

解 説

液体Li、Li-Pb、溶融塩ブランケットからの トリチウム回収

深田 智・西川 正史

九州大学工学部応用原子核工学科
〒812 福岡市東区箱崎6-10-1

Recovery of Tritium from Liquid Blanket of Lithium, Li-Pb Eutectic Alloy or Molten Salt

Satoshi FUKADA, Masabumi NISHIKAWA

Department of Nuclear Engineering,
Faculty of Engineering, Kyushu University
Hakozaki, Higashi-ku, Fukuoka 812
(Received August 1, 1994; accepted November 28, 1994)

Abstract

Several methods for tritium recovery from liquid lithium, Li-Pb eutectic alloy, aqueous salt solution or fluoride salt (Flibe) of the breeding materials of a fusion reactor were comparatively investigated based on engineering designs. The methods of a permeation window, an yttrium particle bed and molten salt extraction were promising for liquid lithium. The methods of a permeation window, counter-current extraction in a packed bed and cold trapping in a Na or NaK loop were hopeful for tritium recovery from $\text{Li}_{17}\text{Pb}_{83}$ eutectic. The methods of helium gas purging and vacuum extraction were successfully applied to the Flibe blanket. Although any of the tritium recovery systems resulted in realistic figures of engineering design, extensive research based on materialistic and chemical viewpoints is necessary for resolving impurity effects and various interactions in the tritium recovery systems.

1. はじめに

核融合炉は最も有望な長期エネルギーシステムの一つである¹⁾。現在JT-60, TFTR, JET等の大型試験装置によって臨界プラズマ条件が達成され、研究の第一段階である軽水素や重水素による臨界プラズマ研究から、第二段階の核反応プラズマや長放電プラズマ実証段階に移行しつつある。核融合科学研究所のLHDや国際間協力によるITERは今後この方面

の研究をリードするであろうし²⁾、第三段階の連続燃焼を目指した研究開発がこれからの課題である。燃焼プラズマ研究の骨格に、ブランケット炉工学や燃料サイクル研究で衣をまとわせ、科学的実証段階にある研究から、エネルギー源としての核融合炉の安全性、信頼性、経済性を高める工学研究に進む必要がある。さて核融合炉が炉心の本質的安全性と重水素燃料資源の無限性の利点を誇負する一方で、現実には解決しなければならない問題が多くある。⁶Liや炉形式によっては³He、Beの資源確保が重要な問題の一つである。水素同位体燃焼に伴って誘導放射能を有する廃棄材を生じる事、炉外放出の可能性のある放射性物質トリチウム（本稿では以後Tで略記する）の環境への影響を評価する事も重要な課題である。さらに、燃焼プラズマ研究の進展とまったく同時進行で、燃料サイクルを確立する必要がある。Tが大量に核融合炉から漏洩する事態になれば、漏洩したT₂がHTOに変換し、大気中のHTOの体内取り込みや、飲料水や食物のHTOによる汚染が生じる³⁾。従ってTを核融合炉内で厳重に閉じ込め管理する必要がある、本質的な安全性および経済性の観点から、核融合炉全体でTインベントリをできるだけ小さくするような炉設計と、それに付帯するT回収システムを構成する必要がある。

核融合炉において想定されるT燃料サイクルシステムを機能的に区分すると⁴⁾、(1)T生産システム、(2)ブランケットからのT回収システム、(3)水素同位体燃料ガス循環精製システム、(4)水素同位体燃料貯蔵システムとなる。その他、関連システムとしてT格納、汚染除去、廃棄物処理、計量および測定管理等の各システムが付帯する。本稿で取り扱う液体ブランケットからのT回収システムの内容は、その材料および構造によって異なる。広範なブランケット材候補の中から、今後の開発の方向を集約するため、T増殖性、動作温度における構造材との共存性、システムの経済性等の観点にもとづき、少数の有力な構成材が選出された⁵⁾。選択された液体ブランケット構成材候補を増殖材／冷却材／構造材（／増倍材）の順で書き表すと、液体金属冷却では、Li／Li／V、Li／Li／HT-9、LiPb／LiPb／V、He冷却では、Li／He／HT-9、Flibe／He／HT-9／Beとなる。その他、固体ブランケット候補として、Li₂O／He／HT-9、LiAlO₂／He／HT-9／Be、LiAlO₂／H₂O／HT-9／Be、LiAlO₂／NS／HT-9／Beがある。ここでHT-9はフェライト鋼の一種であり、Nitrate Salt (NS) はNaNO₃とKNO₃の熔融混合物である。

ブランケットの主要な役割は、遮蔽、冷却（熱交換）とT増殖である。特に増殖はLiの(n, α)反応-T拡散-再結合-気相拡散の過程を経て移動するTを、いかに効率よく回収するかによってブランケットの性能、ひいては核融合炉の経済性を左右する。本稿ではT回収に関する過去の研究を機能的にまとめるため、過去に提案されたブランケット、特に液体増殖材からのT回収装置の試算を具体的におこない、原子力化学工学的な視野の中でT回収を検討しようとするものであり、願わくは、T工学の発展に寄与できるものと期待するものである。

Table 1 Advantages and disadvantages of some blanket materials

Breeder	Coolant	Advantages	Disadvantages
Li	Li	Simple blanket structure No need to exchange Large TBR Large thermal conductivity Low tritium pressure (low tritium leak) High neutron load	High pumping power by MHD effect (Improvement by poloidal flow, two-phase flow or insulation wall) Low compatibility by Li corrosion Difficult tritium recovery High reactivity to oxygen and water High melting temperature
	He	Relatively safe Low tritium pressure High neutron load	Complicated blanket structure Difficult tritium recovery Low compatibility High He pressure
Li ₁₇ Pb ₈₃	LiPb	Simple blanket structure No need to exchange Easy tritium recovery High neutron load	High pumping power by MHD effect Low compatibility Reactive to oxgen at high temp. High melting temperature Generation of Po
	He	Easy tritium recovery The others are the same as Li/He	Small TBR
Flibe	Flibe	Simple blanket structure Stable Li salt Low induced radioactivity Low tritium inventory Low reactivity	Low TBR Low compatibility Corrosion by TF High tritium pressure High melting temperature Small thermal conductivity
	He	Stable Li salt Low induced radioactivity The others are the same as Li/He	Low TBR High tritium pressure
Li ₂ O	He	Easy maintenance Low reactivity Large thermal conductivity	Complicated coolant loop Generation of LiOH (Li transfer)
LiAlO ₂	He	Easy maintenance Low reactivity High operating temperature	Complicated coolant loop Low tritium diffusivity Small TBR

2. 液体ブランケットからのT回収システム

Table 1 に選択された液体増殖材のLi, Li₁₇Pb₈₃共晶合金およびFlibe (Li₂BeF₄熔融塩), そして参考のため固体増殖材のLi₂OとLiAlO₂を取り上げ, その長所と短所を列挙する。冷却と増殖を同時におこなう液体ブランケットの構造は簡単であり, 高温での液体金属Liと構造材との共存性⁶⁾, 熔融塩では発生するTFの腐食性⁷⁾が解決できれば, エネルギー効率を上げるための高温操作が可能で, 経済的に有利である。しかし液体金属ではHMD効果を

が生じ^{8, 9)}, Liと酸素や水との反応性が高く^{10, 11)}, 潜在的な火災の危険性が高い等の欠点もある。固体ブランケットではLi反応性の欠点はかなり解消されるが, TBR (T増殖比)が小さく, ブランケット構造によってBe等の中性子増倍材を添加する必要がある。そのためブランケットコストが高く, ブランケット構造が複雑となる欠点がある。その他, Li水溶液ブランケット¹²⁾も提案されている。このブランケットはTBRが小さく, 液体状態を維持するため, PWR程度の圧力で操作しなければならない欠点があるが, 取扱いが容易で今後も候補の一つに数えられるだろう。

液体Liの化学的性質は勝田¹³⁾によってまとめられている。液体LiへのNbの溶解度¹⁴⁾は, 973Kで30ppm程度であり, この温度でも十分共存性がある。しかしLi中の窒素濃度の増加とともにNbの溶解度も増加するので, 窒素濃度を100ppm以下に押さえる必要がある。一般的には, Ti, Zr, Hf, Mo, V, Nb, Ta, Wの高融点金属がLiとの共存性が良い¹⁴⁾。PdはLi中で使用できない事が古い報告¹⁵⁾にある。さらにLi-Pb合金の空気, 水, 各種構造材との共存性がHanford¹⁶⁾やロシア¹⁷⁾で研究されている。また液体Li, $\text{Li}_{17}\text{Pb}_{83}$, Flibeの静的状態, あるいは実際の使用状況に近い強制循環ループ等の状態における共存性のデータ⁶⁾も報告され, たとえ共存性が悪くても表面にAl被膜をほどこす事によって腐食の速度をかなり減少させ得る事も見だされた。

