

JAERI-M

5 4 2 1

低温化学照射装置(LTFL)の運転報告・IV

昭和47年度運転

1973年10月

佐藤 章一・森山 昇・小林 敏明・
池添 康正・清水 三郎・山崎弥三郎・
団野 鮎文

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

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

低温化学照射装置（L T F L）の運転報告・IV

昭和47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・小林敏明・池添康正

清水三郎・山崎弥三郎*・団野皓文**

(1973年9月25日受理)

昭和47年度には、低温化学照射装置（L T F L）を6回運転し、24カプセルを照射した。

同時に3ヶの内カプセル（従って3ヶの照射試料）を1ヶの外カプセル中に入れて照射できる改良型のカプセルを第2回運転から使用した。この改良型カプセルの設計、試験結果については原子炉運転委員会において安全性の所内審査を受けた。これにより、本期照射された24ヶのカプセルで49ヶの試料を照射できた。また、アンモニアと炭化水素混合系照射試料についても安全審査を受けた。

第5回の運転では、ループの試料取出部からの照射後カプセルの取り出し操作に関して2回のトラブルがあり、原因を検討した。その他の運転では、最終回（第6回）運転での低温運転も含めて予定通りの照射ができた。照射試料を分類すると；エチレン15試料（11ヶは核分裂片の析出効率測定用、4ヶはバックグラウンド（n+γ）線量測定用）、アンモニアとエタン混合系22試料、アンモニアとエチレンまたはプロピレン混合系各4試料および固体損傷実験のための4試料である。

ループ保守作業も行われたが詳細は本文中に記した。L T F Lを利用して行った照射実験の概略についても述べた。

* 東海研究所安全工学部

** アイソトープ事業部・ラジオアイソトープ研修所

Operation Report on the Low Temperature Fissiochemical Loop (LTFL). IV. Operations During the Period of April 1972 to March 1973.

Shoichi SATO, Noboru MORIYAMA, Toshiaki KOBAYASHI,
Yasumasa IKEZOE, Saburo SHIMIZU, Yasaburo YAMAZAKI*,
and Akibumi DANNO**

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

(Received September 25, 1973)

The Low Temperature Fissiochemical Loop (LTFL) was operated six times, irradiating 24 capsules during the F.Y. 1972 - 1973 period.

Capsules of the improved design were used from the second run, with which 3 inner capsules, i.e. 3 samples, were irradiated simultaneously in one outer capsule. The safety aspects of the design and the test results of the new capsule were reviewed by the Committee on the Operation and Maintenance of Reactors, JAERI. With 24 capsules, 49 samples were thus irradiated during the period. The safety of the chemical irradiation systems containing ammonia and hydrocarbons was also examined.

*Division of Reactor Safety, Tokai Research Establishment. JAERI

**Radioisotope School, Radioisotope Center. JAERI

The fifth run was encountered twice with operational troubles in the procedure of bringing the irradiated capsule out of the irradiation plug of the loop; its cause is being investigated at present. Other runs were successful of which the last (sixth) was a low temperature operation. The number of the irradiation samples as classified by the systems; 15 samples were of ethylene (11 samples for the deposition efficiency experiment of fission fragments and 4 samples for the background reactor radiation dosimetry), 22 samples were the mixtures of ammonia and ethane, 4 samples each of ammonia and ethylene or propylene and 4 solid samples for radiation damage experiments.

Maintenance works on the loop are also described, and the irradiation experiments outlined.

目 次

1.はじめに	1
2.安全審査	2
2 A. L T F L 4型カプセル	2
2 A. 1 4型カプセル設計の目的	2
2 A. 2 4型カプセルの構造	3
2 A. 3 耐圧計算	4
2 A. 4 温度特性	7
(1) 発熱量	7
(2) 伝熱計算	8
(3) 伝熱実験	17
2 A. 5 気送力	21
2 A. 6 放射線漏洩	22
2 A. 7 4型カプセルの使用条件と安全性	23
2 B. 試料照射計画	23
2 B. 1 照射試料の安全性	23
2 B. 2 L T F L 照射実験計画 (VII)	24
(1) 実験目的	24
(2) 照射する物質と規格	24
(3) 照射実験条件	24
(4) 安全性	24
3.照射運転	29
3.1 運転の概要	29
3.2 運転の経過	29
(1) 72-1, 2, 3運転	29
(2) 72-4運転	32
(3) 72-5, 5A運転	32
(4) 72-6運転	33
3.3 カプセル落下機構の検討	34
3.4 内カプセルの改良	34
3.5 保守	35
(1) コネクターの交換	35
(2) 機算時間計の取付	35
(3) L T F L 電気機器の絶縁抵抗測定	36
(4) ストレンメーターに関する調査	36
(5) カプセル落下機構のリミットスイッチ新位置取付	36
(6) その他の保守	37

3.6 照射運転のまとめ	37
4. L T F Lによる照射実験	45
4.1 核分裂片線量測定法の開発	45
4.2 アンモニアと炭化水素の反応	45
4.3 固体試料照射	46
5. 結論	46
謝辞	46
参考文献	47

1. はじめに

高崎研究所研究部では低温化学照射装置 (Low Temperature Fissiochemical Loop, LTFL)¹⁾ を核分裂片による化学反応実験装置として昭和44年から運転してきた。^{2~4)} この間、LTFLを用いてループ内線量測定⁵⁾、エチレン線量計による核分裂片線量測定法の開発^{6,7)}、照射後反応生成物中の核分裂片の挙動^{8,9)} エチレン窒素混合系からのシアン化水素生成反応¹⁰⁾ の実験を行った。

昭和47年度にはLTFLを用いて核分裂片線量のエチレンによる測定^{11,12)} およびアンモニアーエタン、エチレン、プロピレン系のアミン等の生成反応実験を行った。この他、大学協力研究として硝酸セルローズ膜と白雲母膜を用いた固体検出器 (Fission Track Detector) の実験と、石英、黒鉛中の固体欠陥生成状態を調べるための実験を行った。エチレン線量計以外の実験については結果のまとめ作業中である。本年度にJRR-3は第2サイクル(47年7月)後半と第3サイクルが運転された後、第4サイクルから第8サイクルまでの運転休止とその後の定期自主検査期間とで、47年8月中旬から48年1月前半まで運転されなかった。このため、LTFLの運転を47年7、8月の間に3回と48年1、2、3月に3回の計6回のみ行い、合計外カブセル数にして24ヶを照射した。第5回運転では照射直後のカブセルを落下機構の中间位置に引掛けたこと、および別のカブセル取扱い中にコンテナ中の同一収納位置に二重にカブセルを落し込んだことの2回の誤判断、誤操作があった。最後の第6回運転は低温照射運転として行って、正常に終了した。

本年度は前年度から試作、試験を行ってきた4B型の外カブセルと、4B型内カブセルについて安全審査を受け、第2回運転での試用後、第4回以降使用した。これは外カブセル1ヶの中に内カブセル3ヶを入れて、同時に照射を可能にするためのもので、このため本年度は46年度の55ヶの実績の半分にしか達しない、外カブセル24ヶの照射を行ったのみであるが、内カブセル数では49ヶを照射でき、前年に近い実質的成果があった。本年度に予定していた照射試料のうち、窒素-エチレン混合系の補充データ試料の一部については、JRR-4で代替できる部分を照射したが、これは、LTFL以外の実験であるので本報では報告しない。このほかアンモニア系照射試料の安全審査も受けた。

2. 安全審査

昭和47年夏には、設計変更したカプセル（4型カプセルと称する）の安全性について6月に、アンモニアとエチレン、エタンの混合系の照射試料としての安全性について8月にそれぞれ東海研究所原子炉運転委員会の安全審査を受けた。

4型カプセルはこれまで使用してきた3型カプセルと比較して、1ヶの外カプセル当り1ヶ（3型カプセル）ではなく、3ヶの内カプセルが同時に照射できるものであり、このため、照射条件同一での照射が可能となったための照射精度向上、最大核燃使用量の1/3を1カプセルに納めることにしたための万一の漏洩破損に際しての放射能汚染の可能性の減少、除熱性向上による照射時の温度上昇低下、部品数減少による組立時のトラブル減少、その他、全体的に照射試料当りの経費、労力の節減等の利点が生じた。不利な点としては、重量が増加したための気密時の安全率の低下があるが、この点、増加分はカプセル全重量に比較して小さく、安全率には充分な余裕があるため、問題にならないと考えられる。尚、その後、外カプセルを3型と同一のものを用いた4B型のほか外カプセル気密端子部をコンプレッション型ガラス絶縁体を用いた耐圧性の気密端子に変更した4C型カプセルも用いられるようになった。

アンモニア系試料は、47年夏の照射試料として、前年度から継続しているエチレン線量計と窒素+エチレン系照射試料と共に重点的に照射する計画であった。ただ原子炉運転時期のズレが生じたので実際にアンモニア系試料は48年1月以降に照射され、分析結果は48年度になってから出て来ている。照射準備はアンモニア+エタン系については47年度早々から計画していたので、47年夏にはこれと、これまでガンマ線照射の研究が進んでいるアンモニア+エチレンなどの系^{13,14)}のうち中心となるエチレンの系について安全審査を受けることとした。尚、エチレンの系は当時の計画では47年度末に照射開始を見込んでいたが、48年夏現在、48年後半に炭酸ガス系と共に照射予定を立てている。

以下に安全審査のための資料をもとに説明する。

2A. L T F L 4型カプセル

2A. 1 4型カプセル設計の目的

L T F Lでこれまで使用してきたカプセル（3型カプセル）は、爆発、漏洩に対する安全性を考えて、二重カプセル構造とし、化学反応物質と核燃料を入れた内容積約50mlの内カプセル1ヶを、内容積400mlの外カプセル内に入れ、その間にアルミニウム合金製のフィンを入れ、内カプセルのガンマ発熱を除くようにしてある。この内カプセルには熱電対、歪ゲージが、外カプセルには歪ゲージがそれぞれつけられて、試料の圧力、温度が照射中も測定可能になるよう設計されて、異常状態の早期発見による安全確保を図ってある。

このように安全性を第一に考えて設計されたカプセルであるので、昭和47年2月迄に試験的に製作、性能試験を行うために製作された約10ヶのカプセルを除き、合計71ヶ（JRR-3出力7MWにて31ヶ、内²³⁵U 0.755mg入りカプセル4ヶ、1.258mg入りカプセル19ヶ、炉出力10MWにて40ヶ、内²³⁵U 1.258mg入りカプセル23ヶ）のカプセルを

10分から5時間常温から-190°C付近までの温度で実際にLTFで照射して、カプセル照射に関するトラブルは生じなかった。

しかし、照射毎に生じる多少の照射位置、照射温度および原子炉Fluxの変動は現在の3型カプセルでは避け難い。これは、複数の試料を1回で同時照射することにより、更に実験条件をよく制御できると考えられ、このため、1ヶの外カプセル中に3ヶの内カプセルを納める4型カプセルを設計した。4型カプセルは3型カプセルと比較して、以上の実験条件の改善のほかに、試料カプセル内の発熱が、3型カプセルでは大きな伝熱抵抗となる空気隙部（押着部）が2ヶ所（内カプセル—アルミフィン間とアルミフィン—外カプセル間）あるのに対し、4型カプセルでは1ヶ所（内カプセル—外カプセル間）しかないので、よく除熱される点、間接的には、照射能率の向上、放射能安全性（取扱い重量が試料あたりで半分以下になる）の向上、カプセル粗立て、調整、照射後の操作の簡略化の点などが優れている。4型カプセルの設計、除熱試験の結果について述べ、このカプセルが使用上問題のないことを説明する。

2 A. 2 4型カプセルの構造

4型カプセルでは外カプセルについて、4A型、4B型、4C型の3種類の変型を作った。このうち、4A型は市販のハーメチックシール（新日本電気製S-50-4型、ガラス・コンプレッション型絶縁体（ハトメ、径5mm）、耐圧部鉄、表面スズメッキ、外径32mm、8端子）をそのまま3型カプセルの気密端子板の代りに用いたものである。試作品は50気圧の油圧試験に耐え、使用可能と判定されたが、ガラス製ハトメが熔接部と近く、表面に微細な割れ目が生じた。従って、材料的に入手しやすく、耐圧および電気的に一応問題がないが工作上の改良の余地があるということで、照射には予備的なデザインとしたことにした。本格使用を考える場合は、今回の試作品（3ヶ）よりもかなり多數の試験体を製作、試験してみる必要があるかと思われる。

4B型カプセルは、これまでの3型カプセルと外カプセルは同一のものである。4C型カプセルは、4A型カプセルを改良し、特製のハーメチックシールを用いたものである。

以上の3種類の変型を通じて、内カプセルは3型カプセルの内カプセルとほとんど同じでノズル部と破裂板に僅かな変更を行ったほかは、外径を3型内カプセルの25mmから24.5mmに変更した点のみが異った4B型内カプセルである。また全く異なるのは内カプセル3ヶを外カプセル1ヶの内に組み込む点で、このため、3型カプセルでは、1ヶの内カプセルをアルミニウム耐食合金製の除熱フィンとその支持リングで中央に固定したのに対し、4型カプセルでは、フィンは不要となり、前後にアルミニウム製テーパー付きの三角柱型くさびを打ち込んで三本の内カプセルを固定する。以下に代表として4B型外カプセルと4B型内カプセルの組み合わせについて検討した結果を述べる。

4型カプセルの外カプセルは、3型カプセルと外型が等しいためカプセルの取付け、照射後の取外し、コンテナー内、その他、カプセル開封等の装置は、これまでのものを全く変更しないで使用できる。しかし、また、外カプセルの気密端子板（またはハーメチックシール）が8端子であるものを用いるため、3ヶの内カプセル全部の温度測定、圧力測定を行うことはできない。従って4型カプセルでは「同じカプセル中で、1ヶの内カプセルのみ

に熱電対と歪ゲージを取り付けることとし、他の2ヶの内カプセルには、圧力、核燃料の両者が同じかより低いものを充填して用いる」こととした。圧力変化の最も大きい内カプセルの圧力が安全系と結ばれていれば、異常現象はまずこの計測系つきの内カプセルに現われるので、全体としての安全性は保たれる。同時に、外カプセルの歪ゲージにより、他の2ヶのカプセルから漏洩があった場合の検出が可能であり、異常な温度上昇も、内カプセル相互間の伝熱により検出が行われる。以上のように内カプセル3ヶ中1ヶのみに歪ゲージ、熱電対がついているとしても安全性は充分と思われるが、更に核燃料の量は、設計最大量 $3.6 \text{ mg}^{235}\text{U}$ の $1/3$ の 1.2 mg に抑えられることとすれば、核分裂発熱量の1外カプセル当りの直はこれまでと同じかそれ以下になるので、内カプセルが3ヶ同時に破裂するという考え難い事故の場合も、核分裂生成物放出量は変わらず、従って、これまでのLTFL本体の事故対策上の条件を変更する必要がない。従来型の3型と4C型カプセルの断面構造と、4A、4B型でのカプセル後半部（炉心から遠い側）の構造を図1、2に示す。

2 A . 3 耐圧計算

(1) 脈板（内カプセル）

圧力容器構造規格第32条二項により、外径600mm以下の脈の耐圧（最高使用圧力）Pを求める。

$$P = \frac{200\sigma \times \eta (t - \alpha)}{D_0 - 2K(t - \alpha)} \quad [\text{kg/cm}^2]$$

ここで σ 材料の引張強さ、 52 kg/mm^2

\times 引張強さに対する許容引張応力の割合、 0.25

η 長手縫手効率、溶接引抜き管故、 1.0

t 脈板最小厚さ、 1 mm

D_0 脈外径、 24.5 mm

K 定数、 480°C 以下の蒸気におけるオーステナイト鋼で 0.4

α 腐れじろ、ステンレス鋼で 0

であるから、

$$P = \frac{(200)(52)(0.25)(1.0)(1-0)}{(24.5)-(2)(0.4)(1-0)} = 110 \quad [\text{kg/cm}^2]$$

(2) ノズル部と脈板の周縫手強度（内カプセル）

$$P = \sigma \times \eta \frac{(D+2t)^2 - D^2}{D^2} \quad (\because P = \frac{\pi}{4} D^2 = \sigma \times \eta \frac{\pi}{4} ((D+2t)^2 - D^2))$$

ここで D ノズル部縫手内径 22.5 mm

t ノズル部縫手厚さ 1 mm

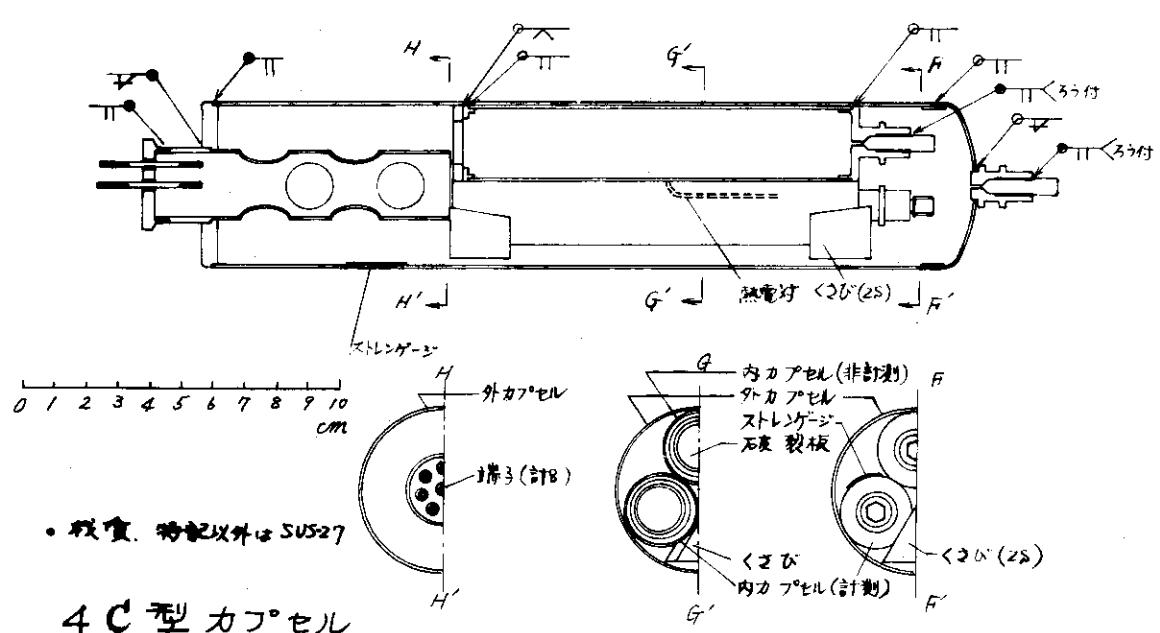
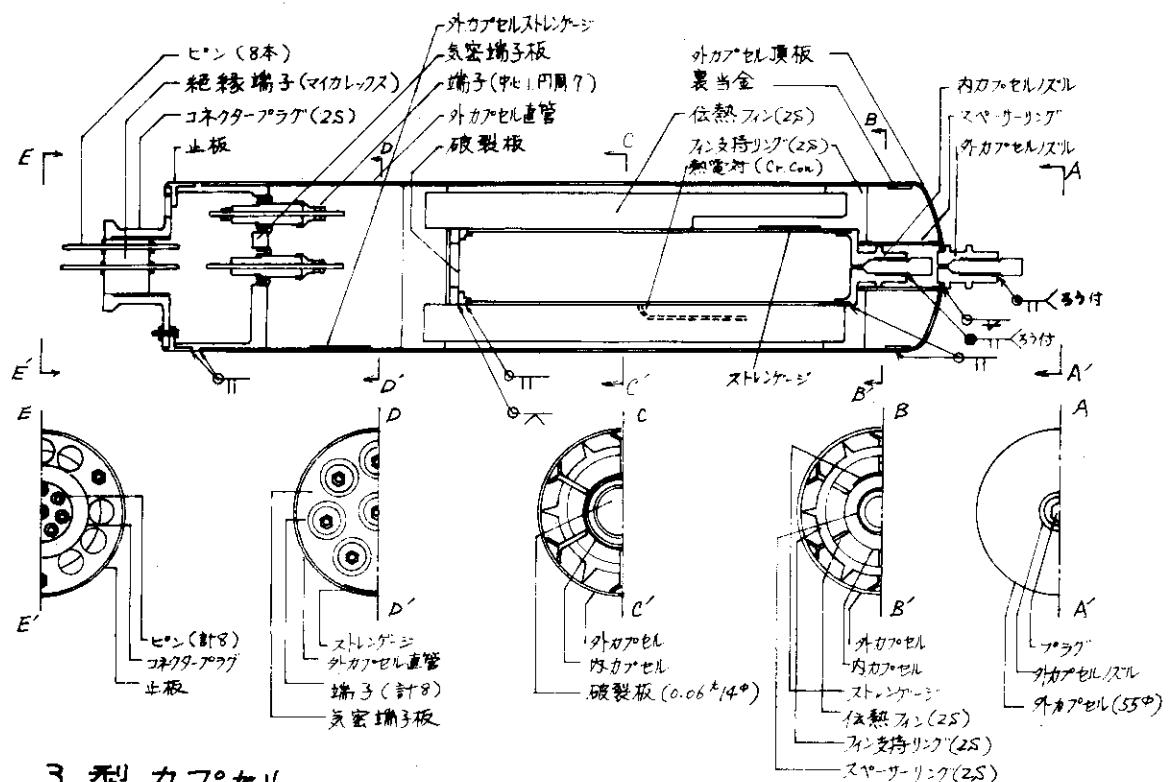


