

2. 気相吸着を用いた水素同位体分離

2. Hydrogen Isotope Separation by Gas Adsorption Processes

古藤健司 KOTOH Kenji 九州大学大学院工学研究院 (原稿受付:2015年8月17日)

合成ゼオライトは液体窒素温度などの低温において H₂<HD<HT<D₂<DT<T₂の同位体効果をもって水素に 対して有為な物理吸着力を示す.従って物理吸着法による同位体分離が可能であるが,吸着法は脱着操作が必要 であり,従来の温度スイング吸着法では実用的な効率は期待できない.しかしながら,既に中小規模の空気分離 に用いられるようになった圧力スイング吸着法を応用すれば格段の効率の向上が図れることを紹介する.

Keywords:

hydrogen isotope separation, cryogenic adsorption, synthetic zeolite, absorption isotherm, pressure swing adsorption

2.1 はじめに

ゼオライトは結晶性多孔質のアルミノケイ酸塩鉱物の総称であり,脱水されることによって結晶格子構造内に規則 的な細孔と分子窓が形成される.窓径より小さい分子は結 晶内に浸透して細孔内に吸着されるが,大きい分子は結晶 内に進入できないので吸着されない.つまり,分子篩作用 を呈する.水分子の結晶内配位空間を主たる吸着場とする ゼオライトは強い極性吸着力を持っており,除湿・脱水剤 として古くから工業的に用いられている.モルデナイト (斜方晶系)などの天然ゼオライトに加えて,ユニオンカー バイド社が開発した立方晶系のA型,X型,Y型などの合 成ゼオライトが汎用されている[1,2].合成ゼオライトが "モレキュラシーブ"と通称されるのは,同社の"Molecular sieves 3A,4A,5A,13X"などの商品名に由来してい る.合成ゼオライト研究は更に進展し,疎水性などの各種 の機能性を持った製品が開発され商品化されている.

DT 核融合炉開発に関連した技術[3]の中で,合成ゼオラ イトなどを用いた気相吸着には,水蒸気を取り扱うものと ガスを処理するものとがある.前者としては,トリチウム 取扱施設のトリチウム安全閉込システム(室内漏洩トリチ ウム回収装置,グローボックス雰囲気浄化装置など)が代 表的であり,雰囲気中の漏洩トリチウムを触媒酸化・吸着 除去回収する方式が一般的である[4,5].吸着操作は回分 操作であるので,操作を継続するには吸着剤の脱着再生が 必要である.最近,水蒸気透過中空糸膜を用いたプロセス を採用して除湿操作の連続化を図ったトリチウム除去シス テムが開発されているが,バックアップとして合成ゼオラ イト吸着剤充填塔が依然として装備されている[5,6].

後者としては、プラズマ排ガス浄化システム(未燃焼 DT 燃料ガスの浄化回収(1 段目:冷温でのメタンなどの Faculty of Engineering, Kyushu University, FUKUOKA 819-0395, Japan 吸着除去,2段目:深冷温(液体窒素温度)での吸着回 収・ヘリウム(⁴He,³He)除去))が考えられるが,パラジ ウム水素透過膜を用いた連続操作プロセスが効率的であり 専ら採用されている.また,炉心プラズマ高真空排気クラ イオソープションポンプは極低温(液体ヘリウム温度)吸 着装置であり,温度スイング吸脱着操作によって大容量真 空排気を実現し,核融合炉開発の当初から燃焼プラズマ排 気ポンプとして採用されてきた[5].微量ヘリウムを含む DT 未燃焼ガスのクライオソープションポンプの操作にお いて同位体効果が昇温脱気過程で顕著に現れる.温度上昇 に伴って軽成分が優先的に脱着脱気してくる.この効果を 同位体分離に利用することもできるが,分離仕事は水素同 位体分離システムに任せ,本務を優先し,速やかな昇温脱 気再生操作よる排気性能の維持・向上に努めるのが工学的 に得策である.

