

JAERI-M

6107

低温化学照射装置 (LTFL) の運転報告・V

昭和48・49年度運転

1975年4月

佐藤 章一・小林 敏明・池添 康正・
清水 三郎・中島 隼人

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、複製などのお問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしてください。

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(LTFLL)の運転報告・V

昭和48・49年度運転

日本原子力研究所・高崎研究所・研究部

佐藤 章一・小林 敏明・池添 康正・

清水 三郎・中島 隼人

(1975年3月28日受理)

昭和48・49年度の2年間に、低温化学照射装置(LTFLL)を各6回と7回運転し、それぞれ99個と102個の試料を入れたカプセル37個と34個を照射した。

この期間に、プロパン-炭酸ガス系、アンモニア-プロピレン系と酸化窒素-アンモニア-エタン系の新規の反応系の照射実験計画と、エチレン線量計、窒素-エチレン系、アンモニア-エチレン系とアンモニア-エタン系の既審査実験計画で、実験条件を拡大する計画とについて、2回にわたり東海研究所原子炉運転委員会による安全審査を受け、承認が得られた。

運転にあたり、48年度前半にはカプセル取出し操作、取扱部排気系統、ヘリウム圧送機冷却水系統などに多少のトラブルがあったが、全部解決され、それ以後は順調に照射運転を行うことができた。前年度から使用開始した4Bおよび4C型カプセルにより、カプセル照射数と運転回数に比較して、照射試料数は多くなり、照射効率は著るしく向上した。この2年間に安全審査された上記の反応系全部の照射を行うことができた。

保守作業では大きな工事はなかった。詳細は本文中に記した。また、今後、高圧気体またはガス発生のある固体、液体試料の核分裂片照射を可能とするため、4D型内カプセル(耐圧150気圧、内容積10ml。固体、液体試料照射時には、核分裂片エネルギー吸収効率を上げるため、スプレーを用いて内容積1mlとすることができる。)を開発することを試みた。試作、耐圧試験、組立試験および圧力検出器の作動試験を行った。

LTFLLを用いた反応実験の結果について、概略を記した。窒素-エチレン系からのシアン化水素生成反応、アンモニア-エタン(および、これに酸化窒素添加)系からのエチルアミン生成反応、プロパン添加炭酸ガスの分解による一酸化炭素生成反応について、核分裂片照射効果、圧力効果、組成効果などの組み合わせとなった複雑であるが興味ある結果が得られている。

Operation Report on the Low Temperature Fissicchemical Loop (LTFL). V. Operations During the Period of April 1973 to December 1974.

Shoichi SATO, Toshiaki KOBAYASHI, Yasumasa IKEZOE,
Saburo SHIMIZU, and Hayato NAKAJIMA

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

(Received March 28, 1975)

During the period of April 1973 to December 1974, the Low Temperature Fissiochemical Loop (LTFL) was operated 13 times, irradiating 71 capsules which contained 201 irradiation samples in total.

The safety aspects were reviewed by the Committee on the Operation and Maintenance of Reactors, JAERI, of the irradiation conditions of the chemical reaction systems; propane - carbon dioxide system, ammonia - propylene system, and nitrogen monoxide - ammonia - ethane system, which were examined for the first time, as well as ethylene dosimetric system, nitrogen - ethylene system, ammonia - ethylene system, and ammonia - ethane system, which were examined for the second time because of the expanded experimental conditions.

In a number of operations in the earlier half of the

F. Y. 1973, a series of minor troubles have occurred with the capsule disconnecting mechanism, the pumping system for the capsule handling section, and the cooling water system of the helium compressor. Later the operations could be carried out without such a trouble, after solutions were worked out. Capsules of the improved designs (type 4B and 4C capsules) were used extensively, more than doubling the efficiency of irradiation operations, as compared to the records of the preceding 3 years. Irradiations of all the above-mentioned reaction systems could be made, which had been reviewed for the experimental safety.

Maintenance works on the loop are described in the text, which include none in a large scale. The design of a new inner capsule (type 4D, maximum test pressure 150 atg, inner volume 10 ml. The inner volume is reduced to 1 ml, when spacers are used for the efficient irradiation of solid or liquid samples by fission fragments.) has been developed. Its fabrication, assembly tests and the test of the pressure gage were generally successful.

Reaction experiments are outlined which have been made during the period. Some interesting results, concerning the effects of fission fragment irradiation, pressure, and reactant composition, have been obtained for reactions of nitrogen - ethylene system to produce hydrogen cyanide, ammonia - ethane system (with and without nitrogen monoxide addition) to produce ethylamine and carbon dioxide - propane system for efficient production of carbon monoxide.

目 次

1	はじめに	1
2	安全審査	1
2.1	計画Ⅱ, X, XI	1
2.2	計画Va, VIa, VIIa, VIIIa	3
2.3	安全審査	3
3	照射運転	6
3.1	運転の概要	6
3.2	運転の経過	7
3.3	照射運転のまとめ	11
4	保 守	19
4.1	一般点検	19
4.2	ヘリウム圧送機冷却水系統洗浄	19
4.3	液体窒素炉外タンク塗装	19
4.4	ラインポンプの取付	20
4.5	電気系統絶縁抵抗試験	21
4.6	計測系の点検調整	21
4.7	高周波誘導加熱装置電気配線	21
4.8	補助計器の点検調整	21
4.9	そ の 他	22
5	4 D型試作カプセルの開発	23
5.1	構造と試験の概要	23
5.2	耐圧試験	23
5.3	圧力検出試験	23
6	L T F Lによる照射実験	28
6.1	窒素とエチレンの反応	28
6.2	アンモニアと炭化水素の反応	28
6.3	炭酸ガスの反応	29
6.4	そ の 他	30
7	結 語	31
	謝 辞	31
	参考文献	32

1 はじめに

高崎研究所研究部東海駐在グループは、昭和44年から低温化学照射装置(Low Temperature Fissiochemical Loop, LTFL)¹⁾を、核分裂片を含む炉内放射線による化学反応実験のために運転してきた。昭和44年は装置の特性試験を行い²⁾、昭和45年度以降、照射のための運転を行ってきた。^{3,4,5)}

本報告で扱う昭和48, 49年度は、LTFLによる照射実験とその前段階としての γ 線照射実験とで、核分裂片と炉内放射線線量測定のためのエチレン線量計,^{6,7,8)}窒素-エチレン系からのシアン化水素生成反応,^{9,10,11,11a)}アンモニア-エタン系からのエチルアミン生成反応,^{12,13,14,15,15a)}および添加物を用いた炭酸ガス分解(一酸化炭素生成)反応^{16,17,18,19,19a)}を中心として扱った。この間、固体、液体または高圧気体試料用の新型(4D型)内カプセルの開発や、トラブルのない運転が可能となる機器改善などにより、照射に関連した技術も進んだ。特に、47年度以降に使用している新型(4B, 4C型外カプセル, 4B, 4C型内カプセル)カプセルにより、この両年度は、1回、2~4回の運転で5(外)カプセル、13~15試料を照射することができた。運転そのものでも、48年度前半にはトラブルがあったが、問題が解決されてからは全く順調に照射を行うことができた。48年度後半から、本グループで新テーマの研究が開始されたため、運転回数は年間6, 7回になったが、前記新型カプセル使用と運転維持の適切なことにより、照射試料数は48, 49年度それぞれ99および102となり、その前3年間(45年度21ケ, 46年度55ケ, 47年度49ケ)と比較して、極めて実り多い成果をあげることができた。

この2年間に行われた、試料照射計画の所内安全審査、LTFLの運転と保守作業、および高圧用新型カプセルの開発の経過について述べ、またLTFLを用いて行った照射実験の概略についてまとめた。

2 安全審査

LTFLで照射する試料については、実験条件が定まるとして所内安全審査を受けることが定められている。照射実験を計画した2.1, 2.2項の計画について、このため昭和48, 49年度の間2回にわたり、東海研究所原子炉運転委員会(以下、委員会とする)の安全性に関する審査を受けた。ここに、新反応系についての計画IX, X, XI, および以前審査された反応系であるが、実験条件を変更した計画Va, VIa, VIIa, VIIIa について、計画の概要と安全性の検討結果を述べる。このうち、計画IXのみは49年10月第96回委員会で、他は48年10月第85回委員会で審査された。

2.1 計画IX, X, XI

これまでLTFLで照射したことがない、新しい反応系について実験計画を立てた。反応系

1 はじめに

高崎研究所研究部東海駐在グループは、昭和44年から低温化学照射装置 (Low Temperature Fissiochemical Loop, LTFL)¹⁾ を、核分裂片を含む炉内放射線による化学反応実験のために運転してきた。昭和44年は装置の特性試験を行い²⁾、昭和45年度以降、照射のための運転を行ってきた。^{3, 4, 5)}

本報告で扱う昭和48, 49年度は、LTFLによる照射実験とその前段階としての γ 線照射実験とで、核分裂片と炉内放射線線量測定のためのエチレン線量計,^{6, 7, 8)}窒素-エチレン系からのシアン化水素生成反応,^{9, 10, 11, 11a)}アンモニア-エタン系からのエチルアミン生成反応,^{12, 13, 14, 15, 15a)}および添加物を用いた炭酸ガス分解(一酸化炭素生成)反応^{16, 17, 18, 19, 19a)}を中心として扱った。この間、固体、液体または高圧気体試料用の新型(4D型)内カプセルの開発や、トラブルのない運転が可能となる機器改善などにより、照射に関連した技術も進んだ。特に、47年度以降に使用している新型(4B, 4C型外カプセル, 4B, 4C型内カプセル)カプセルにより、この両年度は、1回、2~4回の運転で5(外)カプセル、13~15試料を照射することができた。運転そのものでも、48年度前半にはトラブルがあったが、問題が解決されてからは全く順調に照射を行うことができた。48年度後半から、本グループで新テーマの研究が開始されたため、運転回数は年間6, 7回になったが、前記新型カプセル使用と運転維持の適切なことにより、照射試料数は48, 49年度それぞれ99および102となり、その前3年間(45年度21ケ, 46年度55ケ, 47年度49ケ)と比較して、極めて実り多い成果をあげることができた。

この2年間に行われた、試料照射計画の所内安全審査、LTFLの運転と保守作業、および高圧用新型カプセルの開発の経過について述べ、またLTFLを用いて行った照射実験の概略についてまとめた。

2 安全審査

LTFLで照射する試料については、実験条件が定まるとして所内安全審査を受けることが定められている。照射実験を計画した2.1, 2.2項の計画について、このため昭和48, 49年度の間2回にわたり、東海研究所原子炉運転委員会(以下、委員会とする)の安全性に関する審査を受けた。ここに、新反応系についての計画IX, X, XI, および以前審査された反応系であるが、実験条件を変更した計画Va, VIa, VIIa, VIIIa について、計画の概要と安全性の検討結果を述べる。このうち、計画IXのみは49年10月第96回委員会で、他は48年10月第85回委員会で審査された。

2.1 計画IX, X, XI

これまでLTFLで照射したことのない、新しい反応系について実験計画を立てた。反応系

は、アンモニアとプロピレン混合系（照射実験計画Ⅸ）、炭酸ガスとプロパン混合系（照射実験計画Ⅹ）、およびアンモニアとエタンの混合物に酸化窒素を添加した系（照射実験計画Ⅺ）である。

次節の計画Ⅴa-Ⅷa関係のものも含めて、用いる反応原料の純度等を表1に示す。炭化水素アンモニア等は、空気と混合して爆発性混合物になる可能性があるので、安全審査上もその性

表1 反応原料の性質

反 応 原 料			爆 発 限 界 (空气中%)	発火点 (℃)
化 合 物	純 度 (%)	製 造 元		
アンモニア	99.99	Matheson	15.5-27.0	651
プロピレン	99.7	"	2.0-11.1	458
炭酸ガス	99.99	日本酸素	—	—
プロパン	99.99	Matheson	2.4-9.5	493
エタン	99.7	高千穂化学	3.3-10.6	510
酸化窒素	99.8	"	—	—
エチレン	99.8	"	3.0-3.4	543
窒素	99.995	日本酸素	—	—

質を調べておく必要がある。実際の実験操作上は、排気により気密性を各個に試験したカプセルにて、本表のような得られる限りの高純度原料を充填し、発火点以上にはなり得ない条件でのみ扱うので問題はない。

各実験計画での実験条件を表2に示した。用いる核燃料は全部93.3% ²³⁵U の20%U-

表2 照射実験条件

計画番号	Ⅸ	Ⅹ	Ⅺ
反応系	$\text{NH}_3 + \text{C}_3\text{H}_6$	$\text{CO}_2 + \text{C}_3\text{H}_8$	$\text{NH}_3 + \text{C}_2\text{H}_6 + \text{NO}$
初圧 (ata) (注1)	14.0	13.5	14.4
核燃料 (cm ²) (注2)	10	10	10
反応系混合率	0-100% C_3H_6	0-50% C_2H_8	0-100% C_2H_6 NO添加率3%以下
照射時間(h)	25	25	5
照射温度	常温~-190℃		

