

JAERI-M

4 9 2 0

低温化学照射装置（LTFL）の運転報告・Ⅱ

（昭和45年度運転）

1972年6月

佐藤章一・森山 昇・助川友英

池添康正・小林敏明・岡本次郎

浜ノ上熊男・徳永興公・山崎弥三郎

大島恵一・団野皓文

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

低温化学照射装置 (LTFL) の運転報告・II  
(昭和 45 年度運転)

日本原子力研究所・高崎研究所・研究部

佐藤 章一・森山 昇・助川 友英  
池添 康正・小林 敏明・岡本 次郎  
浜ノ上 熊男・徳永 興公・山崎 弥三郎  
大島 恵一・団野 哲文

昭和 45 年度に、低温化学照射装置 (LTFL) は 6 回運転され、21 ケのカプセルが照射された。これに先立ち、原子力局の使用前検査および照射反応系の原子炉運転委員会による安全審査が行なわれた。本報では、使用前検査と安全審査の詳細についても述べた。

第 1 回運転は、リミットスイッチの故障から始まった重大ではないが連鎖的なトラブル発生により失敗に終った。このような運転上のトラブルを無くすために、カプセル照射中の制御回路やカプセル取扱い手順の改良など、必要な手段を講じた。その他、カプセルの TIG 焊接化をはかったり、複合型ストレンゲージの採用、運転操作チェックシートの整備など技術開発を行なった。

このような改善の結果、後半 3 回の運転はトラブルなく行なわれ、次年度の定常運転確立の道をひらいた。特に最終回の運転では、初めて核燃料入りのカプセル 4 ケが無事照射された。本年度の照射試料は、亜酸化窒素、エチレンおよび二酸化窒素添加炭酸ガスであり、炉内放射線線量測定法の開発と LTFL 照射プラグ内線量率分布の測定を目的としたものである。

\* 東海研究所原子炉工学部

\*\* 東海研究所原子炉化学部

\*\*\* 高崎研究所中間規模試験場

\*\*\*\* 東京大学工学部

Operation Report on the Low Temperature Fissiochemical Loop  
(LTFL). II. Operations During the Period of April 1970 to  
March 1971.

Shoichi SATO, Noboru MORIYAMA, Tomohide SUKEGAWA,\*  
Yasumasa IKEZOE, Toshiaki KOBAYASHI, Jiro OKAMOTO,  
Kumao HAMANOU, \*\* Okihiro TOKUNAGA, \*\*\* Yasaburo  
YAMAZAKI, Keichi OSHIMA, \*\*\*\* and Akibumi DANNO.

Division of Research, Takasaki Radiation  
Chemistry Research Establishment, JAERI.

(Received July 18, 1972)

The Low Temperature Fissiochemical Loop (LTFL) has been operated six times, irradiating 21 capsules during the F.Y. 1970 - 1971 period. Prior to these irradiation operations, the loop was inspected by Atomic Energy Bureau, the Science and Technology Agency, and the safety aspects of the chemical irradiation systems were examined by the Committee on the Operation and Maintenance of Reactors, JAERI. The pre-operation inspection and the safety examinations are first described in detail.

The first run was unsuccessful due to the faulty limit switches which led to a series of accidents, though not serious. The steps taken to eliminate such operational troubles included the improvement on the capsule control circuit in irradiation and the procedure of handling the capsules. Other improvements made were tungsten arc welding of the capsules, compound strain gage elements, revised operation check sheet, etc.

These alterations resulted in the last three successful runs, preparing the way for the regular operations in the next year. In the last run, four capsules loaded with nuclear fuels were thus irradiated successfully. The samples used for irradiation were nitrous oxide, ethylene and carbon dioxide mixed with nitrogen dioxide, for the purposes of dose rate distribution measurement in the LTFL in-pile plug and development of the reactor radiation dosimetry.

- 
- \* Division of Reactor Engineering, Tokai Research Establishment, JAERI.
  - \*\* Division of Chemistry, Tokai Research Establishment, JAERI.
  - \*\*\* Pilot Scale Research Station, Takasaki Radiation Chemistry Research Establishment, JAERI.
  - \*\*\*\* Faculty of Engineering, The University of Tokyo.

# 目 次 な し

## 1 はじめに

低温化学照射装置 (Low Temperature Fissiochemical Loop, LTFL) は、核分裂エネルギーを高い効率で直接化学的なエネルギーとして利用する方法を探査する装置として、最終的には化学原子炉 (Chemonuclear Reactor) を実現することを目指して、提案<sup>1)</sup>、概念設計<sup>2)</sup>、建設、試験<sup>3), 4), 5)</sup> が行われてきた。昭和 44 年度から使用可能の状態となり、同年度中の原子炉 (JRR-3) 運転休止期間を利用して、設計計算との比較を行い、あわせて運転員の操作習熟をはかるための特性試験<sup>6)</sup>を行った。

昭和 45 年度には、JRR-3 の共同利用運転が開始されると共に、原子力局に対して LTFL の原子炉付属施設としての使用前検査を申請し、45 年 5 月 18, 19 日の 2 日間立合検査を行った。検査合格証は 7 月 22 日付で発行され、直ちに照射運転を開始した。7 月 30 日に行われた第 1 回 (70-1) 運転では予期しなかったカプセルの停止位置異常などの故障が生じたので、原因検討、補修、操作手順の改善の後、9, 10 の 2 ヶ月間空運転などの試験を行って 11 月に運転を再開した。11 月 13 日に行われた第 2 回 (70-2) 運転ではカプセル 2 ケを照射する操作は円滑に進んだが、11 月 26, 27 日に行われた第 3 回 (70-3) 運転では、4 ケ目のカプセル送入が正常に行われず、予定の 5 ケのうち 3 ケのカプセルを照射するのみで打切った。第 4 回以降は運転操作にもなれ、運転中断に至るような大きなトラブルはなく、70-6 運転まで各回 5 ケのカプセルを予定通り照射することができた。特に第 6 回 (70-6) 運転では初めて核燃料入りの試料照射を行い、無事に運転を終えることができた。

昭和 45 年度には、計 21 ケのカプセルが照射された。このうち、13 ケは亜酸化窒素 (内 4 ケ、核燃料入り)、4 ケはエチレン、4 ケは二酸化窒素添加炭酸ガスのカプセルで、全部炉内線量測定法の開発のための気体化学線量計である。また、70-4 運転においては、特に金箔とコバルトベレットを用いて、先端から 40 cmまでの間の熱中性子束分布を測定した。

本年度の照射試料は、全部線量測定用のものであり、運転は全部常温で行われた。原子炉出力は 70-1 運転 (45R3-5 サイクル) のみ 1.0 MW、70-2 運転以後の全回共 (45R3-8 ~ 12 サイクル) 7 MW であった。

照射試料の安全性については、45 年 6 月 12 日に原子炉運転委員会による所内審査が行われ、照射計画は承認された。この計画承認により、核燃料無しで、亜酸化窒素 (通常品および  $^{14}\text{N}^{15}\text{NO}$ )、エチレン、1 vol. % の二酸化窒素添加の炭酸ガスを常温照射することができるようになった。また、46 年 3 月 11 日には、エチレン、亜酸化窒素および窒素-エチレン混合ガスを核燃料 ( $\text{U-Pd}$  合金箔、 $0.67 \text{ mg}^{235}\text{U}/\text{cm}^2$ 、 $12 \text{ cm}^2$  以内) の存在で照射する計画が、同じく原子炉運転委員会により安全審査され、承認された。70-6 運転において核燃料入り亜酸化窒素カプセルの照射が行われたのは、この二回目の計画の承認に基づくものである。

以下に、45 年度の運転の経過と、それに関連した事項について述べる。

## 2 使用前検査

昭和45年5月18, 19日の2日間にわたり、原子力局担当官立合で、低温化学照射装置の使用前検査が行われた。以下に、検査の概要と結果について述べる。

### 2.1 スクラム試験・カプセル挿入試験

本検査では、内カプセルに20気圧のヘリウムおよび $^{235}\text{U}$  36mg相当分を含有するU-A1合金薄板を充填し、外カプセルには常圧のヘリウムを充填したカプセルが使用された。

このカプセルをコネクターに接続し、カプセル圧力計P R C A - 1 3 (内カプセル) およびP I C A - 1 4 (外カプセル) の警報第2段を同時発信して、警報回路の作動(表示灯点灯とブザーによる報知)とJ R R - 3制御室におけるスクラム信号の受信を確認した。また、カプセル切離作動板を引戻し、カプセルとコネクターの、気送前の接続状態が正常であることを確認した。

### 2.2 インターロック試験・カプセル送入試験・緊急引戻し試験

#### 2.2.1 インターロック試験

次のインターロックの動作を確認した。

- (1) シャッターと弁45が閉のとき、カプセル送入用モーターが作動しない。
- (2) シャッターが開のとき、カプセル取付位置(試料取扱部)の遮蔽蓋が閉かない。
- (3) カプセル照射中は、シャッターと弁45は閉じない。
- (4) 試料取扱部の圧力が常圧程度にならないと、カプセル落下用弁(V-46)が開かない。
- (5) ヘリウム圧送機運転中は、主冷却タンク内の活性炭吸着塔のヒータが作動しない。

#### 2.2.2 カプセル送入試験

前節1の操作で、コネクターと接続されたカプセルを「試料装填」、「取扱部排気」、「試料挿入準備」、「試料挿入」のシーケンス操作により照射位置まで送入して、その間の作動、性能が正常であることを確認した。

#### 2.2.3 カプセル緊急引戻し試験

照射位置にあるカプセルが、カプセル自動引戻し(緊急引戻し)信号の発信により、予冷位置で一旦停止せずに切離し位置まで自動的に引戻されることを確認した。この信号としては、中圧タンクから低圧タンクへの手動戻し弁(V-33)を開き、ヘリウム全流量(FRCA-1)の低下による下限第2段を発信させた。

### 2.3 安全弁作動試験・耐圧試験・警報作動試験

#### 2.3.1 安全弁作動試験

低圧ヘリウムタンクの安全弁(SV-2)の作動試験を、タンクにヘリウム加圧して行い、設定値  $1.8 \text{ kg/cm}^2 \text{ G}$  で作動することを確認した。その他の5ヶの安全弁については、工場検査の成績書により確認に代えた。即ち、ヘリウム供給系安全弁(SV-1, 設定, 作動圧共

6 kg/cm<sup>2</sup> G ), 中圧タンク安全弁 ( SV-3, 同 1.8 kg/cm<sup>2</sup> G ), 液体窒素補助タンク ( SV-4, 同 6 kg/cm<sup>2</sup> G ), 主冷却タンク ( SV-5, 同 1.0 kg/cm<sup>2</sup> G ) および圧送機出口 ( SV-6, 同 1.65 kg/cm<sup>2</sup> G ) の各弁である。

