



解説

イオン液体含浸有機隔膜によるリチウム同位体分離技術開発

星野 毅

日本原子力研究開発機構

(原稿受付：2012年10月31日)

核融合炉の燃料となるトリチウムと発電に必要な熱を生産するためには、リチウム6 (${}^6\text{Li}$) を含むリチウム(Li)がトリチウム増殖材料として必要となるが、天然のLiには ${}^6\text{Li}$ が約7.8%しか存在しない。そこでイオン液体含浸有機隔膜を用いた電気透析法に着目し、実用化(産業化)に向けた可能性がきわめて高いLi同位体分離技術の研究開発を行った。

Keywords:

Lithium isotope separation, ${}^6\text{Li}$, ionic-liquid, electrodialysis, tritium breeding material

1. はじめに

核融合炉の燃料として必要なトリチウムは、核融合炉ブランケット内に装荷されるトリチウム増殖材料中のリチウム6 (${}^6\text{Li}$) と中性子との核反応により生産する。また、核融合発電に使用する熱は、 ${}^6\text{Li}$ と中性子の核反応により生じる反応熱を利用することから、Li同位体である ${}^6\text{Li}$ の役割は大きい。しかしながら、天然のLiは ${}^6\text{Li}$ が最大で約7.8% [1]しか存在せず、核融合炉の定常運転に必要な量のトリチウムを確保するためには ${}^6\text{Li}$ の存在比が天然より高い30~90%に濃縮されたLiが必要となる。

現在、実用化されている ${}^6\text{Li}$ 濃縮技術は、水銀を用いたアマルガム法 [2-4]しか存在しないが、水銀は有害金属のため、世界に類を見ない脱水銀国の日本では工業化できない技術である。また、溶媒抽出法 [5]は、分離係数が小さく量産技術に不向きである。さらに、ウラン回収や同位体分離でも検討された電気泳動法 [6-9]は、消費電力が多く、連続処理が不可能なことから ${}^6\text{Li}$ 濃縮に適応するとしても量産化へ向けた課題が多い。したがって、日本は ${}^6\text{Li}$ 濃縮技術を有しておらず、希少な ${}^6\text{Li}$ の海外からの輸入もほぼ不可能であることから、日本独自の ${}^6\text{Li}$ 濃縮技術の確立は、核融合炉早期実現に向けた最重要課題の一つである。

そこで、著者はイオン液体を用いた電気透析法による、新たなLi同位体分離技術を開発した [10, 11]。イオン液体とは、食塩のようにイオンだけから構成され、室温で液体の物質である。また、液体のままの状態ですぐ電気を通すことができ、さらに、液体が蒸発することなく、容易に分解しないなど、特異な性質を持つ。近年、リチウムイオン電池の新たな電解質材料として注目されているものである。このイオン液体を用い、まず天然同位体比のLi水溶液(アノード側)とLiのない溶液(カソード側)間を、イオン液体を含浸した有機膜で隔てる。次に両側に電位を加えることにより、Liイオンはカソード側へ移動するが、 ${}^6\text{Li}$ イオン

は ${}^7\text{Li}$ イオンより移動速度が速いため、カソード側に ${}^6\text{Li}$ が濃縮する技術である。特に、高いLi同位体分離係数と大量製造へのスケールアップが有望な点を特徴とする。

本解説は、2章および3章にて、本研究の背景となる核融合炉に必要な ${}^6\text{Li}$ と既往の研究について紹介し、4章ではイオン液体を用いたリチウム同位体分離技術開発の最新の成果について報告する。最後にリチウム同位体分離技術の展望を述べ、 ${}^6\text{Li}$ 同位体分離濃縮の技術開発が核融合炉の早期実現に向けた最重要課題の一つであることを解説する。

2. 核融合ブランケットに要求されるリチウムの量と同位体濃縮度

現在、最も実現が近いとされている核融合炉は、燃料に重水素(D)とトリチウム(T)を用い、燃料のプラズマを磁場で閉じ込めるDT核融合炉である。このDT核融合炉の概念図を図1に示す。

プラズマ中で生じる核融合反応は次式で表される。

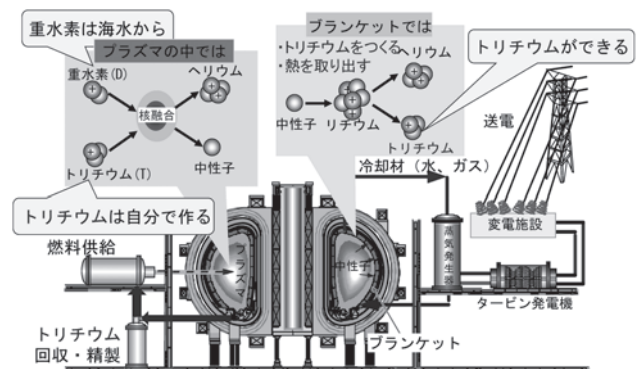


図1 核融合炉の概念図。

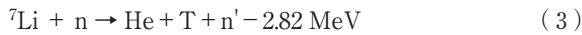
Research and Development of Lithium Isotope Separation using an Ionic-Liquid Impregnated Organic Membrane

HOSHINO Tsuyoshi

author's e-mail: hoshino.tsuyoshi@jaea.go.jp

核融合エネルギーは14MeVが中性子の、残りはヘリウムの運動エネルギーとなる。燃料はほんの一部しか反応しないので、プラズマ維持のため燃料とヘリウムを連続排気し、トリチウム処理設備で不純物を取り除き、トリチウムを分離し、再び燃料とする。この燃料循環が滞ると核融合反応が維持できないので、燃料循環システムの成立は核融合炉成立の必須条件となっている。

核融合炉燃料の一つである重水素は海水から取り出し濃縮して供給するが、トリチウムは半減期約12.3年で天然存在比はきわめて低いいため人工的に製造する必要がある。DT核融合炉ではトリチウム製造をブランケットで行う。例えば固体ブランケットの場合、ブランケットにリチウム含有セラミックス（トリチウム増殖材料）を装荷し、核融合反応（プラズマ中）にて発生する中性子とリチウムの核反応でトリチウムを製造する。反応は次式で表される。