(注1) 300°Kにおける全圧

(注2) 試料カプセル(1外カプセル当り3ヶ以下)1ヶ当りのU-Pd合金箔使用面積の最大値。

80%Pd合金箔、厚さ2.1μ、両面にそれぞれ0.2μのPt被覆をしたBNL製のもので、面

積密度 $0.503 \text{ mg } ^{235}\text{U}/\text{cm}^2$ である。このほか外カプセル1ケにつき2ケづつの $1 \text{ mm} \phi \times 1 \text{ mm}$ Lのコバルトペレットを入れ、熱中性子束モニターとする。

2.2 計画 Va, VIa, VIIa, VIIIa

これまで、エチレン（計画 V，46年3月第56回委員会）、窒素-エチレン混合系（計画 VI，同前）、アンモニア-エチレン（計画 VII，47年8月第70回委員会）、およびアンモニア-エタン（計画 VIII，同前）の各系については、安全審査が行われ、計画は承認されている。これらの計画は、LTFE実験の設計時期のデータを基礎として、カプセルの残留放射能（一番の基礎としては、試料照射位置での熱中性子束）が過大に評価された状態で安全性を検討していたため、非現実的な余裕があったが、研究計画の進展に伴い、実測値が出て、考慮すべき限界を検討の上、実験条件を拡張する必要が生じたものである。（例えば、照射位置の熱中性子束は、JRR-3炉心の設計値、 $7 \times 10^{12} \text{ n/cm}^2 \text{ sec}$ を用いていたが、Coモニターによる実測値は $3.0 \times 10^{11} \text{ n/cm}^2 \text{ sec}$ である。）試料の充填圧（初圧）と照射時間とを改めて拡張した新計画について、安全審査を求めるとした。新、旧計画の照射条件の相異点を表3に示す。

表3 照射実験条件（注1）

計画番号	V (Va)	VI (VIa)	VII (VIIa)	VIII (VIIIa)
反応系	C_2H_4	$\text{N}_2 + \text{C}_2\text{H}_4$	$\text{NH}_3 + \text{C}_2\text{H}_4$	$\text{NH}_3 + \text{C}_2\text{H}_6$
初圧 (ata)	10 (14)	10 (14)	14	14
核燃料 (cm^2)	12	12	10	10
反応系混合率	—	0-100%	0-100%	0-100%
照射時間 (h)	5 (25)	5 (25)	5 (25)	5 (25)
照射温度	常温 $\sim -190^\circ\text{C}$			

（注1）（）内は新計画の値。他は同じ。

2.3 安全審査

安全審査はこれまで^{3,5)}と同様に、試料の爆発性、腐蝕性、誘導放射能、反応原料充填圧（初圧）、G値、反応熱の各性質について、実験条件で安全性が保たれるかどうかを検討した。結果は以下の通りで、実験にあたり空気混入のないよう、純度に留意した反応原料を用いることにより、充分安全性は保たれると結論された。

(i) 爆発性：試料のうち炭化水素とアンモニアは、空気と混合すれば爆発性をもつことがあり得るが、試料調整にあたり実験精度上の必要程度注意すれば、どの系でも爆発限界に入ることはない（試料封入装置の排気性能は 10^{-3} mmHg 程度であるから、空気混入は 10 ppm 以下と考えられ、実験上も数百 ppm の酸素混入があれば、著るしく生成物分布が変わるので、これ以下にする必要がある）。ただ、酸化窒素（計画 XI）のみは、単独または空気との混合物には爆発性がないが、酸化性物質であり、炭化水素、アンモニアと混合して（化学組成から考

えて純酸素よりは安全側だろうが、空気の場合よりは広い爆発限界をもつ可能性がある。文献は見当たらない。) 危険が生じ得る。実験計画で、アンモニアとエタンの混合物に3%以下の酸化窒素を混合することを考慮しているので、アンモニアとエタンの発火限界上限を見ると、アンモニアは空气中27.0%、酸素中79%、エタンは空气中で10.6%、酸素中で66%である。つまり、純酸素をアンモニアに混合する場合、酸素21%までは発火限界に入らない。従って、酸化窒素が3%以下混入したアンモニア、エタンまたはその混合物は、発火限界の充分外側であるとみられる。

(ii) 腐蝕性：内カプセルの材質は、18Cr-8Ni オーステナイト鋼(SUS 304)であり、反応原料のみでは酸化窒素を除き、常温以下、水不在の条件で腐蝕性は全くない。酸化窒素およびアミン、シアン化水素等の反応生成物についても、同じ条件で腐蝕性はほとんどないと考えられ、また量、濃度も小さいので安全性は充分保たれる。

(iii) 放射能：計画された反応物質は、炭素、窒素、酸素、水素からなるものであるから、誘導放射能は安全上全く問題がない。なお、核分裂片線源のウラン-パラジウム合金の誘導放射能については、装置設計時に解析を行って、カプセルあたり36mg ^{235}U まで安全性が保たれることが示されている。計画量10-12mg ^{235}U / 試料カプセルの量では外カプセル当り3本の試料カプセルを用いる4型カプセルでも、この範囲内にあり安全である。

(iv) 充填圧：試料カプセルへの反応気体充填圧は、雰囲気温度、放射線化学反応、熱反応(熱分解)による圧変化を評価してきめることができる。

充填時の温度、300°Kを基準とするとき、試料カプセルの最高温度は、通常の操作では照射中の温度である。照射中の試料カプセル温度の実測最高値は32°Cであるが、さらに安全側に評価するため、カプセルをプラグ先端に放置し、かつヘリウム圧送機が停止した事故を考える。プラグ先端位置温度計は、カプセル照射位置より炉心側に20cm以上離れた位置であるが、その実測値はヘリウム圧送機を停止してから1時間後に100°C程度、2時間で150°C、その後の平衡値で約200°Cである。位置関係も考えると、このような事故時での照射位置のカプセル温度は120°C程度に見積っておけばよいであろう。この温度を最高温度とすれば、カプセル初圧 P_0 、温度上昇による圧増加 ΔP_1 として、圧力上昇率 $(\Delta P_1/P_0) = (120 + 273)/(300) - 1 = 0.33$ となる。

放射線化学反応による圧力変化は、 γ 線を $10^7 - 10^9 \text{ R}$ 照射したとき、 C_2H_4 単独(Va)、 $\text{C}_2\text{H}_4 + \text{NH}_3$ (Vla)、 $\text{C}_2\text{H}_6 + \text{NH}_3$ (Vla)、 $\text{C}_3\text{H}_8 + \text{NH}_3$ (X)、 $\text{C}_2\text{H}_6 + \text{NH}_3 + \text{NO}$ (M)の各系で、全圧が減少することが実測された。これらの系で、反応による圧力増加 ΔP_2 とすれば、圧力上昇率 $(\Delta P_2/P_0) = 0$ として安全側である。 $\text{C}_2\text{H}_4 + \text{N}_2$ 系(Vla)では全圧の実測がないが、主反応を $\text{C}_2\text{H}_4 + \text{N}_2 = 2\text{HCN} + \text{H}_2$ と考えると、実験条件での最大値は $(\Delta P_2/P_0) = 0.007$ である。 $\text{CO}_2 + \text{C}_3\text{H}_8$ (50%以下、計画K)では、 CO_2 単独および5% C_3H_8 添加の場合 $3 \times 10^8 \text{ R}$ 照射後、全圧(初圧 $P_0 = 1$ 気圧)は減少したが、50% C_3H_8 では同じ線量で1.05倍に圧力が増大した。安全側に考えるため、 $\text{C}_3\text{H}_8 = \text{C}_2\text{H}_4 + \text{CH}_4$ の反応で1モルの反応物質から2モルの生成物が得られる場合を基準に考え、 $(\Delta P_2/P_0) = 0.125$ となった。

熱分解による圧力上昇率 $\Delta P_3/P_0$ は、試料の雰囲気温度範囲として-190°C~+120°Cを

とって、この間で熱分解する物質はないので0とおける。

以上の3項目の圧力上昇率のうち、負となるものは0とおき、どのような場合にもカプセル内圧が、カプセル使用最高圧力20気圧(ラプチュアプレート作動圧50気圧)を超えないようにするためには、充填圧の最高値を次式で求められる値以下とすればよい。前記、各計画で

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

の最高初圧は、 P_{\max} 以下となるように定めてある。

(V) G 値：放射線化学反応の進行が、著るしく急激であれば、特に発熱反応では危険がある。この意味で、主な反応のG値を γ 線照射により測定したが、10以上の値を示したものはほとんどなく、基準値1000を超えることは全くなかった。従って安全上問題はない。

(VI) 反応熱：考えられる主な反応について、熱力学的な反応熱 ΔH を求めたが、基準となる200 kcal/moleを超える系はなく、安全上の問題はない。

3 照射運転

3.1 運転の概要

48・49年度のLTFLの運転では、カプセル取出し操作、取扱部排気系統、圧送機冷却水系統などに関連して、前半多少のトラブルはあったものの、大きなものはなく、ほぼ予定通りの照射が行えた。カプセル計測系に関するトラブルはカプセル組立て、コネクタへの取付けの手順、検査の改善でほとんど解消し、排気系統については部品交換、作業の注意で、圧送機冷却水については圧送機洗浄と給水系へのラインポンプ取付けで一応解決した。排気系統については、ポンプのオーバーホールが望ましい時期に来たとみられる。

照射は、反応研究の中心的興味は、低温反応より核分裂片照射反応へ移行したため、この2年間低温運転は行わなかった。また、線量測定関係の研究も一段落した後なので、線量計試料は各サイクル毎のルーチン測定用のみであった。照射試料は、4Bまたは4C型内カプセル²²⁾計3本を4型(主に4C型、一部4B型)外カプセル²³⁾1本に入れて照射したので、外カプセル1ケにつき3試料が照射できる場合が多く、照射の能率は著るしく向上した。

照射時の線量測定は、昭和46年度以降コバルトペレットによる熱中性子束測定と、エチレン線量計による $n + \gamma$ 線量測定を行ってきた。

熱中性子束測定用のコバルトペレット(1mm ϕ ×1mmL)は、各カプセル毎に2ケを用いている。1ケは内カプセルのプラグ側端面より18mm、他は123mmの位置に、当初はアルミ箔に包んだペレットを針金で耐蝕アルミニウム合金製の3型カプセル用伝熱フィンに固定し、また48年度末からは、固定位置に1.2mm ϕ の穴をあけたアルミニウム板(7×142×2mm)中にペレットを入れ、上からアルミニウム薄板(6mmW, 0.5 mmt)で巻きつけ抑える方法で固定した。照射後⁶⁰Coの γ 線放射能測定により、各カプセル毎に熱中性子束を測定する。熱中性子束の測定値の平均は、先端18mm位置で 3.7×10^{11} 、後部123mm位置で 2.3×10^{11} 、前後平均して 3.0×10^{11} n/cm² secであった。48年8月から49年12月までの期間は、JRR-3第3ステップ燃料交換後、第4ステップ交換前にあたり、炉心が著るしく変化しなかった時期であったためか、測定値の標準偏差は 0.2×10^{11} 以下、相対誤差約7%と、割合安定した値を示した。

また、各運転毎に1-3ケの無核燃エチレン線量計試料を照射し、運転毎の $n + \gamma$ 線量率測定を行ってきた。1試料の場合には、エチレン圧は1気圧、3試料の場合には1気圧のもの2ケ、2気圧のもの1ケを用いている。これまでの結果によれば、コバルトペレットによる熱中性子束測定値と、エチレンによる $n + \gamma$ 線量率測定値はほぼ比例関係が成立する。

運転は原則として1班2名、12時半交代で行い、必要な時は早番、遅番それぞれが多少超勤する形式をとった。この報告の期間、照射開始前に時間を要する低温運転がなく、また大きなトラブルも無かったので、超勤を必要としたことはほとんどない。全運転共、照射位置は最先端、炉出力は73-5A運転時以外は10MWで行った。

3.2 運転の経過

(1) 73-1 運転

アンモニアとエチレン，エタン，プロピレンの混合物の無核燃試料12ケとエチレン線量計1ケを入れた5カプセルを照射した。

今回照射のうち，第2発目40-14カプセルについて照射終了後の取出操作時に次のトラブルがあった。本カプセルは4時間照射を正常に行ったが，カプセル落下操作時に試料取出部のホトランジスター位置付近にカプセルが止まり，キャスク・コンテナに収納できなくなった。

