# 業 解説

### 核融合炉トリチウム水処理システムの研究開発動向

山西 敏 彦, 岩 井 保 則, 磯 部 兼 嗣, 杉 山 貴 彦<sup>1)</sup> 日本原子力研究開発機構,<sup>1)</sup>名古屋大学

(原稿受付:2007年2月25日)

核融合炉施設は核融合を起こす燃料として,放射性物質であるトリチウムガスおよび副次的に生じる高濃度 トリチウム水を大量に取り扱う施設であり,施設内に設ける燃料循環システムにて処理を行い,燃料サイクルを 施設内に閉じてしまうことが必要となる.したがって,核融合炉の安全確保と燃料サイクルの確立を目指す上で, トリチウム水の処理は鍵となる技術である.本報では,ITERにおけるトリチウム水処理システムの開発経緯,第 一壁冷却水やブランケット冷却水の処理までを見通した核融合原型炉に向けた水処理総合システムの研究開発状 況を紹介する.

#### Keywords:

tritium, water detritiation system, ITER

#### 1. はじめに

国際熱核融合実験炉(ITER)は、1992年より工学設計活 動が開始され、建設地が仏カダラッシュに決定し、さらに 昨年ようやく ITER 機構が発足して、本格的な建設時期を 迎えたところである.2007年2月の時点で、仏カダラッ シュでは、ITER 建設地の木々の伐採、整地がいよいよ開 始された.

一般によく紹介されているように,核融合炉は,1)連鎖 反応がなく燃料を止めれば炉が停止する.2)燃料過多状 態になっても、プラズマが膨張して炉内構造物と接触し、 そこからの不純物により炉が停止する.3)反応停止後の 放射化生成物の密度が低い,等優れた固有の安全性を持 つ.一方,水素の同位体で放射性物質であるトリチウムを 数kg保有するという, 今までにないトリチウムを大量使用 するホット施設である.しかも、非密封で、漏洩しやすい 水素ガスあるいは水の形でほとんどのトリチウムを取り 扱っている. つまり核融合炉では、トリチウムの閉じ込め が最大の安全の鍵であるといって過言ではない. カナダの トリチウム設備では重水炉から回収した数 kg のトリチウ ムを保有しているが、そのほとんどを安定な金属水素化物 (チタン等金属に、トリチウムを吸蔵させる)で貯蔵してい るのであり、水素ガスあるいは水の形で取り扱っているの は極わずかである.

トリチウムの閉じ込めは、まずトリチウムを直接取り扱 う機器を気密な構造とし(containment),その機器が設置 された空間を若干の負圧に制御し、常に外から空間内へ雰 囲気の流れがある状態に保つことで、トリチウムが機器か ら漏洩したとしてもその空間から外へは出て行かない構造 (confinement)とすることで実現する.上記空間を負圧に 保つためには、空間内の雰囲気を常に一定量環境へ排気し 続けなければならない. この空間内にトリチウムが存在し た場合、トリチウム除去設備でトリチウムを除いた後、環 境へ排気することになる. トリチウム除去設備は、トリチ ウムを酸化して水にする触媒と、その水を吸着除去するモ レキュラーシーブ吸着塔から構成される. モレキュラー シーブがトリチウム水を容量いっぱいにまで吸着すれば, 温度を上げて水を排出させることで再生する.通常の場合 トリチウムは空間に存在することはなく、トリチウム除去 設備で、上記操作によりトリチウム水が製造・貯留されて いくことはない. ところが核融合炉では、トリチウムで汚 染された機器(特に核融合炉心内の機器)の保守を行うた めにホットセルが必要であり、そこでは、定常的にホット セル内にトリチウムが放出される.よって、ホットセル雰 囲気用トリチウム除去設備が必要となり、トリチウム水が 上記操作で連続に製造・貯留されてしまう. このトリチウ ム水は、法令に定められる排出上限濃度を大きく上回るこ とがほとんどであり、環境に放出できるレベルまでトリチ ウム濃度を低減するとともに、一方でトリチウムを濃縮・ 回収して、燃料として利用できるように処理する必要があ る. つまり、トリチウム水の濃度低減、濃縮、水素相への 相変換を行うトリチウム水処理システムが必要となる.

発電を行う核融合炉では、ブランケットと呼ばれるトリ チウム増殖材を充填した装置を炉心内に設置し、そこで、 中性子を受けてトリチウムを増殖するとともに、冷却水を ブランケットに流して熱を取りだし、発電を行うこととな る.このブランケット内で増殖したトリチウムが、冷却水 配管の金属を透過して水に移行してしまうという困った現 象を引き起こす。冷却水中のトリチウムは、従事者被曝の 低減の観点から、トリチウム水濃度が上昇しないように処 理が必要であり、またその移行量が大きい場合は、増殖ト

Developments of Water Detritiation Systems in a Fusion Reactor

YAMANISHI Toshihiko, IWAI Yasunori, ISOBE Kanetsugu and SUGIYAMA Takahiko corresponding author's e-mail: yamanishi.toshihiko@jaea.go.jp

リチウムの回収という観点からもトリチウム水処理システ ムが必要となる.

水の形のトリチウムは、水素の形と比較すれば、漏洩し づらい性質を持つ. ところが, 困った性質も合わせ持って いる.1)水の形のトリチウムは、水素の形のトリチウムと 比較して,生物学的危険性が10000倍以上大きく,法令によ る取り扱い制限も当然厳しい.2)核融合炉には大量の冷 却水配管がはりめぐらされており、配管金属壁をトリチウ ムが透過しうるため、移行により思わぬところにまでトリ チウムが広がってしまう可能性がある.しかも、気密に設 計されている水素形のトリチウムを扱う機器に対して、ト リチウム水が侵入してくることを想定していない箇所の冷 却水配管の気密度は劣り、設計上あるいは運転上のミスに よるトリチウム水の漏洩等思わぬ事態が生じることも否定 できない、すなわち、核融合炉でのトリチウム水の処理は 将来にわたって重要な課題である.加えて,現在確立して いるトリチウム水処理法は、対応できる処理量、必要分離 係数等の観点から、原型炉までを見通した場合不十分であ り、今なお開発途上にある課題でもあることが、トリチウ ムに関する研究者の共通認識である.

本解説は、トリチウム水処理システムの開発の現状と課題を紹介するものである。第2章では、ITERにおけるト リチウム水処理システム開発について紹介する。ここで、 主な水処理法の原理とそれぞれの特徴、核融合炉での水処 理の特異性、ITER 水処理システムの概要と残された研究 開発課題を紹介する。第3章では、ITERで採用された水 処理システムの中核となる液相化学交換塔の最適化に向け た最新の研究開発状況を紹介する。第4章では、3章まで とは対象を変え、広い意味でのトリチウム水処理システム という観点から、特に核融合炉心内で発生が予想される超 高濃度トリチウム水処理に有望な固体セラミックス電解質 セルの研究開発状況と今後の課題を紹介する。第5章で は、原型炉を見通した先進的水処理法の開発の現状を、 ITER との要求事項の相違点を明確にしつつ紹介する。

最後に、本解説により、核融合炉での水処理システム開 発の重要性と困難性を、核融合の他分野の方にも広く理解 いただき、この分野の研究開発に挑戦する若手研究者が現 れることを期待しております.

## ITER におけるトリチウム水処理システム開発 トリチウム水処理の原理とシステム選択

核融合炉で発生したトリチウム水のうち濃度制限以下ま で希釈して処理することのできない高濃度のトリチウム水 がトリチウム水処理システムの処理対象となる. 高濃度ト リチウム水処理では,

- (1) 高濃度トリチウム水を濃縮システムにてさらに濃縮,
- (2) 濃縮トリチウムを相変換システムにて水形からガス 形に変換,
- (3) ガス形のトリチウムを水素同位体分離システムにて 燃料純度にまで濃縮

という三段階を経てトリチウムを燃料に再利用する.この うち三段階目の水素同位体分離システムには核融合炉燃料 循環システムの深冷蒸留水素同位体分離システムを共用す るので、トリチウム水処理システムとは残りの濃縮システ ムと相変換システムの組み合わせを指す.

トリチウム水処理システムの構成を考える場合,濃縮シ ステムには水蒸留法や液相化学交換法など,相変換システ ムには気相化学交換法や電解法などの既存技術を適用する ことができる.これらシステムにはトリチウム濃度や処理 流量によって各々に適した性能を発揮する範囲があるの で、トリチウム水処理システムではこれらシステムを適切 に組み合わせることが重要となる.

