

研究種目：特定領域研究

研究期間：2007～2011

課題番号：19055002

研究課題名（和文） トリチウムの透過漏洩と汚染・除染

研究課題名（英文） TRITIUM PERMEATION, CONTAMINATION AND DECONTAMINATION

研究代表者

波多野 雄治 (HATANO Yuji)

富山大学・水素同位体科学研究センター・教授

研究者番号：80218487

研究代表者の専門分野：水素同位体科学

科研費の分科・細目：総合工学・核融合学

キーワード：核融合、トリチウム、水素、放射性同位体、放射線、同位体効果、透過、除染

### 1. 研究計画の概要

本研究の目的は、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である。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材料からの放出・移行、などがある。いずれも材料の表面状態やバルク中の拡散挙動に敏感に依存する現象であり、これまでも研究がなされてきたが、従来の実験の大部分は軽水素や重水素を用いた真空中でのものであり、トリチウムの内部被曝危険性を左右する放出化学形（元素状か水蒸気状か）や、それを支配する因子、 $\beta$ 線の照射効果については明らかとなっていない。そこで本研究では、トリチウム移行を理解・制御する上で特に重要な、下記の研究を進める。

- (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

### 2. 研究の進捗状況

高温材料中のトリチウムの透過漏洩抑制を目指し、複雑形状への施工に適する湿度法による透過抑制膜形成技術の開発を進めた。比較的緻密な膜が得られやすい金属につい

ては水素同位体の溶解度が低い Au に着目し、メッキ法で厚さ約  $10\mu\text{m}$  の膜を形成すると  $300^\circ\text{C}$  付近でフェライト鋼中の透過速度を  $1/1000$  程度に抑制できることを見出した。また、ゾルゲル法でフェライト鋼上に  $\text{ZrO}_2$  膜を形成したのち、膜中の開気孔を金属硝酸塩溶液中での電解処理およびリン酸塩被膜との多層化により封孔処理したところ  $300\sim 600^\circ\text{C}$  で水素同位体の透過速度を  $1/100\sim 1/3000$  に抑制することに成功した。ただし、 $500^\circ\text{C}$  以上の温度領域での耐久性には改善の余地が見られた。

また、主要なトリチウムシステム構造材であるステンレス鋼について、トリチウムが広範な条件下で拡散律速のもとで水蒸気として放出されることを明らかにした。表面状態およびトリチウム吸着状態の分析により、酸化膜中の Fe 濃度が高い場合に保持される水分量が多く、また酸化膜中のトリチウム濃度も増大することを見出した。これらの結果より、酸化膜中に水分が保持されやすいと同位体交換によりバルクからトリチウムが OT として高濃度に濃縮し、水蒸気として脱離する確率が高まるというモデルを提案した。このような実験室での成果の実機への適用性を核融合科学研究所 LHD にて評価する準備として、トリチウム計測・回収装置の設計・試作を進めた。また、プラズマ対向材料として有望視されているタングステンについて、トリチウム滞留量に及ぼす粒子線照射の影響を調べ、照射により滞留量が増大する可能性を示した。並行して量子力学計算・分子動力学計算等でトリチウム挙動を解析・予測するモデルの構築も進め、材料中の水素同位体の溶解度や拡散係数に対する同位体効果や応力

場の影響等を予測する見通しを得た。

### 3. 現在までの達成度

#### ② おおむね順調に進展している

透過抑制技術に関しては、条件によっては目標値である 1/1000 の透過抑制を達成できるようになり、耐久性等の検討に移行しつつある。また、鉄鋼材料についてトリチウム放出挙動や表面反応過程を明らかにし、汚染防止技術を提案する段階に入っている。モデリングも同位体効果等を予測できる域に達し、おおむね当初の予定通り進展している。

### 4. 今後の研究の推進方策

より広い温度領域で目標値である 1/1000 を達成しうる透過抑制膜を得るため、タングステンなどの低溶解度・低拡散係数金属を探索する共に、セラミックス多層膜についてさらなる開気孔密度低減を目指し封孔処理条件の最適化を図る。結晶構造解析や微細組織観察を行い、溶解・拡散機構を含む水素同位体透過機構を考察する。トリチウムを用いた透過実験により、β線環境下での耐久性を評価する。汚染材料からのトリチウム放出機構については、プラズマ対向材料として期待されるタングステンや、ステンレス鋼、および純鉄などの参照材料について、マクロなトリチウム脱離実験に加え、水素同位体の吸着状態についての詳細な分析を行い、トリチウムの表面濃度や放出速度・化学形を支配する因子を定量的に明らかにすると共にデータベースを構築する。特に、共存する他の水素同位体や不純物の影響と、β線照射効果に注目する。これらの知見をもとに、汚染されにくく、かつ除染が容易な表面状態の設計指針の確立を目指すと共に、除染技術を探索する。また、材料内部汚染の非破壊測定にも取り組む。上述の実験研究の成果とマルチスケールモデリングの結果を比較することにより、モデルの妥当性を評価する。また、界面の影響や核融合炉環境に特有な欠陥－水素同位体相互作用なども取り入れることでモデルを高度化しトリチウム挙動の予測精度をさらに高める。

### 5. 代表的な研究成果

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 40 件)

- ① K. Zhang, Y. Hatano, Preparation of Mg and Al Phosphate Coatings on Ferritic Steel by Wet-Chemical Method as Tritium Permeation Barrier, Fusion Eng. Design, 査読有, 印刷中.
- ② Y. Asakura, M. Tanaka, T. Uda, H. Ogawa, S. Takami, Y. Oya, K. Okuno, S. Fukada,

Design of Gaseous Tritium Recovery System Applying Commercially Available Membrane Type Dehumidifier, J. Nucl. Sci. Technol., 査読有, 46, 2009, 641-647.

- ③ S. Naoe, Y. Torikai, R.-D. Penzhorn, K. Akaishi, K. Watanabe, M. Matsuyama, Transport of Tritium in SS316 at Moderate Temperatures, Fusion Sci. Technol., 査読有, 54, 2008, 515-518.

[学会発表] (計 125 件)

- ① T. Oda, Y. Oya, S. Tanaka, Effect of Permeation Barrier on Tritium Leakage through Metallic Materials, 9th Int. Symp. Fusion Nucl. Technol., Oct. 11-16, 2009, Dalian, China.
- ② H. Nakamura, M. Nakamichi, H. Tanigawa, T. Yamanishi, Effect of Welding and Coating on Deuterium Permeation through F82H, 14th Int. Conf. Fusion Reactor Mater., Sep. 6-11, 2009, Sapporo, Japan.

[図書] (計 1 件)

[産業財産権]

#### ○出願状況 (計 1 件)

名称: 金属表面への被膜生成方法

発明者: 波多野雄治、張 鯤

権利者: 富山大学

種類: 特許

番号: 特願 2009-166165

出願年月日: 平成21年7月14日

国内外の別: 国内