やや長時間の照射直後であるためカプセルの放射能が大きく，取出作業は困難であるため，翌朝まで放置し放射能が減衰してから処理することとし，放射線管理課担当者に周辺モニター等の処置を依頼した。試料挿入蓋上で約1R/hであったが，装置境界線付近では10~30mR/hのリークであった。このため，リーク位置に実験装置をもつ東大物性研グループに情況説明を行った。カプセルが照射位置でないため原子炉本体への危険性は無く，周辺へのリーク以外には支障がないのでそのまま停止操作を行った。この間JRR-3管理課とも打合せを行った。

翌朝，試料挿入蓋を開け鏡でカプセルを確認し，棒で突いてキャスク・コンテナに落下させた。この時の作業手先位置の最大線量率は1R/h程度であったが，作業は極めて短時間で終了した。ポケット線量計による胸部被曝量は小であった。48年第1四半期(48.4~48.6)の関係者の全身被曝は全員検出限界以下，局部(フィルムリング，手先)被曝は160mR1名，30mR3名であった。

本トラブルは，以前(48年2月20日，72-5 運転)発生したトラブル²⁴⁾と同じ位置で起きたが，前回以後，カプセル先端部の削りと丸味づけを行っていたため，今回は僅かな機械的衝撃で簡単に落下した。従って，前回のように先端部を穴にひっかけたのではなく，落下機構下の落下ガイド板に僅かに止り，先端を当り部に接して停止したものと見られる(前回報告⁵⁾図12の(A)，(B)の中間程度の状況)。今後の方針として，このカプセル先端部の加工を充分に行い，また，カプセル胴部の研磨を行うこととした。

(2) 73-2 運転

アンモニアとエチレン，エタンおよび窒素とエチレンの混合物の核燃共存および無核燃試料12ケとエチレン線量計1ケを入れた5カプセルを照射した。

今回の照射は予定通り行ったが，9月でまだ水温がかなり高く(25~27℃)，連続運転時にヘリウム圧送機のクロスヘッド水温が45℃付近に達しやすくなった。この水温の限度は絶対的なものではなく，47年1月の圧送機オーバーホール直前には60℃にも達したことがあり，それ以後も50℃までは上昇したことがある。²⁵⁾しかし，高温では保守上問題があることは確かなので，カプセル照射時間以外は圧送機を停止するようにして，同水温を45℃以下に抑えた。この点に関しては，冷却水流量を増加する処置により根本的に解決することとし，冷却水供給系にラインポンプを入れ，昇圧する工事を計画した(4.2，4.4 節参照)。

(3) 73-3 運転

アンモニアとエチレン，エタンおよび窒素とエチレンの混合物の核燃共存試料12ケとエチレン線量計1ケを入れた5カプセルを照射した。

今回は、前回運転直後に応急処置として、圧送機内部の水アカ洗浄を行ったことと、たまたま水圧がやや高かったため、クロスヘッド水温はあまり上らず、数時間の運転でも40℃に達したのみであった。また、圧送機の油漏れが見出されたが増し締めでほとんど止った。ただ起動時操作する手動ウイングポンプ軸部の漏れは完全には止らなかつたが、半年に1回1~2ℓの油補給を要する程度である。その他、カプセル関係では、圧力または温度指示が、多分コネクター部の接触不良によると思われる異常を示したが、照射には直接問題となるものではなく、全体として今回運転は順調であった。

(4) 73-4 運転

前2回と同様、アンモニアとエタン、エチレンおよび窒素とエチレンの混合物の核燃共存試料12ケとエチレン線量計1ケを入れた計5カプセルを照射した。

照射は予定通り行えたが、取扱部の排気が不良で、通常0.1~0.3 mmHgまで排気できるのに、約2 mmHgまで達したのみで真空度上昇が停止した。このため、ヘリウムによるバージを2回行った。このほか、ヘリウム圧送機の起動時に初めて油圧高の警報1段が出たが、これは低温のためやや油の粘性が高くなっていたためとみられ、起動後約1分で消えた。また、カプセルの温度計、圧力計の接触不良によると思われる指示不良が2カプセルあった。今後はカプセルのコネクターピンの曲りなどの調整を充分行うこととした。

(5) 73-5 A, 73-5 運転

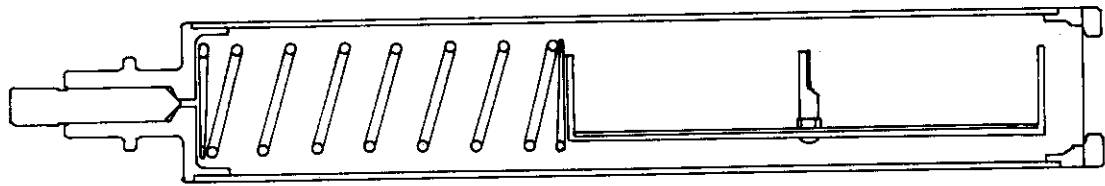
炭酸ガスに1-10%のプロパンを添加した無核燃試料12ケとエチレン線量計1ケを入れた5カプセルを照射した(73-5 運転)。今回は、このルーチンの照射のほか、本サイクルの炉起動時に、炉出力100 kWでカプセル1ケを照射した(73-5 A 運転)。

73-5 A 運転では、固体の核分裂片検出器として白雲母(Muscovite)を用い、核燃料と検出器の幾何学的配置を変え、エチレン充填圧を0.5および1気圧とした3試料(FTD-4, 5, 6、図1参照)を入れた1カプセルを協力研究(阪大・工・品川研)試料として照射した。これは、72-2 運転(47年7月)に照射した固体検出器試料と同系統の補充実験として行われた。照射は前回と同様、原子炉起動時の定出力試験時期を利用して、短時間に行ったものである。

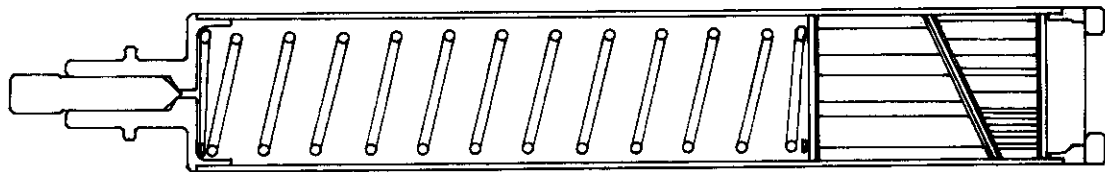
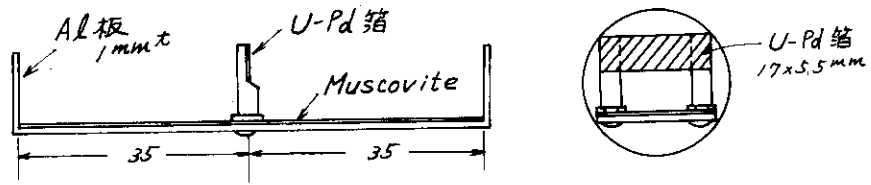
73-5 運転では、カプセル関係のトラブルはなかつたが、外的原因で最終照射のD-84(エチレン線量計)カプセルは、4時間照射の予定を37分で中断した。すなわち、照射開始37分後にヘリウム圧送機冷却水(濾過水)の水圧が低下(通常 2 kg/cm^2 以上であるのが、 0.3 kg/cm^2 まで低下した)し、圧送機が自動停止、カプセルが自動引き戻しとなった。約10分後に水圧は正常値に復帰したが、放射化したカプセルを直ちに再照射することは不可能であるため、カプセルをキャスク・コンテナに収納し、運転を終了した。断水の原因は、JRR-2 高架水槽用真空ポンプの配線工事のため制御盤電源を切ったとき、JRR-3 冷却塔で約20 t/hを使用していたため、10分間ほど水槽が空になったことによる。そのほかは、運転は順調であった。

(6) 73-6 運転

炭酸ガスにプロパンを添加した核燃、無核燃試料計12ケとエチレン線量計1ケを入れた5カプセルを照射した。



FTD-5



FTD-4.6

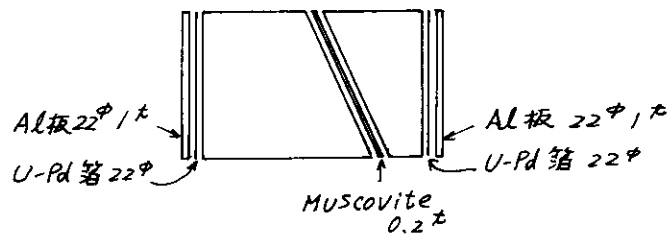
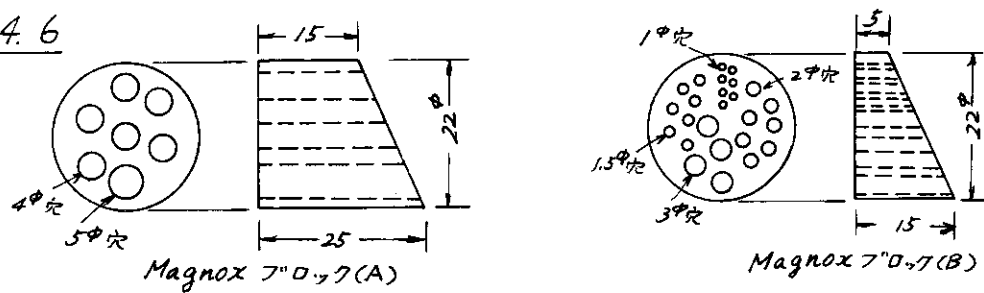


図1 固体検出器試料カプセル組立断面図

試料カプセル(4B型内カプセル)内FTD-4には 0.505 kg/cm^2 , FTD-5, 6には 1.005 kg/cm^2 (18.5°C)の C_2H_4 を充填, 4B型外カプセルに納めた。

照射は順調に行われ、カプセル関係計器の動作、ヘリウム圧送機関係指示(クロスヘッド水温最高39℃、水流量最低0.80m³/h)も正常であった。ただ、2回にわたり放射線モニター(RaICA-1,2)が10³cpm程度に短時間急上昇し警報1段が出たが、LTFL近くにある気送管操作によるものらしく、短時間で、また警報2段(RaICA-1のH2は、出ればカプセル自動引戻と圧送機停止)に至らなかったため照射には直接の影響はなかった。

(7) 73-6A 運転

73-6運転と同じサイクルで、研究計画上の理由により、さらに炭酸ガスとプロパンの系の核燃共存試料18ケを入れた6カプセルを照射した。今回も照射は順調であったが、再び試料取扱部排気系回転ポンプRP-2の作動が時に不調になる現象が生じた。これはRP-2のみを運転し、拡散ポンプDP-2を止めたとき、「荒引」系のバルブ(油圧、シーケンス作動)動作となるべきところ、「荒引補助バルブ」が入ったままとなるためと見られ、制御盤でRP-2操作ボタンのON, OFFを2回位操作することで訂正できる。

(8) 74-1 運転

前年度に引き続き、プロパン添加および無添加の炭酸ガスの核燃、無核燃試料12ケとエチレン線量計試料3ケを入れた5カプセルを照射した。

エチレン線量計は分析誤差を少なくするため、今回から原則として、4B型内カプセル²²⁾3ケを4C型外カプセル²³⁾に納めたもの(カプセル番号、4B-XXとする)を用いることにした。この型の内外カプセルの組合せは47年度にエチレン線量計関係のための試料として(72-4運転)、47、48年度に固体試料照射用として3回(72-2、72-6、73-5A運転)既に用いたことがあるが、ルーチンの各運転で照射するエチレン線量計用に用いるのは今回からである。反応試料はこれまで同様4C型内カプセル3ケを4C型外カプセルに納めたもの(カプセル番号4C-XX)を用いている。

今回運転は順調に行うことができた。ヘリウム圧送機冷却水は、前回運転後(49年2月)に供給系統中にラインポンプを増設し、水圧上昇を行う工事を行ったので流量が充分であった。このため一時クロスヘッド水温47℃となったが、弁の調節により連続運転中も45℃以下に保てるようになった。排気系も特に問題を生じなかった。

(9) 74-2 運転

プロパン添加炭酸ガスの核燃共存および無核燃試料12ケとエチレン線量計試料3ケを入れた5カプセルを照射した。

照射は予定通り行ったが、試料カプセル温度計(熱電対)の指示不良が3ケあり、原因を調べるため回路抵抗等を試験したが異常がなく、工作上の問題と考えられる結果となった。今後、カプセル組立時の試験をさらに入念に行うこととした。また、DP-1、RP-1の排気系統の排気性能が低下したので、点検の結果、この系統の補助系としてついているエジェクターポンプEP-1の引口の真空用肉厚ゴム管の劣化を見出し、これを交換、またオイル補給を行って1×10⁻²mmHg程度まで排気するようになった。この件は、今回運転後回転ポンプオイル交換を行い、その後正常値(≤10⁻³mmHg)に復帰した。

