

JAERI-M

7064

連続流動層コールドトラップの開発

1977年5月

八木 英二^{*}・前田 充・鏡 八留雄・宮島 和俊

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、複製などのお問合せは、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.

連続流動層コールドトラップの開発

日本原子力研究所東海研究所燃料工学部

八木 英二 * · 前田 充 ·

鏡 八留雄 · 宮島 和俊

(1977年4月5日受理)

フッ化物揮発法開発研究の一環として、そのプロセスの連続化を図り、 PuF_6 の放射線分解を防止する観点から、流動層型凝縮器および揮発器から成る連続コールドトラップ装置を開発した。 PuF_6 と類似の物性を有する UF_6 を用いた実験により 99% 以上の捕集率、数分ないし 15 分程度の固相滞留時間、安定操作限界 ($\text{UF}_6/\text{Al}_2\text{O}_3$) 比 0.07 以下であることを確認して、この連続コールドトラップ法の技術的可能性を実証した。またこのコールドトラップ法における凝縮モデルを作成し、ミスト生成率などモデルから推定される凝縮特性が実験結果と良く一致することを確認してこのモデルの有効性を明らかにした。モデルによるパラメータ解析の結果、入口ガス温度および濃度、流動層内軸方向温度分布がミスト生成率に最も大きな影響を及ぼし、生成率が最小となる最適な温度分布の存在することを示した。

* 三菱金属(株) 中央研究所原子力部

Development of a Continuous Cold Trap
of Fluidized Bed

Eiji YAGI*, Mitsuru MAEDA, Haruo KAGAMI and
Kazutoshi MIYAJIMA

Division of Nuclear Fuel Research, Tokai, JAERI

(Received April 5, 1977)

As part of the R&D program of Fluoride Volatility Process for the reprocessing of FBR fuel, a continuous cold trap system of fluidized-bed condenser/stripper has been developed which is designed for establishing a continuous flowsheet and also for reducing radiation decomposition of PuF_6 .

Feasibility of this cold trap was revealed by an experiment with UF_6 of physical properties similar to those of PuF_6 ; more than 99% trapping efficiency, less than 15 min residence time, and 0.07 critical ($\text{UF}_6/\text{Al}_2\text{O}_3$) ratio were obtained in stable operation.

The analytical results from a condensation model, such as mist yield, agreed well with those by experiment.

Parametric study of the mist formation using the model was made with UF_6 concentration, feed gas temperature and axial temperature distribution. Existence of the optimum axial temperature distribution in the condenser was shown.

*Present address, Mitsubishi Metal Corp.

目 次

1. はじめに	1
2. 凝縮モデル	2
2. 1 概 要	2
2. 2 回分流動層凝縮モデル(モデル 1)	3
2. 3 連続流動層凝縮モデル	6
2. 3. 1 逆混合粒子流れモデル(モデル 2 a)	6
2. 3. 2 ピストン流粒子流れモデル(モデル 2 b)	10
2. 4 ミスト生成率	12
2. 5 適用モデルの選定	13
2. 5. 1 モデルの評価	13
2. 5. 2 適用モデルの選定	14
3. 実験装置	18
3. 1 実験装置の概要	18
3. 2 実験装置の詳細	23
3. 2. 1 ガス供給系	23
3. 2. 2 流動層凝縮器	23
3. 2. 3 流動層揮発器	24
3. 2. 4 粉体循環系	24
3. 2. 5 オフガス系	25
4. 流動層凝縮器伝熱特性の測定	33
4. 1 概 要	33
4. 2 理 論	33
4. 2. 1 壁面伝熱係数	33
4. 2. 2 凝縮器軸方向温度分布	34
4. 2. 3 粒子拡散係数	36
4. 3 実験方法	36
4. 4 結果および考察	36
5. 回分流動層による UF_6 の凝縮	42
5. 1 実験目的	42
5. 2 実験方法	42
5. 3 結果および考察	42
6. 連続流動層による UF_6 の凝縮	46
6. 1 実験目的	46
6. 2 実験方法	46
6. 2. 1 試料	46

6.2.2 実験操作手順	46
6.2.3 実験条件	47
6.3 結果および考察	48
6.3.1 予備実験	48
6.3.2 凝縮特性実験	58
6.3.3 連続実験	66
7. 連続流動層凝縮モデルによるケーススタディー	75
7.1 モデルの検証	75
7.1.1 物性	75
7.1.2 計算手法	75
7.1.3 検証結果	77
7.2 モデルによるケーススタディー	77
7.2.1 層内に温度分布が無い場合	83
7.2.2 層内に温度分布が有る場合	87
7.2.3 ケーススタディーのまとめ	87
7.3 連続流動層凝縮器の最適化	92
8. 結論	93
謝 辞	93
使用記号	94
参考文献	98
付録	
A 1 装置規模の予備検討	99
A 2 モデル 1 のデータ解析への応用	104
A 3 連続流動層凝縮モデルへの二相モデルの適用(モデル 2 c)	106
A 4 データ	111

Contents

1. Introduction
2. Condensation Model
 - 2.1 General
 - 2.2 Condensation Model in Batch Cold Trap of Fluidized Bed, Model 1
 - 2.3 Condensation Model in Continuous Cold Trap of Fluidized Beds
 - 2.3.1 Model Based on Back-mixing Flow of Particles (Model 2a)
 - 2.3.2 Model Based on Piston Flow of Particles (Model 2b)
 - 2.4 Mist Yield
 - 2.5 Model for Case Study
 - 2.5.1 Evaluation of Models
 - 2.5.2 Selection of Model
3. Experimental Equipment
 - 3.1 General
 - 3.2 Description
 - 3.2.1 Gas Supply System
 - 3.2.2 Cold Trap of Fluidized Bed
 - 3.2.3 Stripper of Fluidized Bed
 - 3.2.4 Powder Circulation System
 - 3.2.5 Off Gas System
4. Measurements of Heat Transfer
 - 4.1 General
 - 4.2 Theory
 - 4.2.1 Heat Transfer Coefficient between Bed and Wall
 - 4.2.2 Axial Distribution of Bed Temperature
 - 4.2.3 Axial Dispersion Coefficient of Particle
 - 4.3 Procedure
 - 4.4 Results and Discussion
5. UF₆ Condensation in Batch Cold Trap of Fluidized Bed
 - 5.1 Purpose
 - 5.2 Procedure
 - 5.3 Results and Discussion
6. UF₆ Condensation in Continuous Cold Trap System by Fluidized Beds
 - 6.1 Purpose
 - 6.2 Procedure
 - 6.2.1 Material and Gases
 - 6.2.2 Operation Procedure

- 6.2.3 Experimental Conditions
- 6.3 Results and Discussion
 - 6.3.1 Preliminary Experiment
 - 6.3.2 UF₆ Condensation Characteristics
 - 6.3.3 Demonstration Experiments with UF₆
- 7. Case Studies by the Proposed Model
 - 7.1 Verification of the Model
 - 7.1.1 Physical Properties
 - 7.1.2 Calculating Method
 - 7.1.3 Results
 - 7.2 Case Studies
 - 7.2.1 Studies for the Uniform Bed Temperature Distribution
 - 7.2.2 Studies for Non-Uniform Bed Temperature Distribution
 - 7.2.3 Conclusion
 - 7.3 Optimization of Continuous Cold Trap System by Fluidized Beds
- 8. General Conclusion

Acknowledgment

Symbols

Reference

Appendix

- A1 Preliminary Study : Sizing of Experimental Equipment
- A2 Application of Model 1 to Published Experimental Results
- A3 Condensation Model by Two-Region Model for Continuous Cold Trap of Fluidized Bed (Model 2c)
- A4 Data

Contents of Figures

- Fig. 2-1 Profiles of Temperature, Concentrations of UF_6 and Mist in Continuous Cold Trap of Fluidized Bed by Homogeneous Model (Model 2a)
- Fig. 3-1 Flowsheet for Continucus Cold Trap System by Fluidized Beds
- Fig. 3-2 Condenser (CT-1)
- Fig. 3-3 Stripper (CT-2)
- Fig. 3-4 Schematic Diagram of Control System of Powder Flow
- Fig. 3-5 Detail of Mixing Pot
- Fig. 3-6 Detail of Powder Flow Meter
- Fig. 3-7 Powder and Gas Feed System to Condenser
- Fig. 3-8 Powder Vessel (CV-1) and the Mixing Pot
- Fig. 3-9 Schematic Diagram of Control System of Powder Level in Powder Vessel
- Fig. 4-1 Positions of Thermometers and Overflow Nozzles in Condenser
- Fig. 4-2 Axial Distribution of Bed Temperature in Condenser
- Fig. 4-3 Heat Transfer Coefficient between Bed and Wall in Condenser with Alumina's Flow
- Fig. 4-4 Axial Dispersion Coefficient of Particle in Condenser with Alumina's Flow
- Fig. 4-5 Effect of Gas Flow on Dispersion Coefficient Extrapolated to Zero Flow of Alumina
- Fig. 5-1 Temperature, UF_6 Concentration, Pressure Drop and Gas Flcw Rate in Batch Condensation of UF_6 (Run UC-12)
- Fig. 6-1 Temperature, UF_6 Concentration, Pressure Drop and Alumina Mass Flow Rate in Continuous Condensation of UF_6 (Run UC-1C2)
- Fig. 6-2 Pressure Drop in Continuous Condensation of UF_6 (Run UC-1C2)
- Fig. 6-3 UF_6 Concentration and Off Gas Flow Rate in Continuous Condensation of UF_6 (Run UC-103B)
- Fig. 6-4 UF_6 Condensation Profiles in Run UC-106
- Fig. 6-5 UF_6 Condensation Profiles in Run UC-108
- Fig. 6-6 Effect of UF_6 Concentration on Mist Formation
- Fig. 6-7 Effect of Gas Flow Rate on Mist Formation
- Fig. 6-8 Effect of Alumina Flow Rate on Mist Formation
- Fig. 6-9 Effect of UF_6 Mass and Gas Flow on Mist Formation Rate
- Fig. 6-10 Operation Limit in Continucus Cold Trap System by Fluidized Beds

- Fig. 6-11 Temperature Profiles in Condenser (Run UC-112)
Fig. 6-12 Off Gas and Alumina Flow Rate in Run UC-112
Fig. 6-13 UF_6 Concentration in Feed and Effluent Gases (Run UC-112)
Fig. 6-14 Mass Balance and Accumulated Fraction of UF_6 in Equipment (Run UC-112)
Fig. 6-15 Effect of Mass Velocity on Accumulation of UF_6 on Cold Surface of Condenser
- Fig. 7-1 Schematic Flow-Chart for the Model Analysis of Condensation Characteristics in Cold Trap of Fluidized Bed
Fig. 7-2 Comparison of Experimental Data with Calculated Values on Mist Formation in Continuous UF_6 Condensation in Cold Trap System of Fluidized Beds
Fig. 7-3 Effect of Temperature on Trapping Efficiency of Naphthalene in Batch Condensation by Fluidized Bed Cold Trap
Fig. 7-4 Effect of Concentration on Trapping Efficiency of Naphthalene in Batch Condensation by Fluidized Bed Cold Trap
Fig. 7-5 Effect of Gas Flow Rate on Trapping Efficiency of Naphthalene in Batch Condensation by Fluidized Bed Cold Trap
Fig. 7-6 Results of Model Analysis (1): Effect of Feed Gas Temperature on UF_6 Condensation under Uniform Bed Temperature Distribution
Fig. 7-7 Results of Model Analysis (2): Effect of Bed Temperature on UF_6 Condensation under Uniform Temperature Distribution
Fig. 7-8 Results of Model Analysis (3): Effect of UF_6 Concentration on the Condensation under Uniform Bed Temperature Distribution
Fig. 7-9 Results of Model Analysis (4): Effect of Condenser Gas Flow on UF_6 Condensation under Uniform Bed Temperature Distribution
Fig. 7-10 Results of Model Analysis (5): Effect of System Pressure on UF_6 Condensation under Uniform Bed Temperature Distribution
Fig. 7-11 Results of Model Analysis (6): Effect of Particle Diameter on UF_6 Condensation under Uniform Bed Temperature Distribution
Fig. 7-12 Assumed Axial Distribution of Bed Temperature for Model Analysis
Fig. 7-13 Results of Model Analysis (7): Effect of Temperature Gradient on UF_6 Condensation under Axially Distributed Bed Temperature for 0.3 vol % UF_6 Feed
Fig. 7-14 Results of Model Analysis (8): Effect of Temperature Gradient on UF_6 Condensation under Axially Distributed Bed Temperature for 1.0 vol % UF_6 Feed

JAERI-M 7064

- Fig. 7-15 Results of Model Analysis (9): Effect of Temperature Gradient on UF₆ Condensation under Axially Distributed Bed Temperature for 3.0 vol % UF₆ Feed
- Fig. 7-16 Results of Model Analysis (10): Effect of UF₆ Concentration in Feed Gas and Gas Flow on Mist Formation under Axially Distributed Bed Temperature
- Fig. A1-1 Effect of UF₆/Al₂O₃ Ratio on Cooling Capacity in Continuous Cold Trap System by Fluidized Beds
- Fig. A3-1 Heat and Mass Balance by Two-Region Model in Continuous Cold Trap of Fluidized Bed

Contents of Tables

- Table 3-1 Parts and Equipment List in Continuous Cold Trap System of Fluidized Beds
- Table 4-1 Experimental Results on Heat Transfer and Particle Dispersion in Continucus Cold Trap System of Fluidized Beds
- Table 5-1 Operating Conditions of Batch Condensation of UF_6 in Fluidized Bed Cold Trap
- Table 5-2 Mass Balance in Run UC-11 and UC-12
- Table 6-1 Operating Conditions for Continuous UF_6 Condensation in Cold Trap System of Fluidized Beds (Run UC-101~UC-105)
- Table 6-2 Operating Conditions for Continuous UF_6 Condensation in Cold Trap System of Fluidized Beds (Run UC-106~UC-111)
- Table 6-3 Operating Conditions in UC-112
- Table 6-4 Mass Balance in Run UC-103B
- Table 6-5 Total UF_6 Balance in Continuous Condensation Experiments
- Table 6-6 Principal Operating Conditions and Mist Yield
- Table 6-7 Estimation of UF_6/Al_2O_3 Ratio in Top Bed of Condenser after Blow-Back in Run UC-112
- Table 6-8 Estimation of UF_6 Gas Leakage through Condenser in Run UC-112
- Table 6-9 Estimation of Accumulated UF_6 in Equipment during Phase 3 of Run UC-112
- Table 7-1 Experimental Cnditions for Batch Condensation of Naphthalene
- Table 7-2 Assumed Conditions in Model Analysis for UF_6 Condensation under Uniform Bed Temperature Distribution
- Table 7-3 Assumed Conditions in Model Analysis for UF_6 Condensation under Axially Distributed Bed Temperature
- Table 7-4 Calculation Conditions for Axial Distribution of Bed Temperature (in Model Analysis)
- Table 7-5 Comparison of Experimental Results with Calculated ones on Mist Formation
- Table A1-1 Assumed Operating Conditions for Design of Continuous Cold Trap System of Fluidized Beds
- Table A1-2 Circulation Rate of Alumina Powder
- Table A1-3 UF_6/Al_2O_3 Ratio and Required Bed Height
- Table A4-1 Summary of Temperature Data in Condenser
- Table A4-2 UF_6 Specification

Table A4-3 Vapor Pressure of the UF_6 Produced by Direct Fluorination
of U_3O_8 Powder

Table A4-4 Physical Properties of UF_6 , and Related Equations

Table A4-5 Physical Properties of Naphthalene

1. はじめに

使用済核燃料のフッ素化で得られる UF_6 または PuF_6 の精製法の一つとして分縮法が考えられている。¹⁾ この方法は、フッ素化搭出口ガスをまず UF_6 または PuF_6 が凝縮しない温度まで冷却し、同伴する FP フッ化物のうち NbF_5 , RuF_5 などの高沸点成分の一部を凝縮除去し、つづいて約 -80°C に冷却して UF_6 または PuF_6 を凝縮させて非凝縮成分から分離するものである。このための装置は次のような条件を具備していることが望まれる。

- (1) 放射線分解に起因する不揮発性の UF_4 または PuF_4 の生成を少なくするため装置内固相滞留時間ができるだけ短かいこと。
- (2) 放射線分解生成物の再フッ素化が容易に行えること。
- (3) 連続操作がはかり易いこと。

UF_6 用コールドトラップとしては、すでに工業規模で内部冷却フィン型あるいは外部冷却 “egg-crate 型” が用いられており通常の使用条件下では特に問題はない¹⁾が、いずれも回分式で装置内固相滞留時間が長い。

このため、フッ化物揮発法の精製工程にこれを採用する場合には、分解生成物の蓄積による伝熱効率の低下や閉塞などのトラブルが予想されるほか、回分操作であるためにフローシートおよび操作がかなり複雑となる。

一方、連続式コールドトラップとしては壁面かきとり型^{1), 2)} および流動層型^{1), 3)} が知られている。これらの型式は壁面伝熱係数が大きいので装置を小型にでき、かつ、分縮操作の連続化をはかることができる利点を有するので好ましい装置型式と考えられる。しかしながら、回分式に比べ装置構造はより複雑となる。この中、流動層型は冷却された流動媒体の表面に凝縮成分を凝縮させ、次にこの流動媒体を加熱器に送りキャリヤーガス中に凝縮成分を再揮発させるものである。この方式は工業的にまだ実用化されていないが、加熱が容易なので析出した不揮発性物質の再フッ素化がはかり易く、場合によっては不揮発性物質を含む流動媒体をフッ素化塔に送り、ここで再び回収する連続システムが描けるので、フローシートの単純化が期待できる。¹⁹⁾

そこで、この流動層型のコールドトラップの概念をフッ化物揮発法再処理フローシートに適用することを目的として、その装置的具体化をはかり、 PuF_6 と物性が類似している UF_6 を試料に用いた実験により、その概念の技術的可能性を示すとともに装置特性を把握した。さらに、これらの結果をもとに凝縮器の最適操作条件について検討した。

本報告書は、流動層における凝縮モデル、実験装置、予備実験として行った凝縮器の伝熱試験、 UF_6 による凝縮実験、ならびにケーススタディーに基づく流動層型連続凝縮器の最適操作条件の検討内容について述べたものである。

2. 凝縮モデル

2.1 概要

流動層型の凝縮器では、熱は気相から流動媒体粒子へ、粒子から壁面への移動が支配的であり、また凝縮成分は気相における分圧と粒子表面での分圧との差により、気相から粒子表面に移動し、その表面で固体となる。これを気液系にならって凝縮と呼ぶことにする。

気相温度が凝縮成分分圧に相当する飽和温度より高い場合、凝縮は粒子表面のみで起る。このような領域を“過熱ガス領域”と呼ぶ。温度が下り飽和温度に達すると一部は物質移動で粒子表面で凝縮するが残りは気相中で凝縮し、いわゆる“ミスト”となる。このような領域を“飽和ガス領域”と呼ぶ。この領域で生ずるミストはフィルターで捕集することにより回収可能であるが、これは凝縮器内に蓄積して流動化を妨げ、また放射線分解量増加の原因になると考えられる。

したがって、このようなミスト発生をさける条件で凝縮器を操作することが望まれる。そこで、操作条件とミスト生成率との関係を解明する目的で、流動媒体の供給・拔出のない“回分流動層”および流動媒体を連続的に供給・拔出する“連続流動層”について凝縮モデルの検討を行った。

モデル検討は、流動層内の気相および粒子の流れ様式から次のような4つのモデルを立て、これらについて行った。

(1) 回分流動層（モデル1）

流動媒体の供給・拔出：無

気相側	ピストン流	}	均一相流動層モデル
粒子側	完全混合		

(2) 連続流動層

流動媒体の供給・拔出：有

供給は流動層最下部から行われ、かつ定常状態にあるとする。

a 逆混合粒子流れモデル（モデル2a）

気相側	ピストン流	}	均一相流動層モデル
粒子側	逆混合流		

b ピストン流粒子流れモデル（モデル2b）

気相側	ピストン流	}	均一相流動層モデル
粒子側	ピストン流		

c 二相流ガス流れモデル（モデル2c）

気相側	(バブル相) (エマルジョン相)	}	ピストン流
粒子側	(エマルジョン相)		

}	二相流流動層モデル

連続流動層については、各モデルの取扱い易さを評価し後章7（連続流動層凝縮モデルに

よるケーススタディー)において使用するモデルを選定した。なおモデル2cについての検討は付録A3に示す。一方モデル1については実験データ解析への応用について考察した。これも付録A2に示す。

2.2 回分流動層凝縮モデル(モデル1)

回分型多管式凝縮器の理論解析はThompsonら^{4), 18)}によってすでに行われており、次の仮定を設けた回分流動層については、物質および熱の移動係数についての違いを考慮するだけで彼等のモデルがほど適用できる。すなわち、流動層への粒子の供給がなく、粒子は層内で完全混合(層内に温度分布が無く、温度均一)，気相はピストン流と仮定する。この場合には過熱ガス領域と飽和ガス領域しか存在しない。

(1) 過熱ガス領域

流動層凝縮器内の微小層高における物質収支は、非凝縮性ガスの供給速度G(mol/h)，凝縮成分と非凝縮性ガスのモル比Y(mol/mol)，気相中の凝縮成分分圧P(atm)および粒子表面上の分圧P_p(atm)により次式で表わされる。

$$-G \cdot dY = k_p \cdot (P - P_p) \cdot da \quad (2.1)$$

ここに、k_pは物質移動係数(mol/m²·h·atm)，aは単位層高中の粒子表面積(m²/m)である。k_pはSherwood数Shと次式の関係にある。

$$Sh = \frac{k_p \cdot M_{gm} \cdot P_{gf} \cdot d_p}{\rho_{gm} \cdot D_v} \quad (2.2)$$

ここにM_{gm}はガスの平均分子量，P_{gf}は拡散にあずからない成分分圧のガス境膜における対数平均値(atm)，D_vは拡散係数(m²/h)，ρ_{gm}はガス密度(kg/m³)，d_pは粒子径(m)である。またaは

$$a = \frac{6(1 - \epsilon_f) \cdot A_t}{d_p \cdot \phi_s} \quad (2.3)$$

ここにε_fは流動層空隙率(—)，A_tは流動層断面積(m²)，φ_sは粒子形状係数(—)である。

式(2.1)のP-P_pはP_{gf}の定義式を変形することで次式で表わせる。

$$P - P_p = P_{gf} \cdot \ln \{ (1 + Y)(1 - \beta) \} \quad (2.4)$$

ここにβはP_p/P_o，P_oは全圧(atm)である。

したがって、凝縮成分の濃度Yと層高lの関係は上の4式から

$$-\int_{Y_i}^{Y_s} \frac{dY}{\ln \{ (1 + Y)(1 - \beta) \}} = G \int_l^L$$

$$= \left(\frac{S h \cdot \rho_{gm} \cdot D_v}{d_p \cdot M_{gm}} \right) \cdot \frac{6(1-\epsilon_f) \cdot A_t}{d_p \cdot \phi_s} \cdot l_1 \quad (2.5)$$

となる。ここに Y_i は供給ガス中の濃度、 Y_s は飽和濃度、 l_1 は過熱ガス領域の層高である。

次にガス温度 T_g と Y の関係を求める。微小層高における気相の熱収支は、ガスの平均比熱を C_{gm} (kcal/mol·deg)，粒子温度を T_p とすれば

$$\begin{aligned} -G \cdot (1+Y) \cdot C_{gm} \cdot dT_g \\ = h_p \cdot (T_g - T_p) \cdot da \end{aligned} \quad (2.6)$$

ここで h_p は粒子とガス間の伝熱係数 (kcal/m²·h·°C) であり、Nusselt 数 Nu との関係にある。

$$Nu = \frac{h_p \cdot d_p}{k_{gm}} \quad (2.7)$$

ここで k_{gm} はガスの伝熱係数 (kcal/m·h·°C)，したがって、 T_g と Y の関係は式 (2.1) (2.2) (2.4) (2.6) (2.7) から

$$\begin{aligned} l_n &= \frac{T_{gi} - T_p}{T_{gs} - T_p} \\ &= \frac{Nu}{Sh} \cdot \frac{k_{gm} \cdot M_{gm}}{\rho_{gm} \cdot D_v \cdot C_{gm}} \cdot \int \frac{dY}{(1+Y) \cdot l_n \{ (1+Y)(1-\beta) \}} \end{aligned} \quad (2.8)$$

となる。ここで T_{gi} は供給ガス温度、 T_{gs} は飽和ガス温度である。

なお、 Sh , Nu については Reynolds 数 (Re) の関数で表わされた次式⁶⁾ を使用する。

Sh は

$$\begin{cases} 0.1 < Re < 15 & Sh = 0.374 Re^{1.18} \\ 15 < Re < 250 & Sh = 2.01 Re^{0.5} \end{cases} \quad (2.9)$$

Nu は

$$0.1 < Re < 100 \quad Nu = 0.03 Re^{1.3} \quad (2.10)$$

(2) 飽和ガス領域

飽和ガス領域では前述の過熱ガス領域と異なり、物質移動で粒子表面に凝縮するものと気相中で凝縮しミストとなるものの2つを考慮しなければならない。

そこで、全凝縮量の単位粒子表面積当りの凝縮速度を L (mol/h·m²)、物質移動による粒子表面での凝縮速度を L_1 (mol/h·m²) としミスト分率 α を次式のように与える。

$$\alpha = 1 - \frac{L_1}{L} \quad (2.11)$$

したがって L_1 は

$$\begin{aligned} L_1 &= L \cdot (1 - \alpha) \\ &= k_p \cdot (P - P_p) \end{aligned} \quad (2.12)$$

となる。

まず、ミスト分率 α を求める。微小層高における凝縮速度は

$$L \cdot da = -G \cdot dY \quad (2.13)$$

凝縮成分濃度 Y とガス温度 T_g の関係は T_g が飽和温度にあることから、Clasius-Clapeyron の式 ($dP/dT_g = \lambda / \{(v_g - v_s) T_g\}$) において分圧 P 、ガスの比容積 v_g を Y で表わすことにより式 (2.14) が得られる。ただし、固体の比容積 v_s は無視する。ここに λ は昇華潜熱 (kcal/mol) である。

$$\frac{dY}{dT_g} = Y(1+Y) \cdot \frac{\lambda}{R \cdot T_g^2} \quad (2.14)$$

また微小層高における熱収支は、物質移動に伴なう熱の移動を無視するとすれば

$$\begin{aligned} -G \cdot (1+Y) \cdot C_{gm} \cdot dT_g + \alpha \cdot \lambda \cdot L \cdot da \\ = h_p \cdot (T_g - T_p) \cdot da \end{aligned} \quad (2.15)$$

となる。

そこで、ミスト分率 α は式 (2.2) (2.4) (2.7) (2.11) ~ (2.15) を整理することによって次式のように表わせる。

$$\alpha = 1 - \frac{A_1 + A_2}{T_g - T_p + A_1} \quad (2.16)$$

ただし A_1, A_2 は

$$A_1 = \frac{Sh}{Nu} \cdot \frac{\rho_{gm} \cdot D_v \cdot \lambda}{M_{gm} \cdot k_{gm}} \cdot \ln \{ (1+Y)(1-\beta) \} \quad (2.17)$$

$$A_2 = \frac{A_1 \cdot C_{gm} \cdot R \cdot T_g^2}{\lambda^2 \cdot Y} \quad (2.18)$$

とする。

この飽和ガス領域では、凝縮成分濃度 Y は式 (2.14) でガス温度 T_g によって規定されるので、 T_g とこの領域の層高 l_2 (m) の関係が得られれば凝縮器の出口ガス濃度が求められる。そこで、式 (2.15) 中の α, L を式 (2.11) (2.16) により消去し整理すると次式を得る。

$$\begin{aligned}
 & - \int_{T_{gs}}^{T_{go}} \frac{d_p \cdot \left(1 + \frac{A_1}{A_2} \right) \cdot G \cdot (1+Y) \cdot C_{gm}}{Nu \cdot k_{gm} (A_1 + T_g - T_p)} \cdot dT_g \\
 & = \frac{6 (1 - \epsilon_f) \cdot A_t}{d_p \cdot \phi_s} \cdot l_2 \quad (2.19)
 \end{aligned}$$

ここで、 T_{go} は流動層出口ガス温度である。

したがって、回分流動層凝縮器の層高に対する領域ごとのガス、粒子の温度、濃度およびミスト分率は式(2.5)(2.8)(2.16)(2.19)から求められる。

2.3 連続流動層凝縮モデル

流動媒体の連続的な供給・抜出手法が存在する流動層凝縮器における凝縮の理論的検討は、まだ報告されていない。以下に連続流動層における凝縮モデルについて述べる。

2.3.1 逆混合粒子流れモデル（モデル 2a）

均一相流動層モデルに従う流動層凝縮器の最下部に粒子およびガスが供給され、気相側はピストン流、粒子側は層内で逆混合するものと仮定する。

この場合、凝縮は過熱ガス領域、飽和ガス領域で進行するが、粒子温度が流動層下部から上部に向かって低くなるために、上部で粒子に凝縮した成分が逆混合によって下部に移動し暖められることによる再揮発を考慮する必要がある。このような再揮発する領域を揮発領域と呼ぶことにする。したがって、流動層凝縮器内部には下部から上部に向かって揮発領域、過熱ガス領域、飽和ガス領域が存在することになる。このモデルに基づく層高に対する温度、濃度の分布を Fig. 2-1 に示す。

(1) 挥発領域

流動層凝縮器内の微小層高における物質収支を考える。逆混合する粒子に伴なって流動層の単位断面積を通過する凝縮成分のモル速度 N は、層の軸方向の粒子拡散係数を D (m^2/h)、固相凝縮成分の濃度を C (mol/m^3) とすると

$$\begin{aligned}
 N (\text{mol}/\text{m}^2 \cdot \text{h}) &= D \cdot \frac{\partial C}{\partial l} \\
 &= D \cdot \frac{\partial}{\partial l} \left(\frac{\frac{m}{M}}{\frac{m_p}{\rho_p} + \frac{m}{\rho}} \right) \quad (2.20)
 \end{aligned}$$

ここで、 m_p, m は単位層高中の粒子量と凝縮成分量 (kg)、 M は凝縮成分分子量、 ρ_p 、 ρ は粒子と凝縮成分の密度 (kg/m^3) である。

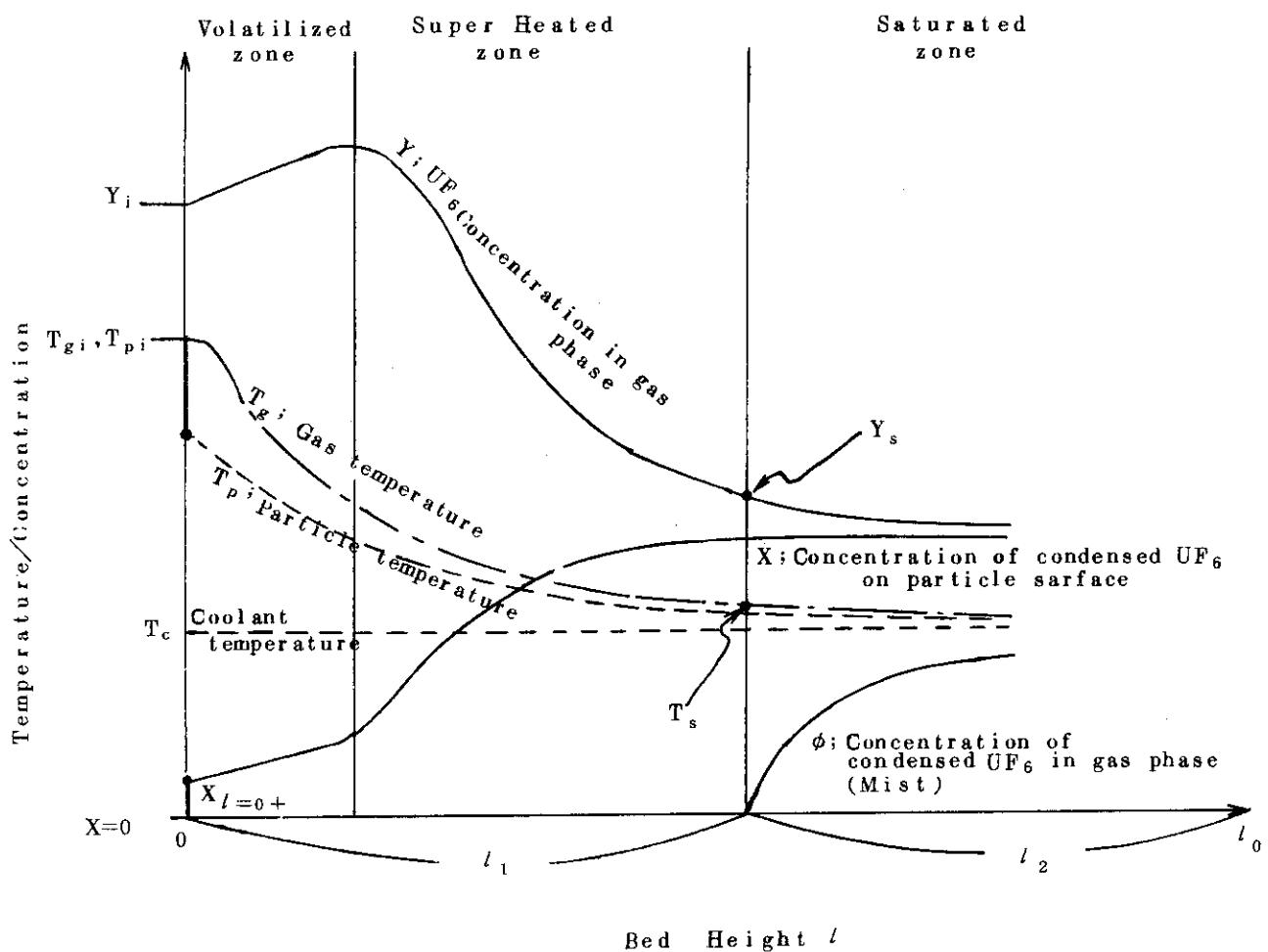


Fig. 2-1 Profiles of Temperature, Concentrations of UF_6 and Mist in Continuous Cold Trap of Fluidized Bed by Homogeneous Model (Model 2a)

(Flow pattern, Particles : backmixing flow)
 gas : Piston flow

ここで、 $(m_p/\rho_p) \gg (m/\rho)$ である場合、上式は

$$\begin{aligned}
 N &= D \cdot \frac{\partial}{\partial l} \left(\frac{\rho_p}{M} \cdot \frac{m}{m_p} \right) \\
 &= D \cdot \frac{\partial}{\partial l} \left(\frac{\rho_p}{M_p} \cdot X \right)
 \end{aligned} \tag{2.21}$$

となる。ただし X は、凝縮した成分と粒子とのモル比であり、粒子の分子量を M_p とすれば次式で表わされる。

$$X = \left(\frac{m}{M} \right) / \left(\frac{m_p}{M_p} \right) \tag{2.22}$$

したがって、微小層高における物質収支は、流動媒体粒子の供給速度を F_p とし、式(2.21)を用い、定常状態にあるとして整理すると次式を得る。

$$A_t \cdot D \cdot \frac{\rho_p}{M_p} \cdot \frac{d^2 X}{d\zeta^2} - \frac{F_p}{M_p} \cdot \frac{dX}{d\zeta} - G \cdot \frac{dY}{d\zeta} = 0 \quad (2.23)$$

また、気相の濃度 Y は凝縮成分の気相における分圧と粒子表面上のそれとの差に比例して変化するから

$$-G \cdot dY = k_p \cdot (P - P_p) \cdot da \quad (2.1)$$

が同時に成り立つ。ただし、 $X = 0$ のときは $P_p = P$ である。

この揮発領域は、 $X \geq 0$ の条件下で $P \leq P_p$ を満す範囲に存在する。

次にガス温度 T_g 、粒子温度 T_p および気相、固相の濃度 Y 、 X の関係を求める。そこで、微小層高における熱収支を考える。

先ず、物質収支の場合と同様に、逆混合する粒子に伴なって移動する熱量を求める。流動層の軸方向の粒子拡散に基づく単位断面積当りの伝熱量 q ($\text{kcal}/\text{m}^2 \cdot \text{h}$) は

$$q = k_e \cdot \frac{\partial T_p}{\partial \zeta} \quad (2.24)$$

ここに、 k_e は流動層の有効伝熱係数 ($\text{kcal}/\text{m} \cdot \text{h} \cdot ^\circ\text{C}$) と呼ばれ、粒子拡散係数 D (m^2/h)、粒子の比熱 C_p ($\text{kcal}/\text{mol} \cdot ^\circ\text{C}$) と次式の関係にある。¹²⁾

$$D = \frac{k_e}{(\frac{\rho_p}{M_p}) \cdot C_p} \quad (2.25)$$

そこで、ガス、粒子、気相中の凝縮成分および凝縮した成分の各々の顯熱、凝縮潜熱、流動層壁面と粒子間の伝熱量を考慮し、かつ、式(2.24)を用い、微小層高における熱収支を取ると、

$$\begin{aligned} A_t \cdot k_e \cdot \frac{d^2 T_p}{d\zeta^2} - \frac{F_p}{M_p} \cdot C_p \cdot \frac{dT_p}{d\zeta} - \frac{F_p}{M_p} \cdot C_v \cdot (X \cdot \frac{dT_p}{d\zeta} + T_p \cdot \frac{dX}{d\zeta}) \\ - G \cdot C_g \cdot \frac{dT_g}{d\zeta} - G \cdot C_v \cdot (Y \cdot \frac{dT_g}{d\zeta} + T_g \cdot \frac{dY}{d\zeta}) \\ - G \cdot \lambda \cdot \frac{dY}{d\zeta} = \pi \cdot D_t \cdot h_w \cdot (T_p - T_w) \end{aligned} \quad (2.26)$$

ここで、 C_v は凝縮成分の比熱 ($\text{kcal}/\text{mol} \cdot ^\circ\text{C}$)、 T_w は流動層壁面温度である。ただし C_v はガスおよび固体の値が等しいと仮定してある。

また、ガスと粒子間の熱収支は

$$\begin{aligned}
 -G \cdot C_g \cdot dT_g &= G \cdot C_v \cdot Y \cdot dT_g \\
 &= h_p \cdot (T_g - T_p) \cdot da
 \end{aligned} \tag{2.27}$$

したがって、揮発領域のガスおよび粒子の温度、濃度は式(2.1)(2.23)(2.26)(2.27)を層高 z について解くことにより求められる。

(2) 過熱ガス領域

過熱ガス領域では、気相の凝縮成分分圧 P と粒子表面上の分圧 P_p 間に、 $P > P_p$ の関係がある。この条件のもとでも前項(1)で求めた式(2.23)および式(2.1)が成立する。

また熱収支についても、前項(1)の式(2.26)(2.27)が成り立つ。

この過熱ガス領域は、ガス温度 T_g に相当する凝縮成分の蒸気圧と気相の成分分圧 P とが等しくなる位置(飽和点)にまで及ぶ。また、この領域のガスおよび粒子の温度、濃度は上記4式を層高 z について解くことにより求められる。

(3) 飽和ガス領域

飽和ガス領域では、気相中でも凝縮が起る(ミストの生成)。ミスト濃度を、ミストと非凝縮性ガスとのモル比 ϕ で表わし、層の微小層高について物質収支を取ると、

$$A_t \cdot D \cdot \frac{\rho_p}{M_p} \cdot \frac{d^2 X}{dz^2} - \frac{F_p}{M_p} \cdot \frac{dX}{dz} - G \cdot \left(\frac{dY}{dz} + \frac{d\phi}{dz} \right) = 0 \tag{2.28}$$

となる。

また、ガスと粒子間の物質収支は

$$-G \cdot dY = k_p \cdot (P - P_p) \cdot da + G \cdot d\phi \tag{2.29}$$

一方、熱収支は、ミスト温度がガス温度 T_g と同一であるとするならば

$$\begin{aligned}
 A_t \cdot k_e \cdot \frac{d^2 T_p}{dz^2} - \frac{F_p}{M_p} \cdot C_p \cdot \frac{dT_p}{dz} - \frac{F_p}{M_p} \cdot C_v \cdot \left(X \cdot \frac{dT_p}{dz} + T_p \cdot \frac{dX}{dz} \right) \\
 - G \cdot C_g \cdot \frac{dT_g}{dz} - G \cdot C_v \cdot \left\{ (Y + \phi) \frac{dT_g}{dz} + T_g \cdot \left(\frac{dY}{dz} + \frac{d\phi}{dz} \right) \right\} \\
 - G \cdot \lambda \cdot \frac{dY}{dz} = \pi \cdot D_t \cdot h_w \cdot (T_p - T_w)
 \end{aligned} \tag{2.30}$$

また、ガスと粒子間の熱収支は

$$\begin{aligned}
 -G \cdot C_g \cdot dT_g &- G \cdot C_v \cdot (Y + \phi) dT_g + G \cdot \lambda \cdot d\phi \\
 &= h_p \cdot (T_g - T_p) da
 \end{aligned} \tag{2.31}$$

となる。

したがって、飽和ガス領域のガスおよび粒子の温度、濃度、ミスト濃度は式(2.28)(2.29)

(2.30)(2.31)を層高 l について解くことにより求められる。この場合, Clasius - Clapeyron の式の代りに, 凝縮成分の蒸気圧 P が温度の関数である実験式 $f(T)$ で与えられるならば, 濃度 Y とガス温度 T_g の関係は次式で表わされる。

$$\frac{dY}{dT_g} = \frac{P_0}{\{P_0 - f(T_g)\}^2} \cdot \frac{df(T_g)}{dT_g} \quad (2.32)$$

(4) 境界条件

モデル 2 a の境界条件について述べる。流動層凝縮器下部に供給されるガス温度を T_{gi} , 気相濃度を Y_i , 粒子温度を T_{pi} とすれば, 流動層内部の入口近傍 $l=0+$ における温度 T_g , T_p , 濃度 Y , ϕ は,

