

# ヘリウム回収ガス純度不良から学んだこと

吉本佐紀<sup>#</sup>

千葉大学 理工系総務課技術グループ

## 概要

利用者のバルブ操作ミスにより回収ヘリウムガスに大量の空気が混入してしまい、ヘリウム液化運転が不調に陥るトラブルがあった。しかし、この件がきっかけとなり液化運転および運用方法を考察する機会が得られ、業務改善が図られたので報告する。

## 1. 回収系統に空気吸引事件

ヘリウム利用者の中に回収配管が敷設されていない研究室があり、小型実験装置を運び込んで極低温室で液体ヘリウムを充填している。通常は作業に立会い補助しているが、その日は不在であったため利用者だけで作業をし、その際に回収バルブを閉め忘れる出来事があった。翌朝発見するまで半日に渡り開けっ放しになっていた。図1に回収バルブを示す。今回の事件を受けて開閉操作を伴わないカプラ継手（接続時だけ流れる）に変更した。

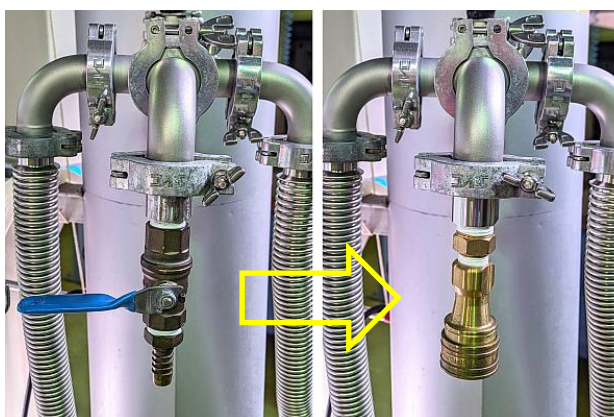


図1. バルブを開閉操作不要タイプに変更した

当初は回収ラインからヘリウムガスが漏洩したのと考えていたが、なんと空気を吸引していた。作業場所は貯槽直近の液体ヘリウムを小型容器に充填する箇所、この回収口を分岐させて利用していた。恥ずかしながら長い事、回収系統で負圧なのはガスバック近傍だけだと思っていた。今回の事件で充填箇所も負圧であることがわかった事はせめてもの収穫であった。

## 2. 液化機の不調

空気吸引事件が起きてから初めての液化運転では内部精製器からの液体空気の放出頻度がこれまで体験した事ないほど激増し、また内部精製器前後の差圧も短時間で付いてしまう有様となった。液化運転のいつもと違う様子を見て、やっと空気が吸引されていた事を悟った。

液化運転ではガスの精製と液化が同時に行われるが、液化能力に対して精製能力の方が大きくなっている。ところが今回の運転ではガス純度の低下により精製能力が著しく損なわれたため、液化能力と逆転してしまうという珍現象に陥った。通常、精製過程においてはバッファタンク（以下、中圧タンク）に精製ガスを貯めながら液化が進むが、今回の場合は中圧タンクへ精製ガスを規定量まで貯めることが出来ず、逆に中圧タンクから消費しながら液化が進んでしまった。このような場合、通常は純ガスを補う事で処理される。当施設にもバラ瓶を設置できる小口の純ガスカードルはあるものの平常時未使用であり<sup>\*1</sup>、また保有していたボンベもわずか3本しかなく<sup>\*2</sup>全く歯が立たない状況であった。

図2に液化運転における当日の中圧タンクの波形と正常時の波形を示す。正常時は三角形の頂点は鋭角を描いているが、当日の純度不良時は丸くなっている。精製量が足りず次第に貯圧から消費に移っていったことを示している。その後もう1サイクル様子を見た後に不調のため液化運転を停止している。

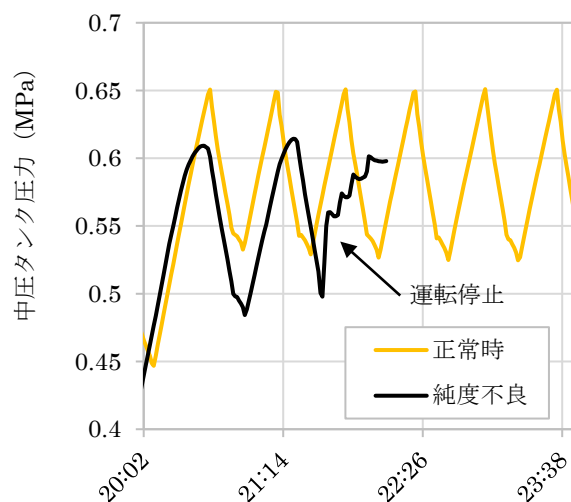


図2. 運転時の中圧タンク圧力の動き

<sup>\*1</sup>: ヘリウムの補充はもっぱら液体での購入である  
<sup>\*2</sup>: 品薄状態で頼んでも購入の目途が立たない状態が続いていた

