

JAERI-M

4867

LTF-L 内の γ -線量及び熱中性子束の測定

1972年7月

岡 本 次 郎, 徳 永 興 公, 浜 の 上 熊 男
助 川 友 英, 佐 藤 章 一, 森 山 昇
池 添 康 正, 小 林 敏 明, 団 野 皓 文

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

L T F L 内の γ -線量及び熱中性子束の測定

日本原子力研究所高崎研究所研究部

岡 本 次 郎, 徳 永 興 公*, 浜の上 熊 男**
助 川 友 英**, 佐 藤 章 一, 森 山 昇
池 添 康 正, 小 林 敏 明, 団 野 晴 文

(1 9 7 1 年 6 月 1 3 日受理)

化学用原子炉の考え方を実現することを最終目的として, J R R - 3 に設置された低温化学照射装置 (L T F L) の運転に伴う装置内の γ 線量, 热中性子束をそれぞれ気体線量計及び ^{59}Co , ^{197}Au モニターを用いて測定した。

炉出力 7 MW における γ 線量率は約 $3 \times 10^6 \text{ R/hr}$ であり, 热中性子束としては約 $1.1 \times 10^{11} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{Sec}$ なる結果を得た。U-Pd 箔を装填した試料については, その取扱い方法の確立を図ると共に, 核分裂片による線量の評価を行なった。さらに気体中に混入してくる放射性物質とそれによる汚染に関する検討を行なった。

* 高崎研究所開発試験場

** 東海研究所原子炉化学部

*** 東海研究所原子炉工学部

Measurement of γ -dose Rate and Thermal Neutron Flux in the LTFL

Jiro Okamoto, Okihiro Tokunaga*, Kumao Hamanoue**,
Tomohide Sukegawa*** Shyoichi Sato, Noboru Moriyama,
Yasumasa Ikezoe, Toshihiko Kobayashi and Akibumi Danno

Div. of Research, Takasaki, JAERI

(Received June 13, 1972)

To obtain basic data for the construction of a chemonuclear reactor, the dose rate of γ -rays and the thermal neutron flux at the irradiation position of Low Temperature Fissiochemical Loop (LTFL) attached to JRR-3 were measured by use of a gaseous dosimeter and by activation analysis.

The dose-rate of γ -rays and the thermal neutron flux at 7MW output of the reactor were determined to be 3×10^6 R/hr and 1.1×10^{11} n/cm². sec, respectively.

The dose-rate by fission fragments due to thermal neutron irradiation was measured in a capsule containing the U-Pd foil.

The behavior of fission products, ¹³¹I, in particular, in the gaseous reactant was also examined by means of a radiogaschromatograph, and the extent of contamination of the gaseous reactant with fission products studied in comparison with the calculated value.

* Pilot Scale Research Station, Takasaki, JAERI (Present Div.)

** Div. of Chemistry, Tokai, JAERI (Present Div.)

*** Div. of Reactor Engineering, Tokai, JAERI (Present Div.)

目 次 な し

1. まえがき

放射線の工業利用の一端として、核燃料²³⁵Uの²³⁵U(n, f)なる核反応による核分裂片の反跳エネルギーを直接化学反応へ利用することは放射線源のコストを下げる一つの手段として有望である。又核分裂片のような重い荷電粒子線では LET が大きく、即ちイオンやラジカルの密度が大きいので、これら活性種同志の再結合反応が起り易い。したがってこの再結合反応で生成する生成物に着目した場合、他の放射線源例えは γ -線に比べて大きな G 値を期待し得る。大きな収率を得ることは実用的にも化学用原子炉反応にとって重要である。

従来放射線源として原子炉を利用して研究された系は種々報告されている。即ち窒素の酸化窒素としての固定^{1~2)}、炭酸ガスの一酸化炭素と酸素への分解^{1~2)}、メタノールからのエチレングリコールの合成³⁾、アンモニアからのヒドラジンの合成⁴⁾、などである。これらの研究が進歩するに伴ない化学用原子炉は核分裂片の反跳エネルギーを直接化学エネルギーとして有効に使用し得る大規模なエネルギー源となり得ることが指摘されるようになった。

筆者らは核燃料²³⁵U からの核分裂片の反跳エネルギーの化学反応への利用を目的とした化学用原子炉の開発のための基礎データの集積と有利な反応系の探索を目的とし JRR-3 に LTFL (Low Temperature Fissiochemical Loop, 低温化学照射装置)⁵⁾ を設置し、この実験装置内の気体線量計による γ -線量率、⁵⁹Co, ¹⁹⁷Au による熱中性子束分布の測定、及び核燃料を用いた場合の線量の評価更に核燃料の照射後の取り扱いに関する技術的開発を行なつたので報告する。尙本報告中の測定は昭和 45 年 11 月に LTFL が本格的に稼動し始めてから昭和 46 年 6 月までの期間、JRR-3 が 7 MW で運転されていた時に行なわれた。

2. 実験

2.1 装置

i) カブセルカッター

照射筒二重カブセルの内、及び外カブセルのリード線コネクター側約 5 cm の所を輪切りにし、更に縦二箇所を対称に切断し、附属の治具で内カブセルを取り出し得るように設計されたもので概略は写真 1 で示した。

ii) パンクチュアーマシン

取り出した内カブセルのラブチュアーディスクを真空系内でやぶるよう設計されたもので、附属したヒーターで温度を 400°C まで上昇させ吸着の可能性のある生成物及び放射性物質を吸引して試料として採取できるよう設計しており概略は写真 2 に示した。

以上二種の機器は鉛 5 cm の遮蔽セル内に組込まれておりすべて遠隔操作出来るよう設計されている。

iii) 試料の捕集用真空系

通常用いられる真空系にバッファー用タンクとして 300 ml, 500 ml, 1000 ml の

ガスだめを接続し、50 ml カブセルに最高 20 kg/cm²の反応物質を封入して照射した後の操作に耐え得るよう設計してある。更に反応物質と接触する部分のコックは全てバイトンゴム製グリースレスコックを使用した。概略は写真3に示す。

2.2 線量率測定

試料は当研究室で炉内放射線線量率の測定用に研究開発した気体線量計である。N₂O系、C₂H₄系、及びCO₂-5%NO₂系の3種を⁶⁾用い反応系に及ぼす線量の熱中性子、速中性子、 γ 線等の各割合を測定することを目的としたものである。又核燃料からの核分裂片による線量の寄与に関しても同様の系を用いて実験した。

精製した試料を50 ml ステンレス内カブセルにステンレス製封入装置⁷⁾を用いて1気圧(2.23×10⁻³ mole)充填し、JRR-3に設置してあるLTFLを用いて、炉出力7 MWでパラメータとして照射時間、照射位置をかえて実験を行なつた。

照射終了後カブセルの誘導放射能がカブセル表面で50 mR/h程度に減衰した後専用セル内に設置されたカッターを用いて内カブセルを取り出す。次に内カブセルをパンクチュアーマシンに装填した。パンクチュアーマシン及び附属のガラス製真空系はあらかじめ10⁻⁴ mm Hgに排気しておきしかる後ベローを用いたパンクチュアでカブセルのラブチュアーディスクを破壊した。試料ガスは1000 ml のガスだめに拡散させ、各所にあるコック、及びテブラーポンプを操作して試料中のH₂、N₂、O₂、CO等を真空蒸留法によりサンプラーに捕集した。但しテブラーポンプの操作時間は約1時間である。

分析は全て日立ガスクローマススペクトロメーター(RMS-4型)を用いて行なつた。エチレン線量計での水素はあらかじめ求めておいた絶対検量線を用いてその量を求めた。亜酸化窒素線量計からのN₂、O₂量は一定容量中での圧力とマススペクトロメーターによるN₂/O₂比(実際には捕集したガスの80%⁸⁾をN₂として計算した。)を求め混入空気の補正是標準空気のN⁺⁺のピークの高さとAr⁺のピークの高さを基準として次式を用いて行なつた。

$$\frac{N^{++}(\text{P.H})_{\text{sample}}}{N^{++}(\text{P.H})_{\text{sampling gas}}} = \frac{N^{++}(\text{P.H})_{\text{stand, air}}}{Ar^+(\text{P.H})_{\text{stand, air}}} \times Ar^+(\text{P.H})_{\text{sampling gas}}$$

$$\frac{N^{++}(\text{P.H})_{\text{sample}}}{N^{++}(\text{P.H})_{\text{sampling gas}}} \times (\text{mole}) N_2_{\text{sampling gas}} = (\text{mole}) N_2_{\text{from Radiolysis}}$$

N⁺⁺(P.H) stand, air : 標準空気中のN⁺⁺のピークの高さ

Ar⁺(P.H) stand air : 標準空気中のAr⁺のピークの高さ

又 CO₂-NO₂系線量計の場合は生成气体の60%がCO⁺⁹⁾によるものとして生成量を計算した。尚G値としてはG(N₂)(N₂Oよりの)=10⁸⁾, G(H₂)(C₂H₄よりの)=1.3¹⁰⁾及びG(CO)(CO₂+NO₂よりの)=5⁹⁾を用いて線量率計算を行なつた。

2.3 热中性子の测定

プラグ先端からの位置による热中性子束の分布を調べる目的で J R R - 4 用アルミキャップセルを 2 ケ連結し第 1 図に示すように ^{59}Co , ^{197}Au を固定し、従来用いられている核反応 ^{59}Co (n, γ) ^{60}Co 及び ^{197}Au (n, γ) ^{198}Au による ^{60}Co , ^{198}Au の放射能を Tracer Lab の Source Calibrator 及び GM - カウンター（神戸工業製）を用いて測定を行ない次式を用いて热中性子束の計算を行なった。尙照射時間は 30 min であった。

$$A = N f \sigma (1 - e^{-\lambda t}) e^{-\lambda t'}$$

ここで

A ; 照射終了後時間 t' における放射性核種の放射能

N ; ターゲット元素の原子数

f ; 热中性子束

σ ; 原子放射化断面積 ^{59}Co ; $3.6 \times 10^{-24} \text{ cm}^2$, ^{197}Au ; $9.6 \times 10^{-24} \text{ cm}^2$

