

JAERI-M

9 1 0 3

流下液膜式凝縮器（〔ヘリウム／水素  
同位体〕分離器）の分離特性解析

1980年9月

木下 正弘・成瀬 雄二

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.

流下液膜式凝縮器（〔ヘリウム／水素同位体〕分離器）  
の分離特性解析

日本原子力研究所東海研究所核融合研究部

木下正弘・成瀬雄二

（1980年9月1日受理）

核融合炉燃料給排気系における燃料ガス精製システムの1ユニットとして有望視されている流下液膜式凝縮器（水素同位体中に不純物として含まれるヘリウムを除去する機能を持つ）について、モデリング及びモデル式系の導出を行うと共に、定常解析用のコンピューターコードを開発した。

全理論段数（塔高に対応）、塔壁からの除去熱量（冷却用ヘリウムガスの供給温度あるいは流量に対応）、塔底からの液体水素抜き出し量を主要パラメーターに選定し、開発したコードによってパラメーターサーベイを行った。その結果、このユニットについていくつかの興味ある特性（定常時における）を明らかにすることができた。

Computer Analysis on Separation Characteristics of  
Falling Liquid Film Condenser for Separation of  
Helium and Hydrogen Isotopes

Masahiro KINOSHITA and Yuji NARUSE  
Division of Thermonuclear Fusion Research,  
Tokai Research Establishment, JAERI

(Received September 1, 1980)

A falling liquid film condenser is considered to be very promising as a unit of the fuel gas purification process in the fuel circulation system for fusion power reactors.

Development of mathematical simulation model for the separation column and derivation of model equations were made and a computer code was developed for analysis of steady state separation characteristics of the column.

Parametric studies were made ; the parameters chosen for the studies were number of total theoretical stages ( corresponding to the column height ), heat removed from any theoretical stage ( corresponding to the inlet temperature of refrigerated helium gas supplied as a coolant or its flow rate ) and flow rate of liquid hydrogen drawn from the bottom of the column. Several important characteristics were revealed by the studies.

KEYWORDS : Fusion Reactor, Fuel Circulation System, Purification System, Cryogenic System, Falling Liquid Film Condenser, Modeling, Computer Code, Hydrogen, Helium, Separation Characteristics

## 目 次

|  |    |
|--|----|
| 1. はじめに .....                            | 1  |
| 2. 流下液膜式凝縮器の定常シミュレーション法 .....            | 4  |
| 2.1 流下液膜式凝縮器のモデリング及びモデル式系の導出 .....       | 4  |
| 2.2 コンピューターによる流下液膜式凝縮器の定常シミュレーション法 ..... | 5  |
| 2.3 ヘリウム-水素同位体系の気液平衡関係に関する一考察 .....      | 8  |
| 3. 必要な基礎物性データの調査 .....                   | 11 |
| 4. 流下液膜式凝縮器の定常シミュレーション .....             | 17 |
| 4.1 定常シミュレーション例 .....                    | 17 |
| 4.2 パラメーターサーベイ .....                     | 18 |
| 4.3 本研究で明らかにされた流下液膜式凝縮器の特性 .....         | 20 |
| 5. おわりに .....                            | 26 |
| 謝 辞 .....                                | 26 |
| 参考文献 .....                               | 27 |

## Contents

|     |  |    |
|-----|--|----|
| 1.  | Introduction .....   | 1  |
| 2.  | Steady State Simulation Method of Falling Liquid<br>Film Condenser .....   | 4  |
| 2.1 | Development of Mathematical Simulation Model for<br>the Separation Column and Derivation of Model<br>Equations ..... | 4  |
| 2.2 | Simulation Procedure by Digital Computer .....   | 5  |
| 2.3 | A Consideration on Vapor-Liquid Equilibrium of<br>Helium-Hydrogen Isotopes System .....                              | 8  |
| 3.  | Investigation of Data Required for the Simulation ...  | 11 |
| 4.  | Steady State Simulation of the Separation Column ....  | 17 |
| 4.1 | Example of Steady State Simulation .....   | 17 |
| 4.2 | Parametric Studies .....   | 18 |
| 5.  | Conclusion .....   | 26 |
|     | Acknowledgement .....  | 26 |
|     | References .....   | 27 |

## 記号表

本文中で定義されていないものについてまとめる（アルファベット順）。

|           |                                       |
|-----------|---------------------------------------|
| $B$       | : 缶出流量 (g-mol/hr)                     |
| $F_j$     | : $j$ 段目に供給されるフィードの流量 (g-mol/hr)      |
| $H_j$     | : $j$ 段目を去る蒸気のエントルピー (cal/g-mol)      |
| $h_j$     | : $j$ 段目を去る液のエントルピー (cal/g-mol)       |
| $H_{Fj}$  | : $j$ 段目に供給されるフィードのエントルピー (cal/g-mol) |
| $K_{i,j}$ | : $j$ 段目における $i$ 成分の平衡比 (-)           |
| $L_j$     | : $j$ 段目を去る液の流量 (g-mol/hr)            |
| $m$       | : 全成分数 (-)                            |
| $N$       | : 全理論段数 (-)                           |
| $P_j$     | : $j$ 段目における圧力 (atm)                  |
| $T_j$     | : $j$ 段目における絶対温度 (K)                  |
| $V_j$     | : $j$ 段目を去る蒸気の流量 (g-mol/hr)           |
| $x_{ij}$  | : $j$ 段目を去る液中の $i$ 成分のモル分率 (-)        |
| $y_{ij}$  | : $j$ 段目を去る蒸気中の $i$ 成分のモル分率 (-)       |
| $z_{ij}$  | : $j$ 段目に供給されるフィード中の $i$ 成分のモル分率 (-)  |

## 1. はじめに

核融合炉からのプラズマ排出ガス中には、未燃焼のD、Tの他に、核融合反応によって生成した $^4\text{He}$ 、副反応(D-D反応)や中性子と構造材料との(n,p)反応によって生成するH、その他C、N、O、Arなどの不純元素が含まれているものと考えられる。また、これらの元素の存在形態(化学形)としては、 $\text{H}_2$ 、HD、HT、 $\text{D}_2$ 、DT、 $\text{T}_2$ 、He、 $\text{C}(\text{D},\text{T})_4$ 、 $\text{N}(\text{D},\text{T})_3$ 、 $\text{CO}_2$ 、CO、 $\text{N}_2$ 、 $\text{O}_2$ 、 $(\text{D},\text{T})_2\text{O}$ 、Arなどが考えられる。1例として、LASL(Los Alamos Scientific Laboratory)のTSTA(Tritium Systems Test Assembly)で考えられている、プラズマ排出ガス中の不純元素とその含有割合を表1.1に示す。<sup>1)</sup>

すなわち、D、Tを燃料として再使用するためには、H、He、C、N、O、Arなどの元素を除去しなければならない。H以外の元素は精製システム(Purification System)で、Hは水素同位体分離システム(Hydrogen Isotope Separation System)で除去することになるが、その方式としては、種々のものが考えられる。最も有力なもの1つとして、精製システムには多段交流型冷凍ユニット(Multistage Counter current Freeze-out Unit)と流下液膜式凝縮器(Falling Liquid Film(He/Hydrogen Isotopes) Separator)を用い、水素同位体分離システムには深冷液化蒸留システム(Cryogenic Distillation System)を用いて両システムを低温システム(Cryogenic System)として統一し、システム全体をコンパクトにまとめようとする方式がある。この低温システムの最も大きな利点は、トリチウム透過がほとんど問題にならないということであり、また、消費電力も比較的少ない。ただし、トリチウムのインベントリーはやや大きくなり、また、冷凍能力低下などの緊急時に対して充分安全対策がなされていなければならない。そのうち、精製システムの概略フローシートを図1.1に示す。不純元素を含んだガス(D、T混合ガス)は、まず多段向流型冷凍ユニットに送られ、ここでHe以外の不純物が除去される。このユニットは、4ステージからなり、第1番目のステージで $(\text{D},\text{T})_2\text{O}$ がまず凝固除去され、次のステージで $\text{N}(\text{D},\text{T})_3$ 、第3番目のステージで $\text{C}(\text{D},\text{T})_4$ 及び $\text{CO}_2$ 、最後のステージでCO、 $\text{O}_2$ 、 $\text{N}_2$ 、Arが主に凝固除去される。除去された $(\text{D},\text{T})_2\text{O}$ 、 $\text{C}(\text{D},\text{T})_4$ 、 $\text{N}(\text{D},\text{T})_3$ はD-T回収システムへ送られる。残ったHeは、次のユニット、流下液膜式凝縮器で除去される。このユニットの概略図を図1.2に示す。Heと水素同位体の混合ガスは、塔(カラム)の下部に供給され、ガスは塔内を上昇する。一方、塔壁は冷媒であるヘリウムガスによって冷却され、そのために水素同位体が凝縮し、液体となって壁をつたって降下する。この流下液膜と塔内を上昇するHeガス(水素同位体を含む)との間に物質移動が起こっている。すなわち、液体水素中に溶解しているHeはHeガス中へ、Heガス中の水素同位体は凝縮して液体水素中へ移行する。このようにして、精留塔と同様の原理で多段の分離効果を得ることができ、塔の最下部からは純粋な液体水素が連続的に取り出される。なお、塔の最上部を出るHeガス中には水素同位体が含まれているため、やはりD-T回収システムに送られる。

上記2つのユニットのうち、流下液膜式凝縮器に対し、モデリング(コンピューターシミュレーションのためのモデル化)及びモデル式系の導出を行うと共に、定常シミュレーションのため



の計算コード (FLFC) の開発を行った。また、シミュレーションに必要な物性データの調査及び検討を行った。しかしながら、ヘリウム-水素同位体系の気液平衡データが見あたらなかったため、He-H<sub>2</sub>系を考え (He-H<sub>2</sub>系の気液平衡関係は報告されている)、HeとH<sub>2</sub>を分離する流下液膜式凝縮器を想定して、開発したコードによって定常シミュレーション及びパラメータサーベイを行った。その結果は、核融合炉燃料給排気系の流下液膜式凝縮器の特性の概略を把握する上で十分に価値のあるものと考えられる。

