

JAERI-M
7528

Pu炭化物分析試料取扱い用不活性ガス
雰囲気グローブボックス

1978年2月

福島 奨・阿部 治郎・高橋 一郎
前多 厚・渡辺 斉

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.

Pu炭化物分析試料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 奨・阿部治郎[†]・高橋一郎[†]・前多 厚
渡辺 斉

(1978年1月23日受理)

U-Pu混合炭化物系燃料物質の酸素，窒素，炭素分析用試料を取扱うためのアルゴンガス雰囲気グローブボックスを製作した。本装置ではPuを安全に取扱うことに加えて，分析試料を酸素，水分による組成変化なく取扱うために高純度アルゴンガス雰囲気を保持することに重点を置いて設計した。

グローブボックスの酸素，水分漏洩率はそれぞれ 6.1×10^{-4} atm cc/secであった。これら不純物漏洩は主としてハイパロン製グローブ4双からの透過に起因するものであった。グローブボックス雰囲気ガスの純度は酸素，水分ともに1 ppm以下を保持することができた。このグローブボックス内に5時間露出した炭化ウラン粉末では，炭素含有量が 7.5×10^{-3} w/o減少し，酸素含有量が 1.0×10^{-2} w/o増大した。この程度の組成変化は分析精度からみれば無視できる。

現在，ウラン炭化物粉末を用いて試験運転を行っているが，安全性，操作性およびアルゴンガス雰囲気純度について所定の設計仕様を満足していることを確認した。

Inert-Atmosphere Glovebox for Analysis of Pu Carbide

Susumu FUKUSHIMA, Jiro ABE, Ichiro TAKAHASHI, Atsushi MAEDA
and Hitoshi WATANABE

Division of Nuclear Fuel Research,
Tokai Reseach Establishment, JAERI

(Received January 23, 1978)

An argon-atmosphere glovebox was constructed in order to treat samples for analysis of oxygen, nitrogen and carbon in U-Pu mixed carbide fuel. In addition to safe handling of plutonium, the glovebox is designed to maintain the highly pure argon atmosphere in order to avoid the contamination from oxygen and water.

The leak rates of oxygen and water vapor into the glovebox are 1.6×10^{-4} and 3.1×10^{-4} atm cc/sec respectively. These impurities enter the glovebox mainly through four pairs of Hypalon gloves. The purity of argon gas in the glovebox is kept at less than 1 ppm each of oxygen and water. When uranium carbide powder was in the glovebox for 5 hr, the amount of carbon decreased by 7.5×10^{-3} w/o, and of oxygen increased by 1.0×10^{-2} w/o. This composition change is negligibly small for analysis of carbon and oxygen.

Test operation with uranium carbide powder showed that the glovebox satisfy its design specifications of safety, operation and argon gas purity.

Keywords: Inert-Atmosphere Glovebox, Gas Purifier, Pressure Control, Uranium-Plutonium Carbide, Oxygen, Nitrogen, Carbon, Safety Handling, Impurity Leakage, Impurity Analysis

目 次

1. まえがき	1
2. 基本設計条件	3
2.1 グローブボックス本体	3
2.2 循環精製系	4
2.3 圧力制御系	6
2.3.1 グローブボックス	6
2.3.2 循環精製系	7
2.4 分析系	7
2.5 安全警報系	8
2.6 操作系	10
3. 装置	10
3.1 グローブボックス	10
3.2 循環精製装置	11
3.3 圧力制御装置	12
3.3.1 グローブボックス	12
3.3.2 循環精製系	13
3.4 分析装置	14
3.5 安全警報装置	15
3.6 操作盤	17
4. 性能	24
4.1 精製筒	24
4.1.1 精製能力	24
4.1.2 精製容量	24
4.1.3 再生	24
4.2 グローブボックス雰囲気ガス純度	25
4.2.1 グローブボックス内ガス置換	25
4.2.2 循環精製	25
4.2.3 到達純度	26
4.2.4 循環ガス流量と純度との関係	27
4.2.5 物品搬入	27
4.3 グローブボックスの気密度	28
4.3.1 ヘリウムリーク試験	28
4.3.2 酸素漏洩	28
4.3.3 水分漏洩	29

4.3.4	グローブの酸素、水分透過係数	29
4.3.5	グローブボックス圧力の影響	29
4.3.6	相対湿度の影響	30
4.4	循環ガス温度および圧力	30
4.5	グローブボックス内窒素の蓄積	31
4.6	圧力制御特性	32
4.7	グローブボックス雰囲気ガス純度の評価	33
4.8	安全性	34
5.	運転実績	35
6.	結論	51
謝辞		51
参考文献		52

Contents

1.	Introduction	1
2.	Design Philosophy	3
2.1.	Glovebox	3
2.2.	Gas Purification and Circulation System	4
2.3.	Pressure Control System	6
2.4.	Impurity Analyzing System	7
2.5.	Alarm and Interlock System	7
2.6.	Control System	8
3.	Apparatus	10
3.1.	Glovebox	10
3.2.	Gas Purifier and Circulator	11
3.3.	Pressure Controller	12
3.4.	Impurity Analysis Meter	14
3.5.	Alarm and Interlock	15
3.6.	Control Panel	17
4.	Performance Test	24
4.1.	Purifier	24
4.2.	Argon Gas Purity in the Glovebox	25
4.3.	Leakage of the Glovebox	28
4.4.	Temperature and Pressure of Argon Gas under Circulating	30
4.5.	Accumulation of Nitrogen in the Glovebox	31
4.6.	Characteristic of Pressure Control	32
4.7.	Appreciation of Argon Gas Purity in the Glovebox	33
4.8.	Safety	34
5.	Operation	35
6.	Conclusions	54

表 目 次

- 表 1 特殊型HEPAフィルターの性能
- 表 2 グローブボックス圧力制御作動圧力範囲
- 表 3 各種グローブ装着グローブボックス雰囲気ガスの到達純度
(循環精製ガス流量 $30 \text{ m}^3/\text{h}$ 時)
- 表 4 各種グローブ装着グローブボックスの酸素および水分漏洩率
- 表 5 各種グローブ材の酸素および水分透過係数
- 表 6 グローブボックス圧力に対するハイパロン製グローブ装着グローブボックスの
酸素および水分漏洩率
- 表 7 外気相対湿度に対するハイパロン製グローブ装着グローブボックスの水分漏洩率
- 表 8 グローブ破損時のグローブボックス圧力変化およびボックス内空気流入線速度
- 表 9 グローブボックス雰囲気ガスに露出した金属ナトリウムの表面状態
- 表 10 グローブボックス雰囲気ガスに露出した炭化ウラン粉末の重量増加率の比較
- 表 11 グローブボックス雰囲気ガスに露出した炭化ウランの特性値
- 表 12 各種異常に対する警報，インターロックおよび安全効果

目 次

- 図 1 グローブボックス等の配置
- 図 2 運転時のグローブボックス雰囲気ガスの循環および漏洩の関係
- 図 3 グローブボックス本体外観
- 図 4 グローブボックスのフローシート
- 図 5 特殊型 HEPA フィルター
- 図 6 精製筒出口における雰囲気ガスの酸素濃度と循環流量の関係
- 図 7 精製筒出口における雰囲気ガスの水分濃度と循環流量の関係
- 図 8 運転時 (循環ガス流量 $30\text{m}^3/\text{h}$) の精製筒出入口における雰囲気ガスの純度
- 図 9 再生時の精製筒温度の時間変化
- 図 10 ガス置換および循環精製時のグローブボックス内酸素濃度の時間変化
- 図 11 ガス置換および循環精製時のグローブボックス内水分濃度の時間変化
- 図 12 グローブボックス雰囲気ガスの酸素濃度と循環流量の関係
- 図 13 グローブボックス雰囲気ガスの水分濃度と循環流量の関係
- 図 14 物品搬入時のエアロック室内ガス置換過程における酸素濃度の時間変化
- 図 15 物品搬入後のグローブボックス内酸素および水分濃度の時間変化
- 図 16 運転停止後のグローブボックス内酸素濃度の時間変化
- 図 17 運転停止後のグローブボックス内水分濃度の時間変化
- 図 18 グローブボックス圧力に対するグローブボックス内酸素濃度の時間変化
- 図 19 グローブボックス圧力に対するグローブボックス内水分濃度の時間変化
- 図 20 運転時の循環ガスブロワおよび循環ガス温度と循環流量の関係
- 図 21 循環ガス圧力と循環流量の関係
- 図 22 運転時のグローブボックス内窒素濃度の時間変化
- 図 23 グローブ 1 双「出し」操作時のグローブボックス圧力変化
- 図 24 グローブ 1 双「入れ」操作時のグローブボックス圧力変化
- 図 25 通常作業時のグローブボックス圧力変化
- 図 26 グローブボックス雰囲気ガス中に露出したウラン粉末の重量増加率

1. ま え が き

本装置はU-Pu混合炭化物系燃料物質中の酸素、窒素および炭素を化学分析する試料を準備することを目的に製作する。主な分析試料の準備工程は試料の採取、粉碎、秤量、キャプセル内への密封および一時保管である。

Puは毒性がきわめて高い α -放射性物質(最小身体負荷量 $0.64\mu\text{g}$)であるので、作業者を内部被曝から防護するため作業環境に対して常時負圧に維持した包蔵性のよいグローブボックス(以下GBと略す)内で取扱わなければならない。また、U, Pu炭化物系物質は化学的にきわめて活性な物質であるので、GBの雰囲気は不活性ガスが望ましい。とくに、粉末は室温においても雰囲気ガス中の微量の酸素、水分によって容易に酸化および加水分解反応を起し、組成変化する。

以上の理由から、主成分元素である炭素、窒素および燃料製造工程で混入する主不純物元素の酸素を化学分析する試料を取扱うGBでは雰囲気ガスの純度が重要になる。このため分析試料の調製および化学分析は同一高純度雰囲気ガス中で一環してすすめるのが理想と考え、酸素、窒素、炭素分析装置は不活性ガス雰囲気GB内に組込むことで検討をすすめた。その結果、つぎのような問題点が明らかになった。

- ①不活性ガス雰囲気GB内に組込む分析装置は必要最小構成部のみに限定することが高純度雰囲気ガスを維持するうえで理想である。このためには、市販の規格品装置を大巾に改造する必要がある。
 - ②分析装置とGBとの気密構造上のとり合い部分が多くなり、GBの高気密維持が困難になる。
 - ③GBの大型化、数量の増大および付帯設備の大型化を招くため、製作費および維持費が増大する。
 - ④雰囲気ガスを汚染する恐れのある化学薬品等が使用できないため分析方法に制約がある。
- 上記問題点の解決策として、つぎの方法を採用することにした。
- ①分析試料は高純度不活性ガス雰囲気GB中で調製したあとキャプセル内に密封する。
 - ②分析装置は空気雰囲気GB内に組込む。
 - ③①, ②のGBは互にエアロック室を介して連絡するか、あるいは近傍に設置する。
 - ④分析試料は分析GBに移したあと、キャプセル密封のまま化学分析する。

この方法は、つぎの理由から有効であると判断した。

- ①分析試料は白金、錫製の小型キャプセル内に圧封方式により容易に密封できる。圧封部の気密度はヘリウムリークディテクターの最小検出感度(1×10^{-9} atm cc/sec)以下であった。これは空気中でキャプセル内に漏洩する酸素、水分による試料の組成変化が無視できる気密度である。
- ②分析装置は空気雰囲気GB内に組込むことにより大巾な改造がなくなる。また、GBとの気密構造上のとり合いが少くなる。
- ③試料はキャプセル内密封のまま化学分析しても分析精度上とくに問題がない。

④分析試料の調製作業には標準型寸法(床1m×2m)の不活性ガス雰囲気GB 1台で十分である。これは設備費と維持費の軽減になる。

本装置の設計、製作にあたっては、不純物(酸素、水分)による分析試料の組成変化を阻止して分析精度を高めるため高純度雰囲気ガスを得ることとそれを長時間連続維持することに重点をおいた。また、Puの包蔵性、安全性、操作性についても昭和47年および49年度にそれぞれ設計、製作した試作GB¹⁾および調製GB²⁾の仕様、性能を基に検討した。

GB雰囲気ガスはアルゴンガスとし、その純度は循環精製方式により維持する方法を採用した。その結果、GB 1台に循環精製装置などの付帯設備1式を付設することになるため製作費は増大したが、きわめて高い純度の雰囲気が短時間内に得られ、その雰囲気を長時間維持できる利点がある。

本報告は装置の基本設計条件、装置概要および各種性能について報告したものである。

2. 基本設計条件

本装置は大別するとGB本体，循環精製系，圧力制御系，分析系，安全警報系および操作系から構成される。これら構成各系の基本設計条件および仕様は以下のように決定した。

2.1 グローブボックス本体

(1) 内装機器

GB内に格納する機器は，油圧式小型キャプセル圧封装置，精密直示天秤（秤量範囲 1×10^{-4} ~ 200g，最小感度 1×10^{-4} g），TIG溶接機トーチ部および回転式試料ポジショナーである。これら機器はいずれも一体構造でGB内に格納するので，GB本体とのとり合いは電気およびガス導入のためのGB壁面での中継のみである。

(2) 構造

気密構造には高气密性を得るため真空規格を適用する。一方，作業性を確保するため窓は所定の気密を確保できる範囲で大きくする。この条件を満足するGB構造として使用実績があり，とくに問題がないことが確認された調製GB²⁾と同じ構造を採用する。

一般に，GBに耐真空構造強度をもたせて真空排気装置を付設することは，循環精製運転開始前のGB内ガス置換において真空排気後ガス置換ができるためガス置換所要時間が短くなる。また，真空排気によりGB内表面吸着不純物ガスが脱ガスされるため循環精製過程でGB内雰囲気ガスが最高純度に到達する時間も短くなる。しかしながら，本装置においてはつぎの理由から耐真空構造のGBを採用しない。

- ① 耐圧 $\pm 1 \text{ kg/cm}^2 \text{ G}$ を得るためにはGBの形状をタンク型または外壁を補強する必要がある。さらに窓の大きさを縮小しなければならない。これは作業性を大きく悪化させる結果になる。
- ② GB内高汚染雰囲気ガスを直接排気するため，真空排気装置内部の高汚染を招くことになる。この結果，真空排気システムの安全管理が重要になる。
- ③ GBは長時間循環精製運転が可能であるので，GB内ガス置換頻度は少ない。
- ④ 製作費および機器設置床面積の増大を招く。

以上の理由から，本GBでは循環精製運転開始前のGB内ガス置換はOnce-through方式のみによるものとする。

(3) 気密性

GBの気密度は雰囲気ガスを高純度に維持するうえで重要な因子であり，Puを包蔵するために規定されているPu取扱用空気雰囲気GBの気密度（0.1 Box Vol%/h以下）を大きく上回らなければならない。このためGBは可能な限り溶接組立て構造とし，ガスケット部には真空規格を適用する。GBの気密度は装着グローブのガス透過による漏洩を除き $1 \text{ } \mu\text{sec}$ ($1.3 \times 10^{-3} \text{ atm cc/sec}$)以下にする。これは大型真空容器で許容されている最大漏洩率である。一方，グローブの透過によるGB内への不純物ガス漏洩は2.2(4)で述べるようにGB本体の漏洩に比べて大き

い。このためグローブポートは必要最小限の4双（8インチ）にする。

(4) 型式および寸法

作業内容および内装機器の大きさ、操作性を考慮して、GBは両面操作の箱型とし、その床面の大きさは巾2m×奥行1mとする。操作面は垂直面に対して傾斜させ、窓からのGB内覗き視野を確保する。

(5) 配置

GBは図1に示すようにエアロック室を介して酸素、窒素分析用空気雰囲気GBを経由して行うため、とくに物品搬出入専用GBを必要としない。

(6) エアロック室

GB内へ搬入する物品のガス置換はエアロック室で行う。エアロック室における搬入物品のガス置換方法には、「真空排気後ガス置換」と「Once-through方式のみによるガス置換」がある。一般に、前者は後者に比べガス置換所要時間が短い。しかしながら、調製GBで実施した物品搬入試験において「真空排気—ガス置換」操作と大きなガス流量の「Once-through方式によるガス置換」との間に顕著な差は認められなかった。²⁾また、「真空排気—ガス置換」操作では前述したように安全管理が重要になる真空排気装置を付設する必要がある。

以上の理由から、本GBでは搬入物品のガス置換は「Once-through方式のみによる」ことに決定した。

2.2 循環精製系

(1) 循環

雰囲気ガスは冷却付帯設備を必要としない空冷式循環ブロワにより循環する。循環ガス流量はGBの漏洩率と同様に雰囲気ガスの到達純度を決定する重要な因子である。

図2に示すように、循環精製により雰囲気ガス純度が平衡に達したGBにおいてGB内既存雰囲気ガス、循環ガスおよび漏洩ガスがGB内で完全混合すると仮定すると、雰囲気ガス純度は次式で与えられる。¹⁾

$$C = \frac{C_I I + C_L L}{I + L} \quad (1)$$

ここで、 C = GB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 = 漏洩ガス中の注目不純物濃度

L = GBの漏洩率

である。

(1)式から循環精製ガス流量を大きくしてGB内雰囲気ガスを希釈することは高純度雰囲気ガスを得るうえで有効である。一方、循環ガス流量をむやみに増大することは、つぎのような問題点を生じるので得策でない。

- ①循環ポンプが大型になり、強制冷却が必要になる。
- ②循環ガスの圧損失が増大するため2.3.1で述べるように系の負圧管理が難しくなる。
- ③精製筒充填剤による最適精製条件のレイノルズ数 (Reynolds number) を得るためには、精製筒の寸法を大きくする必要がある。
- ④GB内循環ガスの線速度が増大し、粉末状試料が飛散する恐れがある。

以上の長短所および④項で推算するGB雰囲気ガス到達純度を考慮して、本装置では循環精製ガス流量を約 $30 \text{ m}^3/\text{h}$ にすることに決定した。

装置の小型化を図るため循環精製系回路の主配管は40A(呼び径)以下にする。配管径の制限によって循環精製系回路の循環ガス圧損失が増大するために循環ガス圧力が増大し、正圧領域が生じることが計算によって確められた。このためにもGBの出入口にHEPAフィルターを設けて循環精製系へのPu汚染移行を阻止する。しかし、極く小さいPu粒子はフィルターを透過する可能性もあるので、さらに系の気密度および耐圧強度をそれぞれ $1 \times 10^{-5} \text{ atm cc/sec}$ 以下、 $\pm 1 \text{ kg/cm}^2 \text{G}$ 以上に高めてPuの包蔵性を十分に確保する。また、正圧が推定される領域の配管溶接部は放射線透過試験(検査基準JIS2級以上)により全線確認する。

(2) 精 製

循環ガス中の精製対象不純物は酸素、水分および油分または有機溶媒である。雰囲気ガス中に混入する窒素はつぎの理由により考慮しない。

GB雰囲気ガス中に混入する窒素は循環精製開始前のガス置換時に残留したものおよびその後の運転でGB外から漏洩したもの等である。本GBとほぼ同じ気密構造の試作GBで測定された漏洩によるGB内窒素蓄積速度は約 2.7 ppm/h であった。¹⁾ これからGB内ガス置換で雰囲気ガス中の初期窒素濃度を小さくすることによりGB内窒素は長時間低濃度を維持できることが推測される。一方、Russelら³⁾、McLarenら⁴⁾によると低窒素濃度(300ppm以下)不活性ガス雰囲気中、室温では粉末状U、Pu炭化物と窒素との反応はほとんど無視できる。

不純物ガスの精製温度は長時間連続運転中の安全維持を考慮して室温にする。精製能力は精製筒入口で酸素、水分濃度それぞれ10、50ppmの循環ガス(流量 $30 \text{ m}^3/\text{h}$)を筒出口で酸素、水分ともに1ppm以下に精製できるものとする。精製筒1基あたりの精製容量は上記精製能力を48時間以上維持できるものとする。これは酸素15ℓ以上、水分60g以上除去できることに相当する。精製筒は並列に2系統備え、そのうち1系統は常時予備として待機させることにより連続循環精製運転を可能にする。

(3) 再 生

精製筒は再生可能方式とし、再生所要時間は精製容量が破過点近くに達した精製筒を引続き予備として待機させるため24時間以内にする。再生温度はできるだけ低温とし、また再生ガスにはアルゴン+8%水素混合ガスを使用して安全を確保する。

(4) 純 度

循環精製で平衡に達したGB雰囲気ガスの純度は、(1)~(3)で述べた設計諸条件を用いて(1)式から推算できる。今、Pu取扱い用として市販されているグローブのうちガス透過度が最も大きいといわれているネオプレン製グローブ(公称厚さ0.4mm)を装着した場合について、その到達純度を計算するとつぎのようになる。

ネオプレン中の酸素、水分透過係数はハンドブック^{5,6)}に散見されるが、ここでは文献5) (酸素、水分透過係数は25°Cにおいてそれぞれ 3.0×10^{-8} , 8.8×10^{-7} Torr \cdot cm/cm² sec atm) から引用した。室温25°C、相対湿度50%のときグローブ1本あたりの酸素、水分透過量はそれぞれ2.1cc/h, 9.2cc/hである。また、GB本体からの酸素、水分漏洩量はそれぞれ1.0, 0.1cc/hである。したがって、(1)式から、循環ガス流量30m³/h (酸素、水分濃度ともに1ppm以下)のときのGB内到達酸素、水分濃度はそれぞれ1ppm以下、2.5ppm以下と算出される。

