

# 耐フッ素型流量計の試作

---

1964年12月

---

日本原子力研究所

Japan Atomic Energy Research Institute

## 耐フッ素型流量計の試作

### 要　　旨

フッ素ガスおよび反応性の大きいフッ素化合物用の流量計の試作研究をおこない、次の2つの型を製作した。

A型流量計 — ニッケル管の中央にヒーター、その両側に抵抗温度計としての白金線を巻き、温度差を測定することによって流量を求める。

B型流量計 — ニッケルフィラメントを直接ガス中におき、その抵抗変化を測定することによって流量を求める。

この2つの流量計の特徴を比較すると次のとくである。

		A型	B型
流量測定範囲	cc/min	0~200	0~3000
フッ素ガスにたいする感度	$\mu\text{A}/(\text{cc}/\text{min})$	0.8	0.01
応答時間		2 min	5 sec
電 源	D.C. volt	12	4
大きさ		やや大	コンパクト

両者ともすぐれた耐フッ素性を有している。

この他に無水フッ化水素酸蒸気用の流量計として、フッ素化オイル中でガスをバブルさせる型式の流量計を製作した。

1964年11月

東海研究所 化学部 物理化学研究室

辻村重男，藤沢銀治

高橋 昭，鈴木敬三

\* 現在は浜名鉄工(株)

Construction of Flowmeter for Fluorine Gas  
and Vapors of Reactive Fluorides

SUMMARY

The constructions of flowmeters are described that were developed to measure flow rate of fluorine gas and vapors of reactive fluorides.

Two kinds of flowmeter were constructed.

Type A : Manganin wire as a heating element was wound on nickel tube through which fluorine gas flow. Flow rate was determined from the measurements of temperature gradient along the tube by platinum resistance thermometers which were wound on the tube at both sides of the heating element.

Type B : Nickel filament was placed directly in the fluorine gas. Flow rate was determined from the measurements of variation of resistance of the filament.

The characteristics of these flowmeters are summarized as follows.

	Type A	Type B
Range of flow rate, cc/min	0 ~ 200	0 ~ 3000
Sensitivity for fluorine gas, $\mu\text{A}/(\text{cc}/\text{min})$	0.8	0.01
Time of response	2 min	5 sec
Power supply, D.C. volt	12	4
Size	spacious	compact

A flowmeter, Type C, for measurement of flow rate of anhydrous hydrogen fluoride (AHF) vapor was constructed in which AHF vapor was bubbled through fluorinated oil.

November 1964

Shigeo TSUJIMURA, Ginji FUJISAWA,  
Akira TAKAHASHI, and Keizo SUZUKI\*

Division of Chemistry, Tokai Research Establishment.

---

\* Now at Hamana Iron Works Co. Ltd.

## 目 次

1 まえがき .....	1
2 設計および製作の経過 .....	1
3 構造および特性 .....	2
4 考 察 .....	3
図 .....	7

## CONTENTS

1 Introduction .....	1
2 General Description of Design and Construction .....	1
3 Construction and Characteristics .....	2
4 Discussion .....	3
Figures .....	7

## 1. まえがき

物理化学研究室においておこなっているフッ化物分離法による燃料再処理の研究は、このプロセスについての化学的問題の研究と関連基礎技術の確立を目的としている。本研究は基礎技術開発のひとつとしておこなった流量計の試作研究に関するものである。

フッ化物分離法の研究は、核燃料のフッ化による<sup>6</sup>フッ化ウランの生成についての研究と、<sup>6</sup>フッ化ウランと核分裂生成物との分離研究に大別されるが、いずれにおいても反応系ガスの流量を測定する必要がしばしば生ずる。しかしながらこれらの研究において扱う物質は、フッ素ガス、無水フッ化水素酸、<sup>3</sup>フッ化プロム、<sup>6</sup>フッ化ウランのように化学的反応性大できわめてふしおく性の強い物質であり、これらの使用に耐える流量計は市販されていない。

本報告は耐フッ素型流量計の試作の経過と、製作した流量計の構造、特性を述べたものである。

## 2. 設計および製作の経過

フッ化物分離法による燃料再処理の研究を始めた32年度末に、耐フッ素型流量計について調査をおこなった結果、次の3つの流量計が外国の原子力研究機関において試作、利用されていることがわかった。

### (1) オリフィス型流量計

Fig. 1 のごとく配管の一部をしぶり、その前後の圧力差を耐フッ素性液体を用いたU字管で測定<sup>1)</sup>する。

### (2) 熱式流量計 I

Fig. 2 のごとく配管にヒーターHと抵抗温度計R<sub>1</sub>, R<sub>2</sub>を巻き、ヒーターの入力を一定にしてR<sub>1</sub>, R<sub>2</sub>の温度差を測定し、流量を求める方式である。<sup>2), 3)</sup> 測定範囲は大体 200 cc/min 以下である。これは英國の Harwell 研究所で用いられていた。

### (3) 熱式流量計 II

これは異なる温度にたもたれた2つの金属ブロックを配管が貫通し、ガスが流れたとき2つのブロックの温度差を一定にたもつように、高い温度のブロックの加熱入力を調節する方式である。<sup>4)</sup> 測定範囲はすこぶる広く 30cc/min ~ 30 l/min におよぶ。文献<sup>4)</sup>はごく概略のこととを述べてあるのみで、詳細構造は32年度末には不明であった。

これらの流量計のなかで、オリフィス型流量計は簡単であるが、耐フッ素性液体の選定に難点があると思われた。よって熱式流量計を製作することにきめ、まずII型の構造を推定し、その製作の可能性を32年度末に2~3の計器メーカーと打ち合わせた。しかし、いずれのメーカーも製作辞退の意向を表明したので、II型の製作は実現しなかった。次いでI型の製作の可能性をしらべ、33年度になつて製作引受の業者が見つかったので発注をおこない、34年5月に製品が納入された。価格は43万円で

あった。この流量計を以後 A 型流量計と称する。

A 型流量計の製作と前後して、米国の Bendix 社発売の流量計がフッ素ガスにも使用できると思われたので 33 年度に発注をおこなった。しかし、納入に至らないうち Bendix 社より該当品製造中止の連絡があり、契約解除になった。予定価格は 55 万円であった。