### 2.3.2 耐圧試験

主冷却系, 即ちヘリウム系機器, 配管を常用圧 1.5 kg/cm<sup>2</sup> G の 1.5 倍にあたる 2.25 kg/cm<sup>2</sup> G に全系をヘリウム加圧して耐圧試験を行った。全系に異常は認められなかった。

### 2.3.3 警報作動試験

装置の異常を検出する警報系の作動試験を行った。警報の発信と表示が正常であるかどうかを検査し, 表1の全項目が正常であった。表中で示した警報一段 ( 上限 H1, 下限 L1 ) は, 警報のランプ表示とブザー作動で運転員への警告を行い, 必要な措置をとるもので, 警報二段 ( H2, L2 ) では自動的に安全動作が行われる。

表 1 警報の設定および作動

( 系統 ) 警報項目	警 器・警 報 段	設 定 値	安 全 動 作
( 冷却補助系統 )			
ヘリウムポンベ圧力低下	PIA-1 L1	5 Kg/cm <sup>2</sup> G	
ヘリウムポンベ漏圧弁出口圧力低下	PIA-2 L1	1 "	
同 同	PIA-2 H1	5 "	
液槽補助タンク液位低下	LIA-1 L1	1 0 0 $\mu$ Aq	
同 同	PVIA-4 L1	1 0 $\mu$ Aq	
エバキュエイドタンク真空度低下	PVIA-6 L1	1 0 $^{-1}$ "	
排氣セクトラ吸込側真空度低下	PVIA-7 L1	1 0 $^{-4}$ "	
同 同	PVIA-8 L1	1 0 $^{-1}$ "	
エバキュエイドタンク放射性上昇	RaIA-2 H1	3 $\times$ 1 0 <sup>4</sup> cps	
拡散ポンプ1冷却水流量低下	FC A-5 L1	所定値	DP-1停止
同 同	FC A-6 L1	所定値	DP-2停止
液槽減圧ポンプ過負荷	4.9-2	7.3 A	RP-3停止
回転ポンプ1過負荷	4.9-3	7.3 A	RP-1停止
同 同	4.9-4	7.3 A	RP-2停止
空気源圧力低下		3 Kg/cm <sup>2</sup> G	
( 主冷却系統 )			
低圧タンク圧力低下	PIGA-3 L1	0.3 Kg/cm <sup>2</sup> G	
圧送機油圧低下	PCA L1	3.2 "	
同 同	PCA L2	3.2 "	
中圧タンク圧力上昇	PIGA-7 H1	2.5 "	圧送機停止
同 同	PIGA-7 L1	0.7 "	

中圧タンク圧力低下	PICA-7	L2	0.5 Kg/cm <sup>2</sup> G	カブセル引戻
主冷却タンク圧力低下	PICA-9	L1	-6 0 0 mHg	R P - 3 停止
一次熱交入口流量低下	FRCA-1	L1	280 Nm <sup>3</sup> /h	カブセル引戻
同	FRCA-1	L2	200 "	カブセル引戻
主冷却タンク液位上昇	LICA-1	H1	所定値	
同 液位低下	LICA-1	L1	所定値	
同	LICA-1	L2	所定値	カブセル引戻
低圧タンク出口酸素濃度上昇	O <sub>2</sub> RA-1	H1	20 ppm	
主冷却系配管断熱部真空度低下	PVIA-2	L1	10 <sup>-2</sup> mHg	
熱交タンク断熱部真空度低下	PVIA-3	L1	10 <sup>-2</sup> "	
主冷却タンク断熱部真空度低下	PVIA-4	L1	10 <sup>-2</sup> mHg	
低圧タンク入口放射性上昇	RICA-1	H1	6 × 10 <sup>3</sup> cps	カブセル引戻し
低圧タンク入口放射性上昇	RICA-1	H2	6 × 10 <sup>4</sup> cps	RF送機停止
圧送機冷却水流量低下	FCA-4	L1	所定値	
圧送機過負荷	49-1	66 A	66 A	圧送機停止
( 試料照射部 )				
試料照射部入口圧力上昇	PRA-11	H1	2.0 Kg/cm <sup>2</sup> G	
同 壓力低下	PRA-11	L1	0.3 "	
同 出口圧力上昇	PIA-15	H1	2.0 "	
同 壓力低下	PIA-15	L1	0.3 "	
試料照射部先端温度上昇	TRCA-12	H1	設定値	
同	TRCA-13	H1	"	
同	TIKA-14	H1	"	
同	TRCA-12	H2	200°C	2 out of 3 真空破壊 ( V-19 開 )
同	TRCA-13	H2	"	

(系統) 警報項目		計器・警報段		設定値		安全動作	
試料照射部先端温度上昇		TICA-14	H2	200°C			
試料照射部断熱部真空度低下		PICA-1	H1	10 <sup>-2</sup> mbar Hg			
同		PICA-1	H2	10 <sup>-1</sup> mbar Hg			
(カプセル)							
試料(内)カプセル圧力上昇	(*1)	PRCA-13	H1	3.0 kg/cm <sup>2</sup> G			
同	(*1)	PRCA-13	H2	3.5 kg/cm <sup>2</sup> G			
保護(外)カプセル圧力上昇	(*2)	PICA-14	H1	1.0 kg/cm <sup>2</sup> G			
同	(*2)	PICA-14	H2	1.8 kg/cm <sup>2</sup> G			
試料(内)カプセル温度低下		TRCA-11	L1	設定値			
同	温度上昇	TRCA-11	H1	設定値			
同		TRCA-11	H2	設定値			

## 2.4 カプセル照射試験

内カプセルに、20気圧のヘリウムと<sup>235</sup>U 3.6mg相当を含有するU-Al合金薄板を充填し、外カプセルに常圧のヘリウムを充填したカプセルを使用して、カプセル照射に関連した作動、性能試験を行った。

### 2.4.1 カプセル照射試験

上記のカプセルをシーケンス操作で最先端照射位置に送入し、-100°C, -150°Cおよび最低温度(-191°C)で各1時間以上保持し、計5時間の照射を行った。最低温度では、更に主冷却タンク圧力を排気減圧して過冷却を試みた。各温度では、各部の温度、圧力、真空度、圧送機電流、液体窒素液面、放射能を測定して次の事項を確認した。

- (1) 照射温度は-100°C, -150°Cの各中間温度で制御可能であった。
- (2) 圧送機の吸入圧は0.20 kg/cm<sup>2</sup>G, 吐出圧は1.55 kg/cm<sup>2</sup>Gで、ヘリウム流路の圧力に異常はない。
- (3) エバキュエイトタンク真空度10<sup>-1</sup> mHg以上、その他の真空断熱部等の真空部分の真空度は10<sup>-3</sup> mHg以上で、正常であった。

照射中に、ヘリウム圧送機の作動、バイパス流量調節、加熱器作動によるカプセル(照射)温度の制御、冷却が正常に行われることを確認した。照射終了後、シーケンス操作でカプセルを引戻し、取出しまで異常なく行われることを確認した。

### 2.4.2 冷却補助系統および計測制御系統の性能試験

系内へのヘリウム供給、真空断熱部の排気セット作動、主冷却タンク内減圧ポンプの作動が所期の性能を有すること、およびカプセルの送入取出しにあたってのシーケンス(操作手順)、カプセル照射中の計測制御、配線の絶縁性、通電性の各性能が良好であることを確認した。

## 2.5 遮蔽試験

前節カプセル照射試験で照射されたカプセルを、予冷位置から引戻す間に、装置本体の遮蔽試験を行い、装置表面で漏洩線量率が2mR/h以下であることを確認した。測定結果は図1に示すように、検出最高値は0.60mR/hであった。また、キャスク・コンテナに照射後カプセルが正常に収納され、キャスク・コンテナが取出位置(JRR-3炉室内クレーンによる吊り上げ可能位置)まで正常に引出されることを確認した後、表面の漏洩線量率の測定を行った。測定結果は図2に示すように、検出最高値が0.2mR/hで、基準値2mR/h以下であった。

照射終了後72時間経過した45年5月22日に、コンテナをキャスクから引出し、表面漏洩線量率を測定した。二重構造をなすコンテナの、外側コンテナ表面では検出最高値0.3mR/h。これから引出した内側コンテナのみの場合の値も0.25mR/hの程度で、基準値(外側コンテナ表面3.6mR/h以下、距離1mで0.3mR/h以下、内側コンテナ(輸送容器)表面2.00mR/h以下、距離1mで1.0mR/h以下)を充分下まわった値であった。

○ 漏洩線量率測定法(6章)

