



AESJ-SC-S009:202X

(案)

日本原子力学会標準

沸騰水型原子炉の水化学分析方法

－ よう素 131:202X

202X 年 X 月

一般社団法人 日本原子力学会

入
参
保
粗
田

入
参
保
粗
田

入
参
保
粗
田

まえがき

“沸騰水型原子炉の水化学分析方法 — よう素 131 : 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 BWR 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、向上の観点から燃料破損を精度良く検知することを目的として、冷却材のよう素 131 濃度を化学分析するための具体的方法を規定しています。

沸騰水型原子炉（BWR : Boiling Water Reactor）では、高温高圧環境下で構造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、腐食反応によって、水質によっては構造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、構造材料の腐食によって発生する腐食生成物が水中に溶解し炉心で放射化され材料の表面に移行して蓄積しますと、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水化学管理指針を策定することとなりました。水化学管理の目的は、構造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低減の 3 項目です。原子力安全の基本原則のうち、構造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、被ばく低減は、“人と環境を護ること” に繋がります。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た“沸騰水型原子炉の水化学管理指針 : 202X” を制定しました。

“沸騰水型原子炉の水化学管理指針 : 202X” では、構造材料及び燃料被覆管の健全性維持、並びに被ばく低減の観点から、通常運転時の原子炉水の水化学管理項目、診断項目、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原子炉水の停止時の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、BWR における水化学管理の品質を担保するものであり、原子力安全に係る“異常・故障の発生防止”及び“異常・故障の検知及び拡大防止”に該当します。BWR システム全体の安全性確保に係る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。“沸騰水型原子炉の水化学管理指針 : 202X” 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、これら項目のうち JIS などで標準化されていない原子炉水のよう素 131 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、“沸騰水型原子炉の水化学管理指針 : 202X” において、通常運転時の原子炉水において推奨値及び分析頻度が、並びに原子炉の停止時にはよう素 131 増加量の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 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。

Foreword

"The Water Chemistry Analysis Methods of Boiling Water Reactor - Iodine 131: 202X" was developed according to the discussions of the Water Chemistry Guideline Working Group for Boiling 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 iodine 131 concentration of reactor coolant to detect fuel failures accurately from the viewpoint of maintaining and improving the reliability of all plant systems. In Boiling Water Reactors (BWR), the structural materials and fuel claddings are immersed in the water used as coolant and 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 BWR water chemistry guidelines to achieve the appropriate water quality management has been needed.

Under such circumstances, water chemistry guidelines 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 3 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 "Water Chemistry Guidelines for Boiling Water Reactors : 202X" was established for the purpose of contributing to achievement, maintenance, and improvement of nuclear safety.

The Water Chemistry Guidelines for Boiling Water Reactors stipulates control parameters, diagnostic parameters, recommended values, action levels, responses when there is deviation from the action levels and analysis frequency for water chemistry for reactor water during normal operation, as well as analysis frequency during shutdown, 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 BWR 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 BWR systems, it is necessary to perform high-precision chemical-analysis measurement with outstanding reliability, and the establishment of standard chemical-analysis methods is required to underpin the Water Chemistry Guidelines for Boiling Water Reactors.

This standard stipulates the methods of analyzing the iodine 131 concentration of reactor coolant as AESJ standards, which have not been standardized in Japanese Industrial Standards (JIS). The Water Chemistry Guidelines for Boiling Water Reactors specifies the recommended value and analysis frequency of iodine 131 under normal plant operation, and the analysis frequency of the increase in iodine 131 during shutdown. Iodine 131 is a gamma ray emitting nuclide and the concentration of iodine 131 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 iodine 131 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 observations related to safety improvements to plant operation management. These activities will contribute to the continuous improvement of nuclear power plant safety.

制定：202X 年 X 月 XX 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。

入
参
保
租
民

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 サンプルング	3
5.1 試料容器	3
5.2 サンプルング操作	3
6 化学分析方法	3
6.1 ろ過後沈殿生成法	3
6.2 陰イオン交換フィルタ法	6
6.3 イオン交換樹脂処理法	8
7 品質保証	9
附属書 A (参考) サンプルング系統の例	11
解説	12

入
参
保
粗
田

日本原子力学会標準
沸騰水型原子炉の水化学分析方法
- よう素 131 : 202X

The Water Chemistry Analysis Methods of Boiling Water Reactor
- Iodine 131: 202X

序文

この標準は, AESJ-SC-S007:202X“沸騰水型原子炉の水化学管理指針”において燃料健全性評価に係る推奨値及び測定頻度が規定されたよう素131濃度及び停止時よう素131増加量の化学分析方法を規定することによって, 沸騰水型原子炉 (BWR) 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, BWR 原子炉水から試料を採取し, よう素 131 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, その追補をも含む。また, 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 (追補をも含む。) を適用する。

なお, 引用規格とこの標準の規定と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 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 8541 硝酸 (試薬)
- JIS K 8550 硝酸銀 (試薬)
- JIS K 8913 よう化カリウム (試薬)
- 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-S007:202X 沸騰水型原子炉の水化学管理指針

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 2 年原子力規制委員会規則第 2 号)

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-S007:202X によるほか、次による。

3.1

ろ過後沈殿生成法 (post-filtration precipitation method)

採取試料中のよう素 131 をよう化銀として沈殿させて測定する方法

3.2

陰イオン交換フィルタ法 (anion exchange filter method)

採取試料中のよう素 131 を陰イオン交換ろ紙に吸着させて測定する方法

3.3

イオン交換樹脂処理法 (ion exchange resin treating method)

採取試料中のコバルト 60 などの妨害核種をイオン交換樹脂によって取り除いて測定する方法

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

- a) JISマーク表示品の最上級品質の試薬類を用いる。
- b) 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。
- c) 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、ファクタを求める必要がある。
- d) 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[1]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 メスシリンダ又は全量ピペット