液体窒素温度(77.4 K)で合成ゼオライトは水素同位体 ガスを有効に物理吸着する.この吸着系の吸脱着操作は DT 燃料処理系プロセスラインの回分式移送ポンプに利用 できる.多成分吸着挙動としては軽成分より重成分が選択 的に吸着される.例えば,H2-D2系では常圧気相に対して 2.0前後の吸着平衡同位体分離係数が得られている.このこ とは,合成ゼオライトは比較的安価な冷媒温度77.4 Kにお いて水素同位体ガスを吸着すると同時に,工学的に有為な 同位体分離仕事を成し得ることを示している.しかしなが ら,吸着法は回分操作であり,処理を継続するには吸着剤 の脱着再生を行う必要がある.

吸着剤の再生法としては、高い活性化率が得られる"昇 温脱着・冷却再生"が古くからの常套的な手段である(温 度スイング吸着法(Temperature Swing Adsorption (TSA) process または Thermal Swing Adsorption process)).しか

author's e-mail: kotoh@nucl.kyushu-u.ac.jp& kotoh@har.bbiq.jp

しながら,本法はこの脱着再生操作に時間を要し,その昇 温工程と冷却工程の所要時間が本法の処理効率向上の限界 を律している.したがって,TSA法は微少・少量の吸着分 離には簡便であり適しているが,工業的処理に用いる場合 は深冷蒸留などの他の分離法に対して優位性を持ち難い.

一方,脱着活性化の高率化は犠牲にして"減圧脱着再生" あるいは"減圧脱着・昇圧再生"によって脱着再生工程の 時間短縮を図り,処理効率の格段の向上を目論む方法が "圧力スイング吸着法 (Pressure Swing Adsorption (PSA) process)"である.種々のガス吸着系について,本法ガス 分離プロセスが開発され,各種 PSA システムが工業化に 至っている.特に,合成ゼオライトを用いた空気分離 PSA は有効であり,既に中小規模の酸素製造装置として随所に 普及している[7-10].しかしながら,本法は水蒸気/合成 ゼオライトなどの強吸着系では有効な脱着率が得られない ので不向きである.

DT 核融合炉燃料サイクルでは,回収・精製された未燃 焼排ガス中に混在する同位体不純元素:H成分を除去する ための水素同位体分離システムは必需要素である.また, トリチウム増殖ブランケットからのT回収ガスのH浄化の ための同位体分離システムも必要である.これらDT 燃料 サイクルの水素同位体分離システムには,既に技術的完成 度の高い深冷蒸留法が最有力と考えられている[3,5].

一方,著者らは,水素同位体 (H₂, D₂, HD) / 合成ゼオ ライト低温吸着挙動を実験観察し解析検討を行ってきた. その結果,本吸着系の77.4 K 深冷 PSA 操作は有為の水素同 位体分離仕事を成し得ることがわかった.よって,合成ゼ オライト(5A あるいは 13X) 充填塔を用いた PSA 水素同 位体分離実験装置を製作し、D2-H2 混合ガス試料からのH2 単離回収/試料中のD2濃縮の実験検証を行った.一連の PSA 実験解析研究の成果を踏まえ、実用化への設計操作問 題を検討した.吸着分離 - 減圧脱着 - 昇圧再生の回分操作 を複数塔の輪番組合せによって擬連続化した多塔式深冷 PSA 水素同位体分離プロセスを提案した. 本式システムに ついて、核融合科学研究所 (NIFS) で概念設計が進められ ているヘリカル型核融合原型炉(FFHR)の燃料サイクル に求められる未燃焼ガス同位体分離処理量を基準にスケー ルアップしたところ、工業的成立性が十分見込まれる設備 規模になると予想される.

簡素な設備構造で廉価な冷媒を利用する深冷 PSA 水素 同位体分離システムは,深冷蒸留システムに比較して,設 備・運転・維持費を格段に軽減でき,更に,ガス処理プロ セスなので DT 燃料のプロセスインベントリーを低減でき る.このことは,放射性可燃物取扱事故リスクを抑制する と共にトリチウム初期装荷必要量を削減できることを示唆 する.このように,DT 核融合炉燃料サイクルの同位体分 離操作に気相吸着法も有望であり,ここに紹介する.

