

論文

100Ciトリチウム実験装置の性能試験 (1) —排ガス処理装置—

原 正憲, 松山 政夫, 芦田 完, 波多野 雄治, 舒 衛民*,
渡辺国昭

富山大学 水素同位体機能研究センター
〒930-8555 富山市五福3190

Performance Test of Tritium Experimental System for 100 Ci/run (1) - Detritiation Device for Exhaust Gases -

Masanori HARA, Masao MATSUYAMA, Kan ASHIDA, Yuji HATANO, W. M. SHU*,
Kuniaki WATANABE

Hydrogen Isotope Research Center, Toyama University
Gofuku 3190, Toyama 930-8555, JAPAN

(Received January 22, 1999; accepted March 15, 1999)

Abstract

A tritium experimental system for 100 Ci/run was established at the Hydrogen Isotope Research Center, Toyama University. This system consisted of two distinct experimental chambers for tritium experiments and backup components such as tritium storage-supply, gas purification, isotope separation and exhaust-gas detritiation. To confirm the reliability of the detritiation device, which is an important factor of the system, the basic performance of the detritiation device was assessed using a small amount of tritium. Two different methods were examined: one is based on conventional oxidation-adsorption (wet method) and the other gettering (dry method). The wet method is advantageous if exhaust gases include large amounts of impurities such as oxygen, water, hydrocarbon and so on. The dry method is applicable for processing exhaust gases which mainly include elemental tritium with a small amount of impurities. The wet method showed excellent

※ 現在, 日本原子力研究所

日本原子力研究所 核融合工学部トリチウム工学研究室

〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根2-4

performance for tritium removal from exhaust gases with impurity oxygen, the initial tritium concentration was reduced below 1/10 within 20 min. Similar performance was also obtained by dry method. In addition, the absorption bed loaded with molecular sieves could be regenerated by applying the dry method. Accordingly, it was concluded that the performance of the detritiation device satisfies the safety requirement for performing tritium experiments.

1 緒言

未来の高密度エネルギー源として、核融合炉が期待されている。核融合炉の運転には、1日当たり数億キュリー程度のトリチウムを取扱う必要がある¹⁾。このような大量のトリチウムを安全に取扱うためにはトリチウムと材料との相互作用を明らかにすることが必要であり、このことは核融合炉の安全設計及び放射線安全管理等につながり、核融合炉の社会的受容性を高めることに貢献する。これまでトリチウムと材料の相互作用を明らかにするため、さまざまな手法、視点から水素同位体-材料相互作用が研究されてきた。しかし、多くの研究は安定同位体である軽水素及び重水素、またはこれら安定同位体で希釈したトリチウムを用いて行われており、現在までに核融合炉で想定される様な高濃度条件下でのトリチウム-材料相互作用に関する研究報告は少ない。このため、核融合炉条件に相当するようなトリチウム濃度でのトリチウム-材料相互作用の体系的な研究を行う必要がある。

このような観点から高濃度トリチウムの取扱いが可能な「100Ciトリチウム実験装置」が当センターに設置された^{2,3)}。本実験装置は大きく分けると実験チャンバー、精製・同位体分離装置及び排ガス処理装置から構成されている。本実験装置の特長は実験チャンバーで使用されたトリチウムが精製・同位体分離装置により高純度トリチウムへと精製され、トリチウムの再利用が可能な点にある。このようなトリチウム循環に対する安全性を確保するために、実験チャンバー等から排気された排ガス中のトリチウムは排ガス処理装置により除去される設計になっており、本装置は100Ciトリチウム実験装置の安全性の要となる。本実験装置が設置された後、軽水素及び重水素を用いて排ガス処理装置の基本性能が確認されたが、より詳細な性能確認にはトリチウムによる性能試験が必要不可欠である。本報ではその試験結果について報告する。

2 排ガス処理装置の構成及びトリチウムの導入

2.1 排ガス処理装置

排ガス処理装置は100Ciトリチウム実験装置からの排ガスを処理し、トリチウム濃度を排出可能なレベルまで低減する装置である。図.1に排ガス処理装置の概略図を示す^{1,2)}。本装置は大きく分けて3つの部分より構成されている。排ガスを受け入れるバッファータンク(30L)、トリチウムを除去する処理部、トリチウム除去処理後に排気する排気部より構成されている。排気部にはオイルフリーのスクロールポンプが装備されている。本装置はバッ