A 型流量計は 35 年度に無水フッ化水素酸（蒸気）の流量測定に若干利用したが、フッ素実験室におけるフッ素ガス関係の実験体制がしばらくととのわなかつたため、その後ほとんど用いられなかつた。38 年度に至りフッ素ガス循環ループによる研究が始まり、ガス循環量測定に A 型を用いた結果、(i) 測定範囲が少しせまいこと、(ii) 構造上、循環ループ内に小さく組みこむことができず不便であること、(iii) 12V の直流電源を必要とし 36 AH 容量蓄電池 6 個を使用しなければならず、この点も不便であることがはっきりして來た。

このため 38 年度後半に、これらの欠点を有せず、しかもなるべく簡便で経費のかからない流量計の製作を検討した。その結果、ニッケルフィラメントの抵抗を測定する熱線式流量計を設計し、所内工作工場で製作した。これを以後 B 型流量計と称する。B 型の製作経費は 1 万円以下である。

これより先、35 年度末に熱式流量計 II の詳細構造が発表された。<sup>5)</sup>これを Fig. 3 に示す。配管を U 字型にまげて金属ブロック  $B_1$ ,  $B_2$  を通し、ガスが流れたとき  $B_1$  と  $B_2$  の温度差を一定 ( $150^\circ\text{C}$ ) にたもつように  $B_1$  加熱ヒーターの入力調節をおこない、 $B_1$  への入力を測定することによって流量を求める方式である。この II 型は Argonne National Laboratory で開発されたものであるが、これはその前に Oak Ridge National Laboratory でつくられた III 型、Fig. 4 の改良型である。III 型は原理的には既述の I 型と同じであるが、配管を U 字型にまげ、温度測定に熱電堆を用いている点が異なる。

A, B 型はフッ素ガス、無水フッ化水素酸（蒸気）、その他のフッ化物ガスのいずれにも使用できる流量計であるが、この他に無水フッ化水素酸（蒸気）用として、フッ素オイル中に蒸気をバブルさせるきわめて簡単な流量計を 36 年度に試作した。これを C 型流量計と称する。

### 3. 構造および特性

#### 1 A 型流量計

構造 Fig. 5 に A 型流量計の構造、Fig. 6 に電気的結線図を示す。ニッケル管の中央にヒーター、その両側に抵抗温度計としての白金線を巻き、2 つの白金線抵抗の差をブリッジによって測定する。

特性 チッ素ガス、酸素ガス、その他のガスを大気圧において流したときの流量とブリッジ出力電流の関係を Fig. 7 に示す。フレオンについての曲線は  $70 \text{ cc/min}$  あたりで水平になり、さらに流量大の部分ではやや減少し始める。他のガスについては Fig. 7 の範囲内ではこのような傾向は見られないが、流量を非常に大にするとすべて出力は減少し零に近づく。すなわち、流量は出力の 2 価関数である<sup>3), 5)</sup>で、使用に当ってはこの点に十分の注意が必要である。A 型と同じ原理の I, III 型もやはりこういう特性をもっている。

白金抵抗体が配管の外側に巻いてあるため、流量変化に追ついする指示変化がおそい。実験の結果によれば応答時間定数は約 2 分である。

## 2 B型流量計

構造 Fig. 8 に B型流量計の構造、Fig. 9 に電気的結線図を示す。ニッケルフィラメントを直接ガスの流れのなかにおき、その抵抗変化をブリッジによって測定する方式である。ニッケルフィラメントは径 0.03 mm のニッケル線をコイル状に巻いたものである。直流電源電圧はフィラメント抵抗、フィラメント電流に応じてきめられるが、おおむね 4 V で十分である。ふたのしめつけ部分およびふたに設けてある導線挿入部分は、組立後つねにヘリウムリークディテクターによって検査し、もれのないことを確認した。

特性 Fig. 10 ~ 12 はちっ素ガスを大気圧において流したときの流量とブリッジ出力電流の関係である。Fig. 10 に示すごとく、流量計設置の向き、ガスを流す方向によって出力電流は相当異なる。このなかで No. 1 の使用法が最もよいと思われる所以、以後の特性はすべて No. 1 のごとくして測定している。Fig. 13 はガスの種類による特性のちがいを示す図である。

流量検出のフィラメントが直接ガスに接するので、流量変化に追ついする応答は速く、応答時間定数は 5 秒以内である。フィラメントとフッ素ガスの反応による特性変化については、フッ素ガス中、数十時間の使用期間においてほとんど認められなかった。

## 3 C型流量計

無水フッ化水素酸 (AHF) の蒸気用として製作したバブル型流量計の構造を Fig. 14 に示す。バブルさせる液としては濃硫酸もしくはダイフロイル (ダイキン工業(株)製) を用いる。後者の方が扱いやすい。A HF のふつ点は 19°C であるから、室温のまま使用すると A HF が凝縮して液量がだんだん増加する。これをふせぐため流量計全体を 40°C の温浴に入れて使用する。

この流量計は目安として使用する程度であり、流量の少ない範囲をのぞいては定量用としては用いられない。

## 4 考 察

A型、B型流量計の特徴を Table 1 に示す。表の感度については後述する。現在のフッ素実験室の研究目的に関するかぎり、B型の方が簡単で使いやすくてよい。現在 B型流量計はフッ素ガス、あるいは 6 フッ化ウランを揮発性フッ化物をふくむフッ素ガスの循環ループに組み入れられ、ガス循環量の指示に利用されている。

A型、B型ともいうまでもなくフッ素ガス、A HF、その他のふしおく性フッ素化合物用として製作したものであるが、これらのガスにたいする特性（検量曲線）は、実験の困難性と、現在のところ正確な流量を測定する必要がないため、まだ作成していない。しかし、Fig. 7, 13 に示した各種のガスについての特性の測定結果から、フッ素ガスなどについての特性を以下に述べるごとくして推察することができる。

Fig. 7 と Fig. 13 をくらべてみると、A型と B型では各ガスにたいする曲線の順位が全く異なつておらず、流量測定が異なる現象にもとづいていることがわかる。ガスの諸性質をしらべて見ると、A型における曲線の順位は比熱の大きさにしたがっており、B型における順位は熱伝導度の大きさにしたがっていることが判明する。Table 2 と Table 3 に各ガスの比熱と熱伝導度を示す。

### (1) A型流量計

出力電流と流量の比、つまり Fig. 7, 13 の曲線の傾斜を感度と称することにすると、Table 2 に示すごとく A 型流量計の感度は比熱にほとんど正確に比例している。出力電流、あるいはいかえれば 2 つの白金抵抗体の温度差が流量と比熱の積に比例していることは、上流管壁 → ガス → 下流管壁という熱伝達機構の中で、管壁とガスの熱の交換は十分速くおこなわれることを示している。たゞしこれは Fig. 7 の範囲（フレオンは除外）についてのみ成立つことで、出力が減少するような流量の大きい領域では、逆に管壁とガスの熱の交換の速さが出力をきめる主要因子となる。

