

JAERI-M
8543

熱拡散法によるKr-Xe系の分離

1979年11月

吉田 浩・沼田 和義・松田 祐二
大内 操・成瀬 雄二

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

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

熱拡散法による Kr - Xe 系の分離

日本原子力研究所東海研究所燃料工学部

吉田 浩・沼田 和義・松田 祐二⁺

大内 操⁺⁺・成瀬 雄二

(1979年10月12日受理)

本研究は、再処理工場廃ガスを対象としたクリプトン放出低減化プラントの Kr - Xe 分離工程に熱拡散法を適用する場合の可能性を検討することを目的として実施したものである。実験装置としてはガラス製の加熱管型拡散塔（有効高さ1000mm，冷壁内径32mm，熱管外径21mm，塔内容積約500cc）を使用し，種々の操作条件（温度，圧力，ガス組成，リザーバー容積）における Kr - Xe 系の分離特性（分離係数，回収率，平衡達成時間など）を調べた。この結果，加熱管型の回分式熱拡散塔の分離特性は安定しており，最適操作圧力が広い温度範囲において400Torr前後となること，ならびに見掛けの分離係数が塔の上下部におけるリザーバーの有無あるいは容積にかかわらず操作温度を高めるほど向上できることが確かめられた。さらに，1500ton-U/yrの再処理工場を対象とした Kr - Xe 分離プラントが放射性ガスの漏洩に対して安全性に優れており，しかも比較的小型に設計できることの見通しを得た。

+ 東海研究所核融合研究部

++ 東海研究所原子炉化学部

Separation of Kr-Xe System by Thermal Diffusion Method

Hiroshi YOSHIDA, Kazuyoshi NUMATA, Yuji MATSUDA⁺,
Misao OUCHI⁺⁺ and Yuji NARUSE

Separation Engineering Laboratory, Division of Nuclear Fuel
Research, Tokai Research Establishment, JAERI

(Received October 12, 1979)

Separation experiments of Kr-Xe system were carried out to study the possibility of adapting thermal diffusion method for concentration of krypton in a fuel reprocessing off-gas treatment process.

The results are as follows.

- (1) A batchwise thermal diffusion column of hot tube diameter 21 mm, cold tube diameter 32 mm, effective height 1000 mm and volume ~500 CC is the best in separation characteristics and in ease of operation under the different conditions.
- (2) The overall separation factor increases with increase of the operating temperature in the column with and without reservoir.
- (3) The optimum operating pressure (about 400 Torr) is independent of the operating conditions such as temperature, reservoir volume and feed gas content.
- (4) A preliminary design of the Kr-Xe separating plant for a reprocessing plant (1500 ton-U/yr) shows the required number of columns and the total electric power.

Keywords : Reprocessing Off-Gas, Krypton, Xenon, Thermal Diffusion Column, Separation Factor, Equilibrium Time, Optimum Operating Pressure, Decontamination Factor, Reduction Ratio

⁺ Division of Thermonuclear Fusion Research, Tokai Research Establishment, JAERI

⁺⁺ Division of Chemistry, Tokai Research Establishment, JAERI

目 次

1. はじめに	1
2. 実 験	7
2.1 実験装置	7
2.2 実験方法	8
(1) リザーバーのない熱拡散塔による場合	8
(2) リザーバー付き熱拡散塔による場合	8
3. 結果および考察	12
3.1 リザーバーのない熱拡散塔の分離特性	12
3.2 リザーバー付き熱拡散塔の分離特性	15
3.3 Kr-Xe 分離工程の検討	17
4. ま と め	32
謝 辞	33
参考文献	34

List of Contents

1.	Introduction	1
2.	Experimental	7
2.1	Experimental apparatus	7
2.2	Experimental procedure	8
(1)	Ordinary type column	8
(2)	Reservior type column	8
3.	Result and Discussion	12
3.1	Separation characteristics of ordinary type column ...	12
3.2	Separation characteristics of reservior type column ...	15
3.3	Preliminary design of Kr-Xe separating process	17
4.	Conclusion	32
	Acknowledgment	33
	References	34

1. はじめに

核燃料サイクルにおいて、環境へのクリプトン放出量が最も大きいのは、再処理工場廃ガスからのものと考えられる。再処理工場廃ガスを対象とした希ガスの分離・回収法については、液化蒸留法（深冷分離法）、溶媒吸収法、選択透過膜法など幾つかの方法が有望とされており、多数の報告がなされている^{1~5)}。特に、液化蒸留法は、動燃団・再処理工場（処理量 0.7 ton-U/yr）においてパイロット・プラントの建設計画が進められており、さらに米国（Barnwell, Exxon）、フランス（Fontenay-aux-Roses, Marcoule）、西独（Jülich, Karlsruhe）、ベルギー（SCK-CEN, Mol）において実用規模プラント（処理量 1,000~1,500 ton-U/yr を対象としたもの）の設計がなされるなど、現時点では最も実用化に近い技術と考えられている。しかし、廃ガス中には放射性希ガスとともに有機ヨウ素、揮発性ルテニウム、トリチウムおよび空気成分である窒素、酸素、アルゴン、メタン、水分など多種類の物質が含まれているため、放射線の作用による蒸留塔内でのオゾン生成と爆発の危険性ならびに配管、バルブ等の凍結・閉塞の恐れがあり、これらの成分を除去する前処理工程の確立と信頼性の向上が重要な開発課題となっている。

一方、筆者らの提案している多孔質隔膜法^{7~8)}は、操作が常温・常圧で行えること、カスケードの安定性が高いこと、オゾンや過酸化物の生成・蓄積の恐れがなく前処理工程を簡単にできること、大流量ガスの連続処理に適したプロセスであること、隔膜が耐放射線性に優れていること、など放射性ガスの取扱いの面で安全性の高いことが特長となっている。さらに、2分割型拡散筒を採用したカスケード（Hertz型）の段分離係数は非常に大きくなり（ N_2 -Ar-Kr-Xe系を用いた分離実験より、 $\alpha_{Ar/N_2} \cong 1.30$ 、 $\alpha_{Kr/N_2} \cong 2.28$ 、 $\alpha_{Xe/N_2} \cong 2.90$ なる値を得ている*）、カスケード規模を小さくできること（所要段数約25段）から、かなりの経済性も期待されている。

図 1.1 は、処理量 1,500 ton-U/yr の再処理工場廃ガス（燃焼度 34,000 MWD/ton, ガス流量 5,000 Nm³/day）からの希ガス分離・回収工程に多孔質隔膜法を適用した場合のクリプトン放出低減化プラントのプロセスフローシートを示したものである。また、表 1.1 は、プラント各部における各成分の流量、濃度、放射能をまとめたものである。

前処理工程は、第1カスケード系（多孔質隔膜法）において隔膜性能への悪影響、機器内表面への附着・汚染あるいはカスケード最上段から大気中へ放出される排気ガスへの同伴などが考えられる成分（微粒子、水分、トリチウム、有機ヨウ素、NO_x、Ru）をあらかじめ除去するためのものであり、コンデンサー、HEPA フィルター、ヨウ素吸着塔、窒素酸化物・水素反応塔（Ti系触媒、Pt-Al₂O₃触媒使用）、乾燥塔、Ru吸着塔などから構成されている。本プロセスの大きな特徴は、後述する理由から、廃ガス①の約半分を占める酸素の除去行程を

* N_2 -Ar-Kr-Xe系の理想的な分離係数は、 $(\alpha_0)_{Ar/N_2} = 1.195$ 、 $(\alpha_0)_{Kr/N_2} = 1.742$ 、 $(\alpha_0)_{Xe/N_2} = 2.163$ であり、2分割型拡散筒の採用により段分離係数は大幅に向上する。

設けていないことである。このため、前処理工程の規模を液化蒸留法の場合より小さくすることができる。

以上の前処理工程を経た廃ガス⑩は、第1カスケード系において排気ガス(空気成分)⑪と回収ガス(希ガス)⑫とに分離される。排気ガスはスタックから放出され、回収ガスはさらに後処理工程で分離、貯蔵される。ここで、第1カスケードは25段で構成されており、 ^{85}Kr に対する除染係数(DF)は112、排気ガス中への ^{85}Kr およびトリチウムの放出量はそれぞれ504 Ci/dayおよび0.9 Ci/dayである。

図1.2は、筆者らの実験結果に基づく操作条件と分離係数との関係ならびに図1.1に示した第1カスケード入口⑩における廃ガス条件(流量、組成)を用いて、カスケード内に形成される濃度分布(定常時)を計算したものである。これより、比較的軽い成分である酸素は、カスケード上段(段番号の大きい方)に濃縮され、カスケード最下段(第1段)において10~20%程度の値をとることが分かる。しかし、この条件における $\text{O}_2 \rightarrow \text{O}_3$ 反応のG値10~30は、 $\text{O}_3 \rightarrow \text{O}_2$ 反応のG値5,000~15,000に比べて極めて小さいことから、オゾン濃度は高々10 ppm程度に過ぎないものと推定される(ガス状オゾンの爆発限界; 10%以上)⁹⁾。本カスケードのこのような分離特性から、酸素除去プロセスを前処理工程に設ける必要のないことが明らかにされた。

後処理工程は、回収ガス中に10~20%程度含まれる酸素を除去するための酸素・水素結合器、水分を除去するための乾燥塔、KrとXeを分離するための第2カスケード系ならびに貯蔵設備から構成されている。ここで、回収ガスを分離しないでそのまま貯蔵する方法(⑬、⑭)における減容比 1.1×10^{-3} も考えられるが、ポンペ所要本数は約900本/yr(充填圧力; 35 kg/cm^2 , 放射能; $1.6 \times 10^4 \text{ Ci/年}$, 表面線量率; 900 R/hr , 発熱量; $22 \text{ Kcal/hr} \cdot \text{本}$)となり、貯蔵設備の大きさを考慮すると放射性 ^{85}Kr を含むクリプトンと非放射性的なキセノンとを分離して貯蔵する方式(クリプトンポンペ本数; 80本/yr)の方が有利となる。

クリプトンとキセノンとを分離する第2カスケード系の分離法としては、ガス流量が比較的小さいことから、熱拡散法^{10~18)}、液化蒸留法、低温吸着法が有力な方法と考えられる。特に、回分式熱拡散塔は、運転の容易さ、故障に対する信頼性、高気密性など高濃度の放射性ガスを取扱う上で要求される事項を満足しており、高い安全性が期待できる。

本研究は、以上の観点から、回分式熱拡散塔の分離特性(分離係数、濃縮度、回収率、平衡達成時間)と操作条件(温度、圧力、ガス組成)との関係を明らかにし、実用装置の設計および運転に反映できる工学データを得ることを目的として実施したものである。

なお、熱拡散塔の分離特性は、

- (1) 幾何学的条件 ; 塔長、熱壁と冷壁との間隙、塔の鉛直度、熱線・熱管の偏心など
 - (2) 気体の物性値 ; 粘度、密度、拡散係数など
 - (3) 操作条件 ; 温度、圧力
 - (4) その他 ; 塔の材質、塔の運転方式(回分式、連続式)、リザーバーの有無など
- などのような諸因子により影響を受け、非常に複雑である。また、分離特性を詳細に解析するためには、塔内の濃度分布、流動分布(循環流量)の測定も必要となるが、これらの測定は容易ではない。

そこで、本研究では、塔長、間隙、材質、運転方式などの条件を固定し、熱拡散塔の見掛けの分離係数と操作条件との関係を K_r-X_e 系について明らかにした。次いで、実験結果に基づき、図 1.1 における第 2 カスケードの規模（段数、塔数、所要電力）の推定を行った。

表 1.1 クリプトン放出低減化プラントにおける廃ガスの流量、濃度および放射能

	プラント入口 ④			第1カスケード入口⑤ 流量, 放射能	排気ガス⑥ 流量, 放射能	回収ガス⑦ 流量, 放射能	第2カスケード入口⑧ 流量, 放射能
	流量	濃度	放射能				
N ₂	1332 kg/hr	4946 %	—	133.2 kg/hr	4.76×10 ³ mol/hr	0.310 mol/hr	0.310 mol/hr
O ₂	1431 "	4656 "	—	142.9 kg/hr	4.47×10 ³ "	1.20 "	—
H ₂ O	5625 "	325 "	—	21.4 g/hr以下	—	—	—
Ar, Ne	223 "	5820 ppm	—	223 kg/hr	580 "	0.217 "	0.217 "
Xe	1.175 "	910 "	3.15 Ci/day	131 mCi/hr	1.46 μCi/hr	8.74 mol/hr 0.131 mCi/hr	8.74 mol/hr 0.131 mCi/hr
NO _x	125 g/hr	340 "	—	0.87Nℓ/hr以下	—	—	—
CO ₂	783 "	186 "	—	783 g/hr	0.562 mol/hr	—	—
Kr	800 "	98 "	56500 Ci/day	2354 Ci/hr	21 Ci/hr	0.938 mol/hr 2333 Ci/hr	0.938 mol/hr 2333 Ci/hr
H ₂ , HT	1.19 "	62 "	900 Ci/day	375 mCi/hr	375 mCi/hr	—	—
I	0.639 "	0.5 "	12.3 mCi/day	0.513×10 ⁻³ "	—	0.513×10 ⁻³ Ci/hr	0.513×10 ⁻³ Ci/hr
Ru	4.17×10 ⁻⁶ "	—	24 mCi/day	0.001 "	—	0.001 mCi/hr	0.001 mCi/hr
合計	285.7 kg/hr 215.3 Nm ³ /hr	100.0 %	57403 Ci/day	208.5 Nm ³ /hr	(154.8 mol/min)	(11.4 mol/hr)	(10.2 mol/hr)

- ・再処理工場 : 処理量1500ton-U/yr, Purex法, 稼働日数300日/yr
- ・使用済燃料 : 軽水炉燃料, 燃焼度34000MWD/ton, 冷却日数180日
- ・燃料中のFP生成量 : ORIGENコードによる計算値
- ・廃ガス流量 : 空気成分については, 動燃団再処理工場のせん断, 溶解工程をスケールアップした。FP成分の廃ガス中への混入率については, 同上工場のケミカルフローに準拠した。

