

JAERI-M

84-087

酸化リチウムの照射下トリチウム放出試験
—トリチウムの放出挙動—

1984年5月

倉沢 利昌・吉田 浩・渡辺 齊
竹下 英文・宮内武次郎・松井 智明

JAERI-M レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。

入手の間合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡東海村 日本原子力研究所内）で複写による実費領布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Section, Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1984

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 日立高速印刷株式会社

酸化リチウムの照射下トリチウム放出試験
—トリチウム放出挙動—

日本原子力研究所東海研究所燃料工学部

倉沢 利昌・吉田 浩⁺・渡辺 斉

竹下 英文・宮内武次郎⁺⁺・松井 智明⁺⁺⁺

(1984年4月18日受理)

トリチウム増殖材として最も有力視されている酸化リチウムの中性子照射下におけるトリチウム放出特性を調べるため、「酸化リチウム高照射試験(I)VOM-15H計画」を実施した。

本実験に用いた中性子照射孔は、研究炉JRR-2の燃料領域の垂直照射孔VT-10(熱外中子を含む熱中性子束 1.12×10^{14} n/cm²・sec, 速中性子束 1.0×10^{12} n/cm²・sec)である。照射試料として、真空焼結した円筒状ペレット(11mm-OD, 1.8mm-ID, 10mm-H, 嵩密度86%TD)を4個(全重量6.67g)を使用した。照射キャプセルは、内部ヒータを備えたスイープガス・キャプセルを使用した。

照射期間は1983年5月から8月までの4サイクルであり、この間の実効熱中性子フルエンスと⁶Li燃焼率はそれぞれ 5.9×10^{19} nvt及び0.24%に達した。照射温度は、470~760°Cの範囲で調節した。熱中性子束歪補正係数及び⁶Li(n, α)³H反応の実効断面積をそれぞれ0.148, 543バーンとしたときのトリチウム生成量は31.2Ciと計算された。

本報告書は、実験装置の概要とトリチウム放出特性に及ぼす水分、水素H₂及び照射温度の影響について述べたものである。また、スイープガス(ヘリウム)中の比較的高濃度(10⁻¹~10² μCi/cm³)のトリチウムを連続的に定量測定する際の問題点についても言及した。

+ 核融合研究部
++ 研究炉管理部
+++ 保健物理部

JAERI-M 84-087

In-pile Test of Tritium Recovery from Lithium Oxide

--- Tritium Release Behavior ---

Toshimasa KURASAWA, Hiroshi YOSHIDA,⁺ Hitoshi WATANABE
Hidefumi TAKESHITA, Takejiro MIYAUCHI⁺⁺ and Tomoaki MATSUI⁺⁺⁺

Department of Fuels and Materials Research,
Tokai Research Establishment, JAERI

(Received April 18, 1984)

In-situ tritium recovery experiment with sintered lithium oxide pellets was performed under a high neutron fluence in the JRR-2. The irradiation hole VT-10 is the vertical one in the fuel rods region of the reactor, and the neutron flux is as follows: the thermal neutron flux with the epithermal neutron; 1.12×10^{14} n/cm².sec, the fast neutron flux; 1.0×10^{12} n/cm².sec.

Irradiation material is the four pellets of cylindrical Li₂O with the size of 11mm-OD, 1.8mm-ID, 10mm-H, and their total weight is 6.67g (the apparent bulk density 86%TD). A sweep gas capsule with a inner heater was constructed for the present study. Irradiation temperatures were regulated in the high temperature range, 470 ~ 760°C.

Four cycles of irradiation tests were carried out from May to August in 1983, and the effective thermal neutron fluence and the burnup of ⁶Li were 5.9×10^{19} nvt and 0.24% of total lithium (natural abundance of Li), respectively. The amount of generated tritium was calculated to be 31.2Ci by using a value of the depression factor of the thermal neutron flux (0.148) and the effective neutron cross section (543b) for the ⁶Li(n,α)³H reaction.

Present report describes the tritium release behavior in the in-situ tritium recovery apparatus and discuss the effects of the moisture, the hydrogen spiking, the irradiation temperature, etc.. Problems relative to a real time measurement of a comparatively high tritium concentration ($10^{-1} \sim 10^2$ μCi/cm³) in the helium gas stream were also investigated.

Keyword: Fusion Reactor, Breeding Materials, Lithium Oxide, Tritium Release, Neutron Fluence, Neutron Cross Section, Natural Lithium, Moisture, Hydrogen, Irradiation Temperature

+ Department of Thermonuclear Research, Tokai, JAERI

++ Department of Research Reactor Operation, Tokai, JAERI

+++ Department of Health Physics, Tokai, JAERI

目 次

1. はじめに	1
2. 実 験	4
2.1 実験装置	4
2.2 照射試料	5
2.3 照射条件	5
2.4 原子炉起動前準備	6
3. 結果および考察	11
3.1 原子炉起動時のトリチウム放出特性	11
(1) 水分の影響	11
(2) 水素ガス添加の影響	12
3.2 原子炉定常出力時のトリチウム放出特性	13
(1) 昇温時のトリチウム放出	13
(2) 定常温度下のトリチウム放出	15
4. おわりに	47
謝 辞	47
文 献	49
付 記：高濃度トリチウムの連続測定法に関する検討	51

Contents

1.	Introduction	1
2.	Experimental	4
2.1	Experimental apparatus	4
2.2	Specimens	5
2.3	Irradiation conditions	5
2.4	Procedures of irradiation test	6
3.	Experimental results and discussion.....	11
3.1	Tritium release at start-up operation of the JRR-2.....	11
(1)	Effect of moisture	11
(2)	Effect of hydrogen gas spiking	12
3.2	Tritium release at steady-state operation of the JRR-2.....	13
(1)	Tritium release on heating.....	13
(2)	Tritium release under constant temperatures	15
4.	Summary	47
	Acknowledgement.....	47
	References.....	49
Appendix	: Real time measurement of high concentration tritium gas stream	51

List of Tables

- Table 1. Comparison of In-Situ Tritium Recovery Experiments
- Table 2. Summary Data of Experimental Conditions and Results(I)
Ionization Chamber : Bird-cage Type Electrode
- Table 3. Summary Data of Experimental Conditions and Results(II)
Ionization Chamber : Conventional Type without
Bird-cage Type Electrode
- Table 1A. Specifications of Commercial Ionization Chambers

List of Photographs

- Photo. 1 Appearance of Li_2O Sintered Pellets
- Photo. 2. Scanning Electron Micrograph of
 Li_2O Sintered Pellet
- Photo. 3. Transmitted X-ray Image of VOM-15H Inner Capsule

List of Figures

- Fig.1. Schematic Flow Sheet of Experimental Apparatus
- Fig.2(a,b). Flow Lines for Tritium Measurement(1st and 2nd cycles)
- Fig.2(c,d). Flow Lines for Tritium Measurement(3rd and 4th cycles)
- Fig.3. A Typical Moisture Effect on Tritium Gas(HT, T_2) Release at Start-up Operation of the JRR-2
- Fig.4. Comparison of the Moisture Concentrations Released at Start-up Operation in Each Cycle
- Fig.5. Comparison of Moisture Concentrations in Each Cycle at the Early Stage of Irradiation Period
- Fig.6. Monitoring Result of Moistures at Positions in the Experimental Apparatus
- Fig.7. Effect of H_2 -gas Spiking on Tritium Release at Start-up Operation of the JRR-2
- Fig.8. Typical Release Characteristics of Tritium and Moisture on Heating under Full Power Operation of the JRR-2 (1st, 2nd and 3rd cycles)
- Fig.9(a,b). Tritium Release Characteristics on Heating under Full Power Operation of the JRR-2
- Fig.9(c,d). Tritium Release Characteristics on Heating under Full Power Operation Of the JRR-2 (4th cycle)
- Fig.9(e). Tritium Release Characteristics on Heating under Full Power Operation of the JRR-2 (4th cylce)
- Fig.10. Tritium Release Profiles in the 1st Cycle at Constant Temperatures
- Fig.11. Tritium Release Profiles in the 2nd Cycle at Constant Temperatures
- Fig.12. Tritium Release Profiles in the 3rd Cycle at Constant Temperatures
- Fig.13. Tritium Release Profiles in the 4th Cycle at Constant Temperatures
- Fig.14. Comparison of the Performance of the Two Types of Ionization Chambers(IC-1,2 : ionization volume 100cm^3 , with bird-cage type electrode, IC-3 ; ionization volume 1500cm^3 , without bird-cage type electrode)
- Fig.15. Temperature Dependence of Tritium Release

- : calculated tritium generation rate
- ▲ ● : total tritium measured with the Bird-cage Type of Ionization Chamber
- ◇ : total tritium measured with the Conventional Type of Ionization Chamber
- ⊗ : tritium-gas $HT(T_2)$ measured with the Bird-cage Type of Ionization Chambers

- Fig.1A. Effect of Spike-gas(0.1% H_2 -He) on Tritium Measurement with Ionization Chambers(IC-1,2 with the bird-cage type electrode)
- Fig.2A. Ionization Efficiency of A Ionization Chamber(IC-3)
- Fig.3A. Improvement for Real Time Measurement of Tritium Gas Stream in the VOM-15H Experiment
- Fig.4A. Measurement of Background Tritium in the Ionization Chambers with the Bird-cage Type Electrode(IC-1,2)

1. はじめに

核融合炉開発においてトリチウム増殖ブランケット材に関する研究の重要性が高まっている。最近の数年間に限っても、INTOR (IAEA)⁽¹⁾⁻⁽³⁾、STARFIRE (米国)⁽⁴⁾、DEMO (米国)⁽⁵⁾、INTOR-J (日本・原研)⁽⁶⁾ の設計研究において固体とくにセラミックス系のリチウム化合物を中心とするトリチウム増殖材の選定、評価が精力的になされている。これらの研究を通じて有望と考えられた物質を列挙すると、酸化リチウム (Li_2O)、 Li_2O との複合酸化物であるアルミン酸リチウム (LiAlO_2)、珪酸リチウム (Li_2SiO_3 , Li_4SiO_4)、ジルコン酸リチウム (Li_2ZrO_3 , Li_8ZrO_6)、チタン酸リチウム (Li_2TiO_3) などである。セラミックス以外のトリチウム増殖材候補物質においても同様にいろいろな合金、金属間化合物が検討されている。このようにさまざまな物質が提案されしかも個々の物質の適用可能性について研究者間の見解が必ずしも一致していないのは、この分野の研究の歴史が高々10年前後に過ぎないことを考慮するとやむを得ないことと言える。トリチウム増殖材として多種多様な物質が考えられる理由、これを一口に言えば、トリチウム増殖ブランケット材として具備すべき諸特性 (増殖性能、熱・化学的特性、物理的特性、トリチウム放出特性、照射特性、照射健全性、製造など) を評価するに足るデータが現在のところ十分には得られていないことに尽きる。

そこで、最近の欧米各国における研究の動向であるが、筆者らが昨年出席した“ANS-3rd Topical Meeting on Fusion Reactor Materials: 19~22 Sept., 1983, Albuquerque, NM”及び“IEA-Solid Breeder Workshop: 22~23 Sept., 1983, Albuquerque, NM”における報告の概要を以下に述べる。

米国では DEMO 及び STARFIRE の設計基準として選定した Li_2O 、 LiAlO_2 を含む数多くの固体、液体増殖材の性能を評価するための設計研究 (Blanket Comparison and Selection Study) が進められている。これと併行して実施されている TRIO/ORR 計画と FUBR/EBR-II 計画は、現在それぞれの第1段階が終了している。TRIO 計画は中性子照射下のトリチウム放出特性の解明を目的とし、FUBR 計画はブランケット領域の中性子スペクトルに近い速中性子照射による各種増殖材の特性変化を調べるとともに健全性の確証を目的とするものである^{(7),(8)}。

一方、ECには次期装置 NET の開発において液体増殖材とともに固体増殖材の開発計画がある。これらは未だ調整が終っていないが幾つかの研究チームによって実施される予定であり、製造、キャラクタリゼーション、物性測定、照射特性試験、トリチウム放出特性試験など米国と類似の研究項目がとり上げられている。

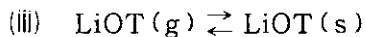
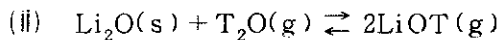
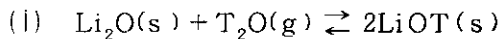
我が国では、酸化リチウム Li_2O の諸性質 (リチウム原子密度、熱伝導度、高温安定性、水素溶解度、トリチウム拡散定数、など) がトリチウム増殖ブランケット材として適していることから Li_2O ブランケットの研究が中心となっている。すなわち原研では1977年6月に Li_2O がトリチウム増殖材の第1候補に選定されるとともに Li_2O の製造、物性、両立性、中性子照射した Li_2O のトリチウム放出特性など各種の基礎研究が開始された。最近ではさらに、タンデム加速器を用いた酸素イオン $^{16}\text{O}^{+6}$ (100~110MeV) による照射損傷の研究^{(9),(10)}、バンデグラフ加速器を

用いたヘリウムイオン $^3\text{He}^+$ (1.5MeV) 照射による He ガス挙動試験⁽¹¹⁾並びに原子炉(熱中性子炉)を利用した照射下におけるトリチウム放出試験なども軌道に乗ってきている。

“VOM-15H計画”とキャプセル名称で呼ばれる本研究は、JRR-2を使用して実施した ICM-8H(1978年)、VOM-5H(1979年)及びVOM-7H(1981年)などの予備的実験の結果^{(12),(13)}を踏まえて計画された高温・高照射下における Li_2O トリチウム放出特性試験の最初のものである。

原子炉による照射は、JRR-2の事情により約8ヶ月遅れたが1983年5月23日より8月5日までの4サイクルに亘っては当初の予定通りに実施された。この実験にやや先行して米国で ORRを用いたトリチウム放出試験 TRIO-01 実験⁽⁷⁾が実施(1983年3月~6月)されたので、両研究の概略比較を Table 1 に示す。

ところで、 Li_2O は水蒸気に対して高い反応性を有しているため、 Li_2O ブランケットの予想される操作範囲(温度400~1000°C、水蒸気濃度1~100 vppm、水冷却-ヘリウムガス・スweep方式)においては、次のような諸反応が起こる可能性がある。⁽¹⁴⁾



これらの熱力学的な平衡反応は、ブランケット内の温度分布とスweepガス中の水蒸気濃度変化に応じて相互に変化するので複雑となる。しかしながら、これらはブランケット内のトリチウムインベントリの増加や Li_2O の質量移行の原因ともなり、トリチウム放出挙動にも影響を与える。

本実験の目的は、「VOM-15H計画と安全評価」⁽¹⁵⁾、「スweepガス・キャプセルの核・熱評価」⁽¹⁶⁾、「トリチウムの除去とモニタリング」⁽¹⁷⁾として既に報告しているように多岐に及ぶが、 Li_2O のトリチウム放出特性に影響すると考えられる各種要因を抽出し明らかにすることを主題としている。

Table 1 Comparison of In-Situ Tritium Recovery Experiments

	JAERI VOM-15H Experiment	ANL TRIO-01 Experiment
Material	<p>Li₂O sintered pellet 86%TD (apparent density) grain size < 10μm 1.8mm^{ID}x11mm^{OD} x ~10mm^H 6.67g (4 pellets) 7.4%⁶Li</p>	<p>^γ-LiAlO₂ pellet (Bimodal) ~65%TD (smear density) grain size ~0.1μm, agglomerate size ~50μm 15.9mm^{ID}x25.4mm^{OD} x ~12.7mm^H 42.9g(7 pellets) 0.55 ± 0.01%⁶Li</p>
Reactor	JRR-2	ORR
Fluence	5.7x10 ¹⁹ n/cm ² (effective)	3x10 ²¹ n/cm ²
Burn up	0.24% of Li(3.2% of ⁶ Li)	0.22% of Li
Tritium production	~31Ci, ~4.2μCi/cm ³ (steady state)	~35Ci, ~5μCi/cm ³ (nominal)
Irradiation time	990hr	2112hr
Irradiation temperature	480 ~ 750°C	400 ~ 700°C
Sweep gas	100cm ³ -STP/min dry-He, 1%H ₂ -He	100cm ³ /min(nominal), 30, 300cm ³ /min 0.1%H ₂ -He(nominal), 100%He, 0.2%O ₂ -He

2. 実 験

2.1 実験装置

中性子照射下における酸化リチウム焼結ペレット（以後 Li_2O ペレット）からのトリチウム放出特性を調べることを目的として製作した実験装置の概略フロシートを Fig. 1 に示す。この装置は、機能面から見ると次の4つの部分に大別される。

(i) 中性子照射部

Li_2O ペレットを原子炉内で照射し、生成したトリチウムを掃引（スイープ）するための装置であり、照射キャプセル、乾燥ヘリウム供給用の乾燥塔 MS-1*（MS-5A 135g, 充填高さ34cm）、水分計（照射キャプセル出入口部）などから構成されている。照射キャプセルは、内蔵したヒーターにより試料中心部分を 750°C 前後（ヒーター出力 $82\text{W}/\text{cm}$, 最大出力 200W ）に加熱することができる。

(ii) トリチウム測定部

スイープガス（乾燥ヘリウム）中に放出されたトリチウムの濃度を連続測定するための乾燥塔 MS-2（MS-5A 37g, 充填高さ 50cm）、触媒還元塔 RX（触媒 $\text{CuO}\cdot\text{ZnO}\cdot\text{Cr}_2\text{O}_3$ 5g, 充填高さ 2cm）、通気型電離箱（IC-1~3）などから構成されている。この装置により、例えば MS-2 塔から IC-1 への配管経路を用いた場合には、スイープガス中の水蒸気成分 HTO (T_2O) とガス成分 HT (T_2) のうち水蒸気成分はモレキュラーシープに吸着され、ガス成分のみが測定される。一方、RX 塔から IC-2 への経路の場合には、HTO (T_2O) が HT (T_2) に還元されるので、 Li_2O ペレットから放出されたトリチウムの全濃度が測定できる⁽¹⁸⁾。これらの配管経路を交互に使用することにより放出トリチウムの成分比 HT (T_2) / HTO (T_2O) を求めることが可能となる。ところで、ヘリウム気流中の比較的高濃度のトリチウムを連続的に定量測定するための電離箱は十分には開発されていない。市販の電離箱（IC-1, 2: アロカ社製ガスモニター RIC-551R 型, 鳥カゴ形補完電極方式, 電離容積 100cm^3 , IC-3: 大倉電気社製ガスモニター I-409601, 電離容積 1500cm^3 ）を用いた本実験では、照射試験のサイクル（4 サイクル）毎に測定上の問題点の摘出並びに改善を進めながらトリチウムの放出特性を測定した。各サイクルにおけるトリチウム測定部の構成を Fig. 2 (a~d) に示す。

(iii) トリチウム除去部

本実験で生成するトリチウムの環境放出量を低減化するための装置であり、トリチウムガス HT (T_2) を水蒸気 HTO (T_2O) に転換するための触媒酸化塔 OX-1（触媒 5wt% $\cdot\text{Pd}-\text{Al}_2\text{O}_3$ 4g, 充填高さ 9.5cm）、同水蒸気を吸着・除去するための乾燥塔 MS-3（予備として同一仕様の MS-4 を併設）などから構成されている。

(iv) フード

* MS ; モレキュラーシープの略。

マニュアル操作を基本とする本実験装置において作業者の安全を確保するためのものであり、トリチウム測定部及びトリチウム除去部を収納している。フード（鋼板装、容積 0.86m^3 ）は、前面にガラス製引戸（アルミサッシ枠）を備えている。同引戸開放時の換気風量は、 $6\text{m}^3/\text{hr}$ である。

以上の各装置の設計条件及びトリチウムの安全取扱いに関する検討結果については、先に報告している^{(15),(16),(17)}ので参照されたい。

2.2 照射試料

本実験に使用した Li_2O ペレットは、Cerac社製の酸化リチウム粉末を静圧（ $4\text{ton}/\text{cm}^2$ ）で圧粉体に成形した後、白金製ルツボ内で真空焼結（ 1200°C で4h）したものである。その外観は、Photo. 1に示すように白色半透明の色調を有する円筒である。照射キャプセルに装荷した Li_2O ペレットの寸法及び重量を以下に記す。

# 1	ペレット	: 11.000mm ^{OD} × 10.391mm ^H	, 1.712g
# 2	"	: 11.042 " × 10.319 "	, 1.700"
# 3	"	: 11.035 " × 10.055 "	, 1.740"
# 9	"	: 11.020 " × 10.694 "	, 1.512"

Photo. 2は、走査型電子顕微鏡で観察した Li_2O ペレットの微細組織（破面）を示したものである。これより、粒子の大きさは $1\sim 2\mu\text{m}$ 程度であり比較的均一な組織となっていることが分かる。本ペレットの重量と寸法から求めた嵩密度は86%TDである。また、同一条件で製造したペレットの測定結果から、開気孔率10%、閉気孔率4%と推定される^{(19),(20)}。

Photo. 3は、上記4個の Li_2O ペレットを充填したインナーキャプセルの透過X線写真である。ペレットとキャプセル部材との接触を防ぐために、ペレットの上・下端及び周囲に白金製のスペーサーが使用される。

2.3 照射条件

本実験に使用した照射孔はJRR-2の燃料領域の垂直照射孔VT-10であり、 Li_2O ペレットを充填した照射キャプセル（以後VOM-15Hキャプセルと記す）は同炉心のほぼ中心面に位置している。照射期間は、1983年5月23日から同8月5日における4サイクル（各サイクルの有効照射時間：第1：235.25h、第2：265.50h、第3：265.50h、第4：223.62h）である。照射孔の熱中性子束及び速中性子束は、それぞれ $1.0 \times 10^{14}\text{n}/\text{cm}^2 \cdot \text{sec}$ 、 $1.0 \times 10^{12}\text{n}/\text{cm}^2 \cdot \text{sec}$ 、カドミウム比（Rcd）は3.1である。また、熱群輸送計算コードTHERMOSにより計算したキャプセル未装荷時及び装荷時の中性子束分布並びに装荷時の中性子束スペクトルによる試料部分の中性子束歪補正係数（ d_f ）と ${}^6\text{Li}(n, \alpha){}^3\text{H}$ 反応の実効断面積（ $\sigma_{n,d}$ ）は、それぞれ0.148, 543バーンである。 Li_2O ペレットにおける実効中性子束は、熱外中性子（カドミニウム比から求めたエピ

*各ペレットの中心部には、熱電対を挿入するための貫通孔（直径1.8mm）が設けられている。

サーマル寄与分補正係数 1.12) 及び中性子束歪補正係数を考慮すると $1.658 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ となる。上記照射期間のトリチウム生成量は 31.2 Ci, ${}^6\text{Li}$ 原子 (天然の存在比 0.075) の燃焼度は Li 原子の 0.24% に達する。照射温度 (Li_2O ペレットの中心孔に挿入した熱電対で測定) は $470 \sim 760^\circ\text{C}$ の範囲で調節した。熱源としては ${}^6\text{Li}(n, \alpha){}^3\text{H}$ 反応 (JRR-2 全出力運転時の反応熱 $20.6 \text{ W/g-Li}_2\text{O}$, γ 線による発熱 1 W/g-Steel) 及びインナーキャプセル内蔵ヒータ (最大出力約 200 W) を利用する。スweepガス流量は $100 \text{ cm}^3\text{-STP/min}$ に設定した。

なお、インナーキャプセル設計条件並び照射孔 VT-10 の中性子束特性については先に報告した JAERI-M 84-013⁽¹⁶⁾ (スweepガス・キャプセルの核・熱評価) を参照されたい。

2.4 原子炉起動前準備

原子炉の起動に先立って次のような準備操作を行った。

(i) 乾燥塔の再生

モレキュラーシーブ 5 A を充填した乾燥塔 MS-1~4 は、照射実験の開始前に再生処理 (温度 $350 \sim 400^\circ\text{C}$, 再生用 N_2 ガス^{*1} 流量 30 l/h , 再生時間 3 h) し、水分計 (Panametric 社製 Hygrometer) により各 MS 塔の常温時における出口水蒸気濃度が 0.01 vppm ^{*2} (N_2 ガス流量 30 l/h) 以下となることを確認した。

(ii) Li_2O ペレット及び配管系の乾燥

乾燥塔 MS-1 より乾燥ヘリウム ($100 \sim 300 \text{ cm}^3\text{-STP/min}$) をインナーキャプセル内に供給 (約 12 h) するとともにキャプセル出口部からフード入口部に至るスweepガス配管を加熱 ($100 \sim 150^\circ\text{C}$) して、 Li_2O ペレット、キャプセル内部及び配管系の除湿を行った。この時の装置各部の水蒸気濃度は次の通りであった: HG-1 (キャプセル入口部) 約 8 vppm , HG-2 (キャプセル出口部) 約 3 vppm , HG-3 (フード入口部) 約 90 vppm , HG-4 (触媒還元塔出口部) 約 10 vppm 。

