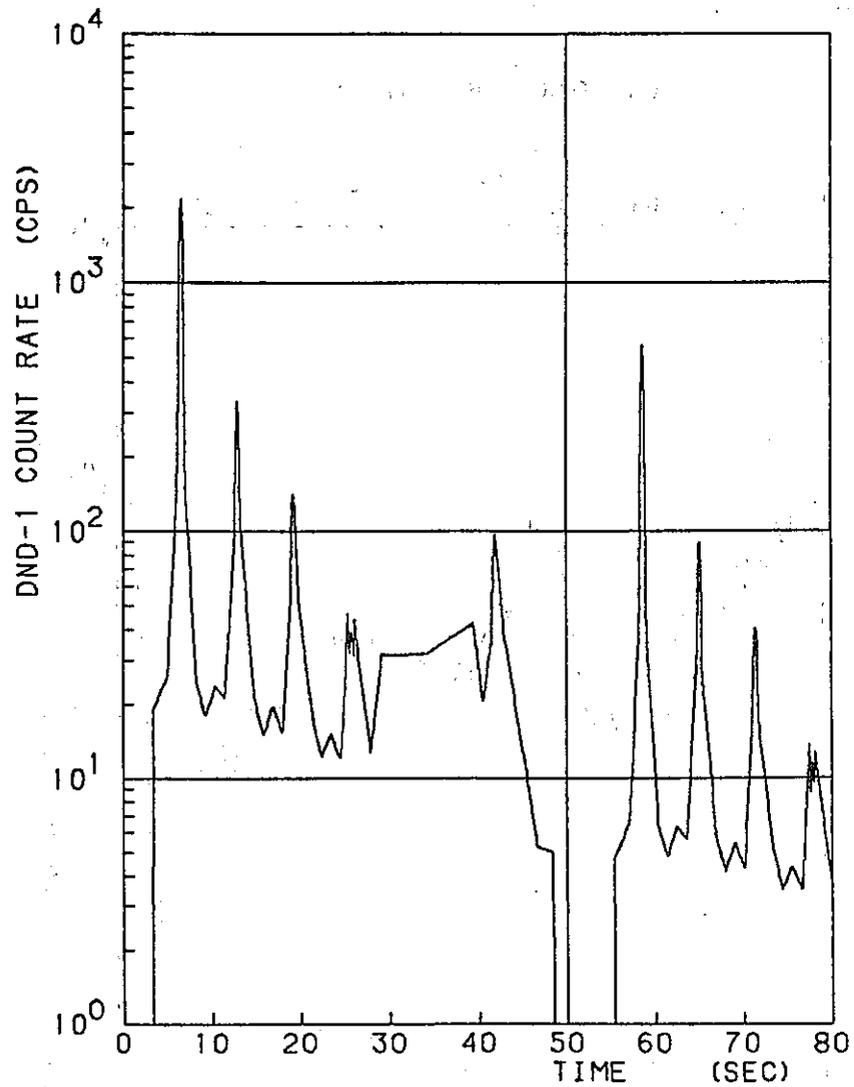


1) Exp. No. 19 (DND - 1)

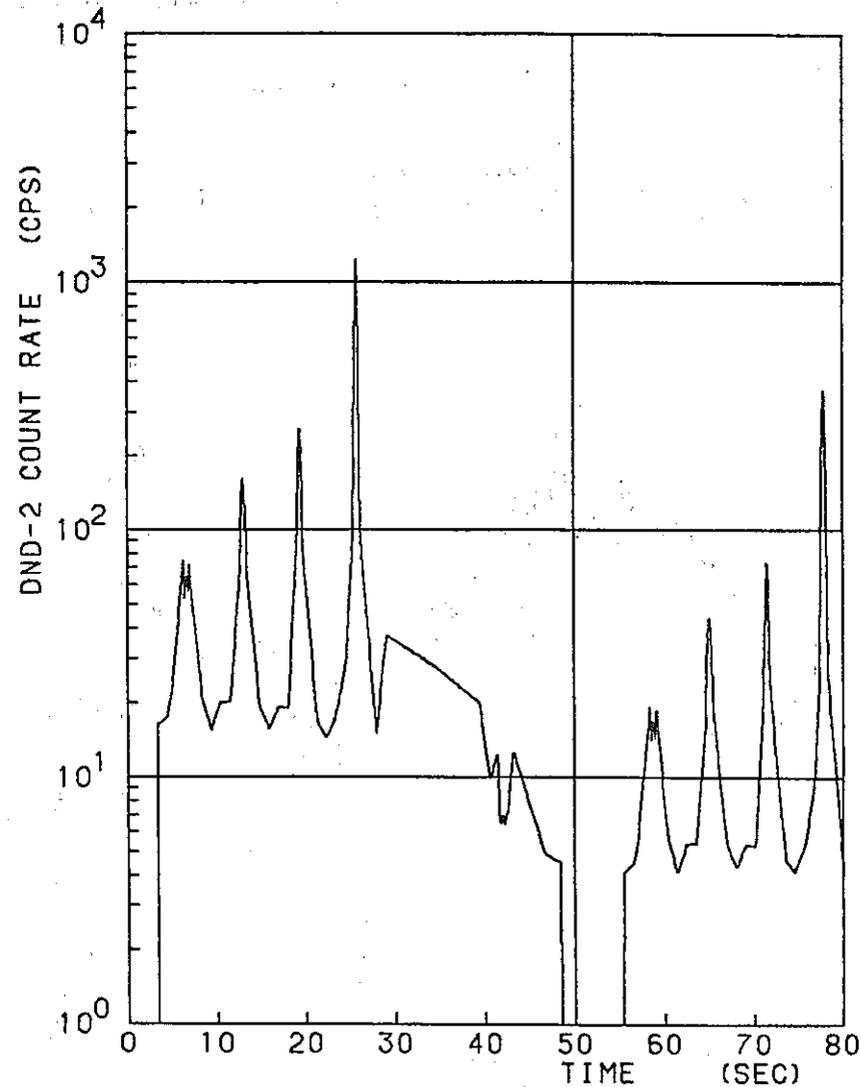


2) Exp. No. 19 (DND - 2)

Fig. 7 - 1 Delayed neutron count rate after TTR test scram



1) DND-1



2) DND-2

Fig 7 - 2 Delayed neutron count rate calculated by using analytical model at TTR test scram in the same experimental condition as Exp. No 19

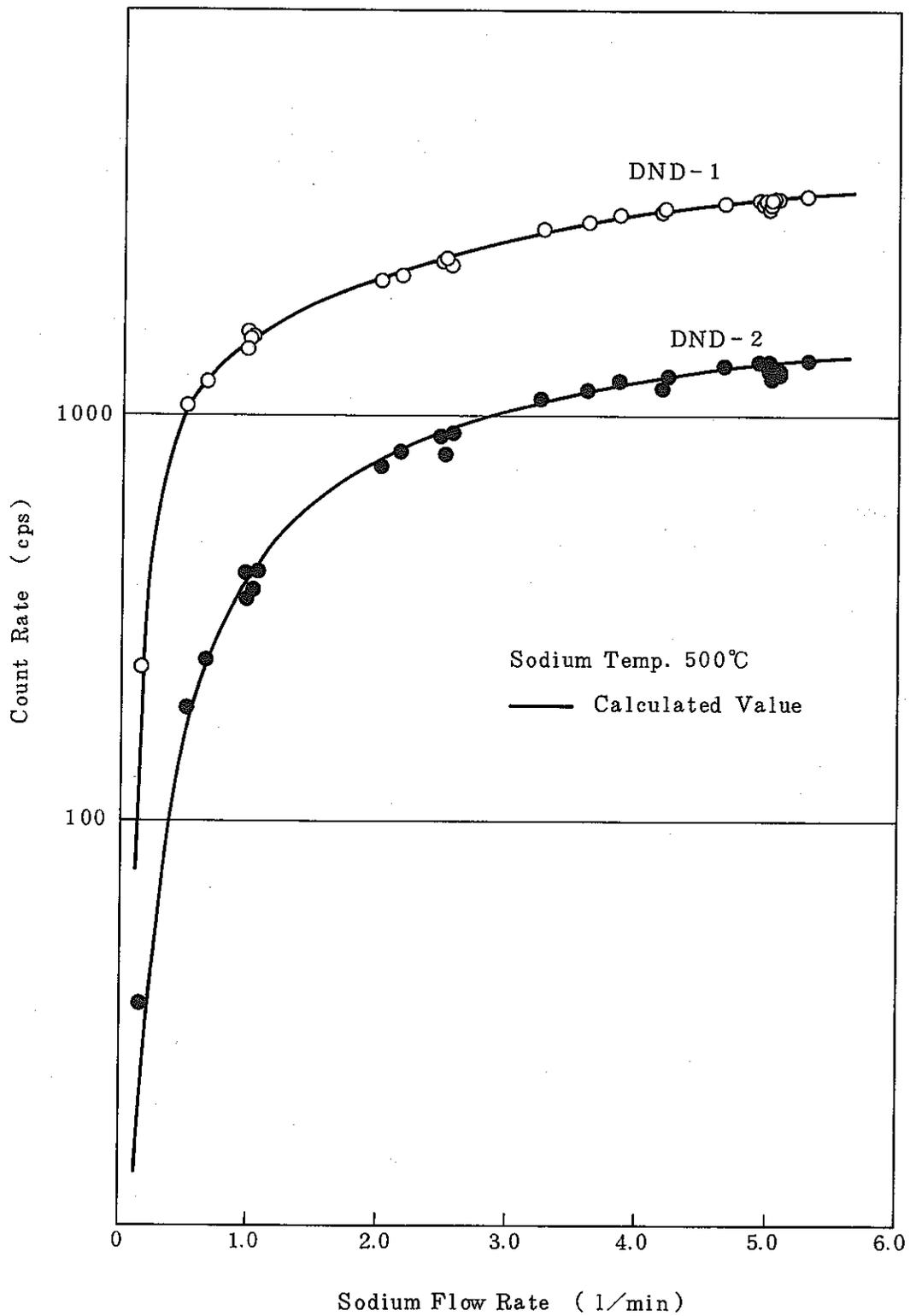
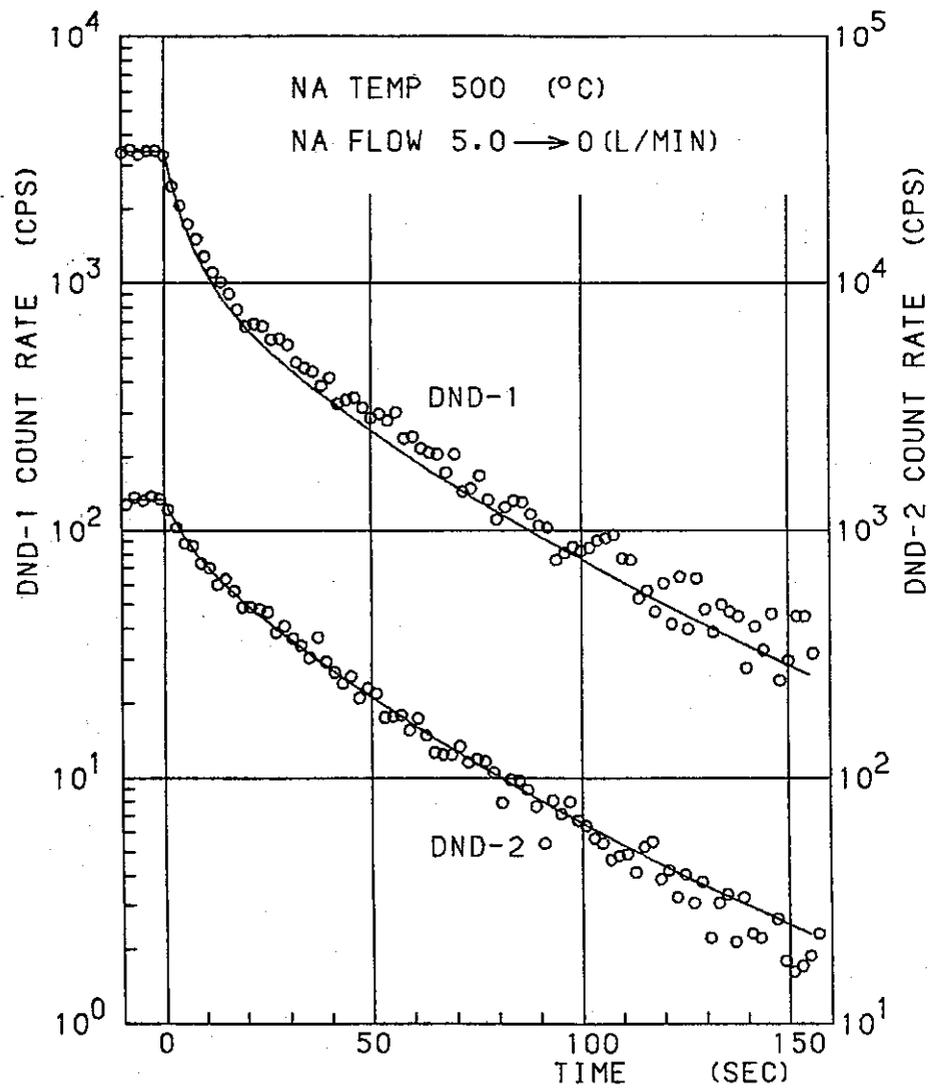
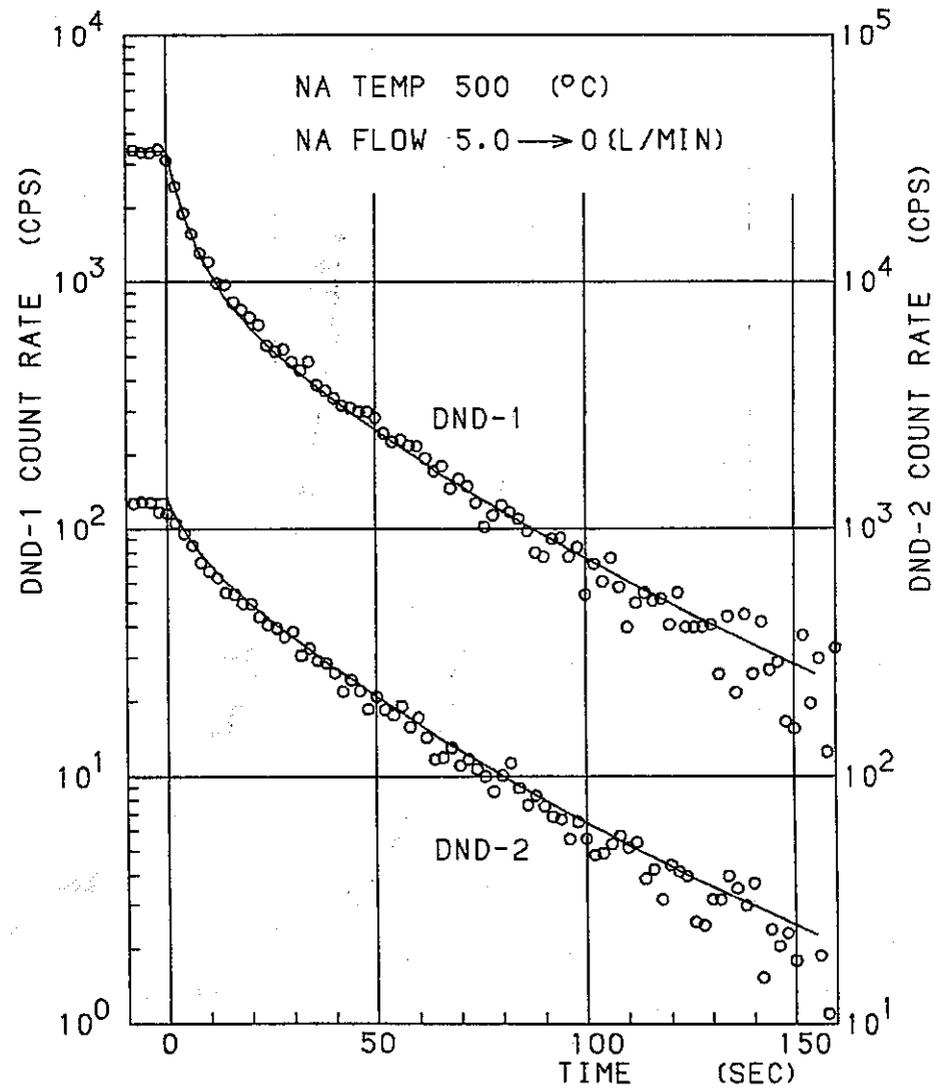


Fig 7 - 3 Delayed neutron count rate and calculated value vs. flow rate for both detectors at the high sodium temperature (500°C) condition

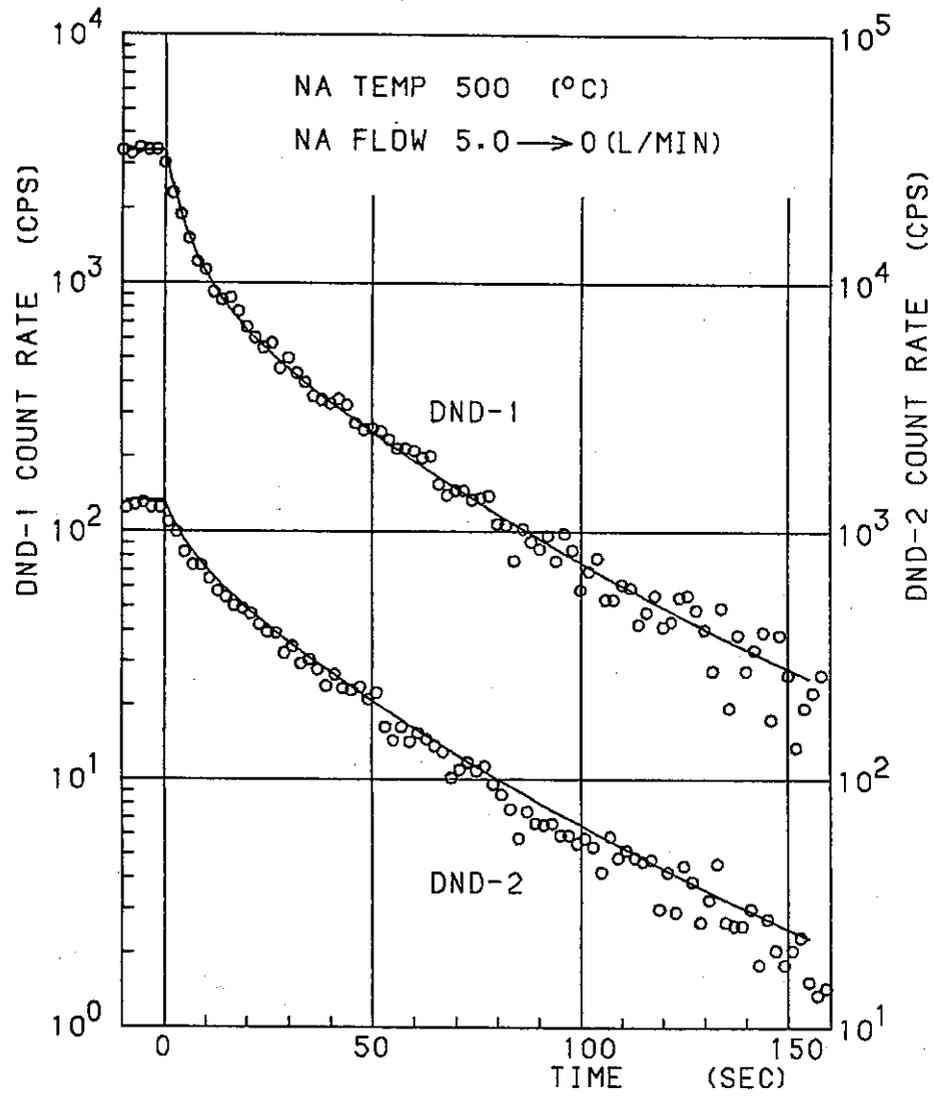


1) EXP. NO. 10

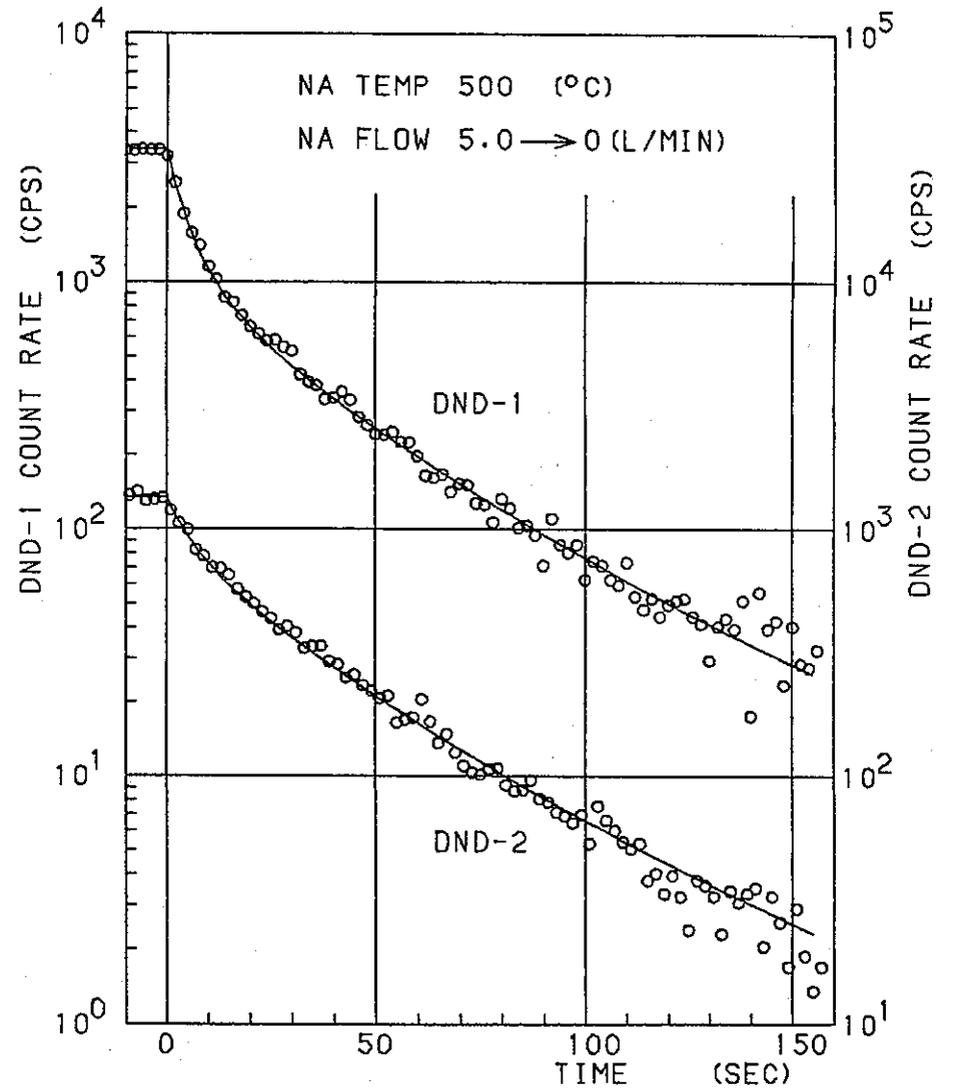


2) EXP. NO. 23

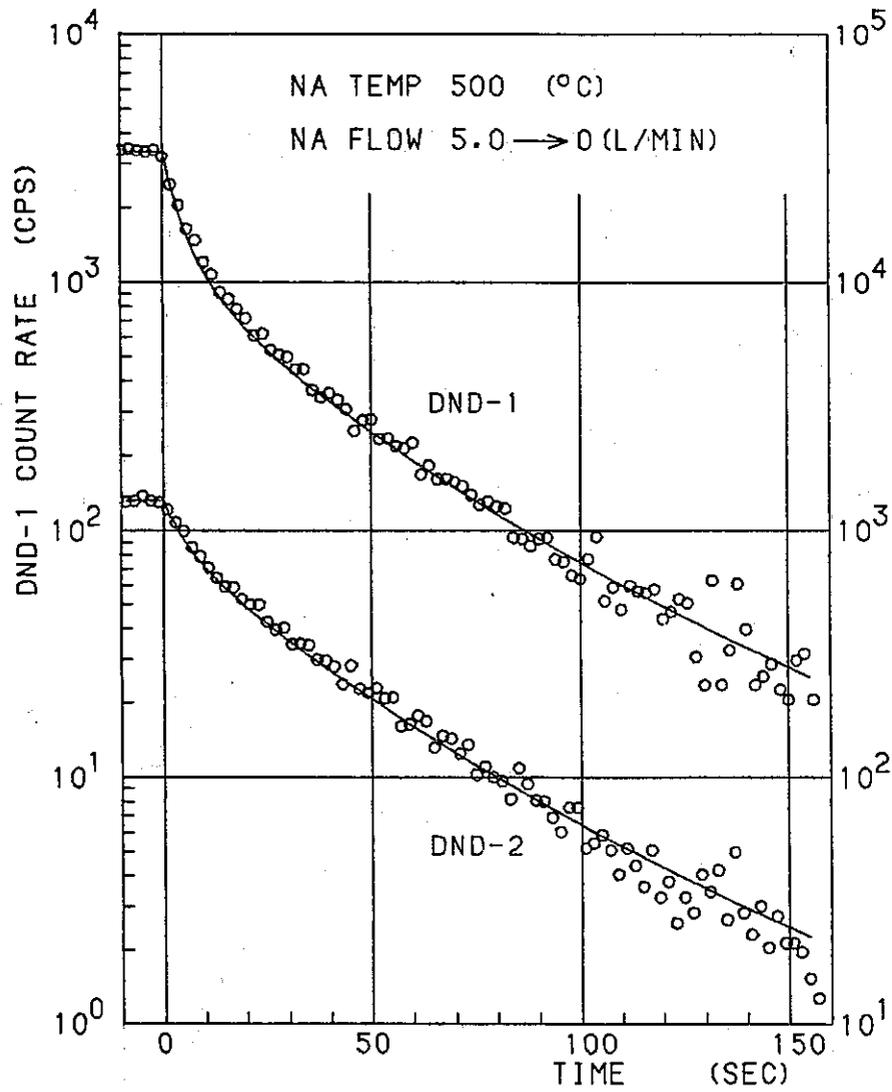
Fig 7 - 4 Delayed neutron count rate and calculated value by using analytical model for both detectors during flow stop test



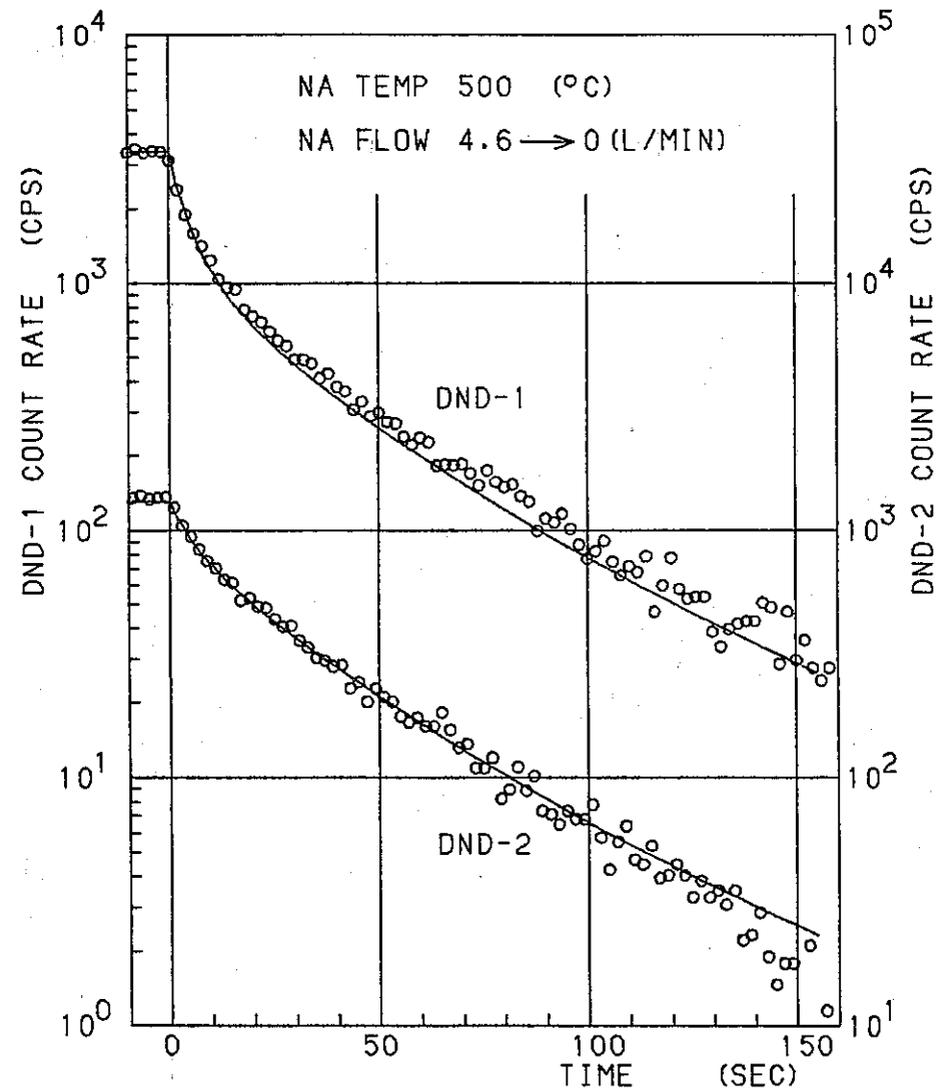
3) EXP. NO. 26



4) EXP. NO. 28

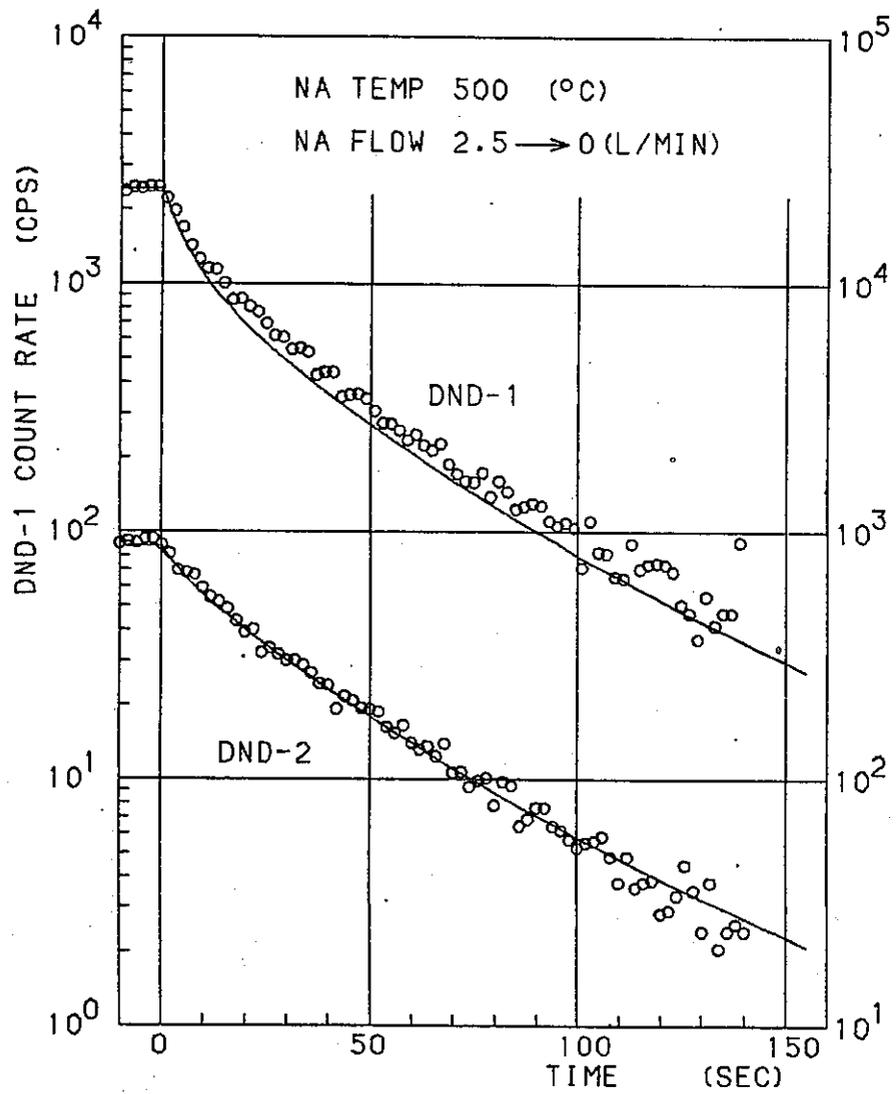


5) EXP. NO. 31

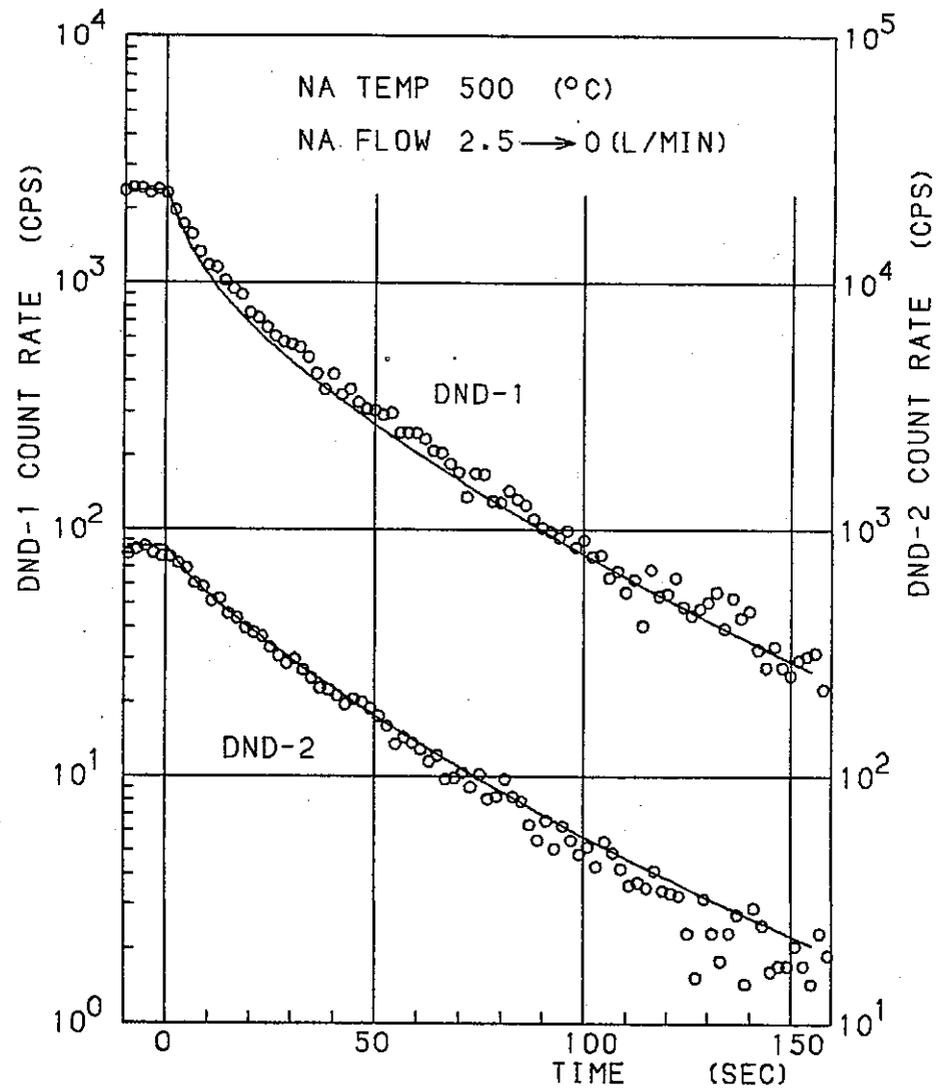


6) EXP. NO. 13

Fig 7 - 4 (continued)

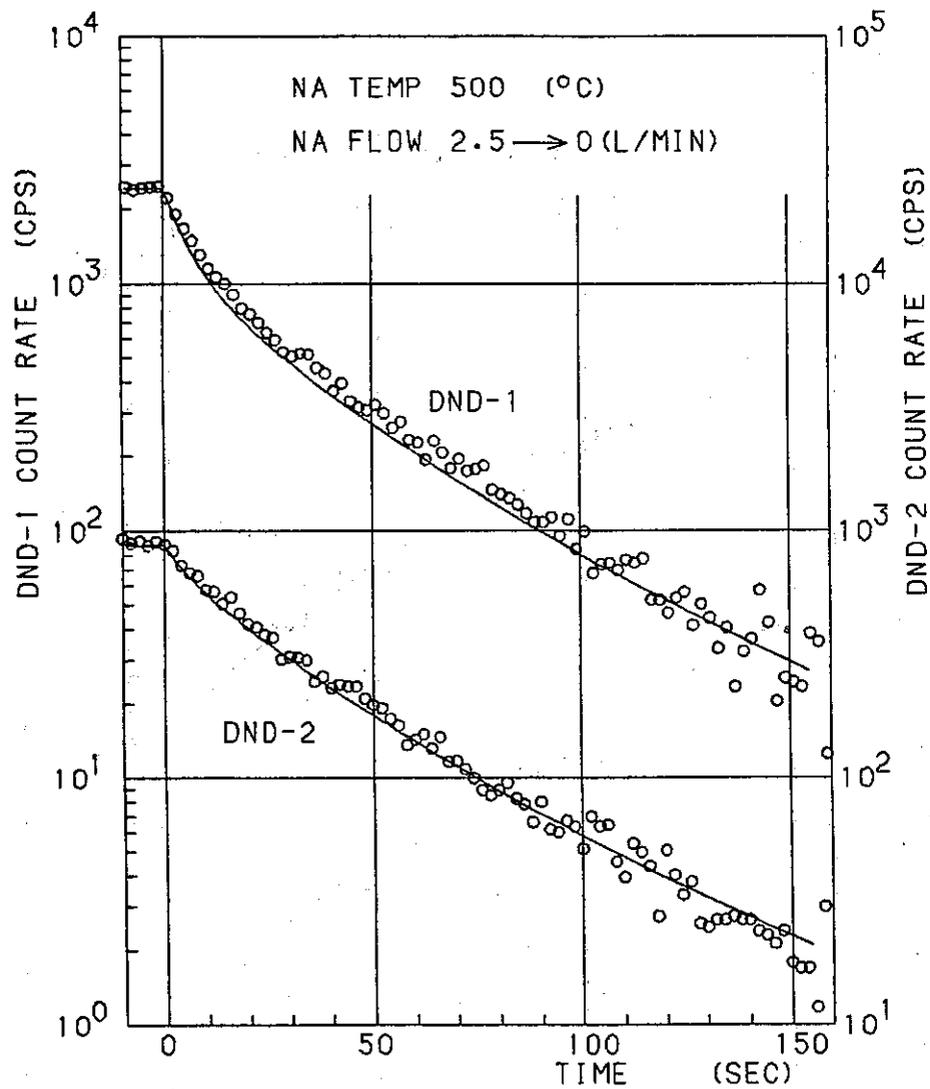


7) EXP. NO. 10

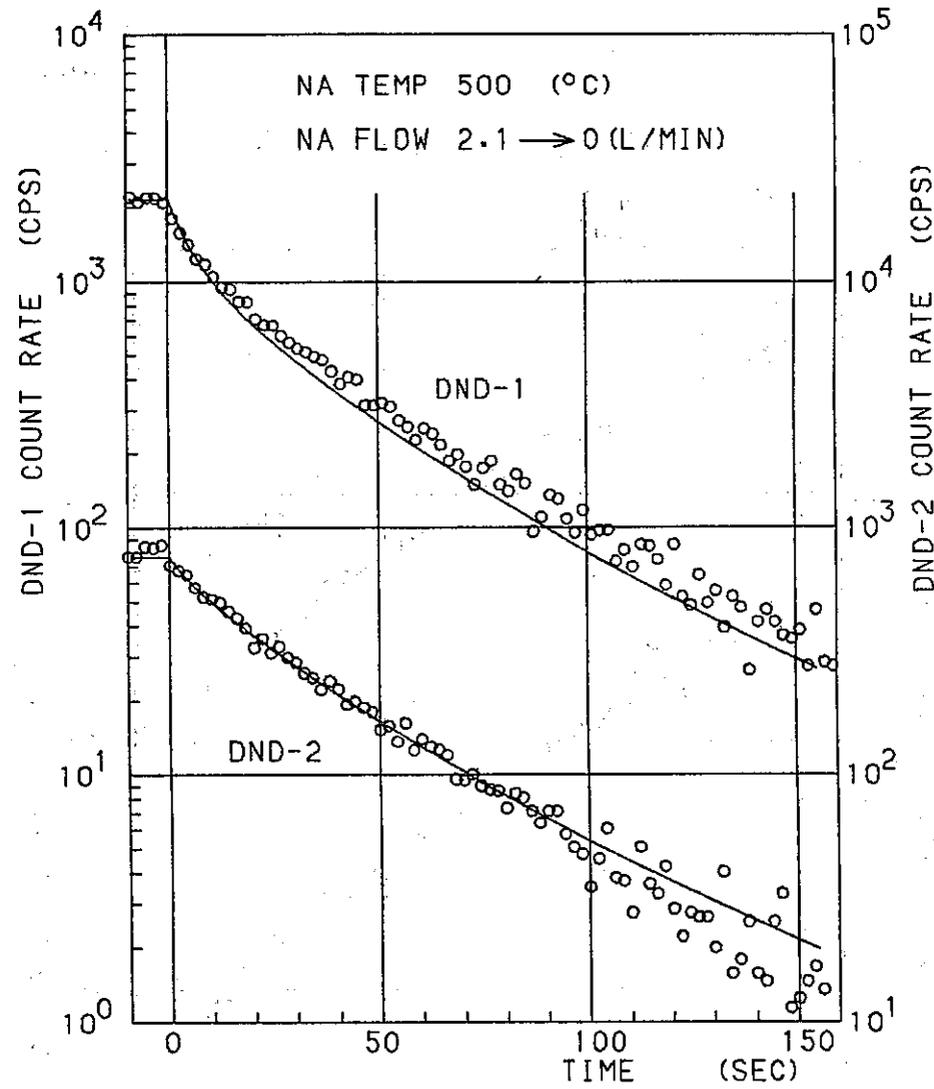


8) EXP. NO. 26

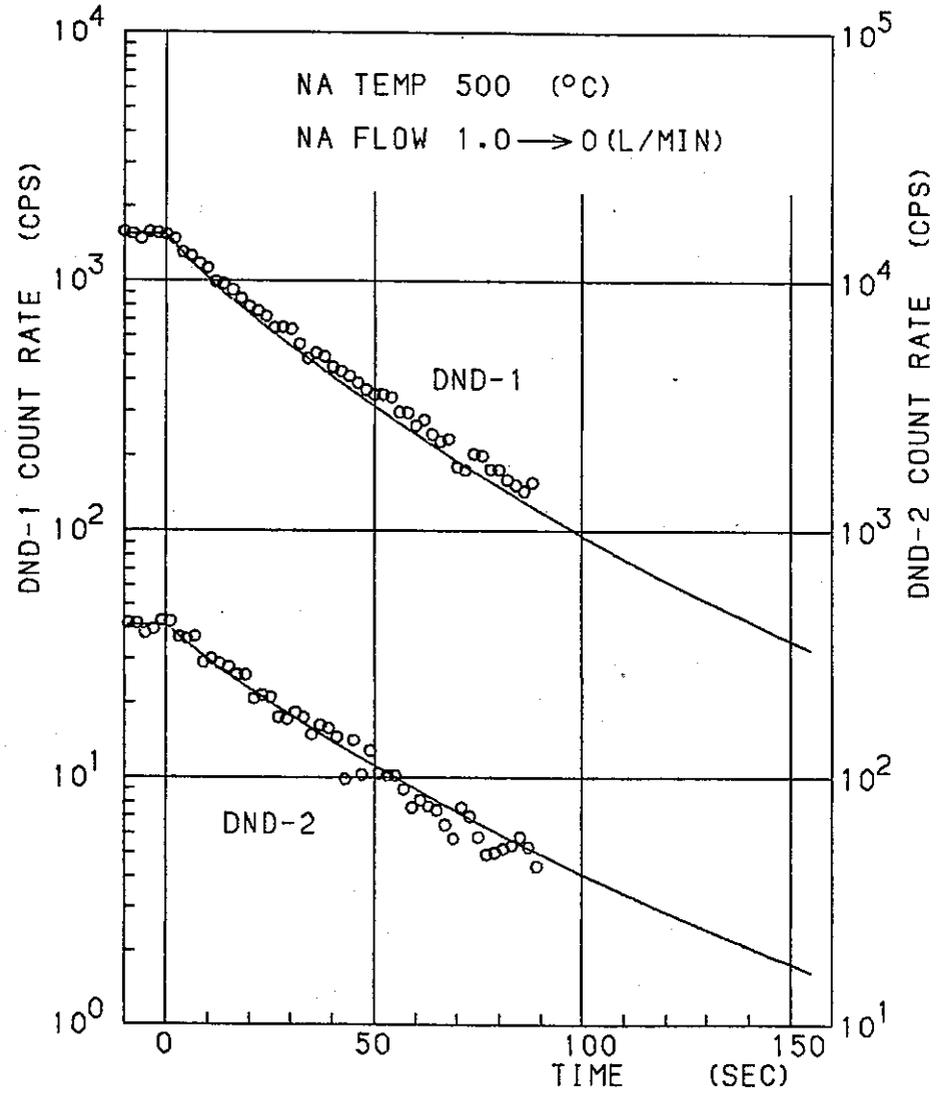
Fig 7-4 (continued)



