

(19)日本国特許庁(JP)

(12)特許公報(B1)

(11)特許番号

特許第7808376号  
(P7808376)

(45)発行日 令和8年1月29日(2026.1.29)

(24)登録日 令和8年1月21日(2026.1.21)

(51)Int. Cl.	F I
B 0 1 D 59/40 (2006.01)	B 0 1 D 59/40
C 2 5 B 1/02 (2006.01)	C 2 5 B 1/02
C 2 5 B 9/00 (2021.01)	C 2 5 B 9/00 Z
C 2 5 B 9/23 (2021.01)	C 2 5 B 9/23
C 2 5 B 11/052 (2021.01)	C 2 5 B 11/052

請求項の数 10 (全 11 頁) 最終頁に続く

(21)出願番号 特願2025-1736(P2025-1736)	(73)特許権者 505374783
(22)出願日 令和7年1月6日(2025.1.6)	国立研究開発法人日本原子力研究開発機構
審査請求日 令和7年10月28日(2025.10.28)	茨城県那珂郡東海村大字舟石川765番地1
(出願人による申告) 2023年度、国立研究開発法人科学技術振興機構、研究成果最適展開支援プログラム A-STEP「産学共同(育成型)」、課題名「量子トンネル効果を利用した常温・高分離能の重水素分離デバイスの開発」の委託事業、産業技術力強化法第17条の適用を受ける特許出願	(74)代理人 100097113 弁理士 堀 城之
早期審査対象出願	(74)代理人 100162363 弁理士 前島 幸彦
	(74)代理人 100194283 弁理士 村上 大勇
	(72)発明者 保田 諭 茨城県那珂郡東海村大字白方2番地4 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 先端基礎研究センター内

最終頁に続く

(54)【発明の名称】重水素回収装置、重水素回収方法

(57)【特許請求の範囲】

【請求項1】

水素(<sup>1</sup>H)と、前記水素の同位体である重水素とが混在した液体である原料水中の前記重水素を、前記原料水とは別の、水素を含む液体である回収水中に回収する重水素回収装置であって、

水素の正イオンを伝導させるプロトン伝導体で構成され、対向する2つの主面を具備するプロトン伝導層と、

前記プロトン伝導層における一方の前記主面に形成され、正側の電圧とされる第1触媒電極と、

前記プロトン伝導層における他方の前記主面に形成され、負側の電圧とされる第2触媒電極と、

を有する膜電極集合体を具備し、

前記第1触媒電極と前記原料水とが接するように前記第1触媒電極側に設けられた陽極室と、

前記第2触媒電極と前記回収水が接するように前記回収水が溜められる陰極室と、を具備し、

前記陽極室側から前記陰極室側にイオンとして流れた前記重水素が前記回収水との間の液相化学交換反応によって回収された後の前記回収水が、前記陰極室から取り出される構成とされ、

前記水素に対する前記重水素の濃度比が、前記原料水において、前記重水素の回収前に

おける前記回収水側よりも高く設定されたことを特徴とする重水素回収装置。

【請求項 2】

前記第 1 触媒電極はルテニウム (Ru)、イリジウム (Ir) のいずれかである貴金属、あるいは当該貴金属が含まれる合金、又は酸化イリジウム ( $\text{IrO}_2$ )、酸化ルテニウム ( $\text{RuO}_2$ ) のいずれかからなる粒子を含むことを特徴とする請求項 1 に記載の重水素回収装置。

【請求項 3】

前記第 2 触媒電極は、白金 (Pt)、パラジウム (Pd)、ルテニウム (Ru)、ロジウム (Rh)、イリジウム (Ir)、金 (Au) のいずれかである貴金属、あるいは当該貴金属が含まれる合金からなる粒子を含むことを特徴とする請求項 1 に記載の重水素回収装置。

10

【請求項 4】

前記重水素を回収後の前記回収水が、前記陰極室から前記陽極室に輸送されて前記原料水と混合される構成とされたことを特徴とする請求項 1 又は 2 に記載の重水素回収装置。

【請求項 5】

前記重水素は二重水素 ( $^2\text{H}$  あるいは D)、又は三重水素 ( $^3\text{H}$  あるいは T) であることを特徴とする請求項 1 又は 2 に記載の重水素回収装置。

【請求項 6】

水素 ( $^1\text{H}$ ) と、前記水素の同位体である重水素とが混在した液体である原料水中の前記重水素を、前記原料水とは別の、水素を含む液体である回収水中に回収する重水素回収方法であって、

