

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 6 日現在

機関番号：82110

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2012～2013

課題番号：24860071

研究課題名(和文)コンクリート用疎水性塗料におけるトリチウム透過機構の解明

研究課題名(英文)Clarification of mechanism of tritium permeation through hydrophobic paints

研究代表者

枝尾 祐希 (Edao, Yuki)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・核融合研究開発部門 六ヶ所核融合研究所・研究員

研究者番号：70633858

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 1,900,000円、(間接経費) 570,000円

研究成果の概要(和文)：塗料塗布コンクリートのトリチウム移行メカニズムを明らかにするため、各種塗料のトリチウム透過挙動を実験的に調べた。トリチウム水蒸気を曝露した塗料膜におけるトリチウム移行速度を測定した結果、エポキシとウレタン塗料膜におけるトリチウムは、水分子状で透過し塗膜内の拡散が律速段階にあることが解ったため、拡散モデル解析により拡散係数を求めた。塗料塗布コンクリート材へのトリチウム浸透速度は塗料膜のトリチウム透過速度に比べて十分に遅かったことから、塗料とコンクリートとの境界面における移動抵抗がトリチウム浸透速度を決める支配的要因であることが明らかになった。

研究成果の概要(英文)：Behavior of tritium permeation through paint membranes was experimentally investigated for clarification of mechanism of tritium transfer through hydrophobic paints coated on a concrete material. From the results of measurement of tritium permeation rates, it was found that tritium permeated through epoxy and urethane paint membranes as the form of a HTO molecule, and that diffusion in their paints was the rate-determining step. The permeation rates through concrete materials coated with the paints were much slower than those through the paints only. Hence, resistance of tritium diffusion through interface between a concrete material and paint was clarified to be most effective in the overall tritium transfer process.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：核融合学

キーワード：トリチウム 塗料 コンクリート 透過

1. 研究開始当初の背景

放射性水素同位体であるトリチウムを大量に取り扱う施設において、トリチウムの漏洩が生じた場合、コンクリート建屋が最終的に環境へのトリチウム放出を防ぐ役割を持っている。安全性確保の観点から、コンクリート建屋の汚染評価、除染技術開発を行うためにはトリチウムの浸透、蓄積、放出といった移行挙動を把握することは重要である。コンクリート壁には通常防水性塗料が塗布されており、塗料を含めたトリチウム移行挙動を把握しておく必要がある。

塗料に関するトリチウム移行挙動としては、これまでエポキシ樹脂塗料、シリコン樹脂塗料など数種類の塗料を塗布したコンクリート試験片についてトリチウムの捕捉量や放出速度を調査してきた。その内容は、図1で示すように試験片をトリチウム雰囲気中に曝露し、捕捉されたトリチウムを軽水に浸して放出させるものであった。その結果、塗料がトリチウムのコンクリート内部への浸透を遅延し抑制することを実験的に示すことができ、塗料を介したコンクリートにおける総括したトリチウムの移行挙動は明らかになった。しかしながら、トリチウムの表面反応、コンクリートと塗料界面の移動、塗料内部の拡散といった素過程を把握するまでには至っていない。

2. 研究の目的

本研究では、塗料の膜にトリチウム水蒸気を直接透過させる非定常透過法を実験手法として、塗料膜内部のトリチウム透過挙動を把握することを目的とする。塗料はこれまでの研究で用いたエポキシ樹脂、シリコン樹脂、ウレタン樹脂を対象とし、各塗料膜のトリチウム透過・拡散速度を定量し、塗料膜単体と塗料塗布コンクリートにおけるトリチウム移行過程を比較・評価する。

3. 研究の方法

図2に示すトリチウム透過実験装置を用いて、VCR部に2枚のガスケットで挟んだ塗料膜を装着し、フランジ容器部に既知濃度のトリチウム水を封入した。塗料膜を透過したトリチウムを水蒸気添加の窒素ガスによりパージし、水バブラーによって捕集した。捕集した水のトリチウム濃度を液体シンチレーションカウンターによって測定した。定期的にバブラーを切り替え、サンプリングすることによりトリチウム透過量の経時変化を測定した。実験は室温で行った。本実験では、トリチウムが塗料膜を透過する際の化学形を確認するために、水蒸気形トリチウム (HTO) と水素ガス形トリチウム (HT) の弁別回収を行った。試験部に封入するトリチウム水の濃度を2~100 Bq/cm³の範囲で調整し、トリチウム透過量の濃度依存性を調べた。塗料膜の厚みを0.1~0.4 mmと変化

