AESJ-SC-S004:202*

学会の
マーク

(案)

日本原子力学会標準

加圧水型原子炉一次冷却材の化学分析方法

- 放射性よう素：202*

202*年*月

一般社団法人 日本原子力学会

まえがき

“加圧水型原子炉一次冷却材の化学分析方法—放射性よう素:202x”は、一般社団法人日本原子力学会が、標準委員会 システム安全専門部会 水化学管理分科会 PWR 水化学管理指針作業会、同分科会、同専門部会及び同委員会での審議を経て制定し発行したものです。この標準では、プラントシステム全体の信頼性の維持、向上の観点から通常運転時、停止時及び起動時の燃料被覆管の健全性確認を目的として、原子炉一次冷却材の放射性よう素濃度を精度良く化学分析するための具体的方法を規定しています。

加圧水型原子炉（PWR：Pressurized Water Reactor）の一次系では、高温高圧環境下で一次系構成材料及び燃料被覆管が冷却材及び減速材としての水と接触しており、水質によっては、腐食反応により一次系構成材料及び燃料被覆管の健全性に影響を及ぼす可能性があります。また、一次系構成材料の腐食により発生する腐食生成物が水中に溶け出し炉心で放射化され一次系構成材料の表面に移行して蓄積すると、これが線源となって作業従事者の被ばく線量の上昇の原因となります。このため、水化学管理を適切に行うための指針の制定が必要とされてきました。

このような状況のもと、2011年に発生した福島第一原子力発電所事故の教訓を踏まえ、軽水炉の自主的安全性向上の取組みのもとに“加圧水型原子炉一次系の水化学管理指針：2019”が策定されました。水化学管理の主な目的として、一次系構成材料及び燃料被覆管の健全性維持並びに作業従事者の被ばく線量低減の3項目がありますが、原子力安全の基本原則のうち、一次系構成材料及び燃料被覆管の健全性維持は、“放射線リスク源を閉じ込めること”に繋がり、被ばく線量低減は、“人と環境を護ること”に繋がります。加圧水型原子炉一次系の水化学管理指針：2019”は、これらの概念を体系化し、原子力安全の達成、維持、向上に資することを目指して制定されています。

“加圧水型原子炉一次系の水化学管理指針：2019”では、一次系構成材料及び燃料被覆管の健全性維持並びに被ばく線量低減の観点から、通常運転時の原子炉一次冷却材の水化学管理項目、制御項目、診断項目、制御値、推奨値、アクションレベル、アクションレベル逸脱時の対応及び分析頻度並びに停止時及び起動時の原子炉一次冷却材の制御値、推奨値及び分析頻度を規定しています。また、品質管理の箇条で規定されている化学分析は、加圧水型原子炉一次系における水化学管理の品質を担保するものであり、原子力安全の基本原則のうち“異常・故障の発生防止”並びに“異常・故障の検知及び拡大防止”に該当します。加圧水型原子炉一次系システム全体の安全性確保に係る分析項目について適切に運用管理するためには、精度の高い信頼性に優れた化学分析を行う必要があります。“加圧水型原子炉一次系の水化学管理指針：2019”を下支えするための化学分析方法の策定が求められていました。

この標準では、これらの項目のうちJIS、ASTM及び放射能測定シリーズで標準化されていない原子炉一次冷却材の放射性よう素の化学分析方法を日本原子力学会標準として規定しました。よう素131は、“加圧水型原子炉一次系の水化学管理指針：2019”において、通常運転時、停止時及び起動時には原子炉一次冷却材において分析頻度が規定されています。よう素131はγ線放出核種で、その濃度はゲルマニウム検出器を用いて計測されますが、信頼性の高い定量分析では計測前に試料から妨害核種の影響を排除する化学操作が重要です。この標準では、よう素131を含む放射性よう素の化学分析の具体的な方法に関する一般事項、サンプリング、器具及び装置並びに化学分析操作を規定しています。

この標準は改定した後も、安全性向上に係る国内外の新知見をプラントの運用管理に適切に反映するため、プラントの運転経験及び新知見に基づく適用事例を解析しフィードバックを図ることにより、最新の化学分析技術を取り入れ、標準の改定を適宜行っていきます。このような活動を通じて、原子力発電所の

継続的な安全性向上に寄与できるものと期待されます。

公開権限版

Foreword

“Chemical analysis methods for primary coolant of PWR - radioactive iodine: 202*” was developed according to the discussions of the Water Chemistry Guideline Working Group for Pressurized Water Reactor, the Water Chemistry Committee, the System Safety Committee, and the Standards Committee organized by the Atomic Energy Society of Japan (AESJ). This standard stipulates concrete methods of analyzing the radioactive iodine concentration of reactor coolant accurately for maintaining the integrity of fuel claddings during power operation, shutdown and start-up from the viewpoint of maintaining and improving the reliability of all plant systems.

In the primary system of Pressurized Water Reactors (PWR), the structural materials and fuel claddings are immersed in the water used as a coolant and a neutron moderator under a high-temperature and high-pressure environment, and the integrity of the structural materials and fuel claddings may be affected by corrosion reactions depending on the water quality. Moreover, if the corrosion products generated by the corrosion of structural materials are released to and deposited on the surface of the fuel claddings, and then activated in the reactor core, the corrosion products will act as the radiation source and will cause an increase in the personnel dosage. For this reason, the establishment of PWR primary water chemistry guidelines to achieve the appropriate water quality management has been needed.

Under such circumstances, “Primary Water Chemistry Guidelines for Pressurized Water Reactors: 2019” shall be established independently to improve the safety of the light water reactors, based on the lessons learned from the Fukushima Daiichi nuclear power plant accident, which occurred in 2011. Water quality management has the following three purposes: Maintaining the integrity of the structural materials, maintaining the integrity of the fuel claddings, and reducing the personnel exposure dose. From the viewpoint of fundamental principles for nuclear safety, maintaining the integrity of the structural materials and fuel claddings leads to “confining sources of radiation risks,” and reducing the personnel exposure dose leads to “protecting people and the environment.” These concepts have been systemized, and the “Primary Water Chemistry Guidelines for Pressurized Water Reactors: 2019” was established for the purpose of contributing to the achievement, maintenance, and improvement of nuclear safety.

“Primary Water Chemistry Guidelines for Pressurized Water Reactors: 2019” stipulates control parameters, conditioning parameters, diagnostic parameters, conditioning and recommended values, action levels, responses when there is deviation from the action levels and analysis frequency for water chemistry for reactor primary water during power operation, as well as conditioning and recommended values and analysis frequency during shutdown and start-up, established from the viewpoint of maintaining the integrity of the structural materials and fuel claddings, and reducing the personnel exposure dose. Furthermore, the chemical analysis that is stipulated as a quality management item assures the quality of PWR primary water chemistry management and falls under “To prevent the occurrence of failures or abnormal conditions” and “To detect the failures or abnormal conditions and prevent the escalation of any such failures and abnormal conditions” for nuclear safety. In order to carry out operation management appropriately for the items concerning securing the safety of all the PWR systems, it is necessary to perform high-precision chemical-analysis measurements with outstanding reliability, and the establishment of standard chemical-analysis methods is required to underpin the “Primary Water Chemistry Guidelines for Pressurized Water Reactors: 2019”.