Liや $\text{Li}_{17}\text{Pb}_{83}$ 中のTの化学形は, ほとんどが T^- である^{18, 19)}。(結合状態は LiT である。Li中に LiT の形で固溶している状態から, 化学量論的な LiT までのPCT曲線²⁰⁾も得られている)。Flibe中のTの化学形は, 85%が T^+ (結合状態は TF)であり, 残りは T^- (結合状態は LiT)である²¹⁾。 TF は強酸で腐食性が強いが, Beが存在する雰囲気では T_2 (あるいは HT)の形になる²²⁾。以下の節に各増殖材に対応したT回収システムの具体例を与える。(本報では磁場閉じ込めと慣性閉じ込めの区別をせず, 設定したT発生量をいかに回収するかに着目する。)

2. 1. 液体Li

T溶解度は $\text{Li} \gg \text{Li}_{17}\text{Pb}_{83} \gg \text{Flibe}$ の順に減少する。LiのT溶解度が非常に大きいので(973K中で, Li中にTが1ppm溶解しているときの平衡 T_2 分圧は 4×10^{-7} Pa), Tの環境への漏洩率は非常に小さいが, 逆にLiからのT回収は非常に困難である。液体LiからのT回収方法として想定し得るものに, (1)透過窓, (2)Yゲッタ吸蔵, (3)溶融塩抽出, (4)スイープガスとの直接接触(向流充填塔, スプレ塔), (5)蒸留, (6) LiT コールドトラップ, (7)電磁気的分離, (8)熱拡散塔, 等がある。このうち気液直接接触法は, Liの T_2 平衡圧の点から回収率が非常に小さく, 装置が巨大化し非現実的である。蒸留法は, LiT の蒸気圧から見て, 低T濃度で共沸混合物となり, 悲観視されている⁷⁾。 LiT コールドトラップ法は高速増殖炉で使用している NaH コールドトラップに類したものであるが, LiT の溶解度が大きく非現実的である¹⁵⁾。電磁気的方法是原理的に可能であるが, 核融合炉システムの様な大

Table 2 Comparison among the tritium recovery methods from liquid lithium

	Permeation window	Y particle bed	Molten salt extraction
Method	Permeation through Nb or Nb/ Zr	Yttrium gettering	Electrolysis of LiT after extraction to molten salt
Temperature	~973K	~673K(absorption) ~1173K(desorption)	773K
Operation	Continuous	Switch twin beds	Continuous (Several units in series)
Verification / Concern	Experiments using Nb Film / Oxide film	Experiments using Y particles / Oxide film	Electrolysis experiment / Metallic impurities

量のT処理に用いるには分離コストが高くつく。熱拡散塔は、蒸気化した後、 ${}^6\text{Li}$ と T_2 の分子量差が小さく（熱拡散定数が小さく）分離が困難であり、またHTにして分離するとH-Tの同位体分離操作が余計に必要な点から経済的ではない。以上の点から液体LiからのT回収システムとして有望視され、一部実験的研究も行われている方法として(1)(2)(3)の方法を挙げる事ができる。Table 2に透過窓、Yゲッタおよび熔融塩抽出の各方法の原理あるいは研究の動向をまとめて示す。以下にそれぞれの設計式と設計例を与える。

2. 1. 1. 透過窓

透過窓はFig.1に示す様に、Nb, V, Ta, Zr等の水素透過性金属膜を流路壁とした流路内にTを含む流体を流し、壁を透過するTを回収する方法である^{1,5,23,24}。利点として、操作が連続的であり、熱交換器と形状および操作が似ており、熱交換器に関する従来の装置建設技術がそのまま利用できる点が挙げられる。Liから水素同位体を透過膜で回収した

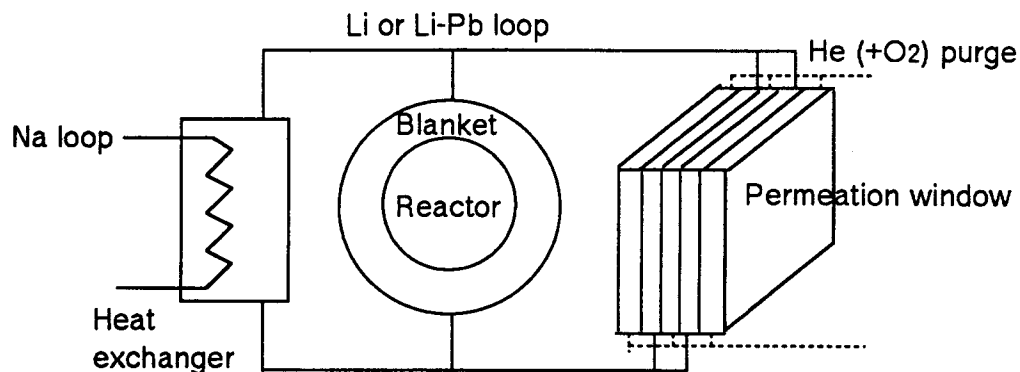


Fig. 1. Permeation window for tritium recovery from liquid lithium

実験例に、Nb膜を用い、Li中に溶解した1%程度の水素を回収した勝田ら²⁵⁾の研究、液体LiをNb製カプセル内に封入し、その中から重水素あるいは水素を回収したMcCrackenら²⁶⁾とAlire²⁷⁾の研究がある。McCrackenの実験では、求めた透過速度にNb膜の表面抵抗が影響したが、Alireの実験ではLi中の水素拡散が律速であった。この事は透過窓による良好な水素同位体回収を保证する。

設計計算式は、次の連続の式、運動量方程式、拡散方程式からなる^{23,28,29)}。

$$\nabla \cdot \vec{v} = 0 \quad (1)$$

$$(\vec{v} \cdot \nabla) \vec{v} = -\frac{1}{\rho} \nabla p + \nabla \cdot (\nu + \varepsilon_m) \nabla \vec{v} \quad (2)$$

$$(\vec{v} \cdot \nabla) c = \nabla \cdot (D_{AB} + \varepsilon_D) \nabla c \quad (3)$$

透過壁上の境界条件は

$$\vec{v} = 0 \quad (4)$$

$$-D_{AB} (\partial c / \partial y)_{w a 11} = D_s \{ (C_s)_1 - (C_s)_2 \} / \delta \quad (5)$$

ここで \vec{v} は流体の速度ベクトル、 p は流体圧力、 c はT濃度、 ν は動粘性係数、 D_{AB} は拡散係数、 ε_m と ε_D はそれぞれ運動量輸送と物質輸送のうず拡散係数である。流れが発達した後では、連続の式と運動量方程式を解かずとも物質輸送に関する既存の整理式が使用できる。 $(C_s)_1$ は透過壁内の一次側濃度であり、T溶解が原子状であるので、Liと透過材のSieverts定数(S_{L1} , S_s)を用いて次の関係式が成立する。

$$(C_s)_1 / S_s = C_1 / S_{L1} = (P_{T2})_1^{0.5} \quad (6)$$

二次側境界濃度 $(C_s)_2$ を求めるには、真空排気の場合、再結合反応速度を考え、透過膜二次側をPd被覆し酸素パーズする場合²⁴⁾、酸化反応速度を考える。再結合反応はTの二次反応である。酸化反応は通常一次反応であるが、T濃度が非常に低いとき二次反応になる可能性も示唆されている³⁰⁾。

設計計算の透過膜にはLiとの共存性が良いNbを用いる。透過窓はLiの冷却材主ループのバイパス位置に設置し、追加加熱をおこなわない。Liは冷却材と増殖材を兼ねる。(他に増殖材をLi、冷却材をHeガスとする炉設計でもNbやPdの透過窓によってTが回収できる²³⁾)。平行平板型透過窓(高さ5 m, 奥行き5 m, 流路幅1 cmのダクトを一次側と二次側でサンドイッチ構造にする)の設計条件と計算に用いた物性値等をTable 3 (a)に示す。表中のT回収速度には代表的な商業用炉ブランケットのT増殖速度に等しい 1.0×10^{-2} g/s (=900 g/day³¹⁾)を採用している。Li中のT濃度は、インベントリや環境へのT漏洩防止の点から制限されるが、本例ではインベントリ制限値の1ppm⁷⁾を採る。もう一つの環境制限値はT₂分圧を定めるが、LiのT溶解度が非常に大きいので、インベントリ制限値がより厳しい条件を課する。現在考えられている構造材であるV合金の最大使用可能温度が