先ず, 気相側についてはピストン流の仮定から

$$\left. \begin{array}{rcl} T_{g,i} & = & T_{gi} \\ Y_{i,0+} & = & Y_i \\ \phi_{i,0+} & = & 0 \end{array} \right\} \quad (2.33)$$

となる。

次に, 粒子側については, 逆混合の仮定から粒子温度 T_p は, 入口近傍の微小層高における式(2.34)(2.35)の物質収支および熱収支を満足するよう決定されなければならない。
すなわち, 物質収支より

$$A_t \cdot D \cdot \frac{\rho_p}{M_p} \cdot \left(\frac{dX}{dl} \right)_{l=0+} - \frac{F_p}{M_p} \cdot X_{i,0+} = 0 \quad (2.34)$$

熱収支より

$$\begin{aligned} C_p \cdot \frac{F_p}{M_p} \cdot T_{pi} - A_t \cdot k_e \cdot \left(\frac{dT_p}{dl} \right)_{l=0+} \\ = \frac{F_p}{M_p} \cdot (C_p + C_v \cdot X_{i,0+}) \cdot T_{p,i,0+} \end{aligned} \quad (2.35)$$

2.3.2 ピストン流粒子流れモデル(モデル 2 b)

均一相流動層モデルに従う流動層凝縮器の最下部に粒子およびガスが供給され, 粒子側および気相側ともピストン流であると仮定する。したがって, このモデルでは過熱ガス領域と飽和ガス領域しか存在しない。また, 前項のモデル 2 a で扱った粒子拡散係数 D , 有効伝熱係数 k_e はこのモデル 2 b では考慮する必要がないため, より単純な式となる。

(1) 過熱ガス領域

流動層凝縮器の微小層高における物質収支より

$$-G \cdot dY = -\frac{F_p}{M_p} \cdot dX \quad (2.36)$$

また、ガスと粒子間の物質収支は

$$-G \cdot dY = k_p \cdot (P - P_p) da \quad (2.1)$$

となる。

一方、微小層高の熱収支より

$$\begin{aligned} & -\frac{F_p}{M_p} \cdot C_p \cdot \frac{dT_p}{dz} - \frac{F_p}{M_p} \cdot C_v \cdot \left(X \cdot \frac{dT_p}{dz} + T_p \cdot \frac{dX}{dz} \right) - G \cdot C_g \cdot \frac{dT_g}{dz} \\ & - G \cdot C_v \cdot \left(Y \cdot \frac{dT_g}{dz} + T_g \cdot \frac{dY}{dz} \right) - G \cdot \lambda \cdot \frac{dY}{dz} \\ & = \pi \cdot D_t \cdot h_w \cdot (T_p - T_w) \end{aligned} \quad (2.37)$$

また、ガスと粒子間の熱収支は

$$\begin{aligned} & -G \cdot C_g \cdot dT_g - G \cdot C_v \cdot Y \cdot dT_g \\ & = h_p (T_g - T_p) \end{aligned} \quad (2.27)$$

となる。

したがって、過熱ガス領域におけるガス、粒子の温度および濃度は式(2.36)(2.1)(2.37)(2.27)を層高 z について解くことにより求められる。

(2) 飽和ガス領域

先ず、流動層凝縮器の微小層高における物質収支を考える。

$$-G \cdot dY = \frac{F_p}{M_p} \cdot dX + G \cdot d\phi \quad (2.38)$$

また、ガスと粒子間の物質収支は

$$-G \cdot dY = k_p \cdot (P - P_p) da + G \cdot d\phi \quad (2.29)$$

となる。

一方、微小層高における熱収支より

$$\begin{aligned} & -\frac{F_p}{M_p} \cdot C_p \cdot \frac{dT_p}{dz} - \frac{F_p}{M_p} \cdot C_v \cdot \left(X \cdot \frac{dT_p}{dz} + T_p \cdot \frac{dX}{dz} \right) - G \cdot C_g \cdot \frac{dT_g}{dz} \\ & - G \cdot C_v \cdot \left\{ (Y + \phi) \cdot \frac{dT_g}{dz} + T_g \cdot \left(\frac{dY}{dz} + \frac{d\phi}{dz} \right) \right\} - G \cdot \lambda \cdot \frac{dY}{dz} \\ & = \pi \cdot D_t \cdot h_w \cdot (T_p - T_w) \end{aligned} \quad (2.39)$$

また、ガスと粒子間の熱収支は

$$\begin{aligned} -G \cdot C_g \cdot dT_g &= G \cdot C_v \cdot (Y + \phi) \cdot dT_g + G \cdot \lambda \cdot d\phi \\ &= h_p \cdot (T_g - T_p) \cdot da \end{aligned} \quad (2.31)$$

となる。

したがって、飽和ガス領域におけるガス、粒子の温度および濃度は式(2.38)(2.29)(2.39)(2.31)を層高について解くことにより求められる。なお、温度 T_g と濃度 Y の関係については式(2.32)で与えられる。

(3) 境界条件

モデル 2 b では、流動層凝縮器の入口近傍 $t = 0+$ における温度 T_g , T_p , 濃度 Y , X , ϕ は次のように与えられる。

ガス側については

$$\left. \begin{array}{l} T_{g,t=0+} = T_{gi} \\ Y_{t=0+} = Y_i \\ \phi_{t=0+} = 0 \end{array} \right\} \quad (2.33)$$

粒子側については

$$\left. \begin{array}{l} T_{p,t=0+} = T_{pi} \\ X_{t=0+} = 0 \end{array} \right\} \quad (2.40)$$

2.4 ミスト生成率

凝縮特性の重要な 1 つであるミスト生成率について述べる。ミスト生成率を次のように定義する。

ミスト生成率

$$= \frac{\text{(流動層出口におけるミスト流出速度)}}{\text{(凝縮成分の供給速度)}} \times 100 \quad (2.41)$$

ここで、凝縮成分の供給速度は $G \cdot Y_i$ (mol/h) である。一方、ミスト流出速度は、前節の 2.2 回分流動層凝縮モデルと 2.3 連続流動層凝縮モデルにおけるミストの取扱いの相異からそれぞれ次のように表わされる。

(1) 回分流動層

回分流動層では、Thompson の取扱⁴⁾にならってミストの生成割合をミスト分率 α で表わし、式(2.11)～(2.13)のように定義した。

すなわち、

$$\alpha = 1 - \frac{L_1}{L}$$

$$= \frac{-G \cdot dY - k_p \cdot (P - P_p) \cdot da}{-G \cdot dY} \quad (2.42)$$

このミスト分率 α は、層高 $l \sim l + dl$ における、全凝縮分に対するミスト分の割合を意味する。したがって、式(2.41)で定義したミスト生成率は、ミスト生成速度を飽和ガス領域の全層区間で積分し、 $G \cdot Y_i$ で割ったものとなる。すなわち

$$\text{ミスト生成率 (\%)} = \frac{100}{Y_i} \int_{l_1}^{l_2} -\alpha \cdot \frac{dY}{dl} \cdot dl \quad (2.43)$$

ここに、 l_1 、 l_2 はそれぞれ過熱ガス領域および飽和ガス領域の層高(m)である。

(2) 連続流動層

連続流動層では、ミスト生成速度を式(2.29)においてミスト濃度 ϕ を用いて示した。すなわち

$$-G \cdot dY = k_p \cdot (P - P_p) \cdot da + G \cdot d\phi \quad (2.29)$$

これを式(2.42)を用い整理すると

$$d\phi = -\alpha \cdot dY \quad (2.44)$$

したがって、ミスト生成率は前項(1)と同様に飽和ガス領域の全区間で式(2.44)を積分し Y_i で割ったものとなる。

$$\begin{aligned} \text{ミスト生成率 (\%)} &= \frac{100}{Y_i} \int_{l_1}^{l_2} -\frac{d\phi}{dl} \cdot dl \\ &= \frac{\phi_0}{Y_i} \times 100 \end{aligned} \quad (2.45)$$

ここに、 ϕ_0 は流動層出口ガス中のミスト濃度である。

2.5 適用モデルの選定

2.5.1 モデルの評価

前節2.2、2.3で述べたモデルにより凝縮特性に関する実験結果を整理する上での問題点を比較する。

(1) モデル 1

回分流動層では、流動媒体粒子の入換えがないため凝縮の進行に伴なって粒子径が変化するとともに、粒子に凝縮した成分が粒子同志の衝突などで剝離し、見掛け上ミスト生成率が大きくなる可能性がある。解法上の問題は特にない。

(2) モデル 2 a

このモデルでは、粒子拡散係数Dが重要な因子であるが信頼性の高い値の推定が難しい。ま

た境界条件として与えるべき流動層凝縮器内部の入口近傍における粒子温度 $T_{p,i=0+}$ および凝縮した成分濃度 $X_{i=0+}$ は、式(2.35)(2.36)で定められるが収斂計算により求めねばならず計算はより複雑となる。

(3) モデル 2 b

気相側および粒子側ともピストン流と仮定しているため関係式は比較的単純であり、計算も容易である。

しかし、いずれのモデルを採用したとしても実際の流動層内の現象を近似する上で不十分であろう。また、複雑なモデルでは使用する係数の推定が困難になるとともに元数が多くなるので大胆な仮定や近似を設けない限り解析的に解くことは殆んど不可能である。

2.5.2 適用モデルの選定

回分流動層についてはモデル1がそのまま適用できるが、次のとく、連続流動層に関する単純化したモデルも拡張して使えるのでこれについて述べる。

連続流動層については、前節に述べた理由から均一相モデルの1つであるモデル2bをさらに単純化することが望ましい。そこで、粒子側と気相側とを独立に取扱うモデルを考える。すなわち、層内温度分布は逆混合モデルなどによる理論式またはこれを補正した実験式により与えられるものとし、かつ、気相側の変化はこの温度分布により定まるが、その温度分布は凝縮成分の温度、濃度および相の変化(凝縮)により影響されないと仮定する。物理的には、凝縮成分の熱量変化は非凝縮性ガスおよび粒子の熱量変化に比べ小さく、無視し得ると仮定したことになる。凝縮潜熱の評価が大胆すぎる欠点はあるが、粒子側の変数とガス側の変数とを独立に取扱うことができ、さらに、層内温度を均一とした場合には回分流動層のモデルと内容が同一になるなどの利点がある。

以下に単純化したモデルの関連式を示す。先ず、粒子側の解析に基づく層内温度分布について述べ、次に過熱ガス領域および飽和ガス領域におけるガス側のモデルについて述べる。

(1) 粒子側のモデル(層内温度分布)

流動層凝縮器下部から供給された流動媒体粒子は流動層内で逆混合するものと仮定し、非凝縮性ガスGを考慮した微小層高における定常状態の熱収支から、層高 l と粒子温度 T_p の関係は、後章4でも述べるが、次式で表わされる。

$$\begin{aligned} A_t \cdot k_e \cdot \frac{d^2 T_p}{d l^2} &= \left(\frac{F_p}{M_p} \cdot C_p + G \cdot C_g \right) \frac{dT_p}{dl} \\ &= \pi \cdot D_t \cdot h_w \cdot (T_p - T_w) \end{aligned} \quad (2.48)$$

境界条件は、流動層内部の入口近傍 $l = 0+$ における熱収支から

$$\begin{aligned} \left(\frac{F_p}{M_p} \cdot C_p + G \cdot C_g \right) \cdot T_{p,i=0+} - A_t \cdot k_e \cdot \left(\frac{dT_p}{dl} \right)_{l=0+} \\ = \left(\frac{F_p}{M_p} \cdot C_p + G \cdot C_g \right) \cdot T_{p,i=0+} \end{aligned} \quad (2.49)$$

および

$$\ell \rightarrow \infty \text{ のとき } T_p \rightarrow T_w \quad (2.50)$$

であり、これにより式(2.48)を解けば層内温度分布は次式で与えられる。ただし T_{p_i} は供給粒子温度である。

$$T_p = \frac{T_{p_i} - T_w}{1 - A \cdot B} + e^{-B \cdot \ell} + T_w \quad (2.51)$$

ここで、AおよびBは

$$A = \frac{A_t \cdot k_e}{\left(\frac{F_p}{M_p}\right) \cdot \bar{C}_p + G \cdot \bar{C}_g} \quad (2.52)$$

$$B = \frac{1}{2} \left\{ \frac{1}{A} + \sqrt{\left(\frac{1}{A}\right)^2 + 4 \frac{\pi \cdot D_t \cdot h_w}{A_t \cdot k_e}} \right\} \quad (2.53)$$

ここに、 \bar{C}_p , \bar{C}_g は粒子およびガスの平均比熱である。

この場合、壁面伝熱係数 h_w および有効伝熱係数 k_e (または粒子拡散係数 D)を正確に与えることが重要である。しかし、これら、とくに D について信頼性の高い数値を推定することが困難である。

一方、粒子流れをピストン流と仮定しさらに単純化すれば、式(2.48)左辺第1項を除いた次式が成り立つ。

$$-\left(\frac{F_p}{M_p} \cdot C_p + G \cdot C_g\right) \frac{d T_p}{d \ell} = \pi \cdot D_t \cdot h_w \cdot (T_p - T_w) \quad (2.54)$$

$\ell = 0$ のとき $T_p = T_{p_i}$ として上式を積分すれば

$$T_p = (T_{p_i} - T_w) \exp \left\{ -\frac{\pi \cdot D_t \cdot h_w}{\left(\frac{F_p}{M_p}\right) \cdot \bar{C}_p + G \cdot \bar{C}_g} \cdot \ell \right\} + T_w \quad (2.55)$$

となり、層内温度の推定は可能である。しかし壁面伝熱係数 h_w は正確に与える必要がある。

実測値が得られる場合には、これを基に補外する方がより望ましい。二点の実測値のある場合式(2.54)より、次の半実験式が得られる。

$$T_p = (T_{p_a} - T_w) \exp \left\{ -\frac{\ell - \ell_a}{\ell - \ell_b} \cdot \ell \ln \frac{T_{p_a} - T_w}{T_{p_b} - T_w} \right\} \quad (2.56)$$

ここに、 T_{p_a} , T_{p_b} は層高 ℓ_a , ℓ_b における実測の層内温度である。後章 6 に述べる実験結果の整理には上式を用いた。

(2) ガス側のモデル

a 過熱ガス領域

流動層凝縮器内の微小層高における物質収支は、前節 2.2(1)式(2.1)～式(2.4)より

$$\begin{aligned} -G \cdot dY &= k_p \cdot (P - P_p) \cdot da \\ &= \left(\frac{Sh \cdot \rho_{gm} \cdot D_v}{d_p \cdot M_{gm}} \right) \cdot \ln \{ (1+Y)(1-\beta) \} \left(\frac{6(1-\varepsilon_f) \cdot A_t}{d_p \cdot \phi_s} \right) \cdot dl \quad (2.57) \end{aligned}$$

一方、ガスと粒子間の熱収支は式(2.27)および式(2.3)(2.7)より、

$$\begin{aligned} -G \cdot (C_g + C_v \cdot Y) \cdot dT_g &= h_p \cdot (T_g - T_p) \cdot da \\ &= \left(\frac{Nu \cdot k_{gm}}{d_p} \right) (T_g - T_p) \cdot \left(\frac{6(1-\varepsilon_f) \cdot A_t}{d_p \cdot \phi_s} \right) \cdot dl \quad (2.58) \end{aligned}$$

となる。

したがって、過熱ガス領域の層高 l についてのガス温度 T_g 、濃度 Y は式(2.57)(2.58)により求められる。なお、 Sh および Nu は式(2.9)(2.10)で与えられる。

b 飽和ガス領域

前項と同様に流動層凝縮器内の微小層高における物質収支および熱収支を取る。

先ず、物質収支は式(2.29)より

$$\begin{aligned} -G \cdot dY &= k_p (P - P_p) \cdot da + G \cdot d\phi \\ &= \left(\frac{Sh \cdot \rho_{gm} \cdot D_v}{d_p \cdot M_{gm}} \right) \cdot \ln \{ (1+Y)(1-\beta) \} \left(\frac{6(1-\varepsilon_f) \cdot A_t}{d_p \cdot \phi_s} \right) \cdot dl \\ &\quad + G \cdot d\phi \quad (2.59) \end{aligned}$$

一方、ガスと粒子間の熱収支は式(2.31)より

$$\begin{aligned} -G \{ C_g + C_v \cdot (Y + \phi) \} \cdot dT_g &+ G \cdot \lambda \cdot d\phi \\ &= h_p \cdot (T_g - T_p) \\ &= \left(\frac{Nu \cdot k_{gm}}{d_p} \right) (T_g - T_p) \left(\frac{6(1-\varepsilon_f) \cdot A_t}{d_p \cdot \phi_s} \right) \quad (2.60) \end{aligned}$$

となる。

ガス温度 T_g と成分濃度 Y の関係は、前述のごとく蒸気圧が温度 T の関数 $f(T)$ で与えられておれば式(2.32)で表わされる。

したがって、飽和ガス領域の層高 l についてのガスの温度 T_g 、濃度 Y およびミスト濃度 ϕ は式(2.59)(2.60)(2.32)により求められる。

c 境界条件

この単純化したモデルの境界条件は、気相側をピストン流と仮定しているので、流動層凝縮器内の入口近傍 $l = 0+$ における温度、濃度はモデル 2a における気相側の条件と同一で

ある。すなわち

$$\left. \begin{array}{l} T_{g, t=0+} = T_{gi} \\ Y_{t=0+} = Y_i \\ \phi_{t=0+} = 0 \end{array} \right\} \quad (2.33)$$

である。

3. 実験装置

3.1 実験装置の概要

流動層型連続凝縮器の型式として、凝縮器と揮発器を並置する2塔型と両者を上下に組合せた1塔型が考えられるが、前者は後者に比べ据付け面積が大きいが自由度に富み実験装置として好ましいのでこの方式を取ることにした。

凝縮器へのガスおよび流動媒体として使用するアルミナ粒子の供給は、流動層最下部から行うこととした。このような供給法は流動層内温度の分布をなだらかにするので、供給部でのUF₆の急激な凝縮による閉塞を防止する上で有効であると期待される。一方、揮発器は、UF₆の再揮発が効率的に行われるよう、UF₆が凝縮付着しているアルミナを上部から供給し流動化ガス(キャリアガス)を下部から供給する向流接触方式とした。

凝縮器と揮発器間のアルミナ移送には、当初機械的移送方式を予定していたが、耐摩耗性およびガスシールに問題があったため、ガス移送方式に変更した。

実験装置の規模は、径として流動層の最小工学規模とみられる50^φ mmを選んだ。この寸法は別に報告されているウランフッ素化実験装置⁸⁾⁹⁾のフッ素化塔(内径80^φ mm)にほど見合った塔内流速(20 cm/sec)が得られ、必要によってはウランフッ素化実験装置とこの流動層型連続凝縮器を組合せた実証実験を行うことも可能である。塔高およびアルミナ循環流量は、アルミナ表面に凝縮付着するUF₆の割合、すなわちUF₆/Al₂O₃、と冷却・加熱に要する伝熱面積、熱容量の関係から塔高は凝縮器、揮発器とともに1,200 mmに取り、アルミナ循環流量は36 kg/h以下とした。これらの検討の詳細は付録A 1に示す。

実験装置のフローシートをFig. 3-1に示す。これはモックアップ実験および作動実験²⁰⁾に基づく改良を経た最終的なフローシートである。これに基づき装置の機能およびガス・アルミナの流れを以下に述べる。

UF₆は、空気恒温槽で約90°Cに加熱されているボンベから供給され稀釈ガスと混合したのち、揮発器(C T - 2)下部から排出されたアルミナ粉末とともに凝縮器(C T - 1)下部に供給される。凝縮器は約-70°Cの冷媒で冷却されており、器内をガスが上昇するにつれてUF₆はアルミナ粒子表面に凝縮し稀釈ガスと分離される。UF₆の付着したアルミナは、粉体中間槽(C V - 1)を経由し、ここからガス移送により揮発器上部に送られる。揮発器は約40°Cに加温されており、ここでUF₆は再揮発し流動化ガスとともに揮発器を出てオフガス処理系に排気される。一方、アルミナは揮発器下部から、前記の稀釈UF₆ガスを利用したガス移送で粉体流量計¹⁰⁾に送られ、再び凝縮器にもどされる。

凝縮器および揮発器の出口にはT C C(差動型熱伝導計)¹¹⁾が設けられており、オフガス中のUF₆濃度(0.01~10 vol %)が測定される。

凝縮器、揮発器ともその上部の分離部内には焼結フィルターが設けられており、ガスに同伴する固体粉末が分離される。とくに凝縮器には、供給されたUF₆の一部が気相中で凝縮し固体微粒子(ミスト)となりガスに同伴するが、このミストを再揮発し、その量を測定する目的でフィルター下部に網目構造のヒーターが内蔵されている。

ガス流量の測定計としては、稀釀ガス、流動化ガスおよびアルミナ移送ガス用にはローターメーターを、UF₆ ガス(100 vol %)用にはHasting 社(USA)製のマスフローメーターを、また、オフガス用にはオリフィスマーターを採用した。流動層およびフィルターの差圧は d / p セルで、圧力はブルドン管型圧力計で測定される。温度は、凝縮器は白金測温抵抗体で、揮発揮は熱電対で測定される。

これらの実験装置は、長さ 3 m、巾 1.2 m、高さ 3 m の工学フードに納められている。装置の主要機器を Table 3-1 に示す。

Table 3-1 Parts and Equipment List in Continuous Cold Trap System
of Fluidized Beds

(C. f. Fig. 3-1~3-9)

Name	Type and Size (mm)	Material	Operating Conditions			Remarks
			Gas and Solid	Temperature (°C)	Pressure (kg/cm ² Q)	
Condenser	Fluidized bed Fluidizing section 49φ×1200H Diengaging section 100φ×300H	SUS-304 UF ₆ Alumina Powder	N ₂ , air, F ₂ UF ₆ Alumina Powder	-70~100	~2	Cooling:Jacket type Coolant:Trichloroethylene -Dry ice Stainless Steel sintered filter;mean pore size 20 μ
Stripper	Fluidized bed Fluidizing section 50φ×1200H Diengaging section 150φ×275H	Nickel	N ₂ , air, F ₂ UF ₆ Alumina Powder	Room Temp. ~100	~2	Heating:Electric heater Stainless Steel sintered filter;mean pore size 20 μ
Powder vessel	Moving bed 30φ×1500H	SUS-304 UF ₆ Alumina Powder	N ₂ , air, F ₂ UF ₆ Alumina Powder	-70~100	~2	Cooling:Jacket type Used for transport gas seal
Mixing pot	30φ×50~100H	SUS-304 UF ₆ Alumina Powder	N ₂ , air, F ₂ UF ₆ Alumina Powder	-70~100	~2	Small vessel connected to the bottom of the stripper and the powder vessel
Powder flow meter	Gas Purge type 50φ×300H	SUS-304 UF ₆ Alumina Powder	N ₂ , air, F ₂ UF ₆ Alumina Powder	Room Temp. ~100	~2	See ref. (10)
Cyclon	25φ(max.diameter) ×78H	SUS-304 UF ₆ Alumina Powder	N ₂ , air, F ₂ UF ₆ Alumina Powder	Room Temp. ~100	~2	Used for powder flow meter

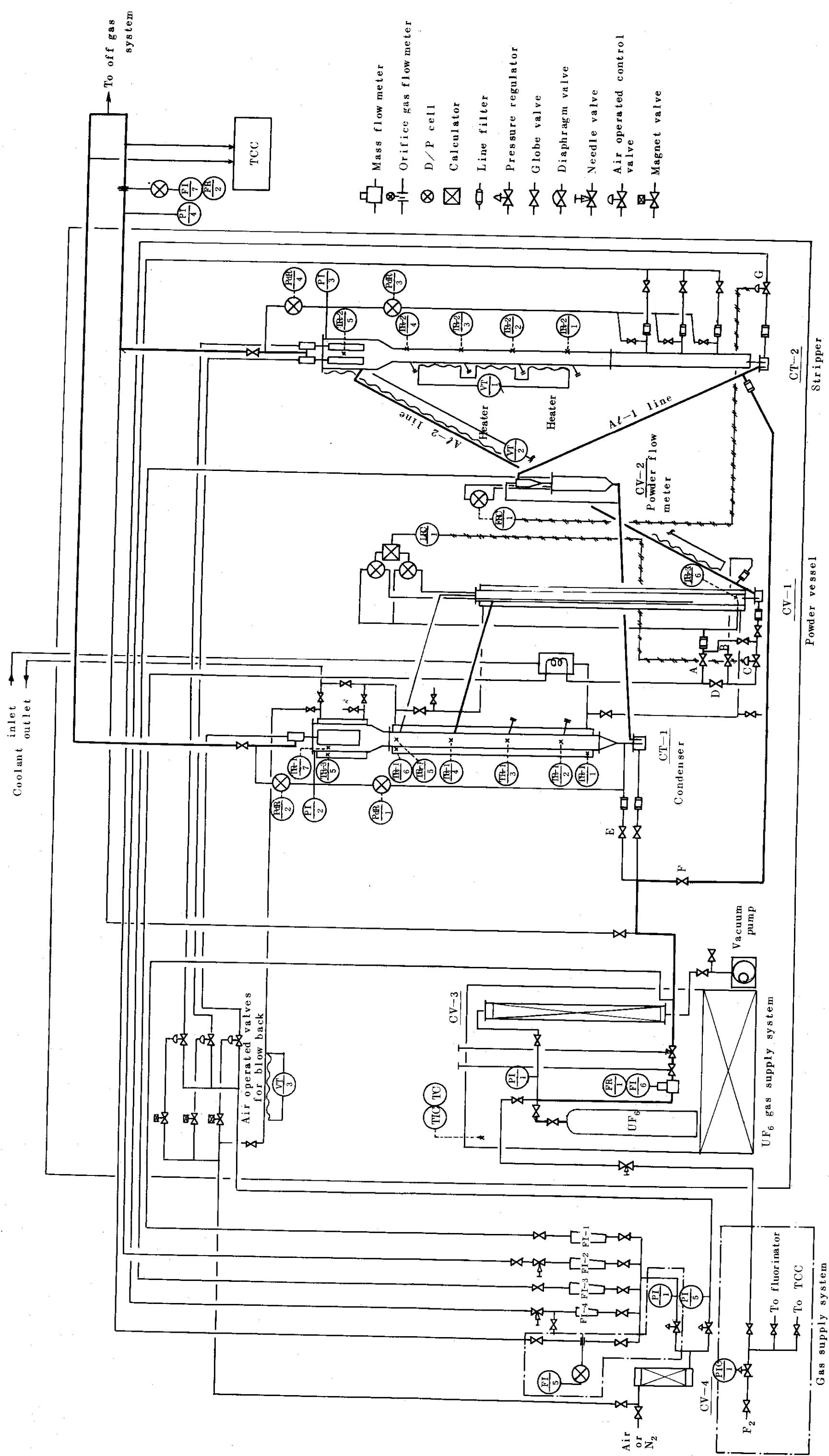


Fig. 3-1 Flowsheet for Continuous Cold Trap System by Fluidized Beds

3.2 実験装置の詳細

流動層型連続凝縮器実験装置は次のような系から構成されている。

- (1) ガス供給系
- (2) 流動層凝縮器
- (3) 流動層揮発器
- (4) 粉体循環系
- (5) オフガス系

3.2.1 ガス供給系

- (1) 惰性ガス、エアー

UF_6 または後述の F_2 の稀釈ガス、揮発器の流動化ガス、アルミナ移送ガス、フィルタープローバックガスには N_2 またはエアーが使われる。

N_2 は市販のポンベガス ($7 \text{ N m}^3/\text{ポンベ}$) を、エアーは施設より供給される圧縮空気 ($5 \text{ Kg/cm}^2 \cdot \text{G}$, 露点 -20°C) を用い、シリカゲルおよびモレキュラーシーブを充填した脱湿器を通し、減圧弁 ($2 \text{ Kg/cm}^2 \cdot \text{G}$ に設定), 流量計 (ロータメーター; max. $40 \ell/\text{min}$) を経て供給される。なお、プローバックガスは元圧 $3 \text{ Kg/cm}^2 \cdot \text{G}$ で供給される。

- (2) フッ素ガス

UF_6 が水分および油脂などの不純物と反応し分解するのを防止するため、装置を予めフッ素化処理する必要がある。このための F_2 (Air Products 社 (USA) 製) は実験室外に設けた専用のフッ素庫よりマスフローメーターで流量を調整し N_2 またはエアーにより稀釈して供給される。

- (3) UF_6

UF_6 は設定温度に保たれた空気恒温槽内で UF_6 ポンベを加熱し (前述のごとくマスフローメーターを見ながら、ニドル弁により流量を調整) 供給される。

恒温槽として、温水、スチーム、空気恒温の各方式が考えられたが、空気恒温槽が最も簡便に(配管等も含めた)全 UF_6 供給系の均一加熱を行えるので、この方式を採用することにした。恒温槽の加熱は電気ヒーターで行い、過熱による UF_6 事故対策としてその温度制御は $40\sim95^\circ\text{C}$ の範囲で自動調節することとし、さらに上限温度 100°C を越えた場合には別の独立した制御系により自動的に恒温槽電源が切れるよう、二重の安全系が設けられている。

UF_6 濃度は、 UF_6 流量と稀釈ガス流量の調整により定められるが、この混合は、温度低下による配管内での UF_6 の析出を防ぐため、恒温槽内で行われる。

配管に残留する UF_6 ガスは、 NaF ペレットおよび活性アルミナを充填したトラップ、真空ポンプからなるオフガス系に脱気される。

3.2.2 流動層凝縮器

凝縮器はステンレス (SUS-304) 製で、流動部 ($50^\phi \text{ mm} \times 1200 \text{ H mm}$) および分離部 ($100^\phi \text{ mm} \times 300 \text{ H mm}$) からなり、外周には冷却用ジャケットが設けられ、分離部にはステンレス (SUS-304) 製の焼結フィルター (戸過面積, 1160 cm^2 , 戸過精度, 20μ) が設けられている。Fig. 3-2 に流動層凝縮器を示す。流動部には、粉体抜出ノズル、温度測定用ノズルが各々 4 本設けられている。整流器には、塔下部よりアルミナを供給できるよう

コーン型 (Fig. 3-7 に示す) を使用した。

凝縮器の冷却は、ドライアイス（昇華温度、 -78.5°C ）で冷却されたトリクロールエチレン（商品名；トリクレン）を循環して行い、器内を $-50\sim-60^{\circ}\text{C}$ に保つ。ジャケットには、トリクレンの偏流を防止するためバッフルが、またトリクレンの出入口部には温度計が設けられている。

温度の測定は、正確を期し、かつ流動化阻害の影響を少なくするため保護管は使用せず、直接流動層内部に温度計 ($3.2\phi\text{ mm}$) を挿入 (25 mm) する方式になっている。また、器内圧力はモネル製、絶対圧力指示のヘリコイド式ブルドン管型圧力計で、流動部およびフィルターの差圧はステンレス製ダイヤフラムを有する d/p セルで測定される。

凝縮器の作動状態は、これらによる温度、圧力、差圧で監視される。

3.2.3 流動層揮発器

揮発器はニッケル製で、流動部 ($50\phi\text{ mm} \times 1200\text{ H mm}$) および分離部 ($150\phi\text{ mm} \times 300\text{ H mm}$) からなり、分離部には凝縮器と同一形式のステンレス製焼結フィルターが設けられている。揮発器を Fig. 3-3 に示す。

流動部には粉体抜出ノズル、温度計保護管が各々 4 本、分離部下部には粉体供給ノズル 1 本が設けられている。加熱はシーズヒーターで行い、スライダックにより調整される。

揮発器下部には、凝縮器にアルミナをガス移送するに必要なガス圧力を確保するために、加熱を行わない移動層部 (SUS-304) が設けられており、このガス圧力の調整のため、流動化ガス供給ノズルが下部より 20 cm 間隔で 3 本設けられている。

圧力、差圧の測定は凝縮器の場合と同様である。

3.2.4 粉体循環系

粉体循環系は、定流量のアルミナを揮発器下部から粉体流量計を経て凝縮器下部にガス移送する系統 (Aℓ-1) と、UF₆ の凝縮付着したアルミナを凝縮器から粉体中間槽を経て揮発器分離部にガス移送する系統 (Aℓ-2)、の 2 つからなる。

揮発器下部からのアルミナの抜出、移送ガスとアルミナとの混合は、粉体循環系を確立するために行った予備実験で開発した混入器で行われ、アルミナ流量の調整はこの混入器に供給されるガスの流量を粉体流量計の出力により制御して行われる。Fig. 3-4 にこのアルミナ流量の制御系を、また Fig. 3-5 に混入器を示す。

アルミナ流量は、サイクロンにより移送ガスから分離されたアルミナ粒子を粉体流量計に自由落下させて測定される。この粉体流量計は混入器と同様予備実験の過程で開発した¹⁰⁾ もので、その形状を Fig. 3-6 に示す。

粉体流量計を出たアルミナは、再び移送ガスと混合され共に凝縮器下部のコーン型整流器に供給される。この供給部を Fig. 3-7 に示す。

さらに、凝縮器内で UF₆ が付着したアルミナは、流動層上部のオーバーフローノズルを流れて粉体中間槽に入る。この粉体中間槽は、揮発器分離部までアルミナをガス移送するに要する圧力を確保するためと、凝縮器・揮発器間のガスの混合を防止するため設けられている。粉体中間槽には、滞留するアルミナが昇温し UF₆ が再揮発するのを防止するために冷却用ジャケットが取付けられており、凝縮器と同様トリクレン冷媒で冷却される。粉体中間槽を Fig.

3-8に示す。下部には揮発器と同形式の混入器が設けられている。粉体中間槽のアルミナ滞留量は、混入器に供給するガス流量を調節し、アルミナ排出速度を変えて制御する。このガス流量は、測定されるアルミナ層高で調節される。Fig. 3-9に層高の制御系を示す。

なお、移送管には銅管($3/8^{\phi}$ in × 1.2^t mm)を使用し、揮発器への移送管は加熱できるようシースヒーターが設けられている。

3.2.5 オフガス系

凝縮器および揮発器のオフガスは、それぞれガス中のUF₆濃度をTCCで測定するため一部をオンラインサンプリングしたのち、大半はNaFトラップ、活性アルミナトラップからなるオフガス処理系に導かれ、ここでUF₆およびF₂が除去され、施設排気系に排気される。オフガス流量はオリフィスマーターで測定される。

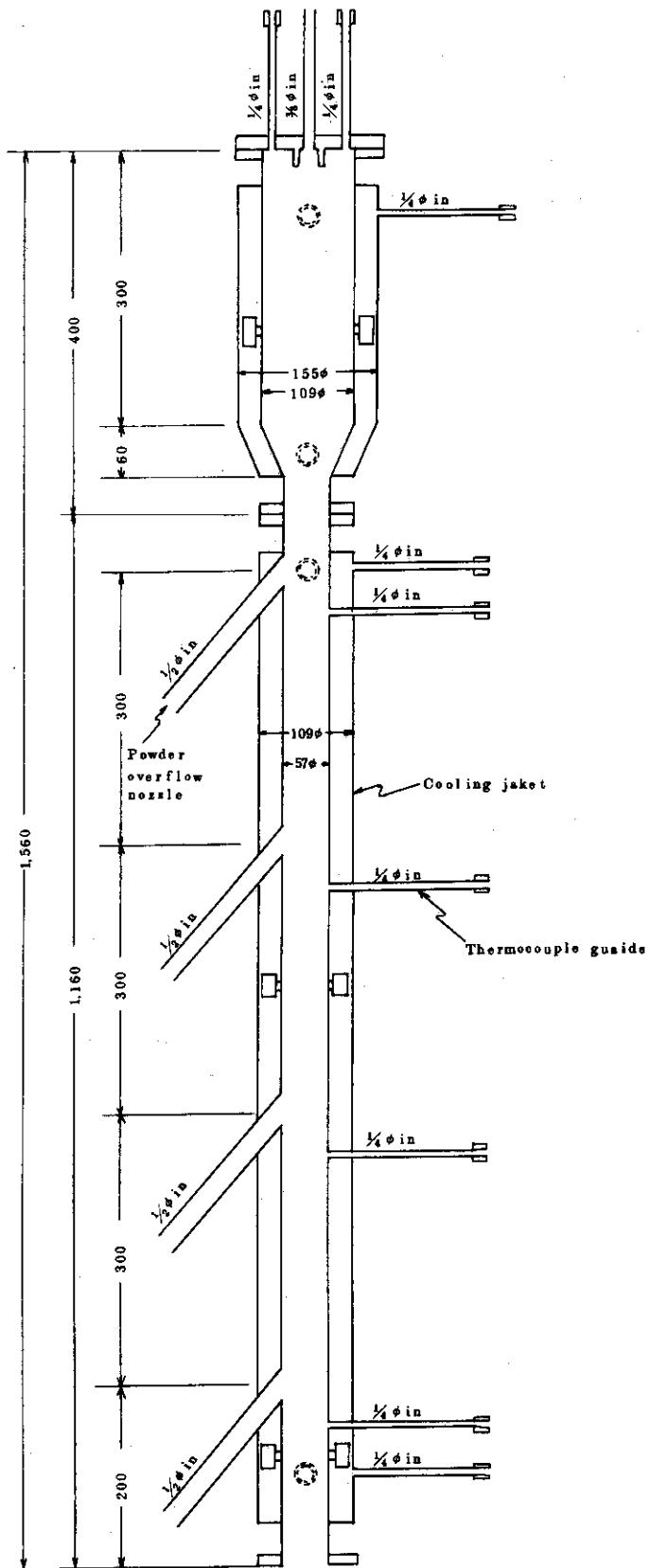


Fig.3-2 Condenser (CT-1) (Fluidized bed)

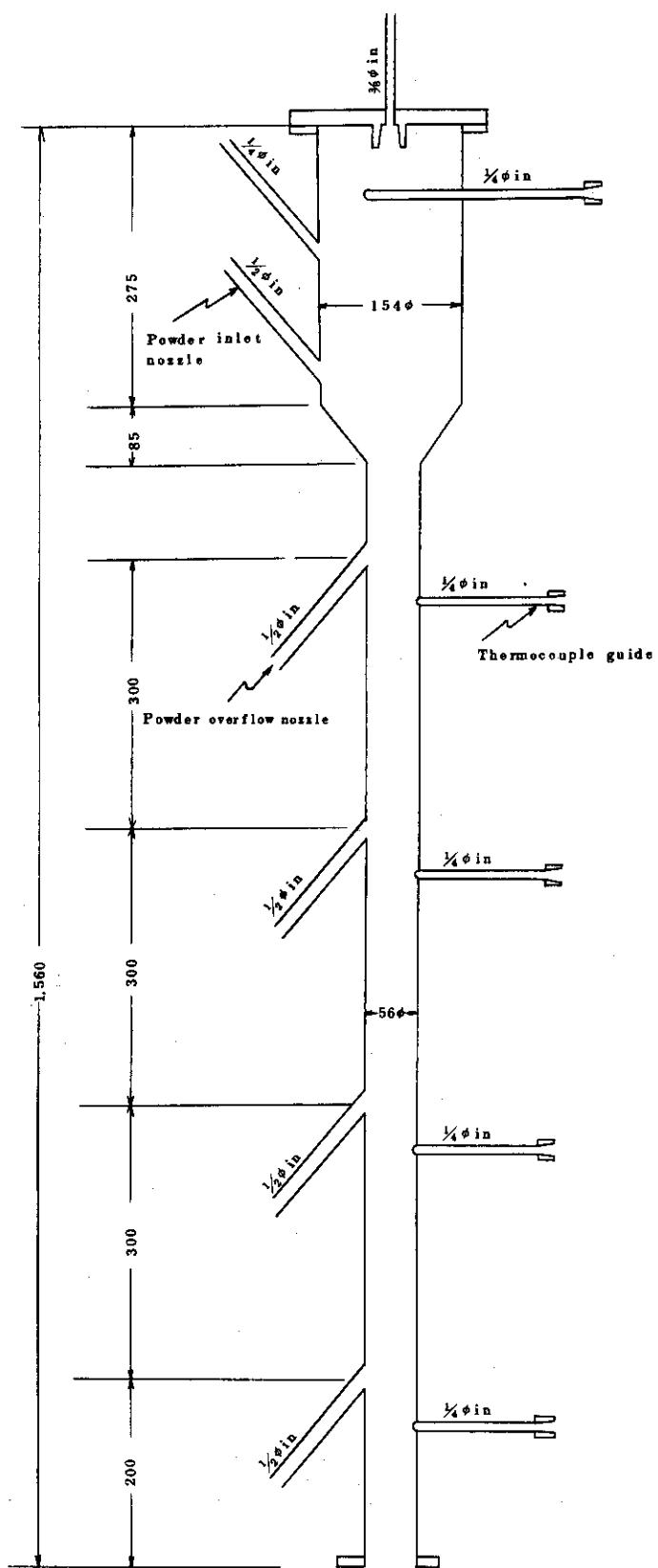


Fig.3-3 Stripper (CT-2) (Fluidized Bed)

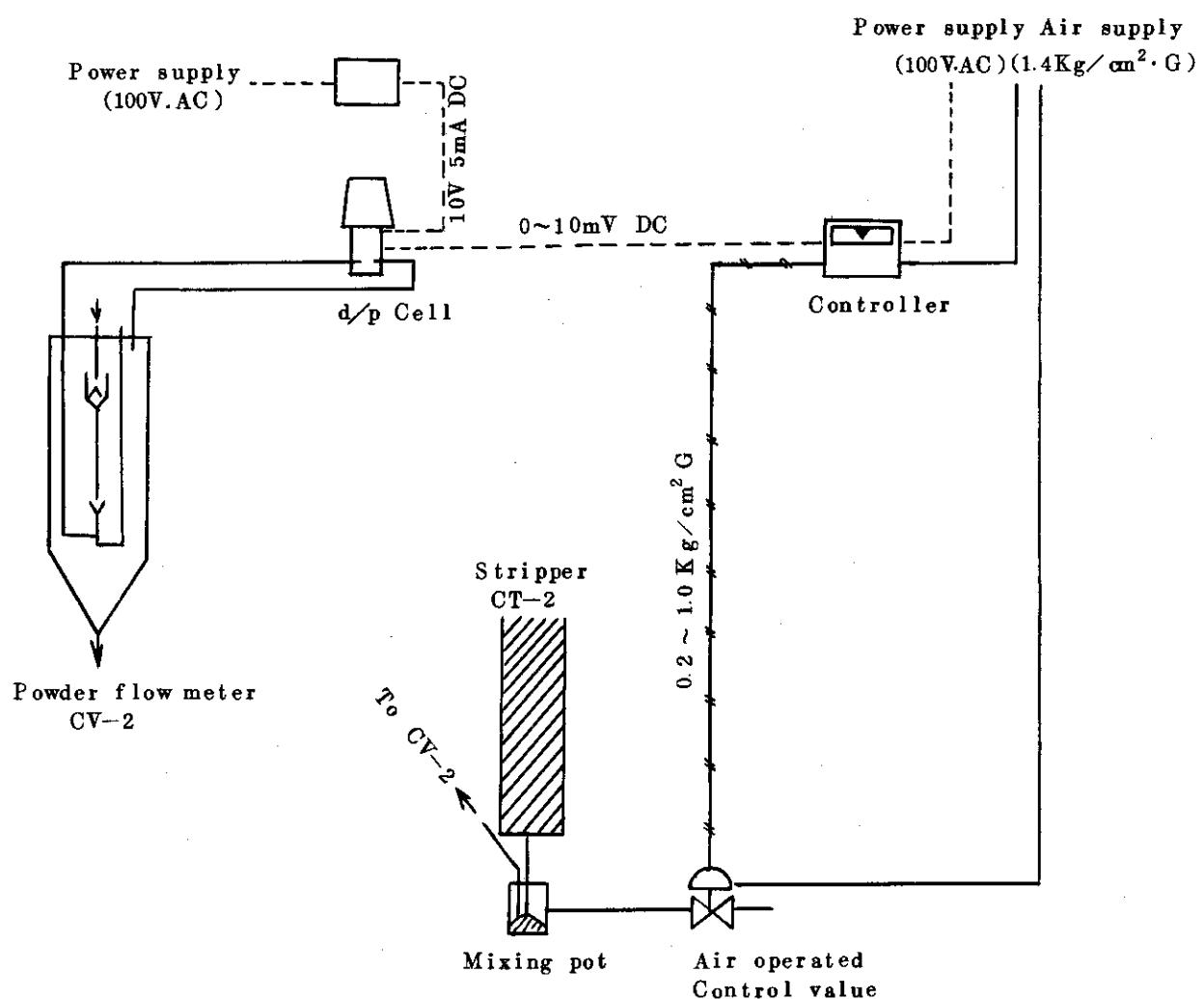


Fig. 3-4 Schematic Diagram of Control System of Powder Flow

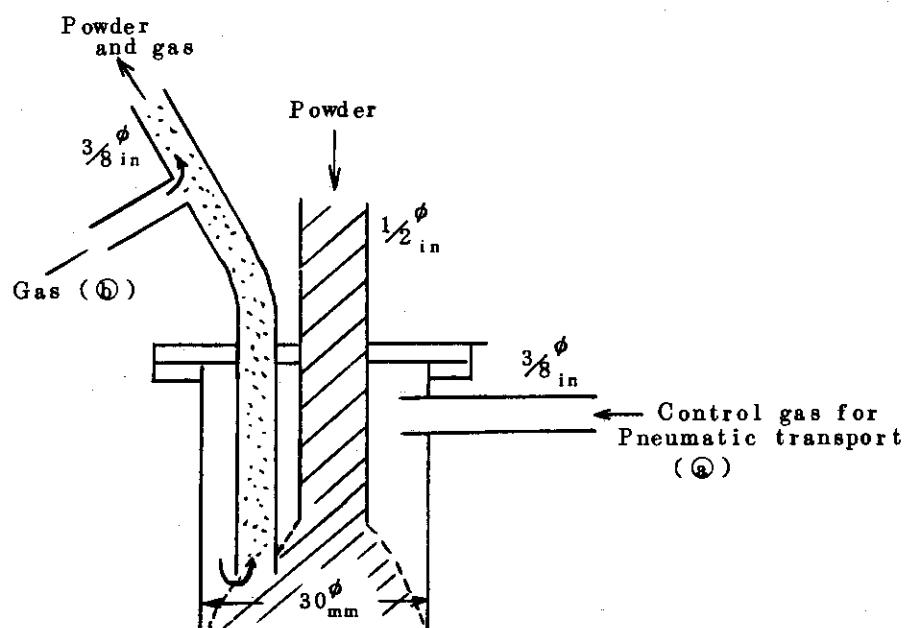


Fig. 3-5 Detail of Mixing Pot

JAERI-M.7064.

