

JAERI-M

8309

HENDELのメイクアップ系および
精製系の基本設計

1979年7月

戸根 弘人・根小屋 真一・大内 義弘・下村 寛昭
田中 利幸・藤田 久美雄・岡本 芳三

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.

HENDELのメイクアップ系および精製系の基本設計

日本原子力研究所東海研究所高温工学室

戸根 弘人⁺・根小屋真一・大内 義弘・下村 寛昭

田中 利幸・藤田久美雄・岡本 芳三

(1979年6月8日受理)

HENDELは多目的高温ガス実験炉の炉内構造物、中間熱交換器、高温配管などの性能および健全性を実証するため、1981年末の完成を目標に、その設計製作が進められている。この設計・製作にさきだち、HENDELの基本的な全体系統設計、各部系統設計および構成機器設計を行なった。本報告書は、HENDELの主要な構成要素であるメイクアップ系および精製系の構造、構成機器、設計データ、物質収支、熱収支など基本製作設計を遂行する過程で実施された検討内容をまとめたものである。

Design studies on make-up and purification systems of the Helium Engineering Demonstration Loop (HENDEL) .

Hirohito TONE⁺ , Shinichi NEGOYA , Yoshihiro OUCHI , Hiroaki SIMOMURA , Toshiyuki TANAKA , Kumio FUJITA and Yoshizo OKAMOTO. Division of High Temperature Engineering , Tokai Research Establishment , JAERI .

(Received June 8 , 1979)

For completion at the end of 1980 , HENDEL (Helium Engineering Demonstration Loop) is now under design and construction , which will be used to confirm performances of VHTR core components , intermediate heat exchanger and high temperature piping .

Befor beginning the final design of the HENDEL system and components , basic manufacture designs were made of its M₁ and M₂ loops , adapter , test sections , make-up system (Mu) , helium purification system (Mp) , instruments and utilities .

Executing the basic manufacture designs , important elements for the designs such as arrangement , component parts , design data , mass and heat balances have been studied .

In this report , results of the studies on the basic designs of make-up and purification systems are described .

Similar results for other than these systems will be described separately in later reports .

Key words : Helium Loop , HTGR Yype Reactor , Helium Purification , Copper Oxide Bed , Activated Charcoal Bed , Molecular Sieve Bed , Heating Material , Copper Oxide Catalyst , High Temperature Engineering .

+) Division of JMTR Project, Oarai, JAERI

目 次

まえがき	1
1. メイクアップ系 (Mu 系)	2
1.1 Mu 系の機能	2
1.2 Mu 系の構成	2
1.3 Mu 系によるHe の供給および回収	5
1.4 M ₁ , M ₂ , ループ運転時の圧力制御	6
2. ヘリウム精製系 (Mp 系)	17
2.1 Mp 系の設計条件	17
2.2 Mp 系の構成	17
2.3 水素除去方式の選定	21
2.4 Mp 系流量の検討	22
2.5 コールドチャコールベッドの冷却システム	31
2.6 ベッドの容量計算	39
2.7 酸化銅触媒	59
2.8 再生システムの検討	59
2.9 加熱器ヒーター材料と不純物ガス濃度	68

Contents

Introduction	1
1. Helium make-up system (Mu system)	2
1.1 Function of make-up system	2
1.2 Composition of make-up system	2
1.3 Supply and withdrawal of helium	5
1.4 Pressure control of M_1 , M_2 loops	6
2. Helium purification system (Mp system)	17
2.1 Design conditions	17
2.2 Composition of purification system	17
2.3 Removal method of hydrogen impurity	21
2.4 Flow rate of purification system	22
2.5 Cooling system of activated charcoal bed	31
2.6 Capacities of beds	39
2.7 Copper oxide catalyst	59
2.8 Regeneration system	59
2.9 Heating materials and impurity concentrations	68

まえがき

HENDEL (Helium Engineering Demonstration Loop, 大型構造機器実証試験ループ) は多目的高温ガス実験炉の炉内構造物 (燃料体スタック, 炉心黒鉛ブロック, 炉床部構造体), 中間熱交換器, および高温配管などの性能および健全性を実証するため, 1981年末完成を目標に現在その設計製作が進められている。この設計製作にさきだち, HENDEL の基本製作設計を川崎重工業株式会社に委託し, ループの全体系統設計, 各部系統設計および構成機器設計を行なった。HENDELは M_1 ループ, M_2 ループ (M_{2-1} , M_{2-2}), アダプター, テストセクション, メイクアップ系, 精製系, 計測制御系, ユーティリティ系から構成されている。本報告書はHENDELの主要な構成要素であるメイクアップ系および精製系の構造, 構成機器, 設計データ, 物質収支, 熱収支など基本製作設計を遂行する過程で実施された検討内容をまとめたものである。

1. メイクアップ系 (Mu系)

1.1 メイクアップ系 (Mu) の機能

メイクアップ系はHENDELで使用するヘリウムガスの貯蔵、供給、回収およびマザーループ (M_1, M_2)、アダプター、試験部、精製系の圧力制御の機能を有している。メイクアップ系の主要な構成機器は供給ヘッダー、回収ヘッダー、冷却器、レシーバタンク、主圧縮機、高圧ポンベ、低圧ポンベおよび配管弁類などである。メイクアップ系の機能を説明するため、そのフローシートの概要をFig. 1. 1. 1に示す。20°CにおけるHENDEL内のヘリウム装荷量は8000 Nm³で、このヘリウムは高圧ポンベ (2基)、低圧ポンベ (3基) に充填圧力150 kg/cm²Gで貯蔵される。Mu系はマザーループ (M_1, M_2) および精製系 (M_p) と供給、回収ヘッダーを介し配管、弁類で接続されている。高・低圧ポンベのヘリウムガスは2次圧40気圧の減圧弁および供給ヘッダを経て M_1, M_2, M_p の各系に供給される。 M_1, M_2 系の昇温、圧力変動時の回収ヘリウムガスは回収ヘッダー、冷却器 (水冷却) を経てレシーバタンクに一時貯蔵される。レシーバタンクと高・低圧ポンベ間に設置された主圧縮機によってレシーバタンク内のヘリウムガスは150 kg/cm²Gに加圧されて、高圧ポンベまたは低圧ポンベのいずれかに貯蔵される。このように、マザーループ M_1, M_2 系のHeはMu系によって制御され、Heの供給、回収、圧力制御はすべてMu系を介して行なわれる。

1.2 Mu系の構成

フローシートFig. 1. 1. 1に示すように、Mu系は主圧縮機、高圧ポンベ、低圧ポンベ、レシーバタンク、供給ヘッダー、回収ヘッダー、冷却器、および配管弁類から構成されている。これら主要構成機器の詳細を次にのべる。

(1) 主圧縮機

形式は4段式無給油往復動圧縮機で、吸入圧力は0.5 kg/cm²G、吐出圧力は150 kg/cm²Gである。実風量は440Rpmで6 m³/min、所要動力は160 kwである。主圧縮機の曲線をFig. 1. 2. 1に示す。

(2) 高・低圧ポンベ

高圧ポンベは2組、低圧ポンベは3組で、各ポンベの1組は内容積575 ℓの小形ポンベ20本から成るカードルである。小形ポンベの寸法は外径355.6 mm、平均肉厚20.3 mm、長さ8000 mmで、最高充填圧力は150 kg/cm²G、充填ガス容量は80 Nm³である。したがって、各高・低圧ポンベ1組の充填ガス量は1600 Nm³で、全ガス貯蔵量は8000 Nm³である。

(3) レシーバタンク

形式は立形円筒式で容量は3 m³である。設計圧力は45 kg/cm²Gで、 M_1, M_2 ループの回収ヘリウムガスを一時貯蔵し、主圧縮機の吸入側へ一定圧力のHeを供給する機能を有している。

(4) 供給および回収ヘッダー

各ヘッダーともに横形円筒式で容量は0.3 m³、設計圧力は45 kg/cm²Gである。Mu系はこれ

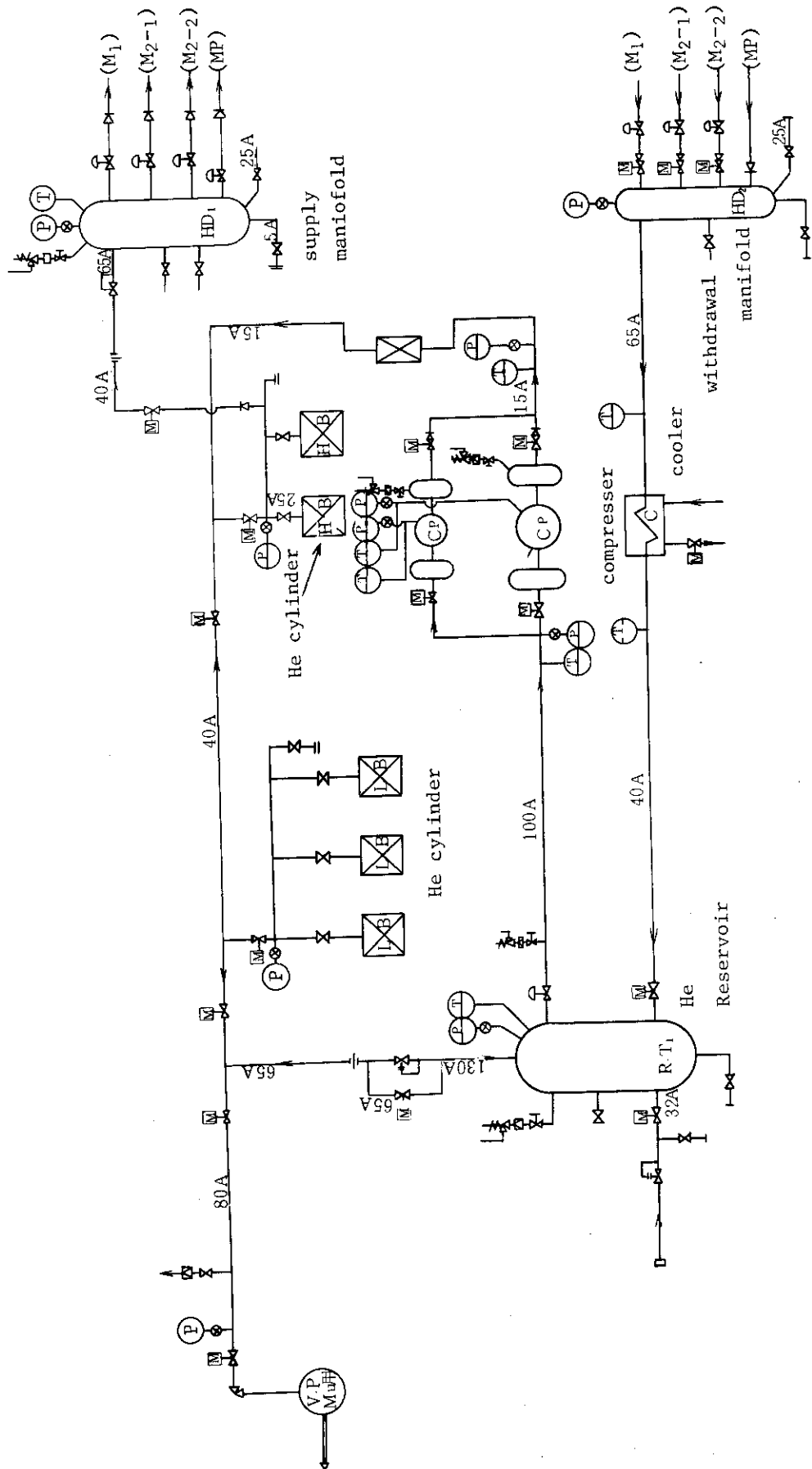


Fig. 1-1-1 Flow sheet of make-up system (Mu)

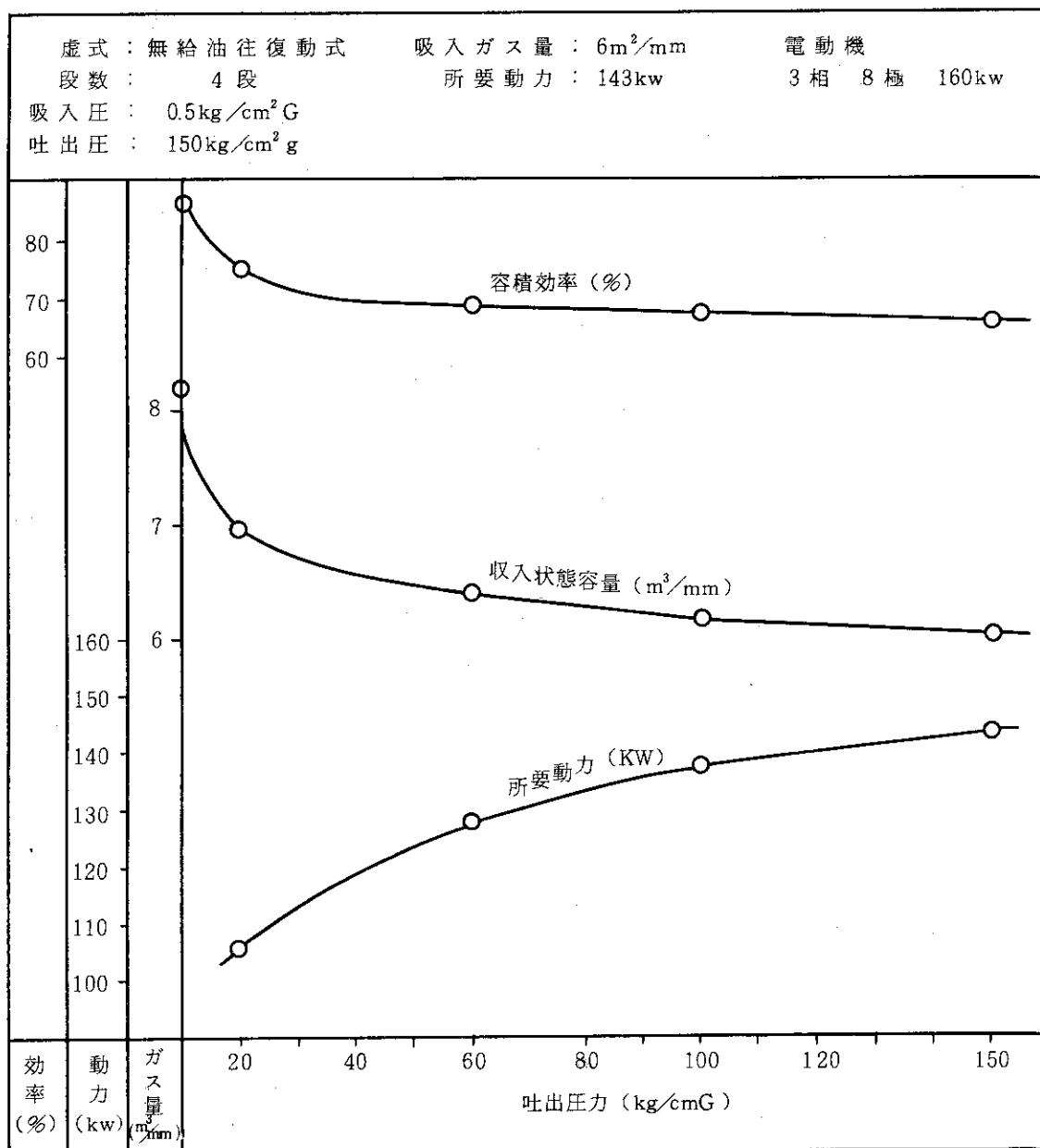


Fig. 1-2-1 Performance curve of He compressure equiped in make-up system.

らの両ヘッダーを介してM₁、M₂、M_p系とつながり、Heの供給と回収を行なう。設計温度は供給ヘッダー-50℃、回収ヘッダー-450℃である。

(5) 冷却器

形式はシエルアンドチューブ形で、水冷却により450℃の回収Heを50℃まで冷却する。冷却器の伝熱容量は1.56 × 10⁵ kcal/hrである。

1.3 Mu系によるHeの供給および回収

M₁、M₂+Aループの起動、昇温、運転および停止時の昇圧、圧力制御、ヘリウム回収などについて検討する(Aはアダプターを示す)。検討の前提条件は、起動前の8000 Nm³のHeはすべて高・低圧ポンベ(計5組)に貯蔵され、M₁ループ、M₂+Aループの内容積はそれぞれ、

$$M_1 \text{ (T/Sを含む)} = 37.5 \text{ m}^3 \text{ (1500 Nm}^3\text{/He)}$$

$$M_2+A \text{ (T/Sを含む)} = 162.5 \text{ m}^3 \text{ (6500 Nm}^3\text{/He)}$$

とする。Mu系の内容積が5組の高・低圧ポンベの内容積に等しいとすれば、

$$\text{カードルの容積} = 10.7 \text{ m}^3$$

$$Mu = 53.5 \text{ m}^3$$

となる。また、圧力、温度の前提条件は、

(A) M₁およびM₂+Aの圧力

運転開始前…………… 1 torr

運転中…………… 40 kg/cm²G

(B) Muの圧力

運転開始前…………… 150 kg/cm²G

(C) 各系の温度

(i) M ₁ ループ	初期	20℃
	運転中	400℃
(ii) M ₂ ループ	初期	20℃
	運転中	400℃
(iii) Mu系	常時	20℃

とする。HENDELの運転モードは多数あるが、ここでは「M₁+M₂の同時起動」、「M₂400℃運転中にM₁を起動」、「M₁+M₂の同時昇温」の代表的な3ケースについて各系の圧力の時間変化を検討する。

(1) M₁+M₂の同時起動の場合

高圧ポンベ(HB)、低圧ポンベ(LB)の圧力150 kg/cm²G、M₁、M₂圧力1 torrの状態からHB、LBのHeをM₁+M₂に充填する。約31 kg/cm²Gの圧力でLB、HB、M₁、M₂は均圧となる。次に主圧縮機によって、LB中のHeをHBに移送する。このとき、HBの圧力は最高79 kg/cm²Gとなる。HBの79 kg/cm²GのHeをM₁、M₂に均圧になるまで充填すると約37 kg/cm²Gとなる。この状態からHBの残留Heを主圧縮機によって昇圧し、M₁+M₂ループに充填することはできない。このため、M₁+M₂同時起動の運転モードでは、ループ内圧力は20℃で約37 kg/cm²G

cm²Gとなり、この圧力からループ昇温に移ることになる。これらの詳細をFig. 1. 3. 1に示す。

(2) M₂ 400 °C運転中にM₁を起動する場合

圧力変動の詳細をFig. 1. 3. 2に示す。M₂は400 °Cで運転され、このときLBの圧力は52 kg/cm²G、HBの圧力は150 kg/cm²Gである。HBのHeをM₁の起動に使用したとき、M₁の圧力40 kg/cm²GでHBは80 kg/cm²Gとなる。次に、主圧縮機によってLBのHeをHBに150 kg/cm²Gの圧力まで移送する。このとき、LBの圧力は16 kg/cm²Gである。

(3) M₁ + M₂の同時昇温の場合

M₁、M₂の圧力37 kg/cm²Gから昇温を開始する。系の圧力は40.4 °Cで40 kg/cm²Gとなるので、これ以後の昇温によって膨張するHeは主圧縮機を用いてHB、及びLBに回収する。M₁、M₂のHe温度が400 °Cに達したとき、HBの圧力は150 kg/cm²G、LBの圧力は25 kg/cm²Gである。Fig. 1. 3. 3にその詳細を示す。

1.4 M₁、M₂ループ運転時の圧力制御

Mu系の重要な機能に、M₁、M₂ループ運転時の圧力制御がある。これらループ運転時の圧力変動外乱の要因には、

- (A) ヘリウムの温度変動および温度サイクル。
- (B) 精製用ヘリウムの出入り変動。
- (C) 不純物分析用ヘリウムの流出。
- (D) 実験上の圧力サイクル。

などがある。Mu系による圧力制御は供給・回収ヘッダーおよび制御弁によって行なわれる。ここでは、圧力制御弁の容量、形式と制御性能の検討結果について記載する。

1.4.1 ヘリウムの供給および回収による圧力変動

ループの容積(V₀)および温度(T)が一定のとき、ΔWkg/minのHeの出入りがあり、これによってループの圧力が微小変化(ΔP)したとき、次式が成立つ。

$$\frac{\Delta P}{P_0} = \frac{\Delta n}{n_0} \quad (1.1)$$

ここで、

P₀ = ループの初期基準圧力 (kg/cm²)

n₀ = ループ内ヘリウムのモル数 (mole)

V₀ = ループ内容積 (m³)

T = ループのヘリウム温度 (°K)

V = ループ内ヘリウム量 (Nm³)

W = ヘリウム量変化速度 (kg/min)

とすると、

$$n_0 = \frac{V \times 10^3}{22.4} \quad (1.2)$$

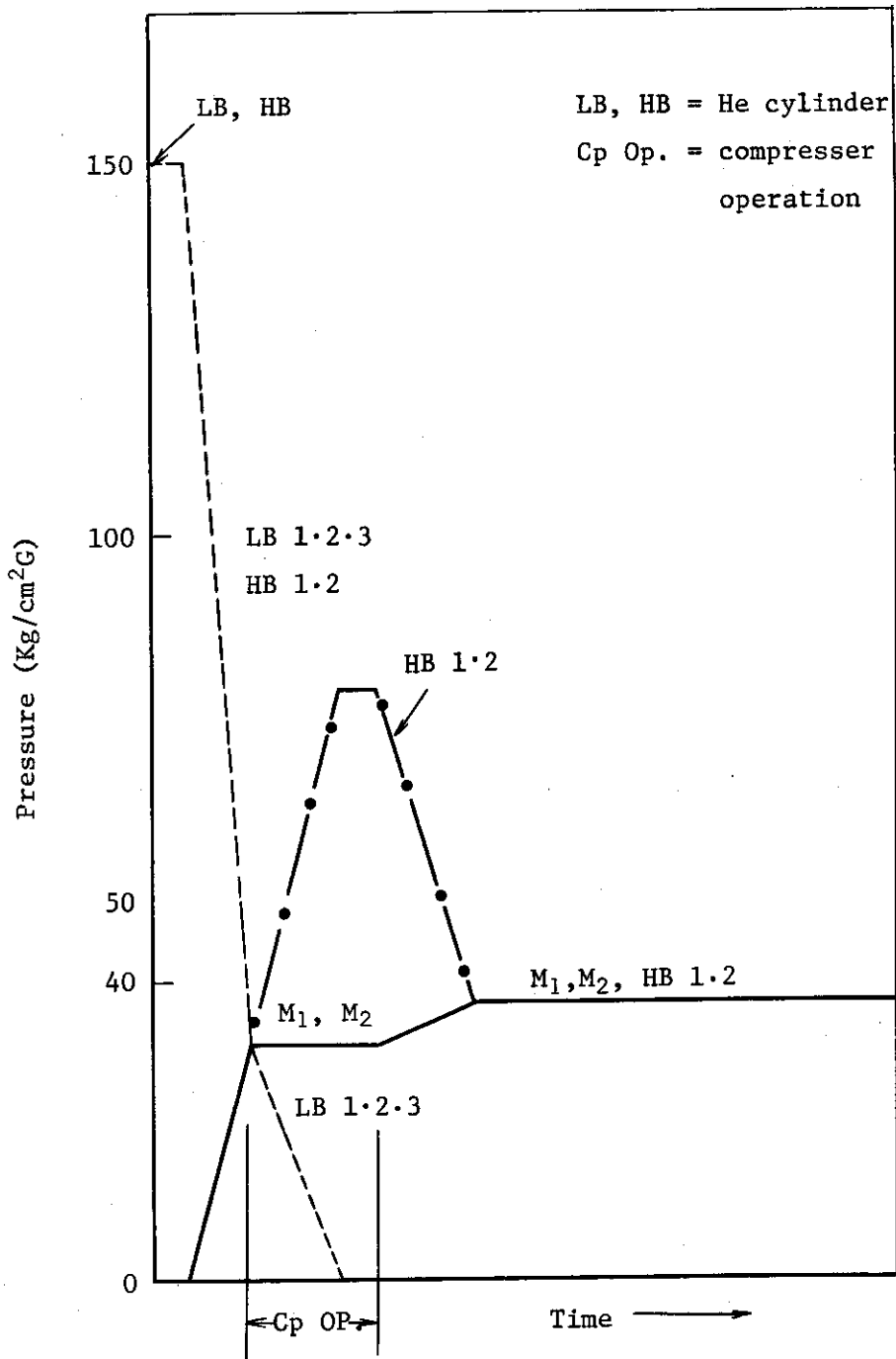


Fig. 1-3-1 Pressure in helium cylinder and loops on starting simultaneously operation of M₁ and M₂ loops.