Table 3 Specifications for the reference designs of permeation window

	Design Data		
	(a)	(b)	(c)
Breeder	Li	Li _{1.7} Pd _{8.3}	Li ₂ BeF ₄
Tritium recovery	1.0×10 ⁻² g/s(=900g/day ⁵⁾)		
Tritium concentration	<1 ppm and <1 Pa ⁷⁾		
Permeation material	Nb window		
Operating temperature	973K	973K	973K
Permeability (mol/msPa ^{0.5})	3.06×10 ⁻⁸ ^{3.1)}	3.06×10 ⁻⁸	3.06×10 ⁻⁸
Solubility	6.5×10 ⁻⁴ ^{2.0)} (T/Li)/Pa ^{0.5}	5.42×10 ⁻⁷ ^{3.2)} (T/Li-Pb)/Pa ^{0.5}	5.42×10 ⁻⁷ ^{3.3)} mol/m ³ Pa
Diffusivity (m ² /s)	3.16×10 ⁻⁹ ^{2.7)}	8.88×10 ⁻⁹ ^{3.4)}	10 ⁻⁹ ^{3.5)} (Estimation)
Kinematic viscosity (m ² /s)	5.84×10 ⁻⁷ ^{3.6)}	1.3×10 ⁻⁷ ^{3.6, 3.7)} (Estimation)	2.84×10 ⁻⁶ ^{3.8)}
Chemical form of T	LiT ^{**)}	LiT ^{**)}	T ₂
Flow rate per one slit	0.1m ³ /s	0.1m ³ /s	0.1m ³ /s
Fluid velocity	2m/s	2m/s	2m/s
Re number ^{**)}	6.85×10 ⁴	3.05×10 ⁵	1.41×10 ⁴
n value	1	1	0.5
G value	0.145	1.2×10 ⁻⁵	4.0×10 ^{-1.0}
(W ₂) _{recombination}	0.560	940	940
(W ₂) _{oxidation} ^{***)}	152	152	152
Total window area	4.77×10 ⁴ m ²	6.91×10 ² m ²	1.23×10 ⁸ m ²
Number of slits ^{**)}	954	14	2.5×10 ⁶

* LiT in Li or Li_{1.7}Pb_{8.3} is present as a solid solution.

** Parallel-plate type of permeation window : height=5m, length=5m, width=1cm, thickness=0.5mm, 1 slit=50m².

(Upstream and downstream side of permeation film are aligned in parallel)

*** Downstream side of Nb is coated with Pd film.

1023Kであるので⁶⁾, 操作温度を973Kと設定した。今後, 更に高温度で使用可能な金属や合金が構造材に開発されることも想定し, 1173Kでも計算した。計算の結果, 何れの温度においても透過窓面積は, 通常の熱交換器あるいは蒸気発生器^{3.9)}の伝熱面積と同程度かそれより少し大きい程度であった。もし1ppmの制限値 (2.3×10⁶kgのLiに対して1kgのTインベントリ)を10ppmに緩和すると, 窓面積は1/10で済むので, 経済性はブランケット全体のコストで評価すべきであろう。なおHT-9を構造材とするときの操作温度である773Kでは, 表の値よりさらに数倍の透過面積が必要であった。また773K付近では, Nbの透過係数に酸化膜の影響が現れる事にも注意しなければならない。

Table 3の973Kや1173Kの操作温度では, 透過抵抗と流体側拡散抵抗に差があまりない。(両者の抵抗の比を無次元数Gで表し^{2.3, 2.8)}, Gが1/Sh_{m1}に等しいとき二つの抵抗は等しい)。従って流体側拡散抵抗と壁の透過抵抗を同時に考慮する必要があり, 場合によって

二次側の再結合反応抵抗も考慮する必要がある。表中には二次側の再結合や酸化反応抵抗と透過膜抵抗の比を無次元数 $W_2^{(4)}$ で表している。過去の透過窓による液体LiからのT回収の計算で、Watson¹⁵⁾やBuxbaum²⁴⁾らは流体中の拡散抵抗が物質移動の律速段階であると仮定したが、実際には流体側拡散抵抗、膜透過抵抗、一次側と二次側の表面抵抗も同時に考慮する必要がある。表面抵抗を減少させるため、あるいは長期間の使用によって表面に酸化膜が形成するのを抑制するため、Nb透過膜表面の一次側をZr膜、二次側をPd膜で覆う事が効果的であろう。また二次側を酸素混入不活性ガスでパージし、T水蒸気の形で回収すると透過面積が少なく済む事が、以上の設計計算にもとづき定量的に予測できる。

透過窓は高温操作を必要とするので、特に透過窓の入口と出口付近の他の構造材との接合部を通じてのT漏洩にも注意する必要がある。漏洩を低減させる方法の一つとして、透過窓構造材の表面を透過率の小さいアルミニウム酸化膜やタングステンで被覆する、透過窓全体を二次閉じ込めシステム中に格納する等の方法が考えられる。

2. 1. 2. Y 充填層

液体LiのT溶解度は、他の金属や合金のそれと比較して極めて高い。従ってLiからの通常の水素吸蔵合金を用いたT回収は不可能である。そのうち、YはLiよりT溶解度が大きく、かつLiとの共存性が良い数少ない金属の一つである。Yゲッタ法は、Fig. 2に示すように、Y粒子を充填した塔の上部から液体Liを流下させ、Yの水素吸蔵作用を利用してLiからTを回収する方法である。この方法は吸蔵と脱離操作を並行しておこなう必要があるため、一般的には二塔切り替え方式（もう一塔を待機状態にするならば三塔式）にする。従って操作は半連続的であり、Tインベントリも大きくなる欠点があるにせよ、Li中に存在する1ppm程度のTを回収できる有力な方法である^{41, 42)}。

金属粒子充填層内のT物質移動は、根拠のある仮定のもとで次の物質収支式によって記述できる⁴³⁻⁴⁵⁾。

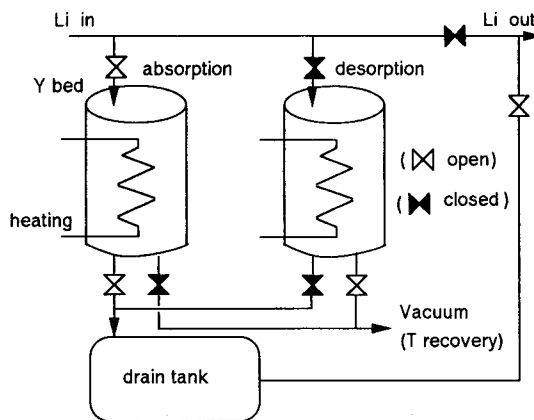


Fig. 2. Yttrium particle bed for tritium recovery from liquid lithium

$$(\partial C / \partial t) + v(\partial C / \partial z) + (\gamma / \varepsilon)(\partial q_m / \partial t) = D_L(\partial^2 C / \partial z^2) \quad (7)$$

ここでは c は充填層内流体中の T 濃度, q_m は充填層内 Y 粒子中の T 平均濃度, ε は空隙率, v は充填層の隙間を流れる速度, γ は Y の充填モル密度, D_L は充填層の軸方向混合拡散係数である。(7)式中の q_m の時間変化項は, 粒子内拡散の物質移動容量係数 $k_{s,a,v}$, 粒子表面の反応速度定数 $k_{s,b,s,a,v}$, 流体境膜中の T 拡散の物質移動容量係数 $k_{F,a,v}$ の三つを使って次の様に表せる。

$$\gamma(\partial q_m / \partial t) = k_{F,a,v}(C - C_i) = k_{s,b,s,a,v}(C_i - f(q_i)) = \gamma k_{s,a,v}(q_i - q_m) \quad (8)$$

$f(q_i)$ は Y と流体の各 T 濃度間の平衡関係 (気相では PCT 曲線) である。設計では入口 T 濃度を与え, 出口 T 濃度が必要な T 回収条件を満足する充填層の大きさを求めた。