させてトリチウム透過量の膜厚依存性を調べた。各塗料のトリチウム透過量の過渡変化を解析することにより拡散速度を定量した。

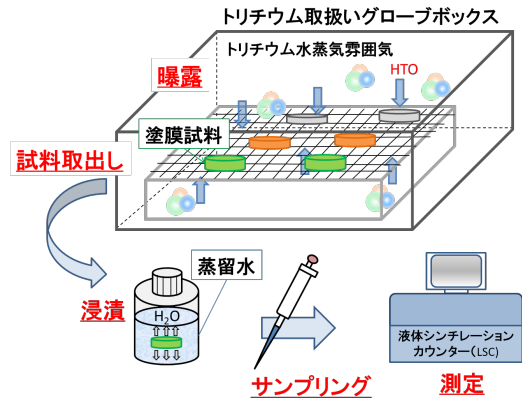


図1 塗料塗布コンクリート材のトリチウム水蒸気曝露実験概略図

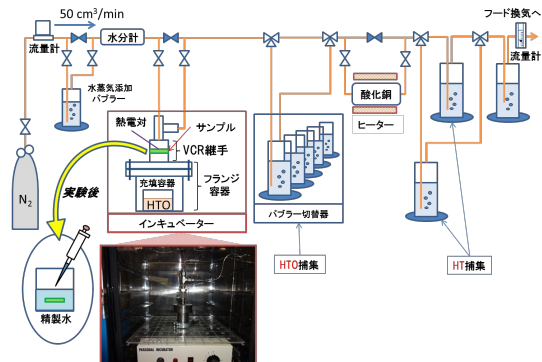


図2 塗料膜 トリチウム水蒸気透過実験装置概略図

4. 研究成果

(1) トリチウム透過化学形と透過過程

実験結果の一例として、エポキシ塗料膜におけるトリチウム透過量の経時変化を図3に示す。HTOとHTの弁別回収を行ったが、HT成分はほとんど検出されなかった。また、図4に示すように、エポキシ及びウレタン塗料膜の定常状態におけるトリチウム透過流束と上流側トリチウム分圧が傾き1の比例関係となったことから塗膜へのトリチウムの溶解はヘンリー則に従うことが解った。一方、シリコン塗料膜については水蒸気曝露により膨潤し変形したことから結果にばらつきが生じたため他の塗料と同様の傾向は得られなかった。

図5にエポキシ及びウレタン塗料膜におけるトリチウム透過流束と膜厚の関係を示す。透過流束は塗膜厚の逆数に比例したことからトリチウムの透過過程においてフィックの法則が成立し、塗料膜内の拡散が律速であることが解った。

以上の結果より、塗料膜におけるトリチウム水蒸気は水蒸気分子状で透過し、塗料膜内の拡散が律速段階にあることが明らかにな

った。

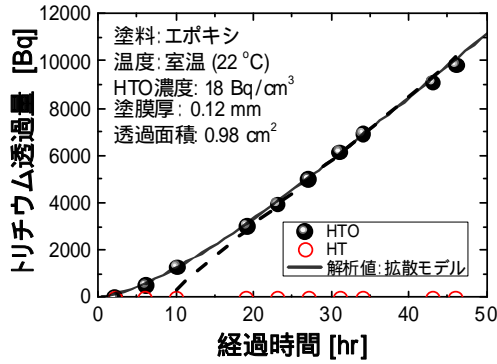


図3 実験結果一例（エポキシ塗膜のトリチウム透過量経時変化）

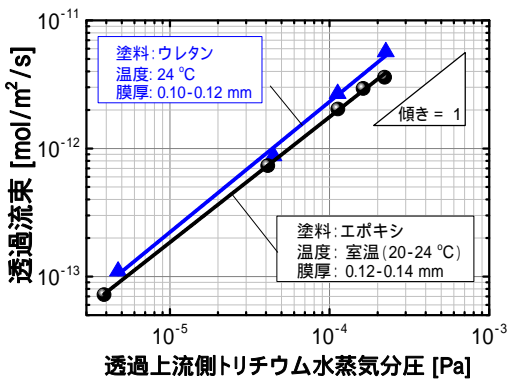


図4 トリチウム透過流束の透過上流側トリチウム分圧の関係

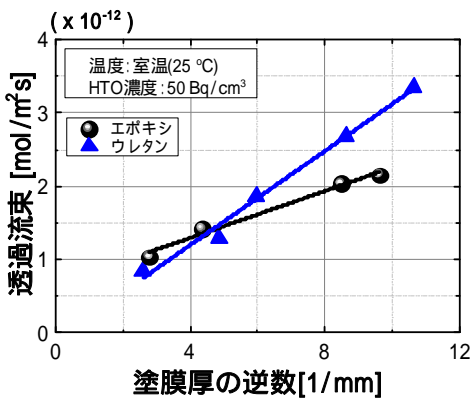


図5 トリチウム透過流束と塗料膜厚の関係

(2) 塗料膜におけるトリチウム拡散係数の定量

塗料膜におけるトリチウムの透過が拡散律速であることが解ったため、一次元の拡散方程式の解析式とのフィッティングにより拡散係数を求めた。図6にトリチウム透過率時間変化と解析解のフィッティング結果を示す。実験データと解析解はよく一致したため、トリチウムの透過過程は塗料膜内の拡散で説明できることが示された。拡散係数はエポキシで $2 \times 10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$ 、ウレタンで $4 \times 10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$

