

ノート

高濃度トリチウム取扱いシステムの開発（I）
—仕様とトリチウム循環サブシステムの製作・評価—

三宅 均・芦田 完・松山政夫・渡辺国昭

富山大学水素同位体機能研究センター
〒930 富山市五福3190

Development of High Level Tritium
Handling System

—Design and Fabrication of Tritium Circulation Subsystem—

Hitoshi MIYAKE, Kan ASHIDA,

Masao MATSUYAMA and Kuniaki WATANABE

Hydrogen Isotope Research Center, Toyama University
Gofuku 3190, Toyama 930, Japan

(Received July 31, 1991; accepted October 31, 1991)

Abstract

We designed an experimental system capable of handling at least 100 Ci of tritium in an experimental run: the amount is considered to be necessary for a variety of experiments aiming at investigating the physicochemical properties of tritium. As a first step, we fabricated one of its subsystems, tritium circulation subsystem, in order to examine pumping and outgassing characteristics of the subsystem as well as the potential of Zr-based alloys for the storage and recovery of about 1000 Ci of tritium.

It has been observed that the combination of a mechanical roughing pump and sorption pump could evacuate the subsystem down to 1×10^{-6} Torr. It was suggested, however, that the adsorption and desorption of HTO on/from the inner wall of tritium systems would cause serious problems on safety and environmental aspects as well as pumping characteristics, requiring thus the development of surface coating layers to protect the wall from tritium adsorption and/or absorption.

1. はじめに

D-T核融合反応実験装置では近い将来 $10^6 \sim 10^8$ Ciにも及ぶトリチウムが使用される¹⁾。この際大量のトリチウムの安全取扱い技術が必要不可欠であるが、そのためにはトリチウムの物理・化学的挙動を詳細に知る必要がある。しかしながら、これまでに知られていることは水素及び重水素と比較すると極めて少ない。この一因は大量トリチウムの使用が困難で、水素及び重水素に用いたのと同等の研究手段が適用され得なかったことである。

気相均一反応、不均一触媒反応及び吸着等の気体実験は通常数+Torrの圧力で行われる。この際の反応容器を1ℓ程度とすれば、必要な気体量は数+Torr・ℓである。水素貯蔵合金等の水素化物調製には1mg当たり約0.1Torr・ℓの水素が必要であり、1回の試料を100mgとすれば、10Torr・ℓの水素が使用される。トリチウムプラズマの生成では30Torr・ℓのトリチウムがあれば、排気速度100ℓ/sec、導入圧 10^{-4} Torrで3000秒の測定が可能である。即ち、約30Torr・ℓのトリチウムを使用できれば水素及び重水素と同等の条件下での実験が可能となり、同位体効果、放射線効果、³Heの生成効果等の詳細な情報を得ることができる。トリチウム30Torr・ℓは約100Ci (約 10^{-3} mole) である。従って、上記の問題の解決には1回100Ci程度のトリチウムを安全かつ容易に取扱う技術を確立する必要がある。

その第1段階として装置自体の開発が重要である。このためには既存の要素技術を適格に評価し、その信頼性を確認する必要がある。このような観点から、筆者らはこれまでに蓄積した要素技術を基に1回100Ciの使用が可能なたトリチウム取扱いシステム開発の基本概念及び設計仕様を検討した。次に、これを基にトリチウム取扱いシステムのサブシステムの一つであるトリチウム循環システムを設計・製作した。本報ではこれらの概要を述べる。

2. 基本 概念

大量トリチウム取扱いシステムには作業者の安全と環境保全を確保するための基本的概念が必要である。その第一はトリチウムの使用一回取一再使用サイクルの原則である。第二はシステムからのトリチウム漏洩あるいは放出を最小限にすることである。従って、これに応じたシステム構成と材料・部品の選択あるいは開発が不可欠である。

2. 1. システム構成

システムは①貯蔵-供給、②実験、③回収及び④分離-精製のサブシステムから成る。トリチウムは貯蔵-供給系から実験系に供給する。使用済みトリチウムは不純物ガスの有無により貯蔵-供給系で再貯蔵するか、回収系に送る。回収系では酸素、窒素、不活性ガス等の不純物ガスからトリチウムを回収する。回収トリチウムは他の水素同位体の混入の有無で貯蔵-供給系で再貯蔵するか、分離-精製系に送る。分離-精製系ではトリチウム

