プロジェクトレビュー

核融合炉実現を目指したトリチウム研究の新展開

Tritium Science and Technology for Fusion Reactor

1. 領域設置の目的と進め方

田 辺 哲 朗 九州大学大学院総合理工学研究院 (原稿受付:2009年8月27日)

1.1 はじめに

平成19年度より文部科学省科学研究費特定領域「核融合 炉実現を目指したトリチウム研究の新展開」が採択され発 足している.**表1**に示す6研究項目について,「計画研究」 により重点的に研究を推進するとともに,これらに関連す る,一人または少数の研究者による公募研究を補完的に 行っている.また総括班を設置し,各研究計画の班長に加 えて,これまでトリチウムの研究に長年携わってきた我が 国の主だった研究者にも協力を仰ぎ,個々の研究班の個別 の成果を評価検討して,全体的あるいは俯瞰的見地より, 各研究班へのフィードバックをはかるとともに,それらの 成果を統括・連携して核融合炉全体としてのトリチウムに 対する安全対策を講じ,核融合で使用されるトリチウムに ついての社会的受容性を高めるための活動を行っている.

本章では,まず特定領域設置の目的を述べた後,核融合 炉を実現するために不可欠なトリチウム研究の現状と,何 が求められているかをまとめ、研究をどのように遂行しよ うとしているかを紹介する.次章以降,順に本領域を構成 する6つの研究計画

- 第2章 核融合炉内複雑環境におけるトリチウム蓄積挙 動の実験的研究
- 第3章 核融合炉のトリチウム蓄積・排出評価のための 理論およびシミュレーションコードの開発
- 第4章 核融合炉ブランケット材中のトリチウム移動現 象解明と新規回収プロセス開発の研究
- 第5章 核融合炉ブランケット材料中のトリチウム-材 料相互作用に関する研究
- 第6章 トリチウムの閉じ込めに関わる高濃度トリチウ ム水および有機物の化学的現象の解明
- 第7章 トリチウムの透過漏洩と汚染・除染

について,それぞれのレビュー(具体的な研究目的,研究 内容,現在の研究の進展状況,さらにこれまでに得られて

	表1	計画研究の課題および達成目標
--	----	----------------

					T		
班名		研究代表者		研究課題	達成目標		
総括班		田辺	哲朗	核融合炉実現を目指したトリチウム研究の新展 開	 ・トリチウム燃料システムの設計(A, B, C 班の結果) ・水素同位体の理解,トリチウム学の創成 ・国際的人材育成 		
A 班	A01班	上田	良夫	核融合炉内複雑環境におけるトリチウム蓄積挙 動の実験的研究	- 蓄積トリチウム量の評価と除去法を開発し, ITER の運転 シナリオ策定へ		
	A02班	大宅	薫	核融合炉のトリチウム蓄積・排出評価のための 理論およびシミュレーションコードの開発	- JT-60SA の壁材料選択と運転シナリオ策定 - 周辺プラズマ・材料相互作用統合コードの作成		
B 班	B01班	深田	智	核融合炉ブランケット材中のトリチウム移動現 象解明と新規回収プロセス開発の研究	- ブランケットによるトリチウムの増殖,回収システムにお ける増殖比105以上の実田		
	B02班	寺井	隆幸	核融合炉ブランケット材料中のトリチウム-材 料相互作用に関する研究	- 安全な排ガス回収,不純物除去,トリチウム分離・再利用		
C 班	C01班	山西	敏彦	トリチウムの閉じ込めに関わる高濃度トリチウ ム水および有機物の化学的現象の解明	- ITER のトリチウム処理施設高性能化 - 友効た添渦抑制注の開発(1/1000 を実現)		
	C02班	波多野	予雄治	トリチウムの透過漏洩と汚染・除染	(日か)なななどますいいな、2月17日 (1/1000 と大元)		

1. Introduction - Research Purposes and Outline -TANABE Tetsuo

author's e-mail: tanabe@nucl.kyushu-u.ac.jp

いる研究成果の報告)を行う.

特定領域のこれまでの活動,研究内容の詳細,これまで 開催あるいは開催予定のワークショップやシンポジウムな どの報告と案内,研究の進展状況,これまでに発表され研 究成果等はホームページ http://tritium.nifs.ac.jp/[1]に詳 細に記載しているので,そちらを参考にしていただきたい.

1.2 領域設置の目的

核融合炉を実現する上で,安全かつ経済的に成立する燃料(トリチウム)サイクルを構築することは,プラズマ閉じ込めと並び立つ2本柱のひとつと言っても過言ではない.核融合炉では放射性同位元素であるトリチウムを大量に取り扱う必要があるにもかかわらず,放射能的にクリーンであると強調されすぎているきらいがある.核融合炉燃料として使用されるトリチウムは,平均約6keVの電子を放出して³Heになる放射性同位元素であり,またDT反応で発生する中性子が材料を放射化するため,十分な放射線管理のもとで安全性を確保して運転される必要がある.また希少資源であるトリチウムを燃料として使用するため,その増殖および回収を極めて効率的に行わねばならない.エネルギー発生装置としての実用核融合炉は,安全性の観点から社会的にも受容されるものでなければならない,と同時に経済的に見合うものでなければならないのである.

本特定研究領域設置の目的は、トリチウム(T)と重水素 (D)との核融合反応(DT反応)によりエネルギーを取り出 す核融合炉を実現するため、トリチウムを含んだすべての 水素同位体(H, D, T)に関連する様々な学問的分野を背 景としている研究者を組織化し、トリチウムが放射性であ る故に、その放射性安全を確保することはもとより、トリ チウムが希少資源である故に、経済的にも成立する核融合 炉燃料システムを構築すること、具体的には

- (1) 炉内への重水素とトリチウムの導入量を,核融合反応を継続するために制御しつつ供給すること,
- (2) それらを排気回収し不純物を除去した上で、トリチウム分離・再利用すること、
- (3) ブランケットによりトリチウムを増殖回収,利用すること,
- (4) 安全なシステムの構築あるいは制御を可能にするための技術開発をすること,

(5) トリチウム汚染の制御と除染法の確立をはかること, である.同時にトリチウムに関する正しい理解に基づいた

- (6) 新しいトリチウム科学ともいうべき学問分野を打ち 立てる
- とともに.

(7) トリチウムに対する正しい理解を社会に広めること も重要な課題である.

1.3 核融合炉のためのトリチウム研究(研究の背景) 国際熱核融合実験炉ITERの建設が南仏カダラッシュで スタートし、いよいよトリチウム燃焼に向けた核融合研究 が本格化する.核融合炉では核融合プラズマの核燃焼を維 持するために大量のトリチウムが燃料として中性粒子入射

系,ペレット,ガスパフの装置を通して供給され,いった んプラズマ化され燃焼される.しかしかなりの部分は燃焼 されずにプラズマから逃げ出し,壁に衝突してその一部は 壁に蓄積されるか,またはDT燃焼により生じたHe灰と同 時に排気される.排気されたトリチウムは,それから He 灰を除去した後,軽水素や重水素からも分離精製され,再 び燃料供給系に戻される.またブランケットでは主に⁶Li (n,T) He 反応によりトリチウムが生産され,回収・精製 され燃料系に供給される.この間,装置・システムの各所 でトリチウムが滞留,蓄積するばかりでなく配管壁等を通 じて,冷却系や系外に透過漏洩する.図1には,核融合炉 に燃料としてペタベクレル(1PBq=10¹⁵ Bq)のトリチウ ムを導入した際に,トリチウムが系外に透過漏洩していく ことをも考慮して,必要な研究を示した[2,3].

実際に核融合炉で燃料サイクルとして循環使用されるト リチウムの総量は、重さにすればわずか数 kg 程度である が、放射能レベルでば 10¹⁷ Bq(=100 PBq; 1 秒間に10¹⁷ 個のβ電子を発生させる)となっており、安全性の観点か ら定められている規制値に比べると10桁以上も多い.この ため ITER のような実験炉でも、わずか100回程度の DT 放電でその立地での使用許可量を超えるトリチウムが真空 容器内に蓄積されてしまい、頻繁にその除去作業を余儀な くされるとして、安全性・経済性の観点からの核融合炉の 実現を危惧する声すらある.

このような多量のトリチウムを取り扱った経験は、日本 はおろか世界にも(軍事研究を除けば)まったくなく、そ の安全な取り扱い技術が確立されているとは言えない.ま たトリチウムの放射性同位元素としての特性、またその安 全性についても十分理解されているとは言えない.実際に は、昨年春の放射線障害防止法の改正に見られるごとく、 トリチウムの放射線影響は他の放射性物質に比べきわめて 弱く、安全性の観点からの理解に事実からの大きな乖離が 見られる.この乖離を放置すると、一般社会と核融合研究 者間の相互信頼性を欠くことになり、これからの核融合炉 開発に社会的受容性が得られなくなる危険がある.プラズ マ化された大量のトリチウムの挙動の理解と予測なしには ITER はもとより核融合炉の建設はあり得ない.

図2にトリチウムの自然界の存在量,核実験による生成,法的規制値等の量を比較してみた.ITERで使用するトリチウムがどのような量であるかが,わかっていただけるであろう.また規制が必要なレベルから比べて10桁以上強いレベルであることもわかっていただけよう.多量トリチウムを扱う際には,わずかの量の損失といえども,放射線としては極めて多量であるため,定量評価の誤差を非常に小さくしなければならない.例えば1ペタベクレル(1PBq)のトリチウムを相手にするとき,そのわずか1/10¹²にすぎない1キロベクレル(1kBq)のトリチウムでさえ,放射線安全の観点からは見逃すことはできないのである.これは通常の実験室レベルでの実験精度が1/10³程度であれば十分であることを鑑みると,1/10¹²を制御することは不可能である.一般に取り扱う物理量が3桁異なるとその根底となる物理・化学がまったく異なる場合が多

い.しかもトリチウムのエネルギー状態あるいは温度は, keV オーダのエネルギーを持つプラズマ状態から,meV 程度のエネルギーしか持たない通常のガス状態,あるいは 燃料供給のために使われる固体水素 (ペレット)の状態ま で,6~12桁に渡る.このような広いエネルギー範囲で出 現する物理・化学現象を統一的に研究・理解することが必 要であり,まさにトリチウム研究に新展開が要請されてい るのである.極めて高い濃度のトリチウムは,それ自身が 発する β 線の直接的影響だけではなく,それが熱としても 大きな影響を及ぼしうる.このように高濃度トリチウムを 取り扱うことは,単なる希釈されたアイソトープとしてで はなく,それ自身の重さと放射性による特殊性に初めて向 き合わねばならなくなったことを意味するのである.

核融合炉の燃料サイクルは極めて効率の悪いものと予測 される.炉内における燃料の燃焼率があまり高くないの で、多量のトリチウム燃料を導入しても、その大半は燃焼 しないで排気され、それを回収した後再び燃料として供給 することになる.しかも、図2からわかるように、ITER で必要とされるトリチウム量は、天然に存在するトリチウ ム量の1/10にも達しており、トリチウムは稀少資源なので ある.もちろんブランケットにて増殖されるが、その増殖 率は、トリチウムを潤沢に供給できるほど大きくすること は難しく、核融合炉の燃料サイクルにおいてトリチウムが



図1 核融合炉に燃料としてペタベクレル(PBq)のトリチウム を導入した際に、トリチウムが系外に透過漏洩していくことをも考慮して、必要な研究.



図2 トリチウムの自然界の存在量,核実験による生成,法的規 制値等の量等の比較.

ロスすることは許されない.すなわちトリチウムの計量管 理は経済的にも究めて重要な課題なのである.

かつて経験をしたことのない多量のトリチウムを使用す る燃料サイクルの構築とその安全性確保,さらには社会受 容性を得ることは、その挙動の理解と正確な予測なしには あり得ない.トリチウムに関する正確な知識、その取り扱 いのための確かな技術を持った人材育成が国際的にも求め られている.

学術的にも図3のように、取り扱うべきトリチウム量, またそのエネルギー状態は10桁以上にも拡がっており、解 明すべき物理・化学現象,あるいは新しい物理・化学過程 が山積している[2,3].

1.4 研究の進め方

以上のような背景のもとに,表1で示した6つの「計画 研究」および総括班の活動が行われている.6つの計画研 究は,それぞれ2つずつを組み合わせて,A,B,Cの3班 に大別され,それぞれが緊密な連携のもとに研究を進めて いる.個々の計画研究の詳細は次章以下で詳述するが,班 ごとの研究計画の進め方を,簡単に紹介する.

A 班で課題とするのは、炉内のトリチウムインベントリ の評価と蓄積、そして蓄積トリチウムの除去である.これ らはプラズマ対向壁の材料や炉の温度、プラズマ条件等に より大きく変化するが、これを基礎現象の積み重ねとし て、理論およびシミュレーションによってモデル化し予測 可能にするのである.実機はこのためのテストベッドと位 置づけられる.その結果はB班およびC班に伝えられ る.また特にA02班はA班にとどまらず、B班、C班の理 論・シミュレーション研究に協力し相互の研究の調整、整 合性を確保する役割を果たしている.

B 班では A 班からのデータアウトプットにもとづいて燃料の供給と排出のバランスを考慮しなければならない.現時点で,実際の炉を念頭にトリチウムを循環させるシステムの設計は可能である.しかし現実の DD 実験装置ですら供給した D は回収しておらず,炉に供給されたトリチウム燃料がどのような化学形でどれだけ排気されるかは不明であり,データの取得が必要不可欠である.また供給トリチ



図3 トリチウムの取扱量,およびそのエネルギー状態に応じて 出現する理解・解明すべき物理/化学現象,または学術的 課題.

ウムの全量回収をどのように行うかも不明である.これを 実機(LHDおよびJT-60U/SA)および基礎実験で行ってい るA班との緊密な連携のもとで推進している.ブランケッ トにより回収できなかったトリチウムあるいはシステムか ら透過・漏洩するトリチウムの情報はC班の研究に活かさ れる.

C 班では透過・漏洩と汚染を課題としている.トリチウ ムの放射線としての計測から, PVT 測定へのつなぎ, さら には熱量測定へのつなぎ, そしてその有効測定桁数の問 題,および固体中に存在するトリチウムの絶対測定(熱量 測定レベル以下での),連続性を確保し,計測の完結をは かりつつ,A 班が担当する主燃料循環系と,B 班が担当す る増殖トリチウム回収系から透過・漏洩してくるトリチウ ム量,およびその化学形に関する知見をベースに,従来の プラント外に移行するトリチウムを単純に回収除去する対 策にとどまらず,核融合発電プラント内の作業環境中への トリチウム漏洩をきめ細かく抑制するための技術開発を想 定している.同時に環境安全を確保するために,最低限許 容される透過・漏洩トリチウム量をA 班,B 班にフィード バックし,システムとしてのトリチウム安全が確保された トリチウムシステムの設計に資する.

総括班では、これまでトリチウム研究に長年携わってき

た我国の主だった研究者に協力を仰ぎ,個々の研究班の個別の成果を評価検討して,全体的あるいは俯瞰的見地よ り,各研究班へのフィードバックをはかるとともに,それ らの成果を統括・連携して核融合炉全体としてのトリチウ ム安全対策を講じ,核融合トリチウムについての社会的受 容性を高めるための活動ができる研究組織とした.さら に,総括班には,一般社会へトリチウムの正しい理解が浸 透するよう情報発信を行い,トリチウムの安全性,核融合 の社会的受容性を高めると同時に,水素同位体理工学とも いうべき啓蒙書の発刊を行うことを目標にしている.また ITER で活躍できる人材の育成も非常に大きな課題であ り,将来 ITER で活躍しようとする院生,若手研究者の積 極的な参加を期待している.

参考文献

- [1] 文部科学省科学研究費特定領域「核融合トリチウム」領 域番号476 ホームページ, http://tritium.nifs.ac.jp/
- [2] 田辺哲朗:日本原子力学会誌 50,716 (2008).
- [3] T. Tanabe, Proc. 2nd ITER Intern. Summer School; Confinement, ed. S.-I. Itoh, S. Inagaki, M. Shindo, M, Yagi, pp.112-126 (AIP, 2009) ISBN 978-0-7354-0628-5.



2. 核融合炉内複雑環境におけるトリチウム蓄積挙動の実験的研究

上田良夫¹¹,日野友明²¹,大野哲靖³¹,高木郁二⁴¹, 仲野友英⁵¹,田辺哲朗⁶¹,梶田 信⁷¹,福本正勝⁵⁵ ¹¹大阪大学大学院工学研究科,²¹北海道大学大学院工学研究科,³¹名古屋大学大学院工学研究科, ⁴¹京都大学大学院工学研究科,⁵¹日本原子力研究開発機構,⁶¹九州大学総合理工学研究院, ⁷¹名古屋大学エコトピア科学研究所

(原稿受付:2009年8月27日)

Keywords:

tritium retention, radiation damage, dust, carbon, tungsten, helium, particle balance, codeposition, tritium removal, inert gas glow discharges

2.1 A01班計画研究の概要

トリチウムは放射性物質であることから、その取り扱い には大きな注意を払う必要がある. ITER においては、核 融合炉内の蓄積許容量が1kgに定められている. 安全性を 考慮し500-700g程度が通常の運転における上限とされて いる.この値を越えるトリチウム量が炉内に蓄積した場合 は、ITER で DT 放電を継続することはできず、トリチウム を除去し、許容量以下に減ずる必要がある.頻繁にトリチ ウム蓄積部分の除去やトリチウムの脱離処理を行う必要が 生じると、ITERの目標実現に大きな障害となる.特に、 ITER においては、ダイバータや第一壁を水冷却している ため、高熱負荷部を除いては壁温度が比較的低く(200℃ 程度以下),トリチウムが蓄積しやすい環境にある.また, 原型炉を視野に入れた場合は、壁温度が高く(低放射化 フェライト鋼のブランケットでは,表面温度は500℃~ 600 ℃), ITER と比べるとトリチウム蓄積の問題は軽減さ れる可能性が高い.しかしながら、一方で放電時間や中性 子照射量は桁違いに大きいため、トリチウム蓄積速度が遅 くても注意が必要である.

ITER の第1期(H, Dフェーズ)のダイバータでは垂直 ターゲットにCFC(炭素繊維複合材),それ以外の部分と ドーム部分にタングステンを使用する.また,第一壁には ベリリウムを使用することになっている.これらの壁材料 は,損耗・輸送・再堆積を通じて混合する.壁材料の堆積 速度が再損耗速度より速ければ,堆積層が形成される.一 方,損耗速度が速い場合は損耗が進むが,表面にはイオン 入射飛程程度の厚みの混合層が形成される.これらの堆積 層,あるいは混合層はトリチウムの蓄積挙動に大きな影響 を及ぼす.たとえば,炭素が堆積層を形成するときは、ト リチウムと共堆積し,堆積層の厚みに比例して、トリチウ ムの蓄積量が増大する.一方,混合層については,トリチ ウムの放出や拡散に大きな影響を及ぼす.

核融合プラズマ中には、上記に加え、核融合反応で生じ るヘリウム、およびエッジプラズマを冷却するためのアル ゴンやネオンなどが含まれている.アルゴンやネオンが存 在すると、タングステンのような軽イオンでは損耗されに くい材料の損耗が懸念される.ヘリウムについては、近年、 低温(室温)から高温(~3,000 K)まで、非常に幅広い温 度領域において、タングステンとの相互作用研究が行われ、 様々な結果が示されている[1-3].その結果、低温域ではト リチウムの蓄積に大きな影響を及ぼし、高温域(1,100 K 程 度以上)では、表面にナノ構造と呼ばれる綿毛状の構造や、 ミクロンオーダのバブルが形成される.これらの構造が形 成されると、実効的な損耗率の増加、ダストの発生、実効 的な熱伝導率の低下による表面層溶融などが懸念される.

さらに,核融合反応で生じる中性子は,壁材料の照射損 傷を与え,機械的特性に影響を与えるとともに,トリチウ ムの蓄積・拡散挙動に影響を与える[4].このトリチウム 蓄積に与える影響は,特に ITER で顕著であると考えられ (壁温度が低いため),必要なデータベースの整備と蓄積の 基礎過程の解明が必要である.

壁材料は、すでに述べたように損耗・輸送・再堆積によ り混合層や堆積層を形成するが、特に低 Z 材は損耗率が大 きく、損耗された原子はエッジプラズマや炉心プラズマ中 を輸送され、主に内側ダイバータ近傍に再堆積層を形成す る.また、炭素は、炭化水素ラジカルの形で、プラズマか ら直接見えない部分にも輸送され、トリチウムを多く含む 再堆積層を形成する。再堆積層の構造やトリチウム蓄積量 は壁温度やイオンの入射エネルギーに依存するため、再堆 積層の形成場所、あるいは堆積速度を知ることは、トリチ

2. Experimental Studies on in-Vessel Tritium Inventory in Complicated Environment of Fusion Reactors

UEDA Yoshio, HINO Tomoaki, OHNO Noriyasu, TAKAGI Ikuji, NAKANO Tomohide, TANABE Tetsuo, KAJITA Shin and FUKUMOTO Masakatsu corresponding author's e-mail: yueda@eei-eng.osaka-u.ac.jp Project Review

ウムの蓄積量を見積もるために重要である[5].このよう な知見を得るためには、実機での壁材料の損耗・輸送・再 堆積を明らかにした上で、シミュレーションやモデリング 研究と密接に協力して現象を理解し、精度の高い予測を行 わなければならない.

さらに、近年、炉内における微粒子(ダスト)の発生、輸送、堆積、およびその炉心プラズマに与える影響の研究が 重要になってきている[6].高温のダストが水と接触する と、水素を発生し、圧力で真空境界を破壊したり、水素爆 発を起こすことなどが懸念されている.そのため、安全上 の理由からダストの発生量には、上限が設けられている. このようなダストは、その発生時、あるいは輸送・堆積時 にトリチウムを内蔵したり、吸着することで、トリチウム の蓄積量を増加させる懸念がある.しかしながら現在のと ころ、ダストによるトリチウム蓄積量を見積もるための十 分な知見は得られていない.

壁材料中のトリチウム蓄積のメカニズム解明や蓄積量の 推定とともに、その除去法を開発することも、核融合炉を 運転する上では、大変に重要である.レーザーアブレー ションなどによる再堆積層の除去や、同位体交換反応を利 用するトリチウム除去法などが提案されているが[7]、そ のメカニズムの解明や、現象の適切なモデリングは不十分 である.

以上のような現状を鑑み,特定領域研究(核融合炉実現 を目指したトリチウム研究の新展開)の計画研究 A01班 「核融合炉内複雑環境におけるトリチウム蓄積挙動の実験 的研究」では,以下の5テーマについて,日本を代表する 研究者の方々に参画していただき,研究を進めている.以 下の節では,これらのテーマにおける代表的な研究成果の 報告を行う.

- (1) イオン同時照射環境における水素同位体蓄積挙動
- (2) 照射損傷が水素同位体蓄積に与える影響
- (3) ダストの発生と水素同位体蓄積に与える影響
- (4) 実機における壁材料の損耗・再堆積と再堆積層の水 素同位体蓄積・放出挙動
- (5) 壁材料中の水素同位体除去

本特定領域研究において,計画研究 A01班は炉内複雑環 境における現象の実験的解明を行うとともに,計画研究 A02班のシミュレーション研究と密接に協力して,現象の 理解や適切なモデリング,および ITER や原型炉における トリチウム蓄積挙動の評価を行う.さらに,壁材料中を拡 散してブランケットに至るトリチウム透過の研究や,排気 ガス中のトリチウムの化学形の研究などを行うことで,B 班やC班の研究とも連携する.

2.2 イオン同時照射環境における水素同位体蓄 積挙動

前節で述べたように ITER では、ダイバータのストライ ク点近傍を除き、壁温度が比較的低く(200℃程度以下), トリチウムが蓄積しやすい環境になっている.したがっ て、トリチウムの蓄積量評価は、ITERの壁材料・エッジ プラズマ関連研究において,最も重要な課題の一つと認識 されている.すでに,イオンビームや高密度プラズマ装置 を利用した材料照射実験は多く行われているが,前節で述 べたような複雑環境を考慮した実験研究やモデリング研究 は,未だ十分ではなく,トリチウム蓄積量を精度良く評価 することは困難であるといえる.

そこで、本計画研究では、水素同位体と炭素、あるいは ヘリウムが同時にタングステン壁材料に照射された場合の 水素同位体の挙動に関する基礎研究をイオンビームを用い て行っている.本節ではその研究の一端を紹介する.

図1に水素・炭素混合ビームをタングステンに照射した



図1 タングステンへの炭素・水素混合ビーム照射によるブリス タリングの発生.イオンビームエネルギー1,ビーム中の 炭素割合は,(a)0.11%,(b)0.35%,(c)0.95%.



図2 タングステンのブリスタリングに及ぼすHeの影響.イオン ビームのエネルギーは1keV,ビーム中の炭素割合は~ 0.8%.

場合のブリスタリングの発生に及ぼす炭素の影響を示した [8].炭素割合がおおよそ0.2~0.3%以上になるとブリスタ リングの発生が促進されていることがわかる。ブリスタリ ングは、水素がタングステン内部に拡散し、局部に集積す ることで発生するため、混合イオン照射により材料表面か らの水素の脱離が抑制され、内部への拡散が増加したこと が示唆される.表面の元素分析より,混合イオン照射でタ ングステン表面に炭素・タングステンの混合層が形成され ていることがわかっており、この混合層が水素の表面再結 合過程(~1000 K 以下では、水素原子は表面再結合により 水素分子を形成して脱離する)を抑制している可能性があ る. 今後は, 混合イオン照射時の水素同位体の透過特性や, 水素同位体分布などを詳細に測定することにより、表面に 動的に形成される混合層が、水素同位体の放出に与える影 響について、定量的なデータを取得することを目標として 研究を進める. さらに、モデリングやシミュレーション研 究と連携して,核融合炉壁材料中の水素同位体挙動の評価 を行う.