2.3 圧力制御系

2.3.1 グローブボックス

(1) 圧力制御範囲

Puを包蔵するためGB本体およびPu汚染の可能性のある系は、常時大気圧に対して負圧に維持しなければならない。さらに、操作性を考慮した場合のPu取扱い用GBの最適使用圧力範囲はおおよそ-10~-80mmAqと⁷⁾言われている。しかも、使用圧力は圧力外乱に対する変動巾が小さいほど操作性が優れている。

GBおよび循環精製系は完全な密閉構造のため、グローブ操作あるいは温度変化によりGB圧力は大きく変化する。とくにグローブ操作はGB内容積を大きく変えることになるため圧力変化が大きい。また、その変化量はGB内容積が小さくなるにしたがって増大する。たとえば、グローブ1双の「出し」または「入れ」操作をした場合、グローブ1双の内容積が約32ℓであるから本GB (内容積は約1.6m³)内では設定圧力に対し約 ± 200 mmAqの圧力変化をすることになる。またGB内温度変化 $\pm 1^\circ\text{C}$ に対しGB圧力は約 ± 35 mmAq変化する。したがって、作業時は勿論のことグローブ操作をしない時においても、GB圧力は適正圧力範囲を大きく超える可能性が十分にあるので、圧力制御が必要になる。

本装置のGB保持設定圧力および許容圧力変化は燃料研究棟でPu取扱いGBに規定している-30mmAq, ± 20 mmAqにする。この許容圧力変化 ± 20 mmAqはGB内容積変化としては僅か ± 3 ℓに相当する。

(2) 圧力制御方式

前述したようにGBの許容圧力範囲が予測される圧力変化に対してきわめて小さいため応答性が速く、しかも信頼性の高い圧力制御方式を採用する必要がある。そこで、本装置ではOPEN-CLOSE制御とPI制御を組合せた独立回路でGB雰囲気ガスを直接給排気することによりGB圧力を制御する方法を採用する。この方法は試作GB、調製GBでその性能および信頼性が十分に確認された圧力制御方式である。

定常時における最大圧力変動の原因はグローブ操作である。グローブ操作の中でも作業者がグローブを装着あるいは脱着するためグローブをGB内に押入れあるいはGB外へ引抜くとき、圧力変化およびその変化速度はともに最大になると考えられる。したがって、このようなグローブ操作を基準に最大圧力制御容量および応答速度は決定されなければならない。一般に、作業者がグローブを装着あるいは脱着するための所要時間は2, 3秒である。

本GBの圧力制御設計条件として2秒間でグローブ1双(内容積約32ℓ)をGB内に「入れ」またはGB外へ「出し」操作をしたとき、GB圧力が $-30 \pm 20 \text{ mmAq}$ の範囲内にあるものとする。このためには、GB雰囲気ガスを流量約 $58 \text{ m}^3/\text{h}$ で給気あるいは排気することが必要であることが、計算から求められる。

2.3.2 循環精製系

循環精製系はそのGB出入口にHEPAフィルターを設置して、系内へのPu汚染移行を防止する。さらに安全を考慮した場合、GBを除く系においても負圧で管理して系外へのPu漏洩を防止するのが理想である。しかしながら、GB圧力を -30 mmAq に維持し、しかも2.2(1)で述べた性能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80A以上(呼び径)の配管とこれに相当するバルブ類で構成しなければならないことが圧損失計算から推定された。この結果は装置の大型化と製作費の増大を招き、非実用的である。この理由から本系回路は40A以下(呼び径)の配管とそれに相当する部品で構成する。このために系に正圧領域が生じることは許容するが、最小範囲にとどめ、その最大圧力は $+1000 \text{ mmAq}$ 以下とする。

GB経由回路で雰囲気ガスを循環したとき系の圧力はGBの圧力制御に支配されると考えられるが、GBバイパス回路で運転するときあるいは停止したとき系は完全密閉になる。したがって、温度変化に伴って系に圧力変動が起る可能性があるため、本系にもOPEN-CLOSE制御方式の圧力制御を1系統設ける。

2.4 分析系

酸素、水分に対してきわめて活性なU、Pu混合炭化物系燃料物質の分析試料を安全にしかも組成変化なく取扱うためには、GB雰囲気ガスの純度を常時知る必要がある。分析対象不純物は酸素と水分である。ネオプレン製グローブを装着したときの本GB雰囲気ガスの推定到達純度は酸素1ppm以下、水分2.5ppm以下である。このような微量酸素、水分濃度を簡便に、しかも長時間連続測定する必要がある。

分析位置は酸素、水分ともに循環精製系の精製筒出口、GB出口およびエアロック室内の3個所について任意に選択できる。エアロック室内の測定によって搬入物品のガス置換進捗状況も確認できる。

2.5 安全警報系

(1) フィルター

Puの包蔵は安全管理上欠くことのできないものの1つである。本装置ではPu汚染系の気密保持と負圧管理のほかにGBに連がる循環精製、圧力制御、分析各系の出入口にHEPAフィルターを設けて、系へのPu汚染の移行を阻止する。

(2) 警報

本装置で考えられる最大事故はPuの系外漏洩と火災である。このような事故の誘因となる直

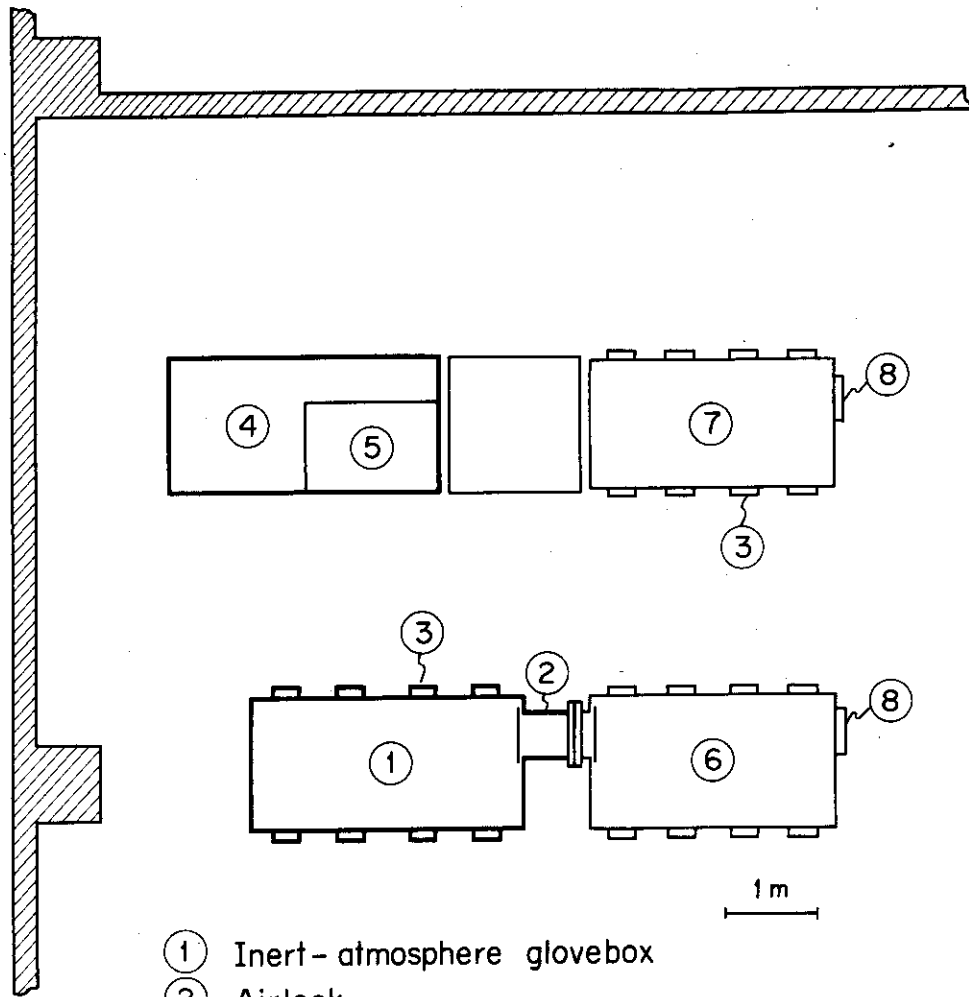
接あるいは間接的異常現象の発生はすべて直ちに電気的あるいは機械的に検知して、電気信号により通報する。

(3) インターロック

異常現象発生時の安全対策および2次的事故誘発の防止対策は不可欠である。この目的のため本装置では可能な範囲でインターロック等の対策を講じる。

2.6 操作系

本装置は構成系およびガス流路系が多いため操作が複雑化する恐れがある。一方、操作を自動化し、装置全系の運転状況が一見して把握できることは安全運転の見地からきわめて有効である。この目的から本装置では自動操作方式を採用し、操作系を一つのパネルにまとめる。



- ① Inert-atmosphere glovebox
- ② Airlock
- ③ Gloveport
- ④ Gas purifier and circulation blower
- ⑤ Control panel
- ⑥ Air glovebox for oxygen and nitrogen analyses
- ⑦ Air glovebox for carbon analysis
- ⑧ Bag-port

図1 グローブボックス等の配置

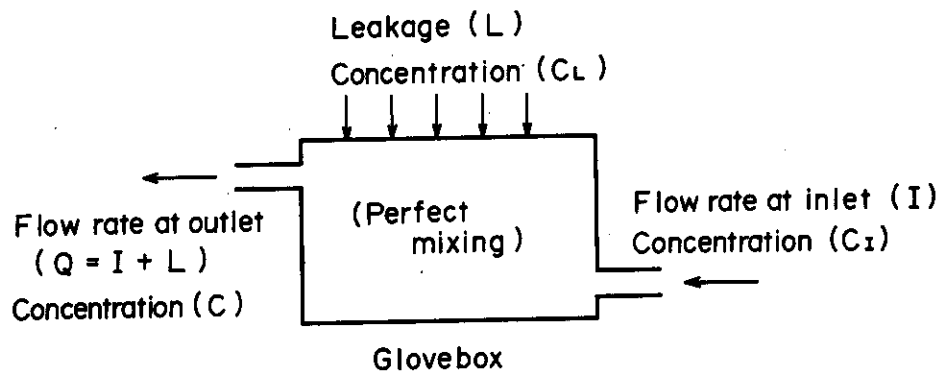


図2 運転時のグローブボックス雰囲気ガスの循環および漏洩の関係

3. 装 置

3.1 グローブボックス

(1) グローブボックス

GBは図3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。GBの外形寸法は巾2000mm, 床奥行1000mm, 天井奥行700mm, 高さ950mmで, その内容積は約1.6 m^3 である。GB本体は厚さ5mmの磨きステンレス鋼板(SUS304)の冷間成型およびTIG溶接によって製作している。折曲げおよび角隅部分は半径50mmの角とりをすることによって循環ガスの滞留を阻止し, さらに掃除, 汚染除去作業が容易なように考慮している。GB内表面は不純物ガスの吸着を極力少くするために400番のパフ研磨によって鏡面仕上げをしている。

窓は厚さ10mmの透明アクリル板を, GB本体に溶接でとりつけた窓枠の角溝に自緊式ネオプレンガスケットを介して取付けたもので, その大きさは730mm \times 400mmである。窓の数は片側操作面各2面である。

グローブポートは8インチグローブ用で, GB本体に溶接でとりつけたステンレス鋼(SUS304)製である。ポートにはグローブを装着するためのOリング溝3本と金属バンド締付部を設けている。さらに, 外側表面もパフ研磨による鏡面仕上げをすることによりグローブとの密着性をよくしている。グローブの数は両操作面合せて必要最小限の4双である。また, GB作業をしないときグローブからの不純物ガス(酸素, 水分など)の透過を抑えるため, ステンレス鋼(SUS304)製蓋を備えている。蓋はグローブの上からポートに装着でき, グローブと蓋との間をガス置換できるように2個のガスノズルを設けている。

循環ガスとGB既存雰囲気ガスが完全混合するようにGB内床右隅と天井左隅の奥行方向にそれぞれガス拡散器とガス捕集器を設置している。これらは循環精製系回路と同じ呼び径40Aのステンレス鋼(SUS304)製管(長さ600, 800mm)に床面あるいは天井面と側壁面の2方向に20~30cm間隔で約6mm ϕ の孔をあけた構造である。拡散器の小孔群から吹出した循環ガスが床面と側壁面に衝突して乱気流になりGB内に拡散し, 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込まれることによってガス置換が効果的に行われる。

GB側壁には内装機器等に供するガス給排用ノズル(10mm ϕ , ベローシールバルブ付)3個および電源, 電気信号用ハーメチックシール型電流導入端子5個を設けている。さらに, 盲蓋付予備口(2インチ ϕ)3個を付設している。また, GB内には吊下げ式ステンレス鋼(SUS304)製棚(250mm \times 550mm)を1式天井から設置している。

(2) エアロック室

エアロック室は本GBと隣接する酸素, 窒素分析用空気雰囲気GBとの間に設け, その両端は両GB側面に溶接でとりつけている。しかし, 将来の撤去切離しを考慮して中央付近でOリングフランジ合せ接続としている。寸法, 形状は内径300mm, 長さ500mmの円筒状をした耐真空構造である。室内には搬出入物品の移動を容易にするためにスライド式移動テーブル(285mm

×500mm)を設けている。両GB内側エアロック室の蓋は、ハンドル付2点固定の中心でステンレス鋼円板(厚さ10mm)をOリングフランジに抑えこむ構造のカウンターウェイト式扉のものである。室内左上と右下の位置に、搬入物品をOnce-through方式でガス置換するためのガス導出入口(20mmφ)を設け、それぞれ排気ダクトおよびGB本体に連結している。したがって、ガス置換ではGB雰囲気ガスをエアロック室内に直接導入し、室内を通過したあと排気ダクトに直接排気する。

3.2 循環精製装置

(1) 構成

循環精製系は図4に太線で示すように並列に2系列組込んだ精製筒、循環ポンプ、ガス流量計、特殊型HEPAフィルター、手動・自動操作式バルブおよびこれらを連結する配管(SUS304、呼び径40A)などから構成されている。精製筒にはさらに加熱器、再生ガス予熱器、再生、冷却ガス給排気回路、ガス冷却器などから構成される再生系が組込まれている。これら系は経年劣化による気密度の低下を避けるため、さらに循環回路の一部に正圧領域が予測されるので一部を除きTIG溶接により組立てている。定常運転ではGB雰囲気ガスは循環ガスブロワによりHEPAフィルターを経て精製筒内に導入され、不純物除去後HEPAフィルターを経て再びGB内に送りこまれる。このGB循環回路のほかにGBに対してバイパス回路を設けている。

(2) 循環ポンプ

循環ポンプは本装置のなかでも重要な構成部の一つで、長時間連続運転に対する耐久性が要求される。本装置では調製GBで耐久性(積算稼動時間 7.5×10^3 h以上)が十分に実証された渦巻型ボルテックスブロワを使用した。このブロワはそのケーシングの気密度に難があるため、さらにステンレス鋼(SUS304)製円筒型ケース(400mmφ×360mm)内に収納し溶接で密封している。ケース内ブロワは自己循環ガスで冷却されるような構造が採られている。

一般に、循環ガス流量は、試作、調製GB^{1,2)}でも採用したように循環ガスブロワに対してニードルバルブ付バイパス回路を設け、そのバルブの開度調節により調節する方法が採られる。しかし、この方法では、循環ガスブロワで加熱された循環ガスの一部をブロワ吸込側に戻し再びブロワ内に導入する循環の繰返しになるため、ブロワと循環ガスが増々温度上昇する。このためブロワと循環ガスを新たに冷却する設備が必要になり好ましくない。このような理由から本装置では循環ガスブロワに対してバイパス回路を設けていない。循環ガス流量は循環回路GB入口に設けている手動バルブの開度調節で、回路内循環ガスの圧損失を変えることにより調節する。循環ガス流量測定には、浮子式流量計に比べ圧損失が小さくしかも堅牢な空気式差圧発信型の流量指示計(測定範囲 $0 \sim 40\text{m}^3/\text{h}$)を使用している。

(3) 精製筒

精製筒はステンレス鋼製(SUS304)円筒型で、その寸法は200mmφ×950mmである。筒内には有機溶媒、油分を除去するための活性炭、酸素をニッケル表面に吸着した水素と反応させ水分にして除去する粒状ニッケル、水分を除去するモレキュラシーブが充填されている。これらの筒内充填順序は循環ガスの流れに対して活性炭床、ニッケル床およびモレキュラシーブ床で

ある。有機溶媒、油分は定常作業では使用しないが、内装機器に使用されているものが蒸発し雰囲気ガス中に混入することが考えられる。このような有機性不純物は粒状ニッケル床を劣化させる恐れがあるので除去する必要がある。

(4) 特殊型 HEPA フィルター

循環回路の GB 出入口に設け循環精製系への Pu 汚染の移行を防止する HEPA フィルターは、外系に対して所定の気密度 (1×10^{-5} atm cc/sec 以下) と耐圧構造 ($\pm 1 \text{ kg/cm}^2 \text{G}$) を有しなければならない。また、捕集効率は 0.3μ の粒子に対し 99.97% 以上あり、しかも系の圧力管理上所定の循環ガス流量 (約 $30 \text{ m}^3/\text{h}$) に対し圧損失が小さいほど好ましい。フィルターはクロズド法により容易に交換できることも重要である。

以上のような目的に合致する HEPA フィルターは市販されていないため、特別に設計し、製作した。フィルターとその取付け部の構造を図 5 に示す。フィルターは円筒型 HEPA フィルターをステンレス鋼 (SUS 304) 製円筒型ケース ($315 \text{ mm}\phi \times 340 \text{ mm}$) 内に設置したあと溶接で密封したもので、その諸性能は表 1 に示すとおりである。取付け部はフィルター交換時の Pu 汚染を包蔵するためビニールバックで囲めるようにフィルター側と取付け相手側にバック装着構造部を設けている。また、フィルターの接続は O リングフランジ合せ構造で、予めビニールバック内に準備した専用治具によりバック外側からクロズド法により容易にフィルターの着脱ができるよう考慮している。

フィルターの目詰り度合を測定する差圧計には、ダイヤフラム式に比べて気密性、耐圧性が優れた空気式差圧発信型を採用している。

(5) 再生

精製能力が破過点近くに達した精製筒はアルゴン + 8% 水素混合ガスとアルゴンガスを使用して再生する。これらガスは循環精製運転のときの逆方向で筒内を通過したあと排気ダクトへ排出される。再生工程は、先ず外熱型ヒータで 300°C に加熱した精製筒に同じく 300°C に予熱した再生ガス (混合ガス) を流量 $3.5 \text{ m}^3/\text{h}$ で 5 時間流す。この場合、モレキュラシーブ床では水分の放出、ニッケル床では水素の吸着、活性炭床では有機性不純物の放出が起る。ついで、加熱、予熱ヒータは断となり、筒内残留水素置換と筒冷却を兼ねてアルゴンガスを流量 $3.5 \text{ m}^3/\text{h}$ で約 19 時間流す。筒内通過で加熱された再生および置換、冷却ガスは蛇管式放熱型ガス冷却器で室温付近まで冷却されたあと、ドレーン分離機と HEPA フィルターを経て排気ダクトに排出される。

以上述べた再生各工程は予めプログラムされており、再生開始スイッチ操作のみで再生が行われる。一方、プログラムは再生状況に応じて手動操作により任意に変更できる。とくに、筒内置換および冷却時間は約 10 時間で十分であることが確認された。

3.3 圧力制御装置

3.3.1 グローブボックス

(1) グローブボックス本体

GB 圧力は図 4 に示すような OPEN-CLOSE 制御回路と PI 制御回路の組合せで GB 雰囲気ガスを直接給排気することにより、 $-30 \pm 20 \text{ mmAq}$ の範囲内に制御される。このために PI 制御

とOPEN-CLOSE制御の作動圧力範囲は表2に示すように設定している。まず、設定圧力 -30mmAq に対し $\pm 20\text{mmAq}$ を超える圧力変動は、OPEN-CLOSE制御で $\pm 20\text{mmAq}$ の範囲内に抑える。ついで、PI制御により設定圧力 -30mmAq に戻す。

GB圧力変化の検出には堅牢で信頼性のある空気式差圧伝送器を使用している。すなわち、GBの圧力変化を設定圧力 -30mmAq に対する偏差として検出し、この圧力変化を空気圧信号($0.2 \sim 1.0\text{kg/cm}^2$)に変えて圧力調節計に伝送する。圧力調節計にはPI制御においては調節動作がPI(比例、積分)型の空気式、OPEN-CLOSE制御においては上下限警報付空気式を採用している。また、PI制御では流量特性がイコールパーセント型の空気操作式アナログ弁、OPEN-CLOSE制御では空気操作式開閉弁によりGB雰囲気ガスの給排気量を調節する。

圧力制御用供給ガスには液化アルゴンから気化した高純度アルゴンガス(酸素濃度 1ppm 以下、水分濃度 2.5ppm 以下)を使用している。したがって、供給アルゴンガスがGB雰囲気ガスの純度に悪影響を与えることはほとんどない。一方、GB雰囲気ガスは排気ダクト圧力($-120 \sim -150\text{mmAq}$)を利用して排出する。

圧力制御給気回路には急激なGB圧力減少に対しても瞬時に変化相当量のアルゴンガスを供給できるようにアルゴンガスを貯蔵するための圧力調節タンク($300\text{mm}\phi \times 900\text{mm}$)を設けている。これは同回路に設けられている圧力調節弁などのガス流量抵抗が大きいため、タンクはGBに最も近いGB下に設置している。タンク内容積はグローブ1双の内容積(約 64ℓ)相当のアルゴンガスを瞬時供給したあとにおいても圧力約 $0.05\text{kg/cm}^2\text{G}$ のガスが残るよう決定している。