2.2 吸着平衡特性

合成ゼオライトなどを用いた気相吸着法による水素同位 体分離プロセスを考える場合,先ず,同位体単成分の吸着 平衡特性(吸着等温線)を知る必要があり,そして少なく とも2成分以上の吸着平衡挙動を実験および解析的に把握 する必要がある.吸着塔を用いた分離操作を行う場合は吸 着剤充填床内の物質移動とその特性,つまり,物質移動係 数などの特性因子とその依存性を把握しておく必要がある.

2.2.1 水蒸気吸着

蒸気の物理吸着現象は気液平衡関係の化学熱力学を拡張 することで説明できる.したがって、水素同位体水6成分 の吸着力の強さは比揮発度(各成分の平衡蒸気圧比)の逆 数に順じて H₂O<HDO<HTO<D₂O<DTO<T₂Oの関係 にあり,その比率(吸着平衡分離係数に相当)は吸着ポテ ンシャルエネルギー差に起因する効果が加わって比揮発度 の逆数より若干高目になる.しかしながら、水素同位体水 は 次式: $H_2O + D_2O \neq 2$ HDO, $D_2O + T_2O \neq 2$ DTO, H₂O+T₂O **↓** 2 HTO の可逆反応は迅速でありほぼ平衡状態 で存在するので、水素同位体分 (H, D, T) の分離係数は 複雑になる.更に,吸着平衡における多成分挙動を推算す るには単成分の吸着等温線を知る必要があるが、HDO, DTO, HTOの実測は不可能である.加えて, 天然の酸素に は¹⁷Oが0.037%,¹⁸Oが0.204%含まれており,例えばD¹⁶O や HT¹⁶O と質量効果の近接した H¹⁸O も存在している. よって,水分吸着系における水素同位体分離挙動の詳細な 把握は極めて困難である.

トリチウム安全閉込システムでのT汚染水蒸気(極微量 HTO含有)除去回収では,H₂Oに対するHTOの吸着分離 係数が1.1程度であるので,汚染水分からのH₂O単離開放 /汚染水分の濃縮減容回収の分離操作は非効率的である. したがって,トリチウム除染は専らバルク水分を吸着除去 する(同位体分離をしない)処理法が得策で一般的である. 2.2.2 ガス吸着

・吸着等温線

77.4 K における合成ゼオライト (Synthetic Zeolite) 4A, 5A, 13X は水素同位体分子を有為に物理吸着して Langmuir 型等温線の平衡特性を示す.同位体効果として,吸着 力の強さは次の関係:H₂<HD<HT<D₂<DT<T₂にある [11].吸着等温線は吸着処理プロセスを検討する上で最も 重要な物性情報であり,プロセスの設計操作の工学では吸

着等温式で整理された数値情報が求められる[12-15]. 吸着平衡についての理論的研究は古くからなされてい る.表面吸着説に基づくLangmuir式やPolanyiの吸着ポテ ンシャル論に拠ったDubinin-Astakhov 半経験式,経験的 相関式のFreudlich式など,近年には,統計熱力学に基づく Ruthven式など,多くの吸着式が提案されている.しかし, 吸着剤内吸着場は活性的に不均一であり,吸着モデルを更 に理論付けるには不均一エネルギー分布関数を考慮した記 述が求められる.しかしながら,多くの相関因子からなる 詳細な理論モデル式も,例えば,Clausius-Clapeyronの式 から求められる吸着熱の吸着量依存性などの化学熱力学的 な傍証がなければ,単なる複雑な経験式に過ぎないという ことになってしまい,理論モデルの意味を失う[16].

・多成分吸着挙動

同位体分離に応用するには多成分吸着平衡挙動を把握し ておかなければならない.多成分挙動を記述するには各成 Special Topic Article

分の吸着等温線が既知でなければならない.最も簡単な吸 着式として Langmuir モデルを拡張した Markham-Benton 式が挙げられる.その他,いくつかの経験的数学モデル式 が提案されている.理論的な推算法としては,吸着相を理 想溶液と仮定し,熱力学に基づいてラウール則(Raoult's law)を適用した Myers-Prausnitz の理想溶液理論(Ideal Adsorbed Solution Theory)が代表的である[14-17].

