

JAERI-M
8648

トリチウム除去システムにおける
トリチウム水吸着塔の設計法に関
する検討

1980年1月

木下 正弘・松田 祐二・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.

トリチウム除去システムにおけるトリチウム水吸着塔の
設計法に関する検討

日本原子力研究所東海研究所核融合研究部

木下 正弘・松田 祐二・成瀬 雄二

(1979年12月18日受理)

トリチウム除去システムの主要構成機器の1つであるトリチウム水吸着塔(充填吸着剤はモレキュラーシーブ)について、その設計法を確立するための予備的検討を行った。

設計に必要なデータの収集ならびにモデルの選定を行い、設計計算の手順をまとめた。高い除染係数が得られ、かつ圧力損失の小さい高性能の吸着塔を設計するのに必要な重要事項を明らかにするために、破過時間、塔の寸法、所要除染係数などを主要パラメーターとしてとりあげ、いくつかのケーススタディを行った。その結果、通常の操作条件下では粒子内拡散抵抗支配であること、吸着圏の存在を無視した設計法では破過時間の設定値が十分に長くない限り誤差が大きいことなどが示された。また、高除染係数を得るためにいくつかの方式を取り上げ、比較検討を行った。

H_2O とHTOの同位体効果の問題、混合拡散やチャネリングの影響など、今後必要な研究開発課題についても述べた。

JAERI-M 8648

Preliminary Design Study of Tritiated Water Adsorber
in Tritium Removal System

Masahiro KINOSHITA, Yuji MATSUDA and Yuji NARUSE

Division of Thermonuclear Fusion Research, Tokai Research
Establishment, JAERI

(Received December 18, 1979)

A preliminary design study has been made of the tritiated water adsorber in tritium removal system, in order to establish its design method.

Design data and calculation procedure are described in detail. In case studies, break-through time, required decontamination factor and dimensions of the adsorber were chosen as parameters. The key factors which give high decontamination factor and low pressure drop were revealed.

Problems to be solved in further study are also described, such as isotopic effect of the H₂O-HTO system and effects of mixing diffusion and channeling.

Keywords : Tritium, Tritiated Water, Tritium Handling,
Tritium Containment, Tritium Removal System,
Decontamination Factor, Tritiated Water Adsorber,
Break-Through Time, Molecular Sieve, Adsorption
Equilibrium

目 次

| | |
|---|----|
| 1. はじめに | 1 |
| 2. トリチウム水吸着塔の設計法 | 3 |
| 2.1 吸着過程 | 3 |
| 2.2 ガス側境膜物質移動容量係数 | 3 |
| 2.3 粒子内有効拡散係数 | 4 |
| 2.4 総括物質移動容量係数 | 5 |
| 2.5 吸着塔設計のためのモデリング | 7 |
| 3. 設計法の検討 | 11 |
| 3.1 モレキュラーシープの特性値 | 11 |
| 3.2 モレキュラーシープ-水系の吸着平衡データ | 13 |
| 3.3 ケーススタディ | 16 |
| 3.3.1 設定条件 | 16 |
| 3.3.2 設計例 | 16 |
| 3.3.3 パラメーターサーベイ | 23 |
| (1) (塔長) / (塔径) の値の影響 | 23 |
| (2) 高除染係数を得るための工夫 | 23 |
| (3) H ₂ O と HTO の同位体効果 | 24 |
| 4. おわりに | 28 |
| 謝 辞 | 28 |
| 参考文献 | 29 |

Contents

| | | |
|-------|--|----|
| 1. | Introduction | 1 |
| 2. | Design Method of Tritiated Water Adsorber | 3 |
| 2.1 | Adsorption Mechanism | 3 |
| 2.2 | Volumetric Gas Film Coefficient of Mass Transfer ... | 3 |
| 2.3 | Effective Diffusion Coefficient in Adsorbent Particle | 4 |
| 2.4 | Over-all Volumetric Coefficient of Mass Transfer ... | 5 |
| 2.5 | Modeling of Tritiated Water Adsorber | 7 |
| 3. | Examination of Design Method | 11 |
| 3.1 | Characteristics of Molecular Sieve | 11 |
| 3.2 | Adsorption Equilibrium Data of Molecular Sieve-Water System | 13 |
| 3.3 | Case Studies | 16 |
| 3.3.1 | Calculation Conditions | 16 |
| 3.3.2 | Example of Design Calculation | 16 |
| 3.3.3 | Parametric Studies | 23 |
| (1) | Dimensions of Adsorber | 23 |
| (2) | Decontamination Factor | 23 |
| (3) | Isotopic Effect | 24 |
| 4. | Conclusion | 28 |
| | Acknowledgment | 28 |
| | References | 29 |

1. は じ め に

トリチウム除去システムは、トリチウムを大量に取り扱う施設における安全設備の一環として、きわめて重要な役割を果たす。^{1)~4)} 図 1.1 は、トリチウム除去の基本概念を示したものである。トリチウムを含むガス(トリチウムは、 T_2 、HT、HTO、 CH_3T などの化学形で存在するものと考えられる)は、先ず予熱器で所定温度にまで加熱される。その後、ガスは触媒酸化反応器に送られ、ここで、トリチウムは水の化学形に転換される。反応器を出たガスは、もとの温度に冷却されてモレキュラーシーブを充填したトリチウム水吸着塔に送られ、水分が吸着・除去される。媒体ガスがヘリウムなどの不活性ガスの場合には、予熱器の入口に O_2 を添加する必要がある。また、吸着塔入口における水分量がきわめて少ない場合には、トリチウムの除染係数を向上させるために H_2O 添加を行う必要がある。

吸着塔は、通常 2 基並列に設けられ、一方で吸着が行われている間、他方は再生される。図 1.2 は、吸着塔再生システム概念フローシートを示したものである。常温以下に冷却されたヘリウムなどの不活性ガスをヒーターで約 $300 \sim 350^\circ C$ に加熱して相対湿度を大幅に低下させ、塔内に送入してモレキュラーシーブから水分を脱着させた後、塔を出たガスをコールドトラップで常温以下に冷却して水分を凝縮または凝固させて除去する。不活性ガスは再びヒーターで加熱され、塔に送られる。この閉ループを所定時間操作することにより、吸着塔の再生が可能となる。

ところが、再生操作によって、モレキュラーシーブ中の水分を完全に除去することは不可能であるため、吸着操作において出口ガス中にある程度の水分が存在することは避けられない。すなわち、吸着塔出口ガス中の水分量は、モレキュラーシーブの再生条件によって決定される。よって、吸着塔入口ガス中の水分量がきわめて少ない場合においても、(吸着塔入口ガス中の水分濃度) / (吸着塔出口ガス中の水分濃度) の値をある程度高い値に保つためには、ガスを吸着塔に送入する前に H_2O を添加することが必要となる。

以上、トリチウム除去システムの概要を述べたが、モレキュラーシーブを充填したトリチウム水吸着塔は、触媒酸化反応器と共に、トリチウムの除染係数を決定する重要な構成機器である。本報では、トリチウム水吸着塔の設計に必要なデータを調査すると共に、設計モデルの検討、ケーススタディ、高除染係数を得るための方式についての検討などを行った。また、今後さらに必要な研究開発項目について述べた。

