

講座

トリチウム実験入門

How to Start Tritium Experiments

1. どんなどころに使われているの? トリチウム利用の現状と将来

1. Engineering and Scientific Applications of Tritium –Present and Future–

波多野雄治

HATANO Yuji

富山大学学術研究部理学系

(原稿受付: 2019年10月18日)

トリチウムは、将来の核融合炉の燃料として期待されるだけでなく、既に長寿命で安定した光源および電源において活用されており、またニュートリノの質量決定や中性子過剰核の生成、負ミュオン顕微鏡の構築など物理学の最先端分野で決定的な役割を果たしている。本章では工業的应用と最先端科学研究における活用の両面から、トリチウム利用の現状と将来展望について述べる。

Keywords:

tritium, radioluminescence, nuclear battery, neutron-rich nucleus, muon microscope

1.1 はじめに

本章ではトリチウム (^3H または T) が工業的に、また科学技術の発展のために、どのように役に立っているのかを紹介する。トリチウムという言葉自体はここ数年で国民の間に浸透したが、残念ながら福島第一原子力発電所汚染水問題によるものであり、負の側面のみが強調されている。しかしトリチウムは、核融合炉の燃料として将来世代にエネルギーを供給するのみならず、他の様々な面でも人類の発展に貢献する潜在能力を持っている。そのような活躍の一端に触れ、「トリチウムの研究をはじめよう」と思っただけなら幸いである。なお、核融合・原子力関連のトリチウム技術については、既に本誌に多くの記事が掲載されているので、そちらをご覧ください。参考のため、2001年以降に掲載された講座と小特集を参考文献[1-5]に記載した。

表1にトリチウムの放射性同位元素としての特徴を示す。トリチウムは放射線としては極めて低エネルギーの β 線のみを放出する核種である。



$\bar{\nu}$ は反ニュートリノである。壊変で発生するエネルギーは β 線と反ニュートリノに分け与えられるので、 β 線は連続エネルギースペクトルを取り、その平均エネルギーは

5.7 keV, 最大エネルギー 18.6 keV である。この β 線の飛程(到達距離)は空気中で約6 mm, 水中で約6 μm と短く、食品用ラップフィルムなどで十分に遮へいできる。したがって、トリチウムがガラスや金属製の容器内に閉じ込められている限りは、放射線被ばくが生じることはない。そのため、比較的民生利用がしやすい放射性同位元素と言える。万が一トリチウムが漏洩して人体へ付着した場合も、 β 線は皮膚表面を覆う角層で遮へいされるため外部被ばく(体外被ばく)は問題とならず、吸入等で体内に取り込んだ場合の内部被ばくのみが問題となる。取り込まれたトリチウムは尿などとして排出され、体内のトリチウム濃度の半減期は水の状態(HTO)で約10日、有機物に結合した状態で約40日である[2]。すなわち、生物学的半減期は、物理学的半減期(12.3年)と比べてかなり短い。

表1 放射性同位体としてのトリチウム(T)の特徴。

β 線の最大エネルギー	18.6 keV
β 線の平均エネルギー	5.7 keV
空気中の飛程	約6 mm
水中での飛程	約6 μm
水中での平均到達距離	約500 nm
物理学的半減期	12.3年
生物学的半減期	トリチウム水 HTO: 約10日 有機物に結合した T: 約40日

本章ではまず、工業的応用例として放射線ルミネッセンスとトリチウム電池について紹介する。また、科学の最先端でのトリチウム利用の例として、中性子過剰核物理の研究、ニュートリノの質量の決定、負ミュオン顕微鏡の開発について述べる。

1.2 放射線ルミネッセンス

放射線のエネルギーで蛍光材を発光させると、外部電源を必要としない長寿命な光源が得られる。そこで、停電時でも確実に認識される必要がある建物や航空機内の避難誘導灯、暗所での長時間作業に使用される腕時計の針や文字盤などにトリチウム光源が使用されてきた。腕時計の例を図1 [6]に示す。光源の構造はいたって単純で、蛍光材を内壁に塗布したガラス管内にトリチウムガスを封入するだけである。表1に示すようにトリチウムの物理学的半減期は12.3年なので、放っておいても十年単位で光り続けるため、交換頻度が低くてすみ信頼性も高い。避難誘導灯における北米の基準は、一標識当たり925 GBq (25 Ci) のようである[7, 8]。また、トリチウムを用いた時計(図1)にはT25やT100等の表示が記載されていることがあるが、これらは25または100 mCi (925 MBq または 3.7 GBq) を示している[9]。インターネットで"tritium sign"や"tritium watch"で検索すれば、多くの市販品の広告や、関係機関からの廃棄手続きの案内などがヒットするので、一度試して欲しい。なお、トリチウムを使用した商品を購入する際は、含有量が法律で規制される値未満であることを、信頼できる販売店にて十分に確認する必要がある。

1.3 トリチウム電池

放射性同位元素を用いた電池は、充電しなくても長期間安定して発電できる電源として宇宙開発等で利用されてきた。従来は放射線のエネルギーで発生する熱をゼーベック素子で電力に変換する方式が用いられていたが、小型化が困難なため、放射線を半導体に入射させ、そのエネルギーを直接電力に変換する方式が開発された[10]。先述のようにβ線の飛程が極端に短いトリチウムは、小型長寿命電池



図1 トリチウムによる放射線ルミネッセンスを利用した腕時計 (I, Autopilot, Swiss Military Watch Commander model with tritium-illuminated face, <https://en.wikipedia.org/wiki/Radioluminescence#/media/File:Tritium-watch.jpg>).

のエネルギー源としてうってつけである。

トリチウムを用いた電池は既にくつかのメーカーより市販されているようだが、ここでは仕様等が広く公開されている City Labs 社の製品を紹介する(図2 [11])。同社は20年以上交換不要な電池としてトリチウム電池を販売している。また、化学反応を伴わないので、 -40°C ~ 80°C という広い温度範囲で使用できるのも魅力である。

City Labs 社の製品の初期トリチウム含有量は、2 Ci (74 GBq) 未満または 100 Ci (3.7 TBq) 以下であり、後者における出力が0.125 mWである。3.7 TBqのトリチウムが放出するエネルギーが3.4 mWなので、エネルギー効率は3.7%と見積もられる。一方で、ある研究によるとスマートフォンは待機中でも68.6 mWを消費するとのことである[12]。この値と比べても、トリチウム電池で得られる出力は決して大きなものではない。低電力の長期間安定供給が求められるような用途や、化学電池では耐えられない過酷な条件での使用が想定される。例えば、コンピュータの電源を切った状態でも暗号化キーを長期間安全に保持する用途などが提案されている[11]。自動車や航空機、ロケット、人工衛星、橋梁やトンネルなど、高い安全性と長期信頼性が求められる乗り物やインフラ設備において、異常を感知するセンサーなどにも利用できるであろう。

今後、身体機能を補助するための小型インプラント装置や健康管理・治療のために体内で動作するナノロボットなどが発達するであろう。一般的に、装置が小さくなれば消費電力は減少する。将来、体内で働く超小型装置がトリチウムで駆動される時代が来るかもしれない。

1.4 中性子過剰核の物理

原子核物理を習った方は、核子1個あたりの結合エネルギーが質量数に対してプロットされたグラフをもとに、原子核は ^{56}Fe が一番安定であり、それより軽い水素などは核融合し、重いウランなどは核分裂する、と教わったことと思う。ならば、Feより重い元素は、どのようにして形成されたのだろうか? ビッグバンで形成された原子核の質量数は、最大でも7 (Li) までだったそうである[13]。恒星中の核融合反応で形成されるのはFeまでで、それより重い元素は、全く別のルートを通して合成される[13]。

その別ルートの一つが、中性子吸収に伴う中性子過剰核の形成と、その後のβ壊変である。β壊変では、原子核中の中性子が陽子に変換するために、原子番号が1つ増える。



図2 トリチウム電池の例 (City Labs 社[11])。)



ここで Z は原子番号, A は質量数で, X と Y は元素記号を表している. この反応で生成された Y がさらに中性子を吸収して中性子過剰核となり, 再度 β 壊変すると, 原子番号は $Z+2$ に増え, さらに反応が繰り返されると, どんどん高原子番号の元素が生成されていく. このような過程が赤色巨星の中や, 超新星爆発ならびに中性子星同士の合体等の間に生じ, 重たい元素ができたと考えられているが [13], 詳細はわかっていない.

このように重元素生成の過程で重要な役割を担う中性子過剰核の特性を詳細に調べるには, 中性子過剰核を実験室で生成する必要がある. その手段の一つが, 中性子数:陽子数が 2:1 という著しい中性子過剰状態にあるトリチウムとの核反応である. 例えば, Wimmer ら [14] は ${}^{30}\text{Mg}$ のビームを, 公称濃度 $[T]/[Ti]=1.5$ までトリチウムを添加したチタン標的に照射し, ${}^{32}\text{Mg}$ を生成すると共に, エネルギー状態の分析に成功している. マグネシウムの天然同位体は ${}^{24}\text{Mg}$, ${}^{25}\text{Mg}$, ${}^{26}\text{Mg}$ なので, これらと比較し ${}^{32}\text{Mg}$ がいかに中性子過剰の状態にあるかがわかる. 今後, このようなトリチウム標的の利用により中性子過剰核の物理が詳細に理解され, 重元素生成の謎が解けることが期待される.

究極の中性子過剰核として, 中性子のみから構成される原子核の探索も行われている. Kisamori ら [15] は, 理化学研究所仁科加速器研究センターの RI ビームファクトリーにて ${}^8\text{He}$ ビームを液体 ${}^4\text{He}$ 標的に照射し, 4 個の中性子のみからなる原子核の共鳴状態「テトラ中性子共鳴」の候補を発見した. この成果は中性子星の構造解明などにつながるとして注目されている. 一方, 東北大学, 理化学研究所仁科加速器研究センターを中心とするグループは, ${}^3\text{H}({}^3\text{H}, {}^3\text{He}){}^3\text{n}$ 反応により三中性子状態が形成される可能性があると考え, トリチウムを高濃度に含有するチタン標的にトリチウムビームを照射する実験の準備を進めている [16, 17]. 新たな多中性子系の発見が期待される. これらの分野の発展に貢献すべく, 著者が管理・運営に携わっている富山大学研究推進機構水素同位体科学研究センターでは東京大学大学院理学系研究科附属原子核科学研究センターおよび東北大学大学院理学研究科との共同研究のもと, 理化学研究所 RI ビームファクトリーで使用可能なトリチウム含有チタン薄膜標的の開発に取り組んでいる.

1.5 ニュートリノの質量の決定

ニュートリノに質量があることはノーベル物理学賞に輝いた梶田らの研究 [18] によりわかっているが, それが何 kg なのかを決定するには至っていない. ドイツのカールスルーエ工大では, トリチウムの β 壊変を利用してニュートリノの質量を決めるための Karlsruhe TRitium Neutrino (KATRIN) experiment (以下, KATRIN 実験) が進められている [19]. トリチウムの壊変は式 (1) で表される. 最大エネルギーは 18.6 keV と上述したが, より高精度に最大エネルギーを求めることでニュートリノの質量を決定しようとしている. 図 3 にその原理を示す. β 壊変で生じたエ

ネルギーの一部がニュートリノの質量に転換されていれば, その分, β 線の最大エネルギーが減少するという原理に基づいている.

詳細は [19] に譲るが, T_2 ガスの状態のトリチウムから放出された β 線を超伝導マグネットで差動排気された真空チャンバー内を輸送し, 巨大なエネルギー分析器へと誘導する. 既に T_2 ガスを用いた実験が開始されており, ニュートリノの質量が少なくとも 1.1 eV 以下であることがわかった [19]. 今後, より測定精度が向上し, ニュートリノの質量が決定されることが期待される. 富山大学研究推進機構水素同位体科学研究センターはカールスルーエ工大と学術協定を締結し, KATRIN 装置内のトリチウム分圧測定技術の開発に協力している.