上述したように、本装置は空気雰囲気GBに比べて複雑な圧力制御機構を採用している。このため、GB圧力を常時記録することは圧力制御系の作動状況を判断するうえで有効であると考えられ、空気式小型記録計を設けている。

GB経由回路で循環精製運転を始める前にGB雰囲気ガスは所定の酸素濃度(20ppm 以下)になるまでOnce-through方式でアルゴンガス置換する必要がある。この場合、置換用アルゴンガスはOPEN-CLOSE圧力制御給気回路の自動開閉弁を手動で開くことによりGB内へ導入する。置換ガスは排気側のPI制御とOPEN-CLOSE制御の組合せにより $-30 \pm 20\text{mmAq}$ の圧力範囲内に調節されながら排気ダクトに排出される。しかしながら、導入ガス流量はPI圧力制御作動範囲内で選ぶのがGBの圧力変動を小さくするうえで理想である。

(2) エアロック室

エアロック室は定常時および搬入物品のガス置換時においては、つぎのような負圧管理が行われる。

- ① 定常時は常時本GB側扉を開放しているので、圧力は $-30 \pm 20\text{mmAq}$ の範囲内にある。
- ② 物品搬入時の置換ガスはGB(圧力 $-30 \pm 20\text{mmAq}$)から導入し排気ダクト(圧力 $-120 \sim -150\text{mmAq}$)へ排出されるので、エアロック室圧力は $-10 \sim -150\text{mmAq}$ の範囲を超えることはない。

3.3.2 循環精製系

(1) 循環精製系

循環精製系は3.2(4)で述べたように系のPu汚染を防止するためGB出入口にHEPAフィルター

を設けているし、さらに耐圧 ($\pm 1 \text{ kg/cm}^2\text{G}$)、高気密 ($1 \times 10^{-5} \text{ atm cc/sec}$ 以下) 構造である。しかも、GB 経由循環精製運転時の圧力変動は GB の圧力制御に吸収される。したがって、GB 循環回路で循環精製しているときの圧力変動はその安全を十分に確保していると考えられる。しかし、GB バイパス回路での循環精製運転時および停止時は系が完全密閉になるので、系内圧力は温度変化に伴って変化する。この圧力変化を調節し、さらに GB 回路で循環運転時の GB 圧力制御を二次的にバックアップする目的から本系に OPEN-CLOSE 圧力制御回路を 1 系統設けている。圧力制御および圧力検出位置は循環精製運転時のガス圧力が最大になる循環ブロウ吐出部である。圧力検出は上下限接点付ダイヤフラム式圧力指示計で、その警報信号で空気操作式自動開閉弁を作動させて系内雰囲気ガスを直接給排気する。本系圧力変動の原因を考慮すると、圧力制御容量および応答性は GB のそれに比べて小さくてよいので、制御弁および配管等には $15 \text{ mm}\phi$ を使用している。

2.2(1)で述べたように装置の大型化を避けるなどの理由から循環精製回路を 40 A (呼び径) に制限したため循環ガスの圧損失が増大し、循環時の系に大気圧に対し正圧領域が生じる。しかし、この正圧領域を最小範囲にとどめるため、循環ガスブロウは精製筒の後側に設置している。この結果、循環精製運転中の正圧領域は循環ガスブロウ吐出口から GB 入口側 HEPA フィルターまでの約 4 m と推算された。その他の領域 (GB-精製筒-循環ポンプ吸引口) は大気圧に対し負圧である。

(2) 再生系

精製筒再生時は筒内に再生ガスと置換、冷却ガスを加圧 (約 $0.3 \text{ kg/cm}^2\text{G}$) で供給する。これらガスは精製筒内を通過したあと排気ダクトに排出される。一方、再生が終了した精製筒はその出入口弁を閉じて完全密閉になるため、筒内圧力は温度変化に伴って変化する可能性がある。

以上の理由から筒内圧力を所定範囲内に維持するため 2 系列のガス給排回路に OPEN-CLOSE 圧力制御を設けている。圧力は再生系精製筒入口に設けた上下限接点付ダイヤフラム式圧力指示計で検知し、その警報接点でガス供給回路あるいは排出回路の空気式自動開閉弁を作動することにより $-1000 \sim +1000 \text{ mmAq}$ の範囲内に調節される。

(3) 酸素分析系

雰囲気ガス中の酸素分析時は常時分析計検出部に雰囲気ガスを導入する。そのあとガスは排気ダクトに排出するかまたは雰囲気ガス採取位置 (精製筒出口、GB 出口、エアロック室内) の負圧系に戻す。したがって、本系では分析計検出部のあとにガスサンプリングポンプを設けることにより、分析計稼動中は全系を負圧に維持している。一方、停止中は系を排気ダクト圧と平衡させることにより負圧を維持できる。

3.4 分析装置

(1) 酸素分析計

雰囲気ガス中の酸素分析系は酸素分析計、ガスサンプリングポンプ、活性炭筒、HEPA フィルターおよび記録計などから構成されている。

分析計にはジルコニア焼結筒を用いた酸素濃淡電池の原理を利用した、いわゆるセラミック式

酸素分析計を採用している。このセラミック式分析計は微量酸素を簡便に連続して測定でき、しかもガルバニ電池式、黄リン発光式分析計に比べて保守をほとんど必要としないし、測定後のガスを再び採取した系に戻すことができる。測定範囲は0~100, 0~1000 ppm (2レンジ切換え)である。分析計はセル部のPu汚染の可能性を考慮し、さらにガスサンプリング回路を短くするため計測部と検出部とを分離している。3.3(4)で述べたように検出部セルは大気圧に対し負圧である。一方、被測定ガス中の酸素濃度はきわめて低いから、セル部の漏洩率がきわめて重要になる。本装置では漏洩率が 5×10^{-5} atm cc/sec 以下(ヘリウムリーク試験)の分析計を使用している。このため漏洩酸素が分析精度に与える影響は1 ppm以下と推定される。

セラミック式酸素分析計はセル部を850°Cに加熱しているため被測定ガス中に水素、有機溶媒蒸気などの可燃性ガスが混入すると燃焼して酸素濃度が見掛け上減少する。この結果、測定濃度指示値は実際より小さくなるためガスサンプリング回路に活性炭筒を設けて有機性可燃性ガスを除去している。

被測定ガスはダイヤフラム式ポンプで採取する。採取位置は精製筒出口、GB出口およびエアロック室の3個所で、切換えスイッチにより任意の位置を選ぶことができる。エアロック室はその蓋を開放することによりGB雰囲気ガスを直接採取し、分析することが可能である。また、採取位置のうち精製筒出口、GB出口はHEPAフィルター通過後の循環精製回路に位置しているので、分析計セル部へのPu汚染移行はない。エアロック室からのガスサンプリング往復回路にはガスライン用小型HEPAフィルターを設けてPu汚染の浸入を阻止している。

酸素分析値は水分濃度(露点)と併せて警報接点付2ペン記録計により連続記録する。

(2) 露点計

雰囲気ガス中の水分濃度はキャパシタンス式露点計により露点として測定する。水分濃度は測定された露点で水と共存するときの飽和水蒸圧^{B)}から換算する。測定範囲は-20°C~-80°Cで、これは水分濃度0.526~1021 ppmに相当する。測定位置は酸素分析用ガス採取位置と同じ精製筒出口、GB出口およびGB内の3個所について任意の位置を選択できる。GB内は検出器を移動することにより任意の位置で測定ができるため、GB内の水分濃度の分布を調べることが可能である。

3.5 安全警報装置

本装置に発生した異常現象はすべて直ちにわかるように次のような各種異常とその警報に対して自動的に作動する安全機構を設けている。これら警報はランプおよびブザーで現場表示したあと、さらに5系統にまとめて集中監視盤に発信される。さらに、無人時は24時間管理体制にある中央警備詰所に発信される。

(1) グローブボックス負圧異常

GB圧力が負圧破壊(-5 mmAq以上)および負圧超過(-55 mmAq以下)になったとき警報を発信する。

負圧破壊の場合、警報と同時にアルゴンガス供給回路に設けている自動開閉弁(RCV-404)が閉じ負圧破壊の原因になるアルゴンガス供給を圧力制御給気弁とともに2重に遮断する。

(2) グローブボックス温度上昇

GB内温度が60°Cを超えたとき警報を発信する。温度検知器はGB天井中央部に設けている。

(3) 酸素濃度異常

GB出口またはGB内から採取している雰囲気ガス中の酸素濃度が記録計での警報設定値(通常時30ppm)を超えた場合に警報を発信する。発信と同時にガス循環はGB回路からバイパス回路に切換わる。これは高酸素濃度の雰囲気ガスが精製筒内に急激に流込んで充填剤を劣化することを防ぐためである。また、酸素濃度異常は主としてグローブ破損に原因するものと考えられるので、破損部からのPu漏洩を最小限に抑えるためGB雰囲気ガスの乱流を止めることも目的としている。

(4) 循環ブロウ異常

循環ガスブロウに過電流が流れて電源のサーマルが作動した場合および温度が上昇して80°C以上を検知した場合に発信する。これと同時に循環ガスブロウは停止し、循環精製回路は閉じる。

(5) 循環ガス温度異常

循環ガスの温度が上昇し100°C(設定可変)を超えた場合に発信する。これと同時に循環ブロウは停止し、循環精製回路は閉じる。温度検出位置は循環ガス温度が最高になる循環ブロウ吐出部で、この位置の循環ガス温度は循環ブロウ内部の温度にほぼ相当する。

(6) アルゴンガス圧力異常

圧力制御用、GBガス用置換用および精製筒再生時の置換、冷却用アルゴンガス供給圧力が5.0 kg/cm²G以下あるいは8.0 kg/cm²G以上になったときに警報を発信する。

(7) 再生ガス圧力異常

精製筒再生用アルゴン+8%水素混合ガスの供給圧力が2.5 kg/cm²G以下あるいは3.5 kg/cm²G以上になったときに警報を発信する。

(8) 圧縮空気圧力異常

空気式自動弁、空気式圧力制御計など計装機器の操作源である圧縮空気の供給圧力が空気ドライヤー出口で4.0 kg/cm²G以下になったとき警報を発信する。GB圧力制御回路のアナログ弁(CV-801)とOPEN-CLOSE弁(RCV-801)には弁作動用空気圧低下でこれらの弁が開となるいわゆる“Normal open”型を使用している。したがって、本警報発信と同時に警報系を除く全系が停止になり、これら圧力制御弁が開いてGB圧力は排気ダクト圧力と平衡になり正圧にならない。

圧縮空気供給回路にはバックアップ回路が設けてあり、その手動開閉弁を開くことによりアルゴンガスによるバックアップが可能になる。

(9) 再生温度異常

精製筒再生運転中に精製筒の加熱が異常に上昇して再生適正温度を超えて350°C以上になったとき警報を発信し、これと同時に加熱電源が断になる。

(10) 再生系圧力異常

再生系内の圧力が上昇し+1000 mmAq以上になったときに警報を発信し、ガス供給弁(RCV-203)は閉じ、排気弁(RCV-204)は開となる。

(1) 停電

本装置は商用電源が止まった場合でも直ちに非常用電源に切換わる電源システムを使用しているので、安全は引続き維持される。

非常用電源も停電した場合、全系は直ちに停止する。これと同時にGB圧力制御排気回路のアナログ弁(CV-801)と自動開閉弁(RCV-801)が開いてGB圧力は排気ダクト圧と平衡になるので、正圧にはならない。

3.6 操作盤

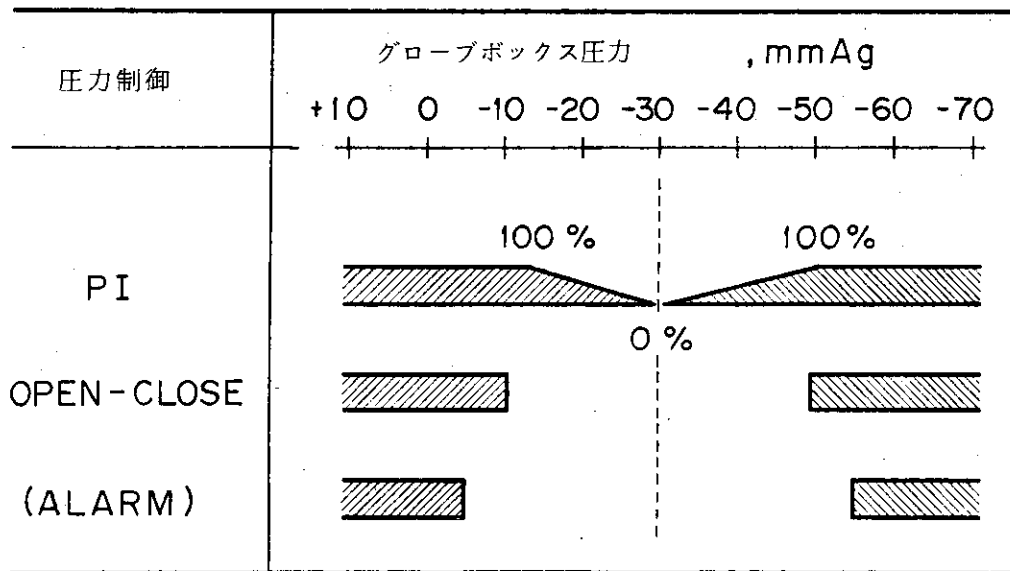
装置の運転状況を容易に把握し、かつ優れた操作性と安全を確保するため操作系と警報系は一つの操作盤にまとめて組込んでいる。また、本装置で使用する各種ガス(アルゴン、再生用ガスおよび圧縮空気)の供給制御設備も一つのパネル盤(ガス供給制御盤)にまとめている。操作盤に組込んでいる主要機器はつぎのとおりである。

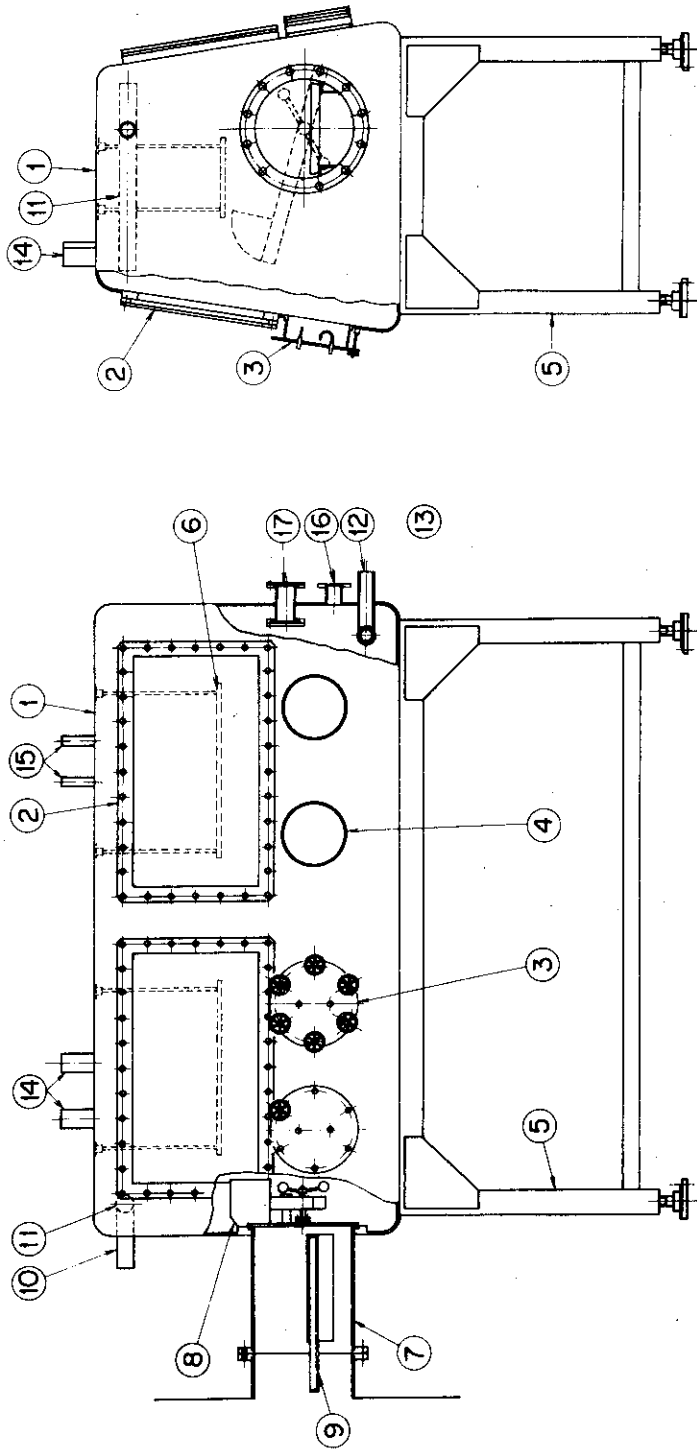
- ①各構成系電源(制御、警報、循環精製、再生)
- ②警報、インターロック回路および警報表示(ランプ、ブザー)
- ③グラフィックパネル
- ④GB圧力指示調節計(PI、OPEN-CLOSE制御)および循環精製、再生系圧力指示警報計、GB圧力記録計
- ⑤循環ガス流量計測定部、循環精製系HEPAフィルター差圧指示計
- ⑥酸素分析計測定部、露点計および2ペン記録計
- ⑦循環ポンプ電流計および稼動時間積算計
- ⑧精製筒再生プログラムタイマー、再生温度調節計および加熱ヒータ電流計
- ⑨精製筒使用時間計(2系列)
- ⑩各種操作、切換えスイッチ

表1 特殊型HEPAフィルターの性能

外容器気密度	1×10^{-5} atm cc/sec 以下 (ヘリウムリーク試験)
外容器耐圧	± 1 kg/cm ² G
定格風量	2 m ³ /min
空気抵抗	風速 2 m ³ /min 時 25.4 mm H ₂ O 0.5 m ³ /min 時 6.5 mm H ₂ O
捕集効率	99.97%以上 (0.3 μ DOP試験)

表2 グローブボックス圧力制御作動圧力範囲

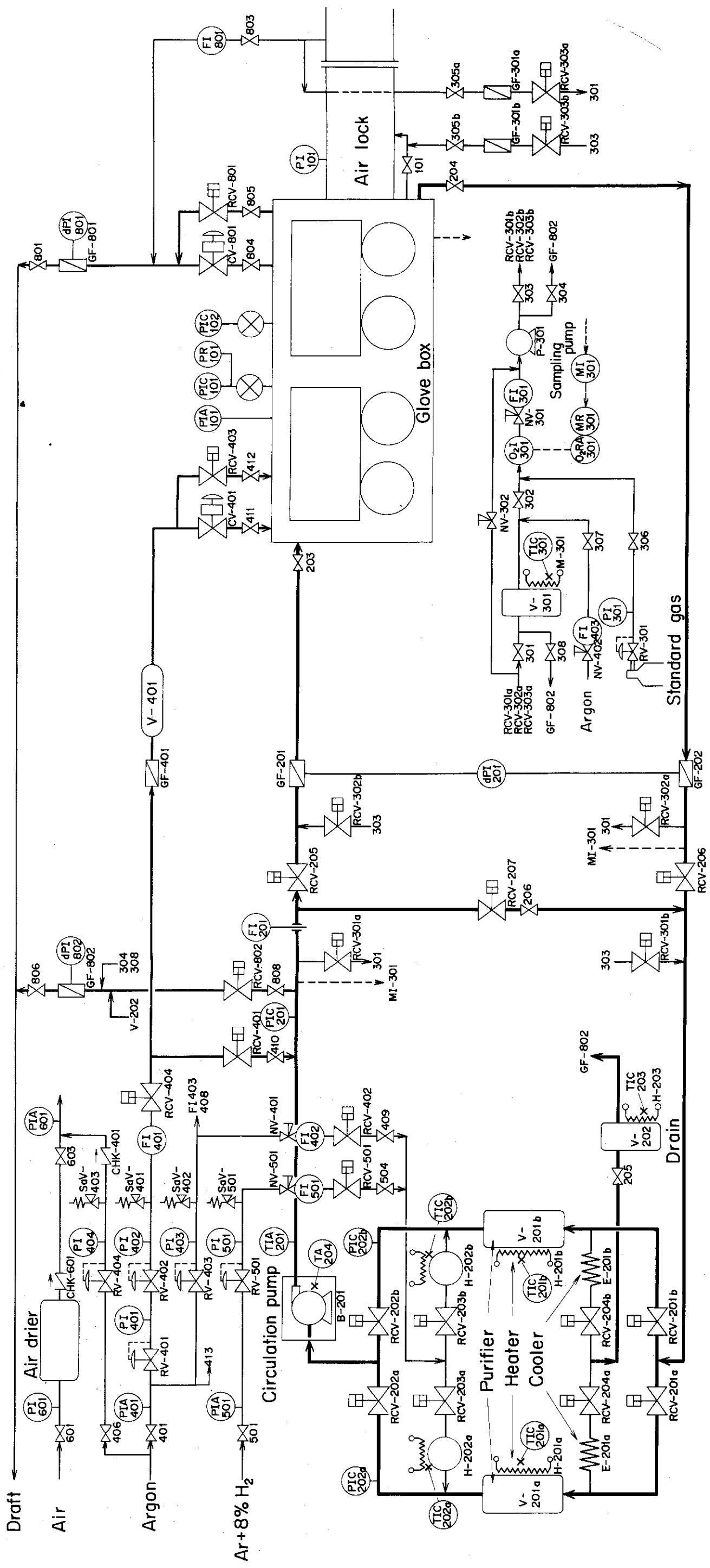




- ① Box shell
- ② Windows
- ③ Glove ports and covers
- ④ Glove ports
- ⑤ Legs
- ⑥ Shelves
- ⑦ Airlock
- ⑧ Vertically acting, counter balanced door

