

---

## 同位体ガスのパルス・非定常拡散による濃縮分離に関する研究

Studies on isotopic enrichment/separation by pulse-transient diffusion process

代表研究者	横浜国立大学工学部教授 若尾 法昭 Prof., Faculty of Eng., Yokohama National Univ.	Noriaki WAKAO
協同研究者	横浜国立大学工学部教授 山本 一夫 Prof., Faculty of Eng., Yokohama National Univ.	Kazuo YAMAMOTO
	横浜国立大学工学部助手 谷生 重晴 Res. Assoc., Faculty of Eng., Yokohama National Univ.	Shigeharu TANISHO
	横浜国立大学工学部助手 佐藤 行成 Res. Assoc., Faculty of Eng., Yokohama National Univ.	Yukinari SATOH

A steady Knudsen diffusion has been utilized as one of the promising isotopic separation techniques. This makes use of the fact that the Knudsen diffusion coefficient is inversely proportional to the square root of the molecular weight of the diffusing species. In case of a uranium enrichment, the difference in molecular weight between  $^{238}\text{-UF}_6$  and  $^{235}\text{-UF}_6$  is 0.86% so that 0.429% is the highest enrichment attainable for  $^{235}\text{-UF}_6$  when diffusing through a porous membrane under steady-state condition. However, a considerable increase in the enrichment, say 1-2% enrichment, is predicted from theory when the gas is imposed as a pulse on one surface of the porous membrane and a gas diffused out from the other surface of the membrane at short time is collected. When to upgrade the  $^{235}\text{-UF}_6$  concentration from 0.7% (concentration in nature) to 3% (as a light water nuclear reactor fuel) 200-300 diffusion stages are required under a pulse diffusion condition, while 731 stages are needed in steady diffusion. Also, an amount of the 3%-concentration product obtained from the final stage is 3-4 times that of steady process. Running-belt and rotary-disk concentrators are then proposed for the enrichment of light species based on the pulse diffusion process.

The pulse diffusion may also be applied to enrich/separate heavier species. Examples are given of enrichment of HD slightly contained in hydrogen gas and the recovery of HT in a gas mixture with hydrogen. A laboratory scale apparatus for enriching heavier species was built with a porous Vycor glass plate as a separating membrane. Measurements made with various binary gas systems showed that the measured data were in good agreement with those predicted from the theory.

---

研究代表者の若尾は多孔質粒子内のガス拡散や細孔構造、およびそれら粒子層（吸着剤粒子層や触媒粒子層など）を流れるガスの濃度変化に対する粒子層のダイナミックな応答特性について長い研究歴がある。吸着力の差を利用して混合ガス中のある成分を除くことはできるが、同位体ガスの場合には特殊な条件（極低温や特殊の吸着剤）を除けば吸着力にほとんど差はない。同位体とはそもそも原子番号が同じで原子量だけが異なる元素

である。

それではこの質量の差を利用してダイナミックな方法で同位体を分離できないかと種々理論検討をした結果、マイクロ細孔のみをもつ多孔質膜にパルス状にガスを印加し、膜の反対側の面から時間の短いうちに拡散して出てくるガス中に分子量の小さい軽成分が非常に多く含まれていることが分かった。ここでマイクロ細孔というのはガス分子の平均自由行程より小さな径の細孔のことで、こう

した細孔内ではガス分子が細孔壁と衝突を繰り返しながら移動してゆく。これをクヌッセン拡散（またはクヌッセン流れ）といい、クヌッセン拡散係数はガス分子量の平方根に反比例する。つまり分子量の小さい軽成分ガスほど速く細孔内を移動するのである。

実際、米国でウラン濃縮を初めて大規模プラントで行なったのはマイクロ細孔のみをもつ多孔性のテフロン膜による定常クヌッセン拡散である。天然ウランは約99.3%の $^{238}\text{U}$ と約0.7%の $^{235}\text{U}$ の混合物である。ガス拡散させるために六フッ化ウランにするが、 $^{235}\text{UF}_6$ を濃縮するのにマイクロ細孔内のクヌッセン拡散を用いるのである。 $^{235}\text{UF}_6$ の分子量は349、 $^{238}\text{UF}_6$ のそれは352であり、その分子量には0.86%の違いがあり、平方根にすると0.429%の差になる。したがって1回のクヌッセン拡散で $^{235}\text{UF}_6$ は最高で0.429%濃縮されることになる。これは拡散前に対する相対値であって、絶対値0.7%のものから、たとえば軽水炉燃料として必要な濃度3%まで $^{235}\text{UF}_6$ を濃縮するにはこの拡散を実際に1000段近く行なうが必要になる。ところがダイナミックな方法では $^{235}\text{UF}_6$ の濃縮率を0.4%ではなく、1~2%にも高め得るのである。ダイナミックな方法にも各種あるが最も効果的なのはマイクロ細孔の多孔質膜の一面にガスをパルスとして印加し、印加直後に膜の反対側の面から出てくるガスを集めるのがよい。

