

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 2 年 6 月 25 日現在

機関番号：63902

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K14901

研究課題名(和文) 超透過現象を利用したステンレス中トリチウム回収方法の実用性の検証

研究課題名(英文) verification for the removal of tritium in stainless steel by using super-permeation

研究代表者

小林 真 (Kobayashi, Makoto)

核融合科学研究所・ヘリカル研究部・助教

研究者番号：50791258

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、ステンレス等の核融合炉で使用される金属材料中に残留したトリチウムの超透過法による除染手法の実用性検証を行うことを目的とし、実験的、計算的アプローチにより検討を実施した。水素同位体交換予測コードを作成し、トリチウム除染速度を評価した。ステンレス系材料については、トリチウム除染速度は水素同位体の金属内での拡散速度に依存することが示された。十分な水素同位体超透過流速によりトリチウムが除染できると評価された。一方、トリチウムの安定な捕捉サイトを有する金属材料では、トリチウムの脱捕捉過程が律速となり、除染が困難であると示唆された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

核融合炉では燃料に放射性核種であるトリチウムを使用します。トリチウムは材料内に溶解するため、メンテナンス時に炉機器から作業環境及びプラント外へのトリチウム移行が懸念されます。本研究では材料中のトリチウム移行現象を数値的にモデル化し、その除染の予測が可能となりました。除染においては材料中の水素同位体の拡散速度と照射欠陥などの水素同位体捕捉サイトからの脱捕捉速度が律速過程となることを示しました。

研究成果の概要(英文)：This study aimed to develop the decontamination method of tritium retained in metal components with using super-permeation of hydrogen isotopes. The simulation code which can estimate the hydrogen diffusion, solution, recombination in solids was combined with the dynamics of hydrogen injection during plasma exposure and hydrogen isotope exchange reaction in solids. According to this code, the decontamination of tritium in stainless steel was expected under sufficient high hydrogen diffusion and high tritium detrapping rate condition. To evaluate the tritium detrapping in the trapping sites such as irradiation defects in solid, radiation irradiation into metals was carried out, then hydrogen isotope introduction into metal materials was performed. Thermal desorption of hydrogen isotopes showed tritium detrapping is a rate-determining step in some metals such as tungsten.

研究分野：トリチウム理工学

キーワード：トリチウム ステンレス タングステン

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

核融合発電では炉心に投入されるトリチウムの内、核融合反応により燃焼するのは一部であり、殆どのトリチウムは炉心から排気される。水素同位体であるトリチウムは金属を通り抜ける(透過する)特徴を持ち、透過したトリチウムは環境へ放出される。このようなトリチウムの透過・漏洩は近隣住民の被ばく防護の観点から重要であり、その低減努力は核融合炉開発・推進を社会が受容していくための後押しとなる。現在、配管材料であるステンレスに対してセラミック膜蒸着を行う、透過防止膜研究が行われているが、この場合も定常的なトリチウム漏洩は避けられないため、ステンレス中に滞留したトリチウムの能動的な回収手法が必要である。核融合炉の燃料輸送システムは安全を考慮して複数系統になるため、その場・迅速なトリチウム回収手法が実現できれば、系統切替後の待機期間に実施することができ、核融合炉運転へ影響を与えずに安全性を高めることができる。

2. 研究の目的

本研究の目的は、配管材中のトリチウム回収を、室温・その場で速やかに行うため、水素と不純物のプラズマにより発生(駆動)する高効率水素透過現象である超透過を利用した、同位体交換によるトリチウムの回収手法を検証することである。超透過の発生時の材料内部で進行するトリチウムの拡散・脱捕捉・同位体交換などをモデル化し数値解析によりその実効性を予測するための計算コード群を開発する。また、除染の律速過程を明らかにするため、加熱下での水素同位体脱離挙動から拡散・再結合・照射欠陥からの脱捕捉等の各素過程の進行速度を明らかにする。

