

本資料は 年 月 日付けで登録区分、  
変更する。 2001. 6. -6

[技術情報室]

## 再結合器における水素添加自動制御装置の 特性実験

Performance tests on the characteristics of automatic control system  
for hydrogen supply in the recombination reactor

1977年5月

動力炉・核燃料開発事業団

東海事業所

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字村松4番地49  
核燃料サイクル開発機構  
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:  
Technical Cooperation Section,  
Technology Management Division,  
Japan Nuclear Cycle Development Institute  
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184  
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)  
2001

## 再結合器における水素添加自動制御装置の特性実験



Performance tests on the characteristics of automatic control system for hydrogen supply in the recombination reactor

技 術 部

実施責任者

本 山 茂 二

堤 健 一

角 田 直 己

報 告 者

土 屋 弘 行

三 浦 襄

飛 田 祐 夫

稲 田 栄 一

期 間 1975年7月 ~ 1977年3月

目 的

再処理工場からのクリプトン-85の放出量を低減するためのクリプトン回収装置において、その主要部を構成する再結合器の酸素除去用水素添加自動制御装置について、その酸素濃度変動に伴う応答特性を明らかにする。

要 旨

東海再処理工場には液化蒸留法を主体としたクリプトン回収プラントの設置が予定されている。クリプトン回収プラントでは蒸留塔内部で液体酸素と炭化水素、特にアセチレンが反応して爆発する危険性があるので、これを避けるために信頼性の高い酸素除去プロセスが必要となる。

ところで、再処理工場ではせん断および溶解の2工程からのオフガスがパイロットプラントに導入され、各オフガスの主成分が空気および酸素であるため、プラント入口において酸素濃度がかなり変動するものと考えられる。そこで、酸素除去のプロセスとして軽水炉のオフガス系で実績がある触媒反応を用い、濃度変動が大きい酸素を確実に除去するために水素添加量を自動制御することとし、この自動制御装置について検討した。主要な検討項目を要約すると次の3点になる。

- (1) 再処理工場オフガス系の運転モードを想定し、バッファタンク内の酸素濃度の時間変動をあらわす計算式を導出した。その結果、酸素濃度の変動幅としては約17%であることがわかつ



た。

水素添加自動制御装置の主要構成機器の流量調節計について、最適設定値を選定した。その結果、比例帯および積分時間をそれぞれ 300 % および 5 min に設定することにより、本制御系が 17 % の酸素濃度の変動に対し応答できることがわかった。

- (3) 再結合器の触媒の温度は水素濃度が 1 % 増加することにより約 84 °C 上昇し、この値は酸・水素の反応発生熱量 ( $57.8 \times 10^3 \text{ cal/mol}$ ) を考慮して導出した計算式の結果と一致することがわかった。

## 目 次

1. まえがき .....	1
2. バッファタンク内の酸素濃度の時間変動計算 .....	2
2-1 再処理工場のオフガス系 .....	2
2-2 計算方法 .....	2
2-3 計算結果と検討 .....	4
3. 実 験 .....	6
3-1 実験装置 .....	6
3-2 水素添加自動制御系の構成 .....	6
3-3 実験方法 .....	7
4. 実験結果および検討 .....	9
4-1 酸素濃度変動時の特性 .....	9
4-2 比例帯の影響 .....	11
4-3 積分帯の影響 .....	11
4-4 希釈度の影響 .....	12
4-5 反応熱による触媒層の温度特性 .....	12
5. まとめ .....	14
6. 参考文献 .....	15
7. Appendix .....	16

## 1. ま え が き

再処理工場のオフガス系に含まれる放射性希ガスのうち、半減期が10.8年のクリプトン-85の環境放出を低減するため、当室ではクリプトン-85の回収方法として液化蒸留法を選定し、これの開発研究を進めている。液化蒸留法はオフガスを液化窒素で冷却し、これを液化し、成分の沸点差により Kr-85 を回収するもので、現在、酸素等の製造に用いられている空気分離装置<sup>1)</sup>の技術を応用できるため、実用性が高いものと考えられている。<sup>2)</sup>

ところで、従来の空気分離装置では空気中に不純物として微量に含まれているアセチレンなどの炭化水素が蒸留塔にそのまま持ち込まれ、液体酸素と反応して爆発する事故がいくつか発生している。<sup>3)</sup> このような爆発を避けるためには反応物質の炭化水素とともに酸素を除去することがきわめて有効であると報告されている。<sup>4)</sup> そこで、クリプトン回収パイロットプラントでは酸素を除去するための信頼性の高い前処理装置が必要となる。

酸素を除去するための方法の一つに、水素添加による触媒反応があり、この触媒反応については軽水炉のオフガス系で水の放射線分解により生じた水素を除去するための酸水素結合器において、すでに実績がある。軽水炉のオフガス系ではガス中の水素濃度が爆発下限の4%以下であるため、酸素をそのまま添加しても水素爆発の可能性がなく、しかもオフガス中の水素濃度はほとんど変動しないため、プロセスの制御が容易である。しかし、再処理工場ではオフガス系がせん断および溶解の2工程より構成され、各工程のガスの主成分が空気および酸素とそれぞれ異なるため、オフガス中の酸素濃度がかかなり変動する。また、オフガス中の平均酸素濃度は約30%以上と高く、この酸素に直接水素を添加すると水素爆発の危険性がある。そこで、これらの問題を解決するため、当室では日立と共同して独自の酸素除去システムを考案した。<sup>5)</sup> このシステムの特長としては、第1に水素爆発を防止するため、酸水素結合器出口のガスを入口に再循環し、水素濃度を4%以下にする再循環希釈方式を用いていること、第2に、水素添加を自動制御装置により行ない、濃度変動の大きい酸素をすみやかに除去すること、第3に、再結合器出口に微量酸素除去器を設けることにより、非常運転時等に流出する未反応酸素を確実に除去する点にある。この酸素除去システムの信頼性を把握するため、次の項目について検討した。

まず、再処理工場オフガス系の運転モードを想定し、酸素濃度の時間変動を計算により明らかにした。次に、この結果をもとに再結合器入口の酸素濃度を変動させ、水素添加自動制御装置の負荷追従性を明確にするとともに、本制御系を構成する調節計の設定値の影響について明らかにした。さらに、酸水素結合器の触媒の温度と水素濃度の関係について、実験と計算により比較した。

本報では以上の3点について検討した結果を報告する。

## 2. バッファタンク内の酸素濃度の時間変動計算

### 2-1 再処理工場のオフガス系

まず、計算の前提になる再処理工場のオフガス系についてその概要を記す。図1に再処理工場のオフガス系を示す。このオフガス系はせん断工程および溶解工程より構成されており、オフガスの主成分ならびに運転方法が2つの工程でそれぞれ異なっている。すなわち、せん断工程ではオフガスの主成分は空気であり、1日3回程度の頻度で断続的に運転される。これは切断工程が核燃料を切断機で切断するもので、切断機内は-35 mm WG程度の負圧条件下で運転されるので空気が流入するためである。

一方、溶解工程ではオフガスの主成分が酸素（以下  $O_2$  と略記）であり、この工程についても1日2～3回程度の頻度で断続的に運転される。これは溶解工程において燃料と硝酸の反応により生ずる窒素酸化物を酸吸収塔で吸収されやすい二酸化窒素とするために  $O_2$  ガスを吹き込んでいる。

さて、再処理工場の Kr 回収パイロットプラントではせん断工程からのオフガスを混合するためのバッファタンクを設け、プラントへ導入するガス（以下処理ガスと略記）中の  $O_2$  濃度が均一になるよう工夫されている。しかし、上記したように2つの工程で  $O_2$  濃度および運転時間がそれぞれ異なるため、運転中にバッファタンク内の  $O_2$  濃度がかかなり変動するものと考えられる。この  $O_2$  濃度の変動に対し、自動制御装置により水素添加する場合、処理ガス中の  $O_2$  濃度の変動幅をあらかじめ明らかにしておくことが重要となる。そこで処理ガス中の  $O_2$  濃度の変動幅について、バッファタンク容量などをパラメータとして計算により求めることにする。

### 2-2 計算方法

計算を単純化するため、上記した各工程からのガスはバッファタンク内で瞬時に混合され、 $O_2$  濃度は均一になるものとする。また、ガスの温度は混合前後で変化しないものとする。

いま、バッファタンクの容量、圧力および  $O_2$  濃度をそれぞれ  $Qm^3$ 、 $P$   $kg/cm^2$  および  $C$  (—) とし、流量と  $O_2$  量について物質収支をとると、次式が成り立つ。

$$Q \frac{dP}{dt} = V_1 + V_2 - V_3 \quad \dots\dots\dots(1)$$

$$Q \frac{d}{dt} (PC) = V_1 C_1 + V_2 C_2 - V_3 C \quad \dots\dots\dots(2)$$

ここで  $V_1$  : せん断工程オフガス流量 (Nm<sup>3</sup>/hr)

- $V_2$  : 溶解工程オフガス流量 (Nm<sup>3</sup>/hr)
- $V_3$  : 処理ガス流量 (Nm<sup>3</sup>/hr)
- $C_1$  : せん断工程オフガス酸素濃度 (-)
- $C_2$  : 溶解工程オフガス酸素濃度 (-)
- $t$  : 時間 (hr)

初期条件  $P = P_0$ ,  $C = C_0$  のもとで (1) 式を解くと、貯蔵タンクの圧力は次のようになる。

$$P(t) = P_0 + \frac{r}{Q} t \dots\dots\dots (3)$$

ここで  $r = V_1 + V_2 - V_3$

次に (3) 式を (2) 式に代入し、同一の初期条件でこれを解くと (Appendix A 参照)、バッファタンクの O<sub>2</sub> 濃度は次式のようにになる。

$$C(t) = \frac{\delta}{\alpha} + (C_0 - \frac{\delta}{\alpha}) (1 + \frac{r}{\beta} t)^{-\frac{\alpha}{r}} \dots\dots\dots (4)$$

- ここで  $\alpha = V_1 + V_2$
- $\beta = Q P_0$
- $\delta = V_1 C_1 + V_2 C_2$

次に、オフガス系について一定の運転サイクルを想定し、この運転サイクルの前後でバッファタンク内の O<sub>2</sub> 濃度が同一の値になるような条件を考える。いま、1 サイクルの運転時間を  $T_2$  hr とし、溶解工程からのガスについてはこの間連続的に流出、また、せん断工程からのガスについては、はじめの  $T_1$  hr に流出するような運転サイクルを想定すると、上記条件を満たすには  $T_2$  hr 中に貯蔵タンクに流入する O<sub>2</sub> 量と流出するそれとが等しくなることである。 $T_2$  hr 中に流入する O<sub>2</sub> 量を  $W_0$  (Nm<sup>3</sup>) とすると、 $W_0$  については流量、濃度および運転時間の積により計算されるので、

$$W_0 = (V_1 C_1 + V_2 C_2) T_1 + V_2 C_2 (T_2 - T_1) \dots\dots\dots (5)$$

となる。

一方、流出する O<sub>2</sub> 量を  $W_1$  (Nm<sup>3</sup>) とすると、 $W_1$  については O<sub>2</sub> 濃度として (4) 式の値を用いると、

$$W_1 = \int_0^{T_2} V_3 C(t) dt \dots\dots\dots (6)$$

となる。

そこで  $W_1 = W_2$  として計算すると (Appendix B 参照)、 $C_0$  が次式で表わされることになる。



$$C_0 = \frac{\delta}{\alpha} + \frac{A - F \left( \frac{\delta}{\alpha} - \frac{\delta'}{\alpha'} \right)}{D + EF} \dots\dots\dots(7)$$

$$\text{ここで } A = \delta T_1 \left( \frac{1}{V_3} - \frac{1}{\alpha} \right) + \delta' (T_2 - T_1) \left( \frac{1}{V_3} - \frac{1}{\alpha'} \right)$$

$$D = \frac{\beta}{r - \alpha} \left\{ \left( 1 + \frac{r}{\beta} \right)^{\left( 1 - \frac{\alpha}{r} \right)} - 1 \right\}$$

$$E = \left( 1 + \frac{r}{\beta} T_1 \right)^{-\frac{\alpha}{r}}$$

$$F = \frac{\beta'}{r' - \alpha'} \left[ \left\{ 1 + \frac{r'}{\beta'} (T_2 - T_1) \right\}^{\left( 1 - \frac{\alpha'}{r'} \right)} - 1 \right]$$

$$\alpha' = V_2$$

$$\beta' = QP_0 + rT_1$$

$$r' = V_2 - V_3$$

$$\delta' = V_2 C_2$$

したがって、運転サイクルの前後で酸素濃度が同一になるような  $O_2$  濃度の変動式は  $C_0$  として(7)式の値を用い、これを(4)式に代入することにより求めることができる。

### 2-3 計算結果と検討

図2に  $V_1 = 200 \text{ Nm}^3/\text{hr}$ ,  $V_2 = 10 \text{ Nm}^3/\text{hr}$ ,  $V_3 = 52.1 \text{ Nm}^3/\text{hr}$ ,  $C = 0.207$ ,  $C_2 = 1$ ,  $T_1 = \frac{5}{3} \text{ hr}$ ,  $T_2 = 8 \text{ hr}$ ,  $Q = 40 \text{ m}^3$  および  $P_0 = 3 \text{ kg/cm}^2$  とし、(3)式によりバッファタンクの圧力変動を計算した結果の1例を示す。この図より、圧力はせん断工程からのオフガスが流入する場合に増加して、これが停止すると減少することがわかる。バッファタンクの圧力はせん断オフガスの停止する  $5/3 \text{ hr}$  後に最大約  $9.6 \text{ kg/cm}^2$  となり、この運転中に  $7 \text{ kg/cm}^2$  程度の圧力上昇がバッファタンクに生ずることになる。