(10) 74-3 運転

アンモニアとエタン、エチレン系の核燃共存試料12ケとエチレン線量計3ケを入れた5カ

プセルを照射した。運転は順調であった。

(11) 74-4 運転

アンモニアとエタン、エチレン系の無核燃試料9ケとエチレン線量計3ケを入れた4カプセルを照射した。今回運転は無核燃試料で、特に照射時間の長いものが多い(照射時間、カプセル当り2.5-6.3時間)ため、1日1カプセルの照射を行って4日間で終了した。運転は順調で、コネクターの残留放射能も最悪条件の第4日目(前日に6.3時間照射した次の朝)でコネクター表面700mR/h程度であり、カプセル取付け時の限界3R/h²⁶⁾を下まわった。

(12) 74-5 運転

アンモニアとエチレン混合系の核燃共存、無核燃試料12ケとエチレン線量計試料3ケを入れた5カプセルを照射した。照射、運転共に全く順調で、カプセル関係、ヘリウム圧送機関係、排気系関係も正常であった。

(13) 74-6 運転

窒素とエチレン混合系の核燃共存および無核燃試料12ケとエチレン線量計試料3ケを入れた5カプセルを照射した。今回も照射、運転共、順調であった。

(14) 74-7 運転

10%アンモニアと90%エタンの混合系に一酸化窒素を添加した系の核燃共存、および無核燃試料14ケとエチレン線量計1ケを入れた5カプセルを照射した。一酸化窒素添加系については、49年10月に照射計画の安全審査が行われ、承認を受け試料調製、照射を行ったものである。今回も、照射、運転共に順調であった。

3.3 照射運転のまとめ

48、49年度は、アンモニア+エタン、エチレン、プロピレン系、炭酸ガス+プロパン系の核分裂片による反応研究のための試料を中心に、全部常温でL T F L照射を行った。結果を表4にまとめた。

48年度は、6回の運転で99試料(内、核燃入45)を入れた37カプセルを、49年度は、7回の運転で102試料(内、核燃入44)を入れた34カプセルを照射した。試料の内訳は、エチレン線量計25(無核燃)、窒素+エチレン24(内、核燃入12)、アンモニア+エチレン42(同、20)、アンモニア+エタン(同、19。酸化窒素添加系も含む)、アンモニア+プロピレン4(無核燃)、炭酸ガス+プロパン66(内、核燃入35)、および協力研究のための固体検出器試料3(核燃入)となる。

この2年間の13回の運転で照射された試料数201ケは、その前3年間(45年;21試料、46年;55、47年;49、計125試料)の23回の運転での照射試料数の2倍近い数となった。これは、3試料(3内カプセル)を1カプセル(外カプセル)に入れる4型(4B、4C)カプセルが47年度後半から実用化されて、照射の能率が向上し、経費も節減されたことと、大きなトラブルが発生せず、維持作業が適切であったことによるといえよう。

表 4 照射試料と運転

L T F L 照射運転 %	J R R - 3 サイクル (炉出力)	年月日	試料		試料組成			全圧 (atm)	U-Pd箔 (cm×cm)	照射	
			カプセル %	試料 %	試料組成	位置 (cm)	照射温度 (C)			照射時間	
73-1	48R3-01 (10MW)	48-4-18	4C-13	A-33	95%NH ₃ + 5%C ₂ H ₆	1	0	0	25	3h	
			A-	37	95%NH ₃ + 5%C ₂ H ₄	1	"	"	28	4h	
			A-	41	10%NH ₃ + 90%C ₂ H ₆	2	0	"	24	2h	
			4C-14	A-34	95%NH ₃ + 5%C ₃ H ₆	1	0	"	26	1h	
			A-	38	95%NH ₃ + 5%C ₂ H ₄	1	"	"	25	4h	
			A-	42	10%NH ₃ + 90%C ₂ H ₆	2	0	"	27	10.8m	
			4C-12	A-32	95%NH ₃ + 5%C ₃ H ₆	1	0	"	31	1h15m	
			A-	36	95%NH ₃ + 5%C ₂ H ₄	1	"	"	31	1h15m	
			A-	40	10%NH ₃ + 90%C ₂ H ₆	2	0	"	30	20m	
			4C-11	A-31	95%NH ₃ + 5%C ₃ H ₆	1	0	"	32	4h	
A-	35	95%NH ₃ + 5%C ₂ H ₄	1	"	"						
A-	39	10%NH ₃ + 90%C ₂ H ₆	2	0	"						
D-55					C ₂ H ₄	1	0				
73-2	48R3-04 (10MW)	48-9-19	4C-20	A-54	10%NH ₃ + 90%C ₂ H ₆	1	0.5×5	0	27	10.8m	
			A-	45	90%NH ₃ + 10%C ₂ H ₄	1	"	"	31	1h15m	
			R-	52	95%N ₂ + 5%C ₂ H ₄	1	0	"	31	1h15m	
			4C-26	A-57	10%NH ₃ + 90%C ₂ H ₆	1	0	"	30	20m	
			A-	48	90%NH ₃ + 10%C ₂ H ₄	1	"	"	32	4h	
			R-	55	95%N ₂ + 5%C ₂ H ₄	1	0	"			
			4C-25	A-56	10%NH ₃ + 90%C ₂ H ₆	2	0	"			
			A-	47	90%NH ₃ + 10%C ₂ H ₄	2	0	"			
			R-	54	95%N ₂ + 5%C ₂ H ₄	2	0.5×5	"			
			4C-19	A-53	10%NH ₃ + 90%C ₂ H ₆	2	0	"			
A-	44	90%NH ₃ + 10%C ₂ H ₄	2	"	"						
R-	51	95%N ₂ + 5%C ₂ H ₄	2	"	"						
D-75					C ₂ H ₄	1	0				

73-3	48R3-05 (10MW)	48-10-18	4C-17 A- 63 A- 72 R- 61 4C-24 A- 55 A- 46 R- 53 4C-23 A- 66 A- 75 R- 64 4C-18 A- 52 A- 43 R- 50 D-81	10%NH ₃ +90%C ₂ H ₆ 90%NH ₃ +10%C ₂ H ₄ 95%N ₂ + 5%C ₂ H ₄ 10%NH ₃ +90%C ₂ H ₆ 90%NH ₃ +10%C ₂ H ₄ 95%N ₂ + 5%C ₂ H ₄ 10%NH ₃ +90%C ₂ H ₆ 90%NH ₃ +10%C ₂ H ₄ 95%N ₂ + 5%C ₂ H ₄ 10%NH ₃ +90%C ₂ H ₆ 90%NH ₃ +10%C ₂ H ₄ 95%N ₂ + 5%C ₂ H ₄ C ₂ H ₄	6 6 6 3 3 3 6 6 6 3 3 3 1	1×7.5 " " 0 " " 0 " " 0.5×5 " " 0	0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0	26 27 28 27 27 27	19.3m 1h15m 1h15m 25.8m 4h
73-4	48R3-06 (10MW)	48-11-7 " " 48-11-8 "	4C-16 A- 62 A- 71 R- 60 4C-22 A- 65 A- 74 R- 63 4C-21 A- 64 A- 73 R- 62 4C-15 A- 61 A- 70 R- 59 D-83	10%NH ₃ +90%C ₂ H ₆ 90%NH ₃ +10%C ₂ H ₄ 95%N ₂ + 5%C ₂ H ₄ 10%NH ₃ +90%C ₂ H ₆ 90%NH ₃ +10%C ₂ H ₄ 95%N ₂ + 5%C ₂ H ₄ 10%NH ₃ +90%C ₂ H ₆ 90%NH ₃ +10%C ₂ H ₄ 95%N ₂ + 5%C ₂ H ₄ 10%NH ₃ +90%C ₂ H ₆ 90%NH ₃ +10%C ₂ H ₄ 95%N ₂ + 5%C ₂ H ₄ C ₂ H ₄	10 10 10 10 10 10 14 14 14 14 14 14 1	1×7.5 " " 0 " " 0 " " 1×7.5 " " 0	0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0	23 24 25 23 23	27.7m 1h15m 1h15m 33.6m 4h
73-5A	48R3-07 (照射時 100kW)	48-11-19	4B-3 FTD4 FTD5 FTD6	C ₂ H ₄ , 白雲母 C ₂ H ₄ , 白雲母 C ₂ H ₄ , 白雲母	0.5 1 1	2.2φ×2 0.55×1.7 2.2φ×2	0	室温	1m40s

73-5	48R3-07 (10MW)	48-11-27	4C-29 C- 7 C-11 C-15 4C-31 C- 9 C-13 C-17 48-11-28 4C-30 C- 8 C-12 C-16 " 4C-32 C-10 C-14 C-18 48-11-29 D -84	90%CO ₂ +10%C ₃ H ₈ 95%CO ₂ + 5%C ₃ H ₈ 99%CO ₂ + 1%C ₃ H ₈ 90%CO ₂ +10%C ₃ H ₈ 95%CO ₂ + 5%C ₃ H ₈ 99%CO ₂ + 1%C ₃ H ₈ 90%CO ₂ +10%C ₃ H ₈ 95%CO ₂ + 5%C ₃ H ₈ 99%CO ₂ + 1%C ₃ H ₈ 90%CO ₂ +10%C ₃ H ₈ 95%CO ₂ + 5%C ₃ H ₈ 99%CO ₂ + 1%C ₃ H ₈ C ₂ H ₄	6 6 6 6 6 6 6 6 6 6 6 6 6 6 6 6 1	0 " " 0 " " 0 " " 0 " " 0 " 0 0	26 28 25 28 32	40m 1h20m 1h 1h40m 37m
73-6	48R3-08 (10MW)	49- 1-22	4C-33 C-19 C-23 C-27 4C-28 C- 4 C- 5 C- 6 49- 1-23 4C-34 C-20 C-24 C-28 4C-27 C- 1 C- 2 C- 3 49- 1-24 D-85	90%CO ₂ +10%C ₃ H ₈ 95%CO ₂ + 5%C ₃ H ₈ 99%CO ₂ + 1%C ₃ H ₈ 95%CO ₂ + 5%C ₃ H ₈ " " 90%CO ₂ +10%C ₃ H ₈ 95%CO ₂ + 5%C ₃ H ₈ 99%CO ₂ + 1%C ₃ H ₈ 95%CO ₂ + 5%C ₃ H ₈ " " C ₂ H ₄	6 6 6 3 2 1 6 6 6 14 10 6 1	0.5×7.5 " " 0 " " 0.5×7.5 " " 0 " " 0 0	23 28 26 28 27	27m13s 1h 47m17s 1h 4h
73-6A	"	49- 1-29	4C-37 C-31 C-35 C-39	95%CO ₂ +5%C ₃ H ₈ " "	6 6 6	0.5×7.5 0.8×7.5 1.1×7.5	24	23m10s

73-6A	48R3-08 (10MW)	49- 1-29	4C-39 C-33	95%CO ₂ + 5%C ₃ H ₈	6	0.5 × 7.5	0	26	46m20s
		"	C-37	"	6	0.8 × 7.5			
		"	C-41	"	6	1.1 × 7.5			
		"	4C-35 C-21	90%CO ₂ + 10%C ₃ H ₈	6	0.5 × 7.5	0	27	55m03s
		"	C-25	95%CO ₂ + 5%C ₃ H ₈	6	"			
		"	C-29	99%CO ₂ + 1%C ₃ H ₈	6	"			
		49- 1-30	4C-38 C-32	95%CO ₂ + 5%C ₃ H ₈	6	0.5 × 7.5	0	26	34m45s
		"	C-36	"	6	0.8 × 7.5			
		"	C-40	"	6	1.1 × 7.5			
		"	4C-40 C-34	95%CO ₂ + 5%C ₃ H ₈	6	0.5 × 7.5	0	27	57m55s
		"	C-38	"	6	0.8 × 7.5			
		"	C-42	"	6	1.1 × 7.5			
		"	4C-36 C-22	90%CO ₂ + 10%C ₃ H ₈	6	0.5 × 7.5	0	27	1h08m49s
		"	C-26	95%CO ₂ + 5%C ₃ H ₈	6	"			
"	C-30	99%CO ₂ + 1%C ₃ H ₈	6	"					
74-1	49R3-03 (10MW)	49- 6-26	4C-41 C-43	CO ₂	6	0.5 × 7.5	0	30	41m17s
		"	C-14	"	6	"			
		"	C-45	"	6	0			
		"	4C-42 C-46	CO ₂	6	0.5 × 7.5	0	31	1h08m49s
		"	C-47	"	6	"			
		"	C-48	"	6	0			
		49- 6-27	4C-44 C-52	99%CO ₂ + 1%C ₃ H ₈	6	0	0	31	40m
		"	C-53	95%CO ₂ + 5%C ₃ H ₈	6	"			
		"	C-54	90%CO ₂ + 10%C ₃ H ₈	6	"			
		"	4C-43 C-49	CO ₂	6	0.5 × 7.5	0	32	1h40m
		"	C-50	"	6	0			
		"	C-51	"	6	"			
		49- 6-28	4B-6 D-101	C ₂ H ₄	1	0	0	32	4h
		"	D-104	"	1	"			
"	D-98	"	2	"					