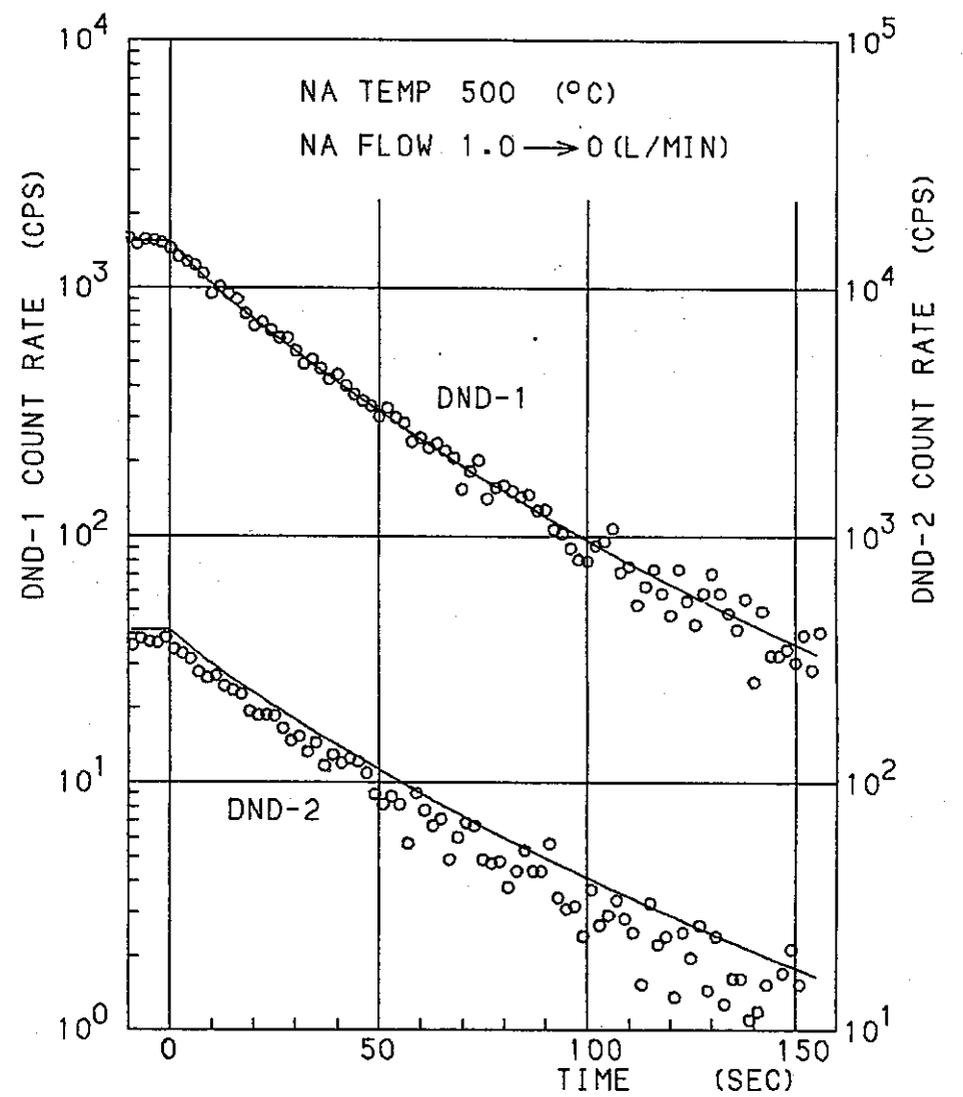
9) EXP. NO. 31



10) EXP. NO. 13

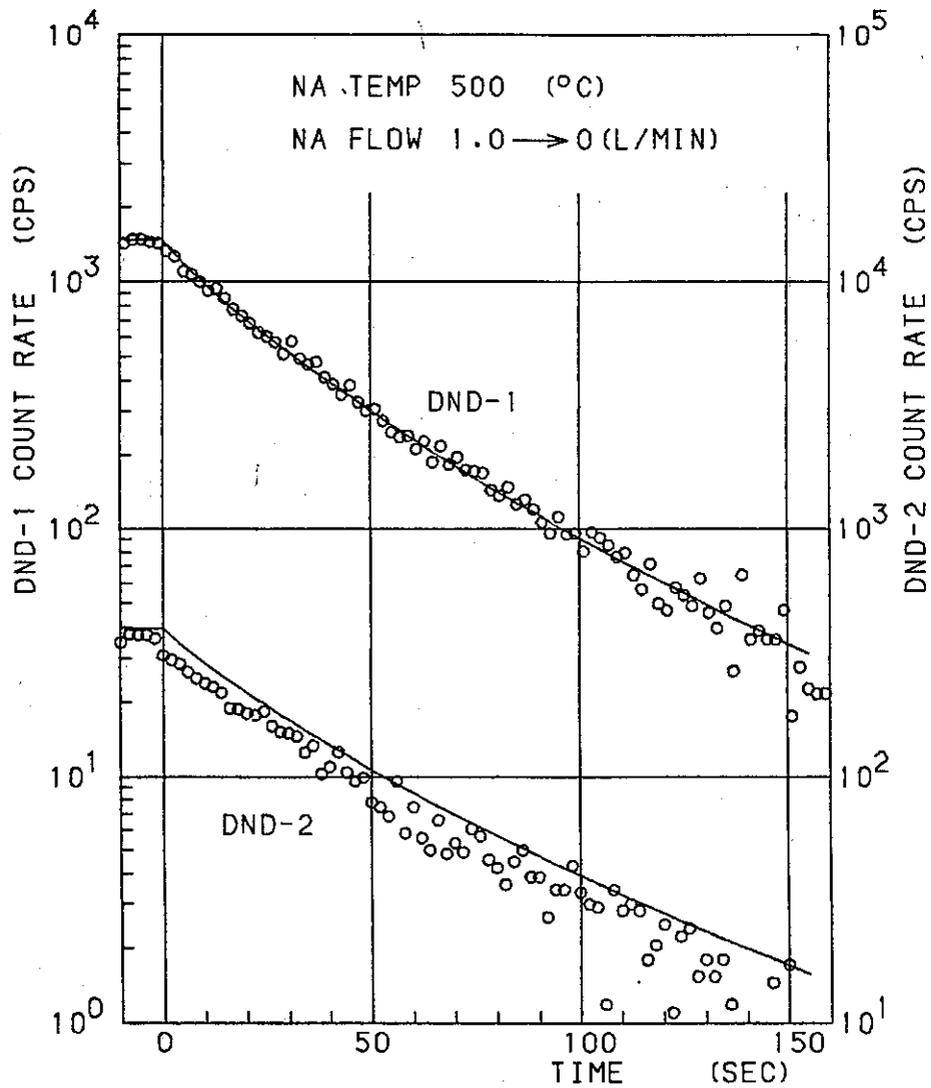


11) EXP. NO. 10

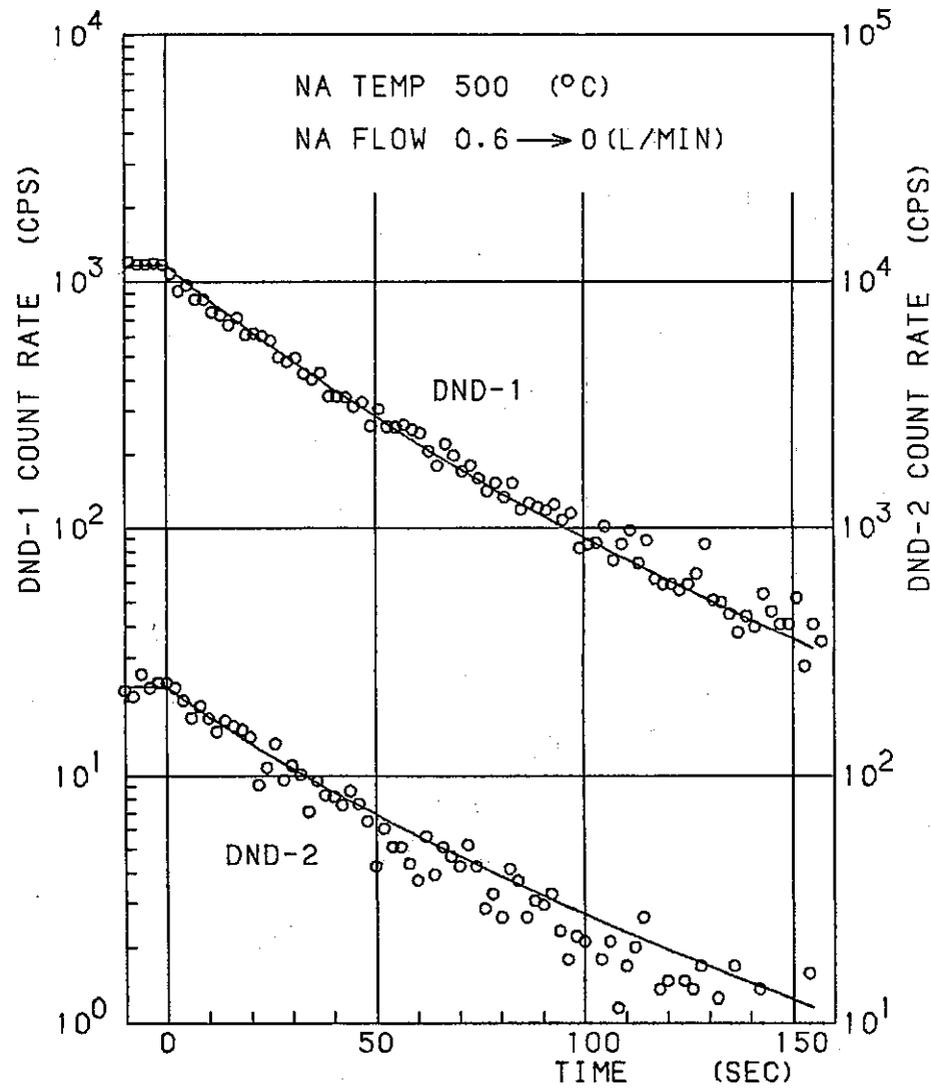


12) EXP. NO. 26

Fig 7 - 4 (continued)

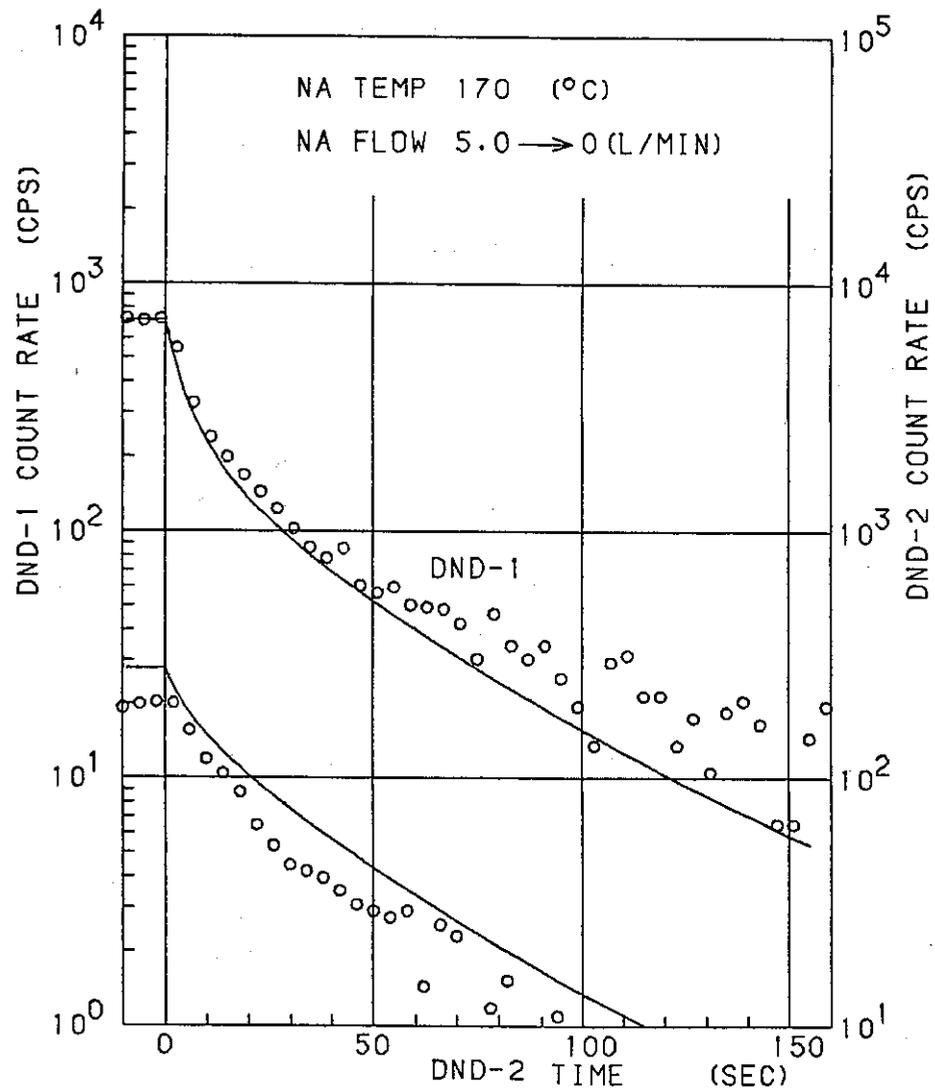


13) EXP. NO. 31



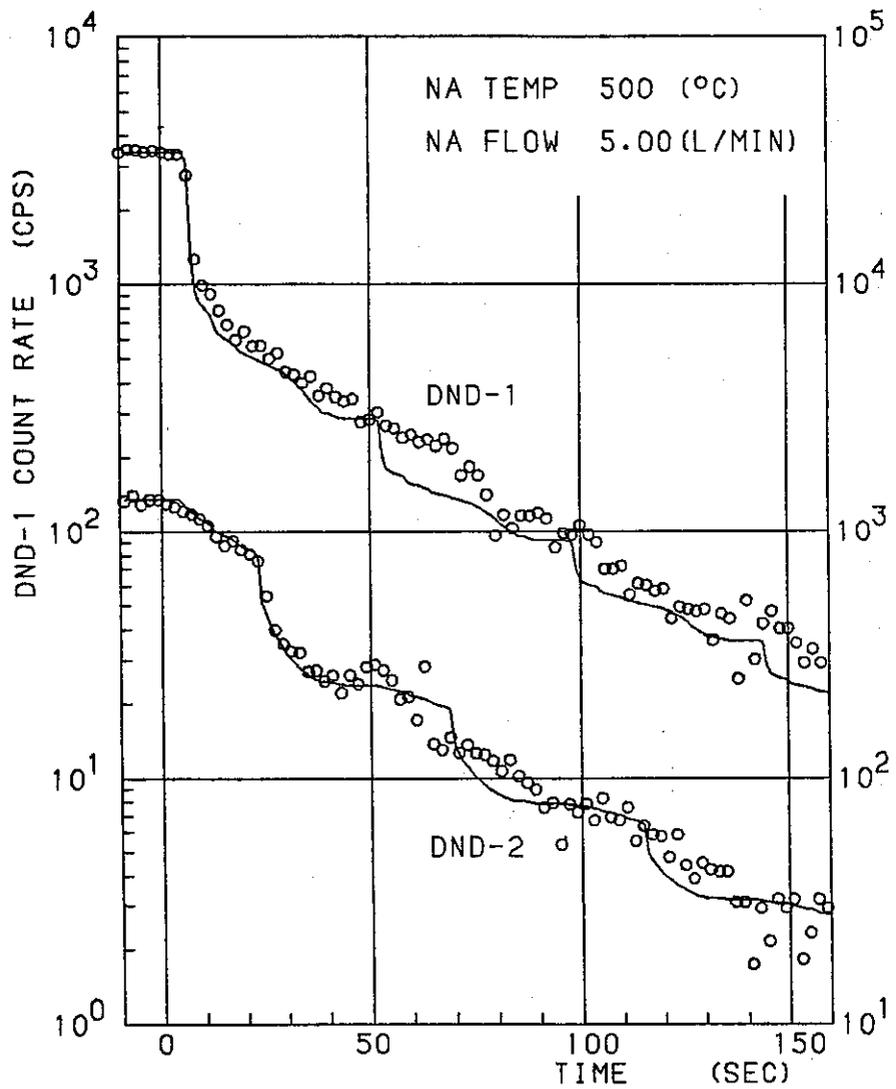
14) EXP. NO. 13

Fig 7 - 4 (continued)

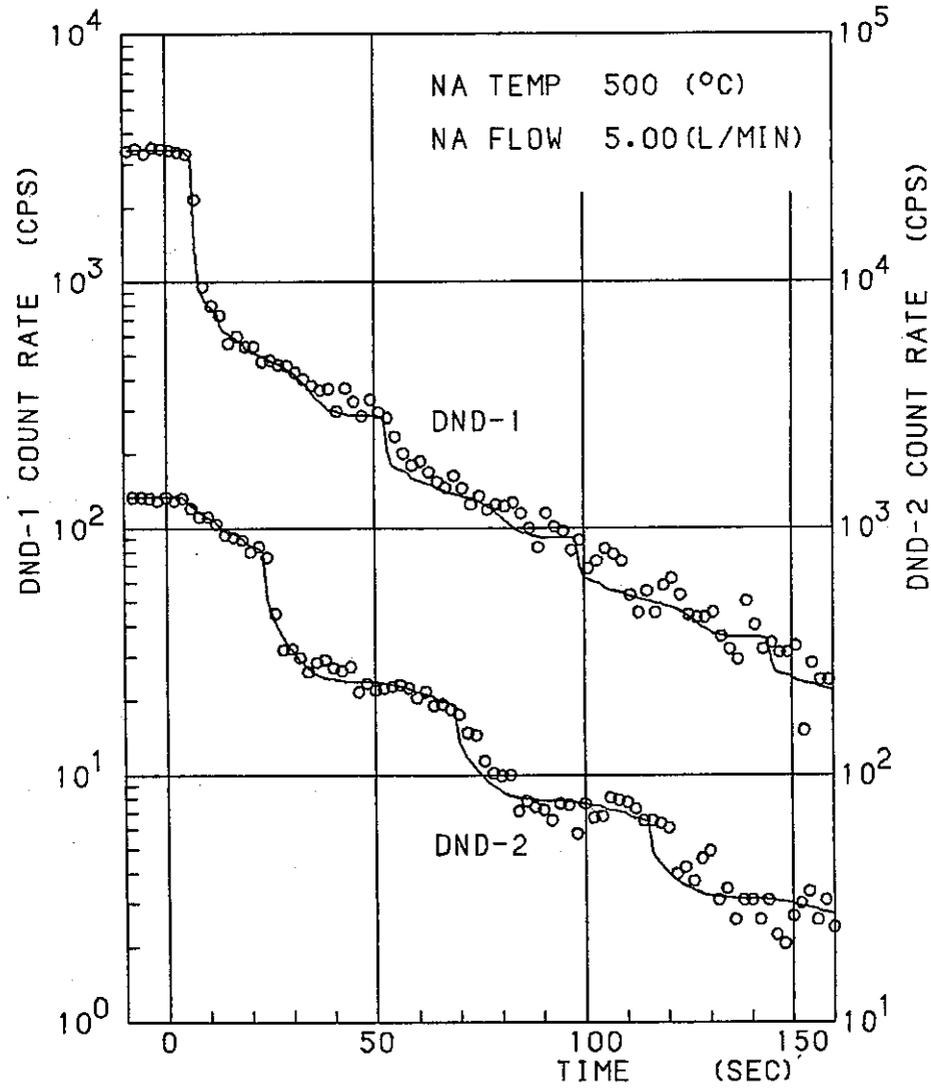


15) EXP. NO. 9

Fig 7 - 4 (continued)

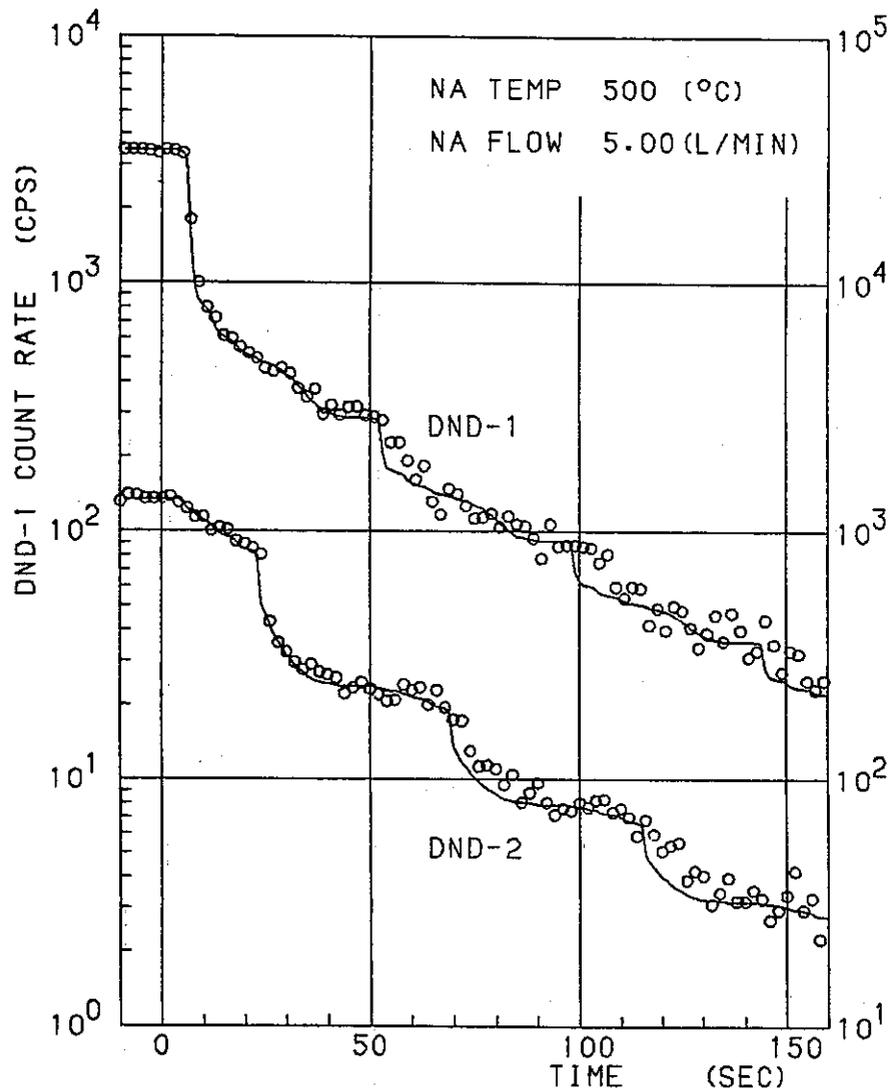


1) EXP. NO. 10

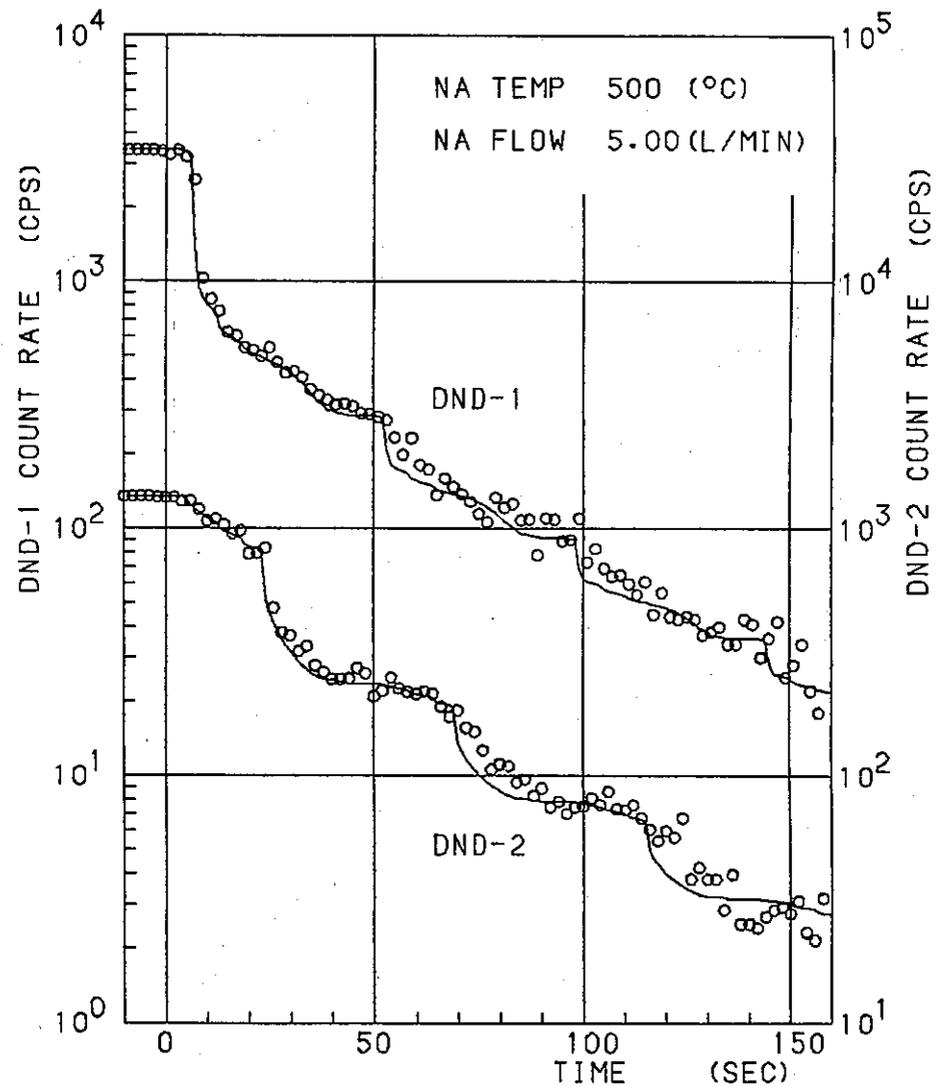


2) EXP. NO. 27

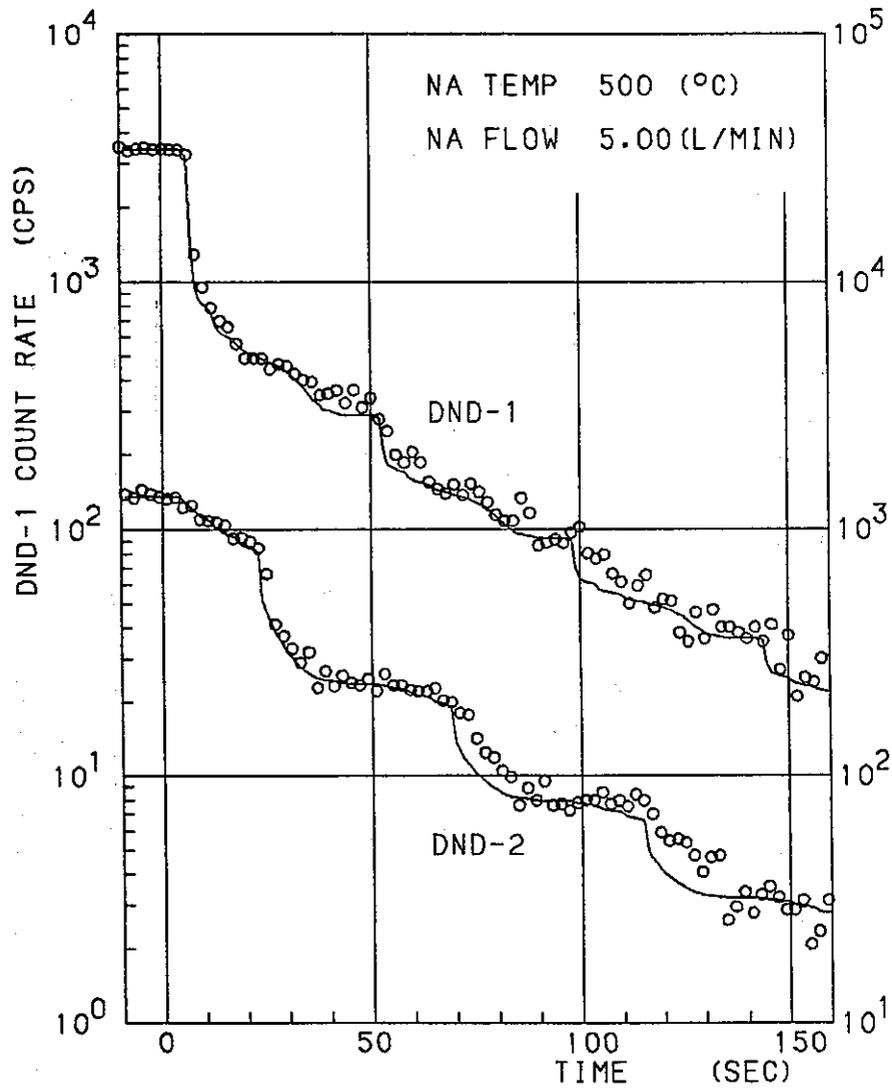
Fig 7 - 5 Delayed neutron count rate and calculated value by using analytical model for both detectors after TTR test scram