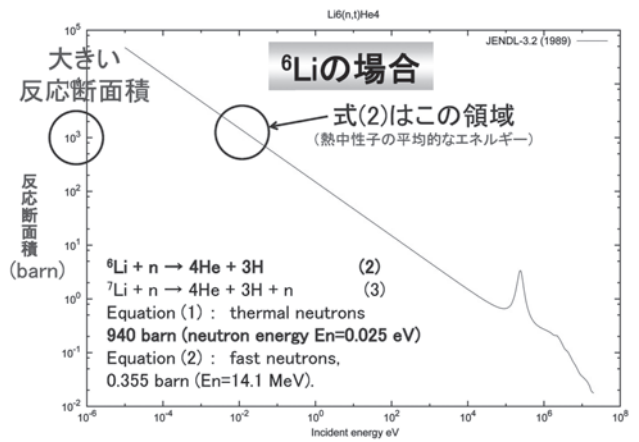
式(2)はエネルギーの低い熱中性子、式(3)はエネルギーの高い高速中性子との反応である。核融合発電にて使用する熱のほとんどは、式(2)の ${}^6\text{Li}$ と熱中性子との核反応にて発生する熱を利用する。また各反応における核融合炉の燃料となるトリチウム生成量の違いは、反応断面積で比較することができる。図2(a)は式(2)における ${}^6\text{Li}$ の反応断面積を、図2(b)は式(3)における ${}^7\text{Li}$ の反応断面積を示す。

核融合炉内にて発生する中性子のエネルギーから反応断面積を見積ると、 ${}^6\text{Li}$ は約 10^3 barnであるのに対し、 ${}^7\text{Li}$ は約 10^{-2} barnである。この数値がトリチウム生成量の大きさを示すことから、 ${}^6\text{Li}$ の寄与は ${}^7\text{Li}$ より桁違いに大きいことがわかる。よって、核融合炉内にて生成されるトリチウム生成量を計算する際は、核融合炉内にて発生した中性子の量と ${}^6\text{Li}$ の反応のみを考慮する。

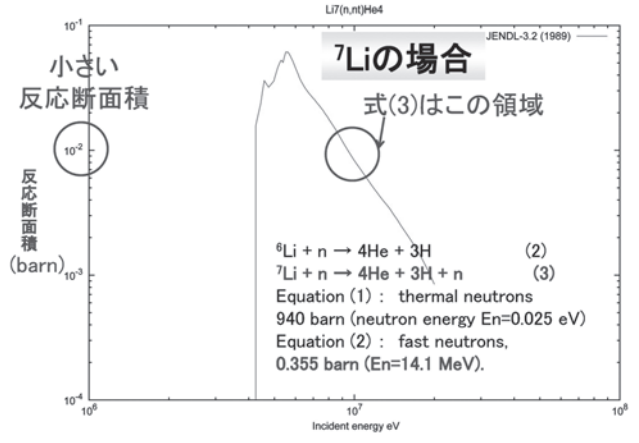
核融合炉の連続運転を実現するためには、ブランケットにおいて製造されるトリチウム量の核融合反応で消費するトリチウム量に対する比（トリチウム増殖比、TBR）が常に1を上回る必要があり、トリチウムの半減期による崩壊や透過による損失等を考慮すると、TBRは1.05より大きい値を要求されている[12]。TBR向上のためには、核融合炉内で生成するトリチウム量をより多くする必要があるため、核融合中性子との反応断面積の大きい ${}^6\text{Li}$ の役割は大きい。

一方、天然のリチウム同位体存在比は ${}^6\text{Li}$ が最大で7.8%、 ${}^7\text{Li}$ が最小で92.2%のため、核融合炉運転に必要なトリチウム量を確保するためには ${}^6\text{Li}$ の同位体存在比をより大きくする濃縮が必須である。核融合炉に要求される ${}^6\text{Li}$ 濃縮度は、ブランケットのTBRの値から決定するが、ブランケットの形状は、核融合原型炉の設計デザインに大きく影響を受けるため、決まった値は存在しない。

そこで、過去の核融合原型炉のモデルから ${}^6\text{Li}$ 濃縮度とTBRの関係を求めた結果より[13]、我が国の原型炉デザインである DEMO2001 および SlimCS の二種類のモデルか



(a) ${}^6\text{Li}$ の場合



(b) ${}^7\text{Li}$ の場合

図2 核融合炉内における ${}^6\text{Li}$ と ${}^7\text{Li}$ の反応断面積の違い。

ら、 ${}^6\text{Li}$ 濃縮度とTBRの関係を考察した結果を表1に示す。トリチウム増殖材料としては日本の第一候補材料の一つである Li_2TiO_3 を、また、中性子増倍材料としてはベリリウム(Be)を選択した。核融合炉内にはダイバータ等が存在するため、核融合プラズマのまわりすべてをブランケットで覆うことはできない。そこで、増殖領域被覆率はSlimCSにおける値である75.9%とした。DEMO2001におけるブランケットのTBRより増殖領域被覆率からTBRを計算した結果、30%濃縮 ${}^6\text{Li}$ でTBR1.07と目安となる1.05を若干上回る結果となった。また90%濃縮 ${}^6\text{Li}$ の際はTBR1.15となり、 ${}^6\text{Li}$ の濃縮度が高くなるにつれTBRに余裕が生まれる。すなわち、実現可能な核融合原型炉設計には90%濃縮 ${}^6\text{Li}$ が要求される結果となった。

次に、核融合炉一基に必要なリチウム量と価格を見積った。国際熱核融合実験炉(ITER)ではブランケットは1つしか装荷できないテストブランケットモジュール(TBM)

表1 DEMO炉における ${}^6\text{Li}$ 濃縮度とTBRの試算。

トリチウム増殖材料	Li_2TiO_3	
中性子増倍材料	Be	
使用温度	増殖材料：900℃，増倍材料：600℃	
増殖領域被覆率	75.9%	
${}^6\text{Li}$ 濃縮度	30%	90%
TBR	1.07	1.15

