

2021年12月28日

加賀山 茂 様

(〒105-6032) 東京都港区虎ノ門4-3-1
城山トラストタワー32階

特許業務法人日栄国際特許事務所

拝啓 時下ますますご清栄の事と
お慶び申し上げます
下記の書類を送付致しますので
ご査収のほどお願い申し上げます
敬 具

電話 03-5425-2091
F A X 03-5425-2094
担 当 者 松浦 文子
請 求 担 当 長崎 麻貴

記

1. 件 名： **出願手続完了のお知らせ**

2. 事件名： 1) 御社整理番号 (弊所番号：021296)
2) 出 願 番 号 特願2021-212839
3) 名 称

トリチウム含有汚染水の処理方法、トリチウム含有汚染水の処理
装置

3. 添付書類： 1. 出願書類 1 通
2. 受領書（出願番号通知） 1 通

4. 備 考： ★共同出願人：総合企画開発合同会社 様

- 1) 以後、当所へお問い合わせは、受領書に記載の出願番号でお願い致します。
- 2) 出願日から1年以内に関連発明に関する優先権主張出願及び、外国への優先権主張出願をすることができます。

以上

受領書

令和 3年12月27日
特許庁長官

識別番号 100103850
氏名(名称) 田中 秀▲てつ▼ 様

以下の書類を受領しました。

項番	書類名	整理番号	受付番号	提出日	出願番号通知(事件の表示)	アクセスコード
1	特許願	021296	52102809633	令 3.12.27	特願2021-212839	B749

以上

【書類名】 特許願
【整理番号】 021296
【提出日】 令和 3年12月27日
【あて先】 特許庁長官殿
【国際特許分類】 G21F 9/06
【発明者】
【住所又は居所】 東京都板橋区舟渡1丁目13番10号 アイ・タワー2F 総合
企画開発合同会社内
【氏名】 高島 香華樹
【特許出願人】
【住所又は居所】 東京都板橋区舟渡1丁目13番10号 アイ・タワー2F
【氏名又は名称】 総合企画開発合同会社
【特許出願人】
【住所又は居所】 大分県日出町大神823-6
【氏名又は名称】 加賀山 茂
【代理人】
【識別番号】 100103850
【弁理士】
【氏名又は名称】 田中 秀▲てつ▼
【選任した代理人】
【識別番号】 100105854
【弁理士】
【氏名又は名称】 廣瀬 一
【選任した代理人】
【識別番号】 100116012
【弁理士】
【氏名又は名称】 宮坂 徹
【選任した代理人】
【識別番号】 100066980
【弁理士】
【氏名又は名称】 森 哲也
【手数料の表示】
【予納台帳番号】 449623
【納付金額】 14,000円
【提出物件の目録】
【物件名】 明細書 1
【物件名】 特許請求の範囲 1
【物件名】 要約書 1
【物件名】 図面 1

【書類名】明細書

【発明の名称】トリチウム含有汚染水の処理方法、トリチウム含有汚染水の処理装置

【技術分野】

【0001】

本発明は、トリチウム含有汚染水の処理方法と処理装置に関する。

【背景技術】

【0002】

東日本大震災に伴う福島第一原子力発電所の事故で発生した放射性物質を含む汚染水の処理に関しては、汚染水からセシウム、ストロンチウムを重点的に除去した後、多核種除去設備（ALPS）を用いて大半の放射性物質を除去することが行われ、ALPSで取り除くことができないトリチウム水を含む処理水がタンクに貯蔵されている。この処理水が貯蔵されたタンクが日々増え続けており、保管場所にも限りがあるため、海洋放出が検討されている。しかし、海洋放出には海外からの批判や風評被害などの問題がある。そのため、大量のトリチウム含有汚染水からトリチウム水を効率的に分離する方法が模索されている。

例えば、特許文献1には、トリチウム含有汚染水を遠心分離して、汚染水中のトリチウムの濃度を不均一化させることで、トリチウムの濃度が他の部分よりも相対的に高い高濃度部分を生じさせ、高濃度部分を分離して抽出する方法が記載されている。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0003】