## 3. 対処

他大学の方に相談したところ高圧ラインの運転圧

(以下、HP)を変更すれば精製能力と液化能力のバランスを変更できる事を教えていただいた。HPを小さくすれば液化能力が下がり、その分の精製ガスを中圧タンクへ貯めることが出来るようになる。具体的には中圧タンクへの導入弁(CV2150)の開度が大きくなり、精製ガスを液化よりも貯蔵へ多く割り振るといったものだった。そこで設定圧を1割ほど下げてみたところ、見事に精製ガスを貯めることに成功し、液化速度は低下したもののプロセスとして平常通りの液化運転ができた。図3にHPに設定した圧力と液化速度の関係を示す。綺麗な相関関係とまではいかないが、HPを小さくすると液化速度が低下する傾向がうかがえる。

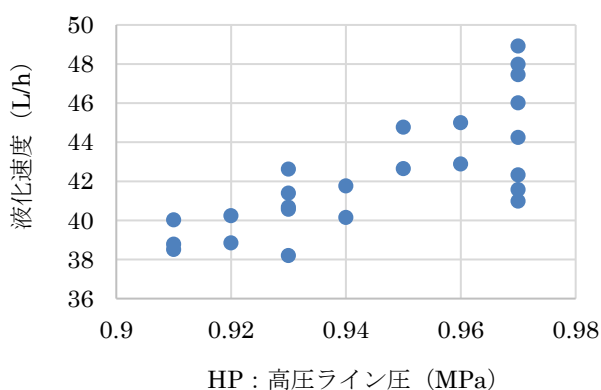


図3. HP と液化速度

#### 4. 発見した事

今回の不具合を通して液化運転状況をまじまじとよく見るようになった。それに伴って新たに発見した事がいくつかあった。不具合と直接かかわらない間接的な事も含めて以下に紹介する。

##### 4.1 内部精製器の差圧設定のズレ

精製過程から再生過程へ移行する条件の一つとして、内部精製器の差圧(PI3401-PI3445)がある。不純物の蓄積で目詰まりを起こして内部精製器の入口と深部に圧力差が出来るとこれを検知して再生過程へ移行するというものだが、この設定値が適正とはいえない状態だった。当初0.25 MPa 差圧が付くと移行する設定になっていたが、観察していると0.20 MPa 前後で中圧タンクへ送り込む弁(CV2150)が全閉となり、逆に中圧タンクから吸い出す弁(CV2160)が開いてしまう。

もう一つの再生過程への移行条件として、中圧タンクに設定圧(本機は0.65 MPa)まで精製ガスを貯める条件があるが、中圧タンクからガスを吸い出している限り0.65 MPa まで到達することはできない。内部精製器の差圧が0.25 MPa になるまでは中圧タンクのガスを使い続ける事になってしまう。純ガスが補充されない場合、精製のサイクル(三角制御)毎に中圧タンクの到達圧が小さくなり、いずれ使い尽くして液化不能に陥ってしまうと考えられる。以上より再生過程移行条件である内部精製器の差圧設定を

0.25 MPa から0.20 MPa へ変えた。ちなみに中圧タンクへ貯める設定圧を変える事でも応急的に再生過程へ移行させることが出来る。

##### 4.2 中圧タンク導入弁の開度減少

精製過程において精製したヘリウムガスを中圧タンクへ送り込む弁(CV2150)の開度が液化運転時間の経過とともに小さくなる傾向に気が付いた。通常は内部精製器の差圧が大きくなるとそれに応じて開度が小さくなるが、差圧ができていない状態でも精製開始から10時間ほど経過した頃から開度が小さくなる傾向がみられる事がわかった(図4)。再生不良による不純物の蓄積なのだろうか。老朽化に起因するのか気になって10年前のデータを調べてみたところ、この傾向は既に起こっていた。差し迫った問題は今のところ無いが今後原因を探っていきたい。

