157. JMTR 1 次冷却水中の放射性ヨウ素の放出源

山本 克宗*, 横内 猪一郎*,
比佐 勇*, 米沢 伸四郎*, 中山 富佐雄*

(1986年 4月14日 受理)

*Source of Radioiodine in Primary Cooling Water
of Japan Materials Testing Reactor*

By Katsumune YAMAMOTO, Ichiro YOKOUCHI,
Isamu HISA, Chushiro YONEZAWA and Fusao NAKAYAMA

During normal operation of Japan Materials Testing Reactor (JMTR), radioiodines are always detected in the primary cooling water in low levels. In order to identify the main source of the radioiodines, the data obtained during steady-state operation were investigated and uranium contents in main structural materials of JMTR core were determined by neutron activation analysis. It was found that the concentration of the radioiodines had varied in accordance with the exchange of the beryllium reflector frame in the core. The analytical results of the main structural materials showed that the uranium content in beryllium materials was 10~42 ppm. The radioiodine concentration in the water calculated from the uranium content agreed with the measured concentration with a limited accuracy. These results suggest that the radioiodines in the reactor water were released mainly from uranium contained in beryllium materials as an impurity.

KEYWORDS: *beryllium, impurity, iodine isotopes, JMTR reactor, primary cooling water, radiation, reactor core, reactor materials, recoil, sources, structural materials, uranium*

I. はじめに

水冷却型原子炉の1次冷却水からは、通常微量の放射性ヨウ素(I)が検出される。放射性Iは燃料被覆の微小欠陥から水中に放出される場合もあるが、燃料が健全であっても燃料被覆表面のU汚染や炉心構成材中の不純物Uなどから生じることも考えられる。通常運転時の1次冷却水中の放射性Iの放出源を明らかにしておくことは、万一燃料破損が生じた場合、燃料破損であることの判定を速やかに行うために非常に重要である。

研究用原子炉の場合、破損燃料以外の放射性Iの放出源についていくつか報告がなされている。Beaver^①らは、LITR (Low-Intensity Test Reactor)の燃料被覆(Al合金)表面のUを定量し、1次冷却水から検出される核分裂生成物が主に、①燃料製作時に使用するローリングミルのU汚染および②燃料の熱処理時に内部から被覆表面まで拡散した燃料Uから生成している

と報告した。

また野崎^②らは、武蔵工業大学炉(TRIGA II)の場合、燃料被覆材であるAl合金中の不純物Uが放射性Iの主な放出源であると推定した。

原研JMTR(材料試験炉)においても運転開始(1969年)以来、1次冷却水から放射性Iが検出されている^③。本報では、JMTRにおける現在までの放射性Iの測定結果を整理し、炉心構成材料中のUの分析結果も考慮して、JMTR 1次冷却水中の放射性Iの放出源について考察した。

II. JMTR 1次系の概要

1. 炉心構成要素

JMTR 炉心部の主な構成要素は、燃料要素、制御棒、Be 反射体要素、Al 反射体要素、Be 枠などであり、これらの材質をTable 1に示す。これらの構成要素は炉心においてFig. 1のように配置されている。

* 日本原子力研究所 (Japan At. Energy Res. Inst.)

Table 1 Main structural materials
in JMTR core

Component	Material
Fuel element	
Clad	A1200 Al or A1100 Al
Side plate	A6061 Al
Adaptor	AC4C Al
Be reflector element	
Reflector	Be
Adaptor	AC4C Al
Be reflector frame	Be
Al reflector element	A6061 Al
Control element	
Neutron absorber	Hf
Fuel follower	Same as fuel element Boron-SUS plate (attached to upper end of fuel plate)
Connector	Al and SUS
Control rod guide tube	Al and SUS
γ -ray shield plate	Zircaloy-2

A	B	C	D	E	F	G	H	I	J	K	L	M	N	O	P	Q	R
---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---

