研究論文

167. 向流型ガス遠心分離法による同位体の分離, (I)

分離パワーに及ぼす向流流型の影響

金川 昭*, 大山 義年*

*On the Isotope Separation by Counter-current Gas Centrifuge, (I)**Influence of a gas flow pattern upon separative power*

By Akira KANAGAWA and Yoshitoshi OYAMA

The influence of a gas flow pattern in a rotor of a counter-current gas centrifuge upon the separation factor and the separative power has been studied. The optimum gas concentration gradient, at which the centrifuge performs the maximum separative power, has been obtained from the equation of the diffusion velocity. The equations with respect to the separation properties have been derived in two regions of the rotor separately, one of which is an upper part above the feed point as a stripping section, the other a lower part as an enriching section.

The effects of the radial concentration gradient on the performance of the centrifuge have been considered by means of the flow pattern coefficient K , which depends only upon the flow pattern and approaches to the maximum value, that is, unity, as the neutral layer between the counter currents approaches to the rotor wall.

緒 言

向流型ガス遠心分離機の性能に関する理論的な解析は Cohen⁽¹⁾ の著に詳しい。また、同位体分離に対する実験的研究もウラン濃縮という実的な目的に即して, Beams⁽²⁾⁽³⁾, Barker⁽⁴⁾, Groth⁽⁵⁾⁻⁽⁷⁾ および Zippe⁽⁸⁾⁻⁽¹⁰⁾ らにより発展されている。向流型ガス遠心分離機は1基内にて多段効果によりその分離係数を単一工程のそれよりも大きく取り得る著しい特長をもつ。しかし、工業的な実用的見地からは分離装置は分離係数そのもの以上に分離パワーを大きく取り得ることが強く望まれる。

著者らは Cohen の手法に準じて向流型ガス遠心分離性能に対する解析をガス供給口が回転円筒内部におかれた場合に拡張し、特に分離パワーに及ぼすガス循環向流の流れの型の影響を考察した。遠心分離機内のガス向流の流れの型に関する流体力学的な理論解析としては Steenbeck⁽¹¹⁾ の見るべき研究がある。しかし、ここでは向流の流れの型の分離パワーに与える影響の

概括的傾向を知る意味において、簡単な流型を想定してその考察を行なった。

I. 遠心分離の基礎方程式

まず、連続の方程式から注目成分の濃度に関する基礎方程式を求める。多成分混合ガス中の i 種成分ガスの連続の方程式は、拡散速度の項において

$$\frac{\partial n_i}{\partial t} + (\nabla \cdot n_i (\mathbf{v}_0 + \bar{\mathbf{V}}_i)) = 0 \quad (1)$$

とかかれる⁽¹²⁾。ここで、 n_i は i 種分子の数密度、 $\mathbf{v}_0$ は質量平均速度、 $\bar{\mathbf{V}}_i$ は i 種分子ガスの拡散速度および t は時間である。

遠心分離機中にある2成分混合ガスを対象として考える。ガスは遠心分離機と共に一様等速に回転し、回転軸方向および回転角方向に圧力勾配はなく、かつ等温にあるものとする。座標軸として遠心分離機と同じ一定角速度 ω で回転している回転円筒座標を選べば、

* 東京工業大学 原子炉研究施設 (Res. Lab. of Nucl. Reactor, Tokyo Inst. of Technology)

注目成分の拡散速度 $\bar{V}_1$ は

$$\bar{V}_1 = \frac{n^2 m_2}{n_1 \rho} D_{12} \left\{ \nabla \left(\frac{n_2}{n} \right) + \left(\frac{n_2}{n} - \frac{n_2 m_2}{\rho} \right) \frac{\rho}{p} \omega^2 r r_0 \right\} \quad (2)$$

