

JAERI-M

7 2 4 6

低温化学照射装置(LTFL)の運転報告・VII

昭和51年度運転

1977年8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）まで、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 (LTFL) の運転報告・VII

昭和 51 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

(1977 年 8 月 8 日受理)

昭和 51 年度には、LTFLを51年12月から、52年3月までの間に4回運転し、57試料を入れた19カプセルを照射した。試料のうち、45ケはプロパン添加炭酸ガス(内33ケは核燃料共存試料)、残り12ケは線量測定用エチレン(全部核燃料無し)であった。

照射運転は、これまでで最長の12時間照射も含めて順調であった。保守作業として、冷却水系統の洗浄用配管の取付け、計測系統の点検調整などを行った。照射試料の分析により、炭酸ガス分解による一酸化炭素生成と共に、水その他の多くの含酸素化合物が生成していることが明らかになった。たとえば、プロパン添加率1%で10-15 Mradの照射により、 $G(\text{CO}) = 5.4$ 、 $G(\text{H}_2\text{O}) = 3.5$ 、 $G(i\text{-PrOH}) = 0.2$ 、 $G(\text{Acetone}) = 0.1$ といった値が得られた。

LTFLは昭和42年に炉外試験、45年から照射運転を行ってきた。装置の炉内部分の放射能は、取外し時の放射線防護対策の最重要事であるので、これを評価するため、核種別の重量分布の評価を行った。

Operation Report on the Low Temperature Fissionochemical Loop (LTFL). VII. Operations During the Period of April 1976 to March 1977.

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

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

(Received August 8, 1977)

From December 1976 to March 1977, LTFL was operated four times, irradiating 19 capsules which contained a total of 57 samples. Of these, 45 samples were of carbon dioxide added with propane, including 33 with fission fragment sources, or U-Pd foil pieces. Other 12 were of ethylene for dosimetry.

Operations were without trouble. A capsule was irradiated 12 hours, which was the longest irradiation time with the loop. Maintenance works during the one year period ending March 1977, included modification of the cooling water piping for descaling and calibration check of the instrumentation system.

Analysis of the irradiated carbon dioxide samples revealed that water and other oxygen containing products were formed besides carbon monoxide. E.g., by addition of

1 % propane and irradiation to 10 - 15 Mrad, $G(\text{CO})=5.4$,
 $G(\text{H}_2\text{O})=3.5$, $G(\text{i-PrOH})=0.2$, and $G(\text{Acetone})=0.1$.

For future dismantling of the LTFL, which has been in service since 1965, an estimation was made of weight distribution of the nuclides constituting the in-pile portion of the loop. The estimation is important in connection with radiation protection at the time of the dismantling.

Keywords: In-Pile Loop, Irradiation, Radiation Chemistry,
Fission Fragment, Loop Operation, Maintenance,
Reaction Analysis

目 次

1. はじめに	1
2. 照射運転	2
2.1 運転の概要	2
2.2 運転の経過	2
(1) 76-1 運転	2
(2) 76-2 運転	2
(3) 76-3 運転	2
(4) 76-4 運転	2
2.3 照射運転のまとめ	3
3. 保守	3
3.1 電気系統絶縁抵抗測定	3
3.2 液体窒素炉外タンク塗装	3
3.3 冷却水管内洗浄ライン工事	6
3.4 計測系および補助計器の点検調整	6
3.5 キャスクコンテナ台車駆動機構修理	6
3.6 その他	7
4. LTFLによる照射実験	7
4.1 51年度照射実験とその目的	7
4.2 50年度照射実験の結果と解析	8
5. LTFL 炉内被照射部の残留放射能評価	10
参考文献	14

1. はじめに

高崎研究所研究部（東海駐在）では、昭和 49 年度から「核エネルギーによる水素製造に関する研究」を開始した。本テーマは、いわゆる熱化学法による核熱利用閉サイクル水素製造プロセスの開発を主目標とするものであるが、放射線化学反応をとり入れた閉サイクル水素製造プロセスの開発も、これまで炉内放射線による化学反応を研究してきた本グループにとって適当な目標となる。

このため、炭酸ガスの効率的な放射線化学的分解反応の条件を求めて、ガンマ線による実験と共に炉内放射線による実験も、低温化学照射装置（Low Temperature Fissiochemical Loop, LTFL）を使用して行っている。炭酸ガスを一酸化炭素に分解できれば、これを転化反応によって水蒸気と反応させて水素を得ることができる。

これまでの LTFL の運転については、各年度に報告にまとめた。昭和 50 年度には¹⁾、予定 4 回運転のうち 2 回のみ行えたので、繰り越し分 2 回を含め、51 年度には、4 回の運転を行った。この 4 回の運転は 51 年 12 月から 52 年 3 月までの年度後半に行ったので、本報告では、50 年度照射試料で得られた結果までを概略述べてある。

炭酸ガスの放射線分解に関しては²⁻⁴⁾、添加物として、プロパンが一酸化炭素収率、 $G(\text{CO})$ の向上に有効であることを見出して、プロパン添加炭酸ガスの照射をこれまで行って来た。その結果、核分裂片による収率が、ガンマ線による収率より高圧で高くなる現象などを見出したが、最近に至り、この反応系の物質収支、エネルギー効率⁵⁾が求められて、予想外にエネルギー効率（反応系の吸収した放射線エネルギーのうち、反応生成物の化学的ポテンシャルの純増となった割合。）が低く 2% 前後の値となることが判ってきた。これは、一酸化炭素生成によるエネルギーの利得は大きい⁵⁾が、同時にプロパンの酸化分解による損失も大きい⁵⁾ため、差引きの純増が小さくなったためである。この意味で、そのような損失の少いと予想される添加物、たとえば二酸化窒素、での実験が今後の課題となった。⁵⁾

