



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 (ウランベット) 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

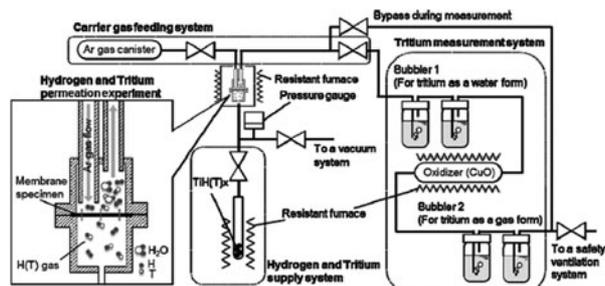


図1 トリチウムガスの透過実験装置の例[4].

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

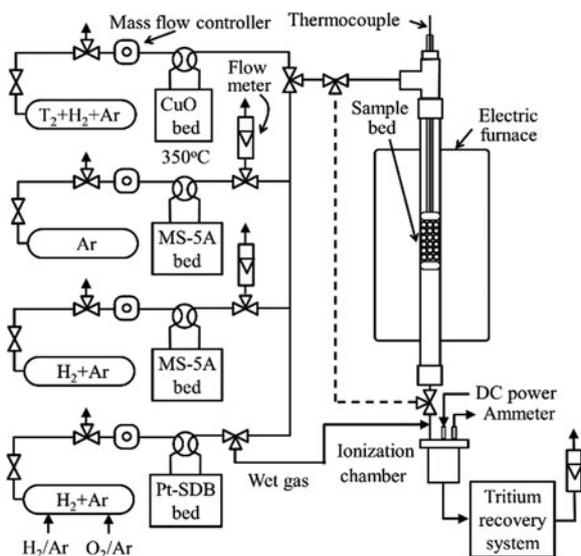


図2 トリチウム水蒸気収着実験装置の例[5].

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

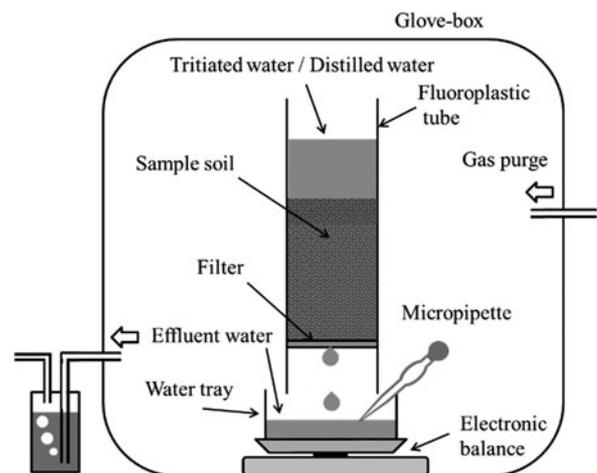


図3 土壌充填層へのトリチウム水の透水実験の例[6].

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

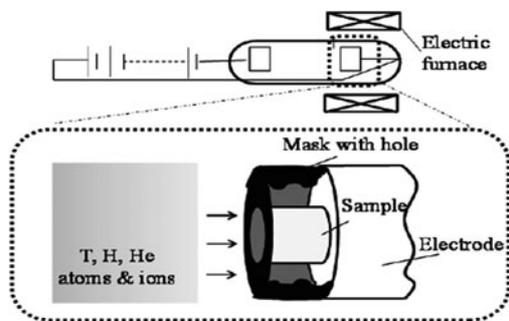


図 4 グロー放電プラズマを用いたトリチウム注入装置の例[7].

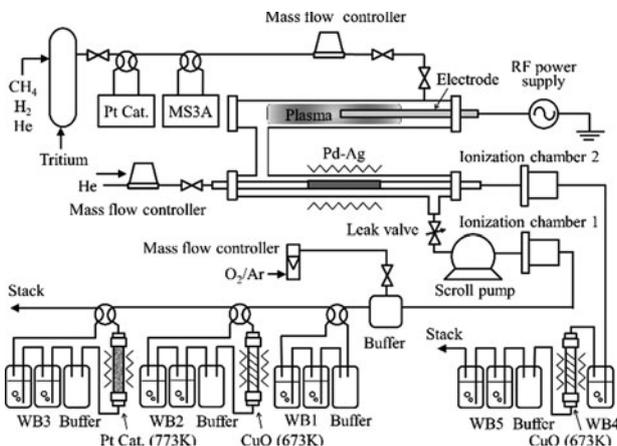


図 5 トリチウム化メタン分解抽出実験装置の例[8].

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).