



3. 核融合施設における放射線計測

3. Radiation Measurement in Fusion Facility

3.2 トリチウム計測の基礎と実践

3.2 Basis and Practice of Tritium Measurements

松山 政夫

MATSUYAMA Masao

富山大学水素同位体科学研究センター

(原稿受付：2013年9月6日)

核融合炉システムにおけるトリチウムの閉じ込め性能およびその健全性を監視し、施設内の作業員および公衆の安全性を確保するためには、種々のトリチウム測定装置の設置が必要となる。そこでトリチウムの化学形や物理的状態、濃度範囲および測定環境などの条件を考慮した測定装置や測定法の例示と共に注意事項を記す。

Keywords:

tritium, measurement, β -ray, D-T reactor, environment

3.2.1 はじめに

第一世代の核融合炉では元素状のトリチウムと重水素が燃料となるが、炉の運転においては燃料の粒子制御が第一義的に重要である。しかし、炉心において消費される燃料は数%程度であり、大部分の燃料は回収されたのちに純化されて再び燃料として使用される。この燃料循環プロセスにおいて、元素状以外の化学形を有する高濃度の水蒸気状トリチウムやトリチウム化メタン等が混入するため、これらのトリチウム化合物からのトリチウム回収プロセスが不可欠となる。また、トリチウム製造の役割をなすブランケットからのトリチウムの回収・純化プロセスも加わる。このような燃料循環プロセスを安定して運転するためには、各プロセスでのトリチウム量や濃度の測定は必須であり、各プロセスでの測定条件に合致した種々の計測法が適用されることになる。

一方、核融合炉システム内には高濃度かつ大量のトリチウムが存在するため、環境保全や被ばく防止の観点より、定常運転時における炉システムからのトリチウムの透過・漏洩を最小限に食い止めるための技術的対策が必須となる。これと同様に、透過対策等の健全性を常時監視するためには核融合炉システムの内外における空気中のトリチウム濃度の測定が不可欠であるが、その際の濃度範囲は上述の燃料循環系における濃度領域とは大きく異なる。

このような観点より、燃料循環系におけるトリチウム測定については他の報告等に譲り[1, 2]、本節では核融合炉システムの外側における空気中のトリチウム濃度、適用し

得る測定装置、要求仕様および人体や固体材料表面のトリチウム測定法について注意すべき点などを含めて概要を記す。

3.2.2 トリチウムの化学的状態および物理的状態

核融合炉システム内で存在するトリチウムの化学形としては、元素状トリチウム (HT, DT および T_2) が主となるが、これ以外にも水蒸気状トリチウム (HTO, DTO および T_2O) やトリチウムを含むメタン化合物 (CH_3T , CH_2T_2 , CHT_3 および CT_4) およびこれ以外の有機物 (CH_xT_y) が想定される。炉心に供給される燃料としてのトリチウムは基本的に元素状トリチウムであるが、炉心から排気される気体の中には炉内で使用される材料の表面構成原子などとの相互作用によって生じた元素状トリチウム以外の分子種が生じ、排気される気体の中に混入し得る。したがって、測定対象となるトリチウムは元素状トリチウム以外のトリチウム含有分子種も考慮しなければならない。

このように種々の気体状トリチウム分子種の混合状態に加えて、物理的状態としては液体および固体状態 (トリチウムが固体材料に吸着や溶解したものを含む) の分子種も存在し得る。したがって、測定対象となるトリチウムの化学形および物理的状態の両者を考慮して最適の測定方法を選択する必要があるが、単一の測定装置でこれらのトリチウムをすべて測ることは不可能であり、すべてのトリチウム分子種の精密な濃度測定に対応するためには色々な測定方法・手段を準備しなければならない。ただし、現実的な放射線防護の観点からみると、作業員が出入りするよう