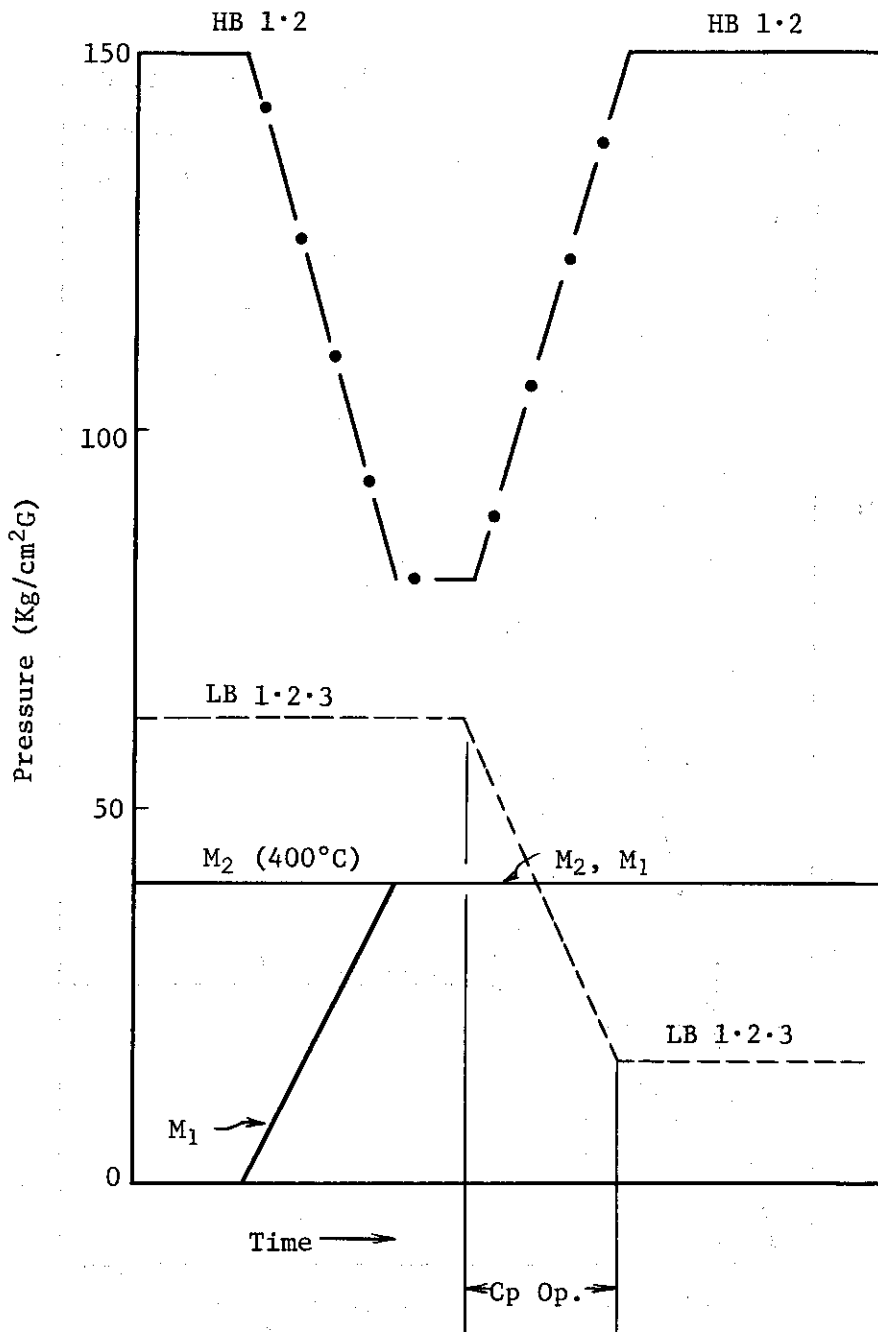


Fig. 1-3-2 Pressure in helium cylinders and loops on starting M₁ loop through M₂ loop operation at 400°C.

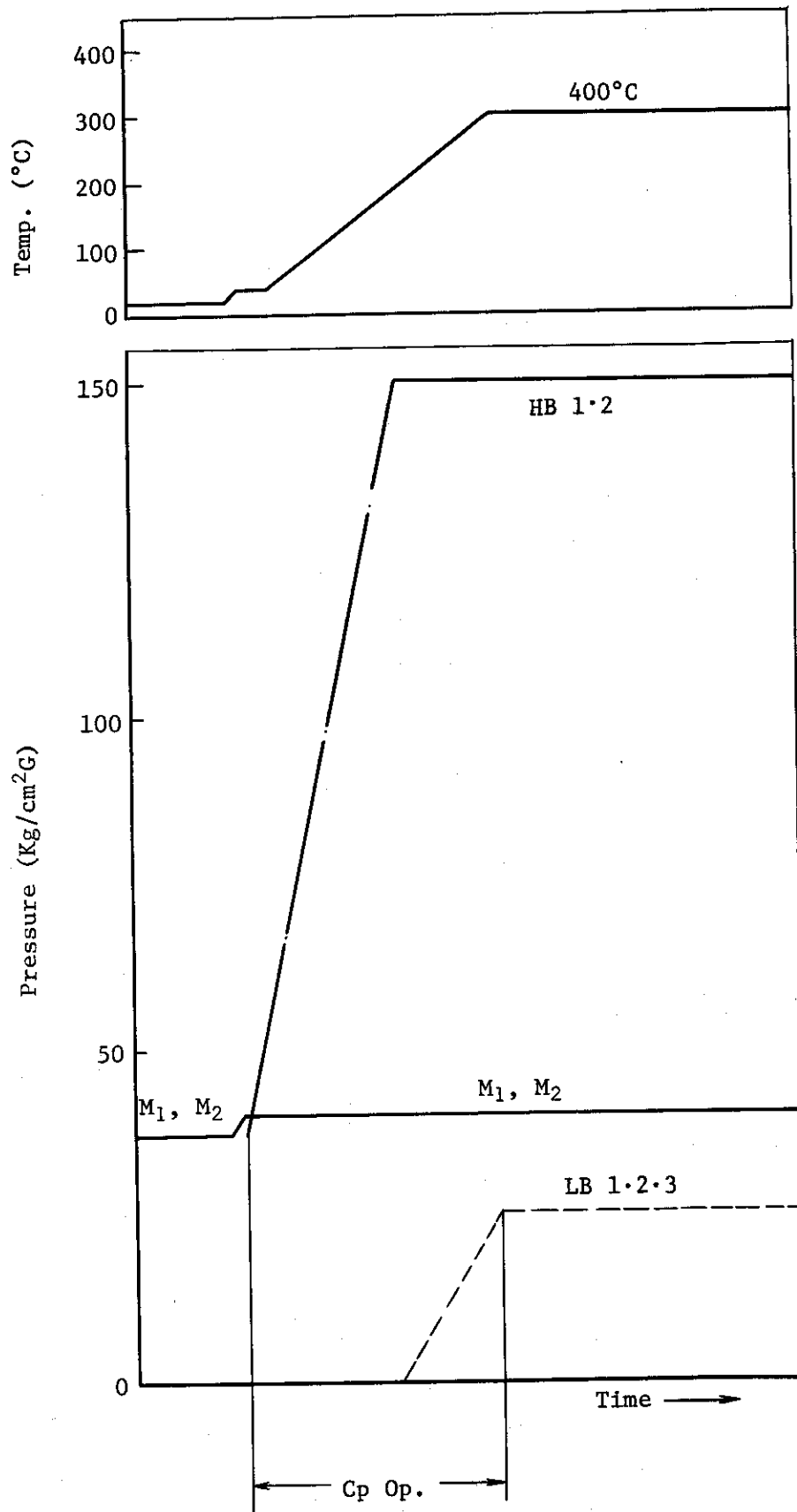


Fig. 1-3-3 Pressure in helium cylinders and loops on heating simultaneously M₁ and M₂ loop

$$\Delta n = \frac{\Delta W \times 10^3}{4} \quad (1.3)$$

したがって、(1.1)式より

$$\frac{\Delta P}{P_0} = \frac{22.4 \Delta W}{4 V} \quad (1.4)$$

となる。M₁, M₂ ループのΔW, V, P₀の種々のケースについてΔPを計算しTable 1.4.1に示した。

Table 1.4.1のM₁+T₁(T₁は試験部)の欄に示したΔW 0.15kg/minは1分間あたりの精製系流量の10%に相当する(25g/sec × 60 × 0.1 = 0.15kg/min)。同じくM₂+A+Tの0.45kg/minはM₂ループの精製系流量(75g/sec × 60)の10%に相当する。また、同表M₂の欄の1982Nm³はヘリウム平均温度700°Cにおける装荷量をNm³で表わした値である。

M₁, M₂ループの圧力許容変動巾が40kg/cm²Gの±1%, 供給制御弁の動作範囲が39.6kg/cm²G(弁開)から39.9kg/cm²G(弁閉), 回収制御弁の動作範囲が40.1kg/cm²G(弁閉)から40.4kg/cm²G(弁開)としたときの外乱要因に対するM₂ループの圧力変動を調べFig. 1.4.1に示した。Fig. 1.4.1の実線は、精製流量に10%の出入変動があり(減圧側に移行)ヘリウムの出入流量差が-0.45kg/min(75g/sec × 60 × 0.1)の場合、破線はM₂ループの出入り流量差が+0.15kg/minにおける圧力変動である。Fig. 1.4.1に示すように弁の動作範囲が±0.3kg/cm²のとき、ループ内ヘリウム装荷量の増減はM₁ループで4.9Nm³, M₂ループで14.9Nm³となる。

1.4.2 ヘリウムの温度制御による圧力変動

ループ運転中、ヘリウム温度は計測制御系によって制御されるが、その制御巾は現在の制御技術では設定値の±0.5%である。この±0.5%の温度制御巾によって生ずる圧力変動とヘリウム供給・回収制御弁との関連を検討する。

ループの初期基準温度 = t₀ °C

ループの初期基準圧力 = P₀ kg/cm²G

ループの温度変動巾 = Δt °C

ループの温度変化後の圧力 = P kg/cm²

とすると、

$$P = \frac{P_0 (t_0 + \Delta t + 273)}{(273 t_0)} \quad (1.5)$$

ここで、Δtは設定温度の±0.5%とする。設定温度300, 400, 600および700°CのP/P₀をもとめTable 1.4.2に示した。最も厳しい700°Cの温度変動巾は±3.5°Cで、このとき圧力変動巾は±0.36%である。したがって、温度制御精度が±0.5%であればすべての温度範囲で温度制御巾による圧力変動は圧力許容変動巾(圧力設定値の±1%)の中に入る。

Table 1.4.1 Pressure change through normal operation of M₁ and M₂ loop

圧力変動要因		Temp.	ΔW	P _o	V	ΔP
		°C	kg/min	kg/cm ²	Nm ³	kg/cm ² /min
M ₁ +	精製用ヘリウムの出入差 (ループへの戻りが約10%減)	400	-0.15	40	655	-0.0513
	T ₁ 不純物分析用ヘリウムの 放出(約500ℓ/min)	400	-0.05	40	655	-0.0172
M ₁ +	精製用ヘリウムの出入差 (ループへの戻りが約10%減)	400	+0.15	40	218	+0.154
	T ₁ 不純物分析用ヘリウムの 放出(約500ℓ/min)	400	+0.05	40	218	-0.0513
M ₂ +	精製用ヘリウムの出入差 (ループへの戻りが約10%減)	700	-0.45	40	1982	-0.0508
	A +					
T	M ₁ 用精製ヘリウムの出入 差をM ₂ で吸収する場合	700	+0.15	40	1982	+0.0171

外乱要因		ループのHe インベントリー	ヘリウム 出入差量
精製流量の出入 変動 (~ 10%)	——	6500 Nm ³	- 0.45 Kg/min
M ₁ 精製流量の出入差 を M ₂ で吸収する場合	----	6500 Nm ³	+ 0.15 Kg/min

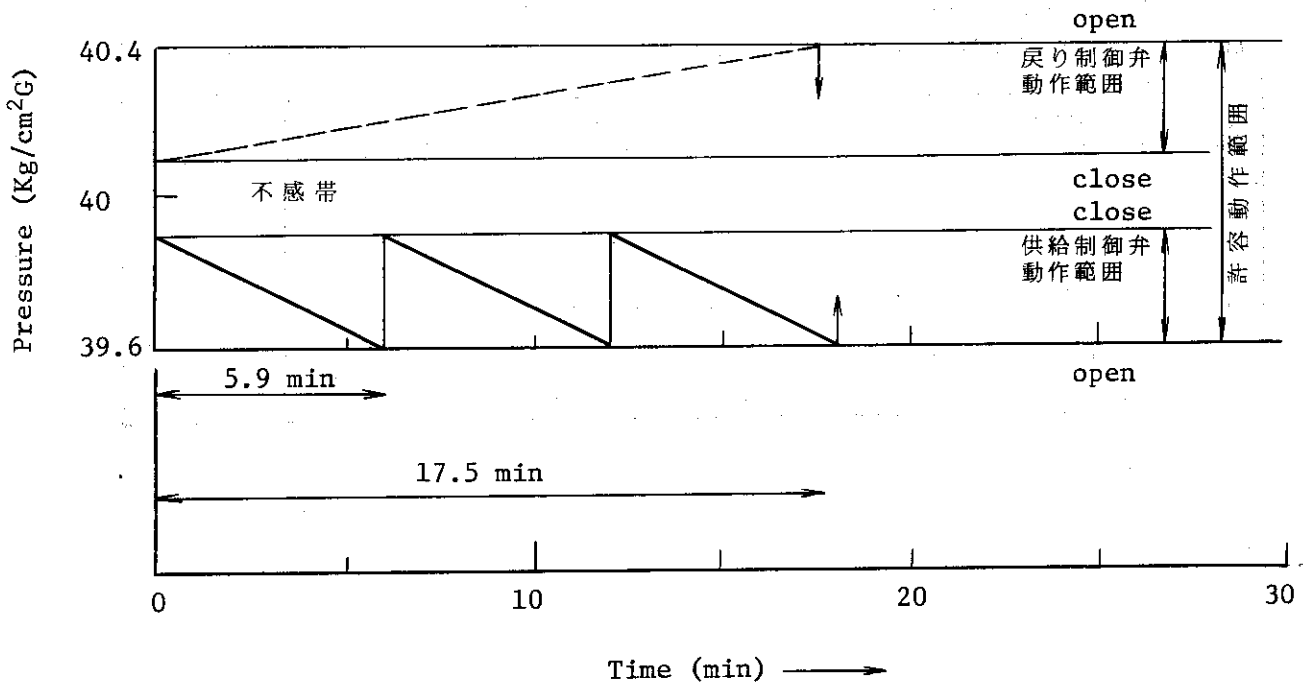


Fig. 1-4-1 Pressure change of M₂ loop resulting in the accuracy of pressure control.

1.4.3 圧力変動時の圧力制御

ループが定常の運転温度で運転されているとき、系の圧力がサイクル状に変動したとして、Mu系を出入りするHe量、制御弁の制御性を検討する。系の内容積および温度が一定とすれば、圧力変化 ΔP における系内のヘリウム量の変化 Δn (moles)は、(1.1)式より、

$$\Delta n = \frac{\Delta P}{P_0} n_0$$

Δn および n_0 を標準状態の体積(Nm³)で表わすと、

$$\Delta V = \frac{\Delta P}{P_0} V_0 \quad (1.6)$$

ここで、

ΔP = 圧力変動速度 (kg/cm²/min)

P_0 = 初期基準圧力 (kg/cm²)

V_0 = 初期ループ内ヘリウム量 (Nm³)

ΔV = ヘリウム量の変化速度 (Nm³/min)

M₁, M₂ループの圧力が±5 kg/cm²/minの速度で変化したときのMu系を出入りするHe量をもとめTable 1.4.3に示す。He量の変化速度はM₁で±81.9 Nm³/min, M₂で±247.8 Nm³/minとなる。

1.4.4 温度変動時の圧力制御

ループが定常の運転圧力で運転されているとき、系の温度がサイクル状に変動したとしてMu系を出入りするHe量を検討する。系の圧力、内容積が一定とすれば、

$$nT = \text{const}$$

ここで、 n = ヘリウムのモル数

T = ヘリウム温度 (°K)

ΔT の温度変化により Δn モルのHe量の変化が起るとすれば、

$$(n - \Delta n)(T + \Delta T) = \text{const}$$

したがって

$$\frac{(n - \Delta n)(T + \Delta T)}{(nT)} = 1 \quad (1.7)$$

が成立つ。(1.7)式より Δn は

$$\Delta n = \frac{n\Delta T}{T + \Delta T}$$

Δn を標準状態の体積で表わすと、

$$\Delta V = \frac{V \Delta T}{T + \Delta T} \quad (1.8)$$

ここで、

ΔT = 温度変化速度 ($^{\circ}\text{C}/\text{min}$)

T = ヘリウム温度 ($^{\circ}\text{K}$)

V = ヘリウム量 (Nm^3)

ΔV = ヘリウム変化速度 (Nm^3/min)

M_1 , M_2 ループの温度が $100^{\circ}\text{C}/\text{min}$ の速度で変化したときの Mu 系の He 出入速度をもとめ Table 1.4.4 に示した。平均温度 400°C で運転中の M_1 ループ温度が $100^{\circ}\text{C}/\text{min}$ で変動したとき M_1 ループを出入する He 量は $79.6 \text{ Nm}^3/\text{min}$ である。また、平均温度 700°C で運転中の M_2 ループの温度が同じく $100^{\circ}\text{C}/\text{min}$ で変動したとき、 M_2 ループを出入する He 流量は $240.7 \text{ Nm}^3/\text{min}$ となる。

1.4.5 制御弁の容量

以上の検討結果をもとに Mu と M_1 , M_2 ループ間の He 供給・回収用制御弁の容量の検討を行なう。 M_1 , M_2 ループの定常運転時および圧力、温度の予想される急激な変動時に系を出入する He 速度をまとめ Table 1.4.5 に示した。 M_1 ループ定常運転時の He の出入量は 0.84 から $1.94 \text{ Nm}^3/\text{min}$ 、圧力温度変動時の He 出入量は $80 \text{ Nm}^3/\text{min}$ となる。したがって、Mu - M_1 間の供給・回収制御弁の最大容量は He 量最大出入量 $80 \text{ Nm}^3/\text{min}$ の約 20% 増の $100 \text{ Nm}^3/\text{min}$ にする必要がある。次に、 M_2 ループ定常運転時の He の出入量は $2.5 \text{ Nm}^3/\text{min}$ から $7.14 \text{ Nm}^3/\text{min}$ 、圧力温度変動時の He 出入量は最大 $250 \text{ Nm}^3/\text{min}$ となる。したがって、Mu - M_2 間の供給・回収制御弁の最大容量は He 最大出入量 $250 \text{ Nm}^3/\text{min}$ の約 20% 増の $300 \text{ Nm}^3/\text{min}$ にする必要がある。

Table 1.4.2 Pressure change of M₁ and M₂ loop resulting in accuracy of temperature control

Temp.	Press	Δt	P	P/P ₀
t ₀ (°C)	P ₀ (kg/cm ²)	°C	kg/cm ²	%
700	40	±3.5	+40.144 -39.856	±3.6
600	40	±3	+40.137 -39.863	±0.34
400	40	±2	+40.118 -39.881	±0.3
300	40	±1.5	+40.105 -39.900	±0.3

Table 1.4.3 Performance of pressure control at ±5 kg/cm² of pressure change per minute

Loop	t	ΔP	P ₀	V ₀	ΔV
	°C	kg/cm ² /min	kg/cm ²	Nm ³	Nm ³ /min
M ₁ (M ₁ + T ₁)	400	±5	40	655	±81.9
M ₂ (M ₂ + A + T)	700	±5	40	1982	±247.8

Table 1.4.4 Performance of pressure control at 100°C of temperature change per minute

Loop	t	ΔT	T ₀	V ₀	ΔV
	°C	°C/min	°K	Nm ³	Nm ³ /min
M ₁ (M ₁ + T)	400	-100	637	655	+79.6
M ₂ (M ₂ + A + T)	700	-100	973	1982	+240.7

Table 1.4.5 Pressure control capacity of make-up system for M₁ and M₂ loop

	圧力変動要因	ループ	Temp ℃	Press kg/cm ² G	V Nm ³	ΔP kg/cm ² /min	ΔV Nm ³ /min	備考
定常運転時	精製用Heの出入差による圧力変動(戻りが約10%減)	M ₁ +T	400	40	655	-0.0513	0.84	
		M ₂ +A+T	700	40	1982	-0.0508	2.5	
	温度制御巾(±5%)による圧力変動	M ₁ +T	400	40	655	±0.118	1.94	±5%の温度制御巾が1 minで生ずると仮定
		M ₂ +A+T	700	40	1982	±0.144	7.14	"
圧力・温度変動時	圧力のサイクル変動	M ₁ +T	400	40	655	±5	± 81.9	
		M ₂ +A+T	700	40	1982	±5	±247.8	
	温度のサイクル変動	M ₁ +T	400	40	655		± 79.6	±100℃/minの変動
		M ₂ +A+T	700	40	1928		±240.7	"

2. ヘリウム精製系 (M_p系)

