

# 核燃料再処理排ガス中の放射性希ガスの吸着除去

Adsorptive Removal of Radioactive Rare Gases from Waste Gases in Nuclear Fuel Reprocessing Plants

河添邦太朗・川井 利長・宝 角 茂

Kunitaro KAWAZOE, Toshinaga KAWAI and Shigeru HÖZUMI

## 1. ま え が き

使用済の核燃料は再処理工程で分離精製されるが、この過程で発生する核分裂生成ガスには、たとえば溶媒抽出法の場合  $^{85}\text{Kr}$ ,  $^{133}\text{Xe}$ ,  $^{131}\text{I}$  などの放射性核種が含まれる<sup>1)</sup>。したがって、再処理排ガス中のこれら放射性ガスの捕集除去、あるいは濃縮ならびに貯蔵などの処理処分の問題は、再処理工場の大型化に伴い、安全上ますます重要となるものであり、特に比較的長寿命の  $^{85}\text{Kr}$  (半減期 10.3 年) についてはすみやかに対策を講ずる必要がある。

これらの希ガスの濃縮分離法の一つは活性炭による吸着法である。ただし排ガス中の Kr 濃度がきわめて低いので、加圧または低温で操作して吸着量の増大を図ることが考えられる。加圧下での吸着と常圧への減圧による脱着とを交互にくりかえす pressure swing cycle は熱的操作を必要としない点で有利であり、この方法の performance、最適操作条件を明らかにし装置設計の指針を与えることを目的として次の実験を行なった。

## 2. 実 験

### 1) 装置および方法

図 1 の装置を用いて、 $1\sim 30\text{ kg/cm}^2\text{G}$  の圧力範囲で、少量の  $^{85}\text{Kr}$  を含む  $\text{N}_2$  ガスの吸着破過曲線を測った。

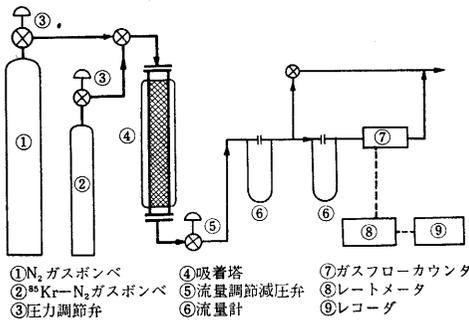


図 1 実験装置

表 1 活性炭 HGR-510 ペレットの物性値

ペレット寸法	$0.427\phi \times 0.496\text{ cm}$
内表面積	$1067\text{ m}^2/\text{g}$
充てん密度	$0.52\text{ g/cm}^3$
空隙率	0.41
マクロ孔半径	$1.2\ \mu$
空隙率	$0.26\text{ cc/cc particle}$
ミクロ孔半径	$6\ \text{Å}$
空隙率	$0.30\text{ cc/cc particle}$

耐圧吸着カラムは内径 2.0 cm, 充てん層高 56 cm, カラム温度はほぼ  $15^\circ\text{C}$  であり、使用した吸着剤は HGR-510 ペレット (武田製シラサギ GX) であり、その物性値を表 1 に示す。

### 2) 実験結果

破過曲線の若干の例を図 2 に示す、破過曲線から得られる Kr の平衡吸着量と全圧との関係は図 3 のとおりである。図 3 の縦軸の  $v$  は活性炭単位重量当たり常圧換算で  $v\text{ cc}$  の処理ガス中に含まれる Kr を吸着することを示す。Kr の濃度がきわめて低いにもかかわらず、図 3 の吸着等温線が著しく彎曲するのは高圧における  $\text{N}_2$  の吸着の影響によるものである。

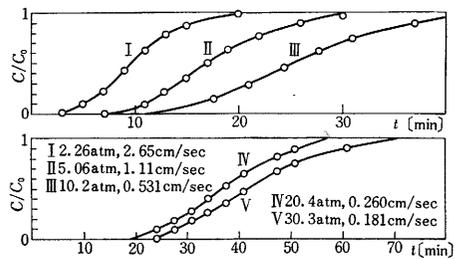


図 2 加圧下の吸着破過曲線

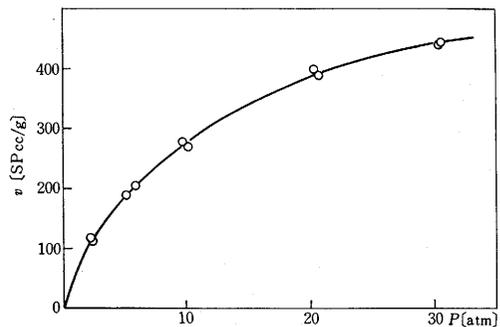


図 3 平衡吸着量

破過曲線の erf プロットはほぼ直線となり、理論解の誤差関数近似<sup>2)</sup>が、高圧においても成立することを示した。したがって常圧の場合と同様に erf プロットの傾斜から総括物質移動係数が得られ、さらに境膜物質移動係数および軸方向混合係数の推算値を入れることによって粒内拡散係数が求められる。その結果を表 2 および図 4 に掲げた。粒内拡散係数の実測値は、吸着剤粒子の細孔構造の値を用い、Tortuosity factor  $k^2$  を 3.6 として次

