

一般セッション | V. 核燃料サイクルと材料：504-1 同位体分離，同位体応用，ウラン濃縮

2024年9月11日(水) 10:00 ~ 11:25 N会場(講義棟B棟2F B203)

[1N01-05] リチウム同位体分離

座長:長谷川 秀一(東大)

10:00 ~ 10:15

[1N01]

MCCCE法を用いたリチウム-7濃縮技術開発

(7) 開発状況の概要

長谷川 信¹、*福森 麻衣¹、小田桐 哲也¹、綱田 宜司²、田中 健哉²、村松 誉与³、岸本 忠史⁴ (1. 株式会社アトックス、2. 株式会社ペスコ、3. 東洋エンジニアリング株式会社、4. 大阪大学)

10:15 ~ 10:30

[1N02]

MCCCE法を用いたリチウム-7濃縮技術開発

(8) 平板型濃縮装置によるLi-7濃縮実験の概要

*岸本 忠史¹、小川 泉²、松岡 健次¹、福本 敬夫¹、碓 隆太³、長谷川 信⁴、福森 麻衣⁴、川上 智彦⁵、白石 啓宜⁵、塚原 剛彦⁶ (1. 大阪大学 核物理研究センター、2. 福井大学、3. 大阪産業大学、4. 株式会社ATOX、5. 株式会社化研、6. 東京工業大学)

10:30 ~ 10:45

[1N03]

MCCCE法を用いたリチウム-7濃縮技術開発

(9) CFDシミュレーションを用いた印加電圧の影響の調査

*堀口 直樹¹、吉田 啓之¹、北辻 章浩¹、福森 麻衣²、長谷川 信²、岸本 忠史³ (1. JAEA、2. アトックス、3. 阪大)

10:45 ~ 11:00

[1N04]

リチウム同位体分離への疑似移動層プロセスの適用性評価 (2)

*杉山 貴彦¹、香村 迅¹、加藤 昌太郎¹ (1. 名大)

11:00 ~ 11:15

[1N05]

疑似移動層プロセスによるリチウム同位体分離に用いる候補吸着系における選択係数の評価

*香村 迅¹、青島 伊吹¹、加藤 昌太郎¹、大橋 利正¹、杉山 貴彦¹ (1. 名古屋大学)

11:15 ~ 11:25

座長持ち時間

MCCCE 法を用いたリチウム-7 濃縮技術開発

(7) 開発概要の概要

Li-7 Enrichment Technology Development by MCCCE Method

(7) Current Status of Technology Development

*福森 麻衣¹, 小田桐 哲也¹, 長谷川 信¹, 綱田 宜司², 田中 健哉²,
村松 誉与³, 岸本 忠史⁴

¹株式会社アトックス、²株式会社ペスコ、³東洋エンジアリング株式会社、⁴大阪大学

PWR 一次系冷却水の pH 調整に使用される LiOH は、被ばく管理の観点から Li-7 同位体を濃縮して使用される。しかし、Li-7 同位体はロシアから輸入され、また濃縮方法が水銀アマルガム法であるため、安全保障面及び環境面に課題がある。これらの課題を解決するため、Li-7 同位体の国内生産を目指して、既存法に替わるマルチチャンネル向流電気泳動(MCCCE)法[1]を用いた同位体濃縮技術開発を進めている。

キーワード: MCCCE, Li-7, PWR, ロシア

1. 緒言

PWR プラントの一次冷却水にはホウ酸を添加するが、液性が酸性になると系統構成材料の腐食を進めるため、LiOH を添加し pH 調整を行っている。しかし、Li には天然に 2 つの同位体が存在し、特に Li-6 は中性子吸収剤であるため、被ばく低減の観点から可能な限り Li-7 の濃縮が必要である。

2. Li-7 供給状況

Li-7 の供給はロシアのほぼ独占状態であり、日本もロシアからの輸入に依存している。これは安全保障及び安定供給の観点からは課題である。また、ロシアが採用している水銀アマルガム法は、世界的に取り扱いが厳しい水銀を用いるため、環境面でも課題である。各国は、ロシアのウクライナ侵攻を起点に、独立したサプライチェーンを構築して依存度の低減戦略を検討している。日本も同様に経済面及び環境面を考慮した新たな国内供給体制の構築が必要である。