高濃度トリチウム取扱いシステムの開発

を他の水素同位体から分離・精製する。精製トリチウムは貯蔵-供給系で再貯蔵する。このように、トリチウムをその実験の種類によらず再貯蔵-再利用することは、トリチウムの大気放出及び汚染廃棄物の発生を最小限にし、作業の安全性及び環境保全の確保を容易にする。

2. 2. 材料, 部品

構造材, 配管・継手類, 計測器, ポンプ及びバルブ等は信頼性, 堅牢性, 耐久性, 及び操作性等に優れるのみならず, さらに次のことが要求される。①構造材はトリチウムが吸着, 溶解及び透過し難いこと。その際, 温度特性が重要である。有機材料は原則として使用しない。②配管・継手類は取外し再取付に際し操作が簡単かつ使用条件ならびに繰返しにより性能低下がないこと。③計測器はサンプル量が僅少, 高精度かつトリチウム汚染による性能低下がないこと。④ポンプはオイルフリーかつメンテナンスフリーであること。⑤接合は金属-金属接合及び金属-セラミック接合等によること。

3. 設計・仕様

上記の基本概念に基づいて 100Ci システムの設計・仕様を検討した。Table 1 にシステムの構成及び仕様を示した。以下に各サブシステムの詳細について述べる。

3. 1. 貯蔵-供給系

貯蔵-供給系は使用するトリチウムを安全に貯蔵し必要に際して一定量のトリチウムを供給するためのシステムである。本サブシステムは, トリチウム貯蔵容器, リザーバー, 圧力計及び真空ポンプから構成される。

トリチウム貯蔵容器には貯蔵時の安全性を考慮して水素貯蔵合金を充填する。トリチウム貯蔵用合金(以下, 「ト

Table 1. Components and its specifications of the high level tritium handling system.

SUBSYSTEM	COMPONENT	SPECIFICATION
STORAGE-SUPPLY	STORAGE	<ul style="list-style-type: none"> • Amount of tritium: 1000 Ci • Material: Zr based alloy, 5 g • Container: Stainless steel/passivation, W-alloys • Temperature: Room temperature to 500 °C
	RESERVOIR	<ul style="list-style-type: none"> • Volume: 3 l • Material: Stainless steel/passivation
	PRESSURE GAUGE	<ul style="list-style-type: none"> • Total pressure : Capacitance manometer (10⁻⁴ to 10³Torr) <li style="padding-left: 20px;">: Ionization gauge (10⁻¹⁰ to 10⁻⁴Torr) • Partial pressure: Bremsstrahlung counting (10⁻² to 10³Torr) <li style="padding-left: 20px;">: Quadrupole mass spectrometer (1 to 50 amu, 10⁻⁴ to 10⁻¹⁰Torr)
	VACUUM PUMP	<ul style="list-style-type: none"> • Oil free, Maintenance free
RECOVERY and PURIFICATION	BED	<ul style="list-style-type: none"> • Material: Zr based alloy, 0.5 g • Container: Stainless steel/passivation
	RESERVOIR	<ul style="list-style-type: none"> • Same as the STORAGE-SUPPLY SUBSYSTEM.
	PRESSURE GAUGE	<ul style="list-style-type: none"> • Same as the STORAGE-SUPPLY SUBSYSTEM.
	VACUUM PUMP	<ul style="list-style-type: none"> • Same as the STORAGE-SUPPLY SUBSYSTEM.
SEPARATION	GAS CHROMATOGRAPH	<ul style="list-style-type: none"> • Material: Fe₂O₃/Al₂O₃ • Carrier gas: Inert gas • Temperature: Room temperature • Detector: Thermal conductivity detector <li style="padding-left: 20px;">: Ionization chamber
	RECOVERY BED	<ul style="list-style-type: none"> • Same as the RECOVERY and PURIFICATION SUBSYSTEM
	CIRCULATION PUMP	<ul style="list-style-type: none"> • Metal bellows pump
MISCELLANEOUS	TUBE	<ul style="list-style-type: none"> • Material: Stainless steel/passivation • Tube O.D.: 3/8 or 1/2 inch
	CONNECTION	<ul style="list-style-type: none"> • VCR connector, ConFlat flange, Welding
	VALVE	<ul style="list-style-type: none"> • All metal valve