であり、核融合原型炉 (DEMO) には、プラズマのまわりを複数のブランケットで覆う [14]。必要となるブランケット数は DEMO 炉設計により変化し、TBM400~500個分といわれるが、今回の見積りでは TBM400個と仮定した。リチウムは炭酸リチウムを主原料として購入することから、この価格をベースに ITER, DEMO で必要な Li 価格を算出した結果を表 2 に示す。

天然 Li (${}^6\text{Li}$: 7.8%) を購入する場合、ITER-TBM で約 120万円、DEMO で 4.8 億円必要となるが、90%濃縮 Li の場合は、ITER-TBM で約 3.2 億円、DEMO で 1280億円と、核融合炉一基に必要な Li 調達予算規模としては非現実的な価格である。価格が高価な理由は、Li 原料そのものの価格をはるかに上回る海外での ${}^6\text{Li}$ 濃縮技術料が上乗せされているからであり、さらに冒頭でも述べたとおり、海外からの大量の ${}^6\text{Li}$ 輸入は困難な状況から、我が国独自の ${}^6\text{Li}$ 濃縮技術の確立は、劇的な調達価格の低下および安定調達の観点から、核融合炉早期実現に向けた最重要課題の一つである。核融合エネルギーフォーラムの ITER・BA 技術推進委員会ロードマップ等検討ワーキンググループでは、核融合炉の実現のため今後我が国独自に技術開発を開始すべき研究課題を 9つ挙げており、 ${}^6\text{Li}$ 濃縮技術開発はその研究課題の 1つとしてロードマップ等検討ワーキンググループ中間報告書に明記されていることから、本技術開発の重要

性がわかる [15]。

3. リチウムの同位体分離技術とその特徴

海外で実用化されていると考えられている Li 同位体分離法は、水銀を用いたアマルガム法と推測されている。推測という言葉の理由は、主にアメリカ、ロシア、フランスをはじめとする海外での ${}^6\text{Li}$ 同位体分離技術開発は軍事目的での技術開発であったため、論文や特許等を含め、公開されている情報がほとんどないからである。筆者が学生の頃に使用した炭酸リチウム等の Li 原料の中には、 ${}^6\text{Li}$ が天然比よりも小さいものが存在し、明らかに貴重な ${}^6\text{Li}$ が抜き取られて販売された時代があったといえる。また、海外から少量であれば 90%濃縮 ${}^6\text{Li}$ を購入することが可能であり、購入した濃縮 ${}^6\text{Li}$ の不純物分析を行った結果、水銀が混入していたことから、水銀を使用したアマルガム法が使用されていたことは間違いのないであろう。

しかしながら、日本では有毒物質である水銀を工業的に使用することは不可能なため、水銀アマルガム法に代る、新たな Li 同位体分離技術開発が行われた。既往の Li 同位体分離技術開発の概要を表 3 に示す。主に、分子蒸留法 [16]、イオン交換法 [17-21]、抽出法、クラウンエーテル吸着法 [22-25]、電気泳動法、グラファイトインターカレーション法 [26-27]、リン酸リチウムによるクロマト分離法 [28-29]、

表 2 核融合炉一基あたりに必要な Li 量と価格。

	Li 濃縮度	ブランケット 1つあたりの必要 Li 量	装荷ブランケット数	1 kg 単価*2	価格
ITER-TBM	天然比	約 40kg	1	3 万円	120 万円
	90%			800 万円	3.2 億円
DEMO ブランケット	天然比	約 40kg	400*1	3 万円	4.8 億円
	90%			800 万円	1280 億円

* 1 数量は仮定

* 2 炭酸リチウムでの時価 (濃縮 Li は 95%での販売価格)

表 3 既往の同位体分離法。

方法	原理	特長	問題点
アマルガム法	リチウムアマルガムとリチウム化合物水溶液との間の同位体交換平衡を利用。	分離係数 1.02~1.07 システム化・スケールアップが容易。 工業化されている唯一の方法。	水銀を使用する。
分子蒸留法	同位体間の蒸気圧の差を利用。	気相に ${}^6\text{Li}$ が濃縮。 分離係数 1.05~1.08 気相 10^{-4} Torr.	エネルギー消費が大。 スケールアップが困難。
イオン交換法	イオン交換体と溶液の間の同位体交換平衡を利用。	イオン交換体内に ${}^6\text{Li}$ が濃縮。 分離係数 1.001~1.01 スケールアップが容易。	分離係数が小さい。
電気泳動法 (溶融塩法)	電場により ${}^6\text{Li}$ と ${}^7\text{Li}$ の泳動速度の差を利用。	陰極側に ${}^6\text{Li}$ が濃縮。	エネルギー消費が大。溶融塩を使うため高温材料の選定が困難。
溶媒抽出法	クラウンエーテル (有機溶媒溶液) と水溶液間の同位体交換平衡を利用。	クラウンエーテル中に ${}^6\text{Li}$ が濃縮。 分離係数 1.01~1.06	還流操作が困難。薬剤が高価。 分離係数が小さい。 工業化が困難。
グラファイトインターカレート法	グラファイトに対する ${}^6\text{Li}$ の選択的インターカレート。Li-GIC 内の ${}^6\text{Li}$ と ${}^7\text{Li}$ の移動速度の差の利用。	分離係数: 1.007~1.025	分離係数が小さい。 スケールアップ、工業化が困難。
リン酸ジルコニウムによるクロマト分離法	リン酸ジルコニウムへ Li を吸着させた際の、 ${}^6\text{Li}$ と ${}^7\text{Li}$ の同位体効果を利用。	分離係数 1.02~1.03	分離係数が小さい。 スケールアップが困難。
電気化学的酸化還元法	低融点金属 (Sn, Zn, Ga 等) へ Li を電気化学的に挿入した際の、 ${}^6\text{Li}$ と ${}^7\text{Li}$ の同位体効果の差を利用。	分離係数 1.002~1.02	分離係数が小さい。 スケールアップが困難。

