

**News Letter No.10,
November 24, 2009**

ニュースレター第10号をお届けします。
 C班の活動状況を集めています。



目次

1. はじめに	領域代表	田辺 哲朗	p.1
2. C班の研究活動の目標と概要	調整班C代表	山西敏彦	p.3
3. 2009年度のC班の活動			p.4
4. C班の研究紹介			p.7
5. C班の今年度の活動			p.17

1. はじめに — C班に期待する —

領域代表 田辺 哲朗

「木を見て森を見ず」は有名なことわざですが、トリチウムを見る場合には、「何をみているのか、山なのか、森なのか、木なのか、下草なのか、菌なのか、はたまた？」を念頭に置く必要があります。その心は、取り扱うトリチウムの量が、それと必ず同時に存在する軽水素やその他の水素を含む不純物量に比べてどの程度か、あるいは、取り扱うトリチウムそのものの絶対量がどの程度なのかということです。表面に存在する水素量同位体量と、バルクに存在する水素同位体量との関係も同様です。今仮に、表面に1 mono-layerの水素が吸着していたとすると、 $10^{15}/\text{cm}^2$ 程度、さらに10nm程度の深さまで基質原子と1:1で存在したとすると、その30倍程度、即ち最大 10^{17} 程度の水素同位体が表面近傍に局在し得ることになります。一方バルク内の水素は、1ppmだと、 $10^{16} \cdot 10^{17}/\text{cm}^3$ 程度になります。(単位面積あたり、単位体積当たりの単位の違いにご注意下さい。)

ですから、表面に局在したトリチウムは、トリチウム山(あまり大きな山にはなり得ませんが)そのものであることも、水素山の森、木あるいは下草であることも、あるいは、はげ山のトリチウム草であることも、などなど、どのような状態での存在でもあり得ます。私たちは、トリチウムに集中するあまり、このことを忘れがちです。常に扱っているトリチウムの全量、あるいはその局所での存在絶対量を、共存する軽水素やその他の水素を含むまたは水素と反応する不純物の絶対量と比較しつつ、把握し研究を進めていく必要があるのです。水素山の中でトリチウム草を探すの(あるいはその果たす役割)と、はげ山の中でトリチウム草を探すの(あるいはその果たす役割)とは、全く異なります。また水素山の中でトリチウム菌を探すのも、それらとはまた異なっているでしょう。

一方、多量のトリチウム、特にトリチウム水（トリチウムが比較的高濃度で含まれた水）を扱う時の汚染が問題となることからよく分かるように、制御出来ない、または計量管理の際の誤差以下の、トリチウムが必ず存在し、その取り扱い、まさに黴菌を取り扱うが如く、極めて厄介です。特に高濃度トリチウム水を扱う場合は、水の蒸気圧があまり低くないため、トリチウム水蒸気がまさにありとあらゆる所へ飛んで行ってしまいます。そこで水として凝縮してしまうと、際限なくトリチウムが運ばれ、汚染が拡大または増大してしまいます。余談かもしれませんが、高濃度のトリチウム水を使った実験は、すぐに汚染（放射線の取り扱い規則上）につながるため、やりたく無いというのが本音です。だからこそ高濃度トリチウムを実際に使用した実験や経験が必要なのです。だからといって、炉内インベントリーの研究に超超超高濃度あるいは純粋なトリチウムの使用が必要かというところでもないのです。炉内トリチウムインベントリーの評価の研究が、水素同位体でも可能と考えられるのは、水素山の挙動さえ見ておれば良いからです。水素山から多少の土砂やトリチウム草の種が流れて出ても山は揺るぎません。

一方、トリチウム山や林のもつ放射線エネルギーが環境に与える影響は、あまり明瞭にはされておられません。今回、本ニュースレターで報告される C 班のトリチウム水による腐食電位の測定は、(まさに、上に述べた周囲環境への汚染を考えると、誰もやりたくない実験のひとつです。)、あまり多量とは言えない 0.23GBq/cc のトリチウム水ですら、アノード分極特性に大きな影響を与えることを明瞭に示しています。ただし、これを持って、さらに高濃度トリチウム水でどうなるかを予測することは、未だ出来ません。トリチウムの存在が、酸化性に働くか、還元性に働くかは、今のところ、明確にはなっていません。これまでの経験では、環境やトリチウム濃度によって大いに異なっているようで、学術的にはとても整理出来ている状態ではありません。制御された条件下でのさらなる研究が必要です。

透過防止膜に見通しが得られたのは、C 班の成果のひとつですが、それが、トリチウム山を覆う広大なテントなのか、目の荒いあるいは細かい網なのか、そしてそれはすぐ破れないのか、はたまた、それへの放射線エネルギー照射効果はどうなのか、興味は尽きぬ所です。

世の中、新しい発見といえども、いままでの我々の知識（物理や化学の法則）から全く離れた現象は、そうそう有りません。研究の結果は、それを過去の知識に照らし合わせてみると、なるほどと思うことが大半です。しかし、そこに意味があるのです。山を見ているのか、森をみているのか、木を見ているのか、下草をみているのか、はたまた菌をみているのかを、その時の天気、あるいは周囲環境の状況、と共に把握し、現象を整理し、定量的に説明あるいは予測可能にすること、これが重要です。

学術として求められているのは、必ずしも、今までに無かった新しい物理や化学ではありません。(見つければ、それはそれで大変結構なことですが) 我々がなすべきは、現象を定量的に論述できるようにすること、定量的な外挿を可能にすること、です。これにより、初めて、後生に残る仕事をしたこととなります。

昨今は、基礎データ取得のための仕事が、単に拡散係数を求めるだけ、あるいは単に熱力学データをそろえるだけなどと、蔑まされて？おそろかにされがちです。しかし高濃度トリチウム(含む水素同位体)に関しては、基礎データが必要です。トリチウムのβ線とその重い質量が担っている役割を明確にした基礎データの取得が必要です。その意味で C 班の役割は極めて重要であり、期待するところ大であります。

2. C班の研究活動の目的と概要

調整班C代表 山西 敏彦

核融合炉から排出された He 灰等を含む燃料ガスは、燃料循環系で処理された後再注入されます。この燃料循環系は、真空排気、精製捕集、水素同位体分離、燃料貯蔵及び供給の基本システムがつながったものです。これにブランケットで生成したトリチウムを回収する系統（増殖トリチウム回収システム）が繋がれて核融合炉の燃料循環系が完成します。トリチウムの特定領域では、A班が真空容器内トリチウムの挙動を、B班がブランケットでのトリチウム挙動を担当しており、C班はそれ以外の多様なシステムを対象とし、特に、炉外、環境とのインターフェイスを持つことから、トリチウムの閉じ込めがキーワードとなります。核融合炉で 100 万 kW の電気出力を得るためには、発熱量と電気のエネルギー変換効率を 1/3 と仮定すると、1日 400 g のトリチウムの核融合反応による燃焼が必要です。プラズマ容器における燃焼率(供給燃料のうちプラズマ装置内平均滞留時間内に燃焼する燃料の割合)としてトカマク型核融合炉で考えられている 4%を使用すると、プラズマ容器へは 1日あたり 10 k g のトリチウム供給流量が必要です。作業従事者被曝および核融合炉周辺環境のトリチウム排出を防止するためには、この 10 k g/日で循環する膨大な量のトリチウムを適切に閉じ込めなければいけません。