を得た。

(3) 塗料塗布コンクリート材におけるトリチウム移行過程

エポキシ塗料とウレタン塗料を塗布したセメントペースト試験片（試験片厚 7mm、塗膜厚 0.1mm）にトリチウム水蒸気を曝露し、トリチウムの浸透量の経時変化を調べた結果を図7に示す（九州大学との共同研究として実施。学会発表）。裸のセメントペーストへのトリチウム浸透量が飽和に達するまでの時間は1～2日と十分速いのにに対し、塗料塗布のセメントペーストは塗膜厚が 0.1mm 程度であるにもかかわらず60日以上と遅い。図6で示したトリチウムの透過速度と比較すると、塗料塗布セメントペーストの浸透速度は十分に遅い。すなわち、塗料塗布セメントペーストにおけるトリチウム透過過程は、セメントペーストと塗料膜との境界面における移動抵抗が支配的となっていることを意味する。当初、塗料塗布のコンクリート材へのトリチウム浸透については、塗料内部の構造が拡散障壁となり遅延効果を発揮するものと予測していたが、本研究結果から塗料とコンクリートの境界面の構造が大きく影響していることが明らかとなった。今後、塗料とコンクリート材の境界面について調査する必要性が示された。

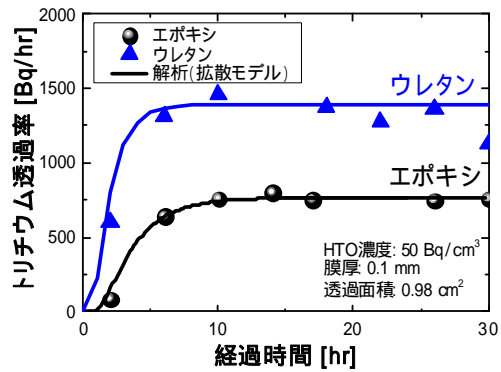


図6 トリチウム透過率の経時変化

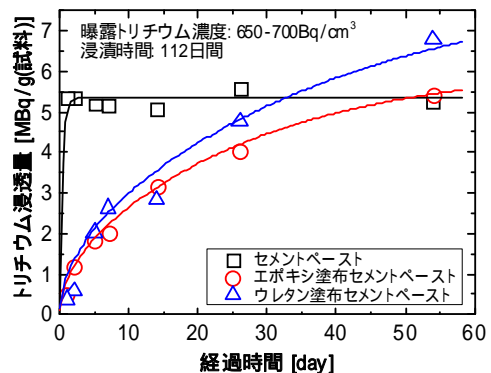


図7 セメントペースト及び塗料塗布セメントペーストのトリチウム浸透量の経時変化

5. 主な発表論文等
(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 1件)

Y. Edao, Y. Kawamura, T. Yamanishi, S. Fukada, Penetration of tritiated water vapor through hydrophobic paints for concrete materials, Fusion Engineering and Design, in press, 査読有
DOI:10.1016/j.fusengdes.2014.02.059

[学会発表](計 3件)

Y. Edao, Y. Kawamura, T. Yamanishi, S. Fukada, Penetration of tritiated water vapor through hydrophobic paints for concrete materials, The 11th International Symposium on Fusion Nuclear Technology (ISFNT-11), 16-20 September 2013, Barcelona, Spain

Y. Edao, Y. Kawamura, R. Kurata, S. Fukada, T. Takeishi, T. Hayashi, T. Yamanishi, Measurement of tritium penetration through concrete material with various paints coating, The 10th International Conference on Tritium Science and Technology (TRITIUM 2013), 21-25 October 2013, Nice, France

枝尾祐希、河村繕範、林巧、深田智、コンクリート壁へのトリチウム浸透速度に対する塗料の影響、日本原子力学会2014年春の年会、2014年3月26日、東京都市大学

6. 研究組織

(1)研究代表者

枝尾 祐希 (EDA, Yuki)

独立行政法人・日本原子力研究開発機構・核融合研究開発部門 六ヶ所核融合研究所・研究員

研究者番号：70633858