システムの組み合わせ方としては高濃度トリチウム取り 扱い実績から次の二通りが考えられる.まずは保守的な考 えで今までトリチウム取扱施設にて蓄積されてきた高濃度 トリチウム水取扱実績を踏まえて現状の技術レベルにて十 分に実プラントに適用できるシステムを限定し,その中か ら最善なシステムの組み合わせを選択する方法である.一 方,現時点での高濃度トリチウム水取り扱い実績が十分で はないものの分離濃縮性能的に魅力的な長所を持つシステ ムも選択肢に含め,ITER等にて高濃度トリチウム取扱実 績を蓄積していくことを前提にしてシステム構成を選択す る方法もある.

システム構成の選択に際して,濃縮システムや相変換シ ステムの選択候補となるシステムの特徴を整理する.現時 点において軽水炉や核燃料再処理施設から発生する廃液中 からトリチウムを除去・回収するための分離装置として実 用化されているものは存在しない.水形における水素同位 体分離は重水製造プラントの進展とともに発展してきた歴 史がある.重水製造プラントは当初は軍事目的だったが, その後重水炉の減速材を生産する目的で建設された.これ らの重水製造プラントを目的に発展してきた各システムを 核融合炉トリチウム水処理システムに適用するには,欠け ている視点である高濃度トリチウム取り扱いを加味した評 価が不可欠となる.トリチウム取り扱いにて注意しなけれ ばならない評価項目として以下をあげることができる.

- (a) トリチウムインベントリーは多くないか?トリチウム安全性の観点から要求される.
- (b) 向流操作により多段効果をあげることができるか? 閉じこめ区画内にシステムを収納するためにシステムの小型化は必須である.
- (c) 分離濃縮のために添加物質を加える必要のないシス テムか?トリチウム化アルカリや酸等の取り扱い困 難な物質を発生させないため.
- (d) 可動部が少ないシステムか?高濃度トリチウムを扱う機器のメンテナンスは困難であるため.
- (e) 減損流中のトリチウム濃度は放出基準濃度以下に低減できるか?厳しいトリチウム濃度制限のクリアは必須条件であるため.

次にこれらの視点を含みつつ各システムを概観する.

濃縮システムの候補である水蒸留法[1-4]は水素同位体 分離技術の中では古くから実用化されている方法の一つで あり,第二次大戦中には米国のマンハッタン計画にて既に 重水製造に用いられていた.水の化学形を持つ水素同位体 には、次の六つの組み合わせがある.

H<sub>2</sub>O, HDO, HTO, D<sub>2</sub>O, DTO, T<sub>2</sub>O(H;軽水素, D; 重水素, T;トリチウム)

通常 H<sub>2</sub>O を軽水, D<sub>2</sub>O を重水と呼び, 核融合炉でいうト リチウム水とは通常HTOを指す.これらの6つの化合物 の蒸気圧は、 左から右に行く程少しずつ小さくなる. 一般 に蒸気圧の異なる物質は、蒸留により分離・精製すること が可能である.水蒸留法の分離の原理は蒸気圧の異なる2 種類以上の混合液を蒸発させた場合、液側の組成に比べて 蒸気側には蒸気圧の高い成分がより多く含まれることを利 用し各成分の分離を行うものである.多成分を分離するに はカスケードを構築する必要がある. 蒸留装置は加熱部 (再沸器),冷却部(凝縮器)と多段向流接触部(充填塔)か ら構成される.装置の運転においては低温では同位体間の 量子効果の差が大きくなるため、同位体間の蒸気圧比が大 きくなる低温・低圧の蒸留条件が好ましい傾向がある. 一 方,処理能力の観点では分離能力を大きくするために可能 な限り高い圧力で蒸留を行うことが好ましいといえる. 両 者を勘案して蒸留条件が決定される.水蒸留塔は装置・運 転条件ともシンプルであるが、比揮発度がほぼ1に近いた め単位段数あたりの分離性能は小さく[5],蒸留装置の規 模は必然的に大きくなり, エネルギー消費量も大きくなる 傾向がある.水蒸留塔は技術的には高度な部分はなく既に 完成しているといえる. 蒸留法であるので大流量処理が可 能であるが、トリチウムインベントリーの観点では特に充 填部の液ホールドアップに留意する必要がある.水蒸留法 単独にてトリチウム水の高濃縮を行えばトリチウムインベ ントリーが必然的に大きくなる.単段あたりの分離性能が 低いこと、高濃縮を行えばトリチウムインベントリーが大 きくなることから,水蒸留法は中濃度程度までの濃縮目的 に適したシステムであると評価される. トリチウム水を高 濃縮する要求がある場合はまず水蒸留塔によりトリチウム 水を中濃度程度まで濃縮し、後段にトリチウム水の高濃縮 に適したシステムを設けて目的濃度までトリチウム水を濃 縮するのが好ましい.

化学交換法は現在最も盛んに研究が行われている濃縮シ ステムである.化学反応は化学結合・親和性にかかわるエ ネルギー転換過程であるとみなすことができ,そのため物 理過程と比べて大きな同位体効果を期待することができ る.今日まで幾多の化学交換法が提案されてきたが,その 中で現実的に有望なものは以下の数種類にすぎない.

- (a) GS 法 (Girdler-Sulfide 法):  $H_2O+HTS = HTO+H_2S$
- (b) 水 水素交換法: H<sub>2</sub>O+HT = HTO+H<sub>2</sub> (高性能触媒 が必要)
- (c) アンモニア法: NH<sub>3</sub>+HT = NH<sub>2</sub>T+H<sub>2</sub> (KNH<sub>2</sub>触媒 の添加が必要)
- (d) アミン法: CH<sub>3</sub>NH<sub>2</sub>+HT=CH<sub>3</sub>NHT+H<sub>2</sub> (CH<sub>3</sub>NHK 触媒の添加が必要)

これらの有望な化学交換法の中でトリチウム取り扱いを考 えた際,核融合炉におけるトリチウム水処理システムに適 切な方法は分離のために添加物質を加えないので取り扱い 困難な物質が発生しない(b)の水 - 水素交換法のみであると いえる.水-水素交換法による同位体の化学交換システム は高温で運転する気相法(水蒸気-水素)と低温で運転す る液相法(水-水素)に大別される.一般に気相法を適用 した化学交換システムを VPCE(Vapor Phase Catalytic Exchange)システム[6-7],液相法を適用した化学交換システ ムを LPCE (Liquid Phase Catalytic Exchange)システム [8-12]と呼ぶ.

高温で運転する VPCE システムは水蒸気から水素にトリ チウムが移行するので相変換システムとして利用できる. VPCE システムは、ガス – ガス反応であるため自ずと並流 操作となり多段効果を得ることはできない. 多段効果を得 るためには VPCE 塔を複数並べる必要がある. VPCE シス テムは技術的に既に完成しており、トリチウム除去、濃縮 装置として使用されているため十分な高濃度トリチウム水 取り扱い実績を有していると評価できる. VPCE システム の採用例としてはカナダ、ダーリントン原子力発電所のト リチウム除去装置 (TRF)[13]やフランス、ラウエ・ラン ジュバン研究所の高中性子束炉の減速材からのトリチウム 除去・濃縮装置[14]をあげることができる.

対して,LPCE システムは水素から水蒸気を介して水に トリチウムが移行するので濃縮システムとして利用でき る. ガス - 液反応であるため向流操作が可能であり多段効 果による分離性能の向上が期待できる. また液相法は分離 器の体積あたりの性能においても VPCEシステムより有利 である.LPCE システムは物理過程を利用した水蒸留と比 べて大きな同位体分離効果が期待できるが、塔内に液をう まく均一に分散させることが鍵となる. 塔内に液を均一に 分散させるための構造にバリエーションがある. バリエー ションの一つで発電用重水炉「ふげん」の「重水精製装置 Ⅱ」[15]の LPCE システムで用いられている気液分離方式 は良好な性能が得られているが、塔内に液を均一に分散さ せるための内部構造が複雑なため,処理流量に上限があ る. LPCE システムの例としては他にカナダのCRNL (チョークリバー原子力研究所)におけるトリチウム回収装 置のパイロットスケール装置[16]をあげることができる. また水 - 水素交換法による化学交換システムには濃縮シス テムである LPCE 塔に相変換システムの電解法を組み合わ せた CECE (Combined Electrolysis Catalytic Exchange) シ ステム[17]や、高温塔と低温塔を組み合わせ、高温状態と 低温状態の同位体化学平衡シフトを利用した二重温度交換 法[17]がある.我が国で最初の発電用重水炉「ふげん」が 有するパイロットスケール装置である「重水精製装置Ⅱ」は CECE システムの代表例である.二重温度交換法は CECE システムと比較して大流量処理に適用できる可能性がある が、インベントリーの増加、流量制御、操作性に難点を持 つ. 二重温度交換法は重水製造を目的に設計検討された例 はあるが、トリチウムプラントに適用する場合は減損水中 のトリチウム濃度を低減させなければならないなどさらに 制約条件が多くなり、システムとしての成立性自体を十分 に検討する必要がある.