LTFL は昭和 42 年に炉外試験、45 年から照射運転を開始した。現在まで保守作業に努力してきたことと、運転頻度が比較的少なかったこと、などにより、装置の状態は良好に保たれている。しかし、製作後の年数も経過し、研究計画上の比重の変化もあるので、今後 2、3 年中に撤去の可能性もある。このため撤去作業時に最も安全上基本的な、炉内部分の残留放射能の評価を予備的に開始した。残留放射能は、炉の運転状況と冷却期間がどの程度おけるかにより大きく変わるが、その計算上の基礎となる核種別の重量の炉内部分位置による分布の計算を行った。

2. 照射運転

2.1 運転の概要

昭和 51 年度は、12 月から翌年 3 月までの間に LTF L で 4 回の運転を行った。各回の運転は全部順調で、これまで行った照射時間として最長の 9 時間照射と 12 時間照射の 2 カプセルでも照射を予定通り無事行うことが出来た。照射試料は、プロパン添加炭酸ガス (15 カプセル, 45 試料, 内核燃入り 33 試料), および線量測定用エチレン (4 カプセル, 12 試料, 全部無核燃) であった。今年度照射は、従って 19 カプセル, 57 試料となった。

2.2 運転の経過

(1) 76-1 運転

炭酸ガス中にプロパンを 0.2, 0.5, 2 % 添加した核燃なし試料 3 ケと同組成核燃入り試料 9 ケ, およびエチレン線量計 3 ケを入れた計 5 カプセルを, 全数常温, 最先端照射位置 (0 cm), 炉出力 10 MW で照射した。保守の項でも述べるが, 運転前点検でキャスクコンテナ台車が動かなくなるトラブルが発生した。原因は電磁クラッチ接続部の断線で, この修理を終え照射運転に入った。運転は順調であったが, 一時ヘリウム圧送機の流量指示値 (FRCA-1) が低下する現象が見られた。しかしこれもすぐに回復し異常は継続しなかった。原因は不明であるが, 常温運転であるため同じ流量を直列に設置した 2 個の流量計で測定しており, 他方 (FI-2) では流量低下が現われていない点および, 圧送機の動作状況などにも異常な兆候が現われなかった点から観て, 計器 (FRCA-1) の誤指示と思われる。52 年度には, この 2 個の流量計の点検校正を行う。

(2) 76-2 運転

炭酸ガス中にプロパンを 0.2, 0.5, 2 % 添加した核燃なし試料 6 ケと同組成核燃入り 3 ケ, プロパンを 1, 3, 5 % 添加した核燃入り 3 ケ, およびエチレン線量計 3 ケを入れた計 5 カプセルを照射した。照射運転はきわめて順調で, 前回に流量低下の見られた流量計も異常が見られなかった。

(3) 76-3 運転

エチレン線量計 3 ケおよびプロパン添加炭酸ガス試料 12 ケを入れた計 5 カプセルを照射した。運転前にヘリウム圧送機のベルトが少し緩んでいるのを発見してベルト張り作業を行った。ベルトは 6 本掛けであるが個々に長さが不揃いになって来ており, 完全には調整することが出来なくなった。次年度にはヘリウム圧送機のオーバーホールを計画しており, この時にベルト交換を行う予定であるが, ベルトは予備部品として確保してあるので必要な時には交換が可能である。照射運転はほぼ順調であったが, 3 本目のカプセル照射時にカプセル温度と圧力に不安定が見られた。コネクターとの接触不良と思われる。その後の照射では不安定な現象が見られなかった。

(4) 76-4 運転

エチレン線量計 3 ケ, およびプロパン添加炭酸ガス 9 ケを入れた計 4 カプセルを照射した。当

初心配された LTFL 設置以来の最長連続照射時間、12 時間照射のカプセルも順調に照射を終えた。前回 76-3 運転で 9 時間照射で行っており、これをトラブルなく照射したことが大きな自信となった。また、ヘリウム圧送機に冷却水流量が多く取れクロスヘッドの温度もさほど上昇せず、無事運転を終了した。

2.3 照射運転のまとめ

本年度運転での照射試料、照射条件等を表 1 にまとめた。

3. 保 守

本年度、LTFL では 4 回の照射運転を行った。キャスクコンテナ台車のトラブルは運転前の点検で発見し、照射運転前には修理を完了した。その他照射運転に支障をおよぼすトラブルはなく、順調に照射運転を行った。以下本年度に行った保守作業についてまとめた。

3.1 電気系統絶縁抵抗測定（4 月）

LTFL の電気系統の絶縁抵抗を測定した。測定結果では全く異常は見られなかった。

測定箇所は ① 実験盤ナイフスイッチ 2 次側から NFB 盤 NFB 1 次間、② NFB 2 次側から電磁接触器 1 次間、で対アースを 500 V メガーにて測定した。ナイフスイッチ No. 1, 2, 3, 5, 6 はいずれも数十 $M\Omega$ ～ ∞ で異常なし、NFB No. 4, 5, 6, 7, 8, 9, 10, 11, 12, 13 も数十 $M\Omega$ ～ で異常なしの結果が得られた。③ 負荷については電磁接触器の 2 次側から測定を行った。ヘリウム圧送機、液体窒素減圧ポンプ、排気セット No. 1, 排気セット No. 2, 活性炭トラップヒータ、ヘリウムヒータ、遮蔽蓋駆動モータ、等について対アース間の測定を行ったが、数 $M\Omega$ ～ ∞ で異常のないことが判明した。