さて、バッファタンクの安全性を考慮した場合、材料強度およびガス漏洩の両面から、タンク内の圧力はできるだけ低くした方が好ましい。このためには、(3)式よりバッファタンクの容量を大きくすればよいことがわかる。

次に、運転サイクル前後において酸素濃度が等しくなるように、(7)式により先と同一条件下で  $C_0$  を計算すると  $0.465$  になる。この値を用い(4)式により酸素濃度の変動を計算した結果を図3に示す。この図より、 $O_2$  濃度の変動はせん断および溶解の2工程からガスが流入する場合に著しく、その変動幅は17%程度になることがわかる。一方、溶解工程のみからガスが流入する場合には  $O_2$  濃度の変動は比較的ゆるやかで、時間の経過に伴ない直線的に増大する。

図4にバッファタンクの容量をパラメータとし、 $O_2$ 濃度の変動幅を計算した結果を示す。この図より、 $O_2$ 濃度の変動幅を小さくするには貯蔵タンクの容量を大きくすればよいことがわかる。これはバッファタンクの容量を限りなく大とすれば $\beta \rightarrow \infty$ となり、これを(4)式に代入すれば $C(t)$ が $C_0$ にぜん近するためである。一方、バッファタンクの容量を限りなく小とすれば $\beta \rightarrow 0$ となり、(4)式から $C(t)$ は $\delta/\alpha$ にぜん近する。すなわち、 $C(t)$ は処理ガス中の平均の $O_2$ 濃度となり、この場合の $O_2$ 濃度変動幅は $|\delta/\alpha - C_0|$ となる。

以上のことから、バッファタンクの容量を $40\text{ m}^3$  (Kr回収パイロットプラントでの設計値)とし、オフガス系について上記した1日8時間のサイクル運転を想定すると、処理ガス中の $O_2$ 濃度の変動幅は定常値に対し17%程度であり、この値を基準として水素添加自動制御装置の設計をすればよいことが明らかとなった。

### 3. 実 験

#### 3-1 実験装置

図5に実験装置のフローシートを示す。装置の詳細については前報<sup>6)</sup>に記してある。実験装置の主要部は $O_2$ と水素（以下 $H_2$ と略記）の反応により $O_2$ を除去するための酸水素結合器（以下再結合器と略記）未反応酸素除去用の微量酸素除去器、水素添加のための自動制御装置および分析計より構成されている。表1に実験装置の仕様をまとめて示してある。再結合器（内径155 mm, 高さ1,130 mm）には基礎実験<sup>7)</sup>により選定したパラジウム触媒（アルミナ担体）が約11 ℓ充填されている。再結合器は3 kwの電気炉内に収納されており、加熱できるようになっている。触媒層の下部より約600 mmの位置には熱電対が挿入してあり、触媒層の温度を検出できるようになっている。混合タンクには（内径216 mm, 高さ600 mm）コンプレッサおよびポンペより空気と $O_2$ がそれぞれ流量計を介し通気され、 $O_2$ 濃度を任意に調整できるようにしてある。再結合器への $H_2$ はポンペより供給され、その添加量は自動制御装置でコントロールするようになっている。この自動制御装置の詳細については3.2節に記してある。再結合器の出口には冷却器があり、反応により生じた水分を除去するようにしてある。再結合器出口の窒素（以下 $N_2$ と略記）ガスは循環ポンペで入口に再循環させ $H_2$ を4%以下の濃度に希釈し、水素爆発を防止するようになっている。再循環系の出口の微量酸素除去器（内径155 mm, 高さ1,000 mm）には銅触媒が約4 ℓ充填してある。再結合器および微量酸素除去器の出入口にはサンプリング管が設けられ、分析計により $O_2$ および $H_2$ の各濃度をそれぞれ連続的に測定できるようにしてある。

#### 3-2 水素添加自動制御系の構成

図6に水素添加自動制御系の構成をブロック線図で示す。基礎実験の結果から、再結合器で $O_2$ を確実に除去するにはその入口において $O_2$ 量に対し化学当量以上の $H_2$ 量を添加すればよいことがわかっているので、<sup>6)</sup>制御系の設計上のポイントは出口の $H_2$ 濃度を常に一定の値に保守するような制御法を選択することにある。通常の化学プラントなどで用いられている制御法としては制御系の出力を検出しこれを入力側にもどし、目標値との偏差に応じて制御動作を行なうフィードバック制御法および制御系の出力によらず外乱の変動などの入力に応じて制御動作を行なうフィードフォワード制御法の2つがある。後者の制御法は外乱に対する応答性がすぐれている点に特長があるが、制御系の出力が目標値と必ずしも一致しないという問題点がある。したがって、この制御法は出口の $H_2$ 濃度を一定値に保守するような本プロセスに対して適さない。そこで、ここではフィードバック制御法を選定することにした。さらにこの制御法において、2つの調節計を直列に結合（カスケード制御）し、単一調節計による制御に比して、変動に対する応答

性をはやめるなどの制御性の向上に留意している。

この制御系の作動原理は次のようになっている。まず、分析計により検出された再結合器出口の  $H_2$  濃度を E/P 変換器で圧力信号に変換し、これが濃度調節計において、入力となる。濃度調節計では  $H_2$  濃度を手動で任意の値に設定できるようになっており、この設定値と入力の  $H_2$  濃度との偏差  $\epsilon$  に対し、つぎのような修正動作が行なわれる。

$$y = \frac{100}{K_P} \left( \epsilon + \frac{1}{T_I} \int \epsilon dt \right) \dots\dots\dots (8)$$

ここで  $y$  : 出力  
 $K_P$  : 比例帯  
 $T_I$  : 積分時間

流量調節計では(8)式で演算された出力が設定値となり、これとオリフィスで検出された  $H_2$  流量による差圧との偏差に対し、(8)式と同様な修正動作が行なわれる。そして、この出力がダイヤフラム式流量調節弁の開度を調整し、 $H_2$  添加量をコントロールするようになっている。

### 3-3 実験方法

まず、電気炉を作動し、再結合器と微量酸素除去器を所定温度に加熱する。次に、循環ポンプを作動するとともに、ガスボンベからの  $O_2$  およびコンプレッサからの空気を所定比で混合し、所定の  $O_2$  濃度に調整した処理ガスを混合タンクより再結合器に通気する。さらに、分析計で  $H_2$  濃度が 4% を越えないよう注意しながら、 $H_2$  ガスをボンベから手動操作で再結合器に通気する。 $H_2$  と  $O_2$  の反応が開始すると、反応熱により触媒層の温度が上昇してくるので、この温度上昇を確認しながら  $H_2$  添加量を徐々に増大させ、再結合器出口の  $H_2$  濃度を 0.5% にする。 $H_2$  と  $O_2$  の反応により生じた水分は冷却器で除去する。除湿されたガスの一部は再循環系の圧力が一定になるよう系外の微量酸素除去器に通気し、残りのガスについては循環ポンプで入口に再循環させる。以上の操作により、系内の操作条件が所定値に達した後、 $H_2$  の添加を手動から自動操作に切り換える。

表 2 に実験条件をまとめて示してある。本実験では、まず、3-2 節で記した 2 つの調節計について比例帯 (以下  $K_P$  と略記) および積分帯 (以下  $T_I$  と略記) の値をそれぞれ固定し、系内を自動操作により定常状態にした後、処理ガス中の  $O_2$  濃度を定常値 35% から増大、あるいは減少させ、再結合器の出入口の  $O_2$  および  $H_2$  を連続的に測定し、本制御系の負荷追従性を明確にした。次に、濃度調節計の  $K_P$  および  $T_I$  をそれぞれ変えて、上記と同様な実験を行ない、出口の  $H_2$  濃度が設定値に復帰する時間およびその間の入口  $H_2$  濃度の最高値を求め、この 2 つの指標に基づいて  $K_P$  と  $T_I$  の最適値を選定した。また、最適な  $K_P$  と  $T_I$  の条件下で循環流量をパラメータにして  $H_2$  の希釈効果について検討した。さらに、 $H_2$  濃度を変えて触媒温度を測

定し、これを酸・水素の反応による発生熱量に基づき導出した計算式と比較した。なお、流量調節計については流量調節弁を直接作動させるので感度を高くしておく必要があり、このためには(8)式より  $K_P$  と  $T_I$  の値を小さくすればよい。そこで、流量調節計の  $K_P$  および  $T_I$  の値として 200 % と 1/20 min をあらかじめ選定し、これらの値については固定して実験を行なった。

## 4. 実験結果および検討

### 4-1 酸素濃度変動時の特性

図7に処理ガス中のO<sub>2</sub>濃度を定常値35%から23%にステップ状に減少させ、再結合器入口のO<sub>2</sub>およびH<sub>2</sub>濃度の時間変動を測定した結果を示す。この図より、処理ガス中のO<sub>2</sub>濃度の減少に伴ない、入口のO<sub>2</sub>濃度についてはほぼ同時に減少するが、出入口のH<sub>2</sub>濃度についてはいずれも増加し、その増加幅はかなり大きいことがわかる。これはプロセスの上で必然的に存在する水素分析計などの時間のおくれにより、H<sub>2</sub>添加量が定常時の値に比して過剰となり、このH<sub>2</sub>が再循環系より再結合器の入口に流入するためである。このH<sub>2</sub>流入の影響を明確にするため、制御系がないと仮定してH<sub>2</sub>濃度の時間変化を計算により求めてみる。いま、定常運転の条件として再結合器出口のH<sub>2</sub>濃度が0.5%、また再結合器での反応率が100%であるとし物質収支をとってみる。H<sub>2</sub>添加量をF<sub>2</sub> Nm<sup>3</sup>/hr とすると、これについては処理ガス中の2倍のO<sub>2</sub>流量と再循環系から流入するH<sub>2</sub>流量を加えたものであるから、次のようにあらわされる。

$$F_2 = F_1 \times 2 \times \frac{C_1}{100} + F_4 \times \frac{0.5}{100} \dots\dots\dots (9)$$

また、再循環系からの抜き出し流量をF<sub>4</sub> Nm<sup>3</sup>/hr とすると、これについては処理ガス中のH<sub>2</sub>流量を加えたものであるから、次のようにあらわされる。

$$F_4 = F_1 \times \left(1 - \frac{C_1}{100}\right) + F_4 \times \frac{0.5}{100} \dots\dots\dots (10)$$

ここで F<sub>1</sub> : 処理ガス流量 (Nm<sup>3</sup>/hr )

C<sub>1</sub> : 処理ガス中のO<sub>2</sub>濃度 (%)

(9)式と(10)式を整理するとそれぞれ次のようにあらわされる。

$$F_2 = \left\{ 2 \times \frac{C_1}{100} + \frac{\left(1 - \frac{C_1}{100}\right)}{\left(1 - \frac{0.5}{100}\right)} \times \frac{0.5}{100} \right\} F_1 \dots\dots\dots (11)$$

$$F_4 = \frac{\left(1 - \frac{C_1}{100}\right)}{\left(1 - \frac{0.5}{100}\right)} \times F_1 \dots\dots\dots (12)$$

さらに、循環ガス量を  $F_3 \text{ Nm}^3/\text{hr}$  とすると、再結合器入口における  $\text{O}_2$  濃度  $C_{2,\text{O}_2}\%$  および  $\text{H}_2$  濃度  $C_{2,\text{H}_2}\%$  についてはそれぞれ次式のようなになる。

$$C_{2,\text{H}_2} = \frac{F_2 + F_3 \times \frac{0.5}{100}}{F_1 + F_2 + F_3} \times 100$$

$$= \frac{\left\{ 2 \times \frac{C_1}{100} + \left( \frac{1 - \frac{C_1}{100}}{1 - \frac{0.5}{100}} \right) \times \frac{0.5}{100} \right\} F_1 + F_3 \times \frac{0.5}{100}}{\left\{ 1 + 2 \frac{C_1}{100} + \left( \frac{1 - \frac{C_1}{100}}{1 - \frac{0.5}{100}} \right) \times \frac{0.5}{100} \right\} F_1 + F_3} \times 100 \dots\dots\dots (13)$$

$$C_{2,\text{O}_2} = \frac{\frac{C_1}{100} \times F_1}{F_1 + F_2 + F_3} \times 100$$

$$= \frac{C_1 F_1}{\left\{ 1 + 2 \times \frac{C_1}{100} + \left( \frac{1 - \frac{C_1}{100}}{1 - \frac{0.5}{100}} \right) \times \frac{0.5}{100} \right\} F_1 + F_3} \dots\dots\dots (14)$$

すなわち、定常状態における再結合器入口での  $\text{H}_2$  および  $\text{O}_2$  濃度は  $F_1$ 、 $C_1$  および  $F_3$  により一義的にあらわされることになる。

さて、処理ガス中の  $\text{O}_2$  濃度が定常値  $C_1\%$  から  $(C_1 - \Delta C_1)\%$  にステップ状に変動し、 $F_2$  については定常値とかわらないとすると、再結合器で反応する  $\text{H}_2$  流量は

$$F_1 \times 2 \times \frac{(C_1 - \Delta C_1)}{100}$$

になるから、変動直後における再結合出口の  $\text{H}_2$  濃度  $C_{3,\text{H}_2}\%$  は

定常値  $0.5\%$  から増加し、次のようにあらわされる。

$$C_{3,\text{H}_2} = \frac{F_3 \times \frac{0.5}{100} + F_2 - F_1 \times 2 \times \frac{(C_1 - \Delta C_1)}{100}}{F_3 + F_4} \times 100 \dots\dots\dots (15)$$