リチウムゲッター」と記す)としては一般に金属ウラン(ウランゲッター)が使用されるが、ウランゲッターは空気中での発火性、吸蔵-放出の繰返しに伴う微粒化等の問題の他に、ウランが国際規制物質であることによる使用制限がある²⁾。そこで、筆者らはウランゲッターと同等の性能を有し、空気中で発火せず、貯蔵-回収の繰返しによる微粒化もし難いZr系合金ゲッターを開発した。本システムでは、このZr系合金ゲッターを使用する³⁾。トリチウムゲッターの必要量は、貯蔵するトリチウム量によって決められる。本システムでは1回のトリチウムの最大供給量が100Ciに設定されているので、各サブシステムを定常的に運転するためには、トリチウムゲッターの貯蔵能力は1000Ci程度、また解離圧を考慮すると上記のZr系合金は約5g必要である。リザーバーは、トリチウムガスを供給する際の安全性と操作性を確保するために、必要量のトリチウムを一時的に貯蔵するためのものである。3ℓのリザーバーに100Ciのトリチウムを導入した場合、約10Torrの圧力になる。即ち、ゲッターからのトリチウムの供給圧力が低くて済み、ゲッターの加熱温度を低くすることができる。

圧力計は実験系に供給するトリチウム量及び残留圧力を 10^{-9} ~ 10^3 Torrの範囲で測定する。隔膜型圧力計は破損の恐れがなく、感度が気体の種類によらず、感度の異なる幾つかのセンサーを用意すれば 10^{-4} ~ 10^3 Torrの範囲を測定できる点で優れている。 10^{-4} Torr以下の圧力は電離真空計が利用できる。分圧計は供給トリチウム及び残留気体の成分を測定する。この分圧計には吸着トリチウムによるノイズ対策を施した質量分析計が有効である⁴⁾。但し、電離真空計も質量分析計もあらかじめトリチウムに対する感度を測定する必要がある。

真空ポンプは、大気中へのトリチウムの放出が法律で厳しく制限されていること、油回転ポンプのポンプ油等トリチウムを含む廃棄物の処理が困難なこと等の問題がある。これに対し、粗引きポンプとしてソーブションポンプ、高真空ポンプとして水銀拡散ポンプ、イオンポンプ及びバルクゲッターポンプはポンプ本体に機械的稼働部がなくメンテナンスフリーであること及びオイルフリーであること等の利点がある⁴⁾。しかし、ソーブションポンプは吸着剤再生法に改良が必要であり、水銀拡散ポンプはシステム構成材料とのアマルガム生成、寒剤(液体窒素)及び補助ポンプを必要とする等の欠点がある。イオンポンプ及びバルクゲッターポンプは排気容量、ゲッター材のトリチウム汚染等に問題がある。このように、既存のポンプはトリチウム取扱い用真空ポンプとして使用するためにはまだ多くの問題点が残されており、トリチウム仕様の真空ポンプの開発は今後の検討課題である。

3. 2. 回収系

回収系は回収ベッド、圧力計及び真空ポンプからなる。この系は実験系で使用したトリチウムの回収を行うが、回収トリチウムには実験に応じて軽水素及び重水素のみならず酸

高濃度トリチウム取扱いシステムの開発

素、水、一酸化炭素、窒素、不活性気体等の不純物の混入が予測される。従来、このような不純物が混入したトリチウムは真空ポンプで系外に排気し、除去装置により処理した⁶⁾。しかし、100Ciもの大量トリチウムを取り扱う場合は回収-再利用が原則である。Zr系合金ゲッターは室温で選択的に水素を吸収する。また、適当な温度では水を吸収し、再放出の際に水素のみを放出する⁷⁾。即ち、このゲッターの利用により水素同位体と他の不純物を分離できる可能性がある。但し、貯蔵-供給系に比較して不純物気体が多く含まれる回収系ではZr系合金ゲッターの耐不純物特性の評価及び改善が重要な問題となる。