Y 充填層の設計条件を Table 4 に示す。T 回収速度 (S_T) は $1.0 \times 10^{-2} \text{ g/s}$ ($= 900 \text{ g/day}^5$) である。勝田らは, Li 中の T 濃度を 2.3ppm ($= 1\text{wppm}$) 以下にするために, 553K の Y 充填層温度を提案した⁴⁹⁾。しかしこの操作温度では Y 表面の不可避的な酸化膜形成のため表面反応抵抗が大きく⁴⁴⁾, 従って吸蔵速度が遅くなり, T が回収できない可能性がある。この事は Li 中に含まれる微量の酸素により Y 表面に LiYO_2 が形成される事⁵⁰⁾からも裏付けられる。そこで操作温度を実験的に実績のある 673K とした。この場合, YH_{2-x} のプラトー圧力までの操作をおこなわず, α 相領域の吸蔵に抑える。(Y 充填層は $\text{YH}_{0.001}$ ま

Table 4 Specifications of the reference design of twin beds of yttrium particle for tritium recovery from liquid lithium

Tritium recovery rate(= S_T)	$1.0 \times 10^{-2} \text{ g/s}^5$
Bed size	1m in diameter, 2m in height
Packed amount	$3 \times 10^3 \text{ kg}$
Particle diameter	0.15m
Cycle of opeartion	0.5day at 673K for absorption 0.5day at 1173K for absorption
Void ratio of bed, (Density)	$\varepsilon = 0.5, (\gamma_s = 3.8 \text{ g/cm}^3)$
Li molar flow rate, (Velocity)	1400 mol/s, ($u = 0.1 \text{ m/s}$)
Density of Li	$493 \text{ kg/m}^3^36)$
Diffusivity of T in Li	$9.95 \times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}^27) *$
Kinematic viscosity of Li	$8.46 \times 10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}^36)$
Inlet tritium concentration	2.3ppm ($= 1\text{wppm}$)
$k_{s,a,v} (= 150D_s/a^2)$	$5.9 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}^46)$
$k_{s,b,s,a,v}$	$10 \text{ s}^{-1}^43)$
$k_{F,a,v}$	$0.40 \text{ s}^{-1}^47)$
Pressure drop through bed, Δp	$1.5 \times 10^6 \text{ Pa}^48)$

* This (too low) value was extrapolated from Alire's correlation. More accurate data should be determined for a future design.

でしか利用できないので有望ではないとTSTAで評価されている⁵¹⁾。しかし誤解を解くため書くが、充填層内の水素濃度は均一でないので、 α 相における吸蔵でもYの利用率は十分高い。脱離を1173KでT分圧を 1×10^{-4} Pa以下にすれば673Kでも2.3ppm以下にできる)。さらに充填層の入口T濃度を2.3ppmにするため、Li流量(Q_{Li})を $Q_{Li} = S_T / (C_{in} - C_{out})$ から計算し、1400mol/sとした。表中の k_{sav} ($=15D_s/a^2$, D_s は拡散係数, a は粒子半径)の値はVorovoyovら⁴⁶⁾の D_s の実験結果から、 k_{fav} の値はCarberyの式⁴⁷⁾から、充填層の圧力損失 ΔP はErgunの式⁴⁸⁾からそれぞれ評価している。計算の結果、各塔 3×10^3 kg容量のものを二塔準備する事によって、半連続的かつ安定なT回収が可能であった。そして充填層出口T濃度は、約17時間後に破過を開始した。従って半日吸蔵・半日脱離サイクルで安定な吸蔵が保証できる。またLi中のT濃度を仮に23ppmまで許すと、必要なY充填量は表の1/10になり、より小型の充填塔で回収できる。

離脱の具体的な試算はおこっていないが、塔内を真空排気する事により吸蔵時間に比べて短時間で脱離が完了できるだろう。またYのPCT曲線⁵²⁾から判断して、1173Kで 10^{-4} Paの条件でTの脱離は完全である。しかし、充填塔壁からのT透過の防護策と残存Liによる腐食防護策を講じる必要がある。例えば、内部加熱し、塔を二重構造にし、充填塔支持材に耐熱合金の Hastelloy や Inconel に W 被覆した特別な材料を用いる必要があろう。

2. 1. 3. 溶融塩抽出法

溶融塩抽出法はANLで研究された方法で⁵³⁾、LiとLiF-LiCl-LiBr(22:31:47mol%)溶融塩混合物を773Kで混合し、溶融塩混合物側にTを溶媒抽出し(分配係数値は2~4程度と報告されている)、電気分解によって溶融塩混合物からTを回収する。この方法では、Li中のT濃度を3ppm程度にでき、もし溶媒との混合や溶媒からの密度差を利用したLiからの分離が、連続的かつ完全におこなえるなら連続操作が可能である。しかしハロゲン化物を使用するので構造材の腐食性に問題があり、電気分解をおこなうので装置の運転コストが大きくなる欠点がある。実用化のためのフローシートがTSTAで与えられている⁵¹⁾。そこでは、主Liループにバイパスを設け、Li溶融塩接触器、Li分離器、電解槽、溶融塩純化器を直列に配置し、LiTを電解し、発生したT₂をHeガスでページし、金属ゲッターで回収するシステムが示されている。この操作ではHeガスに窒素やアセチレンの不純物が多く含まれるので、これを除去する装置が別途必要である。

Calaway⁵³⁾は溶融塩抽出法のブランケットシステムへの適用を考え、運転温度773K、T増殖率 2.7×10^{-2} g/s, Liインベントリ 8×10^5 kg, Tインベントリ425 gの条件で、抽出器の分配係数と必要な電気出力の関係を与えている。分配係数が2における値を読むと、一器あたり 6.4×10^{-3} m³/s, 3.73kWの容量の抽出器が32器並列に必要であり、そのための電気量は119kWである。実際にはこれ以外に、Liと溶融塩の接触器、分離器、純化器の運転費用やLi循環用のポンプ動力が常時必要である。TSTAは、Yゲッター法と透過窓に比べて溶融塩抽出法を推奨しているが³⁰⁾、溶融塩抽出法の運転コストは前2つの方法に比べ

て高いと予想されるので、溶融塩抽出法を採用するには運転コストに見合った高い運転実績が保証されなければならない。

2. 2. Li-Pb共晶合金

$\text{Li}_{17}\text{Pb}_{83}$ の融点は、Liを除きLi-Pb合金中で最も低い（融点508K）、それでも核融合炉の冷却材として使用するには常に融点以上に加熱しておく必要がある。またPbの誘導放射能やPoからの α 線にも注意する必要がある。しかしこれらの欠点を上回る利点に、 $\text{Li}_{17}\text{Pb}_{83}$ のT溶解度がLiに比べて小さく、T回収がかなり容易である事、ブランケット材中のTインベントリが小さくできる事が挙げられる。現在考えられているT回収方法として、Liで挙げた方法のうち、本質的に連続操作が可能な(1)透過窓、(4)スイープガスとの直接接触（あるいは真空脱気法）⁵⁴⁾が有力である。さらに $\text{Li}_{17}\text{Pb}_{83}$ 中のTを中間熱交換器を通して中間熱媒体（NaもしくはNaK）に積極的に透過させ、コールドトラップによってTを回収する方法も提案されている⁵⁵⁾。以上三通りについて設計例を与える。

2. 2. 1. 透過窓

Liの場合と同様に、透過窓を $\text{Li}_{17}\text{Pb}_{83}$ 冷却材ラインのバイパス位置に設置する。従って余分な加熱操作が不要である。 $\text{Li}_{17}\text{Pb}_{83}$ へのT溶解度³²⁾ (Table 3 (b)) から判断して、流体中のT濃度を1ppm以下にする回収条件だけでは T_2 分圧が大きくなる。従って、Tが蒸気発生器を通じて環境へ漏洩するのを防止する必要条件も同時に満足させなければならない。そこで流体中のT濃度と平衡な T_2 分圧の限界を1Paと決め⁷⁾、この1ppmと1Paの二つの条件をとともに満足する透過窓面積を求めた。（実際蒸気発生器からのTのもれは材質や伝熱面積によって変わるが、現時点では1PaをT分圧目標値と考える。）用いた物性値と試算した透過窓面積をTable 3 (b) に示している。その結果、 $1.0 \times 10^{-2} \text{ g/s}$ で発生するTを回収するためには700 m^2 の透過面積が必要であった。この面積は同じ973KのLiの場合に比べてかなり小さい。

