

JAERI-M
5599

プルトニウム炭化物取扱い用不活性ガス
雰囲気グローブボックス

1974年3月

福島 奨・笛山 龍雄・鈴木 康文・渡辺 齊

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

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問い合わせは、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.

プルトニウム炭化物取扱い用不活性ガス
雰囲気グローブボックス

日本原子力研究所東海研究所燃料工学部
福島 奕・筈山龍雄・鈴木康文・渡辺 齊
(1 9 7 4 年 2 月 5 日受理)

U-Pu 混合炭化物系燃料を取扱う不活性ガス雰囲気グローブボックスを設計し製作した。本装置はグローブポート 4 双と耐真空型エアロックを備えたステンレス鋼製ボックス、ガス精製循環系、酸素および水分測定系、自動圧力制御系および安全警報系から構成されている。本装置は装置外への Pu 漏洩を防止するため常時負圧で運転される。雰囲気ガスの純度はグローブボックスのリーク率および精製能力に依存するので、本装置の設計条件としてはボックスのリーク率を 1 lusec 以下に抑え、また酸素、水分の除去剤としてニッケル触媒床とモレキュラーシーブ床の組合せを用いた。その結果、ボックスの換気回数が 20 回 / hr のとき雰囲気ガス中の酸素、水分濃度はともに 1 ppm 以下に保持することができた。定常グローブ作業においてグローブボックス内圧は $-30 \pm 20 \text{ mmAq}$ の範囲内に制御された。

Inert-Atmosphere Glovebox for Handling Plutonium Carbide Fuel

Susumu FUKUSHIMA, Tatsuo SASAYAMA, Yasubumi SUZUKI
and Hitoshi WATANABE

Division of Nuclear Fuel Research, Tokai, JAERI

(Received February 5, 1974)

An inert-atmosphere glovebox for handling uranium-plutonium mixed carbide fuel was designed and constructed. It consists of the stainless-steel box with four pairs of glove ports and a vacuum airlock, an inert gas purifier, a gas circulation system, oxygen and water vapor measuring devices, an automatic pressure-control system, and a safety-alarm system. The apparatus is maintained at negative pressure to prevent the leakage of plutonium. Purity of argon gas depends on leakage of the glovebox and also performance of the purifier. The design leakage is smaller than 1 lusec; a nickel catalyst bed and a Molecular Sieves bed are used to remove oxygen and moisture, respectively. The oxygen and water vapor concentrations in the inert atmosphere are held at 1 ppm at a circulation rate of 20 box-volumes/hr. The gas pressure in the glovebox is controlled at -30 ± 20 mmAq during normal operation.

目 次

1. まえがき	1
2. 装置構成	2
2.1. 基本仕様	2
2.2 グローブボックス	3
2.3 循環精製装置	4
2.4 圧力制御装置	5
2.4.1 グローブボックス	5
2.4.2 循環精製系	6
2.5 分析装置	6
2.6 安全性および警報	7
2.6.1 フィルター	7
2.6.2 警報装置	7
2.6.3 オイルバブラー	7
2.6.4 グローブボックスのリーク対策	7
2.6.5 グラフィックパネル	7
2.6.6 その他	8
3. 性能試験	20
3.1 分析計	20
3.2 気密試験	21
3.3 グローブボックス内雰囲気ガス純度	22
3.4 精製能力	24
3.5 雰囲気ガス中のチッ素の蓄積	24
3.6 循環精製流量と雰囲気ガス純度との関係	25
3.7 圧力制御	25
3.8 安全関係	26
3.8.1 停電	26
3.8.2 グローブボックスの異常リーク	27
4. まとめ	37
5. 今後解決すべき事項	37
6. 48年度購入不活性ガス雰囲気グローブボックス	38

1. まえがき

高速炉燃料として有望視されている炭化物系燃料は化学的に活性な物質なので、不活性ガス雰囲気中で取扱う必要がある。とくに、それらの粉末を取扱うには不活性ガス雰囲気は不可欠である。またこの燃料は Ra に比較して 10 数倍毒性の高い Pu を含んでいる〔Pu の最大許容身体負荷量は $0.04 \mu\text{c}$ ($0.64 \mu\text{g}$) である〕ので、その取扱いに際し作業者の体内被曝防止を講じなければならない。このような理由から海外における Pu 炭化物を取扱うグローブボックストンとしては、アルゴン、ヘリウムまたはチッ素ガス雰囲気でその内圧を常時負圧状態に維持できるものに限られている。本邦では Na 分析や U 炭化物研究などのため不活性ガス雰囲気グローブボックスはかなり使用されているが、いずれもボックス内圧は外界とほど同じ常圧であり、そのままでは Pu 取扱には適用できない。Pu 用としては動燃事業団で U-Pu 混合酸化物燃料の要素の加工および組立用 He ガス雰囲気グローブボックスが稼動しているだけで、この形式のボックスの製作経験は国内メーカーにはほとんどないのが現状である。

大洗燃料研究棟の内装整備は 48 年度より 3 ケ年計画ですすめられおり、その一環として 10 数台の不活性ガス雰囲気グローブボックスが整備される。本計画に着手する前に、この形式のボックスを試作して、グローブボックスの諸元、不活性ガス供給方式、圧力制御方式、雰囲気分析法、安全性などを検討することにした。さらに、このボックスの製作および運転によって得た知見をもとに、48 年度以降の不活性ガス雰囲気グローブボックスの整備をすすめることにした。

さて、グローブボックスは 2 つの形式に大別できる。1 つはパネル型で視野が広く作業性に優れているが気密性に劣る形式である。もう 1 つは耐真空構造のもので、ボックス内部を真空中にすることができる始動時のガス置換が容易であり、気密性に優れているが、窓が小さく視野が狭くなるので作業性が悪いものである。また、その構造上後者の製作費は高くなる。

ボックス内を不活性ガス雰囲気にする方法にも 2 通りある。1 つは Once-through 法で、ボックス内を 1 度通過したガスはそのままダクトへ排出する方式で、設備費は安いが長時間運転ではガスの消費が大きく不経済である。もう 1 つはボックスとガス精製装置の間を不活性ガスを循環させる方法で、循環精製装置を設置するため高価であるが、長時間運転の場合ガス消費上経済的である。

本グローブボックスの設計製作にあたっては気密性、作業性、長時間運転および低廉なことに重点をおき、ボックスの形式はパネル型を採用し、ガスの漏洩しやすいグローブや窓についてはその数を少くしまたその寸法を縮小した。ボックスを除くその他の部分はすべて耐真空構造とし、また不活性ガスの供給は循環方式によった。

本報では試作グローブボックスの設計仕様および性能試験の結果を述べる。

2. 装置構成

2.1 基本仕様

本装置はグローブボックス（以下GBと略す），循環精製装置，圧力制御装置，分析装置および安全警報装置から構成され，これらの基本仕様は金属Na，U炭化物などを取扱う高純度の不活性ガス雰囲気GBとはほぼ同じであり，これを以下に示す。

(1) 循環雰囲気ガスの目標純度は精製筒出口で酸素濃度 0.1 ppm^* 以下，水分濃度 1 ppm （露点 -76°C ）以下，またGB出口で酸素濃度 3 ppm 以下，水分濃度 11 ppm （露点 -60°C ）以下である。

(2) 循環精製流量は本装置のリーク率が $1.5 \times 10^{-2}\text{ Box Vol \% / hr}$ で，グローブにネオプレン製（厚さ 1.5 mm ）を使用した場合を仮定して上記GB内純度を確保できる約 $20\text{ m}^3/\text{hr}$ を常用とし， $10\sim30\text{ m}^3/\text{hr}$ の範囲で可変である。

(3) 精製筒は長時間連続運転できるように並列に2系列設けてあり自動および手動による切換えと再生が可能である。

(4) 精製筒1基の精製可能時間は，循環流量が $30\text{ m}^3/\text{hr}$ において循環ガスの純度が酸素濃度 3 ppm ，水分濃度 11 ppm のとき72時間以上である。

このような一般的な性能に加えて全系の圧力管理と気密性から系外へのPu漏洩を防止するために，さらにつぎのような点にも留意した。

(5) 圧力管理については，通常のグローブ操作中GB内圧力変化は $-30\pm20\text{ mmAq}$ の範囲内に自動的に制御され，また大きな圧力外乱に対しても負圧破壊および負圧異常超過を起さない。GB本体を除く循環精製系および分析系回路の内圧は負圧または必要最小限の正圧とし，正圧領域は最小範囲に抑える。

(6) 気密性についてGB本体のリーク率はグローブからの透過を除き 1 lusec ($2.3 \times 10^{-4}\text{ Box Vol \% / hr}$)以下，その他の系について 10^{-2} lusec 以下とする。また構造的に許容できる圧力はGB本体では大気圧に対して $\pm 300\text{ mmAq}$ ，その他の系について $\pm 1\text{ kg/cm}^2$ とする。したがって，気密構造は全系真空規格にもとづいて製作される。パッキンシールはネオプレンの経年変化によるリークの懸念があり，その補修がきわめて難しいので溶接による構造組立てを原則とする。

(7) ガス吸着防止のため主構成材はステンレス鋼(SUS-304)を使用し，またバルブ類もペローシール型とする。

(8) 系外へ通じる回路に高性能フィルターを配置することにより系外へのPu流出を防止する。

このほか安全の点からつぎのことにも考慮している。

(9) 精製筒の再生には一般に水素ガスを使用するが爆発の危険防止の上から混合ガス** (Ar

* ppmには重量比，容積比があるが，ガス濃度を示すには容積比の方が理解し易いので本報告書においては特記しない限り容積比を表わす。

** 混合ガスは精製筒を通過したあと流量 $3\text{ m}^3/\text{hr}$ でダクトへ排気される。この排気位置におけるダクト内空気流量は $3\text{ m}^3/\text{hr}$ 以上が確保されているので，ダクト内水素濃度は空気中の爆発下限界組成4%より小さくなり爆発の危険性はない。

+8%H₂) を使用する。

(10) 重大な事故につながる異常現象はすべて検知して警報を発信し、早期に対処できるようになる。

2.2 グローブボックス

本GBは長期間の連続運転を計画しているため作業性が悪く、しかも製作費の増大をまぬく耐真空型構造を採用していない。したがって、循環精製運転開始に先立ってはOnce-through方式により所定の不純物濃度までGB内のガス置換を行うことになる。

GBはFig.1に示すように操作面が垂直面に対して約9度の傾斜をもつ両面操作型である。ボックスの外形寸法は巾2000mm, 床奥行900mm, 天井奥行600mmおよび高さ950mmで、内容積は約1.4m³である。ボックス本体は厚さ4mmの磨きステンレス鋼板の冷間成形および溶接によって製作されている。折曲げおよび角隅の部分は半径50mmの角とりをすることにより循環精製時に循環ガスがよどまないようにしている。ボックス内面はガスの吸着を極力小さくするため400番のバフ研磨によって鏡面仕上げをしている。

窓は大きさ760×370mm, 厚さ5mmと10mmの磨き板ガラスをはり合わせたものを使用し、ボックス本体に溶接でとり付けられた外枠(巾60mm, 厚さ20mm)の角溝(巾9mm, 深さ6mm)に自緊式平ネオプレンガスケットを介してとり付けられ、気密性が保たれている。窓の数は片側操作面に2個ずつである。

グローブポートはステンレス鋼管からつくり出された直径200mm, 厚さ6.5mmの大きさで、ボックス本体に溶接でとり付けられている。グローブのガス透過およびグローブの装着箇所からのリークがGBのうちで最も大きな量を占めると考えられるので、グローブの数は必要最小限の4枚に抑えられている。ポートにはグローブを装着するためのOリング3本と締付けバンド1本を設け、さらにポートの外側表面もバフ研磨による鏡面仕上げをほどこし、グローブの密着性をよくしている。使用しないグローブにはグローブの上からポートをおさえ込んで気密を保持する簡易構造の蓋をすることにより、グローブからの不純物ガス(酸素および水分)の透過が抑えられるようになっている。

エアーロックは内径300mm, 長さ500mmの円筒状をした耐真空型構造で、GBの側壁面に溶接されたフランジ(厚さ20mm)にOリングシールでとり付けられている。ロック内には物品の運搬を容易にするため大きさ280×530mmのスライド式移動テーブルが設けられている。GB内側に位置するロックの蓋はハンドルをまわすだけで2点固定の中心でステンレス鋼円板(厚さ10mm)をネオプレン平パッキングにおさえ込む構造で、カウンターウエイト付スライド式である。一方、GB外側に位置するエアーロックの他方の口は実際にPuを取扱うときには物品搬出入専用の空気雰囲気GBに連結し、この口には同じ気密構造の蓋がとり付けられるが、現在は盲蓋がとり付けられている。空気雰囲気GBにバックイン(Bag in)された物品はエアーロックにおいて真空排気およびArガス置換後不活性ガス雰囲気GB内に搬入されることになる。またエアーロックと反対側のGB側壁面には将来さらにGBと連絡することを考慮して盲蓋付フランジ(300mmφ)がとり付けられている。

雰囲気ガスの循環においては循環ガスがGB内で完全混合するように床右隅と天井左隅にそ

それぞれガス拡散器とガス捕集器が設置されている。これらは1.5インチのステンレス鋼管（長さ700mmおよび450mm）に床（あるいは天井）面と側壁面の2方向に20mm間隔で6mmφの孔があけられた構造である。拡散器の小孔群から吹出された循環ガスは床面と側壁面に衝突して乱気流となりGB内へ拡散し、再び天井面と側壁面に沿った流れで捕集器の小孔群に吸入されるように設計されている。

GB側壁面にはGB内での実験に供するガスおよび冷却水の給排用ノズル（1/4, 3/8インチ）（ボックス内外側に弁が設けられている）を各2個および電源と電気信号用のハーメチックシール型電流端子各2個（AC200V, 20A, 2芯および5A, 8芯）が設けられている。予備用として65, 75mmφの盲蓋付フランジがそれぞれ1個設けられている。

ボックス内の照明は蛍光灯によってGBの外側から窓を通して行われる。

2.3 循環精製装置

循環精製装置はFig.2に太線で示すように並列に2系列組込まれた精製筒、循環ポンプ、水冷式ガス冷却器、流量計、手動・自動操作式バルブおよびこれらを連結する1.5インチのステンレス鋼管、精製筒再生回路などから構成されている。

循環精製回路のうちGB出入口には後述するような気密ケースに収納した高性能フィルターを配置することにより循環精製装置までPu汚染が拡大しないようにしている。主循環回路のほかにGBに対してバイパス回路が設けられており、圧空作動開閉弁V21, V22およびV23の組合せにより主回路およびバイパス回路のみあるいは両回路同時に雰囲気ガスを循環することができる。なお、両回路における循環時の圧力損失が等しくなるようにバイパス回路上の手動操作弁V24で調節することにより全系のバランスが維持される。

循環ポンプはスピラルプロワー型の気密構造で、循環流量は約40m³/hrと一定である。じたがって、循環流量はポンプに対して設けられたバイパス回路上の手動操作弁V15の調節により10~30m³/hrの範囲内で可変である。

精製筒はステンレス鋼製円筒型でFig.3に示すような構造および寸法である。内部には脱酸素触媒としてニッケル系合金床と水分吸着剤としてモレキュラーシーブ床がドーナツ状に充填されている。これら触媒と吸着剤の組合せによって、循環流量10~30m³/hrの範囲内にある雰囲気ガス中の酸素と水分は目標純度（酸素濃度0.1ppm以下、水分濃度1ppm以下）まで除去される。精製筒の切換えはGB内雰囲気ガスの純度と精製筒の酸素、水分の交換吸着容量との関係から推算された時間（定常運転においては72時間を設定している）で自動的に行われる。使用済み精製筒はつきの順序で自動的に再生される。

- ① Ar + 8%H₂混合ガス気流中（圧力0.3kg/cm²、流量3m³/hr）で250°C、3時間加熱
- ② 油回転ポンプによる3時間真空排気
- ③ 自己雰囲気ガスの導入と精製筒の6時間冷却（自然放冷）