JIS R 3505に規定するもの。

4.2.2.4 メンブランフィルタ

孔径0.45 µmの網目をもつ外径25 mm～47 mmのろ紙とする。

4.2.2.5 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とする (JIS Z 4001参照)。

4.2.3 水

JIS K 0557に規定するA3の水とする。

4.3 放射性試料の取扱い

原子炉水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、被ばくに留意して化学分析操作を行う。化学分析後の廃液、ろ紙及びイオン交換樹脂は放射性廃棄物として処理する。

5 サンプルング

5.1 試料容器

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

5.2 サンプルング操作

試料のサンプルングに当たっては、配管及び装置内をサンプルング配管内の体積の3倍量以上[2]の原子炉水で置換し、洗浄する。ただし、検出点からサンプルング箇所までの一部において原子炉水を連続的に流している場合は、当該部分の体積を含まない。試料容器は、試料水で共洗いし、その後、試料をサンプルングする。共洗い回数は3回程度とすることが望ましい（附属書A参照）。

6 化学分析方法

6.1 ろ過後沈殿生成法

6.1.1 適用する濃度範囲

適用する濃度範囲は、 10^{-3} Bq/mL～ 10^4 Bq/mL とする。

6.1.2 試薬

6.1.2.1 よう素担体溶液（よう素: 10 g/L）

- a) 調製 JIS K 8913 に規定するよう化カリウム 6.54 g を水に溶かし、全量を 500 mL とする。調製した溶液は共栓褐色瓶に密栓して暗所に保管する¹⁾。

なお、保管中に着色した溶液は使用しない。

注¹⁾ この溶液は空気酸化されるとよう素が遊離するので、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、更に 0.1 mol/L 硝酸銀溶液 20 mL 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 °C 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 （よう素: g/L）は、式（1）によって求める。

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

ここで、 C_1 : よう素担体濃度（よう素: g/L）

R : よう素/よう化銀分子量比（=0.540（－））

W : よう化銀沈殿質量（mg）

X_1 : よう素担体液量（=5.0 mL）

6.1.2.2 濃硝酸

JIS K 8541 に規定するもの。

6.1.2.3 0.1 mol/L 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 3.5 g を水に溶かし、全量を 500 mL とする。

