

JAERI-M

7572

プルトニウム蒸発挙動測定グローブ
ボックスの製作

1978年3月

大道敏彦・笹山竜雄・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、お申しこしてください。

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.

プルトニウム蒸発挙動測定グローブボックスの製作

日本原子力研究所東海研究所燃料工学部
大道敏彦・笹山竜雄・前多 厚・渡辺 斉

(1978年1月31日受理)

プルトニウム燃料物質の蒸発挙動を質量分析的に研究するための装置を製作した。クヌンセンセルは一对のタングステンコイルヒーターで加熱され、この上部の約10cmの位置に四重極子型質量分析計のイオン化室が設けられている。セル等を含むチェンバーを排気するためにはイオンポンプが使用され、チェンバー内の圧力はセルの温度(室温~1800°C)に依存して、 10^{-8} ~ 10^{-6} Torr 台にある。主イオンポンプと二個のソープションポンプ以外の装置全体は、 $100 \times 225 \times 110$ cm³の大きさをもつプルトニウム用グローブボックス内に収められている。測定装置の性能を調べるために銀の蒸発の測定を行ない、銀の融点近傍で $\log IT$ vs. $1/T$ 曲線の勾配の変化が認められた。融点以上での ΔH°_{vap} 、融点以下での ΔH°_{sub} は、それぞれ $60.1 \text{ Kcal} \cdot \text{mole}^{-1}$ 、 $66.8 \text{ Kcal} \cdot \text{mole}^{-1}$ であり、従来の文献値と良く一致した。

Mass spectroscope-knudsen cell apparatus for
vaporization of plutonium fuel materials

Toshihiko OHMICHII, Tatsuo SASAYAMA, Atsushi MAEDA
and Hitoshi WATANABE

Division of Nuclear Fuel Research,
Tokai Research Establishment, JAERI

(Received January 31, 1978)

In the apparatus for mass spectroscopic study of the vaporization of Pu fuel material, the ionization room of a quadropole mass spectroscope is about 10 cm above the knudsen cell, which is heated by a pair of W coil resistance heaters. Ion pumps are used to evacuate the chamber including the cell, and pressure in the chamber is $10^{-8} \sim 10^{-6}$ mmHg depending on temperature of the cell (room temperature to 1800 °C). The apparatus except a main ion pump and two sorption pumps is in a Pu glove box, 100 x 225 x 110 cm. To examine performance of the apparatus, the vaporization of Ag was measured. A log IT vs. $1/T$ curve shows slope changes near the melting point of Ag: $\Delta H_{\text{vap}}^{\circ} = 60.1 \text{ Kcal.mole}^{-1}$ and $\Delta H_{\text{sub}}^{\circ} = 66.8 \text{ Kcal.mole}^{-1}$ are in agreement with those in the literature.

Keywords: Plutonium, Vaporization, Mass spectroscope,
Knudsen cell

目 次

まえがき	1
1. グローブボックスと内装装置の概略設計	1
1.1 グローブボックス内装置の製作についての一般的制約	1
1.2 グローブボックスと内装装置の組合せ	2
2. 装置の構成	4
2.1 クヌンセンセルおよびヒーター部	6
2.2 質量分析部	7
2.3 排気系	8
2.4 内装装置のための制御系	9
2.5 冷却水送水装置	9
2.6 グローブボックス	10
3. 装置の性能	13
3.1 蒸発挙動測定装置の特性	13
3.2 装置の定量測定の信頼性	18
あとがき	20

Contents

Introduction	1
1. Rough design of the knudsen cell-mass spectroscope apparatus	1
1.1 General limitation for constructing apparatus in glove box	1
1.2 Combination of the apparatus and the glove box	2
2. Constitution of the apparatus and the glove box	4
2.1 Knudsen cell and heater	6
2.2 Mass spectroscope	7
2.3 Vacuum pump	8
2.4 Control and record panel	9
2.5 Water pump	9
2.6 Glove box	10
3. Characteristics of apparatus	13
3.1 Performance of apparatus (heating, vacuum and mass spectroscopy)	13
3.2 Reliability of measurement	18
Summary	20

ま え が き

原子炉燃料材料の開発にとって、高温の熱力学、熱化学反応の研究は基本的なものである。しかし、高温であるために一般的な物理化学的手段を用いることには種々の困難が伴ない、高温用測定手段の開発が望まれる。この様な中で、クヌンセンセルと質量分析計を組合せた装置は従来から熱力学諸量の算出、熱化学反応の研究に有用とされてきた。

近年、四重極子型質量分析計の進歩がめざましいが、この質量分析計は軽量小型であり、保守が簡単であるとともに、構造的に完全なヌード型に出来るためにクヌンセンセルとの結合は容易である。

一般にプルトニウム化合物はウランやトリウムなどの化合物と比較して蒸発性に富んでいる。これはプルトニウムを含む核燃料の挙動に重要な意味をもっている。プルトニウムの優先的な蒸発のために、燃料ペレット表面 プルトニウム密度は減少する。すなわち、ペレット径方向のプルトニウム密度の変化により、燃料単位体積当りの出力の変化が起り、径方向の温度分布の変化が起るであろう。このことは燃料ペレット内の偏折、ペレットのスエリング機構に影響があるであろう。またペレット表面の組成変化はクラッド材との化学的相互作用に影響することが考えられる。この様なことからプルトニウムの蒸発現象を基礎的に把握しておくことは重要であり、これを調べるためのグローブボックスと組合せた測定装置の製作が望まれる。

本報告は、質量分析計として、小型で取扱いが簡単であるためグローブボックス内での使用に適している四重極子型質量分析計を採用し、これとクヌンセンセルと組合せた装置の製作に関したものである。蒸発挙動測定装置本体の製作は、この種の装置の製作に経験を有した日電バリアン(株)に依頼し、これを収容するグローブボックスの製作は吉田鉄工所(有)に依頼し、製作依頼者である我々原研側との多くの協同作業の中で進められた。

1. グローブボックスと内装装置の概略設計

1.1 グローブボックス内装装置の製作についての一般的制約

グローブボックス(以下文中G・B)という密封系で限られた空間の中に装置を設置する場合、一般実験室における設置と比較すると数倍の検討が必要である。一般にG・Bと内装装置との組合せたものの設計は次の様な過程を経る。

- i) 内装装置の基本的性能を定め、G・Bを考慮しない仕様を定める。
- ii) 装置各部分について、G・B内に収容すべき部分と、G・B外に置く部分を分類する。
- iii) 装置各部分のG・Bとの組合せ(配置、構成)を検討する。
- iv) 内装装置とG・Bとを組合せた結果が、内装装置の基本的性能をそこなっていないかどうかを確認する。

ま え が き

原子炉燃料材料の開発にとって、高温の熱力学、熱化学反応の研究は基本的なものである。しかし、高温であるために一般的な物理化学的手段を用いることには種々の困難が伴ない、高温用測定手段の開発が望まれる。この様な中で、クヌンセンセルと質量分析計を組合せた装置は従来から熱力学諸量の算出、熱化学反応の研究に有用とされてきた。

近年、四重極子型質量分析計の進歩がめざましいが、この質量分析計は軽量小型であり、保守が簡単であるとともに、構造的に完全なヌード型に出来るためにクヌンセンセルとの結合は容易である。

一般にプルトニウム化合物はウランやトリウムなどの化合物と比較して蒸発性に富んでいる。これはプルトニウムを含む核燃料の挙動に重要な意味をもっている。プルトニウムの優先的な蒸発のために、燃料ペレット表面 プルトニウム密度は減少する。すなわち、ペレット径方向のプルトニウム密度の変化により、燃料単位体積当りの出力の変化が起り、径方向の温度分布の変化が起るであろう。このことは燃料ペレット内の偏折、ペレットのスエリング機構に影響があるであろう。またペレット表面の組成変化はクラッド材との化学的相互作用に影響することが考えられる。この様なことからプルトニウムの蒸発現象を基礎的に把握しておくことは重要であり、これを調べるためのグローブボックスと組合せた測定装置の製作が望まれる。

本報告は、質量分析計として、小型で取扱いが簡単であるためグローブボックス内での使用に適している四重極子型質量分析計を採用し、これとクヌンセンセルと組合せた装置の製作に關したものである。蒸発挙動測定装置本体の製作は、この種の装置の製作に経験を有した日電バリアン（株）に依頼し、これを収容するグローブボックスの製作は吉田鉄工所（有）に依頼し、製作依頼者である我々原研側との多くの協同作業の中で進められた。

1. グローブボックスと内装装置の概略設計

1.1 グローブボックス内装装置の製作についての一般的制約

グローブボックス（以下文中G・B）という密封系で限られた空間の中に装置を設置する場合、一般実験室における設置と比較すると数倍の検討が必要である。一般にG・Bと内装装置との組合せたものの設計は次の様な過程を経る。

- i) 内装装置の基本的性能を定め、G・Bを考慮しない仕様を定める。
- ii) 装置各部分について、G・B内に収容すべき部分と、G・B外に置く部分を分類する。
- iii) 装置各部分のG・Bとの組合せ（配置、構成）を検討する。
- iv) 内装装置とG・Bとを組合せた結果が、内装装置の基本的性能をそこなっていないかどうかを確認する。

多くの場合、i) ~iv) の段階は単純な進行を見ない。とりわけ、iii) の段階の作業は困難である。これはG・B内の装置を入れる場合は次の様な制約があるからである。

- a) G・B内の装置各部はグローブによる操作性を満足していること。
 - b) グローブによる装置各部の修理・交換が可能であること。
 - c) G・B内事故の原因となりやすい危険な要素はG・B内から取除くこと。
- などである。

