

JAERI-M

7275

多孔質隔膜法による“N₂-Kr”系の分離

—再処理工場オフガス中のクリプトン除去・
回収に関する予備的検討—

1977年9月

成瀬雄二・吉田 浩・藤根幸雄
松田祐二・清水 徳・斉藤恵一朗

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしてください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

多孔質隔膜法による "N₂-Kr" 系の分離
— 再処理工場オフガス中のクリプトン除去・
回収に関する予備的検討 —

日本原子力研究所・東海研究所・燃料工学部

成瀬雄二・吉田 浩・藤根幸雄

松田祐二・清水 徳・齊藤恵一朗

(1977年8月19日受理)

本研究は、再処理工場オフガス中のクリプトン分離・回収工程に多孔質隔膜法（ガス拡散法）を適用することの可能性について検討することを目的としたものである。

多孔質隔膜法の分離係数は、ウラン濃縮のような同位体分離プロセスにおいては、一般に小さい。しかし、クリプトン分離プロセスのように空気とクリプトンとの間に大きな分子量の差がある場合には、大きな分離係数が得られる。さらに、無機多孔質隔膜を装着した2分割型拡散筒からなる Hertz 型カスケードを採用することにより、段分離係数をかなり改善することができた。

カスケードの所要段数、濃度分布、隔膜面積、拡散筒寸法、圧縮機所要動力などについてクリプトン除去プラントの予備設計を行ったところ、カスケードの配置は非常にコンパクトにまとまり、操作も簡単であることが判明した。

以上の研究により、多孔質隔膜法は、クリプトンの除去・回収法として、安全性および操作の容易さから可能性の高い技術の一つであることが明らかになった。

Feasibility Study of Krypton Removal Plant
by Porous Membrane Method

Yuji NARUSE, Hiroshi YOSHIDA, Sachio FUJINE,
Yuji MATSUDA, Toku SHIMIZU and Keiichiro SAITO

Fuel Reprocessing Laboratory, Division of Nuclear
Fuel Research, Tokai Research Establishment, JAERI

(Received August 19, 1977)

In preservation of the environment, it is desirable to minimize the release of radioactive Kr-85 (half life 10.73yrs) from the off-gas of a fuel reprocessing plant. For the purpose, methods such as cryogenic distillation, solvent absorption and membrane permeation are investigated.

Feasibility of the porous membrane method for removal of Kr (Xe) from fuel reprocessing off-gas has been studied.

The separation factor of porous membrane is generally small in isotope separation, especially in uranium enrichment. However, relatively large separation factor is expected in Kr removal process, because of the large difference in molecular weight between air and krypton. Furthermore, the stage separation factor can be increased by adopting Two-compartment diffuser with porous inorganic sintered membranes.

Based on the preliminary design studies of the Kr removal cascade (number of stages, concentration profile, membrane area, diffuser size and compressor power), the separation plant was found to be compact in cascade layout and simple in operation.

The porous inorganic membrane method was proved to be one of the feasible techniques with safety and handling ease for removal of Kr from the radioactive off-gas.

Keywords: Off-Gas Treatment, Rare Gases, Krypton, Porous Membrane, Hertz Cascade, Two-Compartment Diffuser, Separation Factor, Membrane Area, Number of Stages

目 次

1. はじめに	1
2. 実験装置と実験方法	5
2.1 実験装置	5
2.1.1 カスケードの構成	5
2.1.2 拡散筒	5
2.1.3 圧縮機	6
2.1.4 真空排気系	6
2.1.5 配管系	6
2.1.6 主要計器	6
2.1.7 計装・動力パネル	7
2.2 実験方法	7
2.2.1 カスケードの起動方法	7
2.2.2 分析方法	7
2.2.3 流量の換算	8
3. 実験結果と考察	13
4. N_2 -Kr 分離プラントの概略設計	20
4.1 設計計算式	20
4.1.1 カスケードの規模	20
4.1.2 拡散筒の大きさと構造	23
4.1.3 圧縮機の所要動力	24
4.2 計算結果と考察	25
4.2.1 計算条件	26
4.2.2 計算結果	26
4.2.3 モデルプラントの概略設計	26
5. おわりに	39
参考文献	40

1. はじめに

原子力施設から大気中に放出される放射性ガスは、環境保全の観点からできる限り低減化することが望ましい。とくに、半減期の比較的長い⁸⁵Kr (10.73年)、トリチウム (12.35年) について効果的な除去・回収がなされない場合、その汚染度は将来地球全体の規模で無視できないレベルに達するといわれている。

このため、軽水炉、高速炉、再処理工場などを対象にして、それぞれ特有の除去・回収法の研究開発が進められており、一部には実用化に至っているものもある (たとえば、Xe の放出低減化を目的としたBWRの希ガスホールドアップ装置)。

Krについては、表1-1¹⁻⁶⁾に概括して示すように、低温吸着法、液化蒸留法、溶媒吸収法、選択透過膜法などの開発が進められているが、いずれも十分な実用化段階には至っていないとみられている。これらの各法は、⁸⁵Kr の主要発生源である再処理工場のオフガス処理工程に適用することを目的とするものであるが、以下のような特徴と問題点があり、安全性、操作性を含めた各法の技術的信頼性ならびに経済性についての検討がなお続けられている。

低温吸着法は希ガスに対する活性炭、シリカゲル、モレキュラーシーブの吸着特性を利用したdelay bed (希ガスホールドアップ装置はその1例) の欠点 (吸着量が少ないため多量の吸着材が必要) を改良したものである。すなわち、delay bed を液体チッ素により-180°C程度に冷却し希ガスの吸着量を増加させるとともにbedの小型化を図っている。本法は、当初ICPP⁷⁾において実用化されたが、表1-1に示すように安全性および処理能力の点から問題があり、次に述べる液化蒸留法に切換えられたものである。

液化蒸留法は、混合ガス中の各成分の沸点の差を利用してガス分離を行なうもので、空気分離法として古くから工業化されており、再処理オフガスの処理法としてもICPPにおけるパイロット規模の試験を通じてその有用性が確認されている。本法は、わが国では動燃団・再処理施設・オフガス処理系のKr分離工程にパイロットプラントとして採用されることになっている。また仏⁸⁾、西独⁹⁾、ベルギー¹⁰⁾においてもその工学試験が実施されるなど、現在のところ最も実用化に近いものと考えられている。しかし、放射性ガス、NO_x、O₂、N₂その他非常に多種類の不純物を含む再処理オフガスの処理法として確立するためには、放射線の存在下におけるオゾン、過酸化物の生成および爆発の原因となるO₂、NO_x、炭化水素を除去する前処理工程の確立と信頼性向上が不可欠であり、低温装置の安全設計とともに各国においてさまざまな設計法が検討されている。

溶媒吸収法は、Kr、Xeがフレオン、四塩化炭素、ケロシンなどの溶媒に選択的に物理吸収される現象を利用したものであり、再処理工場のオフガス処理技術として現在のところ液化蒸留法に次いで実用化が期待されている。ORGDPにおけるパイロットプラント規模 (処理量0.55m³/min) の研究結果から、操作条件を適切に選択することよりKrの除染係数、除去率をそれぞれ約1000、約99.9% (フレオン12の場合) まで高め得ることが実証されている。フレオン12を溶媒とする場合には、KrとXeの相互分離が難しいが、Kr回収時に¹²⁹I、¹⁴Cを同時に除去し得る

といわれている。なお、本法については、今後、前処理系、溶媒の回収・精製系を含む総合処理システムとしての試験研究が必要である。

選択透過膜法は、ある種の有機膜が希ガスに対して選択透過性を持つことに着目してガス分離を行なうもので、膜の種類を選択または特性の異なる膜の巧みな組合せにより非常に大きな分離係数が得られることが特徴である¹¹⁾。反面、透過係数が小さいため操作圧力が高くなること、放射線損傷により膜寿命が短くなることが難点とされており、これらに対する膜特性の改善が課題となっている。

一方、ここにとり上げる多孔質無機隔膜による希ガスの分離法は、ウラン濃縮におけるガス拡散技術の1つの応用例であり、隔膜・拡散筒などの設計・製造技術、カスケードの設計・操作法およびカスケード特性の把握、さらには主要機器、配管類を含むプラント全体の気密保持機構などにおける幅広い知識がそのまま役立てられることが特徴である。

ガス拡散法における隔膜の理論的分離係数は、混合ガス成分の分子量の比の平方根で与えられるのでウラン同位体分離 ($^{238}\text{UF}_6 / ^{235}\text{UF}_6$) では非常に小さな値 (1.00429) となり、濃縮プラント (製品濃度約4%) は1000段程度の多段カスケードとなるが、 N_2 ガス中の Kr, Xe の場合には、分離係数がそれぞれ 1.742, 2.179 と大きく、カスケードはかなりコンパクトに設計することができる。また、2分割型拡散筒による Hertz 型カスケードを採用した場合には、カスケード所要段数をさらに削減することが可能となる。隔膜 (ニッケルまたはステンレス焼結管で補強された管状膜) を使う本法の利点としては、透過係数が大きく (選択透過膜の約 100~1000 倍) 大流量を常温常圧で連続的に取扱えること、耐放射線性に優れていることならびにカスケードの操作性、安全性の高いことなどが挙げられる。

以上のような多孔質隔膜法の特長は、処理量が数 $1000\text{m}^3/\text{day}$ (処理量 $1500\text{tonU}/\text{yr}$ の再処理工場に想定されるオフガス量) におよぶオフガスの処理工程の設計において有利な条件を与えるものである。

本研究は、このような観点から、ガス拡散法とくにアルミナ隔膜を用いた 2 分割型拡散筒による Hertz 型カスケード¹²⁾ を、再処理工場から放出されるオフガス中の ^{86}Kr 分離回収工程に適用するための技術的、経済的可能性について検討することを目的とするものである。

本稿では、まず、研究の第 1 段階として実施した 5 段からなる工学規模のカスケード装置 (表 1-2 参照) による N_2 -Kr 系の分離実験結果を報告し、ついで、実験で得られた分離係数、操作条件に基づき、 N_2 -Kr 分離カスケードの概略設計を試みた結果について述べる。

表1-1 再処理工場オフガス中のKr除去・回収法とその問題点

除去・回収法	装置	問題点
低温吸着法	<ul style="list-style-type: none"> 装置：吸着ベッド 吸着材：活性炭, シリカゲル 冷却材：液体ナツ素 	<ul style="list-style-type: none"> 過酸化物, オゾンの生成と爆発の危険性 凝縮性ガスの凍結 冷却系統の安全設計 加温脱着時間が長く, 処理能力が低い
液化蒸留法 (深冷分離法)	<ul style="list-style-type: none"> 装置：低温蒸留塔 冷却材：液体ナツ素 	<ul style="list-style-type: none"> 過酸化物, オゾンの生成と爆発の危険性 凝縮性ガスの凍結 冷却系統の安全設計 蒸留塔の操作条件
溶媒吸収法	<ul style="list-style-type: none"> 装置：吸収塔 吸収剤：四塩化炭素 フルオロカーボン (フレオン) 	<ul style="list-style-type: none"> 放射線損傷による吸収剤の性能低下 腐食性物質の生成
選択透過膜法	<ul style="list-style-type: none"> 装置：カスケード 透過膜：シリコングム膜 アセチルセルロース膜 	<ul style="list-style-type: none"> 放射線損傷による有機膜の寿命低下 膜の透過係数, 機械的強度が小さい 操作圧力が高い 圧縮機的设计・操作条件
多孔質隔膜法 (ガス拡散法)	<ul style="list-style-type: none"> 装置：カスケード 隔膜：多孔質無機膜 	<ul style="list-style-type: none"> 隔膜の分離係数が小さい (カスケードが多段になる) 圧縮機的设计・操作条件

表 1 - 2 多孔質隔膜法による希ガス分離実験装置の比較

	カスケード			隔膜		操作条件			
	形式	段数	圧縮機流量	形状	材質	面積	温度	圧力	操作方法
MAPI*1	方形カスケード (通常型)	4	~15 Nℓ/min	板状	テフロン	250cm ² /段	室温	Ph = 800~1600 Torr Ph = 150~400 Torr	全還流
JAERI*2	方形カスケード (通常型) Hertz型カスケード	5	~280Nℓ/min (Ph=2200 Torr)	管状	アルミナ (支持体; ニッケル又はSUS)	2200cm ² /段	室温	Ph = 600~2200 $\frac{Ph}{Pℓ} = 7~12$	全還流 定常供給抜出し

* 1. Mitsubishi Atomic Power Industries, Inc. (前川, 石森らのカスケード)

* 2. Japan Atomic Energy Research Institute (筆者らのカスケード)

2. 実験装置と実験方法

2.1 実験装置と実験方法

本研究で使用したカスケード実験装置は、実際のガス拡散法によるカスケードで想定される種々の操作条件下における分離特性および流動特性を調べ、プラントの設計、操作に必要な工学的基礎データを得ることを目的として製作したものである。本装置の設計上の考え方ならびに主要な機器、計器類の概要を以下に述べる。

2.1.1 カスケードの構成

本実験装置は、管状の無機隔膜を内蔵した寸法の等しい拡散筒5基から構成され、全体としては方形カスケードになっている。本装置は、図2-1に示したように、原料ガス ($N_2 + Kr$) 供給部、製品 (Kr)・廃棄材 (N_2) 抜き出し部を備えており、全還流または定常供給・抜き出し操作による分離実験を行なうことができる。また、原料ガスの供給段を任意に選ぶことができ、プラントの濃縮部または回収部のみを対象とする実験も可能である。なお、フローシート中の記号は表2-1に示した通りである。

本装置の大きな特徴は、通常の方角カスケード以外に、隔膜透過流を流れ方向に2分割した拡散筒を基本とした Hertz 型カスケードの実験ができることである。

図2-2は、Hertz 型カスケードの基本的な構成を示したものである。この方式は、拡散筒の流れ方向に濃度分布が生じることに着目し、隔膜透過流を2つに分割してそれぞれの流れを適当な位置に連結することにより、カスケード1段当りの分離係数の向上をはかるものである。図において、第 n 段目の供給流 (L_n, X_n) は、分離器 A_n に入り、第1透過流 (l'_n, x'_n) と第1未透過流 ($L_n - l'_n, x_n$) とに分けられる。第1透過流は、第 $(n+1)$ 段目の供給流となり、第1未透過流は、分離器 B_n に供給され、第2透過流 (l''_n, x''_n) と第2未透過流 (L''_n, X''_n) とに分けられる。ここで、第2透過流は、第 n 段目の分離器 A_n に再循環され (リサイクル流)、第2未透過流は、第 $(n-1)$ 段目の分離器 A_{n-1} への供給流となる。

以上のように、本カスケードの特徴は、リサイクル流を設けることにより、段方向の濃度勾配を高め、段分離係数を向上することにある。

2.1.2 拡散筒

拡散筒は、図2-3に示すように、長さ約1mのユニット4本をフランジで接続したもので、管状隔膜 (単位長さ1m、直径19mm O.D.) の装脱着が容易に行なえる構造になっている。また隔膜透過流側の流路に仕切板を挿入することにより、簡単に2分割型拡散筒に変更することができる。仕切板の取付け位置により、透過流の分割比を $1/3$ 、 $1/1$ 、 $3/1$ に変え得ることが理解できよう。

隔膜は、ニッケルまたは SUS 316L 製の焼結管内面にアルミナを被覆したもので、透過係数は Al_2O_3-Ni 隔膜では $9.4 \times 10^{-6} \text{ mol-N}_2/\text{cm}^2 \cdot \text{cmHg} \cdot \text{min}$ 、 Al_2O_3-SUS 隔膜では 16.1×10^{-6}

$\text{mol-N}_2/\text{cm}^2 \cdot \text{cmHg} \cdot \text{min}$ である。

2.1.3 圧縮機

圧縮機（モーターの定格出力 5.5kW）は、インタークーラー付きの 2 気筒往復動圧縮機で、隔膜の目詰りを避けるために完全無給油方式を採用している。圧縮機の気密性を高めるために、ケーシングの内、外表面に約 30μ の厚みのニッケルメッキを施し、さらに軸封部には磁性流体シール（耐圧 $\leq 1.4 \text{ kg/cm}^2\text{G}$ ）を組み込み、1 基当りのリーク量を $1 \times 10^{-6} \text{ atm} \cdot \text{cm}^3/\text{sec}$ 以下に抑えている。この結果、カスケード全体のリーク量は $1 \times 10^{-5} \text{ atm} \cdot \text{cm}^3/\text{sec}$ 以下に保たれている。