今後、モデルの改良及び詳細なシステム解析を行うためには、クライオスタットによるヘリウム-水素同位体系の気液平衡データの測定及び流下液膜式凝縮器を試作しての実験を早急に行うことが不可欠となる。

本報告では、主として流下液膜式凝縮器のモデリング及びモデル式系の導出過程、パラメータサーベイの結果明らかになったこのユニットのいくつかの興味ある特性について述べる。

表 1.1 プラズマ排出ガス中の不純元素とその含有割合の例  
(LASL の TSTAより<sup>1)</sup>)

| 元素 | モル%      | 化学形   |
|----|----------|---|
| He | 2 ~ 20   | He  |
| H  | 1        | H <sub>2</sub> , HD, HT   |
| C  | 0.04 ~ 2 | CO, CO <sub>2</sub> , C(D, T) <sub>4</sub> , C <sub>2</sub> (D, T) <sub>2</sub> |
| N  | 0.12     | N(D, T) <sub>3</sub> , N <sub>2</sub> , CN, NO, NO <sub>2</sub>                 |
| O  | 0.6      | (D, T) <sub>2</sub> O, CO, CO <sub>2</sub> , O <sub>2</sub>                     |
| Ar | 0.0006   | Ar  |

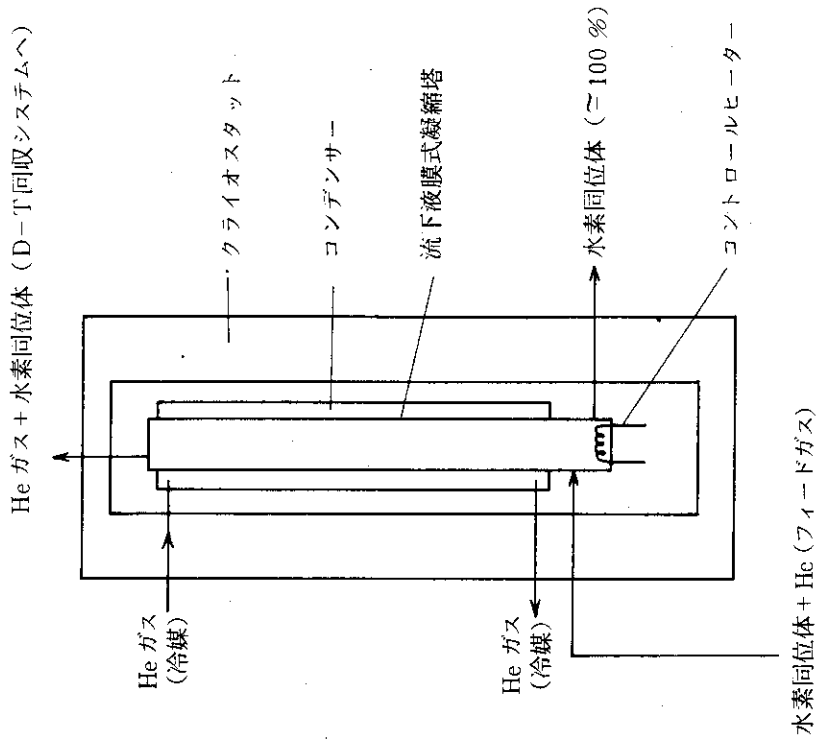


図 1.2 流下液膜式凝縮器

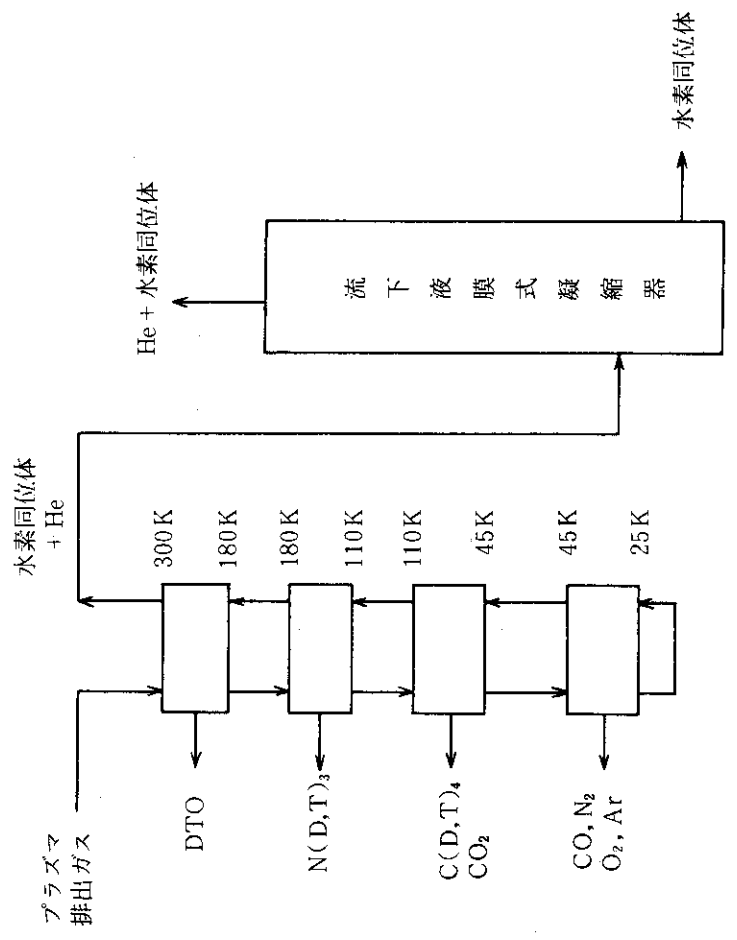


図 1.1 不純物除去システム

## 2. 流下液膜式凝縮器の定常シミュレーション法

### 2.1 流下液膜式凝縮器のモデリング及びモデル式系の導出

流下液膜式凝縮器については、1.でその概略を述べたが、これはきわめて複雑なユニットであり、厳密にシミュレーションを行うのは困難である。本研究では、このユニットが、原理的には精留塔と同様であることに注目し、次に述べるようなモデルを考える。

流下液膜式凝縮器のモデルを図2.1に示す。モデルの概要は次の通りである。

- (1) 塔全体を離散型化してN個の段(Stage)から成るものとする。
- (2) N段目はコントロールヒーターである。フィードは、N-1段目にガス状態で供給されるものとする。
- (3) 各段では、 $Q_j$  ( $j=1, \dots, N$ )の熱損失がある。これは、Heガスを連続的に送り込んで塔を冷却するということを模擬している。
- (4) 水素同位体(Heをほとんど含まない)(流量 $L_N$ )は、N段目から液体状態で抜き出される。  
 $V_1 = F_{N-1} - L_N$ に相当する量のHeガス(水素同位体の含有量は少ない)が塔頂(1段目)から連続的にとり出され、D-T回収システムに送られる。
- (5) 途中の抜き出し(サイドカット)は存在しない。

以上述べたモデルに従ってモデル式系の導出を行う。基礎となるのは、物質収支式、熱収支式、平衡関係式である。

#### 物質収支式

$i$  - 成分に着目し、 $j$  段目において物質収支をとると次式となる。

$$V_j y_{ij} + L_j x_{ij} = F_j z_{ij} + V_{j+1} y_{i,j+1} + L_{j-1} x_{i,j-1} \quad (j=2, \dots, N-1) \quad \dots \quad (2.1)$$

ただし、 $j=N-1$ に対しては $F_j=0$ である。

$j=1$ に対しては、

$$V_2 y_{i2} = V_1 y_{i1} + L_1 x_{i1} \quad \dots \quad (2.2)$$

$j=N$ に対しては、

$$L_{N-1} x_{i,N-1} = V_N y_{iN} + L_N x_{iN} \quad \dots \quad (2.3)$$

#### 平衡関係

$$y_{ij} = K_{ij} x_{ij} \quad \dots \quad (2.4)$$

ここで、平衡比 $K_{ij}$ は温度 $T_j$ のみの関数とする。ヘリウム-水素同位体系に対してこの仮定が妥当であるか否かについては2.3で考える。



ここに,

$$\left. \begin{aligned} A_j &= -L_{j-1} \\ B_j &= V_j K_{i,j} + L_j \\ C_j &= -V_{j+1} K_{i,j+1} \\ D_j &= 0 \quad (j \neq N-1) \\ D_{N-1} &= F_{N-1} z_{i,N-1} \end{aligned} \right\} \dots\dots\dots (2.8)$$

以後, (2.1) ~ (2.3) 式の代わりに (2.7) 及び (2.8) 式を用いる。先に述べたように, 定常シミュレーションの基本となるのは傾斜法であるが, 独立変数としては温度  $T_j$  と液流量  $L_j$  ( $j=1, \dots, N$ ) を選定し, 残余関数としては次式を用いる。

$$S_j = \sum_{i=1}^m x_{ij} - \sum_{i=1}^m y_{ij} \quad (j=1, \dots, N) \quad \dots\dots\dots (2.9)$$

$$G_j = \frac{E_{j,in} - E_{j,out}}{E_{j,in}} \quad (j=1, \dots, N-1) \quad \dots\dots\dots (2.10)$$

また,  $G_N$  は次式で定義する。

$$G_N = (L_N - B) / L_N \quad \dots\dots\dots (2.11)$$

ただし,  $B$  は  $L_N$  の設定値である。

結局, 次の非線形 (2N) 元連立方程式を解くことに帰着される。

$$\left. \begin{aligned} S_1(T_1, \dots, T_N, L_1, \dots, L_N) &= 0 \\ &\vdots \\ S_N(T_1, \dots, T_N, L_1, \dots, L_N) &= 0 \\ G_1(T_1, \dots, T_N, L_1, \dots, L_N) &= 0 \\ &\vdots \\ G_N(T_1, \dots, T_N, L_1, \dots, L_N) &= 0 \end{aligned} \right\} \dots\dots\dots (2.12)$$

