

## 解 説

# トリチウム安全取扱い技術開発の最近の進歩

渡辺 国昭・松山 政夫

富山大学水素同位体機能研究センター

〒930 富山市五福3190

Recent Progress on Developments of Tritium  
Safe Handling Techniques in Japan.

Kuniaki WATANABE and Masao MATSUYAMA

Hydrogen Isotope Research Center, Toyama University

Gofuku 3190, Toyama 930

(Received July 31, 1992 ; accepted November 7, 1992)

### Abstract

Vast amounts of tritium will be used for thermonuclear fusion reactors. Without establishing safe handling techniques for large amounts of tritium, undoubtedly the fusion reactors will not be accepted. Japanese activity on tritium related research has considerably developed in the last 10 years. This review paper gives a brief summary of safe handling techniques developed by Japanese research groups.

### 1. はじめに

トリチウムは周知のごとく自然界には殆ど存在しない水素の放射性同位元素である。その半減期は12.3年、放射される $\beta$ 線の最大エネルギーは18.6keV、平均エネルギーは5.7keVである。我国でのトリチウムの一般的な用途は、従来は標識化合物及び自発光塗料としてであった。核融合炉燃料として位置づけられ本格的な研究が行われ始めたのは昭和52年原子力委員会核融合会議「トリチウム分科会報告書」での提言以来のことであり、先進諸国に立ち遅れた<sup>1)</sup>。

この様な状況の中で、昭和60年度より文部省科学研究費「核融合特別研究」が始められ、トリチウム研究もこのプロジェクトのもとに強力に進められた。トリチウム研究は①トリチウム理工学、②トリチウム環境動態、③トリチウム生物影響の3班に分かれて展開され、各々の分野で質・量ともに大きな成果が得られた。「トリチウム理工学」は極めて広範な

物理的及び化学的現象を対象とするが、本稿はここ約10年間に得られたトリチウム理工学研究の成果を、トリチウム安全取扱い技術の開発の観点からまとめてみたものである。以下に取り上げる技術は核融合炉燃料プロセッシングへの応用を展望するのみならず、実験室規模のトリチウム取扱い装置にも極めて有用であり、ITER計画の本格的展開を控えトリチウム研究の一層の進展が望まれている状況からして、時宜を得た取りまとめであると思われる。現象の解明或は新現象の発見等の理学・基礎工学的研究成果は別の機会に取りまとめてみる予定である。

## 2. 理工学研究の目標と課題

トリチウムはその半減期が短いため比放射能は高い（1グラム当り約1万Ci，或は370TBq）。加えて、常温常圧では気体であること及び材料を透過し易いので、閉じ込め容器から洩れ易い性質を持っている。ところで、トリチウムβ線の平均飛程は空気中で約1cm，液体及び固体中では約0.6μmとさきわめて短いので、外部被曝の影響は殆ど問題にならない。従って問題となるのは内部被曝である。その際、元素状のトリチウム（T<sub>2</sub>，HTその他）は生体に取り込まれ難いが、水蒸気状（T<sub>2</sub>O，HTOその他）は極めて容易に取り込まれるので、内部被曝に対して重大な問題を引き起こす。実用炉ではこの様な性質を持つトリチウムを1日当り数十kgも取り扱うことになる。

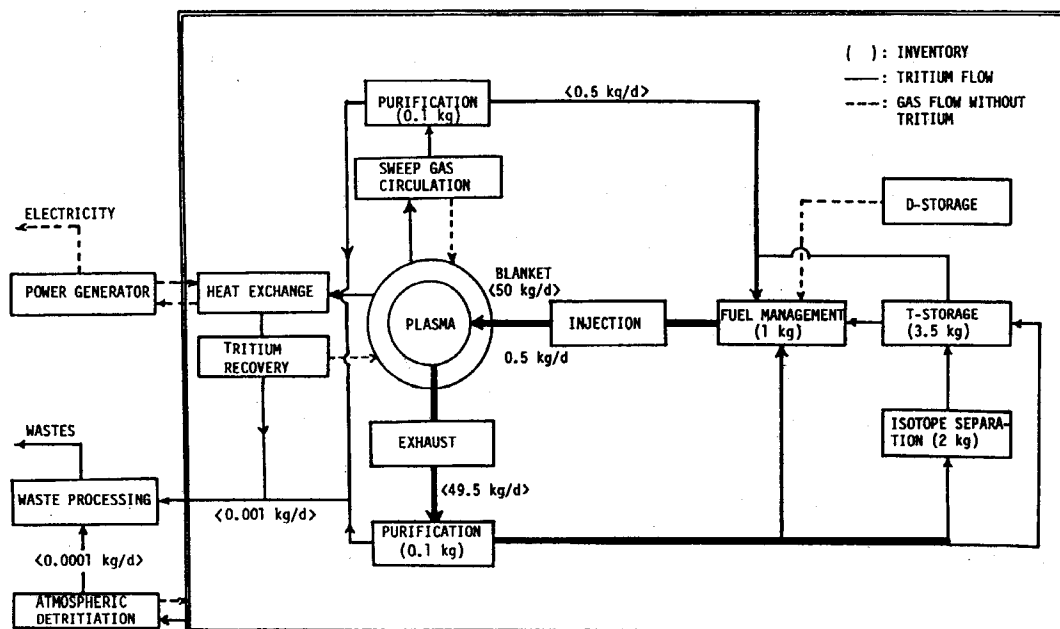


Fig. 1. An example of tritium flow diagram for a thermonuclear reactor with 1000 MW(e). (Ref. 2)

Table 1. Research targets and technological subjects on tritium science and engineering. (Ref. 3)

System/Assemble Technology	Basic Technology	Purpose
Tritium Containment	Recovery/Detrification Measurement/Monitoring Waste handling System Assessment	Establish satisfactorily reliable tritium handling technology to assure employees and public safety
Fuel Cycle	Breeding/Recovery Purification/Separation Fuel management/Injection Recovery/Storage	Establish maximum production yield and use efficiency (100% (?) recovery and minimized inventory)
Material Designing	Tritium behavior in materials  Tritium plasma behavior  Data base of physicochemical properties of tritium/its compounds  Related nuclear reactions	Construction of tritium data base to lead into full understanding of tritium-material interaction  New application of tritium

Fig. 1 は100万kWの核融合発電炉で必要とされる燃料（トリチウム）の流れを模式的に示したものである<sup>2)</sup>。燃料システムは大きく分けて、①貯蔵系、②注入系、③回収／分離系、④除去系、及び⑤廃棄物処理系の5つのサブシステムで構成される。図中には各々のサブシステムを流れるトリチウムの1日当りの流量と滞留量（インベントリー）が示されている。図によれば1日当り50kg（5億Ci）のトリチウムが系内を循環することになるが、スタックからの排出をおそらく10Ci/d程度に抑えることが求められるであろう。加えて、図の構想では約1000Ci/dのトリチウム廃棄物が出ることになるが、この点にも注目しなければならない。

トリチウム理工学の第一の研究目標はこの散逸し易いトリチウムを系の中にしっかりと閉じ込め環境への放出を最小限に抑える（安全閉じ込め）技術を確立し、作業者は勿論公衆の安全と環境の保全を保証することである。第二の目標は人工的に作られるトリチウムを出来るだけ有効に使用するための（燃料サイクル）技術を確立することである。これは資源の有効利用のみならず、安全性の確保と不可分の関係にある。Table 1 に目標達成のために必要とされる研究課題をまとめた。この分類は「昭和62年度核融合特別研究総合総括班事業（トリチウム取扱・施設利用の向上に関する検討）報告書」に準じたものであるが<sup>3)</sup>、表中にみられる技術区分と要素技術の対応関係はある程度便宜的なもので、明確に線引きできる訳ではない。ところで、これらの点に関し如何に完全な技術が開発されたにしても、核融合炉での膨大なトリチウム取扱い量からして、また経済性の観点からもトリ

チウムの定常的排出は避けられないものと考えられる。例えば、今日の電力の30%相当を供給するに至っている核分裂炉からのトリチウム放出量は、1基当たり1ヵ月平均で約1-10Ci程度である<sup>4)</sup>。核融合炉における定常的なトリチウム放出量をどの程度に抑えるべきかに関する社会的合意はまだ無いが、トリチウム環境動態及び生物影響の研究はこの管理レベルの設定と公衆の受けるリスクの評価に不可欠である。国際協力事業として進められているITER (International Thermonuclear Experimental Reactor) では境界でのトリチウムによる被曝線量を年間自然被曝線量の10分の1、即ち10mrem/y以下となるよう設定している。試算によれば、ITERでの最大トリチウム取扱量(8.6kg/d)に対しスタックから環境に放出される量は8.6Ci/dで、それによる境界周辺住人の被曝線量は0.4mrem/yとしている<sup>5)</sup>。