λ ; $0.693/T_{1/2}$ (; $T_{1/2}$; 半減期)

t ; 照射時間

t' ; 照射終了時からの経過時間

更に線量率測定用及び反応系のカプセルにもモニター（ほとんど ^{59}Co ペレットを使用）をカプセルをささえ冷却効率をあげることを目的としたアルミ製フィンに 2 ケ所あるいは 3 ケ所アルミ管に封入して固定しカプセル毎に热中性子束の測定を行なった。尙 ^{59}Co はワイヤー 0.7 mg 及びペレット 7 mg を用い、自己吸収の補正は溶解したものと溶解しないものとの計数値の比（ワイヤーに対する 6.67, ペレットに対する 17.55）を用いて行なった。

2.4 核燃料 ^{235}U を含む系で生成する気体状物質中に含まれる放射能の測定

^{235}U を含む試料については ^{235}U (n, f) なる核反応で生成する核種の生成物中への混入を調べるために 2.2) 節で述べた操作の後、凝縮相を氣化させ特殊サンプラー図 2-a, 2-b [C] 一定量の気体試料をとりラジオガスクロマトグラフ [11] [C] よりヨウ化アルキルの検出を試みた。

用いたカラムはシラン処理した Celite 545 [C] silicone DC-550 を 10% コーティングしたものをガラスカラム (3m × 4mmφ) [C] 充填したものであり、温度は常温、 N_2 ; 4.0 ml/min の条件で放射能検出器は NaI (Tl) 1 インチ × 1 インチのクリスタル、 PHA は ^{131}I の γ -線のエネルギー 0.365 MeV を測定するようにセットした。更に気体中への種々核種の混入の可能性を考え PHA [C] より他核種の同定をも試みた。

有機化合物例えばメタン、エタンなどを ^{235}U 存在下で中性子照射を行なった場合、核分裂片であるヨウ素が有機化合物と反応してヨウ化メチルなどのヨウ化物が得られることが知られている。

3. 結 果

3.1) 線量率 ; N_2O や C_2H_4 の放射線分解により生成する N_2 , H_2 の生成量はかなりの高線量まで直線的に変化して行くことが知られているため $G(H_2) = 1.30$ (C_2H_4 の場合) 及び $G(N_2) = 1.0$ (N_2O の場合) を用いて各位置における線量率を計算し、その結果を第 1 表に示した。 N_2O 系を用いた場合の最先端での線量率は $0.8 \times 10^6 \sim 4.3 \times 10^6 R/hr$ となり、かなりの変動がみられる。同様に C_2H_4 系においても $1.6 \times 10^6 \sim 3.2 \times 10^6 R/hr$ となり、かなりのバラツキはみられるがオーダーとしては $10^6 R/hr$ 程度であり、頭初の予想値 $8 \times 10^7 R/hr$ よりかなり下まわった結果が得られた。

3.2) 热中性子束の分布；各線量測定の際中性子束も測定したがその結果も第 1 表に示す。一方 JRR-4 用カプセルを用いて行なった結果と LTFL 設置位置再確認後の炉出力 7 MW 時における热中性子束分布とを第 3 図に示した。

3.3) ^{235}U 存在下での照射で生成する核種の気体中への混入について、シアン化水素合成に用いる $N_2 - C_2H_4$ 系に ^{235}U の Pd 箔を入れて照射した場合生成すると予想される ^{131}I 一有様化合物としてヨウ化アルキルが考えられるがラジオガスクロマトグラフィーによる結果ではその生成は認められなかつた。更に 200 channel PHA による混入放射性核種の検討も試みたが γ -エネルギーで $0.075 MeV$, $0.11 \sim 0.12 MeV$ のピークを認めたが照射後の経過時間及び γ -線のエネルギー等を検討した結果相当する核種の同定を行なうことはできなかつた。第 4 図に D-28 のサンプルの分析結果を示す。

4. 考 察

4.1) 線量率について

i) N_2O 線量計；この気体線量計を用いた場合最大線量率として $4.3 \times 10^6 R/hr$ なる値を得たが照射時間による変動及び各試料間の差が非常に大きい。この変動に対する原因として
 ① 50 ml ステンレス内カブセルへの試料封入の際起こる空気の混入，② 銀ローによる封入後内カブセルのある箇所からのリークがある，③ 試料捕集の際パンクチュアー，真空系のある箇所からのリークがある。などの試料の封入，捕集の過程で起こることと，照射位置の不確定さによるバラつき等が考えられる。しかし後者の場合は同時に熱中性子束の測定も行なっておりその結果よりサイクル毎の変動はあるにしても大体目的とした位置にカブセルがセットされていることが確認された。

空気の混入に対しては一応実験の項でも述べた様に補正を行なってはいるが大量の空気が混入した場合には殆んど放射線分解で得られる N_2 がかくれて意味をなさなくなる。

ii) C_2H_4 線量計；本実験における水素の生成量は日立ガスクロマス RMS-4型によりあらかじめ求めておいた絶対検量線から求めた。カブセル番号 D-11, と D-12 は同時期に行なわれたもので $2.8 \times 10^6 R/hr$ 及び $2.5 \times 10^6 R/hr$ と非常によく一致している。本系において特に問題となつたのは、マススペクトラム上にブランクとしての水素のピークがかなり大きく認められたことで、この原因としては試料封入時の、仮締め、銀ローによる封入の際の水の熱分解等である。これらは試料作製上十分注意することにより解決できるものと考えられる。

iii) 気体線量計と設計値との比較

本装置 LTFL の JRR-3 での設置状態は第 5 図¹³⁾ a に示した。これによると LTFL の先端が炉心から約 2 m, 炉心タンク壁から 0.5 m の所に位置し、その位置での γ -光子の数は図から読み取ると大体 2 MeV で 2×10^{11} ケ, 5 MeV で 1.5×10^{11} ケ, 8 MeV で 9×10^{10} ケである。今エネルギー E MeV の平行 γ -線束の空気層による吸収を考えた場合、毎センチにつき毎秒 μ ケの γ -光子が通過し、 γ -線に対する空気の吸収係数のうち電子エネルギーに変換される部分を μ^a とすれば空気層 1 cm を通過し吸収されるエネルギー E_A は

$$E_A = \phi E \mu^a$$

¹⁴⁾ で与えられる。一方定義により 1 R は空気 1 cm² につき 7.08×10^4 MeV のエネルギー吸収に相当するので線量率は

$$\frac{\phi E \mu^a}{7.08 \times 10^4} (R/sec) = 0.0508 \phi E \mu^a (R/hr)^{**}$$

で与えられる。

ここで μ^a は γ -線のエネルギーにより異なる値を示し質量吸収係数から求めることが出来る。炉心構成物質は、天然ウラン、アルミ、重水で代表される。これらの熱中性子捕獲ガンマ

線のエネルギーは、それぞれ 5 MeV, 7.7 MeV, 223 MeVとなっていることを考慮し、ここでは 2, 5, 8 MeV の 3 つのエネルギーのガンマ線を考えることにする。これらのエネルギーをもつガンマ線のエネルギーと質量吸収係数との間には、第 6 図¹⁵⁾ の関係があり、この図から読みとった値を用いて LTFL 内の線量率を計算すると、2 MeV に対しては

$$0.0508 \times 2 \times 10^{11} \times 2 \times 2.95 \times 10^{-5} = 6.00 \times 10^5 \text{ R/hr}$$

5 MeV に対しては

$$0.0508 \times 1.5 \times 10^{11} \times 5 \times 2.16 \times 10^{-5} \text{ R/hr} = 8.25 \times 10^5 \text{ R/hr}$$

8 MeV に対しては

$$0.0508 \times 9 \times 10^{10} \times 8 \times 1.95 \times 10^{-5} = 7.15 \times 10^5 \text{ R/hr}$$

となり全体では $2.14 \times 10^6 \text{ R/hr}$ となる。この値はエチレン線量計で得られた値と良く一致しており封入時の注意を十分に行なえば、LTFL 内 γ 線の線量率測定にはエチレンを用いることが妥当であると考えられる。

IV) ^{235}U を用いた場合の線量評価

化学原子炉用として核燃料体を使用する場合つきのような諸点が問題となるであろう。(1)核分裂片のエネルギーが化学反応系にできるだけ多量に与えられるような燃料体の形と大きさ、(2)核分裂片のエネルギーができるだけ多量に与えられるような燃料体の集合状態、(3)放射線化学反応を行なっている炉心部をもつ原子炉の臨界条件の安定性を保たせるに適した燃料体の型式、(4)化学原子炉の安全性を出来るだけ保ちやすいような燃料体の型式、(5)生成物と燃料体及び放射性核分裂片との分離が容易であること、(6)熱工学上、機械工学上問題の少ないような燃料体であること、などである。燃料体の型式には気体燃料 (UF_6)、液体燃料、固体燃料(粒状、線状、繊維状、板状、リボン状、合金箔)等である。実際に使用する場合は気体、液体よりも固体で使用することが容易であり、反応系内に固定することも可能であるという利点があり本実験では $^{235}\text{U-Pd}$ 合金箔を用いた。化学反応系を ^{235}U (n, f) からの核分裂片で照射する場合反応系が核分裂片のエネルギーを吸収する効率が高いことが望ましい。

ここで用いた $^{235}\text{U-Pd}$ 合金箔(厚さ 2.1μ , 両面に Pt 被覆 0.2μ 全厚 2.5μ)から毎秒どの程度のエネルギーが発生するかを見積る必要がある。今箔中の核分裂片の飛程は 5.45μ この箔から脱出する核分裂片の数は生成数の 77 %, エネルギー効率は(核分裂片の初期エネルギーが平均 84.8 MeV / 核分裂片とし、その内どれだけが箔の外部に脱出するかの割合は)¹⁶⁾ 32.5 % と算出した。

毎秒発生するエネルギー E は

$$E = \frac{g}{M} \cdot N \cdot \phi_{th} \cdot \epsilon \cdot \alpha \cdot \sigma_{(n, f)}$$