種々の制約のため、i) ~iv) の検討過程で、当初の目標とされた内装装置の基本的性能の変更を余儀なくされる場合も少くない。結局、i) ~iv) を何度かくり返すことによって、G・B内装装置の組合せ方式が決まり、次いで詳細な設計・検討に入っていく。

1.2 グローブボックスの内装装置の組合せ

内装装置の使用主目的は、固体・液体試料表面と平衡している 10^{-1} ~ 10^{-6} Torr程度の蒸気を測定しようとするものだから、試料の周りの系の圧力を如何にして低くするかが課題になる。また、真空雰囲気は排気ポンプからの逆流分子によって汚され、測定しようとする蒸気種の質量数と重なることは極力さげなければならない。油拡散ポンプは油の逆流をさげ難いので、主ポンプにはイオンポンプを使用することにした。また、イオンポンプの他にチタンゲッターサブレーションポンプを並用するならば、排気容量の小さいイオンポンプでよいが、サブレーションポンプの素子交換の頻度が多いこと、冷却水を使用しなければならないことなどから、比較的容量の大きいイオンポンプを使用することにした。

クヌンセンセルと質量分析計分析管との位置関係は、必然的にクヌンセンセルの上部に分析管を設置する必要がある。また、試料交換時にクヌンセンセル部を大気に開放する場合でも、分析管は真空に保たれていることが分析管性能維持のために望ましい。このために両者の間にゲートバルブを備える必要がある。一方、蒸気種の分析精度を高めるには、クヌンセンセルと分析管イオン化室の間の距離は出来るだけ小さいことが望まれる。ゲートバルブの使用はこの距離を大きくするため、この使用をさげ、後述の様なカットオフバルブを使用することになった。このため、後述の様に排気系主イオンポンプの設置に制約を生じた。

試料の交換をクヌンセンセルを収容する真空チェンバーのどの部分から行うかは、重要な問題である。真空チェンバーの上部から試料交換を行うことは、そこに質量分析計が位置しているために不可能である。従って、側面部または下部からの交換が残されるが、側面からの交換は真空チェンバー内部構造物の配置を複雑にするとともに設計上の困難を伴う。一方、下部からの試料交換、即ち、真空チェンバーの下部フランジ上に、クヌンセンセルを支持させて、フランジごとクヌンセンセル部を取はずす方法は、真空チェンバー下に大きな空間を作る必要があるため、G・Bの高さが大きくなる難点がある。両者を比較検討の結果、設計上の容易さを優先して真空チェンバー下部からの試料交換を採用した。

以上が内装装置から見たG・Bとの結合で問題となる要因であるが、一方、G・B側自体にも種々の制限がある。これらを考慮して、内装装置とG・Bの組合せの概略が決められた。図1にG・Bと内装装置の配置の概略を示す。

大きな容積をしめるイオンポンプおよび荒引用のソーブションポンプはG・B外に設置した。イオンポンプと真空チェンバーをつなぐ排気導管はG・B壁と接するが、この接続面は金属面である必要がある。質量分析計とカットオフバルブを結ぶ線の長さはかなり長くなり、その距離はG・Bの奥行(通常100 cm)をこえる。また排気導管の長さは真空性能上は出来る限り短かいことが望ましい。この様なことから排気導管の接続面は図1に示すように普通はグローブ操作面である面の一部にもってこざるを得なかった。

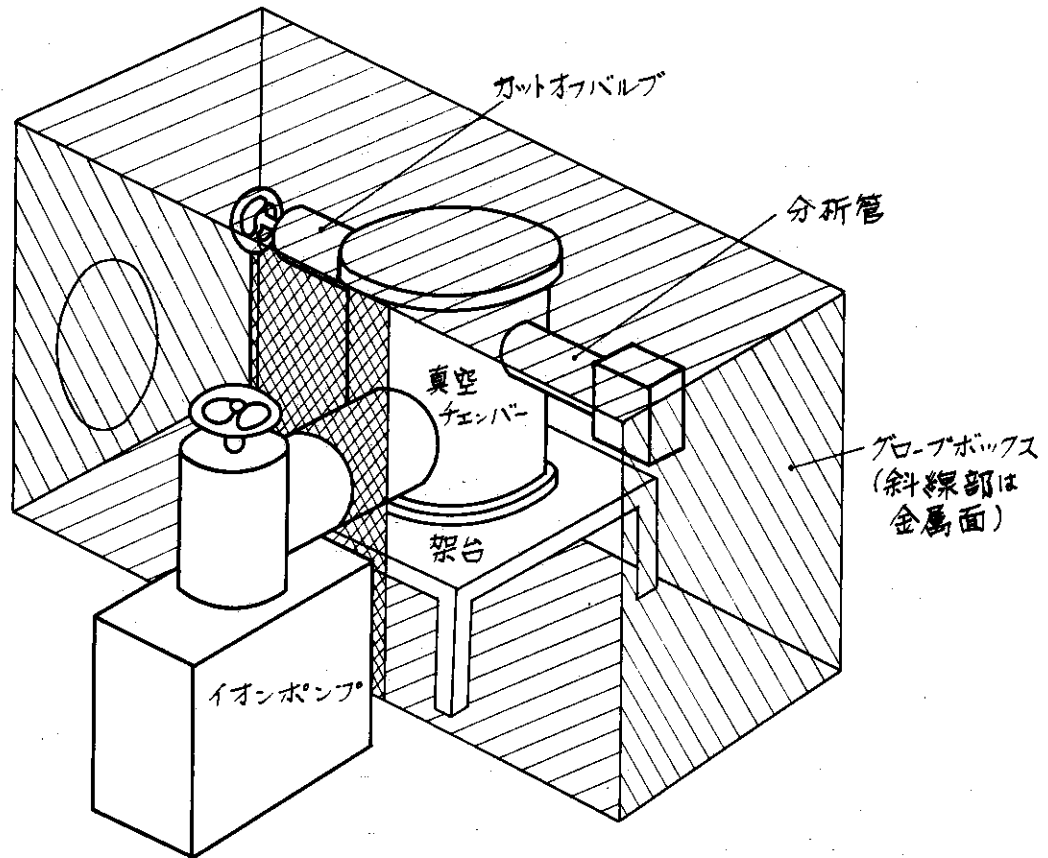


図1 内装装置とG・Bの結合の概略構造(製作前)

2. 装置の構成

前項で記述したG・Bと内装装置との概略配置をもとにして、各部の詳細な検討が加えられ、最終的には図2に示す様な内装装置が製作された。また、実験室内におけるG・Bならびに関連機器の配置も図3の様に改定された。2の項では、装置各部の詳細と機能などを記述する。

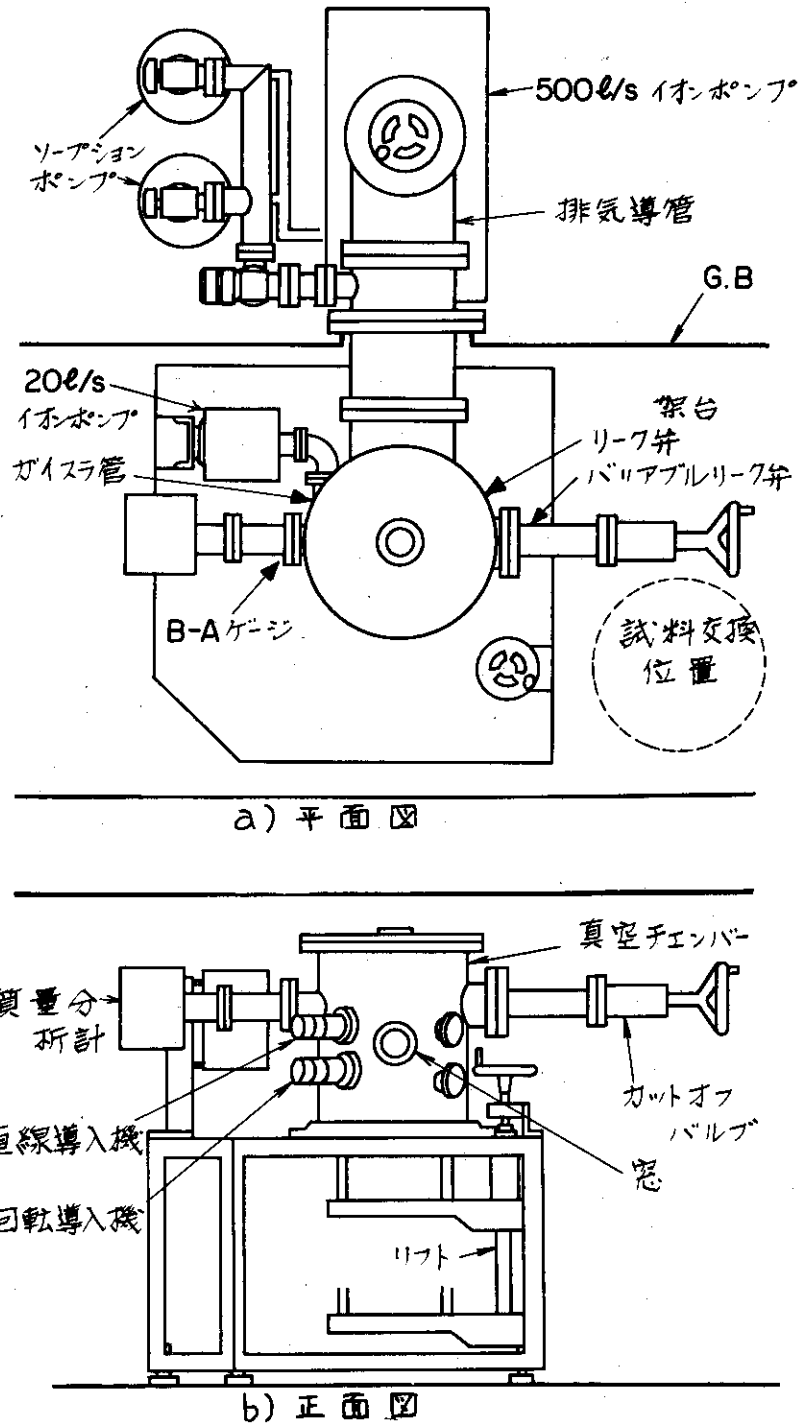


図2 製作された内装装置 (→は真空チェンバーにとりつけられた位置を示す。)