3. 研究の方法

超透過現象発生時に進行する水素同位体移行現象を数値モデル化するため、溶解・拡散・再結合などの素過程を数式化すると共に、有限差分法を用いて近似した。材料内ではすべての素過程が同時に進行するため、各式を同時に解くアルゴリズムを用い、超透過現象の時間発展に伴うトリチウムの移行及び材料内部からの除染過程について予測するコード群を開発した。計算コードのフローチャートを図1に示す。材料中トリチウム濃度等の各変数の収束値の算出には Newton-Raphson 法を用い、計算の繰り返しにより各数式の残差の和が規定値を下回った際に収束解が得られたと判断する。この手法により各変数の時間発展を計算した。

併せて、研究の進展により材料内部におけるトリチウムの捕捉サイトである照射欠陥によりトリチウムが強く捕獲され、除染を阻害することが示された。この現象を詳細に理解するため、金属材料への中性子照射を実施し、その試料へ水素同位体を導入後、熱分析を行うことで、照射欠陥による水素同位体の捕捉・脱捕捉挙動を定量的に解析した。実験のフローチャートを図2に示す。中性子照射だけではなく、重イオン照射(Fe²⁺を使用)したタングステン試料も併せて用い、照射欠陥の形成状態により水素同位体の捕捉・脱捕捉挙動の差異についても検討した。

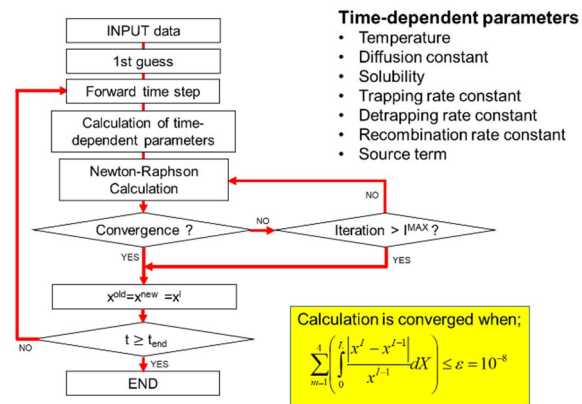


図1 超透過現象などの固体材料中トリチウム移行現象の数値解析に用いたシミュレーションコードのフローチャート

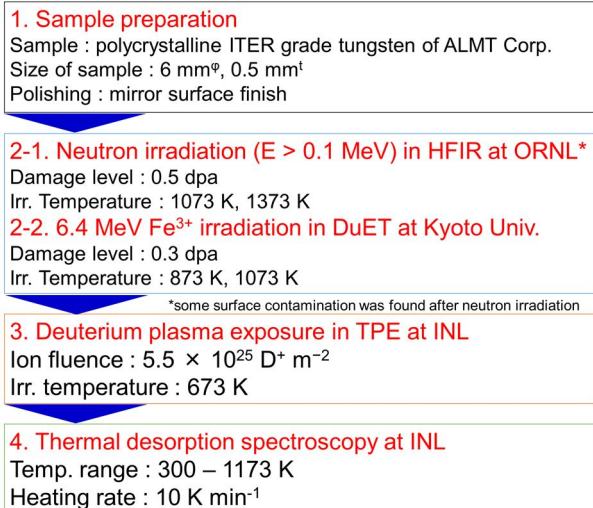


図2 中性子照射試料中の水素同位体滞留挙動説明実験のフローチャート

4. 研究成果

ステンレス中にトリチウムが滞留している状態で、超透過現象を起こした際のトリチウム除染挙動について計算を行った。また、比較として超透過現象のない、通常のイオンビームによる透過現象を用いたトリチウム除染挙動も併せて計算した。結果を図3に示す。計算においては、温度473 K、材料厚さ0.1 mm、照射損傷密度 10^{-6} 、脱捕捉エネルギー1.2 eVを想定し、トリチウム初期値(入力値)から平衡に到達するまで待ち、十分に平衡に到達した1万秒地点から水素イオンビーム透過または水素超透過による水素の透過速度及び材料内のトリチウム滞留量を計算した。室温付近では超透過とイオン駆動透過では水素同位体の透過速度に5桁以上の差異が確認された。この高い水素同位体の透過速度により材料中に滞留したトリチウムの同位体交換が誘起され、結果として、イオン駆動透過ではトリチウムの除染は僅かであったが、超透過現象ではトリチウムの除染が効率的に進行することが示された。除染速度については、トリチウムの滞留量は超透過現象の持続時間に対し指数関数的に減少することがわかり、このことからトリチウムの除染に対し超透過現象の応用は非常に効果的であることが理論的に示された。一方、材料中の照射欠陥等によるトリチウム捕捉状態により除染効率が大きく変動することも同時に予測され、その機構の理解と影響低減も併せて考える必要がある。