### 3. 主たる研究成果

以下に主として我国で行われた技術開発研究の成果について述べる。理学・基礎工学的研究の成果は紙面の都合上別の機会に取りまとめてみる予定である。

#### 3. 1. 製造

トリチウムは上に述べたように天然には殆ど存在しない。従って人工的に作られなければならない。トリチウムの製造に関しては二つの要件がある。その第一は核融合炉に最初に装荷すべきトリチウムの製造である。第二に日々の消費に見合うトリチウムの製造である。例えばFig. 1では、炉心での核反応の効率を1%と少な目に見積もっているが、この場合には1日当りのトリチウムの消費量は500g/d、炉心へのトリチウムの供給量は50kg/dとなる。従って、核融合炉の運転前にはこれに見合う量のトリチウムを準備しておく必要がある(初期装荷量)し、運転後には500g/d以上のトリチウムを生産し、補給する必要がある。

トリチウムは分裂炉で定常的に発生しているが、ことに重水炉(CANDU)では多量のトリチウムが生成する。カナダではこの副産物のトリチウムを回収し初期装荷量を賄うための技術開発が活発に行われている。一方、他の先進諸国では様々な理由からトリチウムの原子炉照射によるトリチウム製造を行っている。我国では日本原子力研究所において

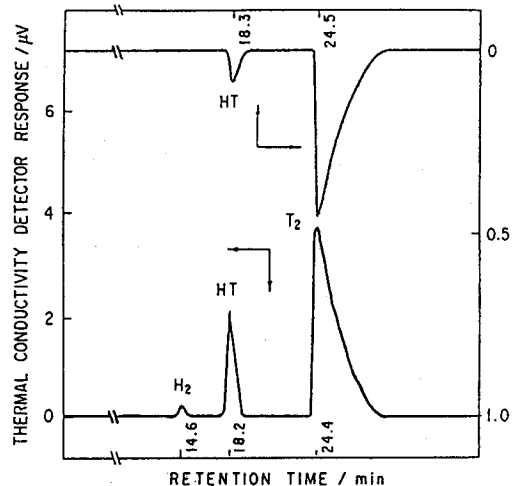


Fig. 2. A radio-gas chromatogram of tritium gas (sensitivity ratio of T<sub>2</sub>, HT and H<sub>2</sub> for TCD was 1:1.5 :2. 2) produced from Li-Ai alloy. (Ref. 6)

Li-Al合金の中性子照射によるトリチウム製造技術の開発研究が行われてきた。Fig. 2は得られたトリチウムのガスクロマトグラムで、同位体純度95%、放射化学的純度99%のものが得られている。加えてターゲットからのトリチウムの回収率はほぼ100%であると報告されている<sup>6)</sup>。この方法により現在までに一回り1000Ci (約0.1g) のトリチウムを製造する技術が確立されている。この技術を更に改善・発展させて一回当たり1~10g規模のトリチウム製造に関する基礎工学的試験研究が計画されている<sup>7)</sup>。但し先に示したように、核融合炉への初期装荷量は50kg程度であり、現在の製造技術の研究レベルに較べ遥かに膨大なトリチウム量である。従って、今後この種の研究を精力的に推進してトリチウム製造に対する問題点を抽出し、初期装荷用のトリチウムの供給計画に対する見通しを立てる必要がある。

上述の第二の点、即ち核融合炉での消費量に見合う分のトリチウム製造がブランケット部で行われる。ここでもトリチウムの原料は ${}^6\text{Li}$ であるが ( ${}^1_0\text{n} + {}^6_3\text{Li} \rightarrow {}^3_1\text{T} + {}^4_2\text{He}$ )、この際消費量以上のトリチウムが生産される必要がある。即ち、トリチウム増殖比 (TBR =  ${}^3\text{T}/{}^1_0\text{n}$  : Tritium Breeding Ratio) が1以上であることが必要条件である。増殖材としては $\text{Li}_2\text{O}$ 、 $\text{Li}_2\text{ZrO}_3$ 、 $\text{LiSiO}_4$ 等のセラミックス系の化合物が現在有望視されているが、Li-Pbなどの液体増殖材の研究も進められている<sup>8)</sup>。核融合炉で発生する14Mevの中性子と ${}^6\text{Li}$ の反応のTBRが1以上になることは確認されているが<sup>9)</sup>、ここで問題となるのはブランケット材料からのトリチウムの回収が如何に効率よく行えるか、言い換えるとブランケット材料中でのトリチウムの平均滞留時間がどれほど短いかと言うことである<sup>10)</sup>。ブランケット材料中でのトリチウムの拡散や表面での会合反応と言った回収速度に直接関与する因子は材料の化学的組成、結晶構造、格子欠陥、表面状態及び気相の化学ポテンシャル (気相の化学成分、分圧、温度) の複雑な関数であり簡単に議論できないが、セラミックス系の材料では一般に大きな回収速度は望めない。田中らによれば平均滞留時間を10日とした場合、回収率が生成率の95%になるまでに1ヶ月かかる。その上ブランケット部におけるトリチウムの定常的インベントリーは4kgにもなる<sup>10)</sup>。この点はトリチウムの有効利用のみならず安全取扱上の重要な問題であるが、現在までこれと言った技術的解答はない。加えて、中性子照射や核反応率が増えることによる欠陥濃度の増加が回収率にどの様に影響するかについては現在殆ど未知であり、今後の研究に期待するところは大きい。

### 3. 2. 貯蔵

トリチウムを安全に貯蔵するには、散逸し易い気体としてではなく、常温で固体の状態にしておく事が望ましい。この観点から、大量トリチウムの貯蔵には従来トリチウム化ウラン ( $\text{UT}_3$ ) が用いられてきた。 $\text{UT}_3$ の生成熱は一般の金属水素化物と同じく正であるので、 $(3/2) \text{T}_2 + \text{U} = \text{UT}_3$ の反応は低温度では右側に、高温では左側に傾く。即ち、系を

冷やすとトリチウムガスが固体になり、暖めると $UT_3$ が分解してトリチウムガスが放出される。この反応は可逆的に起きるのでトリチウムを貯蔵容器から自由に出し入れできる。しかし、ウランは核燃料質としての規制を受けること、空気中の酸素に触れた場合に発火性があること、きわめて細かい粉体になること、等々の使用上の問題がある。従って、より安全性が高く、使いやすいトリチウム貯蔵材料の開発が望まれていた。その開発上の要点として、①室温での平衡圧がきわめて低いこと、②適度の温度で平衡圧が1気圧になること、③吸収と放出速度が充分速いこと、④不純物気体に対して抵抗力の高いこと、⑤繰り返し使用で著しい性能の劣化のないこと、等の性能を有することが望まれる。上記の要件を完全に満たす材料はまだ開発されていないが、近年いくつかの有望な材料が開発された<sup>11-12)</sup>。

Fig. 3は近年我国で開発されたZr合金での平衡圧特性をウランと比較したものであるが、ZrCoでは図のように室温での平衡圧はウランよりも約一桁高い。その代わりウランよりも若干低い400度で1気圧になる。一方ZrNi及び $Zr_9Ni_{11}$ は共に等温線上に2段のプラトーを示す(その一例をFig. 4に示す)。両者の一段目のプラトーでの反応熱は殆ど等しいため、平衡圧の温度変化はほぼ等しい。Fig. 4によれば一段目のプラトー域での平衡圧はウランより約一桁低い、1気圧のトリチウムが得られる温度は約500度で約100度高い。他方2段目のプラトーでは300度弱の温度で1気圧が得られる。即ち、室温での平衡圧が低い一段目のプラトー域は使用済みトリチウムの回収用として、2段目のプラトーはガス供給用として使い分けることが出来る<sup>12)</sup>。これらの新たに開発された合金でのトリチウムの吸収と放出の速度はきわめて速く、速度の点からも実用性がある。ちなみに、ZrCoはITER CDA (Conceptual Design Activity)

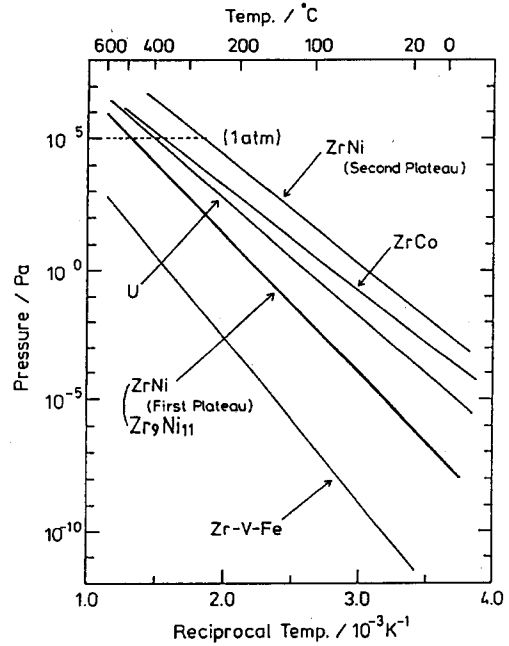


Fig. 3. Temperature dependence of the equilibrium pressure over some feasible tritium storage materials.