本機的设计性能は、最大吐出流量 $18 \text{ Nm}^3\text{-Ar/hr}$ 、吐出圧力 $3 \text{ kg/cm}^2\text{G}$ 、圧縮比 10、回転数 $150 \sim 600 \text{ rpm}$ （無段変速）である。

圧縮機の吸入、吐出側に設けたサージタンク（容積 69 l ）は、カスケード内のガス流れの脈動を $\pm 1\%$ 以下に減少させるためのものである。また、吐出ガス温度は、インタークーラーと外部熱交換器（冷却水量 $8 \sim 15 \text{ l/min}$ ）で室温に保たれる。

2.1.4 真空排気系

カスケード全体の真空排気用に備えたメカニカルブースターポンプ（排気速度 $600 \text{ m}^3/\text{hr}$ 、到達真空度 $4 \times 10^{-4} \text{ Torr}$ ）により、全系（大気圧）を約 30 分で $1 \times 10^{-2} \text{ Torr}$ の真空度に排気することができる。また、製品・廃棄材の抜き出し部の油回転ポンプ（排気速度 150 l/min 、到達真空度 10^{-3} Torr ）により、カスケードの高圧側圧力を大気圧以下の操作条件にして実験することができる。

サンプリング系の真空ポンプは、油回転ポンプ（排気速度 320 l/min ）をバックアップとする油拡散ポンプ（排気速度 1200 l/min ）であり、液体チッ素コールドトラップを併用して $1 \times 10^{-7} \text{ Torr}$ の真空度を得ることができる。本ポンプにより各段に取付けられたすべての試料ガス採取瓶（容積 60 cm^3 ）は数分以内に $1 \times 10^{-3} \text{ Torr}$ 以下に排気され、残留ガスの分析精度への影響はほとんど無視できるようになる。

2.1.5 配管系

カスケードの一般的な特性を調べるために、プロセス配管は各段のホールドアップが等しくなるように対称性のある配置をとっている。各段の容積は、拡散筒を含めて約 200 l で、このうち高圧側流路が約 80 l 、低圧側流路が約 120 l を占めている。

サンプリング用の真空排気配管は、各段における供給流、第 1・第 2 透過流、未透過流のガス組成の経時的変化を追跡するために、各流路ごとに設けられており、試料ガスの採取を迅速に行なうことができる。サンプリング箇所は、拡散筒の 4 つのノズル近傍にあり、隔膜付近の組成との時間的ずれをできるだけ小さくするよう考慮している。

2.1.6 主要計器

カスケードの主要な測定計器は、流量計、圧力計および温度計である。

流量の測定は、各段の供給流、第 1・第 2 透過流、未透過流の各流路に設けた質量流量計

(Hastings 社製；検出器誤差±1%以下，校正目盛：Ar表示)により，また，カスケード全体の流量制御は，原料ガス供給部，製品・廃棄材抜き出し部に設けた同種の流量計によりそれぞれ行なう。流量の記録には，主に多ペン型記録計（精度±0.25%）を使用する。

圧力計の主なもの，供給流の拡散筒入口近くの圧力を検出し，未透過流路の圧力調整弁を作用させて供給流圧力を一定に保つ自動圧力制御記録計（検出器：電子式絶対圧力伝送器，精度±0.5%，測定範囲：0～3 kg/cm²A，制御記録計：PI制御，精度±0.5%）と透過流の圧力計（検出器：前出のものと同じ，測定範囲：0～368 mmHg）である。この他に，圧縮機の吸入，吐出側に圧力指示計（ブルドン管式，精度±1.5%）があり，圧縮機の運転状態の管理も行なっている。

カスケード内の温度は，拡散筒供給流と第1透過流について測定する。温度計には，白金測温抵抗体（0℃で100オーム，精度±0.3）を用いている。

2.1.7 計装・動力パネル

カスケードの操作と運転状態の管理を円滑に行なうために，各種の操作スイッチ，流量・圧力・温度等の指示計，記録計類をパネルに集中している。これにより，圧縮機，ポンプ類の起動・停止，カスケードにおける各段独立運転⇔全段連結運転の切換，カスケード操作圧力の調節等を遠隔操作で行なうことができる。

2.2 実験方法

2.2.1 カスケードの起動方法

分離実験の際のカスケード起動手順を簡単に示すと，まず，全系を十分に真空排気し気密性が保たれていることを確認する。ついで，目標とする操作条件に相当する原料ガスを各段均一に充填し，各段を独立に運転する。拡散筒入口圧力を所定圧力に設定し，全段の流量，圧力が等しくなるようにカスケード内インベントリーを調節した後，遠隔操作弁により全段を連結したカスケード運転に入る。この瞬間から，カスケード内に濃度分布が形成され始め，やがて平衡に到達する。

2.2.2 分析方法

実験で採取された試料ガスの組成分析は，TCD型ガスクロマトグラフで行ない，N₂-Kr混合ガスについてあらかじめ作成したガスクロマトグラフによる測定値と質量分析計（Varian Mat CH-7）による測定値との換算曲線（図2-4参照）を用いて感度を校正した。

ガスクロマトグラフのカラム操作条件は，以下の通りである。

カラム	: 2 mL × 3 mm O. D.
カラム充填材	: 活性炭（充填長さ1 m）+モレキュラーシーブ5 A（同1 m）
温度	: 50℃（カラム），100℃（TC部，インジェクター部）
キャリアガス流量	: 34 mL-He/min
TCD印加電流	: 100mA（100 V）
チャートスピード	: 20.40 mm/min

なお、充填カラムについては、水分、その他の吸着ガスを除去するために、He (30mℓ/min) を導入しながら 300℃で20時間ベーキングを行なった。

一方、実験の原料ガスとして用いた N₂, Kr の純度は、以下の通りである。

N ₂ ガス	N ₂	>	99.999%
	CO ₂ , H ₂	:	それぞれ~1 ppm
	O ₂	:	~0.5 ppm
	露点	:	-70℃

Kr ガス	Kr	>	99.995%
	Xe, N ₂	:	それぞれ~25 ppm
	O ₂	:	~4 ppm
	H ₂	:	~5 ppm
	炭化水素	:	~10 ppm
	露点	:	-43.3℃

2.2.3 流量の換算

質量流量計 (Ar ガスで校正してある) で測定した各段の流量値は、ガスの種類およびカスケード内の濃度分布に対応して次式による換算が必要である。すなわち

$$\text{換算流量} = (\text{流量計指示値}) \times \frac{C_{\text{mix}}}{C_{\text{Ar}}}$$

ここで

C_{Ar} : Ar ガスに対する換算係数 (= 1.43)

C_{mix} : 混合ガスに対する補正係数

C_{mix} は、カスケードの第 n 段の Kr 濃度が x_n (%) である場合

$$C_{\text{mix}} = \frac{1}{\frac{x_n}{1.39} + \frac{1-x_n}{1.02}}$$

で与えられる。ここで、1.39 および 1.02 は、それぞれ N₂ ガス, Kr ガスに対する質量流量計の換算係数である。

表 2-1 フローシート記号表

記号	名称	称
○	バルブ	計器
○	現場計器	計器
PI	計装用空気配管	計器
PR	計装用電気配線	計器
PRC	圧力指示計	計器
PR	圧力記録計	計器
PRC	圧力制御記録計	計器
TI	温度指示計	計器
TR	温度記録計	計器
TRA	温度配線記録計	計器
FI	流量指示計	計器
FR	流量記録計	計器
FRC	流量制御記録計	計器
	手動弁	弁
	空動作弁	弁
	圧力調整弁	弁

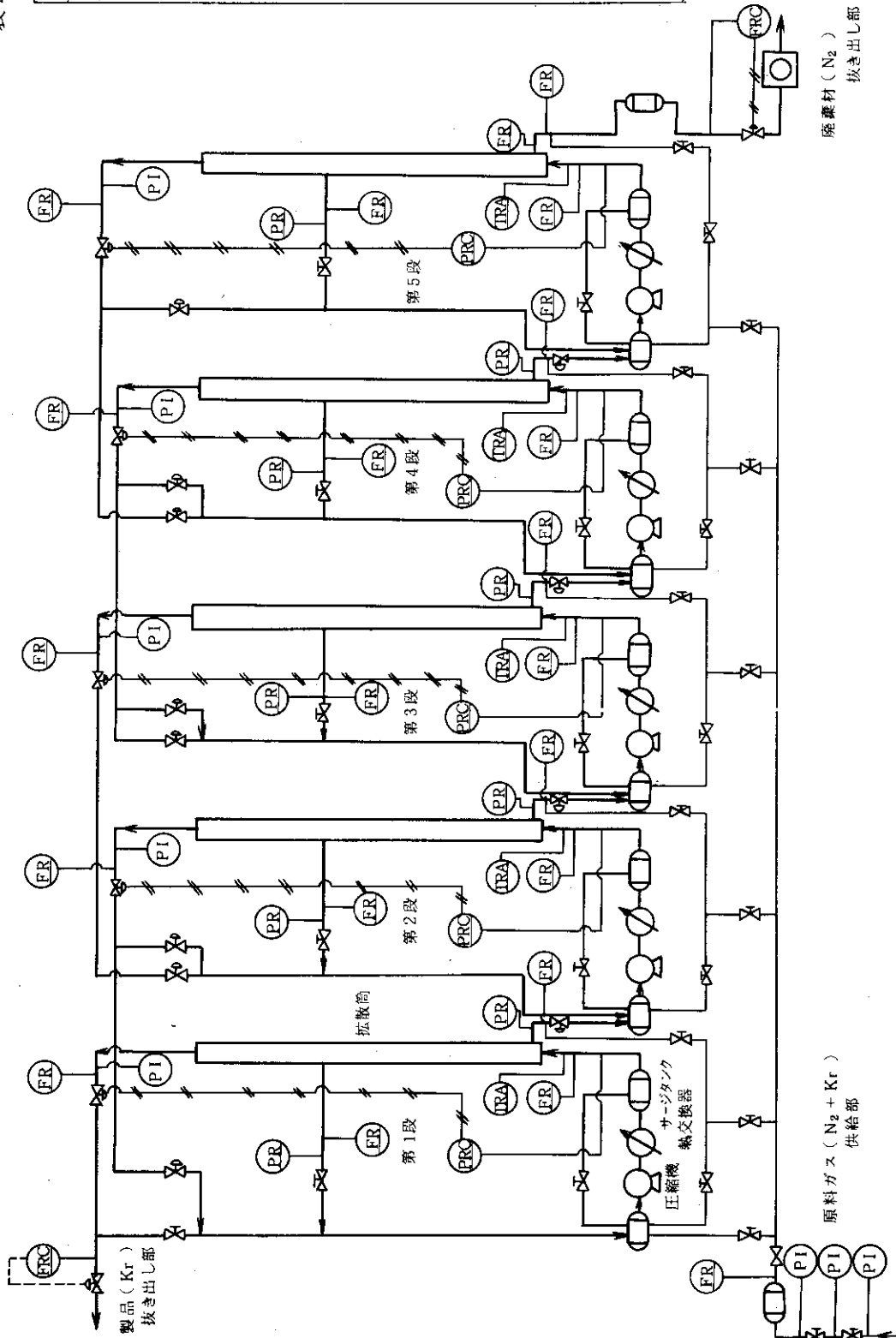
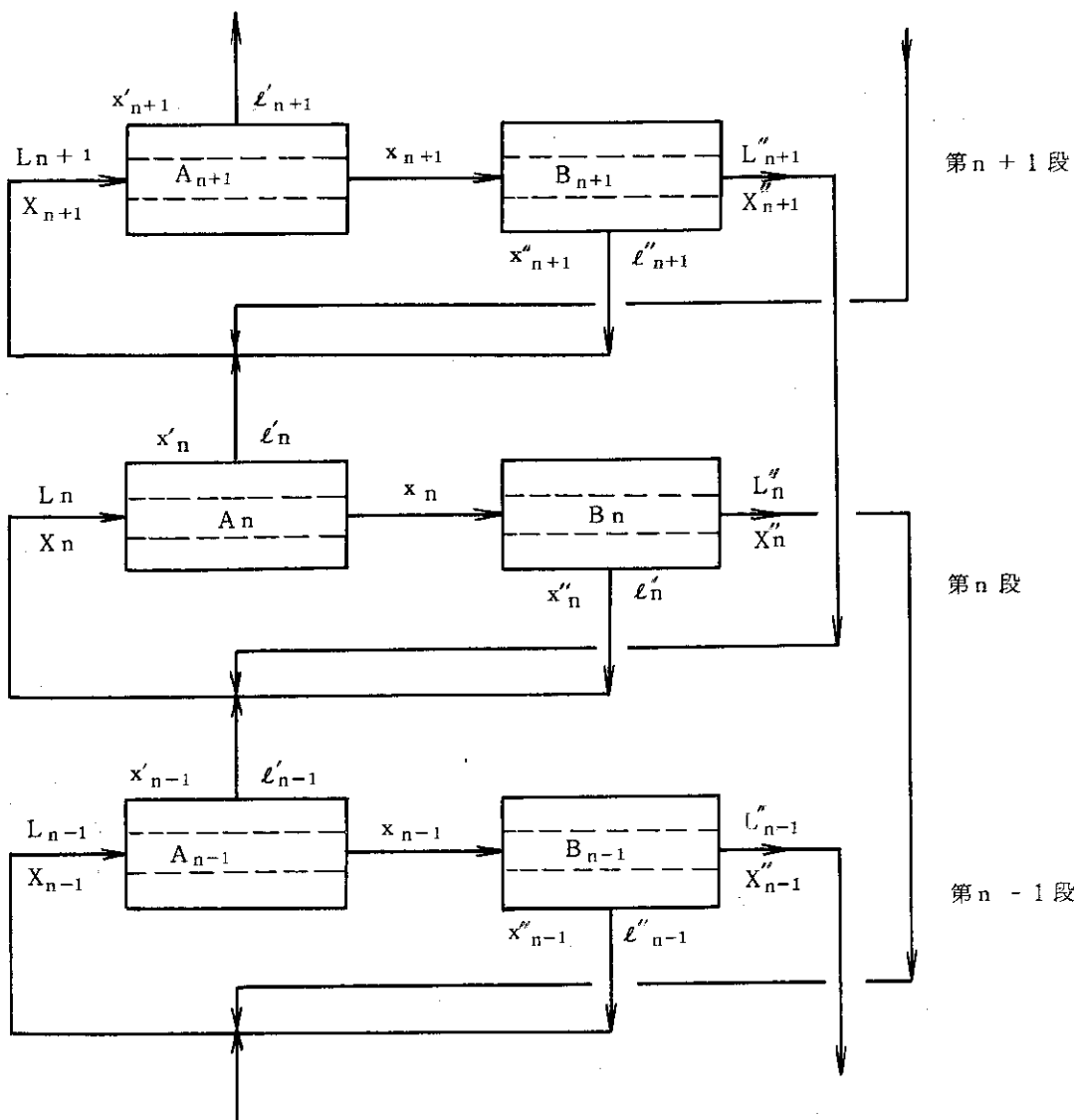


図 2-1 5 段カスケード実験装置の概略フローシート



記号 { L, l ; 流量
 { X, x ; 濃度 (軽成分)