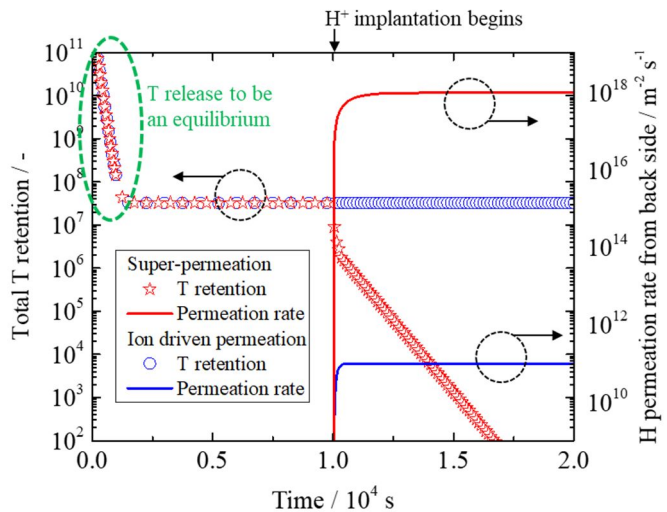
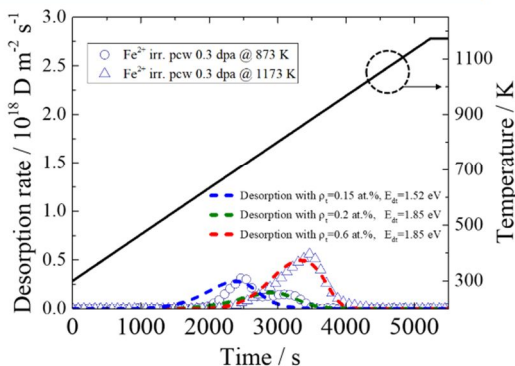


図3 水素超透過及び水素イオンビーム照射による水素透過速度とトリチウム除染挙動予測

過去の研究においては、モデル金属材料として使用したタングステンに中性子照射することで、トリチウム脱離が非常に困難になることが昇温脱離法などにより示された。そこで中性子により発生した照射欠陥による水素同位体の脱捕捉過程の影響が実環境では無視できないことが予測された。より詳細に理解するため、炉環境に近い1000 K付近で中性子照射したタングステンに対し、重水素プラズマを曝露し、その後昇温脱離法により脱離スペクトルを取得することで、その脱離機構を解析した。重水素脱離スペクトルを図4に示す。中性子照射材と併せ、重イオン照射材の結果も記載する。重イオン照射と比較し、中性子照射材は中性子による照射欠陥形成が材料バルク全体で発生するため、照射欠陥の総量が多い。そのため重水素滞留量も大きくなった。上記の解析コード群を有効活用し、重水素の照射欠陥からの脱捕捉の活性化エネルギーを約1.8 eVとした際の重水素の脱離挙動を図に加えた。結果を良く再現することから、この脱捕捉エネルギーの妥当性が示された。このエネルギーは水素同位体の拡散エネルギーである約0.4 eVと比較して圧倒的に高く、主に照射欠陥のひとつである空隙による水素同位体捕捉の影響と考えられた。このように照射欠陥の存在が低温でのトリチウム除染速度を大きく下げる原因であることが示された。