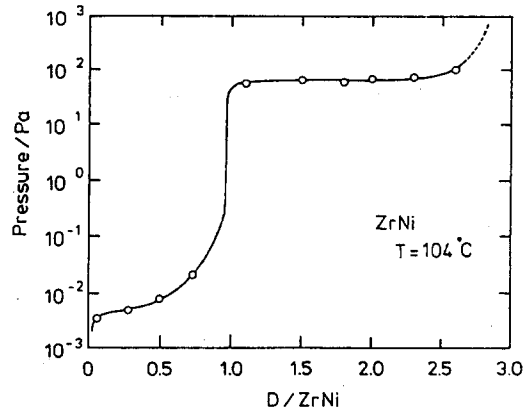


Fig. 4. Pressure-composition isotherm for  $ZrNiD_x$  at 104°C. (Ref. 12)

でもウランに代わるトリチウム貯蔵材として検討されている。但し、繰り返し使用すると合金の不整合が起きると言う報告もあり<sup>13)</sup>、今後検討の余地がある。

Fig. 3 に示したZr-V-Fe合金はもともと真空ポンプ材として開発されたもので、室温で極めて低い平衡圧を示す点に特長がある。トリチウムの吸収反応は室温でも著しく速い事とあいまって、貯蔵材としてよりも使用済みトリチウムの回収・保管材としての利用価値がある。

これらの貯蔵材に大量のトリチウムを長期間にわたって貯蔵した場合、トリチウムの崩壊に伴う<sup>3</sup>Heの生成が問題になる可能性がある。即ち、トリチウムは1日で貯蔵量のおよそ $1/10^4$ が崩壊する。例えば、Fig. 1 のトリチウム貯蔵系だけでも1日0.1モルの<sup>3</sup>Heが生成することになる。従って、貯蔵材料中に蓄積するヘリウムの挙動と材料特性に与える影響が重要となる。また、貯蔵材の加熱によりトリチウムガスと共にこの<sup>3</sup>Heが全て放出された場合には、貯蔵系の次の燃料調整系へ放出ガスを供給する前に予め精製する必要があること有り得る。今後、種々の材料中での<sup>3</sup>Heの挙動に関する研究は重要となるであろう。

### 3. 3. 精製と同位体分離

使用済み及びブランケットで生産されたトリチウムが炭化水素、水及び<sup>3</sup>He等の不純物ガスを含んでいるので、トリチウム回収の前に予め取り除いておく必要がある。これらの不純物により貯蔵ベッド及び同位体分離システムの性能が劣化するためである。

#### 3. 3. 1. 精製

Table 2 はITERで想定されている燃料ガス中の不純物の種類と相対的な量（モル分率）を示したものである<sup>14)</sup>。燃料ガス中への不純物ガスの混入の原因は様々であるが、不純物にはトリチウムを含む化合物（CnQm, Q<sub>2</sub>O, nQ<sub>3</sub>等北Q=H,D,T）と含まない化合物（CO, CO<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>等）がある。またこれらとは意味あいは異なるが、不活性ガス等のトリチウムの搬送用のガスがある。いずれも同位体分離の前に取り除いておく必要がある。その必要条件として、①効率の良いこと、②廃棄物を出さないこと、③システムが簡単なこと、④穏和な条件であること、⑤連続運転が可能なこと、⑥インベントリーが少ないこと等が挙げられよう。

Table 2. Typical impurity gases and their molar fractions in the fuel processing system. (Ref. 14)

Impurity gas	Molar fraction
CnQm*	0.56
CO	0.08
Ar	0.04
CO <sub>2</sub>	0.04
N <sub>2</sub>	0.08
nQ <sub>3</sub>	0.04
Q <sub>2</sub>	0.08
Q <sub>2</sub> O	0.08
Total	1.00

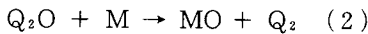
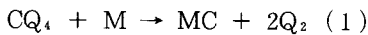
\*CnQm is mostly CQ<sub>4</sub>.

1) Pd-透過膜法

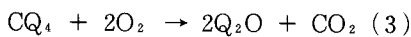
これらの点を勘案して、これまでに様々な方法が提案されてきているが、Pd-透過膜法はその一つである。Fig. 5は水素透過能の測定結果の一例で、300°Cの運転温度で実用的に充分満足できる透過速度が得られることを示している<sup>15)</sup>。但し、透過速度は炭素を含む不純物ガスの共存により著しく遅くなる事が知られているので<sup>16)</sup>、この点の改善が必要であろう。また、Pd膜は本来水素透過膜であるから、トリチウムを含む不純物を別個に処理する必要がある。その一方法として、小西らの提案になる固体電解質法が有望視されている<sup>17)</sup>。この方法では、CnQmやNQ<sub>3</sub>等は一過Q<sub>2</sub>Oの形に酸化され、ついで固体電解質によりQ<sub>2</sub>とO<sub>2</sub>に分離される。この方式は廃棄物が出ないこと、連続処理できること、インベントリーが少ないことに特長がある。

2) 金属ベッド法

金属ベッド法は水素貯蔵合金のような活性な金属を利用して、



によりトリチウムを含む化合物気体から直接トリチウムを得る方法である。Fig. 6はJETで提案されている方法で、活性金属としてはウランを使用する<sup>18)</sup>。その際、(1)の反応は遅いので、あらかじめCQ<sub>4</sub>は触媒反応を利用して、



により水の形に変換して(2)の反応を行わせる。この方式ではシステムが極めて簡単になり安全性の向上を期待できる。また、

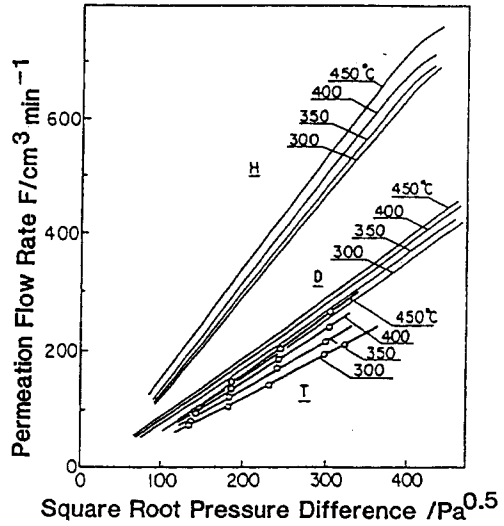


Fig. 5. Permeation flow rate of H<sub>2</sub>, D<sub>2</sub> and T<sub>2</sub> through a palladium diffuser plotted against the square root of pressure difference between the two sides of the membrane. (Ref. 15)

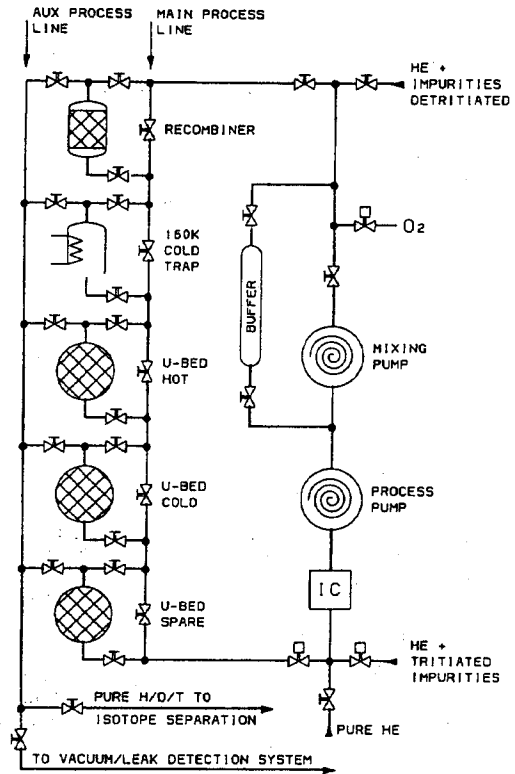


Fig. 6. The functional schematic of impurity processing loop using getter beds. (Ref. 19)



生成した金属酸化物を還元して元の金属状態に戻すことも原理的には可能であり、廃棄物を出さないと言う観点からも魅力ある方法である。

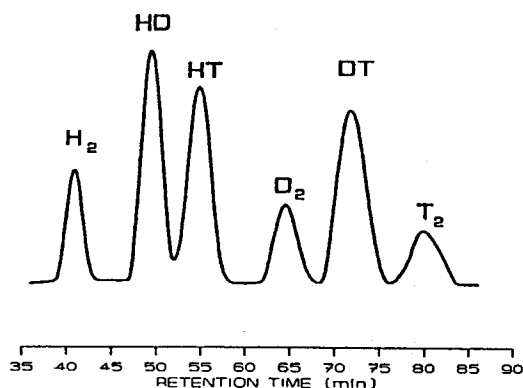
### 3. 3. 2. 同位体分離

同位体分離は化学的性質の殆ど差のない同位体を同位体効果により分離する技術である。同位体効果は質量の小さい元素ほど大きいという特長があるので、水素同位体の分離は他の元素に較べると原理的には容易であるが、そもそも余り大きくはない同位体効果を利用するので、①同位体効果は低温ほど大きい、②平衡論的同位体効果と速度論的同位体効果がある、といった特徴をうまく応用しなければならない。但し、どの様な条件にしても同位体効果の大きさには制限があり、一段のプロセスでは不十分であり、この為プロセスの多段化が不可欠である。その際トリチウム取扱いであることを考慮すると、①不必要なインベントリーをできるだけ少なくすること、②システムを簡素化すること、等により安全性／信頼性を確保する必要がある。