定常拡散よりなぜパルス拡散のほうがよいか、その物理的意味を理解するには運動会の競争を考えるとよい。何人かの人達が一斉にスタートするのが普通の競争だが、もし何百人もの人達が連続的にスタートしているとしよう。この場合ゴールには足の早い人も遅い人も一緒に現れてくる。足の早い人はより短い時間で走り、遅い人は余計に時間がかかっているだけである。もちろん、普通のレースは一団の人が一斉にスタートするパルス入力である。ゴールには初め足の速い人だけが現れてくる。ガスのパルス拡散もこれと同じである。パルス印加して直ぐに膜の反対側から出てくるガス中には足の速い軽成分が多量に含まれてい

る。したがってパルス印加のあと早く出てくるガスを集めることで軽成分を高濃縮するのがパルス拡散の特長である。パルス印加のあと多孔質膜のマイクロ細孔内の残存ガスを除くことが必要で、これがダイナミックな方法のめんどろな点ではあるが、1回の拡散でこのように高濃縮することは定常拡散ではでき得ないことである。

このようにパルス拡散により、軽成分を多量に含むガスを系外に除去することで系内の残存ガス中で重成分を濃縮することもできる。以下にパルス拡散の理論、計算、実験装置、測定結果などについて述べる。

## 理 論

まず、マイクロ細孔をもつ多孔質膜の物性について次の定義をする。

$a$  = 細孔空隙率

$D_e$  = 有効拡散係数

$L$  = 膜厚さ

この多孔質膜の一面にガスを濃度 $C_0$ 、時間 $t_0$ のパルスで印加し、そのあとこの面を圧力ゼロにする。また、ガス印加と反対側の面は常に圧力をゼロとする。基礎式および条件は次のようである。

$$a \frac{\partial C}{\partial t} = D_e \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} \quad (1)$$

$$t=0, \quad C=0$$

$$x=0, \quad C=C_0 \quad 0 < t < t_0$$

$$C=0 \quad t > t_0$$

$$x=L, \quad C=0 \quad t > 0$$

ガスは多孔質膜の反対側の面から出てゆすが、その拡散流束は

$$Q = -D_e \left( \frac{\partial C}{\partial x} \right)_L \quad (2)$$

$$= \frac{C_0 D_e A}{L} \quad (2a)$$

ここで

$$A = 1 + 2 \sum_{n=1}^{\infty} (-1)^n \exp[-(n\pi)^2 T], \quad 0 < t < t_0 \quad (2b)$$

$$A = 2 \sum_{n=1}^{\infty} (-1)^n \{ \exp[-(n\pi)^2 T] - \exp[-(n\pi)^2 (T - T_0)] \}, \quad t > t_0 \quad (2c)$$

$$T = \frac{D_e t}{aL^2}, \quad T_0 = \frac{D_e t_0}{aL^2} \quad (2d)$$

時間  $0-t_e$  間の拡散ガスの総量は :

$$S = \int_0^{t_e} Q dt \quad (3)$$

$$= aLC_0B \quad (3a)$$

$$B = T_e + 2 \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(-1)^n}{(n\pi)^2} \{1 - \exp[-(n\pi)^2 T_e]\}, \quad t_e < t_0 \quad (3b)$$

$$B = T_0 - 2 \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(-1)^n}{(n\pi)^2} \{ \exp[-(n\pi)^2 T_e] - \exp[-(n\pi)^2 (T_e - T_0)] \}, \quad t_e > t_0 \quad (3c)$$

なお、パルス印加終了後、印加の面 ( $x=0$ ) から出てくるガスの拡散流束は

$$Q' = 2 \frac{C_0 D_e}{L} \sum_{n=1}^{\infty} \{ \exp[-(n\pi)^2 (T - T_0)] - \exp[-(n\pi)^2 T] \} \quad (4)$$

さて、式 (1) - (4) は単成分のガスを印加した場合であり、混合ガスの場合には混合ガス中の各成分についてこれらの式がそのまま成り立つ。たとえば、2成分系ガスの場合には、軽成分 (分子量が小さい) を上添字 I, 重成分 (分子量が大きい) を上添字 II で区別すれば、式 (1) - (4) において  $C_0, D_e, T, T_0$  をそれぞれ  $C_0^I, D_e^I, T^I = D_e^I t / (aL^2), T_0^I = D_e^I t_0 / (aL^2)$  とすれば軽成分についての  $Q^I, S^I, (Q')^I$  の式となる。同様に重成分については  $C_0^{II}, D_e^{II}, T^{II} = D_e^{II} t / (aL^2), T_0^{II} = D_e^{II} t_0 / (aL^2)$  とすれば  $Q^{II}, S^{II}, (Q')^{II}$  の式が得られる。

パルス印加とそのあと脱ガス時における多孔質固体内のガス濃度変化

例としてアメリカ・コーニングガラス社の多孔質バイコールガラス #7930 の厚さ  $L=5.22$  mm のものを用い、印加ガスとしては水素 ( $H_2$ ) と重水素 ( $D_2$ ) の成分混合ガスを使用し、バイコールガラス板の一面にこのガスを印加したときの板内のガス進入状態を図1に示す。また、例として  $t_0=0.5$  秒のパルス印加後バイコールガラス板両面からガスを脱気する間の板内のガス濃度変化を図2に示す。なお、この計算に当たってバイコールガラス板について下記の物性を用いた。