(iii) 触媒還元塔の活性化

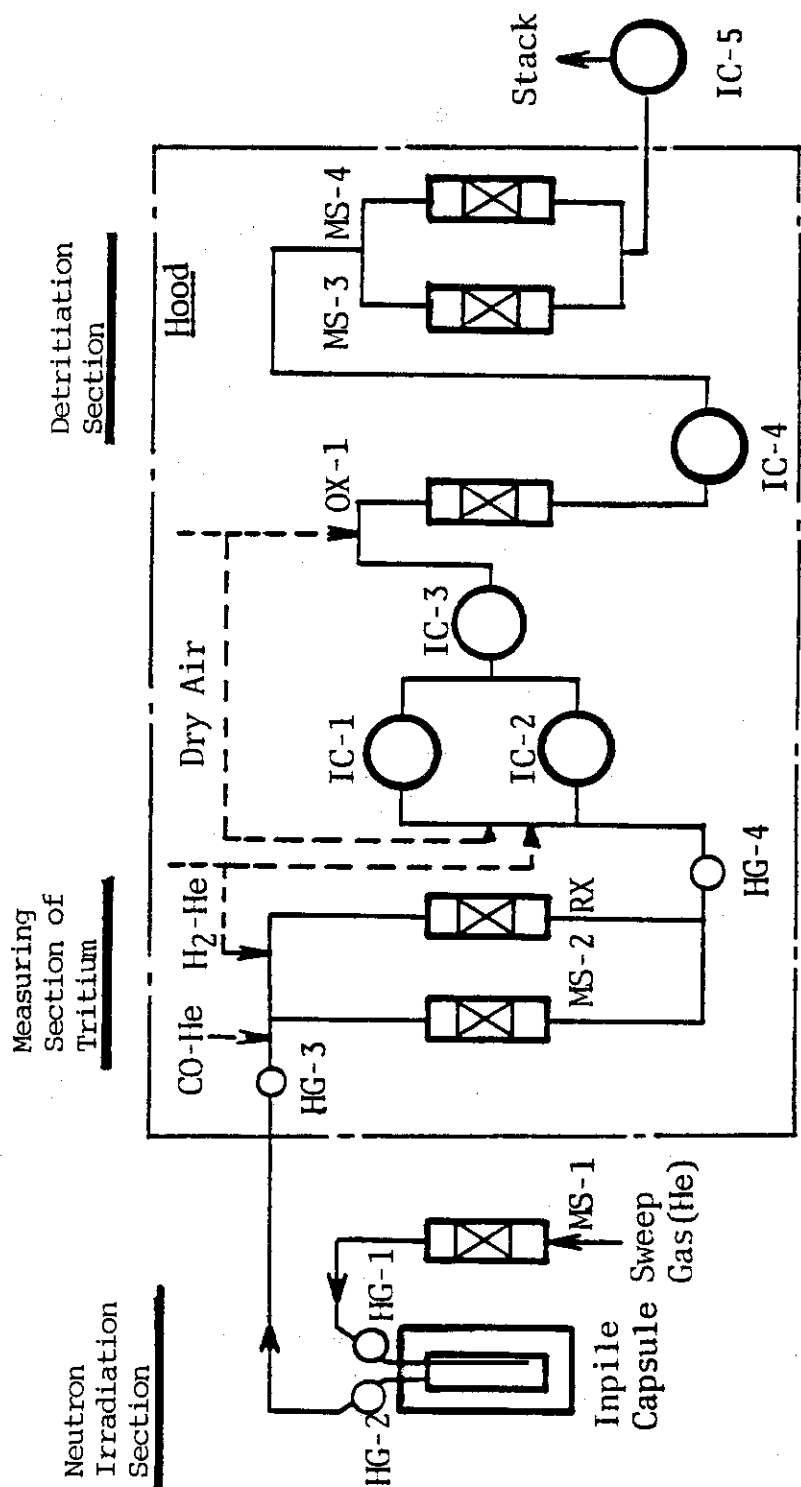
触媒 ($\text{CuO} \cdot \text{ZnO} \cdot \text{Cr}_2\text{O}_3$) は希薄な還元ガスによる活性化処理が必要である。こゝでは、前記の配管系乾燥処理と併行して触媒還元塔を定常操作温度 (175°C) に加熱し、 $1\% \text{ CO-He}$ 混合ガスを通気 (約 12 hr) した。活性化の終了は還元塔出口部の水分計 (HG-4) 指示値の時間変化により確認した。

(iv) 計器・機器類の起動

原子炉の起動と同時に生成したトリチウムがスweepガスにより実験装置の測定系に到達するので、あらかじめ装置各部の計器 (電離箱, 流量計など), 機器 (触媒還元塔ヒーター, 触媒酸化塔ヒーターなど) を起動した。

*1 公称露点 -76°C 以下 (水蒸気濃度表示で 1 vppm 以下) の N_2 ガスボンベより供給。

*2 露点 $-60 \sim -76^\circ\text{C}$ における検出器のインピーダンスを直線近似し, 外挿した値。



MS-1~4 ; Molecular Sieve Bed
 RX-1 ; Catalytic Reduction Bed
 OX ; Catalytic Oxidation Bed
 IC-1~5 ; Ionization Chamber
 HG-1~4 ; Hygrometer

Fig.1 Schematic Flow Sheet of Experimental Apparatus

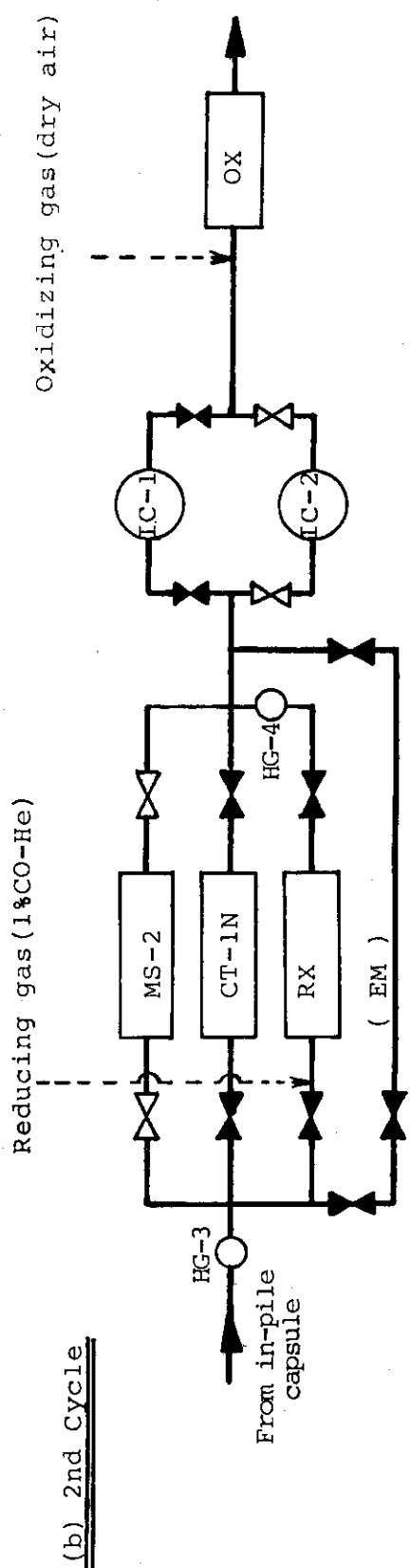
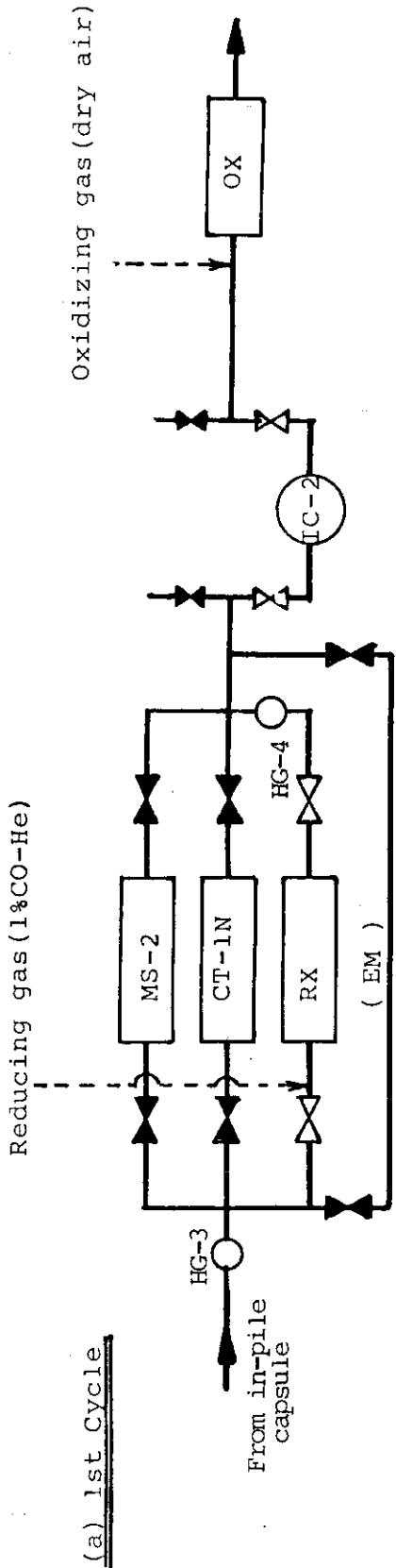


Fig.2(a,b) Flow Lines for Tritium Measurement(1st and 2nd cycles)

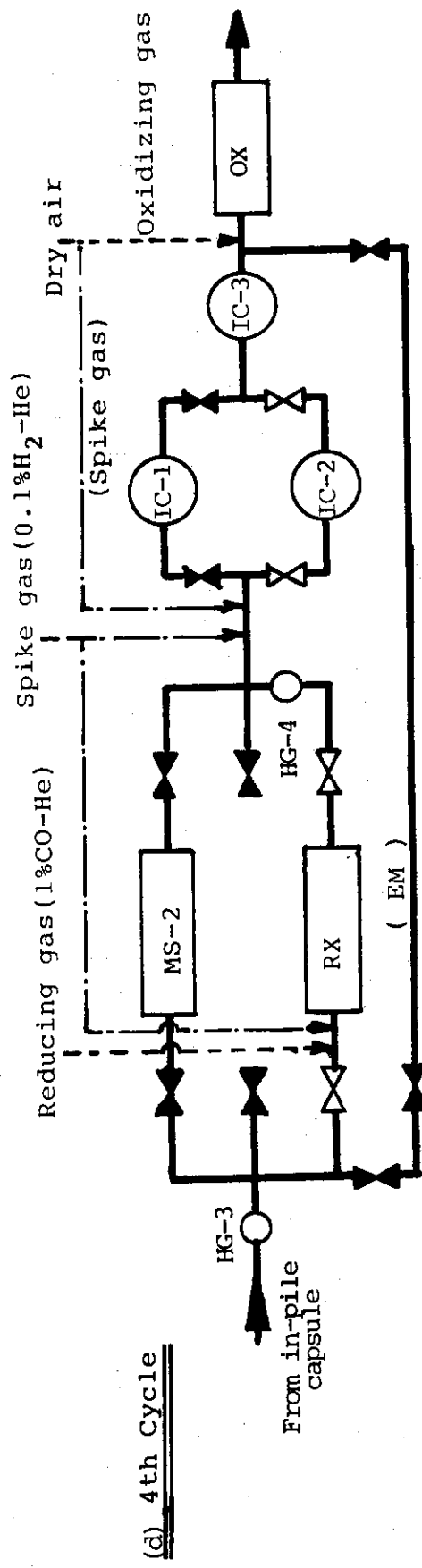
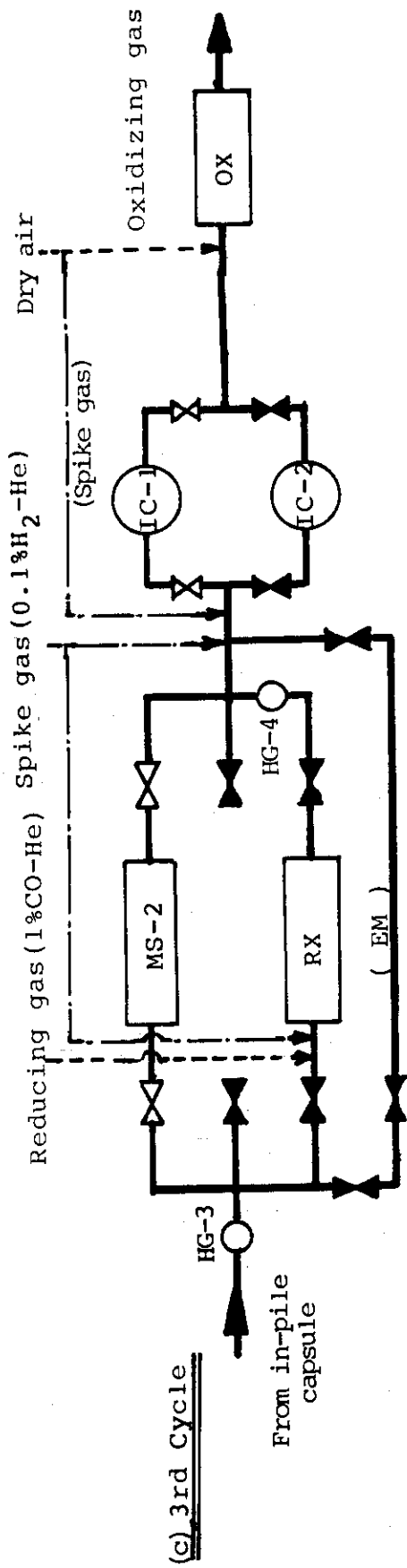


Fig.2(c,d) Flow Lines for Tritium Measurement(3rd and 4th cycles)

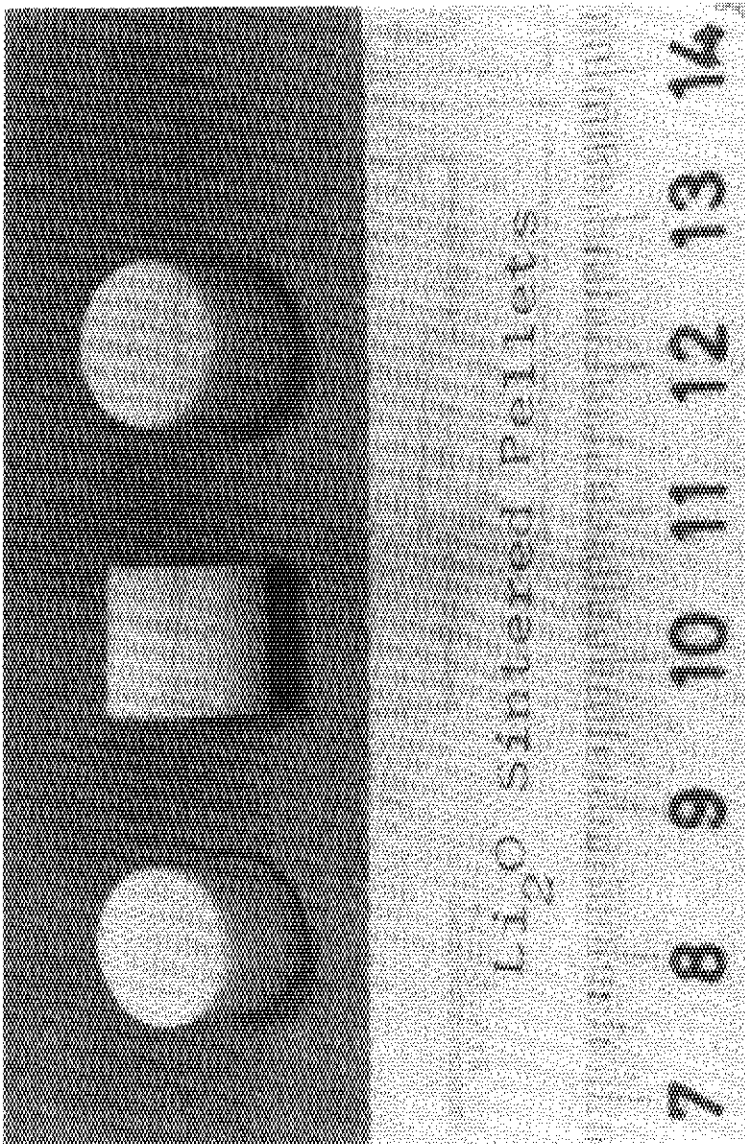


Photo. 1 Appearance of Li_2O Sintered Pellets

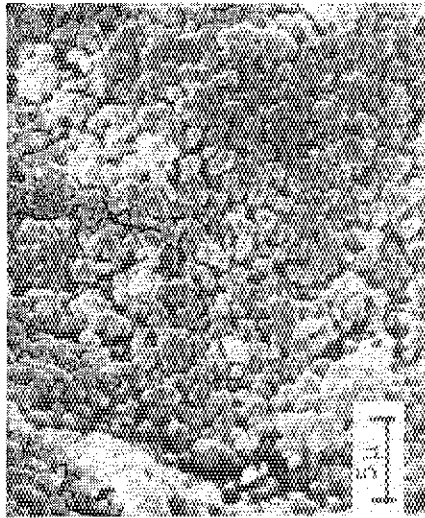


Photo. 2 Scanning Electron Micrograph of Li_2O Sintered Pellet

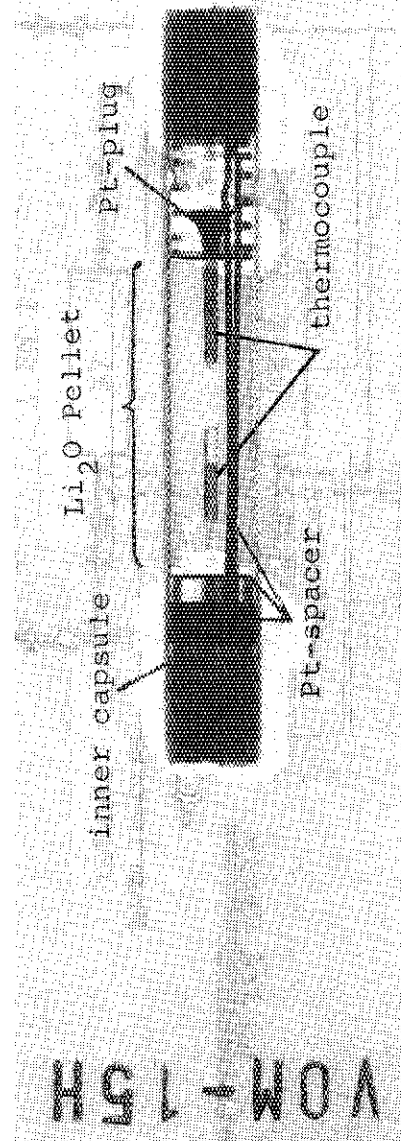


Photo. 3 Transmitted X-ray Image of VOM-15H Inner Capsule

3. 結果および考察

3.1 原子炉起動時のトリチウム放出特性

(1) 水分の影響

JRR-2 の通常の起動モード (0.1MW → 1MW → 5MW → 10MW) では、全出力状態に到達するまでに約5時間を要する。この間に観測されたトリチウム (ガス成分) の放出挙動の1例 (第3サイクル起動時) を Fig. 3 に示す。図中、トリチウムは電離箱 IC-1、水蒸気はキャプセル出口部の水分計 HG-2 による測定値である。これより、トリチウム濃度は、出力の上昇及びこれに伴う照射温度の上昇につれて増加していくが、水蒸気濃度の増加につれて減少する傾向にあることが分かる。水蒸気の影響は特に10MWにおいて顕著に認められ、トリチウム濃度は8MW時のそれよりもかなり低い。トリチウムと水蒸気のこのような相関々係は以後の測定結果に基づいて詳しく検討するが、定性的には次のような過程により説明できる。

(i) 吸着水分の放出

インナーキャプセル及びその前後のスweepガス配管に吸着している水分の照射温度上昇による脱着 (ベークアウト)。

(ii) 同位体交換反応^{(21)~(26)}

照射キャプセル出口部 (水分計 HG-2) からフード入口部に至る配管 (全長約8m, 温度100~150°C) 表面の触媒作用による $HT(g) + H_2O(ads, g) \rightleftharpoons HTO(ads, g) + H_2(g)$, $T_2(g) + 2H_2O(ads, g) \rightleftharpoons 2HTO(ads, g) + H_2(g)$ などの同位体交換反応。ここで "ads" は金属表面に吸着している分子を指す。

(iii) HTOの吸着

フード入口部から電離箱 IC-1 に至る配管 (約2m, 室温) の表面及び乾燥塔 MS-2 への HTO(g) の吸着。

そこで、水蒸気の発生原因であるが、まず第1~第4サイクルの起動時における水蒸気の放出特性を見てみよう。

Fig. 4 は、原子炉起動後6時間の水蒸気濃度 (HG-2) を示したものである。第1サイクルにおける水蒸気放出濃度が第2サイクル以降のそれよりもかなり高くしかも減少速度が極めて緩やかであることが分かる。各サイクルの原子炉出力に対応するキャプセル温度が若干異なることを考慮すると、第2~第4サイクルの水蒸気放出特性には良い再現性が見られる。

Fig. 5 は、原子炉起動後3日間の水蒸気濃度を示している。第1サイクルに着目すると、10MW (平均温度475°C) で約40時間経過後もなお200vppm前後の水蒸気放出が続いており、キャプセル内蔵ヒーターの使用による605°Cへの昇温時にはさらに急激な放出が起こっている。しかし、この温度では水蒸気濃度の減少傾向も著しく昇温後約5時間で9200vppmから10vppm以下へと低下していく。

Fig. 6 は、各サイクルの開始及び終了時の実験装置各部の水蒸気濃度を示したものである。

照射キャプセル入口部 (HG-1) 及びフード入口部 (HG-3) の水蒸気濃度は、配管系 (それぞれ約 8 m) からの水分の脱着に基づいている。前者はサイクルが進むにつれて配管系内が乾燥していく様子を表わしている。後者は配管系に組込まれている計器 (ブルドン管式圧力計) が水蒸気の発生源となっているためスイープガス中の水蒸気濃度を低減化できなかったことを示している。

一方、キャプセル出口部の水蒸気濃度 (HG-2) に着目すると第 1 サイクルを除いて 1 vppm 以下の極めて低い値となっており原子炉の停止時にはさらに減少することが分かる。原子炉の運転中 (11日間) 及び停止中 (10日間) のキャプセルまわりの水蒸気濃度 (HG-1 及び HG-2) の差異は、 Li_2O ペレットによる水蒸気の吸収が起こるためである⁽¹⁴⁾。

各サイクルの起動後 12.5 時間までの放出水蒸気量を以下に示す。

第 1 サイクル :	3.61×10^{-3}	mol- H_2O
	(1.25×10^{-2})	mol- H_2O)* ¹
第 2 サイクル :	3.30×10^{-4}	mol- H_2O
第 3 サイクル :	4.54×10^{-4}	mol- H_2O
第 4 サイクル :	2.31×10^{-4}	mol- H_2O

第 2 ~ 第 4 サイクルの水蒸気量は、原子炉停止期間中に供給されたスイープガス中の水蒸気量 ($2 \times 10^{-4} \sim 4 \times 10^{-4}$ mol- H_2O) とほぼ等しい。ちなみに、インナーキャプセル及びキャプセル内配管による吸着量は上記放出量の高々 0.4% であり、 Li_2O ペレットによる吸収が支配的であることが分かる。

なお第 1 サイクルの 72 時間までの水蒸気量は、キャプセルに装荷したペレット全重量の 3.36 wt% (4.28 mol%) に相当する。これは、照射試料をキャプセルに装荷する際の諸過程 (ペレットの寸法・重量検査、キャプセルの組立て・気密検査など) で空気中の水分が Li_2O に吸収されたためである。

ところで、 Li_2O に吸収された水蒸気は次の反応により水酸化リチウムを生成する： $\text{Li}_2\text{O}(\text{s}) + \text{H}_2\text{O}(\text{g}) \rightleftharpoons 2\text{LiOH}(\text{s})$ 。このことから、Fig. 4 及び Fig. 5 に見られた昇温時の急激な水蒸気放出は $\text{LiOH}(\text{s})$ の熱分解によるものと断定できる。

(2) 水素ガス添加の影響

Li_2O 及び LiAlO_2 ペレットの中性子照射下トリチウム放出実験において、水素 H_2 を添加したスイープガス (He) を用いるとトリチウムの放出が促進され平衡濃度への到達時間が短縮される現象が見出されている⁽⁷⁾。しかしこの現象については、スイープガス中の水蒸気濃度やスイープガス配管の条件 (ガス流速、配管長さ、温度など) に関して不明な点もあり、未だ解明されていない。そこで本実験では、JRR-2 の事情により原子炉の運転が一旦停止され、24 時間後に再起動された機会 (第 1 サイクル) を利用して、1% H_2 -He 混合ガスをスイープガスとした場合の起動時放出特性を調べた。その結果を Fig. 7 に示す。ただし、こゝでは原子炉出力を 5

*1 起動後 72 時間までの値

*2 インナーキャプセルを 12mm-ID, 80mm-L, キャプセル内のスイープガス配管を 4mm-ID, 4mm-L, H_2O 分子の吸着断面積を $10.8 \times 10^{-16} \text{cm}^2$ とし、吸着モデルを単分子膜吸着、被覆率を 100% と仮定して計算した値