ファータンクに受け入れたガス組成に応じて以下に示すような湿式処理法又は乾式処理法を選択できる構造となっている。

湿式処理法は従来からの酸化吸着法である。酸化触媒としてPt触媒を使用し、吸着材にはモレキュラーシーブ4A (MS) が充填されている。酸化触媒は450℃で使用することにより、トリチウム化メタンも十分酸化できる能力を有する⁴⁾。

乾式処理法は金属ゲッターを用いた処理法であり、排ガス中の酸素濃度が低い場合に使用する。また湿式処理法に用いられた吸湿材のMSの再生も行える構造である。ゲッターは不純物除去並びにトリチウム化合物の分解を行うためのゲッター (T-GT01)とトリチウムを補集するゲッター(T-GT02)が直列に接続されている。なお、両ゲッターともゲッター材として同じ組成のZr-V-Mn合金を使用し、前段のゲッターは高温で使用し、後段のゲッターは室温で運転する。この乾式処理法は、トリチウム化合物を分解してトリチウムガスに還元し、金属ゲッターにより除去する方法である。この方法は生物学的影響の大きいトリチウム水を生成しない利点がある。さらに除去したトリチウムは極めて安定な金属トリチウム化物となるため保管容器の破損時でもトリチウムが環境に出る危険性は少ない。本処理装置には容積50ccの電離箱4個(T-β I01~04)がトリチウムモニター(またはTritium monitor)として装備されており、運転モードに応じた各所でのトリチウム濃度変化が追跡できるようになっている。

2.2 トリチウムの導入

トリチウムを100Ciトリチウム実験装置に導入し、精製及び一時貯蔵した際に出た排ガスを用いた。主な排ガスは、精製系に装備されているPd膜上流側に残留したガス、実験装置の真空排気中に排出された排ガス等である。

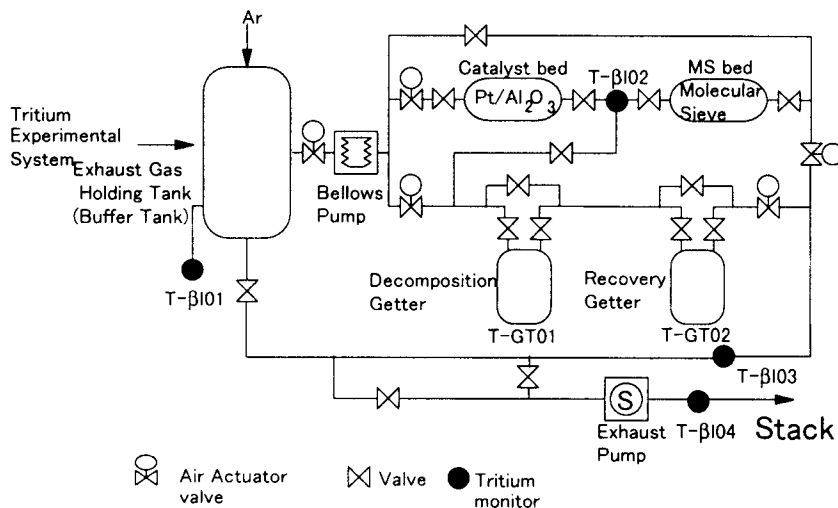


Figure 1. Schematic diagram of the detritiation device for exhaust gases.

3 性能試験

3.1 湿式処理法

100Ciトリチウム実験装置からの酸素を含む排ガスをバッファータンクに所定量受け入れた。排ガス処理を行う直前に、バッファータンクへアルゴンを導入して全圧を500Torr(66.7kPa)または400Torr(53.3kPa)とした。このアルゴンは処理装置内の圧力をペローズポンプの作動圧まで高め効率よく循環を行うほかに、電離箱の電離ガスとしての役割をなす。湿式処理法においてはペローズポンプにより触媒、モレキュラーシーブ及びバッファータンクを継ぐ経路で循環させた。循環流量は5L/minとした。通常、触媒塔の温度は450℃とした。排ガス処理中のトリチウム濃度変化はT-β I01, T-β I03により測定した。