このような要求に比較的良く合致するものとして、ガスクロマトグラフ、熱拡散及び深冷分離法が近年注目されている。レーザー分離法はその極めて大きな分離能の故トリチウムの選択的分離法として注目されているが、プロセスの簡素化或はシステム化等の問題が残されており、まだ研究開発段階である。

#### 1) ガスクロマトグラフ法

ガスクロマトグラフ法による水素同位体分離はモレキュラーシーブ及び活性アルミナ等の吸着剤に対する物理吸着と脱離における同位体効果を利用する。従って、通常は液体窒素温度に冷却された分離カラムに不活性ガス等で搬送されてくる水素同位体ガスを流入させる。水素同位体はカラム内を流れる間に吸着と脱離を繰り返し、その速度の差に応じた時間をかけて出口に到達する。即ちカラムそのものが多段プロセスとして働く。Fig. 7はカラム剤にモレキュラーシーブ(2 mm φ × 2.5 m)を用い、-170°Cの温度で得



Adsorbent: Molecular Sieve/ Charcoal (4:1)

Carrier Gas: Helium 5.6      Flow Rate: 48ml/ min

Column: 2 mmID × 3 m      Temperature: -170°C

Sample: H/D/T      Sample Vol.: 0.07ml NTP

Fig. 7. Complete separation of all hydrogen isotopes by molecular sieve 5A. (Ref. 19)

られたクロマトグラムである<sup>19)</sup>。図のように6種の水素同位体がきれいに分離されている。ガスクロマトグラフ法は、クロマトグラフ法の常として連続処理が出来ない(回分法)、搬送ガスを必要とすることに加えて、寒剤を必要とする等の不便があるが、インベントリーは少ない、システムは簡単である、全体としての分離能が大きい、コストが安い等の特長があり、小規模のトリチウム分離装置として極めて有用である。

ガスクロマトグラフ法では連続処理が出来ないと言う従来の固定観念に対して、近年棚瀬らは斬新な提案を行っている<sup>20)</sup>。Fig. 8はその概略である。従来一次元(流れ)方向の速度差にのみ注目していたことに対し、二次元方向の速度差を組み合わせたことがその要点である。カラムとして従来の管状を板状に替え、この板状カラムが縦方向の移動速度に同調した速度で回転する。これにより、被分離気体を連続的に供給でき、且つ分離された気体は異なる出口から連続的に回収される。この方法は若干システムが複雑になるので、その運転・保守等に改善の余地があるが大量トリチウムの分離法としても有望である。

## 2) 熱拡散法

熱拡散法は、気体混合物中に温度勾配があると、より高温側には軽い分子が、より低温側には重い分子が集まる現象と対流の効果を利用するものである。即ち、通常は分離筒の中央に高温壁を、外側に低温壁を設け筒の半径方向に熱拡散流を作ると共に、壁に沿っての対流を組み合わせて混合気体を分離する。この方法は、装置は簡単であり安全性の向上につながると共に、コストが安いという利点があるが、分離能が低いという欠点があった。山本らはこの点を検討し、深冷熱拡散法とも言うべき方法を開発した<sup>21)</sup>。Fig. 9は装置の

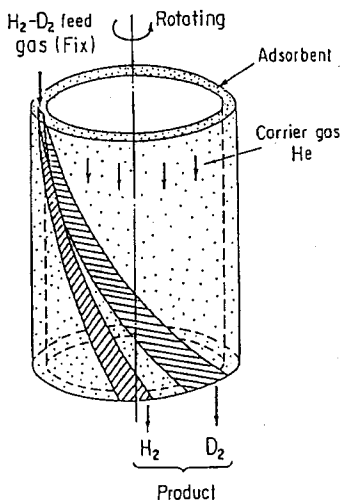


Fig. 8. Schematic diagram of continuous separation of hydrogen isotopes by two dimensional gas chromatography. (Ref. 20)

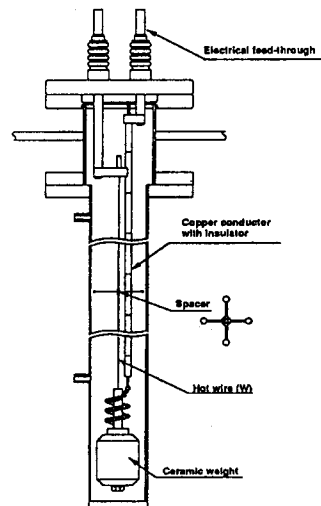


Fig. 9. Cross-sectional view of the column for cryogenic-wall thermal diffusion system. (Ref. 21)

概略で、その要点は外側の低温壁を液体窒素温度まで冷却することにある。Fig.10はこの方法で得られた結果の一例で50% $H_2$ +50%D $_2$ の混合気体が筒頂と筒底にはほぼ完全に分かれていることを示している<sup>22)</sup>。分離能は処理量その他様々な因子の関数であるが、理論的計算によれば1000以上の値が期待できる<sup>21)</sup>。従来の熱拡散筒の分離能がせいぜい10程度であったことを考えれば著しい改善である。

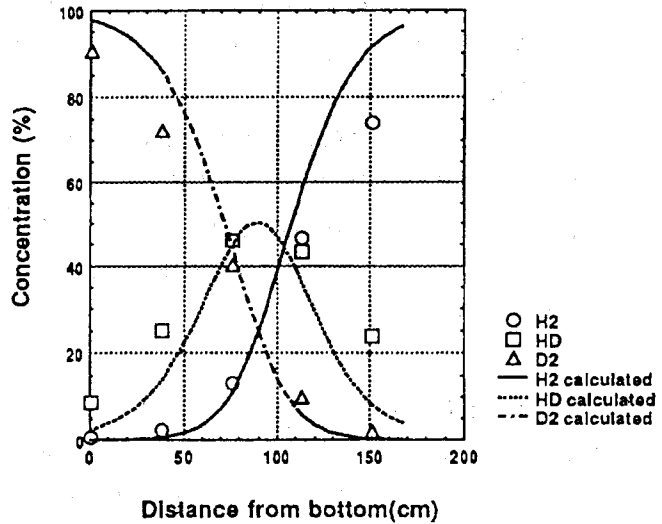


Fig. 10. Axial concentration distribution of hydrogen isotopes along the column at hot wire temperature 1273K, column pressure 30kPa, initial gas composition  $H_2 / D_2 = 1$ . (Ref. 22)

### 3) 深冷分離法

水素同位体の凝縮・蒸発時の同位体効果を利用する分離法である。従って装置は基本的には液体ヘリウムなどにより水素をその液化温度まで冷却した蒸留塔である。蒸留塔の中で水素同位体は凝縮・蒸発を繰り返す、その過程で沸点の高い重分子は塔底に、沸点の低い軽分子は塔頂に濃縮される。但し、一基の蒸留塔だけでは分離が充分でないので、実際の装置では複数の塔を組み合わせ使用する。Fig. 11は木下らにより提案され、TSTAで採用されているシステムの流れ図である<sup>23)</sup>。システムは4基の塔で構成され、4種の同位体分子の流れを作るように設計されている。即ち、第2塔からはHDを主とするトリチウムフリー、第3基の塔底からはほぼ純粋の $T_2$ 、またその塔頂と第4基の塔底からはDT、第4基の塔頂からは $D_2$ を得られるように設計されている。処理量を15mol/hrに設定

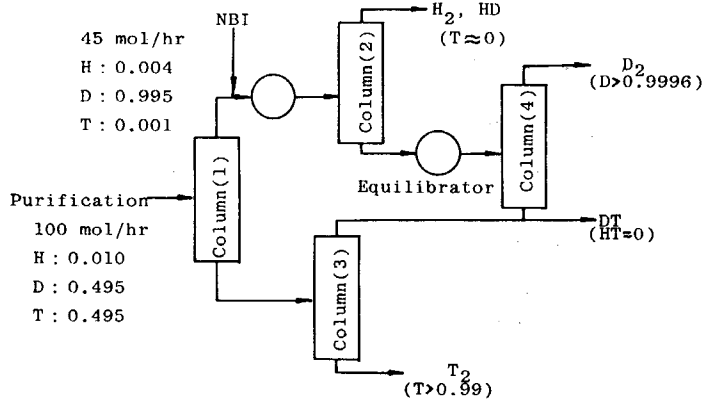


Fig. 11. An example of cryogenic distillation system for the evacuation system in a thermalnuclear reactor. (Ref. 23)