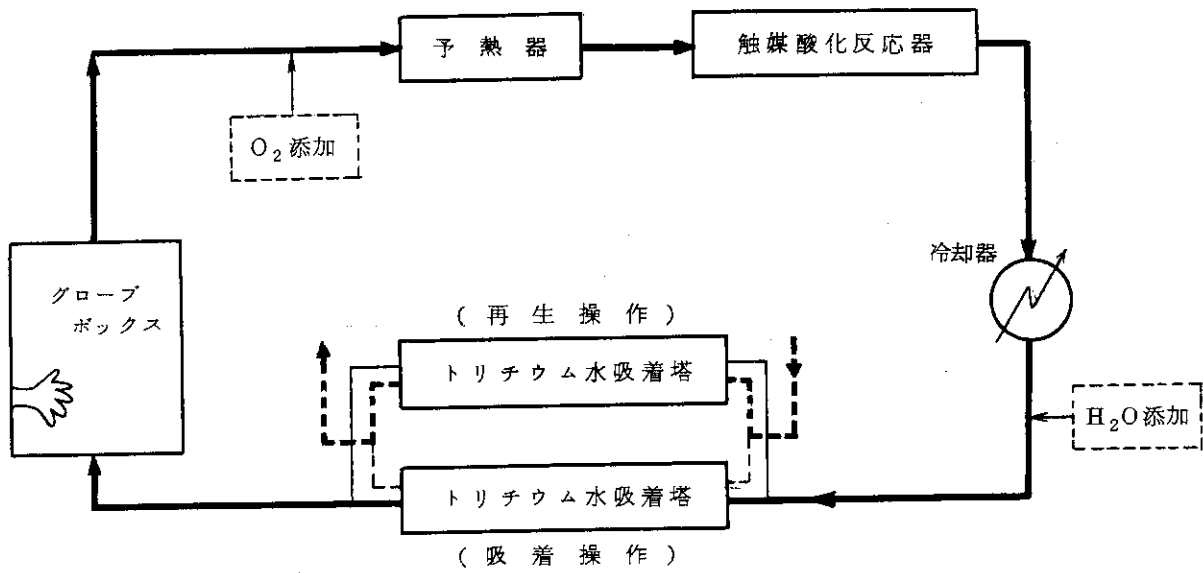


図 1.1 トリチウム除去の概念フローシート

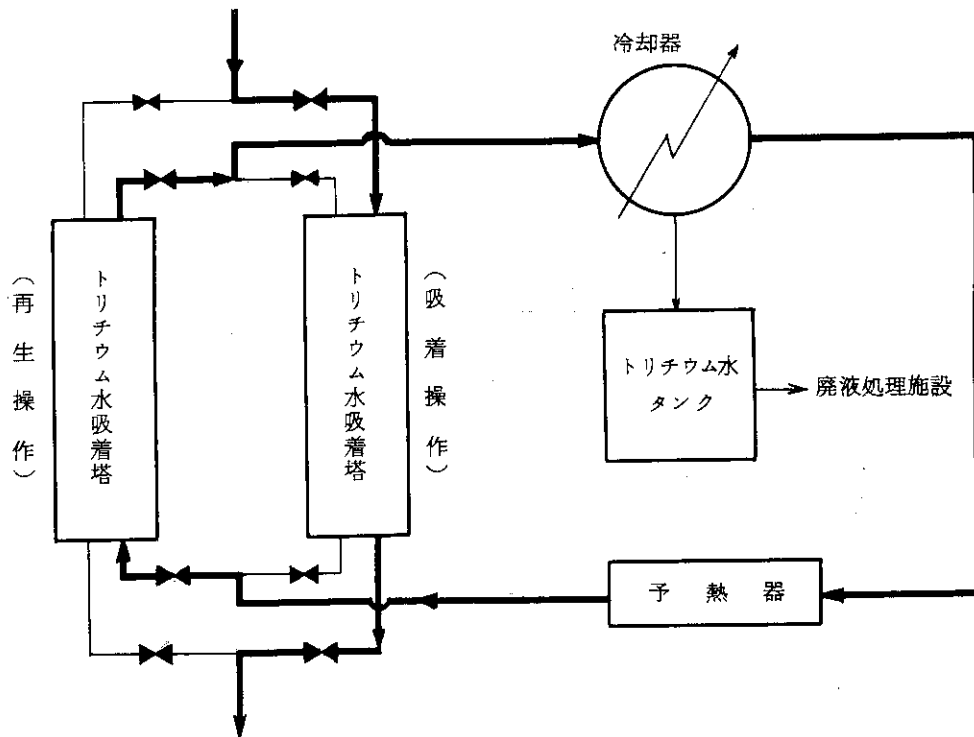


図 1.2 吸着塔再生システムの概念フローシート

2. トリチウム水吸着塔の設計法

2.1 吸着過程

吸着は、一般に次のような過程からなるものと考えられている。^{5),6)}

- ① 吸着質の粒子外(ガス側)境膜内における拡散
- ② 吸着質の粒子内部の細孔(マクロ孔)内における拡散
- ③ 吸着質の吸着剤表面への吸着

従って、吸着質が吸着剤に吸着される速度は、上記3つの素過程の速度に依存する。そのうち、吸着質分子または原子と吸着剤との相互作用が比較的弱い物理吸着の場合には、③の過程はきわめて迅速であると考えることができる。シリカゲルや活性炭で水分を吸着する場合がこれにあたる。しかし、モレキュラーシープによって水分を吸着する場合には、吸着質分子(水分子)とモレキュラーシープとの相互作用はかなり強く、むしろ化学吸着に近いという考え方もある。⁷⁾ 従って、その場合には、③の過程がきわめて迅速であると考えて良いか否かは明確ではないが、ここではシリカゲルや活性炭によって水分を吸着する場合と同様に考え、①または②が律速過程であるものと仮定する。

2.2 ガス側境膜物質移動容量係数

先に示した2つの過程(過程①, ②)のうち、先ず、吸着質のガス側境膜における拡散過程について考える。

粒子表面における吸着質の濃度を c_s 、ガス本体におけるそれを c とおくと、ガス側境膜内の物質流束 N は次式で表わされる。

$$N = k_F a (c - c_s) \quad (2.1)$$

ここに、 k_F はガス側境膜物質移動係数と呼ばれ、ガス流速、ガス粘度、ガス密度、吸着剤粒子の径などの関数である。 k_F の値の推算式としては、次の Chu の式⁸⁾ が一般に採用されている。

$$\frac{k_F}{u} \left(\frac{\mu}{\rho D_{AB}} \right)^{2/3} = \left\{ \begin{array}{ll} 1.77 \left(\frac{Re}{1-\epsilon} \right)^{-0.44} & (30 < \frac{Re}{1-\epsilon} \text{ のとき}) \\ 5.70 \left(\frac{Re}{1-\epsilon} \right)^{-0.78} & (30 > \frac{Re}{1-\epsilon} \text{ のとき}) \end{array} \right\} \quad (2.2)$$

ここに、 u はガスの空塔速度、 μ はガス粘度、 ρ はガス密度、 ϵ は充填層の空隙率、 Re は粒子を基準としたレイノルズ数、 D_{AB} は媒体ガス-吸着質系の拡散係数である。 Re は、粒子の直径(球形粒子でない場合は代表径)を d_p とおくと、

$$R_e = \frac{d_p u \rho}{\mu} \quad (2.3)$$

で表わされる。また、 D_{AB} は次の藤田⁹⁾の式から推算することができる。

$$D_{AB} = \frac{0.00067 T^{1.83}}{P \left\{ \left(T_c / P_c \right)_A^{1/3} + \left(T_c / P_c \right)_B^{1/3} \right\}^3} \sqrt{\frac{1}{M_A} + \frac{1}{M_B}} \quad (2.4)$$

ここに、

$$\left\{ \begin{array}{l} P : \text{全圧力 (atm)} \\ T : \text{絶対温度 (K)} \\ M : \text{分子量 (g/g-mol)} \\ p_c : \text{臨界圧力 (atm)} \\ T_c : \text{臨界温度 (K)} \\ D_{AB} : \text{拡散係数 (cm}^2/\text{sec)} \end{array} \right.$$

また、(2.1)式中の a は、充填層単位体積当りの粒子の全表面積で、次式で表わされる。

$$a = \frac{6(1-\epsilon)}{d_p} \quad (2.5)$$

(2.2)式及び(2.5)式から、 $k_F a$ の概略値を推定することができる。 $k_F a$ は、ガス側境膜物質移動容量係数と呼ばれる。(2.1)式において、濃度差($c - c_s$)は推進力であり、 $1/k_F a$ はガス側境膜内拡散の抵抗に相当する。

2.3 粒子内有効拡散係数

次に、吸着質の粒子内部の細孔(マクロ孔)内における拡散過程について考える。

モレキュラーシーブのような多孔性粒子の細孔は、マクロ孔とマイクロ孔からなる。マクロ孔は粒子内を曲折、交錯あるいは貫通し、マイクロ孔はその孔壁に分布している。吸着質分子はマクロ孔内を拡散し、マイクロ孔表面に吸着される。すなわち、マイクロ孔は吸着の容量を定め、マクロ孔は吸着の速度に関係している。このマクロ孔内における分子の拡散係数 D_i は、近似的に次式で表わされる。

$$1/D_i = 1/D_{AB} + 1/D_{KA} \quad (2.6)$$

ここで、 D_i は(2.4)式で与えられる分子拡散係数であり、 D_{KA} は次式で与えられるクヌッセン拡散係数である。

$$D_{KA} = \frac{\bar{d}}{3} \sqrt{\frac{8RT}{\pi M_A}} \quad (2.7)$$

\bar{d} はマクロ孔の平均径である。

しかし、実際にはマクロ孔の形状は複雑きわまりないため、 $1/D_i$ を粒子内部の細孔内の拡散抵抗と考えることはできない。従って、 $1/D_i$ を次のように補正する。

$$1/D_e = (1/D_i) (\xi / \epsilon') \quad (2.8)$$

ここに、 ϵ' はマクロ孔の細孔率、 ξ は屈曲係数と呼ばれる。上式中、 $1/D_e$ は粒子内部の細孔内の拡散抵抗であり、 D_e は有効拡散係数と呼ばれる。

2.4 総括物質移動容量係数

吸着質の粒子内部における拡散現象を集中定数化して、仮想的な固体境膜の物質移動容量係数 $k_s a$ で表現するとき、総括物質移動容量係数 $K_F a$ は次式で与えられる。

$$1/K_F a = 1/k_F a + 1/\beta k_s a \quad (2.9)$$

上式中、 $1/\beta k_s a$ は、粒子内有効拡散係数 D_e と近似的に次式で与えられる関係にある。

$$1/\beta k_s a = d_p^2 / \{ 60 D_e (1 - \epsilon) \} \quad (2.10)$$

$K_F a$ を用いて、充填層単位容積当りの吸着質の吸着速度 R は、

$$R = K_F a (c - c^*) \quad (2.11)$$

で与えられる。ただし、 c^* は吸着剤中の吸着質の平均吸着量と平衡にある仮想的なガス中の吸着質濃度である。モレキュラーシーブの場合は、多くの場合、円柱状の粒子が用いられる。円柱状の粒子の場合には、(2.10)式の代わりに次式を用いる。

$$\left. \begin{aligned} 1/\beta k_s a &= D_p^2 / \{ 4 \phi(\delta) D_e (1 - \epsilon) \} \\ \delta &= \ell / D_p \end{aligned} \right\} \quad (2.12)$$

ここに、 D_p は円柱粒子の底面の直径、 ℓ は円柱粒子の高さ、 $\phi(\delta)$ は形状係数である。 $\phi(\delta)$ は δ の関数で δ に対して図 2.1 のように変化する。

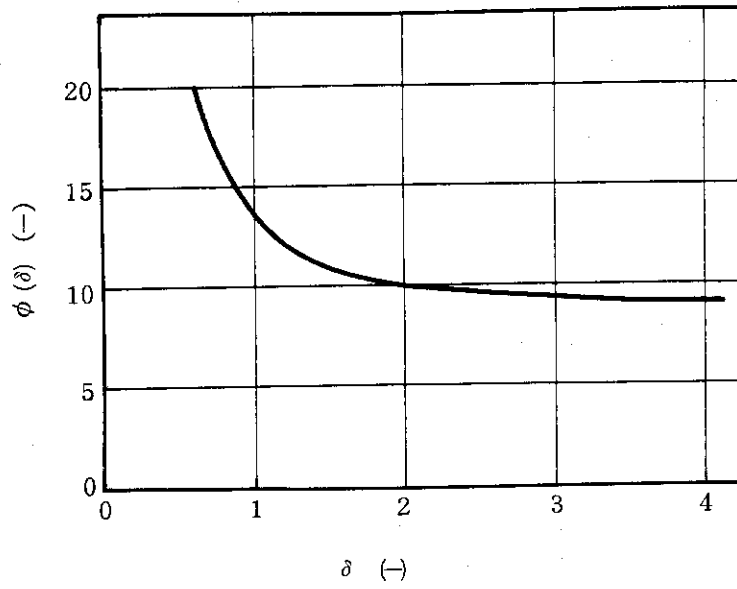


図 2.1 { (円柱粒子の高さ) / (円柱粒子の底面の直径) } = δ と形状係数 $\phi(\delta)$ との関係

2.5 吸着塔設計のためのモデリング

モレキュラーシーブなどの吸着剤を充填した充填層に、上方から吸着質（たとえば水蒸気）濃度 c_0 のガスを流下させる場合について考える。最初、吸着は層の最上部で急速かつ有効に行われ、吸着されずに残った吸着質がその下層部で吸着される。上部は事実上飽和状態にあり、吸着の大部分は比較的狭い圏内、すなわち、吸着圏（その長さを Z_a とする）内で行われる。吸着塔のモデルを図 2.2 に示す。