空隙率  $a=0.28$

板厚さ  $L=5.22$  mm

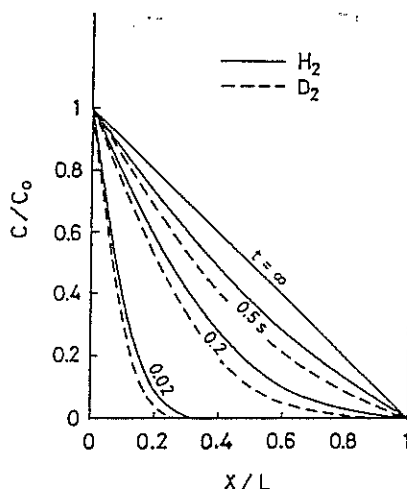


図1.  $H_2$ - $D_2$  ガスがパルス印加された時のバイコールガラス板内へのガス進入状態

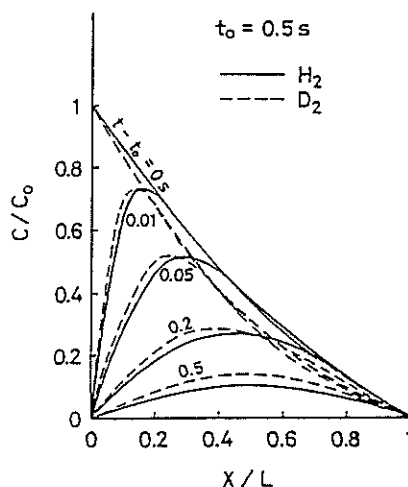


図2.  $H_2$ - $D_2$  ガスパルス印加のあと脱ガス時のバイコールガラス板内の残留ガス時間変化

有効拡散係数 ( $H_2$  についての測定値)

$$D_e^{H_2} = 2.47 \times 10^{-7} m^2 \cdot s^{-1}$$

有効拡散係数 ( $D_2$  について)

$$D_e^{D_2} = 1.74 \times 10^{-7} m^2 \cdot s^{-1}$$

図1から分かるように、軽成分の  $H_2$  のほうが速やかに板内へ進入し、また脱気のときも図2から分かるように  $H_2$  が速やかに板外に出てゆくのである。

パルス拡散による軽成分濃縮—ウラン濃縮例

2成分ガスを多孔質固体の一面に時間  $t_0$  のパルス印加をし、同じ時間  $t_0$  の間に固体内を拡散して反対側の面から出てくるガスの総量は、軽成分については、 $(S(t_0))^I$ 、重成分については  $(S(t_0))^{II}$  である。すなわち、軽成分と重成分の濃度比は印加ガスと拡散通過後のガス中で次のようになる。

軽成分 / 重成分の濃度比

$$\text{印加ガス} \quad \frac{C_0^I}{C_0^{II}} \quad (5)$$

$$\text{拡散通過後のガス} \quad \frac{(S(t_0))^I}{(S(t_0))^{II}} = \frac{C_0^I}{C_0^{II}} \frac{(B(t_0))^I}{(B(t_0))^{II}} \quad (6)$$

$$= \frac{C_0^I}{C_0^{II}} (1+R) \quad (6a)$$

上式で定義される  $R$  が軽成分の最大濃縮率である。

ウラン濃縮の場合には、軽成分  $I=235\text{-UF}_6$ 、重成分  $II=238\text{-UF}_6$  であり、この場合に  $R$  とパルス時間、拡散ガス捕集時間との関係は理論的に図3に示すようになる。 $T_0 = D_e t_0 / (aL^2) = 0.02 \sim 0.06$  の範囲で、いずれも拡散ガス捕集時間が小さいと  $R$  が大きくなることが分かる。また捕集時間が大になると、いずれの場合も  $R=0.429\%$  になるが、これが定常拡散で達し得る最大濃縮率である。

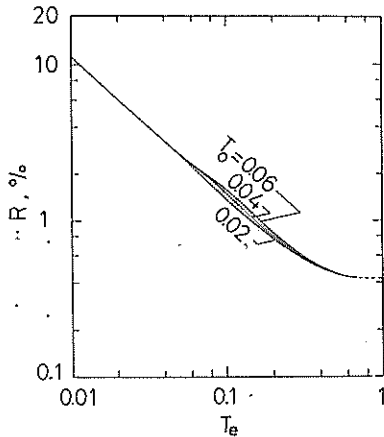


図3. ウラン濃縮での  $235\text{-UF}_6$  の最高濃縮率  $R$  と  $T_0$ ,  $T_e$  の関係

Running-belt, Rotary-disk 型の軽成分濃縮器

パルス拡散の原理によって軽成分を濃縮する装置として若尾は図4に示す Running-belt 型のもと、図5に示す Rotary-disk 型のを提案した。前者は2枚の多孔質膜がベルト状に走り、後者は多孔質円板がその中心を軸として回転する。両者とも部屋①がガス印加室であり、多孔質体のどの部分もこの部屋①内に  $t_0$  時間滞留することによりその間パルス印加を受ける。多孔質体の一面がガス印加を受ける間に、この多孔質体の反対側の面から拡散して出てくるガスを部屋②, ③で捕集する。このようにガス印加時間と拡散ガス捕集時間とは等しい。部屋④は脱気室で、多孔質体がこの部屋を走り抜ける間に多孔質体細孔内のガスが除去される。