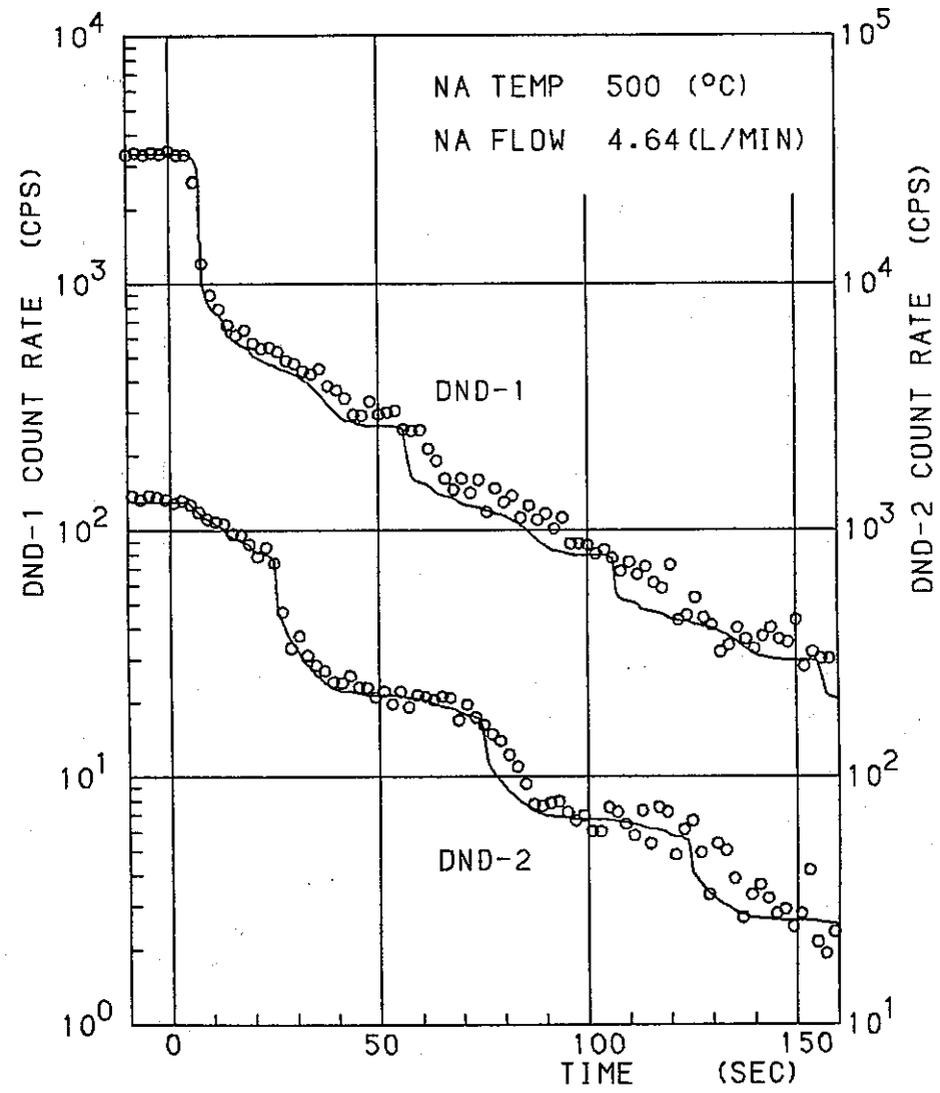
3) EXP. NO. 28



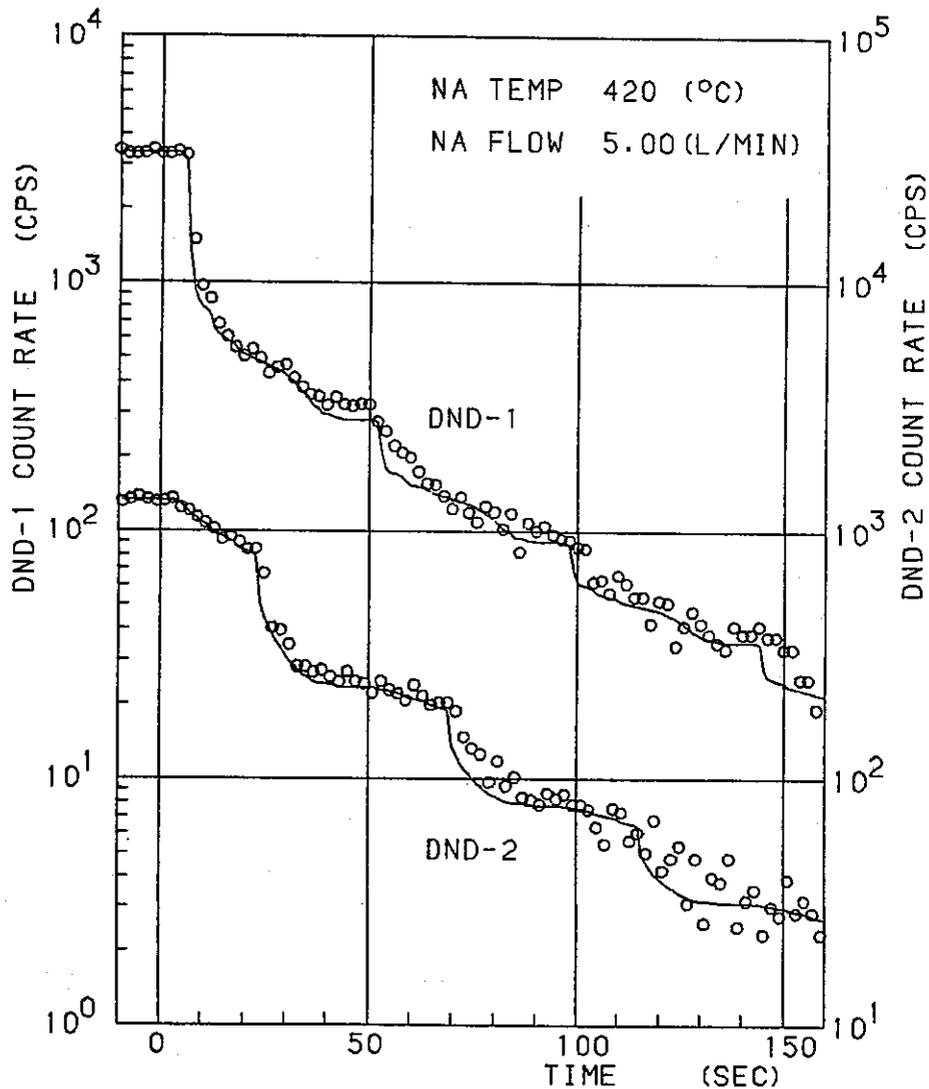
4) EXP. NO. 31



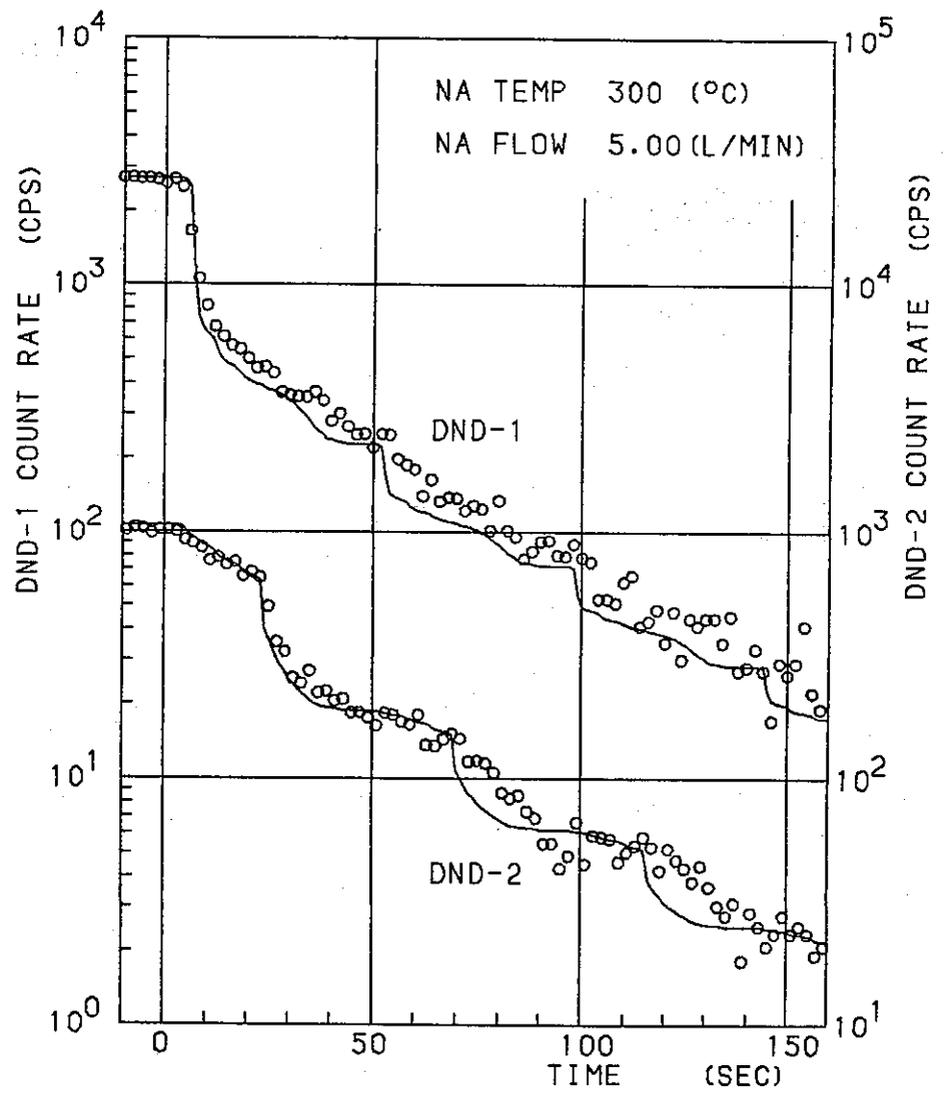
5) EXP. NO. 32



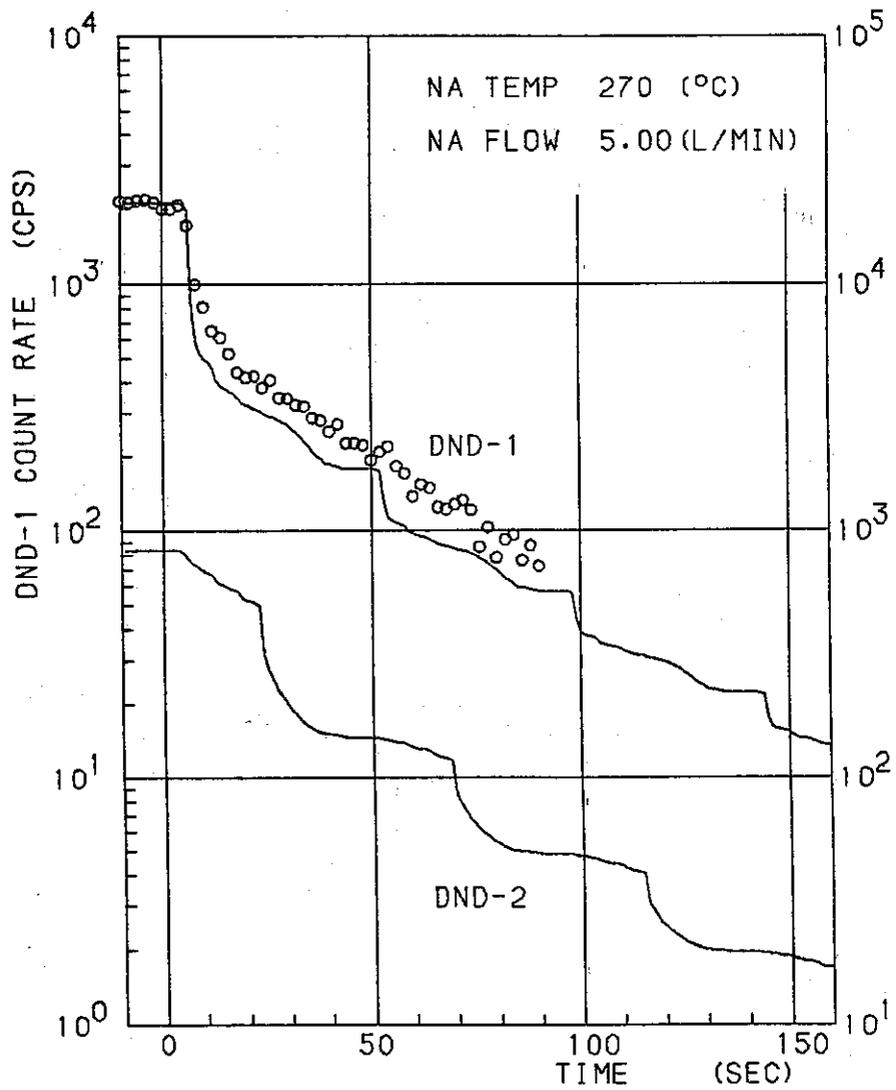
6) EXP. NO. 13



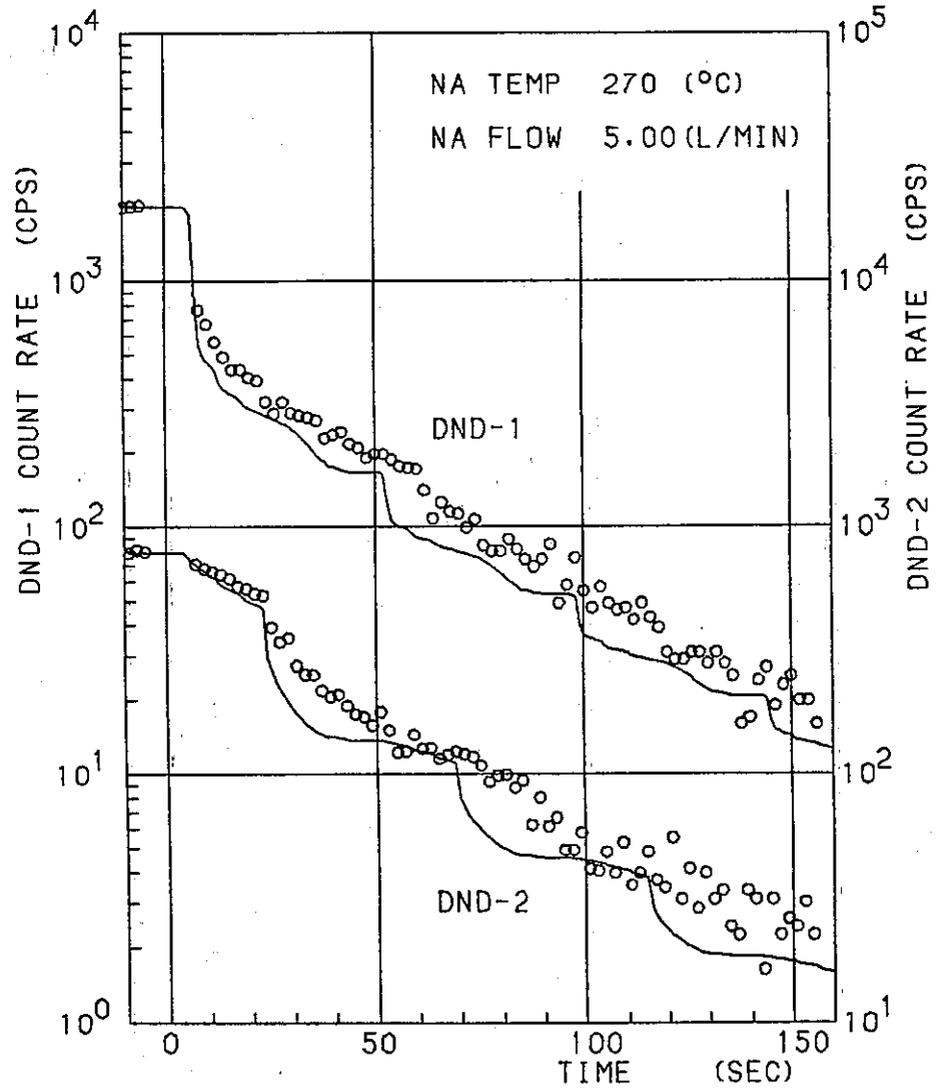
7) EXP. NO. 29



8) EXP. NO. 15

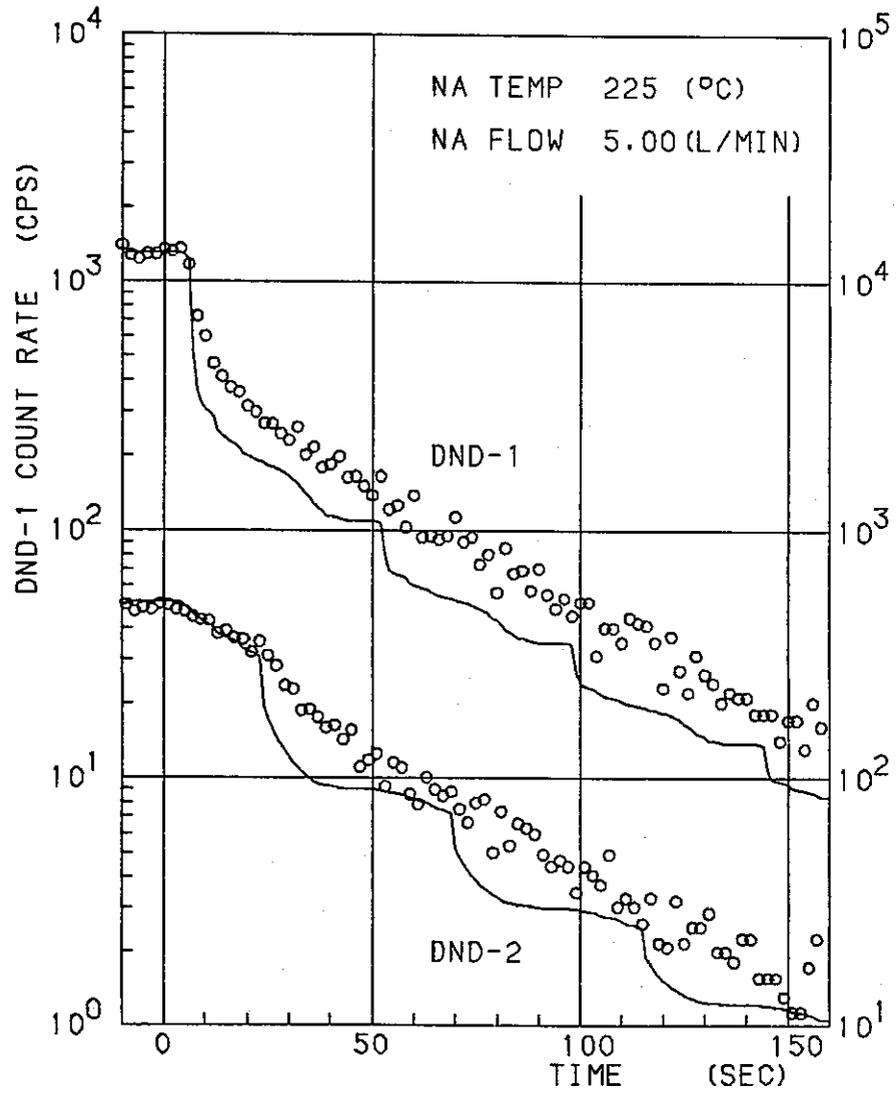


9) EXP. NO. 11

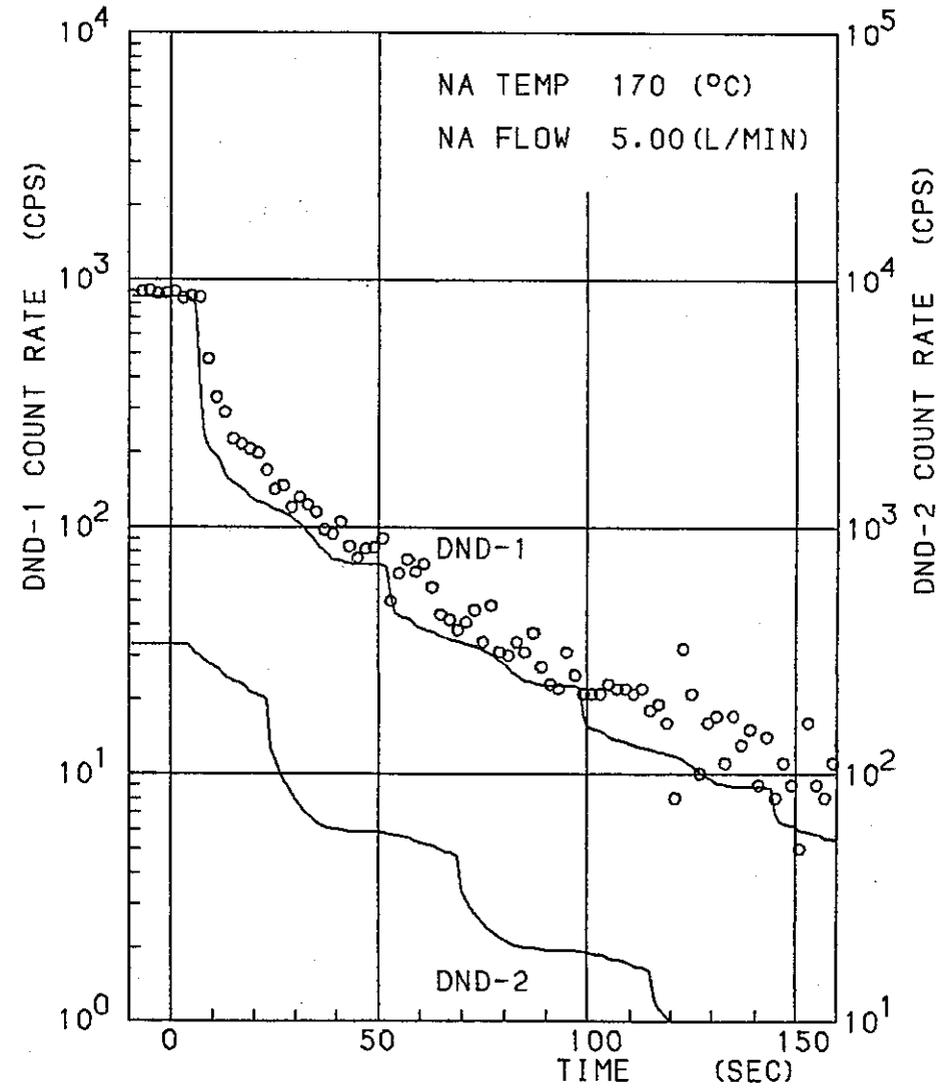


10) EXP. NO. 30

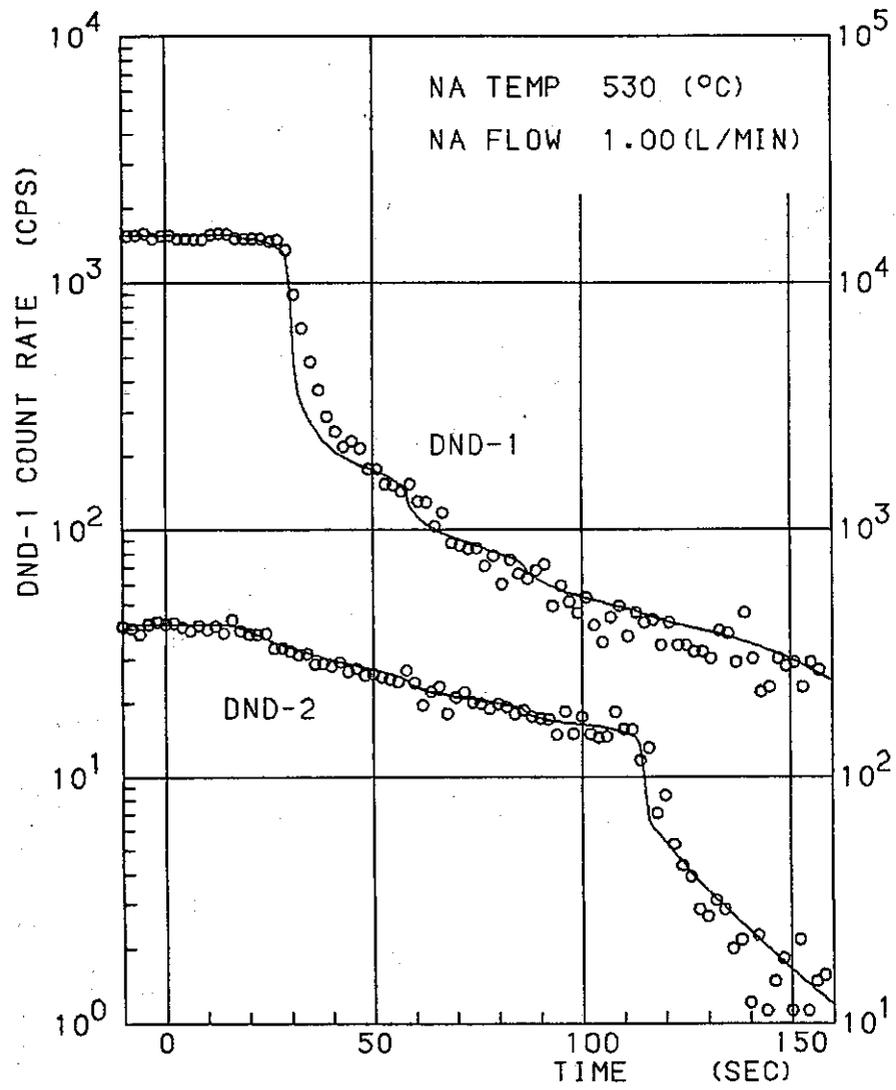
Fig 7 - 5 (continued)



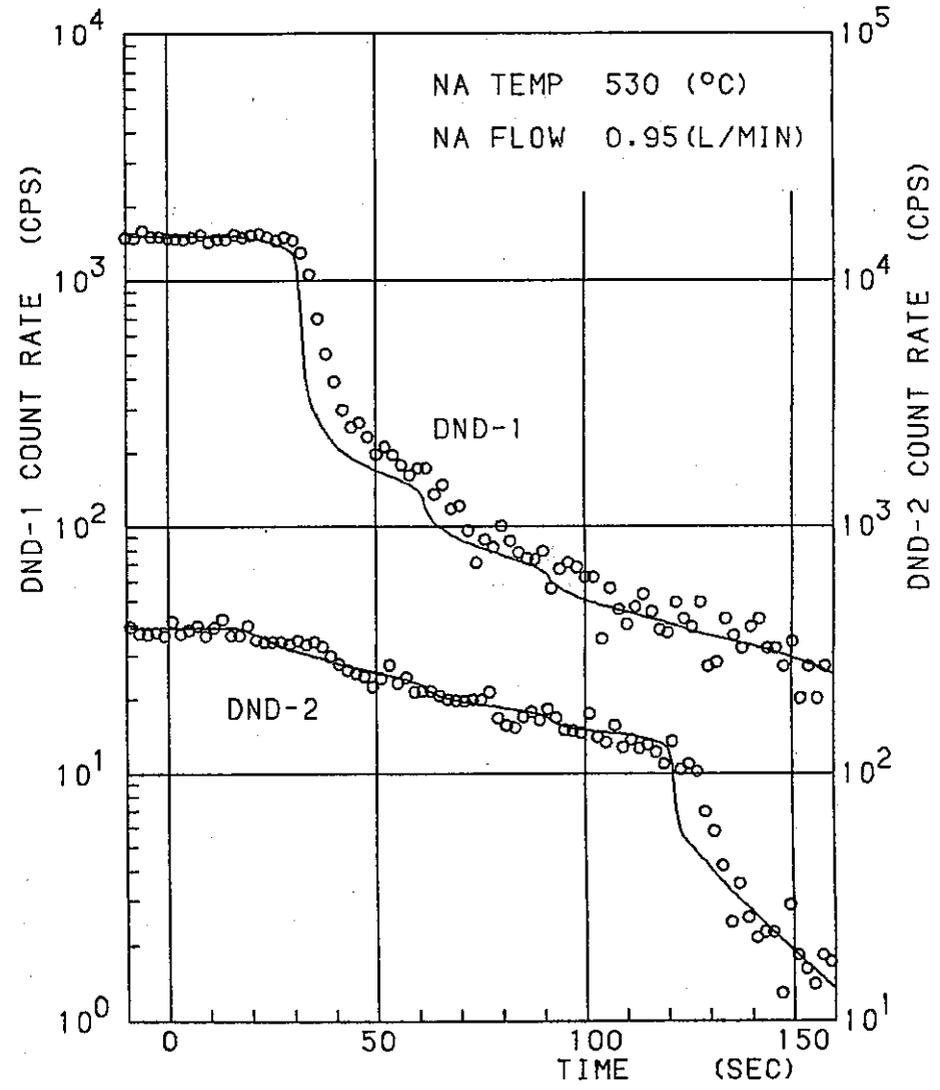
11) EXP. NO. 12



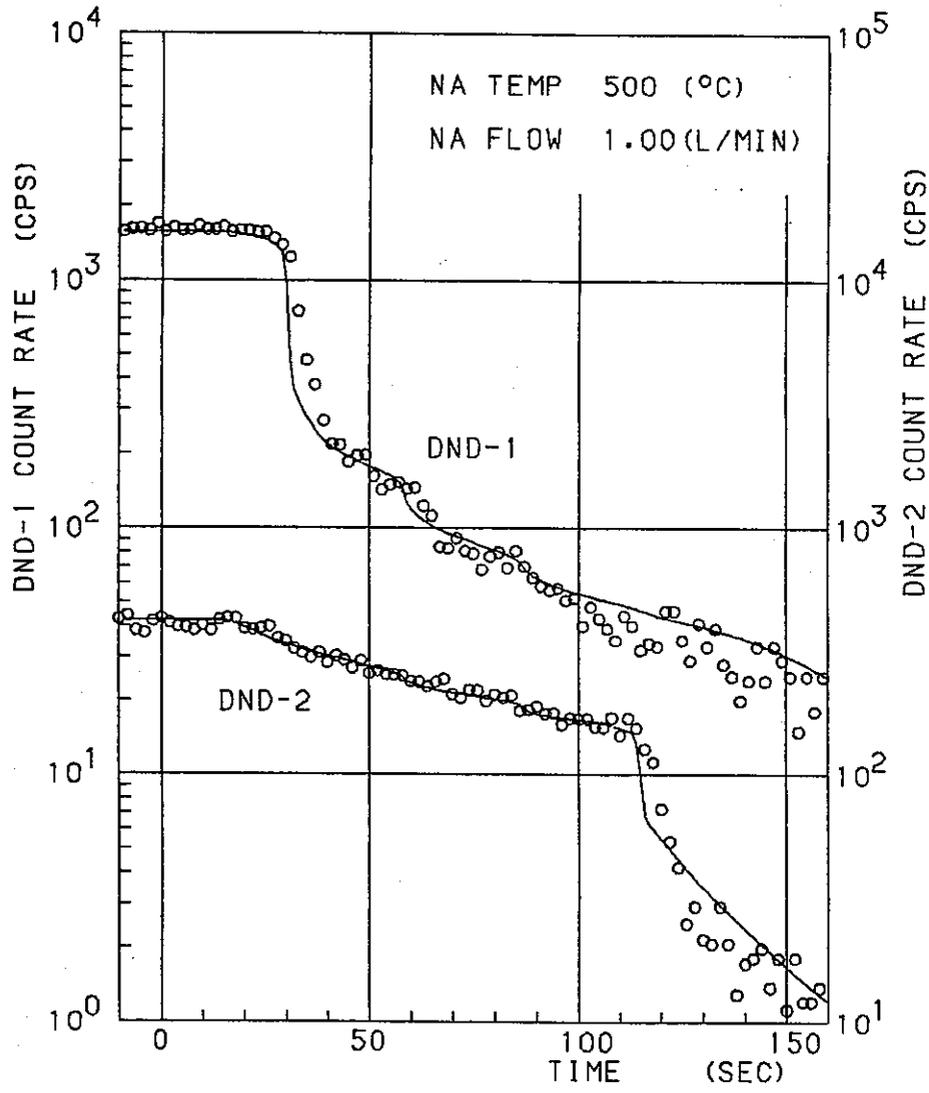
12) EXP. NO. 21



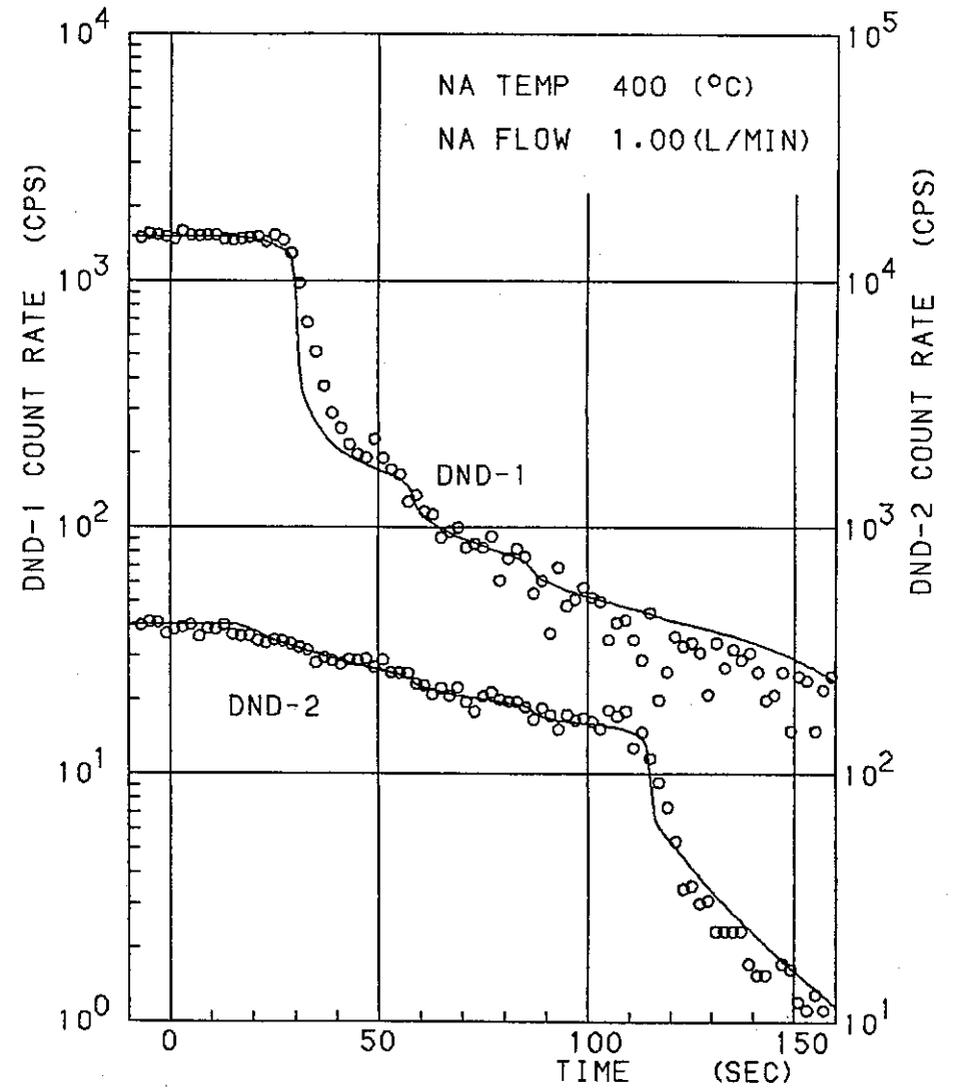
13) EXP. NO. 16



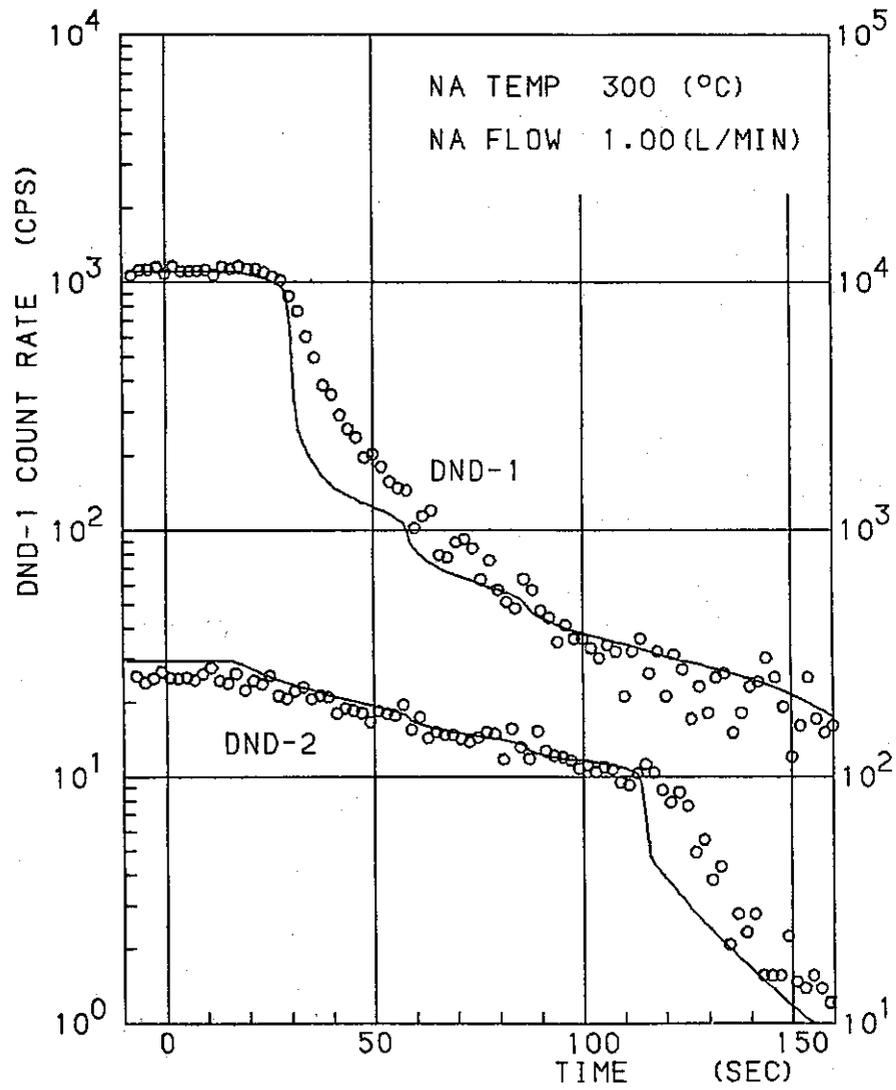
14) EXP. NO. 14



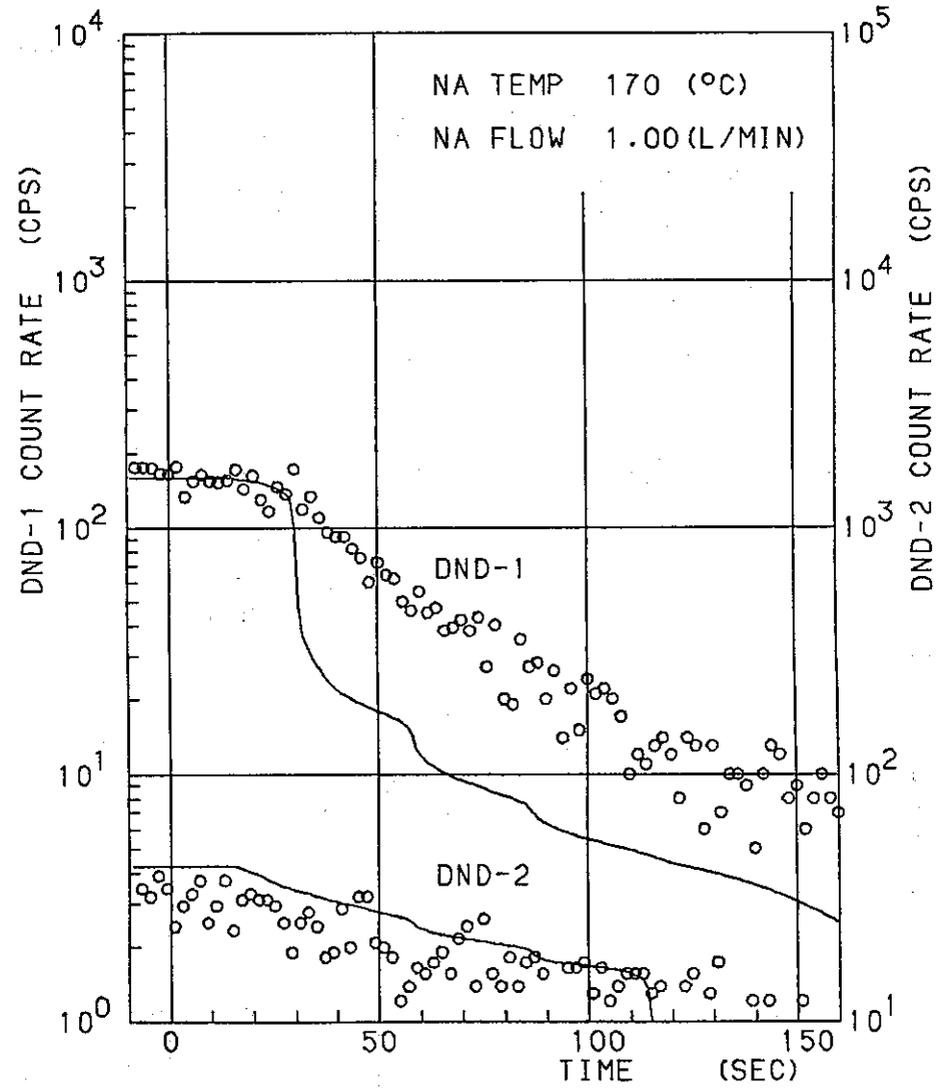
15) EXP. NO. 33



16) EXP. NO. 22



17) EXP. NO. 25



18) EXP. NO. 20

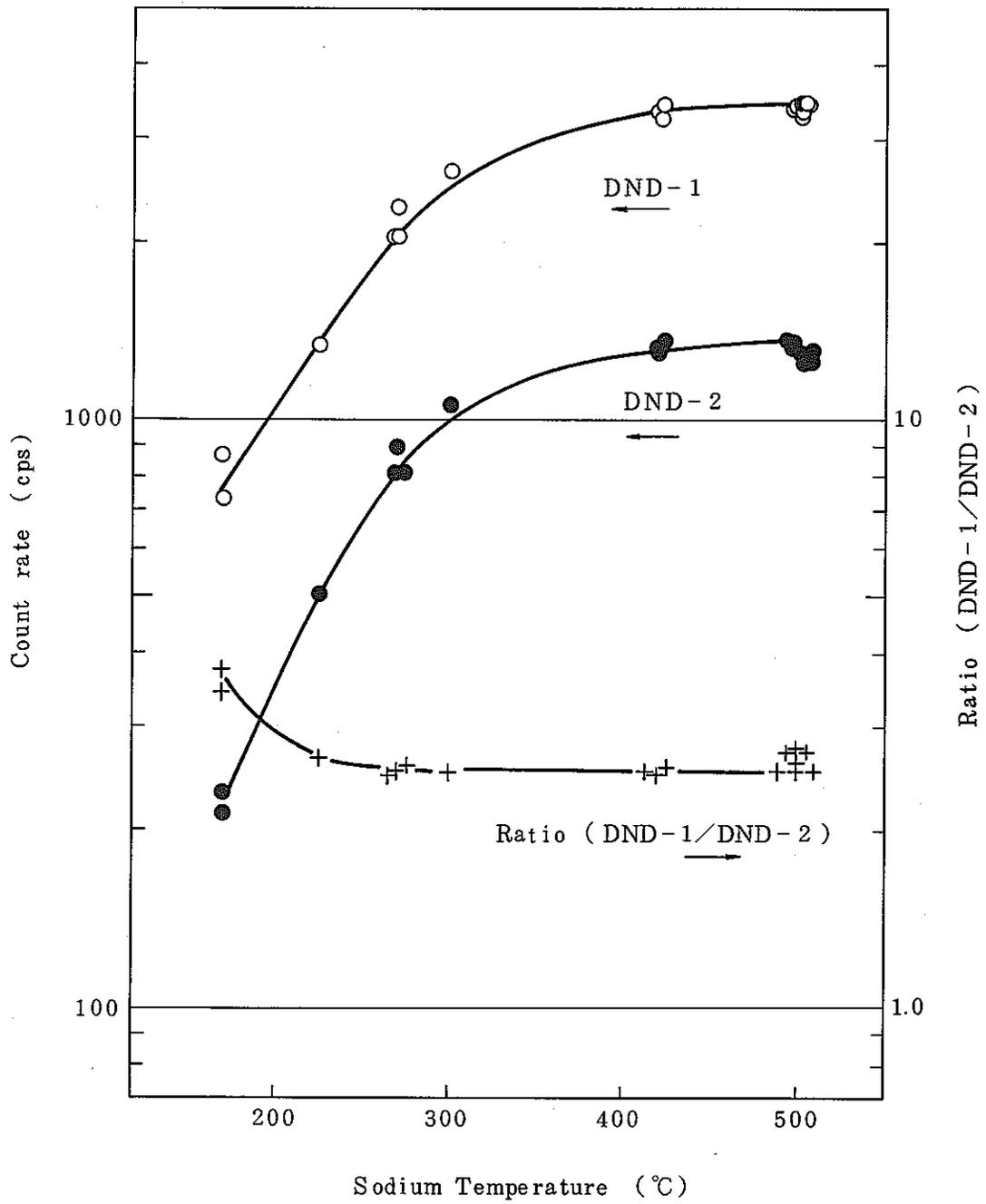


Fig 7 - 6 DN - count rate vs. sodium temperature
(Sodium flow rate 5 l/min)

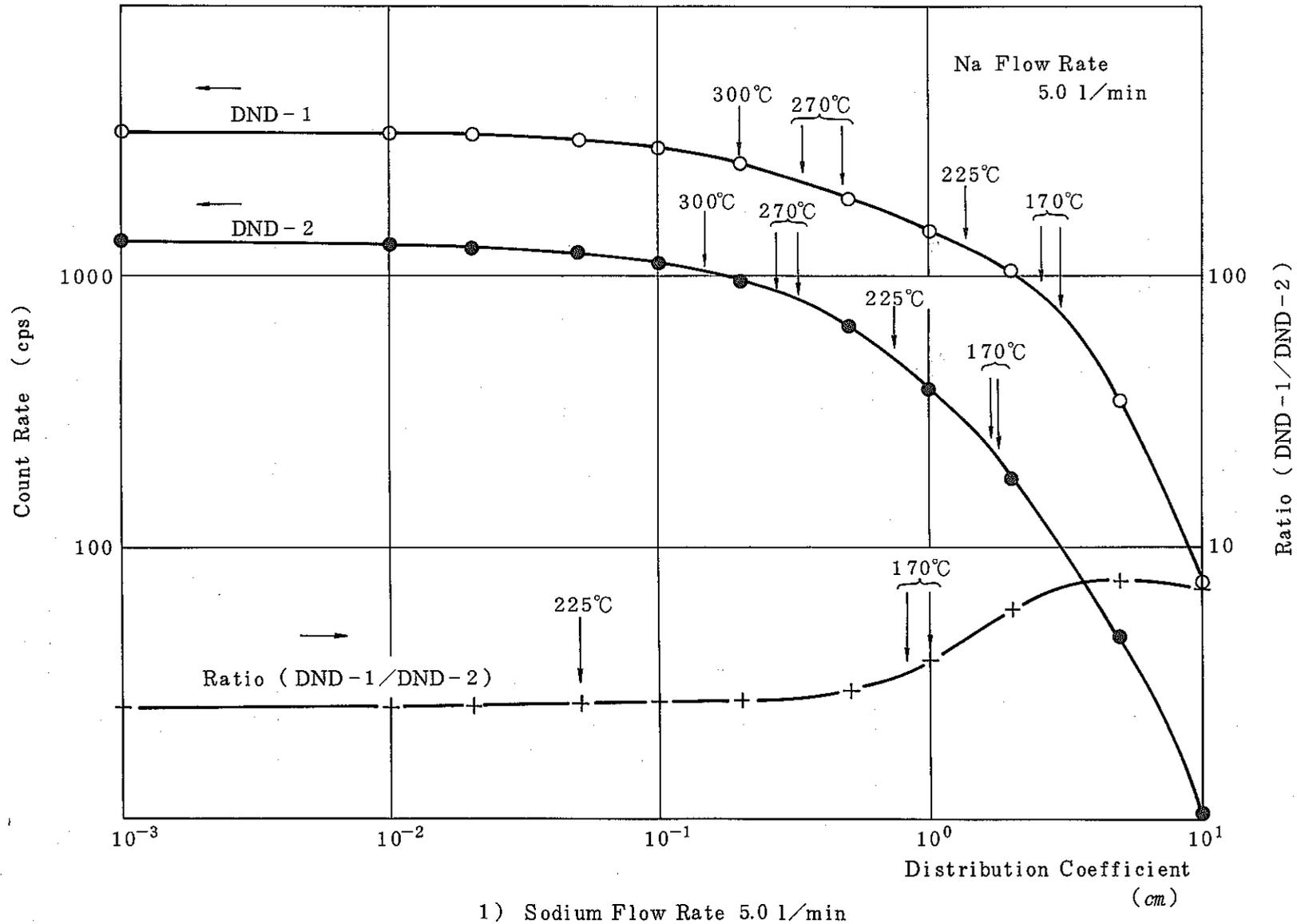


Fig 7 - 7 Relationship between calculated delayed neutron count rate by using analytical model and distribution coefficient

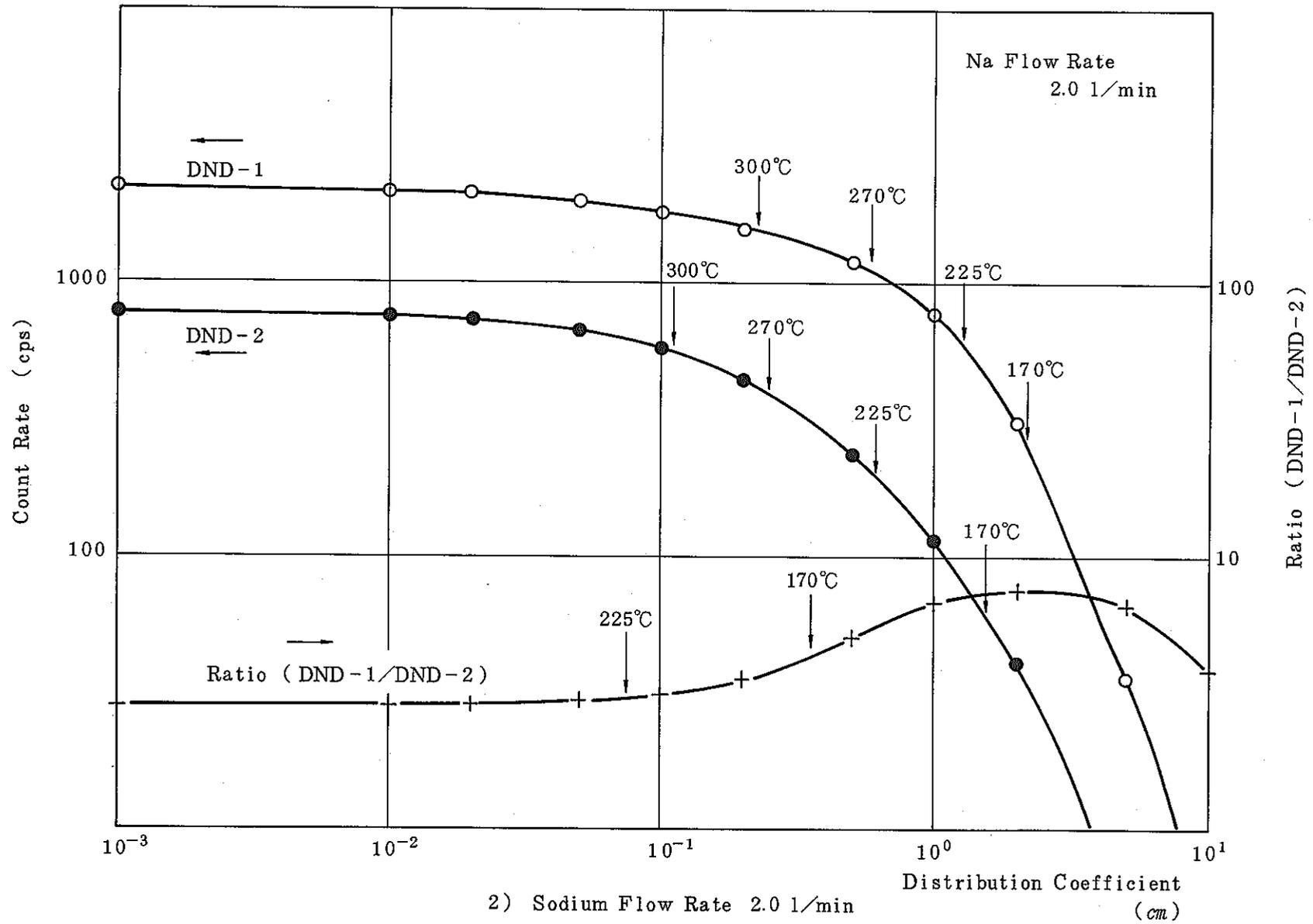


Fig 7 - 7 (continued)