20

水素の正イオンを伝導させるプロトン伝導体で構成され、対向する 2 つの主面を具備するプロトン伝導層と、

前記プロトン伝導層における一方の前記主面に形成された第 1 触媒電極と、

前記プロトン伝導層における他方の前記主面に形成された第 2 触媒電極と、

を有する膜電極集合体を用い、

前記第 1 触媒電極と前記原料水とが接し、前記第 2 触媒電極と前記回収水が接する状態で、前記第 1 触媒電極を正側、前記第 2 触媒電極を負側として電圧を印加し、

前記第 1 触媒電極側から前記第 2 触媒電極側にイオンとして流れた前記重水素が前記回収水との間の液相化学交換反応によって回収された後の前記回収水を取り出し、

30

前記水素に対する前記重水素の濃度比を、前記原料水において、前記重水素の回収前における前記回収水側よりも高く設定することを特徴とする重水素回収方法。

【請求項 7】

前記第 1 触媒電極はルテニウム (Ru)、イリジウム (Ir) のいずれかである貴金属、あるいは当該貴金属が含まれる合金、又は酸化イリジウム ( $\text{IrO}_2$ )、酸化ルテニウム ( $\text{RuO}_2$ ) のいずれかからなる粒子を含むことを特徴とする請求項 6 に記載の重水素回収方法。

【請求項 8】

前記第 2 触媒電極は、白金 (Pt)、パラジウム (Pd)、ルテニウム (Ru)、ロジウム (Rh)、イリジウム (Ir)、金 (Au) のいずれかである貴金属、あるいは当該貴金属が含まれる合金からなる粒子を含むことを特徴とする請求項 6 又は 7 に記載の重水素回収方法。

40

【請求項 9】

前記重水素を回収後の前記回収水を、前記第 2 触媒電極側から前記第 1 触媒電極側に輸送して前記原料水と混合することを特徴とする請求項 6 又は 7 に記載の重水素回収方法。

【請求項 10】

前記重水素は二重水素 ( $^2\text{H}$  あるいは D)、又は三重水素 ( $^3\text{H}$  あるいは T) であることを特徴とする請求項 6 又は 7 に記載の重水素回収方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

50

## 【0001】

本発明は、水素 ( $^1\text{H}$ ) と重水素が混在する中で重水素を選択的に回収する重水素回収装置、重水素回収方法に関する。

## 【背景技術】

## 【0002】

天然に存在する水や水素ガス等を構成する水素の安定同位体として、質量数が1である(原子核が1個の陽子のみからなる)水素 $^1\text{H}$ (以下、H)と、質量数が2である(原子核が1個の陽子と1個の中性子からなる)重水素 $^2\text{H}$ (以下、D)があり、Dの存在比率はHに比べて圧倒的に小さい。H、Dの化学的性質はほぼ同様であるが、原子力分野や半導体製造分野においては、Dが特に有効となる用途が知られている。このため、HとDが混在する水や水素ガスの中から特にDを選択的に回収する(分離する)技術が求められている。ただし、HとDを瞬時に完全に分離することは実質的には不可能であるため、実際にはこれらが混在する物質(水、水素ガス等)に対して、いずれか一方(特にD)の濃度が高くなるような処理が分離のために行われる。

10

## 【0003】

液体である水の中におけるHとDを分離するための手法として、電解法が知られている。電解法においては、水が電気分解される際におけるH(軽水)とD(重水)の分解速度差等によって、これらが分離される。この場合、この水中のHを水素ガス( $\text{H}_2$ )として取り出すと共に、Dを水(重水)として取り出すことによって、Dが回収される。この原理より、電解法を用いた重水素回収装置の基本的構成は、水電解によって水素ガスを生成する水素生成装置と共通であり、水素ガスを高効率で生成できれば、Dも同時に高効率で回収される。

20

## 【0004】

このような水素生成装置の構成は、例えば非特許文献1に記載されている。水素生成装置の代表的な形態のうち、重水素回収装置としても適用可能な型としては、アルカリ水電解型とPEM(polymer electrolyte membrane: 高分子電解質膜)型がある。

## 【0005】

アルカリ水電解装置においては、水素ガス及びDの原料となる水は、アルカリ水溶液の形で用いられ、これが電気分解されるのに対し、PEM型電解装置においては、原料となる水はそのままの形で用いられる。PEM型電解装置においては、水素イオンを通過させる高分子電解質膜(PEM)が用いられ、水素ガスから電力を発生させる燃料電池と同様の構造を具備し、燃料電池とは逆に電極に電圧を印加することによって水素ガスを発生させる。