図1. 3型と4C型カプセルの断面構造

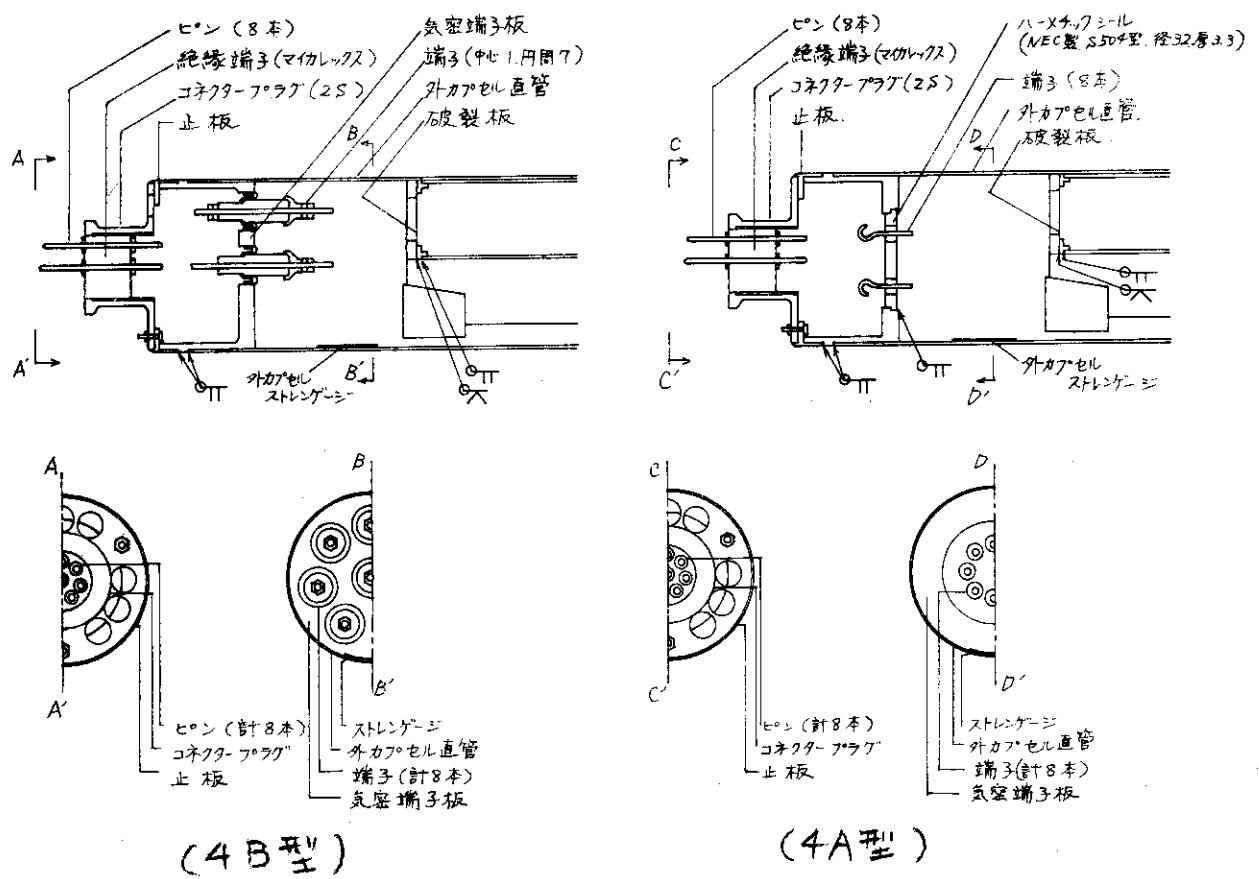


図 2. 4 A 型, 4 B 型 カプセル後部構造

7 T 1 G溶接継手効率(裏当金を使用した突合せ片側溶接で;応力除去無し,
A種鋼材, 放射線検査無しとして圧力容器構造規格第105条により)
0.68
x 引張強さに対する許容引張応力の割合 0.25
σ 材料の引張強さ 52 Kg/mm²

であるから

$$P = (52)(0.25)(0.68) \frac{(22.5 + (2)(1))^2 - (22.5)^2}{(22.5)^2} = 1.64 (\text{Kg/mm}^2)$$

従って, 4型カプセルの内カプセルの耐圧は 5.0 Kg/cm² 以上である。

ラブチュアプレート(破裂板)部の構造は3型カプセルの場合と同様であり, 50気圧(実測により 50 ± 10 気圧)で破れ, 内カプセル圧力を外カプセルの内側に放出し, 反応の急激な進行をとめることができる。

外カプセルの構造は3型カプセルと同一である。30気圧に耐えるように耐圧計算を行った結果は胴板所要肉厚 0.62 mm [実際の厚さ 1 mm], 鏡板所要肉厚 0.98 mm [実際の厚さ 1 mm], 耐圧気密端子板と胴板の周継手の耐圧 92 Kg/cm² (> 30 Kg/cm²) であった。¹⁵⁾

2 A . 4 温度特性

(1) 発熱量

LTF照射プラグ中で, カプセルが最も炉心に近い位置で照射されるとき, 炉内放射線束は最大, 次の値を越えない。

熱中性子束 ϕ_{th} $7.2 \times 10^{11} \text{n/cm}^2 \text{ sec.}$

高連中性子束 ϕ_f $2 \text{ MeV } 2.1 \times 10^{11} \text{ n/cm}^2 \text{ sec.}$

ガンマ線束 ϕ_γ $2 \text{ MeV } 3.7 \times 10^{11} \text{ r/cm}^2 \text{ sec.}$

$5 \text{ MeV } 2.0 \times 10^{11} \text{ r/cm}^2 \text{ sec.}$

$8 \text{ MeV } 1.0 \times 10^{11} \text{ r/cm}^2 \text{ sec.}$

熱中性子による核燃料の発熱 H_{Fn} , 高連中性子とガンマ線によるカプセル材料(SUS27と2Sアルミ)の発熱 H_{Fn} , H_γ をそれぞれ(1)~(3)式により求める。

$$H_{Fn} = KN_F \sigma_F E_F \phi_{th} \quad [\text{watt/capsule}] \quad \dots \dots \dots \quad (1)$$

$$H_{Fn} = K \frac{2A}{(A+1)^2} \sum_s \bar{E}_F \phi_f \quad [\text{watt/cm}^3] \quad \dots \dots \dots \quad (2)$$

$$H_\gamma = K \mu_a E \phi_\gamma \quad [\text{watt/cm}^3] \quad \dots \dots \dots \quad (3)$$

アルミニウムの場合 $^{27}\text{Al}(n, \gamma)^{28}\text{Al}$, $\gamma = 7.5 \text{ MeV}$, $^{28}\text{Al} \rightarrow \beta(\text{av. } 1 \text{ MeV})$, γ (1.8 MeV) の反応のうち β 線の吸収を考える。この熱中性子に起因する発熱, H_{th} は(4)式により求められる。

$$H_{th} = KN_A \sigma_{act} \bar{E} \phi_{th} f \quad [\text{watt/cm}^3] \quad (4)$$

以上の式で

K 換算係数 1.6×10^{-13} watt sec/MeV

N_F ^{235}U 原子数, $12\text{mg}^{235}\text{U}$ で $3.07 \times 10^{19}/\text{capsule}$

N_A Al 原子数, $6.02 \times 10^{22}/\text{cm}^3$

σ_F ^{235}U 核分裂断面積 $580 \times 10^{-24} \text{cm}^2$

E_F 核分裂エネルギー 200MeV

A 原子量, 散乱断面積を加重平均して SUS

$27 = 56$, $2\text{S Al} = 27.5$

$\bar{\Sigma}_s$ 平均巨視的散乱断面積, $SUS 27 = 0.086$,

$2\text{S Al} = 0.86 (\text{cm}^{-1})$

\bar{E}_F 平均高速中性子エネルギー, 2MeV

μ_a エネルギー吸収係数 (cm^{-1})	SUS 27	2 S Al
2 MeV	0.1955	0.0635
5 MeV	0.1835	0.0525
8 MeV	0.1855	0.0505

E ガンマ線エネルギー, $2, 5, 8\text{MeV}$ とする。

σ_{act} $^{27}\text{Al}(n,\gamma)^{28}\text{Al}$ の放射化断面積

\bar{E} ^{28}Al からの β 線平均エネルギー, 1MeV

f 3型カプセルで, Y型の断面をした除熱フィン中で放出された β 線のエネルギーのうち, フィン内で吸収される場合。Al 中の 1MeV 電子の飛程は 1.5mm , フィン肉厚は $1 \sim 2\text{mm}$ であるので $f = 0.5$ とする。

である。以上により, 各発熱項を計算した結果を表 1 に示す。

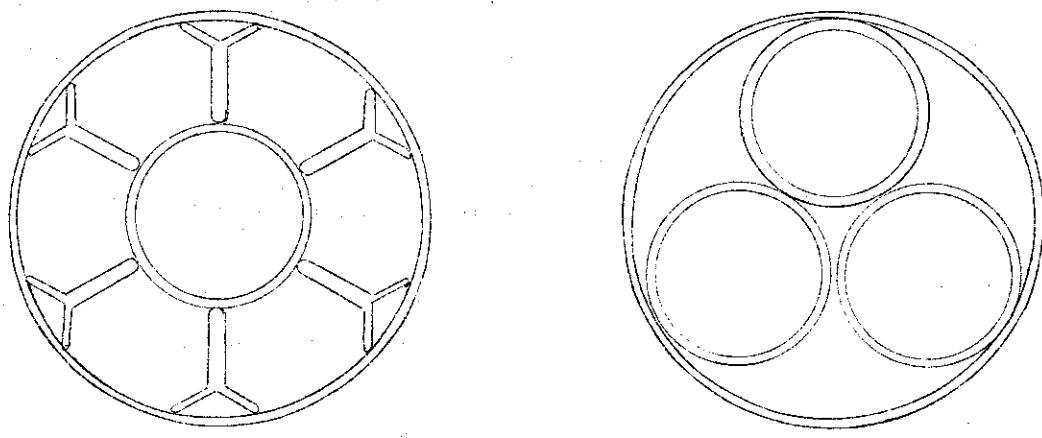
第1表 発熱量

発熱物質	$12\text{mg}^{235}\text{U}$	SUS 27	2 S Al
H_{FF}	0.411	—	—
H_{fn}	—	0.00020	0.00004
H_γ	—	0.0763	0.00073
H_{th}	—	—	0.0238
計	$0.411 \frac{\text{watt}}{\text{capsule}}$	0.0767watt/cm^3	0.0245watt/cm^3

(2) 伝熱計算

(a) 発熱

カプセル中央部について, 伝熱計算を行い。カプセル断面図を図 3 に示す。



3型カプセル

4型カプセル

図3 カプセル中央部断面

内カプセル直管部は全長 141 mm であるが、核分裂片線源の核燃料は、中心部に、長さ 100 mm でセットする。このとき、内カプセル中央部のカプセル長手方向の長さ 1 cm 当りの発熱は、表 1 の結果を用いて、表 2 のようになる。

表2 単位長さ当たりおよび全発熱量

	3型カプセル	4型カプセル
核燃料発熱(カプセル当り)	1.23 / カプセル	0.411 / カプセル
長手単位長さ当り	0.123 watt/cm	0.0411 watt/cm
アルミフィン単位長さ当り体積	1.92 cm ³ /6フィン, cm	
長手単位長さ当り発熱	0.0470 watt/cm	
内カプセル単位長さ当り体積	0.754 cm ³	0.738 cm ³ /カプセル
長手単位長さ当り発熱	0.0578 watt/cm	0.0566 watt/cm
核燃料, 全発熱	1.23 watt	0.411 watt/カプセル 1.23 watt/3カプセル
アルミ材 * 1	全体積 全発熱	39.7 cm ³ 0.973 watt
SUS材	全体積 全発熱	14.0 cm ³ 1.07 watt
全発熱 * 2	3.27 watt	4.41 watt
外カプセル発熱軸方向 cm 当り	0.130 watt/cm	0.130 watt/cm

* 1 フィン 6 ケ + 支持リング 2 ケ + ピン 4 ケ = 107.2 g

* 2 外カプセルの内側にあるものの全発熱

(b) 内カブセル

内カブセル長手方向には伝熱がないとし、また核燃料の発熱は内カブセル全体に均一に伝えられると仮定する。図4の如く、極座標を定め、円筒の厚さを無視し、 $\theta = 0$ を放熱位置から最も遠い位置にとれば、定常状態の伝熱は次の(5)式によって与えられる。

$$(Q_1 + Q_2)r d\theta = \lambda \left\{ \left(-\frac{dT}{r d\theta} \right)_{\theta+d\theta} - \left(-\frac{dT}{r d\theta} \right)_{\theta} \right\} \quad \dots \dots \quad (5)$$

但し、 Q_1 ：カブセル内容物の発熱がカブセル内表面上に均一に伝えられるとき、カブセル軸方向単位長さ、および円周上の単位長さ当りの伝熱量
[watt/cm 円周, cm 軸]

Q_2 ：カブセル自体の発熱。カブセル軸方向単位長さ、円周上単位長さ当りの発熱量 [watt/cm 円周, cm 軸]

r ：カブセル半径。カブセル肉厚の中心でとる。

= 1.225 [cm, 3型カブセル], 1.175 [cm, 4型カブセル]。

λ ：熱伝導率。18-8 鋼 0°C (文献値¹⁶) で 13 [Kcal/m hr °C]
= 0.151 [watt/cm °C]

T ：温度 [°C]

である。

$$Q_1 + Q_2 = Q \quad \dots \dots \quad (6)$$

と直き、(5)式を整理して

$$\frac{-Q r^2}{\lambda} = \frac{d^2 T}{d\theta^2} \quad \dots \dots \quad (7)$$

$$\therefore -\frac{dT}{d\theta} = \left(\frac{Q r^2}{\lambda} \right) \theta + A \quad \dots \dots \quad (7)$$

$$\therefore T = \left(\frac{\theta r^2}{2\lambda} \right) \theta^2 + A\theta + B \quad \dots \dots \quad (8)$$

(7)式において、

$$\frac{dT}{d\theta} = 0 \quad \text{at} \quad \theta = 0$$

$$\therefore A = 0$$

また、(8)式において、 $\theta = 0$ で $T = T_0$

とし、

$$\theta = \pi/6 \text{ で } T = T_0 + \Delta T \quad (3型カブセル)$$

$$\theta = \pi \quad \text{で} \quad T = T_0 + \Delta T \quad (4型カブセル)$$

とすれば、

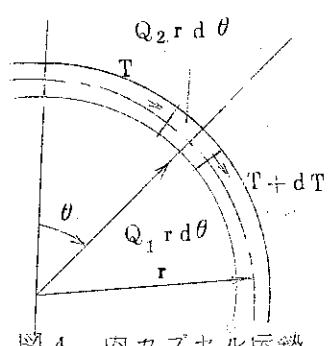


図4 内カブセル伝熱

$$\Delta T = \frac{\pi^2 Q r^2}{72\lambda} \quad (3\text{型カブセル}) \quad \dots \quad (9)$$

$$\Delta T = \frac{\pi^2 Q r^2}{2\lambda} \quad (4\text{型カブセル}) \quad \dots \quad (10)$$

という結果を得る。表2の値を用いて、カブセル軸方向単位長さ当りの核燃発熱と内カブセル発熱は、それぞれ

$$0.123 + 0.0578 = 0.181 \text{ watt/cm} \quad (3\text{型カブセル})$$

$$0.0411 + 0.0566 = 0.0977 \text{ watt/cm} \quad (4\text{型カブセル})$$

となるから、両カブセルの内カブセル肉厚中心径を用いて、軸方向単位長さおよび、円周方向単位長さ当りの発熱Qを求めれば、

$$Q = (0.181) / (3.14)(2.45) = 0.0235 \text{ watt/cm} \quad \text{軸方向, cm}, \text{円周方向} \\ \dots \quad 3\text{型カブセル}$$

$$Q = 0.0977 / (3.14)(2.35) = 0.0132 \quad \dots \quad 4\text{型カブセル}$$

これを(9), (10)式に入れ

$$\Delta T = \frac{(3.14)^2 (0.0235) (1.225)^2}{(72)(0.151)} \quad \dots$$

$$= 0.032 [\text{C}, \quad 3\text{型カブセル at } 0\text{ C}]$$

$$\Delta T = \frac{(3.14)^2 (0.0132) (1.175)^2}{(2)(0.151)} \quad \dots$$

$$= 0.595 [\text{C}, \quad 4\text{型カブセル at } 0\text{ C}]$$

(c) 内カブセル, 外カブセル間の伝熱

(c-1) 3型カブセル

3型カブセルでは〔内カブセル-アルミフィン〕間, 〔アルミフィン両端〕間, および〔アルミフィン-外カブセル〕間の伝熱計算が必要である。

(i) 内カブセル-アルミフィン間の伝熱

アルミフィンと内カブセルのそれぞれの接触点における温度を $T + \Delta T$ および T とする。SUS27の平面またはこれに近い面に充分な圧力で線接触する2Sアルミ合金の接触熱抵抗 R は, $1.5 \times 10^{-4} (\text{C m}^2 \text{ R}/\text{Kcal})$ である¹⁷⁾。よって

$$\Delta T = R Q_s \quad \dots \quad (11)$$

ここに, Q_s はアルミフィン1本当りの内カブセル接触位置からの熱流束で, アルミフィンが6本あること, 接触圧力が充分なとき, 端部の塑性変形による接触幅は, 0.02cm程度¹⁷⁾と見込まれることを入れ, 表2の発熱量を用いると, 軸方向単位長さ当りで考えて,

$$Q_s = \frac{(0.123) + (0.0578)}{(6)(0.02)(1)} = 1.51 \text{ watt/cm}^2$$

$$= (1.30)(10)^4 \text{ Kcal/m}^2\text{h}$$

よって(10式は

$$\Delta T = (1.5)(10)^{-4}(1.30)(10)^4 = 1.95 [\text{C}]$$

(b) アルミフィン両端間の伝熱

前の(2)節と同様な計算が行える。フィンの断面形状は、厚さ2mmの部分が長さ11mm、厚さ1mmの枝分れ後の部分が長さ5mmである。これを全長1.6cm、幅2mmの1本とみなして伝熱計算を行う。内カプセルとの接触部分を基点として図5のように、距離Lでの微小幅△Lの前後の熱収支からQ [Kcal/m³h] をアルミの発熱、A [m²] を断面積として