1.6 走査負ミュオン顕微鏡

本節のテーマはミュオン触媒核融合を応用することで従来の負ミュオンビームの収束性を飛躍的に高めた「走査負ミュオン顕微鏡」である. ミュオンは素粒子の一種であり, ± 1 の電荷と約 $2 \mu\text{s}$ の寿命を持つ. その質量は電子の約 200 倍であり, 負電荷のミュオン (負ミュオン) は物質中で「重い電子」のように振る舞う [20]. ミュオンが原子核を取り巻く「ミュオン原子」におけるミュオンの軌道半径は電子の約 $1/200$, 束縛エネルギーは約 200 倍となる. 束縛エネルギーが電子の 200 倍ということは, エネルギーが高い準位から低い準位へミュオンが遷移する際に放出される特性 X 線のエネルギーも電子と比べ 200 倍高いことを意味する. ミュオンを物質に照射し, 放出されるミュオン由来の特性 X 線のエネルギー分布を計測すれば, 元素分析に用いることができる. 電子線や X 線を用いた従来の元素分析手法と比較すると, その分析感度は数桁以上と圧倒的に高い. これはミュオンが原子に捕獲される時, 必ず 1 個以上の特性 X 線光子を放出すること, また同じ原子であれば 200 倍高いエネルギーの X 線を出すことによる. 特性 X 線が高エネルギーなため, 電子励起では計測が難しい軽元素からの X 線や, 試料深部で発生したのもでも十分に検出できる. エネルギーの高いミュオンを用いれば, 物質中かなりの深さまで注入でき, その深さもミュオンのエネルギーで調整できる. 大強度陽子加速器施設 J-PARC のミュオンビームラインでは, 炭素の場合 6 cm 程度の深さまで注

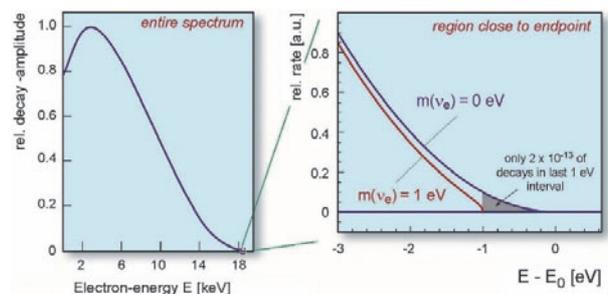


図 3 トリチウムからの β 線のエネルギー分布とエンドポイントの拡大図 [19]. 2 本の線はニュートリノの質量をエネルギー換算で 0 eV および 1.0 eV としたときのスペクトルである.

<https://www.katrin.kit.edu/79.php#gallery-2>

入できる。即ち、空気中や容器内に置いた試料内部の非破壊元素分析が可能である。J-PARC ではミュオンのこのような特性を活かし、「はやぶさ2」が小惑星から持ち帰る試料の組成を、地球上物質によるコンタミを防ぐための容器に入れたまま分析することなどを計画している[20]。

このように優れた特性を有するミュオンビームであるが、現時点では、まだ収束性に改善の余地がある。三宅ら[21]はこの課題の克服ため、ミュオン触媒 DT 核融合反応を用いることを提案している[21]。

ミュオン触媒 DT 核融合反応は、水素同位体と結合したミュオンが引き起こす特異な現象である。重水素 (D) とトリチウムよりなる核融合燃料中にミュオンが入射すると、ミュオンを伴う重水素原子とトリチウム原子が分子を構成し、電子を伴う通常の DT 分子と比べて原子核同士の距離が極端に近くなり、核融合が起こる。ミュオンから見ると核融合反応により D と T は消失し、残ったミュオンは他の D, T を捕らえ、再びミュオン分子を生成、核融合反応を誘発し続ける。この一連の反応はミュオン触媒核融合と呼ばれる。ミュオン触媒 DT 核融合反応が生じると、高エネルギーの中性子 (14 MeV) とヘリウム原子核 (3.5 MeV) が生成される。このとき、反応前に重水素原子およびトリチウム原子内に束縛されていた負ミュオンが、数 keV 程度の比較的揃った運動エネルギーを持って遊離する。この単一エネルギーに近い低速負ミュオンを再加速することで、集束性が高いビームが得られる[21]。

負ミュオンを収束させ、試料上を走査し、特性 X 線のエネルギーを分析すれば、試料上の元素分布が極めて高い感度で画像化される。また、エネルギーを変化させることにより、深さ方向の分解能も得られ、試料内の 3 次元的な元素分布が取得される。これが走査負ミュオン顕微鏡の原理である。試料の元素組成分布も分析できる顕微鏡として、電子顕微鏡 (走査電子顕微鏡や走査透過電子顕微鏡) が広く利用されているが、走査負ミュオン顕微鏡はリチウムを含む軽元素から重い元素まで圧倒的に高い感度を持っており、軽元素より構成される生物系試料などの電子線照射に弱い試料であっても非破壊的に分析できる。さらに、ミュオン特性 X 線分析の特徴として、元素のみならず同位体組成比や元素のおかれた化学結合の状態までもが分析でき、走査負ミュオン顕微鏡はそれらの情報を 3 次元的に可視化する。

このようにトリチウムは、負ミュオンを用いた微小部の非破壊元素分析技術実現の立役者としても期待されている。

1.7 まとめ

以上のようにトリチウムは、将来の核融合炉の燃料として期待されるだけでなく、既に長寿命で安定した光源および電源において活用されており、またニュートリノの質量決定や中性子過剰核の生成、負ミュオン顕微鏡の構築など物理学の最先端分野で決定的な役割を果たしている。もし読者の中からトリチウムを用いた新たな研究テーマの提案があれば、望外の喜びである。著者はトリチウム実験室

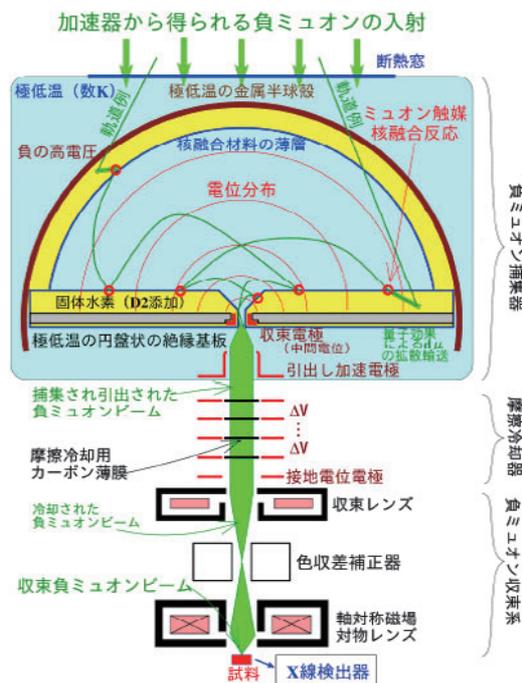


図4 トリチウムと重水素のミュオン触媒核融合で生成される低速ミュオンを用いたミュオン顕微鏡の概念図。
https://member.ipmu.jp/SpaceTech_to_QuantumBeam/planned-research/c02/index.html

を管理・運営する立場にあるが、安全の確保に努めつつ、今後は一層多様な研究ニーズに対応できるよう体制・設備を整えていきたいと考えている。

謝辞

本章を執筆するにあたり、高エネルギー加速器研究機構の三宅康博 博士、河村成肇 博士、東京大学大学院理学系研究科附属原子核科学研究センターの今井伸明 博士のご助言をいただいた。ここに謝意を表する。

参考文献

- [1] 山本一良 他：プラズマ・核融合学会誌 92, 14 (2016).
- [2] 田内 広 他：プラズマ・核融合学会誌 88, 119 (2012).
- [3] 奥野健二 他：プラズマ・核融合学会誌 85, 2 (2009).
- [4] 百島則幸 他：プラズマ・核融合学会誌 85, 421 (2009).
- [5] 西 正孝：プラズマ・核融合学会誌 78, 1294 (2002).
- [6] I. Autopilot, Swiss Military Watch Commander model with tritium-illuminated face, <https://en.wikipedia.org/wiki/Radioluminescence#/media/File:Tritium-watch.jpg>
- [7] New Jersey Department of Environmental Protection, https://www.state.nj.us/dep/rpp/rms/agreedown/tritium_exit.pdf
- [8] Government of Canada, <https://laws-lois.justice.gc.ca/eng/regulations/sor-2000-207/page-3.html>
- [9] <https://www.nitewatches.com/us/blog/t100-vs-t25.html>
- [10] M.A. Prelas *et al.*, Prog. Nucl. Energy, 75, 117 (2014).
- [11] <https://citylabs.net/>
- [12] A. Carroll and G. Heiser, An analysis of power consumption in a smartphone, Proceedings of the 2010 USENIX

- conference, 21, 2010, https://www.usenix.org/legacy/event/atc10/tech/full_papers/Carroll.pdf
- [13] 小浦寛之：化学と教育 65, 108 (2017).
- [14] K. Wimmer *et al.*, Phys. Rev. Lett. 105, 252501 (2010).
- [15] K. Kisamori *et al.*, Phys. Rev. Lett. 116, 052501 (2016).
- [16] 酒井大輔 他：日本物理学会第73回年次大会概要集, 23 pPSA-7, 2018.
- [17] 宇津城雄大 他：日本物理学会2019年秋季大会概要集, 19pS31-8, 2019.
- [18] <http://www-rccn.icrr.u-tokyo.ac.jp/kajita/ILLUME-32-Kajita-reduced.pdf>
- [19] <https://www.katrin.kit.edu/>
- [20] 寺田健太郎：Isotope News 730, 2 (2015).
- [21] https://member.ipmu.jp/SpaceTech_to_Quantum-Beam/planned-research/c02/index.html



は た の ゆ う じ
波 多 野 雄 治

組織の変更で富山大学学術研究部理学領域所属になりましたが、これまでと同様に研究推進機構水素同位体科学研究センターで材料中の水素同位体挙動、トリチウム計測、放射線効果等に関する教育・研究に従事しています。センターの一般共同研究の枠組みで、新たなトリチウム利用等に関する共同研究を実施しています。ご興味のある方は、ホームページをご覧ください。

http://www.hrc.u-toyama.ac.jp/jp/joint_research/



2. 何に気をつけて実験すべきか？ 放射性物質・水素同位体としてのトリチウムの特性

2. Important Points in Safe Handling of Tritium Compounds. Characteristics of Tritium in View from Hydrogen Isotopes or Radio Isotopes

原 正憲

HARA Masanori

富山大学 学術研究部理学系

(原稿受付：2020年5月1日)

トリチウムの量は放射性核種としてはBqの単位、水素同位体としてみるのであればmolの単位あるいは分子数で議論される。この二つの観点からの数字を実感することは、安全な実験計画、取り扱いにつながる。そこで、この二つの側面から、化学物質としてのトリチウム、トリチウムによる被ばくについて簡略化した仮想的な系で述べた。併せて、トリチウムを使用する際に有用と思われる数値をまとめた。

Keywords:

tritium, hydrogen isotope, range, isotope exchange, internal dose

2.1 はじめに

トリチウムは放射性の水素同位体であり、 ${}^3\text{H}$ または T で表記される。トリチウムの壊変は



で表され、半減期は 12.312 年 (4497日) である [1]。放出される電子の運動エネルギーはゼロから 18.564 keV であり、その平均エネルギーは 5.68 keV である [1]。

トリチウムを用いる実験を行う際には、トリチウムの水素としての化学的性質、放射性核種としての性質、作業環境を考慮して計画を立てる。この際、トリチウムの放射能と実際の物理量の関係が重要となる。そこで、トリチウムに対する量の感覚を知るために、種々のトリチウムに関する量を表 1 にまとめた。

表 1 を見ながら実感できる量と比較を行っていく。この表を作成するにあたり、最初に半減期を用いて壊変定数を求める。壊変の速さは

$$\frac{dN}{dt} = -\lambda N \quad (2)$$

で表される。ここで N はトリチウムの原子数、 λ は壊変定数である。単位時間 (dt) でのトリチウムの壊変の数 (dN) より、放射能は $A = dN/dt$ となる。求めた壊変定数を用いることにより、当初の放射能が A_0 であった試料のある時間 (t) 経過後の放射能 (A) は以下の式より求めることができる。

$$A = A_0 \exp(-\lambda t) \quad (3)$$

トリチウムの放射能と分子数についてみる。式 (2) より、1 Bq に対応するトリチウムの原子数が 560.5×10^6 と求められる。1 TBq (27 Ci) のモル数は HT または DT で 9.31×10^{-4} mol であり、そのガス体積は 298.15 K, 1 bar の下で $23.1 \text{ cm}^3 \cdot \text{bar}/\text{TBq}$ である。より実用的な量として 1 GBq の HT, DT ガスでは、 $2310 \text{ Pa} \cdot \text{cm}^3/\text{GBq}$ であり、100 Pa の圧力で 23.1 cm^3 となる。1 GBq の HT, DT のガス量は実験で使用するには少量であるため、通常は水素同位体ガスで希釈し、ガス量を増やして使用する。

トリチウム水を用いる実験では、1 MBq/cm³ 以下のトリチウム濃度で扱う場合が多い。高濃度のトリチウム水は被ばくの問題、放射線による自己分解等があり、特段の理由がない限り使用しない。ここで、1 MBq/cm³ のトリチウム水の化学的性質が通常の水と変わらないことを確認する。1 MBq の HTO のモル数は $9.31 \times 10^{-10} \text{ mol}_{\text{HTO}}/\text{MBq}$ であり、1 cm³ の水のモル数は $55.5 \times 10^{-3} \text{ mol}_{\text{H}_2\text{O}}/\text{cm}^3$ である。その分子数比は $\text{HTO}/\text{H}_2\text{O} = 1.68 \times 10^{-8}$ となる。1 MBq/cm³ のトリチウム水では、HTO の数は H₂O の 6 千万分の 1 であり、実質上、通常の水と変わることはない。

次に、トリチウムから放出される β 線についてみる。トリチウムから放出される β 線の最大運動エネルギーは他核種の β 線の最大運動エネルギーと比較して小さく、物質中での飛程も短い。このため、トリチウムからの β 線の測定は難しい。様々な物質中でのトリチウムの β 線の飛程を検討する。トリチウムの β 線の運動エネルギーは連続であるが、ここでは 10 keV の単一エネルギーの電子線を考える。10 keV 以上の電子線の飛程は Web 上の

表1 トリチウムに関連する実用的な値.