処理ガスが再循環系内を一巡すると、(15)式で示した  $\text{H}_2$  濃度の定常値からの増加分が再結合器入口に加算されるため、出口の  $\text{H}_2$  濃度は処理ガスの循環回数  $N$  に比例して増大することがわかる。再循環系の容量を  $V \text{ m}^3$ 、経過時間を  $T \text{ hr}$  とすると、 $N$  は次のようになる。

$$N = \frac{F_3 \times T}{V} \dots\dots\dots (16)$$

図7の実験条件、すなわち  $F_1 = 1 \text{ Nm}^3/\text{hr}$ 、 $F_3 = 50 \text{ Nm}^3/\text{hr}$ 、 $C = 35 \%$  および  $4C_1 = 12 \%$  を(11)式、(12)式および(15)式に代入して  $C_3$ 、 $H_2$  を求めると  $0.97 \%$  になる。また、本実験装置においては再循環系の容量が約  $0.56 \text{ m}^3$  あるので  $V = 0.56 \text{ m}^3$  を(16)式に代入して処理ガスの一循環あたりの時間  $T/N$  を計算すると約  $40 \text{ sec}$  となる。すなわち、処理ガス中の  $O_2$  濃度の変動後、約  $40 \text{ sec}$  間に出口の  $H_2$  濃度は定常値の  $0.5 \%$  から  $0.97 \%$  に増大し、その後同じ割合で増大することになる。この計算結果を図7に破線で示しておく。実験では出口の  $H_2$  濃度と設定値  $0.5 \%$  の偏差により制御系が作動し、 $H_2$  添加量が減少するので、出入口の  $H_2$  濃度の増加割合は次第に低下し約  $10 \text{ min}$  後に減少する。そして、約  $60 \text{ min}$  後に出口の  $H_2$  濃度は設定値に復帰することがわかる。この間、かんじんの出口の  $O_2$  濃度については約  $0.3 \text{ ppm}$  で、分析計の検出限界以下の値であった。また、 $H_2$  濃度については入口で最高  $3.5 \%$  程度であり、この値は  $H_2$  の爆発下限濃度にまだ到達していないことがわかる。

以上のことから、処理ガス中の  $O_2$  濃度が減少した場合には、再結合器出口に  $O_2$  は流出しないが、プロセス上の時間おくれにもとずき  $H_2$  濃度がかなり高くなることがわかった。

図8に処理ガス中の  $O_2$  濃度を定常値  $35 \%$  から  $50 \%$  にステップ状に増大させ、再結合器出入口の  $O_2$  および  $H_2$  濃度の時間変動を測定した結果を示す。 $O_2$  濃度が増大した場合では、図7の結果と反対に  $O_2$  が再循環系から流入し、かんじんの  $O_2$  が再結合器出口に流出するが、微量酸素除去器の出口で  $O_2$  濃度を測定したところ、 $0.3 \text{ ppm}$  であった。また、 $H_2$  添加量については図7の場合と反対に増大し、約  $50 \text{ min}$  後に出口の  $H_2$  濃度は設定値に復帰している。このことから、処理ガス中の  $O_2$  濃度が増大した場合には再結合器出口に  $O_2$  が流出するが、この  $O_2$  について微量酸素除去器で十分除去できることがわかった。

#### 4-2 比例帯の影響

図9に濃度調節計の比例帯をパラメータにし、処理ガス中の  $O_2$  濃度を定常値  $35 \%$  から  $50 \%$  にステップ状に増大させ、入口の  $H_2$  濃度および出口の  $H_2$  濃度が設定値へ復帰する時間（以下収束時間と略記）を測定した結果を示す。この図より、 $H_2$  濃度は  $K_P$  に逆比例して多少減少するが、収束時間については  $K_P$  にほぼ比例していることがわかる。したがって、出口の  $H_2$  濃度が短時間で設定値になるようにするには  $K_P$  を小さい値に設定した方が望ましい。しかし、 $K_P$  が  $200 \%$  以下になると、 $H_2$  濃度が  $4 \%$  以上となり爆発下限濃度を越えるため  $K_P$  としては  $300 \%$  程度の値を選定すればよいものと考えられる。

#### 4-3 積分帯の影響

図10に  $K_P$  を先の実験の結果により選定した  $300 \%$  とし濃度調節計の積分時間をパラメータにして、入口の  $H_2$  濃度および収束時間を測定した結果を示す。この図より  $H_2$  濃度については  $T_I$  に逆比例し、また、収束時間については  $T_I$  に比例することがわかった。これらの結果につ



いては先の結果とほぼ同一の傾向にあり、したがって前記の理由により、 $T_I$ としては5 min程度の値を選定すればよいものと考えられる。

#### 4-4 希釈度の影響

処理ガス中の $O_2$ 濃度の変動幅が大きくなると、制御系への負荷が大きくなり、制御系では $O_2$ 濃度の変動をカバーしきれなくなることが予想される。そこで、本制御系の応答限界を明らかにするため、 $K_P$ と $T_I$ については最適値の300%と5 minにそれぞれ設定し、 $O_2$ 濃度の変動幅と循環ガス流量を変えて先と同様な実験を行なった。その結果を図11に示す。横軸は循環ガス流量を処理ガス流量で割った値(希釈度と定義する)で示してある。 $O_2$ 濃度の変動幅が小さい条件下では、出口の $H_2$ 濃度が設定値に復帰する間に入口の $H_2$ 濃度は4%を越えないが、 $O_2$ 濃度の変動幅を徐々に増大していくと入口の $H_2$ 濃度はついに4%に到達する。この条件下における $O_2$ 濃度の変動幅を本制御系の応答限界とし、この値をたて軸の左部に示してある。また、たて軸の右部に同時に測定した触媒層の温度を示している。この図より、制御系の応答限界は希釈度に比例することがわかる。これは(13)式より希釈度( $F_3/F_1$ )が大になるほど定常時における入口の $H_2$ 濃度は低くなり4%に至る濃度幅が大きくなるためである。入口の $H_2$ 濃度が定常時において4%になる希釈度を(13)式より求めると約18となる。すなわち、希釈度が18以下では定常運転時にすでに入口の $H_2$ 濃度が4%以上となるので、循環ガス流量についてはあらかじめ希釈度が18以上になるようにする必要がある。一方、触媒層の温度は希釈度に逆比例している。これは先と同様な理由によるもので、水素濃度と触媒層温度の関係について4.5節で詳細に記してある。

ところで、2-3節の計算例では $O_2$ 濃度の変動幅が約17%であった。この変動幅を本制御系でカバーするためには図11の結果より、希釈度として55程度の値を選定すればよい。

以上の結果から、本制御系では希釈度を大きくとることにより、大幅な $O_2$ 濃度の変動に対し応答できることが明らかとなった。

#### 4-5 反応熱による触媒層の温度特性

図12に処理ガス中の $H_2$ 濃度を変えて、触媒層の温度を測定した結果を示す。この図より、触媒層の温度は $H_2$ 濃度に比例して上昇することがわかる。この図の温度勾配から、1% $H_2$ 濃度が増大すると、触媒層の温度は約84℃上昇することになる。

ところで、触媒層の温度については、これが低すぎる場合には $O_2$ と $H_2$ の反応がかんまんとなり、また、高すぎる場合には触媒にシントリング現象が生ずるため、いずれの場合についても酸素除去性能が低下する。このように、触媒層の温度は酸素の除去性能に重大な影響を及ぼす操作因子であり、再結合器をスケールアップする場合に重要となるので、触媒層の温度に影響する因子について検討してみることにする。

いま、触媒層からの放熱を無視すると、定常状態では  $H_2$  と  $O_2$  の反応による発生熱量により触媒層の温度が上昇し、さらにガスの温度については触媒層の温度と等しくなるものと考えられる。また、処理ガス主成分は  $N_2$  であり、 $H_2$  や  $O_2$  濃度については  $N_2$  のそれに比して小さく、しかも、各成分の定圧比熱は  $6 \sim 7 \text{ cal/mol } ^\circ\text{K}$  の範囲内にあるため、処理ガスの平均の定圧比熱  $\overline{C_P}$  cal/mol  $^\circ\text{K}$  は  $N_2$  の定圧比熱  $\overline{C_{P_{N_2}}}$  cal/mol  $^\circ\text{K}$  にはほぼ等しくなる。そこで、処理ガス流量、再結合器入口の温度、入口  $H_2$  濃度および出口  $H_2$  濃度をそれぞれ  $V \text{ Nm}^3/\text{hr}$ 、 $T_0 \text{ }^\circ\text{C}$ 、 $C_0 \%$  および  $C_1 \%$  とし、熱収支をとると次式が成り立つ。

$$\frac{V + \overline{C_{P_{H_2}}} \times (T_1 - T_0)}{22.4 \times 10^{-3}} = \frac{V \times (C_0 - C_1) \times \frac{1}{100}}{22.4 \times 10^{-3}} \times \overline{Q} \quad \dots\dots\dots (17)$$

ここで  $T_1$  : 再結合器出口の温度 ( $^\circ\text{C}$ )  
 $\overline{Q}$  : 平均反応熱 (cal/mol)

(17)式を整理すると、つぎのようになる。

$$T_1 = T_0 + \frac{\overline{Q}}{\overline{C_{P_{N_2}}}} (C_0 - C_1) \times \frac{1}{100} \quad \dots\dots\dots (18)$$

ところで、(18)式により  $T_1$  を計算する場合には  $\overline{Q}$  と  $\overline{C_{P_{N_2}}}$  の温度依存性が重要になるが、本実験のように触媒温度が  $300 \text{ }^\circ\text{C}$  程度の範囲であれば、 $\overline{Q}$  および  $\overline{C_{P_{N_2}}}$  の値として  $25 \text{ }^\circ\text{C}$  (標準温度) の値を用いたとしても、その誤差は  $6 \%$  以内である。(Appendix C 参照)そこで、熱力学表<sup>8)</sup>より  $\overline{Q} (25 \text{ }^\circ\text{C}) = 57.8 \times 10^3 \text{ cal/mol}$ 、 $\overline{C_{P_{N_2}}} (25 \text{ }^\circ\text{C}) = 6.90 \text{ cal/mol } ^\circ\text{K}$  および図 12 の実験条件である  $C_1 = 0.5 \%$ 、 $T_0 = 40 \text{ }^\circ\text{C}$  を(18)式に代入して  $T_1$  を計算した。その結果を図 12 に実線で示してある。これより、実測値と計算値がよく一致していることがわかる。以上の結果から、触媒層の温度に影響する操作因子としては処理ガス中の  $H_2$  濃度であり、処理ガス流量については触媒層の温度に影響しないことが明らかになった。

## 5. ま と め

再処理工場のオフガス系に特有な酸素濃度の時間変動を計算により明らかにするとともに、この計算結果をもとにして酸素濃度の変動実験を行ない、再結合器の水素添加自動制御装置の負荷追従性と信頼性を確かめることができた。結果をまとめると以下ようになる。

### (1) 酸素濃度の時間変動計算

溶解オフガス（主成分酸素）およびせん断オフガス（主成分空気）がバッファタンクにそれぞれ連続的および断続的に流入するような再処理オフガス系を想定し、バッファタンク内の酸素濃度の時間変動を求める計算式（本文(4)式）を導出したところ、酸素濃度の変動幅を小さくするにはガスのホールドアップ量（バッファタンク容量(V)とガス充填圧力(P)の積）を大きくすればよいことがわかった。 $V = 40 \text{ m}^3$ 、 $P = 3 \text{ kg/cm}^2 \text{ G}$  の条件下では酸素濃度変動幅は約 17 % になる。

### (2) 再結合器の水素添加自動制御装置の特性

流量調節計および濃度調節計の2つをカスケード結合した独自の水素添加自動制御装置により、濃度変動を伴う酸素を確実に除去できることが確認された。流量調節計の比例帯および積分時間については 300 % および 5 min 程度にそれぞれ設定することにより最適な制御が行なわれる。この条件下で希釈度を 50 にすると、本制御装置は酸素濃度が定常値 35 % において  $\pm 15 \%$  の変動に対し追従できることがわかった。

### (3) 再結合器の温度特性

再結合器の触媒の濃度は水素温度が 1 % 増大すると約 84 °C 上昇し、この値は酸・水素の反応発生熱量を考慮して導出した計算式（本文(18)式）の結果と一致することがわかった。また、この計算式より、触媒の温度はガス流量に無関係となることが明らかとなった。

## 6. 参 考 文 献

- 1) 成田：  
" 空気分離法による酸素製造装置 "，高圧ガス 8(3)p 37 (1971)
- 2) J. R. Nichols et al  
"Status of noble gas removal and disposal "，ORNL-TM - 3515 (1971)
- 3) 西岡，橋本：  
" 酸素製造装置ならびに付帯設備の事故例と原因分析 "，高圧ガス 8(6) p 42 (1971)
- 4) 遊佐他  
" 液酸中のアセチレン爆発実験 " 昭和 50 年日本原子力学会年会要旨集， p 138 (1975)
- 5) 星野他  
" Kr - 85 回収用前処理工学試験装置の試作 " 昭和 50 年秋の分科会要旨集 p 125 (1975)
- 6) " 放射性希ガス除去回収技術開発 — 前処理工学試験 " SJ 702 75-02 (1975)
- 7) " 放射性希ガス除去回収前処理基礎実験 " (1974)
- 8) 永廻他  
" 熱力学 " p 254 丸善 (1967)