また精製筒の切換えおよび上記再生の行程は手動操作によって任意の時間でもできるようになっている。

循環ガスの流量の測定には浮子式流量計に比べ圧力損失の小さい空気式差圧発信型の流量指示計（測定範囲10~30m³/hr）が使用されている。

2.4 圧力制御装置

2.4.1 グローブボックス

GB, 循環精製系および分析系における圧力制御は Pu を安全に取扱う上できわめて重要である。とくに, GBでは許容圧力範囲が小さい(本GBでは負圧 $-30 \pm 20 \text{ mmAq}$ を目標にしている)ために圧力変動に対して応答性が速く, しかも信頼性が高い制御方式を採用する必要がある。一般に, 圧力制御は循環精製回路に組込まれているが, 本GBでは独立した圧力制御回路(配管3/4インチ)を設けてPI制御(比例+積分動作)とON-OFF制御の組合せで, GB内へArガスを直接供給することによってまたはGB内雰囲気ガスを直接排気することによって圧力制御が行われる。この供給ガスには液体Arから気化した高純度Arガス(酸素濃度1ppm以下, 水分濃度2.5ppm以下)が使用される。排気ガスはドラフト(負圧 -150 mmAq)へ排気される。供給Arガスの純度はGB内雰囲気ガスの目標純度と同程度であるが, この目標純度に悪影響をおよぼす場合も考慮して供給口は循環ガス捕集器に近接して設置され, ArガスがGB内へ流入すると同時に循環精製系回路に吸込まれるようになっている。

Table 1 は圧力制御方式とGB内圧変動との関係を示す。PI圧力制御は圧力設定値 -30 mmAq からの圧力偏差($0 \sim \pm 20 \text{ mmAq}$)に対してつきのような作動特性をもつPI圧力制御弁により行われる。

(1)弁のストロークの動きとGB内圧との関係をFig.4-(a)に示す。すなわち,弁は $-30 \pm 20 \text{ mmAq}$ の範囲においてストロークが圧力偏差に対し直線的に比例して動くようなカム特性をもっている。

(2)弁のストロークとCv-値^{*}との関係をFig.4-(b)に示す。すなわち,この弁では流量変化の割合が変化前の流量に比例して変化するイコールパーセント・コンタード型のプラグが使用されている。

なお,このPI圧力調節弁は空気式ダイヤフラム調節弁, 空気式バルブポジショナーおよび圧力調節指示計から構成されている。

-10 mmAq 以上および -50 mmAq 以下では, PI圧力制御弁の全開に加えて空気作動式ピストン操作弁によるON-OFF圧力制御が行われる。給気および排気回路に位置するピストン操作弁において前者は -11 mmAq で後者は -34 mmAq で閉の作動をするように調節されている。

このようなPI圧力制御弁およびON-OFF圧力制御弁の作動は圧力調節指示計でGB内圧の設定値からの偏差を検出して, 制御量を空気圧信号で発信する空気式微差圧発信器によって自動的に行われる。また足踏式スイッチにより手動でON-OFF圧力制御弁を作動させることができる。

-5 mmAq 以上では, 上記2つの制御に加えてオイルバブラーが作動し負圧破壊が防止されるようになっている。オイルバブラーにはバラフィン油が使用され, ドラフト圧(-150 mmAq)に対して -5 mmAq でGB内雰囲気ガスを吹出すようにオイルレベルが調整されている。

*弁の容量を表わすには一般にCv-値が用いられるが, これは弁出入口の差圧を1psi(0.07 kg/cm^2)とあって $60^\circ\text{F}(15.6^\circ\text{C})$ の浄水を弁全開の状態で流した場合の流量 USgal/minで表わした数値である。

2.4.2 循環精製系

系外への Pu 漏洩防止のためには GB を除くほかの系においても負圧で運転するのが理想である。しかしながら、本装置の性能仕様を満足しながら循環精製系を負圧で運転するためには、循環回路は 3 インチφ 以上 の配管とこれに相当するバルブ類で構成されなければならないことが循環ガスの圧力損失の計算から導かれた。この計算結果は装置の製作費用の増大とともに装置の大型化をまねき、このような装置は非実用的である。この理由から本装置の循環精製回路は上述したように 1.5 インチφ の配管で構成され、正圧運転領域が許容されている。しかし正圧領域は循環ポンプを精製筒のあとに配置することにより最小範囲にとどめられている。なお、系外への Pu 漏洩はこの系の気密性によって防止され、さらにこの系への Pu の侵入は GB 出入口のフィルターによって阻止されるので多少の正圧領域があっても安全と考えられる。Fig. 2 の循環精製回路にそって示した括弧内数値は、流量 $30 \text{ m}^3/\text{hr}$ のときの循環系各部における計算圧力である。循環ポンプ吐出口から GB 入口までの正圧運転領域を除き、雰囲気ガスは負圧で循環精製される。また正圧運転領域のうち圧力指示計の位置では計算圧力値 +141 mmAq に対し実測圧力値は約 +40 mmAq であった。このことから当該領域の実際の循環圧力は計算値に比べ小さく、少くともフィルターから GB までの領域（計算値 +20 mmAq）においては負圧で循環していると推測できる。

GB 内圧力制御回路とは別に Fig. 2 に示すように循環精製系に対しては、上下限接点付圧力指示計（測定範囲 -500 ~ +500 mmAq）の ON-OFF 圧力制御（配管 3/8 インチφ）により循環系内雰囲気ガスが給排気される。この制御装置は循環精製系の圧力制御をすると同時に、定常運転時の GB 内圧力制御のバックアップをはかっている。

なお、分析計回路は負圧で運転されるように設計されている。酸素分析計のあとに位置するサンプリングポンプの吸込圧力は -200 mmAq、吐出圧力は -5 mmAq と推定される。

2.5 分析装置

GB 内で酸素、水分に対してきわめて活性な U-Pu 混合炭化物系燃料を取扱う場合、雰囲気ガスの純度を常時知る必要がある。本 GB における循環雰囲気ガスの目標純度は上述したように酸素濃度 3 ppm 以下、水分濃度 11 ppm 以下ときわめて小さい。このような微量酸素と水分濃度を簡便に連続測定するために、本装置ではセラミック式酸素分析計（Ceramic oxygen analyzer）（日本碍子製、測定範囲 0.1 ~ 1000 ppm）とキャパシタンス式露点計（SHAW hygrometer）（英國 SHAW 製、測定範囲 -20 ° ~ -80 °C）が使用されている。

酸素分析用試料ガスは Fig. 2 中に示すように GB 出口または精製筒出口の位置から連続的にダイヤフラムポンプ（約 3 l/min）により採取され、測定後のガスは再び循環精製系または GB 内にもどされるようになっている。試料ガスの採取位置ともどす位置の選択は弁の切換え操作により行われる。

露点計の検出素子は GB 出口と精製筒出口の雰囲気ガス気流中に直接露出してとり付けられている。

2.6 安全性および警報

2.6.1 フィルター

定常回路からの系外への Pu 流出についても安全管理上防止されなければならない。本装置では Fig. 2 に示すように GB に連がる各系に高性能フィルターを設置することによって Pu 汚染を GB 本体のみにとじ込めている。フィルターには 99.97% 以上 (0.3 ミクロン粒径のスマーカによる DOP 試験) の捕集効率をもつ不燃性のアソリュートフィルター (米国 Cambridge Filter Co. 製) が使用され, Fig. 5 に示すような気密 (10^{-2} lusec 以下) と安全交換作業を考慮して設計されたステンレス鋼製円筒型ケース内に完全溶接構造で組込まれている。ケース内組込み後のフィルターの捕集効率は 99.95% 以上であった。フィルターの目づまりはフィルター前後の差圧から検出され, フィルターは気密と捕集効率を確保するためにケース内組込みのまま交換する方法が採用されている。

2.6.2 警報装置

本装置で考えられる最も重大な非常事故は Pu の系外への漏洩である。Table 2 はこの事故の誘因となる直接あるいは間接的異常現象を構成装置ごとに類別して示す。これら異常現象の発生は機械的あるいは電気的に検出され, 同時に電気信号により警報が発せられる。

2.6.3 オイルバブラー

Table 2 に示した異常現象のうち GB 内圧上昇は Pu の系外漏洩汚染の主原因の一つである。このような内圧異常はボックス上部にとり付けられた上下限接点付圧力計 (目盛範囲 -150 ~ +150 mmAq) により検出され通報される。これと併行してオイルバブラーが作動して, -5 mmAq で GB 内雰囲気が吹出されることにより内圧上昇は阻止される。

2.6.4 グローブボックスのリーク対策

GB の異常リーク発生は系外への Pu 漏洩をもたらすほかに, このリークにより GB 内へ多量の空気が流入するため活性状態 (たとえば微粉末状) にある U-Pu 混合炭化物などが酸化し変質する原因にもなる。このように GB の異常リーク対策はきわめて重要である。異常リークの発生は GB 内雰囲気ガスの純度測定から検出する方法が最も感度が高く, しかも酸素濃度による検出は水分濃度によるそれに比べ確度が高くて応答時間が短い。¹⁾ この理由から本装置では GB 出口における雰囲気ガス中の酸素濃度の連続測定から異常リークが検出される方法が採用されている。異常リーク検出と同時に雰囲気ガスの循環は主回路から GB バイパス回路に自動的に切換わり, 精製筒が保護されるようになっている。これは主として精製筒に流れ込む多量の空気と触媒に化学吸着している水素との急激な発熱反応を阻止するためである。GB の異常リークの発生原因はパッキングシール部の経年変化を除けばグローブの破損に限定されると考えられる。このような見地からグローブ作業をしない場合, グローブポートに蓋を装着して気密を保持し, さらに活性状態にある物質を GB 内の気密容器内に保管することはきわめて有効である。

2.6.5 グラフィックパネル

装置全系の運転作動状況が一見してわかるることは安全運転の見地からきわめて有意義である。この目的から Fig. 6 に示すような循環精製, 圧力制御, 真空排気, 精製筒再生および分析系などの回路が模式図化され, 自動弁と電動機の作動の有無を表示灯で示したいわゆるグラフィ

ックバネルが設けられている。またプログラムした精製筒の再生進行状況も併せて知ることができる。

2.6.6 その他

本装置では自動運転方式が採用されているため、Fig.2 に見られるように電磁弁、空気操作弁および空気調節弁のような各種自動弁が多数使用されている。これら自動弁の出入口におけるリークは微量であるが許容されていて、完全な密閉状態を維持することはきわめて難しい。この理由から各自動弁に対してペローシール形式の手動操作弁を設けて、稼動停止回路の気密が二重に保持されるようになっている。

Table 1 Pressure control method versus the pressure range
in the glovebox

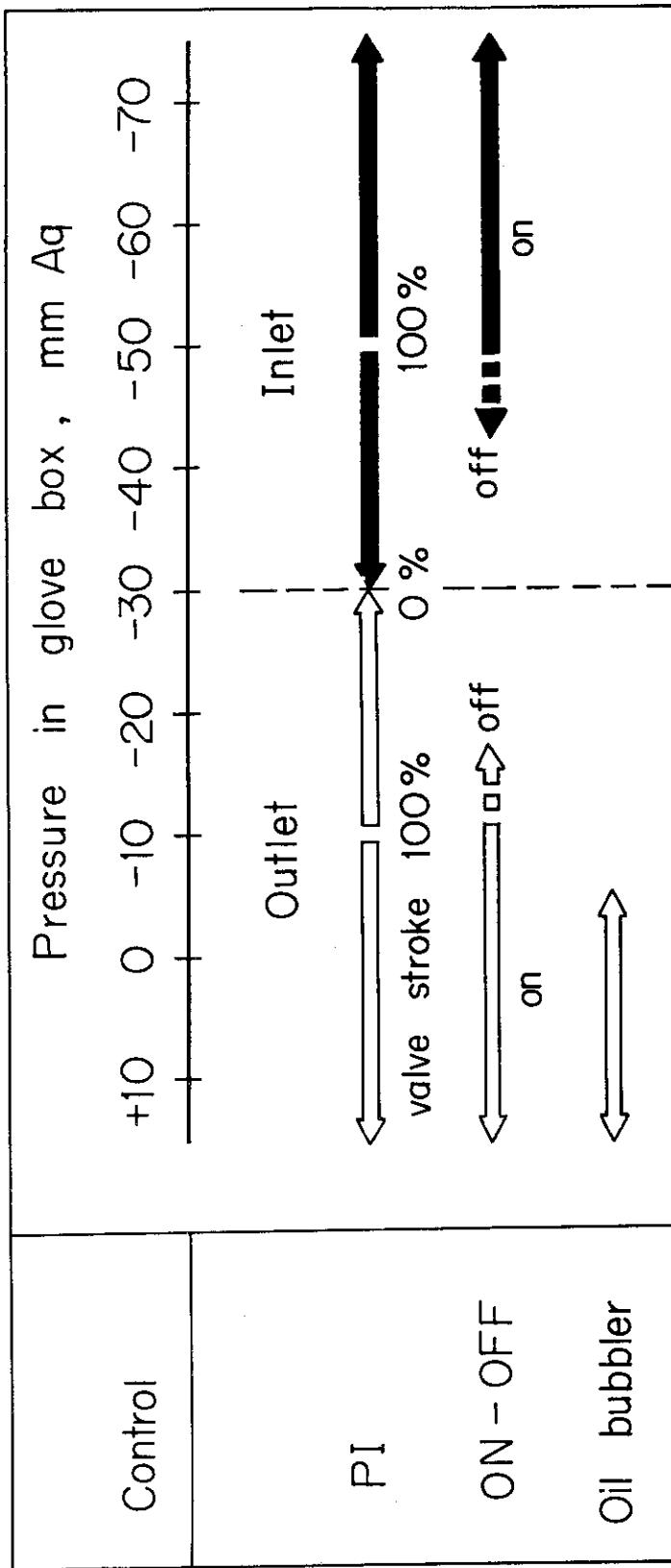
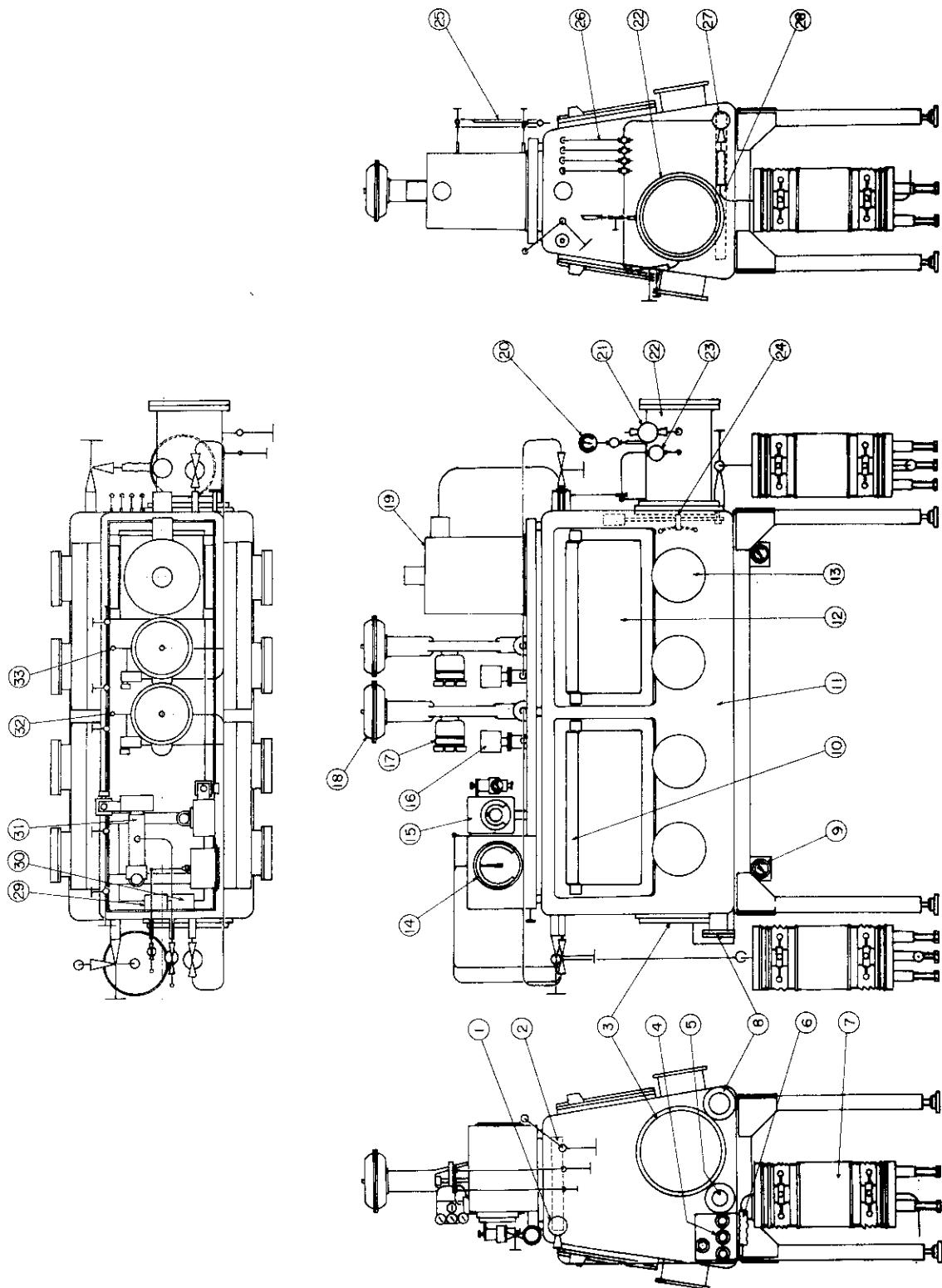