で与えられる。ここで、 D_{12} は拡散係数、 m は分子質量、 ρ は密度、 p は圧力、および $n = n_1 + n_2$ である。したがって(1)式は注目成分のモル分率 $N (= n_1/n)$ の項において

$$\begin{aligned} p \frac{\partial N}{\partial t} + \left(\nabla \cdot \left[p N v_0 \right. \right. \\ \left. \left. - D p \left(\nabla N + \frac{(m_2 - m_1) N (1 - N) \omega^2 r r_0}{k T} \right) \right] \right) \\ = 0 \end{aligned} \quad (3)$$

とかける。ガスは理想気体とし、拡散係数は

$$D \equiv \frac{n m_2}{\rho} D_{12}$$

とした。

II. 向流型遠心分離機

半径方向および方位角方向の速度成分がなく、かつ軸対称の場合を考えれば、(3)式は

$$\begin{aligned} p \frac{\partial N}{\partial t} + p w \frac{\partial N}{\partial z} - D p \frac{\partial^2 N}{\partial z^2} - \frac{D p}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left[r \frac{\partial N}{\partial r} \right. \\ \left. + \frac{(M_2 - M_1) \omega^2 r^2}{R T} N (1 - N) \right] = 0 \end{aligned} \quad (4)$$

となる。ここで、 w はガスの軸方向速度成分であり、分子質量 m および Boltzmann 定数 k はそれぞれ分子質量 M および気体定数 R にかきかえた。(4)式の解析は、すべての方向の濃度勾配が小さいということから近似的に行ない得る。これは Cohen によりよくまとめられているが、その結果は遠心分離機の濃縮域に相当する区域しか適用できない。よって、ここに Cohen の手法に基づく回収域に対する解析結果をも示しておく。第1図に向流型遠心分離機の概要図を示す。軸座標 0 から Z_P の区域を濃縮域、 $-Z_W$ から 0 までの区域を回収域と呼ぶ。

(4)式の r についての第1回積分は分離効果の二次の項を無視することにより⁽¹⁾,

$$\begin{aligned} \frac{\partial N}{\partial r} = - \frac{(M_2 - M_1) \omega^2 r}{R T} N (1 - N) \\ + \frac{1}{r} \left(\frac{\partial N}{\partial z} \right) \int_0^r \frac{p w}{D p} r dr \end{aligned} \quad (5)$$

となり、さらに第2回積分もつぎのように求まる。

第1図 向流型ガス遠心分離機概要図

$$\begin{aligned} \frac{\partial N}{\partial t} \left[\frac{1}{(p w)_a} \int_0^1 p dx \right] - \frac{\partial}{\partial z} \left[I_1 N + \frac{I_2 \ln \alpha_0}{2} N (1 - N) \right] \\ + \frac{\partial^2 N}{\partial z^2} \left[\frac{I_3}{8} \frac{r_2}{B} + r_2 B \right] = 0 \end{aligned} \quad (6)$$

ここで、

$$\alpha_0 = \exp \frac{(M_2 - M_1) (\omega r_2)^2}{2 R T}$$

$$B = \frac{D p}{(p w)_a} \frac{1}{r_2}$$

$$I_1 = \int_0^1 (p w)^* dx$$

$$I_2 = 2 \int_0^1 dx \int_0^x (p w)^* dx$$

$$I_3 = 2 \int_0^1 \frac{dx}{x} \left(\int_0^x (p w)^* dx \right)^2$$

$$x = \left(\frac{r}{r_2} \right)^2, \quad (p w)^* = \frac{p w}{(p w)_a}$$

であり、 $(p w)_a$ は $x = 0$ における $p w$ の値および r_2 は回転円筒の半径である。

定常状態における $N \ll 1$ の場合の(6)式の解は濃縮

域および回収域においてそれぞれつぎのように得られる。

濃縮域⁽¹⁾：

$$\frac{N_P}{N_0} = \frac{(1+\psi) \exp \left[2\varepsilon_0 Z_P \frac{2m}{1+m^2} (1+\psi) \right]}{1+\psi \exp \left[2\varepsilon_0 Z_P \frac{2m}{1+m^2} (1+\psi) \right]} \quad (7)$$