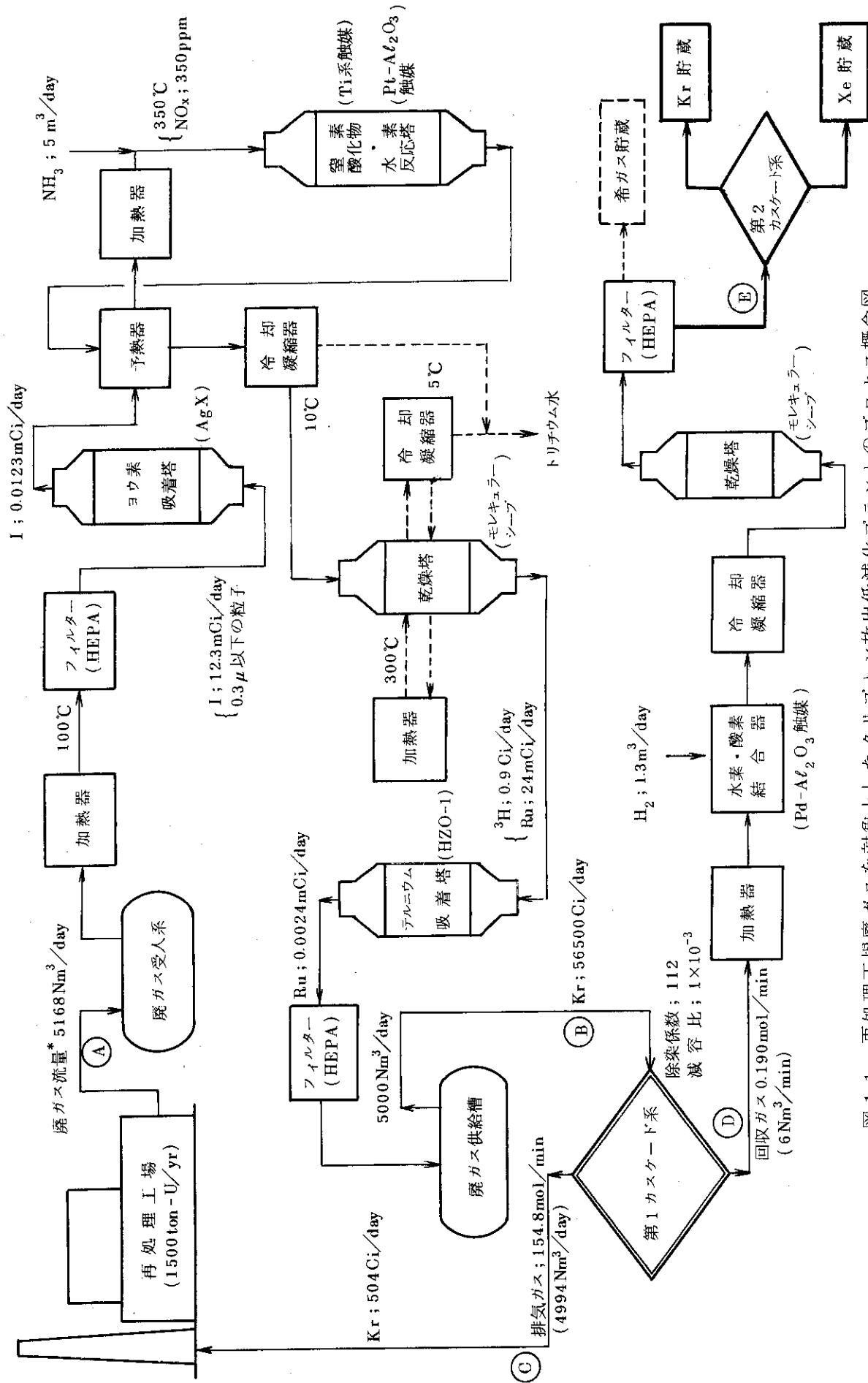


図 1.1 再処理工場廃ガスを対象としたクリプトン放出低減化プラントのプロセス概念図

* 水分 168 Nm³/day を含む。
 [①~⑭は表1.1に示した条件に対応する。]

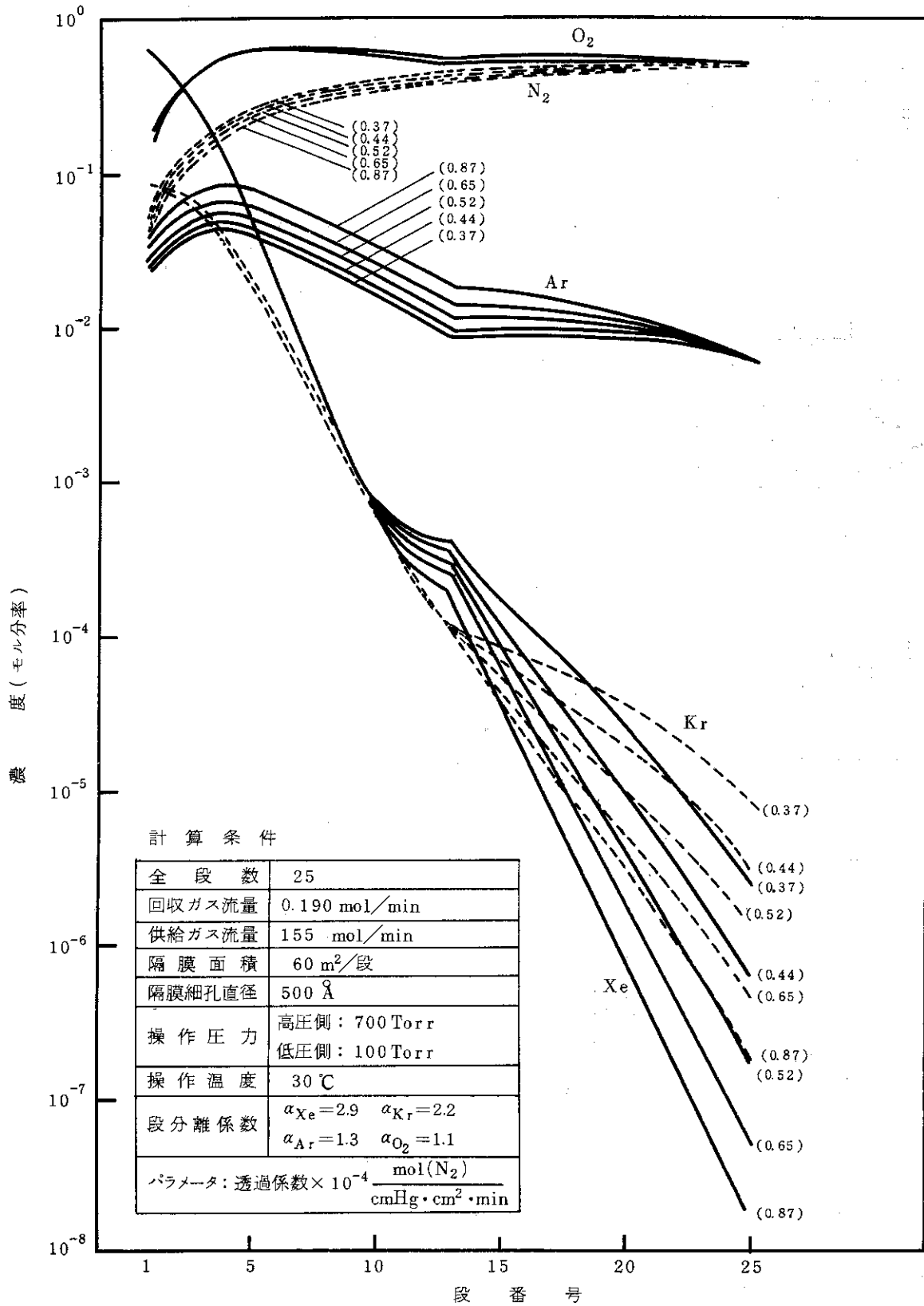


図 1.2 クリプトン放出低減化プラントの第1カスケード(多孔質隔膜法)内における濃度分布

〔再処理工場規模: 1500 ton-U/yr
 廃ガス条件: 図 1.1, 表 1.1 の⑩参照〕

2. 実 験

2.1 実験装置

図 2.1 は、実験に用いた熱拡散塔の構造および寸法を示したものである。熱拡散塔には硬質ガラス製の 2 重管を用い、熱管には熱膨張係数が比較的小さく*、しかも水素の透過および水素脆化の起りにくいインコネル 600 製の管を使用している。熱管は、管内のニクロム線に交流を通じることによって加熱される（有効発熱長 100 cm）。熱管温度は、有効発熱長の 2 分の 1 の位置に挿入した CA 熱電対で測定する。塔内の圧力は、ヘリコイドゲージ（測定範囲 0 ~ 2500 mmHg, 最小目盛 10 mmHg）で測定する。冷壁と熱管表面との間隙は、5.5 mm となっており、この部分の容積は約 500 cm³ である。加熱による熱管の曲がりや偏心を防ぐために、熱管の下端部は熱膨張ガイドを設けた自由端としている。

熱拡散塔の上、下部には冷却水の流入・流出ノズルならびに種々の大きさのリザーバーを装着できるノズルが設けられている。サンプルガスは、塔内あるいはリザーバーから抜き出すことができる。なお、塔上下端はフランジ（SUS304 製）により密閉されており、ガasket にネオプレンを用いることによって装置の気密度を 1×10^{-6} atm·cm³/sec 以下に保っている。

図 2.2 は、実験装置全体を概念的に示したものである。装置は、大別すると熱拡散塔を中心とするガス循環系、電気系、冷却水系、混合ガス供給系、真空排気系から構成されている。

電気系には、熱拡散塔の熱管加熱用交流電源および塔上下部とリザーバー間のガス循環を促進するための熱サイフォン用交流電源があり、いずれもスライダックにより加熱温度が調節される。

混合ガス供給系には、ブルドン管式圧力計（測定範囲：-760 mmHg ~ 2.5 kg/cm² G, 精度：0.15% F.S.）を備えたガス混合容器（ステンレス製タンク、容積 69 l）と希ガスポンプヘッダーおよび真空排気用配管系がある。これにより、一定組成の混合ガスを熱拡散塔に供給することができる。

真空排気系は、熱拡散塔、混合ガス供給系とともにサンプルピンを真空排気するためのもので、真空ポンプとして油拡散ポンプを用いることにより各部分を 1×10^{-2} mmHg 以下の真空度にする事ができる。

図 2.3 は、熱拡散塔の消費電力と熱管温度との関係を Kr-Xe 系、H₂-He 系混合ガスおよび純 He ガスについて示したものである。また、図には純粋気体の熱伝導度と温度の関係を既存の値から外挿して示している。

これより、Kr-Xe 系の場合、高温では気体の熱伝導度が増加するため、消費電力に対する熱管温度の上昇割合が減少することが分かる。一方、熱伝導度が大きい H₂-He 系および He ガスの場合（800℃において、Kr, Xe の熱伝導度の約 15 ~ 30 倍）、熱管温度の上

線膨張係数： $16.1 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ (800℃)

昇割合は広い温度範囲において緩やかになる。この結果、最大消費電力が約 3 kW の本実験装置では、Kr-Xe系に対して約 800°C、H₂-He系に対して約 650°C が熱管温度の上限と分かる。なお、熱管温度は、圧力にほとんど依存しないようである。

また、冷壁温度は、熱拡散塔の冷却水出口温度に等しいものとし、出口温度が 15~20°C になるように水量を適宜調節した。

2.2 実験方法

本実験では、熱拡散塔の分離特性として濃縮度、分離係数、平衡達成時間、回収率などに着目し、以下の実験を行った。

(1) リザーバーのない熱拡散塔による場合

実験パラメータとして、操作温度、圧力および原料ガス組成をそれぞれ次のように定めた。

操作温度については、熱管温度を 500°C、700°C および実験装置において可能な最高温度 800°C とし、冷壁温度（冷却水出口温度）を 15~20°C とした。

操作圧力については、放射性ガスを取扱う場合の安全性を考慮して、大気圧より低い 200 Torr、400 Torr および 600 Torr とした。

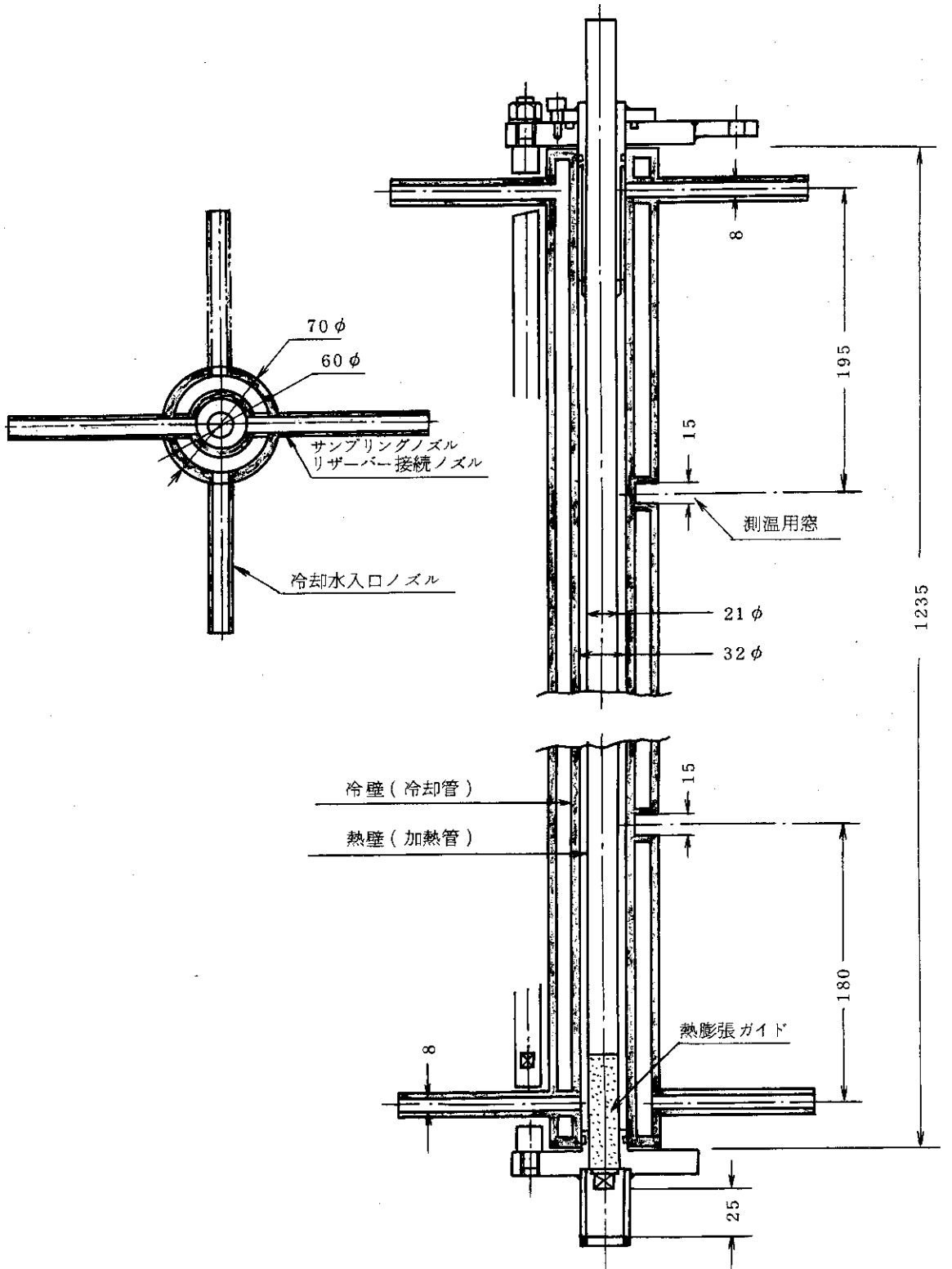
原料ガスについては、第 1 カスケード（図 1.1 参照）の最下段から抽出される回収ガス組成を考慮して、重成分濃度の高い 10% Kr-90% Xe 系を選定した。また、比較のために、両成分の混合割合の等しい 50% Kr-50% Xe 系も用いた。