で与えられる。ここで

* * この算式は実際には $0.07 \text{ MeV} \sim 3 \text{ MeV}$ の範囲で適用される。

M ; ^{235}U の原子量 = 235g ; ^{235}U の使用グラム数N ; アボガドロ数 = 6.02×10^{23} ϕ_{th} ; 热中性子束 = $1.1 \times 10^{11} \text{n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ ϵ ; 1 fission のエネルギーの内実際に反応系に寄与する分 = $200 \times 0.848 \text{ MeV}$ α ; 箔から飛び出して来る粒子の割合 = 32.5% $\sigma_{(n, f)}$; 放射化断面積 = $58.2 \times 10^{-24} \text{ cm}^2$ (14)

である。故に発生するエネルギーは ^{235}U の設計最大使用可能量 3.6 mgについて計算してみると

$$E = \frac{3.6 \times 10^{-3}}{235} \times 6.02 \times 10^{23} \times 200 \times 10^6 \times 0.848 \times 0.325 \times 58.2 \times 10^{-24} \times 1.1 \times 10^{11}$$

$$= 2.70 \times 10^{17} \text{ eV/sec}$$

で与えられる。

今 ^{235}U を用いない系での炉内線量と比較するために、 N_2O ; $9.86 \times 10^{-2} \text{ g}$ (我々の使用した S u S 内キャブセルの容量 = 5.4.8 ml, 1気圧封入 25°Cとした) を用いた場合この系に吸収されるエネルギーを R/hr の単位に換算すると

$$\frac{2.70 \times 10^{17} \times 3.6 \times 10^3}{9.86 \times 10^{-2} \times 6.13 \times 10^{13}} = 1.95 \times 10^8 \text{ R/hr}$$

となり同様に N_2 ; $6.27 \times 10^{-2} \text{ g}$ (5.4.8 ml, 1 atm 25°C) の場合は

$$\frac{2.70 \times 10^{17} \times 3.6 \times 10^3}{6.27 \times 10^{-2} \times 6.13 \times 10^{13}} = 3.07 \times 10^8 \text{ R/h}$$

で与えられる。

実際には ^{235}U の熱中性子照射で生成する核分裂片の運動エネルギーは非常に大きいため系内に全て吸収されるかどうかを検討する必要がある。平均原子量 A を

$$A = \frac{m A_X + n A_Y}{m+n}$$

(但し A_X, A_Y をそれぞれ構成原子の原子量, m, n を A_X, A_Y の分子中の原子の数とする) で定義すれば物質 1, 2 の核分裂片の飛程をそれぞれ R_1, R_2 , 比重 ρ_1, ρ_2 などの間に次の方程式が成立する。

$$\frac{R_2}{R} = \frac{\rho_1}{\rho_2} \left(\frac{A_2}{A_1} \right)^{\frac{1}{2}}$$

Steinberg らが種々の物質中での核分裂片の飛程を求めており 15°C, 1 atm における空

気中の飛程は 2.2 cm であることが報告されている。この値を用いて本実験系での核分裂片の飛程を求める。

I) N_2O の場合

$$A_2 = \frac{2 \times 14 + 1 \times 16}{3} = 14.7$$

$$\rho_2 = 1.96 \times 10^{-3} \text{ g/cc}$$

$$\therefore R_2 = 2.2 \times \frac{1.23 \times 10^{-3}}{1.96 \times 10^{-3}} \left(\frac{14.7}{14.33} \right)^{\frac{1}{2}}$$

$$= 1.42 \text{ cm}$$

同様に

II) N_2 の場合

$$A_2 = 14$$

$$\rho_2 = 1.25 \times 10^{-3} \text{ g/cc}$$

$$\therefore R_2 = 2.2 \times \frac{1.23 \times 10^{-3}}{1.25 \times 10^{-3}} \left(\frac{14}{14.33} \right)^{\frac{1}{2}}$$

$$= 2.14 \text{ cm}$$

III) C_2H_4 の場合

$$A_2 = 4.67$$

$$\rho_2 = 1.25 \times 10^{-3} \text{ g/cc}$$

$$\therefore R_2 = 2.2 \times \frac{1.23 \times 10^{-3}}{1.25 \times 10^{-3}} \left(\frac{4.67}{14.33} \right)^{\frac{1}{2}}$$

$$= 1.23 \text{ cm}$$

となる。

一般に核分裂片の飛程以下の通過に際してのそのエネルギー損失を各気体で考慮する必要があるが、実際には第7図の如くエネルギー損失は複雑である。

今回用いられた S u S の内カプセルは、内径 2.3 cm のものであるから、中心で核分裂片が生成され、中心線に対して直角に円周方向へ運動して運動エネルギーが消滅して行くものと考え大略のエネルギー損失をカプセルの円周部分、即ち中心から 1.15 cm の所で考える。

実際には第7図の破線で示したような近似を行なう。即ち linear Approximation (図中 a 線) と Square Approximation (図中 b 線) の方法である。前者では

$$-\frac{dE}{dr} = K \quad (0 \leq r \leq R), \quad 0 (R < r)$$

K ; const

$$\therefore E = E_0 \left(1 - \frac{r}{R} \right)$$

という式が成り立つ。ここで E_0 は粒子の初期エネルギー、Rは飛程である。半径 1.15 cm の所での各系即ち N_2O , N_2 , C_2H_4 系における粒子のエネルギーは、

$$\text{N}_2\text{O} \text{ 系 } E = E_0 \left(1 - \frac{1.15}{1.42} \right) = 0.19 E_0$$

$$\text{N}_2 \text{ 系 } E = E_0 \left(1 - \frac{1.15}{2.14} \right) = 0.46 E_0$$

$$\text{C}_2\text{H}_4 \text{ 系 } E = E_0 \left(1 - \frac{1.15}{1.23} \right) = 0.06 E_0$$

で与えられ初期エネルギーの約 81% , 54% , 及び 94% がそれぞれ N_2O 系, N_2 系, C_2H_4 系 (いずれも 1 気圧) で吸収されたことになる。一方後者の近似法では

$$-\frac{dE}{dr} = K \left(1 - \frac{r}{R} \right) \quad (0 \leq r \leq R), \quad 0 \quad (R < r)$$

$$\therefore E = E_0 \left(1 - \frac{r}{R} \right)^2$$

で与えられるから同様に半径 1.15 cm でのそれぞれのエネルギーは、

$$\text{N}_2\text{O} \text{ 系 } E = E_0 \left(1 - \left(\frac{1.15}{1.42} \right)^2 \right) = 0.04 E_0$$

$$\text{N}_2 \text{ 系 } E = E_0 \left(1 - \left(\frac{1.15}{2.14} \right)^2 \right) = 0.22 E_0$$

$$\text{C}_2\text{H}_4 \text{ 系 } E = E_0 \left(1 - \left(\frac{1.15}{1.23} \right)^2 \right) = 0.004 E_0$$

で与えられ、それぞれ初期エネルギーの 96% , 78% , 100% が系内に吸収されたことになる。

$^{235}\text{U}-\text{Pd}$ 箔を用いた場合の線量測定として第 1 表の試料 D-25, D-26, D-27, D-28 について行なった。

実験結果は前二者が 1.5 cm の箔を用いて $8.78 \times 10^6 \text{ R/hr}$ 及び $8.52 \times 10^6 \text{ r/hr}$ で計算値 $6.70 \times 10^6 \text{ R hr}$ とオーダーでは一致している。ここでは半径方向のみについて検討したが実際には全空間について検討する必要及び本実験のように U-P 箔がタンザク形で巾も考慮する必要があるなどから正確な値を示すことは不可能であるが大ざっぱな近似として一応の予想をたてることが出来る。これらについては更に実験を積み重ね検討すべきであろう。

V) 热中性子束の実測値と設計計算値との比較

先端からの各位置の熱中性子束を正確に知る目的で用いた JRR-4 用カプセル IC^{59}Co ベ

レット及び¹⁹⁷Au 箔による測定結果は high flux 側では設計値と大きくずれ、 low flux 側ではかなり良い一致をみせているが線量測定などのために用いたカプセルに取り付けた⁵⁹Co ワイヤーあるいはペレットによる熱中性子束の測定結果ではかなりのばらつきがみられた。例えば先端では $(1.07 \pm 0.35) \times 10^{11} \text{n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ 、中心で $(0.87 \pm 0.24) \times 10^{11} \text{n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ 、最後部で $(0.62 \pm 0.22) \times 10^{11} \text{n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ となり、各位置での変動が大きい。

これらの原因として、 i) 照射位置の変動、 ii) 制御棒の位置、 iii) 各サイクルにおける炉出力の変動、 iv) その他の原子炉運転上の要因が考えられる。照射位置に関しては LTFL リード線のたわみ、あるいは数回の実験後交換したことによるリード線自体の寸法の違い等が考えられる。第3図で示したように⁵⁹Co ペレットの取り付け位置は矢印の所で 10 cm 程度位置がづれると約 4割近く変わることになる。一方制御棒の位置による変動は VC-2 垂直孔に挿入してあった Co 金属を 46年 2~3月頃に取り出し、 0.4%程度の反応度を補償するために S. 7, 9, 10, 12 (第8図参照) の制御棒を 240 mm 降下させて運転が行なわれたことであるが第9図に示したように制御棒の位置と CIC の変化から一応結論できることは、変化は約 7.5%でありまた中性子束の分布が第10図に示すような分布をとっているものとすれば、その変化は大体 11%程度でありこれらの値は 30数%の変動の原因とは考えられない。更に第11図に示したように照射の行なわれたサイクルによってカプセルの各位置における相対的の中性子束の値は変わらないが照射サイクルによる変動が大きいことが事実として明らかとなつた。しかし変動の原因是明らかでない。今まで行なわれた実験では恐らく諸原因の相乗効果によるものと考えた方が妥当と思われる。結論として Co モニターは各カプセルに少なくとも 1 箇所取り付ける必要があり特に U-Pd 箔を用いる場合は正確な熱中性子束を知る意味でもこのことは絶対に必要であろう。