2.1 精製系の設計条件

精製系 (M_p系) はマザーループ (M₁, M₂ループ), アダプターおよび各試験部 (T₁~T₄) のヘリウム冷却材を精製するために設置される。M_p系は使用圧力 40 kg/cm²G, 最大流量 100 g/sec で設計され, M₁, M₂ループ定常運転時のヘリウム冷却材の全不純物ガス濃度は 10ppm 以下に維持される。M₁ループおよびM₂ループからM_p系へのバイパス流量はそれぞれ 25 g/sec および 75 g/sec で, これらの流量配分はM₁, M₂ループのヘリウム装荷量から決められた。100 g/sec の精製系流量は 2000 Nm³/hr の流量となり, この流量は HENDEL の全 He インベントリ 8000 Nm³ の 25% に相当する。M_p系の不純物除去装置は酸化銅ベッド (CuOベッド), モレキュラーシーブベッド (M.S.ベッド) およびチャコールベッド (A.C.ベッド) から構成され, これらの各ベッドはM_p系入口からCuOベッド, M.S.ベッド, A.C.ベッドの順に配置される。He冷却材に含まれる不純物ガスのうちH₂とCOはCuOベッドで酸化されてH₂O, CO₂になり, M.S.ベッドでH₂OとCO₂を吸着除去し, 最後に-196℃に冷却されたA.C.ベッドでO₂, N₂, CH₄, などの残留不純物ガスを吸着除去する。Table 2.1.1にM_p系の設計条件と各ベッドの容量決定に必要な入口および出口不純物ガス濃度の値を示している。Fig. 2.1.1にM_p系のフローシートを示す。M_p系の精製ラインは2チャンネルから成り, 運転と再生が交互に切換えられて行なわれる。各チャンネルの運転と再生の切換時間は運転 72時間/再生 24時間で, この運転, 再生操作は計算機制御によって自動切換自動運転できるよう設計される。更に, 再生操作を効率よく経済的に行なうため3ベッド (CuO, M.S., A.C.ベッド) が同時に再生できるよう設計される。また, M_p系はマザーループM₂の運転圧力に合わせて運転されるが, 将来マザーループM₁がM₂より低い圧力で運転されてもM₁の精製運転が可能となるような改造を考慮してM_p系は設計される。次に, A.C.ベッド冷却のため多量の液体窒素が使用されるが, この液体窒素の消費量を 100 ℓ/hr以下に維持するため補助のフロン冷却機を設けM.S.ベッドの入口ガス温度を 10℃に制御できるよう設計される。M_p系に水分計, 酸素計, プロセスガスクロマトグラフ, ガスマス分析計を設置し, M_p系各部の不純物ガス濃度の測定, ならびにマザーループM₁, M₂, アダプター, ならびに試験部など HENDEL 主要個所の不純物ガス濃度の分析を行なう。分析ラインのフローシートを Fig. 2.1.2 に示す。

2.2 M_p系の構成

Fig. 2.1.1 に示すように, HENDEL の M_p 系は 3 種の不純物除去ベッドとガス循環機, 加熱器, 補助フロン冷却機, 熱交換器, 液体窒素タンク, 再生装置, ガス分析計, 計測制御機器などから構成される。HENDEL の M_p 系は水素除去に CuO ベッドを採用したが Ti スポンジベッド方式を採用するところの M_p 系の構成も変わってくる。CuO ベッドおよび Ti スポンジベッド共に一長一短があるが, 両者の寿命, 再生頻度, 使用再生温度などの比較検討結果にもとづいて HENDEL では CuO ベッドを採用した。これらの詳細については他の章に記載される。次に, M_p の主要機器の詳細について述べる。

Table 2.1.1 Design conditions of He purification system (M_p)

Fluid	He gas
Design Press.	45 kg/cm ² G
Operating Press.	40 kg/cm ² G
Flow rate	100 g/sec
Inlet concentration of impurity (vol. ppm)	H ₂ O < 100, O ₂ < 10, N ₂ < 50, H ₂ < 10 CO ₂ < 10, CO < 10, CH ₄ < 5, CmHn < 15
Outlet concentration of impurity (vol. ppm)	H ₂ O < 0.1, O ₂ < 0.1, N ₂ < 0.1, H ₂ < 0.2 CO ₂ < 0.1, CO < 0.1, CH ₄ < 0.2, CmHn < 0.2
He Inventory	8000 Nm ³
Operation/Regeneration Period	Operation 72hr/Regeneration 24 hr

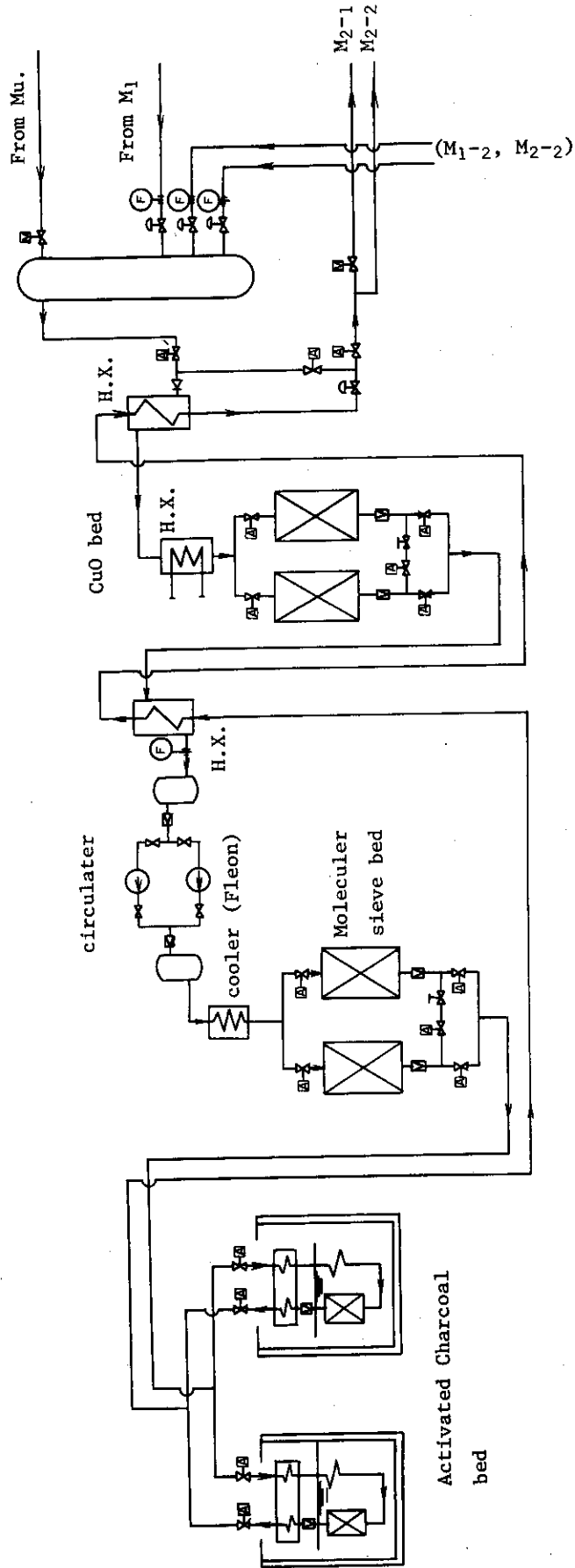


Fig. 2-1-1 Flow sheet of purification system (Mp)

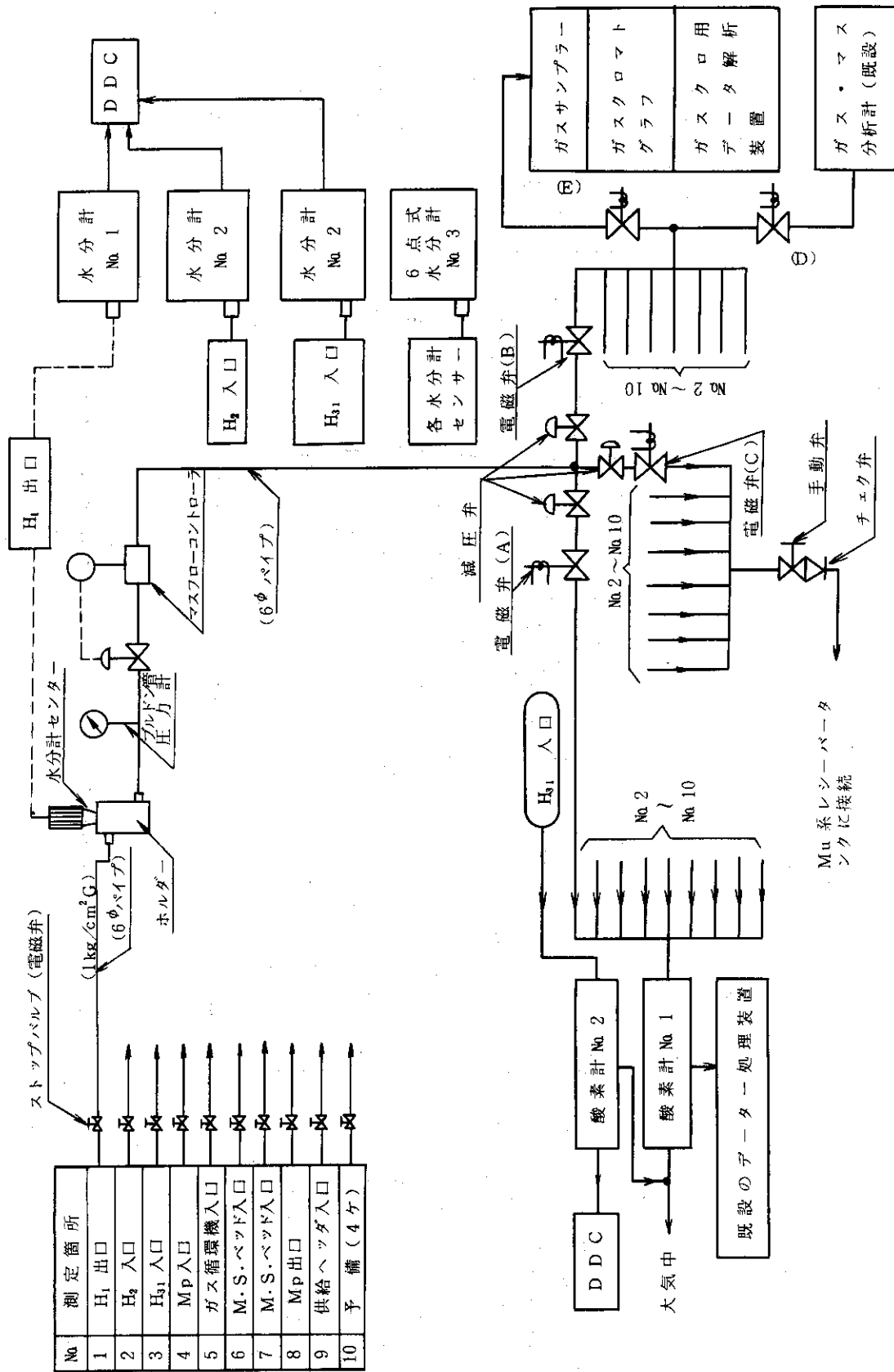


Fig. 2-1-2 Impurity analytical system.

(1) 酸化銅ベッド (CuO ベッド)

形式は縦型円筒式で、使用温度は 300 °C である。ベッドの温度制御精度は水素の除去性能に影響を与えるので、使用温度は ±10 °C に制御される。充填材はペレット状に成形された酸化銅触媒または銅触媒で、銅触媒は酸化状態で使用される。充填材はメーカー、形式、成分などで物理的、化学的性質が異なるため、M_p 系に最適した充填材をえらぶ必要がある。再生温度は充填材の形式によって異なり 200 °C から 300 °C の範囲である。

(2) モレキュラーシーブベッド (M. S. ベッド)

モレキュラーシーブの H₂O, CO₂ に対する比吸着量を増加させるため、M. S. ベッドは 10 °C で使用される。また、M. S. ベッドを 10 °C に冷却することにより A. C. ベッドの液体窒素消費量を大巾に減少させることができる。充填材には M. S. - 5 A 型を使用するが、M. S. - 13 X 型なども使用できる。モレキュラーシーブの再生温度はどの型についても 300 °C から 350 °C の範囲であるが、M_p 系では 300 °C ± 10 °C の再生温度とした。

(3) チャコールベッド (A. C. ベッド)

形式は縦型円筒式で、使用時は液体窒素によって -196 °C に冷却される。充填材はヤシ殻活性炭 (破碎炭)、成形炭などであるが、窒素、酸素の平衡吸着量が大きく、物理的強度の強い充填材を選択する必要がある。再生温度は 150 °C ± 10 °C である。

(4) ガス循環機

形式は一段縦型無給油式で、流量 100 g/sec, 吸込吐出圧力はそれぞれ 40 kg/cm²G および 45 kg/cm²G である。電動機出力は約 30 KW である。

(5) 液体窒素タンク

容量 10 m³ の液体窒素タンクを設置し、3 kg/cm²G の吐出圧で A. C. ベッドに液体窒素を供給する。M_p 系の液体窒素消費速度は 60 l/hr であるから、その貯蔵量は M_p 系消費量の約 7 日分に相当する。

(6) モレキュラーシーブ冷却器

形式はシエルアンドチューブ型で 1 次側は He, 2 次側はフロンガスである。補助冷却機で 5 °C に冷却されたフロンガスが 1 次側の He ガスを 23.4 °C から 10 °C に冷却する。この冷却器の容量は 10 KW である。

(7) 再生熱交換器

高温、中温、低温用三基の再生熱交換器が M_p 系に設置される。高温用再生熱交換器は容量 135 KW で A. C. ベッド出入口ガスの熱交換を行なう。

以上の主要機器のほかに、サージポリウム、加熱器、再生用ガス加熱器、ガス分析装置などが M_p 系に設置されている。

2.3 水素除去方式の選定

チタンスポンジまたは CuO が He 冷却材に含まれる H₂ の除去に最もよく使用されている。このほか、パラジウム触媒を用いて H₂ と O₂ を反応させて H₂O とし、この H₂O を吸水剤で除去する方法もあるが、H₂ と O₂ が化学量論的に存在しない場合には完全な除去が困難であるため、あまり使用されていない。チタンスポンジは 400 °C で多量の H₂ を吸収するが、この時 O₂, N₂ が存

在すると酸化物および窒化物を生成し H_2 の吸収能が低下する。このため、チタンスポンジを用いた H_2 精製システムでは、チタンスポンジベッドは精製システムの最終段に設けられ、システムの前段で O_2 、 N_2 が十分に除去される。Fig. 2.3.1にチタンスポンジを用いた代表的な H_2 精製システムを示す。CuOベッドを用いたHe精製システムでは、 H_2 およびCOをCuOで酸化し、生成した H_2O 、 CO_2 は吸水剤で除去される。したがって、この精製システムではCuOベッドがシステムの最前段に設けられる。Fig. 2.3.2にCuOベッド方式のHe精製システムを示している。次に、HENDELの精製装置としてCuOベッド方式とチタンスポンジ方式のいずれを採用すべきかについては議論のわかれるところであった。現在までに製作された高温ガスループおよび高温ガス炉のCuOならびにチタンスポンジの使用実績をしらべると、CuOベッド方式の実施例として

- (1) Turret Reactor (ロスアラモス研究所)¹⁾
- (2) Dragon Reactor²⁾
- (3) Peach Bottom Reactor³⁾
- (4) GAIL (ガスループ)⁴⁾

があり、チタンスポンジベッド方式の実施例として、

- (1) Fort St. Vrain⁵⁾
- (2) OGL-1⁶⁾

などがある。これらの原子炉およびガスループでCuOまたはTiが用いられた理由は明確ではない。このため、HENDEL精製システムの決定にあたり、実績、運転操作性、コスト、などについて比較検討を行ないTable 2.3.1に示した。Table 2.3.1の評価項目は十分とはいえないが、この比較表によるかぎりチタンスポンジとCuOの両者間に有意な差は認められない。強いてその差を引き出すとすれば、CuOの再生温度がTiより低く、寿命も長いという2点である。HENDELではこの2点の有意な差にもとずき、CuO触媒方式が採用された。ただし、ここで注意すべきことは、メーカーおよび触媒の型式によってCuO触媒の特性が異なることである。また、製作されている各種CuO触媒のすべてが十分な使用実績をもっているわけではない。HENDELの精製系では日産ガードラー(株)製のT-366型酸化銅触媒を使用する予定であるが、この触媒についてもHENDELでの使用経験を経てその詳細な特性が明らかになるであろう。

2.4 精製系流量の検討

M_p 系流量については、次の二つのケースについて検討を行ないHENDELのいかなる運転状態においても不純物ガス濃度が10ppm以下に維持されることを確認する必要がある。すなわち、

- (1) 初期不純物ガス濃度 (Table 2.1.1) がHENDELの昇温開始前の12時間以内に許容濃度以下になることの確認、
- (2) M_1 、 M_2 ループの起動、昇温にいたる過程で、不純物ガス濃度が許容濃度以下に維持されることの確認、

である。許容不純物ガス濃度は、

Total	10 ppm以下
H_2O	5 ppm以下

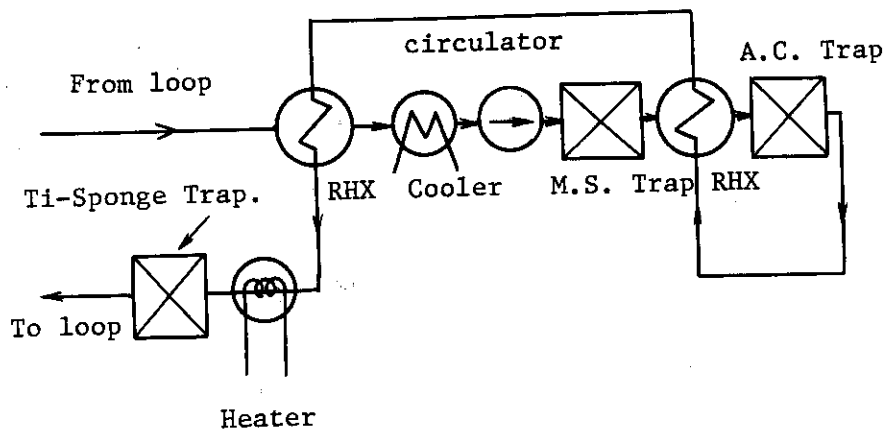


Fig. 2-3-1 He purification system by use of Ti sponge bed.

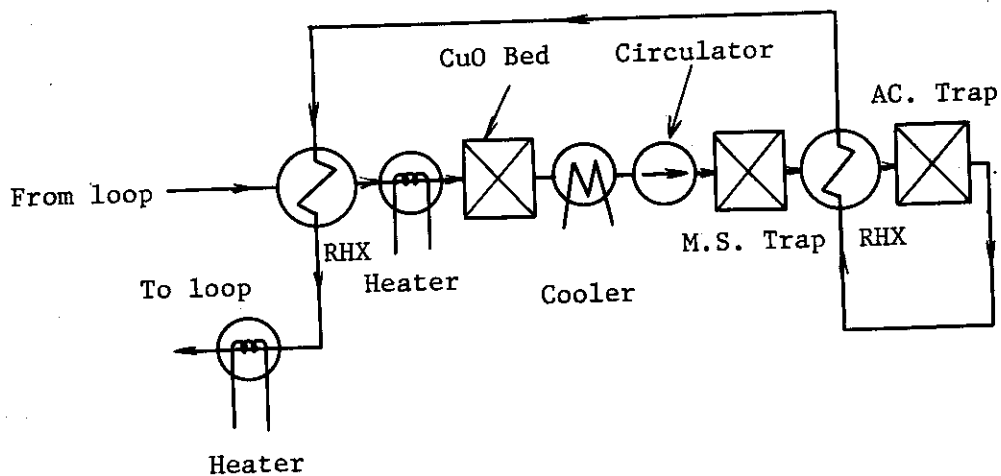


Fig. 2-3-2 He purification system by use of CuO-bed.