図 2 - 2 Hertz 型カスケードの基本構成

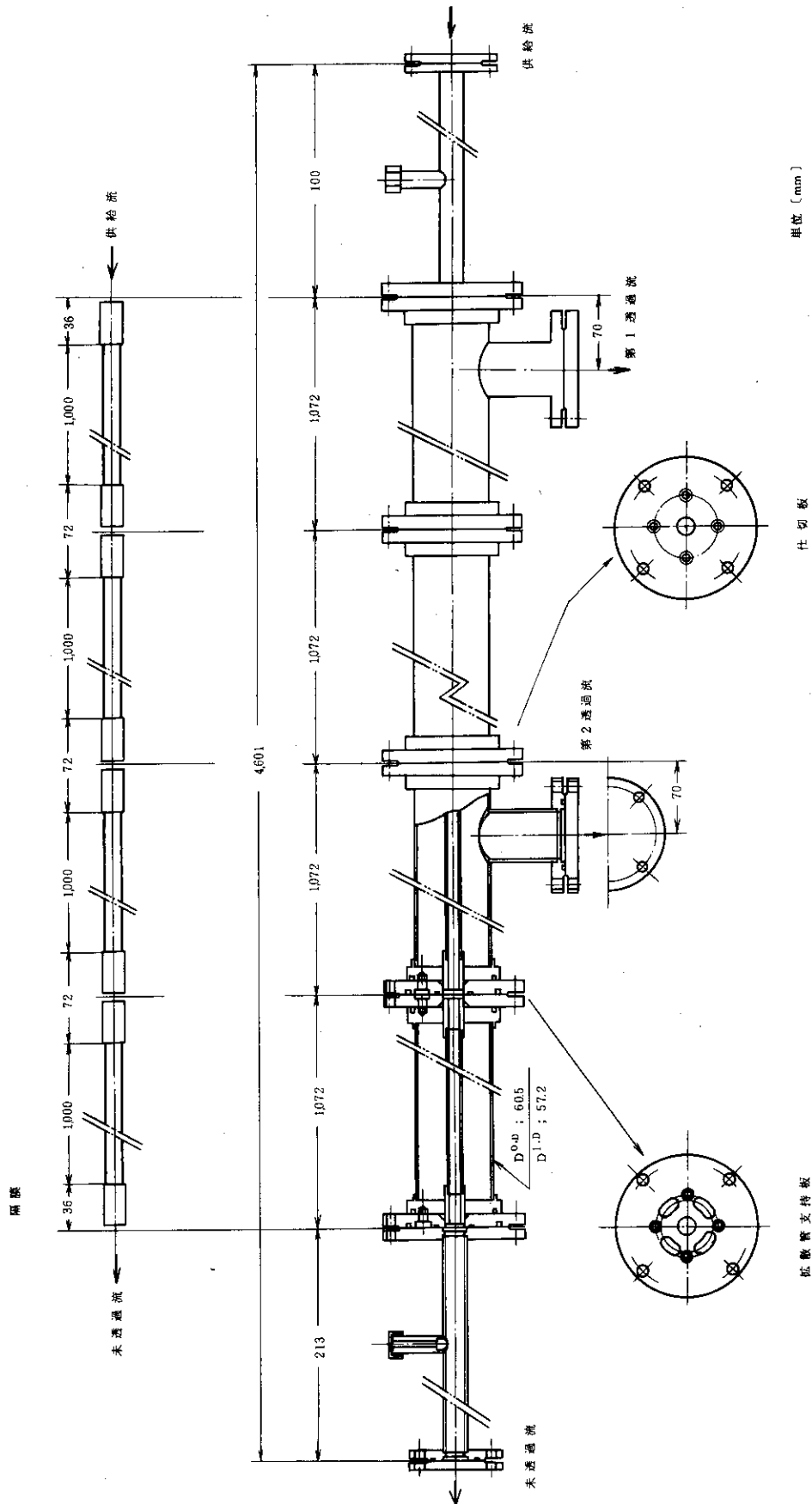


図 2 - 3 拡散筒の構造

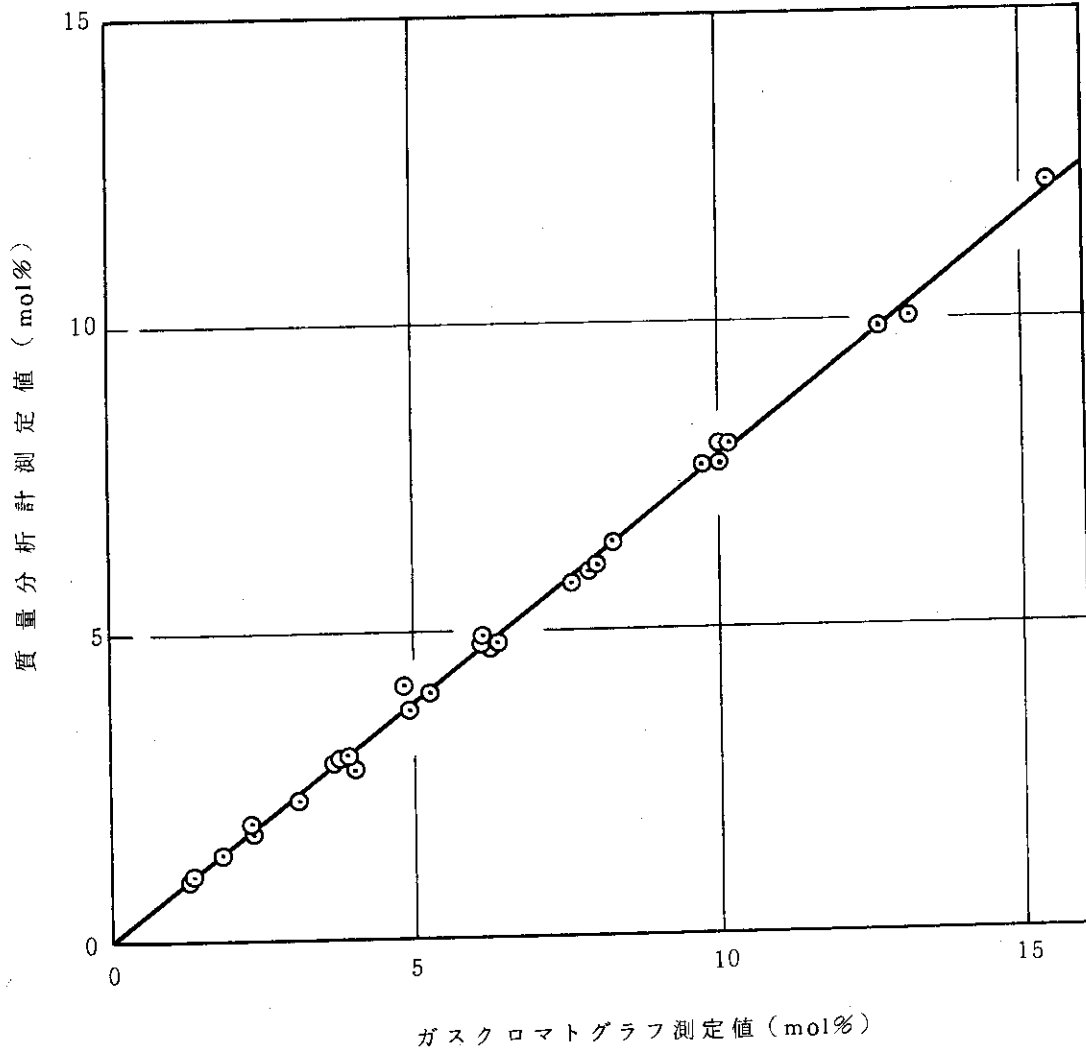


図 2-4 $N_2 - Kr$ 混合ガス中の Kr に対するガスクロマトグラフの感度補正曲線

3. 実験結果と考察

表3-1は、5段のカスケード実験装置による N_2 -Kr系の分離実験結果をまとめたものである。カスケード内の初期ガス組成は、全Runとも95% N_2 -5%Krに固定し、また、操作圧力、段間流量、段分離係数は、5段全体の平均値を示している。カスケードの形式は、Run-1以外は、全て2分割型拡散筒（分割比：1/1）によるHertz型カスケードである。両カスケードにおける分離係数の定義は、図3-1に示した通りである。通常型拡散筒による理想的な分離係数 α_0 は、

$$\alpha_0 = \sqrt{85/28} = 1.742$$

であるが、Run-1の結果では $\alpha = 1.65$ であり、比較的良好な値を示している。これは、分離効率 Z （ $\equiv \alpha - 1 / \alpha_0 - 1$ ）として87.6%に相当する。一方、Run 2~16における2分割型拡散筒を用いたHertz型カスケードでは、高圧側圧力が700~1660 Torrの広い範囲で、段分離係数 α_T として2.0前後の値を示している。すなわち、2分割型拡散筒を採用することにより、所要段数の削減が期待できることを示唆している。

図3-2は、実験結果の一例として、原料の供給および製品・廃棄材の抜き出しを定常的に行った場合のカスケード内の段方向濃度分布を示したものである（Run-10）。この図より、カスケード内にはきれいな濃度分布が形成されていることが分かる。また、各段の流れの混合点（ $1 - X_{n+1}''$, $1 - x_n''$, $1 - x_{n-1}'$ が混合して $1 - X_n$ となる）において、濃度的な混合が非常に大きくなっており、これが段分離係数を高め、段方向の濃度勾配を大きくしていることが理解される。このように、2分割型拡散筒によるHertz型カスケードは、内部循環（リサイクル）流をつくることにより段方向の濃度勾配を高めているため、1段当りの隔膜面積、圧縮機所要動力が増大するが、所要段数の削減には非常に有効であるといえる。

一方、この実験において、原料、製品、廃棄材の流量収支が正確には合っていないが、これは① N_2 -Kr系の混合ガスを取扱うため、スタートアップ時にあらかじめ濃度分布を想定して流量計の換算を行い、流量を設定する、②カスケード内の制御方法として圧力制御方式をとり、一方原料供給系および製品・廃棄材抜き出し系には流量制御方式を採用しているため、カスケード全体の制御系として一貫性がない、ことに起因していると考えられる。定常状態に達成したかどうかは、製品および廃棄材中のKr濃度を測定し、一定値になったことを確め判定している。

図3-3は、前図の濃度分布に対応したカスケード内の流動状態および分離特性を示したものである。流量、圧力、透過係数は各段ごとに若干異っているが、これは、各段における配管系の容積、流れ抵抗、圧縮機特性の僅かな違いならびにカスケード制御方法などに基づくものと考えられる。いま、分離特性としてカスケード全体の平均値を考えると、総括の段分離係数 α_T は約2.0、拡散筒AおよびBの分離係数 α_A , α_B は1.5~1.8、透過係数 Q は $1.6 \times 10^{-5} \text{ mol/cm}^2 \cdot \text{cm Hg} \cdot \text{min}$ である。またカット θ_A , θ_B は、それぞれ0.32, 0.51で、各段ほぼ一定となっている。

以上のように、各特性値については各段で若干のばらつきはみられるが、カスケード全体とし

ては非常に安定した特性を持っていると考えてよい。

なお、第1段目の高圧側圧力と第4, 5段目の低圧側圧力に若干の乱れがみられるが、これはカスケード内インベントリーとカスケード制御圧力(高圧側圧力)の設定値との不釣り合いにより生じたものである。すなわち、カスケード制御方式を改善すれば、これらの不均衡は除去できる。

図3-4は、各種操作条件下における分離実験結果を拡散筒の高圧側圧力 P_h を基準にしてまとめたものである。本実験では、高圧側圧力を700~1700 Torrの範囲内に設定したが、圧力比 r は、圧縮機特性と配管系の容積、抵抗などにより、高圧側圧力の増加とともに0.13から0.10に減少している。カットについては、隔膜前後の差圧が一定となるように高圧側圧力を制御しているため、分離器Aのカット θ_A は~0.32, 分離器Bのカット θ_B は~0.51, 1段の総括のカット θ_T は~0.68とほぼ一定値に保持できた。分離器A, Bの分離係数 α_A , α_B は、実験のばらつき範囲内に入って1.5前後の値をとり、高圧側圧力の増加とともに若干減少する傾向を示している。同様に、段分離係数 α_T も、1.8~2.1の範囲内にあり、高圧側圧力の増加とともに減少する傾向となっている。以上のように、2分割型拡散筒の段分離係数は、通常の拡散筒における理想的な分離係数 $\alpha_0 = 1.742$ に比べて、かなり大きな値をとり得ることが理解できる。なお図中に破線で示した分離係数 α は、次章で述べる分離係数の概略算出式(流れ様式を十字流とし、カットの効果のみを考慮した式)に本実験結果を代入し、逆算して求めたものである。これより本実験で得られた分離器A, Bの分離係数 α_A , α_B の値が、通常の拡散筒をカット0.5で運転した場合の分離係数 α の値1.59~1.70に相当していることが分かる。また、Run-1の分離係数 $\alpha = 1.65$ は、通常の方形カスケードについて得られたものであるが、先きの破線とよく一致している。すなわち、拡散筒の分離係数は、高圧側圧力 P_h , 圧力比 r , レイノルズ数 Re , カット θ などにより異なるものであるが、カットのみを考慮した簡便式でもカスケードの概略計算には十分使用できるといえる。

表 3-1 操作条件とカスケード特性

Run	操作圧力 (Torr)		段間流量 (NL/min)					カスケード処理量 (Ncc/min)			段分離係数 (-)	備考
	高圧側	低圧側	供給流	第1透過流	第2透過流	未透過流	原料流	製品流	廃棄流			
1	1126	111	83.6	42.1	—	41.5	0	0	0	1.65		
2	706	87	66.8	22.4	22.8	21.6	0	0	0	2.04		
3	898	104	83.6	28.0	27.1	28.4	0	0	0	2.01		
4	912	105	87.6	29.3	30.0	28.2	0	0	0	1.86		
5	912	113	86.0	28.9	29.8	27.3	0	0	0	2.03		
6	912	107	87.1	29.3	30.2	27.6	676 (1.80)	381 (18.30)	479 (0.72)	2.06		
7	912	112	86.9	28.9	29.3	28.7	2094 (4.4)	46.0 (19.50)	2092 (0.85)	2.00	原料供給段: 第4段	
8	920	105	86.5	28.7	29.3	28.4	0	0	0	1.94	" : 第3段	
9	920	107	86.7	28.9	29.8	27.8	5915 (1.14)	136 (17.30)	6127 (0.79)	2.00		
10	920	114	87.4	28.9	29.8	28.4	2366 (1.19)	52.5 (19.75)	2678 (0.83)	1.99	" : 第5段	
11	927	114	85.8	28.7	29.8	27.3	0	2393 (15.68)	2634 (0.81)	1.89	" : 第3段	
12	949	109	89.8	30.2	28.2	31.6	0	0	0	1.96		
13	1177	126	130.4	37.9	38.5	34.5	0	0	0	1.97		
14	1192	128	115.1	38.0	39.9	37.0	0	0	0	1.95		
15	1324	143	130.1	43.7	44.6	40.8	0	0	0	2.07		
16	1655	171	161.3	53.5	55.8	51.7	0	0	0	1.89		

• 表中の圧力, 段間流量, 段分離係数は, 5 段全体の平均値を表わす。

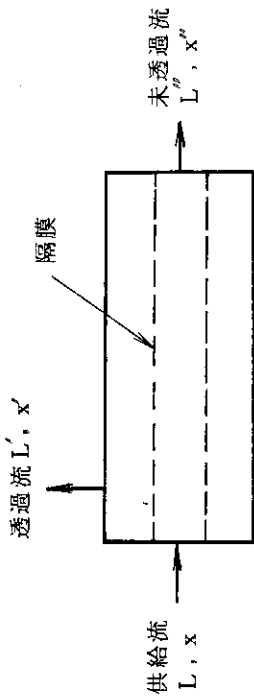
• () 内の値は, Kr の濃度 (mol%) を表わす。

• カスケードに充填した初期ガス組成は, すべて 5 (mol%) Kr-95 (mol%) N₂ である。

• カスケード形式は, Run 1 (通常型方形カスケード) 以外は, すべて 2 分割型 (分割比: 1/1) 拡散筒による Hertz 型カスケードである。

• 隔膜は, Run 1 (Al₂O₃-Ni) 以外は, すべて Al₂O₃-SUS 製のものである。なお, 向隔膜の ³⁶Ar-⁴⁰Ar の分離効率は, はほぼ同一である (~90%)。

