

JAERI-M  
7858

多孔質隔膜法による気体の分離

1978年9月

成瀬 雄二・吉田 浩

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

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

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

多孔質隔膜法による気体の分離

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

(1978年8月17日受理)

多孔質隔膜法による気体の分離プラントを設計，運転するためには，種々の操作条件におけるカスケードの定常特性および非定常特性を十分に把握しなければならない。

本報告書は，多孔質隔膜法に関する既往の研究を概観し，各理論における考え方，前提条件などを整理するとともに，実際の分離操作において想定される種々の分離特性の評価方法を検討したものである。

すなわち，実際の隔膜，拡散筒における分離機構の解析法，種々のカスケードの設計法ならびに分離プラントのスタートアップと制御方式などの非定常問題の解析法について説明した。

Separation of Gases by Porous Membrane Method

Yuji NARUSE, Hiroshi YOSHIDA

Division of Nuclear Fuel Research,  
Tokai Research Establishment, JAERI

(Received August 17, 1978)

To design and operate a separation plant by porous membrane method, it is necessary to know the static and dynamic characteristics of cascade under different operating conditions.

This report reviews the separation theories and the estimation methods of cascade characteristics, i.e.

- (1) separation principle in porous membrane and diffuser,
- (2) design method of typical cascade,
- (3) calculation procedures of transient behaviors of the separation plant.

Keywords: Porous Membrane Method, Gaseous Diffusion Process, Gas Separation, Isotope Separation, Separation Factor, Permeability, Diffuser, Cascade, Static Characteristics, Dynamic Characteristics

## 目 次

1. はじめに .....	1
2. 多孔質隔膜法による分離の基礎理論 .....	2
2.1 分離の基本原理 .....	2
2.2 多孔質媒体中の気体の流れ .....	3
2.2.1 Knudsen 流と Poiseuille 流 .....	5
2.2.2 遷移流 (中間流) .....	6
2.2.3 表面拡散流 .....	7
2.2.4 拡散係数 .....	8
2.3 隔膜の分離係数 .....	9
2.3.1 隔膜の理論的分離係数 .....	10
2.3.2 逆拡散の効果 .....	11
2.3.3 粘性流の影響 (Present-de Bethune の効果) .....	12
2.3.4 境界層の効果 .....	17
2.3.5 表面拡散流の効果 .....	20
2.3.6 流れ様式の効果 .....	20
2.3.7 その他の影響因子 .....	20
2.4 拡散筒の分離係数 .....	22
2.4.1 定義式 .....	22
2.4.2 完全混合型 .....	24
2.4.3 十字流型 .....	25
2.4.4 並流型および向流型 .....	26
3. 多孔質隔膜法によるカスケードの基本式 .....	29
3.1 カスケード一般式 .....	29
3.1.1 分離係数およびカット .....	29
3.1.2 カスケードの物質収支 .....	32
3.1.3 最小理論段数 .....	34
3.1.4 最小還流比 .....	35
3.2 理想カスケード .....	36
3.2.1 分離係数 $\alpha$ と頭分離係数 $\beta$ との関係 .....	37
3.2.2 所要段数 .....	37
3.2.3 濃度分布 .....	38
3.2.4 還流比 .....	38
3.2.5 階段作図 (McCabe-Thiele 法) .....	39
3.2.6 循環流量 .....	40

3.2.7	循環流量の総和	40
3.3	方形カスケード	42
3.3.1	所要段数	42
3.3.2	濃度分布	44
3.4	ステップカスケード	46
3.4.1	所要段数および濃度分布	46
3.4.2	カスケードの最適化	48
3.5	2分割型拡散筒によるカスケード Type-1 (Hertz 型カスケード)	49
3.5.1	所要段数	52
3.5.2	濃度分布	54
3.5.3	分離係数 $\alpha_A$ , $\alpha_B$ と段分離係数 $\alpha_T$	55
3.5.4	段分離係数 $\alpha_T$ の応用	56
3.6	2分割型拡散筒によるカスケード Type-2	58
3.6.1	所要段数	60
3.6.2	濃度分布	61
3.6.3	分離係数 $\alpha_A$ , $\alpha_B$	62
3.7	カスケードの非定常特性	63
3.7.1	非定常特性の基礎方程式	63
3.7.2	定常到達時間 (Burton の方法)	70
3.8	分離作業量および最適廃棄材濃度	70
3.8.1	分離作業量	70
3.8.2	最適廃棄材濃度	71
4.	おわりに	73

## List of Contents

1. Introduction .....	1
2. Basic theory of separation by porous membrane method .....	2
2.1 Basic principle of separation .....	2
2.2 Gas flow through porous media .....	3
2.2.1 Knudsen's flow and Poiseuille's flow .....	5
2.2.2 Intermediate flow .....	6
2.2.3 Surface diffusion flow .....	7
2.2.4 Diffusion coefficient .....	8
2.3 Separation factor of barrier .....	9
2.3.1 Theoretical separation factor of barrier .....	10
2.3.2 Effect of back-diffusion .....	11
2.3.3 Effect of viscous flow (Present-deBethune's effect) .....	12
2.3.4 Effect of laminar layer .....	17
2.3.5 Effect of surface diffusion flow .....	20
2.3.6 Effect of flow pattern .....	20
2.3.7 Other effects .....	20
2.4 Separation factor of diffuser .....	22
2.4.1 General equation .....	22
2.4.2 Perfect mixing type .....	24
2.4.3 Cross flow type .....	25
2.4.4 Co-current type and Counter-current type .....	26
3. Basic cascade equations .....	29
3.1 General cascade equations .....	29
3.1.1 Separation factor and cut .....	29
3.1.2 Material balance of cascade .....	32
3.1.3 Minimum number of stages .....	34
3.1.4 Minimum reflux ratio .....	35

3.2	Ideal cascade .....	36
3.2.1	Relation between separation factor $\alpha$ and heads separation factor $\beta$ .....	37
3.2.2	Number of stages .....	37
3.2.3	Concentration profile in cascade .....	38
3.2.4	Reflux ratio .....	38
3.2.5	McCabe-Thiele diagram .....	39
3.2.6	Flow rate of each stage in cascade .....	40
3.2.7	Total flow rate in cascade .....	40
3.3	Square cascade .....	42
3.3.1	Number of stages .....	42
3.3.2	Concentration profile in cascade .....	44
3.4	Step cascade .....	46
3.4.1	Number of stages and concentration profile in cascade .....	46
3.4.2	Optimization of cascade .....	48
3.5	Cascade Type-1 consisting of Two-compartment diffusers .....	49
3.5.1	Number of stages .....	52
3.5.2	Concentration profile in cascade .....	54
3.5.3	Separation factor $\alpha_A$ , $\alpha_B$ and stage separation factor $\alpha_T$ .....	55
3.5.4	Application of stage separation factor $\alpha_T$ to cascade analysis .....	56
3.6	Cascade Type -2 consisting of Two-compartment diffusers .....	58
3.6.1	Number of stages .....	60
3.6.2	Concentration profile in cascade .....	61
3.6.3	Separation factor $\alpha_A$ , $\alpha_B$ .....	62
3.7	Dynamic behavior of cascade .....	63
3.7.1	Dynamic equations of square cascade .....	63



3.7.2	Equilibrium time of cascade (Burton's method).....	70
3.8	Separative work unit and optimum waste concentration.....	70
3.8.1	Separative work unit.....	70
3.8.2	Optimum waste concentration.....	71
4.	Conclusion.....	73

## 1. はじめに

多孔質隔膜法（ガス拡散法）は、混合気体をその平均自由行程よりも小さい細孔を有する隔膜で分離しようとするものであり、一般に分離係数が小さいため、注目成分を所定の濃度に濃縮するには多段のカスケードを必要とする。ちなみに、本法を工業的に適用したウラン濃縮プラントでは、理想的な分離係数 $\alpha_0$ が $1.00429$  ( $=\sqrt{M_2/M_1}=\sqrt{352/349}$  ;  $M_1, M_2$  は、それぞれ  $^{235}\text{UF}_6$ ,  $^{238}\text{UF}_6$  の分子量) と非常に小さいため、天然ウランから4%の低濃縮ウランを得るのに約1000段からなるカスケードが必要である。このように、分離係数は、工業的規模の分離プラントの設計にあたって、カスケード規模（所要段数、循環流量）さらにはその経済性を左右する重要なパラメータである。したがって、プラントの種々の操作条件における隔膜および拡散筒内の流体力学的な条件と分離係数との相関を十分に把握するとともに、プラント建設費および所要動力の少ない最適カスケードの構成法を確立する必要がある。

また、実際のプラントに想定される種々の運転条件および外乱条件におけるカスケードの非定常特性に対応した制御法の検討も必要である。

本報告書は、以上の目的から、隔膜および拡散筒における分離特性ならびにカスケードの定常および非定常特性など多孔質隔膜法に関する既往の研究を概観し、それぞれの理論における考え方、前提条件を整理するとともに基本的な計算式をまとめたものである。

第2章は、分離の基礎理論について述べたものである。まず、Graham, Knudsen, Presentらの、細孔および隔膜に関する理想的モデルを基にして展開された分離過程に着目し、多孔質隔膜の分離係数と気体の流れの性質および細孔構造（直径、断面形状、長さ）との関係を明らかにした。ついで、Present-deBethune, Carman, Cardirolo, Bilousらの理論よりこれを実際の多孔質隔膜に拡張する場合の問題となる逆拡散の効果、粘性流の影響、境界層の効果、表面拡散流の効果、隔膜構造の影響などの分離係数影響因子の評価方法を検討した。最後に、隔膜を拡散筒に組み込んだ場合の拡散筒分離係数の推算方法として、大石、東、Weller & Steinerらの理論式を与えた。

第3章は、カスケードの構成法ならびに実際の分離プラントにおいて想定される種々の非定常特性の解析法について述べたものである。

カスケードの構成法については、Cohen, Benedictらの理想カスケード、方形カスケードに関する代表的なカスケード理論を紹介し、ついで、ステップカスケードおよび拡散筒の分離係数を高めることを目的として導出した筆者らの2分割型拡散筒によるカスケード基本式を列挙した。

カスケードの非定常特性の解析法については、筆者らのウラン濃縮用ガス拡散プラントにおけるスタートアップ方法、制御方式などの非定常問題に関する検討結果に基づいて提案された基礎式を与えた。

## 2. 多孔質隔膜法による分離の基礎理論

多孔質隔膜法（ガス拡散法）によるカスケードは、全体としてほぼ閉ループに近いガス循環装置であり、たとえば、初期充填ガス圧力を変えると、カスケード各段において圧力、流量に関連した流体力学的な諸条件が変化する。すなわち、各段の分離性能に影響を及ぼす因子は相互に関連し合って複雑に変化するため、カスケードの特性を広い操作範囲にわたって定量的に比較、考察することは簡単ではない。

そこで、本章では、多孔質隔膜法に関連した在来の理論のうち、カスケードの分離特性を考察する上で重要な幾つかの基礎理論を概観し、それらの前提条件を整理するとともに基本的な理論式を列挙する。

### 2.1 分離の基本原則

混合気体はその平均自由行程よりも十分に小さい細孔中を流れる場合には、軽い分子は重い分子と衝突（分子飛行速度の平均化が起こる）するよりもずっと高い頻度で細孔壁と衝突するので、各分子はそれぞれ個々の飛行速度を保持している。この結果、軽い分子は重い分子よりも早く細孔を通り抜ける。多孔質隔膜による混合ガスの分離は、このように分子が細孔を通過する速度の差を利用したものである。

2成分混合気体における各分子の飛行速度は、気体運動論から次のように与えられている。

$$C_1 = C_2 \sqrt{\frac{M_2}{M_1}} \quad \dots\dots\dots (2.1)$$

ここで、 $C_1$ 、 $M_1$  はそれぞれ軽い分子の平均飛行速度と分子量であり、 $C_2$ 、 $M_2$  はそれぞれ重い分子の平均飛行速度と分子量である。

Graham<sup>1)</sup>は、真空下における気体分子の細孔を通り抜ける現象から、質量の異なる2種類の分子について次のような法則のなり立つことを実験的に見出している。

$$\frac{x'_1}{x'_2} = \frac{x_1}{x_2} \sqrt{\frac{M_2}{M_1}} \quad \dots\dots\dots (2.2)$$

ここで、 $x_1$ 、 $x_2$  は拡散する前の気体における軽成分および重成分のモル分率であり、 $x'_1$ 、 $x'_2$  は拡散した気体における軽成分および重成分のモル分率である。

この法則は、後述する分子流条件での細孔の分離特性を表わすもので、 $\sqrt{M_2/M_1}$  は隔膜で得られる理論的分離係数に相当するものである。

なお、セルロース、天然ゴムなどからなる非孔質の有機膜による気体の分離過程<sup>2), 3)</sup>は、分子の溶解、拡散、再蒸発であり、気体の分子運動速度の違いを利用した多孔質隔膜による分離過程とは本質的に異なるものである。

2.2 多孔質媒体中の気体の流れ<sup>4~16)</sup>

多孔質媒体を通過する気体の流れは、気体の平均自由行程 $\lambda$ と細孔半径 $r$ との相対的大きさにより、次のように大別されている。

- a) 分離効果のある流れ ( $\lambda/r \geq 1$ )
  - (i) 分子噴散 (Molecular effusion)
  - (ii) 分子流 (Knudsen's flow)
- b) 分離効果のない流れ ( $\lambda/r < 1$ )
  - (i) 層流 (Poiseuille's flow)
  - (ii) 乱流 (Turbulent flow)
  - (iii) オリフィス流 (Orifice flow)

分子噴散は、細孔の厚み(長さ)が極めて小さい場合であり、細孔壁が重要な役割を果す隔膜の場合とは分離機構が異なる。

分子流は、細孔の長さ $l$ が半径 $r$ に比して十分に大きく、細孔入口から出口までの間における圧力勾配に対する両端の影響が無視できるような場合を対象とする流れである。

層流その他の分離効果のない流れは、気体の一般的な流れ(粘性流)に見られるものである。

ところで、気体分子の平均自由行程 $\lambda$ は、分子密度 $n$ と分子の衝突直径 $\sigma$ とによって定まる量である。混合気体の各成分についての平均自由行程は、分子の相対速度に基づいて導かれた次式<sup>17)</sup>により求められる。

$$\frac{1}{\lambda} = \sqrt{2} \pi \cdot n \sigma^2 = \frac{\sqrt{2} \pi \cdot P \cdot \sigma}{k T} \cong \frac{P \sigma^2}{2.33 \times 10^{-20} T} \quad \dots\dots\dots (2.3)$$

$$\frac{1}{\lambda_1} = \frac{1}{2.33 \times 10^{-20} T} \left\{ P_1 \sigma_1^2 + \frac{1}{4} \sqrt{1 + \frac{M_1}{M_2}} P_2 (\sigma_1 + \sigma_2)^2 \right\} \dots\dots\dots (2.4)$$

$$\frac{1}{\lambda_2} = \frac{1}{2.33 \times 10^{-20} T} \left\{ P_2 \sigma_2^2 + \frac{1}{4} \sqrt{1 + \frac{M_2}{M_1}} P_1 (\sigma_1 + \sigma_2)^2 \right\} \dots\dots\dots (2.5)$$

ここで、

$\lambda_1, \lambda_2$  : 軽い分子および重い分子の平均自由行程〔cm〕

$n_1, n_2$  : 軽成分および重成分の分子密度〔atom/cm<sup>3</sup>〕

$P_1, P_2$  : 軽成分および重成分の分圧〔Torr〕

$\sigma_1, \sigma_2$  : 軽い分子および重い分子の衝突直径〔cm〕

$k$  : ボルツマン定数

$T$  : 気体の温度〔°K〕

これらの各式から、細孔直径がある一定値を有する隔膜における流れの性質は、圧力によって変化することが分る。すなわち、混合気体の圧力を十分に高い圧力から真空に近い値まで減少させる間に、隔膜を通過する流れの性質は、粘性流、遷移流(中間流)、分子流へと変化する。

図2-1は、純粋なアルゴン、クリプトン、キセノンおよび空気の平均自由行程と圧力の関係を示したものである。これより、細孔直径が $500 \text{ \AA}$ 程度の隔膜を用いると、数 $100 \text{ mmHg}$ の圧力で $\lambda/r \geq 1$ の条件が満足され、分離が可能となることが分る。

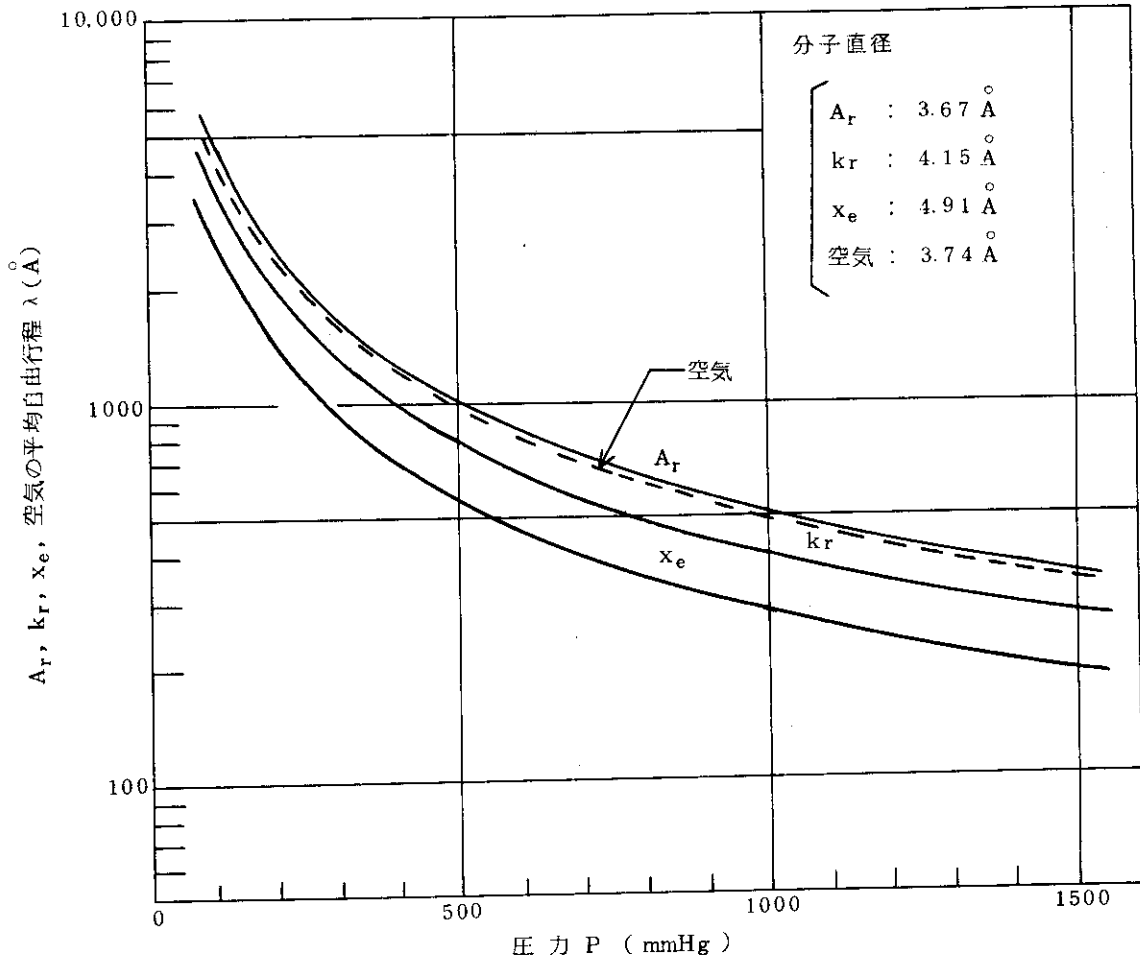


図2-1 気体分子の平均自由行程と圧力の関係  
〔気体温度：293°K〕

これらの記述は、平均自由行程と細孔径との相対的な関係から流れの性質を区分したものであるが、真空下の輸送現象に基づいて次のような区分もなされている。<sup>18)</sup>

- (i) 分子流領域 :  $Kn > 10$  ( $10^{-3} \text{ mmHg}$  以下)
- (ii) 遷移流領域 :  $0.1 < Kn < 10$  ( $10^{-3} \sim 1 \text{ mmHg}$ )
- (iii) すべり流領域 :  $0.01 < Kn < 0.1$  ( $1 \text{ mmHg}$  以上)

ここで、 $Kn$ は、Knudsen数と呼ばれるもので、分子の平均自由行程を気体の流れる管の内直径で除した値で定義される。

ところで、以上の各区分は、理想的なモデルに基づくものであり、実際の隔膜には広い範囲にわたる細孔径分布が考えられる。したがって、実際の分離過程では、いろいろな性質の流れ

が複合して生じていると見なすのが自然である。以下に、そのような場合の表現方法を示す。

### 2.2.1 Knudsen 流および Poiseuille 流

先に述べたように、分子流についての最初の研究はGrahamによってなされており、気体分子の Maxwell 速度分布則に基づく法則として知られている。これは、今日 Knudsen 流あるいは分子流と呼ばれている流れの性質の表現にほかならない。

Knudsen 流の条件（細孔は無限に長い円形断面の管であり、かつ  $\lambda/r \geq 1$ ）における単位時間当りのモル流量  $dn/dt$  (mol/sec) は次式で与えられる。

$$\frac{dn}{dt} = \frac{8}{3} \cdot \frac{\pi r^3}{\ell} \cdot \frac{P_h - P_\ell}{\sqrt{2\pi MRT}} \cdot \frac{2-f}{f} \quad \dots\dots\dots (2.6)$$

ここで、

- $r, \ell$  : 細孔の半径および長さ [cm]
- $P_h, P_\ell$  : 隔膜の前方および後方の圧力 [dyne/cm<sup>2</sup>]
- $f$  : 細孔壁により確率反射される分子の割合 [-]
- $1-f$  : 細孔壁により鏡面反射される分子の割合 [-]

上式において、 $(2-f)/f$  は、Smolchowski 因子と呼ばれるもので、細孔壁における分子が Knudsen の法則“すべての分子は確率反射し、鏡面反射する分子は存在しない”<sup>\*</sup>に従うとすると、

$$\frac{2-f}{f} = 1 \quad \dots\dots\dots (2.7)$$

したがって、円形断面の細孔における断面積  $\pi r^2$  当りの流量  $N_K$  (mol/cm<sup>2</sup>·sec) は、

$$N_K = \frac{8}{3} \left\{ \frac{1}{2\pi MRT} \right\}^{1/2} \cdot \frac{r}{\ell} \cdot (P_h - P_\ell) \quad \dots\dots\dots (2.8)$$

ここで、

- $R$  : 気体定数 [erg/°K·mol]

Poiseuille 流の条件 ( $\lambda/r < 1$  がなり立ち、気体分子同志の衝突が支配的な流れ) における流量  $N_P$  (mol/cm<sup>2</sup>·sec) は、

$$N_P = \frac{r^2}{8\ell\mu R} \cdot \frac{P_h^2 - P_\ell^2}{T} \quad \dots\dots\dots (2.9)$$

ここで、

- $\mu$  : 気体の粘度 [g/cm·sec]

(2.8) 式および (2.9) 式から理解されるように、Knudsen 流と Poiseuille 流の基

\* 断面が円形でない場合には、正しくないと考えられている。<sup>18)</sup>

本的な違いは、Knudsen 流ではモル流量が圧力差に正比例し分子量の平方根に逆比例するのに対し、Poiseuille 流では圧力の 2 乗の差に比例し粘度に逆比例することである。一方、両者の共通点としては、いずれも細孔長さに逆比例することが挙げられる。

いま、細孔の断面が円形であり、かつその直径、長さがともに一定であるような特定の隔膜を仮定すると、(2.8)、(2.9)式は、次のようにそれぞれの流れの特徴を表わす簡単な式に書換えられる。

Knudsen 流 :

$$N_K = \frac{A}{\sqrt{M}} (P_h - P_l) \quad \dots\dots\dots (2.10)$$

Poiseuille 流 :

$$N_P = \frac{B}{\mu} (P_h^2 - P_l^2) \quad \dots\dots\dots (2.11)$$

定数 A, B は、(2.8)式および(2.9)式から容易に定義できる。

### 2.2.2 遷移流 (中間流)

実際の多孔質隔膜では、細孔の断面および長さは複雑な形状をしており、さらに広い孔径分布も存在すると考えられる。このため、隔膜中の分離過程は、理想的な Knudsen 流によるものでなく、むしろ粘性流の影響が重畳した遷移流によるものとみなされる。

遷移流の表現方法としては、Knudsen<sup>3)</sup>、安積<sup>6),7)</sup>、Pollard & Present<sup>8)</sup>、Carman<sup>16)</sup>、その他<sup>19)</sup>により、一般式として単に Knudsen 流と Poiseuille 流を結びつけた次式が提案されている。<sup>\*</sup>すなわち、遷移流での流量  $N_T$  (mol/cm<sup>2</sup>·sec) は、

$$N_T = \frac{A}{\sqrt{M}} (P_h - P_l) + \frac{B}{\mu} (P_h^2 - P_l^2) \quad \dots\dots\dots (2.12)$$

上式より、非常に低い圧力では粘性流の効果を表わす第 2 項は無視でき、逆に非常に高い圧力では分子流の効果を表わす第 1 項が無視できるようになることが理解できる。

定数 A, B は (2.10)、(2.11)式で定義したものであるが、実験的に求めることもできる。すなわち、 $P_h, P_l$  の関数として  $N$  を測定し、 $N/(P_h - P_l)$  と  $(P_h + P_l)$  の関係を図示すればよい。

ここで、隔膜の単位面積当りの透過流量  $N$  (mol/cm<sup>2</sup>·sec) を  $(P_h - P_l)$  で除した値を透過係数と定義すると、(2.10)、(2.11)および(2.12)式から、それぞれの流れに対する隔膜の透過係数  $Q_K, Q_P$  および  $Q_T$  が求められる。

\* 後述するように、Present-de Bethune は、より厳密な取扱いをしている。

Knudsen 流 :

$$Q_K = \frac{A}{\sqrt{M}} \dots\dots\dots (2.13)$$

Poiseuille 流 :

$$Q_P = \frac{B}{\mu} (P_h + P_\ell) \dots\dots\dots (2.14)$$

遷移 流 :

$$Q_T = \frac{A}{\sqrt{M}} + \frac{B}{\mu} (P_h + P_\ell) \dots\dots\dots (2.15)$$

### 2.2.3 表面拡散流

細孔内の流れには、これまで述べてきたような気体運動論により説明できる流れとは別に、細孔内の固体表面と気体分子との相互作用あるいは気体の物理化学的性質に影響を受ける流れの存在することが早くから知られている。この流れは、吸着層流れまたは表面拡散流などと呼ばれる過剰な流れである。

表面拡散流がどのような条件で問題となり、その大きさ(流量)、性質(分離効果)はどのようなものであるかは、多孔質隔膜による分離過程を考える上で極めて重要な課題である。現在のところ既往研究におけるこれらの評価は一定ではないが、表面拡散流を理解するのに有益な幾つかの研究について概説しておこう。

Sears<sup>20)</sup>, Hill<sup>21)</sup>, 浜井<sup>5)</sup> は、多孔質媒体の細孔径と気体の平均自由行程がほぼ等しく、しかも分子が吸着性の気体である場合には、細孔内の流れとして Knudsen 拡散および分子拡散(分子間衝突の支配的な流れ)からなる遷移流拡散の他に、表面拡散を考慮すべきことを理論的に明らかにしている。