2.2.3 水素同位体吸着特性

・H₂ および D₂ の吸着等温線

水素同位体ガスは可逆反応: H_2+D_2 =2HD, D₂+T₂=2DT, H₂+T₂=2HTの下に存在する.反応は遅鈍 であるが、白金やパラジウムなどの触媒の存在下では迅速 である.従って, H₂, D₂, T₂の吸着等温線は実測できるが、 HD, HT, DTの単離は極めて困難であり吸着等温線は実 測不可能である.液体窒素などの冷媒温度でのH₂および D₂の各種ゼオライトへの吸着実験データは比較的古くか ら報告されている.特に液体窒素冷却下のT₂吸着平衡デー タ[18]は、本格的トリチウム取扱施設でしか取得できない 貴重な学術情報である.しかしながら、T₂の測定系では崩 壊熱の影響を除しきれないので、参考にはなるが77.4 K でのH₂およびD₂の吸着等温線とは温度条件が厳密には異 なる.

著者らは[19,20],図1に示す定容式吸着平衡測定装置 を用いて,液体窒素および液体アルゴン温度における合成 ゼオライト4A,5A,13X (SZ-4A,SZ-5A,SZ-13X)への H₂およびD₂の吸着平衡を気圧10⁻²~10⁵ Paの広範囲で測 定した.例として,図2にSZ-5Aへの吸着等温線を示 す.図中プロットは実測値であるが,平衡圧力は熱遷効果 (Thermal Transpiration Effect)[21]を考慮して校正されて いる.実線は著者らが提案した"吸着ポテンシャル場空孔 気液充填モデル"による吸着式:

$$\frac{Q}{Q_{\rm S}} = \exp\left[\frac{\mu_a - \overline{\mu}}{RT} \left\{ 1 - \int_{-\infty}^{\mu_a} G(\mu) \,\mathrm{d}\mu \right\} - \frac{\sigma^2}{RT} G(\mu_a) \right\} (1)$$

による近似曲線である.ここで,QとQ_sは平衡吸着量と飽 和量を表す.本吸着モデルでは,平衡圧Pにおける気相自



由エネルギーを $\mu = RT \ln P$ と定義し、対応する吸着ポテ ンシャルの分布を関数 $G(\mu)$ で特徴付けられると仮定して いる.そして、 $\mu = \mu_a$ で吸着平衡にある吸着場空間内の吸 着相は、 $\mu \le \mu_a$ の空間域では拘束された凝縮相的状態、 $\mu > \mu_a$ の空間域では拘束までには至らない気相的状態の 混相を想定している.本解析では吸着ポテンシャル分布に 正規分布:

$$G(\mu) = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} \exp\left\{-\frac{(\mu - \overline{\mu})^2}{2\sigma^2}\right\}$$
(2)

を仮定した.したがって、本吸着式は吸着ポテンシャル分布の平均値 μ と標準偏差 σ の2つのエネルギー因子と絶対容量 Q_s の3つの特性因子で吸着等温線を表現している.

式(1)は、図中の H₂ および D₂ の広範囲の実験値分布を 全域に亘って忠実に近似している。各成分の等温線に対す る特性値を**表1**に示す。これらは Marquardt 法による Curve-fitting 解析によって決定した。ただし、① H₂ と D₂ に対する Q_S は共通で、②吸着ポテンシャル分布は相似で ある:

$$\frac{\overline{\mu}_{H2} - \mu_0}{\sigma_{H2}} = \frac{\overline{\mu}_{D2} - \mu_0}{\sigma_{D2}}$$
(3)



図 2 77.4 K および 87.3 K における SZ-5A への H₂ と D₂ の吸着等 温線.

Journal of Plasma and Fusion Research Vol.92, No.1 January 2016

表1 77.4 K における SZ-5A への水素同位体吸着特性因子.