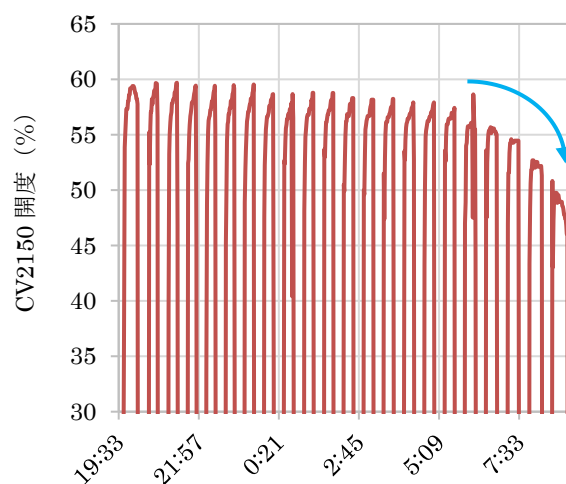


図4. CV2150 開度が終盤急に小さくなっていく

##### 4.3 液化機排出の回収ヘリウムガスの純度

液化運転中に回収用圧縮機が起動するとそれに呼応するように液空の溜まりが多くなり液空放出がよく起こる。当初、たまたま純度の悪いガスが回収されてきたものと思っていたが、この現象が毎回起こるのでピンポイントで純度の悪いガスが実験室から戻ってきているとは考えにくい。

液化運転での様子を図5に示す。鋸刃のような周期的形状を描いているのは中圧タンク圧を示す(青線)。上昇している部分は精製過程、下降している部分が再生過程と冷却過程である。上昇と下降を不規則に繰り返すのが液空液面(黒線)を示す。左上から右下へグラフを二分するのが長尺ボンベ圧(赤線)で、液化運転が進むにつれて小さくなっていく。長尺ボンベ圧が減少している部分を見ると精製過程(青線の上昇部分)に同期しているのがわかる。しかし、一部長尺ボンベ圧が上昇している部分がある。これが回収用圧縮機が起動して長尺ボンベにガスを詰めている状況を示している。このグラフ中で精製過程に液空液面が急上昇して放出が起こっている(10%で放出:図では縮尺の関係で切れている)のは赤矢印

で示す2回で、いずれも回収用圧縮機が起動している最中または起動直後である。なお、再生過程中（青線の下降部分）の液空液面の上昇は加温によるものであり今回の話とは無関係である。

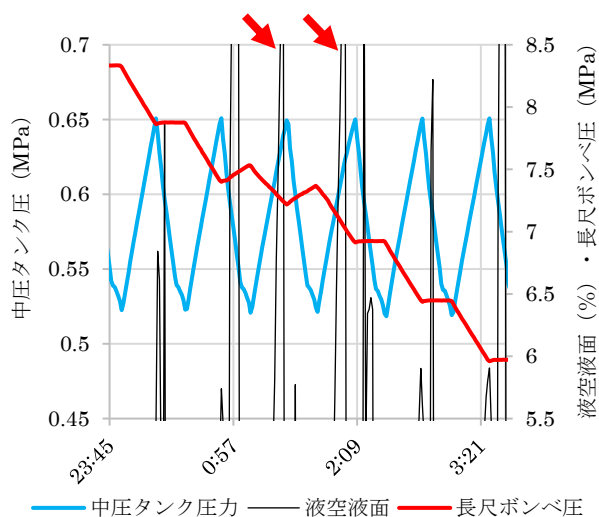


図5. 精製中の液空放出が回収用圧縮機起動と同期している様子

最近の運用状況を顧みると利用量が減少し続けている。2023年は前年の5割程に急減し年間5,000L台まで落ち込んでしまった。持出し容器がゼロ、全ての容器が極低温室に保管されている場面も多かった。そのような状況では液化運転中にガスバッグへ戻ってくる回収ガスはほとんど液化機からの排出ガス（再生過程において内部精製器から排出）であると言える。また、利用量が急減している状況を踏まえると長尺ポンベに貯蔵されているガスは、実験室からの回収ガスよりも極低温室内での自然蒸発ガスの比率が高いと考えられる。以上より、長尺ポンベに貯蔵している回収ガスに対して、液化機から排出されるガスの純度が悪いと推測される。



図6. 排出ラインに設置されたHeガス純度計

そこで液化運転中に排出ガスの純度を測ってみた（図6）。すると再生過程において純度の低下がみられた。内部精製器 TI3475 が 60 K 程にまで暖まった時が下げ止まりで、再生開始時の純度から毎回3%程度低下していた。普段から測っているわけではないので、この値が異常なのかかわからない。10%とか20%も低下するのではないかと恐れていたが、そのような事は起こらなかった。

