

令和 2 年 6 月 19 日現在

機関番号：82502

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K14905

研究課題名（和文）バイオリアクターを活用したトリチウム除去システムの高度化に関する研究

研究課題名（英文）Research on utilization of bioreactor for advancement of detritiation system

研究代表者

枝尾 祐希 (Edao, Yuki)

国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構・六ヶ所核融合研究所 ブランケット研究開発部・主任研究員（定常）

研究者番号：70633858

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,100,000円

研究成果の概要（和文）：トリチウム取扱施設のトリチウム除去システムでは、トリチウムガスを酸化して回収するために貴金属触媒を用いるが、室温、高湿度、低水素濃度の条件ではその触媒機能を失う。従来の貴金属触媒法の欠点を補う新たな手法として、土壤中の水素酸化細菌の水素酸化能力を利用したトリチウム酸化法の有用性を実験調査した。水素酸化細菌が通常貴金属触媒とは真逆の水素酸化特性、特に室温、高湿度、低濃度水素という通常の触媒が適さない条件でも効率的にトリチウムを酸化できる特性を持つことを明らかにし、水素酸化細菌を利用したトリチウム酸化手法の実用可能性を見出した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

土壤が有する水素酸化能力を工学的アプローチによりトリチウム除去システムへ応用するという新しい試みにおいて、水素酸化細菌が従来触媒のトリチウム酸化における弱点を補う特徴を持つことを明らかにし、その実用可能性を評価したことは、トリチウム除去システムの高度化に対して有益な成果であり、トリチウムの安全取扱技術の向上において意義があると考えられる。

研究成果の概要（英文）：A precious metal catalyst is used to oxidize gaseous tritium in catalytic reactors in a detritiation system in tritium handling facilities. A precious metal catalyst is deactivated in the conditions of room temperature, high moisture and a low concentration of hydrogen. As a complementary method of tritium oxidation to compensate defects of a conventional method using a precious metal catalyst, availability of a tritium oxidation method using hydrogen-oxidizing bacteria in natural soil was investigated experimentally. Experimental results clarified that hydrogen-oxidizing bacteria could oxidize tritium efficiently under a condition of room temperature, high moisture and a low concentration of hydrogen. This shows an opposite tendency to a precious metal catalyst. Furthermore, a practical feasibility of the method using hydrogen-oxidizing bacteria was found out.

研究分野：トリチウム理工学

キーワード：トリチウム 水素酸化 土壤 水素酸化細菌 触媒 トリチウム除去システム 核融合

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

核融合炉などの大量のトリチウムを取扱う施設は、トリチウムを環境に漏らさないよう多重に閉じ込める仕組みをもっており、万一、トリチウムガスが異常放出された場合でも、即時にトリチウムガスを回収し除去するトリチウム除去システムが備えられている。トリチウム除去システムでは、トリチウムガスを触媒で酸化した後、水蒸気の形で回収除去する。トリチウムの環境への漏洩防止のため、トリチウム除去システムはあらゆる状況で機能する必要がある。しかしながら、既存の触媒はトリチウムを効率的に酸化するために高温保持する必要があり、室温では雰囲気中水蒸気の影響を強く受けるためその酸化活性を失う。核融合炉のトリチウム除去システム設計においては室温かつ飽和水蒸気条件下で微量トリチウムの酸化が主要課題となっている。

そこで、室温かつ飽和水蒸気下でトリチウムを酸化する方法の一つとして、土壌中の水素酸化細菌に着目した。水素酸化細菌は、触媒酸化に最も不適な条件である室温・飽和水蒸気下を最適とし、微量のトリチウム酸化に対しても高い活性を示すことが期待できた。土壌中細菌の水素酸化に関する研究は、環境・生物の分野で多く見られるが、実際にトリチウムを酸化させる研究例は極めて限られていた。トリチウム除去効率の精査、速度論的評価、長期性能安定性の検証といった工学的アプローチによって、微生物を応用したトリチウム酸化反応器（バイオリアクター）実現に向けての研究開発には至っていなかった。