(2.12) 式は, 傾斜法 (修正ニュートン・ラフソン法) を用いて解くことができる。その手順としては, Tomich<sup>2)</sup> によって開発されたものを用いる。ただし, 独立変数の初期仮定値 (第0近似解) の決定法, 及び第  $r$  近似解から第  $(r+1)$  近似解 ( $r=0, 1, 2, \dots$ ) を求める方法 (収束手法) には, 工夫が必要である。

傾斜法を用いる場合, 独立変数の初期仮定値の与え方はきわめて重要であり, なるべく収束値に近い値を与えることが望ましい。さもなければ収束が遅くなるばかりでなく, いかなる収束手法を適用しても発散することさえある。

まず,  $T_j$  ( $j=1, \dots, N$ ) に対しては,  $T_1, T_N$  の値を適当に仮定し, 次式から計算される  $T_j$  の値を初期仮定値とする。

$$T_j = T_1 + \frac{j-1}{N-1} (T_N - T_1) \quad (j=2, \dots, N-1) \quad \dots\dots\dots (2.13)$$

次に、 $L_j$  ( $j = 1, \dots, N$ ) の初期仮定値の決定法について述べる。まず、塔項と  $j$  段の間で物質収支をとると次式が得られる。

$$\sum_{k=1}^j F_k + V_{j+1} = V_1 + L_j \quad (j = 1, \dots, N-1) \quad \dots\dots\dots (2.14)$$

ただし、 $F_k = 0$  ( $k \ni N-1$ ) である。

塔項と  $j$  段の間で熱収支をとると次式が得られる。

$$\sum_{k=1}^j H_{Fk} + H_{j+1} V_{j+1} = H_1 V_1 + h_j L_j + \sum_{k=1}^j Q_j \quad (j = 1, \dots, N-1) \quad \dots\dots\dots (2.15)$$

ただし、 $H_{Fk} = 0$  ( $k \ni N-1$ ) である。

(2.14) 式を (2.15) 式に代入して整理すると、 $L_j$  は次式で表わされる。

$$L_j = \frac{(H_1 - H_{j+1}) V_1 + \sum_{k=1}^j (Q_k - H_{Fk}) + H_{j+1} \sum_{k=1}^j F_k}{H_{j+1} - h_j} \quad (j = 1, \dots, N-1) \quad \dots\dots\dots (2.16)$$

そこで、まず、 $x_{i,j}$ ,  $y_{i,j}$  を適当に仮定する。その方法として考えられるものの1つは、

$$x_{i,j} = y_{i,j} = z_{i,N-1} \quad (\text{フィード組成}) \\ (j = 1, \dots, N)$$

とおくことである。

次に、 $x_{i,j}$ ,  $y_{i,j}$ ,  $T_j$  の仮定値からエンタルピー  $H_j$ ,  $h_j$  を求め、(2.16) 式から  $L_j$  を求める。ただし、 $L_N$  の初期仮定値は設定値  $B$  に等しくとる。また、次式の関係が成り立つ。

$$V_1 = F_{N-1} - B \quad \dots\dots\dots (2.17)$$

以上より、独立変数  $L_j$  の初期仮定値が求まる。なお、定常シミュレーションが終了すれば、次式からコントロールヒーターの熱負荷  $Q_R$  を求めることができる。

$$Q_R = V_N H_N + L_N h_N + Q_N - L_{N-1} h_{N-1} \quad \dots\dots\dots (2.18)$$

$Q_j$  の値は、

$$Q_R = \sum_{j=1}^N Q_j + V_1 H_1 + h_N L_N - H_{FN-1} > 0$$

を満たすように設定しなければならない。かつ、 $V_j$  の値が負になるほど大きな値を設定してはならない。ここで、 $Q_j$  の値を変えるということは、塔を冷却するために塔外に流すヘリウムガスの流量または供給温度を変えることに相当している。

また、図 1.2 に示したユニットのシミュレーションを行うためには、

$$Q_{N-1} \approx Q_N \approx 0$$

と設定するのが妥当であろう。

## 2.3 ヘリウム-水素同位体系の気液平衡関係に関する一考察

流下液膜式凝縮器の定常シミュレーションを実行するためには、ヘリウム-水素同位体系の気液平衡関係が必要である。対象となる成分は、 $H_2$ 、 $HD$ 、 $HT$ 、 $D_2$ 、 $DT$ 、 $T_2$ 、 $He$  の7成分であるが、比較のために、まず水素同位体のみの6成分系について考える。

気相は理想気体の混合物と考える。常圧付近ではこの仮定は妥当であろう。ところで、成分  $i$  の化学ポテンシャルを液相 I において  $\mu_i^I$ 、液相 II において  $\mu_i^{II}$  とし、また、この成分の液相 I と平衡にある蒸気中における分圧を  $p_i^I$ 、液相 II と平衡にある蒸気中における分圧を  $p_i^{II}$  とおくと次式が成り立つ。

$$\left. \begin{aligned} \mu_i^I &= \mu_i^+ + RT \ln p_i^I \\ \mu_i^{II} &= \mu_i^+ + RT \ln p_i^{II} \end{aligned} \right\} \dots\dots\dots (2.19)$$

ここで、 $\mu_i^+$  は同温・同圧における純  $i$  成分の化学ポテンシャルである。

(2.19) 式より次式が得られる。

$$\ln \frac{p_i^I}{p_i^{II}} = \frac{\mu_i^I - \mu_i^{II}}{RT} \dots\dots\dots (2.20)$$

いま、液相 I を水素同位体6成分の混合溶液、液相 II を純  $i$  液体とすると次の関係式が成り立つ。

$$\mu_i^I - \mu_i^{II} = RT \ln r_i x_i \dots\dots\dots (2.21)$$

よって、(2.20) 及び (2.21) 式より、

$$p_i = p_i^0 r_i x_i \dots\dots\dots (2.22)$$

となる。ただし、 $p_i$  は成分  $i$  の分圧、 $p_i^0$  は溶液と同温度における純  $i$  液体の蒸気圧、 $r_i$  は液相における成分  $i$  の活量係数、 $x_i$  は液相における成分  $i$  のモル分率である。

(2.22) 式中、 $r_i x_i$  は成分  $i$  の活量であり、溶液中における成分  $i$  の「実効モル分率」である。ところが、水素同位体系の場合、たとえば  $(H_2)-(H_2)$  結合\* の相互作用エネルギーは、 $(H_2)-(D_2)$  結合のそれと近似的に等しいものと考えられる\*\* すなわち、各分子は単に理想混合エントロピーの効果だけで完全にランダムに混じり合っており、 $i$  分子の「活動しやすさ」は、純  $i$  液体中の場合でも混合溶液中の場合でもほとんど変わらない。よって、(2.22) 式で  $r_i = 1$  とおくと次式が得られる。

$$p_i = p_i^0 x_i \dots\dots\dots (2.23)$$

上式は、ラウールの法則に他ならない。

\* ) ここにいう「結合」とは、単に分子間力で相互に作用することを表わすに過ぎない。

\*\* ) 厳密には  $(H_2)-(H_2)$  結合の方が  $(H_2)-(D_2)$  結合よりもエネルギー的に安定であり、 $H_2 - D_2$  系はラウールの法則に対して正のずれ (positive deviation) を示す。<sup>3)</sup>

ヘリウム-水素同位体系の場合、以上述べたような仮定は近似的にも成立しないであろう。すなわち、この系は非理想系である。しかし、20 ~ 30 K ではヘリウムの蒸気圧はきわめて高く、液相中のヘリウム濃度はきわめて希薄であるものと考えられる。

よって、ヘリウム-水素同位体の混合溶液中には、大多数の水素同位体分子中にヘリウム分子(原子)が散在しているにすぎないという極限化されたモデルで考えることができる。分子間の接触は、ほとんどが  $(\text{hydrogen isotopes})-\text{hydrogen isotopes}$  であり、 $(\text{hydrogen isotopes})-\text{He}$  はきわめて少ない。また、 $\text{He}-\text{He}$  は事実上無視して良い。このようなモデルを採用すると、水素同位体に対しては、近似的にラウールの法則が成立するものと考えることができる。

一方、 $\text{He}$  は溶液中では  $(\text{hydrogen isotopes})$  にのみ取り囲まれているものと考えられる。ヘリウムに対しては、 $\text{He}-\text{He}$  結合の相互作用エネルギーと  $(\text{hydrogen isotopes})-\text{He}$  結合のそれとは全く異なるため、明らかにラウールの法則は成立しない。(2.20)式において、液相 I を水素同位体とヘリウムの 7 成分の混合物、液相 II を純ヘリウム液体と考えると、次式が成り立つ。

$$\mu_{\text{He}}^{\text{I}} - \mu_{\text{He}}^{\text{II}} = \mu_{\text{He}}^* - \mu_{\text{He}}^{\circ} + RT \ln r_{\text{He}}^* x_{\text{He}} \quad \dots\dots\dots (2.24)$$

ここで、 $\mu_{\text{He}}^*$  は前述の理想希薄溶液<sup>4)</sup>(液相 I と同温・同圧)中の He の化学ポテンシャル、 $\mu_{\text{He}}^{\circ}$  は液相 II の化学ポテンシャルである。 $x_{\text{He}} \rightarrow 0$  にすると  $r_{\text{He}}^* \rightarrow 1$  となり、(2.20) 及び (2.24) 式より次式が得られる。

$$p_{\text{He}} = p_{\text{He}}^{\circ} x_{\text{He}} \exp \left( \frac{\mu_{\text{He}}^* - \mu_{\text{He}}^{\circ}}{RT} \right) \quad \dots\dots\dots (2.25)$$

上式中、

$$p_{\text{He}}^{\circ} \exp \left( \frac{\mu_{\text{He}}^* - \mu_{\text{He}}^{\circ}}{RT} \right) = C \quad \dots\dots\dots (2.26)$$