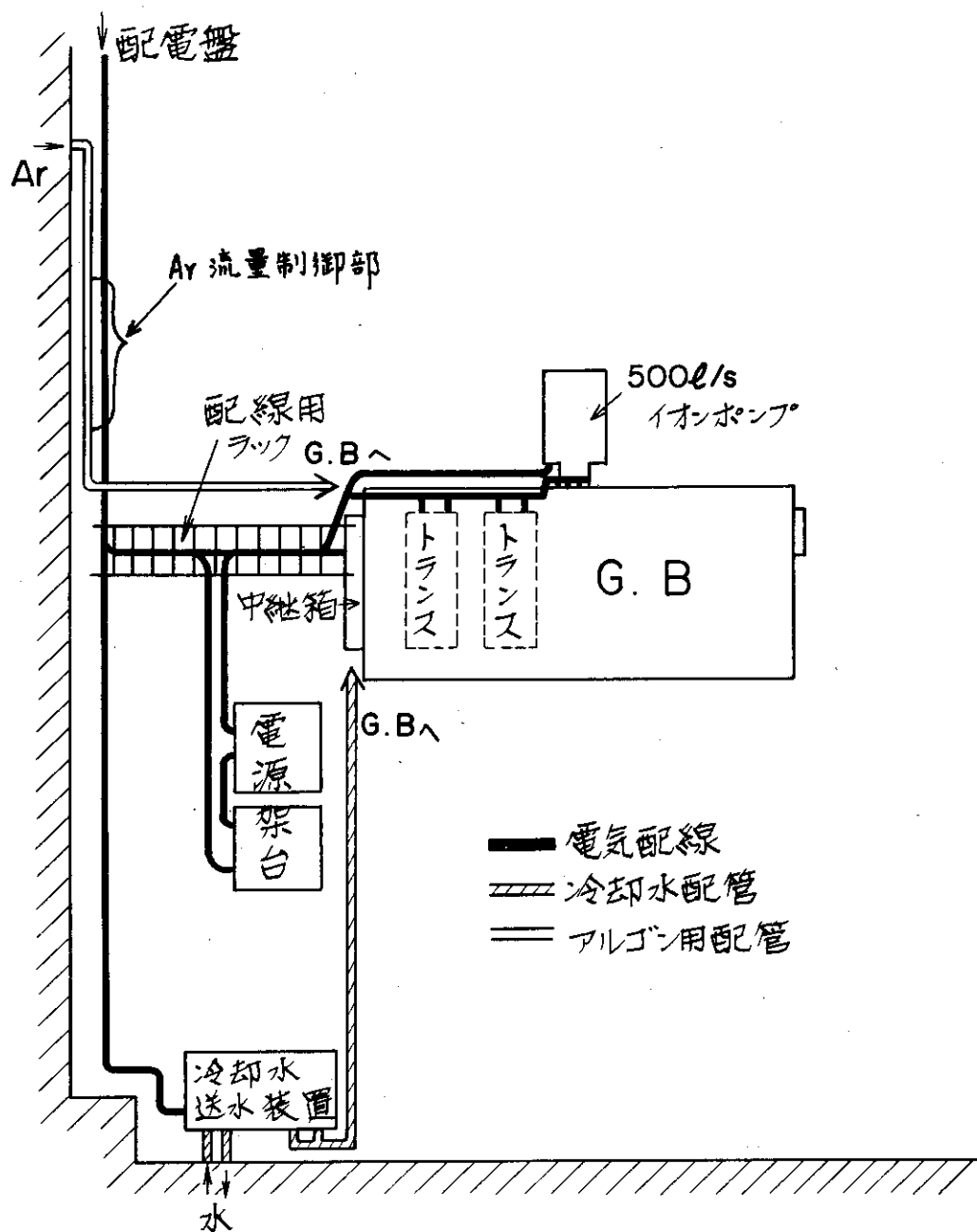


図3 実験室内におけるG.B.ならびに関連機器の配置

2.1 クヌンセンセルおよびヒーター部

図4には質量分析計、クヌンセンセルなどを収容する真空チェンバーの内部組立を示す。

チェンバーのほぼ中心に位置するクヌンセンセルは、タンタル製サセプターに収められる。セルの寸法は外径116mm以下、高さ13mm以下の同筒形であれば良い。セルの材質は測定に供せられる試料と測定温度によって選ばれるが、本装置の主要目的である、含プルトニウム炭化物系試料の測定のためには、タンタル製セルを使用し、しかもセル内面は約2000°Cで24時間、黒鉛粉末と反応させて、表面をタンタルカーバイト化したものを使用する予定である。こうすることによって、セルとプルトニウム炭化物との熱力学的反応を避けることが出来る。サセプターはモリブデン製棒によって支持されており、真空チェンバー下部フランジと連結している。

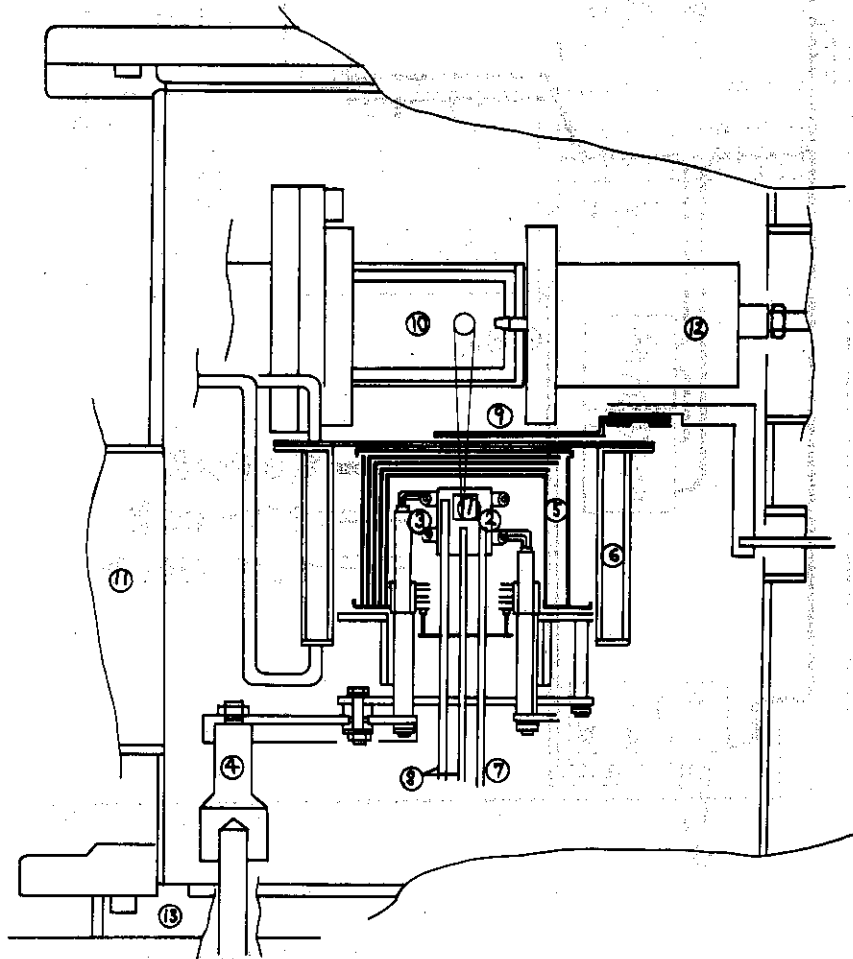


図4 内装装置真空チェンバーの内部組立

- ①クヌンセンセル ②Ta製サセプター ③Wコイルヒーター
- ④ヒーター用電極 ⑤Ta, Mo製熱反射板 ⑥水冷ジャケット
- ⑦Mo製支持棒 ⑧熱電対 ⑨スリット板 ⑩質量分析計イオン化室
- ⑪排気導管 ⑫カットオフバルブ ⑬下部フランジ

セルの加熱は、サセプターの外側に位置する上下2対のタングステンのらせんヒーター（線径1.0 mmφ）によって行われる。加熱は輻射加熱方式で、上下を独立にPID制御可能である。温度の測定はタンタルサセプターにあげられた孔に挿入した2対のW/Re 3-25熱電対によって行われる。1対の熱電対はクヌンセンセル底部に先端を有し、もう1対はクヌンセンセルの上部より側方に約5 mmの位置に先端を有している。この様に試料を収容するセルと熱電対は非常に接近しており、しかも2対の熱電対で測定しているため、試料温度は熱電対指示温度によって指示されると考えて良い。物質の蒸気圧はそれが置かれている温度に非常に鋭敏であり、試料の温度を正確に測定することと温度制御が良いことが望まれる。クヌンセンセルの加熱には、電子衝撃の方法がよく用いられるが、この方法は温度制御に難点があるが、本装置の加熱方式はこの点では優れていると云える。また、ヒーターならびに被加熱体の熱容量が小さいため、迅速な温度上昇と冷却が可能である。

ヒーターの外側はタンタル、モリブデン製の五重の熱反射板が置かれている。反射板の上部中心にはクヌンセンセルから出てくる蒸発分子線を質量分析計に導く孔があげられている。