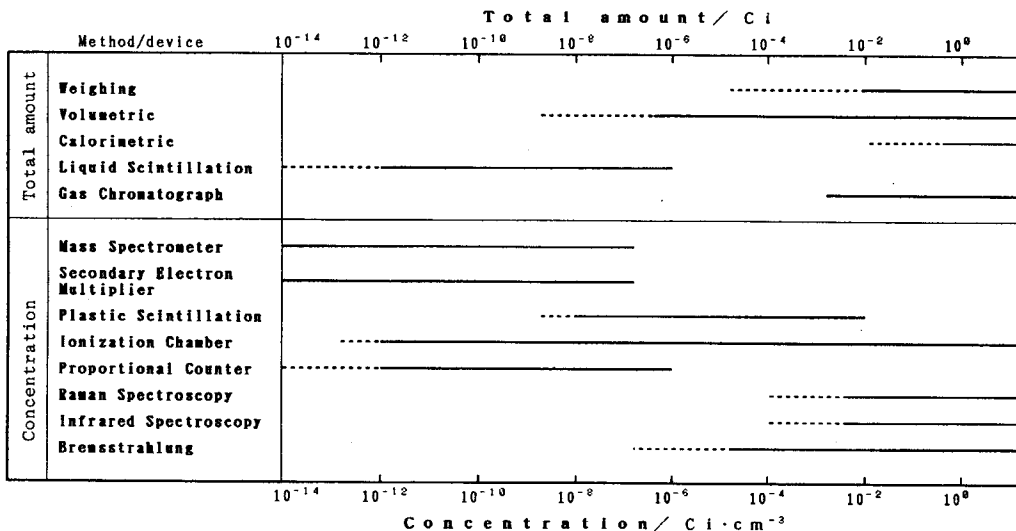
してTSTAで行われたこれまでの実験ではほぼ設計仕様通りの性能が得られていると報告されている<sup>24)</sup>。但し、システム全体としての安定性に関してはまだ問題が残されており、システム構成の簡素化などが検討されている。

この方式ではシステム試験及び解析が示しているように大量のトリチウムを高い分離能で処理できるという利点がある。ITER CDAではコスト及び安全性の点からの評価もふまえ深冷分離システムによる同位体分離を採用しているが、この方式では他に比べてインベントリーが極めて大きくなるという点が問題であり、安全性に対する十二分の対策が必要となろう。

### 3. 4. 計測とモニターリング

ここでは計測は主としてトリチウム循環システム内、モニターリングはその外側を意味するものとする。計測の対象となるトリチウムはシステム内の場所に応じて、プラズマ、気体、液体或は固体と様々な形態を取る。加えてその濃度も化学形も様々である。従って適材適所の計量及び分析器が必要となる。最初に問題となるのはシステム内を流れる気体状トリチウムの量を正確に計測する技術である。その濃度は $\text{MCi}/\text{m}^3 \sim \text{Ci}/\text{m}^3$ の桁に渡るが、いずれにしても従来に比べてかなり高い。Table 3は気体状トリチウムの計量・分析に適する測定法の一覧で、我国においても開発研究課題として取り組まれたものである<sup>25)</sup>。本稿では紙面の都合上、従来比較的立ち遅れていた高濃度域トリチウムの計量・分析法の開発研究のみについて述べる。

Table 3. Typical tritium measuring devices and their working ranges. (Ref. 25)



3. 4. 1. 計測

1) 小型電離箱

Fig.12は松山らが開発した小型電離箱の概略で、その容積は僅か1.9cm<sup>3</sup>である。Fig. 13はその検量線測定結果で、図のように10<sup>-6</sup>～1気圧付近までの広い範囲で良好な直線性が得られており、高濃度域トリチウムの測定に適している<sup>26)</sup>。加えて、本装置はその簡単な構造、ベイクابلであること、特別の制御回路を要しない等の利点があり、トリチウムプロセス用のモニターとして極めて有用である。

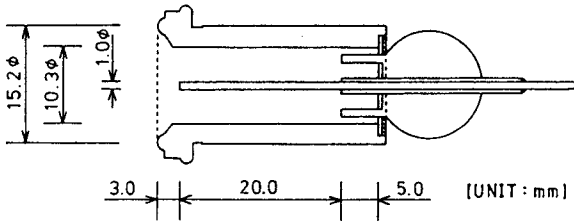


Fig. 12. Cross-sectional view of a small ionization chamber. (Ref. 26)

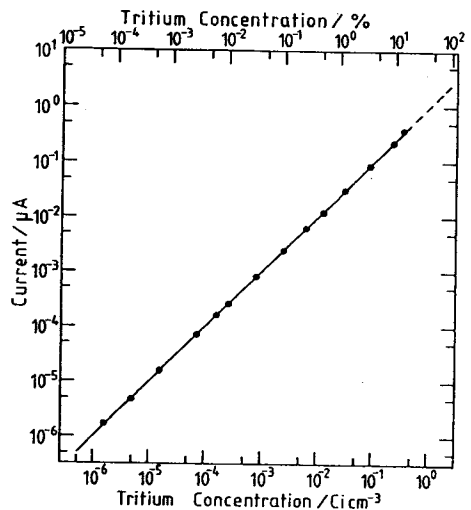


Fig. 13. Tritium-concentration dependence of ionization current. (Ref. 26)

2) 光量子計測法

上記の小型電離箱はプロセス用配管の中に探針を挿入して、放射線を計測するものである。従って、この種の計測器が故障した場合には配管部を開いて部品を交換する必要がある。この点からは探針を差し込む必要のない計測器の必要性も高い。光量子計測法はこの要求に答えるものである。

(イ) 制動X線計測法

トリチウムβ線の飛程は固体中では約0.6μmと極めて短く装置壁の外側からはこれを検知出来ないが、壁材との相互作用により制動X線が放出される。このX線は比較的容易に壁を透過するので検知可能である。Fig.14は松山らによる制動X線計測装置で、この場

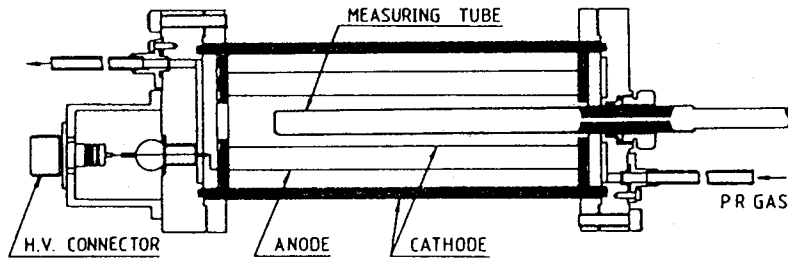


Fig. 14. Cross-sectional view of the proportional counter. (Ref. 27)

合には壁材のガラス或はアルミニウムの特性 X 線を検出する。Fig.15はその検量線であるが、みられる通り制動 X 線の計数率とトリチウム圧力との間には広い範囲で直線性がある<sup>27)</sup>。本装置は流路内に探針を挿入する必要がない上、構造及び計数回路とも極めて簡単であるので、小型電離箱と共に有望な計測法である。

(ロ) 可視光計測法

制動 X 線の代わりに可視光を計測する方法である。従って、 $\beta$  線励起により可視光を放射する適当な蛍光物質を必要とする。Fig. 16は無機蛍光物質を用いる高木らの装置である。ここで発生した可視光はオプティカルファイバーで導かれ光電子増倍管を用いて計数される。Fig.17はこの装置による発光強度とトリチウム圧の関係を示したものであるが、いずれの蛍光物質でも良好な直線性が得られている。この装置では 0.07 ~ 1 気圧までの直線性が確認されており<sup>28)</sup>、特に高い濃度域でのトリチウムの測定に適している。

3) ラマン分光法

上記は気体状トリチウムの化学形に関係なくその全量を計測するための装置である

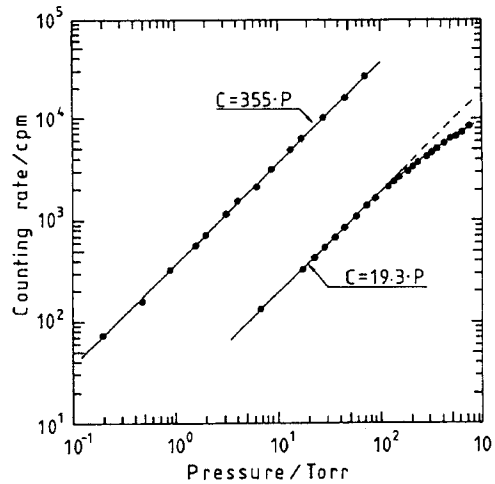


Fig. 15. Correlation between the bremsstrahlung counting rate (C) and the total pressure of the sample gas (P). (Ref. 27)