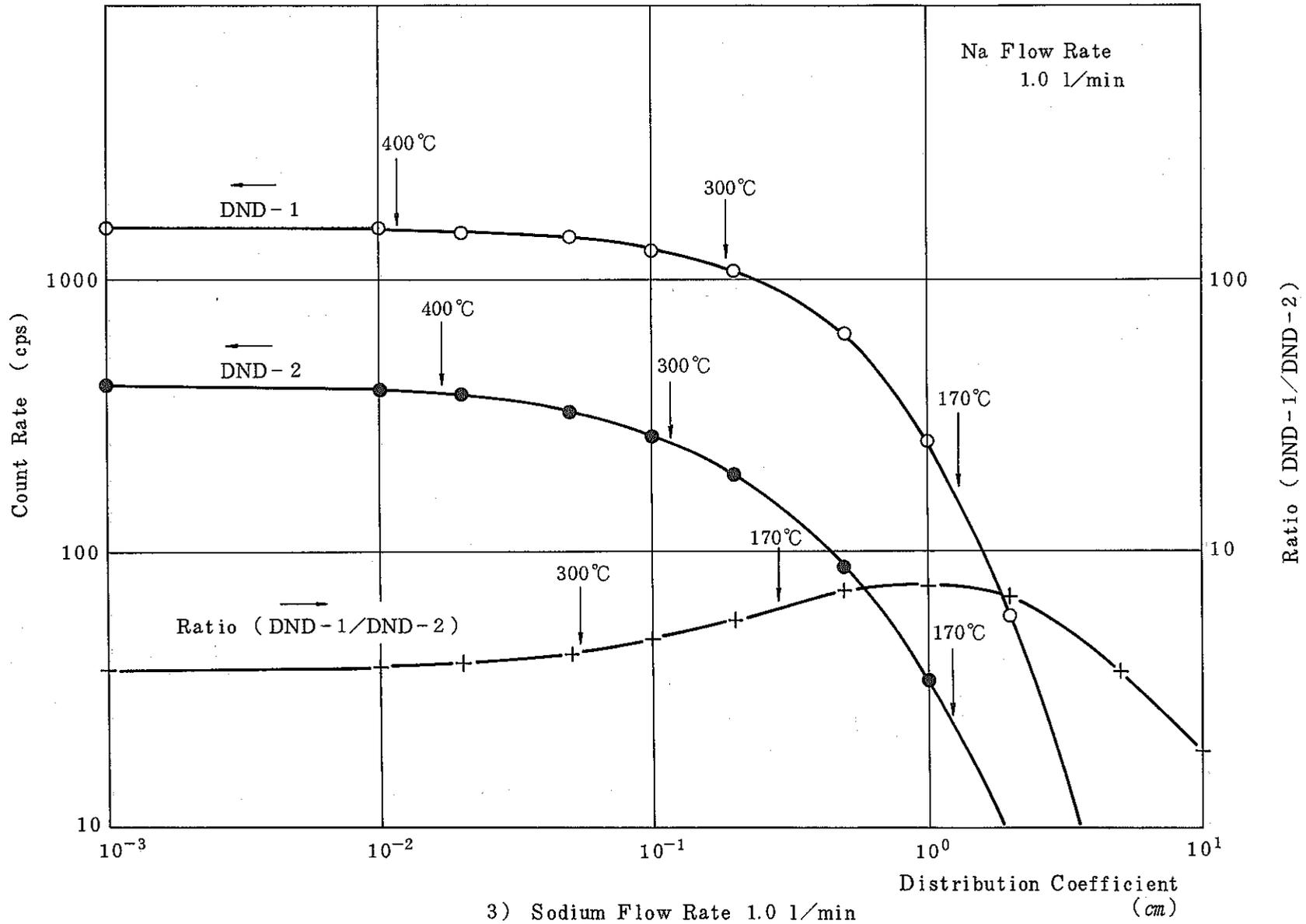


Fig 7 - 7 (continued)

8. DN系計数率変動特性の解析

8.1 緒 言

遅発中性子(DN)法破損燃料検出(FFD)システムは、冷却材汚染防止と炉心局所事故伝播防止を目的に設置され、その信号は安全保護系に用いられる。

燃料破損が生じた場合の検出確率は、上記の目的からすると可能な限り高いことが要求されるが、問題となるのは破損の無い状態で存在するバックグラウンド(BG)放射線の影響である。

現在、DN系計数率信号の平均値による検出限界はBGレベルの20%増程度と考えられており、検出感度を高めるためにはBGレベルを低下させねばならない。しかしながら検出遅れ時間に対する要求上、検出器の設置場所が大きく制限されることから、ハードウェアの設計対応によってBG放射線の影響を完全に除去することは困難と見られる。

即ち何らかの信号処理技術を用いることが必要となろう。

信号処理による対応の最も簡単なものは、計数率信号の変化を求め、これを監視することである。しかしながら実際に観測される計数率信号には「ゆらぎ」(雑音)成分が含まれているため、単純な変化率の監視は必ずしも検出感度の向上につながらず、雑音特性を考慮した信号処理が必要となる。

この様な信号処理技術を開発するためには、燃料が健全な状態で観測されるDN系計数率のBG雑音特性を把握しておくと共に、破損による信号特性の変化を知っておくことが要求される。

本章は、昭和58年9月より昭和59年4月にかけて測定されたFPL-II雑音データに関して測定・解析の詳細を述べ、燃料破損状態におけるDN系計数率雑音特性を示すものである。

なおDN系計数率の「ゆらぎ」の解析は既に、1969年(昭和44年)の燃料破損時に得られたRapsodie炉のデータに対してORNLが実施しており、「ゆらぎ」の解析が高感度の破損検出に有効なばかりでなく、破損のタイプの同定や破損の位置決めにもある程度有効なことが報告されている。¹⁵⁾

8.2 測 定

8.2.1 雑音測定信号

FPL-II の計装の内、DN系を含む放射線計測装置については2章に述べられている。それらの他に、ループの主要な運転パラメータであるナトリウム流量を制御するために、Fig 2-2にEMF-1として示されている電磁流量計が設置されている。また、ループの温度を制御する目的で、Fig 8-1に示した各位置に配管温度測定用の熱電対が設置されている。各熱電対は温度制御用ヒータと1対1に対応しているが、TE-11, TE-13, 14は表示専用である。Table 8-1にウランカプセル先端から各熱電対までの距離を示した。

雑音測定の主目的は、燃料破損状態において観測されるDN計数率信号の特性を把握することにある。従って雑音測定の対象には、この計数率信号に影響を与えると予想される信号を全て含めることとした。

実際に測定した信号は以下の通りである。

FPL-II 関係

- | | |
|------------------|---------|
| (1) 上流側DN計数率 | : DND-1 |
| (2) 下流側DN計数率 | : DND-2 |
| (3) ループ流量 | : EMF-1 |
| (4) ウランカプセル温度 | : TE-12 |
| (5) ウランカプセル出口管温度 | : TE-14 |
| (6) インパイルプラグ出口温度 | : TE-16 |
| (7) ディレイライン温度 | : TE-19 |
| (8) ディレイライン温度 | : TE-20 |
| (9) ディレイライン温度 | : TE-21 |
| (10) ディレイライン温度 | : TE-22 |

TTR関係

- | | |
|-----------------------|---------|
| (1) 原子炉出力(出力系チャンネル#1) | : PRM-1 |
| (2) 原子炉出力(出力系チャンネル#2) | : PRM-2 |

なお上記各信号の内、(1)~(6)、(9)、(11)は全ての試験で測定したが、他の信号は必ずしも測定されているとは限らない。また、本報では以後、上記のDND-1等の記号により各信号を区別する。

8.2.2 測定方法

全ての信号は、測定系のトラブルが装置側まで波及することの無い様に、夫々一旦絶縁型の直流増幅器を介して測定された。また、この増幅器は出力のZero Suppressionが可能であり、各信号の平均値に当る直流成分をキャンセルして雑音成分のみを取出すためにも利用された。

この様にして取出された雑音成分は、S/N比を高めるために更に増幅された後アナログ磁気テープに記録された。

Fig 8-2は信号の種類毎に雑音測定系を示したものである。

(図中、絶縁増幅器の入力端に示されているコンデンサは、同増幅器のチョッパからのパルス状ノイズが装置側に影響を与えない様に接続されたものである。)

8.2.3 測定条件

雑音測定は、配管へのFP沈着挙動を調べるための試験が実施される時に合わせ、且つできる限りTTRが定格出力(100 kWt)で運転されている状態において実施した。またこの時、雑音測定を目的とした条件設定は一切行なわなかった。

上記の沈着挙動試験の条件は3章に示されているが、ここでは雑音測定を実施したときのFPL-IIおよびTTRの運転条件一覧をデータNoと共にTable 8-2に示し同表の備考欄にTable 3-1のExp Noを記しておく。

測定系のノイズを記録したC-03とC-05を除く18ケースのデータの内、定常運転状態で得られたものはFig 8-3に示された12ケースと温度雑音のみを記録したC-09であり、他の5ケースは非定常データである。

C-01は、Fig 2-2に示されている弁VA-3を閉じてVA-5を開いた状態で測定されたものであり、燃料破損の無い状態に相当するDN計数率データが得られている。但し、ウランカプセル部のヒータの容量が小さいためにこの部分の温度が低下し、ループ全体の温度も除々に低下している。

この他、C-10、C-13およびC-18は、DN減衰特性試験に測定したデータであり、途中でループ流量が(従って温度も)大きく変化している。

8.2.4 データの概要

既に述べた通り 8.2.1 に示した信号が常に全部測定された訳ではない。ここでは、各試験条件で実際に測定された信号の一覧を、8.2.1 に示した記号を用いて Table 8-3 に示す。同表にはまた、後の解析で考慮すべき重要な測定系の条件である DN 系リニア・レートメータの時定数も示しておいた。

また、測定・記録された信号波形の例として C-01、および定格流量 5 / min で低温時のデータであり後に予備解析に用いた C-07、更に FPL の定格運転条件下でのデータである C-19 の全信号波形を Fig 8-4 (a)~(c) に示した。TTR の運転時間を概ね 4 時間に制限しているため、データの長さは最長 230 分程度であり同図の横軸は 0 ~ 10,000 秒とした。一方、縦軸のスケールは Fig 8-4 (a) に示した通り、最大値と最少値の中間値を "ZERO" として (ZERO ± "SCALE") の範囲で表示してある。

DN 系計数率の "SCALE" 値は C-01 のみ 10 cps、他は 100 cps とし、温度および TTR 出力については全ケース共、夫々 20 °C と 1 kWt に固定した。

以下、Fig 8-4 について若干のコメントを付け加える。

先ず、FPL-II の温度、流量信号には約 70 秒の間隔でパルス状ノイズが重畳しているが、これは FPL-II 制御盤において温度信号を打点式記録計に表示する際に発生するものである。

TTR の出力信号の内、PRM-1 は PRM-2 と比べて徐々に低下する傾向を見せているが、これは PRM-2 を出力の定値制御に用いていることと、水温上昇に伴う反応度変化を補償するための制御盤の動きが出力分布に若干の歪みをひき起すことによるものである。

この他、ヒータの ON・OFF 制御における不感帯によって FPL-II の温度に低周波の振動が見られ、また C-07 (Fig 8-4 (b)) の様にこれと似た振動が DN 計数率信号にも現れているケースがある。この点については後述する。

8.3 解 析

雑音データの測定・解析の第一の目的は、燃料破損時に観測されるDN系計数率雑音特性の把握、即ち計数率雑音の振幅、周波数特性の運転パラメータへの依存性を調べ、またその雑音源を明らかにすることである。本筋では、特に上記雑音源の同定を目的に行なう多変量自己回帰（Auto Regressive, 以下AR）モデルによる時系列解析について、解析の方法・条件を述べた後結果を示し検討を加える。

8.3.1 解析方法

ARモデルを適用した時系列解析方法は既に成書¹⁶⁾で詳しく解説されている。ここでは、後出の構造行列（Associate matrix）を用いたARモデルによる解析について述べる¹⁷⁾。

p次元の観測変数（ $X_i(t)$, $i=1, 2, \dots, p$ ）に対して、構造行列を導入したARモデルは次式で記述される。

$$X_i(t) = \sum_{j=1}^P \sum_{m=S_{ij}}^{M_i} |r_{ij}| a_{ij}(m) X_j(t-m) + V_i(t) \quad (i=1, 2, \dots, p) \quad (8-1)$$

ここで、 r_{ij} は次の様に定義する。

$r_{ij} = 0$: $X_j \rightarrow X_i$ に直接の伝達経路が存在しない場合

$r_{ij} = 1$: $X_j \rightarrow X_i$ に直接の伝達経路が存在する場合

$r_{ij} = -1$: $X_j \rightarrow X_i$ の伝達経路に零回帰項が含まれる場合

(8-1)式の S_{ij} は通常1であるが、 $r_{ij} = -1$ のとき $S_{ij} = 0$ と置くことにより変数 X_i と X_j の同時刻の回帰項（零回帰項）を考慮することができる。

モデル次数 M_i は各変数毎に、次の予測誤差FPECを最小にする様に決定される。

$$FPEC(M_i) = \frac{N + \sum_{j=1}^P \sum_{m=S_{ij}}^{M_i} |r_{ij}|}{N - \sum_{j=1}^P \sum_{m=S_{ij}}^{M_i} |r_{ij}|} \sigma_{ii}^2, \quad (i=1, 2, \dots, p) \quad (8-2)$$

ここでNは解析データ数、 σ_{ii}^2 は残差列 $V_i(t)$ の分散値であり、 σ_{ii}^2 は(8-1)式のAR係数 $a_{ij}(m)$ と共に最小2乗法により求めることができる。

一旦ARモデルが(8-1)式により与えられると、多変数フィードバック系に関する種々の解析が可能になる。

先ず、Z変換を用いて(8-1)式を次の様に変換する。

$$X(t) = A(Z^{-1})X(t) + V(t) \quad (8-3)$$

ここで、AR係数行列Aの各要素は次式で定義される。

$$a_{ij}(Z^{-1}) = \sum_{m=S_{ij}}^{M_i} r_{ij} |a_{ij}(m)| Z^{-m} \quad (8-4)$$

一方、Fig 8-5に示す様な2次元フィードバック系を想定し、次を要素とする開ループ伝達関数 $B(Z^{-1})$ および雑音源 $U(t)$ を定義する。

$$\left. \begin{aligned} b_{ij}(Z^{-1}) &= a_{ij}(Z^{-1}) / (1 - a_{ii}(Z^{-1})), \quad (i \neq j) \\ b_{ii}(Z^{-1}) &= 0, \quad u_i(t) = (1 - a_{ii}(Z^{-1}))^{-1} V_i(t) \end{aligned} \right\} \quad (8-5)$$

これを用いると(8-3)式は

$$X(t) = B(Z^{-1})X(t) + U(t) \quad (8-6)$$

と書き換えることができる。更に、閉ループ伝達関数 $C(Z^{-1}) = (I - B(Z^{-1}))^{-1}$ を用いると、(8-3)式は次の形にも書くことができる。

$$X(t) = C(Z^{-1})U(t) \quad (8-7)$$

上式において各雑音源が互いに無相関な場合を考えると、観測変数 $X_i(t)$ の自己パワースペクトル密度(APSD)は次式で評価できる。

$$P_{ii}(f) = \sum_{j=1}^P |C_{ij}(f)|^2 \cdot P_{uj}(f) \quad (8-8)$$

但し、周波数 f と Z^{-1} とは $Z^{-1} = \exp(-j2\pi f)$ の関係にあり、 C_{ij} は閉ループ伝達関数の要素である。また、 $P_{ui}(f)$ は次式で与えられる、雑音源 u_j のAPSDである。

$$P_{uj}(f) = \sigma_{jj}^2 / |1 - a_{jj}(f)|^2 \quad (8-9)$$

上記(8-8)式の長所は、各雑音源からの寄与の和としてAPSDが表現されていることであり、今回の様に解析対象系内の雑音伝播機構を把握する必要がある場合に非常に役立つ量である。通常、この式の右辺各項をAPSDで規格化した次式をノイズ寄与率(noise power contribution ratio)と呼んでいる。

$$q_{ij}(f) = |C_{ij}(f)|^2 \cdot P_{uj}(f) / P_{ii}(f) \quad (8-10)$$

以上の解析によって得られる結果の妥当性が保証されるためには、各変数の残差列 $V_i(t)$ が相互に独立であることが必要である。即ち、次式の規格化共分散行列の非対角項が十分に小さいことを確認することが重要である。

$$\tilde{\sigma}_{ij}^2 = \sigma_{ij}^2 / (\sigma_{ii} \cdot \sigma_{jj}) \quad (8-11)$$

なお通常の AR モデルは (8-1) 式で $r_{ij} = 1$, $M_i = M$ と置いたものである。

8.3.2 解析条件

測定データは全てアナログ磁気テープ上に記録されており、前節に述べた AR 解析を行なうために先ず A/D 変換を実施し、物理単位に換算されたデジタルデータ・テープを作成した。A/D 変換には TEAC 社の DR-1000 型デジタル・データ・レコーダを使用した。このときのサンプリング間隔は 0.2 秒、アナログ・ローパス・フィルタ (NF 回路設計ブロック社 LP-3 型 LPF) の設定は 2.5 Hz であった。

この様にして作成した時系列データに対して、大型計算機による解析処理を行なった。Fig 8-6 は一連の処理の流れを示したものである。

上記の 0.2 秒間隔で A/D 変換されたデータの内、実際に解析に用いたのは 15 点に 1 点である。即ち、解析時のサンプリング間隔 (Δ) は 3.0 秒であり、カットオフ周波数 0.167 Hz のデジタル LPF を使用した。

データの時間長は Fig 8-4 で見た通りケース毎に異っており、Fig 8-6 中に示した相関関数計算に使用する解析データ点数 (N) も最大を 4096 点として様々である。但し相関関数の最大遅れ時間を 128Δ に固定したため、解析周波数帯域は 0.00130 ~ 0.167 Hz となった。この様な、比較的低い周波数帯域を解析対象としたのは、DN 系リニア・レートメータの時定数が通常 10 秒程度の大きい値を持つことを考慮したためである (Table 8-3 参照)。

8.3.3 解析結果

(1) 計数率信号信幅の運転パラメータ依存性

TTR の出力信号が測定された 16 ケースについて、計数率信号 DND-1 と DND-2, および代表的な信号として選んだ TE-14 (ウランカプセル出口配管温度) と TTR 出力信号の各々の平均値と RMS (Root-Mean-Square) 値を、測定条件と共に一覧にして Table 8-4 に示す。

ここで、RMS値は同表の脚注にある様に0.00130～0.167 Hzの周波数成分に対するものであり、APSDの積分により求めた。また、Table 8-3に示した通りC-06～C-10ではリア・レートメータの時定数が小さくなっており、これを補正するため解析時に時定数10秒の一次遅れフィルタを計数率信号にのみ用いている。

Table 8-4に示した中から、流量をパラメータにとってDN計数率とRMS値の温度依存性を示したものがFig 8-7である。但しFig 8-3にも示した通り、例えば5 ℓ/min、500℃で測定されたデータにはC-14、C-15、C-19の3ケースがあるが、Table 8-4からわかる様に測定値間の差が小さいために、Fig 8-7にはこれらのケースの平均値を示した。C-11とC-17についても同様である。（このことはDN放出核種の挙動に対するナトリウム中酸素濃度の影響が小さいことを示している。）

この図から、同一流通条件下での温度による変化が非常に大きいことがわかる。ここで、同図(a)に示した平均値に関しては、文献3)で述べた検討結果がそのまま当てはまる。即ち、DN計数率が温度の低下に従って減少する理由には配管壁面へのDN放出核種の吸着挙動の温度依存性があり、その他、燃料からナトリウム中へのFP放出率の温度依存性や、燃料表面への吸着の可能性、等の未知の因子を含んでいる。

一方この図は、同一温度条件下において流量が小さくなると平均値、RMS値共に小さくなることも示している。この理由は流量の低下によってウランカプセル部からDN検出器までのナトリウムの移行時間が増大し、短半減期のFP壊変が進むためである。

配管壁面への吸着の効果を調べる上で重要な量としてDND-1とDND-2の計数率の比があり、Fig 8-8に温度を横軸にとってこの値を示した。

同図(a)は、流量5 ℓ/minの場合には約270℃より高温の状態では壁面への吸着の影響はほとんど無視できるが、それより低い温度で吸着が増大することを示しておりFig 8-7、Fig 8-8共に平均値に関する結果は文献3)の結果と良く一致している。

これに対してRMS値に関する結果は、Fig 8-8(b)で流量1 ℓ/minの場合のRMS

値の比に有意の変化が認められるものの、Fig 8-7 (b) では平均値の場合と若干傾向が異なり、顕著な温度依存性は見られない。但し、DN 系計数率の雑音成分に対しても影響を与えると予想される温度を見ても、Fig 8-9 (a) に示した TE-14 の様に平均値と RMS 値とが正比例していないといった点に注意せねばならない。即ち RMS 値の結果については、後に示す計数率信号の周波数特性や雑音源同定結果も考慮して解釈することが必要である。

なお、FPL の運転条件には依存しない PRM-1 の RMS 値 (Table 8-4) を参考のため Fig 8-9 (b) に図示した。

(2) 計数率信号周波数特性の運転パラメータ依存性

ナトリウム流量が 5 l/min の場合の DND-1 と DND-2 の APSD 解析結果を夫々 Fig 8-10, Fig 8-11 に、また 1 l/min の場合の結果を Fig 8-12, Fig 8-13 に示す。

5 l/min の場合の結果には、燃料破損の無い状態のデータに相当する C-01 の APSD も併せて示したが、Table 8-4 に数値で示した通り C-01 の計数率は平均値、RMS 値共に他のデータに比べて無視できる程小さい。言い換えれば Fig 8-10 Fig 8-11 から明らかな様に、燃料破損の発生は DN 系計数率雑音の全周波数成分に顕著な振幅の増加を引き起こす。

またこの 2 枚の図は、Fig 8-7 (b) において 5 l/min, 270 °C の場合 (C-11 と C-17) の RMS 値が大きいのは、約 0.006 Hz の振動成分の存在によるものであることを示している。この様な低周波の振動が計数率信号に現われるのは、Fig 8-4 の波形からも明らかな様に低温時のみであり、この時には Fig 8-14 に APSD の例を示す通り、配管部の温度にも同じ周波数の振動が見られる。そこで次に、計数率信号同士、および計数率と各部温度との相関解析を行なった結果を Fig 8-15 (a)~(d) に示した。これらの結果は FFT (高速フーリエ変換) 解析によるものであるが、各図中のコヒーレンスより明らかな様に、これらの各信号は約 0.0045 Hz を中心とする低周波領域で相互に密接な関係をもって変動していることがわかる。しかしながら、信号間の伝達特性に関するこれ以上の情報を FFT 解析で得ることは難しく、8.3.1 で述べた AR モデルによる寄与率解析の結果を待たねばならない。

なお、コヒーレンス Γ_{xy} には次式の定義を用いている。

$$\Gamma_{xy} = |\text{CPSD}_{xy}| / (\text{APSD}_{xx} \cdot \text{APSD}_{yy})^{1/2}$$

(3) 計数率雑音源の同定のための予備解析

ここでは、計数率信号の雑音源同定、即ちARモデルによる寄与率解析の条件を決定する目的で行なった予備解析について述べる。

先ず始めに行なった解析は、8.2.1の終りで述べた全ての測定ケースに含まれる8信号（Table 8-3参照）を用いた場合のARモデル同定である。解析方法の説明で述べた様に、同定されたARモデルの妥当性が保証されるためには各信号の予測残差列の独立性が成立する必要がある、このためには一般に系内雑音源が相互に独立であり、高い相関を示す信号が含まれていないこと、が条件となる。上記8信号による解析は、どの信号を組み合わせてモデルを作成するのが良いかを決めるために行なったものであり、信号の伝達方向に不明確な点もあったため、この解析には構造行列を用いない通常のARモデルを適用した。

Fig 8-16は、燃料破損の無い状態に相当するC-01の解析結果であり、DND-1（同図a）およびDND-2（同図b）のAPSDを（3-8）式に従って各雑音源からの寄与の和として表現したものである。但しFig 8-10～Fig 8-15と異なり、同図の縦軸は線形目盛となっている。またこの解析で得られた、（8-11）式の値を要素とする、残差列の規格化共分散行列は、Table 8-5(a)の様であった。Table 8-5(b)には原信号の規格化共分散行列も示した。これらの結果からC-01の場合にはTE-12とTE-16の相関がやや強いものの、残差列の独立性はほぼ成り立っていること、従ってFig 8-16は妥当なものであり、計数率雑音はいずれも他の信号の影響を全く受けていないことが明らかとなった。

一方、(2)でコヒーレンスを示したC-07に対する同様の解析結果はFig 8-17とTable 8-6に示す通りであった。Fig 8-17は、計数率雑音の約0.0045Hzを中心とする主成分はほぼTE-14とTE-16の変動によって生じたものであることを示している。しかしながら、Table 8-6(a)からはTE-12～TE-21の残差列の間に独立性が成り立っていないこと、またこれは同表(b)に見る様に極めて強い相関関係にあるこれらの温度信号を同時に用いたことによること、が明らかである。これより、C-07の場合にはDND-1、DND-2、PRM-1の他にいずれか1つの温度信号を選択して解析する必要があることがわかった。また、今回測定された様に電氣的雑音成分の混入した流量信号（Fig 8-4参照）の場合には、定常状態で計数率雑音に何の寄与も与えない結果になることが明らかであり、以後の解析に

は含めないことにした。

温度信号には TE-14 を用いて C-07 を解析した結果の APSD を Fig 8-18 に、また原信号と比較した夫々の予測値と残差を Fig 8-19 に示す。Table 8-7 にはこのときの残差の共分散行列を示した。なおこの解析には Table 8-8 に示した構造行列を用いている。

Fig 8-18 の APSD は Fig 8-17 に比べて約 0.0045 Hz のピークが再現されていないが、これはモデル次数 M の違いによるものである。即ち、Fig 8-17 の解析に用いた通常の AR モデルでは、比較的高い周波数成分をもった PRM-1 の特性を表現するためのモデル次数が他の変数にも適用されてしまうのに対し、Fig 8-18 の解析では 8.3.1 に述べた通り各変数毎に次数が決定されるためである。

Table 8-7 から、これら 4 信号を用いた解析結果は極めて妥当なものであると言える。

C-07 の解析において上記 TE-14 の替わりに他の温度を用いた場合に、DND-1、DND-2 の分散値に対する各雑音源からの寄与率がどの様になるかを調べたところ、Table 8-9 に示す様な結果を得た。(この解析の場合のみ、リア・レポートメータの時定数補正のためのフィルタは用いておらず、またデータ長も半分の約 6100 秒とした。従って後出の Table 8-10 中の C-07 の値とは若干異なっている。表中の数値は(8-10)式のノイズ寄与率を解析周波数範囲内で積分して求めたものである。)この表を見る限りでは、温度信号の違いによる効果は顕著ではないが、中でも温度信号の寄与が大きくなるのは TE-14 を用いた場合であることがわかる。この結果と、実機で測定可能な温度が燃料集合体出口、炉容器出口でのナトリウム温度であることとを考え、以後の解析に用いる温度信号の代表として TE-14 を選択した。

(4) 計数率変動機構の運転条件依存性

定常状態で得られたデータ (Fig 8-3) と、燃料破損の無い状態でのデータに相当する C-01、の計 13 ケースのデータに AR モデルを適用して得られた結果を Table 8-10 にまとめて示す。表中の値は、Fig 8-18 に示した様な APSD の各雑音源からの寄与分の面積に当る分散値を表わしたものであり、括弧内には Table 8-9 と同様の寄与率を示してある。Table 8-8 の構造行列から明らかな如く、DND-2 から DND-1 への寄与は無いため、この表からは除いてある。

またナトリウム流量が5ℓ/minの場合と1ℓ/minの場合の各々について、計数率雑音の分散値に対する各雑音源からの寄与の内訳の温度依存性を明示したものがFig 8-20, Fig 8-21であり、Fig 8-7と同様に同じ運転条件のデータは数ケースの結果を平均して示してある。以下、この2枚の図についてコメントする。

先ず言えることは、温度変動からの寄与分が約300℃より低い温度条件においてのみ見られ、明らかに温度依存性が認められる点である。特にこの寄与は5ℓ/min 270℃(C-11, C-17)の場合に顕著であるが、これはFig 8-22から明らかな様に、(2)で述べたFig 8-10の約0.0065Hzの変動がやはりFig 8-14の温度変動に起因していたことによる。また、Fig 8-20(a)に見られる通りこれらのケースでDND-1自身の雑音源が大きくなっているが、これはTE-14の近辺以外の部分での温度変動に起因する成分の存在を示すものと推察される。

次に言えることは、Fig 8-20(b)とFig 8-21(b)の比較から高流量運転時には上流側計数率変動から下流側計数率変動への寄与分が増加している様子が認められる点である。この理由は既に(1)で述べた。

以上より、(1)で述べた計数率平均値に関する運転条件依存性はそのまま計数率変動成分にもあてはまることが明らかとなった。

なおFig 8-21で、1ℓ/min, 400℃(C-08)の場合に特に変動が大きくなっているのはFig 8-23の信号波形に見られる約1000秒周期の雑音成分の影響と考えられる。

8.4 結 言

本章では、DN法FFDシステムによる運転中燃料破損検出の感度を向上させるための信号処理技術の開発を目的に実施したFPL-II雑音測定・解析の結果を述べた。

本研究を通じて以下の諸点が明らかとなった。

- ① FPL-IIの場合には燃料破損の無い状態に相当する試験条件下で得られるDN系計数率雑音は破損時に比べて無視できる程小さい。
- ② 燃料破損の発生によりDN系計数率雑音はレートメータの時定数で定まる全周波数成分の振幅が顕著に増加する。即ち、増加分の周波数特性は白色である。
- ③ 低温時には系統温度の変動が計数率信号の大きな雑音源となる。

これらの結果は計数率信号の平均値の示す特性と同じものであり、DN放出核種の挙

動という面では雑音測定によって新たな知見が得られた訳ではない。

一方燃料破損検出という面から考えると、上記①の特性が例えば「常陽」等の実機で観測されるものとは異なっているため、破損が生じていない正常運転状態での計数率特性については特に情報は得られなかったが、今後実機データの測定・解析結果と併せて燃料破損検出の感度を検討する上で貴重な知見が得られたと言える。

Table 8 - 1 Thermocouples position
along the FPL-II experimental loop

Thermo Couple No	Position	Distance*1) (cm)
TE - 12	Uranium Capsule	10
- 13	Inpile Plug	13
- 14	"	374
- 15	VA - 3	457
- 16		494
- 19	Delay Line	710
- 20	"	1426
- 21	"	2143
- 22	"	2859
- 24	EMP - 1	3232
- 25	VA - 4	3279
- 4		3316
- 5	EMF - 1	3384
- 6	H - 1	3582
- 7		3647
- 8		3733
- 9		3904
- 10	VA - 2	3959
- 11	Inpile Plug	4276
- 12	Uranium Capsule	4395

*1) Distance from the Uranium Capsule

Table 8 - 2 Noise measurement conditions

Data No.	Conditions			Remarks	Exp. No. (Table 3-1)
	Sodium Temp. (°C)	Sodium Flow Rate (l/min)	TTR Power (kWt)		
C- 1	500~300	5.0	100	Inpile plug bypass test (correspond to non-fuel failure situation) (See Fig. 2-2)	18
C- 2	300	2.0	0	Flow change from Inpile plug bypass to normal fl w after TTR shut down	
C- 3	/	/	/	Isolation Amp. "Zero" mode (Noise measurement of measurement system)	—
C- 4	530	2.0	100		19
C- 5	/	/	/	Isolation Amp. input (H, L) short (same as C-3)	—
C- 6	170	1.0	100		20
C- 7	170	5.0	100		21
C- 8	400	1.0	100	Delay line trace heater OFF (Temperature gradient experiment)	22
C- 9	400	1.0	0	Measurement for temperature noise in the same condition	
C-10	500	5.0/0/4.2/ 0	100		23
C-11	270	5.0	100		24
C-12	300	1.0	100	Delay line trace heater OFF	25
C-13	500	5.0/0/2.5/ 0/1.0/0/5.0	100		26
C-14	500	5.0	100	Higher oxygen concentration (12ppm _*)	27
C-15	500	5.0	100	Higher oxygen concentration (12ppm)	28
C-16	420	5.0	100	Higher oxygen concentration (12ppm)	29
C-17	270	5.0	100	Higher oxygen concentration (12ppm)	30
C-18	500	5.0/0/2.5 0/1.0/0/5.0	100		31
C-19	500	5.0	100		32
C-20	500	1.0	100		33

*) Usual oxygen concentration is 1ppm

Table 8 - 3 Summary of noise data

Data No	Measured signals (○)												Time Constant of Linear Rate Meter (s)	
	DND 1	DND 2	EMF 1	TE 12	TE 14	TE 16	TE 19	TE 20	TE 21	TE 22	PRM 1	PRM 2	DND -1	DND -2
	C- 1	○	○	○	○	○	○			○		○		10
C- 2	○	○	○	○	○	○			○				10	10
C- 3														
C- 4	○	○	○	○	○	○			○		○		10	10
C- 5														
C- 6	○	○	○	○	○	○			○	○	○		0.03	0.5
C- 7	○	○	○	○	○	○			○	○	○		0.03	0.5
C- 8	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○		0.03	0.5
C- 9	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○			0.03	0.5
C-10	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○		0.03	0.5
C-11	○	○	○	○	○	○	○		○	○	○	○	10	10
C-12	△	○	○	○	○	○	△		○	○	○	○	10	10
C-13	○	○	○	○	○	○	○		○	○	○	○	10	10
C-14	○	○	○	○	○	○		○	○	○	○	○	10	10
C-15	○	○	○	○	○	○		○	○	○	○	○	10	10
C-16	○	○	○	○	○	○		○	○	○	○	○	10	10
C-17	○	○	○	○	○	○		○	○	○	○	○	10	10
C-18	○	○	○	○	○	○		○	○	○	○	○	10	10
C-19	○	○	○	○	○	○		○	○	○	○	○	10	10
C-20	○	○	○	○	○	○		○	○	○	○	○	10	10

Table 8 - 4 Mean and RMS values of typical signals in each measurement

Data No	Exp. Condition			Mean value (m), RMS value (σ), and their ratio (σ/m)											
	TTR	FPL-II		DND-1 (**)			DND-2 (**)			Capsule Outlet Temp.			TTR Power (PRM-1)		
	Power (kWt)	Flow Rate (l/min)	Temp. (°C)	m (CPS)	σ (CPS)	σ/m (%)	m (CPS)	σ (CPS)	σ/m (%)	m (°C)	σ (°C)	σ/m (%)	m (kWt)	σ (kWt)	σ/m (%)
C-1	100	4.94	500 300	25	1.00	4.0	1	0.21	21.1	513	1.29	0.25	100	0.115	0.12
C-4	100	1.95	530	2230	16.7	0.75	840	7.43	0.88	510	0.94	0.18	99.0	0.145	0.15
C-6	100	1.00	170	177	7.71	4.36	40	1.87	4.67	172	2.07	1.20	99.0	0.146	0.15
C-7	100	4.95	170	924	11.6	1.26	300	6.84	2.28	174	1.65	0.95	99.0	0.174	0.18
C-8	100	1.06	400	1548	15.0	0.97	447	7.48	1.67	393	0.84	0.21	99.0	0.151	0.15
C-9	0	1.07	400	0	-	-	0	-	-	397	-	-	0	-	-
C-10	100	4.98 50	500	2290 (initial v.) 3470	791	34.5	1090 (initial v.) 1460	318	29.2	493	3.13	0.63	99.0	0.151	0.15
C-11	100	4.99	270	2310	20.7	0.90	1040	10.3	0.99	270	1.63	0.60	99.0	0.125	0.13
C-12	100	1.04	300	1110	(10.1)	(0.91)	305	4.68	1.53	299	1.26	0.42	98.0	0.125	0.13
C-13	100	5.05 50	500	2230 (initial v.) 3400	401	18.0	828 (initial v.) 1400	173	20.9	484	3.24	0.67	96.9	0.146	0.15
C-14	100	5.04	500	3400	14.3	0.42	1500	9.54	0.64	500	0.86	0.17	98.0	0.132	0.13
C-15	100	5.04	500	3450	14.8	0.43	1580	10.1	0.64	500	0.95	0.19	98.7	0.124	0.13
C-16	100	5.08	420	3360	15.6	0.47	1540	10.8	0.70	418	1.02	0.24	98.8	0.129	0.13
C-17	100	4.96	270	2060	21.9	1.06	960	11.4	1.18	268	1.59	0.59	98.1	0.162	0.16
C-18	100	5.00 50	500	2300 (initial v.) 3400	431.	18.7	1070 (initial v.) 1560	191	17.9	499	3.84	0.77	97.5	0.156	0.16
C-19	100	5.00	500	3440	14.4	0.42	1580	9.78	0.62	495	0.93	0.19	97.8	0.157	0.16
C-20	100	1.04	500	1640	10.6	0.65	490	5.91	1.21	498	0.93	0.19	97.9	0.142	0.14

(*) RMS value of $1.30 \times 10^{-3} \sim 1.67 \times 10^{-1}$ (Hz) component

(**) Low-pass filters ($\tau=10s$) were used in analysis of C-6 ~ C-10 (See Table 8 - 3)

Table 8 - 5 (a) Normalized covariance matrix of innovation sequence of Data № C-01, produced by eight variables AR-model

$$\sigma^2 = \begin{pmatrix} 1.000 & & & & & & & & \\ -0.007 & 1.000 & & & & & & & \\ -0.017 & -0.023 & 1.000 & & & & & & \\ 0.030 & -0.006 & 0.050 & 1.000 & & & & & \\ 0.011 & -0.006 & -0.073 & 0.049 & 1.000 & & & & \\ -0.010 & -0.035 & -0.037 & 0.116 & 0.202 & 1.000 & & & \\ -0.035 & 0.001 & -0.050 & 0.114 & 0.280 & 0.297 & 1.000 & & \\ -0.018 & 0.014 & 0.017 & 0.025 & 0.014 & 0.013 & 0.028 & 1.000 & \end{pmatrix}$$

Var. name → (DND-1) (DND-2) ($\overset{\text{Flow}}{\text{rate}}$) (TE-12) (TE-14) (TE-16) (TE-21) (PRM-1)

Table 8 - 5 (b) Normalized covariance matrix of original data № C-01

$$\sigma^2 = \begin{pmatrix} 1.000 & & & & & & & & \\ -0.008 & 1.000 & & & & & & & \\ -0.019 & -0.030 & 1.000 & & & & & & \\ -0.008 & -0.015 & -0.042 & 1.000 & & & & & \\ -0.037 & -0.056 & 0.179 & 0.203 & 1.000 & & & & \\ 0.007 & -0.012 & 0.005 & \underline{0.673} & 0.097 & 1.000 & & & \\ 0.040 & -0.025 & -0.039 & 0.216 & -0.115 & 0.127 & 1.000 & & \\ -0.001 & 0.002 & -0.011 & -0.182 & 0.054 & -0.158 & -0.100 & 1.000 & \end{pmatrix}$$

Var. name → (DND-1) (DND-2) ($\overset{\text{Flow}}{\text{rate}}$) (TE-12) (TE-14) (TE-16) (TE-21) (PRM-1)

Table 8 - 6 (a) Normalized covariance matrix of innovation sequence of Data № C-07, produced by eight variables AR-model

$$\sigma^2 = \begin{pmatrix} 1.000 & & & & & & & & \\ -0.004 & 1.000 & & & & & & & \\ 0.019 & 0.019 & 1.000 & & & & & & \\ 0.010 & 0.006 & -0.129 & 1.000 & & & & & \\ 0.021 & 0.012 & -0.063 & 0.232 & 1.000 & & & & \\ 0.037 & 0.023 & -0.024 & 0.291 & \underline{0.755} & 1.000 & & & \\ 0.028 & 0.034 & 0.002 & \underline{0.362} & \underline{0.389} & \underline{0.494} & 1.000 & & \\ 0.020 & -0.001 & -0.023 & -0.005 & 0.022 & 0.017 & -0.023 & 1.000 \end{pmatrix} \quad (\sigma_{ij} = \sigma_{ji})$$

Var. name → (DND-1) (DND-2) (F_{rate}^{low}) (TE-12) (TE-14) (TE-16) (TE-21) (PRM-1)

Table 8 - 6 (b) Normalized covariance matrix of original data № C-07

$$\sigma^2 = \begin{pmatrix} 1.000 & & & & & & & & \\ 0.684 & 1.000 & & & & & & & \\ 0.335 & 0.307 & 1.000 & & & & & & \\ 0.297 & 0.373 & 0.073 & 1.000 & & & & & \\ 0.343 & 0.432 & 0.086 & 0.983 & 1.000 & & & & \\ 0.324 & 0.485 & 0.194 & 0.864 & 0.874 & 1.000 & & & \\ -0.024 & -0.053 & 0.109 & 0.253 & 0.240 & 0.483 & 1.000 & & \\ 0.359 & 0.343 & 0.097 & -0.300 & -0.280 & -0.217 & -0.296 & 1.000 \end{pmatrix}$$

Var. Name → (DND-1) (DND-2) (F_{rate}^{low}) (TE-12) (TE-14) (TE-16) (TE-21) (PRM-1)

Table 8 - 7 Normalized covariance matrix of innovation sequence of Data № C-07, produced by four variables AR-modle

$$\sigma^2 = \begin{pmatrix} 1.000 & & & \\ 0.008 & 1.000 & & \\ 0.057 & 0.004 & 1.000 & \\ 0.019 & -0.008 & 0.019 & 1.000 \end{pmatrix}$$

Var. name → (DND-1) (DND-2) (TE-14) (PRM-1)

Table 8 - 8 Associate matrix of four variables AR-model

$$r = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 1 & 1 \\ 1 & 1 & 1 & 1 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}$$

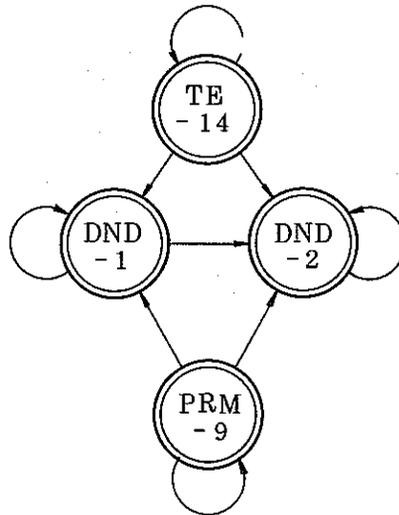


Table 8 - 9 Integrated noise power contribution ratio to DN signals in Data № C-07.