3. MCCCE 法の概要

本報告では、水銀アマルガム法に代わる新たな濃縮技術として、電気泳動のキャピラリー法と向流法を組み合わせた MCCCE 法に着目した。新たに改良した平板型流路の新型試験装置を用いてパラメータ試験を行い、1.03 前後の分離係数を定常的に得ている。また、濃縮プラントの検討では実用化へ向けた課題整理を行い、世界の Li-7 同位体に係る国際情勢の調査も実施した。本報告では、2023 年度報告の第 4~6 報[2][3][4]に続いて本研究の開発状況を報告する。

謝辞

本研究成果は、経済産業省資源エネルギー庁令和 5 年度「原子力の安全性向上に資する技術開発事業」の一部として実施されたものです。

参考文献

[1] T. Kishimoto, K. Matsuoka, T. Fukumoto, S. Umehara “Calcium isotope enrichment by means of multi-channel counter-current electrophoresis for the study of particle and nuclear physics”(2015), PTEP, 033D03, 2015

[2] 福森ら, AESJ2023 春, 1H01(2023), [3] 岸本ら, AESJ2023 春, 1H02(2023), [4] 堀口ら, AESJ2023 春, 1H03(2023).

*Mai Fukumori¹, Tetsuya Odagiri¹, Makoto Hasegawa¹, Takashi Tsunada², Kenya Tanaka², Takayo Muramatsu³, Tadafumi Kishimoto⁴

¹ ATOX, ² Pescos, ⁴ TEC, ³ Osaka Univ.

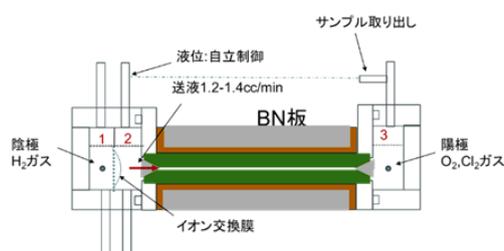


図 1. 平板型流路の新型試験装置

MCCCE 法を用いたリチウム-7 濃縮技術開発 (8) 平板型濃縮装置による Li-7 濃縮実験の概要

Li-7 Enrichment Technology Development by MCCCE Method

(8) Current status of the Li-7 enrichment experiment by a planer type instrument

*岸本 忠史¹, 小川泉², 松岡健次¹, 福本敬夫¹, 裕隆太³, 白石 啓宜⁴, 川上 智彦⁴,
福森 麻衣⁵, 長谷川 信⁵, 塚原 剛彦⁶

¹大阪大学, ²福井大学, ³大阪産業大学, ⁴㈱化研, ⁵㈱アトックス, ⁶東京工業大学

MCCCE 法は電気泳動法を基礎に、向流法とキャピラリー法の利点を組み合わせた濃縮法である。高い熱伝導率で絶縁物の BN 板で泳動路を作ることによって実現した。濃縮 Li-7 の製造に向けた基礎実験を進めている。泳動路を円筒型から平板型へ変更することで装置の改良を目指した。その現状と今後について概説する。

キーワード: MCCCE, Li-7, 濃縮, ハーゲン・ポアズイユ流, 移動度

1. 緒言

MCCCE 法は電気泳動法の向流法とキャピラリー法の問題点を解消しながら統合した同位体濃縮法で、高い熱伝導率を持ちながら絶縁体である BN で泳動路を作ることによって、高い電場で向流法を実現し、効率の向上を実現した。性能の改良には速度分布の均一化が重要である。

2. 実験

昨年完成させた平板型泳動路で実験を進めている。LiCl 溶液を流す向流速度（液送速度）を一定に保ち、逆方向に泳動する電圧をかけることで泳動速度の違い Li-7 を濃縮させる。分離係数を電圧の関数として測定した。図 1 に示す様に最大電圧の 500V で 4.7%の分離係数が得られた。図 2 に示される電圧の降下と共に増大する収量の変化も妥当なものである。この結果は更に条件の探索で改善が期待できることを示している。500V の 2 点の外れた 1 点は初期条件の純水の値である。