	数値	文献		数値	文献
原子質量		[2]	放射壊変に伴う発熱量		---
^1_0n	$1008664.9232 \pm 0.0022 \mu\text{u}$		1 TBq 当たり	$9.10 \times 10^{-4} \text{ W/TBq}$	
^1_1H (H)	$1007825.03214 \pm 0.00035 \mu\text{u}$		HT, 1 g 当たり	0.243 W/g	
^2_1H (D)	$2014101.77799 \pm 0.00036 \mu\text{u}$		DT, 1 g 当たり	0.194 W/g	
^3_1H (T)	$3016049.2675 \pm 0.0011 \mu\text{u}$		T ₂ , 1 g 当たり	0.324 W/g	
^3_2He	$3016029.30970 \pm 0.00086 \mu\text{u}$				
	$1 \text{ u} = 1.66053906660 \times 10^{-27} \text{ kg}$				
半減期	$12.312 \pm 0.025 \text{ 年} = 4496.9 \pm 9.1 \text{ 日}$ $1 \text{ 年} = 365.242198 \text{ 日} = 31556926 \text{ 秒}$	[1]	HTO, 1 g 当たり	48.8 mW/g	
トリチウムのβ線エネルギー		[1]	DTO, 1 g 当たり	46.5 mW/g	
最大エネルギー	$18.564 \pm 0.03 \text{ keV}$		T ₂ O, 1 g 当たり	88.7 mW/g	
平均エネルギー	$5.68 \pm 0.01 \text{ keV}$		トリチウムの放射能が 1 Bq/cm ³ の水中の HTOとH ₂ Oの 分子数比		---
壊変定数	$5.630 \times 10^{-2} \text{ 年}^{-1}$ $1.541 \times 10^{-4} \text{ 日}^{-1}$ $1.784 \times 10^{-9} \text{ 秒}^{-1}$	---	HTO/H ₂ O	1.68×10^{-14}	
			H ₂ O/HTO	59.6×10^{13}	
放射能当たりの トリチウム原子数		---	種々の物質中での 10 keVの電子の飛程 (CSDA)		[3]
1 Bq	560.5×10^6 トリチウム原子/Bq		空気 (0.001185 g/cm ³)	$2.4 \times 10^{-3} \text{ m}$	
1 GBq	560.5×10^{15} トリチウム原子/GBq		水 (1 g/cm ³)	$2.5 \times 10^{-6} \text{ m}$	
1 TBq	560.5×10^{18} トリチウム原子/TBq		ベリリウム (1.8477 g/cm ³)	$1.6 \times 10^{-6} \text{ m}$	
水素同位体 1 mol 当たりの放射能		---	黒鉛 (1.7 g/cm ³)	$1.7 \times 10^{-6} \text{ m}$	
HT	$1.07 \times 10^{15} \text{ Bq/mol}_{\text{HT}}$		アルミニウム (2.698 g/cm ³)	$1.3 \times 10^{-6} \text{ m}$	
DT	$1.07 \times 10^{15} \text{ Bq/mol}_{\text{DT}}$		鉄 (7.874 g/cm ³)	$5.5 \times 10^{-7} \text{ m}$	
T ₂	$2.15 \times 10^{15} \text{ Bq/mol}_{\text{T}_2}$		銅 (8.960 g/cm ³)	$5.1 \times 10^{-7} \text{ m}$	
1 TBq 当たりのモル数		---	金 (19.320 g/cm ³)	$4.1 \times 10^{-7} \text{ m}$	
HT	$9.31 \times 10^{-4} \text{ mol}_{\text{HT}}/\text{TBq}$		ポリエチレン (0.91 g/cm ³)	$2.5 \times 10^{-6} \text{ m}$	
DT	$9.31 \times 10^{-4} \text{ mol}_{\text{DT}}/\text{TBq}$		天然ゴム (0.91 g/cm ³)	$2.6 \times 10^{-6} \text{ m}$	
T ₂	$4.65 \times 10^{-4} \text{ mol}_{\text{T}_2}/\text{TBq}$		パイレックス (2.23 g/cm ³)	$1.5 \times 10^{-6} \text{ m}$	
1 TBq 当たりの 標準状態 (1 bar, 298.15 K) でのガス量		---	下限数量		[4]
HT	$23.1 \text{ cm}^3/\text{TBq}$		数量	$1 \times 10^9 \text{ Bq}$	
DT	$23.1 \text{ cm}^3/\text{TBq}$		濃度	$1 \times 10^6 \text{ Bq/g}$	
T ₂	$11.5 \text{ cm}^3/\text{TBq}$		管理区域内での 空气中濃度限度		[4]
水素同位体 1 g 当たりの放射能		---	元素状水素	$1 \times 10^4 \text{ Bq/cm}^3$	
HT	$267.0 \times 10^{12} \text{ Bq/g}_{\text{HT}}$		メタン	$1 \times 10^2 \text{ Bq/cm}^3$	
DT	$213.6 \times 10^{12} \text{ Bq/g}_{\text{DT}}$		水	$8 \times 10^{-1} \text{ Bq/cm}^3$	
T ₂	$356.2 \times 10^{12} \text{ Bq/g}_{\text{T}_2}$		有機物 (メタンを除く)	$5 \times 10^{-1} \text{ Bq/cm}^3$	
			上記を除く化合物	$7 \times 10^{-1} \text{ Bq/cm}^3$	
HTO	$53.6 \times 10^{12} \text{ Bq/g}_{\text{HTO}}$				
DTO	$51.1 \times 10^{12} \text{ Bq/g}_{\text{DTO}}$				
T ₂ O	$97.5 \times 10^{12} \text{ Bq/g}_{\text{T}_2\text{O}}$				

ESTARにより得ることができる[3]。ここでは、飛程として連続減速近似 (Continuous Slowing Down Approximation, CSDA) [5, 6]のものを使用する。この近似において、粒子は連続して運動エネルギーを失い停止するとしており、飛程は減速過程での移動距離となる。ESTARで得られた空気中 (密度 0.001185 g/cm^3 , 1気圧, 298 K) の飛程は、 $2.4 \times 10^{-3} \text{ m}$ である。水中での飛程は約1000分の1の $2.5 \times 10^{-6} \text{ m}$ であり、空気に比べ密度が約1000倍であることを反映している。固体物質中の飛程は、有機物質あるいは軽元素では約 $2 \times 10^{-6} \text{ m}$, 金属元素では $5 \times 10^{-7} \text{ m}$ である。ESTARで20 keVの電子線の飛程もみることにより

トリチウムのβ線の飛程がいかに短いかわかる。トリチウムの壊変に伴う放出エネルギーを求めると、1 TBqのトリチウムでは $9.10 \times 10^{-4} \text{ W/TBq}$ となる。また、単位重量当たりの放出エネルギーを表1に示す。

ここまで、いくつかの数値が出てきたが、特に覚えておくと便利な数値は、半減期 ≒ 4500日, 平均エネルギー ≒ 5.7 keV, 1 GBqのトリチウム (HT, DT) のガス量 = $2.3 \text{ L} \cdot \text{Pa}$ である。

2.2 化学物質としてのトリチウム

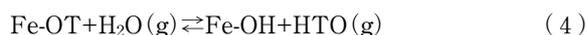
トリチウムは水素同位体であるので、水素としての化学

的性質を持っている。条件がそろえばHT, DT, T₂は、爆発的に酸素と反応する。水素を含む物質中の水素とも交換する(同位体交換反応)。様々な物質へ溶け込むことができ、物質中を拡散、透過する。

表1で見たように放射能当たりのトリチウム原子数は少ない。1 GBqのトリチウムガス(HT, DT)のガス量は2.3 L・Paである。トリチウムガスを使うラインから1秒間に1 kBqのトリチウムが漏洩するとき、その際のトリチウムの外部へのリークレートは $2.3 \times 10^{-6} \text{ L} \cdot \text{Pa} \cdot \text{s}^{-1} = 2.3 \times 10^{-9} \text{ m}^3 \cdot \text{Pa} \cdot \text{s}^{-1}$ となる。

次にどれほどのトリチウムが容器表面に吸着するか検討してみる。ここでは、計算を簡単にするために内容積1 L(10 cm×10 cm×10 cm)の鉄製の容器を考える。表面粗さは考えずに、容器の表面は体心立方構造の(110)面で構成されているとする。鉄1原子が占める面積は $\sqrt{2}(0.287 \times 10^{-9})^2/2 = 5.8 \times 10^{-20} \text{ m}^2$ となる。よって、容器の内表面に現れている鉄原子の数は 1.7×10^{16} となる。この鉄原子は水酸基(-OH)と結合しているとする。さらに、水酸基の水素が全てトリチウムで置換されていると仮定すると、そのトリチウムの量は $1.7 \times 10^{16}/(560.5 \times 10^6) = 3.0 \times 10^7 \text{ Bq}$ (=30 MBq)となる。このトリチウムがすべてHTOで脱離した際のガス量は $69.3 \text{ Pa} \cdot \text{cm}^3$ となる。また、表面のトリチウム密度は 50 kBq/cm^2 と見積もられる。このようにトリチウムを放射能の観点から見ると、材料表面に多くのトリチウムが吸着できることがわかる。

次に、この鉄製の容器の表面の水酸基がトリチウムで置換されているところへ、298 Kで1 kPaの水蒸気を含む空気を1 bar(100 kPa)導入するとする。この時、どのようなことが起こるか考えてみる。水蒸気の導入により鉄表面のFe-OTとH₂Oの同位体交換反応が起こる。



簡単のため同位体効果を考えないとすれば、この平衡反応は水素とトリチウムの入れ替えなので、系内のトリチウムから見ると、導入されたH₂O(g)による希釈と考えることができる。つまり、平衡達成後は、鉄表面上の[T]/[H]比と気相中の[T]/[H]比は等しくなる。交換反応前の鉄表面に存在するトリチウムの原子数は 1.7×10^{16} である。導入した空気中の水分子の数は 2.4×10^{20} で、そこに含まれる水素原子は 4.8×10^{20} である。当初、表面上のトリチウム濃度は100%であったのが、平衡到達後は $3.5 \times 10^{-3}\%$ となる。平衡到達後に鉄表面に残存するトリチウムの原子数は 6.0×10^{11} で、このトリチウムの原子数は1 kBqに対応する。また、表面のトリチウム密度は 1.7 Bq/cm^2 となる。水蒸気を含むガスの導入は、効率的なトリチウムの除染技術であることが分かる。一方、トリチウムを使用していた配管を保守のため大気開放を行うと、多くのトリチウムが気相中に放出されることとなる。トリチウムを使用していた配管の開放作業は、この点に注意して作業計画を立てる必要がある。

気相中へ放出されたトリチウムの回収は、一般的に酸化-吸着法(湿式法)で行われる。この方法は、トリチウムを含む全ての分子(HT, CH₃T, 有機物)を触媒により燃

焼させ、水素同位体を水の化学形へと変換し、この水を乾燥材で回収する方法である。酸素分圧の低い気相中からのトリチウム回収では、触媒として酸化銅を利用する。酸化-吸着法は、広く利用されており、大気中からトリチウムを回収する方法として信頼性が高い。しかし、生体への影響が大きいトリチウム水を積極的に生成する回収方法である。

2.3 トリチウムによる被ばく

トリチウムのβ線(18.6 keVの電子線)の飛程をESTAR[3]のデータより内挿して求めると、空気中で7.3 mm程度である。これは、トリチウムから体が10 mm以上離れていれば、トリチウムのβ線による被ばくが起らないことを意味している。さらに、有機物質中のトリチウムのβ線の飛程は7.5 μm程度であり、人間の表皮の厚さ20 μmに比べ飛程は十分短い。よって、トリチウムの取り扱いにおいて外部被ばくは無視できる。一方、トリチウムを体内に取り込んでしまった際の内部被ばくは無視できない。表1に示すように管理区域内での空気中濃度限度は、トリチウムの化学形により異なる。この管理区域内での空気中濃度限度は被ばくの観点より決められており、濃度限度が低いトリチウム化合物ほど生体への影響が大きいことを示している。元素状水素(HT, DT, T₂)では $1 \times 10^4 \text{ Bq/cm}^3$ であるのに対し、水の化学形では 0.8 Bq/cm^3 と12500分の1である。言い換えると、被ばくの観点からはトリチウム水1 Bqの飛散は、12500 Bqの元素状トリチウムの飛散と同等であることを示す。取り扱うトリチウムの化学形に応じて被ばく管理を行う必要がある。

トリチウムを体内に取り込む経路として、吸入、経口摂取、吸収の3つが主となる。吸入は作業環境中の大気に含まれるトリチウムを呼吸により取り込む経路であり、この軽減には作業環境の換気、フード等の利用による希釈と隔離が有効である。これらは、いずれもハードウェアにより達成できる。経口摂取は、呼吸以外の口を介した体内への取り込みであり、飲食、口周辺へのトリチウムの付着などが原因である。管理区域では飲食は禁止されているので、通常の使用状況では起こりえない。口周辺へのトリチウムの付着による取り込みは、実験者の無意識の動作、癖などにより起こりえる。例えば、トリチウム実験中にゴム手袋をしたまま口周辺に触ることが挙げられる。これは、教育、作業訓練を通して軽減できるものである。吸収で問題となるのは、主に皮膚からのトリチウム水の吸収である。