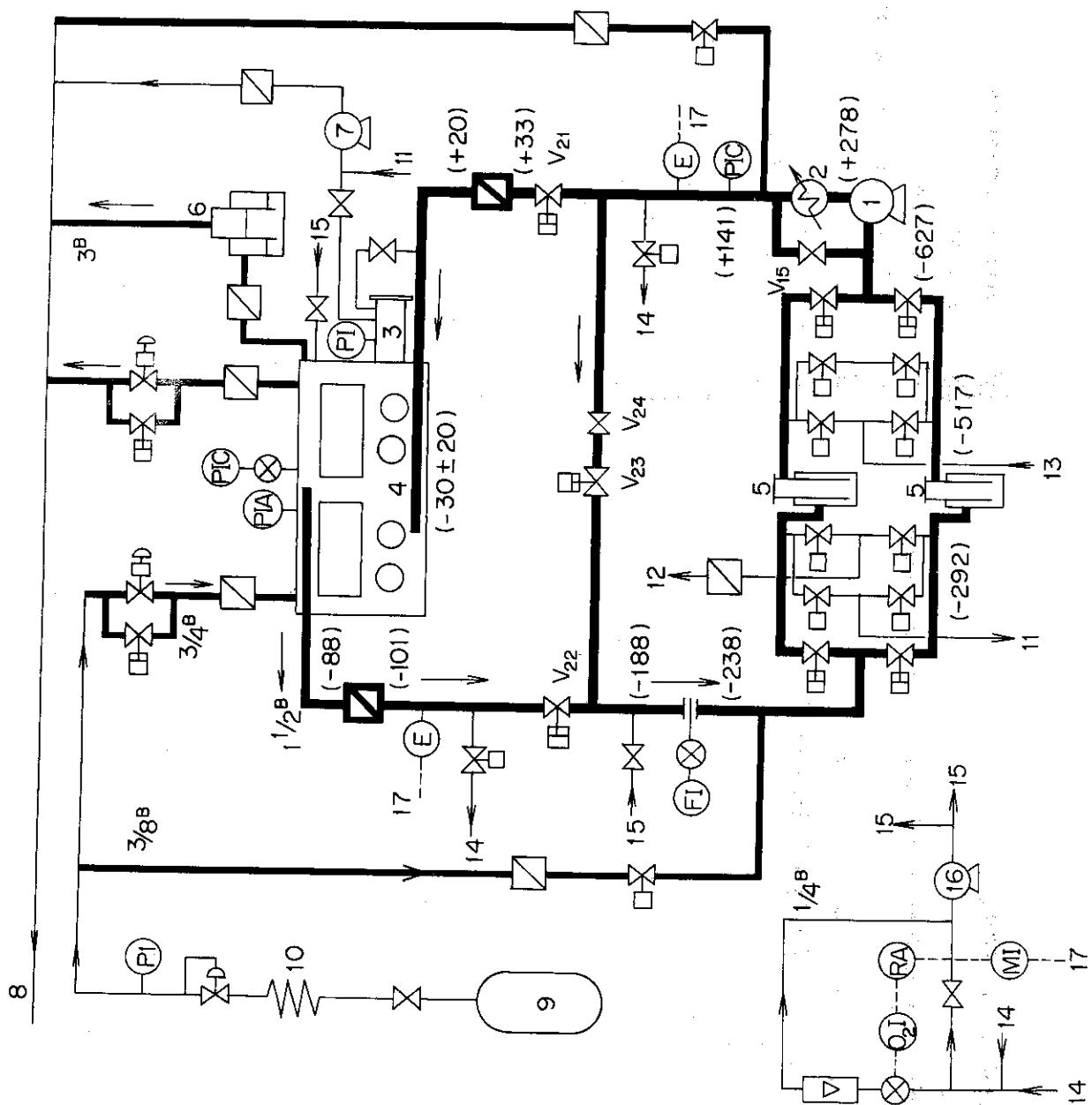
Table 2 Alarm system

Apparatus	Emergency condition
In glovebox	Gas pressure greater than -5 mmAq Gas pressure lower than -6 mmAq Oxygen impurity greater than 100 ppm Temperature greater than 50°C Greater concentrations of inflammable gases
Circulation and purification	Temperature in the pump greater than 60°C Temperature in the purifier greater than 300°C Supplied pressure of Ar+8%H ₂ mixture lower than 0.3 kg/cm ² Temperature of cooling water greater than 35°C Lower flow rate of cooling water
Feed gas	Supplied pressure of raw argon gas lower than 0.5 kg/cm ² Supplied pressure of compressed air for pneumatic valves lower than 2 kg/cm ²



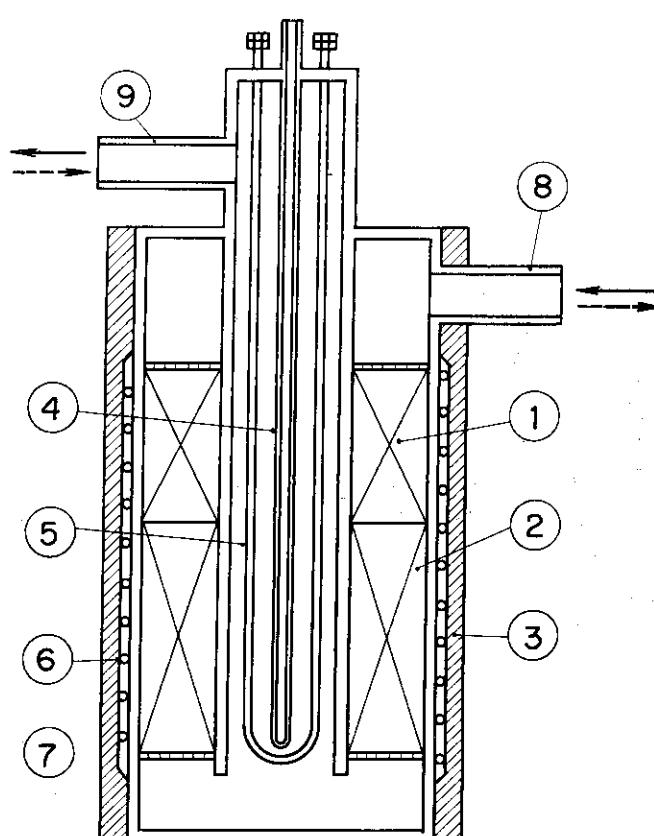
- ① Circulation outlet valve
 ② Gas collector
 ③ Blind flange for connecting the other inert atmosphere glovebox
 ④ Electrical connector and terminal box
 ⑤ Blind flange (Vacuum pump out connection)
 ⑥ Flexible tube
 ⑦ Absolute filter
 ⑧ Blind flange (Spare)
 ⑨ Differential pressure meter
 ⑩ Fluorescent lamps
 ⑪ Box shell
 ⑫ Windows
 ⑬ Glove ports and covers
 ⑭ Pressure indicating alarm
 ⑮ Pressure indicating controller
 ⑯ Pneumatic shut-off valve
 ⑰ Valve positioner
 ⑱ Diaphragm control valve
 ⑲ Oil bubbler
 ⑳ Compound gauge
 ㉑ Evacuation valve for airlock
 ㉒ Airlock
 ㉓ Refill valve
 ㉔ Vertically acting,counter balanced door
 ㉕ Oil level meter
 ㉖ Service valves
 ㉗ Circulation inlet valve
 ㉘ Gas diffuser
 ㉙ Pressure switch (Higher)
 ㉚ Pressure switch (Lower)
 ㉛ Differential pressure type transmitter
 ㉜ Gas outlet for pressure control
 ㉝ Gas inlet for pressure control

Fig. 1 The inert atmosphere glovebox



☒	Manual valve	(1) Circulation pump
☒	Electromagnetic valve	(2) Cooler
☒	Diaphragm control valve	(3) Air lock
☒	Pneumatic shut-off valve	(4) Glove box
☒	Absolute filter	(5) Purification tower
☒	Pressure regulator	(6) Oil bubbler
PIC	Pressure indicating controller	(7) Vacuum pump
PI	Pressure indicator	(8) Draft (-150 mm Aq)
FI	Flowmeter	(9) Liquid argon
PIA	Pressure indicating alarm	(10) Evaporator
E	Moisture monitor	(11) To vacuum
O ₂ I	Oxygen analyzer (NGK Ceramic type, 1000 ~ 0.1 ppm)	(12) To draft
M1	Hygrometer (SHAW, -20 ~ -80 °C)	(13) Ar+ 8% H ₂
RA	Recorder & alarm	(14) To oxygen analyzer
(±)	Argon gas pressure at circulation flow rate of 30 m ³ /hr	(15) From oxygen analyzer
		(16) Sampling pump

Fig. 2 Flow sheet of the glovebox system



- (1) Catalyst bed
- (2) Molecular sieve bed
- (3) Heat insulator
- (4) Thermocouple sheath
- (5) Sheathed nichrome heater
- (6) Sheathed nichrome heater
- (7) Outer vessel (250Ø x 560 mm)
- (8) Inlet pipe
- (9) Outlet pipe
- Purification
- > Regeneration

Fig. 3 The gas purification tower

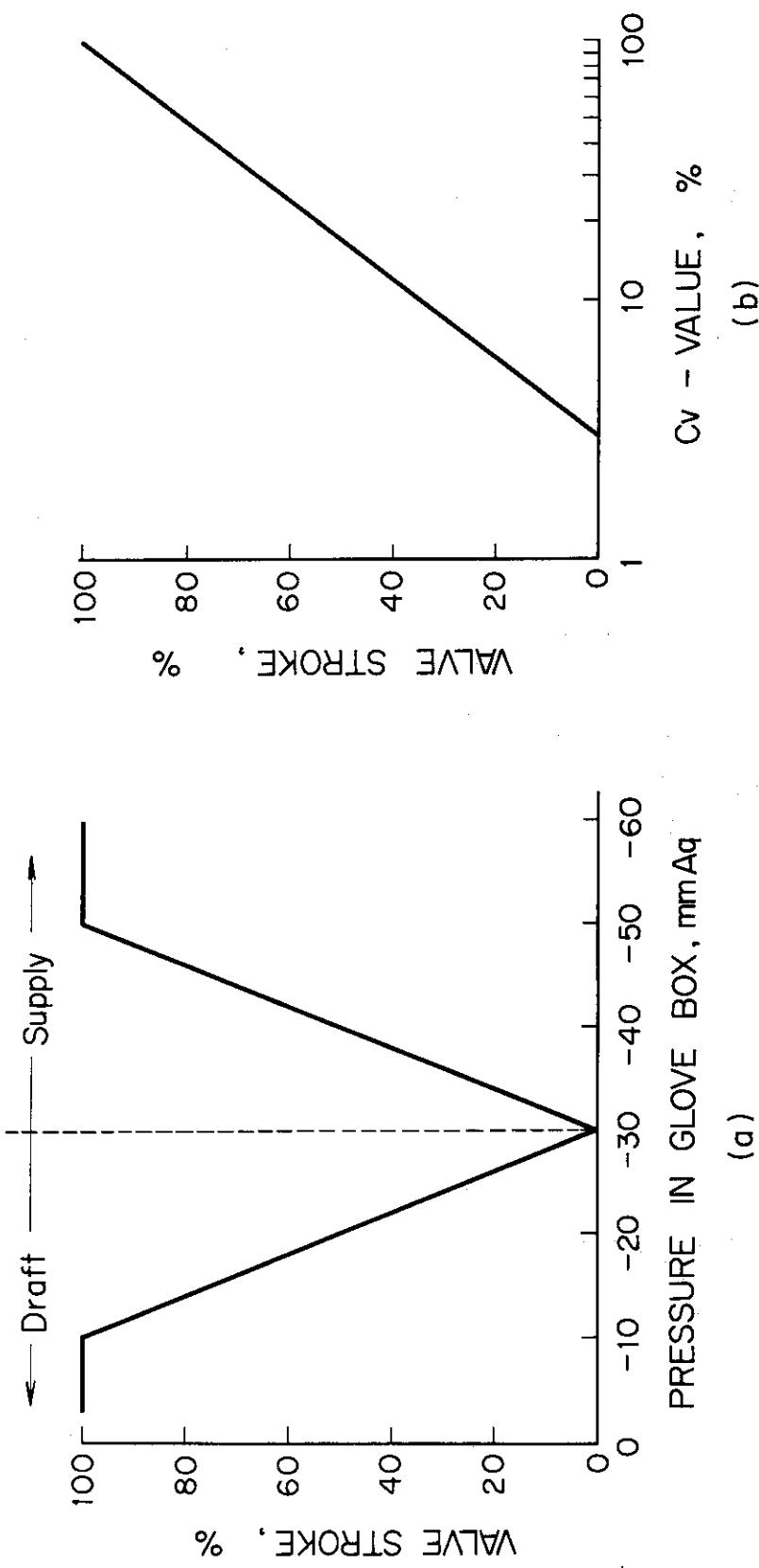


Fig. 4 Relations between (a) the pressure in the glovebox and the stroke of the PI control valve, and (b) the stroke and the Cv-value of the PI control valve