前述の記号に加えて更に次を定義する。

$A_c$  = 多孔質体の片面の面積

$h$  = 二つの多孔質体間の距離

$t_r$  = 多孔質体が部屋①, ④を1回走り抜ける時間

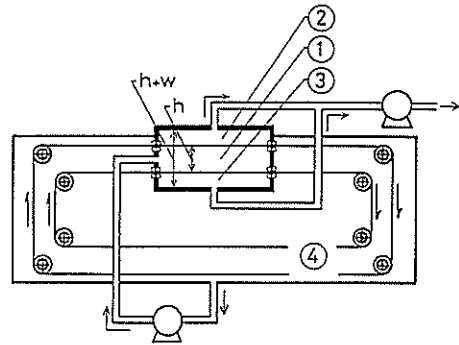


図4. Running-belt 型軽成分濃縮器

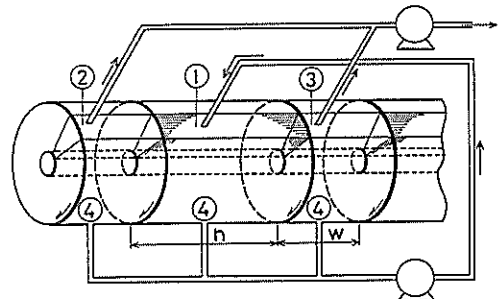


図5. Rotary-disk 型軽成分濃縮器

$$T_r = D_e t_r / (aL^2)$$

$v$  = 部屋①の容積

さて、多孔質体が  $t_r$  時間で装置内を最初 1 回転する間に部屋②, ③で捕集される拡散ガス量は、軽成分については

$$A_e S_{(1)}^I = A_e a L C_0^I B^I = v C_0^I k B^I \quad (7)$$

ここで

$$k = \frac{A_e a L}{v} \quad (7a)$$

であり、図 4, 5 に示す装置では

$$k = 2 \frac{aL}{h} \frac{t_r}{t_0} \quad (7b)$$

多孔質体が 2 回目の回転を始めるとき、部屋①内のガス量は

$$v C_{(1)}^I = v C_0^I - A_e S_{(1)}^I = v C_0^I (1 - k B^I) \quad (8)$$

多孔質体が 2 回目の回転をする間に部屋②, ③で捕集されるガス量は

$$A_e S_{(2)}^I = A_e a L C_{(1)}^I B^I = v C_0^I k B^I (1 - k B^I) \quad (9)$$

同様にして多孔質体の  $n$  回目の回転で捕集される拡散ガス量は

$$A_e S_{(n)}^I = v C_0^I k B^I (1 - k B^I)^{n-1} \quad (10)$$

したがって、ガス捕集量の合計は  $A_e (S_{(1)}^I + \dots + S_{(n)}^I)$  であり、初めに部屋①に原料として供給したガス量に対する全ガス捕集量の比(カット)は

$$F^I = \frac{A_e}{v C_0^I} (S_{(1)}^I + S_{(2)}^I + \dots + S_{(n)}^I) \quad (11)$$

$$= 1 - (1 - k B^I)^n \quad (11a)$$

同様にして重成分のカットは

$$F^{II} = 1 - (1 - k B^{II})^n \quad (12)$$

一方、パルス拡散でなく、膜を回転させずその全面を使つての固定膜拡散を行なうならば、印加ガス室の容積を  $v_s$ 、多孔質体面積を  $A_s$ 、ガス濃度を  $C$  (初期濃度を  $C_0$ ) とすれば

$$v_s \frac{dC^I}{dt} = -A_s D_e^I \frac{C^I}{L} \quad (13)$$

したがって

$$C^I = C_0^I \exp \left[ -\frac{A_s D_e^I t}{v_s L} \right] \quad (14)$$

軽成分のカットは

$$F^I = \frac{C_0^I - C^I}{C_0^I} \quad (15)$$

$$= 1 - \exp \left[ -\frac{A_s D_e^I t}{v_s L} \right] \quad (15a)$$

重成分カットは

$$F^{II} = 1 - \exp \left[ -\frac{A_s D_e^{II} t}{v_s L} \right] \quad (16)$$

ウラン濃縮は実際工業ではカットおよそ 50% で操作されている。したがって、いま  $F^{II} = 0.5$  として、235-UF<sub>6</sub> 濃度を 0.7% (天然物中濃度) から 3% (軽水炉燃料用) に濃縮する場合を例とし、図 6 に示すような多段連結方式を用いてのパルス拡散法と固定膜拡散法とを比較したのが表 1 である。所要段数を  $N$ 、最終段から得られる 3% 濃縮物の量を  $P$  とし、パルス法によるものを下添字  $l$ 、固定膜式のものを上添字  $s$  で区別する。