試料の交換は次の様にして行なわれる。クヌンセンセル部およびヒーター部は下部フランジに支持固定されているので、まず、図2に示したリフトを駆動させて下部フランジを下降させ、セル部共に真空チェンバー外に取出す。次いで、リフト軸を中心にフランジを回転移動させて、図2に示す試料交換位置にもってくる。熱反射板全体を取りはずし、タンタルサセプター上部を開けるとクヌンセンセルが露出するため、この状態で試料のセットを行うことになる。

クヌンセンセル部、ヒーター部に附随して、真空チェンバー壁ならびに内部には以下に示す様な機構を有している。

クヌンセンセル支持部はヒーター部とは独立しており、セル位置の調整のためにX-Y方向に±5 mmの範囲でセルを移動する機構を下部フランジの下に持っている。

熱反射板の外側には水冷ジャケットが真空チェンバー内に内蔵されている。また、前出の熱電対による測温以外に、光高温計用の窓が真空チェンバー壁に設けられており、水冷ジャケットにあげられた穴を通してセル部の温度を測定することが可能である。

2.2 質量分析部

クヌンセンセル部の上部には質量分析部がある。質量分析計としては日電バリアン製NAG531型四重極共振型質量分析計が使用されている。分析管の大きさは約50 mmφ×300 mmとであり、真空チェンバー壁にヌード型として取付けられている。分析管はイオン化室、四重極子部、検出部からなり、四重極子部、検出部はSUS-304製筒に覆われている。イオン化室は雰囲気露出して、電子衝撃型イオン源を見えている。イオン化フィラメントはクヌンセンセルオリフィスから直上約100 mmの位置にある。

質量分析計分析管は常に真空に保っておくことが望ましい。分析を行わない時に真空チェンバー内の他の部分と隔離するために、金属ベローシールタイプの円筒形のカットオフバルブが用いられている。前にも記したが、クヌンセンセルとイオン化室との間の距離を短くすることが望ましいが、カットオフバルブの使用によりこれを実現することが出来た。

さらに、質量分析計が作動するためにはイオン化室の圧力は 10^{-4} Torr 以下である必要がある。また、作動状態にない場合でも、常にこの部分を排気して清浄にしておくことは、分析精度の維持のために必要なことである。このため、分析管排気用として分析管筒の一部に 20 l/sec の排気量をもつイオンポンプを配置した。

クヌンセンセルから来る蒸発分子はイオン化室に入り、イオン化されたものは四重極子部、検出部に導かれるが、イオン化されない蒸発分子は分析管壁あるいはその近辺の真空チェンバー壁に衝突する。本装置で実験に供せられる試料は固体であるので、イオン化室に至る時は気体であっても、壁との衝突などの冷却過程により凝固、吸着する。この壁に附着した分子は、附着時状態より高温に露された場合には再び蒸発分子の様な振舞をとり、質量分析時のバックグラウンドとなり得る。質量分析部に独自のイオンポンプを配した理由は、これらのバックグラウンドになり得る分子を排気してしまう機能をポンプにもたせることにもある。

なお、前記の水冷ジャケットの上部と質量分析部の間には、クヌンセンセルオリフィスからの蒸発分子をしゃへい、または規制してイオン化室に導くためのスリットが設けられている。この駆動は真空チェンバー外壁に取付けられた直線導入機によって行われる。このスリットの動作により、クヌンセンセルからの蒸発分子による信号とバックグラウンドによる信号との区別が可能である。

2.3 排気系

本装置の性能は如何にして真空チェンバー内を良い真空に保つかにかかっていると云っても良い。本装置では主排気系に 500 l/sec イオンポンプを、荒引系にソーブションポンプ2台を配し、図2に示す様にG・B壁外に設置した。

この様な排気系を設けたことにより、次の様な利点が生じた。オイルフリーのポンプを用いたため、質量分析の際に質量数の高い領域でのバックグラウンドを無視することが出来る。また、二つのポンプとも排気しようとするガスをポンプ内に内蔵する機能を有するため排気系を真空チェンバーとともに密封系として取扱うことが出来る。ただし、ソーブションポンプについては一度吸蔵したガスを追い出す過程（再生過程）があるが、この時のガス放出速度はゆるやかであるため、放出ガスをG・B内の負圧変化を起さずにG・B内にもとすことが可能である。従って、本装置においてはソーブションポンプからの配管をG・B壁に接続して、実質的に密封の排気系を形成することが出来た。その他、排気系には加熱源がないため冷却水の必要がなく、従って夜間の無人運転に対して特別の配慮を必要としない。また、系の圧力異常に対して防禦機能をもつイオンポンプの使用は、試料交換から測定開始に必要な圧力到達までには、長時間の排気が要する場合やさらに夜間の機器の運転に特別の配慮がなされねばならぬプラチウムに関連する機器の排気にはイオンポンプによる排気が最適であると考えた。

圧力測定は真空チェンバー壁に設けられたガイスラー管およびB-Aゲージによって行われる。また、イオンポンプ自身が真空計になるので、 500 l/sec ならびに 20 l/sec イオンポンプとあわせて3ヶ所に真空指示計を配していることになる。

系を高真空に達せしめるためにはベーキングが随時必要である。このため真空チェンバー、イ

オンポンプ部にはベーキング用ヒーターが巻かれている。G・B内機器の表面温度はネオプレングローブの操作時の安全性のために60°C以下であることが必要であるが、このためベーキングヒーターには覆いがつけられ、表面温度60°C以下を保持出来る様になっている。

試料交換時の真空チェンバー内のリークは真空チェンバーに取つけられたリーク弁によって行われる。本装置の場合、試料は大気と接して発火の可能性のある炭化物等であるので、リークガスは不活性ガス等であることが望ましい。後述の様にG・Bにはアルゴンガスのonce-through系が設けられているが、イオンポンプは不活性ガスに対する排気能力が劣るとともにポンプの劣下を早める。この様な事情により、リークはチッ素ガスで行うよう講じた。

上記のリーク弁以外に、リーク量の微量調整可能なバリアブルリーク弁を設けた。これは真空系のリークを目的とするよりも、任意のガスサンプルを真空チェンバー内に導き、その成分分析を行うためのものである。

2.4 内装装置のための制御系

質量分析計NAG-531のための制御装置、500ℓ/secおよび20ℓ/secイオンポンプ電源、B-Aゲージ用真空計、クヌンセンセル用定電圧電源（温度調節、温度指示計付）および各種スイッチパネルは電源架台をもうけてG・B脇に設置した。またクヌンセンセルヒーター用トランス（4KVA、2ケ）はG・B架台内に収めた。これらは（500ℓ/secイオンポンプ用を除いて）全て電気配線を通じてG・B内機器と連絡している。この連絡方法についてはG・Bの項で説明する。

2.5 冷却水送水装置

図5には送水ポンプを見えた冷却水送水装置を示す。これは真空チェンバー内、外壁、および下部フランジの冷却のために設けられたものである。この様な冷却水送水装置はPu用G・B内に冷却を用する部分がある限り、不可欠なものである。すなわち、G・B内冷却部分への通水は、配管内の水はG・B内に導かれるため、密却系であるとともに、配管のG・B内部分の破損に対しては十分な配慮が必要である。本装置の場合、G・Bに通ずる、ならびにG・B内を通じる配管は、定常的な配管の曲げを要する部分を除いては、耐食性を考慮してSus-304製とした。密封循環系である配管の一部には、熱交換器が設けられ、この熱交換器にはら旋状に巻かれた銅管が内蔵され、この銅管には建屋から15°C以下の水が流れている。送水装置にはG・Bからのもどり冷却水、建屋からの流入冷却水の温度指示、送水装置タンクの水位指示、ならびに建屋側とG・B側冷却水の送水圧の指示設備がほどこされている。特に最後の圧力指示は内装装置の加熱源と運動して、建屋側ならびにG・B側の冷却水流量が不足の場合には内装装置加熱源がoffの状態になる様、配慮されている。

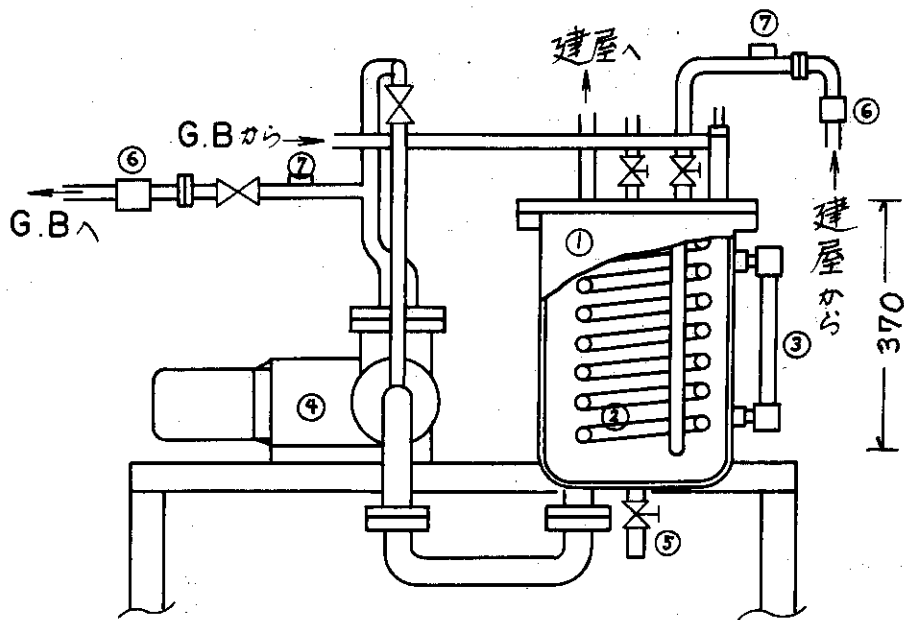


図5 冷却水送水装置

- ①熱交換タンク ②銅製らせんパイプ ③水位計 ④送水ポンプ
⑤ドレイン口 ⑥圧力スイッチ ⑦温度計用座

2.6 グローブボックス

図6に、G.Bの側面図ならびに天井部の図を示す。

G.Bの寸法は巾2250mm、奥行1000mm、高さ1100mmであり、約2.5m³の容積をもつ。現在までに当プルトニウム建屋（原研大洗研究所燃料研究棟）に設置されたパネル型両面操作空気雰囲気G.Bの大きさは巾900mm、奥行1000mm、高さ900mm（グローブポート両面4双）を1単位とし、内装装置により巾を450mmずつ広げる方法を基本として製作されてきた。この理由は、この単位のG.Bが、通常型、両面操作型G.Bのグローブ操作の無理のない空間範囲をもち、また、この単位の広がり日本人の平均的体格をもつ作業者に適合したものであると考えられる。しかし、本G.Bの場合、内装装置の高さ寸法は極力短縮の方向で検討したが、960mmより短縮は不可能であったため、G.B高さは基本寸法より200mm長い、1100mmとなった。この寸法はG.Bへの装置の組込みを考慮すれば最小ぎりぎりのものである。