Fig. 1 Configuration of JMTR core

2. 1次冷却系

JMTR 1次冷却水循環システムのフローシートをFig. 2に示す。冷却水は軽水の脱イオン水であり、 N_2 ガスで1.5 MPaに加圧されている。水温は原子炉入口で47℃以下である。主循環系の冷却水の一部は精製系に入り、まず脱気タンクにて水の放射線分解生成物である H_2 ガスを放出する。その後カチオン交換樹脂塔(以下、カチオン塔)とアニオン交換樹脂塔(以下、アニオン塔)を通して主循環系に戻る。主循環系の流量は6,000 m^3/h 、またイオン交換樹脂塔での流量は、各樹脂塔のバイパス流量を変えて1次冷却水のpH調整を行うため多少変動があるが、カチオン塔で約30 m^3/h 、アニオン塔で約40 m^3/h である。1次冷却水の全量は160 m^3 であり、冷却水のpHおよび導電率はそれぞれ5.5~7

および $2 \mu S/cm$ 以下である。水中の放射性核種は ^{13}N 、 ^{24}Na 、 ^{27}Mg 、 ^{41}Ar が主成分である。 ^{24}Na と ^{27}Mg はともに燃料要素の被覆材等に使用されているAl合金から生成する⁽³⁾。なお、1次系配管の材質はSUS 304、圧力容器の材質はSUS 304Lである。

Ⅲ. 分析方法

1. 試料水の採取

放射性I濃度測定のための試料水は、Fig. 2に示した脱気タンク入口(以下、脱気入口)およびカチオン塔出口の2箇所のサンプリングラインから採取した。い

Fig. 2 Flow diagram of primary cooling system of JMTR

ずれの場合にもまず約 1 l の捨て水を行なってから、脱気入口の場合には 300 ml を、カチオン塔出口の場合には 1 l をそれぞれポリエチレン瓶に採取した。

2. 放射性 I の分析法

各サンプリングラインから採取した試料水について次の方法で放射性 I 濃度を測定した。

(1) 脱気入口から採取した場合

脱気入口から採取した水には、放射性 I に比べて高濃度の ^{24}Na 等の核種が含まれているため、放射性 I をこれらの核種から分離する必要がある。このため、この試料水の場合には、Fig. 3 に示す手順により I を抽出して分離濃縮した。キャリアとして KI と KIO_3 を用いたのは、 I^- や I_2 だけでなく IO_3^- (または IO_4^-) の形態で存在する I をも回収するためである⁽⁴⁾。 IO_3^- は、

の反応により I_2 に変換され CCl_4 で抽出される。放射性 I 濃度は、分離濃縮後の試料水 10 ml をガラス製低カリウムバイアル瓶に入れ γ 線測定を行なって求めた。

(2) カチオン塔出口から採取した場合

1 次系の精製系には上流側からカチオン塔とアニオン塔が別々に設置されている。カチオン塔では水中の主な核種である ^{24}Na と ^{27}Mg が除去されるため、カチオン塔出口水の γ 線スペクトルは Fig. 4 のようになり、陰イオンとして存在する $^{99\text{m}}\text{Tc}$ や ^{187}W が支配的となった。この γ 線スペクトルには $^{132}, ^{133}, ^{134}, ^{135}\text{I}$ の γ 線ピークも現れており、計測時間を適度に長くすることにより、抽出操作を行うことなく、直接測定が可能で

Fig. 3 Analytical procedure of radioiodine (KI-KIO₃ carrier method)

ある。 ^{131}I は採水後 1 日放置して短半減期核種を減衰させることにより直接測定が可能となる。カチオン塔出口水については、このようにして 1 l の試料水を直接 γ 線測定することにより放射性 I 濃度を求めた。

(1) と (2) の方法による測定結果はほとんどの場合、平均値に対して $\pm 20\%$ 以内で一致した。なお、いずれの場合にも γ 線測定には Ge(Li) 検出器と 4096 チャンネル波高分析器を用いた。

Fig. 4 γ -ray spectrum of primary cooling water sampled at cation exchanger outlet