以上の各操作条件において、熱拡散塔の上、下部におけるクリプトン濃度の経時変化を測定し、分離特性と操作温度、圧力ならびに原料ガス組成との関係を調べた。

(2) リザーバー付き熱拡散塔による場合

本実験装置はクリプトンの高濃縮に着目して設計したものであり、下部リザーバーの大きさ（容積）は 2500 cc に固定されている。今回の実験では上部リザーバー容積を 100 cc、250 cc および 500 cc に変更し、上下リザーバーの各組合せに対応する分離特性を調べた。熱拡散塔の操作条件は、リザーバーのない場合の分離特性との比較のため、温度および圧力はそれぞれ 700°C、800°C（冷壁温度 15~20°C）および 200 Torr、400 Torr、600 Torr とし、原料ガス組成は 10% Kr-90% Xe 系、50% Kr-50% Xe 系、およびクリプトン濃度のかなり低い場合を想定した 1% Kr-99% Xe 系を用いた。熱拡散塔両端とリザーバーとの接続管の温度は一定値（50°C）に固定した。

以上の(1)、(2)における実験ガスの分析には、質量分析計（Varian Mat 社製 CH-4、相対偏差 ± 0.01）を用いた。



単位 (mm)

図 2.1 熱拡散塔 (硬質ガラス製) の構造

記号	機器の名称
PI	ブルドン管式圧力計
TR	温度指示記録計
V-1~9	真空用ベローズバルブ
C-1	ガラスコック
SV-1	ガス混合容器内サンプルバルブ
SC-1, 2	サンプルガス採取用三方コック
WV-1, 2	冷却水用バルブ
←	継手 (ボール・ジョイント)
~	ヒーター供給用電源
—	実験ガス循環系
≡	冷却水循環系
---	電気系

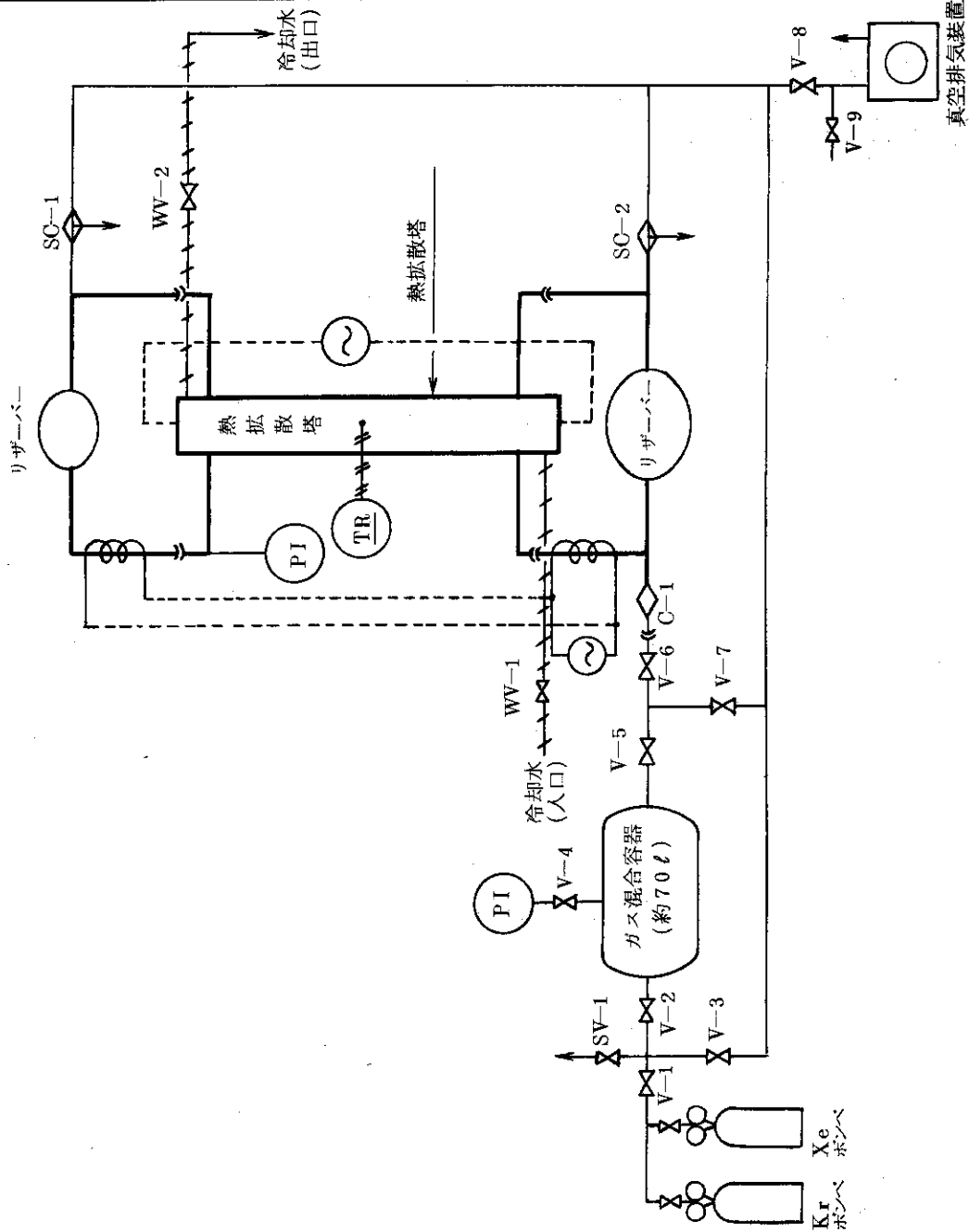


図 2.2 熱拡散塔実験装置の概念図

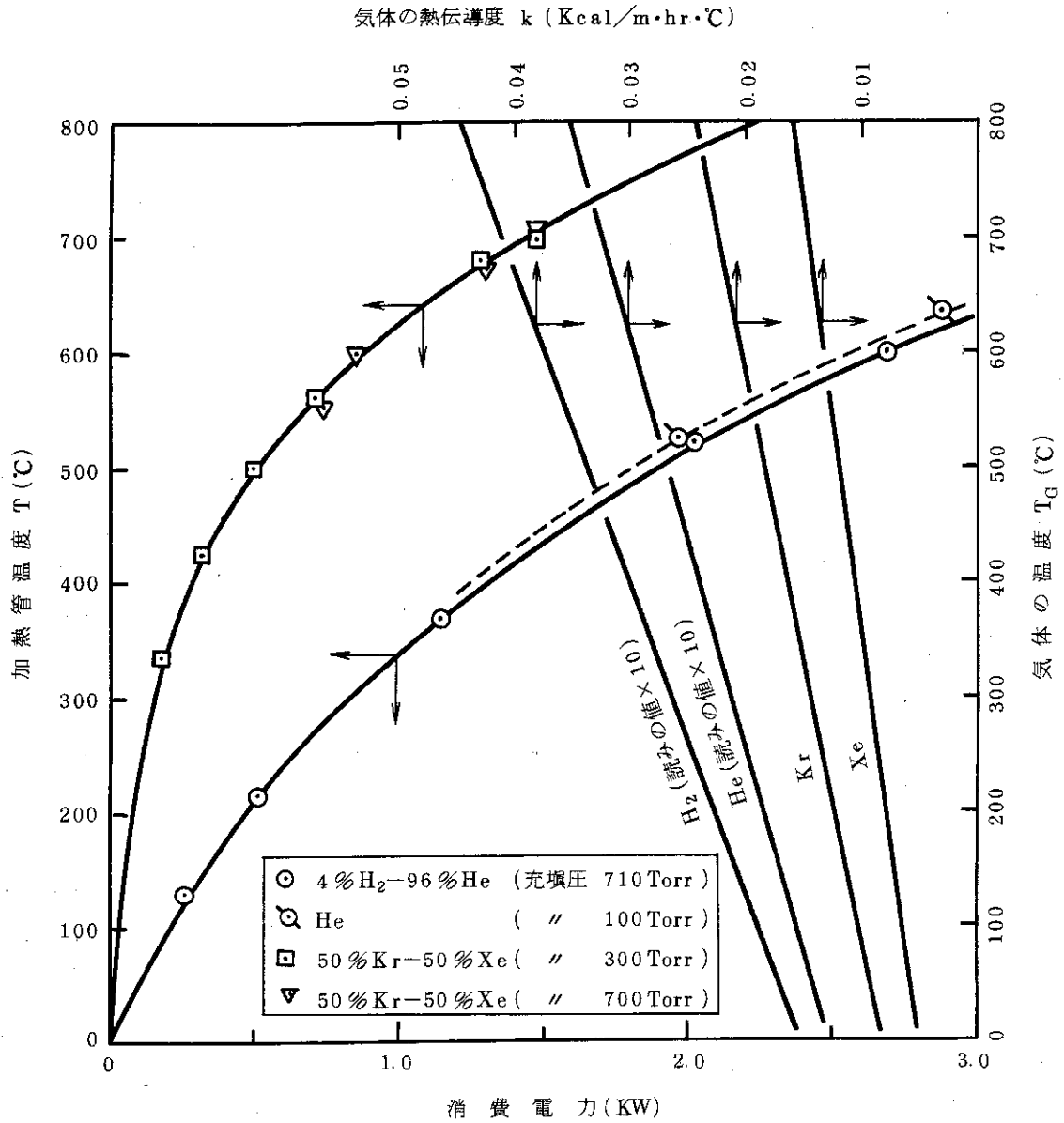


図 2.3 熱拡散塔の加熱管温度と消費電力の関係

熱拡散塔; 硬質ガラス製
 加熱管; インコネル600製 (外径: 21 mm,
 有効長さ: 100 cm, ヒータ: ニクロム線)
 電源; 交流
 温度計; CA熱電対 (加熱管内挿入型)

3. 結果および考察

3.1 リザーバーのない熱拡散塔の分離特性

表 3.1 は、実験条件および結果の概要をまとめたものである。以下、本表に示す実験について考察をすすめる。

図 3.1 は、操作圧力を 400 Torr に固定し、操作温度（熱管温度）をパラメータにした場合の熱拡散塔上下端におけるクリプトン濃度 N_T, N_B および次式で定義される見掛けの分離係数 $\ell n q$ の経時変化を示したものである。

$$\ell n q = \ell n \frac{N_T (1 - N_B)}{N_B (1 - N_T)} \quad \dots\dots\dots(1)$$

これより、平衡時における分離係数 $\ell n q_e$ は、500℃、700℃および800℃の各温度についてそれぞれ 1.67、3.18 および 3.80 であり、温度依存性が極めて大きいことが確かめられた。一方、平衡達成時間 τ_e は、いずれの温度条件においても 70 分以内であり、極めて短時間のうちに塔内に定常濃度分布が形成されることならびに平衡達成時間の温度依存性は比較的小さいことが明らかになった。

図 3.2 は、操作温度を 700℃ に固定し、圧力を 200 Torr、400 Torr および 600 Torr と変化した場合の分離特性を対比して示したものである。これより、分離係数 $\ell n q_e$ は、200 Torr および 400 Torr においてほぼ等しい値 3.4 となっているが、600 Torr において 1.63 と大幅な減少がみられることが分かる。一方、平衡達成時間 τ_e は、いずれの場合も 70 分程度であり、操作圧力の影響は明瞭ではない。しかし、詳細にみると、分離係数 $\ell n q_e$ の小さいときほど（操作圧力が 600 Torr のとき）、平衡達成時間 τ_e が短くなる傾向が認められる。

図 3.3 は、以上の実験結果を整理したものである。これより、本熱拡散塔の見掛けの分離係数 $\ell n q_e$ が最大となる操作範囲は、各操作温度に対して 400 Torr 以下の操作圧力であることが推定される。一方、平衡達成時間 τ_e は、操作温度が高く、操作圧力が低いほど、すなわち、分離係数 $\ell n q_e$ が大きくなるほど長くなる傾向にある。従って、処理量を考慮すれば、本実験範囲における最適操作条件として、温度 800℃、圧力 400 Torr が選定される（見掛けの分離係数；3.80、塔上端 Kr 濃度；28.23%，平衡達成時間；70 分）。

ところで、方形カスケードの全還流操作における平衡達成時間の簡易計算法としてよく知られている Burton¹⁹⁾ の式は、次式で与えられる。

$$\tau_k = \frac{4}{(\alpha - 1)^2} \left(\frac{h}{L''} \right) \left[\frac{B^2}{B^2 + \pi^2} \cdot \ell n \frac{2\pi^2(1 + e^B)(1 + e^{-B})}{k(B^2 + \pi^2)^2} \right] \quad \dots\dots\dots(2)$$

$$B = \frac{N(a-1)}{2} \dots\dots(3)$$

ここで、 h ; 1段当りのガスのホールドアップ
 L' ; 循環(下降)流量
 N ; カスケードの段数
 a ; 1段当りの分離係数
 k ; カスケード起動後 τ 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 (N, ∞), $x(0, \infty)$ と表わしたとき, 次式で定義される値である。

$$1 - k = \frac{x(N, \tau) - x(0, \tau)}{x(N, \infty) - x(0, \infty)} \dots\dots(4)$$

例えば、 $k=0.02$ のとき, (2)式を満足する τ を 98% 平衡達成時間と呼び、 $\tau_{0.02}$ と書く。

(2)式の〔〕内はほぼ段数の2乗に比例していることから、平衡達成時間は段数と1段当りの分離係数により大きく影響を受けることが分かる。すなわち、段数が与えられた場合には平衡達成時間は分離係数の増加とともに減少し、分離係数が与えられた場合には平衡達成時間は段数の増加とともに増大する。

本実験においては、熱拡散塔の上下端の濃度を測定することにより塔全体の見掛けの分離係数 $\ln q_c$ を求めており、塔内部の濃度分布や循環流量の測定を行っていないため、変数相互間の解析は不可能である。しかし、ここに図示した実験結果より、操作条件の変更が1段当りの分離係数および所要長さ(HETS)の変化として現われ(後者のHETSの変化が熱拡散塔の段数に影響する)、これらが熱拡散塔の見掛けの分離係数および平衡達成時間に複雑な影響を及ぼしているものと考えてよい。