G.B天井部にはG.B内の負圧制御のための給排気系が装備されている。給気はプレフィルター、HEPAフィルター、手動三方弁等を通じて行われる。排気はG.BからHEPAフィルター、排気ダクトを通して行われる。G.B内の負圧（ $-30 \pm 20 \text{ mmAq}$ ）の調整はG.B給・排気口部のボールバルブによって行われる。排気系には過剰なG.B内負圧変動を防ぐための背圧ダンパーがHEPAフィルターとともに設けられている。

G.B内火災の消火のため、およびG.B内で発火性の試料を取り扱う場合のために、給気系には

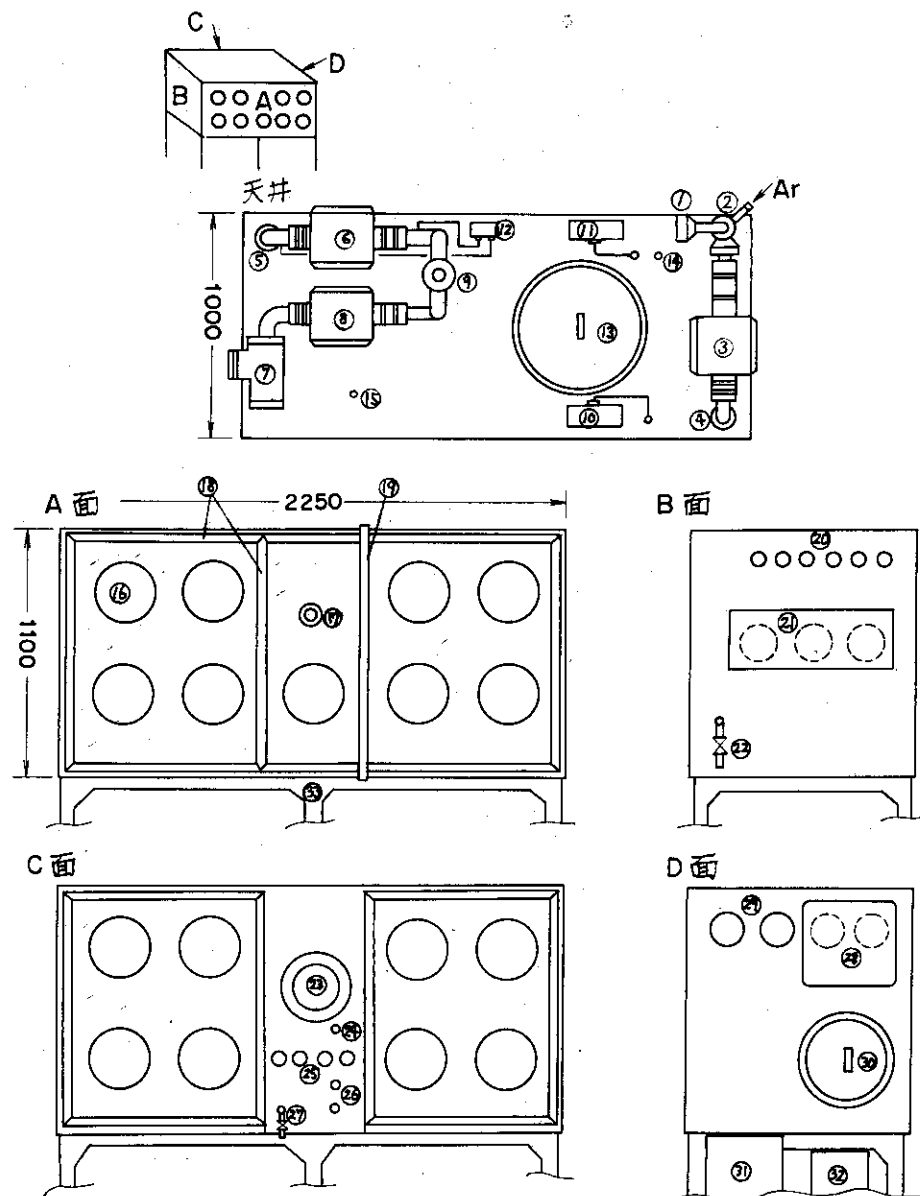


図6 製作されたG.B

- ①給気プレフィルタ ②空気-Ar 切換え三方弁 ③給気用HEPAフィルタ
- ④G.B給気口 ⑤G.B排気口 ⑥排気用HEPAフィルタ ⑦背圧ダンパー
- ⑧背圧用HEPAフィルタ ⑨排気ダクトへ ⑩G.B圧力指示計 ⑪Ar系圧力制御計
- ⑫排気用フィルタ-差圧計 ⑬大型物品エントリーポート ⑭G.B内酸素濃度計用口
- ⑮予備口 ⑯グローブポート ⑰石英窓 ⑱アクリル面-金属面接続部
- ⑲アクリル面支持棒 ⑳㉑内装装置用電氣的接続端子フランジ, ㉑については多端子電流, 信号, 同軸用端子
- ㉒ガス導入口 ㉓500ℓ/S イオンポンプ用導管接続口 ㉔ソープションポンプ排出ガス導入口
- ㉕内装装置のためのヒーター用導線接続口 ㉖冷却水導出入口 ㉗内装装置リーク用ガス導入口
- ㉘G.B内電気設備用フランジ ㉙予備口フランジ ㉚G.Bエントリーポート
- ㉛G.B用警報信号箱 ㉜G.B用電源箱 ㉝G.B架台

アルゴンガス Once-through 系が附設されている。アルゴンガスの供給は実験室壁附設配管から行われ、減圧弁、ストップ弁、電磁弁、ならびに流量計を経て、(図3参照)給気用手動三方弁に通じる。空気-アルゴンの切替は手動三方弁によって行われる。

G・B内負圧監視のために、二個の微圧計が設置され、一個は負圧超過(-55mmAq)および負圧破壊(-5mmAq)時に実験室ならびに建屋全域に警報を発信する機能を有する。他の一個は、アルゴンガス once-through 時の供給ガスの制御のために、アルゴンガス once-through 系の電磁弁の開閉を行わず機能を有するものである。その他、天井部には排気系フィルターの圧力損失測定用の差圧計、アルゴンガス once-through 時のG・B内酸素濃度測定のための配管が設けられている。

さらに天井部には500mmφのポートが設置されている。これは、大型物品の搬入、搬出のためのものであるが、内装装置の真空チェンバー内の部品補修にも使用出来る様に配慮されている。

G・B側面はアクリル面(10mmt)と金属面(Sus-304, 4mmt)とから成っている。前者はグローブポートを有し、ボックス内での実験、機器の操作に使用される。後者は、G・B内への電気、ガス、水等の導入の接続面として使用されている。各面(A, B, C, D)を図6に従って、以下に説明する。

A側面は、グローブポート9個が配置され、機器の操作、内装装置の試料交換等、ほとんどのグローブ操作はこの面から行われる。また中央上部には石英ガラス窓が設けられていて、この窓より光高温計を用いてクヌンセンセル部の温度を測定することが可能である。

C側面は、南側に二枚のグローブポート面(グローブポート数各面4個、計8個)、中央に金属面が配置されている。ここに金属面を配置せざるを得なかった理由は1.2に述べた通りである。この金属面は500ℓ/secイオンポンプの排気導管の接続、冷却水をG・B内に導入するためのガス導入弁の設置、ソークションポンプからの放出ガスのG・Bへのもどし配管の接続、および、加熱ヒーターの電流端子の取り付けなどに利用されている。排気導管の接続はGB壁に設けられたフランジと、排気導管外側に溶接されたフランジを用いて行われ、気密はネオプレンパッキングによって保たれている。冷却水、チッ素ガスリーク、ソークションポンプ用の配管は全て溶接によってGB壁と接続されており、全てSUS-304製である。電流端子は、70mmφIGFフランジを具えたセラミック封止のCu電極で400A容量のものを用いている。水冷配管とヒーター用電線は真空チェンバー下部フランジに接続している。下部フランジは試料交換時に上下ならびに回転移動するので、水冷配管のうち、駆動部分については耐久性に優れたテフロンフレキシブル管を使用している。また、ヒーター用電線は曲りに対して柔軟性に富むシリコンゴム被覆電線を使用している。

B側面は、内装装置のための制御パネルとG・B内部分との電気配線の接続に利用されている。G・B壁には3種類のフランジが3個ずつ配置されている。34mmφフランジは20ℓ/secイオンポンプならび質量分析計の高圧用配線に使用され、70mmφフランジは熱電対の接続に使用される。これらの電極端子にはセラミック封止のものが用いられている。もう一種類のフランジは120mmφのもので、これには当研究室のG・Bの各種電気配線に共通的に使用している3種類の電極端子(弱電回路用、同軸用、動力用)がそれぞれ一個ずつとりつけられている。これらは銅の接続子の両端にビニールあるいはゴム絶縁電線が接続され、それらが束になってエポキシ樹脂に埋め