Table 2.3.1.1 Comparison between CuO and Ti sponge bed (1/2)

評価項目	Ti Sponge	CuO catalyst	備考
1. 使用実績	2	4	使用されたCuOの種類は不明
2. 設計データ量	平均径1.5 mm ϕ のTi Spongeの設計データ有り	各CuO触媒について設計データをもとめる必要あり	
3. 運転・操作性	通常のプラントと同じ	通常のプラントと同じ	
A. 運転性 (運転の難易度)	通常のプラントと同じ	通常のプラントと同じ	
B. 再生操作	通常のプラントと同じ	通常のプラントと同じ	
C. 保守	① 加熱ヒーターの断線 ② バルブのシート漏れ 易しい, 定検時	① 加熱ヒーターの断線 ② バルブのシート漏れ 易しい, 定検時	
(1) 発生しやすい故障場所			
(2) 消耗品交換の難易とその回数			
4. コスト	1	1.02 ~ 1.3	
A. 製造コスト			
B. 運転コスト			
(1) 再生時のページHe量とコスト/回数	9.9 Nm ³ , 22,000	9.2 Nm ³ , 14,000	
(2) ヒーター出力	20 KW	23 ~ 34 KW	
(3) 再生時の消費ガス量	なし	N ₂ 240 Nm ³ , O ₂ 3 Nm ³	
(4) 充填剤消耗量	なし	なし	
(5) 充填剤入手の容易性	即納	納期 1 ~ 3ヶ月	

Table 2.3.1 Comparison between CuO and Ti sponge bed (2/2)

評価項目	Ti Sponge	CuO catalyst	備考
5. 性能			
A. 吸収, 酸化特性			
(1) 静的, 動的に関するデータ	平衡吸収量, 総括容量係数	反応速度定数, CuO利用率, 水蒸気の効果	Ti-Spongeの静的, 動的データの方がCuOより多い
(2) 最適操作温度	400 °C	300 °C	Tiについては550 °Cという報告もある
(3) 最低水素分圧	6.23×10^{-3} Torr以下	6.05×10^{-3} Torr以下	分析計の検出感度による
6. 再生			
A. 必要真空度	0.1 Torr以下	0.1 Torr	Ti-Spongeの再生には 10^{-3} Torrが必要
B. 再生ガスの種類	真空再生	N_2 (97%) + O_2 (3%)	
C. 再生ガス量	なし	240 Nm ³	
D. 再生温度	650 °C ~ 800 °C	200 °C ~ 300 °C	CuOの再生温度はその種類によって異なる。 Tiの再生温度は高いほど有効
E. 再生時間	24 hr	24 hr	
7. 寿命			
A. 再生回数	45回	200回	Tiの寿命は推定値, CuOの寿命は種類によって異なる。

O₂ 5 ppm 以下

H₂ 5 ppm 以下

とする。ここで、ppm は体積比率とする。

2.4.1 昇温開始前の精製時間

Fig. 2.4.1 に示した質量収支の概要図より、 Δt 時間経過後の系内の不純物ガス濃度は、

$$C(t + \Delta t) = C(t) - \frac{\ell \Delta t [C(t) - y]}{V} \quad (1)$$

ここで、
 t : 精製時間 (hr)
 V : He インベントリ (Nm³)
 ℓ : 精製流量 (Nm³/hr)
 C : 系内不純物濃度 (ppm)
 y : 精製系出口不純物濃度 (ppm)
 C_0 : 初期不純物濃度 (ppm)

(1)式より、

$$\frac{C(t + \Delta t) - C(t)}{\Delta t} = -\frac{\ell}{V} [C(t) - y] \quad (2)$$

したがって、

$$\frac{dC(t)}{dt} = -\frac{\ell}{V} [y - C(t)] \quad (3)$$

(3)式を解くと、

$$C(t) = y + A \cdot \exp\left(-\frac{\ell}{V} \cdot t\right) \quad (4)$$

$t = 0$ のとき、 $C = C_0$ であるから、(4)式は

$$C(t) = y + (C_0 - y) \exp\left(-\frac{\ell}{V} \cdot t\right) \quad (5)$$

となる。(5)式を用い精製開始12時間後におけるヘリウム冷却材の各不純物ガス濃度を求めTable 2.4.1 に示した。なお、Table 2.4.1 の計算で使用したHeインベントリは8000 Nm³、精製流量は2085 Nm³/hr (100 g/sec)である。次に、各不純物ガス濃度と精製時間との関係をFig. 2.4.2 に、全不純物ガス濃度と精製時間との関係をFig. 2.4.3 に示した。Table 2.4.1 から、精製開始12時間後のH₂O、O₂、H₂の各濃度は許容濃度(各5 ppm以下)以下となるが、全不純物ガス濃度は10ppmの許容濃度をわずかに越えている。しかし、Fig. 2.4.3 から、全不純物ガス濃度が許容濃度以下となるのは12.5時間である。これらの検討結果から、精製流量が100 g/secの

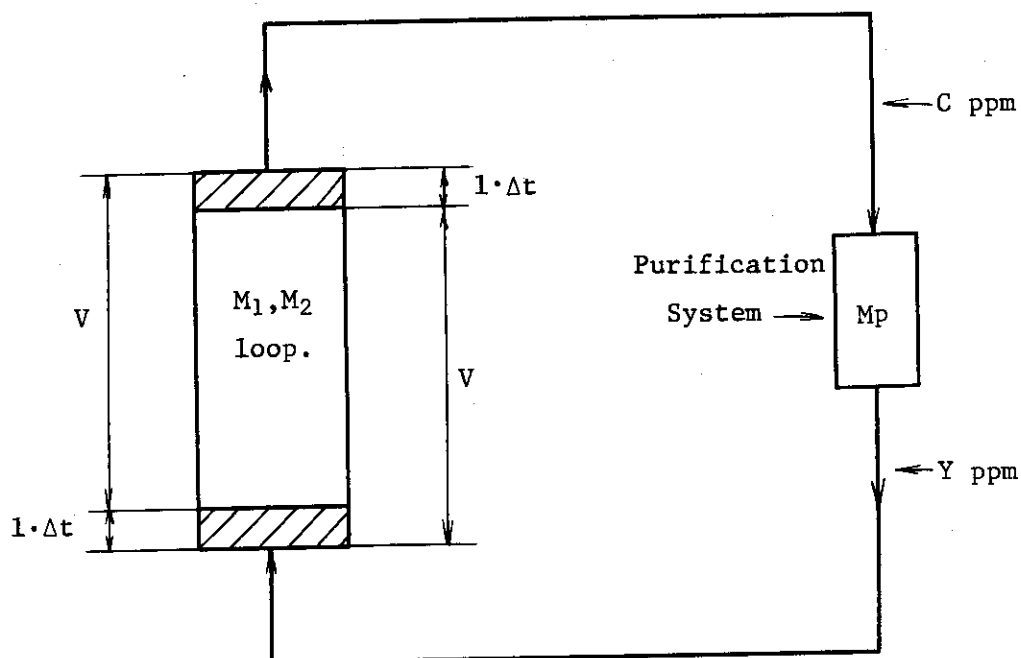


Fig. 2-4-1 Mass balance for He coolant purification

Table 2.4.1 Impurity concentrations

不純物名	初期不純物濃度 X_0 (ppm)	精製系出口不純物 濃度 y (ppm)	12時間後の系内 不純物濃度 X_{12} (ppm)	12時間後の全不 純物濃度 (ppm)
H ₂ O	100	0.1	4.956	11.253
O ₂	10	0.1	0.581	
N ₂	50	0.1	2.526	
H ₂	10	0.2	0.676	
CO ₂	10	0.1	0.581	
CO	10	0.1	0.581	
CH ₄	5	0.2	0.433	
C _m H _n	15	0.2	0.919	

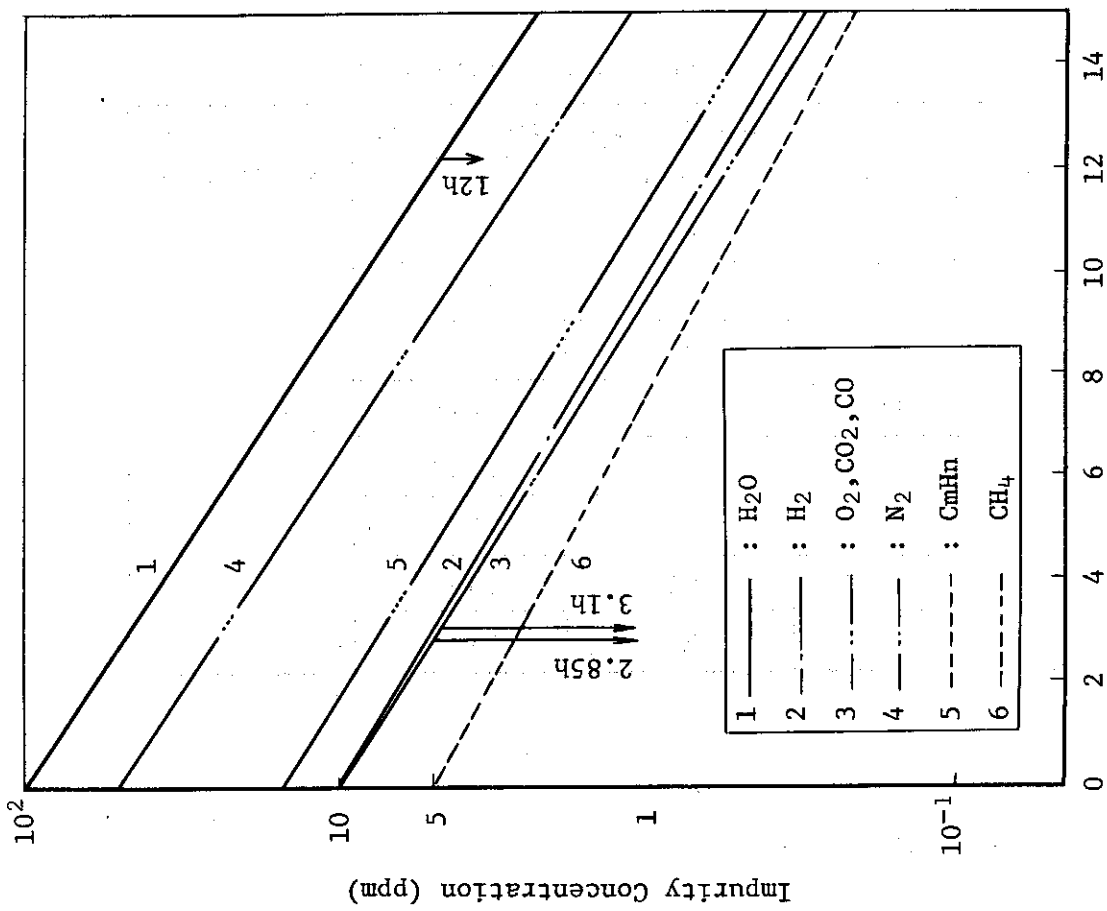


Fig. 2-4-2 Relation ship between impurity concentration and purification time.

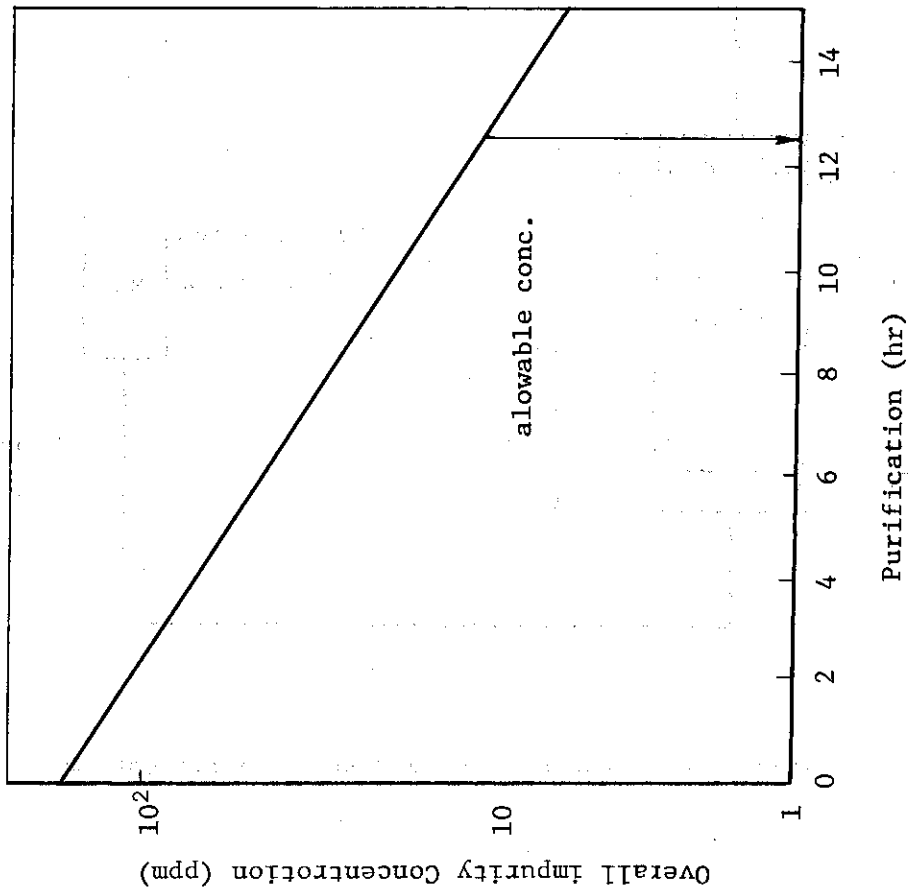


Fig. 2-4-3 Overall impurity concentrations to purification time.

ときHENDELの昇温開始前の精製運転に約12時間が必要で、全不純物ガス濃度が10ppm以下に下がった時ループの昇温が開始される。

2.4.2 ループ昇温時の不純物ガス濃度

M_1 , M_2 ループの起動, 昇温にいたる過程で, 系内の断熱材, 配管その他の構造材料からガス放出が生じ, 全不純物ガス濃度が許容濃度を越える可能性もある。昇温開始前の精製運転で許容濃度以下に保持した不純物ガス濃度が昇温時に許容濃度を越えることがあれば, ループの運転に重大な支障をきたすことになる。このため, 昇温時の系内不純物ガス濃度変化を精製系流量, 昇温速度をパラメータにとって推測し, 精製系流量, 昇温速度の妥当性について検討を行なった。系内に不純物ガス発生がある場合の濃度変化は不純物発生速度一定とした場合次式で表わされる。

$$C = \frac{S}{PV} + \left(C_0 - \frac{S}{PV} \right) \exp(-Pt) \quad (6)$$

ここで,

S : 不純物発生速度 (Nm^3/hr)

P : 純化率, ℓ/V , ($1/\text{hr}$)

である。HENDELのヒーター, アダプター, 試験部が 25°C から 1000°C に昇温される間に発生する全放出ガス量を U (Nm^3)とし, 1000°C の昇温に要する時間を T (hr)とすれば,

$$S = U/T \quad (\text{Nm}^3/\text{hr}) \quad (7)$$

となるので, (7)式を(6)式に代入すると,

$$C = \frac{U}{PVT} + \left(C_0 - \frac{U}{PVT} \right) \exp(-Pt) \quad (8)$$

となる。断熱材 (RF-800相当) およびグラファイト (原子炉級) を 1000°C まで昇温したときの全放出ガス量の測定量をTable 2.4.2に示す。断熱材RF-800およびグラファイトのデータはそれぞれ川崎重工業株式会社および原研において得られた値である。HENDEL内で使用される断熱材およびグラファイトの推定重量は夫々約16 ton および約70 ton (Table 2.4.3)となるため, これらの材料を使用前にベーキングしないで使用したとき,

$$U = 1.09 \times 10^{-4} \times 16 \times 10^4 + 6.07 \times 10^{-5} \times 70 \times 10^3$$

$$U = 6 \text{ Nm}^3$$

となる。また, $V = 8000 \text{ Nm}^3$, $\ell = 2085 \text{ Nm}^3$ (100 g/sec)であるから,

$$P = \frac{\ell}{V} = 0.261$$

である。初期濃度10ppmで, 昇温中の系内不純物濃度が常に10ppm以下となるような昇温時間を, $V = 6 \text{ Nm}^3$ として(8)式よりもとめると, 近似的に

$$T > \frac{U}{PVC} = \frac{6}{0.261 \times 8000 \times 10 \times 10^{-6}} \quad (9)$$

Table 2.4.2 Impurity gas evolved in M₁, M₂ loop at the period of elevating temperature

Impurity	Volume of gas evolved up to 1000°C.	
	from thermal insulator (coramic fiber, RF-800) (Nm ³ /kg)	from graphite (Nm ³ /kg)
Total	1.09×10^{-4}	0.607×10^{-4}
H ₂	7.61 %	69.18 %
O ₂	—	—
N ₂	1.28 %	1.89 %
CO ₂	24.59 %	15.98 %
CO	9.82 %	2.64 %
CH ₄	1.38 %	5.6 %
CmHn	4.04 %	—
H ₂ O	51.28 %	4.71 %

Table 2.4.3 Inventory of thermal insulator and graphite in HENDEL

	Thermal Insulator (ton)	graphite (ton)
Test section (T ₁)	2 (KAOWOOL)	20
Test section (T ₂)	4 (KAOWOOL)	50
Adapter	5.5	—
Heater	4	—
Total	16	

となり、

$$T > 288 \text{ hr (12 day)}$$

となる。この時の昇温速度は 3.4°C/hr である。この結果、以上の条件では昇温時間が非常に長くなり HENDEL の運転が不可能となる。したがって、HENDEL の高温配管及び試験部に使用する断熱材及びグラファイトは試運転開始前に十分ベーキングして脱ガスする必要がある。これらの材料のベーキングを十分に行なった時、それ以後のガス放出は微少となる。HENDEL で予定している 100°C/hr の昇温を可能にするための全放出ガス量(U)は、 $T = 10\text{hr}$ 、 $C = 10 \times 10^{-5}$ であるから、(8)式より

$$U = 0.21 \text{ Nm}^3$$

となる。この結果、 100°C/hr の昇温速度で、全不純物ガス濃度が 10ppm を越えないようにするための全放出ガス量は 0.21 Nm^3 以下でなければならない。

2.5 コールドチャコールベッドの冷却システム

コールドチャコールベッド (A.C. ベッド) は -196°C で使用し、その冷却材に液体窒素が使用される。A.C. ベッドの出入口に再生熱交換器をもうけ、液体窒素タンク、及び配管などに十分な断熱施工をほどこすなどの熱管理を行なっても、液体窒素の消費量はかなりの量となる。このため、A.C. ベッドの効果的かつ経済的な冷却方法を調らべるため、次の3つの方法について比較検討を行なった。

- (A) 液体窒素使い捨て方式。
- (B) 液体窒素再液化方式。
- (C) 三元冷凍機による冷却方式。

比較検討を行なうにあたり次の仮定を行なった。

- (A) A.C. ベッド入口の低温熱交換器の温端温度差を 10°C とする。
- (B) 系のヒートロスを見捨てる。

2.5.1 液体窒素使い捨て方式

液体窒素使い捨て方式の温度分布とヒートマスバランスを Fig. 2.5.1 に示す。また、Table 2.5.1 に Fig. 2.5.1 の各点における圧力、温度、エンタルピーを示す。液体窒素の消費量は Fig. 2.5.1 の低温熱交換器出入口の He のエンタルピーの変化分に相当する液体窒素の蒸発量であるから、

$$5.2 \text{ (KW)} = W (431.1 - 29.4) \times 10^{-3} \text{ (KW)} \quad (10)$$

ここで、 W = 液体窒素の消費量 (g/sec)、また 5.2 KW は出入口 He のエンタルピー変化である。(10)式を計算すると、

$$W = 12.9 \text{ g/sec}$$

となる。 -196°C の液体窒素の密度は 0.81 であるから消費体積は 57.4 l/hr となる。

2.5.2 液体窒素再液化方式

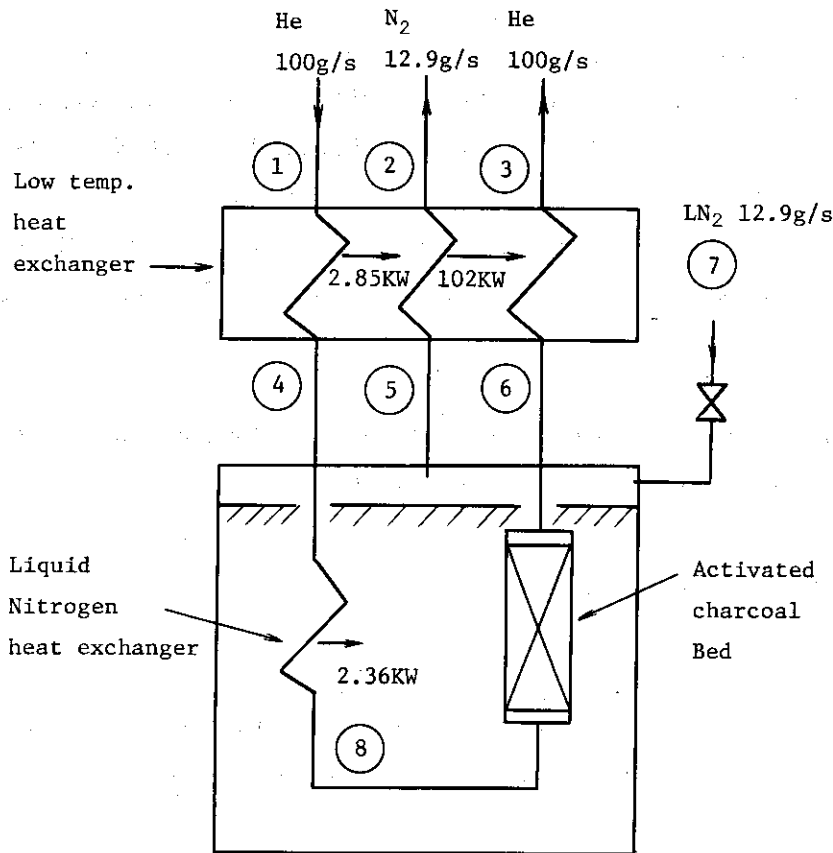


Fig. 2-5-1 Heat and mass balance of activated charcoal bed in the cooling system to use only latent heat of evaporation of liquid nitrogen.

Table 2.5.1 Enthalpy of helium and liquid nitrogen shown in Fig. 2-5-1

	Gas	Press. (kg/cm ²)	Temp (C)	Enthalpy (J/g)
1	He	45	10	1500
2	N ₂	1	0	431.1
3	He	45	0	1448
4	"	"	-191	452.9
5	N ₂	1	-196	228.7
6	He	4.5	-195	429.3
7	N ₂	1	-182	58.68
8	"	4	-196	29.40

液体窒素再液化方式を採用する場合に使用する再液化機はコールドチャコールベッドの定常運転時に気化する液体窒素の再液化に使用する。すなわち、A.C.ベッドの予冷時に使用する液体窒素は別に設置する液体窒素貯蔵タンクより供給するものとし再液化は行なわないものとする。液体窒素再液化方式を採用した場合の温度分布とヒートマスバランスをFig. 2. 5. 2 に示す。また、Table 2. 5. 2 にFig. 2. 5. 2 の各位置におけるパラメータを示す。Fig. 2. 5. 2 のHe出入口のエンタルピー変化は5.2 KWであるから、必要再液化能力も5.2 KW必要となる。このとき、再液化される -196°C の窒素ガス量は 26.5 g/sec である。5.2 KWの再液化能力を有する液化機の軸動力は約7.5 KW必要である。

2. 5. 3 三元冷凍機による冷却方式

この冷却方式は、液体窒素を使用せず、三元冷凍機によってフロンガスを -120°C に冷却し、このフロンガスによってA.C.ベッドを -115°C に冷却する。冷却温度は -115°C が限度であるから、 -196°C のA.C.ベッドにくらべてそのベッド容積が非常に大きくなるという欠点がある。三元冷凍機の三段蒸発温度（フロン熱交・フロン側温度）が -120°C のとき、温度分布とヒートマスバランスをFig. 2. 5. 3 に示す。また、Table 2. 5. 3 にFig. 2. 5. 3 の各位置のパラメータを示す。He出入口のエンタルピー変化から低温熱交換器の容量は59.9 KWとなる。対数平均温度差は 10°C となるので、低温熱交換器の熱量比は $5.15 \times 10^3\text{ Kcal/hr}$ となる。次に、フロン熱交換器の交換熱量は -105°C のヘリウムを -115°C に冷却するための熱量に等しいので、 5.21 KW ($4.48 \times 10^3\text{ Kcal/hr}$)となる。対数平均温度差は 9.1°C で、熱量比（総括熱伝達係数 \times 面積）は $4.92 \times 10^2\text{ Kcal/hr}^{\circ}\text{C}$ となる。三元冷凍機の必要冷凍能力はフロン熱交換器の交換熱量と同じ5.21 KWである。このとき必要な冷凍機動力は約89 KWとなる。次に、三元冷凍機による冷却温度 -115°C のA.C.ベッドの容量を計算する。A.C.ベッドで吸着除去される代表的な不純物は N_2 であるから入口濃度50 ppmの N_2 除去に必要なA.C.ベッド容量をもとめる。 N_2 に関する設計データをTable 2. 5. 4 に、容量の計算結果をTable 2. 5. 5 に示す。計算の結果、A.C.ベッドの容量は1840 kgとなる。 -196°C のA.C.ベッド容量が約150 kgであるから、 -115°C のA.C.ベッド容量は前者の約12倍の大きさとなる。容量1840 kgは N_2 除去に必要な値であるが、実際には O_2 、 CH_4 などの除去容量が必要で、これらを合せると約2960 kgとなる。したがって、三元冷凍機方式のA.C.ベッドは建設コストが莫大となり、更にベッドを予冷するための大型冷凍機の運転などを考えると、運転コストも相当な額になることが予想される。したがって、この方式のメリットはないと考えてよい。