【特許文献1】特許第6656909号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0004】

しかし、トリチウム原子を含む水であるトリチウム水（ T_2O 、 THO ）とトリチウム原子を含まない水（ H_2O ）とでは重さの差が小さいので、トリチウム含有汚染水を水の状態で遠心分離法によりトリチウム水（ T_2O 、 THO ）と水（ H_2O ）とに分離しようとしても、分離することは困難である。

また、トリチウム含有汚染水を電気分解して、陰極側で回収された軽水素（ H_2 ）およびトリチウム（ T_2 、 TH ）を含む気体を、遠心分離法により軽水素（ H_2 ）とトリチウム（ T_2 、 TH ）とに分離しようとしても、平衡状態となって分離が進まないという問題点がある。

本発明の課題は、トリチウム含有汚染水の処理方法として、汚染水からトリチウムを効率的に分離できる方法を提供することである。

【課題を解決するための手段】

【0005】

上記課題を解決するために、本発明の第一態様は、トリチウム水（ T_2O 、 THO ）を含む汚染水を電気分解して、陰極側で回収された軽水素（ H_2 ）およびトリチウム（ T_2 、 TH ）を含む気体を液化する第一の工程と、前記第一の工程で得られた液化物を液状で保持可能な処理用タンクに入れる第二の工程と、前記処理用タンクを回転台上に固定して回転させることにより前記液化物に遠心力を付与して、軽水素（ H_2 ）とトリチウム（ T_2 、 TH ）とを液状で分離する第三の工程と、前記第三の工程で分離された軽水素（ H_2 ）の少なくとも一部を前記処理用タンクから取り除く第四の工程と、を有する下記の構成を有するトリチウム含有汚染水の処理方法を提供する。

【0006】

本発明の第二態様は、トリチウム水を含む汚染水を電気分解して、陰極側の気体を回収する装置と、前記装置で回収された陰極側の気体を液化する装置と、前記液化する装置で得られた液化物を液状で保持可能な処理用タンクと、前記処理用タンクを載せる回転台を有する遠心分離装置と、を有するトリチウム含有汚染水の処理装置を提供する。

【0007】

第一態様のトリチウム含有汚染水の処理方法は、以下の構成(1)(2)を更に有することができる。

(1)前記処理用タンク内の前記液化物における、前記第四の工程で取り除く液状の軽水素(H_2)の割合($X\%$)に応じて、 $Y(=100/X)$ 個の前記処理用タンクを用意し、 Y 個の前記処理用タンクを用いて、前記第二の工程、前記第三の工程、および前記第四の工程を行うことにより、前記第四の工程で前記軽水素が取り除かれた分の空間が生じた Y 個の前記処理用タンクを得る。

【0008】

(2)前記空間が生じた Y 個の前記処理用タンクに前記第一の工程で得られた液化水素の $1/Y$ の量をそれぞれ入れる第五の工程を行うことと、前記第五の工程後の Y 個の前記処理用タンクを用いて前記第三の工程および前記第四の工程を行うことと、を繰り返すことにより、 Y 個の前記処理用タンク内の液化水素のトリチウム濃度を上昇させていく。

【発明の効果】**【0009】**

本発明のトリチウム含有汚染水の処理方法によれば、電気分解して回収した水素の液化物を遠心分離するため、汚染水からトリチウムを効率的に分離することができる。

本発明のトリチウム含有汚染水の処理方法が上記構成(1)(2)を更に有する場合、処理用タンクの個数を Y 個から増やすことなく汚染水の処理が行えるため、処理用タンクの設置場所を広げることなく(最初に確保した場所だけで)、効率的に且つ大量の汚染水を処理することが可能になる。

本発明のトリチウム含有汚染水の処理装置によれば、本発明のトリチウム含有汚染水の処理方法を実施することができる。

【図面の簡単な説明】**【0010】**

【図1】本発明の一実施形態の汚染水処理装置を示す概略構成図である。

【図2】本発明の一実施形態の汚染水処理方法を説明するフローチャートである。

【図3】本発明の一実施形態の汚染水処理方法における、液化水素の処理用タンクからの出し入れについて説明する図である。

【発明を実施するための形態】**【0011】**

以下、本発明の実施形態について説明するが、本発明は以下に示す実施形態に限定されない。以下に示す実施形態では、本発明を実施するために技術的に好ましい限定がなされているが、この限定は本発明の必須要件ではない。