3.2 乾式処理法

元素状トリチウムが多く含まれる排ガスをバッファータンクに所定量受け入れ、次いでバッファータンクにアルゴンを全圧400Torr(53.3kPa)まで添加した。乾式処理法は不純物分解ゲッターと補集ゲッターを直列または、それぞれのゲッターを単独でバッファータンクを結ぶ経路で循環させ乾式処理を行った。通常、不純物分解ゲッターは450℃、補集ゲッターは室温または200℃で用いた。

3.3 乾式処理法によるMS塔の再生

乾式処理法の性能試験はMSに吸着していたトリチウム水を系内に放出し、これをバッチ処理する方法で行った。先ず、吸着した水を脱離させるためにMS塔を200℃まで加熱した。その後、バッファータンクにArガスを充填し、加熱中のMS塔並びにT-GT01を循環する流路によりガスを循環させ適量のトリチウム水を排ガス処理系内に放出させた。次いで、MS塔を循環する流路から、MS塔を循環しない乾式処理を行う流路に変更し系内に放出したトリチウム水を除去した。通常、T-GT01の温度は450℃とし、T-GT02は水素同位体の吸収速度を速くするために200℃とした。トリチウム濃度変化はT-β I01, T-β I03により測定した。

4 結果と考察

4.1 湿式処理法

実験装置から排出された排ガスを湿式処理した結果の一例を図2に示す。排ガスを受け入れた当初、T-β I01は約400fAの電離電流を示した。T-β I03と指示値が違うのはバルブによりバッファータンクと区切られているためである。T-β I03の指示値は以前の処理の残留トリチウムによる。触媒塔とMS塔を循環させるとT-β I01の指示値は速やかに減少し、約250fAで定常になった。他方、T-β I03の指示値は急激に減少し約20fAで定常となった。循環

中にはT-β I03の指示値に上昇が見られないことから排ガス中のトリチウムは触媒塔で燃焼され、MS塔により完全に捕集されたことが分かった。処理開始200min後に触媒塔とMS塔を通さずにバイパスで循環を行った。T-β I03の指示値にほとんど上昇が見られないことからトリチウム除去が終わっていることが確認された。なお、わずかな上昇はバイパスラインの残留トリチウムによるものと考えられる。除去処理中のT-β I01の指示値とT-β I03の指示値は

一致しなかった。これはT-β I01がT-β I03に比べ高い濃度のトリチウムに接触していた時間が長いため、電離箱の内面がトリチウムにより汚染され、メモリー効果が発現したためである。実際、除去処理が終わった後に水蒸気を含む空気を100Torr(13.3kPa)程度バッファータンクに導入すると電離箱の指示値は上昇し、その後バッファータンク内のトリチウムを除去すると電離箱のバックグラウンドが下がる現象が確認された。なお、排ガス処理装置の運転中及び運転終了後においても、実験室内のトリチウム濃度の上昇は全く見られなかった。この事より排ガス処理装置は高い気密性を保持していることが確認された。

前報¹²⁾で報告したコールドランの結果とトリチウムを用いた今回のホットランの結果を図3に示す。ホットランの図の縦軸は電離箱の電離電流、コールドランはガスクロマトグラフにより求めた水素濃度である。横軸は処理時間を示す。コールドランでは、先ず水素を含むガスをバッファータンクに入れて排ガス処理装置内に均一に分布させてから、排ガス処理の操作を行った。このため処理開始当初はバッファータンク内の水素濃度とMS塔出口側の水素濃度がほぼ同じ値となっている。一方、ホットランでは配管の不要なトリチウムによる汚染を避けるために、このような均質化は行わなかった。初期条件の違いがあるにもかかわらず、バッファータンク内のトリチウム(ホットラン)又は水素濃度(コールドラン)は処理時間とともに減少し約20min後には定常値に達した。ホットランではMS塔出口濃度は

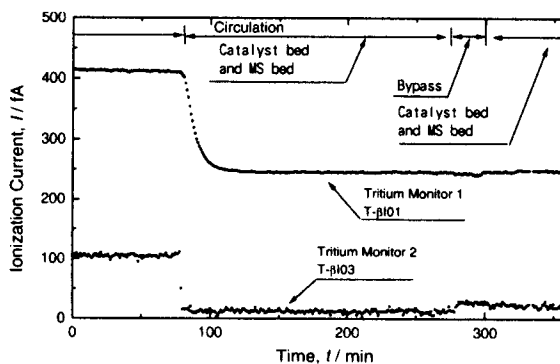


Figure 2. An example of detritiation processing by the wet method.