3.2 液体窒素炉外タンク塗装

昭和 45 年完成のこのタンク⁶⁾は、低温照射時に多量の液体窒素を供給出来るように設置したもので、2,600 ℓ の液体窒素を貯蔵することが出来る。しかし屋外に設置したため、近年脚部の塗装がはげ、錆がひどくなったので、48 年度に錆落とし、錆止め塗料の塗布、白ペンキ塗布の作業を行った⁷⁾。今回も錆がひどくなってきたので 48 年度と同様の作業を行った。塗装箇所は前回とほぼ同じであるが、前回の手の行き届かなかったタンク底部の塗装をも行った。これによりもう二三年発錆を防ぐことが出来ると思われる。

初心配された LTFI 設置以来の最長連続照射時間、12 時間照射のカプセルも順調に照射を終えた。前回 76-3 運転で 9 時間照射で行っており、これをトラブルなく照射したことが大きな自信となった。また、ヘリウム圧送機に冷却水流量が多く取れクロスヘッドの温度もさほど上昇せず、無事運転を終了した。

2.3 照射運転のまとめ

本年度運転での照射試料、照射条件等を表 1 にまとめた。

3. 保 守

本年度、LTFI では 4 回の照射運転を行った。キャスクコンテナ台車のトラブルは運転前の点検で発見し、照射運転前には修理を完了した。その他照射運転に支障をおよぼすトラブルはなく、順調に照射運転を行った。以下本年度に行った保守作業についてまとめた。

3.1 電気系統絶縁抵抗測定（4月）

LTFI の電気系統の絶縁抵抗を測定した。測定結果では全く異常は見られなかった。

測定箇所は ① 実験盤ナイフスイッチ 2 次側から NFB 盤 NFB 1 次間、② NFB 2 次側から電磁接触器 1 次間、で対アースを 500 V メガーにて測定した。ナイフスイッチ No. 1, 2, 3, 5, 6 はいずれも数十 $M\Omega$ ～ ∞ で異常なし、NFB No. 4, 5, 6, 7, 8, 9, 10, 11, 12, 13 も数十 $M\Omega$ ～ で異常なしの結果が得られた。③ 負荷については電磁接触器の 2 次側から測定を行った。ヘリウム圧送機、液体窒素減圧ポンプ、排気セット No. 1, 排気セット No. 2, 活性炭トラップヒータ、ヘリウムヒータ、遮蔽蓋駆動モータ、等について対アース間の測定を行ったが、数 $M\Omega$ ～ ∞ で異常のないことが判明した。

3.2 液体窒素炉外タンク塗装

昭和 45 年完成のこのタンク⁶⁾は、低温照射時に多量の液体窒素を供給出来るように設置したもので、2,600 ℓ の液体窒素を貯蔵することが出来る。しかし屋外に設置したため、近年脚部の塗装がはげ、錆がひどくなったので、48 年度に錆落とし、錆止め塗料の塗布、白ペンキ塗布の作業を行った⁷⁾。今回も錆がひどくなってきたので 48 年度と同様の作業を行った。塗装箇所は前回とほぼ同じであるが、前回の手の行き届かなかったタンク底部の塗装をも行った。これによりもう二三年発錆を防ぐことが出来ると思われる。

表 1 51 年度照射運転のまとめ

LTFL 照射運転 No	JRR-3 サイクル (炉出力)	年月日	試料			照射																						
			カプセルNo	試料No	試料組成	全圧 (atm)	U-Pd 箔 (cm×cm)	位置 (cm)	照射温度 (°C)	時間																		
76-1	R3-51-5 (10MW)	51-12-13	4C-77	{ C-88 { C-92 { C-96	99.8%CO ₂ + 0.2%C ₃ H ₈ 99.5%CO ₂ + 0.5%C ₃ H ₈ 98 %CO ₂ + 2 %C ₃ H ₈	6 6 6	0 " "	30	.1 h																			
										"	4C-83	{ C-102 { C-106 { C-110	99.8%CO ₂ + 0.2%C ₃ H ₈ 99.5%CO ₂ + 0.5%C ₃ H ₈ 98 %CO ₂ + 2 %C ₃ H ₈	6 6 6	0.5×7.5 " "	0	33	1 h										
																			51-12-14	4C-82	{ C-101 { C-105 { C-109	99.8%CO ₂ + 0.2%C ₃ H ₈ 99.5%CO ₂ + 0.5%C ₃ H ₈ 98 %CO ₂ + 2 %C ₃ H ₈	6 6 6	" " "	0	28	40 m	
		"	4C-84	{ C-103 { C-107 { C-111	99.8%CO ₂ + 0.2%C ₃ H ₈ 99.5%CO ₂ + 0.5%C ₃ H ₈ 98 %CO ₂ + 2 %C ₃ H ₈	6 6 6	" " "	0	32																			1h 30m
										51-12-15	4B-11	{ D-110 { D-113 { D-116	C ₂ H ₄ C ₂ H ₄ C ₂ H ₄	2 2 1	0 " "	0	32	4 h										
																			52-1-25	4C-81	{ C-100 { C-104 { C-108	99.8%CO ₂ + 0.2%C ₃ H ₈ 99.5%CO ₂ + 0.5%C ₃ H ₈ 98 %CO ₂ + 2 %C ₃ H ₈	6 6 6	0.5×7.5 " "	0	25	20 m	
		"	4C-78	{ C-89 { C-93 { C-97	99.8%CO ₂ + 0.2%C ₃ H ₈ 99.5%CO ₂ + 0.5%C ₃ H ₈ 98 %CO ₂ + 2 %C ₃ H ₈	6 6 6	0 " "	0	28																			2 h
										52-1-26	4C-79	{ C-90 { C-94 { C-98	99.8%CO ₂ + 0.2%C ₃ H ₈ 99.5%CO ₂ + 0.5%C ₃ H ₈ 98 %CO ₂ + 2 %C ₃ H ₈	6 6 6	" " "	0	30	3 h										