2. 5. 4 3方式の比較検討

上記3方式の結果をまとめTable 2. 5. 6 に示した。この表によって3方式を比較すると、熱交換器はほぼ同じ容量となりあまり差はないが、三元冷凍機方式はA.C.ベッドの容量が他の2方式の約19倍となり、更に予冷用に大容量の冷凍機が必要で、このため建設コストが高昇するなどデメリットが多い。次に、液体窒素冷却の2方式の運転コストを検討する。両方式の運転コストは定常時液体窒素消費量と再液化機の運転動力によって計算される。液体窒素の単価を40 円/ ℓ とすると、液体窒素使い捨て方式の液体窒素使用量が $57.4\text{ } \ell/\text{hr}$ であるから運転コストは

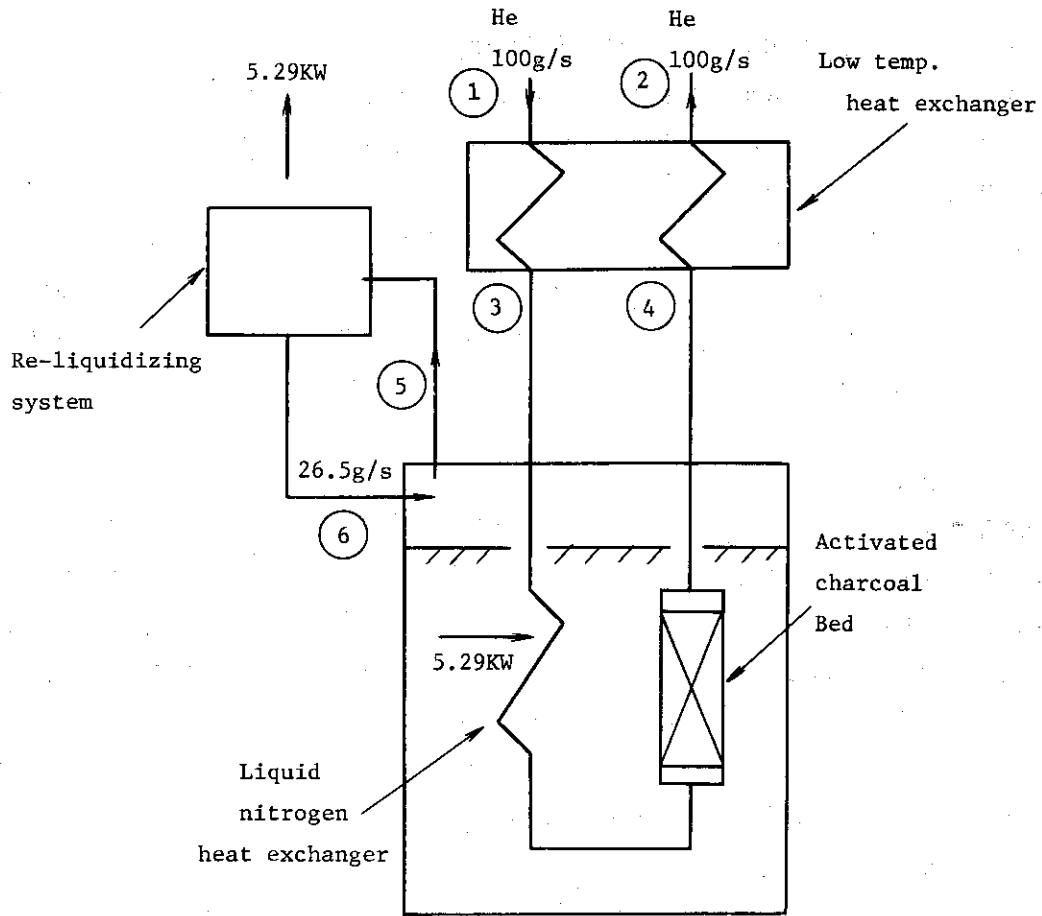


Fig. 2-5-2 Heat and mass balance of activated charcoal bed by use of re-liquidizing system of evaporated liquid nitrogen.

Table 2.5.2 Enthalpy of helium and liquid nitrogen shown in Fig. 2-5-2

		Pressure (kg/cm ²)	Temperature (°C)	Enthalpy (J/g)
1	He	45	10	1500
2	"	"	0	1448
3	"	"	-185	482.2
4	"	"	-195	429.3
5	N ₂	1	-196	228.7
6	"	1	-196	29.40

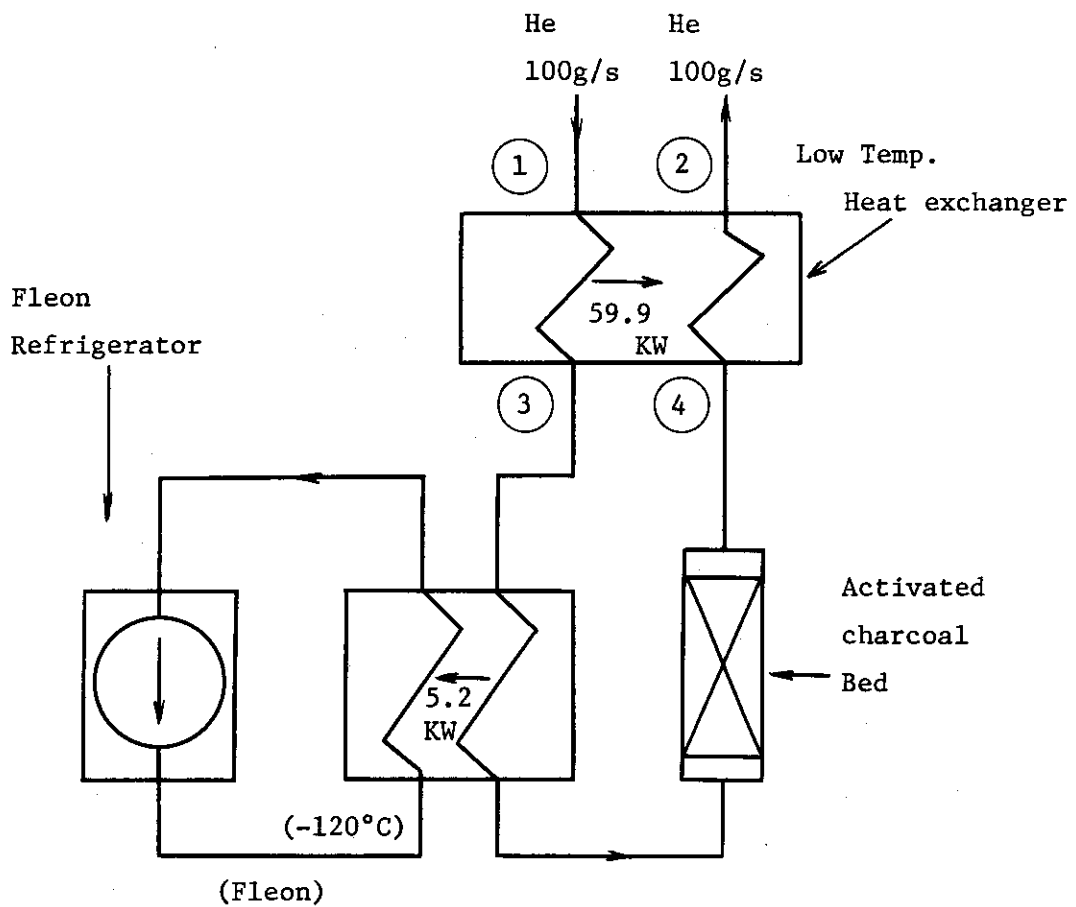


Fig. 2-5-3 Heat and mass balance of activated charcoal bed by use of fleon refrigerator.

Table 2.5.3 Enthalpy of coolants shown in Fig. 2-5-3

	Pressure (kg/cm ²)	Temp. (°C)	Enthalpy (J/g)
1	45	10	1500
2	45	0	1448
3	45	-105	901.2
4	45	-115	849.1

Table 2.5.4 Design data of fleon refrigeration system
for removing N₂ gas by activated charcoal bed

項 目	記 号	単 位	数 値
入 口 不 純 物 濃 度	C _∞	kg/kg	35×10 ⁻⁴
破過濃度(出口不純物濃度)	C _b	kg/kg	7×10 ⁻⁷
充 填 筒 径	D	m	0.4
空 筒 速 度	U _L	m/hr	234
流 体 粘 度	μ	kg/m·hr	0.0479
流 体 密 度	ρ ₁	kg/m ³	123
流 体 相 互 拡 散 係 数	D _{AB}	m ² /hr	1.98×10 ⁻³
操 作 温 度	T	K	158
不 純 物 分 子 量	M	kg/kg·mol	28
" 処 理 量	C _N	kg	9.1
破過までの時間(運転時間)	T _B	hr	720
粒 子 代 表 径	D _P	m	4×10 ⁻³
" 真 密 度	ρ _S	kg/m ³	833
空 間 率	ε _B	—	0.4
粒 子 内 気 孔 率	ε _P	—	0.5
粒 子 内 細 口 半 径	R	m	1×10 ⁻⁹
充 填 密 度	ρ _b	kg/m ³	500
フレンドリッヒ式 q=kc ^β の k	K	—	1.204
" の β	β	—	0.6021
入口濃度に対する平衡吸着量	q ₀ [*]	kg/kg	0.0100
平衡吸着量による吸着剤量	q _N	kg	910
" 充 填 高 さ	Z _N	m	14.5

Table 2.5.5 Capacity of activated charcoal bed to remove N₂ gas by use of fleon refrigerator

項 目	記 号	単 位	数 値
総括移動単位数	N _{OG}	—	16.2
総括容量係数	K _{FAY}	hr ⁻¹	1.28×10 ⁴
気相側 "	k _{FAY}	"	1.61×10 ⁴
粒子側 "	k _{SAY}	"	2.70×10 ³
粒子内拡散係数	D _{AK}	m ² /hr	2.62×10 ⁻⁵
物質移動帯の高さ	Z _A	m	0.297
理論充填高さ	Z	m	146
理論充填量		kg	918
単位高さ当りの圧力損失		kg/m ² /m	25.1
予 裕 率		—	2.0
実 充 填 高 さ		m	29.2
実 充 填 量		kg	1840
圧 力 損 失		kg/m ²	732

Table 2.5.6 Comparison of cooling systems for activated charcoal bed

	液体窒素使い捨て方式	液体窒素再液化方式	三元冷凍機による冷却方式
低温熱交換器	UA=1.37×10 ⁴ kcal/hr・℃	UA=8.77×10 ³ kcal/hr・℃	UA=5.15×10 ³ kcal/hr・℃
液体窒素熱交換器	UA=8.17×10 ² kcal/hr・℃	UA=1.09×10 ³ kcal/hr・℃	—
フレオン熱交換器	—	—	UA=4.92×10 ³ kcal/hr・℃
コールドチャコールベットの充填	355.6φ×12t×1216ℓ×3本	355.6φ×12t×1216ℓ×3本	420φ×20t×2454ℓ×20本
コールドチャコールベットの活性炭充填量	158 kg	158 kg	2960 kg
液体窒素再液化機	—	PILIPS PPG440×2台 液化能力 3.5 kw/台	—
ヘリウム冷却用三元冷凍機	—	—	三元冷凍機 (R14蒸発温度-120℃) 1500 kcal/hr×4台
定常時液体窒素消費量	13.9 g/s (61.9 ℓ/hr)	—	—
予冷時	750 ℓ	750 ℓ	—
予冷用三元冷凍機	—	—	ヘリウム冷却用と共用にする
予冷時間	再生温度(150℃)より6時間	再生温度(150℃)より6時間	20℃より45時間

2,296 ¥/hrとなる。また、電力単価を12.5 ¥/KWHとすると、運転能力は72 KW、運転コストは900 ¥/hrとなる。次に、両方式のイニシャルコストの差は主として再液化機のみと考えられる。代表的な再液化機のコストは再液化能力3.5 KW/台で約3500万円である。この再液化機が2台必要となるので、再液化方式のイニシャルコストは7,000万円となる。以上の結果から再液化方式のイニシャルコストを回収するためには稼働率を50%としても約10年を必要とする。HENDELの試験装置としての寿命は比較的短かく、また、年間の稼働率も小さいと考えられるので、液体窒素使い捨て方式が最もメリットがあると判断される。

2.6 ベッドの容量計算

Table 2.1.1 に示す入口不純物ガス濃度のHeを、100 g/secの流量で72時間精製しうるM_p系各ベッドの容量をもとめる。

2.6.1 CuOベッドの容量

CuOベッドはCuOとH₂, COとの化学反応によってこれらのガスをH₂O, CO₂に変えて除去する。したがって、使用中CuOベッド内のCuOが反応の進行と共に減少し、このためH₂, COの酸化速度も減少する。このように、CuOベッド内で起る現象はM.S.およびA.C.ベッドにくらべて複雑で、このため前者の容量決定は後者とは異なる方法によらなければならない。CuOベッドの容量計算方法はJAERI-M-8031⁷⁾にその詳細が記載されている。この方法ではH₂, COを酸化するに必要な最少高さを単位反応高さ(HRU, Height of Reaction Unit)とし、このHRUがCuOの還元される速度に関連する速度でCuOベッド内を移動するというモデルによってCuOベッドの容量をもとめている。この方法によればCuOベッドの塔高さは次式によってもとめられる。

$$Z = \frac{u}{K \epsilon a_v} \ln c_2/c_1 + \frac{M_1 c_1 u T_u}{M_2 f r} \quad (6.1)$$

ここで、

- Z = CuO ベッドの塔高さ (cm)
- u = 空塔速度 (cm/sec)
- K = 総括反応速度定数 (cm/sec)
- ε = 空間率
- a_v = 単位体積あたりの粒子外表面積 (cm²/cm³)
- c₁ = ベッド入口の水素濃度 (g/cm³)
- c₂ = ベッド出口の水素濃度 (g/cm³)
- M₁ = CuOの分子量 (g/mole)
- M₂ = H₂の分子量 (g/mole)
- f = 酸化銅利用率
- r = 充填密度 (g/cm³)
- T_u = 使用時間 (sec)

(6.1) 式の酸化銅利用率(f)とは酸化銅ベッドに最初に存在したCuOのうち実際にH₂の燃焼に使用されるCuOの比率である。ベッドの塔高さ Z が決まればベッド断面積と充填材の充填密度からベッド内容積および充填材の量を求めることができる。充填材のCuOには線状酸化銅、酸化銅触媒などがあるが、工業的に多量生産され、形状、品質などのそろったペレット状の酸化銅触媒をHENDELのM_p系では使用する。この酸化銅触媒は日産ガードラ触媒(株)製のT-366型で、その詳細をTable 2.6.1に示す。この触媒はケイソウ土担体に51%のCuが含まれている。使用するときには、CuをCuOに酸化した触媒をベッドに充填する。HENDELのCuOベッドではH₂とCOの2成分ガスを酸化するので、2成分ガスの個々についてベッド容量を計算し、その合計をCuOベッド容量とする。

(A) H₂ 除去容量

まず、H₂ガスの除去容量を計算する。水素ガスの入口濃度は10ppmであるから、運転時間72hrのH₂除去総量は

$$2016 (\text{Nm}^3/\text{hr}) \times (10 \times 10^{-6}) \times 72 (\text{hr}) = 1.45 \text{ Nm}^3$$

そのmole数は64.7moleである。空塔速度(u)とベッド径(D cm)との関係は、圧力40kg/cm²、温度300°C、ガスの質量速度100g/secであるから、

$$u = 37.45 \times 10^3 D^{-2} \quad (6.2)$$

となる。Fig. 2.6.1は u と D の関係を示すグラフである。一般に使用されている空塔速度は5cm/secから100cm/secの範囲である。CuOベッドの場合、空塔速度50cm/sec ($D=27$ cm)とし、このときの容量をもとめる。ここで、(6-1)式の変数の値は、

$$c_1 = 10 \text{ ppm} (1.7 \times 10^{-8} \text{ g/cm}^3)$$

$$c_2 = 0.1 \text{ ppm}$$

$$M_1 = 79.5$$

$$M_2 = 2$$

$$u = 50 \text{ cm/sec}$$

$$T_u = 72 \text{ hr} (2.59 \times 10^5 \text{ sec})$$

$$r = 1.2 \text{ g/cm}^3$$

$$e = 0.73$$

また、T-366触媒(ペレット状)の表面積は171m²/gであるから $a_v = 2 \times 10^6$ (1/cm)となる。300°Cの反応速度定数(K)は日産ガードラ触媒(株)の実験結果より

$$K = -1.75 \times 10^{-6} \text{ (cm/sec)}$$

となる。 K は負の値になることに注意しなければならない。T-366触媒のCuO含有率は61.3%で、このうち酸化銅利用率は65%(メーカーの実験結果による)であるから、触媒全体の酸化銅利用率は0.4となる。これらの値を(6.1)式に代入しH₂除去に必要なベッド高さをもとめると、

$$Z = 108.4 \text{ cm}$$

となる。

(B) CO 除去容量

T-366触媒によるCOの酸化反応速度定数は得られていないので、水素の場合と同じとして除去容量をもとめる。このとき、 $M_2 = 28$ 、 $C_1 = 2.4 \times 10^{-7} \text{ g/cm}^3$ となり他の変数はH₂と同一で

Table 2.6.1 CuO catalyst

CuO Catalyst	Girdler, T-366
Contents	Zeolite - support 51% Cu
Dimension	3/16" x 1/8" Tablets
Density	4450 kg/m ³
Packed density	1200 kg/m ³
Void fraction in fixed bed	0.73
Conditions of use	300 °C, 40 kg/cm ² G
Head loss	0.1 kg/cm ²

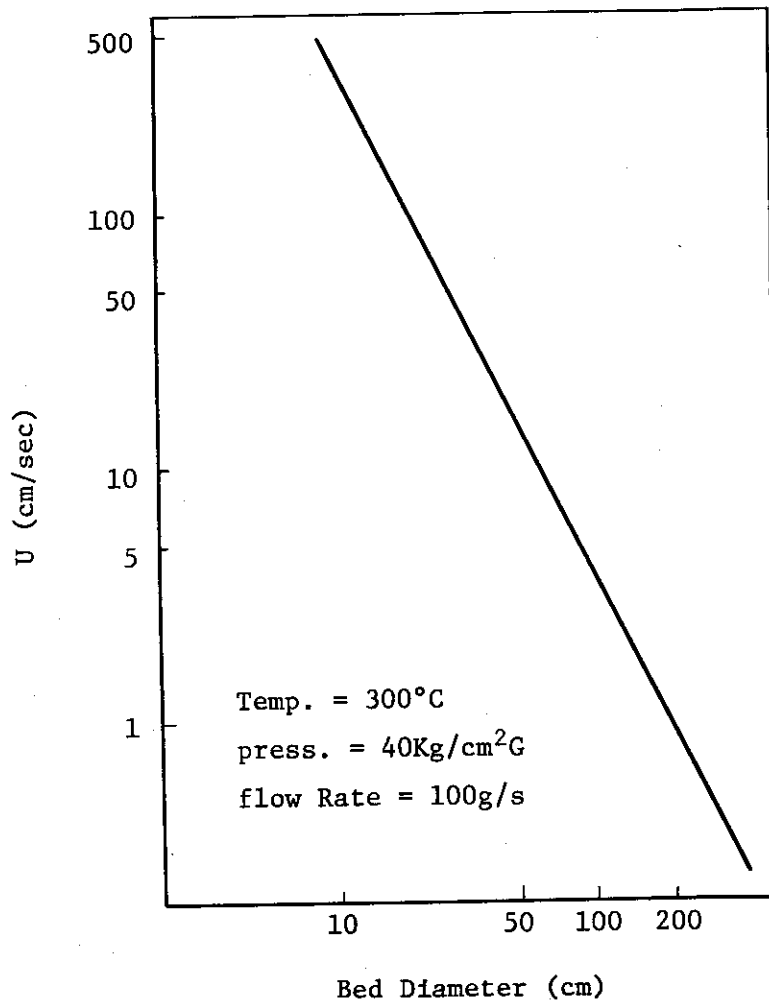


Fig. 2-6-1 Relationship between linear velocities and diameter of CuO bed.