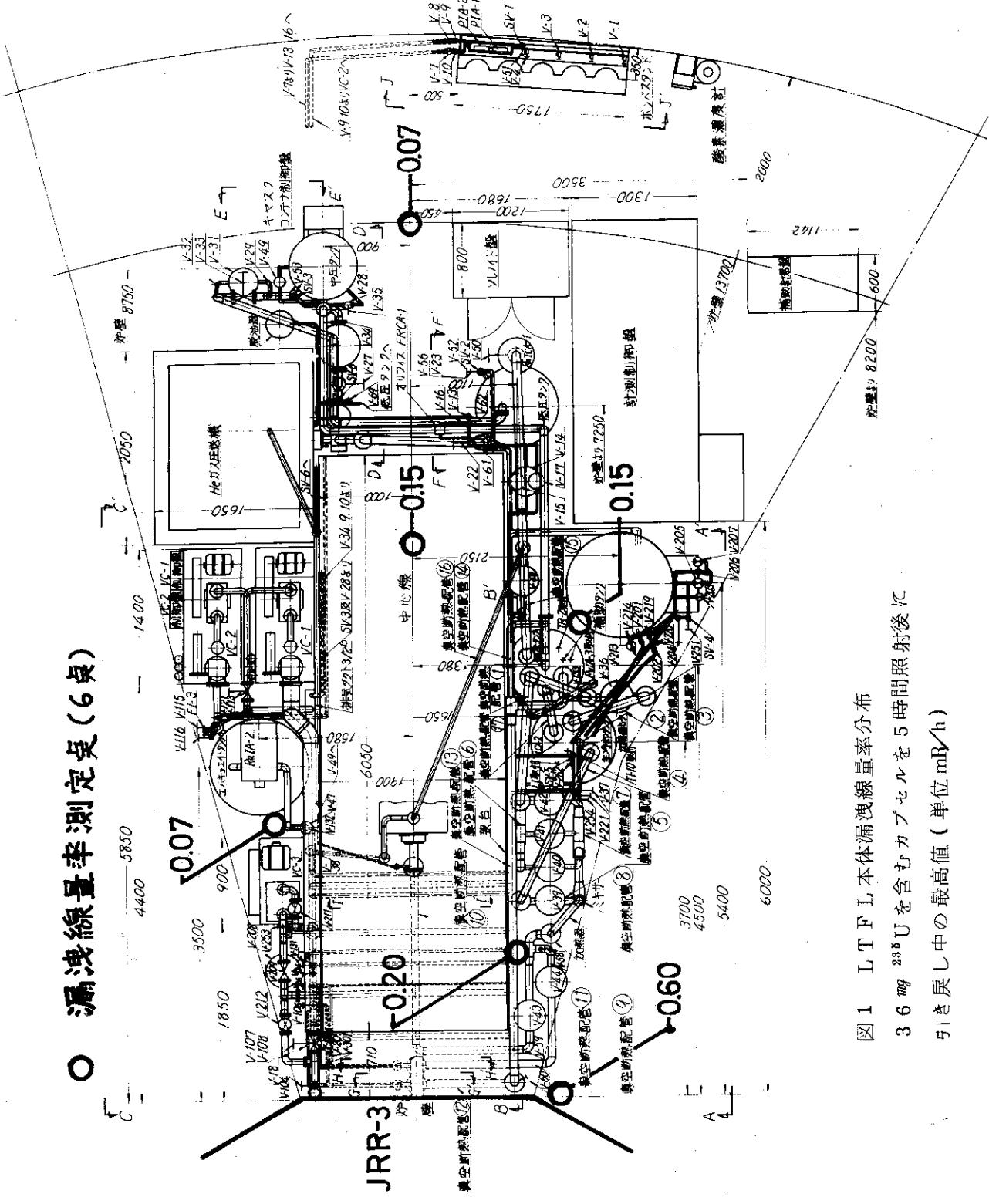
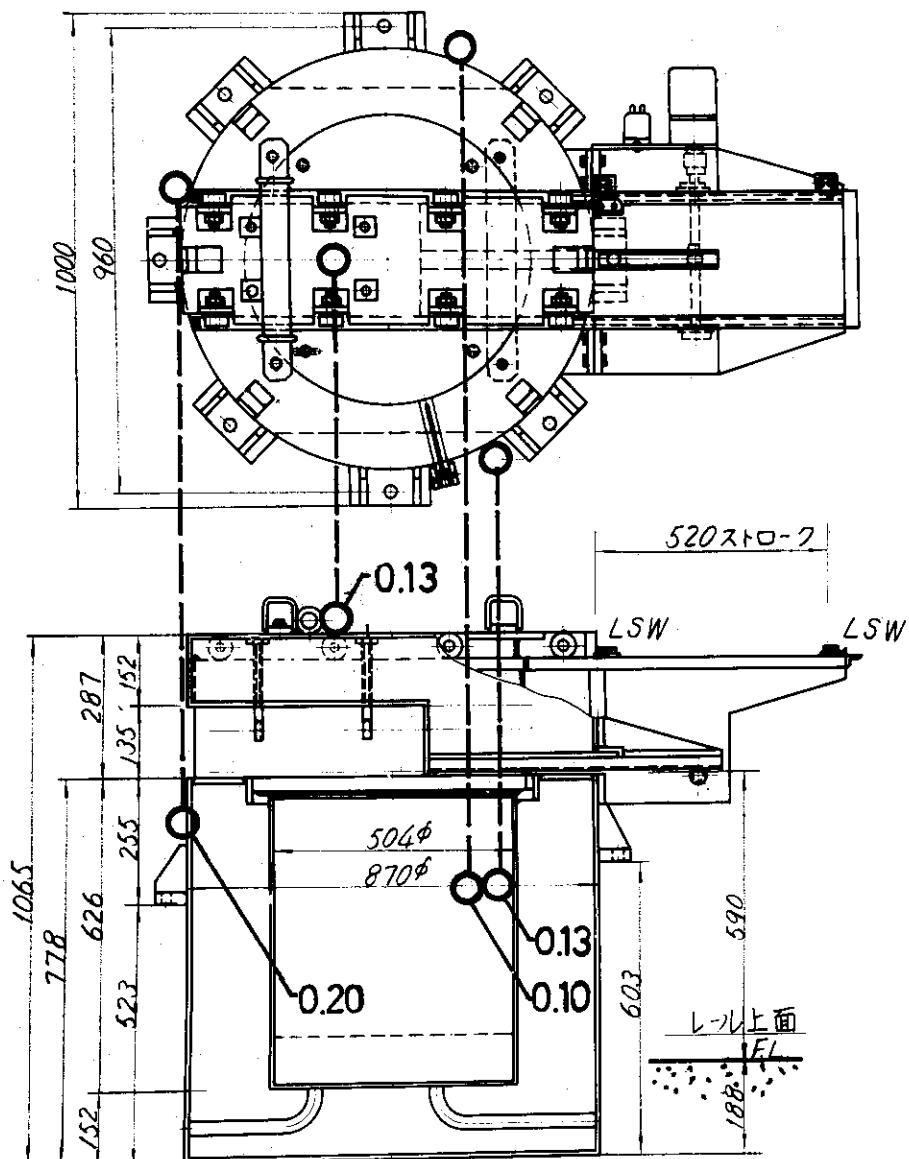


図1 LTFI本体漏洩線量率分布  
3.6 mg<sup>235</sup>Uを含むカプセルを5時間  
引き戻し中の最高値(単位 mR/h)



○漏洩線量率測定卓(4卓)

図2 キャスク表面漏洩線量率分布

$3.6 \text{mg}^{235}\text{U}$ を含むカプセルを5時間照射し、キャスク・コンテナ内に取出した直後の測定値(単位mR/h)

### 3 照射試料の安全審査

前章に述べたような、LTF-Lに関する使用前検査の申請を行つて、その実施を待つ間に、照射試料に関する安全審査が行われた。

照射試料に関しては、本装置の安全審査にあたり、40年12月に具体的な反応系と照射条件が定まってから、個別的に所内で審査が行われることが定められ、これに従つて、原子力委員会の安全審査も通過した。本装置でカプセル内の試料の異常状態によりカプセル引き戻し、原子炉スクラン等の安全動作が働くとしても、試料自身の安全性は極めて重要であり、それを照射前に充分検討しておくことが必要であるが、一方研究の性質上ある程度の放射線に対する不明の性質があることもやむを得ないと考えられ、照射試料の一応の安全性の基準を設け、これに従つて個別の試料、照射条件について安全審査を受けることとなつた。<sup>脚注1)</sup> このような経緯から、試料の安全性に関する基準と、45年度に申請された試料の照射計画について以下に述べ、実際の試料照射に至る一つ前の段階を説明することとした。

#### 脚注1)

##### 3.1 照射試料の安全性

###### 3.1.1 照射試料

(1) 本装置を用いて行なう実験における試料カプセル内の内容物全体（以後照射試料という）は、常温において気体の場合は全気体量20気圧50ml以下、固体又は液体の場合は全固体量又は液体量2g以下とする。

(2) 照射試料は次の系に限る

- イ) 化学反応物質
- ロ) 核分裂片源と共に存した化学反応物質
- ハ) 希ガスおよび核分裂片源と共に存した化学反応物質
- ニ) 触媒物質と共に存した化学反応物質

(3) 核分裂片源とは<sup>235</sup>U 3.6mg以下の量を含む20～90%濃縮ウラン配合のガラス繊維又はU-Pd合金箔とする。

(4) 化学反応物質および触媒物質（希ガスを含む）とは、安全管理室又はその指定する適當な所内安全審査機関（以後小委員会といふ）における安全性の検討を経たものに限る。

###### 3.1.2 本装置を用いる実験に関する手続き

- (1) 本装置を用いる実験毎の各試料は全て次の第(2)項に定める手続きにより審査される。
- (2) 照射試料については実験担当研究室の要請により、小委員会が安全性を検討し、実験の可否を決定する。
- (3) 上記第(2)項による安全審査に際し、小委員会は必要に応じてその試料に關係するγ線照

脚注1) 「東海研究所原子炉施設の変更に係る安全性の審査のための書類（JRR-3に対する低温化学照射装置の設置）」（40原研04第4号、昭和41年5月）の説明書P59～62。

照射又は  $n + \gamma$  線照射の実験結果又は参考資料の提出を実験担当研究室に命じることができる。但し  $n + \gamma$  照射とは 3.1.1 の(2)の(1)又は(2)に属する試料の原子炉内照射をいう。

(4) 上記第2項による安全審査に際し、小委員会の考慮する主たる要件は以下の点とする。

- イ) 照射試料は-196°C~+120°Cの範囲で爆発性のないものでなければならない。
  - ロ) 照射試料は-196°C~+120°Cの範囲で試料カプセルを腐蝕してカプセル強度を減少に至らせることのないものでなければならない。
  - ハ) 照射試料は本装置の最大線量率で5時間照射した場合の照射直後および72時間後に帯びる誘導 $\gamma$ 放射能が、同様に照射した3.6%の $^{235}\text{U}$ が照射直後および72時間後それぞれ帯びる誘導 $\gamma$ 放射能を越えないものでなければならない。
  - ニ) 照射試料は常温を基準として反応前後において

であり日つ

$$z \leq 200 \text{ Kcal/mole} \quad \dots \dots \dots \quad (2)$$

$$G \leq 1000 \text{ molecule}/100 \text{ eV} \quad \dots \dots \dots (3)$$

であることを要し、またその充填圧は

$$\frac{20}{1 + (\Delta P_1 / P_0) + (\Delta P_2 / P_0) + (\Delta P_3 / P_0)} = P_{\max} \text{ (atm)} \quad \dots \dots \dots (4)$$

で定まる圧  $P_{max}$  を越えないものでなければならぬ。但し本項中の各記号の意味は次の通りとする。

$P_0$  : 初压

( $\Delta P_1/P_0$ ) : 300 °Kを基準としたときの雰囲気温度の変化 (-196~+120°Cとする)に対する圧力変化の最大値。

( $\Delta P_2 / P_0$ ) : 放射線化学反応による気体増加量の初圧に対する比で(5)(6)式で与えられる値をとるとする。

$G_{\text{total gas}}$  : 全ガス生成取率  $G \text{ molecule}/100 \text{ eV}$

M<sub>n</sub>:原系平均分子量

T : 照射時間 h

N : 反応により原系 1 モルから生成するモル数。

この場合  $n + \gamma$  照射に対しては、

核分裂片照射に対しては、 $^{235}\text{U}$ を 3.6 mg 用いたとき

ところで、**上**で述べたとおり、照射とは本装置を用いて 3.1.1 の(2)の(1)又は(2)の系の照射を行なうこと。

脚注 2)