電解法[18]は、電解により陰極(カソード)で水素ガス が発生し、陽極(アノード)にて酸素ガスが発生する際、カ

ソードに発生する水素ガスには、電解液中の同位体比に比 べ重成分が少なくなり、重成分が電解液に濃縮されること を利用して濃縮システムとして利用できる.しかし電解法 はエネルギー消費量が大きく,多段カスケードを構築する とその消費量は甚大となる.したがって電解システム単独 にて同位体を濃縮することはコスト面から不利であるとい える. 電解法は濃縮システムの役割より相変換システムと しての役割が魅力的となる.従来の重水製造における電解 法としては電解助剤を加えるが大容量の電解が可能である アルカリ電解法が採用されてきた.しかし近年では電解助 剤を加えず水を直接電解できる固体高分子電解法が新たな 候補として実用レベルに達してきている. 電解法は高濃度 トリチウム水取扱経験が十分ではないが、大量の水素が必 要である VPCE システムと比較して深冷蒸留水素同位体分 離システムへの負荷を大幅に減らせる観点からも核融合プ ラントには魅力的なシステムといえる.

上記のシステム概観を踏まえトリチウム水処理システム の構成を検討する. 高濃度トリチウム水取扱実績に加えて 現状の技術レベルが完成の域に達している選択肢としては 水蒸留 (WD: Water Distillation) 塔を濃縮システムに VPCE 塔を相変換システムとして組み合わせた WD+VPCE シス テムがあげられる.また高濃度トリチウム水取り扱い実績 が十分ではないが高い分離濃縮性能が魅力的な組み合わせ として濃縮システムに LPCE システムを用い、また相変換 システムに電解システムを適用するCECEシステムがあげ られる.なお LPCE システムの流量上限を超える場合は水 蒸留システムを LPCE システムの前段に付加することにな る. ITERの水処理システムの設計では当初ITER中央設計 チームは WD+VPCE システムを主案としていたが 100 m 超の水蒸留塔が必要となり蒸留塔自身の設備規模が大きく なることに加えて、その蒸留塔を閉じこめるための建屋や トリチウム除去システムを設けなければならないなど大き

な欠点を有することが明らかとなった[19].対して日本 チームは ITER におけるトリチウム水処理では要求処理流 量が小さいため WD 不要の CECE システムが適用できるこ とを提案し,LPCE は単位規模あたりの分離濃縮性能が高 いため装置規模は 15 m 程度の塔を 2 本と小さくすむこと を明らかとした[20].この提案を ITER 中央設計チームは 実現性が高いと認め,ITER 水処理システムの設計タスク を日本が請け負った経緯がある.

#### 2.2 ITER トリチウム水処理システムの概要

ITERトリチウム水処理システムではトリチウム濃度3.7×10<sup>11</sup> Bq/kgのトリチウム水を20 kg/hの処理流量にて処 理できるよう設計されている[21].この量は主にホットセ ルを触媒酸化吸着除去方式のトリチウム除去システムで除 染する結果生じる再生水に由来する.対して透過によりプ ラズマ第一壁冷却水に混入するトリチウム量に関しては, ベリリウム第一壁を透過し冷却水に混入するトリチウムの 量の解析評価が進展した結果,ITER 運転開始後10年目に おいても~10<sup>-4</sup> g/day 程度と評価され,定常的にトリチウ ム水処理システムにて冷却水を処理する必要はないと評価 されている.

図1にITER向けトリチウム水処理システムの構成を機 能別に区分した図を示す.ITER向けトリチウム水処理シ ステムはトリチウム成分を水素ガスから水へ移行する機能 を担うLPCE塔とトリチウム水をトリチウムガスへ変換さ せる電解槽を中核に構成される.LPCE塔では触媒を用い た化学交換反応を行うので、トリチウム分離性能に悪影響 を及ぼす物質の濃度を事前に低減する前処理システムが必 要となる.LPCE塔にて濃縮されたトリチウム水は電解槽 における電気分解にて水素ガスに変換される.発生した水 素の一部はトリチウム水素精製システムに送られ水素同位 体ガス以外の不純物成分を除いた後に極低温にて運転され



図1 ITER-WDS のシステム構成.

る深冷蒸留水素同位体分離システムに送られ燃料純度にま で濃縮される.電解槽にて発生した水素ガスのうちトリチ ウム水素精製システムに送られる以外の水素は再びLPCE 塔に戻す.LPCE 塔内にてトリチウム成分をガスから水に 移行させることで、トリチウム成分が十分に少なくなった 水素ガスがLPCE 塔上部から得られる.このガスは排気シ ステムにて希釈し環境に放出する.ITERトリチウム水処 理システムはLPCE 塔上部に通常設けられる再結合システ ムを廃して、代わりに天然水をLPCE 塔に供給することで 設備規模をさらに小さくする工夫が採用されている.電解 槽にて発生した酸素は酸素精製システムにてトリチウム成 分を除き排気システムに送られる.設計結果は実現性が高 く、完成度の高い設計として国際協力の下進められた ITER 設計活動においてトリチウム水処理システムの標準 設計に採用された.次に各システムの詳細を紹介する.

#### (a) 前処理システム

前処理システムは LPCE 塔においてトリチウム分離性能 に悪影響を及ぼす物質を事前に除去する役割を担う.具体 的にはトリチウム水に含まれる陰イオン、金属イオン、有 機物を樹脂槽,活性炭槽,フィルターの順に通すことで除 去する.前処理システムではLPCE 塔で1週間にて処理を するトリチウム水量を7時間で前処理することができる設 計とする。樹脂槽ではイオン除去効率が104となる設計と し、樹脂槽は3年ごとの交換を前提にその樹脂容量を決定 した. 樹脂槽は樹脂の交換が容易なカートリッジ方式を採 用した.活性炭槽はトリチウム水に含まれる有機物の除去 を目的とし、TOC (Total Organic Carbon) が2 mg/kg以下 となるように設計した. 有機物の活性炭への吸着平衡式に 関してはFreundrich式を採用し,有機物の中で活性炭にて 除去しにくい酢酸の定数を用いて活性炭槽の設計を行っ た.活性炭槽は毎年の交換を前提にその活性炭容量を決定 した.活性炭槽も交換が容易なカートリッジ方式を採用し た.フィルターはトリチウム水に含まれる懸濁浮遊成分の 除去を目的とし, Depth Type フィルターと1µmのScreen Type フィルターの積層とした.積層フィルターは3年ご との交換を前提とし交換が容易なカートリッジ方式を採用 した. 前処理が完了したトリチウム水は LPCE 塔に供給す る際にトリチウム濃度に変動が生じないよう、十分な容量 を持つ貯槽に貯蓄される. 貯槽に貯蓄された前処理済みの トリチウム水はポンプにて順次 LPCE 塔に供給される.

#### (b) 交換塔システム

LPCE 塔は「ふげん」の「重水精製装置Ⅱ」にて十分な実績を有する気液分離型[12,15]を採用する.気液分離型の概念図を図2に示す.ITER-WDSに用いる気液分離型LPCE 塔の単位トレイ高さは「ふげん」の「重水精製装置Ⅱ」と同様の0.3m(疎水性白金触媒層とディクソンリング充填層の層高はそれぞれ0.056 m および0.16 m)である.内径は「ふげん」より大きい489 mm となる.LPCE 塔は建家高さを考慮して2塔に分割した.LPCE 塔の運転温度は70℃とした.運転温度に関しては、第一に同位体交換反応の平衡定数は温度が低いほど大きくなり、同位体分離の観点からは運転温度は低い方が有利となる.第二に気液分離型では



図2 気液分離カラムの内部構造(単位ユニット).

水蒸気を介して2段階反応でトリチウム水の濃縮を行う が、水蒸気は反応に重要な同位体キャリアの役割をしてお り、塔内の水蒸気量は多いことが望ましい、水蒸気量は飽 和水蒸気量で制限されるため、水蒸気量を多くするには運 転温度は高いことが望ましい.両者の兼ね合いで運転温度 が決定された. 交換塔には温水ジャケットを設けて, 運転 温度が一定に保たれるようにする. LPCE 塔にて使用する 触媒の寿命は LPCE 塔の運転計画に大きな影響を与え る. ITER の LPCE 塔で用いるスチレンジビニルベンゼン 共重合体に白金を担持させた Kogel 触媒は「ふげん」の LPCE 塔にて使用されたものと同じものである.「ふげ ん」では運転開始以来、触媒を交換することなくその活性 を維持し続けている実績がある. このことから Kogel 触媒 は失活時に取り替えが可能なように設計上の配慮をする が、実際には高濃度のトリチウム水に常に曝されて放射線 による高分子劣化を起す一部分を除いてLPCEの運転計画 に影響を与える頻度にて Kogel 触媒の性能が交換を必要と するまで低下することはないと評価している. LPCE 塔頂 には凝縮器を配し、水蒸気を凝縮させることで環境中に排 出する水素ガスに同伴する水蒸気量を低減させる. また凝 縮器にて凝縮した水蒸気は70℃まで再加温しLPCE塔に戻 す.