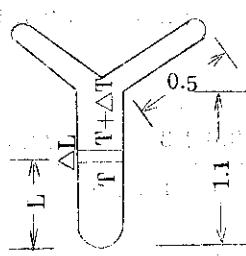


図5 アルミフィン(3型カプセル)の伝熱

$$QA = -\lambda \frac{d^2T}{dL^2} \quad \dots \dots \dots \quad (12)$$

境界条件を入れ、両端の温度差を△Tとして、

$$\Delta T = \frac{QA L^2}{2\lambda} \quad \dots \dots \dots \quad (13)$$

フィンの単位長さ当たりで考えれば

$$Q = 0.0245 \text{ watt/cm}^3 \quad [\text{第1表}]$$

$$= (2.11)(10)^4 \text{ Kcal/m}^3\text{h}$$

$$A = (0.01)(0.002) = (2)(10)^{-5} \text{ m}^2$$

$$L = (1.6)(10)^{-2} \text{ m}$$

$$\lambda = (1.8)(10)^2 \text{ Kcal/m h C}$$

よって(12式よりアルミ発熱による温度差は

$$\therefore \Delta T = \frac{(2.11)(10)^4(2)(10)^{-5}(1.6)^2(10)^{-4}}{(2)(1.8)(10)^2} = (3)(10)^{-7} \text{ C}$$

また、内カプセルの伝熱による温度差は

$$\Delta T = L Q_s / \lambda \quad \dots \dots \dots \quad (4)$$

となるから、それぞれの値を入れ、

$$\Delta T = (1.6)(10)^{-2}(1.30)(10)^4 / (1.8)(10)^2$$

$$= 1.15^\circ\text{C}$$

となる。

(4) アルミフィン-外カプセル間の伝熱

前(イ)の項と同様に扱う。ただし、山式において、 Q_s に代えて、 Q_s とアルミフィン発熱 Q_A との和を用いることになる。

$$Q_A = \frac{(0.0470)}{(6)(0.02)(1)} = 0.392 \text{ watt/cm}^2$$

$$= (0.337)(10)^4 \text{ Kcal/m}^2\text{h}$$

フィンが外カプセルに接する部分は二股になっていて接触面積が(4)の場合の2倍となることを考え

$$\Delta T = R(Q_S + Q_A)/(2) \quad \dots \dots \dots \quad (15)$$

$$= (-1.5)(10)^{-4} \{ (1.30) + (0.337) \} (10)^4 / (2)$$

$$= 1.23 \text{ } ^\circ\text{C}$$

以上により、3型カプセルでの内カプセル、外カプセル間の温度差は

$$\sum \Delta T = (1.95) + (3)(10)^{-7} + (1.15) + (1.23) = 4.33^\circ\text{C}$$

となる。

(e - 2) 4 型 カブセル

4型カプセルでは、内径 53 mm の外カプセルの内側に外径 24.5 mm の内カプセルが接することになる。この接触熱抵抗は、測定値がないので、図 6 のように、この内外カプセルの間隔 Lに対する角度 θ 、間隔 Lである幅 Mを求めて、この間に常温常圧のヘリウムがあるとして、その伝熱を評価してみる。

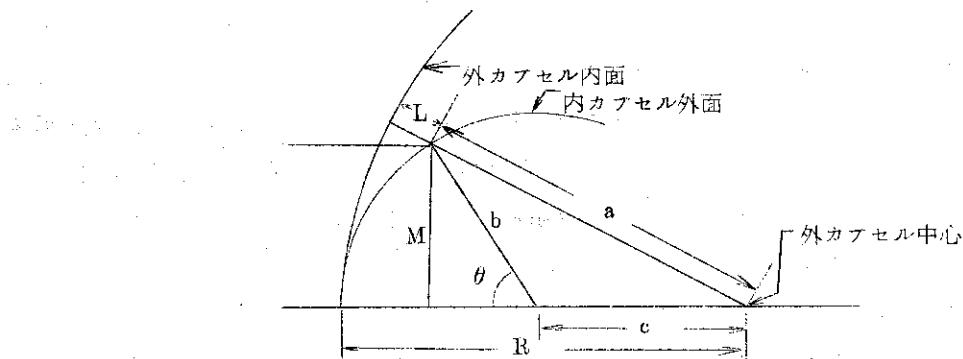


図 6 外カプセルと内カプセル間の伝熱

図 6 のように、三辺の長さが a , b , c である三角形については $a^2 = b^2 + c^2 + 2bc \cos \theta$ である。よって間隔 L は

$$L = R - \sqrt{b^2 + c^2 - 2bc \cos \theta} \quad \dots \dots \dots \quad (16)$$

$R = 26.5$, $b = 12.25$, $c = 14.25$ であることから $L = 0.05, 0.1, 0.2 \text{ mm}$ である高さ(又は幅) M を求める。結果を表 3 に示す。

表 3 伝 热 面 横

L [mm]	θ	$\sin \theta$	$2M$ [mm]	差 [mm]
0.05	7°07'	0.1230	3.014	3.014
0.1	10°00'	0.1736	4.253	1.239
0.2	14°07'	0.2439	5.976	1.723

$M = b \sin \theta$ であって、幅はこの 2 倍であるから、 $2M$ の値を示す。内カブセル 1 ケ当たり、軸方向単位長さ当たりの発熱量 $Q = (0.0411) + (0.0566) = 0.0977 \text{ watt/cm}$ ($\text{cm} = 0.0841 \text{ Kcal/h cm}$) がこの間隔を伝って除熱されるとすれば、

$$Q = A \lambda \Delta T / L \quad \dots \dots \dots \quad (17)$$

故、第 3 表の各間隔の区間の L と $2M$ を用い、またヘリウムの熱伝導率 ¹⁸⁾ $\lambda = (1.23)(10)^{-1} \text{ Kcal/m h C}$ として式に入れれば、

$$\Delta T = (Q/\lambda) (1/\Sigma (A/L))$$

$$= \frac{(0.084)(10)^2}{(1.23)(10)^{-1}} / \left\{ \frac{(0.3014)}{(0.005)} + \frac{(0.1239)}{(0.01)} + \frac{(0.1723)}{(0.02)} \right\}$$

$$= 0.84 \text{ C}$$

内外カブセル間にヘリウムの代りに空気(同じく 0°C で)があるとすると、その熱伝導率 ¹⁸⁾ $\lambda = (2.09)(10)^{-2} \text{ Kcal/m h C}$ を入れて、 $\Delta T = 4.97 \text{ C}$ 。

(d) 外カブセルからの除熱

外カブセルの外表面でも、外カブセルの内側でアルミフィン(3型カブセル)または内カブセル(4型カブセル)と接している部分が最も高温で、接していない部分との間に多少の温度勾配があることは明らかであるが、内カブセル内容物の温度には直接関係しないとみられる。そこで、外カブセル外表面からの除熱については、二重管環状部の伝熱として解析を行い、その際、表面温度は一様とする。

(d-1) 境膜伝熱係数

伝熱条件、 $D e G/\mu_t > 10000$ 以上の場合と 2100 以下の場合について、それぞれ次のような二重管環状部の強制対流伝熱での境膜伝熱係数 h [$\text{Kcal}/\text{m}^2 \text{ h } \text{C}$] を與する

実験式が与えられている。¹⁹⁾

$$\left(\frac{h}{C_p G}\right) \left(\frac{C_p \mu}{\lambda}\right)^{2/3} \left(\frac{\mu_w}{\mu}\right)^{0.14} = 0.029 \left(\frac{D_o}{D_i}\right)^{0.15} \left(\frac{D_i G}{\mu}\right)^{-0.2} \quad \dots\dots \quad (18)$$

$$\left(\frac{h_{am} D_e}{\lambda}\right) \left(\frac{\mu_w}{\mu}\right)^{0.14} = 1.86 \left(\frac{4 W C_p}{\pi \lambda \theta}\right)^{1/3} \quad \dots\dots \quad (19)$$

ここで

D_e 相当直径。 $D_e = D_o - D_i$ [m] , D_o , D_i は外管内径（即ち試料照射部内管内径, $D_o = 0.06$ [m]）, および内管外径（即ち, 外カプセル外径, $D_i = 0.055$ [m]）である。

$$\therefore D_e = 0.005 \text{ [m]}$$

G 流体質量速度 [$\text{kg}/\text{m}^2 \text{ h}$]

μ_f 境膜での流体粘度。²⁰⁾ $\mu_f = \mu$ (μ は流体粘度) としてよい。He で $\mu = 0.071$, air で $\mu = 0.064 \text{ Kg/m h}$ 。

L T F Lでの G は $400 \text{ N m}^3/\text{h}$ であるから

$$G = \frac{(4)(400)}{(22.4)(3.14)\{(0.03)^2 - (0.0275)^2\}} = (1.58)(10)^5$$

また参考として行った後述の実験での空気流量 $6.54 \text{ m}^3/\text{h}$ の場合は,

$$G = \frac{(29)(6.54)}{(22.4)(3.14)\{(0.03)^2 - (0.0275)^2\}} = (1.88)(10)^4$$

となる。それぞれの場合の Reynolds 数 ($D_e G / \mu$) を求めれば,

$$Re = \frac{(0.005)(1.58)(10)^5}{(0.071)} = (1.1)(10)^4 > 10000$$

..... [$400 \text{ m}^3/\text{h}$, He, 0°C の場合]

$$Re = \frac{(0.005)(1.88)(10)^4}{(0.064)} = (1.5)(10)^3 < 2100$$

..... [$6.54 \text{ m}^3/\text{h}$, Air, 0°C の場合]

となる。即ち L T F L の場合は(18)式, 参考実験の空気除熱の場合は(19)式が適用される。(18), (19)式の記号の内容は,

C_p 定圧比熱 [$\text{Kcal/Kg }^\circ\text{C}$]²¹⁾, He で 1.24 , air 0.236

λ 熱伝導度 [$\text{Kcal/m h }^\circ\text{C}$]。He で 0.123 , Air で 0.0209

μ_w 伝熱面平均温度での粘度。この場合 $\mu_w = \mu$ 。

である。他はこれまで通り; この値を入れ, ヘリウムの場合(18)式より,

$$\begin{aligned}
 h &= \frac{(0.029) \left(\frac{D_o}{D_i} \right)^{0.15} \left(\frac{D_i G}{\mu} \right)^{-0.2} (C_p G)}{\left(\frac{C_p \mu}{\lambda} \right)^{2/3} \left(\frac{\mu_w}{\mu} \right)^{0.14}} \\
 &= \frac{(0.029) \left(\frac{0.06}{0.055} \right)^{0.15} \left(\frac{(0.055)(1.58)(10)^5}{0.071} \right)^{-0.2} (1.24)(1.58)(10)^5}{\left(\frac{(1.24)(0.071)}{0.123} \right)^{2/3} \left(\frac{1}{1} \right)^{0.14}} \\
 &= (0.029)(1.09)^{0.15} \left\{ (1.22)(10)^5 \right\}^{-0.2} (1.96)(10)^5 / (0.716)^{2/3} \\
 &= \frac{(0.029)(1.013)(1.96)(10)^5}{(1.04)(10)(0.800)} = (6.92)(10)^2 \text{ Kcal/m}^2 \text{ h } ^\circ\text{C}
 \end{aligned}$$

空気の場合 19式より

$$h_{am} = (1.86) \left(\frac{4WC_p}{\pi \lambda \ell} \right)^{1/3} \left(\frac{\lambda}{D_e} \right)$$

但し、流体流量 $W = (29)(6.54)/(22.4) = 8.46 \text{ [Kg/h]}$; 伝熱長さ $\ell = 0.30 \text{ [m]}$, $h_{am} = h$ とする。

$$\begin{aligned}
 \therefore h &= (1.86) \left(\frac{(4)(8.46)(0.236)}{(3.14)(0.0209)(0.30)} \right)^{1/3} \frac{(0.0209)}{(0.005)} \\
 &= (7.77)(4.05)^{1/3} = (7.77)(7.40) \\
 &= 57.5 \text{ Kcal/m}^2 \text{ h } ^\circ\text{C}
 \end{aligned}$$

(d - 2) 外カブセルと冷却気流の温度差

次の基本式に従って温度差 ΔT ($= (\Delta T)_{\ell, m}$ とみなす) [$^\circ\text{C}$] を求めよ。

$$q = u A (\Delta T)_{\ell, m} \quad \dots \dots \dots \quad (20)$$

ここで

q : 伝熱量 [Kcal/h]。

u : 総括伝熱係数 $= h$ [Kcal/m² h $^\circ\text{C}$]

A : 伝熱面積。カブセル軸方向単位長さ当たりでとれば $A = (3.14)(0.055)(0.01) = (1.73)(10)^{-3} \text{ [m}^2]$]。

である。 q は、カブセル軸方向単位長さ当たりでとつて、核燃発熱内カブセル発熱(アルミフィン発熱)と外カブセル発熱の和を求めればよい。表2の値を用いて、3型カブセルの場合、

$$\begin{aligned}
 q &= (0.123) + (0.0578) + (0.0470) + (0.130) \\
 &= 0.358 \text{ watt/cm}
 \end{aligned}$$

$$= 0.308 \cdot \text{Kcal/h}$$

よって(20)式より

$$\Delta T = \frac{q}{hA} \dots \dots \dots \quad (21)$$

$$= \frac{(0.308)}{(-6.92)(10)^2 (1.73)(10)^{-3}} = 0.26 [^\circ\text{C}] \quad (\text{ヘリウムの場合})$$

同様に

$$\Delta T = \frac{(-0.308)}{(57.5)(1.73)(10)^{-3}} \\ = -31.0 [^{\circ}\text{C}] \quad (\text{空気の場合})$$

4型カブセルの場合

$$\begin{aligned}
 q &= (3)(0.0411) + (3)(0.0566) + (0.130) \\
 &= 0.423 \text{ watt/cm} \\
 &\equiv 0.364 \text{ Kcal/h}
 \end{aligned}$$

よって単式から、ヘリウム、空気の場合それぞれ

$$\therefore \Delta T = \frac{(0.364)}{(6.92)(10)^2(1.73)(10)^{-3}} = 0.304 \text{ } (\text{C})$$

$$\Delta T = \frac{(0.364)}{(575)(173)(10)^{-3}} = 3.66 \text{ } ^\circ\text{C}$$

となる。

(e) 伝熱計算のまとめ

以上の結果を表4にまとめた。

(3) 実験結果

前の(2)節の計算の妥当性を検証するため、図7に示すように、空気流中にカブセルを置いたときの各部の温度の測定を試みた。内カブセル中央部とそれに接する外カブセルの図8に示した位置の各点に径1mmの穴をあけ、アルメル-クロメル熱電対を銀ロウ付けし、接触面を平滑に磨いた。このカブセルを内径6.0mm(LTF-Lプラグ内径)に巻いた全長約2mの紙筒中に置き、空気入口からカブセル先端までの距離は、1.5mとした。これにより、 $\ell/D \sim 2.5$ となるから、空気流の層流域での助走区間として小さすぎることはない。空気流は流量4.82~12.16m³/hの範囲で流し、内カブセル内部に置いた電熱線の発熱量を一定に保った後、全温度が記録計(0~2mV)上で一定となるまで、30~50分間待ってから、温度の読みをとった。電流(0~0.15A)と電圧(0~30V)を0.5級の交流電流電圧計で、それぞれ読み取り、発熱量を、可変抵抗器とスライダックで調節した。測定結果は表5にまとめて示す。この表で、測温区間C-D(即ち、外カブセルの内カブセルからの伝熱点と外側空気流の温度

表4 カプセル温度分布計算値まとめ(0°C)

区間	記号	温度差 [°C]			
		3型カプセル	4型カプセル		
内カプセル高, 低温端間	ΔT_1	0.03 0.03		0.60 0.60	
内カプセル低温端～ アルミフィン間	ΔT_2	1.95 1.95		— —	
アルミフィン高, 低温端間	ΔT_3	1.15 1.15		— —	
アルミフィン低温端～ 外カプセル間	ΔT_4	1.23 1.23		— —	
内カプセル低温端～ 外カプセル間	ΔT_5	— —		0.84 4.97	
外カプセル～冷却気流間	ΔT_6	0.26 (He) 3.10 (Air)		0.30 (He) 3.66 (Air)	
総計		4.62 7.46		1.74 9.23	

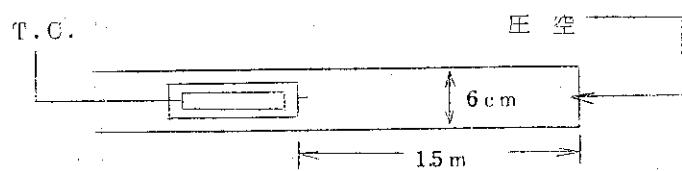
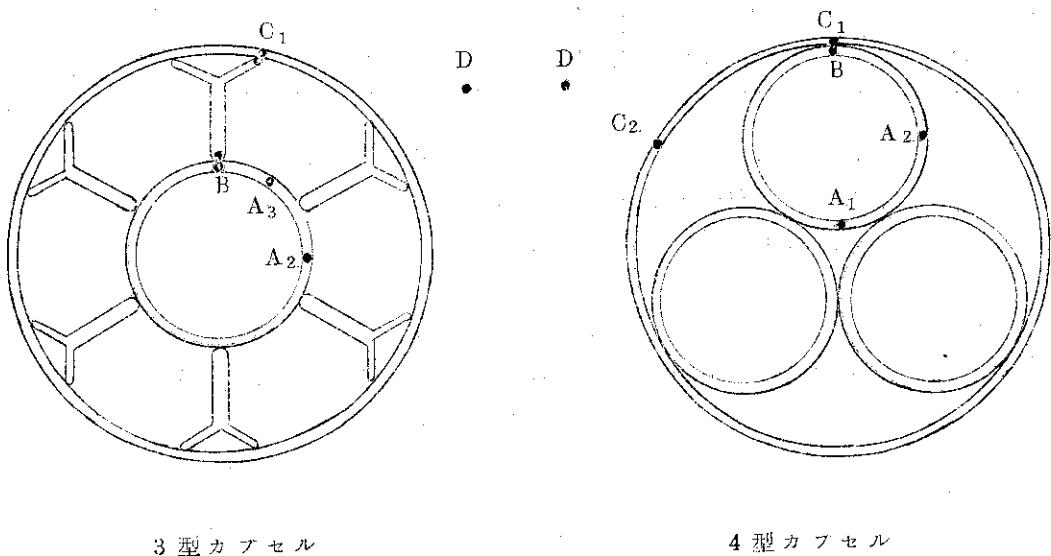