This standard stipulates the methods of analyzing the radioactive iodine concentration of reactor coolant as AESJ standards, which have not been standardized in the Japanese Industrial Standards (JIS). “Primary Water Chemistry

Guidelines for Pressurized Water Reactors: 2019” specifies the analysis frequency of iodine 131 during power operation, shutdown and start-up. Radioactive iodine is a gamma ray emitting nuclide and the concentration of radioactive iodine is measured using a germanium detector. In a reliable quantitative analysis, it is important to eliminate the influence of the nuclides affecting the detection limit from samples before measurement. This standard stipulates concretely general items for radioactive iodine analysis methods, sampling, instruments, equipment, and analytical practice.

After this standard has been established, the feedback from plant operation experiences and case studies based on new observations, and the latest chemical analysis technology will be incorporated into the standard, and then this standard will be updated in order to appropriately apply new knowledge related to safety improvements to plant operation management. These activities will contribute to the continuous improvement of nuclear power plant safety.

制定：202*年*月**日

この標準についての意見又は質問は、一般社団法人日本原子力学会事務局標準委員会担当（〒105-0004 東京都港区新橋 2-3-7 TEL 03-3508-1263）にご連絡ください。

免責条項

この標準は、審議の公平性、公正性、公開性を確保することを基本方針として定められた標準委員会の規則類に従って、所属業種のバランスに配慮して選出された委員で構成された委員会にて、専門知識及び関心を有する人々が参加できるように配慮しながら審議され、さらにその草案に対して産業界、学界、規制当局を含め広く社会から意見を求める公衆審査の手続きを経て制定されました。

一般社団法人日本原子力学会は、この標準に関する説明責任を有しますが、この標準に基づく設備の建設、維持、廃止などの活動に起因する損害に対しては責任を有しません。また、この標準に関連して主張される特許権及び著作権の有効性を判断する責任もそれらの利用によって生じた特許権及び著作権の侵害に係る損害賠償請求に応じる責任もありません。そうした責任は全てこの標準の利用者にあります。

なお、この標準の審議に規制当局、産業界の委員が参加している場合においても、この標準規制当局及び産業界によって承認された

標準作成ガイドライン:2020 参照

Disclaimer

This standard was developed a 標準作成ガイドライン:2020 参照 balance with the Standards Committee Rules, which assure Balance, Due process, and Openness in the process of deliberating on a standard. The Committee is composed of individuals who are competent or interested in the subject and elected, keeping the balance of organizations they belong in the subject, with their professional affiliations well-balanced as specified in the Rules. Furthermore, the standard proposed by the Committee was made available for public review and comment, providing an opportunity for additional input from industry, academia, regulatory agencies and the public-at-large.

AESJ accepts the responsibility for interpreting this standard, but no responsibility is assumed for any detriment caused by the actions based on this standard during construction, operation, or decommissioning of facilities. AESJ does not endorse or approve any item, construction, device or activity based on this standard.

AESJ does not take any position with respect to the validity of any patent rights or copyrights claimed in relation to any items mentioned in this document, nor assume any liability for the infringement of patent rights or copyrights as a result of using this standard. The risk of infringement of such rights shall be assumed entirely by the users.

The Committee acknowledges with appreciation the participation by regulatory agency representatives and industry-affiliated representatives, whose contribution is not to be interpreted that the government or industry has endorsed this standard.

著作権

文書による出版者の事前了解なしに、この標準のいかなる形の複写・転載も行ってはなりません。
この標準の著作権は、全て一般社団法人日本原子力学会に帰属します。

Copyright

No part of this document may be reproduced in any form, without the prior written permission of the AESJ.
Copyright © 202x Atomic Energy Society of Japan All Right Reserved

標準作成ガイドライン:2020 参照

原子力標準の位置付けについて

“加圧水型原子炉一次冷却材の化学分析方法 — 放射性よう素：201*”は、1999年9月22日に設置された日本原子力学会標準委員会（Standards Committee of AESJ）が、原子力施設の安全性と信頼性を確保してその技術水準の維持・向上を図る観点から、原子力施設の設計・建設・運転・廃止措置などの活動において実現すべき技術のあり方を、原子力技術の提供者、利用者、専門家の有する最新の知見を踏まえ、影響を受ける可能性のある関係者の意見をパブリックコメントをも通じて聴取するなど公平、公正、公開の原則を遵守しながら審議し、合意したところを文書化した原子力標準の一つです。

標準委員会は、専門家集団の果たすべきこのような役割と責任を意識しながら、原子力施設の安全性と信頼性の達成に必要なニーズに対応する標準策定活動を行うために、公平、公正、公開の原則に則って定めた運営規則に従い、システム安全専門部会でのこの標準の原案を作成しました。この標準が標準委員会設置の趣旨を踏まえて各方面で活用されることを期待します。

なお、この内容については、
こととしておりますので、本
も歓迎します。

Later

として5年ごとに改定する
定に向けてのご提案をいつで

202x年x月

標準委員会
委員長 関村 直人

システム安全専門部会の活動について

システム安全専門部会（以下、本専門部会）は、標準委員会の下で、原子力施設のシステム安全に関する標準を制定する活動を行っています。”システム安全”のゴールは、複雑な原子力施設をシステムとしてとらえ、総合的な安全を確保することです。具体的には、原子力システムの安全設計や、運転や保守における安全確保に関する考え方などについて、最新の技術的知見を標準としてまとめるとともに、継続的な改善を進める活動を行っています。

2011年3月11日の東日本大震災によって引き起こされた東京電力株式会社福島第一原子力発電所の事故によって、原子力発電に対する国民の信頼が大きく損なわれました。国内外で多くの事故調査報告書が刊行され、様々な視点からの改善提案がなされており、数多くの具体的な安全性向上対策が積極的に進められています。本専門部会の活動についても、しっかりと反省し、二度と大規模な事故を起こさないために、改善を進めていく必要があります。具体的には、従来不十分であった、シビアアクシデントの発生防止、拡大防止及び影響緩和のために必要な標準の策定に、体系的かつ一体的に取り組んでいます。さらに、原子力発電の安全・安定運転に対して従来から取り組んでいる、自主的安全性向上、高経年化対策、炉心燃料、水化学などの標準にも従来に増して安全性の徹底が求められており、引き続き積極的に改善を進めていきます。

このような多くの課題に対して、原子力発電の安全性及び信頼性の一層の向上を図るためには、関係する産業界、学术界、国・官界、学協会が俯瞰的かつ有機的な連携を図っていくことが必要です。さらに、原子力発電所の安全を確保するために、仕様規定となる標準を民間がシームレスな関係となり、総合関係組織との役割分担を明確にし、安全に係る標準を体系的かつ計画的に整備する活動を推進しています。対象とする標準としては、国の規制に含まれるものから産業界の諸活動における手引き類までを含みます。国際的な視点がかかります重要になってきており、専門部会の活動にも国際的活動を積極的に取り組んでいきます。

本専門部会は公開で行われていますので、事前に連絡頂ければ傍聴することができます。また審議過程は議事録として残し、ホームページにも掲載されますので、活動状況を確認いただくこともできます。標準は、継続的に改善されていくことが必要です。新技術の開発状況や新たに得られた知見に基づいて適切に改定されていくことによって、その利用価値が維持できるものです。少なくとも年に一度は本専門部会で改定の必要性について検討を行うとともに、原則として5年ごとに改定版を発行することを目標に、活動を進めていきたいと考えています。

202x年9月

標準委員会
システム安全専門部会
部会長 岡本 孝司

標準委員会，専門部会，分科会 委員名簿

標準委員会

(順不同，敬称略)

(2010年9月9日現在)