#### (c) 排気システム

CECEシステムではLPCE 塔上部に再結合器(リコンバ イナー)を配し,電解槽にて発生する酸素とLPCE 塔にて 処理したトリチウム減損水素ガスを反応させて水にし,そ の水を再度LPCE 塔上部から供給することが一般的であ る.しかし再結合器は水素爆発防止の観点から水素を爆発 下限界を十分に下回る100倍程度に希釈した後に水素と酸 素を再結合させる必要がある.ITER のように大型 CECE システムとなると,水素ガス量が多くなるために膨大な希 釈ガスが合わせて必要となることから再結合器の規模は極 めて大型化する.また再結合器は大量の水素を取り扱うた め,爆発の潜在的危険性がある.大量のトリチウムを取り 扱う施設において爆発の潜在的危険性がある大型再結合器 を配するのは施設の安全性,特にトリチウム閉じ込めの観 点から避けるべきであると判断される.よって ITER トリ チウム水処理システムでは再結合器を排除し,代わりに LPCE 塔においてトリチウム濃度を十分に低減させた水素 ガスおよび水蒸気は希釈排気し,LPCE 塔上部には再結合 水に代わり天然水を供給する案が採用された.希釈排気ラ インには防爆を考慮し原理の異なる2種類のフレームアレ スター[22]を直列に備える.Crimp Metal 型フレームアレ スターし消炎機能を有しLPCE 塔に炎が伝播することを防 ぐ役割を担う.Seal Pot 型フレームアレスターは水封機能 により水素ガスラインに空気が混入することを防ぐ役割を 担う.環境に排出する水素ガスは爆発下限界である4%を 十分に下回る1%となるまで希釈された後に環境へ放出さ れる.

#### (d) 電解システム

電解槽ではLPCE塔にて濃縮したトリチウム水を電気分 解して水素ガスにする.高濃度のトリチウム水を処理する 電解槽は以下の条件を満たすことが求められる.

- 水の電解について十分な実績を有し、単位装置規模 あたりの電解性能がすでに実用的なレベルに達して いること
- 2) トリチウムインベントリーが小さいこと
- 3) システム構成がシンプルであること
- 4) メンテナンス時のトリチウム除染が容易であること
- 5) 高濃度トリチウム水使用環境に対し,耐久性がある こと

現時点においてこれらの条件をすべて満たす電解槽はな く,条件をできるだけ満たす電解槽を選択する必要があ る.ITERのWDSの設計上の良きお手本となった「ふげん」 の「重水精製設備Ⅱ」は、当時における実績からフィルター プレス型アルカリ電解槽[15,23]が使用され、アルカリ電 解槽は十分な実績を積んできたといえる.しかしアルカリ 性電解助剤(KOH,15 wt%)を使用するこの方式は、アル カリを取り除く工程を必要としシステム構成は複雑とな る.アルカリ電解槽をITERに適用する場合では、開放検 査における除染時にアルカリの使用に起因する困難が伴う ことが想定される.

対してアルカリ性電解助剤を用いずまたアルカリ電解と 比較し少ないトリチウムインベントリーにて電解を行える 電解槽に固体高分子電解質(SPE: Solid Polymer Electrolyte)を使用する SPE 電解槽がある. SPE 電解槽は電流密 度1 A/cm<sup>2</sup>,連続通電時間 30000 hと電解性能上,十分な実 績を有し,商業的に水素・酸素発生装置として販売されて いる実績がある[24,25]. SPE 電解槽の構造を図3に示す. アノードとカソードの間にイオン交換膜を挟み込んだ構造 であり,水素イオンがアノードからイオン交換膜を介しカ ソードへ移動する. SPE 電解膜の製膜工程の進展により小 さい液インベントリーにて電解が実現していることはトリ チウムインベントリー低減の観点から非常に魅力的な特徴 といえる. インベントリーは同様の電解性能を有するアル カリ電解槽の1/10 程度にまで低減できる. SPE 電解槽の



図3 固体高分子電解槽の概念図.

ITER への採用を想定した場合も処理流量の増加要求に対 しては膜を積層させることにより装置規模を大きくするこ となく柔軟に対応することが可能となる. 電解液中のイオ ン濃度に関しては十分な管理が必要であり、イオン交換樹 脂にて金属イオンの除去を行うとともに配管からの金属イ オンの溶解抑制のためチタン配管を用いる等の特別の配慮 が必要となる.しかしアルカリを用いない方式であるため 除染はアルカリ電解槽と比して容易に行える. SPE 電解槽 の ITER への適用には高濃度トリチウム水使用環境に対す る高分子材の耐久性評価が最も重要なR&D項目となった。 高濃度トリチウム水使用環境に対する高分子材の耐久性は トリチウム水の濃度に依存する.設計においても電解槽は 少なくともメンテナンス期間から次のメンテンス期間まで の2年の期間中は健全に運転できることが不可欠であり、 R&Dの結果から電解槽で取り扱うことができるトリチウ ム水濃度 1.85×10<sup>13</sup> Bq/kg が導かれた. SPE 電解槽におけ るトリチウム水濃度が決まることでマスバランスから深冷 蒸留水素同位体分離システムへ送られる水素ガス流量が 280 mol/h と決定される.この水素ガス流量は深冷蒸留水 素同位体分離システムが処理するトーラス排ガスの最大 320 mol/h と同等の大きな流量である.現時点における技 術ではLPCEにおけるトリチウム水の濃縮限界をSPE電解 槽に使用している電解膜等の高分子材料のトリチウム水耐 久性が決めており, 深冷蒸留水素同位体分離システムに大 きな流量負荷をかけている点は今後の改善課題として留意 する必要がある.

電解システムは SPE 電解槽本体の他に水素セパレー タ,酸素セパレータ,循環液貯槽,循環ポンプ,循環液冷 却器,循環液樹脂槽,循環液フィルタ,塔底液貯槽,塔底 液ポンプ,塔底液冷却器,塔底液樹脂槽により構成される. SPE 電解槽はLPCE 塔にて濃縮されたトリチウム水を電気 分解するが、高濃度のトリチウム排水が生じた場合は LPCE 塔を通さず直接電解槽に供給し電気分解する。断面 積 750 cm<sup>2</sup>のセルを100セル積層した SPE 電解槽 (30 Nm<sup>3</sup>-H<sub>2</sub>/h)を2基、予備機1基の計3基を並列に配し、最大 60 Nm<sup>3</sup>/hの水素を発生させる。高分子シール等の使用によ り完全な気密構造を取り得ない電解槽は気密格納容器に収 納することとなる。電解槽を透過または漏洩するトリチウ ムは気密格納容器を窒素パージすることで除去する。格納 容器内のトリチウムは常時モニターを行う。

#### (e) トリチウム水素精製システム

電解槽で生産された濃縮トリチウムガスの一部はトリチ ウム水素精製システムに送られ水素同位体ガス以外の不純 物成分を除いた後に極低温にて運転される深冷蒸留水素同 位体分離システムに送られ燃料純度にまで濃縮される. し かし電解槽で生産された濃縮トリチウムガスは70℃の温 度における飽和水蒸気を同伴し、また電解膜を介した透過 により微小酸素を含む.対して水素同位体分離システムは 水素ガスを20Kまで冷やして液化させ蒸留により同位体 を連続分離する深冷蒸留法を採用しており、極低温での水 素ガスの取り扱いを要する. トリチウム水素精製システム は水素ガス成分以外の成分を完全に除去し、水素同位体の みを ISS へ供給する役割を担う. トリチウム水素精製シス テムは水素冷却器,水素シールポット,パラジウム合金膜 分離装置,精製水素冷却器,精製水素ブロア,ブリードガ ス冷却器,水素昇圧ブロアから構成される. 電解槽で生産 された濃縮トリチウムガスは水素冷却器、水素シールポッ トにて水蒸気濃度を低減させた後,パラジウム合金膜分離 装置に供給する.パラジウム合金膜分離装置では水素同位 体ガスのみがパラジウム合金膜を透過することにより、水 素が高純度に精製される.パラジウム合金膜における未透 過ガスはLPCE 塔へ戻す.パラジウム合金膜分離装置は 350℃ で運転されるため、高温金属を介したトリチウム透 過が予想される.対策としてパラジウム合金膜分離装置は 気密格納容器に収納する.パラジウム合金膜を透過するト リチウムは気密格納容器を窒素パージすることで除去す る. 格納容器内のトリチウムは常時モニターを行う.

