

京都大学工学部 正員 井上頼輝

正員 ○菅原正孝

学生員 岡田宏道

1. はじめに

使用済の核燃料は再度使用するために燃料再処理工程で分離精製されるが、この時に多くの核分裂生成ガスが放出される。この中には、セシウム-133, クリプトン-85, ヨウ素-131 等の放射性核種も数多く含まれているが、近年、放出される放射性ヨウ素の一部が有機ヨウ素（そのほとんどがヨウ化メチル）として存在していることが判明した。さらに、原子炉内の燃料被覆中に蓄積される放射性ヨウ素が、原子炉事故に際して放出される時、有機ヨウ素の形態をとるものもあることが知られている。したがって、原子炉施設周辺の住民の安全を確保する見地から、有機ヨウ素ガスの除去対策の確立が急務となっている。そこで、本研究においては、ヨウ化メチルを除去する方法として、吸着剤およびイオン交換樹脂による吸着除去法に注目し、ヨウ化メチルに対する吸着能と比較検討して性能の良いものについてはさらにその吸着特性を明らかにすることを目的として実験を行った。

2. 実験装置および方法

吸着量の測定は定容法によった。その実験装置を図-1に示す。吸着剤としては、粒状活性炭（径4.0mm, 高さ6.4mm）および粒状の人造ゼオライト（径1.6mm, 高さ3.6mm）を用いた。また、分子状ヨウ素ガスの吸着除去にあわせて有効である陰イオン交換樹脂についても実験を行った。

実験は試料を真空状態で約30℃の高温で（樹脂は常温にて）約2時間の加熱排気の後に行ない、種々の圧力における平衡吸着量を測定した。また、同時に、吸着量の時間的変化を観察することによって吸着速度を求めた。なお、試料が吸着器中で占める容積は小さく、吸着量の算出に際しては無視しうる程度のものであった。

3. 実験結果および考察

50mm Hg 附近までの圧力範囲で、25℃, 50℃および80℃における平衡吸着量を求めた。その結果、ヨウ化メチルに対してイオン交換樹脂の吸着能はほとんど発揮されないことがわかった。しかし、活性炭およびゼオライトについては、その吸着が認められたので、それらの吸着等温線がどのような形で表れているかを検討した。

吸着等温式としては、ヘンリー型、ラングミュア式、フロインドリッヒ式などがその代表的なもので

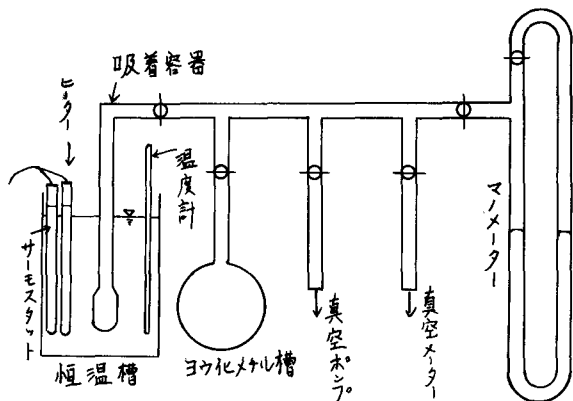


図-1 実験装置

あるが、活性炭、ゼオライトともに本実験の圧力範囲ではラングミエア式に適合することはわかった。その結果を図-2 および表-1 に示す。ラングミエア式は次のように表現される。

$$v = \frac{abP}{1+abP} \quad \text{または} \quad \frac{v}{P} = \frac{1}{b} + \frac{a}{1+abP} \quad \dots(1)$$