VI) 誘導放射能について

フロータイプ及びバッチャタイプのサンプラーに採取した気体試料中の放射能は殆んど検出限界以下であり、核分裂生成物による汚染は殆んどなかった。特に気体相に混入してくると考えられるヨウ化アルキルについては、ラジオガスクロマトグラフによって検討したがその生成も認められなかつた。ここで汚染度合をみるために実験 D-28 (最大 U-Pd 箔を使用した) の試料について試料中に生成すると考えられる¹³¹I の放射能について検討してみよう。¹³¹I の生成原子数を N_I とすれば

$$N_I = Y F t_1 e^{-\lambda t_2} \quad \text{となる。}$$

但し、 Y ; ¹³¹I の核分裂収率 = 0.031¹⁵⁾

$$F ; \text{核分裂速度} = N_u \sigma_{(n, f)} \phi_{th}$$

ここで N_u ; ²³⁵U の原子数、 $\sigma_{(n, f)}$; 放射化断面積 ($582 \times 10^{-24} \text{cm}^2$)、 ϕ_{th} ; 热中性子束 ($1.1 \times 10^{11} \text{n/cm}^2 \cdot \text{sec}$) である。U-Pd 箔は单位 cm^2 当り 0.67mg の ²³⁵U を含むから D-28 に関しては、 $0.67 \times 2.5 = 1.675 \text{mg}$ となり F, t_1 , λ は次のようになる。

* この実験孔は LTFL の設置されている孔の近傍にある (第8図参照)

$$\therefore F = \frac{1.675 \times 10^{-3} \times 602 \times 10^{23}}{235} \times 582 \times 10^{-24} \times 1.1 \times 10^{11}$$

$$= 2.77 \times 10^7 = 2.77 \times 10^8 \text{ fission/sec}$$

$$\text{照射時間 } t_1 = 30 \text{ min}, \quad \lambda = \frac{0.693}{T_{1/2}} = \frac{0.693}{8.1} = 8.56 \times 10^{-3} \text{ d}^{-1}.$$

従って照射後 29 日間放置されたものについて N を計算すると次のようになる。

$$N = 3.1 \times 10^{-2} \times 2.77 \times 10^8 \times 1.8 \times 10^3 \times e^{-8.56 \times 10^{-3} \times 29}$$

$$\begin{aligned} &= 1.55 \times 10^{10} e^{-8.56 \times 10^{-3} \times 29} \\ &= 1.30 \times 10^9 \end{aligned}$$

¹³¹I の全放射能 A は

$$\begin{aligned} A &= \lambda N / 3.7 \times 10^{10} \text{ Ci} \\ &= 9.91 \times 10^{-7} \times 1.30 \times 10^9 / 3.7 \times 10^{10} \\ &= 3.48 \times 10^{-8} \text{ Ci} \end{aligned}$$

よって波高分析器による検出限界 S と比べてみると

$$\begin{aligned} S/A &= 4.5 \times 10^{-11} / 3.48 \times 10^{-8} \\ &= 1.30 \times 10^{-3} \end{aligned}$$

となり、¹³¹I の分析時の全存在量のうち約 0.13% 以上の量が液体窒素にて凝縮された後、蒸発することはない結論される。

今後の汚染量評価のための実験としては、可能な限り、厳密な実験条件を考える必要がある。検出感度に寄与する因子として i) 炉出力 7 MW から 10 MW への約 50% 増 (1.5 倍の寄与), ii) 核燃量の増加 (例えば 10 cm³ にし従来の 4 倍にする), iii) 照射時間を最大の 5 時間にする (10 倍), iv) Sampler の採取量を全量とする (2 倍), v) 照射後 8 日以内に測定する ($e^{-\lambda t} = 0.5$ となるので 29 日後測定の場合と比べ $0.5 / 0.0837 = 6.0$ 即ち 6 倍となる) という条件で実験を行なえば最大 720 倍の感度となり $1.3 \times 10^{-3} / 7.2 \times 10^2 = 1.8 \times 10^{-4} = 0.018\%$ 程度の汚染が測定可能となる。このような条件での実験を積み重ねて汚染の評価をすることが今後必要であろう。

その他 ¹⁴N (n, p)¹⁴C 反応による ¹⁴C の汚染が考えられるが、¹⁴N の放射化断面積、¹⁴C の半減期、更には $1.1 \times 10^{11} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ での 5 時間照射では殆んど問題にならない。しかも炉出力が 10 MW に上昇したとしても中性子束が $3 \times 10^{11} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ となるのでそれによる心配は殆どないものと確信出来る。特に $\text{C}_2\text{H}_4 - \text{N}_2$ 系からの HCN 生成機構から考えても HCN それ自体が ¹⁴C で汚染されることはないであろう。

5. 結 論

L T F L 装置による放射線化学の研究に必要な γ -線量，熱中性子束などの炉出力 7 MW 時における特性が常温において調べられた。これによると，Loop 最先端における γ -線量率はオーダーとして 10^6 R/hr ，熱中性子束は $1.1 \times 10^{11} \text{ n/cm} \cdot \text{sec}$ であり設計値よりかなり低い結果が得られた。附属する諸機器の操作法及び U-Pd 箔を用いての実験の際に考えられる汚染の問題に関する調査もなされ，気体試料の取り扱い技術はほぼ確立され，又 ^{131}I などの核分裂生成物による汚染あるいは， ^{14}N (n, p) ^{14}C による汚染は，得られた熱中性子束，照射時間，U 使用量を現状のままとすれば殆んど無視出来るという結論に達した。

今後炉出力 10 MW での結果と今回の結果との対比から L T F L の特性に対する最終的な結論が得られるであろう。

文 献

- 1) P. Harteck, (団野抄訳) ; J. Atom Energy Soc. Japan, No. 9, 627~635, (1962).
- 2) M. Steinberg ; Adv. in Nucl. Sci. and Tech., 1, 248~333, (1962).
- 3) A. K. Weibe, W. P. Conner and G. A. Kinzer; Nucleonics, 19 (2), 50~52, (1961).
- 4) C. P. Fritsch Jr., M. R. Guslavson, J. H. Cusack and R. L. Miller; Chem. Eng. Progr., 57 (8), 37~41, (1961).
- 5) LTFL 関係 JAERI-memo 3319, 3852, 4630, 4717.
- 6) 池添ら; JAERI-memo 3780
- 7) 封入装置; to be published
- 8) M. G. Robinson and G. R. Freeman; J. Phys. Chem., 72, 1394, (1968).
- 9) P. Harteck and S. Dondes ; J. Chem. Phys., 26 1727~1733, (1957); 23, 902~908, (1955).
- 10) K. Hamanoue, J. Okamoto, O. Tokunaga and A. Danno et al ; JAERI-memo 4573 ; Y. Ikezoe, S. Sato and A. Danno ; J. Nucl. Sci. Technol., 8, 394, (1971) ; G. G. Meisels ; J. Am. Chem. Soc., 87, 950, (1965).
- 11) J. Okamoto and G. Tsuchihashi ; Proceedings of the 6th Radioisotope Conference (Tokyo, 1964). P-14 ; E. Tachikawa and M. Narutomi ; J. Nucl. Soc. Technol., 成富清夫 ; JAERI-memo 4391
- 12) G. Herrman, H. O. Denshlag and A. A. Gordus ; Division of Nuclear Chemistry and Technology, American chemical Soc., (1966)
- 13) 石川 寛, 朝岡卓見, 笹倉 浩, JAERI-1002
- 14) R I 研修所テキスト, P 218

- 15) 木村健二郎編著；放射線データーブック
- 16) 佐藤，森山，池添他；JAERI-M レポート投稿中

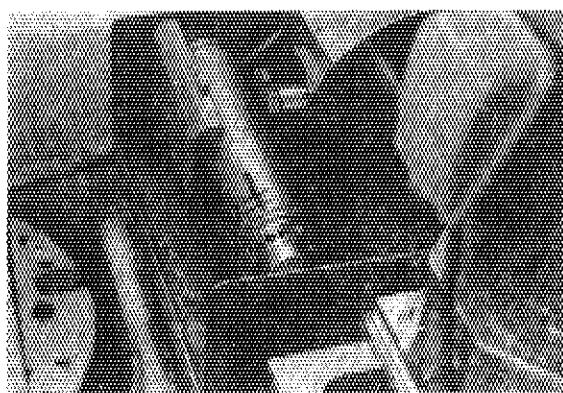


写真1 特殊カプセルカッター

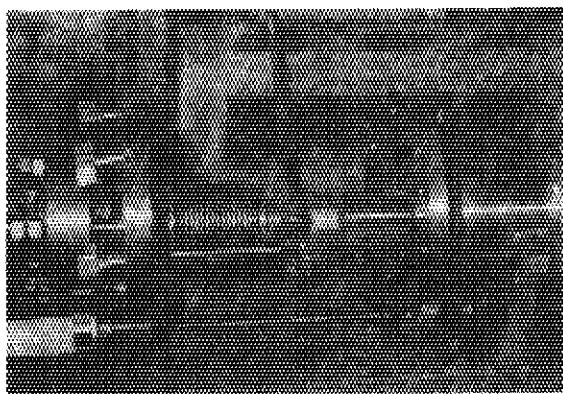


写真2 バンクチュア

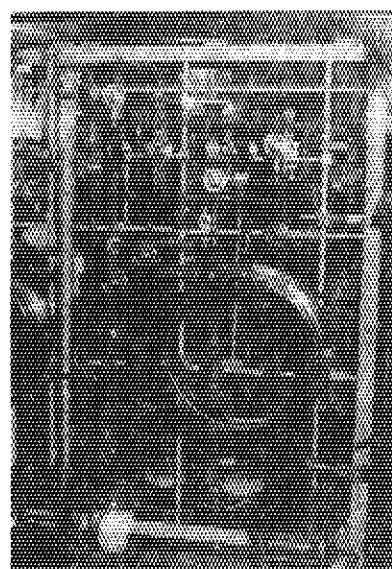


写真3 真空系

第1表 LTFLにおける線量率，熱中性子束の結果
(JRR-3, 7MW)