#### (f) 酸素精製システム

電解槽で生産された酸素ガスは、トリチウム成分を含む 70℃の温度における飽和水蒸気を同伴し、また電解膜を介 した透過によりトリチウムガスを含む.電解膜を介した透 過に起因するトリチウムガスは濃度が極めて低くトリチウ ム濃度の低減化措置を行う必要はない.対して酸素ガス中 の水蒸気形トリチウム成分は有意な量であるため、酸素を ITERトリチウムプラントの排ガス処理システムに送る前 に水蒸気形トリチウム成分を除去する酸素精製システムが 必要となる.酸素精製システムは酸素冷却器,酸素脱湿器, 酸素再生ブロア、酸素シールポットにより構成される.酸 素ガスに含まれる水蒸気は酸素冷却器内での2℃の冷媒と の接触により大部分が凝縮により除去される.次に酸素ガ スをモレキュラーシーブが充填された酸素脱湿器に供給 し、水分を十分露点の低い状態にまで低減し、ITERトリ チウムプラントの排ガス処理系に送る.酸素脱湿器は2基 で構成し定期的に切り替える.酸素ガスの脱湿を行ってい ない酸素脱湿器はもうひとつの酸素の脱湿を実施している 酸素脱湿器を出た水分の十分に低減されたガスを加熱状態 で流すことにより再生する.回収されたトリチウムを含む 水は酸素シールポットを通して,LPCE 塔底の濃縮トリチ ウム水を貯留した塔底液貯槽へ送られる.

#### (g) その他のシステム

その他のシステムとしてはLPCE塔に供給する70℃温水 を製造,および冷却器に供給する冷媒を製造するユーティ リテーシステム,設備の開放点検を行う際にLPCE塔,電 解システム,酸素精製システムなどから内部のトリチウム を含む水を抜き出して貯蔵するドレンシステム,設備の開 放点検を行う際に通気乾燥および真空乾燥により開放する 機器のトリチウムを低減させる乾燥システムがある.

#### 2.3 固体高分子電解槽に使用する高分子材の放射線耐久性

SPE 電解槽の ITER への適用には高濃度トリチウム水使 用環境に対する高分子材の耐久性評価が最も重要な R&D 項目となった. 高分子材の SPE 電解槽に使用される高分子 材は電解膜, Oリングゴム, 電気絶縁シート[24,25]であ る.トリチウムの放射線はβ線で,その最大エネルギーは わずか 18 keV, 平均エネルギーは 5.7 keV と放射線として は弱い部類といえる.また水中での最大飛程が0.0005 cm (空気中:0.65 cm) であることから物質中にトリチウムが 含まれるとβ線のエネルギーは、すべてその物質に吸収さ れてしまうものと考えられる.よってβ線による劣化・損 傷に材料の含水特性が大きな影響を与えると予想された. 電解槽の心臓部であるナフィオン電解膜は放射線に対する 耐久性が低いことで知られるホリテトラフルオロエチレン (PTFE)を骨格に持ち、また含水率が高く水分子は殆ど均 一に膜内に分散しているとして考える必要があり, 放射線 による劣化・損傷が最も懸念された. 高分子材が電解槽内 におけるトリチウム水濃度 9.25×10<sup>12</sup> Bq/kg に 2 年間曝さ れた場合,その吸収線量は530 kGy となる.

図4にナフィオン電解膜の強度の線量による変化を示 す. 強度はナフィオン主鎖の劣化度合いを示す指標とな る.ナフィオン電解膜はPTFE同様の数百kGyで完全に劣 化してしまうと当初は予想されていた.確かに空気雰囲気 下で照射をした場合はPTFE同様の結果となったが浸漬下 で照射をした場合は1600 kGy 超の耐久性があることを見 いだした.これは劣化反応が主に酸素の存在下で促進さ れ、溶存している酸素量が少ない水を一様に含水した浸漬 状態では劣化反応が抑えられているためである. また放射 線による高分子材料の破壊に関しては、放射線が直接的に 高分子主鎖を切断することで強度低下を起こすのに加え, 高分子が水に浸かっている場合は放射線と水との作用によ り生成する活性な中間体,例えばOH ラジカル等の反応で 強度の低下がさらに促進される懸念があった. しかし水に 浸漬させた試料と脱気させた試料をγ線照射して強度を比 較した場合、含水による強度低下はあるが浸漬時に活性な 中間体が劣化を促進させることがないことを明らかとし



図4 浸漬 Nafion 電解膜強度の照射線量による変化.



図5 浸漬 Nafion イオン交換能の照射線量による変化.

た. これはナフィオンが OH ラジカルに対して反応性が極めて低いフッ素材料であることによる[26].

図5にナフィオン電解膜のイオン交換能の線量による変 化を示す.強度はナフィオン側鎖の劣化度合いを示す指標 となる.イオン交換能の変化から側鎖スルホン基の脱落は 500 kGy 強から緩やかに始まることを明らかとした.側鎖 の劣化は主鎖の劣化より遅れて顕在化するといえる.設計 では1600 kGy において2割のイオン交換能低下を見込ん でおけばよいことを明らかとした.

図6にナフィオン電解膜から溶出するフッ素量の線量に よる変化を示す.電解槽の構成材料の劣化,特に重要な構 成要素である電解膜の強度低下およびイオン交換能低下を 運転中に非破壊にて判断することができる指標を確立させ ることが重要である.実験から容易に測定できる溶出フッ 素量は主鎖の劣化を示す強度および側鎖の劣化を示すイオ



図6 浸漬 Nafion 溶存フッ素量の照射線量による変化.

ン交換能とそれぞれ確かな再現性を有する相関関係を有す ることを明らかとした.このことを利用して溶出フッ素量 から電解膜の劣化を判定する手法は有効に作用すると考え ている[27].

劣化において線種の違いが与える影響についてはγ線と 電子線の結果の比較から線種の違いによる劣化挙動の変化 がないことを確認している.また劣化において線量率の違 いが与える影響についても0.5~10 kGy/hの範囲で違いは 殆ど見られなかった.このことからγ線や電子線で得られ たデータからナフィオン電解膜の高濃度トリチウム水浸漬 に対する放射線耐久性を評価できると考えている.

SPE電解槽を構成するOリングゴムでは放射線に対する 劣化が少ないうえに,水素透過性が低く,劣化による有機 物の溶出がないことが求められる.様々なゴムを精査した 結果,バイトンゴムが最適であることを見いだした.また 電気絶縁シートには放射線耐久性があるポリイミドを採用 することで目標としていた電解槽の530kGyまでの放射性 に対する耐久性確保の見通しを得た.現在は研究計画の最 終段階であるトリチウム水を用いた長期耐久性確証試験に 移行している.

## 液相化学交換塔の塔内構造の最適化にむけて 液相化学交換塔の内部構造

液相化学交換塔を用いた水 - 水素化学交換反応法とは, 反応流体を水素ガス,水蒸気,水(液体)の3種類とし,白 金触媒の作用による水素ガス - 水蒸気間の同位体交換反応 と,親水性充填物によって促進される水蒸気 - 水間の気液 交換反応とによって,水素ガス中の重い水素同位体を,水 蒸気を経て水へと濃縮する同位体分離法である.通常,垂 直に設置した管の中に白金触媒と親水性充填物を詰めた反 応塔に,水素ガスと水蒸気を上向きに,水を下向きに流し て向流接触させ,上述の2種の交換反応を繰り返し行うこ とにより濃縮度を高める. 液相化学交換塔の内部構造に関する既往の研究成果とし て画期的なものは,世界的にみてもほとんど唯一であっ て,それは理研の磯村らによって考案された気液反応分離 型交換塔である[28].白金触媒の表面が水に覆われると 徐々に活性を失うことが古くから知られている.気液反応 分離型交換塔は,水が触媒に接触せずに流れるように内部 構造を工夫したもので,原理的に優れている.15年を超え る実績があり[29],液相化学交換塔の内部構造として一つ の最適解であるといえる.あえて難点をあげれば,複雑な 内部構造のためコストが高いことである.

一方,疎水性の担体に白金を担持させた水に濡れにくい 触媒が開発されている[28,30].それらの疎水性触媒を用 いれば,円管に触媒と充填物を詰めただけの簡単な構造 (トリクルベッド型)の反応塔を適用できる.このあたりの 背景は限られた紙面では舌足らずなところもあり,詳細は 文献[28,30]に委ねたい.ここでは,内部構造が簡単で低コ ストであるトリクルベッド型液相化学交換塔の充填構造の 最適化にむけて,名古屋大学で行っている基礎的な研究に ついて紹介する.