30

## 【0006】

PEM型電解装置の構成は、例えば特許文献1に記載されており、ここでは、水素イオンを伝導させるPEMの両面に、イリジウム(Ir)、ルテニウム(Ru)、白金(Pt)等の貴金属やこれらの貴金属を含む合金、これらの酸化物( $\text{IrO}_2$ 、 $\text{RuO}_2$ 等)を含む触媒からなる電極が形成され、一方が正側、他方が負側とされる。この構成によって、正側の触媒電極に水を当接させれば、負側の触媒電極で水素ガスが生成され、Dも抽出される。実際には触媒電極/PEM/触媒電極の構造は、膜電極集合体として一体化されて形成することができる。このような膜電極集合体は、陽極(入力)側を液体(水)とする場合だけでなく、特許文献2に記載されるように、入力側をH、Dが混在した気体(水素ガス)とし、陰極(出力)側でDを回収する装置においても、同様に用いられる。

40

## 【先行技術文献】

## 【非特許文献】

## 【0007】

【非特許文献1】「水素関連プロジェクトの今後の取組みに関する提言」水素関連プロジェクトの今後の取組みに関する提言(経済産業省)、2022年12月19日: [https://www.meti.go.jp/shingikai/energy\\_environment/2050\\_carbon\\_neutral/pdf/001\\_04\\_00.pdf](https://www.meti.go.jp/shingikai/energy_environment/2050_carbon_neutral/pdf/001_04_00.pdf)

50

f

【特許文献】

【0008】

【特許文献1】特許第7378005号

【特許文献2】特開2024-76690号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0009】

アルカリ水電解装置を用いた重水素回収装置においては、高い水素生成能力に伴い、高いDの回収効率が得られたのに対して、PEM型電解装置を用いた重水素回収装置においては、これよりも低い回収効率しか得られなかった。一方、アルカリ水電解装置は、溶液を作るためのアルカリ電解質やこれに伴う設備が必要であること、陽極側で生成された酸素ガスと陰極側で生成された酸素ガスが反応をする可能性がありその対策も必要であること、という欠点があった。これに対して、PEM型電解装置においては、その構造が単純であり、電解質を原料水に投入する必要がなくそのまま供給できること、かつ陽極側と陰極側はガスの通過が困難なPEMで仕切られるためにこのようなガスの反応は発生しにくく、装置全体の構造を単純化できるという利点がある。

10

【0010】

このため、高効率で重水素を回収するPEM型の装置が求められた。

【0011】

本発明は、かかる問題点に鑑みてなされたものであり、上記問題点を解決する発明を提供することを目的とする。

20

【課題を解決するための手段】

【0012】

本発明は、上記課題を解決すべく、以下に掲げる構成とした。

本発明の重水素回収装置は、水素( $^1\text{H}$ )と、前記水素の同位体である重水素とが混在した液体である原料水中の前記重水素を、前記原料水とは別の、水素を含む液体である回収水中に回収する重水素回収装置であって、水素の正イオンを伝導させるプロトン伝導層で構成され、対向する2つの主面を具備するプロトン伝導層と、前記プロトン伝導層における一方の前記主面に形成され、正側の電圧とされる第1触媒電極と、前記プロトン伝導層における他方の前記主面に形成され、負側の電圧とされる第2触媒電極と、を有する膜電極集合体を具備し、前記第1触媒電極と前記原料水とが接するように前記第1触媒電極側に設けられた陽極室と、前記第2触媒電極と前記回収水が接するように前記回収水が溜められる陰極室と、を具備し、前記陽極室側から前記陰極室側にイオンとして流れた前記重水素が前記回収水との間の液相化学交換反応によって回収された後の前記回収水が、前記陰極室から取り出される構成とされ、前記水素に対する前記重水素の濃度比が、前記原料水において、前記重水素の回収前における前記回収水側よりも高く設定されたことを特徴とする。

30

前記第1触媒電極はルテニウム( $\text{Ru}$ )、イリジウム( $\text{Ir}$ )のいずれかである貴金属、あるいは当該貴金属が含まれる合金、又は酸化イリジウム( $\text{IrO}_2$ )、酸化ルテニウム( $\text{RuO}_2$ )のいずれかからなる粒子を含んでもよい。