6.1.2.4 0.1 mol/L 硝酸銀溶液

JIS K 8550 に規定する硝酸銀 8.5 g を水に溶かし，全量を 500 mL とする。

6.1.3 器具及び装置

4.2.2 によるほか，次による。

6.1.3.1 共栓褐色瓶

容量 1 L のもの。

6.1.3.2 加熱器

110 ℃以上に加熱可能なもの。

6.1.3.3 ビーカ又はコニカルビーカ

容量 100 mL～500 mL のもの。

6.1.3.4 陽イオン交換ろ紙

負の固定電荷をもった多数のイオン交換基を備えたろ紙とする。

6.1.3.5 ろ紙

外径 25 mm で JIS P 3801 の 5 種 C のもので，使用前に恒量を得るまで乾燥させ，デシケータ内で放冷後，電子天びんでひょう量したもの。

6.1.3.6 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。吸引ろ過装置の一例を図 1 に示す。

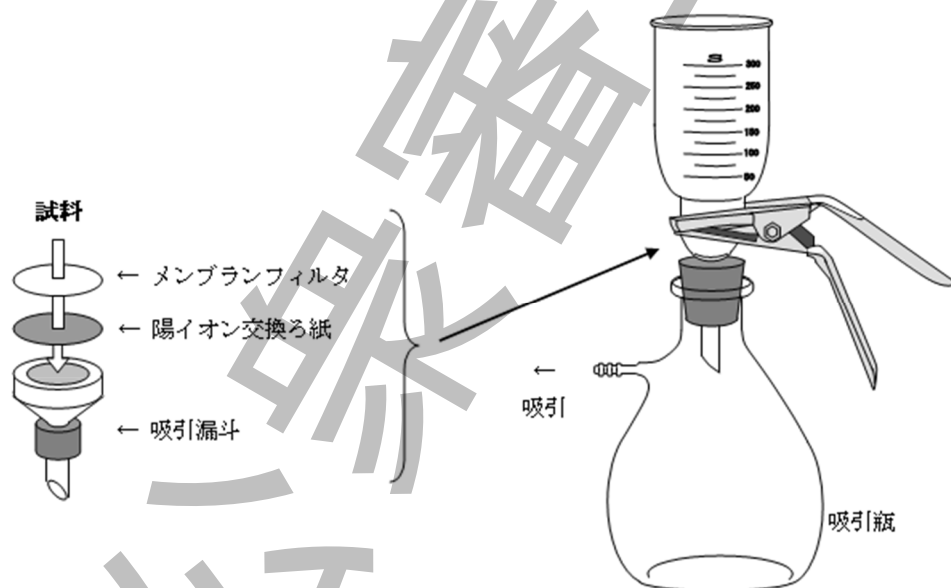


図 1—ろ過後沈殿生成法における吸引ろ過装置の一例

6.1.3.7 分離型フィルタ

化学分析に支障のない分離型フィルタとする。分離型フィルタの一例を図 2 に示す。

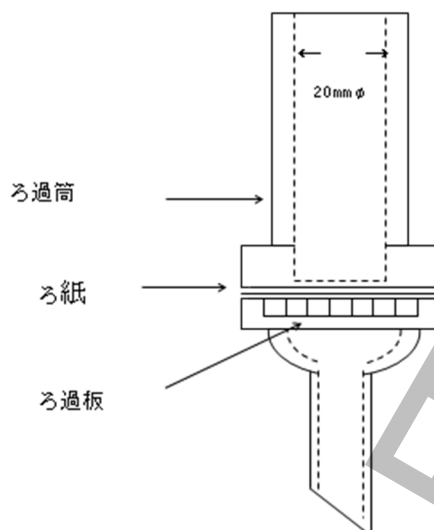


図 2—分離型フィルタの一例

6.1.3.8 乾燥器又は赤外線電球

乾燥器は 110 °C 以上で乾燥可能で試料の飛散が防止できるもの。

6.1.3.9 電子天びん

JIS K 0050 に規定するもの。最小表示値は 1 mg 以下とする。

6.1.3.10 全量フラスコ

JIS R 3505 に規定するもの。

6.1.4 操作

- a) メスシリンダは試料水で共洗いし、その後量り取る。共洗い回数は 3 回程度とすることが望ましい。
 なお、採取量が少ない場合には全量ピペットを用いる。この場合に分取する試料量は、ゲルマニウム検出器の計測条件を考慮し、決定する。
 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試料と検出器との間の距離などの計測条件を見直す。
- b) よう素担体溶液（よう素：10 g/L）2.0 mL を全量ピペットで採り、試料に加えてかくはんする。
- c) 図 1 に示すとおり、吸引ろ過装置に下から陽イオン交換ろ紙 1 枚及びメンブランフィルタ 1 枚の順にセットし、ろ過速度が 100 mL/min[3] 以下となるように真空度を調節して、試料を吸引ろ過する。
- d) ろ過後の試料をビーカーに移し、0.1 mol/L 亜硝酸ナトリウム溶液 2 mL、濃硝酸 8 mL 及び 0.1 mol/L 硝酸銀溶液 2 mL を加えてかくはん後、加熱器で加熱（沸騰後 10 分程度）し、よう化銀の沈殿を生成させる。
- e) 放冷後、図 2 に示すとおり、分離型フィルタ及び既知質量のろ紙を用いて沈殿を吸引ろ過し、ろ紙上の沈殿を水などで洗浄する。
- f) ろ紙を 110 °C の乾燥器に入れるか、又は赤外線電球で恒量を得るまで乾燥させ、デシケータ内で放冷後、電子天びんでひょう量し、式 (2) によって収率を求める。

$$Y = \frac{R \times W_I}{C_I \times X_I} \times 100 \dots \dots \dots (2)$$

ここで、 Y : 収率 (%)

W_1 : よう化銀沈殿質量 (mg)

R : よう素／よう化銀分子量比 (=0.540 (－))

C_1 : よう素担体濃度 (よう素: g/L)

X_1 : よう素担体液量 (=2.0 mL)

- g) 上記 f) 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²⁾。ピーク面積及びそのピークのエネルギーに対応する計数効率及び γ 線の放出割合から、式 (3) によって測定時のよう素 131 量 A_c (Bq) を計算する[4],[5]。

$$A_c = \frac{N_{\text{net}}}{I_\gamma \times t \times E / 100} \dots\dots\dots (3)$$

ここで、 A_c : 測定時のよう素 131 量 (Bq)

N_{net} : ピークの正味計数値 (ピーク面積) (counts)

I_γ : γ 線放出割合 (－)

t : 計数時間 (s)³⁾

E : 計数効率 (%)

- h) 測定時のよう素 131 量 A_c (Bq) に基づき、測定時のよう素 131 濃度 I_c (Bq/mL) を式 (4) によって算出する。

$$I_c = \frac{A_c}{V \times Y / 100} \dots\dots\dots (4)$$

ここで、 I_c : 測定時のよう素 131 濃度 (Bq/mL)

A_c : 測定時のよう素 131 量 (Bq)

V : 試料量 (mL)

Y : 収率 (%)

注²⁾ よう素 131 同定の指標とする γ 線のエネルギーは 0.364 MeV である。

注³⁾ 計数時間は、試料形状、検出器からの距離、検出器の性能などを考慮し、よう素 131 濃度 10^{-3} Bq/mL を計測できる時間とする。

6.2 陰イオン交換フィルタ法

6.2.1 適用する濃度範囲

適用する濃度範囲は、 10^{-3} Bq/mL～ 10^4 Bq/mL とする。

6.2.2 器具及び装置

4.2.2 によるほか、次による。

6.2.2.1 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。吸引ろ過装置の一例を図 3 に示す。

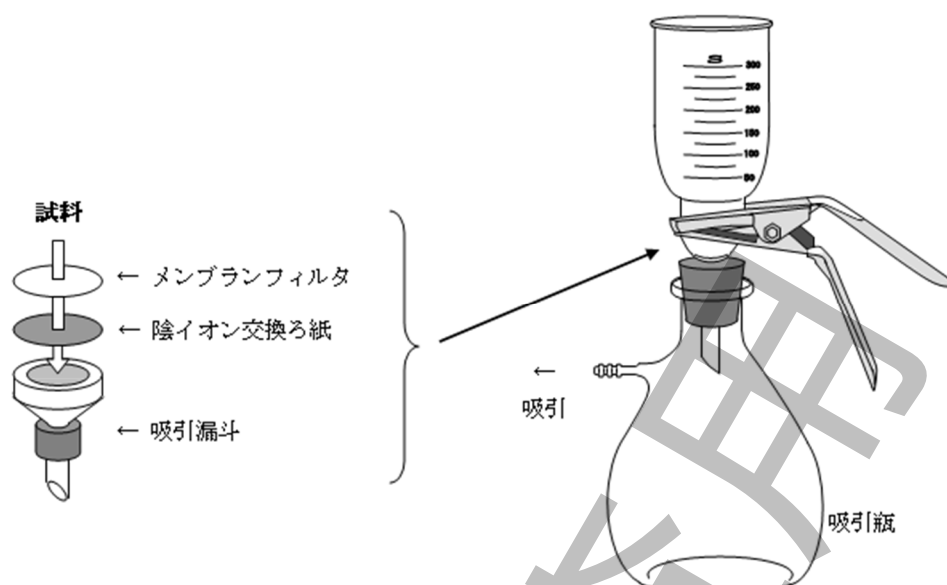


図 3—陰イオン交換フィルタ法における吸引ろ過装置の一例

6.2.2.2 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ろ紙とする。

6.2.3 操作

- a) メスシリンダは試料水で共洗いし、その後量り取る。共洗い回数は 3 回程度とすることが望ましい。この場合に分取する試料量 V (mL) はゲルマニウム検出器での計測条件を考慮し、決定する。
 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試料と検出器との間の距離などの計測条件を見直す。
- b) 図 3 に示すとおり、吸引ろ過装置に下から陰イオン交換ろ紙 1 枚及びメンブランフィルタ 1 枚の順にセットし、ろ過速度が 100 mL/min^[3]以下となるように真空度を調節して、試料を吸引ろ過する。更に通水し、洗浄を行う。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よう素 131 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、又はよう素 131 濃度が大きく変化した場合には、陰イオン交換ろ紙を 2 枚重ねし、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よう素 131 が吸着されていることを確認する。
- c) 陰イオン交換ろ紙を固定用紙に貼るなどして固定する⁴⁾。
- d) 上記 c) の陰イオン交換ろ紙をゲルマニウム検出器で計測する⁵⁾。ピーク面積及びそのピークのエネルギーに対応する計数効率及び γ 線の放出割合から、式 (5) によって測定時のよう素 131 量 A_c (Bq) を計算する^{[4],[5]}。

$$A_c = \frac{N_{\text{net}}}{I_\gamma \times t \times E / 100} \dots\dots\dots (5)$$