#### 3.2 層状充填塔と均一混合充填塔

本研究では,疎水性白金触媒として Kogel 触媒(昭光通 商製,粒径 4.5~5.5 mm,白金担持量 1.0 wt-%),親水性充 填物として Dixon gauze ring(東京特殊金網製,直径 6 mm, 高さ 6 mm)を用いた.これらを図7に示す.疎水性白金触 媒と親水性充填物を,それぞれ交互に層状に充填した液相 化学交換塔をここでは層状充填塔と呼ぶ.通常,それぞれ の層の高さは,触媒反応と気液交換反応のそれぞれの反応 が十分平衡に達するのに必要な長さとする.ところで,そ のように決めた充填層の高さは最適だろうか.

図8に示すように、触媒と充填物の総量を変えずに、



図8 層状充填塔における層の重ね方.

各々層高さを半分にして交互に積み重ね,繰り返しを倍に したらどうなるか.結論を先にいえば,濃縮性能が向上す るのである.

これは次のように説明できる.カギは触媒層にある.水 素ガスと水蒸気は共に塔内を上向きに流れており,触媒反 応は並流反応である.物質移動の推進力はこれら2流体の 濃度差なので,並流反応では流れが進むほど2流体間の濃 度差は小さくなり推進力も減少する.つまり触媒層の下方 で濃度変化が大きく,上方は濃度変化が小さい.そこで, 触媒反応が平衡に達する前に気液交換反応を差し挟み,水 蒸気中の重成分を水中に移すことで,水素ガスと水蒸気間 の濃度差が再び大きくなり推進力が回復する.以上の説明 から,同量の充填物を用いても,それらの層をできるだけ 細かく繰り返すように充填することで濃縮性能が向上する と考えられる.では,際限なく細かくしたらどうなるか.



 層状充填塔
 均一混合充填塔

 図9
 ガラス製充填塔内の充填の様子.



図10 液相化学交換塔と電解槽を組み合わせた水素同位体分離実 験装置の概要.



図11 異なる充填形式の反応塔の全分離係数の比較.

白金触媒と親水性充填物を混合し,各々塔内に均一に分 布するよう充填した液相化学交換塔をここでは均一混合充 填塔と呼ぶ.層状充填塔よりも均一混合充填塔の方が濃縮 性能は高いと予想し,それらの性能を実験により比較した [31].本研究で用いたそれらの充填塔を図9に示す.

実験は軽水素 - 重水素系で行った.実験装置の概略を図 10に示す.反応塔は内径 2.5 cm,有効塔長 60 cm で,操作 圧力,温度は 101 kPa,70°C である.SPE 電解槽で発生さ せた重水素を富化した水素ガスと加湿器で発生させた水蒸 気とを飽和させ,塔下部より供給した.塔頂からは蒸留水 を供給した.図10にサンプルと示した各部の重水素濃度を 測定し,濃縮性能を得た.濃縮性能の指標として,全分離 係数 $\alpha\beta(=x/z)$ を用いた.x,zはそれぞれ抜出水,抜出水 素ガスの重水素モル分率である. $\alpha\beta$ の値が大きいほど濃縮 性能が高い.図11に全分離係数の比較を示す.本実験の範 囲では,均一混合充填塔の全分離係数が層状充填塔のそれ に比して2倍程も大きく,予想が正しいことが実証され た.同じ充填物を同量用いても,充填方法を変えただけで 性能が大きく変わることは興味深い.

#### 3.3 触媒の充填割合

白金触媒と親水性充填物のどちらも2種の反応を行うた めにそれぞれ必要で,かつ限られた塔内空間に充填するの だから,それらの充填割合には最適値が存在するはずであ る. Kogel 触媒の充填割合を次式で定義する.

Kogel 触媒充填割合 = Kogel 触媒の粒子体積 全充填物の粒子体積

ここで粒子体積とは, Kogel 触媒を球に, Dixon gauze ring を円柱に見立てたときの体積である.

均一混合充填塔の場合について,触媒の充填割合を変え て実験を行い,充填割合が濃縮性能に及ぼす影響を調べ た.実験装置は前節で用いたものと同じである.図12に結



図12 触媒充填割合と気液流量比が全分離係数に及ぼす影響.

果を示す. 図中の*G*/*L* は水素ガスの水に対するモル流量の 比である. *G*/*L* が 1.7 の場合, *α*β 値は他の条件に比して小 さく, 触媒充填割合に最適値は確認できなかった. 一方, *G*/*L* が 0.9 および 0.7 の場合, 最適充填割合が存在すること は明白である. 気液流量比と最適充填割合は密接に関係し ているはずで, 今後の研究で明らかにしたい.

#### 3.4 まとめ

トリクルベッド型液相化学交換塔の充填構造の最適化を 目的とした基礎的な研究について紹介した.軽水素 - 重水 素系において,たかだか 60 cm の塔で全分離係数20を達成 したことは有用な成果と考える.単に平衡係数のみを置き 換えて軽水素 - 三重水素(トリチウム)系の場合を計算す ると,全分離係数は約75となる.

ー般の化学工学の分野において、多相多成分反応性流体 の反応塔に関しては多くの研究がなされているが、充填物 が複数でかつ個々の反応と密接に関連している事例はあま り見かけない.その点でも興味の尽きない系である.

### 固体電解質電解セルによる超高濃度トリチウム水処理

#### 4.1 固体電解質電解セルによる水処理の原理と課題

核融合炉で発生するトリチウム水は、建家換気で発生す る自然界レベル(1×10<sup>3</sup> Bq·m<sup>-3</sup>)から、ブランケット中、 また燃料排ガスとして発生する超高濃度(D:T=1:1と した場合、3.0×10<sup>18</sup> Bq·m<sup>-3</sup>)まで幅広い濃度となることが 想定されている.この超高濃度トリチウム水の発生量自体 は少ないものの、比放射能が高く、トリチウム除去系の再 生水、あるいは冷却水を対象としている ITER の水処理設 備では処理することができない.よって、超高濃度のまま トリチウム水を処理することが要求され、処理後のトリチ ウム濃度を極力低くでき(高いトリチウム除染係数を持 ち)、使用する材料に放射線劣化がなく、かつ真空系のよう な気密性を確保できる方法が必要となっている.この要求



図13 気相電気化学法による水処理の原理.

に応えることのできる方法の一つが、酸素イオン導電性セ ラミックスであるイットリア安定化ジルコニア(YSZ)を用 いた気相電気化学法である. YSZ を用いた気相電気化学法 の代表例としては、固体酸化物型燃料電池 (Solid Oxide Fuel Cell: SOFC)が有名であるが、水処理の場合は燃料電 池とは逆に、電気を使って水を水素ガスと酸素に電気分解 させる反応を利用する.図13にこの方法を用いた水処理の 原理図を示す.この方法では、超高濃度トリチウム水を パージガスとともに YSZ の配置された電解反応器へ送り 込む. 電解反応器は、YSZ のイオン導電性が生じる温度 (600~800℃)まで加熱されており, YSZ 表面に施工した電 極表面において、電極間に加えた電圧により水(水蒸気)の 電気分解を生じさせ水素分子の形とし、分解で発生した酸 素はYSZに取り込まれ処理ガスから抽出される. その後水 素透過膜等にて水素成分のみを抽出する. この手法の特徴 として, セラミックスと金属により処理系が構成できるの で放射線劣化の心配がなく、また気密性の確保が容易であ ることがあげられる. さらに、ITER 排ガス処理系の研究 開発において、気相電気化学法と水素透過膜を組み合わせ た方法で高い除染係数が得られることが実証されているこ とからも[32-34],超高濃度トリチウム水処理法として非 常に有望な方法である.しかし、セラミックス固体電解質 における水の分解効率は、高分子固体電解質などに比べ2 桁も低く、どうしても規模が大きくなってしまう欠点があ る. そのため、より効率良く分解反応を生じさせる反応器 の開発が本手法の実用化に向けた大きな課題であった.

#### 4.2 分解効率向上に向けた研究開発

SOFC の分野では、このような気相電気化学反応の効率 化に関する研究が数多く報告されている.特に電極材につ いては、様々な特性や最適化の図られた混合材が開発され ている.図14に電極上で生じる水の電気分解の模式図を示 す.電極は一般的に白金(Pt)ペースト等を塗布し焼結し たものであり、図14のように電極材の微粒子により構成さ れている.気相電気化学法にける反応は、イオン導電体で ある固体電解質(本例では YSZ)と電子伝導体である電極 材および気相との三相界面で生じる.図14(a)で示す破線 で囲んだ部分が三相界面に相当する.気相中の水が三相界 面に達すると電極材から電子を受け取り電気分解し、水素 ガスは再び気相へと移動し酸素イオンは YSZ に取り込ま れる.この電極材として,例えば電子伝導と酸素イオン伝 導を併せ持つ電極材を使用した場合の模式図を図14(b)に 示す.電極材自体がイオン導電性を持つため,従来の三相 界面に加え,電極材表面でも三相界面が成立するため,三 相界面の密度向上に非常に効果的であることがわかる.こ のようなイオン導電性と電子伝導性を併せ持つ材料として セリウム酸化物(セリア)があり,SOFCの分野で高い電極 性能を示すことが報告されている[35,36].そこで,このセ リアを利用した電極を作製し,その水分解効率を調べた.