回収域：

$$\frac{N_0}{N_W} = \frac{\psi + \exp \left[2\varepsilon_0 Z_W \frac{2m}{1+m^2} (1+\psi) \right]}{1+\psi} \quad (1+\psi \neq 0 \text{ の場合}) \quad (8)$$

$$= 1 + 2\varepsilon_0 Z_W \frac{2m}{1+m^2}, \quad (1+\psi = 0 \text{ の場合})$$

N_P , N_0 および N_W は $z=Z_P$, 0 および $-Z_W$ における注目成分のモル分率 N の値である。ここに

$$\psi = \frac{I_1}{\frac{1}{2} I_2 \ln \alpha_0} \quad (9)$$

$$2\varepsilon_0 = \frac{1}{\sqrt{\frac{8}{3} r_2}} \left(\frac{I_2^2}{I_3} \right)^{1/2} \ln \alpha_0 \quad (10)$$

$$m = \frac{1}{\sqrt{\frac{8}{3} B}} I_3^{1/2} \quad (11)$$

であり、さらに

$$m\psi = \frac{G}{G_0} \quad (12)$$

の関係がある。ここで

$$G = \pi r_2^2 \frac{(pw)_a}{RT} I_1$$

$$G_0 = (2\pi r_2^2) \left(\frac{Dp}{RT} \right) (2\varepsilon_0) \quad (13)$$

である。 P および W をそれぞれ濃縮物および減損物の抽出流量とすれば、濃縮域においては $G=P$ 、回収域においては $G=-W$ である。 I_1 は濃縮域にあっては正值をとるが回収域においては負値をとり、したがって ψ の符号もそれに準ずる。

以上のパラメータのうち、直接に向流の流れの型の影響を代表するのが I_2 および I_3 である。そして、 I_1 および B はガス抽出流量および循環流量の影響を代表している。したがって、これらのパラメータを含む他のパラメータはそれに準ずる影響を表示する。

Ⅲ. 分離パワーの最大値

(2)式から遠心分離機内の任意の面積要素 ds (法線単位ベクトル $\mathbf{n}$) を単位時間に移動する注目成分の真の質量の流れは

$$(\mathbf{n} \cdot \mathbf{n}_1 m_1 \mathbf{V}_1) ds = \left(\mathbf{n} \cdot M_1 \frac{Dp}{RT} \left[-\nabla N - \frac{(M_2 - M_1) \omega^2 r}{RT} N(1-N) \mathbf{r}_0 \right] \right) ds$$

で与えられる。このことから、遠心分離機パワーを最大にする ∇N の値は

$$\nabla N = -\frac{1}{2} \frac{(M_2 - M_1) \omega^2 r}{RT} N(1-N) \mathbf{r}_0 \quad (14)$$

であり、遠心分離機全域の分離パワーの最大値 $(\delta U)_m$ は

$$(\delta U)_m = M_1 \frac{Dp}{RT} \left[\frac{(M_2 - M_1) (\omega r_2)^2}{2 RT} \right] \frac{\pi}{2} Z \quad (15)$$

となることがわかっている⁽¹⁾。ここで、 Z は遠心分離機の回転円筒の筒長である。

(14)式の条件は濃度勾配の各方向成分が

半径方向：

$$\frac{\partial N}{\partial r} = -\frac{1}{2} \frac{(M_2 - M_1) \omega^2 r}{RT} N(1-N) \quad (16)$$