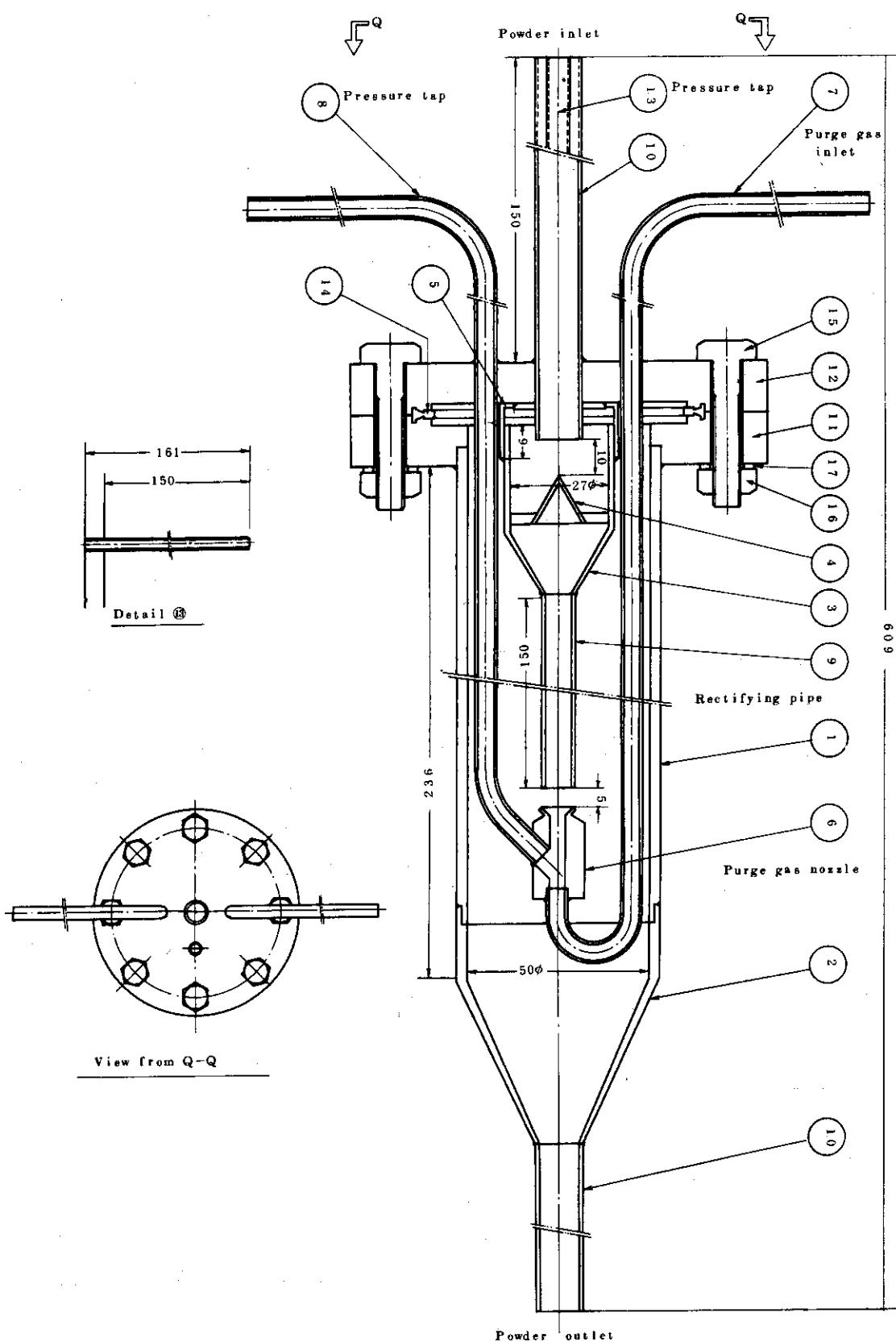


Fig. 3-6 Detail of Powder Flow Meter

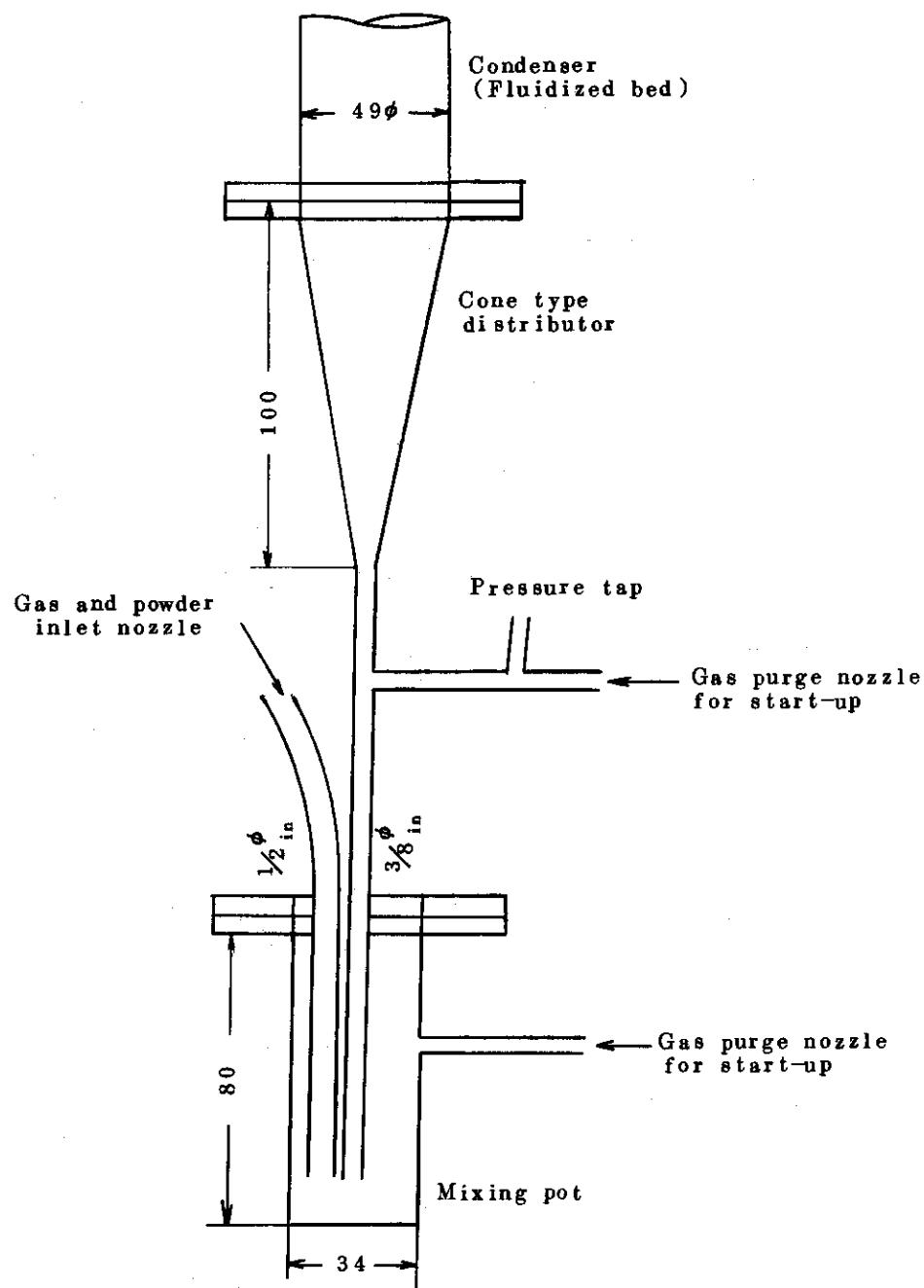


Fig. 3-7 Powder and Gas Feed System to Condenser

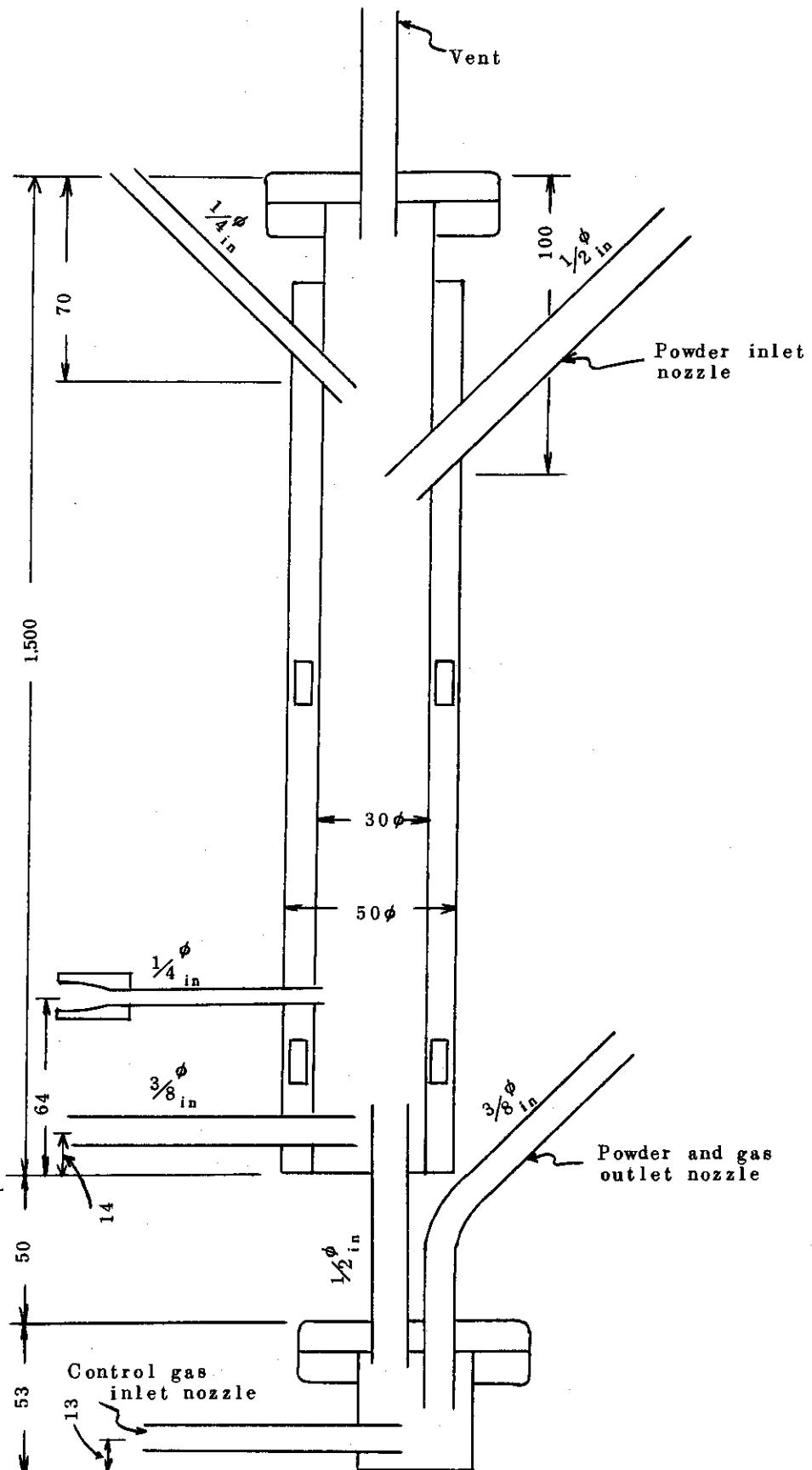


Fig. 3-8 Powder vessel (CV-1) and mixing pot

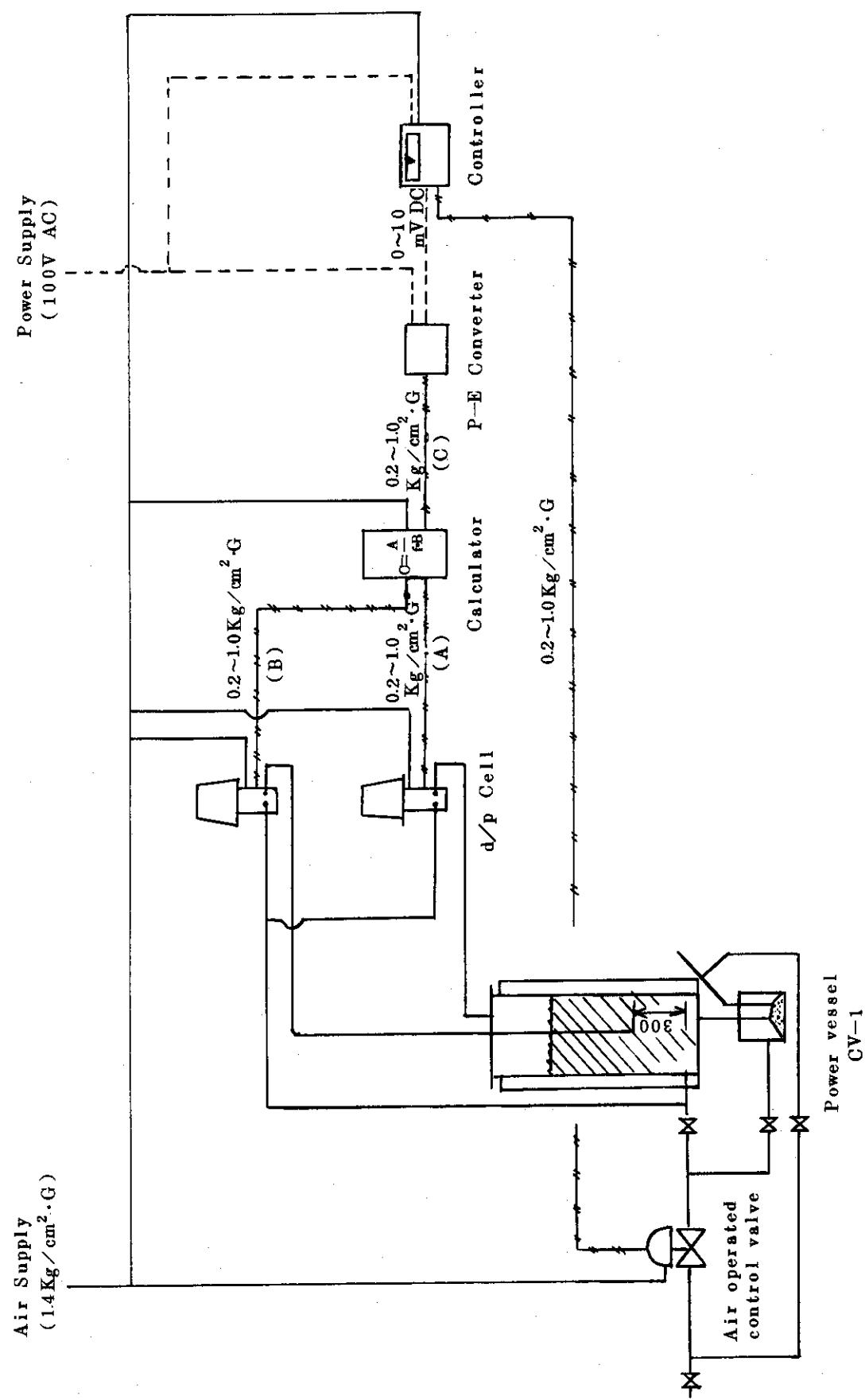


Fig. 3-9 Schematic Diagram of Control System of Powder Level in Powder Vessel

4. 流動層凝縮器伝熱特性の測定

4.1 概 要

UF_6 の凝縮特性を把握する上で、凝縮器内の温度分布を知ることが最も重要である。2.5.2節で選定した粒子側のモデル（逆混合モデル）を基に、相変化（凝縮）のない系において伝熱特性実験を行い、上記モデルの基本パラメータである凝縮器壁面伝熱係数 h_w および流動層軸方向粒子拡散係数 D （または流動層有効伝熱係数 k_e ）を求めた。次いで、この測定値を文献に認められる報告値と比較するとともに、これらを基に得られた温度分布の計算値を実測温度分布と対比することによって、上記パラメータおよび温度分布に関するモデルの検証を行った。ここで、粒子拡散係数 D について、温度分布の理論値と実測値との対比により先ず流動層有効伝熱係数 k_e を定め、2.3.1(1)式(2.25)の関係より算出した。

流動層の壁面伝熱係数 h_w に関する報告は多数あるが⁶⁾、本報告で述べる凝縮実験装置のごとく流動媒体（アルミナ）の連続循環流が存在する系についての報告は認められない。また、拡散係数についても連続循環流存在下のデータがないため、文献値⁶⁾¹²⁾と比較するには循環流のない状態に測定値を外挿するに留めざるを得なかった。

以上の結果伝熱係数 h_w は文献値とほど一致したが、拡散係数 D はそれに比べ1桁小さく、また流動化ガス流量に対して極大値を有することが知られた。

4.2 理 論

4.2.1 壁面伝熱係数

この系では(1) 冷媒・壁間 (2) 壁・粒子間 (3) 粒子・ガス間 の三種の伝熱係数を考えられる。実測値は(1)および(2)の総括伝熱係数を与えることになるが、(1)に比べ(2)が支配的であるので、この実測値を壁・粒子間の伝熱係数 h_w ($\text{kcal}/\text{m}^2 \cdot \text{h} \cdot ^\circ\text{C}$)とする。

相変化の起らないガスを用いた場合の凝縮器における熱収支は、粒子供給速度 F_p (kg/h)、その分子量、比熱を M_p , C_p ($\text{kcal}/\text{mol} \cdot ^\circ\text{C}$)、ガスの流量、比熱を G (mol/h), C_g ($\text{kcal}/\text{mol} \cdot ^\circ\text{C}$)、層高 l (m)、温度を T ($^\circ\text{C}$)とすれば

入熱 q_i (kcal/h)は

$$\begin{aligned} q_i &= \frac{F_p}{M_p} \int_{T_o}^{T_i} C_p \cdot dT + G \int_{T_o}^{T_i} C_g \cdot dT \\ &= \left(\frac{F_p}{M_p} \cdot \bar{C}_p + G \cdot \bar{C}_g \right) (T_i - T_o) \end{aligned} \quad (4.1)$$

ここに、 T_i は供給されるガスおよび粒子温度、 T_o は凝縮器オーバーフロー位置の温度、 \bar{C}_p および \bar{C}_g は平均比熱である。

一方、出熱 q_o (kcal/h)は

$$\begin{aligned} q_i &= \pi \cdot D_t \cdot h_w \cdot \int_{l_c}^{l_o} \{ T_p(l) - T_w(l) \} dl \\ &= \pi \cdot D_t \cdot h_w \cdot (\bar{T}_p - \bar{T}_w)(l_o - l_c) \end{aligned} \quad (4.2)$$

ここで、 D_t は凝縮器直径 (m), l_c は凝縮器最下部から冷却ジャケット底部までの層高 (m), l_o はオーバーフロー位置 (m) である。 \bar{T}_p , \bar{T}_w は粒子温度 T_p および壁面温度 T_w の層高についての平均温度で次式で定義する。

$$\left. \begin{aligned} \bar{T}_p &= \frac{1}{l_o - l_c} \int_{l_c}^{l_o} T_p(l) \cdot dl \\ \bar{T}_w &= \frac{1}{l_o - l_c} \int_{l_c}^{l_o} T_w(l) \cdot dl \end{aligned} \right\} \quad (4.3)$$

したがって、壁面伝熱係数 h_w は $q_i = q_o$ の関係から次式で表わされる。

$$h_w = - \frac{\left(\frac{F_p}{M_p} + G \cdot \bar{C}_g \right) (T_i - T_o)}{\pi \cdot D_t \cdot (\bar{T}_p - \bar{T}_w) (l_o - l_c)} \quad (4.4)$$

4.2.2 凝縮器軸方向温度分布

凝縮器軸方向温度分布は、(i)流動層凝縮器下部から供給されるガス、粒子が器内を上昇しながら冷却されること、および(ii)流動化により粒子が混合すること、によって形成される。

すでに前章 2.5.2(1), 式 (2.4.8) に示したが、微小層高 dl 区間における熱収支は、定常状態にあり、かつガス温度 T_g と粒子温度 T_p が等しいと仮定すれば、

$$\begin{aligned} A_t \cdot k_e \cdot \frac{d^2 T_p}{dl^2} &- \left(\frac{F_p}{M_p} + G \cdot \bar{C}_g \right) \cdot \frac{dT_p}{dl} \\ &= \pi \cdot D_t \cdot h_w \cdot (T_p - T_w) \end{aligned} \quad (2.4.8)$$

ここで、 A_t は凝縮器断面積 (m^2), k_e は有効伝熱係数 ($keal/m \cdot h \cdot ^\circ C$) である。上式において、比熱として凝縮器の入口出口間での平均比熱 (\bar{C}_p , \bar{C}_g) を用い、かつ壁面温度 T_w も同様に平均温度 \bar{T}_w とし定数化すれば積分可能となる。

しかしながら、この実験で用いた凝縮器では冷却用ジャケットが途中から設けられている (Fig. 3-2 参照)ため、式 (2.4.8) の熱収支式は非冷却部 (I と表わす) と冷却部 (II と表わす) に分けて考えなければならない。

I. 非冷却部 (層高 l : $0 < l \leq l_c$)

器壁面からの放熱を無視すれば

$$A_t \cdot k_e \cdot \frac{d^2 T_p}{dl^2} - \left(\frac{F_p}{M_p} + G \cdot \bar{C}_g \right) \cdot \left(\frac{dT_p}{dl} \right) = 0 \quad (4.5)$$

II. 冷却部 (層高 ℓ : $\ell_c \leq \ell$)

$$\begin{aligned} A_t \cdot k_e \cdot \frac{d^2 T_p}{d \ell^2} &= \left(\frac{F_p}{M_p} \cdot \bar{C}_p + G \cdot \bar{C}_g \right) \frac{dT_p}{d\ell} \\ &= \pi \cdot D_t \cdot h_w \cdot (T_p - \bar{T}_w) \end{aligned} \quad (4.6)$$

式(4.5)(4.6)の境界条件は次の通り

(1) 凝縮器内入口近傍 $\ell = 0 +$ においては

$$\begin{aligned} \left(\frac{F_p}{M_p} \cdot \bar{C}_p + G \cdot \bar{C}_g \right) \cdot T_{p,i} &- A_t \cdot k_e \cdot \left(\frac{dT_p}{d\ell} \right)_{\ell=0+} \\ &= \left(\frac{F_p}{M_p} \cdot \bar{C}_p + G \cdot \bar{C}_g \right) \cdot T_{p,\ell=0+} \end{aligned} \quad (4.7)$$

(2) 層高 $\ell \rightarrow \infty$ においては

$$T_p \rightarrow \bar{T}_w \quad (4.8)$$

(3) ジャケット底部位置 $\ell = \ell_c$ において

$$\left. \begin{array}{l} \left(\frac{dT_p}{d\ell} \right)_I = \left(\frac{dT_p}{d\ell} \right)_{II} \\ (T_p)_I = (T_p)_{II} \end{array} \right\} \quad (4.9)$$

結局、非冷却における温度分布 $(T_p)_I$ は式(4.5)(4.7)より

$$(T_p)_I = T_{p,i} - (T_{p,i} - T_{p,\ell=0+}) \cdot e^{\lambda_1 \cdot \ell} \quad (4.10)$$

また、冷却部における温度分布 $(T_p)_{II}$ は式(4.6)(4.8)(4.9)(4.10)より

$$(T_p)_{II} = \left\{ - (T_{p,i} - T_{p,\ell=0+}) \left(\frac{\lambda_1}{\lambda_2} \right) \cdot e^{(\lambda_1 - \lambda_2) \cdot \ell_c} \right\} \cdot e^{\lambda_2 \cdot \ell} + \bar{T}_w \quad (4.11)$$

となる。ここで、 $\lambda_1, \lambda_2, T_{p,\ell=0+}$ は次式で与えられる。

$$\lambda_1 = \frac{1}{A_t \cdot k_e} \left(\frac{F_p}{M_p} \cdot \bar{C}_p + G \cdot \bar{C}_g \right) \quad (4.12)$$

$$\begin{aligned} \lambda_2 &= \frac{1}{2 \cdot A_t \cdot k_e} \left\{ \left(\frac{F_p}{M_p} \cdot \bar{C}_p + G \cdot \bar{C}_g \right) \right. \\ &\quad \left. - \sqrt{\left(\frac{F_p}{M_p} \cdot \bar{C}_p + G \cdot \bar{C}_g \right)^2 + 4 \pi \cdot D_t \cdot h_w \cdot A_t \cdot k_e} \right\} \end{aligned} \quad (4.13)$$

$$T_{p,i} + \frac{\bar{T}_w}{\left(1 - \frac{\lambda_1}{\lambda_2}\right) \cdot e^{\lambda_1 \cdot t_c} - 1} = \frac{1}{1 + \frac{1}{\left(1 - \frac{\lambda_1}{\lambda_2}\right) \cdot e^{\lambda_1 \cdot t_c} - 1}} \quad (4.14)$$

4.2.3 粒子拡散係数

流動層の有効伝熱係数 k_e ($\text{kcal}/\text{m} \cdot \text{h} \cdot ^\circ\text{C}$) と粒子拡散係数 D (m^2/h) の関係は前節 2.3.1 (1), 式 (2.25) で表わされる。すなわち,

$$D = \frac{k_e}{\left(\frac{\rho_p}{M_p}\right) \cdot C_p} \quad (2.25)$$

4.3 実験方法

流動媒体は 80 メッシュの電融アルミナ, 流動化およびアルミナ移送ガスには脱湿空気, 冷媒にはドライアイス冷却のトリクレンを使用した。

凝縮器の温度測定位置, アルミナのオーバーフロー位置 (A または B), ガス (G), アルミナ流れ (F_p) を Fig. 4-1 に示す。供給されるガスおよびアルミナの温度 ($T_{p,i}$) は凝縮器下部混入器の入口配管に熱電対を設け測定した。器内温度の測定は熱電対 (3.2φ) を直接層内に挿入 (保護管なし) して行った。アルミナ流量は粉体流量計で測定した。

実験では, オーバーフロー位置が A 部 (600mm) または B 部 (900mm) である場合についてガス流量およびアルミナ流量を変え各部温度を測定した。

4.4 結果および考察

主な実験条件と得られた壁面伝熱係数 h_w , 粒子拡散係数 D を Table 4-1 に示す。温度分布の例 (実験 No. 9, 13) を Fig. 4-2 に示す。温度分布の傾向は他の実験についても同様であり, 温度はアルミナ流量の増加に伴ない上昇する。なお実測温度を付録の Table A 4-1 に示す。

(1) 壁面伝熱係数

式 (4.4) で求めた壁面伝熱係数 h_w を, 凝縮器内におけるアルミナの平均上昇線速度 u_p とガスの線速度 u_g の比 u_p/u_g に対して示したのが Fig. 4-3 である。アルミナ流量, ガス流量の大きな影響は認められず, その値は $80 \sim 120 \text{ kcal}/\text{m}^2 \cdot \text{h} \cdot ^\circ\text{C}$ であった。一方, Wen, Leva ら⁶⁾ による計算値は $66 \sim 88 \text{ kcal}/\text{m}^2 \cdot \text{h} \cdot ^\circ\text{C}$ である。

なお, 式 (4.4) の壁面温度 \bar{T}_w は, 冷媒の入口部 (TR-1-1) と出口部 (TR-1-6) の平均値とし, 層温度の平均 \bar{T}_p は図積分により求めた。

(2) 粒子拡散係数と温度分布

先ず、粒子拡散係数Dを求める。式(4.11)を次のように変形する。

$$(T_p)_{II} - \bar{T}_w = k \cdot e^{\lambda_2 \cdot z} \quad (4.15)$$

ここに、kは層高zによらない定数となる。

そこで、2つの異なる層高(z_a, z_b)での実測(粒子)温度 $\{T_p(z_a), T_p(z_b)\}$ を上式に代入することで λ_2 が求められ、次式で表わされる。

$$\lambda_2 = -\frac{1}{z_b - z_a} \cdot \ln \left[\frac{T_p(z_a) - \bar{T}_w}{T_p(z_b) - \bar{T}_w} \right] \quad (5.16)$$

結局、拡散係数Dは、この λ_2 を式(4.13)に代入して k_e を定め、式(2.25)の関係から求めた。なお、 λ_1 は式(4.12)よりこの k_e を用いて定め得る。

各実験とも層高は、 $z_a=250\text{mm}$, $z_b=550\text{mm}$ とした。これらの結果をTable 4-1に示す。

このようにして定めた k_e を式(4.10)(4.11)に適用し温度分布を計算した。これをFig. 4-2に実測値と対比して示す。温度が冷却ジャケット底部付近で急激に下がるのが特徴的である。

また、粒子拡散係数Dとアルミナおよびガスの線速度比 u_p/u_g の関係をFig. 4-4に示す。さらにFig. 4-5にアルミナ循環流を零($u_p=0$)に外挿した場合のDとガスの質量速度(G)の関係をBartの触媒粒子およびGaborらの銅・ニッケル粉末¹²⁾のデータと共に示す。これら文献値はガス質量速度の増加に伴ない拡散係数が大きくなるのに反し、ここで得た結果は極大値を持ち、かつ1桁小さい。

拡散係数Dがガス流速の変化に対し極大値を有する理由として次のようなことが考えられよう。この実験では、Dは式(2.25)を介する伝熱測定値から求めているが、この場合、粒子拡散による熱移動量は粒子の運動速度と粒子数の積に比例するであろう。したがって、ガス流速の増加は粒子の運動速度を大きくするが、粒子密度が小さくなる。凝縮器にはオーバーフローノズルが設けられているためアルミナの滞留量、すなわち粒子数が減少して行くので、両者の積には極大値が存在することになる。文献値より1桁小さい理由として、使用粉体の差、およびこの実験の凝縮器の径が小さいことが考えられるが明らかでない。

以上のことから、凝縮モデルの基本となる層内温度分布の推定にさいして ①実測の温度に基づく半理論温度分布式(式(2.56))を利用するか、または、②ここで得た実測の拡散係数Dを式(2.25)(4.10)(4.11)に適用して計算することが重要であり、文献に認められるD, h_w による理論温度分布式では大きな誤差をもたらす危険がある。

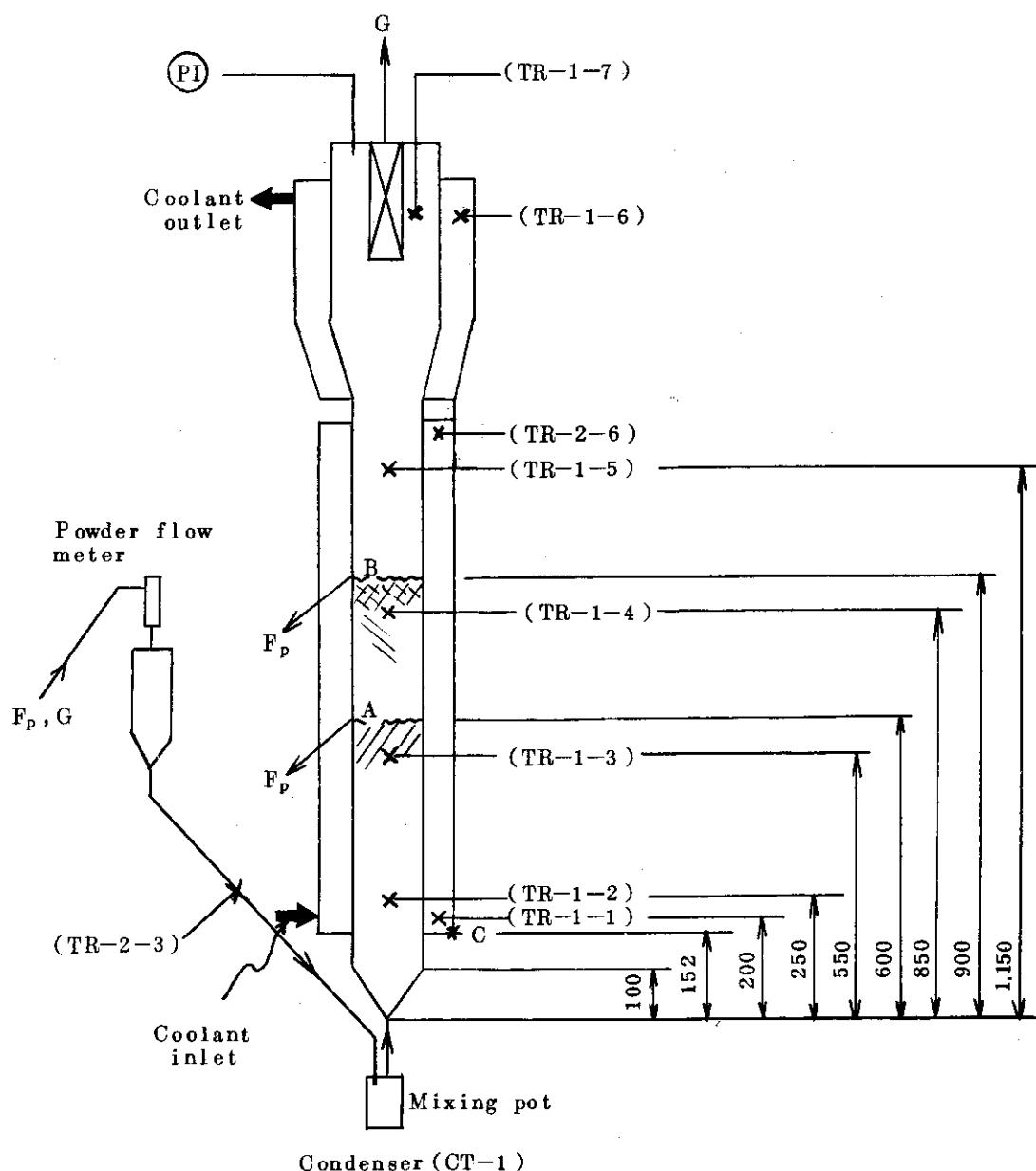


Fig. 4-1 Position of Thermometers and Overflow Nozzles
in Condenser (CT-1)

Table 4-1 Experimental Results on Heat Transfer and Particle Dispersion
in Continuous Cold Trap System of Fluidized Beds

Run #	Temperature		Feed gas(air)			Alumina Powder		Heat transfer rate q (kcal/m ² .hr.deg)	Heat transfer coefficient h_w (kcal/m ² .hr.deg)	Bed temperature $T_p(\ell_a)$ (ℓ_b) (°C)	Effective thermal conductivity k_e (kcal/m.hr.deg)	Dispersion coefficient of particle D (cm ² /sec)	
	inlet	mean	outlet	wall pressure $P_o(t_o)$ (mmHg)	Velocity u_g (cm/sec)	mass flow F_p (kg/h)	mass flow velocity in CT-1 u_p (cm/sec)						
1	16	-44	-61	-73	-	1.97	1.53	1.38	5.09×10 ⁻²	3.33×10 ⁻³	2.02	1.01	-3.4
2	19	-50	-67	-73	-	1.97	1.49	8.2	3.02×10 ⁻²	2.03×10 ⁻³	1.52	9.7	-4.0
3	21	-49	-59	-73	-	2.62	1.94	7.9	2.92×10 ⁻²	1.51×10 ⁻³	1.49	9.1	-4.2
4	19	-41	-54	-73	-	2.62	2.02	1.28	4.72×10 ⁻²	2.34×10 ⁻³	1.93	8.7	-3.3
5	19	-32	-46	-73	-	2.62	21.0	1.84	6.79×10 ⁻²	3.23×10 ⁻³	2.29	8.0	-2.4
6	19	-37	-55	-71	-	3.20	24.0	1.59	5.87×10 ⁻²	2.45×10 ⁻³	2.41	1.17	-2.6
7	21	-47	-64	-72	-	3.20	23.0	8.3	3.06×10 ⁻²	1.33×10 ⁻³	1.76	1.04	-3.8
8	31	-44	-64	-73	9.47	1.97	1.50	1.74	6.42×10 ⁻²	4.28×10 ⁻³	3.04	9.6	-2.6
9	27	-60	-72	-73	9.37	2.01	1.45	6.1	2.25×10 ⁻²	1.55×10 ⁻³	1.43	9.5	-4.4
10	30	-48	-66	-73	9.42	2.01	1.52	1.23	4.54×10 ⁻²	2.99×10 ⁻³	2.31	8.1	-3.0
11	28	-50	-66	-74	9.50	2.62	1.95	1.53	5.65×10 ⁻²	2.90×10 ⁻³	2.85	1.04	-3.2
12	22	-58	-71	-74	9.55	2.63	1.86	8.1	2.99×10 ⁻²	1.61×10 ⁻³	1.77	9.6	-4.4
13	31	-39	-57	-73	9.87	2.62	1.99	1.81	6.68×10 ⁻²	3.36×10 ⁻³	3.05	7.7	-2.1
14	31	-43	-58	-74	10.10	3.20	23.2	1.81	6.68×10 ⁻²	2.88×10 ⁻³	3.20	9.0	-2.7
15	37	-46	-61	-74	1000	3.20	23.1	16.1	5.94×10 ⁻²	2.57×10 ⁻³	3.23	1.00	-3.0
16	26	-60	-71	-74	992	3.20	21.8	6.9	2.55×10 ⁻²	1.17×10 ⁻³	1.80	1.14	-4.8