また、Huckins<sup>10)</sup>, 東<sup>22)</sup>, その他<sup>2), 3), 14), 23)</sup> は、 $r \cong 40 \text{ \AA}$  程度の多孔質ガラスなどを用いた実験より、He, H<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>, Ar, O<sub>2</sub>, CO<sub>2</sub> などの希ガスあるいは揮発性の高い気体は Knudsen の法則に従うが、プロパン、ブタンなどの液化しやすい気体は低温度、高い圧力の条件で過剰流れを生ずることを実証している。なお、Hwang & Kammermeyer の最近の研究<sup>23)</sup> では、Knudsen 流および単分子吸着の条件では、He, Ne, Ar などの気体でも表面拡散流の生ずることが実験的に確かめられている。

一方、表面拡散流の分離効果についても幾つかの説が知られている。石田<sup>24)</sup>, Haul<sup>25)</sup> は、表面拡散流が隔膜の分離効果を高めるとしているが、東<sup>26)</sup> は、単分子吸着層には Knudsen 流と同程度の分離効果が期待できるが多分子吸着層には分離効果がないという見解をとっている。表面拡散流の分離効果を実験的に考察した Caldirola<sup>11)</sup>, Trawick<sup>27)</sup> の考え方を紹介しておこう。

Caldirola は、<sup>3</sup>He, <sup>4</sup>He を用いた実験より、同位体混合ガスについて次式で表わされる



分離効果の存在を見出している。

$$\alpha_{\text{mig}} = \frac{\frac{\phi^{(1)}_{\text{mig}}}{\phi^{(2)}_{\text{mig}}}}{\frac{n_1}{n_2}} \dots\dots\dots (2.16)$$

$$\phi^{(i)}_{\text{ads}} = \phi^{(i)}_{\text{evp}} + \phi^{(i)}_{\text{mig}} \dots\dots\dots (2.17)$$

ここで、

- $\alpha_{\text{mig}}$  : 表面拡散流による分離係数
- $n_1, n_2$  : 隔膜の前方における同位体 1 (軽成分) および同位体 2 (重成分) の分子密度
- $\phi^{(1)}_{\text{mig}}, \phi^{(2)}_{\text{mig}}$  : 隔膜の後方における同位体 1, 2 の分子密度
- $\phi_{\text{ads}}$  : 細孔内表面への吸着分子数
- $\phi_{\text{evp}}$  : 細孔内表面からの蒸発分子数
- $\phi_{\text{mig}}$  : 細孔表面に沿って移動する吸着分子数
- $i$  : 軽成分分子 1 および重成分分子 2 に対するサフィックス

一方、異分子からなる混合気体の場合については、表面拡散流は、気体の物理化学的性質に依存して隔膜の分離係数を増加または減少させるとしている。

Trawick は、表面拡散流が Knudsen 流と共存する場合をとり上げて、表面拡散流による分離効果  $\alpha_{\text{mig}}$  が  $\sqrt{M_2/M_1}$  より小さいので隔膜の分離係数  $\alpha_{\text{total}}$  は減少すること、その減少度合いは温度が低いほど著しくなることを報告している。

### 2.2.4 拡散係数

多孔質隔膜における気体の拡散係数を考える場合には、細孔内の流れの性質の他に細孔構造 (直径, 断面形状, 迷宮度, 孔径分布), 気体の物理化学的性質などの影響を考慮の必要があり、実測値を予想する完全な理論は未だ確立されていない<sup>15), 28), 29)</sup>。

ここでは、Knudsen 流, Poiseuille 流および遷移流の各条件における拡散係数の推算式として提案されている幾つかの式を列挙しておく。

Knudsen 流拡散係数  $D_{K,1}$  ( $\text{cm}^2/\text{sec}$ ) については<sup>15)</sup>,

$$D_{K,1} = \frac{4}{3} r \sqrt{\frac{2RT}{\pi M_1}} \dots\dots\dots (2.18)$$

Poiseuille 流拡散係数  $D_{11}, D_{12}$  ( $\text{cm}^2/\text{sec}$ ) については<sup>30)</sup>,

$$D_{12} = \frac{6.7 \times 10^{-4} T^{1.833}}{P \left\{ \left( \frac{T_c}{Pc} \right)_1^{\frac{1}{3}} + \left( \frac{T_c}{Pc} \right)_2^{\frac{1}{3}} \right\}^3} \sqrt{\frac{1}{M_1} + \frac{1}{M_2}} \dots\dots\dots (2.19)$$

ここで、

- $D_{12}$  : 2成分混合気体の相互拡散係数
- $P$  : 圧力 [ atm ]
- $P_c$  : 臨界圧力 [ atm ]
- $T$  : 絶対温度 [ °K ]
- $T_c$  : 臨界温度 [ °K ]
- $M$  : 分子量 [ - ]

添字 1, 2 : 軽成分分子 1 および重成分分子 2 を指す。

同位体混合気体の場合には、上式において、 $D_{12}$  を自己拡散係数  $D_{11}$  と置き換えることができる。

遷移流拡散係数  $D_T$  (  $\text{cm}^2/\text{sec}$  ) については<sup>30)</sup>,

$$\left. \begin{aligned} D_T &= D_{12} \left[ 1 - e^{-\frac{D_{K,1}}{D_{12}}} \right] \\ \frac{1}{D_T} &= \frac{1}{D_{K,1}} + \frac{1}{D_{12}} \end{aligned} \right\} \dots\dots\dots (2.20)$$

隔膜構造を考慮した有効拡散係数  $D_e$  (  $\text{cm}^2/\text{sec}$  ) については、 $D_{K,1}$ ,  $D_{11}$ ,  $D_{12}$  などに  $\epsilon/k^2$  (  $\epsilon$  : 空隙率,  $k^2$  : 迷宮度 ) を乗じた式が用いられている<sup>30)</sup>。一例として、Weisz のモデルと呼ばれる式<sup>31)</sup>を示すと、

$$D_e = \frac{\epsilon^2 \cdot D_{K,1}}{\sqrt{3}} \dots\dots\dots (2.20)$$

ここで、迷宮度として  $\sqrt{3}/\epsilon$  を用いている。

また、細孔分布を考慮したものとしては、 $r=0$  から  $r=\infty$  までを積分した Jonson & Stewart の式<sup>32)</sup>が知られている(ただし、本式を適用する場合には、あらかじめ細孔分布を測定しておく必要がある)。

### 2.3 隔膜の分離係数

Caldirola<sup>11)</sup>, Benedict<sup>12)</sup> は、隔膜による混合ガスの分離過程にはさまざまに因子が作用しており、実際的な分離係数  $\alpha$  が理想的な分離係数  $\alpha_0$  より小さくなることを明らかにしている。ここでは、それらの因子の定量的な表現法としてどのような推算式が提案されているかについて述べる。

隔膜の分離係数に対する影響因子の主なものを以下に示す。

- (i) 逆拡散流れ : 隔膜の後方(低圧側)圧力が無視できない大きさであるために生ずる隔膜前方(高圧側)への逆拡散
- (ii) 分離効果のない流れ : 気体分子同志の衝突が支配的な流れ(粘性流)
- (iii) 境界層 : 隔膜の表面近傍に形成される物質移動抵抗層

- (iv) 表面拡散流 : 細孔内表面に生じた吸着層による過剰流れ
- (v) 細孔壁における分子散乱の確率反射法則からのずれ

2.3.1 隔膜の理想的分離係数

まず、隔膜の理想的分離係数はどのようなものであるかを説明しよう。

図2-2は、隔膜を通過する2成分混合ガスの流れを模式的に表わしたものである。

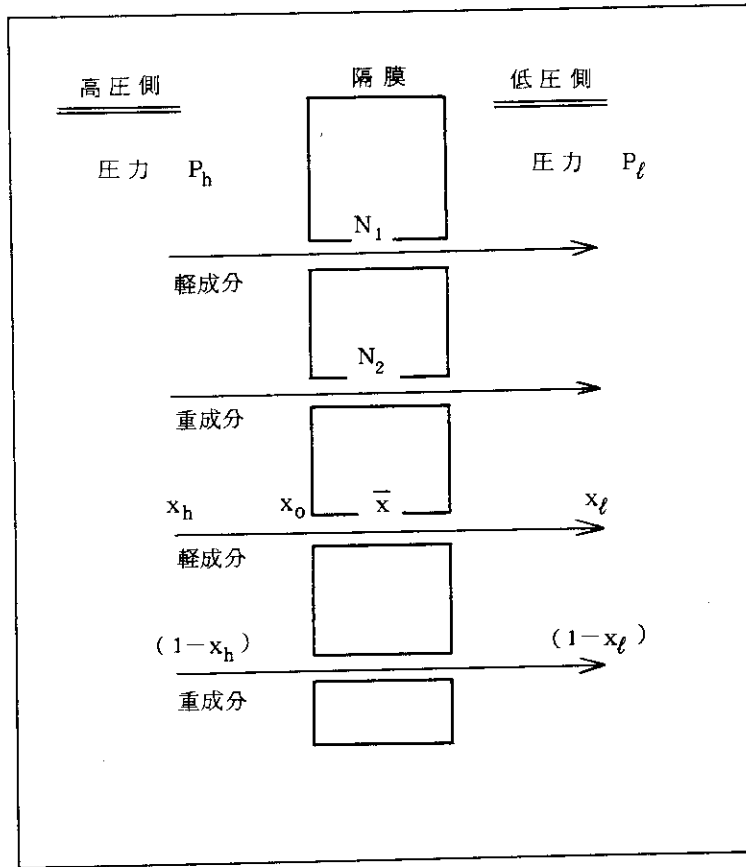


図2-2 2成分混合気体の多孔質隔膜透過モデル

N : 透過モル流量

x : 軽成分モル分率

いま、高压側圧力が十分に低く  $\lambda/r \geq 1$  がなり立ち、低压側圧力  $P_l$  が無視できる大きさで、 $P_l/P_h \approx 0$  であるような条件つまり Knudsen 流のみが存在する場合を考える。

この場合、各成分の透過モル流量は高压側の分圧に比例するので、(2.10)、(2.11)式より、

$$N_1 = \frac{A}{\sqrt{M_1}} P_h \cdot x_h \dots\dots\dots (2.21)$$

$$N_2 = \frac{A}{\sqrt{M_2}} P_h (1-x_h) \quad \dots\dots\dots (2.22)$$

隔膜中の正味流れの組成  $\bar{x}$  は,

$$\bar{x} = \frac{N_1}{N_1+N_2} = \frac{x_h \sqrt{\frac{M_2}{M_1}}}{x_h \sqrt{\frac{M_2}{M_1}} + (1-x_h)} \quad \dots\dots\dots (2.23)$$

上式を变形して,

$$\frac{\bar{x}}{1-\bar{x}} \cdot \frac{1-x_h}{x_h} = \sqrt{\frac{M_2}{M_1}} = \alpha_0 \quad \dots\dots\dots (2.24)$$

以上から, 理想的分離係数  $\alpha_0$  を与える条件が理解されよう。なお, このような理想的条件で組成  $\bar{x}$  の正味流れをもたらす高压側の組成を  $x_0$  として (2.24) 式を書改めると,

$$x_0 = \frac{\bar{x}}{\bar{x} + \alpha_0 (1-\bar{x})} \quad \dots\dots\dots (2.25)$$

隔膜の分離効率  $z_b$  は次式で定義される。

$$z_b = \left. \begin{aligned} & \frac{\bar{x} - x_h}{\bar{x} - x_0} \\ & = \frac{(\bar{x} - x_h) \{ \bar{x} + \alpha_0 (1-\bar{x}) \}}{(\alpha_0 - 1) \bar{x} (1-\bar{x})} \end{aligned} \right\} \quad \dots\dots\dots (2.26)$$

上式は, 蒸留操作においてよく使用される Murphree の点効率と類似していることが注目される。

### 2.3.2 逆拡散の効果

隔膜前後の圧力  $P_h, P_l$  が十分に低い圧力で Knudsen 流のみが生じているが,  $P_l$  の値が有限であるとすると, 隔膜を通過する正味流れの流量 (mol/cm<sup>2</sup>·sec), 組成 (モル分率) は次式で与えられる。

$$N_1 = \frac{A}{\sqrt{M_1}} \{ P_h x_h - P_l x_l \} \quad \dots\dots\dots (2.27)$$

$$N_2 = \frac{A}{\sqrt{M_2}} \{ P_h (1-x_h) - P_l (1-x_l) \} \quad \dots\dots\dots (2.28)$$

$$\bar{x} = \frac{N_1}{N_1+N_2} = \frac{\alpha_0 x_h - r x_l}{\alpha_0 x_h + (1-x_h) - r \{ \alpha_0 x_l + (1-x_l) \}} \quad \dots\dots\dots (2.29)$$

$$r = \frac{P_\ell}{P_h} \dots\dots\dots (2.30)$$

(2.29)式を  $x_h$  について解くと,

$$x_h = \frac{\bar{x} + r \{ \alpha_0 x_\ell (1 - \bar{x}) - \bar{x} (1 - x_\ell) \}}{\bar{x} + \alpha_0 (1 - \bar{x})} \dots\dots\dots (2.31)$$

(2.26)式の定義より, 隔膜の分離効率  $z_1$  は,

$$z_1 = 1 - \frac{r \{ \alpha_0 x_\ell (1 - \bar{x}) - \bar{x} (1 - x_\ell) \}}{(\alpha_0 - 1) \bar{x} (1 - \bar{x})} \dots\dots\dots (2.32)$$

隔膜を通過した低圧側の気体の濃度が隔膜を通過中の正味流れの濃度に等しい ( $\bar{x} = x_\ell$ ) 場合には, 以下の簡単な式となる。

$$z_1 = 1 - r \dots\dots\dots (2.33)$$

この  $z_1$  は, 逆拡散の効果と呼ばれ, 隔膜の低圧側にある気体による分離の低下度合いを表わしている。この場合の分離係数も同様に定めることができる。すなわち, 低圧側の気体組成は隔膜中の各成分の正味流れの比に等しいので, (2.27), (2.28)式より,

$$\frac{x_\ell}{1 - x_\ell} = \frac{N_1}{N_2} = \frac{\alpha_0 (x_h - r x_\ell)}{1 - x_\ell - r (1 - x_\ell)} \dots\dots\dots (2.34)$$

したがって, 分離係数  $\alpha$  は,

$$\alpha = \frac{x_\ell (1 - x_h)}{x_h (1 - x_\ell)} = 1 + (\alpha_0 - 1) \frac{1 - r}{1 + (1 - x_\ell) (\alpha_0 - 1)} \dots\dots\dots (2.35)$$

上式は, 分離係数が低圧側の気体組成  $x_\ell$  に依存することを表わしている。分子量が大きく異なる混合気体の分離においては, <sup>35)</sup>カスケード段毎における濃度変化が大きいので, 分離係数の取扱いには注意を払う必要がある。

しかし, 分子量の大きい同位体混合気体の場合には,  $\alpha_0 - 1 \ll 1$  がなり立つので, (2.35)式は次のように近似できる。

$$\alpha = 1 + (\alpha_0 - 1) (1 - r) \dots\dots\dots (2.36)$$

すなわち, このような混合気体の分離過程では, 低圧側気体の組成の影響は無視できる。

### 2.3.3 粘性流の影響 (Present-de Bethune の効果)

2.2節で述べたように, 実際の分離過程は, 完全な Knudsen 流よりもむしろ遷移流で特徴づけられる。

この条件において, 隔膜を通過する正味の流量および組成は, 各成分について次式で表わされる。

$$N_1 = \frac{A}{\sqrt{M_1}} (P_h x_h - P_\ell x_\ell) + \frac{B}{\mu} (P_h^2 - P_\ell^2) x_h \quad \dots\dots\dots (2.37)$$

$$N_2 = \frac{A}{\sqrt{M_2}} \{ P_h (1 - x_h) - P_\ell (1 - x_\ell) \} + \frac{B}{\mu} (1 - x_h) (P_h^2 - P_\ell^2) \quad \dots\dots\dots (2.38)$$

$$\bar{x} = \frac{N_1}{N_1 + N_2} = \frac{\alpha_0 (x_h - r x_\ell) + \frac{x_h (P_h + P_\ell) (1 - r)}{\psi}}{\alpha_0 x_h + (1 - x_h) - r (\alpha_0 x_\ell + 1 - x_\ell) + \frac{(P_h + P_\ell) (1 - r)}{\psi}} \quad \dots\dots\dots (2.39)$$

$$\psi = \frac{\mu A}{B \sqrt{M_2}} \quad \dots\dots\dots (2.40)$$

(2.39) 式を  $x_h$  について解き, (2.26) 式に代入すると分離効率  $z_b$  は,

$$z_b = \left\{ 1 - r \frac{\alpha_0 x_\ell (1 - \bar{x}) - \bar{x} (1 - x_\ell)}{(\alpha_0 - 1) \bar{x} (1 - \bar{x})} \right\} \left\{ \frac{\bar{x} + \alpha_0 (1 - \bar{x})}{\bar{x} + \alpha_0 (1 - \bar{x}) + \frac{(P_h + P_\ell) (1 - r)}{\psi}} \right\} \quad \dots\dots\dots (2.41)$$

これより, 粘性流の効果  $z_2$  は次式で表わされる。

$$z_2 = \frac{\bar{x} + \alpha_0 (1 - \bar{x})}{\bar{x} + \alpha_0 (1 - \bar{x}) + \frac{(P_h + P_\ell) (1 - r)}{\psi}} \quad \dots\dots\dots (2.42)$$

$\alpha_0 - 1 \ll 1$ ,  $\bar{x} = x_\ell$  なる関係がなり立つ混合気体については,

$$z_b = \frac{1}{\frac{1}{1 - r} + \frac{P_h + P_\ell}{\psi}} \quad \dots\dots\dots (2.43)$$

Present & deBethune<sup>9)</sup> は, 長い細管内の流れ ( $\ell \gg r$ ,  $\lambda \sim r$ ) が分離効果のある Knudsen 流と分離効果のない Poiseuille 流および分子拡散流\* からなるとして, より厳密な計算法を導いており, 今日 Present-de Bethune 効果として広く受け入れられている。以下にこの理論の概要を述べる。

\* 粘性の効果が明確に現われない中間圧力 ( $\lambda \sim r$ ) において, 分子衝突による分子飛行速度の平均化の行われる結果生ずる分離効果のない流れ。

分子量が大きく異なる一般の2成分混合気体が半径  $r$  の円形断面をもつ長い細管内を流れる場合、各成分に対する流量方程式は以下のように表わされる。

$$\frac{-G_1}{g} = \frac{f^+}{1+b(x)P} \cdot \frac{d(xP)}{d\ell} + \frac{\bar{f}(x)b(x)P}{1+b(x)P} \cdot x \frac{dP}{d\ell} + x a(x)P \frac{dP}{d\ell} \dots\dots\dots (2.44)$$

$$\frac{-G_2}{g} = \frac{1}{1+b(x)P} \cdot \frac{d(1-x)P}{d\ell} + \frac{f(x)b(x)P}{1+b(x)P} \cdot (1-x) \frac{dP}{dx} + (1-x) a(x)P \frac{dP}{d\ell} \dots\dots\dots (2.45)$$

ここで、

$$f^+ = \left(\frac{M_2}{M_1}\right)^{\frac{1}{2}} \dots\dots\dots (2.46)$$

$$g = \frac{8}{3\pi} \left(\frac{\pi}{2kTM_2}\right)^{\frac{1}{2}} r \dots\dots\dots (2.47)$$

$$\bar{f} = \frac{M_2^{\frac{1}{2}}}{\langle M^{\frac{1}{2}} \rangle_x} \dots\dots\dots (2.48)$$

$$a(x) = \frac{3r}{16\eta(x)v_2} \dots\dots\dots (2.49)$$

$$b(x) = \frac{8}{3\pi} \left(\frac{\pi kT}{2M^+}\right)^{\frac{1}{2}} \frac{\langle M^{\frac{1}{2}} \rangle_x}{(M_1+M_2)^{\frac{1}{2}}} \cdot \frac{1}{\rho(x)D_{12}} \dots\dots\dots (2.50)$$

$$\langle M \rangle_x = xM_1 + (1-x)M_2 \dots\dots\dots (2.51)$$

$$\langle M^{\frac{1}{2}} \rangle_x = xM_1^{\frac{1}{2}} + (1-x)M_2^{\frac{1}{2}} \dots\dots\dots (2.52)$$

$M^+$  : 衝突分子の運動量保存則から定められる換算質量

$\ell, d\ell$  : 細管の全長および微小長さ

$x$  : 軽成分1の濃度(モル分率)

$P$  : 気体の圧力

$v_2$  : 重成分2の分子飛行速度 ( $=\sqrt{8RT/\pi M_2}$ )

$k$  : ボルツマン定数

$\mu(x)$  : 気体の粘度

$\rho(x)$  : 気体の密度

$D_{12}$  : 相互換算係数

(2.44)式および(2.45)式の第1項は Knudsen 流, 第2項は分離効果のない拡散流, 第3項は Poiseuille 流に対応するものである\*。

\* Present-de Bethune の理論の厳密さを調べた Fain<sup>34)</sup>の研究では, 多孔質隔膜および円形断面の短い細管については, このような加成性がなり立つが, 長い細管については適用できないことが報告されている。

パラメータ  $a(x)$  および  $b(x)$  は、それぞれ  $\eta(x)$  および  $\rho(x)$  の関数である（したがって細管の長さ方向の組成変化に依存する）。しかし、理想的 Knudsen 流の場合には、管の全長にわたる気体組成は入口における値のまま一定であることから、 $a(x)$ 、 $b(x)$  の取扱いは、一般に入口組成を基準にして行う方がよいと考えられている。

また、パラメータ  $a(x)$ 、 $b(x)$  より、(2.44)、(2.45) 式における右辺の第2、第3項の相対的な大きさが求められる。すなわち、

$$X(x) = \frac{b(x)}{a(x)} = \frac{256}{9\pi} \cdot \frac{\langle M^{\frac{1}{2}} \rangle_x \langle M \rangle_x}{M_2 \cdot M_1^{\frac{1}{2}}} \cdot \frac{\eta(x)}{\rho(x) D_{12}} \quad \dots\dots\dots (2.53)$$

一方、分離効率の定義式は、(2.44)、(2.45) 式ならびに細孔出口側の気体組成と各成分の通過流量との関係  $x_\ell / (1-x_\ell) = G_1 / G_2$  より導出される。結果のみを示すと、

$$z_{P-D} = \frac{(x_\ell - x_h) h(x_\ell)}{x_\ell (1-x_\ell)} \cdot \frac{1}{f^+ - 1}$$

$$= \frac{\int_{P_\ell}^{P_h} \exp \left\{ \frac{1}{h(x)} \left[ (1 + X(x)\bar{f}) \phi + \left( \frac{X(x)}{2} \right) \phi^2 \right] \right\} d\phi}{\phi_h \exp \left\{ \frac{1}{h(x)} \left[ (1 + X(x)\bar{f}) \phi + \left( \frac{X(x)}{2} \right) \phi^2 \right] \right\}} \quad \dots\dots\dots (2.54)$$

ここで、

$$\phi = a(x) P = \frac{3rP}{16\eta v_2} \quad \dots\dots\dots (2.55)$$

$$h(x) = 1 + (f^+ - 1)(1-x) \quad \dots\dots\dots (2.56)$$

$x_h, x_\ell$  : 細管の入口および出口における軽成分1のモル分率

$P_h, P_\ell$  : 細管の入口および出口における混合気体の圧力

(2.54) 式は、Present-deBethune の効果と呼ばれ、遷移流域における分離係数の減少度合いを表わしている。

この式は、分子量比があまり大きくないすべての2成分混合気体になり立つ一般式であるが、 $H_2 - CO_2$  のように分子量の著しく異なる系についても高々数%の誤差以内で適用できるとされている\*。

なお、同位体混合気体の場合には、(2.53) および (2.54) 式において、以下の近似がなり立つ。

---

\* Massignon<sup>11)</sup> は、分子量比が大きい2成分混合気体の場合には細孔壁における各成分分子の反射挙動が異なるため、すべての分子が確率反射をするという Knudsen の法則からのずれを生ずるが、そのための誤差は、 $N_2 - CO_2$  系では  $0.65 \leq z \leq 1$  の範囲で、約2%であるとしている。



$$\left. \begin{aligned} \frac{\langle M^2 \rangle_x \langle M \rangle_x}{M_2 \cdot M_1^{\frac{1}{2}}} &\cong 1 \\ \bar{f} &\cong 1 \\ h(x_\ell) &\cong 1 \end{aligned} \right\} \dots\dots\dots (2.57)$$

(2.54)式の解は数値積分により求められるが、以下の変数を導入することにより、ほぼ同程度の精度で適用できる簡略式が与えられる。

$$t_h = t_o + \left\{ \frac{X(x)}{2h(x)} \right\}^{\frac{1}{2}} \phi_h = t_o + \delta_h \dots\dots\dots (2.58)$$

$$t_\ell = t_o + \left\{ \frac{X(x)}{2h(x)} \right\}^{\frac{1}{2}} \phi_\ell = t_o + \delta_\ell \dots\dots\dots (2.59)$$

$$t_o = \frac{1 + X(x)\bar{f}}{\{2h(x) \cdot X(x)\}^{\frac{1}{2}}} \dots\dots\dots (2.60)$$

$$\begin{aligned} z(t_h, t_\ell, t_o) &= z(\delta_h, \delta_\ell, t_o) \\ &= \int_{t_o + \delta_\ell}^{t_o + \delta_h} \frac{\exp[t^2] dt}{(t_h - t_o) \exp[t_h^2]} \dots\dots\dots (2.61) \end{aligned}$$

Martensson は、上式を  $\exp[t^2]$  について展開、積分した後、 $\delta_h, \delta_\ell$  の2次以上の高次項を無視して以下の式を得ている。

$$z(\delta_h, \delta_\ell, t_o) = \frac{\delta_h - \delta_\ell}{\delta_h} \exp[-t_o(\delta_h - \delta_\ell)] \dots\dots\dots (2.62)$$

すなわち、

$$z_{p-D} = (1-r) \exp\left[ \frac{-r P_h (1-r)}{C} \right] \dots\dots\dots (2.63)$$

$$= z_1 \cdot z_2 \dots\dots\dots (2.64)$$

ここで、

$$r = \frac{P_\ell}{P_h} \dots\dots\dots (2.65)$$

$$\frac{1}{C} = \frac{3(1+X\bar{f})}{32\eta(x)h(x)v_2} \dots\dots\dots (2.66)$$

(2.63)式より, Present-deBethuneの効果  $z_{p-D}$  は, 細管の孔半径  $r$  と細管入口(高圧側)における圧力  $P_h$  との積として表われることが分る。また, 同式の右辺には, 逆拡散の効果  $z_1$  に相当する  $(1-r)$  の項が含まれているが, 通常は  $z_2$  の項を Present-deBethuneの効果と呼んでいる。

同位体混合気体については, (2.63), (2.66)式に(2.57)式を代入して

$$z_2 \cong \exp \left[ \frac{-3 r P_h (1+9 S_c) (1-r)}{32 \eta v_2} \right] \dots\dots\dots (2.67)$$

ここで,

$$S_c : \text{シュミット数} (= \eta(x) / \rho(x) \cdot D_{12})$$

図2-3はアargon同位体 ( $^{36}\text{Ar} / ^{40}\text{Ar}$ ) について, Present-deBethuneの式と Martensson の式  $[(2.66) \times (1-r)]$  とによる計算値を比較したものであり, 両者が広い圧力範囲において良く一致することが分る。