Capsule No	Date (Irradn)	Coda (pressure)	Duration (min)	Position (cm)	r-doserate (r/h)	th, n, flux ($n/cm^2 \cdot sec$)	
D- 1	45.11.26	N ₂ O (1 atm)	180	90	2.7×10 ⁴	1.5×10 ⁸ — 0.7×10 ⁸	
D- 2	45.11.13	N ₂ O (1 atm)	60	0	4.3×10 ⁶	1.1×10 ¹¹ 0.8×10 ¹¹ 0.6×10 ¹¹	
D- 3	46. 2. 3	N ₂ O (1 atm)	180	0	4.4×10 ⁵	1.4×10 ¹¹ 1.1×10 ¹¹ 0.8×10 ¹¹	Heもれあり
D- 4							
D- 5	45.11.27	N ₂ O (1 atm)	180	60	測定不能	2.7×10 ⁹ 1.4×10 ⁹ 1.2×10 ⁹	airもれ大
D- 6	45. 7.30	N ₂ O (1 atm)	不明	0			
D- 7	45.11.26	N ₂ O (1 atm)	90	0	1.2×10 ⁶	0.9×10 ¹¹ 0.8×10 ¹¹ 4.8×10 ¹⁰	
D- 8	45.11.13	N ₂ O (1 atm)	120	0	0.8×10 ⁶	— 0.8×10 ¹¹ 0.6×10 ¹¹	
D- 9	46. 2. 3	N ₂ O (1 atm)	180	0	1.6×10 ⁶	1.4×10 ¹¹ — 0.8×10 ¹¹	
D-10	46. 2. 4	N ₂ O (1 atm)	120	0	3.2×10 ⁶	1.4×10 ¹¹ — 0.7×10 ¹¹	
D-11	46. 2. 5	N ₂ O (1 atm)	120	0	2.8×10 ⁶	1.4×10 ¹¹ — 0.7×10 ¹¹	

JAERI-M4867

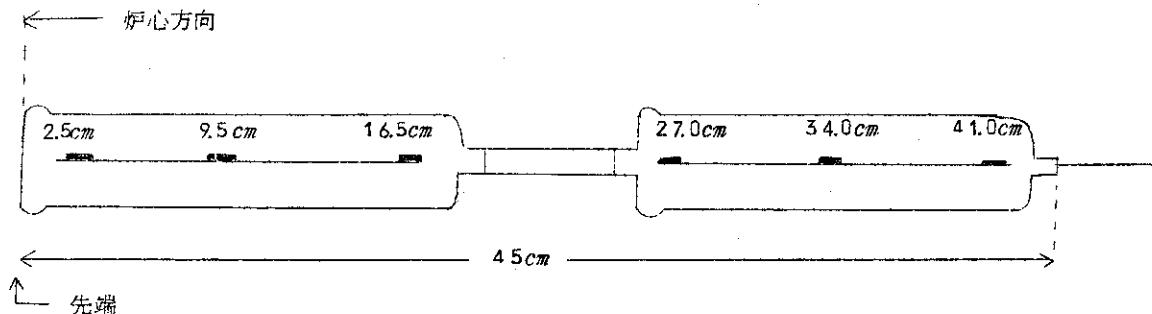
Capsule No	Date (Irradn)	Compd (pressure)	Duration (min)	Position (cm)	r-doserate (r/h)	th,n, flux (n/cm ² ·sec)	
D-12	46. 2. 5	C ₂ H ₄ (1 atm)	180	0	2.5×10 ⁶	— — —	
D-13	46. 5.27	C ₂ H ₄ (1 atm)	300	0	3.2×10 ⁶	なし	
D-14	46. 6.10	C ₂ H ₄ (1 atm)	300	0	3.7×10 ⁶		
D-15	46. 2.19	N ₂ O (1 atm)	180	30	3.4×10 ⁶		
D-16	46. 3.18	N ₂ O (1 atm)	240	0			
D-17	46. 2.18	CO ₂ -NO ₂ (1 atm)	60	0	/	0.9×10 ¹¹ — 5.4×10 ¹⁰	NO ₂ : 1% CO-59 : ベ レット
D-18	46. 2.18	CO ₂ -NO ₂ (1 atm)	180	0	1.7×10 ⁶	0.74×10 ¹¹ — 55×10 ¹⁰	"
D-19	46. 2.19	CO ₂ -NO ₂ (1 atm)	120	0	/	0.9×10 ¹¹ — 5.3×10 ¹⁰	"
D-20	46. 2.20	CO ₂ -NO ₂ (1 atm)	180	0	0.5×10 ⁶	0.9×10 ¹¹ — 5.4×10 ¹⁰	"

JAERI-M 4867

Capsule No	Date (Irradn)	Compd (pressure)	Duration (min)	Position (cm)	r-doserate (r/h)	th, n, flux (n/cm ² .sec)	U-Pd (cm)
D-21	46. 3.16	N ₂ O (1 atm)	120	0		0.80×10 ¹¹ 0.46×10 ¹¹	2.5
D-22	46. 3.16	N ₂ O (1 atm)	240	0		0.88×10 ¹¹ 0.51×10 ¹¹	2.5
D-23	46. 3.17	N ₂ O (1 atm)	120	0		1.09×10 ¹¹ 0.62×10 ¹¹	5.0
D-24	46. 3.17	N ₂ O (1 atm)	240	0		0.88×10 ¹¹ 0.54×10 ¹¹	5.0
D-25	46. 5.28	C ₂ H ₄ (1 atm)	20	0		1.12×10 ¹¹ 0.64×10 ¹¹	1.5
D-26	46. 5.27	C ₂ H ₄ (1 atm)	60	0		1.04×10 ¹¹ 0.58×10 ¹¹	1.5
D-27	46. 6. 9	C ₂ H ₄ (1 atm)	10	0		1.08×10 ¹¹ 0.69×10 ¹¹	2.5
D-28	46. 6.10	C ₂ H ₄ (1 atm)	30	0		1.08×10 ¹¹ 0.66×10 ¹¹	2.5
D-29							
D-30							

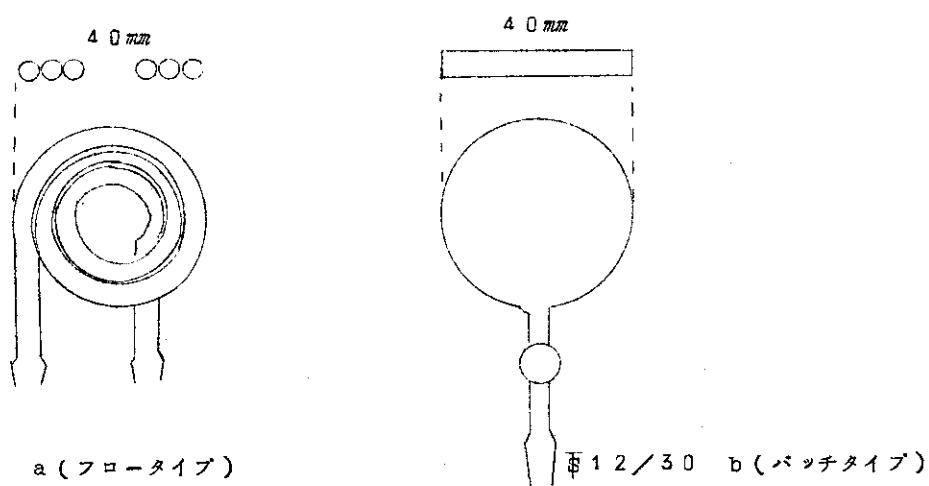
JAERI-M4867

Capsule No	Date (Irradn)	Compd (pressure)	Duration (min)	Position (cm)	th, n, flux (n/cm ² ·sec)
R- 1					
R- 2					
R- 3					
R- 4					
R- 5	46. 5.28	N ₂ +C ₂ H ₄ 1 atm U-Pd. 3 _{mm} ×50min	20	0	1.08×10 ¹¹ 0.65×10 ¹¹
R- 6	46. 5.26	N ₂ +C ₂ H ₄ 1 atm U-Pd. 3 _{mm} ×50min	60	0	0.97×10 ¹¹ 0.58×10 ¹¹
R- 7	46. 6. 9	N ₂ +C ₂ H ₄ 1 atm U-Pd. 3 _{mm} ×	10	0	1.18×10 ¹¹ 0.69×10 ¹¹
R- 8	46. 6.10	N ₂ +C ₂ H ₄ 1 atm U-Pd.	30	0	1.10×10 ¹¹ 0.66×10 ¹¹
R- 9					
R-10					