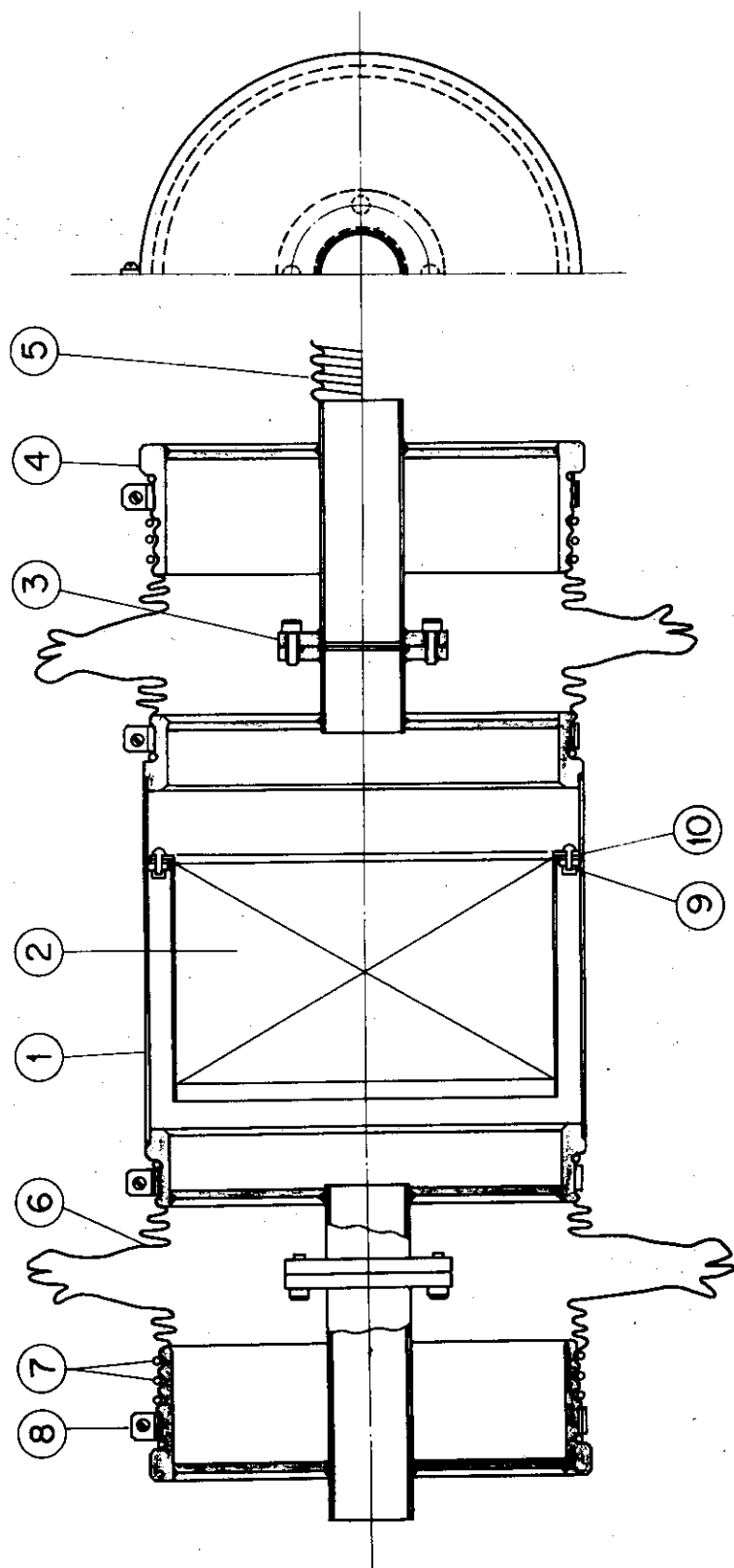
- ⑨ Tray
- ⑩ Circulation outlet
- ⑪ Gas collector
- ⑫ Circulation inlet
- ⑬ Gas diffuser
- ⑭ Gas outlet for pressure control
- ⑮ Gas inlet for pressure control
- ⑯ Electrical inlet terminals
- ⑰ Blind flanges (Spare)

図3 グローブボックス本体外観



- Manual shut-off valve
- Needle valve
- Pneumatic shut-off valve
- Diaphragm control valve
- Pressure regulator
- Safety valve
- Chucky valve
- HEPA filter
- Pressure indicator
- PIC Pressure indicating controller
- PIA Pressure indicating alarm
- FI Flow indicator
- TIA Temperature indicating alarm
- TA Temperature alarm
- MI Moisture indicator (Hygrometer, -20~-80°C)
- O₂I Oxygen concentration indicator (Ceramic type, 0~1000 ppm)
- Moisture recorder
- O₂RA Oxygen concentration recorder and alarm

図 4 グローブボックスのフローシート



- | | | | |
|---|---------------------------|---|---|
| ① | Outer vessel | ⑥ | Vinyl bag with one pair of vinyl gloves |
| ② | HEPA filter | ⑦ | O-rings |
| ③ | Flange-type sealing joint | ⑧ | Clamping band |
| ④ | Bag clamping ring | ⑨ | Clamping bolt and nut |
| ⑤ | Flexible tube | ⑩ | Plate gasket |

図5 特殊型HEPAフィルター

4. 性 能

4.1 精 製 筒

4.1.1 精製能力

精製筒の精製能力は充填床の不純物除去率の観点から検討した。充填床の雰囲気ガス中の酸素、水分除去率は、循環精製運転したときの精製筒入口および出口における循環ガスの純度（酸素、水分）を連続的に測定することにより調べた。精製筒入口における循環ガスの酸素、水分濃度は酸素含有標準アルゴンガスまたは人為的に加湿したアルゴンガスをGB内に直接供給し、その供給流量を調節することにより制御した。これらのガスはGB付設のガス導入ノズルからGB内に供給した。

図6および図7は精製筒入口で雰囲気ガスの酸素、水分濃度をほぼ一定に保持したときの、精製筒出口における雰囲気ガスの酸素、水分濃度変化を循環ガス流量に対して示す。循環流量20～40m³/hの範囲内では精製筒出口における循環ガスの純度は、循環流量に依存しないで酸素濃度約0.5ppm、水分濃度約0.6ppmと一定である。循環流量20～40m³/hは、レイノルズ数に換算すると粒状ニッケル床、モレキュラシーブ床でそれぞれ約10および8になる。

図8は循環流量30m³/hのときの精製筒入口と出口における循環ガスの純度の関係を示す。精製筒出口における循環ガスの純度は酸素、水分濃度ともに精製筒入口におけるガス純度に依存しない約0.5ppmと0.6ppmである。

4.1.2 精製容量

精製筒充填床の酸素、水分除去容量は空気と加湿アルゴンガスをGB内に一定流量で直接供給しながら雰囲気ガスを循環精製運転したとき、精製筒出口でのガス純度が見掛上の破過点に達しないことを確認しながら調べた。空気は平均流量約50cc/minでGB内に供給し、その合計量は積算可能なガスメータにより測定した。アルゴンガスは洗気瓶の水中を平均流量約400cc/minで通過させることにより飽和水蒸気まで加湿した。合計供給水量は洗気瓶内消失水量（重量）から求めた。この結果、積算酸素量約30ℓ、水分量約65gを供給したあとにおいても精製能力に破過現象は認められなかった。これは酸素、水分濃度がともに5ppmの雰囲気ガスを流量30m³/hで循環精製した場合に換算すると200時間以上所定の精製能力を維持できることに相当する。実際の定常運転においては精製筒1系列あたり精製容量が2000時間以上あることが確認された。

4.1.3 再 生

精製筒の再生で確認された再生過程および筒内温度の時間変化は図9に示すとおりである。再生工程プログラムでは筒内置換、冷却時間として19時間を設定しているが、50℃までの冷却所要時間は約10時間である。

4.2 グローブボックス雰囲気ガス純度

4.2.1 グローブボックス内ガス置換

GB經由回路で循環精製運転を開始するに先立ち、GB内はOnce-through方式でアルゴンガス置換する必要がある。また、置換ガスはGB圧力制御給気側のOPEN-CLOSE制御回路からGB内に供給し、排気側圧力制御回路から排出する。この場合、ガス供給流量はGB圧力がほぼ一定圧(-30mmAq)に保持されるように排気側PI圧力制御作動範囲で決定するのが圧力管理の見地から理想である。この条件を満足する最大置換ガス供給流量は約13m³/hであった。

図10および図11にGB内アルゴンガス置換時のGB雰囲気ガス中酸素、水分濃度が減少していく様子をそれぞれ示す(実線)。置換用アルゴンガス純度は酸素1ppm以下、水分2.5ppm以下であった。酸素濃度は置換開始後約30分で酸素分析計の検出上限目盛1000ppmに到達する。このときの水分濃度は約70ppmで、置換前のGB内水分濃度は約 1.7×10^4 ppm(温度21°C、相対湿度70%)であった。

図中に示した点線は、置換ガスとGB内既存ガスがGB内で完全混合しながら排出されると仮定して、4.1.2で述べる計算式(4)を用いて求めた計算結果である。

4.2.2 循環精製

アルゴンガス置換したGBを引続き循環精製運転(ガス流量30m³/h)に切換えたとき、GB雰囲気ガスの酸素と水分が精製されていく様子も図10および11にそれぞれ示すとおりである。一方、図中点線は循環ガスとGB既存雰囲気ガスがGB内で完全混合すると仮定して、つぎのように導出した計算式(3)から求めた計算結果である。

置換あるいは循環ガス、漏洩ガスとGB内既存雰囲気ガスがGB内で完全混合する場合、ガス置換または循環精製過程で精製されていくGB内注目不純物ガス濃度の時間変化はつぎのように表わされる。¹⁾

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

ここで、

I = 置換または循環精製時のGB内流入アルゴンガス流量

C_I = GB内流入アルゴンガス中の注目不純物ガス濃度

L = GBの漏洩率

C_L = GB内漏洩ガス中の注目不純物ガス濃度

Q = GBから流出する完全混合ガス流量

C = 時間t後のGB内注目不純物ガス濃度

V = GB内容積

である。置換または循環精製開始時(t=0)のC=C₀とすると(2)式は

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

になる。ガス置換過程ではGB内不純物ガス濃度におよぼす漏洩ガスの影響は無視できるし、またGBの漏洩率は置換ガス流量に比べてきわめて小さいので、(3)式は

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

となる。

実測酸素濃度の時間変化と計算結果との比較から、本GBでは前述の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置換および精製されていることがわかる。GB内酸素濃度は循環精製開始後約90分後にGBの漏込みに相当する約0.5 ppmで飽和する。一方、GB内水分濃度も2.3 ppmまでは完全混合に基づいてほぼ減少しているが、それ以下はきわめて徐々に減少している。循環精製で水分濃度がGBの漏込みに相当する約0.7 ppmに到達するまでには20~30時間要する。これはGB内表面吸着水分が容易に放出しないことに起因すると考えられる。

4.2.3 到達純度

循環精製ガス流量 30 m³/h のときのGB雰囲気ガスの到達純度は、表3に示すように酸素、水分濃度ともに1 ppm以下であるが、装着グローブの材質により異っている。装着グローブはいずれも市販のもので、その厚さ(公称値)はネオプレン、ハイパロン製グローブは0.4 mm、ブチルゴム製グローブは0.38 mm (15 mil) である。グローブポートに蓋を装着した場合は、グローブと蓋との空間を Once-through 方式でアルゴンガス置換しながら測定した結果であるので、グローブからの不純物ガス透過は無視できる。

一般に、GBの漏洩はつぎのような過程で起るものである。⁸⁾

- ① シール部および構造上の機械的欠陥を通しての漏洩
- ② グローブ、アクリル窓などの透過性GB構成材を拡散しての漏洩
- ③ (i) 搬入物品、エアロック室内のガス置換が不十分なために物品搬入時に持込まれる不純物
(ii) 誤操作、グローブ破損による漏洩
(iii) GB内表面吸着ガスの放出

①、②は定常的漏洩で、その漏洩率は一定であるが、③はいずれも非定常的現象である。したがって、グローブ作業をしない場合および精製が平衡に達したGBでは考慮する必要がない。

十分に精製されたGBの漏洩率(L)はつぎのように分解して考えることができる。

$$L = L_B + L_G \quad (5)$$

ここで、L_BはGB本体の漏洩率、L_Gはグローブの不純物ガス透過率である。したがって、

(1)式は、

$$C = \frac{C_I I + C_B L_B + C_G L_G}{I + L_B + L_G} \quad (6)$$

となる。ここで、 C_B 、 C_G はそれぞれGB本体からの漏洩ガスおよびグローブ透過ガス中の注目不純物ガス濃度である。

表3に示した到達純度は、4.3.2, 3と4.3.4でそれぞれ求めたGB本体の漏洩率とグローブの不純物ガス透過率を用いて(6)式から算出した計算結果ときわめてよい一致を示した。

4.2.4 循環ガス流量と純度との関係

図12および13に示すプロットは循環精製ガス流量に対するGB雰囲気ガスの酸素および水分濃度変化を調べた結果である。酸素濃度変化は酸素780 ppm含有標準アルゴンガスを酸素漏洩率で1.67および7.78 atm cc/secに相当するように一定流量でGB内に供給しながら測定している。また、水分濃度変化は洗気瓶の水中を通過させて、飽和水蒸気圧まで加湿したアルゴンガスを一定流量でGB内に供給しながら測定している。このときのGB内水分流入速度は、循環ガス流量25 m³/hのとき測定した水分濃度を使って(1)式から求めている。一方、図12および13に示す実線は(6)式から算出した計算結果である。(6)式において G_I は4.1.1で述べたように循環ガス流量に依存しないで一定、また同一GBでは L_B 、 L_G 、 C_B および C_G はGBに固有な値であるから一定と見なして計算している。

図12および13において酸素、水分濃度ともに計算結果ときわめてよい一致を示している。これは定常運転において循環精製ガスとGB内既存雰囲気ガスがGB内で完全混合し、その酸素および水分濃度は均一でしかも循環ガス流量のみに依存することを示唆している。また、雰囲気ガス純度が十分に平衡に達したGBで水分濃度(1 ppm以下)の分布を縦、横、高さ方向約15 cm間隔で調べた結果、読みとり誤差(±0.05 ppm)以内で均一であった。

一般に、不活性ガス雰囲気GB中の水蒸気の挙動は、内壁への水分吸着などが影響してきわめて複雑で、GB内水分濃度分布は不均一であると言われている。したがって、上記実験結果から本GB内の水分動特性は理想状態にあると言える。

4.2.5 物品搬入

循環精製運転中のGB内に物品を搬入する場合、これに伴うGB雰囲気ガスの純度変化を予測することは、高純度雰囲気ガスを維持するうえで重要である。

搬入物品はエアロック室でアルゴンガス置換したあとGBに移動する。この場合、本GBでは物品のガス置換は2.1(6)で述べたようにOnce-through方式のみである。このため搬入物品がエアロック室内でOnce-through方式によりガス置換されていく様子を酸素濃度の時間変化から調べた。ついで物品をGB内に移動したときの雰囲気ガスの酸素、水分濃度変化とその回復過程を調べた。搬入物品にはガス吸着性が大きい綿ガーゼ(約100 g)を選んだ。

図14はエアロック室内搬入物品装荷時と無装荷時の室内酸素濃度の時間変化を置換ガス流量に対して示す。ガス置換時のエアロック室内圧力は-80~-100 mm Aqであった。この結果、置換所要時間は置換ガス流量に依存し、さらに物品装荷時と無装荷時との置換所要時間差は置換

ガス流量が大きくなるにしたがって小さくなっている。

エアロック室内で酸素濃度約2ppmまでアルゴンガス置換したあと、綿ガーゼを循環精製ガス流量30m³/hで運転中のGB内(酸素、水分濃度1ppm以下)に移動したときのGB内酸素、水分濃度の時間変化を図15に示す。GB雰囲気ガス中の酸素濃度は最大2ppmになるが5~10分で回復する。一方、水分濃度の最大変化は1ppm以下であるが、回復はきわめて遅い。これは吸着水分が脱着し難いことに起因するものと考えられる。

4.3 グローブボックスの気密度

4.3.1 ヘリウムリーク試験

本装置のうちPu汚染が予想される系および高純度雰囲気ガス維持上高い気密度が要求される系の気密度は、加圧法によるヘリウムリーク試験により調べた。試験圧力はグローブポートに蓋を装着したGBでは+300mmAq、その他の系では+1kg/cm²Gであった。

その結果、GB本体(エアロック室含む)の漏洩率は 1×10^{-3} atm cc/sec以下、その他の系では 1×10^{-5} atm cc/sec以下であった。

4.3.2 酸素漏洩

GBの気密度はGB雰囲気ガス中の酸素濃度の経時変化からGBの漏洩率を求める、いわゆる“酸素濃度測定法”(Oxygen measurement method)でも調べた。この方法は高純度不活性ガス雰囲気GBの気密試験に有効であると言われている⁹⁾。しかも、定常運転時と同じ条件のGB圧力(-30mmAq)を維持しながら測定できるため実用的である。

GB内酸素濃度の経時変化は、材質が異なる3種類の市販グローブを装着した場合およびグローブからの不純物透過防止のためグローブポートに蓋を装着した場合についてそれぞれ調べた。まず、GB雰囲気ガスを十分に循環精製したあと、GBの循環精製回路出入口弁を閉じた。ついでGB圧力を引続き設定圧-30mmAqに維持しながらGB雰囲気ガス中の酸素濃度を連続測定した。測定のため採取した雰囲気ガスは再びGBにもどすことによりGBの圧力は一定に保持した。また、圧力制御で給排気されるGB雰囲気ガスを最小にするため、気温変化が最小となる時間帯を選んで測定した。その結果、測定時間(2.5~3時間)中のGB内温度変化は $\pm 0.3^{\circ}\text{C}$ 以内であった。この温度変化に伴うGB雰囲気ガス中の酸素濃度変化は測定濃度に対し $\pm 0.1\%$ 以内であるので無視できる。

以上のような測定で得られたGB内酸素濃度の時間変化は図16に示すように、いずれの場合も酸素濃度は時間とともに直線的に増大している。これは酸素濃度の増大がGB外からの漏洩酸素に起因するものであることを示唆している。直線の勾配から求めたGBの酸素漏洩率は、表4に示すように装着グローブの材質に依存している。グローブポートに蓋を装着して求めた酸素漏洩率はグローブを除くGB本体の漏洩率に相当すると考えられる。したがって、この酸素漏洩率から空気組成比を考慮して求めたGB本体の空気漏洩率は約 5×10^{-4} atm cc/secである。

4.3.3 水分漏洩

高純度不活性ガス雰囲気GBの水分漏洩率を“酸素濃度測定法”と同様にGB内水分濃度の時間変化から精度よく求めることは期待できないと言われている。⁹⁾これはGB内表面への水蒸気の吸着が大きいためGB内の水分の挙動が複雑になることに原因する。しかしながら、前項のGB内酸素濃度の時間変化の測定と併行して測定したGB内水分濃度の時間変化は図17に示すように、ほぼ直線的に増大している。この直線性は水分濃度の増大がGB外から漏洩した水分によることを明らかに示唆するものである。しかも、GBの水分漏洩率も表4に示したように酸素漏洩率と同様に装着グローブの材質に大きく依存している。このようにGBの水分漏洩率が精度よく測定できた理由としてつぎの2つが考えられる。1つは、測定開始前のGB内表面吸着水分が完全に除去され、いわゆる“枯れた”状態にあった。もう1つは、GB雰囲気ガス中の水分濃度がきわめて小さいためGB内表面への水分吸着が少なかった。

一般に、有機性物質の水分透過度は酸素、窒素の透過度に比べて大きい。⁹⁾したがって、GBの水分漏洩では、グローブからの水分透過以外にアクリル窓面からの透過も考慮する必要がある。文献5)によると25°Cにおけるアクリルの水分透過係数は 7.3×10^{-7} Torr \cdot l cm/cm² sec atm ときわめて大きい。この文献値を引用して算出した本GBのアクリル窓面からの水分透過率はGB外気相対湿度70%、室温25°Cのとき 2.4×10^{-4} atm cc/secである。この透過率はグローブポートに蓋を装着して求めたGB本体の水分透過率にはほぼ相当する。

4.3.4 グローブの酸素、水分透過係数

4.3.2, 3でそれぞれ求めたGBの酸素、水分漏洩率においてグローブ装着時と蓋装着時の漏洩率の差はすべてグローブからの透過によるものと考えて、各種グローブ材の酸素、水分透過係数の算出を試みた。

表5は上記仮定に基づいて算出した各種グローブ材の酸素および水分透過係数と文献値⁵⁾とを比較して示したものである。測定方法および測定温度、相対湿度など測定条件が異なるため定量的比較はできないが、比較的よい一致を示している。