MW に上昇した後のトリチウム濃度変化を第 2 サイクル起動時のそれと対比させている。5MW → 8MW 及び 8MW → 10MW におけるトリチウム濃度のうちガス成分 (HT(T₂)) は乾燥塔 MS-2, 全トリチウム (HT(T₂), HTO(T₂O)) は触媒還元塔 RX をそれぞれ経由して測定したものである。各出力時の照射温度はサイクル毎に若干異なっているが、水素添加の影響は図において明瞭である。即ち、水素 1% を添加した場合のトリチウムガス成分 HT(T₂) 及び全トリチウムの最大放出濃度は見掛け上、ヘリウムのみの場合のそれのそれぞれ約 30 倍 (8MW 時), 約 10 倍 (10MW 時) にも達している。トリチウムの高濃度域での電離効率の不確かさから正確な放出量は求められないが、印加電圧 340V における電離箱の電離効率を 100% と仮定すると 8MW (22 分間) 及び 10MW (30 分間) の運転時間のトリチウム量はそれぞれ 0.13Ci, 0.10Ci となる。これらの値は同じ照射条件における全トリチウムの生成量 (計算値でそれぞれ 1.4×10^{-2} Ci, 2.4×10^{-2} Ci) 並びに Li₂O ペレットの吸着インベントリ ($1.6 \times 10^{-3} \sim 7.2 \times 10^{-3}$ Ci/g-Li₂O)^{*1} に比べてかなり多い。これらの事実及び前節で考察した水蒸気の吸・脱着特性を考慮すると、トリチウム発生源としてはインナーキャプセル及び配管に吸着している水蒸気成分 HTO が考えられる。この成分は、次のような同位体交換反応 $\text{HTO}(\text{ads}, \text{g}) + \text{H}_2(\text{g}) \rightleftharpoons \text{HT}(\text{g}) + \text{H}_2\text{O}(\text{ads}, \text{g})$ によって水素の化学形 HT に転換しキャプセル及び配管表面から脱着する。

3.2 原子炉定常出力時のトリチウム放出特性

(1) 昇温時のトリチウム放出

照射温度は、JRR-2 の定常出力時の自己発熱^{*2}により約 480°C に到達した後、キャプセル内蔵ヒーターの調節により最高温度約 760°C までの幾つかの温度に設定した。昇温速度は約 20°C/min であった。以下、原子炉の定常出力の下における昇温過程で見られたトリチウム及び水蒸気の放出特性について考察する。

Fig. 8(a-c) は、第 1 ~ 第 3 サイクルで照射温度を自己発熱温度から約 100°C 上昇させた際のトリチウム放出濃度と装置各部の水蒸気濃度の時間変化を示したものである。ただし、図(a), (b) はトリチウムガス成分、図(c) は全トリチウムに着目し、それらの濃度を便宜的に電離箱(IC-1, 2) の見掛けの出力で表わしている。これは、トリチウム濃度が過渡的に変化している際の電離箱のバックグラウンドを測定することができないためである。図(a) (第 1 サイクル) では、水蒸気放出が著しくキャプセル出口部及びフード入口部の水蒸気濃度がそれぞれ 1×10^4 , 5×10^3 vppm 前後に達し、トリチウムガス濃度は逆に初めの値の $\frac{1}{10}$ 程度に減少している。トリチウムガス濃度が減少する理由は前節 3.1 で述べた。即ち、配管表面の触媒作用あるいは放射線効果などに基づく $\text{HT}(\text{g}) + \text{H}_2\text{O}(\text{ads}, \text{g}) \rightleftharpoons \text{HTO}(\text{ads}, \text{g}) + \text{H}_2(\text{g})$ のような同位体交換反応によってガス成分 HT(T₂) が水蒸気 HTO(T₂O) に転換するためである。従って、HTO(T₂O) は電離箱の前段に設置されている乾燥塔 MS-2 あるいは配管により吸着されて電離箱(IC-1)

*1 ヘリウム気流中の Li₂O ペレットの吸着水量と水蒸気分圧との相関式⁽¹⁴⁾において、温度 700°C のときの平衡水蒸気圧を 4×10^{-6} atm (キャプセル入口の平均値) 及び 4×10^{-7} atm (キャプセル出口の平均値) とし、水蒸気成分を HTO のみと仮定して計算した値。

*2 γ 線及び ${}^6\text{Li}(n, \alpha){}^3\text{H}$ 反応に基づく発熱は、それぞれ 1W/g-Steel, 20.6W/g-Li₂O

には到達できない。一方、図(b) (第2サイクル)におけるトリチウムガスの放出挙動は図(a)の場合と著しく異なっている。この違いは、図(b)中の水蒸気濃度(HG-2, 3)から分かるように、キャプセル及び配管内の水分が第1サイクルの場合よりも極めて少なく、この影響が小さくなるためであろう。つぎに図(c)の全トリチウム濃度であるが、昇温時の挙動を図(b)のトリチウムガス成分濃度のそれと対比させると、全トリチウムの濃度変化はガス成分HT(T_2)よりもむしろ水蒸気成分HTOの挙動に左右されていることが分かる。

以上の各図に見られた昇温時の水蒸気濃度の異常上昇やトリチウムガス成分のピーク放出の原因としては、キャプセル内の吸着分子(H_2O , HTO, HT, など)の脱着、 Li_2O ペレット内の溶解水素(HT, T_2)の放出、水酸化リチウム($LiOH$, $LiOT$)の解離などが考えられる。

つぎに、キャプセル出口部の水蒸気濃度(定常値)が0.2 vppm前後に低下した第4サイクルにおけるトリチウム放出挙動(Fig. 9(a~e))を見てみよう。本サイクルでは、照射温度は475°Cから762°Cまで約50°C間隔ではステップ状に変化させている。図(a) (全トリチウム)と図b, d (トリチウムガス成分)に見られる変化傾向は、それぞれFig. 8中の図(c)及び(b)のトリチウム放出挙動と良く類似している。一方、図(c), (e)においては、全トリチウムの放出濃度は一定であり、温度変化の影響は認められない。この事実は、全トリチウムの放出速度すなわちキャプセルから放出されるトリチウム各成分を総合した見掛けの放出速度がこの温度域606°C (図(c)の温度)~762°C (図(e)の温度)で平衡値に到達していることを示唆している。

以上で述べてきたように、原子炉の起動時及び定常出力運転下の昇温に伴って起こる過渡的なトリチウム放出挙動は、キャプセルや配管内の水分の吸・脱着、 Li_2O - $LiOH$ - H_2O 系の熱力学的な平衡関係、同位体平衡反応などによって極めて複雑となる。

つぎに照射キャプセルまわりの水蒸気に関する物質収支を検討する。キャプセルの入口、出口部分の水蒸気濃度は、Fig. 9(a~e)の各図においてそれぞれ約1.9 vppm (露点で-72°C)、約0.2 vppm (同じく-86°C)で定常となっている。いま水分計の精度を $\pm 3^\circ C$ (公称精度)とすると、それぞれの水蒸気濃度は1.2~3.0 vppm及び0.1~0.3 vppmとなる。両者の差分の水蒸気($3 \times 10^{-7} \sim 8 \times 10^{-7} \text{ mol-H}_2\text{O/hr}$)は、 Li_2O と反応し $LiOH(s)$ に転換してキャプセル内に蓄積していく。しかし、照射キャプセル内の温度がある臨界温度以上であれば $LiOH(s)$ の解離(熱分解)が起こるのでキャプセル入口、出口の水蒸気濃度は等しくなるはずである。そこで次のように考える。いまキャプセル内の Li_2O ペレットを掃引するヘリウムガス中の平衡水蒸気濃度を2 vppm (分圧で $2 \times 10^{-6} \text{ atm}$)と仮定すると、温度500°C, 750°Cのそれぞれに対応する平衡状態 $Li_2O(s) + H_2O(g) \rightleftharpoons 2 LiOH(g)$ が存在する。各温度下の $LiOH(g)$ の平衡蒸気圧は約 $4 \times 10^{-11} \text{ atm}$, 約 $2 \times 10^{-7} \text{ atm}$ である⁽¹⁴⁾。この $LiOH(g)$ は、ヘリウムガスにより掃引されてキャプセル及びスweepガス配管の低温部分に移行する間に、以下の反応を経て新たな平衡状態に達する。即ち、 $LiOH(g) \rightarrow LiOH(s)$ 及び $2 LiOH(s) \rightleftharpoons Li_2O(s) + H_2O(g)$ である。この反応における水蒸気分圧がキャプセル出口部の水蒸気分圧となることが理解できよう。

結局、高温部で生成した気相 $LiOH(g)$ は、凝縮相 $Li_2O(s)$ 及び $LiOH(s)$ として低温部(例えばキャプセル内スweepガス配管)に折出することとなる。Fig. 9及びFig. 8(b, c)の各図に

* $LiOH(s)$ の解離温度はスweepガス中の水蒸気分圧にも関係する。

見られた小さなピーク状の水蒸気放出は、スイープガスの流れの方向の温度分布に沿って析出しているLiOH(s)が照射温度のステップ状の上昇につれて順次熱分解していくことによると推定される。このような過程によるLi₂Oの質量移行量は、全照射期間(990 hr)の照射温度を750 °C、キャプセル入口、出口の水蒸気濃度をそれぞれ 3×10^{-6} 、 3×10^{-7} atmと仮定すると、Li₂O装荷量6.66 gの約0.3%と見積られる。

(2) 定常温度下のトリチウム放出

第1～第4サイクルの測定結果をFig.10～Fig.15に示す。以下、サイクル順に観測されたトリチウムの放出特性並びに測定上の問題を考察する。

(1) 第1サイクル(Fig.10, Fig.2(a))

まず照射温度474 °Cにおける全トリチウム●印に着目する。図より明らかのようにその放出濃度は計算値 $5.25 \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ *1に比べて著しく低い値である。この原因として以下の事項が挙げられる。即ち、配管表面や乾燥塔MS-2あるいは触媒還元塔RXの充填物(モレキュラーシーブ、触媒)への水分を介した吸着(3.1(1)及び3.2(1)参照)あるいはキャプセル低温部に析出したLiOT(s)による吸収(例えば、 $\text{LiOH(s)}^{*2} + \text{HTO(g)} \rightleftharpoons \text{LiOT(s)} + \text{H}_2\text{O(g)}$)、さらには電離箱の性能上の問題も考えられる。しかし、このサイクルはFig.4に見られるようにキャプセルからの放出水蒸気量が極めて多いので、配管などに吸着した水蒸気の影響が最も大きいと思われる。なお、全トリチウム濃度がトリチウムガス成分のそれよりも低くなる理由として、触媒層におけるトリチウムの吸着あるいは電離箱の性能上の問題などが考えられたが明らかではない。

つぎに605 °Cにおける放出特性に着目すると、全トリチウムの放出特性は2段階に大別できる。即ち、昇温後の約40時間(約 $0.5 \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ 以下)とそれ以後(約 $5 \sim 2 \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$)の放出である。第1段階における放出特性は、キャプセル出口部の水蒸気濃度変化(昇温前170 vppm, 昇温直後9200 vppm, 40時間後2 vppm)並びにLi₂Oペレット内の温度分布(半径方向に約50 °C低下)⁽¹⁶⁾を考慮すると、昇温に伴って新たに放出された水蒸気によるトリチウムの配管表面への吸着が著しい事を示している。第2段階のトリチウム濃度変化は、水蒸気を吸着した配管系における全トリチウムの破過特性、つまり配管表面に吸収されたトリチウムの濃度とスイープガス中のトリチウムの濃度が吸着平衡に達したことを示唆している。図中の◇A(●印:トラップCT-1Nを素通りさせたときの濃度であり、全トリチウム濃度に相当する)及び◇B(触媒還元塔RXを用いた場合の全トリチウム濃度)の変化は、スイープガス流路の切換操作に伴う気流の乱れ及び圧力変動により電離箱の器壁や配管系からトリチウムが1時的に激しく脱着するためである。図中◇Cに見られるトリチウムの異常放出は、触媒還元塔RXの温度を定常操作温度の175 °Cから250 °Cに変更したために触媒層内に吸着していたトリチウムが脱離したことを示している。この事実より、全トリチウム濃度の測定に

*1 VT-1Dの中性子束分布に基づいて計算した値

*2 先に述べたようにLi₂Oペレットはキャプセルへの装荷準備及びキャプセル組立作業の段階で空気中水分を吸収しLiOH(s)を生成(Li₂O充填量の約34 wt%)している。このLiOH(s)は原子炉起動時の昇温過程でLi₂O(s)とH₂O(g)とに熱分解する。この解離反応とともに $\text{Li}_2\text{O(s)} + \text{H}_2\text{O(g)} \rightleftharpoons 2\text{LiOH(g)}$ なる反応も起こる。LiOH(g)の蒸気圧は、水蒸気分圧 10^{-3} atm(Fig.4参照)、温度500 °Cの条件で 10^{-9} atmである。従ってLiOH(g)を介したLiOH(s)のキャプセル低温部への析出量は極めて少ないと考えられる。

あたっては触媒還元塔のトリチウムガスHT(T_2)に対する破過特性に注意を払わねばならないことが分かる。

ついで原子炉再起動後(運転時間 250hrs 以降)のトリチウム放出は、スイープガスとして 1% H_2 -He 混合ガスを用いたときの特性を表わしている。この放出特性については 3.1(2)節で考察した。

(ii) 第2サイクル(Fig. 11, Fig. 2(b))

本サイクルでは、2台の電離箱 IC-1 と IC-2 (同一仕様)を切替使用しているため、測定結果はやゝ複雑である。

以下、照射温度の順を追って説明する。

まず 485°Cにおける全トリチウムとトリチウムガス成分の濃度を見してみる。それぞれ測定時間が短いために定常値を見出すことが難しいが、第1サイクルにおける値よりもかなり高い。これは、水蒸気の放出濃度(Fig. 4, Fig. 5)から推察されるように水分の影響が小さいためと言えが、前サイクルの再起動後に使用したスイープガス(1% H_2 -He 混合ガス)中の水素が残留し影響しているとも考えられる。

605°Cにおいては、測定系に新たに組込んだ電離箱 IC-1により、全トリチウムとガス成分の濃度比の測定を試みた。しかし図から明らかなように全トリチウムについては定常値を確定することが難しい。

705°Cにおいては、605°Cからの昇温に伴ってガス成分濃度(IC-1による測定結果)の急激な上昇(最高で約 $3.5 \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$)が起こりその後約50時間で $2 \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ 前後まで緩やかに減少する傾向が見られる。全トリチウムについても流路切替時の濃度の過渡的な変化が著しいため定常値は得られていない。

運転時間 170~250 hr (温度 605°C)及び同 250 hr 以降(温度 485°C)の全トリチウム濃度についても流路変更及び電離箱の切替操作時の変動が著しい。一方、これらの温度域に見られるトリチウムガス成分の濃度は、電離箱の違いによる差異が極めて大きい(IC-1: $0.3 \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ 以下, IC-2: $1.3\sim 4.7 \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$)。電離箱 IC-2による値が高めとなる理由として、この電離箱で相対的に高濃度の全トリチウムを測定した際の電離箱バックグラウンドの上昇が考えられる。本実験に使用した電離箱*1は全容積に比べて電離容積が小さく器壁トリチウムの吸・脱着の影響を受け易い構造となっている。図中の $\diamond A$, $\diamond B$ 及びこれらに続く濃度変化は器壁からの影響の大きいことを裏付けている。

(iii) 第3サイクル(Fig. 12, Fig. 2(c))

これまでの測定結果から、トリチウム濃度の定量測定を行うためには、電離箱のバックグラウンドの影響を低減し定常値への収束を促進する必要があることが明らかになった。本サイクルではこれらの問題を解決し電離箱の正常な作動特性を得るために種々の検討を行った。その結果については付記に譲る。トリチウム放出濃度は、Fig. 12に示すように電離箱に添加

*1 トリチウムから壊変する β^- 線(最大エネルギー 18.5 keV)の空気中の飛程(約 0.5cm)を基準にして設計されており、鳥カゴ型補完電極と器壁との間隙部分は死容積となっている。

したスパイクガス（乾燥空気^{*1}，0.1% H_2 -He 混合ガス^{*2}）の流量によって大きく変化した。以下、この図で注目すべき事項を説明する。

全トリチウム濃度が485°Cにおいてある一定値（原子炉起動後50時間で約 $4\mu Ci/cm^3$ ）に到達する傾向が認められる。一方、キャプセル出口部の水蒸気濃度は、起動後25及び50時間の時点でそれぞれ0.5，0.3 vppmと極めて低いレベルに減衰している。つまりこゝでは水蒸気の影響が小さいため全トリチウム放出濃度が定常値に到達し易くなっている。しかしながら、この値はトリチウム生成率（計算値）⁽¹⁶⁾から求められる放出濃度（ $5.25\mu Ci/cm^3$ ）に比べてかなり低い。この点については第4サイクルの結果と合わせて後述する。

一方、トリチウムガス成分の放出濃度は、このサイクル全体を通じて高々 $1\mu Ci/cm^3$ 程度（電離箱IC-1では $0.2\sim 0.7\mu Ci/cm^3$ ）である。しかも照射温度に対する明瞭な相関も認められない。このような放出特性は、第2サイクル（IC-1による測定結果）及び第4サイクルにおいても観測されており、比較的再現性の高い特性と言える。

(IV) 第4サイクル（Fig. 13,14, Fig. 2(d)）

このサイクルでは前記のスパイクガスをそれぞれ一定流量（乾燥空気： $200,250\text{ cm}^3$ -STP/min，0.1% H_2 -He 混合ガス： 50 cm^3 -STP/min）に保持した。また電離箱の性能比較を試みるために容積が大きく（電離容積 1500 cm^3 ）構造の極めて単純な在来型の電離容積IC-3をIC-1,2の下流側に直結した（Fig. 2(d)）。

電離箱IC-1及びIC-2による測定結果をFig. 13に、IC-1,2とIC-3とによる結果の比較をFig. 14に示す。

両図より明らかなようにいずれの電離箱についても照射温度に対応する全トリチウム及びガス成分の濃度の定常値が得られている。そこで、トリチウム放出濃度と温度とを図示するとFig. 15の相関が得られた。図中▲印は第3サイクルのデータ、破線はトリチウムの生成率（計算値 $5.25 \times 10^{-4}\text{ Ci/min}$ ）⁽¹⁶⁾である。IC-1及びIC-2による全トリチウム濃度の測定値（●▲印）はやゝバラツキが大きいIC-3の結果（◇）と合わせると、約550°C以上の温度域においてトリチウムの放出率（観測値）と生成率（計算値）とが平衡することが分かる。一方、約550°C以下の範囲の温度依存性は、 Li_2O ペレット内の温度分布⁽¹⁶⁾にも関連しているが $LiOH(s)$ の熱分解反応の温度依存性を表わしている。つまりこの温度域では ${}^6Li(n,\alpha){}^3H$ 反応により生成したトリチウムのうち生成率と放出率との差分^{*3}が未分解で残留している $LiOH(s)$ に吸収されることになる。その吸収量は $LiOH(s)$ のトリチウム溶解度によって定まるので、低照射温度でも照射量が増加すると放出率と生成率とは等しくなると考えられる。この点は今後の照射下トリチウム放出試験により実証を試みる予定である。

ところで $LiOH(s)$ に吸収されたトリチウムはインベントリーとしてブランケット内に保持されるので、 Li_2O 焼結体の製造工程及びブランケット組立工程の水分管理、並びに水分漏洩のないブランケット冷却配管系の設計・製作が極めて重要となる。

*1 スイープガス中の β^- 線の飛程（約4 cm）を電離箱の設計条件に近似するための添加ガス

*2 電離箱の器壁等へのトリチウムの吸着を低減するとともに吸着しているトリチウムの脱着を促進するための添加ガス

*3 例えば、480°Cの差分は生成率 $5.25 \times 10^{-4}\text{ Ci/min}$ の約25%にあたる。

つぎにトリチウムガス成分の放出特性に着目する。図から明らかなように有意な温度依存性は認められない。照射期間中の平均濃度は約 $0.4 \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ (第3サイクル: $0.2 \sim 0.7 \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$) であり、これは全トリチウム濃度(平均値を $5.25 \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ とする)の約8%に相当する。この値は、スイープガスとして $0.1\% \text{H}_2\text{-He}$ 混合ガスを用いた米国の TRIO-01 実験(照射試料 LiAlO_2 , Table 1 参照)の最近の報告(トリチウムガス成分 HT の比率 99%以上)⁽²⁷⁾と著しく異なる。この相違は、両実験の照射試料の違いも関係するかもしれないが、以下に述べるように主として配管系内の水蒸気の影響の度合が水素 H_2 によって異なるためと考えられる。筆者らの実験では Li_2O ペレットから放出されたガス成分 HT (T_2) は、配管表面の触媒作用により系内の水蒸気 H_2O と同位体交換 ($\text{HT}(\text{g}) + \text{H}_2\text{O}(\text{ads}, \text{g}) \rightleftharpoons \text{HTO}(\text{ads}, \text{g}) + \text{H}_2(\text{g})$) し、トリチウム水蒸気 HTO に転換する。ちなみにキャプセル出口部の水蒸気濃度 (HG-2) から推定されるガス成分と全トリチウムとの比は80%以上であり、 Li_2O ペレットから放出されるトリチウムの大部分が HT もしくは T_2 である可能性もある。一方、TRIO-01 実験では、 $\text{H}_2(\text{g}) + \text{HTO}(\text{ads}, \text{g}) \rightleftharpoons \text{HT}(\text{g}) + \text{H}_2\text{O}(\text{ads}, \text{g})$ なる同位体交換反応が考えられ、ガス成分 HT が高目に測定される可能性がある。

以上4サイクルにおける照射条件、トリチウム濃度及び測定条件、電離箱の補正係数、実験装置各部の水蒸気濃度を Table 2 及び Table 3 に整理した。

さて、酸化物系のトリチウム増殖材から放出されるトリチウムの化学形 (T_2 , HT, T_2O , HTO など) 及びその成分比率が問題とされる理由を以下に説明する。

まずトリチウムガス成分については、ブランケット冷却系、スイープガス配管系及び熱交換器からの漏洩が問題となる。トリチウム水蒸気については、本実験結果からも明らかであるようにブランケット内のトリチウムインベントリーの増大や質量移行が指摘される。これらの問題は、ブランケットの設計及び操作条件、トリチウム回収システムの設計条件さらにはトリチウムに対する安全性などに密接に関係している。HT/HTO の比率を正確に知ることが極めて重要な所以である。

Table 2 Summary Data of Experimental Conditions and Results (I)
 Ionization Chamber : Bird-cage Type Electrode
 1st Cycle - 1

Time	Irradiation temperature (°C)	Flow line	He flow rate (cm ³ /min)	1%CO-He flow rate (cm ³ /min)	1%H ₂ -He flow rate (cm ³ /min)	Dry air flow rate (cm ³ /min)	Total flow rate in IC (cm ³ /min)	Correction factor ^{*1} (-)	Meter reading (μCi/cm ³)	Tritium concentration Apparent value (μCi/cm ³) ^{*2}	No. of IC ^{*3}	Moisture concentration (vppm) ^{*4}	
												HG-1/HG-2	HG-3/HG-4
5231045	91.2(10MV)	RX	100	15	0	0	115	1.31	-	-	2	7.8/3.08	93.3/9.6
1158	313 (5MV)	"	100	15	0	0	115	"	0.002	0.003	"	7.8/3.85	96.7/8.9
1200	441.7(8MV)	"	100	15	0	0	115	"	0.075	0.113	"	7.8/614	621/8.0
1209	"	"	100	15	0	0	115	"	0.002	0.003	"	-	-
1340	"	"	100	15	0	0	115	"	0.001	0.002	"	7.70/523	591/7.7
1500	495.0(10MV)	"	100	15	0	0	115	"	0.001	0.002	"	7.80/835	811/7.3
1507	"	"	100	15	0	0	115	"	0.003	0.005	"	7.70/1052	956/7.5
1738	483.7(10MV)	"	100	15	0	0	115	"	0.0035	0.005	"	7.60/1666	1357/8.9
1857	"	MS-2	100	75	0	0	175	"	0.0018	0.004	"	6.90/1273	842/52.1
2135	"	CT-IN ⁺	200	0	0	0	200	"	0.061	0.16	"	4.60/713	756/9.3
5241652	473.9(10MV)	RX	102	50.2	0	0	152.2	"	0.17	0.34	"	11.2/426	431/23.5
1900	474.7(10MV)	MS-2	94	50.2	0	0	144.2	"	0.30	0.57	"	9.6/431	422/22.8
1915	"	RX	"	"	0	0	"	"	0.16	0.30	"	-	- / 181
5250850	"	"	104	50.2	0	0	154.2	"	0.185	0.37	"	4.84/234	242/5.1
1145	"	MS-2	104	50.2	0	0	154.2	"	0.435	0.88	"	4.84/201	226/9.6
1345	"	CT-IN ⁺	104	50.2	0	0	154.2	"	0.49	0.99	"	4.65/205	184/5.1
1420	"	"	95	50.2	0	0	145.2	"	0.51	0.97	"	4.99/186	205/4.3
1555	"	MS-2	102	50.2	0	0	152.2	"	0.52	1.04	"	5.06/174	197/7.1
5251608	605	MS-2	102	50.2	0	0	154.2	"	-	-	"	5.83/8423	4324/7.3
1745	607.2	RX	104	50.2	0	0	154.2	"	0.27	0.54	"	6.60/30.3	141/6.6
5260950	606.4	"	110	50.2	0	0	160.2	"	0.095	0.20	"	3.74/1.67	47.9/3.1
1735	607.6	"	102	50.2	0	0	152.2	"	0.090	0.18	"	6.00/2.13	63.2/4.4
2125	606.5	"	103	50.2	0	0	153.2	"	0.090	0.18	"	5.36/2.13	52.2/3.6
5270835	606.6	"	106	50.2	0	0	156.2	"	0.078	0.16	"	4.78/1.53	45.7/3.2
1047	607.2	CT-IN ⁺⁺	106	50.2	0	0	156.2	"	1.90	3.88	"	4.99/1.60	52.2/92.2
1057	"	"	107	50.2	0	0	157.2	"	2.3	4.73	"	4.99/1.60	51.2/80.2
1117	607.6	"	104	50.2	0	0	154.2	"	2.25	4.54	"	4.99/1.60	52.2/76.5
1132	"	"	105	50.2	0	0	155.2	"	2.25	4.57	"	4.99/1.60	53.5/72.1
1500	607.4	MS-2 ⁺⁺	107	50.2	0	0	157.2	"	1.65	3.39	"	5.36/1.57	49.8/14.7
1655	"	CT-IN ⁺⁺	105	50.2	0	0	155.2	"	2.72	5.52	"	5.36/1.57	46.2/ -
1730	608.0	"	106	50.2	0	0	156.2	"	2.20	4.50	"	5.36/1.57	45.1/14.8