Temp. ²⁾ Signal	Contribution ratio to DND-1 and DND-2 ¹⁾ from			
	DND-1	DND-2	Temp ²⁾	PRM-1
TE-12	0.866	0.	0.109	0.025
	0.044	0.772	0.177	0.007
TE-14	0.850	0.	0.125	0.025
	0.034	0.746	0.213	0.006
TE-16	0.883	0.	0.090	0.026
	0.051	0.780	0.162	0.007
TE-21	0.884	0.	0.091	0.025
	0.155	0.722	0.112	0.011
TE-22	0.883	0.	0.089	0.028
	0.134	0.709	0.146	0.011

- note 1. Contribution rates to DND-1 (upper) and DND-2 (lower)
 2. Various Temperature signals were used in AR modeling of four variables [DND-1, DND-2, Temp., PRM-1]
 3. Association matrix used in these analysis is shown in Table 8 - 8

Table 8 - 10 Decomposed variances of DND-1 and DND-2 to each noise source contribution.

Date No	Exp. Condition		Variance of DND-1 (CPS ²)				Variance of DND-2 (CPS ²)				
	Flow Rate (ℓ/min)	Temp. (°C)	Contribution from (*)			Total	Contribution from (*)				Total
			DND-1	Capsule Outlet Temp.	TTR Power (PRM-1)		DND-1	DND-2	Capsule Outlet Temp.	TTR Power (PRM-1)	
C-1	Plug bypassed (4.94)	500 300	1.0 (99.7)	0 (0.3)	0 (0)	1.0	0 (0)	0.04 (99.6)	0 (0.1)	0 (0.2)	0.04
C-4	1.95	530	246.5 (88.9)	3.3 (1.2)	27.5 (9.9)	277.2	0.2 (0.4)	53.8 (97.6)	1.0 (1.8)	0 (0)	55.1
C-6	1.00	170	16.4 (27.6)	42.8 (71.9)	0.3 (0.5)	59.5	0.1 (1.7)	2.8 (81.5)	0.6 (16.5)	0 (0.3)	3.5
C-7	4.95	170	86.4 (64.2)	46.5 (34.6)	1.7 (1.2)	134.6	3.8 (8.2)	17.7 (37.8)	24.0 (51.5)	1.2 (2.6)	46.7
C-8	1.06	400	220.2 (97.9)	3.6 (1.6)	1.2 (0.5)	224.9	1.2 (2.1)	54.1 (96.9)	0.3 (0.5)	0.3 (0.5)	55.9
C-11	4.99	270	264.0 (61.6)	159.3 (37.2)	5.4 (1.3)	428.6	16.9 (16.1)	63.6 (60.6)	24.3 (23.1)	0.3 (0.3)	105.0
C-12	1.04	300	54.1 (52.7)	47.3 (46.0)	1.3 (1.3)	102.8	0.6 (2.6)	16.5 (75.6)	4.4 (20.1)	0.4 (1.8)	21.9
C-14	5.04	500	199.8 (97.4)	3.5 (1.7)	1.9 (0.9)	205.2	1.4 (1.5)	84.7 (93.0)	2.1 (2.3)	2.8 (3.1)	91.0
C-15	5.04	500	197.4 (89.8)	20.0 (9.1)	2.6 (1.2)	220.0	4.7 (4.6)	95.9 (95.0)	0.2 (0.2)	0.2 (0.2)	101.0
C-16	5.08	420	236.6 (96.8)	5.6 (2.3)	2.3 (0.9)	244.5	2.14 (18.4)	93.9 (80.6)	0.8 (0.7)	0.3 (0.3)	116.4
C-17	4.96	270	284.9 (59.7)	180.3 (37.8)	12.4 (2.6)	477.6	34.9 (27.1)	60.7 (47.0)	31.1 (24.1)	2.4 (1.9)	129.1
C-19	5.00	500	202.1 (96.9)	5.1 (2.5)	1.3 (0.6)	208.5	1.9 (2.0)	92.3 (97.1)	0.9 (0.9)	0.0 (0.0)	95.7
C-20	1.04	500	103.9 (92.6)	8.3 (7.4)	0.1 (0.1)	112.3	2.9 (8.3)	29.8 (85.3)	2.1 (6.1)	0.1 (0.3)	34.9

(*) Contribution rate (%) in parentheses

(**) Low-pass-filters ($\tau=10s$) were used in analysis of C-6~10

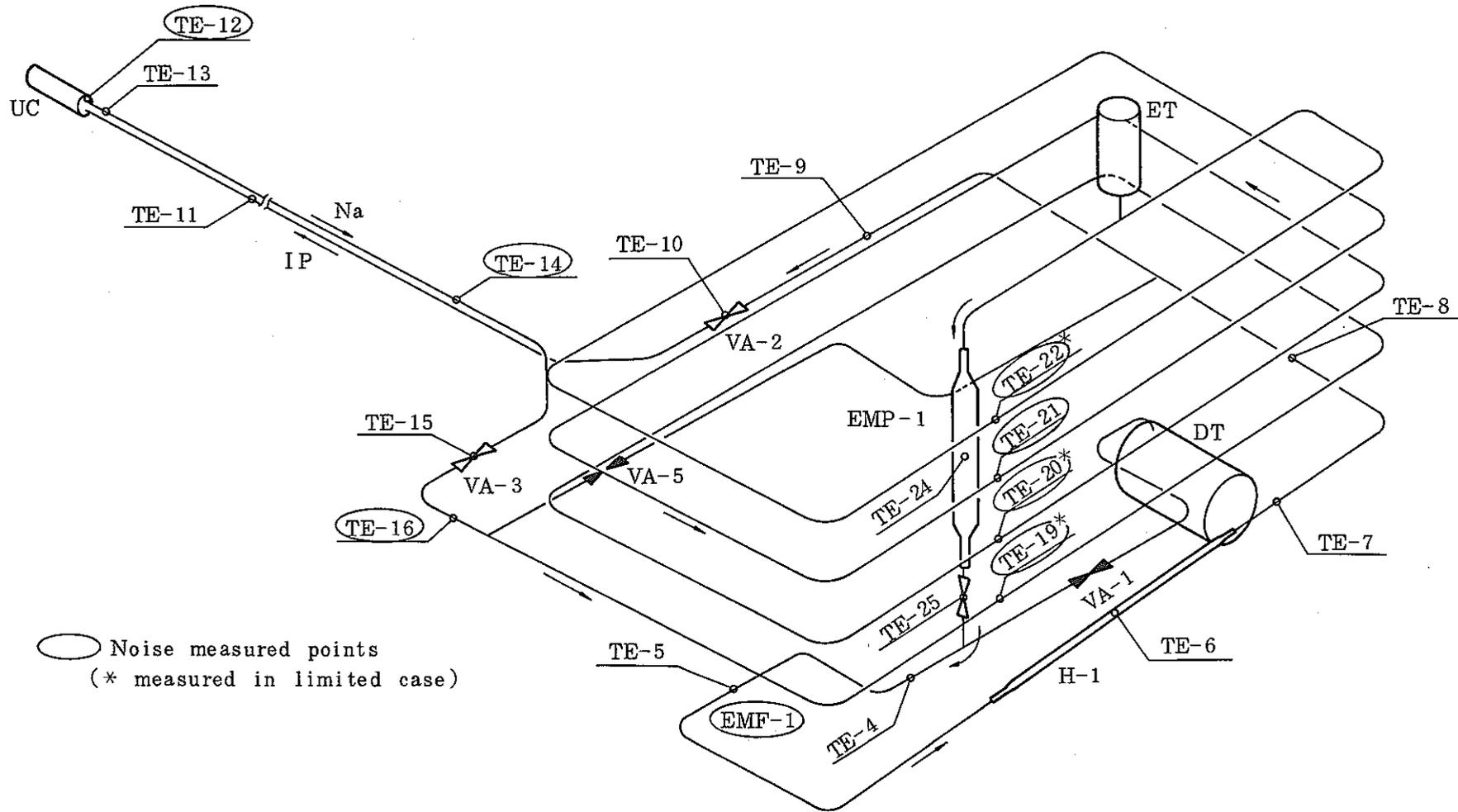


Fig 8 - 1 Thermocouples position at FPL-II experimental loop

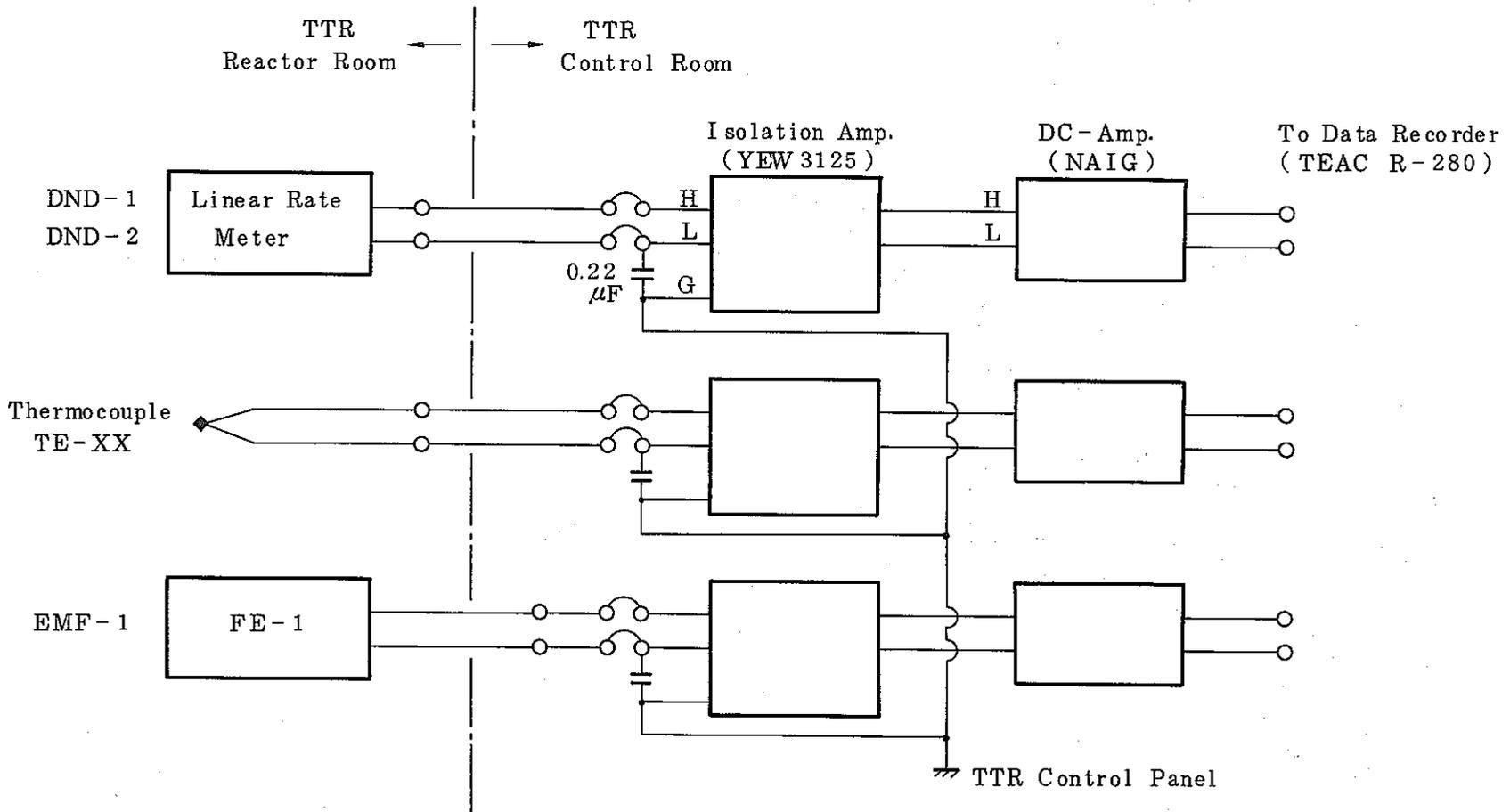


Fig 8 - 2 Block diagram of noise recording system on FPL-II signals

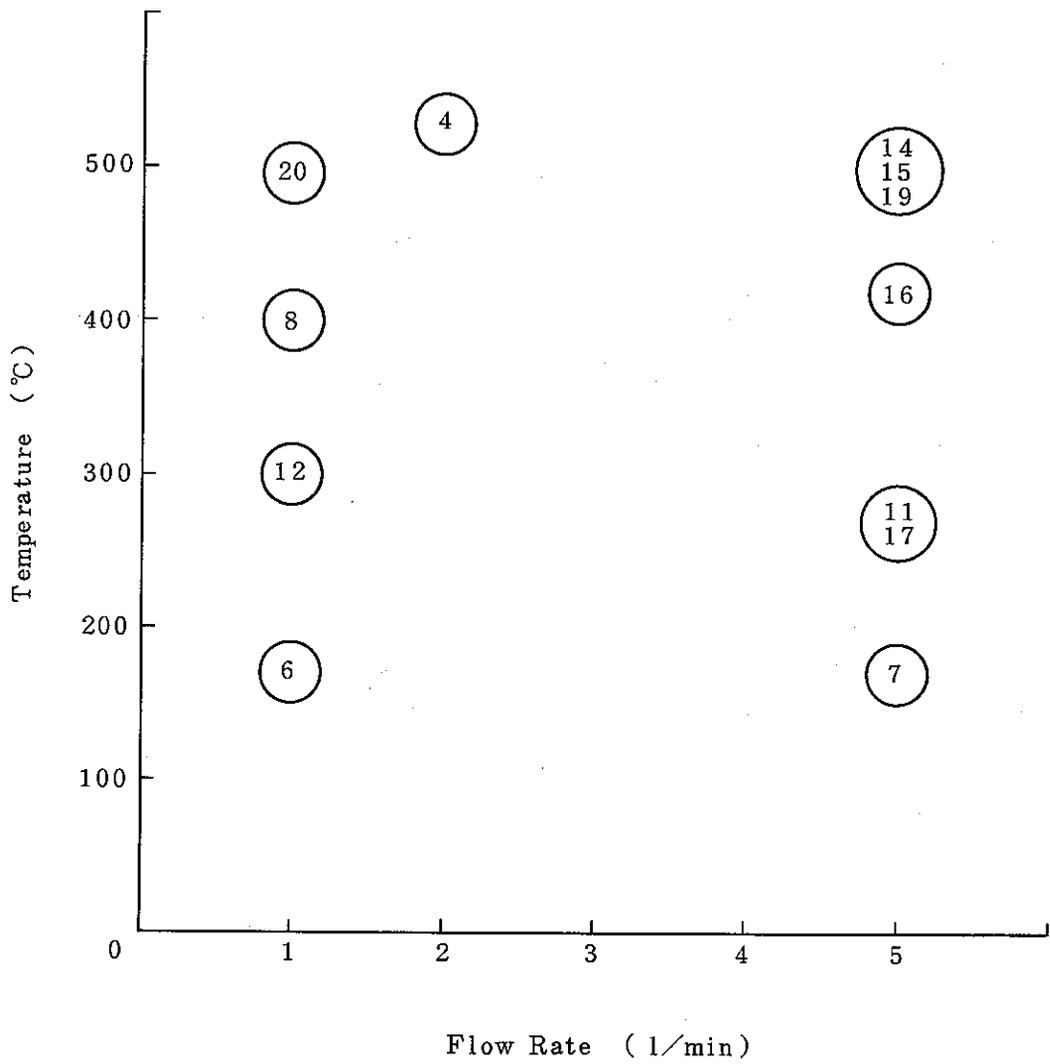


Fig 8 - 3 Noise data N_s obtained under stationary operating conditions (TTR : 100kW_t)

Fig 8 - 4 (a) FPL-II NOISE DATA NO. C-01 ()
 PLANT FPL2 CYCLE 400DEG POWER 100.(%) FLOW 100.(%)
 DELTAT 4.000 (S) LENGTH 10000. (S)

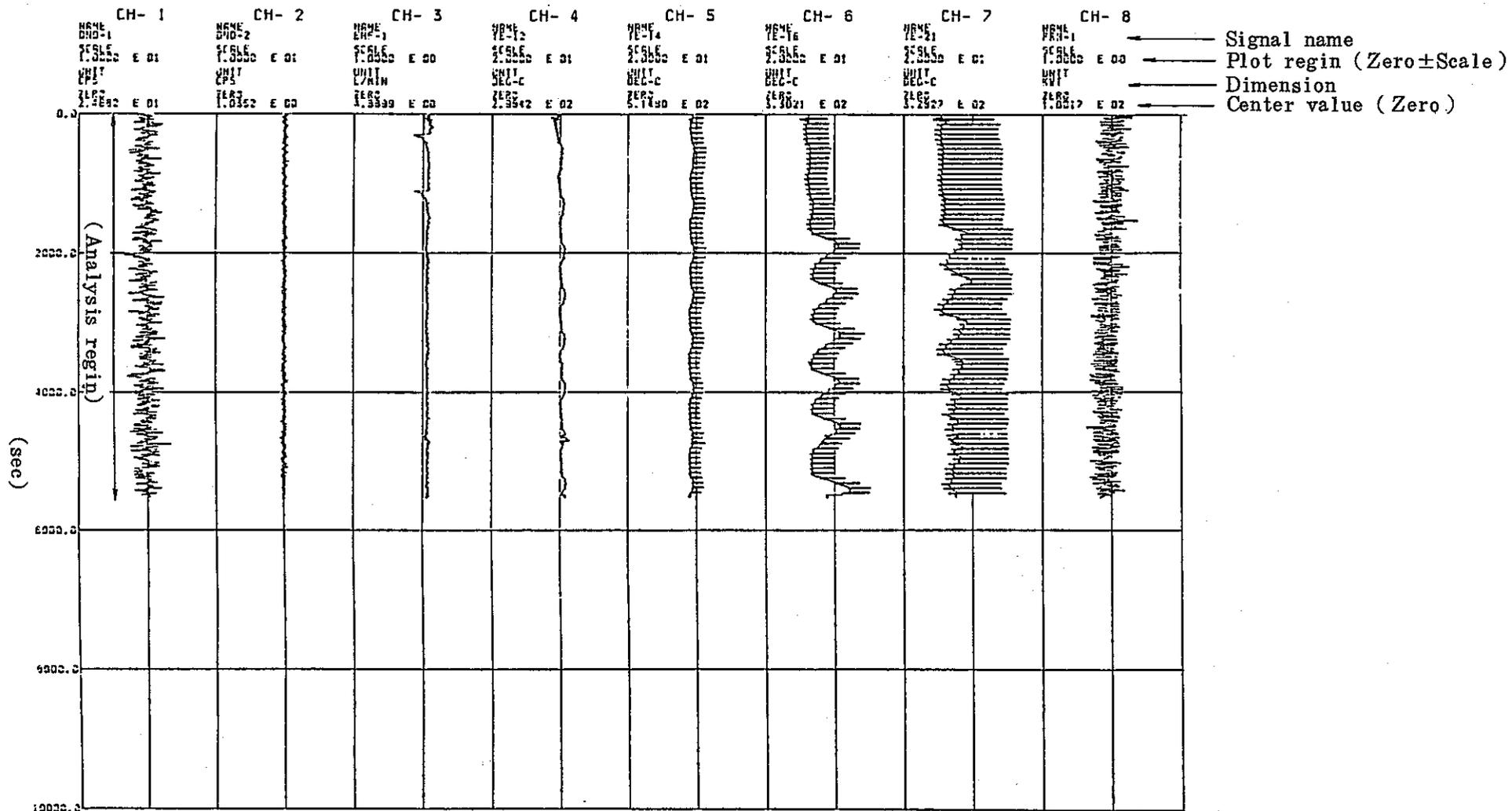


Fig 8 - 4 (b) FPL-II NOISE DATA NO. C-07 ()

PLANT FPL2 CYCLE 170DEG POWER 100.(%) FLOW 100.(%)
 DELTAT 4.000 (S) LENGTH 10000. (S)

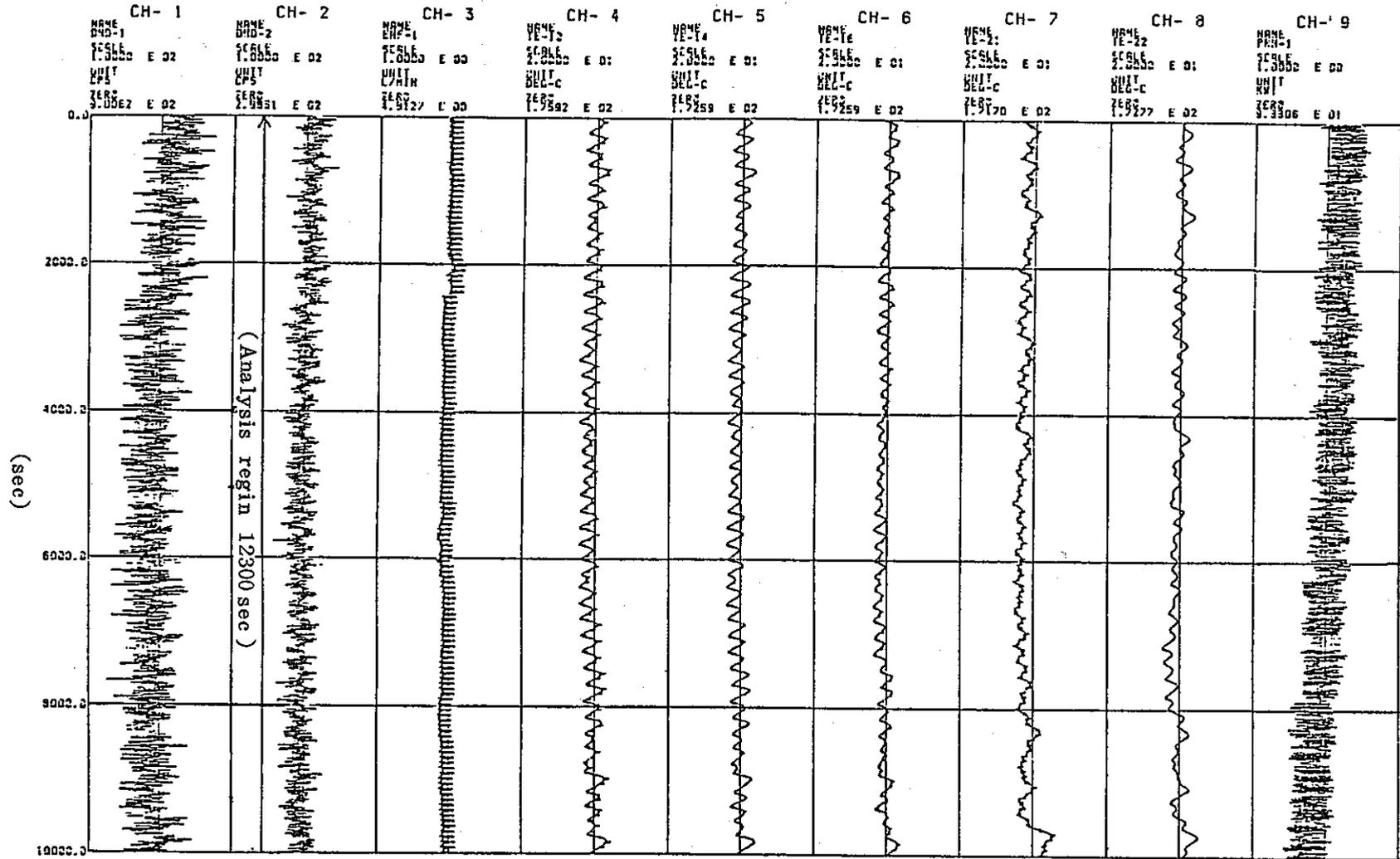
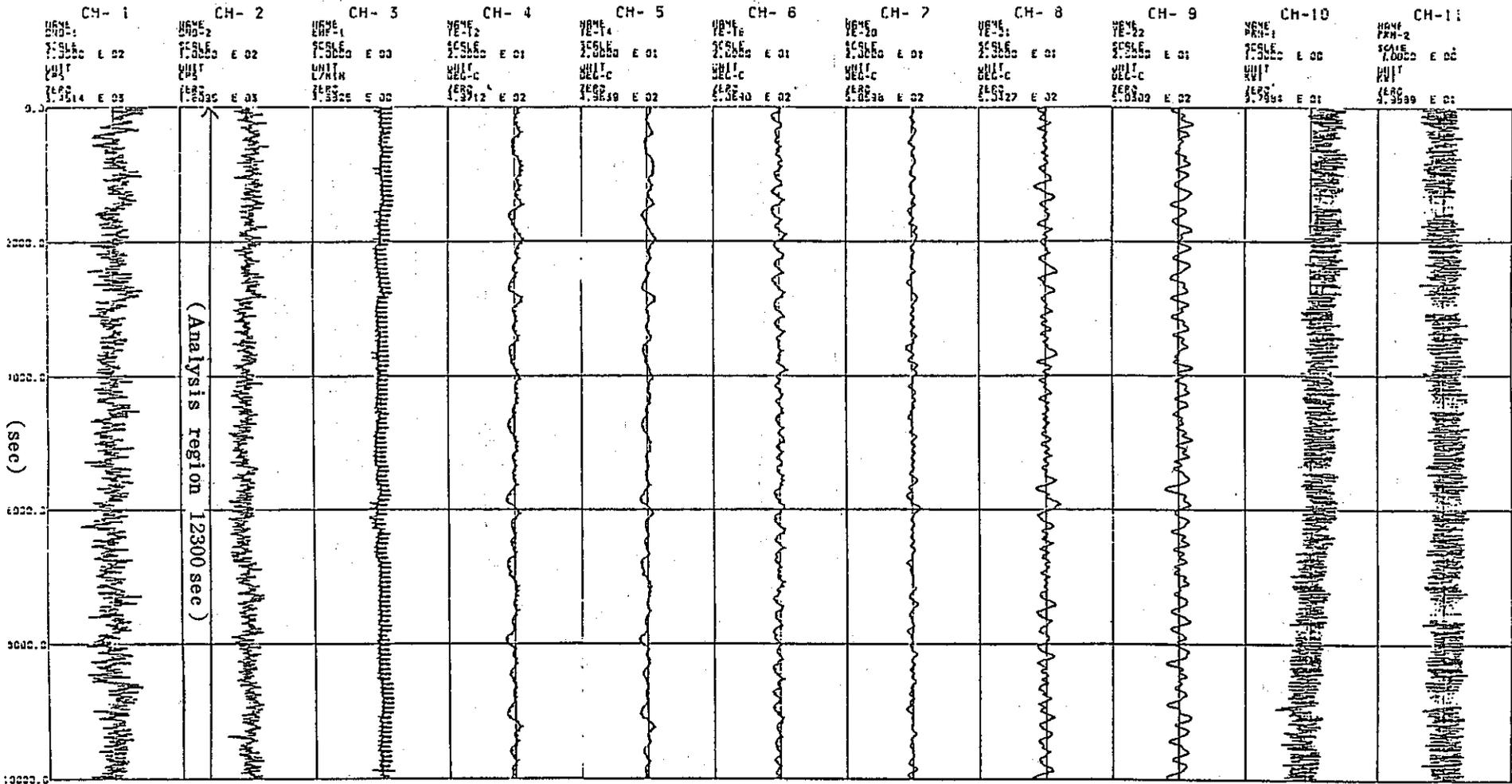


Fig 8 - 4 (c) FPL-II NOISE DATA NO. C-19 ()

PLANT FPL2 CYCLE 500SEC POWER 100. (X) FLOW 100. (X)
 DELTAT 4.000 (S) LENGTH 10000. (S)



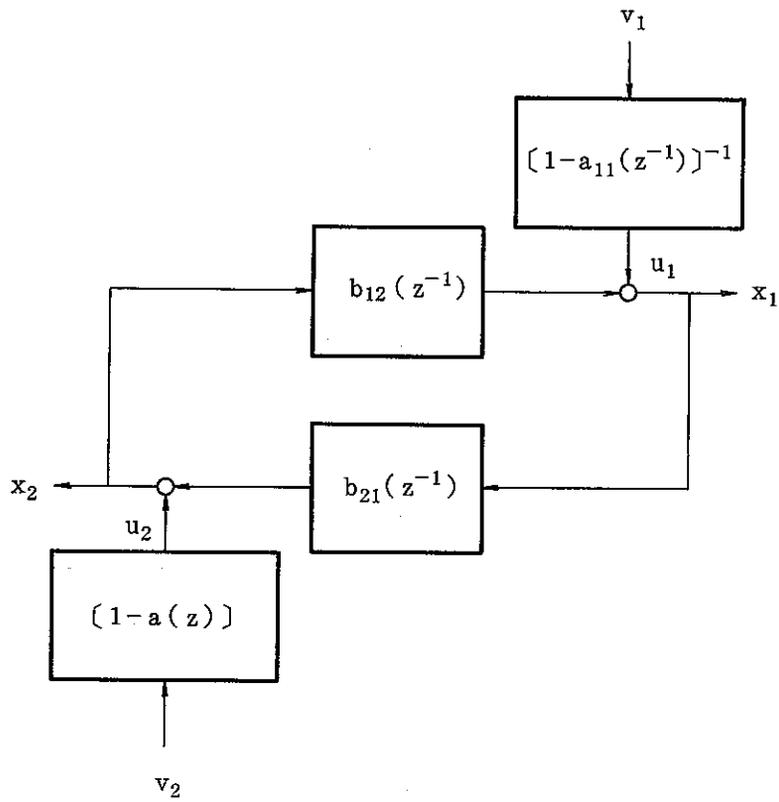


Fig 8 - 5 An example of feedback system with noise sources

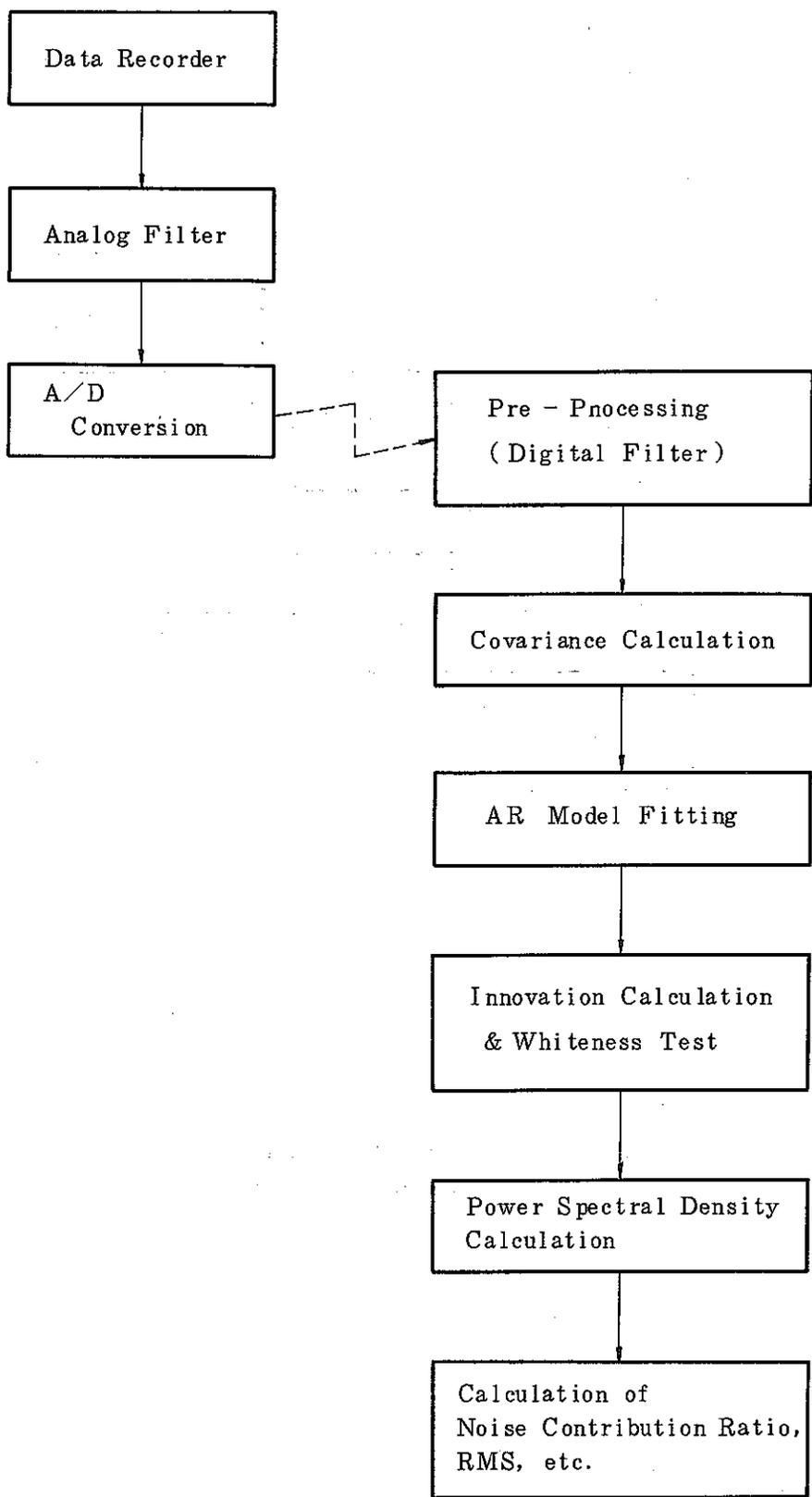
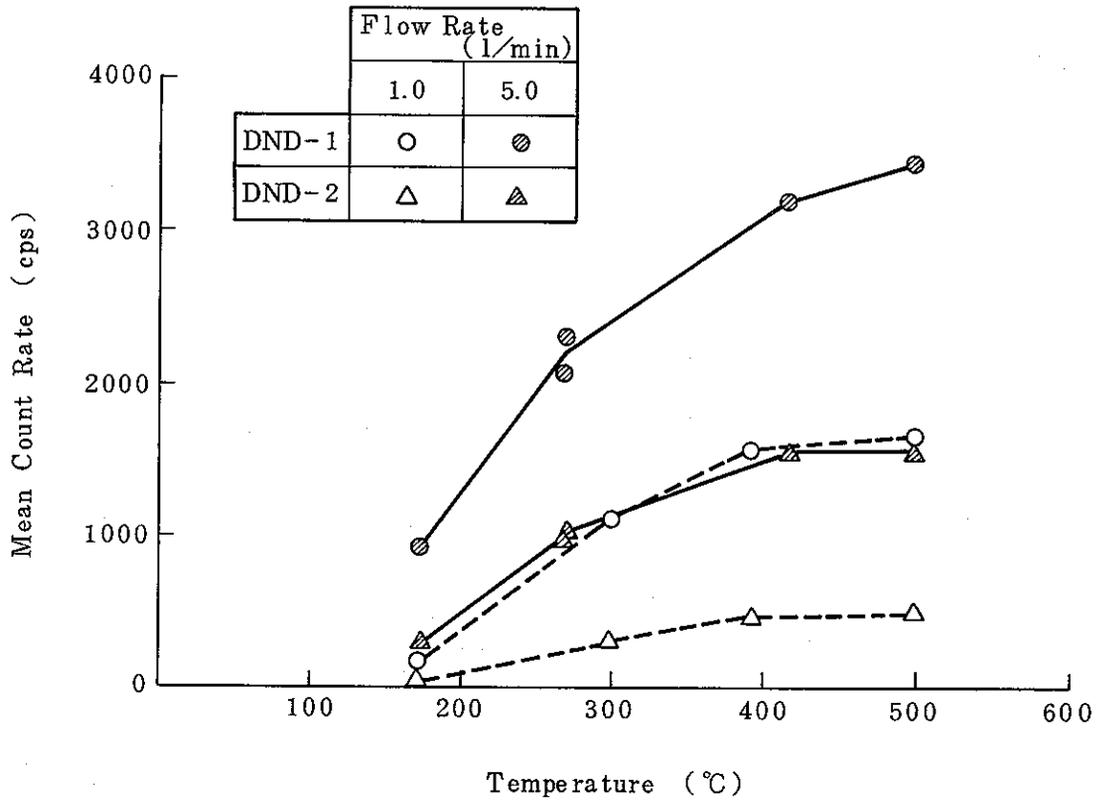
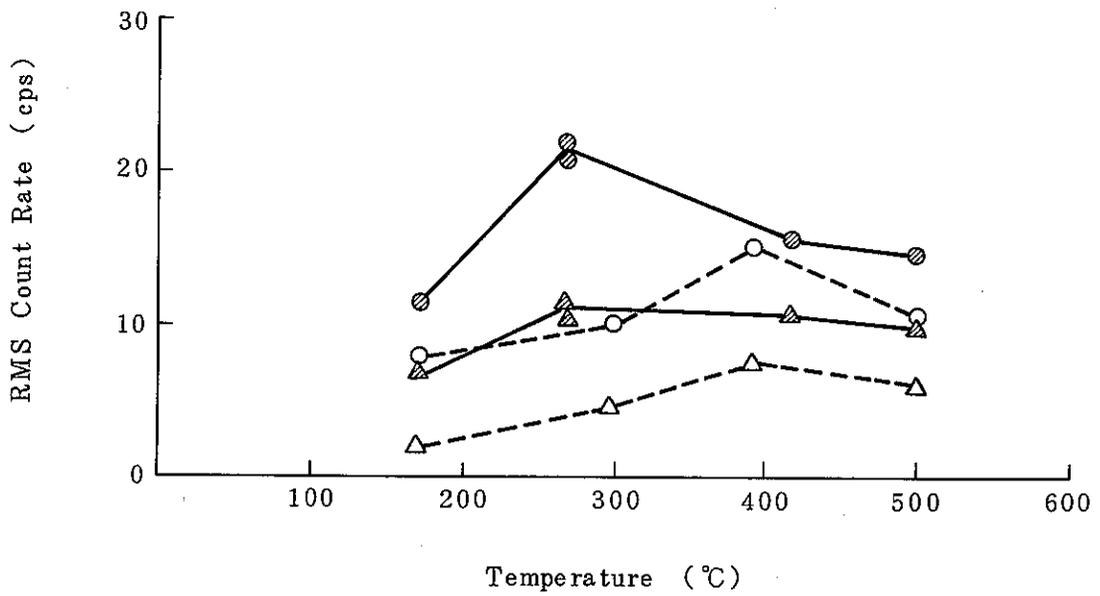


Fig 8 - 6 Flow diagram of AR analysis

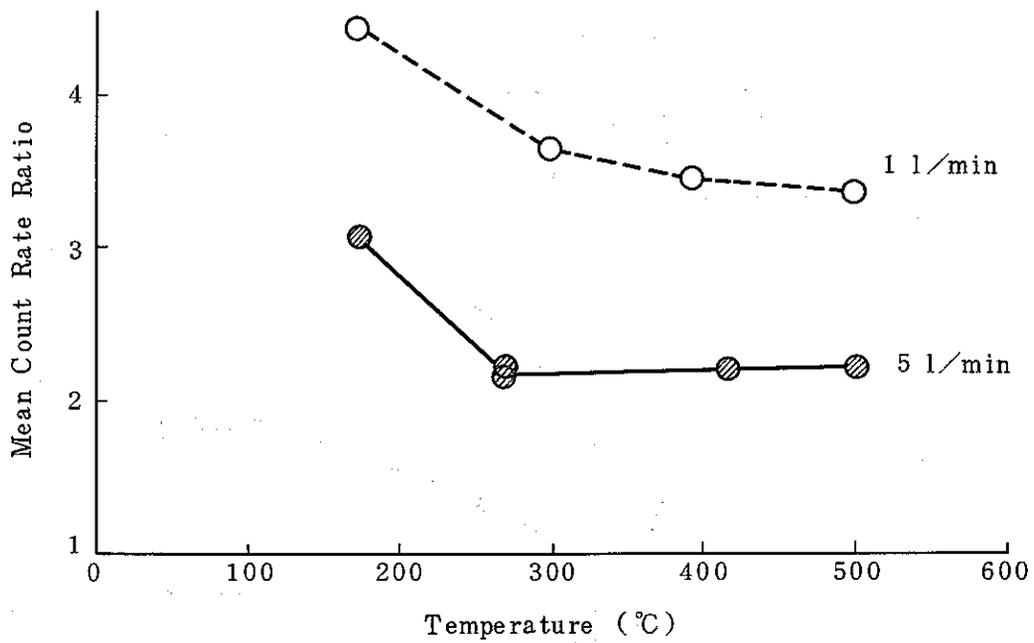


(a) Mean Value

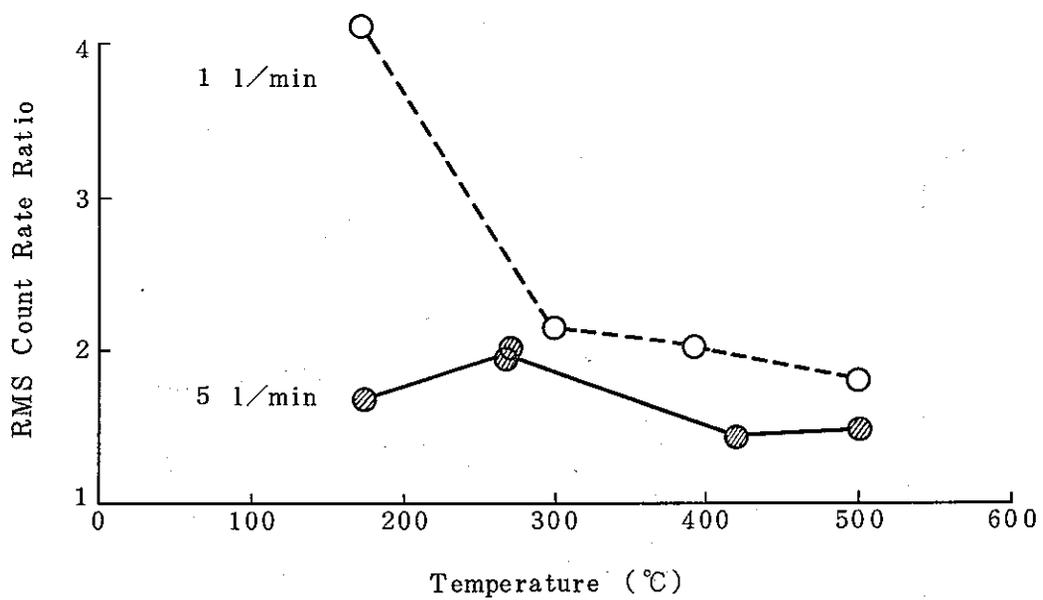


(b) RMS Value

Fig 8 - 7 Temperature dependence of mean and RMS values of DN count rates

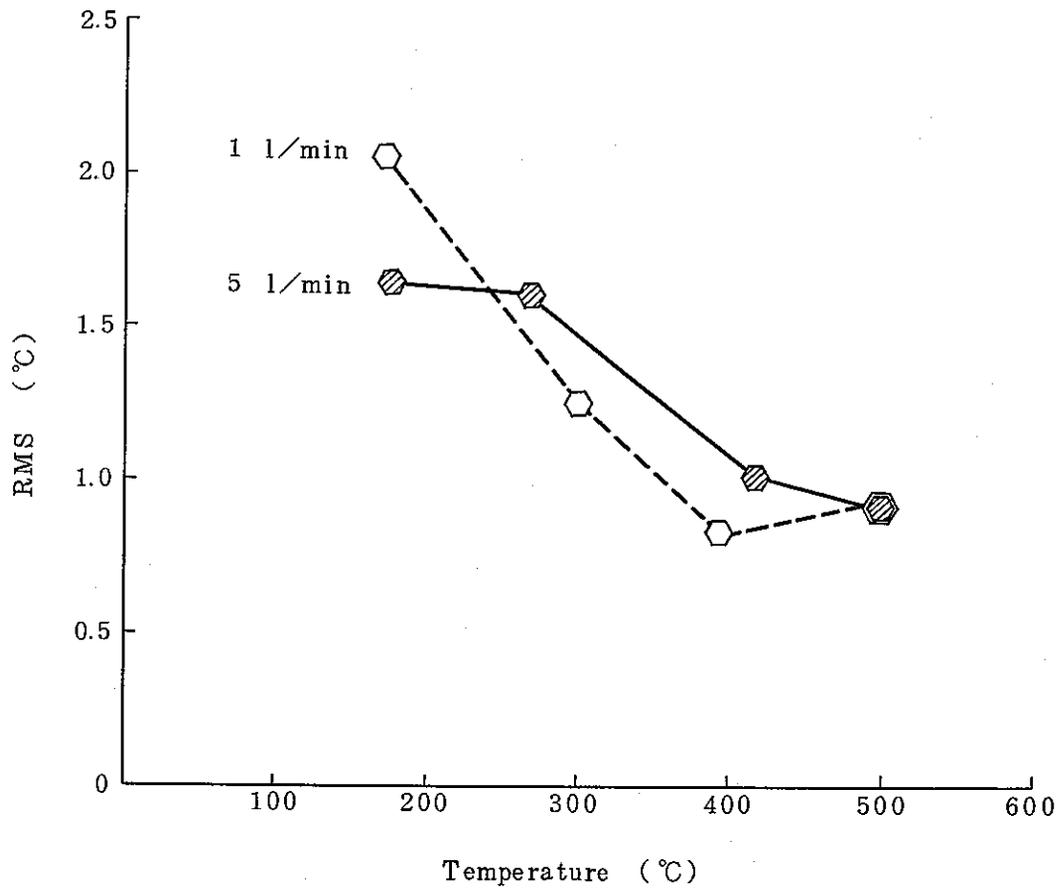


(a) Mean Value

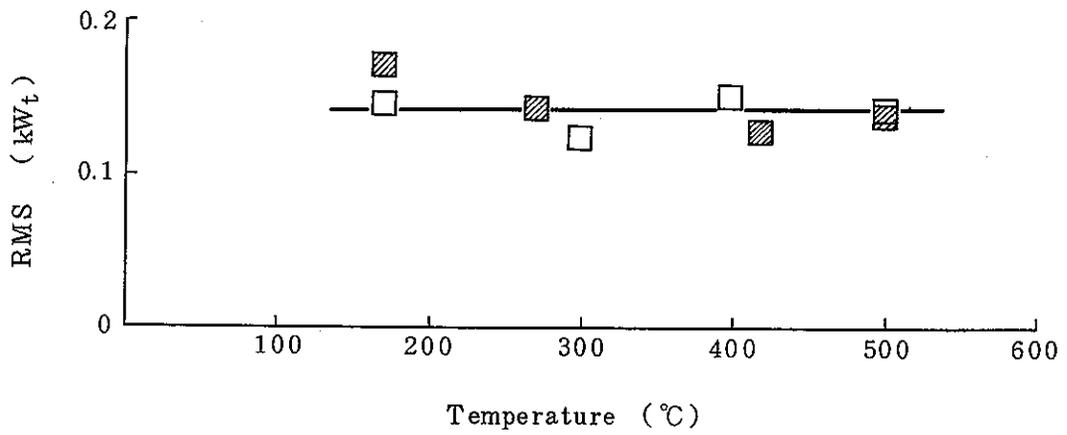


(b) RMS Value

Fig 8 - 8 Temperature dependence of mean count rate ratio and RMS count rate ratio of DND-1 and DND-2