	E ⁰ [kJ/mol]	$\frac{\overline{\mu}}{[kJ/mol]}$	σ [kJ/mol]	μ_0 [kJ/mol]	$\begin{array}{c} Q_S \\ [mol/kg] \end{array}$
H_2	25.96	4.291	3.071		
HD	22.53	3.926	3.215	12.09	6.495
HT	21.26	3.790	3.268		
D ₂	18.44	3.490	3.387		
DT	16.85	3.321	3.453		
T_2	15.10	3.135	3.527		

を解析条件とした.ここで,吸着凝縮相の相圧を P_0 として 基準ポテンシャル $\mu_0 = RT \ln P_0$ を定義した.両対数表示で の相関性と片対数表示での相関性の両者を満足するように 重みを付け適宜調整して最適値を決定した.

・HD, HT, DT および T₂ の吸着等温線

物理吸着力における差異は分子の零点エネルギー E^0 に 依存することから[11],水素同位体i成分とj成分の吸着 ポテンシャル分布平均値の差は零点エネルギー差 ΔE_{j-i}^0 に比例する:

$$\overline{\mu}_i - \overline{\mu}_j = \overline{\kappa}_a \varDelta E^0_{i-i} \tag{4}$$

と仮定した.相関係数 π_a は同位体間の共通因子であり,H₂ と D₂の実験解析値の関係から決定できる.したがって,既 知の $\overline{\mu}_{H2}$ あるいは $\overline{\mu}_{D2}$ を基準に式(3)から $\overline{\mu}_{HD}$, $\overline{\mu}_{HT}$, $\overline{\mu}_{DT}$, $\overline{\mu}_{T2}$ が求まり,式(4)で σ_{HD} , σ_{HT} , σ_{T2} が決まる. 77.4 K での結果を**表1**に示す.推算される HD,HT,DT, T₂の吸着等温線の妥当性はH₂-HD-D₂系吸着平衡実験で得られる同位体分離係数:

$$S_{F,HD/H2} = (x_{HD}/x_{H2})/(y_{HD}/y_{H2})$$
 (5 a)

または

$$S_{F,D2/HD} = (x_{D2}/x_{HD})/(y_{D2}/y_{HD})$$
 (5 b)

の挙動とIAS理論に基づく多成分吸着解析結果との整合性 によって裏付けられる.ここで, x_i と y_i はi 成分の吸着相 組成と気相組成を表す.

2.2.4 多成分吸着における水素同位体分離

図1の吸着装置を用いてH₂-D₂およびH₂-HD-D₂混合ガス 吸着平衡実験を行った.3成分実験では,定容槽に仕込ま れたH₂-D₂混合ガスを付設の放電管でH₂+D₂→2HDの反応 を右へ起こさせてH₂-HD-D₂系試料を作成した.混合試料 の初期組成と吸着平衡達成後の気相組成を質量分析計で測 定し,吸着系の総括物質収支から吸着相組成を決定した. 例として,77.4 KでのSZ-5Aへの水素同位体2,3成分混合 ガス吸着平衡における分離係数を図3に示す.気相組成は 任意であるが全圧 1~10⁵ Paの広い吸着域で観察した値を プロットしている.一方,IAS 理論に則り,H₂,D₂,HD の吸着等温線を用いて計算したトレーサー混合系の分離係 数の推算値を実線または破線で示している.ここでは, $S_{F,D2/H2}$, $S_{F,D2/HD}$ の推算値曲線が実験値のプロッ トを良く近似している.特に, $S_{F,HD/H2} \geq S_{F,D2/HD}$ について の実験値と解析値の良い近似は,HD 吸着等温線の推算の



図 3 77.4 K における SZ-5A への H₂-D₂ 系 2 成分および H₂-HD-D₂ 系 3 成分吸着平衡における同位体分離係数.

妥当性を立証しており、相関係数 κ_a の信頼度を裏書している.