次に、取扱いの最も簡単な平板型熱拡散塔モデルの分離係数推算式は次式で与えられる¹⁶⁾

$$\ln q_c = \frac{N_T(1-N_B)}{N_B(1-N_T)} = \frac{H \cdot L}{K_c + K_d} \dots\dots(5)$$

ここで、 L ; 塔の有効高さ
 H, K_c, K_d ; 熱拡散塔定数と呼ばれ、それぞれ、塔内部における熱拡散、対流および塔の垂直方向における相互拡散に依存する項である。

いま、塔内の気体が理想気体として取扱うことが可能であり、しかも熱壁・冷壁間の温度差 ΔT が小さく気体の物性値(密度 ρ , 粘度 μ , 拡散係数 D_{12} , 熱伝導度 λ) および熱拡散定数 α_T の温度変化が無視できる場合には、熱拡散塔定数は次の各式で与えられる。

$$H = \frac{\alpha_T \cdot \rho^2 \cdot g \cdot X^3 \cdot W}{96 \eta} \left(\frac{\Delta T}{T} \right)^2 \dots\dots(6)$$

$$K_c = \frac{\rho^3 \cdot g^2 \cdot X^7 \cdot W}{4 \cdot 8^2 \cdot \eta^2 \cdot D_{12}} \left(\frac{\Delta T}{\bar{T}} \right)^2 \quad \dots\dots(7)$$

$$K_d = 2 \rho \cdot D_{12} \cdot X \cdot W \quad \dots\dots(8)$$

ここで、 \bar{T} ; 熱壁および冷壁の平均温度

g ; 重力の加速度

$2X$; 熱壁と冷壁の間隔

W ; 平板型熱拡散塔の幅

また、熱拡散定数 α_T は次式で定義されるものである。¹⁶⁾

$$D_T = D_{12} \cdot N_1 \cdot N_2 \cdot \alpha_T \quad \dots\dots(9)$$

ここで、 D_T は熱拡散係数、 N_1, N_2 は軽成分、重成分の濃度である。 D_T は組成により変化するが、 α_T は組成により余り変化しないとされている。

以上の各式から、熱拡散塔の分離係数は、塔の幾何学的条件、気体の物性値、操作条件などにより大きく影響を受けることが分かる。すなわち、分離係数と操作条件との相関を定量的に把握するためには、熱拡散塔内に形成された温度分布および濃度分布を正確に測定することにより熱拡散塔定数 H, K_c, K_d を求める必要があるが、ここでは、測定上の制約もあるため、実験値と理論式による解析結果との詳細な比較・検討は行わないものとする。

次に、熱拡散塔の分離係数に及ぼす原料ガス組成の影響に着目して実施した実験結果について述べる。

図 3.4 ~ 3.6 は、原料ガス組成を 50% Kr-50% Xe にした場合の分離特性を示したものである。図 3.4 では、操作圧力を 400 Torr に固定し、操作温度を変化した場合の塔上下端における濃度 N_T, N_B の経時変化を示している。これより、いずれの操作温度についても、塔上下端濃度の経時変化は初期濃度に対してほぼ対称的であり、塔内にきれいな濃度分布の形成されていることが推定される。また、分離の度合いは、操作温度の高いほど大きくなる傾向にあるが、700℃と800℃とで大きな差がないことも注目される。平衡達成時間は、いずれの場合も、80分程度である。次に、図 3.5 は、操作温度を 700℃ に固定し、操作圧力を変化させた場合の濃度 N_T, N_B の経時変化を示したものである。これより、分離の度合いは 400 Torr > 600 Torr > 200 Torr の順になっており、操作圧力に対して最適値のあることが分かる。また、この場合にも、定常濃度分布は約 80 分で形成される。図 3.6 は、見掛けの分離係数 $\ln q_e$ および平衡達成時間 τ_e を操作圧力について整理したものである。これより、本実験範囲における最適操作条件として、操作圧力 400 Torr、操作温度 800℃ が選定される。このときの見掛けの分離係数 $\ln q_e$ は 5.17、塔上端 Kr 濃度は 92.7%、平衡達成時間は 80 分である。

以上の実験結果より、リザーバーのない熱拡散塔の分離特性が比較的広い操作範囲（温度；500~800℃、圧力；200~600 Torr、原料ガス組成；10~50% Kr）において安定しており、最適条件（800℃、400 Torr）においては分離係数が大きく（10% Kr-90

％Xe系では3.80，50％Kr-50％Xe系では5.17)，かつ平衡達成時間も80分以内と短いことが実証された。これより，本法のクリプトン放出低減化プラント・第2カスケード系への適用の可能性が確かめられた。

3.2 リザーバー付き熱拡散塔の分離特性

表3.2は，実験条件および結果をまとめたものである。以下，表に示す実験について考察を進める。

図3.7は，塔上端に500cc，下端に2500ccのリザーバーを設けた熱拡散塔における分離特性の経時変化を示したものである。ここで，リザーバーのない場合の分離特性との比較のために，操作条件（温度，圧力，原料ガス組成）は同一としている（図3.2参照）。また，見掛けの分離係数 ℓ_{nq} は，上下部リザーバー内のクリプトン濃度 N_T, N_B を(1)式に代入して求めた値である。図において，濃度 N_T, N_B の変化は極めて滑らかであり，リザーバーを含む熱拡散塔の分離特性が非常に安定していることが分かる。見掛けの分離係数 ℓ_{nq} は圧力により大きく変化するが，その傾向はリザーバーのない熱拡散塔における分離係数と圧力との関係に類似しており（図3.2参照），圧力400 Torrのときに最大の分離係数が得られるものと推定される。平衡達成時間は，いずれも300分以上となっており，図に示す範囲では平衡値に到達していない。特に，見掛けの分離係数 ℓ_{nq} の最も大きい400 Torrのとき平衡時間が著しく増加している。

いま，圧力400 Torr，操作時間270分におけるクリプトン濃度 N_T, N_B を操作条件の等しい前節の実験結果と比較すると，前者ではそれぞれ34.80％，45.0％であるのに対し後者のそれは23.70％，12.7％（操作時間70分）である。これより，塔下部に容積の大きいリザーバーを設けると，装置内のクリプトンインベントリーが増加するため，熱拡散塔内の濃度分布が高濃度側に移行し，上部リザーバーにおける濃縮度が大幅に増加することが分かる。しかし，下部リザーバーにおける希釈度が低下するので，クリプトン回収率を高めるためにはこれをさらに処理する必要がある。さらに，本実験では熱サイフォン部の温度を50℃に固定しているが，熱拡散塔の処理量を増加するには平衡達成時間を短縮することのできる効率のよい熱サイフォンの採用が課題となる。

図3.8は，分離特性に及ぼす上部リザーバー容積の効果を調べたものである。ここで，操作条件は，温度70℃，圧力400 Torr，原料ガス組成10％Kr-90％Xeおよび下部リザーバー容積2500ccと，それぞれ一定値に固定している。図には，比較のために同一操作条件におけるリザーバーのない熱拡散塔の分離特性も示している。まず，上下部濃度 N_T, N_B に着目すると，上部濃度 N_T は上部リザーバー容積を小さくするほど上昇するのに対し，下部濃度 N_B にはあまり差違が認められない。例えば，操作時間300分における濃度 N_T, N_B は，上部リザーバー容積が100ccおよび500ccのときそれぞれ79.0％，4.5％および41.7％，6.5％である。塔下部濃度 N_B に上部リザーバーの容積の効果がほとんど現われないのは，下部リザーバーの容積が非常に大きく装置全体のクリプトンインベントリーに対して支配的となっているためである（熱拡散塔本体の容積；500cc）。

クリプトン濃縮度に対するリザーバーの効果は、リザーバーのない場合の濃度 N_T との比較より明らかである。これより、再処理工場廃ガスより回収される放射性クリプトンの減容比を高めるためには、塔下部に容積の大きいリザーバーを設け、塔上部に容積の小さいリザーバーを取付けばよいことが分かる。しかし、それぞれの大きさは、処理すべきガス量およびガス組成、減容比（濃縮度）、回収率（希釈度）などによって異なり、目標とするプロセス条件に応じて選定しなければならない。なお、平衡達成時間に及ぼす上部リザーバーの容積効果は明確ではなく、図に示したいずれの場合も未だ平衡値に到達していないことが分かる。

しかし、熱拡散塔の運転方法としては、上下部リザーバーにおけるクリプトン濃度が平衡値に到達するまで運転を続ける必要はなく、むしろ処理量を考慮すると各濃度が目標値に達した時点でできるだけ早く次の操作に移ることが得策と考えられる。

図 3.9 は、上部リザーバー容積をパラメータとして、クリプトン回収率 R と操作時間との関係を示したものである。ここで、回収率 R は、次式により算出した。

$$R = \frac{V_T \cdot N_T}{(V_C + V_T + V_B) N_F} \times 100$$

V_C : 塔部分の容積 (= 500 cc)

V_B : 下部リザーバー容積 (= 2500 cc)

V_T : 上部リザーバーの容積 (100 ~ 500 cc)

N_F, N_T : 原料ガスおよび上部リザーバーガス中のクリプトン濃度 (mol %)

図において、回収率 R は、時間の経過とともに滑らかに増加し、やがて平衡値に達する傾向がみられる。また、上部リザーバー容積を小さくするほど回収率の低下が生じている。これは、下部リザーバー容積 V_B が非常に大きいため装置全体のクリプトンインベントリー $(V_C + V_T + V_B) N_F$ がほぼ一定値となるのに対し、上部リザーバー内のインベントリー $V_T \cdot N_T$ は容積 V_T にほぼ比例して変化するためである。

図 3.10 は、クリプトン回収率 R と操作圧力の関係を示したものである。ここで、回収率は、分離操作開始後 200 分における値（操作温度 700℃）をとっている。上部リザーバー容積 500 cc についての相関関係より、回収率の最大値が得られる圧力は 400 Torr 附近であり、これはリザーバーのない熱拡散塔について求めた最適値とほぼ一致するものである。即ち、リザーバー付き熱拡散塔の操作条件として熱拡散塔本体における最適値を選定すればよいことが分かる。

以上より、リザーバー方式の熱拡散塔の特性として、クリプトン濃縮度を高めるためには塔下部リザーバーの容積を上部リザーバーおよび塔本体の容積よりも大きくすればよいこと、希釈度を高めるためには下部リザーバーガスをさらに処理しなければならないことが確かめられた。次に、本実験装置によりどの程度の濃縮度および希釈度が達成できるかを検討してみる。

図 3.11 は、原料ガス組成を約 1% Kr, 約 10% Kr および約 90% Kr の 3 ケースに変化させた場合の分離特性を示したものである。ここで、上下部リザーバー容積をそれぞれ 100 cc, 2500 cc とし、温度および圧力は 700℃, 400 Torr に固定している。分離操作開

始後420分における各ケースの上下部濃度 N_T, N_B は、ケースⅠについて7.55%、0.26%、ケースⅡについて78.33%、3.79%、ケースⅢについて99.85%、87.36%である。これより、各ケースにおけるリザーバーの容積を幾分調整すれば、ケースⅠの上下部濃度 N_T, N_B をそれぞれ10%および0.1%、ケースⅡの各濃度をそれぞれ90%および1%とすることが十分可能であることが分かる。即ち、再処理工場廃ガス(第1カスケード系からの回収ガス、組成10%Kr-90%Xe)は、ケースⅠおよびⅡに用いた熱拡散塔からなる2段の分離装置により、クリプトン(濃度90%)とキセノン(濃度99.9%)とに分離される。さらに、ケースⅢの分離操作を行えば濃縮度99.9%以上のクリプトンを得ることも可能となる。

3.3 Kr-Xe分離工程の検討

筆者らの提案したクリプトン放出低減化プラントの第1カスケード系(多孔質隔膜法)の除染係数DFは112であり、排気ガス中の放射能 ^{85}Kr は21Ci/hr、回収ガスの組成は10%Kr-90%Xe(^{85}Kr :2333Ci/hr)となる(表1.1参照)。いま、第2カスケード系(Kr-Xe分離工程)の除染係数DFを第1カスケード系のそれと同程度の100(下部リザーバーガス中のKr濃度0.1%に相当)とすると、回収キセノン中の放射能(^{85}Kr)レベルは、第1カスケード系における排気ガス中の放射能レベルとほぼ等しくなり(23Ci/hrに相当)、大気へ希釈放出することが可能となる。一方、回収クリプトンについては、現在のところ放射性クリプトンを大量に利用する方法がないため、高濃縮を行う必要がない。ここでは、クリプトン貯蔵容器の数をKr-Xe分離を行わない場合の所要数の10分の1程度に削減するとすると、減容比(回収クリプトン流量/第2カスケード系供給ガス流量)0.1が目標となる。

以下に、実験に使用したものと同規模の熱拡散塔およびリザーバーを用いて第2カスケード系を構成した場合の分離装置の規模(熱拡散塔の数、所要動力)の概算を試みた。ただし、操作圧力および温度は実験値に基づく400 Torr、700℃とし、除染係数および減容比は上記各値を目標とした。また、定常運転時における運転時間は、ガスの供給・移送に0.5時間/1サイクル、分離操作に1.5時間/1サイクル、即ち1バッチあたりの所要時間を2時間と仮定した。

図3.12は、第1塔2基および第2塔1基より構成された熱拡散塔ユニットにおける物質収支およびガスの流れを示したものである。第1塔の上下部リザーバーおよび塔部分の容積はそれぞれ0.1ℓ、2.5ℓ、0.4ℓとしており、第2塔各部(上記順序で)の容積はそれぞれ0.05ℓ、4.55ℓ、0.4ℓとなっている。第1塔に供給された原料ガス(組成; 10%Kr-90%Xe, 処理ガス量; 6ℓ/2基, 運転時間; 1.5時間)は、上部リザーバー濃度90%Kr, 下部リザーバー濃度1%Krに分離される。上部リザーバーガスは、熱拡散塔部分のガスとともに拔出されて(組成; 55%Kr-45%Xe, ガス量; 1ℓ/2基)、クリプトン貯蔵設備に送られる。一方、下部リザーバーガス(組成; 1%Kr-99%Xe, ガス量; 5ℓ/2基)は、第2塔(運転時間; 1.5時間)に送られ塔下部リザーバー濃度0.1%Krにまで希釈された後、排気スタックまたはキセノン貯蔵設備に送られる。上部リザーバーガスを含む塔内ガス(組成; 10%Kr-90%Xe, ガス量; 0.45ℓ)は、第1塔の原料ガスとして戻される。