図7 空気流によるカプセル除熱実験



3型カプセル

4型カプセル

図8 測温点

表5 空気流による伝熱実験と計算の比較^{*1}

測温区間	加熱量(W)	温 度 差 (°C)			
		記号 ^{*2}	実測	計算	換算 ^{*3}
(3型カブセル)					
A ₂ -B	2.29	△T ₁	0.9	0.03	—
B-C ₁	3.27	△T _{2~4}	14.3	3.3	—
C ₁ -D	8.42	△T ₆	8.0	3.1	0.7
(4型カブセル)					
A ₁ -B	3×1.47	△T ₁	7.7	0.6	—
B-C ₁	3×1.47	△T ₅	4.1	5.0	0.7
C ₁ -D	3×3.19	△T ₆	15.1	3.7	1.2

*1 実測値は、△T₁、△T_{2~4}、△T₅について、空気流量を表6に示す範囲で変えたときの値（空気流量で原理的に変わらない値）8点の平均値。計算値は表4に示した値である。

*2 記号は表4と同じ。対応をつけるために示した。

*3 伝熱媒体が気体の区間について、表4に示した計算によるHeと空気の場合の温度差の比で、実測を換算した。即ち△T₅では熱伝導率の比、△T₆ではこれと共に流量、密度等の差も込みになつてゐる。

表6 空気流速による△T₆の変化

空気流量 (m ³ /h)	3型カブセル での△T ₆ (°C) ^{*1}	4型カブセル での△T ₆ (°C) ^{*2}
12.2	4.7	10.3
8.94	5.8	12.4
6.54	8.0 (3.10) ^{*3}	15.1 (3.66) ^{*3}
4.82	10.0	18.3

*1 加熱量 8.42 W

*2 加熱量 3.19W/内カブセル、全加熱量 $3 \times 3.19 = 9.56$ W

*3 表5の計算値

差)については表6に示すような空気流量4点中計算を行った点のデータのみをとり入れた。

表5の実測と計算との比較をみて、3型カブセルでは ΔT_{2-4} と ΔT_6 、4型カブセルでは、 ΔT_1 と ΔT_6 が大きな差が生じている。実験条件の面で、計算の前提からのズレを生じる原因を考えると、(1) 内カブセル(内部有効長122mm)の中央部に径12mm、長さ50mmのボビンをセットし、その中央部23mmにニクロムヒーター線をセットしたので、SUS27の熱伝導性の悪さから軸方向の伝熱が充分でなく、中央部が集中的に加熱される条件にあったこと、(2)このヒーター(100W半田コテ用ヒーター)のセットをするためSUS27製のわくに銅線で固定したが、このため中央部に加熱が集中しただけでなく、円周方向にも伝熱が不均一になったこと、および(3)照射プラグを模擬した紙筒中におかれたカブセルが、実際の場合は金属間の伝熱による除熱もあると考えられるが、大まかに言って外カブセルの下部の除熱効果が少なく、測定を行った点(C_1 、最上部になるようにセットした)の付近でのみ除熱が行われたこと、などが考えられる。

原因(1)は全温度差に影響するが、特に ΔT_{2-4} , ΔT_5 に、(2)は特に ΔT_1 に、(3)は ΔT_6 に影響が大きいと考えられる。4型カブセルの ΔT_1 の実測、計算の差はそれでも大き過ぎるかもしれない。しかし、 ΔT_1 は前記原因(1), (2)がなければかなり小さくなることは確かである。

換算値を用いて、内カブセル中の高温点(A_2 または A_1)とLTF_Lヘリウム流との温度差を推定すると、

$$(3\text{型カブセル}): 0.9 + 14.3 + 0.7 = 15.9^\circ\text{C}$$

$$(4\text{型カブセル}): 7.7 + 0.7 + 1.2 = 9.6^\circ\text{C}$$

となる。尚 ^{235}U 約1.3mgを入れた3型カブセルを $2.5 \times 10^{11} \text{ n/cm}^2 \text{ sec}$ (炉出力10MW)で照射したときの内カブセル壁温(中心部)とヘリウム温度との差は実測で2°C以内である。

以上から考えて、4型カブセルは除熱性能の点で3型カブセルと比べて劣ることはなく、安全性は充分であり、炉出力10MWのとき、内カブセル壁温とヘリウム冷却流との温度差も通常の条件で2°C以下になると見込まれる。

2 A . 5 気送力

4型カブセルは外形は3型カブセルと同じであるから、気送力については、同じ計算が成立するはずである。3型カブセルについての計算結果²²⁾は既に得られており、実際にも常温から最低温度(-190°~-192°C)で気送り問題を生じたことはない。

3型と4型カブセルの総重量と、摩擦係数0.3としたとき生じる摩擦力と、気送力に対する比率をあわせて表7に示す。

表で明らかのように、常温一定流量でヘリウム圧送機を運転しているLTF_Lでは、照射プラグ内ヘリウム線速度が最低となる最低運転(照射)温度-196°C付近で気送力は最低となるが、この条件でも安全率(=(気送力)/(所要気送力)×100)-100(%)は、3型、4型カブセルそれぞれ、18.6%, 16.3%あり、常温では、100.0%以上になる。このように気送力は充分余裕をもっていて、運転上のトラブルとはならないと考えられる。

なお、この摩擦係数(0.3)の値は、実際に、SUS27板同志の静止角を種々の条件で測定して求められた。この値は、条件により0.20~0.35(これ以上はない)となり、0.3とい

表7 気送力とカブセル摩擦抵抗

	3型カブセル	4型カブセル
カブセル重量		
内カブセル	114 (g)	327 (g) ^{*4}
アルミ伝熱材 ^{*1}	107	-
外カブセル	5.30	5.30
コネクター重量	4.50	4.50
重量総計	119.8 (g)	130.7 (g)
所要気送力 ^{*2}	3.60	3.92 (g)
気送力比 ^{*3}	{ 2.86 1.20	{ 2.63 (-196°C) 1.10 (20°C)

* 1 伝熱フィン 6ヶ, 支持リング2ヶ, 押えピン2ヶ

* 2 重量×摩擦係数 (= 0.3)

* 3 気送力²²⁾ (1.03Kg (-196°C), 4.30Kg (20°C)) / 所要気送力

* 4 内カブセル1ヶ = 109g

う値自体は安全率は含んでないが、適当な値と考えられる。通常のグリースの摩擦面塗付あるいはSUS27板の研磨、または粗面化 (#60~#240 サンドペーパー研磨) は、以上で考慮したような静止摩擦係数に多大幅を縮める効果があるが、動摩擦係数は、0.25~0.30の程度で影響が小さい。

2 A・6 放射線漏洩

照射後カブセルの放射能は、運転員の被曝線量に影響する可能性がある。照射後カブセルの放射能に影響する因子はカブセル重量であるが、3型カブセルは100g以上の2Sアルミを用いているのに対し、4型カブセルは、アルミ材はほとんどなく、SUS27が3型カブセルより約200g多い。

45年5月にLTFの使用前検査(原子力局立合検査)が行われ、この時J-Aル合金箱で²³⁵U 3.6mgを入れた3型カブセルを5時間照射した。照射後カブセルを引き出す間のLTF周辺部の最大漏洩線量率と、このカブセルを直ちに収納したキャスク・コンテナの表面線量率²³⁾は炉室バックグラウンドを含めて、0.6mR/h以下であり安全上の問題はなかった。

4型カブセルを用いたときの放射能は上記の素材と重量の点を考えれば、アルミは照射直後から1~2時間以内のカブセル放射能に寄与するが、その重量約100gがないだけカブセル放射能は減少する。数時間以上の経過した後では、ステンレス鋼の重量が増した分だけ残留放射能は高くなる。この点は、照射直後のカブセル取出中のLTF本体周辺ではほとんど影響がない。キャスク・コンテナの場合では、ステンレス鋼重量増分だけ漏洩線量は高くなると見

られるが、これは表7を参照して $(327+530)/(111+530) = 1.34$ 即ち1.3倍の程度で、キャスクコンテナ表面線量率は、3型カプセルで最大 0.2mR/h であるから4型カプセルでも 0.3mR/h の程度しかならない見られる。

2 A - 7 4型カプセルの使用条件と安全性

以上、4型カプセルを3型カプセルと比較しつつ、耐圧、伝熱、気送、放射線漏洩の各性能を検討した結果および特に記さなかったが、SUS27素材の特性から、機械的強度の耐放射線性、耐熱性（耐低温性）についても、安全上の問題はないと結論される。

最後に4型カプセルの使用条件をまとめれば以下のようになる。

(1) 核燃料使用量

- (i) 内カプセル（試料カプセル）1ヶ当り $1.2 \text{mg}^{235}\text{U}$ 以下
- (ii) 総計1カプセル当り $3.6 \text{mg}^{235}\text{U}$ 以下。
(現在、1カプセル当り $3.6 \text{mg}^{235}\text{U}$ 以下)

(2) 試料圧力等

- (i) 内カプセル：最高20気圧（耐圧50気圧）
- (ii) 外カプセル：1気圧のヘリウム充填（耐圧30気圧）
(変更なし)

(3) 計測等

- (i) 内カプセルは全部破製板を有する。
- (ii) 外カプセル1ヶにつき1ヶの内カプセルは更に熱電対と歪ゲージを有する。この内カプセル（計測カプセルと称する）としては、1ヶの外カプセル内に納められる内カプセル中で、核燃料と試料圧力とが最も高いものを選ぶ。計測カプセルでない内カプセルの核燃量、または、試料圧力が計測カプセル中の値を越えるような内カプセルの組み合わせは作らない。
- (iii) 外カプセルは歪ゲージを有する。
- (iv) カプセル関係の計測系警報設定値は変更なし。

即ち、内カプセル圧力 $H_1 = 30 \text{Kg/cm}^2\text{G}$

同 H_2^* $= 35 \text{Kg/cm}^2\text{G}$

外カプセル圧力 $H_1 = 10 \text{Kg/cm}^2\text{G}$

同 H_2^* $= 18 \text{Kg/cm}^2\text{G}$

* 同 H_2 同時発信により、原子炉スクラム

2 B 照射試料安全審査

2 B . 1 照射試料の安全性

照射試料は以下に述べるような基準²⁴⁾により安全管理室の指定する所内審査機関（この場合、原子炉運転委員会）により審査される。

安全性の基準として、 $-196^\circ \sim +120^\circ\text{C}$ の間の爆発性、カプセル腐蝕性のないこと、誘導放射能が最大使用量 ($235\text{U}, 3.6 \text{mg}$) の核燃料の放射性を越えないこと、および温度、反応

と熱分解により試料圧力が設定値を越えないこと、などが定められている。これに従い、アンモニアとエチレン、エタン系の照射計画の安全性について述べる。

2 B . 2 L T F L 照射実験計画 (VII)

(1) 実験目的

アンモニアとエチレンの混合物をL T F Lで照射し、アミンと炭化水素生成物収率を測定する。

(2) 照射する物質と規格

アンモニア 純度、99.99%以上 (Matheson, 高千穂商事)

エチレン 純度、99.8% 以上 (高千穂化学)

ウラン-バラジウム合金箔 20w/0 U-80w/0 Pd, ^{235}U 93.3%,

密度 12.8 g/cc, 厚さ 2.1 μ , 両面 Pt (100%)

被覆厚さ 0.2 μ (片面), 全厚 2.5 μ ,

面積密度 5.03 mg $^{235}\text{U}/\text{cm}^2$, 箔 (BNL 製)

ほかに少量のコバルト、金片をモニターとして外カプセルの内側におく。

(3) 照射実験条件

イ 照射温度：常温～-190°C

ロ 圧力 : 0.5～14 気圧

ハ 核燃料 : 合金箔面積 10 cm² (5.03 mg ^{235}U) / カプセル以下

ニ 照射時間 : 最長 5 時間

ホ 反応系混合比 : 0～100%

(4) 安全性

イ 爆発性²⁵⁾

NH_3 爆発限界 1.6%～2.5%, 自己発火 651°C

C_2H_4 爆発限界 3.0%～3.4%, 自己発火 543°C

共に単独で爆発性はない。混合物も空気と混合しなければ安全である。

ロ 腐蝕性²⁶⁾

18Cr-8Ni オーステナイト鋼 (カプセル材料) の耐蝕性は、非酸化還元性の酸、中性塩、アルカリ (アンモニア、アミンを含む) 溶液や点蝕性 (例えば FeCl_3 等) でない酸化剤に対し、fair～excellent である。

ハ 放射能

反応物質の成分元素 (N, C, H) からみて、誘導放射能は無視できる。

ニ 充填圧

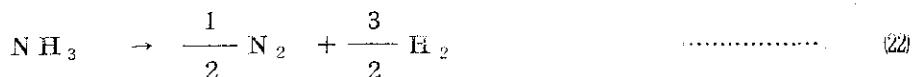
$\Delta P_1/P_0$: 300°K を基準としたときの昇温気温での変化 (最高 120°C) に対する圧力変化の最大値

$$\Delta P_1/P_0 = \frac{120 + 273}{300} - 1 = 0.33$$

$\Delta P_2/P_0$: 放射線化学反応による圧力変化

100% C_2H_4 では $G(-C_2H_4) = 30 \sim 40$ で反応式により全圧は低下する。

(A) 50% $C_2H_4 + 50\% NH_3$ では γ 線による全圧変化の実測値は初圧 1 気圧で、10 Mrad, 100 Mrad の線量に對し、0.975, 0.973 気圧となり、やはり全圧は低下する。 (B) 100% NH_3 では $G(H_2) \approx 3$, $G(N_2H_4) < 0.01$ である²⁷⁾ので全反応を必式のようと考えれば、



原料ガス 1 モルから生成するガスモル数を N , 全ガス収率を $G_{total\ gas}$ として $N = 2$, $G_{total\ gas} = G(H_2) + G(N_2) = 4$ となる。(C)

(A), (B)の場合安全側であるので(C)の場合を評価する。バックグラウンドの $n + \gamma$ 放射線の線量率が $n + \gamma = 8 \times 10^7$ rad/n, 及び核燃 $36\ mg^{235}U$ を入れた試料で、その上に 7×10^{12} n/cm² sec の熱中性子束による反応が加算された場合は、

$$\Delta P_2/P_0 = 5.0 \times 10^{-4} G_{total\ gas} (N - 1) MT \quad \dots \dots \dots \quad (23)$$

の式が成り立つ。ここで M は原系平均分子量, $T(h)$ は照射時間である。(C)の場合の値を入れ、核分裂片線量率が $n + \gamma$ の 5 倍であることと(23)式での核燃料量を計画上の最大量に換算することを行って、

$$\begin{aligned} \Delta P_2/P_0 &= \left(\frac{(1)}{(6)} + \frac{(5)}{(6)} - \frac{(5.03)}{36} \right) (5.0) (10)^{-4} (4) (2-1) (17) (5) \\ &= 0.048 \end{aligned}$$

$\Delta P_3/P_0$: 热分解平衡による圧増加

-190°C ~ +120°C の間で热分解は起きないので, $\Delta P_3/P_0 = 0$

よって最大充填圧 P_{max} (atm) は

$$\begin{aligned} P_{max} &= \frac{2.0}{1 - (\Delta P_1/P_0) + (\Delta P_2/P_0) + (\Delta P_3/P_0)} \\ &= \frac{2.0}{1 + 0.33 + 0.05 + 0} = 1.45 \text{ [atm]} \end{aligned}$$

今回の実験計画は 1.4 気圧以下であるので安全である。

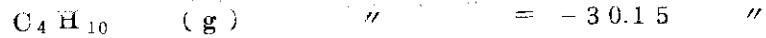
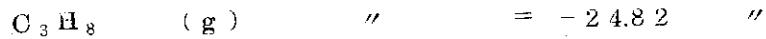
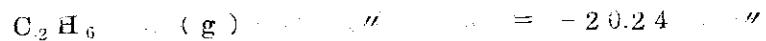
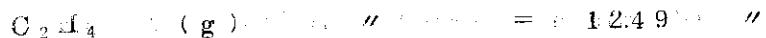
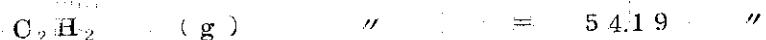
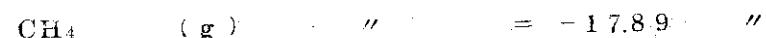
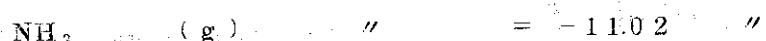
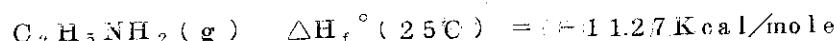
ホ G 値

実測^{27, 28)}されたこの反応系の主な G 値は線量 10 Mrad, 全圧 1 ~ 2 気圧で表 8 の値であった。これから明らかのように G 値は充分小さく安全である。

表 8 アンモニア+エチレン系からの生成物収率

反応系	G(H ₂)	G(N ₂ H ₄)	G(C ₂ H ₂)	G(n-C ₄ H ₁₀)	G(C ₂ H ₆)	G(C ₂ H ₅ NH ₂)
100%NH ₃	3.14	0.01	—	—	—	—
98%NH ₃	0.7*	<0.01	1.73	2.12	0.52	0.89
100%C ₂ H ₄	1.26	—	1.9	0.4	0.15	—

△H (29)



よって



となり (- : 発熱, + : 吸熱), 基準値 200 Kcal/mole より充分小さい。

2 B. 3 L T F L 照射実験計画 (附)

(1) 実験目的

アンモニアとエタンの混合物をL T F Lで照射し, アミンと炭化水素生成物収率を測定する。

(2) 照射する物質と規格

アンモニア 純度 99.99% 以上 (Matheson, 高千穂商事)

エタン 純度 99.7% 以上 (高千穂商事)

ウラン-バラジウム合金箔 0.503 mg²³⁵U/cm² (BNL)

コバルト, 金の少片をモニタとして入れる。

(3) 照射実験条件

イ 照射温度: 常温 ~ -190°C

ロ 圧力: 0.5 ~ 1.4 気圧

ハ 核燃料: 合金箔面積 10 cm² (5.03 mg²³⁵U)/カプセル以下

ニ 照射時間: 最長 5 時間

ホ 反応系混合比: 0 ~ 100%

(4) 安全性

イ 爆発性²⁵⁾

NH_3 爆発限界 16%~25% 自己発火 651°C

C_2H_6 爆発限界 3.3%~10.6% 自己発火 510°C

共に単独で爆発性はない。混合物も空気と混合しなければ安全である。

ロ 腐蝕性

カプセル材料は反応原料により腐蝕されない。

ハ 放射能

成分元素 (N, C, H) からみて、誘導放射能は無視できる。

ニ 充填圧

$\Delta P_1/P_0$: 温度変化による項、計画 (VII) と同様にして、0.33。

$\Delta P_2/P_0$: 反応による圧変化の項

50% $\text{C}_2\text{H}_6 + 50\% \text{NH}_3$ の場合、10Mrad, 100Mrad の線量で、初圧 1気圧のとき、照射後の全圧は、それぞれ 0.992, 0.992 気圧であった。³⁰⁾ 10Mrad 以上も照射したときの全反応はかなり複雑になるとと思われるが、全圧が減少するので安全側である。100% C_2H_6 については全圧変化のデータがないが、主生成物 $n-\text{C}_4\text{H}_{10}$, C_3H_8 , CH_4 の G 値は 50% のときの値約 1, 0.2, 0.2 に対し、約 1, 0.5, 0.5 であり、大差ないとと思われる。結局、安全性的点では、100% NH_3 の場合を検討すればよく、前の計画 (VII) と同様となる。その結果

$$\Delta P_2/P_0 = 0.048$$

$\Delta P_3/P_0$: 分解による圧変化の項

-190° ~ +120°C の間で熱分解は起きないので、0°によって最大充填圧 P_{\max} (atm) は

$$P_{\max} = \frac{2.0}{1 + 0.33 + 0.05 + 0} = 1.45$$

今回の実験計画は 1.4 気圧以下であるので安全である。

ホ G 値

実測された最高 G 値³¹⁾ とその時の混合比を表 9 に示す。直は小さく照射による急激な反応の進行はないと考えられる。

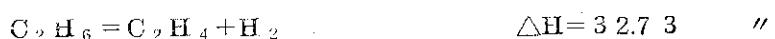
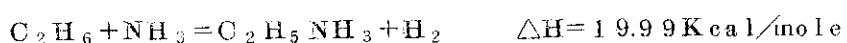
表 9 アンモニア + エタン系からの生成物収率