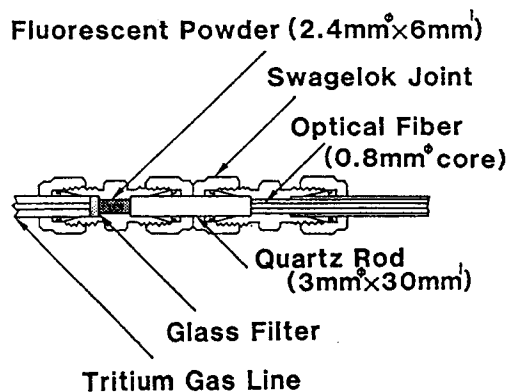


Fig. 16. Cross section of tritium detector using inorganic fluorescent powder. (Ref. 28)

が、種々の化学操作を行うためにはトリチウムの化学形を知る必要がある。トリチウムガスの分析法として、従来から質量分析やガスクロマトグラフ法が利用されてきているが<sup>29-31)</sup>、質量分析法は一般にクラッキングパターンが複雑であり、且つ定量性を確保するための操作がかなり煩雑である。また、二次電子増倍管等の検出器がトリチウムガスに常にさらされるのでそのトリチウム汚染の除去も必要となる<sup>32)</sup>。ガスクロマトグラフ法では定量性を確保すること自体にそれほど問題はないが、水素同位体の分析には通常液体窒素温度に冷やしたカラムを用いるので、この温度で凝縮する気体が混在すると不都合である。また、分析気体を分取する必要があるので、連続測定には不向きである。このような観点からすると、気体を分取する必要もなく、検出器を流路内に挿入する必要もない分光学的手段、即ち赤外線吸収法<sup>33)</sup>やラマン分光法が有用である。特に近年では強力な光源を備えたレーザーラマン分光装置が製作されており、トリチウムガス分析への応用技術開発が活発に行われてきた。Fig.18は宇田らによって開発されたトリチウムガス分析用ラマン分光装置の概略である<sup>34)</sup>。フード内に納められた系を外部から測定するために光ファイバーと望遠レンズを組み合わせた光学系を採用しているため、非放射性ガスの測定に較べて感度は約一桁低いが、 $H_2$ の検出感度は約0.5%であり、プロセスモニター用の分析器としてはこのままでも有用である。Fig.19はこの装置に90kPaの水素同位体混合物ガス ( $H_2$  北  $D_2$  北  $T_2 = 1$  北 1 北 1) を装置に導入し、その165時間

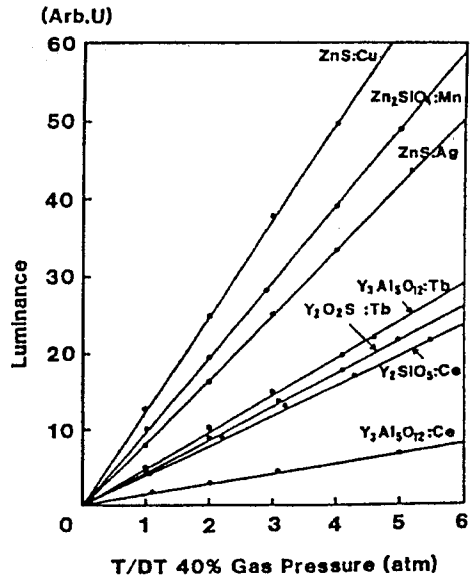


Fig. 17. Luminescent intensity for various fluorescent materials. (Ref. 28)

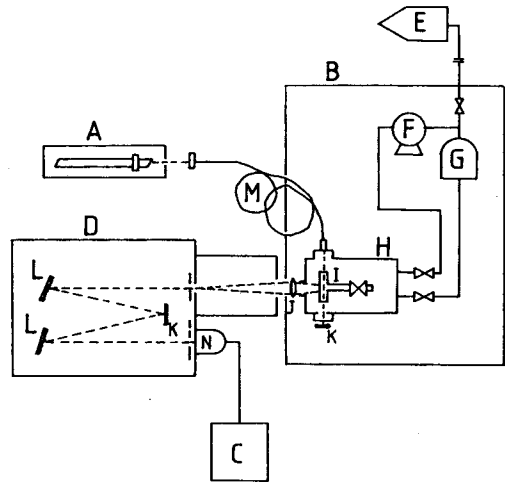


Fig. 18. Schematic diagram of Raman scattering spectroscopic apparatus for tritium analysis: A,  $Ar^+$ -Laser; B, Hood; C, Data Processor; D, Spectrometer; E, Effluent Removal System (ERS); F, Circulation Pump; G, Ionization Chamber; H, Container; I, Gas Cell; J, Telescope Lens; K, Mirror; L, Grating; M, Optical Fiber; N, Photo-multiplier. (Ref. 34)

後に得たラマンスペクトルである<sup>34)</sup>。スペクトル中にHD, HT及びDTなどの異核種分子が認められる。これはβ線誘起の自己触媒反応で平衡化反応が進んだためであるが、6種の水素同位体分子が別々に観測できることを示している。

ちなみに非放射性的のH<sub>2</sub>とD<sub>2</sub>に対する検量線はFig.20の様になり広い圧力範囲で直線性が認められる。これらの観測には2Wのレーザー光源が用いられているが、現在20W級の大出力レーザーによる感度向上が図られている<sup>34)</sup>。

以上高濃度トリチウムの計量・分析器の開発研究の成果を述べたが、ここで省略した他の方法も含めて、気体状トリチウム計測法の開発研究の基本的段階はほぼ終了したと言える。次の目標はシステム化と信頼性の検証である。他方、プラズマ状及び固体状トリチウムの計量法の開発研究には殆ど手が付けられておらず、今後の重要課題である。

### 3. 4. 2. モニタリング

モニタリングに関しては、従来はその化学形がHTであれHTOであれ気体状トリチウムは一括して規制されていたが、平成3年11月の法改正によりそれぞれ個別に規制を受けることになった。特にHTOの許容濃度はHTに比べて約1万分の1であるので、HTOの分別モニタリング技術の開発が今後の重要課題である。加えて室内モ

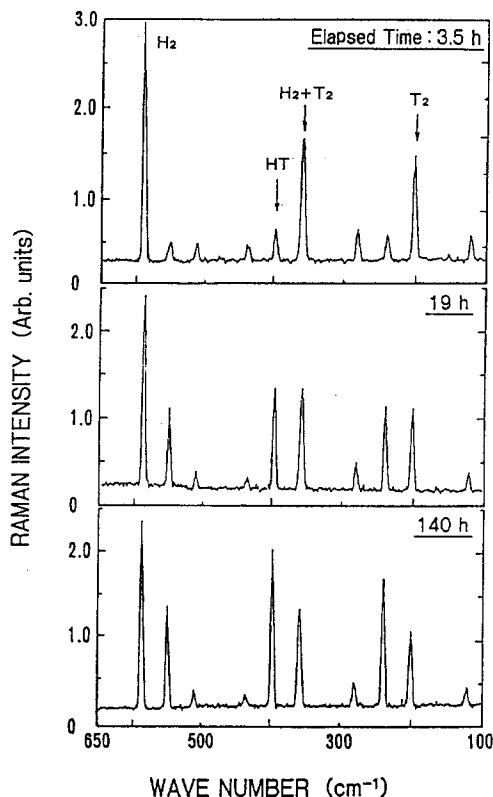


Fig. 19. Examples of the Raman spectra of a mixture gas of H<sub>2</sub> and T<sub>2</sub>. (Ref. 34)

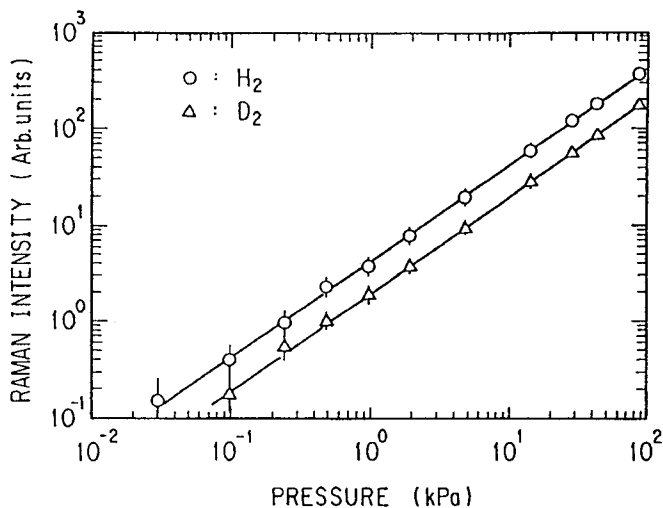


Fig. 20. Correlation between pressure of hydrogen isotopes and the intensity of Raman scattering. (Ref. 34)



