

JAERI-M

6507

低温化学照射装置(LTFL)の運転報告・VI

昭和50年度運転

1976年3月

小林敏明・佐藤章一・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・VI
昭和50年度運転

日本原子力研究所・高崎研究所・研究部

小林敏明・佐藤章一・池添康正・

清水三郎・中島隼人

(1976年3月15日受理)

昭和50年度には、L T F Lを7月と9月に運転し、30コの試料を入れた10コのカプセルを照射した。運転は円滑に行われた。当初予定したあと2回分の運転は10月から原子炉が停止したので次期に延期した。

本年度に行った主な保守作業である2系列の真空ポンプのオーバーホール、その他の作業について述べた。本ループが運転可能となった昭和44年4月以降の全保守作業を年表にまとめた。

今期の照射試料は主にプロパン添加炭酸ガス系の反応で物質収支を見るためのものであった。最近に行ったループ照射実験結果の解析により、明らかになったことについても概略を述べた。

Operation Report on the Low Temperature Fissiochemical Loop (LTFL). VI. Operations During the Period of April 1975 to March 1976.

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

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

(Received March 15, 1976)

In July and September 1975, LTFL was operated to irradiate 10 capsules which contained 30 samples in total. Operation was without any trouble. The subsequent two runs scheduled for the year, however, were postponed because of the reactor shut-down from October.

During the period of April 1975 to March 1976, overhauling of the two vacuum pumps of the loop was the only major maintenance work. This and a few other works in the year are described in the report. A chronological table is summarized of all the maintenance works conducted since the LTFL was first made operable in April 1969.

Samples irradiated in the period were mostly for obtaining the mass balance in reaction of carbon dioxide added with propane. The results of analysis of the recent data of loop experiments are also presented.

目 次

1. はじめに	1
2. 照射運転	1
2.1 運転の概要	1
2.2 運転の経過	1
(1) 75-1 運転	1
(2) 75-2 運転	2
(3) 照射運転のまとめ	2
3. 保 守	2
3.1 リード線コネクター点検	2
3.2 真空ポンプオーバーホール	2
3.3 昇圧ポンプの分解掃除	5
3.4 今後の保守関連事項	5
3.5 保守作業年表	6
4. L T F Lによる照射実験とその結果	6
4.1 炭酸ガス-プロパン系の反応	6
4.2 アンモニア-炭化水素系の反応	10
(1) アンモニア-エタン系	10
(2) アンモニア-エチレン系	10
4.3 窒素-エチレン系の反応	10
参考文献	11

1 はじめに

低温化学照射装置 (Low Temperature Fissionochemical Loop, LTFL) は、昭和44年度運転開始以来昭和49年度まで、「化学用原子炉に関する工学的研究」および「炉内放射線による化学反応の研究」の2テーマの主要実験装置として各種線量測定、反応実験に使用されてきた。^{1)~5)} 本装置は、冷却用ヘリウム循環系統を有するカプセル照射装置で、低温照射および核分裂片照射実験が可能であることに特徴があり、更に、5年以上にわたり種々の気体化学反応混合物を安全に照射してきた実績がある。これら特徴を生かし、49年度より開始した核エネルギーによる水素製造プロセス研究の道具として本装置を使用することとした。

核エネルギーによる水素製造は熱化学法が中心となるべき性質のものであるので、放射線化学プロセスについてはこれまでの使用頻度の半分を目標にLTFLを運転し、また別にガンマ線高温反応の実験も行うこととした。LTFLを用いる反応実験の対象としては、熱効率で20%近い、 $G(\text{CO}) = 7 \sim 8$ の値が見出されている添加物混合炭酸ガス系を第一の目標としている。水の直接放射線分解の効率が高々5~10%であるのに対し、炭酸ガス分解の効率は20%以上になる期待があり、一酸化炭素が効率良く得られれば、これを転化反応により水素に転化する事は容易であるからである。

以上の理由で、LTFLで50年度は4回の炭酸ガス系試料を中心とした照射運転を予定していたが、原子炉側の予定変更があり、2回分は次年度に繰り越した。本報告では本年度行った運転と、保守作業、照射実験の概要について述べた。また、本格的運転開始より約6年を経過しているので、これまでの保守作業の年表をまとめ、近い将来の保守作業の予定についても触れた。

2 照射運転

2.1 運転の概要

昭和50年度の運転はLTFLを7月~12月にかけて4回運転の予定であったが、JRR-3が10月からトラブルにより定期自主検査を繰り上げて行ったため、前半の2サイクルのみの運転を行った。LTFLの運転は順調で、特にオーバーホール直後の真空ポンプの調子が良かった。照射は、エチレン試料1カプセル、炭酸ガスにプロパン添加試料7カプセル、エチレン線量計2カプセルの計10カプセルで計30試料を照射した。後期の残り2サイクル分の試料は次年度に持ち越す事となった。

2.2 運転の経過

(1) 75-1 運転

炭酸ガス中にプロパン0, 1, 5%添加核燃入り試料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。今回の照射は真空ポンプのオーバーホール直後に行われ、多少の不安もあったが順調に運転を終了することが出来た。真空ポンプはNo.1, No.2とも排気状態は良好であり、真空引き時間が短いこと、到達真空度が高く断熱層では、 10^{-6} Torrに達しているなどオーバーホールの効果を示している。ただ真空ポンプの冷却水管内スケールが完全に除去されたため、真空ポンプの冷却