生成物	$\text{C}_2\text{H}_6/\text{NH}_3$ 混合比	G 値
$\text{C}_2\text{H}_5\text{NH}_2$	3/7	1.3
CH_3NH_2	3/7	0.1
$n-\text{C}_4\text{H}_{10}$	9/1	2.9
C_3H_8	10/0	0.55
CH_4	10/0	0.55

へ 反応熱 29,32)

計画 (VII) での ΔH_f° を用いて、代表的と考えられる全反応の反応熱を評価する。

(- : 発熱 , + : 吸熱)



いずれも吸熱か、小さな発熱であり、安全上問題とならない。

3. 照 射 運 転

3.1 運転の概要

昭和47年度の第1四半期にはJRR-3の運転が行われなかつたので、LTFの保守作業を行つと共に、前章記載の4型カブセルのデータをまとめ所内安全審査を受けた。7, 8月には3回の運転を行い、3型10ヶと4型1ヶの照射を行つた。第3四半期には再び炉運転が行われず、この間懸案となつてゐた試料落下機構のリミットスイッチ位置の変化などの保守作業を行つた。第4四半期にはLTFを3回運転して、4C型11ヶ、4B型1ヶ、3型1ヶの13カブセルを照射した。4型カブセルを主に用いたため、13カブセルで計36試料（線量測定用2試料を含む）が照射できた。しかし、第5回運転では、誤操作、誤判断により照射後カブセル落下について2回のトラブルが生じた。このトラブル関係と保守作業全般については後に一括して述べることにする。

3.2 運転の経過

(1) 72-1, 2, 3運転

(a) 概要

エチレン線量計中の核分裂片エネルギー吸収効率または核分裂片の燃料脱出効率の測定のため、エチレン圧を0.5気圧から2気圧まで変化させたカブセル8ヶを2回に分けてそれバッケグランド線量率測定用の無核燃カブセル1ヶと組み合わせ、72-1, 3運転として、炉出力10MWで常温照射した。また安全審査により使用可となつた4型カブセルの初使用を兼ねて、Fission Track Detector(FTD)^{33), 34)}となるCellulose TriacetateとMuscovite(白雲母, $KAl_3Si_3O_{10}(OH)_2$)を蜜素またはエチレン中に封入した3試料を納めた4型カブセル1ヶを、原子炉起動時の10kW出力の時間に照射した。FTDカブセルは協力研究(阪大)として照射を行つたものである。運転は操作上の問題点はあつたが全部予定通り行つた。

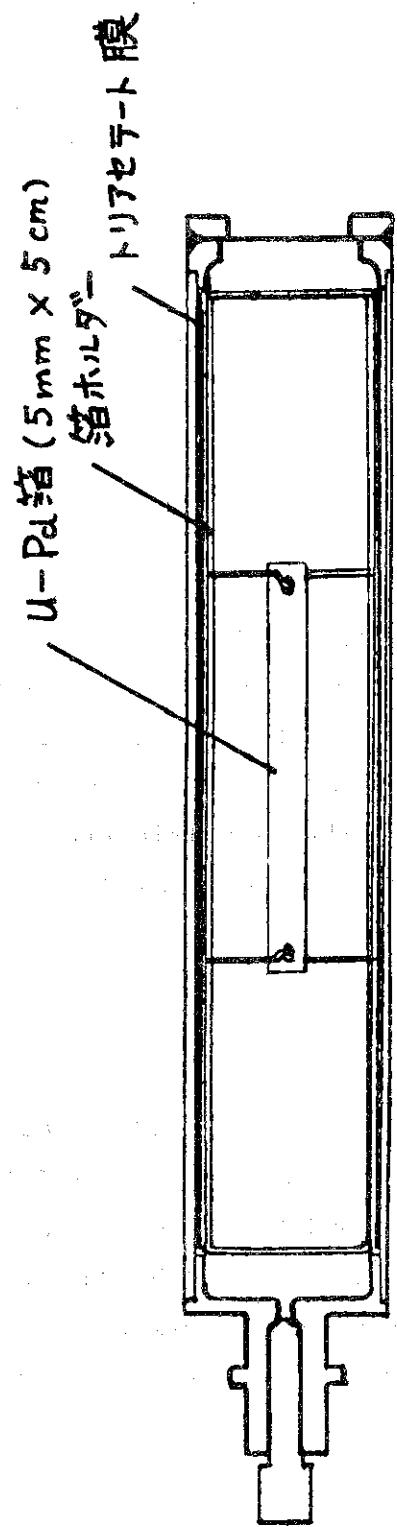
(b) 照射試料

10ヶのエチレン線量計カブセルは従来通りの3型カブセルで核燃料入り試料はステンレス鋼製フレームにより、5mm×5cmのU-Pd箔をカブセル中央に固定した。取付け状態はFTD-3カブセルと同様である。FTD試料は図9のようFTD-1, 2はアルミニウム製試料ブロック(図10)中にU-Pd箔と密着および雰囲気(吸収体)気体と幾何学的に定義しやすい配置で5mm間隔で距離を変えた状態で醋酸セルローズ膜と白雲母膜をセットした。またFTD-3はこれまでの3型カブセルの場合と同様に核燃料を取り付け、カブセル内壁に密着一周してほぼ全長にわたり、醋酸セルローズ膜をセットした。

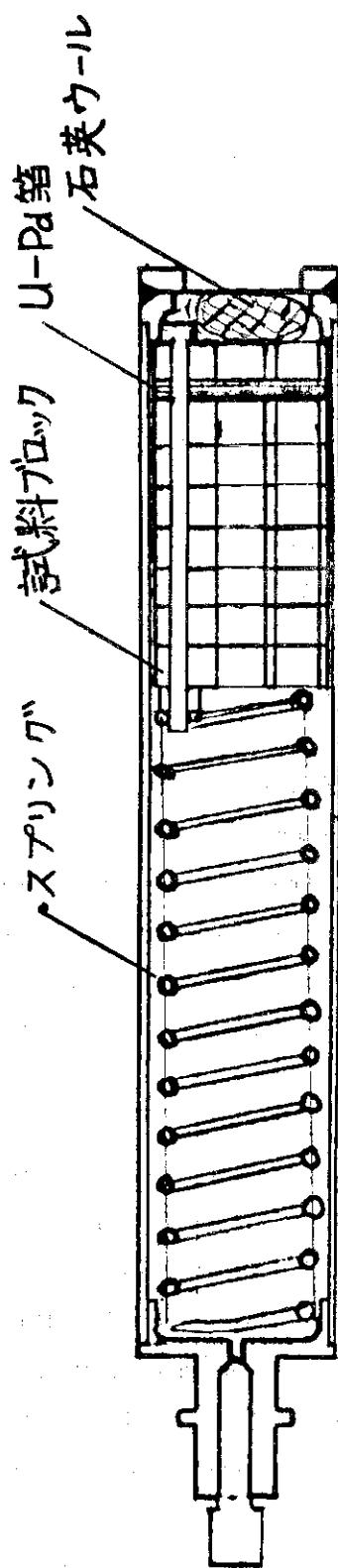
(c) 特記事項

照射予定は順調に終了したが、操作上の問題点があつた。

(1) 冷却水: He圧送機、アフタークーラーの冷却水(沪過水)は、水圧は2.0~2.2kg/cm²Gあり、これまでと変わらないのに流量はアフターカーラーへの水を止めても圧送



FTD-3



FTD-1, 2

図9. FTD-1, 2, 3 カブセル組立図

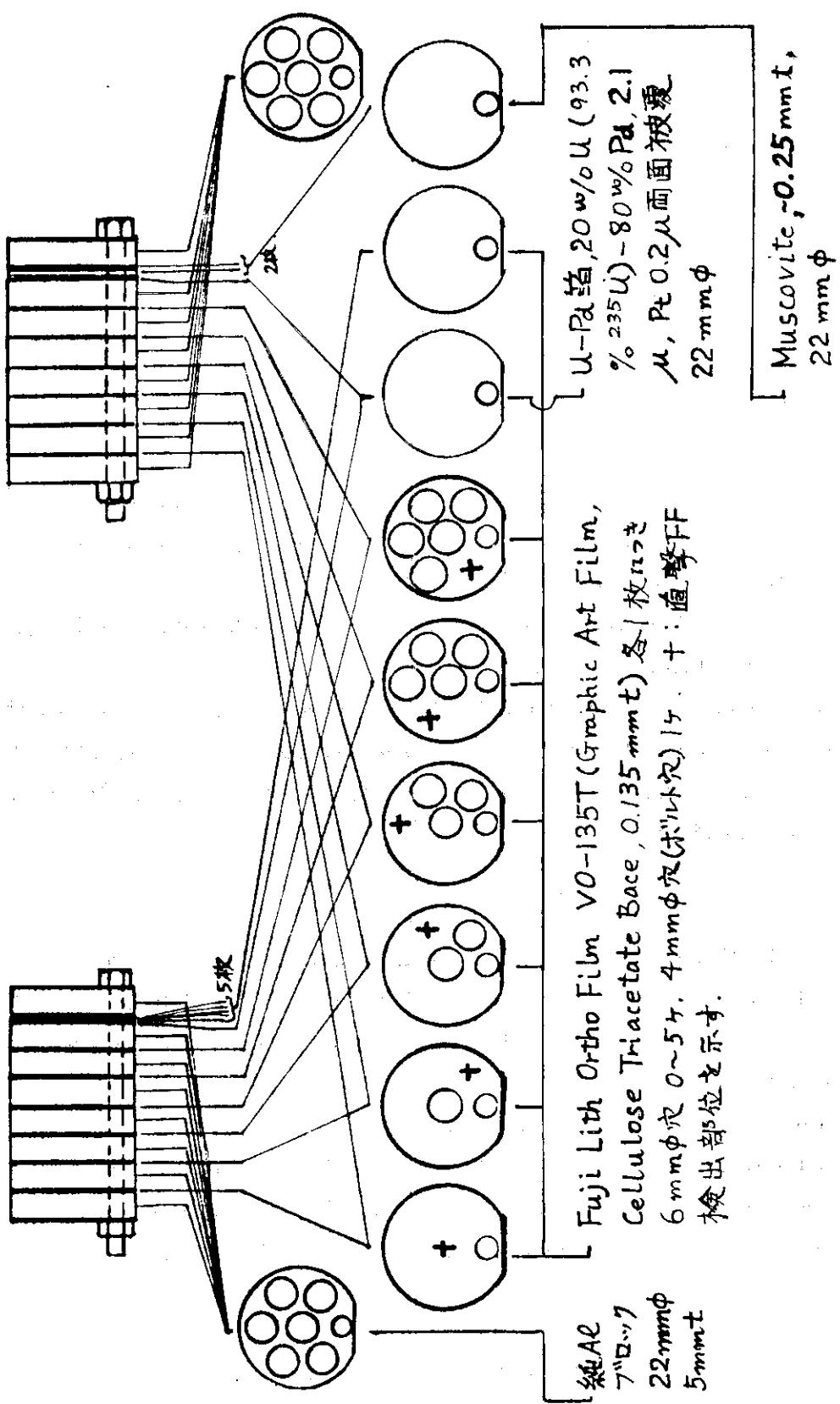


図 10 FTD - 1, 2 用試料プロック

機へ $0.8 \text{ m}^3/\text{h}$ 程度しか流れなかつた。このため 72-1 運転から、(i)アフターカーラー水量を最低に抑え、(ii)サイレンサー～アフターカーラー～中圧タンク間管路に応急のアルミフォイルなどを用いた放熱フィンをつけ、(iii)圧送機停止の可能な時間はなるべく停止する、などの操作で、これまでの圧送機クロスヘッド水温最高値 60°C を絶対越えないようとした。原因として排水管路のつまりを考え、逆止弁を分解したが特につまりはなかつた。背圧上昇が最も考えやすいが、排水管が合流している LHTL の冷却水を流したり止めたりしてもらって流量変化をみたが明らかな影響はなかつた。このため 72-3 運転前に、圧送機出口のドレン抜き弁にビニール管で臨時配管して排水を別経路でも出すようにした。しかし圧送機冷却水流量は、 $0.85 \text{ m}^3/\text{h}$ 程度になつたくらいで大きな効果はなく、結局 72-1 運転と同様な操作を 72-3 運転でも行った。この臨時配管からの排水流量は約 $0.5 \text{ m}^3/\text{h}$ であるので、背圧が高いため正規の排水管からの排出水が、臨時配管にまわつたと思われる。

(1) コネクター：リード線コネクターは 6 月に工作工場試作品と交換したが、運転開始前にすでにストレンゲージのバランスがとり難かったので、再び 7 月初めに MAP I 製のものと交換した。このコネクターで 72-3 運転までを行つたが、再びバランス不良となつたので後述の原因調査を行い 8 月には完全に解決した。

(2) その他：アフターカーラー出口温度計の不良品交換、TRI～3 の記録計の極性逆接続の接続し直しを 72-1 運転中に行つた。

これまで問題になつてゐたが、PICA-3 による遠隔操作ではポンペヘリウム供給が完全に止らないため、V-13 の手動によりヘリウム量制御を行つた。今回は問題が起きたが、試料落下機構リミットスイッチについて取付け位置変更の検討を続け、その後、10 月に作業を完了した。

(2) 72-4 運転

(a) 概要

エチレン線量計による核分裂片エネルギー効率の測定実験補充データのための 3 試料を入れた 4B 型カブセル 1 ケ、アンモニア＋エタン系の最初の試料 9 ケを入れた 4B 型カブセル 3 ケおよびバックグラウンド測定用無核燃カブセル 1 ケを全数常温、最先端照射位置 (0 cm) で、炉出力 10 MW で照射した。

今回運転は JRR-3 が 8 月以降運転休止後の初めてのもので、この間、種々の保守作業等を行つたため、LTFI 運転は順調であった。4 型カブセルの最初の本格的使用を行つた。冷却水は $0.85 \text{ m}^3/\text{h}$ 程度あり、圧送機の一時停止も行つたため、圧送機クロスヘッド水温は最高 51°C で、季節的に水温が低いこともあり操作上の問題にはならなかつた。

(3) 72-5, 5A 運転

(a) 概要

アンモニア＋エタン系の 9 試料を入れた 4B 型カブセル 3 ケ、石英、黒鉛小片を核燃料と組み合わせた 1 試料とバックグラウンド測定用無核燃エチレン線量計 1 試料を入れた 4B 型カブセル 1 ケを照射した。照射後のカブセルが試料落下部にひっかかっていた時、これをコネクターから外れてフラグ先端部に残してきたと誤認、カブセル取出し作業を行つて、運転を一時中断

した。（第1発目）また、この後、継続して予定を消化するため72-5A運転を次の炉サイクルに行つたが、第3発目のカブセルを、第2発目の照射済カブセルが既に入っているコンテナに二重に落し、取り出しに1日冷却を要したため、この後予定していた第4発目のカブセル照射は次回運転に延期した。尚、今回照射した3カブセルは、照射そのものについては予定通りであった。

(b) 特記事項

第1発目のカブセル(4C-3)は20分照射終了後、通常のシーケンス操作で取出しを行つた。カブセル落下操作時にV-46の上部にあるホトトランジスター落下検出器により落下が認められなかつた。このため、カブセル自動切離しができなかつたと考え、状況検討の結果カブセルをプラグ内に残したと判断し、引出棒を操作して取出しを行つたが成功しなかつた。このためJRR-3管理課、放音と打合せの上、照射プラグ断熱部とプラグ内にヘリウムを充填して伝熱をよくして運転を終えた(48-2-20)。原子炉運転終了(48-2-24)3日後(48-2-27, 28)から取出作業を継続したが、内部の観察の結果、試料取出部のホトトランジスター光路にある孔に、カブセルが先端プラグ部を僅かに引掛けで止つてゐることを見出しう、無事取出した。20分照射後8日を経ていたためカブセル表面線量率は8mR/hで、作業は容易であった。このトラブルの原因を考えると、(i)外カブセル圧力指示計がカブセル切離し時にフリ切れなかつたための指示誤認、(ii)カブセルが試料取出部の中間位置にあることを考えつかず、V-46を開いて下から内部を観察(48-2-28に行つた)しなかつたこと、(iii)照射プラグ先端部とカブセル後部が外見上類似しているため、プラグ先端にはカブセルがないのになると誤認して作業したこと、が挙げられ、不正確な判断の積み重ねがあつたといわねばならない。カブセルが中間位置に止つたことについては後に検討する。

第2発目は次の炉運転サイクルに照射した。V-104開でリーク大であり、断熱部の真空が上らなかつたが常温運転で特に問題はないので照射を継続した。これは、第1発目のトラブルの時にヘリウムを断熱部に加圧充填したため、図面にない臨時配管の盲板となっていた真空計が飛んで抜けたためと判り、次回運転にあたり、交換して正常となつた。

第3発目では照射終了後、第2発目のカブセルが既に収納されているコンテナ位置に3発目のカブセルを二重に落下させたため（誤操作）、1日後、放射能が減衰してから3発目のカブセルを臨時の治具により釣上げ取出した。

(4) 72-6 運転

(a) 概 要

アンモニア+炭化水素(エタン、エチレン、プロピレン)混合試料計12ヶを入れた4C型カブセル4ヶを温度を変えて低温で、また石英、黒鉛と核燃料を入れた1試料とエチレン線量計を組み合わせた、72-5運転で照射できなかつた4B型カブセル1ヶを常温で照射した。

(b) 照射試料

アンモニア+炭化水素系試料は外カブセル1ヶにつき3種類の炭化水素となるよう組み合わせ、+5°から15°Cきざみで-35°Cまで照射する予定であった。実際は温度の安定値が少しづれて、+3°、-9°、-18°、-34°Cで照射されたが、これは実験パラメーターとして問題はない。石英、黒鉛、核燃料は図11のようして石英と黒鉛を各1ヶのアルミニウム製の5mm角の穴の中に核燃料と共に充填して後、内カブセル頂板部をエポキシ系樹脂で接着して