40

前記第2触媒電極は、白金( $\text{Pt}$ )、パラジウム( $\text{Pd}$ )、ルテニウム( $\text{Ru}$ )、ロジウム( $\text{Rh}$ )、イリジウム( $\text{Ir}$ )、金( $\text{Au}$ )のいずれかである貴金属、あるいは当該貴金属が含まれる合金からなる粒子を含んでもよい。

前記重水素を回収後の前記回収水が、前記陰極室から前記陽極室に輸送されて前記原料水と混合される構成とされてもよい。

前記重水素は二重水素( $^2\text{H}$ あるいはD)、又は三重水素( $^3\text{H}$ あるいはT)であってもよい。

本発明の重水素回収方法は、水素( $^1\text{H}$ )と、前記水素の同位体である重水素とが混在した液体である原料水中の前記重水素を、前記原料水とは別の、水素を含む液体である回

50

収水中に回収する重水素回収方法であって、水素の正イオンを伝導させるプロトン伝導体で構成され、対向する2つの主面を具備するプロトン伝導層と、前記プロトン伝導層における一方の前記主面に形成された第1触媒電極と、前記プロトン伝導層における他方の前記主面に形成された第2触媒電極と、を有する膜電極集合体を用い、前記第1触媒電極と前記原料水とが接し、前記第2触媒電極と前記回収水が接する状態で、前記第1触媒電極を正側、前記第2触媒電極を負側として電圧を印加し、前記第1触媒電極側から前記第2触媒電極側にイオンとして流れた前記重水素が前記回収水との間の液相化学交換反応によって回収された後の前記回収水を取り出し、前記水素に対する前記重水素の濃度比を、前記原料水において、前記重水素の回収前における前記回収水側よりも高く設定することを特徴とする。

10

前記第1触媒電極はルテニウム (Ru)、イリジウム (Ir) のいずれかである貴金属、あるいは当該貴金属が含まれる合金、又は酸化イリジウム ( $\text{IrO}_2$ )、酸化ルテニウム ( $\text{RuO}_2$ ) のいずれかからなる粒子を含んでもよい。

前記第2触媒電極は、白金 (Pt)、パラジウム (Pd)、ルテニウム (Ru)、ロジウム (Rh)、イリジウム (Ir)、金 (Au) のいずれかである貴金属、あるいは当該貴金属が含まれる合金からなる粒子を含んでもよい。

前記重水素を回収後の前記回収水を、前記第2触媒電極側から前記第1触媒電極側に輸送して前記原料水と混合してもよい。

前記重水素は二重水素 ( $^2\text{H}$  あるいは D)、又は三重水素 ( $^3\text{H}$  あるいは T) であってもよい。

20

#### 【発明の効果】

#### 【0013】

本発明は以上のように構成されているので、PEM型の構成を用いて、高効率で重水素を回収することができる。

#### 【図面の簡単な説明】

#### 【0014】

【図1】本発明の実施の形態に係る水素同位体回収装置の構成を示す図である。

【図2】本発明の実施の形態に係る水素同位体回収装置の実施例、比較例における重水素の分離能を実測した結果である。

#### 【発明を実施するための形態】

#### 【0015】

以下、本発明の実施の形態に係る重水素回収装置、重水素回収方法について説明する。この重水素回収装置は、HとDが混在する原料水中のDを選択的に回収して水中に取り込んで回収する。これによって、Dを高濃度で有する (D/Hの存在比が高い) 水を得ることができる。

#### 【0016】

この重水素回収装置、重水素回収方法においては、特許文献2に記載された装置と同様に、膜電極集合体 (MEA: Membrane Electrode Assembly) が基本的な構成要素として用いられる。図1は、この重水素回収装置1の構成を模式化して示す図である。この構成においては、直流電圧が印加される2つの電極 (第1触媒電極11、第2触媒電極12) と、これらに挟まれるプロトン伝導層20が組み合わされたMEA10が用いられる。ここでは、第1触媒電極11・第2触媒電極12間には直流電圧が印加され、第1触媒電極11側が正とされ、第2触媒電極12側が負とされる。

40

#### 【0017】

プロトン伝導層20を構成する材料としては、例えばナフィオン (Nafion: 登録商標) 等、Hイオン、Dイオンの伝導体 (プロトン伝導体) を用いることができる。これらのイオンがプロトン伝導層20を図中左側から右側に流れ、第2触媒電極12で再び酸化反応を生じる。プロトン伝導層20の厚さは、例えば  $25\ \mu\text{m} \sim 200\ \mu\text{m}$  の範囲とされる。