3. 結果と今後

現在平板型泳動路で性能と再現性の向上を目指している。向流速度の理解は進み、泳動速度を決める温度とイオン分布の制御法の研究を、実験とシミュレーションの両面から進めている。本報告では、2023 年度報告の第 4~6 報[2][3][4]に続いて、本研究の最新の開発状況について報告する。

謝辞

本研究は、経済産業省資源エネルギー庁令和 5 年度「原子力の安全性向上に資する技術開発事業」の一部として実施されたものです。また科研費の支援も受けています。

参考文献

- [1] T. Kishimoto, K. Matsuoka, T. Fukumoto, S. Umehara “Calcium isotope enrichment by means of multi-channel counter-current electrophoresis (MCCCE) for the study of particle and nuclear physics”(2015), PTEP, 033D03, 2015
[2] 福森ら, AESJ2023 春, 1H01(2023), [3] 岸本ら, AESJ2023 春, 1H02(2023), [4] 堀口ら, AESJ2023 春, 1H03(2023).

*Tadafumi Kishimoto¹, Izumi Ogawa², Kenji Matsuoka¹, Takao Fukumoto¹, Ryuta Hazama³, Hironori Shiraishi⁴, Tomohiko Kawakami⁴, Mai Fukumori⁵, Makoto Hasegawa⁵, Takehiko Tsukahara⁶

¹ Osaka Univ., ² Fukui Univ., ³ Osaka Sangyo Univ., ⁴ Kaken, ⁵ ATOX, ⁶ TIT

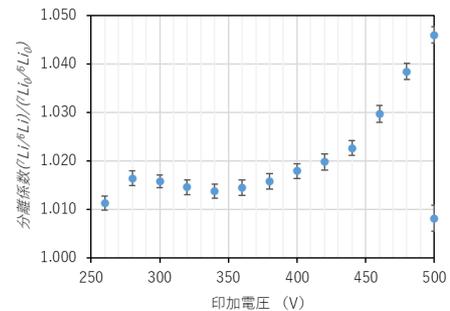


図 1. 印加電圧と分離係数の関係

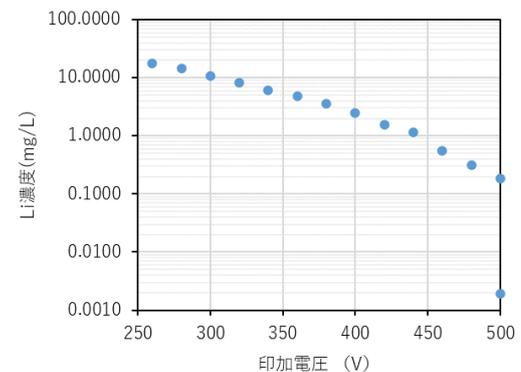


図 2. 印加電圧と収量の関係

MCCCE 法を用いたリチウム-7 濃縮技術開発 (9) CFD シミュレーションを用いた印加電圧の影響の調査

Li-7 Enrichment Technology Development by MCCCE Method

(9) Examination of applied voltage effects using CFD simulation

*堀口 直樹¹, 吉田 啓之¹, 北辻 章浩¹, 福森 麻衣², 長谷川 信², 岸本 忠史³

¹JAEA, ²アトックス, ³阪大

電場下脈動流中のイオン挙動の数値シミュレーション手法により、MCCCE 法による Li-7 濃縮実験におけるイオン挙動に対する印加電圧の影響を調査した結果を報告する。

キーワード : Li-7 濃縮技術, MCCCE 法, 平板型流路, TPFIT-LPT, CFD, イオン挙動

1. 緒言

PWR の水質管理には、Li-7 を濃縮した pH 調整剤が不可欠であり、この国内供給網構築に向けて、本技術開発では、マルチチャンネル向流電気泳動(MCCCE)法による Li-7 濃縮技術[1]を開発している。濃縮実験[2]におけるイオン挙動を把握するため、流れ場と電場の 3 次元データを元に、長時間のイオン挙動をシミュレーションする手法を開発した[3]。今回、濃縮実験流路内のイオン挙動に本手法を適用し、イオン挙動に対する印加電圧の影響を調査した結果について報告する。