従来は電極材料として白金(Pt)とYSZの混合物(Pt-YSZ)を使用してきた.それに対し、試験電極は2つの施工 法でセリアを電極材として利用している. 一つは YSZ 表面 にセリアをコーティングし、その上に従来の Pt-YSZ 電極 材を塗布した電極(セリア二重電極)である.もう一つは 単純に Pt-YSZ とセリアを混合させた電極(セリア混合電 極)である.これら電極に 1.5 V の電圧を印加した場合の水 分解実験の結果を図15に示す.気相電気化学法における水 の分解効率は、図15の縦軸のように電流密度として表され る. 横軸は供給した水蒸気濃度である. 供給する水蒸気濃 度が増加するとともに水の電気分解が増加するため、どの 電極材でも電流密度が増加する.水分濃度が1000 ppm と なると Pt-YSZ ならびにセリア混合電極の電流密度の上昇 は止まり、Pt-YSZ 電極は 14 mA·cm<sup>-2</sup>、セリア混合電極は Pt-YSZ 電極の約3倍となる40mA·cm<sup>-2</sup>の電流密度に達 した.一方,セリア二重電極の電流密度の上昇は10000 ppm に至ってもつづき、電流密度は Pt-YSZ 電極の約4倍



図14 電極上にて起こる水分解反応の模式図.(a)電極が電子伝 導性のみを持つ場合,(b)電極が電子伝導性と酸素イオン 導電性を併せ持つ場合.



図15 水分濃度による各電極の電流密度変化 (印加電圧 1.5 V, 温 度 800℃).



図16 各電極表面の SEM 観察結果. (a) セリア二重電極, (b) セ リア混合電極, (c) Pt-YSZ 電極.

(60 mA·cm<sup>-2</sup>) に達した. このように,セリアを電極材料 に利用することで,水の分解効率が著しく向上することが 明らかとなっただけでなく,その性能向上はセリアの施工 法によっても大きく変化することがわかった.

このセリアを利用した電極の微細構造を走査型電子顕微 鏡 (SEM) にて観察した結果を図16に示す.図16(a)がセリ ア二重電極, 図16(b)がセリア混合電極, 図16(c)がPt-YSZ 電極の観察結果である. セリアを使用した電極は、その施 工法によらず3~4 umの微粒子が繋がった微細構造となっ ていることがわかった. その一方でPt-YSZ 電極は、セリア を利用した電極と同じように3~4 µmの微粒子から構成さ れているものの、それぞれが固まってしまい、より大きな 粒子が粗く繋がったような構造となっている. このよう に、セリアを使用することで、電極の構造にも違いが現れ、 効率向上に適した微細構造となっていることが明らかと なった. セリア二重電極は、セリアコーティング後、Pt-YSZ を塗布しているので、図16(a)は従来の Pt-YSZ 電極材 と同じものである. それにもかかわらず, Pt-YSZ 単独の電 極と構造が異なるのは、Pt-YSZ を塗布後に実施した焼結 中にPt-YSZ 中へセリアが拡散し、セリア混合電極となっ ているためではないかと考えられる.

#### 4.3 まとめ

気相電気化学法による超高濃度トリチウム水処理の課題 であった分解効率は、電極材料およびその施工法により大 幅に向上することが明らかとなり、今後の開発指針が得ら れるに至った.しかし、実用化に向けては、熱サイクルに よる電極の剥離、長期使用による電極の変化、より効果的 な施工法の開発などの課題も多く残されており、引き続き 研究開発を進めていく必要がある.

#### 5. 核融合原型炉にむけたトリチウム水処理の課題

トリチウム水処理システムの役割において ITER と核融 合原型炉で異なる点は,核融合原型炉にて水冷却方式の増 殖ブランケットが採用された場合にブランケット冷却水の 処理が新たに加わることがあげられる.原型炉以降の核融 合炉ではブランケットにおけるトリチウム増殖が定常的に 行われることになるが,水冷却方式のブランケットは高温 で運転されるので増殖したトリチウムの一部は透過により ブランケット内を流れる冷却水に混入することになる. よってブランケット冷却水中のトリチウム濃度を制御す るために、大量の冷却水を定常的にトリチウム水処理シス テムにて処理することが必要となる.核融合原型炉に必要 となるトリチウム水処理システムの設計条件をITER-WDSと比較した場合、まずブランケット冷却水処理が加 わることで処理すべき流量がITER条件から桁違いに大き くなることが予想される.また冷却水へ移行するトリチウ ムの流束を低く抑えるための透過防止膜等の透過バリアの 研究が進んでいるが、透過バリアを有していても処理すべ きトリチウム水の濃度も桁違いに高くなってしまう可能性 がある.

処理すべき流量が桁違いに大きくなった場合,ITER-WDSからどのようにシステムを修正すればいいのか?高 濃度のトリチウムを取り扱うのでシステムは実績を重視す べきである.よってITERにて実績を積むITER-WDSをそ のままスケールアップして利用したいのであるが残念なが らうまくいかない.ITER-WDSにてトリチウム濃縮に採用 されている液相化学交換塔は塔内に液を均一に分散させる ために構造が複雑であり,これ以上の流量に対応させるこ とが困難である.また液相化学交換塔の後段に控える電解 槽は設備コストが高く,流量が桁違いに大きくなった場合 に単純に電解槽の数を増やせばいいというわけにはいかな い.よって現状のITER-WDSの前段にトリチウム水を減 容・濃縮する前処理システムを新たに設け,前処理システ ムの後ろはITERにて実績を積むITER-WDSをそのまま利 用するのが最善の方法であると筆者は考えている.

前処理システムに適用可能な従来技術には水蒸留法があ る.しかし水蒸留塔では単位塔高あたりの濃縮効率が低い ため、設備規模があまりに巨大となるという大きな欠点が ある.よって前処理システムでは水蒸留法に代わる新たな システムの開発が必要である.日本原子力研究開発機構で はその目的に合う有望な方法として気相吸着法に着目し. 研究開発を進めている.気相吸着法は既存のトリチウム取 扱施設で雰囲気トリチウムの除去システムの一部として長 年使用され実績がある水分吸着塔に着目した技術である. 水分吸着塔にトリチウムを含む水を通した際に、同位体差 でトリチウムが吸着剤に優先して吸着することを利用して トリチウム水を濃縮し、吸着剤内に吸着した濃縮トリチウ ム水の脱着は従来の温度を上げる方法ではなく圧力スイン グにて迅速に脱着させることを目指している.研究開発で は濃縮性能を維持しつつ水蒸気脱着を迅速化させるゼオラ イト吸着剤の開発が重要な課題となっていた.現在ではゼ オライト吸着剤のシリカ/アルミナ比を主に制御すること で課題であった水蒸気脱着の迅速化に見通しがついた段階 まできている. 今後は吸着材開発をさらに進めつつ次の段 階であるシステム実証を進めていく.

次に処理すべきトリチウム水の濃度が桁違いに高くなっ た場合は ITER-WDS からシステムをどのように修正すれ ばいいのか?濃度が高くなった場合にまず問題となるのは システムに使用している高分子材料の放射線耐久性とな る. ITER-WDS に向けた放射線耐久性を有する固体高分子 電解槽の研究開発で得られている知見として, ITER-WDS から濃度が桁違いに高くなった場合は高分子材料の各機能 が大幅に低下する.よって新たな高分子材料の研究開発を 進めること,また平行して電解方式を固体高分子電解法か ら固体電解質電解法に変更することも視野に入れておく必 要がある.固体電解質電解法は高分子を用いないため高濃 度トリチウムに対する耐久性は期待できるが固体高分子電 解法に比べ電解効率が大きく見劣りするのが現状である. よって前項に記した電解効率の向上に向けた研究をはじ め,設備コストや設備規模を適正に抑えるための研究開発 を日本原子力研究開発機構にて今後も進めていく.その他 に液相化学交換塔にて使用されている白金担持高分子触媒 や水質管理に使用しているイオン交換樹脂等 ITER-WDS では問題とならなかった高分子材についても放射線耐久性 の確認を進めていくことが必要となっている.

本稿が核融合炉トリチウム水処理システムの研究開発動 向を核融合コミュニティに広く知っていただくきっかけと なれば幸いである.