あるから、(6.1)式より、

$$Z = 108.5 \text{ cm}$$

となる。反応速度定数を水素と同じにしたため、Zは当然水素と同じ高さとなる。HENDELの酸化銅ベット設計までには反応速度を正確にもとめておく必要がある。以上の結果からCuOベットの全高さは217 cmとなる。空塔速度50 cm/secのベッド径は27 cmとなるからベッド断面積は572.3 cm²となる。ベッド内容積は124.2 ℓでT-366の充填量は149 kgとなる。

2.6.2 モレキュラーシーブベッドの容量

M.S.ベッドはM₁, M₂ ループから導入されるHe中のH₂OとCO₂を、またCuOベッドでの反応によってH₂とCOより生成したH₂OとCO₂を吸着除去する。72時間の運転中にM.S.ベッドに吸着されるH₂Oの量はH₂からH₂Oに変換する量が1.2 kg、最初から含まれているH₂O量が11.65 kgで、合計12.8 kgである。また、吸着されるCO₂量はCOから生成する量を合せて5.75 kgである。M.S.ベッドの容量はH₂OとCO₂のそれぞれについて設計計算を行ない得られた容量を合計することによって全体の容量をもとめる。M.S.ベッド高さは次式で与えられる。

$$Z = \frac{T_u u \rho}{r q^*} + 0.5 Z_a \quad (6.3)$$

ここで、
 Z = ベッド高さ (m)
 T_u = 使用時間 (hr)
 u = 空塔速度 (m/hr)
 ρ = 流体密度 (kg/m³)
 r = 充填密度 (kg/m³)
 q* = 入口濃度 (c₁)に対する飽和吸着量 (kg/kg)
 Z_a = 物質吸着帯の高さ (m)
 ρ_s = 粒子密度 (kg/m³)
 ε = 空間率

充填密度(r)は次式でもとめることができる。

$$r = \rho_s (1 - \epsilon) \quad (6.4)$$

また、Z_aは次式でもとめられる。

$$Z_a = \frac{u}{K_F a_v} N_{OG} \quad (6.5)$$

ここで、

K_Fa_v = 総括容量係数 (hr⁻¹)
 K_F = 総括物質移動係数 (m/hr)
 a_v = 単位体積当りの粒子外表面積 (m²/m³)
 N_{OG} = 総括移動単位数

ここで、総括容量係数は次のように定義される。

$$\frac{1}{K_F a_v} = \frac{1}{k_g a_v} + \frac{1}{H k_s a_v} \quad (6.6)$$

$k_g a_v$ = 気相側容量係数 (hr⁻¹)

$k_s a_v$ = 粒子内容量係数 (hr⁻¹)

H = 等温吸着式の接線 (dq^{*}/dc)

k_g = 気相側物質移動係数 (m/hr)

k_s = 粒子内物質移動係数 (m/hr)

k_g は $Re > 30$ のとき, Chu の式を用いてもとめることができる。

$$k_g = 1.77 (Re)^{-0.44} (Sc)^{-2/3} u \quad (6.7)$$

ここで,

$$Re = \frac{D_p u \rho}{\mu (1 - \epsilon)}$$

$$Sc = \frac{\mu}{\rho D_{AB}}$$

Re = レイノルズ数

Sc = シュミット数

D_p = 粒子代表径 (m)

μ = 流体粘度 (kg/mhr)

D_{AB} = 拡散係数 (m²/hr)

a_v の値は近似的に,

$$a_v = \frac{6 (1 - \epsilon)}{D_p} \quad (6.8)$$

でもとめられる。

次に, 粒子内容量係数は次式でもとめられる。

$$k_s a_v = \frac{60 D_i (1 - \epsilon)}{D_p^2}$$

D_i = 粒子内拡散係数 (m²/hr)

この粒子内拡散係数は総括拡散係数 (D_0) と次の関係がある。

$$D_i = \frac{\epsilon_p}{k^2} D_0 \quad (6.9)$$

ここで,

ϵ_p = 多孔質体の細孔率

k^2 = 屈曲度 (Tortuosity, M.S.-5 A の実測値は約 4 である。)

(6.9) 式の D_0 は

$$\frac{1}{D_0} = \frac{1}{D_{AB}} + \frac{1}{D_{KA}} \quad (6.10)$$

$$D_{KA} = \frac{2}{3} \sqrt{\frac{8RT}{\pi M}} r_p \quad (6.11)$$

ここで、

R = 気体定数 (8.314×10^7 erg mol⁻¹ K⁻¹)

T = 温度 (°K)

M = 分子量

r_p = 細孔半径 (m)

(6.5) 式の N_{OG} は

$$N_{OG} = \int_{c_b}^{c_0-c_b} \frac{dc}{c-c^*} \quad (6.12)$$

c^* = 吸着量 q と平衡な濃度

c_b = 破過濃度

c_0 = ベッド入口濃度

等温吸着線がフレンドリッヒの式 ($q = kc^{1/n}$) で表わされると、

$$q = kc^{1/n} \quad (6.13)$$

また、物質吸着帯の物質収支より次式がもとまる。

$$q/q_0 = c/c_0 \quad (6.14)$$

q_0 = 吸着帯入口の吸着量

c_0 = 吸着帯入口の濃度

(6.13), (6.14) より c^* は

$$c^* = \left(\frac{q_0}{kc_0} \cdot c \right)^n \quad (6.15)$$

(6.12) の積分は (6.14) の操作線から図積分によってもとめることができる。MS-5A の $1/8''$ ペレットの 10°C における isotherm は、

$$\text{CO}_2 \quad q = 5.351 C^{1/1.787} \quad (6.16)$$

$$\text{H}_2\text{O} \quad q = 0.1903 C^{1/1.36.99} \quad (6.17)$$

である。MS-5A を使用する場合の M.S. ベッドの設計データを Table 2.6.2 (CO₂), Table 2.6.3 (H₂O) に示してある。これらの設計データにもとずいて計算した移動単位数、容量係数、吸着帯高さ、ベッド容量などを Table 2.6.4 (CO₂), Table 2.6.5 (H₂O) に示す。この結果、内径 40 cm のとき CO₂ 除去に必要なベッド高さは 1.38 m, H₂O 除去に必要な高さは 1.13 m で合計 2.51 m となる。設計余裕率を 2 とすると、MS-5A の実充填量は合計 455 kg となる。

Table 2.6.2 Design data of molecular sieve bed (M.S.-Bed) for removing CO₂

項 目	記 号	単 位	数 値
入 口 不 純 物 濃 度	C _o	kg/kg	2.2×10 ⁻⁴
破 過 濃 度 (出 口 不 純 物 濃 度)	C _b	kg/kg	1.1×10 ⁻⁶
充 填 物 径	D	m	0.4
空 筒 速 度	U _L	m/hr	419
流 体 粘 度	μ	kg/m·hr	0.0697
液 体 密 度	ρ _I	kg/m ³	684
流 体 相 互 拡 散 係 数	D _{AB}	m ² /hr	0.00482
操 作 温 度	T	°k	283 (10℃)
不 純 物 分 子 量	M	kg/kg·mol	44.0
“ 処 理 量	C _N	kg	5.75
破 過 ま だ の 時 間 (運 転 時 間)	T _B	hr	720
粒 子 代 表 径	D _P	m	0.003175
“ 真 密 度	ρ _S	kg/m ³	1059
空 間 率	ε _B	—	0.32
粒 子 内 気 孔 率	ε _P	—	0.61
粒 子 内 細 孔 半 径	R	m	2.5×10 ⁻⁷
充 填 密 度	ρ _b	kg/m ³	720
フレンドリッヒ式 q = kc ^{1/n} の k	K	—	5351
“ 1/n の n	n	—	1.7
入 口 濃 度 に 対 する 平 衡 吸 着 量	q _o *	kg/kg	48×10 ⁻²
平 衡 吸 着 量 に よ る 吸 着 剤 量	q _n	kg	116
“ 充 填 高 さ	Z _n	m	1.28

Table 2.6.3 Design data of molecular sieve bed for removing H₂O

項 目	記 号	単 位	数 値
入 口 不 純 物 濃 度	C_o	kg/kg	4.95×10^{-4}
破過濃度 (出口不純物濃度)	C_b	kg/kg	4.57×10^{-7}
充 填 筒 径	D	m	0.4
空 筒 速 度	U_L	m/hr	419
流 体 粘 度	μ	kg/m·hr	0.0697
流 体 密 度	ρ_I	kg/m ³	6.84
拡 散 係 数	D_{AB}	m ² /hr	0.00445
操 作 温 度	T	°K	283
不 純 物 分 子 量	M	kg/kg·mol	18.0
" 処 理 量	C_N	kg	12.8
破 過 ま で の 時 間	T_B	hr	72.0
粒 子 代 表 径	D_P	m	0.003175
" 真 密 度	ρ_S	kg/m ³	1059
空 間 率	ϵ_B	—	0.32
粒 子 内 気 孔 率	ϵ_P	—	0.61
粒 子 内 細 孔 半 径	R	m	2.5×10^{-7}
充 填 密 度	ρ_b	kg/m ³	720
フレンドリッヒ式 $q = kc^{1/n}$ の k	k	—	0.1903
" $1/n$ の n	n	—	136.99
入口濃度に対する平衡吸着量	q_{o^*}	kg/kg	0.18
平衡吸着量による吸着剤量	q_n	kg	71.1
" 充 填 高 さ	Z_N	m	0.786

Table 2.6.4 Design of M.S. bed for removing CO₂

項 目	記 号	単 位	数 値
総括移動単位数	N_{OG}	—	123
総括容量係数	K_{Fav}	hr^{-1}	4.02×10^4
気相側 "	k_{Fav}	"	5.81×10^4
粒子側 "	k_{Sav}	"	7.83×10^3
粒子内拡散係数	D_i	m^2/hr	1.94×10^{-4}
物質吸着帯の高さ	Z_A	m	0.128
理論充填高さ	Z	m	138
理論充填量		kg	125
単位高さ当りの圧力損失		$kg/m^2/m$	163
余 裕 率			2.0
実 充 填 高 さ		m	2.76
実 充 填 量		kg	250
圧 力 損 失		kg/m^2	450

Table 2.6.5 Design of M.S. bed for removing H₂O

項 目	記 号	単 位	数 値
総括移動単位数	N_{OG}	—	7.00
総括容量係数	K_{Fav}	hr^{-1}	4.23×10^3
気相側 "	k_{Fav}	"	5.51×10^4
粒子側 "	k_{Sav}	"	8.68×10^2
粒子内拡散係数	D_i	m^2/hr	2.14×10^{-4}
物質吸着帯の高さ	Z_A	m	0.692
理論充填高さ	Z	m	1.13
理論充填量		kg	102
単位高さ当りの圧力損失		$kg/m^2/m$	163
余 裕 率			2.0
実 充 填 高 さ		m	2.26
実 充 填 量		kg	205
圧 力 損 失		kg/m^2	368

2.6.3 コールドチャコールベッド

1) コールドチャコールベッドの容量

コールドチャコールベッド(ACベッド)は不純物のうちCuOベッドとMSベッドで除去されないO₂, N₂, CH₄, 炭化水素を吸着除去するために使用される。設計上のベッド入口の各不純物ガス濃度はO₂ 10ppm, N₂ 50ppm, CH₄ 5ppm, C_mH_n 15ppmである。-196°Cのチャコールに対するガスの吸着はMS-5Aと同じく物理吸着である。このため、ACベッドの容量計算式はMSベッドと同一である。O₂, N₂, CH₄, C_mH_nに関するACベッドの設計データをTable 2.6.6, 7.8, および9に示す。チャコールのisothermもフレンドリッヒの式にしたがい、

$$\text{N}_2 \quad q = 1.216 C^{1/4.604}$$

$$\text{CH}_4 \quad q = 0.528 C^{1/9.17}$$

となる。また、この報告書ではO₂はN₂と、C_mH_nはCH₄とそのisothermが同じであるとして設計した。各ガスの除去に必要なACベッド容量の計算結果をTable 2.6.10, 11, 12, および13に示す。設計余裕率を2とし、ベッド高さの合計をもとめると3.8mとなる。ベッド内径が33cmであるからチャコールの全充填量は164kgとなる。

2) コールドチャコールベッド用低温熱交換器

低温熱交換器はACベッドに入るヘリウムガスとACベッドより出る低温ヘリウムガスおよび気化した低温窒素ガスを熱交換させて液体窒素を効果的に使用するために設置される。ACベッドの熱、物質収支から低温熱交換器の設計条件をTable 2.6.14に示すように定め、アルミプレートフィン熱交換器を設計する。プレートフィン熱交換器の計算モデルをFig. 2.6.2に示す。有効伝熱係数は

$$h = \eta h' \quad (6.18)$$

ここで、

η = フィン効率

h' = 伝熱係数 (Kcal/m²hr °C)

この伝熱係数は、

$$h' = \frac{J C_p G}{P_r^{2/3}}$$

J = J-factor

C_p = 比熱 (Kcal/kg °C)

G = 質量速度 (kg/m² hr)

P_r = プラントル数

フィン効率は、

$$\eta = \frac{\tan h(mb)}{mb} \quad (6.20)$$

$$m = \sqrt{2h/kt}$$

$b = H/2$, (HはFig. 2.6.2参照)

Table 2.6.6 Design data of activated charcoal bed (A.C.-bed) for removing O₂

項 目	記 号	単 位	数 値
入 口 不 純 物 濃 度	C ₀	kg/kg	8×10 ⁻⁵
破過濃度 (出口不純物濃度)	C _b	kg/kg	8×10 ⁻⁷
充 填 筒 径	D	m	0.332
空 筒 速 度	U _L	m/hr	166
流 体 粘 度	μ	kg/m·hr	0.0319
流 体 密 度	ρ _I	kg/m ³	25.13
流 体 密 度 拡 散 係 数	D _{AB}	m ² /hr	5.31×10 ⁻⁴
操 作 温 度	T	°K	77.0
不 純 物 分 子 量	M	kg/kg·mol	32.0
“ 処 理 量	C _N	kg	2.08
破過までの時間 (運転時間)	T _B	hr	72.0
粒 子 代 表 径	D _P	m	4×10 ⁻³
“ 真 密 度	ρ _S	kg/m ³	833
空 間 率	ε _B	—	0.4
粒 子 内 気 孔 率	ε _P	—	0.5
粒 子 内 細 孔 半 径	R	m	1×10 ⁻⁷
充 填 密 度	ρ _b	kg/m ³	500
フレンドリッヒ式 q = kc ^{1/n} の k	k	—	1.216
“ 1/n の n	n	—	4.604
入口密度に対する平衡吸着量	q ₀ *	kg/kg	0.157
平衡吸着量による吸着剤量	q _N	kg	13.2
“ 充 填 高 さ	Z _N	m	0.305

Table 2.6.7 Design data of A.C. bed for removing N₂

項 目	記 号	単 位	数 値
入 口 不 純 物 濃 度	C _o	kg/kg	3.5×10 ⁻⁴
破過濃度 (出口不純物濃度)	C _b	kg/kg	7 ×10 ⁻⁷
充 填 筒 径	D	m	0.332
空 筒 速 度	U _L	m/hr	166
流 体 粘 度	μ	kg/m·hr	0.0319
流 体 密 度	ρ _I	kg/m ³	25.13
流 体 相 互 拡 散 係 数	D _{AB}	m ² /hr	5.64×10 ⁻⁴
操 作 温 度	T	°K	77.0
不 純 物 分 子 量	M	kg/kg·mol	28.0
“ 処 理 量	C _N	kg	9.10
破過までの時間 (運転時間)	T _B	hr	72.0
粒 子 代 表 径	D _P	m	4 ×10 ⁻³
“ 真 密 度	ρ _S	kg/m ³	833
空 間 率	ε _B	—	0.4
流 子 内 気 孔 率	ε _P	—	0.5
流 子 内 細 孔 半 径	R	m	1 ×10 ⁻⁷
充 填 密 度	ρ _b	kg/m ³	500
フレンドリッヒ式 q=kc ^{1/n} のk	k	—	1.216
“ 1/n のn	n	—	4.604
入口濃度に対する平衡吸着量	q _o *	kg/kg	0.216
平衡吸着量による吸着剤量	q _N	kg	42.1
“ 充 填 高 さ	Z _N	m	0.976

Table 2.6.8 Design data of A.C. bed for removing CH₄

項 目	記 号	単 位	数 値
入 口 不 純 物 濃 度	C ₀	kg/kg	2×10 ⁻⁵
破過濃度 (出口不純物濃度)	C _b	kg/kg	8×10 ⁻⁷
充 填 筒 径	D	m	0.332
空 筒 速 度	U _L	m/hr	166
流 体 粘 度	μ	kg/m·hr	0.0319
流 体 密 度	ρ _I	kg/m ³	25.13
流 体 相 互 拡 散 係 数	D _{AB}	m ² /hr	4.77×10 ⁻⁴
操 作 温 度	T	°K	77.0
不 純 物 分 子 量	M	kg/kg·mol	16.0
” 処 理 量	C _N	kg	0.521
破過までの時間 (運転時間)	T _B	hr	72.0
粒 子 代 表 径	D _P	m	4×10 ⁻³
” 真 密 度	ρ _S	kg/m ³	833
空 間 率	ε _B	—	0.4
粒 子 内 気 孔 率	ε _P	—	0.5
流 子 内 細 孔 半 径	R	m	1×10 ⁻⁷
充 填 密 度	ρ _b	kg/m ³	500
フレンドリッヒ式 q = kc ^{1/n} の k	k	—	0.5277
” 1/n の n	n	—	9.17
入口濃度に対する平衡吸着量	q ₀ [*]	kg/kg	0.162
平衡吸着量による吸着剤量	q _N	kg	3.21
” 充 填 高 さ	Z _N	m	0.0743

Table 2.6.9 Design data of A.C. bed for removing CmHn

項 目	記 号	単 位	数 値
入 口 不 純 物 濃 度	C_o	kg/kg	6×10^{-5}
破過濃度 (出口不純物濃度)	C_b	kg/kg	8×10^{-7}
充 填 筒 径	D	m	0.332
空 筒 速 度	U_L	m/hr	166
流 体 粘 度	μ	kg/m·hr	0.0319
流 体 密 度	ρ_I	kg/m ³	25.13
流 体 相 互 拡 散 係 数	D_{AB}	m ² /hr	4.77×10^{-4}
操 作 温 度	T	°K	77.0
不 純 物 分 子 量	M	kg/kg·mol	16.0
” 処 理 量	C_N	kg	1.56
破過までの時間 (運転時間)	T_B	hr	7.20
粒 子 代 表 径	D_p	m	4×10^{-3}
” 真 密 度	ρ_s	kg/m ³	833
空 間 率	ϵ_B	—	0.4
粒 子 内 気 孔 率	ϵ_p	—	0.5
粒 子 内 細 孔 半 径	R	m	1×10^{-7}
充 填 密 度	ρ_b	kg/m ³	500
フレンドリッヒ式 $q = kc^{1/n}$ の k	k	—	0.5277
” $1/n$ の n	n	—	9.17
入口濃度に対する平衡吸着量	q_o^*	kg/kg	0.182
平衡吸着量による吸着剤量	q_N	kg	8.54
” 充 填 高 さ	Z_N	m	0.198

Table 2.6.10 Design of A.C. bed for removing O₂

項 目	記 号	単 位	数 値
総括移動単位数	N _{OG}	—	5.52
総括容量係数	K _{Fav}	hr ⁻¹	5.64×10 ³
気相側 "	k _{Fav}	"	6.64×10 ³
粒子側 "	k _{Sav}	"	5.07×10
粒子内拡散係数	D _I	m ² /hr	2.25×10 ⁻⁵
物質移動帯の高さ	Z _A	m	0.163
理論充填高さ	Z	m	0.388
理論充填量		kg	16.8
単位高さ当りの圧力損失		kg/m ² /m	21.2
余 裕 率		—	2
実 充 填 高 さ		m	0.776
実 充 填 量		kg	33.5
圧 力 損 失		kg/m ²	16.5

Table 2.6.11 Design of A.C. bed for removing N₂

項 目	記 号	単 位	数 値
総括移動単位数	N _{OG}	—	7.59
総括容量係数	K _{Fav}	hr ⁻¹	4.44×10 ³
気相側 "	k _{Fav}	"	6.91×10 ³
粒子側 "	k _{Sav}	"	5.39×10
粒子内拡散係数	D _i	m ² /hr	2.40×10 ⁻⁵
物質移動帯の高さ	Z _A	m	0.284
理論充填高さ	Z	m	1.12
理論充填量		kg	48.4
単位高さ当りの圧力損失		kg/m ² /m	21.2
余 裕 率		—	2.0
実 充 填 高 さ		m	2.24
実 充 填 量		kg	96.8
圧 力 損 失		kg/m ²	47.5

Table 2.6.12 Design of A.C. bed for removing CH₄

項 目	記 号	単 位	数 値
総括移動単位数	N _{OG}	—	3.33
総括容量係数	K _{Fav}	hr ⁻¹	5.75×10 ³
気相側 "	k _{Fav}	"	6.18×10 ³
粒子側 "	k _{Sav}	"	4.98×10
粒子内拡散係数	D _i	m ² /hr	2.21×10 ⁻⁵
物質移動帯の高さ	Z _A	m	0.0962
理論充填高さ	Z	m	0.122
理論充填量		kg	5.27
単位高さ当りの圧力損失		kg/m ² /hr	21.2
余 裕 率		—	2.0
実 充 填 高 さ		m	0.244
実 充 填 量		kg	10.5
圧 力 損 失		kg/m ²	5.17

Table 2.6.13 Design of A.C. bed for removing CmHn

項 目	記 号	単 位	数 値
総括移動単位数	N _{OG}	—	4.58
総括容量係数	K _{Fav}	hr ⁻¹	5.14×10 ³
気相側 "	k _{Fav}	"	6.18×10 ³
粒子側 "	k _{Sav}	"	4.98×10
粒子内拡散係数	D _i	m ² /hr	2.21×10 ⁻⁵
物質移動帯の高さ	Z _A	m	0.148
理論充填高さ	Z	m	0.271
理論充填量		kg	11.7
単位高さ当りの圧力損失		kg/m ² /m	21.2
余 裕 率		—	2.0
実 充 填 高 さ		m	0.542
実 充 填 量		kg	23.4
圧 力 損 失		kg/m ²	11.5

Table 2.6.14 Design conditions of low temperature heat exchanger

		A	B	C
流体状態		Heガス	Heガス	Heガス
流量	kg/hr	360	360	50.0
常用圧力	kg/cm ² G	45	45	3
温端温度	℃	10	0	0
冷端温度	℃	-191	-195	-196
熱負荷	kw	105	102	294
許容圧力損失	kg/cm ²	0.1	0.1	0.05
型式	アルミプレートフィン式			

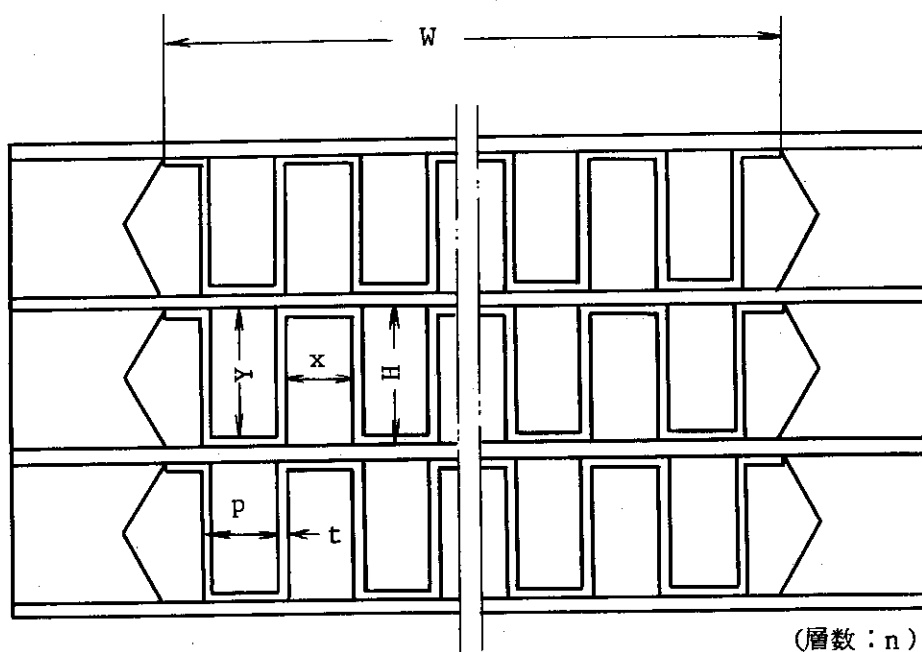


Fig. 2-6-2 Calculation model of plate fin type heat exchanger

k = アルミの熱伝導度

また、総括伝熱係数 (u) は

$$1/uA = 1/h_H A_H + 1/h_L A_L \quad (6.21)$$

A, A_H, A_L = 伝熱面積 (m^2)

ここで、サブスクリプト H は高温側流路、L は低温側流路を示す。伝熱面積は Fig. 2.6.2 より

$$A = \frac{2(X+Y)WLn}{P} \quad (6.22)$$

L = 熱交換器有効長さ (m)

また、圧力損失は、

$$\Delta P = 4f \frac{G_2}{2g_c \rho} \frac{L}{D_e} \quad (6.23)$$

$$D_e = \frac{4XY}{2(X+Y)}$$

以上の計算式を使用して計算した結果を Table 2.6.15 に示す。この表で、流路 A, B, C は A-C ベッドの入口及び出口ヘリウムガスと蒸発 N_2 ガスの各流路を示している。この結果、熱交換器伝熱部の大きさは $700 \times 450 \times 1100$ ℓ となる。ヒートロスを少なくするため、低温熱交換器はコールドチャコールベッドと同じ容器内に組み込まれる。