3. 3. 分離-精製系

分離-精製系は分離装置及びトリチウム回収ベッドからなる。ここではトリチウムを含む水素同位体をトリチウムと水素及び重水素に分離する。分離装置は分離効率が良くかつコンパクト化が容易なガスクロマトグラフ法が有利である。但し、 $\text{FeCl}_3/\text{Al}_2\text{O}_3$ 等の通常の分離カラムには液体窒素冷却が必要であるなど問題点もあり今後検討する必要がある。回収ベッドはZr系合金ゲッターが利用できる。しかし、この系でもキャリアーガス及び系の構造材から放出される不純物ガスの影響が予測される。このため、ポンプを含めた系内のガス放出の評価及びその防止が装置の性能を決めるために重要となる。また、回収されるトリチウムの純度に対するこれらのガスの影響もあらかじめ検討しておく必要がある。

3. 4. その他

システム全体として、閉鎖系内に発生する不純物ガス量を一週間 ($4 \times 10^6 \text{sec}$) で循環ガス量 (100Torr) の0.1%以下に抑えることが目標の一つである。このためにはガス放出速度は $1 \times 10^{-6} \text{Torr/sec}$ 以下でなくてはならない。バルブ・継手類はガス放出の低減及びリーク対策のために超高真空仕様とし、バルブは全金属製のベローズバルブ、継手はVCR継手及びコーンフラットフランジを用いる。また、循環ポンプはメタルベローズポンプを用いる。この他に、これらの部品についても耐久性、堅牢性、信頼性及び操作性等について十分検討する必要がある。

このように100Ciシステムの開発に当たっては、①真空ポンプ、②Zr系合金ゲッターの耐不純物特性、③分離カラム、④放出ガス特性等の改良、開発が重要課題になることが明らかとなった。また、実際の大量トリチウムの使用には予想外の問題の発生も考えられる。これらの問題を予測し未然に対策を施すことが、100Ciシステムを製作するためには必要不可欠である。

4. トリチウム循環サブシステム

4. 1. 概要

既存要素技術の問題点を検証するために100Ciシステムの回収系及び分離-精製系を想

定してトリチウム循環システムを設計・製作した。Fig. 1はシステムの概略である。システムは真空ポンプ，トリチウム回収ベッド，循環ポンプ，電離真空計，隔膜真空計，バッファタンク，ベローズバルブ及び配管から成り，死容積は約3.3ℓである。尚，回収ベッドは室温～600℃でのGetterの性能評価のため石英ガラス製とした。

真空ポンプはソーブションポンプと油回転ポンプを組み合わせて用いた。ソーブションポンプは日電アネルバ社製（MS-5A：1.

2kg），油回転ポンプは真空機工製（GVD-100A）である。油回転ポンプはポンプ油のトリチウム汚染の問題からトリチウム取扱い装置での使用は適当でないが，将来同等性能のオイルフリーポンプを使用するものとしてここでは油回転ポンプを用いた。ソーブションポンプは使用法によっては到達圧が 10^{-5} Torrに達し，粗引きポンプのみならず高真空ポンプとしても期待できる⁷⁾。

循環ポンプはメタルベローズ社製MB-41メタルベローズポンプ，電離真空計は日電アネルバ社製シュルツゲージ，隔膜真空計はMKS社製バラトロン122A（1000Torrヘッド），流量計は全金属製のMKS社製488J-10000，バルブは日電アネルバ社製オールメタルバルブ及びNUPRO社製ベローズバルブである。接続配管は装置をコンパクトにするために主にCAJON社製321SSフレキシブルチューブを用いた。配管の外径は循環ポンプの前後のみ1/4インチ，他は1/2インチである。継手はコーンフラットフランジ及びCAJON社製VCR継手を用いた。