研 究 速 報

表 2 実験結果

Run	P atm	u* cc/sec	$\beta r$	$K_{Fav}$ 1/sec	$k_{Fav}$ 1/sec	$\beta k_{sav}^{**}$ 1/sec	$D_e$ cm <sup>2</sup> /sec
1	2.26	2.65	26.9	0.592	9.08	0.676	4.20
2	2.40	1.10	24.3	0.487	7.14	0.568	3.53
4	5.06	1.11	19.4	0.302	3.70	0.350	2.17
5	5.94	0.495	17.8	0.243	2.86	0.301	1.87
6	9.71	0.287	14.8	0.161	1.75	0.205	1.27
7	10.2	0.531	13.6	0.142	2.13	0.163	1.01
8	20.4	0.260	9.68	0.0885	0.952	0.106	0.658
9	20.8	0.152	9.16	0.0840	0.847	0.107	0.604
10	30.3	0.181	7.52	0.0602	0.649	0.0720	0.447
11	30.5	0.106	7.52	0.0543	0.682	0.0687	0.427

\* u 高圧下に見掛流速

\*\*  $P_e=2$  として軸方向混合の補正を行なっている。

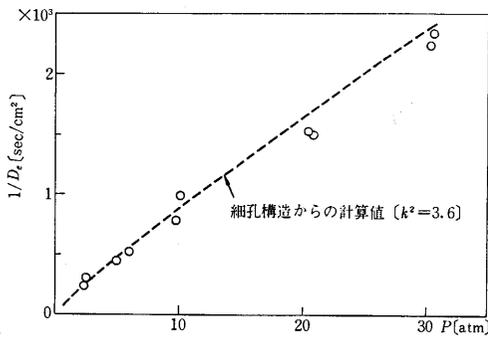


図 4 粒内有効拡散係数

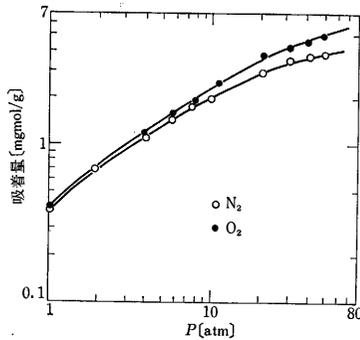


図 5 高圧下の O<sub>2</sub>, N<sub>2</sub> の吸着量

式によりマクロ孔拡散とマイクロ孔拡散の和の形で表わされるところとして計算した値と良好な一致を示す。

$$D_e = \frac{\epsilon_a}{k^2} D_a + \frac{\epsilon_i}{k^2} D_i$$

同一吸着剤に関する純粋の N<sub>2</sub> および O<sub>2</sub> ガスの吸着量を別の実験で測定し、その結果を図 5 に示した。先の吸着破過実験においては Kr の濃度はきわめて低いので、N<sub>2</sub> の吸着量は図 5 の値で表わされるものと考えてよい。

3. 考 察

図 3 および図 5 の Kr および N<sub>2</sub> の平衡吸着量から各

圧力における Kr の N<sub>2</sub> に対する吸着選択性が得られ、その値は常温で 7, 10 atm で 6.1, 30 atm で 5.6 である。また図 3 に示すように Kr の吸着量が圧力の増加とともに飽和を示すとき現象、および空隙に残留する供給ガスと同一組成のガスの割合が圧力ともに増加することなどをあわせ考えると、pressure swing cycle の吸着圧力としては、10 atm 前後が最適であるとみられる。

実際に得られる濃縮度は、上記の空隙残留量の他、吸着帯の幅および常圧に減圧後の不活性ガスによる置換脱着操作の二つの要因によってさらに低下する。

物質移動はこの場合粒内拡散律速であり、粒内有効拡散係数はほぼ圧力に逆比例することから、充てん層高およびガス処理量が同一ならば吸着帯の幅は全圧によらずほぼ一定であることが導かれる。吸着帯の幅が長いことは濃縮度を低下させることになり、したがってまた吸着剤単位重量当たりのガス処理量を大きくとれないことを意味する。本実験の結果からみて、活性炭の粒度をさらに小さくし、直径 2 mm 程度のペレットを用いて物質移動速度を大きくすることが望ましい。

加圧および常圧下における吸着平衡および物質移動に関するデータを用いれば、pressure swing cycle においてさまざまな条件で得られる総括の濃縮度を推算することができるが、上記の諸データからみて <sup>85</sup>Kr の濃縮に関しては 1 段の pressure swing cycle において約 4 ~ 5 倍、2 段の工程によって約 20 倍程度の濃縮が可能であろう。

4. む す び

加圧下の N<sub>2</sub> 中の Kr の吸着破過実験の結果から、1. Kr の平衡吸着量は加圧下では共存する N<sub>2</sub> ガスによって著しい影響を受けること、2. 加圧吸着における物質移動速度は活性炭の細孔構造に関する物性値から推算可能であること、および 3. 再処理排ガス中の放射性希ガスの除去のため pressure swing を用いた活性炭吸着法が大量の排ガスの濃縮にきわめて有力であることが確かめられた。  
(1967 年 12 月 18 日受理)

記号  $D_e$ : 有効拡散係数,  $\epsilon$ : 空隙率,  $k^2$ : tortuosity factor,  $c$ : 濃度,  $K_{Fav}$ : 総括物質移動係数,  $k_{Fav}$ : 境膜物質移動係数,  $k_{sav}$ : 粒内物質移動係数,  $\beta$ : 吸着係数,  $\gamma$ : 充てん密度

文献 1) 河添, 竹内: 生産研究, 19, 246 (1967).  
2) 河添: 化学工学, 31, 354 (1967).