*1. correction factor for ionization efficiency, *2. no correction for back-ground of ionization chamber
 *3. bird cage electrode type ionization chamber, *4. HG-1 : capsule inlet, HG-2 : capsule outlet
 + cold trap with liquid nitrogen
 ++ cold trap without liquid nitrogen

1st Cycle - 2

Time	Irradiation temperature (°C)	Flow line	He flow rate (cm ³ /min)	1%CO-He flow rate (cm ³ /min)	1%H ₂ -He flow rate (cm ³ /min)	Dry air flow rate (cm ³ /min)	Total flow rate in IC (cm ³ /min)	Correction factor *1 (-)	Tritium concentration		No. of IC *3	Moisture concentration (vp/μm) *4	
									Meter reading (μCi/cm ³)	Apparent value (μCi/cm ³) *2		HG-1/HG-2	HG-3/HG-4
5272039	607.2	RX	106	50.2	0	0	156.2	1.31	1.59	3.25	2	4.20/1.27	39.9/7.7
5280837	606.7	"	104	50.2	0	0	154.2	"	1.50	3.03	"	4.00/0.30	41.9/6.3
1305	608.2	RX	102	50.2	0	0	152.2	"	1.45	2.88	"	4.99/1.03	54.8/7.7
1750	610.0	"	101	50.2	0	0	151.2	"	1.40	2.77	"	5.75/1.32	64.0/8.7
5291320	609.0	"	101	50.2	0	0	151.2	"	1.10	2.18	"	5.58/1.32	49.7/7.2
1630	609.3	"	101	50.2	0	0	151.2	"	1.05	2.08	"	5.58/1.32	49.7/7.2
5301038	609.7	RX	100	50.2	0	0	150.2	"	0.90	1.77	"	6.33/1.48	54.8/7.3
1345	610.8	"	97	50.2	0	0	147.2	"	0.87	1.68	"	8.58/2.13	66.3/8.9
5310847	608.9	"	110	50.2	0	0	160.2	"	0.80	1.68	"	6.60/1.27	52.2/6.6
0906	"	MS-2	110	50.2	0	0	160.2	"	0.325	0.68	"	6.79/1.27	51.2/22.3
1012	609.5	"	111	50.2	0	0	161.2	"	0.312	0.66	"	6.79/1.32	53.5/20.1
1451	609.3	"	110	50.2	0	0	160.2	"	0.31	0.66	"	5.91/0.97	63.2/14.7
1554	"	EM	"	50.2	0	0	160.2	"	0.415	0.87	"	5.83/0.98	60.3/94.4
1819	610.4	"	111	50.2	0	0	161.2	"	-	-	"	6.17/1.05	48.6/86.0
6010850	608.2	RX	109	50.2	0	0	159.2	"	2.85	5.94	"	5.36/0.77	32.6/5.7
0906	"	MS-2	"	50.2	0	0	159.2	"	3.15	6.56	"	-	-
1155	608.1	"	110	50.2	0	0	160.2	"	2.70	5.66	"	5.06/0.77	37.0/11.4
1451	610.4	RX	107	50.2	0	0	157.2	"	2.40	4.94	"	5.83/0.91	46.2/10.5
1645	Shut down											4.51/0.16	22.8/135
6022153	Start up											-	22.8/135
2234	252 (5MW)	EM										-	-
2243	428.4 (8 MW)	"										-	-
2301	514.6 (10MW)	"										-	-
2346	485.7 (")	"										-	-
2359	"	"										-	-
6030856	489.8	"										203/135	203/135
1115	488.7	"	0	50.2	102	0	152.2	"	8.25	8.25	"	5.43/30.28	70.4/141
1155	605.2	"	0	50.2	102	0	152.2	"	8.00	8.00	"	5.43/25.05	66.3/142
1354	607.4	"	0	50.2	101	0	151.2	"	5.70	5.70	"	4.84/8.59	41.9/163
1410	607.3	"	0	50.2	103	0	153.2	"	5.50	5.50	"	4.92/8.25	41.9/163
1415	607.3	"	0	50.2	102	0	152.2	"	6.05	6.05	"	4.78/72.9	102/182
1417	"	"	0	50.2	104	0	154.2	"	5.4	5.4	"	4.65/30.3	71.3/188
1435	"	RX	0	50.2	104	0	154.2	"	5.2	5.2	"	4.78/28.8	70.4/130
		"	0	50.2	104	0	154.2	"	34	34	"	4.65/28.8	70.4/70.4
		"	0	50.2	104	0	154.2	"	42	42	"	-	-
		"	0	50.2	104	0	154.2	"	61	61	"	4.64/26.0	70.4/53.5

1st Cycle - 3

Time	Irradiation temperature (°C)	Flow line	He flow rate (cm ³ /min)	1%CO-He flow rate (cm ³ /min)	18H ₂ -He flow rate (cm ³ /min)	Dry air flow rate (cm ³ /min)	Total flow rate in IC (cm ³ /min)	Correction factor (-)	Tritium reading (μCi/cm ³)	Tritium concentration		Moisture concentration (vppm) *4		
										Meter reading (μCi/cm ³)	Apparent value (μCi/cm ³) *2	No. of IC *3	HG-1/HG-2	HG-3/HG-4
6031449	607	MS-2	0	50.2	104	0	154.2	1.31	5.0		-	-	70.3/29.5	
1533	607	EM	0	50.2	104	0	154.2	"	5.15		-	-	- / -	
1623	607.2	"	0	50.2	112	0	162.2	"	5.0		4.45/23.5	-	68.8/28.8	
1631	Shut down													
1635	81.3	EM	0	50.2	112	0	162.2	"	2.0	4.24	-	-	- / -	
1830	38.9	"	0	50.2	132	0	182.2	"	1.15	2.74	4.09/1.25	-	33.0/119	
6040915	24.6		48	9.8	0	0	57.8	"	0.905	0.69	14.25/0.12	-	37.5/207	
1755	24.6		50	9.8	0	0	59.8	"	0.81	0.63	14.25/0.11	-	32.6/658	
6060920	38.2	"	49	9.8	0	0	58.8	"	0.7	0.54	8.70/0.60	-	36.1/811	
1705	-	"	"	"	0	0	"	"	0.66	0.51	8.93/0.56	-	36.1/1157	
6070906	-	"	"	"	0	0	"	"	0.61	0.47	8.70/0.56	-	40.8/1560	
6080855	-	"	48	"	0	0	57.8	"	0.55	0.42	9.82/0.71	-	37.5/1793	
1900	-	"	104	"	0	0	113.8	"	0.48	0.72	5.36/0.92	-	- / -	
6090843	RT		47	9.8	0	0	56.8	"	0.515	0.38	10.51/1.32	-	- / -	
6121215	RT		100	10	0	0	110	"	0.30	0.43	6.00/0.92	-	- / -	

2nd Cycle - 1

Time	Irradiation temperature (°C)	Flow line	He flow rate (cm ³ /min)	1%CO-He flow rate (cm ³ /min)	1% ₂ -He flow rate (cm ³ /min)	Dry air flow rate (cm ³ /min)	Total flow rate in IC (cm ³ /min)	Correction factor ^{*1} (-)	Tritium Meter reading (μCi/cm ³)	Tritium concentration		No. of IC ^{*3}	Moisture concentration (vppm) ^{*4}	
										Apparent value (μCi/cm ³) ^{*2}	IC-3		HG-1/HG-2	HG-3/HG-4
6130840								1.31				2	4.78/0.67	28.8/52.3
0940	start up							"	(2.0-1.1)			"	3.05/0.43	35.1/192
1000	24.1	RX	100	25.1	0	0	125.1	"	1.8			"	4.09/0.59	35.6/154
1024	25.7 (0.1MW)	"	100	26	0	0	126	"	1.4			"	3.85/0.63	37.7/135
1037	35.2	"	100	26	0	0	126	"	1.35			"	3.91/0.78	35.6/121
1051	42.4	"	100	26	0	0	126	"	1.20			"	3.91/0.28	35.2/161
1059	(1MW)	MS-2	100	26	0	0	126	"	-			"	3.91/0.20	35.2/129
1104	98.1 (5MW)	"	100	26	0	0	126	"	0.80			"	4.09/0.45	37.9/110
1121	292.2	"	100	26	0	0	126	"	0.70			"	4.09/0.45	45.7/100
1159	396.2 (8MW)	"	100	26	0	0	126	"	0.65			"	5.58/4.99	84.1/98.8
1203	416.6	"	100	26	0	0	126	"	0.78			"	5.58/105.9	176/96.7
1211	426.0	"	100	26	0	0	126	"	0.78			"	5.36/145.5	138/78.3
1319	397.6	"	100	25	0	0	125	"	0.78			"	5.43/52.2	127/78.3
1355	397.6	MS-2	100	25	0	0	125	"	0.280			"	5.36/42.4	123/93.3
1410	397.5	"	100	25	0	0	125	"	0.285			"	5.43/40.8	149/88.1
1430	409.6	RX	100	25	0	0	125	"	1.30			"	5.43/65.6	149/-
1437	"	"	100	25	0	0	125	"	1.10			"	5.43/64.8	156/89.1
1457	418.9	EM	100	25	0	0	125	"	2.25			"	5.43/69.6	-/-
1501	471.8 (10MW)	MS-2	100	25	0	0	125	"	-			"	-/473	-/-
1515	483.0	"	100	25	0	0	125	"	-			"	-/672	-/-
1535	"	"	100	25	0	0	125	"	-			"	-/449	217/168
1614	485.7	"	100	25	0	0	125	"	1.44			"	5.58/156	142/78.3
1634	489.5	RX	100	25	0	0	125	"	-			"	5.58/52.5	68.8/38.4
1850	490.8	"	100	25	0	0	125	"	-			"	5.83/4.1	-/124
1920	498.4	RX + CT-1 ⁺	100	25	0	0	125	"	2.1			"	-/-	63.2/90.0
2008	490.8	"	100	25	0	0	125	"	3.15			"	5.58/2.63	54.1/78.3
2108	487.3	"	100	25	0	0	125	"	3.00			"	5.75/1.86	40.4/51.6
6140840	484.2	"	100	25	0	0	125	"	4.00			"	5.20/0.71	45.1/22.6
0942	484.8	RX	100	25	0	0	125	"	3.1			"	5.58/0.75	52.2/20.9
1100	485.4	"	100	25	0	0	125	"	3.05			"	5.75/0.77	54.8/21.4
1130	"	"	100	25	0	0	125	"	3.05			"	6.00/0.75	56.1/29.5
1145	485.5	MS-2	100	25	0	0	125	"	1.05			1	6.00/0.77	

+ cold trap CT-1N without coolant (liquid nitrogen)

2nd Cycle - 2

Time	Irradiation temperature (°C)	Flow line	He flow rate (cm ³ /min)	1%CO-He flow rate (cm ³ /min)	1% ₂ -He flow rate (cm ³ /min)	Dry air flow rate (cm ³ /min)	Total flow rate in IC (cm ³ /min)	Correction factor (-)	Tritium concentration		No. of IC #3	Moisture concentration (ppm)*4	
									Meter reading (μCi/cm ³)	Apparent value (μCi/cm ³)*2		HG-1/HG-2	HG-3/HG-4
6141210	491.8	MS-2	100	25	0	0	125	1.31	0.58	0.95	1	6.17/0.77	57.5/33.9
1215	"	"	100	25	0	0	125	"	0.21	0.34	"	- / -	- / -
1317	488.9	"	100	25	0	0	125	"	0.61	1.00	"	6.42/0.91	- / -
1332	"	"	100	25	0	0	125	"	0.78	1.28	"	- / -	- / -
1540	488.1	"	100	25	0	0	125	"	0.62	1.02	"	5.83/0.82	49.7/67.2
1624	488.3	"	100	25	0	0	125	"	3.55	5.81	2	6.00/0.85	49.7/26.3
1816	605.5	"	100	25	0	0	125	"	1.30	2.13	"	6.02/2.45	65.6/33.0
1936	606.5	"	100	25	0	0	125	"	1.35	2.21	"	6.00/1.05	57.5/45.1
6150905	606.1	"	100	25	0	0	125	"	0.5	0.82	"	5.58/0.81	47.4/119
1207	607.9	"	100	25	0	0	125	"	0.5	0.82	"	6.51/1.00	63.2/168
1656	608.1	"	100	25	0	0	125	"	0.5	0.82	"	7.27/1.17	66.3/205
1700	"	RX	100	25	0	0	125	"	3.55	5.81	"	- / -	- / -
1720	608.0	"	100	25	0	0	125	"	3.25	5.32	"	7.08/1.15	67.2/ -
6160855	606.0	"	100	25	0	0	125	"	2.25	3.68	"	5.75/0.84	44.0/11.2
1113	606.4	"	100	25	0	0	125	"	2.25	3.68	"	5.75/0.84	40.8/12.2
1454	606.3	"	100	25	0	0	125	"	1.95	3.19	"	5.58/0.77	38.8/15.5
1535	"	"	100	25	0	0	125	"	2.20	3.60	2	5.58/0.77	37.0/12.8
1623	"	EM	100	25	0	0	125	"	2.45	4.01	"	- / -	- / -
1705	606.4	MS-2	100	25	0	0	125	"	2.70	4.42	"	5.51/0.76	- / -
1734	606.0	"	100	25	0	0	125	"	1.95	3.19	"	5.51/0.71	37.5/11.4
6170845	605.6	"	100	25	0	0	125	"	0.145	0.24	"	5.51/0.69	39.4/62.8
1128	606.2	RX	100	25	0	0	125	"	0.22	0.36	"	5.75/0.76	41.9/74.8
1135	606.4	MS-2	100	25	0	0	125	"	0.155	0.25	"	5.91/0.77	45.7/100
1229	"	"	100	25	0	0	125	"	0.165	0.27	"	5.75/0.77	44.0/84.1
1540	704.3	"	100	25	0	0	125	"	2.20	3.60	"	5.75/0.58	44.0/138
1840	704.3	"	100	25	0	0	125	"	2.15	3.52	"	5.91/0.61	44.0/194
6181100	704.5	"	100	25	0	0	125	"	1.65	2.70	"	5.13/0.58	33.5/544
1135	"	RX	100	25	0	0	125	"	0.80	1.31	"	5.13/0.56	33.5/52.2
1138	"	"	100	25	0	0	125	"	0.30	0.49	"	- / -	- / -
1330	"	"	100	25	0	0	125	"	0.24	0.39	"	4.99/0.56	37.0/87.0
1343	704.4	MS-2	100	25	0	0	125	"	3.60	5.90	2	4.99/0.55	36.1/37.9

2nd Cycle - 3

Time	Irradiation temperature (°C)	Flow line	He Flow rate (cm ³ /min)	18O-He Flow rate (cm ³ /min)	19F ₂ -He Flow rate (cm ³ /min)	Dry air Flow rate (cm ³ /min)	Total flow rate in IC (cm ³ /min)	Correction Factor (-)	Tritium Meter reading (μCi/cm ³)	Tritium concentration Apparent value (μCi/cm ³)*2	No. of IC *3	Moisture concentration (vppm)*4		
												HG-1/HG-2	HG-3/HG-4	
6181622	704.2	MS-2	100	25	0	0	125	1.31	3.35	5.75	2	4.99/0.55	33.2/12.6	- / -
1625	"	EM	100	25	0	0	125	"	8.40	13.76	"	- / -	- / -	- / -
1643	"	"	100	25	0	0	125	"	3.90	6.39	"	4.92/0.55	32.6/12.6	- / -
1655	"	"	100	25	0	0	125	"	4.20	6.88	"	4.92/0.55	32.6/13.1	- / -
1704	704.4	RX	100	25	0	0	125	"	2.8	4.59	"	4.92/0.55	32.2/14.7	- / -
6191332	705.2	"	100	25	0	0	125	"	2.00	3.28	"	5.13/0.61	42.4/11.2	- / -
1548	706.2	MS-2	100	25	0	0	125	"	2.85	4.67	"	5.36/0.64	45.1/16.5	- / -
1815	706.2	"	100	25	0	0	125	"	1.22	2.00	1	5.28/0.61	41.9/15.9	- / -
6200856	705.4	"	100	25	0	0	125	"	1.05	1.72	"	4.92/0.58	37.9/68.0	- / -
1134	"	RX	100	25	0	0	125	"	2.20	3.60	2	- / -	- / -	- / -
1158	"	EM	100	25	0	0	125	"	7.70	12.6	"	- / -	- / -	- / -
1202	"	"	100	25	0	0	125	"	3.65	5.98	"	- / -	- / -	- / -
1327	705.7	MS-2	100	25	0	0	125	"	3.30	5.40	"	4.92/0.59	35.2/11.4	- / -
1406	"	"	100	25	0	0	125	"	3.25	5.32	"	- / -	- / -	- / -
1614	"	"	100	25	0	0	125	"	3.20	5.24	"	- / -	- / -	- / -
1615	"	"	100	25	0	0	125	"	1.05	1.72	"	- / -	- / -	- / -
1624	602.8	MS-2	100	25	0	0	125	"	0.80	1.31	"	5.13/0.49	42.4/20.6	- / -
1630	606.0	"	100	25	0	0	125	"	0.98	1.60	"	- / -	- / -	- / -
1635	600.1	"	100	25	0	0	125	"	1.64	2.69	"	- / -	- / -	38.8/12.8
1700	603.6	"	100	25	0	0	125	"	1.22	2.00	"	5.13/0.47	40.4/14.8	- / -
1738	603.1	"	100	25	0	0	125	"	1.00	1.64	"	5.13/0.47	40.8/17.9	- / -
2020	602.8	"	100	25	0	0	125	"	0.58	0.95	"	5.13/0.50	42.9/28.1	- / -
6210840	"	"	100	25	0	0	125	"	0.18	0.29	"	5.13/0.58	39.9/75.9	- / -
1151	603.0	"	100	25	0	0	125	"	0.15	0.25	"	5.51/0.84	50.0/90.1	- / -
1215	603.0	"	100	25	0	0	125	"	2.40	3.93	2	5.67/0.88	45.1/24.4	- / -
1338	603.3	"	100	25	0	0	125	"	2.30	3.77	"	5.91/0.92	51.6/15.9	- / -
1344	"	CT-IN	100	25	0	0	125	"	2.70	4.42	"	- / -	- / -	- / -
1346	"	"	100	25	0	0	125	"	2.90	4.75	"	- / -	- / -	- / -
1347	"	"	100	25	0	0	125	"	2.93	4.80	"	- / -	- / -	- / -
1521	604.3	MS-2	100	25	0	0	125	"	2.27	3.72	"	6.25/1.03	52.2/15.2	- / -
1527	"	EM	100	25	0	0	125	"	3.15	5.16	"	- / -	- / -	- / -

2nd Cycle - 4

Time	Irradiation temperature (°C)	Flow line	He flow rate (cm ³ /min)	1%CO-He flow rate (cm ³ /min)	18H ₂ -He flow rate (cm ³ /min)	Dry air flow rate (cm ³ /min)	Total flow rate in IC (cm ³ /min)	Correction factor ^{*1} (-)	Tritium concentration		Moisture concentration	
									Meter reading (μCi/cm ³)	Apparent value (μCi/cm ³) ^{*2}	No. of IC ^{*3}	(vppm) ^{*4}
6211738	603.5	RX	100	25	0	0	125	1.31	6.42	10.51	5.75/0.70	HG-3/HG-4
2120	"	"	"	"	"	"	"	"	4.20	6.88	5.58/0.64	- / -
6220840	602.3	"	"	"	"	"	"	"	3.35	5.49	5.13/0.55	42.9/9.6
1100	"	MS-2	"	"	"	"	"	"	2.13	3.49	5.36/0.58	- / -
1639	603.1	RX	"	"	"	"	"	"	3.65	5.98	5.58/0.60	63.2/13.5
1719	"	"	"	"	"	"	"	"	3.45	5.65	5.58/0.63	63.2/12.8
1733	"	MS-2	"	"	"	"	"	"	1.00	1.64	- / -	- / -
1753	602.8	"	"	"	"	"	"	"	0.147	0.24	5.75/0.60	60.3/15.2
1757	"	"	"	"	"	"	"	"	0.140	0.24	- / -	- / -
1806	603.1	"	"	"	"	"	"	"	1.05	1.72	- / -	60.3/18.8
1840	"	RX	"	"	"	"	"	"	4.30	7.04	- / -	- / -
6230843	601.8	"	"	"	"	"	"	"	3.03	4.96	- / -	45.7/7.9
1048	602.2	MS-2	"	"	"	"	"	"	1.50	2.46	4.65/0.46	47.9/14.8
1335	602.1	RX	"	"	"	"	"	"	3.30	5.40	4.65/0.47	49.7/10.5
1530	602.5	MS-2	"	"	"	"	"	"	1.40	2.29	4.84/0.49	56.1/12.2
1700	481.8	"	"	"	"	"	"	"	0.086	0.14	- / -	- / -
1730	482.7	"	"	"	"	"	"	"	0.080	0.13	4.99/0.21	49.8/15.5
1835	482.4	RX	"	"	"	"	"	"	4.55	7.45	4.84/0.24	47.9/12.2
6240838	481.7	"	"	"	"	"	"	"	3.40	5.57	4.78/0.43	44.0/8.5
1126	481.1	MS-2	"	"	"	"	"	"	9.72	1.18	4.84/0.43	47.9/12.6
1400	"	RX	"	"	"	"	"	"	2.50	4.09	- / -	- / -
1407	480.8	CT-IN	"	"	"	"	"	"	0.80	1.31	5.20/0.49	50.9/80.2
1626	485.9	MS-2	300	25	0	0	325	"	2.00	3.28	2.79/0.22	35.6/15.5
1630	SHUT DOWN	"	"	"	"	"	"	"	"	"	- / -	- / -
1639	"	MS-2	300	25	0	0	325	"	0.015	0.02	- / -	35.8/13.5
6250857	49.2	"	100	25	0	0	125	"	1.10	1.80	6.08/0.01	44.0/86.0
1737	"	"	"	"	"	"	"	"	0.995	1.63	6.79/0.016	63.2/159
6271003	"	"	"	"	"	"	"	"	0.46	0.75	4.20/0.13	39.9/242
6281110	61.3	"	"	"	"	"	"	"	0.36	0.59	3.53/0.08	37.5/260