委員長	宮野 廣	法政大学	委員	三枝 利有	(財)電力中央研究所
副委員長	平野 光將	東京都市大学	委員	佐藤 昇平	(独)原子力安全基盤機構
副委員長	関村 直人	東京大学	委員	柴田 洋二	(社)日本電機工業会
幹事	有富 正憲	東京工業大学	委員	谷川 尚司	日立GEニュークリア・エナジー (株)
幹事	岡本 孝司	東京大学	委員	千種 直樹	関西電力(株)
委員	青柳 春樹	日本原燃(株)			
委員	井口 哲夫	名古屋大学			
委員	石原 雅	中部電力(株)			
委員					
委員					
委員					
委員	岡本 太志	富士電機システムズ(株)	委員	平野 雅司	(独)日本原子力研究開発機構
委員	小原 徹	東京工業大学	委員	古川 雄二	三菱重工(株)
委員	喜多尾 憲助	ISO/TC85・IEC/TC45 国内委員会	委員	水繰 浩一	九州電力(株)
			委員	山下 和彦	東京電力(株)

制定後修正

旧委員 (所属は委員会参加当時)

阪口 正敏 (中部電力(株))，神田 忠雄 (経済産業省原子力安全・保安院)，
柳沢 務 ((独)日本原子力研究開発機構)，重政 弥寿志 ((独)原子力安全基盤機構)，
松本 史朗 (埼玉大学)，山根 義宏 (名古屋大学)，莊野 尚志 (九州電力(株))，
辻 昭夫 (日立GEニュークリア・エナジー(株))，吉田 昌郎 (東京電力(株))，

常時参加者

菊池 恂 (内閣府 原子力安全委員会事務局)，小口 一成 (原子燃料工業(株))，
中村 隆夫 (関西電力(株))

システム安全専門部会

(順不同, 敬称略)
(2010年9月7日現在)

部会長	関村 直人	東京大学	委員	釵田 裕史	日本原子力発電(株)			
副部会長	更田 豊志	(独)日本原子力研究開発機構	委員	竹内 力	日立GEニュークリア・ エナジー(株)			
幹事	河井 忠比古	一般社団法人 日本原子力技術協会	委員	中村 隆夫	大阪大学			
委員	阿部 弘亨	東京大学	<div style="border: 1px solid black; padding: 20px;"> <h1 style="margin: 0;">制定後修正</h1> </div>					
委員	木下 幹康	(財)電力中央研究所				委員	文能 一成	(株)原子力エンジニアリング
委員	工藤 義朗	(株)グローバル・ニュークリア・ フュエル・ジャパン				委員	卷上 毅司	東京電力(株)
委員	黒村 晋三	経済産業省 原子力安全・保安院				委員	益子 裕之	原子燃料工業(株)
						委員	松岡 由了	三菱原子燃料(株)
			委員	三島 嘉一郎	(株)原子力安全システム研究所			

旧委員 (所属は委員会参加当時)

荒川 恵史 (関西電力(株)), 西村 章 ((株)グローバル・ニュークリア・フュエル・ジャパン),
 藤田 博之 ((株)原子力エンジニアリング), 和智 信隆 (日本原子力発電(株)),
 平野 雅司 ((独)日本原子力研究開発機構), 菅野 真紀 ((独)原子力安全基盤機構),
 阿部 守康 (東京電力(株)), 瀧口 英樹 (日本原子力発電(株))

常時参加者

中村 年孝 (関西電力(株))

水化学管理分科会

(順不同, 敬称略)
(2010年5月26日現在)

主査 勝村 庸介 東京大学
 副主査 内田 俊介 元東北大学
 幹事 中村 年孝 関西電力(株)
 委員 会沢 元浩 日立 GE ニュークリア・

委員 荘田 泰彦 三菱重工業(株)
 委員 鈴木 良男 東京電力(株)
 委員 高木 純一 (株)東芝

制定後修正

委員 篠原 靖周 ニュークリア・デベロップメント
 (株)

旧委員 (所属は委員会参加当時)

磯部 毅 (三菱マテリアル(株)), 佐野 浩一 (経済産業省 原子力安全・保安院),
 塩川 隆弘 (三菱重工業(株)), 仲田 清智, 坂本 博司 ((独)原子力安全基盤機構),
 黛 正己 ((財)電力中央研究所)

常時参加者

石原 伸秋 (四国電力(株)), 市川 幸司 (北陸電力(株)), 伊東 歩 (九州電力(株)),
 伊藤 重 (東北電力(株)), 北島 英明 (一般社団法人日本原子力技術協会), 金岡 正 (中国電力(株)),
 河合 宣夫 (中部電力(株)), 實重 宏明 (東京電力(株)), 竹田 雅史 (電源開発(株)),
 西村 孝夫 (三菱重工業(株)), 久宗 健志 (日本原子力発電(株)), 松浦 正和 (関西電力(株)),
 渡辺 義史 (北海道電力(株))

PWR 水化学管理指針作業会

(順不同, 敬称略)
(2017年5月26日現在)

主査	河村 浩孝	(一財)電力中央研究所	委員	寺地 巧	(株)原子力安全システム
副主査	荘田 泰彦	三菱重工業(株)			研究所
幹事	梅原 隆司	(一社)原子力安全推進協会	委員	中野 信夫	関西電力(株)

委員
委員

制定後修正

平野 秀朗 ((一財)電力中央研究所), 渡辺 義史 (北海道電力(株)), 山下 盛道 (九州電力(株)),
一丸 忠志 (九州電力(株)), 北島 英明 ((一社)原子力安全推進協会), 都筑 康男((一社)原子力安全推進協会), 高橋 明
(九州電力(株)), 武田 耕太郎 (北海道電力北海道電力(株)), 石原 信秋 (四国電力(株)),
真鍋 裕之 (四国電力(株))

常時参加者

美濃 健太 (日本原子力発電(株))

標準の利用に当たって

標準は対象とする技術，活動あるいは結果の仕様について関係者のコンセンサスを規定しているものです。標準にはこうあるべきという義務的事項の他，こうあってもよいとして合意された非義務的な事項も含まれています。しかし，標準は，対象としている技術，活動あるいは結果の仕様について，規定している以外のものを排除するものではありません。

また，標準が規定のために引用している他規格・標準は，記載された年度版のものに限定されます。標準は全体として利用されることを前提に作成されており，公式な解釈は標準委員会が行います。標準委員会はそれ以外の解釈については責任を持ちません。標準を使用するに当たってはこれらのことを踏まえてください。

なお，標準委員会では，技術の進歩に対応するため，定期的に標準を見直しています。利用に当たっては，標準が最新版であることを確認して下さい。

Later

心家雜直版

目 次

	ページ
序文	1
1 適用範囲	1
2 引用規格	1
3 用語及び定義	2
4 一般事項	2
4.1 化学分析方法の通則	2
4.2 化学分析に用いる試薬類, 器具類及び水	2
4.3 放射性試料の取扱い	3
5 試料採取	3
5.1 試料容器	3
5.2 試料採取操作	3
6 沈殿法	3
6.1 適用する濃度範囲	3
6.2 試薬	3
6.3 器具及び装置	4
6.4 操作	5
7 陰イオン交換フィルタ法	6
7.1 適用する濃度範囲	6
7.2 試薬	6
7.3 器具及び装置	6
7.4 放射能測定に係る操作	7
8 品質保証	8
附属書 A (参考) 原子炉一次冷却材試料の採取系統の例	9
附属書 B (参考) 陰イオン交換フィルタ法でのろ過の例	10
解説	11