## 7. Appendix

(A) 本文中(4)式の導出

本文の(3)式を(2)式に代入し整理すると、次式となる。

$$\frac{dC}{dt} + \frac{\alpha}{\beta + rt} C = \frac{\delta}{\beta + rt} \quad \dots\dots\dots(7.1)$$

ここで

$$\alpha = V_1 + V_2$$

$$\beta = QP_0$$

$$r = V_1 + V_2 - V_3$$

$$\delta = V_1 C_1 + V_2 C_2$$

7.1式的一般解は次のようになる。

$$C = e^{-\int \frac{\alpha}{\beta + rt} dt} \left\{ \int \frac{\delta}{\beta + rt} e^{\int \frac{\alpha}{\beta + rt} dt} + C' \right\}$$

$$= (\beta + rt)^{-\frac{\alpha}{r}} \left\{ \int \delta (\beta + rt)^{\left(\frac{\alpha}{r} - 1\right)} dt + C' \right\}$$

$$= \frac{\delta}{\alpha} + C' (\beta + rt)^{-\frac{\alpha}{r}} \quad \dots\dots\dots(7.2)$$

初期条件  $t = 0$  で  $C = C_0$  より

$$C' = \left( C_0 - \frac{\delta}{\alpha} \right) \beta^{\frac{\alpha}{r}} \quad \dots\dots\dots(7.3)$$

したがって

$$C = \frac{\delta}{\alpha} + \left( C_0 - \frac{\delta}{\alpha} \right) \left( 1 + \frac{r}{\beta} t \right)^{-\frac{\alpha}{r}} \quad \dots\dots\dots(7.4)$$

となる。

(B) 本文中(7)式の導出

(せん断+溶解) 時の  $O_2$  濃度を  $C_1(t)$  とすると、(4)式より、

$$C_1(t) = \frac{\delta}{\alpha} + \left( C_0 - \frac{\delta}{\alpha} \right) \left( 1 + \frac{r}{\beta} t \right)^{-\frac{\alpha}{r}} \quad \dots\dots\dots(7.5)$$

となる。

また、溶解時の O<sub>2</sub> 濃度を C<sub>2</sub>(t) とすると、(4)式において C<sub>0</sub> が C<sub>1</sub>(T), β が (QP<sub>0</sub> + rT<sub>1</sub>), α が V<sub>2</sub>, r が (V<sub>2</sub> - V<sub>3</sub>) および δ が V<sub>2</sub>C<sub>2</sub> となるので

$$C_2(t) = \frac{\delta'}{\alpha'} + \left\{ \frac{\delta}{\alpha} + \left( C_0 - \frac{\delta}{\alpha} \right) \left( 1 + \frac{r}{\beta} T_1 \right)^{-\frac{\alpha}{r}} - \frac{\delta'}{\alpha'} \right\} \times \left\{ 1 + \frac{r'}{\beta'} (t - T_1) \right\}^{-\frac{\alpha'}{r'}} \dots\dots\dots (7.6)$$

ここで

$$\begin{aligned} \alpha' &= V_2 \\ \beta' &= QP_0 + rT_1 \\ r' &= V_2 - V_3 \\ \delta' &= V_2 C_2 \end{aligned}$$

となる。

(6), (7.5) および (7.6) 式より

$$\begin{aligned} W_2 &= \int_0^{T_1} V_3 C(t) dt \\ &= \int_0^{T_1} V_3 C_1(t) dt + \int_{T_1}^{T_2} V_3 C_2(t) dt \\ &= \left\{ \frac{\delta}{\alpha} T_1 + \left( C_0 - \frac{\delta}{\alpha} \right) \cdot D \right\} V_3 \\ &\quad + \left[ \frac{\delta'}{\alpha'} (T_2 - T_1) + \left\{ \frac{\delta}{\alpha} + \left( C_0 - \frac{\delta}{\alpha} \right) E - \frac{\delta'}{\alpha'} \right\} F \right] V_3 \dots\dots\dots (7.7) \end{aligned}$$

ここで

$$\begin{aligned} D &= \frac{\beta}{r - \alpha} \left\{ \left( 1 + \frac{r}{\beta} T_1 \right)^{\left( 1 - \frac{\alpha}{r} \right)} - 1 \right\} \\ E &= \left( 1 + \frac{r}{\beta} T_1 \right)^{-\frac{\alpha}{r}} \\ F &= \frac{\beta'}{r' - \alpha'} \left[ \left\{ 1 + \frac{r'}{\beta'} (T_2 - T_1) \right\}^{\left( 1 - \frac{\alpha'}{r'} \right)} - 1 \right] \end{aligned}$$

である。

(5)式より

$$V_{in} = \delta T_1 + \delta_2 (T_2 - T_1) \dots\dots\dots (7.8)$$

$V_{in} = V_{out}$  であるから (7.6) 式と (7.7) 式より計算すると

$$C_o = \frac{\delta}{\alpha} + \frac{A - F \left( \frac{\delta}{\alpha} - \frac{\delta'}{\alpha'} \right)}{D + EF} \dots\dots\dots (7.9)$$

$$\text{ここで } A = \delta T_1 \left( \frac{1}{V_3} - \frac{1}{\alpha} \right) + \delta' (T_2 - T_1) \left( \frac{1}{V_3} - \frac{1}{\alpha'} \right)$$

となる。

(C) Q および  $C_{P,N_2}$  の温度依存性

Q については  $H_2(g) + \frac{1}{2} O_2(g) \rightarrow H_2O(g)$  の反応式におけるエンタルピーの増加値  $\Delta H_f$  との間に  $Q = -\Delta H_f$  の関係があるから

$$Q(T) = - \left\{ \Delta H_f(298^\circ K) + \int_{298}^T \left( C_{P,H_2O} - C_{P,H_2} - \frac{1}{2} C_{P,O_2} \right) dT \dots\dots (7.10) \right.$$

ここで、

$\Delta H(298^\circ K)$	水分の標準生成エンタルピー (cal/mol)
$C_{P,H_2O}$	水分の定圧比熱 (cal/mol °K)
$C_{P,H_2}$	H <sub>2</sub> " ( " )
$C_{P,O_2}$	O <sub>2</sub> " ( " )
T	温度 (°K)

熱力学表 より、 $\Delta H(298) = 57798$ ,  $C_{P,H_2O} = 7.256 + 2.298 \times 10^{-3} T$ ,  $C_{P,H_2} = 6.947 - 0.200 \times 10^{-3} T$  および  $C_{P,O_2} = 6.148 - 3.102 \times 10^{-3} T$  を(19)式に代入して計算するとQは次式となる。

$$Q = 56986 + 2.765 T - 0.482 \times 10^{-3} T^2 \dots\dots\dots (20)$$

Qの温度依存性については比較的小さく、例えば300°Cと25°CのQの値を(20)式より計算して比較すると、前者が後者に比して約2.7%大きくなるだけである。

また、 $C_{P,N_2}$ については熱力学表より  $C_{P,N_2} = 6.524 + 1.250 \times 10^{-3} T$  であるのでQと同様にして計算すると300°Cでの  $C_{P,N_2}$  値が25°Cの値に比して約5.7%大きくなる。

