

論 文

トリチウム除去装置の性能試験 (II)

松山政夫・三宅 均・芦田 完・市村憲司
渡辺国昭・竹内豊三郎・金 信次*・井上照明*

富山市五福3190 富山大学トリチウム科学センター

*日本酸素(株)

Clean-up Capability of an Emergency Detritiation System (II)

By Masao Matsuyama, Hitoshi Miyake, Kan Ashida,
Kenji Ichimura, Kuniaki Watanabe, Toyosaburo Takeuchi,
Shinji Kon* and Teruaki Inoue*

Tritium Research Center, Toyama University, Gofuku 3190, Toyama 930

* Nippon Sanso K.K.

(Received January 14, 1983)

An emergency tritium removing system, using a precious metal / alumina catalyst, was designed and constructed in order to decontaminate tritium leaked accidentally into laboratory rooms. The performance of the system was examined using a balloon for herium recovery or an aluminum vessel as a substitute of a laboratory room. Tritium gas containing about 10% tritiated methane (CH_3T) as an impurity was introduced into the experimental room and then removed with an air flow rate of 72 m^3/h . Tritium gas (T_2) was removed satisfactorily, i.e. the reaction probability was unity, due to a $\text{Pd}/\text{Al}_2\text{O}_3$ catalyst (Nippon Jun Suiso CO., Ltd) at 200°C , while the tritiated methane could not be removed with a sufficient amount of efficiency: its reaction probability was below unity. It was found that the reaction probability of the tritiated methane became unity above 300°C for this catalyst. On the basis of these results, it is estimated that the accidental leakage of tritium of 5Ci (which is the maximum permissible amount used in a day in this laboratory) into a laboratory room can be removed within an 18h period.

1 結 言

多量のトリチウムの取扱い技術の確立は、核融合反応実験を行なうためには不可欠のも

のである。そのためには、従来行われてきたトレーサーレベルの実験ではなく、より多量・高濃度のトリチウムを用いてその物性および反応性に関する基礎的データを蓄積しておく必要がある。この際、必要に応じてトリチウムを速やかに除去するための装置の性能が重要な問題となる。¹⁾

筆者らは、前報²⁾においてグローブボックス専用のトリチウム除去装置の設計・製作およびその性能試験について報告した。この際、トリチウム (T_2) は CuO 触媒 (400~500°C) で効率よく除去できるが、市販トリチウムガス中に不純物として含まれているトリチウム化メタン (CH_3T) の除去は困難であり、除去装置の性能は化学反応性の低い CH_3T の除去能力で決められること、および CH_3T を含むトリチウムガスの除去には国産の CuO 触媒と Pt/Al₂O₃ 触媒を使用することで充分有効であることを報告した。

本報では、国産の貴金属触媒を使用して実験室用トリチウム除去装置の性能を、主としてトリチウム化メタンの燃焼効率の観点から測定し、トリチウムはもとよりトリチウム化メタンについても満足すべき結果が得られたので報告する。

2 空調システム

当センターにおいては Fig.1 に示されるような空調・モニタリングおよび除去システムによりトリチウムの放射線管理を行なっている。なお、管理区域内で使用された水については独立した排水システムにより自動監視され、それらの状況は中央監視盤に表示・記録される。

管理区域は、三系統の空調システム（実験室系・測定室系および廊下系）で換気、調圧されている。実験室系の換気回数は15回/h、測定室系で18回/h および廊下系で7回/hである。また、外界からの減圧の程度はそれぞれ -11mmHg、-7mmHg および -3mmHg である。大気中放射能のモニターは、それぞれの実験室及びスタックに配置され、トリチウム濃度を監視、記録している。トリチウム漏洩時にはモニターシステムから信号が出力され、空調システムの連動により当該箇所のバタフライ弁が閉鎖されると共に実験室用除去装置が作動し当該箇所の除去を行う。

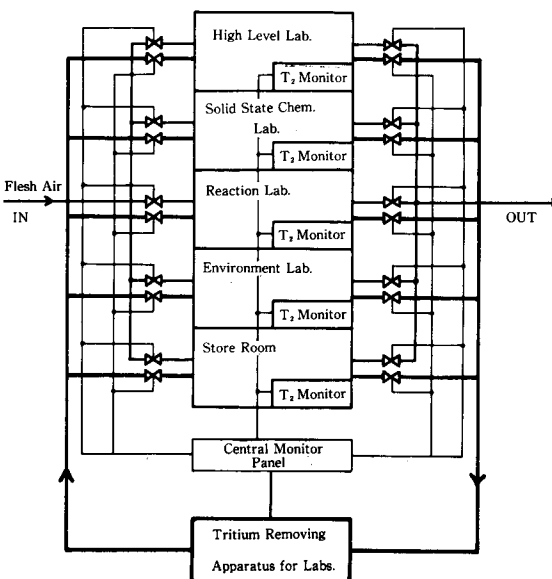


Fig.1 Flow sheet of the tritium monitoring and removing system in tritium Research Center.