ヘリウム同時照射が水素同位体挙動に与える影響につい ては、ここ1~2年で大きな進歩があった。その多くは、 ヘリウム同時照射により水素吸蔵が低減されるというもの である。図1で示した、水素・炭素混合ビーム照射でブリ スタが形成される条件で(エネルギー1keV,炭素割合~ 0.8%),さらにヘリウム0.1%を加えて照射した結果を図2 に示す[9].473Kではブリスタの個数が減少し、653K および723Kではほぼ完全にブリスタの発生が抑制されて いることが明らかになった。この後、プラズマシミュレー タによる高密度かつ低エネルギーの重水素・ヘリウム混合 プラズマ照射による実験結果が報告され、同様にブリスタ の発生が抑制され、また重水素の蓄積量が大幅に減少する ことが明らかになった[3].

タングステンに水素同位体イオンが照射されると,表面 近傍に近い捕獲サイトにまず捕獲される.イオンのエネル ギーが高いときは、イオン自身が照射欠陥を作り、そこに 捕獲される.イオンのエネルギーが低いときは、照射欠陥 は生成されず、固有の欠陥に捕獲される.ただ、フラック スが高く、試料温度が比較的低い場合は、タングステン内 に溶解しきれなかった水素同位体が析出して水素バブルを 作り、捕獲されると考えられている.このような表面近傍 (イオンの飛程程度)の捕獲サイトが飽和すると、水素同位 体が拡散する温度では(おおよそ室温以上)、水素同位体 原子は内部へ拡散し、材料固有の欠陥(あるいは中性子照 射欠陥)に捕獲される.このように高フルエンス照射下で は、内部への拡散が水素同位体蓄積量に大きな影響を及ぼ す.

ヘリウムがタングステンに入射されると, 表面近傍にナ ノメートルサイズのヘリウム原子を含むバブルが形成され る[10]. ITER の壁温度 (200 ℃程度) 条件では、このバブ ルは大きく成長せず,高密度で形成される.水素同位体イ オンの照射量が少ない場合(<10²⁴ m⁻²)はこのヘリウム バブル層が水素同位体の捕獲サイトとなり、ヘリウムがな い場合に比べ水素蓄積量が増加する[11].しかしながら, 照射量がこれ以上大きくなると、ヘリウムバブル層が、水 素同位体の内部拡散を抑制するために、水素同位体蓄積量 が大きく減少すると考えられる. 最近の高密度プラズマ照 射実験によると、ヘリウム同時照射が水素同位体蓄積の抑 制に与える影響は非常に大きく, ITER でタングステンを 使用した場合に、トリチウム蓄積量が大幅に減少する可能 性がある. 今後さらにヘリウムエネルギーやフラックスの 影響を明確にし、ITER での影響を精度良く見積もる必要 がある.

2.3 照射損傷が水素同位体蓄積に与える影響 (1) 水素蓄積評価のための基礎データの取得

材料中の水素蓄積量は水素の濃度分布から評価できる. 水素ガスやプラズマに曝された金属では,溶解度定数,拡 散係数および再結合定数から濃度分布が求められ,照射損 傷が水素の捕獲サイト(トラップ)として働く場合には, トラップエネルギーとトラップ密度も必要である.本研究 ではこれらの諸数値を基礎データと考え,拡散係数と溶解 度定数を除く値を実験的に求める計画である.以下では オーステナイト系ステンレス鋼のトラップに関する結果を 報告する.

試料には厚さ0.1 mmの304オーステナイト系ステンレス 鋼を用いた.予め水素の透過実験を行い,いわゆるタイ ム・ラグ法によって得た拡散係数が公開されている値と一 致すること,つまり,最初の状態ではトラップは存在しな いことを確認した.実験では,試料の片面を重水素プラズ マに曝し,もう片面に透過する重水素束を測定すると同時 に,プラズマに曝している表面近傍の重水素濃度を³He イ オンビームによる核反応法によって測定した.次に0.8 Project Review

MeV⁴Heイオンを照射して損傷を生成した後に同じ測定 を行った.

このようにして得られた重水素の深さ方向分布を図3に 示す.照射前は表面に吸着している重水素が見られ,バル クに固溶している重水素はわずかであった.照射後はト ラップが生成され,バルクの濃度は最大で数10倍増加し た.捕捉された重水素濃度と固溶している重水素濃度との 間に平衡が成り立っていると仮定し,平衡定数を求めた結 果を図4に丸印で示す.直線の傾きから,捕獲サイトは固 溶サイトよりも0.27 eV 低いポテンシャルにある,つまり トラップエネルギーは0.27 eV であることがわかった.

生成したトラップに関する特徴は次のとおりである.(1) 図3の深さ方向分布は照射イオンが生成する弾き出し損傷 分布によく似ている.(2)図4に示したように平衡定数は照 射イオンに依らず,水素照射でもヘリウム照射と同じト ラップが生成されている.(3)水素照射で生成したトラップ は500Kまで加熱すると消滅するが,この温度は空孔クラ スタの回復温度に一致する.(4)ヘリウム照射で生成したト ラップは700Kまで加熱しても消滅しない.これらから, トラップは損傷に起因する空孔クラスタであり,ヘリウム



図3 ヘリウムを照射したステンレス鋼中の重水素濃度分布.



図4 ステンレス鋼中に生成したトラップの平衡定数.

が安定化させていると言える.

水素やヘリウムの照射量は2~3 dpaであったが,この範 囲ではトラップ密度は損傷量に比例しており,弾き出し原 子数に対するトラップの数の比(トラップ生成率)は,ヘ リウム照射で4.7×10⁻³,水素照射で3.4×10⁻⁴であっ た.前者の値が大きいのは損傷カスケードがやや大きく, また,ヘリウムそのものが回復を妨げているためであろ う.

14 MeV 中性子が照射された場合,トラップエネルギー は上で求めた 0.27 eV であり,トラップの生成率は水素照 射での値に近く,多くのトラップは 500 K 付近で消滅する と考えられる.

(2) 高エネルギー水素イオン照射損傷を持つW中の重水 素蓄積挙動

タングステン材料中の照射損傷がトリチウム蓄積挙動に 与える影響を調べるため、あらかじめ照射損傷を付与した タングステンへ重水素イオンを注入した. 照射損傷の形成 には 300 keV H⁻を用いた. 形成した照射損傷の回復を防 ぐため、照射温度は 200 ℃以下とした. 照射損傷の形成後、 1 keV の重水素 (D⁺, D⁺₂, D⁺₃を含む)を照射した. 照射 量は $5.0 \times 10^{23} - 1.6 \times 10^{25}$ D⁺/m² とした. 照射温度は ITER の第一壁を想定し 200 ℃とした. 重水素の注入後、タング ステン内部の深さ分布は二次イオン質量分析法 (SIMS) で 測定し、絶対量を核反応法 (NRA) で校正した. 重水素の 放出特性は昇温脱離測定法 (TDS) を用いた.

図5に~4.8 dpaの照射損傷を形成したタングステン中の重水素深さ分布を照射損傷の分布とともに示す[12]. 試料表面付近(~0.1 μ m)では最も低い照射量(~5.0×10²³ D⁺/m²)で重水素密度が飽和した.重水素の蓄積量が捕獲サイトの密度と等しいと仮定すると,試料表面付近での捕獲サイトの密度はタングステンの原子数に対して~0.014 traps/W(~1.4%)と求められる.この領域での照射損傷量は~1 dpaであることから,トラップサイトの生成率は~1.4%/dpaと評価できる.一方,深さ~1 μ mでの重水素蓄積量は, 1.6×10²⁵ D/m³の重水素照射量でも飽和しな



図5 ピークで 4.8 dpa の照射損傷を形成したタングステンの重 水素密度の深さ分布. Displacement は TRIM コードで計算 した、300 keV H⁻で形成される照射損傷の分布.

かった.これは、照射損傷の形成に使用した軽水素がト ラップサイトに蓄積したためであった.そこで、捕獲サイ トから脱離した軽水素が再捕獲されないと仮定し、深さ~ 1µm付近の重水素密度の変化について指数関数を用いて フィッティングすることにより、飽和重水素密度を求め た.その結果、飽和重水素密度は(1.3±0.2)×10²⁷ D/m³と 推定された.試料表面付近と同様に、重水素密度が捕獲サ イトの密度と等しいと仮定すると、捕獲サイトの密度は2.1 ±0.3%と求められる.この値から、~4.8 dpaの照射損傷 に対する捕獲サイトの生成率は、0.4±0.1%/dpaとな る.このことから、1 dpa 以上の照射損傷では、トラップサ イトの生成率は dpa に対して比例せず、飽和傾向にあると いえる.

重水素深さ分布の測定後, TDSを用いて重水素の放出特 性を調べ, TMAP7を用いて得られた放出特性のシミュ レーションを行った. その結果, ~1.6 eV のエネルギーを 持つトラップサイトが~70%存在し, ~2.0 eV のエネル ギーを持つトラップサイトが~30%存在する可能性が あった.

これまで述べてきた実験結果を基に,TMAP7を用い て,14 MeV中性子照射損傷を受けたITER第一壁タングス テンへのトリチウム蓄積量を評価した.その結果を図6に 示す.ITER第一壁の面積は700 m²,タングステンアー マー材の厚さは1 cm,温度は200 ℃と仮定した.トラップ サイトの生成率は~1.4%/dpaを用いた.照射損傷はアー マー材の深さ方向に均一に形成されるとした.トラップエ ネルギーは~1.6 eV および~2.0 eV とし,これらのトラッ プサイトが7:3の割合で形成されると仮定した.入射粒 子のフラックスやエネルギーはRothらの結果[13]に従っ た.図6に示すように,放電時間が10⁵秒(250ショット)以 下の場合には,14 MeV 中性子照射により照射損傷が形成 されたとしても,これによるトリチウムの大きな蓄積増加



図6 14 MeV 中性子照射損傷を受けた ITER 第一壁タングステン へのトリチウム蓄積量の変化.第一壁への照射損傷の影響 のみが考慮され、ダイバータ部への照射損傷の影響は考慮 されていない.破線は真空容器内でのトリチウムの許容量 を示す.

は見られない.しかし、10⁵秒(250ショット)を超えたあ たりから、14 MeV 中性子の照射損傷による蓄積量の増加 が顕著に現れ始めた.ITER 運転終了時点(400秒運転を 25000ショットと仮定)では、14 MeV 中性子による照射損 傷がない場合にはトリチウムの蓄積量は~8.0×10²⁴ atoms (~40 g)であるのに対して、照射損傷が形成されることで トリチウムの蓄積量が一桁以上増加し、~1.2×10²⁶ atoms (~600 g)となる可能性がある.これは真空容器内でのト リチウムの許容量に近い値である.

2.4 ダストの発生と水素同位体蓄積への影響 (1) 炭素ダスト形成のメカニズム

核融合研究において微粒子の生成・輸送過程の解明,微 粒子発生の抑制と除去方法の開発が重要な研究課題となっ ている.微粒子に関連してトリチウムを吸蔵した炭素微粒 子の飛散,炭素系微粒子の爆発,微粒子の装置ギャップ間 侵入による絶縁および気密性の劣化,高温炉心プラズマ中 での微粒子の溶融,蒸発による多量の不純物発生などの問 題が指摘されている.

直線型ダイバータプラズマ模擬試験装置を用いて、核融 合境界プラズマに相当する高密度重水素プラズマと炭素材 相互作用による炭素ダスト形成メカニズムを調べた[14]. 炭素材としては、等方性黒鉛(東洋炭素:IG430U)を用い た.図7(a)は、重水素プラズマ照射後の炭素材表面の SEM 写真である.表面温度は約800K程度である.図より 球状の炭素微粒子が多数形成されていることがわかる.こ の炭素微粒子の内部モルフォロジーを、半導体プロセス観 測に用いられる FIB (Focused Ion Beam)装置を用いて観 測した.図7(b)-(d)は、ガリウムイオンビームによる炭



図7 (a)重水素プラズマ照射により炭素材表面に形成され微粒 子の電子顕微鏡写真 (SEM 像).表面温度 *T*_s~600-700 K, 入射イオンエネルギー *E*_i~13.4 eV,イオン照射量 F~3.4 ×10²⁶m⁻²,(b)-(d) FIB 装置で観測された微粒子の SIM 像.

Project Review

素微粒子のエッチング過程の SIM 画像である. これよ り、炭素微粒子の内部は稠密ではなく、細かい網目状のセ ル構造により構成されていることが初めて明らかになっ た.以上の結果は、観測された炭素微粒子は気相中で生成 されているのではなく、表面反応により徐々に成長してい ることを示している. また内部のセル構造に伴い多量のガ スを内包している可能性がある. 製作した TDS装置を用い て、今後炭素系ダストの水素吸蔵特性を調べる予定であ る.

(2) タングステンへのヘリウム照射によるダスト発生機構 現在,次期核融合装置のプラズマ対向材料として,水素 同位体との化学反応がなく高い熱負荷に耐えられる高融点 材料であるタングステンの使用が検討されている.

タングステンは水素原子や核融合反応で生成されるヘリ ウム原子などの軽元素に対して非常に大きなスパッタリン グ閾値エネルギーを持つため、これまで水素やヘリウムプ ラズマ照射では損傷しないと考えられていた.しかし最近 の実験研究により、スパッタリング閾値エネルギー以下の ヘリウムプラズマ照射によっても、タングステン材料が損 傷することが明らかとなった[15].さらに、材料表面温度 とヘリウムイオンの照射量を変化させることにより、様々 なナノ繊維構造を有する表面変形が観測されている.これ らのヘリウムプラズマによる照射損傷に伴いタングステン ダストが形成される.

ナノ繊維構造が形成されたタングステンにルビーレー ザーにより過渡的な熱負荷を印加したところ,図8(a)の ような球状のタングステンダストが形成された[16].これ はナノ繊維構造形成により表面の熱拡散係数が著しく低下 しているため,ルビーレーザー照射により表面が溶融した と考えられる.

一方へリウムのバブル/ホールが形成されたタングステン材に重水素プラズマを照射したところ,結晶粒が放出され、タングステンダストとなることが観測された(図8(b)).これはヘリウムバブルは粒界に沿って多く発生するため、重水素プラズマ照射により粒界部が剥離し,結晶粒が放出されたと考えられる.

(3) 実験室プラズマにおけるダストの運動

プラズマ中での微粒子の輸送過程の理解も重要である. 基礎プラズマでは、中性ガスとの摩擦力や電界による力が 主であるのに対して、核融合プラズマでは、プラズマ流と の摩擦力が主であると考えられている.発生したダストを 安全に除去するためにダスト輸送の理解と制御が必要不可 欠となる.

トロイダルダイバータ模擬試験装置 NAGDIS-T によっ て曲率を持った磁力線に沿うヘリカル状の直流高密度プラ ズマを生成し,その中に真空容器上部からダスト粒子を導 入してダスト輸送に磁場構造やプラズマの流れがどのよう に影響するかを調べた.マッハプローブによってプラズマ の流れを計測し,高速掃引4ピンプローブによってプラズ マパラメータの2次元分布の計測を行っている.

マッハプローブによってプラズマの*E*×*B*ドリフト回転 が観測され,真空容器上部から混入されたダストがそのプ



図8 (a)ナノ繊維構造を有するタングステンに熱パルス(ル ビーレーザー)を印加した時に形成されるタングステンダ スト、(b)結晶粒の放出により形成されたタングステンダ スト.

ラズマ回転流によるイオンドラッグ力を受けて径方向弱磁 場側への輸送が増加するという結果が得られた(図9 (a)).また観測されたダスト粒子の軌道解析を行い,その 速度変化も明らかとなった(図9(b)).

2.5 実機における壁材料の損耗・再堆積と再堆 積層の水素同位体蓄積・放出挙動

(1) JT-60Uにおける炭素堆積層の形成と水素同位体蓄積

JT-60Uにおける炭素の損耗/再堆積と水素同位体の蓄 積は、JT-60Uが基本的に570Kで運転されてきたため、室 温付近で運転されているほとんどのトカマク装置や、ダイ バータが水冷されていたJETの実験結果とはやや異なって おり、ITERや核融合炉でのトリチウムの蓄積量の評価に 不可欠なものとなっている.これまでに、ダイバータ領域 での炭素の損耗堆積[17]、および水素同位体の蓄積等[18] がかなり詳細に調べられているが、タイルギャップやトロ イダル方向の非対称性など課題も残されている.ここで は、これまで得られてきた結果を簡単に紹介し、今後この プロジェクトでの目標達成にさらに必要な残された課題に ついて概観する.詳細はレビューとしてまとめられてお り、Suppl. Nucl. Fusion[19]にて出版される予定である.

(i) JT-60U ダイバータ領域でのプラズマ対向炭素タイル



図9 (a)高速カメラで観測されたダスト軌道, (b)各ダストの速 度変化.

の損耗/再堆積

図10にダイバータ領域でのプラズマ対向炭素タイルのポ ロイダル方向の損耗再堆積分布を示した[17].外側ダイ バータタイルは概ね損耗されており, 内側ダイバータタイル が再堆積層で覆われているのは、JET や ASDEX 等のダイ バータ装置で見られている結果とほぼ同様である.図は、 両側排気ダイバータの結果であるが、片側(内側)排気ダ イバータの結果も損耗再堆積分布はほぼ同様である。ただ し片側排気の場合は内側ドームタイルが再堆積になってお り、外側から内側に向かった排気の流れにそって、炭素不 純物が移動していることが示唆されている。このような分 布はトロイダル方向に一様であると仮定し、内側ダイバー タでの再堆積総量を評価すると、0.55 kg(10.7×10²⁰ C/s) であり、同様に評価した外側ダイバータの損耗総量0.34 kg (-5.7×10²⁰ C/s)を上回る.不足分 0.21 kg (5×10²⁰ C/s) は第1壁が損耗されたものと考えられている[17,20,21]. 実際外側第1壁を観察したところ,そのほとんどは損耗さ れていることが確認されたが、炭素輸送質量のバランスは まだ確認されていない、外側ドームウイングタイルは再堆 積になっている.特にタイル底部,排気口に向いた側では 再堆積が著しい. これは外側ダイバータで損耗された炭素 が、プラズマを経由しないで、直接再堆積したもの考えら れ、炭素の輸送に関する新しい知見であり注目を集めてい る.

(ii) JT-60Uダイバータ領域での水素同位体の蓄積
 図11に、ダイバータ領域の炭素タイル中の水素蓄積量を



図10 JT-60U 両側排気 W 型ダイバータの損耗/再堆積のポロイ ダル方向の分布[17]、(正は再堆積層の厚さ、負の厚さは 損耗厚さを表す).



図11 JT-60U 両側排気 W 型ダイバータとして使用された黒鉛タ イルの水素(H+D)の蓄積量の比較(ID, DM., OD はそれ ぞれ内側ダイバータ、ドーム、外側ダイバータタイルから 採取した試料, BP はドーム両側のバッフルプレートから採 取した試料)[22].

比較した[21-23]. 図からわかるように,再堆積領域では, 損耗領域よりも明らかに水素蓄積量が多くなっている. ま た外側ドームの再堆積層の方が、内側ダイバータタイル上 の再堆積層よりも水素蓄積が多いこともわかる.再堆積層 の中の水素濃度は(H+D)/C比で 0.05以下で他のトカマク 装置で報告されている値よりかなり小さい.また JT-60U では DD 放電(重水素放電+重水素ビーム加熱)の後には, DD 放電で生成されたトリチウム(T)を除去するため、 HH 放電(軽水素放電+軽水素ビーム加熱)が行われてい る. このため, 図からわかるように, DD 放電で試料中に蓄 積されていたDがHH放電中にHに置き換えられる. JT-60Uのダイバータ温度は、放電中に900K以上に上昇す るため, DとHの同位体交換効率は高く, Hの蓄積が, 全 体の蓄積量の2/3以上になっている.この同位体交換は、 再堆積層でも同じように起こっており、実際の DT 放電後 に DD 放電を行うことにより, 壁に蓄積された T を効率よ く取り出すことができるものとして期待されている[22].

(iii) JT-60Uの炭素損耗/再堆積および水素蓄積の特徴
 JT-60Uは,通常570Kとかなり高温で運転されていたた

Project Review

め,他の多くのトカマク装置とはやや異なった結果が得ら れている.再堆積層の温度が高くなっているため水素蓄積 が小さいだけでなく基板へ密着性がよいため剥がれにく い.また空気中に取り出してもほとんど変化しない(酸化 されにくい).さらにDが効率よくHに置き換えられてい る.炭素材料をDT炉で使用することをためらわせている, 水素蓄積が多い,再堆積層が剥がれやすくダストになりや すい,Tが除去し難い等の欠点を軽減するものであり,W に頼らざるを得ないと考えられているDT炉に炭素の可能 性を開く結果となっている.

炭素材への水素の蓄積を定量的に評価するためのモデル 化,定式化が,今後の課題であり,またプラズマに晒され ていないタイルギャップや,遠隔地での炭素の再堆積およ び水素の蓄積の解明も残されている.

(2) 炭化水素の発生とグローバル粒子バランス

トカマク実機の容器内での水素蓄積量を測定するに は、1.実験終了後に真空容器内からタイルを取り出し、タ イルに吸蔵されている水素量を測定する方法(以下、タイ ル分析法)、2.真空容器への水素の入射量と排出量の差か ら真空容器内に残留した水素量を測定する方法(以下、粒 子バランス法)などがある.これらの方法による容器内の 総水素蓄積量の測定結果を比較すると、概して、粒子バラ ンス法による測定値がタイル分析法による測定値を大幅に 超える場合が多い.本研究では、統一された実験条件でこ れらの分析法による測定値を比較することによって、両者 の不一致を解決し、水素蓄積量の精度の高い評価と水素蓄 積機構の解明を目的として研究を進めている.

ここでは粒子バランス法による重水素蓄積量の測定結果 について述べる.粒子バランス法とは真空容器壁を境界と した粒子(重水素)の流入と流出のバランスの式から容器 内部の重水素蓄積量を導出する方法である.

$$dN/dt = \Gamma_{\rm injected} - \Gamma_{\rm pumped} - \Gamma_{\rm wall} \tag{1}$$

ここで、N はプラズマまたは中性粒子として気相中に存 在する重水素数、 $\Gamma_{injected}$ はガスパフ、中性粒子ビーム、な どによって容器内へ単位時間あたりに入射される重水素 数、 Γ_{pumped} はクライオポンプなどによって容器外へ単位時 間あたりに排出される重水素数、および Γ_{wall} は容器内のタ イルに単位時間あたりに吸蔵される重水素数である.定常 状態では上式の左辺をゼロとみなし、また右辺の第一項お よび第二項は測定可能であるので、それらの差から右辺の 第三項 Γ_{wall} が導出される.さらに Γ_{wall} を放電中の時間につ いて積分すると一放電での重水素蓄積量が、さらに放電中 以外の時間(プラズマがない状態)についても積分するこ とで、例えば、特定の一実験日あるいは特定の一実験キャ ンペーンでの重水素蓄積量が導出される.

実験は原子力機構のJT-60Uにて行われた.主な放電条件は、プラズマ電流1.2 MA、トロイダル磁場2.3 T、中性粒子ビーム加熱パワー8 MW(入射時間~30秒)であり、Hモード放電である.同一条件の放電を約20ショット繰り返し(ただし約10ショット以降では放電ごとにプラズマ密度

を上昇させた)、粒子バランス法により容器内の重水素蓄 積量を導出した. 同様の実験を壁温(ベーキングの設定温 度) 80 ℃, 150 ℃, および 300 ℃でも行った. 図12には, 最 初のショットを基準にして、あるショット開始前までに蓄 積された重水素数を示す.外側ダイバータプラズマが接触 状態にあるショット(図では塗りつぶした記号で示す、グ リーンワルド密度に対するプラズマ密度割合~50%)を繰 り返している間では、壁温の違いによって重水素蓄積量の 変化に違いが見られる. すなわち, 重水素蓄積量は, 壁温 300 ℃では常に減少するが, 壁温 150 ℃では緩やかに減少 し、一方、壁温80℃ではほとんど増減しない.ここで解析 の対象とした30秒 Hモード放電では、外側ダイバータ板な どプラズマの照射によってタイルの温度上昇が著しい場所 から重水素が放出される一方で、温度上昇が小さい第一壁 領域などでは重水素が吸蔵されると考えられる.炭素材に 吸蔵可能な水素数は低温で多く高温で少なくなるため [24], 壁温 80 ℃では重水素の吸蔵と放出がバランスし重 水素蓄積量が増減しなかったが, 壁温 300 ℃では放出が多 く吸蔵が限られていたために全体として重水素蓄積量が減 少する傾向になったと解釈される.

他方,外側ダイバータプラズマが非接触状態にある ショット(図では白抜き記号で示す,グリーンワルド密度 に対するプラズマ密度割合>70%)では,重水素蓄積量は 壁温によらず上昇傾向を示す.図13には1ショットあたり の外側ダイバータでのメタン発生量を重水素蓄積量に対し て示す.外側ダイバータが接触状態から非接触状態になる と密度の上昇とともに,1ショットあたりの重水素蓄積量 およびメタン発生量は増加する.ここで,1ショットあた りの重水素蓄積量に対するメタン発生量の関係は図13の実 直線に沿うと仮定し,さらに発生したメタンが重水素と供 堆積し,その堆積層中の炭素数に対する重水素数を0.4 お よび,その再堆積層のうち90%が損耗せずに残ったとする と,容器内に蓄積した重水素のうちほぼすべてが再堆積層 に含まれると評価される.