3. 炉心構成材料中のUの分析方法

JMTR 炉心の主な構成材である Be(反射体), Al合金(燃料要素被覆材, 燃料要素側板, 反射体), ステンレス鋼(照射設備), ジルカロイ-2(γ 遮蔽板)および1次系への供給水について不純物として含まれているUの分析を行なった。分析に用いた試料のうち, Beは現在までにJMTR炉心で用いられた3世代のBe棒(各世代の使用期間は, 第1世代: 1969年12月~75年6月, 第2世代: 1975年12月~83年6月, 第3世代: 1983年12月~)とおのの同一ロットの試料を用いた。Al合金は燃料要素被覆材(A1200合金)および燃料要素側板(A6061合金)とそれぞれ同一ロットの試料を用いた。ステンレス鋼とジルカロイ-2は市販の板材を試料とした。1次系への供給水は通常のイオン交換水である。

Uの分析は放射化分析法によった⁶⁾。すなわち, 試

料をJRR-2で中性子照射後, 生成した ^{239}Np をTTA(テノイルトリフルオロアセトン)で抽出分離して γ 線測定する方法で分析した。ただし Be については, U含有率が高かったため ^{239}Np の抽出分離をせず, 中性子照射した試料を直接 γ 線測定して ^{239}Np 生成量を求め, この値からU含有率を求めた。

IV. 結 果

1. 定常運転時の放射性I濃度

定常運転時の1次冷却水中の放射性I濃度をJMTRの第36~66サイクル運転についてFig. 5に示す。放射性I濃度は最も高濃度の ^{134}I で約 $4 \times 10^6 \text{ Bq/m}^3$, 最も低濃度の ^{131}I で約 $4 \times 10^4 \text{ Bq/m}^3$ であった。これらの濃度には大きな変動はなかったが, Fig. 5の期間内では徐々に減少する傾向が見られた。

Fig. 5 Radioiodine concentration in primary cooling water (Cycle #36~66)

第35サイクル以前には核種ごとの測定はしていないので, GM計数管を用いた測定法⁶⁾による全放射性I濃度を, 顕著な変化のあった期間についてのみFig. 6に示す。この期間では第34サイクルから濃度が上昇し, 第33サイクル以前の約5倍となった。

Fig. 7にJMTRの1運転サイクル期間中の放射性I濃度を示す。 ^{132}I は一定の濃度に達するまでに出力上昇後4~5日を要したが, 他のI核種は50 MW到達

後24h以上経過すれば濃度はほぼ一定となった。なお後半サイクルの初めの点は50 MW到達後約10minにおける測定点であるため, 他の測定点より低い値を示した。

なお, アニオン塔出口における放射性I濃度はどの核種も $7 \times 10^4 \text{ Bq/m}^3$ 以下であった。したがってイオン交換樹脂塔での除去効率はほぼ100%と考えられる。

Fig. 6 Radioiodine concentration in primary cooling water (Cycle #32~35)

2. 炉心構成材料中のU含有率⁽⁵⁾

放射化分析による炉心構成材料中のUの分析結果をTable 2に示す。この結果からBe中にかなりのUが含まれていることがわかった。測定した中での最高濃度は第2世代のBe枠の42 ppmであった。第1世代では約10 ppm、現在使用中の第3世代のBe枠では24 ppmのU含有率であった。

Table 2 U contents in structural materials

Structural material	U content (ppm)
Be	
1st generation Be frame	9.6
2nd generation Be frame	42
3rd generation Be frame	24
Al	
Side plate of fuel element	0.32
Clad of fuel plate	0.19
Stainless steel	
SUS 304	<0.02
SUS 316	<0.03
Zircaloy-2	
A (plate)	0.12
B (pipe)	0.055
Demineralized water	<0.0005

Fig. 7 Variation of radioiodine concentration during one operation cycle (Cycle #65)