2. 数値シミュレーション手法

まず濃縮実験[2]と同じ形状寸法の流路、その前後の配管系および電極を有する解析体系を作成した。数値シミュレーションにおいては、流路内に水単相定常の流れが存在するとして、CFD コード TPFIT-LPT[4]を用いて一定流入出速度の流れ場の 3 次元データを得た。また、イオン分布が電場に与える影響を無視し、定電流解析により電場のデータを取得した。これらのデータを元に、質点粒子で模擬したイオンの運動をラグランジュ的に解いた。図 1 に解析体系および流量・電圧条件を示す。平板型流路の前後に電極を配置し、平板型流路手前 10 mm の仮想入口からイオンを均一に継続投入した。電圧差 360、400、440 V の 3 ケースを実施し、移動度が異なる Li-7 および Li-6 イオンの分離係数および通過量に対する電圧差の影響を調べた。

3. 結果

数値シミュレーション結果の例として 1.5 h 経過時点のイオン分布を図 1 に示す。440 V の場合、Li-7 および Li-6 イオンは平板型流路の出口へ到達した。360 から 440 V にすることで、出口に到達する Li-7 および Li-6 イオンの分離係数が向上し各イオンの通過量が 1/100 程度に減少するという、実験と一致する傾向を得た。

謝辞

本研究成果は、経済産業省資源エネルギー庁令和 5 年度「原子力の安全性向上に資する技術開発事業」の補助事業の一部として実施されたものです。また、JAEA のスーパーコンピュータ「HPE SGI8600」を利用して得られたものです。

参考文献

- [1] 福森ら, AESJ2023 春, 1H01(2023),
[2] 岸本ら, AESJ2023 春, 1H02(2023),
[3] 堀口ら, AESJ2023 春, 1H03(2023), [4] H. Yoshida, et al., ICONE2020-16393(2020).

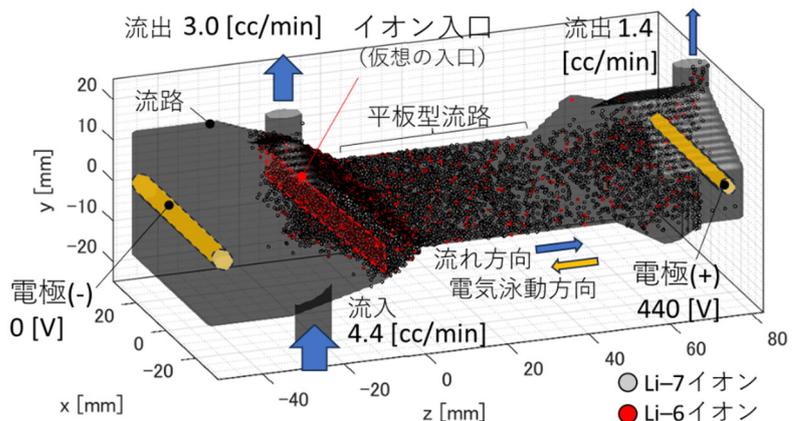


図 1 イオン挙動シミュレーションの概要

*Naoki Horiguchi¹, Hiroyuki Yoshida¹, Yoshihiro Kitatsuji¹, Mai Fukumori², Makoto Hasegawa², Tadafumi Kishimoto³

¹JAEA, ²ATOX, ³Osaka Univ.