ここで評価した炭素との供堆積による重水素蓄積量を確 かめることを目的に,JT-60Uの最終ショットを含む最後 の12ショットには,外側ダイバータより化学スパッタリン



図12 放電数に対する容器内に蓄積した重水素数の変化. 最初の 放電開始前の蓄積量を基準(=0)とした.





グによるメタン発生量と同程度の¹³CH₄を入射した. 今後, タイルを取り出して、堆積層のうち上層の¹³Cを含む層に 含まれている重水素数を定量的に測定し、上記の粒子バラ ンス法による評価結果と比較する予定である.約一年の実 験キャンペーンでの比較ではなく、このように同一放電条 件の限られたショット数でのタイル分析法と粒子バランス 法の評価結果の比較は少数の例外を除くと世界的にも行わ れていない.両者の比較によって、特に再堆積層での重水 素蓄積量の評価精度の向上とともに再堆積層の形成条件な どの理解が進むと期待される. これは ITER でのトリチウ ム蓄積量の予測精度の向上につながり、炭素材ダイバータ でもトリチウム蓄積量を許認可の上限値以下に抑えられる か,などダイバータの材料選択に関わる重要な知見とな る.研究成果をITPA (国際トカマク物理活動) など国内外 の専門家が集結する会合でも積極的に発表する予定であ る.

(3) タングステンの損耗と再堆積

炭素材料を壁材料として用いた場合は、すでに示したように再堆積層中のトリチウム蓄積が問題となる.その際、 損耗された炭素がプラズマ中をどのように輸送され、どこに堆積するかを理解することが大変に重要である.しかし ながら、不純物の輸送機構は大変に複雑であり、理解をより深めて実機での現象を評価するためには、様々な不純物 の輸送特性を知り、その機構の解明、適切なモデリング、 およびシミュレーションコードの開発が必要である.

JT-60Uでは2003年の実験より、タングステンをコー ティングしたタイルを外側ダイバータに設置し(トロイダ ル周長の約1/21)、タングステンのコアプラズマ中での輸 送、および炉内再堆積分布について研究を進めている.特 に炭素タイル上に炭素とともに再堆積したタングステンの 堆積量については、世界で初めて放射化分析法を用いて測 定を行い、精密な測定を行うことに成功している[25].放 射化分析では、原子力機構のFNS(Fusion Nutronics Source)を利用した.炭素タイル上の微量のタングステン を高感度で分析するためには、低速中性子(50 eV 以下)の 吸収反応(¹⁸⁶W(n,g)¹⁸⁷W)を利用することが必要である. このためには、FNS で発生する 14 MeV の核融合中性子で はエネルギーが高すぎるため,Be体系中に試料を設置 し、中性子を減速させて反応率を高めた.

タングステンタイルと同じトロイダル位置での、タング ステン再堆積量のポロイダル分布を図14に示す. タングス テンは、内側ダイバータ(ストライク点近傍)、ドームトッ プ,及びドームの外側ウイングに多く堆積していることが 明らかになった.また、外側ウイング上のタングステン堆 積量のトロイダル依存性を図15に示す.タングステンの堆 積は、 タングステンタイルの近傍に局在していることが明 らかになった.また、内側ダイバータ上の炭素とタングス テンの共堆積層内で、タングステンの割合は約1%であっ た. タングステンタイルは、ポロイダル断面の1カ所に設 置され、トロイダル周長の約1/21を占める(~5%)が、炉 壁全体の割合として考えるとごくわずかである。また、タ ングステンの損耗率は炭素の約10⁻²であり,これらを総合 的に考えると内側ダイバータ上のタングステン割合は非常 に大きく, タングステンがこの部分に局在している可能性 が示唆される. 今後, トロイダル方向の分布を詳細に測定 し、タングステンの輸送についてより進んだ議論を行う予 定である.

外側ウイング上のタングステンの堆積については、A02



図14 タングステンの再堆積量のダイバータ部のポロイダル分 布.タングステンタイルと同じトロイダルセクションの データ (P-8 セクション).



図15 ドーム外側ウイング上のタングステン再堆積量トロイダル 分布.

Project Review

班が行ったダイバータの不純物輸送シミュレーションの結 果より,ダイバータのストライク点をタングステンタイル 上においた放電で,密度の低いプライベート領域をタング ステン原子がイオン化せずに通過し,堆積した可能性が指 摘されている.一方,インナーダイバータのストライク点 近傍のタングステン堆積については,実験結果を再現でき るシミュレーション結果は得られておらず,今後さらに研 究を進める必要がある.

2.6 壁材料中の水素同位体除去

(1) 重水素除去実験

炉内トリチウムインベントリの低減および水素リサイク リング制御のため、グロー放電等による水素同位体の除去 が必要である.このため、まずグロー放電装置[26]のライ ナー(316LSS)に重水素を保持させて、希ガス(He, Ne, Ar)のグロー放電を行い、どの程度除去できるかを測定し た.放電圧力は 8 Pa,放電電圧は235-375 V,1回の放電時 間を 2 h とした.重水素放電を行ってライナー中に重水素 を保持させた後、He, Ne, Ar グロー放電を行った.残留 ガス分析(RGA)による分圧測定から、ガス保持量と脱離 量を求めた.

(2) 実験結果

重水素放電後の 316L SS の重水素保持量は 4.8×10²⁰ D/m²となり,軽水素の保持量 4.1×10²⁰ D/m²とほぼ同程度 であった.重水素放電後に Ne または Ar グロー放電を行っ た場合の装置内の分圧変化をそれぞれ図16および図17に示 す.Ne および Ar グロー放電の除去率は各々 24% および 12%であり, Ne のほうが効果があった.以前に実施した軽 水素除去においても Ne 放電の方が効果的であり,その値 (28%)も同程度であった[27].Ar 放電においては,ス パッタ損耗が大きいため再堆積層が形成されやすく,重水 素除去効果が小さくなるためである[28].一方,He グ ロー放電で重水素保持量を低減する実験では,D₂と He を同時測定でき四重極質量分析計を用いて RGA 分析した. He では重水素保持量を約 45% 除去できた.これは,He ではスパッタ堆積層が形成されにくいこと,およびDとHe の注入深さが同程度であることによる.

ITER ではまず軽水素放電を行い,次いで重水素放電を 行い,DT 放電へと移行する.例えば,重水素放電を行う前 には,保持されている軽水素を除去しておく必要がある. 軽水素グロー放電の後に実施した重水素グロー放電では軽 水素の86%が除去された.したがって,数時間の重水素グ ロー放電により,表面層(数nm)の軽水素の除去が可能で ある.内部から表面への軽水素の拡散を考えると,数10時 間の置換放電が必要と判断される.

重水素保持量に対して, He, Ne, Ar の保持量は各々1 桁, 2桁, 3桁小さな値となる. He 保持量は重水素保持量 に対して比較的大きく, He 放電洗浄中に壁にかなり保持 される. この He が主放電中に混入すると閉じ込め特性も イオン加熱条件も違ってくる. したがって, He 保持量の低 減が必要である. He の除去に対しては, D₂グロー放電では ほとんど効果はない[26]. He 除去に対しては, Ne あるい



図17 アルゴングロー放電中の水素分圧の時間変化.

は Ar グロー放電が効果的である[27,28].

2.7 まとめ

核融合炉内のトリチウム蓄積量の推定,およびその除去 を目的として進められている計画研究 A01班の研究現状を 紹介した.その概要は以下のとおりである.

- イオン同時照射環境下(重水素,炭素,ヘリウム)では、不純物イオン(炭素,ヘリウム)の存在によりタングステンのブリスタリング発生に大きな影響があることが明らかになった。ブリスタリングは、水素同位体の局所的な集積により生ずることがわかっているので、本結果よりタングステン中のトリチウム蓄積量を推定する際には、イオン同時照射下での現象の理解が必要であることがわかった。今後は、重水素透過実験等を行い、同時照射により生じる表面改質層が重水素放出・拡散挙動に与える影響を定量的に評価する。
- 中性子照射損傷を模擬するため、高エネルギーイオン ビーム(H, He)により照射損傷を与えたオーステナ イト系ステンレス鋼、およびタングステンについて、 重水素プラズマ、あるいは重水素イオンビームにさら

して重水素を注入し、捕獲サイトの生成率(はじき出 し原子数に対する捕獲サイト数)を求めた.オーステ ナイト鋼では、HとHe照射(0.8 MeV)試料を比べる と、He照射の方が捕獲サイト生成率が1桁大きく(4.7 ×10⁻³)、照射イオン種が捕獲サイト生成に影響して いることが示唆された.また、タングステン(0.3 MeV -H予照射)の捕獲サイト生成率は1.4×10⁻²であった. また、この捕獲サイト生成率な仮定して、ITERの第 一壁のトリチウム蓄積量を求めると、照射損傷がない 場合に比べ、1桁以上増加することが示された.今後 は、照射量依存性や温度影響のデータを取得し、また 他の研究グループのデータも参照しながら、14 MeV 中性子照射損傷の影響をより精密に評価する.

- 3. 高密度プラズマと炭素材(重水素プラズマ),あるい はタングステン材(ヘリウムプラズマ)が相互作用し ている場合のダスト形成メカニズムを調べた.高密度 重水素プラズマにさらされた炭素材表面には球状のダ ストが形成され、ダスト内部の観察から表面反応によ り成長していることが明らかになった.また、タング ステン材をヘリウムプラズマで照射するとナノ繊維構 造が形成され、この構造はパルスレーザーによる過渡 的な熱負荷でタングステンダストに容易に変化するこ とがわかった.今後は、これらのダストの重水素リテ ンションについて調べる予定である.
- 4. JT-60Uにおける壁材料の損耗・再堆積、およびそれ に伴う重水素リテンションについて調べた. ダイバー タ領域では、外側ダイバータは損耗領域で、内側ダイ バータが再堆積領域である. タングステンの輸送もほ ぼ同様の傾向を示した.再堆積領域に主に水素同位体 は吸蔵されるが、その(H+D)/C比は0.05以下と他のト カマク装置に比べ非常に小さい.また,実験期間の最 後に行われる H 放電により,再堆積層中の D が効率よ く除去されている. さらに、粒子バランスより炉内の 重水素蓄積量を推定した.接触プラズマ条件では,壁 温度が80℃から300℃に上がると重水素蓄積量が、ほ ぼ変化のない状態から減少に転じた.一方,非接触プ ラズマでは、重水素蓄積量は壁温によらず上昇傾向を 示した. 今後は, JT-60Uの最終12ショットで外側ダイ バータより入射した¹³CH₄の堆積層中の重水素蓄積量 と, 粒子バランス法による蓄積量を比較して, 再堆積 層での重水素蓄積量の評価精度を高め、再堆積層形成

条件を明らかにする.

5. ステンレス鋼 (316LSS) に対し, グロー放電で重水素 を注入し, He, Ne, Ar によるグロー放電で重水素除 去効率を調べたところ, He が最も多くの重水素除去 が可能であった. また, He 放電後は壁に He が多く蓄 積されるため, さらに Ne や Ar 放電による He 除去が 必要である. 今後は, タングステン壁について同様の 研究を行い, ITER のタングステン壁中のトリチウム の有効な除去方法について研究を行う.

最終的には、これらの実験結果を基に、A02班のシミュ レーション研究と協力し、ITER や原型炉でのトリチウム 蓄積の評価、およびトリチウム除去法の検討を行う.

参考文献

- [1] N. Ohno et al., J. Nucl. Mater. 363-365, 1153 (2007).
- [2] M. Baldwin et al., J. Nucl. Mater. 390-391, 886 (2009).
- [3] M. Miyamoto et al., Nucl. Fusion 49, 065035 (2009).
- [4] V. Barabash et al., J. Nucl. Mater. 313-316, 42 (2003).
- [5] R. Doerner *et al.*, Nucl. Fusion **49**, 035002 (2009).
- [6] S. Rosanvallon et al., J. Nucl. Mater. 390-391, 57 (2009).
- [7] T. Shibahara et al., J. Nucl. Mater. 337-339, 654 (2005).
- [8] Y. Ueda et al., Nucl. Fusion 44, 62 (2004).
- [9] Y. Ueda et al., J. Nucl. Mater. 386-388, 725 (2009).
- [10] N. Yoshida et al., J.Nucl. Mater. 337-339, 946 (2005).
- [11] H. Iwakiri et al., J. Nucl. Mater. 307-311, 135 (2002).
- [12] M. Fukumoto et al., J. Nucl. Mater. 390-391, 572 (2009).
- [13] J. Roth et al., J. Nucl. Mater. 390-391, 1 (2009).
- [14] N. Ohno et al., J. Nucl. Mater. 390-391, 61 (2009).
- [15] N. Ohno et al., J. Nucl. Mater. 363-365, 1153 (2007).
- [16] S. Kajita et al., Nucl. Fusion 47, 1358 (2007).
- [17] Y. Gotoh et al., J. Nucl. Mater. 357, 138(2006).
- [18] T. Shibahara et al., J. Nucl. Mater. 357, 115(2006).
- [19] T. Tanabe et al., Suppl. Nucl. Fusion, to be published.
- [20] K. Masaki, T. Tanabe and Y. Hirohata, Nucl. Fusion 47, 1577(2007).
- [21] T. Tanabe *et al.*, Physica Scripta, *to be published*.
- [22] T. Tanabe, K. Sugiyama, T, Shibahara *et al.*, J. Nucl. Mater. **390-391**, 705(2009).
- [23] M. Yoshida et al., J. Nucl. Mater. 390-391, 635(2009).
- [24] W. Moller, J. Nucl. Mater. 162-164, 138 (1989).
- [25] Y. Ueda *et al.*, Nucl. Fusion 49, 065027 (2009).
- [26] T. Hino et al., Fusion Eng. Des. 72, 339(2005).
- [27] Y. Yamauchi et al., J. Nucl. Mater. 390-391, 1048(2009).
- [28] T. Hino et al., Vacuum 83, 493(2009).



プロジェクトレビュー 核融合炉実現を目指したトリチウム研究の新展開

核融合炉のトリチウム蓄積・排出評価のための理論 3. およびシミュレーションコードの開発

 $_{\pm 1}^{(1)}$, 井内健介¹⁾, 清水勝宏²⁾, 滝塚知典²⁾, 川島寿人²⁾, 星野一生²⁾, 畑山明聖³⁾, 大宅 藤間光徳³, 冨田幸博⁴, 河村学思⁴, 芦川直子⁵, 田中康規⁶, 小野忠良⁷, 村本哲也⁷, 剣 持 貴 弘⁸, 中 村 浩 章⁴⁾, 伊 藤 篤 史⁴⁾, 加 藤 太 治⁹⁾

¹⁾徳島大学大学院ソシオテクノサイエンス研究部,²⁾日本原子力研究開発機構核融合研究開発部門,

3)慶応大学理工学部,4)核融合科学研究所シミュレーション科学研究部,5)核融合科学研究所大型へリカル研究部,

⁶⁾金沢大学理工研究域電子情報系,⁷⁾岡山理科大学総合情報学部,⁸⁾同志社大学生命医科学部,

9)核融合科学研究所連携研究推進センター

(原稿受付:2009年8月27日)

Keywords:

computer simulation, tritium inventory, plasma wall interaction, co-deposition, integrated modeling, divertor, integrated divertor code, tungsten, SOL, dust, diffusion, fluence dependence, molecular dynamics, chemical sputtering, first principle, radiation defect

3.1 A02班計画研究の概要

核融合炉壁における燃料トリチウムの蓄積および放出挙 動には、 プラズマ化したトリチウムの対向壁材料内への注 入、捕獲、拡散、再放出のような材料自体のローカルな特 性が関係する.一方、プラズマ照射によってスパッタされ た壁不純物がプラズマ中を輸送されるため、対向壁表面に 形成する再堆積層中へのトリチウムの蓄積(トリチウム共 堆積)といった,核融合炉内のプラズマ,特に,ダイバー タ・境界層プラズマ中のトリチウムや不純物の輸送に関係 したグローバルな過程も関与する.また、第一壁にベリリ ウム,ダイバータの上部バッフル板とドームにタングステ ン,ストライク点周辺に炭素繊維複合材料(CFC)を用い る次期核融合装置 ITER では、これら異なった材料の混合 やそれらのトリチウム共堆積への影響が、炉内トリチウム 蓄積量の定量評価に大きく影響すると考えられる[1]. さ らに、トリチウム共堆積の問題は再堆積層の剥離やトリチ ウムを含んだダストの発生へと発展する.したがって、ト リチウムの炉内の蓄積量や炉外への排出速度を定量評価す るには、トリチウムプラズマとプラズマ対向壁とのローカ ルな相互作用と境界層プラズマやダイバータでのトリチウ ムや不純物のグローバルな輸送現象の双方に係る詳細な理 解と、それらを自己無撞着に解析するシミュレーション コードの開発が必要である.

これまで国内でも、個人ベースでプラズマと材料表面と の相互作用や、ダイバータ、境界層プラズマを取り扱う先 進的なシミュレーションコードが開発されてきた.本計画

研究では、境界層・ダイバータプラズマとプラズマ・材料 相互作用関連コードを開発する研究者の連携研究によっ て、1) 炉内プラズマ中のトリチウム輸送と対向壁への蓄 積と放出,2)ダスト粒子の炉内プラズマ中の挙動とトリ チウム蓄積,3)プラズマ対向材料のトリチウム蓄積と放 出に係るコード開発を進めている. さらに,実験を中心と する A01班とも連携して、基礎実験データに基づくシミュ レーションモデルの構築や実機実験データ解析によるシ ミュレーションコードの評価を行いながら、トリチウムの 炉内蓄積量と炉外への排出速度とを定量評価できるシミュ レーションコードを開発している(図1).

本章では、これら研究の現状を報告し、今後の課題につ いて述べる.

3.2 炉内プラズマ中のトリチウム輸送と対向壁 への蓄積と放出

(1) プラズマ・壁相互作用コードによるトリチウム蓄積評 価 (EDDY)

現在の ITER の材料選択では、装置内のトリチウム蓄積 量は特に内側ダイバータやプラズマに晒されない領域での 炭素との共堆積によって支配される. CFC ダイバータ板へ の高粒子東トリチウムの照射によって化学スパッタリング が起こり、その際放出されたメタン等の炭化水素分子が解 離やイオン化などの原子分子過程を経てダイバータプラズ マ中に入り輸送される. これがダイバータ板や構造上プラ ズマに晒されない部分に再堆積される.この際,特に温度

3. Theory and Code Development for Evaluation of Tritium Retention and Exhaust in Fusion Reactor

TOMA Mitsunori, TOMITA Yukihiro, KAWAMURA Gakushi, ASHIKAWA Naoko, TANAKA Yasunori, ONO Tadayoshi, MURAMOTO Tetsuya, KENMOTSU Takahiro, NAKAMURA Hiroaki, ITO Atsushi and KATO Daiji

corresponding author's e-mail: ohya@ee.tokushima-u.ac.jp

OHYA Kaoru, INAI Kensuke, SHIMIZU Katsuhiro, TAKIZUKA Tomonori, KAWASHIMA Hisato, HOSHINO Kazuo, HATAYAMA Akiyoshi,



図1 ダイバータのプラズマ壁相互作用とトリチウム/不純物輸送.

の低い部分では炭素堆積層に多量のトリチウムが吸蔵され る. EDDY コード[2] はプラズマイオン照射による壁材料 の物理スパッタリングや化学スパッタリングによる損耗 と,損耗された粒子のプラズマ中の原子分子過程を含む輸 送、さらには壁への再付着あるいは反射を考慮して、プラ ズマ対向壁表面の損耗・再堆積量を評価することができ る. B2-EIRENE コードで計算した ITER 内側ダイバータ板 付近のプラズマパラメータと入射イオン束、ダイバータ板 表面の温度分布を仮定すると、Roth[3]の提案した化学ス パッタリング損耗率の経験式(ただし、放出炭化水素はメ タンとする)を用いて、EDDY コードで内側ダイバータ表 面の炭素堆積分布が計算できる.これに、炭素堆積層中に 含まれるトリチウム濃度(T/C比)を使って、内側ダイ バータ板に蓄積されるトリチウム量を評価する. ストライ ク点以外を摂氏百数十度とする表面温度分布を用い、炭素 堆積層のD/C比の経験式[4]をT/C比に対して仮定する と、図2のトリチウム蓄積分布の積分値として、33 mgT/s のトリチウム蓄積速度を得る.これは, ITER で 400 s 標準 DT 放電を53回行うと,積算トリチウム量が管理制限値 700gに到達することを示している.ストライク点以外を 500℃程度に加熱するとトリチウム蓄積量をかなり減らす ことができ、500回の放電まで可能になる.いずれにしろ、 トリチウム蓄積量が管理制限値を超せば、その後、トリチ ウム除去作業が必要となる.しかし、これら現状の蓄積予 測には以下の点に問題があり、より確かな評価を行うため シミュレーションコードの改良を進めている.

共堆積層へのトリチウム蓄積には炭素堆積層中のトリチ ウム濃度(T/C比)が予測評価値を大きく左右する.予測 精度向上には、プラズマ対向壁それぞれの照射条件(入射 エネルギーと入射粒子束、材料表面温度など)でのさらな る実験データの蓄積が不可欠であり、A01班と連携を深め そのモデル化を進めている.一方で、第一壁で損耗された ベリリウムがダイバータ領域へ流入してくる.これによっ



 図2 ITERの内側ダイバータにおけるトリチウム蓄積量の予測シ ミュレーション(リモート領域への堆積分も含んでいる).

てダイバータ板上に形成されるベリリウム堆積層がトリチ ウム蓄積に大きく影響する.ダイバータプラズマへのベリ リウム混入割合が1%程度より高くなると、ベリリウムと の共堆積がダイバータのトリチウム蓄積量を支配するよう になる.また、ベリリウムの堆積によって炭素からの炭化 トリチウム放出が大きく抑制されるとの報告もあり、ダイ バータや境界層プラズマでのベリリウムの振る舞いと化学 スパッタリングへのベリリウム堆積の効果について、 EDDY と分子動力学コードで詳細な検討を行っている.化 学スパッタリングは、損耗率が表面温度や入射粒子エネル ギー、入射粒子束に依存し、表面状態によって異なる再付 着特性をもつ炭化水素分子やラジカルを放出する複雑な過 程である.メタンより重い炭化水素とラジカルの寄与、不 純物イオンの同時照射による損耗率の変化、さらにはその 入射粒子束依存性の原因など、共堆積によるトリチウム蓄 積量を評価する上で必要な特性についても,分子動力学シ ミュレーションによる検討を進めている.一般に低エネル ギーの炭化水素分子は表面で反射しやすく,エネルギーが 高くなるほど付着(あるいは注入)されやすいが,その特 性は分子種だけでなく,材料(炭素やベリリウムのような 低 Z 材料とタングステンのような高 Z 材料)によっても異 なる[5].開発した炭化トリチウムと材料との相互作用を 計算する分子動力学コードは,入射粒子の反射(付着)率 と反射粒子種の予測に使用できるが,さらに,プラズマ対 向壁表面に形成される異なった材料の混合層や炭素堆積層 のような表面も擬似的に作成でき(図3),核融合炉内の 様々な表面条件での粒子・表面相互作用の評価が可能と なった.

壁から損耗された不純物は再付着後も再損耗を繰り返 し、炉内広範囲に輸送されるため、EDDY のような壁表面 近傍のプラズマ中での不純物輸送だけでなく、ダイバータ や境界層プラズマ中の実装置形状に関係する炭素不純物の 流れや、第一壁で損耗されたベリリウムの輸送のほか、ス トライク点付近を CFC からタングステンに置き換えた場 合でも、損耗されたタングステンのダイバータや境界層プ ラズマ中での振る舞いも評価結果を左右する重要な要素で ある.このため、ダイバータや境界層でのプラズマ輸送 コードと EDDY のようなプラズマ・壁相互作用コードと の結合を進めているが、これについては次節でその現状を 紹介する.

一方、CFCをプラズマ対向壁とする現在の大型トカマク 装置において、直接プラズマに晒されない対向壁タイル ギャップ側面に多くのトリチウムが蓄積されている.この ため、タイルギャップ近傍のプラズマおよびシース電位分 布を、斜め磁界中のラーモア運動を考慮した PIC コードで 計算し、EDDY コードにギャップ構造とプラズマ分布を導 入した.これによるギャップ内の炭素堆積分布の予測は、 TEXTOR 装置で実施された ITER タイル構造試験の実験 結果を良く再現し(図4)、ギャップ内に侵入した炭素原 子や炭化水素分子はギャップ側面での反射を繰り返しなが ら,奥深くまで侵入していくことがわかった.また,タイ ル表面を数度傾けることでギャップへの堆積を抑制できる こともわかった[6].

さらに、ここで我々が開発したコードと欧州で開発され た不純物輸送コード ERO とのベンチマークテストを行っ た.プラズマ放電中にテストリミタと呼ばれる蒲鉾形ある いは楔形の小さな材料片から¹³CH₄などの炭化水素ガスを



図4 プラズマ対向壁タイルのギャップ内炭素堆積分布と実験結 果との比較.



図3 材料混合・再堆積層形成の分子動力学シミュレーション.

放出し、プラズマ中の不純物発光特性を解析した.両コードとも¹³CH₄放出中に観測されたCH(解離生成物)の二次 元発光分布を再現した[7].一方で,観測されたテストリミ タへの¹³Cの堆積率は非常に小さく(0.11%~0.17%),こ れを両コードで再現するには、プラズマ中で解離したすべ ての炭化水素分子のテストリミタ表面への付着率をほとん どゼロ(炭素原子のみが付着)とし、さらに再堆積した炭 素の再損耗率を通常のグラファイトの10倍程度と仮定する 必要があった.とくに前者は分子動力学コードで計算した 表面での炭化水素分子の反射率(1-付着率)とは矛盾す る結果であり,他の表面物理化学過程も考慮しながら、核 融合炉の複雑環境でのさらなる検討を進めている.