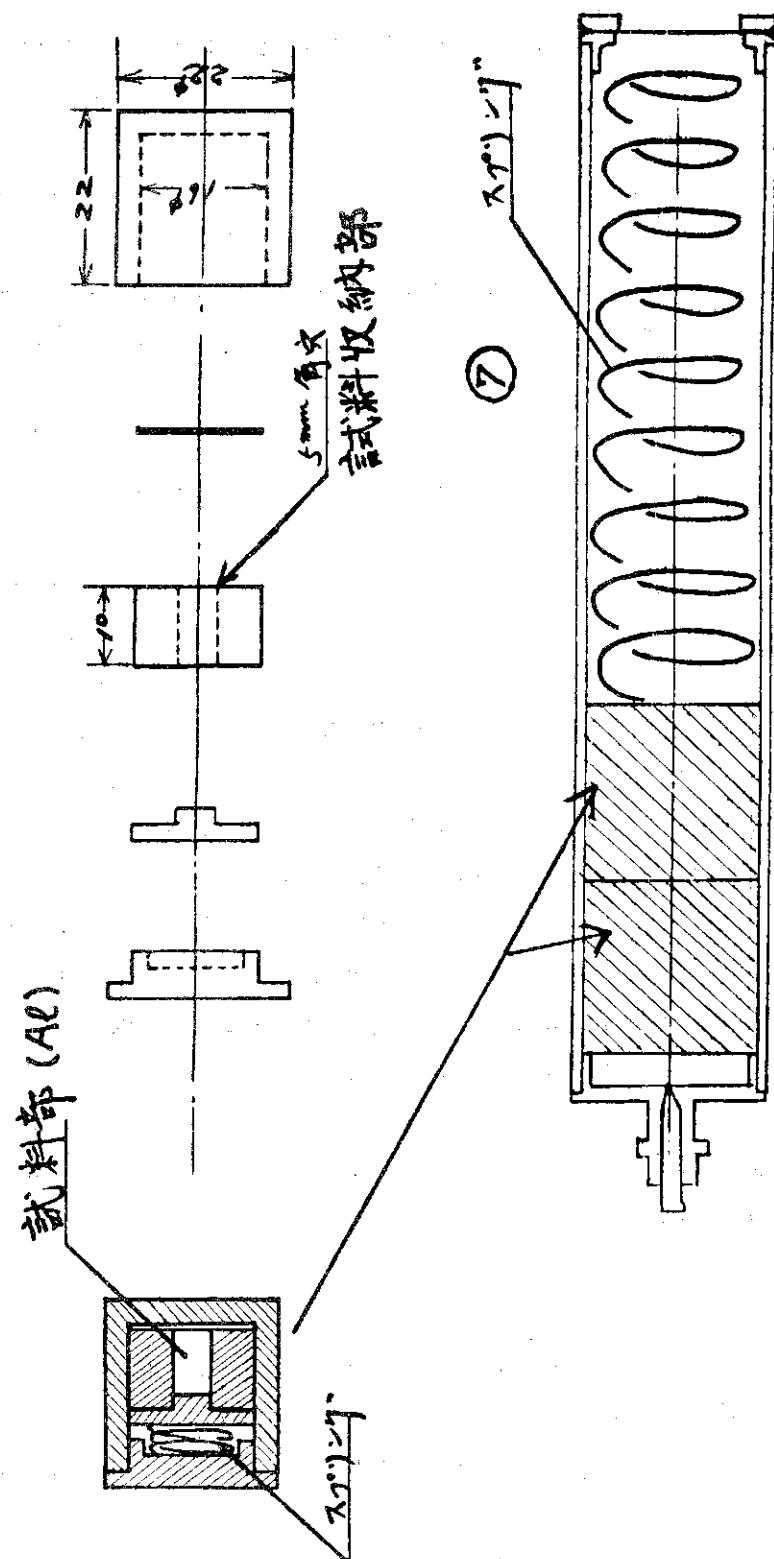


図 11. 固体試料照射内カプセル組立図

組み立てた。樹脂接着は、試料からガス発生の可能性がないこと、内圧が常圧であることで、これまでブランクテストの結果問題がないことが明らかであったが、今回も破損はなかった。これは固体試料に溶接による加熱をしないように考慮した結果である。本試料は協力研究実験として照射された。

(c) 特記事項

今回運転はほぼ1年ぶりの低温運転であったが、照射は順調に進行した。

3.3 カプセル落下機構の検討

72-5運転においてカプセル照射後、コネクターと切離されたカプセルは試料取出部でホトトランジスター光路の穴に、カプセル先端のプラグ部をつっ込んで中間位置に止まり、落下不完全となるトラブルがあった。このようなカプセル落下機構に関連した事項を検討する。

試料取出部の概略の構造は図12の全体図に示すように、試料落下機構（半周を切り取った管部が180°回転し、切離し後のカプセルを落下させる）により、プラグ内で、水平位置にあるカプセルが、落下ガイド板（SUS27）により、先端を下に向けて垂直に落下するようになっている。SUS27ステンレス板間の摩擦係数は約0.3（ $\approx \sin 18^\circ$ ）であるので(A)図のように先端部またはカプセル管部とガイド板間の摩擦により静止することはガイド板の形状から考えてあり得ない。このことは摩擦角30°としたときにどのような位置にあるかを示した(A)図からも明らかである。72-5運転で起きたトラブルは、カプセルが(B)図のような位置で止まったために起きた。これは確率的に極めて起きにくいトラブルであるが、可能性は確かにある。この点は、カプセル先端部をグラインダーなどで削り取り、短かく丸くすることにより原理的に避け得ると考えられる。今後はこのようにIC措置する予定である。

また、70-2運転（昭和45年度）で一度起きたように(C)図のような位置でカプセルが止ることは、直接には手動切離しの時に反動がつき過ぎたため起きたが、間接には当時用いていたコネクターのピン寸法不正確のためコネクターの噛み込みがきつかったためであり、ピン寸法の問題のないその後（46年度以降）のカプセルでは起き難い。実際その後同種のトラブルは起きていない。

以上のように今後カプセル先端部の丸味づけとコネクター部工作精度の向上により、トラブル再発の可能性は小さいと思われる。ただ、装置の使用につれて落下ガイド板の変型があると(A)図に類するトラブルの可能性は生じよう。この点については今後さらに検討を行うこととする。

3.4 カプセルの改良

本年度から、前述の4B型、4C型の外カプセルを用いて照射を行っているが、このほか、内カプセルも、アンモニア系試料の照射開始に伴い改良を行った。また、今後の特に高圧側の実験のために、本年度LTFL照射は行わなかったが、より高圧に耐える変型を開発した。これらの内カプセルの改良について本章に付記する。

図13に4型カプセルに用いる4B型、4C型の内カプセルと高圧用のG4C型カプセルの構造を示した。4B型内カプセルは従来の3型カプセルに用いられたもの（外径25mm）の外

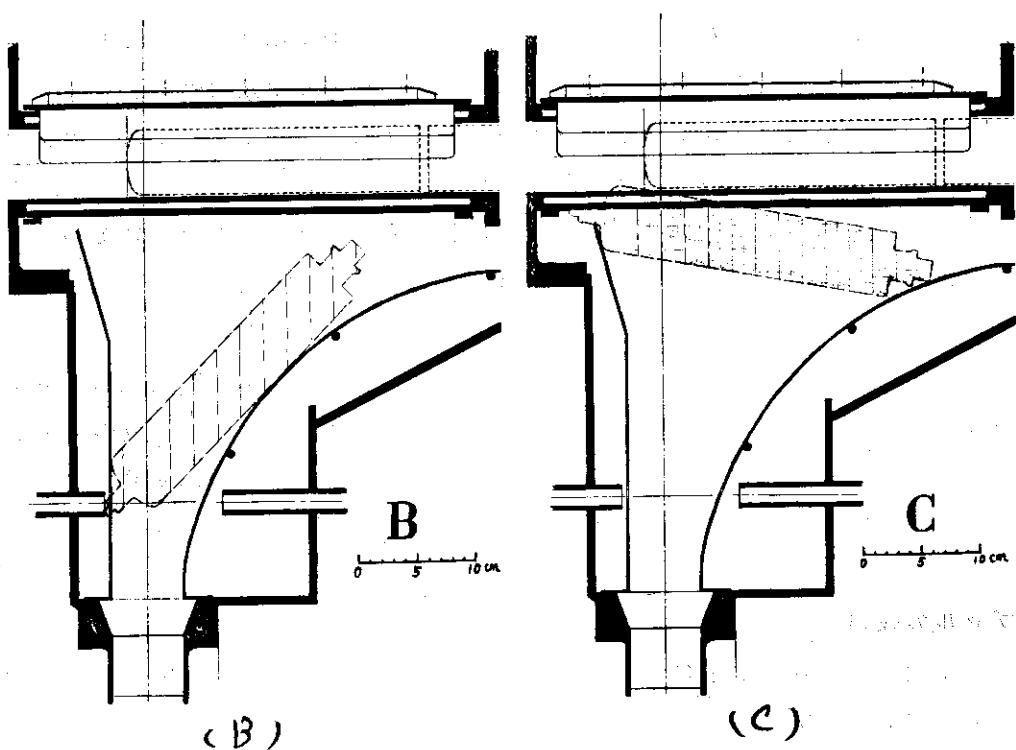
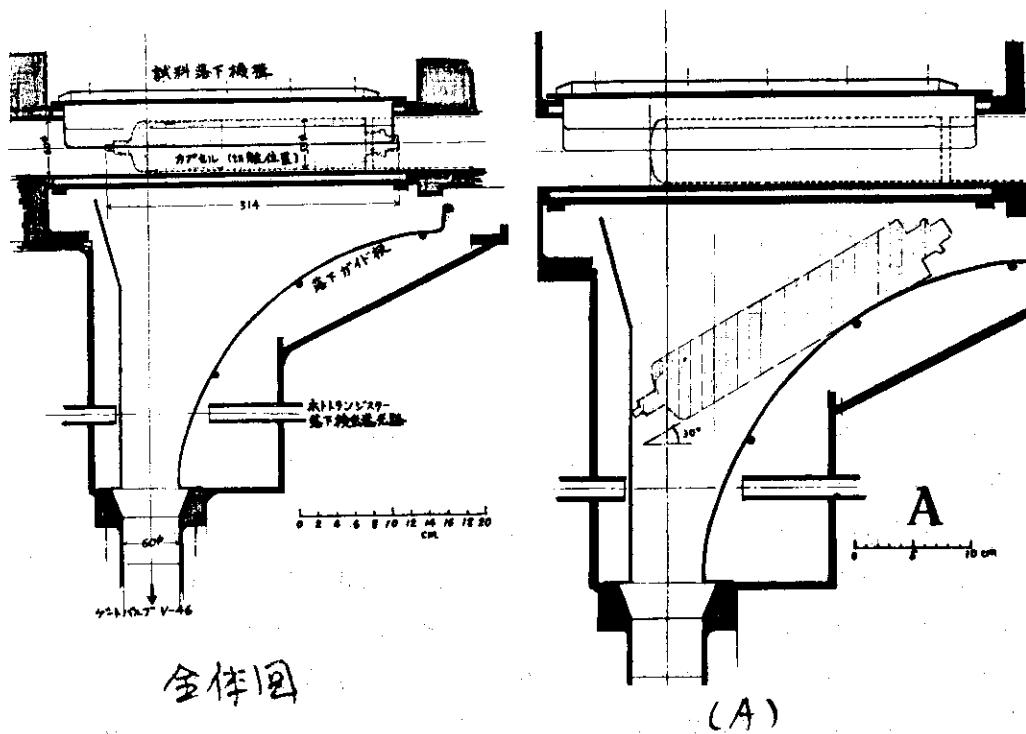


図12 カプセル落下機構

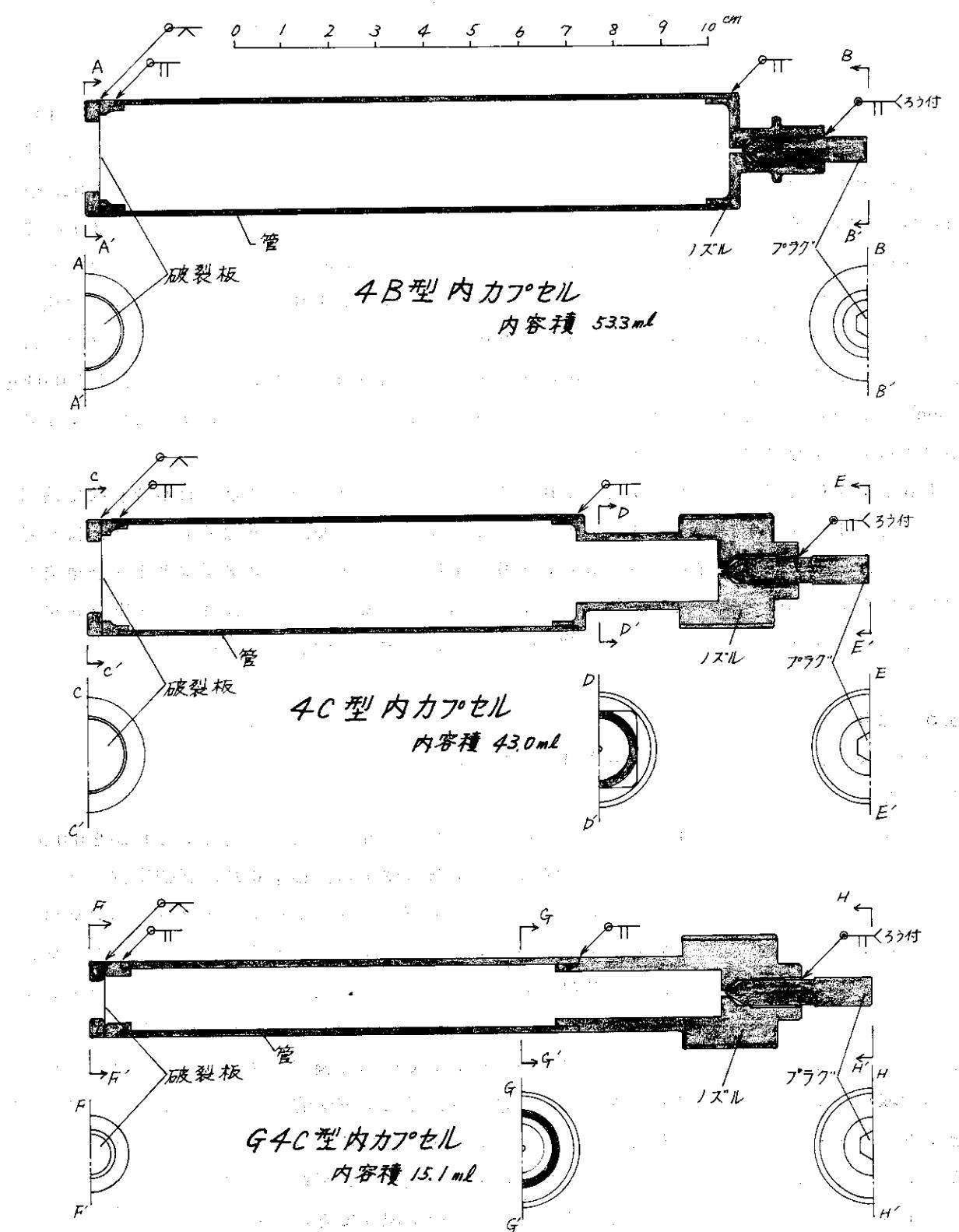


図13 4B, 4C, G4C型内カプセル

径を 0.5 mm 小さくして 24.5 mm とした以外は全く同一構造のものである。但し、ラブチュアプレート部など 3 型内カプセルでも初期（44, 45 年度）のもの³⁵⁾と比べて最近のものは多少変えてある。主な点は銀ロウ付けを焼してプラグ固定のための銀ロウ付け以外は溶接（TIG またはビーム溶接）構造とした点である。

4 C型と G 4 C型内カプセルは今年、製作完了したアンモニア系高圧試料封入装置（図 14）の氣密ドライバーに適合するようノズル部を製作してある。新封入装置はこれまでの試料封入装置と比べて、アンモニア系試料取扱いのため、銀ロウ付け部無しにし 10 Kg/cm^2 と 100 Kg/cm^2 の 2 ケのステンレス鋼製ブルドン型圧力計その他金配管を 304 または 316 ステンレス鋼製としたこと、および耐圧 150 Kg/cm^2 を目標に氣密ドライバーなどを設計したことが異っている。4 C型内カプセルは 3 型、4 B型内カプセルと同じ耐圧（破裂板作動圧 50 Kg/cm^2 、試料充填圧 20 Kg/cm^2 ）であるが、G 4 C型内カプセルは耐圧が高く（破裂板破壊圧計算値約 500 Kg/cm^2 、試験最高耐圧 130 Kg/cm^2 ）で 100 Kg/cm^2 までの試料を充填可能のように設計された。G 4 C カプセルは本年度試作を行い、48 年度からガンマ線照射に用いられている。

4 B型、4 C型内カプセルは 3 型、4 B、4 C型各外カプセルのどれとも組み合わせて使用でき、また 1 外カプセル中で 4 B型、4 C型内カプセルの同時使用が可能である。図には示さなかったが、安全審査と計測上の理由で、4 B、4 C型内カプセルは 3 ケにつき 1 ケ熱電対が管部中央外壁上に熔着されたものを製作し、使用にあたっては、これに複合型のストレンジージ（4 素子をブリッジに組んだもの）³⁶⁾をエボキシ樹脂で接着して用いる。

3.5 保守

保守作業として本年度に行った主な事項について述べる。

(1) コネクターの交換

コネクターのリード線は 3.2 φ のステンレスシース中に 8 本の素線を有し、これが 200 φ のドラムに巻付けられたり引伸されたりするため、疲労度を考慮し、6 月に交換を行った。

（新品のコネクターは、工作工場製、リード線は助川電気製）しかし、コネクターにカプセルを接続し、ブリッジ（ストレンジージ）の容量、抵抗のバランスを取ろうとすると全くバランスは取れず、ノイズが入っているかの如くメーターの針が細く振動し、内カプセル、外カプセルのメーターが互いに干渉し合う。このため、再度 MAP I 製のものと交換し（7 月）良い結果を得た。（しかしこれもすぐに同じ現象が起り、(4)で述べる調査（8 月）を行った。）バランスの取れなかったコネクター本体とリード線については、電気的試験を行い、コネクター部と、リード線部とが、組立時の接着剤によって、導通状態であるべきものが絶縁されてしまった事、摺動部の面接触が不良だった事の 2 点と判り解決した。現在使用中のコネクターの構造を図 15 に示す。このコネクターではチャックの動作、組立て等がこれまでのもの³⁷⁾より改良されている。

(2) 横算時間計の取付

回転機は、オイルや軸受等、運転時間と保守とは密接な関係があるため横算時間計を取付けて、保守の目安とした。（6, 7 月）取付機器は排気回転ポンプ No. 1, No. 2 He 圧送機でこ