## 5. 運用面における活用

以上の事柄をきっかけに運用面も見直したので事例を紹介する。

### 5.1 運転日の選定に余裕

当施設では回収ガスが貯まり次第液化運転を行う。頻度は10日前後に一回である。運転スタイルとして終夜運転（夕方起動～翌朝停止）を行っている。これは消費電力のピークを避ける措置として10年ほど前に導入され、そのまま定着した。しかし終夜運転の弱点として、運転日が月・火・水・木の一週間の内4日しか選択できない制約がある。例えば木曜夕方の起動を見送ると週明けまで運転しないため、長尺カードルの回収容量（750 m<sup>3</sup>）が間に合うのか、毎回判断に悩む。判断を誤って日曜日に起動せざるを得なかった事も過去にあった。

そこで今回発見した液化速度の変化を活用する事を思いついた。終夜運転を行うにはガス量が微妙な時、HP設定を操作する事で液化速度を遅めて翌朝まで運転を引き伸ばすことが出来る。これにより液化運転日の選定に幅ができ運用面での余裕が生まれた。ただしHP設定を下げたからといって圧縮機の消費電力が低下するわけではないので、電気代の視点で考えると非効率となる。故にこの方法を使うのは止むを得ない状況の時だけである。

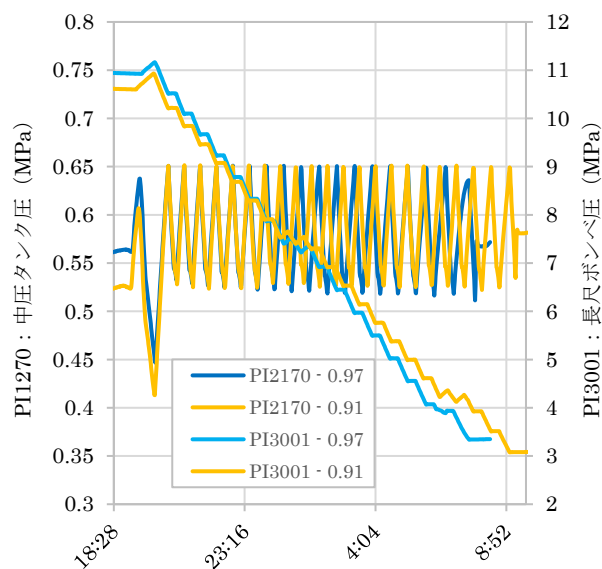


図7. HP設定による運転の比較

図7にHP設定圧が通常の0.97 MPa時と0.91 MPaに操作した時の中圧タンク圧(PI2170)と長尺ポンベ圧(PI3001)の動きを重ねたものを示す。0.91 MPa設定の時は運転開始時の長尺ポンベ圧が0.97 MPa時の時よりも小さい(ガス量が少ない)が、運転終了時には逆転している様子がわかる。また、中圧タンク圧の描く三角形は0.91 MPa設定時の方が幅が狭く(時間が短く)次第に0.97 MPa設定の描く波形からずれていくのがわかる。単純に時間軸方向へ引き伸ばしているのではないのが興味深い。

## 5.2 中圧タンク圧の節約

運転状況を注視していく中で、起動から精製開始に至るまでの冷却過程で消費する中圧タンク圧に幅がある事を発見した。運転の諸条件の違いに起因するものと思われるがはっきりとはわからない。調べた範囲では最小0.08 MPaから最大0.18 MPaと2倍くらいの幅があった(夕方起動データのみ/朝起動データは除く)。起動時に中圧タンクの残圧が低く、かつ最大幅で消費する状況が重なると、1回目の精製サイクルで中圧タンクへ貯めなくてはならないガス量のストロークが非常に大きくなってしまう。

図8に液化運転序盤の中圧タンク圧の動きを示す。中圧タンク圧は内部精製器を冷却する過程で消費され、その後精製過程で設定圧(本機は0.65 MPa)までガスを貯める。以後規則的な波形となる。