図で、部分(I)はすでに吸着質で飽和しており、吸着は行われないと考える。部分(II)は吸着が行われつつある吸着圏であり、部分(III)が未吸着部分である。さらに、ガスを送り続けると、吸着圏は徐々に下方へ移動して行き、ついには吸着圏の最下部が塔の最下部と一致するようになる。このとき、破過したと言ひ、これに至るまでの時間を破過時間と言ひ。ガスを送る前、吸着剤には全く吸着質は含まれていなかったと仮定するならば、破過に達するまでは塔出口ガス中の吸着質濃度は無視小である。しかし、破過を過ぎると塔出口ガス中の吸着質濃度は急に増加し始め、ついには塔内では吸着は全く行われなくなり、塔出口のガス中の吸着質濃度は c_0 に等しくなる。塔出口のガス中の吸着質濃度が時間と共に変動する様子を図 2.3 に示す。図に示すような曲線は破過曲線と呼ばれ、このような曲線形が得られることは実験的に確められている。

次に、設計に必要な基礎式を導く。S を塔の断面積、q を吸着剤単位重量あたりの吸着質の量、 γ を吸着剤の充填密度として、吸着圏内の微小区間 Δz における吸着質についての物質収支を微小時間 Δt に対してとると次式が得られる。

$$\begin{aligned} \epsilon S \Delta z \{ c(t + \Delta t, z) - c(t, z) \} + \gamma S \Delta z \{ q(t + \Delta t, z) - q(t, z) \} \\ = u S \Delta t \{ c(t, z) - c(t, z + \Delta z) \} \end{aligned} \quad (2.13)$$

ただし、吸着質の濃度は小さく、 $u \approx$ 一定と考えることができるものと仮定する。また、軸方向の混合拡散は無視した。上式を $\Delta t \Delta z$ で除して、 $\Delta t, \Delta z \rightarrow 0$ にすると、次の偏微分方程式が得られる。

$$-u \frac{\partial c}{\partial z} = \epsilon \frac{\partial c}{\partial t} + \gamma \frac{\partial q}{\partial t} \quad (2.14)$$

ここで、

$$\frac{\partial c}{\partial t} \approx 0 \quad (2.15)$$

と近似し、さらに、

$$\gamma \frac{\partial q}{\partial t} = K_F a (c - c^*) \quad (2.16)$$

で与えられる関係を用いると次式が得られる。

$$- \frac{dc}{c - c^*} = \frac{K_F a}{u} dz \quad (2.17)$$

このような簡略化されたモデルは、吸着等温線が吸着量 q を縦軸にとった場合に凸状になるならば、近似的に妥当であることが知られている。層内で形成される吸着圏は、一定の形状を保つ

たまた、層内を一定速度で進行する。これを「定形濃度分布の仮定」と呼ぶ。この場合(2.17)式より、吸着層の長さ Z_a を次式から求めることができる。

$$Z_a = \frac{u}{K_F a} \int_{c_E}^{c_B} \frac{-dc}{c-c^*} = \frac{u}{K_F a} N_t \quad (2.18)$$

ここで、

$$N_t = \int_{c_E}^{c_B} \frac{-dc}{c-c^*} \quad (2.19)$$

であり、 N_t は移動単位数と呼ばれる。また、

$$\left. \begin{aligned} c_E &\simeq c_o, & c_E &\neq c_o \\ c_B &\simeq 0, & c_B &\neq 0 \\ c_E &= c_o - c_B \end{aligned} \right\} \quad (2.20)$$

にとる場合が多い。

次に、吸着等温線がラングミュア型の場合について、 N_t を求める式を導く。この場合、先に述べたモデルの適用が可能であり、操作線は次式となる。

$$q = \frac{q_o}{c_o} c \quad (2.21)$$

ここに、 q_o は c_o と平衡関係にある q の値である。(2.21)式と、ラングミュアの吸着等温式

$$q = \frac{k_2 c}{1+k_1 c} \quad (2.22)$$

より、 c^* は次式で表わされる。

$$c^* = \frac{c q_o}{c_o k_2 - q_o k_1 c} \quad (2.23)$$

(2.19)及び(2.23)式より、次式を得る。

$$N_t = \frac{q_o}{k_2 c_o - q_o} \ln \frac{k_2 c_o - q_o - k_1 q_o c_B}{k_2 c_o - q_o - k_1 q_o c_E} - \frac{k_2 c_o}{k_2 c_o - q_o} \ln \frac{c_B}{c_E} \quad (2.24)$$

(2.18)及び(2.24)式から Z_a の値が求まる。 Z_a の値が求まれば、簡単な物質収支式から必要な塔高 Z 、所要吸着剤重量 W の値を決定することができる。破過点における吸着剤中の破着質の量を模式的に示すと図2.4のようになる。破過時間を t_B とすると、図を参考にして次の物質収支式を得る。

$$u c_o S t_B = (Z - Z_a) S \gamma q_o + Z_a S \gamma \frac{q_o}{2} \quad (2.25)$$

よって、上式より、 Z 及び W の値を求めるための次式が得られる。

$$Z = \frac{u c_o t_B}{\gamma q_o} + \frac{Z_a}{2} \quad (2.26)$$

$$W = S Z \gamma = \frac{S u c_o t_B}{q_o} + \frac{Z_a}{2} \gamma S \quad (2.27)$$

$Z_a/Z \ll 1$ の場合には、次の近似式を使うことができる。

$$Z = \frac{u c_o t_B}{\gamma q_o} \quad (2.28)$$

$$W = \frac{S u c_o t_B}{q_o} \quad (2.29)$$

ただし、(2.26)式及び(2.27)式を用いる場合には、 $Z_a/Z \ll 1$ であることを確かめねばならない。

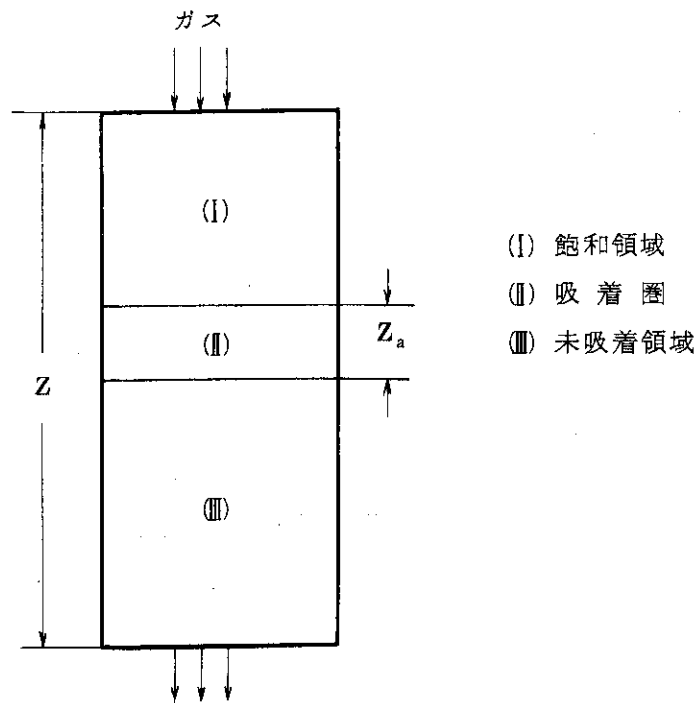
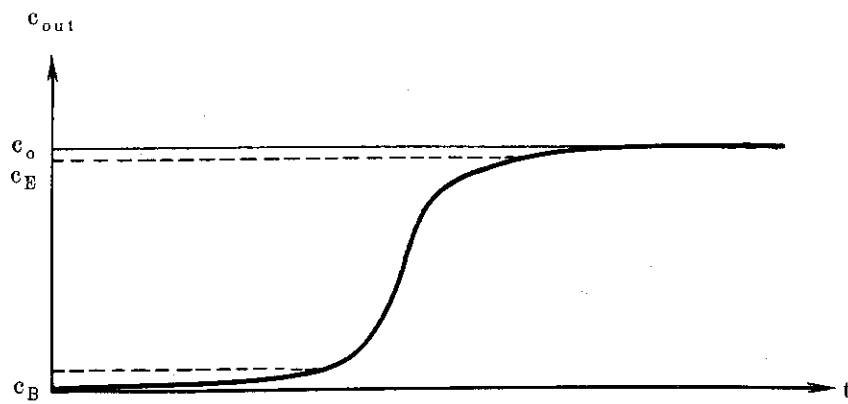
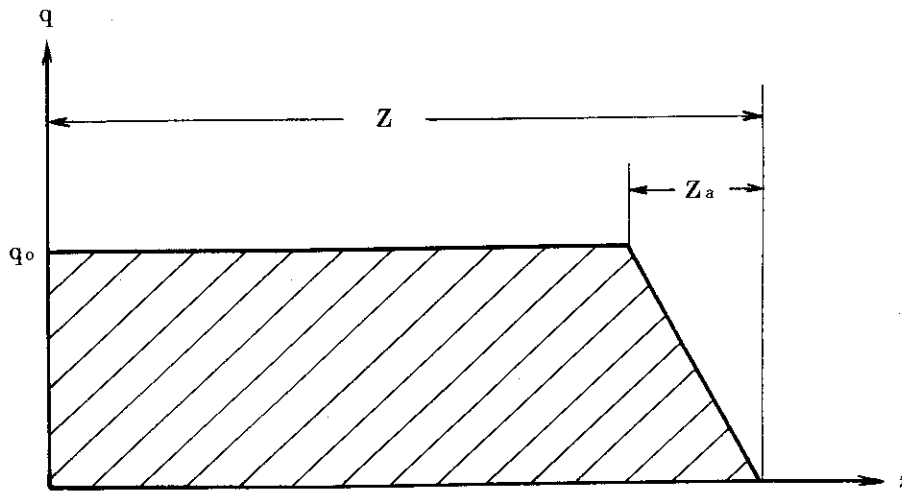