#### 【0018】

50

第1触媒電極11としては、水の電気分解に寄与する触媒材料として、イリジウム(Ir)やルテニウム(Ru)等の貴金属やこれらを含む合金、あるいはこれらの酸化物(IrO<sub>2</sub>、RuO<sub>2</sub>等)が知られ、例えば酸化イリジウム(IrO<sub>2</sub>)が用いられる。第2触媒電極12としては、後述するLPCER反応に寄与する触媒材料として、例えば白金(Pt)、パラジウム(Pd)、ルテニウム(Ru)、ロジウム(Rh)、イリジウム(Ir)、金(Au)等の貴金属、あるいはこれらの貴金属が含まれる合金が用いられる。どちらの電極においても、触媒として機能する上記の材料を、電極と触媒としての機能を両立させるような形態としたものが用いられる。第2触媒電極12としては、上記の材料で構成された粒子(例えばPtナノ粒子(粉末))をカーボン系材料に担持させ、Ptの表面積を大きくして触媒作用を高めるような形態としたもの(Pt/C)が用いられる。この場合、触媒(Pt等)の含有量は0.1~2.0mg/cm<sup>2</sup>程度とすることが好ましい。第1触媒電極11においても、上記の材料で同様の形態としたものを用いることができる。

10

**【0019】**

上記の構成は、特許文献2に記載の技術と同様である。ただし、ここでは、第1触媒電極11と接する側、第2触媒電極12と接する側の構成が、これとは大きく異なる。

**【0020】**

図1において、第1触媒電極11側は、回収されるべき重水素(D)が水素(H)と共に水の形態として存在する液体(原料水W0))して供給される陽極室31とされる。原料水W0においては、H、Dは、H<sub>2</sub>O、HDO、D<sub>2</sub>O等の形態で含まれ、この原料水W0は、導入口31Aから導入される。この原料水W0が、このこの重水素回収装置1によって電気分解される。このため、処理が進むに従って原料水W0の量は減少し、これに伴って酸素(O<sub>2</sub>)ガスが生成され、陽極室31中で、残存する原料水W0と、酸素ガスを含む気体は分離されて存在する。残存する原料水W0は排出口31Bから、気体成分は排出口31Cから排出される。

20

**【0021】**

一方、第1触媒電極11による水の分解によって生成されたH、Dは、イオン(正イオン)化してプロトン伝導層20中を第2触媒電極12側に流れ、この第2触媒電極12の表面で、H<sub>2</sub>、HD、D<sub>2</sub>等の気体(水素ガス)となる。

**【0022】**

図1において、第2触媒電極12側は、原料水W0とは別の水(回収水W1)が第2触媒電極12と接した状態で溜められる陰極室32とされる。このため、陰極室32には、水が投入される導入口32Aと、水(液体)が排出される排出口32Bが設けられる。また、陰極室32内で生成された気体成分を排出する排出口32Cも、排出口32Bとは別に設けられる。

30

**【0023】**

この重水素回収装置1においては、陰極室32内の反応によって、H、DのうちD成分が主に回収水W1中に優先的に取り込まれ、H成分は気体として除去される。これによって、Dをこの水中に回収することができる。

**【0024】**

この原理について説明する。まず、図1において、陰極室32内に回収水W1が導入されない場合、第2触媒電極12(触媒)上で、第2触媒電極12まで移動したH、Dによって、H<sub>2</sub>、HD、D<sub>2</sub>が気体として形成される。一方、陰極室32に回収水W1が導入されない場合でも、Hイオン、Dイオンの流れに伴い、実際には陽極室31中の原料水W0の一部が浸透流(浸透水)として、僅かに陰極室32側に流れる。このため、実際には、陰極室32内には気体成分であるH<sub>2</sub>、HD、D<sub>2</sub>と、液体成分である少量のH<sub>2</sub>O、HDO、D<sub>2</sub>Oが存在する。ただし、このような液体成分が第2触媒電極12上に存在する場合、気体成分はその中の小さな気泡(ナノバブル)として生成されて存在し、このナノバブル内では、その周囲の液体(水)成分が水蒸気として存在する。このため、上記の気体成分とこの水蒸気との反応が発生しうる。

40

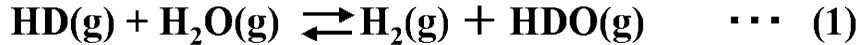
50

## 【 0 0 2 5 】

ここで、上記のように気体として存在するHDと水蒸気として存在するH<sub>2</sub>Oとの間には、以下の反応式(1)で示される反応(気相化学交換反応：VPCE反応)が発生する。