以上のようなわけで A 型については流量の小さい範囲に関するかぎり、フッ素ガスなどの特性をかなりよい精度で推定することが可能である。

### (2) B 型流量計

B 型については、Table 3 に示すごとく熱伝導度の大きいガス程感度が小さいという結果になっているが、これは次のように説明できる。

流速、フィラメントの温度、抵抗を次のとくあらわす。

流速	フィラメント温度	抵抗
0	$t_1$	$R_1$
F	$t$	$R$
$\infty$	$t_0$	$R_0$

流速が大きい程フィラメントで発生する熱の除去も大となるから次の関係が成立つ。

$$t_1 > t > t_0, \quad R_1 > R > R_0$$

$t_0$  はほとんど室温に等しいと考えられる。出力は  $R_1 - R$  に比例する。流量が大きくなると出力は  $R_1 - R_0$  に比例する一定値に近づくが、フィラメント熱除去の機構から考えて A 型のように出力が減少することはおこらないと考えられる。

ヘリウム、水素のよう熱伝導度が大きいときは、ガスが静止していてもフィラメント温度は既に十分低く  $R_1$  と  $R_0$  の差が小さいため、ガスが流れしたことによる抵抗変化が小さい。これにたいしてフレオンなど熱伝導度の小さいガスの場合には  $t_1$  は  $t_0$  よりずっと高く  $R_1$  と  $R_0$  の差が大きい。このようなときはガスが流れることによって抵抗も大きく変化し、つまり感度が大きいという結果になる。

B 型流量計の構造はやや複雑であるので、上述の考察をおし進めてフィラメント熱除去を理論的に論じ、Fig. 13 の実験結果を定量的に説明することは困難である。しかし感度が主として熱伝導度によってきめられることは間違いないと思われ、フッ素ガスなどについての特性を Fig. 13 の結果から大体推定することができる。

A 型、B 型とも熱的性質の関与する測定であるから、その特性は室温の影響を受けると思われるが、現在は正確な流量値を求める必要がないので室温の影響についてはしらべていない。

終りに臨み、B 型、C 型流量計の製作を担当された工作工場の方々に厚くお礼を申上げる。

Table 1 Characteristics of flowmeters, Type A and B

	Type A	Type B
Range of flow rate, cc/min	0 ~ 200	0 ~ 3000
Sensitivity for fluorine gas, $\mu\text{A}/(\text{cc}/\text{min})$	0.8	0.01
Time of response	2 min	5 sec
Power supply, D.C. volt	12	4
Size	spacious	compact

Table 2 Heat capacities of gases and sensitivity of Type A flowmeter

	Heat capacity $C_p$ $\frac{\text{cal}}{\text{°C} \cdot \text{mol}}$ (15°C)	Sensitivity S	
		$\frac{\mu\text{A}}{\text{cc}/\text{min}}$	$S/C_p$
Freon 12	18	2.3	0.13
Oxygen	6.9	0.83	0.12
Nitrogen	6.9	0.82	0.12
Hydrogen	6.9	0.82	0.12
Helium	5.0	0.62	0.12
Argon	5.0	0.58	0.12

Table 3 Thermal conductivities of gases and sensitivity of Type B flowmeter

	Thermal conductivity $\frac{\text{cal}}{\text{cm. sec. }^{\circ}\text{C}}$ (0°C)	Sensitivity	
		$\frac{\mu\text{A}}{\text{cc}/\text{min}}$	
Freon 12	$2.3 \times 10^{-5}$	0.030	
Argon	3.9	0.015	
Nitrogen	5.7	0.012	
Oxygen	5.8	0.010	
Helium	34	0.0001	
Hydrogen	41	<0.0001	

## 文 献

- 1) Preparation, Properties, and Technology of Fluorine and Organic Fluoro Compounds, Chap. 7, National Nuclear Energy Series, Div. VII, Vol. 1 (1951)
- 2) K. R. Hyde and D. J. O'connor : Nucleonics, 15, 68 (1957)
- 3) A. F. Brown and H. Kronberger : J. Sci. Instr., 24, 151 (1947)
- 4) TID-5734, Symposium on the reprocessing of irradiated fuels held at Brussels, Belgium, P. 597 (1957)
- 5) ANL-SL-SL-1816 (1961)