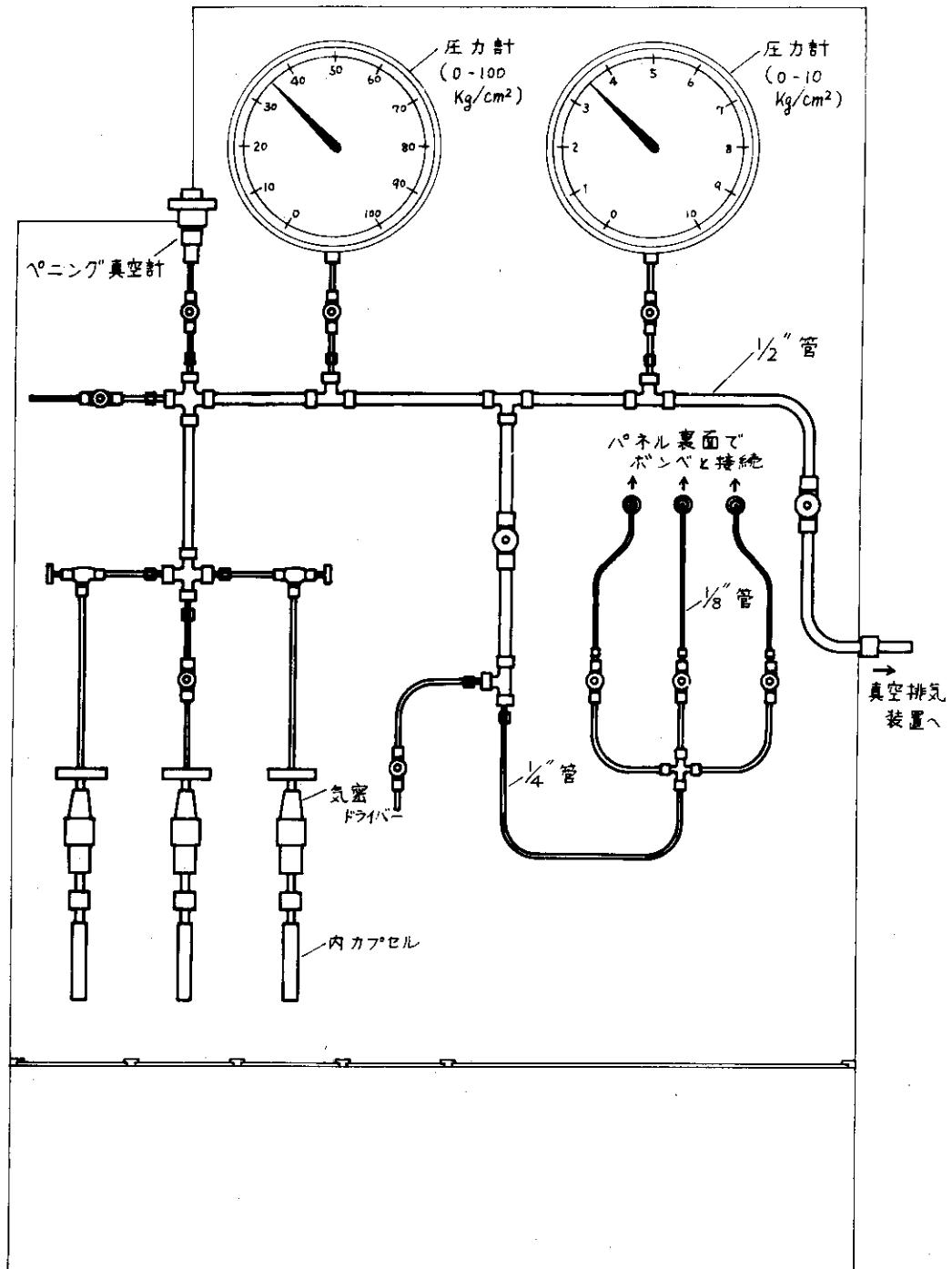


図14 アンモニア系高圧試料封入装置

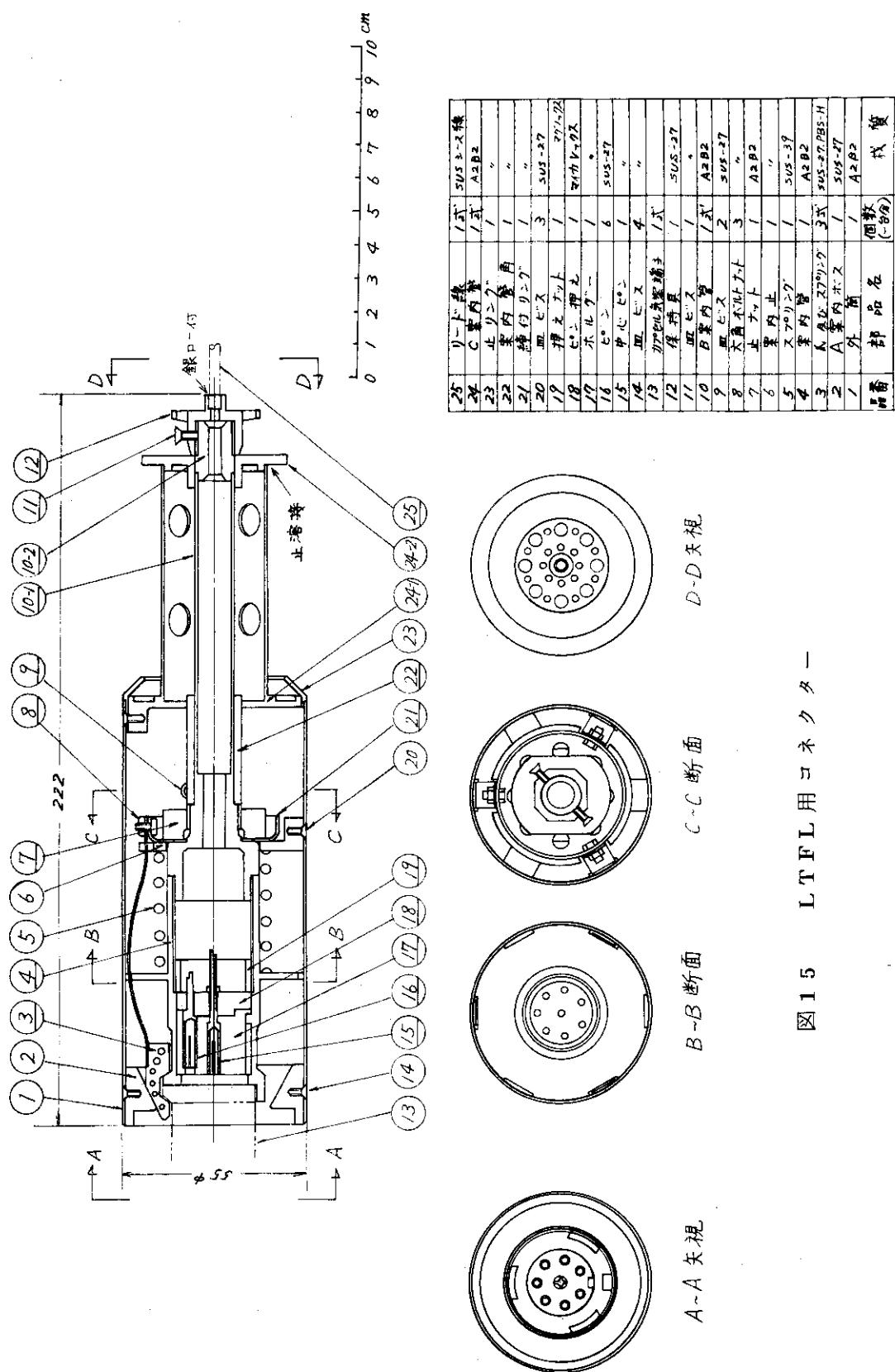


図 15 LTFL 用コネクタ一

の他照射時間のトータルも計れるようにした。照射時間については、カプセルが照射位置に到達した時から照射が終り切り離される時まで、他の機器はONからOFFまでの時間とした。横算計指示値は(取付け47-7-1), 照射時間については新リード線コネクターを取付けた後の使用時間, RP-1, 2については約50.0 h をプラスすればポンプ使用開始後の(そのままでは、油交換後の)運転時間、またHe圧送機については約6.0 h をプラスすれば47年1月のオーバーホール後の運転時間に対応する。今年度最終運転(72-6)終了時の指示値(h)はRP-1: 111.6, RP-2: 88.8, 圧送機: 61.6, 照射: 28.1であった。

(3) L T F L 電気機器の絶縁抵抗測定

装置が設置されて以来、絶縁抵抗測定が行われていないので、JRR-3のオーバーホール期間を利用して、He圧送機、液窒減圧ポンプ、排気用回転ポンプ#1, #2活性炭トラップヒーター、Heヒーター遮蔽蓋駆動モーター等について500Vメガにより測定を行った(7月)。その結果活性炭トラップヒーターが、対アース間に0.003MΩしかなく危険な状態であった。取りはずしてみると外観は何の異状もなく内部で絶縁物が劣化していると考えられたので、新品と交換した。活性炭トラップヒーターを除くすべてはいずれも数MΩ~∞で正常であった。

(4) ストレインメータに関する調査

(1) で述べたように7月に交換した新しいカプセルコネクターではバランスがとれ、最初のうちは良好な状態であったが、結局は最初と同じメーターの針が細く振動し互いに干渉し合う現象が表われた。この現象は、以前にもまれに見られた事であったが、その時はカプセルの接触不良であろうと安易に考えていた。しかし、今回は全くバランスがとれなくなってしまったため、徹底的な調査が必要となった。調査後、ストレンメータユニットを直接アースに落とすことで、全て解決した。この原因を見つけるまでには、コネクター、リード線、中継線、中継端子(ブリッジ・ボックス)、シールド線、計器の移動(ノイズを避けるため)、その他種々の調査を行い(8月)，相当の日数を要した。

(5) カプセル落下機構のリミットスイッチ新位置取付

このリミットスイッチはカプセル落下皿が18.0°回転し照射済のカプセルを落下させ、上下が逆になった位置で作動して落下皿駆動モーターを停止させ、再びシーケンス操作で落下皿を逆転して元の位置に戻った時、モーターを停止させるものである。この落下機構自体が複雑であるし、スペースに余裕がない事などから、当初の設計ではやっと指先が届く程度で、スイッチの交換が出来ない位置に取付てあった。このためリミットスイッチのアームが曲がって作動しないといったトラブルを生じた時は、スイッチのアームを逆方向に少し曲げ作動させるようにしてきた。しかしこれを続けているとスイッチの作動位置に狂いを生じてくるし、ましてスイッチが壊れた時、交換が不可能である事は致命的である。保守を考慮に入れない設計であった。従って早急にこのリミットスイッチを容易に交換出来る別の位置に取付ねばならなかつた。取付に当っては場所の選定、回転角の検出、取付方法などが問題で、せまいスペース内に取付けるのは無理かとも思われたが、結局、試料取扱部内のカプセル落下機構軸受側面にリミットスイッチを取付けた。角度の検出は薄いステンレス板に高さ5mmの突起状カムを設け、軸受ベアリング押えに組み込み、落下皿と一緒に回転させて検出することにした。リミットス

イッチはスライド枠と、固定枠の2枚の薄いステンレス板に取付けるもので、まず固定枠を軸受側面に固定させる。次にスライド枠にスイッチを取付けて固定する。スイッチを取り付けたスライド枠を固定枠にはめ込む。こうするとスイッチを取り付けたスライド枠は、ペアリング円周に沿って円弧を描いてスライドする。同時に、落下皿の断面方向にも約20mm程度の調整が出来る。従って最適の位置、角度でスイッチを固定できる。このスイッチの取付作業は3日で終り、作業後のテストも良好で旧スイッチの回路は切離した。(10月)この結果、スペース的には問題はなく、カプセル取付時に邪魔にならない位置であるし、①スイッチの交換が容易になった。(所要時間10分) ②約90°に渡ってスイッチ作動点が調整できる。③動作が目で確認できる。以上3点が改良された。

(6) その他の保守

- (イ) 各運転サイクル前に、脱湿器シリカゲル精製。(4月)
- (ロ) 自動温度記録計の交換。(4月)
- (ハ) 排気用回転ポンプのオイル交換。(4月) オイルの状態は汚れ、スラツジ有り。
- (ニ) 脱湿器分解点検。逆止弁にシリカゲルの粉末、赤サビが付着していた。洗浄後、組立てた。通気テストはリーカなく逆止弁正常動作。(4, 5月)
- (ホ) 真空計のチョッパー不良のため、5本交換。(5月)
- (ヘ) 炉外LTFL用液窒タンク充填口のつまり。(7月) 原因は、フィルターを押えていたネジ込み式リングが脱落し充填口をふさいだため。
- (ト) 空気式自動調節弁, V-14 不調のため点検。(8月)
完全に締切らないのでV-14弁軸をネジ山1回転下げた。
- (ケ) 計測系の点検及び真空管14種交換。(9月)
- (ロ) 活性炭トラップヒーター温度指示コントローラー動作不良。(11月) 温度指示コントローラーが、水平でなかった事と裏面結線のゆるみが原因。

3.6 照射運転のまとめ

本年度のLTFL運転は炉運転休止期間の延長とLTFL運転上のトラブルにより前年度の11回運転に対して、6回しか運転できなかった。しかし、照射試料数は4型カプセルの開発により前年度の55試料に近い49ヶに達した。

表10に本年度の運転照射試料、照射条件をまとめて示した。

転運試験撮影表

L T F L 照射運転 No.	J R R - 3 サイクル (炉出力)	年月日	カブセル 番号	試 試 料		氣体圧力 (atm)	U-Pd 箔 (cm×cm)	位 置 (cm)	照 射 温 度 (°C)	照 射 時 間
				照 射 料	照 射 紫外線					
7 2 - 1	4 7 R 3 - 2 (10MW)	47-7-12	D- 5 8	C ₂ H ₄	"	2.0	0.5×5	0	室温	2.0 min
		"	D- 6 0	"	"	1.5	"	"	"	"
		"	D- 6 2	"	"	0.9	"	"	"	"
		"	D- 6 4	"	"	0.5	"	"	"	"
7 2 - 2	4 7 R 3 - 3 (10KW, 炉起動時照 射)	"	D- 5 2	"	"	1.0	0	"	"	4 h
		47-7-24	D- 1 0 0	N ₂ , 酚酸セルロース膜	1.0	2.2φ	0.5×5	0	室温	20 sec
		"	F T D - 1	C ₂ H ₄ , "	"	2.2φ	0.5×5	0	室温	2.0 min
		"	{ F T D - 2	C ₂ H ₄ , " + 白雲母膜	"	0.7	"	"	"	"
7 2 - 3	4 7 R 3 - 3 (10MW)	47-8-2	D- 5 9	C ₂ H ₄	"	2.0	0.5×5	0	室温	2.0 min
		"	D- 6 1	"	"	1.1	"	"	"	"
		"	D- 6 3	"	"	0.7	"	"	"	"
		"	D- 6 5	"	"	0.5	"	"	"	"
7 2 - 4	4 7 R 3 - 9 (10MW)	"	D- 5 3	"	"	1.0	0	"	"	4 h
		48-1-29	4 C - 4	5%NH ₃ +95%C ₂ H ₆	2.0	0.5×5	0	室温	7 min	
		"	{ A - 1 2	10%NH ₃ +90%C ₂ H ₆	"	"	"	"	"	
		"	A - 1 6	20%NH ₃ +80%C ₂ H ₆	"	"	"	"	"	2.0 min
4 8 - 1	4 7 R 3 - 9 (10MW)	"	4 C - 1	10%NH ₃ +90%C ₂ H ₆	0.3 3	0.5×5	0	室温	7 min	
		"	A - 1	"	1.0	"	"	"	"	
		"	{ A - 3	"	1.0 7	"	"	"	"	
		"	A - 5	"	"	"	"	"	"	
4 8 - 1	4 7 R 3 - 9 (10MW)	"	4 C - 2	10%NH ₃ +90%C ₂ H ₆	0.6 6	0.5×5	0	室温	7 min	
		"	A - 2	"	3.0	"	"	"	"	
		"	{ A - 4	"	1 3.9	"	"	"	"	
		"	A - 6	"	"	"	"	"	"	
4 8 - 1	4 7 R 3 - 9 (10MW)	4 B - 1	D- 7 2	C ₂ H ₄	0.9	0.5×5	0	室温	7 min	
		"	{ D - 7 3	"	1.2	"	"	"	"	
		"	D- 7 4	"	1.5	"	"	"	"	
		"	D- 5 4	C ₂ H ₄	1.0	"	"	"	"	4 h

	72-5	47 R3-10 (10MW)	48-2-20	4 C-3	5%NH ₃ + 95%C ₂ H ₆	2.0	0.5×5	0	室温		18 min
									"	"	
72-5 A	47 R3-11 (10MW)	48-3-13	4 C-8	A-10	5%NH ₃ + 95%C ₂ H ₆	2.0	0.5×5	0	室温	3 h	
				{ A-11	10%NH ₃ + 90%C ₂ H ₆	"	"				
				A-15	20%NH ₃ + 80%C ₂ H ₆	"	"				
72-6	47 R3-12 (10MW)	48-3-29	4 C-6	A-19	5%NH ₃ + 90%C ₂ H ₆	2.0	0.5×5	0	室温	20 min	
				{ A-23	9.5%NH ₃ + 5%C ₂ H ₄	1.0	"				
				A-27	9.5%NH ₃ + 5%C ₃ H ₆	"	"				
				4 C-7	10%NH ₃ + 90%C ₂ H ₆	2.0	0.5×5	0	+3°		
				{ A-20	9.5%NH ₃ + 5%C ₂ H ₄	1.0	"				
				A-24	9.5%NH ₃ + 5%C ₃ H ₆	"	"		-9°	"	
				A-28	9.5%NH ₃ + 5%C ₃ H ₆	"	"				
				4 C-9	10%NH ₃ + 90%C ₂ H ₆	2.0	0.5×5	0	-18°	"	
				{ A-21	9.5%NH ₃ + 5%C ₂ H ₄	1.0	"				
				A-25	9.5%NH ₃ + 5%C ₃ H ₆	"	"				
				A-29	10%NH ₃ + 90%C ₂ H ₆	"	"				
				4 C-10	9.5%NH ₃ + 5%C ₂ H ₄	2.0	0.5×5	0	-34°	"	
				A-22	10%NH ₃ + 90%C ₂ H ₆	2.0	0.5×5				
				{ A-26	9.5%NH ₃ + 5%C ₂ H ₄	1.0	"				
				A-30	9.5%NH ₃ + 5%C ₃ H ₆	"	"				
				4 B-2	C ₂ H ₄	1.0	0	0	室温	4 h	
				D-82	石英，黑矽(Air)	"	0.5×0.5 (×8枚)				
				{ X-4	Dummy	"	"				

4. L T F Lによる照射実験

47年度には次の3項目にあたる実験をL T F Lを用いて行った。実験の区切りに至っていないことや、まとめ作業未完のため結果は全部まとまっていないが、現在までの主な内容について簡単に述べる。

4.1 核分裂片線量測定法の開発

前年度に核分裂片の線量測定がエチレンにより可能であること、およびその線量評価法についてまとめたが、さらに核分裂片エネルギー吸収効率評価にあたって重要な、固体核燃料から脱出した後のカプセル壁への核分裂片再突入率を実測で求めることを試みた。4B型内カプセル中に、 $5\text{ mm} \times 5\text{ cm}$ の U-Pd 鎔をステンレス鋼製支持わくにより中央に固定しておいて、0.5 気圧から2気圧のエチレンを導入し、L T F L 照射を行った。

核分裂片エネルギー損失が次式で表わされるとする。

$$(E/E_0) = (1 - (r/R))^{1.5} \quad \dots \dots \dots \quad (24)$$

ここで E_0 と R は中間エネルギーの核分裂片の初期エネルギーと飛程 (U-Pd 合金, Pt 被覆およびエチレン中のそれぞれの値を 6.98, 9.07 および 2.38 mg/cm^2 とする) で、 E は核分裂片の飛距離 r の位置での残留エネルギーである。この式に従って計算⁽⁷⁾すると、実験条件ではエチレン圧 1.0.5 気圧以上で平均的な核分裂片はカプセル壁に到達することなく、エチレン中で全エネルギーを失うことになり、また核燃料表面付近で発生した核分裂片では、1.7.7 気圧以上で全エネルギーを失うことになる。このため 2 気圧では核燃料を脱出した核分裂片の全エネルギーがエチレン線量計に吸収され、一方 1 気圧以下では効率が低下する。この計算値を実測値はよく一致した。⁽¹¹⁾⁽¹²⁾ このことは計算の妥当性と共に、エチレン線量計が実験された圧力範囲で圧力効果を有さないことを示している。