以上の一連の操作からなる熱拡散塔分離ユニットの1サイクル(2時間)あたりの処理ガス量と回収クリプトン量および回収キセノン量は、それぞれ5.55ℓ、1.0ℓおよび4.55ℓとなる。また、熱拡散塔分離ユニットにおける除染係数DFは100、減容比は約6分の1となる。熱拡散塔分離ユニットの所要台数は、ユニット全体の平均ガス温度を55℃、圧力を400 Torr、第1カスケード系からの回収ガス流量を230Nℓ/hrとすると、190台となる。従って、第1塔および第2塔の数はそれぞれ380本および190本、第2カスケード系の所要動力(熱拡散塔1本あたりの所要動力は図2.3より1.5KW程度と推定される)は855KWと求められる。

図3.13は、クリプトン放出低減化プラントの第2カスケード系のフローシートを概念的に示したものである。

図において、熱拡散塔の効率的な運転を行うために、190台の熱拡散塔分離ユニットのうち第1塔380本は上段に、第2塔190本は下段にそれぞれ並列に配置している。以下、本装置の運転方法について説明する。

第1カスケード系からの回収ガス(流量; 230Nℓ/hr)は、原料タンクより移送ポンプ、圧力制御弁(設定圧力; 400Torr)を経て第1塔に2時間毎に供給される(供給ガス量; 1140ℓ)。原料タンクの大きさは、供給操作を円滑に行うために24時間程度の貯留容量(6m³)とする。第1塔の運転開始後1.5時間において、塔下端部と下部リザーバーとの間のガス循環ラインに取付けた遠隔操作弁(故障に対する信頼性の高い空気式ON-OFF弁が適している)が閉じられ、上部リザーバーガスを含む塔内ガス(濃度; 55%Kr, ガス量; 190ℓ)はクリプトン貯蔵設備の一時貯留タンクに送られる。ここで、クリプトン貯蔵ポンベの容積および充填圧力を45ℓおよび35kg/cm²Gとし、ポンベ詰め作業を2日毎に行うとすると、貯留タンク容量は約1.8m³となる。昇圧機としては、処理ガス量が少ないので、高圧縮比の得られる往復動型圧縮機が適している。一方、下部リザーバーガス(濃度; 1%Kr, ガス量; 950ℓ)は、第2塔においてさらにクリプトンの回収を行うために、中間タンク(充填圧力; 大気圧)に移送される。中間タンク容量としては、約5時間の滞留時間の得られる2m³程度を選定する。以上のガス抜出し・移送ポンプとしては、排気容量および排気速度が大きくかつ数Torr以下の真空度の得られる揺動式ポンプ(本ポンプは、UF₆ガス、トリチウムなどの放射性ガスを対象に開発されたもので、気密性の高いことが大きな特長となっている)が適していると考えられる。

第2塔の運転操作も第1塔とほぼ同様に行うことができる。処理ガスとしては、中間タンク内のガスを2時間毎に供給する(濃度; 1%Kr, 圧力; 400Torr, ガス量; 950ℓ)。分離操作開始後1.5時間において、塔下端部と下部リザーバーは遠隔操作弁により仕切られ、上部リザーバーを含む塔内ガス(濃度; 10%Kr, ガス量; 85.5ℓ)は原料タンクへ、下部リザーバーガス(濃度; 0.1%Kr, ガス量; 864.5ℓ)はスタック(またはキセノン貯蔵設備)へ送られる。

ここで、第1塔および第2塔におけるガスの抜出し・供給操作に要する時間を0.5時間とすると、第2カスケード系の定常運転時における処理能力は460Nℓ/2時間、即ち第1カスケード系からの回収ガス流量と見合ひ量となる。なお、図に示した分離装置の運転(ガス供給→

分離操作→ガス抽出し→ガス供給)は、タイマー作動式の遠隔操作弁を基本とする簡単なシーケンス制御によって行うことが可能である。

以上の検討より、処理量1500 ton-U/yrの再処理工場廃ガス処理を目的としたKr-Xe分離工程にリザーバー方式の回分式熱拡散塔を適用した場合、分離装置(除染係数100, 減容比6分の1)の構成が非常に単純になること、運転操作が簡単で安定性に優れていることおよび大気圧以下で運転できることから高い安全性が期待できることが判明した。熱拡散塔の所要本数(ここでは570本)については、塔長を大きくし1塔あたりの分離性能を高めることによって、大幅に削減することが可能であると考えられる。

表 3.1 実験条件および結果の概要 (リザーバーのない熱拡散塔の場合)

原料ガス組成 (mol%) ^{*1}	操作圧力 (Torr)	操作温度 (°C)	リザーバー (上部/下部) 容積 (cc)	負荷電圧 (V)	負荷電流 (A)	上部濃度 N _T (mol Kr%)	下部濃度 N _B (mol Kr%)	分離係数 ln q (-)	平衡達成時間 τ (min) ^{*2}	備考
4.624Kr - 5.376Xe	200	700	* 2	187	9.5	7.254	1.525	2.69	75	N _T , N _B , ln q は分離開始後 70 分における値
4.615Kr - 5.385Xe	400	700	* 2	187	9.6	9.147	7.40	4.79	85	同上, 90分
4.255Kr - 5.745Xe	600	700	* 2	185	9.4	8.042	1.712	2.99	35	同上, 30分
4.586Kr - 5.414Xe	400	500	* 2	112	5.5	7.790	1.976	2.66	80	同上, 90分
4.582Kr - 5.418Xe	400	800	* 2	240	12.2	9.267	6.73	5.17	80	同上, 70分
6.42Kr - 9.358Xe	200	700	* 2	187	9.6	1.904	0.80	3.37	60	同上, 90分
7.07Kr - 9.283Xe	400	700	* 2	187	9.6	2.370	1.27	3.18	65	同上, 70分
8.78Kr - 9.1.22Xe	600	700	* 2	185	9.5	1.657	3.76	1.63	30	同上, 30分
1.400Kr - 8.600Xe	400	500	* 2	112	5.6	1.751	3.83	1.67	50	同上, 50分
9.26Kr - 9.0.74Xe	400	800	* 2	240	1.2.2	2.8.2.3	0.87	3.80	70	同上, 70分

*1 熱拡散塔の上部, 下部における初期組成の平均値

*2 熱拡散塔にリザーバーを設けない場合

*3 N_T, N_B の経時変化を示すグラフから求めた 100% 平衡に達するまでの所要時間

表 3.2 実験条件および結果の概要 (リザーバー付き熱拡散塔の場合)

原料ガス組成 (mol %)*1	操作圧力 (Torr)	操作温度 (°C)	リザーバー (上部/下部) 容積 (cc)	負荷電圧 (V)	負荷電流 (A)	上部濃度 N_T (mol Kr%)	下部濃度 N_B (mol Kr%)	分離係数 $\ln q$ (-)	平衡達成 時間 $\tau_{0.1}(\text{min})^{*2}$	備 考
9.18Kr - 90.82Xe	200	700	500/2500	187	9.6	24.40	6.30	1.57	170	$N_T, N_B, \ln q$ は分離開 始後 190 分における値
9.01Kr - 90.99Xe	400	700	500/2500	188	9.6	34.80	4.50	2.43	250	同上, 270 分
9.13Kr - 90.87Xe	600	700	500/2500	187	9.6	29.50	5.06	2.06	140	同上, 140 分
4.710Kr - 52.90Xe	200	700	500/2500	187	9.6	82.56	37.96	2.05	220	同上, 240 分
4.594Kr - 54.06Xe	400	700	500/2500	188	9.6	93.33	35.81	3.22	150	同上, 180 分
4.754Kr - 52.46Xe	600	700	500/2500	190	9.7	95.44	37.95	3.53	240	同上, 240 分
9.20Kr - 90.80Xe	400	700	250/2500	186	9.5	55.83	3.63	3.51	270	同上, 300 分
9.20Kr - 90.80Xe	400	700	100/2500	187	9.5	77.44	4.11	4.38	320	同上, 360 分
0.78Kr - 99.22Xe	400	700	100/2500	187	9.5	7.49	0.29	3.65	330	同上, 360 分
4.883Kr - 51.17Xe	400	800	500/500	240	1.22	96.46	8.85	5.63	340	同上, 360 分
8.952Kr - 10.48Xe	400	700	100/2500	194	9.9	99.68	87.37	3.81	120	同上, 120 分

*1 熱拡散塔の上部, 下部リザーバーにおける初期組成の平均値

*2 下部リザーバーにおける濃度 N_B の 90% 平衡達成時間 (グラフから求めた値)