又核分裂片照射とは本装置を用いて同じく(2)の(a)又は(b)の系の照射を行なうことをいう。

( $\Delta P_3/P_0$ ) : 熱分解による初圧からの圧変化の割合で、反応原系が-196°C~120°Cの範囲で可能な分解平衡に対して、熱力学的に与えられる値とする。

Z : 反応熱(発熱で正とする) Kcal/mole

G : 放射線化学反応収率 molecule/100 eV

ここで G 値は(5), (6)式中の G 値とは必ずしも一致せず熱的な主反応についてとるものとする。

なお、( $\Delta P_1/P_0$ ), ( $\Delta P_2/P_0$ )又は( $\Delta P_3/P_0$ )の値が負である場合はその項を零として取扱うものとする。

以上に従い L T F L 照射実験計画をたて、安全性に関する検討を行う。

### 3.2 照射実験

前節に述べた基準に従って、試料の照射条件が検討され、計画(I)~(III)について 45 年 6 月および計画(IV)~(VI)について 46 年 3 月に原子炉運転委員会において安全審査が行われ、安全性が認められた。以下に、この計画の内容と安全性の検討について述べる。なお、原子炉運転委員会における審議にあたり、次の条件が出された。

- (1) 試料の不純物について充分検討し、できるだけ高純度のものを用いること。
- (2) 今後の検討のため、カプセルの設計基準、検査基準に関する資料を各委員に送付すること。

#### 3.2.1 計画(I)

化学線量計による L T F L 内線量率測定のため、通常の亜酸化窒素および $^{14}\text{N}$  $^{15}\text{NO}$ を内カプセルに入れ、少量のコバルト線(熱中性子モニター)を内外カプセルの間の空間に入れて照射する。

照射条件は、常温(20°C)照射、試料圧力 1 気圧(50 ml)、照射時間は最先端より 0 cm で最長 2 時間、30 cm, 60 cm, 90 cm で 3 時間以内とする。

安全性についての検討結果は次の如くである。

- (1) 爆発性<sup>7,8)</sup> 空気と混合したとき爆発性混合物となるが単独では引火性はない。
- (2) 腐蝕性<sup>7,9)</sup> 単独で腐蝕性なし、照射生成物中で NO<sub>2</sub> は湿っているとき鋼を侵すが、水蒸気濃度 0.1% 以下なら鋼製容器中の保存ができる。
- (3) 誘導放射能<sup>9)</sup>  $7 \times 10^{12} \text{n/cm}^2 \text{sec}$  で 2 時間照射後、5 分(I)または 72 時間経過後(II)の試料の放射能は、 $^{14}\text{N}$ (n, p) 放射化断面積 1.75 b(半減期 5570 y),  $^{15}\text{N}$ (n,  $\gamma$ )  $24 \mu\text{b}$  (7.38 sec),  $^{17}\text{O}$ (n,  $\gamma$ ), 0.5 b (5.570 y),  $^{18}\text{O}$ (n,  $\gamma$ ) 0.21 mb (29.4 sec) の値を用いて、 $\text{N}_2\text{O}$  は(I), (II)共  $2.3 \times 10^{-8}$  Ci,  $^{14}\text{N}$  $^{15}\text{NO}$  は(I), (II)共  $1.2 \times 10^{-8}$  Ci で、装置の設計時のカプセル放射能( $7 \times 10^{12} \text{n/cm}^2 \text{sec}$  で 5 時間照射後)の 360 Ci(I)

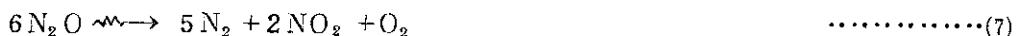
脚注 2) この(5), (6)式はプラグ最先端の放射線線量率として、設計値(最大  $\gamma$  線  $8.7 \times 10^7 \text{R/h}$ , 最大熱中性子束  $7.0 \times 10^{12} \text{n/cm}^2 \text{sec}$ )を用いた場合の式であり、実測の結果を用いて今後は補正する必要がある。尙、47 年までの実測では、設計値がかなり過大評価であったことが明らかになった。

または、5.7 mCi (II)（カプセルと核燃料の放射能を合計した値）と比べて著しく小さく、安全上の問題とならない。

- (4) 充填圧, 反応熱, G 値,  $^{10, 11})$  前節(4)式の適用を検討する。分母第 2 項では  $300^{\circ}\text{K}$  を基準として  $+120^{\circ}\text{C}$  ( $393^{\circ}\text{K}$ ) を最高温度とすれば,

$$\Delta P_1 \wedge P_{\alpha} = (393) \wedge (300) - 1 = 0.33$$

第3項では、亜酸化窒素の放射線分解反応式を



とすれば  $N = (8) / (6) = 1.33$ 。  $G(N_2) = 10^{12}$ ) とすれば、

$$G_{\text{total gas}} = (10)(8) / (6) \doteq 13$$

従って、核燃料無しの場合の 2 時間照射に対し、(5)式により

$$\begin{aligned}\Delta P_2 / P_0 &= (8.3) \cdot 10^{-5} G_{\text{total gas}} (N-1) M T \\ &= (8.3) \cdot 10^{-5} (3(1.33-1)) (44)(2) \\ &= 0.031\end{aligned}$$

第4項に関しては、熱分解はないので、

$$\Delta P_s / P_{\text{eq}} = 0$$

よって最大充填圧  $P_{max}$  は、(4)式より

$$P_{\max} = \frac{20}{1 + (\Delta P_1 / P_0) + (\Delta P_2 / P_0) + (\Delta P_3 / P_0)}$$

$$= \frac{20}{1 + 0.33 + 0.03 + 0}$$

$$= 14.7 \text{ [atm]}$$

となり、1気圧の試料圧は安全である。

反応熱は反応式(7)に対して、16.7 Kcal/mole の発熱で、基準の 200Kcal/mole より低く、安全である。

G 値は、実測<sup>11, 12)</sup>により  $G(N_2) \sim 10$  の程度で基準の値 1000 より低く、安全である。

### 3.2.2 計画⑩

計画(I)と同様、LTFの照射プラグ内線量率測定のため、核燃料を入れないで、コバルトモニターと共に1気圧のエチレンを照射する計画である。

照射条件は、常温照射、試料圧力1気圧、照射時間最長3時間、照射位置は最先端である。

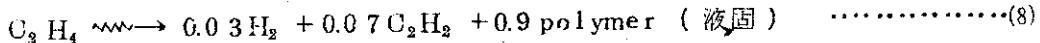
安全性についての検討結果は次の如くである。

- (1) 爆発性。<sup>7, 8)</sup> 空気と混合して炎を近づければ爆発し、単独で引火性がある。

(2) 腐蝕性。<sup>7, 8)</sup> なし。

(3) 誘導放射能。<sup>9)</sup> 成分元素が水素と炭素であり前節の場合と同様、カプセル放射能と比較して充分に低い誘導放射能しか持たない。

- (4) 充填圧, 反応熱, G 値。<sup>11, 12)</sup> 充填圧を(4)式により検討する。前節と同様にして、  
 $(\Delta P_1 / P_0) = 0.33$ 。また、分解反応式については、およそ次式が成立つとすれば、<sup>脚注 3)</sup>  
 $N = 0.1$  となる。



従つて  $(\Delta P_2/P_0) < 0$  故、この項を 0 とみなす。熱分解に関しては、 $C_2H_4$  単独では  $-196^\circ C \sim +120^\circ C$  の温度範囲で安定故、 $(\Delta P_3/P_0) = 0$ 。よって最大充填圧は、

$$P_{\max} = \frac{20}{1 + 0.33 + 0 + 0}$$

$$= 1.5 \text{ [ atm ]}$$

となり、これ以下の試料圧で安全である。

反応熱は、エチレンの重合熱と等しいと考えて、この値が約 27 Kcal/mole の発熱で、基準値より充分低く安全である。

G値は文献<sup>13)</sup>あるいは実測<sup>12)</sup>により  $G(H_2) \sim 1.2$  であって、これも基準値を充分下まわり、安全である。

### 3.2.3 計画(II)

前の2計画と同様な、無核燃料での化学線量計実験である。1 vol %のNO<sub>2</sub>を添加した炭酸ガスを1気圧で充填し、コバルトモニターと共に照射する。

照射条件は、常温照射、試料圧力1気圧、照射時間最長2時間、照射位置は最先端である。

安全性についての検討結果は次の如くである。

(1) 爆発性。<sup>7, 8)</sup> 爆発性、引火性なし。

(2) 腐蝕性。<sup>7, 8)</sup> 炭酸ガスは腐蝕性なし。二酸化窒素は湿っているときは鋼を侵すが、水蒸気濃度が 0.1% 以下なら鋼製容器中に保存される。従って、試料として腐蝕性はない。

(3) 誘導放射能。前2計画と同様、炭素、酸素、水素、窒素から成る試料故、誘導放射能はカプセルの誘導放射能と比較して無視できる。

(4) 充填圧, 反応熱, G 値。前節同様 ( $\Delta P_1 / P_0$ ) = 0.33。

分解反応が次式に従うとすれば  $N = 1.5$ .