核融合炉においてトリチウムを閉じ込めるためには、トリチウムを取り扱う機器、配管等が十分な構造強度や気密性をもつこと、万一の漏洩事象発生を仮定してもその回収ができること、トリチウム透過・漏洩を制御し汚染防止を図ることが重要です。また核融合炉では、特に冷却水系へトリチウムが透過した場合等、大量のトリチウム水発生を招いてしまいます。このトリチウム水を、トリチウム濃度を十分に管理した上で排出する機能的なトリチウム閉じ込めも重要です。

これら研究の必要性を元に、C班では、2つの計画研究班を構成し、基礎研究を進めています。C01班では、「高濃度トリチウム水及び有機物の化学的現象の解明」を目的とし、下記の課題に取り組んでいます。

- 1) トリチウム水及び有機トリチウムが物理的閉じこめ障壁に与える影響の解明：トリチウム水及び有機トリチウムの放射化学的反応による生成物の特定、その反応生成物（過酸化物等）による閉じ込め障壁に対する腐食、浸透現象の解明。
- 2) トリチウム水及び有機トリチウムの機能的閉じこめの研究：トリチウム水及び有機トリチウムのセラミック、触媒での反応の速度の測定、反応速度に影響を与える因子の特定

C02班では、核融合炉システムから作業環境および一般環境へのトリチウム漏洩を制御するための学術的基盤を構築し、ITERおよび原型炉における作業者の内部被曝の抑制、および原型炉建設に対する社会的受容性の確保に資することを目的とします。トリチウムの漏洩経路としては、(1) 運転時における高温配管中の透過、(2) システム開放時や炉外取出し時における汚染材料からの放出・移行、などが考えられます。よって、系外へのトリチウム移行を理解・制御する上で特に重要な、下記の研究を進めています。

- 1) 高温材料中のトリチウム透過抑制技術の開発
- 2) 高濃度にトリチウム汚染された材料からのトリチウム放出・移行速度および化学形と、これらに及ぼす雰囲気の影響の定量的評価と放射線効果を含めた機構解明
- 3) 材料の汚染防止技術および除染技術の開発

以下に、2009年度のC班の活動を纏めました。忌憚ない御意見をいただければ幸いです。

3. 2009年度のC班の活動

今年度C班では、公募研究者や他班の研究者にも参加を呼びかけ、研究打ち合わせのためのワークショップを3回開催すると共に、9月には国際ワークショップおよび日本原子力学会2009年秋の大会におけるシリーズ発表を開催しました。以下に、その概要を記します。

I. 核融合炉材料のトリチウム除染に関するワークショップ

C班計画研究および公募研究のメンバーが集まり、除染技術全般についてのオーバービューを再確認すると共に、これまでまでの研究成果と今後の研究計画、共同研究に提供することができる実験装置などについて研究打ち合わせを行いました。

日時：2008年4月23日(木) 13:00-16:00

場所：富山大学水素同位体科学研究センター

プログラム：(1) C02班における除染研究の概要(富山大学 波多野雄治)

(2) 静岡大学におけるトリチウム除染研究(静岡大学 大矢恭久)

(3) 東京大学田中研究室におけるトリチウム除染研究(東京大学 小田卓司)

(4) 金属材料表面のトリチウム汚染に及ぼす材料内部に溶解したトリチウムの影響
(九州大学 大塚哲平)

(5) 吸着した水素の光脱離—非専門家の立場から(富山大学 小林かおり)

(6) 材料表面におけるトリチウムの挙動及び効率的な除染方法に関する研究
(JAEA 小林和容)

II. トリチウム透過量評価と透過防止技術に関するワークショップ

A、B、C班の幅広いメンバーが集まり、核融合炉プラズマ対向壁、ブランケットおよび回収系におけるトリチウム移行に関する研究成果を報告すると共に、今後の研究の方向性について議論しました。

日時：2009年5月30日(土) 9:00 ~ 17:00

場所：東京大学工学部12号館 2階 219および211号会議室

プログラム：(1) 領域代表 挨拶(九州大学 田辺哲朗)

(2) 水素透過における、水素の取り込み速度、溶解度、拡散係数、捕獲(表面及び内部)の役割について(九州大学 田辺哲朗)

(3) 表面不純物(酸化物)への水素の捕獲とその透過への影響(九州大学 大塚哲平)

(4) D retention in W exposed to low-energy, high flux pure and helium-seeded D plasmas
(JAEA Vladimir Alimov)

(5) 黒鉛中水素挙動の中性子照射効果(近畿大学 渥美寿雄)

(6) QUESTにおける水素透過実験と壁排気と壁放出に関わる臨界圧力について
(京都大学 高木郁二)

- (7) ブランケットシステムのトリチウムバランスに与える透過損失の影響とその対策の検討 (九州大学 西川正史)
- (8) トリチウム透過抑制のための回収装置と連結した液体膜の提案
(九州大学 深田 智)
- (9) 熔融塩からの水素・熱同時回収試験計画と進捗状況 (NIFS 長坂琢也)
- (10) ポテンシャル曲線に基づく透過防止膜の性能評価 (東京大学 小田卓司)
- (11) 湿式法によるトリチウム透過防止膜形成 (富山大学 波多野雄治)
- (12) フェライト鋼からのトリチウム透過抑制の試み (JAEA 中村博文)
- (13) 熔融塩からの水素・熱同時回収試験における大面積被覆開発 (NIFS 田中照也)
- (14) リチウムブランケットシステムにおけるトリチウムの透過漏洩と酸化エルビウムによる防止 (東京大学 寺井隆幸)

III. C 班研究打ち合わせ会

中間年度にあたることから C 班メンバーが集まり、これまでの成果を確認・整理すると共に、後半の研究計画について議論しました。成果発表に対する時間を最小限にとどめ、討論に時間の大半を割きました。

日時：2009年8月4日(火) 13:00 ~ 17:30

場所：独立行政法人日本原子力研究開発機構 システム計算科学センター

- プログラム：(1) C01 班の前半における成果のまとめと後半の計画 (JAEA 山西敏彦)
- (2) C01 班の成果および今後の研究計画に関する討論
 - (3) C02 班の前半における成果のまとめと後半の計画 (富山大学 波多野雄治)
 - (4) C02 班の成果および今後の研究計画に関する討論
 - (5) C 班全体としての成果の統合および今後の研究計画に関する討論
 - (6) 公募研究との協力体制に関する討論

IV. Fourth International Workshop on Tritium on Tritium-Material Interactions (共催)

国内はもとより、米国、ドイツ、中国からトリチウム研究者が集まり、トリチウム取扱施設の現状を確認すると共に、第一壁やブランケットにおけるトリチウムの挙動、透過防止技術、トリチウム回収技術、計測技術などについての研究発表や討論を行いました。博士課程の学生など、若手研究者からの発表が多数ありました。