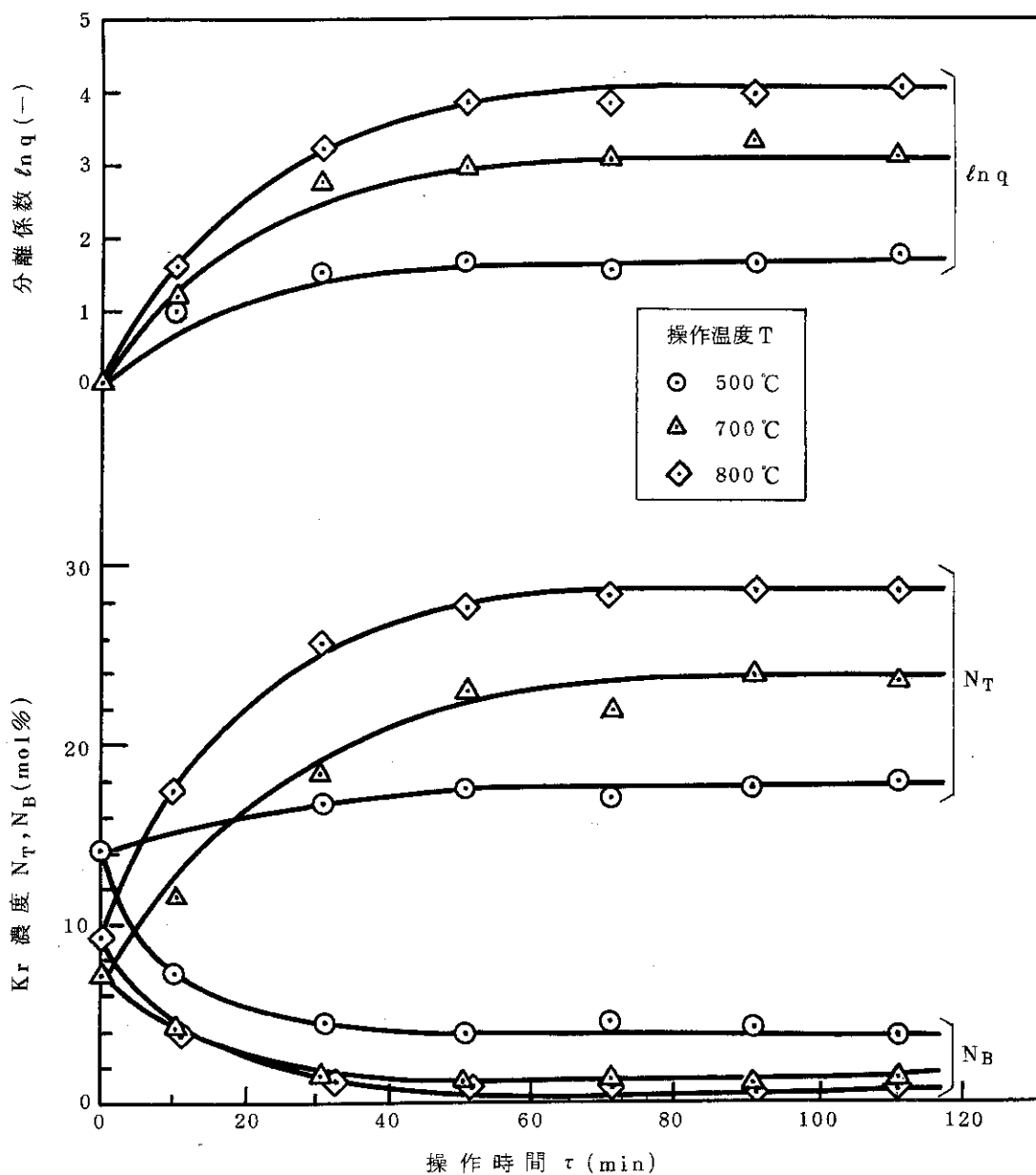


図 3.1 熱拡散塔の分離特性と操作温度との関係

- 上下リザーバー：使用していない
- 操作圧力 P : 400 Torr
- 原料ガス組成(代表値)：10% Kr-90% Xe

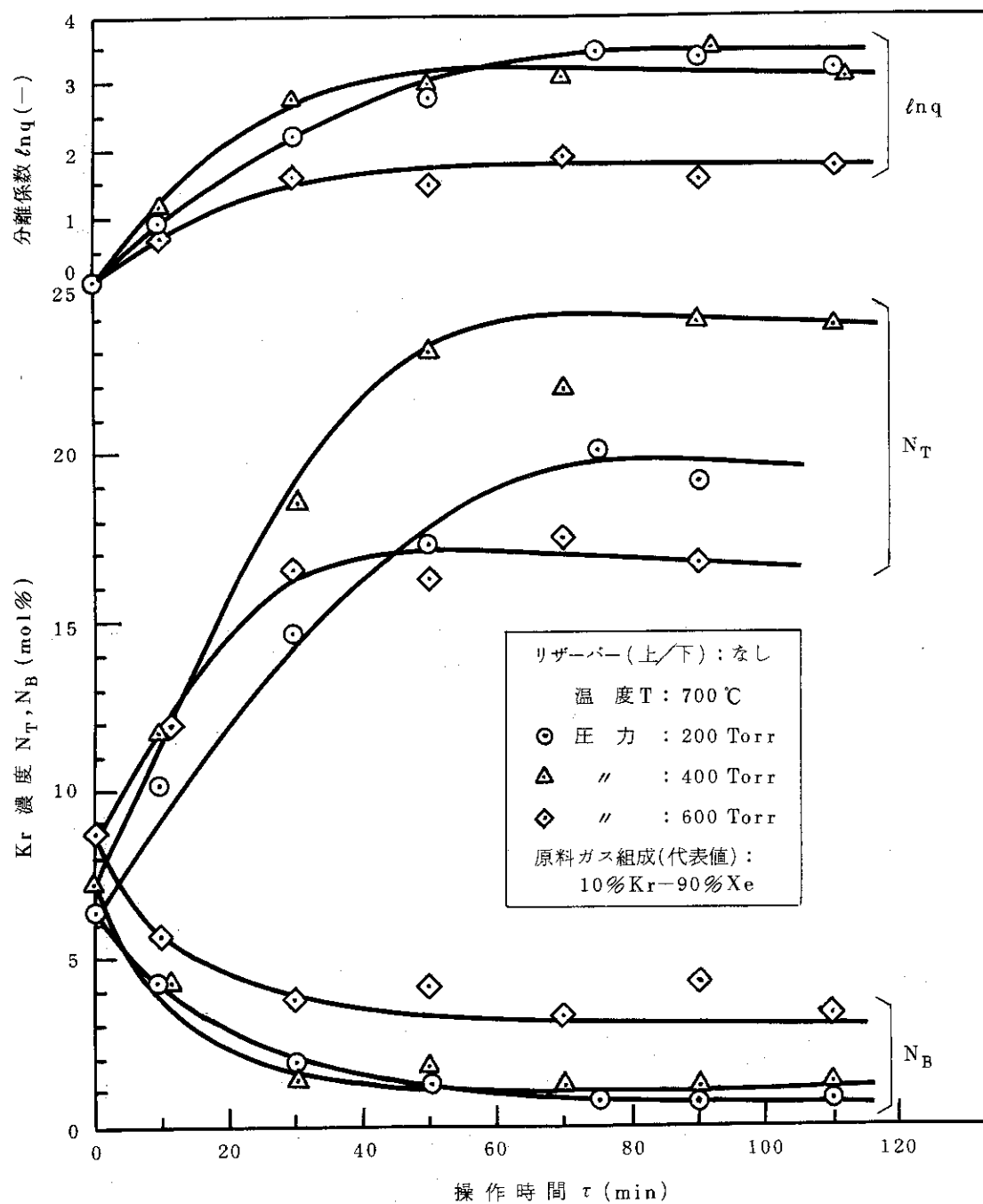


図 3.2 熱拡散塔の分離特性と操作圧力との関係

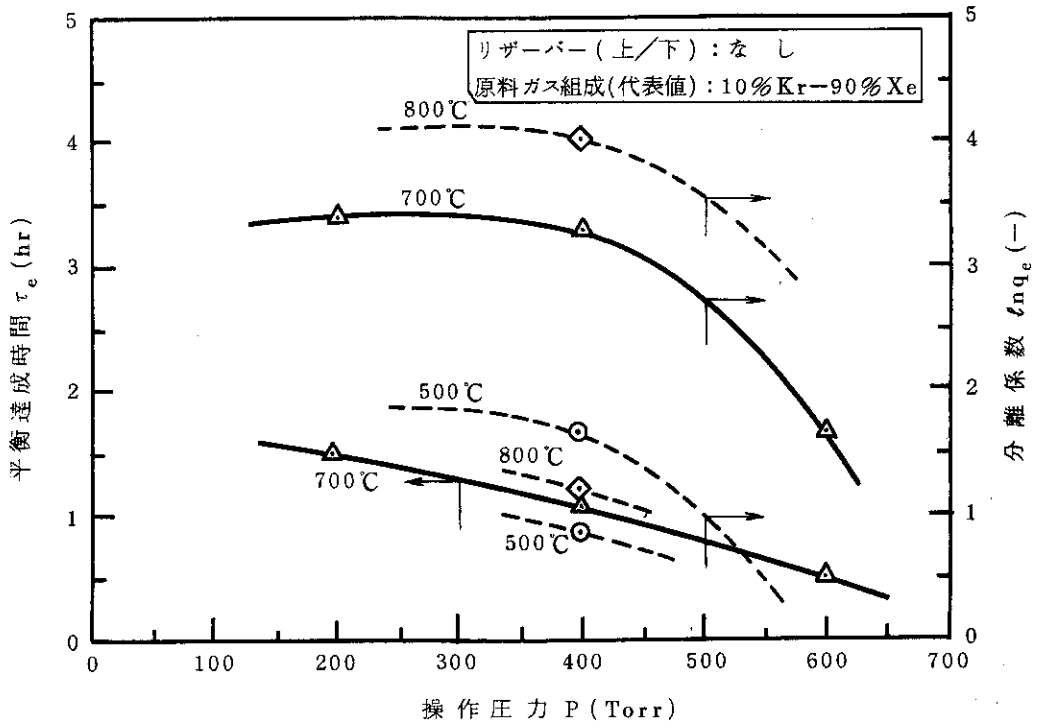


図 3.3 熱拡散塔の分離係数, 平衡達成時間と操作温度・圧力との関係

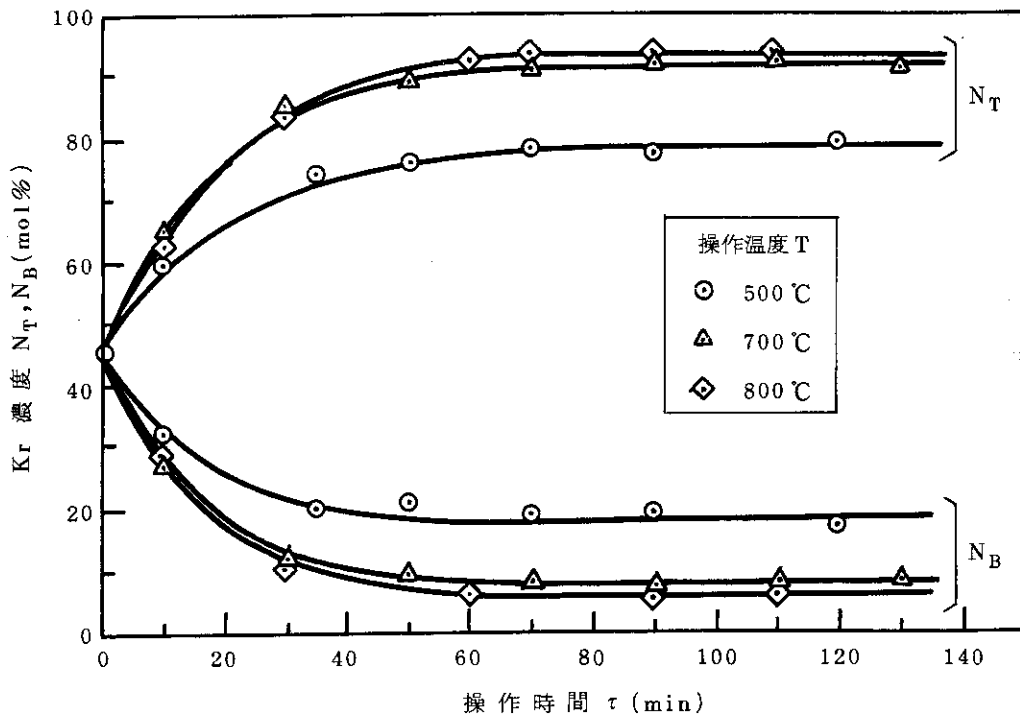


図 3.4 熱拡散塔の分離特性と操作温度との関係

- 上下部リザーバー: 使用していない
- 操作圧力 P : 400 Torr
- 原料ガス組成(代表値): 50% Kr-50% Xe

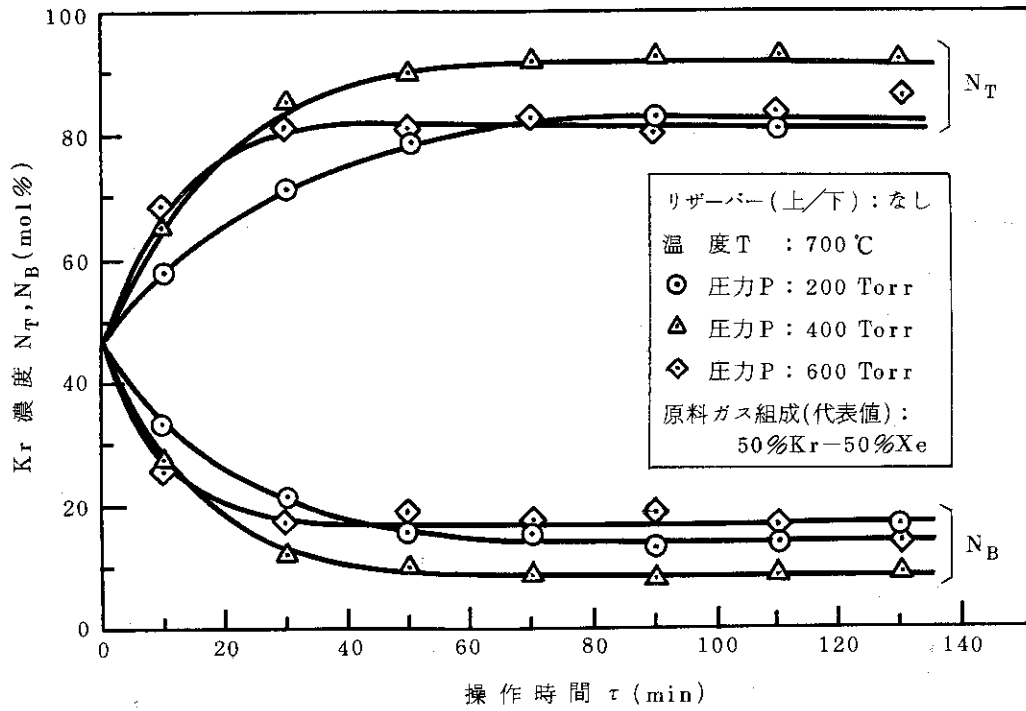


図 3.5 熱拡散塔の分離特性と操作圧力との関係

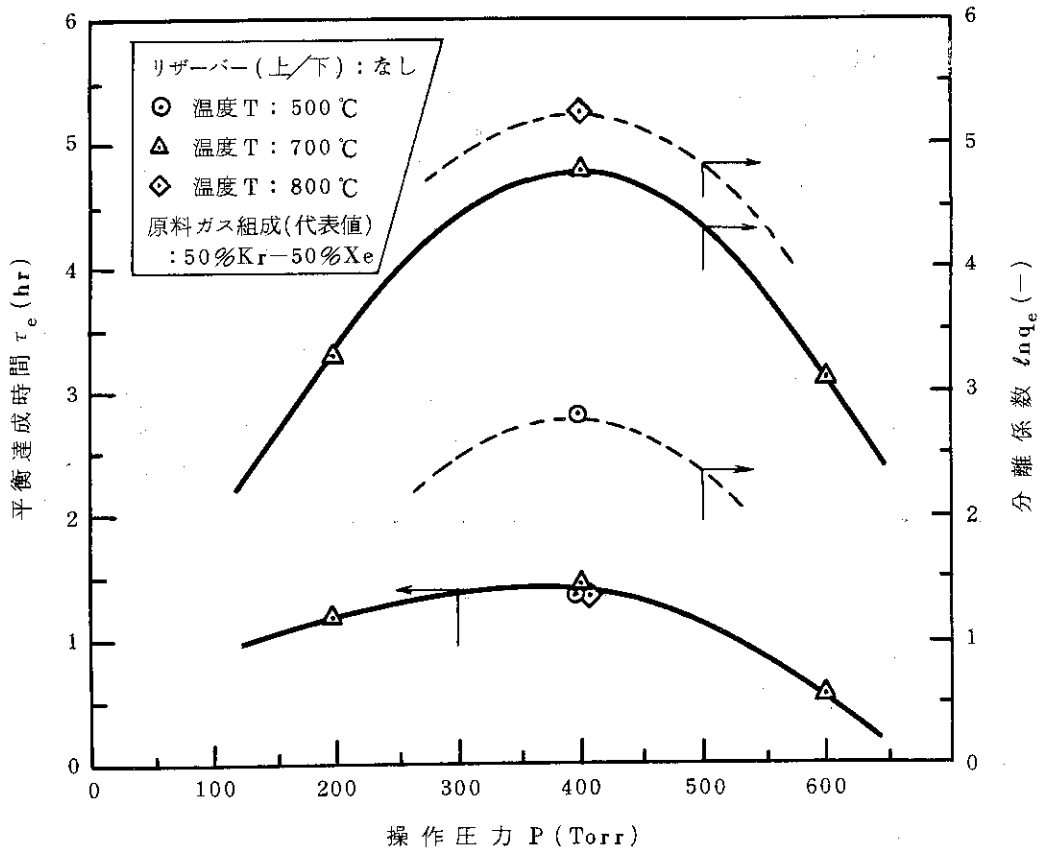


図 3.6 熱拡散塔の平衡分離係数, 平衡達成時間と操作圧力, 操作温度との関係

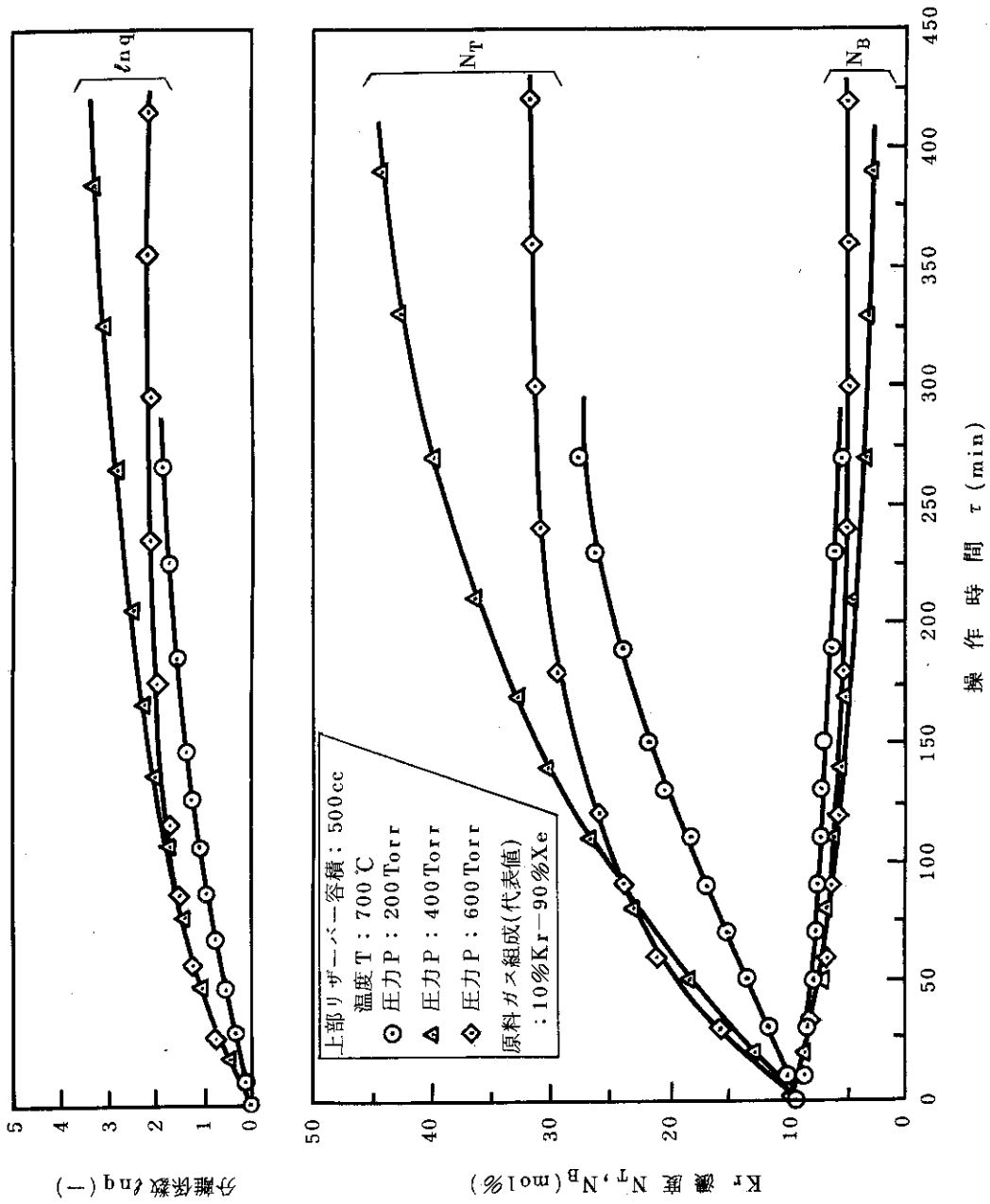


図 3.7 熱拡散塔の分離特性と操作圧力との関係

(下部リザーバー容積は一定値 2500cc に固定)