$G(CO)$ は、実測<sup>12)</sup>で約5であるが、文献値の最大をとり10とすると、

$G_{total\ gas} = 10 \times 1.5 = 15$  となる。

(5)式により、

$$\begin{aligned} (\Delta P_2 / P_0) &= (8.3)(10)^{-5} G_{\text{total gas}} (N-1) M T \\ &= (8.3)(10)^{-5} (15)(1.5-1)(44)(2) \\ &= 0.055 \end{aligned}$$

脚注3) 150~1000mHg のエチレンにガンマ線照射したとき,<sup>13)</sup>  $G(-C_2H_4) = 30\sim40$ ,  $G(H_2) = 1.2$ ,  $G(C_2H_4) = 0.08$ ,  $G(C_2H_2) = 2.4$ である。

熱分解は、120°C以下で起きないから、 $(\Delta P_3/P_0) = 0$ 。

よって、最大充填圧は、

$$\begin{aligned} P_{\max} &= \frac{20}{1 + (\Delta P_1/P_0) + (\Delta P_2/P_0) + (P_3/P_0)} \\ &= \frac{20}{1 + 0.33 + 0.06 + 0} \\ &= 14.4 \text{ [atm]} \end{aligned}$$

となりこれ以下の充填圧で安全性が保たれる。

反応熱は(2)式の反応に対して、67.6 Kcal/mole の吸熱故問題にならない。

G値も、G<sub>total gas</sub> が最大で15程度であり、基準より充分低く、安全である。

### 3.2.4 計画(W)

亜酸化窒素（純度99.9%以上）を核燃料の存在で照射する計画である。核燃料<sup>14</sup>は、BNLで製造されたもので表2で示す性質のものである。

照射条件は、常温照射、試料圧力0.5～10気圧、照射時間最長5時間で、これまで同様に

表2 ウラン-バラジウム合金箔の性質<sup>注1)</sup>

	U-Pd合金箔	Pt被覆
組成	20重量% U-80重量% Pd U濃縮度93.3%	100% Pt
厚さ	2.1 μ	0.2 μ(片面)
全厚	2.5 μ	
比重	12.8	21.45
核分裂片平均飛程 <sup>14)</sup>	5.45 μ	4.23 μ
<sup>235</sup> U面密度	0.503 mg/cm <sup>2</sup>	—

注1)

安全審査時のデータはこの表の値と多少異なる。これは、その後合金箔の性質を確認して得たもので、現在はこの表の値が正しいとする。

少量の金またはコバルトを熱中性子モニターとして入れる。核燃料量は、合金箔量  $1.2 \text{ cm}^2$   
 $(= 6.04 \text{ mg}^{235}\text{U})$  以下とする。

安全性については、計画(I)で述べたように、爆発性、腐蝕性、放射能の点では問題ない。充填圧については、これまで同様、 $(\Delta P_2/P_0) = 0.33$ 、計画(I)と同様に原系 1 モルから生成するガスモル数  $N = 1.33$ 、 $G_{\text{total gas}} = 1.3$  であるので、核燃料量が 3.6 mg でなく 6.04 mg  $^{235}\text{U}$  であることも補正して、(6)式により。

$$\begin{aligned}\Delta P_2/P_0 &= \frac{(6.04)}{(36)} (5.0) (10)^{-4} G_{\text{total gas}} (N-1) MT \\ &= \frac{(6.04)}{36} (5.0) (10)^{-4} (13) (1.33-1) (44) (5) \\ &= 0.079\end{aligned}$$

熱分解は +120°C 以下で起きないから  $(\Delta P_3/P_0) = 0$ 。よって最大充填圧  $P_{\text{max}}$  [atm] は、

$$P_{\text{max}} = \frac{20}{1 + 0.33 + 0.08 + 0} = 14.2$$

となり、今回の計画の最高値 10 気圧では安全である。G 値は約 1.0 で充分小さく、反応熱 1.6.7 Kcal/mole も基準より充分小さい。

### 3.2.5 計画(V)

エチレン（純度 99.9% 以上）を、核燃料、モニターと共に照射して、核分裂片線量測定法の開発を行う。

照射条件は、常温～液体窒素温度付近の間の温度、試料圧力 0.5～1.0 気圧、照射時間最長 5 時間、核燃料量は最大  $1.2 \text{ cm}^2$  ( $8.04 \text{ mg}^{235}\text{U}$ ) である。

安全性については、計画(IV)と同じく腐蝕性、放射能、爆発性には問題ない。なおエチレンの爆発限界は空気と混合するとき、3.0%～34% で、自己発火温度 543°C である。充填圧については、これまで同様  $(\Delta P_1/P_0) = 0.33$ 、熱分解もない所以  $(\Delta P_3/P_0) = 0$ 、また反応によるガス発生については、 $N = 0.1$  の程度で、(6)式での  $(N-1)$  の項が負となるので  $(\Delta P_2/P_0) = 0$  とする。よって最大充填圧  $P_{\text{max}}$  [atm] は、

$$P_{\text{max}} = \frac{20}{1 + 0.33 + 0 + 0} = 15.0$$

となり、これ以下であれば問題ない。G 値は G (-C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>) をとっても 30～40 程度で小さく、反応熱（二重合熱）も 2.7 Kcal/mole で充分小さいので、安全性は保たれる。

### 3.2.6 計画(VI)

窒素（純度 99.995% 以上、O<sub>2</sub> 0.5 ppm 以下、CO<sub>2</sub> 1 ppm 以下、H<sub>2</sub> 1 ppm 以下）に對して、エチレン（純度 99.9% 以上）を混合量 0.01～5.0% で混合して、U-Pd 合金箔  $1.2 \text{ cm}^2$  ( $= 6.04 \text{ mg}^{235}\text{U}$ ) 以下の量の存在で照射し、核分裂片による、主としてシアン化水

素を生成する反応を研究する計画である。

照射条件は、常温～液体窒素温度付近の間の温度、試料圧力全圧 0.5～10 気圧、照射時間は、核燃料のないカプセルで最長 25 時間、核燃料入りカプセルで最長 5 時間とする。

安全性に関する検討結果は次の通りである。爆発性はエチレンと空気の混合物は前計画で述べたように爆発限界 3.0 ~ 3.4 %であるが、窒素との混合では安定である。腐蝕性については、窒素、エチレン、および主生成物であるシアノ化水素と炭化水素類はカプセル材料の S U S 27 を腐蝕しない。誘導放射能についても問題はない。充填圧については、温度変化および熱分解 (+120°Cまでの温度で安定) の項は、 $(\Delta P_1 / P_0) = 1.33$ 、 $(\Delta P_3 / P_0) = 0$ である。反応によるガス発生については次のように扱う。全反応を(10式)のように表現するとき



シアン化水素生成反応を金反応として(1)式の如く考え、



エチレンと窒素各 1 モルから 3 モルの生成物があるとする ( $N = 3/2$ ) と、計画(II)で述べたように純エチレンの場合(10)式で、 $a = 0$ 、 $b = 0.03$ 、 $c = 0.07$ 、 $d = 0.9$ であることが、混合ガスでもそのまま成立し、また大略  $G(HCN) = 1$  とすれば ( $a = 1$ )、(10)式から  $G_{total\ gas} = 1.1$  となる。平均分子量は  $N_2$ 、 $C_2H_4$  共 28 故、照射時間と核燃料の量を(5)式、(6)式でそれぞれ考慮して、無核燃系では

$$\begin{aligned}\Delta P_2 / P_0 &= (8.3)(10)^{-5} \text{ Gtotal gas } (N-1)MT \\ &= (8.3)(10)^{-5} (1.1) (1.5-1) (28) (25) \\ &= 0.032\end{aligned}$$

核燃の存在する系では

$$\begin{aligned}\Delta P_2 / P_0 &= \frac{(6.04)}{(36)} (5.0) (10)^{-4} G_{\text{total gas}} (N-1) M T \\ &= (0.84) (10)^{-4} (1.1) (1.5-1) (28) (5) \\ &\approx 0.006\end{aligned}$$

となる。よって  $P_{max}$  [a tm] は、無核燃系で

$$P_{\max} = \frac{20}{1 + (\Delta P_1 / P_0) + (\Delta P_2 / P_0) + (\Delta P_3 / P_0)} \\ = \frac{20}{1 + 0.33 + 0.03 + 0} = 14.7$$

核燃共存系で

$$P_{max} = \frac{20}{1 + 0.33 + 0.01 + 0} = 14.9$$

よって、実験計画の最高圧は 10 気圧であるから安全性は保たれる。G 値は、 $G (-C_2H_4)$

30 ~ 40, G ( HCN ) で 1 前後故充分小さい。反応熱は、エチレンの重合熱として充分低く ( 27 Kcal/mole ), 反応(1)は、5.2.1 Kcal の吸熱で問題ない。

## 4 照 射 運 転

昭和45年度は、前述の使用前検査およびその予備実験のための運転が行われた後、6回の運転が試料照射のため行われた。照射試料は全部炉内線量測定のための線量計で、前章で述べた3種類の気体反応系、即ち、亜酸化窒素、エチレンおよび二酸化窒素添加炭酸ガスであった。

### 4.1 運転の概要

使用前検査後、試料の安全審査と、検査の合格証の発行をまって、7月末に第1回照射運転を行った。この運転はカプセルを照射位置に停止させる回路の故障を中心とした一連のトラブルで失敗した。この後、補修と改良を行って、空試験を行い、11月に第2回運転を行い2ヶのカプセルが順調に照射された。しかし、11月末に行われた第3回運転では数件の小トラブルが発生し、5ヶの照射予定試料中3ヶのみを照射して運転を中止した。この後、JRR-3の定期自主検査期間を利用して更に装置、操作に改善を重ね、46年2月以降3回の照射運転は無事に行われた。特に最終回の運転では、核燃料入り試料が照射された。

以下に各運転について述べる。なお、運転については45年度の運転について70-1~6と番号付けすることとした。なお、今年度照射運転は全部常温である。

- (1) 70-1運転(45-7-30), JRR-3出力10MW(45R3-05サイクル)。  
照射試料: 1気圧N<sub>2</sub>O。(失敗)
- (2) 70-2運転(45-11-13), JRR-3出力7MW(45R3-08サイクル)。  
照射試料: 1気圧N<sub>2</sub>O, 2カプセル。
- (3) 70-3運転(45-11-26, 2ヶ), JRR-3出力7MW(45R3-09サイクル)。照射試料: 1気圧N<sub>2</sub>O, 3カプセル。
- (4) 70-4運転(46-2-3, 4, 5), JRR-3出力7MW(45R3-10サイクル), 照射試料: 1気圧N<sub>2</sub>O, 1カプセル, 1気圧エチレン, 4カプセル。
- (5) 70-5運転(46-2-18, 19, 20), JRR-3出力7MW(45R3-11サイクル), 照射試料: 1気圧CO<sub>2</sub>-NO<sub>2</sub>, 4カプセル, 1気圧N<sub>2</sub>O 1カプセル。
- (6) 70-6運転(46-3-16, 17, 18), JRR-3出力7MW(45R3-12サイクル), 照射試料: 1気圧N<sub>2</sub>O, 5カプセル(内4ヶはU-Pd合金箔核燃料入り)。

### 4.2 運転の経過

ここで各運転の経過と主な結果について述べる。

#### 4.2.1 LTF L70-1運転

##### (1) 運転経過

照射試料組立作業が不慣れで、気密テスト合格品が1カプセルしか得られず、外(保護)カプセルの銀ロウ付け後、気密端子の外側でコネクター内側の部分にウレタン系樹脂(ウレシール400)を充填し、ヘリウム吹き付けリークテストでリークのある、気密端子板と外管の周縫手部分にエポキシ樹脂を塗布して気密性を保った。このような樹脂によるもれ止めを行った