3rd Cycle - 1

Time	Irradiation temperature (°C)	Flow line	He flow rate (cm ³ /min)	N ₂ -He flow rate (cm ³ /min)	W _{He} -He flow rate (cm ³ /min)	Dry air flow rate (cm ³ /min)	Total flow rate in IC (cm ³ /min)	Correction factor k-1 *7	Correction factor k-2 *7	Meter reading (μCi/cm ³)	Tritium concentration (μCi/cm ³)	C-1 *8	C-2 *8	No. of IC #1	Moisture concentration (vppm) *4
7041045	20.9 (1.4W)	MS-2	100	24.9	0	471	596	1.048	1.000	0.02	0.12	0.12	0.12	1	27.0/61.0
1100	292.9 (50W)	"	"	"	"	"	"	"	"	0.038	0.24	0.24	0.23	"	"
1205	394.8 (80W)	"	"	"	"	"	"	"	"	0.041	0.26	0.24	0.24	1	3.05/136
1434	403.2	"	"	"	"	"	"	"	"	0.105	0.66	0.63	0.63	"	3.14/37.5
1735	(10W)	"	"	"	"	473	598	"	"	-	-	-	-	"	2.79/32.2
7050842	485.3	"	"	"	"	472	597	"	"	0.12	0.75	0.72	0.72	"	3.85/0.64
1026	485.4	"	"	"	"	"	"	"	"	0.130	0.81	0.77	0.77	"	3.85/0.56
1640	485.3	RX	"	353	0	415	868	1.120	"	0.21	2.04	1.82	1.82	2	3.58/0.69
1858	"	"	"	"	"	"	"	"	"	0.23	2.24	2.00	2.00	"	3.58/0.45
2030	484.5	"	"	199	0	"	714	1.097	"	0.21	1.64	1.50	1.50	"	73.9/62.8
7060846	485.9	RX	"	196.7	0	412	609	1.074	"	0.42	2.75	2.56	2.56	"	3.91/0.38
1150	486.9	"	"	25	24	478	627	1.053	"	0.33	2.18	2.07	2.07	"	3.38/0.44
1554	487.3	"	"	25	51	457	633	1.064	"	0.44	2.97	2.79	2.79	"	3.10/0.43
1641	"	"	"	25	50	36	211	1.191	"	1.70	4.27	3.59	3.59	"	3.38/0.43
1721	487.5	"	"	25	52	435	612	1.067	"	0.565	3.69	3.46	3.46	"	50.9/29.5
1902	487.5	"	"	25	52	438	615	1.066	"	-	-	-	-	"	61.8/64.8
7070840	484.8	"	"	"	50	441	611	1.064	"	0.625	4.06	3.82	3.82	"	61.8/37.9
1029	"	MS-2	"	"	0	476	601	1.048	"	0.18	1.13	1.08	1.08	"	51.6/16.9
1357	"	"	"	"	0	531	656	1.044	"	0.135	0.92	0.89	0.89	"	2.84/0.30
1647	603.5	RX	"	"	0	684	809	1.036	"	0.85	7.12	6.88	6.88	"	2.92/0.30
1740	606.1	MS-2	"	"	0	681	806	"	"	0.055	0.46	0.44	0.44	"	3.00/0.30
1940	"	"	"	"	0	531	656	1.044	"	0.025	0.17	0.16	0.16	"	51.6/58.9
7080837	608.3	RX	"	"	49	532	706	1.057	"	0.53	3.96	3.74	3.74	1	2.79/2.01
1341	608.6	MS-2	"	"	48	531	704	"	"	0.167	1.24	1.18	1.18	"	2.84/0.98
1744	608.4	"	"	"	48	666	841	"	"	0.145	1.08	1.02	1.02	"	2.52/0.30
1810	"	RX	"	"	50	"	"	"	"	0.325	2.86	2.73	2.73	"	39.9/13.7
2025	608.2	"	"	"	"	"	"	"	"	0.78	6.87	6.56	6.56	"	2.59/0.30
7090835	607.2	"	"	"	48	663	836	1.048	"	1.22	10.7	10.2	10.2	"	2.52/0.32
1030	607.9	MS-2	"	"	"	662	835	"	"	0.063	0.55	0.53	0.53	"	42.9/61.0
1140	"	"	"	"	0 *5	"	787	1.037	"	0.035	0.29	0.28	0.28	"	41.9/51.6
7101025	609.2	RX	"	"	" *5	661	915	1.064	"	0.38	3.70	3.48	3.48	1	38.8/37.5
1050	"	MS-2	"	"	" *5	"	"	"	"	0.015	0.15	0.14	0.14	"	42.9/34.8

*5. decontamination treatment of ionization chamber IC-2 has been carried out with 1%³H₂-He gas mixture in those period

*7. k-1 is the W value ratio of the β⁻ from ³H in in helium-air gas mixture and air

$$W_{He} = 41.5 \text{ eV}, W_{air} = 33.73 \text{ eV}, W_{mixture} = 33.73X + 41.5(1-X), X : \text{mole ratio of air in the mixture}$$

k-2 is the correction factor in the case of $W_{mixture} = W_{air}$ for the helium-air mixture

*8. C-1 is that for $W_{mixture} = 33.73X + 41.5(1-X)$

C-2 is that for $W_{mixture} = W_{air}$

relationship between tritium concentration C (μCi/cm³) and ionization current I(A) is expressed by

$$C = WI / 3.7 \times 10^4 \text{ eV} \eta = 2.974 \times 10^{10} WI / V \eta = 1.016 I \times 10^{10} \text{ (present ionization chamber)}$$

3rd Cycle - 2

Time	Irradiation temperature (°C)	Flow line	He flow rate (cm ³ /min)	100-He flow rate (cm ³ /min)	18F ₂ -He flow rate (cm ³ /min)	Dry air flow rate (cm ³ /min)	Total flow rate in IC (cm ³ /min)	Correction factor (-)		Titium concentration (μCi/cm ³)	Moisture concentration (ppm)*4		No. of IC *3
								k-1 *7	k-2 *7		C-1 *8	C-2 *8	
7101300	609.4	MS-2	100	25	0 *5	661	786	1.037	1.000	0.036	0.29	0.28	1
1550	"	"	"	"	128	660	914	1.064	"	0.185	1.80	1.69	2
7110840	608.8	RX	"	"	0	661	806	1.037	"	0.235	1.92	1.85	"
1309	709.4	"	"	"	16	"	"	1.041	"	0.395	3.30	3.17	"
7120847	"	"	"	"	0	659	784	1.037	"	0.395	3.21	3.10	1
1205	"	"	"	"	12	655	804	1.043	"	0.76	6.37	6.11	"
1425	"	"	"	"	"	"	"	1.043	"	0.71	5.95	5.71	2
1920	708.9	"	"	"	322	"	1102	1.094	"	0.90	10.85	9.92	1
7130914	703.2	MS-2	"	"	330	666	1121	1.094	"	0.75	9.20	8.41	"
1100	"	"	"	"	50	659	834	1.048	"	1.35	11.80	11.26	"
1450	710.4	"	"	"	"	"	"	1.048	"	2.45	21.41	20.43	2
1715	710.2	RX	"	"	"	"	"	1.048	"	2.10	18.35	17.51	"
7140834	710.0	MS-2	"	"	327 *6	534	986	1.106	"	0.093	1.01	0.92	1
0905	709.6	"	"	"	" *6	"	"	1.106	"	0.095	9.24	0.93	"
1125	658.2	MS-2	"	"	326 *6	524	975	1.107	"	0.075	0.81	0.73	"
1540	658.1	"	"	"	324 *6	"	973	1.109	"	0.055	0.59	0.54	"
1750	658.3	"	"	"	323 *6	"	972	"	"	0.045	0.49	0.43	"
2040	"	"	"	"	" *6	"	"	"	"	0.045	0.49	0.43	"
2044	"	"	"	"	" *6	"	"	"	"	2.60	28.03	25.30	2
7150847	658.1	"	"	"	320 *6	522	967	1.106	"	1.20	12.83	11.60	"
1405	557.4	"	"	"	" *6	"	"	"	"	0.034	0.36	0.33	1
1625	557.6	"	"	"	" *6	"	"	"	"	0.034	0.36	0.33	"
1630	shut down	"	"	"	" *6	"	"	"	"	"	"	"	"
1645	"	"	"	"	" *6	"	"	"	"	0.018	0.19	0.17	"
1736	"	"	"	"	" *6	"	"	"	"	0.66	7.06	6.38	"
7180900	46.2	"	101	"	47	315	488	1.082	"	0.39	2.06	1.90	2
7190850	67.0	"	"	"	23	315	464	1.074	"	0.37	1.84	1.72	"
7200840	43.7	"	"	"	25	314	464	1.074	"	0.355	1.77	1.64	"

*6. regeneration treatment of reducing bed RX has been carried out with 18F₂-He gas mixture in those period

4th Cycle - 1

Time	Irradiation temperature [°C]	Flow line	He flow rate (cm ³ /min)	100-He flow rate (cm ³ /min)	100-He flow rate (cm ³ /min)	100-He flow rate (cm ³ /min)	Dry air flow rate (cm ³ /min)	Total flow rate in IC (cm ³ /min)	Correction factor (-)		Tritium concentration (CI/cm ³)		No. of IC #1	Moisture concentration (ppm) #4	
									K-1 #1	K-2 #7	Meter reading (CI/cm ³)	C-1 #8		C-2 #8	10G-1/10G-2
7251015	30.2 (10KW)	MS-2	100	25			197				0.022		1	2.45/0.45	70.4/47.4
1030											0.022				
1050	38.0 (10KW)										0.02			2.30/0.31	56.1/59.5
1110	259.8 (5KW)						199	374		1.108	1.000	0.10		2.30/0.24	49.7/64.8
1200											0.036	0.135			
1425	295.5						201	376		1.107		0.58		1.95/17.2	108/138
1506	481.2 (10KW)						50				0.12	0.50		1.81/487	332/165
1630	477.6						48	367						2.07/3.10	88.1/293
2011	481.3	RX								1.107		0.32	1.30	1.98/1.32	87.0/61.0
7260900	474.3						47	366			0.36	1.46		1.92/0.30	73.9/31.0
1423	474.8						55	381		1.109		0.17	0.72	1.55/0.16	68.0/ -
1758		MS-2									0.17	0.65		1.53/0.14	68.0/24.5
1934	475.0	RX					191	442		1.131		0.58	2.90	1.60/0.15	64.8/45.1
7270850	476.4						184	362		1.133		0.845	3.47	2.17/0.17	77.3/41.4
1047	475.4	MS					195	373		1.110		0.23	0.95	2.07/0.15	73.9/280
1257	527.5	RX						370		1.109		1.05	4.31	1.86/0.55	77.3/41.4
1450	558.7						190	365		1.110		1.10	4.46	1.86/0.29	76.5/37.9
1510		MS-2									0.33	1.34		- / -	75.6/295
1810	559.9						197	372		1.108		0.11	0.45	1.78/0.33	67.2/231
1905	559.8	RX					196	372		1.109		1.04	4.29	1.70/0.31	56.1/94.4
7280829	560.8						186	364		1.113		1.34	5.43	2.07/0.33	74.8/46.2
1335	559.7						253	429		1.094		1.31	6.15	1.86/0.30	64.0/39.4
1653		MS-2									0.057	0.31	0.29	1.83/0.32	61.8/118
1712	605.3										0.078	0.37	0.33	1.78/0.66	66.3/127
7281722	605.3	MS-2					253	428			0.072	0.34	0.31	1.78/0.59	65.6/134
1900											0.068	0.32	0.29	1.95/0.43	67.2/190
7290850	605						251	427		1.095		0.55	0.26	2.1/0.40	70.4/713
1000		RX									1.16	5.42	4.95	- / -	- / -
1015											1.09	5.10	4.65	- / -	- / -

4th Cycle - 2

Time	Irradiation temperature (°C)	Flow line	He flow rate (cm ³ /min)	1XO-like flow rate (cm ³ /min)	IMV ₂ -like flow rate (cm ³ /min)	Dry air flow rate (cm ³ /min)	Total flow rate in IC (cm ³ /min)	Correction factor (-)		Tritium concentration (μCi/cm ³)	Moisture concentration (vptm) *4		No. of IC *3
								k-1 *7	k-2 *7		C-1 *8	C-2 *8	
7291131	506.9	PX	101	25	"	274	450	1.104	1.000	1.18	5.86	5.31	2
1205	"	MS-2	100	"	"	276	452	1.080	"	0.26	1.28	1.18	"
1715	605.9	"	"	"	52	280	457	1.089	"	0.057	0.28	0.26	1
1735	606.1	RX	"	"	50	281	436	1.092	"	1.22	5.80	5.31	2
7300843	606.4	"	"	"	48	253	426	1.094	"	1.30	6.05	5.54	"
1025	606.1	"	"	"	45	259	429	1.091	"	1.25	5.84	5.36	"
1423	662.2	"	"	"	50	260	435	1.093	"	1.35	6.41	5.87	"
1447	"	MS-2	"	"	263	438	"	"	"	0.07	0.33	0.31	1
7301510	662.2	MS-2	100	25	50	263	438	"	"	0.067	0.32	0.29	1
7311343	662.7	"	"	"	"	"	"	"	"	0.088	0.42	0.39	"
1400	662.5	RX	"	"	"	259	434	"	"	1.30	6.17	5.64	2
1650	"	"	"	"	49	256	430	1.094	"	1.28	6.01	5.50	"
8010917	"	"	"	"	50	264	439	1.093	"	1.26	6.05	5.53	"
1130	662.4	MS-2	"	"	49	257	431	1.094	"	0.091	0.43	0.39	1
1542	662.9	"	"	"	48	254	427	"	"	0.087	0.41	0.37	"
1744	709.6	"	"	"	"	"	"	"	"	0.095	0.44	0.41	"
8020400	Shut down	"	"	"	49	257	431	"	"	0.09	0.42	0.39	"
0745	50.0	MS-2	"	"	48	252	425	"	"	1.26	5.86	5.36	2
1118	50.6	RX	"	"	50	259	434	1.093	"	1.22	5.79	5.29	"
8031900	93.6(11N)	RX	"	"	"	"	"	"	"	1.24	5.88	5.38	"
2000	264.5(5MW)	RX	"	"	"	"	"	"	"	1.22	5.79	5.29	"
2058	428.1(8MW)	"	"	"	"	"	"	"	"	1.20	5.69	5.21	"
2110	439.0	"	"	"	"	"	"	"	"	1.27	6.05	5.54	"
2159	465.2(10MW)	"	"	"	"	261	436	"	"	1.34	6.39	5.84	"
2234	480.9	"	"	"	"	"	"	"	"	1.41	6.72	6.15	"
2300	557.5	"	"	"	"	"	"	"	"	1.12	5.31	4.86	"
8040950	662.4	"	"	"	48	261	434	1.094	"	1.15	5.46	4.99	"
1125	659.2	"	"	"	51	258	"	"	"	1.14	5.41	4.95	"
1143	708.4	"	"	"	"	"	"	"	"	1.14	5.41	4.95	"
1809	709.9	"	"	"	"	"	"	"	"	1.14	5.41	4.95	"
8050911	710.2	"	"	"	50	254	429	"	"	1.20	5.15	5.70	"
0911	"	MS-2	"	"	"	"	"	"	"	0.32	1.37	1.50	"

4th Cycle - 3

Time	Irradiation temperature (°C)	Flow line	He flow rate (cm ³ /min)	1XCO-He flow rate (cm ³ /min)	1W ₂ -He flow rate (cm ³ /min)	Dry air flow rate (cm ³ /min)	Total flow rate in IC (cm ³ /min)	Correction factor (-)		Tritium concentration (μCi/cm ³)	C-1 #8	C-2 #8	#. of IC #3	Moisture concentration (vppm)	
								k-1 #7	k-2 #7					Meter reading (μCi/cm ³)	HG-1/HG-2
1058	708.7	RX	"	"	51	"	430	1.095	1.000	1.22	5.74	5.25	"	1.35/0.21	74.9/45.1
1115	761.5	"	"	"	"	"	"	"	"	1.22	5.74	5.25	"	1.37/0.25	72.9/37.0
1420	"	"	"	"	"	"	"	"	"	1.24	5.84	5.33	"	1.41/0.35	80.2/50.7
1557	761.8	"	"	"	"	"	"	"	"	0.89	4.19	3.83	"	1.37/0.40	77.3/114
1610	"	"	"	"	"	"	"	"	"	1.27	5.98	5.46	"	1.37/0.40	76.5/87.0
1628	"	"	"	"	"	"	"	"	"	1.31	6.17	5.63	"	1.37/0.40	76.5/74.8
1630	Shut down	"	"	"	"	"	"	"	"	-	-	-	"	-	-
1635	53.0	RX	100	25	51	254	430	"	"	1.31	6.17	5.63	"	1.41/0.09	71.3/71.3

Table 3 Summary Data of Experimental Conditions and Results(II)
 Ionization Chamber : Conventional Type without
 Bird-cage Type Electrode

Time	Irradiation temperature (°C)	Flow line	He flow rate (cm ³ /min)	1%CO-He flow rate (cm ³ /min)	1%N ₂ -He flow rate (cm ³ /min)	Dry air flow rate (cm ³ /min)	Total flow rate in IC (cm ³ /min)	Ionization current meter reading x 10 ⁻⁸ (mA)	Ionization current corrected value x 10 ⁻⁸ (mA)*1	Ionization efficiency (%) *2	Tritium concentration (μCi/cm ³)*3
7251530	478	MS-2	100	25	50	201	376	7	24.6		0.248
1812	477	"	"	"	48	194	367	5	18.4		0.173
1830	"	"	"	"	"	"	"	6	22.0		0.20
1950	"	"	"	"	"	"	"	6	22.0		0.20
2009	481	"	"	"	"	191	"	11	40.0		0.376
7260007	478	"	"	"	"	192	364	11	40.2		0.379
0924	474	MS-2	"	"	47	192	365	19.3	70.3		0.662
1130	475	"	"	"	55	199	379	18.0	68.4		0.644
1608	476	"	"	"	54	201	380	18.0	68.4		0.644
1741	476	"	99	"	55	202	381	15	57.1		0.537
1810		MS-2→RX						-	-		-
1934	475	RX	100	98	53	191	442	18	79.5		0.748
2100	476	"	"	97	52	184	433	18	78.1		0.735
2153	"	"	"	97.3	"	-	-	20	-		-
7270016	477	"	"	98.6	"	190	441	22	97.1		0.914
7270845	477	"	"	96.7	51	184	432	29	125.4		1.180
7270945	-	MS-2	"	25	52	194	371	37	137.3		1.292
1435	558	RX	"	"	50	192	367	47	172.5		1.623
1711	559	MS-2	"	"	"	197	372	30	117.7		1.051
2014	559	RX	"	"	51	"	373	105	391.3		3.682
2100	"	"	"	"	"	"	"	108	403.1		3.793
2300	559	"	"	"	"	199	375	112.5	422.2		3.973
7280825	-	"	101	"	49	186	361	135	486.5		4.577
1115	560	MS-2	100	"	54	256	435	12	52.2		0.492
1427	-	"	"	"	49	254	428	12.6	53.9		0.507
2040	605	"	101	"	50	251	427	10.5	44.8		0.421
7290020	605	"	100	"	53	259	437	9.0	39.3		0.370
0845	"	"	101	"	50	251	427	31.5	134.2		1.263
1030	607	RX	"	"	"	270	446	123	548.5	69.8	5.162
1555	"	MS-2	100	"	52	279	456	10.4	47.5		0.466
1807	-	RX	"	"	50	261	436	126	549.9	70.0	5.175

continue

Time	Irradiation temperature (°C)	Flow line	He flow rate (cm ³ /min)	1%CO-He flow rate (cm ³ /min)	1% ₂ -He flow rate (cm ³ /min)	Dry air flow rate (cm ³ /min)	Total flow rate in IC (cm ³ /min)	Ionization meter reading x 10 ⁻⁸ (mA)	Ionization current corrected value x 10 ⁻⁸ (nA) *1	Ionization efficiency (%) *2	Tritium concentration (μCi/cm ³) *3
7291922	605	RX	100	25	50	262	437	126	551	70.1	5.18
2046	"	"	"	"	"	264	439	126	553	70.4	5.20
2110	"	"	"	"	"	261	436	129	563	71.6	5.29
2200	605	"	"	"	"	"	"	126	550	70.0	5.18
7300010	"	"	"	"	"	264	439	126	553	70.4	5.20
0838	"	"	"	"	48	253	426	127.5	543	69.1	5.11
0930	607	"	"	"	47	259	431	51.6	223		2.09
1016	"	MS-2	"	"	45	"	429	13.2	55.6		0.532
1037	"	RX	"	"	51	258	434	132	573	72.9	5.39
1430	658	"	"	"	50	260	435	132	575	73.1	5.41
1610	662	MS-2	"	"	"	262	437	13	56.8		0.535
1800	663	"	"	"	51	264	440	12.5	55.0		0.517
1843	662	"	"	"	50	263	438	12.3	53.8		0.507
1944	662	"	"	"	"	"	"	12.5	54.8		0.515
2016	662	"	"	"	"	264	439	12.8	56.2		0.530
7310017	662	"	"	"	"	"	"	13.0	57.1		0.537
0817	662	"	"	"	49	258	432	14.0	60.5		0.569
1048	663	"	"	"	50	262	437	14.1	61.6		0.579
1232	663	"	"	"	"	261	436	14.2	61.9		0.583
1358	-	RX	-	-	-	-	-	-	-		-
1440	662	"	100	25	50	259	434	136.5	593	75.4	5.58
1540	663	"	"	"	"	256	431	137.1	590	75.1	5.56
1642	663	"	"	"	"	"	"	137.1	590	75.1	5.56
1706	662	"	"	"	"	"	"	136.5	589	74.9	5.54
1735	663	"	"	"	"	258	433	136.5	589	74.9	5.54
1800	663	"	"	"	"	260	435	135.3	591	75.3	5.57
1955	662	"	"	"	"	261	436	135	588	74.9	5.54
8010010	-	"	"	"	"	264	439	135	588	74.9	5.54
0825	662	"	"	"	"	259	434	16.5	71.6	75.3	5.57
1022	662	MS-2	"	"	"	254	428	21	89.9		0.675
1908	709	"	101	"	49	254	428	21	89.9		0.845
1930	709	"	"	"	48	255	428	21.3	91.1		

- *1. normalized for feed flow rate of sweep gas to capsule (100cm³-STP/min)
- *2. ratio of observed ionization current to theoretical ionization current which corresponds to the theoretical tritium production rate (8.75μCi/sec) under full power operation of the JRR-2
- *3. calculated values for average ionization efficiency (71%),
relationship between ionization current I(A) and tritium concentration C(μCi/cm³) is expressed by the following function: C = 6.681 x 10⁸I (ionization efficiency = 100%, wvalue = 33.73eV)

continue

Time	Irradiation temperature (°C)	Flow line	He flow rate (cm ³ /min)	1%CO-He flow rate (cm ³ /min)	1%N ₂ -He flow rate (cm ³ /min)	Dry air flow rate (cm ³ /min)	Total flow rate in IC (cm ³ /min)	Ionization current meter reading x 10 ⁻⁸ (mA)	Ionization current corrected value x 10 ⁻⁸ (mA) * 1	Ionization efficiency (%)	Tritium concentration (μCi/cm ³) * 3
8020010	709	MS-2	100	25	49	258	432	24.3	115		0.978
0750	49.9	"	"	"	"	261	435	18.0	85.5		0.735
8030000	48.9	"	101	"	"	256	431	21.3	100		0.863
1011	34.4	"	100	"	"	257	431	25.5	120		1.03
1706	45.3	"	"	"	50	259	434	36	171		1.47
1754	32.6	"	"	"	"	260	435	39	185		1.60
1822	31.6	"	"	"	"	261	436	39	186		1.46
2230	481	RX	"	"	"	262	437	147	702		6.05
8040855	662	"	"	"	47	249	421	126	581	67.5	4.99
0947	663	"	"	"	48	256	429	"	591	68.8	5.09
1648	700	"	"	"	51	257	433	"	597	69.4	5.13
1735	709	"	"	"	"	258	434	"	598	69.6	5.15
1800	710	"	"	"	"	"	"	"	598	69.6	5.15
1856	709	"	"	"	"	259	435	"	600	69.7	5.16
1932	"	"	"	"	"	"	"	"	"	69.7	5.16
2003	-	"	"	"	"	"	"	"	"	69.7	5.16
2054	-	"	"	"	"	"	"	"	"	69.7	5.16
8050925	-	"	"	"	"	255	431	129	609	70.8	5.23
1145	762	RX	"	"	"	"	"	134	630	73.2	5.41
1200	762	"	"	"	"	"	"	134	630	73.2	5.41
1543	762	MS-2	"	"	"	"	"	134	630	73.2	5.41
1740	41	RX	"	"	"	256	432	53.7	253		2.18
1857	49.9	"	"	"	"	257	433	135	638	74.2	5.49
1912	51.1	"	"	"	"	"	"	121	572	66.5	4.92
1940	-	"	"	"	"	"	"	120	570	66.5	4.92
2224	51.1	"	"	"	"	"	"	120	570	66.5	4.92
8061016	52.5	"	101	"	48	259	435	120	571	66.4	4.91
1648	51.6	"	"	"	51	243	417	99	453		3.89
8081330	45.6	"	"	"	53	236	413	87.6	396		3.40
						266	445	8.82	42.9		0.369

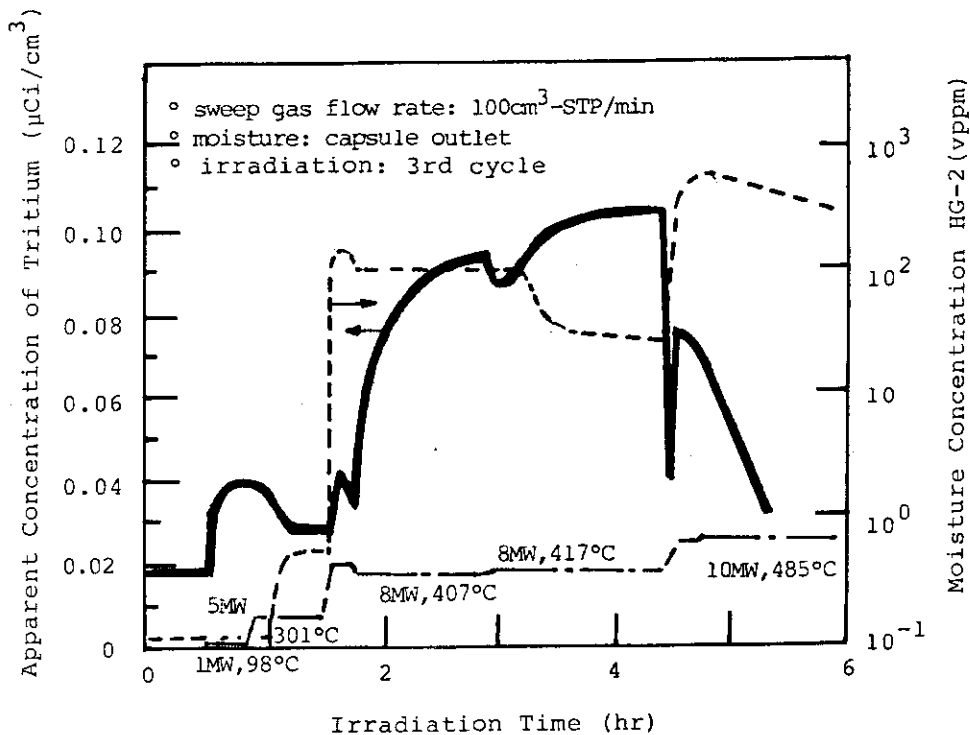


Fig.3 A Typical Moisture Effect on Tritium Gas (HT, T₂) Release at Start-up Operation of the JRR-2