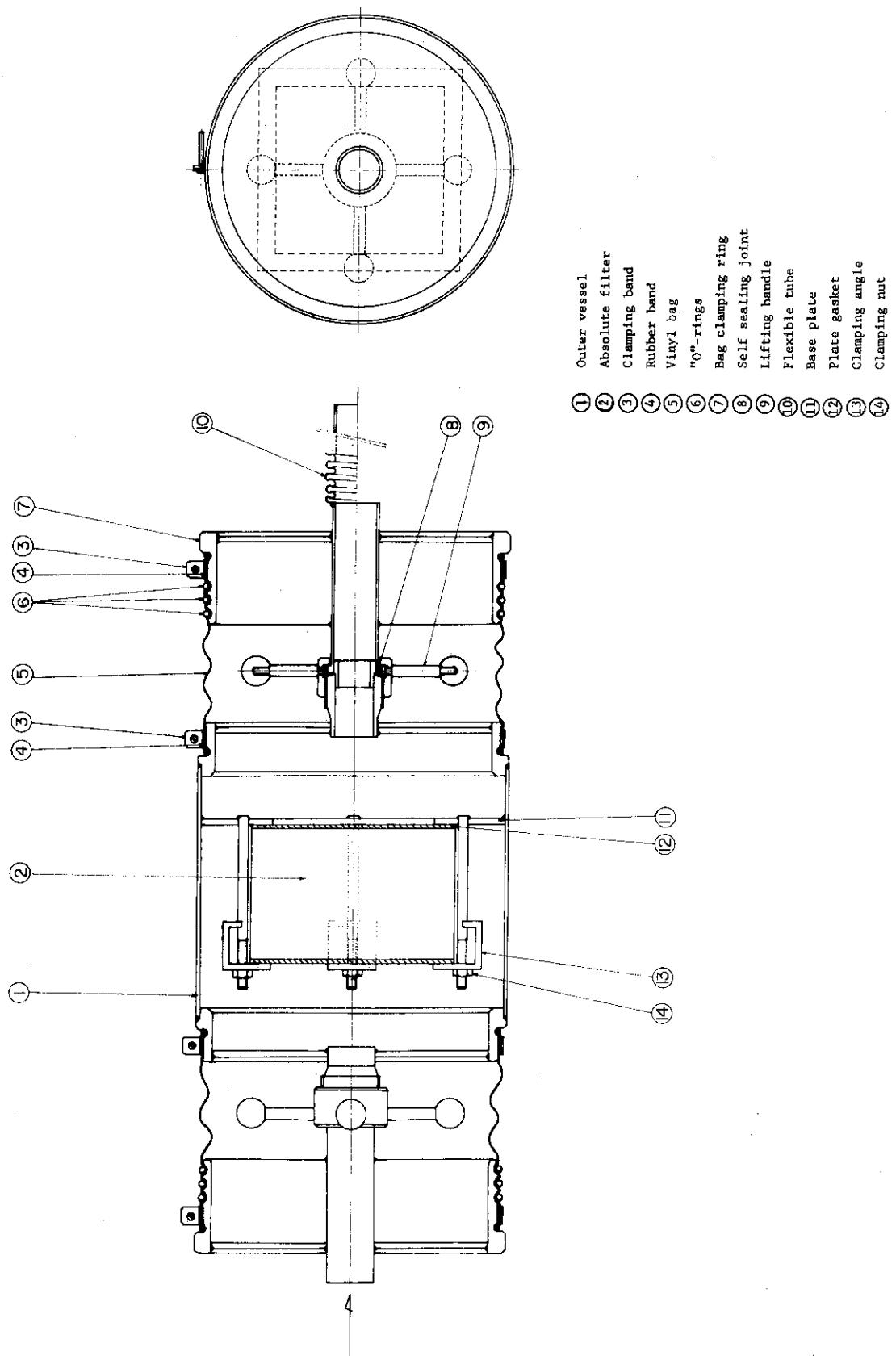


Fig. 5 The absolute filter case

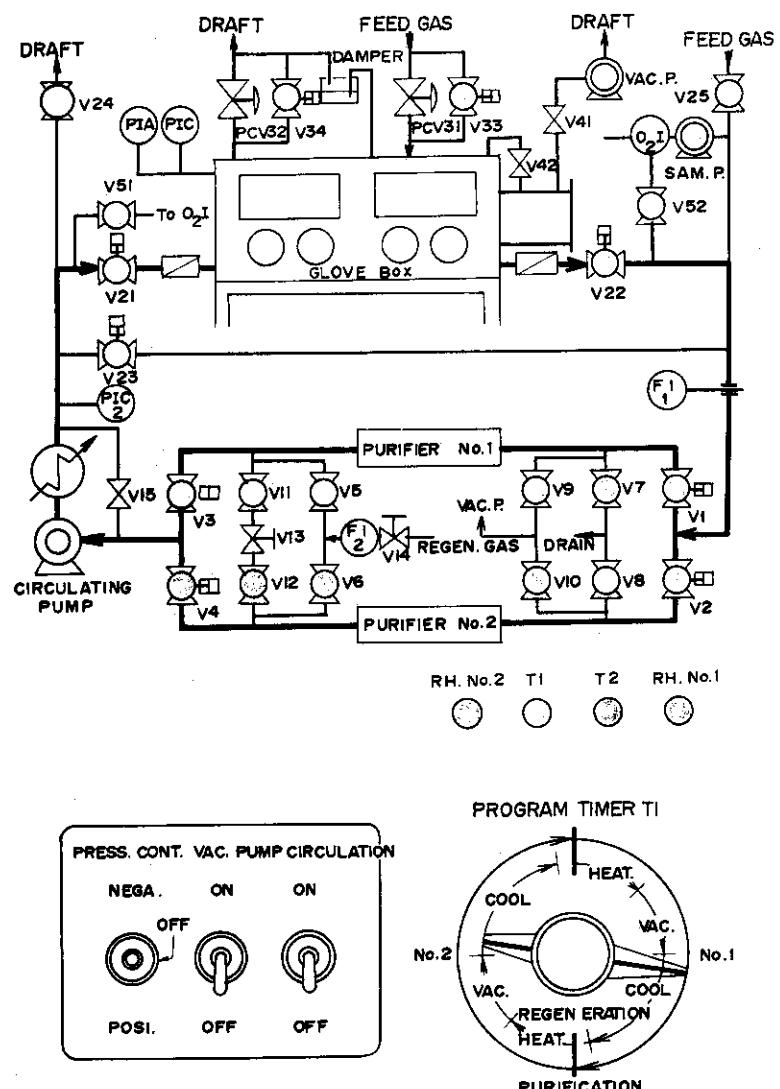


Fig. 6 Graphic pannel of the flow sheet for the glovebox system

3. 性能試験

3.1 分析計

ガス中の微量不純物のなかでもとくに酸素、チッ素および水分の分析は難しいと言われている。とくに、本G Bの定常運転時における雰囲気ガスの目標純度が酸素、水分についてともに0.1~数ppmという分析計の検出下限付近にあるということは一層これらの分析を難しくしている。そこで本G Bで使用している分析計について他の分析法を採用している分析計と比較することにより定常運転時の信頼性が検討された。

セラミック式酸素分析計はこれに並列に組込んだ黄磷発光式微量酸素分析計(Traced oxygen gas analyzer) (富士電機製造製)と比較された。測定結果はFig.7に示されるように酸素濃度1ppm以上では、(セラミック式分析計による酸素濃度)×0.44=(黄磷発光式分析計による酸素濃度)であった。この結果は約1ppm以上において両分析計の指示値がほぼ一致するという報告²⁾と相違するが、これは被測定ガスがG B内ガス置換時に採取されているので、酸素濃度が時間とともに減少しているのに對しセラミック式分析計の応答時間が黄磷発光式のそれに比べ僅かに速いことに原因すると考えられる。1ppm以下では指示値の違いはさらに大きくなり、黄磷発光式分析計の指示値0.1ppmに対してセラミック式分析計は約0.5ppmを指示している。この傾向は約1ppm以下でセラミック式分析計の分析値が黄磷発光式分析計のそれに比べ0.2~0.5ppm程度高く指示するという報告²⁾と一致する。この違いを確証するためにセラミック式分析計の被測定ガスが黄磷発光式分析計に直接流れるように両分析計を直列に組込んで(測定ガスの規定流量が異なるためセラミック式分析計にバイパス回路を設けている)、黄磷発光式分析計で0.1ppmの値を指示した一定酸素濃度のArガスを用いて測定したところ両者の値ともほぼ0.5ppmを示した。この結果から約1ppmにおける両分析計の指示値の違いは、主としてセラミック式酸素分析計に使用されている固体電解質の働きをするジルコニア磁気管(ZrO_2 にCaOなどを固溶させたもの)自身のリーク特性によるものと考えられ、そのリーク率は約 $1 \times 10^{-2} l/sec$ と計算された。このように分析精度は1ppm以下では信頼性に劣るが、2.5で述べたように市販されている酸素分析計のうちでこれ以上簡便に連続測定でき、測定後のガスを再び循環系にもどすことのできるものがないのでやむをえずこれを使用している。本報告で述べる実測酸素濃度はセラミック式酸素分析計の指示値そのままのものである。

S H A W露点計の2つの検出素子(G B内雰囲気および精製筒出口用)は直読式露点計(Direct reading dew-point meter)(浜田電機製)に直列に組むことにより比較された。Fig.8に示すようにS H A W露点計の指示値は直読式露点計のそれに比べ検出素子No.1では 3.5°C 、No.2では 4.5°C 低い。これを水分濃度に換算するとS H A W露点計の指示値1ppmは直読式露点計の指示値1.7ppmおよび2ppmに對応する。しかしながら、直読式露点計の測定技術の難しさを考慮すると誤差範囲内で一致していると見なすことができる。ここで水分濃度は測定された露点で氷と共に存するとときの飽和水蒸気圧⁴⁾から換算されている。

3.2 気密試験

本GBの気密はつきのような方法で調べられた。まず初めに精製筒を除く全系のリーク検出は簡便な加圧法によるフレオンリーク試験法を適用した。精製筒については充填剤がフレオンガスによって変質するので真空法によって調べられた。ついでGB本体には大気圧に対して+300mmAq、その他の系にはHeガスを1.0kg/cm²の圧力までガス導入口から充填し、質量分析計型ヘリウムリークディテクターを用いて加圧法によりリークが調べられた。その結果、全系のリークは最小検出感度である 2×10^{-4} lusec以下であった。エアーロックのリークは油回転ポンプで真空排氣したあと真空度の経時変化をピラニゲージで測定する真空法によっても調べられ、その結果リーク率として 3×10^{-2} lusecの値を得た。

さらに、GB本体のリークは材質の異なるグローブ（ネオプレン、ブチルゴム、ハイパロンコーティングネオプレン）を4双装着した場合およびグローブポートにグローブの上から気密蓋を装着した場合（グローブと蓋との空間はArガスで大さっぱり置換している）について、酸素濃度測定法（Oxygen measurement method）³⁾によって定量的に求められた。GB内酸素について循環精製後、循環精製回路を遮断しGB内圧を所定値-30mmAqに保持しながらGB内雰囲気ガス中の酸素濃度の経時変化が測定された。この場合測定されたサンプリングガスは再びGB内にもどすことによりGB内圧を一定に保持している。この結果、Fig.9に実線で示すように酸素濃度は蓋を装着した場合を除き時間とともに直線的に増大し、またGBのリーク率に相当する勾配はグローブの材質に依存していることが明らかとなった。点線は酸素濃度の増大がグローブからの透過だけによるものと仮定してネオプレンおよびブチルゴム製グローブについて、つきのような拡散式を用いて求めた酸素濃度の時間変化を示す。

$$q = QA \frac{p_1 - p_2}{d} t \quad (1)$$

ここで、 q =注目不純物ガスの透過量

Q =グローブ中の注目不純物ガスの透過度

A =グローブの表面積

p_1, p_2 =GB内外雰囲気中における注目不純物ガスのそれぞれの分圧

d =グローブの厚さ

t =時間

ネオプレンおよびブチルゴム中の酸素の透過度についてはハンドブック^{5, 6)}に散見されるが、ここでは文献6)から引用した。また p_2 は p_1 に比べて小さく無視できるので $p_1 - p_2$ =一定として計算した。Table 3に実測と(1)式から求めた酸素のリーク率を比較して示す。グローブ中の気体透過度は温度に大きく依存する（たとえば、ネオプレン中の酸素透過度は25°, 35°Cにおいてそれぞれ 3.0×10^{-8} , 5.1×10^{-8} Torr·ℓ·cm/sec·cm³·Atm）ので定量的比較は難しいが、ネオプレン製グローブにおいて実測値は計算値に比べて小さく、またブチルゴム製グローブにおいてはよい一致を示している。これは本GBにおける酸素リークの大部分がグローブからの透過であり、GB本体のリーク率はきわめて小さく無視できることを示唆している。蓋を装着したとき酸素濃度の増大する割合はグローブの材質に無関係に時間

とともに減少している。これはグローブと蓋との空間のガス置換が不十分なために残留していた酸素がグローブを透過して G B 内へ移動し、空間中の酸素分圧が次第に減少することに起因すると考えられる。

上記酸素濃度の測定と併行して水分濃度も測定され、この水分濃度と G B のリーク率との関係が検討された。Fig. 10 の実線は循環停止後の G B 内雰囲気ガス中の水分濃度の時間変化を、破線は循環精製（流量 $30 \text{ m}^3/\text{hr}$ ）開始約 100 時間後の精製筒出口と G B 出口における水分濃度の差から推算した水分濃度の時間変化を、そして一点鎖線はグローブからの透過のみによるものと仮定して水蒸気の透過度⁶⁾から計算した水分濃度の時間変化を示している。破線と一点鎖線はよい一致を示しているが、これに比べ実線はきわめて小さい値を示している。しかし、循環精製再開後の水分濃度の時間変化（点線）に一時的増大が観察されることとは、実線が真の G B 内水分濃度の時間変化に対応していないことを意味している。

3.3 グローブボックス内雰囲気ガス純度

本 G B は循環精製装置の始動にさきだち G B 内部を Once-through 方式により不活性ガスで置換する必要がある。置換は G B 本体にとり付けられた圧力制御回路のうち Ar ガス供給側の ON-OFF 圧力制御弁を手動操作で開いて液化 Ar から気化した Ar ガス（酸素濃度 1 ppm 以下、水分濃度 2.5 ppm 以下）を G B 内へ導入し、給排気の P I 圧力制御弁および ON-OFF 圧力制御弁の組合せで G B 内圧を $-30 \pm 20 \text{ mmAq}$ の範囲内に調節しながら排気側回路からドラフトへ排気することにより行われる。また G B 本体と精製筒を除く循環系回路の内部も同様に当該回路に設けられている ON-OFF 圧力制御弁の手動操作で給排気を繰返すことによりガス置換することができる。

Fig. 11 および 12 の実線は Ar ガス置換（置換流量約 $5.6 \text{ m}^3/\text{hr}$ ）および定常の循環精製（循環精製流量 $30 \text{ m}^3/\text{hr}$ ）に切換えたときの G B 内酸素と水分がそれぞれ減少していく様子を示す。置換開始後約 60 分で G B 内雰囲気ガス中の酸素濃度は分析計の検出上限である 1000 ppm に到達する。このときの水分濃度は約 80 ppm であった。図の点線は Fig. 13 に示すように G B 内で置換ガスあるいは循環精製ガスが既存雰囲気ガスと完全混合したあと流出すると仮定して計算した結果および G B 内既存雰囲気ガスが置換あるいは循環精製ガスによって静かに押出されるいわゆる栓流（Plug flow）によって流出すると仮定した結果である。完全混合を仮定したときの計算式をつぎに示す。

計算に必要な諸量を

置換または循環精製時の供給 Ar ガス流量	= I
供給 Ar ガス中の注目不純物ガス濃度	= C _I
G B 内への漏込みガス流量	= L
G B 内への漏込みガス中の注目不純物ガス濃度	= C _L
G B から流出する完全混合ガス流量	= Q
時間 t 後の G B 内注目不純物ガス濃度	= C
G B の容積	= V

と設定すると、循環精製過程で精製されていく G B 内雰囲気ガス中の注目不純物ガス濃度の時

間変化は

$$V \frac{dC}{dt} = -CQ + LC_L + IC_I \quad (2)$$

で表わされる。循環精製開始時 ($t = 0$) の $C = C_0$ とすると(2)式は

$$\ln \frac{C - \frac{LC_L + IC_I}{Q}}{C_0 - \frac{LC_L + IC_I}{Q}} = -\frac{I+L}{V} t \quad (3)$$

