



## 液体アルカリ金属中のトリチウムの除去

柳

忠\*

水素同位体のうちで唯一の放射性であるトリチウム ( $\beta$ 崩壊, 最大, 平均の各エネルギー: 18, 5.7 KeV, 物理的半減期: 12.3年) はエネルギーおよび環境の両面から重要視されてきている。この核種は環境中では最終的にトリチウム水 (HTO) として安定化することから、我々の生活圏に広く分布している。宇宙線の作用による世界の天然トリチウムの定常値は約 70 MCi (megacuries) (4 MCi/y) といわれている<sup>1)</sup>。しかし核実験によってこの値は 1963 年頃に約 3100 MCi に達しており、70 MCi にまで減ずるのは 2030 年頃であろう。原子炉では核分裂性物質の三体核分裂によるもの他、関係する種々の軽元素からもトリチウムが生成する (表 1)。

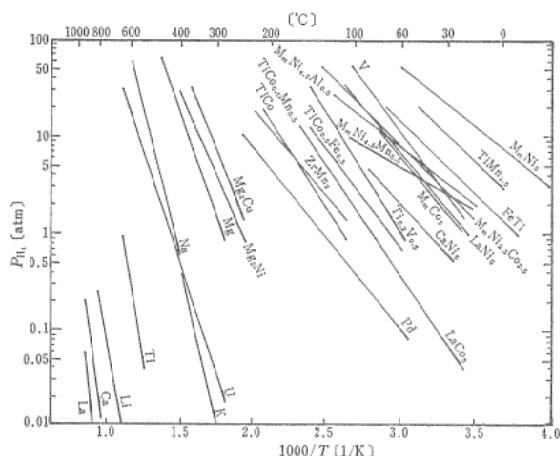
表 1 原子炉中でのトリチウム (T) より  
親核種の生成反応

$^{233}\text{U}$	$(n, f) T$	$^7\text{Li} (n, n'\alpha) T$
$^{235}\text{U}$		$^9\text{Be} (n, \alpha) ^6\text{Li}$
$^{239}\text{Pu}$		$^{10}\text{B} (n, \alpha) ^7\text{Li}$
$^2\text{H} (n, \gamma) T$		$^{10}\text{B} (n, 2\alpha) T$
$^3\text{He} (n, p) T$		$^{12}\text{C} (n, \alpha) ^9\text{Be}$
$^6\text{Li} (n, \alpha) T$		$^{14}\text{N} (n, T) ^{12}\text{C}$

年間のトリチウム生成量は、軽水炉(LWR)で  $1.5 \sim 2.5 \times 10^4$  Ci (ただし 1000 MWe, megawatts electrical, 当り), 重水炉(HWR)からは、 $6 \times 10^5$  Ci と見積られている。現在開発が進められている液体金属冷却高速増殖炉(LMFBR)からは、使用する制御棒の材質にもよるが、 $3 \sim 6 \times 10^4$  Ci と予測される。LMFBRでのトリチウムは水冷却炉の場合と様子が異なる。後者ではトリチウムは水の形であ

るのに対し、前者では分子状のものが対象となる。水素の高温下での諸種材料に対する透過性は比較的大きく、従ってステンレスが燃料被覆材に使用された場合等は燃料中に生じた大部分のトリチウムは冷却材である液体ナトリウム中へと移行する。これが二次冷却系、蒸気発生器等より環境へと漏れ出てくる恐れがあるため、一次冷却系ナトリウム中からトリチウムを除去する必要がある。EBR-II (2nd Experimental Breeder Reactor) での実験から、温度による溶解度差に基づくコールドトラップ法が除去法として有効であることが示された。しかし、沈積したトリチウム—ナトリウム化合物(主に水素化物)の処理法や沈積物による冷却系ループの閉塞等の問題が未解決のままである。それ故、コールドトラップ法に代り得る別の方法が検討されるわけで、ナトリウムに比べて一層水素化物生成自由エネルギーが大きく(図 1)，かつナトリウムに不溶性の金属(固体ゲッター)による吸収除去法<sup>3)</sup>や、アルカリ水素化物がイオン結合性(salt-type)であることから、融解塩による抽出除去法<sup>4)</sup>等が提案された。前者にはナトリウム中の他の非金属不純物(C, N, O)による固体ゲッターの吸収能の劣化、後者にはナトリウムと融解塩陽イオンとの置換反応等問題点はあるが、これらの除去法はそのままトリチウムの固定化法にもなりうるものであり、トリチウムの貯蔵運搬上の問題も少なく、また必要に応じて固化体からのトリチウムの回収も可能である。図 1 からリチウム水素化物はナトリウム水素化物より安定で、また前者は液体ナトリウム中での溶解度も小さく、アルカリ水素化物のうちで最もイオン性が大きい。そこで液体ナトリウム中のトリチウム分離に金属リチウムを可溶性ゲッターとして用い、これと融解塩抽出法との組合せが次に試みられるべき方