74-2	49R3-04 (10MW)	49- 7-16	4C-48 C-64 C-65 C-66	95%CO ₂ + 5%C ₃ H ₈ " "	3 2 1	0.5×5 " "	0	28	47m55s
		"	4C-47 C-61 C-62 C-63	95%CO ₂ + 5%C ₃ H ₈ " "	14 11 8	1.1×7.5 " "	0	28	1h01m53s
		49- 7-17	4C-46 C-58 C-59 C-60	95%CO ₂ + 5%C ₃ H ₈ " "	14 10 6	0 " "	0	28	1h
		"	4C-45 C-57 C-56 C-55	90%CO ₂ + 10%C ₃ H ₈ 95%CO ₂ + 5%C ₃ H ₈ 99%CO ₂ + 1%C ₃ H ₈	6 6 6	0 " "	0	28	1h20m
		49- 7-18	4B-5 D-91 D-94 D-97	C ₂ H ₄ " "	1 1 2	0 " "	0	29	4h
74-3	49R3-07 (10MW)	49- 9-25	4C-52 A-82 A-92 A-95	10%NH ₃ + 90%C ₂ H ₆ 90%NH ₃ + 10%C ₂ H ₄ "	2 2 2	0.5×5 " "	0	27	16m40s
		"	4C-53 A-83 A-93 A-96	10%NH ₃ + 90%C ₂ H ₆ 90%NH ₃ + 10%C ₂ H ₄ "	2 2 2	0.5×5 " "	0	28	33m20s
		"	4C-54 A-84 A-94 A-97	10%NH ₃ + 90%C ₂ H ₆ 90%NH ₃ + 10%C ₂ H ₄ "	2 2 2	0.5×5 " "	0	29	50m
		"	4C-55 A-85 A-98 A-99	10%NH ₃ + 90%C ₂ H ₆ 90%NH ₃ + 10%C ₂ H ₄ "	2 2 2	0.5×5 " "	0	30	1h23m20s
		49- 9-26	4B-3 D-89 D-92 D-95	C ₂ H ₄ " "	1 1 2	0 " "	0	26	4h

74-4	49R3-08 (10MW)	49-10-15	4C-49 A-79 A-86 A-89	10%NH ₃ +90%C ₂ H ₆ 90%NH ₃ +10%C ₂ H ₄ "	2 2 2	0 " "	0 " "	28 28 28	2h30m 3h45m
		49-10-16	4C-50 A-80 A-87 A-90	10%NH ₃ +90%C ₂ H ₆ 90%NH ₃ +10%C ₂ H ₄ "	2 2 2	0 " "	0 " "	30	6h15m
		49-10-17	4C-51 A-81 A-88 A-91	10%NH ₃ +90%C ₂ H ₆ 90%NH ₃ +10%C ₂ H ₄ "	2 2 2	0 " "	0 " "	29	4h
		49-10-18	4B-4 D-90 D-93 D-96	C ₂ H ₄ " "	1 1 2	0 " "	0 " "		
74-5	49R3-09 (10MW)	49-10-30	4C-56 A-100 A-101 A-102	90%NH ₃ +10%C ₂ H ₄ " "	1 2 3	0.5×5 " "	0 " "	28	10m40s 1h15m
		"	4C-58 A-106 A-107 A-108	90%NH ₃ +10%C ₂ H ₄ " "	1 2 3	0 " "	0 " "	28	13m38s
		49-10-31	4C-57 A-103 A-104 A-105	90%NH ₃ +10%C ₂ H ₄ " "	6 8 10	1×7.5 " "	0 " "	28	1h15m
		"	4C-59 A-109 A-110 A-111	90%NH ₃ +10%C ₂ H ₄ " "	6 8 10	0 " "	0 " "	29	4h
		49-11-1	4B-7 D-99 D-102 D-105	C ₂ H ₄ " "	2 1 1	0 " "	0 " "		
74-6	49R3-10 (10MW)	49-11-27	4C-60 R-68 R-70 R-72	90%N ₂ +10%C ₂ H ₄ 75%N ₂ +25%C ₂ H ₄ 60%N ₂ +40%C ₂ H ₄	14 14 14	1×7.5 " "	0 " "	28	33m36s

74-6	49R3-10 (10MW)	49-11-27	4C-62 R-69 R-71 R-73 4C-61 R-74 R-76 R-78 4C-63 R-75 R-77 R-79 4B-8 D-100 D-103 D-106	90%N ₂ +10%C ₂ H ₄ 75%N ₂ +25%C ₂ H ₄ 60%N ₂ +40%C ₂ H ₄ 50%N ₂ +50%C ₂ H ₄ 40%N ₂ +60%C ₂ H ₄ 20%N ₂ +80%C ₂ H ₄ 50%N ₂ +50%C ₂ H ₄ 40%N ₂ +60%C ₂ H ₄ 20%N ₂ +80%C ₂ H ₄ C ₂ H ₄ " "	14 14 14 14 14 14 14 14 14 2 1 1	0 " " 1×7.5 " " 0 " " 0 " "	0 " " 0.5×5 " " 0.5×5 " " 0.5×5 " " 0 " " 0 " "	30 29 27 28	1h15m 33m36s 1h15m 4h
74-7	49R3-11 (10MW)	49-12-10 " 49-12-11 " 49-12-12	4C-64 A-112 A-113 A-114 4C-65 A-115 A-116 A-117 4C-66 A-118 A-119 A-120 4C-67 A-121 A-122 A-123 4C-68 A-125 A-126 D-107	(10%NH ₃ +C ₂ H ₆) (")+0.1%NO (")+0.2%NO (10%NH ₃ +C ₂ H ₆) +0.3%NO (")+0.4%NO (")+0.6%NO (10%NH ₃ +C ₂ H ₆) +1 %NO (")+2 %NO (")+3 %NO (10%NH ₃ +C ₂ H ₆) (")+0.1%NO (")+0.2%NO (10%NH ₃ +C ₂ H ₆) +0.4%NO (")+0.6%NO C ₂ H ₄	2 2 2 2 2 2 2 2 2 2 2 2 2 2 2 2 2	0.5×5 " " 0.5×5 " " 0.5×5 " " 0.5×5 " " 0 " " 0 " "	24 28 27 29	43ml2s 43ml2s 43ml2s 2h13ml19s 2h13ml19s	

4 保 守

48および49年度LTFLは順調に動き、目立ったトラブルはなく保守として行ったのは計器類の点検調整など、定常的な作業が主であった。

4.1 一般点検(48年5月)

かなりの専門知識を必要とする細部にわたる点検は省き、この点検では作動状態あるいは異常なメーターの振れ異音等を見るもので、およそ下記の5項目にわたって点検した。結果もまとめて示す。

- (i) 試料送取部——カプセル落下機構、シャッター作動、正常。
- (ii) 主冷却部——ヘリウム圧送機の冷却水流量不足気味(後述4.2, 4.4参照)。
- (iii) 冷却補助系統——真空ポンプの作動正常、オイル適量。
- (iv) 計測制御系——温度計、圧力計、流量計、液面計、真空計、放射線モニター、正常。
- (v) その他電氣的一般点検——MC接点の過熱、荒れ、焼損、うなり、正常。ターミナルのゆるみ多少あり締付済。表示灯の球切れなし。配線変色なし。モーターの異音振動なし。ベルト良好。

(絶縁抵抗試験は47年度実施の為除く)

4.2 ヘリウム圧送機冷却水系統洗浄(48年9月)

かねてから冷却水は流量不足気味であった。特に近年、同じJRR-3炉室内に同系統の給水ヘッダーから水を必要とする機器装置が増え、夏期の水温の高い時の運転ではヘリウム圧送機の温度はいく分上昇するようになった。この為加圧ポンプの挿入取付を施設課に依頼していたが、取付作業を行う前に水あか率によるパイプのつまりも考えられるとして今回の洗浄を行った。これはヘリウム圧送機の給水口と排水口を切離し、給水口に太いビニールパイプで別のポンプにより水を圧送し排水口にもビニールパイプを継いで仮設のピットに排水させる作業である。この排水ピットからはやはりビニールパイプで圧送するポンプへ給水を行い、ピット—ポンプ—ヘリウム圧送機—ピットの循環路を作りこの排水ピットの中に薬品を投入する。約一時間循環を行いピット内の水は徐々に赤茶色に変わりだいたい水あかが取れた。また、水圧、管路抵抗、流量についても施設課の方々に検討していただいた。しかしこの洗浄では特に目立った効果は現われず、4.4に述べるポンプの取付を行うことにした。

4.3 液体窒素炉外タンク塗装(48年11月)

昭和45年完成のこのタンクは、屋外に設置したため脚部の塗装がはげ錆がひどくなったので、錆落とし、錆止め塗料塗布、白ペンキ塗布の順で作業を行った。これによりあと1~2年の発錆は防げると思われる。

4.4 ラインポンプの取付(49年2月)

4.2で述べたように洗浄の結果が思わしくなかったため給水パイプに350Wのラインポンプを取付けた。このポンプはヘリウム圧送機のNFB二次側から電力を受け、もう一つ小容量のNFBを通して運転するもので、通常この小容量のNFBは入れておき、ヘリウム圧送機のNFB投入と同時に運転する。新冷却水回路は図2に示す通りで、通常バルブは全部開けておく。ラインポンプが運転されると水はポンプ側を通り、昇圧されてヘリウム圧送機に送り込まれる。バイパス側には逆止弁を取付けてポンプとバイパス間との循環を防いでいる。ラインポンプが停止すると水はバイパス側を通り昇圧されないで流れる。従ってヘリウム圧送機が停止していても冷却水は常に流れているが、これは水を流しておいた方がスケールの付着が少いと考えられる為である。また、ラインポンプの前後に水圧計を取付けて給水圧力と昇圧後の圧力が測定出来るようにした。ポンプ取付けの結果、水圧力で 0.3 kg/cm^2 、流量で $0.05 \text{ m}^3/\text{h}$ の増大があった。給水ヘッダーからヘリウム圧送機まで炉室内の管路長約50m、排水も炉外のピットに出るまで約50mと非常に長く管路抵抗が大きいのと、他の装置にも水を取られるのが、著るしい効果のなかった主因と考えられる。しかし、ポンプ設置後の運転ではごく少量の流量増加にもかかわらず、ヘリウム圧送機の温度が今までよりも低く、明らかに好影響が出た。(図2参照)

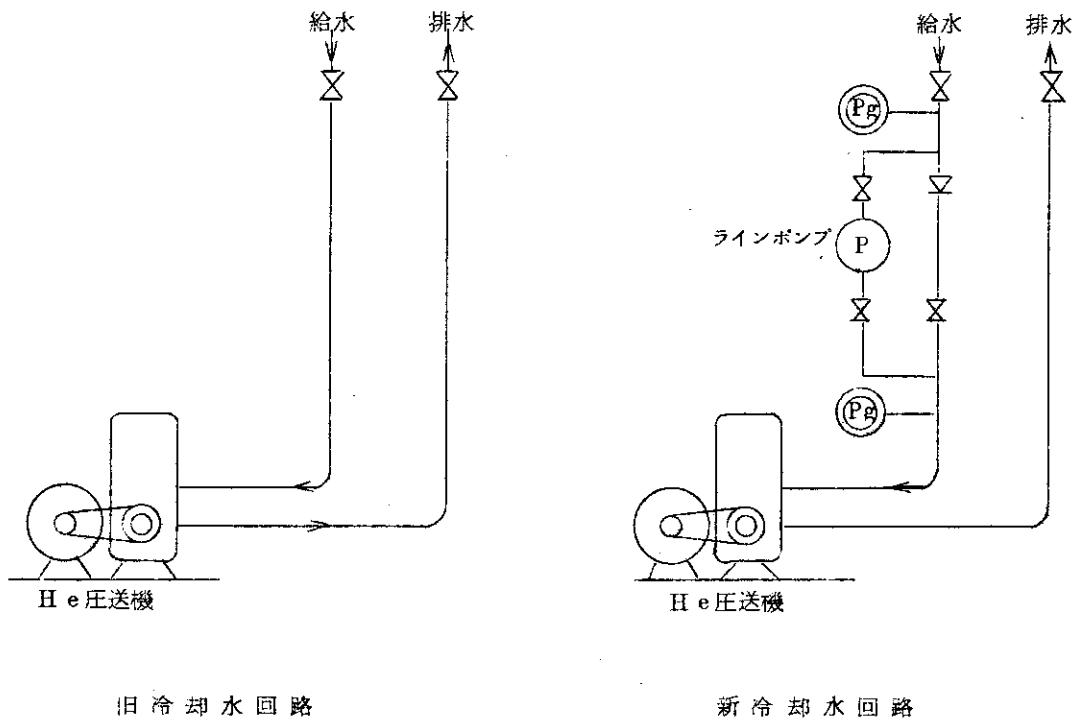


図2 新旧系統図

4.5 電気系統絶縁抵抗試験(49年5月)