3 除去システム及び実験

Fig.2 はトリチウム除去システムの概略図である。システムは触媒筒、冷却器、吸着筒及び循環ポンプより構成されている。触媒筒は比較的高温となり、多量のトリチウム処理時にはトリチウムの器壁への吸着・溶解・透過による汚染が問題となるので、本装置ではこれを抑制するため、SUS304 製筒の内面にガラスライニングを施した。また、配管部分はトリチウムの吸着性の低いアルミニウム³⁾を母体とする合金 (JIS 5052) を用いた。

用いたトリチウムガスは New England Nuclear 社製で、Fig.3 に示すラジオガスクロマトグラフィーによる分析結果によれば、このトリチウムガス中には10%のトリチウム化メタンとわずかにトリチウム化エタン等が含まれている。実験に先だちこのガスを分取し易いようにヘリウムガスで希釈した。この希釈トリチウムガスの比放射能は17Ci/mol (He) であり、除去試験用としてガラスアンブルに 0.05~0.6mCi 封入したものを使用した。なお除去試験に際してはヘリウム捕集用バルーン (1.3m³) またはアルミニウム製円筒容器 (70ℓ) で実験室を模擬した。触媒筒にはアルミナにパラジウムを約0.5wt%担持したもの (Pd/Al₂O₃ 日本純水素(株)社製) を 18kg 充填した。また、吸着剤としてはモレキュラーシーブ 5A (ユニオン昭和(株)) を 25kg 用いた。

トリチウム除去試験を開始する前に、シス

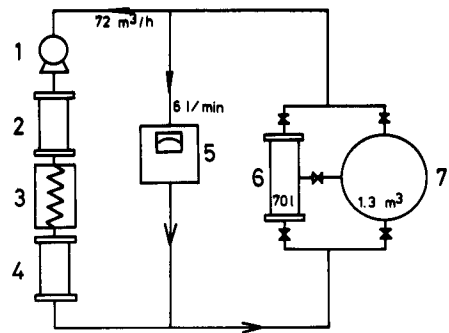


Fig.2 Flow sheet of the tritium removing examination. 1. Blower
2. Catalyst Bed 3. Cooler
4. Adsorbate Bed 5. Tritium Monitor 6. Aluminum Vessel
7. Balloon

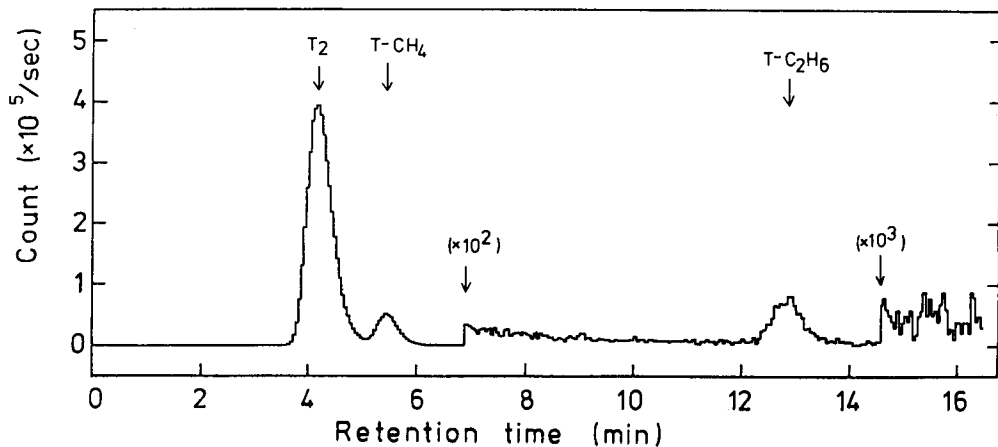


Fig.3 A radio-gaschromatogram of a tritium gas (purchased from New England Nuclear Co. Ltd.)