(2) 炉内トリチウム蓄積評価のためのプラズマ輸送コード との統合化

(SONIC/EDDY) 一炭素壁一

炉内トリチウムの蓄積には、トリチウムのダイバータ板 や壁でのリサイクリングや、化学スパッタリングによる炭 化トリチウムの発生、解離過程、再堆積や、物理スパッタ リングによる炭素の発生が大きく関わる.これらは、ダイ バータ板近傍での局所的な現象ではなく、リサイクリング については、炉心から流出するトリチウムフラックス量に 強く依存し、SOL 領域でのプラズマの流れは、リサイクリ ングのみならず、不純物の輸送に大きく影響する.このた め、トリチウム蓄積の正確な評価には、プラズマ・壁相互 作用を詳細に模擬する EDDY コード[2]と、炉心からダイ バータ領域までのプラズマ、不純物輸送を扱うダイバータ コードとの結合が必要となる.

原子力機構では、ダイバータでの粒子、熱輸送を解析す るため、統合ダイバータコード SONIC(2次元プラズマ流 体:SOLDOR/2次元中性粒子輸送モンテカルロ:NEUT 2D/2次元不純物輸送モンテカルロ:IMPMC)の開発を 行って来た[8].その特徴は、プラズマと自己無撞着に不 純物輸送をモンテカルロ法で解くことである。モンテカル ロ法は、モデリングの自由度に優れるが、時間ステップ幅 が減速時間で強く制限されること、計算時間、ノイズの問 題等があった。これらの問題を克服し、IMPMCとダイ バータコードSOLDOR/NEUT2Dとの統合化に成功した[9].

ダイバータ板の損耗/再堆積の現象を詳細にモデリング した EDDY コードと IMPMC コードとの結合を行っ た.SOLPS コードを初めとして,これまでのダイバータ コードでは,複雑な炭化水素の解離過程を,低エネルギー の炭素の電離過程として近似している.IMPMC/EDDY を用いて,このモデルの妥当性を検証した.非接触ダイ バータにおいては,比較的良い近似であるが,接触状態で は,解離過程途中の中性炭化水素のダイバータ領域中の広 がりが大きく(図5),これまでの近似には大きな問題が あることを明確にした.また,接触,非接触を問わず,壁 での吸着率が小さいドームにおいては,反射を通して,X 点近くまで炭素が広がり,主プラズマへの炭素の混入を増 大させることを明らかにした.

SONICコードでは、炉心プラズマの境界でのイオンの粒 子束,熱流束を入力データとして与え,周辺プラズマの密



図5 接触プラズマ中での C⁺イオンの発生点 (a)外側ストライ ク点で発生した CD4の解離過程を IMPMC/EDDY で計算. (b) C の電離過程で近似.

度,温度,流速の定常分布を求めている.しかし,粒子束, 熱流束は,本来炉心プラズマの閉じ込め特性によって決め られる. 逆に、ダイバータ特性は、中性粒子、不純物の炉 心への逆流、混入を通じて、炉心プラズマの閉じ込め特性 に強い影響を与える. 炉心とダイバータ特性の関連を明ら かにし、トリチウム挙動のモデル精度を上げるため、 SONIC コードと炉心プラズマ輸送コード (TOPICS コード [10]および TASK コード[11]) との結合を行っている. こうした結合において問題となるのは、各コードは複数の 開発者により同時に改良されているため、独自性を保ちな がら結合させる必要が有ることである. 異なる複数のプロ グラムが Massage Passing Interface (MPI) によりデータ を必要に応じて交換し、協調して計算を進めるシステム (MPMD:Multiple Program Multiple Data)の開発を,核融 合研との協力の基に行った.このシステムは、今後予定さ れている材料表面の動的変化に対応した総合シミュレー ションコード開発の基盤となるものである.

(3) 炉内トリチウム蓄積評価のためのプラズマ輸送コード との統合化

(SOLPS/IMPGYRO/EDDY) ータングステン壁ー

炉内トリチウム蓄積評価にとって,燃料水素のみでなく 壁で発生する不純物をも含めた総合的,かつ,大域的な輸 送モデリングが不可欠となる.我々は ITER および原型炉 設計において,現在,有力な壁候補材の1つとなっている タングステンを対象として,大域的周辺プラズマ輸送統合 コードの開発を進めている.タングステンについて,その ラーモア運動をも考慮し,周辺プラズマの大域的輸送を扱 えるコードは世界的にもほとんど例がない.ここでは以下 のように段階的に,その開発を進めている.

- 第1段階(2007年度):高乙不純物輸送(IMPGYRO) コード[12]と材料損耗・再堆積(EDDY)コー ド[2]の結合による材料表面およびその近傍の モデル詳細化.第2,第3段階に向けてのPC クラスタ上でのコード並列化/高速化.
- **第2段階(2008~2009年度)**: 燃料水素プラズマ輸送 (SOLPS) コード[13]との結合.
- 第3段階(2008~2011年度):実験との比較による物理 モデルの検証と炉内トリチウムの輸送および蓄 積評価.

Project Review

図6はIMPGYRO-EDDY コードによる JT-60U タングス テン実験[14]の初期解析結果である[15].解析は、A01班 との連携のもとに進められている (実験結果について は, 2.1.3節(3) 図14参照). 初期解析では, 通常の磁場配 位と、X 点を通常より上に移動させストライク点をタング ステンタイル上に当てた配位(W実験配位)の2つの配位 について行った.背景プラズマ分布は実験時のパラメータ をもとに計算した SOLPS コードの結果を用いた.通常配 位では、タングステンタイルから発生したタングステンの 平均自由行程は短く,発生直後にイオン化され SOL 上流へ と輸送される.一方,図6に示すように,W実験配位時に 関する解析結果では,実験結果と同様に,外側ドームウィ ング(赤)と内側ダイバータ(青)で顕著な堆積が見られ る.外側ドームウィングの堆積は、プライベート領域のタ ングステンタイルから中性粒子のまま直接付着したもので ある. 内側ダイバータの堆積は、プライベート領域を抜け、 内側セパラトリクス周辺でイオン化され、その後、磁力線 にそって内側ダイバータ板へ到達したものによる寄与であ Ъ.

このように、実験と定性的に一致する堆積分布が得ら れ、その堆積にいたる輸送過程の一部が明らかになった. しかし、内側ダイバータ板について、堆積が最大となる位 置については実験結果と解析結果に比較的大きなずれが生 じている.このずれの原因は、今回の解析結果からは説明 できない.実験との相違を説明しうる機構として、1)背 景プラズマ条件(例えば接触状態・非接触状態など)によ る輸送過程の変化、2)コア領域を通過する輸送、3)一 度堆積したタングステンの再スパッタリング、4)ドリフ トの効果などが考えられる.今後、これらを考慮しJT-60 Uの解析およびモデル妥当性の検証・改良を継続する.

一方,上記,第2段階で予定されていた背景プラズマ輸送コード(SOLPS)との結合も順調に進み,計算プログラムとしての結合を完了した.現在,「SOLPS-IMPGYRO-EDDY 統合コード」として,インプリメントした物理モデルのより詳細,且つ,総合的な妥当性評価に着手できる段



図 6 IMPGYRO-EDDY コードによる JT-60U タングステン実験の初期解析結果(ポロイダル方向のタングステン堆積分布).

階にある.実際,この SOLPS-IMPGYRO-EDDY 統合コードを,ダイバータ板,第一壁,ともにタングステンで覆われた ASDEX-Uトカマク装置に適用し,テスト計算を開始したところである.

以上のようにここで開発するコードを,複数の装置, 種々の実験条件に適用し,その妥当性評価を行い,最終的 には信頼性の高い炉内トリチウム輸送・蓄積評価ツールの 構築に寄与していきたい.

3.3 ダスト粒子の炉内プラズマ中の挙動とトリ チウム蓄積

炉内でのダスト挙動を, ITER の周辺プラズマを背景プ ラズマとして用いて調べた.このプラズマは重水素プラズ マでコアプラズマから100 MWの熱入力がSOL領域に流入 するため,SOL 境界でのプラズマ温度,密度がそれぞれ 1.6 keV, 3×10¹⁹ m⁻³となっている.現状の核融合プラズ マ装置でのダスト密度はほぼ 104 m⁻³ であり、荷電状態が 10⁴ 程度になったとしてもプラズマへの影響は少なく,ダ スト間の集団効果も無視できるので、単一粒子として運動 しているとして解析した.ダスト粒子に働く力の主なもの はプラズマとの摩擦による力である[16-18]. 周辺プラズ マ領域ではプラズマは主に磁力線に沿った方向に流れてお り、第一壁近傍で生成されたダストはこのプラズマ流との 摩擦によってトロイダル方向に運動しながらポロイダル流 によってダイバータ板に達する. ITER におけるプラズマ の接する第一壁近傍でのポロイダル方向のプラズマ流速度 を図7に示す.ここで内側ダイバータ板から外側ダイバー タ板への方向を正に取った. セパラトリクス上部に停留点 が存在し、ダイバータ板で1km/sec以上に達している.ダ イバータ板近傍で発生したダストはこのポロイダル流に よってそれが発生した近傍に再堆積すると考えられる.第 一壁起源のダストでダイバータ板上において最大に加速さ れるのは停留点近傍で発生したものである. 停留点から初 期速度ゼロで弱磁場側ポロイダル流によって加速された大 きさが直径1µmの炭素ダストのポロイダル方向の速度変 化を図8に示した. 17.5 msec 間に 1.44 km/sec まで加速さ



図7 ITER周辺プラズマでの第一壁近傍のポロイダル方向へのイ オン流速.内側ダイバータ板から外側ダイバータ板への方 向を正に取っている.



図8 第一壁近傍のポロイダル流停留点から速度ゼロで出発した 1 µm 炭素ダストのポロイダル方向速度の時間変化.

れている. 1 μm の鉄ダストの場合は 18.1 msec でダイバー タ板に達し, 1.17 km/sec まで加速されることがわかった. これらのダストはプラズマ電子の移動度が大きいために負 に帯電しているので,低速度である程度以下の大きさのダ ストはダイバータ板前面のシース電界で減速され,壁に到 達する前に反射される. その大きさの限界は炭素,鉄ダス トでそれぞれ 3.22 nm, 1.55 nm であることが明らかになっ た.

今後は、初期速度、空間3次元挙動などの詳細を検討し て炉内でのダストの詳細な振る舞いを調べる.さらに、最 終目的であるダストへのトリチウム蓄積量を求めるために は、生成機構、ダストの温度変化等が必要となる.これら の研究のために実験を中心とする A01班との共同研究を密 に行っていく.

3.4 プラズマ対向材料のトリチウム蓄積と放出

(1) トリチウム輸送係数(拡散係数,再結合係数等)の評価 ITER のプラズマ対向材,特に、ダイバータ板は高熱流 東かつ高粒子束のプラズマに照射されている.そのような 条件下にある対向材中での入射粒子の減速過程と熱的過程 を扱えるのが ACAT-DIFFUSE コード[19]である.この コードを用いて, 100 eV D イオンを ITER のダイバータ材 候補であるタングステン(W)材に照射した TDS 実験をシ ミュレートした[20]. 捕獲エネルギー 0.85 eV, 2.2 eV, 密度比 0.05 D/W, 0.01 D/W の 2 つのトラップ座を仮定 し、D 原子の拡散係数を D(T) = 1.0×10⁻⁸exp(-0.39 eV /kT) cm²/s (T:温度), W 表面での D 原子の再結合係数 を $K_r = 1.2 \times 10^{-25} / T^{1/2} \exp(-(-0.59 \text{ eV})/kT) \text{ cm}^4/s$ と表 すと、実験結果をよく再現できた.これらの数値と輸送係 数を用いて,(i)イオン照射中の D₂ 熱再放射,反射,自己ス パッタリングによる各フラックスの値はほぼ同程度であ る,(ii)イオン照射中における温度300K,473KのW材か らのDの積算放出フラックスはそれぞれ入射フルーエンス の 96%, 99% である, (iii)W 材中に蓄積された D の総量は 温度 300 K の場合は 473 K の場合より約 6 倍多い, などの 結果を得た.数値計算で用いた輸送係数は実験値ではな く、TDS 実験を再現することから求めたものであり、シ

ミュレーションがいろいろな条件を含むため,信頼性に欠けていることは否めない.現在,実験値が知られているMo 材中のD原子の輸送係数を用いてリテンションの実験結果 の再現を行っている.

W 材中の水素の拡散係数の実験値として D(T) = 4.1× 10⁻³ exp(-0.39 eV/kT) cm²/s という式が知られている が[21], この値は数値計算に用いた式の値と比べ5桁程度 大きい.この実験値は,ITER のダイバータ板で予想され る温度より高温の1100~2400 K での実験から得られたも のであることと,W 材の製造方法により値が大きく異なる 可能性があることを考慮し,ITER と同様の製品もしくは 製造方法による W 材中の水素同位体の拡散係数を測定す る必要があると思われる.また,W 材中の炭素蓄積量が増 加した場合,炭素の拡散係数が炭素中の自己拡散係数に比 べ小さいという拡散係数の濃度依存性も報告されており [22],そのような条件が起こる可能性のある定常運転に向 けて,このような拡散係数等の濃度依存性も評価しておく 必要があると思われる.

また,W 結晶中の水素同位体原子の拡散係数を分子動力 学(MD)計算により求めた.結晶中の移動に必要なエネル ギーを得る確率は,古典論の範囲内ではマクスウェル-ボ ルツマン分布の高エネルギー側への広がりで決まるが,こ れは質量に依存しないので,H,D,Tの間で拡散係数の値 に違いはほとんど見られなかった.MD計算により得られ たH原子の拡散係数は実験値と比較して1桁程度小さく なっていた.この結果は,水素同位体が原子としてトラッ プされる以外の高速拡散機構が存在することを示唆してい る.

さらに、ACAT-DIFFUSE コードの改良も行った. その 結果、(i)約15倍程度の高速化を実現し(ii)2種類の入射粒子 を同時入射が可能となり、(iii)DIFFUSE 部分で取り扱う拡 散方程式中のトラップの種類数を現行の2から6に拡張で きた.

今後は、輸送係数には実験値を用い、改良された ACAT-DIFFUSE コードによる、より実機に近い条件下での W 材中のトリチウム蓄積の評価を行っていく予定である.

MDによるW結晶中の水素同位体原子の拡散係数を求める 計算では,格子欠陥の導入など,より実機炉材に近い条件 下での計算を行う予定である.

(2) 化学スパッタリングと炭化トリチウム放出

炭素材料中のトリチウムの挙動をミクロな観点から調べ るため,MDシミュレーション研究を行っている.MDの 最大の特徴は原子間の化学結合(共有結合など)を考慮し て物質のダイナミクスを追えることにある.これにより, 化学スパッタリングに代表されるような100 eV以下の低 エネルギーでの反応や,材料中の結晶構造の違いや欠陥に よるトリチウム挙動の変化などを調べることが可能とな る.このようなMDの基礎となるのはモデル化された原子 間相互作用ポテンシャルであるが,原子の種類ごとに化学 的性質が異なるため,使用する原子に応じてポテンシャル を準備する必要がある.炭素材料と水素の共有結合のポテ ンシャルに関しては幸いなことに,1990年代のフラーレン Project Review

やカーボンナノチューブの研究のためにBrennerらが開発 を行っており、これを用いた[23,24].炭素材では、グラ ファイト層を形成する共有結合に加えて、層間に働く分子 間力相互作用が必要である.これに関しては我々が独自の ポテンシャルモデルを提案し、プラズマ対向壁として使わ れる炭素材料のシミュレーションが可能となった[25].

これらのポテンシャルを用いて MD 計算を行い, グラ ファイト材料の表面層の結晶構造の違いによってトリチウ ム入射による化学スパッタリングのメカニズムが大きく変 わることを明らかにした. グラファイト表面の構造とし て,結晶軸の向きにより典型的に三種類の異なった面構造 が考えられる.まず,層を構成する平面状のグラフェン分 子の表面がそのまま材料表面になっている(0001)表面を 考える. 15 eV 以下のエネルギーで入射されたトリチウム 原子は表面から第一層目のグラフェンを貫通することがで きず、すべてのトリチウムは第一層目のグラフェンに化学 吸着するか反射されるかのどちらかとなる. すなわち, (0001) 表面において入射トリチウムから直接的な損傷を 受けるのは第一層目のグラフェンだけである. 共有結合に 比べて層間の結合は100分の1程度と弱いため、トリチウ ム入射により第一層に供給されたエネルギーは、第二層に はあまり伝達されずに第一層に留まる. これにより第一層 のグラフェンの温度が4000K程度に達すると、第一層目の グラフェンは表面から剥がれて鎖状の炭化トリチウムへと 分解される.この繰り返しで一枚ずつ順に表層が剥がれて いく graphite peeling という現象が起こる[25].

次に、グラフェン層の配列が表面に垂直になっている場 合について調べた[26]. この場合にはグラフェン層が剥が れることは構造上不可能である.水素に曝されるグラファ イトの端部は、アームチェア構造もしくはジグザグ構造と 呼ばれる二種類の異なった表面構造を取り得る. それぞれ の系で MD を行った結果,アームチェア構造の(1120)表 面ではトリチウム吸着によって C2T2分子が生成され易い のに対し、ジグザグ構造の(1010)表面に吸着したトリチ ウムはT2分子となって脱離しやすいことがわかった.この 違いの原因は、材料表面におけるトリチウムの吸着サイト と炭素間共有結合(C-Cボンド)の位置関係にある.炭化ト リチウムを脱離するためには、アームチェア構造では一つ のトリチウム吸着ごとに一つのC-Cボンドを切断すればよ いが(図9),ジグザグ構造では複数のC-Cボンドを切断せ ねばならず、Cを脱離させる為にはより高いエネルギーが 必要となる. このためジグザグ構造では炭化トリチウムよ り低いエネルギーで脱離できる T2分子の生成確率が高く なる.このように、炭素材料の表面の結晶構造は化学ス パッタリングにより生成される分子の種類に強く影響を与 える. 今後は、グラファイトの表面構造とは大きく異なる アモルファス化が進んだ材料やトリチウムが多量に蓄積し た材料などの化学スパッタリング現象の解明を MD を用い て行っていかなければならない.

トリチウム挙動の材料温度依存性についても MDの研究 課題である.現状の計算機性能では, MD計算の条件は,入 射フラックスを実験よりも10⁴~10⁶倍大きく設定せざるを



図 9 アームチェア表面(左図)の MD シミュレーションにおいて、トリチウムが吸着することで C₂T₂分子が脱離する様子(右図(a)~(c)).

得ない.これにより表面に注入されるエネルギー密度は非 常に大きくなるので,扱っている系の非平衡性が大変強く なり,表面近傍で大きな温度勾配が生じる.このためトリ チウムの挙動は,系を代表する"温度"の選び方や,MD での温度制御のための熱浴モデルに大きく依存する.この ため,MDを用いてトリチウム蓄積量を見積もるためには, 実際の実験条件に適した新しい温度制御法を考える必要が ある.

さらに, MD の課題として, ポテンシャルモデルと現実 の相互作用との不一致が度々問題となる.これは MD で用 いるポテンシャルモデルは過去の実験データを用いて "経 験的"に作られているためである.我々は複数のポテン シャルモデルの比較や量子化学計算との比較を現在行って おり,この結果をフィードバックさせて,より妥当性のあ るポテンシャルモデルを構築していきたい.

最後に、本プロジェクトのめざす統合モデル構築の観点 から、MDによる原子スケールのシミュレーションと、時 間・空間スケールの異なる他のシミュレーションとの関係 について触れる.実験結果と直接比較できるようなマクロ スケールの現象をMDで直接扱える事例は計算機の能力限 界のために少なく、マクロなシミュレーションとの相互補 完が重要となる.そのためには、それぞれの計算モデルの 適応範囲を正しく認識する必要性がある.その第一歩とし て、我々のMDコードとACATコード(3.4節(1)参照)と の比較を現在行っている.将来の統合モデルに基礎となる 正しい情報を与えるためにも、前述した課題を克服し、 MD 自体の信頼性を高めていかなければならない.

(3) 照射欠陥によるトリチウムの捕捉とトリチウム・表面 相互作用

ITER のプラズマ対向材料の有力候補であるタングステン材料中のトリチウム輸送モデルの開発に必要な基礎物理

データの第一原理計算を行っている.タングステン等の水 素固溶度が極めて低い材料では,格子欠陥がトリチウム蓄 積の主たる担い手となる.この欠陥と水素原子との相互作 用を正確に定量化し,タングステン材料中のトリチウム蓄 積量の予測精度を高めることが目的である.

金属結晶中の単原子空孔に複数の水素原子が捕獲され得 ることは20年ほど前(Myers et al. 1986)から指摘されて いたが,第一原理計算による研究が行われるようになった のは最近のことである.第一原理分子動力学コードVASP を用いて,単原子空孔に1~5個の水素原子が結合したク ラスタのエネルギーを計算した結果,水素原子の結合エネ ルギーが1~1.4 eVとなった[27](図10).この結果は,昇 温脱離実験から推定された水素(同位体)原子の捕獲エネ ルギーと近い値であり,主な捕獲サイトが原子空孔である ことを示している.計算によって得られた電子状態密度を 分析すると,原子空孔と結合している水素原子の1s軌道 と最隣接タングステン原子の5d軌道とのオーバーラップ が大きく,強い共有結合性を有することがわかった.この ことが,水素原子と単原子空孔の大きな結合エネルギーの 原因となっている.

単原子空孔と水素原子のクラスタを含むタングステン結 晶の熱平衡状態をボルツマン統計力学に基づいて解析した 結果,結晶中の水素濃度が上昇して,(温度により異なる) あるしきい値を超えるとクラスタ濃度の急激な増加が予測 された.これは,格子間位置の水素濃度が固溶限界を超え ると,水素原子が単原子空孔に多重結合した形態で析出す る様子を表しており,きわめて高いフラックス(~10²¹/m²/s) の水素打込みでみられる水素吸蔵量の上昇との関係が注目 されている.今後,空孔集合体(キャビティ)の核形成・ 成長やキャビティ内の水素同位体の状態を研究し,プラズ マ壁相互作用や中性子照射損傷を受けたタングステン材料 のミクロ構造のトリチウム吸蔵への影響を明らかにした い.

もう一つの課題として、プラズマ対向材料表面での粒子 反射の影響を取り入れた周辺プラズマのトリチウムの発



図10 タングステン(W)と鉄(Fe)の単原子空孔と水素原子の結 合エネルギーの第一原理計算結果[27].実線はゼロ点エネ ルギー補正を含めたもの、点線は補正なし.波線は溶解熱.

光・再結合過程や輸送のモデル化を進めている. タングス テン等の高 Z 材料表面の粒子反射率は非常に高いため,表 面近傍で中性化したトリチウムの多くが反射されてプラズ マ中に戻ってくる.反射粒子の発光線のドップラーシフト を利用して,反射してきた粒子を選別して観測できること は知られている.これに加えて,反射粒子の励起状態分布 が与えられれば,発光線のドップラープロファイルや偏光 度から,反射粒子のエネルギーや角度分布をより正確に知 ることが原理的に可能である.

反射水素原子の励起状態分布を計算するために、反射さ れた水素原子核の運動をモンテカルロ計算で求められた運 動エネルギー分布をもつ古典軌道のアンサンブルで近似 し、古典軌道に沿った原子核の並進運動に伴う電子の時間 発展シュレーディンガー方程式を数値的に解いた. この方 法を試験的に用いて,モリブデン表面で反射された keV 程度の高エネルギー重水素原子からのバルマーα線のドッ プラーシフトの測定値を概ね再現することができた[28]. また、計算から得られた励起状態の磁気副準位の密度行列 をもとに,バルマーα線の直線偏光度を計算すると,入射 エネルギーの増加に伴い偏光度が増加するという結果が得 られた. 今後, 偏光度とトリチウムの反射エネルギーや角 度分布とのより詳しい相関を明らかにし、反射エネルギー や角度分布の新しい計測法を提案し、実験を中心とする A 01班と連携して、実機における複雑条件下でのプラズマ対 向壁からのトリチウム放出挙動を明らかにしたい.

3.5 まとめ

本計画研究では、核融合炉内のトリチウム蓄積・排出量 評価を目的としたコード開発の国内外研究者による連携研 究によって、(1)コード間ベンチマークによるモデルの評 価,(2)実験データ解析によるコード性能評価・向上,(3)時 間空間発展およびセルフコンシステントな評価のための コードの結合、(4)評価シミュレーションのための素過程 データベースの構築を、実験を中心とする A01班とも密接 に連携して進めている.本章では、その現状と今後の課題 について紹介した.この他,A02班では,昨年度から採択 された公募研究として名古屋大の山崎耕造氏や詫間電波高 専の川染勇人氏などにより、核燃焼維持のためのD/T比の 制御を主眼とした炉心プラズマ中のトリチウムやタングス テン不純物挙動を解析や, EDDY コードによるダイバータ 板近傍の CH, C₂発光分布解析による化学スパッタリング の研究なども進められている.これまで、個人ベースで コード開発を進めてきたプラズマ,材料,さらにプラズ マ・壁相互作用の研究者が、炉内トリチウム蓄積・排出量 の評価というテーマで集まり、連携して、新たなコード開 発に取り組んでいる. それぞれの研究は着実に進展し見通 しを得る段階となってきたが、ここで述べた問題を克服す るにはまだ、さらなる努力と時間が必要である.最後に、 本計画研究に参加する若手研究者が精力的にこのコード開 発共同研究を推進していることを述べて、本章の結びとし たい.