前回は47年度に実施し、活性炭トラップヒーターの絶縁不良が発見された。今回の試験ではヘリウム圧送機、液窒減圧ポンプ、ヘリウムヒーター、遮蔽蓋駆動モーター等について500Vメガーにより対アース間の測定を行ったが、いずれも数メガオーム以上で正常であった。炉室内という湿気や塵埃の少ない良い環境にあることが、電気工作物や計器類に良い影響を与えているものと思われる。

4.6 計測系の点検調整(49年7月)

計測系には、温度計、圧力計、流量計、弁開度計、があり、これらはいずれも島津製作所製の計器でグラフィックパネルに取付けてある。又、補助計器盤には真空計、放射線モニターがあり、これは三菱電機製の計器である。今回の点検調整は島津製作所製の計器についてのみ行った。(三菱電機製の計器については4.8参照)温度指示計、電子式記録調節計、空気式記録計、指示調節計、各指示計と計器の種類は多い。これらの主な点検箇所を列記すると、サーボモーターの分解点検、各ギアベアリングの点検組立、スライド抵抗ブラシ接点、アンプのトルクチェック、指示調整、ポテンショメーター点検掃除、ペンユニット点検注油、調節計芯出し、エアーサーボ、ダイヤフラム、ノズルフラップ、オリフィス、インナー弁点検、シンクロナスマーター指示校正、調節弁作動テストなどである。これらの計器は三年前に校正のみを行っているが、今回のように分解掃除注油組立を行うのは初めてである。定期的、計画的な点検調整をこれからの運転に支障をきたさない為の一つの方向と考えていきたい。

4.7 高周波誘導加熱装置電気配線(49年10月)

原子炉特研に設置した試料封入装置のうち、高周波誘導加熱装置は容量15kWで、ケーブルのニードルバルブの銀ロー付等を使用している。配電盤からこの装置までビニールキャブタイケーブルを床にはわけて使用していたが、安全パトロールで危険であると指摘され金属管配線を行った。

4.8 補助計器の点検調整(49年11月)

4.2で述べたように補助計器として真空計、放射線モニターがありこれらは三菱電機製の計器である。

広帯域真空計(5台)では、ユニット電源確認、サーミスタ真空計用電源、電離真空計測定管用高圧電源、ヒーター電圧はいずれも規定値通りで良好であった。また、試験成績書の基準に従って校正を行った。その他レコーダ出力、メーターリレーの作動も正常であった。サーミスタ真空計(3台)についても、放電管電圧、測定管電源出力端電圧、リレー作動等全部正常であった。対数計数率計(2台)では、入力感度、直線性試験、線源試験を行い、1台が標準線源による試験でバックグラウンドを実際より高く計数する異常が見出された。ホトマル電極間を清掃後バックグラウンドは数cpsに落ち正常となった。原因はホトマル自体ではなく、ソケット部の接触不良らしく、この接触不良によるごく小さなスパークをバックグラウンドとして検出したものと思われる。その他については正常であった。

4.9 その他

各サイクル毎の脱湿器の精製，及びJRR-3定期自主検査期間中（48年5月～8月，12月～49年1月，49年4月～5月，12月～50年3月）にLTFLの空運転，活性炭の精製，ヘリウム圧送機給油を行った。

47年7月1日に取付けた積算時間計の指示は，表5の値を示した。RP-1，2，の値は+500で使用開始後，ヘリウム圧送機の値は+60で47年1月のオーバーホール後，照射時間は新リード線コネクター使用開始（47年8月）後の使用延時間である。

表5 積算時間計指示 (hr)

	48年3月	49年3月	50年2月
真空ポンプRP-1	111.6	253.7	385.7
真空ポンプRP-2	88.8	240.3	362.2
ヘリウム圧送機	61.6	168.6	277.4
照射時間	28.1	83.4	146.4

5 4 D型試作カプセルの開発

5.1 構造と試験の概要

4 D型内カプセルの構造は、図3に示す通りでスペーサーを有している。液体、固体の照射時にはスペーサーを挿入し、気体照射時にはこれを取除く。このカプセルは内容積を少なくする為と、重量を軽減する為かなりの細身となっている。従来のように、このカプセル3本を外カプセルに組込んで照射するには、どのようにカプセルを固定するかが問題であった。これは図4に示すように、止めリング⑨と圧着スプリング⑤により確実に固定出来る事がわかり解決した。又、組込時には、図3のようにカプセルのパッキン受部を一部切落とす事により、カプセルが回転せず、圧着スプリング⑤の締付が更に確実となり、従来通りの照射が出来る見込がついた。

又、この4 D型内カプセルには、最高圧力 100 kg/cm^2 の気体を封入する為、耐圧 150 kg/cm^2 の性能があるかの試験、更には 50 kg/cm^2 フルスケールの計器で 150 kg/cm^2 までの圧力を正確に測定する為の試験を行った。試作の4 D型内カプセルは6本あり、これに加圧パイプ、エア抜パイプ及びバルブを取付け、このうち3本には歪ゲージをエポキシ樹脂にて貼付し、歪の測定も行えるようにして以下に述べる試験を行った。

5.2 耐圧試験

工作工場にて、 200 kg/cm^2 まで加圧可能な水圧ポンプにこれら6本の試験用カプセルを取付け、 150 kg/cm^2 まで徐々に加圧した。6本中5本はこの圧に耐えたが、残り1本は約 130 kg/cm^2 でラプチュアプレート溶接部より水漏れし、不合格となった。これと同時に歪ゲージを貼付したカプセルについては、0, 50, 100, 150 kg/cm^2 の各点でストレンメーター出力端の電圧測定を行った。耐圧試験でただ1本漏洩したカプセルは、溶接不良と考えられる。従ってこのような高圧型カプセルは、高い溶接技術で製作する必要がある。

5.3 圧力検出試験

3本の試験用カプセルの異なる位置に歪ゲージをそれぞれ取付けて、圧力と歪ゲージ出力電圧の関係を測定した。歪ゲージを貼付した箇所は、1本はプラグ側の端部、1本は中央部、1本はラプチュアプレート側の端部で、圧力に比例した出力電圧が得られたのは、ラプチュアプレート側の端部に貼付したカプセル1本のみであった。加圧試験をする為に加圧パイプとエア抜パイプを溶接して付けた時、カプセルが熱によって部分的に歪んでしまった可能性があり、この歪んだ部分がプラグ側の端部と中央部にあたった為、この部分に歪ゲージを付けた2本のカプセルは、圧力を加えた時かなり敏感に感応し直線性が出なかったものと思われる。従ってこの2本のカプセルのデータは信頼出来ないと考え、ラプチュアプレート側の端部に歪ゲージを付けたカプセル1本についてのみ以下の実験を行った。取付位置を図5に示す。

JRR-3に設置されている実用のLTF L計測系にカプセルを接続し圧力に対しどのような指示をするかを見た。この目的は、フルスケール 50 kg/cm^2 の指示計で $0 \sim 150 \text{ kg/cm}^2$ の圧力値を正確に測定する事であり、次のような4つの実験を行った。

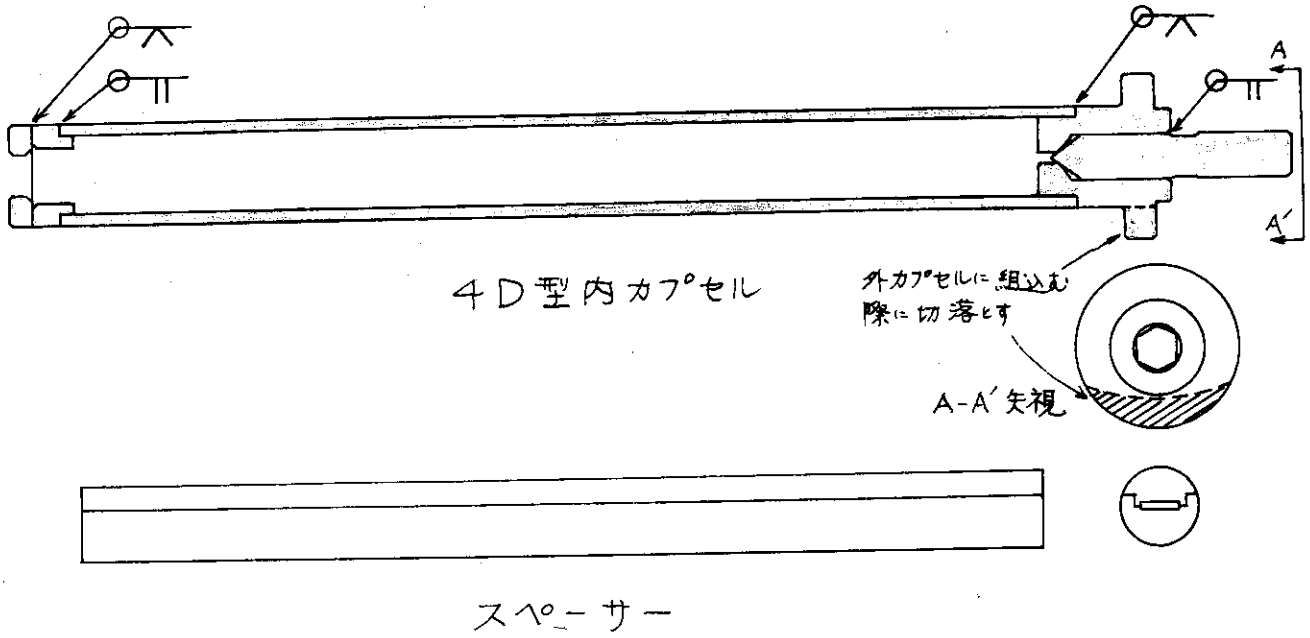


図3 4D型内カプセル構造

内容積 10.0ml, スペーサー使用時内容積 1.0ml,
 カプセル内径 10.0mm, スペーサー外径 9.9mm, 長さ 124.2mm,
 材 質 カプセル SUS 304, スペーサー SUS 304又は A5052,

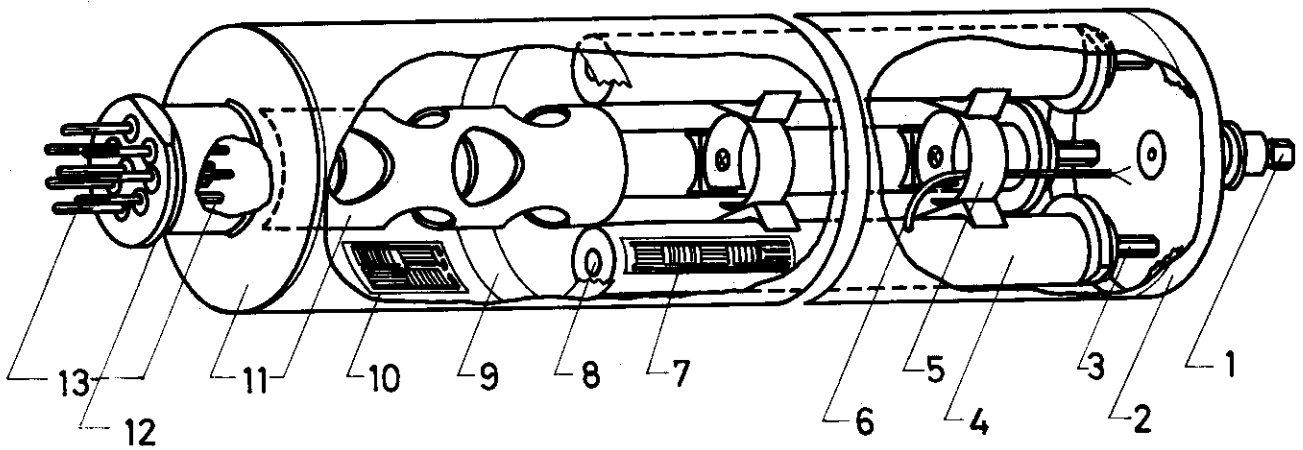


図4 カプセル組立図

- | | | | |
|-------|-------------------------------|-------|-----------|
| 1, 3. | ノズルとボルト (止め弁) | 7, 10 | ストレンジャー |
| 2. | 外カプセル, $55^\circ \times 316L$ | 8. | ラプチュアプレート |
| 4. | 内カプセル | 9. | 止めリング |
| 5. | 圧着スプリング | 11. | 端板 |
| 6. | クロメル・コンスタンタン熱電対 | 12. | 気密端子 |
| | | 13. | コネクターピン |