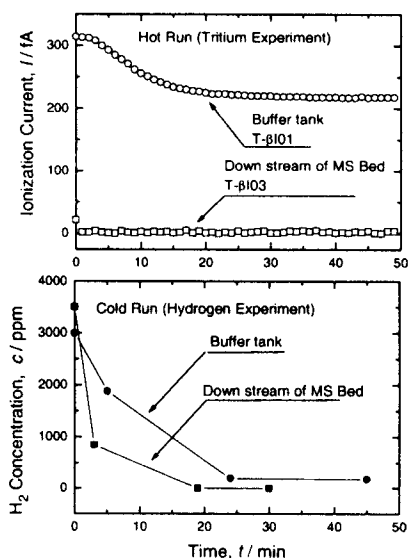


Figure 3. Comparison between hot run and cold run by the wet method.

定であり変化は見られなかった。これは前述したように触媒塔及びMS塔により完全にトリチウムが除去されたことを示している。コールドランにおいてもMS塔出口側の水素濃度は急激に下がっており、水素は湿式処理により除去されることが分かった。即ち、両者の性能試験の結果はよい一致を示しており、もしもバッファータンク内に高濃度のトリチウムが導入されても除去できることが明らかになった。

図3のホットランの結果より湿式処理法の能力を検討した。検討に用いた電離箱はT-β I01である。T-β I01の指示値は電離箱のバックグラウンド並びにトリチウムによる汚染のメモリー効果が含まれているため、処理時間30min以後の定常になった値を正味のバックグラウンドとした。指示値よりこの正味のバックグラウンドをひいた値を用いて処理能力を評価した。その結果を図4に示す。湿式処理の能力は16.8minの循環によりトリチウム濃度を1/10に下げる能力がある事が分かった。これは、3.7TBq (100Ci)でもトリチウムを約3.5時間の処理時間で3.7Bq (100pCi)程度まで除去する能力がある事を示しており、本排ガス処理装置は十分なトリチウム除去能力がある事が明らかとなった。

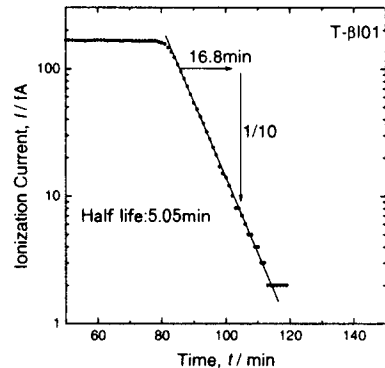


Figure 4. An example of the change in a tritium concentration with time by the wet method.

4.2 乾式処理法

湿式処理は触媒によりトリチウムを酸化させ、トリチウムを除去する方法であるが、系内に酸素が存在しない場合にはトリチウム除去を行うことは出来ない。他方、乾式処理は元素状トリチウムを直接捕集する方法であり、酸素及び含酸素化合物等が少ない場合には有効な方法である。乾式処理法によりトリチウム除去を行った一例を図5に示す。バッファータンクに元素状トリチウムを導入した後アルゴンを加えて全圧を400Torr(53.3kPa)とした。その時のT-β I01の指示値は約1600fAであった。導入したトリチウムガスに酸素やトリチウム水が含まれていないことを確認するために先ず湿式処理経路で循環した。この際、触媒塔は450℃、MS塔は室温、循環流量は4.8L/minとした。循環を開始直後はT-β I01の指示値に減少が見られたが、

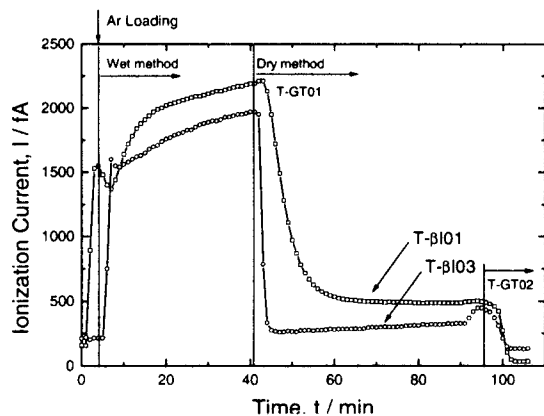


Figure 5. Detritiation process by combination of the wet and dry methods.