通常型拡散筒

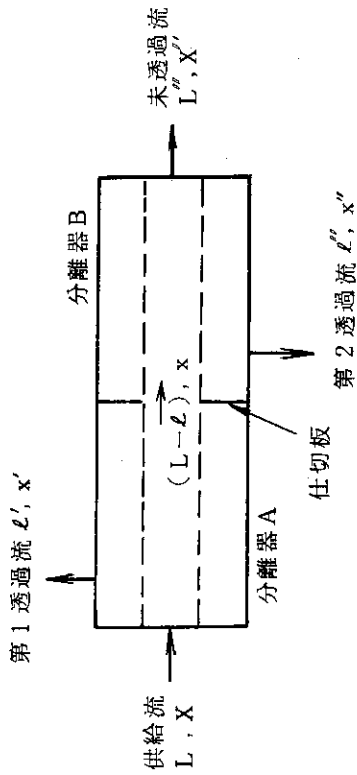


$$\text{段分離係数 } \alpha = \frac{x'/1-x'}{x''/1-x''}$$

$$\text{頭分離係数 } \beta = \frac{x'/1-x'}{x/1-x}$$

記号 { L, x ; 流量
X, x ; N₂ 濃度 (-)

2分割型拡散筒



$$\text{段分離係数 } \alpha_T = \frac{x'/1-x'}{x''/1-x''} = \frac{\alpha_A \cdot \alpha_B}{\beta_B}$$

$$\left. \begin{aligned} \text{分離器A} \left\{ \begin{aligned} \text{分離係数 } \alpha_A &= \frac{x'/1-x'}{x/1-x} \\ \text{頭分離係数 } \beta_A &= \frac{x'/1-x'}{X/1-X} \end{aligned} \right. \end{aligned}$$

$$\left. \begin{aligned} \text{分離器B} \left\{ \begin{aligned} \text{分離係数 } \alpha_B &= \frac{x''/1-x''}{x''/1-x''} \\ \text{頭分離係数 } \beta_B &= \frac{x''/1-x''}{x/1-x} \end{aligned} \right. \end{aligned}$$

図 3-1 通常型拡散筒および2分割拡散筒の分離係数

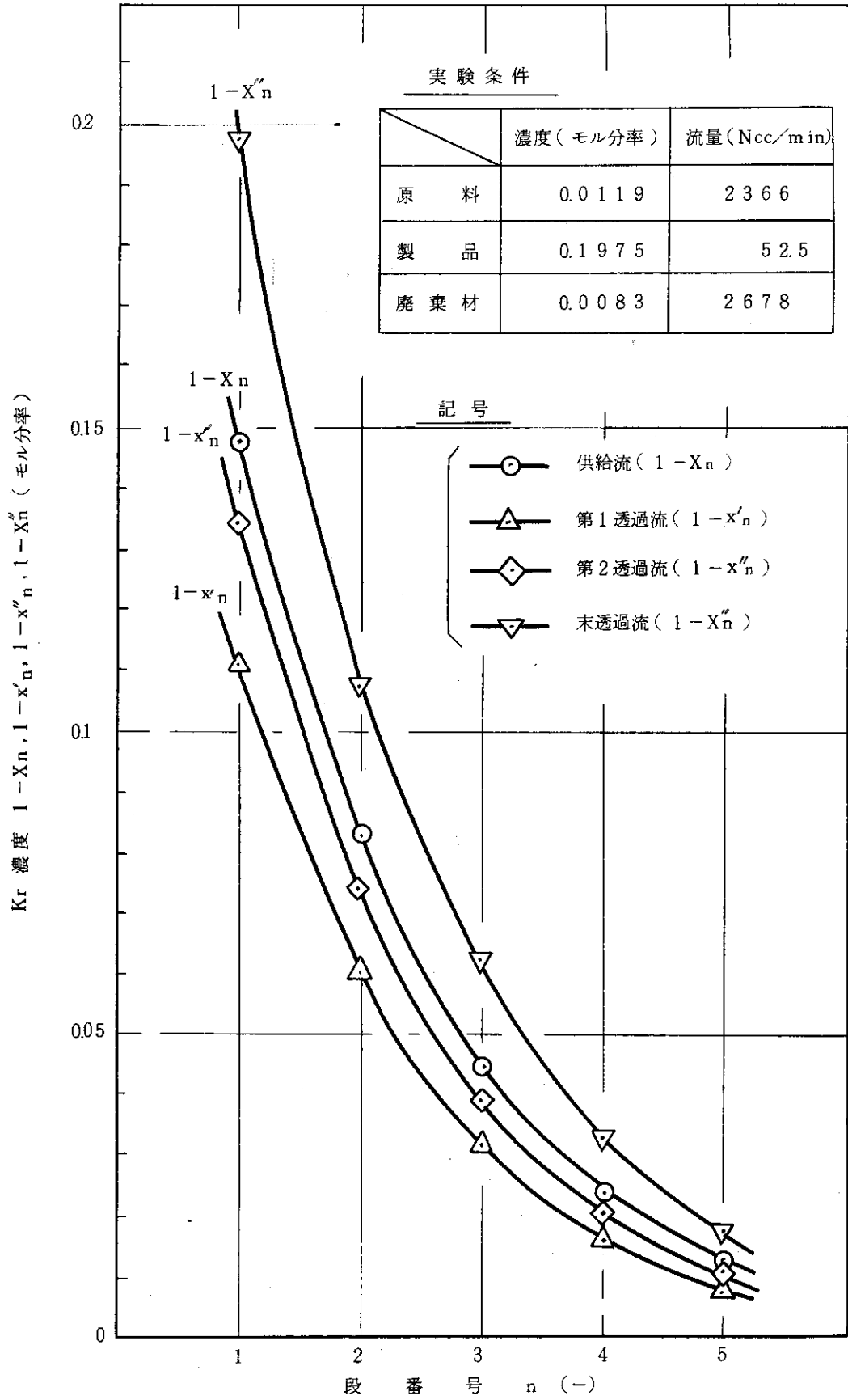


図3-2 カスケード内のKr濃度分布(Run-10)

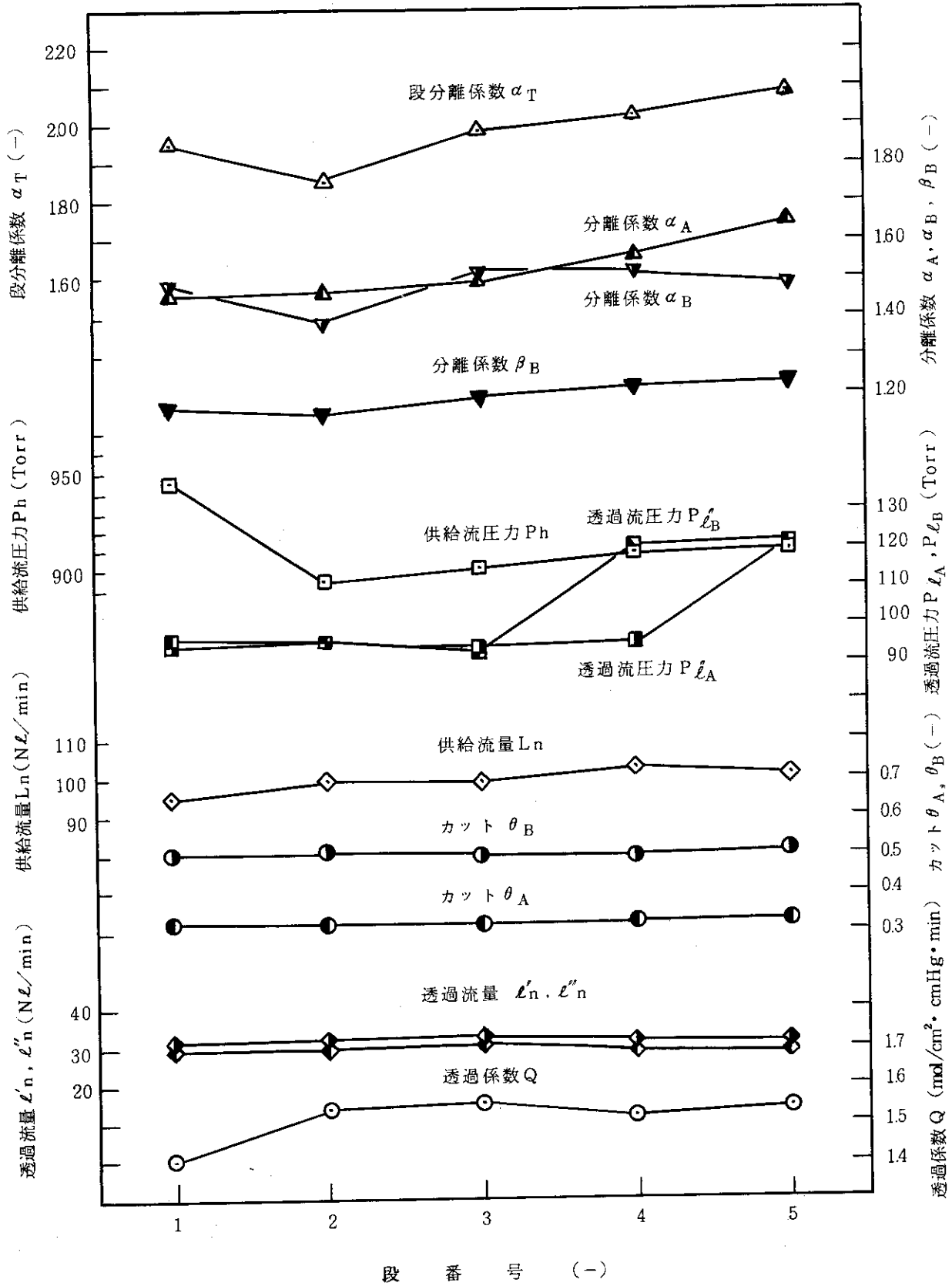


図 3-3 カスケード内の流動条件と分離特性 (Run-10)

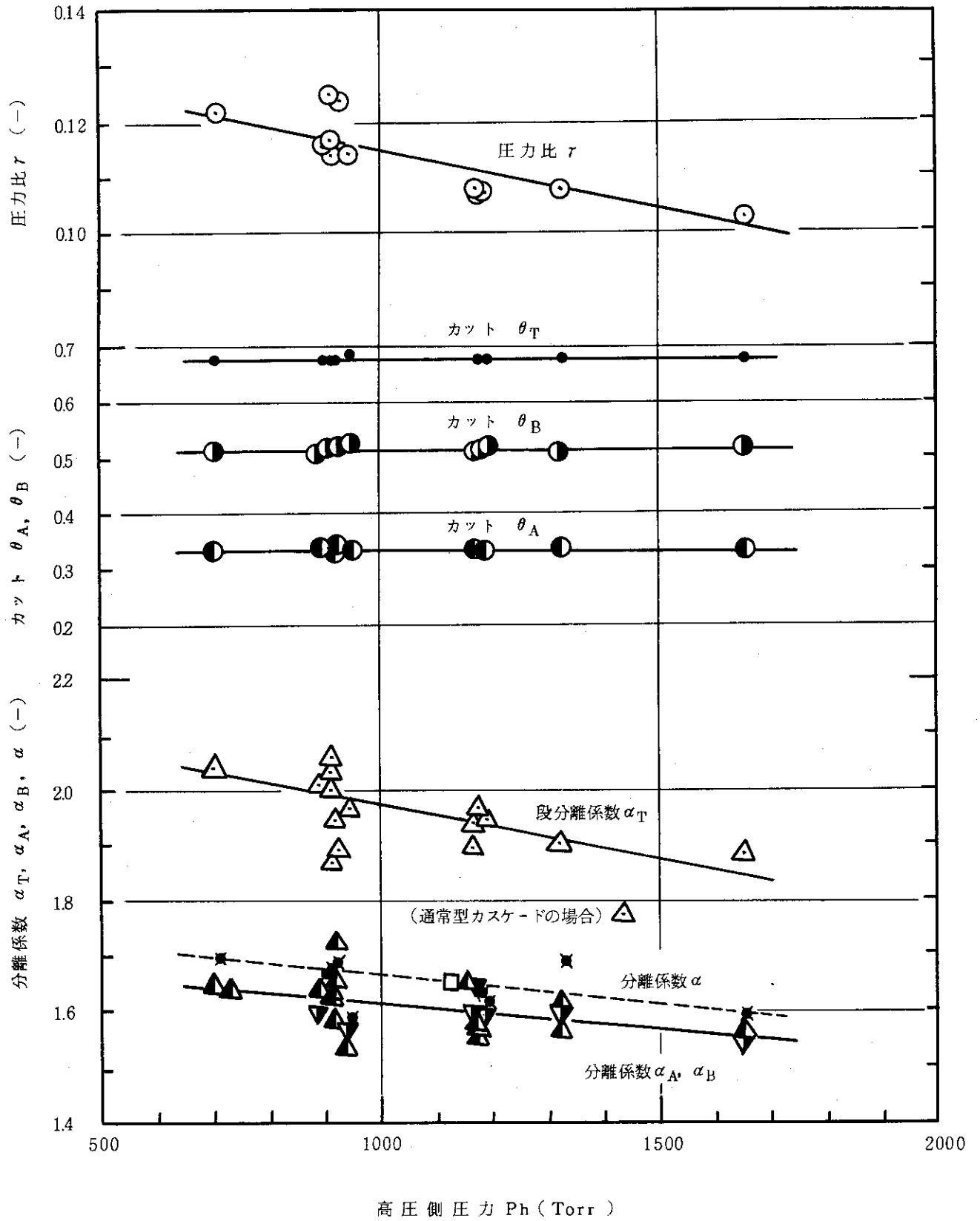


図 3-4 操作圧力とカスケードの分離特性

4. N₂-Kr 分離プラントの概略設計

4.1 設計計算式

前章の分離実験より，多孔質隔膜法による N₂-Kr 系の分離係数として，通常の拡散筒では ~1.65，2分割型拡散筒では ~2.00 という好結果が得られることが判明した。ここでは，ウラン濃縮プラントの設計計算法として提案した2分割型拡散筒による Hertz 型カスケードの算出式¹²⁾を N₂-Kr 分離カスケードの場合に拡張するとともに，拡散筒の大きさおよび圧縮機の所要動力に関する概略計算式を与えた。

4.1.1 カスケードの規模

(1) 仮定

カスケードは，図4-1に示したように，全体として方形カスケードを構成しているものとする。また，隔膜の特性は全段均一とし，拡散筒（分離器）A，Bの分割比 f_i (l_i''/l_i') は全段同一とする。圧力，圧力比などの操作条件も全段同一とする。

すなわち，回収部における流量関係として，

$$\left. \begin{aligned} l_1' &= l_2' = \dots = l_i' = l_m' (\equiv l_s') \\ l_1'' &= l_2'' = \dots = l_i'' = l_m'' (\equiv l_s'') \\ L_1 &= L_2 = \dots = L_i'' = L_m (\equiv L_s) \\ L_1'' &= L_2'' = \dots = L_i'' = L_m (\equiv L_s'') \end{aligned} \right\} \dots \dots \dots (4.1)$$

が成立する。濃縮部についても同様である。

また，流量の単位は (Nℓ/sec, mol/sec)，濃度の単位は軽成分 N₂ のモル分率 (-) とする。

(2) カスケード全体の物質収支

図4-1に示したカスケードについて，流量および軽成分の物質収支をとると，次式が得られる。

$$F = P + W \dots \dots \dots (4.2)$$

$$F \cdot x_F = P \cdot x_P + W \cdot x_W \dots \dots \dots (4.3)$$

Kr 分離プラントにおいては，原料 ($F, 1-x_F$) および廃棄ガス中の Kr 濃度 ($1-x_W$) が与えられるものと考えられるが，上式を満足させるためにはもう1つの条件が必要である。そこでさらに，プラントにおける Kr の回収率 R が与えられるものとする。すなわち，

$$R = \frac{R(1-x_P)}{F(1-x_F)} \dots \dots \dots (4.4)$$

以上の3式を用いることにより，カスケードの出入口の条件は全て求まる。

(3) カスケードの所要段数および濃度分布

プラント内の濃度分布は，カスケード出口段の濃度から逐次的に求めることができる。ここで

は、回収部についての濃度分布算出法を記す。

最上段

廃棄材濃度 x_w は既知であるので、

$$x_i' = x_w \text{ (4.5)}$$

i 段

i 段目の分離器 A に関する平衡関係より、

$$x_i = \frac{x_i'}{\alpha_A - x_i' (\alpha_A - 1)} \text{ (4.6)}$$

分離器 B の物質収支から、

$$(L_s'' + l_s'') \cdot x_i = l_s'' \cdot x_i'' + L_s'' \cdot X_i'' \text{ (4.7)}$$