ここで、 A_c : 測定時のよう素 131 量 (Bq)
 N_{net} : ピークの正味計数値 (ピーク面積) (counts)
 I_γ : γ 線放出割合 (—)
 t : 計数時間 (s)⁶⁾
 E : 計数効率 (%)

- e) 測定時のよう素 131 量 A_c (Bq) に基づき、測定時のよう素 131 濃度を式 (6) によって算出する。

$$I_c = \frac{A_c}{V} \quad \dots\dots\dots (6)$$

ここで、 I_c : 測定時のよう素 131 濃度 (Bq/mL)

A_c : 測定時のよう素 131 量 (Bq)

V : 試料量 (mL)

注⁴⁾ 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。

注⁵⁾ よう素 131 同定の指標とする γ 線のエネルギーは 0.364 MeV である。

注⁶⁾ 計数時間は、試料形状、検出器からの距離、検出器の性能などを考慮し、よう素 131 濃度 10^{-3} Bq/mL を計測できる時間とする。

6.3 イオン交換樹脂処理法

6.3.1 適用する濃度範囲

適用する濃度範囲は、 10^{-3} Bq/mL～ 10^4 Bq/mL とする。

6.3.2 器具及び装置

4.2.2 によるほか、次による。

6.3.2.1 陽イオン交換ろ紙

負の固定電荷をもった多数のイオン交換基を備えたろ紙とする。

6.3.2.2 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。吸引ろ過装置の一例を図 4 に示す。

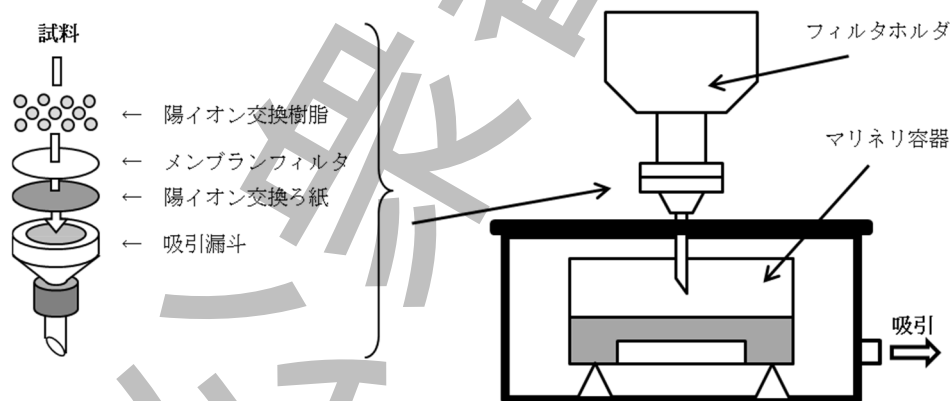


図 4—イオン交換樹脂処理法における吸引ろ過装置の一例

6.3.2.3 陽イオン交換樹脂

負の固定電荷をもった多数のイオン交換基を備えた樹脂とする。

6.3.2.4 マリネリ容器

底部にくぼみがあり、放射線検出器にはめ込みが可能な樹脂製の容器とする。

6.3.3 操作

- a) メスシリンダは試料水で共洗いし、その後量り取る。共洗い回数は 3 回程度とすることが望ましい。
この場合に分取する試料量 V (mL) はゲルマニウム検出器での計測条件を考慮し、決定する。

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試料と検出器との間の距離などの計測条件を見直す。

- b) 図 4 に示すとおり、吸引ろ過装置に下から陽イオン交換ろ紙 1 枚及びメンブランフィルタ 1 枚の順にセットし、更にフィルタホルダ内に 30 mL の陽イオン交換樹脂を満した後、水を用いてろ過面を平たんにし、試料を吸引ろ過する。さらに、通水し、洗浄を行う。この時、通水量は試料量及び通水量の和がマリネリ容器に対するゲルマニウム検出器の計数効率の測定量と同量となるようにする。
- c) マリネリ容器に蓋をし、ビニール袋等で包む。
- d) 上記 c) のマリネリ容器をゲルマニウム検出器で計測する⁷⁾。ピーク面積とそのピークのエネルギーに対応する計数効率及び γ 線の放出割合から、式 (7) によって測定時のよう素 131 量 A_c (Bq) を計算する[4],[5]。

$$A_c = \frac{N_{\text{net}}}{I_\gamma \times t \times E / 100} \dots\dots\dots (7)$$

ここで、 A_c : 測定時のよう素 131 量 (Bq)
 N_{net} : ピークの正味計数値 (ピーク面積) (counts)
 I_γ : γ 線放出割合 (—)
 t : 計数時間 (s)⁸⁾
 E : 計数効率 (%)

- e) 測定時のよう素 131 量 A_c (Bq) に基づき、測定時のよう素 131 濃度 I_c (Bq/mL) を式 (8) によって算出する。

$$I_c = \frac{A_c}{V} \dots\dots\dots (8)$$

ここで、 I_c : 測定時のよう素 131 濃度 (Bq/mL)
 A_c : 測定時のよう素 131 量 (Bq)
 V : 試料量 (mL)

注⁷⁾ よう素 131 同定の指標とする γ 線のエネルギーは 0.364 MeV である。

注⁸⁾ 計数時間は、試料形状、検出器からの距離、検出器の性能などを考慮し、よう素 131 濃度 10^{-3} Bq/mL を計測できる時間とする。

7 品質保証

よう素 131 の化学分析に係る品質保証活動については、原子力発電所全体の品質保証として、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 2 年原子力規制委員会規則第 2 号）に従って実施する。

