

ノート

# 随伴水還流型電解による 多段階トリチウム濃縮装置の実証試験

斎藤正明, 今泉 洋

Reprinted from  
RADIOISOTOPES, Vol.61, No.8  
August 2012



Japan Radioisotope Association  
<http://www.jrias.or.jp/>



倍率は試料水量、濃縮水量及び電解時間に依存しなかった。

しかし、この方式では約 1.3 倍にしかトリチウム濃縮されなかった。そこで、複数の電極を直列配置する多段階電解、あるいは水を陽極側に戻し、多数回の電解を繰り返す還流型電解によって、濃縮水の少容量化が達成できるものと予測した。1.3 倍の濃縮を  $n$  回 (段) 繰り返せば、1.3 の  $n$  乗倍の濃縮、例えば 12 段で 23 倍濃縮となる勘定である。

従来方式のように試料水と濃縮水とが混合しにくいので、軽水素の分解がより効果的に行われ、濃縮効率の向上も期待できる。理論的解析にも微分方程式を使った従来法より単純なものとなる。

多段装置の試作には新たな経費と時間を要するため、既存の装置を利用した軽度な改造によって一段セルによる多数回還流システムを構築し、多段効果の実証を試みた。

### 3. 実 験

#### 3.1 構造

トリチウム濃縮装置は Fig.1 に示すように、試料水容器 T1、貯留水容器 T2、中心部に示す電解セル及び最下部に示すチューブポンプ Tube Pump によって構成されている。T1 は、二つのチューブ R1 及び D1 (内径 10 mm $\phi$ ) によって電解セル陽極に繋がっており、T2 は、二つのチューブ R2 及び D2 によって電解セル陰極に繋がっている。電解セルの 2 本のリード線には直流電源 DC 3V が接続されており、陽極及び陰極に電解電流が給電される。また、DC 3V にはチューブ D1 の途中に設けられた水位センサ S1 が接続され、T1 側試料水の水位の検出あるいは未検出に応じて、給電がオンあるいはオフされるように設定されている。以上は従来の固体高分子型トリチウム濃縮装置と同様であった。

本報の実験では、電解セル内の電解質膜に設けられていた通水孔 (4 mm $\phi$ ) をフッ素樹脂

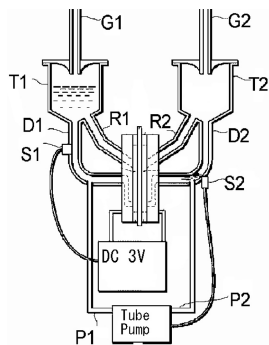


Fig. 1 Accompanying water circulating electrolysis apparatus.

- 1: Anode side
- 2: Cathode side
- G: Gas outlet
- T: Reservoir tank
- R: Gas outlet tube
- D: Water inlet tube
- S: Water sensor
- P: Water circulating tube

粘着テープ (日東電工ニトフロンテープ) で膜の両面から貼り合わせて塞ぎ、陰極と陽極を隔離した。

チューブ D1 に穴をあけ、フッ素樹脂チューブ (内径 1 mm $\phi$ ) P1 を差し込み、シリコン樹脂で接着した。同様に、陰極部の D2 に P2 を接続した。P1 及び P2 の他端を Tube Pump に接続した。この Tube Pump は、生成した濃縮水を陰極から陽極に向け回分的に還流させる働きをする。Tube Pump には D2 の最下部に設けられた水位センサ S2 が接続され、陰極側に貯留した随伴水がなくなると Tube Pump が停止するように設定されている。

#### 3.2 動作

本装置の動作について、T1 にトリチウムを含む試料水を導入し、試料水の水位が S1 の位置を超えている間は DC 3V がオンになり、給電が行われる。電解の進行に伴ってトリチウム濃縮された随伴水が陰極に浸出し、T2 に貯留