となる。ここで、ガス置換過程において GB 内雰囲気ガス中の不純物ガス濃度におよぼす供給ガスおよび漏込みガス中の不純物ガス濃度の影響 (IC_I/Q , LC_L/Q), および漏込みガス流量 (L) は無視できるので(3)式は

$$\ln \frac{C}{C_0} = -\frac{I}{V} t \quad (4)$$

となる。

実測された酸素濃度の時間変化と計算結果との比較から本 GB では、ガス置換および循環精製の両過程において雰囲気ガスは GB 内で完全混合に近い状態を経て精製されることが推察できる。

一方、水分濃度の変化は以上のような解析によって推論できない。これは上述したように GB 内雰囲気ガス中における水蒸気の挙動がきわめて複雑なことに起因すると考えられる。GB 内酸素濃度は循環精製開始約 2 時間後に GB からの漏込みに相当する約 0.6 ppm で飽和し、また水分濃度は数 10 時間後にはほぼ 0.7 ppm で飽和した。このような雰囲気ガス中に金属 Na の切削面を露出し、その金属光沢の変化を観察したところ約 15 分間光沢は保持されたが、その後徐々に青白色の薄い膜が生成し光沢が失われた。

つぎに定常運転下にある GB 内へエアーロックを経て物品を搬入する際、搬入物品に吸着していた不純物ガスが GB 内雰囲気ガスの純度におよぼす影響について調べられた。一般作業用品のうち、とくにガス吸着性が高いと考えられるティッシュペーパー 1 箱、ガーゼ 10 m、脱脂綿 100 g、小形廃棄物容器（紙製）2 個、石綿リボン 1 卷、マスキングテープ 1 卷および断熱剤（ファインフレックス）約 100 g を選び、これらを同時にエアーロック中で真空排気と Ar ガスによる置換をそれぞれ 1 回行ったあと GB 内へ搬入したところ、雰囲気ガス中の酸素、水分濃度はともに約 2 ppm の増大を示した。酸素濃度は約 10 分後に、水分濃度は約 1 時間後に回復した。しかし、エアーロックにおける物品の真空排気およびガス置換を数回繰り返し行えば GB 内不純物濃度の変化は 1 ppm 以下に抑えられることが明らかになった。

GB 内圧力制御用供給 Ar ガスが定常運転時の GB 内雰囲気ガスの純度にあたえる影響は、酸素、水分濃度に変化が認められないことからきわめて小さいと考えられる。

以上 GB 内雰囲気ガスの純度について述べたが、つぎに GB 内における雰囲気ガスの気流状態について述べる。定常運転時（循環流量 $30 \text{ m}^3/\text{hr}$ ）の GB 内における雰囲気ガスの風速の分布が、熱線型風速計（最小検出感度 0.05 m/sec ）および Fig. 14 に示すような GB 内空間

の位置に吊下げた約10cmの細長い綿縄の振れ工合(検出感度0.05m/sec以下)から調べられた。結果はFig.14に示すようにガス拡散器および捕集器付近を除いて局部的な流れは検出されなかつた。このことからGB内作業空間における循環ガスの流れはほぼ均一状態にあると考えられる。

3.4 精製能力

精製筒の精製能力は充填床の交換吸着効率と交換吸着容量から検討された。精製能力試験における酸素濃度の測定には黄磷発光式微量酸素分析計を使用した。酸素と水分の交換吸着挙動は、相対湿度約70%の空気を180, 380, 500cc/minの流速(リーク率0.77, 1.6および2.1Box Vol%/hr)でGB内に導入しながら流量30m³/hrで循環精製したときの精製筒出口における酸素、水分濃度を測定することにより調べられた。すなわち、Table 4に示すような高い不純物濃度の雰囲気ガスが見掛け上精製筒に流込んでいることになるが、その結果として表にみられるように精製筒出口における雰囲気ガスの純度は循環ガスの純度に依存しない酸素濃度0.1ppm以下、水分濃度約0.7ppmであった。このときの触媒床およびモレキュラーシップ床内のガス流速はレイノルズ数でそれぞれ8および7であり、この値は最適値と考えられる。⁷⁾充填床の交換吸着容量は循環流量30m³/hr、GB内への空気の流入量180cc/minの条件下で精製筒出口における酸素濃度(0.1ppm)が見掛け上の破過点^{*}の濃度に達する時間(3.5hr)から求められた。その結果、精製筒1基の酸素の交換吸着容量は約8ℓで、この値は設計仕様値(約6.5ℓ)を十分満足するものであった。

3.5 雰囲気ガス中のチッ素の蓄積

雰囲気ガス中のチッ素濃度が250ppm以下の場合、チッ素がU-Pu混合炭化物系燃料における影響は室温では小さいと報告されている^{8,9)}ので、本装置においてはチッ素の除去は考慮していない。そこで、定常運転の条件下で雰囲気ガス中に蓄積するチッ素量について調べた。

Fig.15はGB内雰囲気ガス中のチッ素濃度の時間変化を示す。チッ素濃度は運転前にあらかじめGB内に準備された採取容器中に逐次採取した雰囲気ガスを運転後質量分析法により測定されている。実線はハイパロンコーティングネオブレン製クローブを装着したGB(4双のうち2双はクローブの上から蓋を装着し、その空間をArガスで大ざっぱに置換している)内のチッ素をOnce-through方式でガス置換したあと、循環精製流量20~30m³/hrおよびGB内圧-30mmAqの条件下の結果である。ここで、時間ゼロにおける200ppmの値はOnce-through方式によるガス置換から循環に切換えたときの値である。チッ素濃度は時間とともにほぼ直線的に増大している。点線はGB本体からの漏込み酸素のリーク率(2.46ppm/hr)から空気の組成比を考慮して求めた計算結果で、破線はクローブの透過だけによるものと仮定してネオブレンのチッ素の透過度⁶⁾から求めた結果である。これら実測および計算値をTable

* 特定の分離装置(充填床など)に除去すべき注目不純物(その濃度C)を含む流体を供給する場合、時間の経過とともに分離装置の除去能力が飽和点に近づき、ついにある時点まで注目不純物が装置外に流れ出す。半経験的に流れ出る流体中の注目不純物濃度が0.05Cに到達した時点を破過点と名づけている。

5に示す。実測値はグローブからのチッ素透過の仮定にもとづいた計算結果ときわめてよい一致を示していることから、チッ素のG B内蓄積は酸素の漏込みの場合(Fig. 9, Table 3 参照)と同様にグローブの透過に大きく支配されることがわかる。

上記結果からG B内チッ素を完全にOnce-through方式で置換したあとの100時間の連続運転を1サイクルとすれば、この時間に雰囲気ガス中に蓄積するチッ素濃度は約250 ppmであり、U-Pu混合炭化物系燃料物質の取扱いに大きな問題はない。

3.6 循環精製流量と雰囲気ガス純度との関係

定常運転において循環精製ガスとG B内既存雰囲気ガスとがG B内で完全混合すると仮定すると、循環精製ガス流量と雰囲気ガス純度との関係は次式で与えられる。

$$C = \frac{C_I I + C_L L}{I + L} \quad (5)$$

ここで、 C = G B出口における注目不純物濃度

C_I = 精製筒出口における注目不純物濃度

I = 循環精製ガス流量

C_L = 漏込みガス中の注目不純物濃度

L = G Bのリーク量

Fig. 16-(a), (b)は、リーク率650 lusec および57 lusec (4.3×10^{-2} , 3.9×10^{-3} Box Vol%/hr)に相当する空気流入を故意に行って測定した循環精製ガス流量(あるいはG B換気回数)に対する酸素、水分濃度の変化を調べた結果である。ここで、実線は循環精製流量30 m³/hr のときの実測された酸素、水分濃度を基準点に(5)式から求めた酸素、水分濃度である。酸素濃度は循環精製流量に依存して計算値ときわめてよい一致を示しているが、水分濃度(点線)は循環精製流量に依存しないで、計算値と大きなへだたりがある。これは3.2でのべたG B内水分濃度の不均一および内壁への水分吸着などが影響しているためと考えられる。なお、精製筒出口における酸素、水分濃度は循環精製流量に無関係にそれぞれ 0.56 ± 0.03 ppm および 0.7 ± 0.1 ppm と一定であった。したがって、(5)式において C_I は一定、また C_L および L は外気およびG Bに固有な値と見なしてよいから、雰囲気ガスの純度は循環流量のみの変数となる。

3.7 圧力制御

圧力制御装置の性能試験としては、グローブ1双を瞬間的にG B内から引抜く操作およびG B内へ押込む操作によってG B内圧に変化を与える、その回復過程を調べる方法を探った。この操作はグローブ1双の内容積が約32ℓであるから、所定圧-30 mm Aq ICに対して約±2.20 mm Aqに相当する圧力変化を0.2, 3秒間でえたことになる。Fig. 17-(a), (b)は、このようなG B内圧の変化に対する圧力制御の様子を示す。G B内圧変化はTsujimuraらによって考案された差圧計¹⁰⁾により測定記録された。図中実線はP I圧力制御とON-OFF圧力制御を組合せて作動させた場合、点線はP I圧力制御のみを作動させた場合である。P I圧力制御による圧力調節特性はP I圧力調節弁の作動特性に依存して決まるが、本性能試験においては

圧力調節計の比例帯^{*} およびリセット率^{**} の設定値をそれぞれ 50% と 1 rep/min としている。この設定値は通常グローブ作業における GB 内圧変化に適合した圧力制御の条件から選定されている。実線および点線ともに約 1.5 秒で所定値 -30 mmAq に制御され、圧力制御の様子に顕著な違いは認められない。また Fig. 18 に示すように圧力制御用 Ar ガスの供給圧力を変数とする圧力制御の過程にも同様に顕著な差が認められない。これらの結果は ON-OFF 圧力制御の寄与が小さいことを示唆している。これは圧力制御時の給気弁および排気弁の作動状況によってそれぞれ Ar ガス供給圧力およびドラフト圧力が設定値から偏位することに原因するものである。すなわち、本性能試験で使用している圧力制御用 Ar ガス供給装置およびドラフトはともに仮の設備であり、これらの容量が小さいため圧力制御装置の機能が十分生かされていないと考えられる。しかし、大洗燃料研究棟における Ar ガス供給装置およびドラフトはともに大きな容量を備えているので、本装置の圧力制御の性能は十分発揮されるであろう。

Fig. 19 に定常運転時における GB 内圧変化の代表例を示す。(a) はグローブ作業をしない場合で GB 内圧は所定圧 -30 mmAq に正確に制御され、圧力偏差が認められない。一方、(b) は通常のグローブ作業(1 双)の場合で 0~+60 mmAq の範囲で圧力変動している。この圧力変動は設計仕様 -30 ± 20 mmAq の範囲を大きく越えているが、これは上述したように Ar ガス供給容量とドラフトの排気容量が小さいことに起因するものと推察される。とくに、負圧破壊に近い現象はオイルバブラーの背圧側のドラフトが圧力制御装置(たとえば風流調整ダンパー)を備えていないため GB 内雰囲気ガスの排出にともなってドラフト圧が低下し、オイルバブラーの吹出し圧力が -5 mmAq より高くなることに原因している。

3.8 安全関係

定常運転において商用電源の停電および GB の異常リーク(主としてグローブの破損)は回避できない異常現象である。このような現象の発生により本装置の動特性のうち圧力制御系が最も重大な影響をうけると推測される。以下停電および GB の異常リークが圧力制御におよぼす影響について調べた。

3.8.1 停電

Pu を取扱う施設においては商用電源の停電に対して迅速かつ確実に非常電源設備による通電再開が法律上義務づけられている¹¹⁾。大洗燃料研究棟においては通電再開までの停電時間を 10 秒に設計している。

Fig. 20 は 30 秒間の停電を仮想して、これに伴う GB 内圧の変化と通電再開後の圧力制御の様子を示す。停電後約 20 秒で GB 内負圧はゼロに低下している。これは停電とほぼ同時にドラフトの負圧がゼロになり、これに伴ってオイルバブラーのオイル液面が変動することに起因する。しかし、Pu を取扱う施設においては非常電源に切換わるまで、ドラフトの負圧は十分に保持される構造になっているので、このような負圧破壊の現象はおこらないと考えられる。

通電再開後の GB 内圧の回復過程は圧力制御用の Ar ガス供給圧力に依存しているが、供給

* 設定範囲 5~500 % (ゲイン 2.0~0.2)

** 設定範囲 0.05~6 rep/min (リセット時間 20 分~10 秒)

ガス圧力 $1.0, 0.5 \text{ kg/cm}^2$ のいづれの場合も約 60 秒で設定圧力 - 30 mmAq に復帰している。

3.8.2 クローブボックスの異常リーク

GB の異常リークはクローブの指を切断することにより人为的に発生させた。Table 6 はクローブ破損に対する GB 内圧変化と圧力制御装置の作動状況を示す。クローブの小指の第 2 関節での切断口に相当する 1.6 mm のまでの孔では GB 内圧は設定圧 - 30 mmAq を保持しているが、これ以上の大きさの孔になると GB 内負圧は次第に減少を示している。さらにクローブ 1 本をとりはずしたときのクローブポート開口部における吸込み風速は 60 cm/sec であり、この値は Pu などを取扱うフードの開口部が半開きのときの窓面における規定風速に相当する。¹²⁾ このことからクローブ 1 本がはずれるような事故においても Pu が系外へ多量に流出する危険性は小さいと推察できる。

Table 3 Oxygen leak rates of the glovebox with various kinds of gloves

Glove material	Leak rate		Temperature °C
	ppm/min	lusec	
Neoprene	0.051 (M)	0.90	23.5
	0.071 (C)	1.26	25
Butyl rubber	0.037 (M)	0.66	24
	0.034 (C)	0.60	25
Hypalon coated Neoprene	0.041 (M)	0.73	21

The volume of the glovebox : 1.4 m³

(M) : Measured

(C) : Calculated from the permeability of glove

Table 4 Oxygen and water concentrations of argon gas at the inlet and outlet of the purifier under circulation flow

Air leak rate of glovebox, cc/min	Impurity concentration, ppm			
	Inlet		Outlet	
	O ₂ *	H ₂ O*	O ₂	H ₂ O
180	7.6	6	<0.1	0.7
380	16.0	11.5	<0.1	0.7
500	21.0	16	<0.1	0.7

* Oxygen and water concentrations of argon gas are calculated from the air leak rate of the glovebox.

Table 5 Nitrogen leak rate of the glovebox with
Hypalon coated Neoprene gloves

	Leak rate		Temperature °C
	ppm/hr	lusec	
Measured	2.72	0.80	~25
Calculated from the oxygen leak rate of glovebox shown in Fig.9	9.25	2.73	
Calculated from the permeability of glove	2.57	0.76	25

The volume of the glovebox : 1.4 m^3

Table 6 Pressure change in the glovebox according to the glove failure

Failure	Pressure in glove box, mmAq	PI control valve stroke, %	ON-OFF valve
Non	-30	0 (Close)	Close
10mm length split	-30	0	Close
20mm length split	-30	8	Close
8mmφ hole	-30	45~50	Close
16mmφ hole	-26~-30	38~75	Close
18mmφ hole	-26	98	Close
22mmφ hole	-18	100 (Open)	Close
18mmφ and 22mmφ holes	-15	100	Open
20mmφ and 22mmφ holes	-8	100	Open
17mmφ, 20mmφ and 22mmφ holes	-2	100	Open
17mmφ, 17mmφ, 20mmφ and 22mmφ holes	0	100	Open
No glove	0 *	100	Open

* Flow rate is 36m/min at the glove port.