3) 液体窒素熱交換器

液体窒素熱交換器は液体窒素に浸設され、A.C. ベッドを囲むように設置される。低温熱交換器を通ったヘリウムガスを液体窒素と熱交換させることにより $-195^\circ C$ まで冷却して A.C. ベッドに供給する。管表面の伝熱は核沸騰によって行なわれ Kutateladze の式により

$$q/A_o = 4.87 \times 10^{11} \left(\frac{C_{pl}}{\lambda \rho_v} \right) \left(\frac{k_l \rho_l^{1.282} P}{\sigma^{0.906} \mu_l^{0.626}} \right) (\Delta T_{wl})^{2.5} \quad (6.24)$$

ここで、

q/A_o = 熱流速 (W/cm^2)

C_{pl} = 流体の比熱 $2.07 J/g \cdot k$

λ = 蒸発潜熱 $199 J/g$

ρ_v = 蒸気の密度 $0.00461 g/cm^3$

k_l = 液の熱伝導度 $0.00136 W/cm^3$

ρ_l = 液の密度 $0.809 g/cm^3$

σ = 表面張力 $8.89 dynes/cm^2$

P = 圧力 $1.01 \times 10^6 dynes/cm^2$

μ_l = 液体の粘度 $0.00164 g/cm \text{ sec}$

ΔT_{wl} = 伝熱面と液体の温度差

これらの数値を (6.24) に代入して計算すると、

$$q/A_o = 0.0421 (\Delta T_{wi})^{2.5} \quad (6.25)$$

管内の伝熱係数は、

$$h_i D_i / k = 0.023 R_e^{0.8} P_r^{0.4} \quad (6.26)$$

10φ × 1 t の伝熱管を使用し、圧力 45 kg/cm²、平均温度 80 °K とすると、

$$\begin{aligned} P_r &= \text{プラントル数} & 0.7 \\ \rho &= \text{密度} & 0.0255 \text{ g/cm}^3 \\ \mu &= \text{粘度} & 91.2 \times 10^{-6} \text{ g/cm sec} \\ k &= \text{熱伝導度} & 0.692 \times 10^{-3} \text{ W/cm} \end{aligned}$$

これらの数値を用いて (6.26) を計算すると、

$$h_i = 0.129 \text{ W/cm}^2 \text{ K} \quad (1110 \text{ Kcal/m}^2 \text{ hr K})$$

総括伝熱係数は、

$$1/U_o = D_o/h_i D_i + 1/h_o \quad (6.27)$$

交換熱量は、

$$q = U_o A_o \Delta T_{ln} = h_o A_o T_{wi} \quad (6.28)$$

$$A_o = \text{伝熱面積 (管外基準)}$$

$$\Delta T_{ln} = \text{対数平均温度 (2.79 K)}$$

$$q = \text{交換熱量} \quad 2360 \text{ W}$$

計算手順は ΔT_{wi} を仮定して (6.25) より A_o をもとめる。この A_o と ΔT_{ln} を (6.28) に代入して U_o を求める。この U_o と $h_i = 0.129$ から (6.27) より h_o をもとめ、(6.28) に得られた h_o と A_o を代入して ΔT_{wi} を求め、初めに仮定した ΔT_{wi} と等しいことを確認する。計算の結果、 ΔT_{wi} は 1.56 °K となり、 $1.85 \times 10^4 \text{ cm}^2$ の伝熱面積が必要となる。

4) 液体窒素の消費量

(A) 予冷時の液体窒素消費量

AC ベッドの予冷に必要な液体窒素量を、0 °C の AC ベッドを液体窒素の潜熱のみで冷却するものとして計算する。活性炭量は 164 kg であるから、-195 °C まで冷却するに必要な熱量は、

$$Q = 164 \times 0.2 \times 195 = 6400 \text{ Kcal}$$

また、容器の冷却に必要な熱量は、

$$Q = 103 \times 1.27 \times 2 \times 0.11 \times 195 \times 3 = 1.68 \times 10^4 \text{ Kcal}$$

で、合計すると、23200 Kcal ($9.71 \times 10^7 \text{ J}$) となる。液体窒素の蒸発潜熱が 170 J/g であるから、液体窒素の必要量は、

$$9.71 \times 10^7 / 170 = 5.71 \times 10^5 \text{ g}$$

となる。この量は約 700 ℓ である。

(B) 定常運転時の液体窒素消費量

定常運転時の液体窒素の消費量は低温熱交換器における温端ロス、AC ベッドのヒートロスおよび液体窒素供給配管ヒートロスによって決定される。AC ベッドの液体窒素容器は真空断熱されているので、輻射伝熱が支配的となり次式により計算される。

Table 2.6.15 Design of low temperature heat exchanger

流 路		A	B	C	
物 性	平均温度	℃	-98	-89	-98
	密度	kg/m ³	17.0	15.8	293
	粘度	kg/m·hr	0.0490	0.0519	0.0398
	熱伝導度	kcal/m hr·℃	0.0932	0.0960	0.0136
	比熱	kcal/kg·℃	1.25	1.25	0.251
熱 交 諸 元	伝熱部の幅(W)	m	0.7	0.7	0.7
	伝熱部の長さ(L)	m	1.1	1.1	1.1
	フィンピッチ(P)	m	1.41×10^{-3}	1.41×10^{-3}	1.41×10^{-3}
	フィン高さ(H)	m	3.81×10^{-3}	3.81×10^{-3}	3.81×10^{-3}
	フィン厚さ(t)	m	4.06×10^{-4}	4.06×10^{-4}	4.06×10^{-4}
	層数(n)	—	33	34	3
	伝熱面積	m ²	159	164	144
計 算 結 果	流路断面積	m ²	0.0577	0.00543	0.00679
	相当直径	m ²	0.00155	0.00155	0.00155
	流速	m/sec	0.11	0.108	0.719
	レイノルズ数	—	187	210	295
	伝熱係数	kcal/m ² ·hr·℃	205	203	39.9
	フィン効率	—	0.991	0.991	0.998
	有効伝熱係数	kcal/m ² ·hr·℃	203	201	39.8
	総括伝熱係数	kcal/m ² ·hr·℃	101		33.2
	対数平均温度差	℃	6.55		7.21
	理論交換熱量	kcal/hr	1.05×10^5		3450
サーマルマージン	%	20		36	

$$q = \sigma \phi A \left\{ \left(\frac{T_1}{100} \right)^4 - \left(\frac{T_0}{100} \right)^4 \right\} \quad (6.29)$$

ここで、

σ = ステファンボルツマン係数 (4.88 Kcal/m²K⁴)

ϕ = 輻射係数 (0.1)

A = 伝熱面積 (18.8 m², 1.2 m ϕ × 5 mH)

T₁ = 外槽の温度 (300 °K)

T₀ = 内槽の温度 (77 °K)

(6.29) を計算すると、輻射伝熱量は

$$q = 740 \text{ Kcal/hr (0.86 KW)}$$

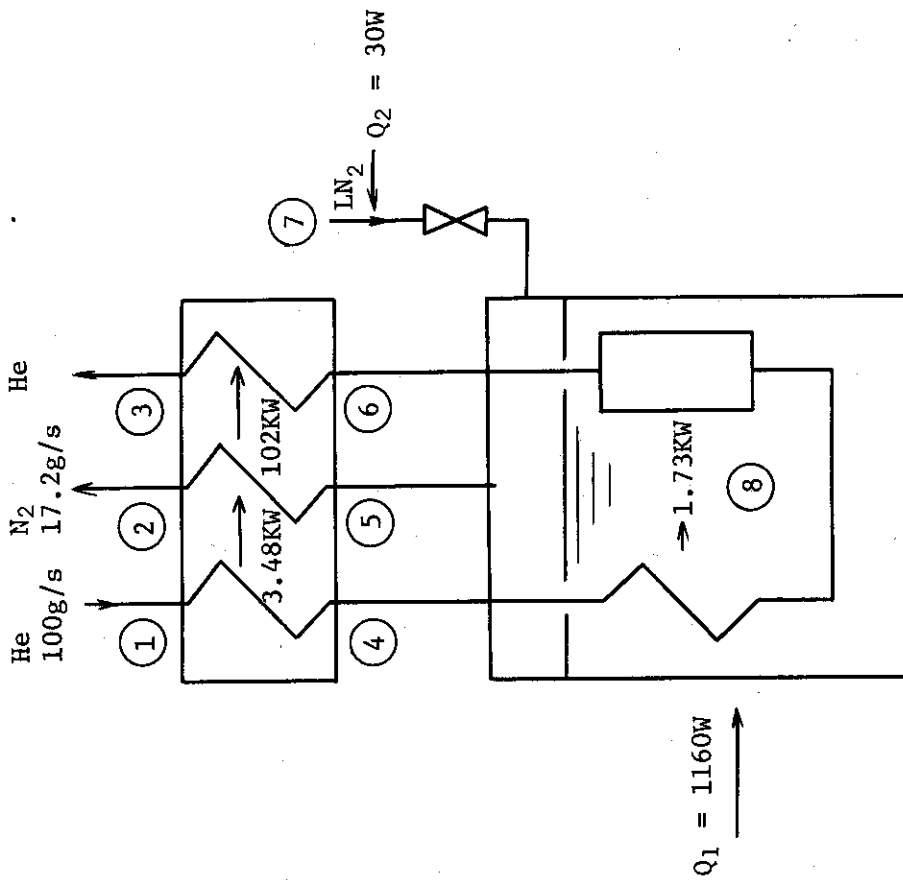
となる。内槽を支持するスペーサなど計算できないヒートロスがあるので、これらを考慮し約 1000 Kcal/hr と推定する。配管のヒートロスの計算結果は 30 W (25.8 Kcal/hr) となる。このヒートロスを検討した場合の各部の温度とヒートマスマランを Fig. 2.6.3 に示す。Fig. 2.6.3 より液体窒素の消費量は 17.2 g/sec (76.4 l/sec) となる。

2.7 酸化銅触媒

酸化銅ベッドに充填される酸化銅として、線状酸化銅および酸化銅触媒がある。線状酸化銅は銅線を酸化処理して製造されたもので、表面積が小さい、反応速度が遅い、使用および再生温度が高い、破壊強度が比較的小さく粉末化しやすい、形状が不均一で圧力損失が大きい、などの欠点がある。これに対して、けいそう土などを担体とし、これに銅を50%程度加えて作られた酸化銅触媒は、活性が強く、表面積および反応速度ともに大きいので酸化銅ベッドの充填材として非常にすぐれている。本来、この酸化銅触媒は有機化合物の水素添加用に製造されたもので、水素添加用を使用するときは酸化銅を還元した銅触媒の状態で使用される。しかし、ヘリウム中の水素ガスの燃焼は銅触媒の還元操作と一致するから、銅触媒の酸化状態(酸化銅触媒)で使用すれば、すぐれたヘリウム精製の酸化銅ベッド充填材となる。市販の酸化銅触媒は5 mm × 3 mm ϕ のペレット状で、使用温度 200 °C から 300 °C、再生温度約 200 °C、充填密度が 0.8 から 1.2 kg/l である。また、触媒の活性を強めるために、ニッケルなどを添加した触媒も市販されている。しかし、酸化銅ベッドの充填材として、これらの触媒を使用する場合、総括反応速度定数をはじめとする酸化銅触媒の各物性値が十分にわかっていることが必要である。

2.8 再生システムの検討

精製系 (M_p 系) で再生操作を必要とするのは CuO ベッド、M.S. ベッド、A.C. ベッドである。M.S. ベッドと A.C. ベッドは物理吸着であるから再生は昇温、減圧による吸着ガスの脱着操作である。CuO は化学反応のため、精製時に H₂ で還元された Cu を O₂ によって酸化することが再生操作となる。CuO ベッドの場合でも再生後に系内パージのため真空引きが必要である。各ベッドの



	Gas	Press. (Kg/cm ²)	Temp. (°C)	Enthalpy (J/g)
1	He	45	10	1500
2	N ₂	1	0	431.1
3	He	45	0	1448
4	"	"	-192	446.6
5	N ₂	1	-196	228.7
6	He	45	-195	429.3
7	N ₂	4	-182	58.68
8	"	1	-196	29.04

Fig. 2-6-3 Heat and mass balance of activated charcoal bed.

再生条件は次の通りである。

- (A) CuO ベッドの再生温度は 300 °C, 再生ガスは 99.5 %N₂ + 0.5 %O₂ 混合ガスである。
- (B) M.S. ベッドの再生温度は 300 °C から 350 °C で減圧排気とする。
- (C) A.C. ベッドの再生温度は 150 °C で, 減圧排気とする。

再生方法として, いろいろの組合せが考えられるが, 大別すると各ベッドを単独に再生する方法と 3 ベッドをシリーズに再生する方法に別けられる。又, 再生ガスを使い捨てにする open System と循環させる closed System とがある。Fig. 2.8.1 は各ベッド単独再生の系統図である。各ベッド単独再生方式は M.S. ベッド, A.C. ベッド, CuO ベッドをそれぞれ任意の時間に個別に再生できるというメリットがある。HENDEL の場合 M.S. ベッド入口の設計水分濃度は 100 ppm で, もしこの 100 ppm の水分が 72 時間 M.S. ベッドで吸着されると, その吸着量は約 10 ℓ に達する。この 10 ℓ の吸着水を真空排気すると真空ポンプに多量の水分が混入し, ポンプ油の劣化をきたす。従って, HENDEL の M_p 系では加熱後 N₂ ガスによる水分パージが必要である。CuO ベッドの再生は 0.5 % の O₂ を含んだ N₂ + O₂ 混合ガスで Cu を酸化し, その後真空排気操作を行なう。Fig. 2.8.2 は 3 ベッドのシリーズによる再生方法で各ベッド間の連絡配管及び弁が余分に必要となるが M.S. ベッドの水分パージと CuO ベッドの酸化操作を兼ねさせた方式であり合理的な方法である。Fig. 2.8.3, Fig. 2.8.4 は 3 ベッドシリーズ再生の closed system に関するものである。Fig. 2.8.3 は精製系を完全に 2 系統設ける方式で, 系統がシンプルなこと, 仕切弁が少なくすむなどのメリットがあるが, 循環機, 高温熱交, 冷却器が全て 2 基必要となるなどのデメリットもある。Fig. 2.8.4 は Fig. 2.8.2 を closed system にしたものである。いずれも再生ブローで再生ガス (N₂ + 0.5 %O₂) を循環させ, 水分は冷却器でドレンとして系外に排出する。しかし, 他の不純物は再生完了後各ベッドを真空排気して除去しなければならず, その意味では系内のガスを絶対に外部に出さないという完全な closed system ではない。更に, closed system の場合, 再生用循環ブローや冷却器などの機器が増えるので操作も繁雑となる。一方, open system における最大の欠点は再生ガスを使い捨てにすることでありその使用量が問題となる。しかし, HENDEL の場合, 一系統の再生に必要な再生ガス量は約 300 Nm³ で, 問題となる量ではない。以上の検討結果から, HENDEL の M_p 系の再生システムは Fig. 2.8.2 の 3 ベッドシリーズ再生の open system で行なうことになった。Fig. 2.8.5 に一系統の再生プログラムを示す。

次に, 各ベッドの再生方法の詳細について述べる。

(1) CuO ベッドの再生

再生ガスは 0.5 % の O₂ を含む N₂ ガスで, 再生時間を 6 時間とする。再生温度は 300 °C である。再生に必要な理論酸素量は H₂ と CO の酸化に使用された酸化銅の化学当量に等しい。H₂ と CO の酸化に 129.4 mol の CuO が消費される。Cu 2 mol を酸化するのに 1 mol の O₂ が消費されるので, CuO ベッドの再生には 64.8 mol の O₂ が必要となる。O₂ を 0.5 % 含む再生ガス量は, 1.29 × 10⁴ mol (289 Nm³) となる。この再生ガスを空気と N₂ の混合によって作ると, 再生時間が 6 時間であるから, その混合割合は空気 7.23 Nm³ (1.2 Nm³/hr), N₂ 282 Nm³ (47 Nm³/hr) となる。次に, Cu の酸化反応は発熱反応である。このため再生時に反応熱のため CuO 触媒の最高使用温度を越える恐れがあるので, 反応熱とガスの温度上昇との関連について検討する。まず, CuO ベッドの再生による温度上昇を反応熱が再生ガスの加熱のみに使用されるとして求める。次の反

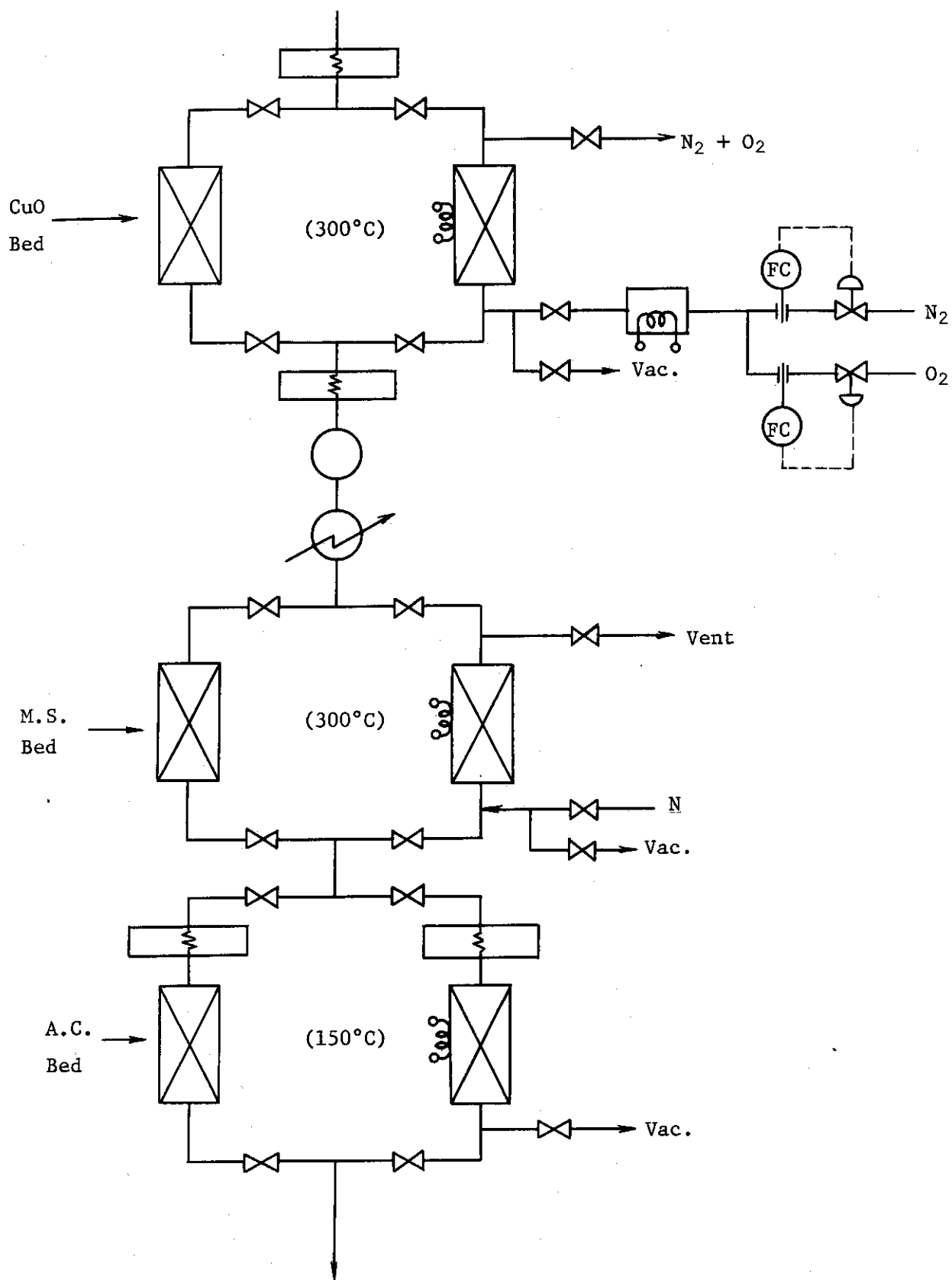


Fig. 2-8-1 Flow sheet to do independent regeneration of each beds by means of open system.

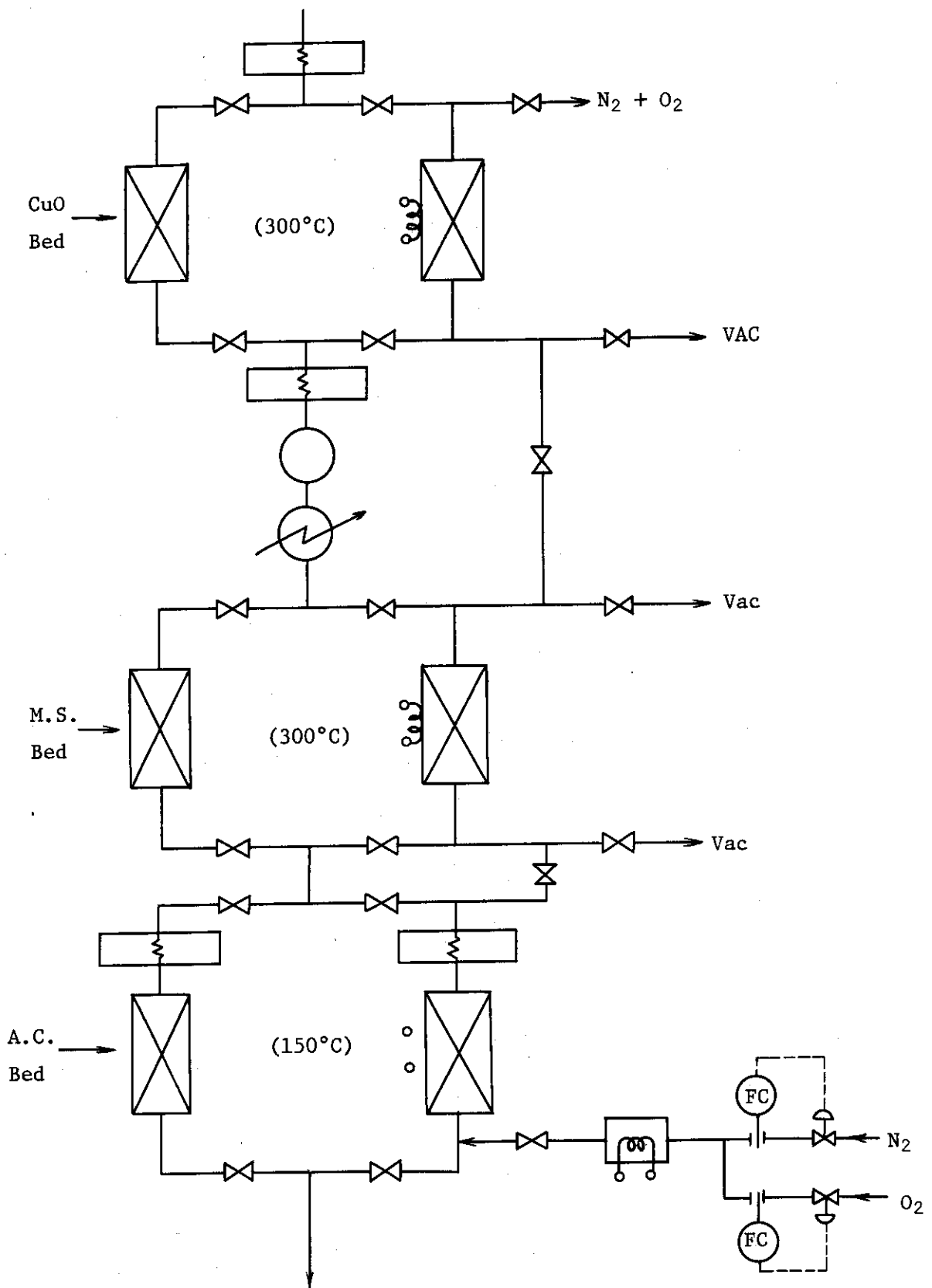


Fig. 2-8-2 Flowsheet to do series regeneration of three beds by means of open system.