処理開始 4 min 後には T-β I03 の指示値に上昇が見られ、それに伴ない T-β I01 の指示値も上昇した。即ち、湿式処理ではトリチウム除去が出来ず、MS 塔下流側に大量のトリチウムが流れてきたことを示している。系内のトリチウム濃度は循環時間とともに増加し約 40min 後に T-β I01 は約 2200fA に達した。T-β I01 の指示値は処理開始時の値より大きな値となった。この理由として触媒塔の加熱によりトリチウムガスの温度が上昇し配管、触媒塔並びに MS 塔より吸着トリチウムが脱離した為と考えられるが詳細は不明である。湿式処理法による運転から乾式処理法に流路を変更した。トリチウムの化学形の確認を行うために室温の T-GT01 のみを循環させその時の指示値の変化を確認した。T-GT01 の循環を開始すると T-β I03 は速やかに減少し約 2 分で 250fA 程度まで減少し、これに伴ない T-β I01 の指示値が減少した。ゲッターは室温であるため元素状以外の化学形のトリチウム化合物は吸蔵できない事から、系内のトリチウムはほぼ元素状トリチウムであることが確認された。除去処理開始 90min 後に再び T-β I03 の指示値の上昇が見られた。このためトリチウムを補集するゲッターを T-GT02 に切り替えた。再び T-β I01 及び T-β I03 の指示値は減少した。この事から開始 90min 後の電離箱の指示値の増加は T-GT01 が系内に存在する微量な不純物ガスにより被毒されたためと考えられる。処理開始 100min 後には T-β I01 の指示値はバックグラウンドレベルまで下り、乾式処理により排ガスから効果的にトリチウムを除去できることが確認された。

4.3 乾式処理法による MS 塔の再生

図 6 は乾式処理法による MS 塔の再生をバッチ法で行った結果の一例を示す。試験条件は T-GT01 の温度を 450°C とした。MS 塔及び T-GT01 のみを循環させながら T-β I01 の指示値が約 13000fA に達するまで MS 塔よりトリチウム水を放出させた。放出初期において T-β I03 の指示値が T-β I01 に比べ高いのは T-β I03 の方が T-β I01 の上流に位置し、さらに T-β I01 はバッファータンクに装備されているために、MS 塔より放出されたトリチウム水がバッファータンク内のガスにより希釈されたためである。MS 塔からのトリチウム水の放出をやめ、乾式処理法によりトリチウム水の除去処理を開始すると T-β I01 及び T-β I03 はほぼ同じ傾きを持って減少した。循環処理をはじめて 120min 後に電離箱の電離電流の急激な減

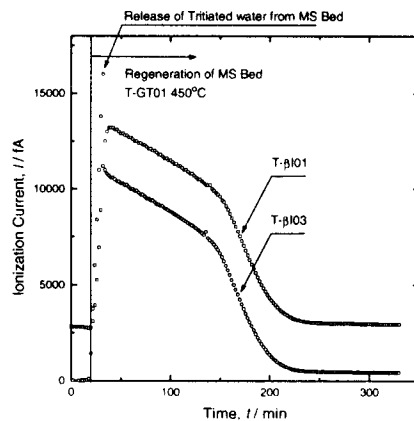


Figure 6. An example of detritiation processing by the wet method.