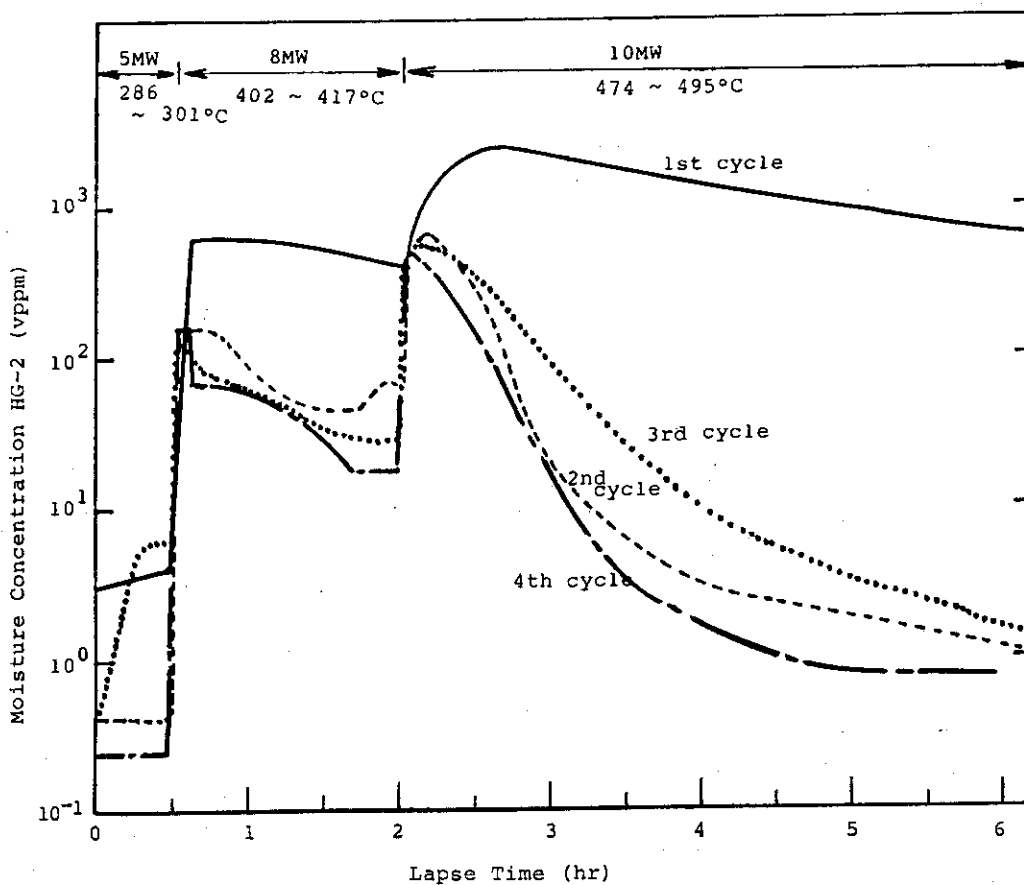


Fig.4 Comparison of the Moisture Concentrations Released at Start-up Operation in Each Cycle

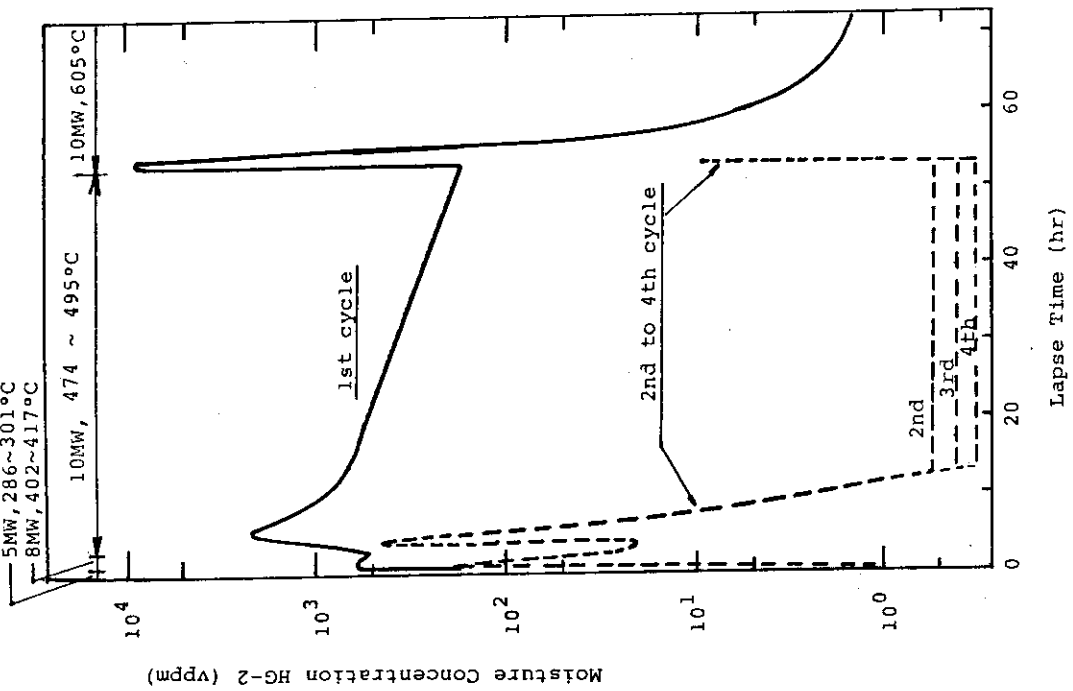


Fig. 5 Comparison of Moisture Concentrations in Each Cycle at the Early Stage of Irradiation Period

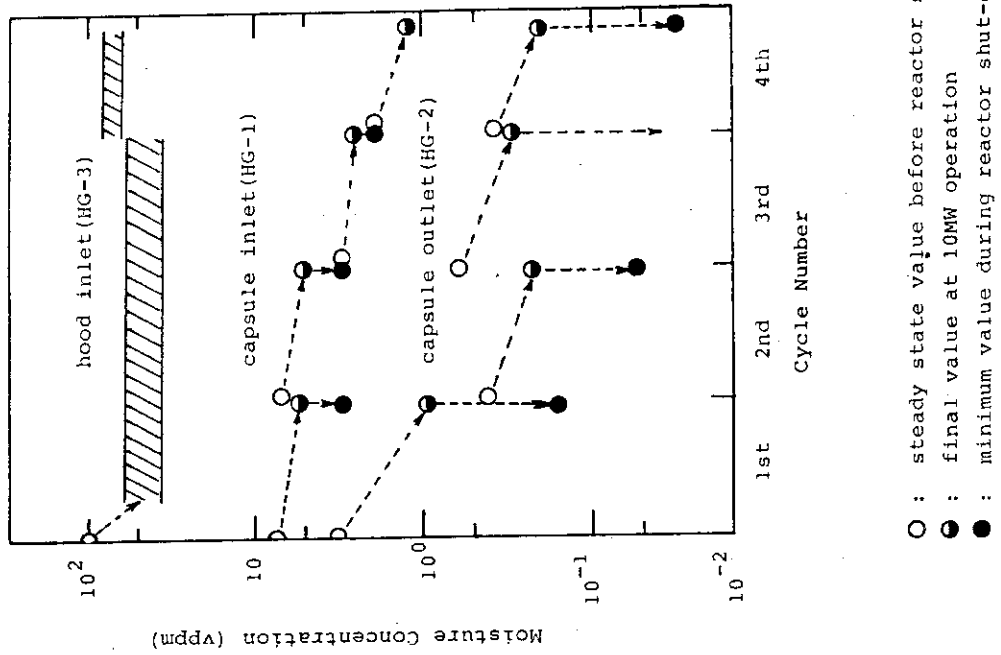


Fig. 6 Monitoring Result of Moistures at Positions in the Experimental Apparatus

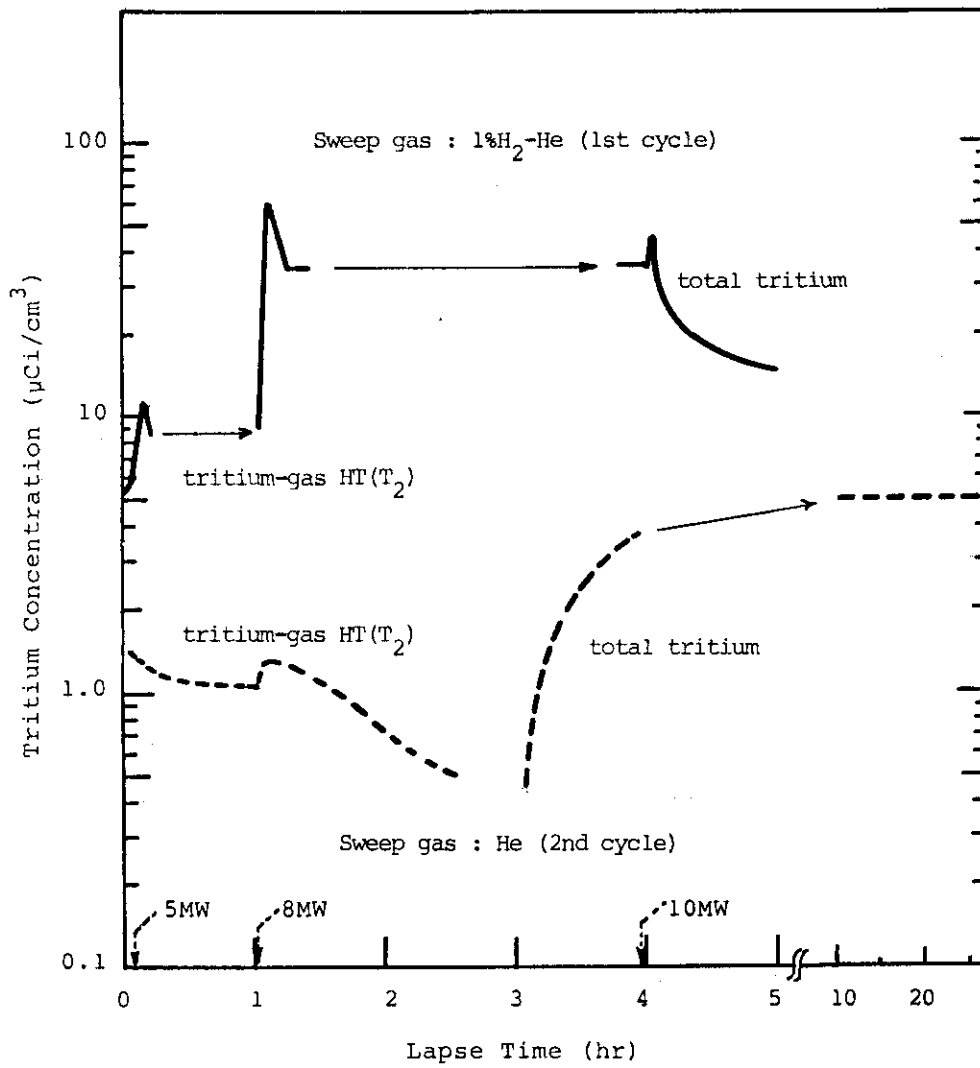


Fig.7 Effect of H_2 -gas Spiking on Tritium Release at Start-up Operation of the JRR-2

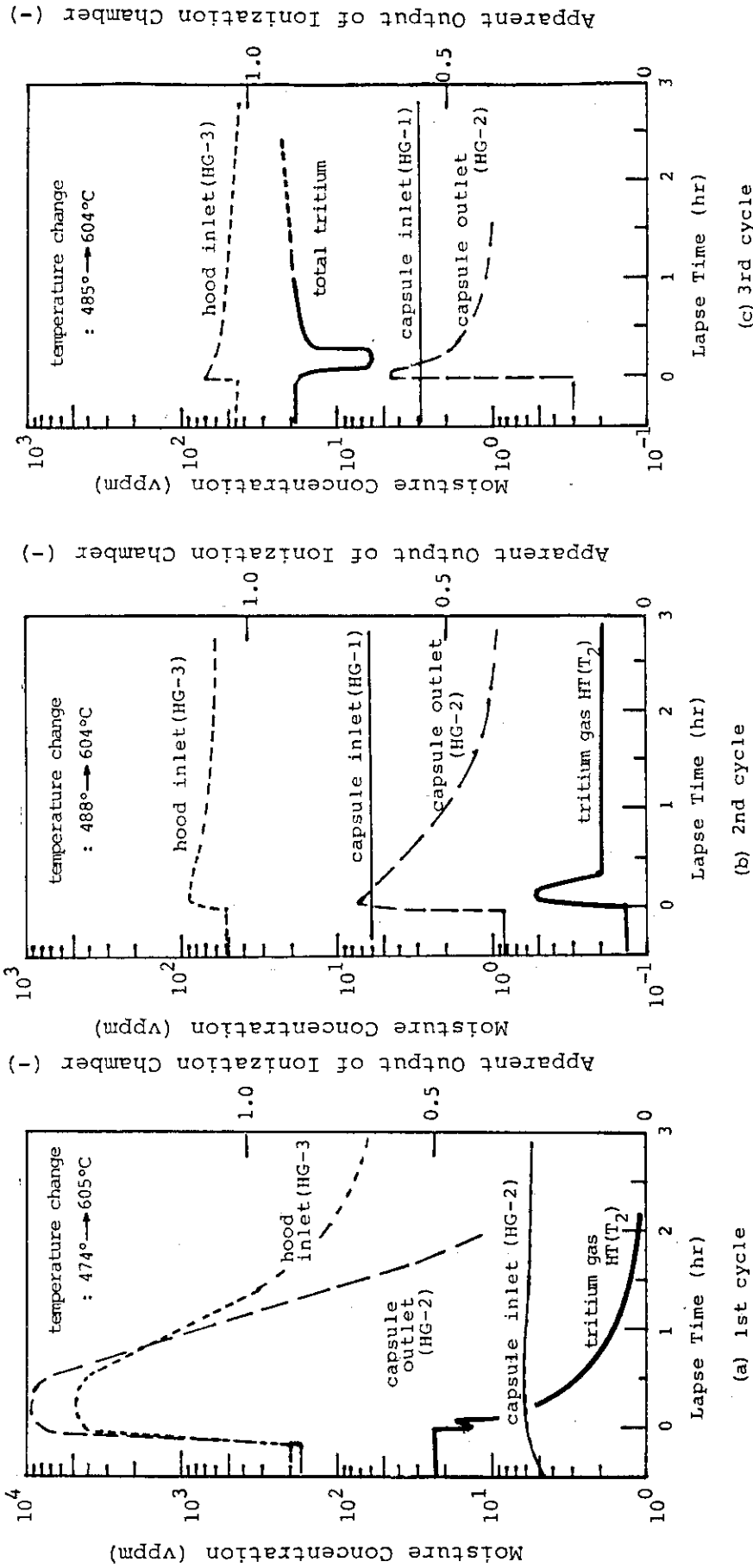


Fig.8 Typical Release Characteristics of Tritium and Moisture on Heating under Full Power Operation of the JRR-2 (1st, 2nd and 3rd cycles)

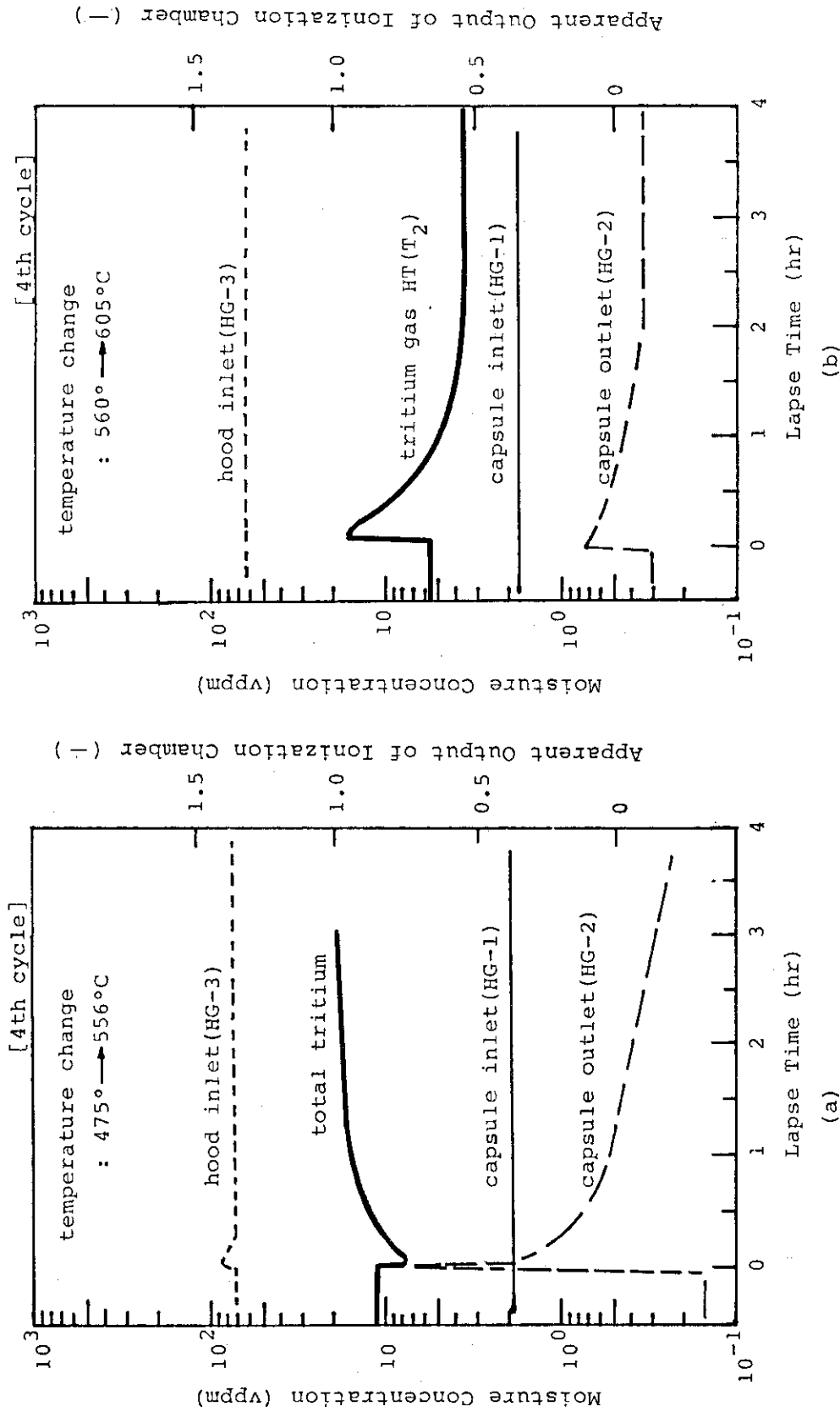
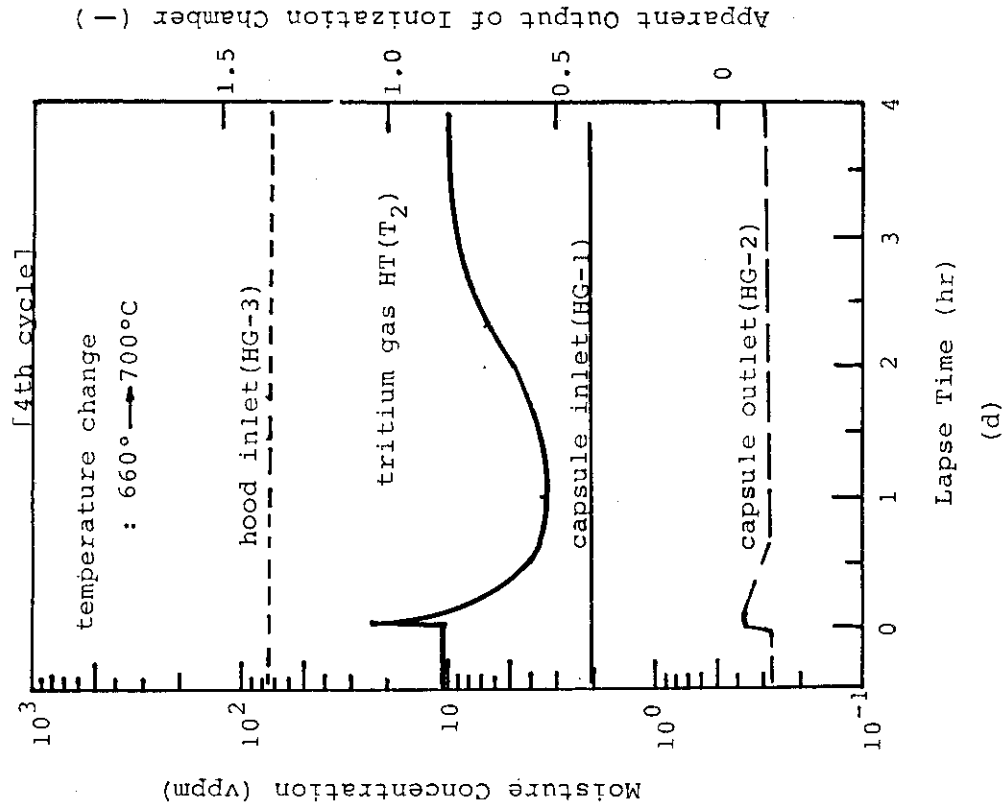
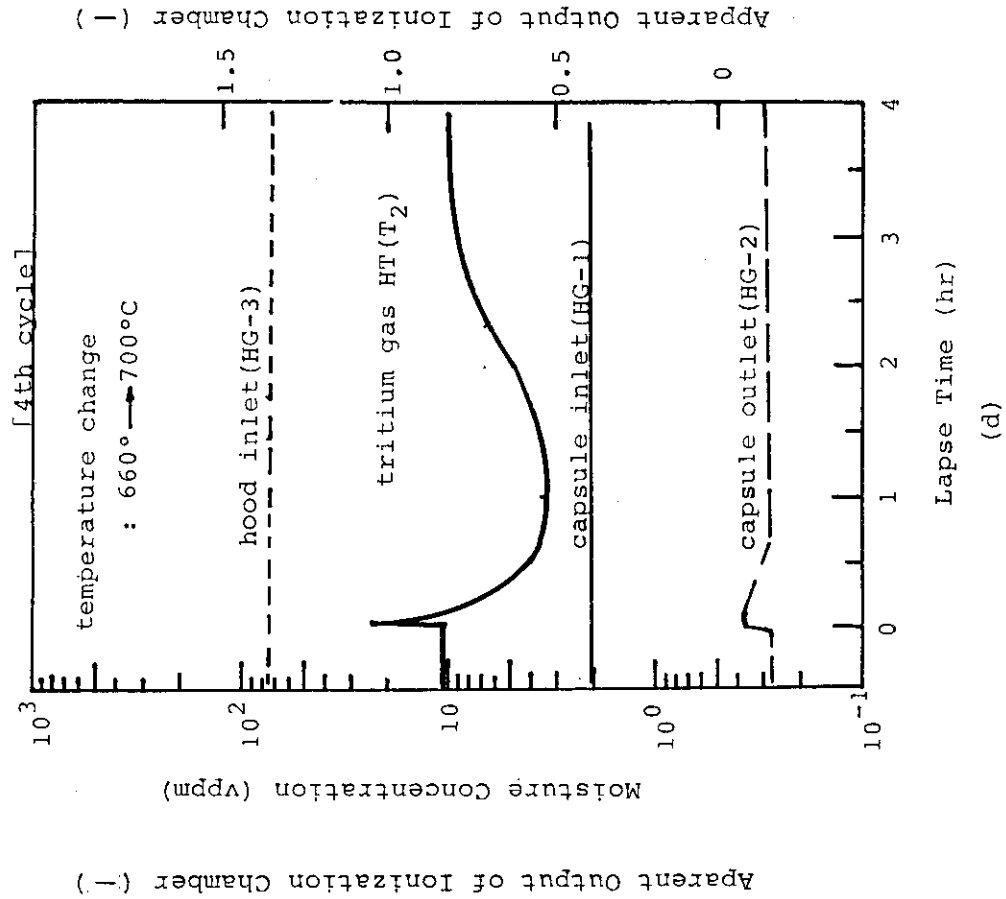


Fig.9(a,b) Tritium Release Characteristics on Heating under Full Power Operation of the JRR-2