4.3.5 グローブボックス圧力の影響

GBの外気からの不純物漏洩率は、グローブなどの不純物透過を除いてGB外圧と内圧の差に依存する。ところが、4.3.2, 3で求めたGBの不純物漏洩率はGB圧力を-30mmAqに維持したときのものである。一方、定常運転においてGB圧力は設定圧力-30mmAqに制御されるが、グローブ操作時は -30 ± 20 mmAq以内の圧力変化を許容している。

以上の理由から、ハイパロン製グローブ装着GBで、GB圧力がGBの酸素、水分漏洩率におよぼす影響について調べた。試験GB圧力として設定圧力-30mmAqのほか負圧超過圧力-70mmAq、負圧破壊圧力+10mmAqを選んだ。図18および19にGB内酸素、水分濃度の時間変化をGB圧力に対して示す。いずれの場合も、酸素、水分濃度ともに時間に対して直線的に増大している。これら濃度の時間変化から算出したGB圧力に対するGBの酸素、水分漏洩率を表6に示す。GB圧力-30と-70mmAq時の酸素、水分漏洩率に違いは認められないが、+10mmAq時の漏洩率は負圧時のそれに比べて小さい。これはGB圧力が外気圧に対して正圧なためグロー

プなどの透過を除くGB本体からの漏洩が小さくなったことに起因すると考えられる。

4.3.6 相対湿度の影響

4.3.3で述べたように、GBの水分漏洩ではGB構成材であるグローブ、窓面からの水分透過が大部分を占めている。

一般に拡散速度式は次式で与えられる。

$$q = QA \frac{p_1 - p_2}{d} t \quad (7)$$

ここで、 Q = 拡散係数

A = 面積

$p_1 - p_2$ = 拡散膜前後の注目拡散物の分圧差

d = 厚さ

t = 時間

である。また、Ayerら¹⁰⁾は、天然ゴムのような水分吸着性物質の水分の拡散式としてつぎのような実験式を提案している。

$$q = \frac{Q A e^{n d p}}{d^m} \cdot t \quad (8)$$

ここで、 m = 厚さで決まる係数

n = 分圧で決まる係数

である。

(7)、(8)式からわかるようにGBの不純物透過率はGB内外の不純物濃度に依存する。この理由からGB外気の相対湿度とGBの水分漏洩率との関係について調べた。

GB周囲の相対湿度は自然変化と人工的に変えることにより調節した。GB内水分濃度の時間変化から求めたハイパロン製グローブ装着GBの水分漏洩率をGB外気相対湿度に対して表7に示す。この結果は年間通してのGB外気相対湿度50~90%の範囲内では、GBの水分漏洩率に顕著な違いがないことを示唆している。

4.4 循環ガス温度および圧力

(1) 循環ガス温度

本装置では循環ガスブロワおよび循環ガスの温度上昇に対し特別な冷却措置を講じていないため、これらにある程度の温度上昇が予想される。

図20は循環ガスブロワ表面、循環ガスおよびGB内の温度を循環精製ガス流量に対して示す。循環ガスおよびGB内温度はそれぞれ循環ガスブロワ吐出口および循環ガスがGB内に吹出されるガス拡散器付近で測定している。したがって、循環ガス温度は循環ガスブロワ内部の温度とほぼ等しいと考えられる。循環ガス温度は循環ガス流量が小さくなるにしたがって上昇し、 $15\text{m}^3/\text{h}$

以下ではブロワ使用上限温度 80°C （警報設備温度）を超える。この原因としてつぎの2つが考えられる。1つは、本装置ではGB入口の手動操作弁により循環回路に抵抗をつけて、循環ガス流量を調節する方法を採用している。したがって、循環ガスの流れの抵抗が増大することによりブロワのモータの負荷が大きくなるため温度上昇する。もう1つは、循環ガスブロワは自己循環ガスにより冷却される構造のため、循環ガス流量が小さくなるにしたがって単位ガス量あたりの交換熱量が増大する。

GB内温度は循環ガスがブロワからGBまでの戻り循環回路で自然冷却されるため室温に対し僅かに $3\sim 5^{\circ}\text{C}$ 高くなるに過ぎない。

(2) 循環ガス圧力

雰囲気ガス循環精製運転時の循環精製系回路内圧力が最大および最小になる位置は、それぞれ循環ガスブロワ吐出口および吸込口である。

定常運転時の循環ガスブロワ吐出口と吸込口の圧力を圧力指示調節計（PIC-201, PIC-202 a, b）により循環ガス流量に対して調べた。その結果は図21に示すように、両圧力は循環ガス流量とともに増大している。吐出口圧力は大気圧に対して正圧であるが、最大循環ガス流量 $40\text{ m}^3/\text{h}$ においても約 $+100\text{ mmAq}$ である。この程度の正圧は循環回路の気密性と耐圧強度を考慮すると安全上問題ないと考えられる。循環ガスブロワ吐出口と吸込口における圧力の差は循環ガス流量が大きくなるにしたがって減少している。この結果は(1)で述べた循環ガス温度と循環ガス圧損失との関係を裏付けるものである。

4.5 グローブボックス内窒素の蓄積

本装置では2.2(2)で述べた理由からGB雰囲気ガス中の窒素の除去は考慮していない。したがって、定常運転においてつぎのような過程でGB内に窒素が蓄積することが予測される。

- ①循環精製運転開始前の Once-through 方式によるGB内ガス置換で残留する窒素
- ②外気からGB内への漏洩窒素
- ③物品搬入時物品とともにGB内に持込まれる窒素

一方、これらGB内蓄積窒素の一部は圧力制御に伴って不定期的にGB雰囲気ガスとともに排出されるか供給アルゴンガス（窒素濃度 $1\sim 3\text{ ppm}$ ）により希釈される。しかしながら、グローブ操作時を除く定常時の圧力変化はGB内温度変化によるものであるから、その影響は小さいと考えられる。

以上述べた理由から、グローブ操作をしない定常運転条件下（GB圧力 -30 mmAq 、循環ガス流量 $30\text{ m}^3/\text{h}$ ）でGB内に蓄積する窒素量について調べた。図22はハイパロン製グローブ装着GB雰囲気ガス中の窒素濃度の時間変化を示す。測定期間中の温度は $20\sim 25^{\circ}\text{C}$ であった。窒素濃度は運転前にあらかじめGB内に準備したガス採取容器中に逐次採取した雰囲気ガスを運転終了後質量分析法により測定している。GB内窒素濃度は時間とともにほぼ直線的に増大しており、その窒素蓄積速度は $1.7\pm 0.2\text{ ppm/h}$ である。この窒素濃度の直線的増大は窒素の蓄積が主としてGB外気からの漏洩によることを示唆するもので、漏洩率に換算すると $7.6\times 10^{-4}\text{ atm cc/sec}$ である。図22に示す点線は4.3.2で求めたGBの酸素漏洩率から空気の組成比を考慮して求めた

計算結果で、その蓄積速度は 5.4 ppm/h である。このように測定結果が計算結果に比べて小さいことは、ハイパロン製グローブの窒素透過率が酸素の場合に比べて小さいことを示唆している。

つぎに、装着グローブの材質であるハイパロンの窒素透過係数を推算した。4.3.2で求めたグローブからの透過を除くGB本体の酸素漏洩率から空気の組成比を考慮して算出したGB本体の窒素漏洩率は 3.9×10^{-4} atm cc/sec である。この計算値と上記実測GB窒素漏洩率との差はグローブの窒素透過によるものと仮定すると、ハイパロンの窒素透過係数は約 0.3×10^{-8} Torr ℓ cm/cm² sec atm である。ハイパロンの窒素透過係数についての適当な文献値はないが、ハイパロンに比べて酸素、水分の透過係数が大きいネオプレンの窒素透過係数は文献5)によると 0.39×10^{-8} Torr ℓ cm/cm² sec atm (25°C) である。したがって、推算したハイパロンの窒素透過係数に大きな誤りはないと考えられる。

以上の結果から、GB内窒素を Once-through 方式で完全にガス置換したあと1週間連続運転で蓄積する窒素濃度は約 300 ppm である。したがって、定期的にGB雰囲気ガスをアルゴンガスで置換することにより分析試料を取扱う上で問題のない窒素濃度の雰囲気を維持することができる。本装置では Once-through 方式によるGB内ガス置換操作が循環精製運転と併行してすすめることができるので、雰囲気ガスの純度を低下させることはない。窒素濃度 300 ppm のGB雰囲気ガスを窒素濃度 10 ppm まで置換するに要するアルゴンガス量は、(4)式から約 5.5 m³ と推算される。

4.6 圧力制御特性

(1) グローブ操作

GBの圧力制御特性は、GBに対してグローブ1双を「出し」または「入れ」する操作によってGBに圧力変化を与え、そのときの圧力変化範囲および回復過程から調べた。グローブの「出し」または「入れ」操作時間は通常作業時のグローブ操作最小時間に相当する約2秒間を選んだ。グローブ1双の内容積は約32 ℓ であるから、このようなグローブの操作はGBの設定圧力に対して約 ± 200 mmAqの圧力変化を与えたことになる。GBの圧力変化およびその変化に対する圧力制御過程は、Tsumijuraらによって考案された差圧計¹¹⁾により連続的に記録測定した。図23および24はOPEN-CLOSE制御とPI制御を組合せた場合、PI制御またはOPEN-CLOSE制御のみの場合について、圧力変化と圧力制御の様子を比較して示したものである。この場合、PI制御用圧力指示調節計の比例帯およびリセット率の設定値はそれぞれ100%および0.5 minであった。また、排気ダクト圧力およびアルゴンガス供給圧力は-130 mmAq および+0.2 kg/cm²であった。排気ダクト圧力を除くこれらの設定値は、通常のグローブ操作作業に適合した圧力制御条件から決定している。PI制御とOPEN-CLOSE制御の組合せにおいては、GBの圧力変化は-30 ± 20 mm以内には制御されたあと設定値-30 mmAqに回復する。しかし、PI制御のみの場合には、-30 ± 20 mmAqの範囲を大きく超えたあと緩慢に設定値-30 mmAqに回復している。一方、OPEN-CLOSE制御のみの場合、GB圧力は-30 ± 20 mmAqを超えないが、設定値には必ずしも回復しないで-30 ± 20 mmAqの範囲内の任意の圧力になる。

図25は通常のグローブ作業を連続して行った場合の圧力変化の様子を圧力制御方式の違いで示

したものである。PI制御とOPEN-CLOSE制御の組合せでは、GB圧力は $-30 \pm 20 \text{ mm Aq}$ の範囲内で波状に変化しているが、PI制御のみでは負圧破壊 (-5 mm Aq 以上)と負圧超過 (-55 mm Aq 以下)が常に起っている。OPEN-CLOSE制御のみでは、GB圧力が $-30 \pm 20 \text{ mm Aq}$ の範囲内で階段状に変化しているため、グローブ操作性が悪い。

以上の結果から、3つの圧力制御方式のうちPI制御とOPEN-CLOSE制御の組合せによる圧力制御過程が、空気雰囲気のものに最も近似しているためグローブの操作性が優れていることがわかる。

(2) グローブボックスの異常漏洩

GBの漏洩事故で最も可能性があるのがグローブの破損、脱落である。このようなGBの異常漏洩についてGBの圧力変化を調べた。異常漏洩はグローブの指などを切断することにより人為的に発生させた。表8はグローブ破損に対するGBの圧力変化、圧力制御作動状況およびGB内への空気流入線速度を示している。小指1本切断に対して、GBは設定圧力 -30 mm Aq を維持している。指5本または手首切断に対しても所定圧力範囲 ($-30 \pm 20 \text{ mm Aq}$)内に維持されている。グローブ1本をとりはずしたときのグローブポート開口部におけるGB内への空気流入線速度は規定値 (30 m/min)を大きく上回る 143 m/min であった。

4.7 グローブボックス雰囲気ガス純度の評価

一般にガス中の微量酸素、窒素および水分の分析は難しいと言われている。とくに本装置では循環精製運転時のGB雰囲気ガス中の酸素、水分濃度がともに 1 ppm 以下に到達しているが、これらはいずれも分析計の検出下限付近である。しかも、セラミック式酸素分析計およびキャパシタンス式露点計は絶対測定法ではなく較正に基づく相対的比較法である。したがって、このような微量領域は較正領域外のため分析計の指示値には誤差が含まれていると考えられる。

以上の理由から、つぎのような試験によりGB雰囲気ガスの純度の評価を試みた。ついで、GB内で準備作業中に分析試料が受ける影響について検討した。

- ① 定常運転下のGB雰囲気ガス中に酸素、水分に対してきわめて活性な金属ナトリウムの切断面を露出し、その表面状態の時間変化を観察する。
- ② 定常運転下のGB雰囲気ガス中に炭化ウラン粉末を露出し、その重量の時間変化を測定する。ついで粉末の重量変化と組成変化との関係を調べる。

(1) 金属ナトリウムによる評価

金属ナトリウムは純度が十分に平衡に達したGB雰囲気ガス中で切断し、その表面変化は肉眼で観察した。試料露出雰囲気ガスの酸素、水分濃度の分析計指示値はともに 1 ppm 以下で、露出面積は約 $25 \times 60 \text{ mm}^2$ であった。その結果は表9に示すように、試料観察面を循環精製ガスの流れ方向に対して平行または垂直に対面して露出した場合と背面で露出した場合とで時間変化が大きく違っている。その理由としてつぎのことが考えられる。前者の場合は試料観察面が常に新鮮な雰囲気ガスに露出され平衡状態にある。一方、後者の場合は試料露出面付近で循環雰囲気ガスが滞留し見掛上局的に不純物ガス分圧が減少する。このように試料の置き方によって時間変化が異なるうえ、肉眼観察のため観察者の主観に大きく依存するので定量的評価はきわめて難し

い。しかしながら、金属ナトリウム表面の金属光沢が消失し始める最短時間が15～20分であることを考慮すると、GB雰囲気ガスの真の純度は酸素、水分濃度ともにほぼ1ppmと推定される。

(2) 炭化ウラン粉末による評価

炭化ウラン粉末は組成変化を避けるためGB雰囲気ガス中で炭化ウランペレット（理論密度：93%）を粉砕し、粒度調整することにより直接調製した。ペレットの炭素、酸素含有量はそれぞれ4.79 w/o, 0.33 w/o である¹²⁾。粉末の粒度は250～325メッシュ（44～63 μ ）と325メッシュ（44 μ ）以下の2種類で、その初期重量はともに約5gであった。粉砕および粒度調整に要した時間は約30分であったが、粉末は引続きGB雰囲気ガス中に露出し、その重量変化は精密直示天秤（最小検出感度：0.1mg）によって測定した。その結果得られた炭化ウラン粉末の重量変化率は、図26に示すように時間に対して放物線的に増大している。測定期間中のGB雰囲気ガス純度は酸素、水分濃度ともに1ppm以下で、温度は24～27.5 $^{\circ}$ Cの範囲内であった。また、4.4で求めたGB内窒素蓄積速度から推定した窒素濃度はおおよそ300～700ppmである。

表10は著者と同様に炭化ウラン粉末の重量の時間変化からGB内アルゴンガス雰囲気ガスの純度を評価している Harisson ら¹³⁾ および McLaren ら¹⁴⁾ の結果と本試験結果を比較して示したものである。炭素含有量および粒径あるいは表面積に違いがあるため定量的比較はできないが、重量変化率がきわめて小さいことを考慮すると本GBの雰囲気ガスの純度がきわめて高いことは明らかである。

炭化ウラン粉末の組成変化を顕著にするため、上記粉末は引続きやや純度の低いGB雰囲気ガス中に長時間放置して大きな重量変化を与えた。この結果得られた重量変化率および化学分析、X線回折結果は表11に示すとおりである。粒度が異なる2つの粉末における単位重量増加率あたりの炭素、酸素含有量変化はいずれもよい一致を示している。この結果から算出した本GBで分析試料準備作業時間（5時間以下）内に起る炭化ウラン粉末の最大組成変化はつぎのとおりである。粒径44 μ 以下の粉末では炭素含有量は 7.5×10^{-3} w/o 減少し、酸素含有量は 1.0×10^{-2} w/o 増大する。また、44～63 μ 粉末では炭素、酸素含有量はそれぞれ 2.8×10^{-3} w/o 減少、 3.8×10^{-3} w/o 増大する。このような組成変化は酸素、炭素の化学分析精度に比べてきわめて小さいため無視できる。

4.8 安全性

本装置では異常現象発生は直ちに検出され、警報で通報すると同時にインターロックが作動して安全を確保するよう考慮している。表12は各種異常現象を人為的に発生させたとき作動した警報とインターロックおよび装置の安全性におよぼす効果を示す。GBの大きな異常漏洩に原因するGB負圧破壊および雰囲気ガスの酸素濃度異常、GB温度上昇を除き、警報通報を受けて現場に到着し対策措置を講じるまでに事故に発展する恐れはない。

GBの異常漏洩の主原因はグローブ破損であるが、4.5(2)で述べたようにグローブ1本脱落においてもGB内への空気流入線速度は143m/minと大きい。したがって、GB内Puが多量に作業環境へ流出することはない。大きなグローブ破損による急激な雰囲気ガス純度低下は、取扱い中の粉末試料の酸化あるいは燃焼を招く可能性がある。しかし、雰囲気ガス中の酸素濃度が5%

以上にならない限り試料の燃焼は起らない¹⁵⁾ また、試料の燃焼、GB温度の異常上昇においてもGB内酸素濃度が10%以下では、グローブ、プラスチックおよび紙のような可燃性物質は燃焼しないので、¹⁶⁾ 火災に発展する恐れはない。

5. 運 転 実 績

本装置は最長連続運転時間 1070時間を含めて、積算約4000時間の試験運転を行った。その間、装置の故障、問題点および事故は全くなかった。また、雰囲気ガス純度、圧力制御等に関する諸性能において初期性能が維持されていることを確認した。

本装置を使用した分析試料準備作業を、標準分析試料およびウラン炭化物、窒化物を使用して行い、試料中の酸素、窒素および炭素の化学分析を行った。その結果、作業に伴う装置上の問題点はなく、分析値にもGB雰囲気純度の影響は認められなかった¹⁷⁾。

以上にならない限り試料の燃焼は起らない。¹⁵⁾ また、試料の燃焼、GB温度の異常上昇においてもGB内酸素濃度が10%以下では、グローブ、プラスチックおよび紙のような可燃性物質は燃焼しないので、¹⁶⁾ 火災に発展する恐れはない。

5. 運 転 実 績

本装置は最長連続運転時間 1070 時間を含めて、積算約 4000 時間の試験運転を行った。その間、装置の故障、問題点および事故は全くなかった。また、雰囲気ガス純度、圧力制御等に関する諸性能において初期性能が維持されていることを確認した。

本装置を使用した分析試料準備作業を、標準分析試料およびウラン炭化物、窒化物を使用して行い、試料中の酸素、窒素および炭素の化学分析を行った。その結果、作業に伴う装置上の問題点はなく、分析値にも GB 雰囲気純度の影響は認められなかった。¹⁷⁾

表3 各種グローブ装着グローブボックス雰囲気ガスの到達純度
(循環精製ガス流量 30m³/h 時)

グローブ材質	濃度 (ppm)		室温 (°C)	相対湿度 (%)
	酸素	水分		
ネオプレン	0.8	0.74	22	70
ハイパロン	0.5	0.68	20	73
ブチルゴム	<0.5	0.66	22.5	79
(グローブポート蓋装着)	<0.5	0.64	23	75

表4 各種グローブ装着グローブボックスの酸素および水分漏洩率

グローブ材質	漏洩率 (atm cc/sec)		室温 (°C)	相対湿度 (%)
	酸素	水分		
ネオプレン	9.33×10^{-4}	8.42×10^{-4}	22	70
ハイパロン	6.14×10^{-4}	3.14×10^{-4}	20	73
ブチルゴム	4.52×10^{-4}	2.15×10^{-4}	22.5	80
(グローブポート蓋装着)	9.71×10^{-5}	1.27×10^{-4}	23	75

表5 各種グローブ材の酸素および水分透過係数

グローブ材質	透過係数 (Torr ℓ cm/cm ² sec atm)		温度 (°C)
	酸素	水分	
ネオプレン	2.0×10^{-8} (3.0×10^{-8})	6.8×10^{-7} (8.8×10^{-7})	22 (25)
ハイパロン	1.2×10^{-8}	2.4×10^{-7}	20
ブチルゴム	0.85×10^{-8} (0.75×10^{-8})	0.94×10^{-7} (0.77×10^{-7})	22.5 (25)

() 内数値 文献5) より引用

表6 グローブボックス圧力に対するハイパロン製グローブ装着
グローブボックスの酸素および水分漏洩率

グローブボックス 圧力 (mmAq)	漏洩率 (atm cc/sec)		室温 (°C)	相対湿度 (%)
	酸素	水分		
+10	4.37×10^{-4}	2.06×10^{-4}	22	70
-30	6.13×10^{-4}	3.14×10^{-4}	23	69
-70	6.33×10^{-4}	3.44×10^{-4}	20	73

表7 外気相対湿度に対するハイパロン製グローブ装着
グローブボックスの水分漏洩率

相対湿度 (%)	室温 (°C)	水蒸気圧 (mmHg)	漏洩率 (atm cc/sec)
100	22	19.82	5.12×10^{-4}
73	21	13.61	3.14×10^{-4}
59	19	9.72	3.09×10^{-4}
20	24	4.47	1.61×10^{-4}