〔実施形態の汚染水処理装置〕

図1に示すように、この実施形態の汚染水処理装置は、汚染水タンク1と、電気分解装置2と、酸素回収装置3と、水素回収装置4と、液化装置5と、液化水素の充填装置6と、処理用タンク7と、遠心分離装置8と、軽水素回収タンク9を備えている。

汚染水タンク1は、トリチウムを含む汚染水を入れるための水槽であって、例えば、汚染水発生場所で一日に生じる量の汚染水が毎回(一回の電気分解毎に)導入されるように構成されている。

【0012】

電気分解装置2は、電源21と、電源21の正極に接続された陽極22と、電源21の負極に接続された陰極23を有し、陽極22および陰極23が汚染水タンク1の内部に配置されている。

酸素回収装置3は、汚染水タンク1の内部から上方に延びる筒状の容器であって、陽極22の直上に配置されている。電気分解により陽極22側に生じた酸素ガスが酸素回収装置3の上部で回収される。

水素回収装置4は、汚染水タンク1の内部から上方に延びる筒状の容器であって、陰極23の直上に配置されている。電気分解により陰極23側に生じた水素ガス(H_2 、 TH

、 T_2) が水素回収装置 4 の上部で回収される。

【0013】

液化装置 5 は水素回収装置 4 の上部と配管 5 1 で接続され、配管 5 1 に設置されたバルブを開けることで、水素回収装置 4 で回収された水素ガス (H_2 、 TH 、 T_2) が液化装置 5 に導入される。液化装置 5 に導入された水素ガス (H_2 、 TH 、 T_2) は、冷却されて液体になり、液化水素として保持される。

液化水素の充填装置 6 は、液化装置 5 と配管 6 1 で接続され、液化装置 5 から液化水素を取り出して処理用タンク 7 に充填するための装置である。

【0014】

処理用タンク 7 は、水素を液状で保持可能な横置型円筒形タンクであり、一回の電気分解で生じた液化水素の全量が丁度入る容量のものである。処理用タンク 7 としては、従来公知の液化水素の運搬に使用されているものを流用することができる。

遠心分離装置 8 は、処理用タンク 7 を回転台 8 1 上に固定して回転させることにより処理用タンク 7 内の液化水素に遠心力を付与して、軽水素 (H_2) とトリチウム (T_2 、 TH) とを分離できる装置である。回転台 8 1 の中心軸の周りに複数の処理用タンク 7 を横置きで設置可能に構成されている。

軽水素回収タンク 9 は、水素を液状で保持可能なタンクであり、遠心分離工程後の処理用タンク 7 から取り出された液状の軽水素 (H_2) を入れるためのものである。

【0015】

[実施形態の汚染水処理方法]

この実施形態の汚染水処理方法は、実施形態の汚染水処理装置を使用して図 2 のフローチャートに従って行う。また、この方法における処理用タンク 7 からの出し入れを模式的に図 3 に示す。

ここでは、遠心分離で処理用タンク 7 内の液化物から取り出す液状の軽水素 (H_2) の割合を 10% と仮定して、 $10 = (100 / 10)$ 個の処理用タンク 7 を用意する。これを図 3 では、処理用タンク $T1 \sim T10$ とする。また、図 3 のタンク 5 2 は、液化装置 5 が有するタンクであり、一日分の汚染水の電気分解により生じた液化水素が入っている。

【0016】

1 日目から 10 日目までは、先ず、汚染水発生場所で一日に生じる量の汚染水を汚染水タンク 1 に入れる。次に、汚染水タンク 1 内の汚染水を電気分解装置 2 で電気分解する。次に、水素回収装置 4 で回収された気体 (H_2 、 TH 、 T_2) を液化装置 5 に導入して、液化する。これが第一の工程である。この液化水素のトリチウム濃度を $[t_0]$ とする。なお、得られる液化水素のトリチウム濃度は日によって大きく変化しないと仮定する。