とおくと、C は圧力 P が与えられれば温度 T のみの関数となり、(2.25) 式は次のように書き換えることができる。

$$p_{\text{He}} = C x_{\text{He}} \quad \dots\dots\dots (2.27)$$

上式はヘンリーの法則である。この場合、与えられた圧力 P に対し、C が温度 T の増加関数とは限らない。以上のモデルでは、水素同位体-ヘリウム系の気液平衡関係に対しては、水素同位体についてはラウールの法則が成立し、ヘリウムについてはヘンリーの法則が成立するものとして取り扱うことができる。ただし、このモデルが妥当であるか否かを検討するためには実測データが必要である。しかし、次章で述べるようにデータはきわめて限られており、よって、現段階では上述のモデルで考えるほかはない。この場合、平衡比  $K_{i,j}$  は温度 T のみの関数となる。



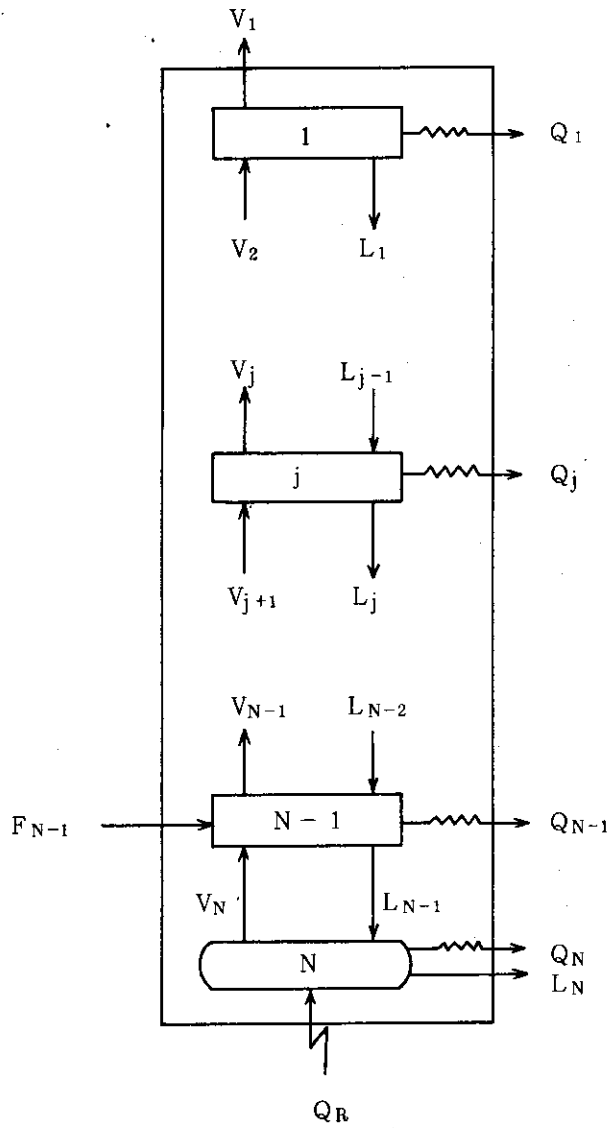


図 2.1 流下液膜式凝縮器のモデル

### 3. 必要な基礎物性データの調査

シミュレーション計算に最低限必要なデータは次の通りである。

- (1) 水素同位体  $H_2$ , HD, HT,  $D_2$ , DT,  $T_2$  の蒸気圧
- (2) 水素同位体の液及び蒸気のエンタルピー
- (3) ヘリウム-水素同位体系の気液平衡データ
- (4) ヘリウムガスのエンタルピー

ただし、流下液膜式凝縮器のフィード中のHの含有量は少ないため、近似的に  $D_2$ , DT,  $T_2$ , He の4成分系でシミュレーションを行うこともできるであろう。しかし、(3)については、 $H_2$ -He系の気液平衡データ以外はほとんど見あたらなかった。すなわち、現段階では、核融合炉燃料給排気系における流下液膜式凝縮器の定常シミュレーションを厳密に行うのは不可能である。そこで、本研究では、 $H_2$ , He の2成分系の処理を想定し、 $H_2$ とHeを分離する流下液膜式凝縮器の定常シミュレーションを行うことにした。報告されている $H_2$ -He系の気液平衡データのうち、Streettらの実測データ<sup>5)</sup>を表3.1及び表3.2に示す。 $H_2$ -He系の気液平衡関係は、2.3で述べたモデルで考えることにする。Streettらのデータから各温度におけるヘンリー定数Cを算出し、圧力Pに対してプロットした図が図3.1である。また、図3.1のグラフを平滑化し、今度はCを温度Tに対してプロットすると図3.2のようになる。図から明らかなように、ヘンリー定数Cは温度Tが増加するにしたがって減少している。正則溶液論<sup>4)</sup>によれば、このことは、 $\text{He}-\text{He}$ 結合よりも $\text{He}-\text{H}_2$ 結合の方がエネルギー的に安定であることを意味している。より厳密に表現すれば、 $\text{He}-\text{He}$ 結合の相互作用エネルギーを $w_1$ 、 $\text{H}_2-\text{H}_2$ 結合、 $\text{H}_2-\text{He}$ 結合のそれを各々 $w_2$ ,  $w_3$ とすると、

$$w = w_3 - \frac{1}{2} (w_1 + w_2) < 0$$

であることを示している。よって、ヘリウムの溶解によって発熱が伴うであろう。ところで、図3.2ではデータが不足して厳密なこととは言えないが、 $T < 23 \text{ K}$ では、 $\ln C$ とTは直線関係にあると近似することができる。P = 2 atmでは、次の近似式を用いることができる。

$$C = \exp(-0.1933 T + 9.901) \quad \dots\dots\dots (3.1)$$

次に、ヘリウムガスのエンタルピーのデータを表3.3に示す。これより明らかなように、エンタルピーの圧力依存性はきわめて小さい。流下液膜式凝縮器の操作圧力は通常1 atm ~ 2 atmであるものと考えられるため、表3.3に示した1 barのときの値と2 barのときの値との平均値を採用し、次の近似式を作った。

$$H = 7.407 + 5.0439 T - 0.001286 T^2 \quad \dots\dots\dots (3.2)$$

$$(H: \text{cal/g-mol}, T: \text{K})$$

$$(18 \text{ K} \leq T \leq 30 \text{ K})$$

He -  $H_2$  混合溶液の液相のエンタルピーの評価は難しいが、液相ではヘリウムのモル分率はきわめて小さいものと考えられるため、液相中のヘリウムに対しても上式を用いるものとする。また

溶解による発熱も無視する。

なお、 $H_2$  の気液のエンタルピー及び蒸気圧の近似式は、筆者が先に核融合炉燃料給排気系の深冷液化蒸留システムの定常シミュレーションを行ったときに用いたものを採用することにした。<sup>7)</sup>

表 3.1 H<sub>2</sub>-He 系の気液平衡データ (1)<sup>5)</sup>

| T, K  | p, atm | x, mole%, liquid |                | y, mole%, vapor |                |
|-------|--------|------------------|----------------|-----------------|----------------|
|       |        | He               | H <sub>2</sub> | He              | H <sub>2</sub> |
| 15.5  | 3.368  | -                | -              | 93.78           | 6.22           |
|       | 5.10   | 0.29             | 99.71          | 95.51           | 4.49           |
|       | 6.84   | 0.46             | 99.54          | 96.31           | 3.69           |
|       | 8.51   | 0.51             | 99.49          | 96.77           | 3.23           |
|       | 10.21  | 0.55             | 99.45          | 97.02           | 2.98           |
|       | 11.91  | 0.64             | 99.36          | 97.14           | 2.86           |
|       | 13.61  | 0.71             | 99.29          | 97.29           | 2.71           |
|       | 17.02  | 0.82             | 99.18          | 97.41           | 2.59           |
|       | 20.42  | 0.87             | 99.13          | 97.48           | 2.52           |
|       | 17.07  | 3.84             | 0.36           | 99.64           | 89.67          |
| 5.10  |        | 0.43             | 99.57          | 91.86           | 8.14           |
| 6.84  |        | 0.57             | 99.43          | 93.30           | 6.70           |
| 8.51  |        | 0.72             | 99.28          | 94.12           | 5.88           |
| 10.24 |        | 0.80             | 99.20          | 94.64           | 5.36           |
| 11.91 |        | 0.89             | 99.11          | 95.03           | 4.97           |
| 13.61 |        | 1.00             | 99.00          | 95.15           | 4.85           |
| 17.02 |        | 1.14             | 98.86          | 95.56           | 4.44           |
| 20.42 |        | 1.31             | 98.69          | 95.82           | 4.18           |
| 27.22 |        | 1.51             | 98.49          | 95.90           | 4.10           |
| 20.4  | 2.38   | 0.34             | 99.66          | 53.60           | 46.40          |
|       | 3.40   | 0.41             | 99.59          | 65.45           | 35.55          |
|       | 5.10   | 0.61             | 99.39          | 75.40           | 24.60          |
|       | 6.84   | 0.84             | 99.16          | 80.30           | 19.70          |
|       | 8.50   | 1.05             | 98.95          | 83.20           | 16.80          |
|       | 10.24  | 1.30             | 98.70          | 84.80           | 15.20          |
|       | 11.91  | 1.54             | 98.46          | 86.03           | 13.97          |
|       | 13.61  | 1.67             | 98.33          | 87.13           | 12.87          |
|       | 17.02  | 2.05             | 97.95          | 88.41           | 11.59          |
|       | 20.42  | 2.36             | 97.64          | 88.97           | 11.03          |
|       | 27.22  | 2.96             | 97.04          | 90.08           | 9.92           |
|       | 34.02  | 3.39             | 96.61          | 90.35           | 9.65           |
| 23    | 3.40   | 0.38             | 99.62          | 37.00           | 63.00          |
|       | 5.10   | 0.75             | 99.25          | 53.44           | 46.56          |
|       | 6.84   | 1.15             | 98.85          | 62.90           | 37.10          |
|       | 8.50   | 1.36             | 98.64          | 67.87           | 32.13          |
|       | 10.24  | 1.72             | 98.28          | 71.75           | 28.25          |
|       | 11.91  | 2.15             | 97.85          | 74.35           | 25.65          |
|       | 13.61  | 2.39             | 97.61          | 76.30           | 23.70          |
|       | 17.02  | 2.91             | 97.09          | 78.78           | 21.22          |
|       | 20.42  | 3.55             | 96.45          | 80.55           | 19.45          |
|       | 27.22  | 4.58             | 95.42          | 82.34           | 17.66          |
|       | 34.02  | 5.46             | 94.54          | 83.30           | 16.70          |
| 26    | 5.51   | 0.67             | 99.33          | 22.60           | 77.40          |
|       | 6.84   | 0.97             | 99.03          | 35.50           | 66.50          |
|       | 8.50   | 1.43             | 98.57          | 43.37           | 56.63          |
|       | 10.24  | 1.92             | 98.08          | 49.77           | 50.23          |
|       | 13.61  | 2.86             | 97.14          | 56.90           | 43.10          |
|       | 17.02  | 3.64             | 96.36          | 62.67           | 37.33          |