・多成分吸着理論と解析

IAS 理論では,吸着相を理想溶液とみなし,Gibbs-Duhem 式に類似の次式をもって熱力学的状態を仮定する:

$$\Pi = \frac{RT}{V_{\rm S}} \int_0^{P_a} Q \,\mathrm{d} \ln P \tag{6}$$

ここで,吸着場圧 Π を定義する. ゼオライトなどの空孔充 填吸着系であれば $V_{\rm S}$ は空孔容積,表面吸着系であれば吸着 飽和面積であり Π は 2 次元圧(広がり圧力: Spreading Pressure)となる. そして,平衡での混合吸着相における 各成分の関係として

$$\Pi_1 = \Pi_2 = \dots = \Pi_n \tag{7}$$

が成立しており、この条件での各成分の平衡圧を P*とすると

$$P_{t}y_{1} = P_{1}^{*}x_{1}, \quad P_{t}y_{2} = P_{2}^{*}x_{2}, \cdots P_{t}y_{n} = P_{n}^{*}x_{n}$$
(8)

のラウール則が適用できる. P_t は平衡全圧であり,吸着平衡全量 Q_t は各成分の吸着等温式による $Q_i(P_i^*)$ と次の関係にある:

$$\frac{1}{Q_t} = \frac{x_1}{Q_1(P_1^*)} + \frac{x_2}{Q_2(P_2^*)} + \dots + \frac{x_n}{Q_n(P_n^*)}$$
(9)

しかしながら,式(7),(8),(9)の関係を満足する解を 得るために Newton-Raphson 法などによる収束計算を必要 とする.

これまでのところ,77.4 K における SZ-4A, SZ-5A, SZ-13X,加えて 87.3 K における SZ-4A, SZ-5A による H₂, HD, HT, D₂, DT, T₂ の吸着等温線が把握できており 6 成 分吸着平衡挙動を予測できる[19,20].その他として,河村 らのゼオライトへの水素同位体 6 成分の深冷吸着等温線の 報告[22]は貴重であるが,残念ながら同位体効果の相関な どに理論性が乏しい. Special Topic Article

2.3 圧力スイング吸着法水素同位体分離

PSA 法水素同位体分離システム開発研究の当初の目的 は、NIFS での LHD-HH 実験への天然水素からの高純度 H₂ の分離生産・供給であったが(HD を 0.03% 含む天然水素 ガスの吸着操作による純 H₂ の単離回収の連続・高速 化)、燃焼プラズマ排気 DT 燃料からの不純物 H成分除去シ ステムへの応用性に着眼し、図4に示す PSA プロセスの実 証研究を行った.実験では 1%D₂+H₂ 混合ガスを用いて 行った.

2.3.1 PSA 水素同位体分離プロセス操作手順

図4のPSAプロセスは、①純H2が吸着充填されている 深冷吸着塔への原料水素ガスの供給で始まる。②77.4K での合成ゼオライトのD₂/H2吸着平衡分離係数が2程度と すると吸着相には気相に対して約2倍D₂が濃縮されるの で、(吸着搭内ステップ状濃度分布を仮定した場合)吸着 塔からD₂が破過するまでに純H2塔吸着容量の約2倍の原 料を搭に供給できる。その間、初期充填H2に加えて、吸着 容量と等量の純H2が塔より単離流出する。③吸着搭を真空 脱着再生する(15%程度が未脱着).④純H2で搭内を昇圧 する(未脱着D2を塔入口方向へフラッシュバック).⑤再 生吸着塔へ原料を供給する(2サイクル目からは再生率が 85%程度の吸着塔で吸脱着操作が継続される).

2.3.2 深冷 PSA 法水素同位体分離塔破過特性実験解析

著者らは、合成ゼオライト SZ-4A、SZ-5A および SZ-13X について、単塔式 PSA 実験装置(NIFS および九大)を用 いて水素同位体吸着破過実験研究を行ってきた.その成果 として、DT 核融合炉燃料サイクルへの応用を考慮した水 素同位体多成分分離 PSA システムの設計操作問題に供す る有用な工学データならびに学術情報を蓄積してきた [21-34].

2.3.3 多塔式 PSA 法水素同位体分離装置

これまでの経験と得られた知見を基に「多塔式PSA水素 同位体分離実験装置」を設計・製作し、平成25年度に完成 させた.核融合研究所に設置されている.図5にスナップ 写真を示す.

