Effect of neutron irradiation on acidity change of boric acid solution

————．　　　　．　　　．

　　　　，

150

，^{10}B (n·)^{7}Li　　　　　　　　　　Li

pH　　　　　　　．　　　　　　　　　　　　Li

，50 2,000 / ml　　　　　　　0.1 1.0 / ml Li

6.4%　　　　　　　　．^{10}B (n·)^{7}Li　　　　　Li

，　　　　　　　　　　　pH

．

polyborate　　　　　　　　　　　．

Abstract

It was measured that the neutron radiation effect on the generated Li from ^{10}B (n·)^{7}Li reaction, the loss of boron content and pH change in boric acid solution. With compensation for interference of excess boron 50 2,000 / ml, lithium 0.2 1.0 / ml range was determined within RSD 6.4%. The amount of lithium generated from ^{10}B (n·)^{7}Li reaction was proportionate to the concentration of boron and the time of irradiation, under our experimental condition. The pH value of irradiated boric acid was shifted to considerably low. It is estimated that boric acid would be transformed into the polyborate form, by radiolysis products of water, which has high dissociation constant.

1.

(radiolysis)

H₃BO₃, LiOH, H₂ 　 pH 　 .

(Hydrogen Injection Chemistry) 　 (Stress

Corrosion Cracking) [1-3]

Co-60, Co-58 　 Zn

[4-6], FAC(Flow Accelerated Corrosion) 　 ETA(Ethanol

Amine) [7] 　 (Water

Chemistry) 　 .

pH 　 .

,

. ,

[8-9]

.

.

pH

[10] .

^{10}B 　 ^{10}B 　 pH

LiOH 　 pH 6.9 7.4 　 . pH S. Anthoni

pH 　 loop

, 300 　 pH 7.0 7.2

pH 　 [11] 　 pH

LiOH 　 pH 　 Zr 　 .

^{10}B (·)^{7}Li 　 1.73% ^{10}B ^{7}Li 　 pH

. 　 LiOH

.[12)

¹⁰B   Li

.   Li

Li   pH   (glove

box)   ·   pH   . ¹⁰B (·)⁷Li   ⁷Li

Li   .

.

2.

2.1.

Li   Zeeman   (Perin

elmer Model 5100,U.S.A)

,   ,

Table 1.   ¹⁰B   Aldrich   A.C.S   ¹⁰B

99.5%   .   LiOH   spec   ICP-AES   .

2.2.

Fig. 1.

.

.   0.8 cm

10 cm   .

10.0 cm   2.0 cm

.   3 mm

.   20%

.   1× 10⁻⁴ torr

.

2.3.

Pool

(Hydralutic Tube System: HTS)　　　　　. HTS

6.5× 10^{13}　n/cm^2·sec　　　,

0.5　1　　　　　　　　　　　　　48　　　　　　　　.

3.

3.1.

7.3 × 10^{-10}

.　　　　　　　　　　　　　Mannitol(K_a = 1.5 × 10^{-4})　　　　　　　　1

0.1 N NaOH　　　　　　　. 5

894.2(RSD 0.3%)　/ml　　　　　.

(ICP-AES)　　　　　　　　893.3(RSD 0.23%)　/ml

Table 2　　　　　　　.

3.2. Li

.

50　2,000　/ml　　　　　　　0.1　1.0　/ml　Li　　　　　Flameless-AAS

Fig. 2　　　　　. Li　　　　　0.1　/ml

Li

.　　　　　　Li　　0.1　10%　　　　　　　　　, Li

0.1　/ml　　　　　　　　　　　　　　　　　　　　　　　　6.4%

.

3.3.　　　　　　　Li

Li

Table 3　　　　　. ^{10}B(　·　)

3847 barn(at 0.0253 eV),　　　(　　　　　　　　　　　　)

6.5 × 10^{13}　n/cm^2· sec.　　　　203.0　/　　^{10}B　1.0

(　　　　)　　　　　　Li　　0.23　/

(　　　　)　　　0.18　/　　　　　78.3%　　　. 381.4　/　　^{10}B

0.5　　　　　　　Li　　0.16　/　　　　71.6%

.　　　　　　　　　　1.0　　　　　　　,

0.44 /　　　　　　　　　Li　　　　0.31 /　　　　　　　70.5%　　．

Li

, ^{10}B　　　　　　　(3847 barn, at 0.0253 eV)　　　　Li　　　　73.5%

．　　　　　　Li　　　　　26.5%

3.4.

^{10}B (・)^{7}Li　　　　　　　　　　Li　　．

Table 4　　　　　　　　　233　932　/　30　120

　　　　　　　　　　．　　　233　932　/　30

5.5　14.1%　　　．60　　　　　　　　　　　8.4　14.2%

120　　　　　　　　　　　　　　　　　　　．

(2　　　)　　　　(932　/　　　)

3.5. pH

Li　　pH

pH　　　　　　　　　　．　　　　　　CO₂

233　932　/ml ^{10}B　　pH　25　　　　　　　Fig. 3

．Fig. 3　　　　　　4

pH　　　　　　　　　4　　pH　　　CO₂

．233, 466, 699, 932　/ml　　　　(6.6 × 10^{13} n·

cm^{-2}· sec^{-1})　　30　　　　pH　　　　　Table 5

．Table 5　　　　　　Li　　pH

(　　　)　　　　　　　　pH

．　　　pH

(H₂, O₂, H₂O₂)　　　(H, OH, HO₂,)

polyborate

4.

Li   . 50 2,000   /ml

0.1 1.0   /ml   Li   Flameless-AAS   .