このほかの材料では、Al合金から0.2~0.3 ppm、ジルカロー-2から約0.1 ppmのUが検出され、ステンレス鋼や原子炉1次冷却水の給水であるイオン交換水からは検出されなかった。なお、Hf材については分析しなかったが、制御棒材の成分表によれば、U含有率は0.6 ppm程度であった⁽⁷⁾。

V. 考 察

1. 炉心構成材料中のUからの放射性Iの放出量

主な炉心構成材料の1つであるBeから最高42 ppmのUが検出されたので、定常運転中にこのBeから放出される放射性Iの量を以下に計算する。この計算を正確に行うためには、壊変系列上の各核種について1次系内の物質収支を追う必要がある。しかしIの親核種であるTeは1次系内の壁面に付着しやすく⁽⁸⁾、正確な物質収支を求めることは困難である。このためTeの半減期が短く、1次系内でのTeの挙動が娘核種であるIの物質収支にほとんど影響を及ぼさないと考えられる質量数135の系列について計算を行うこととした。この系列では¹³⁵Iの先行核種である¹³⁵Sb ($T_{1/2}=1.7$ s)と¹³⁵Te (19.2 s)はともに半減期が短いため、これらに対する計算は省略し、¹³⁵I (6.61 h)のみについ

て累積核分裂収率を用いて物質収支を計算しても大きな誤差は生じないと考えられる。計算は次のように行なった。まず、 ^{135}I の反跳による水中への放出速度は次式で与えられる⁽⁹⁾。

$$r = y\phi\Sigma SR/4 \quad (1)$$

ここで、 r ： ^{135}I の水中への放出速度 (s^{-1})

y ： ^{135}I の累積核分裂収率

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

Σ ：巨視的核分裂断面積 (cm^{-1})

S ：炉心部で冷却水に接している

Beの表面積 (cm^2)

R ：反跳飛程 (cm)

また、放出源がBeからの反跳のみであるとした場合の1次冷却水中の ^{135}I 濃度変化は次式で表わされる。

$$\frac{dn}{dt} = \frac{r}{V} - \lambda n - \frac{Q}{V} n \quad (2)$$

ここで、 n ： ^{135}I の濃度 (cm^{-3})

t ：時間 (s)， λ ：崩壊定数 (s^{-1})

Q ：精製系流量 ($\text{cm}^3\cdot\text{s}^{-1}$)

V ：1次冷却水総量 (cm^3)

定常状態では $dn/dt=0$ であるので、この時(2)式と(1)式から(3)式が得られる。

$$n = \frac{y\phi\Sigma SR}{4(\lambda + Q/V)V} \quad (3)$$

したがって、(3)式から定常状態における ^{135}I の濃度を求めることができる。(3)式で、 $V=1.60\times 10^8\text{ cm}^3$ であり、 Q は変動があるが平均的には $Q=1.1\times 10^4\text{ cm}^3\cdot\text{s}^{-1}$ であるから、 $Q/V=6.88\times 10^{-5}\text{ s}^{-1}$ である。 ^{135}I の場合、 $y=6.41\times 10^{-2}$ ⁽⁹⁾、 $\lambda=2.91\times 10^{-5}\text{ s}^{-1}$ ⁽¹¹⁾であり、また、 ^{135}I がBeから反跳で放出される場合の反跳飛程はWardの式⁽⁹⁾により $R=1.2\times 10^{-3}\text{ cm}$ と計算される。またBe中のU含有率が42 ppmの場合、 $\Sigma=8.20\times 10^{-7}\text{ cm}^{-1}$ である。Be棒の表面積は $S=1.27\times 10^5\text{ cm}^2$ と計算されており、熱中性子束については、Be棒のある各格子位置での熱中性子束にその格子位置でのBeの表面積を考慮に入れてBe棒全体での加重平均を求めることにより、 $\phi=1.63\times 10^{14}\text{ s}^{-1}\cdot\text{cm}^{-2}$ が得られた。これらの値を(3)式に代入した結果 ^{135}I の水中濃度は $6.0\times 10^5\text{ Bq/m}^3$ となった。