$\text{Li}_{17}\text{Pb}_{83}$ のT透過物質移動の律速段階は流体中の拡散であり、透過壁の拡散抵抗は一般に無視できる。従って、圧力損失をむやみに増加させない範囲で、透過面近傍の流れに乱れを生じさせ、流体拡散抵抗を減少させる事によって、回収効率を上昇させる事ができる。さらに流体中の拡散抵抗が透過の律速段階である事から判断して、Nb透過膜表面の汚れや表面酸化膜の形成にも注意を払う必要があまりない。透過壁二次側表面が非常に汚れていない限り、二次側再結合反応抵抗も無視できる。以上の事からLi-Pb合金からの透過窓によるT回収法は、透過面積が小さく不純物耐性が強く、長期の使用も保証できる方法である。

2. 2. 2. 中間熱媒体経路付設コールドトラップ

Reimannら⁵⁶⁾は、 $\text{Li}_{17}\text{Pb}_{83}$ をT増殖材および一次冷却材に、NaKあるいはNaを中間熱媒体（二次冷却材）に、三次冷却材に水を用い、水蒸気発生器とタービンを設置した冷却

システムを提案した。そして中間熱交換器 (Intermediate heat exchanger) あるいは二重壁熱交換器 (Double walled heat exchanger) を通して、Tを中間熱媒体側に透過させ、FBRで開発された網目充填コールドトラップ⁵⁷⁾をNaループのバイパス位置に設置し、連続的にTを回収する。このT回収システムは、後述の気液向流抽出法に比べて比較的小容量の装置でT回収が可能であり、Tインベントリも小さいという利点がある。ReimannがNET (Next European Torus) のために設定した条件⁵⁶⁾にもとづき、熱交換器からのT透過量、透過の一次側および二次側流体中のT濃度を試算した。

T透過条件をTable 5にまとめている。熱交換器の伝熱・透過管は透過係数の比較的大きいフェライト鋼⁵⁶⁾を設定した。T回収速度、および熱交換器の平均温度はNETの概念設計のものである。厳密な設計には前の(1)~(5)式に示した流体の運動量方程式と拡散方程式を同時に解く必要があるが、簡便的には総括平均物質移動係数 $K_{0,m}$ を用いて計算できる。しかし、本例の様に一次側と二次側流体が異なる場合には、流体中の混合平均T濃度差を用いて $K_{0,m}$ を定義できない。そこで化学ポテンシャル差として各流体中のT濃度と平衡にあるT分圧をその物質移動の推進力とする。一次側流体 $Li_{17}Pb_{83}$ と二次側流体NaのT溶解度は、Sieverts則に従うので、 T_2 分圧を推進力とした $K_{0,m}$ は次式で表せる。

$$1/K_{0,m} = 1/k_{f,1}S_{f,1} + 1/k_{f,2}S_{f,2} + t/K_p \quad (9)$$

ここで $S_{f,1}$, $S_{f,2}$ は一次側 (添え字1) と二次側 (添え字2) のSieverts定数である。 K_p は壁材の透過係数である。 $K_{0,m}$ を用いると、T透過質量束 j_T は以下の様になる。

$$j_T = K_{0,m} \Delta P^{0.5} \quad (10)$$

Table 5 Specifications of the reference design of cold trapping in a secondary Na loop for tritium recovery from $Li_{17}Pb_{83}$

Tritium recovery rate	$5.8 \times 10^{-4} \text{ g/s}$ (=50g/day ⁵⁶⁾)
Method of tritium recovery	Permeation into Na and cold trapping
Heat exchanger material	Ferritic steel
Heat exchanger area	3000 m^2 ⁵⁶⁾
Average temperature	673K
Permeability of steel	$3.15 \times 10^{-11} \text{ mol/msPa}^{1/2}$ ⁵⁸⁾
Flow rate of $Li_{17}Pb_{83}$	$4 \times 10^4 \text{ kg/s}$ ($U_m=0.3 \text{ m/s}$)
Flow rate of Na	$5 \times 10^3 \text{ kg/s}$ ($U_m=0.1 \text{ m/s}$)
By-path ratio to cold trap	0.5%
Density of $Li_{17}Pb_{83}$	9330 kg/m^3 ³⁶⁾
Sieverts constant	$5.42 \times 10^{-7} (T/Li_{0.17}Pb_{0.83}) \text{ Pa}^{0.5}$ ³²⁾ $9.12 \times 10^{-6} (T/Na) / \text{Pa}^{0.5}$ ⁵⁹⁾
Plateau pressure (Na-H)	$5.30 \times 10^4 \text{ Pa}$ ⁵⁹⁾
Diffusivity of T in $Li_{17}Pb_{83}$	$2.00 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ ³⁴⁾
Kinematic viscosity	$3.11 \times 10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$ ³⁶⁾ ; $Li_{17}Pb_{83}$ $3.32 \times 10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$ ³⁶⁾ ; Na

$\Delta P^{0.5}$ は次に定義する一次側と二次側の対数平均T濃度差である。

$$\Delta P^{0.5} = \frac{[(P_{1, in}^{0.5} - P_{2, out}^{0.5}) - (P_{1, out}^{0.5} - P_{2, in}^{0.5})]}{\ln [(P_{1, in}^{0.5} - P_{2, out}^{0.5}) / (P_{1, out}^{0.5} - P_{2, in}^{0.5})]} \quad (11)$$

各流体側の物質移動係数 $k_{f, 1}$, $k_{f, 2}$ はDittus-Boelter式³⁶⁾から計算した。さらに定常状態においてT回収速度 S_T (= T発生速度)は次式で表せる。

$$\begin{aligned} S_T &= Q_{Li} (C_{Li, in} - C_{Li, out}) = Q_{Na} (C_{Na, out} - C_{Na, in}) = \alpha Q_{Na} (C_{Na, out} - C_{Na, sat}) \\ &= AK_{0.5} \Delta P^{0.5} \end{aligned} \quad (12)$$

ここでCはT濃度, Qは流量, α はコールドトラップへのバイパス率, Aは透過面積である。コールドトラップの飽和濃度 $C_{Na, sat}$ は, NaがTを固溶体として溶解する上限濃度(プラトー領域と交わる点のT溶解度)である。簡単のため熱交換器の温度は, 一次側と二次側の平均温度で一定かつ均一であり, コールドトラップの温度も一定かつ均一であり, またコールドトラップはその飽和温度(すなわちコールドトラップ操作温度)で100%の回収能力を持つと仮定した。これらの仮定は実際のT透過の物質移動過程やコールドトラップ内のT回収過程を必ずしも満足に表現するものではないが, この様に簡略化した条件で試算する事によっても, 本回収システムの潜在的な可能性が示唆できるだろう。

Fig. 3はコールドトラップへのバイパス率を0.5%とした計算結果である。Li₁₇Pb₈₃中のTの拡散係数は, 報告されている実験値とは別に, Wilke-Chang式³⁵⁾の式から評価される 10^{-8} m²/sから 10^{-10} m²/sの範囲で計算した。その結果, 拡散係数の違いによって計算結果に若干の違いが生じるが, NET規模のLi₁₇Pb₈₃冷却材中のT濃度を1ppm以下にするために, コールドトラップ操作温度を473Kに設定すれば, 発生したすべてのTをコールドトラップで回収できる。この様に, 水素透過窓を兼ねるNa-LiPb熱交換器とコールドトラップの併用により, 非常にコンパクトな形でT回収が可能である。本例は S_T が他の例と異なるが, いずれにしても回収の可能性を否定するものではない。この方法の欠点として, Na中のT濃度が高く, Na側から三次側の蒸気発生器を経てTの環境への漏洩危険性が高い事が挙げられる。一般には蒸気発生器中の

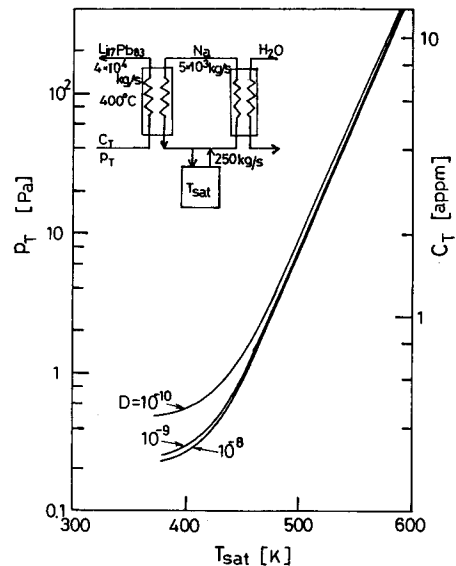


Fig. 3. Variations of tritium concentration in Li₁₇Pd₈₃ with cold trap temperature.