$$\text{軸方向：} \quad \frac{\partial N}{\partial z} = 0 \quad (17)$$

$$\text{方位角方向：} \quad \frac{\partial N}{\partial \phi} = 0 \quad (18)$$

であるべきことを示している。これらの関係を前章で述べた向流型遠心分離機の特性を表わす関係式と対応させて考察を行なうのが本報の目的である。

(18)式の条件は初めから軸対称を仮定しているので問題とならない。

半径方向の濃度勾配に関して、Kistemaker⁽¹³⁾は(5)式との対比において(16)式の実現すべき条件として軸方向の向流の流れの型が

$$\int_0^x (pw)^* dx \propto x \quad (19)$$

を満足すべきものであることを報告している。

Ⅳ. 流型係数

向流の流れの型が(19)式を満足しない場合、その偏りの分離性能に与える影響を知るには次式で定義される流型係数 K を用いると便利である。

$$K = \frac{I_2^2}{I_3} \quad (20)$$

K の値は(19)式を満足するような流型に対してその最大値 $\bar{K}$ をとり、(19)式からの偏りが大きくなるほど K は低い値を示す。

Cohen によれば、最適操作条件のもとにおける向流型遠心分離機の分離パワー $(\delta U)_s$ は

$$(\delta U)_s = K \frac{m^2}{1+m^2} (\delta U)_m \quad (21)$$

で与えられる。 $(\delta U)_s$ が K を比例係数としていることがわかる。(10)および(13)式の $2\varepsilon_0$ および G_0 も K の平方根値を比例係数として

$$2\varepsilon_0 = (2\varepsilon_0)_0 \sqrt{K} \quad (2\varepsilon_0)_0 = \frac{1}{\sqrt{2}r_2} \ln \alpha_0$$

$$G_0 = (G_0)_0 \sqrt{K} \quad (G_0)_0 = 2\pi r_2^2 \frac{Dp}{RT} (2\varepsilon_0)_0$$

とかかれる。(7),(8)式により算出される N_p/N_0 および N_0/N_w の値は大略 $\ln K$ に比例する。いうまでもなく K の値は大きいほどよい。

K の値は(20)式の定義からわかるように、軸方向のガスの流れの型すなわち pw 対 r の相対関係がわかれば決定される。ここで、ガス向流の流れの型のモデルを想定し、それらに対する K の値を求めてみる。そして、その結果をもって K の値をなるべく大きくとるためにはどのような流型であるべきかを検討する。

さきに述べたように、 K の値がその最大値1をとる

$$K = \frac{[x_n + I_1(1-x_n)]^2}{2 \left[\frac{x_n(1-I_1)}{1-x_n} \right]^2 \ln \frac{1}{x_n} - \frac{1}{1-x_n} [2x_n^2 - 2I_1x_n(1+x_n) - I_1^2(1-3x_n)]} \quad (22)$$

となる。 I_1 は濃縮域および回収域においてそれぞれ

$$I_1 = \frac{P}{\pi f_2} \frac{(pw)_0}{RT} \quad \text{および} \quad \frac{-W}{\pi f_2} \frac{(pw)_0}{RT}$$

として計算され、 $0 \sim 1$ および $0 \sim -1$ の変域をもつが、一般には $|I_1| \ll 1$ である。 x_n および I_1 の関数としての K のグラフを第2図に示した。第2図から K の値は x_n が1に近づくほど、すなわちガス向流反転境界面が回転円筒壁に近づくほどその最大値1に近づくことがわかる。なお、 I_2 および I_3 についても同様なことがいえる。

さらに x_n が1に近づいた場合、 I_2 および I_3 の値は内域流における値によって支配され、外域流における値は $(1-x_n)$ に比例して小さくなる。このことはガス向流反転境界面が回転筒壁に充分に近づいていれば、流型係数を考えるとき内域流のみを対称とすればよいことを意味している。

2. Martin の流型

Martin⁽¹⁴⁾は熱向流遠心分離機について加熱板および冷却板によるガスの流れをその温度差が比較的小さい場合に等温過程として近似的に解き、回転筒端壁近傍における半径方向の流量を半径 r の関数として、

$$\Delta T \frac{\pi}{\omega} \left(\frac{\lambda^3}{\mu T} \right)^{1/4} \left(\frac{2rp(r_2)}{MRT} \right)^{1/2} \exp \left[-\frac{M\omega^2(r_2^2 - r^2)}{4RT} \right]$$