表 1 に示すように、100 モルの原料 (0.7 モルの 235-UF<sub>6</sub> と 99.3 モルの 238-UF<sub>6</sub> 混合ガス)

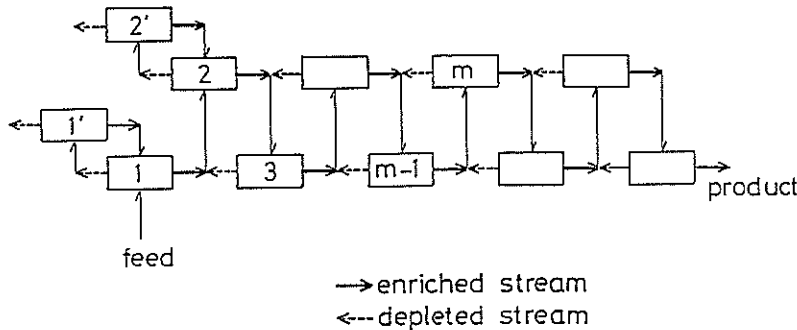


図 6. 濃縮器多段配列 (表 1 の濃縮例)

表 1. ウラン濃縮におけるパルス拡散と連続拡散法の比較

Membranes:  $\alpha=0.3$ ;  $D_0=0.0002 \text{ cm}^2/\text{sec}$ ;  $L=0.01 \text{ cm}$ .

Case	$F_I$	$F_{II}$	Feed mol	Product		Concentrator						Comparison with steady diffusion process		
				Stage number $N_i$	$P_i$ mol	$t_r$ sec	$t_0$ sec	$h$ cm	operatn time min	$T_r$	$T_0$	Product ratio $P_i/P_s$	Volume ratio $V_i/V_s$	Membrane area ratio $A_i/A_s$
Pulse diffusion process														
1	0.505508	0.5	100	197	0.689	0.1047	0.015	3	11.0	0.698	0.1	3.7	2.4	88
								5	18.3					
2	0.504179	0.5	100	260	0.523	0.157	0.0225	3	4.43	1.05	0.15	2.8	3.1	36
								5	7.39					
3	0.503490	0.5	100	311	0.437	0.157	0.03	3	2.82	1.05	0.2	2.3	2.8	17
								5	4.70					
Steady diffusion process														
4	0.501484	0.5	100	$N_a=731$	$P_a=0.186$									

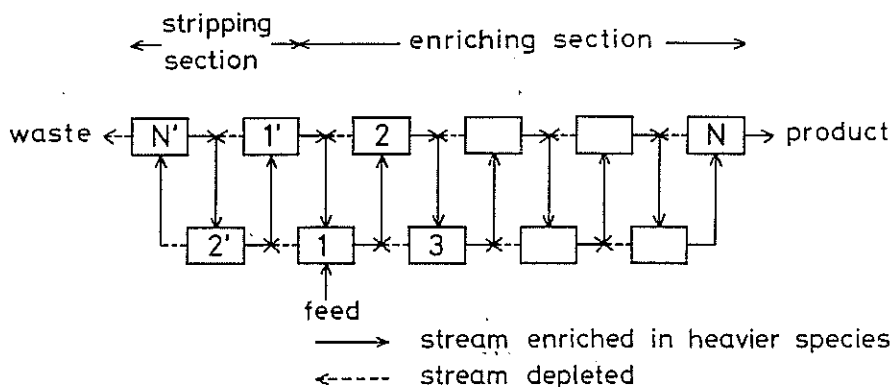


図 7. 濃縮器多段配列 (表 2, 3 の濃縮例)

から固定膜式では 731 段で初めて製品 (3% の 235-UF<sub>6</sub>) が, 0.186 モル得られるのに対して, パルス拡散でははるかに少ない段数で多量の製品を得ることができる。多孔質体面積が大きいこと装置容積が大きいことなどはパルス拡散法の不利な点であるが, 段数の少ないこと製品量の多いことはパルス拡散法の極めて優れた点である。

### 重成分濃縮

パルス拡散法において, 拡散して出てくるガス中に軽成分が著しく高濃縮されている事実は, 系内の残存ガス中で重成分が効率良く濃縮されることを示している。

図 4, 5 に示す装置を図 7 のように配列して H<sub>2</sub> + HD 中の HD 濃縮, H<sub>2</sub> + HT 中の HT 濃縮の

計算例を表 2, 3 に示す。ここで  $N$  は濃縮段数,  $N'$  は回収段数である。いずれの場合も重成分が高い回収率で濃縮されていることが分かる。

### パルス拡散による重成分濃縮装置製作

多孔質固体としてバイコールガラス板を用い重成分濃縮装置を下記のような順序で製作した。

(a) バイコールガラス板を水平に置き, その上面を水銀で覆い, さらにその上部に印加すべきガスを流しておく。ある瞬間にこの装置を上下に回転させることでバイコールガラス面上の水銀膜をはずしてガス印加を行ない, ある時間後にこの装置を回転させて元の位置に戻しバイコールガラス面上を水銀で覆う。