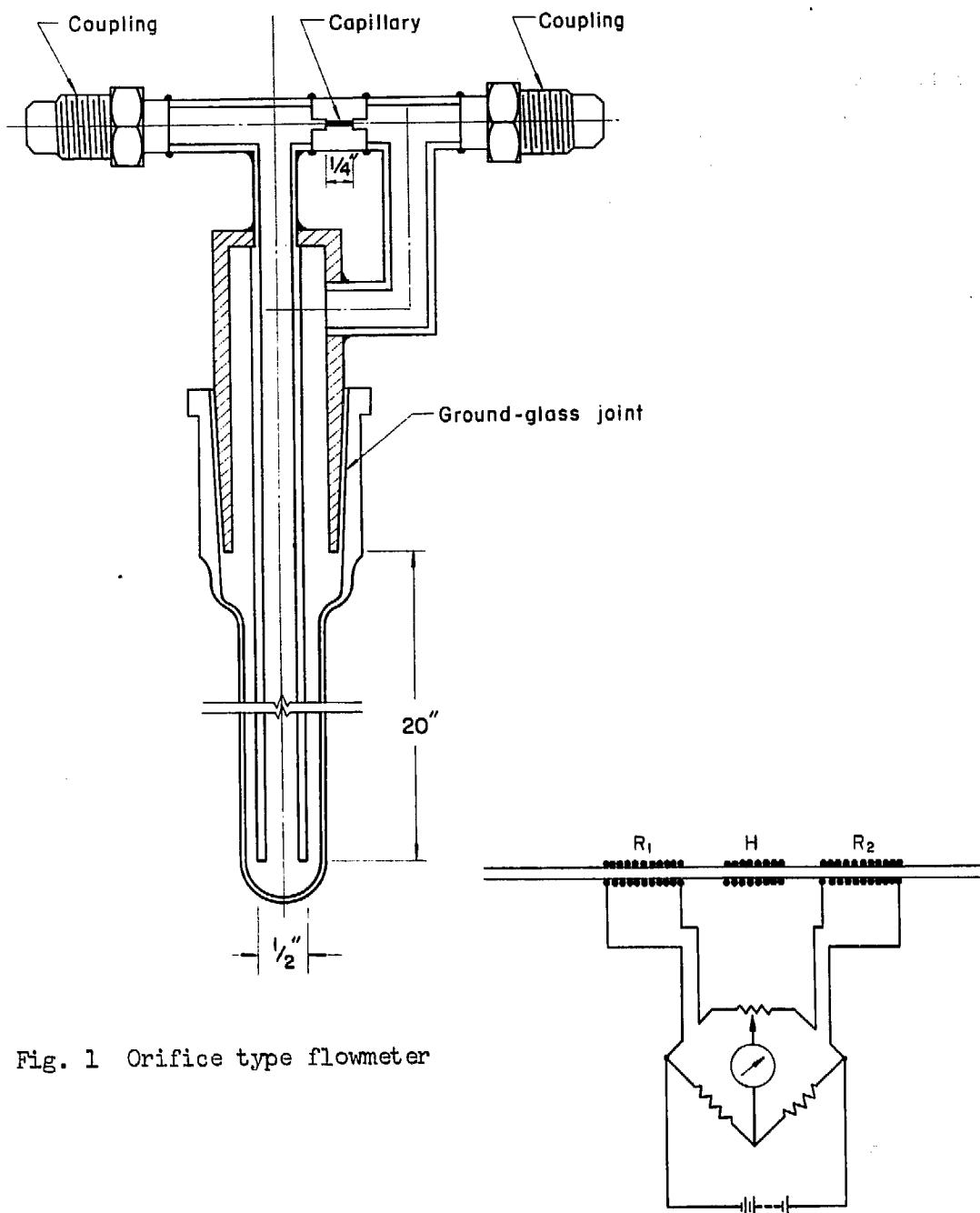


Fig. 1 Orifice type flowmeter

H Manganin heater  
 $R_1, R_2$  Platinum resistance thermometer

Fig. 2 Thermal flowmeter I

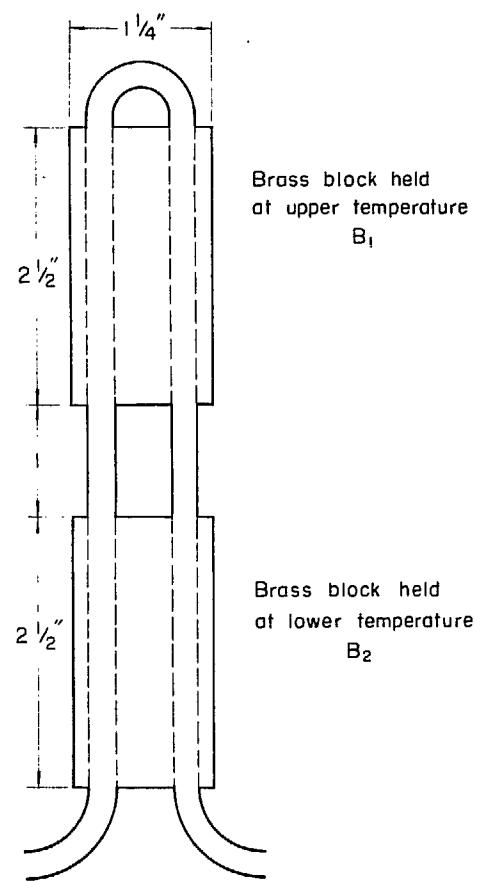


Fig. 3 Thermal flowmeter II

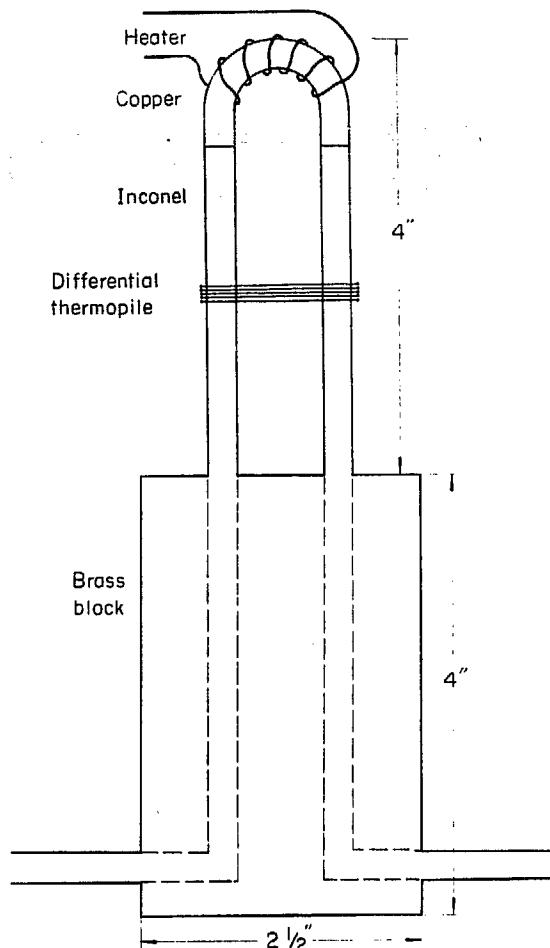


Fig. 4 Thermal flowmeter III

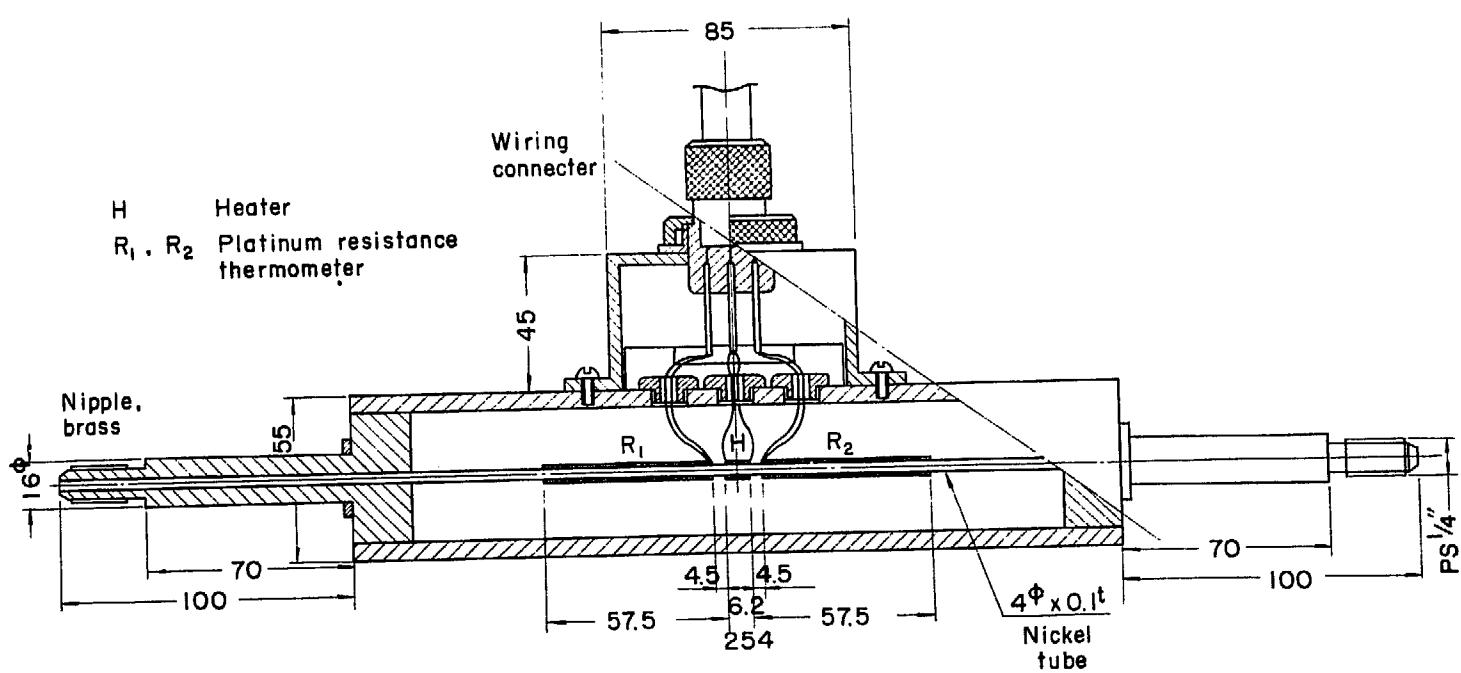