1 はじめに

低温化学照射装置 (Low Temperature Fissiochemical Loop, LTF L) は、昭和44年度運転開始以来昭和49年度まで、「化学用原子炉に関する工学的研究」および「炉内放射線による化学反応の研究」の2テーマの主要実験装置として各種線量測定、反応実験に使用されてきた^{1)~5)}。本装置は、冷却用ヘリウム循環系統を有するカプセル照射装置で、低温照射および核分裂片照射実験が可能であることに特徴があり、更に、5年以上にわたり種々の気体化学反応混合物を安全に照射してきた実績がある。これら特徴を生かし、49年度より開始した核エネルギーによる水素製造プロセス研究の道具として本装置を使用することとした。

核エネルギーによる水素製造は熱化学法が中心となるべき性質のものであるので、放射線化学プロセスについてはこれまでの使用頻度の半分を目標にLTF Lを運転し、また別にガンマ線高温反応の実験も行うこととした。LTF Lを用いる反応実験の対象としては、熱効率で20%近い、 $G(\text{CO}) = 7 \sim 8$ の値が見出されている添加物混合炭酸ガス系を第一の目標としている。水の直接放射線分解の効率が高々5~10%であるのに対し、炭酸ガス分解の効率は20%以上になる期待があり、一酸化炭素が効率良く得られれば、これを転化反応により水素に転化する事は容易であるからである。

以上の理由で、LTF Lで50年度は4回の炭酸ガス系試料を中心とした照射運転を予定していたが、原子炉側の予定変更があり、2回分は次年度に繰り越した。本報告では本年度行った運転と、保守作業、照射実験の概要について述べた。また、本格的運転開始より約6年を経過しているので、これまでの保守作業の年表をまとめ、近い将来の保守作業の予定についても触れた。

2 照射運転

2.1 運転の概要

昭和50年度の運転はLTF Lを7月~12月にかけて4回運転の予定であったが、JRR-3が10月からトラブルにより定期自主検査を繰り上げて行ったため、前半の2サイクルのみの運転を行った。LTF Lの運転は順調で、特にオーバーホール直後の真空ポンプの調子が良かった。照射は、エチレン試料1カプセル、炭酸ガスにプロパン添加試料7カプセル、エチレン線量計2カプセルの計10カプセルで計30試料を照射した。後期の残り2サイクル分の試料は次年度に持ち越す事となった。

2.2 運転の経過

(1) 75-1 運転

炭酸ガス中にプロパン0, 1, 5%添加核燃入り試料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。今回の照射は真空ポンプのオーバーホール直後に行われ、多少の不安もあったが順調に運転を終了することが出来た。真空ポンプはNo.1, No.2とも排気状態は良好であり、真空引き時間が短いこと、到達真空度が高く断熱層では、 10^{-6} Torr に達しているなどオーバーホールの効果を示している。ただ真空ポンプの冷却水管内スケールが完全に除去されたため、真空ポンプの冷却

水流量が増大し、ヘリウム圧送機の流量が低下する現象が見られた。このためアフタークーラーの効きが悪くなり、ガンマヒーティングによるカプセル温度上昇が約10℃と大きくなった。これは後に、真空ポンプへの冷却水バルブを調整し正常に戻った。

(2) 75-2 運転

今回は炭酸ガス中にプロパン0, 1, 5%添加核燃入り試料9ケと、エチレン核燃入り試料3ケ、エチレン線量計3ケを入れた計5カプセルの照射を行った。照射、運転、共に全く順調で、カプセル関係、温度、圧力、ヘリウム圧送機関係、排気関係も正常であった。

(3) 照射運転のまとめ

昭和50年度にはLTF Lを2回運転し、前年度からのプロパン添加炭酸ガス系の照射を主に、30ケの試料を入れた10カプセルを常温照射した。結果を表1にまとめた。

3 保 守

本年度に行った保守作業についてまとめた。

3.1 リード線コネクタ点検 (6月)

リード線コネクタ^{5a)}はLTF Lで照射するカプセルをソケットにより、機械的電氣的に接続し、照射位置までの送入、引戻し、及び同時に照射中のカプセルの温度、圧力の信号を計測器へ導くものである。リード線は長さ7m、外径3.2φのステンレスワイヤーで、中に8本の素線を有している。

このリード線コネクタは、47年7月に交換したもので、この間約100本の外カプセル^{5b)}を照射している。接続の具合、電氣的バランスの具合、カプセル切離し操作の具合が非常に優れており、交換せずもう少しの期間使用したいとの考えで点検を行った。

点検はリード線を全部引き出し、外観に傷やねじれがないかどうかのチェック、リード線全体について(切離し時に力のかかるコネクタ付近とドラムに巻きつけられる部分を重点的に)マイクロメーターにより外径の測定を行った。この点検結果外径は 3.2 ± 0.02 mmで異常のない事が判明したので今しばらくは使用する考えでいる。なお、このほかに素線の抵抗測定、絶縁抵抗測定を次回に行う予定である。