表3.2 H<sub>2</sub>-He系の気液平衡データ(2)<sup>5)</sup>

| T, K  | p, atm | x, mole%, liquid |                | y, mole%, vapor |                |
|-------|--------|------------------|----------------|-----------------|----------------|
|       |        | He               | H <sub>2</sub> | He              | H <sub>2</sub> |
| 26    | 20.42  | 4.76             | 96.24          | 66.65           | 34.35          |
|       | 27.22  | 6.64             | 93.36          | 68.58           | 31.42          |
|       | 34.02  | 8.48             | 91.52          | 70.02           | 29.98          |
| 29    | 8.64   | 0.91             | 99.09          | 14.03           | 85.97          |
|       | 10.27  | 1.50             | 98.50          | 21.92           | 78.08          |
|       | 11.91  | 2.20             | 97.80          | 27.75           | 72.25          |
|       | 13.61  | 3.07             | 96.93          | 32.93           | 67.07          |
|       | 17.02  | 4.59             | 95.41          | 39.54           | 60.46          |
|       | 20.22  | 6.21             | 93.79          | 43.70           | 56.30          |
|       | 27.22  | 9.63             | 30.37          | 47.95           | 52.05          |
| 34.02 | 13.35  | 86.65            | 49.20          | 50.80           |                |
| 30.6  | 20.42  | 7.29             | 92.71          | 30.32           | 69.68          |
|       | 27.21  | 13.24            | 86.76          | 32.60           | 67.40          |
|       | 34.02  | 17.95            | 82.05          | 30.36           | 69.64          |
| 31    | 12.01  | 1.49             | 98.51          | 11.28           | 88.72          |
|       | 13.54  | 2.51             | 97.49          | 15.59           | 84.41          |
|       | 17.02  | 4.78             | 95.22          | 28.58           | 74.42          |
|       | 20.42  | 7.49             | 92.5           | 26.57           | 73.43          |
|       | 22.11  | 8.73             | 91.27          | 27.55           | 72.45          |
|       | 23.81  | 11.03            | 88.97          | 27.85           | 72.15          |
|       | 25.52  | 12.93            | 87.07          | 27.59           | 72.41          |
|       | 27.21  | 15.64            | 84.36          | 25.78           | 74.22          |
|       | 28.10  | 20.87            | 79.13          | 21.82           | 78.15          |
|       | 31.5   | 12.04            | 1.27           | 98.73           | 7.67           |
| 13.61 |        | 2.30             | 97.70          | 11.96           | 88.06          |
| 15.31 |        | 3.61             | 96.39          | 15.64           | 84.36          |
| 17.02 |        | 4.83             | 95.17          | 18.35           | 81.65          |
| 18.71 |        | 6.26             | 93.74          | 20.30           | 79.70          |
| 20.42 |        | 8.18             | 91.82          | 21.37           | 78.63          |
| 22.11 |        | 10.47            | 89.53          | 21.49           | 78.51          |
| 23.88 |        | 16.59            | 83.41          | 17.58           | 82.42          |
| 31.9  | 11.87  | 0.81             | 99.19          | 4.00            | 96.00          |
|       | 13.61  | 2.07             | 97.93          | 8.31            | 91.69          |
|       | 14.97  | 3.17             | 96.83          | 11.75           | 88.25          |
|       | 16.23  | 4.29             | 95.71          | 13.86           | 86.14          |
|       | 17.04  | 4.99             | 95.01          | 14.82           | 85.18          |
|       | 17.79  | -                | -              | 15.62           | 84.38          |
|       | 18.75  | 6.87             | 93.13          | 16.19           | 83.81          |
|       | 19.70  | 8.71             | 91.29          | 16.35           | 83.64          |
|       | 20.42  | 10.10            | 89.90          | 15.88           | 84.12          |
|       | 20.99  | 12.02            | 87.98          | -               | -              |
|       | 32.5   | 12.82            | 0.98           | 99.02           | 3.12           |
| 13.61 |        | 1.68             | 98.32          | 4.80            | 95.20          |
| 14.97 |        | 3.10             | 96.90          | 7.45            | 92.55          |
| 16.47 |        | 5.09             | 94.91          | -               | -              |
| 17.02 |        | 5.99             | 94.01          | -               | -              |
| 17.55 |        | 6.75             | 93.25          | -               | -              |

表 3.3 ヘリウムガスのエンタルピー<sup>6)</sup>

| P(bar) \ T(K) | 1            | 2            | 平均               |
|---------------|--------------|--------------|------------------|
| 18            | 102.6(kJ/kg) | 102.1(kJ/kg) | 97.78(cal/g-mol) |
| 20            | 113.0        | 112.6        | 107.77           |
| 25            | 139.1        | 138.7        | 132.70           |
| 30            | 165.2        | 164.9        | 157.68           |