【0017】

次に、一本の空の処理用タンク 7 に、液化装置 5 からの液化水素 (H_2 、 TH 、 T_2) を入れる。これが第二の工程である。これにより、10 日目には、10 本の処理用タンク $T1 \sim T10$ がそれぞれ液化装置 5 からの液化水素 (H_2 、 TH 、 T_2) で満たされた状態となる。

次に、10 本の処理用タンク $T1 \sim T10$ を横長の状態で回転台に載せて固定し、遠心分離する。これが第三の工程である。遠心分離により、軽水素 (H_2) は、処理用タンク $T1 \sim T10$ 内で回転軸側の部分に集まり、トリチウム (T_2 、 TH) は、回転軸とは反対側の部分に集まる。つまり、軽水素 (H_2) とトリチウム (T_2 、 TH) とが、液状で分離される。

なお、電気分解の陰極側で回収された気体に重水素 (D_2 、 DH) が含まれていた場合、遠心分離により重水素 (D_2 、 DH) は、処理用タンク $T1 \sim T10$ 内で軽水素 (H_2) とトリチウム (T_2 、 TH) との間の部分に存在するようになる。

【0018】

次に、遠心分離後であって分離状態が保持されている間に、各処理用タンク $T1 \sim T10$ の回転軸側の部分の液状物を、各処理用タンク $T1 \sim T10$ 内の全液化物の $1 / 10$ となる量だけ取り出して (この量であれば、トリチウムを含まない液化軽水素 (H_2) のみが取

り出される)、液化軽水素 (H_2) の回収用タンク9に入れる。これが第四の工程である。これにより、10本の処理用タンクT1~T10にはそれぞれ1/10の空間Aが生じる。この時点での各処理用タンクT1~T10内の液化水素のトリチウム濃度 $[t_1]$ は $[t_0]$ より高くなっている。

【0019】

なお、この第四の工程における液化軽水素 (H_2) の取り出しの際には、処理用タンク内に存在する全ての液化軽水素 (H_2) を取り出そうとするのではなく、確実に液化軽水素 (H_2) のみを取り出せるよう、即ち、トリチウム (および重水素) は確実に処理用タンク内に残るようにすることが望ましく、理論的に回収可能な量の一部分 (例えば、半分の量) のみを取り出すという具合に、取り出し量を決めるべきである。

【0020】

11日目には、先ず、汚染水発生場所で一日に生じる量の汚染水を汚染水タンク1に入れる。次に、汚染水タンク1内の汚染水を電気分解装置2で電気分解する。次に、水素回収装置4で回収された気体 (H_2 、TH、 T_2) を液化装置5に導入して液化する。

次に、液化装置5のタンク52内に入っている液化水素 (H_2 、TH、 T_2 : トリチウム濃度 = $[t_0]$) を、1/10ずつ、10本の処理用タンクT1~T10の空間Aに入れる。これが第五の工程である。

次に、10本の処理用タンクT1~T10を回転台に載せて固定し、遠心分離する。つまり、第三の工程を行う。これにより、軽水素 (H_2) とトリチウム (T_2 、TH) とが、液状で分離される。

【0021】

次に、遠心分離後の各処理用タンクT1~T10からトリチウムを含まない液化軽水素 (H_2) を取り出して、液化軽水素 (H_2) の回収用タンク9に入れる。つまり、第四の工程を行う。これにより、10本の処理用タンクT1~T10にはそれぞれ1/10の空間Aが生じる。この時点での各処理用タンクT1~T10内の液化水素のトリチウム濃度 $[t_2]$ は $[t_1]$ より高くなっている。

12日目以降は、11日目と同様に、第五の工程を行うことと、第五の工程後の10本の処理用タンクT1~T10を用いて第三の工程および第四の工程を行うことと、を繰り返す。これにより、10本の処理用タンクT1~T10内の液化水素のトリチウム濃度は上昇していく。