日時：2009年9月14日(月) ~ 9月15日(火)

場所：富山大学水素同位体科学研究センター

プログラム :

Session 1

- (1) Overview of Tritium Research Activities in Hydrogen Isotope Research Center (HRC) (M. Matsuyama, U. Toyama)
- (2) An Overview of Research Activities on Tritium-Material Interactions at the INL Safety, Tritium and Applied Research Facility (Invited) (P. Calderoni, INL)
- (3) The Relative Study on Tritium Material Interactions in CIAE (H. Yang, CIAE)
- (4) Tritium Behavior in Liquid Breeding Materials (T. Terai, U. Tokyo)
- (5) Modeling of Hydrogen Diffusion in Lithium Lead (D. Masuyama, U. Tokyo)
- (6) Modeling of Tritium Diffusion in Solid Breeding Materials (T. Oda, U. Tokyo)

Session 2

- (1) Tritium Control for a High Temperature Blanket (Invited) (D. -K. Sze, UCSD)
- (2) The Formation and Pb-Li Compatibility of Alumina Grown on Aluminide Coatings (B. Pint, ORNL)
- (3) Deuterium Permeation Mechanism in Erbium Oxide Coatings for Tritium Permeation Barrier (T. Chikada, U. Tokyo)
- (4) Functions of Sealing and Densification Processes for Preparation of Tritium Permeation Barriers by Wet-chemical Methods (K. Zhang, U. Toyama)

Session 3

- (1) Application of Palladium Coating on Group 5 Metals for Vacuum Permeator – Problems and Possible Solutions- (T. Nozaki, U. Toyama)
- (2) Behaviors of Hydrogen Localized on the Materials Surface (T. Otsuka, Kyushu U.)
- (3) Effects of Surface Treatments on Tritium Contamination of Stainless Steel (Y. Hatano, U. Toyama)
- (4) Preliminary Study of Electrochemical Corrosion Behavior of F82H Stainless Steel (M. Oyaidzu, JAEA)
- (5) Effects of Ceria Concentration in the Electrode on Water Decomposition Efficiency (K. Isobe, JAEA)
- (6) Permeation of Tritiated Water through Polypropylene (M. Hara, U. Toyama)

Session 4

- (1) Ion-Induced Deuterium Retention in Different Tungsten and Molybdenum Grades (Invited) (O. Ogorodnikova, IPP Garching)
- (2) Three-Dimensional Morphology of Blister-Like Structures and Deuterium Retention in Tungsten Exposed to Low-Energy, High-Flux D Plasma (V. Kh. Alimov, JAEA)
- (3) Simultaneous Ion Implantation Effect on Hydrogen Isotope Retention in Tungsten (Y. Oya, Shizuoka U.)
- (4) Deuterium Concentration of Co-Deposited Carbon Layer Produced at Gap of Wall Tiles (Y. Yamauchi, Hokkaido U.)
- (5) Diffusion Behavior of Tritium in V-4Cr-4Ti Alloy (K. Hashizume, Kyushu U.)

- (6) Modeling of Hydrogen Diffusion in bcc Metals (D. Yamauchi, U. Tokyo)

Session 5

- (1) Present Status and Future Subjects of Tritium Measuring Techniques (M. Matsuyama, U. Toyama)
 (2) The Application of Near-Infrared Spectroscopy to the Observation of Tritium Water (K. Kobayashi, U. Toyama)



ワークショップ参加者の集合写真



水素同位体科学研究センター見学会

V. 日本原子力学会 2009年秋の大会 シリーズ発表

「核融合炉燃料システムにおけるトリチウム透過量評価と透過防止技術の新展開」の総主題のもと、本領域総括班、A、B、C班および領域外の研究者から多数の発表がありました。

日時：2009年9月17日(木) 15:45~18:30

場所：東北大学 青葉山キャンパス

プログラム：

- (1) 水素透過の抑制 –侵入抑制(障壁)、拡散抑制、溶解抑制– それぞれの得失について
(九州大学 田辺哲朗)
- (2) ブランケットシステムのトリチウムバランスに与える透過損失の影響 (九州大学 西川正史)
- (3) 表面不純物(酸化物)への水素の捕獲とその透過への影響 (九州大学 池田隆博 他)
- (4) 球状トカマク QUESTにおける壁面水素透過の実測 (京都大学 今出亮一 他)
- (5) 熔融塩からの熱・水素同時回収試験及び高温水素透過材料の腐食挙動 (NIFS 長坂琢也 他)
- (6) 熱・水素同時回収システムにおける水素透過抑制のための被覆開発 (NIFS 田中照也 他)
- (7) 蒸気発生器におけるトリチウムの効率的な回収に関する検討 (静岡大学 大矢恭久 他)
- (8) トリチウム透過防止膜のフェライト鋼への適合性研究 (JAEA 中村博文 他)
- (9) フェライト鋼上に成膜した燐酸Mg膜のトリチウム透過防止効果 (富山大学 波多野雄治 他)
- (10) 酸化エルビウム薄膜中の水素透過機構研究 (東京大学 近田拓未 他)
- (11) 透過現象を利用した液体ブランケット材中のトリチウム濃度測定 (東京大学 八木重郎 他)

4. C班の研究紹介

C班の研究成果として、今年度開催された国際会議での発表の内容をご紹介します。

I. Fourteenth International Conference on Fusion Reactor Materials (ICFRM 14), September 6-10, 2009, Sapporo, Japan

Hydrophobic Barriers to Reduce HTO Contamination on Construction Materials

(Yasunori IWAI, Kazuhiro KOBAYASHI, Toshihiko YAMANISHI)

核融合炉建家に使用されるコンクリートやエポキシ材上へのトリチウム水汚染はできる限り低減する必要があります。本報告では、シリカ無機撥水剤、アクリルコーティング剤、撥水性フッ素塗料、トリメチルメトキシシラン表面改質剤、金属薄膜といった疎水性コーティングによるトリチウム汚染低減効果を評価しました。これらコーティングを施したコンクリートサンプルやエポキシサンプルを1-60週間、740-1110 Bq/cm³のトリチウム水濃度に維持された室温環境下で曝露した後、取り出したサンプルを純水に浸漬し、溶出トリチウム水量を測定しました。1週間という短時間曝露では疎水性コーティングが有効に機能し、材料中へのトリチウム水収着量が減少しました。一例として単位重量あたりのトリチウム水収着量をコーティングが施されていないコンクリート試料と比較した場合、シリカ無機撥水剤で66.8%、撥水性フッ素塗料で56.0%、トリメチルメトキシシラン表面改質剤で54.2%にまで減少しました。コーティングの効果は、長時間のHTO曝露では徐々に低減する傾向が見られました。疎水性コーティングとしてはトリメチルメトキシシラン表面改質剤が最も優れていました。