1 bar = 0.986923 atm

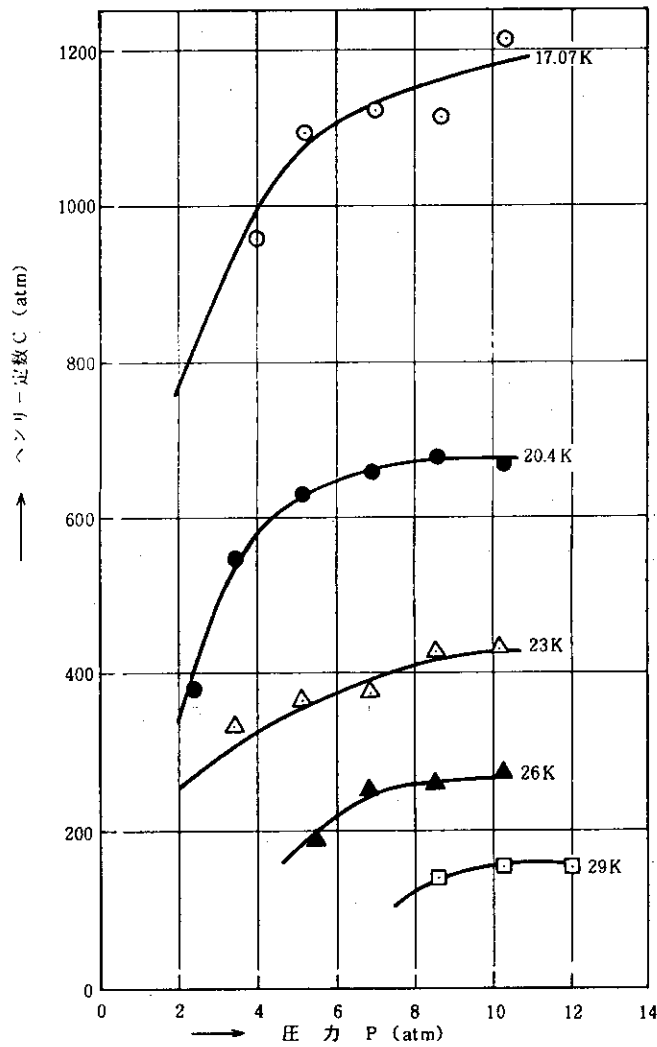


図 3.1 圧力 P 対ヘンリー定数 C の関係<sup>5)</sup>

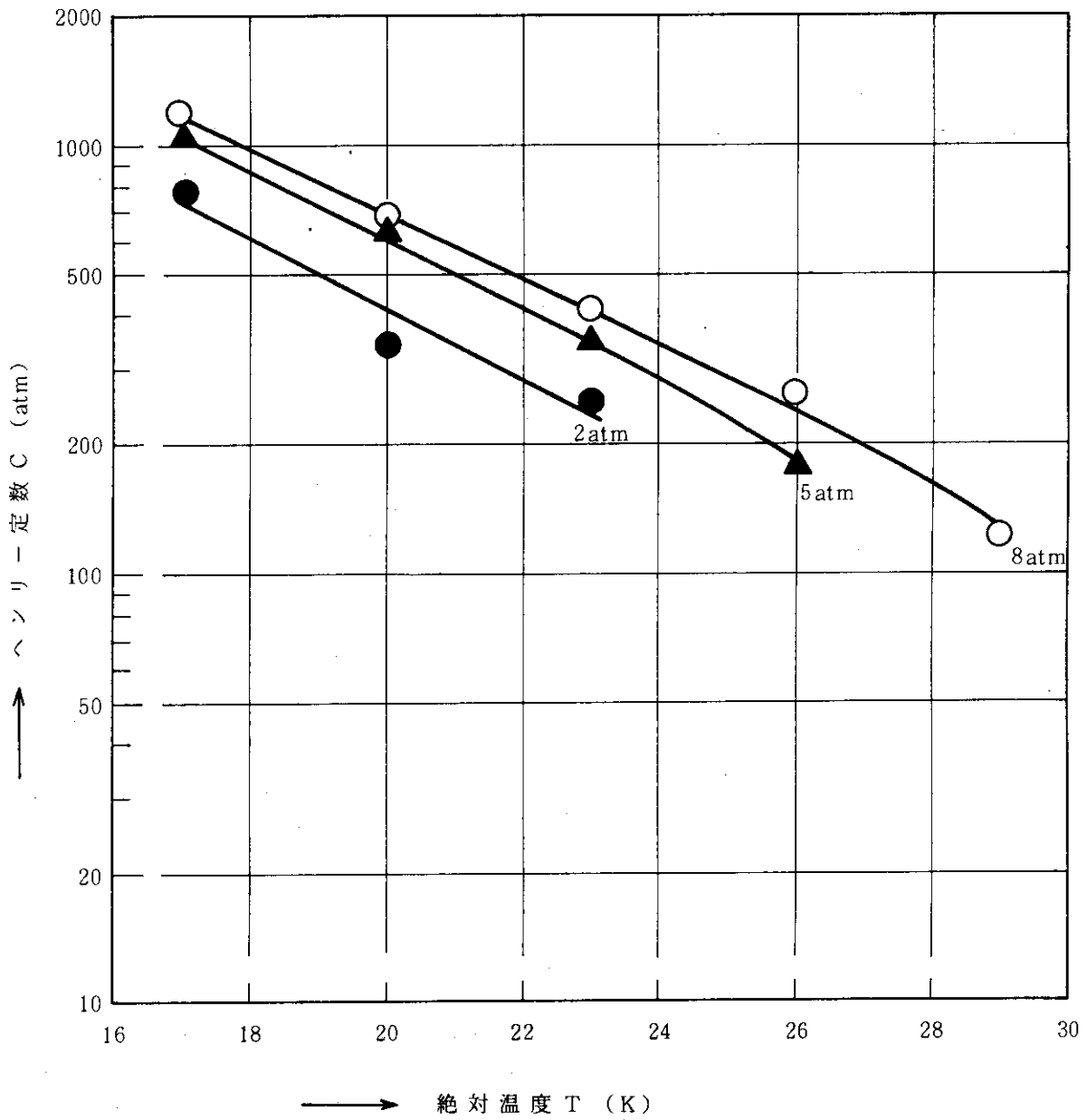


図 3.2 絶対温度  $T$  対ヘンリー定数  $C$  の関係<sup>5)</sup>

## 4. 流下液膜式凝縮器の定常シミュレーション

### 4.1 定常シミュレーション例

厳密には、 $H_2$ , HD, HT,  $D_2$ , DT,  $T_2$ , He の7成分系を対象にしなければならないが、現時点では $H_2$ -He系の気液平衡データが報告されているに過ぎないため、 $H_2$ , Heの2成分系を対象にせざるを得ない。しかしながら、上記7成分中Heだけが著しく性質が異っており、他の6成分は互いに性質が似かよっていること、ならびに流下液膜式凝縮器の目的は水素同位体(6成分)とHeを分離することにあることを考えて、 $H_2$ , Heの2成分系で定常シミュレーションあるいはパラメータサーベイを行っても、分離特性及びこのユニットのその他の概略の特性を把握することは十分に可能であるものと考えられる。

まず、設定条件は次のように定める。

$$\left\{ \begin{array}{l} \text{フィード流量} ; 100 \text{ g-mol/hr} \\ \text{フィード組成} ; H_2 : 95 \text{ mol} \% , \text{ He} : 5 \text{ mol} \% \\ \text{フィード温度} ; 23 \text{ K} \text{ で気体状態で供給する} \\ \text{塔内操作圧力} ; 2 \text{ atm} \end{array} \right.$$

塔底からの液体水素抜き出し量 $B$  (g-mol/hr), 全段数 $N$ , 各段からの除去熱量 $Q_j$  (cal/hr)をパラメータとして選定し、パラメータサーベイを行う。

まず、次のように設定条件を定めてReferenceとし、定常シミュレーションを実行した。

#### Reference

$$\left\{ \begin{array}{l} B = 90 \text{ g-mol/hr} \\ Q_j = 10000 \text{ cal/hr} \quad (j = 1, \dots, N-2) \\ Q_{N-1} = Q_N = 0 \\ N = 20 \end{array} \right.$$

シミュレーションの結果を以下に示す。

$$\left\{ \begin{array}{l} y_{1,H_2} = 0.5000 \quad , \quad y_{1,He} = 0.5000 \\ x_{N,H_2} = 1.0000 \quad , \quad x_{N,He} = 2.243 \times 10^{-7} \\ Q_R = 20.8 \text{ W} \\ T_1 = 20.40 \text{ K} \end{array} \right.$$

ただし、 $y_{1,i}$ は塔頂を出るガス中の $i$ 成分のモル分率、 $x_{N,i}$ は塔底から抜き出される液体中の $i$ 成分のモル分率、 $Q_R$ はコントロールヒーターの熱負荷である。塔内の気液のモル流量分布及び温度分布を表4.1に、塔内組成分布を表4.2に示す。

Referenceで得られた結果から、次のことが明らかとなる。

- ① 冷却材(ヘリウムガス)によって塔全体から除去しなければならない熱量は約180kcal/hrである。
- ② 冷却材の供給温度 $T_s$ は、 $T_1$ より低くなければならない。すなわち、 $T_s < 20.40 \text{ K}$ でな



ればならない。

- ③ 塔底からは、ほぼ純粋な液体水素が得られる。塔頂を出るガス中の $H_2$ 量は、モル分率で0.5とやや多過ぎる。
- ④ 塔頂から塔底に向かうほど、気液のモル流量は増加する。
- ⑤ 温度は塔底から塔頂に向かうほど低くなっており、しかも、塔頂付近において温度勾配及び水素（またはヘリウム）の濃度勾配が大きくなっている。

次節においては、 $B$ 、 $Q_j$ 、 $N$ をとり上げてパラメーターサーベイを行い、ユニットの特性について考察を行う。

#### 4.2 パラメーターサーベイ

- (1) Case 1 ———  $Q_j = 3000 \text{ cal/hr}$  ( $j = 1, \dots, N-2$ )、他の設定条件はReferenceに同じ

次に、上記の設定条件下で定常シミュレーションを行った。 $Q_j$ の値を増加させることは、冷却用ヘリウムガスの供給温度を下げることに相当している。これは精留塔にたとえると還流比を大きくすることに対応しており、従って、塔内の気液モル流量は増加するものと考えられる。

以下に結果を示す。

$$\begin{cases} y_{1,H_2} = 0.5000 & , & y_{1,He} = 0.5000 \\ x_{N,H_2} = 1.0000 & , & x_{N,He} = 3.834 \times 10^{-8} \\ Q_R = 440 \text{ W} \\ T_1 = 20.40 \text{ K} \end{cases}$$

Referenceと異なる点は、塔内の気液モル流量、塔全体からの除去熱量、コントロールヒーターの熱負荷が大きく増加し、それに伴って塔底から抜き出される液体水素中のヘリウムのモル分率が約1/10に減少しており、分離が向上していることである。

- (2) Case 2 ———  $N = 10$ 、 $Q_j = 30000 \text{ cal/hr}$  ( $j = 1, \dots, N-2$ )、他の設定条件はReferenceに同じ

今回開発したコード「FLFC」では、 $L_j$ の初期仮定を行った際に、コントロールヒーターの熱負荷（収束した時に求まる値とは異なる）が負になれば警告のメッセージを打ち出して停止させるようになっている。このメッセージが打ち出された時には、 $L_{N-1}$ や $V_N$ の値も負になっている。これは、 $Q_j$ の値が小さ過ぎて塔底から $90 \text{ g-mol/hr}$ の液体水素を得ることができないということを意味している。 $N = 10$ に設定した場合、 $Q_j = 10000 \text{ cal/hr}$ 、 $20000 \text{ cal/hr}$ に対しては警告のメッセージが出力された。これは、段数が減少したために塔全体から除去される熱量（ $= \sum_{j=1}^{N-2} Q_j$ ）が減少したためである。以上のことは、塔全体についての熱収支を考えれば明らかであろう。

Case 2の結果は次の通りである。

$$\left\{ \begin{array}{l} y_{1,H_2} = 0.5000 \\ x_{N,H_2} = 1.0000 \\ Q_R = 90.6 \text{ W} \\ T_1 = 20.40 \text{ K} \end{array} \right. , \quad \left\{ \begin{array}{l} y_{1,He} = 0.5000 \\ x_{N,He} = 1.017 \times 10^{-7} \end{array} \right.$$

Reference と Case 2 の結果の比較から、以下のことが結論できる。

- ① N の値を減らしても、 $Q_j$  の値を増やすことにより、同量同純度の液体水素を得ることができる。
- ② N の値を減らすことは塔高を低くすることに対応している。 $Q_j$  の値を増やすことは、たとえ  $\sum_{j=1}^{N-2} Q_j$  の値が不変であっても、冷却用ヘリウムガスの流量を増やすことに対応している。従って、Reference に比べて Case 2 では、塔高は約 1/2 で済むが、冷却用ヘリウムガスの流量は 2 倍以上要求される。
- ③ 低温システム全体をコンパクトにまとめるために塔高はなるべく低いことが望ましいこと、冷却用ヘリウムガスの流量もなるべく少ないことが望ましいことの 2 重の要請から、適当な塔高及び冷却用ヘリウムガス流量を決定する必要がある。

(3) Case 3 ——— B = 93 g-mol/hr, 他の設定条件は Reference に同じ

塔頂を出るガス中の  $H_2$  の割合をより少なくするために、B = 93 g-mol/hr に変更したのが Case 3 である。

Case 3 の結果は次の通りである。

$$\left\{ \begin{array}{l} y_{1,H_2} = 0.2857 \\ x_{N,H_2} = 1.0000 \\ Q_R = 20.0 \text{ W} \\ T_1 = 18.59 \text{ K} \end{array} \right. , \quad \left\{ \begin{array}{l} y_{1,He} = 0.7143 \\ x_{N,He} = 2.336 \times 10^{-7} \end{array} \right.$$

Reference と大きく異なる点は、 $T_1$  が 18.59K とかなり低くなっていることである。よって、冷却用ヘリウムガスの供給温度は 18.59 K 以下であることが要求される。B = 94 g-mol/hr とさらに液体水素抜き出し量を増加させた次の Case 4 の結果と合わせ、(4)で考察を行う。

(4) Case 4 ——— B = 94 g-mol/hr, 他の設定条件は Reference に同じ

Case 4 について得られた結果は次の通りである。

$$\left\{ \begin{array}{l} y_{1,H_2} = 0.1667 \\ x_{N,H_2} = 1.0000 \\ Q_R = 19.7 \text{ W} \\ T_1 = 17.06 \text{ K} \end{array} \right. , \quad \left\{ \begin{array}{l} y_{1,He} = 0.8333 \\ x_{N,He} = 2.370 \times 10^{-7} \end{array} \right.$$