#### 2.3.4 境界層の効果

隔膜の高圧側にある気体が隔膜表面に沿って流れると, 表面近傍に境界層と呼ばれる混合あるいは分子拡散による物質移動(隔膜面に垂直方向)の緩慢な乱れの少ない層\*が形成される。軽成分分子は隔膜を優先的に通り抜けていくため, 境界層内の軽成分は隔膜表面に向って連続的に減少する。したがって, 隔膜の有効な分離係数は, 高圧側気体の平均組成に対する値よりも低下することになる。

以上のように, この効果は隔膜の分離係数に大きな影響を及ぼすと考えられるので, 拡散筒の設計にあたっては, その値の大きさを正確に把握することが重要な課題となっている。

本効果に関する研究は少なく, Bilous<sup>36)</sup>, Caldirola<sup>11)</sup>, 三上<sup>37)</sup>, Ebel<sup>38)</sup>らの報告が知られているが, これを定量的に算定する方法は確立されていない。ここでは, 境界層の効果の推算法としてしばしば用いられる Bilous および Ebel の式をとり上げ, 各式における考え方および前提条件を説明する。

隔膜の分離効率の測定あるいは拡散筒の設計などにおいてよく用いられる Bilous の式は, 次の形で与えられている。

\* 分子拡散に対する抵抗層という意味から, 濃度境界層とも呼ばれる<sup>11)</sup>。

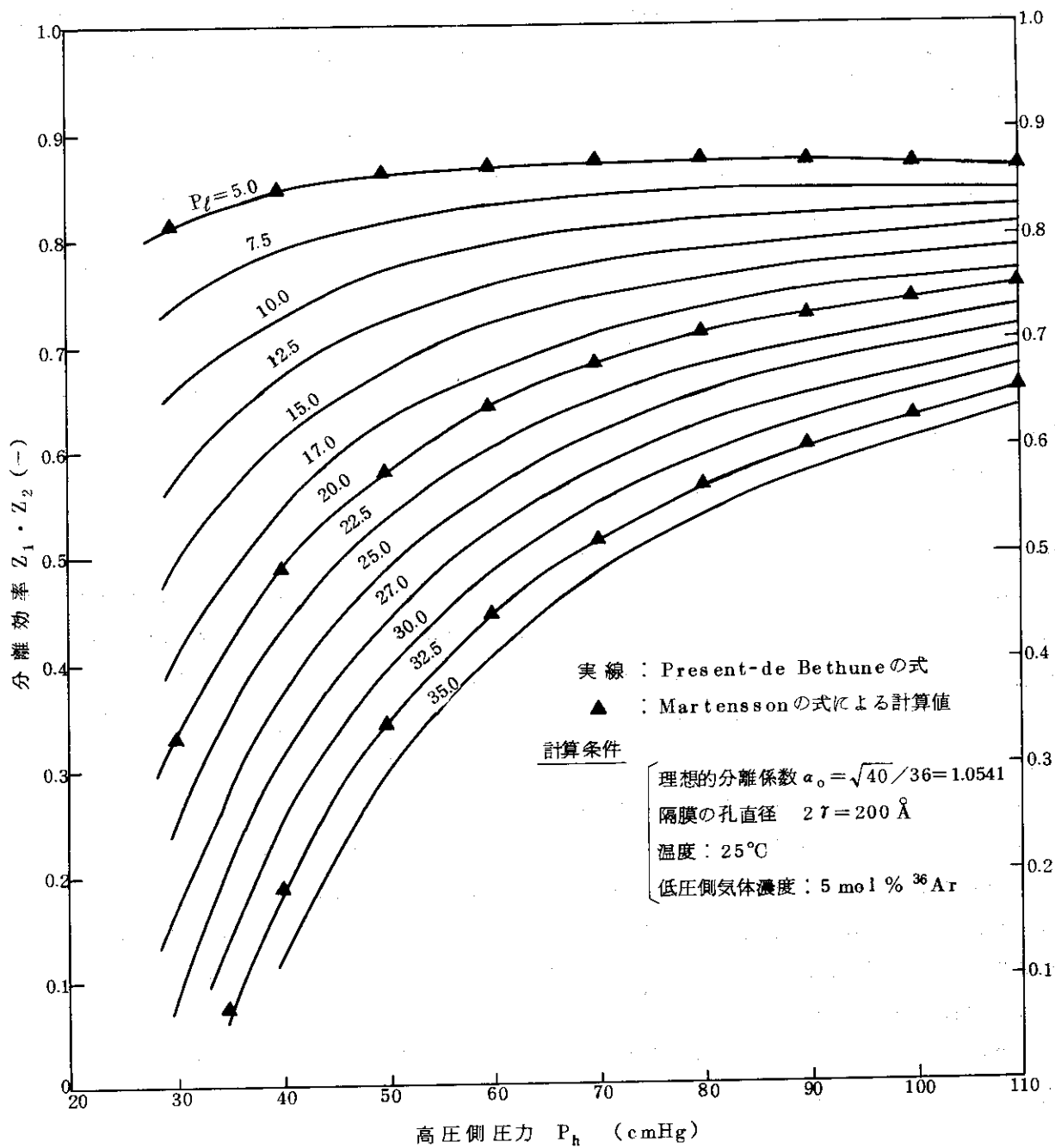


図 2 - 3 遷移流域における隔膜の分離効率の計算法の比較

Present-de Bethuneの式による計算に際して、(2.54)式の被積分項の変化が単調なものであると仮定し、この項を台形公式で解いた。  
 なお、 $\phi_h \sim \phi_l$  の間の分割数  $n=200$  とした。

$$z_3 = \exp \left\{ \frac{-B y Q}{\rho D_{12}} \right\}$$

$$= \exp \{ -C B Q' u^{-0.83} \}^* \dots\dots\dots (2.68)$$

ここで、

- $z_3$  : 境界層効果のみを考慮した隔膜の分離効率
- $B$  : 流れの性質による経験的定数であり、乱流に対しては1に近い値をとる。
- $C$  : 実験条件に依存する定数
- $Q$  : 隔膜単位面積当りの透過流量 [ g/cm<sup>2</sup> · sec ]
- $Q'$  : 隔膜単位面積および単位差圧当りの透過流量 [ cm<sup>3</sup>/cm<sup>2</sup> · sec · atm ]
- $\rho$  : 隔膜高圧側における気体の密度 [ g/cm<sup>3</sup> ]
- $u$  : " 気体の平均流速 [ cm/sec ]

上式における変数  $y$  は、境界層の厚み [ cm ] であり、隔膜高圧側の流れの条件により、以下のように定義される。

乱流の場合 :

$$y = 43 de (Re)^{-0.83} \left( \frac{\rho D_{12}}{\eta} \right)^{0.44} \dots\dots\dots (2.69)$$

層流の場合 :

$$y = \frac{13 de}{70} \dots\dots\dots (2.70)$$

ここで、

- $de$  : 隔膜の高圧側流路断面の相当直径 [ cm ]
- $Re$  : " 流路におけるレイノルズ数 [ - ]

(2.69) および (2.70) 式は、Caldirola<sup>11)</sup> が Gilliland & Sherwood の濡れ壁塔における気相物質移動係数についての実験式をガス拡散法における境界層厚みの算出式に拡張したものである。

\* Martensson<sup>46)</sup> により、逆拡散の効果  $z_1$  および後述する流れ様式の効果  $z_5$  が無視できるような条件 ( 低圧側圧力  $P_f \cong 0$ , カット  $\theta \cong 0$  とすると  $z_1 = 1$ ,  $z_5 = 1$  ) における隔膜の分離効率  $z_b$  の測定方法が提案されている。

$$z_b = z_2 \cdot z_3$$

$$= z_2 \exp \{ -C \cdot B \cdot Q' \cdot u^{-0.83} \}$$

上式対数をとると、

$$\log z_b = \log z_2 - C \cdot B \cdot Q' \cdot u^{-0.83}$$

これより、 $u^{-0.83} \rightarrow 0$  ( 高圧側における流量が無限大 ) とすると、 $z_b$  として隔膜の細孔直径および高圧側圧力  $P_h$  のみの関数である  $z_2$  が求められる。また、 $\log z_b$  vs  $u^{-0.83}$  のグラフの傾きから定数  $B$  の値も定められる。

一方, Ebel は, 境界層における軽成分の物質収支と境界層の物質移動係数に基づいて, 次の算出式を導いている。

$$z_3 = \exp \left\{ -\frac{2}{f} \cdot \frac{\mu}{\rho D_{12}} \cdot \frac{V_m}{V_h} \right\} \dots\dots\dots (2.71)$$

ここで,

- f : 隔膜の表面摩擦係数 [—]
- $\mu/\rho D_{12}$  : 隔膜の高圧側気体のシュミット数 [—]
- $V_m$  : 隔膜を通過する気体の流速 [cm/sec]
- $V_h$  : 隔膜の高圧側流路断面における気体の平均流速 [cm/sec]

上式より, 分離効率  $z_3$  は, 拡散筒内の流速比  $V_m/V_h$  が小さいほど増加することが理解できる。ちなみに, 隔膜の表面摩擦係数  $f$  は, 実際の拡散筒において考えられるレイノズル数範囲  $10^3 \sim 10^5$  において,  $4 \times 10^{-3} \sim 2 \times 10^{-2}$  の範囲とみられる(したがって,  $2/f$  の値は  $100 \sim 500$  程度となる)。また, 気体のシュミット数は一般に 1 に近い値をとるので, たとえば  $z_3 > 0.9$  を与える速度比  $V_m/V_h$  は  $1/1000 \sim 1/5000$  の範囲に入ることが予測できる。

### 2.3.5 表面拡散流の効果

表面拡散流が隔膜の分離効率に及ぼす影響は, 2.2.3 項に述べたように確実なことが不明であるが, 不活性気体その他の理想気体の法則がよく当てはまる気体については分離係数に及ぼす影響が小さいと考えられる。

したがって, 本効果のみを考慮したときの分離効率  $z_4$  は, 上述のような気体については 1 という値がしばしば適用されている。

### 2.3.6 流れ様式の効果

前項までに, 隔膜の分離性能に及ぼすさまざまな因子は隔膜の真の分離係数を低下させるものであり, 実際分離係数は理論的な分離係数  $\alpha_0 (= \sqrt{M_2/M_1})$  以上にはなり得ないことを述べた。

しかし, 実際分離器(拡散筒)では, 高圧側および低圧側の気体の流れ方向を適切に選ぶことにより, 隔膜の分離効率を高める流れ様式の効果と呼ばれる因子の存在が知られており, 東<sup>40)</sup>, Blaisdell<sup>41)</sup>, Weller & Steiner<sup>44), 45)</sup> その他<sup>11), 12), 33), 38), 42)</sup> により理論的な証明もなされている。この効果の詳細は, 次節でとり上げる。

ここでは, 本効果のみを考慮したときの分離効率を  $z_5$  と定義することにする。

### 2.3.7 その他の影響因子

Knudsen の式(2.8)および Present-deBethune の式(2.44), (2.45)は, いずれも円形断面を有する非常に長い直管(キャピラリー)における気体の流れに基づいて導かれたものであり, 多孔質隔膜への理論的な拡張もそのような細管からなる理想的隔膜を対象として

いる。また、Knudsen 流の条件における細管内の気体分子の衝突・反射挙動についても完全な確率反射 (Knudsen の法則) の行われることが前提となっている。

ここでは、実際の多孔質隔膜について、上述のような理想的取扱いとの差異を考えてみよう。

(1) 隔膜構造の影響

Massignon<sup>43)</sup> は、気体分離用の多孔質隔膜の構造解析法に関する研究から、隔膜中の流れが以下の各式により表現できることを明らかにしている。

Poiseuille 流 (2.9) 式に対応する流量方程式は、

$$N_P = \frac{\epsilon^2}{S_0^2} \cdot \frac{P_h^2 - P_l^2}{2 \ell \mu RT} \cdot \frac{1}{k_P \cdot k_T^2} \quad \dots\dots\dots (2.72)$$

$$r_P^2 = \frac{4 \epsilon^2}{S_0^2} \cdot \frac{1}{k_P \cdot k_T^2} \quad \dots\dots\dots (2.73)$$

ここで、

- $N_P$  : 隔膜の単位面積当りの流量 [ mol / cm<sup>2</sup> · sec ]
- $\epsilon$  : 空隙率 [ - ]
- $S_0$  : 隔膜の比表面積 [ cm<sup>2</sup> / cm<sup>3</sup> ]
- $k_P$  : Poiseuille 流に対する細孔断面の形状係数 (円形断面の場合には,  $k_P = 2$ )
- $k_T$  : 細孔の屈曲係数 (理想的隔膜の場合には,  $k_T = 1$ )
- $r_P$  : 粘性流に対する細孔の有効半径 [ cm ]

Knudsen 流については、

$$N_K = \frac{8}{3} \left\{ \frac{1}{2 \pi MRT} \right\}^{\frac{1}{2}} \cdot \frac{P_h - P_l}{\ell} \cdot \frac{\epsilon^2}{S_0} \cdot \frac{\omega}{k_K \cdot k_T^2} \quad \dots\dots\dots (2.74)$$

$$r_K = \frac{\epsilon}{S_0} \cdot \frac{\omega}{k_K \cdot k_T^2} \quad \dots\dots\dots (2.75)$$

ここで、

- $N_K$  : 多孔質隔膜の単位面積当りの流量 [ mol / cm<sup>2</sup> · sec ]
- $k_K$  : Knudsen 流に対する細孔断面の形状係数 (円形断面の場合には,  $k_K = 1$ )
- $\omega$  : 隔膜特性および気体の物性に依存する物理化学的因子で、Knudsen 法則からのずれ、細孔表面の吸着、表面拡散流などの影響を含めた係数
- $r_K$  : Knudsen 流に対する細孔の有効半径 [ cm ]

遷移流についての Present-deBethune の式 (2.44), (2.45) に対しては、粘性項 (2.49) と分子拡散項 (2.50) にそれぞれ  $k_K / k_T$ ,  $1 / k_K$  を乗ずるだけでよい。

(2) Knudsen 法則からのずれ

Knudsen 流の条件の下で細管内のすべての分子は管壁との衝突において確率反射をする ( $f = 1$ ) という Knudsen の法則は、断面が非円形の細管の場合や分子量の大きく異なる 2 成分混合気体の場合には厳密には当てはまらなくなる ( $f < 1$ ) ことが知られている<sup>11), 43)</sup>。この結果、隔膜の分離係数は、 $f_1 < f_2$  ( $f_1, f_2$  は軽成分, 重成分分子の確率反射の比率) ある

いは物理化学的因子  $\omega_1 < \omega_2$  のような条件では、完全な Knudsen 流における分離係数  $\alpha_0$  ( $=\sqrt{M_2}/M_1$ ) より大きな値になることも報告されている (Huggil)<sup>11)</sup>。

## 2.4 拡散筒の分離係数

ガス拡散プラントの規模 (所要段数, 循環流量) を決定する上で最も重要なパラメータは、拡散筒の分離係数である。この分離係数には、内蔵された隔膜に関する分離性能  $z_b$  ( $=z_1 \cdot z_2 \cdot z_3 \cdot z_4$ ) とは別に、拡散筒内の隔膜の両側における気体の相対的な流れの方向に依存する効果  $z_5$  が含まれている。

このような流れの効果は、混合 (mixing) の効果 (Benedict<sup>12)</sup>, Weller & Steiner<sup>44), 45)</sup>, Naylor & Becker<sup>33)</sup>, その他<sup>11)</sup> )あるいは流れ様式の効果 (大石<sup>42)</sup>, 東<sup>40)</sup>, Blaisdell & Kammermeyer<sup>41)</sup> ) などと呼ばれている。

本節では、拡散筒の分離性能とこれらの流れの効果との関係について概説する。

### 2.4.1 定義式

図 2-4 は、拡散筒内における分離過程を模式的に表わしたものである。拡散筒供給流 (組成  $x$ , 流量  $L$ ) は隔膜により分離されて、軽成分濃度の増加した拡散流 ( $x'$ ,  $L'$ ) および軽成分濃度の減少した未拡散流 ( $x''$ ,  $L''$ ) として拡散筒から流出していく。各流れにおける濃度関係は、 $x' > x > x''$  となる。

この場合、拡散筒の分離係数は、次式で定義される。

$$\alpha_s = \frac{x'(1-x'')}{x''(1-x')} \quad \dots\dots\dots (2.76)$$

また、分離効率については、次のように、蒸留理論における Murphree の総括段効率の場合と類似の定義式がなり立つことが知られている<sup>12)</sup>。

$$z_s = \frac{x' - x''}{x' - x_0} \quad \dots\dots\dots (2.77)$$

ここで、 $x_0$  は拡散流組成  $x'$  を与える理想的隔膜の高圧側における気体組成 [(2.25) 式] である。

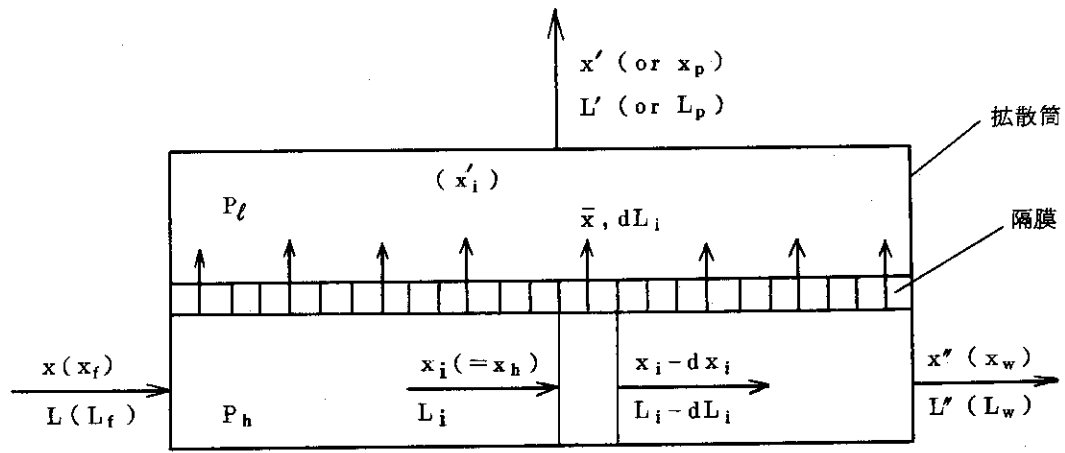
分子量の大きい同位体混合気体の場合には、 $\alpha_0 - 1 \ll 1$  がなり立つので、

$$\bar{x} = x' = x'' = x_0 \quad \dots\dots\dots (2.78)$$

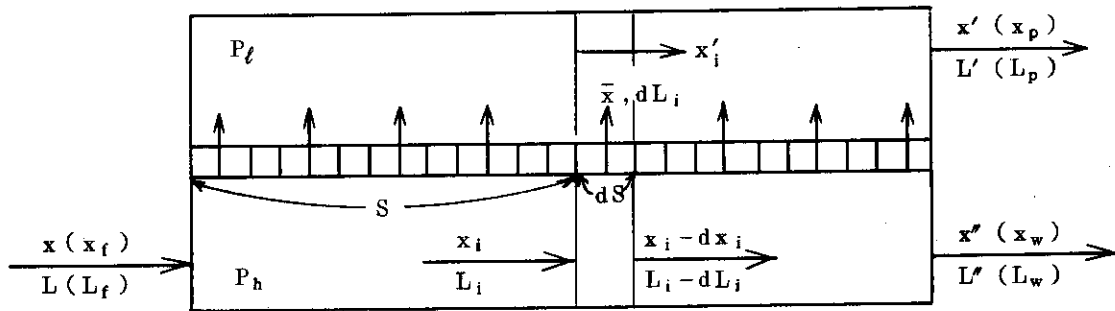
したがって、(2.25) 式より、

$$x' - x_0 = \frac{(\alpha_0 - 1)x'(1-x')}{x' + \alpha_0(1-x')} \quad \dots\dots\dots (2.79)$$

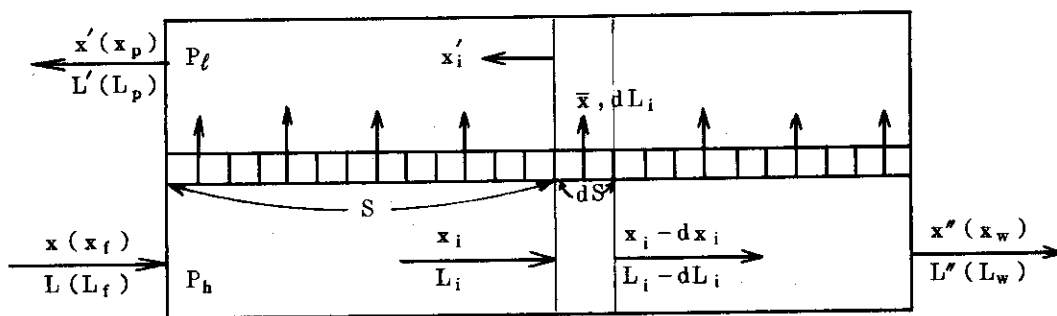
上式を (2.77) 式に代入して、



(a) 十字流型



(b) 並流型



(c) 向流型

図 2 - 4 流れ様式と拡散筒モデル



$$\begin{aligned}
 z_s &= \frac{1}{\alpha_0 - 1} \cdot \frac{x' - x''}{x' (1 - x')} [x' + \alpha_0 (1 - x')] \\
 &\cong \frac{x' - x''}{(\alpha_0 - 1) x' (1 - x')} \\
 &\cong \frac{x' - x''}{(\alpha_0 - 1) x'' (1 - x')} \\
 &= \frac{\alpha_s - 1}{\alpha_0 - 1}
 \end{aligned}
 \quad \left. \vphantom{\begin{aligned} z_s &= \frac{1}{\alpha_0 - 1} \cdot \frac{x' - x''}{x' (1 - x')} [x' + \alpha_0 (1 - x')] \\ &\cong \frac{x' - x''}{(\alpha_0 - 1) x' (1 - x')} \\ &\cong \frac{x' - x''}{(\alpha_0 - 1) x'' (1 - x')} \\ &= \frac{\alpha_s - 1}{\alpha_0 - 1} \end{aligned}} \right\} \dots\dots\dots (2.80)$$

(2.77), (2.80)式で与えられる分離効率は、以下に述べるように、隔膜の両側における流れの相対的方向および混合の度合いに依存する流れ様式の影響を受けている。

(1) 完全混合型 ( perfect mixing )

これは、隔膜の両側における気体が、それぞれの流れの方向に完全に混合され、均一な組成になっている場合である。このとき、拡散筒の分離効率と隔膜の分離効率は一致する。

(2) 非混合型 ( no mixing )

隔膜の両側の気体は流れの方向にまったく混合のない押し出し流れであり、高圧側の組成は入口端から出口端へ連続的に減少している。このタイプは、低圧側の高圧側に対する流れの方向により、次の3型式に大別される。

(i) 十字流型

これは、低圧側の流れの方向が隔膜面に垂直であることから、T字流型とも呼ばれるものであり、単蒸留プロセスにおいて残留液中の揮発成分が蒸留の進行とともに減少していく過程 ( Rayleigh 効果 ) と類似の取扱いができる<sup>33), 38), 46)</sup>。

(ii) 並流型

この場合には、隔膜の両側における流れは隔膜面に平行な押し出し流れであり、拡散流と未拡散流の流れの方向は一致している。

(iii) 向流型

これは、隔膜面に平行な押し出し流れとなっている拡散流と未拡散流の流れ方向が相対している場合であり、分離係数に及ぼす効果は他の3型式に比べて最も大きいことが知られている。

以上の各型式についての理論的考察は、それぞれの報告に詳しいので、ここではそれらの基本式および考え方を簡単に示しておく。

2.4.2 完全混合型<sup>4), 11), 12), 40), 45)</sup>

図2-4(a)において、高圧側の気体組成と拡散筒を流出する未拡散流組成は等しい。すなわち、

$$x_i (= x_h) = x'' \quad \dots\dots\dots (2.81)$$

また、隔膜を通過する気体の組成は、低圧側気体および拡散筒を流出する拡散流の組成と等しいので、

$$\bar{x} (= x'_1) = x' \quad \dots\dots\dots (2.82)$$

したがって、拡散筒の分離効率  $z_s$  は(2.77)式より、

$$z_s = \frac{\bar{x} - x_h}{x - x_0} \quad \dots\dots\dots (2.83)$$

すなわち、 $z_s$  は、隔膜の分離効率  $z_b$  [(2.26)式]と一致する。

2.4.3 十字流型 <sup>(11),(12),(33),(35),(38),(40),44~48)</sup>

この場合には、高圧側における気体の組成および流量は、拡散筒入口端の値  $x_f, L_f$  から出口端の値  $x_w, L_w$  に連続的に変化する。

図2-4(a)に示した拡散筒モデルの微小柱体要素における軽成分についての物質収支から、

$$L_i \frac{dx_i}{dL_i} = \bar{x} - x_i \quad \dots\dots\dots (2.84)$$

$\alpha_0 - 1 \ll 1$  がなり立つ混合気体の場合には、(2.26)式において次の近似が適用できる。

$$\left. \begin{aligned} \bar{x} + \alpha_0 (1 - \bar{x}) &\cong 1 \\ \bar{x} &\cong x_i \end{aligned} \right\} \quad \dots\dots\dots (2.85)$$

すなわち、(2.26)式は、次式のように書換えられる。

$$\begin{aligned} \bar{x} - x_i &\cong z_b (\alpha_0 - 1) \bar{x} (1 - \bar{x}) \\ &\cong z_b (\alpha_0 - 1) x_i (1 - x_i) \quad \dots\dots\dots (2.86) \end{aligned}$$

上式を(2.84)式に代入して、

$$L_i \frac{dx_i}{dL_i} \cong z_b (\alpha_0 - 1) x_i (1 - x_i) \quad \dots\dots\dots (2.87)$$

一方、低圧側の気体は隔膜面に垂直方向に流出するので、 $z_b$  は低圧側の組成に依存せず一定である。したがって、流量  $L_i$  の変化に対する  $x_i$  の変化が小さく、かつほぼ一定と見なせる場合には、上式は  $x_i$  について  $x_f$  から  $x_w$ 、 $L_i$  について  $L_f$  から  $L_w$  の間で積分できる。

$$x_f - x'' = z_b (\alpha_0 - 1) x'' (1 - x'') \ln \frac{L_f}{L''} \quad \dots\dots\dots (2.88)$$

ここで、 $x_w, L_w$  をそれぞれ  $x'', L''$  と置換えている。

拡散筒全体の軽成分に関する収支より、

$$\frac{x' - x''}{x_f - x''} = \frac{L_f}{L'} \quad \dots\dots\dots (2.89)$$

(2.88), (2.89)式より,

$$\begin{aligned}
 x' - x'' &= z_b (\alpha_0 - 1) x'' (1 - x'') \frac{L_f}{L'} \ln \frac{L_f}{L''} \\
 &= z_b (\alpha_0 - 1) x'' (1 - x'') \frac{1}{\theta} \ln \frac{1}{1 - \theta} \dots\dots\dots(2.90)
 \end{aligned}$$

ここで、カット  $\theta$  は、拡散筒供給流量に対する拡散流量の比で定義されたパラメータである。上式を(2.80)式に代入すると、拡散筒分離効率とカットの関係は次式で表わされる。

$$z_s = z_b \cdot \frac{1}{\theta} \ln \frac{1}{1 - \theta} \dots\dots\dots(2.91)$$

この式の  $(1/\theta) \ln(1/1-\theta)$  は、十字流の効果  $z_5$  の大きさを表わすもので、拡散筒の分離効率  $z_s$  が隔膜のそれより大きな値となることが理解される。