Note
1) Overflow position of Alumina powder ; Run # 1~7, A($\ell_o=600\text{mm}$), Run # 8~16, B($\ell_o=900\text{mm}$), (see Fig. 4-1)
2) Bed height $\ell_a=250\text{mm}$, $\ell_b=550\text{mm}$

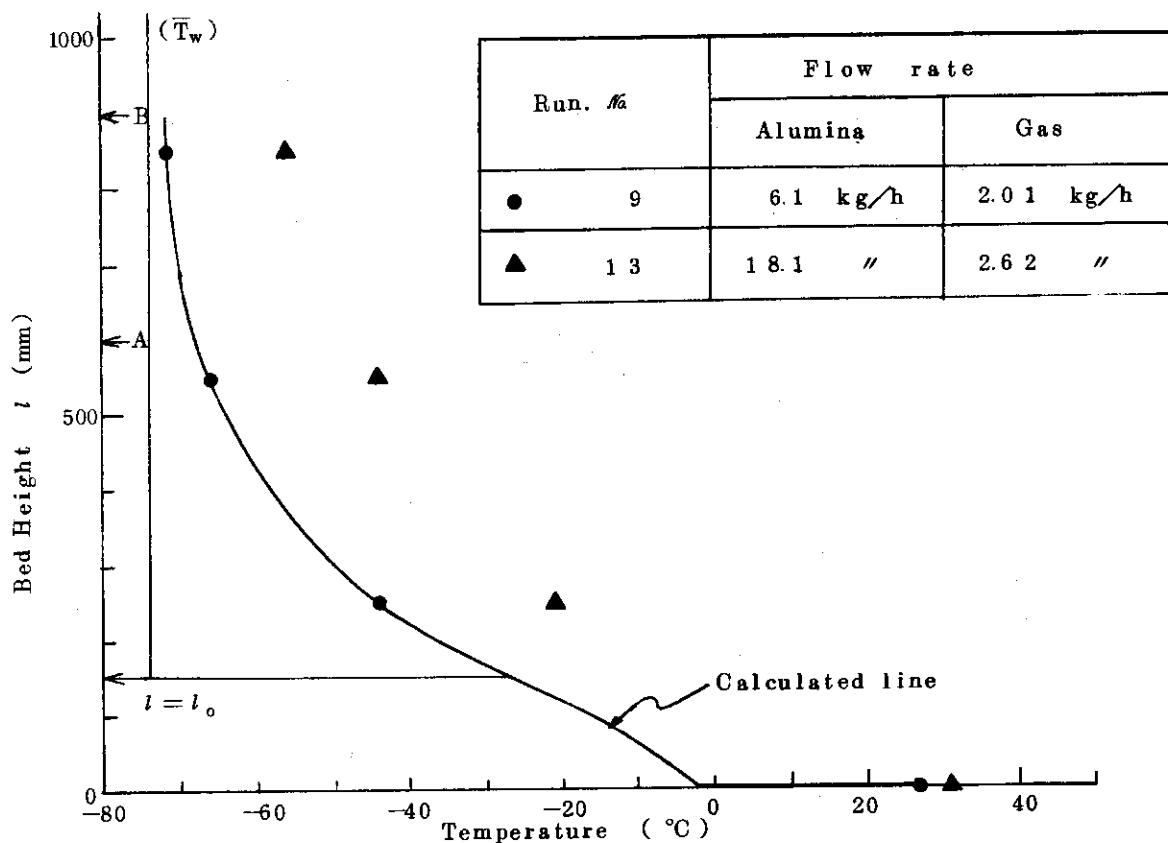


Fig. 4-2 Axial Distribution of Bed Temperature in Condenser (CT-1)

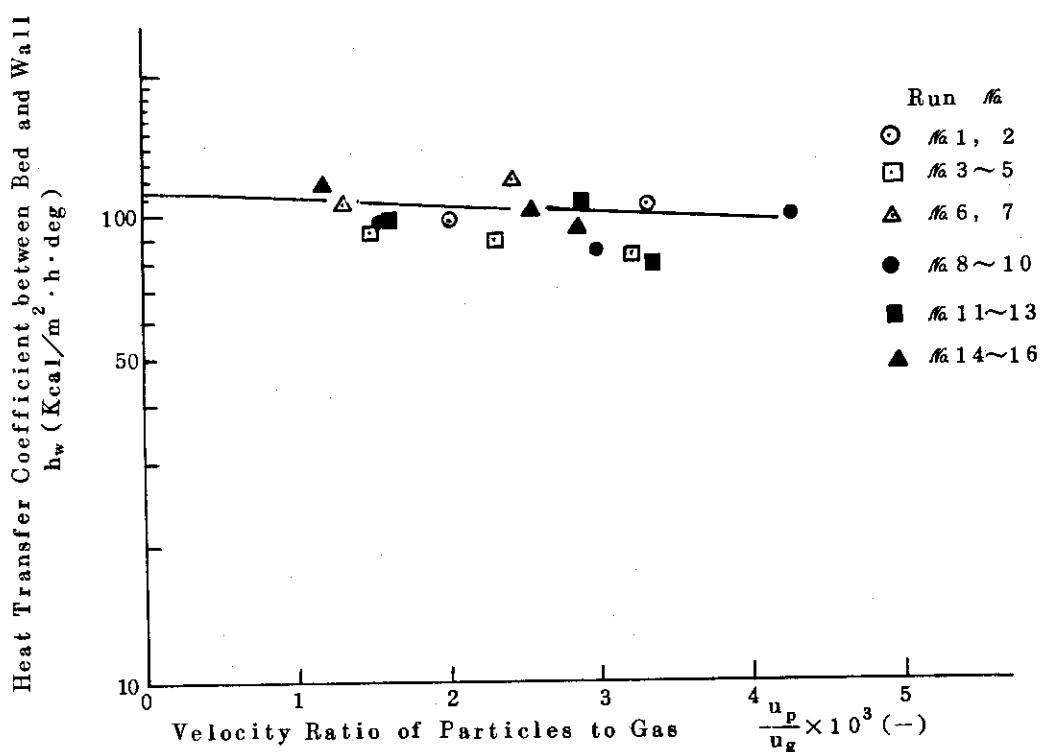
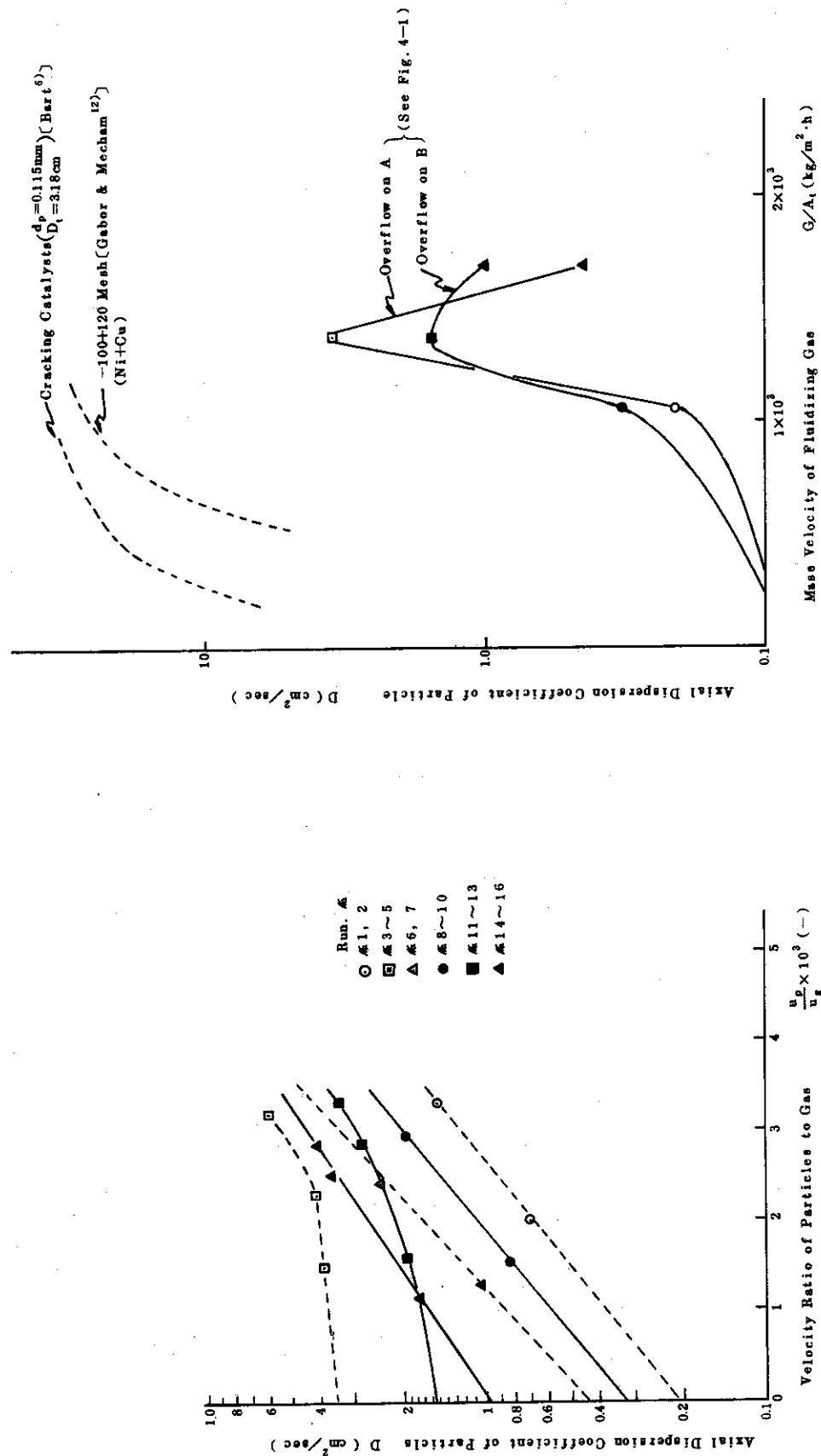


Fig. 4-3 Heat Transfer Coefficient between Bed and Wall for Condenser (CT-1) with Alumina's Flow.



5. 回分流動層による UF₆ の凝縮

5.1 実験目的

アルミナ循環を行わない凝縮器のみによる UF₆ の凝縮実験（回分操作）を次の目的で行った。

- (1) アルミナ表面への UF₆ 凝縮の可能性の確認
- (2) 回分流動層による UF₆ 凝縮操作の可能性の確認

5.2 実験方法

凝縮器のアルミナ供給／抜用ノズルに盲キャップを取り付け、凝縮器を粉体循環系から切離した。凝縮器に 2 kg のアルミナ（80 メッシュ）を装荷し、N₂ ガスで流動化させながら冷媒（ドライアイス冷却のトリクレン）をジャケットに流し全層の冷却を行い、温度が一定となった時点で UF₆ ガスを通気した。

実験条件を Table 5-1 に示す。実験は 2 回（UC-11, 12）行ったが、その条件設定は次の理由による。

- (1) ガス線速度： UC-11 の流動化ガス線速度 6 cm/sec では閉塞を防止するに十分な流動化が得られないと思われたので、 UC-12 ではさらに 15 cm/sec まで上げた。
- (2) UF₆ 濃度： 凝縮に伴なう入口部閉塞を防止するため成るべく低濃度とした（UC-12 では 0.5 vol % 以下）。

5.3 結果および考察

UC-11, 12 とも途中で閉塞が起り、実験を継続することが出来なかった。UC-12 における凝縮器の温度、差圧、ガス流量および UF₆ 濃度の経時変化を Fig. 5-1 に示す。

- (1) UC-11, 12 とも凝縮器が冷却されている間は TCC に全く UF₆ が検出されなかった。冷却壁と粒子との伝熱面積の大きな差から UF₆ はアルミナ粒子表面で支配的に凝縮されていいると考えて良いであろう。なお、TCC の検出限界濃度は 0.01 vol % である。¹¹⁾
- (2) UC-11, 12 とも UF₆ ガスの供給に伴ない層差圧が上昇しはじめ、やがて急激に増加し供給が不可能となる現象が認められた。この現象は、ガス線速度を上げ、かつ UF₆ 濃度を低くして操作した UC-12 でも認められた。これより、アルミナ循環流のない回分流動層による凝縮操作は極めて困難であると結論される。

このような閉塞現象の原因として a. UF₆ がアルミナ表面に凝縮することによる流動化阻害 b. 凝縮器入口部における局部的な UF₆ の凝縮による閉塞、などが考えられるが層内に温度分布が無い回分流動層では b の問題がより大きいであろう。したがって、ガス線速度をさらに大きく取るか、または軸方向に温度勾配を作り UF₆ を除々に凝縮させるなどの対策が必要である。アルミナを連続的に供給・抜出す連続流動層では後者による大きな効果が期待される。

JAERI-M 7064

UF₆ 濃縮によって生じた閉塞は、濃縮器ジャケット内の冷媒を抜出したのち熱風により加熱し、UF₆ を再揮発させることによって解消できた。

なお、UC-11, 12を合せた物質収支をTable 5-2 に示す。

JAERI-M 7064

Table 5-1 Operating Conditions of Batch Condensation of UF₆ in Fluidized Bed Cold Trap

Item		Run #	UC-11	UC-12
Charged Alumina	(kg)	2.0	2.0	
UF ₆ concentration in feed gas	(vol %)	1~2	0.2~0.5	
FI-1 fluidizing gas(N ₂) for CT-1	(Nl/min)	10.5	50	
Gas velocity in CT-1	(cm/sec)	6.0	15.4	
Temperature	TR-1-6 coolant	(°C)	-70	-75
	TR-1-2 bottom of CT-1	(°C)	-66	-32~-20
	TR-1-3 lower bed of CT-1	(°C)	-69	-68
	TR-1-4 middle bed of CT-1	(°C)	-67	-75
	TR-1-7 disengaging section of CT-1	(°C)	-43	—
Pressure	PI-1 UF ₆ cylinder	(mmHg)	2400~2450	2300
	PI-2 CT-1	(mmHg)	890	1650
Air thermostat temp. for UF ₆ cylinder (°C)			91	91

Table 5-2 Mass Balance in Run UC-11 and UC-12

Item	Run #	UC-11	UC-12	Remarks
Charged Alumina (g)		2000		
UF ₆ total feed (g)	130 a)	393 b)	a) by weight in UF ₆ cylinder b) by mass flow meter	
Recovered UF ₆ in clean-up operation (g)	77	362	by TCC	
Discharged Alumina (g)		2036		
Unbalance (g)		48		

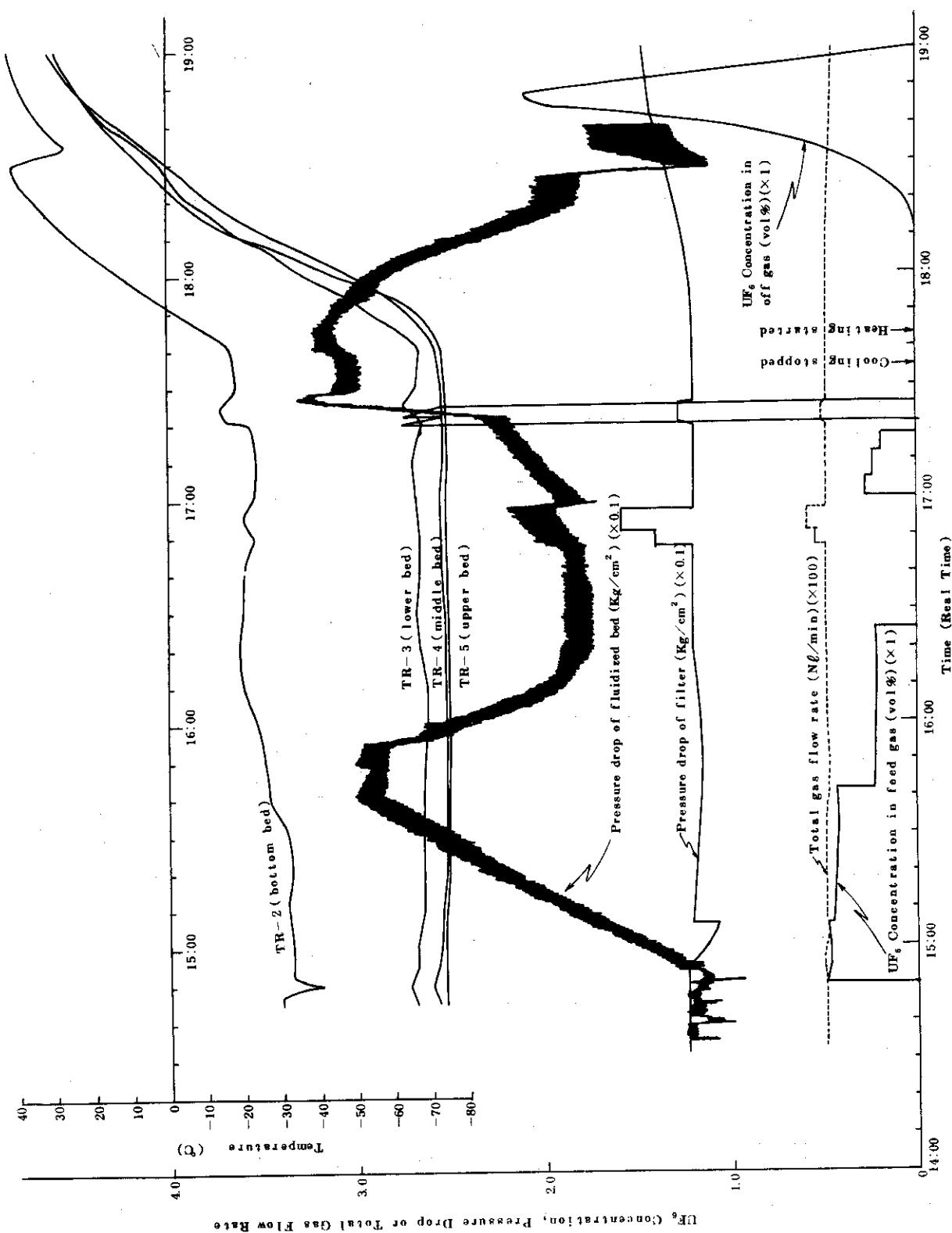


Fig. 5-1 Temperature, UF₆ Concentration, Pressure Drop and Gas Flow Rate in Batch Condensation of UF₆ (Run UC-12)

6. 連続流動層による UF₆ の凝縮

6.1 実験目的

この実験は次の三段階に分けて計画し、それぞれ以下のように実験目的を設定し、進めた。

(1) 予備実験 (UC-101~105)

- a. 連続凝縮法の可能性の確認 (UF₆ による閉塞の有無、アルミナの循環安定性などの確認)
- b. 物質収支の確認 (UF₆ 破過の有無)
- c. 装置操作範囲の把握

(2) 凝縮特性実験 (UC-106~111)

- a. 物質収支の確認
- b. ミスト生成特性の把握 (パラメータースタディー)
- c. 装置操作限界の把握

(3) 連続実験 (UC-112)

- a. プローバック効果およびその影響の把握
- b. 凝縮器オフガス中のUF₆ ガスリーク量の把握
- c. 装置器壁へのUF₆ 凝縮付着特性の把握など

6.2 実験方法

6.2.1 試料

実験に供したUF₆ は、別の実験⁹⁾においてU₃O₈ 粉末の直接フッ素化により製造せるもの、およびウラン濃縮研究用に使用されたものの回収試料などである。後者のUF₆ については冷却排気法により精製後使用した。これらの試料については蒸気圧の測定およびHFの赤外分析¹⁴⁾などによりUF₆ 純度を確認した。付録Table A4-2,-3にUF₆ 試料の仕様、蒸気圧測定値を示す。

アルミナ粉末は、前述の80メッシュ電融アルミナ(8kg)を使用した。

また、ガスには実験初期(UC-103Aまで)はN₂を、以後は脱湿エアーを使用した(第3.2.1項参照)。

6.2.2 実験操作手順

基本的な実験操作の手順について述べる。

(1) スタートアップ

UF₆ ボンベを、重量測定後に空気恒温槽内に設置し、恒温槽を設定温度まで加熱する。この間、実験装置の流動化ガス、アルミナ移送ガスなどの供給を開始し、アルミナ流量を目標値近傍に設定する。アルミナ流量、層差圧などが安定したのちトリクレン冷媒を循環させ、凝縮器および粉体中間層を冷却する。これと並行して揮発器、移送管を加熱し設定温度とする。なお、この時点までTCCを安定化させておく。

(2) 凝縮実験

マスフローメーターを見ながら UF_6 ガスを供給し、ニードル弁でその流量を調整し設定する（凝縮実験の開始）。なお、ミスト生成量を測定する場合には凝縮器分離部に内蔵せるヒーターを加熱する必要がある。

(3) シャットダウン

UF_6 ガスの供給を停止する。オフガス（特に揮発器）中に UF_6 が検出されなくなったら、 UF_6 の器内蓄積量およびその分布を測定するため、アルミナ循環は継続しつつ、凝縮器分離部、凝縮器運動部、粉体中間槽の順にトリクレン冷媒循環を止め冷媒を抜出し、ジャケットに熱風を吹込んで順次 UF_6 を再揮発させる。この UF_6 除去操作をクリーンアップと呼ぶ。

クリーンアップ中、 UF_6 供給系の脱気、ガス置換を行い、空気恒温槽を冷却したのち UF_6 ボンベ重量を測定して実験中の UF_6 供給量を求める。

クリーンアップ後、装置への全供給ガスを停止する。

6.2.3 実験条件

予備実験（UC-101～105）、凝縮特性実験（UC-106～111）、連続実験（UC-112）の実験条件をそれぞれ Table 6-1, 6-2, 6-3 に示す。

供給ガス中の UF_6 濃度は 0.2～5 vol %、アルミナ流量は 6～24 kg/h、凝縮器のガス線速度は 12～20 cm/sec とした。また冷媒温度は凝縮器出口部において -73～-72°C、アルミナ層温度は、アルミナ流量により変化するが、その範囲はオーバーフロー位置において -40～-68 °C であった。揮発器は 20～100°C で操作した。なお、 UF_6 供給系空気恒温槽は UC-103 では 90～98°C、他の実験では 91°C に設定した。

凝縮器分離部については、ミスト生成量を把握する上から種々の条件で行った。先ず、UC-101～103A では冷却・加熱操作を行わなかったが、UC-103B および UC-104 では冷却・加熱を交互に繰返した。加熱はジャケットに熱風を通すだけで行ったが、UC-105～111 ではミストの揮発をさらに確実にするため分離部内蔵ヒーターにより加熱した。また UC-112 は、前述のごとく、ミスト蓄積による装置の操作および凝縮特性を調べることが目的だったので内蔵ヒーターにミストが堆積することのないよう、ヒーターを取りはずして実験を行った。

UC-112 では 6.1 の実験目的に沿って、特に長時間の実験を行うとともにその他の意味でも種々の条件変更を行った。先ず、出来るだけ効率良くミストを発生させ、かつ安定な操作が期待される条件として、それまでの実験結果を基に UF_6 濃度 1 vol %、アルミナ流量 14～16 kg/h、ガス線速度 20 cm/sec を設定した。プローパックは、洗浄時間 0.2 秒、間隔時間 10～15 分で行った。しかし実験初期は、プローパックで落下する UF_6 粉末の運動化状態および粉体循環にどのように影響するかを調べる目的で、故意に一定時間（3.5 時間）ミストを蓄積させ手動でプローパックを行った。また、凝縮器オフガス中の UF_6 ガスリーク量を測定する目的で、小型 NaF トランプ（充填量：～8 g、オフガス 0.1 Nl/min で分取）を三基設け 6～7 時間ごとに切換え使用した。

なお、全実験を通じ UF_6 の供給速度はマスフローメーターで測定したが、感度の経時変化があったのでボンベ重量変化により、感度を毎回補正した。

6.3 結果および考察

6.3.1 予備実験

UC-101では0.3 vol % のUF₆ 供給開始30分後に凝縮器へのアルミナ移送量が低下し凝縮器の層温度が下り、これに伴ない層差圧が上昇しはじめたため実験を中止した。しかし、回分流動層で認められた凝縮器下部での急激な閉塞は、アルミナを下部から供給し温度勾配を作ることで回避できることが実証された。

次に実施したUC-102における温度、層差圧、UF₆ 濃度、ガスおよびアルミナの流量の経時変化をFig. 6-1, 6-2 に示す。この実験ではUC-101で生じたようなアルミナ循環上のトラブルが無く、2時間の実験を継続することができた。しかし、UC-103AではUF₆ 濃度を1.85 vol % より4.6 vol % に上げた段階で循環が悪化した。

物質収支はUC-103Bで確認した。UC-103Bにおけるガス流量およびUF₆ 濃度の変化をFig. 6-3 IC, また物質収支をTable 6-4 IC示す。この実験ではUF₆ 供給を約1時間ずつ2回(Fig. 6-3 中Ⅰ期およびⅡ期)に分けて行い、Ⅰ期ではミスト生成量を知るために凝縮器分離部を加熱し、Ⅱ期ではUF₆ のリーク量(フィルターによるミストの捕集効率も含む)を知るために中途で加熱を停止した。クリーンアップでの回収分も含む全UF₆ 収支(これを静的収支と定義)は97.5% であり満足すべき値であった。一方、UF₆ の供給速度に対する排出速度の割合(これを動的収支と定義)は分離部加熱時で87~91%，冷却時で77%であった。静的収支を考慮すると100%との差は器壁への付着やミストの蓄積により生じたものと考えられ、比較的多い量であることが明らかになった。

UC-104, 105 は操作範囲、ミスト生成特性を把握する目的で実施したが、これらは次項に述べる結果と同様なので省略する。

Table 6-1 Operating Condition for Continuous UF₆ Condensation in Cold Trap System of Fluidized Beds

Item	Unit	UC-101		UC-102		UC-103A		UC-103B		UC-104		UC-105	
		kg	8	kg/h	20	200	186	20	9.3	9.3	9.3	8	8
Charged Alumina													
Mass flow rate of Alumina	kg/min	0.148	0.30	0.80	0.564	1.409	0.844	0.150	0.420	0.840	0.682	0.350	1.070
UF ₆ gas feed rate	vol %	0.30	0.74	1.95	1.85	4.60	2.33	0.44	1.25	2.44	1.62	0.84	2.53
UF ₆ conc. in feed gas													
FI-1 fluidizing gas for condenser(CT-1)	Nl/min	300	38.0	38.7	27.6	26.8	27.4	28.8	27.8	27.3	33.0	33.0	33.0
-2 fluidizing gas for stripper(CT-2)	"	102	140	140	102	102	9.6	10.2	10.2	10.2	14.2	14.2	14.2
-3 feed gas to powder vessel(CV-1)mixing pot	"	24.2	17.5	17.5	23.7	23.7	25±1.6	17.5	17.5	17.5	22.7	22.7	22.7
-4 purge gas to powder flow meter	"	2.4	2.4	2.4	2.4	2.4	2.4	2.4	2.4	2.4	2.4	2.4	2.4
Gas flow rate	"	16.5	0	0	~0	~0	~5.6	~3.4	~3.4	~3.4	6.2	6.2	6.2
Gas feed gas to CT-2 mixing pot	"												
PdR-1 CT-1 bed	mmHg	147	119	119	103	103	108	93	92	92	112	117	110
-2 CT-1 filter	"	20	40	40	36	36	37	30	32	32	41	41	40
-3 CT-2 bed	"	153	184	184	150	150	118	118	120	120	219	220	220
-4 CT-2 filter	"	78	99	106	106	106	6.3	54	57	57	35	32	39
PI-1 UF ₆ cylinder	mmHg												
-2 CT-1	"	>1500	1100	1130	1055	1050	1060						
-3 CT-2	"	1660	1150	1175	1115	1110	1130						
Off gas line	"												
Pressure													
Differential pressure	mmHg												
PI-1 UF ₆ cylinder	"												
-2 CT-1	"	>1500	1100	1130	1055	1050	1060						
-3 CT-2	"	1660	1150	1175	1115	1110	1130						
Off gas line	"												
TR-1-6 Coolant	°C												
TR-2-7 inlet line to CT-1 mixing pot	°C												
TR-1-2 CT-1 bottom	"	-32	-10	-10	-22	-22	-24	-30	-27	-27	-20	-22	-23
-3 " lower bed	"	-56	-37	-30	-42	-36	-45	-55	-50	-50	-46	-40	-30
-4 " middle bed	"	-68	-44	-40	-52	-50	-54	-65	-63	-61	-46	-45	-38
-5 " disengaging section	"	-18	-24	-24	-17	-19	+39,-50	+21	+21	+21	+47	+48	+51
TR-3-6 CV-1 bottom	°C												
TR-2-1 CT-2 bottom	"	34	-53	54	41	41	24	69	72	72	22	24	27
-2 " lower bed	"	45	-38	-70	58	59	30	100	100	98	24	34	35
-3 " middle bed	"	72	-32	-65	68	68-40	43	54	52	50	24	28	34
-4 " upper bed	"	14	-37	-40	17	16	23	48	46	44	20	21	18
-5 " disengaging section	"	2	-65	-70	44	45	77	58	50	52	80	88	90
Vt-1 heater for CT-2	V	40	40	40	40	40	40	50	50	50	(50 ~ 60)		
-2 heater for powder transport line(A ₂ -2 line)	"	-75	-75	60-95	75	75	70	70	70	70	(70 ~ 120)		
-3 CT-1 internal heater for mist sublimation	"	-	-	-	-	-	-	80	80	80	40	40	40
Air thermostat temp. for UF ₆ cylinder heating	°C	91	91	98	98	90	92	91	91	91	91	91	91

Table 6-2 Operating Conditions for Continuous UF₆ Condensation in Cold Trap System of Fluidized Beds

Item	Unit	UC-106	UC-107	UC-108	UC-109	UC-110	UC-111	Remark
Charged Alumina	kg	8	8	8	8	8	8	
Mass flow rate of Alumina	kg/h	16.9	16.9	16.9	11.0	10.2	16.2	19.1
UF ₆ cone. in feed gas	vol %	1.17	0.40	2.61	4.28	1.10	0.43	2.80
FI-1 fluidizing gas for condenser(CT-1)	Nℓ/min	33.0	33.0	33.0	33.0	33.0	33.0	33.0
-2 fluidizing gas for stripper (CT-2)	"	174	174	174	174	174	174	174
-3 feed gas to powder vessel (CV-1)mixing pot	"	23.8	23.8	23.8	24.6	24.6	23.7	23.7
-4 purge gas to powder flow meter	"	2.4	2.4	2.4	2.4	2.4	2.4	2.4
G -5 feed gas to CT-2 mixing pot	"	~6	~6	~6	~6	~2	~2	~3
PAr-1 CT-1 bed	mmHg	117	117	126	140	107	110	102
-2 CT-1 filter	"	39	39	39	40	35	32	35
-3 CT-2 bed	"	204	190	180	~180	182	182	~191
-4 CT-2 filter	"	32	32	37	~37	32	31	33-37
PI-1 UF ₆ cylinder	mmHg	2180	2320	2200	2000	2300	2200	2100
-2 CT-1	"	1105	1110	1110	1115	1080	1080	1090
-3 CT-2	"	—	—	—	—	—	—	—
-4 off gas line	"	1090	1090	1090	1090	1070	1070	1065
TR-1-6 coolant	°C	-72	-72	-72	-72	-72	-72	-72
TR-2-7 inlet line to CT-1 mixing pot	°C	29	34	31	33	33	33	36
TR-1-2 CT-1 bottom	"	-20	-17	-22	-24	-27	-30	-34
-3 " lower bed	"	-42	-34	-32	-27	-55	-57	-50
-4 " middle bed	"	-49	-46	-46	-45	-63	-65	-62
-7 " disengaging section	"	+50	+52	+52	+52	+56	+54	+50
TR-3-6 CV-1 bottom	°C	-60	-60	-60	-	-	-	-
TR-2-1 CT-2 bottom	°C	32	37	35	35±5	38	44	30-50
-2 " lower bed	"	34	38	35	42±10	36	42	30-60
-3 " middle bed	"	24	30	25	40±15	24	39	24-54
-4 " upper bed	"	11	16	15	16±10	17	22	13-26
-5 " disengaging section	"	70	70	72	66±6	46	46	~43
VT-1 heater for CT-2	V	60	60	60	45	45	45-55	27
-2 heater for powder transport line (AT-2 line)	"	100	100	100	70	70	70	70
-3 CT-1 internal heater for mist sublimation	"	70	70	70	70	75	75	70
Air thermostat temp. for UF ₆ cylinder heating	°C	91	91	91	91	91	91	91

Table 6-3 Operating Conditions in UC-112

(1) Condenser and Stripper

UF ₆ concentration in feed gas	1.1~1.3 vol %
Gas velocity in condenser	20~21 cm/sec
System pressure	~1,090 mmHg
Temperature	
Condenser (CT-1)	Feed Alumina ~ 30 °C
	Overflow position ~-48 °C
	Average bed temp. -31 °C
	Disengaging section ~-64 °C
Stripper (CT-2)	Bed temp. 28~44 °C
	Disengaging section ~ 90 °C
Alumina mass flow rate	14~16 kg/h

(2) Gases and Material

UF ₆ gas	Prepared by Allied Chem. Co (reused)
Diluent gas	Dehumidified air
Powder transporting gas	ibid.
Fluidizing medium	80 Mesh fused alumina 8 kg charged

(3) Blowback conditions

Blowback duration : 0.2 sec

Blowback frequency : See below (C.f. Fig. 6-13)

Phase 1	Phase 2	Phase 3
Manual on	21:15	6:15
at 15:32	{ every 10min	{ every 15min
	23:40	8:05
	{ every 15min	{ off
	23:05	8:35
		{ every 10min
		18:10

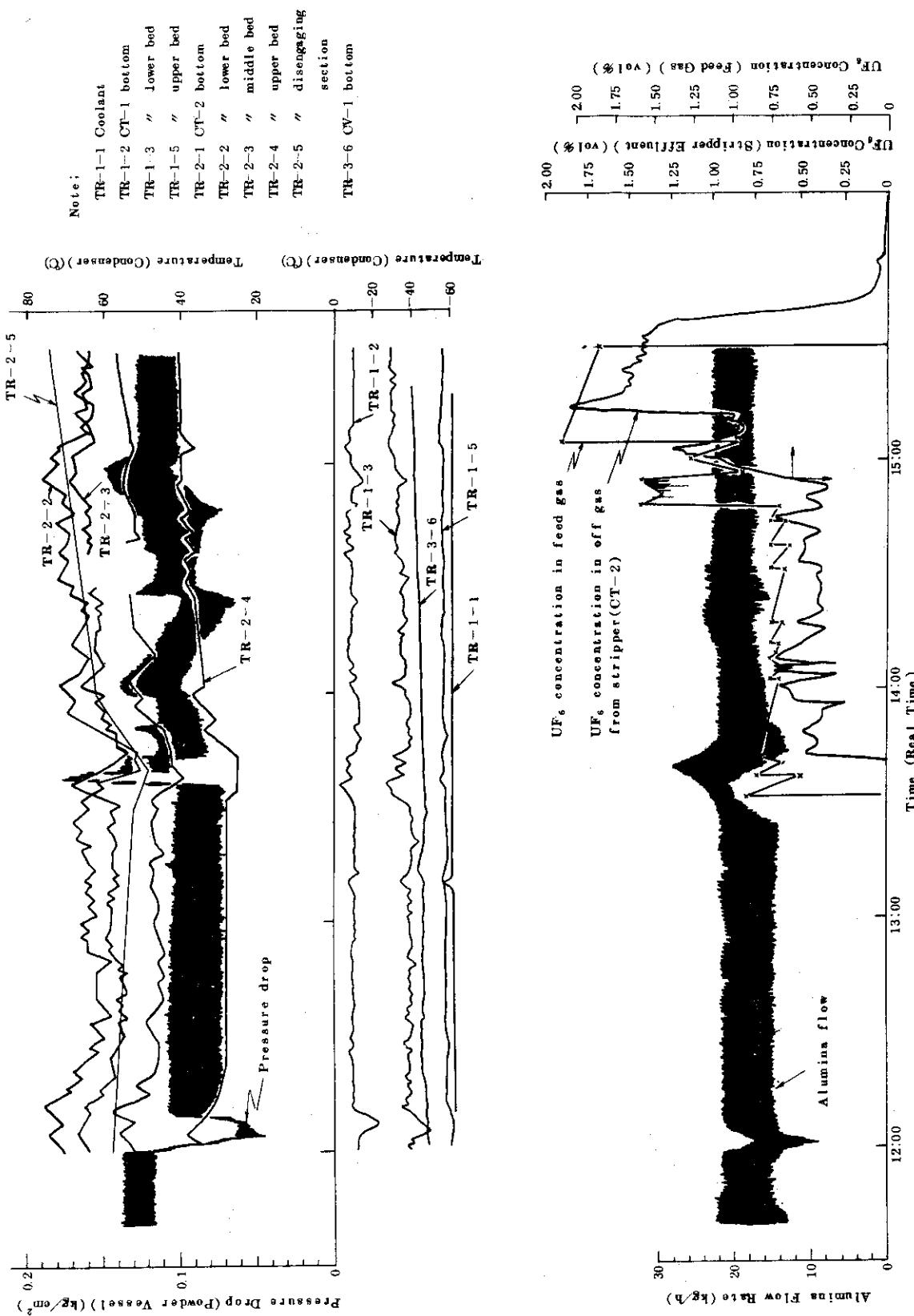


Fig. 6-1 Temperature, UF_6 Concentration, Pressure Drop and Alumina Mass Flow Rate in Continuous Condensation of UF_6 (Run UC-102)

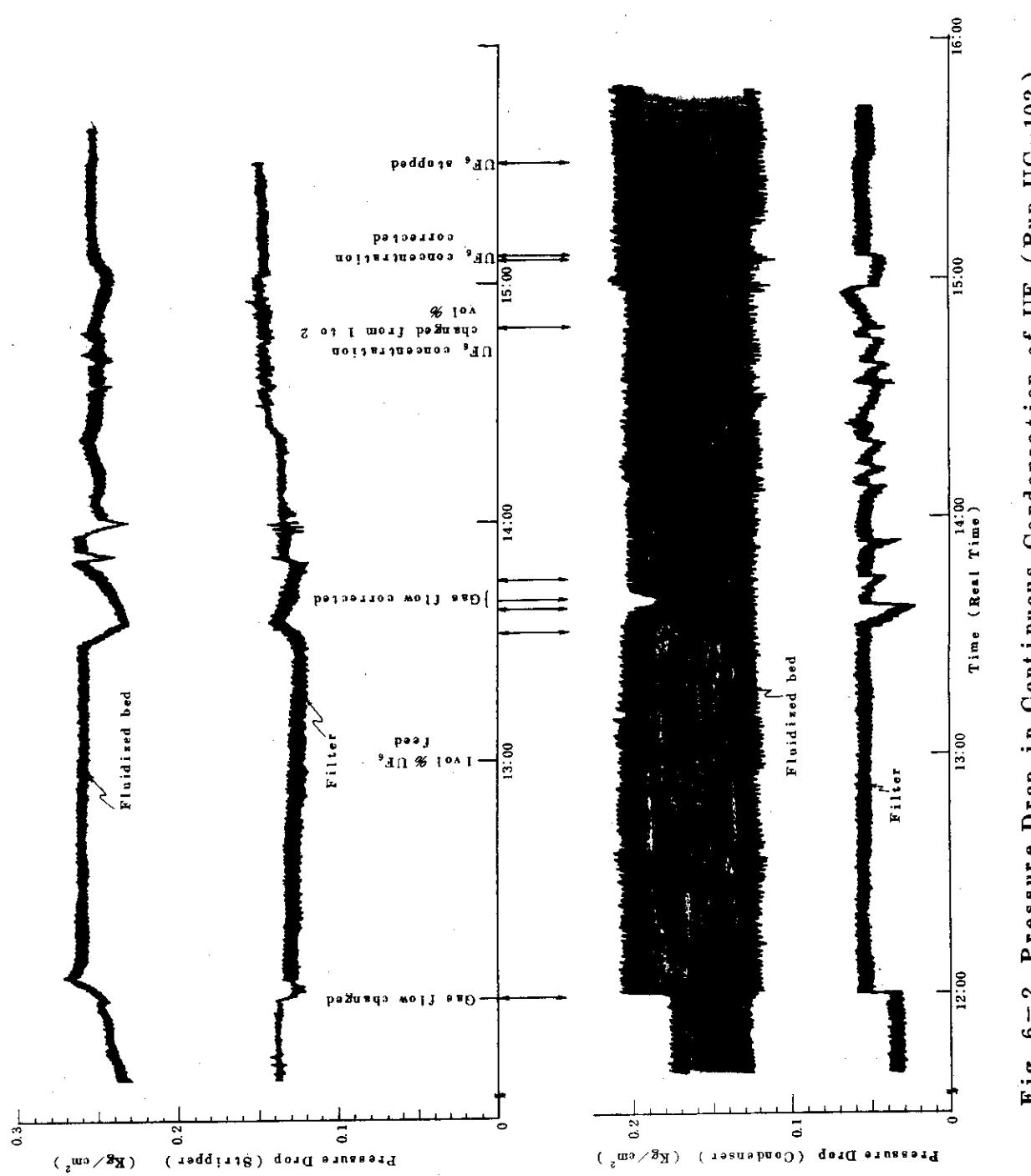


Fig. 6-2 Pressure Drop in Continuous Condensation of UF₆ (Run UC-102)