Reference と Case 4 の塔内温度分布の比較を表 4.3 に示す。

Case 3, Case 4 の結果から考えて、Reference と大きく異なる点は、 $T_1$  の値のみが低くなることである ( $T_j$  ( $j \neq 1$ ) に対しては、3 ケースで大差はない)。このことは、塔頂を出るガス中の水素のモル分率を小さくするためには、冷却用ヘリウムガスの供給温度をかなり低くしなければならぬということの意味している。また、このとき、塔頂付近にかなりの温度勾配が存在する。

ここで、注意しなければならないことがある。それは、シミュレーションでは  $Q_1 = Q_j$  ( $j \neq 1$ ,

$N-1, N$ ) に設定したが、Case 3 及び Case 4 では  $T_1$  の値のみが小さいという理由から冷却用ヘリウムガスの供給温度を下げなければならないため、必然的に  $Q_1 < Q_j$  ( $j=1, N-1, N$ ) となるということである ( $j=2, \dots, N-2$  では、冷却用ヘリウムガスの温度と塔内温度との差、すなわち熱移動の推進力が大きい)。そこで、 $Q_1 < Q_j$  ( $j=1, N-1, N$ ) に設定し直してシミュレーションを行う。

- (5) Case 5 ———  $Q_1 = 10000 \text{ cal/hr}$ ,  $Q_j = 30000 \text{ cal/hr}$  ( $j=2, \dots, N-2$ ),  
 $B = 94 \text{ g-mol/hr}$ , 他の設定条件は Reference に同じ

Case 5 の結果は次の通りである。

$$\left\{ \begin{array}{ll} y_{1, \text{H}_2} = 0.1667 & , \quad y_{1, \text{He}} = 0.8333 \\ x_{N, \text{H}_2} = 1.0000 & , \quad x_{N, \text{He}} = 4.008 \times 10^{-8} \\ Q_R = 415 \text{ W} \\ T_1 = 17.06 \text{ K} \end{array} \right.$$

Case 5 の設定条件の方が、Case 4 のそれに比べてより実際に近いものと考えられるため、Reference と Case 5 の結果を比較して考察を行う。

- ① 塔頂を出るガス中の水素の含有量を低く保ち、ヘリウムの純度を上げるためには、塔頂付近はかなりの低温でなければならない。冷却用ヘリウムガスの温度はさらに低くしなければならない。
  - ② 塔頂付近を除けば、塔内と冷却用ヘリウムガスの温度差が大きいため塔全体から除去される熱量は大きくなり、塔内の気液モル流量及びコントロールヒーターの熱負荷も大きくなる。
  - ③ ①, ②のことから、塔頂を出るヘリウムガスの純度を100%近くにするのは困難である。すなわち、実際の流下液膜式凝縮器では、塔頂からかなりの D-T が出るため、塔頂を出るガスを D-T 回収システムで処理することが必要となる。
- なお、以上のパラメーターサーベイの結果を表 4.4 にまとめた。

### 4.3 本研究で明らかにされた流下液膜式凝縮器の特性

本研究により、流下液膜式凝縮器の特性に関する以下に示すような知見を得た。

- (1) 塔底からは、ほぼ純粋な液体水素を得ることができる。塔全体から除去すべき熱量  $Q_1$  を増加させることは、精留塔で還流比を大きくすることに相当している。よって、 $Q_1$  を大きくする、すなわち、冷却用ヘリウムガスの流量を増やすほど、より純粋な液体水素が得られる。ただし、このとき、塔内の気液モル流量及びコントロールヒーターの熱負荷も増加する。
- (2) 所定量の液体水素を塔底から連続的に得るためには、 $Q_1$  はある程度以上の大きさを持たなければならない。すなわち、冷却用ヘリウムガスの流量がある程度以上大きくなければ希望量の液体水素は得られない。
- (3) (1), (2) から次のことが推定される。操作中、塔底から抜き出される液体水素の純度が低下した場合には、冷却用ヘリウムガスの流量を大きくすると共に、コントロールヒーターでの発生

熱量を増やすと良い。一方、塔底から抜き出される液体水素の流量が減少した場合には、冷却用ヘリウムガスの流量を大きくすると良い。

(4) 塔高を低くしても、冷却用ヘリウムガスの流量をそれを補うに十分な大きさにすることにより、希望量及び希望純度の液体水素を得ることができる。逆に塔高を充分高くとれば、冷却用ヘリウムガスの流量は少なくて済む。よって、低温システム全体をコンパクトにまとめるために、塔高はなるべく低いことが望ましいこと、及び冷却用ヘリウムガスの流量は少ないことが望ましいことの2つの要請から、最適な塔高及び冷却用ヘリウムガス流量を選ぶ必要がある。なお、冷却用ヘリウムガスの流量を増やす代わりに、冷却用ヘリウムガスの供給温度をより低くしても良い。

(5) 塔頂を出るガス中の水素の含有量を少なくしたい場合、塔の最上部はかなりの低温で、塔頂付近にかなりの温度勾配のあることが要請される。よって、冷却用ヘリウムガスの供給温度はかなり低くしなければならぬ。同時に  $Q_t$  の値は大きくなり、コントロールヒーターにも必然的に大きな熱負荷が要求される。かつ、塔内の気液のモル流量は増加する。よって、塔頂から純粋なヘリウムガスを得ることは困難である。実際の He/H, D, T 分離を行う流下液膜式凝縮器には、D-T 回収システムを付置することが必要である（塔頂を出るヘリウムガス中の D, T を回収するため）。

(6) 塔底からの液体水素抜き出し量を少し変えただけで、塔頂を出るガスの組成は大きく変化している。そのため、実操作においては、塔頂を出るガスの組成の大きな変動は避け難いものと考えられる。しかし、そのガスは D-T 回収システムに送られ、回収された D 及び T はタンクに一時貯留された後、一定量が再びフィードに戻される。従って、塔頂を出るガスの組成の変動（回収される D 及び T の量の変動につながる）は大きな問題とはならない。

(7) 塔高、塔内径、塔内における液ホールドアップなどを推定することは重要であるが、基礎データが不足しているため、現時点においてそれを行うことは困難である。流下液膜式凝縮器を試作して実験を行い、基礎データを得ることが強く望まれる。

（Los Alamos Scientific Laboratory の TSTA においては、15 g-mol/hr の処理流量で内径 0.5 ~ 1 cm、高さ 1 ~ 2 m と設定されている<sup>8)</sup>。）

表 4.1 塔内気液モル流量分布及び温度分布 (Reference)

| 段  | $V_j$ (g-mol/hr) | $L_j$ (g-mol/hr) | $T_j$ (K) |
|----|------------------|------------------|-----------|
| 1  | 10.00            | 43.07            | 20.40     |
| 2  | 53.07            | 92.15            | 22.61     |
| 3  | 102.15           | 139.17           | 22.82     |
| 4  | 149.17           | 186.00           | 22.88     |
| 5  | 196.00           | 232.78           | 22.92     |
| 6  | 242.78           | 279.56           | 22.94     |
| 7  | 289.56           | 326.32           | 22.95     |
| 8  | 336.32           | 373.08           | 22.96     |
| 9  | 383.08           | 419.84           | 22.97     |
| 10 | 429.84           | 466.60           | 22.97     |
| 11 | 476.60           | 513.35           | 22.98     |
| 12 | 523.35           | 560.10           | 22.98     |
| 13 | 570.10           | 606.86           | 22.99     |
| 14 | 616.86           | 653.61           | 22.99     |
| 15 | 663.61           | 700.36           | 22.99     |
| 16 | 710.36           | 747.11           | 22.99     |
| 17 | 757.11           | 793.86           | 23.00     |
| 18 | 803.86           | 840.61           | 23.00     |
| 19 | 850.61           | 173.34           | 23.00     |
| 20 | 83.34            | 90.00            | 23.02     |

表 4.2 塔内組成分布 (Reference)

| 段  | 気 相            |                         | 液 相            |                         |
|----|----------------|-------------------------|----------------|-------------------------|
|    | H <sub>2</sub> | He                      | H <sub>2</sub> | He                      |
| 1  | 0.5000         | 0.5000                  | 0.9987         | 0.1292×10 <sup>-2</sup> |
| 2  | 0.9047         | 0.9526×10 <sup>-1</sup> | 0.9996         | 0.3779×10 <sup>-3</sup> |
| 3  | 0.9507         | 0.4929×10 <sup>-1</sup> | 0.9998         | 0.2033×10 <sup>-3</sup> |
| 4  | 0.9663         | 0.3371×10 <sup>-1</sup> | 0.9999         | 0.1408×10 <sup>-3</sup> |
| 5  | 0.9744         | 0.2564×10 <sup>-1</sup> | 0.9999         | 0.1078×10 <sup>-3</sup> |
| 6  | 0.9793         | 0.2070×10 <sup>-1</sup> | 0.9999         | 0.8740×10 <sup>-4</sup> |
| 7  | 0.9826         | 0.1735×10 <sup>-1</sup> | 0.9999         | 0.7347×10 <sup>-4</sup> |
| 8  | 0.9851         | 0.1494×10 <sup>-1</sup> | 0.9999         | 0.6337×10 <sup>-4</sup> |
| 9  | 0.9869         | 0.1311×10 <sup>-1</sup> | 0.9999         | 0.5571×10 <sup>-4</sup> |
| 10 | 0.9883         | 0.1169×10 <sup>-1</sup> | 1.0000         | 0.4971×10 <sup>-4</sup> |
| 11 | 0.9895         | 0.1054×10 <sup>-1</sup> | 1.0000         | 0.4487×10 <sup>-4</sup> |
| 12 | 0.9904         | 0.9598×10 <sup>-2</sup> | 1.0000         | 0.4089×10 <sup>-4</sup> |
| 13 | 0.9912         | 0.8810×10 <sup>-2</sup> | 1.0000         | 0.3756×10 <sup>-4</sup> |
| 14 | 0.9919         | 0.8143×10 <sup>-2</sup> | 1.0000         | 0.3473×10 <sup>-4</sup> |
| 15 | 0.9924         | 0.7569×10 <sup>-2</sup> | 1.0000         | 0.3230×10 <sup>-4</sup> |
| 16 | 0.9929         | 0.7071×10 <sup>-2</sup> | 1.0000         | 0.3019×10 <sup>-4</sup> |
| 17 | 0.9934         | 0.6634×10 <sup>-2</sup> | 1.0000         | 0.2833×10 <sup>-4</sup> |
| 18 | 0.9938         | 0.6248×10 <sup>-2</sup> | 1.0000         | 0.2669×10 <sup>-4</sup> |
| 19 | 0.9941         | 0.5904×10 <sup>-2</sup> | 1.0000         | 0.2523×10 <sup>-4</sup> |
| 20 | 0.9999         | 0.5224×10 <sup>-4</sup> | 1.0000         | 0.2243×10 <sup>-6</sup> |