LTFI 照射運転 No.	JRR-3 サイクル (炉出力)	年月日	試料			照射				
			カプセルNo	試料組成	全圧 (atm)	U-Pd箔 (cm×cm)	位置 (cm)	照射温度 (°C)	時間	
76-2	R3-51-6 (10MW)	52-1-28	4C-85	C-112 C-115 C-118	99%CO ₂ + 1%C ₃ H ₈ 97%CO ₂ + 3%C ₃ H ₈ 95%CO ₂ + 5%C ₃ H ₈	6 6 6	0.5×7.5 " "	0	33	6 h
			4C-88	C-121 C-124 C-127	90%CO ₂ + 10%C ₃ H ₈ 90%CO ₂ + 10%C ₃ H ₈ 90%CO ₂ + 10%C ₃ H ₈	10 3 1	0.5×7.5 " "	0	27	1 h
			4C-89	C-122 C-125 C-128	95%CO ₂ + 5%C ₃ H ₈ 95%CO ₂ + 5%C ₃ H ₈ 95%CO ₂ + 5%C ₃ H ₈	10 3 1	" " "	0	28	1 h
4C-80	52-2-16	52-2-16	C-91	C-91	99.8%CO ₂ + 0.2%C ₃ H ₈	6	0	0	28	4 h
			C-95	C-95	99.5%CO ₂ + 0.5%C ₃ H ₈	6	"	"	"	"
			C-99	C-99	98%CO ₂ + 2%C ₃ H ₈	6	"	"	"	"
4B-13	52-2-22	52-2-22	D-118	D-118	C ₂ H ₄	2	0	0	32.5	4 h
			D-121	D-121	C ₂ H ₄	2	"	"	"	"
			D-124	D-124	C ₂ H ₄	1	"	"	"	"
4C-86	52-2-23	52-2-23	C-113	C-113	99%CO ₂ + 1%C ₃ H ₈	6	0.5×7.5	0	30	9 h
			C-116	C-116	97%CO ₂ + 3%C ₃ H ₈	6	"	"	"	"
			C-119	C-119	95%CO ₂ + 5%C ₃ H ₈	6	"	"	"	"
4C-90	52-3-8	52-3-8	C-123	C-123	97%CO ₂ + 3%C ₃ H ₈	10	0.5×7.5	0	29	1 h
			C-126	C-126	97%CO ₂ + 3%C ₃ H ₈	3	"	"	"	"
			C-129	C-129	97%CO ₂ + 3%C ₃ H ₈	1	"	"	"	"
4C-91	52-3-9	52-3-9	C-130	C-130	99%CO ₂ + 1%C ₃ H ₈	10	"	0	28	4 h
			C-131	C-131	99%CO ₂ + 1%C ₃ H ₈	3	"	"	"	"
			C-132	C-132	99%CO ₂ + 1%C ₃ H ₈	1	"	"	"	"
4B-14	52-3-9	52-3-9	D-119	D-119	C ₂ H ₄	2	0	0	29	4 h
			D-122	D-122	C ₂ H ₄	2	"	"	"	"
			D-125	D-125	C ₂ H ₄	1	"	"	"	"
4C-87	52-3-16	52-3-16	C-114	C-114	99%CO ₂ + 1%C ₃ H ₈	6	0.5×7.5	0	30	12 h
			C-117	C-117	97%CO ₂ + 3%C ₃ H ₈	6	"	"	"	"
			C-120	C-120	95%CO ₂ + 5%C ₃ H ₈	6	"	"	"	"

3.3 冷却水管内洗浄ライン工事（5月）

冷却水に関するトラブルが多くなって来たことは前報でも述べた通りである。この対策として、既設の昇圧ポンプを利用してスケール除去剤を循環させるラインを設置した。新設の管路は既報¹⁾の計画の通りである。スケール除去剤を投入するピットは工作工場に依頼し、容易に持ち運びの出来る大きなバット状の容器を作った。設置後の試運転では、循環の具合は良好である。8月にスケール除去剤が納入されたので早速冷却水管内の洗浄を行った。半年に1度位のペースで洗浄を行えばかなり良い結果が期待出来ると思われる。