参考文献

- [1] “化合物命名法－IUPAC 勧告に準拠－（第2版）”，日本化学会命名法専門委員会編，東京化学同人，ISBN 9784807908882 (2016)
- [2] “加圧水型原子炉一次系の水化学管理指針” **AESJ-SC-S008:2019**，（一社）日本原子力学会，p92-p93，ISBN 978-4-89047-417-2 (2019)
- [3] “原子炉水化学ハンドブック”，日本原子力学会編，コロナ社，p276，ISBN 978-4-339-06662-3 (2022)
- [4] 原子力規制庁，“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” 放射能測定法シリーズ No.7，（公財）日本分析センター，(2020)
入手先：<<https://www.kankyo-hoshano.go.jp/wp-content/uploads/2020/12/No7.pdf>>
- [5] 村上悠紀雄，團野皓文，小林昌敏他，“放射線データブック”，地人書館，p.146，ISBN 978-4-8052-0161-9 (4-8052-0161-4) (1982)

附属書 A (参考) サンプリング系統の例

序文

この附属書は、本体のサンプリング操作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 サンプリング系統の例

図 A.1 は、原子炉冷却材浄化系の主配管（母管）から分岐したサンプリング配管及びサンプリングを行う箇所までのサンプリング装置の例である。BWR の原子炉水は、高温高压であるため、冷却器、減圧機構によって降温、減圧させ、試料をサンプリングする構造になっている。サンプリング配管への不溶解性の金属不純物等の付着を抑制するためにバイパスラインを設置している。

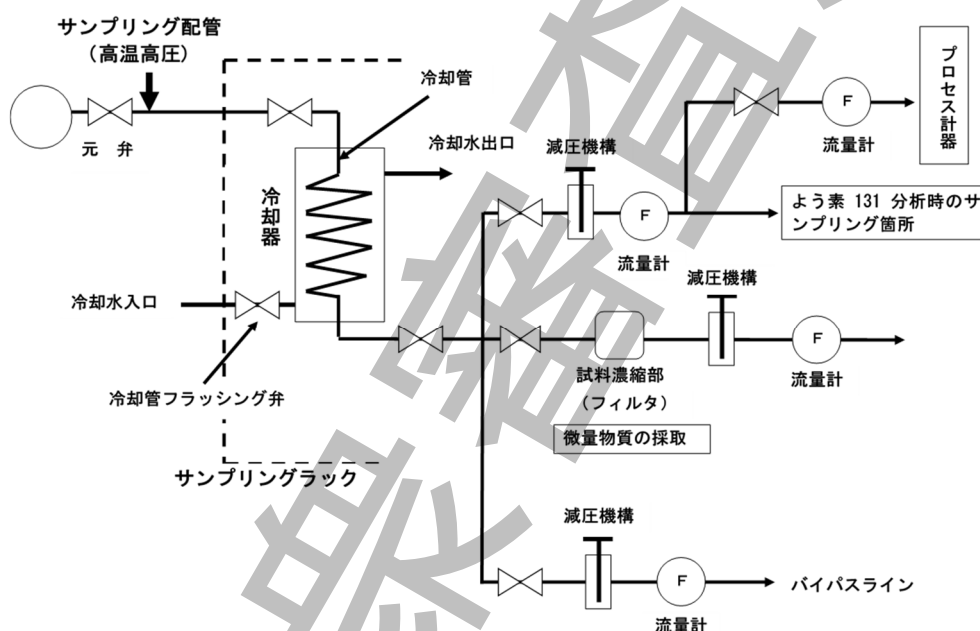


図 A.1ー原子炉冷却材浄化系のサンプリングの冷却部及び減圧系統の例

A.2 サンプリング操作

サンプリング箇所から試料を試料容器にサンプリングする。

サンプリングに先立ち、配管及び装置内をサンプリング配管内の体積の 3 倍量以上[1]の原子炉水で置換し、洗浄する。ただし、検出点からサンプリング箇所までの一部において原子炉水を連続的に流している場合は、当該部分の体積を含まない。試料容器は、試料水で共洗いし、その後、試料をサンプリングする。共洗い回数は 3 回程度とすることが望ましい。

参考文献

- [1] “加圧水型原子炉一次系の水化学管理指針”AESJ-SC-S008:2019, (一社)日本原子力学会, p.92-p.93, ISBN 978-4-89047-417-2 (2019)

AESJ-SC-S009:202X 沸騰水型原子炉の水化学分析方法 - よう素 131:202X 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、そこから原子炉冷却材中に漏出する。安全・安定運転を図る上で、運転中の沸騰水型原子炉（BWR）プラントでは原子炉水中のよう素 131 を定期的に測定し、燃料被覆管の健全性を確認している。

よう素 131 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。BWR の水化学管理に用いる化学分析方法には、JIS などで標準化されているものもある。しかし、よう素 131 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 BWR で用いるよう素 131 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 制定及び改定の経緯

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制定した。同標準は制定から 5 年が経過し、発電所の安全・安定運転の確保及び技術レベル維持・向上等の観点から、標準の見直しを行った。

制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“沸騰水型原子炉の水化学管理指針 2019”が制定された。同指針では、水化学管理の目的として、構造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低減を謳っているが、これらのうち、構造材料及び燃料被覆管の健全性維持は原子力安全における“放射線リスク源の閉じ込め”，作業従事者の被ばく低減は同じく“人と環境の防護”の達成に資するものである。すなわち、構造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造材料の付着放射能レベルを低減し、作業従事者の被ばく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、診断項目、アクションレベル、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。