3.2 真空ポンプオーバーホール (7月)

LTF Lの断熱系及び高真空排気系に使用されている真空ポンプ(日本真空技術製)は本装置炉外試験(昭和43年1月~3月)において使用されて以後、約900時間運転されている。この間分解点検が行われていないので今年度オーバーホールを行った。

この真空ポンプは、油拡散ポンプ、拡散エゼクタポンプ、油回転ポンプからなる吸気口径6インチの装置で、これを2系列有している。油回転ポンプの潤滑油は運転時間等を考慮して1~2年に一度交換していたが、他の油拡散、拡散エゼクタポンプについてはオールドレンコックがないことや、分解するには専門技術が要ることなどの理由により、オイル交換補給が不可能であった。また、最近到達真空度が $10^{-2} \sim 10^{-3}$ Torrと低くなって来ており、オーバーホールを行ってオイルの交換やパッキングの交換をする時期が来たと考えた。

このオーバーホールの作業内容は、油回転ポンプでは、排気弁、排気弁スプリング、排気弁ガイド、

水流量が増大し、ヘリウム圧送機の流量が低下する現象が見られた。このためアフタークーラーの効きが悪くなり、ガンマヒーティングによるカプセル温度上昇が約10℃と大きくなった。これは後に、真空ポンプへの冷却水バルブを調整し正常に戻った。

(2) 75-2 運転

今回は炭酸ガス中にプロパン0, 1, 5%添加核燃入り試料9ケと、エチレン核燃入り試料3ケ、エチレン線量計3ケを入れた計5カプセルの照射を行った。照射、運転、共に全く順調で、カプセル関係、温度、圧力、ヘリウム圧送機関係、排気関係も正常であった。

(3) 照射運転のまとめ

昭和50年度にはLTF Lを2回運転し、前年度からのプロパン添加炭酸ガス系の照射を主に、30ケの試料を入れた10カプセルを常温照射した。結果を表1にまとめた。

3 保 守

本年度に行った保守作業についてまとめた。

3.1 リード線コネクタ点検 (6月)

リード線コネクタ^{5a)}はLTF Lで照射するカプセルをソケットにより、機械的電氣的に接続し、照射位置までの送入、引戻し、及び同時に照射中のカプセルの温度、圧力の信号を計測器へ導くものである。リード線は長さ7m、外径3.2φのステンレスワイヤーで、中に8本の素線を有している。

このリード線コネクタは、47年7月に交換したもので、この間約100本の外カプセル^{5b)}を照射している。接続の具合、電氣的バランスの具合、カプセル切離し操作の具合が非常に優れており、交換せずもう少しの期間使用したいとの考えで点検を行った。

点検はリード線を全部引き出し、外観に傷やねじれがないかどうかのチェック、リード線全体について(切離し時に力のかかるコネクタ付近とドラムに巻きつけられる部分を重点的に)マイクロメーターにより外径の測定を行った。この点検結果外径は 3.2 ± 0.02 mmで異常のない事が判明したので今しばらくは使用する考えでいる。なお、このほかに素線の抵抗測定、絶縁抵抗測定を次回に行う予定である。

3.2 真空ポンプオーバーホール (7月)

LTF Lの断熱系及び高真空排気系に使用されている真空ポンプ(日本真空技術製)は本装置炉外試験(昭和43年1月~3月)において使用されて以後、約900時間運転されている。この間分解点検が行われていないので今年度オーバーホールを行った。

この真空ポンプは、油拡散ポンプ、拡散エゼクタポンプ、油回転ポンプからなる吸気口径6インチの装置で、これを2系列有している。油回転ポンプの潤滑油は運転時間等を考慮して1~2年に一度交換していたが、他の油拡散、拡散エゼクタポンプについてはオールドレンコックがないことや、分解するには専門技術が要ることなどの理由により、オイル交換補給が不可能であった。また、最近到達真空度が $10^{-2} \sim 10^{-3}$ Torrと低くなって来ており、オーバーホールを行ってオイルの交換やパッキングの交換をする時期が来たと考えた。