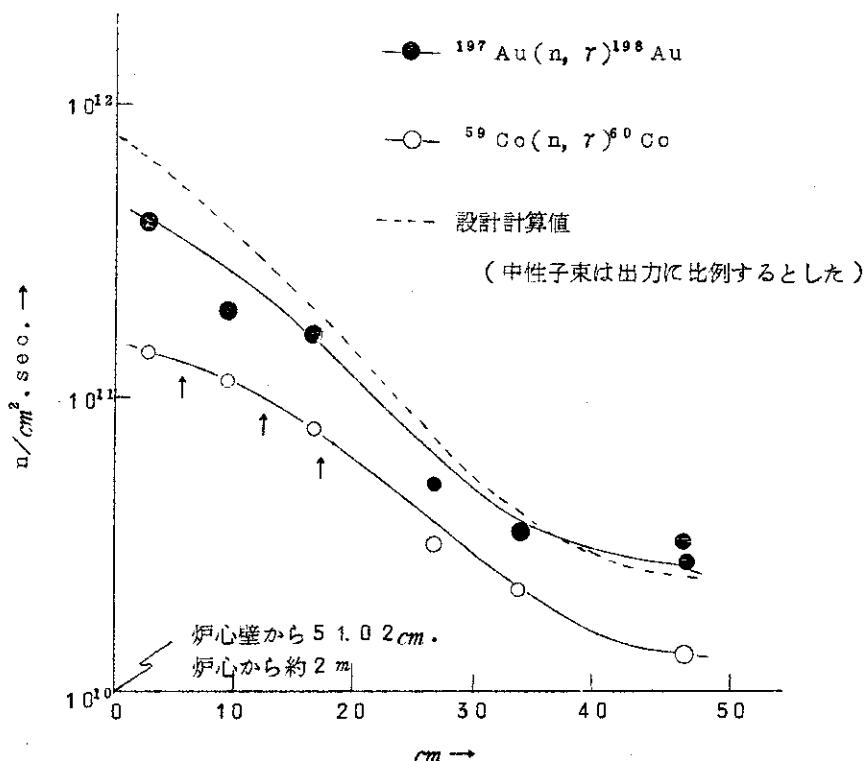


数値は先端からの距離
この位置に⁵⁹Co, ¹⁹⁷Auが取りつけてある。

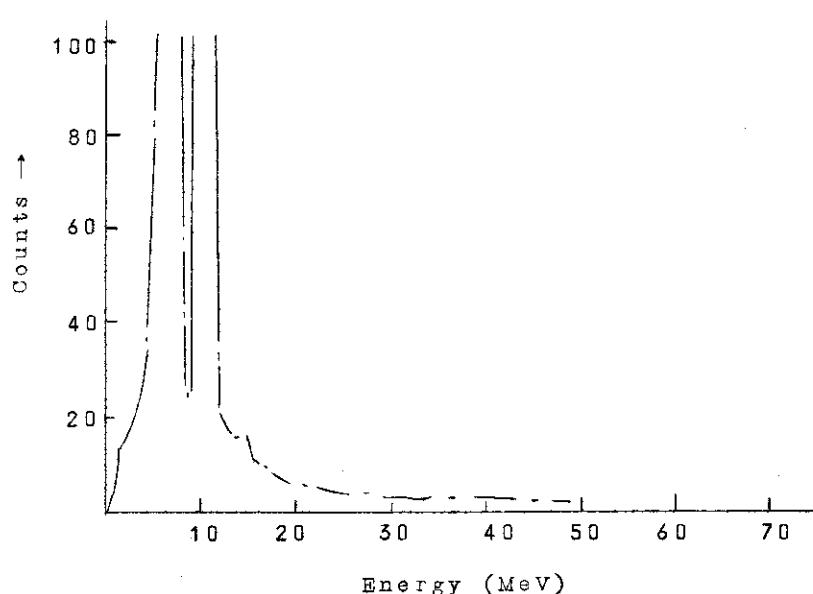
第1図 热中性子束分布测定用カブセル

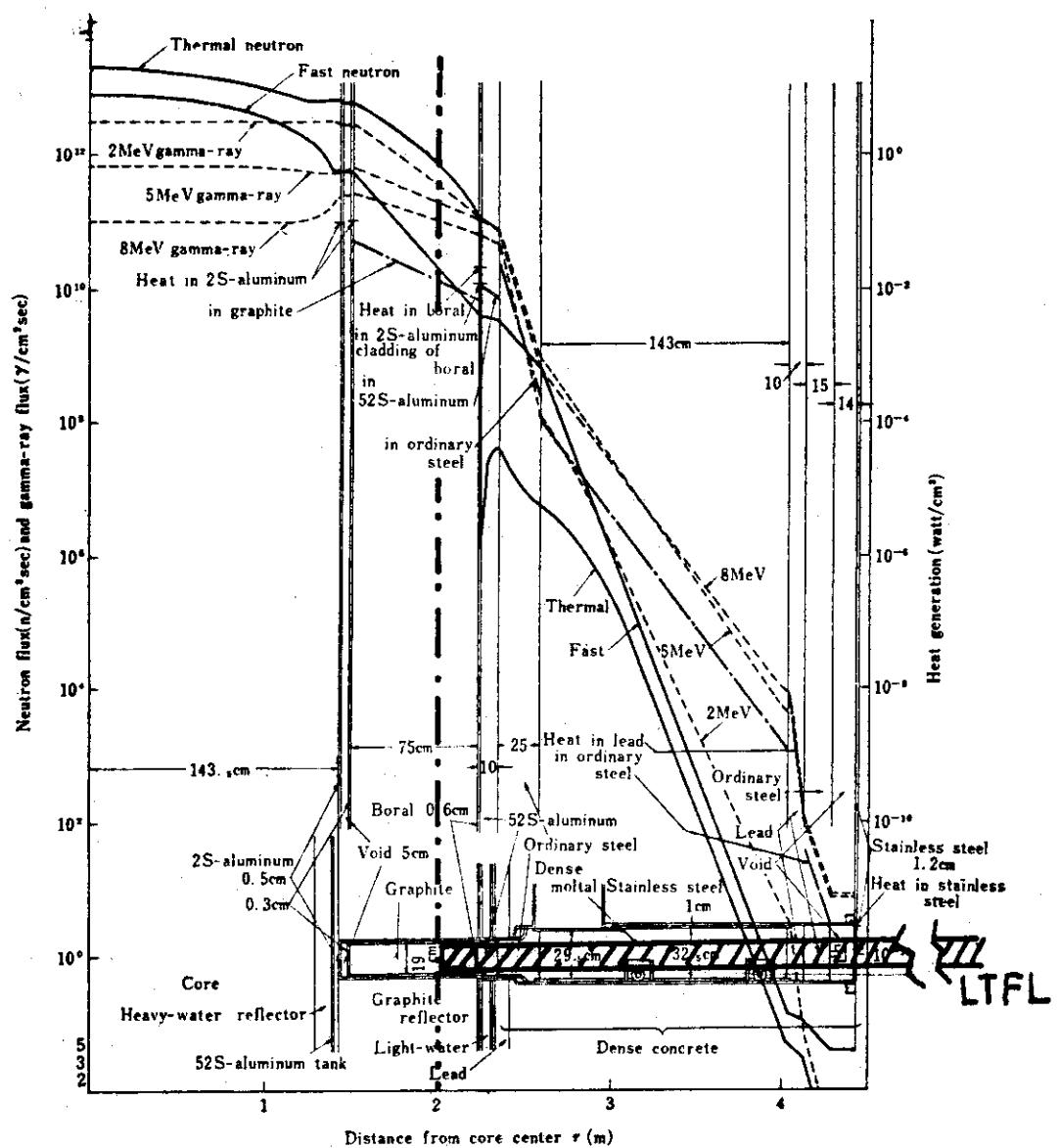


第2図 特殊ガスサンプラー

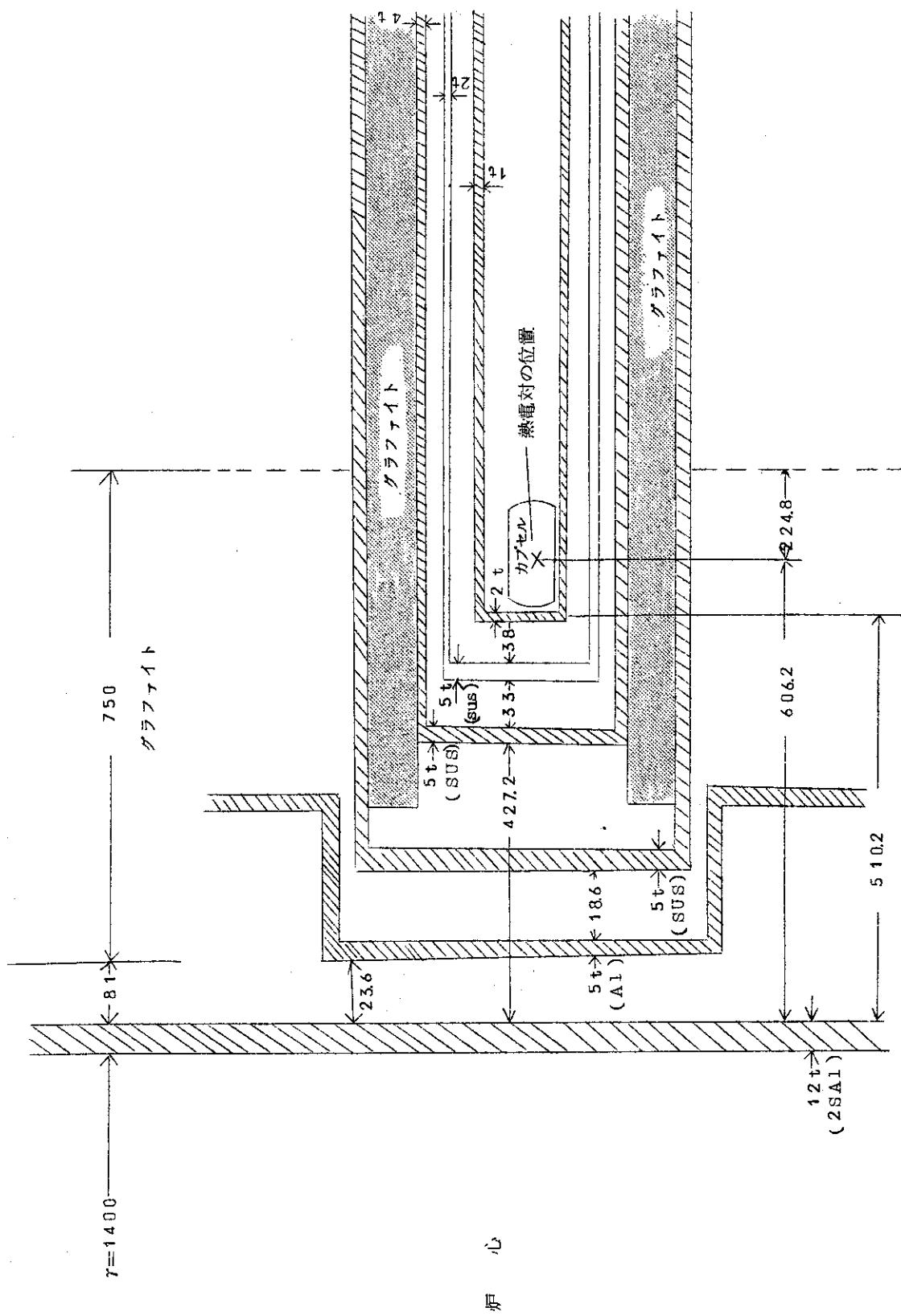


第3図 L T F Lの熱中性子束分布 (7 M W)