図 2.2 吸着塔のモデル



c_{out} : 塔出口ガス中の吸着質濃度
 c_0 : 塔入口ガス中の吸着質濃度
 t : 経過時間 c_E, c_B : 本文参照

図 2.3 破過曲線



Z : 塔長 (吸着剤充填部のみ)

Z_a : 吸着圏長さ

q_0 : 塔入口ガス中の吸着質濃度に対する飽和吸着量

z : 塔入口からの距離

q : z における吸着剤中の吸着質吸着量

図 2.4 破過点における塔内吸着剤中の吸着質吸着量分布

3. 設計法の検討

3.1 モレキュラーシーブの特性値

モレキュラーシーブは合成結晶アルミノ・シリケートの含水金属塩から成り、この金属塩のもつ結晶水を加熱脱離すると結晶水の取り除かれた跡に空洞が残る。この空洞の内壁に被吸着分子が吸着されるのである。モレキュラーシーブの特徴は、この空洞につながっている細孔（マイクロ孔）の孔径が均一であるということであり、従って、マイクロ孔に入り得る分子のみが選択的に吸着される。例えば、モレキュラーシーブ 4 Å, 5 Å, 13 X のマイクロ孔の孔径は、各々 4 Å, 5 Å, 10 Å で均一である（図 3.1 参照）。表 3.1 に、モレキュラーシーブ（MS と略す）の特性値をまとめて示す。また、以下にモレキュラーシーブの特徴を要約する。

- ① ミクロ孔の孔径は均一であり、それを通りうる分子径をもつ物質のみを吸着することができる。
- ② 水のような極性物質を優先的に吸着する。これは、モレキュラーシーブの化学組成に金属イオンが含まれているためと考えられる。
- ③ 水を吸着する能力は強く、水蒸気分圧が極めて低い場合や、比較的高温においても、かなりの吸着能力を持つ。
- ④ モレキュラーシーブの吸着-再生サイクルを繰り返しても、吸着能力が低下しにくい。2000 サイクルで約 33% の低下をみるのみである（これについては後述する）。

上記のうち、特に③及び④に示した理由から、トリチウム除去システムにおける吸着塔の吸着剤としては、モレキュラーシーブが最も有望と考えられる。

なお、サイズ D_p ($D_p = 1/8''$ または $1/16''$) のペレットは、底面の直径が D_p の円柱形である。高さは、 $1/8''$ ペレットが約 $2 D_p$ 、 $1/16''$ ペレットが約 $4 D_p$ とすると、形状係数 $\phi(\delta)$ は、図 2.1 から次のようになる。

$$\phi(\delta) \approx \left\{ \begin{array}{ll} 10 & (1/8'' \text{ ペレット}) \\ 9 & (1/16'' \text{ ペレット}) \end{array} \right\} \quad (3.1)$$

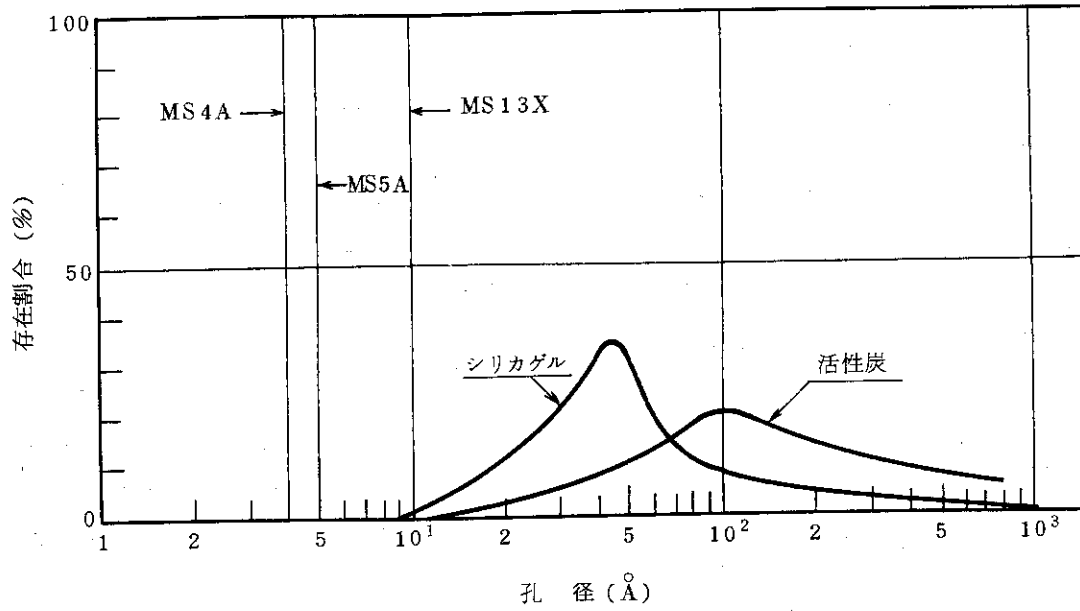


図 3.1 代表的吸着剤のマイクロ孔の孔径分布

表 3.1 モレキュラーシーブの特性値

| 特性定数 | | MSの種類 | | |
|------------------------------|------|--------------------|--------------------|--------------------|
| | | MS 4 A | MS 5 A | MS 13 X |
| マクロ孔の平均径 (Å) | | — | 4000 | 4000 |
| マクロ孔の細孔率 (-) | | — | 0.30 | 0.32 |
| 屈曲係数 (-) | | — | 3.1 | 3.3 |
| サイズ, 形状 | | 1/8", 1/16" 円柱形 | 1/8", 1/16" 円柱形 | 1/8", 1/16" 円柱形 |
| 層空隙率 (-) | 軽充填 | 1/8" | — | — |
| | | 1/16" | — | 0.453 |
| | 振動充填 | 1/8" | — | — |
| | | 1/16" | — | 0.386 |
| 充填密度 (g/cm ³) | 軽充填 | 1/8" | 0.641 | 0.641 |
| | | 1/16" | 0.657 | 0.657 |
| | 振動充填 | 1/8" | 0.721 | 0.721 |
| | | 1/16" | 0.737 | 0.737 |

3.2 モレキュラーシーブ水系の吸着平衡データ

トリチウム除去システムにおけるトリチウム水吸着塔の入口ガス中の水の化学形は、 H_2O 、 HTO と考えられるが、大部分は H_2O である。本来ならば、 H_2O 及び HTO の競合吸着を考えるべきであるが、それに関しては十分なデータが見当たらないため、ここでは H_2O と HTO の同位体効果を見捨てる、すべてが H_2O であるものとして取り扱う。

まず、モレキュラーシーブ4A- H_2O 系、モレキュラーシーブ5A- H_2O 系の吸着平衡データを図3.2、図3.3に示す。移動単位数を知るには、吸着等温式

$$q = \frac{k_2 p}{1 + k_1 p} \quad (3.2)$$

p : H_2O の分圧 (mm Hg)
 q : 吸着量 (g- H_2O / g-MS)

中の定数 k_1 、 k_2 の値を知る必要がある。そこで、 $25^\circ C$ において、 $10^{-3} \text{ mmHg} < p < 10^{-1} \text{ mmHg}$ の範囲での k_1 、 k_2 の値を最小自乗法によって求めた。ただし、モレキュラーシーブ H_2O 系は厳密にはラングミュアの吸着等温式に従わないため、 $10^{-3} \text{ mmHg} < p < 10^{-2} \text{ mmHg}$ 、 $10^{-2} \text{ mmHg} < p < 10^{-1} \text{ mmHg}$ の各範囲で2つの式を使い分ける必要がある。表3.2は、その結果を示したものである。

$10^{-3} \text{ mmHg} \leq p \leq 10^{-1} \text{ mmHg}$ において N_t を求める場合、積分範囲は2領域にわたっているから、次式から計算することになる。

$$N_t = \frac{q_0}{k_2 p_0 - q_0} \ell_n \frac{k_2 p_0 - q_0 - k_1 q_0 p_B}{k_2 p_0 - q_0 - 0.01 k_1 q_0} + \frac{k_2 p_0}{k_2 p_0 - q_0} \ell_n \frac{0.01}{p_B} + \frac{q_0}{k_2' p_0 - q_0} \ell_n \frac{k_2' p_0 - q_0 - 0.01 k_1' q_0}{k_2' p_0 - q_0 - k_1' q_0 p_E} + \frac{k_2' p_0}{k_2' p_0 - q_0} \ell_n \frac{p_E}{0.01} \quad (3.3)$$