(b) バイコールガラスは固定したままで, ガ

表 2. H<sub>2</sub>+HD ガスからの HD の濃縮

Feed: 100-mole ordinary hydrogen (0.03% HD (species II) & 99.97% light hydrogen (species I)).  
 $\sqrt{M^{II}/M^I}$ : 1.22443.  
 Membrane:  $a=0.3$ ,  $D_0^I=2.5 \times 10^{-7} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ ,  $L=4 \times 10^{-4} \text{ m}$ .  
 Revolution:  $t_r=0.153 \text{ s}$  ( $T_r^{II}=0.65$ ),  $t_0=0.0165 \text{ s}$  ( $T_0^{II}=0.07$ ).

F <sup>I</sup>	F <sup>II</sup>	Stage number			Product [mol]	HD in product [%]	Recovery efficiency for HD [%]	h [m]	Running time [min]
		N	N'	Total					
0.7	0.384586	10	5	15	0.0490	57.6	94.1		
		11	4	15	0.0360	75.5	90.5		
		12	3	15	0.0292	87.3	84.8	0.03	9.59
		13	2	15	0.0242	93.7	75.6	0.05	16.0
		14	1	15	0.0189	97.0	61.0	0.07	22.4
0.6	0.308894	20	5	25	0.0572	52.0	99.2		
		21	4	25	0.0469	62.9	98.2		
		22	3	25	0.0395	72.9	96.0	0.03	7.30
		23	2	25	0.0336	81.3	91.1	0.05	12.2
		24	1	25	0.0273	87.9	80.0	0.07	17.0

表 3. H<sub>2</sub>+HT ガスからの HT の濃縮

Feed: 100-mole mixture of  $6 \times 10^{-6}\%$  HT (species II) & the rest light hydrogen (species I).  
 $\sqrt{M^{II}/M^I}$ : 1.41291.  
 Membrane:  $a=0.3$ ,  $D_0^I=2.5 \times 10^{-7} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ ,  $L=4 \times 10^{-4} \text{ m}$ .  
 Revolution:  $t_r=0.176 \text{ s}$  ( $T_r^{II}=0.65$ ),  $t_0=0.0190 \text{ s}$  ( $T_0^{II}=0.07$ ).

F <sup>I</sup>	F <sup>II</sup>	Stage number			Product [mol]	HT in product [%]	Recovery efficiency for HT [%]	h [m]	Running time [min]
		N	N'	Total					
0.7	0.241140	11	2	13	0.00826	0.0703	96.8		
		12	1	13	0.00314	0.172	89.9	0.03	6.29
		11	3	14	0.00866	0.0686	99.0	0.05	10.5
		12	2	14	0.00354	0.164	96.8	0.07	14.7
0.6	0.189483	22	2	24	0.00941	0.0629	98.7		
		23	1	24	0.00496	0.114	94.5	0.03	4.79
		23	2	25	0.00628	0.0944	98.7	0.05	7.98
		24	1	25	0.00331	0.172	94.5	0.07	11.2

ス留めからのガスを電磁弁操作でガス印加室に送る。ガス印加室はその壁面の一つがバイコールガラスであり、この面にガスがパルス印加される。ガス印加室のガスは流動状態にはない。

(c) バイコールガラスは固定したままで、ガス留めからのガスを電磁弁操作でガス印加室に送り、ガスはバイコールガラス(円板)中心部分に噴射され、ガラス円板上を円板周辺まで放射方向に流れて複数の流出孔から印加室を出る。パルス印加中ガスは流動状態にある。

このように印加中もガスを流すことで初めて、

バイコールガラス板上のガス濃度を均一にすることができた。装置概略を図 8、ガス印加室の構造を図 9 に示す。図 8 において E はガス留め、G がガス印加室、D は拡散ガス捕集室である。また、V<sub>1</sub>~V<sub>4</sub> は電磁弁、VP<sub>1</sub>、VP<sub>2</sub> は真空ポンプ、C は冷却管である。

操作手順の概略はまず装置内をすべて脱気し、ガス留め E に原料ガスを供給する。電磁弁 V<sub>1</sub> を開き、ガスを E—V<sub>1</sub>—G—V<sub>2</sub>—VP<sub>1</sub>—E—V<sub>4</sub>—G—… のように流しつづける。この間、電磁弁 V<sub>4</sub> は閉めてあり、ガス捕集室 D のガスを電磁弁 V<sub>3</sub> を経