ニター或はスタックモニターはトリチウム除去設備の起動信号を与える重要な使命を担っているため、分別測定が出来且つ応答の速いモニターの開発が必要不可欠である。

### 3. 5. 除染と除去

#### 3. 5. 1. 除染

トリチウム取扱装置の内壁は常時トリチウムに曝されているので、トリチウムの内壁表面への吸着や溶解による材料の汚染が問題となる。汚染の程度は材料の種類、表面状態や気相の化学ポテンシャルにより異なるので一概に議論できないが、従来のデーターによれば1㎡当たり50~500mCi程度になると推定される<sup>35)</sup>。加えてその大部分は水或は水酸基であるので、作業者の内部被曝防止の観点から汚染防止及び除染技術の開発が重要である。

汚染防止の為には元素状トリチウム ( $T_2$ , HT, DT) と水蒸気状トリチウム ( $T_2O$ , DTO, HTO) が吸着し難い材料の開発が望まれる。前者に対してはAu或はh-BNのようなセラミックスで材料表面を被覆することが有効であるが<sup>36)</sup>、後者に対しては現在のところこれと言った有効な手段は見出されていない。

装置内壁の汚染除去(除染)法としては加熱脱ガス法が原理的には有効であるが、水の脱離には100~200℃、水酸基の脱離にはそれ以上の温度が必要で装置が大規模の場合には余り実用的でない。これに代わる方法として、水蒸気スワンピング<sup>37)</sup>法や紫外線照射法<sup>38)</sup>が提唱されているが、大規模装置への実用化の為には一層の研究が必要である。作業者の被曝防止という点からは、装置内壁のほか建屋内壁の汚染防止と除染も無視できない問題である。従来から用いられてきた放射線施設用の壁塗装材は一般に有機化合物であり、元素状のみならず水蒸気状のトリチウムもとけ込み易い性質を持っている。加えて、壁塗装材に溶込んだ水蒸気状トリチウムが室温ではなかなか取れにくいので<sup>39)</sup>、なんらかの除染策が必要である。加熱は一つの有効な手段であるが、建屋の壁全体を加熱するのは実用的でない。汚染が少なく且つ除染の容易な塗装材の開発は今後の研究課題である。

#### 3. 5. 2. 除去

##### 1) 雰囲気ガス

Fig. 1 の発電炉では一日当たり約10,000Ciのトリチウムが除去装置で処理されることになっている。またITERでは約50Ci/dのトリチウムが建屋内に放出されると想定される。これらの室内の空気或は不活性ガス等の雰囲気中に含まれるトリチウムの除去には通常触媒酸化法が用いられる。即ち $Q_2$ ,  $CQ_4$ ,  $NQ_3$ 等は $Q_2O$ の形に酸化され、モレキュラーシーブの様な吸着材で捕集される。その際、捕集水からのトリチウム回収を効率よく行うためには捕集水中のトリチウム濃度は高くても少量であることが重要である。西川らは種々の酸化触媒の酸化性能と共に触媒担体の働きを評価した。その結果触媒の酸化性能は水蒸気の共存で劣化すること及び触媒担体はそれ自身で有用な吸着材として機能することを見い

でした。この知見に基づき、従来とは異なる方式を提案している<sup>40-41)</sup>。即ち、この方式では、除去対象の雰囲気気体は水蒸気をあらかじめ取り除いた上で触媒筒に送り込まれ、生成したトリチウム水は触媒担体自身に捕集させるので、従来から提案されているスワンピング等は必要ない。従って、濃度は高くても少量のトリチウム水しか発生せず後処理に有利である。

## 2) 水 (冷却水その他)

核融合炉システムでは上記の除染作業で生成した水の他に、壁を透過してきたトリチウムで汚染された大量の冷却水が存在する。ITER CDAでは前者に対して0.1Ci/kg、後者に対して1 Ci/kgの濃度を、またこれらの排水中に存在するトリチウムの総量を最大100 gと見積もっている。これは量的にも又濃度的にも無視できない値であり、トリチウムを効率よく且つ安全に回収する必要がある。(ちなみに我国の法律によれば、排水中のトリチウムの濃度限度は約 $1.6 \times 10^{-6}$  Ci/kgである。)

水中からのトリチウムの回収法としては電気分解法、水蒸留法及び同位体交換法が基本的なものであるが、装置の簡素化、建設コスト、設計安全性及び実績等を考慮すると(水蒸留+同位体交換)法或は(電気分解+同位体交換)法が最も現実的であるとされている。

## 3. 6. 廃棄物処理

トリチウム廃棄物には上に述べた建屋からの排ガスや冷却水をはじめとする排水の他に、第一壁及びブランケット材などの固体廃棄物、装置部品、並びにトリチウム回収システムのような大規模装置そのものが含まれる。これらの廃棄物の処理に関しては三つの考え方が成り立つ。第一にトリチウム除去の後その物質なり部品を再使用すること、第二に廃棄物として保管すること、第三に一般廃棄物として処分することである。これらの内のどれを取る得るかは除去(トリチウム回収)技術の限界、社会的な要請及び除去コストのバランスにより決定されることになろう。コスト面に関しては回収されたトリチウムを如何に有効利用できるかも重要な因子になる。

原理的な面からみれば排水及び建屋の雰囲気中からトリチウムを除去し排水或は排気として処分し、回収されたトリチウムを燃料として再使用することは可能であり、これがトリチウムの有効利用及び環境保全の立場から最良の選択肢である。問題となるのは固体廃棄物であろう。例えば、Fig. 21に見られるようにITER CDAでは第一壁に黒鉛系の材料を想定しているが、そこでの最大インベントリーは2 kg、その内の半分はカーボンデブリにあるとしている。加えてその他の種々雑多な固体廃棄物中にも最大で約1.3kgのトリチウムが含まれると推定している<sup>42)</sup>。固体材料に捕捉されたトリチウムは原理的には真空中での加熱脱ガスである程度除去できるが、その速度は一般に遅く完全な回収は望めない。加えてこれらの廃棄物は材質はもとより形状も、カーボンデブリの様な粉体から大型の部品・装置まで様々である。

現在まで、これらの固体廃棄物の除染法としてこれと言った有望な手段は確立されていない。この問題はトリチウム-材料相互作用研究の重要課題の一つである。固体廃棄物処理に関するもう一つの問題は回収されたトリチウムの処分である。回収トリチウムをなんらかの形で有効利用出来ることが望ましいが、そうでない場合には放射性廃棄物として

保管・廃棄されなければならない。その際回収トリチウムの化学形が元素状であれ水であれ、濃縮・減容することと固体化が必要である。

トリチウムの固化法としては、それが水の場合には吸着物、水和物或は水酸化物とする方法、元素状である場合には金属水素化物とする方法が一般的である。又有機高分子中にC-Tとして捕捉する方法もある。何れの場合にも長期の保存に耐え得ることが重要であるが、その際空気中の水蒸気との、或は水に曝された場合の交換反応による環境中への漏洩が問題となる。Table 4は種々の材料で固化されたトリチウムの漏洩速度を比較したものである<sup>43)</sup>。表のように単なる固化では漏洩を完全に留めることは困難であり、多重梱包として特別の施設に保管することが考えられている。

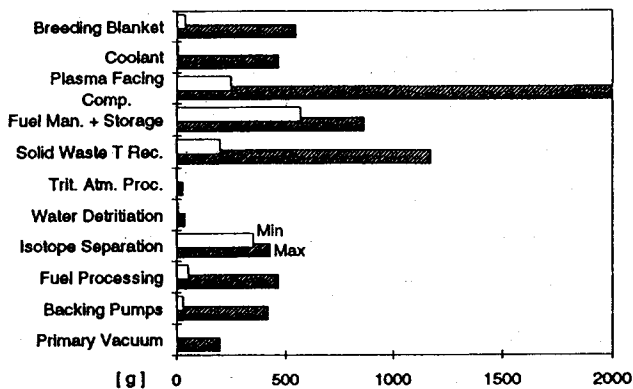


Fig. 21. Maximum and minimum tritium inventories. (Ref. 42)

Table 4. Various fixation methods for tritiated water waste. (Ref. 43)

Water Immobilization by		Water capacity (wt %)	Sample weight <sup>a)</sup>	Leaching rate (into water)
Cement	Portland	0.15	457 g	6.6 %/day
Adsorbent	Alumina	0.15	6340 g	1.7 %/day
Drying agent	Slaked lime	0.21	500 g	7.5 %/day <sup>b)</sup>
	Nickel sulfate	0.41		
Sealing of immobilized water with		Water state	Sample volume	Leaching rate (into water)
0.155 cm Polyethylene		cement+lime	35 l	$1 \times 10^{-4}$ %/day
Polyethylene+asphalt + metallic can		cement+lime	90 l	$< 10^{-7}$ %/day
1 mm bitumen		cement	100 cc	$3.1 \times 10^{-2}$ %/day
Polystyrene impregnation		cement	828 g	$4.2 \times 10^{-2}$ %/day
Beads wax		drying agent	216 l	$1 \times 10^{-2}$ %/day
Immobilization with		Atomic ratio (T/Zr)	Sample weight	Leaching rate (into water)
Zirconium sponge		0.91	3.1 g	$1.3 \times 10^{-3}$ %/day
Zirconium rod		0.93	2.6 g	$4.7 \times 10^{-3}$ %/day
Immobilization by organic material		Bakelite, Acrylonitrile, polystyrene, Polyacetylene		
Tank package Ampoule sealing		upto 200 ml of water		

a) The leaching rate is proportional to the (sample volume) / (surface area) ratio.  
b) Estimation from literature