このオーバーホールの作業内容は、油回転ポンプでは、排気弁、排気弁スプリング、排気弁ガイド、

表-1 照射試料と運転

LTFIL 照射運転 No	JRR-3 サイクル (炉出力)	年月日	試料			全圧 (atm)	U-Pd箔 ($\text{cm} \times \text{cm}$)	照射			
			カプセル版	試料版	試料組成			位置 (cm)	照射温度 ($^{\circ}\text{C}$)	時間	
75-1	R3-50-4 (10MW)	50-7-15	4C-70	C-67	100%CO ₂	6	0.5×7.5	0	33	20m	
				C-70	99%CO ₂ + 1%C ₃ H ₈						
				C-73	95%CO ₂ + 5%C ₃ H ₈						
		"	4C-73	C-76	100%CO ₂	6	"	"	0	33	1h30m
				C-79	99%CO ₂ + 1%C ₃ H ₈						
				C-82	95%CO ₂ + 5%C ₃ H ₈						
		50-7-16	4C-71	C-68	100%CO ₂	6	"	"	0	38	40m
				C-71	99%CO ₂ + 1%C ₃ H ₈						
				C-74	95%CO ₂ + 5%C ₃ H ₈						
		"	4C-72	C-69	100%CO ₂	6	"	"	0	33	1h
				C-72	99%CO ₂ + 1%C ₃ H ₈						
				C-75	95%CO ₂ + 5%C ₃ H ₈						
		50-7-17	4B-9	D-108	C ₂ H ₄	2	0	"	0	33	4h
				D-111	C ₂ H ₄						
				D-114	C ₂ H ₄						
75-2	R3-50-5 (10MW)	50-9-2	4C-69	D-126	C ₂ H ₄	6	0.8×7.5	0	32	20m	
				D-127	C ₂ H ₄						
				D-128	C ₂ H ₄						
		"	4C-74	C-77	100%CO ₂	6	"	"	0	34	2h
				C-80	99%CO ₂ + 1%C ₃ H ₈						
				C-83	95%CO ₂ + 5%C ₃ H ₈						
		50-9-3	4C-75	C-78	100%CO ₂	6	"	"	0	36	2h30m
				C-81	99%CO ₂ + 1%C ₃ H ₈						
				C-84	95%CO ₂ + 5%C ₃ H ₈						
		50-9-4	4C-76	C-85	100%CO ₂	6	"	"	0	36	3h
				C-86	99%CO ₂ + 1%C ₃ H ₈						
				C-87	95%CO ₂ + 5%C ₃ H ₈						
		50-9-5	4B-10	D-109	C ₂ H ₄	2	0	"	0	32	4h
				D-112	C ₂ H ₄						
				D-115	C ₂ H ₄						

ガイドピン、吸気フィルター、ガスケット及びパッキング、オイルの交換、油拡散、拡散エゼクタポンプでは、排気弁、各部Oリング及びパッキング、オイルの交換、ニューマチックバルブでは、グラウンドシート、スピンドル用ガスケット、ボンデッドガスケット、ピストンガスケット、シリンダガスケット、Oリングの交換を行い、各部の研磨洗浄後組立てた。

この結果、ポンプ自体では異常な摩耗や折損あるいは軸のガタなどではなく、分解時に取扱説明書で交換を義務づけられている部品のみで済んだ。ポンプの冷却水管では一つトラブルがあった。通常冷却水には汙過水が使用されているが、水質が劣るため冷却水管内は鉄錆やスケールでだいぶ詰まっていた。これらはピアノ線や、 5 kg/cm^2 の圧縮空気ではほぼ除去出来たが、しかし油拡散ポンプのジェット部外管にスパイラル状に巻いてある冷却水管はピアノ線も通らないほどのスケールで、種々手を尽くしたが除去出来なかった。結局これについてはポンプ製作工場に持ち帰り新しい冷却水管の巻き直しを行った。

オーバーホールしたポンプ全体の組立ての後、試験運転を行い真空破壊弁からのリークを発見した。工事日程が冷却水管トラブルで遅れており、またL T F Lの運転予定日も間近なためとりあえずはこの部分をメクラにし、真空引き試験を行った。真空引き試験では約2時間で、 10^{-5} Torr 領域まで真空度が到達した。メクラにした部分は翌8月に新しい真空破壊弁を取付けた。

オーバーホールはこれで終了した。その後のL T F Lの運転での排気状態は良好で、ヘリウム系排気用Na 2ポンプの排気性能も向上し真空引き時間は短く、断熱層系統排気用のNa 1ポンプでは真空度 10^{-5} Torr に到達した。オーバーホールは非常に有効であった。これにより今後2~3年あるいは1000時間程度の運転が充分行えると思われる。排気系フローシートを図1に示す。