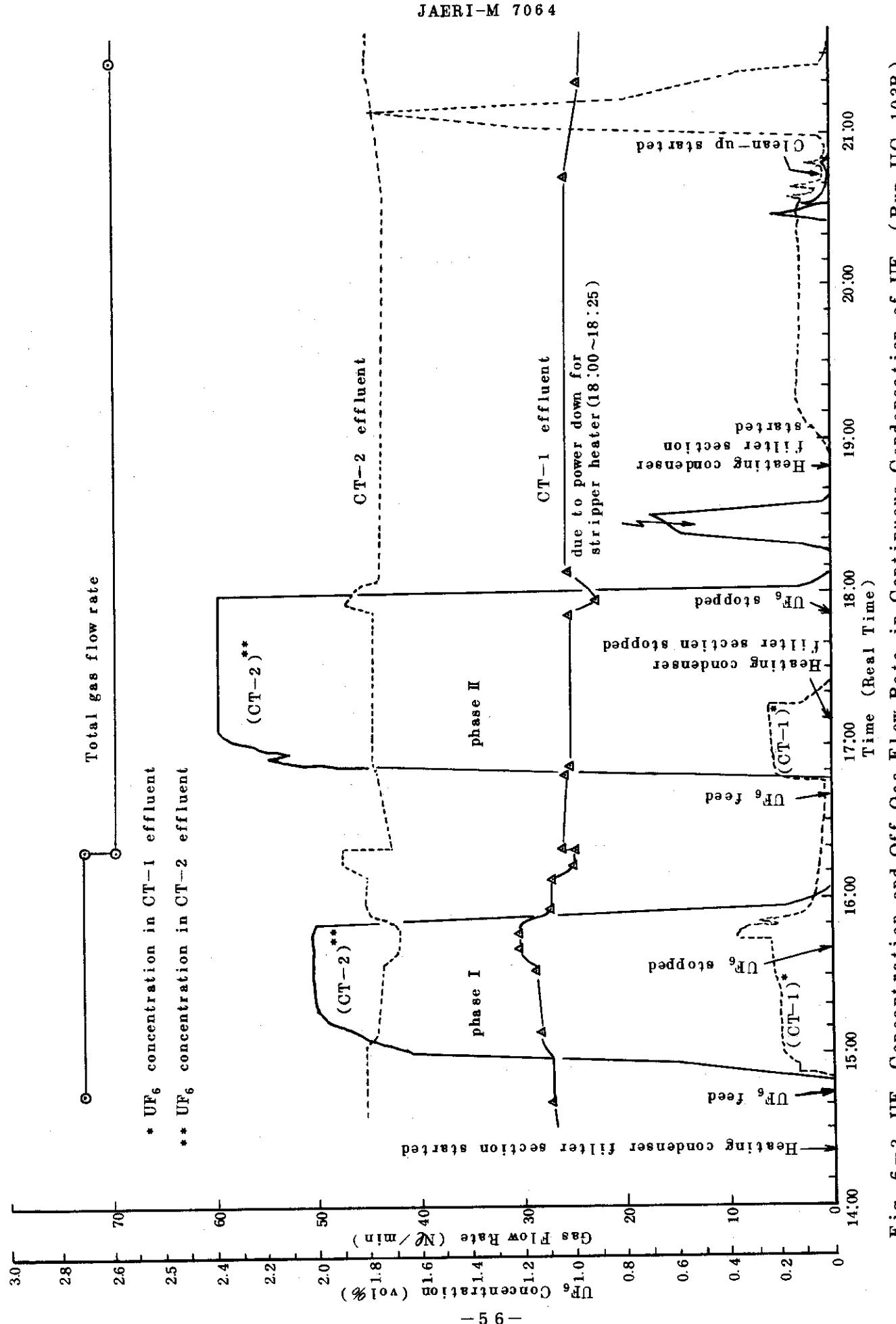


Fig. 6-3 UF_6 Concentration and Off Gas Flow Rate in Continuous Condensation of UF_6 (Run UC-103B)

Table 6-4 Mass Balance in Run UC-103B

A Total Mass Balance

Step	Condensation		Clean-up		Total
	Phase I	Phase II	Condenser disengaging section	Condenser powder vessel heated	
Charged UF ₆ (g)	705	891	—	—	1596
(%)	(100)	(100)			(100)
Discharged UF ₆ (g) from condenser (%)	99 (14.2)	54 (6.0)	49	196	397 (24.9)
Discharged UF ₆ (g) from stripper (%)	524 (74.2)	634 (71.1)	—	—	1158 (72.5)
Total (g) discharged UF ₆ (%)	624 (88.4)	687 (77.1)	49 (3.1)	196 (12.3)	1556 (97.5)

B Hourly Mass Balance at Time θ (c.f. Fig. 6-3)

Case	Heating		Cooling	
	condenser	disengaging section	condenser	disengaging section
Time θ (h:min)	15:20	17:10	17:50	
Phase No	I	II	II	
UF ₆ feed rate (g/min) (%)	12.4 (100)	12.4 (100)	12.4 (100)	
UF ₆ from condenser (g/min) (%)	1.38 (11.1)	1.72 (13.9)	0 (0)	
UF ₆ from stripper (g/min) (%)	9.40 (75.8)	9.50 (76.6)	9.50 (76.6)	
Total UF ₆ from condenser and stripper (g/min) (%)	10.8 (86.9)	11.2 (90.5)	9.50 (76.6)	

6.3.2 凝縮特性実験

UC-106, 108 に関する UF_6 濃度, ミスト生成率, UF_6 の器内蓄積率および動的収支を Fig. 6-4, 6-5 に示す。他の実験についても同様の傾向が見られる。

(1) 物質収支

Table 6-5 に, クリーンアップ前までの物質収支および静的収支を各実験ごとに示す。表中, 器内の UF_6 蓄積量は, UF_6 総供給量からクリーンアップ前までの UF_6 総排出量を差引いて求めてある。

静的収支の不付合は +3.4~+7.0% の範囲にあり, 物質収支は良く取れている。クリーンアップ前の収支では, 撃発器から排出された量が 70~83% にとどまり, ミスト量および器内蓄積量の多い点は予備実験 UC-103B の結果と一致している。さらに Fig. 6-4, 6-5 に示されているように, 動的収支は供給ガス中の UF_6 濃度が高くなるにつれ 100% からの偏倚が大きくなる傾向にあり, また経時的変動も大きい。この変動の理由は, 粉体中間槽下部からのアルミナ排出量が変動し, これが撃発器の UF_6 再撃発速度に影響したためと考えられる。

(2) ミスト生成特性

凝縮器の流動層上部温度が -40°C 以下 (UF_6 蒸気圧: 0.35 mmHg 以下) であるにもかかわらず, 分離部を加熱している場合には UF_6 の流出が認められた。また分離部を冷却していた UC-103B では UF_6 が検知されていない。したがって, この UF_6 は分離部に吹上げられたミストであると考えられる。

ミストの生成は, 凝縮固体の装置内滞留時間を長引かせ, かつフィルター圧損を増大させるなど, プロセス上最も重要な問題であるので, 種々の操作条件下でのミスト生成特性を調べた。主な操作条件とミスト生成率を Table 6-6 に示す。また UF_6 濃度, ガス線速度およびアルミナ流量のミスト生成率に対する効果を Fig. 6-6, 6-7, 6-8 に示す。

これらの結果は, ミスト生成率が, UF_6 濃度の減少またはガス線速度の増加に伴ない大きくなるが, アルミナ流量には全く影響されないことを示している。

一方, Fig. 6-9 に示すようにミスト生成速度は, 供給 UF_6 の質量速度が大きくなるに従いその增加率が小さくなる傾向にある。

以上の結果から, 同一量の UF_6 を処理する場合, UF_6 濃度を高く, 凝縮器の径を大きく取ってガス線速度を小さくする方が, ミスト生成を抑える観点からは望ましい。

(3) 操作限界

連続凝縮器において, 凝縮・撃発操作が続行不能となる理由として(i), アルミナ表面に凝縮付着した UF_6 が粒子同志のバインダー作用をなし, 閉塞を引起す, (ii). アルミナ表面に UF_6 が凝縮付着し, 粉体の流動化性状が変化し循環ができなくなる。の 2 点が考えられる。

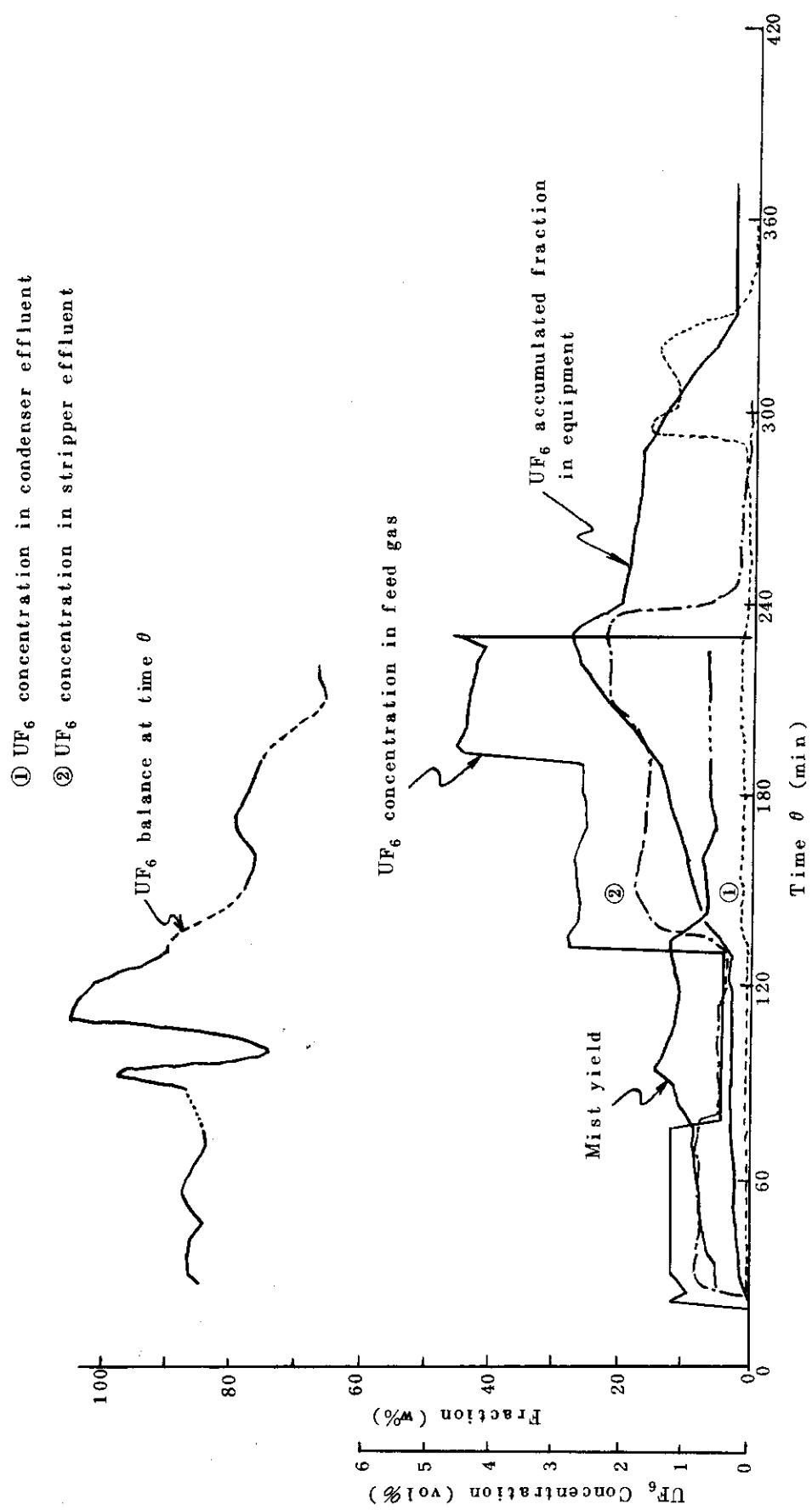
上記の考え方に基づき, 操作の安定性に関する UC-102~111 の結果を, アルミナ流量および UF_6/AI_2O_3 比を変数として分類プロットしたのが Fig. 6-10 である。図中, □印は循環を, ○印は流動化状態を表わし□, ●印は操作不能となって実験を中断したこと示している。この図から安定, 不安定, 操作不能の領域には 3 分類できよう。アルミナ流量が 20 kg/h 以下においては, 安定領域は UF_6/AI_2O_3 比 0.07 以内に存在している。また操作不能領域は, 右下りの直線を境としてこれ以上の部分にあり, この領域に入る操作条件の

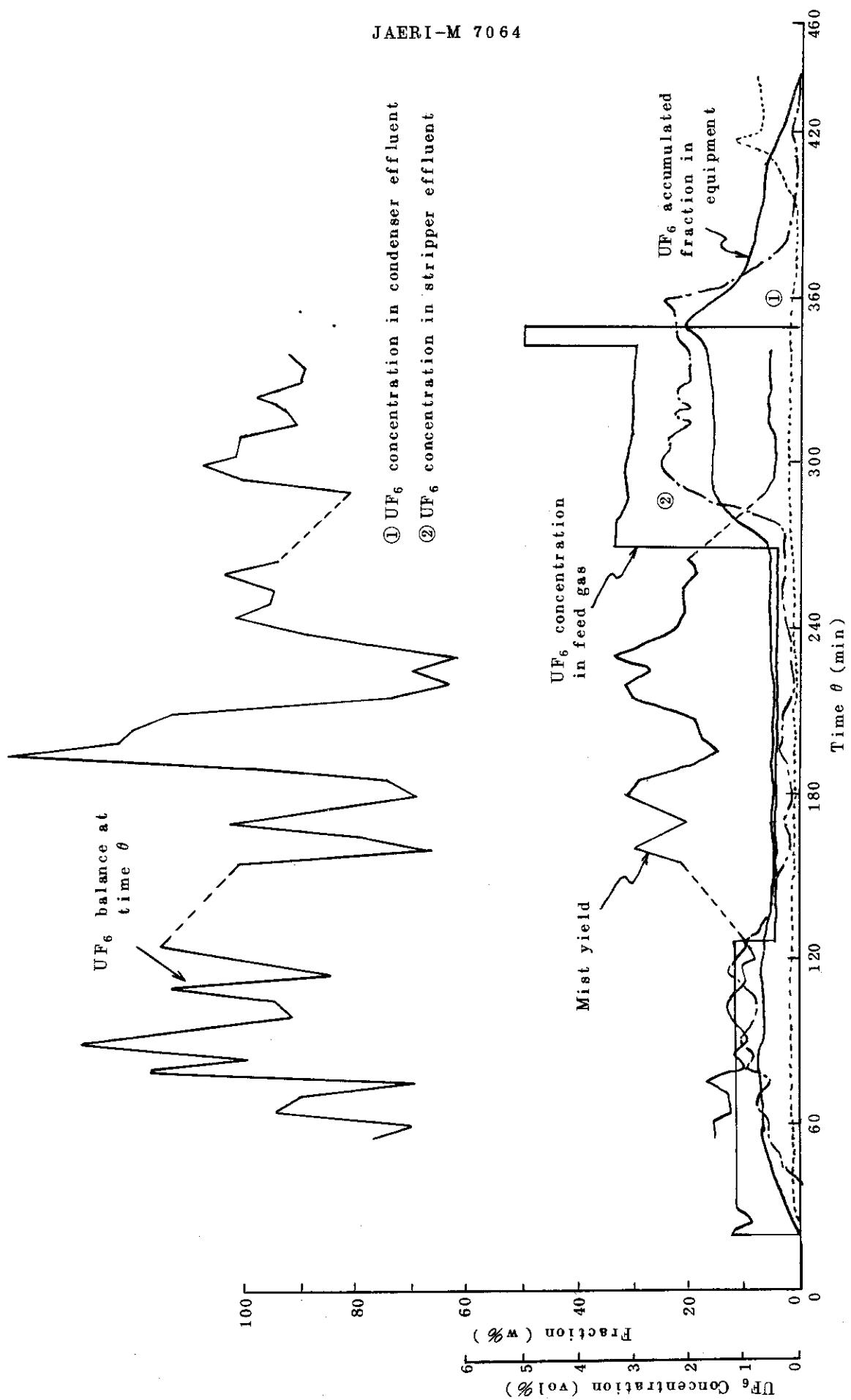
Table 6-5 Total UF₆ Balance in Continuous Condensation Experiments

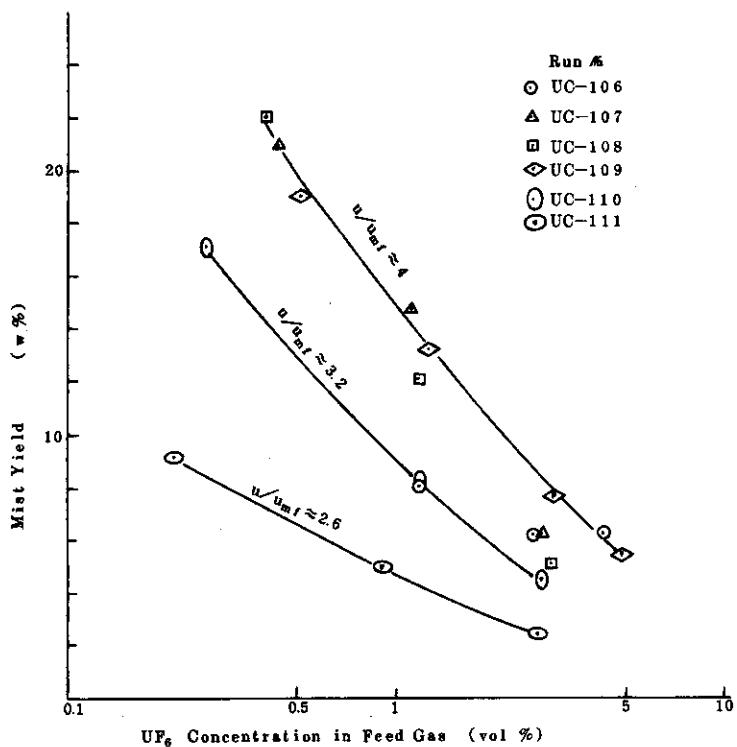
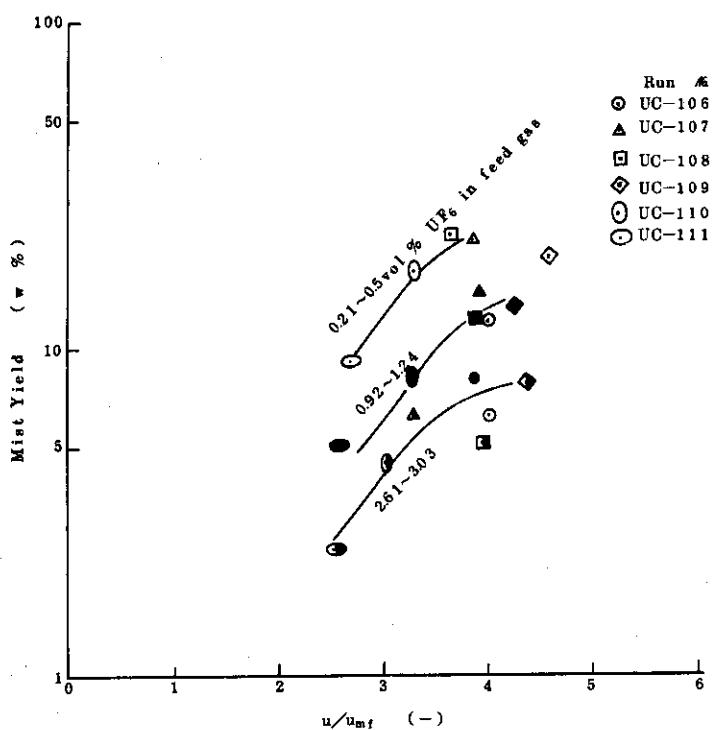
Run #	Charged UF ₆	Discharged UF ₆ before clean-up operation		Estimated UF ₆ accumulation in equipments	Total balance after Clean-up		unbalance
		from condenser	from stripper		from condenser	discharged UF ₆ from stripper	
UC-106	2430 g (100%)	144 g (6.0%)	1866 g (76.8%)	418 g (17.2%)	461 g (20.0%)	1887 g (77.6%)	81 g (3.4%)
UC-107	2200 g (100%)	193 g (8.8%)	1653 g (75.2%)	353 g (16.1%)	476 g (21.6%)	1720 g (78.2%)	3 g (0.2%)
UC-108	2370 g (100%)	218 g (9.2%)	1979 g (83.4%)	177 g (7.5%)	392 g (16.6%)	2034 g (85.8%)	-51 g (-2.2%)
UC-109	2500 g (100%)	222 g (8.9%)	1937 g (77.5%)	341 g (13.6%)	648 g (25.9%)	2022 g (80.9%)	-170 g (-6.8%)
UC-110	701 g (100%)	39 g (5.5%)	487 g (70.0%)	174 g (24.9%)	216 g (24.6%)	661 g (75.1%)	-2 g (-0.2%)
UC-111	550 g (100%)	16 g (2.9%)	434 g (77.9%)	107 g (19.2%)	134 g (24.4%)	462 g (84.0%)	-38 g (-7.0%)

Table 6-6 Principal Operating Conditions and Mist Yield

Run #	UF ₆ conc. C _i (vol %)	Alumina mass flow rate F _p (kg/h)	Off gas flow rate condenser CT-1 (Nl/min)	Off gas flow rate stripper CT-2 (Nl/min)	U _g /U _{m f}		Bed temperature at bed height l=250 mm (°C)	Mist yield (w %)
					condenser (-)	l=850 mm (°C)		
UC- 106	0.40	1.6.9	3.7.2	4.4.8	4.0.0	-1.7	-4.6	1.2.0
	1.17	1.6.9	3.7.0	4.4.5	3.8.8	-2.0	-4.9	8.0
	2.61	1.6.9	3.7.0	4.5.5	4.0.2	-2.2	-4.6	6.2
	4.28	1.6.9	3.6.5	4.6.1	4.0.0	-2.4	-4.5	6.3
UC- 107	0.43	1.0.2	3.2.8	4.5.0	3.8.4	-3.0	-6.5	2.1.0
	1.10	1.1.0	3.3.3	4.4.8	3.9.3	-2.7	-6.3	1.4.7
	2.80	1.0.6	3.0.0	4.6.5	3.3.0	-3.4	-6.2	6.2
UC- 108	0.40	5.7	3.3.1	4.2.9	3.6.4	-3.8	-6.8	2.2.0
	1.17	6.6	3.3.7	4.2.5	3.8.7	-3.5	-6.7	1.2.1
	2.97	8.1	3.3.2	4.3.2	3.9.5	-2.8	-6.4	5.1
UC- 109	0.50	1.7.6	3.7.8	4.1.8	4.5.8	-1.5	-4.9	1.8.9
	1.24	1.6.2	3.7.5	4.2.3	4.2.5	-1.8	-4.4	1.3.2
	3.03	1.7.6	3.7.3	4.2.7	4.3.6	-2.0	-4.4	7.7
	4.85	1.6.2	3.7.7	4.3.2	4.3.6	-2.0	-4.0	5.4
UC- 110	0.26	1.9.1	2.4.4	4.1.8	3.3.0	-1.0	-5.2	1.7.1
	1.16	1.9.1	2.4.4	4.2.0	3.2.6	-1.1	-5.0	8.2
	2.78	1.9.1	2.3.6	4.2.7	3.0.3	-1.6	-4.6	4.5
UC- 111	0.21	2.0.8	1.8.3	4.2.9	2.6.9	-4	-5.0	9.1
	0.92	2.0.8	1.7.6	4.3.2	2.5.7	-4	-4.8	5.0
	2.70	1.9.5	1.7.7	4.3.7	2.5.3	-6	-4.3	2.4

Fig. 6-4 UF_6 Condensation Profiles in Run UC-106

Fig. 6-5 UF_6 Condensation Profiles in Run UC-108

Fig. 6-6 Effect of UF₆ Concentration on Mist FormationFig. 6-7 Effect of Gas Flow Rate on Mist Formation
(u ; gas velocity, u_{mf} ; superficial gas velocity)
at minimum fluidizing condition

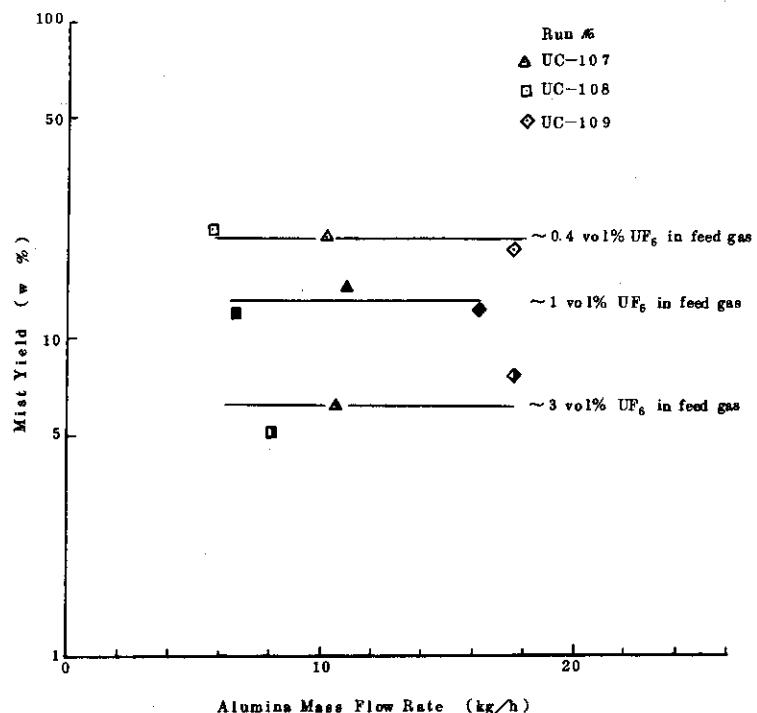


Fig. 6-8 Effect of Alumina Flow Rate on Mist Formation

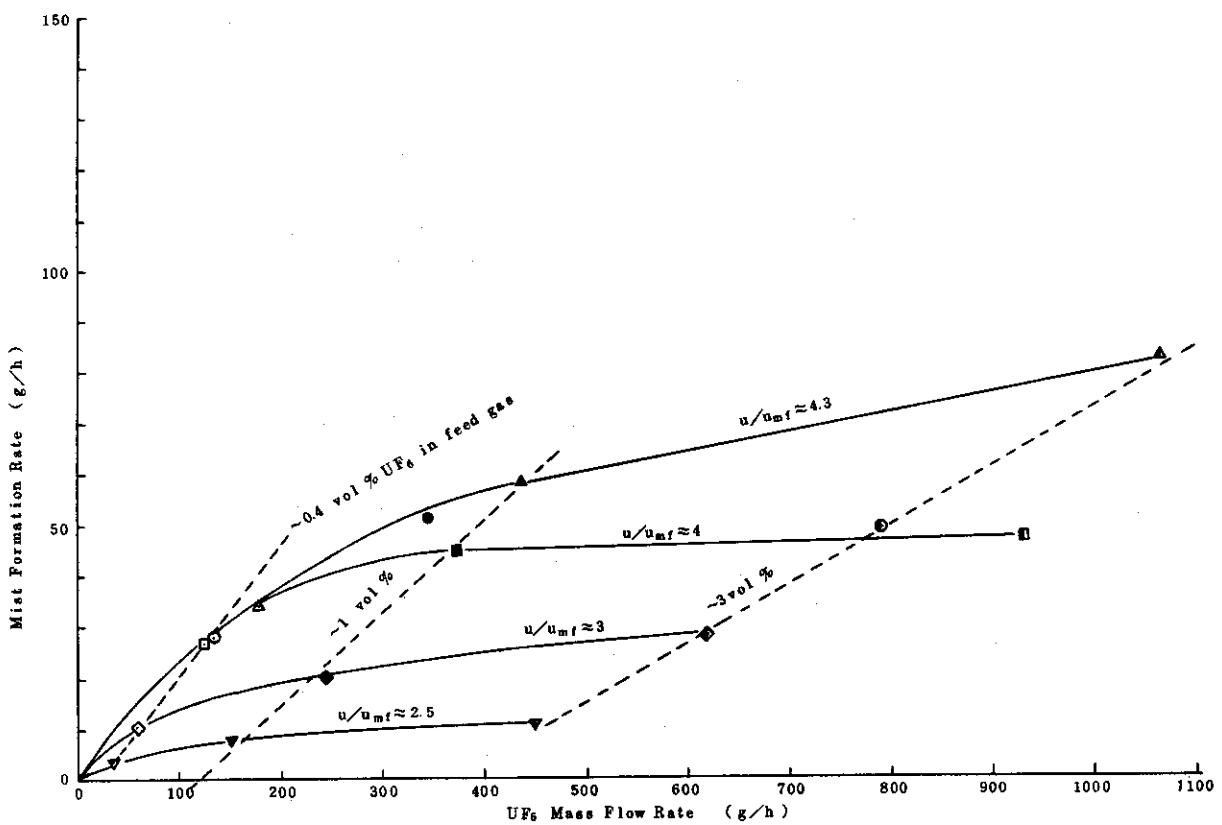
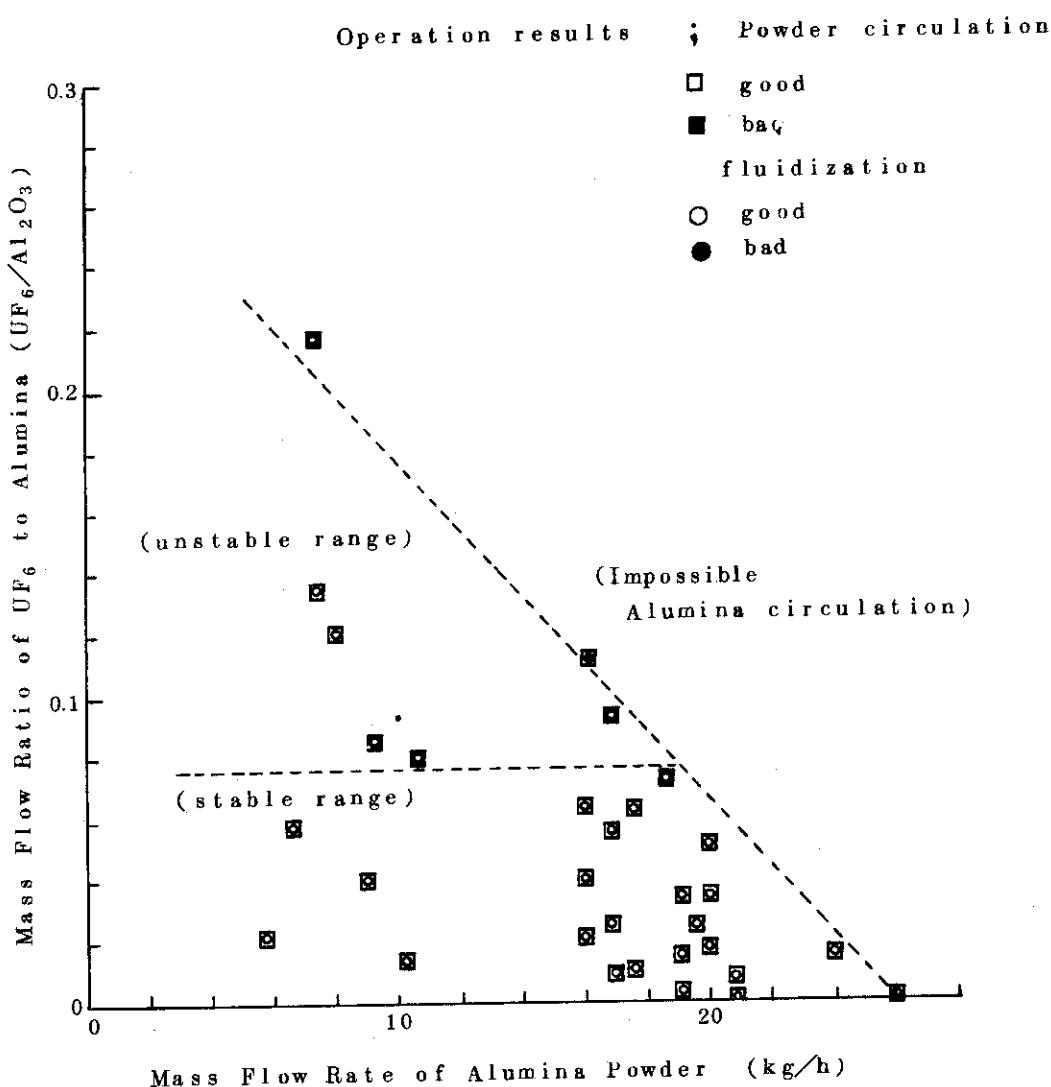


Fig. 6-9 Effect of UF₆ Mass and Gas Flow on Mist Formation Rate

下でのアルミナ循環は不可能であった。一方、不安定領域は上記の2つの領域に囲まれた部分にあり、条件変更により循環が悪化し安定な操作の維持が困難であった。

なお同図では、循環不良と閉塞を区別して示しているが、これは凝縮器差圧や温度の変化などから推定したものであるためどちらが先に発生したかが明確でない場合も多い。右下りの勾配を示す循環性については、移送能力の最大値は循環系の差圧では定まるので、アルミナ流量の少ない場合には最大値までの余力分だけ $\text{UF}_6/\text{Al}_2\text{O}_3$ 比を大きく取り得ると理解することが出来よう。一方、閉塞による限界は、粒子同志の付着力がアルミナ表面に凝縮付着した UF_6 量に比例的であるとするならば、循環量に依存しない一定の $\text{UF}_6/\text{Al}_2\text{O}_3$ 比で定まるであろう。しかしながら、閉塞に関する限界については循環のトラブルのため明確に把握することができなかった。このことは、この実験装置における循環の下限界値が装置全体の操作限界になっていることを示している。



6.3.3 連続実験

凝縮器温度，オフガスおよびアルミナの流量，UF₆ 濃度の経時変化をFig. 6-11, 6-12, 6-13 に示す。またUF₆ の動的収支(供給速度に対する排出速度の比)および器内UF₆ 蓄積率の経時変化をFig. 6-14 に示す。

(1) プローバック効果およびその影響

凝縮器フィルターに蓄積したミストがプローバックにより流動部に戻され，揮発器に移送されている様子がFig. 6-13 および6-14 に揮発器オフガスのUF₆ 濃度ピークとして示されている。

図中，phase 1 では，プローバックを手動で行った直後に凝縮器層差圧が上昇しはじめアルミナ循環が不能となった。これはプローバックを停止していた3.5時間の間にフィルターに蓄積したミスト(ミスト生成速度からの推定量は180g)が流動部に戻され，流動化不良かまたはオーバーフローノズル(1/2^φ in)に詰りを生じたためと考えられる。phase 2 では，プローバックを15分間隔で行ったが約4時間後に層差圧が上昇しはじめ，循環不能となった。これもphase 1 と同様の理由によるものと思われる。そこでphase 3 ではプローバック間隔をさらに短かくし10分とした。その結果6時間以内ではphase 1, 2 のような現象は認められなかった。これらのことから，プローバックおよびその間隔時間は装置操作上の重要因素の1つであることが判った。

前節6.3.2(3)に述べたごとく，流動化(または循環)が安定に行われる領域はUF₆/Al₂O₃ 比で0.07以内にある。プローバック間隔時間に関する上述のphase 1 ~ 3の結果は，プローバック直後に凝縮器の流動層上部で一時的に上昇するUF₆/Al₂O₃ 比についても限界値以内に保持する必要のあることを示している。Table 6-7 にphase 1, 2, 3におけるプローバック時の推定UF₆/Al₂O₃ 比を示す。この推定値は，器内でアルミナ表面に凝縮付着したUF₆ と共に，プローバックで戻されたミストが流動層最上部のスラッグ(層高：直径D_t × 2¹⁰)で形成されるアルミナ層と完全混合する，と仮定して求めた。その結果，phase 1 では0.5と大きく，phase 2 では0.07で限界値近傍に，またphase 3 では0.05へと改善されている。したがって，この実験ではプローバックの間隔時間を10分以内にする必要のあることが明らかとなった。

(2) 凝縮器オフガス中のUF₆ ガスリーク

phase 3において，小型NaF トラップでサンプリングし捕集された凝縮器オフガス中のUF₆ の分析結果とこれに基づくUF₆ リーク量をTable 6-8 に示す。これから，分離部冷却時の平均リーク速度および濃度はそれぞれ～0.3 g/h, 1.8 × 10⁻³ vol % であった。この濃度は，凝縮器層上部温度のUF₆ 蒸気圧には対応しており，理論捕集率の99%に達していることが確認された。

(3) 装置器壁へのUF₆ 凝縮付着特性

ガスおよびアルミナの流量(Fig. 6-12), UF₆ 濃度(Fig. 6-13)は短時間で一定値に達しているにもかかわらず，凝縮器の層温度(Fig. 6-11) およびUF₆ の器内蓄積率(Fig. 6-14) は6時間後においても定常に至っていない。また，この間にUF₆ 全供給量の10%以上が器内に蓄積したことを見出している。phase 3 における装置内蓄積量とそ

の推定分布を Table 6-9 に示す。この中、分離部での蓄積についてはミストの吹上げが、また流動部については冷却壁面への直接凝縮が支配的な原因であると思われる。

このような UF₆ の蓄積は、放射線分解量を増大させかつ装置の操作性を悪化させる原因となるので、その特性の把握が重要である。そこで、プローバック操作時の分離部平衡蓄積量 (UC-112, phase 3), および冷却面への直接凝縮による蓄積量 (UC-106~112) についてデータ整理し、この結果より蓄積の防止または操作維持に関する対策について考察する。

a. 分離部の平衡蓄積量

分離部における UF₆ 蓄積量を推定するため Table 6-9 に示す 3 方法で検討した。

いずれの方法でも、かなりの誤差は避けられないが、方法 2 は原理的に低目の値となること、方法 3 は推定されるミストの全生成量 300 g を上回っていて矛盾していることを考慮すると、最も確からしい値は ~200 g (~2 kg/m²) 程度となろう。

b. 冷却壁面への蓄積量

付着場所としては、凝縮器冷却壁面、粉体抜出ノズル、温度計ガイド管および粉体中間槽の冷却壁面が考えられる。アルミナ粒子表面の UF₆ については、UF₆ ガス供給を停止したのち、揮発器オフガス中に UF₆ が検出されなくなったことを確認してクリーンアップを開始していることから、無視し得る。

UC-106~112 における冷却壁面の単位面積当りの蓄積量と UF₆ の供給質量速度との関係を Fig. 6-15 に示す。前述したごとく、これらの蓄積量は定常に達した平衡値ではないため実際はもっと大きな値となろう。この傾向は高濃度 UF₆ の場合ほど著しく、UC-112 の条件である ~1 vol % (= 230 kg/m² · h) では Table 6-9 に示した結果から 2.3 kg/m² 以上と推定される。

なお、冷却壁面に UF₆ が凝縮付着しこれが増加しつつある事実は、Fig. 6-11 に示す凝縮器層温度が時間とともに上昇していることからも支持される。さらに、UC-112 終了後、凝縮器を解体し流動部内面を観察した結果、冷却ジャケット底部から約 600 mm 程の高さまでアルミナ粒子が緑色物に混って内壁面に固く付着しているのが認められた。この付着物の厚さは、ジャケットを溶接したさいに内面にできた溶接ビードの部分で最も厚く、上に行くにしたがい次第に薄くなっていた。この緑色物は UF₆ の加水分解生成物 (UO₂F₂) と思われる。

c. 蓄積の防止と対策

以上の結果から、分離部のミストの付着による蓄積よりも冷却壁面への直接凝縮による蓄積の方がより重要であることが判った。これを防止する対策として次のようなことが考えられよう。

- i) 凝縮器下部に長い非冷却部を設け、UF₆ 濃度を冷却壁面 (ジャケット部) に至るまでに十分低くする。
- ii) 冷却壁面を不活性ガスで被い、UF₆ が直接冷却壁面に接触するのを防止する。
- iii) ジャケットを軸方向に分割して設け、個々のジャケットを交互に冷却・加熱し、付着した UF₆ を揮発除去しながら凝縮操作を行う。
- iv) 凝縮器内に回転翼などを設け、付着した UF₆ を機械的に除去しながら凝縮操作を行う。

Table 6-7 Estimation of $\text{UF}_6/\text{Al}_2\text{O}_3$ Ratio in Top Bed
of after Blow-Back in Run UC-112

		Phase-1	Phase-2	Phase-3
Alumina flow rate	g/min	270	258	234
UF_6 mass flow rate in the inlet gas	g/min	6.8	6.8	7.2
Blow back cycle	1/min	1/212	1/15	1/10
UF_6 returned to bed by one blow ^{a)}	g	177	12.5	8.3
Alumina in a slugged bed unit ^{b)}	g	376	376	376
$\text{UF}_6/\text{Al}_2\text{O}_3$ ratio ^{c)}	-	0.50	0.066	0.053

Assumption a) Mist formation rate to be 50 g/h (see Fig. 6-9)

b) Including a Spacing of $2 \cdot D_t$ between slugs

(D_t : diameter of condenser)

c) Perfect mixing of Alumina with blown-back mist
in a slugged bed unit

Table 6-8 Estimation of UF_6 Gas Leakage through Condenser in Run UC-112

Analysis	
Sampling	; NaF trap collection
Adsorbent	; Harshaw Chem. pellets (8g)
Sampling	; 0.1 Nℓ/min × 280 min
gas volume	(sampling gas stream) / (process stream) = 1/378
Collected UF_6 on NaF trap	5.3×10^{-3} g ^{a)}
Corresponding total UF_6 leakage	2.0 g
Average UF_6 concentration in condenser effluent	1.8×10^{-3} vol % ^{b)}
UF_6 leakage fraction to feed	0.15 w%

Note

a) Collected before clean-up
step in phase -3 of Run UC-112

b) Equilibrium UF_6 concentration at
condenser outlet temperature (-50 °C)
 UF_6 conc. ; 1.6×10^{-3} vol %

Table 6-9 Estimation of Accumulated UF₆ in Equipment during Phase 3 of Run UC-112

Estimation method	unit	Accumulated UF ₆ in		Total
		Fluidizing section of condenser (CT-1) and powder vessel (CV-1)	Disengaging section of condenser (CT-1)	
Method-1 a)	$\frac{g}{m^2}$ g) ($\frac{g}{m^2}$ g)	699 (2,200)	201 (2,000)	d)
Method-2 b)	$\frac{g}{m^2}$ ($\frac{g}{m^2}$)	757 (2,300)	143 (1,400)	e) f) (2,100)
Method-3 c)	$\frac{g}{m^2}$ ($\frac{g}{m^2}$)	180 (560)	720 (7100)	900