伝熱表面にはしばしば酸化膜が形成するので、T透過速度は清浄面からの透過に比べて減少する。しかしシステムを安全に操作するためには、伝熱管表面をWなど透過係数の低い金属や酸化膜であらかじめ被覆するなどの処置を構ずる必要がある。最近Reimannは、NaKを中間熱媒体とし、T濃度の過渡的变化も計算している⁵⁵⁾。今後はコールドトラップへの各種不純物の影響とその評価にもとづいた回収率の高精度な予測が必要だろう。

2. 2. 3. 気液向流抽出充填塔

液体に溶解しているTを気相に抽出するため、充填塔の上部から液体 ($\text{Li}_{17}\text{Pb}_{83}$)、下部からガス (He) を向流接触させるか、 $\text{Li}_{17}\text{Pb}_{83}$ を液滴分散状態で落下させ真空排気しTを抽出する方法が考えられる。ここでは操作が容易な前者の気液向流抽出塔の計算をおこなう。Fig. 4 に示すように、充填塔内にラシヒリングを充填し、気液接触を促進させた場合の充填塔の高さ方向の定常状態の微分質量収支式は、次の様に書ける。

$$Ldy = 2Gdx = 2k_{Gav}C_t(x_i - x)dh = 2k_{rav}(y_i^2/S_s^2 - P_t x_i)dh = k_{LAv} \gamma_s(y - y_i)dh \quad (13)$$

ここでLとGは液相とガス相の充填塔単位断面積当りのモル流量、 C_t はガスの全モル濃度、 γ_s は液相のモル密度、 y は液相中のTの原子分率、 x は気相中のTのモル分率である。添え字*i*は界面におけるそれぞれの値、 k_{rav} は気液界面における脱離反応速度定数である。向流充填塔の解析では、通常、ガス側と液側の移動単位数 $N_G (= \int dx/(x_i - x))$ 、 $N_L (= \int dy/(y - y_i))$ 、ガス側と液側の移動単位高さ $H_G (= G/k_{Gav}C_t)$ 、 $H_L (= L/k_{LAv} \gamma_s)$ を求める⁶⁰⁾。hを充填塔の高さとする、(13)式は次式の様形式に積分できる。

$$h = H_L N_L = H_G N_G \quad (14)$$

1インチのラシヒリングにおける H_L と H_G の値は、ハンドブック⁶⁰⁾から求めた。またフラディング流量 G_{FL} の評価にはSawistewskiの式⁶⁰⁾を、ラシヒリングぬれ表面積の評価には足田の式⁶⁰⁾を用いた。 k_{rav} は現在確かな値が得られていないので、その項を無視した。これらの評価値をTable 6の各パラメータ値を用いて、(13)式をルンゲクッタ法により積分し充填塔内濃度分布を得た。一般に向流充填塔の設計では、求めた H_L 、 H_G 値に幾分かの余裕を見るが、いずれにしても5 m高さの向流充填塔1機で、 $\text{Li}_{17}\text{Pb}_{83}$ ブランケットで発生するTをすべて回収する事が可能である。充填塔から出る $\text{Li}_{17}\text{Pb}_{83}$ 中のT濃度は、循環するHe中のTをどれだけ低いレベルに

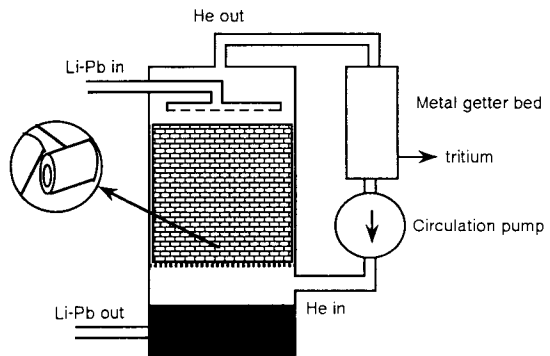


Fig. 4. Counter-current extraction packed tower for tritium recovery from $\text{Li}_{17}\text{Pd}_{83}$.

Table 6 Specifications of the reference design of counter-current extraction packed column for tritium recovery from $\text{Li}_{1.7}\text{Pb}_{0.83}$

Tritium recovery rate	$1.0 \times 10^{-2} \text{ g/s}^{5)}$
Operating temperature	773K
Packed material	1 inch Raschig rings
Flow rate of $\text{Li}_{0.17}\text{Pb}_{0.83}$	$0.01 \text{ mol/m}^2 \text{ s} (=6.23 \times 10^3 \text{ kg/m}^2 \text{ hr})$
Flow rate of He gas	$0.1 \text{ mol/m}^2 \text{ s} (=1.44 \times 10^3 \text{ kg/m}^2 \text{ hr})$
Flooding flow rate	$3400 \text{ kg/m}^2 \text{ hr}^{6)}$
Size of tower	2m(diameter), 5m(height)
Sieverts constant	$5.42 \times 10^{-7} (\text{T}/\text{Li}_{0.17}\text{Pb}_{0.83})/\text{Pa}^{0.5}{}^{32)}$
Pressure of gas	$1.0 \times 10^5 \text{ Pa}$
Diffusivity of T in $\text{Li}_{1.7}\text{Pb}_{0.83}$	$3.74 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}^{34)}$
Viscosity of $\text{Li}_{1.7}\text{Pb}_{0.83}$	$1.58 \times 10^{-3} \text{ kg/ms}^{36)}$
Viscosity of He	$3.85 \times 10^{-5} \text{ kg/ms}^{36)}$
Height of transfer unit	$H_G = 0.306 \text{ m}, H_L = 0.455 \text{ m}$
T concentration in $\text{Li}_{0.17}\text{Pb}_{0.83}$	57.3ppm (T/ $\text{Li}_{0.17}\text{Pb}_{0.83}$) at inlet (=1 wppm)
T concentration in He	2.9 ppm at outlet, 0 ppm at inlet

維持できるかで決まる。従って、YやZr合金^{61, 62)}の様に非常に低い濃度までTを回収する能力のある金属ゲッターをHeからのT回収に用いる事が必要である。今後は微量T濃度における流体と塔壁との間の相互作用や、気液表面の物質移動に関する不確定要素の解明が課題であろう。

2. 3. Flibe

Flibe (Li_2BeF_4)⁶³⁾もまた中性子増倍体Beを含む有望な液体ブランケット材である。一般に、Flibe中でTはTFの形で存在する²¹⁾。古くはTFの構造材を通しての透過速度が小さい点から、TF形による回収も考えられた⁷⁾。しかしTFは強酸で構造材料を腐食させるので、熱力学的な考察にもとづき、 $\text{Be} + 2\text{TF} \rightarrow \text{BeF}_2 + \text{T}_2$ の反応で T_2 にすることが考えられる²²⁾。従って、中性子増倍材のBeがFlibeからのTFと接触のよい位置にあれば、TFの発生を抑える事ができる。またFlibeにLiをドーブすると、TはLiTの形で存在するので前の電解法で回収できる。BeやLiを用いない炉設計では、TFの形で回収する。ここでは T_2 を透過窓で回収する場合と、HeページによってTFあるいは T_2 を回収する方法を試算した。

2. 3. 1. 透過窓

熔融塩中には T_2 は分子状で存在(溶解)するので、溶解はHenry則に従い、その結果Table 3 (c)中の透過の指数パラメータnは、ガスの場合と同じ0.5となる。このHenry定数は非常に小さい³³⁾ので、液体 T_2 分圧を1Pa以下にするには流体中のT濃度を約 2×10^{-5} ppm以下にしなければならない。すなわち環境基準がT濃度を決定する。設計をおこなうにあたり、Flibe中のT拡散係数の値をWilke-Chang式³⁵⁾から、973Kで $10^{-8} \text{ m}^2/\text{s}$ から $10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ の範囲にあると推定した。計算の結果、もし拡散係数の値を $10^{-8} \text{ m}^2/\text{s}$ から

$10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ に $1/10$ にすると、T回収に必要な透過面積が10倍になった。これは透過が流体中の拡散律速で起こるからで、いずれの拡散係数を用いても透過窓の面積は、Liや $\text{Li}_{17}\text{Pd}_{33}$ に比べて非常に大きい (Table 3 (c) 参照)。従って、Flibeからの透過窓によるT回収法は不経済である。 T_2 分圧を1Pa以下にする事が難しいので、Flibeブランケット配管系から環境へのTの漏洩に注意しなければならない。積極的に考えると、Flibeブランケットで発生したTを逆に第一壁を通してプラズマ側に透過させ、T回収装置への負担を軽減するような設計も考えられる。