【0022】

〔実施形態の作用、効果〕

この実施形態の汚染水処理方法によれば、トリチウム含有汚染水を電気分解して回収した水素 (軽水素およびトリチウム) の液化物を遠心分離するため、水の状態で遠心分離する方法や電気分解して回収した水素を気体のまま遠心分離する方法と比較して、汚染水からトリチウムを効率的に分離することができる。

また、回収した水素の液化物の遠心分離は、 $-235^{\circ}C$ という極低温状態で行う必要があるが、上述の処理用タンクに入れて回転台上に固定して回転させるという方法を採用することで、遠心分離装置全体を極低温に保持する方法を採用した場合よりも、遠心分離を容易に行うことができる。遠心分離装置全体を極低温に保持することは技術的に大きな困難を伴うものである。

【0023】

また、第四の工程後で空間Aが生じている10本の処理用タンクT1~T10に、液化装置5のタンク52内の液化水素を1/10ずつ入れる第五の工程を行うことと、第五の工程後の10本の処理用タンクT1~T10を用いて第三の工程および第四の工程を行うことと、を繰り返すことにより、10本の処理用タンクT1~T10内の液化水素のトリチウム濃度を上昇させていくため、使用する処理用タンクは10本のみとすることができる。つまり、処理用タンクを10本から増やすことなく汚染水の処理が行えるため、処理用タンクの設置場所を広げることなく、大量の汚染水を処理することが可能になる。

【0024】

[その他]

上記実施形態では、遠心分離で処理用タンク7内の液化物から取り出す液状の軽水素 (H_2) の割合を10%と仮定して、 $10 = (100 / 10)$ 個の処理用タンク7を用意し、1日目から9日目までは、遠心分離を行わず、液化装置5からの液化水素 (H_2 、 TH 、 T_2) で満たされた状態の処理用タンク7を10本得た10日目に、初めて遠心分離を行って10本の処理用タンクT1~T10に空間Aを生じさせ、11日目から、第五の工程を行うことと、第五の工程後の10本の処理用タンクT1~T10を用いて第三の工程および第四の工程を行うことと、を繰り返している。

【0025】

しかし、本発明の方法は上記実施形態の方法に限定されず、1日目から遠心分離を行ってもよい。つまり、1~10日目に、第一の工程で得られた液化水素を入れた各1個の処理用タンクT1~T10のみを用いて、第三の工程（遠心分離）および第四の工程（軽水素の取り出し）を行ってもよい。この場合でも、10日目には、それぞれ $1 / 10$ の空間Aが生じた10本の処理用タンクT1~T10が得られるため、11日目からは上記実施形態の方法と同様に処理を進めることができる。

【0026】

また、1日目には、1個の処理用タンクT1を用いて第三の工程（遠心分離）および第四の工程（軽水素の取り出し）を行って処理用タンクT1に空間Aを生じさせ、2日目以降は、1個の処理用タンクTnを用いて第三の工程（遠心分離）および第四の工程（軽水素の取り出し）を行って処理用タンクTnに空間Aを生じさせるとともに、前日に得られた空間Aを有する処理用タンクTn-1内に処理用タンクTn内の $1 / 10$ の液化水素を入れて、第三の工程（遠心分離）および第四の工程（軽水素の取り出し）を行うようにしてもよい。

【0027】

さらに、上記実施形態では、新たに発生したトリチウムを含む汚染水を処理することを前提としているが、本発明の方法は、これに限定されるものではなく、既に大量に貯蔵された汚染水の処理に適用することも可能である。即ち、一日に発生する汚染水の量よりも多い量を一日に処理できるよう、例えば、図1に示した汚染水処理装置を複数系統用意し、貯蔵された汚染水を処理する一方で、新たに発生した汚染水は貯蔵タンクに貯蔵するようになれば、貯蔵タンクに貯蔵されている汚染水は、処理量と発生量との差分だけ毎日減じていくことになり、貯蔵タンクを減らすという現実的な大量処理が可能となる。

【符号の説明】

【0028】

- 1 汚染水タンク
- 2 電気分解装置
- 3 酸素回収装置
- 4 水素回収装置
- 5 液化装置
- 5 1 配管
- 5 2 液化装置のタンク
- 6 液化水素の充填装置
- 6 1 配管
- 7 処理用タンク
- 8 遠心分離装置
- 9 軽水素回収タンク
- T 1 ~ T 1 0 処理用タンク