- a) Estimated from sum of blown-back UF₆, and mist formation (see Fig. 6-9)
- b) Estimated from sum of discharged UF₆ in clean-up step
- c) Extrapolated from data in UC-106~111 (see Fig. 6-15)
- d) Amount of mist ; 300 g, Blown-back UF₆ ; 99 g
- e) Discharged UF₆ heating only disengaging section of CT-1
- f) Discharged UF₆ in clean-up step
- g) Accumulated UF₆ per area of inner surface

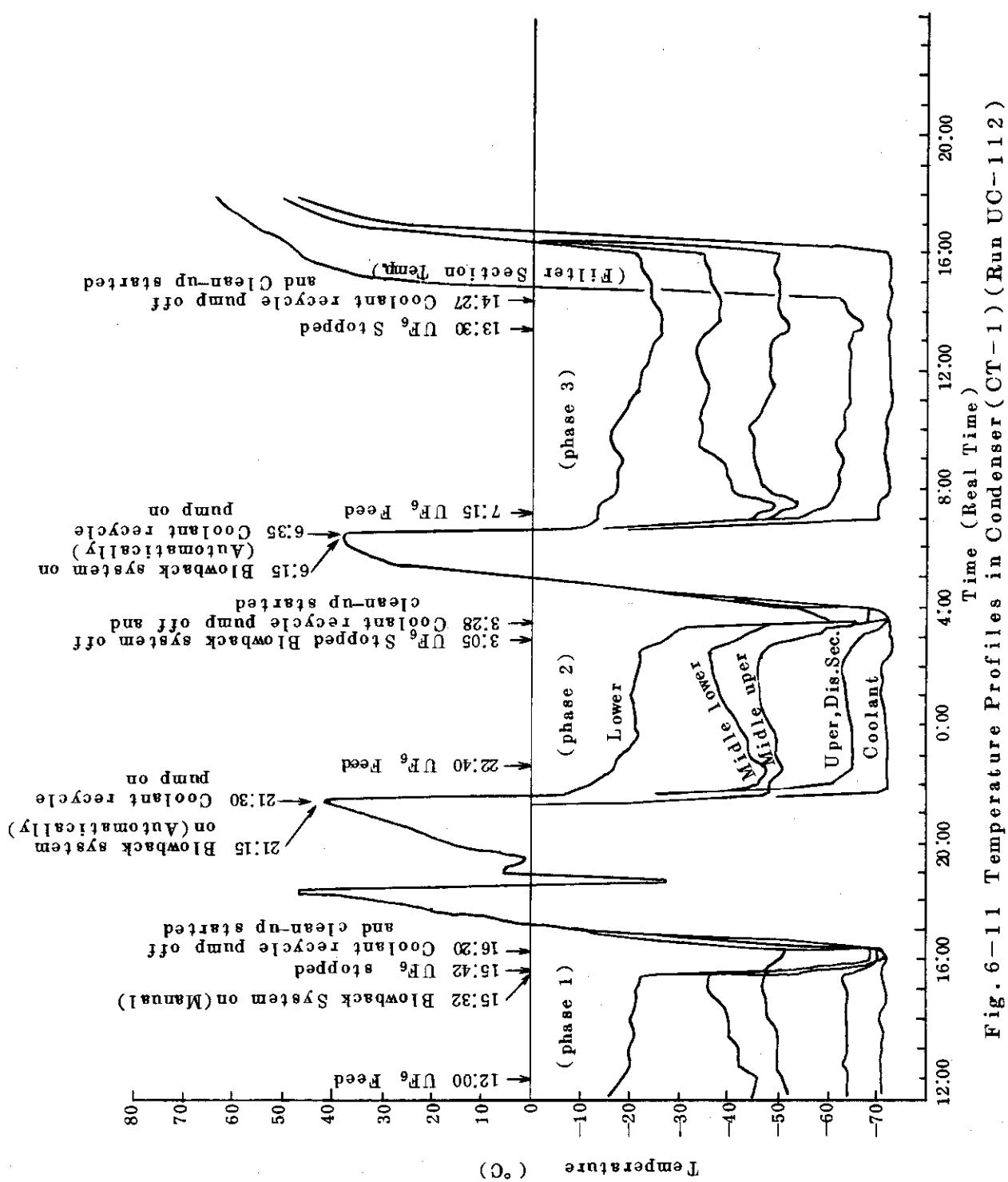


Fig. 6-11 Temperature Profiles in Condenser (CT-1) (Run UC-112)

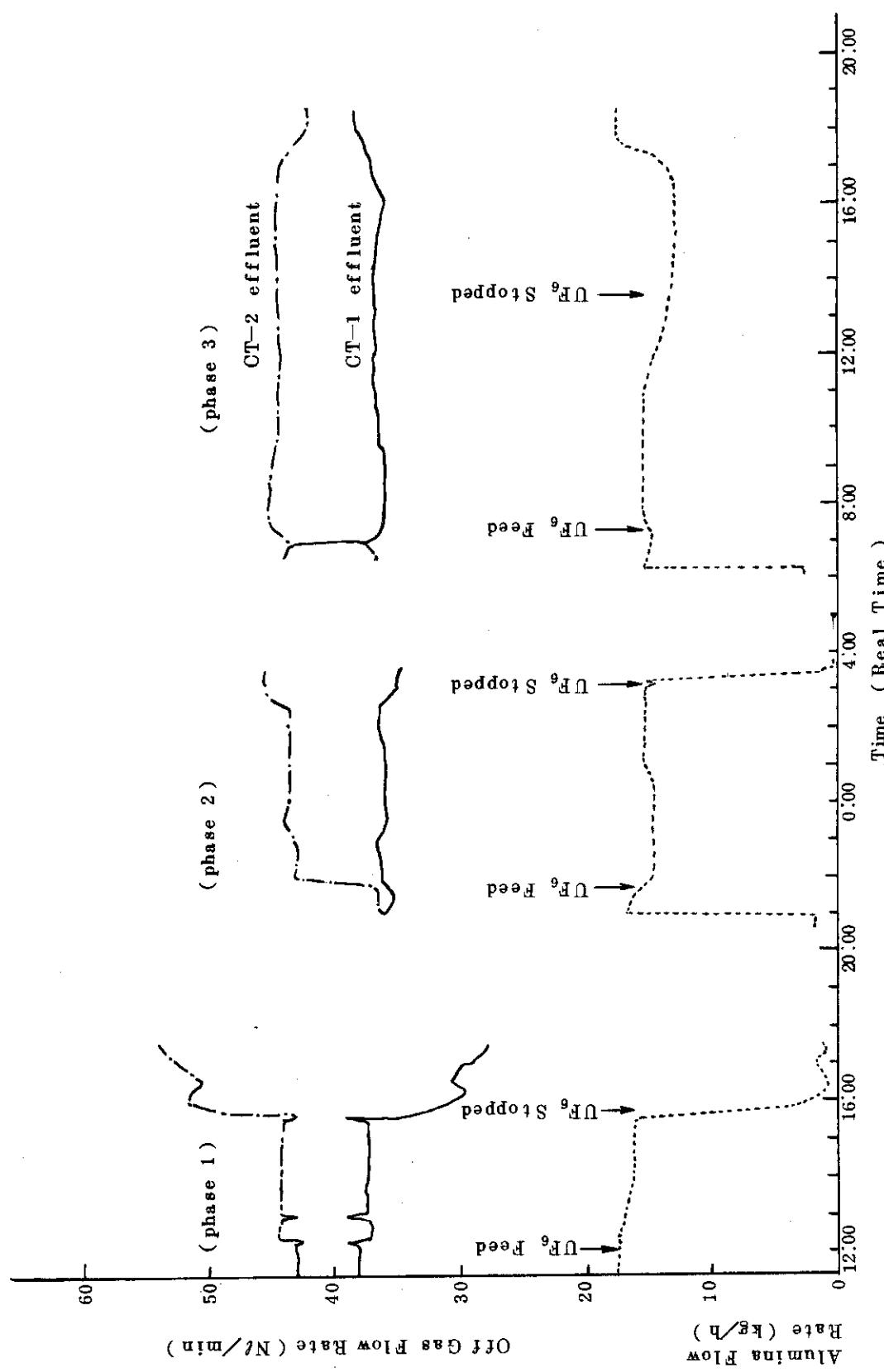


Fig. 6-12 Off Gas and Alumina Flow Rate in Run UC-112

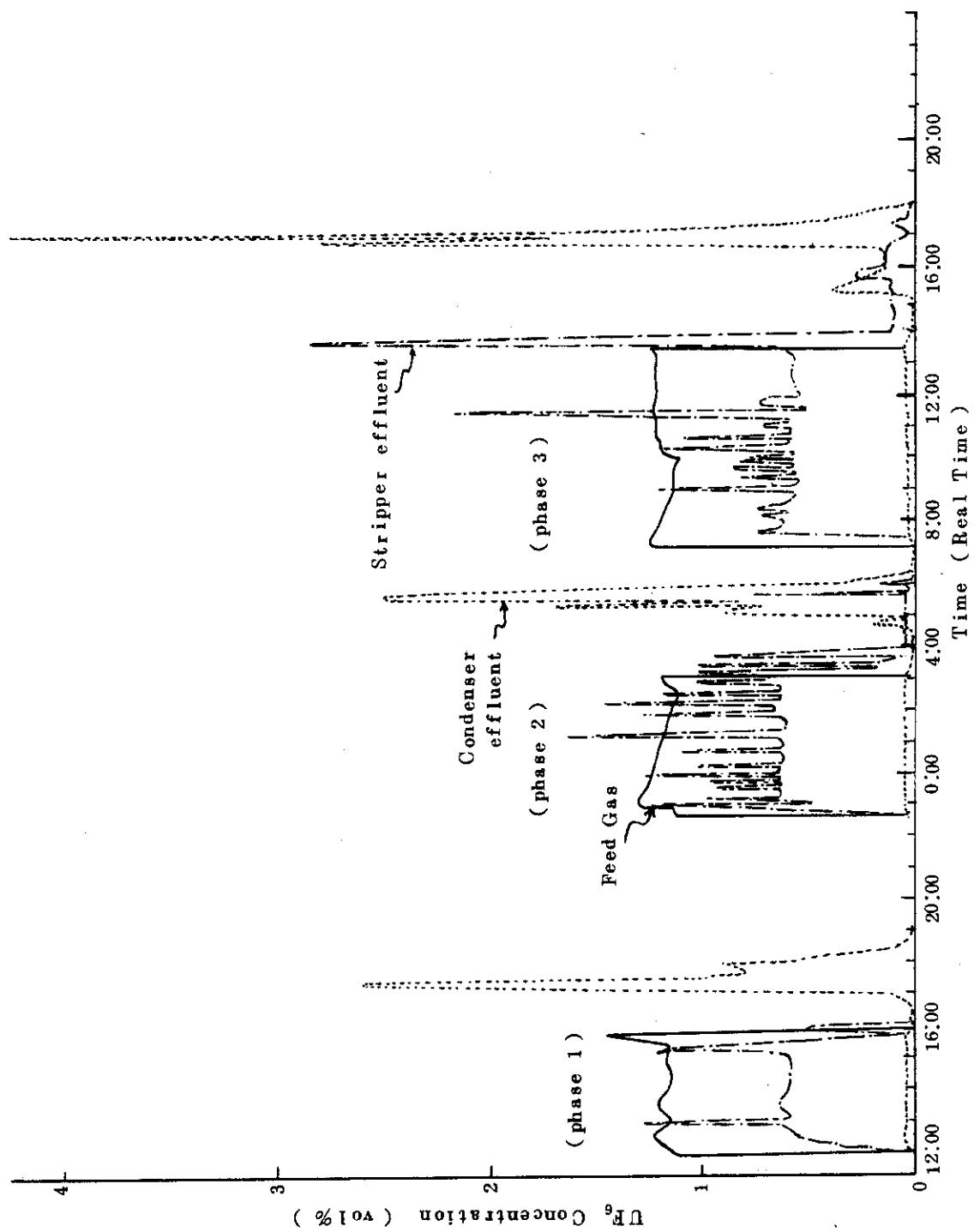


Fig. 6-13 UF_6 Concentration in Feed and Effluent Gases (Run UC-112)

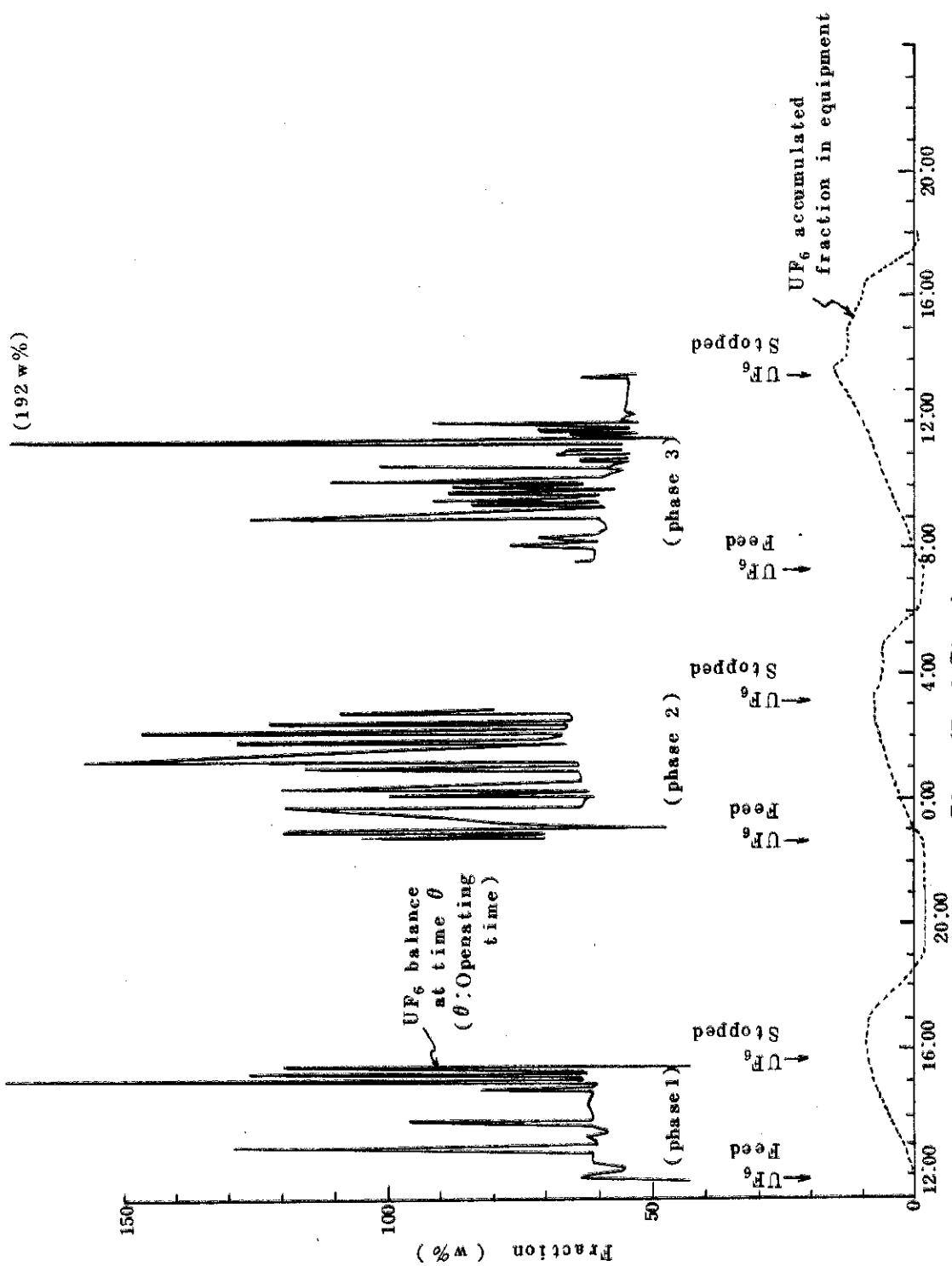


Fig. 6-14 Mass Balance and Accumulated Fraction of UF_6 in Equipment (Run UC-112)

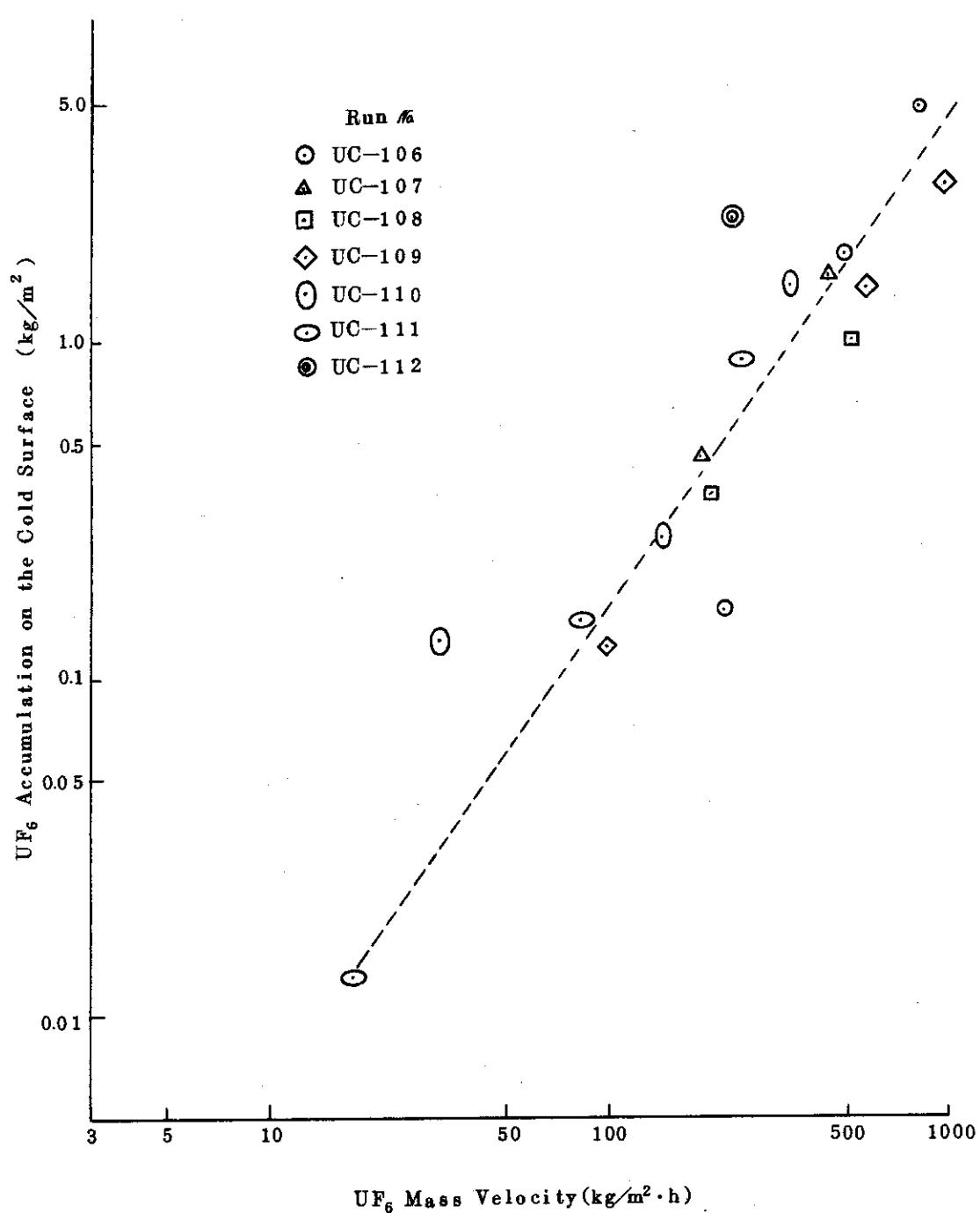


Fig. 6-15 Effect of Mass Velocity on Accumulation of UF₆ on Cold Surface of Condenser (CT-1)

7. 連続流動層凝縮モデルによるケーススタディー

7.1 モデルの検証

凝縮特性を把握する目的で 2.5.2(2)節で単純なモデルを選定した。このモデルの妥当性を検証するため、前章 6 に述べた UF₆ の凝縮実験で得られたミスト生成率および J. Ciborowski らの報告している流動層によるナフタリン凝縮における相対捕集効率に関する実験結果⁷⁾ と、上のモデルによる計算結果を対比した。

7.1.1 物性

計算に使用した UF₆ およびナフタリンの物性式を付録の Table A4-4, 4-5 に示す。物性を求めるための温度、濃度はガスと粒子表面におけるそれぞれの値の対数平均を用いた。UF₆ の物性はすべて文献¹³⁾のデータによった。空隙率の推算に関しては多くの提案がある⁶⁾が、凝縮器がオーバーフロータイプであるため、これらをそのまま用いることはできない。そこで、凝縮器層内の空隙率は、凝縮器冷却時の流動化ガス線速度 u_g における層差圧 Δp から求めた。

Sherwood 数および Nusselt 数は流動層における実験式(2.9)(2.10)を用いた。Nusselt 数は比較的バラツキが小さく信頼性は高いと考えられるが、Sherwood 数は条件によって大きく異なり、かつ、これのミスト生成率への影響が大きいので補正係数を乗じて用いた。

7.1.2 計算手法

モデル式(2.57)～(2.60)は電算機を用い、Runge-Kutta-Gill の方法により 1 倍精度で解いた。この計算の概略フローチャートを Fig. 7-1 に示す。プログラムは、平均温度および分圧の計算、物性値計算、積分計算(Runge-Kutta-Gill)，過熱ガス領域の計算、飽和ガス領域の計算などのサブプログラムから構成されている。

過熱ガス領域と飽和ガス領域の判別は次の条件に基づいて行った。

$$\left| \frac{P(T_g) - P(Y)}{P(Y)} \right| \leq 10^{-5}$$

ここで、P(T_g) はガス温度 T_g における凝縮成分の蒸気圧、P(Y) は凝縮成分濃度 Y に相当する分圧、である。

計算は、凝縮器軸方向の層内温度分布を与えた場合 (T_p=T_p(l)) には実層高(l=0.9 m, 流動部高さ)まで計算したが、層内に温度分布が無い場合には、通常比較的短時間でガス温度が流動媒体粒子温度に近づくので、次の条件を満した時点で計算を打切った。

$$| T_g - T_p | \leq 10^{-4}$$

なお、供給ガス中の凝縮成分分圧 P(Y_i) が凝縮器内入口近傍の粒子温度 T_{p,i=0+} に相当する蒸気圧より小さい条件下では、粒子側をピストン流れと仮定しており再揮発が起り得ないので、熱移動のみを考慮した。

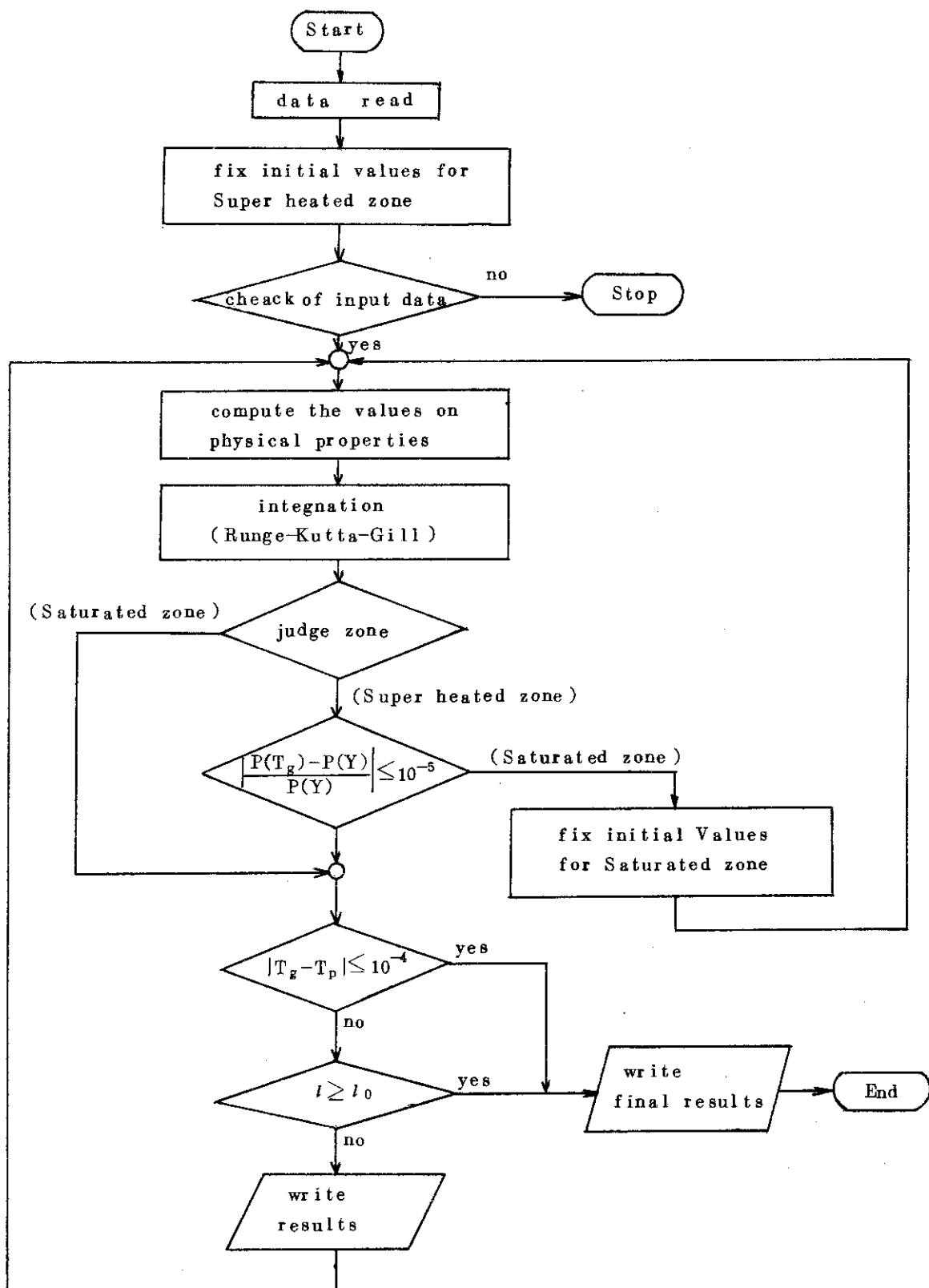


Fig. 7-1 Schematic Flow-chart for the Model Analysis of Condensation Characteristics in Cold Trap of Fluidized Bed

7.1.3 検証結果

(1) UF_6 の凝縮実験結果との対比

Fig. 7-2 に UC-107~111 までの実験について、ミスト生成率の計算値と実験値とを対比して示す。計算値は実験値と全体的に良く一致している。

なお、実験結果と対比する上での問題は、層内温度分布の設定と Sherwood 数 Sh の補正である。層内温度分布については 2.5.2(1)節で検討した式(2.5.6)を用い、実測層内温度を補外する方法により定めた。一方、 Sh については (i) Sh の文献値にバラツキが大きい(約 2 倍)こと、(ii) 凝縮特性が Sh に極めて敏感(依存性大)であること (iii) 1 つの補正係数により他を良く表わし得ること、から補正係数 f は UC-111 を基準として $f = 0.9$ とした。

(2) ナフタリンの凝縮実験結果との対比

J. Ciborowski らの行ったナフタリン凝縮の実験条件⁷⁾ を Table 7-1 に示す。この実験は、層内に温度分布がない場合について、層内粒子量、粒子径、層内温度、ガス濃度、ガス流量などのナフタリン凝縮に対する影響を調べたもので、モデルの検証は温度、濃度、流量の 3 因子について比較検討した。

計算結果と J. Ciborowski らの実験値との対比を Fig. 7-3, 7-4, 7-5 に示す。図中○印は実験値である。Fig. 7-3 の収率と層温度とについては、変化の傾向の一一致は見られるが実験値とのずれが大きい。しかし、濃度(Fig. 7-4), 流量(Fig. 7-5)については、傾向も絶対値も良い一致を示している。なお、Fig. 7-3 中、 A_{cal} (Practical efficiency) の点線は、ナフタリンの供給量に対する固体となった量の割合であり、実線はこの割合からミスト生成率を差引いた値を示す。

Sherwood 数の補正係数 f は前項(1)に述べた理由により、ナフタリン凝縮実験の代表的な結果を基準として $f = 0.8$ とした。

7.2 モデルによるケーススタディー

前節の結果から、適当な Sherwood 数の補正係数 f を用いることで、 UF_6 の連続凝縮だけでなくナフタリンの回分凝縮の結果についても計算値と一致させ得ることが確認され、2.5.2 節で選定したモデルの妥当性が示された。そこで、このモデルに基づき、最適凝縮操作条件を見出す観点から凝縮特性に対する各操作因子の影響の大きさを調べた。

ケーススタディーは、層内温度分布が無い場合、および層内に温度分布がある場合について行ない、前者では入口ガス温度、層内温度、ガス濃度、ガス流速、系内圧、粒子径の 6 因子について、また後者では温度分布、ガス濃度、ガス流速の 3 因子について調べた。これらの結果は、 UF_6 の全捕集率、過熱ガス領域および飽和ガス領域での凝縮率、全凝縮量または飽和ガス領域での凝縮量に対するミスト生成量の割合としてまとめた。計算条件を Table 7-2, 7-3 に、温度分布設定条件を Table 7-4 に示す。

Table 7-1 Experimental Conditions for Batch Condensation of Naphthalene

(J. Ciborowski et al ref. (7))

Parameters	Feed gas temperature T_{g_i} (°C)	Particle diameter d_p (mm)	Mass flow rate of feed gas G (kg/m ² · sec)	Concentration of Naphthalene in feed gas H_o (kg/kg)	Weight of charged particles m (g)	Bed temperature T_{Bed} (°C)
Bed temperature	80	0.77	0.41	0.025	200	25~45
Concentration	80	0.77	0.38 0.46	0.005~0.027 (0.018~0.034) b)	200	(25) c)
Gas flow rate	80	0.32~1.10 (0.77) a)	0.26~0.72	0.018	150~200	(25) c)

a) Assumed $d_p = 0.77 \phi_{mm}$ for model analysis

b) Concentration for model analysis

c) Assumed temperature for model analysis

d) Bed diameter $D_t = 50 \phi_{mm}$

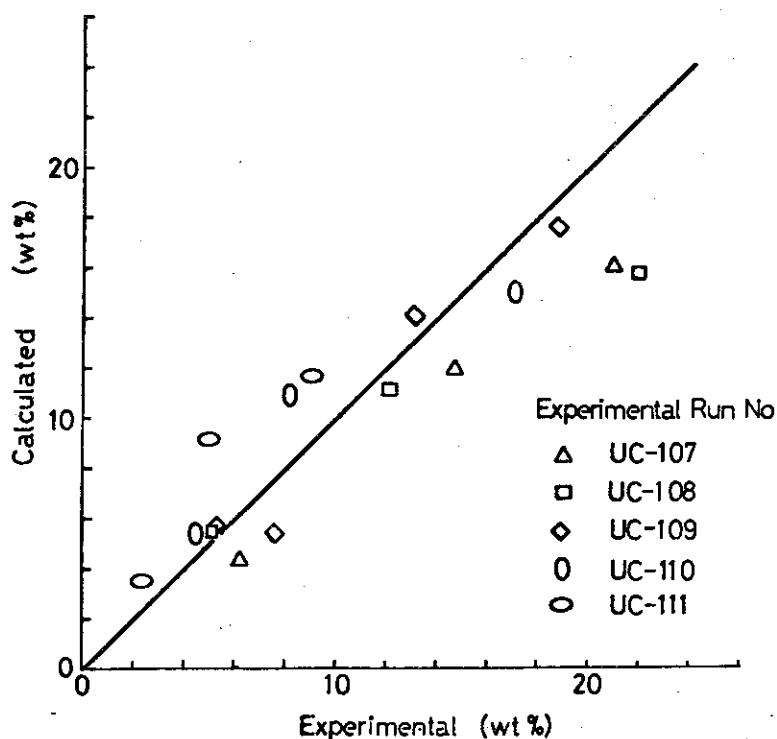


Fig. 7-2 Comparison of Experimental Data with Calculated Values on Mist Formation in Continuous UF_6 Condensation in Cold Trap System of Fluidized Beds

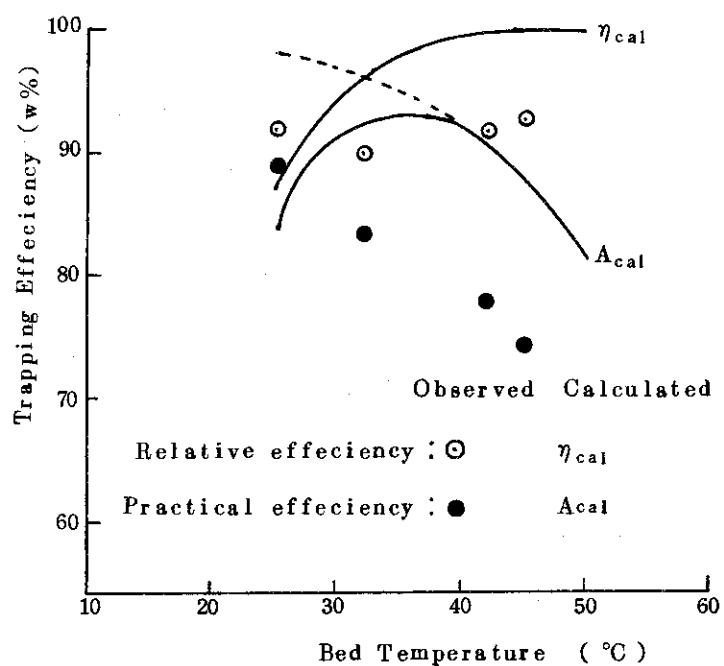


Fig. 7-3 Effect of Temperatate on Trapping Efficiency of Naphthalene in Batch Condensation by Fluidized Bed Cold Trap
(by J Ciborowski el al ref(7))

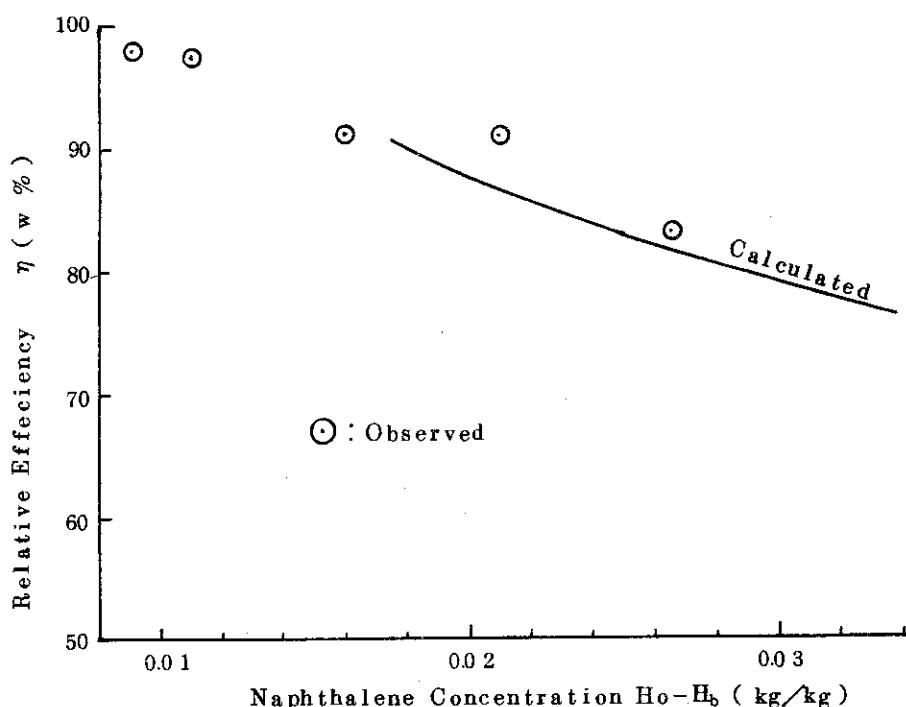


Fig. 7-4 Effect of Concentration on Trapping Efficiency of Naphthalene in Batch Condensation by Fluidized Bed Cold Trap
 (by J. Ciborowski et al ref(7))

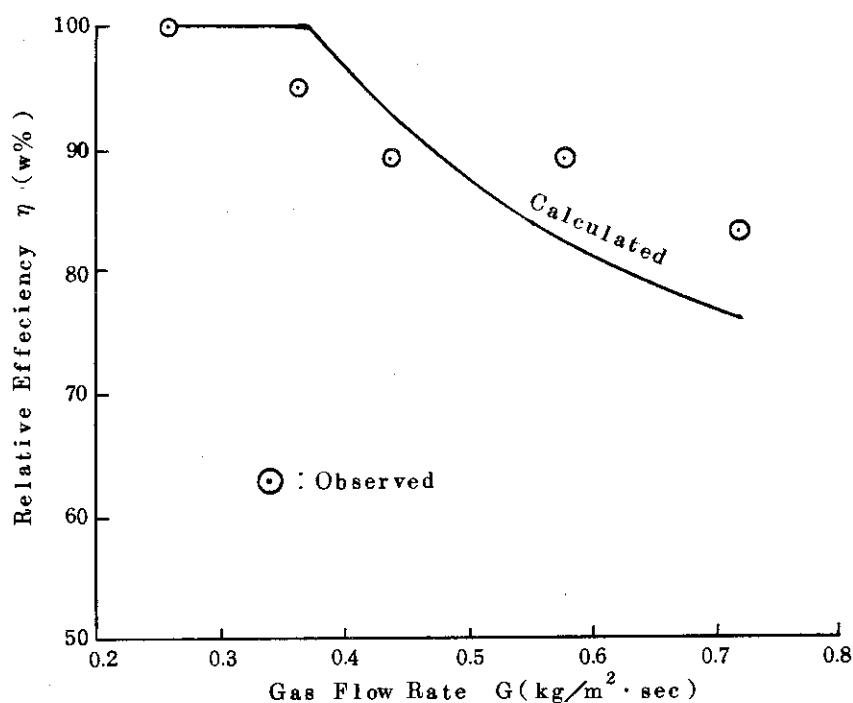


Fig. 7-5 Effect of Gas Flow Rate on Trapping Efficiency of Naphthalene in Batch Condensation by Fluidized Bed Cold Trap
 (by J. Ciborowski et al ref(7))

Table 7-2 Assumed conditions in Model Analysis for UF₆ Condensation under Uniform Bed Temperature Distribution

Parameter \ Item	Feed gas temperature T _{g,i} (°C)	Bed temperature T _{Bed} (°C)	UF ₆ concentration in feed gas C _i (vol %)	Gas flow rate (air) N _{Air} (Nℓ/min)	System pressure P _o (atm)	Particle diameter d _p (mm)	Mean gas velocity u (cm/sec)
feed gas temperature	15 30 60	100 30 -10	-60 3.0 3.0	3.3 3.3 3.3	1.42 1.42 1.42	0.175 0.175 0.175	15.9 15.5 16.0
bed temperature		-20 -30 -50 -60 -70					1.83 1.71 1.67 1.55 1.48
UF ₆ concentration	30	-60	0.1 1.0 3.0				15.9 15.7 15.5
gas flow rate	30	-60	3.0 3.0 3.0	1.5 2.5 3.3	1.42 1.42 1.42	0.175 0.175 0.175	7.4 7.4 7.4
system pressure	30	-60	3.0	3.3 3.3 3.3	2.0 3.0	0.175 0.175 0.175	1.21 1.11 1.11
particle diameter	30	-60	3.0	3.3	1.42 1.42 1.42	0.124 0.175 0.351	1.51 1.55 1.60

Table 7-3 Assumed Conditions in Model Analysis for UF₆
Condensation under Axially Distributed Bed
Temperature

Feed gas temperature T_{g_i} (°C)	UF ₆ concentration in feed gas C_i (vol %)	Gas flow rate G (Nℓ/min)	System pressure P_o (atm)	Particle diameter d_p (mm)
30	0.3	15	1.42	0.175
	1.0	25		
	3.0	30		

Table 7-4 Calculation Conditions for Axial Distribution
of Bed Temperature (in Model Analysis)

Temperature profile No (c.f. Fig. 7-12)	Bed temperature		Cooled wall temperature T_w (°C)	Temperature gradient at $z=0$ $k\lambda^*$ (°C/m)
	T_a ; at $z_a=0.25\text{m}$ (°C)	T_b ; at $z_b=0.85\text{m}$		
①	-50	-60	-72	29
②	-45			51
③	-40			79
④	-35			111
⑤	-30			148
⑥	-25			189
⑦	-20			234
⑧	-15			283
⑨	-10			336
⑩	-5			393

Note * Calculated by use of Eq. (2.56)

7.2.1 層内温度分布が無い場合

計算結果を Fig. 7-6~7-11 に示す。図中、(1)は供給 UF_6 量に対する全凝縮量の割合、(2)は同じく過熱ガス領域での凝縮量の割合、以下同様に(3)は飽和ガス領域での凝縮量の割合、(4)はミスト生成率を表わす。また(5)は飽和ガス領域での凝縮量に対するミスト量の割合である。

(1) 入口ガス温度の影響 (Fig. 7-6 参照)

全凝縮率(捕集率)(1)は、層内温度、 UF_6 濃度が一定であれば入口ガス温度には影響されない。しかし入口ガス温度の上昇は、過熱ガス領域での凝縮率(2)を大きくする。これに伴ないミスト生成率(4)が小さくなっている。この理由は、 UF_6 が気相から粒子表面に移動するためのポテンシャル(分圧の差)が入口ガス温度によらず一定であるのに対し、気相から粒子への熱移動についてはポテンシャルは大きくなるが顕熱量も大きくなるので、一定時間後に到達しうるガス温度はそれだけ高くなる。すなわち物質移動と熱移動の競合を見るならば入口ガス温度の上昇は、熱移動の負担を増大させることになるためと考えられる。したがって、過熱ガス領域が増大し、逆に飽和ガス領域が減少することになり、結局ミスト生成率は小さくなる。