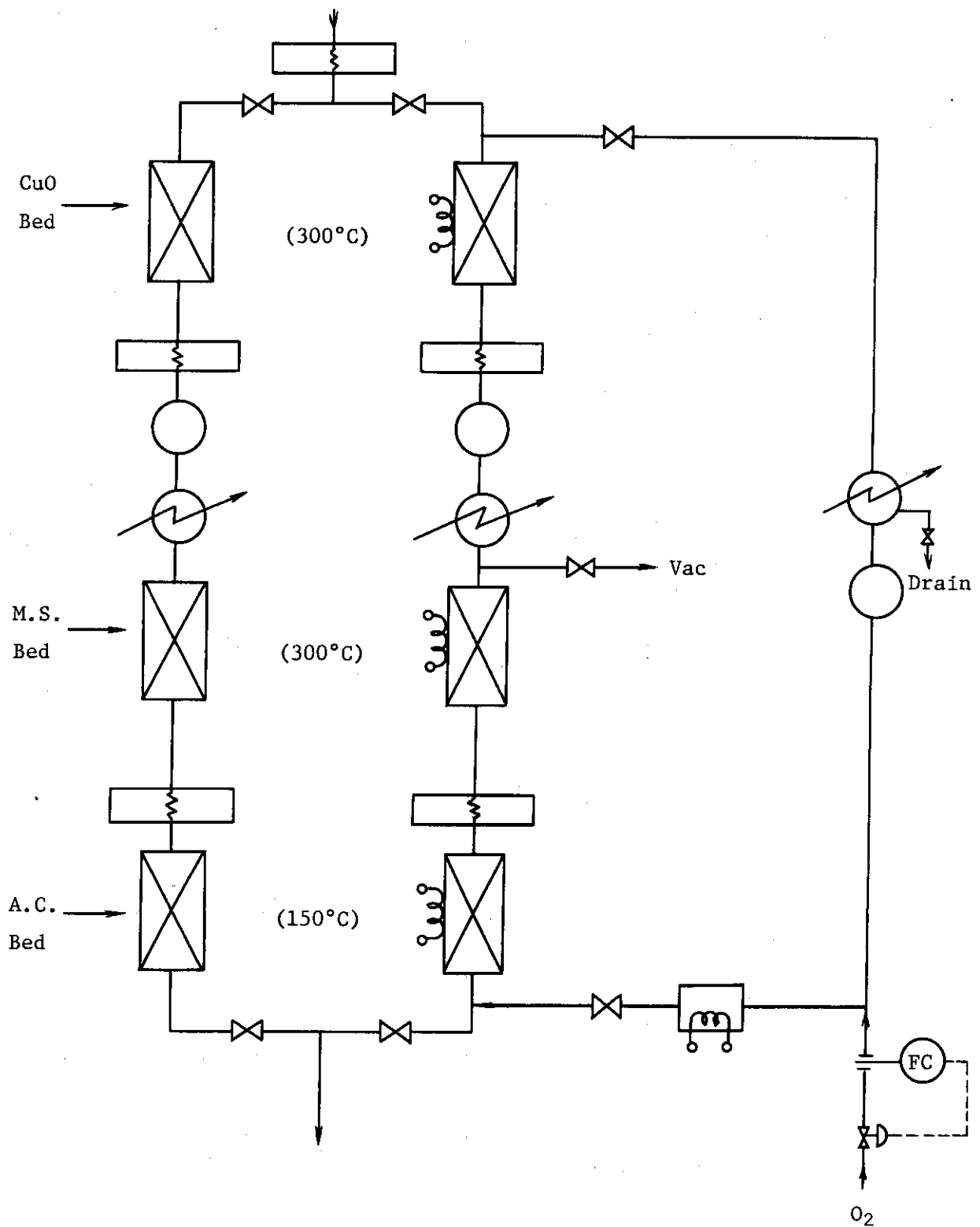


Fig. 2-8-3 Flow sheet to do series regeneration of three beds into independent two channel by means of closed system.

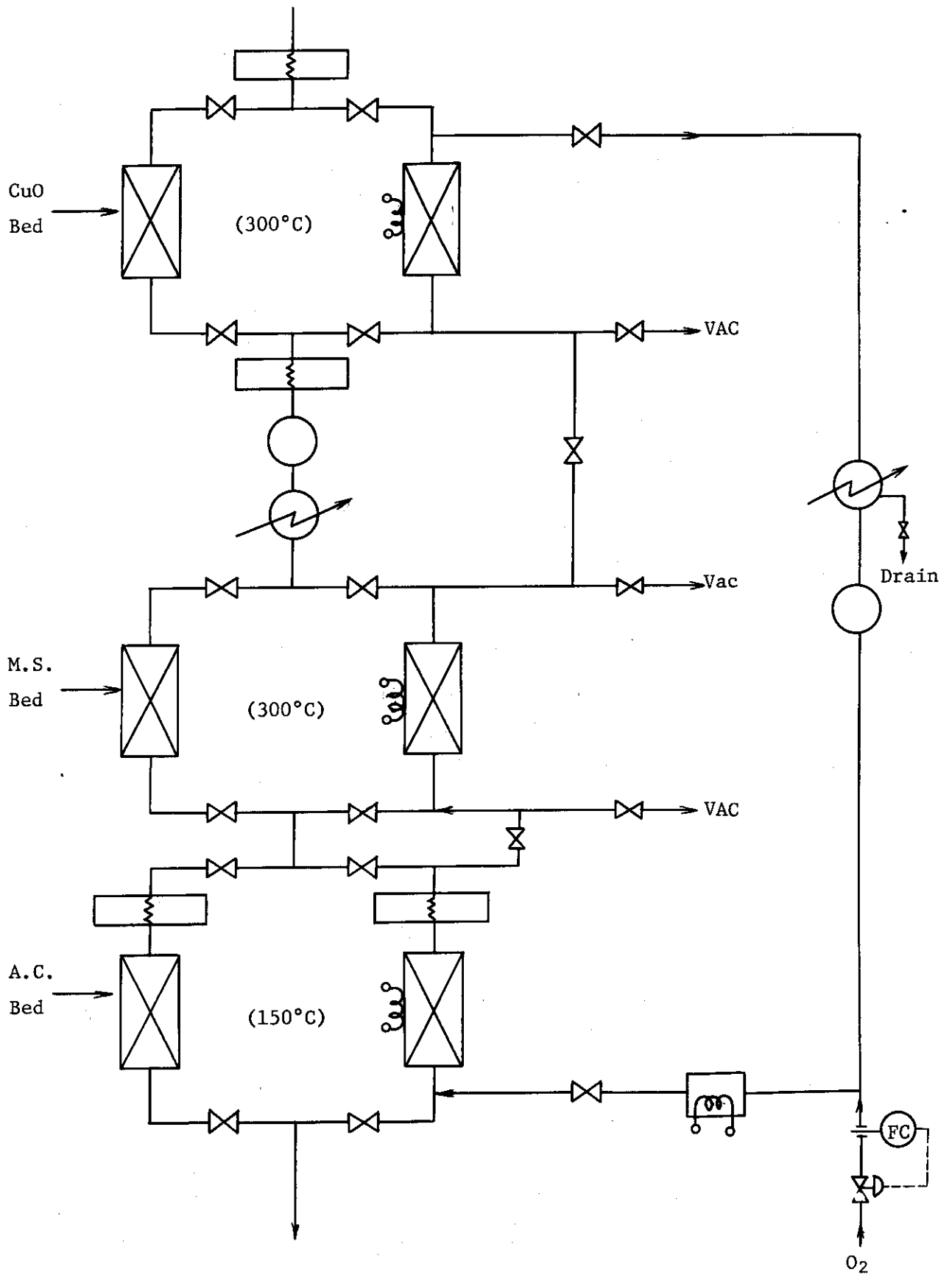


Fig. 2-8-4 Flow sheet to regenerate simultaneously three beds by closed system.

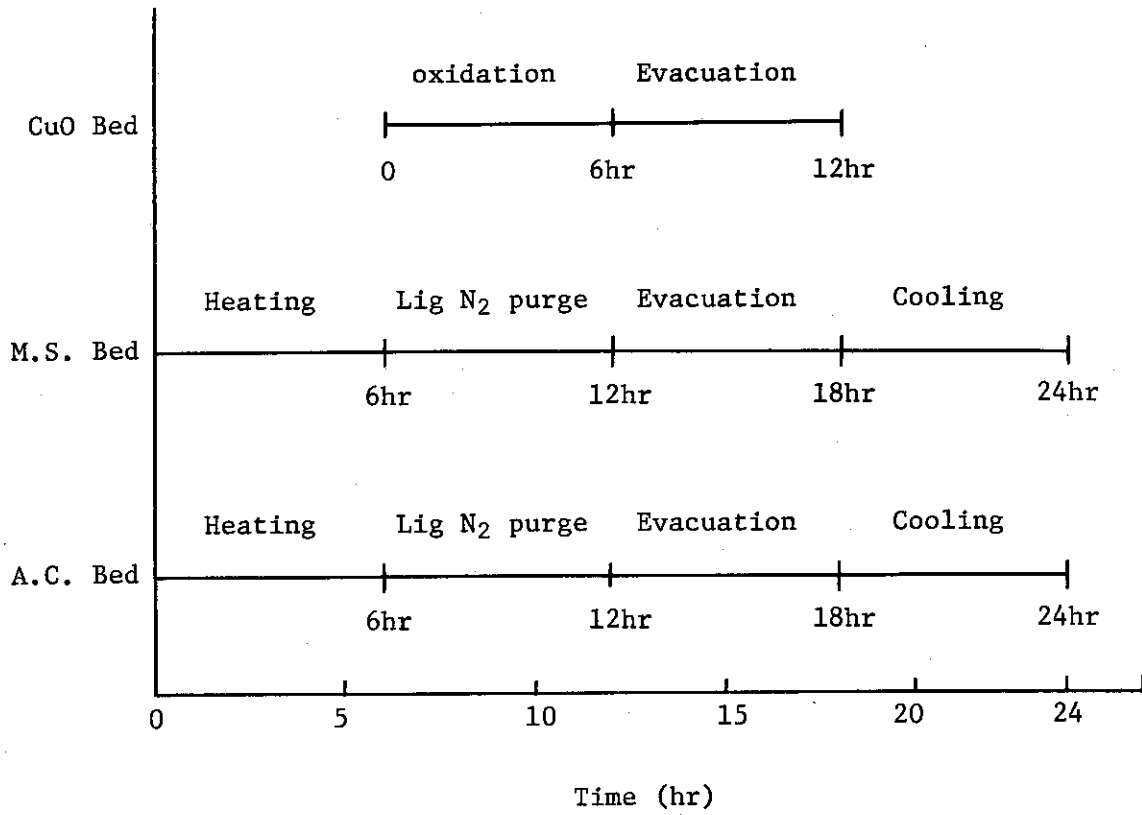


Fig. 2-8-5 Regeneration Program of three beds.

応式に示すように、 O_2 64.8 mol に対してCuは129.6 mol 反応するので、再生によって発生する反応熱は、

$$Q = 129.6 \times 37.1 = 4810 \text{ Kcal}$$

ただし、反応熱 = 37.1 (Kcal/mol-Cu) である。

したがって、再生ガスの温度上昇は、

$$\Delta T = \frac{4810}{0.248 \times 361} = 53.7 \text{ }^\circ\text{C}$$

ここで、

$$\text{再生ガス量} = 361 \text{ kg (289 Nm}^3\text{)}$$

$$\text{ガス比熱} = 0.248 \text{ Kcal/kg }^\circ\text{C}$$

である。再生ガス温度は反応熱のため53.7 $^\circ\text{C}$ 上昇するので、再生ガス温度を300 $^\circ\text{C}$ に制御するためには、入口温度を250 $^\circ\text{C}$ に制御する必要がある。

(2) MS ベッドの再生

モレキュラーシーブに吸着した H_2O 、 CO_2 は300 $^\circ\text{C}$ から350 $^\circ\text{C}$ で脱着する。この脱着した H_2O 、 CO_2 をキャリアガスでベッド外に移送することによりMSベッドを再生する。3ベッドシリーズ再生方式ではCuOベッドの再生ガスをキャリアガスに使用する。MSベッドの昇温および再生時間を夫々6時間とし、50 $^\circ\text{C/hr}$ で、300 $^\circ\text{C}$ まで昇温するに必要なヒーター容量をもとめる。充填材(モレキュラーシーブ)の加熱に必要な熱量は一筒につき、

$$Q_{MS} = W \cdot C_P \cdot \Delta T$$

ここで、

$$Q_{MS} = \text{モレキュラーシーブの加熱熱量 (Kcal)}$$

$$W = \text{モレキュラーシーブの重量 (152 kg/筒)}$$

$$C_P = \text{モレキュラーシーブの比熱 (0.24 Kcal/kg }^\circ\text{C)}$$

$$\Delta T = \text{加熱温度差 (300 - 10 = 290 }^\circ\text{C)}$$

したがって、

$$Q = 1.06 \times 10^4 \text{ Kcal/筒}$$

となる。また、ベッド容器の加熱熱量(Q_{SUS})は重量が約375 kgとなるので、

$$Q_{SUS} = 375 \times 0.11 \times 290 = 1.2 \times 10^4 \text{ Kcal}$$

となる。したがって、加熱に必要な全熱量(Q_T)は

$$Q_T = 2.26 \times 10^4 \text{ Kcal}$$

昇温時間が6時間であるから、再生用のヒーター出力(H)は

$$H = \frac{2.26 \times 10^4}{6 \times 3.6 \times 10^3 \times 0.2389} = 4.4 \text{ KW}$$

となる。

(3) コールドチャコールベッドの再生

ACベッドの再生は-196 $^\circ\text{C}$ で活性炭に物理吸着したガスを150 $^\circ\text{C}$ の温度で脱着させることに

より再生する。再生時にACベッドを液体窒素温度から150℃まで加熱するに要する熱量は活性炭およびベッド容器の加熱熱量の和である。活性炭の加熱に必要な熱量は1筒につき、

$$Q = 54.7 \times 0.2 \times (150 + 196) \\ = 3780 \text{ Kcal}$$

である。ベッド容器の加熱熱量は容器重量が約260kgであるから、

$$Q = 260 \times 0.11 \times (150 + 190) \\ = 9780 \text{ Kcal}$$

となる。従って加熱に必要な全熱量は、

$$Q_T = 13600 \text{ Kcal}$$

である。約4時間で150℃に加熱するとき、ヒーター容量は、

$$H = 3390 \text{ Kcal/hr} \equiv 3.9 \text{ KW}$$

となる。したがって、ACベッドの1基あたり4KWの再生用ヒーターが必要となる。

2.9 加熱器ヒータ材料と不純物ガス濃度

HENDELのM₂ループと試験部はアダプターで結ばれ、このアダプターにはヘリウムガスを1000℃に加熱するための電気ヒーターが設けられている。ヒーターの使用温度は約1200℃に達するため、ヒーター材料と使用雰囲気との適合性を検討し、最も信頼できるヒーター材料を選定することが必要となる。このため、数種のヒーター候補材料の高温における物理的、化学的な安定性の比較検討を行なった。検討を行なったヒーター材料はカンタルA-1、ニクロムNo.3、タンタル(Ta)、グラファイト、ハステロイ-X、インコロイ-800である。これらの主要成分表をTable 2.9.1に示す。

(1) カンタルA-1

カンタルは電気炉の発熱体として良く知られた材料である。特にカンタルA-1タイプは管状ヒータの製作が可能である。カンタルはFe-Cr系合金で耐酸化性をますために5.5%のAlが加えられている。このため、空気中で最高1370℃の温度で連続使用が可能である。しかし、O₂の少ないHe中で使用する場合には空気中で保護酸化被膜を形成したのち使用する必要がある。還元性雰囲気(H₂, NH₃, CH₄)で使用するときは最高使用温度は低下する。カンタルはハロゲンガスを含む雰囲気中では使用不可能である。

(2) ニクロムNo.3

工業的に最も多く使用されている材料で、カンタルと同じく、Fe-Cr-Al合金である。その成分比率もカンタルとよく似ているため使用条件もほぼカンタルと同一である。最高使用温度はカンタルよりやや低く酸化性雰囲気中1200℃である。しかし、ニクロムは管状ヒータの製作が不可能である。

(3) タンタル

タンタルは高融点金属であるが、非常に化学的に活性な金属で高温では容易にO₂, N₂と反応する。このため、O₂雰囲気、N₂雰囲気での使用は不可能である。O₂濃度が1ppm以下の高純度He中では1500℃のヒータ温度で使用可能である。このため、タンタルをHe中で使用するときは、

そのHe純度管理を充分に行なう必要がある。タンタルの管状ヒータの製作は比較的容易である。

(4) グラファイト

He中および還元性雰囲気では約2200°Cまでの使用が可能である。しかし、酸化性雰囲気での最高使用温度は500°Cから700°Cである。グラファイトの管状ヒータは製作可能であるが、機械的強度が弱いという欠点がある。

(5) ハステロイ-X, インコロイ-800

ハステロイ-XはNiベース合金, インコロイ-800はFeベース合金で, 共に耐熱合金である。両合金ともHe中での高温熱交換器の伝熱管或るいは高温部構造材料としての充分な使用実績がある。しかし, 融点がハステロイ-Xで1283°C, インコロイ-800で1380°Cと低いためヒータとして使用するときの最高使用温度は高純度He中で800°Cから900°Cである。

これらヒータ材料の比較表をTable 2.9.2に示す。

Table 2-9-1 Chemical composition of heating materials

Heating Materials	contents (o/o)			
Kanthal A-1	C	max 0.15	Cr	22.0
	Si	max 1.0	Al	5.5
	Mn	max 1.0	Co	0.5
			Fe	Bal.
Nichrome No.3	Cr	23 ~ 27	Al	4 ~ 6
	Fe	Bal.		
Tantalum	Ta	100		
Graphite	C	100		
Hastelloy-X	Cr	22	Mo	9
	Si	0.03	C	0.08
	Fe	18.5	W	0.6
	Ni	Bal	Mn	0.65
Incoloy-800	Cr	19 ~ 23	Ni	30 ~ 35
	Fe	Bal	Mn	0.9
	Ti	0.36	Si	0.33
	Cu	0.21	Al	0.44
			C	0.03

Table 2.9.2 Comparison of heating materials

	融点	物理的性質	電気抵抗	使用可能気	使用不可気	加工性	備考
Kanthal A-1	1510℃ 連続最高使用温度 1375℃ (保護酸化被膜形成時)	γ 7.1 g/cm ³ Cp 0.11 cal/g·°C β 20-1000℃ 1.5×10 ⁻⁶ /°C ブリネル硬さ 200~260 引張強さ 65-85 kg/mm ² 伸び 12-20%	20℃ 0.3Ωmm ² /m 1000℃ 3.7Ωmm ² /m	空気, N ₂ , Ar, He, CO ₂ CO, SO ₂ 雰囲気では比較的高温で使用可 特に酸化雰囲気は使用温度が高い	H ₂ , NH ₃ , タン雰囲気では使用温度は低下する ・ハロゲン及びその化合物との接触不可	焼結時成形 管長 3000 mm まで可 外径 25.4 mm 肉厚 1.3 mm	1050℃で軟化 低温度(300~800℃酸化雰囲気)長時間作動で損傷, 冷却過程での急冷は不可 酸化雰囲気約 1000℃で酸化被膜形成 加熱器形式は横型とすればパイプヒーター可能 実績多数
nichrome No. 3	1500℃ 最高使用温度 1200℃	伸び 7~25% γ 7.2 g/cm ³	132~148 μΩcm	酸化被膜形成により右記雰囲気以外可能	還元雰囲気 CO, CnHm では浸炭 ・イオン雰囲気不可	パイプ不可	
Tantalum	2906℃	β 20-1000℃ 6.6×10 ⁻⁶ γ 16.6 Cp 3.6×10 ⁻² cal/g·°C	20℃ 12.5 μΩcm 1500℃ 72 μΩcm	・Heガス中 H ₂ O 0.5 g/m ³ 以下であれば溶融点まで安定	酸化雰囲気 N ₂ 雰囲気	チューブ曲げ加工管理の5倍まで可能 プレス加工可能	HTGL 使用実績は O ₂ 濃度 1 ppm 以下
Graphite	中性ガス, 還元性 ガス中での最高使用温度 2200~3000℃	Cp 0.16 cal/g·°C β 20-8000℃ 1.8~5.3×10 ⁻⁶ /°C	20℃ 1~2×10 ⁻³ Ωcm 1500℃ 1.2~2.4×10 ⁻³ Ωcm	不活性ガス中, 真空中	酸化雰囲気 酸化開始温度* 空気 N ₂ O CO ₂ 450~500℃ 700℃ 900℃	パイプ製作可 7/8"~6" (外径) × (5t~19t) × 4000 L (焼結管)	熱交用黒鉛パイプの製作実績は多数あり * 24 h で 1% の重量損失のある温度
Hastelloy-x	1283℃	γ 8.2 g/cm ³ Cp 0.105 cal/g·°C ρ 16.7×10 ⁻⁶ /°C 伸び 41.1%	常温 118.3 μΩcm	He中実績あり (ヒータ) He/He熱交では 1000℃ 以下の使用実績が多数あり この温度範囲で使用するかぎりヒータ材としても使用可能		曲げ, 研削, 溶接可能, パイプ製作可	OGL-1 で実績
Incolloy-800	1357~1385℃	γ 8.02 g/cm ³ Cp 0.15 cal/g·°C	常温 95 μΩcm	He中実績あり (ヒータ) 構造材として, He 中では 800℃ 程度で良く用いられている * ヒータとしても大プロで 1120℃ まで実験している			* He の純度不明

文 献

- 1) K.Oshima, K.Naito, K.Nishida : JAERI - 4025 (1963)
- 2) O.E.C.D. : DRAGON, Third Annual Report (1961 ~ 1962)
- 3) W.J. Knapp, P.E.Lutz : C.E.P. Symp. Ser. Vol 66, No 104, 41 (1970)
- 4) R.H.Simon : GA-5938, (1965)
- 5) M.Gitterman : C.E.P.Symp. Ser. Vol 66, No 104, 31 (1970)
- 6) H.Tone : JAERI - M 6505 (1974)
- 7) H.Tone : JAERI - M 8031 (1979)