心家雜直版

日本原子力学会標準

加圧水型原子炉一次冷却材の化学分析方法 — 放射性よう素:202*

Chemical analysis methods for primary coolant of PWR

— Radioactive iodine

序文

この標準は、AESJ-SC-S008:2019“加圧水型原子炉一次系の水化学管理指針:2019”において燃料被覆管健全性評価に係る通常運転時、停止時及び起動時の測定頻度が規定されたよう素131濃度を含む放射性よう素（よう素131及びよう素133）の化学分析方法を規定することにより、加圧水型原子炉（PWR）システム全体の安全性確保に資することを目的としている。

1 適用範囲

この標準は、加圧水型原子炉一次冷却材から試料を採取し、放射性よう素（よう素131及びよう素133）濃度を定量するための化学分析方法について規定する。

2 引用規格

次に掲げる規格は、この標準に引用されることによって、この標準の規定の一部を構成する。これらの引用規格は、その追補を含む。これらの引用規格は、記載の年の版だけがこの規格を構成するものであって、その後の改訂（改正、改定）版・追補には適用しない。西暦年の付記がない引用規格は、その最新版（追補を含む。）を適用する。

なお、引用規格とこの標準の規定に相違がある場合は、この標準の規定を優先する。

JIS K 0050	化学分析方法通則
JIS K 0094	工業用水・工場排水の試料採取方法
JIS K 0101	工業用水試験方法
JIS K 0102	工場排水試験方法
JIS K 0211	分析化学用語(基礎部門)
JIS K 0216	分析化学用語(環境部門)
JIS K 0557	用水・排水の試験に用いる水
JIS K 8019	亜硝酸ナトリウム(試薬)
JIS K 8059	亜硫酸水素ナトリウム(試薬)
JIS K 8102	エタノール(95)(試薬)
JIS K 8271	キシレン(試薬)

JIS K 8541	硝酸(試薬)
JIS K 8550	硝酸銀(試薬)
JIS K 8559	硝酸鉄(Ⅲ)九水和物(試薬)
JIS K 8576	水酸化ナトリウム(試薬)
JIS K 8913	よう化カリウム(試薬)
JIS P 3801	ろ紙(化学分析用)
JIS R 3503	化学分析用ガラス器具
JIS R 3505	ガラス製体積計
JIS Z 1703	ポリエチレンびん
JIS Z 4001	原子力用語

AESJ-SC-S008:2019 加圧水型原子炉一次系の水化学管理指針

3 用語及び定義

この標準で用いる主な用語及び定義は、**JIS Z 4001**、**JIS K 0101**、**JIS K 0102**、**JIS K 0211**、**JIS K 0216**及び**AESJ-SC-S008:2019**によるほか、次による。

3.1

沈殿法

採取試料中の放射性よう素成分を沈殿・ろ過する方法

3.2

陰イオン交換フィルタ法

採取試料中の放射性よう素を陰イオン交換ろ紙に吸着させる方法

3.3

放射性よう素

核分裂によって生成し、 γ 線を放出する放射性同位体よう素の内、よう素 131 及びよう素 133

4 一般事項

4.1 化学分析方法の通則

化学分析方法に共通する一般事項は、**JIS K 0050**による。また、化学分析に係る活動は原子力発電所の品質保証活動の一環として実施する。

4.2 化学分析に用いる試薬類、器具類及び水

4.2.1 試薬類

- JISマーク表示品の最上級品質の試薬類を用いる。
- 試薬類の濃度は、質量濃度はg/L又はmg/L、モル濃度はmol/L又はmmol/Lで示す。化合物については、無水物としての質量を用いる。
- 試薬類の溶液名称の後に括弧で示される濃度は、標準液以外は概略の濃度である。

例 水酸化ナトリウム水溶液 (0.1 mol/L) は約0.1 mol/Lであることを示す。
溶液名称の前に示された濃度は、正確な濃度であるが、端数のない数値で示されているので、別途、ファクターを求める必要がある。
- 試薬類の名称は、“国際純正及び応用化学連合”(IUPAC)の無機化学命名法及び有機化学命名法に基づき、(公社)日本化学会が定めた化合物命名法及びJIS試薬名称による。

4.2.2 器具類

4.2.2.1 ガラス器具

JIS R 3503に規定するもの。

4.2.2.2 ガラス製体積計

JIS R 3505に規定するもの。

4.2.2.3 ポリエチレンびん

JIS Z 1703に規定するもの。なお、JIS K 1703には細口瓶が規定されているが、JIS K 0094に準じて他の形状（広口瓶等）でもよく、ポリプロピレン製の容器を使用してもよい。

4.2.3 水

強酸性イオン交換樹脂（水素イオン形）と強塩基性イオン交換樹脂（I型、水酸化物イオン形）との混合物を用いて精製し、25℃において電気伝導率が0.1 mS/m以下で、JIS K 0557のA3に相当するイオン交換水。

4.3 放射性試料の取扱い

原子炉一次冷却材は放射性物質を含有するため、放射性物質の取扱いに適した設備において、被ばくに留意して分析操作を行う。分析後の廃液は放射性廃棄物として処理する。

5 試料採取

5.1 試料容器

JIS Z 1703:1976に規定する試料容器（例 共栓つきポリエチレンびん）又は相当品。

5.2 試料採取操作

試料の採取に当たっては、主冷却材配管から試料採取箇所までのサンプリング配管内の体積の3倍量以上の原子炉一次冷却材を流した後、試料採取容器に試料を採取するか、又はサンプルフード内のサンプリング配管から試料を採取し、試料容器に入れる（附属書A参照）。ただし、主冷却材配管から試料採取箇所までのサンプリング配管の一部系統において原子炉一次冷却材を連続的に流している場合は、当該系統配管部分の体積を含まない。

6 沈殿法

6.1 適用する濃度範囲

適用する濃度範囲は、放射性よう素の内よう素 131 濃度で $10^2 \sim 10^4$ Bq/mL とする。

注記 ただし、同時に測定されるよう素133濃度も記録し、JEAC4213-2016にあるように、燃料被覆管破損がない場合は、よう素131濃度が37 Bq/mL未満且つよう素131/よう素133比が0.7未満の値で安定していること[1]を確認する。

6.2 試薬

6.2.1 よう素担体溶液(I: 10 g/L)

a) **調整** JIS K 8913 に規定するよう化カリウム 13.1 g を水に溶かし、全量を 1 L とする。調整した溶液は共栓褐色瓶に密栓して暗所に保存する^リ。なお、保存中に着色した溶液は使用しない。

注^リ この溶液は空気中で酸化されるとよう素を遊離するので、これを避ける。

b) **標定** 100 mL の水に、全量ピペットを用いてよう素担体溶液 5.0 mL を加え、さらに硝酸銀溶液 20 mL (6.2.10 に定義する 0.1 mol/L の溶液で良い) 及び濃硝酸 3 mL を加える。これを加熱して生成した沈殿

を質量既知のろ紙を用いてろ過し、1%硝酸及び水で洗浄する。恒量を得るまで100℃で乾燥させ、よう化銀沈殿の質量を電子天びんによって計測する。よう素担体濃度 C_1 (I: g/L) は、式 (1) によって求める。

$$C_1 = \frac{R \times W}{X_1} \dots\dots\dots(1)$$

ここに、 C_1 : よう素担体濃度 (I: g/L)
 R : I/AgI 分子量比 (=0.540 (-))
 W : よう化銀沈殿質量 (mg)
 X_1 : よう素担体液量 (=5.0 mL)