(2) 層内温度の影響 (Fig. 7-7 参照)

層内温度は凝縮特性に大きく影響する。層内温度が高くなるにつれて全凝縮率(1)は急激に下るが、過熱ガス領域での凝縮率(2)は逆に増大しある温度以上(図では-8°C付近)になると飽和ガス領域が存在しなくなる。この特性は、ミスト生成量を低減化する上で重要である。

(3) UF_6 濃度の影響 (Fig. 7-8 参照)

UF_6 濃度の増大について全凝縮率(1)、飽和ガス領域での凝縮率(3)、ミスト生成率(4)がいずれも大きくなり、相対的に過熱ガス領域での凝縮率(2)が小さくなる。これは、前項の入口ガス温度の影響と逆の理由による。

(4) ガス流速の影響 (Fig. 7-9 参照)

ガス流速は、温度分布が無い条件では凝縮特性に大きく影響しない。この理由は、ガス流速の増大は単に流動層の空隙率の増加をもたらすだけであり、この効果は熱および物質の移動には々等価に影響するので特性上大きく現われない、ことによる。

(5) 系内圧の影響 (Fig. 7-10 参照)

系内圧の影響は、ガス密度などの物性に及ぶが結果としては小さいものとなっている。

(6) 粒子径の影響 (Fig. 7-11 参照)

粒子径は凝縮特性にほとんど影響を与えない。粒子径は、表面積、熱および物質の移動係数に関係するが、この効果は空隙率と同様は々等価に作用する。

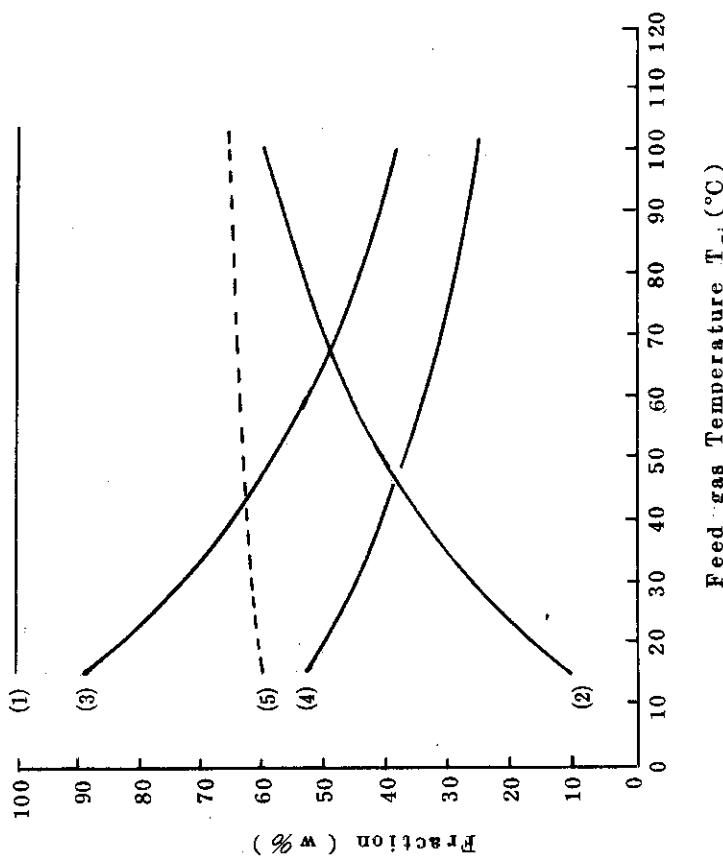


Fig. 7-6 Results of Model Analysis (1);
Effect of Feed Gas Temperature on
UF₆ Condensation under Uniform bed
Temperature Distribution ($T_{bed} = -60^\circ\text{C}$,
 $C = 3.0 \text{ vol\%}$, $G = 33 \text{ Nl/min}$, $P_0 = 1.42 \text{ atm}$,
 $d_p = 0.175 \text{ mm}$)

- (1) Fraction of Total UF₆ Condensed to Total Feed
- (2) Fraction of UF₆ Condensed in Heated zone to Total Feed
- (3) Fraction of UF₆ Condensed in Saturated zone to Total Feed
- (4) Mist Yield
- (5) Fraction of Mist to UF₆ Condensed in Saturated zone

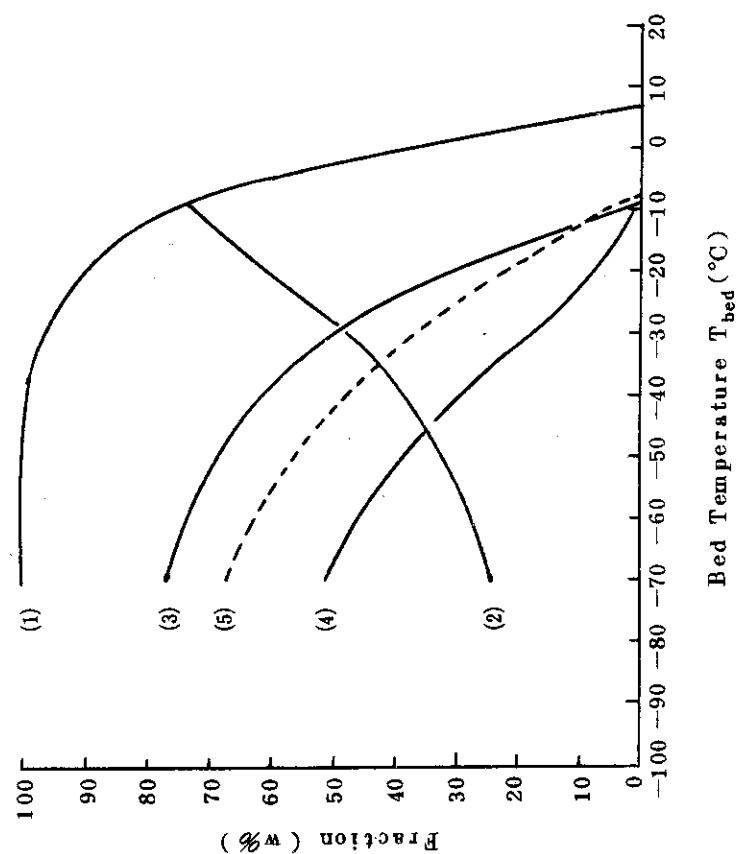


Fig. 7-7 Results of Model Analysis (2);
Effect of bed Temperature on UF₆
Condensation under Uniform
Temperature Distribution
($T_{gi} = 30^\circ\text{C}$, $C = 3.0 \text{ vol\%}$, $G = 33 \text{ Nl/min}$,
 $P_0 = 1.42 \text{ atm}$, $d_p = 0.175 \text{ mm}$),
Description on the line number
shown in Fig. 7-6

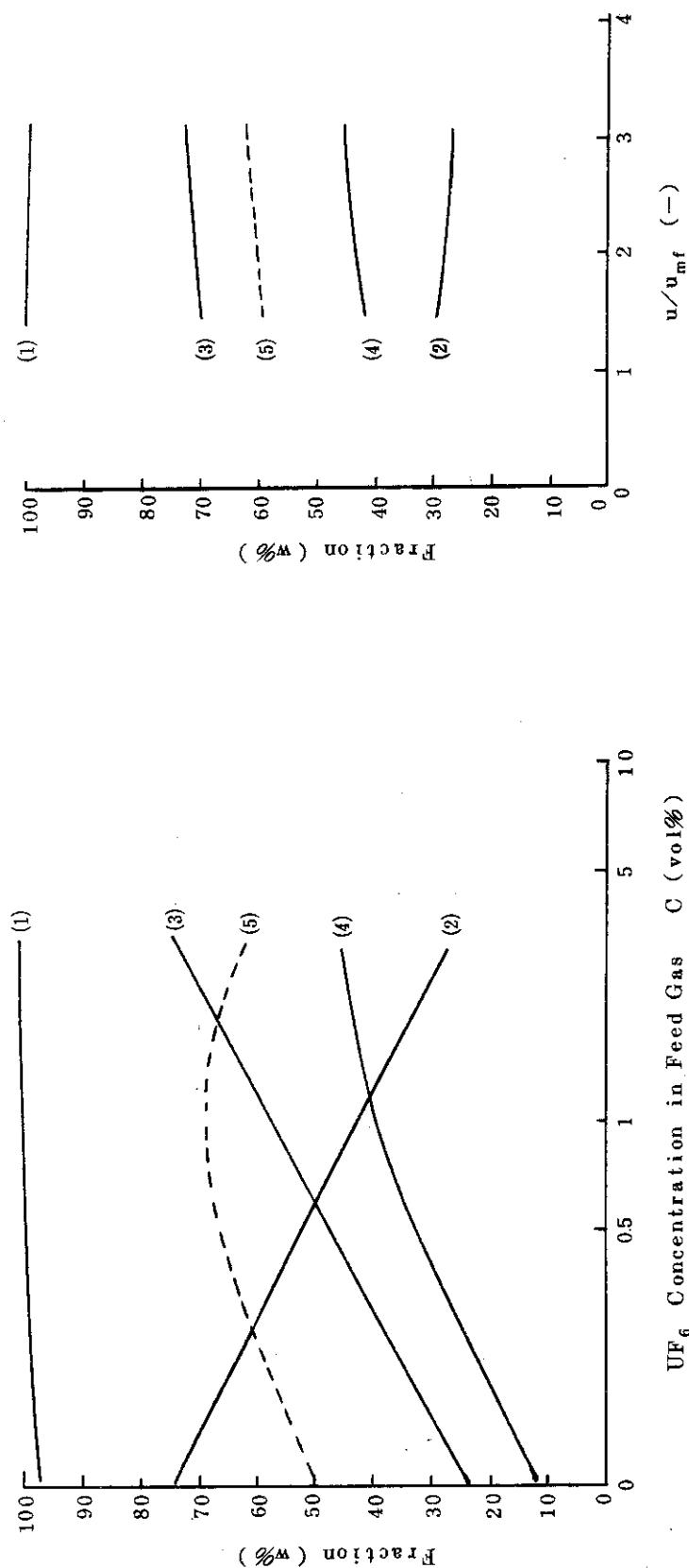


Fig. 7-8 Results of Model Analysis (3); Effect of Concentration on the Condensation under Uniform bed Temperature Distribution ($T_{gi} = 30^\circ\text{C}$, $T_{bed} = -60^\circ\text{C}$, $G = 33\text{N}\ell/\text{min}$, $P_o = 1.42\text{ atm}$, $d_p = 0.175\text{mm}$), Description on the line number shown in Fig. 7-6

Fig. 7-9 Results of Model Analysis (4); Effect of Condensor Gas Flow on UF₆ Condensation under Uniform bed Temperature Distribution ($T_{gi} = 30^\circ\text{C}$, $T_{bed} = -60^\circ\text{C}$, $C = 3.0\text{ vol\%}$, $P_o = 1.42\text{ atm}$, $d_p = 0.175\text{mm}$, $U_{mf} = 5\text{cm/sec}$ assumed), Description on the line number shown in Fig. 7-6

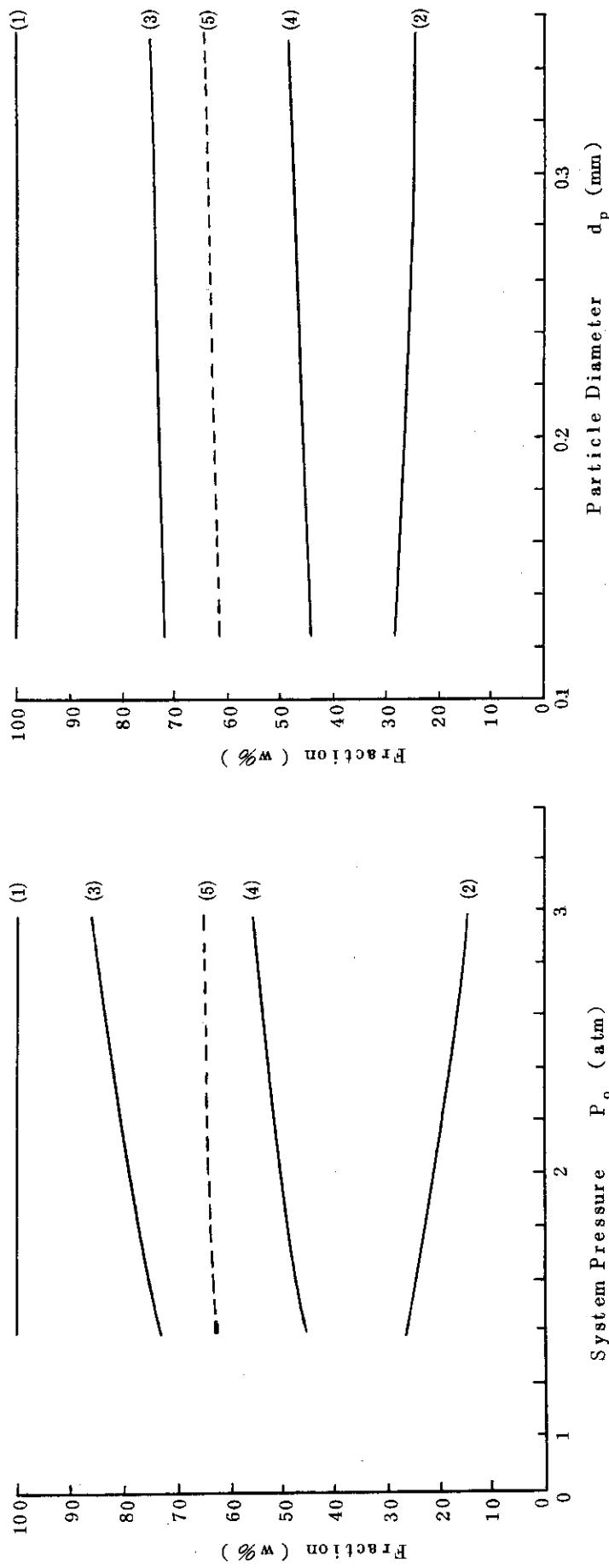


Fig. 7-10 Results of Model Analysis (5); Effect of System Pressure on UF_6 Condensation under Uniform bed Temperature Distribution ($T_{gi} = 30^\circ\text{C}$, $T_{bed} = -60^\circ\text{C}$, $C = 3.0 \text{ vol } \%$, $G = 33 \text{ Nl/min}$, $d_p = 0.175 \text{ mm}$), Description on the line number shown in Fig. 7-6

Fig. 7-11 Results of Model Analysis (6); Effect of Particle Diameter on UF_6 Condensation under Uniform bed Temperature Distribution ($T_{gi} = 30^\circ\text{C}$, $P_o = 1.42 \text{ atm}$), Description on the line number shown in Fig. 7-6

7.2.2 層内に温度分布が有る場合

層内温度分布の設定は、Table 7-4 に示す条件に基づいて行った。層軸方向の粒子温度 T_p と層高 l の関係を Fig. 7-12 に示す。図中、①～⑩は Table 7-4 の番号に相当する。

(1) 層内温度分布の影響

UF_6 濃度 0.3, 1.0, 3.0 vol % について計算した結果を Fig. 7-13～7-15 に示す。横軸の変数は Fig. 7-12 の層高 $l = 0$ における温度勾配 k_λ ($^{\circ}\text{C}/\text{m}$) である。 k_λ は、小さいほど流動層内が完全混合に近く、大きいほどピストン流に近づくことを意味する。

先ず、 UF_6 濃度 0.3 vol % (Fig. 7-13 参照) について考察する。第一の特徴は、各領域における凝縮率が温度勾配の変化に伴なって急激に変わり、 $k_\lambda = 50 \sim 110 \ ^{\circ}\text{C}/\text{m}$ にミスト生成率(4)の最小値が存在すること。第二は、 k_λ がさらに大きくなるとこの影響が見られなくなること。第三は、層内温度分布が無い場合に比べ飽和ガス領域におけるミストの割合(5)が小さく、そのために全体としてミスト生成率(4)も小さくなっていること、である。これらの特徴は、 UF_6 濃度が高くなても基本的には変わらない。

UF_6 濃度が高くなるにつれて、温度勾配 k_λ が大きい場合のミスト生成率(4)が低くなる。また過熱・飽和の各領域の凝縮率(2), (3)が接近してくる。しかし k_λ の小さい条件では、各領域の凝縮率が大きく変動し、ミスト生成率も次第に大きくなってくる。

(2) ガス流速の影響

これは、層内に温度分布が無い場合と影響と同程度である。Fig. 7-16 に UF_6 濃度に対するミスト生成率を、ガス流速をパラメーターとして示す。温度勾配 k_λ は前章 6 で述べた実験条件に近い $234 \ ^{\circ}\text{C}/\text{m}$ とした。

7.2.3 ケーススタディーのまとめ

流動層凝縮器におけるミスト生成率について、実験および計算結果を比較し、各因子の影響を Table 7-5 にまとめて示す。

層内温度分布の無い場合と有る場合との大きな差異は、入口ガス温度の効果が全く逆であること、有る場合の方がミスト生成率が小さいことである。

J. C. Bresee らの連続流動層によるヨー素の凝縮実験の結果³⁾では、濃度の影響が認められていない。この理由としては、層内に温度分布が形成される連続操作であり、そのためミスト生成率そのものが非常に小さいものであったためと推定される。また、J. Ciborowski らの結果では層内温度の影響が現われていない⁷⁾。これは、温度範囲が狭かったこととほとんどミストの発生しない条件で実験が行われていたためと考えられる。

一方、本実験では、アルミナ流量がミスト生成率に全く影響しない (Fig. 6-8 参照)。これは、温度勾配 k_λ がある値以上で凝縮特性に大きな変化が見られなくなることを前項 7.2.2 (1) に述べたが、実験時の k_λ がこの範囲に入っていたためと考えられる。

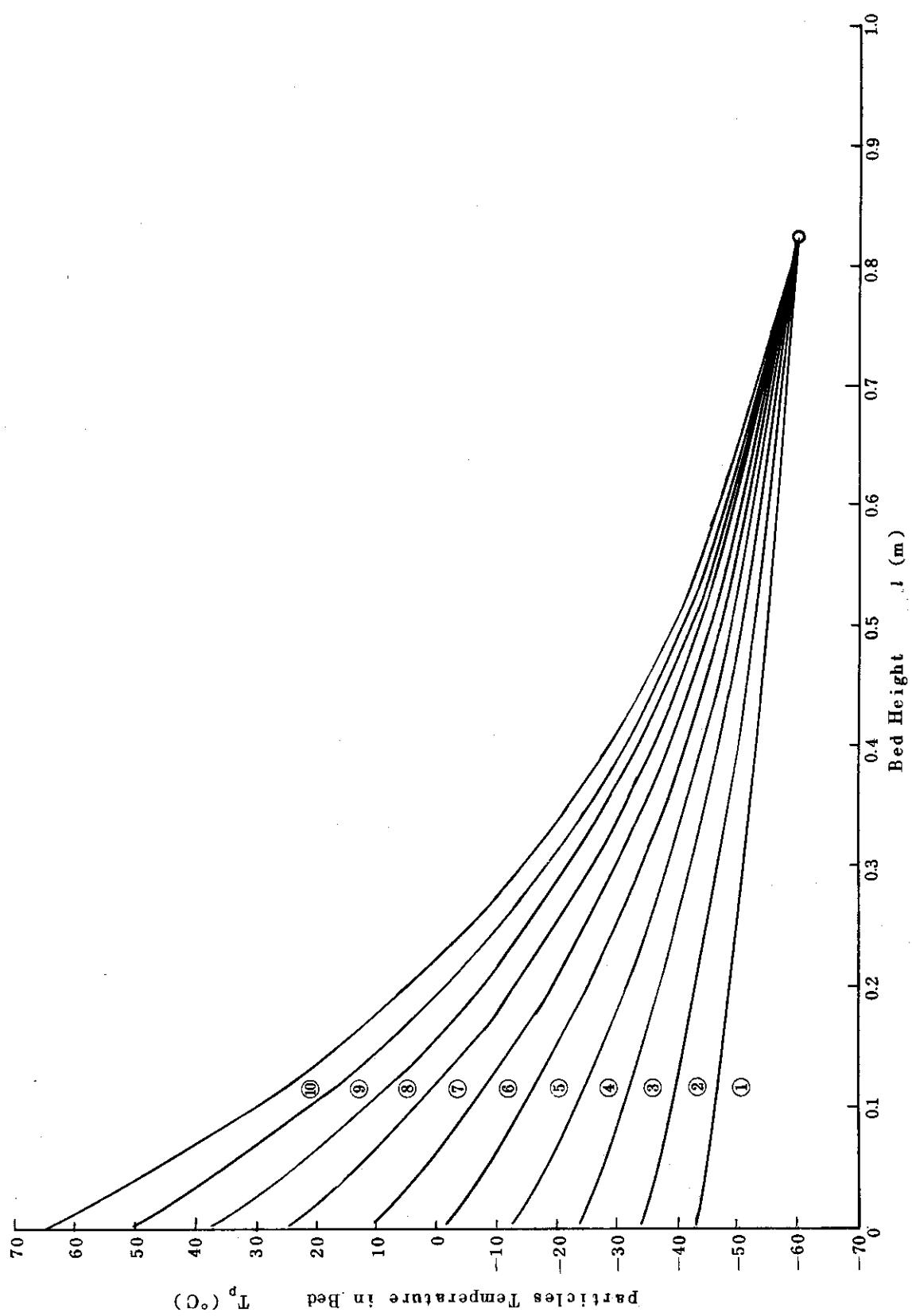


Fig. 7-12 Assumed Axial Distribution of Bed Temperature for Model Analysis

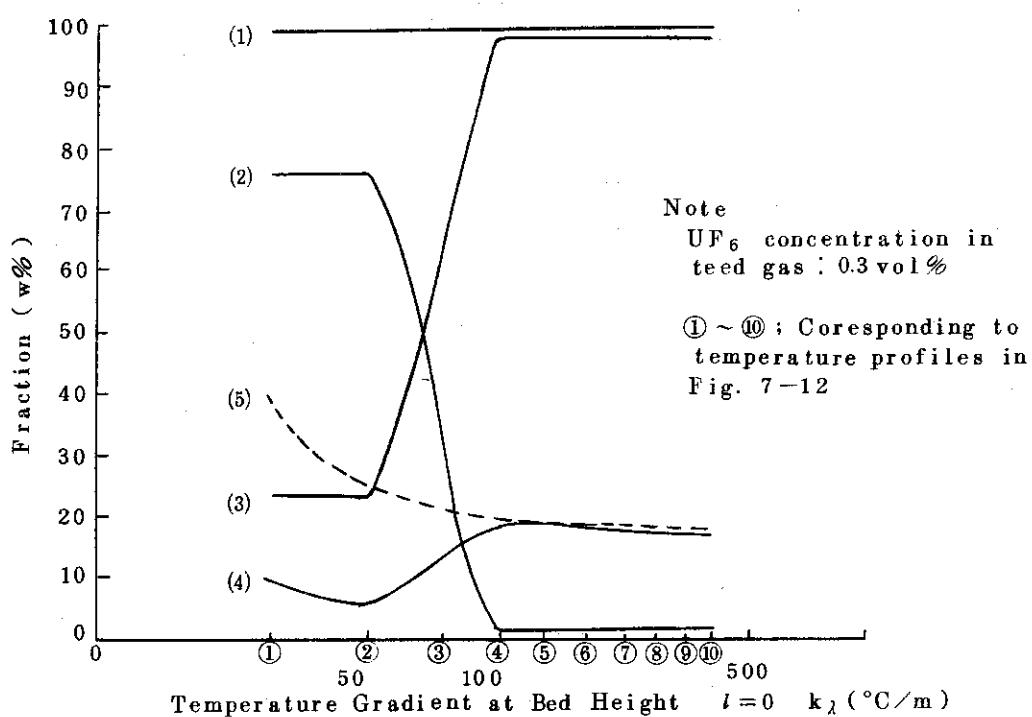


Fig. 7-13 Results of Model Analysis (7); Effect of In-bed Temperature Gradient on UF_6 Condensation under Axially Distributed Bed Temperature ($T_{gi} = 30^\circ\text{C}$, $G = 33 \text{ N}\ell/\text{min}$, $P_o = 1.42 \text{ atm}$, $d_p = 0.175 \text{ mm}$), Descriptions on the line number shown in Fig. 7-6

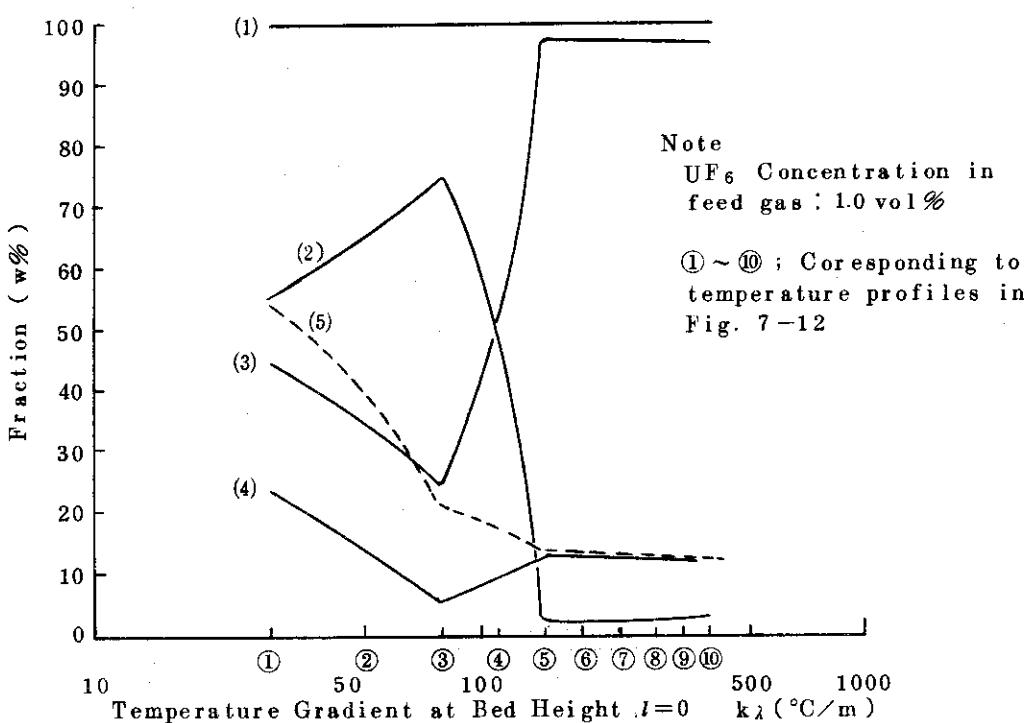


Fig. 7-14 Results of Model Analysis (8); Effect of In-bed Temperature Gradient on UF_6 Condensation under Axially Distributed Bed Temperature ($T_{gi} = 30^\circ\text{C}$, $G = 33 \text{ N}\ell/\text{min}$, $P_o = 1.42 \text{ atm}$, $d_p = 0.175 \text{ mm}$), Descriptions on the line number shown in Fig. 7-6

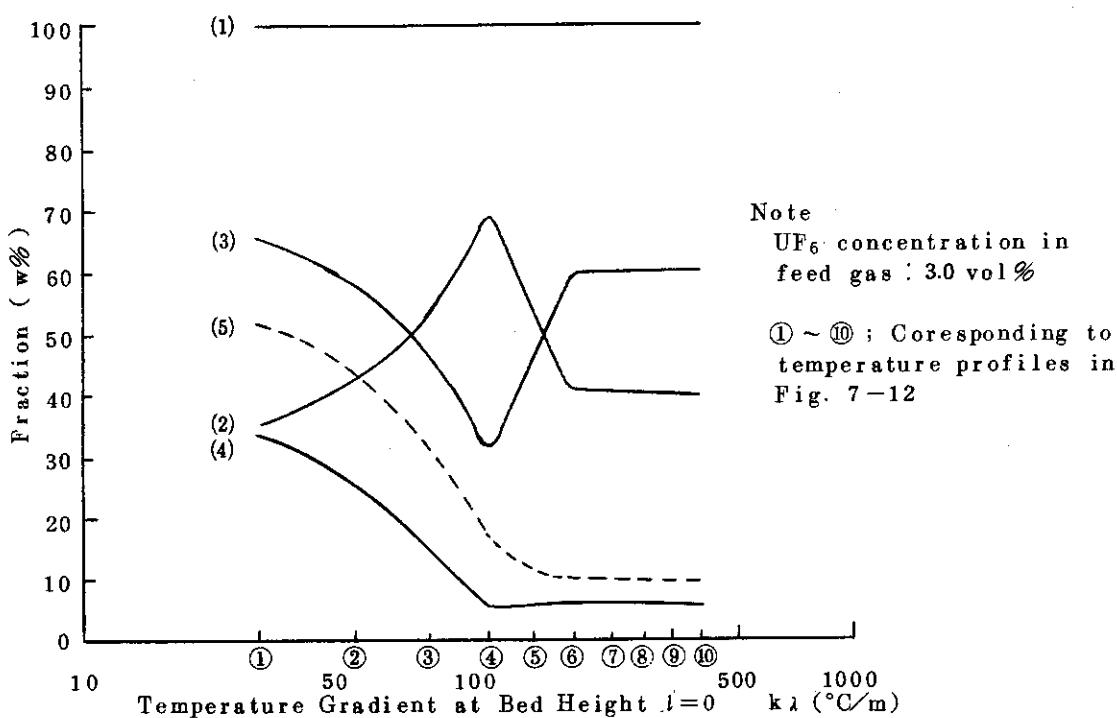


Fig. 7-15 Results of Model Analysis (9); Effect of In-bed Temperature Gradient on UF₆ Condensation under Axially Distributed Bed Temperature ($T_{gi} = 30^\circ\text{C}$, $G = 33 \text{ Nl/min}$, $P_0 = 1.42 \text{ atm}$, $d_p = 0.175 \text{ mm}$), Descriptions on the line number shown in Fig. 7-6

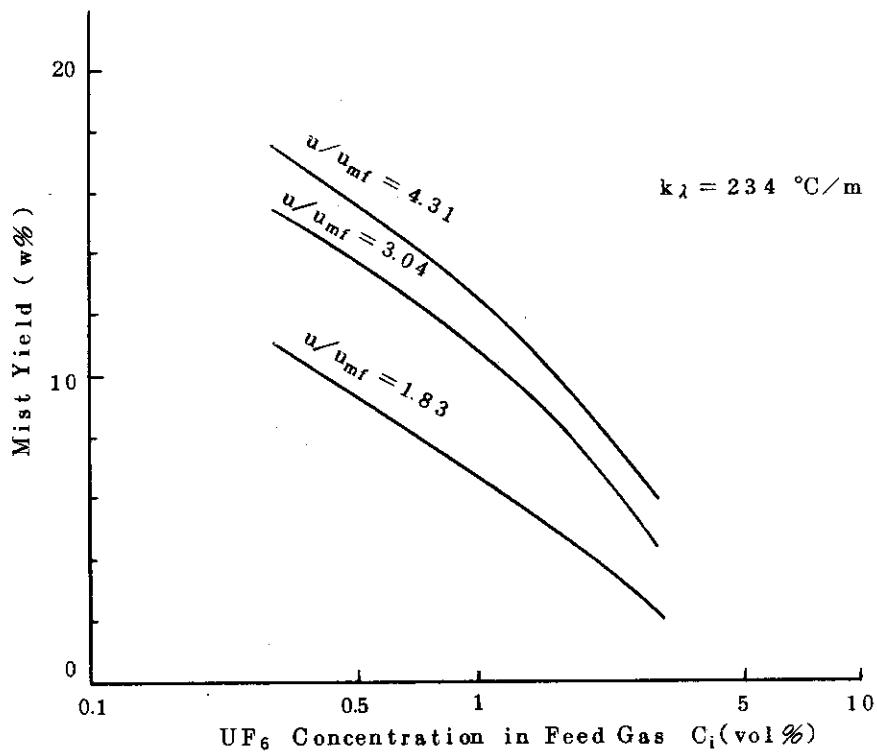


Fig. 7-16 Results of Model Analysis (10); Effect of UF₆ Concentration in Feed Gas and Gas Flow on Mist Formation under Axially Distributed Bed Temperature

Table 7-5 Comparison of Experimental Results with Calculated Ones on Mist Formation

+ : increasing with increasing the value of parameter
 - : decreasing with increasing the value of parameter

Authors	Typical condition	Bed temperature T_{g_i}	Bed temperature $T_{\text{bed or } k_A}$	Concentration in feed gas C_1	Gas flow rate G	System pressure P_o	Particle diameter d_p	Reference
J.C.Bresee et al (continuous operation)	gas; I_2-N_2 fluidized bed ; $1.5^{\phi} \text{ in} \times 30^{\text{H}}$ fluidizing medium ; glass beads $d_p = 0.00695^{\phi} \text{ in}$ $C_{I_2} = 1.1 \sim 9.4$ (no 1%) , $u = 0.21 \sim 0.6$ I_2 medium = 0.6 (w%)	—	—	no effect	no effect	—	—	3)
J. Ciborowski et al (batch operation)	gas:Naphthalene-air fluidized bed ; 50^{ϕ} mm fluidizing medium; Naphthalene particles $d_p = 0.16 \sim 1.10^{\phi}$ mm	—	—	no effect	+	—	—	no effect 7)
E.Yagi et al (continuous operation)	gas; UF_6 -air fluidized bed ; 50^{ϕ} mm fluidizing medium ; sintered Alumina particles $d_p = \sim 0.175^{\phi}$ mm $UF_6/Al_2O_3 = \text{max. } 0.07$	—	—	no effect	—	+	—	this work
Case in model analysis	bed temperature ; uniform axial distribution of bed temperature gas ; Naphthalene	—	—	—	+	+	—	—
	bed temperature ; uniform axial distribution of bed temperature gas ; UF_6 -air	—	—	—	++	+	—	+
	bed temperature ; axially distributed bed temperature gas ; UF_6 -air	—	—	(temperature) gradient	—	—	—	—

7.3 連続流動層凝縮器の最適化

凝縮特性とくにミスト生成率について実験およびモデルにより各因子の効果を検討してきた。これを基に、ミスト生成率を最小とする操作方式および操作因子について考察する。

ミストは飽和ガス領域で発生するので、基本的にはこの領域の存在しない、つまり過熱ガス領域のみで凝縮が進行する条件を選定することが望ましい。ここで重要な因子は、入口ガスの温度、濃度および層内温度である。

この条件を満す1つの方法として、各層内温度が順次低くなっているような多段流動層を考え、各層を通過したガスを再加熱により温度を高めたのち次の層に供給し、再び凝縮を行わせることが考えられる。このことはFig. 7-7において、全凝縮率(1)だけが存在し他の(3)~(5)の現われる直前の層内温度（例えば； $7.5^{\circ}\text{C} \rightarrow -8^{\circ}\text{C}$ ）で凝縮を行い、これと同様の操作を繰返すことには外ならない。

実験で行ったような層内の温度分布を与える方式でも類似の効果は期待できる。いずれの場合でも、凝縮成分の蒸気圧曲線と他の操作条件とから適切な温度分布を選定することが重要となろう。

入口ガス温度はできるだけ高い方が好ましい。

ガス流速はミスト生成率に対する効果が小さいので、流動化に伴なり粒子同志の衝突で起る剝離や微粉末の吹上げなどの問題から決められるべきであろう。

系内圧については、ミストの生成率に関するかぎりほとんど考慮する必要はないと思われる。

粒子径は、移送などの粉体取扱いや飛出しなどから決められるべきものと考えられる。

8. 結 論

二基の流動層（2インチ径）からなる連続凝縮・連続揮発操作の凝縮器（コールドトラップ）特性を、UF₆ を用いた実験およびモデル解析により明らかにした。

連続流動層によるUF₆ の凝縮実験では、捕集率99%以上が達成され、凝縮固相の滞留時間として15分以内、また操作限界についてはUF₆/Al₂O₃ 比としては0.07、という特性が把握され、このような連続凝縮法が技術的に可能であることを具体的に示し、フッ化物揮発法工程装置としても適用し得ることを確認した。

また均一相流動相モデルによる単純な凝縮モデルを導びき、このモデルにより重要な凝縮特性の1つであるミスト生成率の実験結果を良く説明できることを確めた。モデル解析により、ミスト生成に対して入口ガスの温度、濃度および流動層の軸方向温度分布が大きく影響することを明らかにするとともに、ミスト生成率が極小となる最適な温度分布の存在することを示した。

凝縮器下部から流動媒体粒子（アルミナ）を供給する方式は、入口部でのUF₆ 凝縮による閉塞を防止するとともに、ミスト低減化に有効な温度分布を形成させる意味で非常に重要であることを、実験およびモデルの両面から明らかにした。

しかし、流動層型連続凝縮器をフッ化物揮発法再処理の精製工程に適用するには、安定な粉体循環系の確立と凝縮器冷却壁面への揮発性フッ化物の付着防止対策が必要である。

謝 辞

本実験を行うにあたり、装置の製作・改造、分析系装備などに關し 辻野 肇氏、西村允宏両氏を始めとする再処理研究室室員諸氏より種々の有益な助言を載いた。また原子炉化学部フッ素化学研究室大和田謙氏からはUF₆ 中HF分析のため赤外分析装置の貸与と測定法の指導を、元ウラン濃縮研究室（現再処理研究室）成瀬雄二氏からは実験用試料であるUF₆ の提供を受けた。さらに本報告書をまとめるにあたり、燃料工学部 下川純一氏の閲読を受け多くの有益な助言を載いた。以上の諸氏に深い謝意を表する。

8. 結 論

二基の流動層（2インチ径）からなる連続凝縮・連続揮発操作の凝縮器（コールドトラップ）特性を、UF₆ を用いた実験およびモデル解析により明らかにした。

連続流動層によるUF₆ の凝縮実験では、捕集率99%以上が達成され、凝縮固相の滞留時間として15分以内、また操作限界についてはUF₆/Al₂O₃ 比として±0.07、という特性が把握され、このような連続凝縮法が技術的に可能であることを具体的に示し、フッ化物揮発法工程装置としても適用し得ることを確認した。

また均一相流動相モデルによる単純な凝縮モデルを導びき、このモデルにより重要な凝縮特性の1つであるミスト生成率の実験結果を良く説明できることを確めた。モデル解析により、ミスト生成に対して入口ガスの温度、濃度および流動層の軸方向温度分布が大きく影響することを明らかにするとともに、ミスト生成率が極小となる最適な温度分布の存在することを示した。

凝縮器下部から流動媒体粒子（アルミナ）を供給する方式は、入口部でのUF₆ 凝縮による閉塞を防止するとともに、ミスト低減化に有効な温度分布を形成させる意味で非常に重要であることを、実験およびモデルの両面から明らかにした。

しかし、流動層型連続凝縮器をフッ化物揮発法再処理の精製工程に適用するには、安定な粉体循環系の確立と凝縮器冷却壁面への揮発性フッ化物の付着防止対策が必要である。

謝 辞

本実験を行うにあたり、装置の製作・改造、分析系装備などに關し 辻野毅氏、西村允宏両氏を始めとする再処理研究室室員諸氏より種々の有益な助言を載いた。また原子炉化学部フッ素化学研究室大和田謙氏からはUF₆ 中HF分析のため赤外分析装置の貸与と測定法の指導を、元ウラン濃縮研究室（現再処理研究室）成瀬雄二氏からは実験用試料であるUF₆ の提供を受けた。さらに本報告書をまとめるにあたり、燃料工学部 下川純一氏の閲読を受け多くの有益な助言を載いた。以上の諸氏に深い謝意を表する。

Symbols

A_t	(m^2)	:	cross-sectional area of bed
a	(m^2/m)	:	surface of particles per unit height of bed
C_g	(kcal/mol·deg)	:	specific heat of noncondensable gas
C_{gm}	(kcal/mol·deg)	:	mean specific heat of gas in stream
C_p	(kcal/mol·deg)	:	specific heat of particle
C_v	(kcal/mol·deg)	:	specific heat of condensable gas
\bar{C}_s	(mol/ m^3)	:	mean concentration of mist in the bed
D	(m^2/h)	:	axial dispersion coefficient of particle
D_t	(m)	:	bed diameter
D_v	(m^2/h)	:	diffusion coefficient of condensable gas
d_p	(m)	:	particle diameter
F_p	(kg/h)	:	feed rate of particles
G	(mol/h)	:	feed rate of inert gas
G_{mf}	(mol/h)	:	feed rate of noncondensable gas at minimum fluidizing conditions
h_p	(kcal/ $m^2 \cdot h \cdot deg$)	:	heat transfer coefficient between fluid and particle
h_w	(kcal/ $m^2 \cdot h \cdot deg$)	:	heat transfer coefficient between bed and wall
k_{BE}	($\frac{mol}{h} / m^3 - bed$)	:	coefficient of gas interchange between bubble and emulsion phase
k_e	(kcal/ $m \cdot h \cdot deg$)	:	effective thermal conductivity of bed
k_{gm}	(kcal/ $m \cdot h \cdot deg$)	:	thermal conductivity of gas in stream
k_p	(mol/ $m^2 \cdot h \cdot atm$)	:	mass transfer coefficient of condensable gas
L	(mol/ $m^2 \cdot h$)	:	total rate of condensation per unit surface area of particle
L_1	(mol/ $m^2 \cdot h$)	:	rate of condensation per unit surface area of particle, based on mass transfer