#### 参考文献

- [1] G. Vasaru, *Tritium Isotope Separation* (CRC Press, 1993) Chapter 4 and 5.
- [2] S. Villani, *Isotope Separation* (American Nuclear Society, 1976) Chapter 9.
- [3] R.F. Gould, Separation of Hydrogen Isotopes (American Nuclear Society, 1978) Chapter 9.
- [4] 中根良平, 磯村昌平, 清水正己:重水素およびトリチウムの分離(学会出版センター, 1982) Chapter I-3.
- [5]「トリチウムの化学」研究専門委員会:トリチウムの化
   学 -基礎から応用まで-(日本原子力学会, 1982)
   p.216.
- [6] G. Vasaru, *Tritium Isotope Separation* (CRC Press, 1993) Chapter 5-V.
- [7] R.B. Devidson, P. Von Hatten and M. Schabb, Fusion Technol., 14, 472 (1988).
- [8] G. Vasaru, *Tritium Isotope Separation* (CRC Press, 1993) Chapter 5 -VI.

- [9] M. Shimizu, A. Kitamoto and Y. Takashima, J. Nucl. Sci. Technol. **20**, 36 (1983).
- [10] Y. Asakura and S. Uchida, J. Nucl. Sci. Technol. 21, 381 (1984).
- [11] S. Isomura, K. Suzuki and M. Shibuya, Fusion Technol. 14, 518 (1988).
- [12] 磯村昌平 他:理化学研究所報告 63 [1], 1 (1987).
- [13] S.K. Sood *et al.*, Fusion Technol. 8, 2478 (1985).
- [14] M. Damiani, R. Winkler and M. Huber, Sulzer Tech. Rev., Nuclex 75, 1 (1975).
- [15] 清田史巧 他: 動燃技報 70, 19 (1989).
- [16] W.J. Holtslander et al., Fusion Technol. 8, 2473 (1985).
- [17] H.K. Rae, Separation of Isotopes, ACS Symposium Series 68 (American Nuclear Society, 1978).
- [18] G. Vasaru, *Tritium Isotope Separation* (CRC Press, 1993) Chapter 5-VIII.
- [19] Y. Iwai *et al.*, J. Nucl. Sci. Tech. 33, 981 (1996).
- [20] Y. Iwai et al., Fusion Sci. Technol. 41, 1126 (2002).
- [21] プラズマ・核融合学会誌,「ITER 工学設計」78 Supplement, 109 (2002).
- [22] 林 年宏:フレーム・アレスタ及び爆圧放散孔,安全 資料 No.26 (産業安全技術協会, 1982).
- [23] T. Kitabata, Fusion Sci. Technol. 41, 356 (2002).
- [24] 稲住 近:工業材料 48 [8], 31 (2000).
- [25] 尾白仁志他:日立造船技報 59 [3], 68 (1998).
- [26] Y. Iwai et al., Fusion Eng. Des. 81, 815 (2006).
- [27] Y. Iwai et al., J. Nucl. Sci. Tech. 42, 636 (2005).
- [28] 中根良平, 磯村昌平, 清水正己:重水素およびトリチウ ムの分離(学会出版センター, 1982) Chapter I-1.
- [29] S. Kiyota et al., Proceedings of the International Conference on Global Environment and Advanced Nuclear Power Plants, Kyoto, Japan, Sep. 15-19 (2003) p.1152.
- [30] 北海道工業開発試験所報告 34 (工業技術院, 1984).
- [31] T. Sugiyama et al., Fusion Eng. Des. 81, 833 (2006).
- [32] S. Konishi *et al.*, Fusion Technol. **8**, 2042 (1985).
- [33] S. Konishi et al., Fusion Eng. Des. 39-40, 1033 (1998).
- [34] K. Isobe *et al.*, Fusion Sci. Technol. 41, 988 (2002).
- [35] M. Watanabe et al., J. Electrochem. Soc. 141, 1677 (1994).
- [36] M. Watanabe et al., J. Electrochem. Soc. 144, 1739 (1997).



#### 核融合燃料循環システム

核融合炉では,燃料(重水素 - トリチウム)が一度に燃 える割合は数%である.未燃焼燃料を回収し,燃焼等で生 成したヘリウムおよび不純物を除去した後,プラズマに再 注入するシステムが必要となる. ITER においても,燃料 の供給・排出・精製・同位体分離・不純物からの燃料回収 等のプロセスが一体となった核融合燃料循環システムが設 けられる.

#### 深冷蒸留水素同位体分離システム

プラズマから排出される未燃焼のガスには最大6種類の 水素同位体分子(H<sub>2</sub>, HD, D<sub>2</sub>, DT, HT, T<sub>2</sub>)が含まれる. ITER で採用されている深冷蒸留法は水素同位体の沸点 の差(H<sub>2</sub>で19K, T<sub>2</sub>では25K)を利用して水素を液化,蒸 留する同位体分離法である.塔底に蒸気を発生する再沸 器,塔頂に凝縮器,その間に精留部を持ち,全体を20K 前後の極低温に冷却して沸点の低い成分を塔頂,高い成分 を塔底に凝縮する.

#### トリチウム除去設備

トリチウムは多重閉じこめの概念に基づいて,安全に取 り扱われる.その閉じ込め系内にトリチウムが透過・漏洩 した場合には,速やかに検出し,閉じ込め系を隔離し,ト リチウム汚染区域のガスを閉ループで循環処理(格納系は 負圧維持)し,トリチウムを除去する.このような設備を トリチウム除去設備という.一般的に多くのトリチウム取 扱い施設で使用されているのは,貴金属(Pt,Rh等)触媒 によりトリチウムを酸化,トリチウム水を吸着剤(モレ キュラーシーブ)で捕集するものである.

#### 親水性充填物

金属製または表面を酸化処理するなどして水に濡れやす くした充填物のこと.蒸発・凝縮のように気液界面を介し た反応を行う場合,気液界面積が多い方が有利である.親 水性充填物を反応器に充填し,気液界面積を増大させるこ とで目的の反応を促進させる.

#### トリクルベッド

トリクル (trickle) とは,「したたる」,「ちょろちょろ流 れる」の意で,充填層(塔)の中を液体が流れる様を表し ている.液体がそのように流れている形式の充填層(塔)を トリクルベッドと呼ぶ.

#### 全分離係数

分離装置には,原料の供給口と注目成分が濃縮された濃 縮流取り出し口,反対に減損された減損流取り出し口があ る.全分離係数は,濃縮流取出し口と減損流取出し口にお ける注目成分の存在比の比として定義される.

#### 固体高分子電解槽

アルカリ等の電解質を用いないで,代わりに高分子膜を 電解質として用いる電解槽である.高分子膜の厚さは数十 µmで,最も有名なものはデュポン社のナフィオン膜であ る.トリチウム水を直接電気分解することができ,放射性 アルカリ廃液を生じないことから,原子力利用においては 特に有用である.

#### イットリア安定化ジルコニア

酸素イオン導電性を持つジルコニアの高温相(立方晶) を、イットリウム酸化物を固溶させることで安定化させた 酸化物固体電解質.電解質中を酸素イオンが移動すること で導電性を示す.イットリアを固溶させることで欠陥濃度 も増加し、高い酸素イオン導電性を持つ.酸素センサー、 燃料電池として利用される.

#### 固体酸化物型燃料電池

酸素イオン導電性セラミックスを介して水素や炭化水素 等を酸化させることで、ギブスの自由エネルギーの変化か ら直接電力を得る電池.固体高分子型燃料電池と同様、エ ネルギーの変換効率が高い. Commentary



# やま にし とし ひこ

日本原子力研究開発機構核融合研究開発部 門, トリチウム工学研究グループリー ダー,研究主幹.工学博士.香川県出身.昭 和57年3月京都大学大学院工学研究科化学

工学専攻修士課程修了,昭和57年4月日本原子力研究所入所 後,水素同位体分離等核融合炉トリチウム燃料循環システム の研究に携わり現在に至る.



### いわ い やす のり 岩井保則

日本原子力研究開発機構核融合研究開発部 門トリチウム工学研究グループ研究副主 幹.博士(工学).大阪府出身.平成7年3 月京都大学大学院工学研究科化学工学専攻 修士課程修了,平成7年4月日本原子力研究所入所後,現在

に至る.専門は水素同位体分離.



出身.

### いそ べ かね つぐ 磯 部 兼 嗣

平成10年九州大学大学院総合理工学研究科 博士後期課程修了.博士(工学).平成10年 日本原子力研究所(現:日本原子力研究開 発機構)入所.研究員.核融合炉における トリチウム工学の研究に従事. 最近注目を集めている宮崎県

ぎやまた 杉山貴彦

平成12年3月名古屋大学大学院工学研究科 博士課程後期課程修了,同博士(工学)の 学位を取得. 平成12年4月核燃料サイクル 開発機構, 平成14年2月核融合科学研究所

助手,平成17年11月名古屋大学大学院工学研究科助教授,現 在に至る. 核分裂炉および核融合炉燃料サイクルにかかわる 分離化学工学,特に同位体分離を主な研究分野としている. 愛犬はキャバ嬢で名前は「ぶうげん」.(注:キャバリア・キ ング・チャールズ・スパニエルの雌)