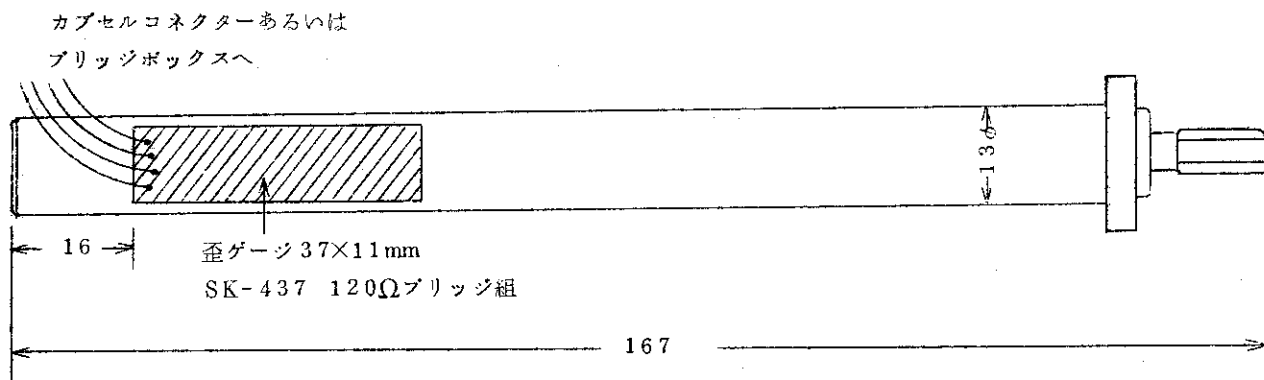


図5 4D型内カプセルへの歪ゲージ取付位置

- (i) 計測系へ工作工場で測定した電圧と同じ電圧を加えてみる。
- (ii) カプセルをL T F L既設のブリッジボックスに継いでみる。
- (iii) ストレンメーターのゲインを変えてみる。
- (iv) 指示計が電流計である為、これに分流器を入れてみる。

これら4つの実験はいずれも失敗に終わった。(i)と(ii)については圧力と指示の誤差が大きい事、(iii)については電圧値と指示が平行移動するだけ、(iv)については計器の測定範囲が4~20mAと特殊なメーターで倍率が変化した為である。実は以上の4つの失敗には共通した原因があった。この試験の操作手順を列記すると、まず歪ゲージの貼付してあるカプセルをブリッジボックスに継ぐ、そしてバランス(抵抗と容量)をとる。次に工作工場での実験と同じゲイン値にする。次にカプセル圧は 0 kg/cm^2 だから、バランスをとる可変抵抗を調整して指示計を0にする。そしてカプセルには実際には圧力が加わっていないから、故意にバランスを崩しあたかもカプセルが加圧され歪んで出力電圧が出たようにみせかけ、上記の4つの実験を行った。結局この実験ではバランスを故意に崩した“みせかけ”による指示値を見ていただけで実際にはカプセルに加圧していない。この辺がこの実験の失敗の主因であろうと考え、次の実験ではカプセルに水圧ポンプで実際に加圧して指示値を見た。

工作工場の水圧ポンプをJ R R - 3 炉室内L T F L側に据え、指示計を0にするまでは4つの実験と同じ手順で行い、加圧の状態は“みせかけ”ではなく水圧ポンプで実際に加圧した。ストレンメーターのゲイン値をパラメーターにして、 $0\sim 100\text{ kg/cm}^2$ まで順次水圧ポンプで加圧し、各点で指示計を読みとり、表6のような結果を得た。これにより、フルスケール 50 kg/cm^2 のメーターで $0\sim 150\text{ kg/cm}^2$ までの圧力値を、ゲインを調整する事により正確に測定出来る確信を得た。この測定を行ったときの機器のブロックダイアグラムを図6に示す。

表 6 カプセル圧と指示値

カプセル 圧 力 kg/cm ²	PRCA-13								PICA-14	
	ゲイン 15.5		ゲイン 14.0		ゲイン15.5(注1)		ゲイン15.0(注1)		ゲイン 13.0	
	指示	倍率	指示	倍率	指示	倍率	指示	倍率	指示	倍率
10	3.5	0.35	1.7	0.17	3.2	0.32	2.5	0.25	3.3	0.28
20	7.5	0.38	4.2	0.21	7.0	0.35	6.0	0.30	5.6	0.28
30	11.5	0.38	(注2)		10.5	0.35	9.5	0.31	8.4	0.28
40	15.3	0.38	9.0	0.23	14.5	0.36	12.8	0.32	11.0	0.28
50	19.0	0.38	(注3)		17.8	0.36	16.0	0.32	13.7	0.27
60	23.0	0.38	14.0	0.23	21.5	0.36	19.5	0.33	(注4)	
70	27.0	0.39	16.5	0.24	25.5	0.36	22.5	0.32	19.5	0.28
80									22.4	0.28
90									25.2	0.28
100									28.0	0.28

注 PRCA-13は内カプセル指示計

PICA-14は外カプセル指示計

(注1) カプセルコネクターに直接接続した時(照射状態)

他のデータはブリッジボックスに接続

(注2) カプセル圧 33 kg/cm^2 の時 7.5 kg/cm^2 の指示
倍率 0.23

(注3) カプセル圧 52.5 kg/cm^2 の時 12.4 kg/cm^2 の指示
倍率 0.24

(注4) カプセル圧 61 kg/cm^2 の時 17.0 kg/cm^2 の指示
倍率 0.28

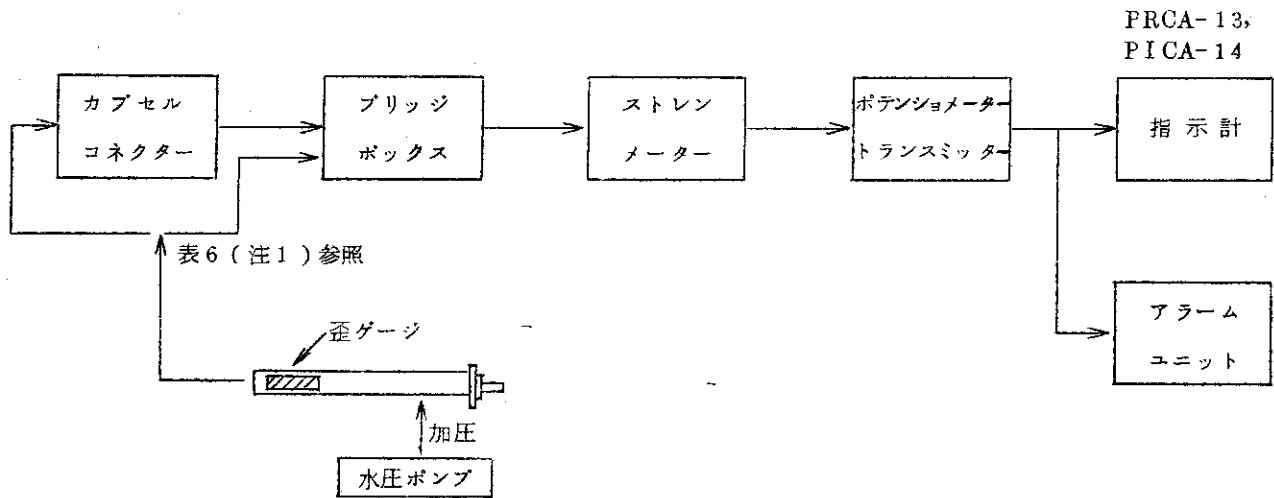


図6 LTFI 指示計ブロックダイアグラム

- 歪ゲージ : 共和 SK-437 120Ω ブリッジ組
- ブリッジボックス : 共和 DB-120
- ストレインメーター : 共和 DM-2L3
- ポテンショメーター : 島津 760TD2633 OUTPUT DC4~20mA SPAN60mV
- トランスミッター : 島津 760TD2633 OUTPUT DC4~20mA SPAN60mV
- アラームユニット : 島津 799NA22-120423K5
- PRCA-13 : 島津 700JF121-120423K8 in DC4~20mA
- PICA-14 : 島津 MW-12 DC4~20mA

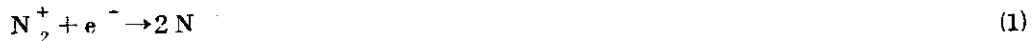
6 L T F Lによる照射実験

6.1 窒素とエチレンの反応

窒素-エチレン系の γ 線照射によるシアニ化水素の生成は、仕込圧、照射温度、吸収線量、組成、反応容器、壁の性質に依存する。⁹⁾ 低圧、高温にするほど $G(\text{HCN})$ 値は大きくなり、実験的に求められた最大 $G(\text{HCN})$ 値は2.0であった。L T F Lを用いての実験は昭和46年度に開始し、予備的な実験結果を報告した。仕込圧1気圧では $(n + \gamma)$ 線照射でも $(\text{FF} + n + \gamma)$ 線照射でも、ほぼ同じ $G(\text{HCN})$ 値($= 0.1 \sim 0.2$)が得られ、FF線の特徴である高いLET (linear energy transfer) による効果は認めることができなかった。

今期は、カプセルの安全性確保のため許容されている最高圧力(14気圧)まで仕込圧を変化させて、三種類の放射線(γ , $n + \gamma$, $\text{FF} + n + \gamma$)照射を行った。1気圧ではいずれの放射線でも $G(\text{HCN})$ 値は0.08であったが、14気圧にすると γ , $(n + \gamma)$ 線で0.04, $(\text{FF} + n + \gamma)$ 線で0.19となった。¹¹⁾ この実験結果は、この反応系が気相でもLET効果のあることを示している。高圧におけるシアニ化水素生成のメカニズムを調べるために、14気圧での $G(\text{HCN})$ 値の温度依存(400°C~室温)、組成依存(N_2 95~20%)を調べ、現在結果の解析を進めている。

高圧での照射であられるLET効果の原因としては、(i) FF飛跡中の局所的な高温、(ii) 飛跡中の活性種の高濃度、の二点が原因として考えられる。まず、 γ 線照射でも、高温にすると $G(\text{HCN})$ 値は大きくなるので、FF飛跡中の高温によっても $G(\text{HCN})$ 値が大きくなっていることは考えられる。同時に、FF飛跡中では活性種濃度が高いため反応(1)(2)のような活性種相互の反応により窒素原子が余分に生成し、



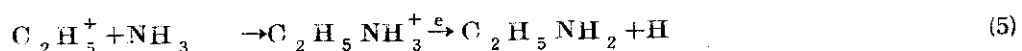
反応(3)によってシアニ化水素生成に寄与するであろう。



この二つの原因により、高圧にすればFF照射でシアニ化水素の生成 G 値が大きくなると考えられる。

6.2 アンモニアと炭化水素の反応

アンモニア-炭化水素系の γ 線照射による実験で、含窒素化合物であるエチルアミンが、アンモニア-エタン系では反応(4)と(5)により、^{12,13,14,15)} アンモニア-エチレン系では反応(4)により²¹⁾ 生成することをすでに報告した。



これらの系を昭和47年度からLTFLで実験を開始したが、炉内放射線による照射効果については48・49年度に本格的に研究した。以下にその概要を述べる。

(i) アンモニア-エタン系

反応ガスの仕込圧(1~14気圧)と吸収線量(6~32Mrad)をパラメータにとり、炉内放射線が本系に及ぼす効果を調べた。(n+ γ)線と(Ff+n+ γ)線とを照射した場合、 $G(C_2H_5NH_2)$ は低仕込圧・低線量領域でやゝ増加する。しかし、線質の違いにもとづく差は認められず、その値は約0.5であった。この値は γ 線照射で得た $G=0.5^{15)}$ とも一致しており、従ってエチレアミン生成反応収率に対し、炉内放射線は特別の効果はない。同様にエチルラジカルの関与するn-ブタン生成反応にも顕著な効果はなかった。

この系に微量の酸化窒素を添加すると $G(C_2H_5NH_2)$ が増加する現象を見出し、^{13,14,15)}酸化窒素の添加率をパラメータとして炉内放射線の効果を調べた。添加率0.1~0.3%の範囲で $G(C_2H_5NH_2)$ は無添加のときと比較して最大2倍に増大した。^{15a)}他の生成物、窒素、水素、メタンも分析し、結果を解析中である。

(ii) エチレン-アンモニア系

前系と同様に仕込圧(1~10気圧)と吸収線量(11~50Mrad)を変化させ、炉内放射線の効果を調べた。

$G(C_2H_5NH_2)$ は仕込圧の低い程やゝ大きいのが、吸収線量には依存しない。また(n+ γ)線と(Ff+n+ γ)線とでは差異は認められずおよそ $G(C_2H_5NH_2)=0.8$ を得た。この値は γ 線で得た値0.7²¹⁾より大きいのが、実験値のバラツキを考えると大差ではない。 $G(n-C_4H_{10})$ についても線質の効果は大きくない。