(D) 実験データ

図13 ~ 図15 に実験データの一部を添付する。

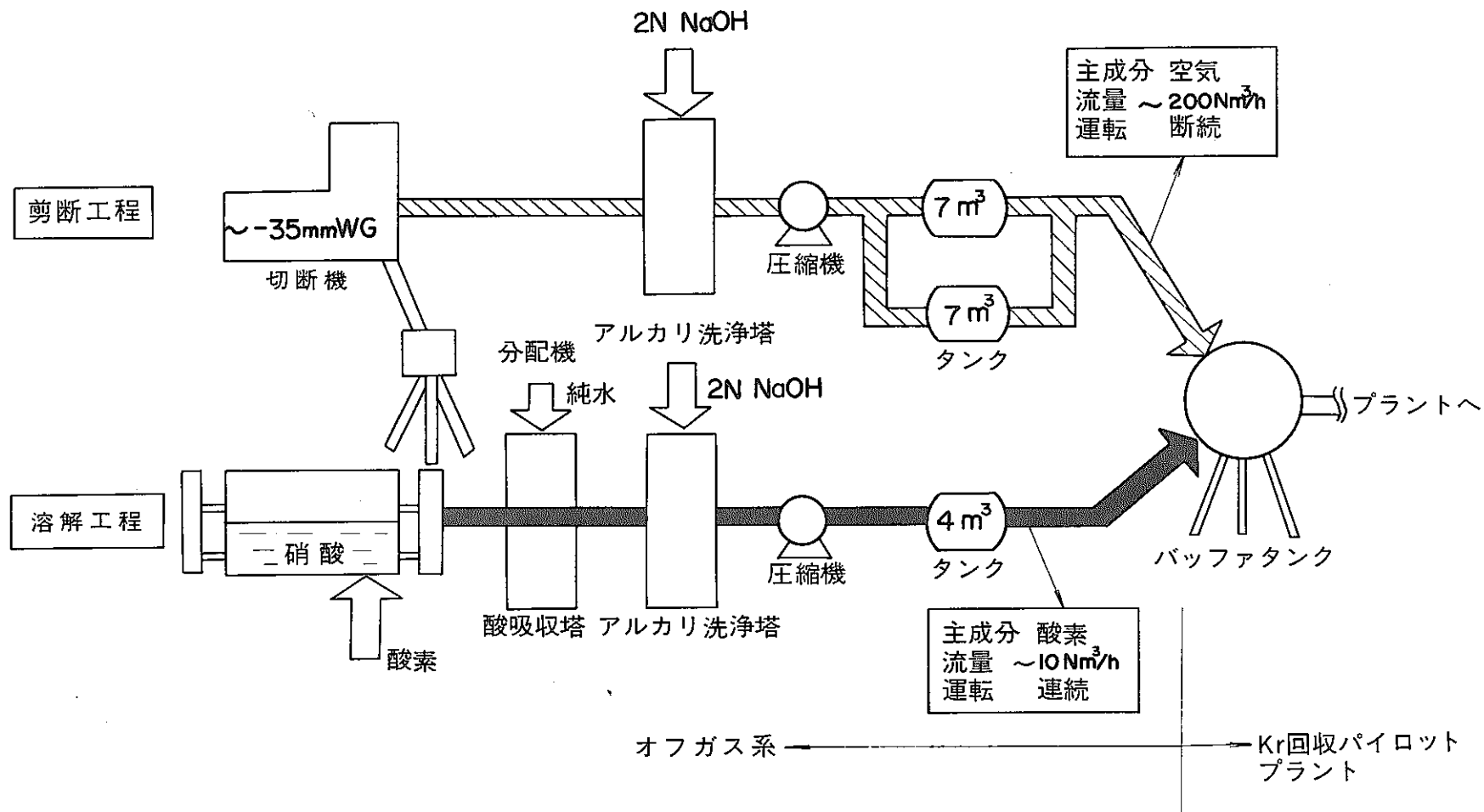


図1 再処理工場オフガス概略図



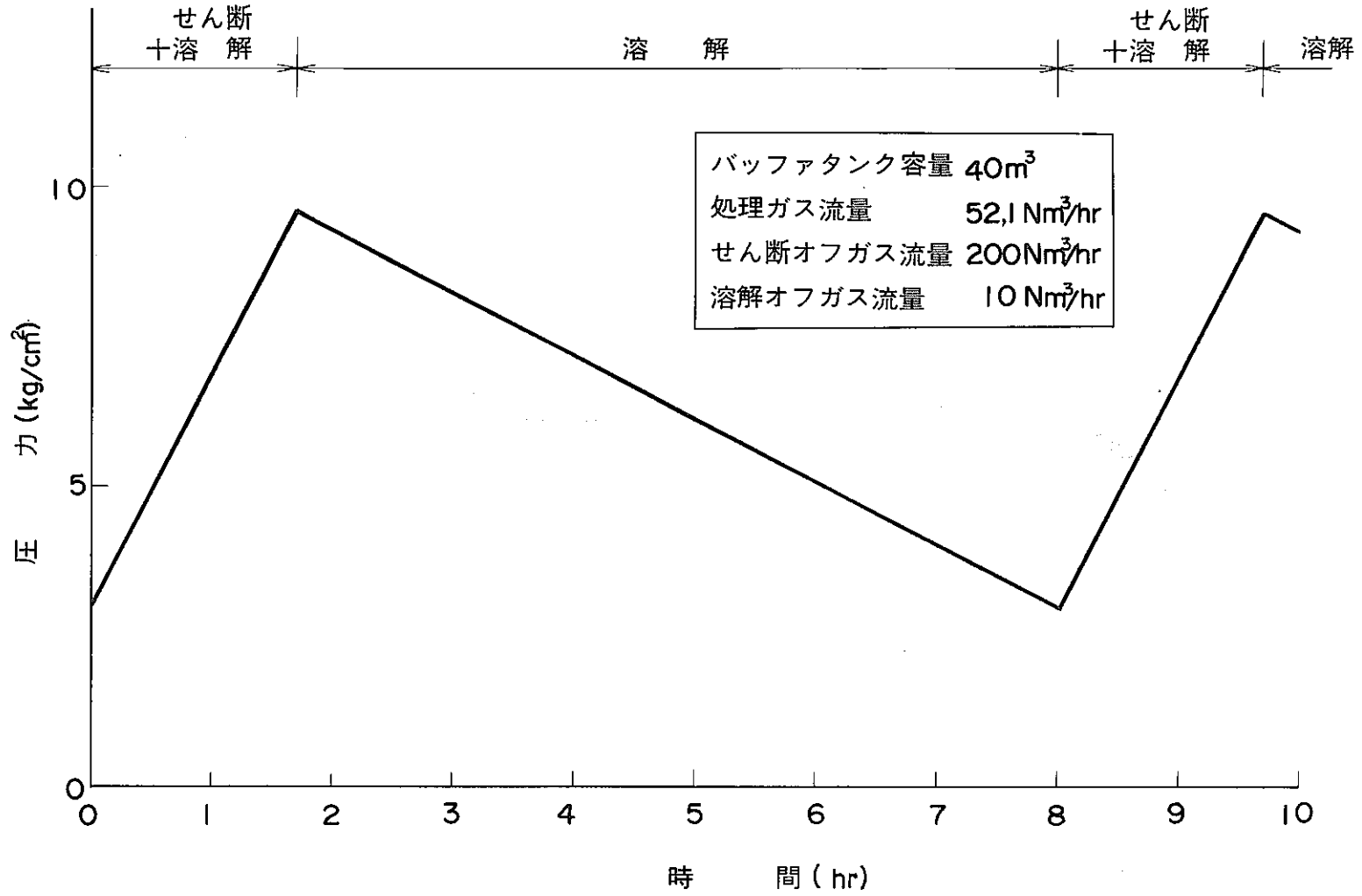


図2 バッファタンクの圧力変動

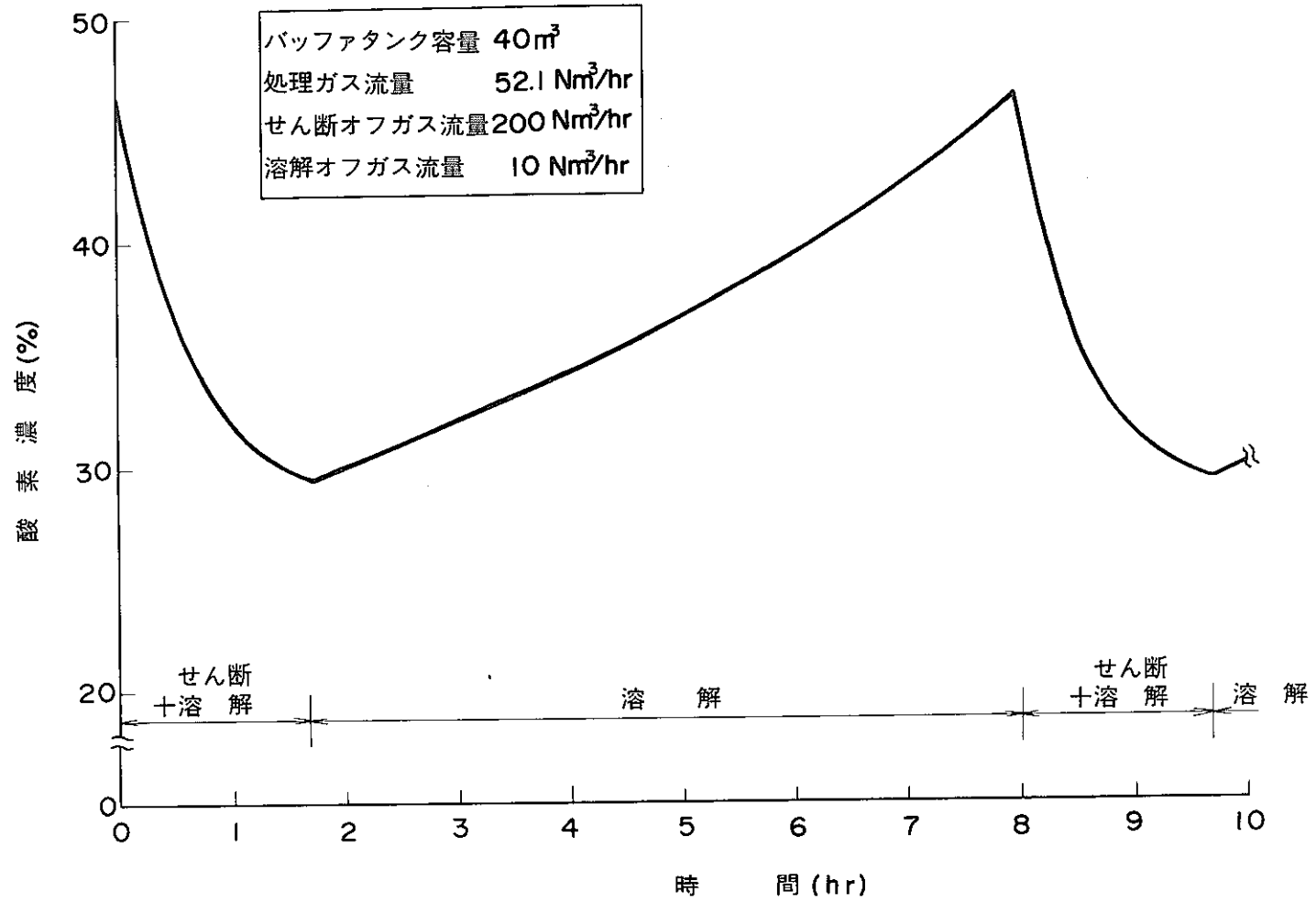


図3 バッファタンクの酸素濃度変動

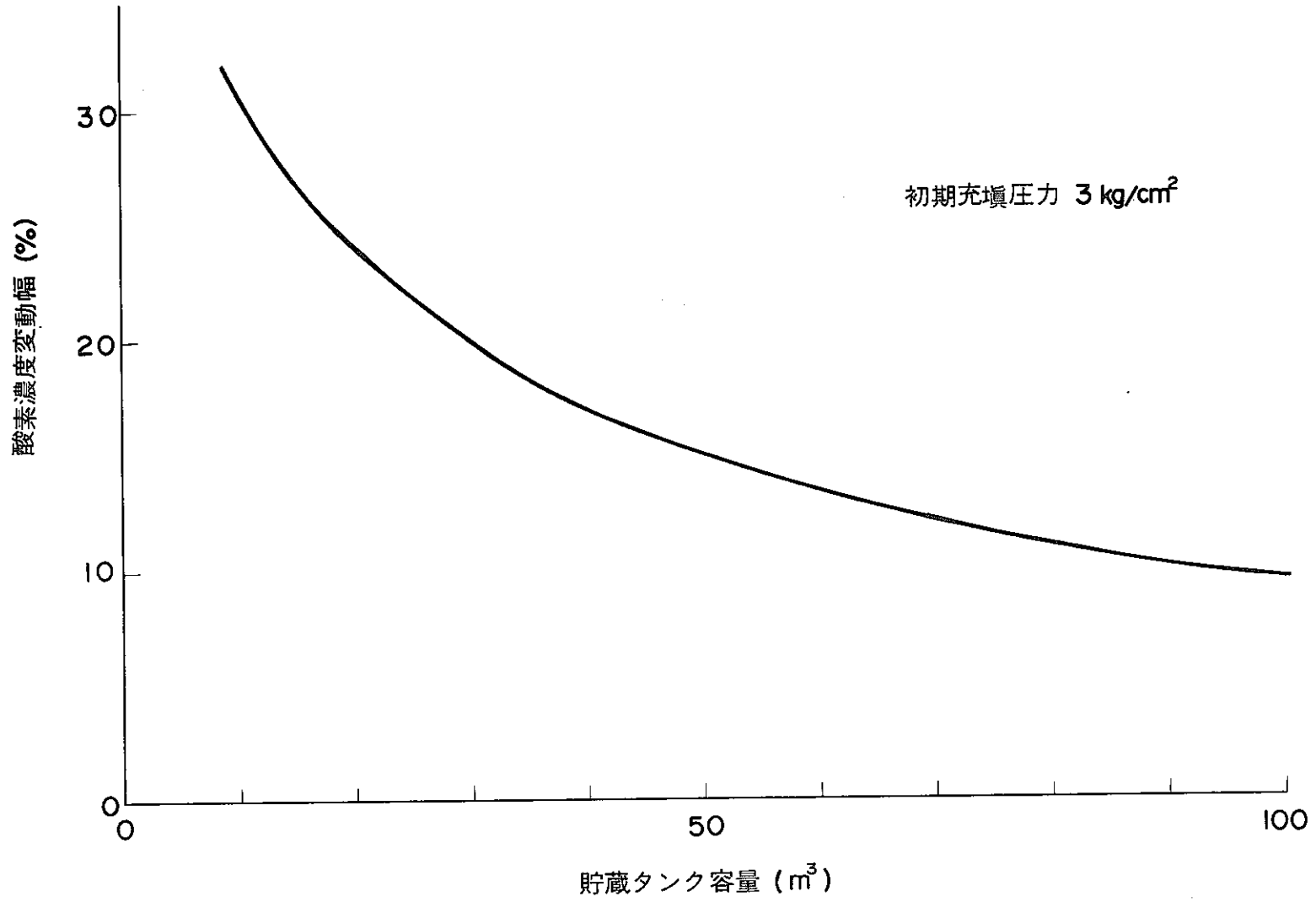


図4 バッファタンク容量と酸素濃度変動幅の関係

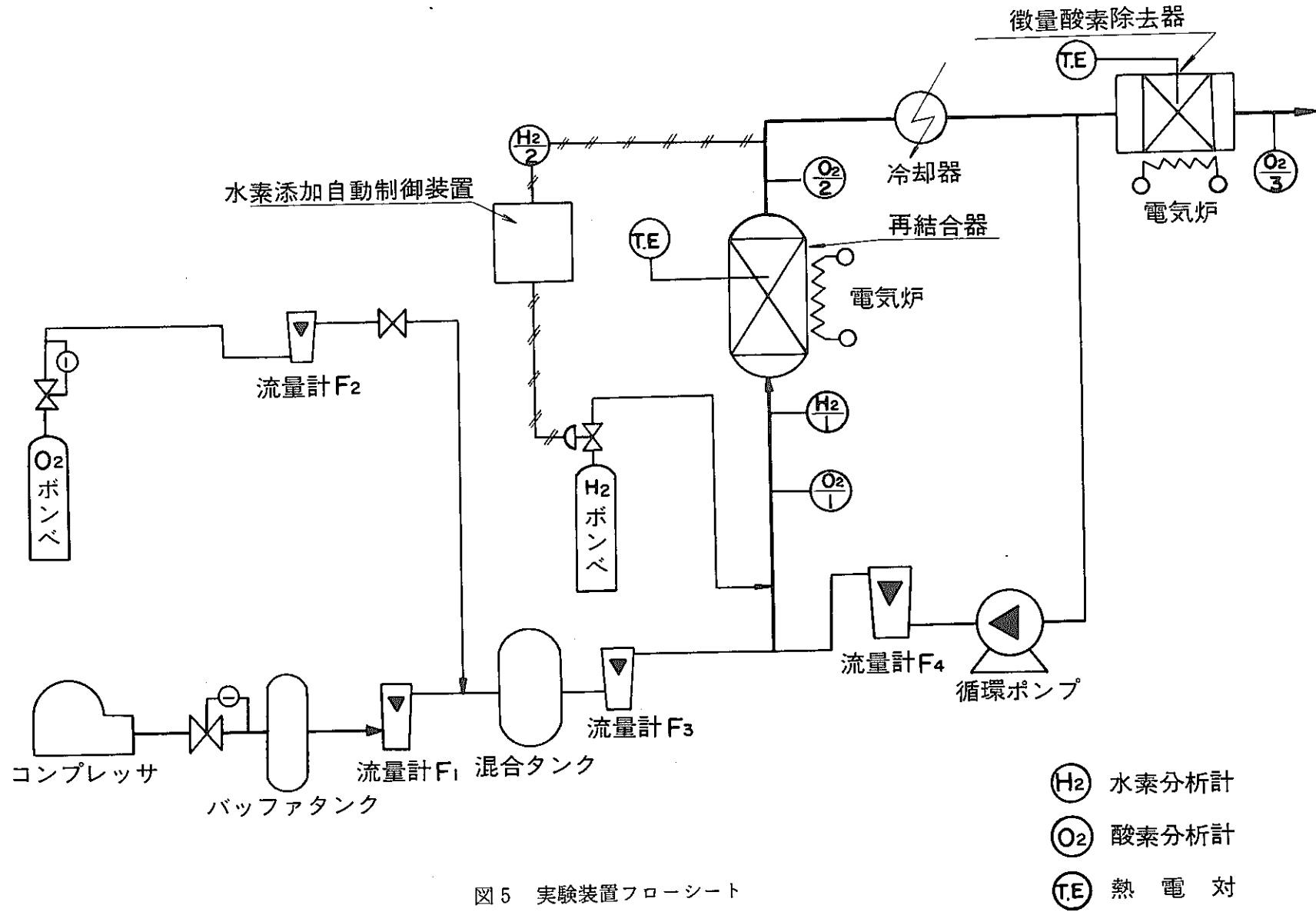


図5 実験装置フローシート

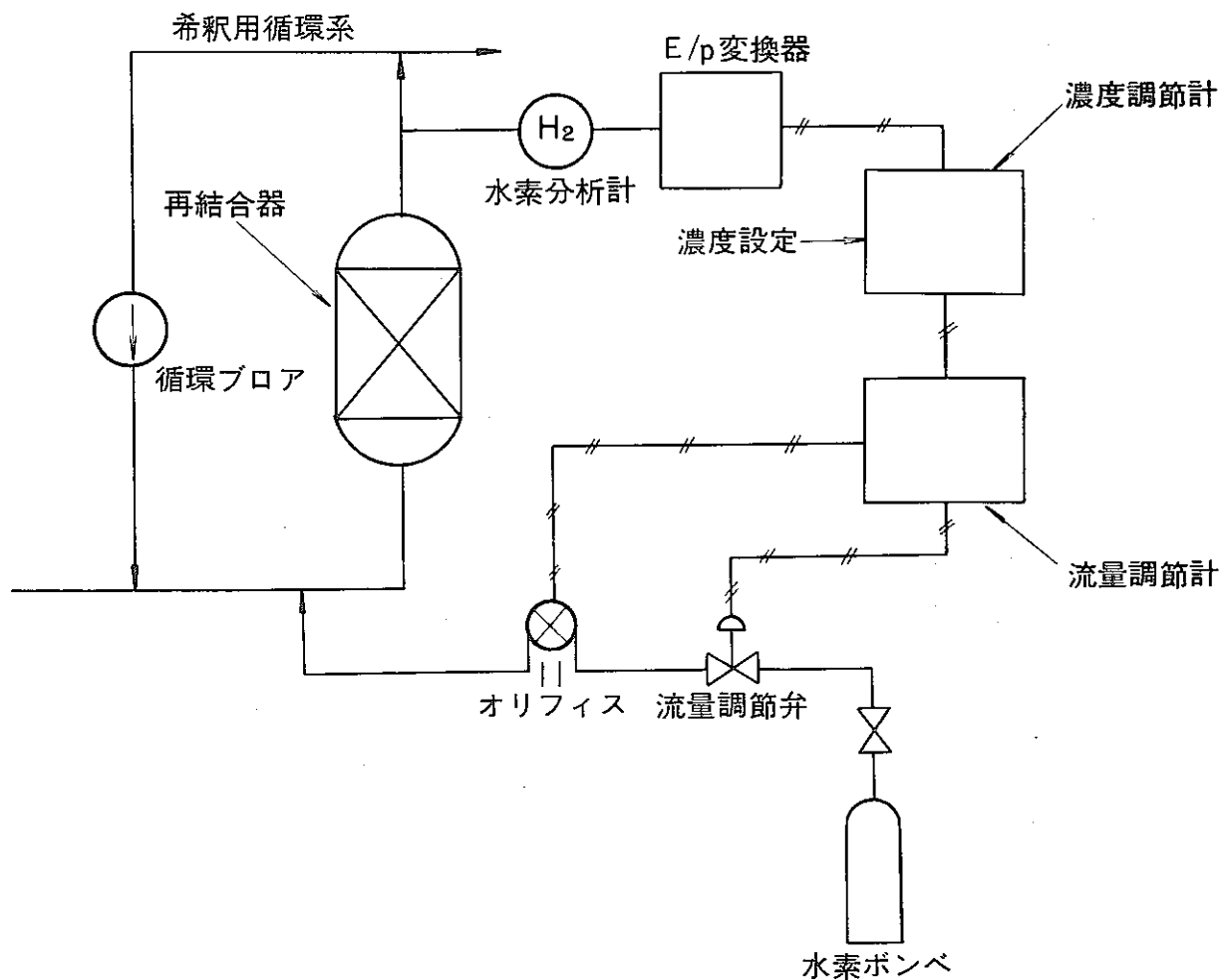


図6 水素添加自動制御系の構成図

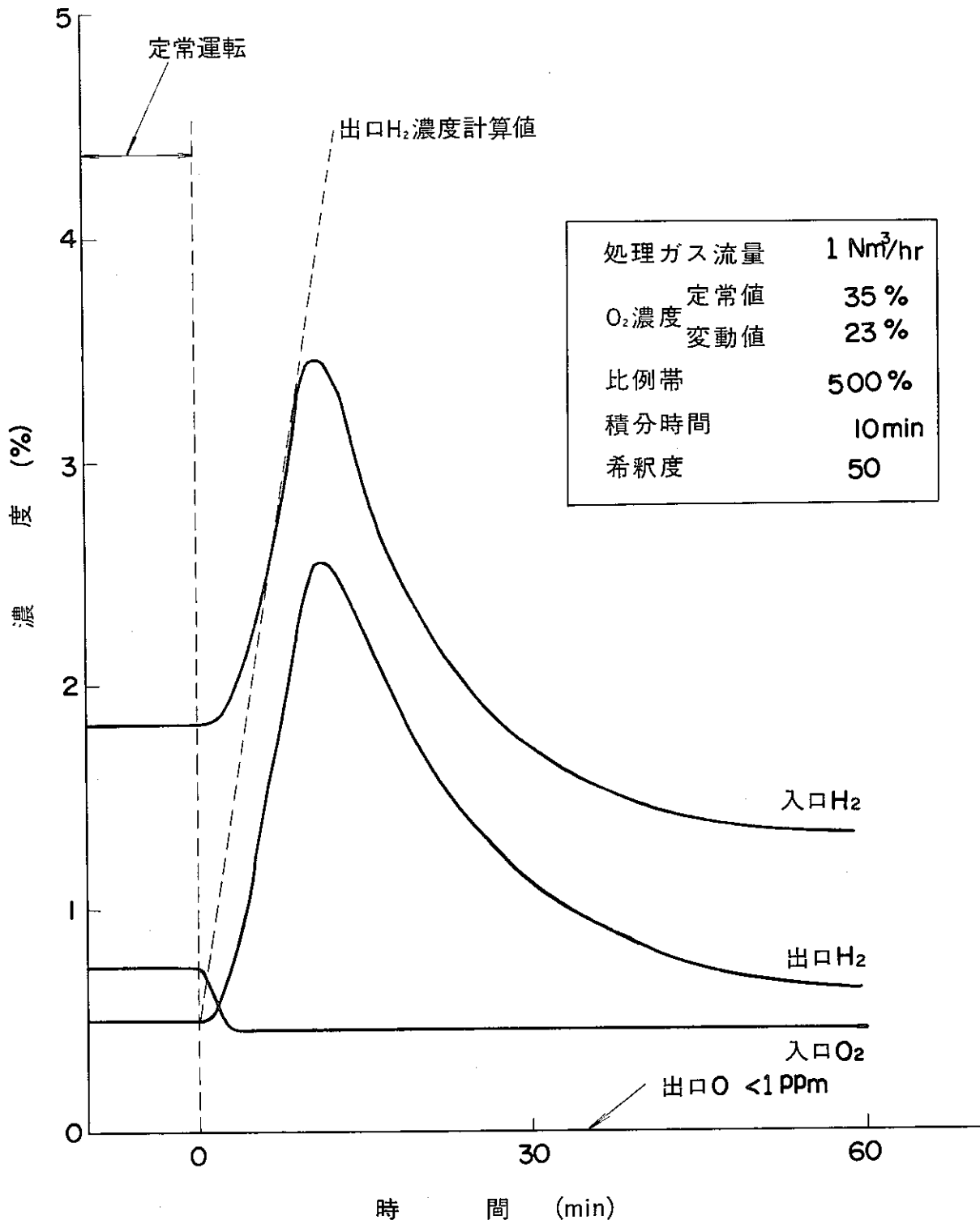


図7 酸素濃度減少時の特性

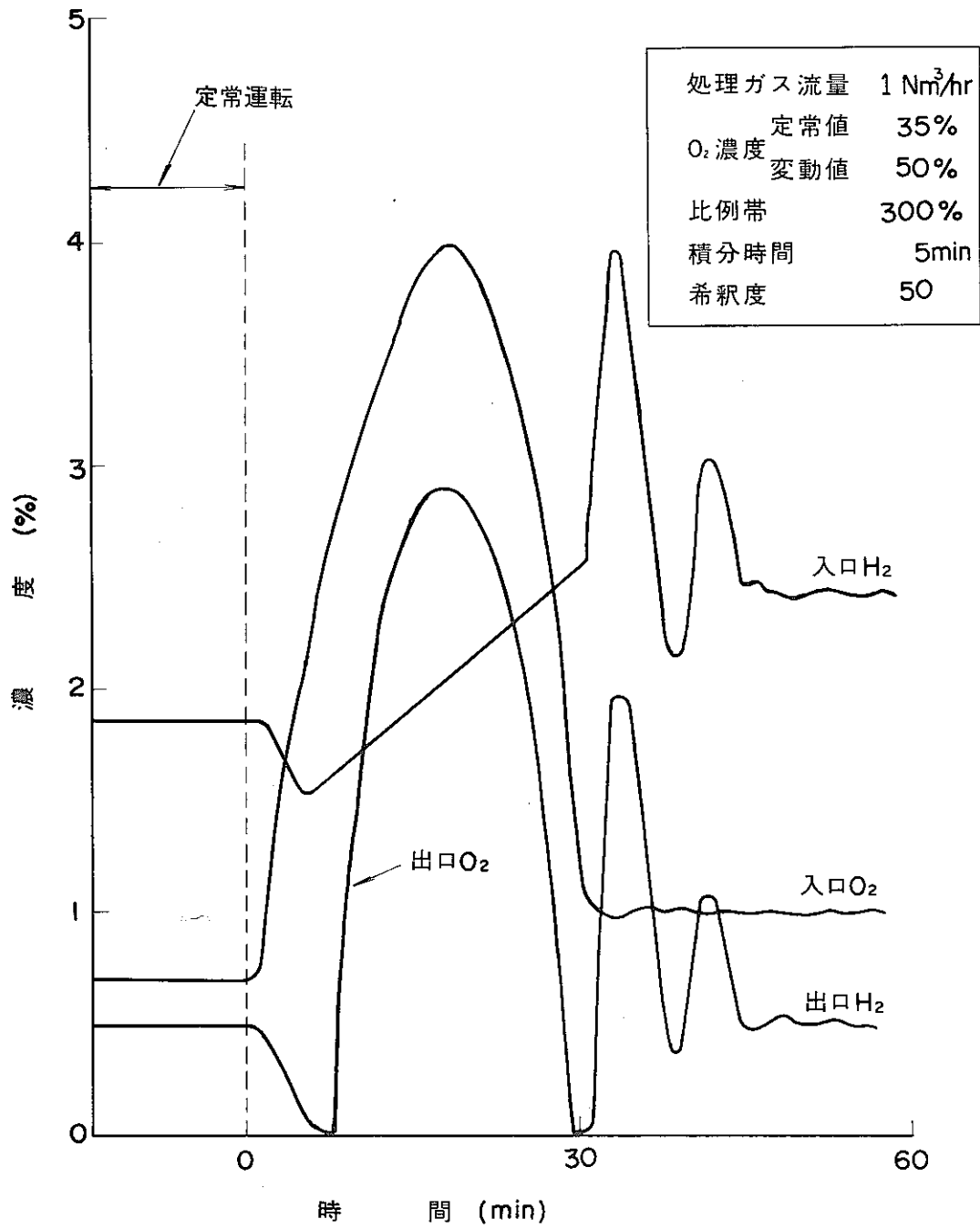


図8 酸素濃度増大時の特性