こまれているものである。弱電回路用には0.3mm²ビニール絶縁線60本、同軸用には同軸コード6本、動力用には2mm²ゴム被覆線19本が備えられている。以上のB側面各種フランジを通じて、大小約60本の電気配線が行われている。G.B壁外側ならびに内側は中継箱を設けてフランジから出ている電線をコネクター等を用いて中継している。

D側面は、通常作業時のG.Bへの物品搬出入のための300mmφエントリーポートが設けられている。また、金属壁面には4個の120mmφフランジが設けられており、そのうちの1個には前出の動力用電流端子が設置され、G.B内のコンセント、G.B内温度検出器等の配線のために使用されている。

G.B本体を支えている架台はS S材で構成されている。架台部にはG.B用電源箱と警報箱が設置されている。前者はG.B内外の各種コンセント、照明用蛍光灯等の中継箱である。後者はG.B負圧超過、負圧破壊の警報発信、アルゴンガスonce-through系の電磁弁開閉信号発信、およびG.B内温度上昇警報発信等のブザー、リレー回路を内蔵している。温度上昇警報はG.B内天井に取りつけられたセンサーにより、センサー接点が60°Cになった時に発信する様になっている。

以上、本G.Bの概略を記述した。G.Bは単にプルトニウムという危険な物質を取扱う空間を他の空間とさえぎる境界物であるには違いないが、しかし、内装装置が伴う場合には格別の配慮がなされるべきである。G.B内外の種々の接続部にはG.B内からのプルトニウムのもれに対しての対策が個々になされている。また、図6に示される様に、G.B壁には種々の設備がもうけられており、これらが完全な機能を果たして、プルトニウムの安全性が守られる訳である。本稿では内装装置の記述を中心とする目的のため、G.Bの詳述をさけたが、汎用的かつ機能的な空気雰囲気G.Bの解説が期待される。

3. 装置の性能

実験室への装置のすえ付作業は、まずG.Bおよび冷却水送水装置について行われた。内装装置の搬入、組立はG.B本体の性能試験終了後に行われた。全装置の組立て完了後、各種性能を調べるための試運転、予備実験が行われたが、この項ではこの期間に得られた結果を主体として記述する。

3.1 蒸発挙動測定装置の特性

1) 排気特性

図7には500ℓ/secイオンポンプの主バルブを開放した後の500ℓ/secイオンポンプ部真空チェンバー側B-Aゲージによる真空度の変化を示す。判定値は真空チェンバーを1~2時間、大気に開放した後、10分程度のソープションポンプによる荒引を行ったあとのものである。両対数目盛で真空度と時間は比例関係にあり、この関係は少くとも1000分程度までは持続する。

こまれているものである。弱電回路用には0.3mm²ビニール絶縁線60本、同軸用には同軸コード6本、動力用には2mm²ゴム被覆線19本が備えられている。以上のB側面各種フランジを通じて、大小約60本の電気配線が行われている。G.B壁外側ならびに内側は中継箱を設けてフランジから出ている電線をコネクタ等を用いて中継している。

D側面は、通常作業時のG.Bへの物品搬出入のための300mmφエントリーポートが設けられている。また、金属壁面には4個の120mmφフランジが設けられており、そのうちの1個には前出の動力用電流端子が設置され、G.B内のコンセント、G.B内温度検出器等の配線のために使用されている。

G.B本体を支えている架台はS S材で構成されている。架台部にはG.B用電源箱と警報箱が設置されている。前者はG.B内外の各種コンセント、照明用蛍光灯等の中継箱である。後者は、G.B負圧超過、負圧破壊の警報発信、アルゴンガスonce-through系の電磁弁開閉信号発信、およびG.B内温度上昇警報発信等のブザー、リレー回路を内蔵している。温度上昇警報はG.B内天井に取りつけられたセンサーにより、センサー接点が60°Cになった時に発信する様になっている。

以上、本G.Bの概略を記述した。G.Bは単にプルトニウムという危険な物質を取扱う空間を他の空間とさきぎる境界物であるには違いないが、しかし、内装装置が伴う場合には格別の配慮がなされるべきである。G.B内外の種々の接続部にはG.B内からのプルトニウムのもれに対しての対策が個々になされている。また、図6に示される様に、G.B壁には種々の設備がもうけられており、これらが完全な機能を果たして、プルトニウムの安全性が守られる訳である。本稿では内装装置の記述を中心とする目的のため、G.Bの詳述をさけたが、汎用的かつ機能的な空気雰囲気G.Bの解説が期待される。

3. 装置の性能

実験室への装置のすえ付作業は、まずG.Bおよび冷却水送水装置について行われた。内装装置の搬入、組立はG.B本体の性能試験終了後に行われた。全装置の組立て完了後、各種性能を調べるための試運転、予備実験が行われたが、この項ではこの期間に得られた結果を主体として記述する。

3.1 蒸発挙動測定装置の特性

イ) 排気特性

図7には500ℓ/secイオンポンプの主バルブを開放した後の500ℓ/secイオンポンプ部真空チェンバー側B-Aゲージによる真空度の変化を示す。判定値は真空チェンバーを1~2時間、大気に開放した後、10分程度のソープションポンプによる荒引を行ったあとのものである。両対数目盛で真空度と時間は比例関係にあり、この関係は少くとも1000分程度までは持続する。

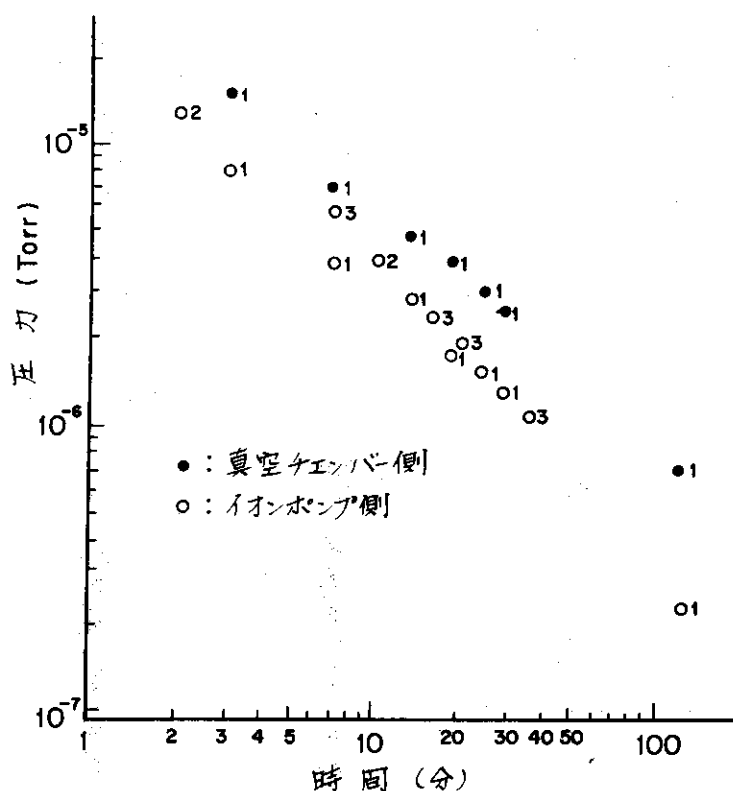


図7 ソープションポンプから500 ℓ /sec イオンポンプに切替えた後の系の圧力変化

適当なベーキングと加熱ヒータの温度上昇による真空チェンバー内壁等の脱ガスを行えば、真空度は更に上昇する。比較的良好な条件での真空チェンバー側の室温における圧力は 1×10^{-8} Torr 程度である。

加熱ヒータによる温度上昇中は、真空度は低下し、真空チェンバー側でおおよそ 1000°C 以下では 10^{-8} Torr のレンジ、 1800°C 以下では 10^{-6-7} Torr のレンジ、これ以上では 10^{-5} Torr のレンジの真空度である。

カットオフバルブを開けた状態で3つの真空計による圧力指示は20 ℓ /sec イオンポンプ部がもっとも圧力が低く、次いで500 ℓ /sec イオンポンプ部、真空チェンバー側の順になる。その圧力比はおおよそ1:2:10である。この様に質量分析部の圧力が最も低いことは、クヌセンセルからの分子流を質量分析部に導くために有利なことである。

ロ) 加熱特性

図8にはら旋状ヒータ(0.5 mm ϕ タングステン)出力と到達温度の関係を示す。横軸のヒータ出力は2個のフィラメントヒータ出力の和として表わされている。1個のフィラメントヒータに対するトランスの容量は4 KVAであるから、 2000°C の温度ではトランス容量の半分以下しか利用していない。1個のフィラメントヒータの電圧-電流値は 1500°C で10 V-75 A、 1800°C では14 V-90 Aである。