表8 グローブ破損時のグローブボックス圧力変化および
ボックス内空気流入線速度

グローブ破損			ボックス 圧力 (mmAq)	圧力制御弁開閉		ボックス内空気 流入線速度 (m/min)
切断位置	直径 (cm)	面積 (cm ²)		PI	OPEN- CLOSE	
なし			-30	閉	閉	0
小指第1関節	1.5	13.3	-30	46~48%開	閉	422
指5本第1関節			-28	90%開	閉	534
手首	7.0		-14	100%開	閉	223
グローブ1本なし	19.3		-4	100%開	開	143

表9 グローブボックス雰囲気ガスに露出した金属ナトリウムの表面状態

表面状態	時間 (分)	
	位置(I)*	位置(II)**
局所的に結晶粒出現	4~5	20
全面的に結晶粒出現	8~10	36
ややにぶい金属光沢	12~15	56
局所的に金属光沢消失	15~20	75
全面的に金属光沢消失	23~30	150
全面的に灰褐色皮膜形成 (但し、結晶粒確認可能)	60~90	300~450

- * ナトリウム切断面をGB雰囲気ガス循環流に表を向けて垂直または平行に置いた場合
- ** ナトリウム切断面をGB雰囲気ガス循環流に裏を向けて垂直に置いた場合

表10 グローブボックス内雰囲気ガスに露出した炭化ウラン粉末の重量増加率の比較

	雰囲気ガス			炭化ウラン粉末		重量増加率 (%)		
	種類	濃度 (ppm)		炭素含有率 (w/o)	粒径, 表面積	5時間	22時間	80時間
		酸素	水分					
Fukushimaら	アルゴン	<1	<1	4.79	44~63 μ	0.003	0.014	0.045
Fukushimaら	アルゴン	<1	<1	4.79	最大44 μ	0.008	0.031	0.080
Harrisonら ¹³⁾	アルゴン	1~2	5	4.4	2 μ	0.035	0.092	
McLarenら ¹⁴⁾	アルゴン	4~8	8~20		1~2 m ² /g			0.96

表11 グローブボックス雰囲気ガスに露出した炭化ウラン粉末の特性値

	露出前	露出後*	
粒径 (μ)	<44, 44~63	44~63	<44
重量変化率 (%)	0	+0.55	+0.75
炭素含有量 (w/o)	4.79	4.24	4.13
酸素含有量 (w/o)	0.33	1.03	1.29
重量変化1%当りの炭素含有量変化率 (w/o/%)	0	-1.00	-0.88
重量変化1%当りの酸素含有量変化率 (w/o/%)	0	+1.27	+1.28
平衡相	UC	UC+UO ₂ (微量)	UC+UO ₂ (微量)
格子定数 (Å)	4.9569	4.9565	4.9563

* 酸素濃度 1~5 ppm, 水分濃度 1~3 ppmの雰囲気ガスに約700時間露出

表 12 各種異常に対する警報，インターロックおよび安全効果

系	異常	異常検出器	警報		インターロック	安全効果
			現場警報盤	中央警報盤		
グローブボックス	グローブボックス負任破壊	接点付圧力指示 警報計 PIA-101	「グローブボックス負任 破壊」ランプ、ブザー	「負任破壊 108-A」 ランプ、警報	圧力制御排気回路PI, OPEN-CLOSE弁 (CV-801, RCV-801)開, アルゴンガス供給 回路元弁(RCV-404)開	GB圧力上昇するが, GB最大圧力は外気圧と平衡
	グローブボックス負任超過	接点付圧力指示 警報計 PIA-101	「グローブボックス負任 超過」ランプ、ブザー	「負任超過 108-A」 ランプ、警報	圧力制御給気回路PI, OPEN-CLOSE弁 (CV-401, RCV-403)開	GB圧力低下するが, GB最小圧力は排気ダクト圧力と平衡
	グローブボックス温度上昇	温度検出器	「グローブボックス温度 上昇」ランプ、ブザー	「温度上昇 108-A」 ランプ、警報		異常上昇でもGB雰囲気ガス酸素濃度が 10%以下の場合、火災になる恐れはない
循環精製	循環精製内 酸素濃度異常	警報接点付酸素 濃度記録計	「酸素濃度異常」 ランプ、ブザー	「不活性ガス雰囲気 108-A」ランプ、警報	循環回路GB出入口弁(RCV-205, 206)閉 GBバイパス循環回路弁(RCV-207)閉	精製筒内への空気流入防止 但し、GB雰囲気ガス純度低下
	循環精製 過電流	サーマルリレー	「循環精製過電流」 ランプ、ブザー	「不活性ガス循環系 108-A」ランプ、警報	循環ガスブロワ停止	GB雰囲気ガス純度徐々に低下する (GB内酸素濃度低下速度は約1.5 ppm/h)
	循環精製 温度異常	温度警報計 TA-204	「循環精製温度異常」 ランプ、ブザー	"	"	"
	循環精製 ガス異常	温度指示警報計 TIA-201	「循環ガス温度異常」 ランプ、ブザー	"	"	"
	再生ヒータ温度異常 a 系列	接点付温度指示警 報計 TIA-201a	「a 系列再生ヒータ温度 異常」ランプ、ブザー	"	上限警報設定温度で加熱電流遮断	精製筒再生中止
	再生ヒータ温度異常 b 系列	接点付温度指示警 報計 TIA-201b	「b 系列再生ヒータ温度 異常」ランプ、ブザー	"	"	"
原料関係	再生系圧力異常	接点付圧力指示警 報計 PIA-201	「再生系圧力異常」 ランプ、ブザー	"	高圧警報で再生ガス、アルゴンガス供給弁 (RCV-501, 402)閉 低圧警報で排気回路弁(RCV-204)閉	再生系圧力上昇防止
	原料アルゴンガス圧力異常	接点付圧力指示警 報計 PIA-401	「アルゴンガス圧力異常」 ランプ、ブザー	"		GB負任超過に対する圧力制御が不能に なるが、GB圧力は排気ダクト圧力に平衡
	再生ガス圧力異常	接点付圧力指示警 報計 PIA-501	「再生ガス圧力異常」 ランプ、ブザー	"	再生ガス予熱器、精製筒加熱器遮断	精製筒再生中止
電源	圧縮空気圧力異常	接点付圧力指示警 報計 PIA-601	「圧縮空気圧力異常」 ランプ、ブザー	"	低圧警報で全系停止、圧力制御排気回路PI, OPEN-CLOSE弁(CV-801, RCV-801)開 GBバイパス回路弁(RCV-207)開その他の自動弁閉	GB圧力は排気ダクトに平衡 但し、GB雰囲気ガス純度低下
	商用電気停電			「停電」 ランプ、警報	10秒後に非常用電源による通電	警報系、制御系のみ再開
排気ダクト	非常用電気停電			「非常用電源故障」 ランプ、警報	全系停止、圧力制御排気回路PI, OPEN- CLOSE弁(CV-801, RCV-801)開, GBバイパス回路弁(RCV-207)を除く全自動弁閉	GB圧力は低下するが, 排気ダクト圧力と平衡
	排気ダクト圧力異常			「ダクト負任異常 108」ランプ、警報		排気ダクト圧力が $\sim 30\text{mmAq}$ 以上の場合, GB圧力は排気ダクト圧力に平衡