一方、分離器 B に関する平衡関係から、

$$x_i'' = \frac{\alpha_B \cdot X_i''}{1 + X_i'' (\alpha_B - 1)} \text{ (4.8)}$$

(4.7), (4.8) 式から、

$$(\alpha_B - 1) L_s'' \cdot X_i''^2 + \{ (\alpha_B \cdot l_s'' + L_s'') - (\alpha_B - 1)(L_s'' + l_s'') x_i \} X_i'' - (L_s'' + l_s'') x_i = 0 \text{ (4.9)}$$

上式を解くと、

$$X_i'' = \frac{(\alpha_B - 1)(L_s'' + l_s'') x_i - (\alpha_B \cdot l_s'' + L_s'') + \sqrt{\{ (\alpha_B \cdot l_s'' + L_s'') - (\alpha_B - 1)(L_s'' + l_s'') x_i \}^2 + 4(\alpha_B - 1)(L_s'' + l_s'') L_s'' \cdot x_i}}{2 (\alpha_B - 1) L_s''} \text{ (4.10)}$$

また、 x_i'' は (4.8) 式から求めることができる。

以上の計算を行うためには、カスケードの段間流量が与えられなければならない。ここでは、次のようにカスケードの還流比 r_s を与えるものとする。すなわち、

$$r_s = \frac{L_s''}{W} \text{ (4.11)}$$

(i + 1) 段目より上の流量収支より

$$l_s' = \bar{L}_s'' + W = W (r_s + 1) \text{ (4.12)}$$

分割比の定義より、

$$l_s'' = f_s \cdot l_s' = W \cdot f_s (r_s + 1) \text{ (4.13)}$$

したがって、

$$L_s = l_s' + l_s'' + L_s'' = W \{ 2r_s + 1 + f_s (r_s + 1) \} \text{ (4.14)}$$

以上の関係式から*i* 段目における濃度関係が求まる。

i + 1 段

(*i* + 1) 段目より上の物質収支から、

$$\begin{aligned} x'_{i+1} &= \frac{L_s'' \cdot X_i'' + W \cdot x_w}{l_s'} \\ &= \frac{L_s''}{L_s'' + W} \left(X_i'' + \frac{W}{L_s''} \cdot x_w \right) \dots\dots\dots (4.15) \end{aligned}$$

また、*i* 段目の分離器 A への供給流濃度は、混合点の物質収支より、

$$\begin{aligned} X_i &= \frac{L_s'' \cdot X_{i-1}'' + l_s'' \cdot x_i'' + l_s' \cdot x'_{i+1}}{L_s} \\ &= \frac{L_s'' \cdot X_{i-1}'' + l_s'' \cdot x_i'' + l_s' \cdot x'_{i+1}}{L_s'' + l_s'' + l_s'} \dots\dots\dots (4.16) \end{aligned}$$

上記の計算を $x'_i = x_i$ になるまで繰返し行えば、回収部における濃度分布と所要段数が同時に求められる。濃縮部についても同様である。

(4) 分離係数

以上、Hertz 型カスケードについて所要段数と濃度分布の計算手順を明らかにしたが、実際の計算には α_A 、 α_B の値が必要である。

拡散筒の分離係数 α は、一般に次式で表わされる¹³⁾

$$\alpha - 1 = (\alpha_0 - 1) S_1 \cdot S_2 \cdot S_3 \cdot S_4 \cdot S_5 \dots\dots\dots (4.17)$$

- ここで、 S_1 ; 逆拡散の効果
 S_2 ; Present-de Bethune の効果
 S_3 ; 境界層の効果
 S_4 ; 流れ様式の効果
 S_5 ; 表面拡散流の効果

いま、分離器 A、B において、

$$S_{1A} \cdot S_{2A} \cdot S_{3A} \cdot S_{5A} = S_{1B} \cdot S_{2B} \cdot S_{3B} \cdot S_{5B} \dots\dots\dots (4.18)$$

なる関係が成立するものと仮定する。さらに、流れ様式を十字流と仮定すれば、カットの効果のみに着目すればよいことになる。

分離器 A、B において、カットの効果は次式で与えられる。

$$\begin{aligned} S_{4A} &= \frac{1}{\theta_A} \ln \frac{1}{1 - \theta_A} \\ &= \left(\frac{l_s' + l_s'' + L_s''}{l_s'} \right) \ln \frac{l_s' + l_s'' + L_s''}{l_s'' + L_s''} \dots\dots\dots (4.19) \end{aligned}$$

$$S_{4B} = \frac{1}{\theta_B} \ln \frac{1}{1-\theta_B}$$

$$= \left(\frac{l_s'' + L_s''}{l_s''} \right) \ln \frac{l_s'' + L_s''}{L_s''} \quad (4.20)$$

いま、通常の分離器でカット 0.5 のときの分離係数 α が与えられた場合、これを分離器 A, B として使用すると、分離係数 α_A, α_B は次のようになる。

$$\alpha_A = 1 + \frac{(\alpha-1)}{1.39} \cdot \left(\frac{l_s' + l_s'' + L_s''}{l_s'} \right) \ln \frac{l_s' + l_s'' + L_s''}{l_s'' + L_s''} \quad (4.21)$$

$$\alpha_B = 1 + \frac{(\alpha-1)}{1.39} \cdot \left(\frac{l_s'' + L_s''}{l_s''} \right) \ln \frac{l_s'' + L_s''}{L_s''} \quad (4.22)$$

4.1.2 拡散筒の大きさと構造

前記のカスケード計算においては、(4.1)式で示した流量関係を仮定し、全体として方形カスケードを構成しているものとした。 N_2 -Kr系の分離においては、両者の分子量に大きな違いがあるため、拡散筒の隔膜所要面積は段方向で変化する。

いま、回収部 i 段目の拡散筒について考える。

分離器 A への供給流濃度は X_i であるので、このときの見掛けの透過係数 Q_{iA} は次式で与えられる。

$$Q_{iA} = (Q_{iA})_{N_2} \cdot X_i + (Q_{iA})_{Kr} \cdot (1 - X_i)$$

$$= (Q_{iA})_{N_2} \left(X_i + \frac{1 - X_i}{\alpha_A} \right) \quad (4.23)$$

ここで、

$$\alpha_A = \frac{(Q_{iA})_{N_2}}{(Q_{iA})_{Kr}} \quad (4.24)$$

同様にして、分離器 B では、

$$Q_{iB} = (Q_{iB})_{N_2} \left(x_i + \frac{1 - x_i}{\alpha_B} \right) \quad (4.25)$$

ここで、

$$\alpha_B = \frac{(Q_{iB})_{N_2}}{(Q_{iB})_{Kr}} \quad (4.26)$$

したがって、回収部 i 段目における拡散筒の隔膜面積 A_i は、

$$A_i = \frac{l_s'}{Q_{iA} \cdot \Delta P} + \frac{l_s''}{Q_{iB} \cdot \Delta P} \quad (4.27)$$

しかし、実際の計算では、 $X_i \cong x_i$ であるので、次の簡略式を使用した。

$$A_i \cong \frac{l'_s + l''_s}{Q_{N_2} \left(X_i + \frac{1-X_i}{\alpha} \right) \Delta P} \quad (4.28)$$

ここで、 Q_{N_2} は、カット 0.5 のとき、同じ圧力条件で N_2 のみを流したときの N_2 の透過係数であり、 α は同様の条件における分離係数である。

つぎに、拡散筒の大きさは、隔膜管の形状、寸法が指定されると、隔膜の所要面積、配列方法により、簡単に求めることができる。

拡散筒の胴部直径 D_i 、隔膜本数 n_i 、隔膜配列環数 N_i は、シェルアンドチューブ型熱交換器などに採用されている正三角形配列を考えると、次式で与えられる。

$$D_i = 2 N_i \cdot P_i - d \quad (4.29)$$

$$\left. \begin{aligned} n_i &= \frac{A_i}{\pi d \ell} \\ &= 1 + 6 \sum (N_i - 1) \end{aligned} \right\} \quad (4.30)$$

ここで、 D_i ; i 段目拡散筒の胴部直径 (cm)

N_i ; i 段目拡散筒内の隔膜管の配列環数 (-)

P_i ; 隔膜管の配列ピッチ (cm)

n_i ; i 段目拡散筒の隔膜管本数 (-)

A_i ; i 段目拡散筒の隔膜面積 (cm²)

d ; 隔膜管直径 (cm)

ℓ ; 隔膜管の長さ (cm)

拡散筒の全長は、両端の鏡部、接続フランジなどを考慮すると、隔膜管長さの約 1.3 倍程度になると考えてよい。

4.1.3 圧縮機の所要動力

N_2 -Kr 分離プラントにおいては、カスケード内濃縮部のガス組成がスタートアップ時と定常時で著しく異なる。したがって、圧縮機の設計には、ガス組成の経時変化に伴うガス物性値の変化に対して考慮を払う必要がある。

(1) 混合ガスの物性値

N_2 -Kr 混合ガスにおいては、理想気体の法則がほぼ完全に適用できると考えられる。いま、 i 段目における Kr 濃度を y_i ($\equiv 1 - x_i$) とすると、圧縮機所要動力の算出に必要なガス物性値は、以下の式で与えられる。

ガス定数 R_i (kg·m/kg·°K) は、

$$R_i = \frac{y_i \cdot M_{Kr} \cdot R_{Kr} + (1 - y_i) \cdot M_{N_2} \cdot R_{N_2}}{M_i} \quad (4.31)$$

平均分子量 M_i は、

$$M_i = y_i \cdot M_{Kr} + (1 - y_i) M_{N_2} \quad (4.32)$$

比重量 τ_i (kg/m³) は,

$$\tau_i = 4.46 \times 10^{-2} M_i \quad (4.33)$$

定圧比熱 C_{p_i} (kcal/kg·°K) は,

$$C_{p_i} = \frac{y_i \cdot M_{Kr} \cdot C_{p_{Kr}} + (1 - y_i) \cdot M_{N_2} \cdot C_{p_{N_2}}}{M_i} \quad (4.34)$$

比熱比 κ_i は,

$$\kappa_i = \frac{1}{1 - \frac{J \cdot R_i}{C_{p_i}}} \quad (4.35)$$

ここで, $J = 1/427$ (kcal/kg·m)

(2) 所要動力

i 段目の圧縮機の所要断熱ヘッド H_{ad_i} (m) は, 次式で与えられる。

$$H_{ad_i} = \frac{\kappa_i}{\kappa_i - 1} \cdot R_i \cdot T_s \left\{ \left(\frac{P_d}{P_s} \right)^{\frac{\kappa_i - 1}{\kappa_i}} - 1 \right\} \quad (4.36)$$

ここで, T_s ; 吸込み温度 (°K)

P_s ; 吸込み圧力 (mmHg)

P_d ; 吐出圧力 (mmHg)

また, 圧縮機の出口温度 T_d (°K) は,

$$T_d = T_s \left(\frac{P_d}{P_s} \right)^{\frac{\kappa_i - 1}{\kappa_i}} \quad (4.37)$$

圧縮機の所要理論動力 E_{ad_i} (KW) は, 次式で求めることができる。

$$E_{ad_i} = \frac{\tau_i \cdot L_i \cdot H_{ad_i}}{102} \quad (4.38)$$

なお, 上式においては, 隔膜未透過流を圧縮機内の圧力が釣合った位置へ供給する方式, すなわち, サイドフロー方式は考慮していない。また, 圧縮機効率については, 採用する機種および設計条件により異なるため, これを考慮していない。

4.2 計算結果と考察

前節に示した計算式を用いて, 対象とする N_2 -Kr 分離プラントがどの程度の規模になるかを検討する。

4.2.1 計算条件

図4-2は、ここで取上げる分離プラントの計算条件を示したものである。カスケードに供給する組成および流量は、動燃団再処理施設からのオフガスを参考にして定めている。実際のオフガスには、Xe, Ar, NO_x, CO₂などが含まれているが、今回の検討ではN₂-Krの2成分系に限定した。

Krの回収率は、90% (800Ci/day 放出) および99% (80Ci/day 放出)とし、また、製品として抜き出されるKr濃縮ガスの濃度(1-x_p)は、90%に定めた。

操作圧力は、高圧側圧力P_hを900mmHg、低圧側圧力P_lを100mmHgとする。したがって、圧力条件は全段を通じて一定である(圧力比一定)。

隔膜の分離係数 α は、通常の拡散筒においてカットが0.5のときの値を基準とし、1.40, 1.50, 1.60, 1.70の4ケースを想定した。透過係数は、現在の製造技術レベルから達成可能な 3×10^{-5} mol-N₂/cm²·cmHg·minを採用した。

4.2.2 計算結果

図4-3は、Kr回収率を90%とした場合のカスケード1段当りの循環流量Lと所要段数Nとの関係を分離係数 α をパラメーターとして点綴したものである。これより、濃縮部では循環流量が60Nℓ/sec以上になると、また、回収部では80Nℓ/sec以上になると、所要段数はほぼ一定になることがわかる。なお、図において、段数が階段的に変化するのは、計算上段数を整数化しているためである。

図4-4は、通常の方形カスケードと2分割型拡散筒により構成されるHertz型カスケードについて、Kr回収率を90%、分離係数を1.60としたときの所要段数を比較したものである。これより、2分割型拡散筒の採用により、所要段数を大幅に削減できることがわかる。この傾向は、濃縮部において特に顕著である。例えば、通常の方形カスケードにおいては濃縮部27段(循環流量~60Nℓ/sec)、回収部9段(循環流量~80Nℓ/sec)であるのに対し、Hertz型カスケードではそれぞれ20段、7段となり、これはカスケード全体として約25%も所要段数が減少したことに相当する。

図4-5は、Kr回収率が90%のときの循環流量とカスケード循環流量の総和N·Lとの関係を分離係数をパラメーターとして示したものである。ここで、カスケード循環流量の総和は、カスケード全体の圧縮機の所要動力および隔膜の所要面積に比例し、カスケードの規模を表わしている。図より、濃縮部においては、循環流量の総和の最小値が、最小還流比の極く近くに相当する循環流量で明確に現われることがわかる。一方、回収部においては、循環流量の総和に大きな変化はみられず、非常に緩やかな曲線となっている。これは、製品と廃棄材の抜き出し流量が大幅に異なるためである。

図4-6は、Kr回収率とカスケード所要段数との関係を示したものである。ここでは、分離係数を1.60に固定し、Kr回収率を90%、99%としたときの所要段数の差違を示している。図より、Kr回収率の増加は、主に回収部所要段数に影響することがわかる。すなわちKr回収率を90%から99%に高めるには、回収部の段数を約2倍にするだけでよい。

4.2.3 モデルプラントの概略設計

前項の計算結果に基づき、N₂-Kr分離プラントとして、図4-7に示したカスケードモデル

を考える。この場合、分離係数として1.60, Kr 回収率として90%を採用している。このときのプラント規模は、濃縮部；段数19段, 循環流量80 Nℓ/sec, 回収部；段数6段, 循環流量100 Nℓ/secである。なお、濃縮部, 回収部の流量は、循環流量の総和が最小になる値よりも若干大き目を選び、カスケード操作上の安定性を考慮している。

図4-8は、モデルプラントにおける段方向の濃度分布を示したものである。段番号1の下降流 ($1 - X_1'' = 0.90$) が製品となり、段番号25の上昇流 ($1 - x_{25}' = 10^{-5}$) が廃棄材となる。図中、▲, ▼印で示した濃度分布は、実験データ (Run-10) を点綴したものである。これより、両濃度分布の勾配は非常によく一致していることがわかる。これは、本計算で使用した分離係数1.60が、Hertz型カスケードの段分離係数 $\alpha_T = 2.00$ に相当し、前提条件の妥当性を示している。

以上の検討により、モデルプラントの操作条件、流量、濃度分布が明らかにされた。そこで、カスケードを構成する拡散筒、圧縮機について考察する。

図4-9は、モデルプラントの各段における拡散筒の隔膜所要面積および圧縮機の所要動力を示したものである。このカスケードでは、循環流量を各段一定としているため、濃度分布に応じて隔膜所要面積および圧縮機所要動力のいずれも段方向で変化することになる。