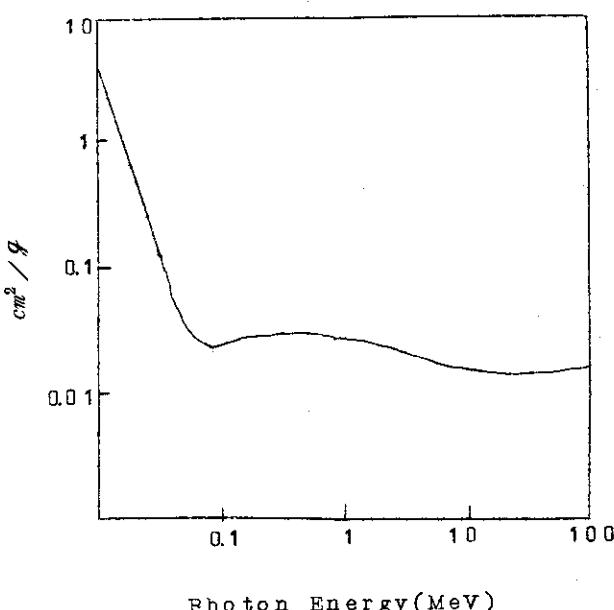
第4図 サンプル D-28 の γ -線スペクトル



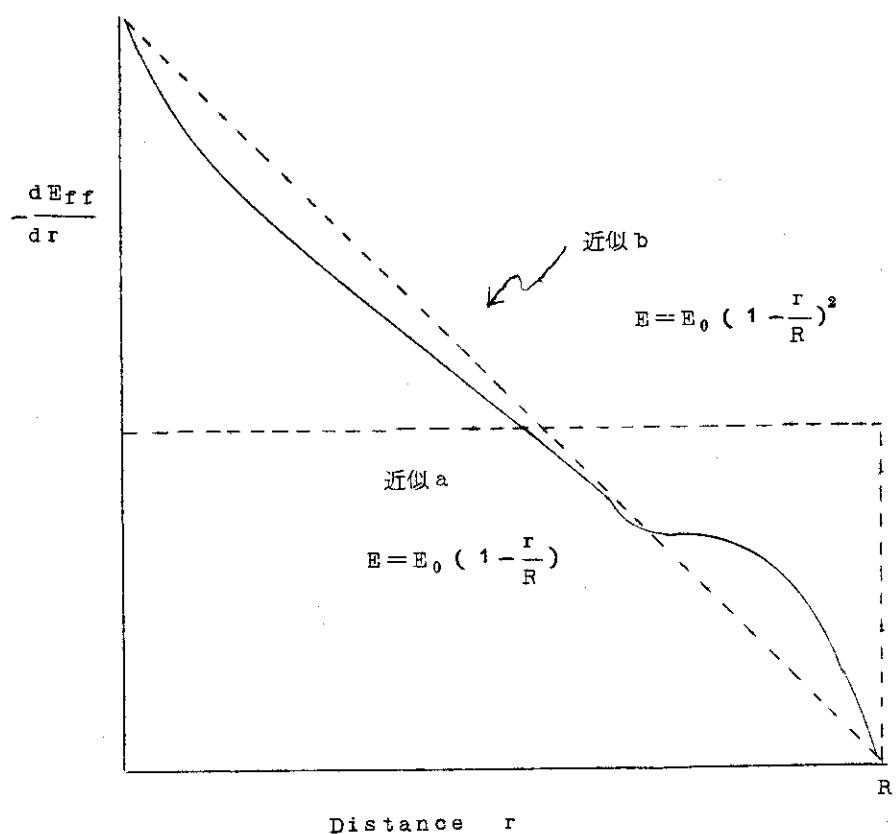
第5図 a JRR-3の設計計算値と LTFL
との位置関係



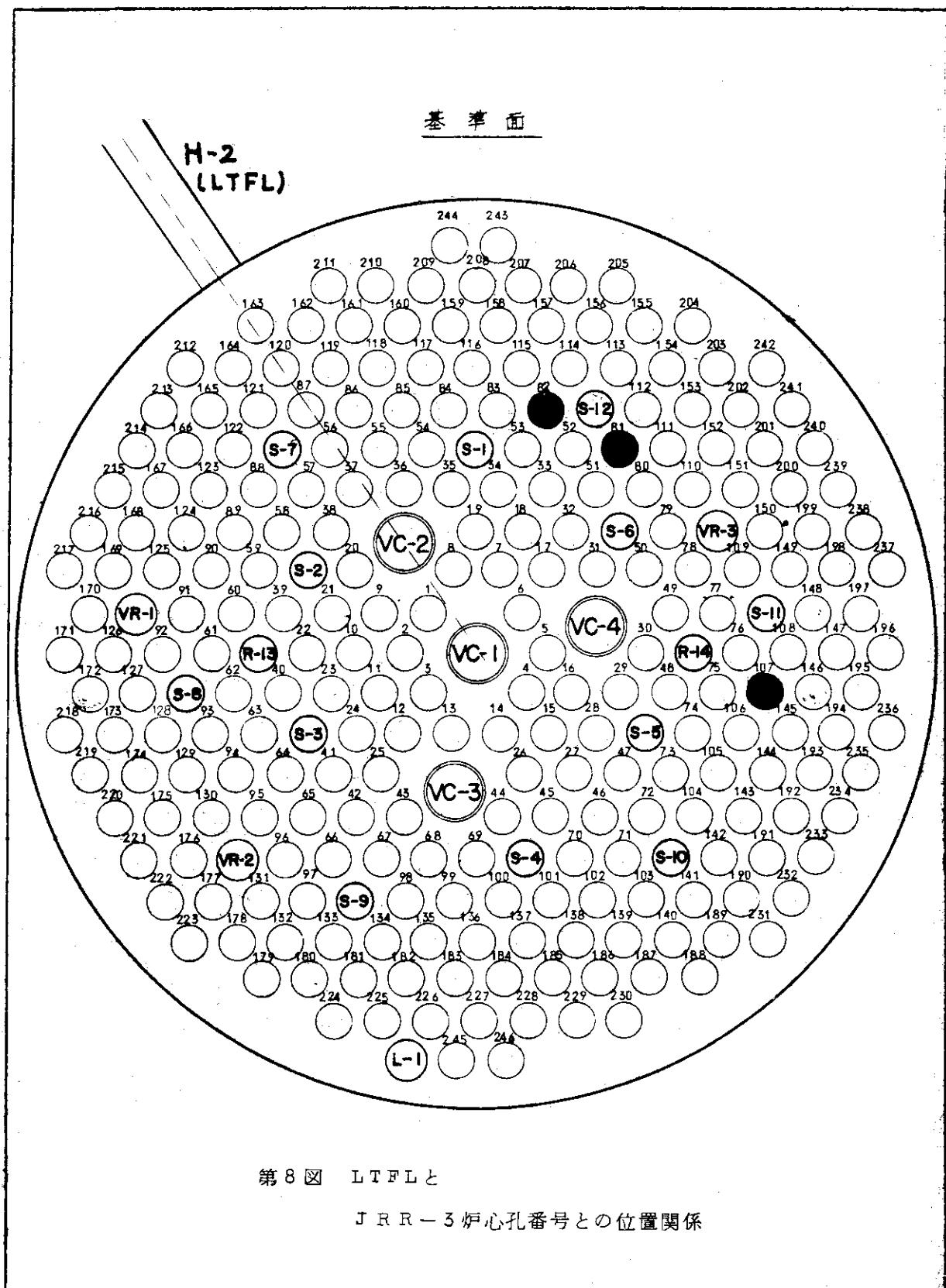
第5図 ガラフアイト壁よりカプセル先端までの距離



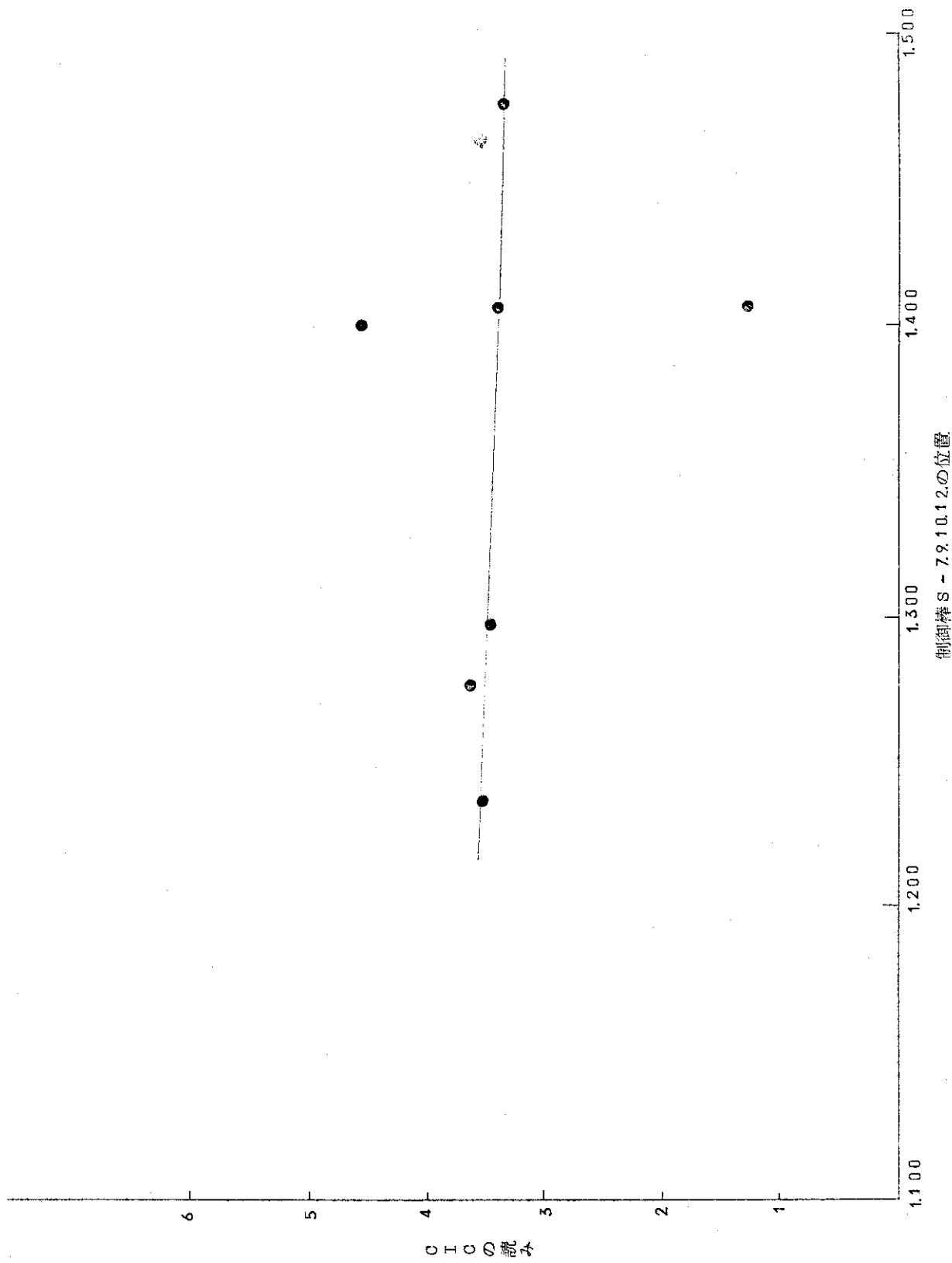