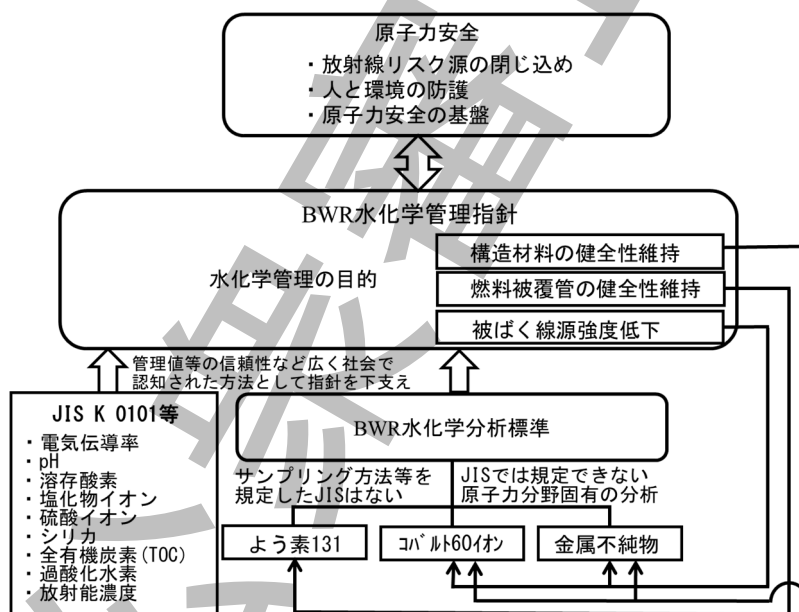
運用管理を適切に実施するためには、標準化した化学分析法に基づいて各項目を分析・評価する必要がある。

ある。これらの項目の中には既に JIS などによって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 などでは規定できない原子力分野固有の化学分析項目がある。具体的には、よう素 131、コバルト 60 イオン、金属不純物がそれに該当する。このうち、よう素 131 は、燃料破損が生じた時に原子炉冷却材中に漏えいする核分裂生成物を迅速に検知する核種であり、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。また、コバルト 60 イオン及び金属不純物は、原子炉冷却材中の濃度を管理することで構造材料の腐食状態及び炉水放射能挙動を把握することができ、構造材料の健全性維持及び被ばく線源強度低下を図る上で重要な分析項目である。このように、BWR 水化学分析標準は、管理値等の信頼性などが広く社会に認知される方法として“沸騰水型原子炉の水化学管理指針”を下支えするものである。

前述のように、引用した文献に係る最新の知見及び動向、サンプリング操作並びに共洗い操作の記載の拡充を反映し、この標準を改定した。

解説図 1 に、原子力安全と BWR 水化学管理指針及び BWR 水化学分析標準との関係を示した。

なお、BWR 水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“沸騰水型原子炉の水化学管理指針”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。

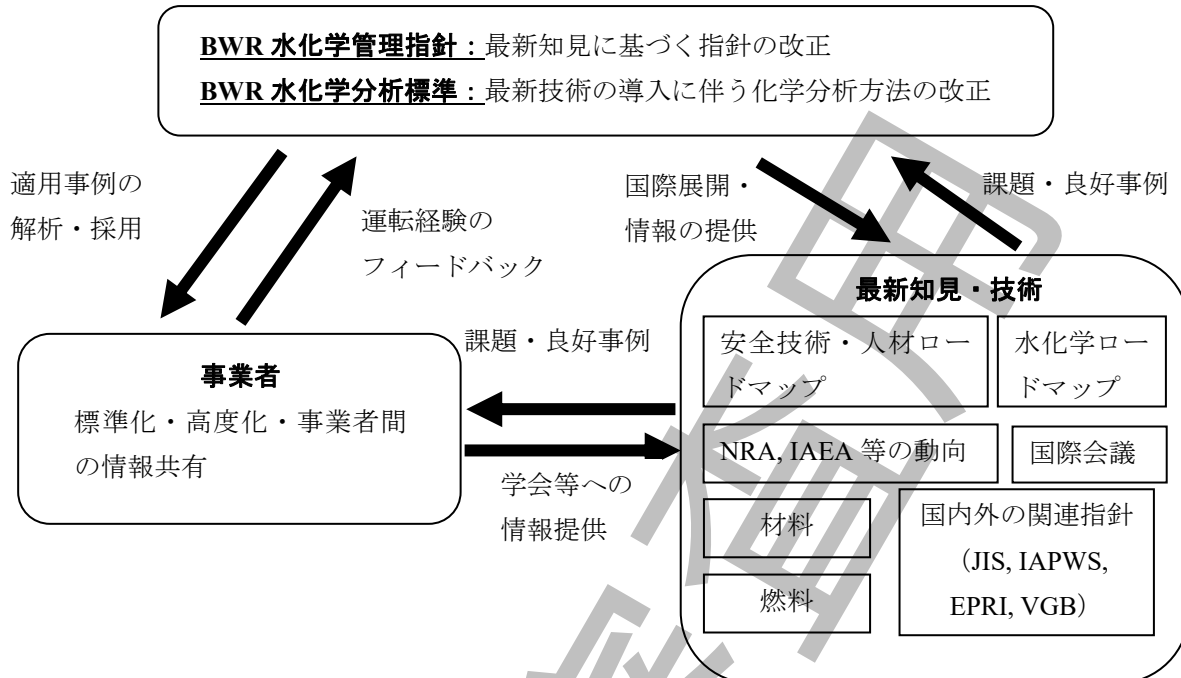


解説図 1—BWR 水化学分析標準と原子力安全との関わり

3 制定後のフォロー

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って水化学管理指針のアクションレベル、推奨値等を見直す際に、必要に応じて関連する化学分析方法の改定を行う。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、化学分析方法の改定を行う。この標準を策定した後も、安全性向上に係る新知見を発電所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って、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、BWR 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—BWR 水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

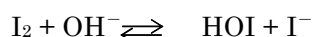
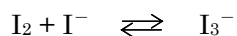
特に記載すべき事項はなかった。

5 懸案事項

特に記載すべき事項はなかった。

6 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水の pH 範囲（5～7）においてはプラント停止時の酸素が存在する環境においてもよう素イオン（ I^- ）又はよう素酸イオン（ IO_3^- ）で存在する。酸化性雰囲気では pH 3 以下の場合

にはよう素分子の状態となるが、よう素濃度が低い場合のよう素分子安定領域は**解説図 3**よりも更に低 pH 側にシフトするため、試料中のよう素 131 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。