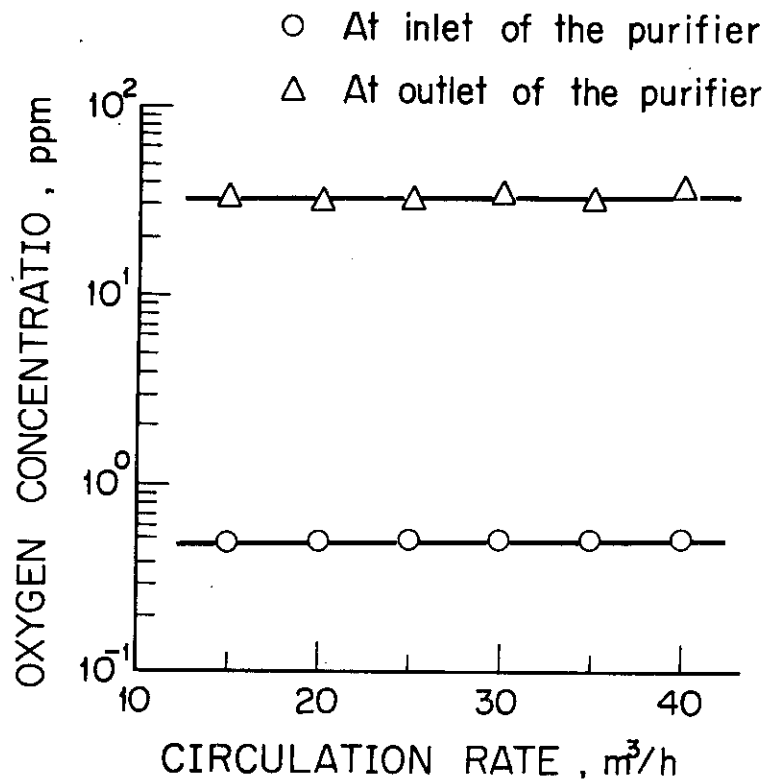


図6 精製筒出口における雰囲気ガスの酸素濃度と循環流量の関係

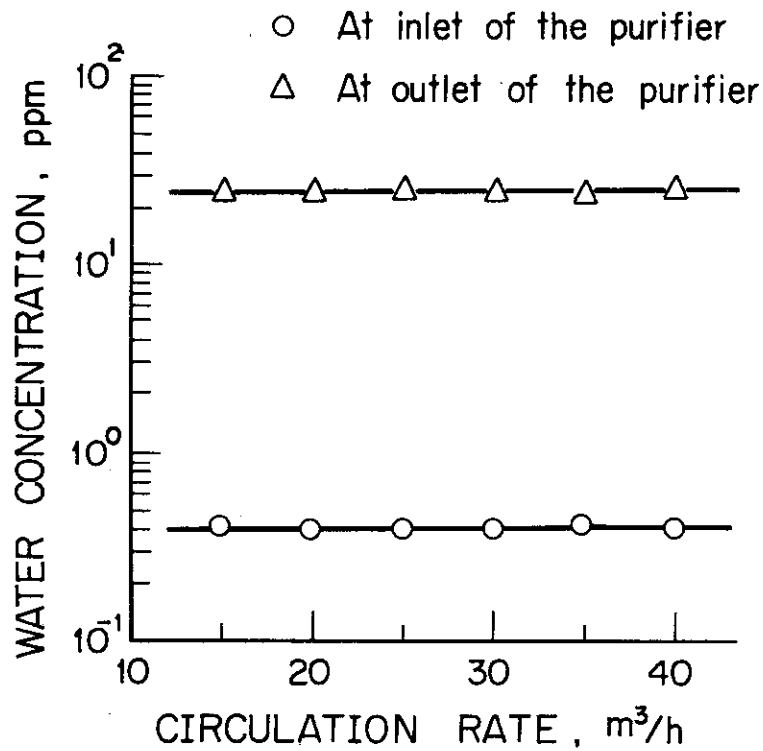


図7 精製筒出口における雰囲気ガスの水分濃度と循環流量の関係

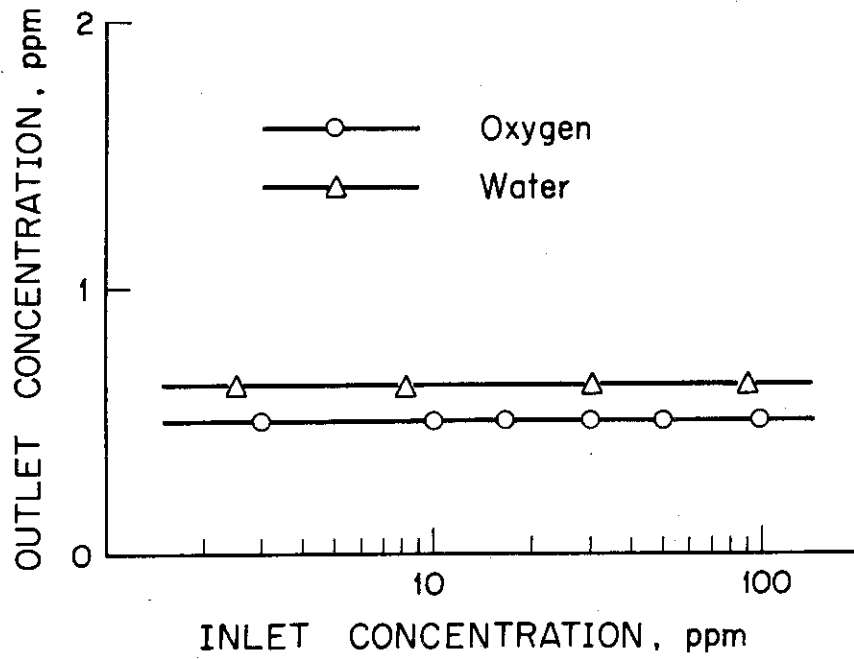


図8 運転時 (循環ガス流量 $30\text{ m}^3/\text{h}$) の精製筒出入口における雰囲気ガスの純度

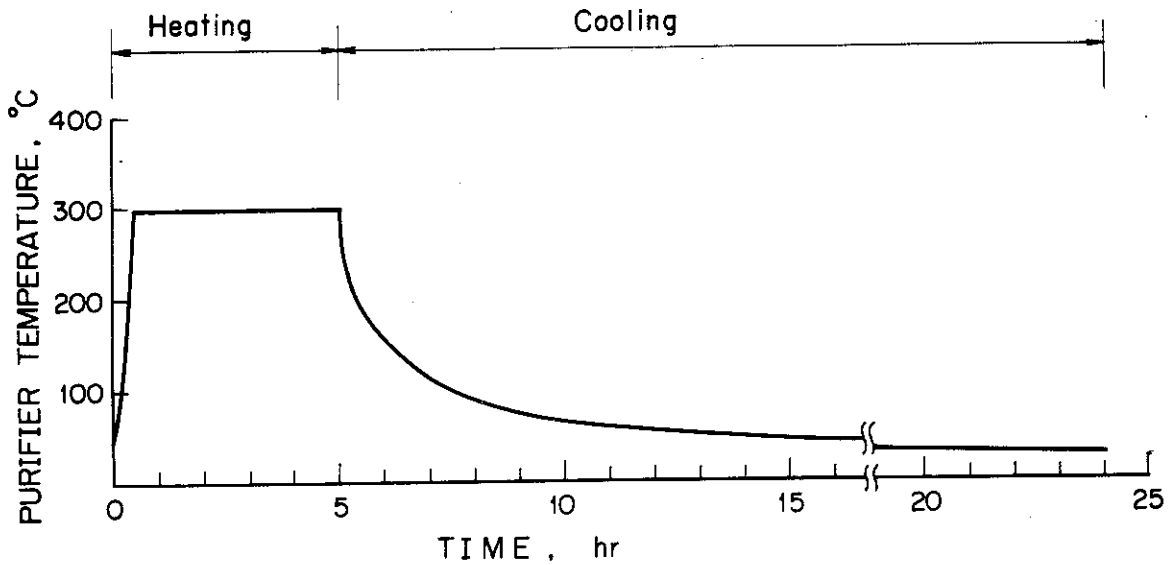


図9 再生時の精製筒温度の時間変化

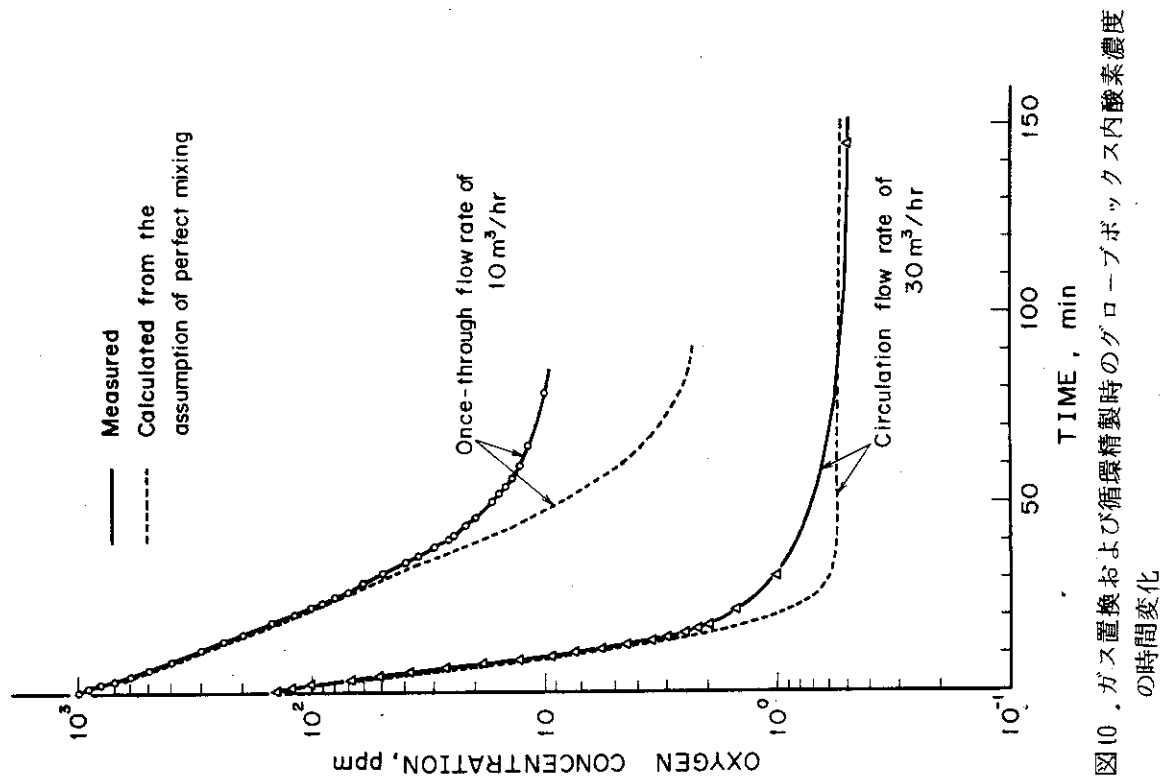


図10. ガス置換および循環精製時のグローブボックス内酸素濃度の時間変化

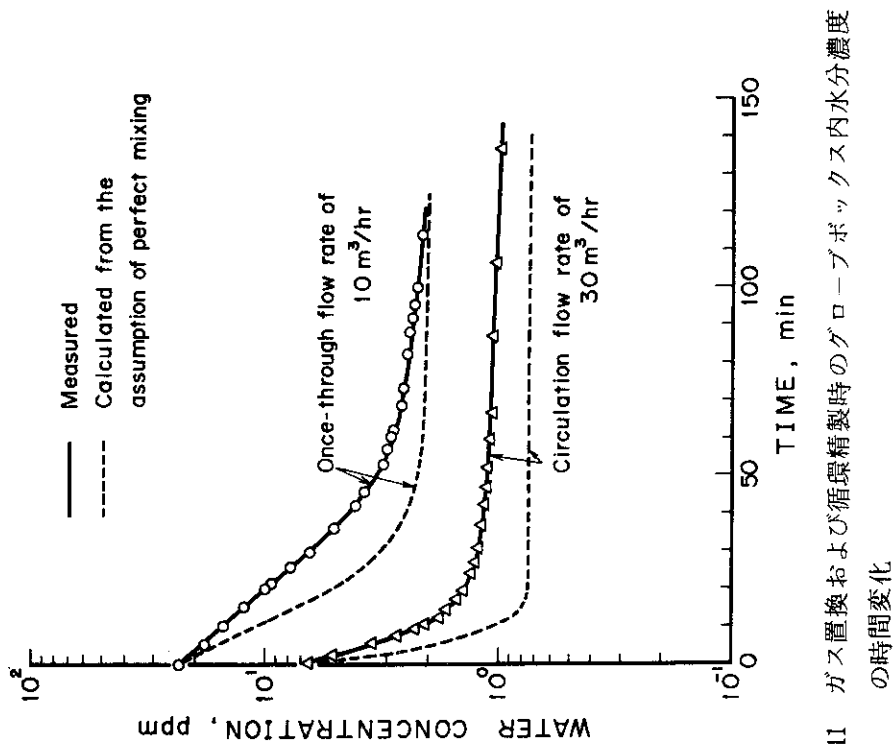


図11. ガス置換および循環精製時のグローブボックス内水分濃度の時間変化

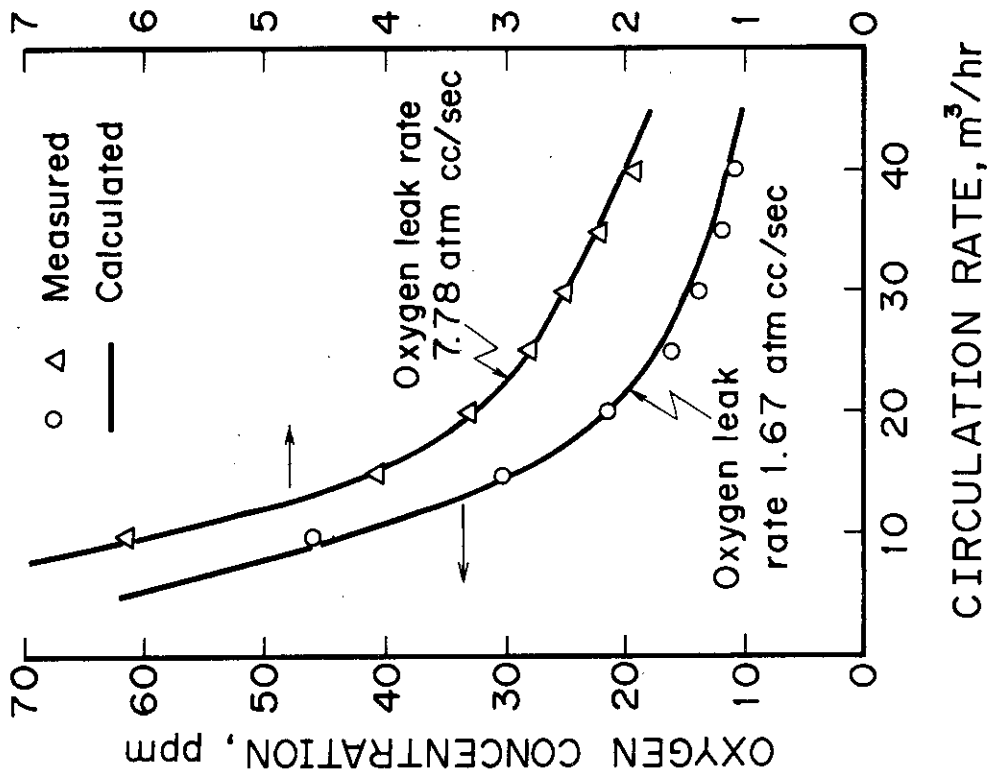


図12 グローブボックス雰囲気ガスの酸素濃度と循環流量の関係

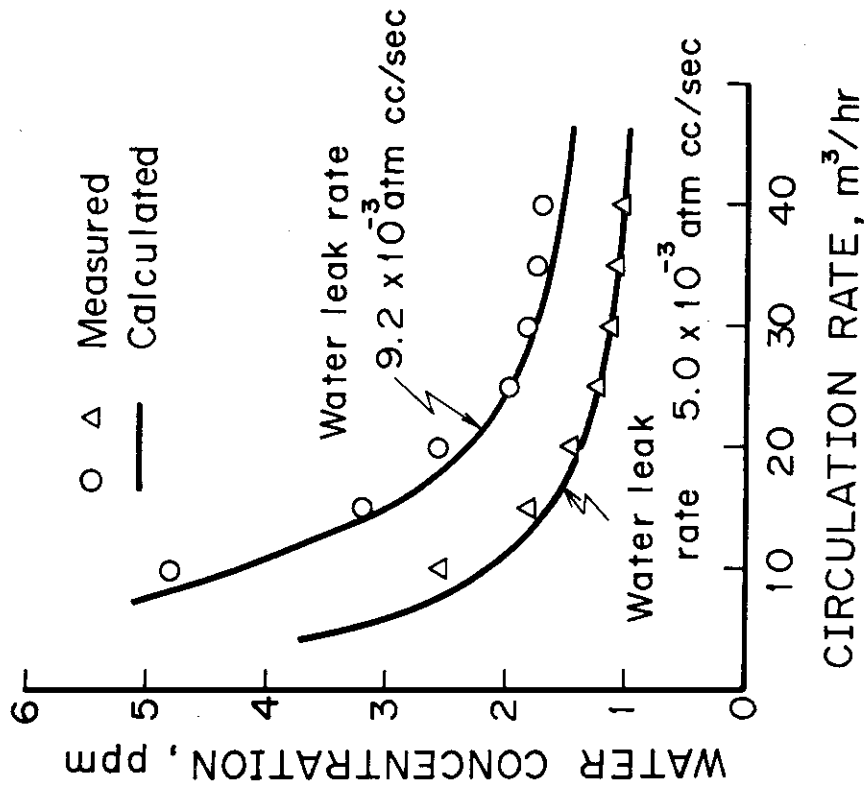


図13 グローブボックス雰囲気ガスの水分濃度と循環流量の関係

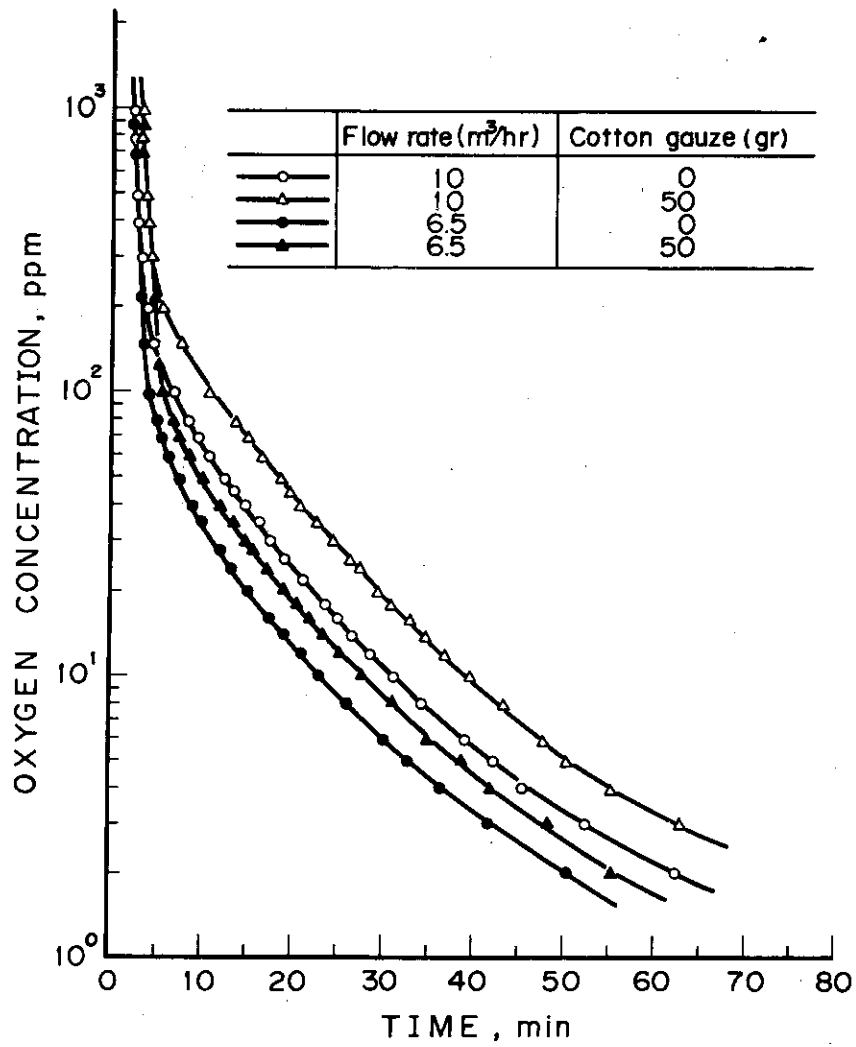


図14 物品搬入時のエアロック室内ガス置換過程における酸素濃度の時間変化

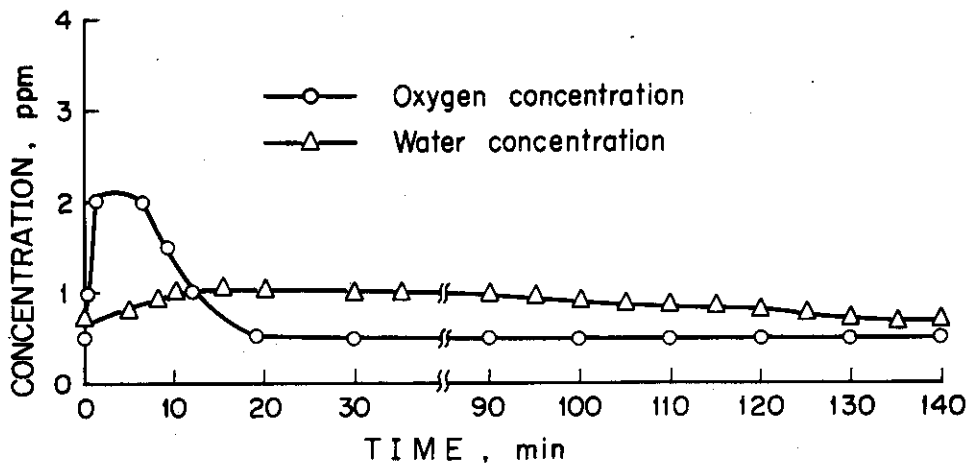


図15 物品搬入後のグローブボックス内酸素および水分濃度の時間変化

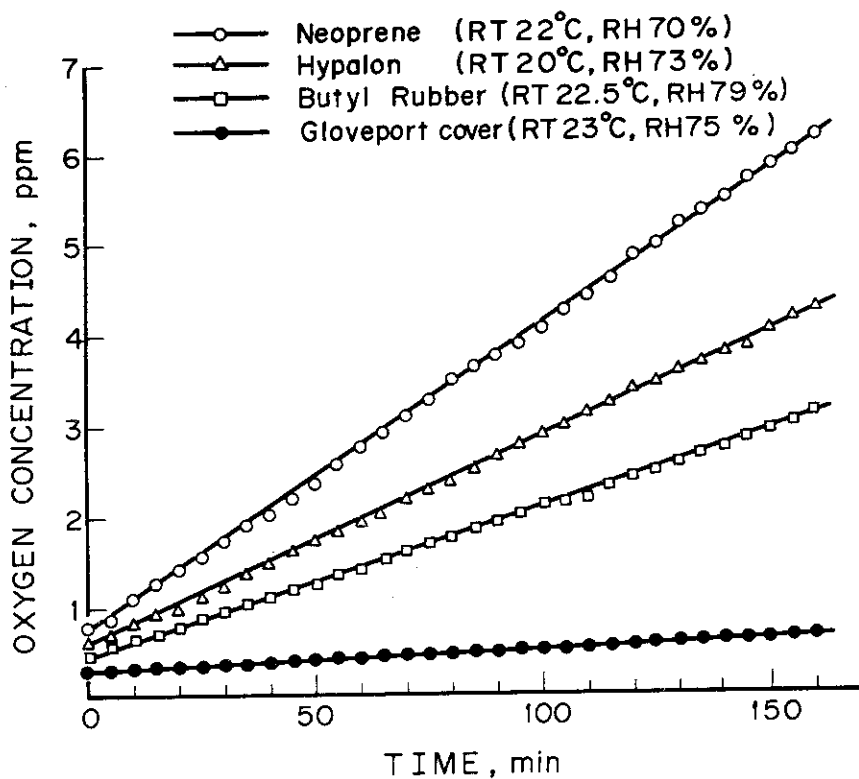


図16 運転停止後のグローブボックス内酸素濃度の時間変化

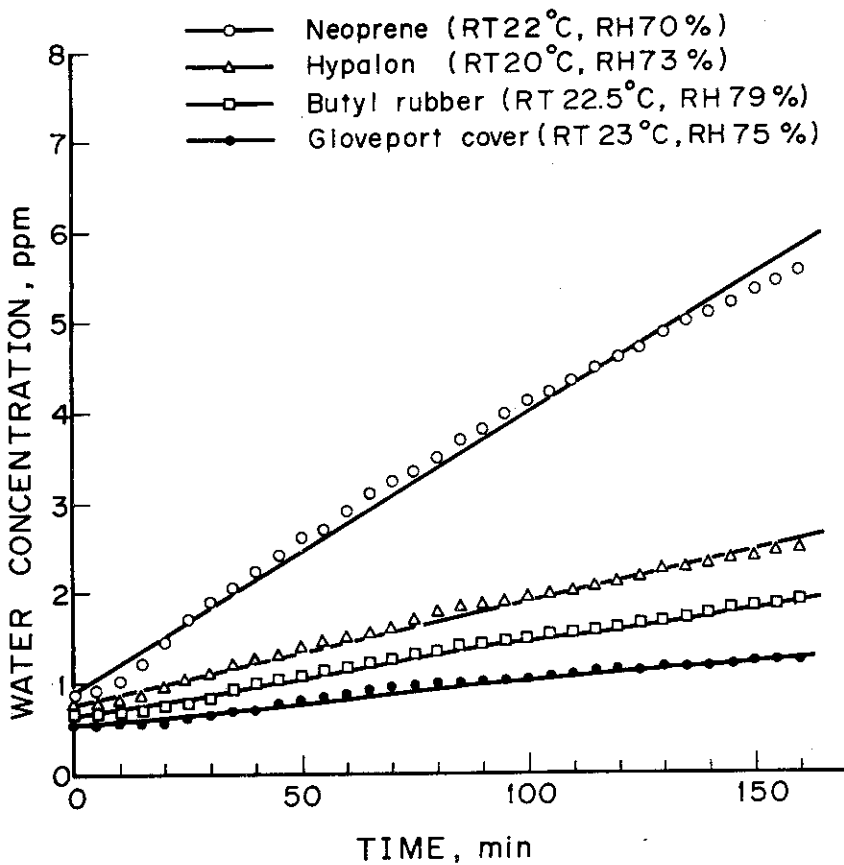


図17 運転停止後のグローブボックス内水分濃度の時間変化

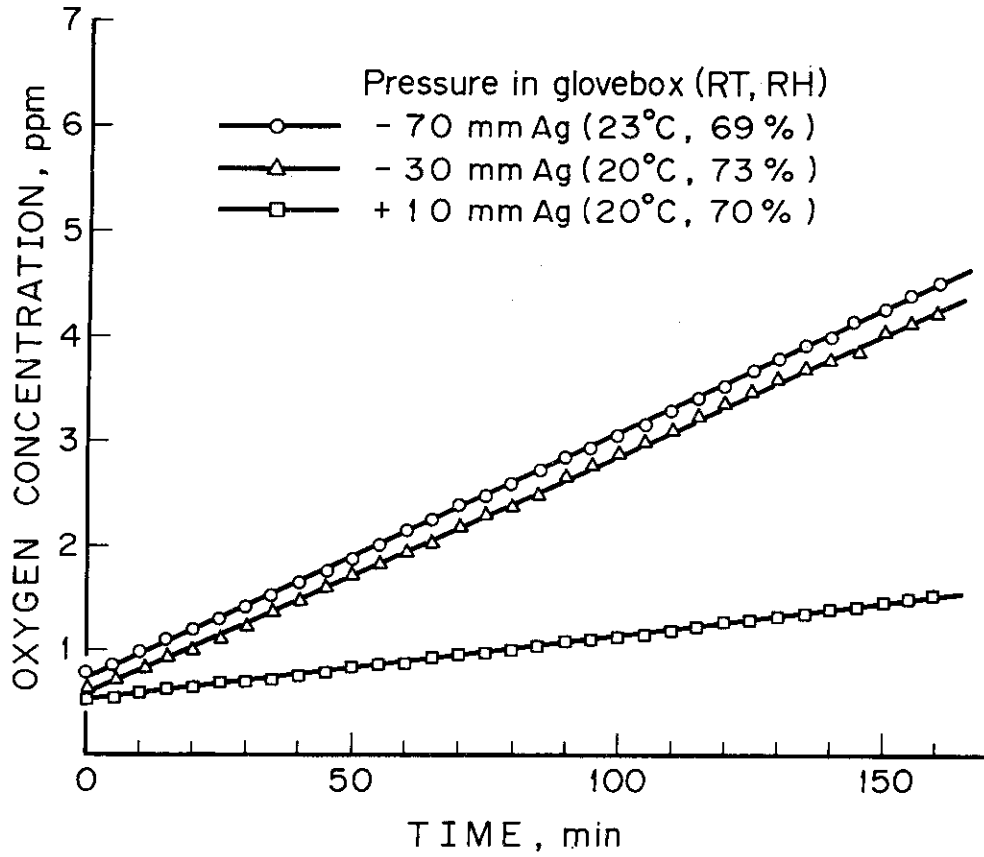


図18 グローブボックス圧力に対するグローブボックス内酸素濃度の時間変化

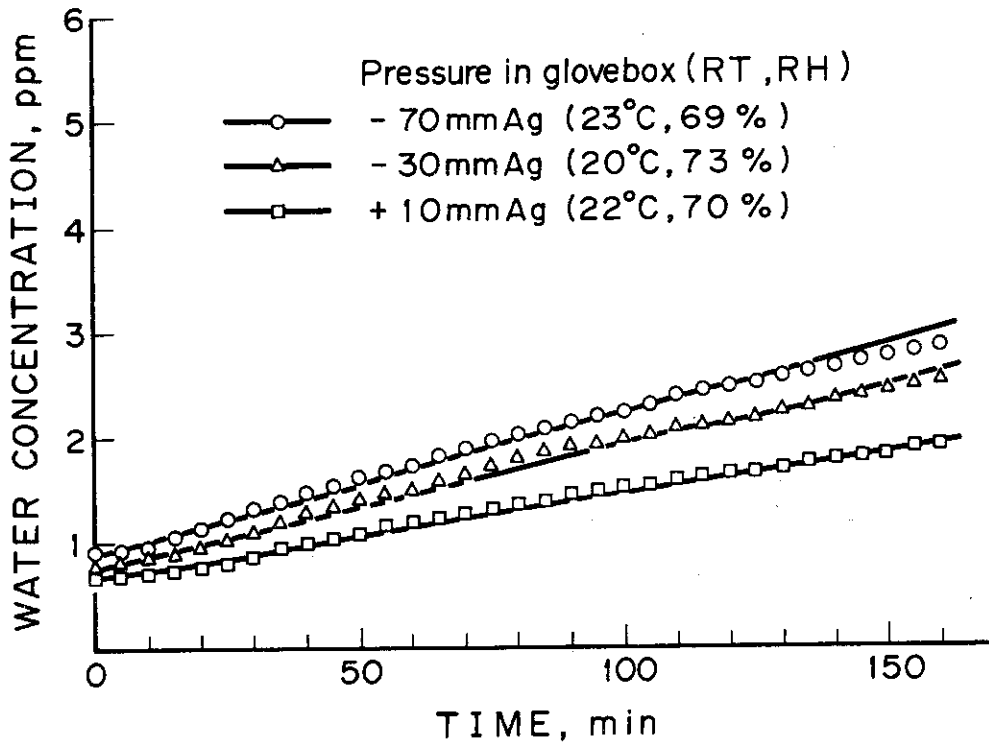


図19 グローブボックス圧力に対するグローブボックス内水分濃度の時間変化

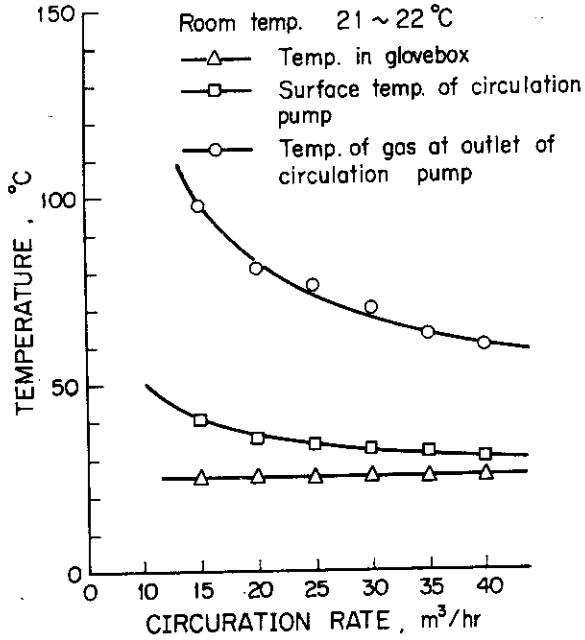


図20 運転時の循環ガスブロウおよび循環ガス温度と循環流量の関係

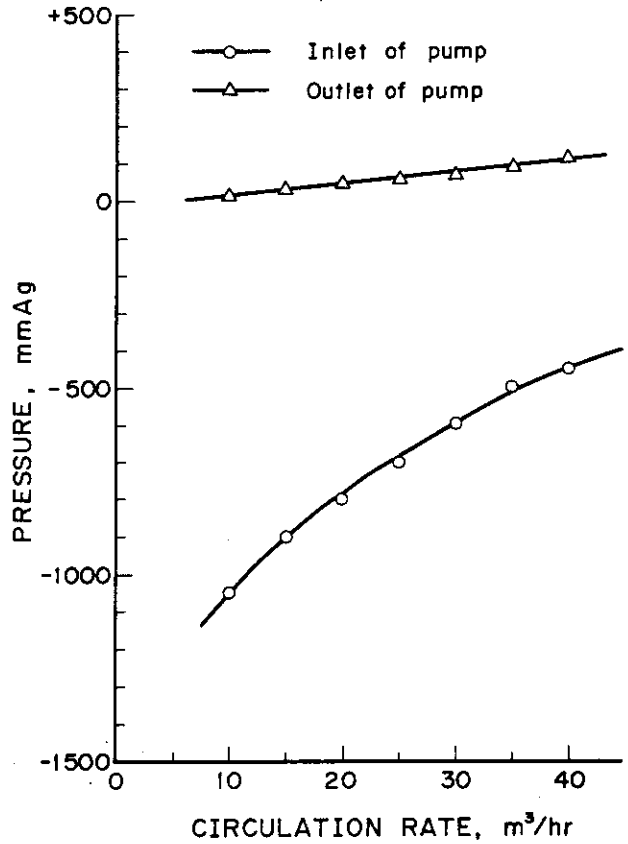


図21 循環ガス圧力と循環流量の関係

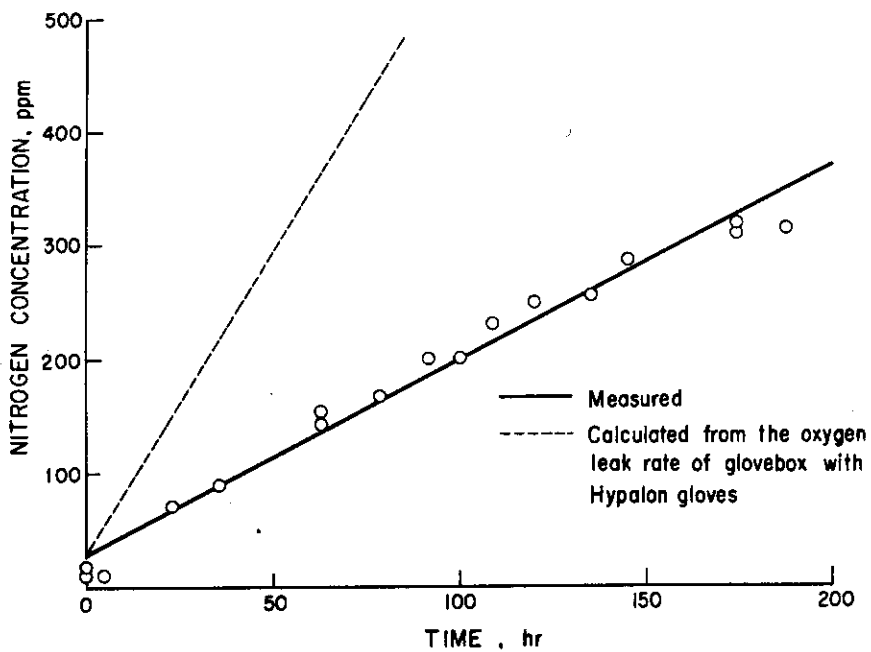


図22 運転時のグローブボックス内窒素濃度の時間変化

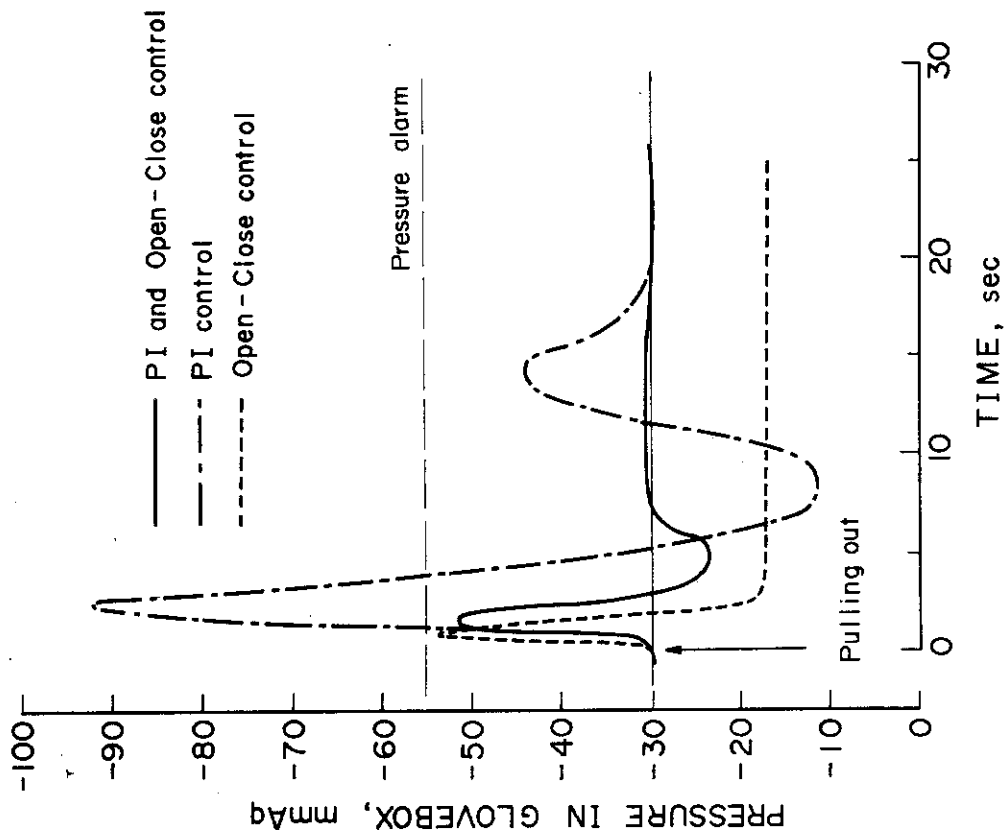


図23 グローブ1双「出し」操作時のグローブボックス圧力変化

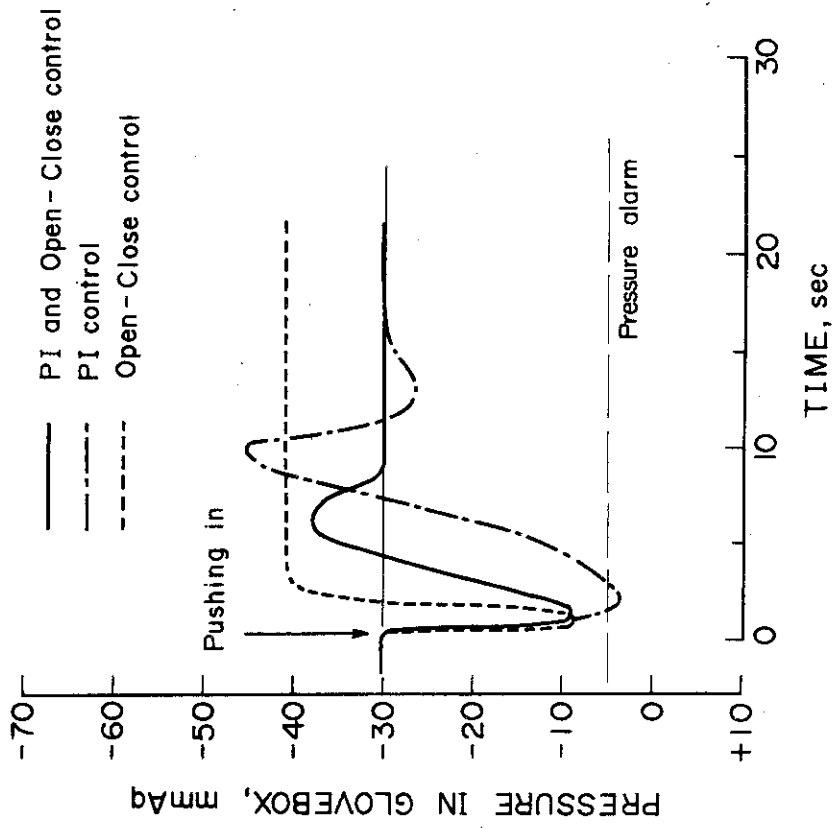


図24 グローブ1双「入れ」操作時のグローブボックス圧力変化

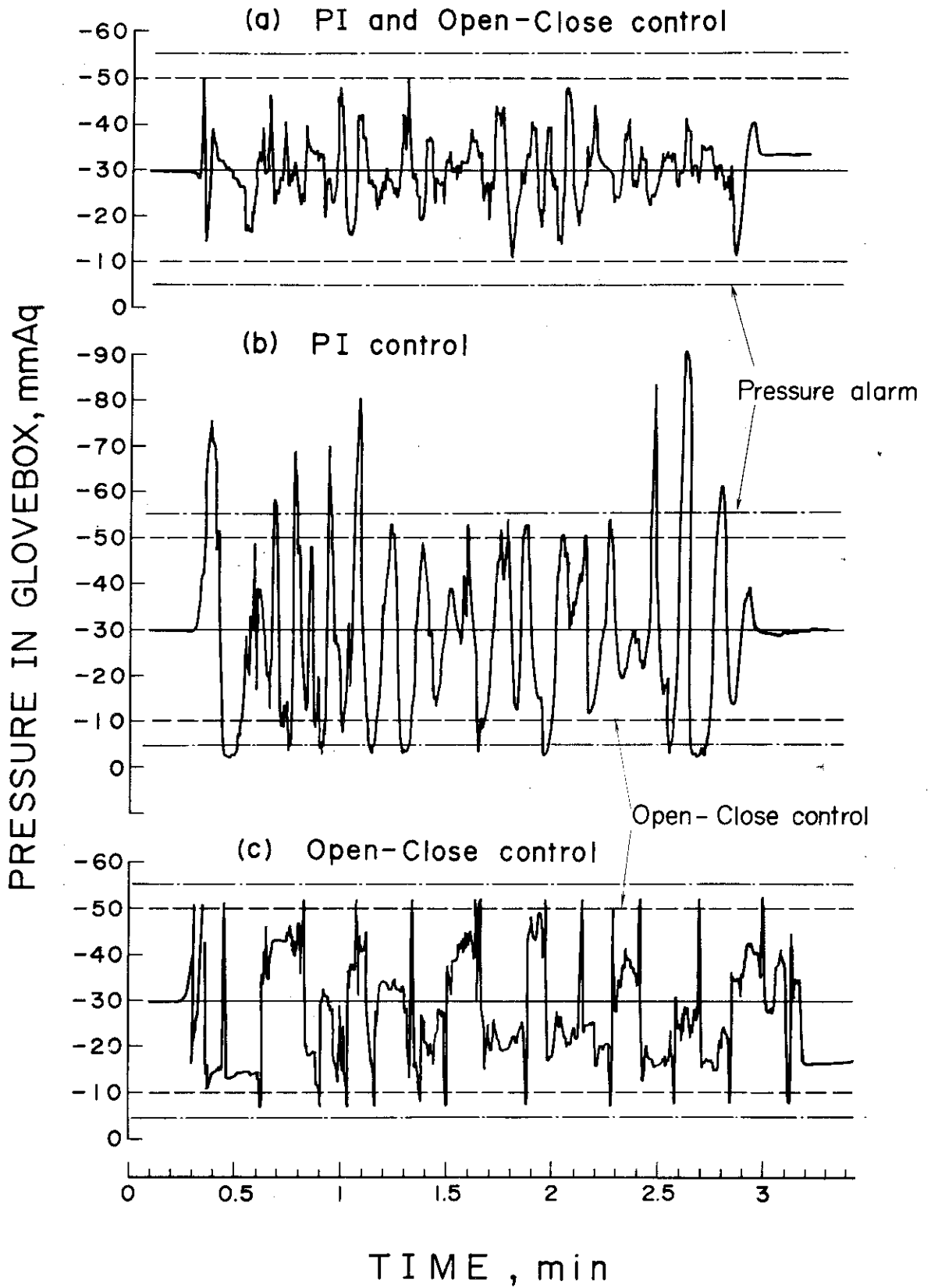


図25 通常作業時のグローブボックス圧力変化

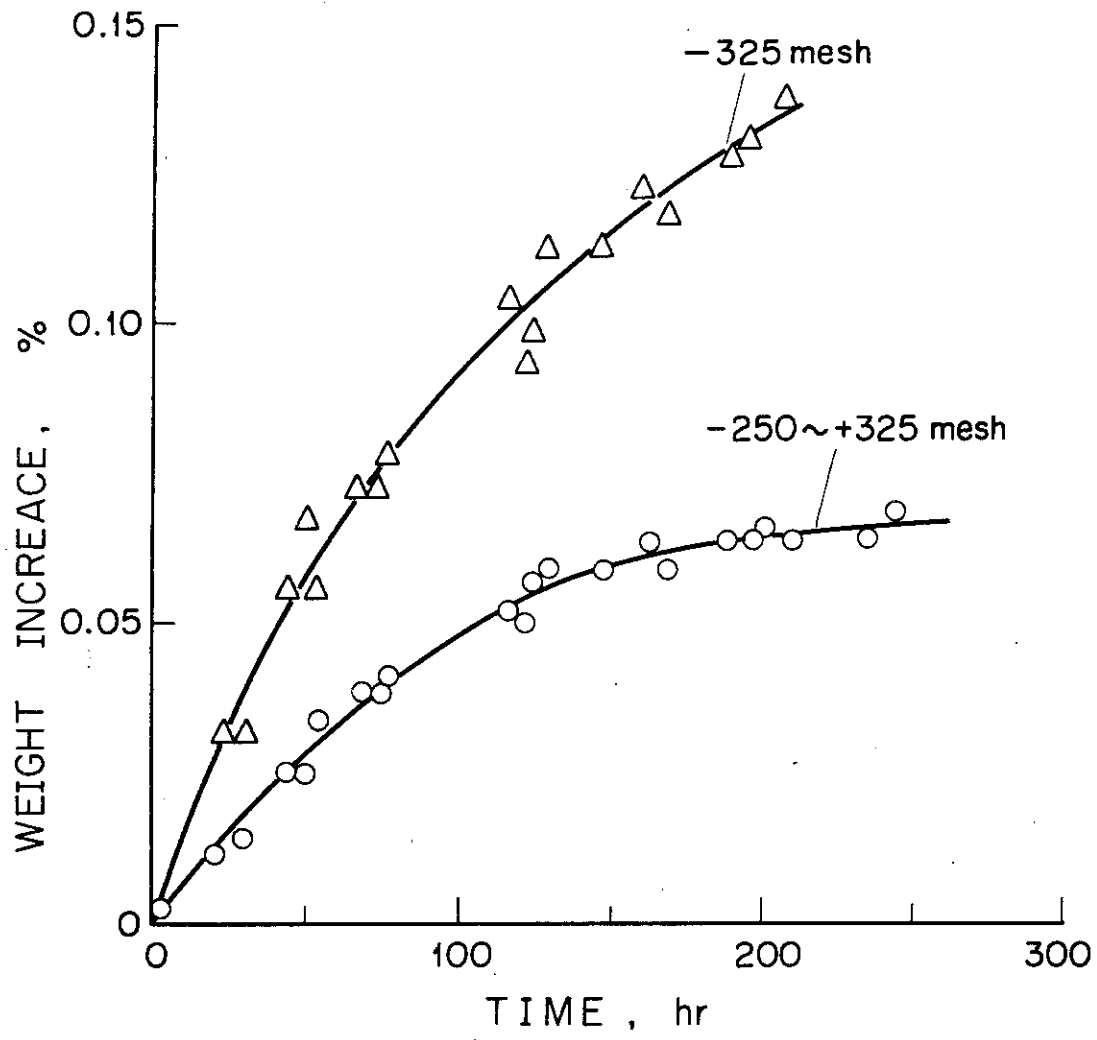


図26 グローブボックス雰囲気ガス中に露出したウラン粉末の重量増加率

6. 結 論

本装置は、化学的にきわめて活性なU-Pu混合炭化物系燃料物質の分析試料を取扱うため操作性、安全性および経済性のほかに装置の小型化と高純度雰囲気ガスを維持するという観点から検討し、設計製作された。この結果、本装置はつぎのような優れた性能を有していることが明らかになった。

- (1) GBの不純物漏洩率は装着グローブの材質に大きく依存するが、ハイパロン製グローブ装着GBにおける酸素、水分漏洩率はそれぞれ 6.14×10^{-4} 、 3.14×10^{-4} atm cc/secである。グローブからの透過を除くGB本体の酸素、水分漏洩率は 7.91×10^{-5} 、 1.27×10^{-4} atm cc/secである。また、これらの漏洩率はGB使用圧力範囲(-30 ± 20 mm Aq)およびGB外気相対湿度(50~90%)に依存しないで、ほぼ一定である。
- (2) 循環精製運転ではGB雰囲気ガスはGB内既存雰囲気ガスと循環精製ガスがGB内で完全混合しながら理想的に精製されている。GB雰囲気ガス純度は循環精製ガス流量に依存するが、ガス流量 $20 \sim 40$ m³/hの範囲では酸素、水分濃度ともに1 ppm以下を維持できる。
- (3) GB雰囲気ガス純度が平衡に達したGB内酸素、水分濃度分布はともに均一である。
- (4) 定常運転でGBの漏洩によりGB内に蓄積する窒素濃度の増加速度は1.7 ppm/h以下である。
- (5) 分析試料準備作業で炭化ウラン粉末(粒径 44μ 以下)がGB雰囲気ガス中の不純物(酸素、水分)により組成変化する割合は、炭素含有量 7.5×10^{-3} w/o以下、酸素含有量 1.0×10^{-2} w/o以下である。これらはいずれも炭素、酸素分析精度以下である。
- (6) 通常作業における精製筒1基あたりの寿命は2000時間以上である。
- (7) PI制御とOPEN-CLOSE制御の組合せにより、GB圧力はグローブ操作時においても -30 ± 20 mm Aqの範囲内で円滑に圧力制御される。
- (8) 最大仮想事故の1つであるグローブ1本脱落時のグローブポート開口部の空気流入線速度は143 m/minである。

謝 辞