4.2 アンモニアと炭化水素の反応

アンモニアとエチレン、エタン、プロピレンを組み合わせた系へのガンマ線照射による反応については、これまで本グループによる研究が行われてきた。⁽¹³⁾⁽¹⁴⁾⁽¹⁵⁾ プロピレンでは含窒素化合物の生成が認められなかったが、エチレン、エタンでは常温常圧付近で G 値約 1 または 0.5 でエチルアミン、G 値 0.1 前後でメチルアミンが生成した。また水素収率については、低温側でエチレン、プロピレンの場合 0°C 前後に収率極大があるという結果⁽¹⁶⁾ が得られており、アミンなど他の生成物収率にも低温照射効果が期待された。このため、エタンでは核分裂片および原子炉放射線による L E T または線量率効果を期待して、圧力、線量、およびエタン濃度依存性をバラメータにして照射を行った。また低温で 3 炭化水素のアンモニア混合物の照射を行って温度効果を調べた。これらの照射は 48 年 1 月以降 4 月まで行われたため、結果の解析はまだ行われていないが、メチルアミン収率の上昇が観測されている。低温照射で著しい効果は見出されていない。

本系の試料充填に、本年度から支用開始したアンモニア系高圧試料封入装置と、アンモニア系試料用に製作した4C型内カブセルを使用した。共に使用にあたり問題なく、よい結果を得ている。

4.3 固体試料照射

協力研究試料として、本年度は固体検出器などの核分裂片による固体損傷実験のため、合計4試料を照射した。内1試料の石英と黒鉛の核分裂片照射反応については、長時間照射のため試料の汚染が著しく、試料取扱いが予想外に難しい。固体検出器（醋酸セルローズ、白雲母）の照射は、条件が適当で解析も終り、計画通りの核分裂トラックの観察が行えた。³⁰特に白雲母はフッ化水素酸によるエッチングで明瞭なトラックが観察された。カ性ソーダ水溶液でエッチングした酢酸セルローズでもトラックは明瞭に観察され、検出トラック密度の評価も行われた。

5. 結論

47年度にはJRR-3は6サイクル運転された。これに伴いLTFを6回運転し、49ヶの試料を入れた24ヶのカブセルを照射した。第5回(7.2-5)運転では照射直後のカブセル取出操作に関連したトラブルが2回発生したが、最終回(7.2-6)運転では、低温運転を行い順調に操作を行うことができた。本年度の運転では、エチレン漏量計の圧力変化により核燃料から脱出した核分裂片がカブセル壁に再突入する条件を実測し、計算値とよく合うことを確かめ、またアンモニアとエタン、エチレン、プロピレンの混合系への核分裂片照射効果を実験した。このほか協力研究として固体検出器と固体欠陥生成の実験を行った。

前年度より試作、試験を行ってきた4型カブセルについて使用条件の検討、伝熱実験などを実行して安全審査を受け、第2回運転での試用後、第4回運転から使用した。本カブセルは従来型(3型)カブセルと共に使用でき、また外カブセル1ヶにつき内カブセル3ヶを照射できるため、照射精度の向上と共に経費、労力の節減ができるようになり、本グループ人員減少にあたって、計画遂行上の大さな支障を除くことができた。また、安全審査では、アンモニア系試料の照射計画が承認された。

保守関係では、コネクターの改善、交換、カブセル落下機構のリミットスイッチの新位置取付けなどを行った。関連する事項として、内カブセルへのアンモニア系試料封入のための新封入装置を製作し、これに伴い内カブセルの変型も使用するようになった。

謝辞

本報告は、我々のグループによる炉内放射線による化学反応の研究のうち、低温化学照射装置の運転に関する部分を中心にまとめたものである。本研究を可能ならしめた高崎研究所の塙代所長(宗像英二現理事長、沢柳正一氏、本島健次現アイソトープ事業部長、大久保一郎現監事、および望月勉現所長)、東海研究所炉管理部その他の多くの部課および研究方針全般について検討をいただいた放射線化学研究委員会化学用原子炉分科会(分科会長大島恵一東京大学

本系の試料充填に、本年度から支用開始したアンモニア系高圧試料封入装置と、アンモニア系試料用に製作した4C型内カブセルを使用した。共に使用にあたり問題なく、よい結果を得ている。

4.3 固体試料照射

協力研究試料として、本年度は固体検出器などの核分裂片による固体損傷実験のため、合計4試料を照射した。内1試料の石英と黒鉛の核分裂片照射反応については、長時間照射のため試料の汚染が著るしく、試料取扱いが予想外に難しい。固体検出器（醋酸セルローズ、白雲母）の照射は、条件が適当で解析も終り、計画通りの核分裂トラックの観察が行えた。⁶⁰特に白雲母はフッ化水素酸によるエッチングで明瞭なトラックが観察された。カ性ソーダ水溶液でエッチングした酢酸セルローズでもトラックは明瞭に観察され、検出トラック密度の評価も行われた。

5. 結論

47年度にはJRR-3は6サイクル運転された。これに伴いLTFを6回運転し、4.9ヶの試料を入れた24ヶのカブセルを照射した。第5回(72-5)運転では照射直後のカブセル取出操作に関連したトラブルが2回発生したが、最終回(72-6)運転では、低温運転を行い順調に操作を行うことができた。本年度の運転では、エチレン線量計の圧力変化により核燃料から脱出した核分裂片がカブセル壁に再突入する条件を実測し、計算値とよく合うことを確かめ、またアンモニアとエタン、エチレン、プロピレンの混合系への核分裂片照射効果を実験した。このほか協力研究として固体検出器と固体欠陥生成の実験を行った。

前年度より試作、試験を行ってきた4型カブセルについて使用条件の検討、伝熱実験などを実行して安全審査を受け、第2回運転での試用後、第4回運転から使用した。本カブセルは従来型(3型)カブセルと共に用でき、また外カブセル1ヶにつき内カブセル3ヶを照射できるため、照射精度の向上と共に経費、労力の節減ができるようになり、本グループ人員減少にあたって、計画遂行上の大きな支障を除くことができた。また、安全審査では、アンモニア系試料の照射計画が承認された。

保守関係では、コネクターの改善、交換、カブセル落下機構のリミットスイッチの新位置取付けなどを行った。関連する事項として、内カブセルへのアンモニア系試料封入のための新封入装置を製作し、これに伴い内カブセルの変型も使用するようになった。

謝辞

本報告は、我々のグループによる炉内放射線による化学反応の研究のうち、低温化学照射装置の運転に関する部分を中心にまとめたものである。本研究を可能ならしめた高崎研究所の瀬代所長(宗像英二現理事長、沢柳正一氏、本島健次現アイソトープ事業部長、大久保一郎現監事、および望月勉現所長)、東海研究所炉管理部その他の多くの部課および研究方針全般について検討をいただいた放射線化学研究委員会化学用原子炉分科会(分科会長大島恵一東京大学

本系の試料充填に、本年度から支用開始したアンモニア系高圧試料封入装置と、アンモニア系試料用に製作した4C型内カブセルを使用した。共に使用にあたり問題なく、よい結果を得ている。

4.3 固体試料照射

協力研究試料として、本年度は固体検出器などの核分裂片による固体損傷実験のため、合計4試料を照射した。内1試料の石英と黒鉛の核分裂片照射反応については、長時間照射のため試料の汚染が著るしく、試料取扱いが予想外に難しい。固体検出器（醋酸セルローズ、白雲母）の照射は、条件が適当で解析も終り、計画通りの核分裂トラックの観察が行えた。⁵⁰特に白雲母はフッ化水素酸によるエッチングで明瞭なトラックが観察された。カ性ソーダ水溶液でエッティングした醋酸セルローズでもトラックは明瞭に観察され、検出トラック密度の評価も行われた。

5. 結論

47年度にはJRR-3は6サイクル運転された。これに伴いLTFを6回運転し、4.9ヶの試料を入れた24ヶのカブセルを照射した。第5回(72-5)運転では照射直後のカブセル取出操作に関連したトラブルが2回発生したが、最終回(72-6)運転では、低温運転を行い順調に操作を行うことができた。本年度の運転では、エチレン線量計の圧力変化により核燃料から脱出した核分裂片がカブセル壁に再突入する条件を実測し、計算値とよく合うことを確かめ、またアンモニアとエタン、エチレン、プロピレンの混合系への核分裂片照射効果を実験した。このほか協力研究として固体検出器と固体欠陥生成の実験を行った。

前年度より試作、試験を行ってきた4型カブセルについて使用条件の検討、伝熱実験などを実行して安全審査を受け、第2回運転での試用後、第4回運転から使用した。本カブセルは従来型(3型)カブセルと共に用でき、また外カブセル1ヶにつき内カブセル3ヶを照射できるため、照射精度の向上と共に経費、労力の節減ができるようになり、本グループ人員減少にあたって、計画遂行上の大きな支障を除くことができた。また、安全審査では、アンモニア系試料の照射計画が承認された。

保守関係では、コネクターの改善、交換、カブセル落下機構のリミットスイッチの新位置取付けなどを行った。関連する事項として、内カブセルへのアンモニア系試料封入のための新封入装置を製作し、これに伴い内カブセルの変型も使用するようになった。

謝辞

本報告は、我々のグループによる炉内放射線による化学反応の研究のうち、低温化学照射装置の運転に関する部分を中心まとめたものである。本研究を可能ならしめた高崎研究所の歴代所長(宗像英二現理事長、沢柳正一氏、本島健次現アイソトープ事業部長、大久保一郎現監事、および望月勉現所長)、東海研究所炉管理部その他の多くの部課および研究方針全般について検討をいただいた放射線化学研究委員会化学用原子炉分科会(分科会長大島憲一東京大学

教授)の委員の方々に感謝する。使用した核燃料を贈られた米国B.N.LのB. Manowitz, M. Steinbergの両氏等関係者の好意に感謝する。原稿整理に研究部 東悦子夫人に努力していただいた。

本年度のLTFル用いた協力研究では、LTFル運転または試料調整、照射後試料処理にあたって、谷修氏(阪大・工), 伊藤泰男助手(東大・工)の参加があり、また、品川睦明教授(阪大・工), 田畠米穂教授(東大・工); その他の大学関係者との協力研究、実験計画に関する討論を行ったことを付記する。

参考文献

- 1) S. Sato, N. Moriyama, Y. Ikezoe, T. Ishii, M. Hirata, Y. Yamazaki, O. Oshima, and A. Danno, Design and Operational Features of the Low Temperature Fissiochemical Loop, J. Nucl. Sci. Technol. 10, 379 (1973).
- 2) 佐藤, 森山, 助川, 団野, 大島, 岡本, 浜ノ上, 池添, 徳永, 低温化学照射装置(LTFル)の運転報告. I. (昭和44年度運転・特性試験), JAERI-M 4630 (46年11月)
- 3) 佐藤, 森山, 助川, 池添, 小林, 岡本, 浜ノ上, 徳永, 山崎, 大島, 団野, 低温化学照射装置(LTFル)の運転報告II。(昭和45年度運転), JAERI-M 4920 (47年6月)
- 4) 佐藤, 森山, 池添, 清水, 小林, 岡本, 浜ノ上, 徳永, 山崎, 団野, 低温化学照射装置(LTFル)の運転報告. III. (昭和46年度運転), JAERI-M 技稿中。
- 5) 岡本, 徳永, 浜ノ上, 助川, 佐藤, 森山, 池添, 小林, 団野, LTFル内の γ -線量及び熱中性子束の測定, JAERI-M 4867 (47年2月)
- 6) 佐藤, 森山, 池添, 岡本, 浜ノ上, 徳永, 清水, 小林, 団野, エチレン線量計による核分裂片線量の測定, 日本原子力学会昭和47年年会要旨集II, 139 (47年3月 平塚)
- 7) 佐藤, 森山, 池添, 清水, 小林, 山崎, 団野, 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)
- 8) 李, 佐藤, 森山, 池添, 岡本, 浜ノ上, 徳永, 清水, 小林, 団野, U-Pd合金箔から化学反応系へ放出された核分裂生成物の挙動, 日本原子力学会昭和47年年会要旨集II, 23 (47年3月, 平塚)
- 9) 森山, 李, 佐藤, 池添, 清水, 小林, 岡本, 浜ノ上, 徳永, 団野, ワランバラジウム合金箔から化学反応系へ放出された核分裂生成物の挙動, JAERI-M 4878 (47年6月)
- 10) 佐藤, 森山, 池添, 岡本, 浜ノ上, 徳永, 清水, 小林, 団野, 錫素-エチレン系からの放射線によるシアノ化水素の合成, Ⅲ. 核分裂片照射, 日本化学会第26春季年会予稿集I, 470 (47年4月, 平塚)
- 11) 佐藤, 森山, 池添, 清水, 小林, 団野, エチレン線量計におけるLET効果(核分裂片エネルギーの固体燃料脱出効率の測定), 日本化学会第28春季年会予稿集I, 475 (48年4月, 東京神田)

教授の委員の方々に感謝する。使用した核燃料を贈られた米国B.N.LのB. Manowitz, M. Steinbergの両氏等関係者の好意に感謝する。原稿整理に研究部 東悦子夫人に努力していただいた。

本年度のLTFルを用いた協力研究では、LTFル運転または試料調整、照射後試料処理にあたって、谷修氏(阪大・工), 伊藤泰男助手(東大・工)の参加があり、また、品川睦明教授(阪大・工), 田畠米穂教授(東大・工); その他の大学関係者との協力研究、実験計画に関する討論を行ったことを付記する。

参考文献

- 1) S. Sato, N. Moriyama, Y. Ikezoe, T. Ishii, M. Hirata, Y. Yamazaki, O. Oshima, and A. Danno, Design and Operational Features of the Low Temperature Fissiochemical Loop, J. Nucl. Sci. Technol. 10, 379 (1973).
- 2) 佐藤, 森山, 助川, 団野, 大島, 岡本, 浜ノ上, 池添, 徳永, 低温化学照射装置(LTFル)の運転報告. I. (昭和44年度運転・特性試験), JAERI-M 4630 (46年11月)
- 3) 佐藤, 森山, 助川, 池添, 小林, 岡本, 浜ノ上, 徳永, 山崎, 大島, 団野, 低温化学照射装置(LTFル)の運転報告II. (昭和45年度運転), JAERI-M 4920 (47年6月)
- 4) 佐藤, 森山, 池添, 清水, 小林, 岡本, 浜ノ上, 徳永, 山崎, 団野, 低温化学照射装置(LTFル)の運転報告. III. (昭和46年度運転), JAERI-M 投稿中。
- 5) 岡本, 徳永, 浜ノ上, 助川, 佐藤, 森山, 池添, 小林, 団野, LTFル内の γ -線量及び熱中性子束の測定, JAERI-M 4867 (47年2月)
- 6) 佐藤, 森山, 池添, 岡本, 浜ノ上, 徳永, 清水, 小林, 団野, エチレン線量計による核分裂片線量の測定, 日本原子力学会昭和47年年会要旨集II, 139 (47年3月 平塚)
- 7) 佐藤, 森山, 池添, 清水, 小林, 山崎, 団野, 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)
- 8) 李, 佐藤, 森山, 池添, 岡本, 浜ノ上, 徳永, 清水, 小林, 団野, U-Pd合金箔から化学反応系へ放出された核分裂生成物の挙動, 日本原子力学会昭和47年年会要旨集II, 23 (47年3月, 平塚)
- 9) 森山, 李, 佐藤, 池添, 清水, 小林, 岡本, 浜ノ上, 徳永, 団野, ワランバラジウム合金箔から化学反応系へ放出された核分裂生成物の挙動, JAERI-M 4878 (47年6月)
- 10) 佐藤, 森山, 池添, 岡本, 浜ノ上, 徳永, 清水, 小林, 団野, 錫素-エチレン系からの放射線によるシアシ化水素の合成, III. 核分裂片照射, 日本化学会第26春季年会予稿集I, 470 (47年4月, 平塚)
- 11) 佐藤, 森山, 池添, 清水, 小林, 団野, エチレン線量計におけるLET効果(核分裂片エネルギーの固体燃料脱出効率の測定), 日本化学会第28春季年会予稿集I, 475 (48年4月, 東京神田)

- 12) S. Sato, N. Moriyama, Y. Ikezoe, A. Danno, Measurement of Fission Fragment Deposition Efficiency by Ethylene Dosimeter, J. Nucl. Sci. Technol., to be published.
- 13) O. Tokunaga, K. Hamanoue, J. Okamoto, A. Danno, The Radiolysis of Mixtures of Hydrocarbons and Ammonia. I. Formation of Ethylamine from a Mixture of Ethylene and Ammonia, Bull. Chem. Soc. Japan, 45, 1050 (1972)
- 14) K. Hamanoue, J. Okamoto, O. Tokunaga, A. Danno, The Radiolysis of Mixtures of Hydrocarbons and Ammonia. II. Formation of Hydrogen from the Mixtures of Ammonia and Olefins (Ethylene, Propylene and Butadiene), Bull. Chem. Soc. Japan, 45, 1306 (1972)
- 15) 大島, 下沢, 佐藤, 森山, 助川, 山崎, 平田, 石井, 低温化学照射装置の設計計算, JAERI-memo 2833, 昭和42年9月, P. 17.
- 16) 化学工学協会編, 化学工学便覧, 新版, 丸善, 昭和41年, P. 45,
- 17) 文献15のP. 49
- 18) 文献16のP. 500
- 19) 文献16のP. 169
- 20) 日本化学会編, 化学便覧, 基礎編II, 丸善, 昭和41年, P. 504
- 21) 文献16のP. 54
- 22) 大島, 山崎, 下沢, 佐藤, 森山, 助川, 平田, 石井, 低温化学照射装置の設計計算。I. カブセルの気送力について, JAERI-memo 3010, 昭和43年2月
- 23) 文献3のP. 8, 9.
- 24) 文献3のP. 10~12.
- 25) N.I. Sax ed., Dangerous Properties of Industrial Materials, 2nd. ed., Reinhold Pub. Corp., New York, 1963, P. 424, 786, 800.
- 26) J.H. Perry, ed., Chemical Engineers Handbook, 4th. ed., McGraw-Hill Book Co., New York, 1963, P. 23-8, 12, 48.
- 27) 浜ノ上, 岡本, 徳永, 団野, 佐藤, 森山, 池添, 小林, アンモニア-炭化水素混合系の放射線分解, III. アンモニアーオレフィン(エチレン, プロピレン, ブタジエン)混合系における水素の生成, JAERI-M 4573 (46年9月)
- 28) 徳永, 浜ノ上, 岡本, 団野, 佐藤, 森山, 池添, 小林, 不飽和炭化水素-アンモニア混合系の放射線分解, I. エチレン-アンモニア混合系におけるアミンの生成, JAERI-M 4487 (46年6月)
- 29) D. D. Wagman, W. H. Evans, V. B. Parker, I. Halow, S. M. Bailey, R. H. Schumm, Selected Values of Chemical Thermodynamic Properties, NBS Technical Note 270-3, Jan. 1968.
- 30) 清水也, 未発表

- 31) 徳永他, 未発表
- 32) 文献 20 の P. 832
- 33) 阪上, 固体内の粒子トラック法とその発展, その 1, 化学の領域 24, 124
(1970); その 2, 同誌 24, 207 (1970).
- 34) 道家, 固体飛跡検出器における飛跡検出の機構, 應用物理 38, 1065 (1969)
- 35) 文献 22 のカプセル組立図参照
- 36) 文献 3 の P. 23
- 37) 文献 22 のコネクター組立図参照
- 38) 谷, 固体検出器による核分裂片の検出, 夏期実習報告書 (47年8月);
追加報告書 (48年5月)