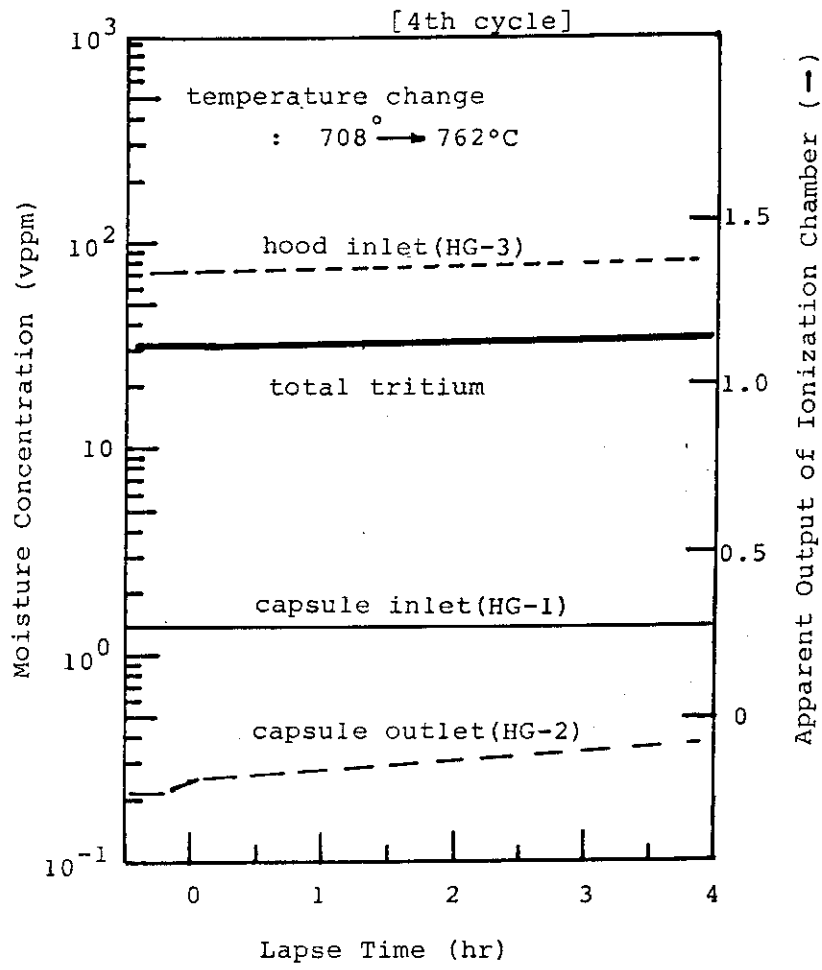


(c)



(d)

Fig.9(c,d) Tritium Release Characteristics on Heating under Full Power Operation Of the JRR-2 (4th cycle)



(e)

Fig.9(e) Tritium Release Characteristics on Heating under Full Power Operation of the JRR-2 (4th cycle)

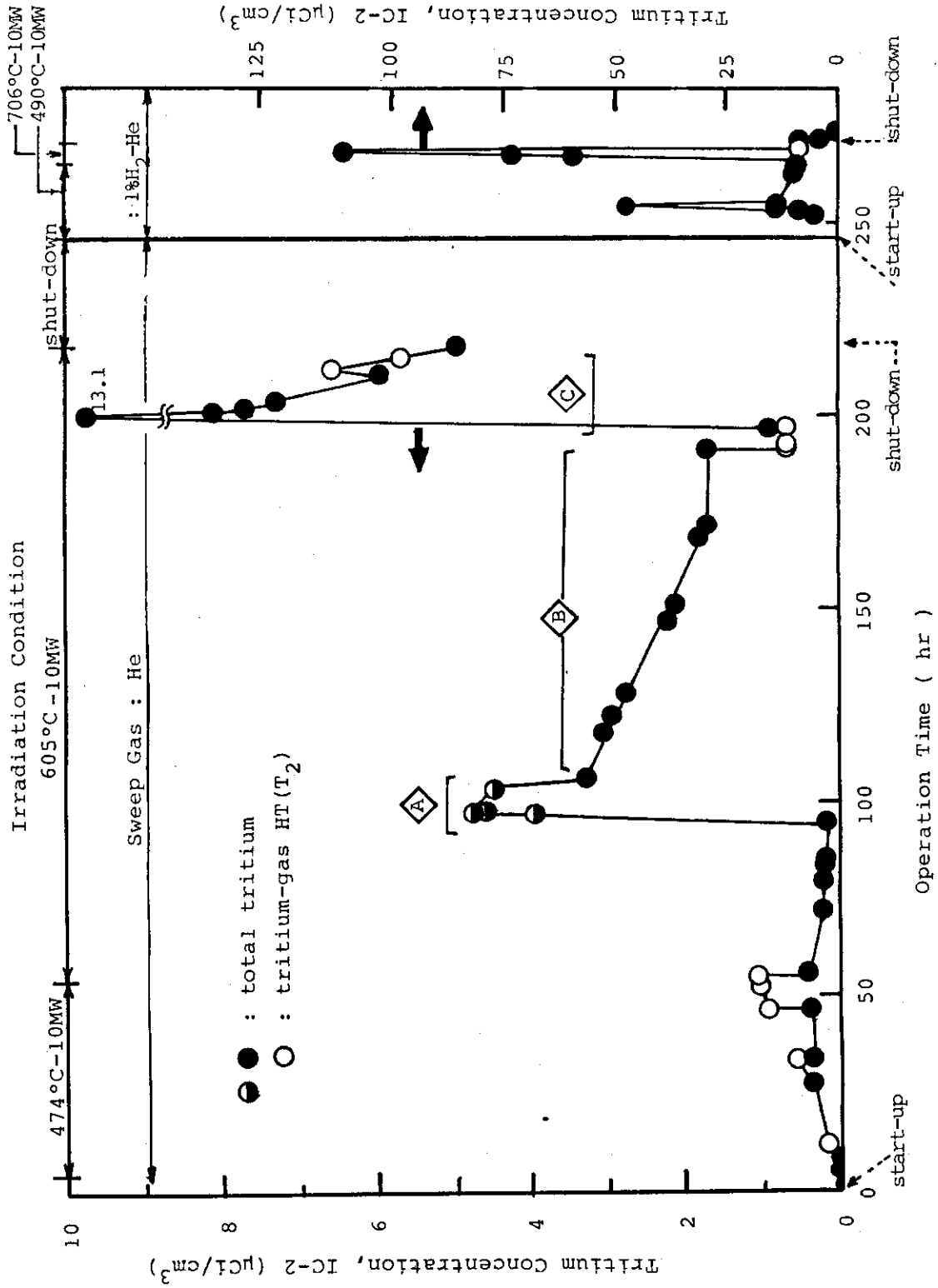


Fig.10 Tritium Release Profiles in the 1st Cycle at Constant Temperatures

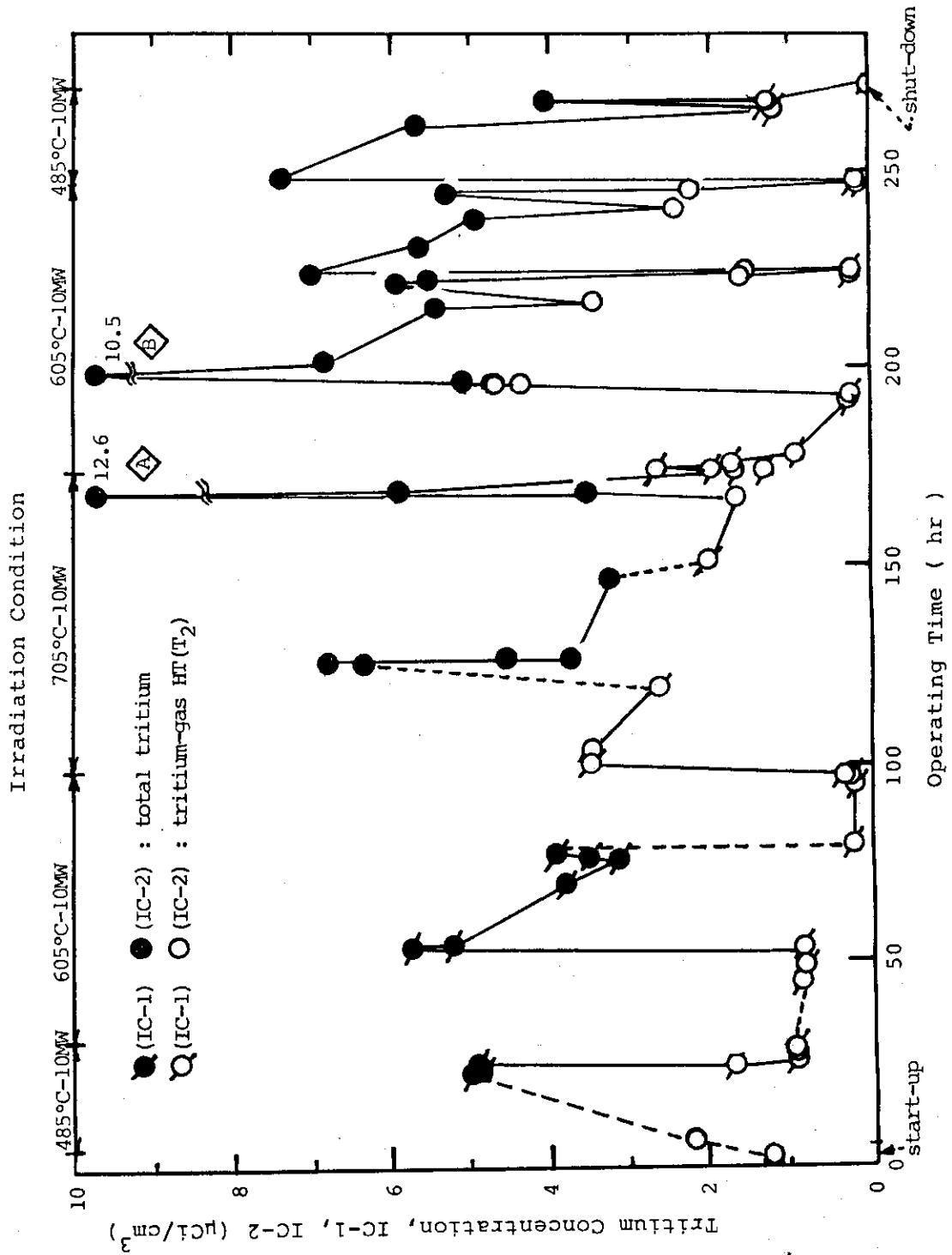


Fig.11 Tritium Release Profiles in the 2nd Cycle at Constant Temperatures

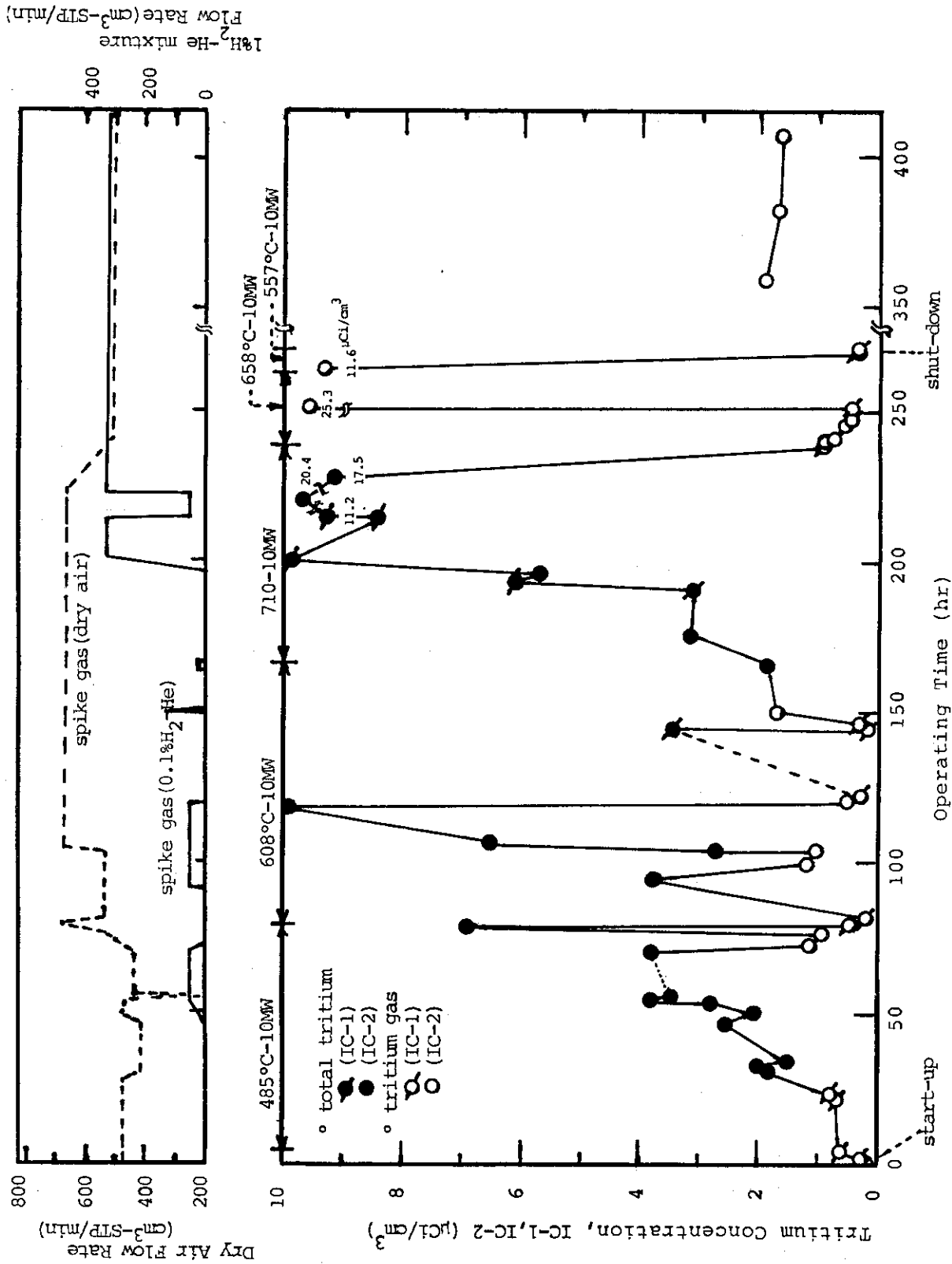


Fig.12 Tritium Release Profiles in the 3rd Cycle at Constant Temperatures

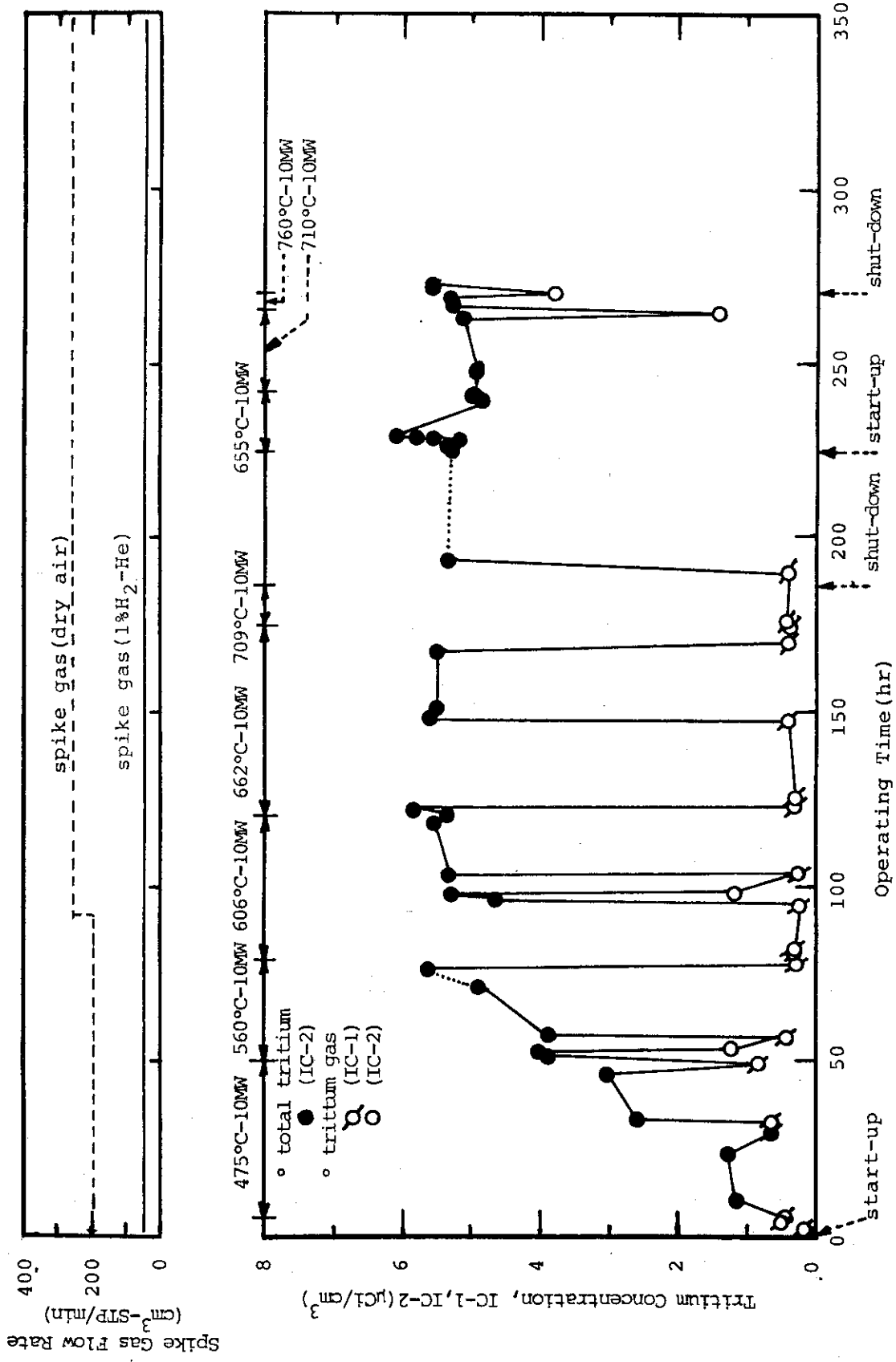


Fig.13 Tritium Release Profiles in the 4th Cycle at Constant Temperatures

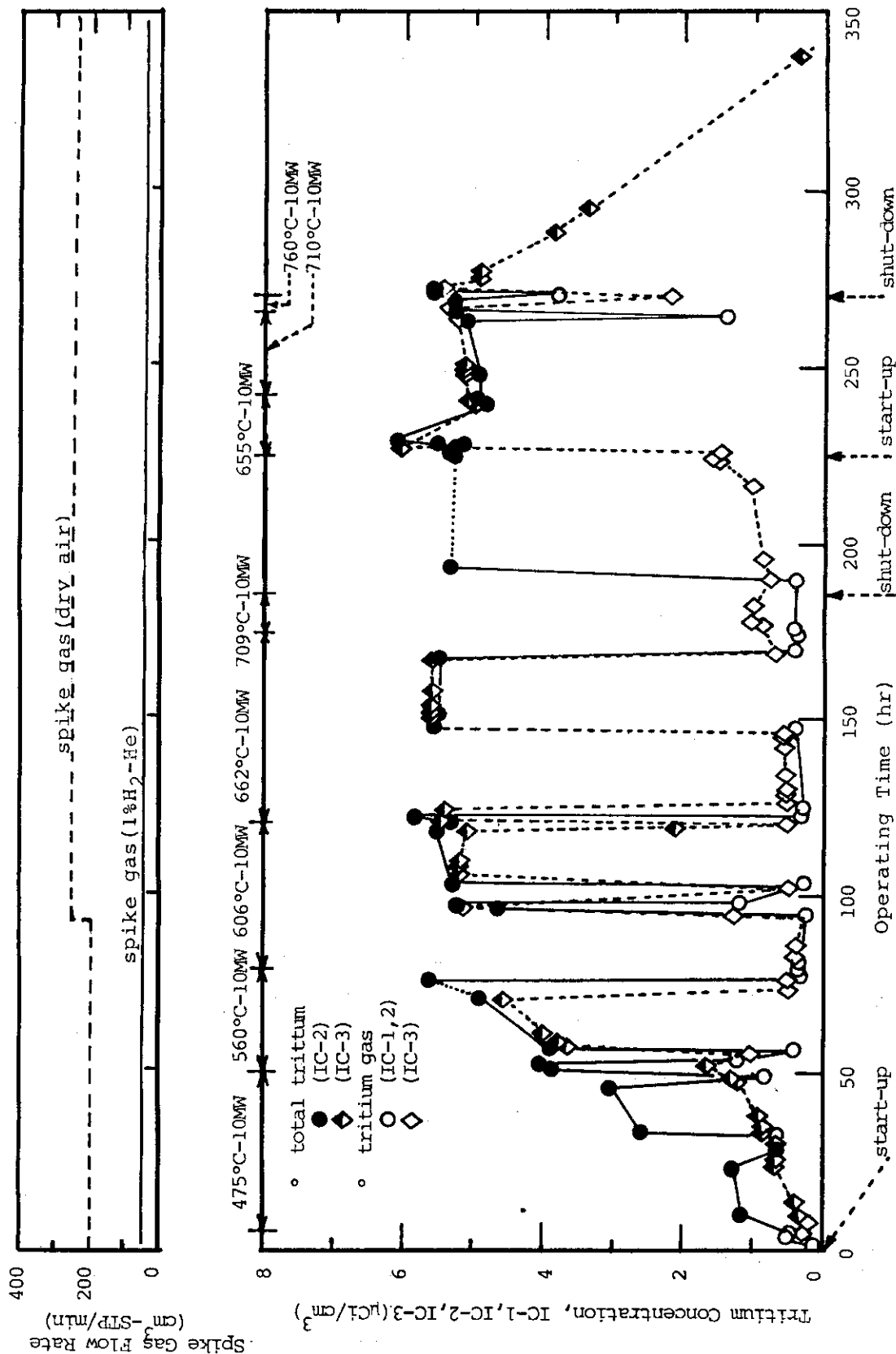


Fig.14 Comparison of the Performance of the Two Types of Ionization Chambers (IC-1,2 : ionization volume 100cm³, with bird-cage type electrode, IC-3 ; ionization volume 1500cm³, without bird-cage type electrode)

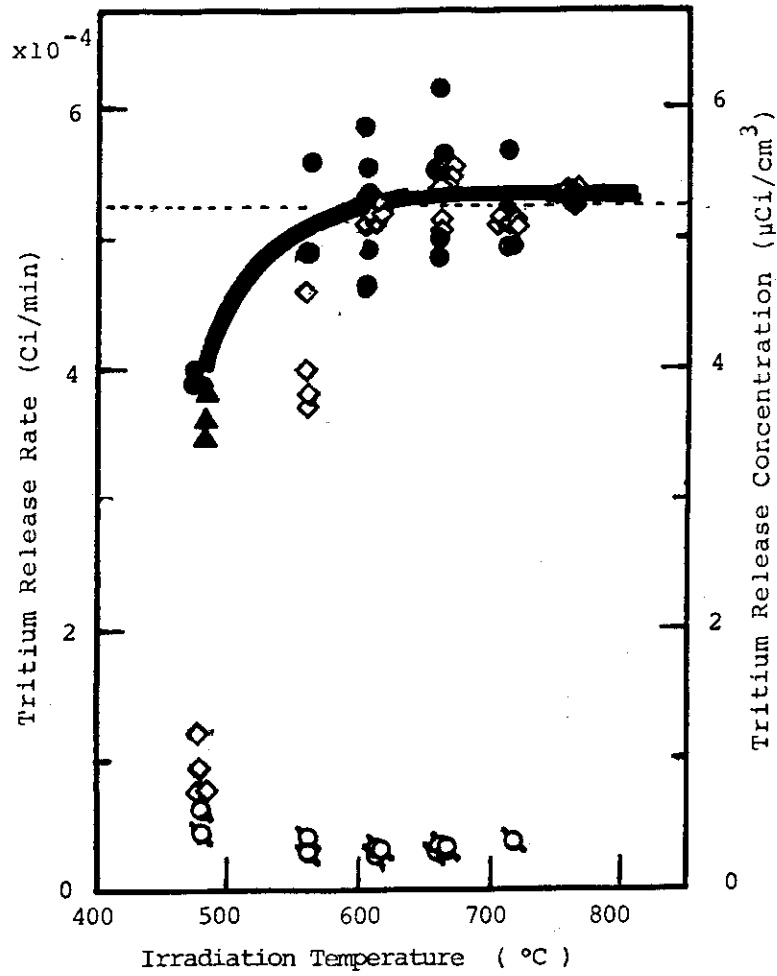


Fig.15 Temperature Dependence of Tritium Release

- : calculated tritium generation rate
- ▲ ● : total tritium measured with the Bird-cage Type of IC
- ◇ : total tritium measured with the Conventional Type of Ionization Chamber
- ⊙ : tritium-gas HT(T_2) measured with the Bird-cage Type of Ionization Chambers

4. お わ り に

本実験は、高温・高照射下におけるLi₂Oのトリチウム放出試験の第1段階として実施したものである。この実験の主要目的は次の2つである：(i) Li₂Oを用いた核融合炉ブランケットの設計及び操作条件を決定する上で必要な工学的基礎データを取得すること、(ii) 引続いて実施が予定されている一連の照射トリチウム放出試験を円滑に遂行するための試験装置（スイープガス・キャプセル、トリチウムの化学形及び濃度の連続測定システム、トリチウムの安全取扱いシステム、など）の設計を検討すること、である。このうち、スイープガス・キャプセル及びトリチウムの安全取扱いシステムに関しては既に報告した通りである。^{(16),(17)}