【書類名】特許請求の範囲

【請求項1】

トリチウム水 (T_2O 、 THO) を含む汚染水を電気分解して、陰極側で回収された軽水素 (H_2) およびトリチウム (T_2 、 TH) を含む気体を液化する第一の工程と、
前記第一の工程で得られた液化物を液状で保持可能な処理用タンクに入れる第二の工程と、

前記処理用タンクを回転台上に固定して回転させることにより前記液化物に遠心力を付与して、軽水素 (H_2) とトリチウム (T_2 、 TH) とを液状で分離する第三の工程と、

前記第三の工程で分離された液状の軽水素 (H_2) の少なくとも一部を前記処理用タンクから取り除く第四の工程と、

を有するトリチウム含有汚染水の処理方法。

【請求項2】

前記処理用タンク内の前記液化物における、前記第四の工程で取り除く液状の軽水素 (H_2) の割合 ($X\%$) に応じて、 $Y (= 100/X)$ 個の前記処理用タンクを用意し、

Y 個の前記処理用タンクを用いて、前記第二の工程、前記第三の工程、および前記第四の工程を行うことにより、前記第四の工程で前記軽水素が取り除かれた分の空間が生じた Y 個の前記処理用タンクを得、

前記空間が生じた Y 個の前記処理用タンクに前記第一の工程で得られた液化水素の $1/Y$ の量をそれぞれ入れる第五の工程を行うことと、前記第五の工程後の Y 個の前記処理用タンクを用いて前記第三の工程および前記第四の工程を行うことと、を繰り返すことにより、 Y 個の前記処理用タンク内の液化水素のトリチウム濃度を上昇させていく請求項1記載のトリチウム含有汚染水の処理方法。

【請求項3】

複数個の前記処理用タンクを用意し、

複数個の前記処理用タンクを用いて、前記第二の工程、前記第三の工程、および前記第四の工程を行うことにより、前記第四の工程で前記軽水素が取り除かれた分の空間が生じた複数個の前記処理用タンクを得、

前記空間が生じた複数個の前記処理用タンクに前記第一の工程で得られた液化水素をそれぞれ入れる第五の工程を行うことと、前記第五の工程後の複数個の前記処理用タンクを用いて前記第三の工程および前記第四の工程を行うことと、を繰り返すことにより、複数個の前記処理用タンク内の液化水素のトリチウム濃度を上昇させていく請求項1記載のトリチウム含有汚染水の処理方法。

【請求項4】

前記第一の工程で電気分解するトリチウム水を含む汚染水の量は、汚染水発生場所で一日に生じる量である請求項1乃至3のいずれか一項に記載のトリチウム含有汚染水の処理方法。

【請求項5】

トリチウム水を含む汚染水を電気分解して、陰極側の気体を回収する装置と、

前記装置で回収された陰極側の気体を液化する装置と、

前記液化する装置で得られた液化物を液状で保持可能な処理用タンクと、

前記処理用タンクを載せて固定する回転台を有する遠心分離装置と、

を有するトリチウム含有汚染水の処理装置。

【請求項6】

前記遠心分離装置で分離された軽水素 (H_2) の少なくとも一部を前記処理用タンクから取り出して入れる回収タンクを有する請求項5記載のトリチウム含有汚染水の処理装置