体内にトリチウム(主にトリチウム水)が取り込まれると、2時間ほどで体内のトリチウム濃度が均一となる。このため、取り込みが疑われたときは、取り込みの可能性がある作業を終えた後、2時間ほど待って試料の採取を行う。取り込まれたトリチウムは、時間とともに体外へ排出される。この排出の速さは人により差があるものの、10日間ほどで取り込まれたトリチウムの半分は排出される。すなわち、トリチウム水として取り込んだ場合のトリチウムの生物学的半減期は約10日間である。

2.4 まとめ

トリチウムは水素同位体であり、水素としての性質を持つ、 β 壊変を起こす放射性同位体である。また、放出される β 線の運動エネルギーが平均で5.68 keVしかなく測定の難しい放射性同位体である。被ばくの影響はトリチウムの化学形により異なり、実験中の化学形の変化にも気を配る必要がある。初めての実験で、これらに配慮してすべての実験計画を立てるのは困難である。

トリチウム使用施設の職員に積極的に相談をしてほしい。

参考文献

[1] M. -M. Bé *et al.*, Table of radionuclides (Vol 3- A = 3-244),

Monographie BIPM-5 (Bureau International des Poids et Mesures 2006).

https://www.bipm.org/utis/common/pdf/monographieRI/Monographie_BIPM-5_Tables_Vol3.pdf

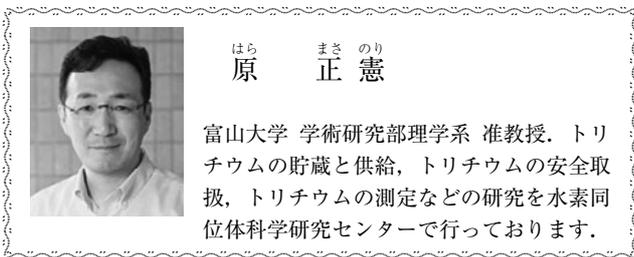
[2] G. Audi and A.H. Wapstra, Nucl. Phys. A **595**, 409 (1995).

[3] M.J. Berger *et al.*, *Stopping-Power & Range Tables for Electrons, Protons, and Helium Ions*, NIST Standard Reference Database 124 (Physical measurement laboratory, 2017). DOI:<https://dx.doi.org/10.18434/T4NC7P>

[4] 放射線を放出する同位元素の数量等を定める件，2000（平成12）年10月23日，科学技術庁告示第5号。

[5] 飯田孝夫：保健物理 **33**, 345 (1998).

[6] H. Nikjoo *et al.*, *Interaction of radiation with matter* (CRC press, 2012).





講座 トリチウム実験入門

3. どこで使えるの？ トリチウム利用施設の紹介

3. Where Should We Handle Tritium? Information of Facilities and Laboratories

大塚 哲平, 波多野 雄治¹⁾

OTSUKA Teppei and HATANO Yuji¹⁾

近畿大学 理工学部, ¹⁾富山大学学術研究部理学系

(原稿受付: 2020年7月6日)

トリチウムを利用するうえで理解しておくべき法令について簡単にまとめ、国内の主要トリチウム実験施設である富山大学および量子科学研究開発機構、欧州および米国の実験室規模を紹介する。また、施設における共同研究利用の申請方法や、トリチウムを含む試料の購入方法について解説する。

Keywords:

radioisotope, tritium, facility, regulatory requirements

3.1 トリチウム使用にかかる法令について理解しよう

トリチウムを利用した実験を始める際の一つのハードルは、使用にかかる法令の理解ではなかろうか。トリチウムが水素の放射性同位体元素 (Radioisotope, RI) である以上、これは避けては通れない。実際に、法令に定められた様々な制限の理解なしには、トリチウム利用実験の計画さえままならない。以下に、トリチウム使用にかかる法令の概略を述べる。

トリチウムは、放射性同位体元素等の規制に関する法律 (2019(令和元)年9月1日施行, 以下 RI 規制法) に定められた通り、その使用にあたっては放射線障害の防止や、公共の安全性の確保がなされなければならない。トリチウムから発せられる β 線を検出することは容易であり、環境中に自然に存在するトリチウムを検出することも可能であるが、法規制を受ける放射性同位体としてのトリチウムは下限数量および濃度が存在する。RI 規制法に述べられている通り、原子力規制庁によって、トリチウムの下限数量は2000(平成十二)年科学技術庁告示第五号の放射線を放出する同位元素の数量等を定める件の別表第1に示されており、数量にして 1×10^9 Bq (1 GBq, 2.7 μ g), 濃度にして 1×10^6 Bq g⁻¹ (1 MBq g⁻¹, 2.8 ppb) とされている。この下限数量および濃度以上のトリチウムを含有する化合物は、RI 施設で使用されなければならない。また、これらの下限数量以下であっても、上記の告示別表第2に定められているように空气中濃度限度や排気・排水中濃度限度は守られねばならない。このため、RI 施設以外で使用することは事実上不可能であることを強調しておきたい。詳しくは、原子力基本法、放射性同位体元素等の規制に関する法律、放射性同位体元素等による放射線障害の防止に関する

法律施行令、および放射性同位体元素等による放射線障害の防止に関する法律施行規則、および告示 (放射線を放出する同位元素の数量等を定める件) に定められているが、文献[1]の放射線主任者試験対策用テキストの [法令] に要領良くまとめられているので、トリチウム利用実験を始めようとするかたにお勧めしたい。

3.2 どこでトリチウムが使えるのか

全国の多くの国公立・私立大学の理工系学部や医学部にはRIを使用することができる施設がある。トリチウムの使用にあたっては、他のRIと同様に、所属する大学、研究所および民間企業において、放射線等取扱業務従事者に登録されていなければならない。このためには各機関において、通常年度初めに実施されている新規教育訓練または継続のための再教育を所定の時間だけ受講しなければならない。各機関で従事者登録されていれば、他機関における使用の申し込みもスムーズにいくと思われる。まずは、各自の機関のRI施設の職員または放射線取扱主任者に相談していただきたい。

RI施設であれば、どこでもトリチウムが使用できるわけではない。トリチウムはそのほとんどの化学形が非密封線源に分類されるため、法令に定められた排気、排水、および貯蔵能力を有した施設および施設内の区域 (部屋) で使用されなければならない。また、トリチウムが取り扱える場合でも、一日最大使用数量、年間最大使用数量、貯蔵量には制限がある。

トリチウムなどの非密封 RI 線源を扱うことができる実験室は、排風機設備により、その能力によって多少の違いはあるが、部屋の空気が1時間に数回以上入れ替わる頻度で排気され新しい外気が取り込まれるようになっている。

このため、部屋の内部は大気圧に比べて負圧になっているので、ドアは外開きであり、風圧により開きにくいことがある。排風機出口には高性能フィルタが備えられており、粉塵や化学物質が吸着除去される。排風機の排風能力や、空気中のトリチウム濃度は常にモニタリングされ、施設職員によって定期的に検査され、記録されている。実験室には実験器具の洗浄ができるように流し台が備えられているところがある。排水は、大容量の貯水槽タンクにいったん貯められたあと、水中トリチウム濃度が測定され、排水前に水中トリチウム濃度が下限値（告示別表第2）を十分に下回っていることがモニタリングされ、記録されている。排気および排水中のトリチウム濃度限度は、第2章で述べたようにトリチウム含有化合物の化学系によっても異なるが、水状のトリチウムの場合は、排気する空気中濃度限度は $5 \times 10^{-3} \text{ Bq/cm}^3$ 、排液中の濃度限度は $6 \times 10^1 \text{ Bq/cm}^3$ として定められている。また、次章で詳細を述べるが、濃度限度以上の無機物、有機物や化合物については公益社団法人 日本アイソトープ協会 (<https://www.jrias.or.jp/>) に引き取ってもらい、適切に処理されなければならない。

3.3 施設紹介

国内外にトリチウム利用が可能な多くのRI施設が存在する。国内で特に関連設備が充実しており大量(TBqオーダー)のトリチウム取扱が可能な施設としては、量子科学技術研究開発機構(QST)のトリチウムプロセス研究棟(日本原子力研究開発機構原子力科学研究所内)および六ヶ所核融合研究所原型炉R&D棟、大阪大学レーザー科学研究所、富山大学研究推進機構水素同位体科学研究センターなどがある。六ヶ所核融合研究所原型炉R&D棟では、後述する核融合原型炉の設計に関わる共同研究が実施されている。富山大学研究推進機構水素同位体科学研究センター(図1)は、核融合科学研究所双方向型共同研究(核融合分野)および同センター一般共同研究(水素エネルギー分野および核融合以外でのトリチウム利用)の枠組みの下で共同研究を受け入れており、一般ユーザーにとっては最もアクセスしやすい施設であろう。そこでまず、同センターの概要を紹介する。

富山大学研究推進機構水素同位体科学研究センター(図1)では、元素状(HT, DT, T₂)、水分子状(HTO, DTO, T₂O)など、様々な化学形の低濃度から高濃度に制御されたトリチウムを利用することができる。また、電離箱、比例計数管、液体シンチレーションカウンタ、イメージングプレート、β線誘起X線測定装置、熱量計など、多様なトリチウム計測装置が整備されている。上述の共同研究は毎年12月中旬から3月末に公募がなされている(http://www.hrc.u-toyama.ac.jp/jp/joint_research/)。実験方法が必ずしも明確に確定していない場合でも、同センター事務室を窓口として相談が受け付けられている。また、個別の要望に応じて、トリチウムの安全取扱や計測に関わる実習なども実施している。施設の概要は[2]の文献に記載されている。

量子科学技術研究開発機構六ヶ所核融合研究所(青森県

共同研究と社会との連携 Collaboration

富山大学内での教育・研究における共同利用。
国内の大学や研究機関および国外の諸機関並びに自治体や民間企業との共同研究。
さらに学術講演や公開講座を通じた社会との連携を積極的に推進しています。



図1 富山大学における共同研究体制(富山大学水素同位体科学研究センターHPより)。

六ヶ所村)は、核融合原型炉の開発を目的として原型炉設計チームを立ち上げており、国内の研究機関および大学が参画して共同研究を展開している(図2)。同研究所では、国際熱核融合実験炉ITERの政府間協議で誕生した幅広いアプローチ(BA)共同研究の一環として、欧州のトカマク型核融合実験炉JETで用いられたITER模擬壁材料のトリチウム分析実験が行われている。

欧州においては、英国のカラム核融合エネルギーセンター(CCFE)で大型トカマク装置JETにおけるITER模擬プラズマ対向壁を用いたトリチウム実験が、また第1章で述べたようにドイツのカールスルーエ工科大(KIT)ではトリチウムを用いたニュートリノの質量測定実験が進められている。フランスの原子力・代替エネルギー庁(CEA)サクレー研究所では、トリチウム標識化合物試料の製造[4]に加え、核融合装置内で発生するトリチウム含有ダストの研究がなされている[5]。加えて、英国原子力公社(UKAEA)では、CCFE内に大規模トリチウム取扱施設H3AT(Hydrogen-3 Advanced Technology Centre)の建設を計画している[6]。これらの施設における共同研究については、核融合科学研究所が取りまとめを行っているIEA PWI協定による共同研究を通じてアクセスできる可能性がある。

米国のアイダホ国立研究所(アイダホ州)では、日米科学技術協力事業核融合分野におけるトリチウム利用研究が十数年にわたって行われてきている。詳しくは第5章で紹介する。

原型炉設計合同特別チーム

- 原型炉総合戦略タスクフォースの方針に沿った原型炉概念の構築を目指す
- 産学協同のオールジャパン体制
H31年1月時点でのメンバー数：105名
(QST 32、大学 44、産業界 29)



図2 QSTにおける原型炉設計合同特別チームの取り組み[3].