3.4 計測系および補助計器の点検調整（6,7月）

計測系には、照射中のカプセル温度や圧力、またLTFL主要部の温度、圧力、流量を測定する計器、および補助計器として、断熱部真空計や放射線モニタ等がある。前回の点検は49年度に行った⁷⁾。炉室内という塵埃や湿気の少ない良い環境に取付けられているため故障が非常に少ない。今回も異常の認められる計器はないが定期的な点検調整を行った。主な計器の作業内容と点検結果を記す。自動温度記録計類では、サーボモータ、シンクロナスモータの分解清掃、各ギア機構の分解点検注油、スライド抵抗の清掃、ブラシ接点点検、ドライブワイヤ点検、指示校正、および調節計バランス調整を行った。圧力計類では、自動手動切替機構の点検グリスアップ、ノズル・フラップ・インナ弁の清掃、ブースタリレーダイヤフラムの点検グリスアップを行った。温度計類、圧力計類とも異常は認められなかった。広帯域真空計では、ユニット電源、ヒータ電圧の確認および電圧測定を行った。これらはいずれも規定値通りで異常はなかった。また、試験成績書の規準に従って指示校正を行った。その他、レコーダ出力、メータリレー作動も正常であった。

3.5 キャスクコンテナ台車駆動機構修理（12月）

LTFLで照射されたカプセルは自動切離されキャスクコンテナ内に自動落下し収納される。このキャスクコンテナにはカプセルを5本までしか収納出来ず、従って照射運転を行う場合には事前にキャスクコンテナから前回の照射運転で照射したカプセルを運び出し、空の状態にしておかねばならない。キャスクコンテナが空であることを確認するのも運転前点検の重要な作業である。

この確認を行うため通常LTFLの鉛遮蔽体の下に移動してあるキャスクコンテナ台車を手前に引き出そうとしたところ、台車は途中で停止したままになってしまった。キャスクコンテナ台車は総重量が7tonあるため、レール上を移動するよう設計されている。従って駆動機構には駆動モーターの他、電磁ブレーキと電磁クラッチが付属している。駆動ボタンを押した時、すなわち電源ONの状態では、電磁ブレーキがフリーになり駆動モータが回転し電磁クラッチが接続する。逆に電源OFFの時は、電磁ブレーキが働き、駆動モータは停止し、クラッチはフリーとなる。今回の故障では、ONとした時電磁ブレーキも電磁クラッチもフリーになり、駆動モータだけが空転した。原因は電磁クラッチが通電されていないことにあり、電磁系統を調べた結果、ビニールスリーブ内で電線接続部が外れていることを発見した。接続後正常に戻り駆動モータの点検も行ったが正常で、キャスクコンテナ内が空であることを確認し、運転前点検を終え、照射運転を開始した。

3.6 その他

6月にヘリウム圧送機の潤滑油の全量交換を行った。特に汚れはなく、積算運転時間から推せば交換の時期ではない。しかし前回交換から4年経過しているため、外見上は判らない変質等の可能性を考えて交換した。8月には、3.3で述べたラインにより冷却水管内のスケール除去作業を行った。9月に排気セットNo.1, No.2, ロータリーポンプのベルト点検および油補給を行った。

52年1月にヘリウム圧送機と排気セットの油補給, 2月にスケール除去洗浄作業を行った。また、1ヶ月に1回程度はLTFLの空運転を行い照射運転に備えた。

4. LTFLによる照射実験

4.1 51年度照射実験とその目的

今年度照射した反応系は炭酸ガス-プロパン系である。昨年度は含酸素化合物の生成を調べたが、今年度の照射実験の目的は以下の3点であった。(1) 最大G(CO)値を与えるプロパン濃度を求める。(2) 最大CO収量を求める。(3) 反応の圧力依存性を調べる。

γ 線照射の場合、最大G(CO)値を与える最適のプロパン濃度は0.5%であることが確かめられている³⁾。核分裂片(FF)照射の場合には、この最適プロパン濃度が変化する可能性がある。最適プロパン濃度は、CO生成、CO再酸化(逆反応)、およびプロパンによる活性種捕捉反応などの反応相互の競争によって決定される。この値が、 γ 線照射による場合と相違するか否か、相違する場合にはどの程度相違しているかを調べることににより、FF照射によって誘起される化学反応の特徴を明らかにすることができる。以上の目的をもって、プロパン濃度を0.2%、0.5%、2%と変化させた、炭酸ガス-プロパン系を照射した。その時に得られる最大G(CO)値も実用上重要な情報である。

γ 線照射の場合、最大CO収量はプロパン濃度に依存した⁵⁾。CO₂転化率(仕込CO₂量に対するCO生成量の比)の実験的的最大値は0.8%(プロパン濃度1%)および24%(プロパン濃度5%)であった。放射線化学反応による放射線エネルギーの化学エネルギーへの変換を考える場合、エネルギー変換効率と共に転化率も重要な因子である。今年度はプロパン濃度を1, 3, 5%と変えてそれぞれに対する最大CO転化率を求めるために、長時間照射(最長12時間)を行った。LTFL照射時間としては、これまでの最長時間照射であったが照射は順調に行われた。

—昨年照射実験を解析した結果、FF照射の場合にはFF飛跡内で生成正イオンと電子の中和反応が起っていることが明らかにされた。さらにこのFF飛跡内反応は圧力に依存する反応であることも推論された。FF飛跡内反応はFF照射の特異効果の主要な原因であるため、今回、圧力を変化させて、このFF飛跡内反応を調べることを目的とした。プロパン濃度を1.0, 3.0,