カプセルと、工作工場で銀ロウ付けにかえてアルゴン溶接してもらったカプセル1ヶとを用いて照射を行った。

運転当日は、コネクターを遮蔽蓋の外へ引き出し、カプセルとの装着テストを行い全部合格した。D-6 カプセルをコネクターと接続して、操作開始した。

カプセル送入開始時に、気送弁V-4-3 開、冷却弁V-4-4 閉の状態でゲート弁V-4-5 開が遅れて一時的にヘリウム流路閉止となり、この異常圧力でカプセル引戻停止のリミットスイッチが作動したままとなつた。<sup>\*</sup> [事後の原因調査による。以後印により事後判明の事項を示す]。このためカプセルを照射位置へ送入したとき、照射位置でカプセルは停止せず、位置指示計上約20cmオーバーランした位置で手動ボタンで送入停止し、ドラム手動ハンドルにより正規の位置に調節した。30分間の照射予定時間終了後、ハンドルにより引き戻しを開始したが、操作困難となり、ハンドルシャフト下部のユニバーサルジョイント上で回り止めボルト付近をねじ切って操作不能となつた。カプセルの位置確認の操作中に、安全回路スイッチ入、<sup>\*</sup> スクラム回路スイッチ切(Block)の状態で電源を切ったため原子炉スクラムが入った。安全回路切として炉再起動が行われたが、カプセルが照射プラグ内にあることが判り、炉出力100KWに低下され、放射線管理課員立合で、後部遮蔽の緊急引出棒用プラグを引き出し、緊急引出棒でカプセルを引き出す作業を行つたが完全に引き出すことはできなかつた。このため、原子炉運転上の理由もあり、カプセルを前部遮蔽中央まで引き出して、遮蔽を閉じ(遮蔽長120cmの中央に約30cm長のカプセルを置いて)ループ運転を終了した。

## (2) 事故解析と対策

ねじ切った手動ハンドルのシャフトは至急修理を行い取付けて、処置終了。

スクラム発信は、装置の回路上、電源喪失時にB接点作動と安全回路スイッチ入のため発信されたことが明らかとなつた。即ち、停電時にはスクラムAuto-Block切替スイッチの位置に無関係に、安全回路スイッチが入っているとスクラム発信状態となる。従つて電源断するときには、その前に安全回路キースイッチ切とすることが必要である。

カプセルの切離し異常にについては、照射位置到達以降のハンドル操作によるショックと、リークを止めるために塗布したエポキシ樹脂と銀ロウのはみ出しがプラグ内段差(前部遮蔽その他)に引っかかったことが原因と考えられた。このことから、今後はカプセル外側への樹脂塗布は止め、外カプセル外管と気密端子および頂板との接続は銀ロウ付けを止めてTIG溶接とし、また、カプセル外側の角張った部分を照射前によく点検して丸みづけることとした。

カプセル緊急引出棒の操作が円滑に進まなかつたことは、形状不良のほか、カプセル後部の気密端子部に樹脂をつめ過ぎて、フックの引掛けがよくなかったことが原因と考えられた。樹脂のつめ込みは以後行わないことにし、工具を改善してフックではなく、首輪式の引出棒を工作した。これにより原子炉停止後、カプセルは約1時間の作業で無事取出された。

今回の全トラブルの根本原因是、リード線繰り出しの駆動モーターが、カプセル照射位置で停止しなかつたことにある。その原因是、試料取扱部カプセル取付け位置にある3ヶのリミットスイッチのうち2ヶが當時押付け位置にあり、バネ作用が弱つて作動不良となつたことが第一歩であった。このため、この2ヶのスイッチは廃止し、また照射位置でのカプセル送入モーター停止回路が生きていることを確認するランプ(X-1)を設置する回路の改良を行つた。

ハンドル操作不良となった原因は、以上のカプセル送入モーターのオーバーランにより、リード線が異常に曲げられ、またその後の激しいハンドル操作もあり、リード線のドラム巻きはじめの位置で、リード線が切断していたことによるものと判り、上記のオーバーラン防止の回路改良と共に、リード線コネクターの交換を行って、修理を完了した。

以上のトラブルの原因解析と、補修、改良のほか、操作ミスを防止するため、運転手順のチェックシートを作成し、次回運転から使用した。

#### 4.2.2 L T F L 7 0 - 2 運転

前回運転の失敗後、補修、改良を行って、45年10月、ヘリウム充填カプセルを用いた空試験を行い、正常に運転できる見通しがついたので、先ず1日のみの2カプセル照射運転を行った。

本運転では、最先端位置の1時間および2時間の常温照射が行われ、チェックシートに従って操作を行い、予定通り無事照射が行われた。

#### 4.2.3 L T F L 7 0 - 3 運転

前回運転の成功により、1回運転で5カプセル照射を行う予定で、70-3運転を行った。

今回運転第一発目のカプセル(D-7, N<sub>2</sub>Oカプセル)は、1時間半の照射が無事行われた。しかし、第2発目(D-1)はコネクターのチャックの噛み込みが悪く、取付作業でハンドル操作を繰り返すうち、ユニバーサルジョイント回り止めボルトを切断した。交換後、再びボルトを破断し、その交換作業中ハンドルシャフトについた笠歯車を落下させた。これを修理するため、試料取扱部の送入引戻モーター側の遮蔽(約2.1 ton)を取り外すこととし、作業位置の放射能減衰を2時間ほど待ってから取り外しを行った。その後笠歯車を取付け、回り止めボルトを全数交換した。

遮蔽取外しのままの運転の是非につきJRR-3管理課と放射線管理課担当者と打合せを行い、前部遮蔽(シャッター)開で周辺及び作業区域の放射能を放管立合いでチェックしつつ運転を再開することとなった。

連続して作業を進め、2発目(先端より90cmで照射)の3時間照射を終え、3発目(同60cmで照射)の3時間照射終了後、コネクターとの切離しがよくなく、手動切離しを行ったところ切離しの反動でカプセルが落下装置上の正常位置より先に飛出し、落下棚の回転時に棚とガイド板にはさまれ、棚回転(落下)機構が動かなくなった。<sup>\*</sup>下からカプセルをつつき出し(作業位置付近放射能レベル10mR/h, カプセルは1mはなれて1mR/h以下)トンクスでコンテナに納めた。

第4発目を引き続き照射しようとしたが、度重なるハンドル操作のためか、リード線がドラム中でからみ送入不可能となったので運転はこの段階で中止した。

前回の2カプセル照射が極めて円滑に行われた後の今回の運転では、かなりトラブルが生じたが、予定の5ヶのうち3ヶは照射ができ一応の成果があった。また、かなり種々のトラブルでも処理できる技術的な自信もついた。しかし、コネクターまわりの信頼性の向上が今後の問題として残った。

このコネクター関係のトラブルは、この後3回の運転では、カプセルの角の丸みづけと共に、照射開始前に接続のテストを行い、またフィルムバッジリングをつけて手作業で確実に接続す

ることにより、一応問題とならなくなつた。更に、46年4月にコネクターを交換の際、コネクターのソケット側ピン配置を精密にチェックした結果、この45年度中に使用したコネクターは2ヶ共寸法が僅かに不良で、このことが接続困難の原因となつていていたことが明らかとなり、新コネクターを使用した46年度には、この関係のトラブルは解消した。

#### 4.2.4 LTFL70-4 運転

##### (1) 運転経過

第1日目に2ヶ、第2日目に1ヶ、第3日目に2ヶの合計5ヶ（1ヶはN<sub>2</sub>O、他はC<sub>2</sub>H<sub>4</sub>）のカプセルを無事に計画通り照射することができた。ただ第1回目の照射終了時にJRR-3ヘリウムガス循環ポンプの分解修理のため炉出力が低下され、第2日目午後に再び7MW運転にもどされた。このためカプセル2ヶの照射が第3日目となつた。また、これまで3回の運転で照射されたカプセルの分析結果とコバルトモニターの測定結果とから、照射プラグ内の線量率が設計値とかなり異なることが考えられたため、金とコバルトを入れたアルミカプセル2ヶ<sup>15)</sup>を連結した全長約40cmの照射容器を30分照射する実験を第2日目の試料照射後に行つた。

##### (2) 特記事項

カプセルは、前回照射予定を完了しなかつたので、その残り（D-3）1ヶを用いたが、その他の4ヶのカプセルからは、新たに製作した4素子を1枚のベースに組みこんだストレングージを使用した。これまで、エポキシベース（9×19.5mm）にアドバンス線（実効3×8mm）をつけたゲージを4枚ずつ、内、外カプセルに、計8枚を1カプセル当たり使用し、しかもゲージの配線が極めて労力を要したが、新ゲージ（図3）はエポキシベース（16×24mm）にアドバンス箔抵抗体（1素子の実効寸法2.5×5mm）を用いたもので、プリッジに組み上っているため、配線ちがいなどのトラブルの可能性も減少し、労力も大いに軽減された。この新ゲージについては、使用前に加圧可能なカプセルに張りつけ、新、旧各2ヶのゲージで常温および液体窒素温度で圧力に対する歪量の関係がほとんど変わることを確かめた。

前回運転時に、試料取扱部のリード線巻取ドラム駆動モーター側の本体遮蔽体1ヶを取り外した。この部分に今回は鉛板4～8mmとバラフインブロック5cmの仮遮蔽を取付けて運転を行つた。前部遮蔽開のとき、遮蔽蓋付近の線量率は、炉出力7MWで中性子が主であるが、換算して最大3～4mR/hの程度であった。この位置は照射中（前部遮蔽開）には無人であり、近くとしても短時間であるので支障ないと考えられる。

今回以後カプセル取付け作業は、フィルムバッジリングをつけて手を行うこととした。被曝の評価については4.2.6で述べるが、安全上の問題はないと判断された。

#### 4.2.5 LTFL70-5 運転

亜酸化窒素とエチレン線量計については一通りの照射試料が得られたので、炭酸ガス線量計の照射を行うこととした。ガンマ線による予備実験では、LTFL用ステンレスカプセルを用いて、試料開封捕集装置にかけるとき微量の空気の混入が避け難く、炭酸ガス分解生成物の一酸化炭素が質量分析を行うと混入空気中の窒素のピークと重なつて分析が困難であった。このため、Ar（M/e=40）で空気量を補正し、M/e=12, 14, 16でパターン係数から一酸化炭素量を推定したが、精度は悪かった。このため、LTFL照射では、JRR-4およびガンマ照射において技術的に確立している石英アンブル照射の方法をとることとし、石英アンブル