試みに、 $p_B = 0.00426 \text{ mmHg}$ 、 $p_E = 0.113 \text{ mmHg}$ 、 $p_0 = 0.117 \text{ mmHg}$ として、図3.2のデータから図積分によって N_t を求めると、

$$N_t = 3.9$$

となる。一方、(3.3)式から求めると、

$$N_t = 3.7$$

となり、近似的に(3.3)式を用いて良いことがわかる。

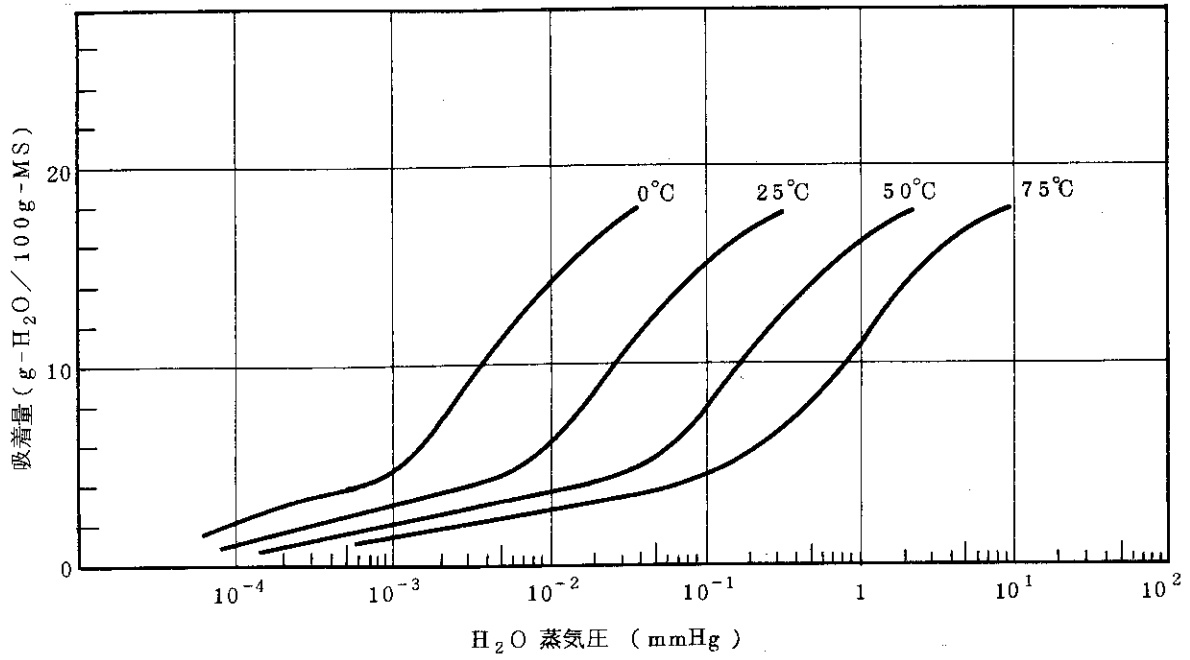


図 3.2 モレキュラーシープ 4 A-H₂O 系の吸着平衡データ

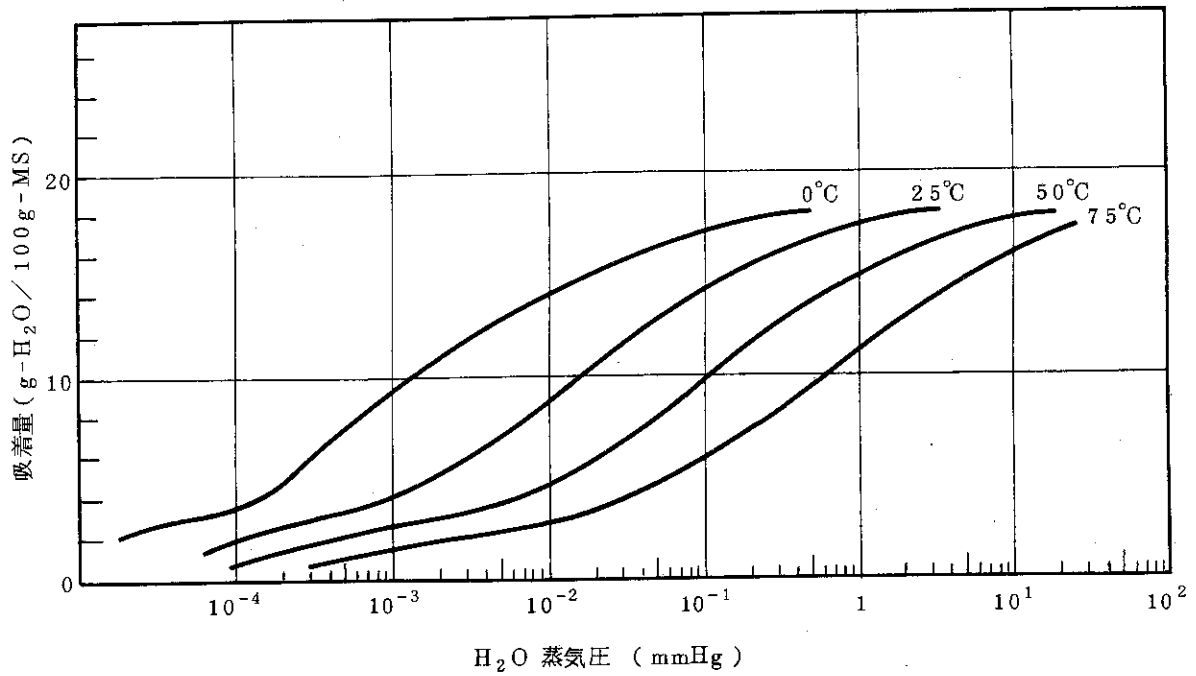


図 3.3 モレキュラーシープ 5 A-H₂O 系の吸着平衡データ

表 3.2 25 °Cにおける吸着等温式中の定数

| MSの種類 範 囲 | MS 4 A | MS 5 A |
|---|--|--|
| $10^{-3} \text{ mm Hg} < p < 10^{-2} \text{ mm Hg}$ | $k_1 = 9.65 \times 10^2$ $k_2 = 5.68 \times 10^1$ | $k_1 = 7.70 \times 10^2$ $k_2 = 6.84 \times 10^1$ |
| $10^{-2} \text{ mm Hg} < p < 10^{-1} \text{ mm Hg}$ | $k_1' = 4.78 \times 10^1$ $k_2' = 8.66$ | $k_1' = 1.15 \times 10^2$ $k_2' = 1.77 \times 10^1$ |

$$\left\{ \begin{array}{l} q = \frac{k_2 p}{1 + k_1 p} \quad (\text{近似式}) \\ p : \text{H}_2\text{Oの分圧} \quad (\text{mm Hg}) \\ q : \text{吸着量} \quad (\text{g-H}_2\text{O} / \text{g-MS}) \end{array} \right.$$

$10^{-2} \text{ mm Hg} < p < 10^{-1} \text{ mm Hg}$ における k_1, k_2 を各々 k_1', k_2' とおいている

3.3 ケーススタディ

3.3.1 設定条件

次に示す値を基本条件として設定する。

- 処理ガス流量； $100\text{m}^3/\text{hr}$ (25°C , 1 atm)
- 操作温度及び圧力； 25°C , 1 atm
- 媒体ガス；空気
- 入口ガス中水蒸気分圧； 0.1 mmHg
- 吸着剤；モレキュラーシーブ 5A, $1/16$ インチペレット, モレキュラーシーブは軽充填
- 所要除染係数；100

ただし, 除染係数 η は, 次式で定義する。

$$\eta = \frac{\text{入口ガス中水蒸気分圧}}{\text{出口ガス中水蒸気分圧}} \quad (3.4)$$

必要な空気及び水の物性値は次の通りである。

空 気

$$\begin{aligned} \rho &= 1.186 \times 10^{-3} \text{ g/cm}^3 \\ \mu &= 1.85 \times 10^{-4} \text{ g/cm sec} \\ p_c &= 37.2 \text{ atm} \\ T_c &= 132.5 \text{ K} \end{aligned}$$

水

$$\begin{aligned} p_c &= 218.4 \text{ atm} \\ T_c &= 647.4 \text{ K} \end{aligned}$$

3.3.2 設計例

① 粒内拡散抵抗

まず, (2.4)式より,

$$D_{\text{H}_2\text{O-air}} = 0.26 \text{ cm}^2/\text{sec}$$

$\bar{d} = 4.0 \times 10^{-5} \text{ cm}$ であるから, (2.7)式より,

$$D_{\text{KH}_2\text{O}} = 0.79 \text{ cm}^2/\text{sec}$$

$\xi = 3.1$, $\varepsilon' = 0.30$ であるから, (2.6)及び(2.8)式より, 有効拡散係数 D_e が求まる。

$$D_e = 0.019 \text{ cm}^2/\text{sec}$$

$D_p = 0.159 \text{ cm}$, $\varepsilon = 0.453$, $\phi(\delta) = 9$ であるから, (2.12)式より,

$$1/\beta k_s a = 0.068 \text{ 1/sec} \quad (3.5)$$

上記が粒内拡散抵抗である。

② ガス側境膜内拡散抵抗

k_F の値を求めるためには、空塔速度 u の値が必要である。モレキュラーシーブを充填した吸着塔に空気を送入する場合、一般には、

$$u < 60 \text{ cm/sec} \quad (3.6)$$

に設定される。流速の設定値が小さ過ぎると軸方向の混合拡散の効果が無視できなくなり、逆に、大き過ぎると圧力損失が大きくなって好ましくない。ここでは、塔内径を 40 cm に設定する。このとき、

$$u = 22.1 \text{ cm/sec}$$

よって、(2.2)式から k_F の値を求めることができる。

$$k_F = 9.44 \text{ cm/sec}$$

(2.5)式を用いる ($d_p = 4D_p/3$) と、

$$1/k_F a = 0.0068 \text{ 1/sec} \quad (3.7)$$

上記が、ガス側境膜内拡散抵抗である。

③ 総括物質移動容量係数

(3.5)式と(3.7)式を比較すると、粒内拡散抵抗の方が大きく、マクロ孔内の拡散過程が律速であることがわかる。

総括物質移動容量係数 $K_F a$ は、(2.12)式より、

$$K_F a = 13.4 \text{ 1/sec} \quad (3.8)$$

④ 移動単位数

モレキュラーシーブを用いて空気中の水分を吸着除去する場合、吸着塔は2基並列に設置され、一方で吸着が行われている間に他方は再生されるのが普通である。再生によってモレキュラーシーブに吸着された水分をすべて完全に脱着することは困難であり、再生後再び吸着モードに切り換えた際には、モレキュラーシーブには少量の水分が残着している。従って、破過に達する以前においても、塔出口の空気中には必然的に水蒸気が含まれている。このときの破過曲線は図3.4のようになる。要求される除染係数は100であるから、 p_i は0.001 mmHg以下であることが必要である。図3.3より、