3.6 その他

6月にヘリウム圧送機の潤滑油の全量交換を行った。特に汚れはなく、積算運転時間から推せば交換の時期ではない。しかし前回交換から4年経過しているため、外見上は判らない変質等の可能性を考えて交換した。8月には、3.3で述べたラインにより冷却水管内のスケール除去作業を行った。9月に排気セットNo.1, No.2, ロータリーポンプのベルト点検および油補給を行った。

52年1月にヘリウム圧送機と排気セットの油補給, 2月にスケール除去洗浄作業を行った。また, 1ヶ月に1回程度はLTFLの空運転を行い照射運転に備えた。

4. LTFLによる照射実験

4.1 51年度照射実験とその目的

今年度照射した反応系は炭酸ガス-プロパン系である。昨年度は含酸素化合物の生成を調べたが, 今年度の照射実験の目的は以下の3点であった。(1) 最大G(CO)値を与えるプロパン濃度を求める。(2) 最大CO収量を求める。(3) 反応の圧力依存性を調べる。

γ 線照射の場合, 最大G(CO)値を与える最適のプロパン濃度は0.5%であることが確かめられている³⁾。核分裂片(FF)照射の場合, この最適プロパン濃度が変化する可能性がある。最適プロパン濃度は, CO生成, CO再酸化(逆反応), およびプロパンによる活性種捕捉反応などの反応相互の競争によって決定される。この値が, γ 線照射による場合と相違するか否か, 相違する場合にはどの程度相違しているかを調べることににより, FF照射によって誘起される化学反応の特徴を明らかにすることができる。以上の目的をもって, プロパン濃度を0.2%, 0.5%, 2%と変化させた, 炭酸ガス-プロパン系を照射した。その時に得られる最大G(CO)値も実用上重要な情報である。

γ 線照射の場合, 最大CO収量はプロパン濃度に依存した⁵⁾。CO₂転化率(仕込CO₂量に対するCO生成量の比)の実験的的最大値は0.8%(プロパン濃度1%)および24%(プロパン濃度5%)であった。放射線化学反応による放射線エネルギーの化学エネルギーへの変換を考える場合, エネルギー変換効率と共に転化率も重要な因子である。今年度はプロパン濃度を1, 3, 5%と変えてそれぞれに対する最大CO転化率を求めるために, 長時間照射(最長12時間)を行った。LTFL照射時間としては, これまでの最長時間照射であったが照射は順調に行われた。

一昨年照射実験を解析した結果, FF照射の場合にはFF飛跡内で生成正イオンと電子の中和反応が起っていることが明らかにされた。さらにこのFF飛跡内反応は圧力に依存する反応であることも推論された。FF飛跡内反応はFF照射の特異効果の主要な原因であるため, 今回, 圧力を変化させて, このFF飛跡内反応を調べることを目的とした。プロパン濃度を1.0, 3.0,

5.0, 10.0%と変え、圧力をそれぞれに対して、10気圧、3気圧、1気圧と変えた試料を照射した。

4.2 50年度照射実験の結果と解析

50年度は炭酸ガス+プロパン系反応用として外カプセル7個(21試料)を照射した。プロパン添加率を0%, 1%, 5%と変えて、一酸化炭素の生成G値と共に含酸素化合物の生成に注目して分析した。含酸素化合物として水($G \approx 1 \sim 4$)、2-プロパノール($G \approx 0.1 \sim 0.6$)、アセトン($G \approx 0.1$)、酸化プロピレン($G < 0.03$)、メタノール($G < 0.03$)を定量した。水の分析は、分析用真空ラインに水が吸着するために困難であった。吸着による影響を避けるために、真空ラインを一度照射ガスに触れさせて後、分析ガスを導入し分析した⁵⁾。

表2に($FF+n\gamma$)線による含酸素化合物のG値を示した。含酸素化合物としては水の生成が多く、ほぼ一酸化炭素の生成に見合う量生成している。

図1, 2に γ 線照射の場合の生成物G値の圧力依存性を示した。(FF+n γ)線照射の場合、一酸化炭素のみ1気圧~14気圧の範囲で調べた。アセトンと2-プロパノールは、6気圧での値のみ求めた。 γ 線照射の場合、G(2-プロパノール)は圧力依存があり、高圧ほどG値が減少した。アセトンは圧力に関係なくほぼG(アセトン) ≈ 0.1 で一定であった。

γ 線照射で詳しくプロパン濃度依存性、線量率依存性、圧力依存性を調べた結果⁴⁾、2-プロパノールの生成反応は逆反応(一酸化炭素再酸化反応)と競争していることが明らかとなった。アセトンの生成は励起酸素原子とプロパンの反応によると結論された。アセトンの生成G値が、 γ 線照射と(FF+n γ)線照射とのいずれにおいても、ほぼ0.1で等しいことは、励起酸素原子の生成G値が γ 線と(FF+n γ)線照射いずれでも等しい値を持っていることを示している。

以上の実験結果から含酸素化合物としては、一酸化炭素以外では水が最も高いG値を示すことが明らかにされた。水の生成反応は、逆反応(一酸化炭素酸化反応)と密接な関係のある反応で、放射線のエネルギーを化学エネルギーに変換するという目的から見れば、望ましくない副反応である⁵⁾。炭酸ガス-プロパン系である限りこの水の生成は避け難い。今後は逆反応阻止剤として、プロパン以外のもの(たとえば、 NO_2 , NO , CCl_4 など)を添加して、炭酸ガスの放射線分解を試みる予定である。

表2 G values of oxygen containing products from CO₂-C₃H₈ by (FF+nγ)

C ₃ H ₈ (%)	CO	H ₂ O	i-ProH	Acetone
0.0	0.5	0	0	0
1.0	5.4	3.5	0.2	0.1
5.0	3.9	3.9	0.1	0.1

10~15Mrad, (FF+nγ); 11.39Mrad/h, FF; 7.39Mrad/h, 42ml stainless steel capsule, 6atm.