(2) Fluence Dependence on Deuterium Retention for the Oxidized SS-316

(Yasuhisa Oya, Sachiko Suzuki, Masao Matsuyama, Takumi Hayashi, Toshihiko Yamanishi, Yamato Asakura and Kenji Okuno)

核融合炉において多く利用されるステンレス鋼中でのトリチウム挙動を理解するためには、表面に形成した酸化膜層中でのトリチウムのミクロ的挙動を理解する必要があります。そこで、酸化膜層のバルク中に重水素を注入し、その放出挙動について検討しました。その結果、水酸基として捕捉された重水素滞留量は注入量が増えるに従って特に大きく増加することが示されました。また表面には過水酸化物が主に形成されますが、飽和はしていないことが示唆されました。これらのことから酸化膜の化学状態がトリチウムの捕捉に大きく影響していることがわかりました。

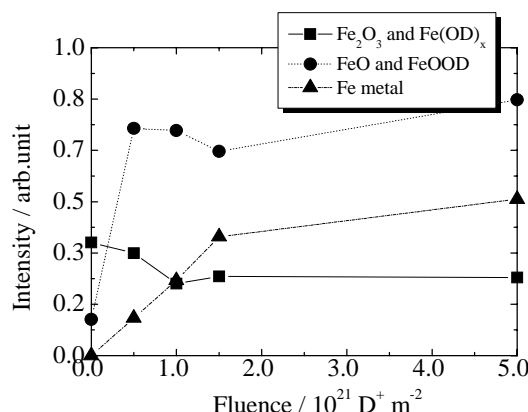


Fig. 1 ステンレス鋼中における重水素滞留挙動に及ぼすフルエンス依存性

(3) Study on Hydroxyl Desorption from F82H Oxidized Surface by FTIR

(Daisuke MASUYAMA, Takuji ODA, Satoru TANAKA)

拡散反射型赤外吸収分光法により、低放射化フェライト鋼 F82H の酸化表面および Fe_2O_3 、 Fe_3O_4 、 Cr_2O_3 粉末表面の化学状態、表面水酸基の同位体交換挙動を評価しました。室温における D_2O 曝露実験 (1.0×10^{-3} Pa or 1.0 Pa) により、 Fe_2O_3 、 Cr_2O_3 および F82H as-received 試料では表面 OD-の生成が確認されましたが、 Fe_3O_4 および酸化処理 (空気雰囲気, 12 h, 473~1073 K) を施した F82H 粉末では観察されませんでした。F82H への D_2O の同位体交換挙動は、表面状態に強く依存することが示唆されました。

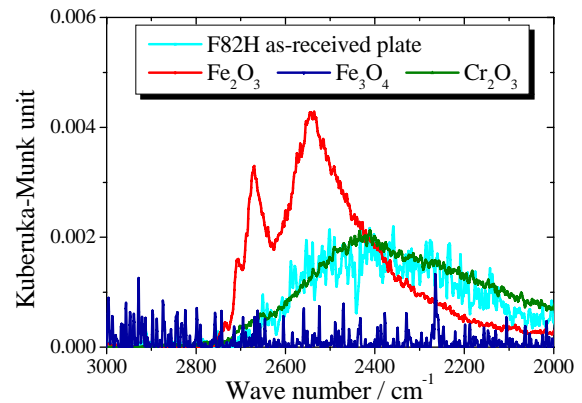


Fig. 2 D_2O に曝露した F82H、酸化鉄、酸化 Cr 試料の赤外吸収スペクトル

(4) Effect of Expansion/Shrinkage of Crystal Lattice on Hydrogen Isotopes Behavior in Body-Centered Cubic Metals

(Daisuke YAMAUCHI, Takuji ODA, Yasuhisa OYA, Satoru TANAKA)

結晶格子の膨張収縮が、bcc 金属中における水素の拡散および溶解に与える影響を、量子力学計算により評価しました。一般に、溶解熱、拡散障壁のいずれにおいても、ポテンシャルエネルギーの寄与分は収縮により増加し、膨張により減少することが確認されました。また、収縮が大きな場合 (~5%) には、Octahedral site 経路の拡散経路において、第 2 近接原子と水素との結合が強くなるため、拡散障壁が大きく低下することがわかりました。

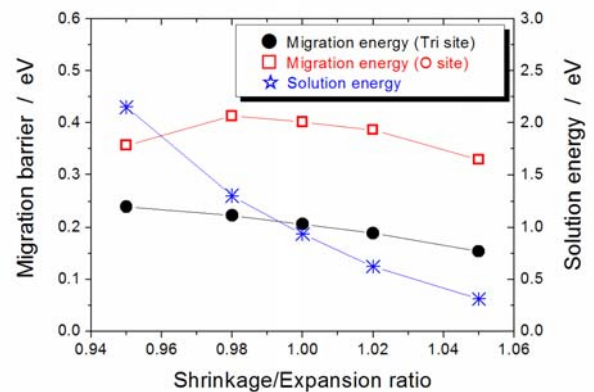


Fig. 3 金属中の水素同位体の拡散に対する障壁エネルギーに及ぼす格子の膨張・収縮の影響

(5) Effect of Welding and Coating on Deuterium Permeation through F82H

(Hirofumi NAKAMURA, Masaru NAKAMICHI, Hiroyasu TANIGAWA, Toshihiko YAMANISHI)

核融合炉、特に増殖ブランケットは多くの溶接部を有しており、また、透過防止膜で被覆されています。このような部位からのトリチウム透過量を評価するために、核融合炉構造材の候補材である F82H 鋼に対し、表面処理を行わない試料、溶接部を有する試料、及び金メッキを施した試料に関する重水素透過試験を実施しました。その結果より、重水素の定常透過及び過渡挙動から導かれる拡散係数を議論しました。表面処理を行わない試料からの重水素透過は清浄表面での透

過より小さいこと、溶接部からの重水素透過はF82H母材と大差無いこと、及び金メッキの透過抑制効果が大きいことがわかりました。

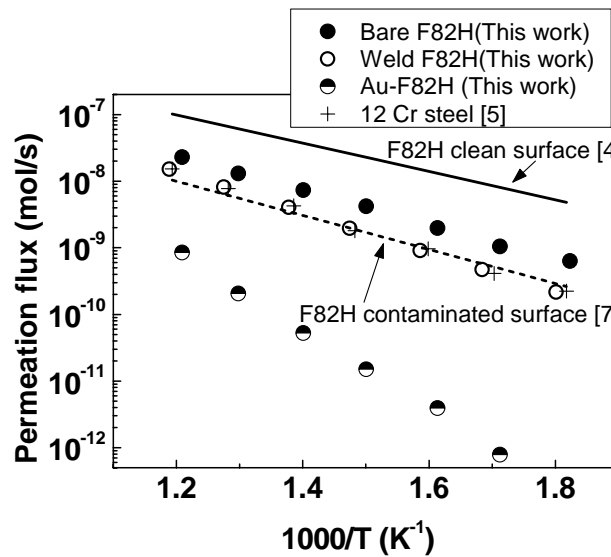


Fig. 4 F82H 中の重水素透過速度に及ぼす溶接の影響および Au 被膜による透過抑制効果

(6) Sealing of Pores in Sol-Gel-Derived Tritium Permeation Barrier Coating by Electrochemical Technique