室温で水蒸気濃度に影響されず機能するバイオリアクターが実現できれば、既存トリチウム除去システムにおける高温の貴金属触媒が不要となり、簡素で低コストのシステムを構築することができる。

2. 研究の目的

本研究では、土壌中の水素酸化細菌のトリチウム除去システムへの適用性を検証するために水素酸化細菌を有する天然土壌のトリチウム酸化性能を実験的に調査し、トリチウム酸化に対する最適条件を精査することによりバイオリアクターの実用可能性を評価することを目的とする。バイオリアクターを活用することにより既存トリチウム酸化触媒の欠点を補完した高度なトリチウム除去システムを構築することを目指す。

3. 研究の方法

(1) 実験試料

バイオリアクターとして利用可能な水素酸化細菌を有する土壌として、事前調査により近隣から容易に入手可能な比較的高い酸化能力を持つ土壌を選定した。土壌試料は、雑草等の植物が生育する土壌の表層5cmから試料を採取した。比較対象として、市販の白金アルミナ触媒を試験対象とした。

土壌中の水素酸化細菌を微生物固定化担体に簡易的な方法で移行させるために、高活性の土壌に1ヶ月間曝し、水素酸化細菌を定着させた微生物固定化担体を実験試料とした。

(2) 土壌試料によるトリチウム酸化実験

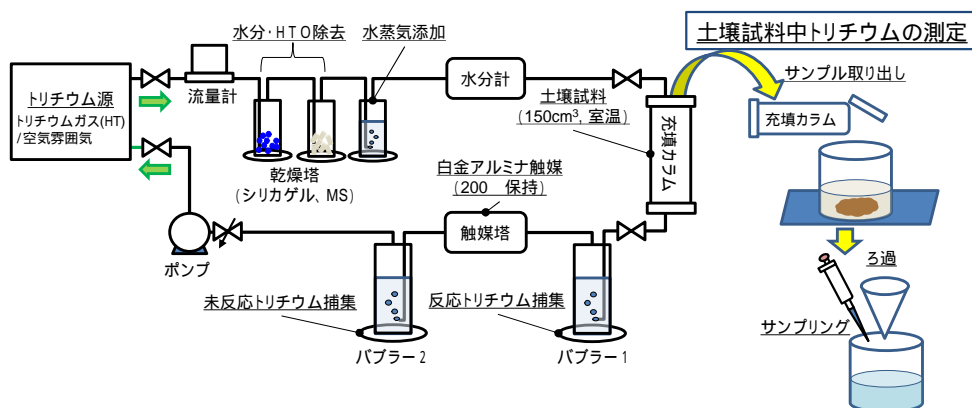


図1 トリチウム酸化実験装置概略図

天然採取した土壌試料についてトリチウムガスの酸化試験を行い、土壌のトリチウム酸化性能を評価した。実験装置概略図を図1に示す。土試料（150cm³）を詰めた充填カラムに所定濃度（0～10000ppm）の水素及び水蒸気（0～2.3%）を添加したトリチウムガス（0.01ppm）を含む空気を所定の流量（200～1200cm³/min）で流通した。土で酸化されたトリチウムの一部は水バブラーで回収した。土試料中に滞留したトリチウムは、土試料を精製水に浸しトリチウムを浸出させることにより回収した。土で酸化できなかったトリチウムガスは充填カラムの後段に設けた

250 の白金触媒に通し完全酸化させ水バブラーで回収した。回収したバブラー水中のトリチウム濃度は液体シンチレーションカウンターで測定した。土で酸化されたトリチウム量を全トリチウム回収量で割った値をトリチウム転化率として評価した。高活性を持つ代表的な土壌についてトリチウム酸化活性に影響すると考えられる水素濃度、水分濃度等の条件を変えてトリチウム酸化性能に関する実験データを取得した。