Project Review

参考文献

- J. Roth *et al.*, Plasma Phys. Control. Fusion **50**, 103001 (2008).
- [2] K. Ohya, Phys. Scr. T124, 70 (2006).
- [3] J. Roth *et al.*, J. Nucl. Mater. **337-339**, 970 (2005).
- [4] R.P. Doerner et al., Nucl. Fusion 49, 035002 (2009).
- [5] K. Ohya et al., Proc. 22nd IAEA-FEC 2008, TH/P4-8.
- [6] K. Inai et al., J. Nucl. Mater. 390-391, 119 (2009).
- [7] K. Ohya and A. Kirschner, *12th PFMC* (Juelich Germany, 11-14 May 2009).
- [8] H. Kawashima et al., Plasma Fusion Res. 1, 031 (2006).
- [9] K. Shimizu *et al.*, Nucl. Fusion **49**, 065028 (2009).
- [10] T. Ozeki and JT-60 Team, Phys. Plasmas 14,056114 (2007).
- [11] A. Fukuyama et al., Proc. 20th IAEA Fusion Energy Conf. (Villamoura, Portugal, 2004) IAEA-CSP-25/CD/TH/P2-3.
- [12] M. Toma, K. Hoshino, K. Inai, M. Furubayashi, A. Hatayama and K. Ohya, J. Nucl. Mater. **390-391**, 207 (2009).
- [13] R. Schneider et al., Contrib. Plasma Phys. 46, 3-191 (2006).
- [14] Y. Ueda et al., Proc. 22nd IAEA-FEC, Geneva, Oct. 2008.
- [15] 星野一生,藤間光徳,畑山明聖,清水勝宏,滝塚知典, 上田良夫,仲野友英,朝倉伸幸:プラズマ・核融合学会 第25回年会,4aA04P,栃木県宇都宮,2008年12月.
- [16] S. Krasheninnikov, Y. Tomita et al., Phys. Plasmas 11,

3141 (2004).

- [17] A. Pigarov, S. Krasheninnikov *et al.*, Phys. Plasmas 12, 122508 (2005).
- [18] R. Smirnov, A. Pigarov *et al.*, Plasma Phys. Control. Fusion 49, 347 (2007).
- [19] Y. Yamamura, Nucl. Instr. Meth. B 28, 17 (1987).
- [20] T. Ono, T. Kenmotsu, T. Muramoto and T. Kawamura, J. Nucl. Mater. **390-391**, 713 (2009).
- [21] R. Frauenfelder, J. Vac. Sci. Technol. 6, 388 (1969).
- [22] K. Schmid and J. Roth, J. Nucl. Mater. 302, 96 (2002).
- [23] D.W. Brenner, O.A. Shenderova, J.A. Harrison, S.J. Stuart, B. Ni and S.B. Sinnott, J. Phys.: Condens. Matter 14, 783 (2002).
- [24] D.W. Brenner, Phys. Rev. B 42, 9458 (1990) [Errata; 46, 1948 (1992)].
- [25] A. Ito and H. Nakamura, Commun. Comput. Phys. 4, 592 (2008).
- [26] A. Ito, Y. Wang, S. Irle, K. Morokuma and H. Nakamura, Proc. 22nd IAEA Fusion Energy Conference, Geneva, Switzerland, October 13-18, 2008, TH/7-1.
- [27] D. Kato, H. Iwakiri and K. Morishita, J. Plasma Fusion Res. Series, vol.8, 404 (2009).
- [28] D. Kato, T. Kenmotsu, K. Ohya and T. Tanabe, J. Nucl. Mater. 390-391, 498 (2009).



プロジェクトレビュー 核融合炉実現を目指したトリチウム研究の新展開

4. 核融合炉ブランケット材中のトリチウム移動現象解明と 新規回収プロセス開発の研究

深田 智¹⁾, 榎 枝 幹 男²⁾, 河 村 繕 範²⁾, 片 山 一 成¹⁾, 西 川 正 史¹⁾, 相 良 明 男³⁾ ¹⁾九州大学大学院総合理工学研究院, ²⁾日本原子力研究開発機構, ³⁾核融合科学研究所

(原稿受付:2009年8月27日)

Keywords:

fusion blanket, tritium, mass transfer, removal process, ceramic, litium

4.1 B01班の概要

核融合炉成立のための必要条件の一つは、核融合炉プラ ズマコア内で燃料トリチウムを消費燃焼しつつ、同量ある いはそれを少し上回るトリチウムをブランケットで安全か つ経済的に製造、回収するとともに、決められた量以下に 透過漏洩を抑えることである.特定領域「核融合炉実現を 目指したトリチウム研究の新展開」の計画研究 B01班は, 「核融合炉ブランケット材中のトリチウム移動解明と新規 回収プロセス開発の研究」と題し、特に核融合炉トリチウ ム安全性確立の立場から、トリチウム回収プロセス構築と ブランケットシステム内でのトリチウム安全閉じ込め達成 に関連した研究をおこなっている.将来実現される定常運 転核融合炉では、熱出力1GW あたり少なくとも 1.6 MCi/ day のトリチウムを消費し、生産回収する必要がある.他 方トリチウム安全性を達成するため,少なくとも核分裂炉 と同程度にトリチウム漏洩率を抑えることを想定すると, 10 Ci/dayの漏洩率目標を達成する必要がある.したがっ て炉のトリチウム生産側管理区域から核融合炉を取り巻く 非管理区域へのトリチウム発生率/漏洩率比で,少なくと も 105 程度を維持する必要があり、この比を高回収率と低 透過率で達成させる必要がある。B01班では、現在想定さ れているITER-TBMの先を見越し,先進ブランケット概念 について,要求される10⁵以上の発生率/漏洩率比を,経済 性を損なうことなく達成することを目標にしている.具体 的な B01班の研究計画は、次のとおりである.

- (1) 固体・液体ブランケットからのトリチウム放出挙動の解明
- (2) ブランケットループ先進トリチウム回収システム構築
- (3) 熱とトリチウムを同時にかつ確実に回収するシステムの構築
- (4) ブランケットシステムからのトリチウム漏洩予測と回収システムとマッチしたトリチウム漏洩阻止システム

の構築

ブランケット - トリチウム研究では、図1(a)、図1(b) に示すように、取り扱う長さスケールと濃度範囲が極めて 広い領域に渡り, その結果, 対象とするブランケットと発 生トリチウム化学種の組み合わせにより, Li 等に含まれる 不純物の影響、トリチウム化学種の変化、同伴する水素や 重水素との同位体交換が同時に生じる.現在ブランケット 候補材として、固体セラミック材(Li₄SiO₄, Li₂TiO₃, Li₂ ZrO₃等)と液体ブランケット材(Li, Li_{0.17}Pb_{0.83}, Li₂BeF₄ (Flibe))が精力的に研究されているが、それぞれ物理化 学的性質や熱的性質が異なることにより、上記発生率/漏 洩率比の目標達成のための研究道筋が異なる. そこで本研 究計画班では、目標を合理的に達成するため、ブランケッ ト-トリチウムを別に材料科学的手段で追求する B02班と 協調して研究を遂行している.研究方法は互いに異なり, B01班では、マクロ相互作用に着目し、化学工学的研究手 法に基づき、トリチウム放出挙動や新規回収システム構築 に着手している. B02班では、材料-トリチウム間のミク ロ相互作用に着目し,照射欠陥,材料化学制御,セラミッ ク被覆材開発に研究の焦点をあてた.本節では,特定領域 B01班で実施している研究のいくつかを例示して、取り組 み状況を示したい.

4.2 固体ブランケット材の研究課題と進行状況

固体ブランケット材中のトリチウム移行挙動を正確に把 握するには、トリチウム移動に関連した多くの情報を手に 入れる必要がある。特に固体ブランケットに特有なものと して、以下の事項が実験的に調べられ、トリチウム移動へ の寄与が定量的に調べられてきている。

- ① セラミックペレット内部が1nm 程度のミクロ細孔か
 - ら1mm 程度にかけてのマクロ細孔構造が存在する,
- ② 中性子照射下で格子欠陥を含む多結晶構造である,

4. Study of Clarifying Tritium Transfer in Materials of Fusion Reactor Blanket and Developing New Processes for Tritium Recovery from Fusion Reactor System

FUKADA Satoshi, ENOEDA Mikio, KAWAMURA Yoshinori, KATAYAMA Kazunari, NISHIKAWA Masanobu and SAGARA Akio

corresponding author's e-mail: sfukuda@nucl.kyushu-u.ac.jp



図1(a) ブランケットートリチウム研究の対象範囲.



図1(b) ブランケットートリチウム研究の対象濃度範囲.



図2 各種固体ブランケット材からの中性子照射後加熱状態にお けるトリチウム放出挙動の実験と解析[3].

③ 気相側水素 - 固体側酸素との反応に起因するセラミッ ク材中の酸素不定比性が生じる,

その他,ブランケットが曝されている環境として,固相 側あるいは気相側で次の条件が考慮されてきている.な お、以下の条件は液体ブランケット材についても成り立つ.

- ④ T₂, HT, HTO, T₂O, その他の化学種が同時に気流中 に存在する可能性がある,
- 5 水素,水蒸気,その他化学種の気固界面への吸着,吸 収,反応が同時に進行する,
- ⑥ 微量トリチウムが、固相中あるいは気相中の不純物と

相互作用することで、トリチウム移動速度が影響を受ける場合がある.

⑦ トリチウム回収装置内のマクロ的な視野で熱,物質, 運動量輸送が生じる.

なお、これまで十分な検討が行われてきていないが、ブ ランケット運転の特殊性として、次のものが挙げられる.

- ⑧ Liと中性子との核反応により、燃焼とともにブラン ケット中のLi含有率が減少する、
- ⑨ プラズマ燃焼運転パターンに非定常性が存在し、動的 あるいは静的インベントリが時間的に変化する、
- ⑩ 応力変形によるブランケット材料の物性値変化が生じ る可能性がある。

例えば、固体ブランケット材のLi₂TiO₃は酸素不定比性 が存在することが知られているが[1]、図2に示すように、 その物性変化、多孔質微細構造の吸着・拡散を考慮した解 析結果は、実験のトリチウム放出挙動をよく表している。 他のブランケット材のLi₄SiO₄やLiAlO₂等でも実験放出曲 線を吸着、同位体交換、拡散等の基礎物質移動過程に基づ いた定量的把握が進んでいる[2,3].

JAEA の榎枝,関らは、図3の試験装置の増殖材充填体 内部の空隙率変化と微小球充填分布について,X線CT 画 像法を用いて,その場観察を行い,テストブランケットで 採用している複雑で狭隘な増殖材充填構造に対しても,実 機増殖材微小球がmm以下の精度で隙間なく充填されるこ



図3 固体増殖ブランケット充填試作体.

とを,はじめて確認した[4].結果は図4に示されている. また,実規模スケールの構造体に微小球増殖材を充填し, 充填体圧力損失を測定することで経験式を得ることに成功 した.さらに今後は,ヘリウムスイープガスの流れ観察お よび充填層内部のマクロ物質輸送シミュレーションを展開 していく予定である.またJAEAの河村は,セラミックプ ロトン導電体膜(Sr-Ce-Ybセラミック)水素ポンプを用い てヘリウムスイープガスからのトリチウムポンピング実験 に成功し,将来のDEMO炉での必要なトリチウム回収装置 の大きさを算定できるまでに至っている[5].

以上,固体ブランケット材でのトリチウム放出予測はか なり正確に測定できるようになったが、トリチウム回収を 完全に行うためには、新規回収システムの構築のみなら ず,配管系からのトリチウム漏洩を含めたトータルな設計 と工学的実証が今後必要になると考えている. 4.3 液体ブランケット材の研究課題と進行状況

液体ブランケット材は、ブランケット構造が簡単になる 特徴があり、大量の Be を使わなくても高いトリチウム増 殖比を達成できる可能性がある. 先の固体ブランケットの 特徴のうち、④-⑧は似た環境が液体ブランケット材とそ れを取り巻く気体間においても実現されるが、さらに液体 ブランケットにおいては次の2点が大きな影響を及ぼすと 考えられる.

- ブランケット構造体内部の三次元空間内で,強制対流 あるいは自然対流による流動が存在する,
- 他の分子種,例えばLi₁₇Pb₈₃ではPo,FlibeではTF が発生し拡散移動する,

Li と Li-Pb 共融合金, Flibe 混合溶融塩では化学的性質が まったく違い, 蒸気圧, トリチウム溶解度もかなり異なる. 水素同位体の溶解度は, Li≫Li₁₇Pb₈₃>Flibeの順であり [6], したがってトリチウム回収法も異なってくる. そこで 液体ブランケット候補材ごとに, 現在の研究状況を報告す る.

ブランケット設計に必要な溶解度やLiからトリチウムを 回収するため最も有望と考えられるのが、金属Yによる吸 収法である.しかしYは酸素と反応しやすく、ただYとLi を接触させただけではLi中に溶解した水素同位体をY側に 移すことはできない.そこで、Y表面をHF処理し、酸化膜 を除去した上で、回収に利用することで、回収率が格段に 上がることが判明した[7].図5はLiに溶けたHをYに回 収させた重量法の結果である[8].水素ばかりでなく、トリ チウムでもLi側とY側の放射能の変化を測定し、HF処理 による回収率上昇を実験的に証明した[9].

Li₁₇Pb₈₃は,トリチウム溶解度の点,融点や材料共存性の 点からも優れた液体ブランケット材であり,高温ブラン ケットをめざした日米欧の先進ブランケットの概念設計に も取り入れられている.Li₁₇Pb₈₃の水素同位体溶解度と拡 散係数は過去数グループの研究者が実験しているが,特に 溶解度について,データ間のばらつきが非常に大きく,そ の差は数桁に及ぶ.Li-Pbの合金組成をLi(100%)の状態 からLi濃度を減らすと,Liの化学活量は組成減少とともに 対数的に減少する.それに伴って水素同位体の溶解度も変





図5 HF処理したYによるLi中のH回収速度.

化する.また溶解度が小さくなれば,Li-Pb中の不純物の影響も無視できなくなる.過去の研究者は,すべて定容装置を用い,吸収あるいは脱離過程の圧力差から溶解度を求めているが,定常になることを十分に確認でき,溶解度と拡散係数を一定圧力のもとで同時に測定できる透過法を用いて,水素と重水素の溶解度と拡散係数を測定した.図6は拡散係数の結果の一例であり[10],我々の結果では二桁にわたって圧力を変えても拡散係数は変化せず,また溶解度もSieverts則が成立することが認められた.

Flibeは日米共同研究 JUPITER-IIでもH,D,Tの溶解 度,HFによる不純物精製,Beによる酸化還元制御,JLF-1 との共存性試験が行われた[11].しかし中性子照射 Flibe からのトリチウム回収実験は行われなかった.そこで当研 究グループは,原子炉で中性子照射した Flibeを炉外で加 熱し,ArあるいはAr+H2ガスパージしたときのトリチウ ム放出曲線を,過去測定した溶解度と拡散係数を用いて解 析した結果を比較し,良い一致を得ることがわかった [12].

以上,液体ブランケット材では、トリチウム回収につい ては、静的状態からのトリチウム放出はほぼ予測できるこ とがわかった[13].今後は、液体ブランケット撹拌状態、 あるいは強制流動状態のトリチウム移行について実験と解



図7 Flibe から Ar ガスパージ側へのトリチウム放出挙動.

析を行いたいと考えている.

4.4 まとめ

固体、液体ブランケット材とも増殖材担体での中性子照 射下あるいは照射後試料の加熱等により放出されるトリチ ウムの挙動については、ほぼ実験値を再現できる状態にあ る.しかしこれまではおもに核分裂炉の熱中性子照射後放 出挙動に実験が集約されてきているが、14 MeV の高速中 性子を含む雰囲気での照射後放出研究に今後の焦点を移し たいと考えている. さらに、増殖材からのトリチウム回収 に関して, 固体増殖材ヘリウムスウィープガスからの回収 はすでに確かめられているが、DEMOに向けての新規シス テムとして、セラミック水素ポンプシステムの実験をトリ チウムで行い、回収システム設計に必要な条件の摘出を 行った. また液体ブランケットシステムでも Y 金属による トリチウム回収の実証に成功し, Li-Pbや Flibe からのトリ チウム回収装置設計に必要な水素同位体溶解度、拡散係数 の測定を終えた. 今後は, 具体的な DEMO 炉を想定し, ブ ランケット流動システムのトリチウム回収装置と, ブラン ケット内外での配管系のトリチウム透過漏洩の具体的評価 を行い、ブランケット内部のトリチウム濃度変化を考慮し た上で、回収装置の回収効率とトリチウム漏洩条件の関係 を明らかにし、核融合炉のトリチウム設計の具体性をさら に高めたいと考えている.

参 考 文 献

- [1] T. Kinjyo, M. Nishikawa, M. Enoeda *et al.*, Fusion Eng. Des. 83, 580 (2008).
- [2] T. Kinjyo, M. Nishikawa, N. Yamashita *et al.*, Fusion Sci. Technol. **54**, 557 (2008).
- [3] K. Suematsu, M. Nishikawa, S. Fukada *et al.*, Fusion Sci. Technol. 54, 561 (2008).
- [4] M. Enoeda, H. Tanigawa, D. Tsuru *et al.*, 16th Pacific Basin Nuclear Conference (16PBNC), Aomori, Japan, Oct. 13-18, 2008, Paper ID P16P1272.
- [5] Y. Kawamura, K. Isobe, Y. Iwai *et al.*, Nucl. Fusion 49, 55019 (2009).
- [6] S. Fukada, Y. Edao, Y. Maeda *et al.*, Fusion Eng. Des. 83, 747 (2008).
- [7] S. Fukada, M. Kinoshita, Y. Maeda *et al.*, Fusion Eng. Des. 82, 2152 (2007).
- [8] Y. Edao, S. Fukada, S. Yamaguchi *et al.*, Fusion Eng. Des. 84 (2009) *in printing*.
- [9] S. Fukada, Y. Maeda and Y. Edao, Fusion Sci. Technol. 54, 117 (2008).
- [10] Y. Maeda, S. Fukada and Y. Edao, Fusion Sci. Technol. 54, 131 (2008).
- [11] S. Fukada, M.F. Simpson and R.A. Anderl *et al.*, J. Nucl. Mater. **367-370**, 1190 (2007).
- [12] Y. Edao, S. Fukada, H. Noguchi *et al.*, Fusion Sci. Technol. 55, 140 (2009).
- [13] S. Fukada, K. Katayama, T. Terai *et al.*, Fusion Sci. Technol. 52, 677 (2007).



プロジェクトレビュー 核融合炉実現を目指したトリチウム研究の新展開

5. 核融合炉ブランケット材料中の トリチウム - 材料相互作用に関する研究

寺 井 隆 幸¹⁾, 鈴 木 晶 大¹⁾, 星 野 毅²⁾, 田 中 照 也³⁾ ¹⁾東京大学大学院工学系研究科,²⁾日本原子力研究開発機構,³⁾核融合科学研究所 (原稿受付: 2009年 8 月27日)

Keywords:

tritium, production, release, permeation, recovery, blanket, lithium, lithium-lead, Flibe, lithium titanate, defect

5.1 B02班計画研究の概要

核融合炉ブランケットにおいては、燃料として使用され るトリチウムを安定に生産・回収するとともに、燃料サイ クルの自立性や安全性だけでなく経済性の観点からも、そ の漏洩量を抑制する必要がある.特定領域「核融合炉実現 を目指したトリチウム研究の新展開」の計画研究B02班は、 「核融合炉ブランケット材料中のトリチウム—材料相互作 用に関する研究」と題し、特に核融合炉トリチウム安全性 確立の立場から、核融合炉ブランケットシステムを構築す るために必要なブランケット材料中のトリチウム挙動に関 する学術的基盤の構築に関連した研究を行っている.

増殖材料を液体状態で使用する液体ブランケットは、固 体ブランケットに比べて全般的に研究開発が遅れている. しかし、ブランケットの高温化や構造単純化などによる飛 躍的な経済性向上が期待できるため、「先進ブランケット」 として、固体ブランケットと並んで、ITER テストブラン ケットモジュールの候補として検討されている.

著者らは、科学研究費補助金や日米共同研究 JUPITER-Ⅱにより, 増殖材料中のトリチウム挙動や構造材料壁中の トリチウム透過挙動に関する研究、トリチウム透過防止 コーティングに関する研究を行い、これまでに大きな成果 をあげてきた.この過程で、核融合炉ブランケット環境下 におけるトリチウムの生成・溶解・拡散・放出・構造材料 壁透過挙動は、中性子照射や液体増殖材料の流動の影響を 受けることが明らかになり、実証炉に向けたブランケット 設計を行うためには、ブランケット模擬環境下におけるこ れらの素過程に関する基礎データを取得し、そのメカニズ ムを明らかにすることが急務であると認識された.一方, 設計のために,ある程度のデータが得られている固体ブラ ンケットにおいても,核融合炉ブランケット環境下で重要 となる照射欠陥や酸素不定比性の影響については明らかに されていない. そこで本計画研究では, 原子炉やトリチウ ムを用いた実験研究と理論・計算機シミュレーションを集

中的かつ相補的に行うことにより,ブランケット環境下に おけるこれらの増殖材料中のトリチウム挙動を明らかにす ることを目的とした.

具体的な B02班の研究テーマは以下のとおりである.

- (1) 溶融金属リチウム(Li) 中のトリチウム挙動の解明
- (2) 溶融リチウム鉛(Li17-Pb83) 合金中のトリチウム挙動の解明
- (3) Flibe (LiF-BeF₂) 溶融塩中のトリチウム挙動の解明と トリチウム化学形の制御
- (4) 固体トリチウム増殖材料中の照射欠陥や酸素欠陥とト リチウムの相互作用の解明
- (5) ブランケット構造材料壁におけるトリチウム透過と透 過防止コーティングの研究

実際の研究は、原子炉を用いたトリチウムの生成・放出 挙動、トリチウムも含めた水素同位体の透過・トリチウム 透過防止コーティングに関する研究にとどまらず、これら の材料中のトリチウム挙動に関する理論・計算機シミュ レーションを相補的に行い、効果的に目的が達成できるよ うにする.これらの研究で得られたデータを、核融合ブラ ンケット工学、高温融体化学、同位体科学、非平衡系物理 化学、核融合炉化学工学などの学術的見地から整理・解析 し、核融合炉ブランケットシステムにおけるトリチウムの 移行挙動の理解とそれを総合化するための学術基盤を構築 する.本計画の実施により,核融合炉の安全性,社会的受 容性と経済性の向上に資することが期待できる. なお,本 研究はB01班と同様の物質を研究対象としているが、その アプローチが互いに異なり、B01班がマクロ相互作用に着 目し, 化学工学的研究手法に基づき, トリチウム放出挙動 や新規回収システム構築を研究対象としているのに対し て、B02班では材料-トリチウム間のミクロ相互作用に着 目し,照射欠陥,材料化学制御,セラミック被覆材開発に 焦点をあてた研究を行っている.本節では,現在実施して いる研究の例をあげて、その取り組み状況を解説する.

5. Study on Tritium-Material Interaction in Fusion Reactor Blanket Materials TERAI Takayuki, SUZUKI Akihiro, HOSHINO Tsuyoshi and TANAKA Teruya

corresponding author's e-mail: tera@n.t.u-tokyo.ac.jp

5.2 溶融金属リチウム(Li)中のトリチウム挙動 の解明[1]

液体金属リチウムは水素同位体との親和性が非常に高 く、その物質中のトリチウム挙動を明らかにすることとと もに、そこからのトリチウム回収方法の確立が極めて重要 な課題であるとされている.本研究では、液体金属リチウ ム中のトリチウム挙動評価のためのモニタリング、および トリチウム回収方法に関する基礎研究として、金属膜透過 を用いた方法について検討している.これまで金属透過膜 法としては主にニオブ膜を用いた方法が検討されてきた が、ニオブ表面における窒化物の生成がトリチウム透過障 壁となり、十分な性能を発揮できていない.そこで、本研 究では、きわめて大きな水素同位体拡散係数と溶解度を持 ち、リチウム側や真空側に安定な化合物を生成せず、Li と高い共存性を持つ純鉄に注目し、純鉄膜を用いたリチウ ムからの水素同位体透過実験を行いつつある.

図1に示すような装置を作製し、水素および重水素ガス の透過挙動を測定したところ、水素同位体透過速度は十分 に短い時間(873 K で10分程度)で一定値となり、また、 図2に示すように、重水素透過速度に比例する四重極質量 分析計の出力がLi中重水素濃度に比例することが確認され た.さらに、定常重水素透過速度の温度依存性が773-873 K の範囲でリチウム中重水素濃度に依存しなかったこ とから、本方法は金属リチウム中の水素同位体溶解度の測 定に適用できると判断された.なお、本方法に関しては、 リチウムポットを東大弥生炉にて中性子照射することによ り1 wppb 程度のトリチウムを生成させ、照射後のトリチ ウム測定試験を現在実施している.

続いて,純鉄透過膜法を用いて,金属リチウム中からの 水素同位体回収法として有望視されているイットリウム回 収法に関して,重水素を用いたその場観察を行った. 図3 に示すように,重水素を溶解した金属リチウム中にイット リウム板を漬漬し,その前後におけるリチウム中の重水素 濃度を連続的に測定した.その結果,イットリウム板を浸 漬することによってリチウム中の重水素濃度が低下し,そ の低下速度は当初大きな値を示すが,やがて減少すること がわかった.これは,リチウム中に溶解している窒素が イットリウム中で安定な化合物を形成し,それがイットリ ウム中への重水素の溶解を阻害しているためであると考え られる.