(Kun ZHANG, Xianghua KONG, Yuji HATANO)

核融合炉高温配管から作業環境や冷却材へのトリチウムの漏洩を抑制するため、トリチウム透過抑制膜の開発が要望されています。一般に酸化物は金属に比べ低い透過速度を有しますが、脆性材料であるため亀裂等が生じやすく、このような開気孔に透過抑制能が阻害されることが問題となっています。そこで本研究では、電気化学的処理により、亀裂等を封孔処理することを試みました。代表的なフェライト鋼である SUS430 鋼上に、まず一般的なゾルゲル法により厚さ 50 nm の ZrO_2 被膜を作成しました。これを硝酸 Zr (または Al) 溶液中に浸漬し、カソード分極することで水酸化 Zr (または Al) を析出させた後、大気中で焼成し ZrO_2 あるいは Al_2O_3 としました。300~600°C で水素透過挙動を調べたところ、ゾルゲル法により厚さ 50 nm の ZrO_2 被膜のみの場合と比較して透過速度は一桁程度減少し、電気化学的処理による封孔が可能であることを実証できました。

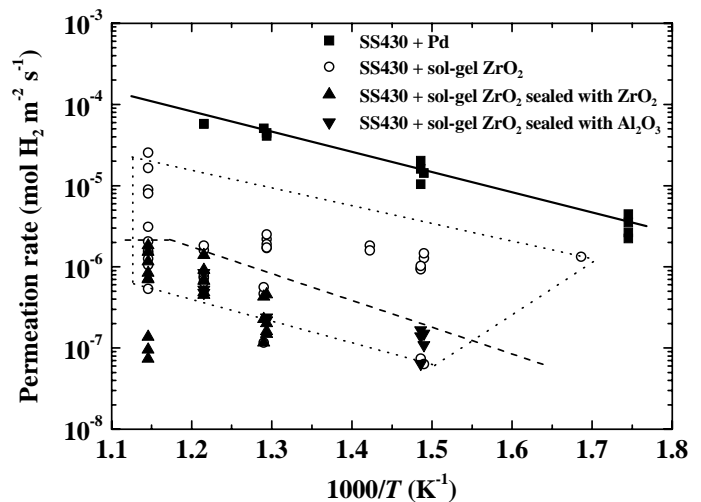


Fig. 5 酸化物系透過抑制膜の性能に及ぼす電気化学的封孔処理の効果

(7) Hydrogen Permeation in Metals near Room Temperature by a Tritium Tracer Technique

(Takahiro IKEDA, Takamitsu HOSHIHARA, Teppei OTSUKA, Tetsuo TANABE)

液体シンチレーション計測法により Ni 中の水素拡散・透過係数を決定し、この手法が金属中の水素拡散・透過係数決定に有効であることを示すと共に、従来から乏しかった室温付近における W および Mo の水素拡散・透過データを拡充することに成功しました。なお、池田は若手ポスター賞に選ばれ、表彰を受けました。

(8) Study for the Behavior of Tritiated Water Vapor on Concrete Materials

(Kazuhiro KOBAYASHI, Yasunori IWAI, Takumi HAYASHI, Toshihiko YAMANISHI)

核融合炉トリチウムの環境への放出の防止、作業員への被ばくの低減及び廃棄物の低減の観点から、最終閉じ込め系で用いられるコンクリート材料におけるトリチウムの挙動を把握することは非常に重要です。本研究により、モルタル中に取り込まれたトリチウムの30%程度は、除去されにくいCa(OH)₂のOH基に取り込まれることが明らかになりました。また、モルタル試料表面に吸着した重水をFT-IRにより測定したところ、OD基が表面に存在することがわかりました。

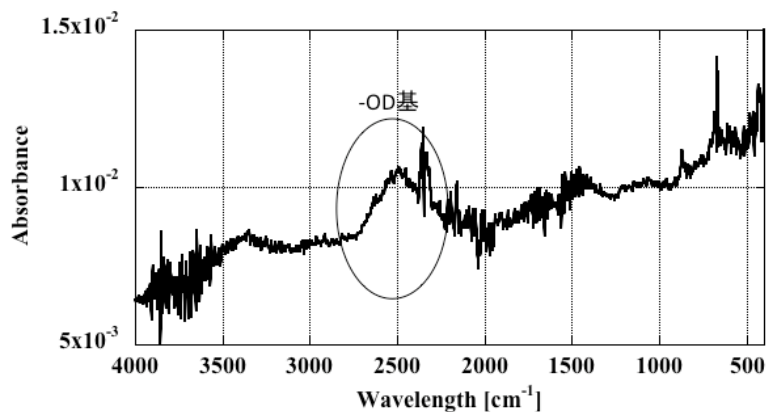


Fig. 6 FT-IR によるモルタルに吸着した重水の測定

II. Fourth International Workshop on Tritium-Material Interactions, September 14-15, Toyama, Japan

(1) Effects of Ceria Concentration in the Electrode on Water Decomposition Efficiency

(Kanetsugu ISOBE, Toshihiko YAMANISHI)

核融合炉で発生する高濃度トリチウム水の処理方法として有望な気相電気化学反応について、課題であった効率向上を目指した電極開発を行っています。本報告では、燃料電池の分野で効率向上に効果のあったセリウム酸化物(セリア)の添加割合を10、20、30%と変えた電極を作製し、1073 Kにおける水分解効率を比較しました。従来のPtとイットリア安定化ジ

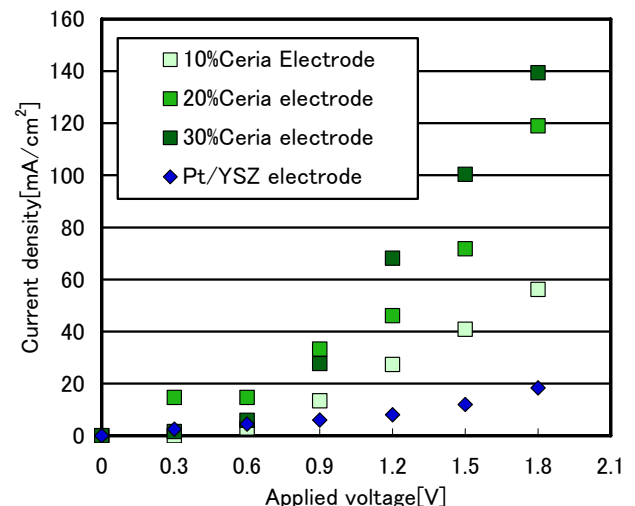


Fig. 7 各電極における水分解効率(電流密度)の比較

ルコニア (YSZ) からなる電極と比較すると、セリア添加電極ではいずれの添加濃度においても分解効率が向上することが明らかになりました。特に 30%セリア添加電極では、1.5V の印可電圧において従来よりも 5 倍も高い電流密度 $100\text{mA} \cdot \text{cm}^{-2}$ ($5 \times 10^{-7} [\text{mol} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{sec}^{-1}]$ の水分解効率に相当) を達成しました。