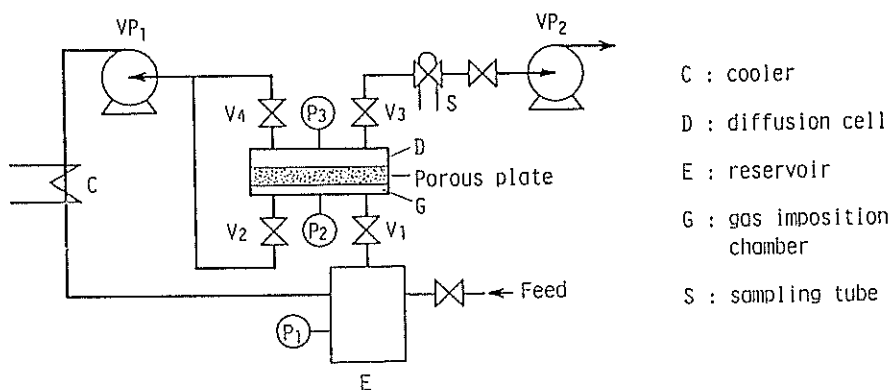


図 8. 重成分濃縮実験装置

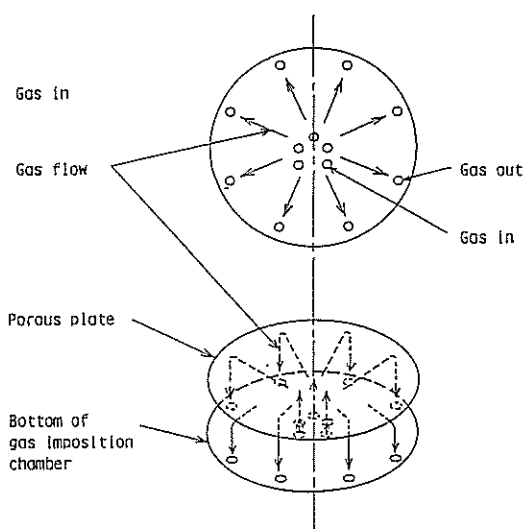


図 9. ガス印加室構造

て真空ポンプ  $VP_2$  により系外に除去する。ついで  $V_1, V_3$  を閉め、 $V_4$  を開け、バイコールガラス板内のガスをその両面から  $G, D$  室内に除き  $V_2, V_4$  を通して  $E$  に送る。こうしてバイコールガラス板が十分に脱気されたら再び  $E$  のガスを  $G-V_2-VP_1-E$  と流しながらパルス印加する。なお、 $S$  はガスクロでの濃度分析用の試料採取管である。また、真空ポンプ  $VP_1$  の排気は熱くなるので冷却管  $C$  で冷却してガス留めに戻す。

さて、この装置を用いパルス印加を繰り返したあとガス留め  $E$  中に残存するガス中の重、軽成分濃度を測り、かつ、初めの原料中の重、軽成分濃度から重成分の分離係数  $\alpha$  を次式により算出する。

$$\alpha = \frac{C_{(n)}^II/C_0^II}{C_{(n)}^I/C_0^I} \quad (17)$$

一方、重成分分離係数は理論的には次式で表さ

表 4. アルゴン-水素系の濃縮実験条件

Separating membrane: porous Vycor glass
void fraction, $a=0.28$
mean pore diameter=4 nm
area, $A_c=56.8 \text{ cm}^2$
thickness, $L=1.62 \text{ mm}$
effective diffusivities, $D_0=0.00192 \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ for hydrogen
$D_0=0.000448 \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ for argon
Gas: 20% (volume) argon—80% hydrogen
Space for gas to occupy in the concentrator, $v=1028 \text{ cm}^3$
Pressure of gas imposed: 100 kPa
Pressure of gas diffused-out chamber: 50 Pa
Pressure while the porous Vycor glass plate being cleaned: 50 Pa
Pulse period: 2 s, 4 s
Time for cleaning the porous Vycor glass plate: 3 s