1段当りの隔膜所要面積は5.9~8.3 m², 圧縮機所要動力は27~34 KWの範囲内に入っており、拡散筒および圧縮機はかなり小型になることが期待できる。また、カスケード全体では、隔膜面積は173 m², 圧縮機所要動力は729 KWに過ぎない。

図4-10は、隔膜面積が最大となる段における拡散筒の概略構造を示したものである。隔膜管の直径を2 cm ϕ , 有効長さを4 mとすると、隔膜管の所要本数は36本となる。また、拡散筒の胴部直径は35 cm ϕ , 全長は5 mである。ここで、隔膜管の配列ピッチは、 $P_1 = 4$ cmにとり、胴部直径は、隔膜管の組立ての容易さを考慮してかなりの余裕を見込んでいる。隔膜透過流の取り出しノズルの位置は、向流型の流れ様式を期待するものであるが、隔膜近傍では十字流に近い流れになると考えられる。

図4-11は、分離プラントの大きさの目安を示すカスケードの概略配置である。拡散筒を縦型に設置し、その下に熱交換器、圧縮機を配置すれば、カスケード設置面積は、2列配置で約140 m² (7 m \times 20 m) となり、非常にコンパクトにまとめることができる。ここで、拡散筒の大きさ (直径、長さ) は、すべて前図と同一にしており、段方向の循環流量に応じて拡散筒内に装着する隔膜管本数だけを変えることにしている。また、圧縮機には、流量の大きさ、運転の安定性から、全段同じ容量の遠心圧縮機を採用し、流量の調整は、バイパス弁により行うことを想定している。

以上の検討から、動燃団再処理施設のオフガス条件を考慮して定めたN₂-Kr分離用のモデルプラントは、2分割型拡散筒によるHertz型カスケードの採用により、非常にコンパクトに設計できることが判明した。今後の課題としては、実際のオフガス組成に近い条件 (多成分系) により分離実験を行い、操作条件と分離特性の関係を明らかにするとともに、この結果を用いてオフガス分離プラントの概念設計を行い、多孔質隔膜法の技術的、経済的見通しを得ることが必要である。