以上で明らかにより、炭化水素-アンモニア系のエチルアミン生成反応(4)、(5)に関しては、窒素-エチレン系で現れたような高圧での核分裂片照射効果も特に見出せなかった。他の生成物収率についてもその効果はほとんどない。

(iii) プロピレン-アンモニア系

この系は、分析系整備の遅れで無核燃試料4ヶを照射したのみであった。

6.3 炭酸ガスの反応

炭酸ガス-プロパン系の γ 線照射による実験結果についてはすでに報告した。^{16,17)}プロパン添加率約1%の時、最大 $G(CO)$ 値(=5.0~6.0)が得られる。プロパンは一酸化炭素生成反応および消滅反応の両方に関与している。

LTFLを用いてこの系を(n+ γ)線、(Ff+n+ γ)線で照射し、生成物(一酸化炭素、水素、メタン、エタン、エチレン)のG値を調べた。プロパン添加率(0~10%)、全圧(1~14気圧)、U-Pd箔の量(0~8cm²)、吸収線量(3~10Mrad)等の実験条件を変化させた。 $G(CO)$ 値は(Ff+n+ γ)線照射による値が他の γ 線、(n+ γ)線照射による値よりも大きいのが、 $G(C_2H_6)$ 、 $G(H_2)$ 、 $G(CH_4)$ の値は逆に、(Ff+n+ γ)線照射による方が小さい。すなわち、Ff照射によって炭酸ガスの分解が促進され、プロパンの分解は抑制されている。この系に見出されたFf線によるG値の変化は、窒素-エチレン系での考察と同様に、(i) Ff飛跡中の高温、(ii) Ff飛跡中の活性種の高濃度の2原因が考えられる

が、前の例と比較すれば、活性種の高濃度の方が反応に大きく寄与しているとみられる。

6.4 その他

反応研究の対象となったのは、前3節の反応系であったが、このほか、ルーチン照射を行ったエチレン線量計と協力研究として行った固体検出器試料がある。

エチレン線量計は、 $n + \gamma$ 線量測定用として各サイクルで1ケは照射したが、時に分析失敗することもあり、後期には3ケを照射するのを標準とした。線量測定結果は、コバルトモニターの結果とよい対応がつくので、熱中性子束の測定値のみでも、照射線量の評価は可能である。3試料照射の場合1ケを2気圧としたのは、分析精度上の理由で、実際よい結果が得られている。

固体検出器試料は、エチレン中の核分裂片の飛程が、約1cm程度(1気圧)であるので、その前後の距離に固体検出器となる白雲母を配置して、カプセルを組立てた。白雲母厚さは約0.25mm、照射後20-25℃で、46%HRにより10-30分エッチングを行い、光学顕微鏡観察する。中性子束×時間 = $10^6 \sim 10^8 \text{ n/cm}^2$ の範囲で、核分裂片面密度は $10^2 \sim 10^4 / \text{cm}^2$ となり、測定に適當であった。飛程の計算値は、1気圧のエチレン中で8.6mm(核燃脱出後の平均エネルギーとして3.22MeVにあたる)であるのに対し、白雲母での実測値からは6.0~7.5mm(1.7~2.2MeV)と求められた。計算値はエチレン線量計での値とよく対応している⁷⁾ので、この差異は固体検出器の特性、飛跡の発現機構などと関係して生じた可能性がある。しかし、固体検出器では核分裂片の数を、直接観察できる点が、著るしい特徴であり、比較的簡単な実験法(技術的にはある程度複雑であるが)を要するのみであるので、核分裂生成物の分布の研究等に発展し得る有益な方法と考えられる。

7 結 論

昭和48・49年度には、アンモニア-プロピレン、炭酸ガス-プロパン、およびアンモニア-エタン-酸化窒素の3反応系について新規に、アンモニア-エタン、エチレン、窒素-エチレン、およびエチレン線量計について実験条件の拡張のために、照射実験計画の安全性の所内審査を受け、承認を得た。安全性の検討については、方法は確立されたと考えられる。

照射運転は、一時期の小トラブルを除き、全体として極めて順調に行うことができた。4型系統の内、外カプセルの採用により、作業能率も著るしく向上し、前3年間の2倍以上の試料を照射することができた。

保守作業は、小トラブルの解決を目的に数件行われたほかは、今後のトラブルフリーの運転を目標とした装置の維持を考えて行って、今期に関しては成功したと見られる。また、核分裂片の特異な効果が期待される高圧気体や、固、液体試料照射の可能な新型カプセルを試作して、よい試験成績をおさめた。

反応研究は、以上の作業を基礎として、窒素-エチレン系、炭酸ガス系、アンモニア-エタン系を中心に多くの成果をあげることができた。総体的に、この2年間のLTF L運転は、十分な成果を挙げるに役立ったと考えられる。

謝 辞

本報告は、高崎研究所研究部東海駐在グループによる「炉内放射線による化学反応の研究」テーマの中心的課題として行った、低温化学照射装置による研究のうち、運転に関係した部分を主としてまとめたものである。本研究テーマは49年度をもって終了することとなったが、本報告に述べた2年間は、10年間にわたる本装置に関する研究を極めて実り多いものにした、有効な期間となった。本研究を可能ならしめた高崎研究所の歴代所長（宗像英二現理事長、沢柳正一氏、本島健次現大洗研究所長、大久保一郎現監事、望月勉現日本分析センター理事、および柴田長夫現所長）、東海研究所炉管理部その他の多くの部課、ならびに研究方針全般について御検討いただいた旧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教授）委員の方々に感謝する。研究の進行にあたって、実験計画、協力研究等に御討議いただいた田畑米穂東京大学教授、品川睦明大阪大学教授、団野皓文鹿児島大学教授ほかの方々に感謝する。また、本研究で使用した核燃料を贈られた米国BNLのB. ManowitzとM. Steinberg等の関係者の好意に感謝する。

48年度の協力研究では、LTF L運転、試料調製、照射後処理にあたり、谷修氏（阪大・工）の参加があった。

7 結 論

昭和48・49年度には、アンモニア-プロピレン、炭酸ガス-プロパン、およびアンモニア-エタン-酸化窒素の3反応系について新規に、アンモニア-エタン、エチレン、窒素-エチレン、およびエチレン線量計について実験条件の拡張のために、照射実験計画の安全性の所内審査を受け、承認を得た。安全性の検討については、方法は確立されたと考えられる。

照射運転は、一時期の小トラブルを除き、全体として極めて順調に行うことができた。4型系統の内、外カプセルの採用により、作業能率も著るしく向上し、前3年間の2倍以上の試料を照射することができた。

保守作業は、小トラブルの解決を目的に数件行われたほかは、今後のトラブルフリーの運転を目標とした装置の維持を考えて行って、今期に関しては成功したと見られる。また、核分裂片の特異な効果が期待される高圧気体や、固、液体試料照射の可能な新型カプセルを試作して、よい試験成績をおさめた。

反応研究は、以上の作業を基礎として、窒素-エチレン系、炭酸ガス系、アンモニア-エタン系を中心に多くの成果をあげることができた。総体的に、この2年間のLTF L運転は、十分な成果を挙げるに役立ったと考えられる。

謝 辞

本報告は、高崎研究所研究部東海駐在グループによる「炉内放射線による化学反応の研究」テーマの中心的課題として行った、低温化学照射装置による研究のうち、運転に関係した部分を主としてまとめたものである。本研究テーマは49年度をもって終了することとなったが、本報告に述べた2年間は、10年間にわたる本装置に関する研究を極めて実り多いものにした、有効な期間となった。本研究を可能ならしめた高崎研究所の歴代所長（宗像英二現理事長、沢柳正一氏、本島健次現大洗研究所長、大久保一郎現監事、望月勉現日本分析センター理事、および柴田長夫現所長）、東海研究所炉管理部その他の多くの部課、ならびに研究方針全般について御検討いただいた旧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）委員の方々に感謝する。研究の進行にあたって、実験計画、協力研究等に御討論いただいた田畑米穂東京大学教授、品川陸明大阪大学教授、団野皓文鹿児島大学教授ほかの方々に感謝する。また、本研究で使用した核燃料を贈られた米国BNLのB. ManowitzとM. Steinberg等の関係者の好意に感謝する。

48年度の協力研究では、LTF L運転、試料調製、照射後処理にあたり、谷修氏（阪大・工）の参加があった。

参 考 文 献

- 1) S. Sato, N. Moriyama, Y. Ikezoe, T. Ishii, M. Hirata, Y. Yamazaki, K. Oshima, A. Danno, Design and Operational Features of the Low Temperature Fissionochemical Loop, *J. Nucl. Sci. Technol.* **10**(6), 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(L T F L)の運転報告・I。昭和44年度運転・特性試験, JAERI-M 4630, 1971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(L T F L)の運転報告・II。昭和45年度運転, JAERI-M 4920, 1972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(L T F L)の運転報告・III。昭和46年度運転, JAERI-M5360, 1973年8月。
- 5) 佐藤, 森山, 小林, 池添, 清水, 山崎, 団野, 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, JAERI-M5421, 1973年10月。
- 6) 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春季年会講演, 4Q 07, 1973年4月。
- 7) S. Sato, N. Moriyama, Y. Ikezoe, A. Danno, Measurement of Fission Fragment Deposition Efficiency by Ethylene Dosimeter, *J. Nucl. Sci. Technol.* **10**(9), 577 (1973).
- 8) N. Moriyama, Y. Ikezoe, S. Sato, A. Danno, Measurement of Absorbed Dose and Flux in a Nuclear Reactor by Chemical Dosimetry, *J. Nucl. Sci. Technol.* **11**(4), 141 (1974).
- 9) Y. Ikezoe, S. Sato, A. Danno, Radiation Synthesis of Hydrogen Cyanide from Nitrogen-Ethylene System. Effects of Temperature, Gas Density and Reactor Wall, *Bull. Chem. Soc. Japan* **46**(4), 1154 (1973).
- 10) 佐藤, 森山, 池添, 岡本, 浜ノ上, 徳永, 清水, 小林, 団野, 窒素-エチレン系からの放射線によるシアン化水素の生成, 日本化学会第26春季年会講演, 2F 34, 1972年4月。
- 11) 池添, 佐藤, 清水, 小林, 核分裂片照射による $N_2-C_2H_4$ 系からのシアン化水素の生成-圧力効果, 第17回放射線化学討論会講演, 3Q 15, 1974年10月。
- 12) 清水, 池添, 森山, 佐藤, 小林, 団野, エタン-アンモニア混合系の $Co-60\gamma$ 線照射反応, 日本化学会第28春季年会講演, 4Q 09, 1973年4月。

- 13) 清水, 池添, 佐藤, 森山, 小林, エタン-アンモニア混合系のCo-60 γ 線照射反応, JAERI-M5562, 1974年2月。
- 14) 清水, 池添, 佐藤, エタン-アンモニア混合系のCo-60 γ 線照射反応, 日本化学会第30春季年会講演, 3F 04, 1974年4月。
- 15) S. Shimizu, Y. Ikezoe, S. Sato, Radiation Synthesis of Ethylamine from Ethylene-Ammonia System. Effect of Nitric Oxide Addition. Bull. Chem. Soc. Japan, 42(3), 1003 (1975)
- 15a) 清水, 他, 未発表
- 16) 池添, 佐藤, 清水, 森山, 小林, 炭酸ガスの放射線分解-キセノン, プロパン, プロピレン添加効果, JAERI-M5498, 1973年12月。
- 17) 池添, 清水, 佐藤, 炭酸ガスの放射線分解, 日本化学会第30春季年会講演, 3F 05, 1974年4月。
- 18) 池添, 佐藤, 清水, 小林, 中島, 添加物を用いた炭酸ガスの高収率放射線分解法, 特許出願, 1975年2月。
- 19) 池添, 佐藤, 清水, 小林, 中島, 核分裂片による炭酸ガスの放射線分解, 炭酸ガス-プロパン系, 日本化学会第32春季年会講演, 4J 30, 1975年4月。
- 19a) 池添, 他, 未発表
- 20) 池添, 佐藤, 炭化水素を用いた放射線合成, 石油学会誌17(8), 635 (1974)
- 21) O. Tokunaga, K. Hamanoue, J. Okamoto, A. Danno, Radiolysis of Mixtures of Hydrocarbons and Ammonia. I. Formation of Ethylamine from a Mixture of Ethylene and Ammonia, Bull. Chem. Soc. Japan 45(4), 1050 (1972).
- 22) 文献5, p. 37.
- 23) 同, p. 5.
- 24) 同, p. 33.
- 25) 文献4, p. 11.
- 26) 文献3, p. 26.