(a) TE-14



(b) PRM-1

Fig 8 - 9 RMS values of TE-14 and PRM-1

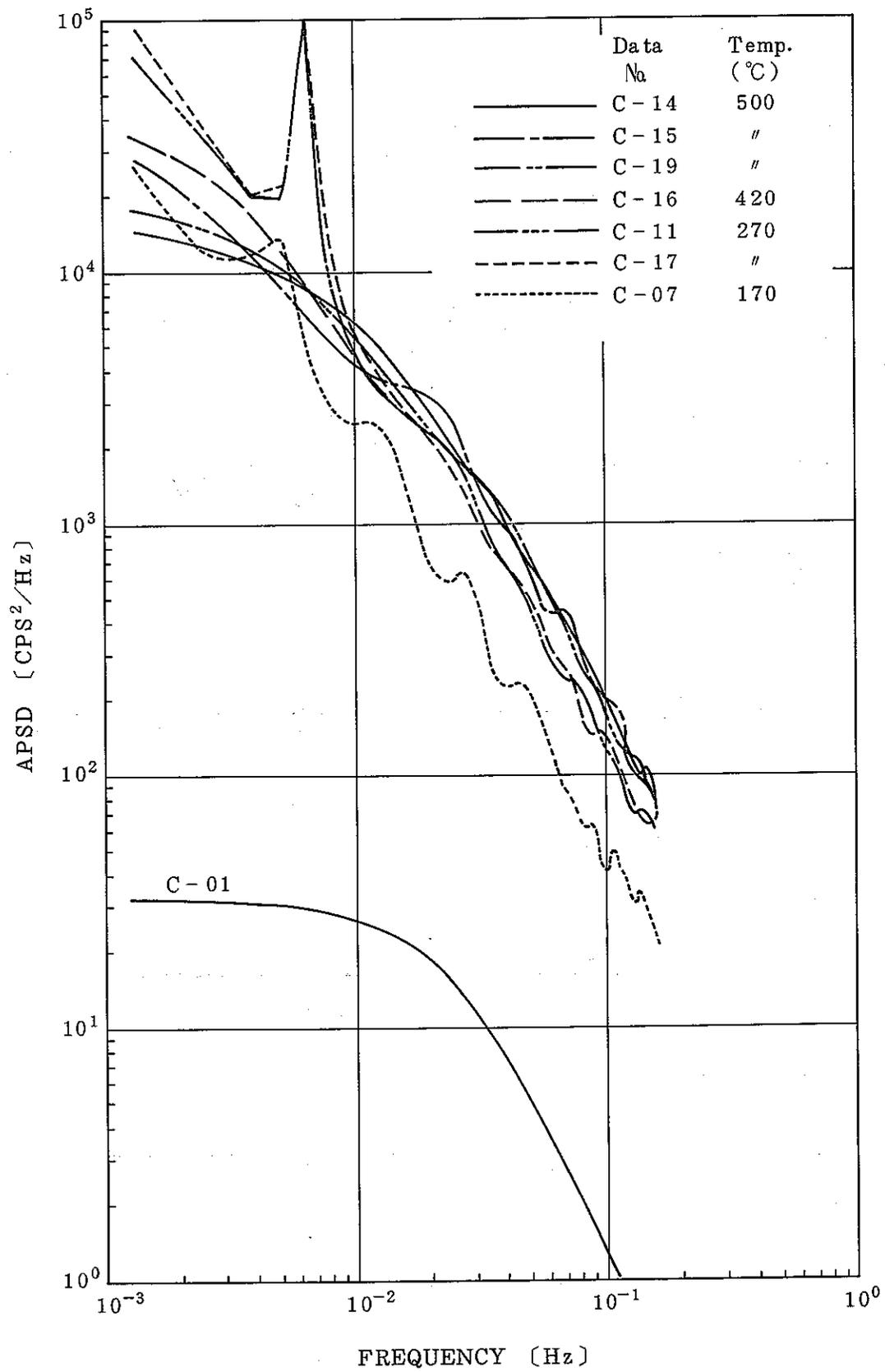


Fig 8 - 10 APSDs of DND-1 : Flow rate = 5 l/min

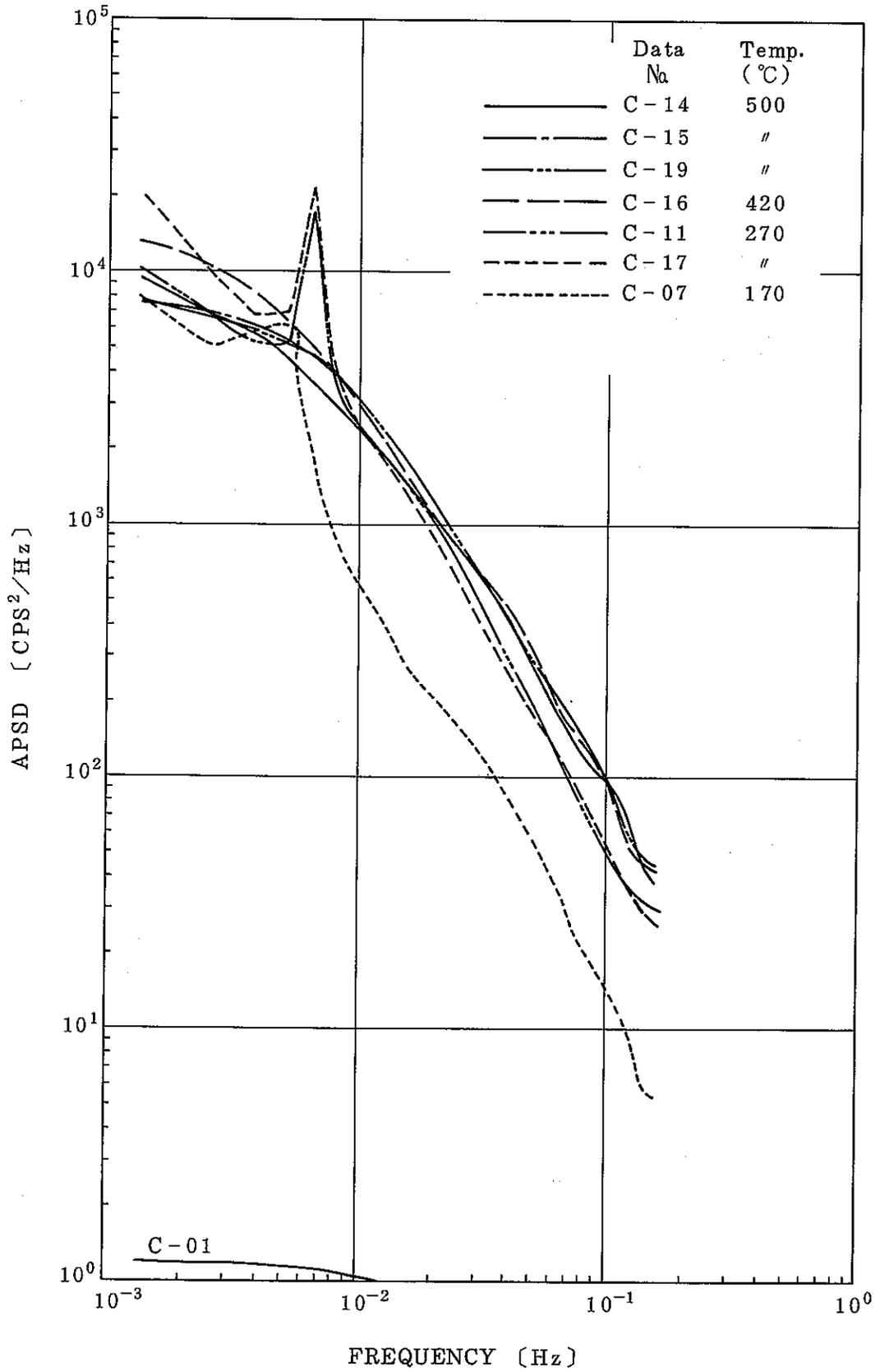


Fig 8 - 11 APSDs of DND-2 : Flow rate = 5 l/min

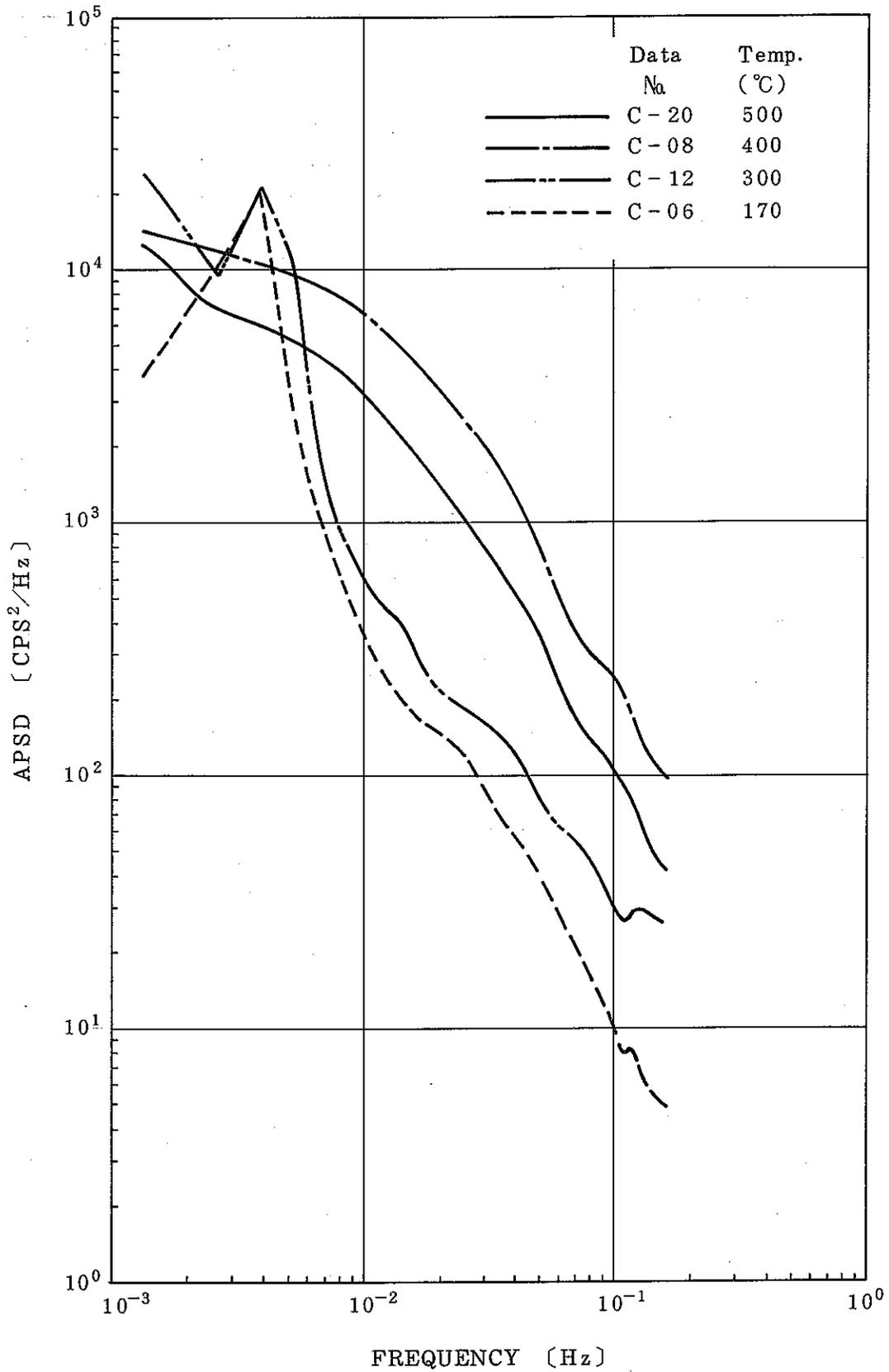


Fig 8 - 12 APSDs of DND-1 : Flow rate = 1 l/min

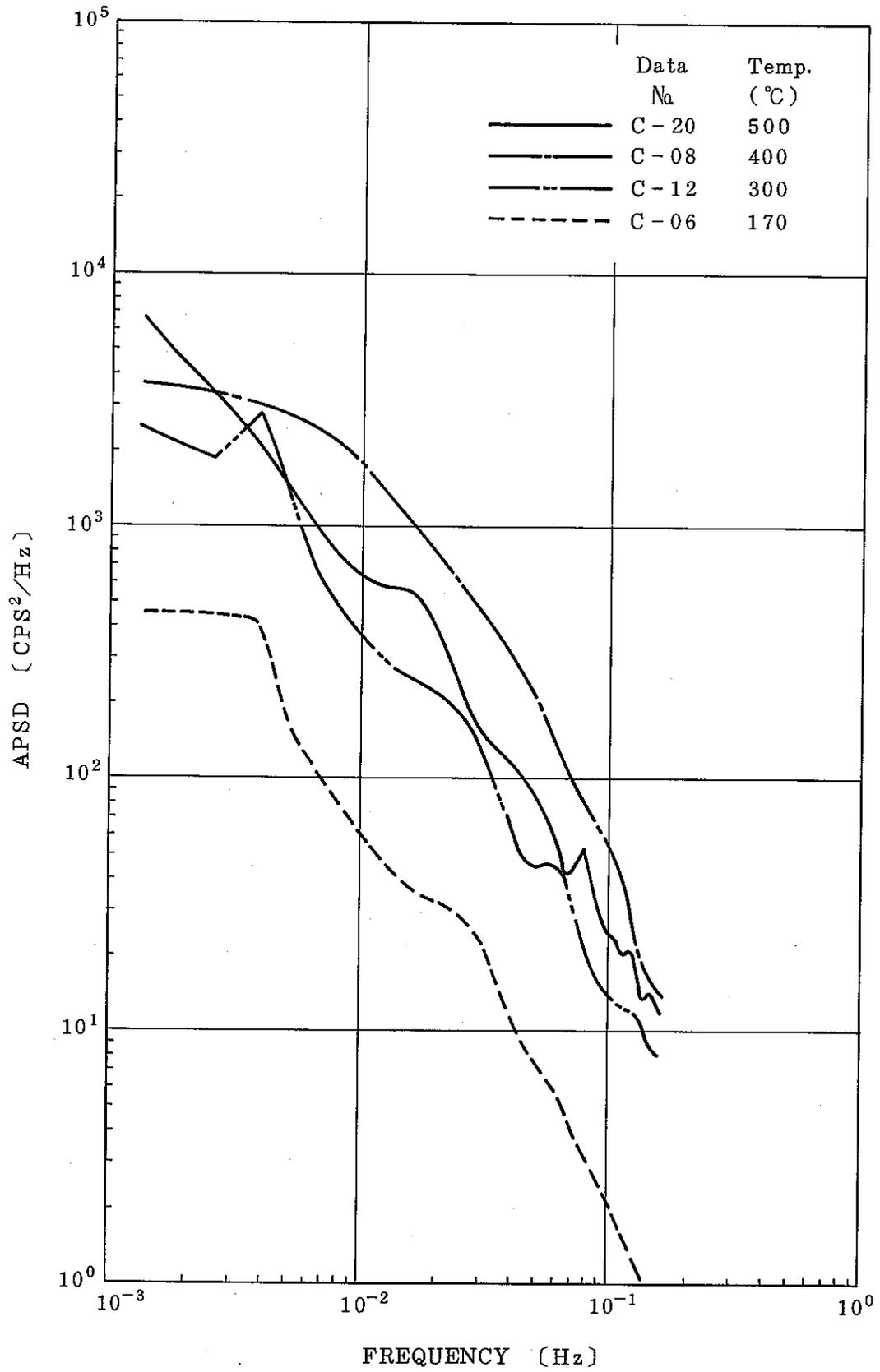


Fig 8 - 13 APSDs of DND-2 : Flow rate = 1 l/min

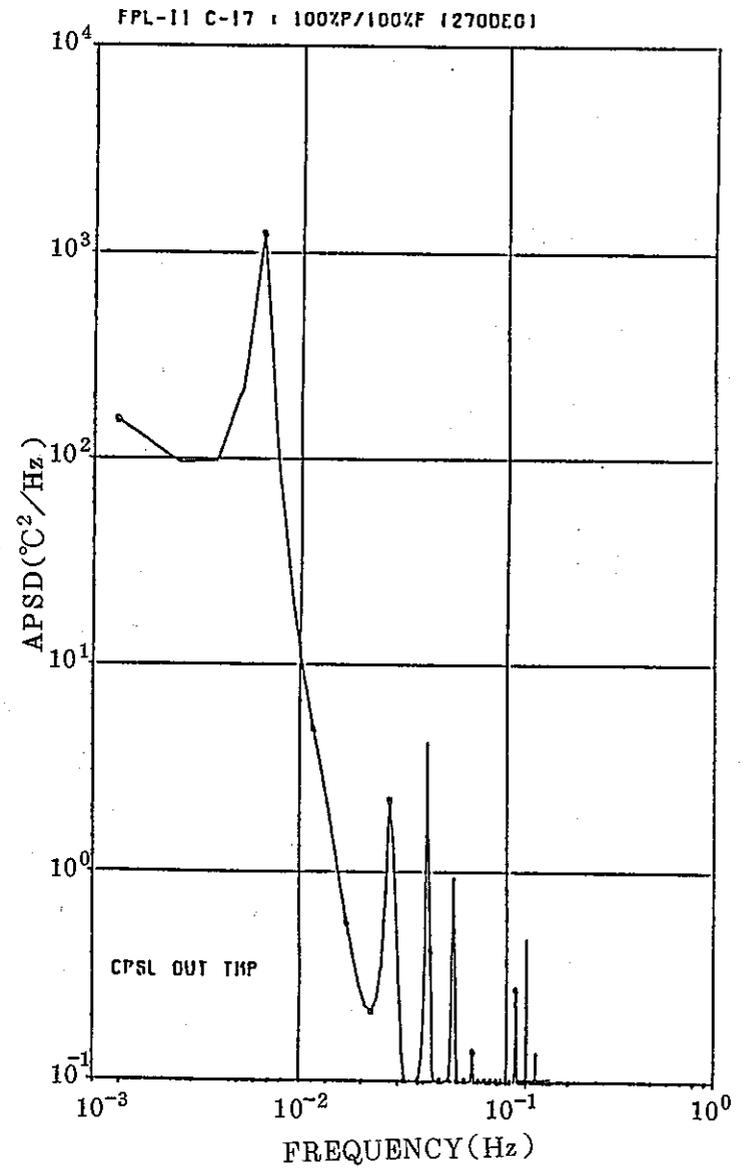
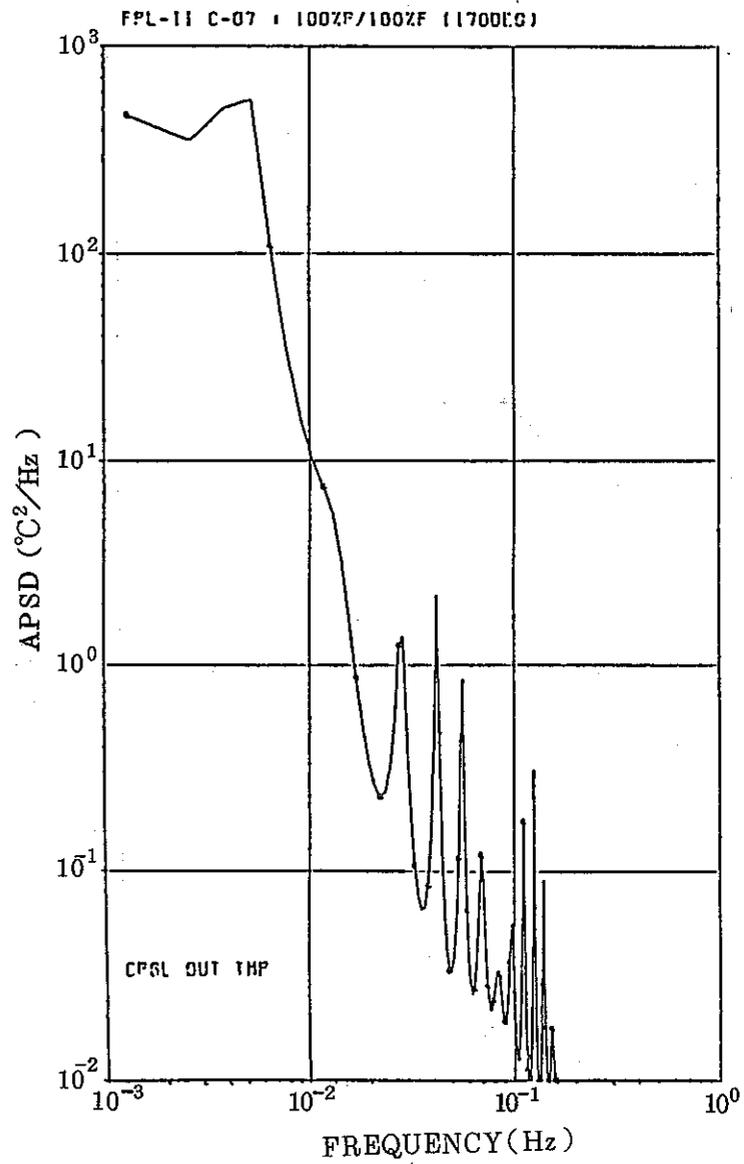


Fig 8 - 14 APSDs of TE-14 in Data No. C-07 and C-17

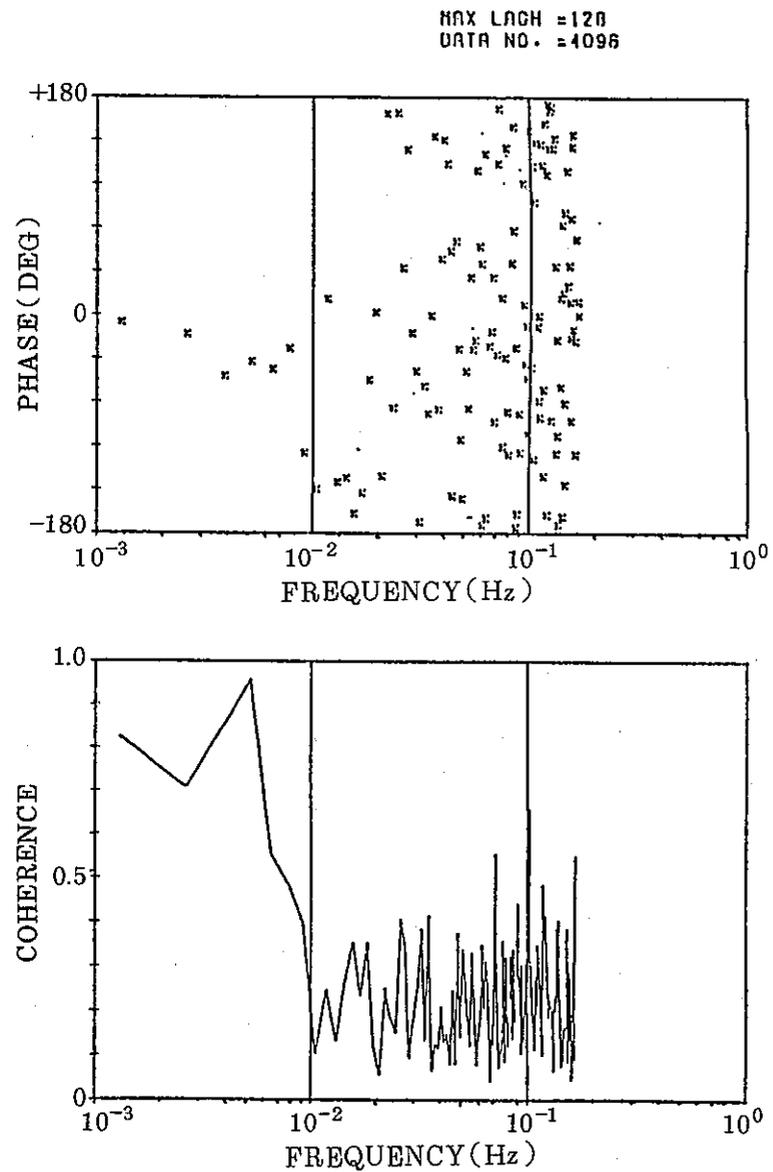
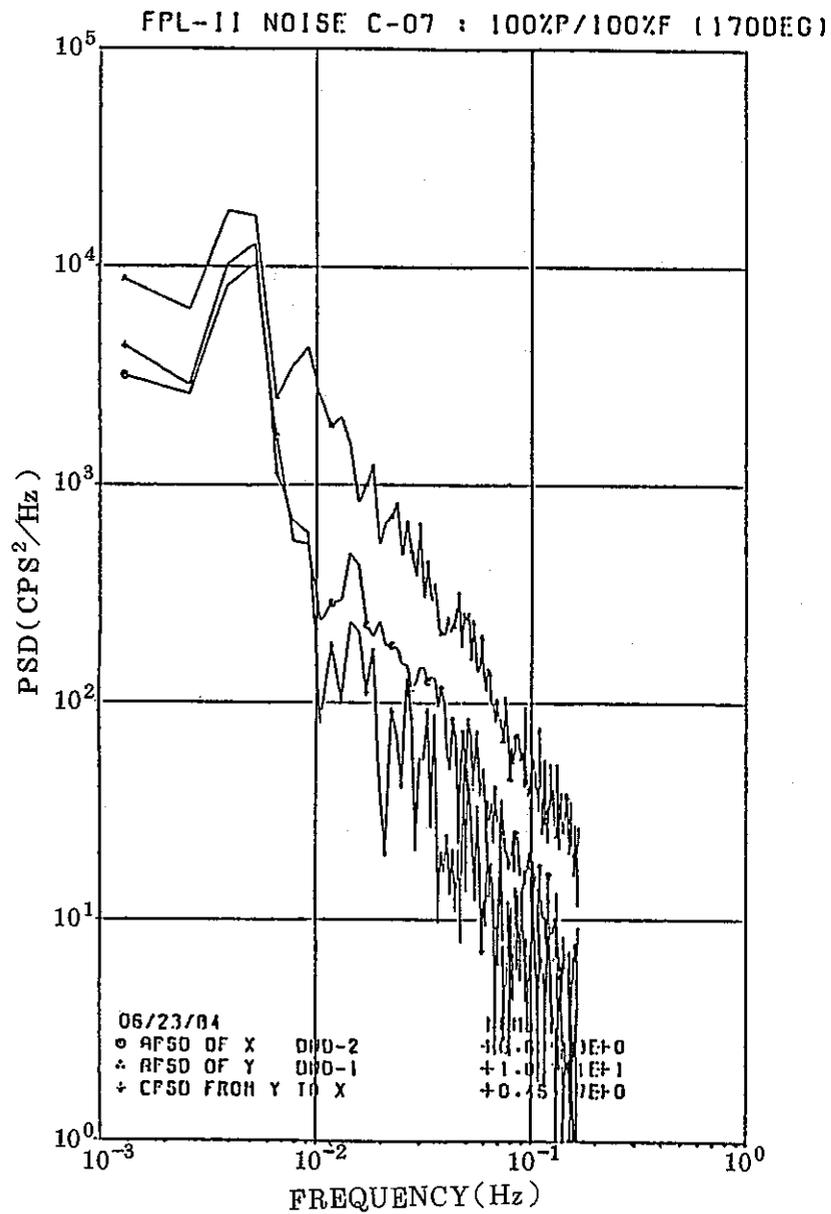


Fig 8 - 15 (a) Coherence of DND-1 and DND-2 of Data No C-07.
 (by FFT method)

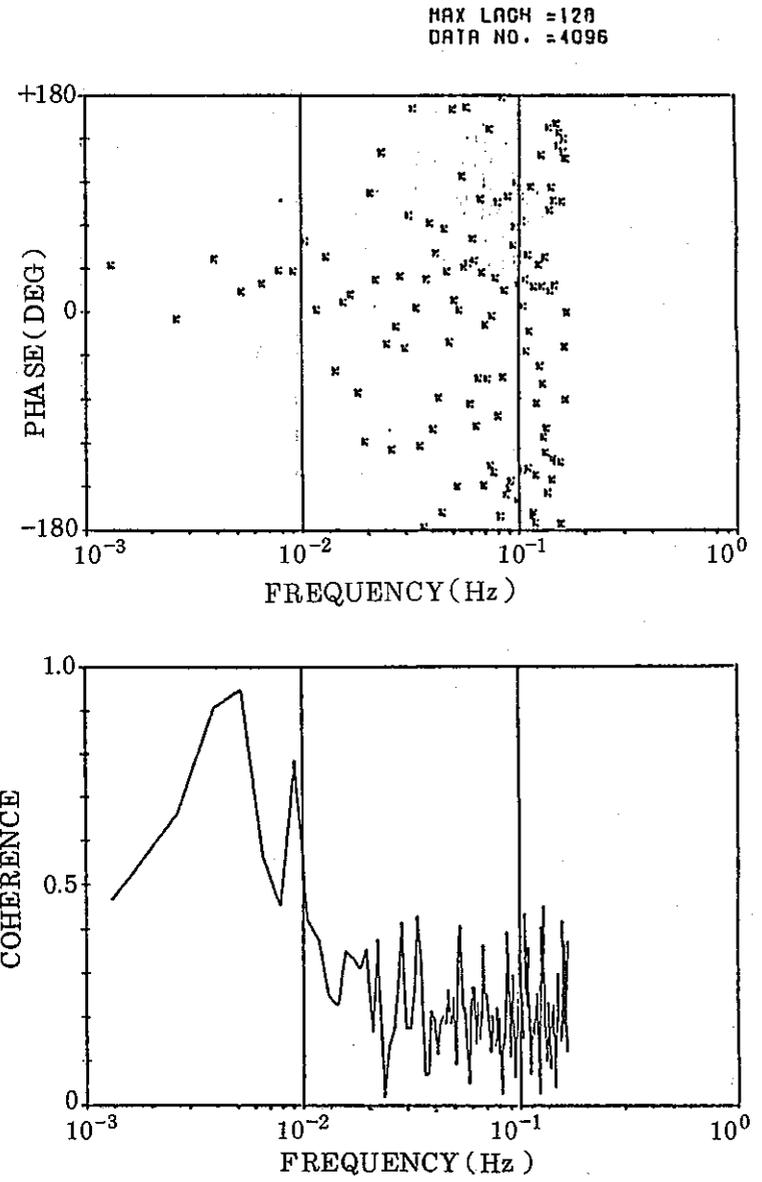
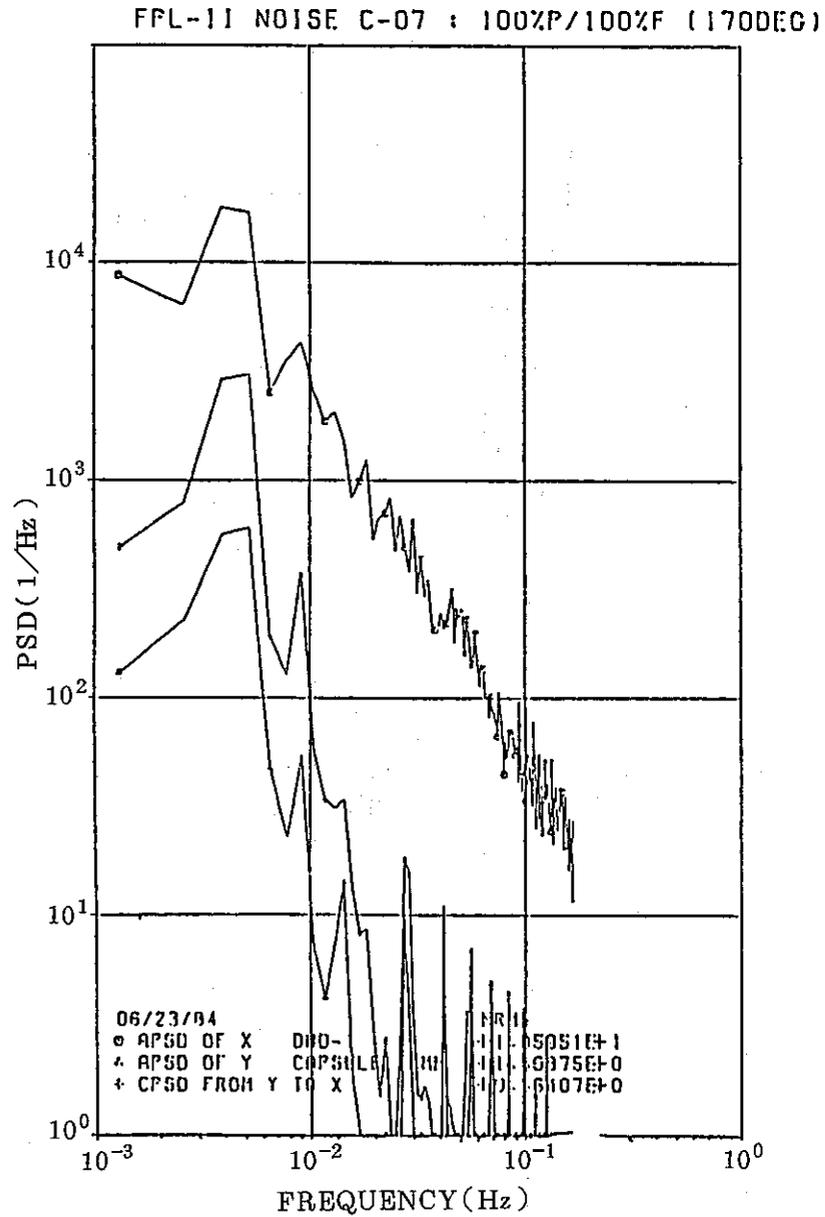


Fig 8 - 15 (b) Coherence of DND-1 and TE-12 of Data No C-07.

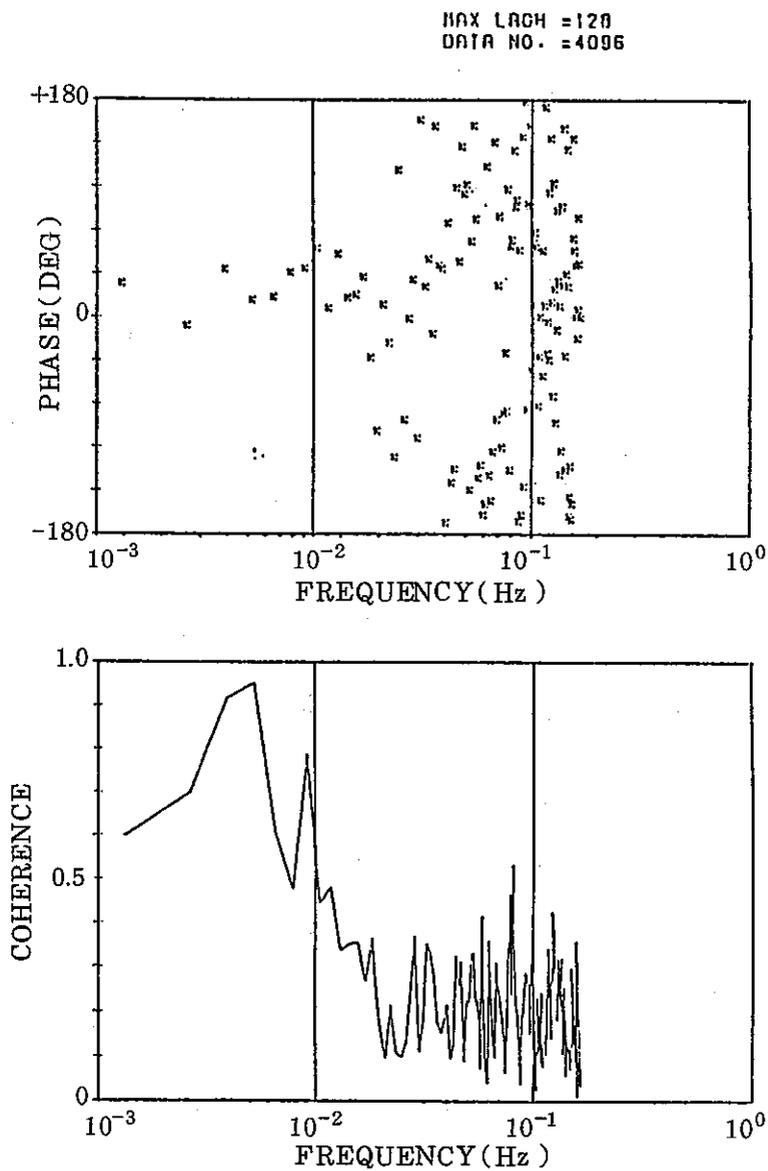
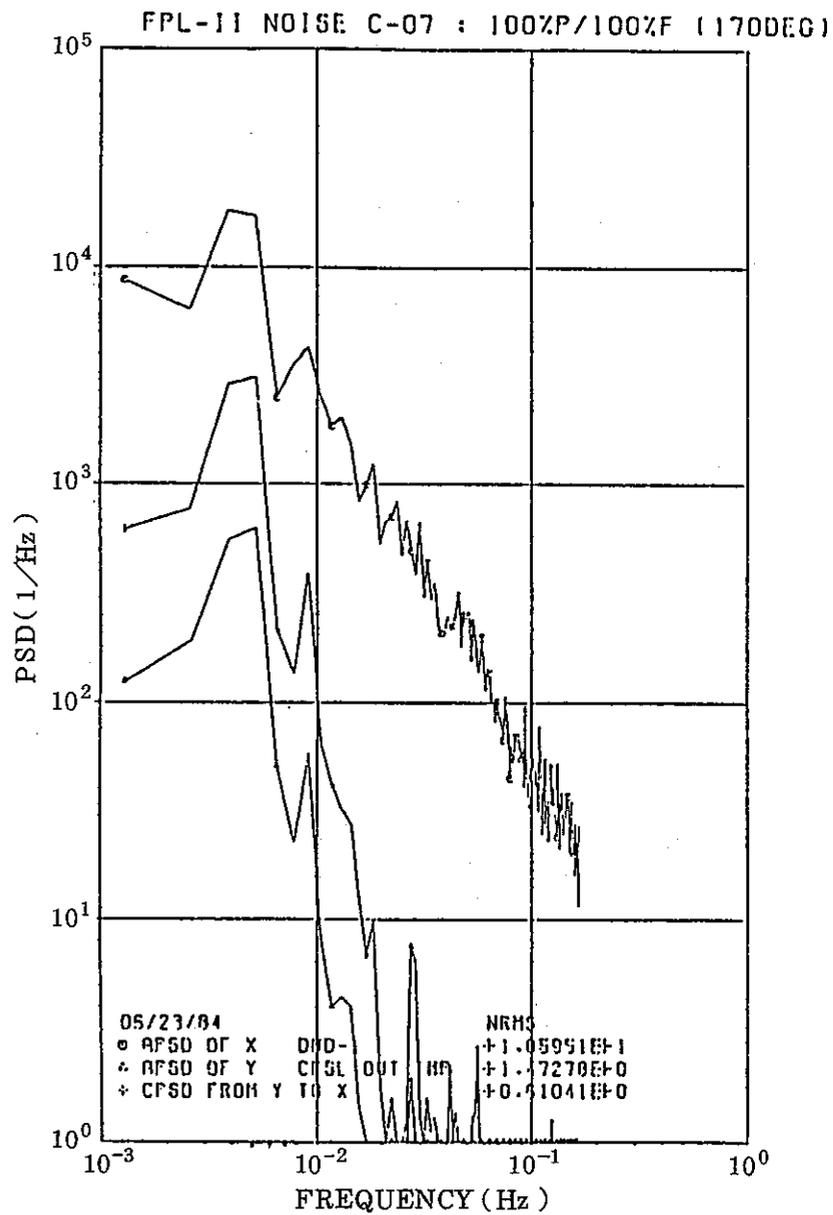


Fig 8 - 15(c) Coherence of DND-1 and TE-14 of Data No C-07.