炉心で使用されているAl合金には0.2~0.3 ppmのUが含まれているが(Table 2)、Al合金の表面積はBe棒の約5倍なので、Al合金から放出される放射性IはBe棒の場合の1/20程度である。またステンレス鋼、ジルカロイ-2およびHf中のU含有率は小さく、またこれらの材料はBeやAl合金に比べて炉心での使用量が少ないので、これらから生成する放射性Iは無視できると思われる。原子炉の給水中のU濃度は低く、

給水から1次系内に持ち込まれたUからの放射性Iの生成量は少ないと考えられる。

2. 放射性Iの放出源

JMTR 1次冷却水中の放射性Iの主な放出源となる可能性のある、燃料破損、燃料被覆表面のU汚染、炉心構成材料中の不純物Uについて以下に考察する。

まず燃料破損の可能性について考えると、燃料が破損した場合には破損の発生および破損燃料の取出しに伴って水中の放射性I濃度が変動するはずであるが、Fig. 5に示したように、濃度の変動は比較的少なく燃料破損が生じているとは考えられない。現在までの運転期間を通じて最も大きな濃度上昇のあった第34サイクル(Fig. 6)の場合でも、上昇後の濃度はほぼ一定であり、すべての燃料が入れ換えられた第35サイクル後半においても放射性I濃度に変化がなかったことから、燃料破損による濃度上昇とは考えられない。

次に、燃料被覆表面のU汚染については、燃料要素製作時にスミヤ法で測定しているが、ほとんどの場合検出限界(約 $0.01\text{ }\mu\text{g }^{235}\text{U}/900\text{ cm}^2$)以下であった。仮に $0.01\text{ }\mu\text{g }^{235}\text{U}/900\text{ cm}^2$ の汚染がすべての燃料板上にあった場合、核分裂によって生成した放射性Iがすべて水中に放出されるとして、 ^{135}I の水中濃度に対して $2\times 10^5\text{ Bq/m}^3$ 分の寄与となる。これは実測濃度の約1/8であるが、実際の表面U汚染はほとんどの場合 $0.01\text{ }\mu\text{g }^{235}\text{U}/900\text{ cm}^2$ 以下なので、表面U汚染により生成する放射性Iの寄与は小さいと推測される。

一方、炉心構成材料中のUは、Be棒中から最高42 ppmという高い濃度で検出された(Table 2)。前述のようにこのBe棒から放出される放射性Iは ^{135}I の水中濃度で $6.0\times 10^5\text{ Bq/m}^3$ と計算され、この値は通常運転時の ^{135}I の実測濃度に近い値である。実測濃度に対する、Be棒から放出された放射性Iの寄与の大きさは、Be棒交換前後の定格運転時の放射性I濃度を比較することにより概略知ることができる。

Be棒の第1回目の交換は第33サイクル運転後に行われ、第1世代(U含有率9.6 ppm)から第2世代(同42 ppm)へと交換された。交換前後の運転時における放射性I濃度はFig. 6に示したように約5倍に上昇しており、Be棒中のU含有量の変化と良く対応している。また、第2世代から第3世代(同24 ppm)への交換の場合も、交換直後の第64サイクルの放射性I濃度は第2世代初期における濃度の約1/2に減少し(Fig. 5)、Be棒中のU含有率の変化と良く対応している。このことからBe棒から放出された放射性Iの寄与がかなり大きいことがわかった。