3.4 施設におけるトリチウムを含んだ試料の購入について

第2章でも述べられているが、トリチウムは化学的には軽水素と変わらないので、水素分子(ガス)から始まり、兎にも角にも水素が結合している化合物(トリチウムトレーサー用標識化合物)まで多種多様な化学形の試料が存在する。これらのトリチウム含有試料は、日本では日本アイソトープ協会から購入することができる。購入したトリチウム含有試料は使用の許可を受けた施設でしか受け取ることができないので、必然、RI施設の職員が日本アイソトープ協会に発注することになる。トリチウムを使用したい研究者は、まず、トリチウム使用実験計画、安全対策、トリチウム含有廃棄物の化学系、量などを予め施設職員に十分に説明し、実験申請の可否およびトリチウム含有試料の使用の許可を得ておく必要がある。つぎに、施設に用途に適した既存の試料があるかどうかを確認し、なければカタログやホームページで試料を調べて、何を購入するかを決める。購入することになれば、施設の貯蔵能力、年間/一日使用限度に応じて、試料のトリチウム濃度、購入量を施設職員に報告し、管理・支払い義務者を決めなければならない。

参考文献

- [1] 柴田徳思 編：放射線概論，第1種放射線取扱主任者受験用テキスト，通商産業研究者，第11版(2018)，ISBN 978-4-86045-111-0.
- [2] 松山政夫，山西敏彦：プラズマ・核融合学会誌 86, 97 (2010)，波多野雄治 他：173-184.
- [3] 原型炉設計合同特別チームウェブサイト：https://www.fusion.qst.go.jp/rokkasyo/project/reactor_document/download/TritiumWG_Introduction.pdf
- [4] http://joliot.cea.fr/drf/joliot/en/Pages/research_entities/medicines_healthcare_technologies/scbm/lmt.aspx
- [5] C. Grisolia *et al.*, Nucl. Fusion 59, 086061 (2019).
- [6] https://www.nuclearuniversities.ac.uk/wp-content/uploads/2018/11/Damian_Brennan_H3AT_NADM_2018.pdf



講座 トリチウム実験入門

4. いざ実験，トリチウム汚染安全対策と廃棄物の後片付け！

4. Experiments, Safety Measures for Tritium Contamination and Clean-Up Wastes!

大塚 哲平, 原 正憲¹⁾

OTSUKA Teppei and HARA Masanori¹⁾

近畿大学 理工学部, ¹⁾ 富山大学学術研究部理学系

(原稿受付: 2020年7月6日)

トリチウム実験を行う際の実験室への入室から、測定の実際、実験中の安全対策および個人被ばく防護のための装具の着用、実験後の後片付けについて紹介する。

Keywords:

safety, personal protection equipment, smear, contamination

4.1 実験室内のトリチウム汚染対策

これまで述べてきたように、トリチウムには水素同位体という側面と、非密封の放射性同位元素 (RI) としての側面がある。このため、トリチウムを安全に利用するには、両者の特性を理解したうえでの対策が必要である。RI施設の管理区域内への立ち入りに関しての所定の教育訓練やガラスパッチの装着、密封線源の安全取扱いについてはここでは割愛する。

非密封のRIであるため、トリチウムを利用する実験室は強制換気されていること、部屋内が負圧になっているのでドアが開けにくいことは前章で述べた。いよいよ、実験室に入室するわけであるが、**図1**に示したように、非密封のRIを取り扱う実験施設または実験室では、それまで履いてきた履物 (靴またはスリッパ) を履き替える必要がある。この際、履き替える場所はスノコや踏み台などで一段高くなっていたり、白いポリエチレンろ紙が敷いてあったりするが、この部分を履物で踏んだり、履物を置いたりしては

ならない。この領域は、非密封RIの付着の連鎖を断ち切る境界だからである。非密封RIには水溶液状のものが存在し、トリチウムの場合は水溶液の状態で存在するものが多い。水溶液をこぼしたり、飛散させたりして、床にトリチウムが付着してしまうことがある。これを1次汚染と呼ぼう。もし、履物で床に付着したトリチウムを踏んでしまうと、2次汚染として履物の接地側表面にトリチウムが移動することがある。トリチウムを初めとする非密封RI取扱領域と他の実験室・廊下には、履物で踏んではならない境界領域を設けることで、表面接触により非密封RIの移動の連鎖が起こることを防ぐことができる。これを疎かにすると、一般の管理区域で使用している履物や、廊下、さらには汚染検査室などを3次、4次汚染を招いてしまうことになる。

さて、非密封RI取扱い実験室に入室すると、実験机は通常、白いポリエチレン製ろ紙で覆われている (**図1** (b))。さらに、トリチウムに限らず、液体状RIを用いる実験では、金属やプラスチック製のバットやトレイを覆うようにポリエチレンろ紙を敷き詰めて、その上でピーカー器具類や装置を用いることにしている。これは、液体状RIをこぼしたとしても汚染の拡大を防ぐためのものであり、液体がろ紙上に落ちて裏側への透過を防ぎ、ろ紙を取り替えることで、バットやトレイのRI汚染を防ぐためのものである。ポリエチレンろ紙は定期的に、また実験中には適宜、取り替えられなければならない。

4.2 トリチウムの測定の実際

トリチウムを用いる実験とその被ばく管理において重要なのがトリチウムをどのようにして測定するかである [1]。放射線の測定では、放射線が検出器内へ入射する必要がある。しかし、トリチウムの β 線の飛程は短いため、通常の

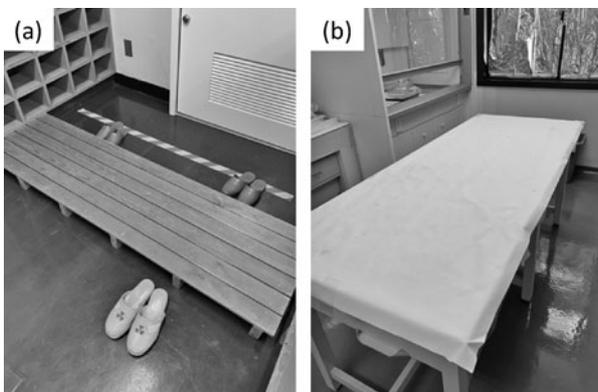


図1 (a)非密封RI線源利用実験室の入り口, (b)ポリエチレンろ紙で覆われた実験台 於: 近畿大学 RI 実験室。

放射線検出器の窓材すら透過できない。そこで、トリチウム測定用の特別な検出器、特別な測定方法が利用される[2]。以下、概略を述べる。

気体状の試料に対して、広く測定に用いられているのが通気型の電離箱である。電離箱に接続されたサンプリングポンプにより、試料ガスを吸引し、連続的に電離箱内へ流通させる。電離箱内で発生したトリチウムのβ線による電離が電流として検出される。併せて、連続的に試料ガスが流通されることから、試料ガス中のトリチウム濃度の経時変化が測定できる。このような特徴から、広くトリチウム測定用のルームモニターとしてガス通気型の電離箱は利用されている。試料ガスを導入できる比例計数管を利用して気体中のトリチウムの測定ができるが、比例計数管を作動させるためのPRガス（アルゴンとメタンの混合ガス）が必要である。図2に示したような可搬型の表面サーベイメータは、固体表面から外部へエスケープできたβ線を検出器表面に貼られた薄膜を通して比例計数管で測定することができる。主にトリチウムによる表面汚染の検査に利用されている。トリチウムのβ線の飛程は空気中で数mmであり、測定中は検出器を測定対象ぎりぎりまで近づけるため、検出器の薄膜を破損しないように注意する必要がある。

液体状のトリチウムの測定には、液体シンチレーションカウンタ(LSC)が使用される[3]。図3に示すように、液体状のトリチウム試料を液体シンチレータと混和させ測定試料(カクテル)として用いる。液体シンチレータは放射



図2 トリチウム用表面サーベイメータ (TPS-303, 日立アロカ社製)。

線が当たると発光する。液体同士を混ぜ均一な測定試料とするため、トリチウムのβ線のように低エネルギーであっても発光を得ることができる。この測定試料を液体シンチレーションカウンタに入れ、2本の光電子増倍管によって発光回数を同時計数することで、試料中のトリチウムの放射能を計測する。LSCの検出限界は、汎用のLSCでも数十Bq/Lの試料を測定できるほど高感度である。一方、高濃度のトリチウムの測定には向かない。測定試料中の放射能を1kBq程度にするのが最も効率的な測定となる。

イメージングプレート(IP)法では、トリチウムを含んだ試料をIPに塗布された輝放射性蛍光体(BaFX:Eu(X=Cl⁻, Br⁻, I⁻))表面に密着させ、トリチウムのβ線によって蛍光体中の電子を励起状態にすることで、β線のエネルギー付与を記録する。その後、リーダー装置のレーザー照射によって蛍光体中の励起電子を再励起し、その電子が基底状態に戻る際の蛍光強度を読み出す[4]。これにより、mmオーダーの試料表面領域について分解能20~50μmで2次元のトリチウムβ線強度分布を測定することができる。標準線源と比較すれば、表面近傍に存在するトリチウムの放射能が定量できる。ただし、材料表面にトリチウムが偏在することもあるので、表面汚染と内部汚染の違いには十分に注意する必要がある(図4)[5]。

比較的高濃度のトリチウムが固体内に存在する場合、β線で誘起されるX線を利用する方法(BIXS法)により、β線の飛程より深部に存在するトリチウムを検出できる[6]。ただし、市販の装置はなく利用者がX線検出器の選定と試料台の製作を行う必要がある。

現時点において、非破壊で固体試料内部のトリチウムの放射能を定量する方法はない。破壊的方法になるが、試料を燃焼させるあるいは加熱することにより試料中のトリチ

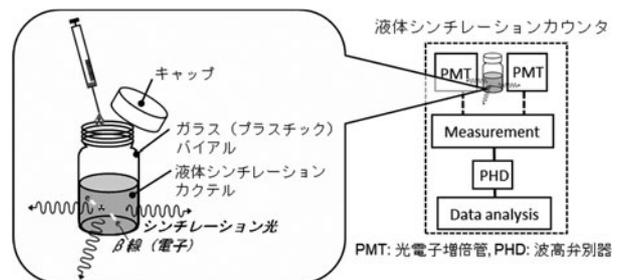


図3 液体試料および液体シンチレーションカウンタの概念図。

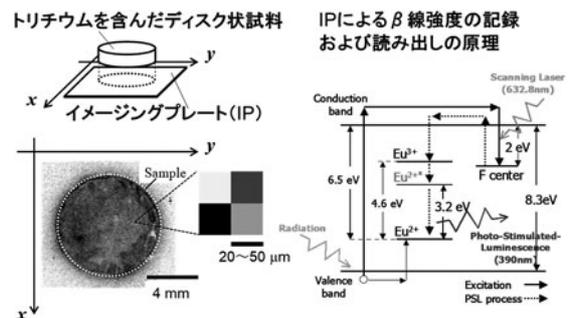


図4 イメージングプレート法およびIPによるβ線強度の記録および読み出しの原理の概念図。

ウムを取り出す方法がある。取り出されたトリチウムは、触媒で酸化しトリチウム水とし、これを捕集してLSCにより放射能を求める。また、金属試料中のトリチウム測定では、試料を酸で溶解し、その酸中のトリチウムをLSCで測定する方法も利用されている。

トリチウムの β 線の運動エネルギーは小さいため、その測定には試料、実験目的に合わせた手法を選択、あるいは開発する必要がある。

4.3 実験者のトリチウム汚染対策

非密封RIを取り扱う実験者は、個人防護装備(Personal Protection Equipment, PPE)を身につけなければならない。密封・非密封RI線源にかかわらず、RI施設では黄衣や白衣などのラボコートを着衣しているはずである。非密封RI線源を取り扱う際には、使い捨ての塩化ビニルプラスチック製またはラテックス・ニトリルゴム製の手袋をつける。これらの手袋を直に素手につけると、夏場などは汗で不快になったり、手が荒れたりすることがあるので、シームレスの極薄いインナー手袋を装着すると良い。医療・手術の細かい作業に用いるための手袋類が販売されている。液体状RIである場合は、ラボコートの上から使い捨ての防水加工されたエプロンを着用し、目の防護のために眼鏡やゴーグルを使用する(図5)。これらのPPEは、実験作業中に数時間に1回の頻度で取り替えられなければならない。非密封RI取扱い実験室は、個人や研究室で専有していることは少なく、生物・医療・工学・理学分野のさまざまな研究者が共用で利用していることが多い。このため、自分がやったわけではなくても、工具・実験器具や壁・床にRIが付着している可能性があると考えたほうが良い。もったいないからといって、長時間PPEを使用していると思わぬRI汚染を引き起こす場合があるので注意が必要である。また、手袋を装着した状態で、顔や肌露出部を触ると、皮膚へのRI付着による外部被ばくや経口でのRI取り込みによる内部被ばくの原因になり得るので注意しなければならない。

手袋やエプロンを取り外す時は、外部に向いていた表面を裏返しにすることにより、RIが付着した可能性がある表



図5 個人防護装備(PPE)の一例、ゴーグル、ポリエチレン製手袋、ゴム手袋、綿インナー手袋および防水加工エプロン。

面が露出しないようにすることが肝要である。自分だけでなく他者への影響を考えてのことである。のちに述べるように、RI実験室で発生した廃棄物は可燃、難燃および不燃等に分類されなければならない。時には、間違っして混入している廃棄物を廃棄作業員が分別を行う場合があるであろう。この際に、外部のRI汚染表面が露出していると作業員の外部被ばくにつながる可能性があるからである。

4.4 トリチウム利用実験中の汚染対策

RIを含む試料を安全に取扱うためには、試料との距離を保ち、短時間の作業とし、放射線を遮蔽することが重要である。トリチウムを含む試料の場合、放射線の遮蔽については手袋1枚で十分である。ただし、トリチウム特有の現象として、トリチウムと軽水素との同位体交換反応に気をつける必要がある。試料中のトリチウムは、化学的には軽水素と同じように振る舞うので、試料周辺の大気中の水蒸気(水分子)中の軽水素や、試料を乗せている紙やプラスチック容器などの有機物中の軽水素とも容易に同位体交換反応を起こす。また、金属内部に溶解させたトリチウム(T)は、軽水素(H)と再結合して水素ガス(HT)として放出されることもある。これらによるトリチウム汚染は、上述の適切な換気と、PPEの装着によって防止することができる。