(2) Preliminary Study of Electrochemical Corrosion Behavior of F82H Steel

(Makoto OYAIIDZU, Toshihiko YAMANISHI)

水冷却固体増殖ブランケット冷却管の腐食による破損は大事故につながる可能性があります。そのため、上記ブランケット構造材の第一候補とされる F82H 鋼の、トリチウム水による腐食挙動の解明を目的として研究を進めています。まず予備実験として、トリチウムを含まない環境での試験を行いました。SUS304 鋼と比較して、F82H 鋼の腐食速度は非常に速く、また、非常に厚い不動態皮膜の形成(図中、低電位領域のピーク)が確認されました。今後は、トリチウムによる腐食への影響の解明を進めていく予定です。

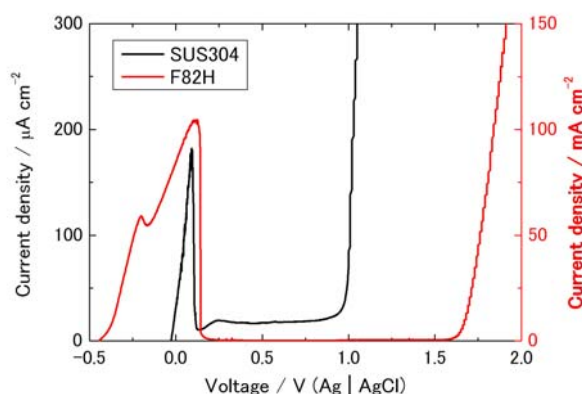


Fig. 8 F82H 鋼および SUS304 に関するアノード分極曲線

(3) Permeation of Tritiated Water through Polypropylene

(Masanori HARA, Yuka TOGASHI)

核融合炉のような高濃度のトリチウムを扱う施設では、手袋などに用いる高分子材料中のトリチウムの透過は放射線防護の観点から重要です。そこで、高分子材料中のトリチウム水の透過現象の理解と透過の低減化の観点より、高分子ポリマーであるポリプロピレン中のトリチウム水の透過を測定しました。Fig. 9 がその結果で、縦軸は透過したトリチウム量、横軸は経過時間です。トリチウム水の透過量は時間の経過に伴い直線的に増加しました。また、見かけ上の透過率は温度が高くなるに従い大きくなりました。これらの結果は、ポリプロピレンを用いてトリチウム水を含む廃棄物を密封し保管した場合、室温の違いで 5 倍程度トリチウム漏洩速度が変化することを示しています。

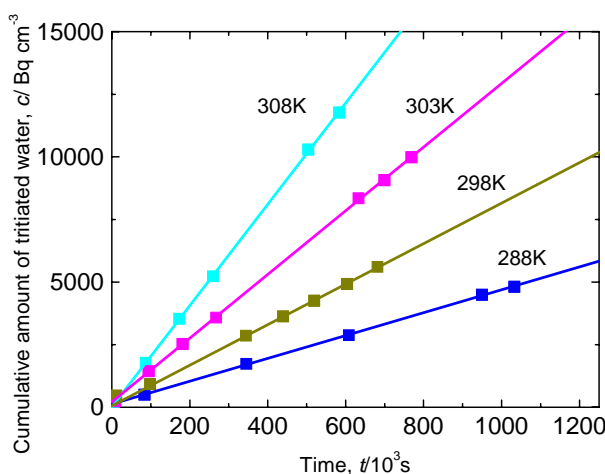


Fig. 9 各温度におけるポリプロピレン中のトリチウム透過量の時間変化

(4) Effect of Simultaneous Implantation on Retention Behavior of Hydrogen Isotope in Tungsten

(Yasuhisa OYA, Sachiko SUZUKI, Makoto KOBAYASHI, Rie KURATA, Kenji OKUNO, Shoji MIYAMOTO, Naoaki YOSHIDA, Naoko ASHIKAWA, Akio SAGARA, Yuji HATANO)

タングステン表面でのトリチウム汚染挙動を理解するために、炭素、ヘリウム、重水素イオンを同時照射し、その際の重水素滞留挙動および

タングステン材料への照射損傷影響について検討しました。その結果、種々のイオン種の照射フラックス比によって重水素滞留量は大きく変化することがわかりました。またヘリウムを含む3種同時照射では、重水素の滞留量はヘリウムと重水素イオンの2種同時照射より減少することを明らかにしました。このことは、炭素によるスパッタリングが大きく影響していると考えられます。

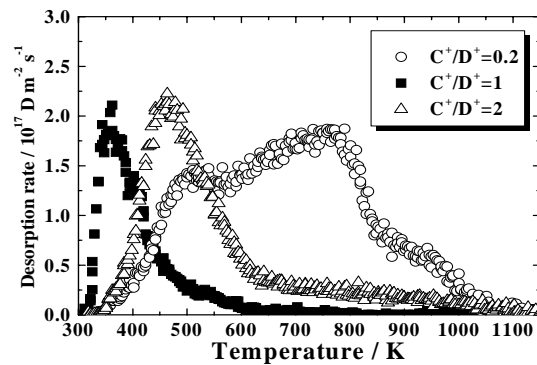


Fig. 10 種々のフラックス比で炭素および重水素イオンを同時照射した際の昇温脱離スペクトル

(5) Application of Palladium Coating on Group 5 Metals for Vacuum Permeator – Problems and Possible Solutions-

(Teo NOZAKI, Yuji HATANO)

高効率なトリチウム回収システムの構築は、トリチウムの透過漏洩抑制につながる重要な課題です。高い水素同位体透過能を有する5族金属を分離膜として用いるトリチウム回収法が提案されていますが、酸素等の不純物により表面が汚染されやすいという問題があり、貴金属であるPdによる表面被覆等が汚染防止策として検討されています。本発表では、ブランケット使用温度領域ではPdと基板5族金属の相互拡散が生じ耐久性に問題があること、また不純物炭化水素の分解に伴う炭素の堆積が透過の著しい妨げになることを指摘しました。また、これらを克服する手段として、4族金属炭化物・窒化物を「水素同位体は透過するが、金属元素同士の相互拡散は抑制する」中間層として用いること、また定期的な酸素ガスによる処理で堆積した炭素を除去することを提案しました。

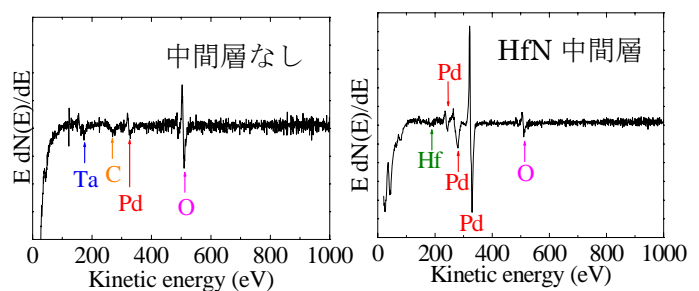


Fig. 11 Pd被覆したTa試料を973 Kに加熱したのち表面分析した結果(オージェ電子分光法)。中間層がないとTa中への溶解によりPdが消失していますが、HfN中間層があるとPd層の健全性が保たれています。