Fig. 5 Diagram of Type A flowmeter

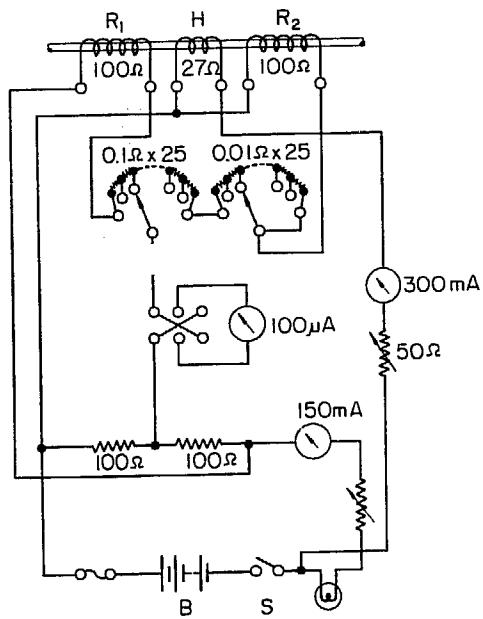


Fig. 6 Wiring diagram for measurement  
of flow rate of Type A flowmeter

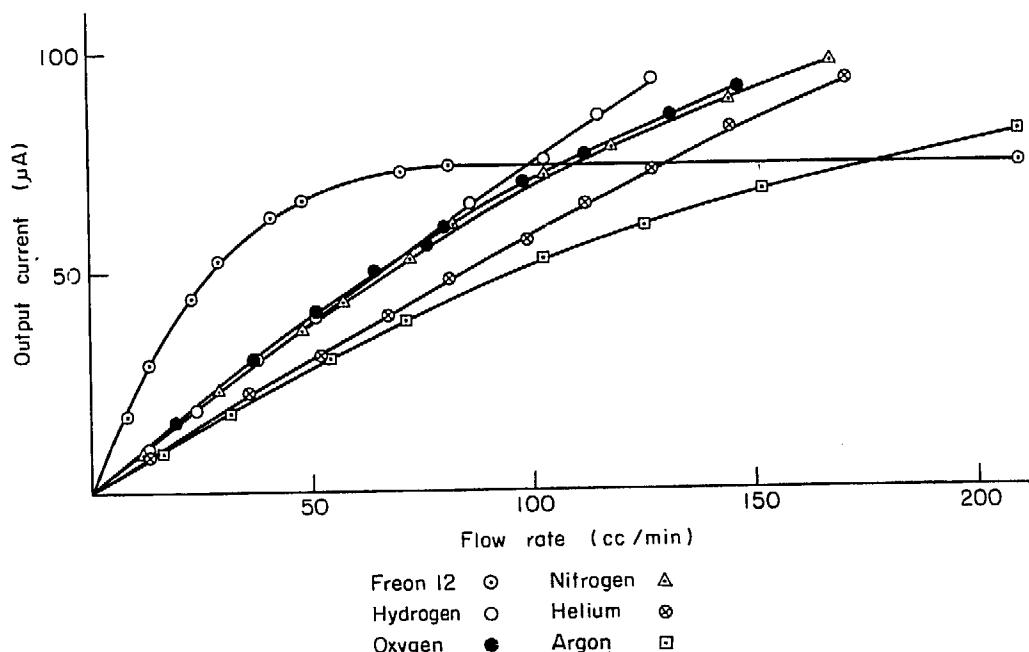


Fig. 7 Characteristics of Type A flowmeter.  
Output current versus flow rate for several kinds of gas.  
Heater current = 250 mA. Bridge current = 85 mA.