実験終了後には、汚染検査を実施する。トリチウム汚染を調べるために最も確実なのはスミヤ測定を行うことである。スミヤ測定では、図6(a)、(b)に示したような紙で検査対象物の表面を拭き取って(スミヤして)、いわば積極的にろ紙にトリチウムを移動させる。ろ紙の形状は杓子型、三矢型、蝶型があり、写真は杓子型のものである。床の汚染検査では、複数箇所の地点で30 cm²をまんべんなく拭き取る。次に、液体シンチレーション溶液中にろ紙を浸漬して、トリチウムから発せられた β 線をLSCにより測定する。

トリチウム汚染が見つかった場合は、まず速やかに周辺を隔離して実験を終了し、周辺で実験している研究者に呼びかけて、実験室から退出するべきである。この際、慌てないで、非密封RI取扱領域で使用した手袋、エプロン、履物を廃棄してから、自身の外部汚染がないかを確認したうえで、退出する。つぎに、施設の職員に通報し、適切に汚

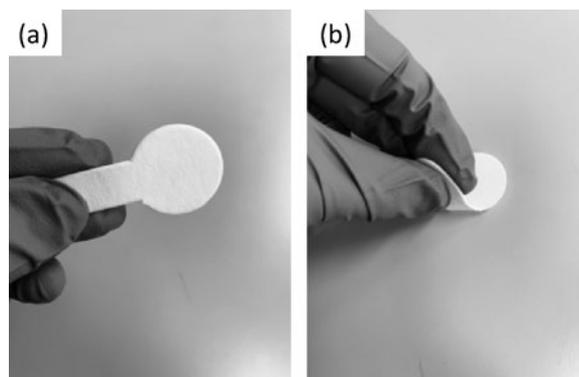


図6 (a)杓子型スミヤろ紙、(b)表面のスミヤ検査の様子。

染の除去（除染）をしてもらうことになる。むやみに自分だけで何とかしようとせず、トリチウム汚染を拡大させないことが重要である。米国アイダホ国立研究所のRad Worker 資格の講習ではSWIMS（泳ぐ）という語呂合わせで、Stop work activities, Worn others, Isolate the area, Minimize exposure, Secure ventilation と説明されている。すなわち、作業を止める、周囲に注意喚起する、汚染区域に人が立ち入らないように隔離する、被ばくを最小限にする、換気・排気を確実にするというものである。

4.5 実験終了後の後片付け

実験終了後には、トリチウム汚染物を固体廃棄物（可燃物、難燃物、不燃物、非圧縮性不燃物）および液体廃棄物（無機液体、有機液体）に分別して廃棄する。トリチウム利用実験でよく用いられるPPEや実験器具の廃棄物分類を表1に示した。実験室には表1に準じた廃棄容器（ゴミ箱）が設置されているはずなので、廃棄物は混在することがないように、分別して廃棄されなければならない。

なお、第2章で述べたように、これら固体廃棄物の表面に付着したトリチウムは水状の化学形であることが多く、廃棄前の保管時に蒸発したり、他に移動したりすることがあるので、廃棄前の管理が重要である。また、トリチウムは金属やセラミックス内に原子状で格子間に溶解したり、他元素と化合物を形成したりする。これら材料内部に取り込まれたトリチウムがどのように外部環境に放出されてくるのかという問題は重要であり、さまざまな材料について研究が進められてきている。このような材料中のトリチウム挙動に関する研究は、実験室レベルだけでなく、原子力発電炉や将来の核融合発電炉における使用済み材料の保管・廃棄・処分の問題として極めて重要である。次章以降で実験研究への取り組みの一端を紹介する。

無機液体はpH2~12に調整した酸やアルカリ溶液であり、有機液体は各種液体シンチレーションカクテル（溶液）に限られる。液体廃棄物中の放射能が規定制限値範囲以内

であることを確認し、液体廃棄物用容器入り口周辺を入念にポリエチレンろ紙によって養生したあとに、漏斗を利用して容器内に流し込む。なお、トリチウムだけを利用していけば、液中放射能は ≤ 2 kBq/mL でなければならない（表2）。

トリチウムを含む固体廃棄物および液体廃棄物において、放射能や1 cm 距離における線量当量率の制限値があり、集荷費用が定められている。ただし、廃棄物にトリチウム以外の核種が含まれている場合は制限値が変化する。詳しくは、日本アイソトープ協会の“RI 廃棄物の集荷について”[7]が参考になる。また、自身で判別がつかない場合には、施設職員に尋ねていただきたい。

参考文献

- [1] 原 正憲 他：日本原子力学会誌 61, 41 (2019).
- [2] M. Hara *et al.*, (T. Tanabe Ed.), *Tritium: Fuel of fusion reactors* (2017, Springer).
- [3] 石河寛昭：最新液体シンチレーション測定法（南山堂1992）。
- [4] 宮原諄二：RADIOISOTOPES 47, 143 (1998).
- [5] T. Otsuka and T. Tanabe, *Mater. Trans.* 58, 1364 (2017).
- [6] M. Matsuyama *et al.*, In-situ measurement of high level tritium by bremsstrahlung counting method", *Toyama Daigaku Suiso Doitai Kino Kenkyu Senta Kenkyu Hokoku* 51, (1994).
- [7] https://www.jrias.or.jp/waste/pdf/haikibutsu_shuka_2018.pdf

表2 トリチウムを含んだ液体廃棄物の分類。

無機液体	有機液体
*pHを2~12以内に調整すること 放射能 ≤ 2 kBq/mL（トリチウム）	*液体シンチレーションカクテル（溶液）のみ 放射能 ≤ 2 kBq/mL（他核種も含む）

表1 トリチウムを含んだ固体廃棄物の分類。

可燃物	難燃物	不燃物	非圧縮製不燃物
布類	プラスチック製品	金属・塩ビ製品	トリチウムを含んだコンクリート、土壌、建築廃材、陶器・機械機器、活性炭など
インナー綿手袋、実験衣、ガーゼなど	プラスチック製バイアル、チップ、キャップ、注射器（金属製針は別）など	金属製ハサミ、ピンセット、アルミホイルなど 注射針 *別途ポリ容器に収納し、針と明記すること 塩ビ製スリッパ、ホースなど	*いずれもトリチウム以外の核種が含まれている場合は施設職員に相談すること
紙類・木片類	ゴム・ポリ製品	ガラス製品	
紙ワイプ、タオル、ろ紙など	ゴム・ポリ製手袋、エプロン、容器など *手袋は裏返した状態にすること	ガラス製フラスコ、ビーカーなど	
敷きわら・床敷		シリコン・テフロン製品	
動物使用実験で利用されたもの *糞尿が分離できない場合は、動物として別分類とすること		テフロン製ビーカー、ピンセット、ホースなど シリコン製ホース、継手 など	

トリチウムのみを含む固体廃棄物の放射能 ≤ 40 MBq



5. どのように実験するのか？ ガス・水・プラズマ状のトリチウム利用

5. How to Do the Experiments? Use of Tritium in Gas, Water and Plasma

片山一成, 橋爪健一

KATAYAMA Kazunari and HASHIZUME Kenichi

九州大学大学院総合理工学研究院

(原稿受付: 2020年9月1日)

トリチウムは核融合炉の燃料であるため、各種の核融合炉構造材中のトリチウム挙動解明は非常に重要であり、多くの研究が進められている。また、トリチウムは水素の放射性同位体であることから、核融合炉材料に限らず水素が関連する分野で、材料との相互作用、材料中での水素の振舞いを調べるうえで大変便利なツールである。このような水素-材料研究では、トリチウム源として水素ガス、液体あるいは気体状態の水、さらにはプラズマ状態あるいは加速されたイオン状態の水素が使われる。本章では、代表的なトリチウム実験の具体例をまとめた。

Keywords:

tritium, hydrogen isotope, β -ray, chemical state, gas, water, plasma

5.1 はじめに

トリチウム実験は、トリチウムが β 崩壊(半減期12.3年)する放射性物質であることを利用して、軽水素および重水素では検出が難しい状況での水素検出が可能であることが最大の特徴である。トリチウム実験を行う際、取扱うトリチウム量およびその濃度によって実験の道具立ては変わってくる。本稿では、一般の材料実験を想定して、GBq以下の比較的少量で、かつ、軽水素あるいは重水素で希釈されトリチウムの同位体比率が $1/10^2 \sim 1/10^6$ 程度のトリチウムを利用するケースについて解説する。もちろん、少量と言っても放射性物質として法令上の制約を受ける量のトリチウムの取扱いは、放射性物質取扱施設内で実施しなければならない。

トリチウム実験で利用する各化学状態のトリチウム源の解説に入る前に、一般的な説明を行う。少量で同位体比率の低いトリチウムであれば、水素ガスにしても水やメタンのような水素の化合物であっても、その取扱いは基本的には非放射性の水素ガスあるいは水素の化合物の場合と大きな違いはない。まず、水素分子状のトリチウムガスについて説明する。実験に応じて、トリチウムを利用するための真空装置、あるいは、トリチウムガスフロー系を有する装置を準備することになる。軽水素や重水素のようにガスボンベに充填したトリチウムを使用する実験では、減圧弁をつけて装置に供給すればよい。この場合、比較的多量の水素ガスを扱うことになるので、通常の水素ボンベを使うように、大気中へのリーク防止、爆発防止などの対策も

必要である。ガスボンベよりも高純度のトリチウムを水素ガスとして使用したい場合は、水素吸蔵合金にトリチウムを吸蔵させておき、これを加熱分解させることによりトリチウムを発生させればよい。こうすればトリチウム中の酸素や水蒸気などの不純分を容易に除去できる。また、水素吸蔵合金を利用すれば、一度使用したトリチウムを再度水素吸蔵合金に回収し再利用することも容易である。なお、最初に水素吸蔵合金へ充填するトリチウムガスは、別に充填されている他の吸蔵合金から分取するか、あるいは、アイソトープ協会等から入手する必要がある。後者の場合は、供給される形態(ガラスアンプルなど)によって、充填のために別途道具立てが必要になることもある。何れにしても、この充填作業時に、軽水素や重水素と混合、希釈することによって、所望の同位体比率のトリチウムガスを作ることができる。次に、液体状の化合物の例として、トリチウム水について説明する。トリチウム水を取扱う場合には、一般薬品と同じように、手袋、マスク、メガネを装着して、皮膚への付着を避けるとともに、口や傷口などから進入しないようにする必要がある。また、トリチウム水を取扱うときには水蒸気に注意しなければならない。水素分子状の場合に比べ、同じ放射能であっても、水の化学的性質のため生体への影響が大きく、水蒸気状態での作業環境中の許容濃度が低く設定されている。

トリチウム実験では、最終的にトリチウムを検出する必要がある。トリチウムの検出、分析に用いられる方法を表1に纏めた[1-3]。主要な検出方法、分析方法について

表1 代表的トリチウムの分析方法[1-3].

方法名	化学形態	測定原理
電離箱, 比例計数管	気体	β 線による気体電離作用
液体シンチレーション法	液体	β 線による蛍光
イメージングプレート法	固体	β 線による輝尽蛍光
質量分析法	気体	同位体質量差
X線測定	固体, 気体	制動Xまたは特性X線
熱量測定	液体, 固体	崩壊熱

は、本シリーズ講座の2章「何に気をつけて実験すべきか? 放射性物質・水素同位体としてのトリチウムの特性」で説明されているので、そちらを参照されたい。本章では、電離箱法、液体シンチレーション法、イメージングプレート法などを利用した実験技術について説明する。

5.2 水素ガス (水素分子状のトリチウムガス)

図1にトリチウムガスを用いた実験例として、金属のトリチウム透過実験装置[4]を示す。この装置は、ガス駆動型透過 (gas-driven permeation) 装置であり、トリチウムガス供給系、透過実験系およびトリチウム回収・分析系の3系統からなる。まず、トリチウムガス供給系は、真空装置に接続しており、ロータリーポンプ、ターボ分子ポンプにより 10^{-5} Pa 程度の真空が得られるようになっている。トリチウムガス源としては、金属チタンに吸蔵させたトリチウムガスを用いており、石英ガラス管に入れた金属チタンを $500\sim 700^{\circ}\text{C}$ に加熱し、熱分解させることにより高純度のトリチウムガスを金属試料に供給している。トリチウムは実験の目的に応じて適宜軽水素あるいは重水素で希釈されて利用される。同実験では、軽水素希釈で、同位体存在比 T/H $\sim 10^{-4}$ 程度の濃度のトリチウムガスが用いられている。水素吸蔵用の金属としては金属チタンのほかにも、ZrCo などの水素吸蔵合金が用いられ、また、古くからの高濃度トリチウムガスの吸蔵材として金属ウラン (ウランベツ) が知られている。熱分解温度はそれぞれの吸蔵材によって変わってくるが、いずれも、前述のように、加熱分解によって高純度のトリチウム供給が可能で、実験終了後は吸蔵合金へ回収でき、減圧下での少量のトリチウムガスの繰り返し利用に向いている。なお、実験後に装置に残留するトリチウムは、その濃度、放射能に応じて、さらにトリチウム回収装置あるいは希釈排気用の設備が必要になることもある。

次に、ガス透過実験系では、通常、試料を加熱すること

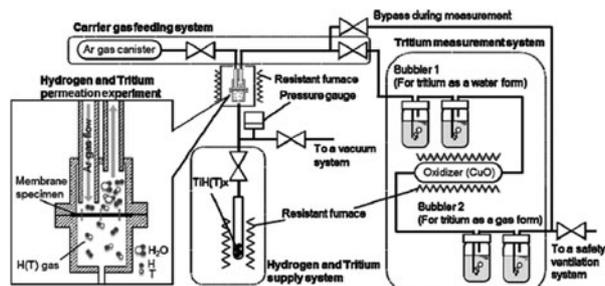


図1 トリチウムガスの透過実験装置の例[4].