III. The International Symposium on Fusion Nuclear Technology (ISFNT-9), October 12-16, Dalian, China



大連の町並み(From ISFNT-9 Home Page)



座長を務める山西班長(左)と米国アイダホ国立研究所の Sharpe 氏

(1) Recent R&D Results on Polymeric Materials for a SPE-Type High-Level Tritiated Water Electrolyzer System

(Yasunori IWAI, Katsumi SATO, Akihiro HIROKI, Masao TAMADA, Takumi HAYASHI, Toshihiko YAMANISHI)

固体高分子電解型高濃度トリチウム水電解システムに使用する高分子材の耐酸性や耐放射線性を精査しました。バイトン、アプラス、変性PPE樹脂、カプトンポリイミドを二年間にわたり高濃度硫酸に浸漬した結果、伸び率等の機械的特性には大きな変化が生じないことを明らかにしました。また、1500 kGyまで電子線で照射したナフィオン電解膜の室温水蒸気飽和条件におけるイオン伝導度では、1000 kGyを超える試料から若干の低下が見られはじめました。0リングシールに使用するゴム材のデュロメータ硬度の放射線影響については、1500 kGyまで照射したバイトン、アプラス等は若干硬度が上昇することを明らかにすると共に、0リングシールとして十分に使用可能な柔軟性は維持することを確認しました。放射線照射にともなう架橋や分解の進展により、一般に照射量の上昇と共に大きく増加するゴム材中のトリチウム水滞留量について、バイトンは1500 kGyまでトリチウム水滞留量がほぼ一定値に安定する優れた特性を示すことを見出しました。本報告までで γ 線や電子線を用いた高分子材耐放射線性データベースの作成は完了し、現在は高濃度トリチウム水をもちいた耐放射線性試験に移行しています。

(2) Effect of Permeation Barrier on Tritium Leakage through Metallic Materials

(Takuji ODA, Yasuhisa OYA, Kenji OKUNO, Satoru TANAKA)

bcc-Fe を対象として、量子力学計算により評価したポテンシャルエネルギー曲線を用いた kinetic Monte Carlo シミュレーションにより、水素の透過挙動をモデル化しました。表面の吸着障壁を 0.4 eV 程度高めることで、約

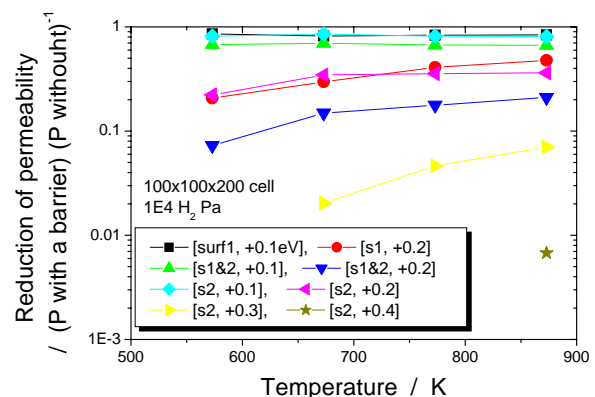


Fig. 12 表面のポテンシャル障壁が透過速度に及ぼす影響

2桁の透過低減が得られることが確認できました。一方で、酸化膜で想定されるような深い谷と比較的高い拡散障壁を持つタイプの透過防止膜では、防止膜中の水素濃度が高まることで、効果的な透過低減は得られないことが示唆されました。

(3) Modeling of Tritium Behavior in Lithium Niobate by Vibration Spectroscopy and Numerical Calculation

(Kisaburo Azuma, Takuji Oda, Satoru Tanaka)

LiNbO₃を対象として、熱的に吸収されたDの拡散および放出挙動を、赤外吸光/熱脱離実験により調べました。Dの放出は、(1)室温においても生じる気相中のH₂/H₂O分子との同位体交換、(2)600 K程度の温度を必要とする表面水酸基の再結合によるHDO/D₂Oとしての脱離、(3)バルクからの拡散後に表面での再結合により生じるHDO/D₂Oとしての脱離、の3つに大別できることを確認しました。数値計算により、(3)の過程は結晶粒の大きさに強く依存することが示唆されました。

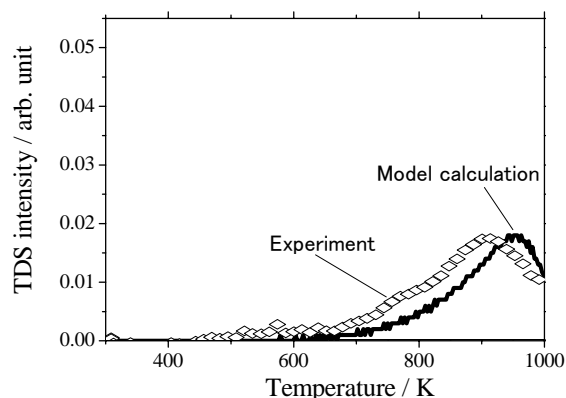


Fig. 13 LiNbO₃からの重水素の昇温脱離スペクトル

(4) Behavior of Hydrogen (OH) in Oxide Film of Type 316 Stainless Steel

(Yohei Ozeki, Yuji TORIKAI, Yuji HATANO)

トリチウムシステムの主要構成材料であるステンレス鋼について、表面トリチウム汚染の軽減を図るため、酸化膜中のトリチウム濃度を支配する因子を調査しました。受け入れ状態および研磨処理あるいは酸化Cr不動態処理したSUS316鋼試料、ならびに純Fe試料をトリチウムガスに曝露し、表面分析を行うと共に表面トリチウム濃度を測定しました。酸化膜中のFe濃度が高い場合により大量のOH基が形成され、かつ酸化膜中のトリチウム濃度も高くなりました。すなわち、酸化膜中でトリチウムはOTとして存在し、Cr濃度が高くかつ薄い酸化膜を形成させることで表面汚染を軽減できると結論しました。

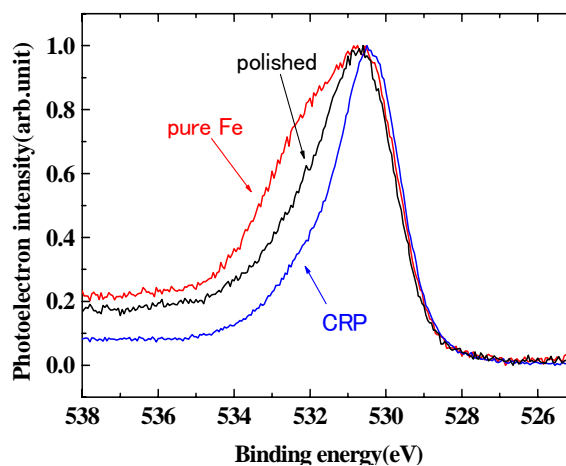


Fig. 14 トリチウムガスに曝露した試料表面におけるO1s光電子スペクトル。高エネルギー側のショルダーは、OH基の存在を示しています。

(5) Composite Tritium Permeation Barrier Coatings Prepared by Wet-Chemical Method