「再生ではモレキュラーシーブ中の水分量を $q_i = 0.04 \text{ g-H}_2\text{O/g-MS}$ 以下にしなければならない」

ことが要求される。

$$p_B = 0.002 \text{ mmHg}$$

$$p_E = 0.099 \text{ mmHg}$$

に設定すると、 $q_0 = 0.1405 \text{ g-H}_2\text{O/g-MS}$ と(3.3)式より、移動単位数 N_t が次のように求まる。

$$N_t = 4.5 \quad (3.9)$$

⑤ 吸着圏長さ

(2.18)式より、吸着圏長さ Z_a は次の値となる。

$$Z_a = \frac{u}{K_F a} N_t = 7.4 \text{ cm} \quad (3.10)$$

⑥ モレキュラーシープ必要量及び塔長

破過時間を 30 days (2.592×10^6 sec) に設定すると, (2.24) 及び (2.25) 式より, モレキュラーシープ必要量 W 及び塔長 Z の値が次のように求まる。

$$Z = 87.7 \text{ cm} \quad (3.11)$$

$$W = 72.5 \text{ kg} \quad (3.12)$$

ただし, q_0 の値としては,

$$0.1405 - 0.04 = 0.1005 \text{ g-H}_2\text{O} / \text{g-MS}$$

を用いなければならない。

ところで, $Z_a / Z \approx 0.1$ であるから, (2.27) 式から W の値を求めてみると,

$$W = 69.4 \text{ kg}$$

となり, 誤差は -4.3% であることがわかる。

よって, 3.3.1 で示した設定条件及び $t_B = 30$ days なる設定値のもとでは, 近似的に (2.27) 式を用いることができる。しかし, 破過時間の設定値が短いほど, 誤差は大きくなる。表 3.3 は, (2.24) 式・(2.25) 式を用いた場合と, (2.26) 式・(2.27) 式を用いた場合とについて, 破過時間の設定値を変えて塔長 Z とモレキュラーシープの必要量 W の計算値を比較したものである。

(2.26) 式・(2.27) 式を用いることは, 吸着圏の存在を無視することであるが, その場合, 破過時間の設定値が短いほど, 誤差が大きくなることは表から明らかである。破過時間の設定値だけでなく, その他の条件にも依存するものと考えられるため, (2.24) 式・(2.25) 式を用いるのが好ましい。

⑦ 圧力損失

充填層にガスを送入する場合の圧力損失の推定式としては, 次の Carman の式¹⁰⁾を用いる。

$$\left. \begin{aligned} \Delta P &= \bar{f} \frac{1-\varepsilon}{\varepsilon^3} S_v \frac{u^2}{g_0} \rho Z \\ \bar{f} &= 5 \bar{R}_e^{-1} + 0.4 \bar{R}_e^{-0.1} \\ \bar{R}_e &= \frac{u \rho}{S_v \mu (1-\varepsilon)} \\ S_v &= 6/d_p \end{aligned} \right\} \quad (3.13)$$

ΔP : 圧力損失
 d_p : 充填粒子と, (表面積) / (体積) の値が同一となるような球の直径

上式から ΔP の値を計算すると,

$$\Delta P = 0.0076 \text{ Kg/cm}^2$$

となる。しかし, ΔP の値は, 層内空隙率 ε の値に大きく影響されるうえ, ε の値及び Carman の式の不確定性を考慮し,

$$\Delta P = 0.02 \text{ Kg/cm}^2 \quad (3.14)$$

と安全側に推定しておく。

⑧ エイジングファクター

先に述べたように、吸着塔は2基並列に設けられ、一方で吸着が行われている間、他方は再生される。再生の方法としては次のようなものを考える。常温以下に冷却した不活性ガス(Heなど)をヒーターで約300~350°Cに加熱して相対湿度を大幅に低下させ、塔内に連続的に送入してモレキュラーシープから水分を脱着させる。塔を出るガスはコールドトラップで常温以下(約-180°C)に冷却され、水分は凝固除去される。ガスは再びヒーターで加熱されて塔に送入される。以上の閉ループを所定時間操作することにより、モレキュラーシープの再生を行う。しかし、このようにモレキュラーシープの吸着-再生のサイクルをくり返していると、モレキュラーシープの吸着容量が低下することが知られている。1例として、ユニオンカーバイド社で行われた実験結果を図3.5に示した。図から明らかなように、200サイクルで吸着容量は約30%低下し、その後も徐々に低下し続ける。図には示されていないが、実験は2000サイクルまで行われており、2000サイクルで約33%の低下をみている。よって、このことを設計時に考慮し、モレキュラーシープの充填量に余裕を見ておかねばならない。すなわち、先に計算で求めたWの値から、近似的に次式を用いて実際の充填量W'の値を決定する。

$$W' = W / 0.67 \quad (3.15)$$

上記0.67の数値をモレキュラーシープのエイジングファクターと呼ぶ。

⑨ 吸着熱による昇温について

先に示した設計では、吸着によって発熱があることを考慮していなかったが、ここでは、次のデータを用いてその妥当性について検討する。

○ 空気の比熱; $C_{P_{air}} = 0.24 \text{ cal/g}^\circ\text{C}$

○ モレキュラーシープ5Aの比熱; $C_{PMS} = 0.25 \text{ cal/g}^\circ\text{C}$

○ 吸着熱(最大); $Q = 10^3 \text{ cal/g} \cdot \text{H}_2\text{O}$

まず、1時間あたりの発熱量Hは、

$$H = \frac{P_0 - P_i}{RT} M_{\text{H}_2\text{O}} FQ \approx \frac{P_0}{RT} M_{\text{H}_2\text{O}} FQ = 1.45 \times 10^4 \text{ cal/hr}$$

よって、昇温 Δt は、

$$H \approx (F\rho C_{P_{air}} + WC_{PMS}) \Delta t \quad (3.16)$$

より、

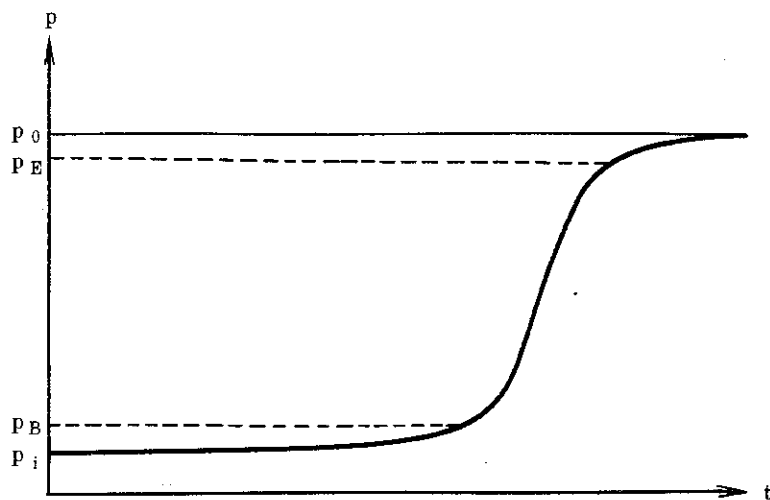
$$\Delta t = 0.24^\circ\text{C} \rightarrow 0.5^\circ\text{C}$$

よって、この条件下では、温度上昇による吸着能力の低下はほとんど起こらない。一般に、モレキュラーシープでは、温度上昇によって相対湿度が20%程度にまで落ちない限り、吸着量の変化は無視できることが知られている。

⑩ まとめ

以上のことから、次のような結果を得る。

- 塔内径；40 cm
- 塔長（充填部長さ）；1.33 m
- モレキュラーシーブ充填量；110 kg
- 圧力損失； 0.03 Kg/cm^2
- 操作時間；30日以下



p : 塔出口ガス中の水蒸気分圧
 t : 経過時間
 P_0, P_E, P_B, P_i : 本文参照

図 3.4 モレキュラーシーブ水系の破過曲線

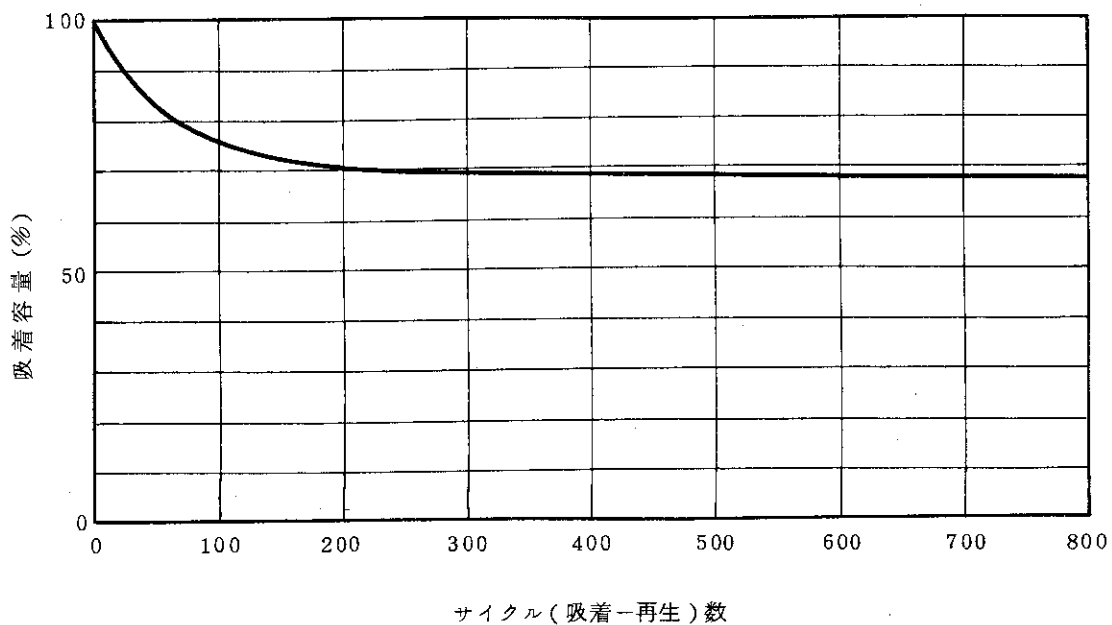


図 3.5 モレキュラーシーブの水分吸着容量低下曲線
 初期吸着容量を100%とする

表 3.3 吸着圏の存在を無視した場合の誤差

| 破過時間 諸元 方法 | $t_B = 30 \text{ days}$ | | | $t_B = 20 \text{ days}$ | | | $t_B = 10 \text{ days}$ | | | $t_B = 5 \text{ days}$ | | |
|------------------|-------------------------|-------------|-------------|-------------------------|-------------|-------------|-------------------------|-------------|-------------|------------------------|-------------|-------------|
| | Z_a (cm) | Z (cm) | W (kg) | Z_a (cm) | Z (cm) | W (kg) | Z_a (cm) | Z (cm) | W (kg) | Z_a (cm) | Z (cm) | W (kg) |
| A | 12.9 | 156 | 72.4 | 12.9 | 106 | 49.2 | 12.9 | 56.2 | 26.1 | 12.9 | 31.3 | 14.5 |
| B | — | 149 | 69.2 | — | 99.6 | 46.3 | — | 49.7 | 23.1 | — | 24.9 | 11.6 |
| — | $E_r = -4.4\%$ | | | $E_r = -5.9\%$ | | | $E_r = -11.5\%$ | | | $E_r = -20.0\%$ | | |

