

【 246 】

氏 名	東 邦 夫
	ひがし くにお
学位の種類	工 学 博 士
学位記番号	工 博 第 120 号
学位授与の日付	昭 和 42 年 3 月 23 日
学位授与の要件	学 位 規 則 第 5 条 第 1 項 該 当
研究科・専攻	工 学 研 究 科 原 子 核 工 学 専 攻
学位論文題目	気 体 拡 散 分 離 法 の 基 礎 的 研 究
論文調査委員	(主 査) 教 授 大 石 純 教 授 岐 美 格 教 授 西 原 宏

論 文 内 容 の 要 旨

この論文はウランを濃縮する方法の一つである気体拡散分離法について、分離の機構とくに表面拡散現象の影響と分離装置の性能とを研究した結果をまとめたものであって、緒論、7章および総括よりなっている。

緒論では、気体拡散分離法の基礎的な面で未解決な問題を概説し、本研究の目的を明らかにしている。

第1章は、従来気体拡散分離法の基礎原理となっている Knudsen や Present-deBetnune の理論とそれにもとづく分離効率の表現法を示したのち、バイコール多孔質硝子製の隔膜を用い水素、ヘリウム、プロパンおよび n-ブタンガスを透過させた実験を記述したものである。この実験では、不活性ガスの透過流量は上記基礎理論に従うが、吸着性の強いガスに対しては理論から予測されるよりはるかに多い透過流量を得ることが認められ、著者は基礎理論の適用に重大な限界があることを示している。

第2章では、まずこの適用限界が多孔質隔膜上の表面拡散流の存在に起因するものであることを指摘し、表面拡散に関する従来の諸研究を概観して、これらの研究には推論上の仮定にまた実験方法に若干の誤りがあることを見出している。ついで著者は表面拡散流の機構に考察を加え、表面拡散現象が固体表面に吸着した分子のジグザグな跳躍であるとしてその挙動を統計的に処理し、吸着が単分子層状態にあるときの表面拡散係数は(1-表面被覆率)に逆比例するとの新しいモデルを提出した。もちろん著者の提案したモデルにも種々の仮定が含まれているが、著者はこれに精細な検討を加えている。最後に第1章に述べた著者自身の実験結果ならびに従来の諸家の実験結果が、この新しいモデルによく適合することを示している。新しいモデルの導入は著者自身の見解によるもので、本研究の中核の一つをなすものである。

第3章は表面拡散流を伴う場合の二成分混合ガスの分離について記述したものである。新しいモデルに従う表面拡散流が伴われる場合、二成分混合ガスの分離がどのように行なわれるかを解析したのち、n-ブタン：プロパン混合ガスの分離実験を実施し、得られた結果がこの解析から予測されるものとよく一致することを示している。

第4章では、とくに二成分混合ガスが同位体混合物である場合の解析が示されている。気相における流れに Knudsen あるいは Present-deBethune の理論を、多孔質隔膜上への吸着に Langmuir あるいは B.E.T. の理論を適用して議論を進め、表面拡散流を伴って同位体が分離される場合の分離効率を解析している。

第5章では、表面拡散流の同位体効果について述べている。表面拡散流の支配因子である吸着平衡と表面拡散係数とについて統計力学的考察を加え、単分子層吸着状態での表面拡散現象には Knudsen 流と同じ程度の同位体効果が存在すると結論している。この結論を前章に述べた解析結果に適用し、かつプロパン（分子量44および45の同位体混合物）ならびに n-ブタン（分子量58および59の同位体混合物）両ガスを対象にして分離実験を行ない、その結果が非常によい精度でもって説明されることを示している。本章の内容は本研究の中核の他の一つをなすものである。

第6章および第7章は気体拡散分離装置の操作条件と分離性能との関係を論じたものである。

第6章では、操作条件として操作圧力を取り上げ、装置の性能の測度である分離パワおよび単位運転所要動力あたりの分離パワと操作圧力との関係を求めている。ウランの濃縮を例にとり数値計算によって明らかにされたことは、これらの分離パワを最大にする最適の操作圧力が存在し、その値は気相における分子性の流れをある程度犠牲にする領域に見出される点である。著者はここでも、分離性能は単に処理されるガスの気相における分子運動に立脚して多孔質隔膜の孔径の大きさだけで論ぜられるべきでなく表面拡散流が存在する以上は隔膜の材質や操作温度にも充分な考慮を払うべきであると説いている。

第7章は、操作条件の他の一つとして多孔質隔膜に沿うガスの流動状態に注目し、装置の分離性能との関係を論じたものである。流動状態を完全混合、非混合、片混合、向流および並流の基本型に分類して解析し、同じくウランの濃縮を例にとって数値計算を行ない、各型式の特性を明らかにしている。そして分離性能は向流型がもっともすぐれ完全混合型がもっとも劣り、多孔質隔膜を透過するガス量と未透過のガス量との比の値によっては、性能にかなりの差異を生ずることを指摘している。