核融合炉施設内の作業室では、元素状トリチウムと水蒸気状トリチウムの濃度を考慮した測定法を検討すれば十分であろう。

3.2.3 測定対象となるトリチウム濃度

核融合炉施設内で測定対象となるトリチウム濃度は核融合炉システム内とその外で大きく異なる。即ち、核融合炉システム内では元素状トリチウムや水蒸気状トリチウム等の気体状トリチウムが主となり、それらの精密測定が対象となる。この場合のトリチウム濃度の最高値は約 100 GBq/cm^3 となるが、最低値は 10 kBq/cm^3 程度となるであろう。一方、炉システム外で作業者が常時出入りするような核融合炉施設内では、環境レベル付近の濃度 ($\sim 0.1 \text{ Bq/cm}^3$) までが測定対象となる。

作業者の被ばく防止という観点では、人体への取り込み効率を考慮すると、元素状トリチウムに比べて水蒸気状トリチウム濃度の精密測定が重要となる。現在、放射線施設に対して適用されている「放射性同位元素等による放射線障害の防止に関する法律」で規定されているトリチウムの空気中濃度限度等を表1に示す。なお、表中の空気中濃度限度は1週間の平均濃度、排気中および排水中濃度限度は3月間の平均濃度であり、何れの濃度限度も瞬間値ではない。表1から明らかなように、水蒸気状トリチウムやトリチウム含有有機化合物に対する空気中および排気中濃度限度はきわめて低く、元素状トリチウムのそれらに比べて4桁以上厳しく制限されている。

3.2.4 測定装置および測定環境

表1に示した濃度限度は人体の構成元素の一つである水素(H)とトリチウム(T)との交換反応の進行を考慮しているためである。即ち、同じトリチウムでも化学形の違いによって測定対象となる濃度範囲が大きく異なる。このように濃度限度に大きな差があるとき、単一の検出器で複数の分子種からなるトリチウム混合物を弁別して測定することは不可能である。これを回避するため、例えば、元素状トリチウムと水蒸気状トリチウムを弁別して測定できるようにするために異なる機能・性能を有する検出器2台を配置する方法がある。また実時間測定ではないが、水蒸気状トリチウムのみの濃度の精密な測定法の一つとして、1週間程度の積分値を水バブラーを使用して測定する方法がある。

作業室内のトリチウム濃度の実時間測定に適用できるトリチウム濃度測定装置の候補としては通気型の電離箱が挙げられる。これは環境レベルに近いトリチウム濃度を実時間で測定でき、可動部をもたない簡単な構造のため耐久性も高いことなどが理由として挙げられるであろう。ただし、表1に示したように、水蒸気状トリチウムの濃度限度はきわめて低いため、大容積の電離箱を用いても測定はかなり困難である。

先に述べたように、電離箱による測定を補完する測定法として作業室から排気される空気を連続的に分取して水バブラーに通し、これに捕集されたトリチウムを液体シンチ

表1 トリチウムに対する空気中濃度限度等。

核種	化学形等	空気中濃度 限度 (Bq/cm ³)	排気中濃度 限度 (Bq/cm ³)	排水中濃度 限度 (Bq/cm ³)
³ H	元素状水素	1×10^4	7×10^1	
	メタン	1×10^2	7×10^{-1}	
	水	8×10^{-1}	5×10^{-3}	6×10^1
	有機物(メタンを除く)	5×10^{-1}	3×10^{-3}	2×10^1
	上記を除く化合物	7×10^{-1}	3×10^{-3}	4×10^1

レーションカウンターで測定する方法がある。この際元素状トリチウムが空気中に混入していても水バブラーでは捕集されないので水蒸気状トリチウムのみを蓄積できる。この方法は実時間での濃度変化は不明となるが、表1に示したような濃度限度に近い場合でもトリチウム濃度の平均値を求めることが可能である。