少が観察された。その時の傾きは T-β I01 と T-β I03 はほぼ同じであった。この事はゲッターによる水蒸気の分解プロセスがほぼ終了し、水素吸収のプロセスが主たるプロセスとなっ

たためと考えられる。循環を継続して定常になった値は、T-β I01、T-β I03ともに循環を行う前とほぼ同じ指示値に達した。このことからトリチウム水はGetterにより分解除去されたことが確認された。

図7は乾式処理法によるトリチウム水の除去が不純物および水を分解するプロセスと水素吸収のプロセスにより構成されていることを明らかにするために行った実験結果を示す。実験手順は以下の通りである。MS塔よりT-GT01 (450℃) 並びにMS塔 (200℃) を循環させてトリチウム水をT-β I01が約60000fAとなるまで放出させた。その後、流路よりMS塔を切り離しT-GT01のみの循環を行った。約140minの循環の後、循環流路からT-GT01を切り離しT-GT02のみを経由して循環させた。なお、T-GT02の温度は200℃とした。T-GT02に切り替えるとT-β I01及びT-β I03の電離電流は極めて速やかに減少した。

この際、元素状以外の化学形のトリチウム化合物が存在するならば、Getter表面はトリチウム化合物のトリチウム以外の元素により被毒され、水素吸蔵速度は低下すると考えられる。しかしながら電離電流の急激な低下は系内のトリチウム成分の大半が元素状トリチウムであることを示していると考えられる。即ち、乾式処理法は2つのプロセスで除去が進む事から、バッファータンクに受け入れた排ガス中に不純物ガスが多い場合には、十分な不純物除去及びトリチウム化合物分解時間を取った後にトリチウムの補集をT-GT02で行うことが有効であることが分かった。

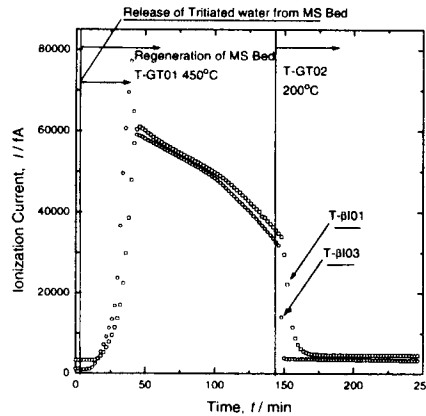


Figure 7. Regeneration of an absorption bed by the dry method.

5. まとめ

100Ciトリチウム実験装置の排ガス処理装置の性能試験をトリチウムを用いて行った結果以下のことが確認された。

湿式処理法においてトリチウムを用いたホットランと軽水素を用いたコールドランは良い一致を示した。湿式処理の除去能力は約17min間の処理運転により系内のトリチウム濃度を1/10に減少させる能力があることが確認された。よって、排ガス処理装置は十分なトリチウム除去能力を持つことが確認された。

湿式処理並びに乾式処理を行える本装置は、湿式処理のみではトリチウムを除去できない排ガス中からも乾式処理によりトリチウムが除去できることが確認された。即ち、従来トリチウムを除去するために系内に酸素添加を行う必要があるガス中からも処理法を変えることによりトリチウムを除去する能力があることが確認された。湿式処理並びに乾式処

理法を備える排ガス処理装置は、従来の湿式処理のみによる処理装置に比べ、トリチウムを除去できる排ガスの適用範囲が広いことが分かった。

乾式処理によるMS塔の再生が行えることが確認された。本排ガス処理装置はトリチウム廃棄物を水の形態として保管するのではなく金属ゲッター内に固体として保管できることが確認された。即ち、除去されたトリチウムは全て安全な金属トリチウム化物として保管できる。

本排ガス処理装置は十分なトリチウム除去能力を備え、さらに処理法の選択により様々なガス中より効率的かつ安全にトリチウムを除去することができる。

参考文献

- 1)佐久間洋一 「トリチウム資料集」,1988（昭和62年度文部省科学研究補助金研究報告書）, P21
- 2)渡辺国昭, 松山政夫, 芦田 完, 舒 衛民, 原 正憲, 田中るみ, 鈴木達志, 森 雄一郎, 佐藤康士, 山口 昇, 林 茂男, 富山大学水素同位体機能研究センター研究報告, 17 (1997) 27-42.
- 3)鈴木達志, 森 雄一郎, 佐藤康士, 山口 昇, 林 茂男, 渡辺国昭, 松山政夫, 芦田 完, 舒 衛民, 原 正憲, 田中るみ, FAPIG, 148 (1998-3) 9-15.
- 4)松山政夫, 三宅 均, 芦田 完, 渡辺国昭, 竹内豊三郎, 富山大学トリチウム科学センター研究報告, 1(1981)15-25