のは(19)式を満足する流型においてである。(19)式が満足されない場合として、まずガス向流の反転境界面の位置の影響を考える。

1. 内域下降流および外域上昇流において、それぞれ独立に pw が一定であるような向流の流れの型の K

第1図に示したように、半径 r_n の位置に円筒形の反転境界面があるものとする。このような場合、内域流および外域流における $(pw)^*$ はそれぞれ

$$(pw)^* = 1 \quad ; \quad -\left(\frac{x_n - I_1}{1 - x_n} \right)$$

で与えられ、 I_2 および I_3 はつぎのように計算される。

$$I_2 = x_n + I_1(1-x_n)$$

$$I_3 = 2 \left(\frac{x_n}{1-x_n} \right)^2 (1-I_1)^2 \ln \frac{1}{x_n}$$

$$-\frac{1}{1-x_n} \left\{ 2x_n^2 - 2I_1x_n(1+x_n) - I_1^2(1-3x_n) \right\}$$

ここに、 $x_n = (r_n/r_2)^2$ 。したがって、求める K は

$$x = 0 \sim x_n \text{ にて } (pw)^* = 1$$

$$x = x_n \sim 1 \text{ にて } (pw)^* = \frac{x_n - I_1}{1 - x_n}$$

第2図 x_n および I_1 の関数としての K

の形で与えている。ここで ΔT は温度差, λ はガスの熱伝導度および μ はガスの粘度である。端壁近傍以外の場所において半径方向の流れがないものとすれば, 内域流においては

$$\int_0^x (pw)^* dx \propto x^{1/4} \exp \frac{M\omega^2 r_2^2}{4RT} x \quad (23)$$

の関係がある。ガス向流反転境界面が筒壁に十分に近く x_n を近似的に 1 と考えてよい場合について, (23) 式の関係から流型係数 K の値を求めている。

$$\zeta^2 = \zeta_2^2 x, \quad \zeta_2^2 = \frac{M\omega^2 r_2^2}{4RT}$$

とおけば, K は

$$K = \frac{8}{\zeta_2^4} \frac{\left(\int_0^{\zeta_2^2} \zeta^{3/2} (\exp \zeta^2) d\zeta \right)^2}{\int_0^{\zeta_2^2} (\exp 2\zeta^2) d\zeta} \quad (25)$$

で与えられ, ζ_2 のみの関数であることがわかる。第 3 図に ζ_2 の関数としての K のグラフを示した。図からわかるように, K の値は $\zeta_2^2 = 1.85$ 附近でその極大値 0.96 を示し, その前後においては緩く低下する傾向を示す。

第 3 図 Martin の流型に対する ζ_2 の関数としての流型係数 K

$\zeta_2^2 = 1.85$ に相当する周辺速度は UF_6 ガス, クセノンおよびアルゴンについてはそれぞれ 245 ($T=343^\circ\text{K}$), 375 (300°K) および 680 m/sec (300°K) である。 UF_6 ガスのみについていえば, $\omega r_2 = 245$ m/sec において K の値は極大値 0.96 を示し, 300, 350 さらに 400 m/sec においては 0.90, 0.79 および 0.67 と著しく低下する。

3. Steenbeck の流型

Steenbeck はポンピング向流型遠心分離機についてガス向流流型を数値的に求め, その結果の 1 例をグラフに与えている⁽¹¹⁾。 $M(\omega r_2)^2 / 2RT = 2$ の場合の解であるそのグラフについて流型係数を数値的に求めると

$K=0.60$ なる値が得られる。なお, 反転境界面の位置は $x_n=0.48$ であった。

これを内, 外域流においてそれぞれ $(pw)^*$ が一定であると考えた第 2 図の結果と比較してみる。第 2 図から $x_n=0.48$ [および $I_1=0$ の時の K の値は 0.63 である。比較的近い値を示すことがわかる。