($D = 30 \text{ cm}$)

A : (2.24) 式・(2.25) 式を用いた場合 (吸着圏の存在を考慮)

B : (2.26) 式・(2.27) 式を用いた場合 (吸着圏の存在を無視)

- t_B : 破過時間
- Z_a : 吸着圏の長さ
- Z : 塔 長
- W : モレキュレーション必要量
- E_r : 吸着圏の存在を無視した場合の誤差

3.3.3 パラメーターサーベイ

(1) (塔長)/(塔径)の値の影響

先に示した設計例では、塔径 $D = 40 \text{ cm}$ に設定したが、 D の値を 40 cm と異なる値に設定した場合、結果がどのように変わるかについて調べた。まず、一般的な考え方について述べる。

- チャネリング(偏流)を避けるためには、塔長はなるべく長い方が望ましい。一般に、少なくとも、

$$Z > 100 d_p \quad (3.17)$$

であることが要求される。モレキュラーシーブ 5A1/16"ペレットの場合は、 $Z \geq 25 \text{ cm}$ となる。

- 吸着塔の前後の配管の内径 d をガス流速が 3 m/sec となるように選ぶものとする、 $F = 100 \text{ m}^3/\text{hr}$ の場合、 $d \approx 10 \text{ cm}$ となる。従って、 $D \geq 30 \text{ cm}$ であることが望ましい。
- 先に述べたように、ガス流速 u が $u < 60 \text{ cm/sec}$ となるように D の値を設定するのが普通である。しかし、ガス流速をあまり小さくすると、ガス境膜拡散抵抗の影響で吸着速度が低下する恐れがある。また、混合拡散の影響も大きくなる。
- 圧力損失を小さくするためには、ガス流速が小さいことが望ましい。すなわち、塔径を大きく設定すれば良い。

以上のことから、 $D = 30 \text{ cm}$ 、 50 cm 、 60 cm と設定した場合に対して、3.3.2 と同様の設計計算を行った。表 3.4 はその結果をまとめたものである。この条件下では粒内拡散抵抗支配であるため、ガス流速が小さくなることによりガス境膜拡散抵抗が大きくなっても、全抵抗 $1/K_{Fa}$ はほとんど変化しない。そのため、モレキュラーシーブの必要量もほぼ一定となっている。従って、圧力損失の点から考えると、塔径をかなり大きく ($D \approx 60 \text{ cm}$) 設定するのが好ましいということになる。しかし、トリチウム除去システムにおける吸着塔において最も重要なことは、除染係数の値がなるべく大きいことであり、このためには、ガスの流れがプラグフローに近づくように塔長を長くとることが必要となる。

以上のようは、 Z/D の値をいかに選定するかはきわめてむずかしい問題である。設計しようとするトリチウム除去システムの仕様に依じて決定することになるだろう。

(2) 高除染係数を得るための工夫

先に示した設計例では、除染係数を 100 に設定した。グローブボックス雰囲気ガスを循環方式で処理するトリチウム除去システムの場合は、一般に 100 程度の除染係数で充分である。しかし、排出ガスをワンスルー方式で処理し、その後スタックへ放出するトリチウム除去システムの場合には、しばしば高除染係数が要求される。ここでは、除染係数を向上させるためのいくつかの方式をあげ、先に示した設計例との比較検討を行う。

方式 I (吸着塔の操作温度を下げる方法)

チャネリングなどの現象が起こらないものと仮定すると、破過に達するまでは、塔出口ガス中の水分濃度はモレキュラーシーブの再生条件と吸着塔の操作温度によって決まる。いま、モレキュラーシーブ再生後に残着している水分量 q_i が、先に示した設計例と同様、 $q_i = 0.04 \text{ g-H}_2\text{O/g-MS}$ と仮定すると、図 3.3 より、出口ガス中の水蒸気分圧 p_i は、温度によって

次のように変化することがわかる。

$$\begin{aligned} t = 0^\circ\text{C} & ; & p_i = 1.3 \times 10^{-4} \text{ mmHg} \\ t = 25^\circ\text{C} & ; & p_i = 1.0 \times 10^{-3} \text{ mmHg} \\ t = 50^\circ\text{C} & ; & p_i = 8.8 \times 10^{-3} \text{ mmHg} \end{aligned}$$

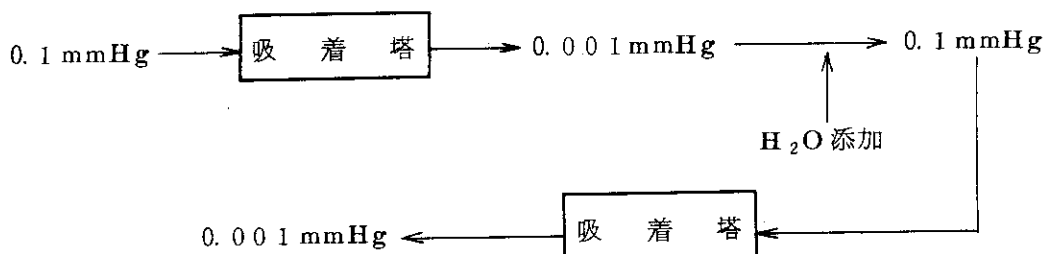
よって、吸着塔の操作温度を 0°C 付近に保つ場合、除染係数 η の値は約10倍となる。

方式Ⅱ（吸着塔の入口で H_2O を添加（加湿）する方法）

塔の入口でガスに H_2O を添加して水蒸気分圧を上げる（このとき、 $\text{HTO}/\text{H}_2\text{O}$ の存在比が減少する）と、除染係数を高めることができる。例えば、 $p_0 = 1 \text{ mmHg}$ に加湿すると η の値は10倍になる。しかし、この方法の大きな欠点は、モレキュラーシーブの充填量がかなり多くしなければならず、また、モレキュラーシーブの再生によって生成される低レベルトリチウム廃液の量もかなり多くなるということである。

方式Ⅲ（吸着塔を2系統設けて中間で H_2O 添加を行う方法）

吸着塔を2系統設け、2番目の吸着塔の入口で H_2O 添加を行う。この場合、ガス中の水蒸気分圧は、たとえば次のように変化する。



上記条件では、モレキュラーシーブ充填量及び生成するトリチウム廃液の量は2倍になるだけで、 η の値は100倍となる。

以上3つの方式の比較を表3.5にまとめた。方式Ⅱは、処理ガス中の水分濃度が小さいために加湿せざるを得ない場合（ヘリウムガス雰囲気グローブボックス内のガスを循環方式で浄化する場合）以外は好ましくない。現在のところ、方式Ⅲが最も優れた方法と考えられる。なお、予め H_2O で飽和させてあるモレキュラーシーブを充填した吸着塔で操作すれば、かなりの高除染係数が得られるという報告がある¹¹⁾。

(3) H_2O と HTO の同位体効果

以上においては、除染係数 η を(3.4)式で定義してきたが、本来ならば次式で定義しなければならない。

$$\eta = \frac{\text{入口ガス中のトリチウム濃度}}{\text{出口ガス中のトリチウム濃度}} \quad (3.18)$$

H_2O 分子の質量と HTO 分子の質量とが互いに異なること、 H_2O 分子—モレキュラーシーブの相互作用エネルギーは、 HTO 分子—モレキュラーシーブのそれと異なるものと予想される

ことなどの理由から、実際には H_2O と HTO の同位体効果がみられるものと考えられる。従って、入口ガス中の水分がすべて H_2O である(実際には少量の HTO が含まれている)として取り扱うのは厳密には正しくない。

田中らは、 H_2O と HTO の混合蒸気を含むガスをモレキュラーシーブを充填した実験用カラム(内径4mm, 長さ30cm)に送入しつつ出口ガス中の H_2O 及び HTO 濃度を追跡し、図3.6に示すような破過曲線を得ている。図から明らかなように、 H_2O に対する破過時間を t_{BH_2O} 、 HTO に対するそれを t_{BHTO} とすると、

$$t_{BH_2O} < t_{BHTO} \quad (3.19)$$

となっている。実験に使用された混合蒸気は、 H_2O に対する HTO の割合がきわめて小さいため、図に示されている H_2O の破過曲線は、 HTO が存在しない場合に得られるものとほとんど変わらないものと変えられる。よって、すべてが H_2O であるものと仮定した本報告における取り扱いは、安全側であるものと考えられる。

今後、(2)の最後に述べた、モレキュラーシーブに吸着された H_2O とガス中の HTO との同位体交換についての研究、 H_2O と HTO の競合吸着についての研究をさらに進めることが必要である。