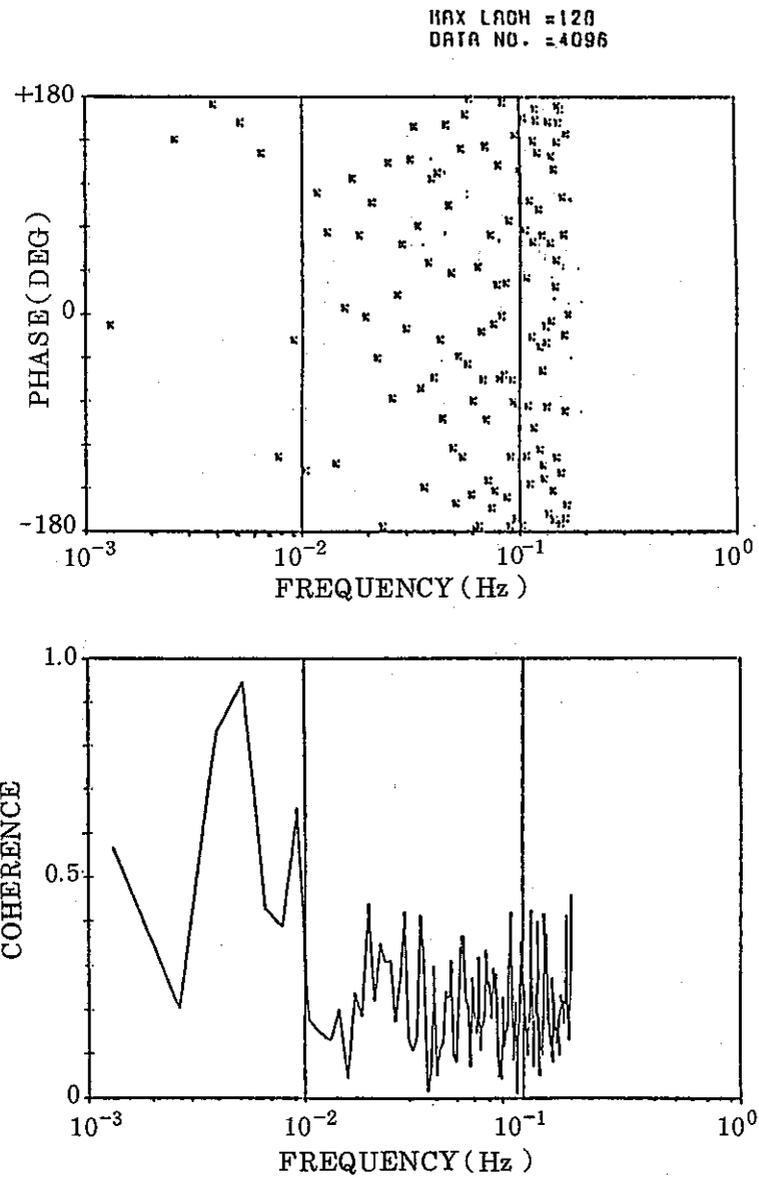
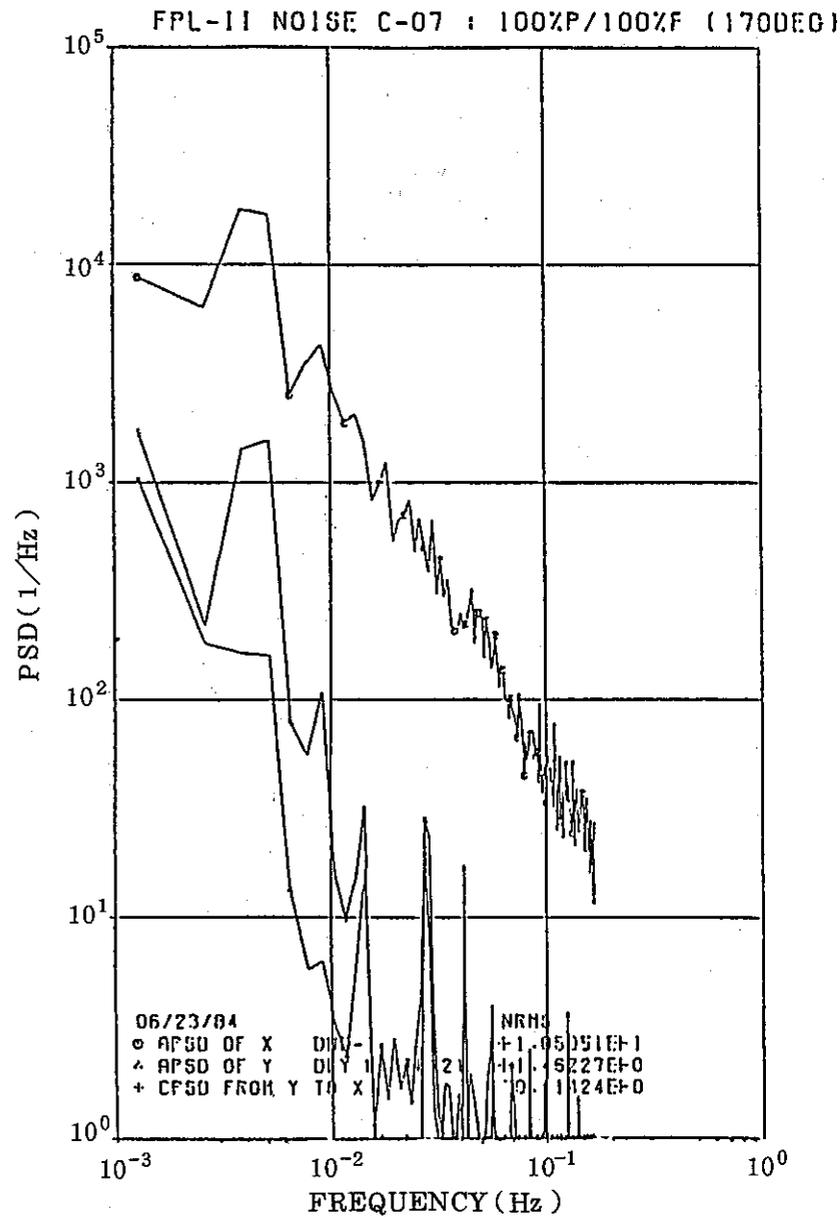
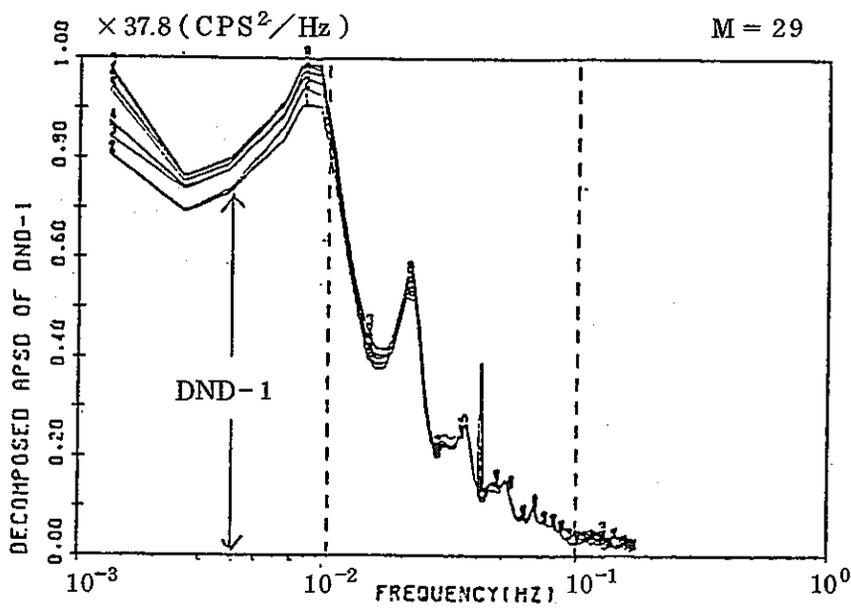
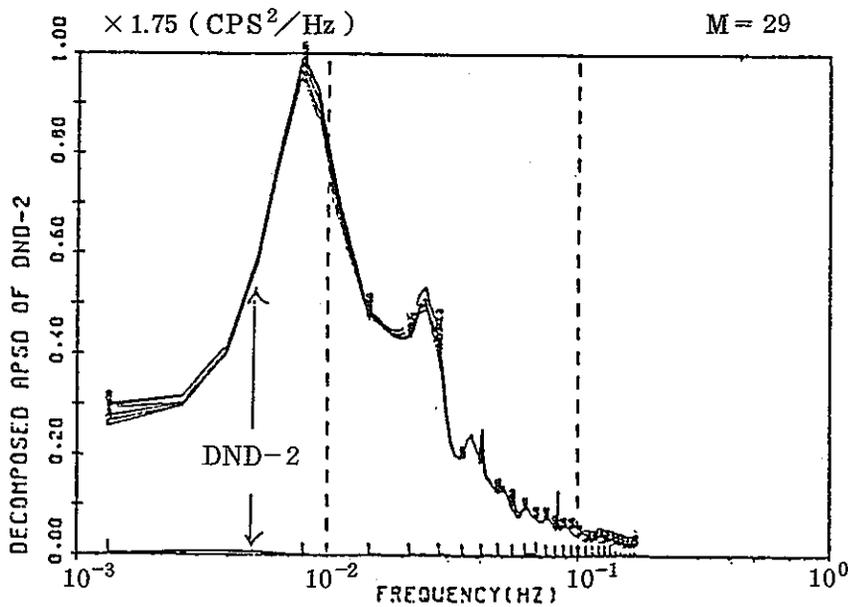


Fig 8 - 15(d) Coherence of DND-1 and TE-21 of Data No C-07.



- Noise source
- 1 ONS-1
 - 2 ONS-2
 - 3 FLOW RATE
 - 4 CAPSULE TEMP
 - 5 CPSL OUT TMP
 - 6 PLC OUT TEMP
 - 7 OLY L.:TE-21
 - 8 POWER :PRM-1

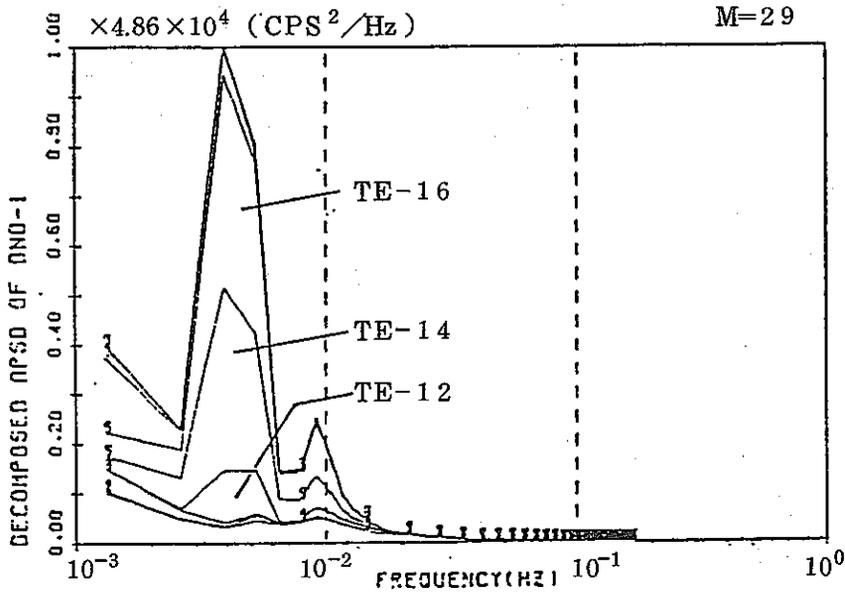
(a) DND-1



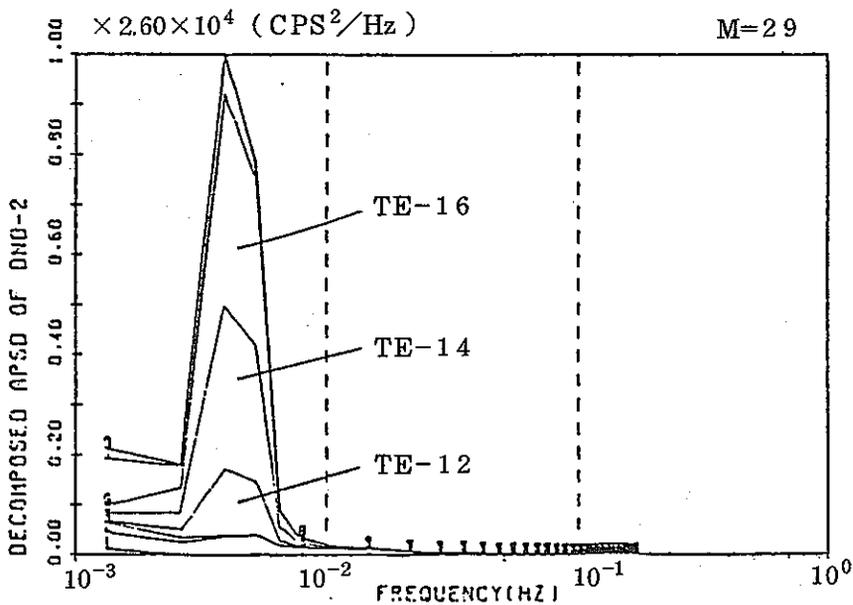
- 1 ONS-1
- 2 ONS-2
- 3 FLOW RATE
- 4 CAPSULE TEMP
- 5 CPSL OUT TMP
- 6 PLC OUT TEMP
- 7 OLY L.:TE-21
- 8 POWER :PRM-1

(b) DND-2

Fig 8 - 16 APSDs of DND-1 and DND-2 of Data No C-01 decomposed to each noise source contribution

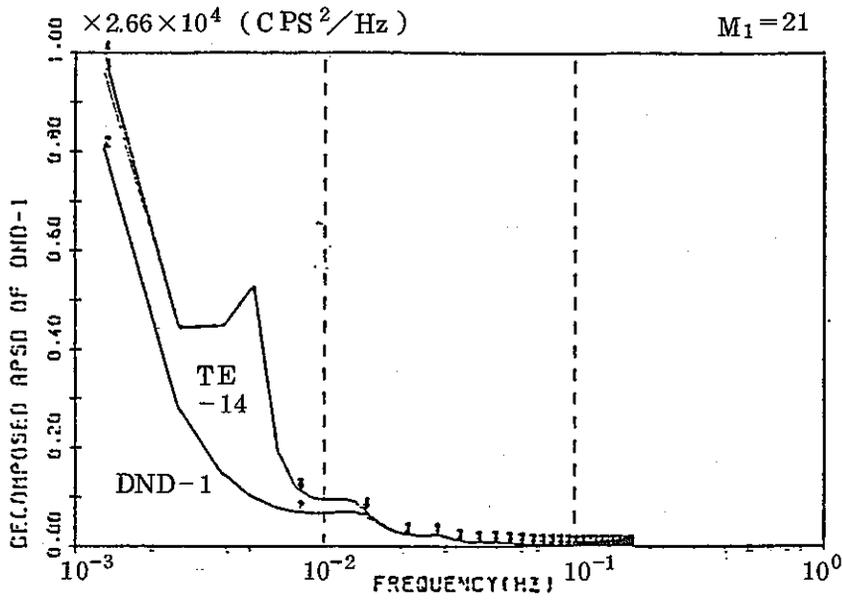


(a) DND-1



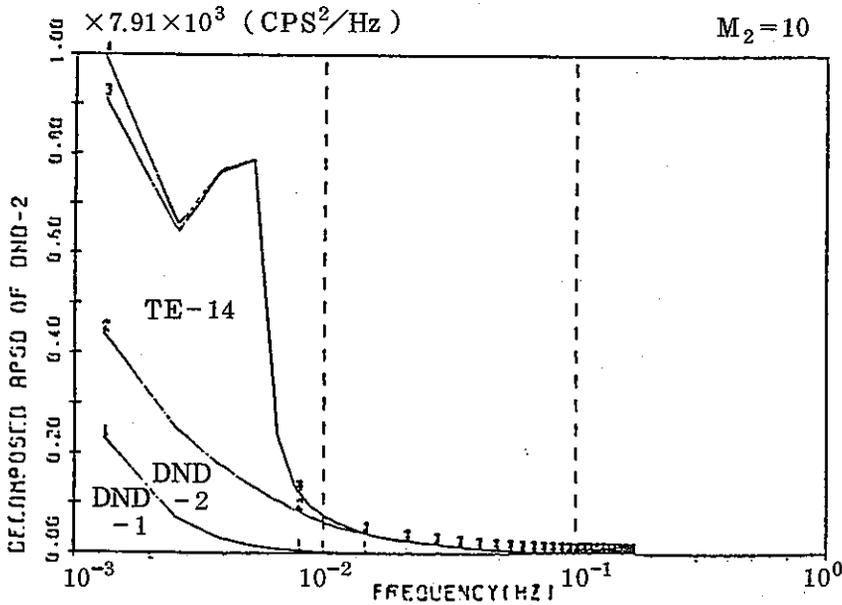
(b) DND-2

Fig 8 - 17 APSDs of DND-1 and DND-2 of Data No C-07 decomposed to each noise source contribution



- 1 DND-1
- 2 DND-2
- 3 CPSL OUT TMP(TE-14)
- 4 POWER :PRM-1

(a) DND-1

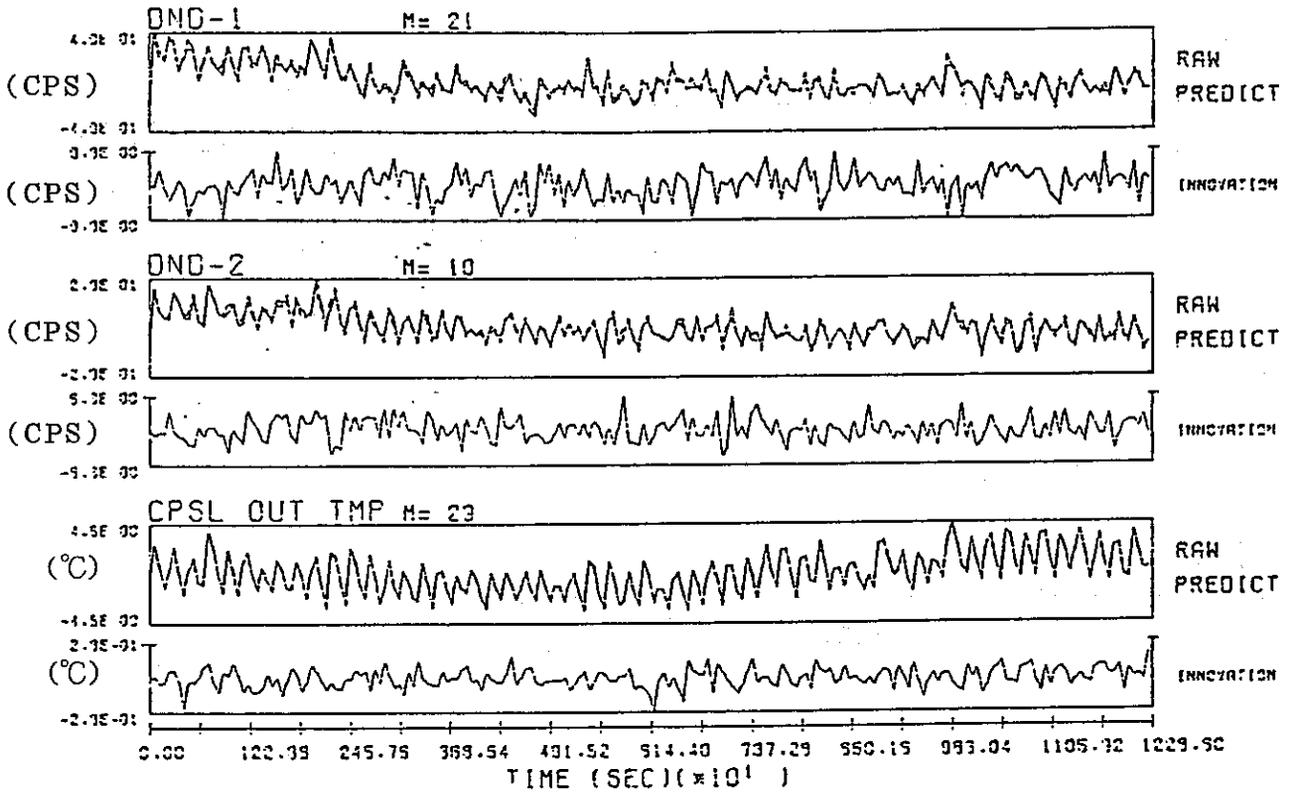


- 1 DND-1
- 2 DND-2
- 3 CPSL OUT TMP
- 4 POWER :PRM-1

(b) DND-2

Fig 8 - 18 Decomposed APSDs of DND-1 and DND-2 of Data No C-07 by four variables AR-model

PREDICTED DATA AND INNOVATIONS
 FPL-11 C-07 : 100ZF/100ZF (1709EC)



PREDICTED DATA AND INNOVATIONS
 FPL-11 C-07 : 100ZF/100ZF (1709EC)

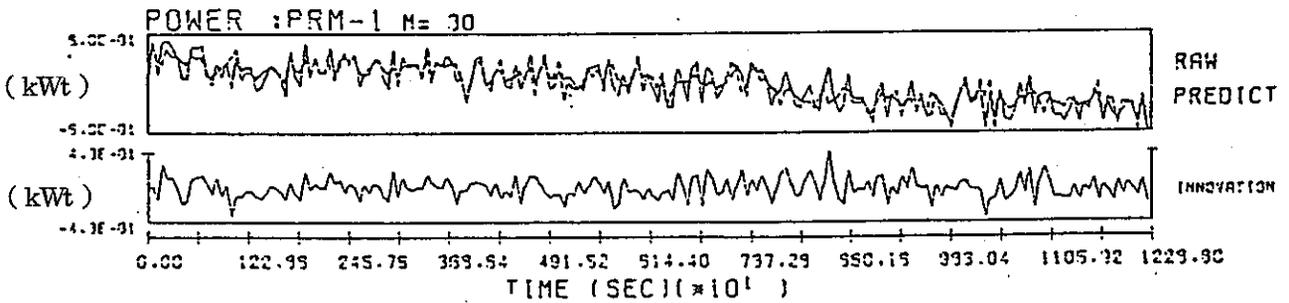
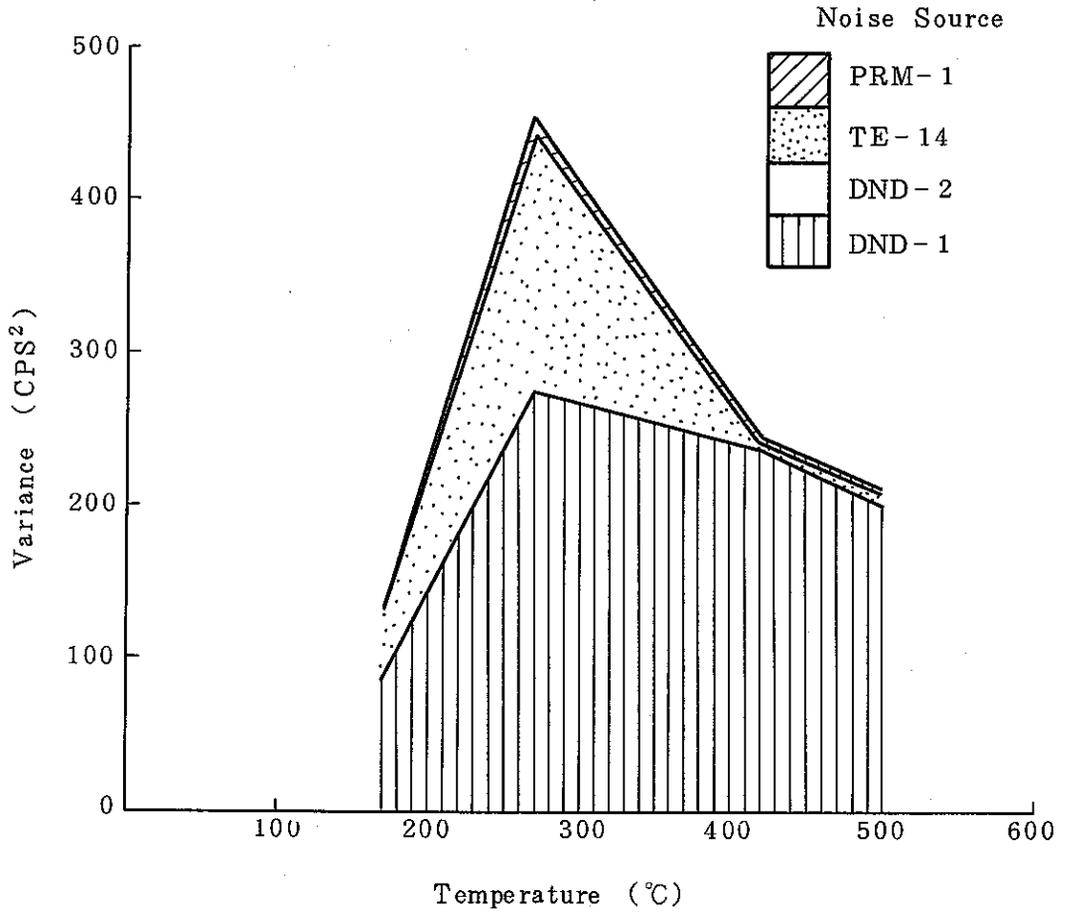
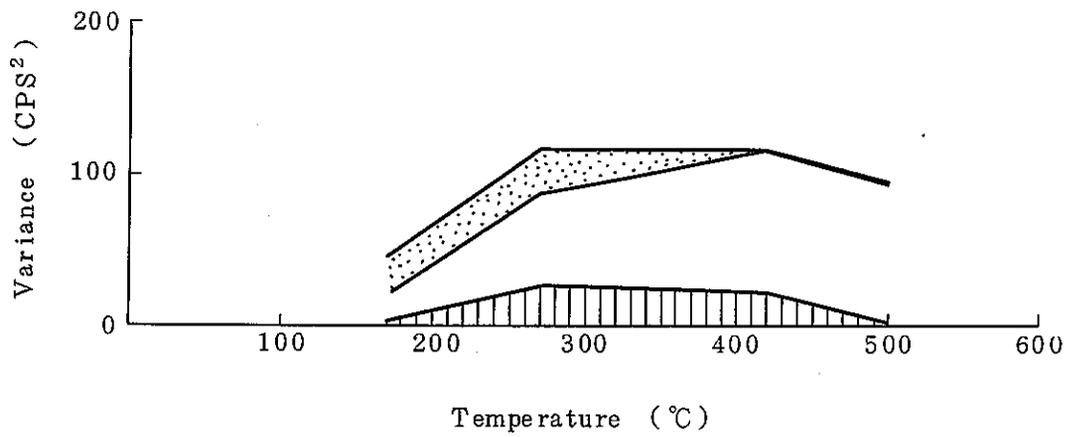


Fig 8 - 19 The original data of No C-07 and the innovation sequence, produced by four variables AR-model.

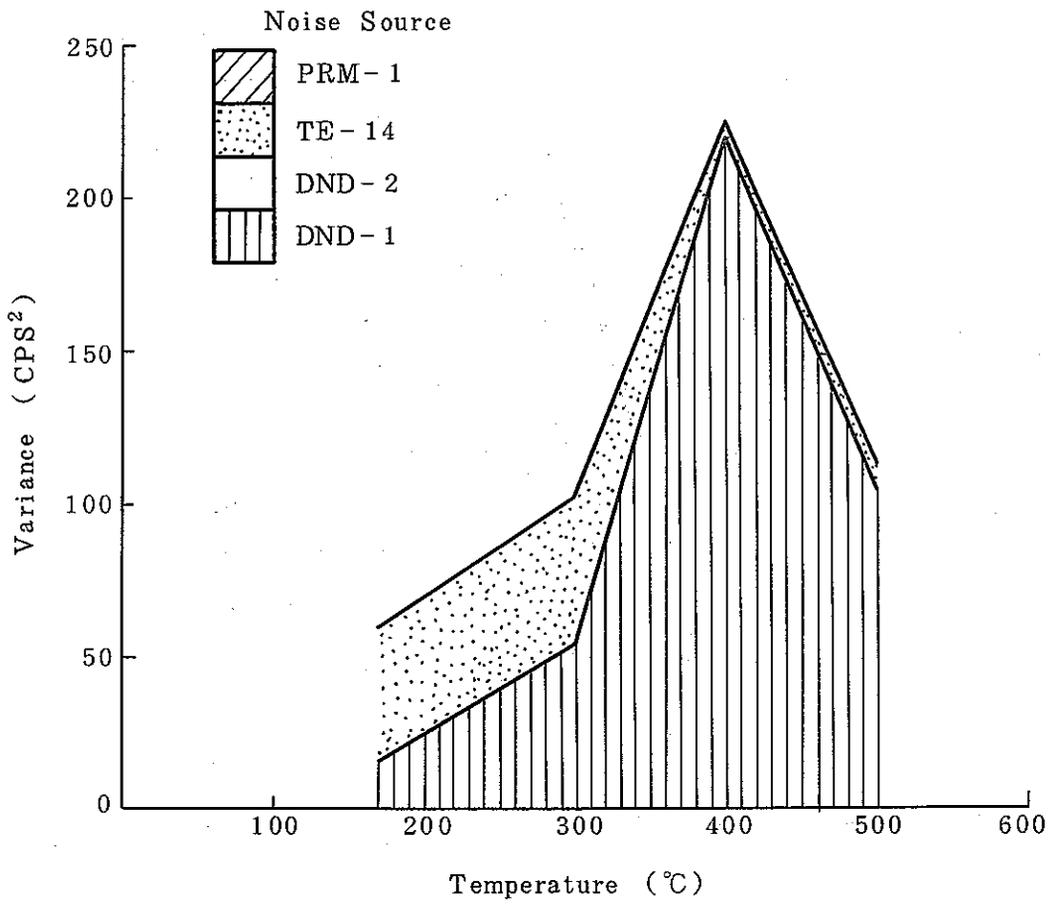


(a) DND - 1

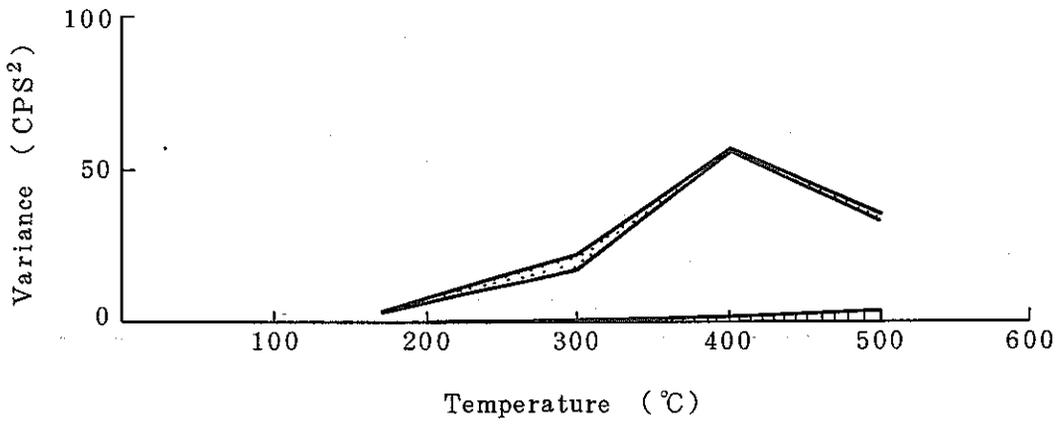


(b) DND - 2

Fig 8 - 20 Decomposed variances of DND-1 and DND-2 to each noise source contribution:
Flow rate = 5 l/min

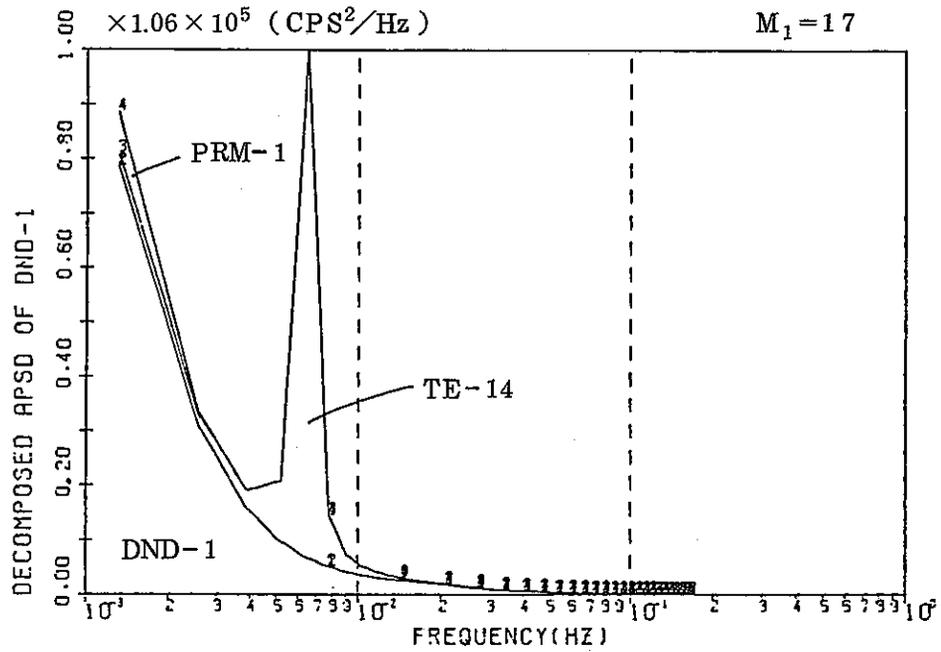


(a) DND - 1

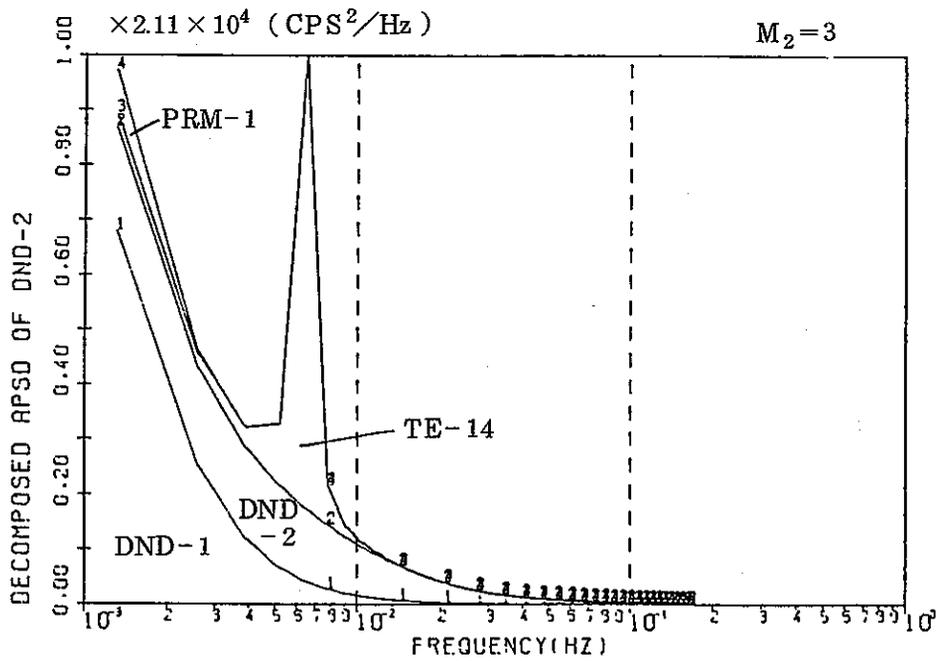


(b) DND - 2

Fig 8 - 21 Decomposed variances of DND-1 and DND-2 to each noise source contribution :
Flow rate = 1 l/min



(a) DND-1

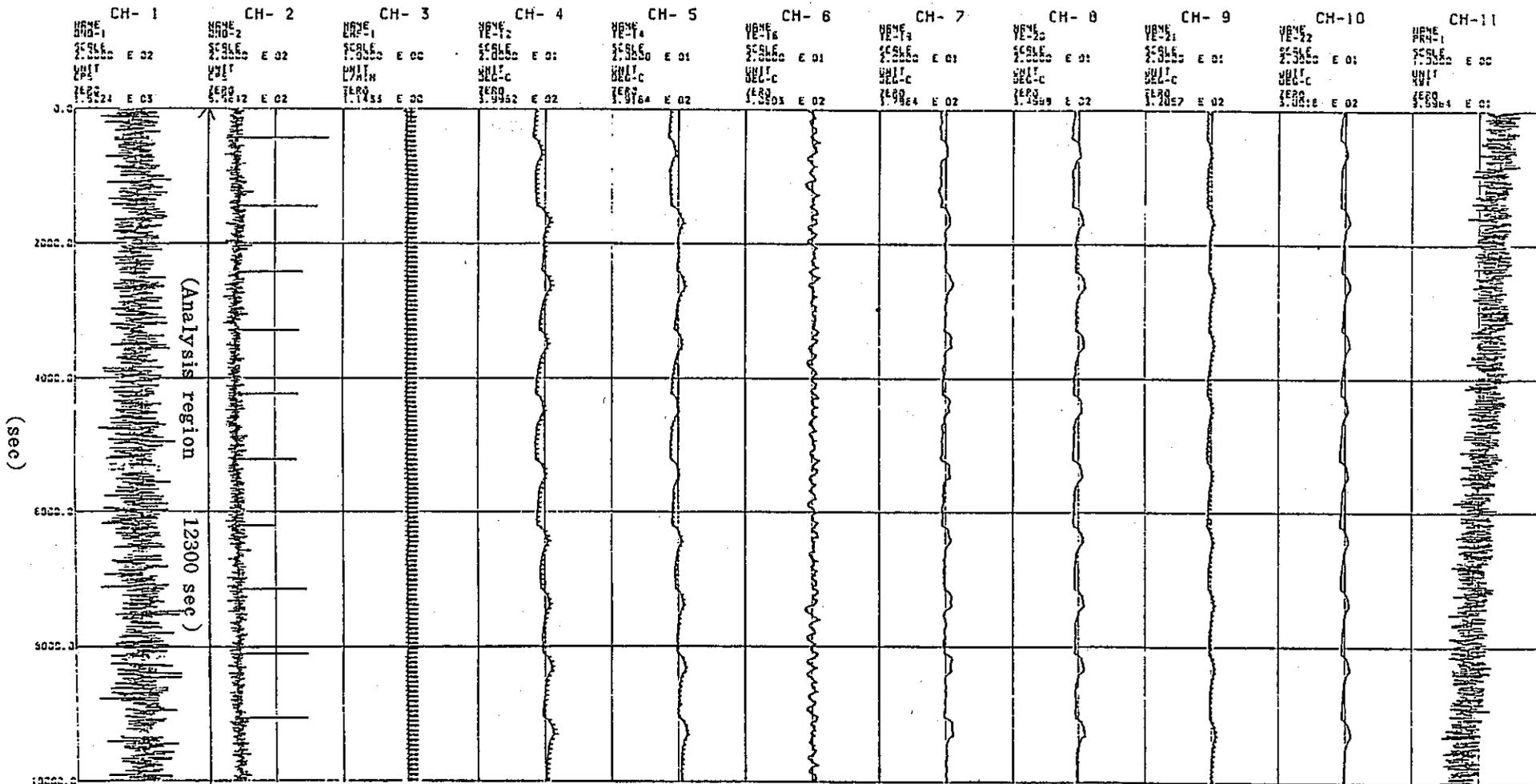


(b) DND-2

Fig 8 - 22 Decomposed APSDs of DND-1 and DND-2 of Data No C-17

Fig 8 - 23 FPL-II NOISE DATA NO. C-08 ()

PLANT FPL2 CYCLE 400DEG POWER 100. (X) FLOW 30. (X)
 DELTAT . 4.000 (S) LENGTH 10000. (S)



9. 結 言

20%濃縮二酸化ウラン100gを装荷したFPL-IIを使用して、主にナトリウム中不揮発性FPの沈着挙動を研究してきたが、昭和59年4月末にすべての照射試験を終了したのでFPL-IIの解体撤去を行ない、解体部材から試験片を切り出して解体試験を実施した。また主に昭和58年度以降に実施した照射試験の結果を用いて、不揮発性FPの沈着挙動の解析と照射試料部からのFPの放出率およびk. factorの算出を行なった。更にDN系計数率雑音の測定と解析を行なった。

解体試験の結果は次のとおりである。

- 1) 試験片の γ 線測定の結果 ^{95}Zr , ^{95}Nb , ^{103}Ru , ^{106}Rh , ^{137}Cs , ^{141}Ce , ^{144}Ce の長半減期FPがループの各部分で検出された。
- 2) Zr, Nb, Ru, Ceはナトリウムの流れに沿って沈着量が減少する典型的な下流効果を示した。
- 3) Csは、ナトリウム弁、コールドトラップなどに特異的に沈着していた。
- 4) 放射性腐食生成物(CP)は、 ^{54}Mn が電磁ポンプおよび主加熱器で検出されたが、 ^{60}Co はループのいずれの部分でも検出されなかった。
- 5) ウランのループ内沈着分布を放射化分析により求めた結果、FPと同様に下流効果を示し、沈着密度はウランカプセル直後の配管で $19.4\mu\text{g}/\text{cm}^2$ であった。
- 6) ループ配管内壁面のSEM観察を行なった結果、すべての試験片について内壁面の腐食は観測されず、推積物が内壁面をおおっているのが観測された。
- 7) ループ配管の除染試験を行なった結果、ホットレグ配管の方がコールドレグ配管より除染されにくいことがわかったが、平均して沈着したFPおよびウランは、硝酸による浸漬洗浄により90%以上が除染されることがわかった。