## 【 0 0 2 6 】

## 【数1】



## 【 0 0 2 7 】

ここで、(g)は気相であることを示す。左辺のHD(g)は、原料水W0から供給され触媒上で生成された成分であり、左辺のH<sub>2</sub>O(g)は、前記の浸透水から生成された成分である。実際には反応式(1)における左辺から右辺への反応と、右辺から左辺への反応が同時に発生することによって、平衡状態となる。

## 【 0 0 2 8 】

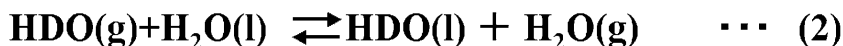
右辺において生成されたHDO(g)中のDは左辺のHD(g)中のDであり、このHDO(g)は、左辺のH<sub>2</sub>O(g)中の一つのHがDに置換されて生成される。一方、左辺のHD(g)中のHは、右辺では上記でDと置換されたH<sub>2</sub>O(g)中のHと結合してH<sub>2</sub>(g)となる。このため、反応式(1)において、左辺から右辺への反応が優勢の状態では平衡状態となれば、右辺のHDO(g)が生成され、このHDO(g)をH<sub>2</sub>(g)と分離して抽出すれば、この中には原料水W0中のHD(g)中のDが取り込まれ、かつHD(g)中のHは除去されるため、結局、左辺から右辺への反応によって、左辺のHD(g)中のHとDが分離される。特許文献2に記載の技術においては、原料が気体として供給されるものの、DとHを分離する原理はこれと同様である。すなわち、陰極室32中におけるVPCE反応を用いてDを回収することができる。

## 【 0 0 2 9 】

ここで、反応式(1)の右辺のHDO(g)は、液体のH<sub>2</sub>Oが存在すると以下の反応式(2)で示される反応を生ずる。

## 【 0 0 3 0 】

## 【数2】



## 【 0 0 3 1 】

ここで、(l)は液相であることを示す。左辺におけるHDO(g)は反応式(1)の右辺におけるものであり、H<sub>2</sub>O(l)は、前記の浸透水に対応する。この場合において、左辺のHDO(g)とH<sub>2</sub>O(l)は、それぞれ右辺のHDO(l)とH<sub>2</sub>O(g)に相変化する。この反応式(1)と反応式(2)の反応を合わせた反応が、液相化学交換反応(LPCE反応)となる。

## 【 0 0 3 2 】

この場合、反応式(2)の右辺の液相のHDO(l)には、反応式(1)の左辺のHD(g)中におけるDが取り込まれる一方、このHD(g)中のHは反応式(1)の右辺のH<sub>2</sub>(g)として除去される。このため、反応式(1)の左辺から右辺への反応が優勢となる場合にはDをHDO(g)として回収することができるのに対して、この反応に加えて反応式(2)の左辺から右辺への反応が優勢となる場合には、DをHDO(l)として回収することができる。

## 【 0 0 3 3 】

このHDO(l)は、具体的には、Dが取り込まれた後の前記の浸透水(左辺のH<sub>2</sub>O(l)に対応)である。Dが取り込まれる前の浸透水は実際には陽極室31中の原料水W0の一部であるため、反応式(2)によってDが取り込まれる前のそのD濃度は原料水W0と等しい。すなわち、上記の反応式(1)(2)を用いて、原料水W0中のDを、原料

10

20

30

40

50

水W0よりもD濃度が高められた水として回収することができる。

【0034】

なお、反応式(1)においては、左辺においてDはHD(g)の形態のみで存在している。しかしながら、例えばD<sub>2</sub>(g)が存在し、反応式(1)の左辺におけるHD(g)がD<sub>2</sub>(g)に置換された場合、右辺のH<sub>2</sub>(g)はHD(g)に置換される。この場合、このHD(g)が反応式(1)の左辺のHD(g)となり、結局、この場合でも反応式(1)の反応が実現される。すなわち、D<sub>2</sub>に対しても、同様に気相化学交換反応、液相化学交換反応が生ずる。

【0035】

ここで、発明者は、反応式(1)と反応式(2)の左辺から右辺への反応は、左辺のH<sub>2</sub>O(l)が含まれる水のD濃度に大きく依存することを知見した。具体的には、図1において、前記の浸透水とは別に陰極室32に導入される回収水W1のD濃度を低くすることによって、反応式(1)と反応式(2)の左辺から右辺への反応を優勢として、多くのHDO(l)を生成することができる。