リチウム同位体分離への疑似移動層プロセスの適用性評価（2）

Applicability assessment of a simulated moving bed process to separation of lithium isotopes (2)

*杉山 貴彦¹, 香村 迅¹, 加藤 昌太朗¹

¹名大・工

リチウム6または7を濃縮した同位体比調整材料の需要が高まっている。環境負荷が小さく大量製造に適用できる同位体分離方法の開発を目的として、疑似移動層プロセスの適用性を評価した。90%に濃縮したリチウム6を年間100 kg 製造するために必要な吸着カラムの直径と全長は、50 cm, 約400 m と見積もられた。

キーワード: リチウム, 同位体分離, 疑似移動層, 大量製造

1. 緒言 リチウム6または7を濃縮した同位体比調整材料の需要が高まっている。環境負荷が小さい方法として吸着法が挙げられる。これまでに置換クロマトグラフィー法に基づくプロセスを検討してきたが、新たに疑似移動層（SMB）プロセスの適用を考えた。SMBは連続処理が可能で廃液が少ないという利点がある。

2. 方法 図1に示すSMBは、直列につながれた8本の吸着カラムにおいて、供給口と抜出口の位置を順に間欠的に切り替えることで擬似的に液相と固相の向流接触を生起させる。移流拡散方程式を解くことでカラム内の濃度分布の時間変化・空間変化を求める計算コードを作成した。単位カラムの長さを1 m, 内径を4.6 mm, 空隙率を0.3とした。吸着材には大環状化合物固定化ビーズを採用し、平衡分離係数を1.03とした。また、塩及び溶媒は塩化リチウムとメタノールとし、物質移動容量係数を 1.67 s^{-1} とした。これらの条件は実験室での実績値に基づいており、この場合の理論段高さは約3 cmである。

3. 結果 天然組成のリチウムを原料とし、90%に濃縮したリチウム6を年間100 kg 製造するために必要な吸着カラムの規模を見積もった結果を表1に示す。吸着カラムの直径は、実証報告[1]のある最大値として50 cmとした。必要な吸着カラムの全長は、置換クロマトグラフィー法の場合の1099 mに対して、疑似移動層プロセスを適用することで414 mと短縮された。

表1 吸着カラムの規模

	置換クロマトグラフィー	疑似移動層
吸着剤	陽イオン交換樹脂 粒径 60 μm , 吸着容量 1.25 mol/kg	大環状化合物固定化ビーズ 粒径 5 μm , 吸着容量 0.32 mol/kg
塩/溶媒	酢酸リチウム/メタノール	塩化リチウム/メタノール
平衡分離係数/HETP	1.003/2 mm	1.03/約3 cm
カラム直径	50 cm	50 cm
カラム全長	1099 m (濃縮流量率 0.01)	414 m (濃縮流量率 0.00055)
90% ⁶ Li 生産速度	100 kg/y	102 kg/y

参考文献 [1] S. Fujine, K. Saito, Y. Naruse et al., JAERI-M 9735 (1981).

*Takahiko Sugiyama¹, Shun Komura¹ and Shotaro Kato¹

¹Nagoya Univ.

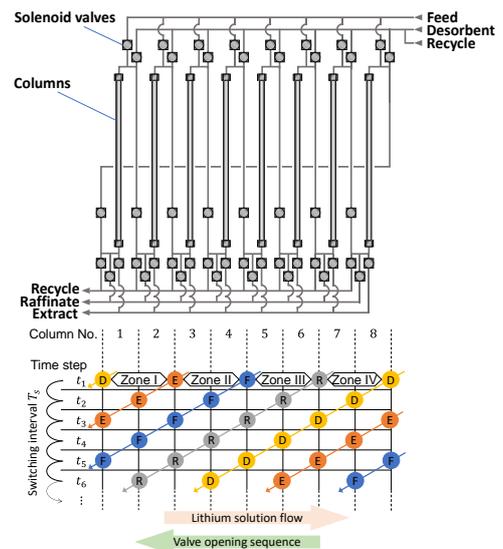


図1 SMBプロセス

擬似移動層プロセスによるリチウム同位体分離に 用いる候補吸着系における選択係数の評価

Evaluation of Selective Coefficient in Candidate Adsorption Systems
for Lithium Isotope Separation by Simulated Moving Bed Process

*香村迅¹, 青島伊吹¹, 加藤昌太郎¹, 大橋利正¹, 杉山貴彦¹

¹名大・工

核融合炉のブランケットには、大量かつ高濃度のリチウム6が必要とされている。高効率のリチウム同位体分離技術として擬似移動層(SMB)プロセスの適用を検討している。プロセスの操作条件の探索の一環として、候補となる吸着系の選択係数を実測した結果について報告する。