2.4 おわりに

NIFS 共同研究として長年に亘って深冷 PSA 法水素同位



体分離プロセス開発研究を行ってきた.これまでの知見から,DT 核融合炉燃料サイクル水素同位体分離システムへの PSA プロセスの応用性が見えてきた.NIFS に新規設置 された多塔式 PSA 水素同位体分離実験装置を使った連続 運転実験など,開発研究の格段の進展に期待したい.

参 考 文 献

- [1] D.W. Breck, Zeolite Molecular Sieves: Structure, Chemistry and Use (John Wiley & Sons Inc., 1974).
- [2] 冨永博夫: ゼオライトの科学と応用 (講談社, 1993).
- [3] 松田慎三郎他:プラズマ・核融合学会誌 87,128 (2011).
- [4] K. Kotoh and K. Kudo, J. Nucl. Sci. Technol. 34, 1099 (1997).
- [5] 関昌弘編:核融合炉工学概論(日刊工業新聞社, 2001) p.197, 205, 225, 229.
- [6] K. Munakata et al., J. Plasma Fusion Res. 10, 36 (2013).
- [7] 川井利長: 圧力スイング吸着技術集成(工業技術会, 1986).
- [8] D.M. Ruthven, Pressure Swing Adsorption (VCH, 1994).
- [9] 広瀬勉: 化学工学 61, 579 (1997).
- [10] 竹内雍監:最新吸着技術便覧 (NTS Inc., 1999).
- [11] P.C. Souers, *Hydrogen Properties for Fusion Energy* (Univ. of California Press, Ltd., London, 1986) p.17, 158.
- [12] 北川浩,鈴木謙一郎:吸着の基礎と設計(槙書店, 1977).
- [13] 化学工学会編:化学工学便覧改訂七版 (丸善, 2011).
- [14] D.M. Ruthven, Principles of Adsorption and Adsorption Processes (John Wiley & Sons Inc., 1984).
- [15] R.T. Yang, *Gas Separation by Adsorption Processes* (Butterworths, Boston, 1987).
- [16] A.L. Myers 他: 化学工学 50, 151 (1986).
- [17] A.L. Myers and J.M. Prausnitz, AIChE J. 11, 121 (1965).
- [18] Y. Kawamura *et al.*, Fusion Sci. Technol. **37**, 54 (2000).
- [19] K. Kotoh and K. Kudo, Fusion Sci. Technol. 48, 148 (2005).
- [20] K. Kotoh *et al.*, Fusion Eng. Des. **85**, 1928 (2010).
- [21] K. Kotoh et al., Fusion Sci. Technol. 56, 179 (2009).
- [22] K. Kawamura et al., Fusion Sci. Technol. 56, 168 (2009).
- [23] T. Sugiyama et al., Fusion Sci. Technol. 48, 163 (2005).
- [24] K. Kotoh et al., Fusion Sci. Technol. 54, 163 (2008).
- [25] K. Kotoh et al., Fusion Sci. Technol. 54, 415 (2008).
- [26] K. Kotoh et al., Fusion Sci. Technol. 56, 173 (2009).



図5 多塔式 PSA 水素同位体分離実験装置.

Journal of Plasma and Fusion Research Vol.92, No.1 January 2016

- [27] K. Kotoh et al., Fusion Sci. Technol. 56, 184 (2009).
- [28] K. Kotoh et al., Fusion Eng. Des. 85, 1992 (2010).
- [29] K. Kotoh et al., Fusion Sci. Technol. 60, 771 (2011).
- [30] K. Kotoh et al., Fusion Sci. Technol. 60, 1355 (2011).
- [31] K. Kotoh et al., Fusion Sci. Technol. 60, 1436 (2011).
- [32] K. Kotoh et al., Fusion Eng. Des. 86, 2799 (2011).
- [33] K. Kotoh et al., Fusion Eng. Des. 88, 2799 (2013).
- [34] K. Kotoh et al., Fusion Sci. Technol. 67, 439 (2015).