6.4 MeV Fe³⁺ irr. W at 873 K and 1073 K



Neutron irr. W at 1073 K and 1373 K

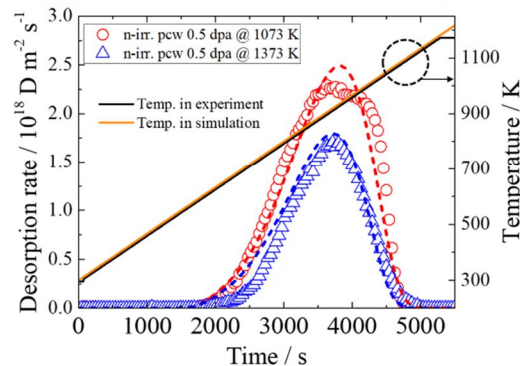


図4 鉄イオン及び中性子照射したタングステンの重水素脱離スペクトル

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Makoto Kobayashi, Yasuhisa Oya	4. 巻 13
2. 論文標題 Development of the Tritium Transport Model for Pebbles of Li ₂ TiO ₃	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Plasma and Fusion Research	6. 最初と最後の頁 3405048
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Kobayashi Makoto, Oya Yasuhisa, Okuno Kenji	4. 巻 487
2. 論文標題 Tritium trapping states induced by lithium-depletion in Li ₂ TiO ₃	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Journal of Nuclear Materials	6. 最初と最後の頁 84～90
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） http://dx.doi.org/10.1016/j.jnucmat.2017.02.008	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Makoto Kobayashi, Masashi Shimada, Chase N. Taylor, Dean Buchenauer, Robert Kolasinski, Takaaki Koyanagi, Yuji Nobuta, Yuji Hatano, Yasuhisa Oya	4. 巻 146
2. 論文標題 Influence of dynamic annealing of irradiation defects on the deuterium retention behaviors in tungsten irradiated with neutron	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Fusion Engineering and Design	6. 最初と最後の頁 1624-1627
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） https://doi.org/10.1016/j.fusengdes.2019.03.003	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計8件（うち招待講演 1件/うち国際学会 6件）

1. 発表者名 Makoto Kobayashi, Masashi Shimada, Chase N. Taylor, Dean Buchenauer, Robert Kolasinski, Takaaki Koyanagi, Yuji Nobuta, Yuji Hatano and Yasuhisa Oya
2. 発表標題 Deuterium retention properties of tungsten irradiated with neutron under divertor operation temperature
3. 学会等名 Symposium on Fusion Technology（国際学会）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Makoto Kobayashi, Moeko Nakata, Akihiro Togari, Yasuhisa Oya
2. 発表標題 Correlation between migration of hydrogen isotopes and oxygen distribution in SS-316L
3. 学会等名 International Toki Conference (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 小林 真、原 正憲、大矢 恭久、島田 雅
2. 発表標題 核融合炉材料内における包括的なトリチウム挙動理解のための 熱・トリチウム・照射欠陥移行平衡解析コード開発
3. 学会等名 核融合エネルギー 連合講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Makoto Kobayashi, Takeo Nishitani, Takuya Saze, Tomoyo Tanaka, Sachiko Yoshihashi, Kunihiro Ogawa, Mitsutaka Isobe
2. 発表標題 Evaluation of imaging plate measurement for activated indium as fast-neutron detector in large radiation field
3. 学会等名 Ninth International Symposium On Radiation Safety and Detection Technology (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Makoto Kobayashi, Yasuhisa Oya, Kiyohiko Nishimura
2. 発表標題 Study on super-permeation of hydrogen isotopes for eliminating tritium in fusion reactor materials
3. 学会等名 Plasma Conference 2017 (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Makoto Kobayashi, Yasuhisa Oya
2. 発表標題 Development of the tritium transport model for pebbles of Li2TiO3
3. 学会等名 International Toki Conference (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 小林 真、原 正憲、大矢恭久、島田 雅、Chase N. Taylor
2. 発表標題 物質界面を跨いだ熱・トリチウム・照射欠陥 平衡輸送計算コード T2D-MIの開発
3. 学会等名 原子力学会春の年会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Makoto Kobayashi, Masashi Shimada, Chase N. Taylor, Yuji Nobuta, Yuji Hatano, Yasuhisa Oya
2. 発表標題 Evaluation of irradiation defect density in tungsten damaged by neutron by means of deuterium gas absorption method
3. 学会等名 12th Asia Plasma and Fusion Association Conference (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考