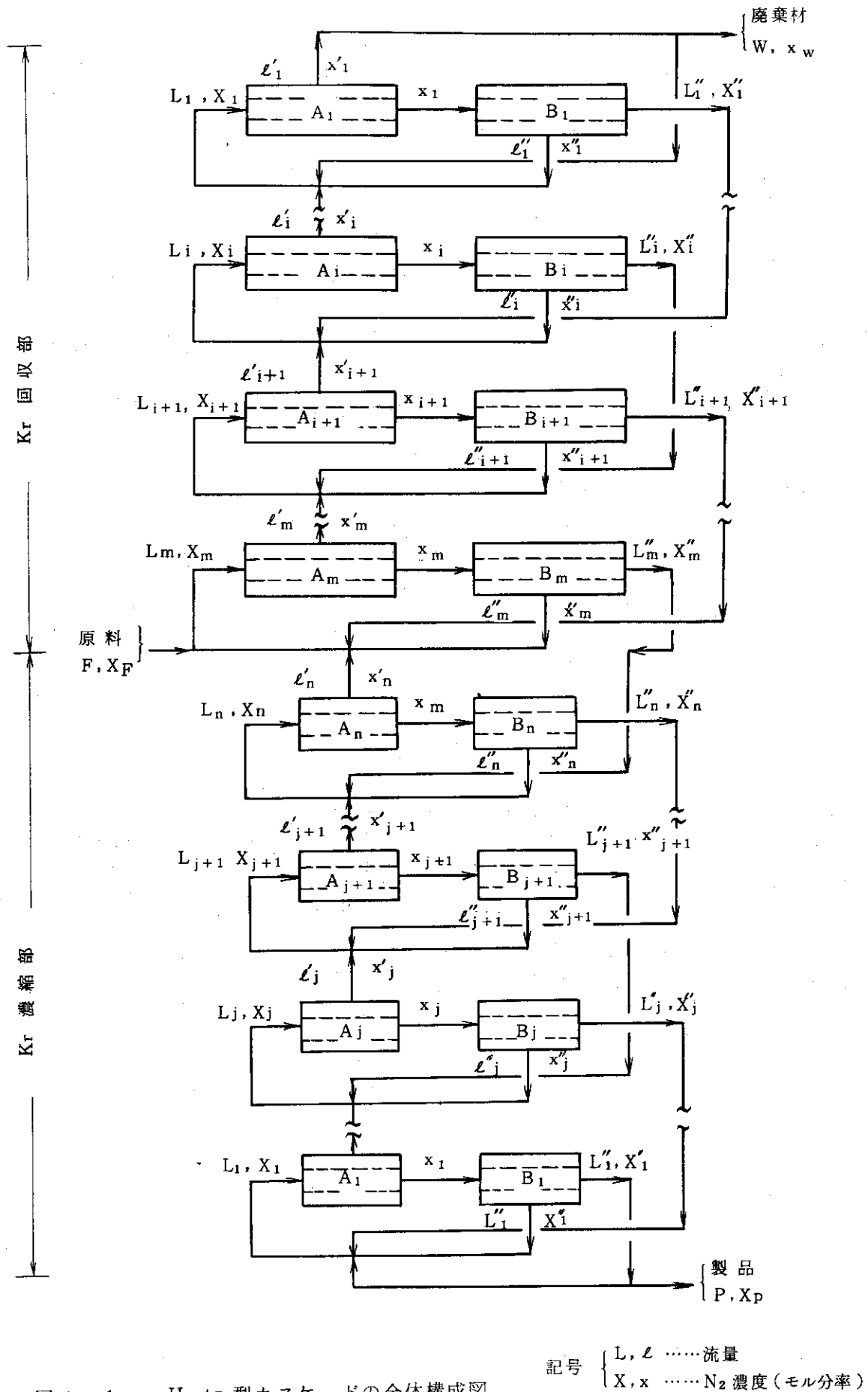


図 4-1 Hertz 型カスケードの全体構成図

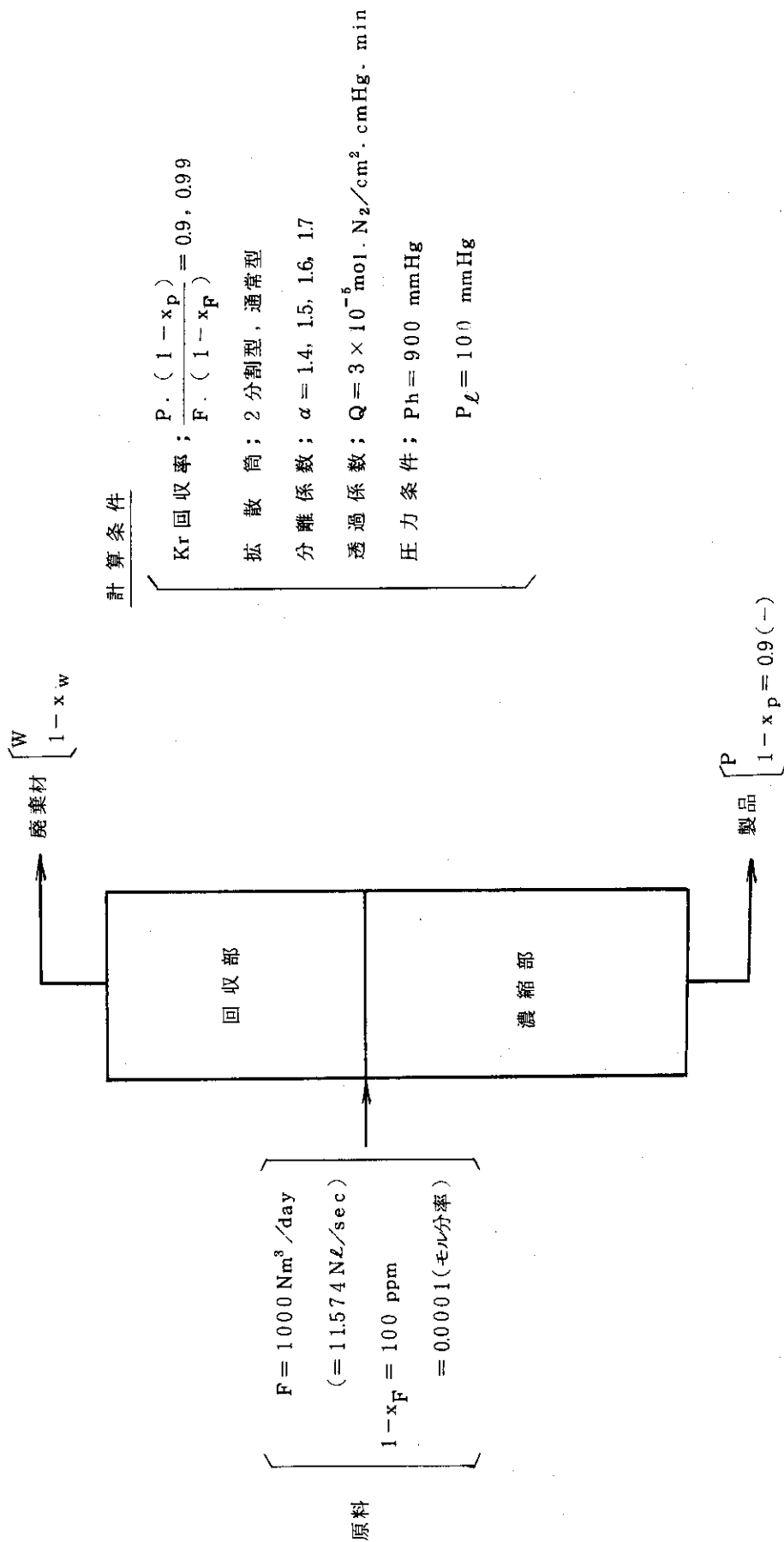


図4-2 N₂-Kr分離カスケードの計算条件

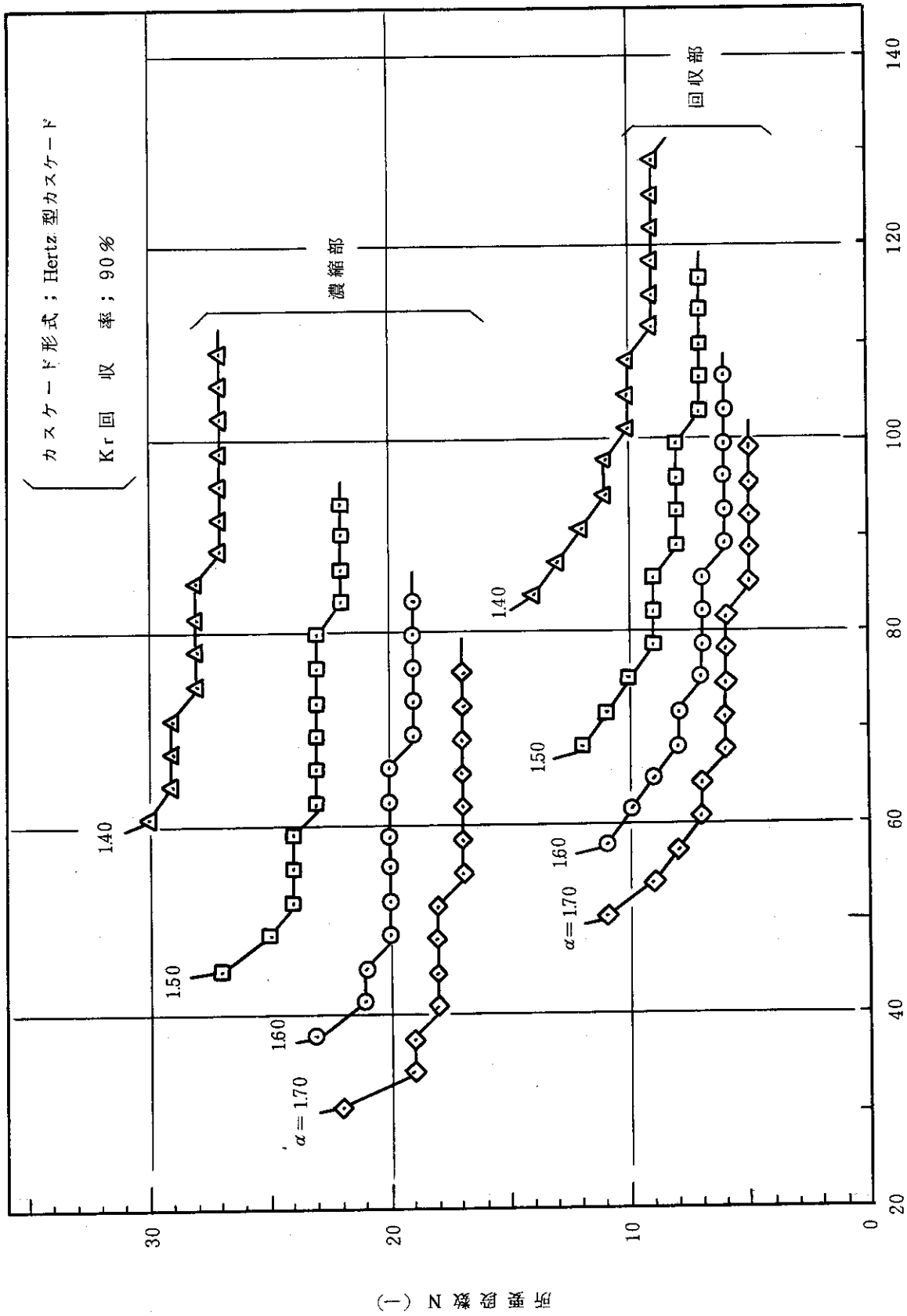


図4-3 カスケード所要段数

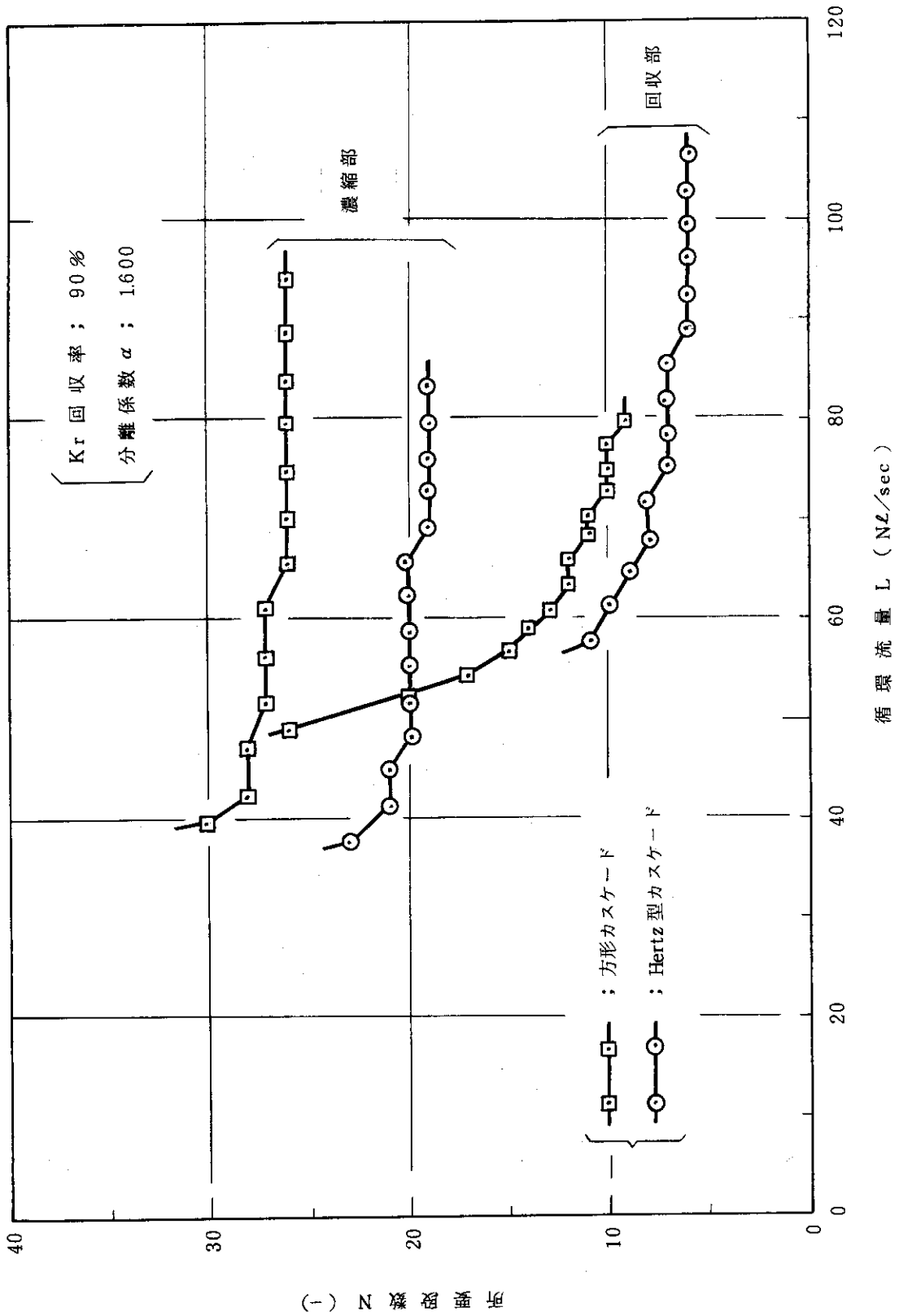


図 4-4 カスケード形式と所要段数との関係

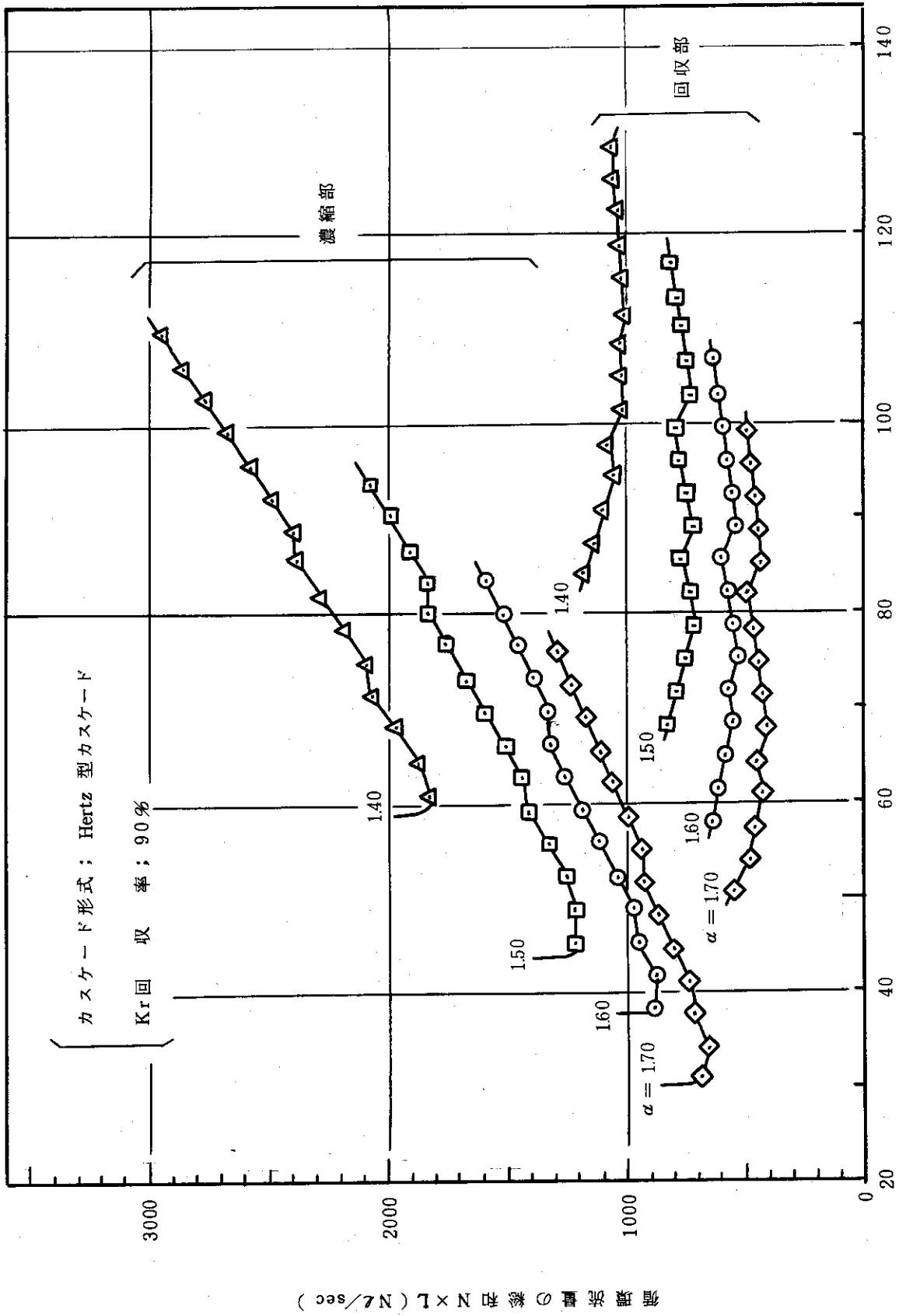


図4-5 カスケード循環流量の総和

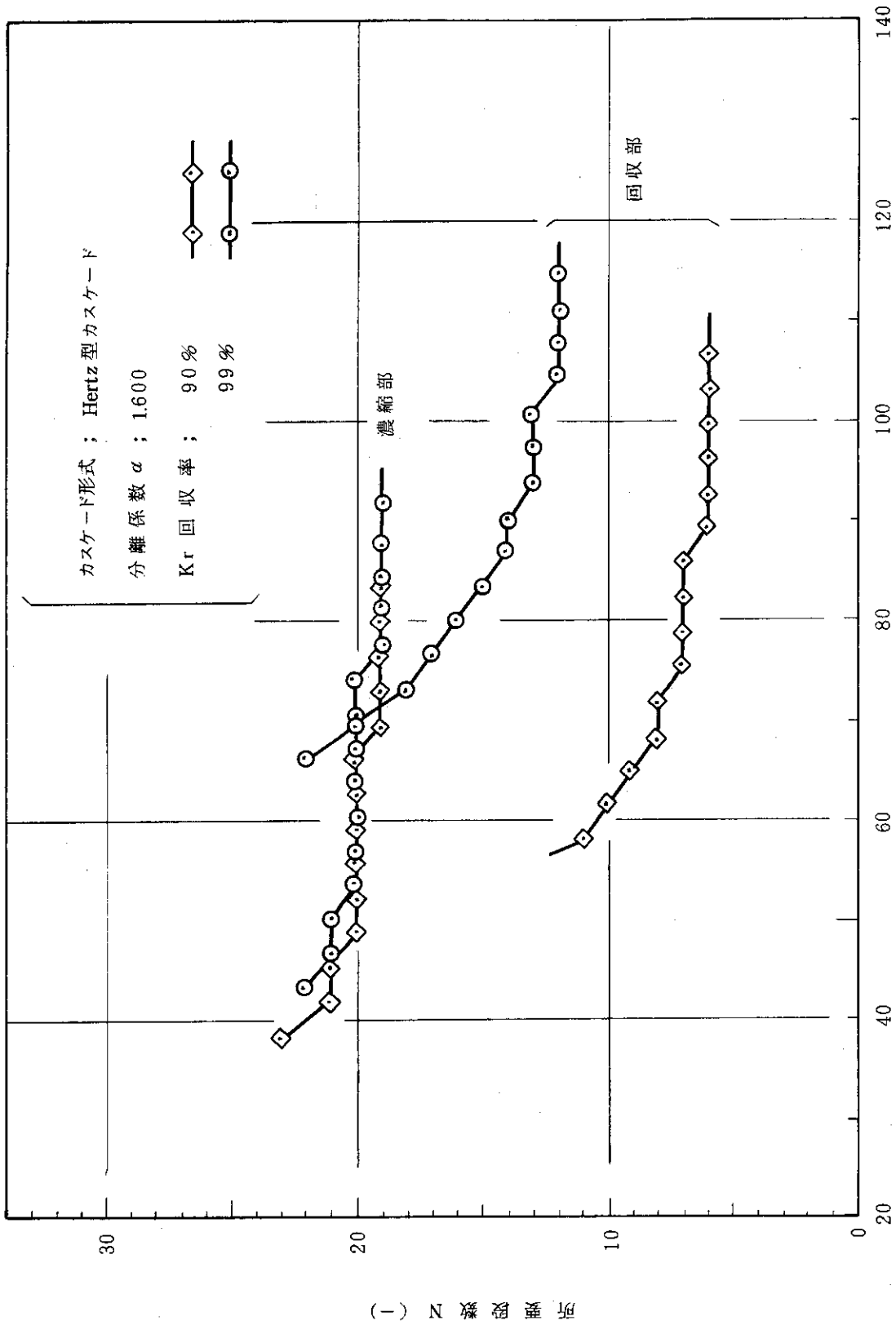


図4-6 Kr回収率とカスケード所要段数との関係

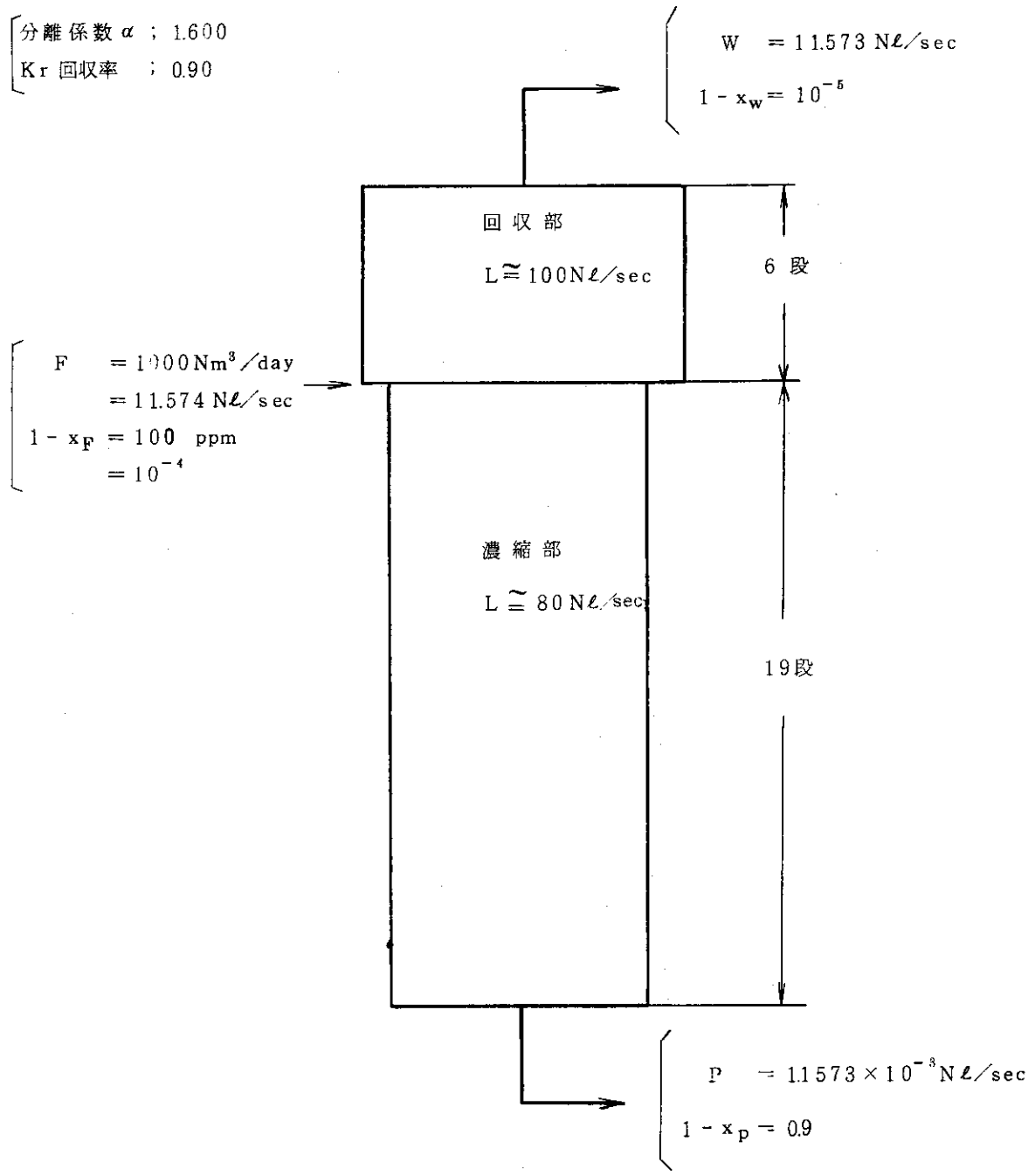


図 4-7 N_2 -Kr 分離用カスケード
(Herz 型カスケード)