6.2.2 鉄担体溶液

JIS K 8559 に規定する硝酸鉄 (III) 九水和物 72 g に濃硝酸 1 mL を加え、水で全量を 1 L とする。

6.2.3 水酸化ナトリウム溶液

JIS K 8576 に規定する水酸化ナトリウム 100 g を水に溶かし、全量を 1 L とする。

6.2.4 次亜塩素酸ナトリウム溶液

試薬化学用で有効塩素を 5 % 以上含有するものを用いる。

6.2.5 濃硝酸

JIS K 8541 に規定するもの。

6.2.6 亜硫酸水素ナトリウム溶液

JIS K 8059 に規定する亜硫酸水素ナトリウム 100 g を水に溶かし、全量を 1 L とする。

6.2.7 キシレン

JIS K 8271 に規定するもの。

6.2.8 亜硝酸ナトリウム溶液

JIS K 8019 に規定する亜硝酸ナトリウム 50 g を水に溶かし、全量を 1 L とする。

6.2.9 硝酸(1+9)

濃硝酸と水を、1:9 の容積比で混合したもの。

6.2.10 0.1 mol/L 硝酸銀溶液

JIS K 8550 に規定する硝酸銀 17 g を水に溶かし、全量を 1 L とする。

6.2.11 エタノール

JIS K 8102 に規定するもの。

6.3 器具及び装置

4.2.2 によるほか、次による。

6.3.1 共栓褐色瓶

容量 1 L のもの。

6.3.2 加熱器

110℃以上に加熱可能なもの。

6.3.3 分液漏斗

容量 50~1000 mL のもの。

6.3.4 ろ紙

外径 25 mm で JIS P 3801 の 5 種 C に相当するもの。

6.3.5 吸引ろ過装置

真空ポンプ又はアスピレータによって減圧し、真空度を調整可能なもの。

6.3.6 乾燥器

110℃以上で乾燥可能で試料の飛散が防止できるもの。

6.3.7 電子天びん

最小表示値が 1 mg 以下のもの。

6.3.8 全量フラスコ

JIS R 3505 に規定するもの。

6.3.9 メスシリンダー又は全量ピペット

JIS R 3505 に規定するもの。

6.3.10 ゲルマニウム検出器

ゲルマニウム単結晶を半導体として用いる放射線検出器 (JIS Z 4001 参照)。

6.4 操作

- a) 試料 V (mL) をメスシリンダーで採取し、ビーカーに入れる。なお、採取量が少ない場合には全量ピペットを用いる。この際に分取する試料量は、ゲルマニウム検出器の計測条件 (試料との距離) を考慮し、よう素 131 の 0.364 MeV の γ 線ピークの正味計数値が 100 以上となるように調整する。また、正味計数率が 100 未満となる場合は、試料量を増やす。ゲルマニウム検出器で計測の際、波高分析器の不感時間が 10% を超える場合には試料量を減らす又は計測条件を見直す。
- b) 6.2.1 で調整したよう素担体溶液 (1 : 10 g/L) 1 mL、水酸化ナトリウム溶液 2 mL、次亜塩素酸ナトリウム 5 mL をそれぞれ全量ピペットで採りビーカーに加え、加熱器で加熱し沸騰させる。なお、放射性腐食生成物濃度が高く、放射性よう素濃度が低い試料の場合には、よう素担体溶液に続いて鉄担体溶液約 1 mL を加える。さらに、上記の操作で沸騰後放熱してろ紙を用いて吸引ろ過し、放射性腐食生成物を除去する。
- c) 濃硝酸を約 3 mL 加え酸性とし、亜硫酸水素ナトリウム溶液約 10 mL を加え約 5 分間放置する。
- d) 分液漏斗に移し、キシレン約 50 mL、亜硝酸ナトリウム溶液約 4 mL を加え振とうし、よう素をキシレン相へ抽出 (赤色) する。試料が多くなるとよう素が遊離しにくくなるので、亜硫酸水素ナトリウム溶液及び亜硝酸ナトリウム溶液の添加量を調整する²⁾。水相は廃棄する。
注²⁾ 操作(6.4c)で酸性にした後、亜硫酸水素ナトリウム溶液を加えてよう素を還元してよう化物イオンにする。その後、(6.4d)で亜硝酸ナトリウム溶液を加えてよう化物イオンを酸化してよう素とするが、試料量が多い場合には規定した添加量では還元反応、あるいは酸化反応が完結しないことがある。このため、抽出時にキシレン相が赤色を呈するように亜硫酸水素ナトリウム溶液、あるいは亜硝酸ナトリウム溶液の添加量を調整するのがよい。
- e) キシレン相に硝酸 (1+9) 約 25 mL を加え振とうする。硝酸相は廃棄する。
- f) キシレン相に水約 50 mL、亜硫酸水素ナトリウム溶液 1~2 滴を加え、振とうし、よう素を水相へ逆抽出 (消色) する。
- g) 上記 d)~f) を繰り返す。
- h) 分液漏斗から水相をビーカーに移し、硝酸 (1+9) 約 3 mL を加え、加熱器で静かに 1 分間沸騰させ二酸化硫黄を除去した後、硝酸銀溶液約 10 mL を加えよう化銀の沈殿を生成させる。
- i) 質量既知のろ紙を用いて吸引ろ過装置でろ過し、ろ紙上の沈殿を水約 5 mL、エタノール約 5 mL で各々 2 回洗浄する。

- j) ろ紙を乾燥器に入れ 110℃で 15～20 分間乾燥させ、デシケーター内で放冷後、電子天びんでその質量を計り、式 (2) によって収率 Y (%) を求める。

$$Y = \frac{R \times W_1}{C_1 \times X_1} \times 100 \quad \dots\dots\dots(2)$$

ここに、 Y : 収率 (%)
 W_1 : よう化銀沈殿質量 (mg)
 R : I/AgI 分子量比 (=0.540 (-))
 C_1 : よう素担体濃度 (I: g/L)
 X_1 : よう素担体液量 (=1.0 mL)

- k) 上記 j) のろ紙を固定用紙に貼るなどして固定し、ゲルマニウム検出器で計測する³⁾。
 l) 各同位体の放射性よう素量 A (Bq) を対応する γ 線のピーク計数値から求め、式 (3) によってそれぞれの放射能濃度 I (Bq/mL) を算出する。

$$I = \frac{A}{V \times Y / 100} \quad \dots\dots\dots(3)$$

ここに、 I : 放射性よう素濃度 (Bq/mL)
 A : 放射性よう素量 (Bq)
 V : 試料量 (mL)
 Y : 収率 (%)

注³⁾ 放射性よう素同位体同定の指標とする γ 線のエネルギーは次のとおりである。
 よう素131 — 0.364 MeV, よう素133 — 0.530 MeV

7 陰イオン交換フィルタ法

7.1 適用する濃度範囲

適用する濃度範囲は、放射性よう素の内よう素 131 濃度で $10^2 \sim 10^4$ Bq/mL とする。

注記 ただし、同時に測定されるよう素133濃度も記録し、JEAC4213-2016にあるように、燃料被覆管破損がない場合は、よう素131濃度が37 Bq/mL未満且つよう素131/よう素133比が0.7未満の値で安定していること[1]を確認する。