V. 結 言

向流型ガス遠心分離機の分離パワーに与える向流の流れの型の影響を考察した。基礎方程式を向流の流れの型のみに係わる項を分離した形で示した。遠心分離機の分離パワーを最大にする濃度勾配の条件を向流型にて完全に満たすことはできない。原料ガス供給口の上下部についてそれぞれ独立に求めた分離特性を示す式を用いて, 半径および軸方向濃度勾配の分離パワーに与える影響を調べた。(21) 式で定義した流型係数 K を用いて, 半径方向の濃度勾配条件を支配する向流流型の影響を考察した。分離パワーは K を, そして分離係数は $\ln K$ をそれぞれ大略比例係数とする。 K はガス向流の反転境界面が回転円筒壁に近づくほど, またその質量速度が半径によらず一定であるような流型であるほどその最大値 1 に近づくことがわかった。Martin の流型についても K は計算され, その結果から K は周辺速度に対して極大値を持つことが見出された。 UF_6 ガスについては, 周辺速度 245 m/sec で K は極大値 0.95 を示した。軸方向濃度勾配の影響については別に論ずる⁽¹⁵⁾。

本研究は科学技術庁原子力平和利用研究委託費に負う所が多い。関係各位に深謝する。また, 終始有意義なご助言をいただいた東京工業大学高島洋一助教授ならびに計算を手伝っていただいた桐原美津子氏に感謝の意を表する。

(1961 年 8 月 7 日 受理)

— 参 考 文 献 —

- (1) K. COHEN: "The Theory of Isotope Separation as Applied to the Large-Scale Production of U^{235} ", (1951), McGraw-Hill Co., New York.
- (2) J. W. BEAMS, et al.: TID-5230, (1951).
- (3) J. W. BEAMS, et al.: A/Conf., P/723 (1958).
- (4) J. J. BARKER: NYO-7348, (1956).
- (5) W. GROTH, et al.: Research Reports of the Ministry of Industry and Commerce, No. 510, (1958).

- (6) W. BULANG, W. GROTH, *et al.* : *Z. Physik. Chem., Neue Folge*, **24**, 249 (1960).
 (7) W. GROTH, K. H. WELGE : *ibid.*, **19**, 1 (1959).
 (8) G. ZIPPE : *ORO-202*, (1959).
 (9) G. ZIPPE, *et al.* : *ORO-210*, (1958).
 (10) G. ZIPPE : *ORO-216*, (1959).
 (11) M. STEENBECK : *Kernenergie*, **1**, 921 (1958).
 (12) J. O. HIRSCHFELDER, *et al.* : "*Molecular Theory of Gases and Liquids*", (1954), John Wiley & Sons, Inc., New York.
 (13) J. LOS, J. KISTEMAKER : "*Proc. International Symposium on Isotope Separation*" Chap. 63, (1958), North-Holland Publ. Co., Amsterdam.
 (14) H. HARTIN : *Z. Elektrochemie*, **54**, 120 (1950).
 (15) 金川 昭, 大山義年 : 本 誌, (投稿中), (1961).

「会 費 一 括 扱 い」 を ご 利 用 下 さ い

会員の便宜のため「一括扱い」の制度がつぎの要領で設けられておりますのでご利用下さい。ご希望の方は事務局へお申し越し願います。

- (1) 同一所属機関で、正会員・学生会員が原則として10名以上の場合を対象とする。
- (2) 責任者(会費の集金その他本会との連絡に当る)1名を定め、一括扱い会員の氏名一覧2部を作り、1部を事務局に、1部を責任者の手許に備え、異動その他変更ある場合は連絡する。
- (3) 一括扱いに限り会費分納の特例が認められる。
- (4) 責任者には、集金額の5%の金額を謝礼する。
- (5) 集金額は一たん事務局に全額送金し、事務局で精算のうえあらためて謝礼を送付する。
- (6) 会費以外にも集金を要する場合は前2項を準用する。