ここに、 v : 吸着量

P : その時の被吸着質の圧力

a : 吸着平衡定数

b : 定数

である。(1)式は単分子層説に基づく理論式であり、一般に化学吸着(活性化吸着)で多くみられる。(1)式において、定数 b は飽和吸着量を表わし、理論的にはこの値は吸着剤の表面積に直接関係する定数であるために、温度によっても変化しない筈である。活性炭では、25℃、50℃における飽和吸着量はほとんど変わらないが、80℃ではかなり減少しており、ゼオライトについても同様の傾向が認められる。このように、実際には、飽和吸着量がある程度程度に依存していると考えられる。活性炭とゼオライトの飽和吸着量を比較すると、活性炭の方が吸着能が大きく、ゼオライトの2.0~2.5倍の吸着能を有することがわかる。加うると、ゼオライトの水分選択性は強く、水蒸気と多く含むガスに対しては吸着能が充分に生かされていない恐れもあるので一般的に、活性炭の方が吸着剤としては優れていると言える。

つぎに、ラングミエアの吸着等温式をクラウジウス-クラペイロンの式

$$q_{iso} = RT^2 \left(\frac{d \ln P}{dT} \right)_v \quad \dots(2)$$

を適用して微分吸着熱を求めた結果、活性炭では 1.03 Kcal/mol、ゼオライトでは 0.197 Kcal/mol であった。活性炭の場合について、吸着平衡定数 a と $1/T$ との関係を図-3に示す。

なお、吸着速度式はラングミエア式で表されることがわかった。このことから、吸着等温線がラングミエア式になることが裏付けされた。

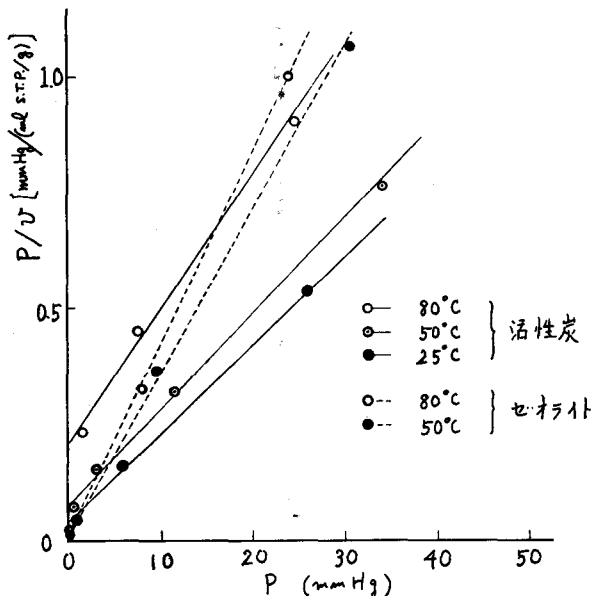


図-2. ラングミエア式吸着等温線

表-1 吸着平衡定数と飽和吸着量

	温度 ℃	吸着平衡定数 a	飽和吸着量	
			$b(\text{ml ST.P/g})$	$b(\text{ml ST.P/cm}^2)$
活 性 炭	20	0.585	51.3	2.63
	50	0.287	49.8	2.56
	80	0.189	34.8	1.79
ゼ オ ラ イ ト	50	3.49	28.7	1.03
	80	2.48	24.2	0.87

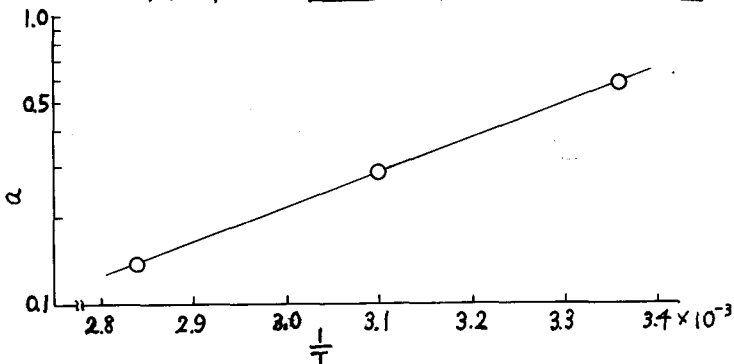


図-3 絶対温度の逆数と吸着平衡定数との関係