テム内に空気を導入し循環運転を行いながら触媒筒を200または 300°C まで昇温した。運転を一時停止して、ヘリウム捕集用バルーン（またはアルミニウム容器）内にトリチウムを導入した。次いでその濃度が定常に達した後に循環を再開した。この時、システムの循環ポンプの流速は 72m³/h であり、反応温度のモニターとして触媒筒出口のガス温度を測定した。系内のトリチウム濃度の変化は、気体を連続的に採取して通気型電離箱(容積10ℓ)で測定した。この時の流速は、6ℓ/min であった。

4 結果及び考察

まず予備実験として、循環ポンプから窒素と水素の混合気体 (H₂ 濃度, 5-10ppm) を導入し吸着筒から出てくる気体中の水素濃度を測定した。Fig.4 はこの結果で、図のように 10ppm の水素は 200°C 以上の温度で検出限界以下まで除去されることがわかった。

Fig.5 は、実験室の模擬としてヘリウム捕集用バルーンを用いた場合のトリチウム除去曲線である。曲線Aは、触媒筒温度を 200°C として除去試験を行なった場合、Bはその後に 300°C まで昇温した時のトリチウム濃度変化を表わしている。反応温度を 200°C とした場合実験開始当初はトリチウム濃度はきわめて速かに減少したが、約15分後にはこの急な減少が止まり、それに引き続いてトリチウム濃度がゆっくりとなだらかに減少する領域があらわれた。曲線Aのなだらかな部分から外挿される初濃度が試料気体の初濃度の約10%であることより、この領域では未反応のトリチウム化メタン (T-CH₄) の燃焼の経時変化と推定された。他方、前報²⁾の結果も考え合わせると、初期の急激な濃度変化は T₂ の燃焼に伴うもので、このことよりトリチウムガスは 200°C で充分除去されることがわかった。この結果は前報²⁾の結果から推定される経時変化と良い一致を示している。未反応のト

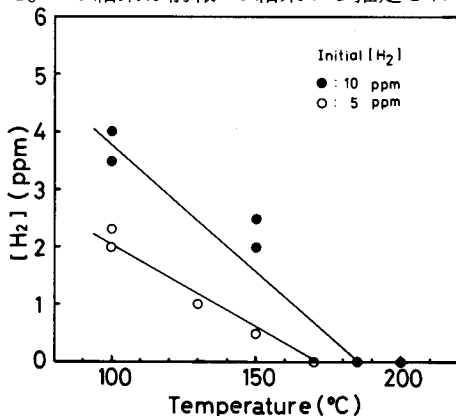


Fig.4 Changes of hydrogen concentration in nitrogen-hydrogen mixtures leaving the removing system in one-through mode with temperature of catalyst bed.

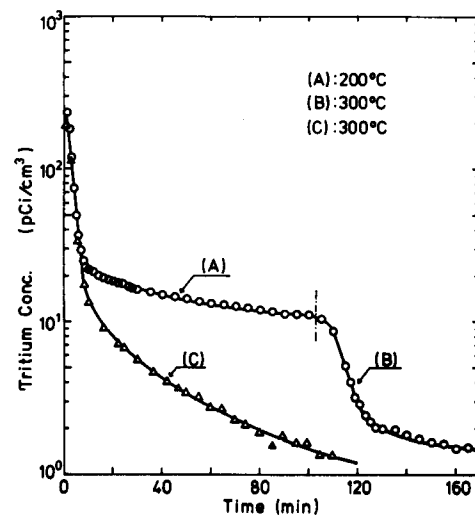


Fig.5 Removal curves of the tritium gas in the balloon.

トリチウム化メタンは曲線Bに示したように、触媒筒を 300°C に昇温すると除去することができて、トリチウム濃度は約 1 時間後にバックグラウンドまで減少した。

この結果を確認する目的で、初めから触媒筒の温度を 300°C に設定して、同様の除去試験を行なった。そのときの除去曲線がCである。上記実験からの予測とは異なり、約 10pCi/cm³ から除去速度が減少し、この部分の減少速度は曲線Bの部分よりも遅い。この原因を調べる目的で、曲線Cで表わされる試験の後バルーンとトリチウムモニターのみを含む閉鎖循環系を構成しこの中のトリチウムの濃度変化を測定した。この時に得られた結果を Fig.6 に示す。図のように、トリチウム濃度は単に空気を循環するのみでも時間の経過とともに徐々に増加した。この現象は除去実験中に一部のトリチウムがバルーンの構成材料であるネオプレンに溶解し、これらが再放出されることによるものである。このことを考慮すると、曲線Cでの遅いトリチウム濃度の減少はバルーンからのトリチウムの再放出によるものと考えられる。