電気化学的酸化還元法[30-31], ICR プラズマ同位体分離法[32]が挙げられる。残念ながら、イオン交換膜法は同位体分離係数が小さく、熔融塩法はエネルギー消費量が大きく大量製造へのスケールアップも困難という結果が得られ、その他の技術も同様な結果となり、研究開発を行ったすべての技術が工業化や大量製造へのスケールアップが困難であったため、実用化されず現在に至った。

1980年代以降はLi同位体分離に関するニーズがなかったため、現在までの30年間、ほとんど研究開発は行われなかったが、ITER 開発が進むにつれ、核融合原型炉の実現性が高まり、日本は⁶Li 同位体分離技術を有していない現状が危惧された。そこで筆者は、新たな Li 同位体分離法として、近年リチウムイオン電池の新たな電解質材料として期待されているLiイオンを選択的に透過させるイオン液体(PP13-TFSI)に着目し、そのLiイオンを透過させるイオン液体と隔膜による電気透析法を融合させることで、⁶Liを濃縮できることを世界で初めて発見し、これまでの課題を克服した、耐環境性、量産性、省エネルギー性に優れた革新的同位体分離技術を発案した。

4. イオン液体のリチウム同位体分離への応用

4.1 イオン液体と膜の選定

イオン液体を用いた電気透析法による⁶Li 同位体分離濃縮技術の基本原則を図3に示す。天然同位体比のLi水溶液(アノード側)とLiのない水溶液(カソード側)の間を、イオン液体を含浸させた有機膜にて隔てた電気透析セルに電位を加え、Liを移動させる。その際、⁶Liイオンは⁷Liイオンより移動速度が速いため、⁶Liがカソード側に分離濃縮される原理である。本発案は、海水の脱塩や減塩しようゆの製造にてすでに実用化されている電気透析を応用した手法のため、日本においても工業化(量産化)しやすい技術であることを大きな特徴とする。

イオン液体は常温で無色透明な液体のため、アメリカの

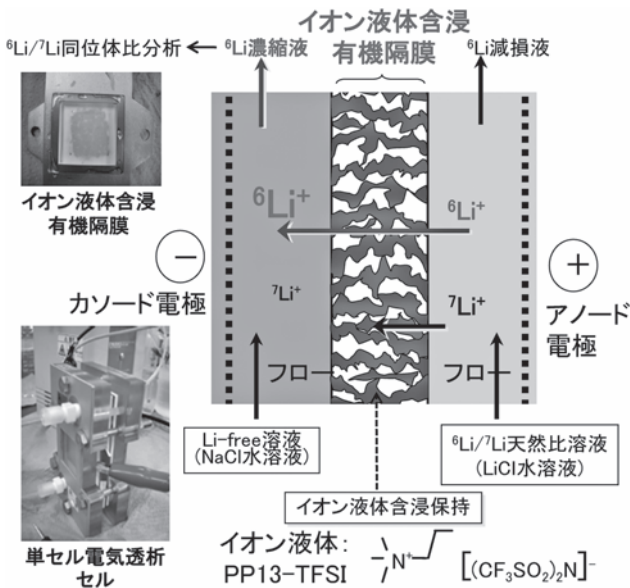


図3 イオン液体含浸有機膜によるLi同位体分離技術の基本原則。

WL ゴア&アソシエイツ社が製造販売する、スポーツ用品等で用いられている撥水性素材であるゴアテックスにイオン液体を含浸させた、イオン液体含浸有機隔膜をリチウム同位体分離膜として使用した。ゴアテックスは撥水性、イオン液体は疎水性と、水に強い性質を有しているが、含浸させたイオン液体は、天然同位体比のLi水溶液およびLiのない水溶液と接触するため、徐々にゴアテックスから抜け出てしまう現象が観察された。

そこで、⁶Li 同位体分離試験中におけるイオン液体含浸有機隔膜からのイオン液体の抜けを防止するため、イオン液体含浸有機隔膜の両端に撥水性の保護膜を用いた、高耐久性イオン液体含浸有機隔膜を製作した(図4)。この保護膜は撥水性だけでなく、Liイオンを透過し、イオン液体は透過しない特性を有するため、Li同位体分離試験中に保護膜が痛まない限り、ゴアテックスに含浸させたイオン液体は、外に漏れ出る心配はない。

この保護膜の材質としては、ナフィオン324、セレミオンCSO、セレミオンCMDの3種類を選択し、製作した各高耐久性イオン液体含浸有機隔膜を用い、Li同位体分離試験装置にて保護膜の耐久性試験を行った。アノード側およびカソード側の溶液を1 ml/minの流速で通液し、0.3 mAと3 mAを約30分毎に交互に切り替えての通電を行った際の約5時間後の高耐久性イオン液体含浸有機隔膜の様子を観察した結果を図5に示す。

セレミオンCSOはイオン液体が抜け、保護膜にシワが生じたが、ナフィオン324、セレミオンCMDに関してはイオン液体のLi原液側および⁶Li回収液側への溶脱はなく、イオン液体含浸有機隔膜内にイオン液体が溜まっていると考