4. 2. 排気特性試験

本装置は上述のような理由で高真空ポンプを取り付けられない状況であるが，さしあたり油回転ポンプーソーブションポンプの組合せでGetterの活性化が可能か否かを検討した。その際，装置内壁からの放出ガスが重要な因子であるのでこれも合わせて評価した。排気特性の測定法を次に示す，①一定時間ソーブションポンプで排気ー圧力測定②排気中断ー圧力上昇測定，これらの圧力変化から装置内壁からのガス放出速度を求めた。Fig. 2はこのようにして求めた排気曲線と圧上昇速度の経時変化である。(a)は循環ポンプを含まない系，(b)は循環ポンプを含む系の結果である。(a)では残留圧力及びガス圧上昇速度のいずれも約200分までおおむね t^{-1} に比例しその後定常になった。この際の残留圧力は約 2×10^{-6} Torr，ガス圧上昇速度は約 5×10^{-7} Torr・ℓ/secであった。一方，(b)の場合，残留圧力で約100分，ガス圧上昇速度で約300分まで t^{-2} に比例しその後は $t^{-1/2}$ に比例したが両者とも測

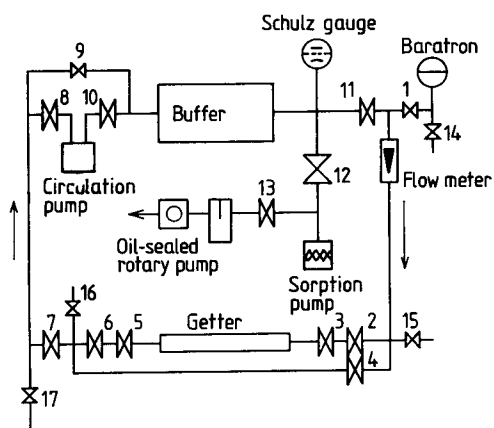


Fig. 1. Schematic diagram of the tritium circulation system.

定範囲内では定常にならなかった。なお、10時間排気した時の残留圧力は約 1×10^{-6} Torr, ガス圧上昇速度は約 2×10^{-6} Torr \cdot ℓ/secであった。即ち、(a)に比べてガス放出速度は4倍速く、残留圧は5倍高い。

(a)の場合ガス圧上昇速度は時間的に一定でなく、これが継手等からの空気の漏れによるものではなく、装置材料からのガス放出によるものであることは明らかである。ちなみに、本装置の主要構造材であるステンレス鋼 (SS)からのガス放出速度は約 2×10^{-10} Torr \cdot ℓ/sec \cdot cm 2 である⁸⁾。本装置のバッファタンクは内表面積が約 10^3 cm 2 で、仮に観測されたガス放出がこの部分からのみとすると単位面積当たりのガス放出速度は約 5×10^{-10} Torr \cdot ℓ/sec \cdot cm 2 となり、文献値にほぼ一致する。また、ガス放出速度が $t^{-(1+a)}$ ($a \geq 0$) に比例する場合は固体表面からの吸着気体の脱離、 $t^{-1/2}$ に比例する場合は固体内部でのガス拡散が関与する⁹⁾。これらの事実を考慮すると

(a)のガス圧上昇はSS表面の吸着気体の脱離によるものと結論される。他方、(b)のガス放出速度は排気の当初 $t^{-1/2}$ に比例し、ガス放出

の機構そのものが(a)と異なっていることを示している。即ち、(a)と(b)のガス放出速度の減少率の相違は、循環ポンプに使われているガス放出特性の異なる材料が全体に大きな影響を与えていることを示している。循環ポンプにはシールにバイトンガスケットが使用されている。バイトンのガス放出速度は 1×10^{-7} Torr \cdot ℓ/sec \cdot cm 2 程度である⁷⁾。バイトンガスケットの系内への露出面積は明らかではないが、仮に 10 cm 2 程度とすると、(b)で得られたガス放出速度の値とほぼ一致する。以上のことから循環ポンプに使われている僅かな有機材料がこの装置の排気特性に大きく影響していると結論される。また、この結果からこの循環ポンプを含む系で 100 Torrのガスを一週間循環させた際の不純物混入量は循環ガス量の約 1% に達することが予測される。さらに、トリチウムは有機材料に容易に溶解する⁹⁾。溶解トリチウムは透過あるいはメンテナンス時の大気開放により作業環境に放出される恐れがある。