#### 4. おわりに

以上紙面の都合で割愛せざるを得なかった部分も多いが、トリチウムの安全取扱い技術開発の最近の進歩をまとめた。トリチウム安全取扱いは地味で目立たない研究であるが、核融合炉はそれ無しには実現できない。その技術開発の成否が、放射化物の取扱い技術と共に、核融合炉の社会的受容性を決定するからである。

核融合炉の燃料プロセス自体は一種の水素取扱い用化学プラントに似ていなくもないが、放射能取扱い装置であることに根本的相違がある。即ち、水素爆発を誘発すること無しに大量の水素を安全に取り扱うと言う点に関しては一般の化学プラントと変わらないが、この種の事故防止は勿論、定常運転時といえどもその際に求められる放射能漏洩防止上の基準は極めて厳しく、この点で燃料プロセスシステムは一般の化学プラントとは全く異なる概念に基づくものである。そこで先ず問題となるのは10kg (1億Ci)にも及ぶトリチウムの量である。第二にその存在状態で、トリチウムはプラズマ、気体、液体、固体と物質の可能な形態の全てをとり、温度も1億度から4Kまでの広い範囲に及び存在場所も様々である。また濃度は100%から $10^{-14}$ %までが問題となる。この様な条件の中でトリチウムの排出量を1日に約10Ci程度とし、且つ異常放出の確率を最少に抑える必要がある。この為には極めて大規模で、複雑なシステムが必要とされている。この種のシステムの総合的な性能や信頼性の評価については米国TSTA (Tritium Systems Test Assembly) や我国のTPL (Tritium Process Laboratories) 等の大規模施設での実験に期待するところ大である。

他方、燃料プロセスシステムの複雑・大規模化は現状の技術レベルからしてやむを得ない面もあるが、将来ともこれが最良の選択であると言う保証はない。むしろ、貯蔵、回収、精製、同位体分離等々の要素技術上の何らかのブレイクスルーにより一挙にシステムの簡素化が達成され、ひいては安全性、信頼性のみならず経済性が向上することも有り得る。この様な観点からは従来技術を集大成した大型施設でのシステム試験の重要性もさることながら、要素技術上のイノベーション並びにそれを支えるトリチウム物性・材料相互作用と言った基礎的研究の一層の進展が望まれる。

#### 文 献

- 1) 河村和孝, 私信
- 2) 昭和62年度文部省科学研究費補助金研究成果報告書「トリチウム資料集・1988」, 核融合特別研究総合総括班事業, p.471.
- 3) 昭和62年度文部省科学研究費補助金研究成果報告書「トリチウム取扱・施設の向上に関する検討」, 核融合特別研究総合総括班事業
- 4) H. Tokuyama and S. Igarashi, Radioisotopes, 39 (1990) 264.
- 5) J. Raeder et al., "ITER SAFETY", ITER Documentaion Series No. 36, IAEA, VIENNA, (1991), p. 33.

- 6) M. Kato, K. Kurosawa, S. Motoishi, S. Okane, H. Sugai, M. Fujie, K. Onoma and H. Yamabayashi, *J. Nucl. Sci. Technol.*, 25 (1988) 198.
- 7) 工藤博, 私信
- 8) H. Moriyama, J. Oishi and K. Kawamura, *J. Nucl. Mater.*, 161 (1989) 197.
- 9) 住田健二, 私信
- 10) 田中知, 寺井隆幸, 「核融合研究, 第9編トリチウム, 第1部 トリチウムの理工学」, (1992), p.12.
- 11) T. Nagasaki, S. Konishi, H. Katsuta and Y. Naruse, *Fusion Technol.*, 9 (1986) 506.
- 12) K. Watanabe, K. Tanaka, M. Matsuyama and K. Hasegawa, *Fusion Eng. Design*, 18 (1991) 27.
- 13) M. Devillers, M. Sirch, R.-D. Penzhorn, *Chem. Mater.*, in press.
- 14) D. Leger et al., "ITER FUEL CYCLE", ITER Documentation Series No. 31, IAEA, VIENNA, (1991), p.41.
- 15) S. Konishi, H. Yoshida, H. Ohno, T. Nagasaki and Y. Naruse, *Proc. Inter. Symp. Fusion Reactor Blanket and Fuel Cycle Technology*, Tokai, Ibaraki, Oct. 27-29, 1986, p.109.
- 16) J. Chabot, J. Lecomte, C. Gtomet, J. Sannier, *Fusion Technol.*, 14 (1988) 614.
- 17) S. Konishi, H. Ohno, H. Yoshida and Y. Naruse, *Nucl. Technol. Fusion.*, 3 (1983) 195.
- 18) J.L. Hemmerich, A. Dombra, C. Gordon, E. Groskopfs, A. Konstantellos, *Fusion Technol.*, 14 (1988) 557.
- 19) R. Vogd, H. Ringel, H. Hackfort, T. Schober and C. Dieker, *Fusion Technol.*, 14 (1988) 574.
- 20) M. Tanase, K. Kurosawa, M. Fujie, H. Sugai, S. Okane and M. Kato, *Fusion Technol.*, 14 (1988) 1090.
- 21) I. Yamamoto and A. Kanagawa, *J. Nucl. Sci. Technol.*, 27 (1990) 250.
- 22) K. Hirata, A. Matsumoto, T. Yamanishi, K. Okuno, Y. Naruse and I. Yamamoto *Fusion Technol.*, 21 (1992) 937.
- 23) 中根良平・磯村昌平・清水正巳著, 「重水素およびトリチウムの分離」, 学会出版センター (1982), p.80.
- 24) M. Inoue, S. Konishi, T. Yamanishi, S. Ohira, T. Watanabe, K. Okuno and Y. Naruse, *Fusion Technol.*, 21 (1992) 293.
- 25) 昭和59年度文部省科学研究費補助金研究成果報告書, 「核融合研究者のためのトリチウム安全取扱いの目安(その2)」, p.33.
- 26) M. Matsuyama, h. Nakatani and K. Watanabe, *Fusion Eng. Design*, 18 (1991) 91.

- 27) M. Matsuyama, h. Nakatani and K. Watanabe, *Fusion Eng. Design*, 10 (1989) 405.
- 28) 高木勝, 乗松孝好, 中井貞雄, 山中千代衛, *日本原子力学会誌*, 31 (1989) 710.
- 29) R.E. Ellefson, W.E. Moddeman and H.F. Dylla, *J. Vac. Sci. Technol.*, 18 (1981) 1062.
- 30) V.H. Dibeler, F.L. Mohler, E.J. Wells, Jr. and R.M. Reese, *J. Res. Natl. Bur. Standards*, 45 (1950) 288.
- 31) C. Genty and R. Schott, *Anal. Chem.*, 42 (1970) 7.
- 32) K. Ichimura, M. Matsuyama and K. Watanabe, *J. Nucl. Sci. Technol.*, 21 (1984) 56.
- 33) K. Ichimura, K. Watanabe, H. Kato, I. Kanesaka and K. Kawai, *Nucl. Instr. Methods Phys. Res.*, A241 (1985) 614.
- 34) 宇田達彦, 「ラマン分光法によるトリチウムの計量技術に関する研究」, (博士論文, 1991年)
- 35) H. Miyake, M. Matsuyama, K. Watanabe and D.F. Cowgill, *Fusion Technol.*, 21 (1992) 812.
- 36) 松山政夫, 新木祐一, 蘆田完, 三宅均, 渡辺国昭, 富山大学トリチウム科学センター研究報告, 8 (1988) 41.
- 37) M. Nishikawa, T. Takeishi, Y. Matsumoto, I. Kumabe, *Nucl. Instr. and Methods*, A278 (1989) 525.
- 38) H. Miyake, K. Ichimura, M. Matsuyama, K. Ashida, K. Watanabe and S. Nakamura and T. Hayashi, *Fusion Eng. Design*, 10 (1989) 417.
- 39) R.A. Jalbert, S.J. Breretpm and D.F. Holland, *Fusion Technol.*, 10 (1986) 1223.
- 40) K. Munakata, M. Nishikawa, T. Takeishi, N. Mitsuishi and M. Enoeda, *J. Nucl. Sci. Technol.*, 25 (1988) 383.
- 41) M. Nishikawa, K. Munakata, S. Izumi and T. Takeishi, *J. Nucl. Mater.*, 161 (1989) 182.
- 42) P.J. Dinner, *Fusion Technol.*, 21 (1992) 197.
- 43) 昭和62年度文部省科学研究費補助金研究成果報告書「トリチウム資料集・1988」, 核融合特別研究総合総括班事業, p.48.