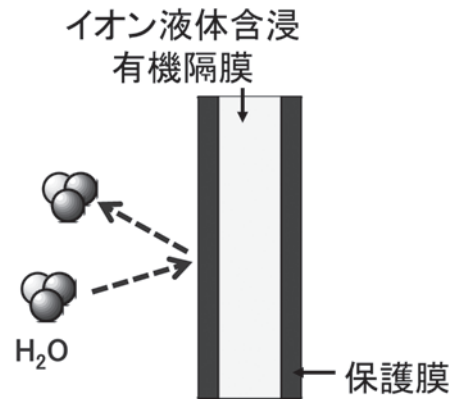


図4 高耐久性イオン液体含浸有機隔膜。

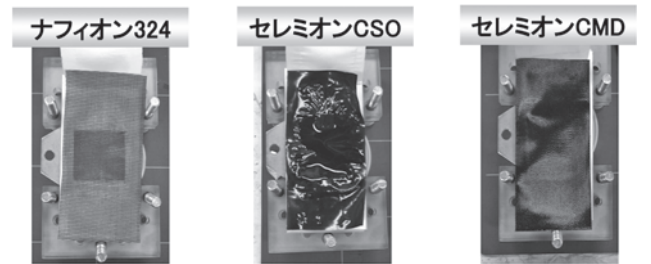


図5 高耐久性イオン液体含浸有機隔膜の耐久性試験後の保護膜外観写真。

えられる。またイオン液体含浸有機隔膜の本試験前後の重量変化を測定することにより、試験後のイオン液体の残存率を算出したところ、ナフィオンの場合では、イオン液体残存率は87%と高い値となり、ナフィオンへのイオン液体の付着分を考慮すれば、イオン液体の残存率は100%に近いと考えられる。これらの結果より、Liイオンを透過させ、且つイオン液体を透過させない保護膜をイオン液体含浸有機隔膜の両端に用いることで、実際の使用環境下においても高耐久性である膜の製作を達成した。

4.2 イオン液体含浸有機隔膜によるリチウム同位体分離実験の結果

アノード側およびカソード側水溶液を図3と同様にし、イオン液体含浸有機隔膜を用いたLi同位体分離装置を用い、電気透析セルに電位を加え、イオン液体含浸有機隔膜中をLiイオンが移動した後の⁶Li回収溶液中の⁶Liと⁷Liの比を分析した。リチウム同位体分離のされやすさを示す⁶Li同位体分離係数は、実験に使用したアノード側水溶液（天然同位体比のLi水溶液）とカソード側水溶液（Liのない水溶液）の⁶Li/⁷Li比より、次式にて算出した。

$${}^6\text{Li 同位体分離係数} = \frac{\text{カソード側の} {}^6\text{Li}/{}^7\text{Li 比}}{\text{アノード側の} {}^6\text{Li}/{}^7\text{Li 比}} \quad (4)$$

⁶Li同位体分離係数が1より大きい値を示した際は、⁶Liが濃縮できたことを示す。

まず、イオン液体含浸有機隔膜の膜厚を1mm~3mmの範囲で変化させ、⁶Li同位体分離係数の透析電流値依存性を測定したところ、膜厚が厚くなるにつれアノード側からカソード側へのLi透過量が低下し、⁶Li同位体分離係数が若干上昇した(図6)。これは、膜厚が厚くなることにより、Liイオンがイオン液体を流れる距離が長くなるた

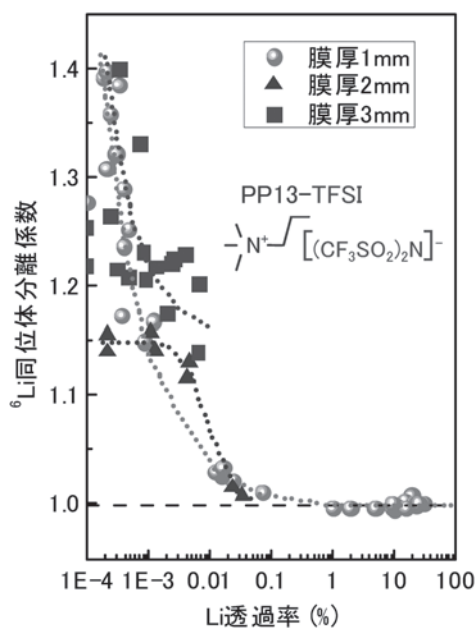
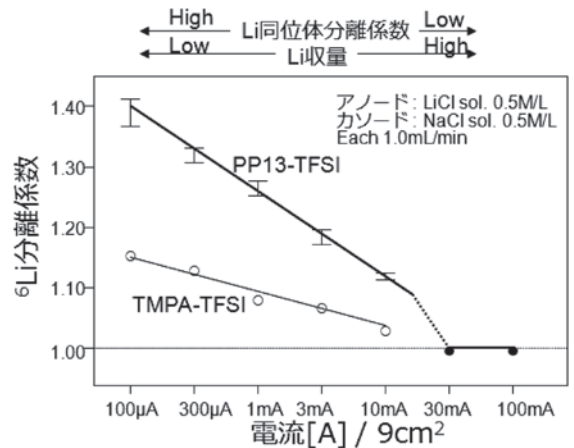


図6 イオン液体含浸有機隔膜の膜厚の違いによる⁶Li同位体分離係数への影響。

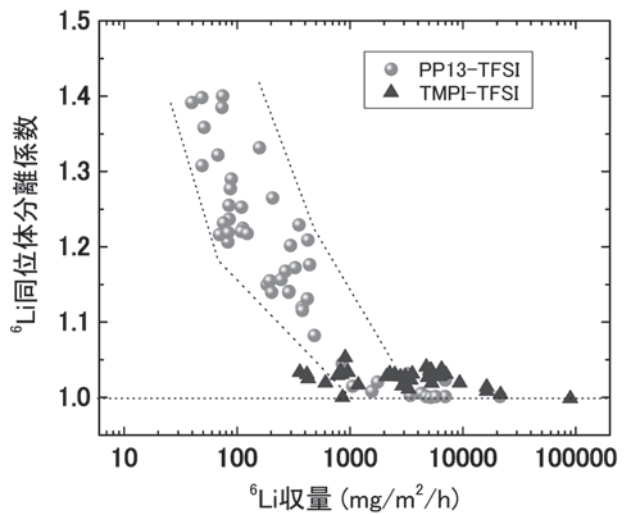
め、より⁶Liが選択的に回収できると考えられる。

また、これまでの測定ではイオン液体としてPP13-TFSIを用いたが、Liイオンを透過する性質を有する他のイオン液体として、TMPA-TFSIを用いた⁶Li同位体分離測定の結果を図7に示す。TMPA-TFSIはLiイオンの透過速度が速く、高い⁶Li同位体分離係数が得られる低電流測定時においてもアノード側からカソード側へのLi透過量が大きくなり、⁶Li同位体分離係数はPP13-TFSIより低い値となった。よって、現時点では、PP13-TFSIが⁶Li同位体分離技術の最適なイオン液体といえる。