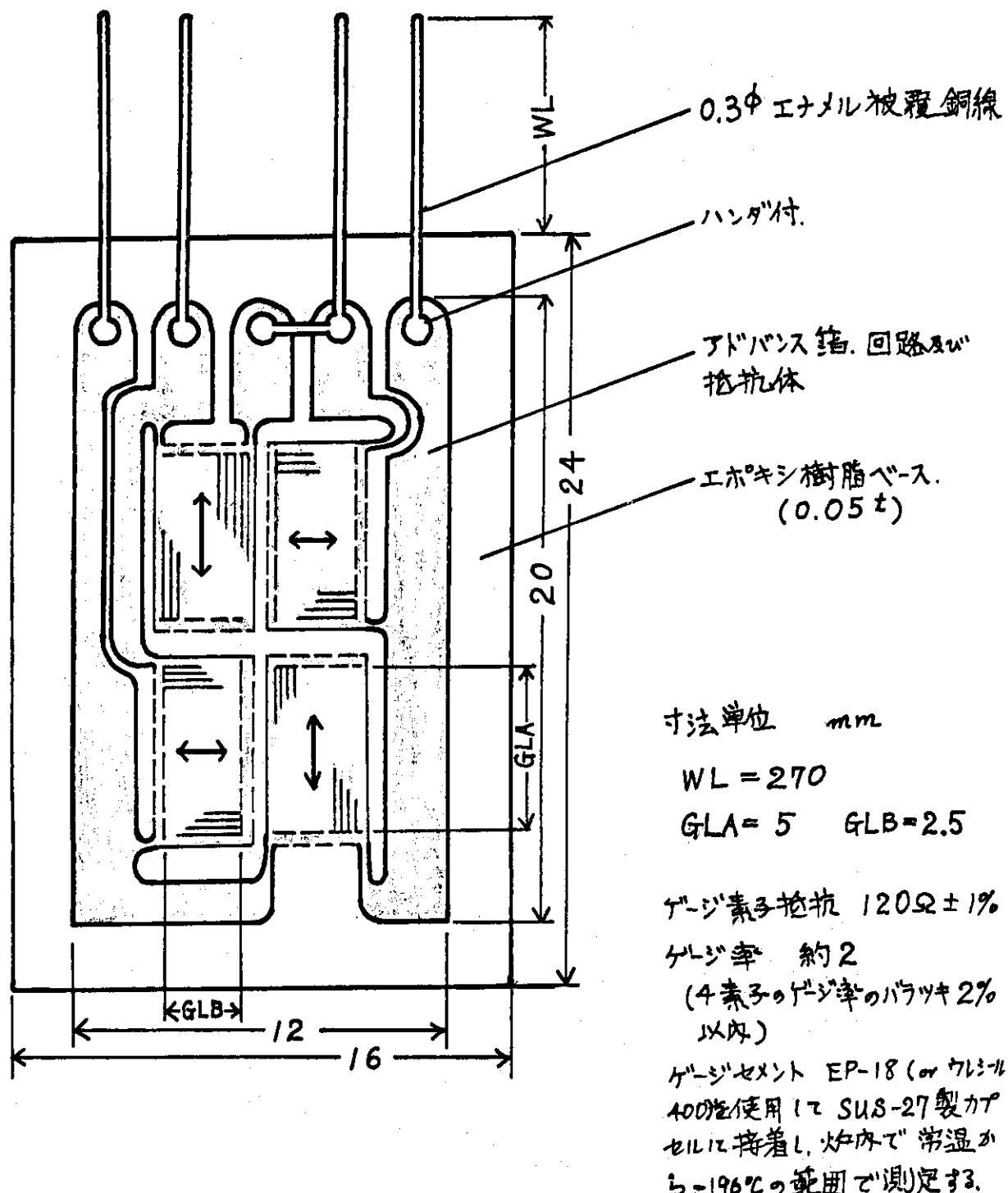


図3 L T F L用複合歪ゲージ

ルに 1 % 二酸化窒素添加炭酸ガスを入れ、これを内カプセルに入れた。このとき、内カプセルのノズル板側に石英ウールを、破裂板側にウレタンフォームラバー片を入れてガタつきをなくした。このような構成としたため、アンプルを封入してノズル板（頂板）を銀ロウ付けすることは難しかったが、カプセル下部を充分液窒冷却しながら作業して、一応良い結果を得た。

照射運転は予定通り円滑に進行し、3日間で 1, 2 時間照射各 1 カプセル、3 時間照射 3 カプセルを照射した。

照射にあたり、石英アンプルの使用によるガンマ発熱増大を考え、カプセル温度の上昇に特に注意した。通常、カプセルを照射位置に送ると、照射前よりカプセル温度は 1.0 ~ 1.5 ℃ 程度上昇することがみられるが、今回のカプセルは 1.5 ~ 2.5 ℃ の上昇があり明らかに石英の存在の熱的効果が出た。しかし、この程度では安全上の問題は全くなく、実験条件としても無視してよいと思われる。

今回の運転では、第 1 発目の (D-18) カプセルの照射後、カプセル切離し操作で、コネクターのチャックがカプセルを機械的には多少くわえている状態で、電気的にはカプセル計測系の断路から判断して切離し完了と考えて落下操作を行ったが、落下せず、放射能減衰後遮蔽蓋を開き、カプセルを押し出してコンテナに落下させた。これは操作上、クラッチを切らずにハンドル操作のみを行えば避けられるトラブルなので、操作を注意して行うこととした。（これ以後同じトラブルはない。）

#### 4.2.6 LTFL 70-6 運転

##### (1) 照射試料

表 2 で示したウラン-パラジウム合金箔を、SUS 27 製の取付けフレームにセットし、箔

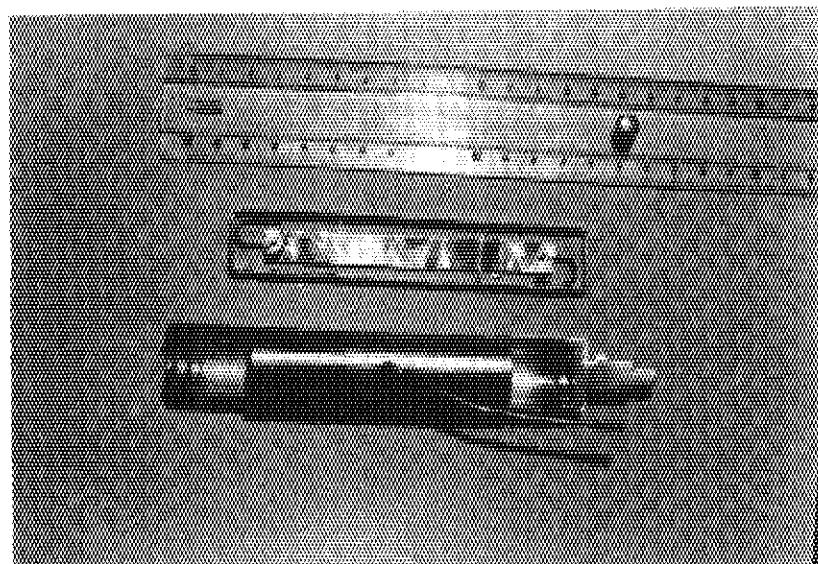


図 4 内カプセルとウラン-パラジウム金箔  
取付けフレーム ( 箔寸法 10 mm × 100 mm )

がカプセル中心にくるようにした。(図4に、フレームにセットした箔と、内カプセルの前、後部を縦割りした状態を示す。図中の箔は  $10 \text{ mm} \times 100 \text{ mm}$  であるが、今回の照射試料には、 $5 \text{ mm} \times 100 \text{ mm}$  および、 $5 \text{ mm} \times 50 \text{ mm}$  の寸法のものを用いた) 箔ははさみで切れるが、邊に傷がつくと裂けやすく、またホルダーに掛けるための穴を丸く抜くのも、穴で箔が裂けやすいので注意を要する。箔をカプセルに取りつけた経験はないので、箔をホルダー(フレーム)に取付けて内カプセルに入れた後、頂板を熔接することにより、ホルダーまたは箔に異常がないことを確かめるため、 $5 \text{ mm} \times 100 \text{ mm}$  のものを1ヶ用い、内カプセルの頂板熔接後に頂板部を切断して内部を観察したが、異常はなかった。

## (2) 照射運転

今回の運転は円滑に進行し、核燃料入りのカプセルを含めて5ヶの照射を終えた。今回は初の核燃料入り試料でもあり、試料とコネクターの放射能(周辺線量率)測定を行ったが、予想通り無核燃カプセルの場合と大差ない結果であった。今回も手によるカプセルの取付けを行なつたので、カプセル落下直後にコネクターを引戻して遮蔽蓋上の位置での最大検出値、およびその後の遮蔽蓋上の検出値とカプセル取付け時のコネクター表面線量率を測定し、表3の如き結果となつた。

表3 コネクターによる線量率<sup>注1)</sup>

カプセル	照射時間 (h)	コネクターによる線量率 (R/h)			表面 <sup>注2)</sup>
		測定時刻	遮蔽蓋上	表面 <sup>注2)</sup>	
D-21	2	直後 <sup>注3)</sup>	0.10	—	—
		1 h 後	0.07	3 ~ 4	
D-22	4	直後	0.05	—	—
		1 h 後	0.14	—	
		1.4 h 後	0.008	0.30	
D-23	2	直後	0.20	—	—
		1 h 後	0.09	—	
		2 h 後	0.07	~ 3	
D-24	4	直後	0.40	—	—
		1.5 h 後	0.013	0.45	
D-16	4	直後	0.20	—	—
		0.5 h 後	0.17	—	

注1) 70-6運転における値。D-16以外はU-Pd合金箔を含む試料である。

注2) コネクター表面にサーベイメーターをつけて測定。

注3) カプセルをコンテナに落下させた直後で、照射位置から引戻し開始時から約5分経過している。

## (3) カプセル取付作業の被曝評価

職業人に対する I C R P 最大許容線量の、手先部と全身に対する値は、それぞれ 20 rem/13 wk, 7.5 rem/y と 3 rem/13 wk, 5 rem/y である。カプセルを照射後のコネクターに取付ける作業時間を 2 分/カプセル、遮蔽蓋付近のボルト外し作業等の時間を 30 分/カプセルとし、5 カプセル/原子炉運転サイクル、4 サイクル/13 wk, 1.2 サイクル/y として許容線量率を 13 週および年間にについて、それぞれ求め、低い方の値をとると、コネクター表面で 30 rem/h、遮蔽蓋上で 1.5 rem/h となる。作業時間は安全率をあまりとっていない値であり、カプセル照射数、コネクター(年 1 回交換)以外の取付け部分の汚染の蓄積などの不確定要素もあるから、10 ~ 15 倍程度の安全率をみこみ、次の値を作業時の標準値とし、これ以下の値であるとき作業することにする。

$$\begin{array}{ll} \text{許容線量率: コネクター表面最大} & 3 \text{ R/h} \\ \text{遮蔽蓋上最大} & 100 \text{ mR/h} \end{array}$$