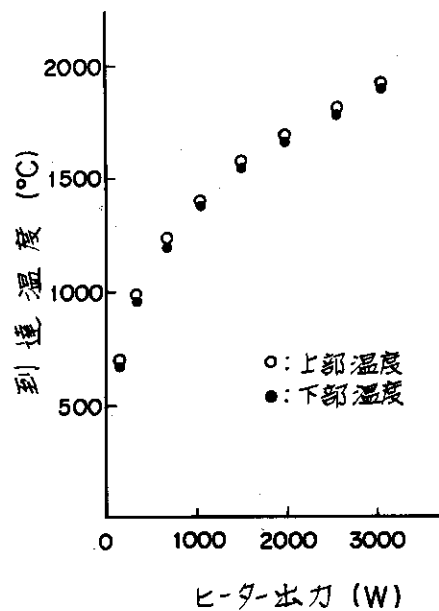


図8 ら旋ヒーター対によるセル加熱特性；ヒーター出力は二個のヒーターの出力和である。

ヒーターの昇温は、室温から1800°Cまでの加熱を10分以内で行わしめることが可能である。また、冷却は1800°Cから1000°Cまでは約5分しか要しない。

この様に加熱部の熱容量が小さいことは温度制御の面でも有利である。温度制御の一例を図9に示す。図から判る様に、ある一定温度から次の一定な温度に移すためには2～3分しか要しない。また、微少な温度変動は真空度に鋭敏な変化を与える。これはクヌンセンセルからの蒸発量に対しても同様であり、温度制御が優れていることは質量分析測定にも有利である。

ハ) 質量分析

NA G-531 質量分析計の分析質量数範囲は1～300 amu の範囲で、ウランならびにプルトニウム炭化物系化合物の測定に耐えられる質量数範囲にある。(現在までのところ、 U_2^+ 、 Pu_2^+ などの蒸発種の報告はない。) その他 NA G-531 型質量分析計のカタログ特性を表Iに示した。(現在、質量範囲を増すべく改造計画中である。)

図10には質量スペクトルの例としてLi, FeO₄ を試料として、セル温度が1200°Cの時のスペクトルを示す。aはクヌンセンセル上部のスリットを閉じた時のスペクトル、bはスリットを開けた時のスペクトルである。質量数6, 7および22, 23のピークはLi⁺およびLiO⁺イオンに由来するものである。本来、大気中にはLi, LiOなどの化学種はないため、スリットを閉じた状態ではこれらは検出されないはずであるが、本スペクトル測定以前に分析管イオン化室に入ったものの部がバックグラウンドとして作用し、ピークとして現われたためである。スリット閉の状態でのこれらのピークが、スリットの脇等から囲り込んでイオン化室に到達したのも一部あることが考えられるが、この様な現象は無視出来ることは、他の方法で確かめられている。結局、クヌンセンセルからの蒸発分子量は、bとaのスペクトルピークの高さに対応して

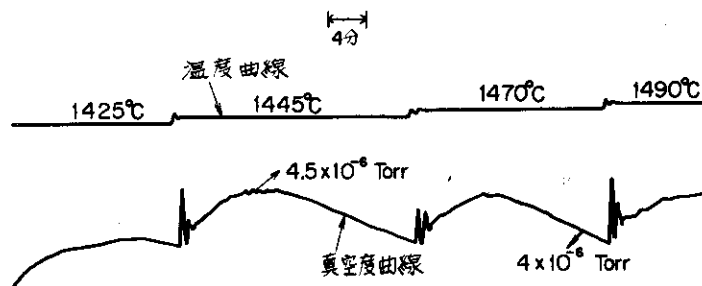


図9 ら旋ヒーター対による温度制御特性と温度変化にともなう系の真空度変化

表I マスフィルターの性能

項 目	性 能
(1) 質量数範囲	1 ~ 300 amu
(2) 分解能	300 (10%谷)
(3) 動作圧力	1 × 10 ⁻⁴ Torr 以下 (1 × 10 ⁻⁴ Torr 以上の真空度になると制御電源 off)
(4) 最小検知圧力	5 × 10 ⁻¹⁴ Torr 以下 (N ₂ に対して)
(5) 感 度	
イオン電流	5 × 10 ⁻¹⁴ A/Torr (N ₂ に対して)
二次電子増倍電流	100 A/Torr (N ₂ に対して)
(6) 電子電流	0.2 ~ 5 mA まで連続可変
(7) イオン源電圧	
電子エネルギー	20 V ~ 100 V まで連続可変
イオンエネルギー	4 V ~ 20 V まで連続可変

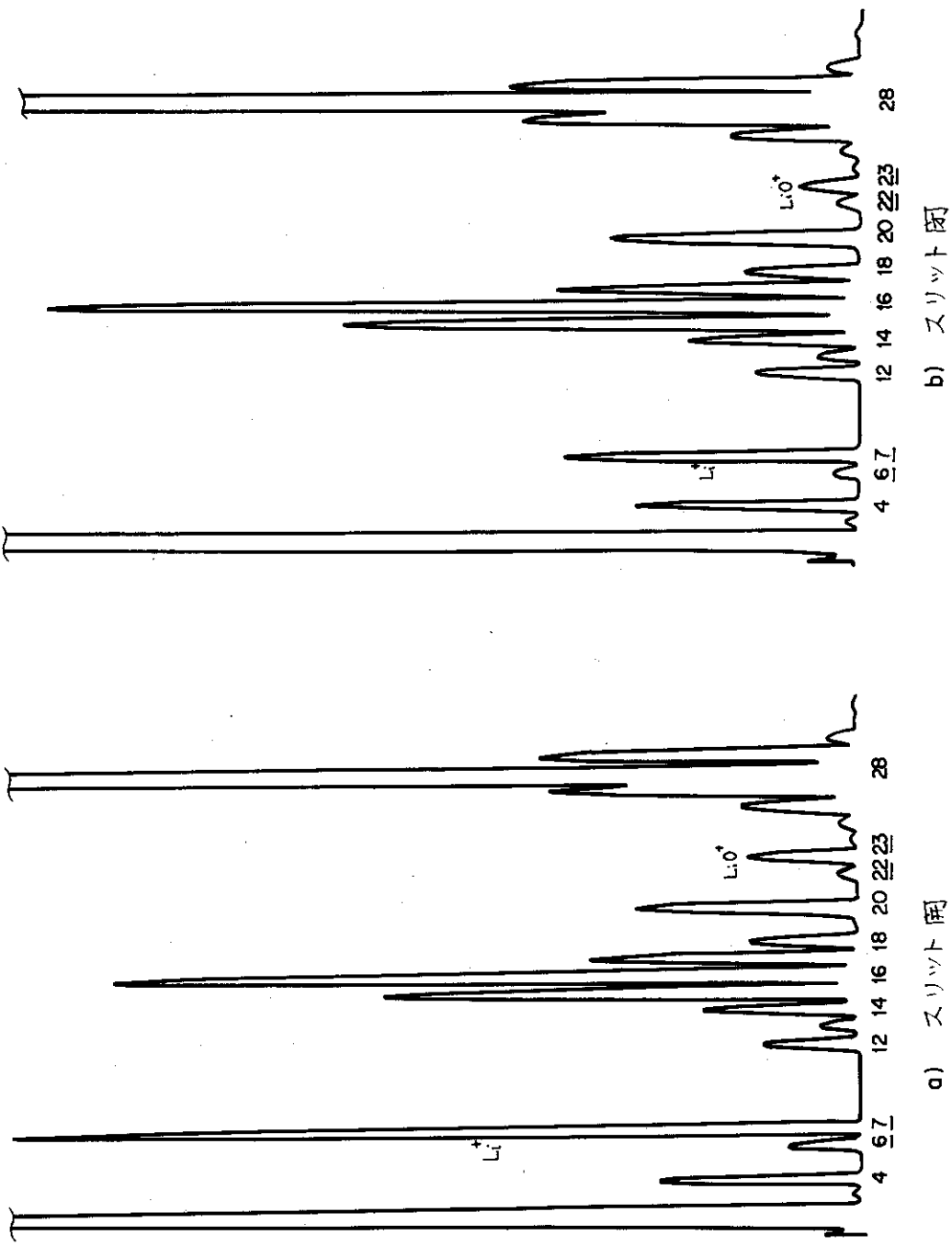


図10 Li₂FeQ 試料の 1200 °C におけるスリット開閉にともなう
質量分析スペクトル差。(真空度: 2×10^{-6} Torr)

いることになる。

しかし、測定を重ねる毎に増加の傾向を示すバックグラウンドの存在は、測定技術上やっかいなものであり、とりわけ測定しようとする蒸発種の絶対量がバックグラウンドとして存在する量と同程度である場合は測定精度を非常に悪いものにする。

3.2 装置の定量測定信頼性

本装置の総合性能ならびに定量測定の信頼性を調べるため、銀の試料を用いて予備的な測定を行った。その結果を以下に記述する。

図11は950°Cにおける Ag^{107} および Ag^{109} のスペクトルピークである。aはスリット開の状態、bはスリット閉の状態である。 Ag^{107} と Ag^{109} のスペクトルピークの高さの比は、誤差2%の範囲で、天然の同位体比に一致している。

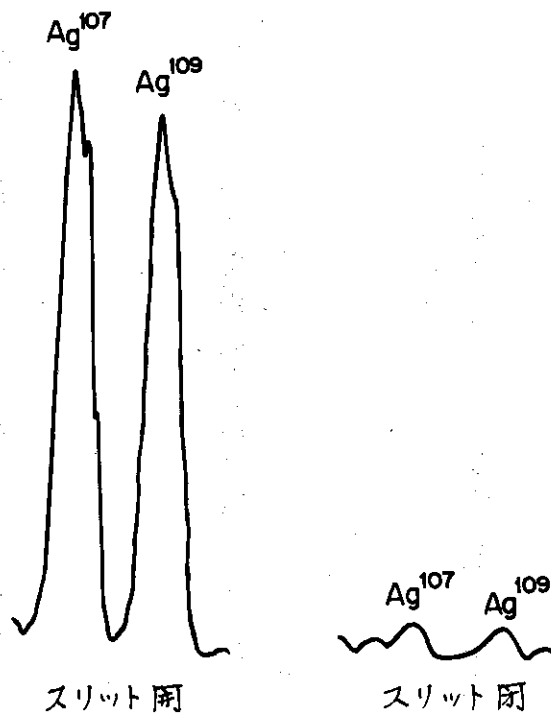


図11 $Ag-107$ および 109 のスリット開閉によるスペクトル差
(セル温度: 950°C)