上記の排気特性試験で明らかとなった問題点を整理すると、①ガス放出速度は装置全体

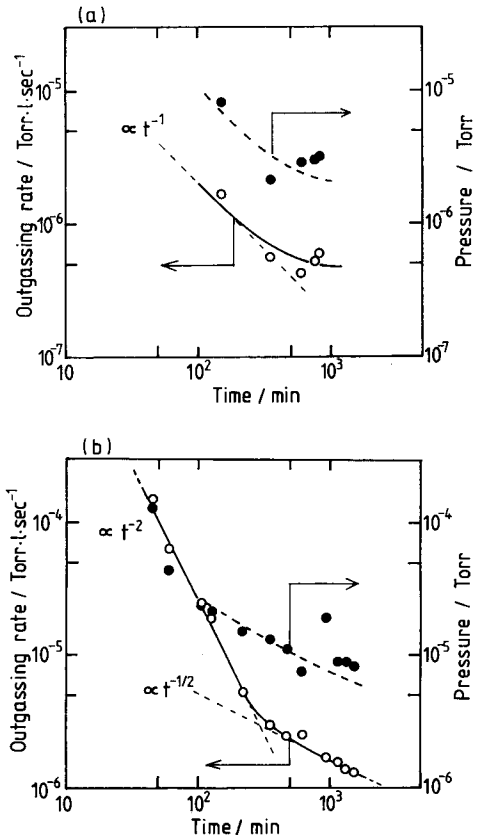


Fig. 2. Outgassing rate and residual pressure of the tritium circulation system without circulation pump (a), and with it (b).

としては必ずしも小さくない。従って、ガス放出速度の低減化が排気特性の改善の観点からも重要な課題となる。②種々の材料について常温での放出ガスの大部分は物理吸着水であることが別の実験から明らかとなっている。これがトリチウム水であることを想定すれば、安全管理上極めて重大な問題である。従って、トリチウム水の物理吸着を防止あるいは低減させ得る表面処理ないしは材料の開発が不可欠である。③装置あるいは部品に使われている僅少の高分子化合物あるいは潤滑剤の有機化合物といえども装置全体の排気特性ひいてはトリチウム格納特性に重大な影響を与える。④上記の問題点は、いわゆるコールドランで見いだされたものである。トリチウムを実際に使用した場合にはその高感度性故にさらに他の問題が露呈する可能性は大きい。従って、今後はトリチウムをトレーサーとする性能評価が不可欠である。

他方、上記の問題点を除くと本装置ではソーブションポンプと油回転ポンプの組み合わせにより 2×10^{-6} Torrまで排気可能であり、系内の不純物除去及びZr系合金ゲッターの活性化の観点からは問題ないことが知られた。即ち、ソーブションポンプー油回転ポンプの組み合わせはトリチウム取扱い装置の真空ポンプとして十分利用でき、ポンプ系の単純化に有効であることが判明した。

今後はこの装置を用いてZr系合金ゲッターの耐不純物特性及び不活性気体からのトリチウム回収試験等を行い、100Ciシステムの製作に必要なデータを収集する予定である。

文 献

- 1) J. S. Watson, C. E. Easterly, J. B. Cannon, and J. B. Talbot, Fusion Technol., 12 (1987) 354.
- 2) 市村憲司, 渡辺国昭, 富山大学トリチウム科学センター研究報告, 6 (1986) 1.
- 3) K. Ichimura, M. Matsuyama, and K. Watanabe, J. Vac. Sci. Technol., A5 (1987) 220. 田中公利, 宇佐美四郎, 長谷川 淳, 松山政夫, 渡辺国昭, 富山大学トリチウム科学センター研究報告, 9 (1989) 47.
- 4) 渡辺国昭, 真空, 29 (1986) 461.
- 5) H. Miyake, K. Ichimura, M. Matsuyama, K. Ashida, K. Watanabe, S. Nakamura and T. Hayashi, Fusion Engrg. Des., 10 (1989) 417.
- 6) 松山政夫, 三宅 均, 蘆田 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.
- 7) 市村憲司, 蘆田 完, 松山政夫, 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, 4 (1984) 37.
- 8) 富永五郎, 熊谷寛夫, 「真空の物理と応用」, (裳華房, 1970) .
- 9) 堀越源一, 「物理工学実験 4 真空技術」, (東京大学出版会, 1983) .
- 10) H. Miyake, M. Matsuyama, K. Ashida and K. Watanabe, J. Vac. Sci. Technol., A1 (1983) 1447.