10

【0036】

以下に、この点についての実験結果について説明する。図1の構成において、全ての実施例及び比較例について、使用されたMEAは共通とされた。プロトン伝導層20としては商品名Nafion 212(ケマーズ社)が用いられ、第1触媒電極11としては酸化物に担持したIrO<sub>2</sub>触媒を1.0mg/cm<sup>2</sup>(Ir重量)を電極として用い、第2触媒電極12としては、前記のPt/C触媒を0.5mg/cm<sup>2</sup>(Pt重量)を用いた。第1触媒電極11と第2触媒電極12の電位差はおよそ2Vとされた。反応時の温度は室温(23)とされた。

20

【0037】

原料水W0としては、45mlのH<sub>2</sub>Oと5mlのD<sub>2</sub>Oの混合水(D濃度(DとHの総和に対するDのモル濃度)で10%)が用いられた。一方、陰極室32に導入される回収水W1として、D濃度を0.015%(以下ではこの場合を0%とする)(実施例1)、5%(実施例2)、10%(比較例1)、20%(比較例2)とした水を用いた。

【0038】

上記の反応式(1)(2)によれば、陰極室32で発生するHの量は、液中に回収されたDの量を反映する。ここで評価の対象とされた気体は、陰極室32で発生したH<sub>2</sub>、HD、D<sub>2</sub>といった気体であり、このHとDの割合であるH/DをR2とし、原料水W0中に含まれるH<sub>2</sub>O、HDO、D<sub>2</sub>OといったHとDの割合H/DをR1とし、 $R2/R1$ を算出した。 $R2/R1 = 1$ ( $R1 = R2$ )の場合には、陽極室31側(入力側)のHとDの割合と陰極室32側(出力側)の気体のHとDの割合が同じであることを意味し、すなわちH/D比が変わらず、陰極室32側(出力側)の液体(水)において少なくとも選択的にDが取り込まれていないことを意味する。一方、 $R2/R1 > 1$ の場合には、陰極室32で、気中におけるD濃度が原料水W0よりも低下していることを意味し、この場合には逆に液中でD濃度が高まっていることを意味する。このため、上記の $R2/R1$ を、Dの回収率の指標(分離能)とすることができる。

30

【0039】

また、ここでは、実施例2、比較例1、2においては、陰極室32に投入される回収水W1中のD濃度が5%、10%、20%とされた。この場合においては、測定時における液中のD濃度の絶対値は元のD濃度に応じて大きく異なるが、前記の $R2/R1$ を用いた評価においては、新たに液中に取り込まれるDのみが評価されるため、同様に $R2/R1$ を用いた評価は有効である。

40

【0040】

また、比較例3として、回収水W1を導入しない場合の結果も測定した。比較例3においては、原料水W0とD濃度が等しい浸透水のみが存在する。

【0041】

図2は、上記の比較例、実施例の $R2/R1$ を測定した結果である。この結果より、回収水W1

50

中のD濃度が低い場合において特に高い分離能 が得られることが明らかである。これは、回収水W1中のD濃度が低いほど反応式(1)と反応式(2)における左辺から右辺への反応が優勢となることを示す。比較例3(回収水W1を用いない場合)と比較例1(回収水W1と原料水W0のD濃度が等しい場合)の結果は同等である。回収水W1のD濃度が原料水W0のD濃度よりも低い比較例2においては、比較例3(回収水W1を用いない場合)よりも分離能 は低くなった。

【0042】

ただし、図2においては、全ての比較例、実施例で  $> 1$  となっている。これは、全ての比較例、実施例において、回収水W1側で、原料水W0よりもD濃度が高められたことを意味する。

【0043】

すなわち、図1の構成において、陽極室31中に原料水W0を導入し、陰極室32中に回収水W1を導入した場合、回収水W1(回収する側)のD濃度が原料水W0(回収される側)より高い場合でも回収水W1中にDを回収することができるものの、回収水W1としてD濃度が原料水W0よりも低い水を用いることにより、特に高効率でDを回収することができる。

【0044】

この場合、反応の進行に伴い、陽極室31中で原料水W0は電気分解されて減少する。一方、Dが回収されたためにD/H比が高められた回収水W1を陽極室31に追加して新たな原料水W0とし、陰極室32に新たにD濃度の低い回収水W1を導入することができる。この操作によれば、原料水W0のD濃度は反応前よりも高くなる。この状態で再度同様に反応を行わせれば、原料水W0のD濃度と回収水W1のD濃度の差は前回の反応時よりも大きくなるため、Dの回収効率を前回よりも大きくすることができ、反応後の回収水W1のD濃度を更に高めることができる。