7.2 試薬

7.2.1 活性アルミナ

多孔質で比表面積が大きく、十分な吸着能をもつ酸化アルミニウム。

7.3 器具及び装置

4.2.2 によるほか、次による。

7.3.1 カラム

内径 20 mm 程度、フィルタ、コック付きクロマトグラフ管。

7.3.2 メンブランフィルタ

孔径 0.45 μ m 以下の網目を有する外径 25～47 mm のろ紙。

7.3.3 陰イオン交換ろ紙

正の固定電荷をもった多数のイオン交換基を備えたる紙とし、その外径は 7.3.2 に記すメンブランフィル

タと同じものを使用する。

7.3.4 吸引ろ過装置

6.3.5 による。

7.3.5 メスシリンダー又は全量ピペット

6.3.9 による。

7.3.6 ゲルマニウム検出器

6.3.10 による。

7.4 放射能測定に係る操作

7.4.1 活性アルミナによって試料中の¹⁸Fを除去する場合

7.4.1.1 カラムの準備

- 活性アルミナは、あらかじめ水で洗浄し微粉末を除去する。
- カラムを水で洗い流しながら約 100 mL の活性アルミナを充填し、カラム容量の 2 倍程度の水で洗浄して残留する微粉末を流し出す。

7.4.1.2 操作

- 活性アルミナ充填カラムに試料を流しビーカーでうける。活性アルミナ中に残留していた水の影響を除去するために、最初の流出液を 200 mL 以上廃棄する。なお、採取量が少ない場合は全量ピペットを用い、水により希釈した後カラムに通水する。
- 通水した試料をメスシリンダーに分取する。この際に分取する試料量 V (mL) はゲルマニウム検出器での計測条件を考慮し、よう素 131 の 0.364 MeV の正味計数値が 100 以上となるように調整する。また、正味計数率が 100 未満となる場合は、試料量を増やす。なお、ゲルマニウム検出器で計測の際、波高分析器の不感時間が 10% を超える場合には試料量を減らす又は計測条件を見直す。
- メンブランフィルタ及び陰イオン交換ろ紙をセットし(附属書 B 参照)、ろ過速度が 100 mL/min^[2] 以下となるよう真空度を調節して、試料を吸引ろ過する。陰イオン交換ろ紙に通水する試料が少ない場合には、陰イオン交換ろ紙に放射性よう素が均一に分布するように、必要に応じて水で試料を適切に希釈してから通水する。

なお、陰イオン交換ろ紙のロットが変わった場合又は放射性よう素濃度が大きく変化した場合には、2 枚重ねとした陰イオン交換ろ紙の 2 枚目の放射能測定によって、1 枚目の陰イオン交換ろ紙にて放射性よう素が吸着されていることを確認する。

- 陰イオン交換ろ紙を固定用紙に貼るなどして固定する。
- 上記 d) の陰イオン交換ろ紙をゲルマニウム検出器で計測する⁴⁾。
- 各同位体に対応する γ 線のピーク計数値から求めた放射性よう素量 A (Bq) に基づき、それぞれの放射能濃度 I (Bq/mL) を式 (4) によって算出する。

$$I = \frac{A}{V} \dots\dots\dots(4)$$

ここに、 I : 放射性よう素濃度 (Bq/mL)
 A : 放射性よう素量 (Bq)
 V : 試料量 (mL)

注⁴⁾ 放射性よう素同位体同定の指標とする γ 線のエネルギーは次のとおりである。

よう素 131 - 0.364 MeV, よう素 133 - 0.530 MeV

7.4.2 活性アルミナによる妨害核種の除去を行わない場合

活性アルミナに通水しない場合は、7.4.1.2b)から始め、7.4.1.2d)の操作後に一定の時間を置いて、短半減期核種 (^{18}F など) を減衰させてもよい。減衰時間は約 1 日間を目安とする。

8 品質保証

電気事業者は、原子力施設の保安のための業務に係る品質管理に必要な体制の基準に関する規則（令和二年原子力規制委員会規則第二号）[3]に従って原子力発電所の保安活動に係る品質マネジメントシステムを確立し、実施し、評価し、継続的に改善するという品質保証活動を実施している。加圧水型原子炉一次冷却材の放射性よう素分析に係る一般事項については **JIS K 0050** の規定によるが、原子力発電所全体の品質保証として、放射性よう素分析に係る活動についても、原子力施設の保安のための業務に係る品質管理に必要な体制の基準に関する規則（令和二年原子力規制委員会規則第二号）に従って実施するものである。

参考文献

- [1] **JEAC 4213-2016** 運転中の漏えい燃料発生の監視及び漏えい燃料発生時の対応規定
- [2] 日本原子力学会水化学部会編，“改訂原子炉水化学ハンドブック”，p275，コロナ社，（2022）。
- [3] 原子力施設の保安のための業務に係る品質管理に必要な体制の基準に関する規則（令和二年原子力規制委員会規則第二号）

附属書 A (参考) 原子炉一次冷却材試料の採取系統の例

この附属書は、本体に関連する事柄を説明するものであり、規定の一部ではない。

A.1 原子炉一次冷却材試料の採取系統の例

原子炉一次冷却材を採取する場合の、試料の冷却部及び減圧系統の例を図 A.1 に示す。図 A.1 において太線及び点線は主冷却材配管から試料採取箇所までの試料採取系統の一例である。試料は、系統に接続された試料採取容器にて採取するか、又はサンプルフード内のサンプリング配管から試料容器に入れて採取する。PWR の原子炉一次冷却材は高温・高圧であるため、冷却器、減圧棒によって降温・減圧させ試料採取する構造になっている。また、試料採取に伴う被ばくを低減するため、ディレイコイル又はディレイ配管を有しており、主冷却材配管から試料採取するまで一定の時間を経過させ、短半減期の放射性物質を減衰させる構造となっている。

原子炉一次冷却材試料の採取系統の運用はプラントによって異なるが、運転中、主冷却材配管から連続的に原子炉一次冷却材を通水し、サンプルシンク上流部から体積制御タンクへパージしているプラントもある。なお、この場合には、点線部分が試料採取前にパージを要する配管となる。

図 A.1—原子炉一次冷却材試料の採取系統（試料の冷却部及び減圧系統の例）

附属書 B

(参考)

陰イオン交換フィルタ法でのろ過の例

この附属書は、本体に関連する事柄を説明するものであり、規定の一部ではない。

B.1 陰イオン交換ろ紙でのろ過の例

イオン交換ろ紙を用いて試料をろ過する場合のセット方法の例を図 B.1 に示す。

図 B.1-1 吸引ろ過のセット方法の例

AESJ-SC-S004:202*

加圧水型原子炉一次冷却材の化学分析方法
- 放射性よう素:202*
解 説

この解説は、本体及び附属書に記載した事柄並びにこれらに関連した事柄を説明するものであり、標準の一部ではない。

1 制定の趣旨

原子炉の運転に伴い燃料中に生成する核分裂生成物は通常、燃料被覆管内に密封されているが、燃料被覆管に損傷が生じると、そこから原子炉一次冷却材中に漏出する。安全・安定運転を図る上で、運転中の加圧水型原子炉（PWR）プラントでは原子炉一次冷却材中の放射性よう素を定期的に測定し、燃料被覆管の健全性を確認している。

放射性よう素は γ 線放出核種でありゲルマニウム検出器によって計測できるが、精度良く定量分析するには妨害核種の影響を排除する化学操作が必要となる。PWRの水化学管理に用いる化学分析方法には、JIS、ASTM及び放射能測定シリーズで標準化されているものもある。しかし、放射性よう素については、国内外での運転実績及びこれまでの知見などを基に独自に化学分析方法が開発され適用されており、標準化したものはない。そこで、特にPWRで用いる放射性よう素の化学分析方法について実プラントでの運用を考慮して日本原子力学会標準として規定する。