(Kun ZHANG, Yuji HATANO)

核融合炉高温配管から作業環境や冷却材へのトリチウムの漏洩を抑制するためのトリチウム透過抑制膜 開発研究の一環として、リン酸 Mg およびリン酸 Al 層の透過抑制効果を調べました。成膜には、複雑形状への施工に有利な湿式法を用いました。代表的フェライト鋼である SUS430 鋼の表面に、まず厚さ 50 nm の ZrO_2 被膜を形成した後、開気孔密度を減少させるため電気化学的処理を行いました。その上に、ディップ法で厚さ約 100 nm のリン酸 Mg あるいはリン酸 Al 層を形成しました。300~600℃で水素透過挙動を調べたところ、右図のように透過速度は著しく減少し、リン酸 Mg およびリン酸 Al が水素透過抑制膜材料として有望であることがわかりました。

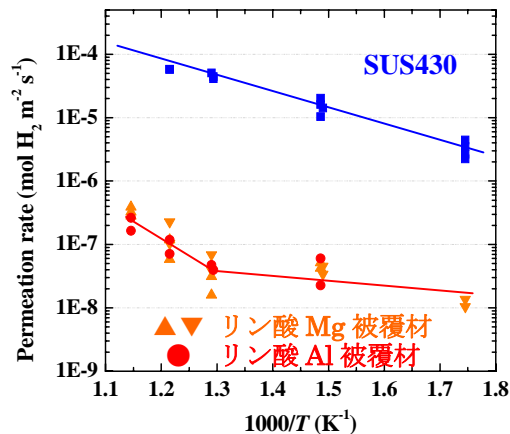


Fig. 15 SUS430 フェライト鋼中の水素透過に対するリン酸塩膜の抑制効果

(6) Retention Behavior of Hydrogen Isotopes in Boron Film Deposited on SS-316 for LHD First Wall

(Kenji Okuno, Sachiko Suzuki, Makoto Kobayashi, Rie Kurata, Masao Matsuyama, Naoko Ashikawa, Akio Sagara and Yasuhisa Oya)

ボロンは酸素不純物を容易に捕捉するため、核融合炉第一壁における壁コンディショニングに利用されています(ボロニゼーション)。このボロン膜には不純物として酸素、炭素が含まれるため、これらのトリチウムとの結合性が高い不純物が混入することにより、トリチウム滞留量が増えることが予想されます。そこで、これらの不純物を含むボロン膜中での水素同位体滞留挙動について検討しました。その結果、ボロン中の酸素濃度が高くなると、水素同位体が水の化学形となり、表面から脱離しやすくなることがわかりました。このことはトリチウム水の放出がプラズマ運転中にも連続的に起こることを示唆しています。

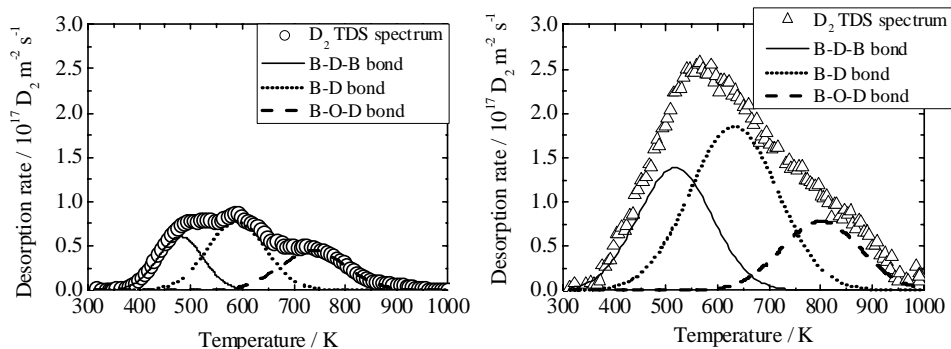


Fig. 17 ステンレス基板 (左) およびシリコン基板 (右) を用い、酸素濃度を 36%とした際の重水素 TDS スペクトル

(7) Behavior of Tritium Accumulated on Materials Surface

(T. Otsuka, T. Tanabe)

トリチウムを導入した金属材料からのトリチウム放出には2つのプロセス、すなわち拡散により放出される格子間に溶解したトリチウムと、一次反応で放出される捕獲サイトにトラップされたものがあることがわかりました。Niのように溶解トリチウム量が捕獲トリチウム量よりも著しく大きな場合には、拡散過程による放出が起こっているように見られ、またCu、Mo、Feのように捕獲トリチウム量のほうが多ければ、一次反応による捕獲サイトからの脱離が見えるということが実験的に裏付けられました。

この他にも、12th International Workshop on Plasma Facing Materials and Components for Fusion Application (PFMC-12), May 11-14, 2009, Jülich, Germany や The 7th General Scientific Assembly of the Asia Plasma and Fusion Association (APFA2009) でも研究発表を行いました。

また、国内学会でも多数の研究発表を行い、以下の賞を受賞しました。

[2009年秋の原子力学会, 学生ポスターセッション, 優秀ポスター賞]

●増山大輔 (東京大学大学院工学系研究科)

「赤外吸収分光法を用いた F82H 酸化表面からの水酸基脱離挙動の評価」

●生野健一郎 (東京大学大学院工学系研究科)

「イオン照射法による LiTaO₃ 中の重水素挙動の観測」

5. C班の今年度の活動 (予定を含む)

日程	内容
H21年4月23日	CO2班研究打合せ「除染WS」(富山大)
5月30日	トリチウム透過漏洩量評価と透過防止技術に関するWS(C班企画、東大)
5月31日-6月5日	23rd Symposium on Fusion Engineering (SOFE 2009) San Diego, USA
8月28-29日	全体会合「21年度中間評価報告会」(かんぼの宿・浜名湖三ヶ日)
9月7-12日	第14回核融合炉材料国際会議(ICFRM-14)、札幌コンベンションセンター
9月14-15日	4th International Workshop on Tritium on Tritium-Material Interactions(C班共催、富山大)
9月16-18日	日本原子力学会 秋の大会/C班企画シリーズ発表 (東北大学)
10月11-16日	9th International Symposium on Fusion Nuclear Tec.(ISFNT-9) Dalian, China
12月1-4日	プラズマ核融合学会 年会 (京都市国際交流会館)
H22年3月5-6日	特定公開シンポジウム「若手交流研究会」(ホテル 時之栖)
3月26-28日	日本原子力学会 春の年会 (茨城大学)

<事務局より>

A班、B班に引き続いて今回はC班の活動の特集させていただきました。高濃度トリチウムの安全閉じ込め(C01班/代表・山西先生)と微量トリチウムの透過・漏洩制御(C02/代表・波多野先生)を目指したC班の熱心な取組みの状況を読み取っていただくことが出来れば幸いです。