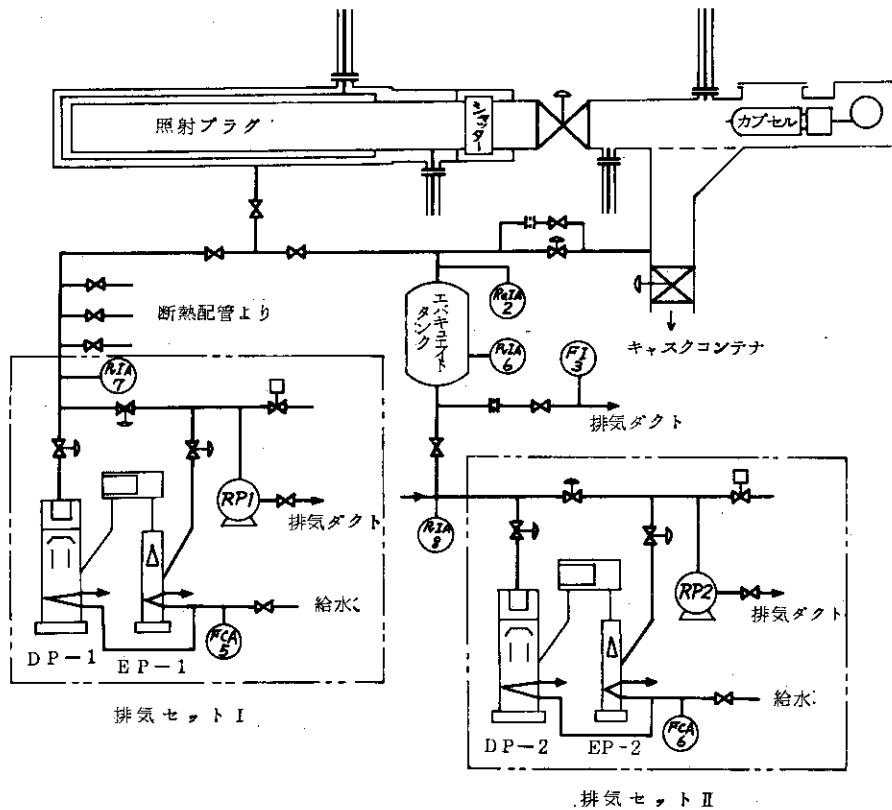


図-1 排気系フローシート

3.3 昇圧ポンプの分解掃除（9月）

49年2月にヘリウム圧送機への冷却水流量増加を目的として取付けたこのポンプは⁵⁾容量0.35 KWと小型ながら水温の高い夏期の運転に効果を示している。

L T F Lの空運転時にこのポンプを作動させたところ、ポンプは回転せずNFBがトリップするようになった。分解点検してみるとモーター自体に異常はなく、ポンプの吸入口、吐出口、及び羽根に多量のスケールが付着していた。ドライバーなどの鋭利なものでないと除去出来ないほどであり、このためポンプの負荷が異常に大きくなりNFBがトリップしたものと思われる。スケールの除去、洗浄後、正常に戻った。

3.4 今後の保守関連事項

ここ2～3年の保守で気付く事は、冷却水に関するトラブルが多いことである。今年度も真空ポンプの冷却水管がスケールで詰まったり、昇圧ポンプがやはりスケールで回転しなくなったりしている。この対策として48年9月に行ったような薬品による冷却水管内洗浄⁵⁾を半年ないし1年毎に行えるよう配管の一部を手直しし、昇圧ポンプで薬品を循環させスケールの除去が出来るよう計画である。（図2参照）

また、48年11月に塗装を行った液体窒素炉外タンク⁵⁾は、最近錆が出て来たので、この再塗装も次年度行う予定でいる。

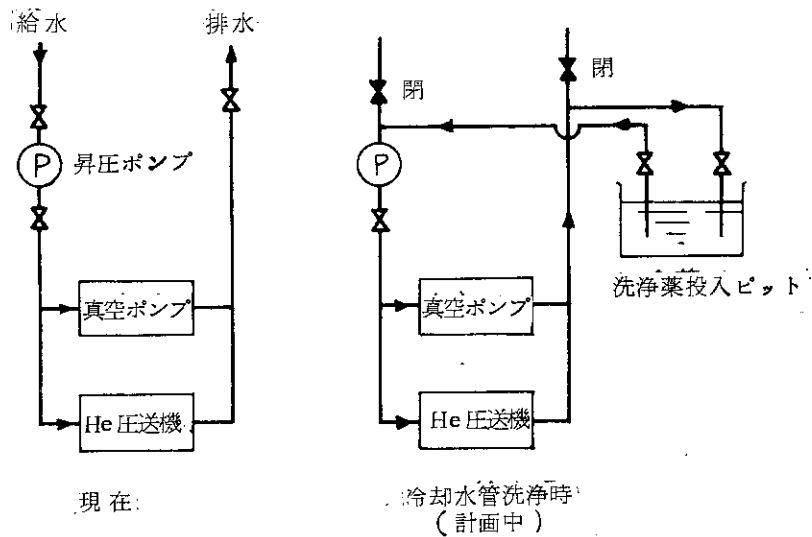


図-2 冷却水管内洗浄計画図

3.5 保守作業年表

第2表に昭和44年4月にLTF Lが操作可能になってから現在までの、主要な保守作業と今後近将来に必要性があると思われる保守作業を年表にまとめた。(表2)。表中運転時間については、47年7月1日から積算時間計が動き出し現在に至っている。44年4月の運転開始までに炉外試験等でヘリウム圧送機100時間、真空ポンプNo.1, No.2各120時間が推定され、47年7月までには、カプセルコネクター140時間、ヘリウム圧送機390時間、真空ポンプNo.1, No.2各500時間が運転記録により推定された。47年7月以後の記録は上段が積算時間計の読み、下段の()内が積算時間計取付以前からの推定積算時間である。

4 LTF Lによる照射実験とその結果

今年度の照射件数(外カプセル10個)は、48年度(外カプセル37個)49年度(外カプセル34個)に比較して少い。照射した系は、炭酸ガス-プロパン系(外カプセル7個)とエチレン(外カプセル3個)である。今年度は主に今迄に得られた実験結果の整理、解析に力を注いだ。

4.1 炭酸ガス-プロパン系の反応

γ 線照射、($n + \gamma$)線照射に比較して、FF照射によって一酸化炭素の生成が増加し、エタン、水素、メタン等の生成は減少した。^{6)~8)}実験結果を解析し以下の事が明らかになった。高圧(2~6気圧以上)の時にはFF飛跡内で反応(1)が起り、一酸化炭素が多く生成する。