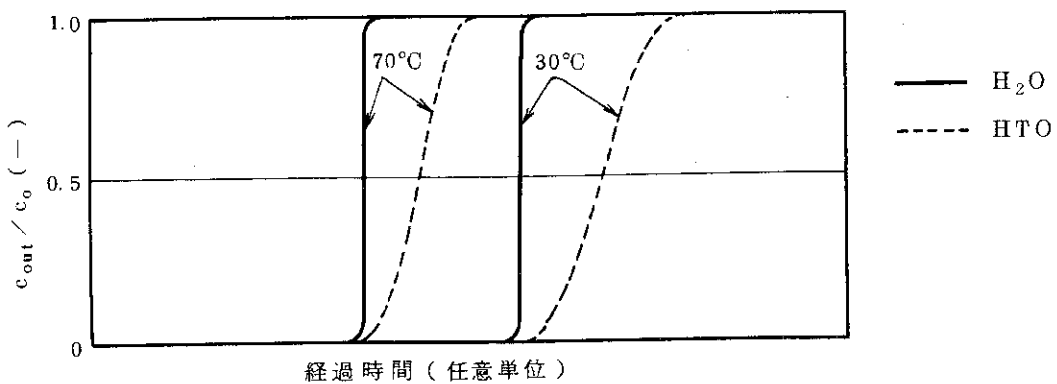


図 3.6 H_2O と HTO の競合吸着(H_2O 濃度 \gg HTO 濃度)で得られた破過曲線¹²⁾

表 3.4 Z / D の値の影響

| D (cm) | u (cm/sec) | 1/k _{Fa} (l/sec) | 1/K _{Fa} (l/sec) | Z _a (cm) | Z (cm) | ΔP (Kg/cm ²) | W (kg) | Z/D (-) |
|--------|------------|---------------------------|---------------------------|---------------------|--------|--------------------------|--------|---------|
| 30 | 39.3 | 0.0050 | 0.073 | 13 | 156 | 0.030 | 73 | 5.3 |
| 40 | 22.1 | 0.0068 | 0.075 | 7.4 | 88 | 0.0076 | 73 | 2.2 |
| 50 | 14.1 | 0.0086 | 0.077 | 4.9 | 57 | 0.0027 | 74 | 1.1 |
| 60 | 9.82 | 0.0099 | 0.078 | 3.5 | 40 | 0.0012 | 74 | 0.67 |

- D : 吸着塔内径
- u : ガス空塔速度
- 1/k_{Fa} : ガス側膜物質移動容量係数
- 1/K_{Fa} : 総括物質移動容量係数
- Z_a : 吸着圈長さ
- Z : 吸着塔長さ (モレキュラーシープ充填部)
- ΔP : 圧力損失
- W : モレキュラーシープ必要量

表 3.5 高除染係数を得るための各方式の比較

| 方式 | 標準方式 | 方式 I | 方式 II | 方式 III |
|---------------------------------|------|--|--|---|
| 方 | | | | |
| 式 | | | | |
| q_i (g-H ₂ O/g-MS) | 0.04 | 0.04 | 0.04 | 0.04 |
| W (kg) | 75 | 55 | 550 | 75 + 75 = 150 |
| η (-) | 100 | 1000 | 1000 | 100 × 100 = 10000 |
| t_R (days) | < 30 | < 30 | < 30 | < 30 |
| 長 所 | — | <ul style="list-style-type: none"> モレキュラーサイズの充填量が少なくて済む | — | <ul style="list-style-type: none"> モレキュラーサイズの充填量及びトリチウム廃液の量が2倍になるだけで、かなりの高除染係数が期待できる |
| 短 所 | — | <ul style="list-style-type: none"> 特別に冷却しなければならぬ | <ul style="list-style-type: none"> モレキュラーサイズの必要量がきわめて多くなる トリチウム廃液の量がきわめて多くなる | <ul style="list-style-type: none"> 吸着塔が2基必要となる |

q_i : 再生後の水分残着量
 W : モレキュラーサイズ必要量
 η : 除染係数
 t_B : 破過時間

4. お わ り に

トリチウム除去システムの重要な構成機器の1つであるトリチウム水吸着塔(充填吸着剤はモレキュラーシープ)の設計法を確立するため、予備的な検討を行った。まず、吸着塔の設計過程を整理し、設計に必要な基礎データを集めた。次いで、設計に必要な知見を得るためのケーススタディ、吸着塔で高除染係数を得るための方式についての検討などを行った。これより、通常の操作条件下では、粒子内拡散抵抗支配であること、吸着圏の存在を無視した設計法では、破過時間の設定値が十分に長くない限り誤差が大きいことを示した。さらに、塔長と塔内径の比をいかに選定するかという問題を取り上げ、考察を行った。これらは、トリチウム除去システムにおけるトリチウム水吸着塔を設計するに際して、参考になるものと考えられる。

今後の研究開発課題をまとめると、以下のようになる。

(1) 実験室でよく用いられるような小さな吸着カラムでは、多くの場合、(カラム長さ)/ (カラム内径)の値はかなり大きく、理想的なプラグフローに近いので、装置設計上の有効なデータとして期待できない。すなわち、実規模に近い吸着塔を用いて実験を行い、軸方向の混合拡散やチャネリングなどの影響について調べる必要がある。

(2) q_{H_2O} 、 q_{HTO} は、 T 、 p_{H_2O} 、 p_{HTO} の関数となるものと考えられるため、モレキュラーシープ-H₂O、HTO系の吸着平衡データを測定しなければならない。あわせて、吸着塔を用いて、H₂O、HTOの競合吸着実験を行う必要がある。

(3) モレキュラーシープ再生システムについても、設計法を確立する必要がある。

(4) 予めH₂Oで飽和させてあるモレキュラーシープを充填した吸着塔を用いる方式(すでに吸着されているH₂O分子と処理ガス中のHTO分子との同位体交換反応を利用する)について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、小幡行雄氏(核融合研究部長兼トリチウム技術研究室長)、田中吉左右氏(核融合研究部)、立川克浩氏(トリチウム技術研究室)の御指導をいただいた。吉田浩氏(トリチウム技術研究室)からは、多くの有益な御助言をいただいた。また、太陽酸素株式会社、大阪酸素株式会社からは、モレキュラーシープに関するいくつかのデータを提供していただいた。

本報告書を作成するにあたり、これらの方々に深い謝意を表します。

4. お わ り に

トリチウム除去システムの重要な構成機器の1つであるトリチウム水吸着塔(充填吸着剤はモレキュラーシーブ)の設計法を確立するため、予備的な検討を行った。まず、吸着塔の設計過程を整理し、設計に必要な基礎データを集めた。次いで、設計に必要な知見を得るためのケーススタディ、吸着塔で高除染係数を得るための方式についての検討などを行った。これより、通常の操作条件下では、粒子内拡散抵抗支配であること、吸着圏の存在を無視した設計法では、破過時間の設定値が十分に長くない限り誤差が大きいことを示した。さらに、塔長と塔内径の比をいかに選定するかという問題を取り上げ、考察を行った。これらは、トリチウム除去システムにおけるトリチウム水吸着塔を設計するに際して、参考になるものと考えられる。

今後の研究開発課題をまとめると、以下のようになる。

(1) 実験室でよく用いられるような小さな吸着カラムでは、多くの場合、(カラム長さ)/ (カラム内径)の値はかなり大きく、理想的なプラグフローに近いので、装置設計上の有効なデータとして期待できない。すなわち、実規模に近い吸着塔を用いて実験を行い、軸方向の混合拡散やチャネリングなどの影響について調べる必要がある。

(2) q_{H_2O} 、 q_{HTO} は、 T 、 p_{H_2O} 、 p_{HTO} の関数となるものと考えられるため、モレキュラーシーブ-H₂O、HTO系の吸着平衡データを測定しなければならない。あわせて、吸着塔を用いて、H₂O、HTOの競合吸着実験を行う必要がある。

(3) モレキュラーシーブ再生システムについても、設計法を確立する必要がある。

(4) 予めH₂Oで飽和させてあるモレキュラーシーブを充填した吸着塔を用いる方式(すでに吸着されているH₂O分子と処理ガス中のHTO分子との同位体交換反応を利用する)について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、小幡行雄氏(核融合研究部長兼トリチウム技術研究室長)、田中吉左右氏(核融合研究部)、立川克浩氏(トリチウム技術研究室)の御指導をいただいた。吉田浩氏(トリチウム技術研究室)からは、多くの有益な御助言をいただいた。また、太陽酸素株式会社、大阪酸素株式会社からは、モレキュラーシーブに関するいくつかのデータを提供していただいた。

本報告書を作成するにあたり、これらの方々に深い謝意を表します。

参 考 文 献

- 1) 三石信雄他：“欧米におけるトリチウム取扱い技術の現状”，日本原子力学会誌，20，
462（1978）
- 2) 吉田芳和，成瀬雄二：“核融合研究におけるトリチウムの安全取扱いとモニタリング”，
RADIOISOTOPES，27，463（1978）
- 3) 吉田芳和，成瀬雄二，飯嶋敏哲：“核融合研究におけるトリチウムの放出低減と環境管
理の技術の現状”，日本原子力学会誌，21，464（1979）
- 4) 木下正弘，松田祐二，成瀬雄二：JAERI-M 8612，“トリチウム除去システムに
おける触媒酸化反応器の設計法に関する検討”
- 5) 北川浩，鈴木謙一郎：“吸着の基礎と設計”（槇書店）
- 6) 亀井三郎編：“化学機械の理論と計算”（産業図書）
- 7) 化学工業社：“吸着”，工場操作シリーズ467
- 8) J. C. Chu, J. Kalil and W. A. Watteroth : Chem. Eng. Progr. , 49,
141 (1953)
- 9) 藤田重文：化学工学，28，251（1964）
- 10) P. C. Carman : Trans. Inst. Chem. Engrs. (London), 23, 150
(1937)
- 11) John. C. Bixel and C. J. Kershner : “A Study of Catalytic
Oxidation and Oxide Adsorption for the Removal of Tritium from
Air”, Monsanto Research Corporation, Mound Laboratory,
WASH-1332 (1974)
- 12) S. Tanaka and Y. Yamamoto : “Removal of Tritiated Water Vapor
by Adsorption”, Journal of Nuclear Science and Technology, 13
[5], pp. 251~259 (1976)