短半減期不揮発性FPの沈着挙動の解析結果から、前報で得られた結果より更に詳細な沈着挙動のメカニズムが明らかとなった。

- 1) Sr, Yは、170から530℃の間で拡散支配で沈着速度が決まる。
- 2) Zr, Baは、170から350℃の間では拡散支配で沈着速度が決まるが、350℃以上では脱着による再分配の効果が大きくなり、実効的な沈着速度は低下する。
- 3) ナトリウム中の高濃度酸素は、Zrのナトリウム中での沈着挙動に大きな影響を与えて脱着による再分配を促進させるが、その他の不揮発性FPの沈着挙動には何らの影響も与え

ない。

尚不揮発性 FP の沈着挙動に拡散支配の物質移動モデルが適用でき、また温度及び流速依存性も物質移動モデルで説明できることが結論されたことから、本解析で得られた結果は、実機の高流速状態に対しても充分外挿性を有していると考えられる。

揮発性 FP の γ 線測定結果および DN 測定結果より k-factor の算出を行なった。その結果次のようなことがわかった。

- 1) γ 線測定結果より得られた k-factor 値は、0.43 で前報⁴⁾の結果と一致した。
- 2) DN 測定結果より得られた k-factor 値は 0.57 で、DN 検出装置の検出効率値に問題があるため両者の値が一致しなかったものと推定される。
- 3) 両者の計測値に経年変化はみられず、照射試料表面の経年変化もほとんどないものと推定される。

尚 k - factor が 1 以下であることについて、今後予定されている照射試料の照射後試験（燃焼度測定、表面分析等）の結果を考慮してその理由を検討していく必要がある。

DN 系計数率雑音の測定と解析を行ない、以下の結論を得た。

- 1) FPL - II の場合には、燃料破損の無い状態に相当する試験条件下で得られる計数率雑音は無視できる程小さい。
- 2) 燃料破損の発生により、計数率雑音はレートメーターの応答する全周波数成分の振幅が顕著に増加する。
- 3) 低温時には系統温度の変動が DN 計数率の大きな雑音源となる。

今後、破損の生じていない正常運転状態での計数率雑音特性の把握を目的に実機データの測定・解析を行ない、今回のデータと併せて燃料破損の高感度検出技術の開発と検証を進めて行く必要がある。

10. 参考文献

- 1) N. V. Krasnoyarov et al : CONF-760503, pp. 30-34 (1976)
- 2) 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)
- 3) 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)
- 4) 酒井拓彦, 原世悦, 他 : " 炉内ループによるFP挙動試験Ⅲ(受託研究)", SJ 201-84-09 (1984)
- 5) R. L. Eichelberger : " Solubility of oxygen in liquid sodium : a recommended expression", AI-AEC-12685 (1968)
- 6) C. M. Lederer et al : " Table of Isotopes ", seventh edition, John Willey & Sons, Inc., New York (1978)
- 7) R. F. Rider : " Compilation of fission product yields ", NEDO-12154-3(A) (1979)
- 8) P. A. Benson, et al : " Determination of iron and uranium in high purity lead foil by neutron activation analysis", Anal. Chem., 34, 1113 (1962)
D. Decat, et al : " Determination of trace quantities of uranium by neutron activation analysis ", Anal. Chem., 35, 845 (1963)
- 9) M. H. Cooper and G. R. Taylor : " A transport model for radioactive corrosion product deposition in an LMFBR ", Nucl. Eng. Des., 52, 246 (1975)
- 10) 三塚哲正, 酒井拓彦, 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)
- 11) R. E. Treybal : " Mass transfer operations ", McGraw-Hill, New York (1965)
- 12) R. C. Reid and T. K. Sherwood : " The properties of gases and liquids ", second editions, McGraw-Hill, New York (1966) P. 544
- 13) B. G. Childs : " Fission product effects in uranium dioxide ", J. Nucl. Mat., 9 No 3 (1963)

- 14) T. Izak - Biram and S. Amiel: Nucl. Sci. and Eng., 57, 117 (1975)
- 15) D. P. Roux and J. Max : " Detection and location of a fuel pin failure in Rapsodie using noise analysis ", Trans. of the A. N. S., 14(1) (1971)
- 16) 赤池, 中川: " ダイナミック・システムの統計的解析と制御 ", サイエンス社 (1972)
- 17) S. Kanemoto et al : " Identification of pressure control system dynamics in BWR plant by multivariate autoregressive modeling technique ",
J. Nucl. Sci Technology, 19(1)(1982)

Appendix A FPL-II の照射熱中性子束の算出

A.1 緒 言

熱中性子束は、核分裂速度を求める上で最も重要で基本的な値である。そこで前報と同様に ^{24}Na の放射化量から、TTR 定格出力 (100 kW) 時のウランカプセル部における平熱中性子束を算出した。尚、ナトリウム温度、流速等の実験条件の違いによる再現性をみるために、 ^{24}Na のループ内分布および平均のナトリウム中濃度を、原則としてすべての照射実験 (Na 18 ~ 33) について求めるようにしたが、実験 Na 23 については、TTR の出力を変化させて DN 信号の出力依存性を測定する実験のため、また実験 Na 26 については、マルチチャンネル波高分析器が不良のため、 ^{24}Na の γ 線測定データがないので省略する。

A. 熱中性子束の算出

1) 照射実験により得られた ^{24}Na のループ内分布と計数率

^{24}Na のループ内分布には 1368.5 KeV の γ 線ピークの計数率を用いた。D-2 ~ D-9 の計測点で計測された計数率には、計数点での幾何学的効率および Ge 検出器間の検出効率の相違 (計測には 2 台の Ge 検出器を用いた) を補正し、また計測開始時刻の相違による生成量の差を、全て照射終了直後の値に壊変補正した。 ^{24}Na の半減期は 15.0 hr である。Fig A-1 に実験 Na 18 ~ 33 (Na 23, 26 を除く) の ^{24}Na のループ内分布を示す。横軸はウランカプセルからループに沿った距離を表わす。これらのループ内分布から、各計測点での上記補正後の計数率は各実験毎に非常によく一致することがわかり、(平均値を図中に実線で示した) 上記補正值が正しいことが確認された。尚、実験 Na 18 の計数率は他の実験の計数率より低い値を示すが、これは照射時間が 2 時間 (他の実験では 4 時間) のためである。Table A-1 に、各実験毎に得られた 1368.5 KeV の γ 線ピークの平均計数率を実験条件とともに示す。ナトリウム温度が一定の条件では、計数率の間に差がほとんどなく、再現性が非常によいことがわかるが、2, 3 の例外を除いてナトリウム温度が低い程、計数率が低くなる傾向が認められる。 ^{24}Na の放射化量は、ウランカプセル内で照射されるナトリウムの原子数に比例する。原子数に関係する因子としては、ナトリウム密度、ウランカプセル内容積の熱膨張による増加および、インバイルプラグナトリウム配管の熱膨張による照射孔内でのウランカプセル位置の変動等が考えられる。ナトリウム密度は温度の低下とともに増加するから、上記傾向とは逆方向である。熱膨

張による寄与については、熱中性子束の算出の後で考察を行なう。

2) 実験値から得られた ^{24}Na の生成量の算出

^{24}Na の生成量 N_e (dps) は、上記実験で得られた平均計数率 \bar{C}_r (cps) を用いて次式で求められる。

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

ここで、

f_r : 1368.5 KeV の γ 線の分岐率 (-)

f_e : 1368.5 KeV の γ 線に対する検出器の検出効率 (cps·cm/ μCi)

V : ディレイラインの単位長さ当りのナトリウム体積 (cm^3/cm)

V_T : 主循環系 (実験系) 内のナトリウム体積 (cm^3)

である。

$f_r = 1.0$, $f_e = 15.64^*$ (cps·cm/ μCi), $V = 0.694 \times (1 + 2\beta \cdot T)$ (cm^3/cm),
 $V_T = 3979 \times (1 + 3\beta \cdot T)$ (cm^3) を上記式に代入して求めた ^{24}Na の生成量 N_e (dps) を Table A-1 の第 6 欄に示す。尚前述した β は 18-8 ステンレスの線膨張係数で、 16.7×10^{-6} (deg^{-1}) であり、 T はナトリウム温度 ($^{\circ}\text{C}$) である。

このようにして照射実験のデータを基に得られた ^{24}Na の生成量は、 $3.82 \sim 4.86 \times 10^8$ (dps) である。

3) 計算上の ^{24}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、 ^{24}Na の生成量 N_c (dps) は次式で求められる。

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

ここで、

N_0 : 照射される ^{23}Na の原子数 (atoms)

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

ϕ : 熱中性子束 ($\text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}$)

λ : ^{24}Na の壊変定数 (sec^{-1})

t : 照射時間 (sec)

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

である。また ^{23}Na の原子数 N_0 は、

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

である。ここで、

ρ : ナトリウム密度 (g/cm^3)

V_I : 照射されるナトリウムの体積 (cm^3)

M : ナトリウムの分子量 (g)

である。またナトリウムの密度 ρ は、

$\rho = 0.9501 - 2.2976 \times 10^{-4} T - 1.460 \times 10^{-8} T^2 + 5.638 \times 10^{-12} T^3$ なる実験式で表わされる。その他の定数については、 $V_I = 30(1 + 3\beta T)$ (cm^3)、 $M = 23.0$ (g)、 $\sigma = 5.0 \times 10^{-25}$ (cm^2)、 $\lambda = 1.28 \times 10^{-5}$ (sec^{-1}) であり、実験 Na 18 以外の実験の照射時間 t を、 $t = 14400$ (sec) (4 時間、実験 Na 18 は $t = 7200$ (sec)) とし、熱中性子束 ϕ を未知数として上記式に代入して求めた ^{24}Na の生成量 N_c (dps) を Table A-1 の第 7 欄に示す。

このようにして得られた ^{24}Na の生成量は、 $5.60 \sim 6.07 \times 10^{-2} \phi$ (dps) である。

4) 熱中性子束の算出

照射実験で得られた ^{24}Na の生成量 N_e と計算で求めた生成量 N_c は本来等しくなければならぬ。そこで、 $N_e = N_c$ としてこれから未知数である ϕ の値を算出した。その結果を Table A-1 の第 8 欄に、またナトリウム温度毎に整理して Fig A-2 に示す。算出された熱中性子束の値は、 270°C 前後では実験によってかなり大きなバラツキを示すが、 500°C 前後では、実験毎にかなり値がよく一致した。しかし熱中性子束の値は非常に強い温度依存性を示した。そこで温度依存性が現われる理由について、以下に考察を行なう。

5) 考 察

前記したように、温度に関係する因子としては、ナトリウム密度、およびステンレス構造材の熱膨張が考えられる。尚ナトリウム密度については温度上昇に対して逆の効果を与える。またウランカプセル内容積の熱膨張による増加 ($V_I = 30 \times (1 + 3\beta T)$) は、主循環系内ナトリウム体積の熱膨張による増加 ($V_T = 3979 \times (1 + 3\beta T)$) と相殺するためこの効果は表にあらわれない。従って最も可能性のあるのは、インパイルプラグナトリウム配管の熱膨張によるウランカプセル位置の変動である。このナトリウ

ム配管は、インパイルプラグ内では束縛されておらず、照射孔の外側の格納容器内部で固定されているため、熱膨張による伸長によりナトリウム配管は炉心に近づく方向に移動する。照射孔内では熱中性子束の大きな勾配が形成されているため、温度上昇によるウランカプセルの炉心方向への移動は熱中性子が増加する方向であり、上記の結果は定性的にはこの事実と一致する。そこで以下に定量的な検討を加える。

まず温度が170℃と500℃でどの程度ナトリウム配管が熱膨張するかを検討する。インパイルプラグナトリウム配管の全長 l は約4 mであるから、線膨張率 $\beta = 16.7 \times 10^{-6}$ (deg^{-1})を用いると、配管の膨張する長さ $l \cdot \beta \cdot \Delta T$ は約2.2 cmとなる。一方照射孔内の熱中性子束分布は測定されており、ウランカプセルが挿入されている付近の分布は指数関数で近似できて $A \cdot e^{-0.104x}$ で表わせる。 x はcm単位で測った距離。従って $\Delta x = 2.2$ cmの差による熱中性子束の比は $e^{+0.104 \cdot \Delta x} = 1.26$ となる。また実験で得られた結果を比較すると、500℃の熱中性子束は平均して 7.84×10^9 、170℃の場合は平均して 6.33×10^9 であるからその比は1.24であり、両者は非常によく一致した。

尚Fig A-2において、熱中性子束の増加率が500℃に近づくにつれて減少しているが、インパイルプラグ内のウランカプセル前面には保温材が装荷されており、これによる束縛によって炉心側への膨張が抑制され、途中の配管部で曲げなどが起こって理論的位置までウランカプセルが移動しないため、図のような温度依存性の傾向を示すと考えられる。また、170℃と500℃の実験から得られた熱中性子束の比が理論値より小さくなっているのも、このためと考えられる。このような検討結果から、熱中性子束の温度依存性は、ナトリウム配管の熱膨張で充分説明できることがわかった。また実験Na 18では、熱中性子束は異常に高い値を示した。この実験では、ウランカプセルの温度は280℃であるが、それに付属するナトリウム配管部の温度は520℃に達しているため、このように高い値を示したものと考えられ、この値は、500℃の熱中性子束の値ともよい一致を示した。

上記の考察から、熱中性子束の温度依存性は理論的に説明可能であることがわかったので、今後のデータ解析に用いる熱中性子束は、温度によって異なった値を用いることにする。500℃では、実験Na 28, 31, 32, 33のデータがよく一致するのでこのデータの平均をとって 7.84×10^9 ($\text{cm}^{-2} \text{sec}^{-1}$)とする。この値は、前報で求めた 7.9×10^9 とも非常によく一致する。また170℃では実験Na 20, 21のデータの平均を用いて 6.33×10^9 とし、170℃から500℃の中間の温度の場合には、Fig A-2中に示した近

似曲線で補間するものとする。

尚前報でもふれたように⁴⁾ $^{23}\text{Na} (n, \gamma) ^{24}\text{Na}$ の核反応における 3eV の中性子による寄与は小さいので、今回も無視する。

3. 結 言

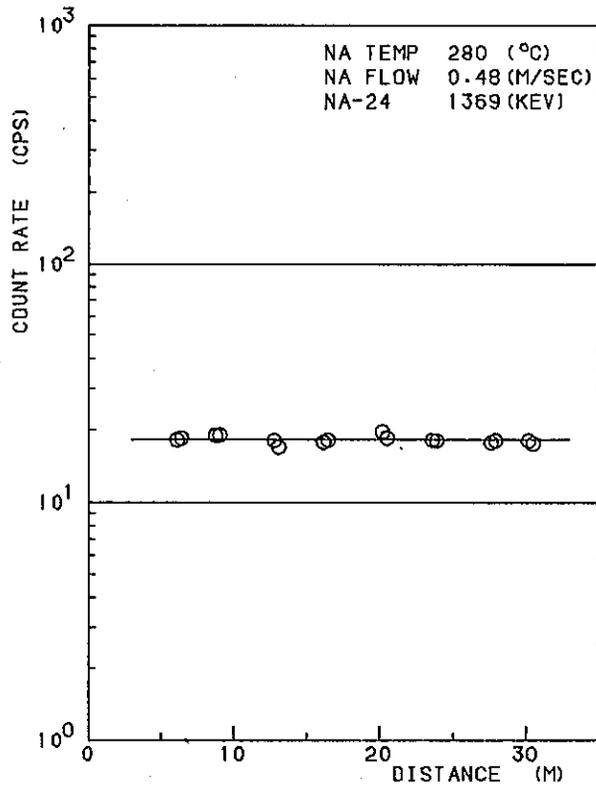
照射実験（実験No 18～33，但し，実験No 23および26は除く）で得た ^{24}Na の放射能をもとに TTR 定格出力（100 kW）時におけるウランカプセル部の熱中性子束を算出し，以下の結果を得た。

- i) 得られた熱中性子束は，ナトリウム温度 500 °C では平均 $7.84 \times 10^9 \text{ (cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1})$ ，170 °C では平均 6.33×10^9 であり，明らかに温度依存性を示す結果となった。
- ii) 今回得られたナトリウム温度 500 °C のときの熱中性子束は，前報の結果（ 7.9×10^9 ）と非常によく一致した。
- iii) 熱中性子束の温度依存性の原因を検討した結果，TTR 照射孔内に挿入されたインパイルプラグナトリウム配管（全長約 4 m）の熱膨張によるウランカプセル位置の炉心側への移動（炉心側に近づく程熱中性子束は高くなる）が原因であることを定量的に確認した。

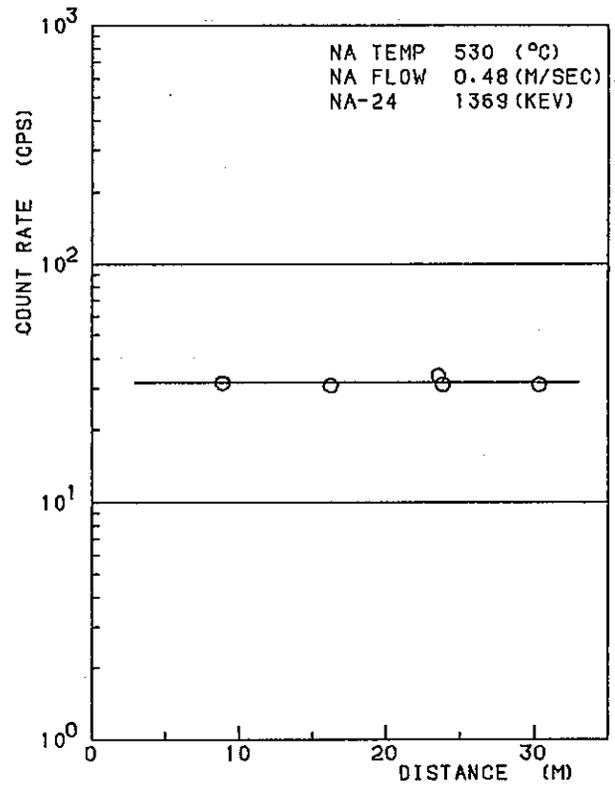
Table A - 1 Thermal neutron flux

Na Temp. (°C)	Na Flow (m/sec)	Exp. No.	Na Dens. ρ (g/cm ³)	Count Rate Cr (cps)	Production Rate Ne (dps)	Production Rate Nc (dps)	T. Neutron Flux ϕ (cm ⁻² · sec ⁻¹)
170	0.24	20	0.911	28.4	3.86×10^8	$6.07 \times 10^{-2} \phi$	6.36×10^9
	1.20	21		28.1	3.82×10^8		6.29×10^9
270	1.20	24	0.887	30.5	4.16×10^8	$5.94 \times 10^{-2} \phi$	7.00×10^9
		30		29.3	3.99×10^8		6.72×10^9
280	0.48	18	0.885	18.2 *	2.48×10^8 *	$3.10 \times 10^{-2} \phi$ *	8.00×10^9
300	0.24	25	0.880	30.2	4.12×10^8	$5.90 \times 10^{-2} \phi$	6.98×10^9
400	0.24	22	0.856	32.3	4.41×10^8	$5.77 \times 10^{-2} \phi$	7.64×10^9
420	1.20	29	0.851	31.5	4.30×10^8	$5.74 \times 10^{-2} \phi$	7.49×10^9
500	0.24	33	0.832	32.7	4.47×10^8	$5.64 \times 10^{-2} \phi$	7.93×10^9
	1.20	27		31.3	4.28×10^8		7.59×10^9
		28		32.1	4.39×10^8		7.78×10^9
		31		32.1	4.39×10^8		7.78×10^9
		32		32.5	4.44×10^8		7.87×10^9
530	0.48	19	0.825	31.5	4.31×10^8	$5.60 \times 10^{-2} \phi$	7.70×10^9

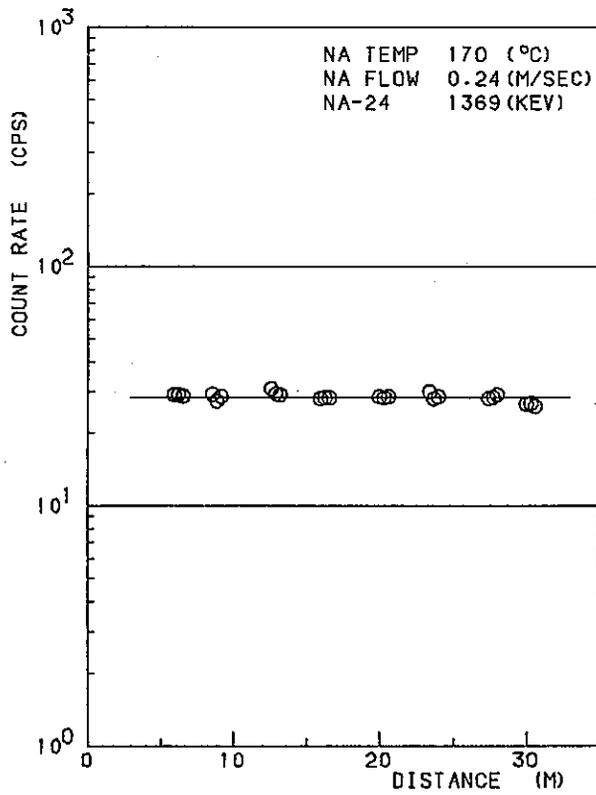
* irradiation time 2.0 hr



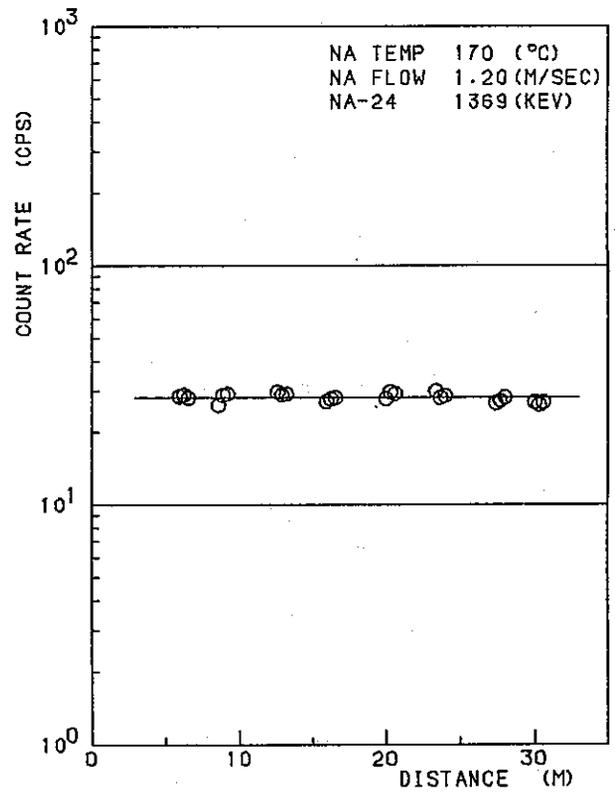
1) EXP. NO. 18



2) EXP. NO. 19

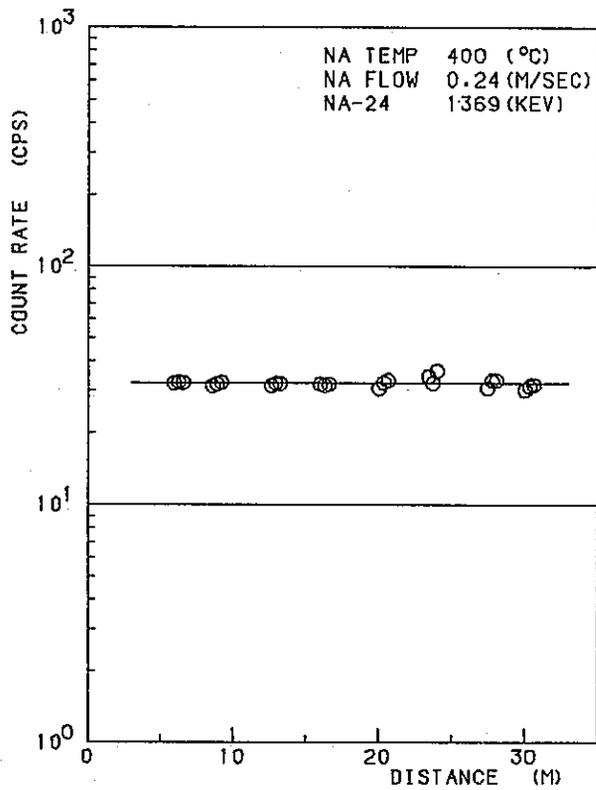


3) EXP. NO. 20

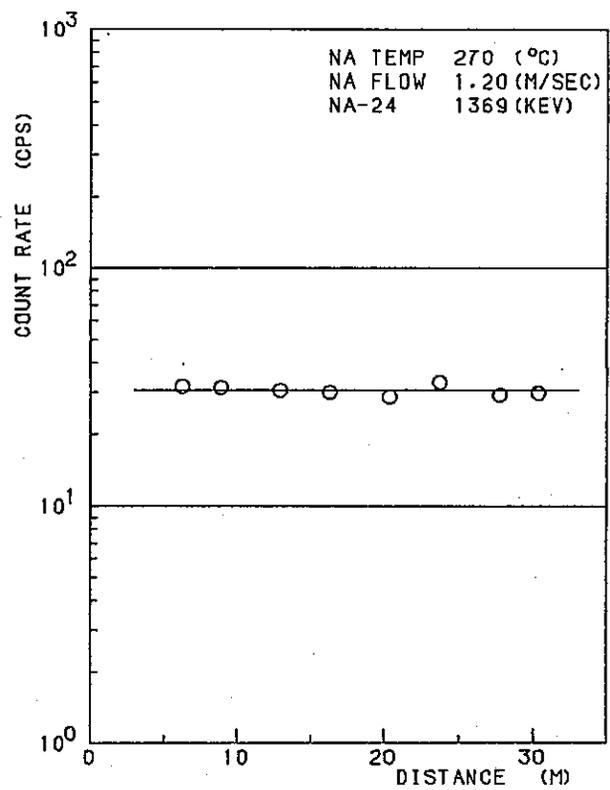


4) EXP. NO. 21

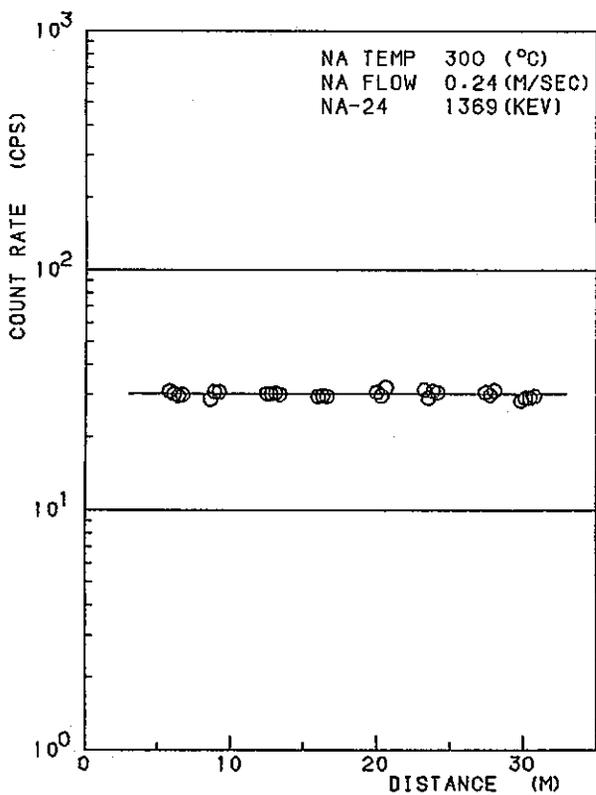
Fig A - 1 ²⁴Na distribution along the delay line



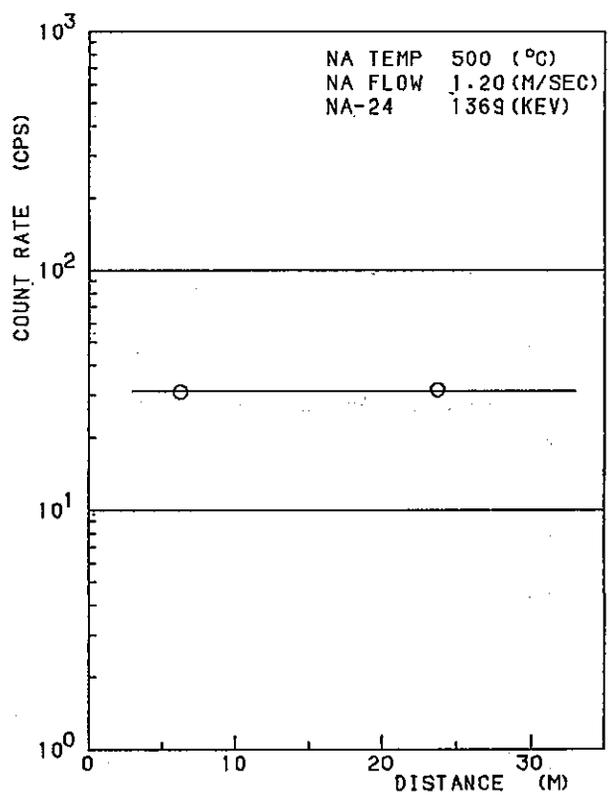
5) EXP. NO. 22



6) EXP. NO. 24

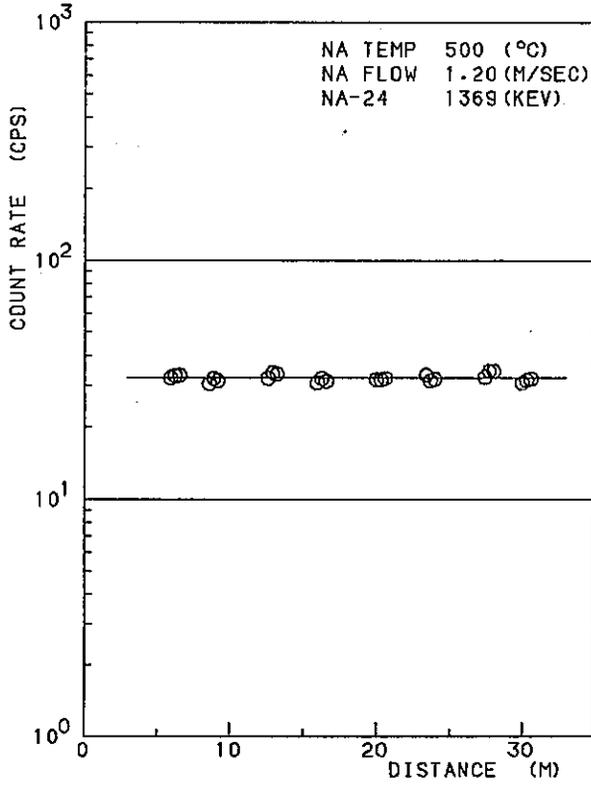


7) EXP. NO. 25

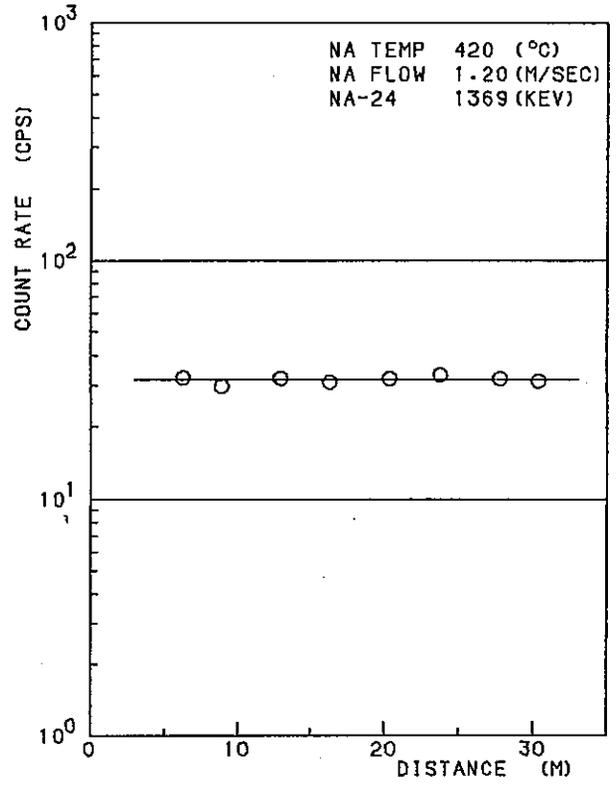


8) EXP. NO. 27

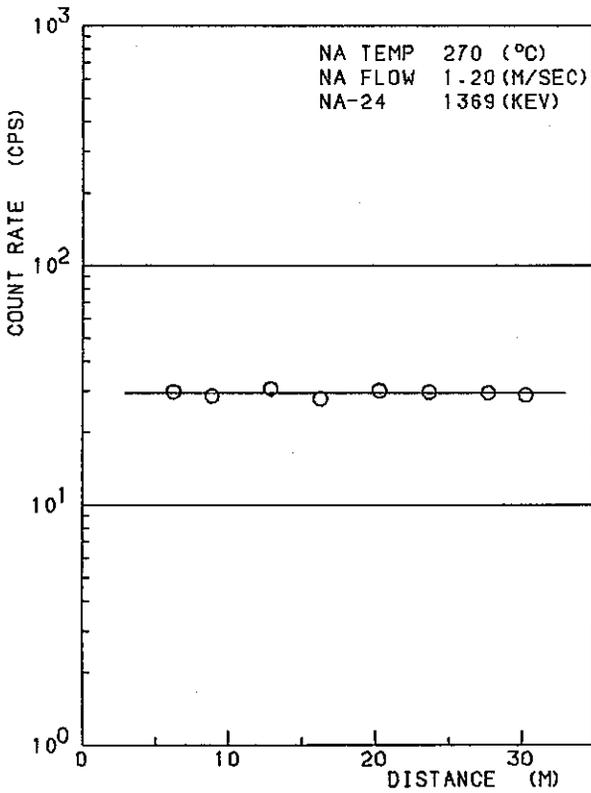
Fig A - 1 (continued)



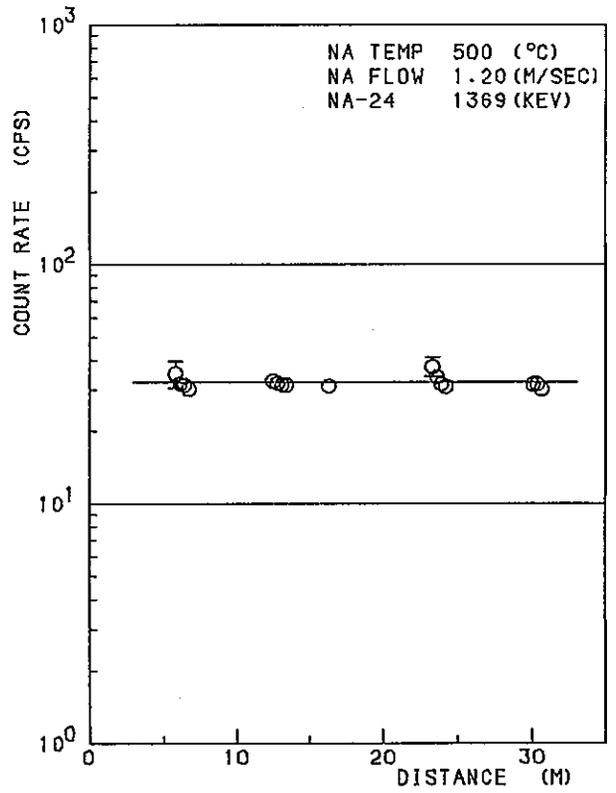
9) EXP. NO. 28



10) EXP. NO. 29

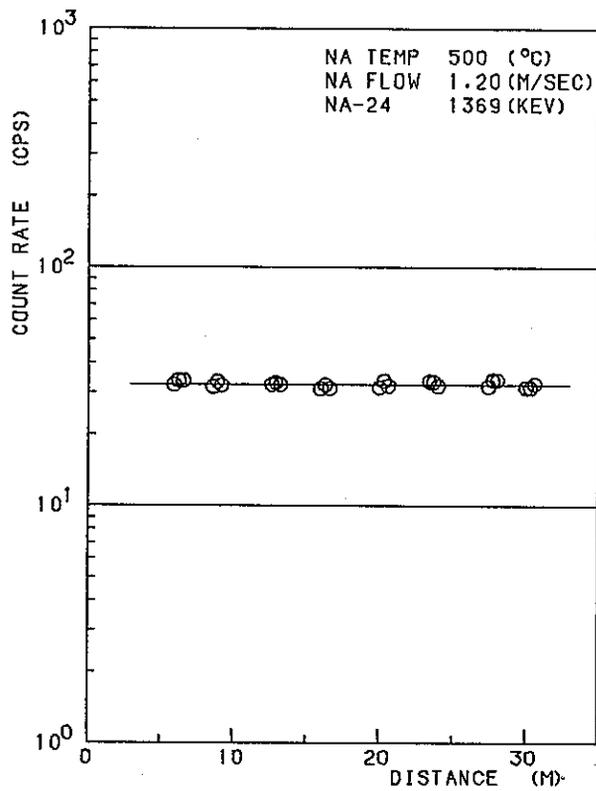


11) EXP. NO. 30

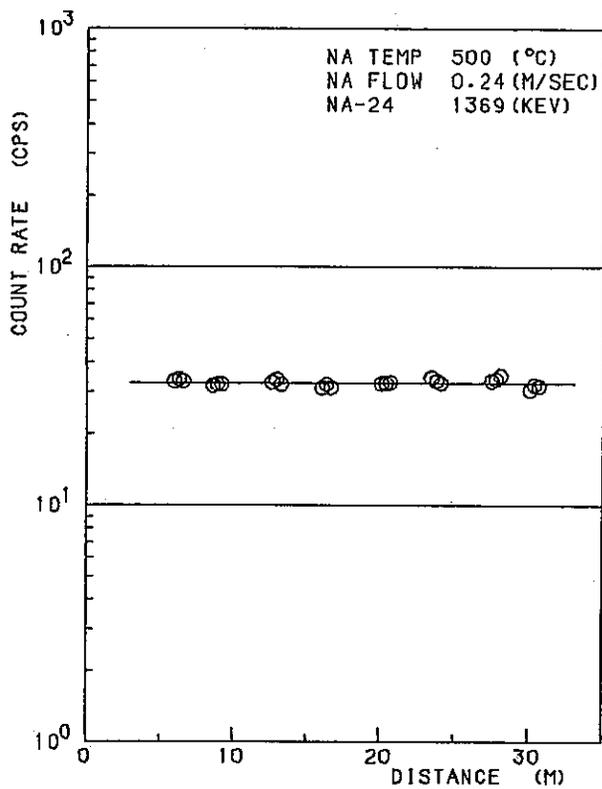


12) EXP. NO. 31

Fig A - 1 (continued)



13) EXP. NO. 32



14) EXP. NO. 33

Fig A - 1 (continued)

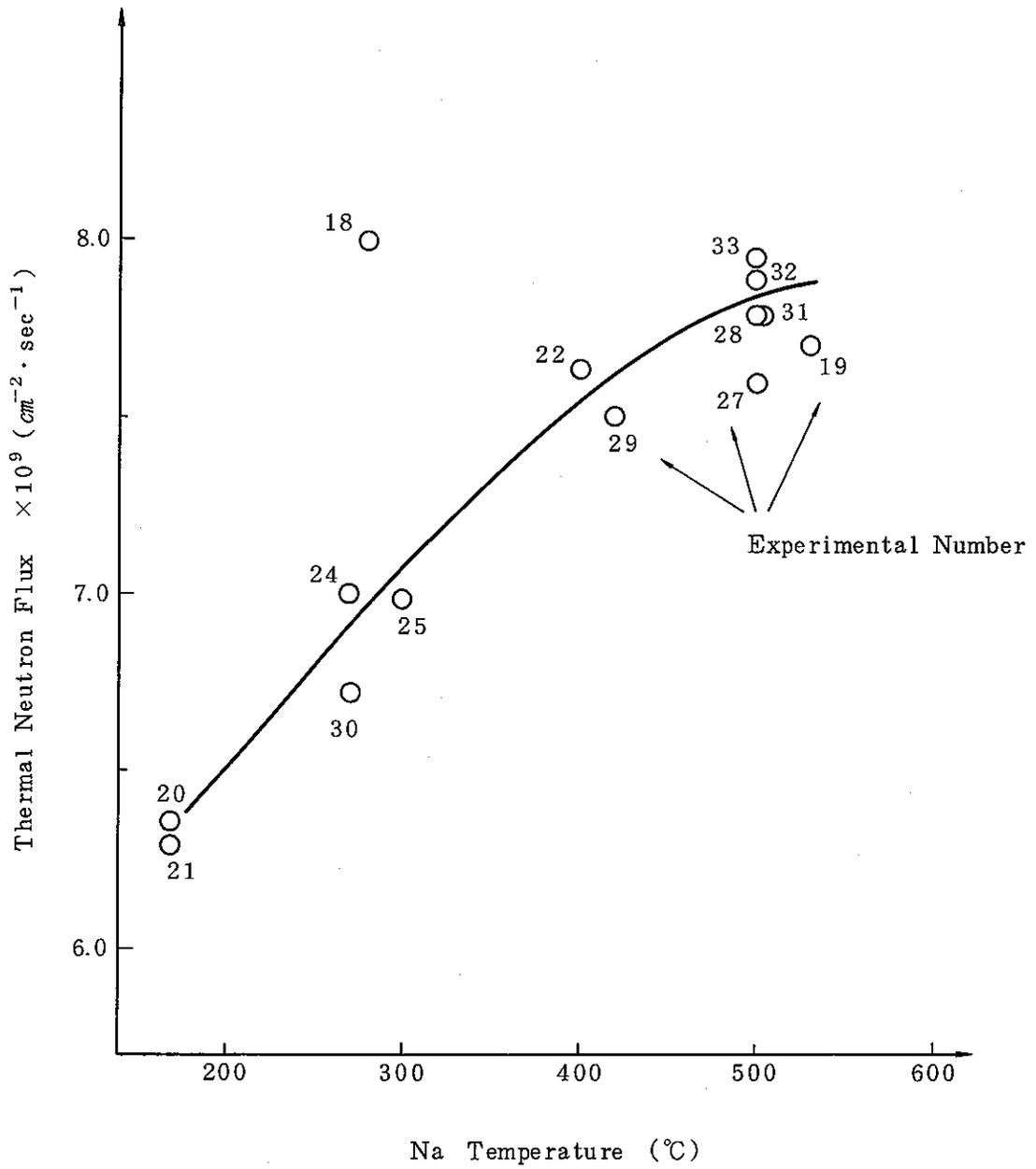


Fig A - 2 Thermal neutron flux calculated by using ^{24}Na gamma-ray spectra