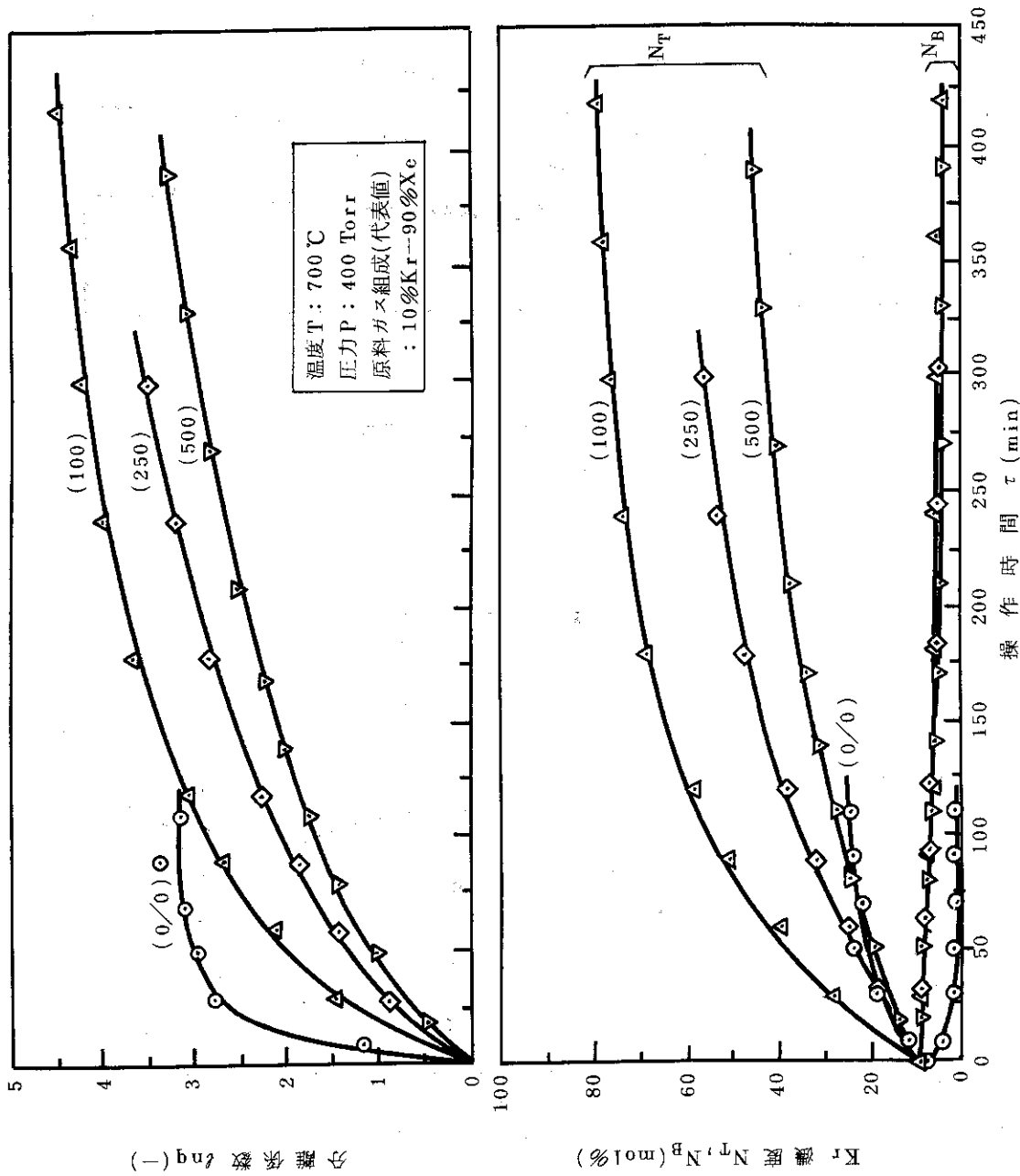


図 3.8 熱拡散塔の分離特性と上部リザーバー容積の関係
 { () 内の数値: 上部リザーバー容積(cc), ただし下部リザーバー容積 2500cc }
 { ◦ (0/0) : 上, 下部リザーバーのない場合 }

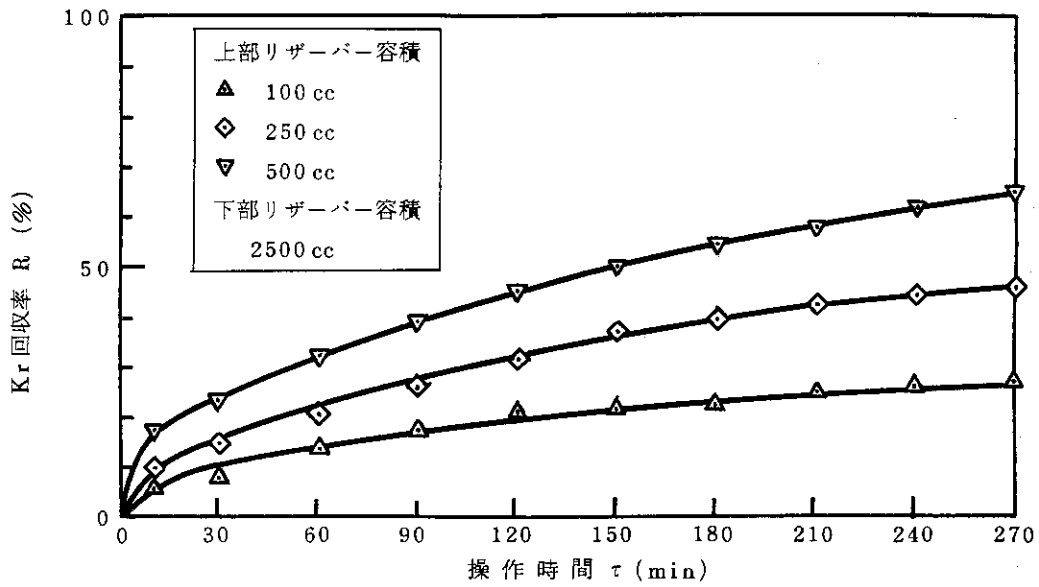


図 3.9 クリプトンの回収率と操作時間の関係

- 操作温度 T : 700 °C
- 操作圧力 P : 400 Torr
- 原料ガス組成(代表値) : 10%Kr-90%Xe

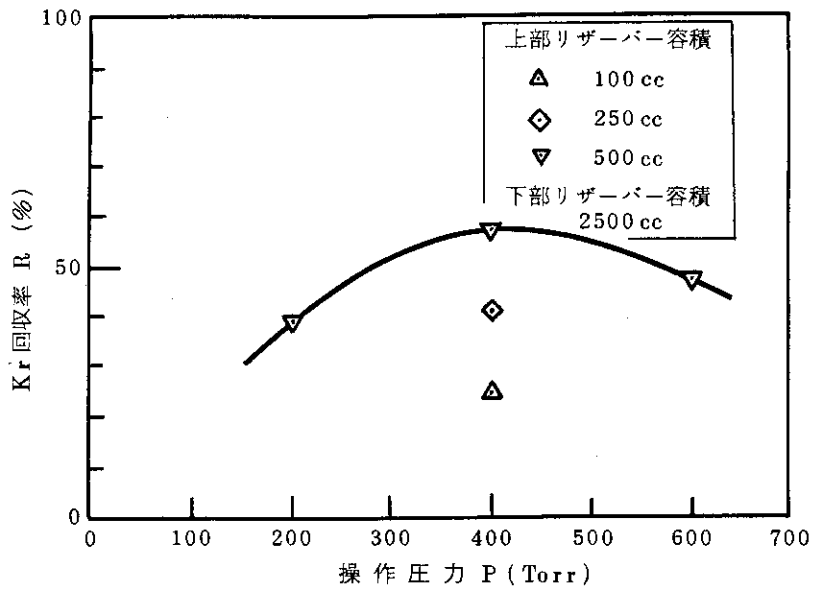


図 3.10 クリプトンの回収率と操作圧力の関係

- 回収率 R : 分離開始後 200 分における値
- 操作温度 T : 700 °C
- 原料ガス組成(代表値) : 10%Kr-90%Xe

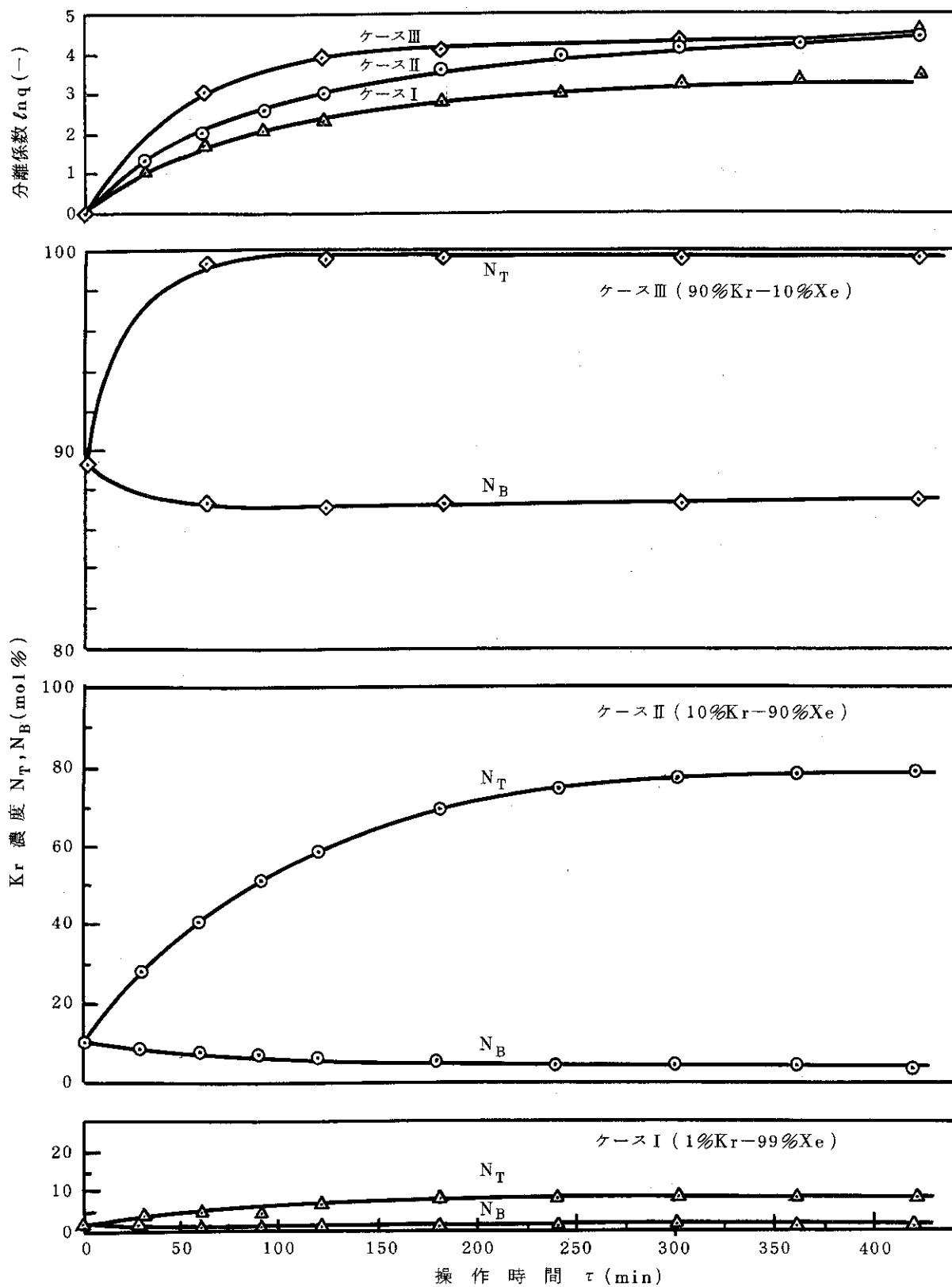


図 3.11 リザーバー付き熱拡散塔の分離特性と原料ガス組成の関係

- 操作条件: 温度 700 °C, 圧力 400 Torr
- リザーバー容積: 上部 100 cc, 下部 2500 cc
- 原料ガス組成: 図中のカッコ内の値 (代表値)