4. 研究成果

(1) 天然土壌のトリチウム酸化特性

室温・高湿度雰囲気下における天然土壌と白金アルミナ触媒のトリチウム転化率の比較(図2)から、室温、高湿度条件においては、一般の親水性白金アルミナ触媒はトリチウムを酸化できない。一方で、天然土壌は、同条件において流通させたトリチウムガスの70%程度を酸化した。天然土壌は室温、高湿度条件において高い酸化活性を示すことを実証でき期待どおりの結果が得られた。

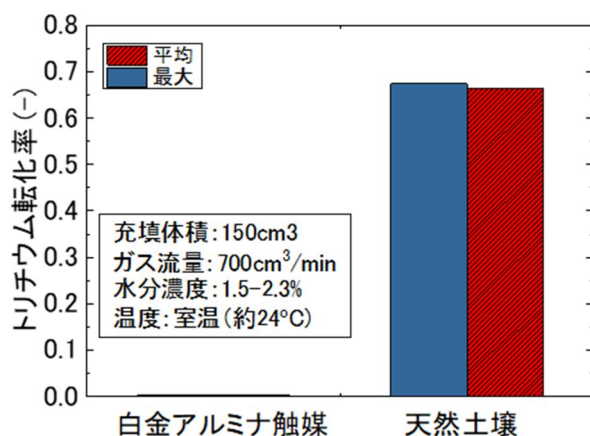


図2 室温・高湿度雰囲気下における天然土壌と白金アルミナ触媒のトリチウム転化率の比較
 (トリチウム転化率) = (試料が酸化したトリチウム量) / (試料を通過した全トリチウム量)

図3にトリチウムをトレーサーとして加え水素濃度を変化させた際の水素転化率の変化を示す。水素転化率は空気中の水素濃度と同じ濃度である0.5ppmにおいて最も高く、水素濃度が高くなるに従い低下し、0.1%以上の高濃度水素では一定化する傾向が確認できた。これは水素濃度が高いほど高い水素酸化性能を発揮する貴金属触媒とは真逆の傾向を示している。

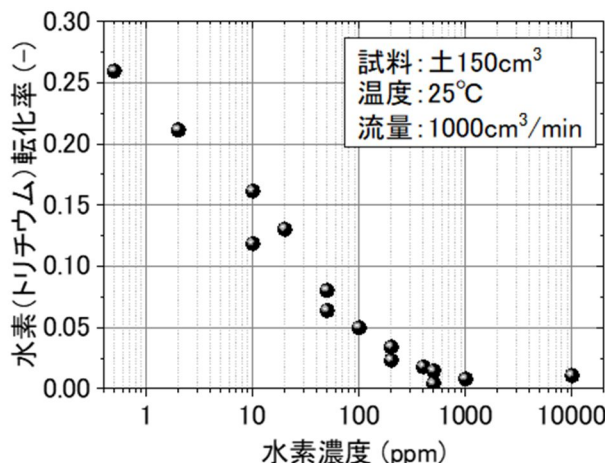


図3 天然土壌による水素転化率

土壌に乾燥ガスと湿潤ガスを流通させた場合の水素転化率の比較(図4)において、湿潤ガスの場合は水素転化率が低下しなかったが、乾燥ガスの場合は、経過時間と共に低下し、水素酸化活性を一時的に失うことがわかった。一度水素転化率が低下した土壌に適度な水分を加えると水

素酸化活性は回復した。本実験で使用した天然土壌の水分保持量は 20～35wt% であり採取した状況によって変化するが、土壌は水素酸化のために適度な水分を保持する必要があることがわかった。本結果も水分によって活性が低下する貴金属触媒とは真逆の傾向を示している。