総括は以上の内容を要約したものである。

## 論文審査の結果の要旨

本論文はウラン濃縮の一方法である気体拡散分離法の基礎的な問題として、分離の機構とくに表面拡散現象が分離効率に及ぼす影響ならびに分離装置の操作条件と性能との関係に着目して行なった研究結果をまとめたものである。

気体拡散分離法の基本的な原理は Knudsen の理論あるいは Present-deBethune の理論と呼ばれるもので、混合ガスの分子がその平均自由行程より小さい直径の孔を、分子同志の衝突をまったくあるいはほとんどおこさずに通過するとき、各成分ガス分子が独立した運動を行なうことによっている。

このような小さい孔を具体的に実現するのは多孔質隔膜であるが、一つの隔膜のもつ細孔の総容積にくらべて孔壁の総表面積がきわめて大きいので、細孔を通過するガス分子と孔壁面との間の分子的な相互作用を無視することはできない。著者は、この相互作用はガス分子の壁面への吸着と吸着された分子が壁面上を二次元的に移動するいわゆる表面拡散現象であると考えた。事実、著者がバイコール多孔質硝子隔膜

を用いて行なった実験では、水素やヘリウムガスのような実験温度で非吸着性のガスについては表面拡散現象は認められないが、プロパンあるいは n-ブタンガスのような吸着性の強いガスでは顕著にあらわれており、著者は Knudsen の基礎理論には実際上適用限界があることを見出した。

そこで著者は表面拡散現象の機構に対し物性論的な考察を加え表面拡散現象は表面に吸着した分子がジグザグな跳躍をくり返すことによるものであるとし、跳躍挙動を統計的に処理した。その結果、従来の定説を破って、単分子層吸着状態での表面拡散係数は(1-表面被覆率)に逆比例して表面被覆率の増加とともに増大するとの新しいモデルを提案した。そして著者自身の実験結果ならびに従来の諸家の実験結果によって、このモデルの妥当性を確認している。新しいモデルの提案は本研究の中核の一つである。

ついで著者は、新しいモデルに従う表面拡散流を伴って混合ガスが分離される場合の分離効率を検討した。まず通常の混合物を対象にして解析し、その結果をプロパン:n-ブタン混合ガスについて検証したのち、とくに同位体混合物の場合の解析を行なった。さらに表面拡散流の同位体による差異すなわち同位体効果について統計力学的立場から考察を進めた結果、Knudsen 流の同位体効果とはほぼ同じ程度であるとの結論に達した。プロパン(分子量44および45の同位体混合物)および n-ブタン(分子量58および59の同位体混合物)両ガスについて著者が行なった実験結果は、この結論が妥当であることを証明しており、従来、同位体効果はまったく無視できるあるいは逆に非常に大きいとしていた諸説に明解な結末を与えたと言える。同位体効果の推定は本研究の中核の一つをなすものである。

つぎに多孔質隔膜を収納した一単位の分離装置の分離性能を装置工学の立場から見るとき、これに影響を及ぼす因子には種々のものが考えられるが、著者はとくに操作圧力と隔膜に沿うガスの流動状態とをえらんで検討した。操作圧力はもちろんガスの分子性の流れを実現せしめる程度の低さでなければならないが、一方装置の処理費の観点からはあまり低圧にするのは望ましくない。著者は性能比較の基準として分離パワおよび装置の単位運転所要動力あたりの分離パワを用い、ウラン濃縮を例にとって数値計算を進めた結果、最適の操作圧力が存在することを確認し、この値は気相における分子性の流れを多少犠牲にした領域にあることを見出した。隔膜に沿うガスの流動状態についてはこれを完全混合、非混合、片混合、向流および並流の基本型にわけ、それぞれの分離性能を同じくウラン濃縮を例にとって示している。そして向流型がもっともすぐれ完全混合型がもっとも劣るとともに、多孔質隔膜を透過するガス量と未透過のガス量との比の値によっては性能にかなりの差があることを指摘し、流動状態に対しても慎重な考慮を払うべきであると説いている。操作圧力および流動状態に関する研究の内容は気体拡散分離装置の設計、運転の一助となるものである。

以上要するに、本研究は気体拡散分離法に関する基礎的問題を物性論的にまた装置工学的に解析したもので、得られた結論はウランを濃縮する場合の貴重な指針を与えるものであり、学術上、工業上寄与するところが少なくない。よって本論文は工学博士の学位論文として価値あるものと認める。