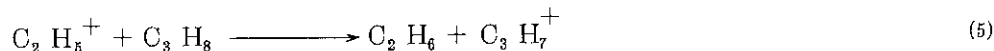
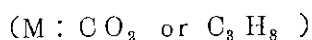
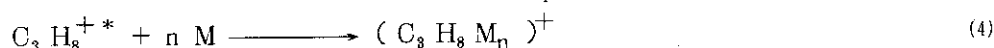
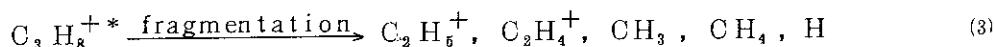


低圧の時には反応(2)が反応(1)に優越するため一酸化炭素生成が減少する。



γ 線、 $n + \gamma$ 線照射の時には常に反応(2)が反応(1)に優越する。

反応(2)の結果生成した励起プロパンカチオンは反応(3)~(5)によってエタンになる。



今期照射した外カプセル7個(内カプセル21個)は、この反応の物質収支を明らかにすることを目的とした。そのために含酸素化合物(H_2O , CH_3OH 等)のガスクロサンプラーに付着した微量の水分、グリース中に吸着した水分等の影響を調べ分析条件を設定した。用いたカラムは、PEG 0.5% on PORAPAK T5 cm とPORAPAK T200 cm とを直列に連結したものである。このカラムで照射試料を分析した結果、炭酸ガス、プロパン、iso-ブタン、n-ブタン、水、その他未同定ピーク4個が得られた。

3.5 保守作業年表

第2表に昭和44年4月にLTF Lが操作可能になってから現在までの、主要な保守作業と今後近将来に必要性があると思われる保守作業を年表にまとめた。(表2)。表中運転時間については、47年7月1日から積算時間計が動き出し現在に至っている。44年4月の運転開始までに炉外試験等でヘリウム圧送機100時間、真空ポンプNo.1, No.2各120時間が推定され、47年7月までには、カプセルコネクター140時間、ヘリウム圧送機390時間、真空ポンプNo.1, No.2各500時間が運転記録により推定された。47年7月以後の記録は上段が積算時間計の読み、下段の()内が積算時間計取付以前からの推定積算時間である。

4 LTF Lによる照射実験とその結果

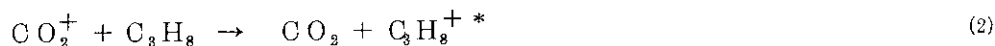
今年度の照射件数(外カプセル10個)は、48年度(外カプセル37個)49年度(外カプセル34個)に比較して少い。照射した系は、炭酸ガス-プロパン系(外カプセル7個)とエチレン(外カプセル3個)である。今年度は主に今迄に得られた実験結果の整理、解析に力を注いだ。

4.1 炭酸ガス-プロパン系の反応

γ 線照射、($n + \gamma$)線照射に比較して、FF照射によって一酸化炭素の生成が増加し、エタン、水素、メタン等の生成は減少した。^{6)~8)}実験結果を解析し以下の事が明らかになった。高圧(2~6気圧以上)の時にはFF飛跡内で反応(1)が起り、一酸化炭素が多く生成する。

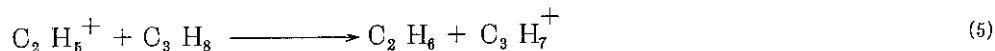
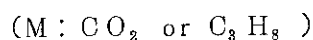
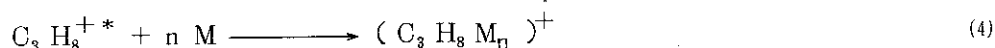
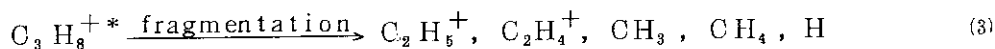


低圧の時には反応(2)が反応(1)に優越するため一酸化炭素生成が減少する。



γ 線、 $n + \gamma$ 線照射の時には常に反応(2)が反応(1)に優越する。

反応(2)の結果生成した励起プロパンカチオンは反応(3)~(5)によってエタンになる。



今期照射した外カプセル7個(内カプセル21個)は、この反応の物質収支を明らかにすることを目的とした。そのために含酸素化合物(H_2O , CH_3OH 等)のガスクロサンプラーに付着した微量の水分、グリース中に吸着した水分等の影響を調べ分析条件を設定した。用いたカラムは、PEG 0.5% on PORAPAK T5 cm とPORAPAK T200 cm とを直列に連結したものである。このカラムで照射試料を分析した結果、炭酸ガス、プロパン、iso-ブタン、n-ブタン、水、その他未同定ピーク4個が得られた。