も考慮して、トリチウムの漏れがないように試料を装置にセットする必要がある。使用する金属試料の形状、および装置と試料のシール部分の加熱の有無によって、用いるシールの種類も変る。図1の装置の場合には、円板形状の試料を市販のコンフラットフランジで直接固定し、試料をガスケット代わりに塑性変形させて、加熱しても有効なシールを得ている。このように試料を直接フランジに取り付けることができない場合は、金などのやわらかい金属のガスケットでのシールが行われる。また、加熱されたフランジや配管からトリチウムが透過、漏洩する場合には、これらの部材に酸化膜や貴金属コーティングを施したり、2重管構造などを採用して外部へトリチウムを漏らさない工夫も必要となる。なお、シール部分を加熱しない円筒形状の試料のような場合は、樹脂製Oリングや各種の真空用接着剤の使用が可能である。

トリチウム回収・分析系では、透過したトリチウムをキャリアガスと共にガス状態で測定可能な電離箱などへ導き直接分析する方法や、図1の装置のように、キャリアガスとして液体シンチレーションカクテル内にトリチウムを導き、バブリングによりカクテル中にトリチウムガス (この場合トリチウム水蒸気) を回収する方法などがある。後者の場合、透過したトリチウムの化学形態が水素分子であればカクテルを通過するため、加熱した酸化銅などで酸化して水分子として回収し、その後液体シンチレーションカウンターで測定することとなる。なお、透過した後のトリチウムの化学形態が水分子の場合は、装置や配管内壁へ吸着し、測定誤差になるので、吸着しないようにそれらを加熱したり、コーティングを施す必要がある。

最後に、図1は透過実験用の装置であるが、試料へのトリチウム溶解実験などへの転用も容易である。トリチウムガス供給系に、試料を入れた石英ガラス反応管などを接続し、試料の加熱冷却ができるようにすれば、トリチウムガス曝露による溶解、拡散実験が可能となる。

5.3 水蒸気

図1の透過実験装置において、トリチウムガス供給系を、トリチウム水を充填した容器に交換すれば、トリチウム水蒸気を供給源とすることができる。すなわち、ガスポンプや水素吸蔵合金の代わりに、トリチウム水をステンレス鋼容器あるいは石英ガラス反応管に入れて接続すれば良い。水蒸気の供給方法にも、トリチウムガスの場合と同じように、大気圧程度でキャリアガスとともにトリチウム水蒸気を供給する方法や、キャリアガスを用いずに真空装置内にトリチウム水蒸気のみを供給する方法などがある。前者の場合は、トリチウム水を入れた容器内をキャリアガスでバブリングし、試料へ水蒸気を送り曝露実験を行うもので、曝露後のトリチウム水蒸気はコールドトラップなどで回収する。後者では、真空装置にトリチウム水容器を接続しておき、真空状態で容器のバルブを開き、トリチウム水蒸気のみを供給する。またこの方法では、トリチウム水を液化窒素やドライアイス等で冷却、固化すればトリチウム水蒸気の回収と繰り返し利用も容易である。いずれの方法

でも、室温のトリチウム水では3 kPa程度の分圧の水蒸気が容易に供給できる。水蒸気分圧をさらに上げた実験を行う場合には、装置配管を100℃以上に加熱しておき、トリチウム水を加熱すれば、大気圧近くまでのトリチウム水蒸気曝露実験が可能である。

図2は、固体トリチウム増殖材であるリチウムセラミックスペブル表面におけるトリチウム挙動を調べる装置である。ペブル充填層にトリチウム水蒸気含有ガスを流通させ、その表面にトリチウムを捕捉させた後、乾燥ガス、乾燥水素ガス、湿潤ガスを用いてトリチウムを回収する。電離箱で観測される気流中のトリチウム濃度変化を詳細に解析することで、同位体交換反応容量や同位体交換反応速度などのトリチウム物質移動パラメータを求めることができる。この実験では、比較的低い水蒸気分圧下でのトリチウム挙動に注目しているため、トリチウム水のバブリングではなく、水素分子状トリチウムを酸化銅で水蒸気状トリチウムに変換して試料に供給する。同様の実験により、ステンレス鋼やアルミニウム、銅などの金属材料や、グラファイトやシリコンカーバイドなどのセラミックス材料の表面におけるトリチウム挙動が調べられている。

5.4 トリチウム水

核融合炉など大量のトリチウムを使用する施設では、副産物としてのトリチウム水も発生する。トリチウム水は前述のように物質との相互作用が強く、液体としてのトリチウム水は施設のコンクリートなどの構造材料への浸透、金属材料の水腐食が問題となり、また、施設外へ放出されたトリチウム水は、土壌へ吸着浸透するなど周辺環境のトリチウム汚染を引き起こす。そこで、このような構造材料や土壌におけるトリチウム挙動を理解するため、トリチウム浸透実験が行われている。実験方法としては、それらの材料をトリチウム水に浸漬したり、カラムに充填してトリチウム水を注水したりして、材料とトリチウム水とを接触させる実験が行われる。図3にカラムに充填した土壌へのトリ

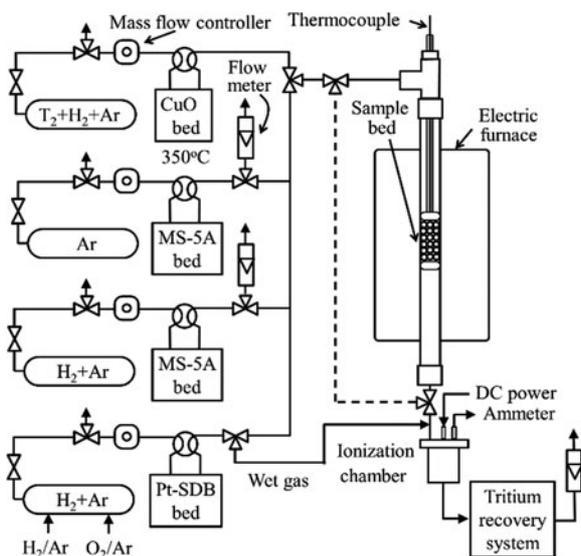


図2 トリチウム水蒸気収着実験装置の例[5].

チウム水の透水実験例を示す[6]。カラム下部から排出されるトリチウム水を定期的にサンプリングし、液体シンチレーションカウンターでトリチウム濃度を測定することにより、トリチウムが土壌充填層に捕捉される様子を観測することができる。トリチウムの放散を防止するため、装置はアクリルグローブボックス内に設置し、ボックス開放時は内側雰囲気中のトリチウム濃度が十分低いことが事前に確認される。

トリチウム水を利用する実験の際、同位体希釈によって低濃度となったトリチウム水に関しては、他の化学薬品と同じように、手袋や保護メガネを着用し、また、局所排気設備内で取扱えば安全に実験が実施できる。一方、高濃度のトリチウム水については、トリチウム水の付着した手袋で他の物を触れることにより、トリチウム汚染を広げる可能性があり注意を要する。加えて、水蒸気についても注意が必要になる。室温の水蒸気の飽和圧力は3 kPa程度なので、 $T/H \sim 10^{-4}$ 程度の希釈されたトリチウム水でも作業環境中のトリチウム濃度は35 kBq/cm³になる可能性がある。トリチウム水蒸気の許容濃度限度は0.8 Bq/cm³なので、高濃度のトリチウム水の取扱いは局所排気されたドラフト内で使用するなど、注意する必要がある。また、トリチウムの同位体比率の高いトリチウム水の場合、トリチウムから発生するβ線による水の放射線が起り、分解ガスが生じるため、トリチウム水を密閉保管する場合には、容器内圧の上昇にも注意する必要がある。

5.5 プラズマ

トリチウムのプラズマを使った実験も数多く行われている。例えば、プラズマ化した水素の金属への溶解挙動を調べる実験、プラズマ駆動水素透過実験、トリチウム化メタンのプラズマ分解実験など多種の実験研究がある。また、イオンガン等を用いてイオン化したトリチウムを加速し、材料へ照射する実験も行われる。それぞれ研究目的によって使い分けられるが、ここでは、プラズマ発生装置を用いた実験方法について述べる。まず、水素ガスをプラズマ化するには1 Pa～数 kPa程度の低圧とし、電極を設けて高電

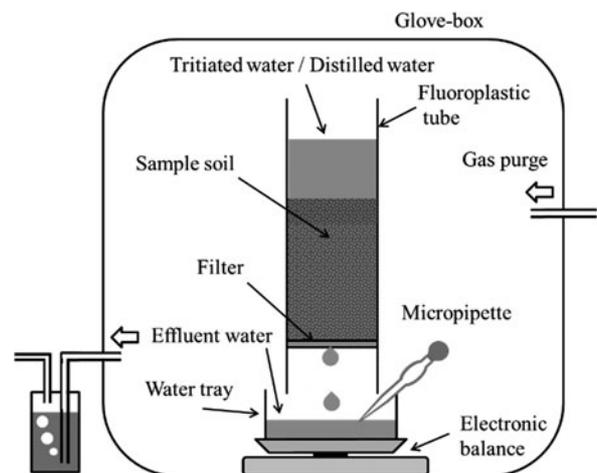


図3 土壌充填層へのトリチウム水の透水実験の例[6].

圧をかける直流・交流グロー放電，高周波 (RF) 放電，電子サイクロトロン共鳴 (ECR) 放電，マイクロ波放電など各種の方法がある。図 4 [7]には，直流グロー放電の概念図を示す。この方法は高圧の直流電源などは必要であるが，比較的簡単な道具立てで実施可能である。まず，放電容器の中に前述のトリチウムガス供給系から低圧のガスを導入しておき，試料を埋め込んだ電極間に数 100 V～数 kV の電圧を印加すればよい。これによりグロー放電が発生し，直流の場合には陰極側に埋め込んだ試料がプラズマに曝される。交流電源を用いれば両方の電極の試料をプラズマに曝すことができる。また，図のように，石英ガラス容器を用いれば試料の加熱も可能である。この方法は金属等の導電性のある試料に適している。また，RF 放電などの他のプラズマ生成法を使えば試料の導電率に関係なくプラズマ曝露実験が可能である。

図 5 [8]は，RF 放電を用いたトリチウム化メタンからのトリチウム抽出実験装置の例である。この実験ではトリチウム水蒸気 (HTO) と軽水素，メタンを触媒塔に流通させ，同位体交換反応によって，水素分子状トリチウム (HT) とメタン状トリチウム (CH_3T) を生成する。その後，HTO の多くを吸着塔で回収し，主に HT と CH_3T をキャリアガスであるヘリウムとともにプラズマに導入する。プラズマ通過中にメタン状トリチウムは分解され，水素分子状トリチウムとなり，プラズマ装置下流に設置された水素透過膜により透過抽出される。透過一次側，二次側それぞれに電離箱が設置されており，トリチウム抽出率が評価される。出口ガス中のトリチウム化学形を評価するた

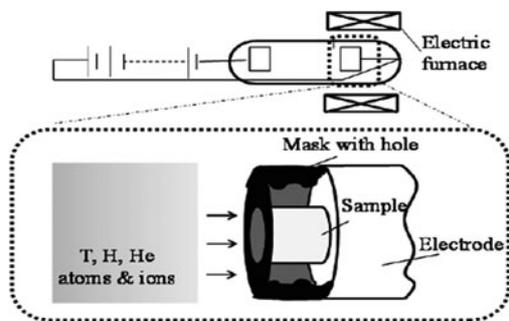


図 4 グロー放電プラズマを用いたトリチウム注入装置の例[7].

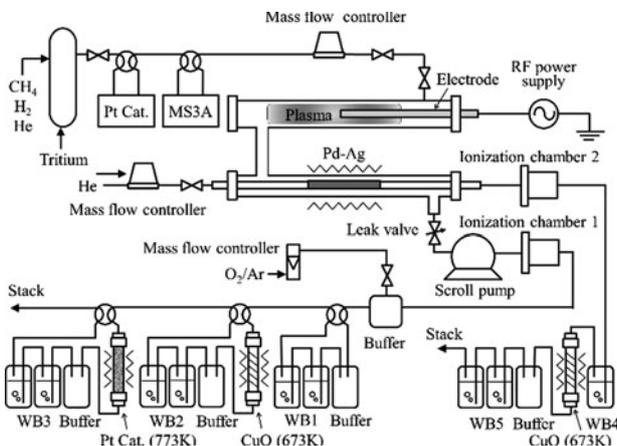


図 5 トリチウム化メタン分解抽出実験装置の例[8].