本研究では最高で⁶Li同位体分離係数1.4と、従来手法の中でも連続的にLi同位体分離が可能で工業化が見込める手法と比較すると、きわめて高い値を得たが、高い⁶Li同位体分離係数が得られる測定条件ほど、得られる⁶Liの収量が低い傾向となった。そこで、電気透析を用いた⁶Li同位体分離測定における⁶Li同位体分離の効率を検討するため、⁶Liの同位分離効率を⁶Li同位体分離係数と⁶Li収量の関係で表す次式で定義し、⁶Li同位体分離効率と⁶Li同位体分離係数



(a) ⁶Li同位体分離係数の印加電流値依存性。



(b) ⁶Li同位体分離係数の⁶Li収量依存性。

図7 イオン液体 (PP13-TFSI および TMPA-TFSI) の違いによる⁶Li同位体分離係数への影響。

の関係を調べた。

$${}^6\text{Li 同位体分離効率} = \frac{{}^6\text{Li 収量} \times ({}^6\text{Li 同位体分離係数} - 1)}{({}^6\text{Li 同位体分離係数} - 1)} \quad (5)$$

計算結果を図8に示す。⁶Li同位体分離効率は⁶Li同位体分離係数1.05まで急激に上昇し、1.15以降は逆に⁶Li分離効率が下がる結果が得られた。本イオン液体含浸有機隔膜による⁶Li同位体分離測定では、すでに海外にて実用化されているものの日本では環境負荷の観点から使用の困難な水銀アマルガム法の⁶Li同位体分離係数である1.06と同等以上の⁶Li同位体分離係数にて⁶Li同位体分離を行うことが、⁶Li同位体分離係数と⁶Li収量のバランスの観点から適している。

4.3 多層膜型⁶Li同位体分離濃縮装置の試作

これまでのイオン液体を用いた⁶Li同位体分離装置は、装置1台にイオン液体含浸有機隔膜1枚を用いた単層膜型⁶Li同位体分離濃縮装置である。この装置では高いLi同位体分離係数にて連続的に⁶Liを回収可能であるが、実用化のためには装置1台あたりの⁶Li収量の向上も課題の一つである。そこで、本課題解決の見通しを得るため、イオン液体含浸有機隔膜を複数枚使用した多層膜型⁶Li同位体分離装置の試作を行った。

単層膜型⁶Li同位体分離濃縮装置では、イオン液体含浸有機隔膜を1枚のみ使用し、その両端にアノード側水溶液(天然同位体比のLi水溶液)とカソード側水溶液(Liのない水溶液)を通液する構造であったが、⁶Li同位体分離試験のために電流を印加した際、電極部にて通液した溶液の一部が電気分解を生じ、塩素等のガスが装置内に滞留し、通液の妨げへの影響が懸念された。

そこで、多層膜型⁶Li同位体分離濃縮装置では、セルの外側に電極を配置した極液部を設け、電極にて発生した微量

のガスはセル内に滞留することなく、極液部より速やかに大気中に解放される装置とし、発生ガスがLi同位体分離試験の結果に与える影響を極力低減することを試みた(図9)。また、イオン液体含浸有機隔膜を4枚使用し通液部を4つとすることで、多層膜中に通液可能な装置設計とした。

最終的に、⁶Li同位体分離試験用のカソード側水溶液(Liのない水溶液)通液部分を1つ、アノード側水溶液(天然同位体比のLi水溶液)通液部分を3つ設けた多段セルとし、単セルよりも天然同位体比のLi水溶液の通液部分を多くすることで、⁶Li同位体分離効率の向上を図った。イオン液体含浸有機隔膜は、同位体分離試験中におけるイオン液体の溶脱を低減させるため、ナフィオン(ナフィオン324)等の保護膜を使用した。電極材質はTi-IrO₂メッシュ、電気透析セル容積は天然同位体比のLi水溶液21.0 mL/Liのない水溶液側7 mL、通液速度は1 mL/minにて、0.5 mAの定電流を75 min通電した際の⁶Li同位体分離係数を算出した。

濃縮側の⁶Li同位体分離係数は1.051となった(表4)。単層膜型⁶Li同位体分離濃縮装置での試験では、カソード溶

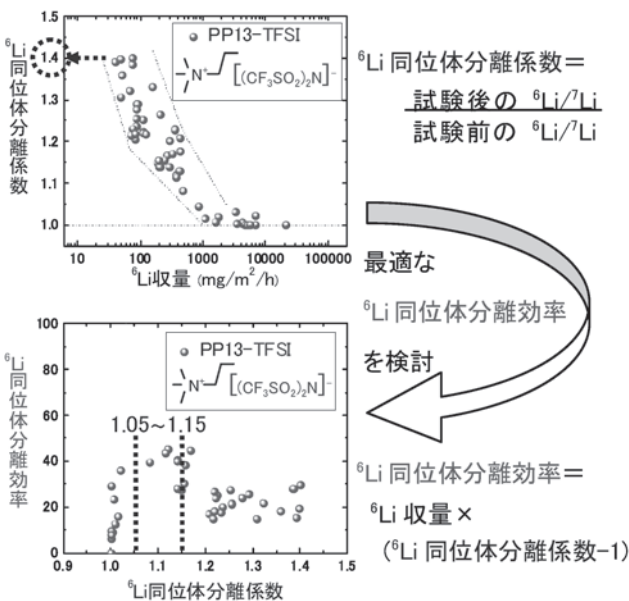


図8 ⁶Li同位体分離係数の⁶Li収量依存性と最適⁶Li同位体分離効率の検討。

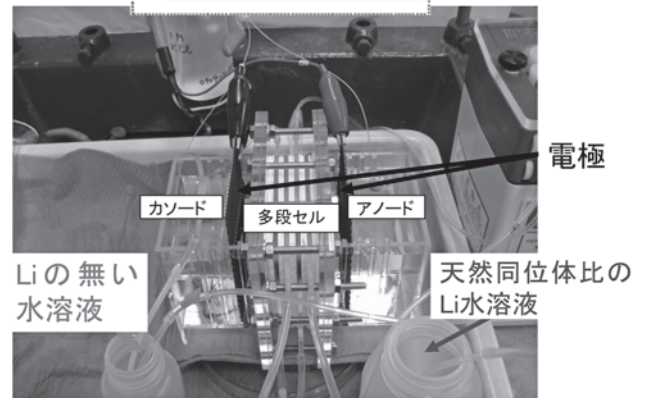
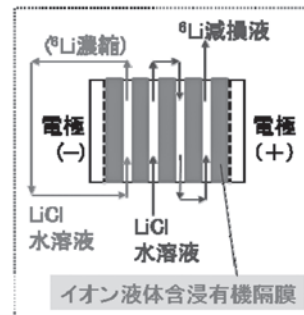