表 2 保守作業年表

年. 月	項 目	運 転 時 間 (h) ※			
		カプセル コネクタ-	ヘリウム 圧送機	真空ポンプ No. 1	真空ポンプ No. 2
44. 4	LTEL 運転開始	(0)	(100)	(120)	(120)
8	リード線コネクタのドラムへの巻直し, 及び位置調整				
9	空気脱湿器サモスタット調整				
"	主冷却タンク活性炭 20 時間加熱再生				
"	カプセル自動引戻関係シケンステスト				
45. 7	カプセル停止位置異常にともなう修理	(20)	(140)	(180)	(180)
8	X-1 ランブ取付 (カプセル送入モーター停止回路正常確認ランプ)				
"	リード線コネクタ交換				
11	カプセル送入用ユニバーサルジョイント関係修理				
46. 3	液体窒素炉外タンクバキニウムライト溶接				
4	リード線コネクタ交換	(60)	(220)	(280)	(280)
"	カプセル送入用モータークラッチ, クラッチシフター交換				
"	放射線モニター高圧電源部修理				
5	活性炭, 空気脱湿器加熱再生				
7	カプセル取扱部遮蔽駆動モーター現場スイッチ取付				
47. 1	ヘリウム圧送機オーバーホール				
2	温度, 圧力関係計測器点検調整				
"	シケンス関係プログラインリレー全数交換				
4	排気系油回転ポンプオイル交換	(140)	(380)	(480)	(480)
"	空気脱湿器逆止弁作動不良による分解点検				
"	自動温度記録計 1 台交換				
5	真空計チャックオーバー交換				

年 月	項 目	運 転 時 間 (h)			
		カプセル コネクター	ヘリウム 圧送機	真空ポンプ No. 1	真空ポンプ No. 2
47. 6	リード線コネクター交換	0 (140)	0 (390)	0 (500)	0 (500)
"	積算時間計取付				
7	リード線コネクター交換				
"	液体窒素炉外タンク充填口修理				
"	L T F L 空運転				
"	L T F L 電気機器絶縁抵抗測定				
8	リード線コネクター電気的バランスが取れず調査	12 (152)	27 (417)	39 (539)	32 (532)
"	空作動弁 V-14 調整				
9	真空計, 放射線モニター関係真空管 14 種交換				
"	活性炭トラップヒーター絶縁不良のため交換				
10	カプセル落下機構リミットスイッチ新位置取付				
11	活性炭再生用ヒーターコントローラー修理				
"	活性炭再生				
48. 1	液体窒素炉外タンク断熱層真空引き	18 (158)	37 (427)	69 (569)	59 (559)
3	L T F L 空運転				
"	空気脱湿器再生				
5	L T F L 全般に関する一般点検	42 (182)	82 (472)	135 (635)	105 (605)
6	排気系ゴム管交換, 油回転ポンプベルトオイル点検				
9	ヘリウム圧送機冷却水系統薬品洗浄	50 (190)	94 (484)	163 (663)	133 (633)
"	活性炭, 空気脱湿器加熱再生				
11	液体窒素炉外タンク塗表	65 (205)	124 (514)	195 (695)	166 (666)
49. 1	活性炭加熱再生				
2	ヘリウム圧送機冷却水用昇圧ポンプ取付	83 (223)	168 (558)	249 (749)	214 (714)
3	高圧カプセル圧力測定実験				
5	L T F L 電気機器絶縁抵抗測定				

年 月	項 目	運 転 時 間 (h)			
		カプセル コネクタ-	ヘリウム 圧送機	真空ポンプ № 1	真空ポンプ № 2
4.9.5	液体窒素炉外タンク断熱層真空引き				
6	空気脱湿器加熱再生				
"	ヘリウム圧送機点検オイル補給	92 (232)	184 (574)	272 (772)	258 (758)
7	温度, 圧力関係計測器点検調整				
11	真空計, 放射線モニタ-点検調整	140 (280)	264 (654)	371 (871)	349 (849)
5.0.4	L T F L 空運転				
6	リ-ド線コネクタタ-点検				
7	真空ポンプオ-バ-ホール	146 (286)	277 (667)	386 (886)	362 (862)
8	真空破壊弁交換				
9	昇圧ポンプ分解点検				
11	L T F L 空運転				
5.1.2	ヘリウム圧送機点検オイル補給				
"	L T F L 空運転	167 (307)	314 (704)	456 (956)	425 (925)
(5.1.4)	。近い将来に必要なと思われる保守作業				
(L T F L 電気機器絶縁抵抗測定				
(液体窒素炉外タンク塗装				
(計測器点検調整				
(ヘリウム圧送機冷却水管洗浄ライン工事				
(ヘリウム圧送機オイル交換				
(リ-ド線コネクタタ-交換				
(5.2.-)	各部リミットスイッチ点検交換				
(5.2.-)	警報シ-ケンス検査				
(5.2.-)	ヘリウム圧送機オ-バ-ホール				

※ 上段は積算時間計取後の読み, 下段()内は推定積算時間

4.2 アンモニア-炭化水素系の反応

今期はこの系のL T F L照射は行わず、前期迄に照射した実験結果の整理解析を行った。

(i) アンモニア-エタン系

この系からのエチルアミンの生成は圧力と共に減少した。n-ブタンの生成は逆に圧力と共に増加した。^{9)~11)} この生成物の圧力依存性は、エタン親イオンの衝突脱活性と関連して説明された。即ち反応(6)、反応(7)の二つの反応が競争し、高圧ほど反応(7)が速くなり親イオンは安定化される。