表 3 の値をみれば、最先端位置照射 2 時間の場合、照射後 1 ~ 2 時間のコネクター放冷後に、次のカプセルの取付け作業可能のレベルに放射線量率は低下するといえる。従って、今後の照射計画にあたり、1 日のうちで第 1 発目が 2 ~ 3 時間以内の照射であれば、1 ~ 2 時間のコネクター放射能減衰後には、2 発目の照射ができると考えてよい。

カプセルとコネクターの放射能は、照射後 1 ~ 2 時間でアルミニウム ( $^{28}\text{Al}$ ,  $\sigma_{\text{act}} 0.21 \text{ b}$ , 半減期 2.27 m,  $\gamma 1.782 \text{ MeV}$ ) の放射能が減衰し、1 ~ 2 日で S U S 27 中のマンガン ( $^{56}\text{Mn}$ ,  $\sigma_{\text{act}} 1.34 \text{ b}$ , 2.58 h,  $\gamma 0.822, 1.81, 2.13 \text{ MeV}$ , S U S 27 T P 中に含有量<sup>16)</sup> 200 % 以下で存在) の放射能が減衰する。この 2 成分がコネクターの残留放射能を左右しているとみられる。なお 1 サイクルで累積 + 数時間の照射を行っても 2 週間後(次の照射運転時)には、コネクター表面線量率は 1 mR/h 前後に低下し、その前の照射歴はほとんど影響しない。

## 4.3 照射運転のまとめ

今年度照射された試料と照射条件等について、表 4 にまとめた。第 1 回および第 3 回には、照射予定試料を計画通り照射できなかったトラブルが発生したが、第 4 回以降は、1 回の運転毎に 5 カプセルの照射が行えるようになり、常温照射に関しては、定常運転が確立された。

装置および操作上の問題点はいくつか生じたが、ヘリウム循環管路に關係した問題は全くなかつた。トラブル発生点は、カプセル取扱い關係にしばられ、この面の改善が今年度達成された主な課題であった。コネクターに関しては、カプセルのプラグに対するソケット部や、チャック部に関して改良された設計のものを設計試作し、次年度から使用される。また、回路の変更を行い、取扱部に 3 ケもあつたりミットスイッチを交換、点検しやすい位置の 1 ケにした。カプセル組立てに要した過大な労力は、ストレンゲージの新型式のものを用いることでかなり軽減され、同時に組立時の配線ちがい等の可能性もなくなつた。また、第 1 回運転での不要な原子炉スクラム発信から考え、操作ミスをなくすため、運転操作手順のチェックシートを作り、その後使用して良い結果を得ている。カプセル取付け作業は、当初、トンクスにより行う計画であったが、予測していたよりコネクター放射能とプラグ内汚染のレベルが低いので、被曝線

表4 照射試料と照射運転

L T F L 照射運転 番号	J R R - 3 サイクル (炉出力)	年 月 日	試 験		科 学		照 射 条 件	
			カバセル番号	反応器 気 体	圧 力 [ atm ]	U-Pd 管 径 [ cm × cm ]	位 置 [ cm ]	幅 温 度 [ h ]
7 0 - 1	4 5 R 3 - 5 ( 1.0 MW )	4 5 - 7 - 3 0	D - 6	N <sub>2</sub> O	1	0	0	毫 温 度 失 敗
7 0 - 2	4 5 R 3 - 8 ( 7 MW )	4 5 - 1 1 - 1 3 "	D - 2 D - 8	N <sub>2</sub> O "	1 "	0	0	毫 温 度 失 敗
7 0 - 3	4 5 R 3 - 9 ( 7 MW )	4 5 - 1 1 - 2 6 "	D - 7 D - 1 D - 5	N <sub>2</sub> O " "	1 " "	0 9 0 6 0	毫 温 度 " " "	毫 温 度 失 敗
7 0 - 4	4 5 R 3 - 1 0 ( 7 MW )	4 6 - 2 - 3 4 6 - 2 - 4 4 6 - 2 - 5 "	D - 3 D - 9 D - 1 0 D - 1 1 D - 1 2	N <sub>2</sub> O C <sub>2</sub> H <sub>4</sub> " " "	1 " " " "	0 " " " "	毫 温 度 " " " " "	毫 温 度 失 敗
7 0 - 5	4 5 R 3 - 1 1 ( 7 MW )	4 6 - 2 - 1 8 4 6 - 2 - 1 9 4 6 - 2 - 2 0	D - 1 7 D - 1 8 D - 1 5 D - 1 9 D - 2 0	C O <sub>2</sub> + 1 % N O <sub>2</sub> " N <sub>2</sub> O C O <sub>2</sub> + 1 % N O <sub>2</sub> "	1 " " " "	0 " " " "	毫 温 度 " " 3 0 0 "	毫 温 度 失 敗
7 0 - 6	4 5 R 3 - 1 2 ( 7 MW )	4 6 - 3 - 1 6 4 6 - 3 - 1 7 4 6 - 3 - 1 8	D - 2 1 D - 2 2 D - 2 3 D - 2 4 D - 1 6	N <sub>2</sub> O " " " "	1 " " 0.5 × 1 0 0	0.5 × 5 " 0.5 × 1 0 " 0	毫 温 度 " " " " "	毫 温 度 失 敗

\*1 プラグ内、最先端よりの距離

量を評価した上、本体遮蔽体1ヶを取り除いて、手作業で確実に短時間に行うようになると  
ができた。その他、緊急引出棒の改良によりプラグ内カプセルの緊急引出操作が1時間程度で  
できるようになったことも含め、カプセル関係のトラブルが多くあったため、逆に技術的にかな  
りのことも手早く処理できるようになつたことなど、定常運転確立に寄与している。

照射試料は、炉内線量測定用の化学線量計であったが、金、コバルトによる熱中性子束分布  
測定、核燃料共存試料での核分裂片照射も行われ、次年度に行われる化学反応実験の準備はと  
とのつた。L T F L のプラグ内線量は 7 ~ 10 MW 運転時の最高実測値で、

熱中性子束  $2 \sim 3 \times 10^{11} n/cm^2 sec.$

ガンマ線および高速中性子線量率(系により異なる)  $2 \sim 4 Mrad/h$

の程度であった。

## 5 結 論

原子炉の共同利用運転が休止されてLTFLに関しては、特性試験のみが行われた44年度に対し、本年度は、原子炉運転が正常化して直ちに、原子力局による使用前検査を受け、また照射試料の初の安全審査も受けて、7月末には照射運転が可能となった。しかし、第1回運転では予期しなかった連鎖的なトラブル発生があり、これを解決して次の運転を開始するのに約3ヶ月を要した。第3回運転でもトラブルが発生したが、更に装置、操作の改善を行って、第4回～6回の間は予定通りの照射ができ、原子炉運転サイクル毎に1回の照射運転を行い、2～3日間で5カプセルの照射を行うという定常運転が確立された。

前年度特性試験の結果からも予想されたように、ヘリウム循環回路関係は順調に動いた。しかし、前年度充分に試験できなかった試料取扱系はトラブルが多く、種々の改良を要した。これらの改良と前半の困難の多かった時期の経験により、次年度（46年度）の11回運転、カプセル55ヶ照射が可能となり、また世界的にも類例のない核分裂片による化学反応研究の進行の基礎となつた。

## 6 おわりに

本研究は、低温化学照射装置による化学原子炉開発を目的とした核分裂片による化学反応研究の一環として行なわれたものであり、この研究の進行にあたり所内外の多くの方の支援を受けた。本研究を可能ならしめた高崎研究所の歴代所長（宗像英二理事長、沢柳正一氏、本島健次アイソトープ事業部長および大久保一郎現所長）、東海研究所の研究炉管理部をはじめとする多くの部課、および側面からの御援助を受けた高崎研究所化学研究委員会化学用原子炉分科会委員の方々に感謝する。使用した核燃料であるウラン合金箔は、米国BNLの化学原子炉研究グループで製造され、B.Manowitz, M.Steinberg氏らから贈与されたものであることを付記して感謝する。また、原稿整理等に研究部、東悦子夫人に努力していただいた。

## 参 考 文 献

- 1) 放射線化学研究委員会化学用原子炉分科会「化学用原子炉分科会報告書」38年10月
- 2) 高崎研研究部「低温化学照射装置概念設計書」, JAERI-memo NO.3027,
- 43年2月
- 3) 高崎研研究部「LTFLの炉外試験」JAERI-memo NO.3453, 44年2月
- 4) 高崎研研究部他「LTFLの炉内試験(I)」, JAERI-memo NO.3852, 45年1月
- 5) 高崎研研究部他「LTFLの炉内試験(II)」(未発表)
- 6) 佐藤・森山・助川・田野・大島・山崎・岡本・浜ノ上・池添・徳永・「低温化学照射装置

(L T F L) の運転報告。I. (昭和44年度運転・特性試験)」, JAERI-M 4630,  
46年11月

- 7) N. I. Sax ed., "Dangerous Properties of Industrial Materials," 2nd ed., Rheinhold Pub. Corp., N.Y., 1963
- 8) P. G. Stecher ed., "The Merck Index," 8th ed., Merck & Co., Rahway, N.J., 1968
- 9) 木村健二郎編, 「放射線データーブック」, 地図書館, 東京, 1959
- 10) 池添・徳永・助川・森山・佐藤・田野・岡本「炉内放射線による化学反応・IV・亜酸化窒素線量計」JAERI-memo 3780, 44年11月
- 11) 日本化学会編, 「化学便覧, 基礎編」II, p. 819~835, 丸善, 東京, 1966
- 12) Y. Ikezoe, S. Sato, A. Danno, J. Nucl. Sci. Technol. 8, 394 (1971)
- 13) M.C. Saur, Jr., L.M. Dorfman, J. Phys. Chem. 66, 322 (1962)
- 14) 佐藤, 森山, 池添, 清水, 小林, 山崎, 田野, 「核分裂片のエネルギー損失と化学反応系中の核分裂片線量率」JAERI-M 4717, 47年2月
- 15) 岡本, 徳永, 浜ノ上, 助川, 佐藤, 森山, 池添, 小林, 田野, 「L T F L内のガンマ線量および熱中性子束の測定」, JAERI-M 4867, 47年7月
- 16) J I S G 3459 (1962制定)