R. J. Lemire, J. Paquette, D. F. Torgerson, et al., “Assessment of Iodine Behaviour in Reactor Containment Buildings from a Chemical Perspective”, AECL-6812, Atomic Energy of Canada Ltd., (1981). 転載予定

解説図 3—水温 25 °Cにおけるよう素／水系の電位—pH 図

7 化学分析方法の解説

この標準で規定したよう素 131 の化学分析方法の原理は次に示すとおりである。利用する化学分析方法は測定が可能となる減衰時間及び化学分析の煩雑さなどを考慮し、適切に選定する（**解説 11** 参照）。また、 γ 線を放出する他のよう素同位体についても、この標準の化学分析方法で原理的には測定可能である。

なお、核分裂によって生成するよう素同位体としてよう素 129 が存在するが、半減期が 1.57×10^7 年と非常に長く、生成個数に対して放射能が非常に低いため、この標準手法を用いて通常運転中における原子炉水中のよう素 129 を検出することは出来ない。

7.1 ろ過後沈殿生成法

試料中の妨害成分を陽イオン交換ろ紙で除去後、 IO_3^- を I^- とし、硝酸銀を加えてよう化銀として沈殿させ、ろ過分別する。その後、沈殿物からの γ 線をゲルマニウム検出器で計測する。

ろ過後沈殿生成法は、“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 **AESJ-SC-S004:2023**” [2]に定める沈殿法の抽出操作を省略したものに近いため、陰イオン交換フィルタ法及びイオン交換樹脂処理法と比較すると化学分析操作がやや多い。また、化学分析の工程を省略しているため、沈殿法のように妨害核種を完全に除去できないが、短半減期核種（例 ^{18}F など）の影響は小さく、試料採取後数時間で測定できる（目安として 2 時間程度）。さらに、沈殿の生成のため薬品を用いるが、キシレンを使用しないので、作業環境測定の必要がない利点もある。

化学分析操作の容易さ、測定までの時間の短さを考慮すると、化学分析方法として妥当である。

7.2 陰イオン交換フィルタ法

よう素 131 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。よう素 131 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、よう素 131 の化学分析法として適用可能である[3]。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場合に、試料中の短半減期核種（例 ^{18}F など）の影響を受ける。これに対しては、陰イオン交換ろ紙による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。

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、化学分析に用いる試薬は少ない。

なお、化学分析操作によって短半減期核種（例 ^{18}F など）の影響を排除していないため、ろ過後沈殿生成法と比較すると短半減期核種による影響が大きい。減衰によって短半減期核種の影響を排除する場合には約 1 日間の減衰時間を目安とする。

7.3 イオン交換樹脂処理法

よう素 131 は陰イオンの形態で存在するため、メンブランフィルタ、陽イオン交換ろ紙、陽イオン交換樹脂に測定妨害となる陰イオン以外の形態の核種を吸着させ、ろ液をゲルマニウム検出器で計測する。妨害となる核種を取り除き、試料中のよう素 131 を直接測定することからよう素 131 の化学分析法として適用可能である。イオン交換樹脂処理法においては、ゲルマニウム検出器で計測する場合に、試料中の陰イオン形態の短半減期核種（例 ^{18}F など）の影響を受ける。これに対しては、吸引ろ過後に短半減期核種を減衰させる方法がある。

イオン交換樹脂処理法の操作は容易であるため数時間で処理でき、かつ、メンブランフィルタ、陽イオン交換ろ紙及び陽イオン交換樹脂は一定回数再利用が可能であるため、停止時よう素 131 増加量測定時のように連続してよう素 131 を測定する場合に適している。

なお、化学分析操作によって短半減期核種（例 ^{18}F など）の影響を排除していないため、ろ過後沈殿生成法と比較すると短半減期核種による影響が大きい。減衰によって短半減期核種の影響を排除する場合には約 1 日間の減衰時間を目安とする。

8 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 γ 線スペクトロメトリー”[4]に基づき実施する。

8.1 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。

- 25 cm 相対効率： 10 %～40 %
- 1 333 keV における FWHM（半値幅）： 1.6 keV～2.2 keV
- 1 333 keV における FWTM（1/10 値幅）： 3.5 keV～4.2 keV
- ピーク・コンプトン比： 30 : 1 以上（コバルト 60 1 333 keV γ 線に対して）

8.2 ピークの正味計数値及び誤差

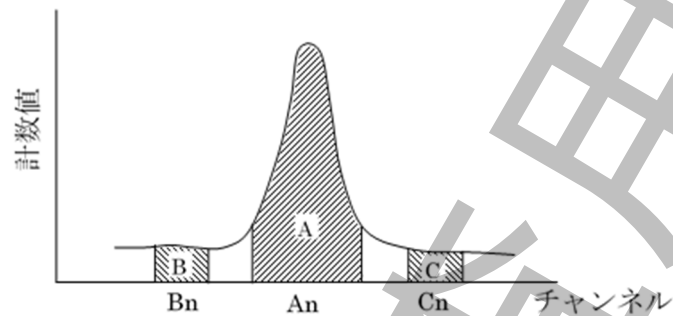
γ 線エネルギーに相当するピークの正味計数値（以下、“ピーク面積”という。）は、独立したピーク及び複合ピーク、妨害ピークがある場合などについて計算方法が示されている[4]。例として解説図 4 に示すような独立したピークでのピーク面積及び標準偏差は次のように求められる。

ピーク中心領域の A 及びピーク中心から低エネルギー側及び高エネルギー側に対して目的とするピーク領域及び同じチャンネル数とした B、C 領域の計数値を用いて、ピーク面積及びその標準偏差は次のよう

に計算される。したがって、精度よく放射能測定を行うためにはピーク領域に含まれるバックグラウンドを十分に下げることが重要である。

コベル法とは、ピーク領域（解説図 4 の A 領域）のカウント数からベースライン領域（解説図 4 の B 及び C 領域）のカウント数を引くことでピーク面積を求める方法である。

$$\begin{aligned} \text{ピーク面積} & N_{\text{net}} = A - B - C \\ \text{ピーク面積の標準偏差} & \sigma_N = \sqrt{A + B + C} \end{aligned}$$