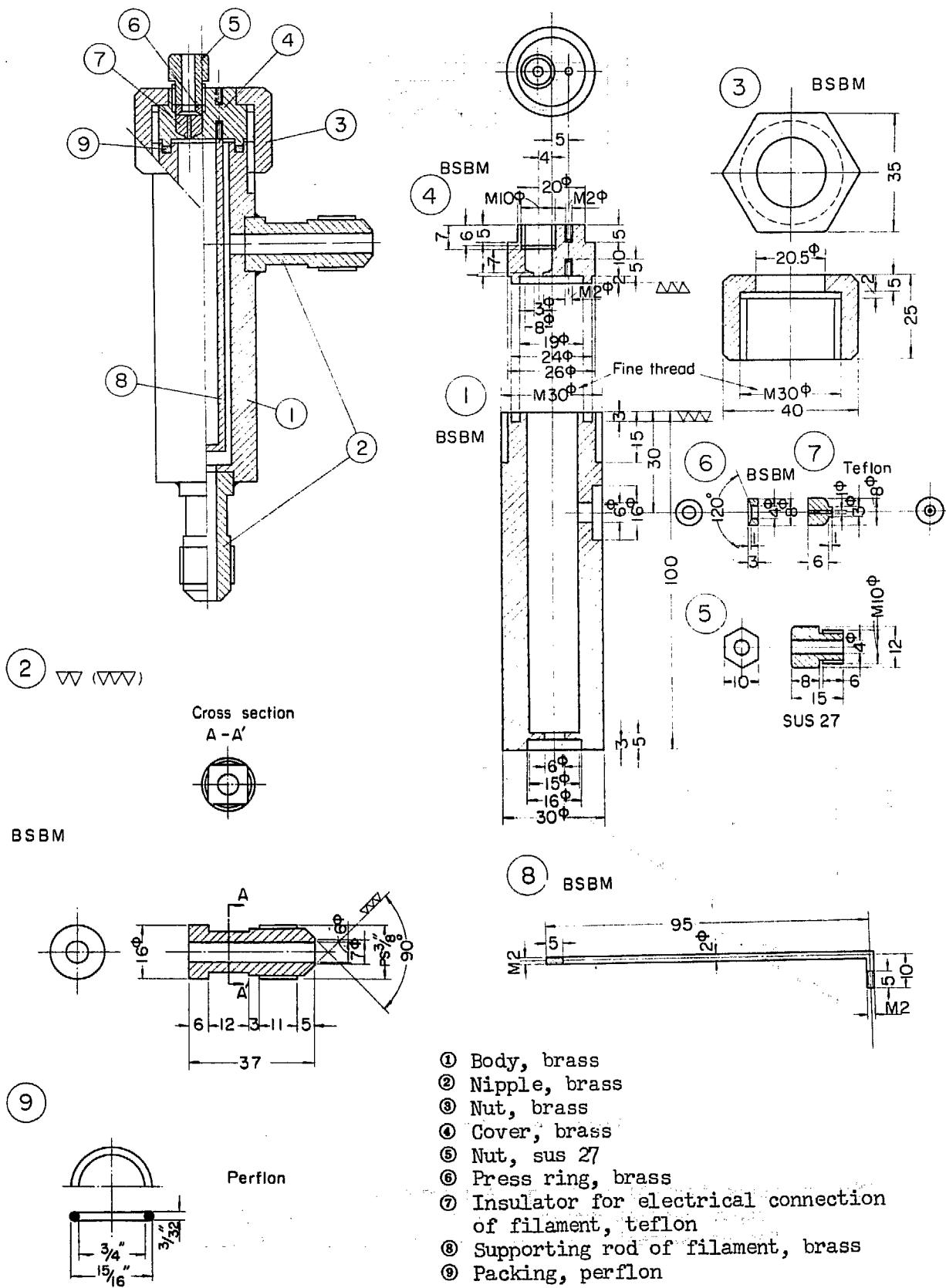


Fig. 8 Diagram of Type B flowmeter

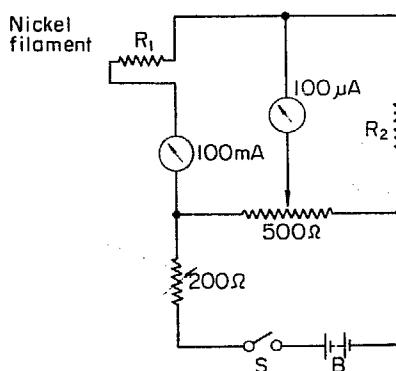


Fig. 9 Wiring diagram for measurement of flow rate of Type B flowmeter.  
R<sub>2</sub> should be chosen to be almost equal to the resistance of filament R<sub>1</sub>.

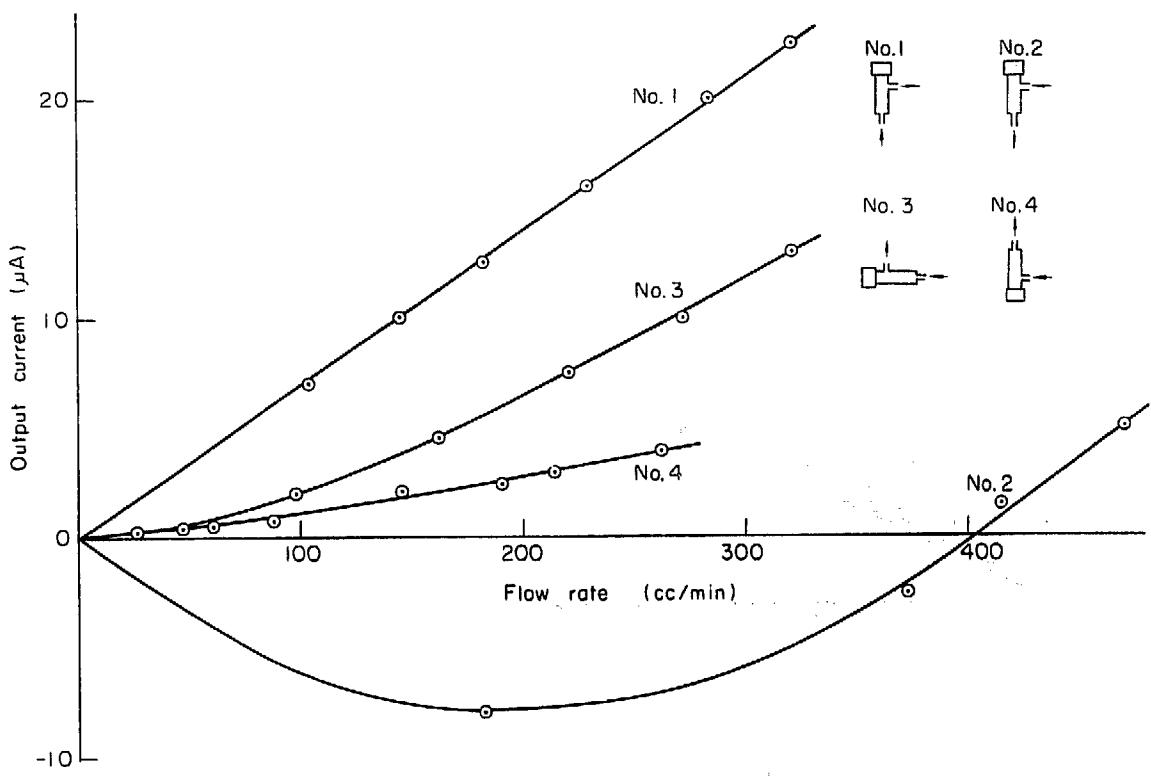


Fig. 10 Characteristics of Type B flowmeter (1).  
Output current versus flow rate of nitrogen gas for different orientation of and different flow directions in the flowmeter. Resistance of filament = 39 Ω. Current = 100 mA.