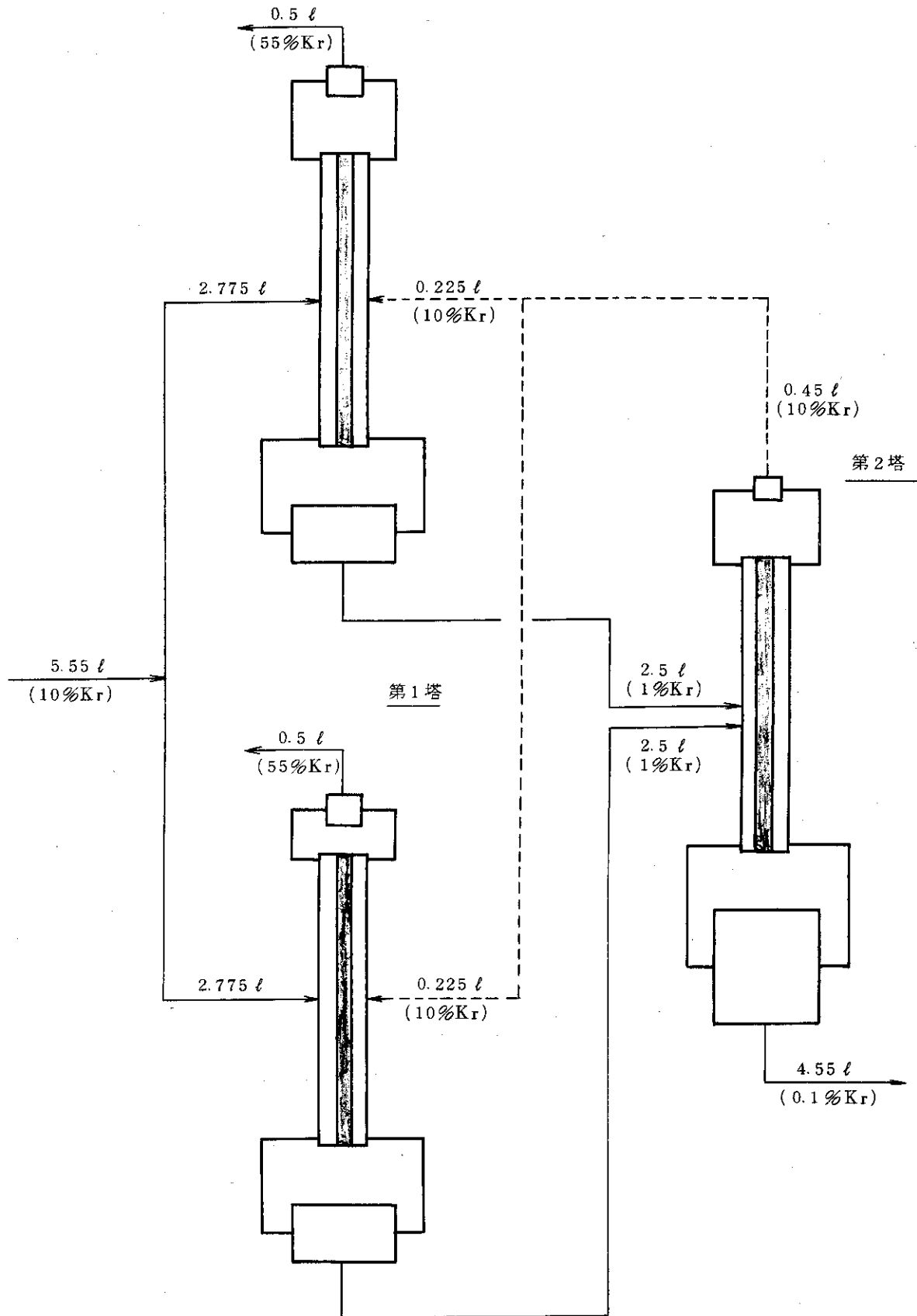


図 3.12 熱拡散塔分離ユニットにおける物質収支

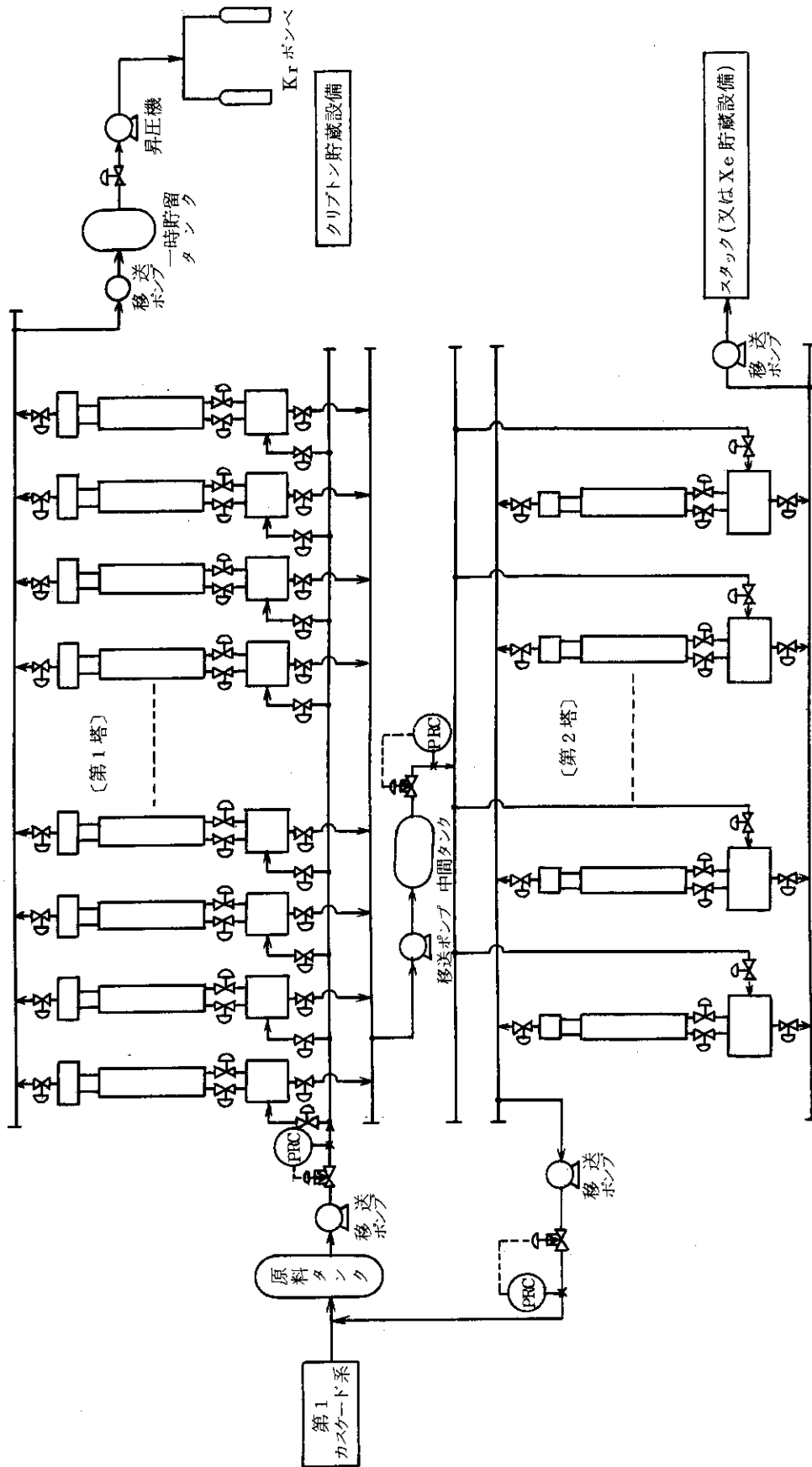


図 3.13 クリプトン放出低減化プラントの第2カスケード系フローシート

4. ま と め

再処理工場廃ガス処理を目的としたKr-Xe分離工程に回分式熱拡散塔を適用するためには、1塔あたりの分離係数および処理ガス量が大きく、しかも故障が少なく運転特性の安定した熱拡散塔を設計しなければならない。

このためには、回分式熱拡散塔の分離特性（見かけの分離係数、クリプトンの濃縮度および希釈度、平衡達成時間など）と操作条件（温度、圧力、ガス組成）およびリザーバー効果との関係を把握する必要がある。以上の観点より、本研究では、塔長1mの加熱管型熱拡散塔の回分操作におけるKr-Xe系の分離特性を測定し、さらに実験結果に基づいて処理量1500 ton-U/yrの再処理工場廃ガスを対象としたクリプトン放出低減化プラントの第2カスケード系の規模の推定を試みた。本研究により次のような結果が得られた。

- (i) 実験に用いた熱拡散塔（熱壁直径21mm，冷壁直径32mm，有効高さ1000mm，容積約500cc）の運転特性は，広い操作範囲（温度；500～800℃，圧力；200～600 Torr，上部リザーバー容積；100～500cc，下部リザーバー容積；2500cc，原料ガス組成；1%Kr-99%Xe～90%Kr-10%Xe）において非常に安定していることが実証された。これより，高放射性のガスを取扱う場合には，加熱管型熱拡散塔が有効であることが判明した。
- (ii) 熱拡散塔の見掛けの分離係数は，本実験範囲内では，リザーバーの有無にかかわらず操作温度を高めるほど向上することが確かめられた。
- (iii) 熱拡散塔の最適操作圧力は，本実験範囲内では400 Torr前後であり，操作温度，ガス組成およびリザーバーの有無ならびにリザーバーの大きさにあまり影響されないことが分かった。
- (iv) リザーバー方式熱拡散塔におけるクリプトンの濃縮度は，下部リザーバー容積を大きくし上部リザーバー容積を小さくするほど向上するが，クリプトンの希釈度を高めるためには，下部リザーバーガスをさらに処理しなければならない。
- (v) 熱拡散塔の平衡達成時間は，見掛けの分離係数が増すほど長くなる傾向にあるが，リザーバーのない場合には70～80分以内である。しかし，塔下部に容積の大きいリザーバーを取付けた場合の平衡達成時間は非常に長くなる（下部リザーバー容積を2500ccとした本実験では300分以上）ので，効率的な熱サイフョンの設計が重要となる。
- (vi) クリプトン放出低減化プラントの第2カスケード系（除染係数；100，減容比；6分の1，クリプトン濃縮度；55%）に実験に使用した分離装置と同規模の熱拡散塔を適用した場合，熱拡散塔所要本数は570本，所要動力は855KWとなること，第2カスケード系の構成は非常に単純となり簡単なシーケンス制御により円滑な運転の行えることが判明した。

本研究の今後の課題として，以下の事項があげられる。

- (i) 第2カスケード系の規模をさらに小さくするために，1塔あたりの分離係数および処理

能力の大きい熱拡散塔を開発する必要がある。このためには、塔長が大きくしかも分離特性の安定した熱拡散塔を設計するとともに平衡時間をできるだけ短縮することのできる熱サイフォンの設計、操作条件を確立しなければならない。

(ii) 高濃度の⁸⁵Krからの放射線および発熱に対する安全を考慮した設計法および遠隔操作技術を確立する必要がある。

(iii) 第2カスケード系におけるKr-Xe分離装置は、回分式熱拡散塔の分離特性が非常に安定していることに着目して設計されたものであるが、これをさらに連続化することによりカスケード規模の削減および運転の効率化をはかることが可能となる。このためには、連続式熱拡散塔の設計および操作法の確立が課題となる。

以上の課題とは別に、熱拡散塔の見掛けの分離特性と塔の幾何学的形状および操作条件との関係を定量的に把握するための評価法ならびに塔内部の温度分布、流動条件（流速分布、レイノルズ数）、濃度分布の測定法を検討する必要がある。

謝 辞

本研究を実施するにあたっては、野村末雄氏（企画室長）、下川純一氏（燃料工学部長）の御指導をいただいた。また、本報告書をまとめるにあたっては、岩本多実氏（燃料工学部次長）の助言をいただいた。さらに、多数の試料の分析については、小森卓二氏（分析センター室長）はじめ同室質量分析グループの方々の協力を得た。

本報告書の作成にあたり、これらの諸氏に深い謝意を表します。

能力の大きい熱拡散塔を開発する必要がある。このためには、塔長が大きくしかも分離特性の安定した熱拡散塔を設計するとともに平衡時間をできるだけ短縮することのできる熱サイフオンの設計、操作条件を確立しなければならない。

(ii) 高濃度の⁸⁵Krからの放射線および発熱に対する安全を考慮した設計法および遠隔操作技術を確立する必要がある。

(iii) 第2カスケード系におけるKr-Xe分離装置は、回分式熱拡散塔の分離特性が非常に安定していることに着目して設計されたものであるが、これをさらに連続化することによりカスケード規模の削減および運転の効率化をはかることが可能となる。このためには、連続式熱拡散塔の設計および操作法の確立が課題となる。

以上の課題とは別に、熱拡散塔の見掛けの分離特性と塔の幾何学的形状および操作条件との関係を定量的に把握するための評価法ならびに塔内部の温度分布、流動条件（流速分布、レイノルズ数）、濃度分布の測定法を検討する必要がある。

謝 辞

本研究を実施するにあたっては、野村末雄氏（企画室長）、下川純一氏（燃料工学部長）の御指導をいただいた。また、本報告書をまとめるにあたっては、岩本多実氏（燃料工学部次長）の助言をいただいた。さらに、多数の試料の分析については、小森卓二氏（分析センター室長）はじめ同室質量分析グループの方々の協力を得た。

本報告書の作成にあたり、これらの諸氏に深い謝意を表します。

参 考 文 献

- 1) Nichols J. P. and Binford F. T. : "Status of Noble Gas Removal and Disposal", ORNL-TM-3515(1971)
- 2) Brown R. A. : "Off-Gas Treatment and Volatile Radioisotope Recovery", ERDA-76-43, Vol. 2(Chapter 13)(1976)
- 3) Benedixsen C. L. : "Prediction of Krypton and Xenon Recovery in a Cryogenic Distillation Column Operating at Total Reboil", ICP-1100(1976)
- 4) Takashima Y. et al. : "Proc. of a Symposium-Management of Radioactive Waste from the Nuclear Fuel Cycle", Vol. 1, IAEA-SM-207/14(1976)
- 5) "Removal, Storage and Disposal of Gaseous Radionuclides from Airbone Effluents", IAEA-209(1978)
- 6) 中島健太郎, 中西芳雄 : "再処理施設における放射性希ガス処理", 日本原子力学会誌, 21, 9(1979)
- 7) 成瀬雄二, 吉田浩, 藤根幸雄, 松田祐二, 清水徳, 斉藤恵一朗 : "多孔質隔膜法による N_2 -Kr系の分離", JAERI-M7275(1977)
- 8) 吉田浩, 藤根幸雄, 清水徳, 斉藤恵一朗, 大内操, 成瀬雄二, ほか : "多孔質隔膜によるクリプトン放出低減化プラントの概念設計", JAERI-M8494(1979)
- 9) 武久正昭, ほか : "液体窒素使用低温照射実験に伴うオゾン分解爆発とその防止対策", JAERI-M6363(1976)
- 10) 北本朝史 : "熱拡散法と放射性希ガスの分離", 化学工学, 39, 378(1975)
- 11) Baker P. S. : "Research Materials Coordination and Planning Meeting", ORNL-TM-1047(1965)
- 12) Rathkamp W. R. : "The Enrichment of Radioactive ^{85}Kr ", Isot. Radiat. Technol., 6, 347(1969)
- 13) Lin K. H. : "A Conceptual Design of a Continuous Thermal Diffusion Plant for ^{85}Kr Enrichment", ORNL-4372(1969)
- 14) Saviron J. M. and Gonzalez D. : "Thermal Diffusion in Multicomponent Mixtures", MLM-1477-TR(1968)
- 15) Roos W. J. and Rutherford W. M. : "Experimental Verification, with Krypton, of the Theory of the Thermal-Diffusion Column for Multicomponent System.", J. Chem. Phys., 50, 424(1969)
- 16) Feather N. and Shoenberg D. : "Thermal Diffusion in Gases", CAMBRIDGE AT THE UNIVERSITY PRESS (1952)
- 17) 広田鋼蔵, 吉住治夫, ほか : "熱拡散法によるクリプトンの窒素からの分離", 日本化学会誌, (9), 1819(1974)

- 18) 田中良樹, 広田鋼蔵, ほか : “熱拡散法による窒素からのクリプトンの分離(その2)”,
日本化学会誌, (9), 1627(1975)
- 19) 東 邦夫 : “ウラン濃縮”, 日刊工業新聞社, 東京, 80(1971)