【0045】

すなわち、上記の重水素回収装置1においては、原料側、回収側で共に液体(水)が用いられるために、反応後の回収水W1を、反応後に減少した原料水W0側の水に追加し、D濃度の低い新たな回収水W1を陰極室32に導入して再度反応を行わせれば、更に高効率でDの回収を行わせることができる。この操作は適宜繰り返すことができ、これによって、最終的にD濃度が高い回収水W1を得ることができる。

【0046】

この場合、このように回収水W1を原料側に戻すタイミングは、原料水W0のD濃度や、最終的に要求される回収水W1のD濃度等に応じて、適宜設定することができる。すなわち、上記の重水素回収装置1を用いて、実質的に水中のD濃度を高めた重水を得ることができる。

【0047】

なお、上記の例では重水素( $^2\text{H}$ 、D)が水素( $^1\text{H}$ 、H)とが混在する気体から重水素成分を回収することについて示されたが、原理的に、三重水素( $^3\text{H}$ 、T)も同様に回収することができることは明らかである。他の水素同位体についても同様である。

【符号の説明】

【0048】

- 1 重水素回収装置
- 10 膜電極集合体(MEA)
- 11 第1触媒電極
- 12 第2触媒電極
- 20 プロトン伝導層
- 31 陽極室
- 31A、32A 導入口
- 31B、31C、32B、32C 排出口
- 32 陰極室

W0 原料水  
W1 回収水

【要約】

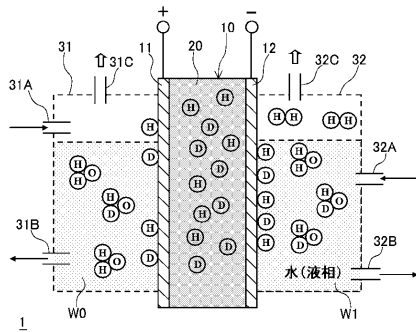
【課題】高効率で重水素を回収するPEM型の重水素回収装置を得る。

【解決手段】直流電圧が印加される2つの電極（第1触媒電極11、第2触媒電極12）と、これらに挟まれるプロトン伝導層20が組み合わされたMEA10が用いられる。ここでは、第1触媒電極11側が正とされ、第2触媒電極12側が負とされる。第1触媒電極11側は、回収されるべき重水素（D）が水素（H）と共に水の形態として存在する液体（原料水W0）として供給される陽極室31とされる。第2触媒電極12側は、原料水W0とは別の水（回収水W1）が第2触媒電極12と接した状態で溜められる陰極室32とされる。陰極室32内の反応によって、H、DのうちD成分が主に回収水W1中に優先的に取り込まれる。これによって、Dをこの水中に回収することができる。回収水W1としてD濃度が原料水W0よりも低い水を用いることにより、特に高効率でDを回収することができる。

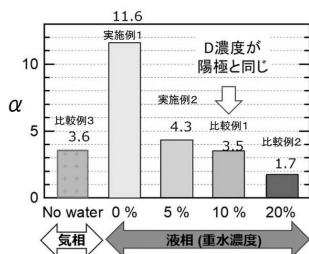
10

【選択図】図1

【図1】



【図2】



## フロントページの続き

(51)Int.Cl. F I  
C 2 5 B 11/081 (2021.01) C 2 5 B 11/081  
C 2 5 B 11/089 (2021.01) C 2 5 B 11/089  
C 2 5 B 11/097 (2021.01) C 2 5 B 11/097

(72)発明者 矢野 雅大  
茨城県那珂郡東海村大字白方2番地4 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 先端基礎研究  
センター内

(72)発明者 久保 真治  
茨城県東茨城郡大洗町成田町4002番地 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 大洗研究  
所内

審査官 畔津 圭介

(56)参考文献 特開2010-6637(JP,A)  
特開2015-29921(JP,A)  
特開2024-76690(JP,A)  
特表2019-526446(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

B 0 1 D 5 9 / 4 0  
C 2 5 B 1 / 0 2  
C 2 5 B 9 / 0 0  
C 2 5 B 9 / 2 3  
C 2 5 B 1 1 / 0 5 2  
C 2 5 B 1 1 / 0 8 1  
C 2 5 B 1 1 / 0 8 9  
C 2 5 B 1 1 / 0 9 7