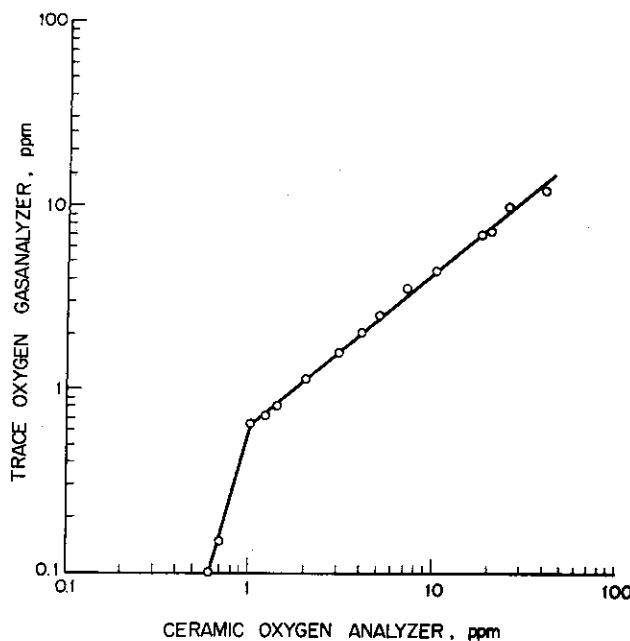


Fig. 7 Comparison between ceramic oxygen analyzer and trace oxygen gasanalyzer

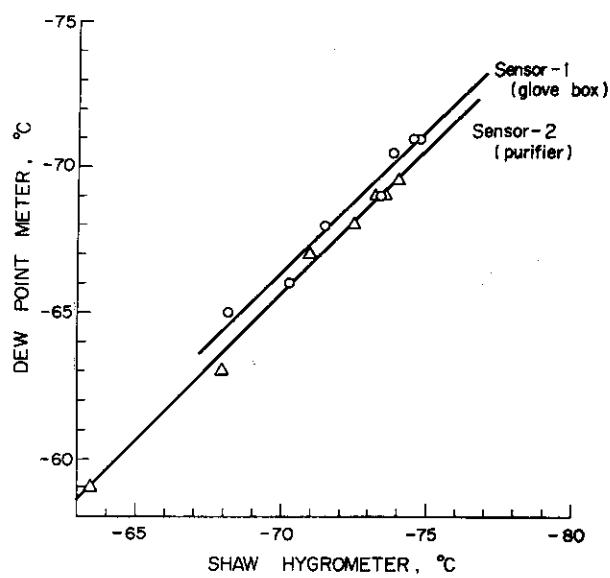


Fig. 8 Comparison between SHAW hygrometer and dew-point meter

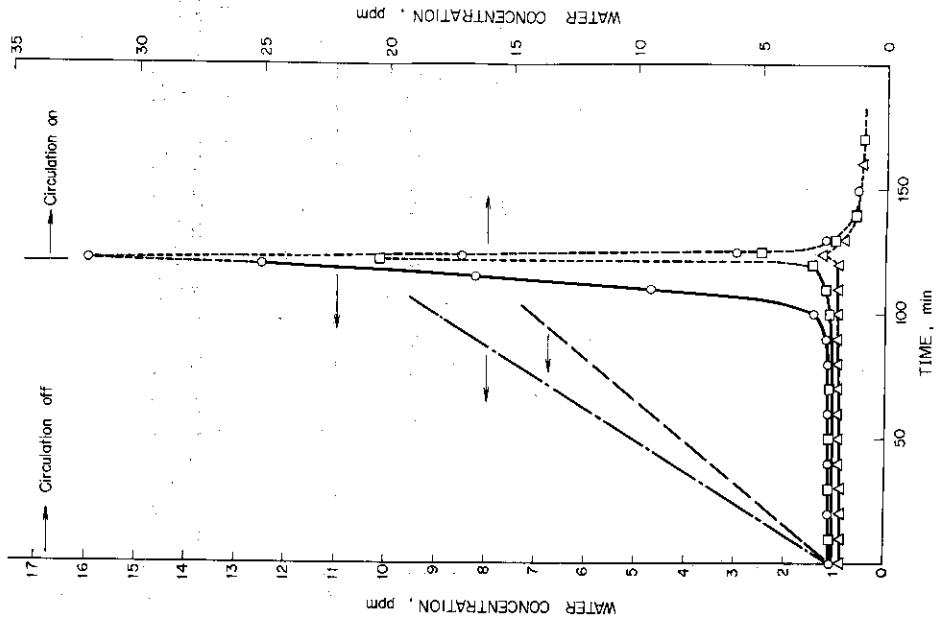


Fig. 10 Increasing rate of water vapor concentration in the glovebox with four pairs of gloves

Legend:

- Neoprene (RT 23.5°C, RH 90%)
- Hypalon coated Neoprene (RT 21°C, RH 86%)
- △ Butyl rubber (RT 24°C, RH 86%)
- × Neoprene gloves (RT 25°C, RH 90%)

RT : Room temperature, RH : relative humidity

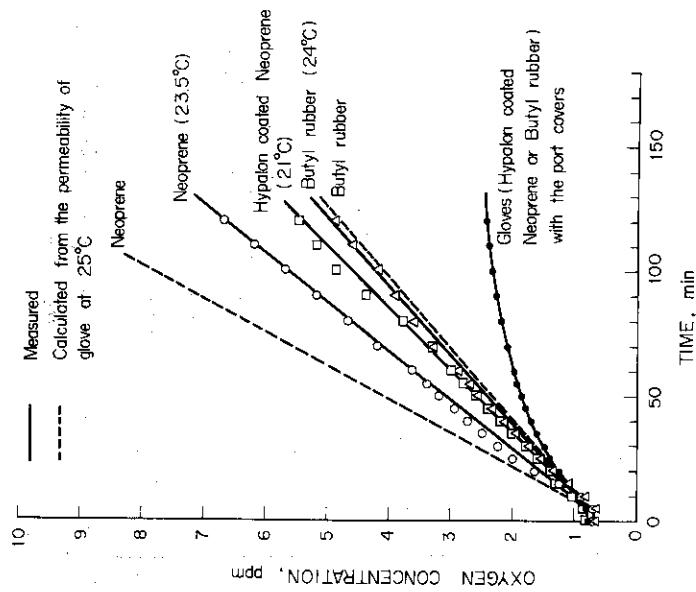


Fig. 9 Increasing rate of oxygen concentration in the glovebox with four pairs of gloves

Legend:

- Neoprene (RT 23.5°C, RH 90%)
- Hypalon coated Neoprene (RT 21°C, RH 86%)
- Butyl rubber (RT 24°C, RH 86%)
- × Neoprene or Butyl rubber with the port covers
- ◆ Neoprene gloves (RT 25°C, RH 90%)

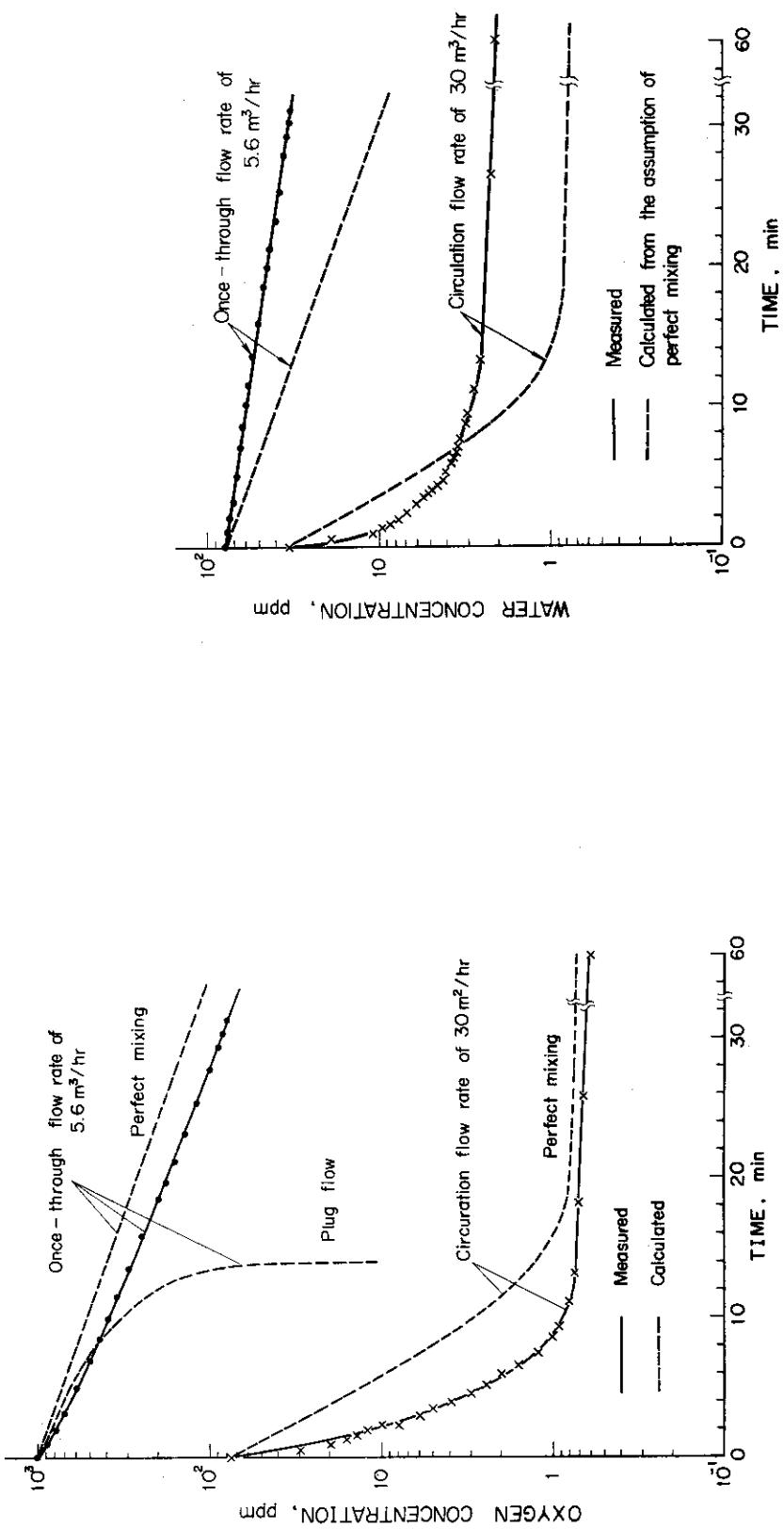
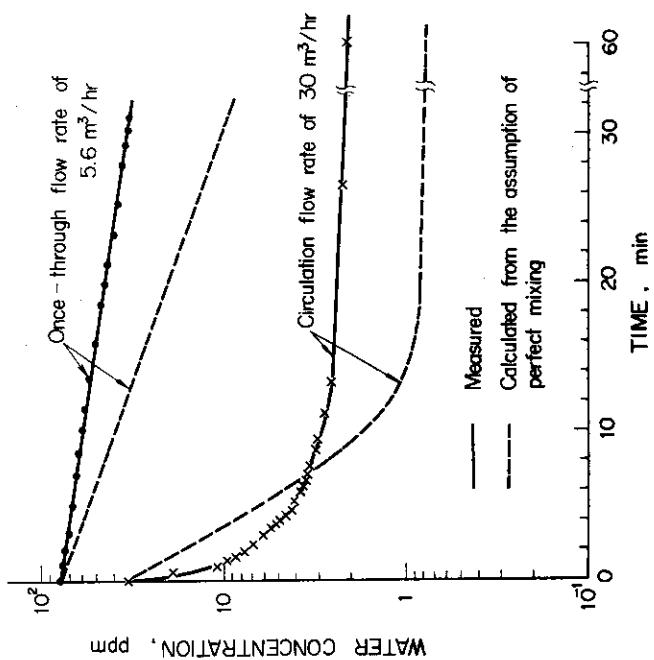


Fig. 11 Decreasing rate of oxygen concentration in the glovebox under once-through and circulation flow

Fig. 12 Decreasing rate of water vapor concentration in the glovebox under once-through and circulation flow



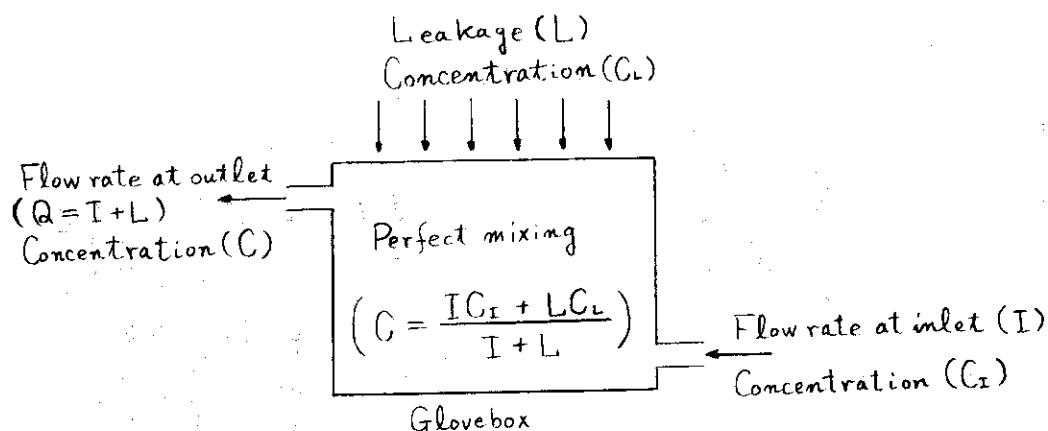


Fig. 13. Perfect mixing of gases in the glovebox under once-through and circulation flow

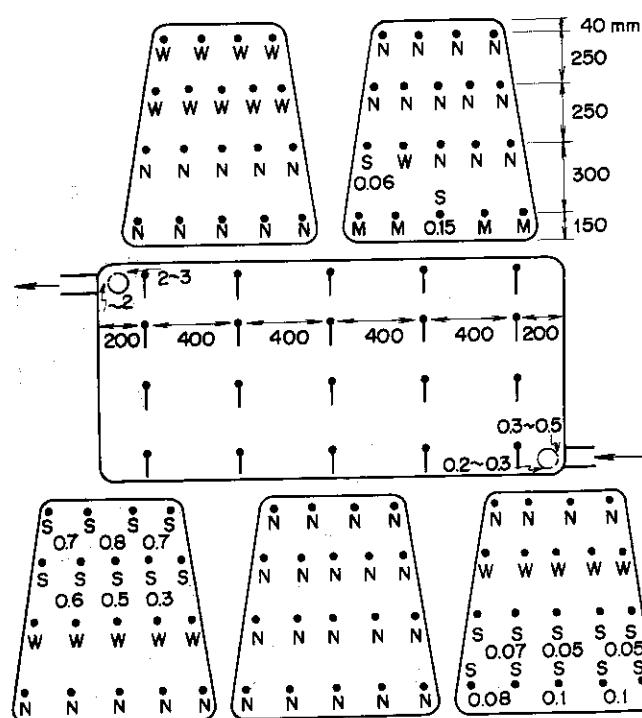


Fig. 14. Distribution of the gas velocity in the glovebox under circulation flow at $30 \text{ m}^3/\text{hr}$, obtained by the anemometer(m/sec) and fluttering of the floss-silk