Be 棒中の U が放射性 I の主な放出源とした場合、U の燃焼が進むにつれて水中の放射性 I 濃度が変化するのはである。Be 中の U は天然 U であるから、燃焼に伴い ^{235}U が減少する一方で ^{239}Pu や ^{241}Pu が生成し、これらからも放射性 I が生成する。JMTR 炉心で照射した場合に、天然 U 中に存在あるいは生成する ^{235}U , ^{239}Pu , ^{241}Pu による単位時間当りの核分裂数の変化を ORIGEN-JR コード⁽¹²⁾を用いて計算し、Fig. 8 に実線で示す。この曲線から、Be 棒 1 世代の照射時間約 550 d の間に水中の放射性 I 濃度は約 1/2 に減少することが予想される。この曲線は図中に示した第 2 世代 Be 使用期間中の ^{134}I 濃度変化(実測)とはほぼ一致しており、放射性 I 濃度は Be 棒中の U に起因する単位時間当りの核分裂数と共に変化することがわかった。

Fig. 8 Variation of fission rate of natural U

これらのことから JMTR 1 次冷却水中の放射性 I は主として、炉心で反射体として使われている Be 棒から放出されていると考えられる。なお炉心で使用されている Be としては、Be 棒のほかに反射体要素および Be フォロワがあり、これらに含まれる U からの寄与もあるはずであるが、どの程度の寄与があるのか現在の段階では明らかではない。

また、炉心構成材料のうち Al については松下らも U 分析を行なっている⁽¹³⁾。これによれば Al 中の U 含有率は 1~4 ppm であり、本報の測定結果の約 10 倍であった。炉心の高中性子束領域で使用されている Al 材料の表面積は Be 棒の約 5 倍なので、このように U 含有率の高い Al 材を使用した場合には、これが Be 棒と

ほぼ同等の放射性 I 放出源となることが考えられる。

このように、炉心で使用される材料の U 含有率によって放射性 I の主な放出源は変化する可能性がある。したがって、今後の運転中の任意の時点における放出源を明らかにし、さらに燃料破損の有無について適確な判断をするために、炉心構成材料中の不純物 U 量を常に正確に把握しておくことが必要である。

Ⅶ. 結 論

JMTR 1 次冷却水中から検出される放射性 I の放出源を明らかにするため、現在までの放射性 I の測定結果の整理および主な炉心構成材料中の不純物 U の分析を行ない、次の結論を得た。

- (1) 炉心で反射体として使われている Be 棒から最高 42 ppm の U が検出された。
- (2) この U からはほぼ実測水中濃度に相当する量の放射性 I が放出されることが計算により明らかとなった。
- (3) 水中放射性 I 濃度の変動時期および変動の程度は、Be 棒の交換時期および交換による Be 棒中の U 含有率の変化とそれぞれ良く対応した。
- (4) これらのことから水中の放射性 I は主として、炉心で反射体として使用されている Be 棒から生成していると考えられる。

本調査を行うに当り分析用試料を提供して頂いた日本原子力研究所の武田卓士、雨沢博男、瀬崎勝二の各氏および ORIGEN-JR コードによる計算に協力頂いた桜井文雄、大島邦男、小向文作の各氏に厚く御礼申し上げます。

— 参 考 文 献 —

- (1) BEAVER, R.J., et al.: ORNL-3206, (1961).
- (2) 野崎徹也, 岡本眞實: 原子力誌, 25(10), 816~821 (1983).
- (3) 戸根弘人, 他: JAERI-1213, (1972).
- (4) 山本克宗, 他: JAERI-M 7801, (1978).
- (5) 米沢伸四郎, 他: 原子力誌, 29(1), 58~63 (1987).
- (6) 戸根弘人, 他: JAERI-M 4594, (1971).
- (7) 武田卓士: 私 信, (1985).
- (8) Martin Nuclear: MND-FBR-1696, (1959).
- (9) WARD, J.C.: ORNL-3152, (1961).
- (10) MEEK, M.E., RIDER, B.F.: NEDO-12154-1, (1974).
- (11) LEDERER, C.M., SHIRLEY, V.S.: "Table of Isotopes", (7th ed.), (1978), John Wiley & Sons, New York.
- (12) KOYAMA, K., et al.: JAERI-M 8229, (1979).
- (13) MATSUSHITA, R., KOYAMA, M.: Annu. Rep. Res. Reactor Inst. Kyoto Univ., 11, 169~176 (1978).