以下、スイープガス方式によるトリチウムの放出特性について得られた結果を要約する。

- (1) 全トリチウム（水蒸気成分HTO, T₂O及びガス成分HT, T₂の和）の放出率は、約550°C以上の照射温度範囲でLi₂Oペレットのトリチウム生成率（計算値5.25 μCi/cm³）とほぼ等しい値で平衡した。この温度（約550°C）以下における全トリチウムの放出率は、固相LiOHの熱分解温度（キャプセル内の温度分布及びLiOHの分布）並びに配管系の吸着水分の影響を受けることが分かった。
- (2) トリチウムガス成分の放出率については、温度依存性が認められなかった。
- (3) トリチウムガス成分の全トリチウムに対する比率（電離箱による測定結果）は約10%であった。しかし、この比率は配管系の吸着水分の影響を受け易いのでLi₂Oペレット固有の放出特性とは断定できない。
- (4) 実験系（キャプセル及びLi₂Oペレット、配管及び機器類、など）に混入した水分は、次のような諸過程によりトリチウムの放出特性を極めて複雑にすることが確認された。
 - (i) Li₂O(s)+H₂O(g) ⇌ 2LiOH(s, g), LiOH(s) ⇌ LiOH(g)などの平衡反応、
 - (ii) スイープガス配管などの器壁による水分の吸・脱着（吸着平衡）
 - (iii) 配管や機器表面の触媒作用によるHT(g)+H₂O(ads) ⇌ HTO(ads)+H₂(g), などの同位体交換反応（同位体平衡）。
- (5) スイープガス中に水素H₂を添加すると、次のような同位体交換反応HTO(ads, g)+H₂(g) ⇌ HT(g)+H₂O(ads, g)が起こることが確かめられた。この反応を利用すると、配管系及び器機へのトリチウムの吸着を低減化することも可能となる。

以上の実験結果よりLi₂Oペレット固有のトリチウム放出特性を測定するためには、(i) 実験系への水分の混入を防止すること、(ii) ヘリウム気流中の比較的高濃度のトリチウムを正確に測定できる電離箱を開発することが重要であることが分かった。昭和59年5月より開始されるトリチウム放出試験（VOM-21H計画）では、これらの問題点をできるだけ改善する予定である。

謝 辞

本実験は、JRR-2において実施されたものであり、JRR-2管理課、研究炉利用課及び放射線管理第2課の多くの方々との協力を得た。燃料工学部岩本多實部長、核融合研究センター

4. お わ り に

本実験は、高温・高照射下におけるLi₂Oのトリチウム放出試験の第1段階として実施したものである。この実験の主要目的は次の2つである：(i) Li₂Oを用いた核融合炉ブランケットの設計及び操作条件を決定する上で必要な工学的基礎データを取得すること、(ii) 引続いて実施が予定されている一連の照射トリチウム放出試験を円滑に遂行するための試験装置（スイープガス・キャプセル、トリチウムの化学形及び濃度の連続測定システム、トリチウムの安全取扱いシステム、など）の設計を検討すること、である。このうち、スイープガス・キャプセル及びトリチウムの安全取扱いシステムに関しては既に報告した通りである。^{(16),(17)}

以下、スイープガス方式によるトリチウムの放出特性について得られた結果を要約する。

- (1) 全トリチウム（水蒸気成分HTO, T₂O及びガス成分HT, T₂の和）の放出率は、約550°C以上の照射温度範囲でLi₂Oペレットのトリチウム生成率（計算値5.25 μCi/cm³）とほぼ等しい値で平衡した。この温度（約550°C）以下における全トリチウムの放出率は、固相LiOHの熱分解温度（キャプセル内の温度分布及びLiOHの分布）並びに配管系の吸着水分の影響を受けることが分かった。
- (2) トリチウムガス成分の放出率については、温度依存性が認められなかった。
- (3) トリチウムガス成分の全トリチウムに対する比率（電離箱による測定結果）は約10%であった。しかし、この比率は配管系の吸着水分の影響を受け易いのでLi₂Oペレット固有の放出特性とは断定できない。
- (4) 実験系（キャプセル及びLi₂Oペレット、配管及び機器類、など）に混入した水分は、次のような諸過程によりトリチウムの放出特性を極めて複雑にすることが確認された。
 - (i) Li₂O(s)+H₂O(g) ⇌ 2LiOH(s, g), LiOH(s) ⇌ LiOH(g)などの平衡反応、
 - (ii) スイープガス配管などの器壁による水分の吸・脱着（吸着平衡）
 - (iii) 配管や機器表面の触媒作用によるHT(g)+H₂O(ads) ⇌ HTO(ads)+H₂(g), などの同位体交換反応（同位体平衡）。
- (5) スイープガス中に水素H₂を添加すると、次のような同位体交換反応HTO(ads, g)+H₂(g) ⇌ HT(g)+H₂O(ads, g)が起こることが確かめられた。この反応を利用すると、配管系及び器機へのトリチウムの吸着を低減化することも可能となる。

以上の実験結果よりLi₂Oペレット固有のトリチウム放出特性を測定するためには、(i) 実験系への水分の混入を防止すること、(ii) ヘリウム気流中の比較的高濃度のトリチウムを正確に測定できる電離箱を開発することが重要であることが分かった。昭和59年5月より開始されるトリチウム放出試験（VOM-21H計画）では、これらの問題点をできるだけ改善する予定である。

謝 辞

本実験は、JRR-2において実施されたものであり、JRR-2管理課、研究炉利用課及び放射線管理第2課の多くの方々の協力を得た。燃料工学部岩本多實部長、核融合研究センター

康彦センター長，核融合研究部小幡行雄部長，トリチウム技術研究室成瀬雄二室長には種々有益な助言を頂いた。なお，燃料物性研究室の高橋正氏より照射試料の提供を受けた。

本報告書の作成にあたり，これら諸氏に謝意を表す。

文 献

1. "International Tokamak Reactor : Zero Phase", IAEA, Vienna (1980).
2. "International Tokamak Reactor : Phase One", IAEA, Vienna (1982).
3. "International Tokamak Reactor : Phase Two A, Part I, IAEA, Vienna (1983).
4. "STARFIRE-A Commercial Tokamak Power Plant Study", ANL-FPP-30-1 (1980).
5. "A Demonstration Tokamak Power Plant Study", ANL/FPP-79-1 (1979).
6. "Japanese Contribution for Session IV of INTOR Workshop Phase-II-A", JAERI-M82-175(1982).
7. R.G.Clemmer et al., "The TRIO-01 Experiment : In-Situ Tritium Recovery Results", (presented at the Third Topical Meeting on Fusion Reactor Materials, Sept. 19-22, 1983, 50 Albuquerque, NM, us)
8. G.W.Hollenberg, "Fast Neutron Irradiation Results on Li_2O , Li_4SiO_4 , Li_2ZrO_3 and LiAlO_2 ", (presented at the same meeting in reference 7).
9. Kichinosuke Harada, et al., "JAERI-TANDEM Annual Report", JAERI-M83-095, p25(1983).
10. Kenji NODA, et al., "Irradiation Effect on Lithium Oxide", (presented at the same meeting of reference 7).
11. Kenji NODA, et al., "Helium Gas Release from Helium-Ion-Irradiated Lithium Oxide", (submitted to J.Nucl. Mater.)
12. Shyoichi Nasu, et al., "Thermal Neutron Flux Distribution Inside and Outside Li_2O Pellets", J.Nucl. Mater., 88, 193(1980).
13. Shyoichi Nasu, et al., "Temperature Distribution in Li_2O Pellets under Neutron Irradiation", J.Nucl. Mater., 91, 121(1980).
14. 吉田浩, 他, "ヘリウム気流中水分の Li_2O ペレットへの吸着特性", JAERI-M82-194 (1982).
15. 渡辺斉, 他, "酸化リチウム高照射試験(1)VOM-15H計画と安全評価" JAERI-M82-136(1982).
16. 倉沢利昌, 他, "酸化リチウムの照射下リチウム放出試験-スweepガス・キャプセルの核・熱評価-", JAERI-M84-013(1984).
17. 吉田浩, 他, "酸化リチウムの照射下トリチウム放出試験-トリチウムの除去とモニタリング-", JAERI-M83-204(1983).
18. 吉田浩, 他, "トリチウム水からのトリチウム回収を目的とした触媒還元法の研究", JAERI-M82-158(1982).
19. 高橋正, 他, "酸化リチウム (Li_2O)の焼結", JAERI-M7518(1978).
20. Tadashi Takahashi, et al., "Porosity Dependence on Thermal Diffusivity and Thermal Conductivity of Lithium Oxide Li_2O from 200~900°C", J.Nucl. Mater., 91, 93(1980).
21. W.D.Bond, ORNL-3334(1962).

22. H.A.Smith, et al., J.Phys. Chem., 67, 926(1963).
23. W.M.Jones, LADC-5905(1963).
24. M.Goldblatt, J.Phys. Chem., 68, 147(1963).
25. W.F.Libby, J.Chem. Phys., 15, 339(1947).
26. J.F.Black, et al., J.Chem. Phys., 11, 395(1947).
27. R.G.Glemmer, et al., "The TRIO-01 Experiment : IN-SITU TRITIUM RECOVERY RESULTS", preprint for the Tenth Symp. on Fusion Engineering, Dec. 5-9, 1983.

付 記：高濃度トリチウムの連続測定法に関する検討

トリチウムガス濃度の実時間 (real time) 測定法としては、通気型の比例計数管^{*1}あるいは電離箱が広く用いられている。しかし、比例計数管は、測定濃度の上限が $0.1 \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ 程度であり、本研究で取扱う濃度範囲 ($0.1 \sim 10 \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$) には適用できない。一方、電離箱は、室内空気あるいはスタック排出ガス中の低濃度トリチウムのモニターとして使用される場合が多い。このため、比較的高濃度を対象としたいいわゆるプロセスモニターは十分には開発されておらず電離箱の設計法やトリチウム濃度に対する校正法なども確立されていない。これは、我が国のトリチウムの取扱い量が主としてトレーサーレベルの研究を対象にしていたことによるためである。本実験では、市販の電離箱のうち典型的な構造をもつ2種類の電離箱を使用した。これにより、ヘリウム気流中あるいは多成分気流中の比較的高濃度のトリチウムを連続的に定量測定する上での問題点 (電離箱の設計及び操作条件、電離効率、校正法など) について知見を得た。その詳細については稿を改めて報告するので、ここでは本実験の測定法に関する検討結果のみを説明する。

Table 1A は、実験に使用した2種類の通気型電離箱の概略仕様をまとめたものである。直流電位計方式の電離箱 (IC-1,2) は、中心及び外側電極の間に金メッキを施した鳥カゴ型の補完電極を設けたものであり、電離部分の容積 100cm^3 、印加電圧 340V (定格値)、公称測定範囲 $10^{-2} \sim 10^2 \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ (設計値) である。この電離箱は、流通ガスとして空気を使用するように設計されているので、スイープガス (He) 中のトリチウム濃度を測定する場合には、W値^{*2}及び β 線の飛程の違いに基づく電離効率の変化並びに電離箱の器壁等におけるトリチウムの吸・脱着の影響に関する考慮が必要である。一方、振動容量電位計方式^{*3}の電離箱 (IC-3) は、中心電極と外側電極のみから構成された単純な円筒構造となっている。両極への印加電圧は 1000V 程度まで昇圧が可能と言われる。本電離箱も空気中のトリチウムを対象として設計されているので、流通ガスのW値に対応した電離効率の校正が必要である。しかし、補完電極が設けられていないのでこの電極と器壁との間のトリチウムの流出入は考慮しなくてよい。

以上のような問題点を解決するために、本実験ではトリチウム測定部 (Fig. 1) において、次のような幾つかの改良を試みた。

(1) 水蒸気の混入防止

配管、バルブ、電離箱などの内表面に吸着・凝縮した水蒸気 H_2O 、HTO (T_2O) は、スイープガス中のトリチウム HT (T_2) 濃度の測定精度を低下させる。

本実験では、モレキュラーシーブ塔 MS-1 通じたヘリウムガスをあらかじめ実験系内に通気し、系内の水分を除去した。また実験中に系内に添加されるガス ($0.1\% \text{H}_2$ -He 混合ガス、乾燥空気) は、それぞれの乾燥塔 (モレキュラーシーブ塔) を経て供給した。さらにトリチ

*1 容積 30cm^3 の計数管の測定範囲: $3 \times 10^{-4} \sim 3 \times 10^{-1} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$

*2 1 イオン対を形成するのに要する平均エネルギー

*3 微弱な直流電流を振動的に直流⇔交流変換させて増幅する方式

ウム測定部は、 Li_2O ペレットから放出された水蒸気成分HTO(T_2O)が電離箱に流入しないようなプロセスを選定している。

(ii) 0.1% H_2 -He 混合ガスの添加

配管系の器壁や触媒(触媒還元塔RX)においてトリチウムガスHT(T_2)が吸脱着することが考えられる。トリチウムガス濃度を正確に測定するためにはこれを定量的に把握しなければならない。しかし、本実験の場合のようにガスが連続して流れているいわゆる流通系における吸・脱着は、ガスの流速や温度、器壁の表面状態などに影響されるために複雑な現象となる。そこで、こゝでは水素ガス(H_2)を添加することによってトリチウムの吸着を低減化し脱着を促進することを試みた。その結果をFig. 1Aに示す。こゝで電離箱はIC-1を用い、スパイクガスには0.1% H_2 -He混合ガスを使用した。これより、スパイクガス流量が12~16 cm^3 (STP)/min程度の場合には濃度の定常値を得るのに長時間を要すること、50~300 cm^3 (STP)/minの範囲では電離箱内のガス流量と濃度との相関が得られかつ応答速度も数分以内となることが分かる。しかし、過剰なスパイクガスは後段に設置したトリチウム除去装置のモレキュラーシーブ塔の寿命(破過時間)を短縮するので注意を要する。

(iii) 乾燥空気の添加

トリチウムの崩壊による β^- 線(最大エネルギー18.5 keV)の空気及びヘリウム中での飛程はそれぞれ5.8mm, 4.2mmである。従って、補完電極と外側電極との間隙の小さい電離箱(IC-1,2の間隙6mm)によりヘリウム中のトリチウムを測定する場合には、器壁(外側電極)に吸着しているトリチウムの影響を受ける。さらに、補完電極内の電離に使われる実効容積も変化することも考えられる。そこで本実験では、乾燥空気を添加することによってこれらの問題の解決を図った。

以上、2種類のスパイクガスの効果は、第3、第4サイクルにおけるトリチウム放出特性の測定結果(Fig. 13~15)に見た通りである。なお、在来型電離箱IC-3については β^- 線のエネルギーと電離効率の相関データが報告されている。本実験から求めた濃度1~10 $\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ のトリチウムに対する電離効率をFig. 2Aに示す。

(iv) バックグラウンドの測定

電離箱の器壁がトリチウムによって汚染される現象を防ぐことは、厳密に言えば不可能である。そこで本実験では、実時間測定時の電離箱のバックグラウンドを推定する方法の検討を試みた。この測定を行うためのガス流路の構成例をFig. 3Aに示す。即ち、トリチウムを含むスイープガスをバイパスして乾燥空気のみを電離箱に通気するとFig. 4Aに示すようなトリチウム濃度の減衰曲線が得られる。図中、時間0~60秒の減衰は電離箱内に気体として存在していたトリチウムが空気により希釈されていく過程を表わしている。一方、60秒以後の極めて緩やかな減衰は器壁からのトリチウムの脱着が起こっていること示している。この濃度変化を時間0秒に外挿すれば実時間測定時のバックグラウンドを推定することができる。図示した実験例では、器壁から脱離するトリチウムの寄与分は約0.5 $\mu\text{Ci}/\text{cm}^3$ と見積られる。

Table 1A Specifications of Commercial Ionization Chambers

Type	Object	Specifications
Electrometer	HT(T ₂) gas HTO(T ₂ O) vapor	<ul style="list-style-type: none"> ◦ air flow type ion-chamber with bird-cage electrode ◦ dimensions of bird-cage : 4.46cm^{ID} x 6.34cm^H (100cm³) ◦ dimensions of housing(external electrode) : 5.65cm^{ID} x 6.94cm^H ◦ measuring range : 10⁻² ~ 10² μCi/cm³
Vibrating reed electrometer	HT(T ₂) gas HTO(T ₂ O) vapor	<ul style="list-style-type: none"> ◦ gas flow type ion-chamber without bird-cage electrode ◦ effective volume : 1500cm³ ± 10% ◦ minimum detection current : 1.5 x 10⁻¹⁶A ◦ input resistance(ohm) : 10¹², 10¹⁰, 10⁸, 10⁶ ◦ input voltage : 90 ~ 180volt

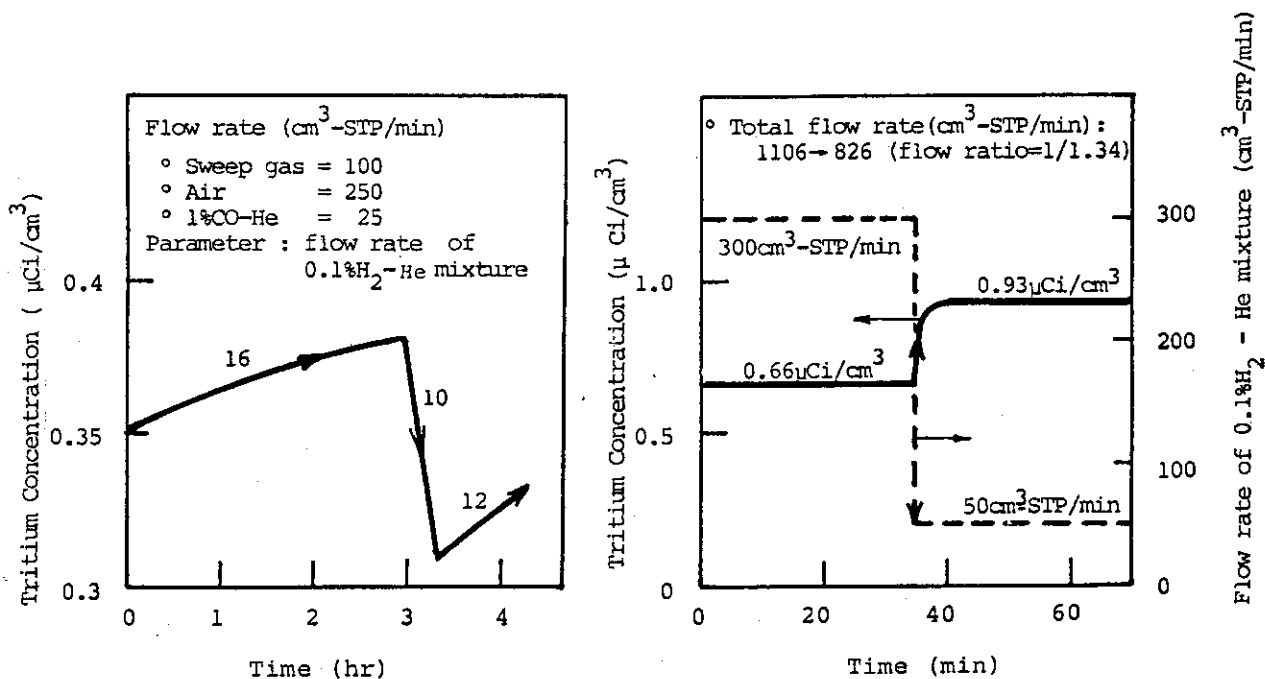


Fig.1A Effect of Spike-gas(0.1%H₂-He) on Tritium Measurement with Ionization Chambers(IC-1,2 with the bird-cage type electrode)

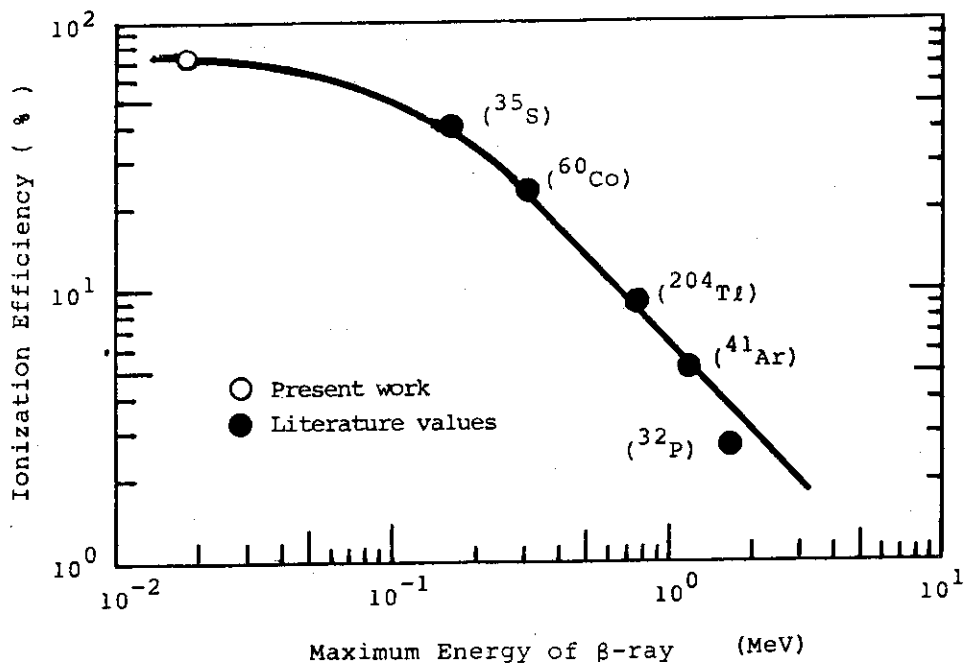
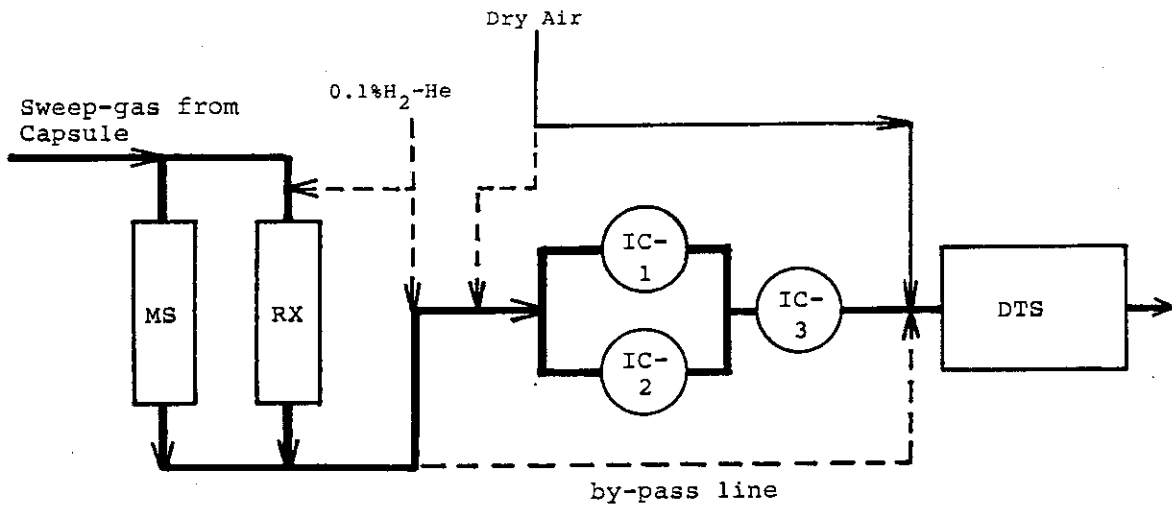


Fig.2A Ionization Efficiency of A Ionization Chamber(IC-3)



MS : Molecular Sieve Bed , DTS : Detritiation System
 RX : Catalytic Reduction Bed

Fig.3A Improvement for Real Time Measurement of Tritium Gas Stream in the VOM-15H Experiment

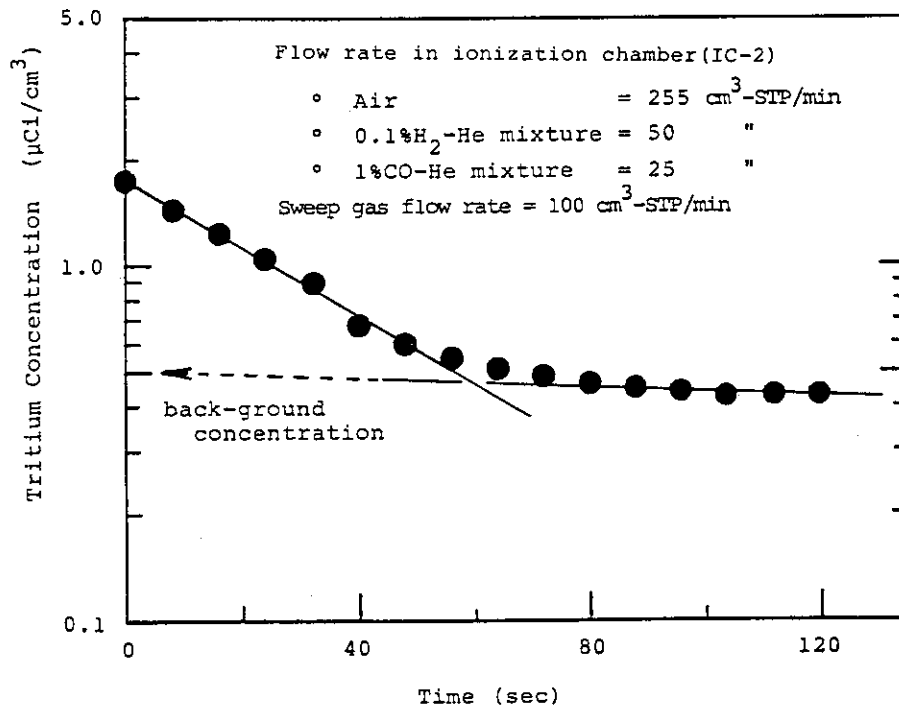


Fig.4A Measurement of Background Tritium in the Ionization Chambers with the Bird-cage Type Electrode (IC-1,2)