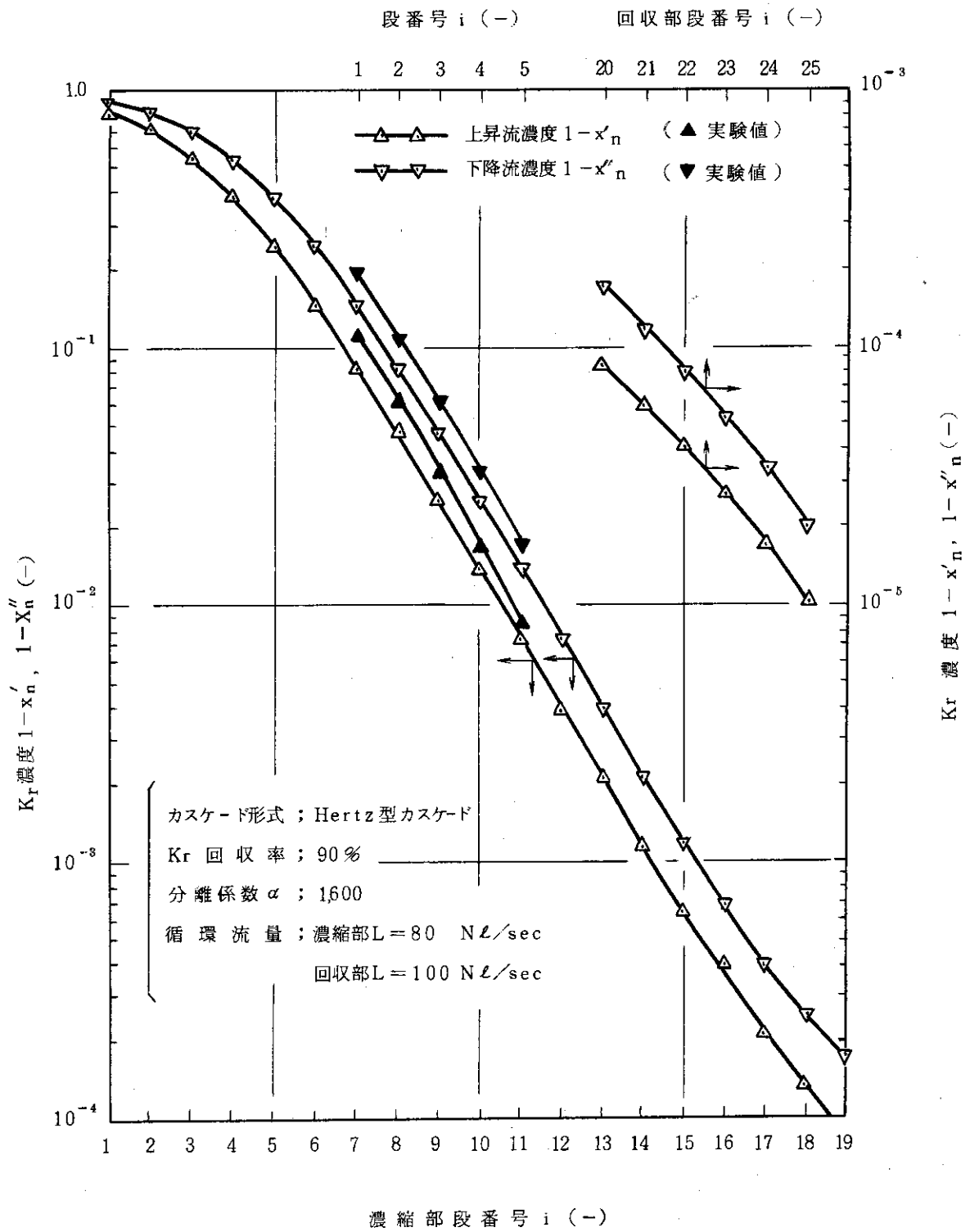


図 4-8 カスケード内濃度分布

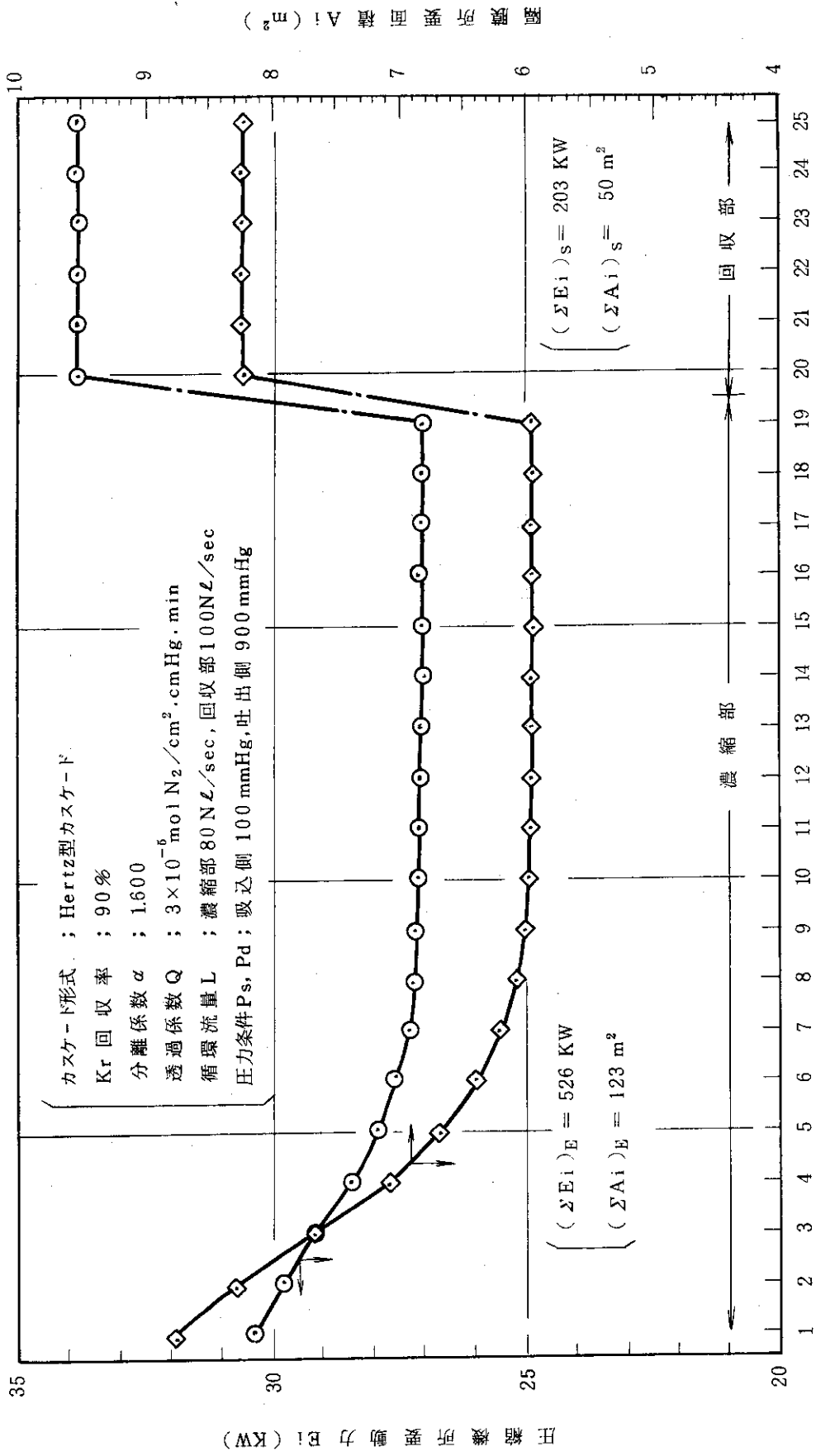


図 4-9 隔膜所要面積および圧縮機所要動力のカスケード内分布

段 番 号 i (-)

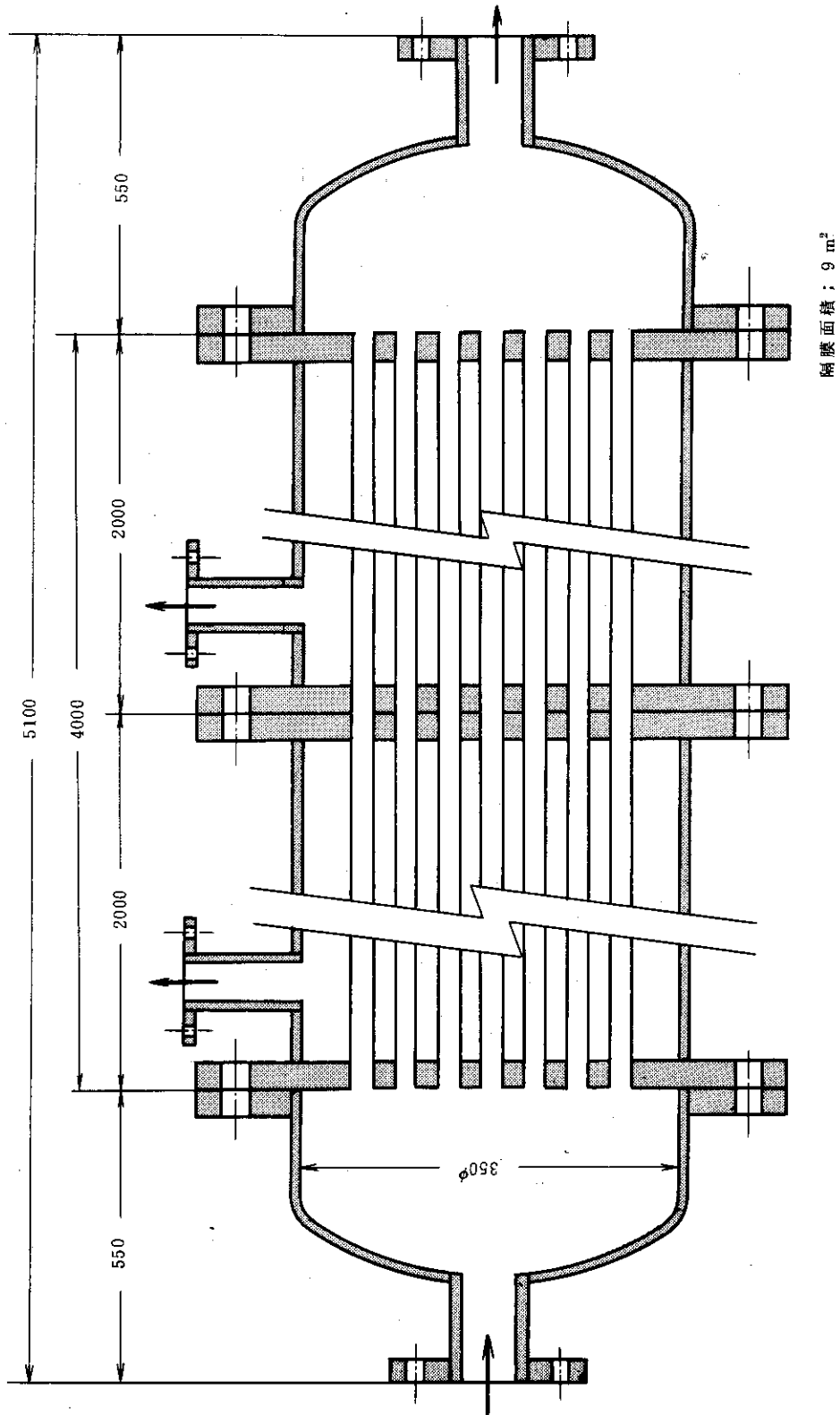
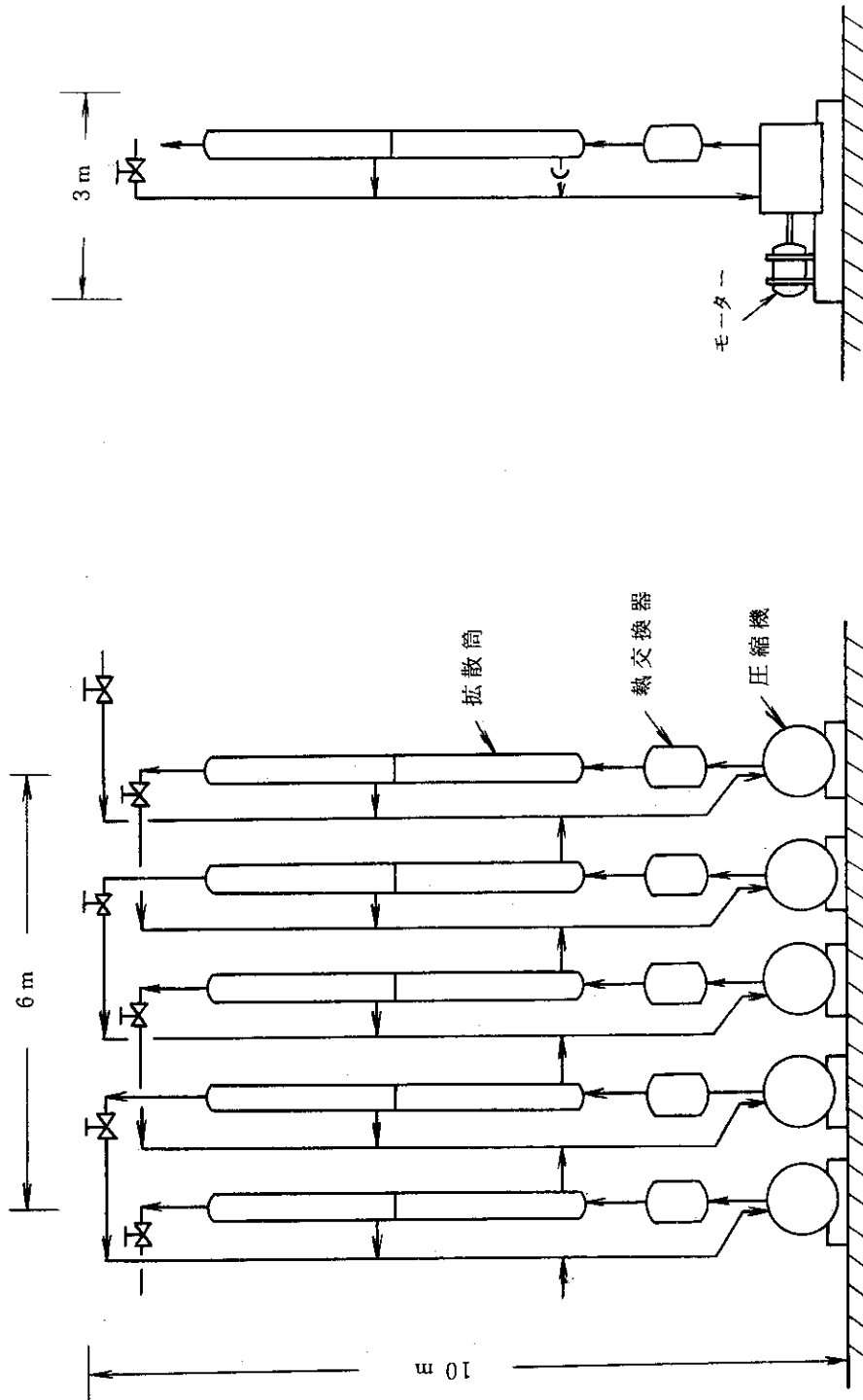


図 4-10 2分割型拡散筒概略図



カスケード設置面積 (25段)
2列に配置; $7\text{ m} \times 20\text{ m}$ (140 m^2)

図4-11 N_2 -Kr分離用カスケードの概略配置図

5. お わ り に

本報告は、多孔質隔膜法によるカスケードを再処理工場オフガス中の⁸⁵Kr 除去・回収工程に適用することへの技術的可能性を予備的に検討したものである。

5段のカスケード実験装置を用いてN₂-Kr系の分離実験を行ったところ、2分割型拡散筒を採用したHertz型カスケードは、分離特性およびカスケード安定性において、非常にすぐれていることが実証された。また、実験結果を基にして実施したN₂-Kr分離プラントの概略設計により、本方法による分離プラントが非常にコンパクトに設計・製作できる見通しが得られた。

本研究で得られた結果を要約すると、以下のようになる。

- (1) 2分割型拡散筒は、段分離係数の向上に非常に有効である。通常の拡散筒の理想的な分離係数が1.742であるのに対し、2分割型拡散筒（分割比；1/1，高压側；900 mmHg，低压側；100 mmHg）では～2.00という好結果を得ている。また、カスケードの流動特性も安定しており、操作・制御も簡単で、安全性の高いプロセスといえる。
- (2) 無機管状隔膜が使用できるので、放射線損傷に対する考慮がほとんど不要である。また、機械的強度に富んだ拡散筒の製作が可能である。さらに、ウラン濃縮の技術をそのまま適用できることも大きな特長といえる。
- (3) 動燃団再処理施設のオフガスを原料ガスとして模擬したN₂-Kr分離プラントについては、カスケード所要段数は、Kr回収率90%（製品；90% Kr，廃棄材；800 Ci/day）のとき約25段、Kr回収率99%（製品；90% Kr，廃棄材；80 Ci/day）のとき約32段となる。回収率の向上は、回収部の所要段数に影響を与える。

また、カスケード（25段）の設置面積は、約140 m²（高さ：約10m）であり、分離プラントとしてはかなりコンパクトで、しかも単純である。隔膜の所要面積、圧縮機の所要動力も、比較的少ない。

なお、今後の課題としては、以下のことが考えられる。

- (1) Xe, Ar, O₂などを含む現実的なオフガス組成について分離実験を行い、多成分系の分離特性およびカスケードの安定性を明らかにする。
- (2) カスケードの起動、停止などの過渡状態におけるカスケード特性を明らかにする。多成分系の分離においては、起動時から定常時までに濃度分布が大幅に、かつ複雑に変化するので、拡散筒および圧縮機の設計・操作面にこの結果を反映させる必要がある。
- (3) カスケード原料ガスの前処理工程、Kr・Xe貯蔵工程、給排気系、安全システム、建家などプラント全体の概念設計を行い、技術的・経済的検討を行うことが必要である。

謝 辞

本研究を行うに当り、試料の分析に協力していただいた原子炉化学部、分析センターの小森卓二室長および大内 操氏に感謝致します。

参 考 文 献

- 1) ERDA- 7643 vol. 2 (1976)
- 2) 能見光彦: FAPIG, **66**, 125 (1972)
- 3) 山本 寛: 日本原子力学会誌, **15**, No. 4, 3 (1973)
- 4) 村田寿典: 原子力工業, **17**, No. 8, 2 (1975)
- 5) 前川立夫, 石森 隆: 原子力工業, **20**, No. 4, 36 (1974)
- 6) Nichols J. P. and Binford F. T.: ORNL- TM- 3515 (1971)
- 7) Benedixsen C. L. and Offutt G. F.: IN- 1221 (1969)
- 8) Chesne A., Kroebel R. et al.: OECD/IAEA - Symposium on the Management of Radioactive Wastes from the Nuclear Fuel Cycle, Vienna, 1976
- 9) Bohnenstingl J., Heidendael M., Laser M. et al.: *ibid.*
- 10) Glibert R.: *ibid.*
- 11) Takashima Y., Ōno M. et al.: *ibid.*
- 12) 成瀬雄二, 松田裕二, 丸山庸一郎, 青地哲男: JAERI - M 6501, "2分割型拡散筒により構成されるガス拡散プラントの静特性解析" (1976)
- 13) 東 邦夫: "ウラン濃縮", 日刊工業新聞社, 東京, 23 (1971)