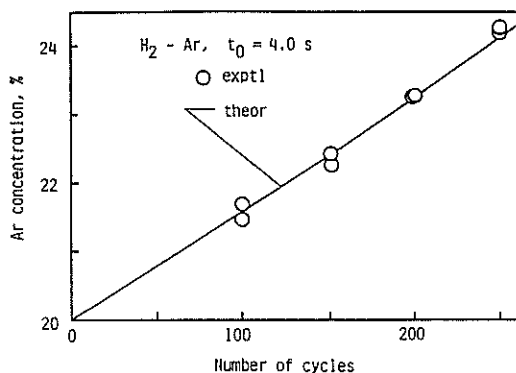


図 10. アルゴン-水素系のアルゴン濃縮実験例

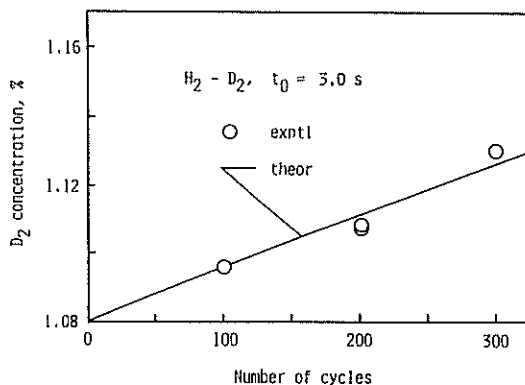


図 12. 重水素-水素系での重水素濃縮実験例

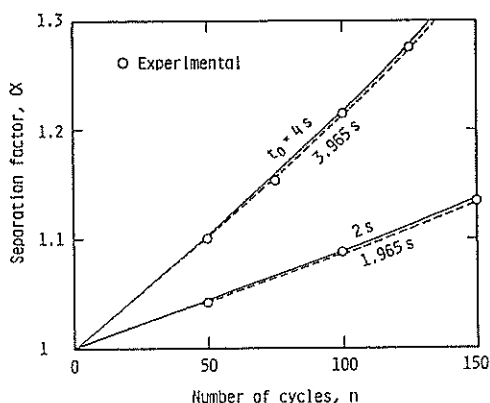


図 11. アルゴン-水素系実験でのアルゴン分離係数

れる。

$$\alpha = \frac{1 - F^{11}}{1 - F^1} \quad (18)$$

$$= \frac{1 - (1 - kB^{11})^n}{1 - (1 - kB^1)^n} \quad (18a)$$

いくつかの 2 成分系で実験を行なったが、例として水素 80% (容積) とアルゴン 20% の混合ガスから重成分であるアルゴンの濃縮回収を表 4 の条件で行なった結果を図 10, 11 に示す。図 10 はパルス印加 4 秒の場合であり、アルゴン濃度が印加回数とともに大きくなる実験結果が理論予測値とよく一致していることが分かる。また、図 11 はパルス印加が 2 秒と 4 秒の両場合であり、実線はパルス印加 2 秒、4 秒の理論線、点線は時間遅れ (0.035 秒) を考慮して印加時間を 1.965 秒、3.965 秒としたときの理論線である。両線ともそ

の差はわずかであり、実測のアルゴン分離係数とよく一致していることが分かる。また、図 12 は水素-重水素系での重水素濃縮例である。この場合も実測値は理論値とよく一致し、パルス印加回数とともに重水素が濃縮されていくのが分かる。

以上述べたようにパルス拡散によれば、パルス印加後の時間の短い間に多孔質膜を拡散通過してくるガス中で軽成分が多量に濃縮されており、この濃縮率は定常拡散で得られるものよりはるかに大きい。このパルス拡散によってウラン濃縮を行なうならば、235-U 濃度を 0.7% からたとえば軽水炉燃料の 3% にするのに 200~300 段で可能となり (定常拡散では理論上 731 段)、しかも最終段から得られる 3% 濃縮ウランの量も定常拡散の場合の 3~4 倍である。また、本研究によりパルス拡散は軽成分濃縮のみならず重成分濃縮にも応用できることが確かめられた。

本来、パルス拡散の工業的装置としては連続操作が可能なもの (たとえば図 4, 5 に提案のもの) が好ましいのであるが、その実現には適当な多孔質膜の開発が必要であり、この膜開発が大規模装置にする場合の今後の課題である。一方、小規模装置としてはたとえば多孔質パイコールガラスを拡散膜として用いる図 8 のものが軽、重成分濃縮に十分使い得るのである。

#### 謝 辞

同位体ガスのパルス・非定常拡散は従来の定常拡散では達し得ない高い濃縮率を与える画期的な同位体濃縮法である。日産科学振興財団のご援助

によりこの研究が著しく進展し得たことを深く感謝する次第である。

#### 使用記号の説明

$a$  = 細孔空隙率

$A_c$  = 多孔質膜面積

$C$  = 濃度

$C_0$  = 原料中の濃度

$D_e$  = 有効拡散係数

$F$  = カット

$k = A_c a L / v$

$L$  = 多孔質膜厚さ

$Q$  = 拡散通過ガス流束

$R$  = 軽成分の最大濃縮率

$S$  = 拡散通過ガス量

$t$  = 時間

$t_c$  = 捕集時間

$t_0$  = パルス時間

$t_r$  = 図 4, 5 の装置で多孔質膜が 1 回転するに要する時間

$T = D_e t / (aL^2)$

$T_c = D_e t_c / (aL^2)$

$T_0 = D_e t_0 / (aL^2)$

$T_r = D_e t_r / (aL^2)$

$v$  = ガス室容積

上添字

I = 軽成分

II = 重成分

下添字

$s$  = 定常拡散式

$t$  = パルス拡散式

$(n)$  =  $n$  サイクル

#### 発表論文

- 1) N. Wakao: 235-U enrichment by pulse gas diffusion. *Nature*, March, 1 (1979), pp. 35-36.
- 2) N. Wakao: 235-UF<sub>6</sub> enrichment equipment. *Nuclear Eng. & Design*, 55, 145-149 (1979).
- 3) N. Wakao, K. Suzuki and M. Ishiko: Isotopic separation by pulse-transient gas diffusion. *J. Chem. Eng., Japan*, 14, 164-167 (1981).
- 4) N. Wakao and S. Tanisho: Recovery of heavy species by pulse gas diffusion. *J. Chem. Eng., Japan*, 16, 182-186 (1983).
- 5) S. Tanisho, Y. Honjo and N. Wakao: Heavy species enrichment by pulsed gas diffusion. *Nuclear Eng. & Design*, 75, 43-48 (1983).