表 4.3 Reference と Case 4 の塔内温度分布の比較

| 段  | $T_j$ (K) <Reference> | $T_j$ (K) <Case 4> |
|----|-----------------------|--------------------|
| 1  | 20.40                 | 17.06              |
| 2  | 22.61                 | 22.54              |
| 3  | 22.82                 | 22.81              |
| 4  | 22.88                 | 22.88              |
| 5  | 22.92                 | 22.91              |
| 6  | 22.94                 | 22.94              |
| 7  | 22.95                 | 22.95              |
| 8  | 22.96                 | 22.96              |
| 9  | 22.97                 | 22.97              |
| 10 | 22.97                 | 22.97              |
| 11 | 22.98                 | 22.98              |
| 12 | 22.98                 | 22.98              |
| 13 | 22.99                 | 22.99              |
| 14 | 22.99                 | 22.99              |
| 15 | 22.99                 | 22.99              |
| 16 | 22.99                 | 22.99              |
| 17 | 23.00                 | 23.00              |
| 18 | 23.00                 | 23.00              |
| 19 | 23.00                 | 23.00              |
| 20 | 23.02                 | 23.02              |

表 4.4 パラメーターサーベイの結果

|           | B (g-mol/hr) | N (-) | Q <sub>1</sub> (cal/hr) | Q <sub>j</sub> (j=2, ..., N-2) (cal/hr) | Q <sub>N-1, N</sub> (cal/hr) | y <sub>1, H<sub>2</sub></sub> (-) | y <sub>1, He</sub> (-) | x <sub>N, H<sub>2</sub></sub> (-) | x <sub>N, He</sub> (-) | T <sub>1</sub> (K) | T <sub>N</sub> (K) | Q <sub>R</sub> (W) |
|-----------|--------------|-------|-------------------------|---|------------------------------|-----------------------------------|------------------------|-----------------------------------|------------------------|--------------------|--------------------|--------------------|
| Reference | 90           | 20    | 10000                   | 10000                                   | 0                            | 0.5000                            | 0.5000                 | 1.0000                            | 2.243×10 <sup>-7</sup> | 20.398             | 23.023             | 20.8               |
| Case 1    | 90           | 20    | 30000                   | 30000                                   | 0                            | 0.5000                            | 0.5000                 | 1.0000                            | 3.834×10 <sup>-8</sup> | 20.398             | 23.023             | 440                |
| Case 2    | 90           | 10    | 30000                   | 30000                                   | 0                            | 0.5000                            | 0.5000                 | 1.0000                            | 1.017×10 <sup>-7</sup> | 20.398             | 23.023             | 90.6               |
| Case 3    | 93           | 20    | 10000                   | 10000                                   | 0                            | 0.2857                            | 0.7143                 | 1.0000                            | 2.336×10 <sup>-7</sup> | 18.590             | 23.023             | 20.0               |
| Case 4    | 94           | 20    | 10000                   | 10000                                   | 0                            | 0.1667                            | 0.8333                 | 1.0000                            | 2.370×10 <sup>-7</sup> | 17.063             | 23.023             | 19.7               |
| Case 5    | 94           | 20    | 10000                   | 30000                                   | 0                            | 0.1667                            | 0.8333                 | 1.0000                            | 4.008×10 <sup>-8</sup> | 17.063             | 23.023             | 415                |

使用記号

B : 塔底からの液体水蒸気抜き出し量

N : 全理論段数

Q<sub>j</sub> : j 段目において除去される熱量

y<sub>1, i</sub> : 塔頂から出るガス中の i 成分のモル分率

x<sub>N, i</sub> : 塔底から出る液中の i 成分のモル分率

T<sub>j</sub> : j 段目の温度

Q<sub>R</sub> : コントロールヒーターの負荷

条件

フィード流量: 100 g-mol/hr

フィード組成: H<sub>2</sub>: 95 mol%, He: 5 mol%

塔内操作圧力: 2 atm



## 5. おわりに

核融合炉燃料給排気系の精製システムに低温システムを採用した場合、流下液膜式凝縮器（ヘリウム／水素同位体）分離器）は、システムの重要なユニットとなる。そこで、その研究開発の第1段階として、ユニットの定常シミュレーションを行うためのコンピューターコードを開発し、分離特性を解析した。本報告の内容をまとめると以下ようになる。

- (1) 流下液膜式凝縮器のモデリング及びモデル式系の導出を行い、コンピューターによって定常シミュレーションを行う手順を明らかにした。
- (2) このユニットの定常時の分離特性を解析するためのコンピューターコード（FLFC）を開発した。このコードは、Tomich<sup>2)</sup>によって考案されたアルゴリズムを参考に作成したものであり、本質的には非線形多元連立方程式を傾斜法によって解くものである。ただし、独立変数の初期仮定値の与え方及び収束手法には、工夫がなされており、発散防止に役立っている（収束手法としては、「CRYDIS-2」<sup>7)</sup>と同様の手法が用意されている）。
- (3) 全理論段数（塔高に対応）、各段における除去熱量（塔外壁を冷却するためのヘリウムガスの供給温度あるいは流量に対応）、液体水素抜き出し量を主要パラメーターと考え、開発したコードを用いてパラメーターサーベイを行った。その結果、4.3に述べたような特性を把握することができた。

なお、今後必要な研究開発項目について述べると、以下ようになる。

- ① ヘリウム-水素同位体（少くとも、D<sub>2</sub>、DT、T<sub>2</sub>の3成分）系の気液平衡データを実測する。
- ② 流下液膜式凝縮器を試作して実験を行い、分離特性を調べる。
- ③ シミュレーションモデル及びコンピューターコードの検討・改良を行う。

## 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）、田中吉左右氏（核融合研究部）の御指導をいただいた。松田祐二氏・吉田浩氏（トリチウム技術研究室）からは御助言をいただいた。

本報告書を作成するにあたり、以上の方々に深い謝意を表します。

## 5. おわりに

核融合炉燃料給排気系の精製システムに低温システムを採用した場合、流下液膜式凝縮器（ヘリウム/水素同位体）分離器）は、システムの重要なユニットとなる。そこで、その研究開発の第1段階として、ユニットの定常シミュレーションを行うためのコンピューターコードを開発し、分離特性を解析した。本報告の内容をまとめると以下ようになる。

- (1) 流下液膜式凝縮器のモデリング及びモデル式系の導出を行い、コンピューターによって定常シミュレーションを行う手順を明らかにした。
- (2) このユニットの定常時の分離特性を解析するためのコンピューターコード（FLFC）を開発した。このコードは、Tomich<sup>2)</sup>によって考案されたアルゴリズムを参考に作成したものであり、本質的には非線形多元連立方程式を傾斜法によって解くものである。ただし、独立変数の初期仮定値の与え方及び収束手法には、工夫がなされており、発散防止に役立っている（収束手法としては、「CRYDIS-2」<sup>7)</sup>と同様の手法が用意されている）。
- (3) 全理論段数（塔高に対応）、各段における除去熱量（塔外壁を冷却するためのヘリウムガスの供給温度あるいは流量に対応）、液体水素抜き出し量を主要パラメーターと考え、開発したコードを用いてパラメーターサーベイを行った。その結果、4.3に述べたような特性を把握することができた。

なお、今後必要な研究開発項目について述べると、以下ようになる。

- ① ヘリウム-水素同位体（少くとも、D<sub>2</sub>、DT、T<sub>2</sub>の3成分）系の気液平衡データを実測する。
- ② 流下液膜式凝縮器を試作して実験を行い、分離特性を調べる。
- ③ シミュレーションモデル及びコンピューターコードの検討・改良を行う。

## 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）、田中吉左右氏（核融合研究部）の御指導をいただいた。松田祐二氏・吉田浩氏（トリチウム技術研究室）からは御助言をいただいた。

本報告書を作成するにあたり、以上の方々に深い謝意を表します。

参 考 文 献

- 1) Anderson, J.L., Sherman, R.H.: "Tritium Systems Test Assembly", LA-6855-P, LASL, (1977).
- 2) Tomich, J.F.: "A New Simulation Method for Equilibrium Stage Process", AIChE J., 16, 229, (1970).
- 3) Souers, P.C., et al.: "Raoult's Law for Liquid D-T and H-T", Trans. Am. Nucl. Soc., 28, 202, (1978).
- 4) 藤代亮一, 黒岩章晃 : "溶液の性質(1)", 現代物理化学講座7, 東京化学同人
- 5) Street, W.B., Sonntag, R.E., et al.: "Liquid-Vapor Equilibrium in the System Normal Hydrogen-Helium", J. Chem. Phys., 40, 1390, (1964).
- 6) エヌ・ベ・ワルガフチック : "便覧. 気体と液体の熱物理的性質", 日・ソ通信社, (1972)
- 7) Kinoshita, M., et al.: "Computer Analyses on Steady State Separation Characteristics of Cryogenic Distillation System", J. Nucl. Sci. Technol., to be published.
- 8) Anderson, J.L., et al.: "Tritium Systems Test Assembly — Preliminary Safety Analysis Report —", Private Communication, (1979).