キーワード：擬似移動層，リチウム同位体分離，選択係数

1. 緒言 核融合炉ブランケットで必要となる高濃度のリチウム6の同位体分離技術として擬似移動層(SMB)^[1]の適用を考えている。これまでの研究で選択係数については1近傍が好ましいことがわかった^[2]。そこで候補となる吸着材と塩、溶媒の組み合わせ(吸着系)に対し選択係数を実験的に評価し、好適な吸着系を探索した。

2. 実験方法 図1に実験装置の概要を示す。カラムには内径4.6 mm, 長さ25 cmまたは内径8 mm, 長さ50 cmのものを用いた。

陽イオン交換樹脂としてGL Sciences製 Inertsil CX (吸着材 A)と大環状化合物を担持した吸着材としてMerck製 Kryptofix2.2.1 polymer(吸着材 B)を用いた。送液速度を1 ml/min, 恒温槽温度を25 °Cとした。カラムの出口濃度を電気伝導度計により測定した。塩の組み合わせとして、酢酸と酢酸リチウム, または塩酸と塩化リチウムを用いた。溶媒には、蒸留水またはメタノールを用い、溶液の塩濃度は0.05, 0.1, 0.2 mol/Lとした。測定した過渡応答波形(図2)からモーメント解析を行い、選択係数を評価した。

3. 結果と考察 吸着材 A の選択係数は酢酸塩を用いた場合、酢酸の緩衝効果により5000程度となった。また、塩酸塩を用いた場合は0.265となった。このことから、塩については塩酸塩が好適と分かった。次に、塩酸塩の場合について得られた塩濃度と選択係数の関係を図3に示す。選択係数は塩濃度とともに単調増加となり、吸着材 B について選択係数が1になる時の塩濃度は溶媒が蒸留水の時で0.1 mol/L, メタノールの時で0.18 mol/Lとなった。リチウム6生産を考えると、塩濃度が高い方が生産量が多くなるため、溶媒はメタノールが適していることが分かった。

4. 結論 リチウム同位体分離にSMBを適用するための好適な吸着系として、濃縮係数の大きい大環状化合物に対して、塩酸塩とメタノールの組み合わせを選定した。今後、擬似移動層シミュレーションから候補吸着系の実用性を評価する。

参考文献 [1] 橋本健治著, 「クロマト分離工学 回分から擬似移動層操作へ」, 培風館 (2005).

[2] 加藤昌太郎, 香村迅, 大橋利正, 杉山貴彦, 第21回同位体科学研究会, 3月8日(2024).

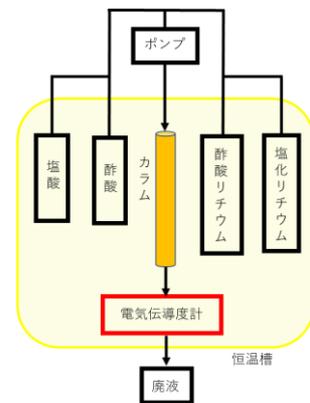


図1 実験装置概要

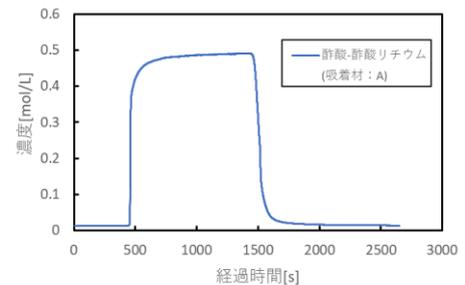


図2 過渡応答波形

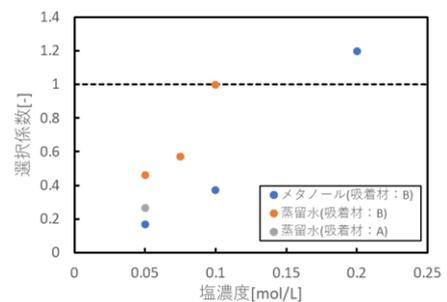


図3 塩濃度と選択係数