JAERI-M 7064

l	(m)	: bed height
l_c	(m)	: bed height at cooling jacket base of condenser
l_o	(m)	: bed height at overflow position of condenser
l_1	(m)	: bed height of super heated zone
l_2	(m)	: bed height of saturated zone
M_{gm}		: mean molecular weight of gas in stream
M_p		: molecular weight of particle
M_v		: molecular weight of condensable gas
Nu	(—)	: Nusselt number for gas - particle heat transfer
P	(atm)	: partial pressure of condensable gas in stream
P_{gf}	(atm)	: logarithmic mean partial pressure of noncondensable gas
P_o	(atm)	: total pressure
P_p	(atm)	: partial pressure of condensable gas at particle surface
R	(kcal/mol · °K)	: gas constant
Re	(—)	: particle Reynolds number
Sh	(—)	: Sherwood number
T_g	(°C , °K)	: temperature of gas
T_{gB}	(°C , °K)	: temperature of gas in the bubble
T_{gE}	(°C , °K)	: temperature of gas in the emulsion
T_{gi}	(°C , °K)	: temperature of feed gas to the condenser
T_{gs}	(°C , °K)	: saturation temperature
T_i	(°C , °K)	: temperature of feed gas and particle to the condenser
T_o	(°C , °K)	: temperature of bed at overflow position
T_p	(°C , °K)	: temperature of particle
T_{pi}	(°C , °K)	: temperature of feed particle
T_w	(°C , °K)	: temperature of heat exchanger surface of condenser
u_g	(cm/sec)	: upward velocity of gas

JAERI-M 7064

u_p	(cm/sec)	: upward velocity of particles
V	(m ³)	: volume of bed
X	(mol/mol)	: mole ratio of condensed solid to fluidized bed medium particles
Y	(mol/mol)	: mole ratio of condensable gas to noncondensable gas
Y_B	(mol/mol)	: mole ratio of condensable gas to noncondensable gas in the bubble
Y_E	(mol/mol)	: mole ratio of condensable gas to noncondensable gas in the Emulsion
Y_i	(mol/mol)	: mole ratio of condensable gas to noncondensable gas in inlet gas
Y_o	(mol/mol)	: mol ratio of condensable gas to noncondensable gas in outlet gas
Y_{so}	(mol/mol)	: mole ratio of condensable gas to noncondensable gas in outlet gas at saturation temperature
α	(—)	: mist fraction at bed height z
α'	(—)	: mist yield
α'_o	(—)	: theoretical mist yield
β	(—)	: ratio of partial pressure of condensable gas to total pressure at particle surface
δ	(—)	: ratio of mist elutriation rate to mist formation rate
ε_f	(—)	: void fraction in a bubbling bed
η	(—)	: cold trapping efficiency of condenser
θ	(min, h)	: operating time
κ	(1/h)	: elutriation constant of mist
λ	(kcal/mol)	: latent heat of sublimation of condensable gas
ρ_{gm}	(kg/m ³)	: mean density of gas in stream
ρ_p	(kg/m ³)	: particle density
ρ_v	(kg/m ³)	: density of condensable gas
ϕ	(mol/mol)	: mole ratio of mist to noncondensable gas
ϕ_B	(mol/mol)	: mole ratio of mist to noncondensable gas in the bubble

JAERI-M 7064

ϕ_E (mol/mol) : mole ratio of mist to noncondensable
gas in the emulsion

ϕ_s (—) : sphericity of a particle

References

- 1) Levitz, N.M. et al ; ANL-7583(1968)
- 2) Kawamura ; Chemical Engineering , p.55-63. (Jan. 1968)
- 3) Bresee, J.C. and Larson , P.R. ; I. & E.C. vol.49 , № 9, p. 1349 - 1354 (1957)
- 4) Thompson, W.I. ; " Theory of Heat and mass Transfer in Batch Condensation of Solids ", Chapter 6. " Engineering Developments in the Gaseous Diffusion Process " (1949)
- 5) Richardson, J.F. and Szekely, J. ; Trans. Inst. Chem. Engrs., vol. 39, p.212 (1961)
- 6) Kunii, D. and Levenspiel, O. ; " Fluidization Engineering ", John Wiley & Sons (1969)
- 7) Ciborowski, J. and Wron'ski , S. ; Chem. Eng. Sci., vol. 17 , p. 481~489 (1962)
- 8) 八木英二ら ; " ウランフッ素化実験装置の概要 ", JAERI-M-6487(1976)
- 9) 再処理研究室 ; " 工学規模流動層による酸化ウランのフッ素化 ", JAERI-M-6664(1976)
- 10) 鏡ら ; " 粉体流量計の開発 ", 化学工学論文集 , vol. 1, № 3, p.327-329(1975)
- 11) Tsujino , T. et al. ; J. Nucl. Sci. Tech. vol.10, p.118(1973)
- 12) Jhon, D. and William J. Mecham ; " Engineering Development of Fluidized Bed Fluolide Volatility Processes. Part 4. Fluidized-Packed Beds ; Studies of Heat Transfer, Solid - Gas Mixing, and Elutriation, " ANL-6859(1965)
- 13) Dewitt, R. ; GAT-280(1960)
- 14) 大和田ら ; 日本原子力学会誌 , vol. 17, № 2, p.77-80(1975)
- 15) Hovemad, S. and Daridson, J.F. ; Trans. Instn. Chem. Engrs., vol.146, p.190 (1968)
- 16) Perry, J.H. ; " Chemical Engineers' Handbook ", Fourth Edition, McGraw - Hill (1963)
- 17) 化学工学協会編 ; " 化学工学便覧 ", 丸善(1958)
- 18) Dunthorom, D.I. ; " The Design of Batch Desublimers " K-L-6220(1968)
- 19) 再処理研究室 ; " フッ化物揮発法再処理プラント予備概念設計(1974)(所内資料)
- 20) 鏡ら ; " 流動層型連続凝縮器のための粉体循環系の開発 ", 公開予定(1977)

A 1 装置規模の予備検討

A 1.1 アルミナ循環および冷却熱量

- (1) 塔径は流動層の最小径と見られる $50 \frac{\phi}{\text{mm}}$ とする。
- (2) 凝縮塔の操作条件を Table A 1-1 のように仮定する。A はウランフッ素化、B はブルトニウムのフッ素化に相当する。
- (3) アルミナ循環量 (F_p)

$$F_p = \left(\frac{u \cdot A_t \times 10^4}{22.4 \times 10^3} \right) \left(\frac{Y \cdot M_v}{\omega} \right) \left(\frac{273}{T_0} \right)$$

$$= 7.9 \frac{Y}{\omega} (\text{g/sec}) = 0.28 \frac{Y}{\omega} (\text{kg-mol/h}) \quad (\text{A1.1})$$

A, B について、 ω を 0.01, 0.1 と仮定したときの循環速度を Table A 1-2 に示す。

(4) 除熱量 (Q_c)

$$C_p = 22.08 + 0.008971 \cdot T - 522.500/T^2 \quad (\text{cal/mol.deg})^{16)} \quad (\text{A1.2})$$

$$C_{O_2} = 8.27 + 0.000258 \cdot T - 187.700/T^2 \quad (\text{cal/mol.deg})^{16)} \quad (\text{A1.3})$$

$$C_v = 32.43 + 0.007936 \cdot T - 320.680/T^2 \quad (\text{cal/mol.deg})^{13)} \quad (\text{A1.4})$$

$$\lambda = -1.405 + 52.512 \cdot T - 0.076822 \cdot T^2 + 1368.600/T \quad (\text{cal/mol})^{13)} \quad (\text{A1.5})$$

$$= 12.75 \quad (\text{kcal/mol at } 60^\circ\text{C}) \quad (\text{A1.5})$$

$$G = \left(\frac{u \cdot A_t \times 10^4}{22.4 \times 10^3} \right) \left(\frac{273}{T_0} \right) = 0.0224 \quad (\text{mol/sec})$$

$$= 8.06 \quad (\text{mol/h}) \quad (\text{A1.6})$$

$$Q_{Al_2O_3} = F_p \int_{T_0}^{T_i} C_p dT = 1 \times 10^3 \frac{Y}{\omega} \quad (\text{kcal/h}) \quad (\text{A1.7})$$

$$Q_{O_2} = 0.08(1-Y) \int_{T_0}^{T_i} C_{O_2} dT$$

$$= 9.3(1-Y) \quad (\text{kcal/h}) \quad (\text{A1.8})$$

$$Q_{UF_6} = 0.08 \int_{T_0}^{T_i} C_v dT = 3.9 \times 10^2 Y \quad (\text{kcal/h}) \quad (\text{A1.9})$$

$$Q_{SUB} = (12.75)(80 Y) = 1 \times 10^3 Y \quad (\text{kcal/h}) \quad (\text{A1.10})$$

$$\begin{aligned}
 Q_c &= Q_{A_1 O_3} + Q_{O_2} + Q_{UF_6} + Q_{SUB} \\
 &= 93 + (1,300 + \frac{1,000}{\omega}) \cdot Y \quad (\text{kcal/h}) \tag{A1.11}
 \end{aligned}$$

Fig. A1-1 に条件 A, B に応する Q_c と ω の関係を示した。 ω が 0.1 以下では Q_c は ω にほぼ反比例する。

(5) 塔高 (l)

$$l = \frac{1}{\pi \cdot D_1} \cdot \frac{Q_c}{U \cdot \Delta t} \tag{A1.12}$$

今, $U = h_w = 150 \text{ (kcal/m \cdot h \cdot }^{\circ}\text{C)}$ とすると

$$\Delta t = \frac{\{80 - (-70)\} - \{-60 - (-65)\}}{\ln(\frac{150}{5})} = 42 \text{ (}^{\circ}\text{C)}$$

$$l = \frac{1}{(3.14)(0.05)} \cdot \frac{Q_c}{(150)(42)} = 0.001 \cdot Q_c \text{ (m)} \tag{A1.13}$$

条件 A, B に対する l の計算例を Table A1-3 に示す。

条件 A では, 所要 l/D_1 は著しく大きくなり非現実的である。そこで, 条件 A を想定するときは, アルミナの予冷器が必要となる。

(6) 冷却熱量

塔高をフード内での実験操作を想定して 1.2 m とする。 l と Q_c の関係式から

$$Q_c = 1,200 \text{ (kcal/h)} = 1.4 \text{ (KW)}$$

冷媒にトリクロレンを使うとして, その循環量 (F_T) は

$$\begin{aligned}
 F_T &= \frac{Q_c}{C_p \cdot \Delta t} = \frac{1,200}{(0.221)(5)} = 1,100 \text{ (kg/h)} \\
 &= 750 \text{ (l/h)} \\
 \text{但し } C_p &= 0.223 \text{ (cal/g \cdot deg) at } 200({}^{\circ}\text{K})^{16)} \tag{A1.14}
 \end{aligned}$$

$$S_p \cdot gr = 1.446^{16)} \tag{A1.15}$$

ドライアイス消費量は, 熱損失を無視して

$$\begin{aligned}
 W_{CO_2} &= 0.75 + 1.4 = 2.15 \text{ (KW)} \\
 &= 1,600 \text{ (kcal/h)} \\
 &= 25 \text{ (kg/h)}
 \end{aligned}$$

$$\text{但し } \lambda_{SUB, CO_2} = 65.3 \text{ (kcal/kg) at } -15 {}^{\circ}\text{C}^{17)} \tag{A1.16}$$

A 1.2 予備検討の結果

予備検討の結果をまとめると以下の通りである。

(1) 凝縮器

構 造	； 1段流動層，外部冷却ジャケット付
寸 法	； $50\phi\text{ mm} \times 1,200\text{ H mm}$
アルミナ循環量	； 36 kg/h 以下
トリクレン循環量	； 13 l/min
ドライアイス消費量	； 25 kg/h (正味)

(2) 振発器

構 造	； 1段流動層，外部電熱ヒーター取付け
寸法，アルミナ循環量	； 凝縮器と同じ
加熱器容量	； 1.4 KW (正味)

JAERI-M 7064

Table A1-1 Assumed Operating Conditions for Design of
Continuous Cold Trap system of Fluidized Beds

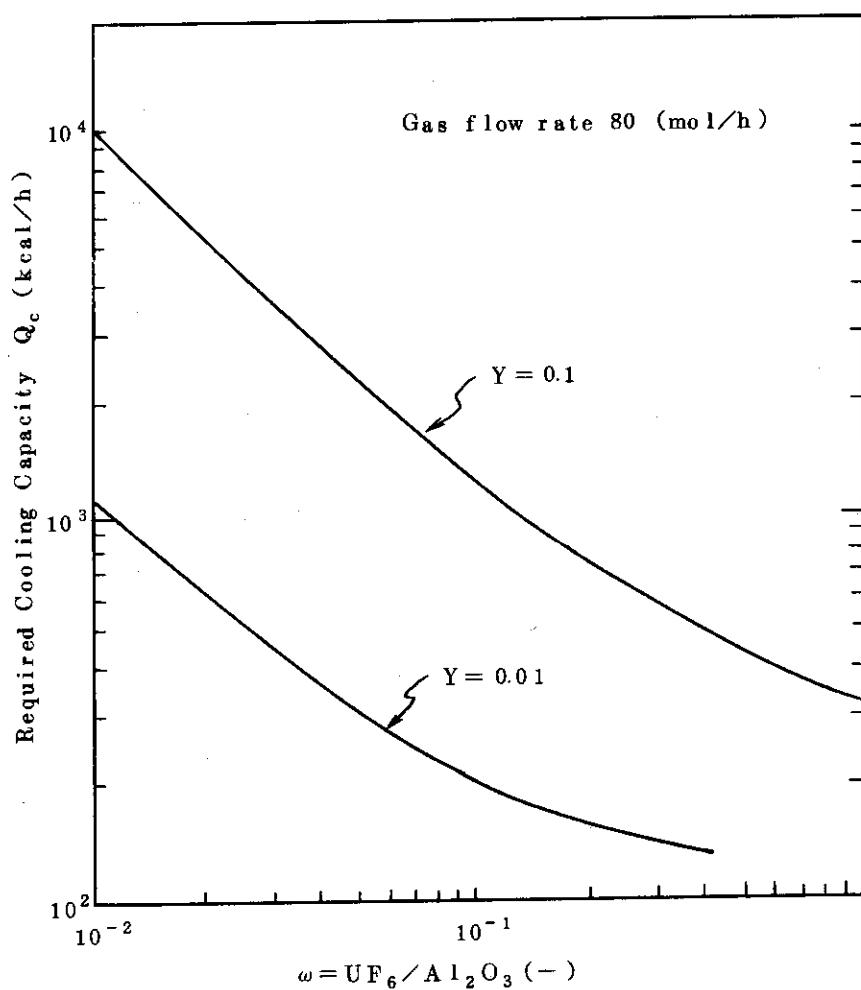
Conditions	Cold Trap	
	A, (UF_6)	B, ($P_u F_6$)
Diameter (cm), D_t	5	5
Gas velocity (cm/sec), u	20	20
Concentration in feed gas (molar ratio), Y	$UF_6 : 0.1$ $O_2 : 0.9$	$P_u F_6 : 0.01$ $F_2 : 0.99$
Temperature		
inlet (°C), T_i	80	80
outlet (°C), T_o	-60	-60
Heat transfer coefficient (kcal/m ² ·h·deg), h_w	150	150
UF_6/Al_2O_3 ratio (-), ω	0.01~0.1	0.01~0.1

Table A1-2 Circulation Rate of Alumina Powder

	Concentration in gas Y(molar ratio)	UF_6/Al_2O_3 ratio ω (-)	Circulation rate F_p (g/sec)
A (UF_6)	0.1	0.01	7.9
		0.1	7.9
B ($P_u F_6$)	0.01	0.01	7.9
		0.1	0.79

Table A1-3 $\text{UF}_6/\text{Al}_2\text{O}_3$ Ratio and Required Bed Height

Cold Trap	Concentration in gas Y(molar ratio)	$\text{UF}_6/\text{Al}_2\text{O}_3$ ratio $\omega (-)$	Required bed height H (m)
A (UF_6)	0.1	0.01	1.0
		0.1	1.2
B (P_uF_6)	0.01	0.01	1.1
		0.1	0.2

Fig. A1-1 Effect of $\text{UF}_6/\text{Al}_2\text{O}_3$ Ratio on Cooling Capacity in Continuous Cold Trap System by Fluidized Beds

A 2 モデル 1 のデータ解析への応用

A 2.1 捕集効率

凝縮器の流動層部を出たガスは、一般に回分操作では流動媒体の温度 T_p と同一と見なすことができ、かつ、この温度に相当する飽和濃度を越えるガスが供給されると多くの場合ミストが生成しガス中に同伴される。

今、実験で得られる全層における見掛けのミスト生成率を α' とすると、壁面への付着を無視すれば

$$\alpha' = \frac{Y_o - Y_{so}}{Y_i - Y_{so}} \quad (A2.1)$$

また捕集効率 η は

$$\eta = \frac{Y_i - Y_o}{Y_i - Y_{so}} = 1 - \alpha' \quad (A2.2)$$

と表わされる。ここで、 Y_i は入口ガス中の凝縮成分濃度、 Y_o は流動部を出るガス中の凝縮成分濃度、 Y_{so} は層温度 T_p に相当する飽和濃度である。

この見掛けのミスト生成率 α' は、生成したミストがガスに同伴し層外に出る割合（同伴率） δ とミスト分率 α により次式のように表わされる。

$$\begin{aligned} \alpha' &= \left\{ \frac{1}{Y_i - Y_{so}} \int_{Y_i}^{Y_{so}} -\alpha \cdot dY \right\} \cdot \delta \\ &= \alpha'_o \cdot \delta \end{aligned} \quad (A2.3)$$

ここで、 α'_o はミスト生成率の理論値である。回分操作では、層内に生成したミストは層からの飛出しとして層外へ運ばれると考えると、同伴率 δ は時間的に変化する値である。したがって δ は次のように表わすことができる。

$$\delta = \frac{\kappa \cdot \bar{C}_s \cdot V}{\alpha'_o \cdot G \cdot (Y_i - Y_{so})} \quad (A2.4)$$

ここで、 κ はミストの飛出係数 ($1/h$)、 \bar{C}_s は層内のミスト濃度 (mol/m^3)、 G は非凝縮性ガスの流量 (mol/h) である。ここで、層内のミスト量の時間変化は、流動層体積を V (m^3)、時間を θ (h) とすれば

$$V \cdot \frac{dC_s}{d\theta} = \alpha'_o \cdot G \cdot (Y_i - Y_{so}) - \kappa \cdot \bar{C}_s \cdot V \quad (A2.5)$$

これより、 \bar{C}_s は

$$\bar{C}_s = \frac{\alpha'_o \cdot G \cdot (Y_i - Y_{so})}{\kappa \cdot V} [1 - e^{-\kappa \cdot \theta}] \quad (A2.6)$$

となる。したがって、同伴率 δ は式(A2.4)と上式から

$$\delta = 1 - e^{-k \cdot \theta} \quad (\text{A2.7})$$

となる。すなわち、 δ は時間とともに増加し一定となる。しかし、この δ に関する飛出しモデルは J. Ciborowski らの実験結果⁷⁾ からは否定される。すなわち層内にはこのようなミストの蓄積は認められず、かつ出口濃度も短時間で一定となっている。一方、生成ミストの全量がガスに同伴されるという仮定も多管型コールドトラップでの結果から考えて極端と思われる。そこで、ミストの一部は粒子表面に付着し一部はガス流中に浮遊して排出されると考えるのが妥当であろう。

以上の考察からミスト生成率 α' は次の因子より決定されよう。

$$\alpha' = f(Y_i, T_p, \delta, R_e) \quad (\text{A2.8})$$

ここで R_e は Reynolds 数である。

J. Ciborowski らはナフタリンの凝縮実験において捕集効率は層高、粒径、温度には左右されず、濃度および流速がますにつれて捕集効率の低下、すなわちミスト生成率が増加することを認めている。

式(A2.3)で α'_0 を計算より求め実測値 α' と比較して δ を算出し、この δ の実験式を得ることができれば合理的な凝縮器の設計が可能になると思われる。

A 2.2 操作限界

流動層では、一般に粒子の混合が大きいため凝縮器入口部のガス温度が急激に低下しているので、この部分で閉塞を生ずることが予想される。この閉塞現象を理論的に解明することは困難であるが、この部分の物質移動の推進力 $Y_i - Y_s (T_p)$ の大きさと関係があることは明らかと思われる。入口粒子層温度を知っておく必要があろう。実験によりこの閉塞限界と操作条件の関係を求め実験式として整理することが望ましい。

A 3 連続流動層凝縮理論への二相モデルの適用（モデル 2C）

均一相モデルでは、流動層に特有な気泡（バブル）が全く考慮されていない。この気泡の発生はガスと粒子の不完全な接触やガスの吹抜け現象を伴うので、凝縮特性とともにミスト発生上関心が高い。そこで層内が、粒子を含まないバブル相と粒子およびガスが均一に分散して存在するエマルジョン相との二相から構成され、二相間でガスの交換がなされ、かつエマルジョン相内のガス線速度が流動化開始速度に等しく、粒子および気相がピストン流れであると仮定した場合について検討する。なお粒子、ガスは流動層凝縮器の最下部から供給されるとする。

このモデルでは、ピストン流れであるため、過熱ガス領域および飽和ガス領域しか存在しない。Fig. A3-1 に層内の微小層高における物質および熱の収支を示す。

A 3.1 過熱ガス領域

(1) 物質収支

a エマルジョン相において

$$\frac{F_p}{M_p} \cdot \frac{dX}{dz} + G_{mf} \cdot \frac{dY_E}{dz} + k_{BE} \cdot A_t \cdot (Y_E - Y_B) = 0 \quad (A3.1)$$

ここに、 G_{mf} は流動化開始速度に相当する非凝縮性ガス流量 (mol/h)、 k_{BE} はエマルジョン相とバブル相間の交換ガス流量速度 ($\text{mol}/\text{h}/\text{m}^3\text{-Bed}$)、 A_t は凝縮器断面積 (m^2)、添字 E、B はエマルジョン相、バブル相を表わす。一方、ガスと粒子間においては、

$$-G_{mf} \cdot dY_E = k_p \cdot (P - P_p) \cdot da \\ + k_{BE} \cdot A_t \cdot (Y_E - Y_B) \cdot dz \quad (A3.2)$$

が成立する。

b バブル相について

バブル相には粒子が無いため交換ガスによって収支が決定され次式で表わされる。

$$(G - G_{mf}) \cdot \frac{dY_B}{dz} - k_{BE} \cdot A_t \cdot (Y_E - Y_B) = 0 \quad (A3.3)$$

(2) 熱収支

a エマルジョン相において

$$\frac{F_p}{M_p} \cdot C_p \cdot \frac{dT_p}{dz} + \frac{F_p}{M_p} \cdot C_v \cdot (X \cdot \frac{dT_p}{dz} + T_p \cdot \frac{dX}{dz}) \\ + G_{mf} \cdot C_g \cdot \frac{dT_{gE}}{dz} + G_{mf} \cdot C_v \cdot (Y_E \cdot \frac{dT_{gE}}{dz} + T_{gE} \cdot \frac{dY_E}{dz}) \\ + C_g \cdot k_{BE} \cdot A_t \cdot (T_{gE} - T_{gB}) + C_v \cdot k_{BE} \cdot A_t \cdot (Y_E \cdot T_{gE} - Y_B \cdot T_{gB})$$

$$+ G_{mf} \cdot \lambda \cdot \frac{d Y_E}{d z} + \pi \cdot D_t \cdot h_w \cdot (T_p - T_w) = 0 \quad (A3.4)$$

ここに, C_v は凝縮成分の比熱 ($\text{kcal/mol} \cdot ^\circ\text{C}$), T_g はガス温度 ($^\circ\text{C}$), λ は昇華潜熱 (kcal/mol), D_t は凝縮器内径 (m), T_p , T_w は粒子および壁面温度 ($^\circ\text{C}$) である。一方, ガスと粒子間の熱収支は

$$\begin{aligned} & G_{mf} \cdot C_g \cdot \frac{d T_{gE}}{d z} + G_{mf} \cdot C_v \cdot Y_E \cdot \frac{d T_{gE}}{d z} \\ & + C_g \cdot k_{BE} \cdot A_t \cdot (T_{gE} - T_{gB}) + C_v \cdot k_{BE} \cdot A_t (Y_E \cdot T_{gE} \\ & - Y_B \cdot T_{gB}) + h_p \cdot (T_{gE} - T_p) \cdot \frac{d a}{d z} = 0 \end{aligned} \quad (A3.5)$$

となる。

b バブル相において

熱収支も交換ガスによってのみ決定される。

$$\begin{aligned} & (G - G_{mf}) \cdot C_g \cdot \frac{d T_{gB}}{d z} + (G - G_{mf}) \cdot C_v \cdot (Y_B \cdot \frac{d T_{gB}}{d z} \\ & + T_{gE} \cdot \frac{d Y_B}{d z}) + C_g \cdot k_{BE} \cdot A_t \cdot (T_{gB} - T_{gE}) \\ & + C_v \cdot k_{BE} \cdot A_t \cdot (T_{gB} \cdot Y_B - T_{gE} \cdot Y_E) = 0 \end{aligned} \quad (A3.6)$$

したがって過熱ガス領域内の濃度 Y_B , Y_E , 温度 T_{gB} , T_{gE} , T_p の層高 z に対する変化は式 (A3.1) ~ 式 (A3.6) の連立方程式を解くことで求められる。

A 3.2 飽和ガス領域

(1) 物質収支

a エマルジョン相において

$$\begin{aligned} & \frac{F_p}{M_p} \cdot \frac{d X}{d z} + G_{mf} \cdot \left(\frac{d Y_E}{d z} + \frac{d \phi_E}{d z} \right) + k_{BE} \cdot A_t \cdot \{ (Y_E \\ & - Y_B) + (\phi_E - \phi_B) \} = 0 \end{aligned} \quad (A3.7)$$

ここで, ϕ はミスト濃度である。一方, ガスと粒子間においては,

$$\begin{aligned} & -G_{mf} \cdot d Y_E = k_p \cdot (P - P_p) \cdot d a \\ & + k_{BE} \cdot A_t \cdot \{ (Y_E - Y_B) + (\phi_E - \phi_B) \} = 0 \end{aligned} \quad (A3.8)$$

が成立する。

b バブル相において

$$(G - G_{mf}) \cdot \left(\frac{dY_B}{dz} + \frac{d\phi_B}{dz} \right) + k_{BE} \cdot A_t \cdot \{ (Y_B - Y_E) + (\phi_B - \phi_E) \} = 0 \quad (A3. 9)$$

と表わされる。

(2) 熱収支

a エマルジョン相において

$$\begin{aligned} & \frac{F_p}{M_p} \cdot C_p \cdot \frac{dT_p}{dz} + \frac{F_p}{M_p} \cdot C_v \cdot (X \cdot \frac{dT_p}{dz} + T_p \cdot \frac{dX}{dz}) \\ & + G_{mf} \cdot C_g \cdot \frac{dT_{gE}}{dz} + G_{mf} \cdot C_v \cdot (Y_E \cdot \frac{dT_{gE}}{dz} + T_{gE} \cdot \frac{dY_E}{dz}) \\ & + G_{mf} \cdot C_v \cdot (\phi_E \cdot \frac{dT_{gE}}{dz} + T_{gE} \cdot \frac{d\phi_E}{dz}) + C_g \cdot k_{BE} \cdot A_t \cdot (T_{gE} \\ & - T_{gB}) + C_v \cdot k_{BE} \cdot A_t \cdot (Y_E \cdot T_{gE} - Y_B \cdot T_{gB}) \\ & + G_{mf} \cdot \lambda \cdot \frac{dY_E}{dz} + \pi \cdot D_t \cdot h_w \cdot (T_p - T_w) = 0 \end{aligned} \quad (A3. 10)$$

一方、ガスと粒子間における熱収支は次式で表わされる。

$$\begin{aligned} & G_{mf} \cdot C_g \cdot \frac{dT_{gE}}{dz} + G_{mf} \cdot C_v \cdot (Y_E \cdot \frac{dT_{gE}}{dz} + T_{gE} \cdot \frac{dY_E}{dz}) \\ & + G_{mf} \cdot C_v \cdot (\phi_E \cdot \frac{dT_{gE}}{dz} + T_{gE} \cdot \frac{d\phi_E}{dz}) + C_g \cdot k_{BE} \cdot A_t \cdot (T_{gE} \\ & - T_{gB}) + C_v \cdot k_{BE} \cdot A_t \cdot (Y_E \cdot T_{gE} - Y_B \cdot T_{gB}) \\ & + G_{mf} \cdot \lambda \cdot \frac{d\phi_E}{dz} + h_p \cdot (T_{gE} - T_p) \cdot \frac{da}{dz} = 0 \end{aligned} \quad (A3. 11)$$

b バブル相において

$$\begin{aligned} & (G - G_{mf}) \cdot C_g \cdot \frac{dT_{gB}}{dz} + (G - G_{mf}) \cdot C_v \cdot \{ \left(\frac{dY_B}{dz} \right. \\ & \left. + \frac{d\phi_B}{dz} \right) \cdot T_{gB} + (Y_B + \phi_B) \cdot \frac{dT_{gB}}{dz} \} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 & + C_g \cdot k_{BE} \cdot A_t \cdot (T_{gB} - T_{gE}) \\
 & + C_v \cdot k_{BE} \cdot A_t \cdot (Y_B \cdot T_{gB} - Y_E \cdot T_{gE}) \\
 & - G_{mf} \cdot \lambda \cdot \frac{d\phi_B}{dz} = 0
 \end{aligned} \tag{A3.12}$$

となる。したがって、飽和ガス領域の温度 T_{gB} , T_{gE} , T_p , 濃度 Y_B , Y_E , ϕ_B , ϕ_E は式(A3.7)~式(A3.12)の連立方程式を解くことで求められる。

A 3.3 境界条件

凝縮器内入口近傍 $z = 0+$ において

$$\left. \begin{aligned}
 T_{gE \cdot z=0+} &= T_{gB \cdot z=0+} = T_{gi} \\
 T_{p \cdot z=0+} &= T_{pi}, \quad X_{z=0+} = 0 \\
 Y_E \cdot z=0+ &= Y_B \cdot z=0+ = Y_i \\
 \phi_E \cdot z=0+ &= \phi_B \cdot z=0+ = 0
 \end{aligned} \right\} \tag{A3.13}$$

となる。

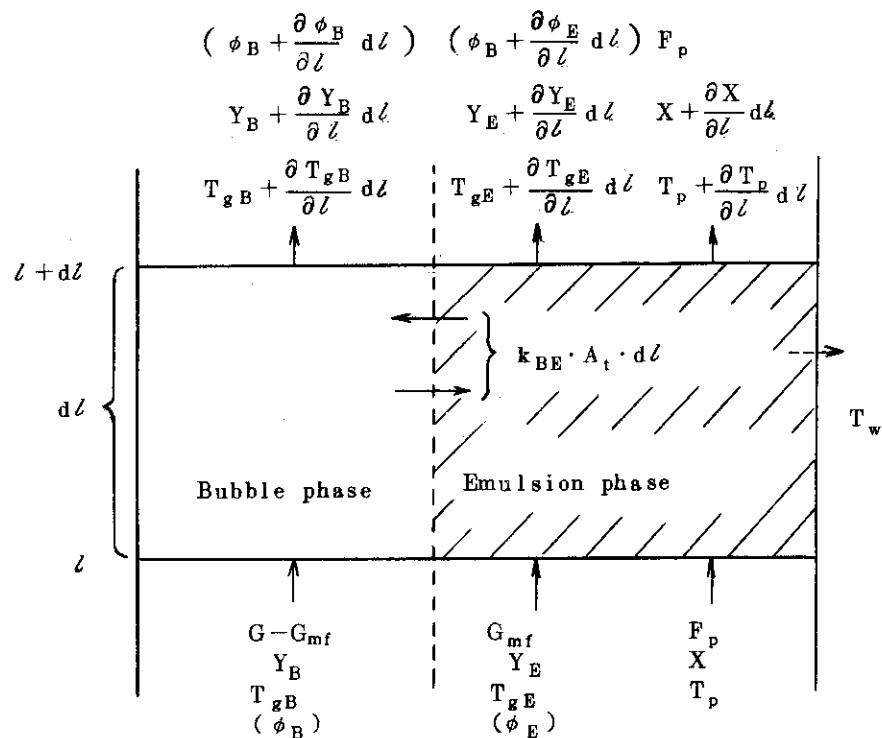


Fig. A 3-1 Heat and Mass Balance by Two-Region Model in Continuous Cold Trap of Fluidized Bed (Model 2c)

(Flow pattern : { Solid } Gas piston flow)

Table A4-1 Summary of Temperature Data in Condenser

Run #	G (Nℓ/min)	P _o (mmHg)	F _p (kg/h)	TR-1-1 (°C)	TR-1-2 (°C)	TR-1-3 (°C)	TR-1-4 (°C)	TR-1-5 (°C)	TR-2-6 (°C)	TR-1-6 (°C)	TR-1-7 (°C)	TR-2-3 (°C)	l _o	
1	25.4	13.8±1.2	-74	-34	-58	-69	-67	-76	-72	-70	16	600mm		
2	25.4	8.2±1.2	-74	-40	-65	-70	-67	-76	-72	-71	19	600 "		
3	33.8	7.9±0.7	-74	-42	-58	-66	-67	-75	-72	-70	21	600 "		
4	33.8	12.8±1.2	-74	-33	-52	-66	-65	-75	-72	-71	19	600 "		
5	33.8	18.4±1.3	-74	-24	-43	-63	-62	-75	-72	-71	19	600 "		
6	41.3	15.9±1.2	-72	-26	-52	-65	-62	-73	-70	-70	19	600 "		
7	41.3	8.3±0.4	-73	-38	-62	-68	-66	-74	-71	-71	21	600 "		
8	25.4	9.47±3	17.4±1.6	-74	-26	-50	-63	-70	-76	-72	-73	31	900mm	
9	25.9	9.37±3	6.1±0.6	-74	-44	-66	-72	-73	-76	-72	-74	27	900 "	
10	25.9	9.42±3	12.3±1.5	-74	-30	-54	-65	-70	-75	-72	-72	30	900 "	
11	33.8	9.50±1.0	15.3±1.0	-75	-32	-55	-65	-70	-76	-74	-74	28	900 "	
12	34.0	9.55±5	8.1±0.7	-75	-44	-64	-71	-73	-76	-74	-72	22	900 "	
13	33.8	9.87±3	18.1±0.8	-74	-21	-44	-56	-66	-75	-73	-73	31	900 "	
14	41.3	10.0±1.0	18.1±0.8	-75	-27	-48	-57	-65	-75	-73	-72	31	900 "	
15	41.3	10.0±1.0	16.1±0.8	-75	-30	-52	-60	-70	-76	-74	-72	37	900 "	
16	41.3	9.92±8	6.9±0.3	-75	-48	-66	-70	-72	-76	-74	-71	26	900 "	

G ; Feed gas flow rate
 P_o ; System pressure
 F_p ; Alumina mass flow rate
 l_o ; Powder overflow position in condenser (CT-1)

Table A4-2 UF₆ Specification

UF ₆ origin	Preparation or history	Used for Run	Remarks
a	Produced by direct fluorination of U ₃ O ₈ powder ⁸⁾⁹⁾	UC-101 ~ 103A	-Not purified
b	ibid.	UC-103B ~ 104	-Not purified -UF ₆ vapor pressure measured (See Table A4-3)
c	Purchased from Allied Chem. Co. (USA)	UC-105 ~ 112	-Purified by refrigeration and vacuuming - HF analysis

Table A4-3 Vapor Pressure of the UF₆ Produced by
Direct Fluorination of U₃O₈ powder(UF₆-b, See Table A4-2)

Thermostat temperature	65 °C	75 °C
Pressure in UF ₆ cylinder	1160mmHg	1560mmHg
UF ₆ vapor pressure ¹³⁾ at thermostat temperature	1169mmHg	1566mmHg

JAERI-M 7064

Table A4-4 Physical Properties of UF_6 , and Related Equations

Physical property	Equation
1. mean temperature between gas and particle T_{gp} ($^{\circ}\text{K}$)	$T_{gp} = \frac{T_g - T_p}{\ln \frac{T_g}{T_p}}$
2. mean concentration between gas and particle surface Y_{gp} (mol- UF_6 /mol-inert gas)	$Y_{gp} = \frac{Y_g - Y_p}{\ln \frac{Y_g}{Y_p}}$
3. specific heat of gas C_{ug} (kcal/mol·deg)	$C_{ug} = 3.243 \times 10^{-2} + 7.936 \times 10^{-6} \cdot T_{gp} - \frac{320.68}{T_{gp}^2}$
4. density of gas ρ_{ug} (kg/m^3)	$\rho_u = 4291 \left(\frac{P_o}{T_{gp}} \right) \left\{ 1 + 1.2328 \times 10^6 \left(\frac{P_o}{T_{pg}^3} \right) \right\}$ P_o (atm): system pressure
5. diffusion coefficient of gas D_{ug} (m^2/h)	$D_{ug} = 5.741 \times 10^{-3} \left(1 + 6.29 \times 10^{-3} \cdot t_{gp} + 9.6 \times 10^{-6} \cdot t_{gp}^2 \right) \left(\frac{1}{P_o} \right)$ $t_{gp} = T_{gp} - 273$
6. heat of sublimation λ_u (kcal/mol)	$\lambda_u = 12.6 - 875.6 \exp \left\{ - \frac{2560}{T_{gp}} \right\} - 2 \times 10^{-3} \cdot T_{gp}$
7. viscosity of gas μ_{ug} ($\text{kg}/\text{m} \cdot \text{h}$)	$\mu_{ug} = 7.56 \times 10^{-4} \cdot T_{gp}^{0.779}$
8. density of air ρ_g (kg/m^3)	$\rho_g = 353.2 \left(\frac{P_o}{T_{gp}} \right)$
9. viscosity of air μ_g ($\text{kg}/\text{m} \cdot \text{h}$)	$\mu_g = 5.41 \times 10^{-3} \left(\frac{T_{gp}^{1.5}}{T_{gp} + 123.6} \right)$
10. molecular weight of mixed gas M_m (kg/mol)	$M_m = (M_u \cdot Y_{gp} + M_g) \left(\frac{1}{1 + Y_{gp}} \right)$

11. specific heat of mixed gas

 C_m (kcal/mol·deg)

$$C_m = (C_{ug} \cdot Y_{gp} + C_g) \left(\frac{1}{1+Y_{gp}} \right)$$

12. density of mixed gas

 ρ_m (kg/m³)

$$\rho_m = (\rho_{ug} \cdot Y_{gp} + \rho_g) \left(\frac{1}{1+Y_{gp}} \right)$$

13. viscosity of mixed gas

 μ_m (kg/m·h)

$$\mu_m = \frac{\mu_{ug}}{1 + \frac{1}{Y_{gp}} \phi_{12}} + \frac{\mu_g}{1 + Y_{gp} \cdot \phi_{21}}$$

$$\phi_{12} = \frac{\left[1 + \left(\frac{\mu_{ug}}{\mu_g} \right)^{0.5} \left(\frac{M_g}{M_u} \right)^{0.25} \right]^2}{\left(\frac{4}{\sqrt{2}} \right) \left[1 + \left(\frac{M_g}{M_u} \right) \right]^{0.5}}$$

$$\phi_{21} = \frac{\left[1 + \left(\frac{\mu_g}{\mu_{ug}} \right)^{0.5} \left(\frac{M_u}{M_g} \right)^{0.25} \right]^2}{\left(\frac{4}{\sqrt{2}} \right) \left[1 + \left(\frac{M_g}{M_u} \right) \right]^{0.5}}$$

14. thermal conductivity of mixed gas

 k_m (kcal/m·h·deg)

$$k_m = \left(\frac{\mu_m}{M_m} \right) (C_m + 2.48 \times 10^{-3})$$

15. gas velocity

 u (cm/sec)

$$u = 0.061 \left(\frac{V \cdot T_{gp}}{A_t \cdot P_o} \right)$$

V(Nℓ/min); gas feed rate

A_t(cm²) ; cross-sectional area of fluidized bed

16. void fraction in continuous cold trap of fluidized bed (CT-1)

 ϵ (-)

$$\epsilon = 0.011 u + 0.425$$

(experimental equation)

17. Sherwood number

 Sh (-)

$$Sh = f \cdot (0.374 Re_p^{1.18})$$

f (-); correction factor

(f=0.9 for UF₆
f=0.8 for Naphthalene)

18. Nusselt number

 Nu (-)

$$Nu = 0.03 Re_p^{1.3}$$

19. heat transfer coefficient between gas and particle

 h_p (kcal/m²·h·deg)

$$h_p = Nu \cdot \frac{k_m}{d_p}$$

20. vapor pressure of UF₆ P_u (atm)

$$P_u = \frac{P_i}{760}$$

$$\log_{10} P_i = - \frac{2751}{T} - 75 e^{-\frac{2560}{T}} \\ - 1.01 \log_{10} T + 13.797$$

Table A4-5 Physical Properties of Naphthalene

No.	Physical property	Equation
1.	specific heat of gas C_{Ng} (kcal/mol·deg)	$C_{Ng} = 3.15 \times 10^{-3} + 1.094 \times 10^{-4} \cdot T_{gp}$ $-3.479 \times 10^{-8} T_{gp}^2$
2.	density of gas ρ_{Ng} (kg/m ³)	$\rho_{Ng} = 1.56 \times 10^3 \left(\frac{P_o}{T_{gp}} \right)$
3.	diffusion coefficient of gas D_{Ng} (m ² /h)	$D_{Ng} = 1.847 \times 10^{-2} \left(\frac{T_{gp}}{273.2} \right)^2 \left(\frac{1}{P_o} \right)$
4.	heat of sublimation λ_N (kcal/mol)	$\lambda_N = 11.75$
5.	viscosity of gas μ_{Ng} (kg/m·h)	$\mu_{Ng} = 0.09958 \left(\frac{\sqrt{TR^3}}{TR + 0.8} \right)$ $TR = \frac{T_{gp}}{748.36}$
6.	void fraction in fluidized bed. ϵ (-)	$\epsilon = 1 - \frac{1 - \epsilon_{mf}}{N_f}$ $N_f = 1 + \frac{u}{20} \left\{ 1 - \frac{u_t - u}{u_t - u_{mf}} \right\}^{1/3}$
7.	vapor pressure P_N (atm)	$P_N = \frac{P_i}{760}$ $\log_{10} P_i = - \frac{3722.5}{T} + 11.424$