5.3 溶融リチウム鉛(Li17-Pb83)合金中のトリ チウム挙動の解明[2,3]

Li17-Pb83については、これまでに水素同位体の溶解度 や拡散係数などが測定されているが、中性子高温照射・温 度勾配・流動状態という核融合炉ブランケット環境下にお けるトリチウム挙動についての研究例はない.そこでこれを 明らかにするために、Li17-Pb83 流動ループを弥生炉の照射 孔内に設置し、トリチウムの生成・放出をオンラインで測 定することを計画している.本実験の概念図を図4に示す.

本装置の主要部分は全体をジャケットで取り囲んだトリ チウム生成部・トリチウム透過部を有する Li17-Pb83 の自



図2 四重極質量分析計重水素出力の Li 中重水素濃度依存性.



図3 重水素を溶解した金属 Li 中にイットリウム板を漬漬した時の Li 中重水素濃度の連続測定.

然循環ループであり,ループの一部に透過測定部を設け, そこからのトリチウム透過量を照射孔外に設置したトリチ ウム測定装置で測定するものである.自然循環ループは高 温部と低温部のLi17-Pb83の密度差によって数cm/secの速 度で流動し,ループ内のトリチウム濃度は一定であるが, トリチウム透過量は管壁温度に依存して変化する.高温 部・低温部それぞれ別個にトリチウム透過部を設け,これ らの透過量を分離して測定する.当研究グループでは,こ



図 4 Li17-Pb83 流動ループを用いたトリチウム生成・放出実験 装置.

れまでに液体金属リチウムや Flibe (LiF-BeF₂) 溶融塩によ る自然循環ループの製作・運転の経験があり,これらの成 果を用いて,Li17-Pb83ループの設計を行い,代表的な設計 値として,内径 10 mm, 20 cm×20 cmの矩形ループを想定 し,高温部 600 ℃,低温部 550 ℃とした時に,流速が 2.1 ~4.3 cm/sec となるという計算結果を得た.本装置は, ループの製作をすでに完了し,現在炉外での流動試験を開 始している.

5.4 Flibe 溶融塩中のトリチウム挙動の解明とト リチウム化学形の制御

Flibe 溶融塩中のトリチウム挙動に関しては, 弥生炉を 用いた中性子高温照射下におけるトリチウム生成・放出実 験を, ポットを用いて行った. 図5に使用した実験体系の 概略図を示す. Flibe約200gを入れたNi製のフランジ付き ポットを弥生炉のファーストコラムまたはサーマルコラム 内に設置し, 673-873 K の温度範囲に保持したまま中性子 照射を行ってトリチウムを生成し, 放出してくるトリチウ ムをヘリウムパージガス (0-100% H₂を含むこともある) で回収し, アルミニウムベッドやモレキュラシーブの後に 設置した電離箱でそのパージガス中のトリチウム濃度を連 続的に測定した. これらの測定結果から, トリチウムの放 出化学形と放出速度を明らかにすることができる. また, 図6に示すNi製の二重壁型ポットを用いて, Ni金属壁を透 過するトリチウムフラックスの測定も行った. さらに,



図5 弥生炉を用いた中性子高温照射下トリチウム生成・放出実 験装置.



図 6 Ni 製の二重壁型ポットを用いた Ni 金属壁透過トリチウム フラックスの測定装置.

Flibe に金属 Be を浸漬することにより体系内を還元性にしたときの挙動についても測定を行った.なお、トリチウム 放出実験に先立ち、室温でFlibeを照射し、硫酸に溶解したのち生成したトリチウムを液体シンチレーションカウンタ で測定したところ、表1に示すように、MCNP コードによるトリチウム生成量の計算結果と3%程度の測定精度でよく一致した.

トリチウムの放出化学形は HT および TF であり,Ni 金属壁を透過してくるトリチウムの化学形は HT であっ た.放出 HT および透過 HT の放出速度はトリチウム放出 に関する一次遅れを仮定した

$$y = a(1 - \exp(-t/\tau))$$
 (a および t は定数)

という式でよく近似できた.ここで, *a* は定常状態におけるHT放出速度およびトリチウム透過速度, *t* はトリチウム 放出の時定数である.しかしながら, TFが主な放出化学形の場合には, 図7に示すように, 一次遅れを仮定した式で は近似できず, 見かけの定常値を決定できなかった.

さまざまな実験条件における運転開始後180分までのト リチウム放出積算量の割合を、650℃での値で代表して図 8に示す.ここで、滞留TFとはFlibe中に存在しているTF 形のトリチウムの割合を示し、生成トリチウムの積算量か ら放出トリチウムの積算量を引いた値で表してある.この 図から、高還元状態ではHTが、低還元状態ではTFがおも な化学形であることがわかる.これは、体系中で生成した TFがH₂およびBeによりHTに還元されるためであると考 えられる.また、HTが主な化学形である場合には放出速 度が大きく、TFが主な化学形である場合には放出速度が 小さくなることも確認できる.さらに、透過と放出の割合 に関しては、高還元状態では透過HTの放出速度が大きく、

表1 MCNP コードによる Flibe 体系中のトリチウム生成量の計 算値と液体シンチレーションカウンターによる測定結果.

評価方法	MCNP 計算值	LSC 測定值	
トリチウム生成量	1.55×10^8 atom/cm ³ s	1.60×10^8 atom/cm ³ s	

放出 HT の割合と同程度になるのに対して,低還元状態で は,透過 HT の割合が著しく減少することが確認され た.これは,高還元状態では,生成したトリチウムのほと んどが Flibe 内部で HT として存在し,これが透過の駆動力 となっているのに対して,低還元状態では,生成したトリ チウムが Flibe 内部で T⁺として存在し,Ni 金属壁表面によ り HT に変化し,これが透過の駆動力となっているためで あると考えられる.

トリチウム放出曲線から,図9に示すようなモデルを仮 定し,高還元状態でのHT放出および透過の総括物質係数 を求めたところ,図10に示すような結果が得られた.そし て,関連する種々の素過程の物質移動係数の大きさやその



図7 Li₂TiO₃ ペレットに関する中性子照射下におけるトリチウ ム放出曲線 (650 ℃).



図9 Flibe からのトリチウム放出モデル.

<u>⑤ K₂₅:Flibe境膜から気相への脱離</u>



図10 高還元状態での Flibe からの HT 放出および透過の総括物質 係数.



図8 様々な実験条件における運転開始後180分までのトリチウム放出積算量の割合(650℃).

活性化エネルギーの大きさについて検討した結果,本実験 体系における高還元状態でのトリチウム移行挙動モデルが 図11のように表わされることが示された.

なお、本研究では、Flibe 中に浸漬した Be や Ni 容器による TF の還元がトリチウム放出に大きな役割を及ぼすこと が示唆されているので、そのことを定量的に明らかにする ために、Flibe 中に電極を挿入し、自然電位の測定やサイク リックボルタンメトリを行うことにより、体系の酸化還元 状態を同定・制御することを計画している.

5.5 固体トリチウム増殖材料中の酸素欠損とト リチウムの相互作用の解明[4-6]

固体増殖材料として,我が国の第一候補材料である Li₂ TiO₃を取り上げ,研究を行った.同材料は,①化学的安定 性が高い,②低温でのトリチウム放出特性が良好である, ③他の候補材と比較して誘導放射能が小さい,という特長 を有しているが,①各種パージガス雰囲気中における高温 での中性子照射下におけるトリチウム放出試験の例がな い,②H₂をパージガスに用いた時には還元されやすく,そ の結果,酸素欠損が生じ非化学量論組成となるが,それが トリチウム放出に及ぼす影響が明らかではない,といった ような研究課題がある.そこで,本研究では,弥生炉に 図12に示すような実験体系を設置し,中性子高温照射下に



図11 Flibe 中で生成したトリチウムの移行挙動モデル.



図12 中性子高温照射下における Li2TiO3 ペレットからのトリチ ウム放出実験装置.

おける Li₂TiO₃ペレット(結晶粒径 1 µm,ペレット直径 9.2 mm,ペレット厚さ 2.5 mm)からのトリチウム生成・放出 実験を行った.トリチウム放出実験に先立ち,室温の同体 系中でLi₂CO₃ペレットを照射し,生成したトリチウムを液 体シンチレーションカウンタで測定したところ,**表 2**に示 すように,MCNP コードによるトリチウム生成量の計算結 果と 3 %程度の測定精度でよく一致した.

放出化学形および放出速度のパージガス組成による影響 を表3に示す.パージガス組成が下の欄になるに従って酸 素ポテンシャルが増大するが,それに伴って放出化学形が HT から HTO に変化すること,また,トリチウム放出速度 が低下することがわかる.なお,パージガスにH₂を添加す ると,トリチウム放出速度は増大するが,Li₂TiO₃の還元が 生じる可能性があるので,試料還元の放出特性への影響を 評価する必要があると考えられる.

図13に He+1%H₂ 雰囲気における HT 放出曲線の温度依 存性を示す.定常状態においては,定常状態時に対するト リチウム放出割合が1まで上昇するはずであるが,3時間 程度の運転では,ある程度の値までしか上昇しなかった. このことから HT の放出過程には,数十分で見かけの定常 状態に達する速いプロセスと3時間程度ではその影響が表 れない遅いプロセスが影響している可能性があることが示

表2 MCNP コードによる Li₂TiO₃ 体系中のトリチウム生成量の 計算値と液体シンチレーションカウンターによる測定結果.

評価方法	MCNP 計算值	LSC 測定值
トリチウム生成量	1.39×10^8 atom/cm ³ s	1.36×10^8 atom/cm ³ s

表3 Li₂TiO₃ペレットからの放出化学形および放出速度のス イープガス組成による影響(550~700℃).

放出化学形 パージガス組成	HT	НТО	
He + 1 %H ₂	速い	—	
$He + 0.1\% H_2O$	—	遅い	
(Pure He)	(非常に遅い)		
$He + 0.1\%H_2O + 0.1\%O_2$	非常に遅い		



 図13 He+1%H2 雰囲気における Li₂TiO₃ ペレットからの HT 放出 曲線の温度依存性.

唆される. なお,見かけの定常状態にある試料体系の温度 をステップ状に 500 ℃から 700 ℃に変化させたときのトリ チウム放出速度の応答を図14に示す. ステップ状の温度上 昇により,トリチウム放出速度の見かけの定常値が上昇し た. これらの結果について,これまでに提案されている放 出モデルとの適合性を念頭に置いた解析を実施中である. また,トリチウム放出に及ぼす試料サイズの影響を検討す るために,結晶粒径 1 µm 以下,直径 1 mm,焼結密度85% TDのLi₂TiO₃ペブルを用いた実験も検討している. さらに は,中性子照射装置としてのJAEAのFNSの利用について も検討を行っている.

一方、Li₂TiO₃にリチウムを余分に添加することにより、 パージガス中の水素で還元されにくく、使用中のLiの蒸発 や核燃焼によるLiの減少をあらかじめ補った先進Li添加 型Li₂TiO₃の研究を行っている.Li₂TiO₃は5%程度の水素 を添加したHe 雰囲気ガス中で1173Kに8時間程度保持す ると、酸素欠損が生じ試料が着色するが、Li₂O/TiO₂比が 1より大きいと水素により還元されないことがわかってい る.従来は、Li/Ti比を1以上にする方法として、LiとTi のアルコキシドを用いた液相合成法が行われていたが、合 成方法が複雑であり、出発原料が高価であるという欠点が あった.そこで本研究では、これらの欠点を補う方法とし て、水酸化リチウム(LiOH・H₂O)とメタチタン酸(H₂ TiO₃)を出発原料に用いた安価で大量合成可能な固相法に よる合成を検討し、量産技術の確立を目標とした.

図15に示す手順で合成を行ったところ、出発原料粉末を LiOH・H₂OおよびTiO₂としたときには,Li/Ti比が仕込量 比に比べて10%程度減少するのに対して、TiO2の代わりに H₂TiO₃を用いた時にはLi/Ti比が変化しないという結果が 得られた.しかしながら,Li/Ti=2.4程度のときには単一 相ではなく、Li₂TiO₃とLi₄TiO₄の二相混合となるという結 果になった. そこで、Li_{2+x}TiO_{3+v}の単一相の合成をめざし て、LiOH・H₂O 粉末と H₂TiO₃ 粉末を混合したのち、ボー ルミルを用いて回転混合を行い、常温反応によりゲル化を 行うプロセスを導入し、その後、大気中773 Kで仮焼、1473 Kで本焼成を行ったところ、Li₂TiO₃の結晶構造を保った Li 添加型 Li₂TiO₃(Li_{2+x}TiO_{3+y})の合成に成功した. さら には、本焼成時の雰囲気を1%H2+Heとすることによ り、合成過程でのLi/Tiの減少をなくすことにも成功した. 今後は、本研究で確立した常温固相反応および水素雰囲気 焼成を利用した Li 添加型 Li₂TiO₃ (Li_{2+x}TiO_{3+y})の微小球 製造を行い、トリチウム放出特性も含めた特性についての 評価を行う予定である.

5.6 増殖材料と接するブランケット構造材料の トリチウム透過と透過防止コーティングの 研究[7-10]

Li17-Pb83やFlibeなどを用いた液体ブランケットシステムにおいては、それらの物質のトリチウム溶解度の小ささから配管壁を通したトリチウムの透過損失が重要であり、トリチウム燃料サイクルと安全性確保の観点からこれを減少させることが重要課題であるとされている。そのため、



図14 見かけの定常状態にある Li₂TiO₃ ペレット体系の温度をス テップ状に500 ℃から700 ℃に変化させたときのトリチウ ム放出速度の応答.



図15 先進 Li 添加型 Li₂TiO₃ の合成手順.

高温配管にトリチウム透過防止バリアを施すことが検討さ れている. これまでは,透過防止バリアとして Al₂O₃を用 いた研究が中心であり、透過速度を 1/10~1/10000 程度に 低減できるとされているが、現在までその透過抑制メカニ ズムに関する研究はほとんど行われていないため、どのよ うな膜質が優れた性能を与えるのかについて十分に明かさ れているわけではない. そこで、本研究では、トリチウム 透過防止性薄膜として熱力学的にもっとも安定な酸化エル ビウム (Er₂O₃) に着目し, 各種パラメータを変化させて Er₂O₃ 薄膜を作製し、試料の微細構造のキャラクタリゼー ションと水素同位体透過試験を通して薄膜中の水素同位体 挙動を解明することを目的とした.具体的には、図16に示 すように、①アーク蒸着法とゾル-ゲル法によるEr₂O₃薄膜 試料の作製, ②薄膜試料の分析, ③重水素透過試験を行い, 試料の微細構造と重水素透過挙動との関係を精査し、本透 過防止薄膜中の水素同位体透過挙動の解明を行った.

おもな試料はSS316, SS430, JLF-1 /F-82H等の基板上に アーク蒸着法により作製した Er_2O_3 薄膜である.その際に, 結晶状態の影響を見るために基板温度を非加熱または 700 ℃と変化させるとともに,蒸着時間を変化させ,膜厚を



図16 Er₂O₃透過防止コーティングの研究手順.

0.25 μ m と 1 μ m の 2 種類とした. また, ゾル-ゲル法は, ス ピンコートによりゾルを塗布・乾燥させてゲル化した後に 熱処理により目的の酸化物を結晶化させる手法であり, ① 複雑な配管形状にも製膜が可能, ②大規模の製膜に適す る, ③作製方法が簡便であるといった利点があるが, ④不 純物の混入・残存, 組織制御が困難であるというような課 題も存在することから,本研究では,作製パラメータの最 適化に主眼を置き,真空アーク蒸着法で作製した薄膜との 特製の比較を行うこととした. なお,本研究で用いた前駆 体は㈱高純度化学研究所製の Er-03と称するもので, Er₂ O₃を換算値で 3 %含む酢酸 n-ブチルと酢酸エチルに溶解 したものである.

作製した薄膜試料のレーザー顕微鏡や断面の TEM 観察 を行ったところ, アーク蒸着法で作製した試料では, 基板 温度 700 ℃で作製した試料で、基板と Er₂O₃ 薄膜の間に鉄 の酸化物層が生成したり、その酸化物層と基板との間に空 洞ができており、そのため、Er₂O₃薄膜が剥離しやすいこ とがわかった.一方,基板非加熱の場合には,基板と Er2 O3薄膜との間に非結晶質の中間層が生成しており、このた め, Er₂O₃ 薄膜の剥離が見られなかった.また,結晶粒径に 関しては, 基板非加熱では柱状の組織が見られ, 基板温度 700℃の試料では、結晶が成長していることが確認された. その結晶粒径は、非加熱の場合の20 nmから200 nmと10倍 に増加した.一方、ゾル-ゲル法では、剥離のない薄膜が 得られたが、熱処理の温度や雰囲気に応じて結晶性の変化 が見られた.特に Er₂O₃の結晶化には熱処理時の雰囲気中 に微量の酸素が必要であるが、酸素分圧が高すぎても基板 の酸化物層が生成するので, 適切な酸素分圧制御が必要と なる.本研究では、高純度アルゴン流下700℃で1時間熱



図17 ステンレス基板上に生成した Er₂O₃ 薄膜の重水素透過実験 装置.

処理した試料を透過試験に用いた.

重水素透過実験に用いた装置を図17に示す.上流側チャンバに重水素を導入し,下流側チャンバを真空排気し,試料を透過して下流側に流れ込む重水素量を四重極質量分析計で測定する.このとき,次の式

$$J = \phi \frac{p_{\rm HD}^{\rm n}}{d}$$

が成り立つ. ここで,

J:水素透過 flux[mol/m²/sec] φ:比例係数 p_{HD}:上流水素分圧[Pa] d:試料の厚さ[m]

であるが、n = 0.5の時、水素は解離して拡散律速で移動 し、n = 1の時、水素は分子拡散で移動、もしくは表面反応 律速で移動するとされている.まずは、各種基板の重水素 透過実験を行ったところ、n = 0.5となり、透過係数の絶対 値も文献値とよく一致し、このことにより装置の健全性が 確認された.

アーク蒸着法で作製した Er₂O₃ 薄膜(1μm 厚)の重水素 透過挙動測定結果の一例を,基板のみの場合と比較して図 18に示す.これより,薄膜の基板がいずれであっても被膜 を施した試料の透過フラックスはほぼ同じ値を示すことか ら,水素同位体の移動は薄膜のみによって制御されている ことがわかる.また,いずれの場合でもn=0.45~0.61とな り,0.5 に近いことから,薄膜中も水素同位体は拡散律速で 移動していることが示唆される.また,水素透過防止性能 については,JLF-1基板の場合に1μm 薄膜で 800,0.25 μm 薄膜で50となり, 膜厚が 1/4 の場合に理論値と比較してそ の低下の度合いが激しいが,これは, 膜厚が薄いと薄膜の



図18 アーク蒸着法で作製した Er₂O₃ 薄膜(1 μm 厚)の重水素透 過挙動測定結果の例.



図19 アーク蒸着法とゾル - ゲル法で作製した薄膜(1 μm 厚)の 透過係数の測定結果.

被覆率が低下し,露出した基板部分からの透過が大きく効 くためであると考えられる.透過の活性化エネルギーに関 しても,膜厚が薄いものは膜厚が厚いもの(51 kJ/mol)と 基板(35 kJ/mol)の間の値(41 kJ/mol)を取っており,こ のことも上記の考え方を支持している.また,Er₂O₃薄膜 の透過係数は500~700 ℃の熱サイクル試験では大きくは 変化せず、本薄膜は熱サイクルにより劣化することはない と考えられる.

アーク蒸着法とゾル - ゲル法の作製方法の違いの効果に ついて、それぞれの方法で作製した薄膜(1µm 厚)の透過 係数の測定結果を図19に示す.500℃での試験では、ゾル-ゲル法で作製した試料の方が重水素透過係数がやや小さ かったが、600℃と700℃では同程度であり、これらの作 製方法による違いは小さいものと考えられる.

今後は、大面積被覆に適応可能なゾル-ゲル法について の研究をさらに進める一方、MOCVD 法での薄膜作製手法 の開発を進める予定である.

参 考 文 献

- [1] J. Yagi, A. Suzuki, T. Terai, T. Muroga and S. Tanaka, Fusion Eng. Des. 84, 1993 (2009).
- [2] M. Nagura, M. Kondo, A. Suzuki, T. Muroga and T. Terai, Fusion Sci. Technol. **52**, 630 (2007).
- [3] M. Nagura, A. Suzuki, T. Muroga, T. Terai, Fusion Eng. Des. 84, 1384 (2009).
- [4] T. Hoshino, M. Yasumoto, K. Tsuchiya, K. Hayashi, H. Nishimura, A. Suzuki and T. Terai, Fusion Eng. Des. 82, 2269 (2007).
- [5] T. Hoshino, K. Sasaki, K. Tsuchiya, K. Hayashi, A. Suzuki, T. Hashimoto and T. Terai, J. Nucl. Mater. 386-388, 1098 (2009).
- [6] T. Hoshino, K. Kato, Y. Natori, M. Nakamura, K. Sasaki, K. Hayashi, T. Terai and K. Tatenuma, Fusion Eng. Des. 84, 956 (2009).
- [7] T. Chikada, A. Suzuki, Z. Yao, A. Sawada, T. Terai and T. Muroga, Fusion Eng. Des. 82, 2572 (2007).
- [8] Z. Yao, A. Suzuki, D. Levchuk, T. Chikada, T. Tanaka, T. Muroga and T. Terai, J. Nucl. Mater. 386-388, 700 (2009).
- [9] T. Chikada, A. Suzuki, Z. Yao, D. Levchuk, H. Maier, T. Terai and T. Muroga, Fusion Eng. Des. 84, 590 (2009).
- [10] T. Chikada, A. Suzuki, T. Kobayashi, Z. Yao, T. Terai and T. Muroga, Fusion Sci. Technol. 56, 309 (2009).



プロジェクトレビュー 核融合炉実現を目指したトリチウム研究の新展開

6. トリチウムの閉じ込めに関わる 高濃度トリチウム水および有機物の化学的現象の解明

山 西 敏 彦¹,林 巧¹),岩 井 保 則¹,磯 部 兼 嗣¹,原 正 憲²,杉 山 貴 彦³),奥 野 健 二⁴ ¹⁾日本原子力研究開発機構トリチウム工学研究グループ,²⁾富山大学水素同位体科学研究センター, ³⁾名古屋大学大学院工学研究科,⁴⁾静岡大学理学部

(原稿受付:2009年8月27日)

Keywords:

燃料循環.増殖 安全閉じ込め

tritium confinement, tritium water, chemical properties, organic compounds

トリチウム

6.1 C01班計画研究の概要

6.1.1 核融合炉の燃料循環系

核融合炉の燃料循環系を図1に示した.プラズマから排 気されたガスは,燃料系で処理された後再注入される.こ の燃料循環系は,真空排気,精製捕集,水素同位体分離,燃 料貯蔵および供給の基本システムがつながったものであ る.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する.図1に示す各基本システムは, ITER クラスの設計・製作が可能なレベルに達しており, 統合システムとしての試験が ITER での研究課題となる. システムの概要等は,既に報告されている文献等に詳しい ので,参照されたい[1].

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 400gのトリチウムの核融合反応による燃焼が必要である. 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

Li 化合物

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10kgのトリチウム供給流量が必要 である.核融合炉作業従事者被爆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10kg/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 ならない.しかしながら、トリチウムは水素の放射性同位 体であるから、物理化学的には高分子や高温の金属中を透 過しやすい性格を持ち、外部への漏洩を完全になくすこと は難しい[2].このため、漏洩トリチウムの量と化学形を 正確に把握し、かつ確実に回収して充分濃度管理すること で、放射線安全対策を確保、つまりトリチウムを閉じ込め なければならない.

6.1.2 トリチウムの閉じ込め

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,配管等を十分な構造強度や気密 性をもって設計し(物理的閉じ込め),万一の漏洩事象発 生を仮定しても十分な影響緩和ができるよう安全確保策を 適切に講じておくことが基本である.核融合研究に係る世 界の主要トリチウム取り扱い施設[3-5]は、基本的にこの 考え方に基づいて安全が確保されており、ITERも同様で ある[6,7].核融合炉の燃料循環系では、系に混入してくる 軽水素,水,有機物を除去する必要があるが、これらには、



6. Studies on Chemical Phenomena of High Concentration Tritium Water and Organic Compounds of Tritium from Viewpoint of the Tritium Confinement YAMANISHI Toshihiko,HAYASHITakumi, IWAI Yasunori, ISOBE Kanetsugu, HARA Masanori, SUGIYAMA Takahiko and OKUNO Kenji

corresponding author's e-mail: yamanishi.toshihiko@jaea.go.jp

水素同位体であるトリチウムを含む.よって,トリチウム 濃度を充分に管理した上で,これら不純物を排出する必要 があり,機能的なトリチウム閉じ込めを形成していること となる.

上記トリチウムの閉じ込めにおいて、まず1次閉じ込め 系である機器でどのようなトリチウムを取り扱い、機器か らのトリチウム漏洩量とその化学形を知ることが、トリチ ウムの安全取り扱いの基本課題となる. 核融合炉の真空容 器では、高濃度トリチウム水および多様な有機トリチウム が生成し、燃料系の機器で取り扱われる.水素形(HT,DT, T²)のトリチウムの取り扱いという観点に限れば、これま での研究および取り扱い実績により, ITER クラスのトリ チウム取り扱いが見通せるレベルに達した.一方、トリチ ウム水および有機トリチウムに関しては、トリチウムを環 境に放出できるレベルまで除去することが必須であるが, バッチ的にトリチウムを除去・回収するシステムしか未だ 開発されておらず, ITER 運転後期には必要な連続回収シ ステム開発のための基礎研究に、今着手しなければならな い. 高濃度トリチウム水中では、放射線による自己触媒反 応等により、過酸化物等が生じ、容器材料の腐食、それに よるトリチウムの浸透等が生じる.これら高濃度トリチウ ム水が引き起こす現象が、機器の材料(物理的閉じ込め障 壁)に与える影響を解明することも重要な課題である.