なお、全還流操作におけるカスケードの拡散筒では、カット  $\theta$  は0.5であるので、このときの分離効率は  $z_s = 1.386 z_b$  となる。

ところで、東<sup>40)</sup> は、 $\alpha_0 - 1 \ll 1$  のなり立つ混合気体について、理想的な完全混合型および十字流型ならびにこれらの中間的な流れ様式を包括的に表現する方法を提案している。これは、長さ方向に  $N$  個の互いに混合のない、しかもそれぞれの隔膜両側における気体が完全混合をしている分離要素から構成された拡散筒モデルから導かれたものである。結果のみを示すと、

$$\alpha_s - 1 \cong z_5 (\alpha_{mix} - 1) \dots\dots\dots(2.92)$$

$$z_5 = \sum_{k=0}^{N-1} \frac{1}{N - k\theta} \dots\dots\dots(2.93)$$

ここで、

- $\alpha_{mix}$  : 完全混合型の場合の拡散筒分離係数 (= 隔膜の分離係数)
- $z_5$  : 流れ様式の効果による分離効率
- $k$  : 拡散筒入口端から数えた分離要素の番号

(2.93)式において、 $N = 1$  のとき  $z_5 = 1$  (完全混合型)、 $N = \infty$  のとき  $z_5 = (1/\theta) \ln(1/1-\theta)$  となることが確かめられる。

#### 2.4.4 並流型および向流型<sup>41),42),49)</sup>

ここでは、完全な Knudsen 流条件を想定して導かれた大石らの理論式について説明しよう。図2-4(b), (c)は、上記の流れ様式を模擬した拡散筒モデルを示したものである。

まず、並流型の場合について考える。

拡散筒入口端から隔膜面積  $S$  を経た部分に微小面積  $dS$  およびそれを含む柱体要素を想定する。この柱体要素のまわりの濃度、流量関係を図2-4(b)のように仮定すると、面積要素  $dS$

を透過する軽成分1および重成分2の流量は、それぞれ次のように表わせる。

$$-d(L_i x_i) = Q_{k1} (P_h x_i - P_\ell x'_i) dS \quad \dots\dots\dots (2.94)$$

$$-d\{L_i(1-x_i)\} = Q_{k2} \{P_h(1-x_i) - P_\ell(1-x'_i)\} dS \quad \dots\dots (2.95)$$

ここで、 $Q_{k1}$ 、 $Q_{k2}$  はそれぞれ Knudsen 流の条件における軽成分および重成分についての透過係数〔(2.13)式参照〕である。

一方、拡散筒入口端から柱体要素までの区間に関する物質収支より、

$$L_f = L_i + L'_i \quad \dots\dots\dots (2.96)$$

$$L_f \cdot x_f = L_i \cdot x_i + L'_i \cdot x'_i \quad \dots\dots\dots (2.97)$$

以上の4式から、 $S$ を独立変数とする  $x_i$  および  $x'_i$  に関する連立微分方程式あるいは  $x_i$  と  $x'_i$  との間の常微分方程式が得られる。これらについて、以下のような無次元化および変数変換を行うと(2.99)、(2.100)式が得られる。

$$\left. \begin{aligned} r &= \frac{P_\ell}{P_h} \\ \frac{Q_{k1}}{Q_{k2}} &= \sqrt{\frac{M_2}{M_1}} = \alpha_0 \\ R_f &= \frac{P_h Q_{k1} S}{L_f} \end{aligned} \right\} \quad \dots\dots\dots (2.98)$$

$$\frac{dx_i}{dR_f} = \frac{x_i - x'_i}{x'_i - x_f} \left[ (1-x_i)(x_i - r x'_i) - \frac{x_i}{\alpha_0} \{1-x_i - r(1-x'_i)\} \right] \quad \dots\dots\dots (2.99)$$

$$\frac{dx'_i}{dR_f} = \frac{x_i - x'_i}{x_i - x_f} \left[ (1-x'_i)(x_i - r x'_i) - \frac{x'_i}{\alpha_0} \{1-x_i - r(1-x'_i)\} \right] \quad \dots\dots\dots (2.100)$$

(2.99)、(2.100)式において、 $x_f$ 、 $L_f$ 、 $P_h$ 、 $P_\ell$  および  $Q_{k1}$  が与えられると、以下の初期条件のもとでRunge-Kutta法による数値解が求められ、 $x_i$  および  $x'_i$  が  $R_f$  の関数として表わせる。

(i)  $R_f = 0$  すなわち  $S = 0$  のとき、 $x_i = x_f$

これに対応する低圧側の気体組成  $x'_f$  はその点で透過する気体の組成に等しいので、Knudsen 流の条件における流量関係(2.27)式および(2.28)式より、次式がなり立たねばならない。

$$\frac{x'_f}{1-x'_f} = \frac{N_1}{N_2} = \frac{\alpha_0 (x_f - r x'_f)}{(1-x_f) - r(1-x'_f)} \dots\dots\dots (2.101)$$

上式の解は、 $x'_f$  についての2次方程式の2根のうち  $x_f < x'_f < 1$  の関係を満足するものである。なお、本流れ様式の場合には、 $x'_f$  は  $x'_i$  の最大値をとる。

(ii)  $R_f = 0$  における  $dx_i/dR_f$  および  $dx'_i/dR_f$  の値をあらかじめ求めておく必要がある。すなわち、 $(dx_i/dR_f)_{R_f=0}$  の値は、(2.99)式の右辺において  $x_i, x'_i$  をそれぞれ  $x_f, x'_f$  に置き換えたものである。 $(dx'_i/dR_f)_{R_f=0}$  の値としては、(2.100)式のカッコ内の式を  $x_i = x_f$  のまわりでテーラー展開し、 $x_i$  を  $x_f$  に収れんさせて得られる下記の極限值が用いられる。

$$\left( \frac{dx'_i}{dR_f} \right)_{R_f=0} = \left( \frac{dx_i}{dR_f} \right)_{R_f=0} \left[ \frac{(\alpha_0 - 1)x'_f - \alpha_0}{\frac{\alpha_0}{x'_f - x_f} \left( \frac{dx_i}{dR_f} \right)_{R_f=0} + (\alpha_0 - 1)(2rx'_f - x_f - r) - 1} \right] \dots\dots\dots (2.102)$$

隔膜の高圧側、低圧側における軽成分組成  $x_i$  および  $x'_i$  の計算手順は、(2.99)～(2.102)式を用いて次のようにすすめられる。

まず、 $x_f, P_h, P_l$  および  $\alpha_0$  が与えられると、(2.101)式より  $x'_f$  が求められ、ついで(2.99)式および(2.102)式より出発点  $R_f = 0$  における  $dx_i/dR_f, dx'_i/dR_f$  の値が順次計算できる。 $R_f > 0$  の範囲については、(2.99), (2.100)両式を用い、 $R_f$  の歩み  $\Delta R_f$  を適当にとつて段階的に  $x_i, x'_i$  の値を計算していく。

$R_f$  に対応する  $x_i, x'_i$  の値が求められると、その  $R_f$  での流量  $L_i, L'_i$  [(2.96), (2.97)式] および分離係数  $\alpha$  [ $= x'_i(1-x_i)/x_i(1-x'_i)$ ],  $\beta$  [ $= x'_i(1-x_f)/x_f(1-x'_i)$ ] が計算できる。

図2-4(c)に示した向流型モデルの場合には、並流型モデルについて導出された各式において  $R_f, L_f, x_f$  をそれぞれ  $R_w, L_w, x_w$  に置き換えた式が得られる。

また、初期条件は、 $R_w$  が拡散筒出口端で0の値をとり拡散筒入口端へ負の値で減少するようにとると、並流型の場合の各式において  $x_f, x'_f$  を  $x_w, x'_w$  に置き換えるだけでよい。分離係数  $\alpha, \beta$  の定義式においても同様の書き換えがなり立つ。

---

\* (2.100)式では、右辺の  $x_i, x'_i$  に  $x_f$  および  $x'_f$  を代入すると不定形となって解が得られない。

### 3. 多孔質隔膜法によるカスケードの基本式

多孔質隔膜法により同位体の分離または混合ガスの組成分離を行う場合、1回の分離操作で達成される濃縮度（分離係数）は小さいので、所定濃度の製品を得るには分離操作を何回も繰返す必要がある。例えば、ガス拡散工場で軽水炉用低濃縮ウラン（濃縮度～3%）を生産するためには、約1000回もの分離操作を繰返さなければならない。カスケードは、このような多数回の分離操作を効率よく行うためのものである（図3-1参照）。

カスケードの代表的な形式としては、理想カスケード、方形カスケードおよびステップカスケードが知られている。ここでは、分離プラントの設計ないし分離実験結果の解析に必要なカスケード算出式を列挙する。

#### 3.1 カスケード一般式<sup>2),12),13)</sup>

##### 3.1.1 分離係数およびカット

図3-2は、分離ユニットとカスケードの基本的構成が示したものである。分離ユニットは、多孔質隔膜法においては拡散筒1基に相当し、また、拡散筒の流量は隔膜面積を増減することにより調整できるので、カスケード1段にも相当する。拡散筒に供給される同位体混合気体または異種の混合気体は、軽い成分の増加した隔膜透過流（拡散流、濃縮流、上昇流とも呼ばれる）と重い成分の増加した隔膜未透過流（未拡散流、減損流、下降流とも呼ばれる）の2つの流れに分離される。これらのそれぞれの流れは、さらに、上方および下方の拡散筒に送られ、分離操作が繰返される。

まず、拡散筒における各流れの濃度を比較すると、

$$x'' < x < x' \quad \dots\dots\dots (3.1)$$

つぎに、拡散筒における流量および着目成分の収支より、

$$L = L' + L'' \quad \dots\dots\dots (3.2)$$

$$Lx = L'x' + L''x'' \quad \dots\dots\dots (3.3)$$

ここで、 $L, L', L''$  ; 供給流、濃縮流、減損流の流量 (mol/sec)

$x, x', x''$  ; 供給流、濃縮流、減損流の着目成分（軽成分）の濃度（モル分率）

濃縮流量の供給流量に対する比はカットと呼ばれ、次式で表わされる。

$$\theta = \frac{L'}{L} = \frac{x - x''}{x' - x''} \quad \dots\dots\dots (3.4)$$

拡散筒1段でなされた分離の程度は、段分離係数 $\alpha$ と呼ばれ、濃縮流存在比 $\theta'$ の減損流存在

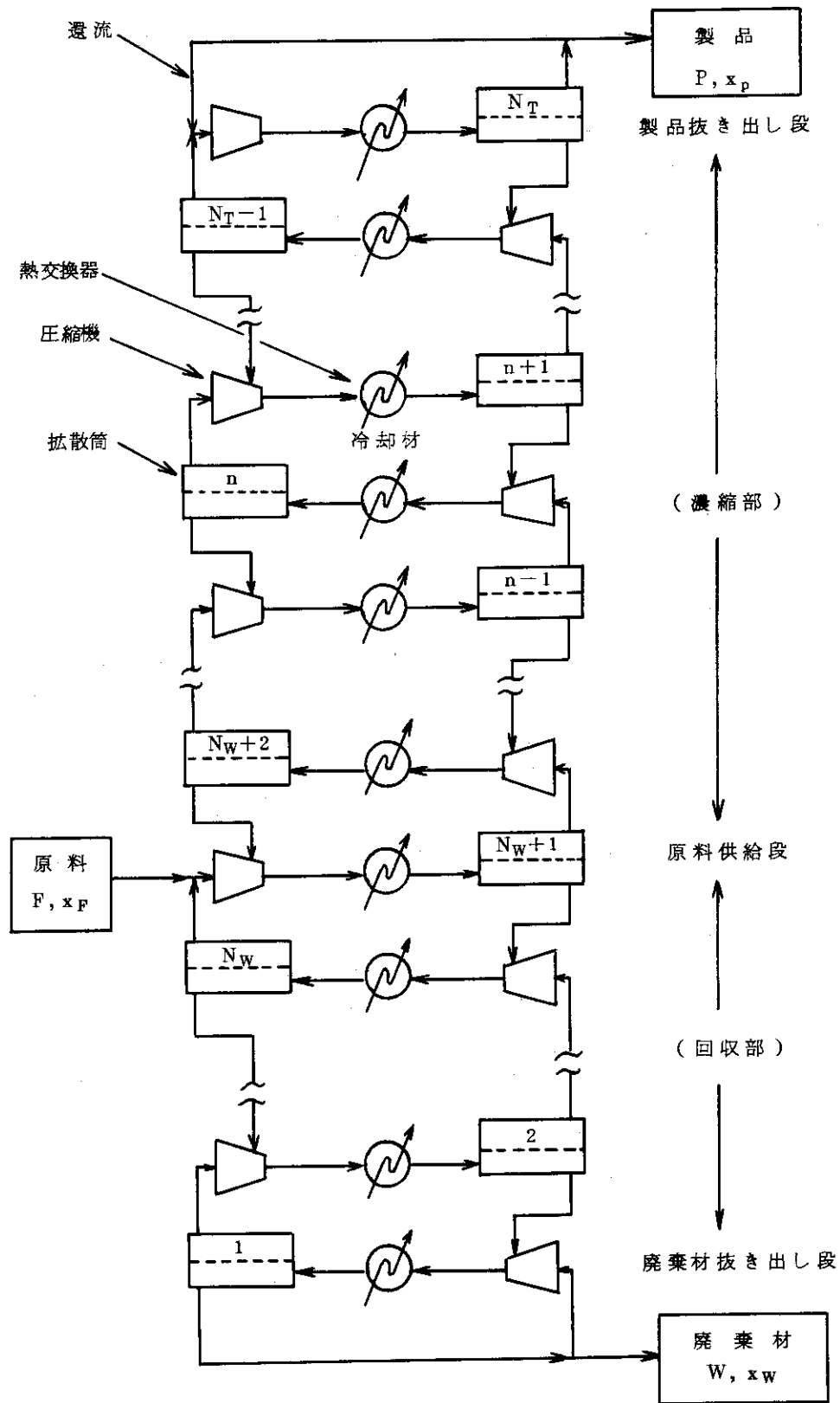
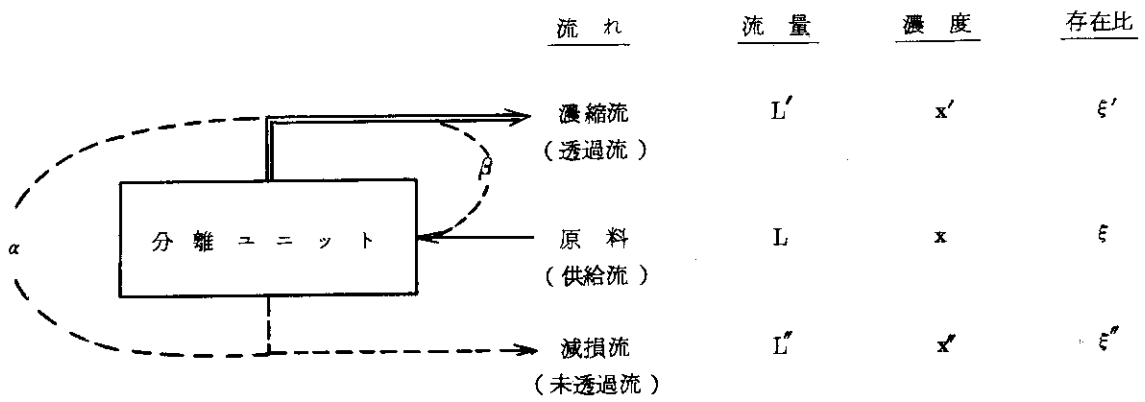


図 3-1 多孔質隔膜法によるカスケード全体図

(1) 分離ユニットと分離係数



○ 分離係数  $\alpha$  [(stage) separation factor]

$$\alpha = \frac{\xi'}{\xi''} = \frac{x'(1-x'')}{x''(1-x')}$$

○ 頭分離係数  $\beta$  (heads separation factor)

$$\beta = \frac{\xi'}{\xi} = \frac{x'(1-x)}{x(1-x')}$$

(2) カスケードの基本的構成 (ガス拡散法)

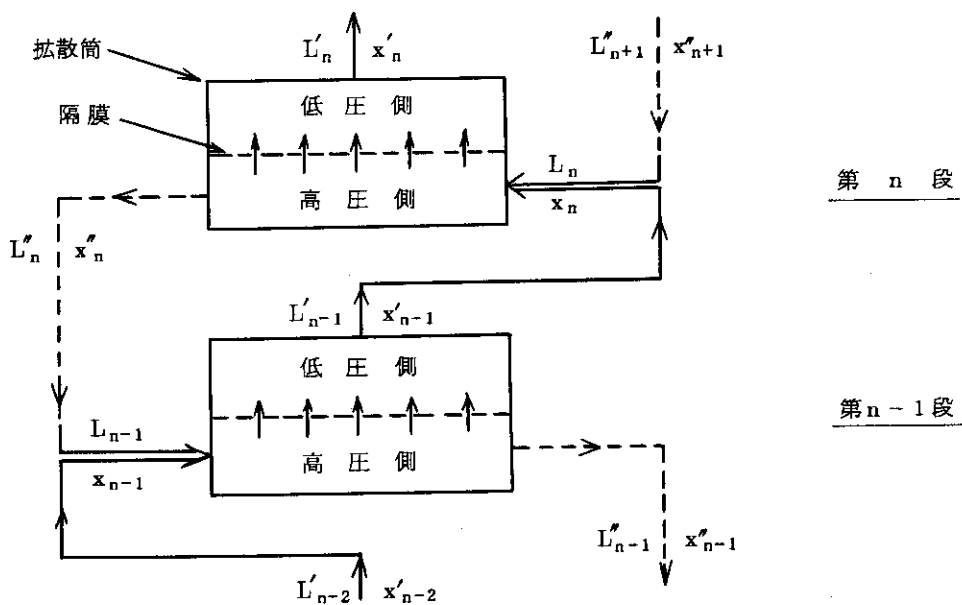


図 3-2 分離係数とカスケードの基本的構成



比 $\xi'$ に対する比で表わされる。

$$\alpha = \frac{\xi'}{\xi''} = \frac{x'(1-x'')}{x''(1-x')} \quad \dots\dots\dots (3.5)$$

一方、頭分離係数 $\beta$ は、次式で表わされる。

$$\beta = \frac{\xi'}{\xi} = \frac{x'(1-x)}{x(1-x')} \quad \dots\dots\dots (3.6)$$

両者を比較すると、

$$1 < \beta < \alpha \quad \dots\dots\dots (3.7)$$

つぎに、分離係数 $\alpha$ 、 $\beta$ の定義式より、濃度 $x$ 、 $x'$ 、 $x''$ の関係は以下のようになる。

$$x' = \frac{\alpha x''}{\alpha x'' + 1 - x''} = \frac{\beta x}{\beta x + 1 - x} \quad \dots\dots\dots (3.8)$$

$$x = \frac{x'}{x' + \beta(1-x')} = \frac{\alpha x''}{\alpha x'' + \beta(1-x'')} \quad \dots\dots\dots (3.9)$$

$$x'' = \frac{x'}{x' + \alpha(1-x')} = \frac{\beta x}{\beta x + \alpha(1-x)} \quad \dots\dots\dots (3.10)$$

また、分離係数 $\alpha$ 、 $\beta$ とカット $\theta$ との関係は、(3.4)、(3.9)、(3.10)式より、次式で与えられる。

$$\beta - 1 = \frac{(\alpha - 1)(1 - \theta)}{1 + \theta(\alpha - 1)(1 - x')} \quad \dots\dots\dots (3.11)$$

### 3.1.2 カスケードの物質収支

図3-3は、カスケードの構成を示したものである。まず、カスケード全体について流量および着目成分の収支をとると、

$$F = P + W \quad \dots\dots\dots (3.12)$$

$$F \cdot x_F = P \cdot x_P + W \cdot x_W \quad \dots\dots\dots (3.13)$$

ここで、 $F$ 、 $P$ 、 $W$  ; 原料、製品、廃棄材の流量 (mol/sec)

$x_F$ 、 $x_P$ 、 $x_W$  ; 原料、製品、廃棄材の軽成分の濃度 (モル分率)

いま、 $P$ 、 $x_F$ 、 $x_P$ 、 $x_W$  が与えられたものとする、

$$F = \frac{P(x_P - x_W)}{x_F - x_W} \quad \dots\dots\dots (3.14)$$



$$W = \frac{P(x_P - x_F)}{x_F - x_W} \dots\dots\dots (3.15)$$

つぎに、濃縮部の物質収支は、最上段から n 段目 ( n 段は含まない ) までのカスケードを考えると、

$$L'_n = L''_{n+1} + P \dots\dots\dots (3.16)$$

$$L'_n \cdot x'_n = L''_{n+1} \cdot x''_{n+1} + P \cdot x_P \dots\dots\dots (3.17)$$

回収部については、正味の流れ方向が逆になるので、

$$L'_n = L''_{n+1} - W \dots\dots\dots (3.18)$$

$$L'_n \cdot x'_n = L''_{n+1} \cdot x''_{n+1} - W \cdot x_W \dots\dots\dots (3.19)$$

ここで、 $L_n, L'_n, L''_n$  ; n 段目の供給流, 濃縮流, 減損流の各流量 ( mol / sec )

$x_n, x'_n, x''_n$  ; n 段目の供給流, 濃縮流, 減損流の各濃度 ( モル分率 )

( 3.16 ), ( 3.17 ) 式より、隣接する段の濃縮流と減損流との濃度差は、

$$x'_{n+1} - x'_n = \frac{x''_n - x_P}{L''_{n+1} / P} \dots\dots\dots (3.20)$$

上式において、 $L''_{n+1} / P$  は還流比と呼ばれる。全還流、すなわち製品を抜き出さない操作 ( $L''_{n+1} / P \rightarrow \infty$ ) のとき  $x'_n$  と  $x''_{n+1}$  とは等しくなる。

### 3.1.3 最小理論段数

原料を所定濃度の製品と廃棄材とに分離するのに必要な段数は、全還流操作の場合に最小となる。

この条件では、

$$\left. \begin{aligned} x''_{n+1} &= x'_n \\ \xi''_{n+1} &= \xi'_n \end{aligned} \right\} \dots\dots\dots (3.21)$$

分離係数の定義より、

$$\left. \begin{aligned} \alpha &= \frac{\xi'_n}{\xi''_n} = \frac{\xi'_{n+1}}{\xi''_{n+1}} = \frac{\xi'_{n+1}}{\xi'_n} \\ \therefore \xi'_{n+1} &= \alpha \cdot \xi'_n \end{aligned} \right\} \dots\dots\dots (3.22)$$

すなわち、最上段と最下段の濃縮流の関係は、カスケード全体の段数を  $N_T$  とすると、次式で表わされる。

$$\xi'_{N_T} = \alpha^{N_T-1} \cdot \xi'_1 \quad \dots\dots\dots (3.23)$$

ここで、

$$\left. \begin{aligned} \xi'_{N_T} &= \frac{x_P}{1-x_P} \\ \xi'_1 &= \alpha \cdot \xi''_1 = \frac{\alpha x_W}{1-x_W} \end{aligned} \right\} \dots\dots\dots (3.24)$$

したがって、最小理論段数  $(N_T)_{min}$  は、

$$(N_T)_{min} = \frac{\ln \frac{x_P(1-x_W)}{x_W(1-x_P)}}{\ln \alpha} = \frac{\ln \omega}{\ln \alpha} \quad \dots\dots\dots (3.25)$$

これは、蒸留操作の全還流操作における Fenske の式に相当する。ここで、 $\omega$  はカスケード全体の分離の程度を示すものである。 $\omega$  が増加し、 $\alpha$  が 1.0 に近づく程、最小理論段数  $(N_T)_{min}$  は増大する。

### 3.1.4 最小還流比

前述したように、全還流操作の場合には、隣接する段の対応する各流れの濃度差（例えば、 $x'_n$  と  $x'_{n+1}$ ）は最大となる。還流比が減少すると（すなわち、製品流量を増加させると）、各段の濃度差は減少し、或る還流比に達すると濃縮が全然行われなない状態となる。このときの還流比は、最小還流比と呼ばれ、濃度の関係は次式で表わされる。

$$x'_{n+1} = x'_n \quad \dots\dots\dots (3.26)$$

(3.10), (3.26) 式より、

$$\begin{aligned} x''_{n+1} - x'_n &= x''_{n+1} - x'_{n+1} \\ &= \frac{-(\alpha-1)x'_{n+1}(1-x'_{n+1})}{x'_{n+1} + \alpha(1-x'_{n+1})} \quad \dots\dots\dots (3.27) \end{aligned}$$

(3.20), (3.27) 式より、最小還流比は次式で与えられる。

$$\left. \begin{aligned} \left(\frac{L''_{n+1}}{P}\right)_{min} &= \frac{(x_P - x'_n) \{ x'_n + \alpha(1-x'_n) \}}{(\alpha-1)x'_n(1-x'_n)} \\ &= \frac{x_P(\alpha x'_{n+1} + 1 - x''_{n+1}) - \alpha x''_{n+1}}{(\alpha-1)x''_{n+1}(1-x''_{n+1})} \end{aligned} \right\} \dots\dots\dots (3.28)$$

そこで、(3.28) 式を特殊な場合について検討してみる。

まず、着目成分の濃度が非常に小さい場合、すなわち  $x'' \ll 1$  のときは、

$$\left(\frac{L''_{n+1}}{P}\right)_{\min} \cong \frac{x_p - x'_n}{x'_n} \cdot \frac{\alpha}{\alpha - 1} \quad \dots\dots\dots (3.29)$$

つぎに、分離係数が1に近い場合、すなわち  $\alpha - 1 \ll 1$  のときは、

$$\left(\frac{L''_{n+1}}{P}\right)_{\min} \cong \frac{x_p - x'_n}{(\alpha - 1) x'_n (1 - x'_n)} \quad \dots\dots\dots (3.30)$$

ガス拡散法によるウラン濃縮の場合には、 $\alpha_0 = 1.00429$ であるので、(3.30)式を使用できる。

### 3.2 理想カスケード<sup>2), B), B)</sup>

図3-4は、カスケードの代表例として、理想カスケード、方形カスケードおよびステップカスケードを示したものである。図において、横軸は1段当りの循環流量を、縦軸は段数を示している。理想カスケードは、濃縮流と減損流の合流点において濃度的に混合があつてはなら