め，それぞれの流路下流には，トリチウム回収・分析系が設置される。HTO は第 1 水バブラーで，HT は酸化銅塔で HTO に変換されたのち第 2 水バブラーで， CH_3T は触媒塔での酸素との反応により HTO に変換されたのち第 3 水バブラーで，それぞれ捕集される。バブラー水を定期的にサンプリングして，液体シンチレーションカウンターによってトリチウム濃度を測定することで，それぞれの化学形でのトリチウム挙動を観測することができる。ただし，水バブラーや酸化銅塔，触媒塔での材料とトリチウムとの相互作用を含んだ挙動であることを考慮した解析が必要となる。

どの放電方式を用いるにしてもプラズマ実験装置内は，トリチウムガス曝露の場合よりもトリチウムが内壁に溶解し，トリチウムで汚染されることになるので，試料交換や装置の処分時などに注意が必要になる。図 5 の装置では，プラズマ容器開放時のトリチウム含有炭素ダストの飛散などが懸念されるため，局所排気機能を有するテント内に装置全体が収まるよう設計・作製し，万が一のトラブルによるトリチウム汚染を最小限に止める対策が講じられている。

5.6 まとめ

低濃度のトリチウムを利用する限りは，実験装置および道具立てとしてはトリチウムを含まない水素ガス，水蒸気の取扱いと大きな違いはない。ただし，トリチウムガスやトリチウム水の漏洩が生じにくい装置構成とし，万が一のトラブルが発生した場合でもトリチウム汚染の拡大をできる限り低減するための対策が求められる。そのため経験と想像力を総動員して安全性の高い実験装置を設計・製作し，安全に実験を実施するための操作手順を慎重に検討することとなる。そして，このようにトリチウム取扱経験を積み重ねていくことは，トリチウムを用いた貴重な実験データが集積されていくということだけではなく，核融合炉発電プラントの安全設計につながるものと考えられる。

ひとりでも多くの研究者が，トリチウム実験に挑戦することを期待する。トリチウム使用施設の職員は，安全に効率的に実験が進むように相談に乗りたいと考えている。積極的に相談をしてほしい。

参考文献

- [1] M. Hara *et al.*, "Tritium measurement I -Tritium in gas, liquid, and solid", chapt. 7 in T. Tanabe Ed. *Tritium: Fuel of fusion reactors* (Springer, 2017).
- [2] 田辺哲朗 他：プラズマ・核融合学会誌 85, 13 (2009).
- [3] R. Lässer, "Analysis of tritium in metals", chapt. 4 in *Tritium and Helium-3 in metals* (Springer-Verlag, 1989).
- [4] T. Otsuka *et al.*, *Fusion Eng. Des.* 132, 107 (2018).
- [5] K. Katayama *et al.*, *Fusion Eng. Des.* 88, 2400 (2013).
- [6] K. Furuichi *et al.*, *Fusion Sci. Technol.* 68, 458 (2015).
- [7] M. Higaki *et al.*, *J. Plasma Fusion Res. SERIES* 11, 6 (2015).
- [8] K. Katayama *et al.*, *Fusion Sci. Technol.* 60, 1379 (2011).



講座 トリチウム実験入門

6. 日米共同研究を通してトリチウム実験しよう

6. Let's Make Experiments with Tritium under Japan-US Joint Project

大矢 恭久

OYA Yasuhisa

静岡大学 学術院 理学領域

(原稿受付：2020年1月26日)

「トリチウムを模擬した重水素実験」をしているみなさん、実際にトリチウムで実験してみませんか？トリチウムを使うと汚染や安全管理が問題になると躊躇している方も多いはず。それなら、アメリカでやってみませんか？アメリカの安全重視した研究施設で共同研究して、実際にトリチウムのデータを取得するのはどうでしょうか？世界的にも貴重なデータが得られるはず。この章では日米科学技術協力事業 FRONTIER 計画の概要を説明し、トリチウム実験の必要性を考えてみたいと思います。

Keywords:

Tritium, Japan-US joint "FRONTIER" project, STAR facility, INL

6.1 はじめに

学会発表や論文によく「トリチウムを模擬した重水素実験を行った。」と記載されているのを見かけませんか？トリチウム実験と言いながら重水素を使った実験が広く行われています。重水素実験、トリチウム実験それぞれに利点があるわけです。重水素実験では、放射性物質を扱わないので比較的容易に実験を始められます。また、汚染対策を必要がないので、重水素実験後の分析の選択の幅が広がります。簡単に別の実験室にある表面分析装置などを利用することができます。一方で、トリチウムを使うと、トリチウムから放出されるβ線を測定することで、二次元の分布やミリメートルレンジの深さ方向分布を明らかにすることができます。このようにトリチウムを使うことにより、これまで軽水素や重水素ではわからなかった水素同位体の挙動を理解することができます。しかし、国内でトリチウムを扱うことができる施設（核融合に関連した研究ができる施設）は限られています。主な大学では富山大学、九州大学、静岡大学、大阪大学あたりしかありませんし、取扱量や実験装置にもそれぞれの施設で制約があります。

そのため、プラズマ壁対向壁中のトリチウム挙動などある程度大量のトリチウムを扱うには国外の研究施設と共同研究として進めることが有効です。本章では日米共同研究 FRONTIER 計画を題材に、米国でのトリチウム実験の魅力について紹介します。ぜひ若い方々にトリチウムを使ってしっかり研究してもらおうきっかけにしていきたいと思います。

6.2 日米共同研究 FRONTIER 計画の概要とトリチウム関連研究

日米プロジェクト研究「原型炉ダイバータにおける界面反応ダイナミクスと中性子照射効果」FRONTIER (Fusion Research Oriented to Neutron irradiation effects and Tritium behavior at material IntERfaces) 計画 (図1) は、富山大学波多野雄治教授を日本側代表として、米国オークリッジ国立研究所、アイダホ国立研究所、サンディア国立研究所が参加して2019年度～2024年度の6年計画で実施されています[1]。トリチウムに関連した研究としてはタスク2の「界面を跨るトリチウム移行および中性子照射効果」が該当します。核融合原型炉プラズマ対向材料は高フラックスのDTプラズマに曝されるとともに、DT核融合反応により生成された高エネルギーの中性子やHeの照射を長時間受けます。これまでに中性子照射されたタングステンでは安定な捕捉サイトが形成されるため、水素同位体滞留量が大幅に増加することが前日米共同研究 (PHENIX

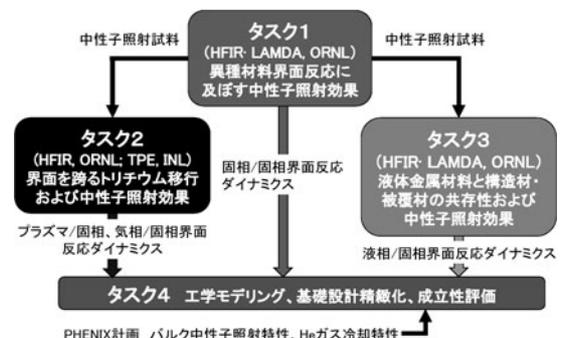


図1 FRONTIER 計画のタスク構成[1].

計画)で明らかにされました[2]。核融合炉をシステムとして設計するためには、異なる材料間を跨がるトリチウム移行挙動の理解および同位体効果を考慮した水素同位体移行評価が必要不可欠です。また、実際の核融合炉でDT比はほぼ50:50で運転することが想定されていますが、これまでのプラズマ対向材中の水素同位体滞留挙動評価では、単一の水素同位体を用いる研究がほとんどであり、水素同位体比を考慮した評価はありません。そのため、種々の水素同位体が存在する環境で、本当にトリチウムが水素同位体全滞留量の50%を占めるのかもよくわかっていません。さらに、核融合原型炉における安全性評価は炉建設に向けて必須の課題です。とくに燃料となるトリチウムやDT核反応によって生成した中性子照射による放射化物の飛散が懸念されます。事故時に真空容器中へ大気や水蒸気が進入すると、運転停止後の崩壊熱により高温状態に保持されたプラズマ対向材料との反応が生じ、放射化したタングステンや核変換で形成されるレニウムが酸化物として昇華すると共に、トリチウムとともに飛散するリスクが考えられます。そのため、温度や酸素分圧、水蒸気分圧等をパラメータとしてトリチウムや放射化物がどのような化学形でどの程度飛散するのか実験的に明らかにし、予測しておくことが必要です。そのために、FRONTIER計画タスク2では次の3つのサブタスクを設定して研究を進めています。

- (1) 界面を跨るトリチウム輸送とその中性子効果
- (2) 中性子照射ダイバータ材料におけるトリチウム滞留に及ぼす水素同位体効果
- (3) 事故時におけるトリチウムおよび放射性核種の放出と輸送

これらの研究では実験研究のみならずシミュレーションも通して幅広い条件下でのトリチウム輸送を評価することとしています。

主な研究施設はアイダホ国立研究所 (INL) の STAR (Safety and Tritium Applied Research) 施設とサンディア国立研究所 (SNL) です。INL には図 2 に示すようにトリチウムに関連したさまざまな研究ができる施設が整備されています。STAR 施設のトリチウム貯蔵量は最大 1.6 g (15390 Ci = 575 TBq) であり、日本の大学よりも多くのトリチウムを使った研究が可能です。このなかでもトリチウ



図2 アイダホ国立研究所の STAR 施設。

ムプラズマ装置 (TPE) (図 3) は、ダイバータプラズマに相当する高フラックスのプラズマ照射が可能です。トリチウム取扱量としても一回のプラズマ実験で 500 Ci (18.5 TBq) まで利用可能です。また、表面から 30 cm で 1 mSv/h 以下の線量であれば、他の核種が含まれる放射化物の利用も可能ですので、様々な中性子照射材を使ったトリチウム実験が可能です。また、近年では分析装置として X 線光電子分光装置、オージェ電子分光装置、グロー放電発光分析装置、陽電子消滅寿命測定装置、電子顕微鏡などが整備されてきており、放射化物試料の分析にも力を発揮しています。SNL では重水素プラズマ装置 (DPE) をはじめ、1150°C の高温まで到達可能なガス透過分析装置や 1600°C まで加熱可能な昇温脱離装置が整備されているとともに、低エネルギーイオン散乱分光装置、フーリエ変換赤外分光装置などが利用可能です。

6.3 共同研究してみませんか？

これまで日米共同研究でのトリチウム研究について見てきました。学生のみなさんもトリチウム共同研究に参加してみませんか？現在、重水素を使った研究や、少量のトリチウムをトレーサーとして使った研究を進めているかもしれませんが、大量トリチウムを使った研究は、安全対策や実験手順が全く違っており、良い経験になると思います。共同研究なのでお互いの興味が合致しないといけません。そのために自分がやりたい研究の必要性を相手側に伝える必要があります。自分の研究とは少しスコープが違うと躊躇している方もいると思いますが、研究領域や視野を広めるといって共同研究はとても有意義です。研究のみならず外国で一人暮らしをしてみることも良い経験になると思います。特にアイダホは日本人がほとんどいませんので、様々なトラブルを自分自身で (英語で) 解決していかなければなりません。このような経験は日本ではできません。研究から日常生活まですべてが勉強ですし、よい経験になり

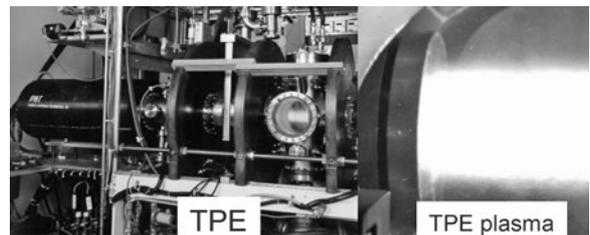


図3 TPE 装置と TPE プラズマ照射時の写真。



写真1 アイダホフォールズの一景。

ます。本研究は博士課程の学生さん（めざしている学生さんも含む）も参加できます。ぜひ、一歩踏み出してみませんか？

参考文献

- [1] 波多野雄治 他：“5.FRONTIER 計画（2019年度～2024年度）”：プラズマ・核融合学会誌 **96**, 145 (2020).
- [2] 大矢恭久 他：“4.タスク3 トリチウム挙動および中性子照射効果”：プラズマ・核融合学会誌 **96**, 140 (2020).



かた やま かず なり
片山一成

九州大学大学院総合理工学研究院 准教授。核融合炉のトリチウムに関する研究を行っています。実験室が散らかりすぎていて、先生方にこっぴどく叱られました。大変申し訳ありませんでしたm(__)m。掃除機を買いました。



おお や やす ひさ
大矢恭久

静岡大学学術院理学領域 准教授。1999年東北大学大学院工学研究科・博士（工学）。専門はトリチウム理工学，放射化学。日米共同研究 FRONTIER 計画タスク2リーダー。最近は水素同位体のプラズマ対向材中でのプラズマ駆動透過挙動評価に専念している。

はし づめ けん いち
橋爪健一