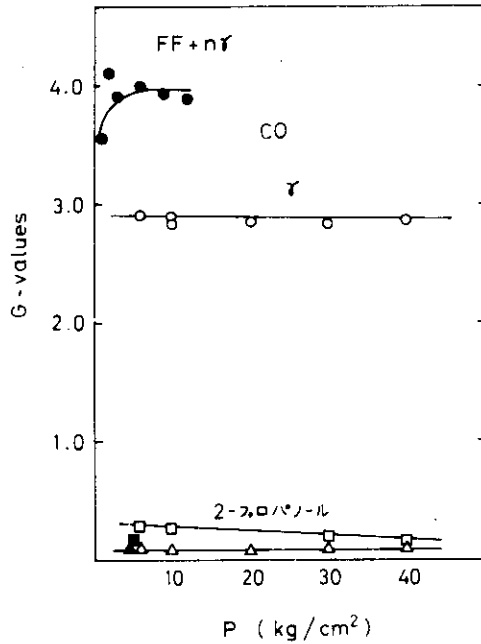


図-1 圧力依存 1

5% C₃H₈, 43 ml, 15 ml Stainless capsule, 1.7 × 10⁷ Rad.

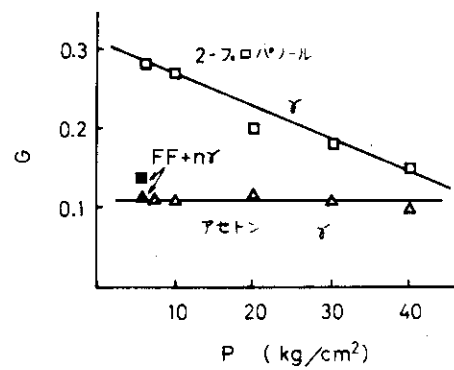


図-2 圧力依存 2

5% C₃H₈; 45 ml, 43 ml Stainless capsule, 1.7 × 10⁷ Rad.

5. LTFL 炉内被照射部の残留放射能評価

LTFLはJRR-3 水平実験H-2に、炉心に向い炉壁から約3mの位置まで照射プラグが挿入してある。照射プラグ内には試料照射部が組み込まれており、試料照射部先端位置でカプセルを照射する。照射プラグは先端部が主に黒鉛、後部が重コンクリートからなる遮蔽用のプラグである。試料照射部はステンレス鋼製三重管で、中心部がカプセル冷却用ヘリウムの炉心方向流路、その外側が帰りのヘリウムの流路、最外層は真空断熱層を構成する。LTFLを炉壁を境にして区分すると、上述部が炉壁内で、これらに付属する鉛遮蔽体、真空ポンプ、ヘリウム圧送機、空気作動弁、キャスクコンテナ、計器類等は炉壁外に位置する。炉壁内に位置する部分、すなわち照射プラグと試料照射部は原子炉放射線により放射化されているので、この部分は装置取外しを行うとすれば、放射線防護の対策が必要となる。このため、この炉内部分装置について、その重量分布試算を残留放射能評価の重要なステップとして行った。照射プラグと試料照射部の主な材質は、SUS-316、黒鉛、SM-41、SS-41、重コンクリート、鉛である。これらを照射プラグ先端位置から10cmきざみで材質別に重量を算出した。次に元素別に重量を算出し、表3の結果を得た。なお表中半減期が極めて短かく、残留放射能への寄与が明らかに無視出来る核種については計算を省略した。この表の値と、原子炉の運転実績（および冷却期間）が決まれば残留放射能の評価が可能となる。

表3 試験照射部と照射プラグ中の核種重量分布

照射プラグ先端からの距離 (cm)	核種別 の 重量 (g)											
	¹³ C	³¹ P	³³ S	³⁴ S	⁵⁰ Cr	⁵⁴ Fe	⁵⁸ Fe	⁵⁹ Co	² H	¹⁷ O	⁴⁴ Ca	⁴⁶ Ca
0 ~ 10	52.9	3.23	0.02	0.10	66.1	325	17.2	24.2				
10 ~ 20	77.6	1.46	0.01	0.05	31.1	154	8.18	11.0				
20 ~ 30	77.6	1.69	0.01	0.05	34.7	170	9.04	12.7				
30 ~ 40	77.7	2.22	0.01	0.07	46.5	230	12.2	16.6				
40 ~ 50	77.7	2.15	0.01	0.07	45.1	223	11.8	16.1				
50 ~ 60	77.7	2.13	0.01	0.07	43.6	214	11.4	16.0				
60 ~ 70	77.7	2.15	0.01	0.07	45.1	223	11.8	16.1				
70 ~ 80	77.7	2.15	0.01	0.07	45.1	223	11.8	16.1				
80 ~ 90	77.7	2.15	0.01	0.07	43.9	216	11.4	16.1				
90 ~ 100	77.7	2.16	0.01	0.07	45.3	224	11.9	16.2				
100 ~ 110	43.3	11.3	0.11	0.65	161	1236	65.6	58.9		1.35	37.6	0.06
110 ~ 120	15.2	11.2	0.23	1.28	36.1	1189	63.1	13.2	0.01	4.42	123	0.20
120 ~ 130	15.3	11.2	0.23	1.30	32.2	1363	72.4	11.8	0.01	4.51	126	0.20
130 ~ 140	15.3	11.2	0.23	1.30	32.2	1363	72.4	11.8	0.01	4.51	126	0.20
140 ~ 150	15.3	11.2	0.23	1.30	32.2	1363	72.4	11.8	0.01	4.51	126	0.20
150 ~ 160	16.0	13.6	0.25	1.44	32.8	1615	85.7	12.0	0.01	4.74	132	0.21