図9 多層膜型⁶Li同位体分離濃縮装置。

表4 多層膜型⁶Li同位体分離濃縮装置によるLi同位体分離試験結果。

	Li同位体分離係数
	回収側 ⁶ Li/ ⁷ Li比 / 原液側 ⁶ Li/ ⁷ Li比
カソード側	1.051
アノード側	0.985
極液	1.044

LiCl濃度(濃縮, 原液, 極液): 0.1 mol/L
 電流値: 0.5 mA, 電圧値: 約 0.4 V
 イオン液体: PP13-TFSI
 通液速度: 1 mL/min

液としてはLiのないNaCl等を用いており、今回、あらかじめ天然比の⁶Li(約7.8%)が存在するLiCl溶液にてLi同位体分離係数1.051が得られたことは、多量の⁶Liが濃縮側へ移動したことを示しており、大量製造へ向けた見通しを得た。また、極液(容量:250 ml)においても、⁶Liイオンがセル内へと透過することでLi同位体分離係数1.044のLiCl溶液が得られることを発見した。

これらの結果は、従来の単層膜型⁶Li同位体分離濃縮装置よりも多量の⁶Li濃縮ができる可能性を示唆するものであり、膜の組み合わせ等を工夫することで、より高い⁶Li収量および同位体分離係数を得るための指針を得た。

5. 今後の展望

⁶Li同位体分離係数は、必要な⁶Li濃縮度までの⁶Li同位体分離装置の段数に関係する値であることから、イオン液体含浸有機隔膜を用いたLi同位体分離技術は、水銀アマルガム法と同等以下の段数で目的とする⁶Li濃縮度を達成でき、環境負荷の大きい水銀を使用しない点からも、イオン液体含浸有機隔膜による⁶Li同位体分離技術は実用化へ向け有望な手法であるといえる。

ITERのテストブランケットモジュール内に90%濃縮⁶Li₂TiO₃を装荷する際、必要な90%⁶Liは金属Liとして換算すると8000gである。仮に⁶Li同位体分離係数を1.05とした場合、90%濃縮⁶Liを得るために必要な単セルの段数を計算した結果、表5より51段となる。また、本⁶Li同位体分離試験の結果より、イオン液体含浸有機隔膜の面積を約100倍にスケールアップした⁶Li同位体分離装置1段では、1日(24h)あたり24gの⁶Liが回収可能である。8000gの⁶Liを得るための時間は、24時間運転の場合、334日間要する。更に、核融合発電炉においては約400個のITERテストブランケットモジュールを核融合炉内に設置すると仮定した際は、必要となる⁶Li量も400倍となる。

スケールアップに際しては、本研究にて得られたデータを基に⁶Li同位体分離装置の効率化を行うだけでなく、実際のトリチウム増殖材料を合成する際の原料となる炭酸リチウム(Li₂CO₃)や水酸化リチウム(LiOH・H₂O)を得るための、⁶Li同位体分離・回収システムが必要となる。図10に示すシステム概念図は、①⁶Li同位体分離、②⁶Li濃縮液の濃度調整、③⁶Li回収系より構成される。本研究では①に重点を置いたため、今後は②、③を含めた基盤技術の確立が必要である。①⁶Li同位体分離では、⁶Li同位体分離装置を多層構造にすることで効率を向上するが期待できる。②⁶Li濃縮液の濃度調整では、⁶Li同位体分離後の⁶Li濃縮液

表5 90%濃縮⁶Liを8000g回収する際の必要な単セル段数と日数。

項目	工業的規模単セル	備考
セル有効寸法	W 1 m×H 1 m (1 m ²)	工業規模
有機隔膜	ゴアテックス	
イオン液体	PP13-TFSl	
イオン液体含浸量	1200 g	
セル有効面積	1 m ²	
⁶ Li同位体分離係数	1.05	仮定値
⁶ Li回収量	1 g/h (24 g/日)	



必要単セル段数 X :

$${}^6\text{Liの天然比}(\%) \times \text{同位体分離係数の X 乗} > \text{目標濃縮度}(\%)$$

$$7.6\% \times 1.05 \text{ の X 乗} > 90\%$$

$$X = 51$$

運転日数(日) : 目標とする⁶Li量(g) ÷ ⁶Li日産量(g/日)