実環境での電離箱による測定で問題となる点は、作業室内の湿度および自然放射能の影響である。前者は電離箱内の中心電極が高抵抗($\sim 100 \text{ M}\Omega$ 程度)で絶縁されているため、湿度が高くなりすぎると電極付近に結露が起り、暗電流の増大が起り得る。ただし、空気調和設備などによって空気の温度や湿度が制御されている場合には問題とはならない。一方、後者の自然放射能の影響としては、コンクリート製建屋の場合、ラドン濃度の影響を考慮しておく必要がある。ラドンはトリチウムからの β 線よりもはるかに電離能の大きい α 線を放出するため、トリチウムよりも低い濃度でも大きな電離電流として観測され、誤信号の原因の一つとなる。通常、作業室内は外気の圧力よりも低く維持されるため、建屋の壁などにわずかなひび割れが発生した場合でもラドンの通り道となるため、日常的な監視が必要となる。

3.2.5 要求される応答性能

このような環境レベルまでのトリチウム濃度を測定する装置は、平常時での濃度測定のみならず、異常時に際しては他の安全設備と連動して動作するように設計されるであろう。例えば、トリチウムの漏洩事故に対処するための「緊急用トリチウム除去装置の運転開始」や「空気調和設備の流路制御」などが挙げられる。トリチウムの漏洩信号はトリチウム濃度測定装置から空気調和設備に送信され、トリチウム漏洩事故の発生室(場所)の空調を遮断すると同時に緊急用トリチウム除去装置を作動させる。風量との関係より、この一連の作業に要する時間が問題の深刻さを決定することが有り得る。したがって、このような環境レベルの濃度を測定する装置では安定性と同時に応答性能が重要な要素となる。

一方、他の安全設備と連動させる場合に注意すべき点がある。それは誤信号の発生の問題である。特に、環境レベルのトリチウム濃度を実時間に近い状態で測定する装置ではきわめて微小な電流(10^{-12} A レベル)を測定することになる。このため誤信号が外的要因や電気回路部品等の不具合から発生することが有り得る。誤信号が一旦発信されると、トリチウム濃度測定装置と連動している全ての設備が

動作することになり、二次的な障害が発生する可能性がある。したがって、このような事象を未然に防止するための一つの手段として、同一性能のトリチウム濃度測定装置を2台使用し、それらが同時に異常状態を検知した際にのみ異常信号を発報させる方法である。

3.2.6 メモリー効果

上述したように、環境レベルのトリチウム濃度を実時間で測定するための候補装置としては3ℓ以上の有効体積を有する通気型電離箱が挙げられるが、この種の検出器ではトリチウムを含む気体が検出器の内部を通過するために、電離箱の内壁材料へのトリチウムの吸着・溶解による汚染が不可避である。即ち、トリチウムのメモリー効果が発現し、バックグラウンドレベルが上昇することがある。特に、高濃度のトリチウム水蒸気が通過したような場合にはこの現象が顕著となり、検出器内のトリチウム濃度が低下してもみかけ上は高い値を示し続ける。これは低濃度トリチウムの精密測定に際しての障害となる。したがって、高濃度のトリチウム水蒸気などが通過する可能性があることが予測される場合には、予めトリチウムの吸着・溶解を低減、あるいは吸着したトリチウムを速やかに除去するための方策を講じておかなければならないであろう[3,4]。

3.2.7 材料表面の汚染状況の測定

核融合施設内では空気中のトリチウム濃度のみならず、被ばくの低減および汚染の拡大防止という観点より、人体を初めとして種々の物品や材料の表面汚染の状況を測定する必要がある。このための測定法として、スミヤ法[5]、トリチウム用サーベイメーター（大面積薄窓形ガスフローカウンター[6]）、 β 線誘起X線計測法（BIXS法[7]）、およびイメージングプレートなどが適用可能である。スミヤ法は被測定物の表面を100 cm²程度拭き取り、これを液体シンチレーションカウンター等で測定するもので、定量性には欠けるが、迅速な評価には適している。トリチウム用サーベイメーターには可搬型もあり迅速な測定には適しているが、超薄膜の放射線入射窓となっているため薄膜が破れやすく、薄膜の支持体などで β 線の吸収が起こるため検出効率が低い点が難点である。なお、作動気体としてPRガス（アルゴンとメタン10%の混合ガス）を必要とするため、ガスの維持管理も必要となる。