2 改定の経緯

この標準は、標準委員会 システム安全専門部会の下に設けられた水化学管理分科会及びその作業会において原案作成を行い、同専門部会及び同委員会の審議並びに公衆審査を経て改定した。改定の背景及び必要性を次に示す。

2011年に発生した福島第一原子力発電所事故の教訓を踏まえ、軽水炉の自主的安全性向上への取り組みが必要とされ、原子力安全の確保及び継続的改善に資することを目的として“加圧水型原子炉一次系の水化学管理指針：2019”が制定された。同指針では、水化学管理の主な目的として、一次系構成材料・燃料被覆管の健全性維持及び作業従事者の被ばく線量低減を挙げている。また近年、自主的安全性向上の観点から炉心反応度制御の高度化が検討されており、炉心反応度制御についても水化学管理の目的のひとつとして求められるようになった。これらのうち、一次系構成材料及び燃料被覆管の健全性維持は原子力安全の基本原則のうち“放射線リスク源の閉じ込め”，作業従事者の被ばく線量低減は同じく“人と環境の防護”の達成に資するものである。すなわち、一次系構成材料は原子炉冷却材圧力バウンダリを構成しており、その健全性維持を図ることによって原子炉一次冷却材漏えいリスクを低下させる。また、燃料被覆管は燃料及び核分裂生成物を収納しており、その健全性維持を図ることによって燃料破損のリスクを低下させる。これらはいずれも“放射線リスク源の閉じ込め”に大きく寄与している。一方、原子炉一次冷却材の水化学管理を適切に行うことによって一次系構成材料の付着放射能レベルを低減し、作業従事者の被ばく線量低減を達成することが可能となる。これは“人と環境の防護”に大きく寄与している。そのため、同指針では、システム全体の安全性確保に係る項目について、管理項目、制御項目、診断項目、アクション

ンレベル，アクションレベル逸脱時の措置等を規定し，適切に運用管理することを求めている。

運用管理を適切に実施するためには，標準化した化学分析法に基づいて各項目を分析・評価する必要がある。これらの項目の中には既に JIS，ASTM 及び放射能測定シリーズにより化学分析手法が確立しているものも多くあるが，その一方で JIS，ASTM 及び放射能測定シリーズで規定されていない原子力分野固有の化学分析項目がある。具体的には，溶存水素，ほう素，ほう素同位体比，放射性よう素がそれに該当する。このうち，溶存水素は，燃料被覆管及び一次系構成材料健全性の維持を図る上で重要な分析項目であり，また，溶存水素濃度管理が被ばく線量低減にも影響すると考えられている。ほう素は，炉心の反応度を制御する上で重要な分析項目であり，一次系構成材料の健全性にも影響すると考えられている。放射性よう素は，燃料破損が生じた時に原子炉冷却材中に漏れいする核分裂生成物として迅速に検知するための分析項目であり，燃料被覆管の健全性維持を図る上で重要な分析項目である。このように，PWR 一次系化学分析標準は，管理値等の信頼性などが広く社会に認知される手段として“加圧水型原子炉一次系の水化学管理指針：2019”を下支えするものとなる。しかし，本分析標準の制定時には“加圧水型原子炉一次系の水化学管理指針：2019”が制定されていなかったため，原子力安全及び“加圧水型原子炉一次系の水化学管理指針：2019”との関係を明確化するために PWR 一次系化学分析標準を改定した。

解説図 1 に，原子力安全と加圧水型原子炉一次系の水化学管理指針：2019 及び PWR 一次系化学分析標準との関係を示した。

なお，PWR 一次系化学分析標準に対する原子力安全の要求事項は，上位概念の“加圧水型原子炉一次系の水化学管理指針：2019”のそれと同一であり，原子力安全に関わる深層防護のレベル 1 の異常・故障の発生防止及びレベル 2 の異常・故障の検知及び拡大防止に該当する安全基盤と位置付けられる。この体系が完成することで，標準的な化学分析方法による信頼性の高いデータの取得と化学分析技術の進歩に応じた改善等の PDCA が機能し，本来の自主的安全性向上の目的を達成することが可能となる。

解説図 1—PWR 一次系化学分析標準と原子力安全との関わり

3 改定後のフォロー

水化学管理に関わる化学分析方法の分野においても自主的安全性向上を取り入れる必要がある。改良水化学の導入又は耐食性の優れた材料への変更などにより水化学管理指針のアクションレベル、制御値及び推奨値を見直す際に、必要に応じて関連する化学分析標準の改定を行う。また、国内外における新たな化学分析機器の導入及び化学分析方法の提案等を受け、化学分析標準の改定を行う。この標準を改定した後も、安全性向上に係る新知見をプラントの運用管理に適切に反映するため、プラントの運転経験及び新知見に基づく適用事例を解析しフィードバックを図ることにより、最新の化学分析技術を取り入れ、標準の改定を行っていく（解説図2参照）。このような活動を通じて、PWRの継続的な安全性向上に寄与できるものと期待される。

注記 NRA：原子力規制委員会，IAEA：国際原子力機関，IAPWS：国際水・蒸気性質協会，EPRI：米国電力研究所，VGB：欧州大規模発電事業者技術協会

解説図2-PWR一次系化学分析標準に最新知見を取込む仕組み

4 審議中問題となった事項など

特に記載すべき事項はなかった。

5 懸案事項

特に記載すべき事項はなかった。

6 適用範囲について

この標準において測定する放射性よう素は、よう素131及びよう素133とする。よう素131は、燃料破損が

生じた際にこれを迅速に検知するために測定が必要であり、本標準において濃度範囲を規定している。よう素133は、よう素131/よう素133比による燃料被覆管破損判定を行う場合による素133濃度が必要であることから、よう素131と同じ原理で同時に測定されるよう素133濃度を記録するものとする。

7 原子炉一次冷却材中のよう素の化学形態

よう素の主要な解離反応は、次のような可逆反応である。

これらの解離平衡状態は電位、pH、よう素濃度に依存する。25℃での電位-pH図[1]を解説図3に示す。通常の室温における原子炉一次冷却材のpH範囲(5~7)においては停止時の酸素が存在する環境においても I^- 、 IO_3^- で存在する。酸化性雰囲気ではpH3以下の場合にはよう素分子(I_2)の状態となるが、よう素濃度が低い場合の I_2 安定領域は解説図3よりも更に低pH側にシフトするため、試料中の放射性よう素は大気下においてもほとんど全て陰イオンの状態で存在すると考えられる。

(出典：Robert J. Lemire, et al., AECL-6812, “Assessment of Iodine Behaviour in Reactor Containment Buildings from a Chemical Perspective”, 1981)

解説図3—よう素/水系の電位-pH図 (25℃)

8 化学分析方法の解説

8.1 化学分析方法の原理

この標準で規定した放射性よう素の化学分析方法の原理は次に示すとおりである。なお、その他放射性核種(よう素132, よう素134, よう素135)についても、この標準の化学分析方法で原理的には測定可能である。

8.1.1 沈殿法

試料のよう素成分 (I) を酸化して単体のよう素分子 (I₂) とし、キシレン相に抽出する。次に還元してよう化物イオンとし、水相へ逆抽出する。よう化物イオンは硝酸銀によってよう化銀として沈殿させ、ろ過分別する。すなわち、酸化・抽出・還元・抽出・沈殿の操作を行って、よう素成分だけを分別する。沈殿物からの γ 線をゲルマニウム検出器で計測する。

沈殿法は分析操作がやや複雑であるが放射性よう素測定時に影響する妨害核種をほぼ完全に除去でき、沈殿形成までの化学操作及び放射能計測を数時間でできるため、化学分析方法として妥当である。