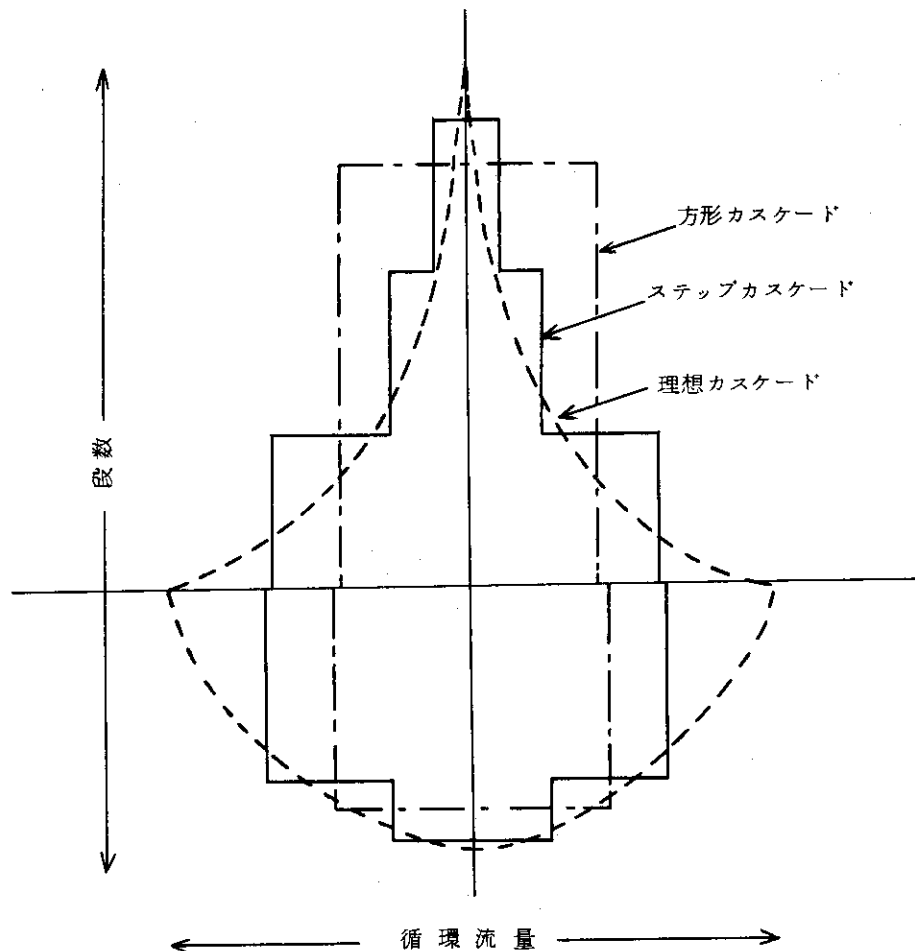


図3-4 カスケードの比較

ないという条件（非混合の条件）を満足させるものであり、カスケードの規模（循環流量の総和、すなわち、隔膜所要面積）は最小となるが、構成機器の大きさが各段により異なるという欠点を有している。すなわち、多孔質隔膜法による理想カスケードは、工業的な観点から、大きな意味をもつものではない。ここでは、カスケード規模の比較という観点から取り上げることとした。

3.2.1 分離係数 $\alpha$ と頭分離係数 $\beta$ との関係

理想カスケードにおいては、非混合の条件が成立するので、次式が成立する。

$$\left. \begin{aligned} x''_{n+1} &= x_n = x'_{n-1} \\ \xi''_{n+1} &= \xi_n = \xi'_{n-1} \end{aligned} \right\} \dots\dots\dots (3.31)$$

(3.31)式と頭分離係数の定義式から

$$\xi'_n = \beta \xi_n = \beta \xi''_{n+1} \dots\dots\dots (3.32)$$

同様にして、

$$\xi'_{n+1} = \beta \xi_{n+1} = \beta \xi'_n \dots\dots\dots (3.33)$$

(3.32), (3.33)式より

$$\xi'_{n+1} = \beta^2 \xi''_{n+1} \dots\dots\dots (3.34)$$

(3.34)式と分離係数の定義式から、次式が得られる。

$$\alpha = \beta^2 \dots\dots\dots (3.35)$$

分離係数が1に近い場合、すなわち、 $\alpha - 1 \ll 1$ ,  $\beta - 1 \ll 1$ のときは、次のようになる。

$$\beta - 1 = \frac{1}{2} (\alpha - 1) \dots\dots\dots (3.36)$$

3.2.2 所要段数

理想カスケードの所要段数は、全還流のときの最小段数を求めた場合と同様の方法で求めることができる。

(3.33)式より、

$$\xi'_n = \beta \cdot \xi'_{n-1} = \dots = \beta^{n-1} \cdot \xi'_1 \dots\dots\dots (3.37)$$

ここで、

$$\left. \begin{aligned} \xi'_n &= \xi'_{N_T} = \frac{x_p}{1-x_p} \\ \xi'_1 &= \alpha \cdot \xi''_1 = \frac{\alpha \cdot x_w}{1-x_w} = \frac{\beta^2 \cdot x_w}{1-x_w} \end{aligned} \right\} \dots\dots\dots (3.38)$$

したがって、カスケードの所要段数  $N_T$  は、

$$\left. \begin{aligned}
 N_T &= \frac{\ln \frac{x_P (1-x_W)}{x_W (1-x_P)}}{\ln \beta} - 1 \\
 &= \frac{2 \ln \frac{x_P (1-x_W)}{x_W (1-x_P)}}{\ln \alpha} - 1 \\
 &= 2(N_T)_{\min} - 1
 \end{aligned} \right\} \dots\dots\dots (3.39)$$

回収部の所要段数  $N_W$  は、

$$N_W = \frac{\ln \frac{x_F (1-x_W)}{x_W (1-x_F)}}{\ln \beta} - 1 \dots\dots\dots (3.40)$$

濃縮部の所要段数  $N_P$  は、

$$N_P = N_T - N_W = \frac{\ln \frac{x_P (1-x_F)}{x_F (1-x_P)}}{\ln \beta} \dots\dots\dots (3.41)$$

### 3.2.3 濃度分布

(3.37)式より、濃縮部  $n$  段目の濃縮流濃度  $x'_n$  は、次式で表わされる。

$$\frac{x_P}{1-x_P} = \beta^{N_T-n} \cdot \frac{x'_n}{1-x'_n} \dots\dots\dots (3.42)$$

したがって、

$$x'_n = x_{n+1} = x''_{n+1} = \frac{\beta^n \cdot x_P}{\beta^n \cdot x_P + \beta^{N_T} (1-x_P)} \dots\dots\dots (3.43)$$

同様に、回収部  $n$  段目の減損流濃度  $x''_n$  は、

$$x''_n = x_{n-1} = x'_{n-2} = \frac{\beta^{n-1} \cdot x_W}{\beta^{n-1} \cdot x_W + (1-x_W)} \dots\dots\dots (3.44)$$

### 3.2.4 還流比

還流比は、(3.20)式より一般に次式で表わされる。

$$\frac{L''_{n+1}}{P} = \frac{x_p - x'_n}{x'_n - x''_{n+1}} \quad \dots\dots\dots (3.45)$$

理想カスケードでは、 $x'_n = x_{n+1}$ であるので、(3.9)式と $\alpha = \beta^2$ の関係を利用して、次のように変形できる。

$$\frac{L''_{n+1}}{P} = \frac{1}{\beta - 1} \left\{ \frac{x_p}{x''_{n+1}} - \frac{\beta(1 - x_p)}{1 - x''_{n+1}} \right\} \quad \dots\dots\dots (3.46)$$

上式は、 $\alpha$ が $\beta$ になっている以外は、最小還流比の(3.28)式と同じである。

3.2.5 階段作図 (McCabe-Thiele 法)

図3-5は、理想カスケードにおける段相互の濃度関係を化学工学でよく使用するMcCabe-Thieleの階段作図により示したものである。

任意の段における濃縮流と減損流の濃度関係、すなわち平衡関係は、分離係数 $\alpha$ の定義式より次式で表わされる。

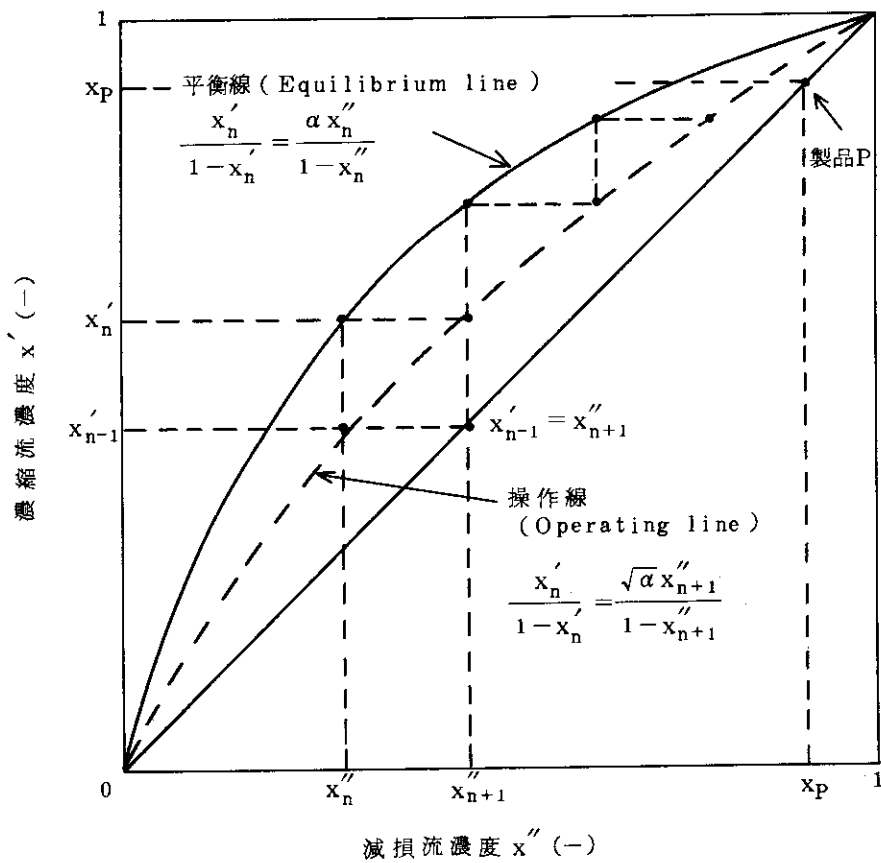


図3-5 McCabe-Thieleの階段作図



$$\frac{x'_n}{1-x'_n} = \frac{\alpha \cdot x''_n}{1-x''_n} \dots\dots\dots (3.5)$$

一方、隣接する段の濃度を関係づける操作線は、頭分離係数  $\beta$  の定義式と非混合の条件を使用して、

$$\beta (= \sqrt{\alpha}) = \frac{x'_n / 1 - x'_n}{x_n / 1 - x_n} = \frac{x'_n / 1 - x'_n}{x''_{n+1} / 1 - x''_{n+1}} \dots\dots\dots (3.47)$$

すなわち、

$$\frac{x'_n}{1-x'_n} = \frac{\sqrt{\alpha} \cdot x''_{n+1}}{1-x''_{n+1}} \dots\dots\dots (3.48)$$

以上の関係を利用すれば、濃度分布および所要段数を作図により求めることができる。

### 3.2.6 循環流量

濃縮部における任意段の減損流の流量  $L''_{n+1}$  は、(3.43)、(3.46)式より、次式で与えられる。

$$\frac{L''_{n+1}}{P} = \frac{1}{\beta-1} \left[ x_P (1-\beta^{n-N_T}) + (1-x_P) \beta (\beta^{N_T-n} - 1) \right] \dots\dots\dots (3.49)$$

一方、濃縮流の流量  $L'_n$  は、(3.16)、(3.49)式より、

$$\frac{L'_n}{P} = 1 + \frac{1}{\beta-1} \left[ x_P (1-\beta^{n-N_T}) + (1-x_P) \beta (\beta^{N_T-n} - 1) \right] \dots\dots\dots (3.50)$$

同様に、回収部については、

$$\frac{L'_n}{W} = \frac{1}{\beta-1} \left[ x_W \cdot \beta (\beta^n - 1) + (1-x_W) (1-\beta^{-n}) \right] \dots\dots\dots (3.51)$$

$$\frac{L''_{n+1}}{W} = 1 + \frac{1}{\beta-1} \left[ x_W \cdot \beta (\beta^n - 1) + (1-x_W) (1-\beta^{-n}) \right] \dots\dots\dots (3.52)$$

以上のことから、理想カスケードでは、循環流量は段数  $n$  の関数になっていることが分かる。すなわち、拡散筒の大きさ（隔膜の所要面積）、圧縮機の所要動力は、各段ごとに異なることを意味している。

### 3.2.7 循環流量の総和

多孔質隔膜法による分離プラントの規模は、濃縮流（上昇流）の流量が隔膜面積および圧縮機動力に関係することから、カスケード全体の循環流量の総和を1つの目安とすることができる。

まず、濃縮部について濃縮流および減損流の流量の総和 ( $J'_P$  および  $J''_P$ ) を求めると、  
(3.49), (3.50) 式より、

$$\begin{aligned}
 J'_P &= \sum_{n=N_W+1}^{N_T} L'_n \\
 &= \frac{P}{\beta-1} \left[ \frac{\{x_P(\beta+1)-1\} \ln \frac{x_P(1-x_F)}{x_F(1-x_P)}}{\ln \beta} + \frac{\beta(x_P-x_F)(1-2x_F)}{(\beta-1)x_F(1-x_F)} \right] \\
 &\dots\dots\dots(3.53)
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 J''_P &= \sum_{n=N_W+1}^{N_T} L''_n \\
 &= \frac{P}{\beta-1} \left[ \frac{\{x_P(\beta+1)-\beta\} \ln \frac{x_P(1-x_F)}{x_F(1-x_P)}}{\ln \beta} + \frac{\{\beta^2-(\beta^2+1)x_F\}(x_P-x_F)}{(\beta-1)x_F(1-x_F)} \right] \\
 &\dots\dots\dots(3.54)
 \end{aligned}$$

同様に、回収部については、

$$\begin{aligned}
 J'_W &= \sum_{n=1}^{N_W} L'_n \\
 &= \frac{W}{\beta-1} \left[ \frac{\{1-x_W(\beta+1)\} \ln \frac{x_F(1-x_W)}{x_W(1-x_F)}}{\ln \beta} - \frac{\beta(x_F-x_W)(1-2x_F)}{(\beta-1)x_F(1-x_F)} \right] \\
 &\dots\dots\dots(3.55)
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 J''_W &= \sum_{n=1}^{N_W} L''_n \\
 &= \frac{W}{\beta-1} \left[ \frac{\{\beta-x_W(\beta+1)\} \ln \frac{x_F(1-x_W)}{x_W(1-x_F)}}{\ln \beta} - \frac{\{\beta^2-(\beta^2+1)x_F\}(x_F-x_W)}{(\beta-1)x_F(1-x_F)} \right] \\
 &\dots\dots\dots(3.56)
 \end{aligned}$$

したがって、カスケード全体の循環流量の総和  $J$  は、

$$J = J'_P + J''_P + J'_W + J''_W$$

$$\begin{aligned}
 &= \frac{\beta + 1}{(\beta - 1) \ln \beta} \left[ W(1 - 2x_W) \ln \frac{x_F(1 - x_W)}{x_W(1 - x_F)} + P(2x_P - 1) \ln \frac{x_P(1 - x_F)}{x_F(1 - x_P)} \right] \\
 &= \frac{\beta + 1}{(\beta - 1) \ln \beta} \left[ P(2x_P - 1) \ln \frac{x_P}{1 - x_P} + W(2x_W - 1) \ln \frac{x_W}{1 - x_W} - F(2x_F - 1) \ln \frac{x_F}{1 - x_F} \right] \\
 &\dots\dots\dots (3.57)
 \end{aligned}$$

ガス拡散法によるウラン濃縮の場合には分離係数はほぼ 1 に等しいので、以上の関係式は次のようになる。

$$J'_P = J''_P = \frac{4P}{(\alpha - 1)^2} \left[ (2x_P - 1) \ln \frac{x_P(1 - x_F)}{x_F(1 - x_P)} + \frac{(x_P - x_F)(1 - 2x_F)}{x_F(1 - x_F)} \right] \dots\dots\dots (3.58)$$

$$J'_W = J''_W = \frac{4W}{(\alpha - 1)^2} \left[ (1 - 2x_W) \ln \frac{x_F(1 - x_W)}{x_W(1 - x_F)} - \frac{(x_F - x_W)(1 - 2x_F)}{x_F(1 - x_F)} \right] \dots\dots\dots (3.59)$$

$$J = \frac{8}{(\alpha - 1)^2} \left[ P(2x_P - 1) \ln \frac{x_P}{1 - x_P} + W(2x_W - 1) \ln \frac{x_W}{1 - x_W} - F(2x_F - 1) \ln \frac{x_F}{1 - x_F} \right] \dots\dots\dots (3.60)$$

以上のことから、カスケードの循環流量の総和は、 $(\alpha - 1)^2$  に逆比例することが分かる。カスケードの規模は、濃縮係数 $(\alpha - 1)$ の僅かな変化により、大きく影響を受ける。これより、多孔質隔膜法においては、隔膜の分離係数が如何に重要な因子であるかが理解できる。

### 3.3 方形カスケード<sup>2),12),13),51)</sup>

理想カスケードは非混合の条件を満足するカスケードであるが、1段ごとに主要構成機器の大きさが異なり、建設、運転・制御面を考えると現実的なものとはいえない。

方形カスケードは、各段の拡散筒、圧縮機、配管などの大きさをすべて等しくしたものであり、理想カスケードとは全く対照的である。すなわち、方形カスケードでは、循環流量の総和は理想カスケードに比べてかなり大きく、動力面では不利になるが、装置の構成が非常に単純になるという大きな利点を有している。

#### 3.3.1 所要段数

まず、任意段における分離係数の定義から、

$$\alpha = \frac{x'_n(1 - x''_n)}{x''_n(1 - x'_n)} \dots\dots\dots (3.5)$$

分離係数がほぼ 1 に等しいときは、上式は次式で近似できる。

$$x'_n - x''_n \cong (\alpha - 1) x'_n (1 - x'_n) \quad \dots\dots\dots (3.61)$$

(3.45), (3.61)式より, 任意の隣接する段における濃縮流の濃度差を求めると,

$$x'_n - x'_{n-1} = (\alpha - 1) x'_n (1 - x'_n) - \frac{P}{L''_n} (x_p - x'_{n-1}) \quad \dots\dots\dots (3.62)$$

ここで, 方形カスケードでは  $L''_n (\equiv L'') = \text{const}$  であり, 各段ごとの濃度変化が小さい場合には, 上式は次のように微分形に変形することができる。

$$\frac{dx}{dn} = (\alpha - 1) x (1 - x) - \frac{P}{L''} (x_p - x) \quad \dots\dots\dots (3.63)$$

(3.63)式は簡単に積分でき, 濃縮部の所要段数  $N_p$  は次のように求まる。

$$\begin{aligned} N_p &= \int_{x_F}^{x_p} \frac{dx}{(\alpha - 1) x (1 - x) - \frac{P}{L''} (x_p - x)} \\ &= \frac{1}{(\alpha - 1) b} \ln \frac{1 + a}{1 - a} \quad \dots\dots\dots (3.64) \end{aligned}$$

ただし,

$$\left. \begin{aligned} a &\equiv \frac{b(x_p - x_F)}{(x_F + x_p)(1 + c) - 2x_F \cdot x_p - 2cx_p} \\ b &\equiv \sqrt{1 + 2c(1 - x_p) + c^2} \\ c &\equiv \frac{P}{L''(\alpha - 1)} \end{aligned} \right\} \quad \dots\dots\dots (3.65)$$

なお, 回収部の所要段数  $N_w$  は, 上式において  $P \rightarrow -W$ ,  $x_p \rightarrow x_w$ ,  $N_p \rightarrow -N_w$  と置き換えることにより求めることができる。

つぎに, 濃縮部における濃縮流流量の総和は,

$$J'_p = L' \cdot N_p = \frac{L'}{(\alpha - 1) b} \ln \frac{1 + a}{1 - a} \quad \dots\dots\dots (3.66)$$

以上の計算式により, 任意の循環流量に対し, 方形カスケードの規模を簡単に求めることができる。カスケードの最適化については, 循環流量の総和を最小にすることを1つの目安と考えれば, 循環流量  $L'$  と循環流量の総和  $J'_p$  の関係をグラフに描くことにより最適の循環流量  $L'$  を決定することができる。

3.3.2 濃度分布

(1) 逐次段法

拡散筒の分離係数  $\alpha$ 、製品の流量  $P$  および濃度  $x_p$  を既知とする。いま、カスケードの濃縮流の流量  $L'$  を任意に仮定すると、減損流の流量  $L''$  は物質収支より求められる。

濃縮部  $n$  段目の平衡関係から、

$$x_n'' = \frac{x_n'}{x_n' + \alpha(1 - x_n')} \quad \dots\dots\dots (3.10)$$

$n$  段目の拡散筒の物質収支から、

$$x_n = \frac{L' \cdot x_n' + L'' \cdot x_n''}{L' + L''} \quad \dots\dots\dots (3.67)$$

( $n-1$ ) 段目より上のカスケードの物質収支より、

$$x_{n-1}' = \frac{L'' \cdot x_n'' + P \cdot x_p}{L'} \quad \dots\dots\dots (3.68)$$

いま、 $x_{NP}' = x_p$  であるので、上の3式を用いて  $x_n' \leq x_p$  になるまで逐次計算を行えば、濃縮部の濃度分布と所要段数を同時に求めることができる。回収部についても、全く同様の方法が採用できる。

この方法は、分離係数  $\alpha$  が如何なる場合にも適用できる。

(2) 濃度分布の一般式

濃縮部の  $n$  段目より上の物質収支より、

$$L' \cdot x_n' - L'' \cdot x_{n+1}'' - P \cdot x_p = 0 \quad \dots\dots\dots (3.69)$$

上式に (3.10) 式を代入し、整理すると、

$$x_{n+1}' \cdot x_n' + \frac{L'' - (\alpha - 1)P \cdot x_p}{(\alpha - 1)(L'' + P)} \cdot x_{n+1}' - \frac{\alpha}{\alpha - 1} \cdot x_n' + \frac{\alpha \cdot P \cdot x_p}{(\alpha - 1)(L'' + P)} = 0 \quad \dots\dots\dots (3.70)$$

ここで、

$$\left. \begin{aligned} A &= \frac{L'' - (\alpha - 1)P \cdot x_p}{(\alpha - 1)(L'' + P)} \\ B &= \frac{-\alpha}{\alpha - 1} \\ C &= \frac{\alpha \cdot P \cdot x_p}{(\alpha - 1)(L'' + P)} \end{aligned} \right\} \dots\dots\dots (3.71)$$

とおくと、(3.70)式は

$$x'_{n+1} \cdot x'_n + A \cdot x'_{n+1} + B \cdot x'_n + C = 0 \quad \dots\dots\dots (3.72)$$

(3.72)式は, Riccati の差分方程式であり, その解は次式で与えられる。

$$x'_n = S + \frac{1}{K \left(-\frac{A+S}{B+S}\right)^n - \frac{1}{(A+S) + (B+S)}} \quad \dots\dots\dots (3.73)$$

ただし,

$$S = \frac{-(A+B) \pm \sqrt{(A+B)^2 - 4C}}{2} \quad \dots\dots\dots (3.74)$$

ここで, 濃縮部第1段目(原料供給段)の濃縮流濃度  $x'_1$  を(3.73)式に代入し,  $n=1$  とおくと

$$K = \left(-\frac{B+S}{A+S}\right) \left\{ \frac{1}{x'_1 - S} + \frac{1}{(A+S) + (B+S)} \right\} \quad \dots\dots\dots (3.75)$$

このとき, 濃縮部の所要段数  $N_p$  は, 次式で与えられる。

$$N_p = 1 + \frac{\ln \left(\frac{x_p - S}{x'_1 - S}\right) \left(\frac{x'_1 + A + B + S}{x_p + A + B + S}\right)}{\ln \left(-\frac{A+S}{B+S}\right)} \quad \dots\dots\dots (3.76)$$

つぎに,  $x'_1$  の値については, 原料供給段における物質収支および平衡関係から求めることができる。

まず, 拡散筒における物質収支から

$$\left. \begin{aligned} L \cdot x_1 &= L' \cdot x'_1 + (L - L') x''_1 \\ \text{すなわち, } x_1 &= \theta \cdot x'_1 + (1 - \theta) x''_1 \end{aligned} \right\} \quad \dots\dots\dots (3.77)$$

平衡関係を考慮して, (3.77)式を変形すると,

$$\begin{aligned} \frac{x'_1}{x'_1 + \beta(1-x'_1)} &= \theta \cdot x'_1 + (1-\theta) \frac{x'_1}{x'_1 + \alpha(1-x'_1)} \\ \therefore \beta &= 1 + \frac{(\alpha-1)(1-\theta)}{1+\theta(\alpha-1)(1-\theta)} \\ &\cong 1 + (\alpha-1)(1-\theta) \quad \dots\dots\dots (3.78) \end{aligned}$$

一方, 頭分離係数の定義式において,  $x_1 = x_F$  と仮定すると,

$$\beta = \frac{x_1' (1-x_F)}{x_F (1-x_1')} \dots\dots\dots (3.79)$$

したがって、第1段目の拡散筒からの濃縮流の濃度は、次式で求めることができる。

$$x_1' = \frac{x_F \{ 1 + (\alpha-1)(1-\theta) \}}{1 + x_F (\alpha-1)(1-\theta)} \dots\dots\dots (3.80)$$

以上の手順で濃縮部の所要段数および任意段の濃度を計算することができる。回収部についても同様である。

### 3.4 ステップカスケード<sup>2),5)</sup>

ステップカスケードは、プラント規模を小さくするという理想カスケードの利点と構成が単純であるという方形カスケードの長所を兼ねそなえたもので、段数の少ない方形カスケードを幾ステップか積み重ね、全体として理想カスケードの形に近づけようとしたものである。ウラン濃縮用の実用ガス拡散プラントにおいては、ステップカスケードが採用されている。

#### 3.4.1 所要段数および濃度分布

ステップカスケードは、方形カスケードの基本式を各ステップに適用することにより解析できる。図3-6は、ステップカスケードの構成を示したものである。

濃縮部第*i*ステップの所要段数 $(N_p)_i$ は、(3.64)、(3.65)式から、次式で与えられる。

$$\begin{aligned} (N_p)_i &= \int_{x_{i-1}}^{x_i} \frac{dx}{(\alpha-1)x(1-x) - \frac{P}{L_i''}(x_p-x)} \\ &= \frac{1}{(\alpha-1)b_i} \ln \frac{1+a_i}{1-a_i} \dots\dots\dots (3.81) \end{aligned}$$

ただし、

$$\left. \begin{aligned} a_i &\equiv \frac{b_i (X_i - X_{i-1})}{(X_{i-1} + X_i)(1 + c_i) - 2X_{i-1} \cdot X_i - 2c_i \cdot x_p} \\ b_i &\equiv \sqrt{1 + 2c_i(1 - 2x_p) + c_i^2} \\ c_i &\equiv \frac{P}{L_i''(\alpha-1)} \end{aligned} \right\} \dots\dots\dots (3.82)$$