解説図 4-コベル法によるピーク面積

8.3 不感時間¹⁾

不感時間については計測器側で測定時間を補正するが、過度に不感時間が大きいとエネルギー直線性及び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 放射能減衰補正

放射能の減衰補正の式を式 (1) に示す。

$$I = I_c \times \exp(\lambda t_1) \dots \dots \dots (1)$$

ここで、 I : 減衰補正後の放射能濃度 (Bq/mL)
 I_c : 測定時の放射能濃度 (Bq/mL)
 λ : 壊変定数 (min^{-1})
 t_1 : 減衰時間 (min)

8.5 よう素同位体核種データ

この標準における γ 線を放出するよう素同位体の半減期、主要 γ 線エネルギー及び γ 線放出割合[5]の例を解説表 1 に示す。

解説表 1— γ 線を放出するよう素同位体の半減期，主要 γ 線エネルギー及び γ 線放出割合の例

核種	半減期	γ 線エネルギー	γ 線放出割合
^{131}I	8.0 日	364 keV	0.82
^{132}I	2.3 時間	668 keV	0.99
^{133}I	20.8 時間	530 keV	0.87
^{134}I	52.5 分	847 keV	0.96
^{135}I	6.6 時間	1 260 keV	0.29

9 適用する濃度範囲

ろ過後沈殿生成法におけるよう素 131 濃度の計算は本文式 (4) によるが，ピーク正味カウント数はよう素 131 濃度，試料量，よう素 131 放出 γ 線の計数効率及び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 1 000mL まで選択できる。一方，陰イオン交換フィルタ法及びイオン交換樹脂処理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，検出器の性能などに依存する。国内 BWR 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^{-3} Bq/mL $\sim 10^4$ Bq/mL[6]を適用する濃度範囲としたが，試料量，計測時間など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。

10 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，ろ過後沈殿生成法においては沈殿生成までの操作における誤差及び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及びイオン交換樹脂処理法においてはフィルタ又はイオン交換樹脂への通水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となる。沈殿生成までの操作における誤差はよう素担体の標定及び採取又は沈殿質量測定などであり，2 %程度と評価される。また，フィルタ又はイオン交換樹脂への通水操作における誤差はろ過器具などへの吸着などであるが，実運用上では明らかな影響は確認されていない。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ってよう素 131 濃度の計数誤差は大きくても 15 %であり，総合精度としては大きくても 20 %程度が得られる[2],[7],[8]。燃料被覆管の健全性を確認することを目的とした本化学分析項目においては 20 %程度の総合精度が得られれば十分に異常を検知することが可能であるため，化学分析方法として妥当である。

注記 この標準の化学分析方法に用いる装置及び器具などは，それぞれ固有の許容誤差をもつ。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 (2) で計算される値を総合精度 P とするのが適切である。

$$P = \sqrt{a^2 + b^2 + c^2 + \cdots} \quad \cdots \cdots \cdots (2)$$

ここで， a ， b ， c ， $\cdots$ は，装置及び器具などがもつ許容誤差を示す。

11 各化学分析方法の比較

各化学分析方法における妨害核種の影響，計数効率，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—各化学分析方法の比較

化学分析法	妨害核種の影響	計数効率	化学分析の煩雑さ	化学分析精度
ろ過後沈殿生成法	小：よう素だけを沈殿として回収するため影響は小さい（必要減衰時間：約 2 時間）	大：ろ紙（外径 47 mm 程度）に濃縮するため大きな計数効率で測定可能	中：2 度のろ過，煮沸及びひょう量操作を必要とする	最大 20 %程度：よう素担体の標定，ひょう量及びゲルマニウム検出器の総合精度
陰イオン交換フィルタ法	中：陰イオン成分核種（ ^{18}F など）を取り除くことが出来ない（必要減衰時間：約 24 時間）	大：ろ紙（外径 47 mm 程度）に濃縮するため大きな計数効率で測定可能	小：一度のろ過だけであるため簡便かつ迅速な化学分析が可能	最大 15 %程度：ゲルマニウム検出器の精度
イオン交換樹脂処理法	中：陰イオン成分核種（ ^{18}F など）を取り除くことが出来ない（必要減衰時間：約 24 時間）	中：濃縮がないため，比較的計数効率は小さくなる	小：一度のろ過だけであるため簡便かつ迅速な化学分析が可能。また，ろ過装置を連続で使用可能なため，連続で処理が必要な場合に有利	最大 15 %程度：ゲルマニウム検出器の精度

参考文献

- [1] R. J. Lemire, J. Paquette, D. F. Torgerson, et al., “Assessment of Iodine Behaviour in Reactor Containment Buildings from a Chemical Perspective”, AECL-6812, Atomic Energy of Canada Ltd., (1981).
- [2] “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：2023” AESJ-SC-S004:2023, (一社) 日本原子力学会, ISBN 978-4-89047-457-8 (2023)
- [3] 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), (一社) 電力中央研究所, (1974).
- [4] 原子力規制庁, “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”, 放射能測定法シリーズ No.7, (公財) 日本分析センター, (2020)
入手先：<<https://www.kankyo-hoshano.go.jp/wp-content/uploads/2020/12/No7.pdf>>
- [5] “NuDat National Nuclear Data Center, Brookhaven National Laboratory” (2024 年 5 月)
入手先：<<https://www.nndc.bnl.gov/nudat2/>>
- [6] “原子炉水化学ハンドブック”, 日本原子力学会編, コロナ社, p.244, ISBN 978-4-339-06662-3 (2022)
- [7] 海野泰裕, 柚木彰, 三浦勉, 濱松潮香, 八戸真弓, 等々力節子, “玄米試料を用いた放射能測定の技能試験”, *RADIOISOTOPES*, **65**, 181-190 (2016).
- [8] *Proficiency Test for Determination of Radionuclides in Sea Water*, IAEA/AQ/51 : IAEA-RML-2015-01, IAEA Analytical Quality in Nuclear Applications Series No.51.