注記 よう化物イオンは水に溶解性よく有機溶剤に溶けにくい性質を有しており、単体のよう素は逆の溶解性を示す。

8.1.2 陰イオン交換フィルタ法

放射性よう素を陰イオン交換ろ紙に吸着させゲルマニウム検出器で計測する。放射性よう素は陰イオン交換ろ紙に再現性良く確実に吸着されることから、放射性よう素の化学分析法として適用可能である[2]。陰イオン交換フィルタ法においては、ゲルマニウム検出器で計測する際に、試料中の短半減期核種 (例 ¹⁸F など) の影響を受ける。これに対しては、活性アルミナによって試料中の ¹⁸F を除去する方法又は陰イオン交換ろ紙によるよう化物イオンを吸着させた後に短半減期核種を減衰させる方法がある[3]。

陰イオン交換フィルタ法の操作は容易であるため数時間で処理でき、かつ、化学分析に使用する試薬は少ない。なお、短半減期核種 (例 ¹⁸F など) の影響を減衰によって排除する場合には約 1 日間の減衰時間を目安とする。

8.2 適用する濃度範囲

沈殿法における放射性よう素濃度の計算は本文式 (3) によるが、ピーク正味計数値は放射性よう素濃度と、試料量、放射性よう素放出 γ 線の計数効率、計測時間によって変わる。ここで、試料量はよう化銀の沈殿生成に供した試料量であり、通常 1mL から 1000mL まで選択できる。一方、陰イオン交換フィルタ法においては通水する試料量を任意に選べる。計数効率については測定形状、検出器からの距離、検出器の性能等に応じて可変である。国内 PWR における燃料被覆管健全時から燃料被覆管損傷時の濃度範囲を十分にカバーするよう素 131 濃度として $10^2 \sim 10^4$ Bq/mL を適用する濃度範囲としたが、試料量や計測時間等の選択によって適用する濃度範囲を拡張できる。ただし、その場合には総合精度の検証を要する点に留意する。また、同時に測定されるよう素 133 濃度も記録し、JEAC4213-2016 にあるように、燃料被覆管破損がない場合は、よう素 131 濃度が 37 Bq/mL 未満且つよう素 131/よう素 133 比が 0.7 未満の値で安定していること[4]を確認する。

8.3 総合精度

この化学分析方法を適用した場合の総合精度は、沈殿法においては沈殿生成までの操作における誤差とゲルマニウム検出器による計測での誤差の総合である。一方、陰イオン交換フィルタ法においてはゲルマニウム検出器による計測での誤差となる。沈殿法においては、沈殿生成までの過程で生じる誤差要因はよう素担体の標定及び採取や沈殿質量測定などであり、これら誤差の内大きな容器容量の誤差でも 1% 以下と評価される。したがって、この化学分析方法においてはゲルマニウム検出器での計測誤差が大きく寄与することとなる。この標準に規定した計測条件を適切に選定することにより、計測誤差は大きくても 15% 程度と評価され、総合精度としては大きくても 20% 程度が得られることから、燃料被覆管の健全性を確認する目的の化学分析方法として妥当である[5]。

注記 この標準の化学分析方法に使用する装置及び器具などは、それぞれ固有の許容誤差を有する。誤差表示についてできるだけ客観的に表示することを第一義とする観点から、それらの許容誤差に

基づき式 (1) で計算される値を総合精度Pとするのが適切である。

$$P = \sqrt{(a^2 + b^2 + c^2 + \dots)} \dots\dots\dots(1)$$

ここに、 a , b , c , $\dots$ は、装置及び器具などが有する許容誤差を示す。

8.4 放射能測定に係る操作

8.4.1 放射能測定

ゲルマニウム検出器による計測方法は、“ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー” [6]を参考とする。

a) **ゲルマニウム検出器** 放射能測定に用いるゲルマニウム検出器の仕様例を次に示す。

- － 相対効率： 20～40 %程度
- － 1333 keV における半値幅： 1.7～2.2 keV
- － ピーク・コンプトン比： 30～60 (^{60}Co 1.3 MeV γ 線に対して)

b) **ピークの正味計数値** ピークの正味計数値は γ 線ピーク計数値からバックグラウンド計数値を差し引いて求める。その計算方法としてコベル法が挙げられる[6]。例として活性アルミナ通水後のよう素 131 のピークは明瞭であるため妨害ピークもなく[3]、コベル法が適用できる。

c) **不感時間**¹⁾ 不感時間については波高分析器が自動的に補正するが、過度に不感時間が大きいとエネルギー直線性やエネルギー分解能に影響するため、放射能量を調整する必要がある。

注¹⁾ 入力した信号を多重波高分析器が処理していて次のデータを受け付けることのできない時間の和又は測定時間に対するパーセントをいう。

8.4.2 放射能減衰補正

放射能の減衰補正の式を式 (2) に示す。……………(2)

$$A = A_C \times \exp(\lambda t_1)$$

ここに、 A : 減衰補正後の放射性よう素量 (Bq)

A_C : 測定時の放射性よう素量 (Bq)

λ : 壊変定数 (min^{-1})

t_1 : 減衰時間 (min)

8.4.3 よう素及び妨害核種データ

陰イオン交換フィルタ法における γ 線計測での放射性よう素と妨害核種の半減期、主要 γ 線エネルギー及び γ 線放出率[7]を解説表 1 に示す。なお、冷却材中の ^{18}F がよう素 131 測定時に主な妨害核種となる[3]。

解説表 1—関連する放射性核種の半減期、主要 γ 線エネルギー及び γ 線放出率

核種	半減期	γ 線エネルギー	γ 線放出率(%)
^{131}I	8.0 日	0.364 MeV	82
^{133}I	20.8 時間	0.530 MeV	87
^{18}F	109.8 分	0.511 MeV	193

8.5 化学分析法の比較

各化学分析方法における化学分析の煩雑さ及び化学分析精度の比較を解説表2に示す。

解説表2—化学分析法の比較

分析法	沈殿法	陰イオン交換フィルタ法
長所	短時間で分析可能	操作が簡便
短所	操作が複雑 キシレンを使用	活性アルミナを使用しない場合は 分析時間を要する
総合精度	約15%	約15%

参考文献

- [1] Robert J. Lemire, et al., AECL-6812, “Assessment of Iodine Behavior in Reactor Containment Buildings from a Chemical Perspective”, (1981).
- [2] 中岡 章, 小原宗弘, 神山弘章, ”原子炉冷却水系の放射化学管理 (その4)。原子炉冷却水中の放射性ヨウ素の迅速分析法”, 電力中央研究所技術第一研究所報告 (研究: 74039) , (1974)
- [3] F. Fukuda, “Feasibility Study on Fuel Monitoring System: Quick Radioactive Iodine Counting”, Chemistry in Water Reactor: Operation Experience and New Developments, Nice, France (1994).
- [4] JEAC 4213-2016 運転中の漏えい燃料発生の監視及び漏えい燃料発生時の対応規定
- [5] IAEA/AQ/51 : IAEA-RML-2015-01, “Proficiency Test for Determination of Radionuclides in Sea Water”, IAEA Analytical Quality in Nuclear Applications Series No.51.
- [6] 放射能測定法シリーズ7”ゲルマニウム半導体検出器によるγ線スペクトロメトリー”, 原子力規制庁, (2020年改訂) .
- [7] “NuDat 2.8”, National Nuclear Data Center, Brookhaven National Laboratory (202x年xx月)

入手先 : <<https://www.nndc.bnl.gov/nudat2/>>