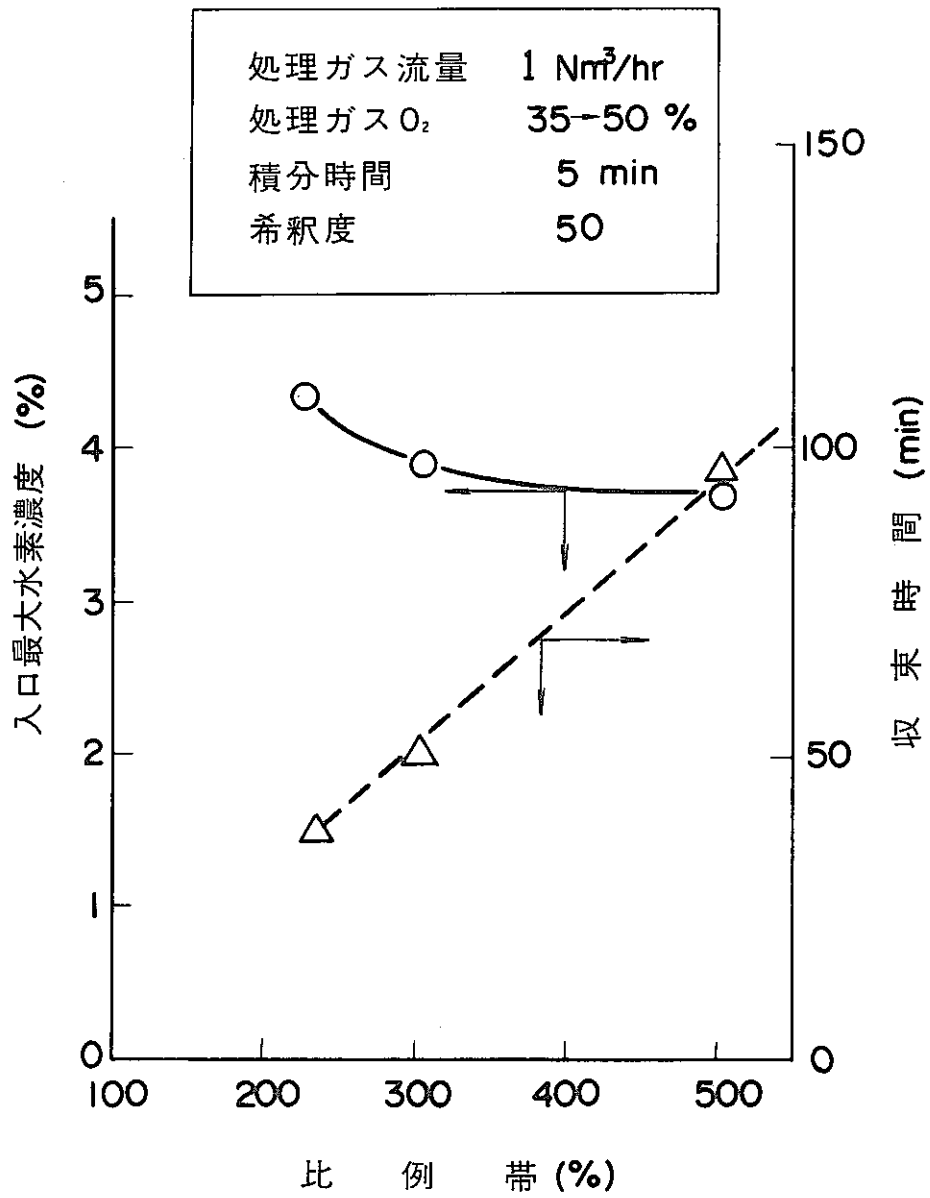


図9 比例帯の影響



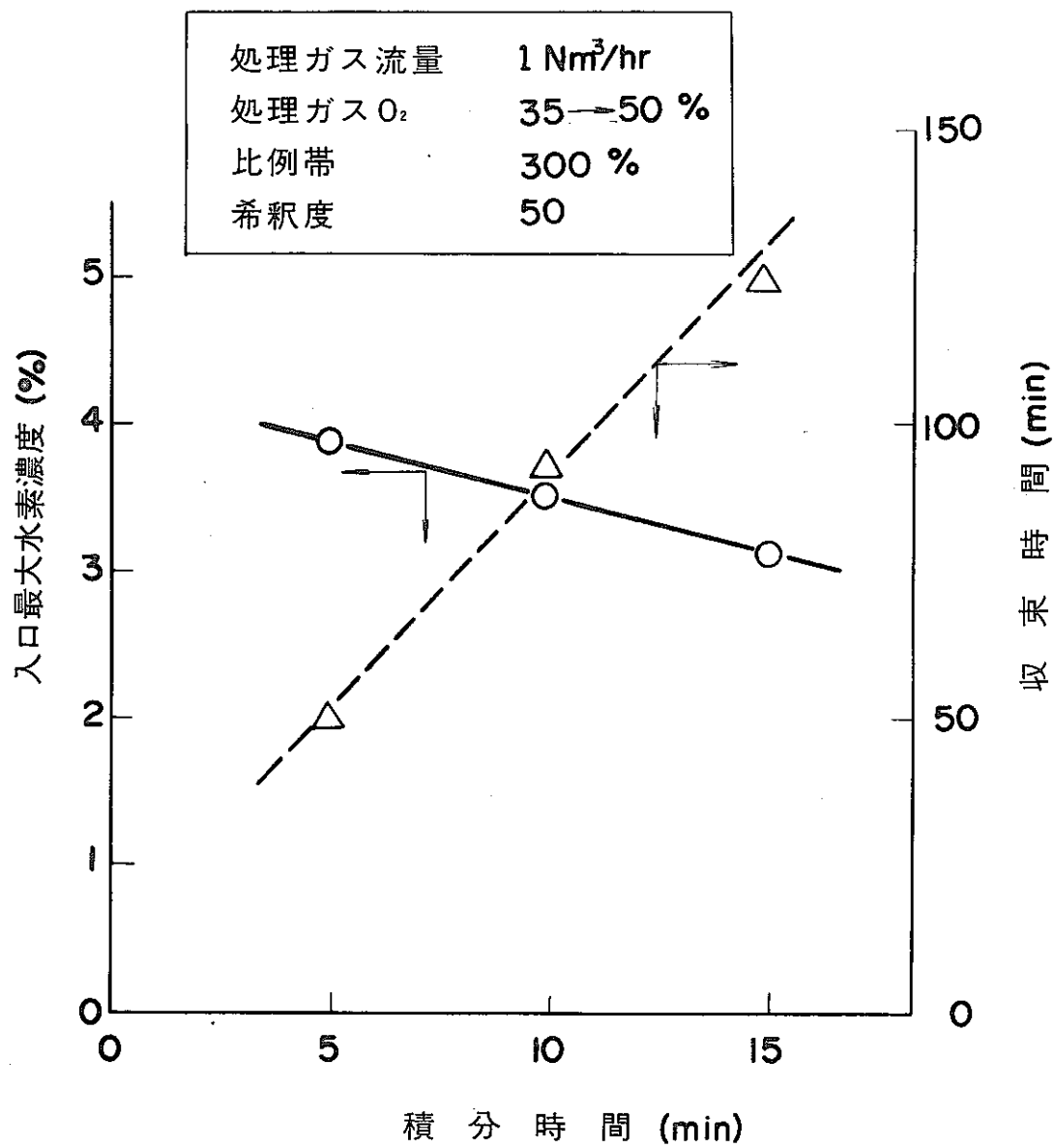


図 10 積分時間の影響

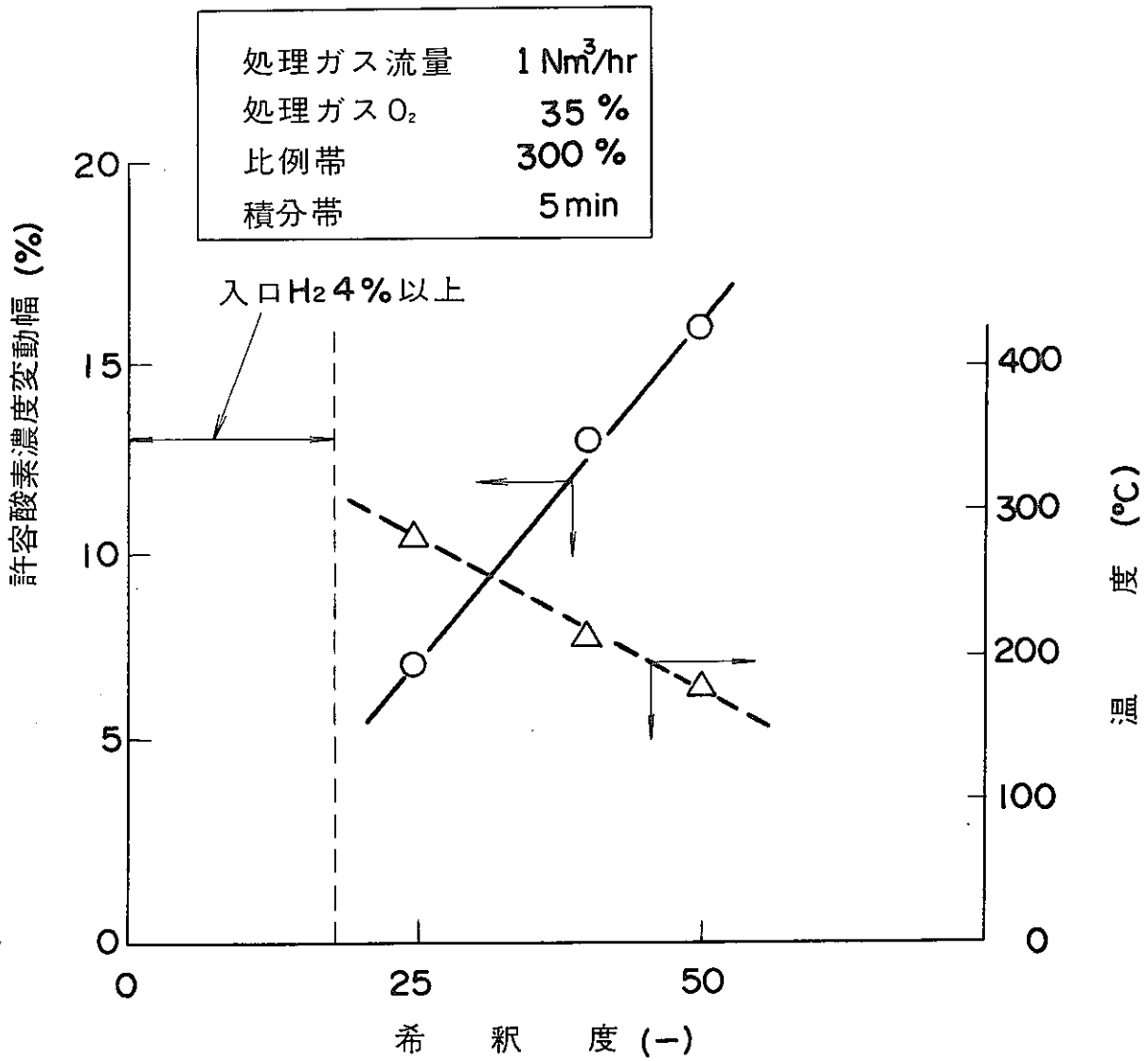


図 11 希釈度の影響

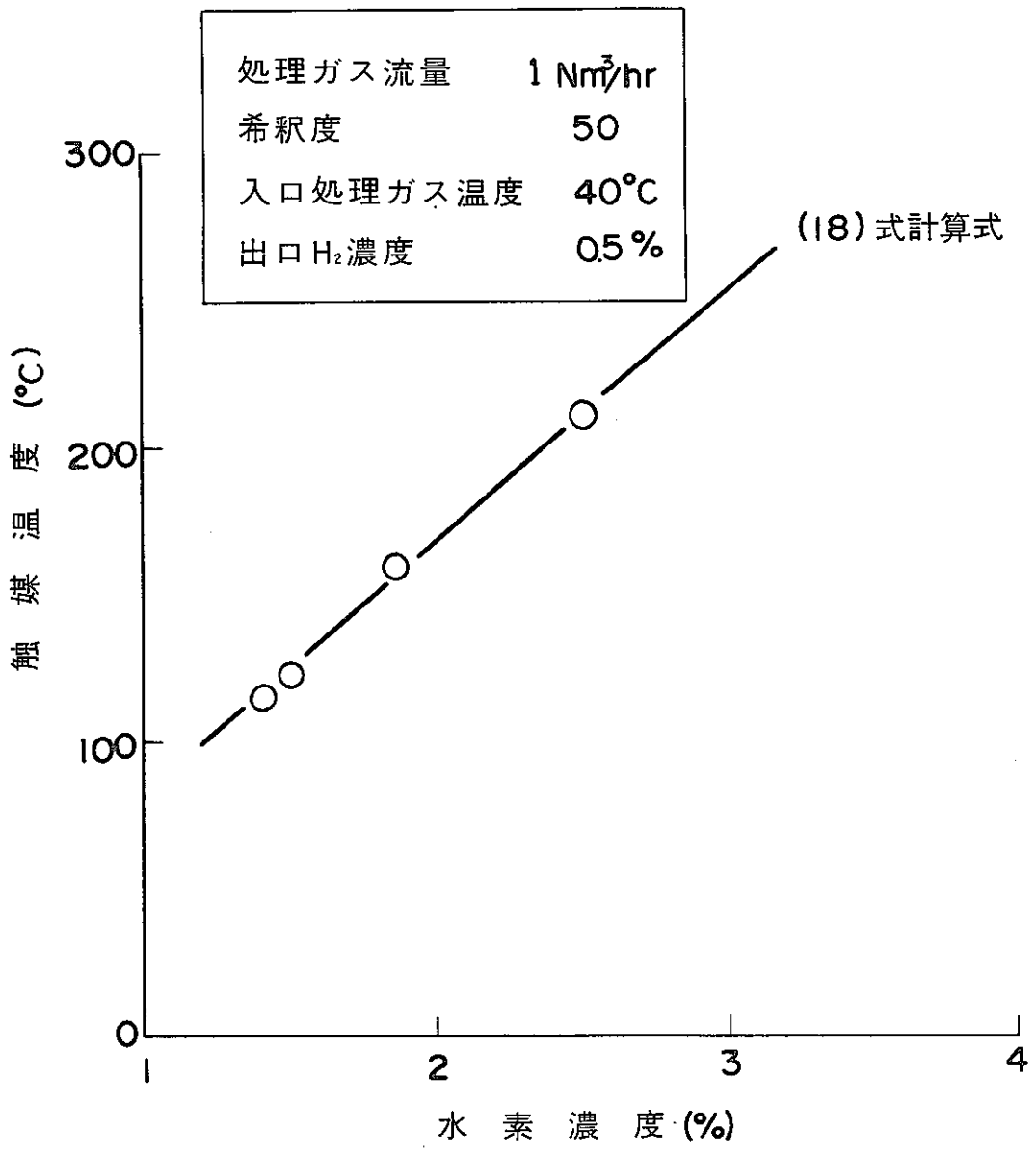


図 12 水素濃度の触媒温度の関係

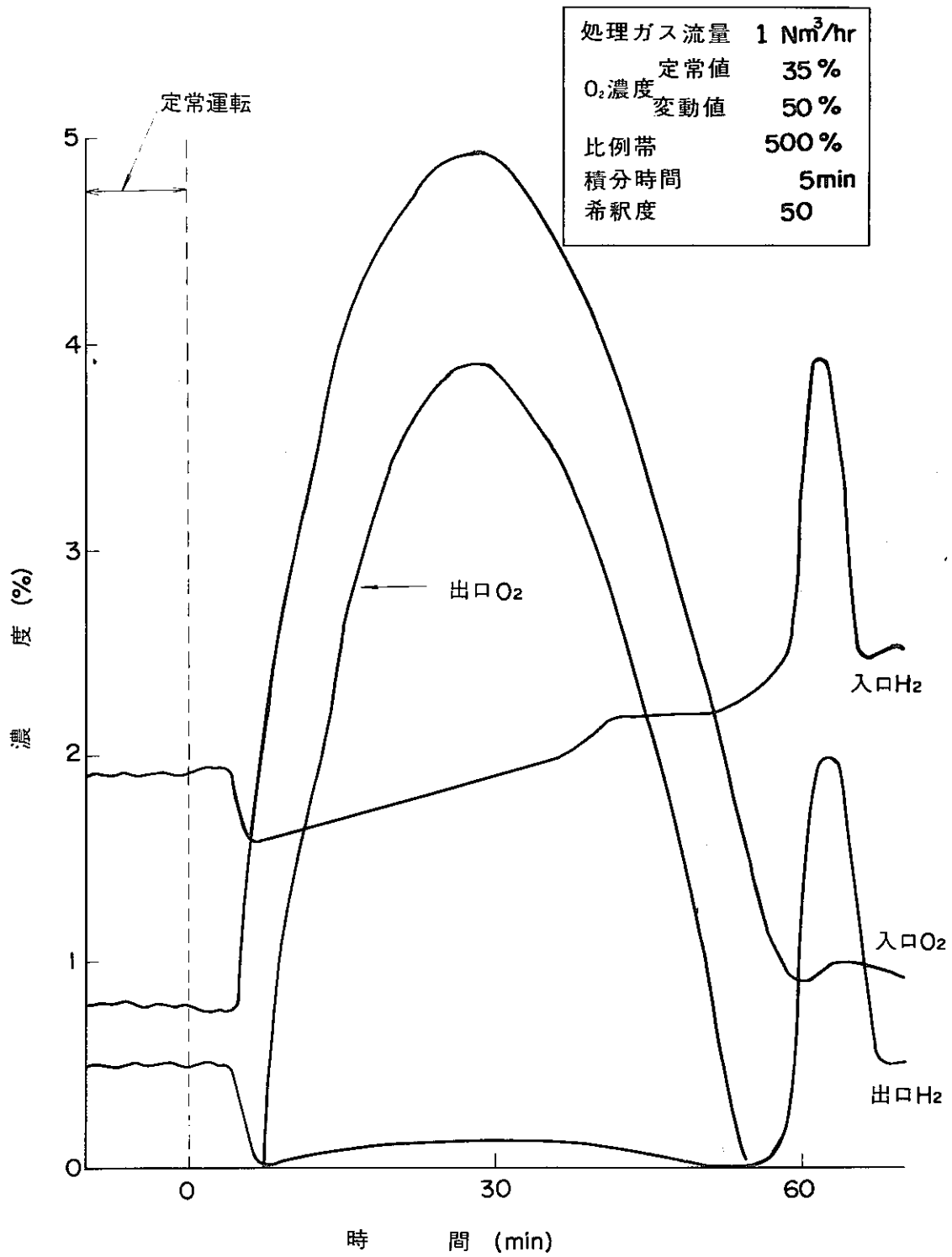


図13 酸素濃度増大時の特性

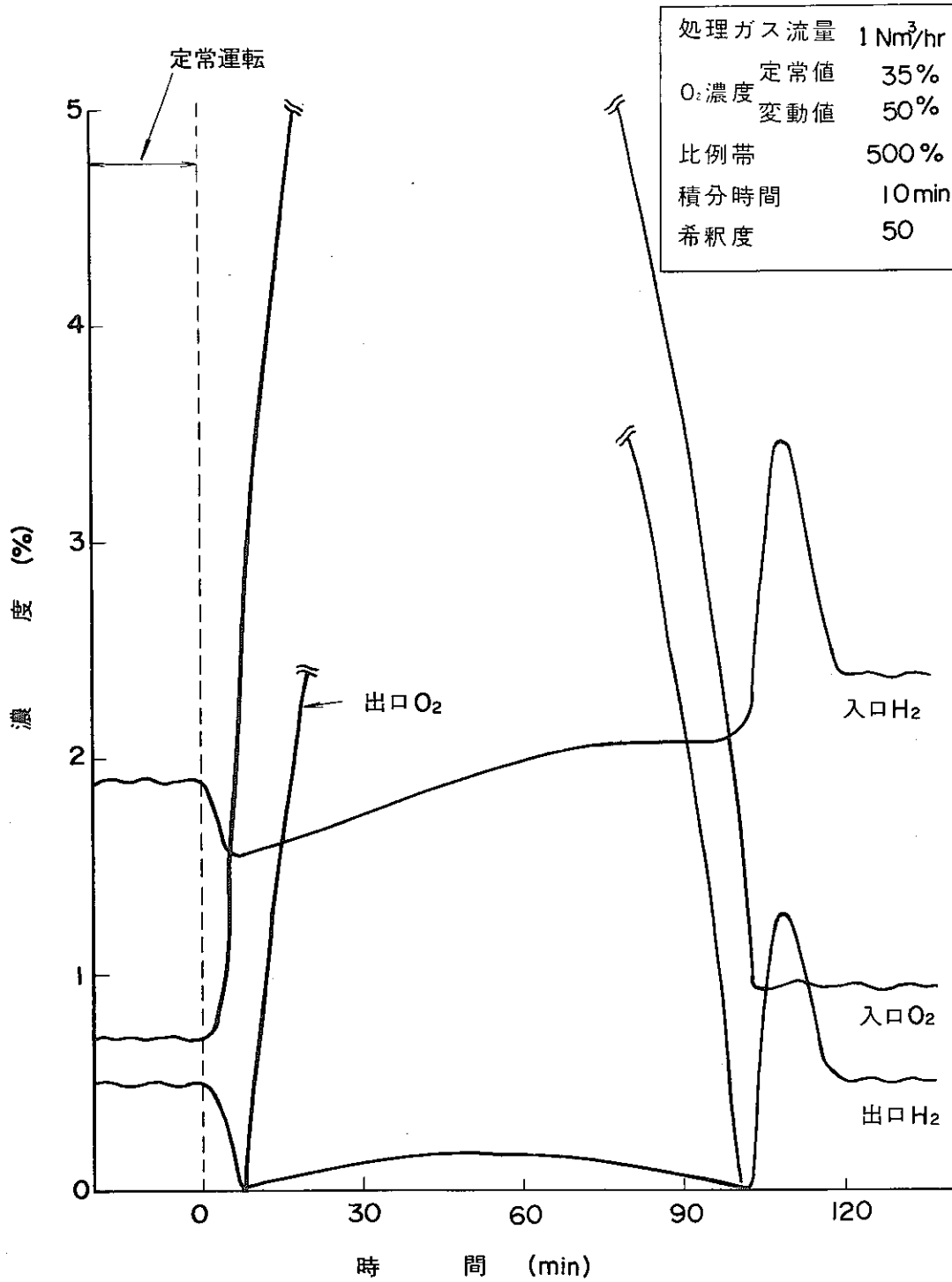


図 14 酸素濃度増大時の特性

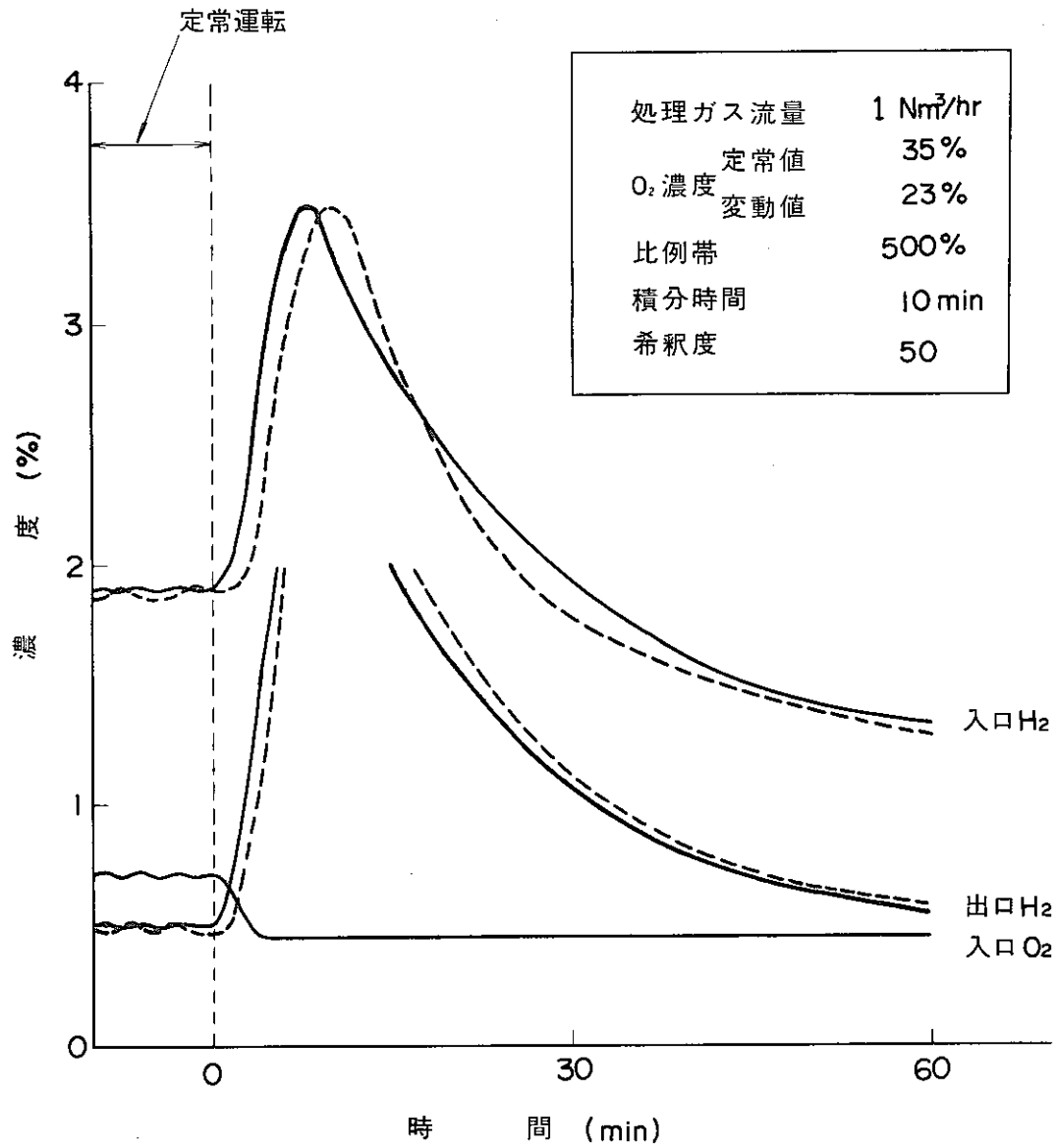


図 15 制御系の再現性

表1 主要機器の仕様

主要機器		仕様		
再結合器	内径 (mm)	155		
	高さ (mm)	1129		
	材質	SUS 304		
	充填量 (ℓ)	11.2		
	含有率 (w/o)	0.29		
	パラジウム触媒	担体	アルミナ	
		形状 (mm)	4~7φ	