ここで、 $X_i$ は、*i*ステップと(*i*+1)ステップとの継ぎ目の濃度であり、東は次式で求めることを提案している。

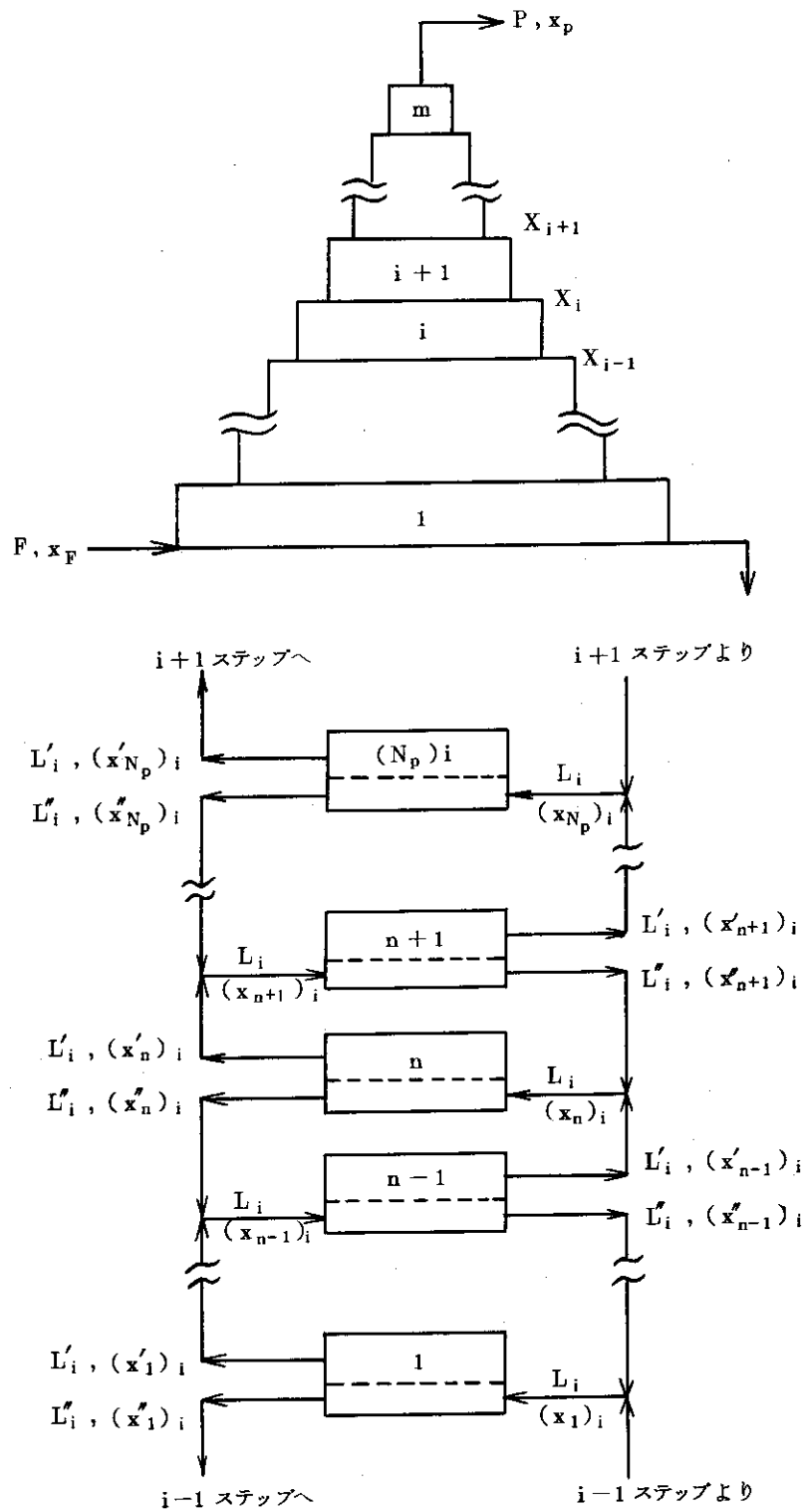


図 3-6 ステップカスケード構成図



$$X_i = \frac{\frac{x_F \cdot A^i}{1 - x_F}}{1 + \frac{x_F \cdot A^i}{1 - x_F}} \dots\dots\dots (3.83)$$

ただし,

$$A = \left\{ \frac{x_P (1 - x_F)}{x_F (1 - x_P)} \right\}^{1/m} \dots\dots\dots (3.84)$$

ここで, mは濃縮部のステップ数である。

以上のことから, 濃縮部全体の所要段数および濃縮流流量の総和は次式で与えられる。

$$N_P = \sum_{i=1}^m (N_P)_i \dots\dots\dots (3.85)$$

$$J'_P = \sum_{i=1}^m L'_i \cdot (N_P)_i \dots\dots\dots (3.86)$$

濃度分布については, 方形カスケードの場合と同様に, 最上段から逐次段法により求めることができる。また, 差分方程式より得られた濃度分布式(3.73)式も, 各ステップの流量および継ぎ目(肩)の濃度を代入することにより利用できる。

なお, 回収部の所要段数は, (3.81), (3.82)式において,  $P \rightarrow -W$ ,  $x_P \rightarrow x_W$ ,  $(N_P)_i \rightarrow -(N_W)_i$  と置き換えることにより求めることができる。

### 3.4.2 カスケードの最適化

ステップカスケードの最適化の手法として, 各ステップ内の循環流量の総和を最小にすることが考えられる。これは, 循環流量の総和が最小のとき, プラント建設費のうちかなりの割合を占めると予想される隔膜の所要面積ならびに運転経費の大部分を占めると考えられる圧縮機の所要動力がそれぞれ最小になるからである。

東は, 任意のステップ i における上下端の濃度  $X_i$  および  $X_{i-1}$  が与えられたとき, そのステップ内の循環流量の総和を最小にする還流比  $r_i$  ( $\equiv L''_i/P$ ) およびそのときの段数  $(N_P)_i$  を求めるための簡便法を提案している。すなわち, 濃縮部については,

$$\frac{J''_i}{P} = \frac{(B_i \cdot g_i - 1)^2}{(\alpha - 1)^2 \lambda_i \cdot B_i \cdot g_i} \ln \frac{A_i \cdot g_i - 1}{g_i - 1} \dots\dots\dots (3.87)$$

ただし、

$$\left. \begin{aligned} A_i &\equiv \frac{X_i (1 - X_{i-1})}{X_{i-1} (1 - X_i)} \\ B_i &\equiv \frac{x_p (1 - x_p)}{X_{i-1} (1 - X_i)} \\ \lambda_i &\equiv \frac{B_i - 1}{\frac{x_p}{X_{i-1}} - \frac{1 - x_p}{1 - X_{i-1}}} \\ g_i &\equiv \frac{1}{B_i} \{ 1 + (\alpha - 1) \lambda_i \cdot r_i \} \end{aligned} \right\} \dots\dots\dots (3.88)$$

(3.87)式を還流比  $r_i$  で微分し、これを0とおくと、次式を得る。

$$\ln \frac{A_i \cdot g_i - 1}{g_i - 1} = \frac{(A_i - 1) g_i (B_i \cdot g_i - 1)}{(A_i \cdot g_i - 1)(g_i - 1)(B_i \cdot g_i + 1)} \dots\dots\dots (3.89)$$

したがって、 $i$ ステップの循環流量の総和 ( $J''_i/P$ ) の最小値は、(3.87)、(3.89)式から、次式で与えられる。

$$\left( \frac{J''_i}{P} \right)_{\min} = \frac{(A_i - 1)(B_i \cdot g_i - 1)^3}{(\alpha - 1)^2 B_i \cdot \lambda_i (g_i - 1)(A_i \cdot g_i - 1)(B_i \cdot g_i + 1)} \dots\dots\dots (3.90)$$

ここで、 $A_i$ 、 $B_i$ 、 $\lambda_i$ 、 $g_i$  は、(3.88)式および図3-7を利用することにより決定できる。また、このときの循環流量  $L''_i$  は、次式を用いて計算できる。

$$L''_i = \frac{(B_i \cdot g_i - 1) P}{(\alpha - 1) \lambda_i} \dots\dots\dots (3.91)$$

以上の関係式において、 $X_i = x_p$ 、 $X_{i-1} = x_p$  とおけば方形カスケードの算出式となる。また、ステップ数  $m$  を増大すれば、ステップカスケードの全循環量は、理想カスケードのそれに近づく。

### 3.5 2分割型拡散筒によるカスケード Type-1<sup>51)</sup> (Hertz 型カスケード)

2分割型拡散筒は、隔膜管内(高圧側)の流れ方向に濃度分布が形成されることに着目し、隔膜透過流を拡散筒の前部と後部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段の見掛けの分離係数を向上させようとしたものである。

図3-8は、Type-1の2分割型拡散筒より構成されるカスケードの配列を示したものであり、Hertz型カスケードとも呼ばれている。このカスケードでは、 $n$ 段目に供給されてフィー

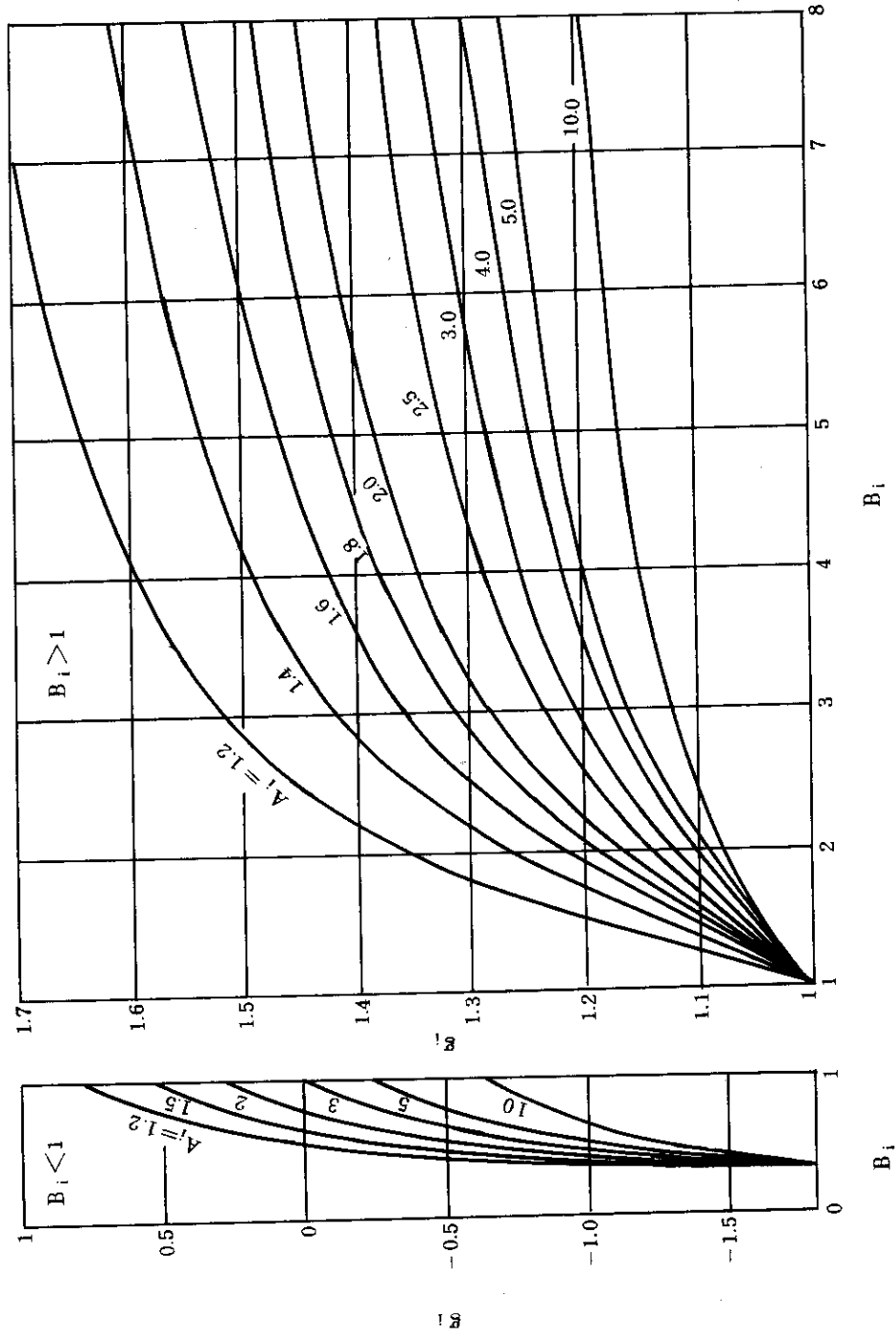


図 3-7  $A_i, B_i$  と  $g_i$  との関係

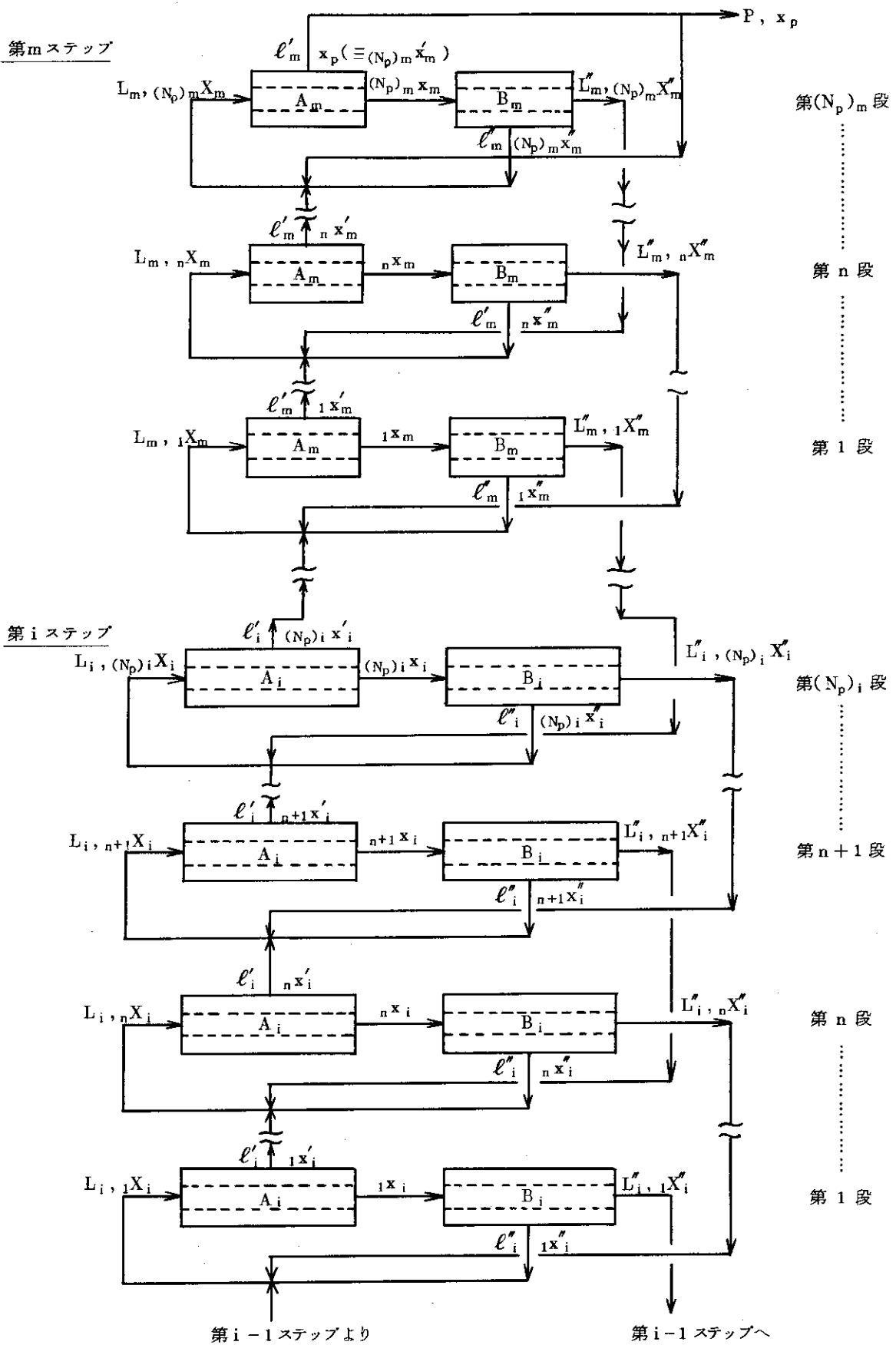


図3-8 Type-1カスケード構成図(濃縮部)

Dは、まず分離器Aに入り、ここで透過流と未透過流とに分けられる。このうち、未透過流はさらに分離器Bに送られる。ここで、分離器Aの透過流（第1透過流）は（n+1）段目のフィードとなり、分離器Bの透過流（第2透過流）はもう一度n段目のフィードにリサイクルされる。また、分離器Bの未透過流は（n-1）段目のフィードとなる。

以下に、本カスケードについて筆者らの提案した計算法の概略を記す。

### 3.5.1 所要段数

図3-8に示したカスケードにおいて、1段当りの分離係数がほぼ1に近く、分離器A、Bの分割比（それぞれの隔膜面積、即ち透過流量の割合）もステップを通じて全段同一であると仮定する。また、隔膜の特性は全段均一であり、圧力、圧力比などの操作条件もステップを通じて全段同一とする。

このような場合には、3.3および3.4で述べた手順で所要段数の算出式を導出できる。

まず、2分割型拡散筒（iステップn段目）の分離係数を次式で定義する。

$$\alpha_A = \frac{{}_n X_i' / 1 - {}_n X_i'}{{}_n X_i / 1 - {}_n X_i} \dots\dots\dots (3.92)$$

$$\alpha_B = \frac{{}_n X_i'' / 1 - {}_n X_i''}{{}_n X_i'' / 1 - {}_n X_i''} \dots\dots\dots (3.93)$$

(3.92)、(3.93)式を変形すると、

$${}_n X_i' = \frac{{}_n X_i'}{\alpha_A - {}_n X_i' (\alpha_A - 1)} \dots\dots\dots (3.94)$$

$${}_n X_i'' = \frac{\alpha_B \cdot {}_n X_i''}{1 + {}_n X_i'' (\alpha_B - 1)} \dots\dots\dots (3.95)$$

一方、iステップn段目の分離器B（ ${}_n B_i$ ）についての物質収支式および(3.94)、(3.95)式から、

$$(L_i'' + \ell_i'') \left\{ \frac{{}_n X_i'}{\alpha_A - {}_n X_i' (\alpha_A - 1)} \right\} = \ell_i'' \left\{ \frac{\alpha_B \cdot {}_n X_i''}{1 + {}_n X_i'' (\alpha_B - 1)} \right\} + L_i'' \cdot {}_n X_i'' \dots\dots\dots (3.96)$$

(3.96)式を変形し、 ${}_n X_i''$ の2乗項を無視すると（低濃縮ウランを生産するガス拡散プラントでは、この仮定は正しい）、

$${}_n X_i'' = \frac{(L_i'' + \ell_i'') \cdot {}_n X_i'}{\alpha_A (\alpha_B \cdot \ell_i'' + L_i'') - \{ (\alpha_A - 1) (\alpha_B \cdot \ell_i'' + L_i'') + (\alpha_B - 1) (L_i'' + \ell_i'') \} \cdot {}_n X_i'} \dots\dots\dots (3.97)$$

以上の関係式より、n段と（n-1）段の第1透過流の濃度差を求めると、次のようになる。

$${}_n x'_i - {}_{n-1} x'_i = {}_n x'_i - \frac{P}{L_i} (x_P - {}_{n-1} x'_i) - \frac{(L_i'' + \ell_i'') \cdot {}_n x'_i}{\alpha_A (\alpha_B \ell_i'' + L_i'') - \{(\alpha_A - 1)(\alpha_B \ell_i'' + L_i'') + (\alpha_B - 1)(L_i'' + \ell_i'')\} \cdot {}_n x'_i}$$

..... ( 3.98 )

ここで、分離係数はほぼ 1 に等しく、各段毎の  ${}_n x'_i$  の変化も非常に小さいので、( 3.98 ) 式の左辺の差分は微分になおし、式中の  ${}_n x'_i$ 、 ${}_{n-1} x'_i$  はともに  $x$  なる変数に置換えることができる。したがって、濃縮部  $i$  ステップの所要段数  $(N_P)_i$  は、次式で表わすことができる。

$$(N_P)_i = \int_0^{(N_P)_i} dn = \int_{x_{i-1}}^{x_i} \frac{dx}{{}_n x'_i - {}_{n-1} x'_i} \quad \dots\dots\dots ( 3.99 )$$

ここで、 $x_i$  は  $i$  ステップの肩濃度を表わしており、 $x_i \equiv (N_P)_i x'_i$  である。そこで、( 3.98 ) 式を次のように変形すると、

$$\frac{1}{{}_n x'_i - {}_{n-1} x'_i} = \frac{d_i + e_i \cdot x}{a_i \cdot x^2 + b_i \cdot x + c_i} \quad \dots\dots\dots ( 3.100 )$$

所要段数は次式で求めることができる。

$$(N_P)_i = \frac{e_i}{2a_i} \ln \left| \frac{a_i \cdot x_i^2 + b_i \cdot x_i + c_i}{a_i \cdot x_{i-1}^2 + b_i \cdot x_{i-1} + c_i} \right|$$

$$+ \frac{2a_i \cdot d_i - b_i \cdot e_i}{2a_i} \cdot \frac{1}{\sqrt{b_i^2 - 4a_i \cdot c_i}} \cdot \ln \left| \frac{2a_i \cdot x_i + b_i - \sqrt{b_i^2 - 4a_i \cdot c_i}}{2a_i \cdot x_i + b_i + \sqrt{b_i^2 - 4a_i \cdot c_i}} \cdot \frac{2a_i \cdot x_{i-1} + b_i + \sqrt{b_i^2 - 4a_i \cdot c_i}}{2a_i \cdot x_{i-1} + b_i - \sqrt{b_i^2 - 4a_i \cdot c_i}} \right|$$

( ただし、 $b_i^2 - 4a_i \cdot c_i > 0$  のとき )

$$= \frac{e_i}{2a_i} \ln \left| \frac{a_i \cdot x_i^2 + b_i \cdot x_i + c_i}{a_i \cdot x_{i-1}^2 + b_i \cdot x_{i-1} + c_i} \right| + \frac{(2a_i \cdot d_i - b_i \cdot e_i)(x_i - x_{i-1})}{2(a_i \cdot x_i + b_i)(a_i \cdot x_{i-1} + b_i)}$$

( ただし、 $b_i^2 - 4a_i \cdot c_i = 0$  のとき )

$$= \frac{e_i}{2a_i} \ln \left| \frac{a_i \cdot x_i^2 + b_i \cdot x_i + c_i}{a_i \cdot x_{i-1}^2 + b_i \cdot x_{i-1} + c_i} \right|$$

$$+ \frac{2a_i \cdot d_i - b_i \cdot e_i}{2a_i} \cdot \frac{1}{\sqrt{b_i^2 - 4a_i \cdot c_i}} \left[ \tan^{-1} \left( \frac{a_i \cdot x_i + b_i}{\sqrt{4a_i \cdot c_i - b_i^2}} \right) - \tan^{-1} \left( \frac{a_i \cdot x_{i-1} + b_i}{\sqrt{4a_i \cdot c_i - b_i^2}} \right) \right]$$

( ただし、 $b_i^2 - 4a_i \cdot c_i < 0$  のとき )

..... ( 3.101 )

ここで、

$$\left. \begin{aligned}
 a_i &\equiv \left( 1 + \frac{P}{L_i''} \right) e_i \\
 b_i &\equiv \left( 1 + \frac{P}{L_i''} \right) d_i - \frac{P}{L_i''} \cdot x_p \cdot e_i - (L_i'' + \ell_i'') \\
 c_i &\equiv - \frac{P}{L_i''} \cdot x_p \cdot d_i \\
 d_i &\equiv \alpha_A (\alpha_B \cdot \ell_i'' + L_i'') \\
 e_i &\equiv - \{ (\alpha_A - 1)(\alpha_B \cdot \ell_i'' + L_i'') + (\alpha_B - 1)(L_i'' + \ell_i'') \}
 \end{aligned} \right\} \dots\dots (3.102)$$

なお、回収部の所要段数は、(3.101)、(3.102)式において、 $P \rightarrow -W$ 、 $x_p \rightarrow x_w$ 、 $(N_p)_i \rightarrow (N_w)_i$ と置換えることにより求めることができる。

### 3.5.2 濃度分布

前項に示した計算式は、分離係数がほぼ1に等しく、かつ、カスケード内の濃度分布が小さい範囲において、適用できるものである。ここでは、どのような条件でも使用できる逐次段法による計算手順について述べる。

i ステップ最上段〔 $(N_p)_i$  段〕  
 肩濃度  $x_i$ 〔 $\equiv (N_p)_i x_i'$ 〕…… 既知  
n 段  
 平衡関係より、

$$n x_i = \frac{n x_i'}{\alpha_A - n x_i' (\alpha_A - 1)} \dots\dots\dots (3.94)$$

$$n x_i'' = \frac{\alpha_B \cdot n X_i''}{1 + n X_i'' (\alpha_B - 1)} \dots\dots\dots (3.95)$$

第2分離器の物質収支式と(3.95)式から、

$$n X_i'' = \frac{(\alpha_B - 1)(L_i'' + \ell_i'') \cdot n x_i - (\alpha_B \cdot \ell_i'' + L_i'') + \sqrt{[(\alpha_B \cdot \ell_i'' + L_i'') - (\alpha_B - 1)(L_i'' + \ell_i'') \cdot n x_i]^2 + 4(\alpha_B - 1)(L_i'' + \ell_i'') \cdot L_i'' \cdot n x_i}}{2(\alpha_B - 1) \cdot L_i''} \dots\dots\dots (3.103)$$

(n-1) 段  
 (n-1) 段より上の物質収支から、

$$n-1 x_i' = \frac{L_i''}{L_i'' + P} \left( n X_i'' + \frac{P}{L_i''} \cdot x_p \right) \dots\dots\dots (3.104)$$

また、 $n$  段の分離器 A への供給流濃度は、混合点の物質収支から、

$${}_n X_i = \frac{L_i'' \cdot {}_{n+1} X_i'' + l_i'' \cdot {}_n X_i'' + l_i' \cdot {}_{n-1} X_i'}{L_i} \quad \dots\dots\dots (3.105)$$

以上の計算式を用いて、 ${}_n X_i' = x_{i-1}$  [  $\equiv (N_P)_{i-1} x_{i-1}'$  ] になるまで繰返し計算を行えば、 $i$  ステップにおける濃度分布と所要段数を同時に求めることができる。

本方法は、分子量の大きく異なる混合ガスの分離にも適用できる。

3.5.3 分離係数  $\alpha_A, \alpha_B$  と段分離係数  $\alpha_T$

前項までにカスケードの所要段数と濃度分布の計算手順を明らかにしたが、実際の計算には分離係数  $\alpha_A, \alpha_B$  の値が必要になる。

まず、通常型拡散筒における分離係数  $\alpha$  が与えられた場合、2分割型拡散筒 Type-1 の分離係数  $\alpha_A, \alpha_B$  が如何なる計算式で推定できるか述べてみる。

通常型拡散筒の分離係数は、次式で表わされる。

$$\alpha - 1 = (\alpha_0 - 1) S_1 \cdot S_2 \cdot S_3 \cdot S_4 \cdot S_5 \quad \dots\dots\dots (3.106)$$

ここで、 $S_1 \sim S_5$  は東の定義に従うものとする。

- すなわち、 $S_1$  : 逆拡散の効果
- $S_2$  : Present-deBethune 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

2分割型拡散筒では、分離器 A, Bとも同一性能の隔膜を用い、かつ操作条件（高圧側圧力・圧力比）もほぼ同一と考えられるので、

$$S_{1A} \cdot S_{2A} \cdot S_{5A} = S_{1B} \cdot S_{2B} \cdot S_{5B} \quad \dots\dots\dots (3.107)$$

一方、分離器 A, Bにおいては高圧側の流量が異なるが、簡単のために両者とも  $Re$  数が充分大きく、境界層の効果  $S_3$  はほぼ等しいものと仮定すると、ここでは流れ様式の効果  $S_4$  のみを検討すればよいことになる。

いま、流れ様式を十字流とすれば（通常、隔膜は焼結体で補強されているので、十字流に近い流れと推定される）、この効果は次式で与えられる。

$$S_4 = \frac{1}{\theta_i} \ln \frac{1}{1 - \theta_i} \quad \dots\dots\dots (3.108)$$

ここで、 $\theta_i$  : カット

(3.108) 式を分離器 A, B に適用すると、



$$S_{4A} = \left( \frac{\ell'_i + \ell''_i + L''_i}{\ell'_i} \right) \ln \frac{\ell'_i + \ell''_i + L''_i}{\ell''_i + L''_i} \dots\dots\dots (3.109)$$

$$S_{4B} = \left( \frac{\ell''_i + L''_i}{\ell''_i} \right) \ln \frac{\ell''_i + L''_i}{L''_i} \dots\dots\dots (3.110)$$