2. 3. 2. 気液向流抽出塔

Fig. 5 に示すように、Flibeからヘリウムガスとの向流抽出塔 (あるいは真空ページ) でTを回収する事ができる。TFのまま抽出し、途中の金属充填層による還元後 ($\text{M} + n\text{TF} = \text{MF}_n + (n/2)\text{T}_2$, 還元金属の例としてCo, V等を使用する), T_2 を金属ゲッターで回収する。FlibeのTF溶解度は、773Kで $2.96 \times 10^{-9} (\text{TF}/\text{Flibe})/\text{Pa}$ である⁶⁴⁾。(TFの実験値が無いのでDFの値を使用している)。従ってTF濃度を1 ppm以下にするには、図の非金属性かくはん槽中のTF分圧を337Pa以下にすればよく、容易にTFを抽出する事ができる。またFlibeの T_2 溶解度として $3.43 \times 10^{-12} (\text{T}_2/\text{Flibe})/\text{Pa}$ (H_2 の溶解度³³⁾で代用)の値を用いると、Flibe中に1ppm以下の T_2 濃度にするには分圧を $2.90 \times 10^5 \text{ Pa}$ 以下にすればよい。途中の配管からのTのものを抑えるため、槽内を環境基準の1Pa以下にすれば、Flibe中の T_2 濃度は $3.43 \times 10^{-6} \text{ ppm}$ になり、Tインベントリは非常に小さくなる。

2. 4. 水溶液あるいは二相流ブランケット

LiOHや LiNO_3 の水溶液 (あるいは重水溶液) あるいはスラリー状にした液体ブランケットも考えられる。この場合、TはHTO (あるいはDTO) の形で水溶液中に存在する。この水溶液からのT回収には、PWRやBWRで開発研究された既存のT回収技術が利用できる。想定分離法として、水蒸留法、気液間の同位体交換反応、電気分解等がある。これらは通常、常温から373K程度の範囲で操作されるので、T容器の密閉度がよければT透過は起こらず、Tインベントリ制限値が系のT濃度を決定する。水溶液からの微量T回収、腐食、溶液化学的問題が水溶液ブランケットにおける今後の課題であろう。

He冷却材と Li_4SiO_4 ⁶⁵⁾や Li_2O ⁶⁶⁾粒子との混相流、あるいはHeと液体Liの二相流ブランケット⁶⁷⁾も考えられている。混相流ではTBRを上げるため、 ^6Li の濃縮やBeの中性子増倍材を使用する

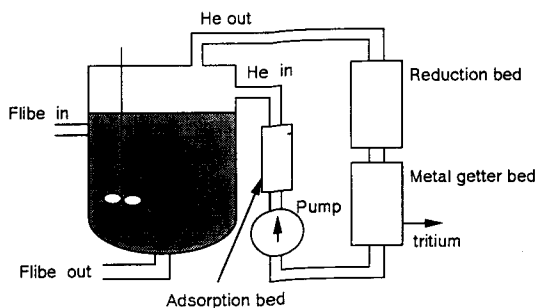


Fig. 5. Helium purging extraction for tritium recovery from Flibe.

必要がある。Li酸化物からのTの除去^{6,8)}には、例えば酸化触媒と吸着材の併用が考えられる。この方法はT実験室のT除去装置として広く利用されているので、技術的にはかなり確立されている。(これと関連した固体ブランケットからのT回収は別の機会に譲りたい)。

3. 同位体スワンピング

T回収における重要な操作に同位体スワンピングがある。この操作は、もし流体中のTを極低レベルまで回収しようとして装置の処理能力に問題が生じる場合、多量の水素でTを希釈し水素同位体濃度を増加させ、T回収装置の処理効率を増加させようとするものである。しかし同位体スワンピングをおこなうと、システムの性能は増大するが、後の同位体分離システムへの負担が大きくなる。従って安易に用いるのは避けるべきだろう。

同位体スワンピングの簡単な評価を、以下におこなう。LiやLi-Pd合金中に水素同位体は固溶体として存在し、Sieverts則が成立すると仮定する。このとき各処理システムのT処理速度あるいは蒸気発生器からのT透過速度 j_T を、次式で代表させる事ができるだろう。

$$j_T = KA[(C_T)_1 - (C_T)_2] = KA[(P_{T_2})_1^{0.5} - (P_{T_2})_2^{0.5}] \quad (15)$$

Kはシステムの代表速度定数であり、透過では総括の透過係数、充填塔や気液交換塔では総括物質移動係数にあたる。Aは代表面積で装置の大きさに関連する。いま一次側を圧力 $(P_{H_2})_1$ の水素で希釈すると次式を得る。

$$j_T = (KA/K_{HT}^{0.5}) [(P_{HT}/P_{H_2}^{0.5})_1 - (P_{HT}/P_{H_2}^{0.5})_2] \quad (16)$$

ここで $K_{HT} = P_{HT}^2 / P_{H_2} P_{T_2}$ の同位体平衡定数を用いている。二次側T分圧を無視し、環境制限条件の $(P_{T_2})_1 = 1\text{Pa}$ を代入すると、同じ j_T を回収するのに $(P_{HT})_1 = (K_{HT} P_{H_2})^{0.5} \text{Pa}$ の関係を得る。これより $P_{H_2}^{0.5}$ に比例して環境制限条件が緩和できる事がわかる。従って、1Pa以下にするために装置が巨大になれば、同位体希釈をおこなって適正な装置規模にできる。しかし同位体分離システムに負荷を与えるので、水素希釈の上限がそちらで決まる。

4. おわりに

透過窓、Y充填層、溶融塩抽出法のいずれもが、液体LiからTを1ppm程度まで、現実的な規模で効果的に回収できる事が明らかになった。透過窓は他の方法に比べて高い操作温度が必要であり不利であるが、 $1.0 \times 10^{-2} \text{g/s}$ で発生するTを1ppm以下まで回収するための透過面積は、蒸気発生器の伝熱面積程度であった。面積の正確な評価には一次側流体中の拡散抵抗、壁の透過抵抗、二次側の表面反応抵抗の考慮が必要であった。その点、Y充填層や溶融塩抽出法は673Kから773Kの操作温度で現実的であるが、操作が複雑で不純物の影響も免れない。なおY充填層の脱離には1173Kで真空排気が必要であり、溶融塩

抽出法では、直列につないだ各単位装置の安定した操作が連続運転のため必要である。次にLi-Pb合金は、Liに比べてT回収が容易であり、透過窓、気液向流抽出法、コールドトラップ法のいずれもが、Liに比べてずっと小さい規模で回収できる事がわかった。さらにFlibeからのT回収に、真空抽出やHeガス抽出法が現実規模である事もわかった。

以上、本論文で述べた液体ブランケットからのT回収法のいずれもが、材料の共存性を始めとした長期の安定性や（高温・低濃度条件における）装置信頼性の観点を除けば、原理的に現時点で科学的に実証されていると考えてよい。TSTA³⁰⁾では、科学的信頼性、Tインベントリ、不純物耐性、T漏洩、操作性、動力、メンテナンス、コストの観点から、Liからの回収法のうち溶融塩抽出法に最高点をつけ推賞したが、点数はともかく現時点でその様に方法を絞り込むのは性急すぎる。本稿では、各方法がT回収に効果的あるいは現実的規模である事を示したのみで、各方法に総括的な優劣をつけなかった。それは将来、具体的な設計・製作時点における経済性、安全性、信頼性の多くの側面にもとづき検討すべきであろう。従って今後の研究がこれを左右する。低レベルのTを完全にコントロールするには、関係するあらゆる要素・成分についての最大の注意と幅広い知識が必要である。D-T炉以外のいわゆる“Advanced-fuel cycle”の一つであるD-D、D-³He、p-Bを最終目標に据え、そのための克服しなければならない一通過点としてD-T核融合炉をとらえ、Tインベントリの経済性、T閉じ込めの安全性、T管理の信頼性を十分に満足するD-T核融合炉ブランケットからのT回収法の確立が必須である。実現性の高い核融合炉の開発に向けて、最善の水素同位体（トリチウム）燃料サイクルの確立のための綿密な基礎的あるいは応用的な実験・解析的な検討がT研究に課されている。

液体ブランケット研究は、炉形式、ブランケット材質等の多くの組合せで広くおこなわれており、本研究はこれをT回収の一側面から消化できる範囲でまとめようとしたものである。

文 献

- 1) 日本学術会議核融合研究連絡委員会，核融合研究連絡委員会報告—核融合炉の開発促進と進め方—，（1991）.
- 2) C. Anderson, Science, 29 (1994) 648.
- 3) 日本原子力学会，“トリチウムの化学—基礎から応用まで”，（1982）.
- 4) 成瀬雄二，松田祐二，原子力工業，37 (1991) 63.
- 5) Y.S. Cha, Y. Gohar, A.M. Hassanein, S. Majumdar, B.F. Picologlou, D.K. Sze and D.L. Smith, Fusion Technol., 8 (1985) 90.
- 6) O.K. Chopra, D.L. Smith, P.F. Tortorelli and D.K. Sze, Fusion Technol., 8 (1985) 1956.
- 7) E.F. Johnson, AIChE J., 23 (1977) 617.