充填率 (kg/ℓ)		0.78		
微量酸素除去器	内径 (mm)	155		
	高さ (mm)	1008		
	材質	SUS 304		
	充填量 (ℓ)	4.2		
	含有率 (w/o)	22.25		
	銅触媒	担体	ケイ土	
		形状 (mm)	4.7φ×4.7h	
充填率 (kg/ℓ)		0.67		
分析計	水素分析計	原理	熱伝導式	
		形式・メーカー	TCA-1 (日立)	
		測定範囲 (%)	0~5, 0~5	
	酸素分析計	原理	磁気式	
		形式・メーカー	6390C-10 (日立)	
		測定範囲 (%)	0~5	
	微量酸素分析計	原理	ガルバニー電池式	
		形式・メーカー	AE-303 (三鷹)	
		測定範囲 (ppm)	0~10, 0~100	
制御器	E/P変換器	形式・メーカー	RTR-66 (日立)	
		入力 (mV)	0~10	
		出力 (kg/cm <sup>2</sup> )	0.2~1.0	
	水素濃度設定器	形式・メーカー	PIB <sub>86</sub> -P (日立)	
		比例帯 (%)	5~500	
		積分時間 (min)	0.05~50	
	流量調整器	形式・メーカー	PIB <sub>86</sub> -P (日立)	
		比例帯 (%)	5~500	
		積分時間 (min)	0.05~50	

表 2. 実験条件一覧

処 理 ガ ス	流 量 (Nm <sup>3</sup> /hr)		1.0
	O <sub>2</sub> 濃度 (%)	定 常 値	3.5
		最 大 値	5.0
		最 小 値	2.1
キ ャ リ ア		N <sub>2</sub>	
再 循 環 系	流 量 (Nm <sup>3</sup> /hr)		25 ~ 50
	圧 力 (kg/cm <sup>2</sup> G)		1.0
再 結 合 器	温 度 (°C)		100 ~ 200
	入 口 濃 度 (%)	H <sub>2</sub>	1 ~ 4
		O <sub>2</sub>	0.5 ~ 5
	H <sub>2</sub> 濃度設定値 (%)		0.5
微 量 酸 素 除 去 器	流 量 (Nm <sup>3</sup> /hr)		0.65
	温 度 (°C)		300
濃 度 調 節 計	比 例 帯 (%)		200 ~ 500
	積 分 帯 (min)		5 ~ 15
流 量 調 節 計	比 例 帯 (%)		200
	積 分 帯 (min)		1/20