したがって、通常型拡散筒でカット 0.5 のときの分離係数  $\alpha$  が既知の場合、2分割型拡散筒の分離係数  $\alpha_A$ ,  $\alpha_B$  は次式で推定できる。

$$\alpha_A = 1 + \frac{(\alpha - 1)}{1.39} \cdot \left( \frac{\ell'_i + \ell''_i + L''_i}{\ell'_i} \right) \cdot \ln \frac{\ell'_i + \ell''_i + L''_i}{\ell''_i + L''_i} \dots\dots\dots (3.111)$$

$$\alpha_B = 1 + \frac{(\alpha - 1)}{1.39} \cdot \left( \frac{\ell''_i + L''_i}{\ell''_i} \right) \cdot \ln \frac{\ell''_i + L''_i}{L''_i} \dots\dots\dots (3.112)$$

つぎに、Hertz 型カスケード1段の見掛けの段分離係数  $\alpha_T$  は、次式で与えられる。

$$\begin{aligned} \alpha_T &= \frac{n x'_i / 1 - n x'_i}{n X''_i / 1 - n X''_i} \\ &= \frac{\alpha_A \cdot \alpha_B}{\beta_B} \dots\dots\dots (3.113) \end{aligned}$$

ここで、 $\beta_B$  は分離器 B の頭分離係数である。

一方、分離器 B の物質収支式と平衡関係式より、頭分離係数  $\beta_B$  は次式で表わされる。

$$\beta_B = 1 + \frac{(\alpha_B - 1)(1 - \theta_{iB})}{\theta_{iB}(\alpha_B - 1)(1 - n x''_i) + 1} \dots\dots\dots (3.114)$$

これより、見掛けの段分離係数  $\alpha_T$  は、分離器 A, B の分離係数  $\alpha_A$ ,  $\alpha_B$ , 分離器 B のカット  $\theta_{iB}$  および第 2 拡散流濃度  $n x'_i$  の関数として与えられることが分かる。

なお、分離係数が 1 に近い場合には、(3.114) 式は次のように簡略化できる。

$$\beta_B \cong 1 + (\alpha_B - 1)(1 - \theta_{iB})$$

### 3.5.4 段分離係数 $\alpha_T$ の応用

段分離係数が  $\alpha_T$  が実験または計算により与えられた場合、Hertz 型カスケードの所要段数および濃度分布は以下の手順で計算できる。

#### (1) 所要段数

段分離係数  $\alpha_T$  がほぼ 1 に等しい場合には、 $n$  段と  $(n - 1)$  段の第 1 透過流の濃度差は次式で近似できる。

$$n x'_i -_{n-1} x'_i = (\alpha_T - 1) \cdot n x'_i \cdot (1 - n x'_i) - \frac{P}{L''_i} (x_P -_{n-1} x'_i) \dots\dots\dots (3.116)$$

上式を微分形になおして積分すると、濃縮部  $i$  ステップの所要段数として次式を得る。

$$(N_p)_i = \frac{1}{(\alpha_T - 1) b_i} \ln \frac{1 + a_i}{1 - a_i} \quad \dots\dots\dots (3.117)$$

ここで、

$$\left. \begin{aligned} a_i &\equiv \frac{b_i \cdot (x_i - x_{i-1})}{(x_{i-1} + x_i)(1 + c_i) - 2x_{i-1} \cdot x_i - 2c_i \cdot x_p} \\ b_i &\equiv \sqrt{1 + 2c_i(1 - 2x_p) + c_i^2} \\ c_i &\equiv \frac{P}{L_i''(\alpha_T - 1)} \end{aligned} \right\} \dots\dots\dots (3.118)$$

(3.117), (3.118) 式は、ウラン濃縮のような分離係数の小さい場合に適用できる。

(2) 濃度分布

$i$  ステップの  $n$  段より上の物質収支式と平衡関係式より、次式が成立する。

$${}_{n+1}x'_i \cdot {}_n x'_i + \frac{L_i'' - (\alpha_T - 1)P \cdot x_p}{(\alpha_T - 1)(L_i'' + P)} \cdot {}_{n+1}x'_i - \frac{\alpha_T}{\alpha_T - 1} \cdot {}_n x'_i + \frac{\alpha_T \cdot P \cdot x_p}{(\alpha_T - 1)(L_i'' + P)} = 0 \quad \dots\dots\dots (3.119)$$

ここで、

$$\left. \begin{aligned} A_i &\equiv \frac{L_i'' - (\alpha_T - 1)P \cdot x_p}{(\alpha_T - 1)(L_i'' + P)} \\ B_i &\equiv \frac{-\alpha_T}{\alpha_T - 1} \\ C_i &\equiv \frac{\alpha_T \cdot P \cdot x_p}{(\alpha_T - 1)(L_i'' + P)} \end{aligned} \right\} \dots\dots\dots (3.120)$$

とおくと、(3.119) 式は次のようになる。

$${}_{n+1}x'_i \cdot {}_n x'_i + A_i \cdot {}_{n+1}x'_i + B_i \cdot {}_n x'_i + C_i = 0 \quad \dots\dots\dots (3.121)$$

上式は Riccati の差分方程式であり、その解は次式で与えられる。

$${}_n x'_i = S_i + \frac{1}{K \left( \frac{A_i + S_i}{B_i + S_i} \right)^n - \frac{1}{(A_i + S_i) + (B_i + S_i)}} \quad \dots\dots\dots (3.122)$$

ただし、

$$S_i = \frac{-(A_i + B_i) \pm \sqrt{(A_i + B_i)^2 - 4C_i}}{2} \quad \dots\dots\dots (3.123)$$

ここで、定数Kおよび所要段数  $(N_p)_i$  は、以下の手順で求めることができる。

①  $i \geq 2$  のとき

第  $i$  ステップ 1 段目の上昇流濃度  ${}_i x'_i$  を (3.122) 式に代入し、かつ  $n = 1$  とおくと、

$$K = \left( -\frac{B_i + S_i}{A_i + S_i} \right) \left\{ \frac{1}{{}_i x'_i - S_i} + \frac{1}{(A_i + S_i) + (B_i + S_i)} \right\} \dots\dots (3.124)$$

このとき、所要段数は次式で与えられる。

$$(N_p)_i = 1 + \frac{\ln \left( \frac{{}_i x'_{i+1} - S_i}{{}_i x'_i - S_i} \right) \left( \frac{{}_i x'_i + A_i + B_i + S_i}{{}_i x'_{i+1} + A_i + B_i + S_i} \right)}{\ln \left( -\frac{A_i + S_i}{B_i + S_i} \right)} \dots\dots (3.125)$$

②  $i = 1$  のとき

第 1 ステップ 1 段目の第 1 拡散流濃度  ${}_1 x'_1$  は、次のようにして求められる。

1 段目の分離器 A に関する物質収支式と平衡関係式から、

$$\beta_A = 1 + \frac{(\alpha_A - 1)(1 - \theta_{1A})}{1 + \theta_{1A}(\alpha_A - 1)(1 - {}_1 x'_1)} \dots\dots (3.126)$$

また、頭分離係数  $\beta_A$  の定義式から ( ${}_1 X_1 = x_F$  と仮定) 、

$$\beta_A = \frac{{}_1 x'_1 (1 - x_F)}{x_F (1 - {}_1 x'_1)} \dots\dots (3.127)$$

(3.126)、(3.127) 式から、 ${}_1 x'_1$  を求めることができる。

なお、分離係数が 1 に近い場合には、次の近似式を適用できる。

$${}_1 x'_1 = \frac{x_F \{ 1 + (\alpha_A - 1)(1 - \theta_{1A}) \}}{1 + x_F (\alpha_A - 1)(1 - \theta_{1A})} \dots\dots (3.128)$$

### 3.6 2 分割型拡散筒によるカスケード Type - 2<sup>51)</sup>

図 3-9 は、Type-2 の 2 分割型拡散筒より構成されるカスケードの配列を示したものである (C. E. A. 特許に基づく)。n 段目に供給されたフィードは、まず分離器 A に入り、ここで透過流と未透過流に分けられる。このうち、未透過流は (n + 1) 段目の分離器 B の未透過流と合流して、n 段目の分離器 B に供給される。ここで、分離器 A の透過流 (第 1 透過流) は (n + 1) 段目のフィードとなり、分離器 B の透過流 (第 2 透過流) はもう一度 n 段目のフィードにリサイクルされる。また、分離器 B の未透過流は (n - 1) 段目の分離器 B の手前にリサイクルされる。

以上のことから、Type-1, 2 と通常型のカスケードとの違いは、分離器 B の透過流および

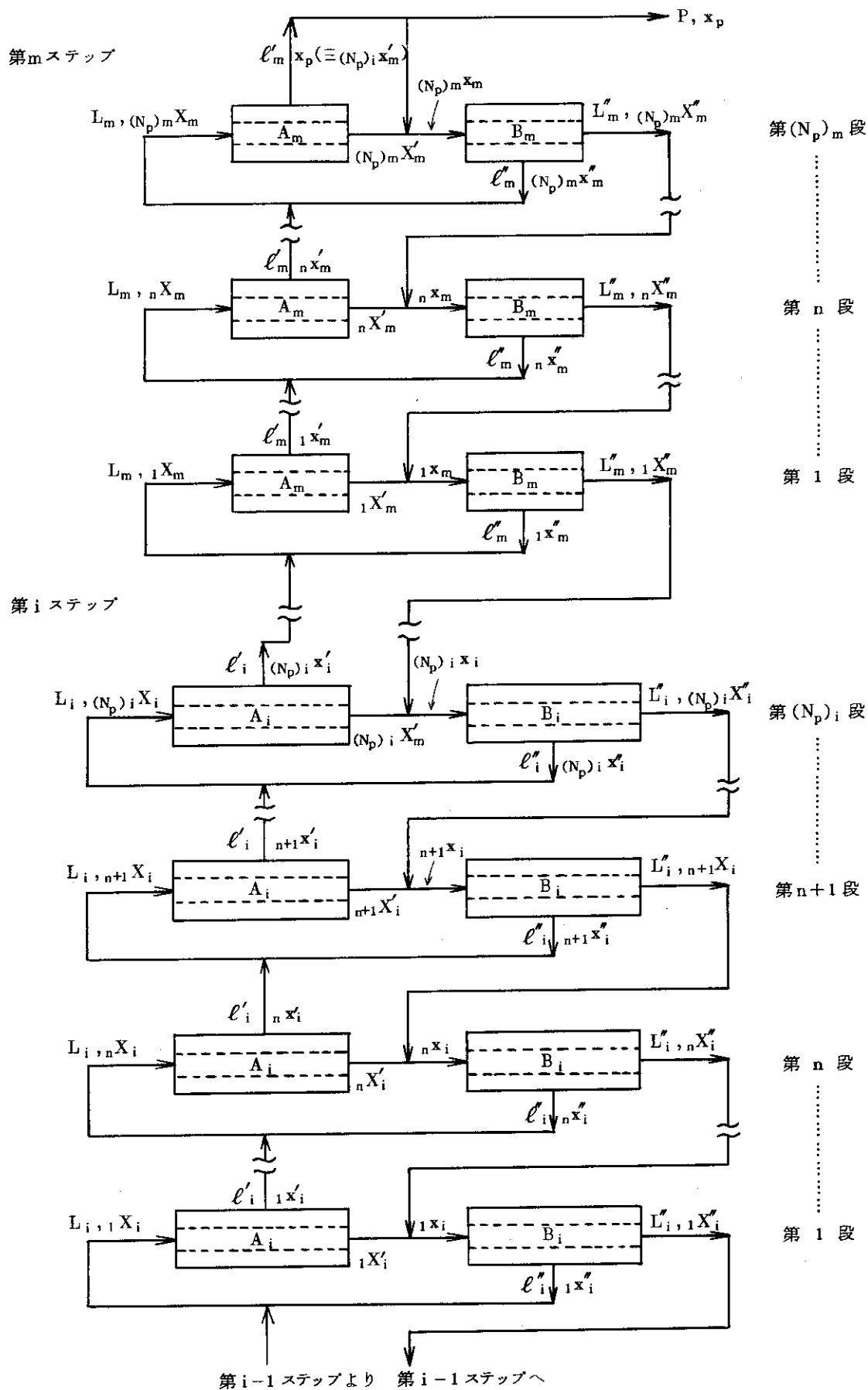


図 3-9 Type-2カスケード構成図(濃縮部)

未透過流をどの位置に戻すかにあることが分かる。以下に、本カスケードについて筆者らの提案した計算法の概略を記す。

3.6.1 所要段数

まず、i ステップ n 段目の分離数  $\alpha_A$ ,  $\alpha_B$  を次のように定義する。

$$\alpha_A = \frac{{}_n X'_i / 1 - {}_n X'_i}{{}_n X'_i / 1 - {}_n X''_i} \dots\dots\dots (3.129)$$

$$\beta_A = \frac{{}_n X''_i / 1 - {}_n X''_i}{{}_n X''_i / 1 - {}_n X'_i} \dots\dots\dots (3.130)$$

上の2式を変形すると、

$${}_n X'_i = \frac{{}_n X'_i}{\alpha_A - {}_n X'_i (\alpha_A - 1)} \dots\dots\dots (3.131)$$

$${}_n X''_i = \frac{\alpha_B \cdot {}_n X''_i}{1 + {}_n X''_i (\alpha_B - 1)} \dots\dots\dots (3.132)$$

n 段と (n-1) 段の第1透過流の濃度差は、n 段目の物質収支式と平衡関係式より、次式で与えられる。

$${}_n X'_i - {}_{n-1} X'_i = \frac{\ell''_i \left[ \frac{\alpha_B \left\{ {}_{n-1} X'_i - \frac{P}{L'_i} (x_p - {}_{n-1} X'_i) \right\}}{1 + (\alpha_B - 1) \left\{ {}_{n-1} X'_i - \frac{P}{L'_i} (x_p - {}_{n-1} X'_i) \right\}} \cdot \frac{{}_n X'_i}{\alpha_A - {}_n X'_i (\alpha_A - 1)} \right]}{\dots\dots\dots (3.133)}$$

ここで、分離係数がほぼ1に等しい場合を考え、上式を整理すると ( ${}_n X'_i = x$  とおく)、

$$\frac{dx}{dn} = \frac{\alpha_B \cdot \ell''_i \left\{ x - \frac{P}{L'_i} (x_p - x) \right\} \left\{ \alpha_A - x (\alpha_A - 1) \right\} - \ell''_i \cdot x \left[ 1 + (\alpha_B - 1) \left\{ x - \frac{P}{L'_i} (x_p - x) \right\} \right]}{\left\{ \alpha_A - x (\alpha_A - 1) \right\} \left[ \alpha_B \cdot \ell''_i + \ell'_i \left[ 1 + (\alpha_B - 1) \left\{ x - \frac{P}{L'_i} (x_p - x) \right\} \right] \right]}$$

$$= \frac{d_i \cdot x^2 + e_i \cdot x + f_i}{a_i \cdot x^2 + b_i \cdot x + c_i} \dots\dots\dots (3.134)$$

ただし,

$$\left. \begin{aligned}
 a_i &\equiv -(\alpha_A - 1)(\alpha_B - 1) \left(1 + \frac{P}{L_i''}\right) \ell_i' \\
 b_i &\equiv \alpha_A(\alpha_B - 1) \left(1 + \frac{P}{L_i''}\right) \ell_i' + (\alpha_A - 1) \left\{ (\alpha_B - 1) \frac{P}{L_i''} x_P - 1 \right\} \ell_i' - (\alpha_A - 1) \alpha_B \cdot \ell_i'' \\
 c_i &\equiv \alpha_A \cdot \alpha_B \cdot \ell_i'' + \alpha_A \cdot \ell_i' \left\{ 1 - (\alpha_B - 1) \frac{P}{L_i''} \cdot x_P \right\} \\
 d_i &\equiv - \left(1 + \frac{P}{L_i''}\right) \left\{ (\alpha_A - 1) \alpha_B + \alpha_B - 1 \right\} \ell_i'' \\
 e_i &\equiv \left[ \alpha_A \cdot \alpha_B \cdot \left(1 + \frac{P}{L_i''}\right) + \left\{ (\alpha_A - 1) \alpha_B + \alpha_B - 1 \right\} \frac{P}{L_i''} x_P - 1 \right] \ell_i'' \\
 f_i &\equiv - \frac{\alpha_A \cdot \alpha_B}{L_i''} \cdot P \cdot \ell_i'' \cdot x_P
 \end{aligned} \right\} \dots\dots (3.135)$$

i ステップの所要段数は, (3.134) 式を積分することにより, 次式で与えられる。

$$\begin{aligned}
 (N_P)_i &= \frac{a_i}{d_i} (x_i - x_{i-1}) - \frac{1}{2d_i} \left( \frac{a_i \cdot e_i}{d_i} - b_i \right) \cdot \ln \left| \frac{d_i \cdot x_i^2 + e_i \cdot x_i + f_i}{d_i \cdot x_{i-1}^2 + e_i \cdot x_{i-1} + f_i} \right| \\
 &\quad + \left\{ \frac{a_i (e_i^2 - 2d_i \cdot f_i)}{2d_i^2} - \frac{b_i \cdot e_i}{2d_i} + c_i \right\} \frac{1}{\sqrt{e_i^2 - 4d_i \cdot f_i}} \times \ln \left| \frac{2d_i \cdot x_i + e_i - \sqrt{e_i^2 - 4d_i \cdot f_i}}{2d_i \cdot x_i + e_i + \sqrt{e_i^2 - 4d_i \cdot f_i}} \right. \\
 &\quad \left. \frac{2d_i \cdot x_{i-1} + e_i + \sqrt{e_i^2 - 4d_i \cdot f_i}}{2d_i \cdot x_{i-1} + e_i - \sqrt{e_i^2 - 4d_i \cdot f_i}} \right|
 \end{aligned}$$

(ただし,  $e^2 > 4df$ ) ..... (3.136)

なお, 回収部についても, 同様の手順で求めることができる。

### 3.6.2 濃度分布

カスケード内の濃度分布 (および所要段数) は, 以下の手順により, 最上段から逐次的に求めることができる。この方法は, 分離係数がどのような値のときにも使用できる。

i ステップ最上段〔(N<sub>p</sub>)<sub>i</sub>段〕

肩濃度 x<sub>i</sub> [≡ (N<sub>p</sub>)<sub>i</sub> x'<sub>i</sub>]..... 既知

n 段

平衡関係より,

$$nX'_i = \frac{n x'_i}{\alpha_A - n x'_i (\alpha_A - 1)} \dots\dots\dots (3.137)$$

混合点の物質収支より,

$${}_n X_i = \frac{\ell_i'' \cdot {}_n X_i' + L_i'' \cdot {}_{n+1} X_i''}{\ell_i'' + L_i''} \dots\dots\dots (3.138)$$

分離器 B の物質収支から,

$${}_n X_i'' = \frac{(\alpha_B - 1)(L_i'' + \ell_i'') \cdot {}_n X_i' - (\alpha_B \cdot \ell_i'' + L_i'') + \sqrt{\{(\alpha_B \cdot \ell_i'' + L_i'') - (\alpha_B - 1)(L_i'' + \ell_i'') \cdot {}_n X_i'\}^2 + 4(\alpha_B - 1)(L_i'' + \ell_i'')L_i'' \cdot {}_n X_i'}}{2(\alpha_B - 1) \cdot L_i''} \dots\dots\dots (3.139)$$

また, 平衡関係より,

$${}_n X_i'' = \frac{\alpha_B \cdot {}_n X_i'}{1 + {}_n X_i'' (\alpha_B - 1)} \dots\dots\dots (3.140)$$

(n-1) 段

(n-1) 段より上の物質収支より,

$${}_{n-1} X_i' = \frac{L_i''}{L_i'' + P} \left( {}_n X_i'' + \frac{P}{L_i''} X_P \right) \dots\dots\dots (3.141)$$

n 段目 A 分離器直前の混合点の物質収支より,

$${}_n X_i = \frac{\ell_i' \cdot {}_{n-1} X_i' + \ell_i'' \cdot {}_n X_i''}{\ell_i' + \ell_i''} \dots\dots\dots (3.142)$$

以上の諸式を用いて,  ${}_n X_i' = x_{i-1}$  [  $\equiv (N_P)_{i-1} x_{i-1}$  ] になるまで繰返し計算を行えば, i ステップにおける濃度分布と所要段数を同時に求めることができる。

### 3.6.3 分離係数 $\alpha_A, \alpha_B$

この場合も 2 分割型拡散筒 Type-1 と全く同じ前提条件をおき, 流れ様式も十字流とすると,  $S_4$  の効果のみを検討すればよいことになる。

分離器 A では,

$$S_{4A} = \left( \frac{\ell_i' + \ell_i''}{\ell_i'} \right) \ln \frac{\ell_i' + \ell_i''}{\ell_i''} \dots\dots\dots (3.143)$$

分離器 B では,

$$S_{4B} = \left( \frac{\ell_i'' + L_i''}{\ell_i''} \right) \ln \frac{\ell_i'' + L_i''}{L_i''} \dots\dots\dots (3.144)$$

従って, カット 0.5 のときの通常型拡散筒の分離係数  $\alpha$  が与えられていれば, 2 分割型拡散筒 Type-2 の分離係数  $\alpha_A, \alpha_B$  は次式で推定することができる。

$$\alpha_A = 1 + \frac{(\alpha-1)}{1.39} \cdot \left( \frac{\ell'_i + \ell''_i}{\ell'_i} \right) \cdot \ln \frac{\ell'_i + \ell''_i}{\ell''_i} \dots\dots\dots (3.145)$$

$$\alpha_B = 1 + \frac{(\alpha-1)}{1.39} \cdot \left( \frac{\ell''_i + L''_i}{\ell''_i} \right) \cdot \ln \frac{\ell''_i + L''_i}{L''_i} \dots\dots\dots (3.146)$$

なお、分離器Bの分離係数は、Type-1, 2とも、同一式で表わされることが分かる。

### 3.7 カスケードの非定常特性

前節までに、カスケードの設計または実験結果の解析に必要な所要段数、濃度分布、流量分布など定常時特性の算出式について記述した。

本節では、カスケードの起動方法または異常時の措置などの検討を目的とした非定常特性の解析法について述べる。

#### 3.7.1 非定常特性の基礎方程式<sup>52)</sup>

筆者らは、①カスケードの運転開始から定常状態に到達するまでの過渡状態、②定常状態にあるカスケードの1部の段を除外または挿入する場合の影響、などを検討する目的で、カスケードの非定常特性に関する解析法を提案した。以下に、方形カスケードに関する計算法の概要を述べる。

図3-10に示した方形カスケードにおいて、各段における着目成分のホールドアップの時間的变化は、物質収支より、

$$\left[ \begin{array}{l} \text{第 } n \text{ 段目における} \\ \text{着目成分のホールド} \\ \text{アップの変化速度} \end{array} \right] = \left[ \begin{array}{l} \text{第 } n \text{ 段目への} \\ \text{着目成分の} \\ \text{流入速度} \end{array} \right] - \left[ \begin{array}{l} \text{第 } n \text{ 段目から} \\ \text{の着目成分の} \\ \text{流出速度} \end{array} \right] \dots\dots\dots (3.147)$$

で表わされる。

ここで、基礎式の導出に際し、次の仮定を設ける。

- ①各流量に時間的变化はない。
- ②透過流（拡散流，濃縮流，上昇流）は，全段にわたり一定である。
- ③ホールドアップは，高圧側にその大部分が存在する。また，この際の高圧側の濃度は，未透過流（未拡散流，減損流，下降流）の濃度で代表する。
- ④カスケード全段にわたり，ガスの漏洩はないものとする。

以上のような仮定の下に、(3.147)式を用いて、各部の基礎式を導くと次のようになる。  
製品抜き出し段 (n=1) について

$$H \frac{dx_1''}{d\theta} = L' \cdot x_2' - L_e'' \cdot x_1'' - P \cdot x_1'$$



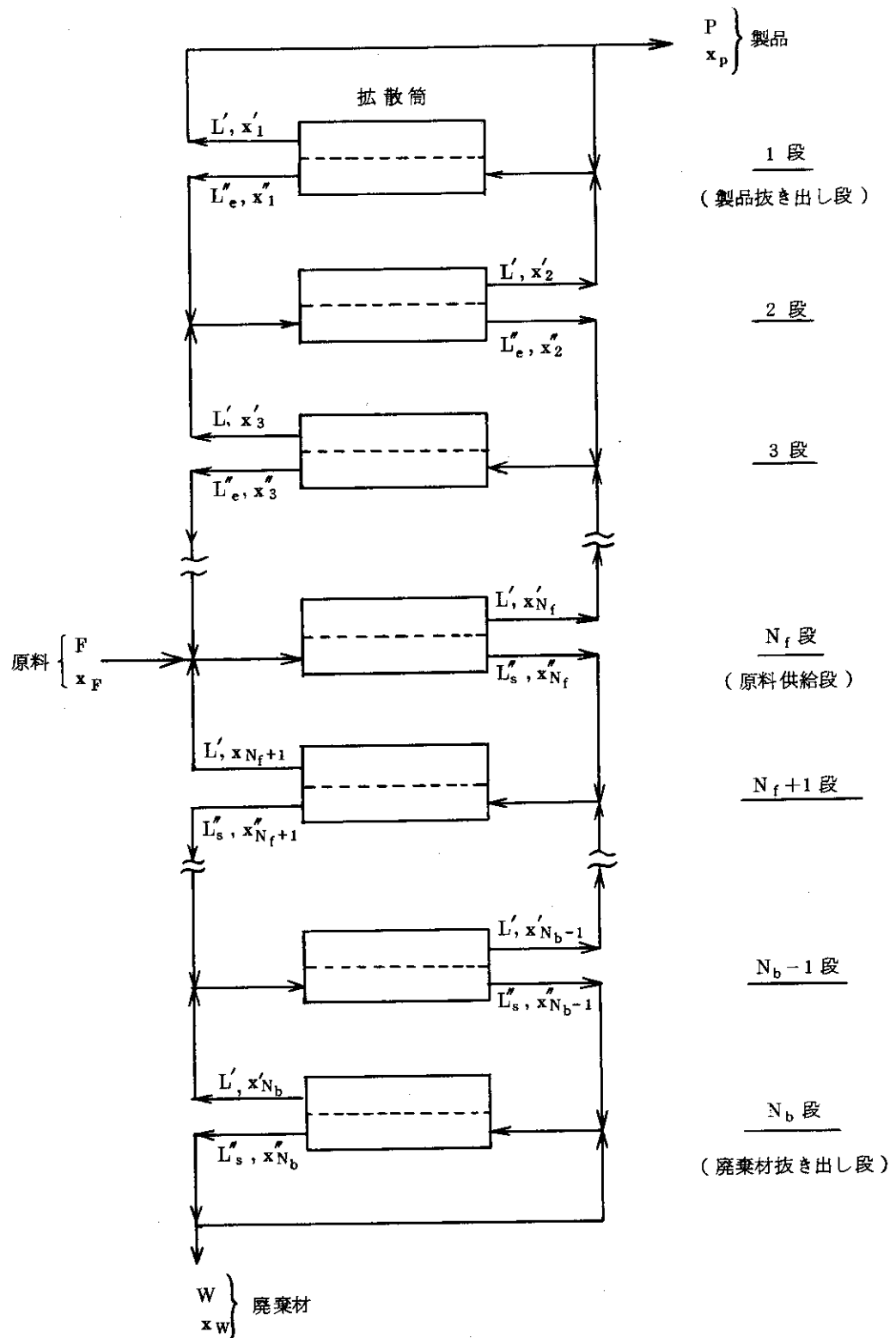


図3-10 方形カスケードモデル

濃縮部 ( n = 2, 3, …, N<sub>f</sub> - 1 ) について

$$H \frac{dx_n''}{d\theta} = L' \cdot x_{n+1}' + L_e'' \cdot x_{n-1}'' - L' \cdot x_n' - L_e'' \cdot x_n''$$