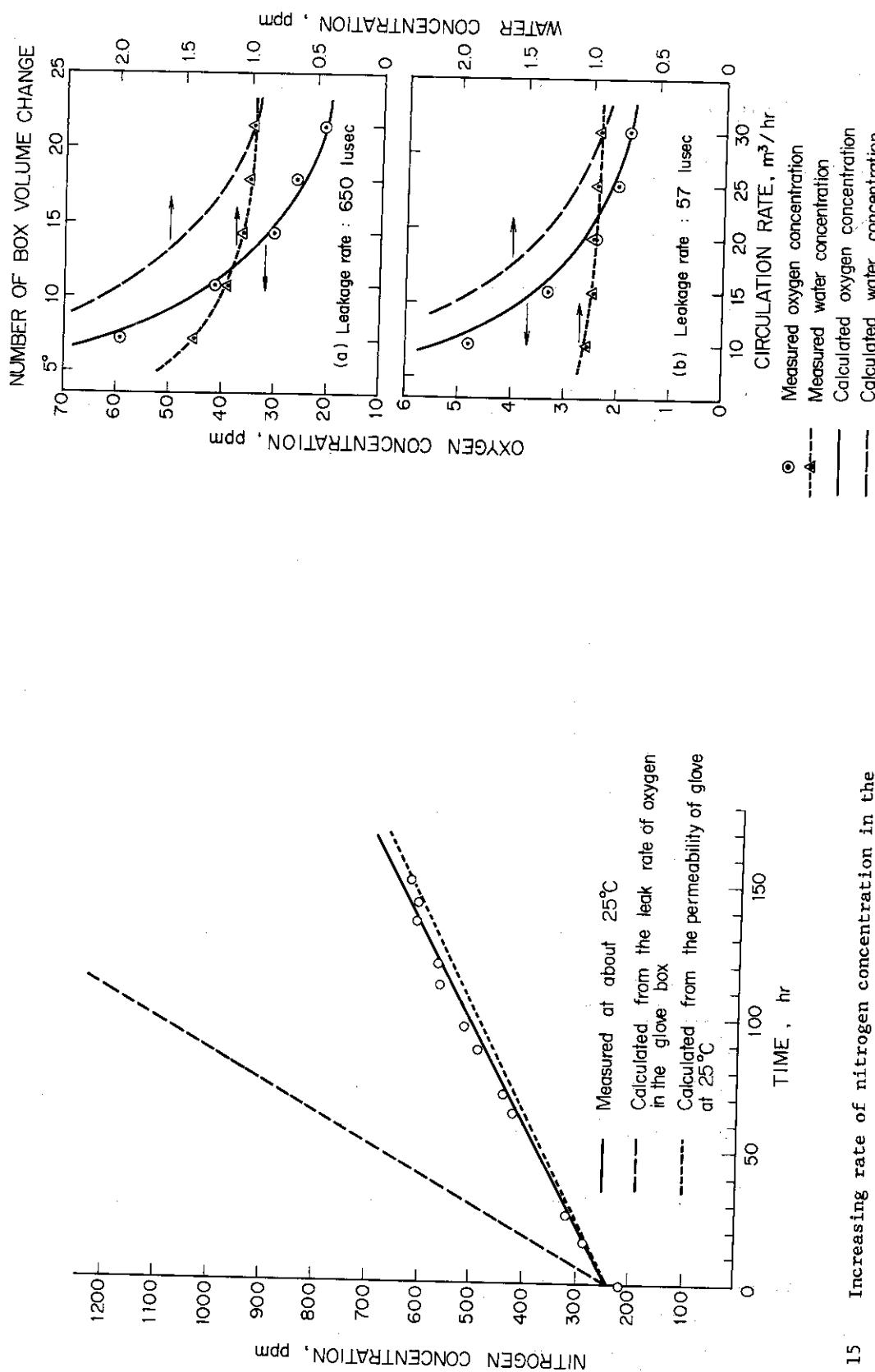
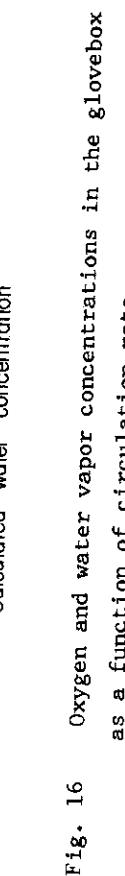


Fig. 15 Increasing rate of nitrogen concentration in the glovebox with two pairs of Hypalon coated Neoprene gloves

Fig. 16 Oxygen and water vapor concentrations in the glovebox as a function of circulation rate



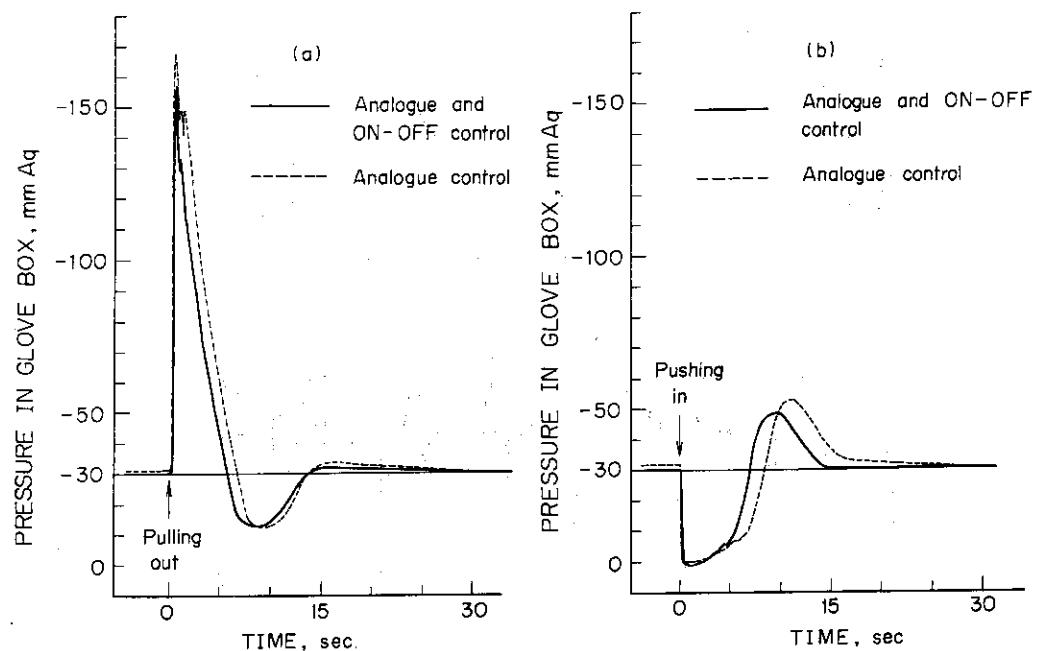


Fig. 17 Pressure changes in the glovebox according to (a) pulling out and (b) pushing in of a pair of gloves (volume = $\sim 32\ell$)

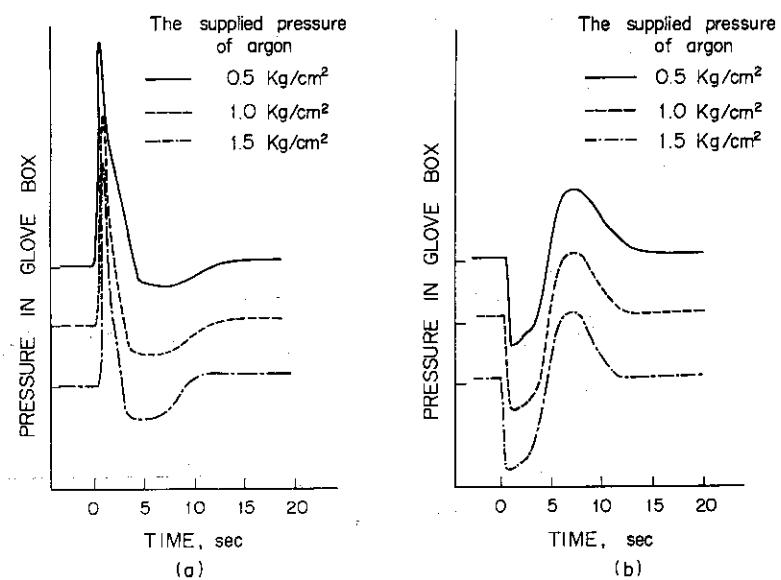


Fig. 18 Pressure changes in the glovebox according to a glove
(a) pulling out and (b) pushing in

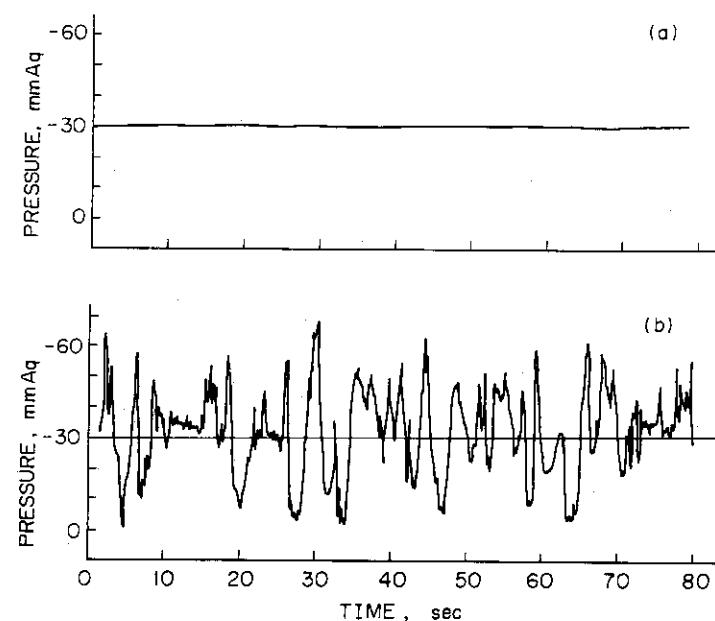


Fig. 19 Pressure changes in the glovebox during (a) no glove handling and (b) glove handling of a pair of gloves

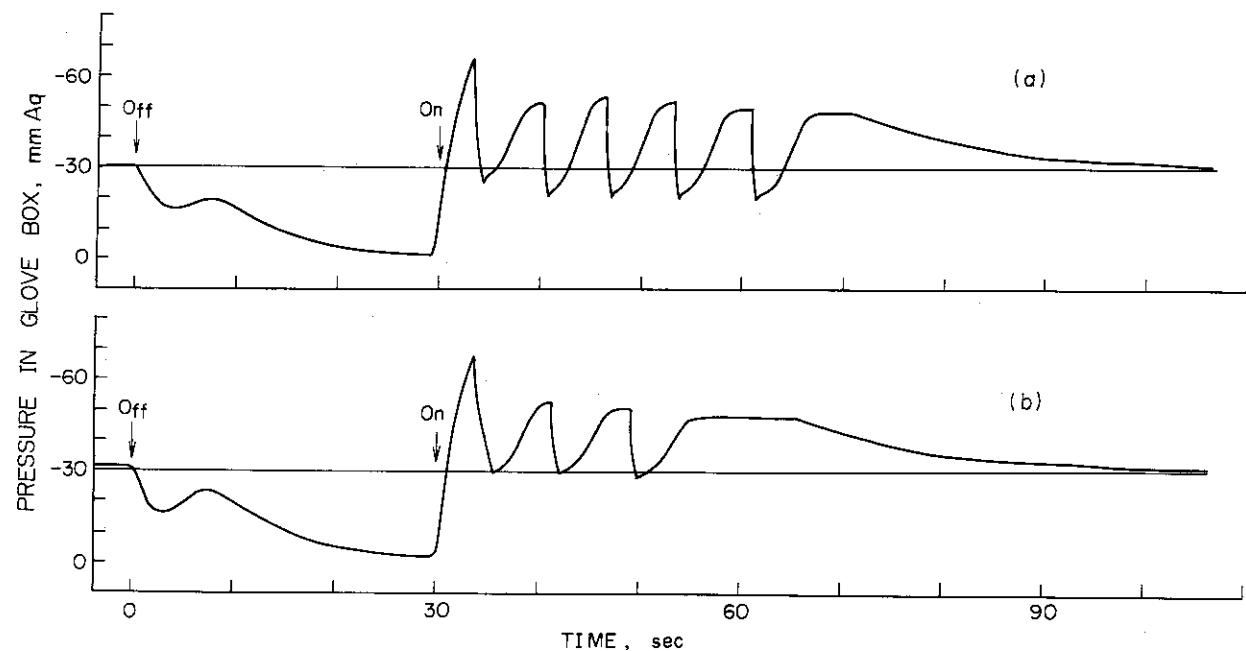


Fig. 20 Pressure changes in the glovebox according to the interruption of electric current for 30 seconds, when the raw argon gas is supplied at pressure of (a) 1.0 kg/cm^2 and (b) 0.5 kg/cm^2

4. まとめ

(1) 本装置は構成材にステンレス鋼(SUS-304)を使用し、パッキングシールを極力避け溶接構造により組立てられた。G Bは8インチのグローブポート4双を備えた非真空型構造で、その内容積は約 1.4 m^3 である。

(2) 本装置のリーク率はG B本体について 1 lusec 以下、その他の系について 10^{-2} lusec 以下であった。なお、G Bの酸素および水分のリーク率はそれぞれグローブの酸素および水分の透過度に支配される値であった。

(3) G B内雰囲気ガスの純度は循環精製流量 $15\sim30\text{ m}^3/\text{hr}$ の範囲で酸素、水分濃度ともに 1 ppm 以下に維持された。運転時の精製筒1基あたりの交換吸収容量は酸素について約 8 l であった。これはハイパロンコーティングネオブレン製グローブを装着したG Bの酸素のリーク率(約 2.5 ppm/hr)において約 2×10^2 時間の寿命に相当する。

(4) G B内圧はグローブ作業をしないときには $-30\pm3\text{ mm Aq}$ に、定常グローブ作業ではほぼ $-30\pm20\text{ mm Aq}$ の範囲内に制御されることがわかった。またグローブ1双を瞬間に出入するような圧力外乱およびグローブの指1本の切断に相当するグローブ破損に対して負圧破壊は起らないことが明らかとなった。

(5) 定常運転時の循環系内圧力は循環ポンプ吐出口からG B給気側フィルターまでの正圧領域を除き負圧であった。

(6) 定常運転においてハイパロンコーティングネオブレン製グローブを装着したG B内に蓄積するチッ素量は 2.72 ppm/hr であった。この値は定期的にG B内を不活性ガス置換することによりU-Pu混合炭化物系燃料に室温で影響をおよぼさないと考えられるチッ素濃度に管理することができる事を示唆している。

(7) 従来この種の高純度不活性ガス雰囲気G Bでは水分透過度の小さいブチルゴム製グローブが一般に使用されているが、機械的強度が小さくPu取扱い用G Bには必ずしも適しているとはいえない。ハイパロンコーティングネオブレン製グローブはネオブレン製グローブと同程度の機械的強度を有するので、これを使用することによりブチルゴム製グローブの場合と同程度の雰囲気ガス純度を維持できることが明らかとなった。

以上の結果から本装置にはU-Pu混合炭化物系燃料を安全に取扱う上で大きな問題点がないことがわかった。

5. 今後解決すべき事項

(1) G B内圧力の異常変動を阻止するオイルバブラーは、その背圧となる排気ドラフト圧が所定値に常時保持されるときのみ有効であり、圧力変動が予想される場合には圧力制御の見地からマイナスの効果があるので、今後検討されなければならない。

(2) 雰囲気ガス中に可燃性不純物ガスが含まれる場合、セラミック式酸素分析計の測定精度

4. まとめ

(1) 本装置は構成材にステンレス鋼(SUS-304)を使用し、パッキングシールを極力避け溶接構造により組立てられた。GBは8インチのグローブポート4枚を備えた非真空型構造で、その内容積は約 1.4 m^3 である。

(2) 本装置のリーク率はGB本体について 1 lusec 以下、その他の系について 10^{-2} lusec 以下であった。なお、GBの酸素および水分のリーク率はそれぞれグローブの酸素および水分の透過度に支配される値であった。

(3) GB内雰囲気ガスの純度は循環精製流量 $15\sim30\text{ m}^3/\text{hr}$ の範囲で酸素、水分濃度ともに 1 ppm 以下に維持された。運転時の精製筒1基あたりの交換吸収容量は酸素について約 8 l であった。これはハイパロンコーティングネオブレン製グローブを装着したGBの酸素のリーク率($\text{約 }2.5\text{ ppm/hr}$)において約 2×10^2 時間の寿命に相当する。

(4) GB内圧はグローブ作業をしないときには $-30\pm3\text{ mm Aq}$ に、定常グローブ作業ではほぼ $-30\pm20\text{ mm Aq}$ の範囲内に制御されることがわかった。またグローブ1枚を瞬間に出入するような圧力外乱およびグローブの指1本の切断に相当するグローブ破損に対して負圧破壊は起らないことが明らかとなった。