C_2H_6^+ イオンはアンモニアとプロトン移行反応を起し、エチルラジカルに変化しn-ブタンになる。



エチルアミンの生成は C_2H_5^+ によって生成する(イオン機構)分がなくなるので減少する。この系に対しては、F F照射による特異効果はなく、圧力依存、線量依存、いずれも γ 線と同じ生成G値が得られた。MozumderのF F track model¹³⁾を用いた解析結果と一致している。

この系にラジカル捕促剤である酸化窒素を添加すると、F F照射による特異効果があらわれた。酸化窒素添加により、水素の生成量は減少するが、その減少量は、 γ 線、($n + \gamma$)、F Fの順に小さくなる。¹⁰⁾そしてこの減少量の酸化窒素添加率依存性は、F F飛跡内反応によっては説明することが出来ない。飛跡内反応以外の原因によるF Fの特異効果が実験的に得られたことは興味深い。

(ii) アンモニア-エチレン系

γ 線照射に比較して、F F照射によって、エチルアミン生成は増大、水素生成は減少、n-ブタン生成は不変であった。この系で見られたこれらのF F照射の特異効果も、F F飛跡内反応(中和、プロトン移行、拡散)によっては説明することが出来ない。新しい機構(例えば初期過程)によっていると考えられる。

4.3 窒素-エチレン系の反応

大気圧では、 γ 線、($n + \gamma$)、F F、いずれの照射によっても、ほぼ同じG(HCN)値(0.08~0.1)で、シアン化水素を生成する。高圧にすると、F F照射でG(HCN)値が増大し($G_{\text{FF}}(\text{HCN}) = 0.23$)、他の放射線では減少する($G_{\gamma}(\text{HCN}) = 0.05$)¹⁴⁾¹⁵⁾すなわち高圧(14気圧)にするとF Fの特異効果が見出された。この特異効果は、MozumderのF F track modelによって説明出来た。即ち、高圧になるとF F飛跡中で反応(9)が起り、窒素原子が余分にF F飛跡中に生成する。



この窒素原子はエチレンと反応してシアン化水素となる(反応(10))。



参 考 文 献

- 1) 佐藤, 森山, 助川, 団野, 大島, 岡本, 浜ノ上, 徳永, 低温化学照射装置 (LTFL) の運転報告・I。昭和44年度運転・特性試験, JAERI-M 4630, 1971年11月。
- 2) 佐藤, 森山, 助川, 池添, 岡本, 浜ノ上, 徳永, 山崎, 大島, 団野, 低温化学照射装置 (LTFL) の運転報告・II。昭和45年度運転, JAERI-M 4920, 1972年6月。
- 3) 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 (LTFL) の運転報告・III。昭和46年度運転, JAERI-M 5360, 1973年8月。
- 4) 佐藤, 森山, 小林, 池添, 清水, 山崎, 団野, 低温化学照射装置 (LTFL) の運転報告・IV。昭和47年度運転, JAERI-M 5421, 1973年10月。
- 5) 佐藤, 小林, 池添, 清水, 中島, 低温化学照射装置 (LTFL) の運転報告・V。昭和48・49年度運転, JAERI-M 6107, 1974年4月。
- 5a) 文献4のp. 40
- 5b) 文献4のp. 5
- 6) 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, 日本化学会第32回春季年会講演, 4J30, 1975年4月(東京)。
- 7) Y. Ikezoe, S. Sato, The Radiation Chemical Reactions in the Carbon Dioxide-Propane System, J. Nucl. Sci. Technol., To be published.
- 8) S. Sato, Y. Ikezoe, M. Takehisa, R. Ueda, Closed-Cycle Hydrogen Production via CO₂ Decomposition, Proceedings for U. S. - Japan Joint Seminar, "Key Technologies for Hydrogen Energy System" T. N. Veziroglu, T. Ohta ed., Yokohama Nat'l Univ., July, 1975 (Tokyo) p. 55-64.
- 9) 清水, 池添, 佐藤, 小林, 中島, 核分裂片によるエタン-アンモニア系からのエチルアミン生成, 第18回放射線化学討論会, 講演No.223, 1975年10月(東京)
- 10) 清水, 池添, 佐藤, 小林, 中島, 核分裂片照射によるエタン-アンモニア混合系の放射線分解, JAERI-M 6406, 1976年2月。
- 11) S. Shimizu, Y. Ikezoe, S. Sato, Fission Fragment Radiolysis in Ethane-Ammonia System, J. Nucl. Sci. Technol. 投稿中。
- 12) S. Shimizu, Y. Ikezoe, S. Sato, Radiation Synthesis of Ethylamine from Ethane-Ammonia Systems, Bull. Chem. Soc. Japan, 48, 1003 (1975)
- 13) A. Mozumder in M. Burton, J. L. Magee (ed.), "Advances in Radiation Chemistry", Vol. 1, Wiley-Interscience, New York (1969), p. 1.
- 14) 池添, 佐藤, 小林, 清水, 中島, 核分裂片による窒素-エチレン系からのシアン化水素生成, 第18回放射線化学討論会, 講演No.224, 1975年10月(東京)。
- 15) Y. Ikezoe, S. Sato, The Radiation Synthesis of Hydrogen Cyanide from the Nitrogen-Ethylene System, Bull. Chem. Soc. Japan, 48, 3111 (1975).