6.1.3 課題と目的

C01班では、核融合炉でのトリチウム閉じ込め技術を確 立することを最終的な目標とするものである.そのため に、6.1.1で記述したように、特に基礎研究の進展とデータ 取得が強く望まれている「高濃度トリチウム水および有機 物の化学的現象の解明」を目的とする.具体的には、下記 の課題に取り組む.

- トリチウム水および有機トリチウムが物理的閉じ込め 障壁に与える影響の解明:トリチウム水および有機ト 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)トリチウム水および有機トリチウムの機能的閉じ込めの研究:トリチウム水およ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

以下に,上記2つの課題に関する研究成果をレビューす ると共に,C01班の2年間の研究活動成果の概要を,今後 の課題とともに報告する.

6.2 トリチウムが物理的閉じ込め障壁に与える 影響の解明

6.2.1 金属一水界面における水素同位体移行挙動

通常,金属構造材は、トリチウム1次閉じ込めの物理的 障壁となっている.水素としてのトリチウム挙動データ は、過去の研究により豊富であるが、実際の核融合炉では、 熱交換器等、水として金属に接する面積が大きい.その重 要度にも関わらず、水に関する系統的データは、定量測定 の困難性のため、ほとんどないのが現状である.

上記現象の理解の第一歩として、バルク内への水素移行 挙動が比較的よく理解されている純鉄配管と高純度のトリ チウムを用い、トリチウムの金属から水中への移行挙動を 観測した[8].実験は、1 kPaのトリチウムガス(純度90%) を封入した純鉄配管を水ジャケット内に設置し、400 K で 純Heまたは1%のH₂を含むHeガスでジャケット内を加圧 パージ(20 cc/min)し続けた状態で水中へ移行したトリチ ウム量を電離箱で連続的に、またはバブラーにより捕集す ることにより、間歇的に測定した。約1日毎に水ジャケッ ト中への総トリチウム移行量を確認し、純鉄配管や小試験 片の表面観察を実施した。純鉄配管試料は、「水中でマグ ネタイト酸化膜(約2 µm)を形成させたもの」と「未使用 のもの」(ともに1年空気中保管)、および金メッキ(膜 厚:7 µm)を施したものを用いた。

図3および表1に,金メッキ試料および高温水中酸化 (Magnetite 膜厚:2µm)した試料のトリチウム透過結 果を示す.以下の結論を見いだすことができる.

- 1) 1000 ppm 以下の水蒸気中へのトリチウム透過後の主 な存在化学形は、>99% が HTO であった。わずかな 酸化物層によって、数 100 ppm 程度の水蒸気の存在下 で、ほぼすべて水(HTO)の化学形で移行する。
- 2)金メッキにより界面の酸素を低減すると、同条件で水素(HT)で移行する割合が支配的(85%)となるとともに、酸化膜試料と比べ約1桁小さいことを確証し



図3 純鉄におけるトリチウムの水・水蒸気への移行量:(a)金メッキ;(b)magnetite 表面,423 K.

Sample No.	Temp.	Outer Jacket	Magnetite	HT fraction	HTO fraction
1) New sample	423 K	water	No→magnetite	31%	69%
2) Just after of 1)	423 K	water	Magnetite	0.7%	99.3%
3) 1 year after of 2)	423 K	Ar + H2O vapor	Magnetite	0.3%	99.7%
4) New sample	423 K	Ar + H2O vapor	No	0.3%	99.7%
5) Gold plated	423 K	Ar + H2O vapor	No	$\sim 85\%$	$\sim \! 15\%$

表1 純鉄におけるトリチウムの水・水蒸気への移行量に対する表面の影響.

た.よって、トリチウムの移行は、界面の酸素の存在 状態及び量により、水蒸気との同位体交換反応と再結 合反応の競合により決められるものと考えられる.

4)純鉄は高温水中で界面にマグネタイト酸化膜を成長させ、この膜形成初期の水素発生に伴い、水素(HT)で移行する成分があるが、初期酸化膜成長後はHTOが支配的となる.成長後は、高温水・水蒸気間でトリチウム移行挙動に大きな変化は見られていない.(表面酸化の進行には差がある.)界面の酸素(酸化物など)と相互作用したトリチウムが水分子と同位体交換反応で透過側雰囲気に移行すると考えられる.

このように,金属 - 水界面における水素同位体移行挙動 の初めての系統的データを取得することに成功し,興味深 い挙動を明らかにすることができた.一方,水素の純鉄中 への移行の素過程,酸化膜の関与(残った酸素の寄与)等, 定量的にまだ不明部分は多い.今後,金メッキ試料の高温 高圧水での実験等の実施,生成酸化膜および水素マスバラ ンスの定量的評価を通じて,上記不明点の解明をめざす. また,純鉄ではなく,実際に核融合炉での使用がめざされ ている F82H を用いた試験を進め,系統的なデータ取得を めざす.

6.2.2 トリチウム水による金属腐食挙動

トリチウム水中では、ラジカルが形成されるとともに、 界面での物理化学的構造と水素および酸素との相互作用に より、界面環境が大きく変動しうる.具体的には、水の pH の変化、金属表面不動態被膜の破壊、腐食酸化物の生成等 が考えられ、腐食促進、局部腐食の誘発など、トリチウム 水特有の現象を起こす可能性と、トリチウムの浸透現象に 対しても多大な影響を与えることが考えられる.高濃度ト リチウム水の取り扱い困難性から、学問的にも・実際的に も重要な課題でありながらデータの不足は否めないため、 この課題に取り組んだ.水による金属腐食では、金属の溶 解と還元、水素、酸素の発生等が生じる.よって、腐食反 応における化学エネルギー変化を電気エネルギーとして取 り出し評価可能である.そこで本研究では、代表的電気化 学手法である分極測定に注目し、腐食速度を電流で示した 腐食電流密度を測定した.

実験は、5%硫酸水溶液を腐食測定セルに貯留し、水溶 液中のトリチウム濃度をパラメータに、ポテンシオスタッ トにより腐食電流密度を測定した.作用極にSUS304鋼、対 極に白金線、参照電極には、銀-塩化銀電極を用いた.図4 に結果を示す.4500 Bq/cc までのトリチウム濃度では、分 極曲線に変化はなく、腐食電位、腐食電流密度に変化はな いことを観測した.アノード側で電流値が電圧に対して変



図 4 トリチウム水(4500 Bq/cc)および純水の腐食電位および 分極曲線.

化していないのは,ステンレス表面に不動態膜が形成され ていると考えられる.

核融合炉で発生が予想される高濃度トリチウム水の腐食 を模擬するためには、今回の測定レベルより桁で高い濃度 のトリチウム水による測定が必要である.取り扱う高濃度 トリチウム水の量は、安全の観点から最小とすべきである ことから、マイクロセルの利用による実験を行い、世界初 となる高濃度トリチウム水の腐食データ取得をめざす.ま た、強酸性ではない、実際に予想されるpH3~8でのデー タ取得を今後行う.

6.2.3 高分子膜中のトリチウム水の透過挙動

高濃度トリチウムを取り扱う機器を設置するグローブ ボックスは、アクリル樹脂とグローブ(ネオプレン、ブチ ルゴム)から構成される.またオーリング、バルブのシー ル部分等、機器そのものにも多くの高分子材が使用され る.高分子材は水を透過することが知られており、トリチ ウムの閉じ込めの観点から、高分子膜中のトリチウム水の 透過挙動を把握することが重要である.本研究では、トリ チウムの閉じ込めの観点から、実際に燃料系で使用される 高分子材を対象に、トリチウム水での実験データ取得をめ ざすものである.高分子材に対する水の透過係数の報告例 は過去にも存在する.しかしながら、水分濃度の高精度の 測定は容易ではなく、得られた透過係数の値にも、誤差が あることが予想される.本研究によるトリチウム水を用い たデータが、高分子材の正確な水透過データともなること が期待されている.

図5に、トリチウム水透過挙動測定装置を示す.本装置 により、ポリプロプレンのトリチウム水透過データ測定を



実験温度範囲:10-60°C

図5 高分子材トリチウム水蒸気透過測定装置.

開始した.現状,過去の報告例と差のあるデータが得られ ているが,今後測定精度を上げるとともに,ゴム類,酢酸 セルロースの測定を開始する.

6.2.4 ステンレス酸化層におけるトリチウム捕捉

トリチウム閉じ込め1次障壁で最も多く用いられるステ ンレスであるが、その表面には容易に酸化層が形成され る.トリチウムが物理的閉じ込め障壁に与える影響におい て、この酸化膜におけるトリチウムの捕捉(滞留)の解明 が必要となる.この現象の科学的解明を目的に、異なる温 度で大気に曝して形成させた酸化層における重水素滞留挙 動に関して検討し、酸化鉄が重水素の滞留に影響を及ぼす ことを明らかにしてきた.本研究では大気曝露温度に対す る形成酸化層中の鉄の化学状態に変化が見られなくなる 673 K にて形成した酸化層にトリチウムを模擬した重水素 イオン(D²⁺)を照射し、酸化層における水素同位体の捕捉 過程について検討した.

試料には316ステンレス板 (厚さ:1.0 mm)を用いた.は じめに不純物除去を目的とした加熱処理を1173 K で行い, 次に試料温度を673Kとして1時間の大気曝露を行い、酸 化層を形成させた.その後室温にて、重水素イオン(D²⁺) を,入射エネルギー,0.5 keV,フラックスを 5.0×10¹⁷ D⁺ $m^{-2}s^{-1}$ とし、フルエンスを $(1.0-5.0) \times 10^{21} D^{+} m^{-2}$ と変 化させて照射した. これによるイオンの打ち込み深さは形 成した酸化層内である. その後, 昇温速度を 0.5 K s⁻¹ とし て室温から1273 Kまで昇温脱離測定を行った. 図6に各フ ルエンス照射後に放出された重水素の量(重水素滞留量) を示す.フルエンスの増加に伴い重水素滞留量は増加した が、2.5×10²¹ D⁺ m⁻² で飽和した. 試料の X 線光電子分光 測定により、大気曝露により試料表面に形成されていた酸 化層は、主として酸化鉄であったものが、イオン照射後に は、Fe-OD に帰属される光電子分光ピーク面積の割合が増 加することが認められた. すなわち, 打ち込まれた重水素 は, 試料表面の酸素と結合し, 重水として放出される一方 で Fe-OD を形成して滞留するものがあることが示され た. 今後は、ステンレス材料酸化膜における Fe の化学状態 がトリチウム捕捉挙動に与える影響について、水として放 出あるいは OD としての滞留の詳細またはその素過程等を 検討する



図6 ステンレスへの重水素照射後の昇温脱理スペクトルへの照 射フルエンスの影響.

6.3 トリチウム水の機能的閉じこめの研究

核融合炉の水処理系では、軽水素を取り除くための水素 同位体分離系からの排気ガス[6],有機物を除く精製系の 最終段階であるトリチウム除去設備の水分吸着塔の再生水 を受け入れており、環境と燃料循環系のインターフェイス となる重要なシステムである. 核融合炉では、トリチウム で汚染された機器の保守はホットセル内で行われるため, セル内にはトリチウムが放出される.よって、ホットセル 内のトリチウム除去のために設置される水分吸着塔から, 定常的にトリチウム含有再生水が排出されることになる. またブランケット内で増殖したトリチウムが、冷却水配管 の金属を透過して冷却水に移行するため(3章参照),ト リチウムを含む冷却水の処理が、従事者被曝の低減の観点 から必要となる.水の形のトリチウムは、水素の形のそれ と比較すれば、透過漏洩は少ない. ところが、水の形のト リチウムは、水素の形のトリチウムと比較して、生物学的 危険性が10000倍以上大きく、法令による取り扱い制限も 当然厳しい.このように、核融合炉の水処理系は、トリチ ウムの機能的閉じ込めを最終的に担う重要なシステムであ り、その研究開発が将来にわたって重要な課題であること は論を待たない. ところが, ITER では、本格的な水処理系 を必要としないため、その研究開発は他のシステムの研究 開発に比べ非常に遅れており、本科研費特定領域の研究成 果が強く期待されている.

6.3.1 水処理系の研究開発の現状と課題

トリチウム水処理システムの現状については、文献[9] に詳細なレビューがなされているため、それを参照された い.ここでは、システム開発の課題の観点から、現状を記 述する.ITERでは、ふげんでの重水濃縮に実績を挙げた CECE (Combined Electrolysis Catalytic Exchange:電解 セルを加えた化学交換塔)が採用された[9].原理的には 水-水素化学交換反応(H₂O+HT=HTO+H₂)を用いるもの であり、重水濃縮では実績を挙げたシステムであるが、ト リチウム水への適用を考えた場合、以下の研究課題を克服 しなければならない.

1) トリチウムを扱う機器は、最終閉じ込め系である建屋

内に設置しなければならない. ITER では, 原理的に 背が高くなることが避けられない CECE システムを建 家内に納めるために, 複数の階層をつらぬいて配置す ることになっている. コスト増を招く建屋の大型化, トリチウム閉じ込め空間数の増加を防ぐために, 塔は できるだけ小型化されるべきであり, 塔構造の抜本的 見直しが必要である.

- 2) CECE で濃縮されたトリチウム水は、電解セルで水素 形に変換されて水素同位体分離システムに送られ、最 終的に、燃料としてのトリチウムとして回収される. つまり、電解セルでトリチウム水濃度が最も高くな り、また電解セルでのトリチウム濃度が高いほど、電 解セルで処理する水の量も小さく、水素同位体分離シ ステムに送る水素ガス量も小さくなり、燃料循環系全 体の効率化を図ることができる.電解セルには高分子 材が多く用いられている.電解セル高分子材が耐えら れるトリチウム濃度と期間等、放射線耐性に関する データベースの構築が必要である.
- 3) ITER での水処理システムでの水の処理量は、20-60 kg/hと想定されているが、ブランケット冷却水処理 が必要となる原型炉以降では、処理量は2桁以上増加 するとの試算がある[9].基本的に大流量処理ができ ない電解セルを抱える CECEは、この処理量には対応 できない、CECEの前段で、処理量を低減させるシス テム開発が必須である。大流量処理が可能な水処理シ ステムとして、重水濃縮に用いられてきた水蒸留塔が あるが、分離係数が小さく必然的に塔は巨大化するこ とから、1)の要件を満たさない、新しい視点からの 水処理のシステム構築が必要で、原理試験からの基礎 研究が必要である。

上記1)-3)の課題に向けて、本科研費特定領域で進め ている研究成果と今後の計画を以下に要約する。

6.3.2 化学交換塔の高性能化に向けたトリチウム挙動の 研究

化学交換塔は、白金触媒による水素ガス-水蒸気間の同 位体交換反応と、親水性充填物により促進される水蒸気-水間の気液平衡とによって、水素ガス中の重い水素同位体 を、水蒸気を経て水へと濃縮する同位体分離法である.世 界的に唯一実績があり、ITERにて採用される化学交換塔 は、理研の磯村らによって考案された気液分離型交換塔で ある(触媒が水に濡れることで、化学交換反応の活性が失 われるため)[7].ところが、その複雑な内部構造により1 段あたりの高さが大きくなる.

現在では、疎水性の担体に白金を担持させた極めて水に 濡れにくい触媒が開発されており、簡単な構造(トリクル ベッド型、触媒と充填物の混合充填)の反応塔も使用可能 であろう.これまで、疎水性白金触媒として Kogel 触媒 (粒径 4.5~5.5 mm,白金担持量 1.0 wt-%)、親水性充填物 として Dixon gauze ring (直径 6 mm,高さ 6 mm)を用い、 塔内に均一に分布するよう充填した化学交換塔での研究を 水素 - 重水素系で行ってきた(塔内径 2.5 cm,有効塔長 60 cm, 圧力,温度は 101 kPa, 70 ℃).触媒と充填物を交互 に層状に充填した場合に比して,全分離係数 *a*β (≒ *x*/*z*) (*x*, *z* はそれぞれ抜出水,抜出水素ガスの重水素モル分率である.)2倍程度も大きく,充填方法の最適化で,大幅な塔の小型化の可能性について見通しを得ている[10].

上記結果を受け、本研究では、以下の研究を進めた.

- 1) トリチウムを用いた系による分離係数の測定
- 2) 塔最適化に向けた、水素ガス-水蒸気間の同位体交換 反応速度のデータ取得
- 3) 分離性能解析手法の開発

図7に名古屋大学で,実際にトリチウムを用いて分離係 数を測定するために準備中の化学交換塔実験装置を示す. 重水素実験で記述したように,塔内径2.5 cm,有効塔長 60 cm であり,まもなく実験を開始する(トリチウム濃 度:400~1000 Bq/cm³,液分散性等について検証する.). また,独カールスルーエ研究所の大型化学交換塔(内径: 5.5 cm,高さ:2 m)の分離データも取得しており,スケー ルアップに関する検討を行っている[11].

同位体交換反応速度の測定に関しては、触媒充填高さお よび粒径 (SDBC:スチレン-ジ-ビニルベンゼン共重合体) をパラメータに水素一水蒸気化学交換反応速度 (HT(g) + H₂O(v) = H₂(G) + HTO(v),可逆反応)を測定した. 1)反応塔内の流れは栓流,2) HT および HTO 濃度のみ に依存する一次反応,3) 触媒の白金担持量は触媒表面積 に比例,の仮定で導かれる以下の速度式

 $\ln(1-\eta) = -(k_1 + k_2)/S_r t_0$

η:反応効率(-), k₁:上記反応式の速度定数,
 k₂:上記反応式の逆反応速度定数,
 S_r:単位体積における触媒面積,
 t₀:触媒層での平均滞留時間

が成立すること,また k_1+k_2 の値を求めた(図8参照). また, k_1 , k_2 の詳細な検討から,水蒸気の境膜物質移動が 律速であることが確認された.

解析手法の開発に関しては,実績のある気液分離型化学 交換塔に対し,段モデルによる解析を行っている.上記の ような均一充填型化学交換塔へ段モデルを適用するには,



図7 名古屋大学におけるトリチウム実験用化学交換塔装置.



図8 化学交換塔における水蒸気-水素同位体交換反応速度.

水蒸留塔で開発された通り抜け段モデルがより適する.化 学交換塔に対する本解析モデルを適用し,多様な条件で塔 性能の予測,液分散の評価等を進めているところである.

6.3.3 電解セル高分子材のトリチウム耐久性

水電解に通常用いられるアルカリ電解セルは,水のイン ベントリが大きく,結果としてトリチウムのインベントリ が大きくなってしまうこと,処理の難しいトリチウムアル カリの発生がありうることから,核融合炉には適用できな い.そこで,上記欠点を持たない,最近開発された固体高 分子電解セルが採用された[12].固体高分子電解セルに使 用される高分子材はナフィオン電解膜,Oリングゴム,電 気絶縁シートであり,電解セル廻りでは,イオン交換樹脂 が用いられる.最も重要なナフィオン電解膜は,典型的な 放射線分解型高分子であるポリテトラフルオロエチレン (PTFE)を骨格に持っておりその放射性耐性が懸念されて いる.トリチウム水濃度9.25×10¹² Bq/kgに2年間曝され た場合(ITERでの設計条件)の吸収線量は530 kGyにもな り,そのレベルでの放射線耐性を検証しなければならな い.

図9にナフィオン電解膜の強度の線量(y線)による変 化を示す[12].ナフィオン電解膜の骨格となる PTEE も,放射線に対する耐久性が低く,数百 kGy で完全に劣化 してしまう.一方ナフィオン膜は、空気雰囲気下での照射 では PTFE 同様の結果となったが,通常の使用状態である 浸漬下では 1600 kGy 超の耐久性があることを見いだした. 放射線照射による劣化は酸素の存在下で促進されるが,水 への浸漬状態では劣化が抑えられる.また、放射線と水と の作用により生成する活性な中間体(OH ラジカル等)の 劣化反応への寄与も低いことが示された. ナフィオン電解 膜のイオン交換能の照射による劣化については、強度の劣 化に比べると緩やかであることを観測した.1600 kGy の照 射において、2割のイオン交換能低下を見込んでおけばよ い. 最近の研究では、電解槽に供給されるトリチウム水の 水質が電解膜の劣化に影響することが明らかとなった.例 えば、 室温での 電子線照射の結果によれば、 電解溶液中に



図 9 高分子電解セルナフィオン膜(N117CS)の放射線照射に よる強度の劣化.

金属イオンが存在する場合, 膜強度が 1/2 以下となるデー タも得られており, 今後さらにデータベースを整備する予 定である.

○リングゴムではゴム分子内の水素/フッ素比が放射線 照射時のゴムの機械的強度に与える影響につき評価を進め ている. その結果, バイトンは放射線照射により架橋が生 じて堅くなる傾向は認められたものの強度の劣化はほとん ど認められず,有力な 0 リング候補材であることを示した [12]. 電気絶縁シートについては、耐放射線に実績のある ポリイミド樹脂を用いることで対処できる[12]. イオン交 換樹脂の劣化を調べるため、2種類の樹脂(アンバーライ ト, セパビーズ)を脱気封入して室温で電子線照射を行っ た[13].いずれのイオン交換樹脂も、イオン交換容量の放 射線照射による劣化は小さく, 1500 kGy までの照射におい て,陽イオン交換樹脂では2割,陰イオン交換樹脂では3 割のイオン交換能低下を見込んでおけばよいことを明らか とした. また母材であるスチレンジビニルベンゼン共重合 体はほとんど問題となる劣化はなく、特段の考慮をする必 要がないことを明らかとした.

6.3.4 セラミック電解セルによる超高濃度トリチウム水 処理

ITERでは、現在炉心にカーボンタイルが用いられてお り、そのタイルに滞留するトリチウムを、酸素を導入して 水として回収することも提案されている.この場合、高濃 度トリチウム水が発生し、その処理システムを公募で研究 開発しようとしているところである。トリチウムインベン トリの観点から、水蒸気状態で処理ができ、高いトリチウ ム除染係数を持ち、使用する材料に放射線劣化がなく、且 つ高い気密性を確保できる、という要件を同時に満たすシ ステムを開発する必要がある.唯一の適用可能な方法とし て、酸素イオン導電性セラミックスであるイットリア安定 化ジルコニア(YSZ)を用いた気相電気化学法の研究開発 を進めている.トリチウム水蒸気をパージガスとともに YSZ の配置された電解反応器へ送り(600~800℃)、水蒸 気の電気分解で発生した酸素は YSZ で抽出され、水素 は、透過膜等にて抽出することになる. セラミックスと金 属で構成され耐放射線性に優れること、過去 ITER で精製 系への適用研究があり、気密性にも実績がある.一方、セ ラミックス固体電解質における水の分解効率は、高分子固 体電解質などに比べ2桁も低く、分解反応の効率化が大き な課題であり、本研究ではそれを克服するための電極開発 を行うこととした.

気相電気化学法反応は、イオン導電体である固体電解質 (YSZ) と電子伝導体である電極材および気相との三相界 面で生じる.気相中の水蒸気が三相界面に達すると電極材 から電子を受け取り電気分解し、水素ガスは再び気相へと 移動し酸素イオンはYSZに取り込まれる.この電極材とし て,電子伝導と酸素イオン伝導を併せ持つ電極材を使用し た場合、電極材自体がイオン導電性を持つため、従来の三 相界面に加え,電極材表面でも三相界面が成立するため, 極めて効果的である. イオン導電性と電子伝導性を併せ持 つ材料としてセリウム酸化物(セリア)があり、このセリ アを利用した電極を作製し、水分解効率を測定した. 図10 に、従来の電極材料:白金(Pt)とYSZの混合物(Pt-YSZ), YSZ 表面にセリアをコーティングし、その上に従 来の Pt-YSZ 電極材を塗布した電極(セリア二重電極), Pt -YSZ とセリアを混合させた電極(セリア混合電極),の水 蒸気分解効率を示す. 1.5 V,水分濃度 1000 ppm において, Pt-YSZ 電極の電流密度は 14 mA・cm⁻², セリア混合電極 は約3倍の電流密度に達した. セリア二重電極では,約4 倍に達した. この電極の微細構造を走査型電子顕微鏡にて 観察した結果、セリアを使用した電極は、その施工法によ らず3~4 µmの微粒子が繋がった微細構造となっているこ とがわかった. その一方で Pt-YSZ 電極は, 3~4 µm の微粒 子から構成されているものの, それぞれが固まってしま い、より大きな粒子が粗く繋がったような構造となってい ることが判明し、セリアの使用により、電極の構造にも違 いが現れることが明らかとなった、今後さらに電極の最適 化を行い,効率向上をめざす.

6.3.5 大流量水処理システムの開発

(1) 気相吸着法による水処理システムの開発に向けた基礎 研究

核融合原型炉を見通した場合,CECEの前段に,大流量



図10 YSZ による水蒸気分解の電流密度変化(印加電圧 1.5 V, 温 度 800 ℃) に与える電極の影響.

処理が可能な水処理システムが必要なことは、先に記述したとおりである.この目的にあう有望な方法として気相吸着法に着目し、研究開発を進めている.水分吸着塔にトリチウムを含む水蒸気を通し、トリチウムが優先して吸着することを利用してトリチウムを濃縮するものである.従来の吸着剤は、水蒸気を簡単には脱着しないため、実用化には向かないとされていたが、ゼオライト系吸着剤のシリカ/アルミナ比(SiO₂/Al₂O₃)を主に制御することで、水蒸気脱着の迅速化に見通しが得られる段階まできた[14].