日常的な汚染状況の測定には適していないが、材料表面や表面層に保持されているトリチウム量を評価するためのBIXS法は、測定表面にアルゴンガスを吹き付けながら、 β 線との相互作用によって発生するアルゴンの特性X線強度をX線検出器で測定する方法である。X線強度は材料の表面から放射される β 線の強度に比例する。検出下限は50 Bq/cm²程度であるが、定量性に優れている。なお、測定時間は表面のトリチウム濃度に依存して変わり、検出限界付近の濃度測定には100時間程度を要する。トリチウムの分布状態を測定したい場合にはイメージングプレートが適

用可能である。これは有機フィルム上に輝尽性蛍光体粉末を塗布した2次元センサーであり、BIXS法と同様に β 線強度の積分が可能であり、低濃度のトリチウム分布の測定にも適用できる。

3.2.8 人体内へのトリチウム取り込み状況の評価

トリチウムから放出される β^- 線のエネルギーはきわめて低く（最大エネルギー：18.6 keV、平均エネルギー：5.7 keV）、外部被ばくよりも内部被ばくの方が問題となる。特に、トリチウム水蒸気の場合には呼吸を通して体内に取り込まれやすい。即ち、人体内へのトリチウムの取り込みが起こった可能性がある場合には、体内のトリチウム濃度を迅速に評価する必要がある。この評価のための基礎データ取得法として、一定時間ごとに尿中のトリチウム濃度を液体シンチレーションカウンター等で追跡する方法がある。これにより被測定者の体内におけるトリチウムの生物学的半減期を考慮した被ばく線量を推定できる。なお、人間における生物学的半減期として10日が報告されている[8]。

一方、これに変わる簡便な測定法として、所定量の呼吸を冷却管中を通し、その中に含まれている水蒸気を捕集し、これを少量の水で洗浄・回収してトリチウム濃度を液体シンチレーションカウンターで測定するコールドトラップ法がある。この方法は尿測定法よりも精度は劣るが、測定の容易さや迅速性の点において優れている。本法は呼吸中のトリチウム濃度が体内の水分中のトリチウム濃度を反映することを利用したものである。ただし、この方法ではバックグラウンドの値に個人差が表れる場合があるので、平常時での各人のバックグラウンドを予め測定しておくことも肝要である。これにより、体内のトリチウム濃度のより正確かつ迅速な評価が可能となる。

3.2.9 おわりに

核融合施設におけるトリチウム計測は施設内の作業員および公衆の安全を確保する上で不可欠な作業項目である。現在、国際協力の下で国際熱核融合実験炉（ITER）の建設が進められており、数kgオーダーのトリチウムを使用して試験が行われる予定である。今後、トリチウム計測技術の高度化がますます重要となるであろう。

参考文献

- [1] 渡辺国昭, 松山政夫: プラズマ・核融合学会誌 70, 36 (1994).
- [2] M. Matsuyama *et al.*, Nucl. Fusion 47, S464 (2007).
- [3] M. Matsuyama *et al.*, Fusion Technol. 8, 2461 (1985).
- [4] H. Miyake *et al.*, Fusion Eng. Des. 10, 417 (1989).
- [5] L. Rodrigo *et al.*, Fusion Technol. 28, 940 (1995).
- [6] 佐藤博夫 他: 保険物理 19, 313 (1984).
- [7] M. Matsuyama *et al.*, Fusion Sci. Technol. 41, 505 (2002).
- [8] E.A. Pinson and W.H. Langham, J. Appl. Physiol. 10, 108 (1957).