原料供給段 ( n = N<sub>f</sub> ) について

$$H \frac{dx_{N_f}''}{d\theta} = L' \cdot x_{N_f+1}' + L_e'' \cdot x_{N_f-1}'' - L' \cdot x_{N_f}' - L_s'' \cdot x_{N_f}'' + F \cdot x_F \quad \dots\dots\dots ( 3.148 )$$

回収部 ( n = N<sub>f</sub> + 1, …, N<sub>b</sub> - 1 ) について

$$H \frac{dx_n''}{d\theta} = L' \cdot x_{n+1}' + L_s'' \cdot x_{n-1}'' - L' \cdot x_n' - L_s'' \cdot x_n''$$

廃棄材抜き出し段 ( n = N<sub>b</sub> ) について

$$H \frac{dx_{N_b}''}{d\theta} = L_s'' \cdot x_{N_b-1}'' - L' \cdot x_{N_b}' - W \cdot x_{N_b}''$$

ここで, H : 高圧側の1段当りのホールドアップ

θ : 時間

n : 段番号 ( 製品抜き出し段から順に 1, 2, 3 … 段と番号をつける。ただし, 原料供給段を N<sub>f</sub>, 廃棄材抜き出し段を N<sub>b</sub> とする。)

添字 e : 濃縮部

s : 回収部

分離係数 α の定義から, n 段目の濃度 x<sub>n</sub>' と x<sub>n</sub>'' との関係は,

$$x_n' = \frac{\alpha x_n''}{1 + (\alpha - 1) x_n''} = A_n \cdot x_n'' \quad \dots\dots\dots ( 3.149 )$$

ただし,

$$A_n = \frac{\alpha}{1 + (\alpha - 1) x_n''} = \frac{1 + \epsilon}{1 + \epsilon \cdot x_n''} \quad \dots\dots\dots ( 3.150 )$$

$$\epsilon = \alpha - 1 \quad \dots\dots\dots ( 3.151 )$$

ここで, 無次元時間 τ ならびに濃縮部, 回収部における透過流と未透過流の比をそれぞれ λ<sub>e</sub>, λ<sub>s</sub> とすると, 次の関係が導かれる。

$$\tau = \frac{L'}{H} \theta$$

$$\lambda_e = \frac{L_e''}{L'}$$

$$\left. \begin{aligned} \lambda_s &= \frac{L''_s}{L'} \\ \frac{P}{L'} &= 1 - \frac{L''_e}{L'} = 1 - \lambda_e \\ \frac{W}{L'} &= \frac{L''_s}{L'} - 1 = \lambda_s - 1 \\ \frac{F}{L'} &= \frac{P+W}{L'} = \lambda_s - \lambda_e \end{aligned} \right\} \dots\dots\dots (3.152)$$

(3.149) ~ (3.152) 式を (3.148) 式に代入し、整理すると、

$$\left. \begin{aligned} \frac{dx''_1}{d\tau} &= A_2 \cdot x''_2 - \lambda_e \cdot x''_1 - A_1 (1 - \lambda_e) x''_1 & (n=1) \\ \frac{dx''_n}{d\tau} &= A_{n+1} \cdot x''_{n+1} + \lambda_e \cdot x''_{n-1} - A_n \cdot x''_n - \lambda_e \cdot x''_n & (n=2, 3, \dots, N_f-1) \\ \frac{dx''_{N_f}}{d\tau} &= A_{N_f+1} \cdot x''_{N_f+1} + \lambda_e \cdot x''_{N_f+1} - A_{N_f} \cdot x''_{N_f} - \lambda_s \cdot x''_{N_f} + (\lambda_s - \lambda_e) x_F & (n=N_f) \\ \frac{dx''_n}{d\tau} &= A_{n+1} \cdot x''_{n+1} + \lambda_s \cdot x''_{n-1} - A_n \cdot x''_n - \lambda_s \cdot x''_n & (n=N_f+1, \dots, N_b-1) \\ \frac{dx''_{N_b}}{d\tau} &= \lambda_s \cdot x''_{N_b-1} - A_{N_b} \cdot x''_{N_b} - (\lambda_s - 1) x''_{N_b} & (n=N_b) \end{aligned} \right\} \dots\dots\dots (3.153)$$

上式が、方形カスケードの非定常特性を表わす基礎方程式である。理想カスケードのように段毎に流量が変化する場合にも、予め流量分布を求めておけば、上式により非定常特性を求めることができる。

なお、ガス拡散プラントのように分離係数が小さく、1000段もの段数を必要とする場合には、次のような方法で計算することができる。

すなわち、1段当りの濃度変化は極めて緩やかであるため、段数  $n$  を連続量とみなし、 $n$  に関して微分可能な連続関数  $x(n)$  を定義して、テーラー展開の低次近似を行うと、

$$\left. \begin{aligned} x''_2 &\cong x(1) + \frac{\partial x(n)}{\partial n} \Big|_{n=1} \\ x''_{n-1} &\cong x(n) - \frac{\partial x(n)}{\partial n} \Big|_n + \frac{1}{2} \cdot \frac{\partial^2 x(n)}{\partial n^2} \Big|_n \\ x''_{n+1} &\cong x(n) + \frac{\partial x(n)}{\partial n} \Big|_n + \frac{1}{2} \cdot \frac{\partial^2 x(n)}{\partial n^2} \Big|_n \\ x''_{N_b-1} &\cong x(N_b) - \frac{\partial x(n)}{\partial n} \Big|_{n=N_b} \end{aligned} \right\} \dots\dots\dots (3.154)$$

また、(3.150)式で定義される $A_n$ も $n$ の連続関数と考えると $A(n)$ を導入し、テーラー展開の一次項までとると、

$$A_{n+1} \cong A(n) + \left. \frac{\partial A(n)}{\partial n} \right|_n \dots\dots\dots (3.155)$$

$$A(n) = \frac{1 + \epsilon}{1 + \epsilon \cdot x(n)} \dots\dots\dots (3.156)$$

ここで、 $\partial A(n)/\partial n$ は極めて小さい値となるため、

$$A_{n+1} \cong A(n) \dots\dots\dots (3.157)$$

と近似することができる。

(3.154)、(3.157)式を(3.153)式に代入して整理すると、次の関係式を得る。

$$\left. \begin{aligned} \frac{\partial x}{\partial \tau} &= \lambda_e (A-1)x + A \frac{\partial x}{\partial n} & (n=1) \\ \frac{\partial x}{\partial \tau} &= \frac{A + \lambda_e}{2} \cdot \frac{\partial^2 x}{\partial n^2} + (A - \lambda_e) \frac{\partial x}{\partial n} & (1 < n < N_f) \\ \frac{\partial x}{\partial \tau} &= \frac{A + \lambda_e}{2} \cdot \frac{\partial^2 x}{\partial n^2} + (A - \lambda_e) \frac{\partial x}{\partial n} + (\lambda_s - \lambda_e)(x_F - x) & (n = N_f) \\ \frac{\partial x}{\partial \tau} &= \frac{A + \lambda_s}{2} \cdot \frac{\partial^2 x}{\partial n^2} + (A - \lambda_s) \frac{\partial x}{\partial n} & (N_f < n < N_b) \\ \frac{\partial x}{\partial \tau} &= (1-A)x - \lambda_s \frac{\partial x}{\partial n} \end{aligned} \right\} \dots\dots\dots (3.158)$$

(3.158)式が求める基礎方程式であるが、これを数値計算するためには、連立微分方程式の形に変換する必要がある。

まず、段方向に $\delta n$ ずつ間隔をおいた代表点を考える。この場合、全代表点 $I$ は、次式を満足する必要がある。

$$I = \frac{N_b}{\delta n} + 1 \dots\dots\dots (3.159)$$

また、原料供給段に対応した代表点 $I_F$ は、

$$I_{N_f} = \frac{N_f}{\delta n} + 1 \dots\dots\dots (3.160)$$

カスケードの製品抜き出し段(最上段)、原料供給段、廃棄材抜き出し段(最下段)を除いた点については、段方向の偏微分は前後の代表点濃度を用いて差分近似できる。すなわち、

$$\left. \begin{aligned} \frac{\partial x}{\partial n} \Big|_{n=i} &\cong \frac{X_{i+1} - X_{i-1}}{2 \delta n} \\ \frac{\partial^2 x}{\partial n^2} \Big|_{n=i} &\cong \frac{X_{i+1} - 2X_i + X_{i-1}}{(\delta n)^2} \end{aligned} \right\} \dots\dots\dots (3.161)$$

ここで、 $X_i$  は代表点  $i$  の濃度である。

(3.161) 式を (3.158) 式に代入して、整理すると、

$$\left. \begin{aligned} \frac{dX_i}{d\tau} &= \frac{1}{2\delta n} \left\{ \frac{A+\lambda_e}{\delta n} - (A-\lambda_e) \right\} X_{i-1} - \frac{A+\lambda_e}{(\delta n)^2} X_i \\ &\quad + \frac{1}{2\delta n} \left\{ \frac{A+\lambda_e}{\delta n} + (A-\lambda_e) \right\} X_{i+1} \quad (i=2, \dots, I_{N_f}-1) \\ \frac{dX_i}{d\tau} &= \frac{1}{2\delta n} \left\{ \frac{A+\lambda_s}{\delta n} - (A-\lambda_s) \right\} X_{i-1} - \frac{A+\lambda_s}{(\delta n)^2} X_i \\ &\quad + \frac{1}{2\delta n} \left\{ \frac{A+\lambda_s}{\delta n} + (A-\lambda_s) \right\} X_{i+1} \quad (i=I_{N_f}+1, \dots, I_{N_b}-1) \end{aligned} \right\} \dots\dots\dots (3.162)$$

次に、カスケードの最上段、原料供給段、最下段については、(3.162) 式と同じような差分近似を用いただけでは、系全体の物質収支を満足することはできない。すなわち、系外と物質の出入のある代表点では、新たに系の物質収支の満足されるような境界条件として、それらの代表点の方程式を誘導する必要がある。

そこで、代表点に選ばれた段以外の濃度はそれをはさむ2つの代表点濃度の直線の内挿により表わされるものとして、カスケードの全ホールドアップを考えると、次の関係式を得る。

$$H_T = \frac{H}{2} \sum_{i=1}^{I-1} (X_i + X_{i+1}) \cdot \delta n \quad \dots\dots\dots (3.163)$$

一方、系全体の物質収支は、次式で表わされる。

$$\frac{1}{H} \frac{dH_T}{d\tau} = \frac{F}{L'} x_F - \frac{P}{L'} X_1 - \frac{W}{L'} X_I \quad \dots\dots\dots (3.164)$$

(3.163)、(3.164) 式より

$$\frac{1}{2} \sum_{i=1}^{I-1} \left( \frac{dX_i}{d\tau} + \frac{dX_{i+1}}{d\tau} \right) \cdot \delta n = \frac{F}{L'} x_F - \frac{P}{L'} X_1 - \frac{W}{L'} X_I \quad \dots\dots\dots (3.165)$$

(3.165) 式に (3.162) 式を代入して整理すると、次式を得る。

$$\left\{ \frac{1}{2} \frac{dX_1}{d\tau} + aX_1 - cX_2 + \frac{P}{(\partial n)L'} X_1 \right\}$$

$$+ \left\{ \frac{1}{2} \frac{dX_{I_{N_f}}}{d\tau} - aX_{I_{N_f}-1} + (c+d)X_{I_{N_f}} - gX_{I_{N_f}+1} - \frac{F}{(\partial n)L'} x_F \right\}$$

$$+ \left\{ \frac{1}{2} \frac{dX_I}{d\tau} - dX_{I-1} + gX_I + \frac{W}{(\partial n)L'} X_I \right\} = 0 \quad \dots\dots\dots(3.166)$$

ただし、

$$\left. \begin{aligned} a &= \frac{1}{2(\partial n)} \left\{ \frac{A+\lambda_e}{\partial n} - (A-\lambda_e) \right\} \\ c &= \frac{1}{2(\partial n)} \left\{ \frac{A+\lambda_e}{\partial n} + (A-\lambda_e) \right\} \\ d &= \frac{1}{2(\partial n)} \left\{ \frac{A+\lambda_s}{\partial n} - (A-\lambda_s) \right\} \\ g &= \frac{1}{2(\partial n)} \left\{ \frac{A+\lambda_s}{\partial n} + (A-\lambda_s) \right\} \end{aligned} \right\} \dots\dots\dots(3.167)$$

(3.166)式において、各{ }が零であれば系全体の物質収支は満足され、これらは系外と物質の出入のある位置での境界条件となる。

以上の関係を整理すると、系全体の非定常特性を表わす基礎式として次式が与えられる。

$$\left. \begin{aligned} \frac{1}{2} \cdot \frac{dX_1}{d\tau} &= -aX_1 + cX_2 - \frac{P}{(\partial n)L'} X_1 & (i=1) \\ \frac{dX_i}{d\tau} &= aX_{i-1} - (a+c)X_i + cX_{i+1} & (i=2, \dots, I_{N_f}-1) \\ \frac{dX_{I_{N_f}}}{d\tau} &= aX_{I_{N_f}-1} - (c+d)X_{I_{N_f}} + gX_{I_{N_f}+1} + \frac{F}{(\partial n)L'} x_F & (i=I_{N_f}) \\ \frac{dX_i}{d\tau} &= dX_{i-1} - (d+g)X_i + gX_{i+1} & (i=I_{N_f}+1, \dots, I-1) \\ \frac{1}{2} \cdot \frac{dX_I}{d\tau} &= dX_{I-1} - gX_I - \frac{W}{(\partial n)L'} X_I & (i=I) \end{aligned} \right\} \dots\dots\dots(3.168)$$

系の経時的挙動は、代表段に対する初期濃度分布を与え、(3.168)式で表わされる連立微分方程式を数値的に解くことにより得られる。

3.7.2 定常到達時間 (Burton の方法)<sup>53)</sup>

前節に述べた非定常特性方程式を用いれば、種々のスタートアップ方式に対して定常到達時間が算出できる。ここでは、方形カスケードの全還流操作に関する定常到達時間の簡易計算法としてよく知られている Burton の式について述べる。

$$\tau_k = \frac{4}{(\alpha-1)^2} \left( \frac{H}{L''} \right) \left[ \frac{B^2}{B^2 + \pi^2} \ln \frac{2\pi^2 (1+e^B)(1+e^{-B})}{k (B^2 + \pi^2)^2} \right] \dots\dots (3.169)$$

$$B = \frac{N(\alpha-1)}{2} \dots\dots\dots (3.170)$$

ここで、H ; 1段当りのガスのホールドアップ

L'' ; 未透過流量

N ; カスケード段数

k ; カスケード起動後  $\tau$  時間における最上段、最下段濃度をそれぞれ  $x(N, \tau)$ ,  $x(0, \tau)$  とし、定常状態 ( $\tau = \infty$ ) における濃度をそれぞれ  $x(N, \infty)$ ,  $x(0, \infty)$  と表わしたとき、次式で定義される定数である。

$$1 - k = \frac{x(N, \tau) - x(0, \tau)}{x(N, \infty) - x(0, \infty)} \dots\dots\dots (3.171)$$

例えば、 $k = 0.02$  のとき (3.169) 式を満足する  $\tau$  を 98% 定常到達時間と呼び、 $\tau_{0.02}$  と書く。

以上の関係式より、全還流操作における定常到達時間を容易に推定することができる。

3.8 分離作業量および最適廃棄材濃度<sup>2), 12), 13)</sup>

3.8.1 分離作業量

分離作業量 (Separative Work Unit) は、或る分離プラントにより、濃度  $x_F$  なる原料 F から濃度  $x_P$ ,  $x_W$  なる製品および廃棄材をそれぞれ P, W だけ得たとき、このプラントで生じた価値の大きさを定量的に表わした単位であり、次式で定義される。

$$U = P \cdot V(x_P) + W \cdot V(x_W) - F \cdot V(x_F) \dots\dots\dots (3.172)$$

一方、任意段 n における分離器の分離作業量は、次式で表わされる。

$$\Delta U_n = L'_n \cdot V(x'_n) + L''_n \cdot V(x''_n) - L_n \cdot V(x_n) \dots\dots\dots (3.173)$$

ここで、V(x) は、価値関数と呼ばれ、次式で定義される。

$$V(x) = (2x - 1) \ln \frac{x}{1-x} \dots\dots\dots (3.174)$$

(3.172) 式と (3.173) 式とを比較すると、次の不等式が成立する。

$$U \leq \sum_n \Delta U_n \quad \dots\dots\dots (3.175)$$

上式において等号が成立するのは、プラント内で濃度的混合が生じないカスケード（非混合の条件）、すなわち理想カスケードだけである。

(3.172)式は、下記のように変形できる。

$$\begin{aligned} U &= P \left\{ \frac{x_P - x_F}{x_F - x_W} V(x_W) + V(x_P) - \frac{x_P - x_W}{x_F - x_W} V(x_F) \right\} \\ &= P \left\{ V(x_P) - V(x_F) - (x_P - x_F) \frac{V(x_F) - V(x_W)}{x_F - x_W} \right\} \quad \dots\dots\dots (3.176) \end{aligned}$$

一方、濃縮部における分離作業量  $U_P$  は、

$$U_P = P \left\{ (2x_P - 1) \ln \frac{x_P(1-x_F)}{x_F(1-x_P)} + \frac{(x_P - x_F)(1 - 2x_F)}{x_F(1-x_F)} \right\} \quad \dots\dots\dots (3.177)$$

従って、回収部における分離作業量  $U_W$  は、

$$U_W = U - U_P \quad \dots\dots\dots (3.178)$$

次に、理想カスケードにおける全循環流量と分離作業の関係は、(3.57)、(3.60)式より、次式で表わされる。

$$J = \frac{\beta + 1}{(\beta - 1) \ln \beta} \cdot U \cong \frac{8}{(\alpha - 1)^2} U \quad \dots\dots\dots (3.179)$$

同様に、任意段  $n$  については、

$$L_n = \frac{\beta + 1}{(\beta - 1) \ln \beta} \cdot U_n \cong \frac{8}{(\alpha - 1)^2} \cdot U_n \quad \dots\dots\dots (3.180)$$

### 2.8.2 最適廃棄材濃度

同位体混合物を分離する場合、1つの同位体に特別な価値があり、廃棄材には余り用途のないことが多い。

ガス拡散プラントを例にとると、プラントの規模は廃棄材濃度  $x_W$  の値により大きく左右される。廃棄材濃度を低くすれば、 $^{235}\text{U}$  の有効利用という面からは利点はあるが、回収部の段数が増加し、建設および運転に要する費用が増大する。従って、両者のバランスを考慮して、最適の廃棄材濃度を決定しなければならない。

分離プラントにおける製品原価は、次式で求めることができる。

$$P \cdot C_P = U \cdot C_E + F \cdot C_F \quad \dots\dots\dots (3.181)$$



ここで,  $C_P$  : 製品原価 (円/kg)

$U_E$  : 分離作業量 (kg-SWU)

$C_E$  : 単位分離作業量当りの分離費 (円/kg-SWU)

$C_F$  : 原料費 (円/kg)

(3.14), (3.176) 式を用いて, (3.181) 式を書き直すと,

$$C_P = \{V(x_P) - V(x_F)\} - \left(\frac{x_P - x_F}{x_F - x_W}\right) \{V(x_F) - V(x_W)\} C_E + \frac{x_P - x_W}{x_F - x_W} C_F \dots\dots\dots (3.182)$$

製品原価  $C_P$  を最小にする  $x_W$  は,  $dC_P/dx_W = 0$  より求めることができる。すなわち, 次式を満足しなければならない。

$$\frac{C_F}{C_E} = (2x_F - 1) \ln \frac{x_W(1-x_W)}{x_W(1-x_F)} + \frac{(x_F - x_W)(1-2x_W)}{x_W(1-x_W)} \dots\dots\dots (3.183)$$

上式を満足する  $x_W$  は, 最適廃棄材濃度と呼ばれている。

## 4. お わ り に

多孔質隔膜法による気体の分離プラントの設計，運転にあたっては，種々の操作条件におけるカスケードの定常特性（カスケードの規模，構成）および非定常特性（カスケード内の濃度分布の過渡的变化とその制御特性）を把握する必要がある。

本報告書は，これらの問題に関する既往の研究を概観し，それぞれの理論における考え方，前提条件を整理したものである。

まず，隔膜法による分離の基本原則に着目し，理想的な細孔および隔膜における分離機構を説明した。ついで分離係数に関する種々の影響因子の評価方法を検討し，実際の隔膜および拡散筒の分離係数推算式を列挙した。

カスケードの定常特性については，理想カスケード，方形カスケード，ステップカスケードならびに2分割型拡散筒により構成されるカスケードに関する基礎方程式を与えた。

最後に，方形カスケードを中心とした分離プラントにおける種々のスタートアップ，制御方式などの非定常特性を解析するための基礎方程式を与えた。

## 文 献

- 1) Graham T. : Trans. Roy. Soc. (London), 153, 385 (1863)
- 2) Brubaker D.W. and Kammermeyer K. : Ind. Eng. Chem., 46, No. 4, 733 (1954)
- 3) Barrer, R.M. : "Diffusion in and through Solids", Cambridge Press, London (1941)
- 4) Higashi K. : "Uran Nōshuku" (Uranium Enrichment), 1st ed., Nikkan Kogyo Shinbunsha, Tokyo, 6 (1971) [in Japanese]
- 5) Knudsen M. : Ann. d. Physik. 28, 705 (1909)
- 6) Adzumi H. : Bull. Chem. Soc. Japan 12, 285, 291, 295, 304 (1937)
- 7) Adzumi H. : ibid. 14, 343 (1939)
- 8) Pollard W.G. and Present R.D. : Phys. Rev. 73, 762 (1948)
- 9) Present R.D. and deBethune A.J. : Phys. Rev. 75, 1050 (1949)
- 10) Huckins H.E. and Kammermeyer K. : Chem. Eng. Progr. 49, No. 4, 180 (1953)
- 11) Caldirola P. and Fiocchi R. : AEC-tr-4171, "The Separation of Uranium Isotopes" (1959)
- 12) Benedict M. : Chem. Eng. Progr. 43, No. 2, 41 (1947)

- 13) Cohen K. : " Theory of Isotope Separation ", McGraw-Hill Book Company Inc., New York (1951)
- 14) Tanaka K. : Nippon Kagaku Zasshi, 79, 740 (1958) [ in Japan ese ]
- 15) Hamai S. and Mitani M. : Kagaku Kogaku, 34, 171 (1970) [ in Japan ese ]
- 16) Carman P.C. : " Flow of Gases through Porous Media ", Butterworths, London (1956)
- 17) Nakajima S. et. al., " Shinku Kagaku Hand Book " ( Vacuum Technology Hand Book ), 1st ed., Asakura Shoten, Tokyo, 7 (1965) [ in Japan ese ]
- 18) Munakata T. : Kagaku Kogaku, 34, 922 (1970) [ in Japan ese ]
- 19) Scott D.C. and Dullien F.A.L., A.I.Ch.E. Journal, 8, 217 (1962)
- 20) Sears G.W. : J. Chem. Phys., 22, 1252 (1954)
- 21) Hill T.L. : ibid. 25, 730 (1956)
- 22) Higashi K., Ito H. and Oishi J. : J. At. Energy Soc. Japan, 5, 846 (1963)
- 23) Hwang S. and Kammermeyer K. : Can. J. Chem. Eng. 44, 82 (1966)
- 24) Ishida K., Shimokawa J. and Yamamoto Y. : Trans. Faraday Soc., 57, 2018 (1961)
- 25) Haul R.A.W. and Peerbooms R. : Naturwisse, 45, 109 (1958)
- 26) Higashi K., Oya, Oishi J. : J. Nucl. Sci. Techn. Japan, 3, 51 (1966)
- 27) Trawick W.G. and Berman A.S. : TID-4500 (1956)
- 28) Scott D.S. and Dullien F.A.L. : A.I.Ch.E. Journal, 8, 217 (1962)
- 29) Wakao N. and Smith J.M. : Chem. Eng. Sci., 17, 825 (1962)
- 30) Fujita S. et. al. : " Kagaku Kogaku Binran " ( Chemical Engineering Hand Book ), 3rd ed., Maruzen K.K., Tokyo, (1968) [ in Japan ese ]
- 31) Weisz P.B. and Schwartz A.B. : J. Catalysis, 1, 399 (1962)
- 32) Jonson M.F. and Stewart W.E. : ibid., 4, 248 (1965)
- 33) Naylor R.W. and Backer P.O. : A.I.Ch.E. Journal, 1, 95 (1955)
- 34) Fain D.E. and Brawn W.K. : K-1863 (1974)
- 35) Martensson M. : Proc. UN 2nd Int. Conf. on Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva, P/181 (1958)
- 36) Bilous O. and Counas G. : ibid., P/1263 (1963)
- 37) Mikami H., Takashima Y. and Ooyama Y. : Bull. Tokyo Institute of Technology, 54, 99 (1963)
- 38) Ebel R.A. and Pasquier L.P. : A.I.Ch.E. Symp. Series, Nucl. Eng., Part XXIII, 68, 107 (1973)
- 39) Gilliland E.R. and Sherwood T.K. : Ind. Eng. Chem., 26, 516 (1934)

- 40) Higashi K., Doi H. and Saito T. : J. At. Energy Soc. Japan, 12, 649 (1970)
- 41) Blaisdell C.T. and Kammermeyer K. : Chem. Eng. Sci., 38, 1249 (1973)
- 42) Oishi J., Matumura Y., Higashi K. and Iuchi C. : J. At. Energy Soc. Japan, 3, 923 (1963)
- 43) Massignon D. : Proc. UN 2nd Int. Conf. on Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva, P/1266 (1958)
- 44) Weller S. and Steiner W.A. : Chem. Eng. Prog., 46, 585 (1950)
- 45) Weller S. and Steiner W.A. : J. Appl. Phys., 21, 279 (1950)
- 46) Martensson M. : Int. Symp. on the Problems Bearing on the Isotope Separation of Uranium, Turin, CNEN, 147 (1968)
- 47) Isomura S. : Reports I.P.C.R. 51, 157 (1975)
- 48) Isomura S. and Nakane R. : *ibid.*, 52, 68 (1976)
- 49) Osburn J.O. and Kammermeyer K. : Ind. Eng. Chem., 46, 739 (1954)
- 50) Sato K. : "Bussei Josu Keisanho", 6th ed., Marusen K.K., Tokyo, (1972) [ in Japanese ]
- 51) Naruse Y., Matsuda Y., Maruyama Y and Aochi T. : JAERI-M 6501, "Static Characteristics of the Gaseous Diffusion Cascades Consisting of Two-Compartment Diffusers" (1976)
- 52) Naruse Y., Maruyama Y., Aochi T., Higashi K., Yamazaki H. and Daito Y. : JAERI-M 6272, "Studies on Dynamic Behavior of Gaseous Diffusion Plant (1) Square Cascade" (1975)
- 53) Burton D.W. : K-1330, "Equilibrium Time for a Square Plant" (1957)