(5) 定常運転時の循環系内圧力は循環ポンプ吐出口からGB給気側フィルターまでの正圧領域を除き負圧であった。

(6) 定常運転においてハイパロンコーティングネオブレン製グローブを装着したGB内に蓄積するチク素量は 2.72 ppm/hr であった。この値は定期的にGB内を不活性ガス置換することによりU-Pu混合炭化物系燃料に室温で影響をおよぼさないと考えられるチク素濃度に管理することができる事を示唆している。

(7) 従来この種の高純度不活性ガス雰囲気GBでは水分透過度の小さいブチルゴム製グローブが一般に使用されているが、機械的強度が小さくPu取扱い用GBには必ずしも適しているとはいえない。ハイパロンコーティングネオブレン製グローブはネオブレン製グローブと同程度の機械的強度を有するので、これを使用することによりブチルゴム製グローブの場合と同程度の雰囲気ガス純度を維持できることが明らかとなった。

以上の結果から本装置にはU-Pu混合炭化物系燃料を安全に取扱う上で大きな問題点がないことがわかった。

5. 今後解決すべき事項

(1) GB内圧力の異常変動を阻止するオイルバブラーは、その背圧となる排気ドラフト圧が所定値に常に保持されるときのみ有効であり、圧力変動が予想される場合には圧力制御の見地からマイナスの効果があるので、今後検討されなければならない。

(2) 雰囲気ガス中に可燃性不純物ガスが含まれる場合、セラミック式酸素分析計の測定精度

は大きな影響をうける。また有機性不純物が含まれる場合には精製筒の充填床がいためられる。G B内に搬入される物品にはこの種の物質が含まれるので、今後これらの不純物ガスについてもチャコール床などで除去する必要がある。

(3) クローブ作業をしない場合、グローブポートに気密蓋を装着してグローブと蓋との空間を不活性ガスで完全に置換することは、G B内雰囲気ガスの純度を管理する上からきわめて有効であろう。

6. 48年度購入不活性ガス雰囲気グローブボックス

大洗燃料研究棟の整備計画の一環として48年度で製作をすすめているArガス雰囲気G Bは、U-Pu混合炭化物系燃料の研究に供する試料を調製する一連のものである。これらG Bは上述した試作G Bで得られた知見に基づき、つきのような仕様概要で製作される。なお、Puを安全に取扱うための基本的仕様は第2章で述べたものと同じである。

G B群はArガス雰囲気G B 7台（呼び名：反応、準備、混合、天秤、保存、焼結およびプレス）と物品搬出入専用の空気雰囲気G B 1台（呼び名：エントリー）から構成される。これらG Bはエアーロックおよびブリッジにより連結される。装置の概要をTable 7に示す。G Bの形状と寸法は内装機器と作業内容を考慮して3種類に分けられている。G Bおよびエアーロックの構造は3.1で述べたそれと同じものが採用される。Fig. 21にG Bの配置、循環精製系、圧力制御系および分析系回路の概略を示す。計画初期においては試作G Bと同様にG B 1～2台ごとに循環精製装置、圧力制御装置などを設ける予定であったが、製作費用および設置スペースの制限からFig. 21に見られるようにG B 7台を一体と見なして雰囲気の純度と圧力を制御する方式が採用される。循環精製は並列に2系列に分割されたG Bについて1台の循環精製装置により行われる。圧力制御はG B系列ごとに設けられたON-OFF圧力制御回路、2系列が合流する3インチのヘッダーに設けられたP I圧力制御回路により行われる。G B内圧の大きな異常上昇は、圧力制御用Arガスが異常供給されたとき発生すると考えられる。この理由から、本装置では圧力調節指示計とは別の上限接点付圧力指示計によりG B内負圧破壊を検知して、Arガス供給源を遮断する圧空作動開閉弁が新しく設けられる。Table 8に本装置の主要性能仕様を示す。雰囲気ガス中の除去対象不純物には、酸素、水分のほかに第5章で述べた理由から、有機溶媒および油分が含まれる。なお、上述した以外の仕様は試作G Bのそれとほぼ同じである。

謝 辞

このグローブボックス製作の遂行にあたって指導助力をいただいたプルトニウム燃料研究室長栗原正義氏および熱中性子炉設計班長下川純一博士（前プルトニウム燃料研究室長）に厚く感謝の意を表します。また、我々の製作意図に協力し、設計および製作を担当していただいた日本純水素株式会社甲斐巣氏（前平塚工場長）はじめ関係各位に厚く感謝の意を表します。

は大きな影響をうける。また有機性不純物が含まれる場合には精製筒の充填床がいためられる。G B内に搬入される物品にはこの種の物質が含まれるので、今後これらの不純物ガスについてもチャコール床などで除去する必要がある。

(3) グローブ作業をしない場合、グローブポートに気密蓋を装着してグローブと蓋との空間を不活性ガスで完全に置換することは、G B内雰囲気ガスの純度を管理する上からきわめて有効であろう。

6. 48年度購入不活性ガス雰囲気グローブボックス

大洗燃料研究棟の整備計画の一環として48年度で製作をすすめているArガス雰囲気G Bは、U-Pu混合炭化物系燃料の研究に供する試料を調製する一連のものである。これらG Bは上述した試作G Bで得られた知見に基づき、つきのような仕様概要で製作される。なお、Puを安全に取扱うための基本的仕様は第2章で述べたものと同じである。

G B群はArガス雰囲気G B 7台(呼び名:反応、準備、混合、天秤、保存、焼結およびプレス)と物品搬出入専用の空気雰囲気G B 1台(呼び名:エントリー)から構成される。これらG Bはエアーロックおよびブリッジにより連結される。装置の概要をTable 7に示す。G Bの形状と寸法は内装機器と作業内容を考慮して3種類に分けられている。G Bおよびエアーロックの構造は3.1で述べたそれと同じものが採用される。Fig.21にG Bの配置、循環精製系、圧力制御系および分析系回路の概略を示す。計画初期においては試作G Bと同様にG B 1~2台ごとに循環精製装置、圧力制御装置などを設ける予定であったが、製作費用および設置スペースの制限からFig.21に見られるようにG B 7台を一体と見なして雰囲気の純度と圧力を制御する方式が採用される。循環精製は並列に2系列に分割されたG Bについて1台の循環精製装置により行われる。圧力制御はG B系列ごとに設けられたON-OFF圧力制御回路、2系列が合流する3インチのヘッダーに設けられたP I圧力制御回路により行われる。G B内圧の大きな異常上昇は、圧力制御用Arガスが異常供給されたとき発生すると考えられる。この理由から、本装置では圧力調節指示計とは別の上限接点付圧力指示計によりG B内負圧破壊を検知して、Arガス供給源を遮断する空作動開閉弁が新しく設けられる。Table 8に本装置の主要性能仕様を示す。雰囲気ガス中の除去対象不純物には、酸素、水分のほかに第5章で述べた理由から、有機溶媒および油分が含まれる。なお、上述した以外の仕様は試作G Bのそれとほぼ同じである。

謝 詞

このグローブボックス製作の遂行にあたって指導助力をいただいたブルトニウム燃料研究室長栗原正義氏および熱中性子炉設計班長下川純一博士(前ブルトニウム燃料研究室長)に厚く感謝の意を表します。また、我々の製作意図に協力し、設計および製作を担当していただいた日本純水素株式会社甲斐巖氏(前平塚工場長)はじめ関係各位に厚く感謝の意を表します。

Table 7 Inert atmosphere gloveboxes for the preparation of Li-Pu
mixed carbide pellets

(a) Dimension of gloveboxes

Box type	Operating side	Width × Depth on the floor(ceiling)× Height (m)	Volume (m ³)	Number of port (8inch φ)	Number of window
A	One	1.0×0.8(0.6)×0.95	0.6 6	2	1
B	Both	2.0×1.0(0.7)×0.95	1.6	8	4
C	Both	1.5×0.9 ×2.0	2.7	12	4

(b) Main work in gloveboxes

Name of box	Box type	Working	Main instruments in glovebox
Entry	A	Bag-in and out	
Reaction	B	Feed preparation	Electric tube furnace and high temperature vacuum furnace
Service	A	Service	
Mixing	B	Milling, blending and sieving	Small sized ball mill, blender and sieve
Storage	A	Store of activated samples	Vacuum container
Balance	A	Weighing	Analytical balance (Direct reading)
Sintering	B	Sintering and reaction	High temperature vacuum sintering furnace
Pressing	C	Press of powders	Automatic press

Table 8 The primary specification of the gloveboxes

Item	Specified value
Impurity in argon gas	
① Outlet of purifier	
Oxygen	0.1 ppm
Water (Dew-point)	-76 °C
Oil vapour	Non
Organic solvent vapour	Non
② In glovebox	
Oxygen	2 ppm
Water (Dew-point)	-70 °C
Oil vapour	Trace
Organic solvent vapour	Trace
Effective saturation capacity of purifier	
Oxygen	About 45 ℥
Water	About 50 ℥
Circulation rate through gloveboxes	More than 90m ³ /hr
Pressure in glovebox	-30 ± 20 mmAq
Suction pressure of circulation pump	Less than -1000 mmAq
Leakage	
① Glovebox	Less than 1 lusec
② Other systems	Less than 10 ⁻² lusec

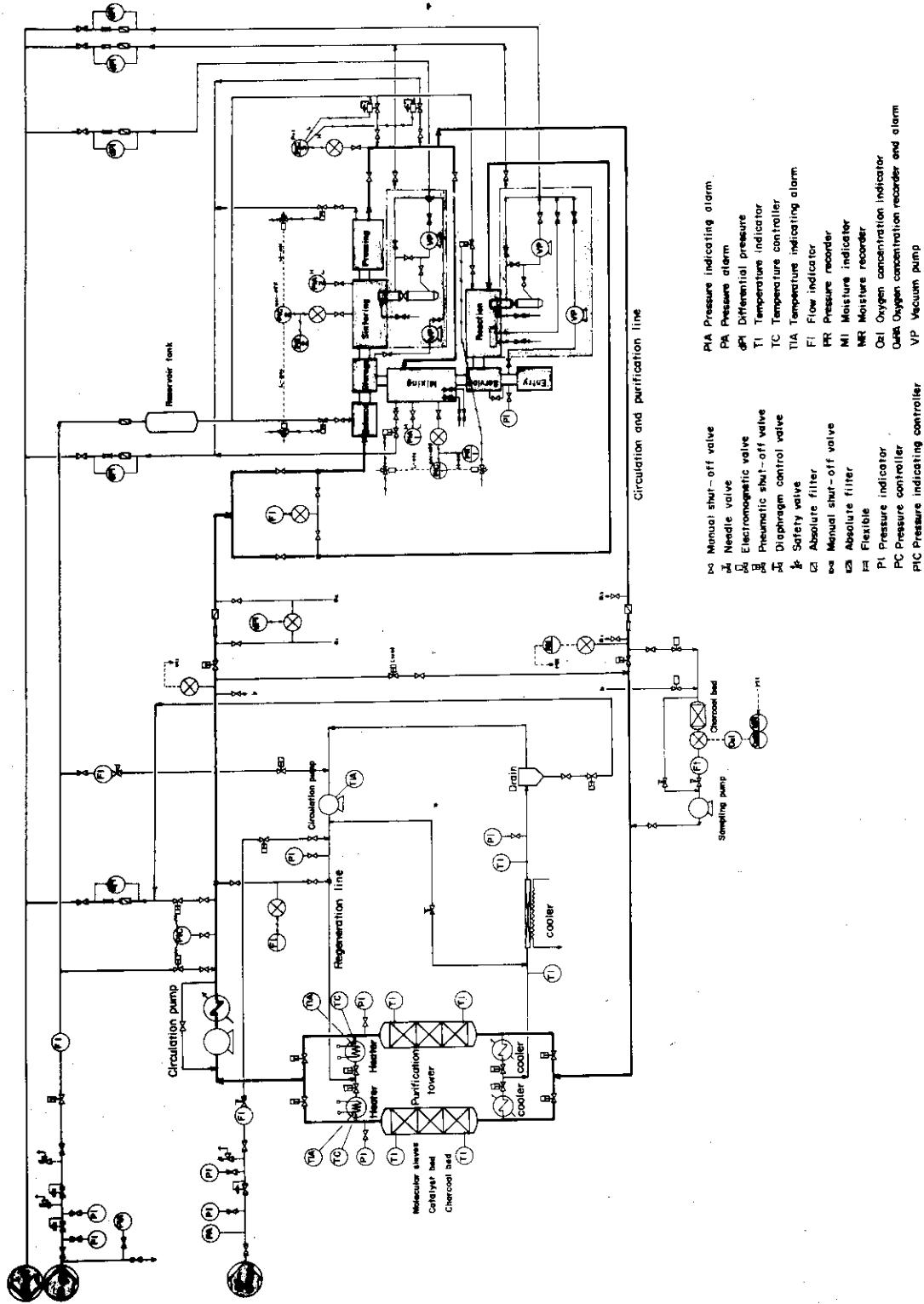


Fig. 21 Flow sheet of inert atmosphere gloveboxes for the preparation of U-Pu mixed carbide pellets

引用文献

- 1) G.N.Walton : *Glove Boxes and Shielded Cells*, p.125(1958),
(Butterworths Scientific Publications, London)
- 2) 三浦幸一郎, 関宏次 : 真空, 14, 286(1971)
- 3) P.A.F.White, S.E.Smith : *Inert Atmospheres*, p.175(1962),
(Butterworths, Washington)
- 4) 工業計測技術大系編集委員会編 : 工業計測技術大系, 10, 7(1965), (日刊工業新聞社)
- 5) 中島敏, 他編 : 真空工学ハンドブック, p.247(1965), (朝倉書店)
- 6) 真空技術常用諸表編集委員会編 : 真空技術常用諸表, p.220, 222(1965), (日刊工業新聞社)
- 7) プルトニウム燃料研究室 : JAERI-memo 3861(1970)
- 8) L.E.Russel, J.D.L.Harrison : AERE-R 4328(1963)
- 9) J.R.McLaren, M.C.Began, H.J.Hedger : AERE-R 4486(1964)
- 10) S.Tsujimura, A.Takahashi, G.Fujisawa : J.Nucl. Sci. Technol., 5 30
(1968)
- 11) 科学技術庁原子力局原子炉規制課編 : 原子炉等の規制の手引き, p.125(1972),
(大成出版社)
- 12) 日本原子力研究所東海研究所編 : 放射線安全取扱手引, p.35(1973)

本試作G Bを製作するに先立って調べた不活性ガス雰囲気G B関係の文献を参考までに以下列記する。

1. M.S.Foster, C.E.Johnson, C.E.Crouthamel : ANL-6652(1962)
2. R.M.Mayfield, W.G.Tope, A.B.Shuck : ANL-6489(1962)
3. W.S.Ginell, M.A.Hiller, L.F.Grantham, T.L.Young : NAA-SR-6488
(1962)
4. A.Zerwekh, W.H.Ashley, C.F.Metz : LA-3109(1964)
5. D.George : AERE-M 1491(1965)
6. J.O.Ludlow, L.F.Coleman, P.A.Nelson, J.H.Schraadt, M.A.Slawecki :
Proceedings of 14th conference on remote systems technology, p.66
(1966)
7. C.E.Johnson, M.S.Foster, M.L.Kyle : Nucl. Appl. 3 563(1967)
8. 田中興治, 秋元勇己 : 日本原子力学会, 核燃料炉材料分科会, A'33, 近畿大 Nov.
2~4(1968)
9. J.Fischer : ANL-7568(1969)
10. J.G.Pack, G.G.Libowitz : Rev. Sci. Instrum. 40, 414(1969)
11. 高橋正雄 : 分析化学, 20 399(1971)

12. CONF-710401

Proceedings of the Rocky Flats Symposium on Safety in Plutonium
Handling Facilities, Golden, Colorado Apr. 13~16(1971), p.69,83,
98

13. P.G.Watson, D.L.G.Rowlands : AERE-R 6856(1971)

14. 半田宗男, 近藤昭憲 : 日本原子力学会年会, G60, 大阪大 Apr. 2~4(1971)