【書類名】要約書

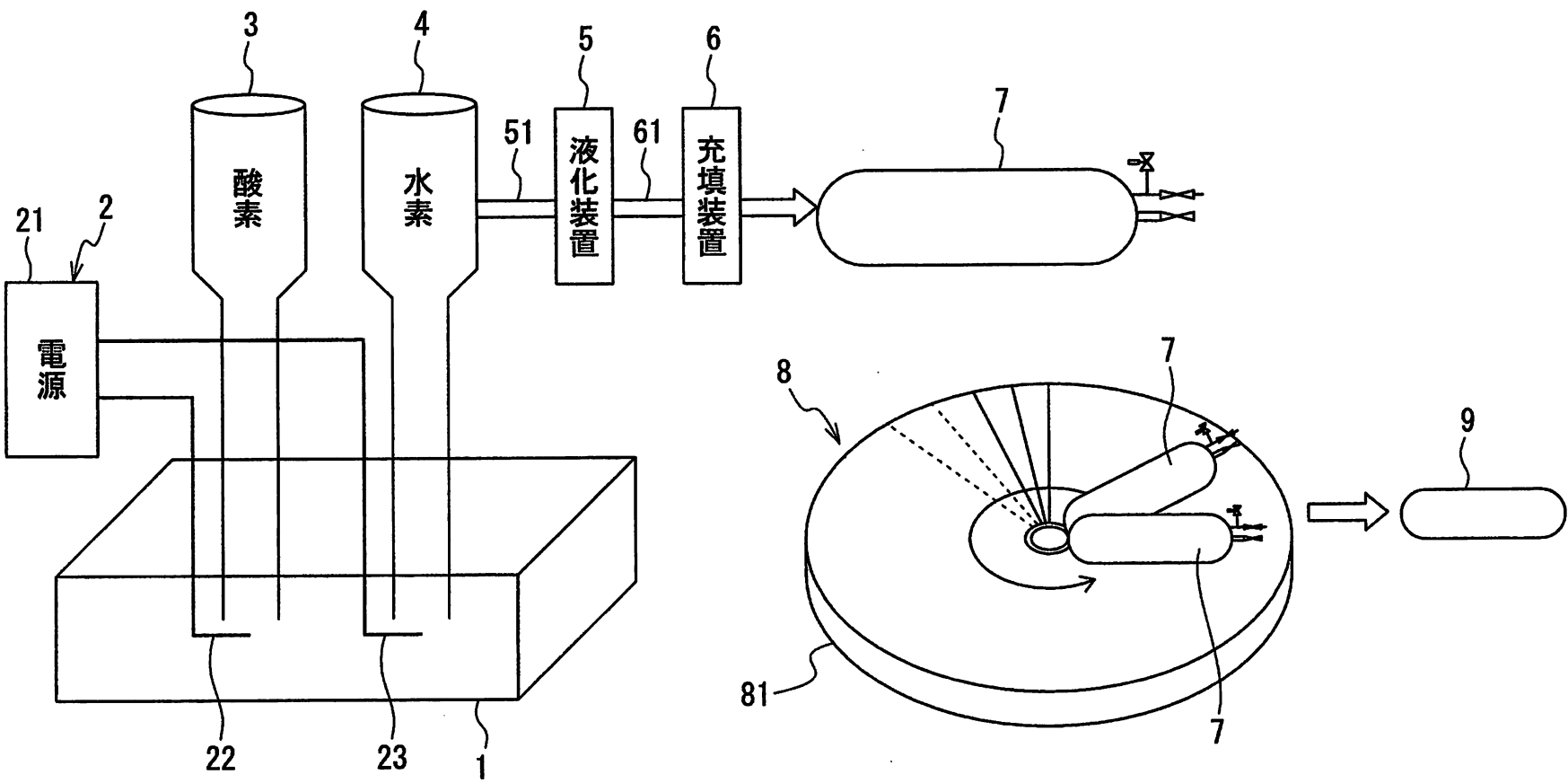
【要約】

【課題】トリチウム含有汚染水の処理方法として、汚染水からトリチウムを効率的に、且つ大量に分離できる方法を提供する。

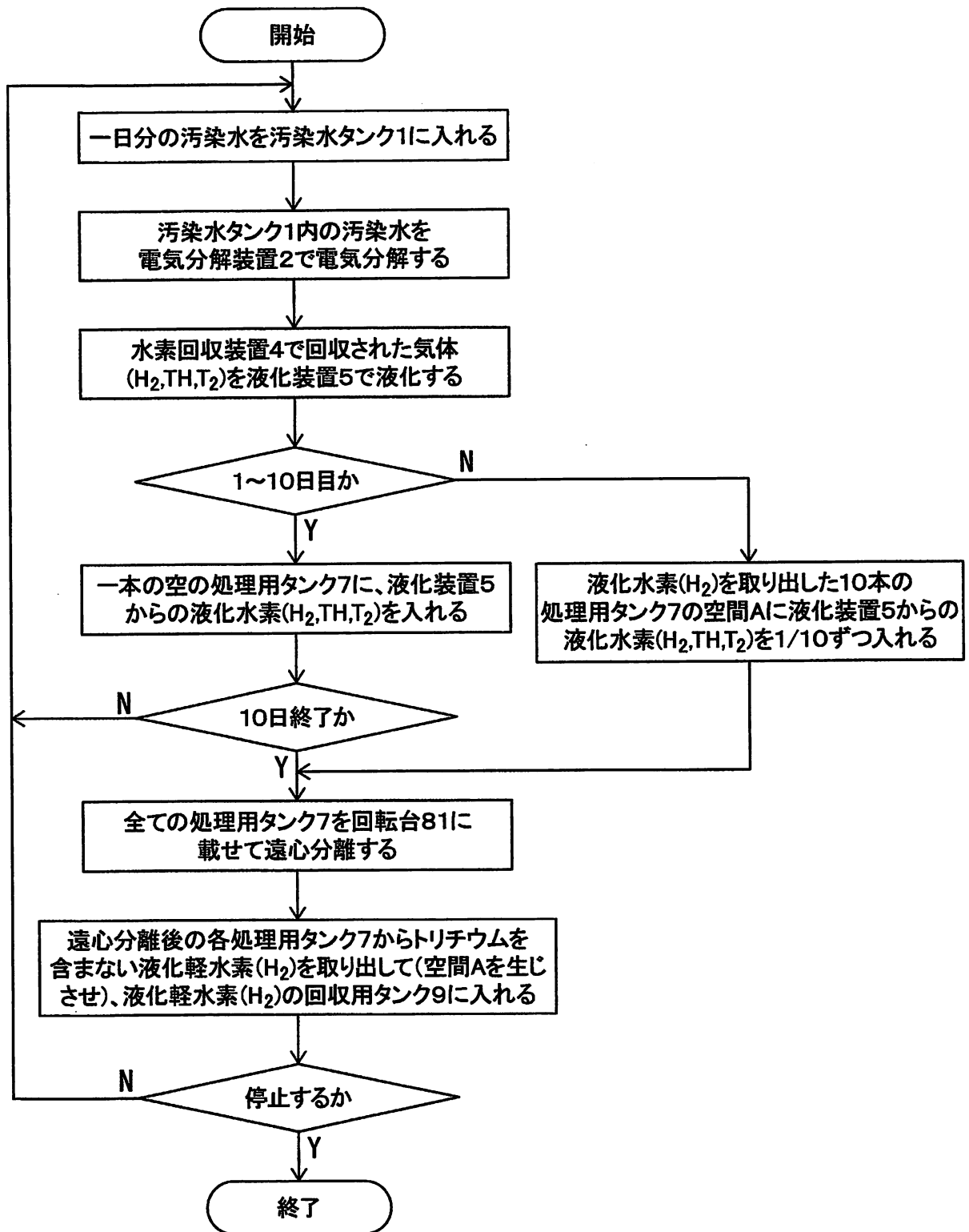
【解決手段】本発明のトリチウム含有汚染水の処理方法は、トリチウム水 (T_2O 、 THO) を含む汚染水を電気分解して、陰極側で回収された軽水素 (H_2) およびトリチウム (T_2 、 TH) を含む気体を液化する第一の工程と、前記第一の工程で得られた液化物を液状で保持可能な処理用タンクに入れる第二の工程と、前記処理用タンクを回転台上に固定して回転させることにより前記液化物に遠心力を付与して、軽水素 (H_2) とトリチウム (T_2 、 TH) とを分離する第三の工程と、前記第三の工程で分離された軽水素 (H_2) の少なくとも一部を前記処理用タンクから取り除く第四の工程と、を有する。

【選択図】図2

【書類名】図面
【図1】



【図2】



【図3】