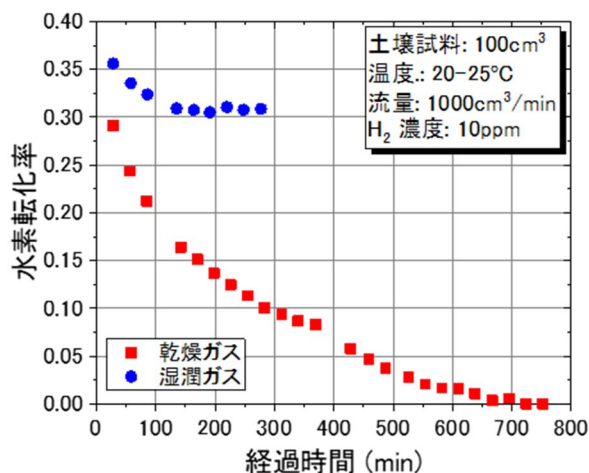


図4 水素酸化における土壌中水分影響

(2) 反応速度評価

土壌のトリチウム酸化反応について反応速度を評価した。トリチウム転化率が水素濃度に依存するという傾向(図3)から、土壌のトリチウム酸化における反応機構は水素を基質とし水素酸化細菌が酵素として働く Michaelis-Menten 型酵素反応であると考えられる。擬一次反応を仮定した反応速度式を用いて評価すると、図5に示すトリチウム転化率と流量の関係において、計算結果と実験結果は良い一致を得た。本解析によって総括反応速度定数は 0.13 s^{-1} と求めることができた。総括反応速度定数を用いることにより任意のトリチウム転化率を得るために必要な土壌の量を評価することが可能となる。

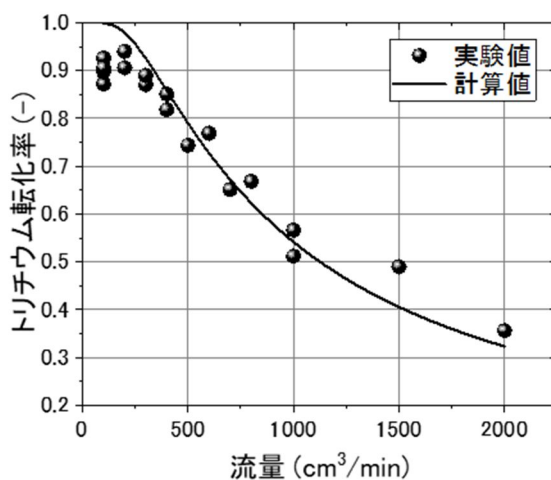


図5 土壌のトリチウム転化率の計算結果と実験結果の比較

(3) 天然土壌中に曝露した微生物担体によるトリチウム酸化

微生物固定化担体のトリチウム転化率は、土壌のそれに対して 15～25%程度であったが、極めて簡易的な固定化方法でもトリチウム酸化性能を確保できることが確認できた。水素酸化細菌等の固定化担体の最適化や培養技術によってさらなる向上が見込めることから水素酸化細菌のトリチウム酸化反応器への適用可能性を見出した。

(4) まとめ

トリチウム酸化において、土壌中水素酸化細菌は通常の貴金属触媒とは真逆の特性を示す。室温、低濃度水素、高湿度という通常の触媒が適さない条件で効率的な酸化を行える水素酸化細菌が既存トリチウム酸化触媒を補完する特性を持つことを明らかにし、水素酸化細菌を利用したトリチウム酸化手法の実用可能性を見出した。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Edao Yuki, Iwai Yasunori	4. 巻 76
2. 論文標題 Investigation on Characteristic of Tritium Oxidation by Natural Soils	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Fusion Science and Technology	6. 最初と最後の頁 135 ~ 140
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1080/15361055.2019.1704572	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 枝尾祐希
2. 発表標題 Investigation on Characteristic of Tritium Oxidation by Natural Soils
3. 学会等名 23rd Topical Meeting on the Technology of Fusion Energy (TOFE) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 枝尾祐希
2. 発表標題 土壌のトリチウム酸化特性
3. 学会等名 日本原子力学会2018年春の年会
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----