Li   0.1 10%   , 0.1   /ml Li

6.4%   .

Li   .

Li   , ^{10}B

(3847 barn, at 0.0253 eV)   Li   73.5%   Li

(> 80   )

.

pH   . 233 932   /ml

pH   5.7 5.1   pH 5.3 3.7   (   )

.   (radiolysis)

polyborate   .

.

References

1. R. L. Cowan, Independent Consultant, Livemore CA and C. J. Wood, EPRI, Palo Alto CA, "Control of Radiation Fields in BWRs After Noble Metal Chemical Addition", Chimie 2002, Avignon France, 22-26(2002).

2. R. S. Lillard, D. L. Pile, D. P. Butt, "The corrosion of materials in water irradiated by 800 MeV protons", Journal of Nuclear Materials, 278, 277-289(2000).

3. Chien C. Lin, F. R. Smith, R. L. Cowan, "Effects of hydrogen water chemistry on radiation field buildup in BWRs", Nuclear Engineering and Design, 166, 31-36(1996).

4. M. Domae, N. Chitose, Z. Zuo, Y. Katsumura, "Pulse radiolysis study on redox rxn of Zinc(II)", Radiation Physics and Chemistry, 56, 315-322(1999).

5. W. S. Walters, J. D. Page, A. P. Gaffka, A. F. Kingsbury, J. Foster, A. Anderson, D. Wicken, J. Henshaw,, "The effect of zinc addition on PWR corrosion product

deposition on Zircaloy-4", Chimie 2002, Avignon France, 22-26(2002).

6. B. Stellwag, Framatome Anp Gmbh, M. Juergensen, Kernkraftwerk Biblis, "Zinc Injetion in German PWR Plants", Chimie 2002, Avignon France, 22-26(2002).

7. Francis Nordmann, Jean-Marie Fiquet, "Selection criteria for the best secondary water chemistry", Nuclear Engineering and Design, 160, 193-201(1996).

8. P. A. Dokhale, V. N. Bhoraskar, P. R. Vijayaraghavan, "A Study on boron diffusion in high density polyethylene using the (n.) reaction", *Materials Science and Engineering* B 57, 1-8(1998).

9. X. Deschanels, D. Simeone, J. P. Bonal, "Determination of the lithium diffusion coefficient in irradiated boron carbide pellets", *Journal of Nuclear Materials*, 265, 321-324(1999).

10. B. Pastina, J. Isabey, B. Hickel., "The influence of water chemistry on the radiolysis of the primary coolant water in PWR", *Journal of Nuclear Materials*, 264, 09-318(1999).

11. S. Anthoni, CEA-CEN Cadarache, France, "effects of pH of primary coolant on PWR contamination", Water Chemistry of Nuclear reactor systems 6. BNES, London,

12. J. A. Sawicki,"Nuclear Chemistry Model of Borated Fuel Crud", Chimie 2002, Avignon France,11-13 April,(2002).

Table 1. Instrumental parameters for Lithium analysis

Graphite Furnace/Temperature program

Step	Temp.	Ramp	Hold	Gas flow	Gas type
1	110	1	20	250	Norm
2	130	5	30	250	Norm
3	900	10	20	250	Norm
4	2200	0	5	0	Norm
5	2400	1	2	250	Norm

Injection Temp.; 20, Pipette Speed: 100%,
Extraction System: n

Wavelength : 670.8 nm, Slit : 0.2 low,
Signal Type: Zeeman AA

Table 2. The measurement of boron by titration and ICP-AES

No.	Titration (/ml)	ICP-AES (/ml)
1	891.2	890.8
2	897.8	896.0
3	893.0	892.5
4	895.2	894.3
5	893.7	892.8
Ave.	894.2(RSD 0.30%)	893.3(RSD 0.23%)

Table 3. Determination of generated Lithium after neutron irradiation of ^{10}B
   * ^{10}B(99.5 atomic percent , $H_3{}^{10}BO_3$)

^{10}B (/)*		Irradiation time(hr)	Calculated Li(/)	Measured Li(/)	Ratio (%)
A	203.0	1.0	0.23	0.18	78.3
B	381.4	0.5	0.22	0.16	71.6
	381.4	1.0	0.44	0.31	70.5

Table 4. Determination of diminution Boric acid after neutron
       irradiation of ^{10}B

Irradiation time(min)	Concentration ^{10}B (/)	post irradiation ^{10}B (/)	diminution (%)
30	233	220	5.6
	466	400	14.1
	699	-	-
	932	820	12.0
60	233	200	14.1
	466	-	-
	699	640	8.4
	932	850	8.7
120	233	200	14.1
	466	-	-
	699	-	-
	932	840	9.8

dash is damaged in a process to test, and there not being data

Table 5. pH change of boric acid before and after neutron irradiation

^{10}B (/)	Measured pH, at 25 , CO$_2$ free	
	Before irradiation	After irradiation
233	5.70	5.25
466	5.38	4.95
699	5.27	4.69
932	5.14	3.72

Caption

Fig. 1. Quartz ampoules and aluminum containner for neutron irradiation of liquid samples.

Fig. 2. Determination of Li content in the boric acid :   ; 50,   ; 100,   ; 500,   ; 800,   ;1,000,   ; 1,500,   ; 2,000   /ml respectively.

Fig. 3. pH measurement of boric acid solution of various concentration at 25   :   ; 250,   ; 500,   ; 750,   ; 1,000   /ml respectively.

Corresponding author
Phone : +82+(0)42-868-2471 Fax : +82+(0)42-868-8148
E-mail : nkcchoi@kaeri.re.kr

Al cover

Quartz Ampoules

Quartz Tube