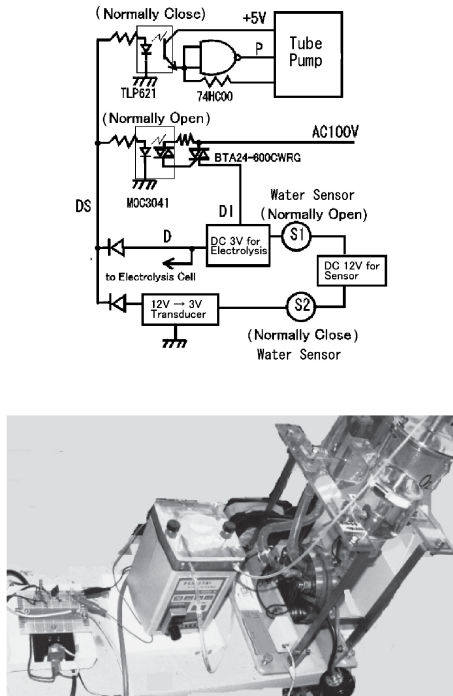


Fig.2 Control circuit of accompanying water circulating electrolysis.  
The photo: control board, tube pump and the electrolysis cell from the left.

していく。

電解と還流の動作を全自動で行う制御システムを Fig.2 に示す。水の分解及び随伴水の移動に伴い T1 内の水位が下降して S1 より下に達すると、直流電源からの給電がオフとなり、電解が停止する。DC 3 V の給電のオフ及び S2 のオンが検出されると Tube Pump が起動し、T2 内の随伴水が陽極側に還流する。

その後、T2 の水位が S2 の位置まで下降すると、Tube Pump が停止され、随伴水の還流が止まる。

Tube Pump が起動から停止に切り替わるタイミングで DC 3 V からの給電が再度オンされ、試料水の電解が再開される。以後、S1 及び S2 両者の水位が直下位置に到達するまで電解セルへの給電、停止及び還流動作が繰り返される。

以下の記述で、[1]あるいは[0]とは、TTL

論理 (トランジスタロジック) 表現における、それぞれ、オン 2.0 V 以上、あるいはオフ 0.8 V 以下を意味する。

図中で、Normally Open 型とはフォトカプラ部品においては入力オフ[0]あるいは水位センサにおいては水面検知がオフ[0]のときに出力がオフ[0]となるように動作し、入力がオン[1]あるいは水面検知がオン[1]のときに出力がオン[1]となるように動作する。Normally Close 型は Normally Open 型とは逆の動作を行うもので両者ともに市販電子部品として一般に入手可能である。

制御回路図において、上から 1 段目が Tube Pump (ペリスタバイオミニポンプ) の制御部で Normally Close 型フォトカプラ及び NAND 型 C-MOS IC で構成され、左側縦結線ライン DS=0 状態で Tube Pump が起動する<sup>9)</sup>。

2 段目が DC 3 V (電解電源 3 V) への AC 100 V 入力制御部で、Normally Open 型フォトカプラとトライアックで構成され、DS=0 で DI=0 V であり、DS=1 で DI=100 V となるが、3 段目の電解電源の出力が DS ラインに供給されているので、自ら相補的に動作することになる。

3 段目電解電源部は水位センサ S1 による水面検知で S1=1 及び DI の積集合値が D から逆流防止ダイオードを経て DS に出力される。

4 段目の 12 V→3 V Transducer は 12 V の S2 出力電圧を TTL レベルに変換するためのもので市販の三端子レギュレータ素子を利用した。水位センサ S2 による陰極部の水面検知で S2=0 が逆流防止ダイオードを経て DS ラインに出力される。

以上の各プロセスの動作によって、制御システムとしての動作は S1, S2 いずれかが水面を検知していれば、ポンプ停止&電解運転あるいはポンプ運転&電解停止のいずれかが行われ、S1, S2 ともに水面を検知しなくなった状態すなわち、陽極水が S1 の直下に貯留した状態で終了することになる<sup>10)</sup>。