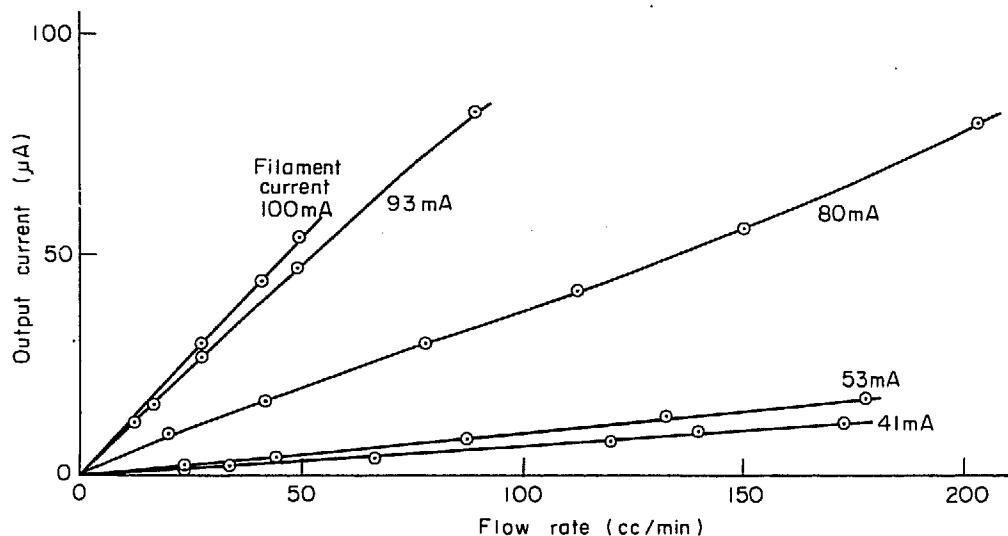


Fig. 11 Characteristics of Type B flowmeter (2).  
Output current versus flow rate of nitrogen gas  
for different filament current.  
Resistance of filament =  $68\Omega$ .  
No.1 orientation in Fig. 10.

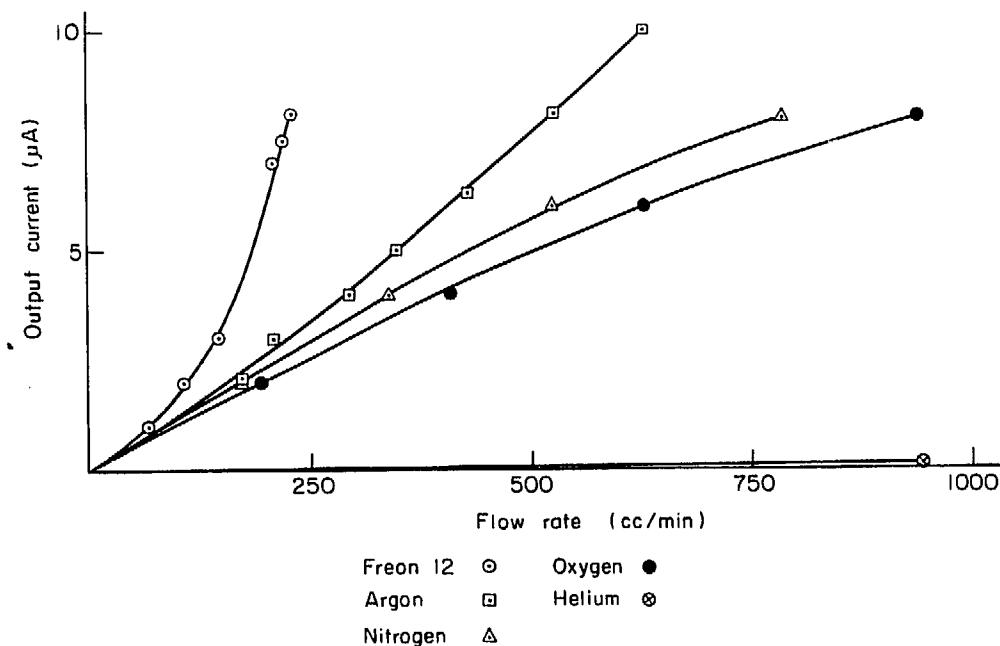


Fig. 13 Characteristics of Type B flowmeter (4).  
Output current versus flow rate for several kinds of gas.  
The curve for hydrogen gas (not shown) is below the one for helium.  
Resistance of filament =  $20\Omega$ . Current = 100 mA.  
No.1 orientation in Fig. 10.