図12は、860°Cから1070°Cの温度範囲におけるセルの絶対温度、 T^- と I^*T (I^* はスリット操作によって得られるクヌンセルからのイオン強度) の関係を示したものである。セルは黒鉛製セル (オリフィス径0.5mmφ) を使用し、セル上下の温度差は約20°C (上>下) に設定した。セル内温度としては、セル上部の温度を採用した。

I^*T は銀の蒸気圧に比例するので、この温度依存性から、蒸発熱あるいは昇華熱が求められる。銀の融点は960°Cであるので、この温度を境にして上下で温度依存性の変化が期待される。銀の融点とは一致しないが940°C近辺で、その温度以上とその温度以下で IT の温度依存性が変化し

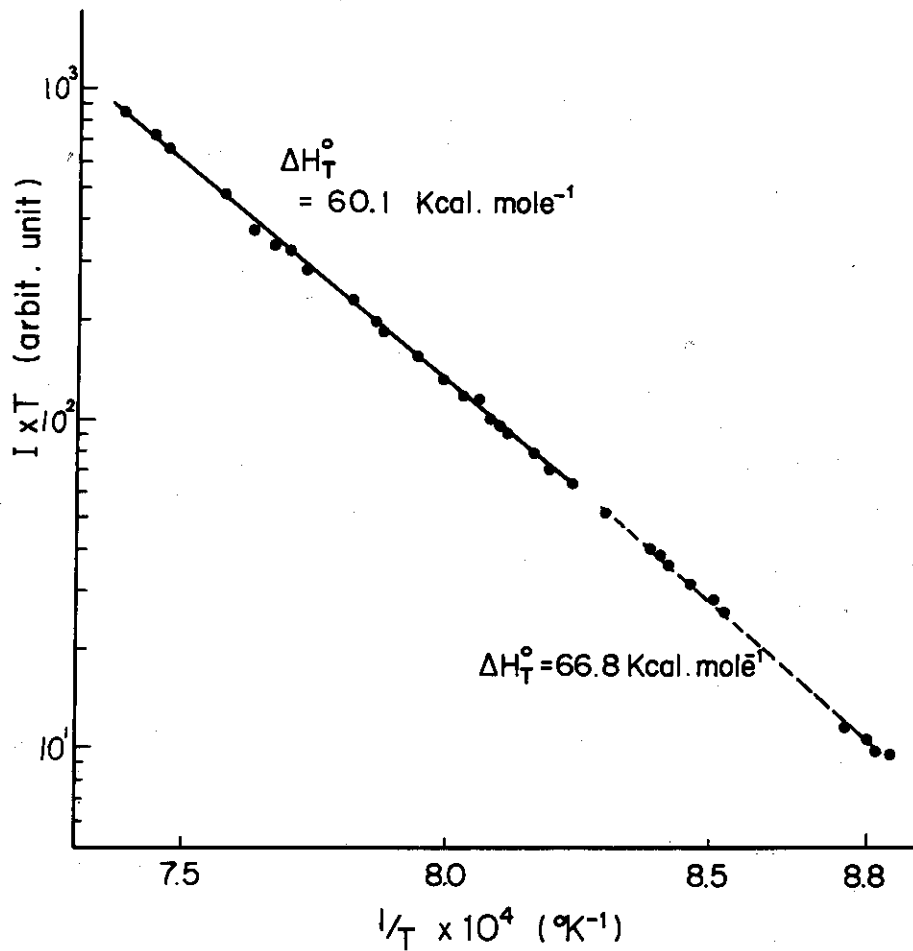


図12 Agの蒸発(860~1070 °C)

ていることが認められる。それぞれの勾配から求められる蒸発熱および昇華熱は次の様である。

$$\Delta H_T^{\circ} \text{ (蒸発)} = 60.1 \text{ Kcal} \cdot \text{mole}^{-1},$$

および

$$\Delta H_T^{\circ} \text{ (昇華)} = 66.8 \text{ Kcal} \cdot \text{mole}^{-1}.$$

これらの値は、報告されている文献値(例えばVapor pressure of the chemical element, A.M.Nesmeyanov ed., Robert Gary, Amsterdam Elsevier, 1963)と比較して、その一致はかなり良い。このことは四重極子型質量分析計とクヌンセンセルとの組合せによる本装置の定量性の優れていることを示している。

図12に示した温度範囲における銀の蒸気圧は $10^{-2} \sim 10^{-4}$ mm Hgの範囲にある。イオン電流の測定は二次電子増倍管によって行われ、主として 10^{-10} アンペアのレンジで測定された。本装置に使用されている質量分析計は 10^{-12} アンペアのレンジの測定まで可能である。ウランやプルトニウムの測定について言えば、二次電子増倍管の検出効率の質量数に対する依存性を考慮すると、定量的な蒸気圧測定が出来る範囲は、蒸気圧で 10^{-5} mm Hg以上の領域であろう。但し、これは図12に

示す様な ΔH_T にして $\sim \pm 1 \text{ Kcal} \cdot \text{mol}^{-1}$ の蒸気圧の温度依存性を検出する必要性のある実験の場合であって、例えばある温度における蒸気圧を知ることのみの実験であるならば、時間をかけた注意深い測定を行なえば、 10^{-7} mmHg （あるいはそれ以下）程度の信頼性のある値を提出する事が可能であろう。ちなみに図12に示す全測定点の測定は約3時間の間に行われたものである。

あ と が き

本装置はプルトニウム用G・Bに収納され、従って種々の設計上の制限があったため、その製作には通常実験室における装置の製作に比較して数倍の検討を要した。そのため、本稿では内装装置とG・Bの結合方法の検討過程等、製作に入るまでの経緯などの記述に意を用いた。可能な限り、内装装置の性能を重視して製作に当たったはずであったが、結果的にはG・Bからの制約のために当初期待したものに達しない部分も現れた。それは、真空チェンバーから主イオンポンプまでの排気導管の長さのために真空チェンバー内の真空度はやや物足りないという点である。G・Bにからむ種々の点から、現在の排気導管の長さは最短に近いものであるが、もしG・Bを考慮しなければ、この長さは少くとも $1/3$ には縮まる。現在のところ、他には期待したものの以下の事象は起っていないが、実際にプルトニウムを使用した実験が経続すれば問題点が出てこないという可能性はない。

上の様なマイナス要因は一部あるにしても、本装置はプルトニウムの実験に耐えるものであることは数ヶ月の経験により証明出来た。プルトニウムの蒸発に関する報告は現在まで少ないともに、まだ一般的には測定の荒いものが多い。従って残された問題も多く、実験の着想と目的を良く吟味すれば、精度の良い、また重要な価値をもつ、新しい情報の提供に本装置は資するであろう。

本装置の製作にあたり、その過程で、有益な御助言をいただいた当研究室副主任研究員半田宗男氏に、また、本装置製作の端緒を作っていただき、種々の御援助をいただいたプルトニウム技術開発室室長栗原正義氏に心から感謝申しあげる。なお、一番最後になったが、本装置は先年、日電バリオンを通じて川崎製鉄技術研究所が製作した装置をモデルにしたものである。（岡部ら、学振54委第18回高炉反速小委員会、昭和51年1月）。

同所製鉄研究室高田至康氏にはノウハウの提供まで含めた御助言をいただいた。感謝の意を表す。

示す様な ΔH_T にして $\sim \pm 1 \text{ Kcal} \cdot \text{mole}^{-1}$ の蒸気圧の温度依存性を検出する必要性のある実験の場合であって、例えばある温度における蒸気圧を知ることのみの実験であるならば、時間をかけた注意深い測定を行なえば、 10^{-7} mmHg （あるいはそれ以下）程度の信頼性のある値を提出する事が可能であろう。ちなみに図12に示す全測定点の測定は約3時間の間に行われたものである。

あ と が き

本装置はプルトニウム用G・Bに収納され、従って種々の設計上の制限があったため、その製作には通常実験室における装置の製作に比較して数倍の検討を要した。そのため、本稿では内装装置とG・Bの結合方法の検討過程等、製作に入るまでの経緯などの記述に意を用いた。可能な限り、内装装置の性能を重視して製作に当たったはずであったが、結果的にはG・Bからの制約のために当初期待したものに達しない部分も現れた。それは、真空チェンバーから主イオンポンプまでの排気導管の長さのために真空チェンバー内の真空度はやや物足りないという点である。G・Bにからむ種々の点から、現在の排気導管の長さは最短に近いものであるが、もしG・Bを考慮しなければ、この長さは少くとも $1/3$ には縮まる。現在のところ、他には期待したものの以下の事象は起っていないが、実際にプルトニウムを使用した実験が継続すれば問題点が出てこないという可能性はない。

上の様なマイナス要因は一部あるにしても、本装置はプルトニウムの実験に耐えるものであることは数ヶ月の経験により証明出来た。プルトニウムの蒸発に関する報告は現在まで少ないともに、まだ一般的には測定の荒いものが多い。従って残された問題も多く、実験の着想と目的を良く吟味すれば、精度の良い、また重要な価値をもつ、新しい情報の提供に本装置は資するであろう。

本装置の製作にあたり、その過程で、有益な御助言をいただいた当研究室副主任研究員半田宗男氏に、また、本装置製作の端緒を作っていただき、種々の御援助をいただいたプルトニウム技術開発室室長栗原正義氏に心から感謝申しあげる。なお、一番最後になったが、本装置は先年、日電バリオンを通じて川崎製鉄技術研究所が製作した装置をモデルにしたものである。（岡部ら、学振54委第18回高炉反速小委員会、昭和51年1月）。

同所製鉄研究室高田至康氏にはノウハウの提供まで含めた御助言をいただいた。感謝の意を表す。