Table 1 Enriched water volume of circulating water electrolysis

Enriched water volume	Enrichment factor
Circulating water electrolysis	
27 ± 1 g	10.3 ± 0.2
Conventional electrolysis (Initial sample volume = 600 g)	
54 ± 1 g	7.0 ± 0.2

#### 4. 結果及び考察

陽極側にトリチウム水 600.0 g を入れ、陰極側を空状態にし、電解を行った。制御動作は無人で期待通り自動的に行われ、最終的には、S1 の直下位置まで濃縮水が貯留されて終了した。

還流型電解の結果を従来型電解方式と比較して Table 1 に掲げる。表示の誤差について、水量は秤量の繰り返し実験から得た標準偏差  $2\sigma$ 、濃縮倍率はトリチウム水の計数誤差  $2\sigma$  である。

濃縮水が陽極部だけに偏在した状態で電解が終了するので、濃縮水量は従来型 54 g に対して、還流型 27 g となり、半減化を達成できた。濃縮倍率は従来型 7.0 に対し、還流型 10.3 となり、濃縮性能は約 1.5 倍増と向上した。

固体高分子電解濃縮において、陰極と陽極を隔離した回分式濃縮を繰り返す多段階電解でトリチウム濃縮が達成できることを実証した。

本報では従来器の転用で初期試料水量が現有のリザーバタンクの上限 600 g であったが、新たなリザーバタンクを製作し初期試料水量を増量すれば、濃縮倍率の倍増、三倍増は容易であろう。

#### 文 献

- 1) 斎藤正明, 高田 茂, 島宗孝之, 錦 善則, 清水秀人, 林 貴信, *RADIOISOTOPES*, **45**, 285-292(1996)
- 2) 斎藤正明, 林 貴信, 錦 善則, 島宗孝之, 特許第 3406390 号(2003)
- 3) 斎藤正明, 高田 茂, *RADIOISOTOPES*, **45**, 483-490(1996)
- 4) 斎藤正明, 特許第 3748304 号(2005)

- 5) 文部科学省, 放射能測定法シリーズ 9: トリチウム分析法, pp.80-88, 日本分析センター(2002年7月)
- 6) M. Saito, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **275**, 407-410(2008)
- 7) 斎藤正明, 今泉 洋, 加藤徳雄, 石井吉之, 関谷喜史, *Electrochemistry*, **77**, 370-372(2009)
- 8) 斎藤正明, 今泉 洋, 加藤徳雄, 石井吉之, 斎藤圭一, *Electrochemistry*, **78**, 597-600(2010)
- 9) 斎藤正明, 加藤徳雄, *RADIOISOTOPES*, **55**, 189-194(2006)
- 10) 斎藤正明, 今泉 洋, 特開 2010-006637(2010), PCT JP 2009061393(2009)

#### Abstract

##### Verification of Multi-step Enrichment of Tritium by Circulating Water Electrolysis

Masaaki SAITO and Hiroshi IMAIZUMI\* : Tokyo Metropolitan Industrial Technology Research Institute, 2-4-10 Aomi, Koto-ku, Tokyo 135-0064, Japan, \*Department of Chemical Engineering, Faculty of Engineering, Niigata University, 8050 Ikarashi 2-Nocho, Niigata-shi, Niigata Pref. 950-2181, Japan

*Hydrogen ions accompany water from the anode to the cathode in solid polymer electrolysis for tritium water enrichment. The conventional enrichment apparatus has a flow pass between the anode and the cathode to mix water continuously. When the flow pass is closed, the cathode shows constant tritium enrichment, while the anode does not show any tritium enrichment at all. In this study, we built a system in which water obtained from the cathode returns to the anode with the help of a tube pump. The automated system repeats this process continuously and achieves tritium enrichment factor from 7.0 to 10.3 in the case of initial water value 600 g, decreasing the enriched water value to half of these conventional value, i.e., from 54 g to 27 g.*

(Received March 21, 2012)