このグローブボックスの設計製作にあたって野村末雄企画室長(前燃料工学部長)、下川純一燃料工学部長、栗原正義プルトニウム技術開発室長の御指導と御助力を、またプルトニウム燃料研究室の方々に有意義な御討論をいただいた。また、グローブボックス雰囲気ガス中の窒素分析にあたって分析センター小森卓二室長、大内操氏に御協力をいただいた。ここに各位に深く感謝の意を表します。

6. 結 論

本装置は、化学的にきわめて活性なU-Pu混合炭化物系燃料物質の分析試料を取扱うため操作性、安全性および経済性のほかに装置の小型化と高純度雰囲気ガスを維持するという観点から検討し、設計製作された。この結果、本装置はつぎのような優れた性能を有していることが明らかになった。

(1) GBの不純物漏洩率は装着グローブの材質に大きく依存するが、ハイパロン製グローブ装着GBにおける酸素、水分漏洩率はそれぞれ 6.14×10^{-4} 、 3.14×10^{-4} atm cc/secである。グローブからの透過を除くGB本体の酸素、水分漏洩率は 7.91×10^{-5} 、 1.27×10^{-4} atm cc/secである。また、これらの漏洩率はGB使用圧力範囲(-30 ± 20 mm Aq)およびGB外気相対湿度(50~90%)に依存しないで、ほぼ一定である。

(2) 循環精製運転ではGB雰囲気ガスはGB内既存雰囲気ガスと循環精製ガスがGB内で完全混合しながら理想的に精製されている。GB雰囲気ガス純度は循環精製ガス流量に依存するが、ガス流量 $20 \sim 40$ m³/hの範囲では酸素、水分濃度ともに1 ppm以下を維持できる。

(3) GB雰囲気ガス純度が平衡に達したGB内酸素、水分濃度分布はともに均一である。

(4) 定常運転でGBの漏洩によりGB内に蓄積する窒素濃度の増加速度は1.7 ppm/h以下である。

(5) 分析試料準備作業で炭化ウラン粉末(粒径 44μ 以下)がGB雰囲気ガス中の不純物(酸素、水分)により組成変化する割合は、炭素含有量 7.5×10^{-3} w/o以下、酸素含有量 1.0×10^{-2} w/o以下である。これらはいずれも炭素、酸素分析精度以下である。

(6) 通常作業における精製筒1基あたりの寿命は2000時間以上である。

(7) PI制御とOPEN-CLOSE制御の組合せにより、GB圧力はグローブ操作時においても -30 ± 20 mm Aqの範囲内で円滑に圧力制御される。

(8) 最大仮想事故の1つであるグローブ1本脱落時のグローブポート開口部の空気流入線速度は143 m/minである。

謝 辞

このグローブボックスの設計製作にあたって野村末雄企画室長(前燃料工学部長)、下川純一燃料工学部長、栗原正義プルトニウム技術開発室長の御指導と御助力を、またプルトニウム燃料研究室の方々に有意義な御討論をいただいた。また、グローブボックス雰囲気ガス中の窒素分析にあたって分析センター小森卓二室長、大内操氏に御協力をいただいた。ここに各位に深く感謝の意を表します。

参 考 文 献

- 1) 福島 奨, 笹山龍雄, 鈴木康文, 渡辺 斉 : JAERI-M 5599 (1974)
- 2) 渡辺 斉, 福島 奨, 鈴木康文, 笹山龍雄 : Internal memo
- 3) Russel L.E. and Harrison J.D.L. : AERE-R 4328 (1963)
- 4) McLaren J.R., Regan M.C. and Hedger H.J. : AERE-R 4486 (1964)
- 5) 真空技術常用諸表編集委員編 : "真空技術常用諸表" 日刊工業新聞社, p. 220, 222 (1965)
- 6) 中島 敏, 他編 : "真空工学ハンドブック" 朝倉書店, p. 247 (1965)
- 7) Walton G.N. : "Glove Boxes and Shielded Cells" Butter worths Scientific Publications, London, p.125 (1958)
- 8) 工業計測技術大系編集委員編 : "工業計測技術大系" 日刊工業新聞社, 10. 7 (1965)
- 9) White P.A.F. and Smith S.E. : "Inert Atmospheres" Butterworths, Washington, 164~175 (1962)
- 10) Ayer J.E., Mayfield R.M. and Schmitt D.R. : Nucl. Sci. Eng., 8, 274 (1960)
- 11) Tsujimura S., Takahashi A. and Fujisawa G. : J. Nucl. Sci. Technol., 5, 30 (1968)
- 12) Suzuki Y., Sasayama T. et al. : JAERI-M (1978) (to be published)
- 13) Harrison J.D.L., Isaacs J.M., Roberts W.G. and Russell L.E. : "Carbides in Nuclear Energy" ed. Russell L.E., Bradbury B.T., Harrison J.D.L., Hedger H.J. and Mardon P.G., Macmillan, London, Vol. 2, 629 (1964)
- 14) McLaren J.R., Regan M.C. and Hedger H.J. : 文献 13 に同じ, p. 588 (1964)
- 15) Musgrave L.E. : "Proc. of the Rocky Flats Symposium on Safety in Plutonium Handling Facilities" TID-4500, 106 (1971)
- 16) Matheson L.A., Johnson T.C. and Oliver A.J. : 文献 16 に同じ, p. 83 (1971)
- 17) Handa M., Maeda A. and Shiozawa K. : private communication