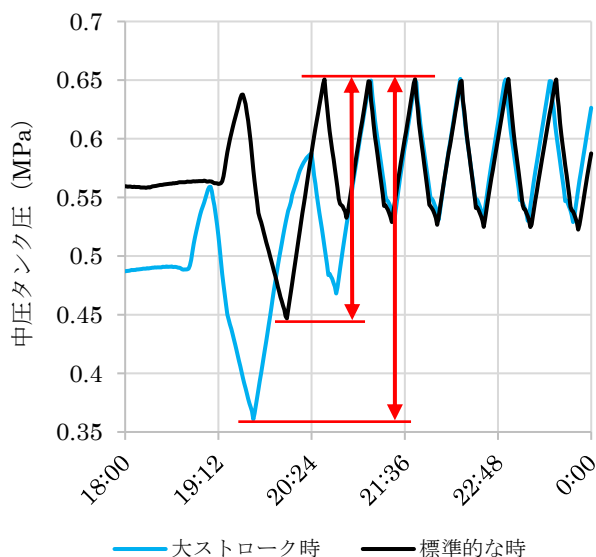


図8. 中圧タンク圧の動き

図8では標準的な動きに対して、起動時の残圧が低かつ消費量が多い時(大ストローク時)は精製開始時に通常よりも1.5倍近くの精製ガスを貯めないといけない。この例では1度目の精製過程で内部精製器に差圧が付いてしまい貯めることが出来ずに2度目の過程で設定圧に達している。

今となってはこの例の様に1度に貯めずとも2度に分割して定常状態へ落ち着けば何ら問題ない事がわかったが、初めてこの現象になった時はとても動

揺した。その時どうすればこのような状況を回避することが出来るのか考えたのが、起動前までの中圧タンク残圧の維持であった。つまり中圧タンク圧をあまり消費しないようにする事である。そこで、液体ヘリウム汲み出し(以下、トランスファー)において貯槽を加圧するため中圧タンク圧を導入する操作の見直しを行った。

トランスファーはトランスファーチューブの蒸発損失を伴うため、効率を考えてなるべくまとめて行う(例:熱容量の大きなトランスファーチューブをせっかく冷やしたのだから1本だけ充填するよりも連続して3,4本充填した方が効率がいい)。その際今までは小型容器毎に都度中圧タンクより貯槽(容量1,000 L)を加圧してきた。これを改め1本目は加圧するが、2本目以降は加圧しない方式とした。

トランスファー終了後、小型容器の付替え作業などを行って次の容器の充填開始まで10分程度の時間がかかる。この際にトランスファーチューブ内の残液が気化して貯槽を加圧する効果がある。これまでは付替え作業時に貯槽の回収バルブを開いてガス圧を抜いていた。これを止め、貯槽を密閉しておく事で加圧効果を保持し、次のトランスファー時に利用する事とした。汲み出す液量によるが4本目くらいまでは問題無く汲めた。貯槽サイズや汲み出し量など運用条件が異なれば全く役に立たない方式だが、当施設で扱っている量においては移送速度の若干の低下は見られるものの、運用上支障はない。

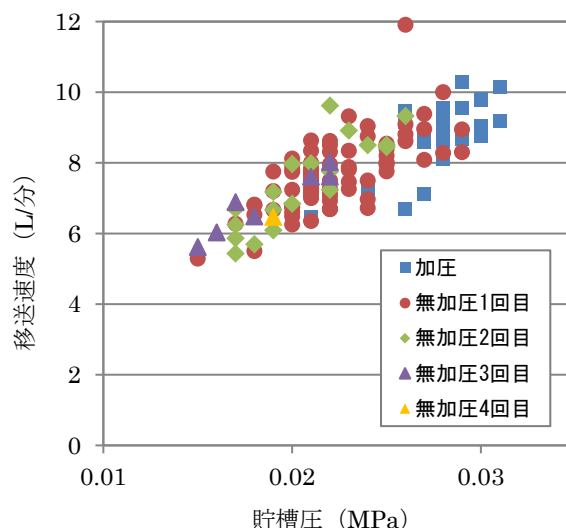


図9. 加圧と無加圧での移送速度

図9に加圧と無加圧のトランスファー状況を示す。帯上の分布の角度がもっと急で移送速度が急激に低下するとか貯槽圧の降下が大きいという事もなく、うまい具合にトランスファーできている。

## 6. 最後に

今回は望まざる事件を発端に不具合が生じたが、そこから有用な事を数多く学ぶことが出来た。現有

機器の多くは設置後14年経過し、今後老朽化が進みそれに伴う不具合が多発すると予想される。今回の出来事を糧にうまく対応できるよう努めたい。最後にHP設定次第で精製能力と液化能力のバランスを調整できる事を教えてくれた琉球大学の宗本氏に心から感謝申し上げます。