\*柳 忠 (Tadashi YANAGI), 大阪大学, 工学部, 原子力工学科, 助教授, 工学博士, 原子炉化学生工学

図1 金属水素化物の平衡分解圧と温度との関係<sup>2)</sup>

法と考えられる。融解塩抽出法のもう1つの利点はトリチウムのみならず、液体ナトリウム中の他の非金属不純物やある種の核分裂生成物も除去し得ることである<sup>5)</sup>。

これらの液体ナトリウムからのトリチウムの除去法は将来のD-T-Liサイクル核融合炉で、トリチウム増殖ブランケットからのトリチウムの分離回収技術としても応用できそうである。

融解塩抽出法を例にとれば、先ず図1にみられるようにリチウム水素化物の解離圧の温度依存性が大きいことを利用して、温度サイクルにより液体リチウム中トリチウム濃度を高め<sup>6)</sup>、融解塩で抽出する。ついで融解塩電解でトリチウムガスを発生させ、固体ゲッターに吸収させ貯蔵を行なう。しかし用いる融解塩や固体ゲッター等の選定、電解時の電極の材質、形状等々の問題がある。液体リチウムがブランケット材および冷却材として使用された場合、液体リチウム中のトリチウムの定常濃度は、ブランケットや一次冷却系の構造材からのトリチウムの透過漏洩を防止するために、できるだけ低くなければならない。この値はT/Li比が $10^{-6}$ のオーダー(800°C)と目されているが、融解塩抽出

除去に先だって $10^{-2} \sim 10^{-1}$ (370°C)まで濃縮しておきたい。つづく抽出過程では、抽出処理後液体リチウムをブランケットへ返送するため、抽出時の液体リチウムとの化学反応性の小さい融解塩系を選択しなければならない。現在ある種のアルカリ塩化物共融体が検討されている<sup>7)</sup>が、リチウムとの化学反応性の他、両者の両相内での分散性も重要な点となっている。塩化物の液体リチウム中への分散は塩化物成分元素の中性子放射化の問題となり、また塩相への液体リチウムの分散は、つぎの第3段階でのトリチウムの電解分離時の分離効率の低下と直接関係してくる。つまり生成トリチウムの分散リチウムとの再結合をいかにして防ぐかとの問題である。電解生成したトリチウムガスは素早く電解系外へ取り出し、固体ゲッター上に捕集する。固体ゲッターの水素同位体捕集挙動は一般に比較的の高温下で行なわれるため、キャリアーガス中の微量不純物(N, O, H<sub>2</sub>O等)の影響を受けやすい。僅かな経験からではあるが、水素の吸収過程よりも、再放出過程に影響が大きいようである。いずれにしてもこれらの各段階について検討していくなければならないわけであるが、実験上からは最低限キャリアーガス中の不純物の濃度管理には十分注意する必要がある。

## 文 献

- 1) "Tritium in the Environment", NCRP Report No. 62, NCRP Publ., (1979).
- 2) 小野修一郎, エネルギー蓄積輸送工学, エネルギー変換懇話会編, オーム社, (1980).
- 3) 羽田晃治, 他, 日本原子力学会, 昭和52年秋の分科会予稿集(K-22), (1977).
- 4) T. Yanagi and T. Ohkuma, J. Nucl. Sci. Technol., **16**, 133 (1979).
- 5) A. Wadamoto, T. Yamasa and T. Yanagi, ibid., **16**, 777 (1979).
- 6) R. G. Hickman, Nucl. Technol., **21**, 39 (1974).
- 7) W. F. Calaway, ibid., **39**, 63 (1978).