第6図 空気中におけるPhoton EnergyとMass Absorption Coefficientとの関係



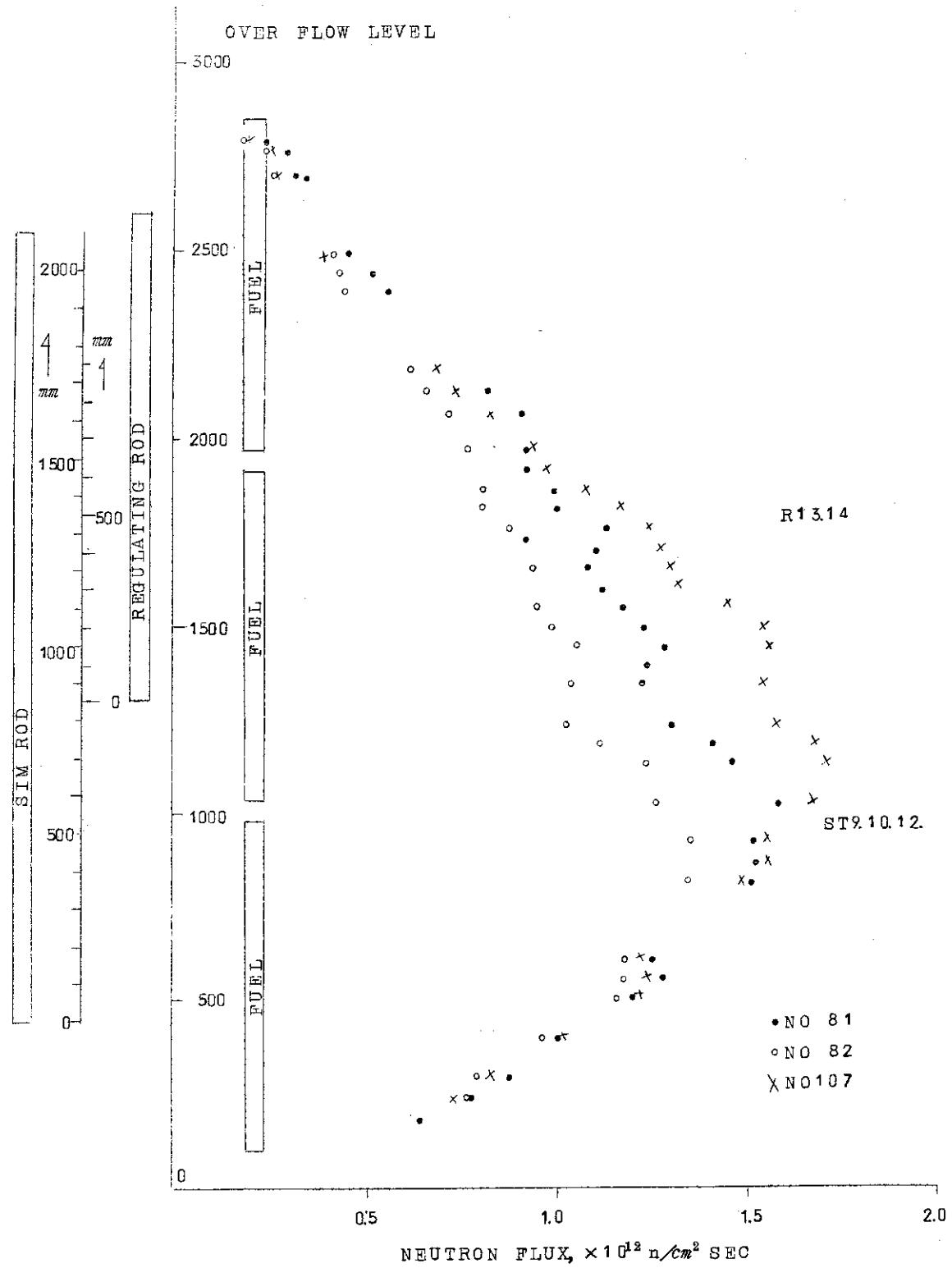
第7図 生成核分裂片のエネルギー損失と飛程距離との関係



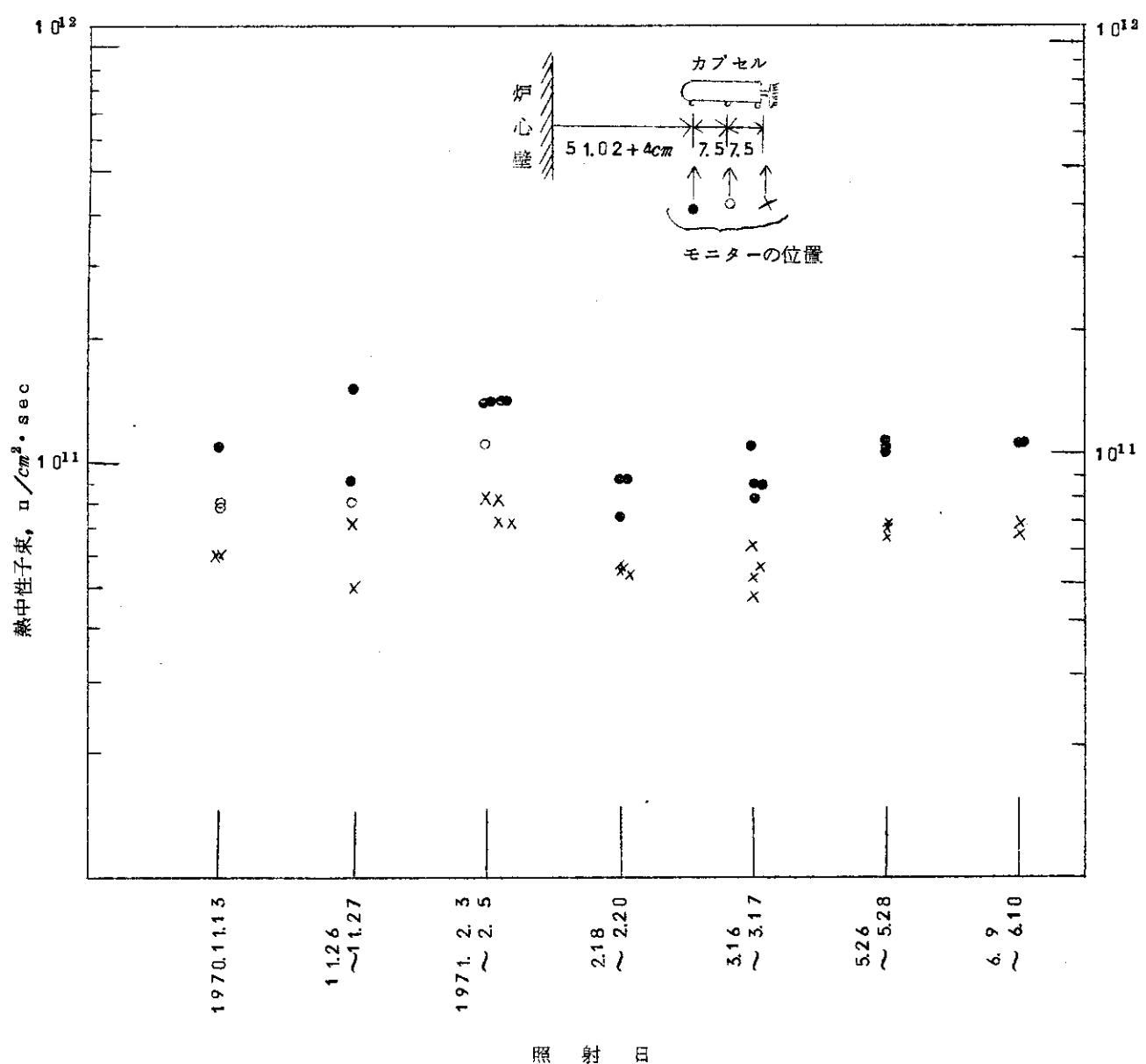
J A E R I - M 4 8 6 7



第9図 制御棒位置とCICの読みとの関係



第10図 垂直方向における熱中性子束分布



第11図 LTF-Lの熱中性子束の照射日による変動