表3 つづき

照射プラグ先端からの距離 (cm)	核 種 別 の 重 量 (g)											
	¹³ C	³¹ P	³³ S	³⁴ S	⁵⁰ Cr	⁵⁴ Fe	⁵⁸ Fe	⁵⁹ Co	² H	¹⁷ O	⁴⁴ Ca	⁴⁶ Ca
160 ~ 170	17.3	16.5	0.29	1.64	32.8	1904	101	12.0	0.01	5.16	144	0.23
170 ~ 180	19.1	14.1	0.29	1.64	33.3	1626	86.3	12.2	0.01	5.70	159	0.26
180 ~ 190	19.1	14.1	0.29	1.64	33.8	1629	86.4	12.4	0.01	5.70	159	0.26
190 ~ 200	19.1	14.1	0.29	1.64	32.4	1622	86.1	11.9	0.01	5.70	159	0.26
200 ~ 210	19.1	14.1	0.29	1.64	32.2	1621	86.0	11.8	0.01	5.70	159	0.26
210 ~ 220	19.1	14.1	0.29	1.64	32.2	1621	86.0	11.8	0.01	5.70	159	0.26
220 ~ 230	19.1	14.1	0.29	1.64	32.2	1621	86.0	11.8	0.01	5.70	159	0.26
230 ~ 240	19.1	14.1	0.29	1.64	32.2	1621	86.0	11.8	0.01	5.70	159	0.26
240 ~ 250	19.1	14.1	0.29	1.64	33.3	1626	86.3	12.2	0.01	5.70	159	0.26
250 ~ 260	17.3	16.6	0.29	1.64	34.4	1912	101	12.6	0.01	5.16	144	0.23
260 ~ 270	*											
270 ~ 280	**											
280 ~ 290	0.02	8.15	0.06	0.34	14.2	940	49.9	5.19				
290 ~ 300	0.02	0.69		0.02	14.2	69.5	3.70	5.19				

表3 つづき

*

260 ~ 270	¹³ C	³¹ P	³³ S	³⁴ S	⁵⁰ Cr	⁵⁴ Fe	⁵⁸ Fe	⁵⁹ Co	¹⁰⁹ Ag	¹¹² Sn	¹¹⁶ Sn	¹¹⁸ Sn
		1.37	10.1	0.17	0.96	34.0	1157	61.4	12.4	2.21	1.62	2.43
	¹²⁰ Sn	¹²² Sn	¹²⁴ Sn	⁶⁴ Zn	²⁰⁹ Bi	170	⁴⁴ Ca	⁴⁶ Ca				
	5.62	0.80	1.02	5.56	114	0.40	11.1	0.02				

**

270 ~ 280	¹³ C	³¹ P	³³ S	³⁴ S	⁵⁰ Cr	⁵⁴ Fe	⁵⁸ Fe	⁵⁹ Co	¹⁰⁹ Ag	¹¹² Sn	¹¹⁶ Sn	¹¹⁸ Sn
		0.03	22.0	0.16	0.91	32.2	2547	135	11.8	1.70	0.12	1.86
	¹²⁰ Sn	¹²² Sn	¹²⁴ Sn	⁶⁴ Zn	²⁰⁹ Bi							
	4.32	0.62	0.78	4.27	87.3							

文 献

- 1) 小林, 佐藤, 池添, 清水, 中島, 「低温化学照射装置 (LTFL) の運転報告・VI. 昭和 50 年度運転」。JAERI-M 6507, 1976 年 3 月
- 2) Y. Ikezoe, S. Sato, "Radiation Chemical Reactions in Carbon Dioxide - Propane System. Formation of Carbon Monoxide by Fission Fragments." J. Nucl. Sci. Technol. 13, 503 (1976)
- 3) Y. Ikezoe, S. Sato, "Radiation Chemical Reactions in Carbon Dioxide - Propane System. II. Reoxidation of CO at Low Propane Concentration." Bull. Chem. Soc. Jpn. to be published.
- 4) Y. Ikezoe, S. Sato, "Radiation Chemical Reactions in Carbon Dioxide - Propane System. III. Formation of Oxygen-Containing Products." to be submitted to Bull. Chem. Soc. Jpn.
- 5) 佐藤, 池添, 清水, 中島, 小林, 「閉サイクル水素製造法の研究・II. 1975, 1976 年度」 JAERI-M 投稿中。
- 6) 森山, 助川, 徳永, 池添, 佐藤, 団野, 「低温化学照射装置 (LTFL) の液体窒素供給系」 JAERI - M 6301. 1975 年 11 月
- 7) 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. 1975 年 4 月。