- 8) R. Moreau and P. Leroy, *Fusion Eng. Des.*, **17** (1991) 227.
- 9) D.K. Sze, R.F. Mattas, A.B. Hull, B.F. Picologlou and D.L. Smith, ANL-CP-75362, (1992).
- 10) D.L. Smith and D.K. Sze, *Fusion Technol.*, **10** (1986) 599.
- 11) D.W. Jeppson and R.F. Keough, *J. Nucl. Mater.*, **103** (1982) 567.
- 12) A. Bruggeman, M. Snykers, W.F. Bogaerts, M.J. Embrechts and D. Steiner, *Fus. Eng. Des.*, **8** (1989) 133.
- 13) 勝田博司, *日本原子力学会誌*, **27** (1985) 100.
- 14) V.A. Maroni, E.J. Cairns and F.A. Cafasso, ANL-8001, (1973).
- 15) J.S. Watson, ORNL-TM-3794, (1972).
- 16) D.W. Jeppson and R.F. Keough, *J. Nucl. Mater.*, **103&104** (1981) 567.
- 17) D.L. Smith, W. Daenner, G. Kalinin and H. Yoshida, *J. Nucl. Mater.*, **179-181** (1991) 1185.
- 18) E. Veleckis, E.H. Van Deventer and M. Blander, *J. Phys. Chem.*, **78** (1974) 1933.
- 19) H. Moriyama, T. Ohmura, S. Maeda, A. Okada, K. Moritani and J. Oishi, *Radiochimica Acta.*, **40** (1986) 125.
- 20) F.J. Smith, J.F. Land, G.M. Begun and A.M. La Gamma De Batiston: *J. Inorg. Nucl. Chem.*, **41** (1979) 1001.
- 21) H. Moriyama, S. Maeda, T. Ohmura, K. Moritani and J. Oishi, *J. Nucl. Mater.*, **148** (1987) 211.
- 22) E.M. Larsen, J. Layton and L.J. Wittenberg, *Fusion Technol.*, **10** (1986) 990.
- 23) S. Fukada and N. Mitsuishi, *J. Nucl. Sci. Technol.*, **25** (1988) 479.
- 24) R.E. Buxbaum, *Sep. Sci. Technol.*, **18** (1983) 1251.
- 25) H. Katsuta, H. Iwamoto and H. Ohno, *J. Nucl. Mater.*, **133&134** (1985) 167.
- 26) G.M. McCracken, D.J.H. Goodall, R.T.P. Whipple and G. Long, *Symp. on Fusion Technol.*, (1974) 439.
- 27) R.M. Alire, *J. Chem. Phys.*, **65** (1976) 1134.
- 28) S. Fukada and N. Mitsuishi, *Mem. Fac. Eng. Kyushu Univ.*, **48** (1988) 69.
- 29) 深田智, 三石信雄, *九州大学工学集報*, **60** (1987) 225.
- 30) P.A. Finn, R.G. Clemmer, L.R. Greenwood, T.L. Grimm, D.K. Sze, J.R. Bartlit, J.L. Anderson, H. Yoshida and Y. Naruse, *Fusion Eng. Des.*, **11** (1989) 335.
- 31) D.W. Rudd, D.W. Vose and S. Johnson, *J. Phys. Chem.*, **66** (1962) 351.
- 32) C.H. Wu, *J. Nucl. Mater.*, **122&123** (1984) 941.
- 33) A.P. Malinauskas and D.M. Richardson, *I&EC Fundam.*, **13** (1974) 242.
- 34) T. Terai, S. Magai, T. Yoneoka and Y. Takahashi, *J. Nucl. Mater.*, **187** (1992) 247.

- 35) C.R. Wilke and P. Chang, *AIChE J.*, **1** (1955) 264.
- 36) 日本機械学会, “伝熱工学資料集”, (1975) 321.
- 37) J. Budde and F. Sauerwald, *Z. Physik. Chem.*, **230** (1965) 42.
- 38) Y. Abe, O. Kosugiyama and A. Nagashima, *J. Nucl. Mater.*, **99** (1981) 173.
- 39) 秋山守, “原子力プラント工学”, コロナ社, (1979).
- 40) S. Fukada and N. Mitsuishi, *J. Nucl. Sci. Technol.*, **25** (1988) 600.
- 41) J.B. Talbot and S.D. Clinton, *J. Less-Comm. Met.*, **66** (1979) 51.
- 42) P. Hubberstey, P.F. Adams and R.J. Pulham, *CONF-750989* (1975).
- 43) S. Fukada, S. Kitajima and N. Mitsuishi, *J. Nucl. Sci. Technol.*, **25** (1988) 895.
- 44) S. Fukada, N. Mitsuishi, S. Kitajima and T. Nakahara, *Mem. Fac. Eng. Kyushu Univ.*, **48** (1988) 281.
- 45) S. Fukada, T. Nakahara and N. Mitsuishi, *J. Nucl. Mater.*, **171** (1990) 399.
- 46) V.A. Vorovoyov and Ryavchikov, *L. Ukr. Fiz. Zh.*, **11** (1966) 209.
- 47) J.J. Carberry, *AIChE J.*, **6** (1960) 460.
- 48) S. Ergum, *Chem. Eng. Prog.*, **48** (1952) 89.
- 49) H. Katsuta, *Proc. 1984 INS Int. Symp. of Heavy Ion Acceleration and their Application to Inertial Fusion*, (1984) 834.
- 50) H. Migge, *J. Nucl. Mater.*, **123** (1984) 903.
- 51) R.G. Clemmer, P.A. Finn, T.L. Grimm, D.K. Sze, J.L. Anderson, J.R. Bartlit, Y. Naruse and H. Yoshida, *Fusion Technol.*, **14** (1988) 657.
- 52) G.M. Begun, J.F. Land and J.T. Bell, *J. Chem. Phys.*, **72** (1980) 2959.
- 53) W.F. Calaway, *Nucl. Technol.*, **39** (1978) 63.
- 54) G. Pierini, A.M. Polcano, P.F. Ricci and A. Viola, *Nucl. Eng. Des.*, **1** (1984) 159.
- 55) J. Reimann, *Fus. Eng. Des.*, **14** (1991) 413.
- 56) J. Reimann and S. Malang, *KfK-4105*, (1986).
- 57) B.R. Grundy, *Int. Conf. on Liquid Metal Technol. in Energy Production*, *Champion Pa.*, (1976) 656.
- 58) T.A. Renner and D.J. Raue, *Nucl. Technol.*, **22** (1979) 312.
- 59) P. Hubberstey, “*Handbook of Thermodynamic and Transport Properties of Alkali Metals*”, Blackwell Scientific Publications (1984).
- 60) R.H. Perry, “*Perry’s Chemical Engineer’s Handbook*”, 6th ed. (1984).
- 61) N. Mitsuishi and S. Fukada, *J. Nucl. Mater.*, **175** (1990) 209.
- 62) S. Fukada, N. Mitsuishi, T. Nakahara and H. Minato, *Fusion Eng. Des.*, **18** (1991) 61.
- 63) R.W. Moir, J.D. Lee, R.C. Maninger, W.S. Neef, Jr., A.E. Sherwood, D.H. Brewald,

- J.H. DeVan and J. Jung, Fusion Technol, **8** (1985) 133.
- 64) P.E. Field and J.H. Shaffer, J. Phys. Chem., **71** (1967) 3218.
- 65) C.P.C. Wong, E.T. Cheng, R.L. Creedon et al., Fusion Technol., **15** (1989) 871.
- 66) Y. Gohar, C.C. Baker, H. Attaya et al.: Fusion Technol., **15** (1989) 876.
- 67) M. Aritomi, Inoue, A., M. Takahashi, et al., Fusion Eng. Des., **11** (1989) 289.
- 68) 東稔達三, 関昌弘他, JAERI-M-017.