$$8000\text{g} \div 24\text{g} = 333$$

必要単セル段数	51段
運転日数	333日

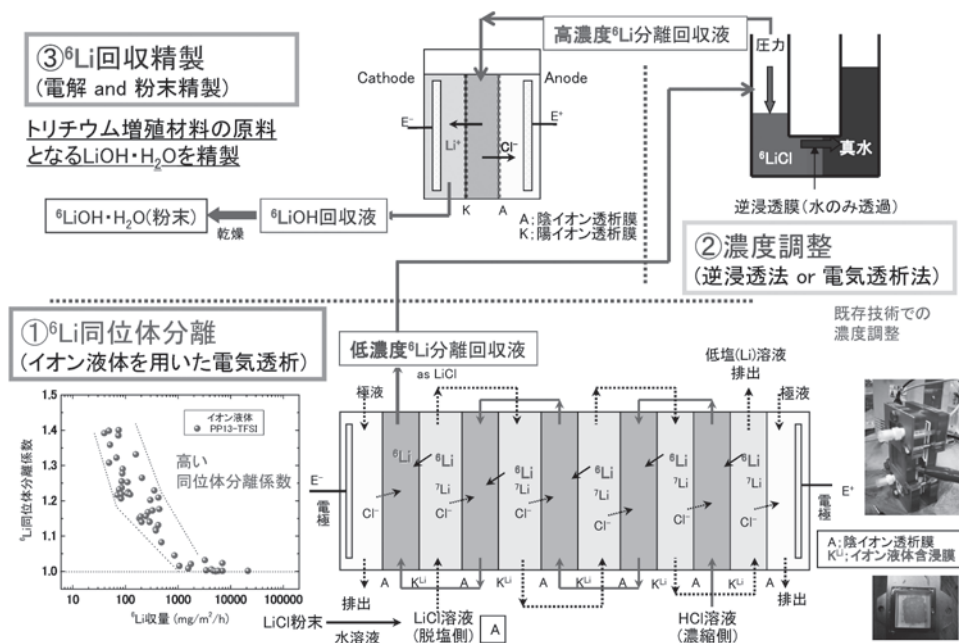


図10 ⁶Li同位体分離および回収の実証システム概念図。

は低濃度のため、 ${}^6\text{Li}$ 原料として回収する際、高濃度の ${}^6\text{Li}$ 同位体濃縮溶液にする。③ ${}^6\text{Li}$ 回収系では、濃縮 ${}^6\text{Li}$ 同位体溶液中に含まれる塩素イオンと濃縮 ${}^6\text{Li}$ 同位体を分離し、濃縮 ${}^6\text{Li}$ セラミックス合成原料を精製する。

以上の結果より、核融合原型炉の早期実現のため、まず装置のスケールアップに必要な技術開発、次に一段あたりの ${}^6\text{Li}$ 同位体分離係数および ${}^6\text{Li}$ 同位体分離効率の向上に関する技術開発、さらにトリチウム増殖材料を合成する際の原料としての回収技術が、今後の日本独自の技術開発戦略として、早期に着手しなければならない。

参考文献

- [1] 日本化学会原子量専門委員会「原子量表(2012)」について：化学と工業 65, No.4 (2012).
<http://www.chemistry.or.jp/international/atomictable2012.pdf>
- [2] E.A. Symons, CFFTP-G-85036, (Atomic Energy of Canada Limited, 1985).
- [3] M. Fujie *et al.*, J. Nucl. Sci. Technol. 23, 330 (1986).
- [4] K. Okuyama *et al.*, J. Inorganic Nucl. Chemist. 35, 2883 (1973).
- [5] K. Nishizawa *et al.*, J. Nucl. Sci. Technol. 21, 694 (1984).
- [6] 垣花秀武 他：日本原子力学会誌 6, 65 (1964).
- [7] 平井昭司, 垣花秀武：日本原子力学会誌 18, 373 (1976).
- [8] F. Lantelme and P. Turq, J. Inorganic Nucl. Chem. 33, 4025 (1971).
- [9] I. Okada *et al.*, Z. Naturforsch. 41a, 1045 (1986).
- [10] T. Hoshino and T. Terai, J. Nucl. Mater. 417, 696 (2011).
- [11] T. Hoshino and T. Terai, Fusion Eng. Des. 86, 2168 (2011).
- [12] 深田 智 他：プラズマ・核融合学会誌 88, 503 (2012).
- [13] M. Enoeda *et al.*, Nucl. Fusion 43, 1837 (2003).
- [14] K. Tobita *et al.*, Nucl. Fusion 49, 075029 (2009).
- [15] 核融合エネルギーフォーラム ITER・BA 技術推進委員会, 内閣府原子力委員会, 第15回会議資料, 核融合エネルギー実用化に向けたロードマップと技術戦略(2008).
- [16] V.A. Malysov *et al.*, Translated from Atomnaya Energiya 11, 43 (1961).
- [17] 藤根幸雄 他：Japan Atomic Energy Research Institute, JAERI-M 9735 (1981).
- [18] K. Nishizawa *et al.*, J. Nucl. Sci. Technol. 21, 133 (1984).
- [19] Z. Hagiwara and Y. Takakura, J. Nucl. Sci. Technol. 6, 326 (1969).
- [20] 山本一良：平成13-15年度文部科学省科学研究費補助金研究成果報告書, 基盤研究(A)(2)(2004).
- [21] K. Ooi *et al.*, Separation Sci. Technol. 30, 3761 (1995).
- [22] S. Fujine *et al.*, J. Nucl. Sci. Technol. 20, 439 (1983).
- [23] D.W. Kim *et al.*, J. Radioanalytical Nucl. Chem. 240, 155 (1999).
- [24] D.W. Kim *et al.*, J. Radioanalytical Nucl. Chem. 240, 229 (1997).
- [25] D.W. Kim *et al.*, J. Radioanalytical Nucl. Chem. 240, 219 (1995).
- [26] S. Yanase *et al.*, Department of Chemistry, Sophia University, 306 (2003).
- [27] S. Saito *et al.*, Prog. Nucl. Energy 999, (2011).
- [28] H. Kakihana *et al.*, J. Nucl. Sci. Technol. 14, 572 (1977).
- [29] Y. Uchiyama *et al.*, J. Nucl. Sci. Technol. 38, 85 (2001).
- [30] Jay R. Black *et al.*, J. Am. Chem. Soc. 131, 9904 (2009).
- [31] K. Zenzai *et al.*, Prog. Nucl. Energy 50, 494 (2008).
- [32] 鈴木達也, 藤井靖彦：プラズマ・核融合学会誌 74, 250 (1998).



ほしの つよし
星野 毅

日本原子力研究開発機構・核融合研究開発部門・増殖機能材料開発グループ、研究副主幹。核融合炉の燃料製造に必要な、先進固体トリチウム増殖材料（リチウム含有セラミックス）の製造法を発案。皆様のご支援により内閣府の外部資金を獲得し、海水からのリチウム資源回収にも挑戦中。震災前より太陽光発電を設置している本流の再生可能エネルギー派。将来は燃料電池も自宅に設置することを目標。