この点を確認するため、ゴム製のバルーンの代わりにトリチウムが比較的吸着しにくいアルミニウム円筒容器で実験室を模擬し、同様の試験を行なったところ Fig.7 に示すような結果が得られた。なおここで曲線Aは反応温度が 200°C、Bは 300°C の結果である。図の曲線Bが示しているように、反応温度を 300°C とした場合には明らかにトリチウムおよびトリチウム化メタンが共にほぼ100%の効率で燃焼し、捕集されている。この結果はバルーン材からのトリチウムの再放出により、バルーンを使用した場合には除去効率が悪くなるという上記の推定を裏付けている。本実験において、 $C=C_0 \exp(-kt)$ と書き表わしたと

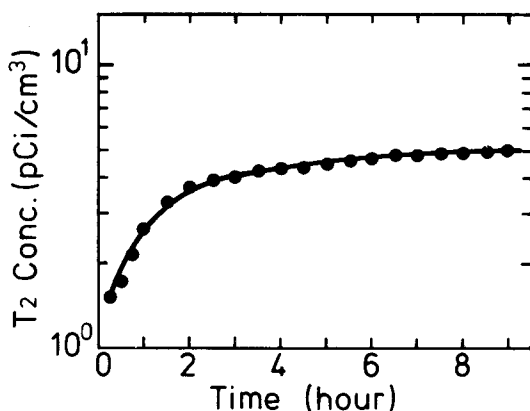


Fig.6 Change in tritium concentration in a balloon after the removing examination.

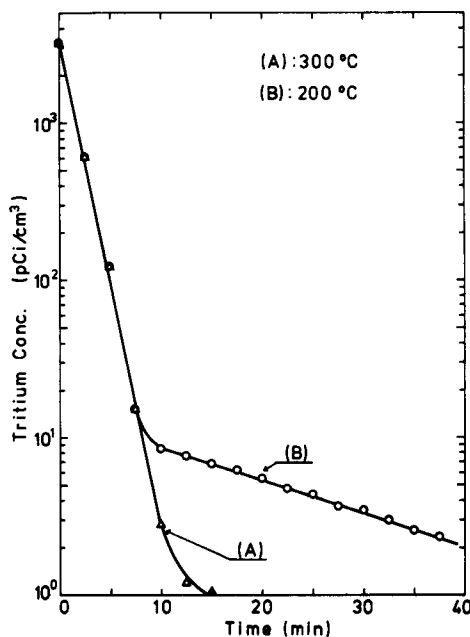


Fig.7 Removal curves of the tritium gas in the aluminum vessel.

きの速度定数はバルーンおよびアルミニウム容器の場合に対し各々 0.35min^{-1} および 0.75min^{-1} の値が得られ、初期より大きくトリチウムの吸着・溶解能の影響を受けている。

アルミニウム容器を用いた場合の除去試験結果によれば、除去速度は除去装置の換気速度で決まり、たとえば約 150m^3 の実験室に 5Ci のトリチウムまたはトリチウム化メタンが放出されこれらが大気中のみに存在するとすれば、18時間で許容濃度以下まで除去し得る。

しかし、ヘリウム捕集用バルーンとアルミニウム容器を用いた場合の比較から明らかな様に実験室模擬材料によって除去性能が著しく異なる。この現象は多量のトリチウムガスが実験室の壁等に接触したときの吸着・溶解性が材料により大きく異なり、その材料に対するトリチウムおよびその化合物の吸着・溶解性が大きい場合には、除去効率が著しく悪くなることもあり得ることを示している。

5 ま と め

多量のトリチウムを使用する際、必要に応じてトリチウムを速やかに除去するためのトリチウム除去装置の性能が問題となる。本報告では、その性能を特に不純物として存在するトリチウム化メタンについて調べた。その結果、以下の知見が得られた。

- (1) トリチウムガスの除去は、 $\text{Pd}/\text{Al}_2\text{O}_3$ 触媒を用いた場合比較的低温の 200°C で充分行える。
- (2) 不純物として反応性の低いトリチウム化メタンを含むトリチウムガスについても、 $\text{Pd}/\text{Al}_2\text{O}_3$ 触媒を 300°C の反応温度とすることにより、ガス 5Ci を18時間以内にバックグラウンド濃度まで除去し得る。
- (3) バルーンを用いた結果で示される相異から、実験室の床・壁・天井などの材料へのトリチウムの吸着・溶解の程度によって除去時間が大きく変動することが予測される。従って、これらの材料に対するトリチウムの吸着性及び溶解性を十分に調べておく必要がある。

文 献

- 1) K. Shikama, M. Saido, K. Nakamura, R. Yamada, and Y. Murakami, *J. Nucl. Mater.*, **98** (1980) 270-278.
- 2) 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(1) (1981) 15-24.
- 3) T. Takeuchi, and M. Matsuyama, unpublished.