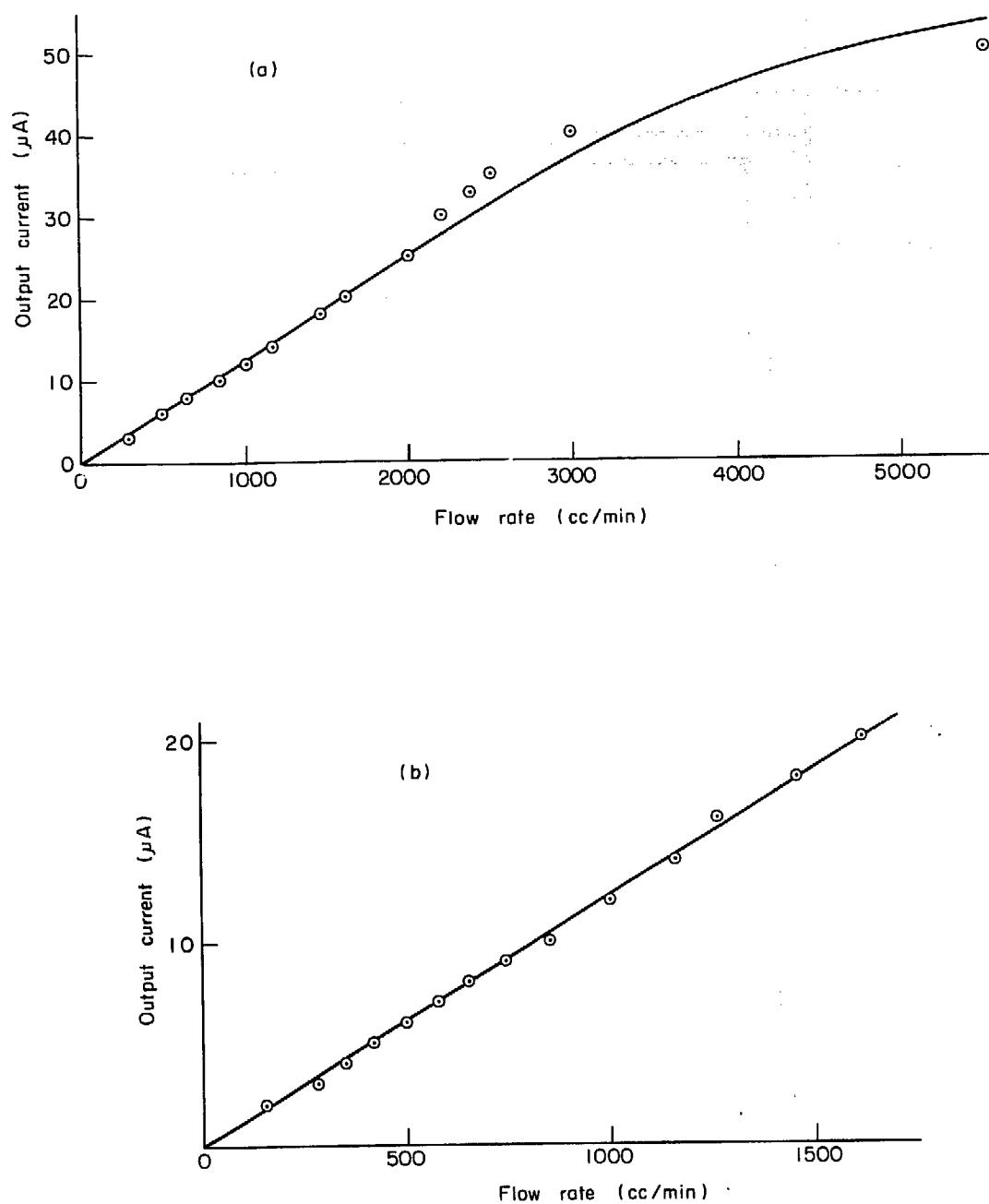


Fig. 12 Characteristics of Type B flowmeter (3).  
Output current flow large (a) and small (b)  
flow rate of nitrogen gas.  
Resistance of filament=20  $\Omega$ .  
Current=100 mA. No.1 orientation in Fig. 10.

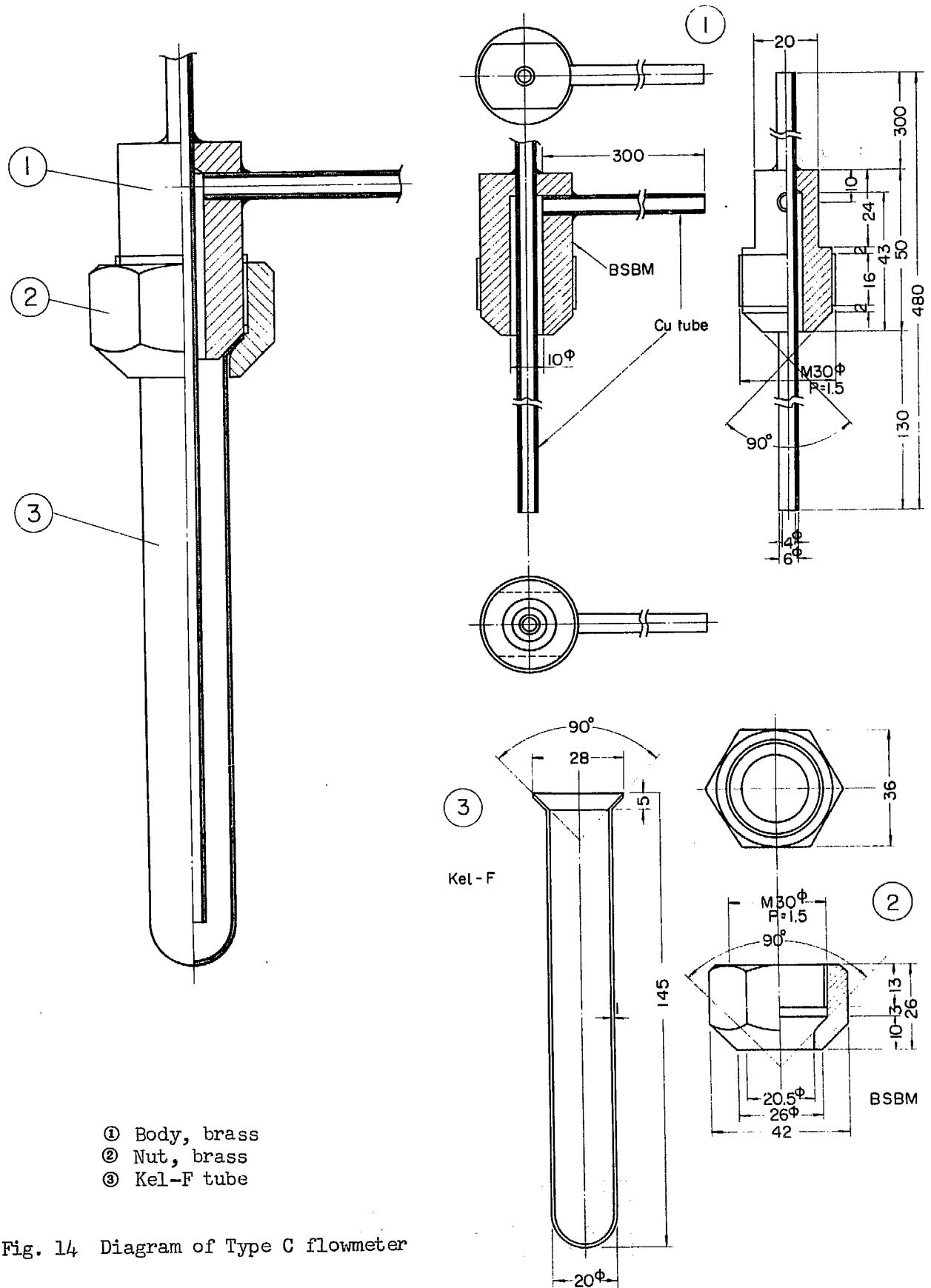


Fig. 14 Diagram of Type C flowmeter