図11に、SiO₂/Al₂O₃比を2,5,7,10にそれぞれ調整し た CaX/CaY 型ゼオライトの水蒸気の室温(298 K)での 吸着等温線を示す[14].特に7から10にSiO₂/Al₂O₃比を変 化させると,吸着塔等温線の形が大きく変化し,Ca型ゼオ ライトの特徴である低水蒸気分圧における高い水蒸気吸着 容量が失われるという興味深い現象を観測した。細抗分布 測定の結果、ミクロポアが大きく減少していることが明ら かとなり、その影響と考えられる.また、ゼオライトを充 填した塔にトリチウム水蒸気を流通させて, その後パージ ガスによる水蒸気脱着試験を行ったところ(吸着操作: HTO 濃度 72000 Bq/cc の飽和水蒸気; 吸着カラム: 内径 10 mm, 有効カラム長270 mm, 充填量10g; 脱着操作: カ ラム後部からヘリウムパージガスを供給、真空ポンプにて 排気.),従来型ゼオライトと比較して、大きな同位体分離 係数および脱着速度を持つこと、従来のゼオライトでは見 られなかったパージガス流速に対する依存が見られる等, 特徴的な特性を示した[14]. このように, SiO₂/Al₂O₃比を 10まで高めたCaY ゼオライトは、学術的に興味深い挙動を 示すとともに、課題であった水蒸気脱着の迅速化にきわめ て効果的であり,気相吸着法による水処理システムの開発 に有望であるとの見通しを得た. 今後, 上記現象を支配す る因子を追求するとともに、システムとしての気相吸着法 の実験を行う.

(2) 2重温度2重圧力水一水素化学交塔による水処理プロセス

化学交換塔による水処理システムが大流量処理に適応し ないのは、電解セルを使用することに他ならない.そこで、 電解セルを用いない2重温度2重圧力水 - 水素化学交換塔 を CECE の前段システムとすることを考案し、解析的研究 を行った.その結果、電解セルの負荷を大きく減少できる ことが明らかとなったが、前段のシステム自体が大型化す ることも判明し、今後さらなる最適化研究を行い、システ ムの可能性を検討する.

6.4 トリチウム分析・計量

核融合炉では、その取り扱うトリチウム濃度が90%とな る燃料注入系から、水処理システムからの排出ガス中のト リチウム濃度と予測される10⁻¹²まで、化学プラントでは考 えられない極めて広範囲の濃度を扱う.また、トリチウム の化学形も、水素、水、有機と多様である.ひとくちに分 析・計量と言っても、燃料の安定供給および安全取扱の観 点からのトリチウムインベントリ分析・計量、環境への放 出量管理のための分析・計量、燃料循環系の制御のための



図11 フォジャサイト型ゼオライト(Caカチオン)の298Kにおける水蒸気吸脱着等温線に与えるシリカアルミナ比(2.0→10.0).

分析・計量等様々であり,濃度範囲,測定対象(気体,固 体等)ごとに適する分析手法が異なり,複数の分析手法を 組み合わせることとなる.計測が必要とされる場所,場面 で,何を計測する必要があるのか(実時間測定,同位体分 析等),既存の方法が適用できるのかどうかを整理した上 で,課題を抽出し研究開発を進めていく必要がある.

6.4.1 トリチウムインベントリ分析・計量

一般的なトリチウムインベントリの計量は,容量法(圧 力,容積,温度,組成を分析する)で行われる.一方核融 合炉では、トリチウムは金属水素化物として保管されてお り(貯蔵ベッド,ウラン,ZrCo合金等を用いる),事前に 貯蔵ベッドを昇温して大型の計量タンクに移送する必要が あり、また貯蔵ベッド内に残留するトリチウム量をいかに 評価するかという問題がある.この問題解決のため,崩壊 熱計測 (0.324 W/g-T) による, インライン (インベッド) 熱量計量法を開発した.図12に、原子力機構で開発したイ ンライン熱量計量機能を持つトリチウム貯蔵ベッドの概念 系統図を示す. トリチウム貯蔵ベッド一次容器内にヘリウ ムガス流通配管を配置し、循環する He ガスのベッド出入 り口の温度差を計測して、校正曲線から貯蔵トリチウム量 を評価する.本手法における計量感度は,貯蔵容量に対し 1%以下の精度で計量が可能であると評価できている [15]. 繰り返し吸放出等による輻射率の変化については、 まだ100回に満たない程度ではあるが特に問題は見られて いない.崩壊³Heの蓄積による水素化物の物性変化の影響 についても検証し, 計量上の問題がないことを明らかにし た.ただし、貯蔵初期はほとんどの³He がトリチウム化物 中に捕捉されているが (>97%), 母金属と³Heのモル比が



図12 インライン熱量計量機能を持つトリチウム貯蔵ベッドの概 念系統図.

上昇すると(例えば³He/ZrCo>0.2)急激に気相放出が始ま るため注意を要する[15].

6.4.2 環境への放出量管理のための分析・計量

核融合炉の環境とのインターフェイスであるスタックに 繋がる水処理システム、トリチウム除去系の排気に関して は、低濃度トリチウムをオンラインで測定しなければなら ない.排気ガス中のトリチウムの化学形は水蒸気であり、 ガス組成の大きな変化もないことから、イオン電離箱での 計測により、要求を満たすことができるであろう.一方、 環境に直結するスタックでは、水素、水蒸気、有機、多様 な化学形のトリチウムが予想され、法令上の許容濃度が異 なること、環境レベルでの極低濃度トリチウム測定が要求 されることから、気体分離膜を用いた化学形分別モニタの 研究が行われている[3].

液体に関しては、貯留タンク等に一時貯留し、サンプリ ング、液体シンチレーションによる測定、環境排出で対応 が可能であろう.一方固体廃棄物中のトリチウムの測定 は、サンプルを取り、焼きだし等でトリチウム量を測定す ることが可能であるが、サンプリングによる代表値の妥当 性、焼きだし操作によるトリチウム汚染等の問題があり、 非破壊による測定をめざした研究開発が行われている。ト リチウムの崩壊熱を測定するカロリーメータは、測定に長 時間を要する等の欠点があるが、最近機器の精度向上が図 られており、固体廃棄物中のトリチウムの分析という観点 で、適用範囲、精度を検討すべきであろう。最近、トリチ ウムのβ電子エネルギーを光エネルギーに変換して測定す る方法の一つであるイメージングプレート法の研究が進ん でいる。プレートに塗布された発光物質をカラーセンサに 励起させ、レーザー照射により発光を誘起させ検出するも のである[3].トリチウム汚染が個体のごく表面である場 合は適用が可能であり、その精度向上に向けた研究が、本 特定領域の公募研究として開始された。

6.4.3 燃料循環系の制御のための分析・計量

トリチウムインベントリ分析・計量,環境への放出量管 理のための分析・計量については,放射性物質の安全取り 扱い上の必要性から,これまで研究が積み重ねられ,実用 レベルに達しているものも多い.一方,燃料循環系の制御 のための分析・計量技術開発はこれからの課題である.つ まり,連続的なトリチウム燃料の流れを高精度,実時間で 測定し,システムの制御を行わなければならない.初めて 本格的な核融合炉燃料循環系を備える ITER において,検 証されなければならない.

|核融合炉燃料循環系で制御が必要なシステムは,1)精 製捕集システム、2)同位体分離システム、3)水処理 系,4)ブランケットトリチウム回収システムである(図 1参照). 1) については、ヘリウムガス中の水素、水蒸 気,有機(メタン等)の組成分析が必要であり, ITER では マイクロガスクロマトグラフ法が採用されている[3].サ ンプルガスが少量で良いこと、ほぼ実時間での測定(2分 程度)を実現しており、制御のための分析手段にも使用で きると考えられ, ITER での実証試験結果に期待した い. 2) については、水素同位体分析が必要であり、やは りマイクロガスクロマトグラフの適用が期待されるが、分 離カラムの開発等克服すべき課題が残されている. レー ザーラマン法の適用も可能であるが[3],多点分析,分析 感度向上、光ファイバによる信号の伝達等に今後の課題が 存在する.3)については、実時間での水中のトリチウム 濃度測定が必要である. サンプリングによる液体シンチ レーションでの測定では、制御にはまったく役に立たな い. ガラスシンチレーションの適用,本科研費特定領域公 募研究としての近赤外線による水同位体の測定手法の研究 開発を行っている. 4) については、ヘリウム中のトリチ ウム濃度が必要である. トリチウムはほぼ水素の形で存在 すると考えられるが,水蒸気も存在するため,水蒸気によ るメモリ効果の排除が必要である.この課題を克服するた めには、高温(200℃)で動作可能なイオン電離箱が必要で あり、その開発が望まれる.

6.5 まとめ

核融合炉では、炉心、燃料循環系、その附帯設備等施設 の全体で、大量のトリチウムを連続で取り扱わなければな らない.つまり、上記施設全体でのトリチウム安全閉じ込 めを確立する必要があり、ITER で初めて(実験炉である ため、ブランケット、発電のシステムを備えていないが)、 その実証試験が行われることになる.ITER のトリチウム システムの運転実績・成果を我が国での原型炉設計・許認 可に反映するためには、トリチウムの安全閉じ込めに関す る研究により、ITER のデータを解析するための基礎デー タベースを構築しなければならない.

これまで記述したように,取り扱い機器の1次閉じ込め 系,建屋とトリチウム除去系の2次閉じ込め系,トリチウ ムを含む不純物を環境に放出できるレベルまで回収する機 能的閉じ込め系で,トリチウムを閉じ込める.ITERに向 けてこの課題に関する研究開発が進められる中で,研究が 遅れているトリチウム水と有機トリチウムの挙動を目的 に,科研費特定領域による本計画班の活動を開始してから ほぼ2年が経過した.ここに,本計画班の研究課題,課題 克服に向けた最新の研究活動成果および今後の計画をレ ビューした.

トリチウム水および有機トリチウムが1次閉じ込め系に 与える影響の解明(金属壁,有機膜とトリチウム水の相互 作用)に関しては、トリチウム水の金属の透過挙動,高濃 度トリチウム水の金属腐食の課題に取り組み,世界で初め てデータ取得に成功することができた.科研費特定領域の 後半の活動で,トリチウム濃度,材料種別をパラメータに, データベース構築を果たす計画である.

トリチウム水および有機トリチウムの機能的閉じ込めの 研究に関しては,燃料循環系で,環境への放出経路を唯一 持ち,トリチウム安全閉じ込めの観点で重要な水処理系に 集中して研究を進めた.水処理系の基本構成機器である化 学交換塔および触媒の性能に影響する因子に関して,基礎 研究を着実に進展させることができ,高効率化の見通しを 得た.吸着法等新たな水処理システム開発に向けた基礎研 究も展開されており,後半の活動により,核融合炉の水処 理系のあるべき概念を示す計画である.

本計画班で対象とする幅広い条件(濃度,化学種)での トリチウムの分析・計量に関しては,公募研究を中心に活 動を進める.既にトリチウムを用いた実験が開始される段 階にあり,今後の成果に期待したい.当初計画に挙がって いた有機トリチウムの放射化学的研究に関しては,後半の 活動において,公募研究含めて展開していく計画である.

参 考 文 献

- [1] 特集・ITER 工学設計、プラズマ・核融合学会誌 78 Sup. (2002).
- [2] トリチウムの化学-基礎から応用まで-(日本原子力 学会, 1982).
- [3]西 正孝他: プラズマ・核融合学会誌 79,1078 (2003).
- [4] P. Schira et al., Fusion Eng. Des. 18, 19 (1991).
- [5] A.C. Bell *et al.*, Fusion Eng. Des. 47, 115 (1999).

Project Review 6. Studies on Chemical Phenomena of High Concentration Tritium Water and Organic Compounds of Tritium from Viewpoint of the Tritium Confinement T. Yamanishi et al.

- [6] D. Murdoch et al., Fusion Eng. Des. 83, 1355 (2008).
- [7] T. Yamanishi et al., Fusion Sci. Technol. 54, 315(2008).
- [8] K. Isobe et al., Fusion Sci. Technol. 54, 533(2008).
- [9] 山西敏彦他: プラズマ・核融合学会誌 83,545 (2007).
- [10] T. Sugiyama et al., Fusion Eng. Des. 83, 1447(2008).
- [11] T. Sugiyama et al., Fusion Eng. Des. 83, 1442(2008).
- [12] Y. Iwai et al., Fusion Eng. Des. 83, 1410 (2008).
- [13] Y. Iwai et al., J. Membrance. Sci. 322, 249 (2008).
- [14] Y. Iwai et al., Fusion Sci. Technol. 54, 462 (2008).
- [15] T. Hayashi et al., Fusion Eng. Des. 83, 1429 (2008).



プロジェクトレビュー 核融合炉実現を目指したトリチウム研究の新展開

7. トリチウムの透過漏洩と汚染・除染

波多野雄治¹⁾, 鳥養祐二¹⁾, 大矢恭久²⁾, 小田卓司³⁾, 田中知³⁾, 中村博文⁴⁾, 朝倉大和⁵⁾, 大内浩子⁶⁾, 大塚哲平⁷⁾, 小林和容⁴⁾

1)富山大学水素同位体科学研究センター,2)静岡大学理学部,3)東京大学大学院工学系研究科,

⁴⁾日本原子力研究開発機構,⁵⁾核融合科学研究所,⁶⁾東北大学大学院薬学研究科,⁷⁾九州大学大学院総合理工学研究院 (原稿受付:2009年8月27日)

Keywords:

tritium, permeation, contamination, decontamination, surface, oxide, film, coating, water, diffusion, multi-scale modeling

7.1 C02班計画研究の概要

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 ることを目的として研究を進めている. 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汚染材料からの放 出・移行,などが考えられる.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 でにも研究がなされてきたが、従来の研究の大部分は軽水 素や重水素を用いた真空中での実験によるものであり、ト リチウムの内部被曝危険性を大きく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、β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、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、下記の研究を進める.

- (a) 高温材料中のトリチウム透過抑制技術の開発
- (b) 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
 (c) 材料の汚染防止技術および除染技術の開発

トリチウムに接する材料には、一次バリアとなる真空容 器や配管を構成する金属材料、グローブボックスなどの二 次バリアを構成するアクリルやエラストマーなどの有機材 料、三次バリアである建屋を構成するコンクリートなどが 挙げられるが、計画研究では最も高濃度のトリチウムに接 する金属材料に重点を置いている.また、実験的に得られ るトリチウム移行過程に関する知見を材料科学・量子化学 などの観点から整理・体系化するとともに、新材料中およ び実機環境下でのトリチウム挙動を予測するためのマルチ スケールモデリングにも取り組んでいる. ここでは主に,これまでにトリチウム透過抑制技術に関 して得られた成果と,代表的な一次バリア材料である SUS 316 ステンレス鋼およびその他の金属材料についての汚染 評価技術,トリチウム放出挙動,汚染防止技術・除染技術 に関する研究の進展を,公募研究の成果も交えつつ紹介す る.

7.2 トリチウム透過抑制技術

核融合炉におけるトリチウムシステムそのものや、それ らをつなぐ配管からのトリチウムの透過・漏洩は、作業者 の内部被曝やトリチウム汚染の拡大につながるため、これ を検知する,抑制する,あるいは、これに備えた対策をと ることは究めて重要な問題である.材料中の水素同位体の 透過は、その溶解度と拡散係数に支配される現象であり、 拡散係数・溶解度が小さい材料を配管材料表面に成膜する ことで抑制することができる.この際、透過抑制膜には (1) 亀裂・空隙などの高速透過経路の密度が低いこと, (2) 複 雑形状への成膜が可能であること、(3)十分な耐久性を有す ること、などの特性が要求される.加えて、中性子照射環 境下で使用されるので、低放射化物質であることが望まし い. このような観点から、本研究ではシステム配管のよう な複雑構造への施工に有利な湿式法によるトリチウム透過 抑制膜形成技術の開発を進めている.これまでに、フェラ イト鋼上に熱膨張率が近く放射化の問題も比較的小さい [1] ZrO₂ 膜をゾルゲル法により形成したのち, 電気化学的 処理およびリン酸塩被膜との多層化により緻密化を図り, 比較的高い温度領域(500~600℃)で良好な透過抑制効果 を得た.また、緻密層の成膜技術が比較的発達している金 属材料にも注目し、鉄鋼材料に比べ水素同位体の溶解度が 低い Au についてメッキ膜の透過抑制効果を調べ、水冷却 ブランケット運転温度付近(300℃)で同様に良好な抑制 効果を見出した.以下にその成果の概要を記す.

7. Tritium Permeation, Contamination and Decontamination

HATANO Yuji, TORIKAI Yuji, OYA Yasuhisa, ODA Takuji, TANAKA Satoru, NAKAMURA Hirofumi, ASAKURA Yamato, OHUCHI Hiroko, OTSUKA Teppei and KOBAYASHI Kazuhiro corresponding author's e-mail: hatano@ctg.u-toyama.ac.jp

ゾルゲル法をはじめとする湿式法は,複雑形状物上に比 較的低コストで被膜を形成することができ、トリチウム透 過抑制膜の施工法として有望である.ただし,溶媒が蒸発 する際の体積収縮や、膜材料と基板材料の熱膨張率の差な どから膜中に亀裂や空隙が生じ、十分な透過抑制効果が得 られない場合もあり, 緻密化処理技術の確立が重要であ る. そこで本研究では、代表的フェライト鋼である SUS430 鋼を例に取り、まず通常のゾルゲル法(ディップ法)で厚 さ50 nmのZrO2層を形成させた後、電気化学的処理および リン酸 Mg 膜との多層化により緻密化することを試みた. 電気化学的処理とは Zr(NO₃)₄・5H₂O を無水エタノールに 加えた 0.1 M 溶液中での, 1 A/m²·10分間のカソード処理 であり、その後、大気中で乾燥処理(150℃)および焼成処 理 (550 ℃) を行った. カソード処理によりゾルゲル法で形 成した ZrO₂ 上に Zr (OH)₄ が形成され,その後の加熱処理 で脱水反応を生じZrO2となる.ZrO2が絶縁体であるので, 被膜が薄い部分や空隙で優先的にZr(OH)4が形成され,封 孔効果が得られることを期待した.これに加え, MgO 粉末 をリン酸溶液中に溶解させることで調製した2.5~10% Mg 溶液中に試料を浸漬し,そののち大気中で乾燥処理 (200 ℃)・焼成処理(500 ℃)を施すことで、リン酸 Mg 層を形成させた.図1は調製した試料をグロー放電発光分 光法で分析した結果であるが、リン酸MgとZrO2の二層が 形成され、被膜全体の厚さが約 200 nm となっていること がわかる.

図2は水素透過実験の結果であり、リン酸 Mg-ZrO₂ 被膜 を有する試料と、再現性を高めるために厚さ 270 nm の Pd 膜で被覆した SUS430鋼試料を比較している.上流側の圧 力を 0.1 MPa とし、下流側への透過速度 P を四重極質量分 析計 (QMS) で測定した. リン酸 Mg-ZrO₂ 被膜を形成する ことにより、300~600℃の間で水素透過速度が1/200~ 1/2000に減少している。特に、低放射化フェライト鋼の使 用上限温度である 550 ℃付近で減少率が大きく,目標値で ある1/1000以下に透過が抑制されている.図が煩雑となる ので割愛したが、Pd 被覆層のない SUS430鋼を用いて調べ た自然酸化膜の透過抑制効果は、本実験条件下では1/10 ~1/20 程度であり,またゾルゲル法で ZrO₂ を成膜しただ けの場合の透過抑制効果はせいぜい 1/100 程度であった. したがって、電気化学的処理およびリン酸 Mg 層の形成に より、水素透過に対する障壁能が著しく向上したと結論し た.ただし、500℃以下の領域では透過速度の温度依存性 が著しく小さくなっており、依然として低い温度領域では 空隙中の透過が無視できないことがわかる. 今後さらに緻 密化を促進できる条件を探索すると共に、トリチウム雰囲 気下などでの安定性を評価する必要がある.また,現在ラ マン分光法や低角入射X線回折法などによる結晶構造解析 と、微細組織観察を進めている.なお、リン酸 Al でも同様 な透過抑制効果が得られることもわかった.リン酸Alにつ いては 900 ℃程度までの高温における酸化抑制効果も確認 されており[2]、本研究で作製した被膜についても同様の 効果が期待される.なお、これらの成果については、2009 年7月17日付けで特許申請を行った.(特願2009-166165)



図1 グロー放電発光分析法によるトリチウム透過抑制膜の深さ 方向分析の結果.



図2 水素透過速度の温度依存性(上流側H2 圧力:0.1 MPa).

本法のように、成膜後の処理により酸化膜の緻密さを高 め、透過抑制効果を増大させる研究として Nakamichi ら [3]の報告がある.彼らは、SUS316 ステンレス鋼上に形成 した Cr₂O₃-SiO₂ 膜(厚さ約 50 µm)中の空隙を CrPO₄で封 孔処理することにより、600℃における重水素の透過を約 1/1000 に抑制することに成功している.また、熱衝撃試験 や接着強度試験でも良好な結果が得られたと報告してい る.下地合金が異なるので単純な比較はできないが、本研 究において約 1/250 の膜厚で同等の透過抑制率が得られて いることは特筆に値する.また、Nakamichi ら[3]は成膜材 料として CrO₃を使用しているが、本研究で用いた方法で は特定化学物質が不要というメリットもある.ただし、熱 衝撃特性等を含めた耐久性の評価は、先述のように今後の 課題である.

上述のように、リン酸 Mg-ZrO₂ 被膜では 300 ℃付近での 透過抑制能に限界があった.この温度領域は水冷却ブラン

ケットの運転想定温度域であり特に重要なため、セラミッ クスに比べ緻密膜が得られやすい金属材料にも注目し, Auの透過抑制効果を調べた. すなわち, 低放射化フェライ ト鋼 F82H 管材の外表面に厚さ10 μm の Au 膜をメッキし, 約 300 ℃から 600 ℃において重水素の透過速度を測定し た. その結果, 600 ℃付近での透過抑制効果は 1/30 程度で あったが、300℃近傍では1/1000を超える効果が得られ た.比較的温度が低いシステムでは Au をはじめとする金 属膜,高温システムではリン酸 Mg-ZrO2 被膜と使い分ける ことで,効果的にトリチウム透過を抑制できると期待され る.過渡状態における透過速度の時間変化を解析し拡散係 数を求めたところ、Au中の重水素の拡散係数はF82H中の 値と顕著な差はなく、透過速度の減少は主に Au 中の重水 素の溶解度が小さいことに起因していることがわかった. 今後,Auと比べコスト面で有利であり、また放射化の問題 も小さい金属を探索していく予定である.

7.3 汚染評価と除染

C02班では汚染材料から放出されるトリチウムによる内 部被曝や二次汚染の拡大を防ぐ観点から,材料汚染評価法 の検討,汚染材料からのトリチウム放出機構の解明,汚染 防止技術・除染技術の開発を進めている.材料が主に気体 および液体状態のトリチウムと接触すると,トリチウムが 表面に吸着し,またバルク中へ溶解することにより汚染が 生じる.金属など緻密な材料の場合には,例えばHTOなど のトリチウム含有分子の分解・解離が生じない状況下では 汚染は表面への吸着にとどまるが,熱分解や化学反応が生 じる環境下ではトリチウム原子がバルク中へ溶解・拡散 し,汚染が材料内部へ広がることとなる.多孔質材料や, もともと水分を含む材料の場合には,分解・解離を伴わず とも内部まで汚染が広がる.

トリチウム経済の観点からは、このように材料に吸着・ 吸収されたものは「退蔵」トリチウムとなるので好ましく ない.核融合炉を十分に長い期間運転し、材料中のトリチ ウム濃度が飽和に達すればこのような吸着・吸収によるト リチウムロスは生じなくなるが、初期起動時にはシステム 内のトリチウム循環に大きな影響を及ぼす恐れもある.こ のような観点から、種々の材料についてトリチウム吸着量 [4]や溶解度[5]が調べられている.溶解度は材料固有の物 性値であり比較的信頼性の高いデータがあるものの、吸着 量については表面状態によって大きく変化すると共に、吸 着状態も明確には理解されておらず、さらなるデータベー スの構築が求められている.

一方,汚染された材料がトリチウムの化学ポテンシャル が低い環境下におかれると,比較的容易にトリチウムを放 出する.先述のように放出されたトリチウムは作業者の内 部被曝や二次汚染を引き起こすため,材料の汚染状況を正 確に評価するとともに,トリチウム放出のメカニズム理解 を通してそれを制御する方法を探索し,有効な除染方法を 開発する必要がある.これらの点について成果の概要を以 下に記す.

7.3.1 トリチウム汚染の評価

トリチウムで汚染された材料を取り扱う上で,まず必要 となるのが汚染の程度(トリチウム濃度分布)に関する情 報である.切断やコア抜きにより汚染材料から試験片を取 り出せば,昇温脱離法や酸溶解法,熱量測定法等により含 有トリチウム量を評価することは可能である.しかし,試 験片取り出し時に汚染を広げる懸念があり,また核融合炉 のような大きなシステムの場合には試験片数も膨大なもの になってしまう.加えて,熱量計は濃度が低い場合には測 定が困難であり,酸溶解法では廃液の問題も生じる.二次 汚染の拡大や廃棄物量の増大を避ける観点からは,非破壊 測定法が望ましい.そこで C02班ではイメージングプレー ト(IP)法に注目し,その適用性に関する基礎研究を行っ ている.

IP は受動積算型放射線検出装置であり,長時間測定すれ ば比較的低線量率の放射線も定量可能である.加えて,現 場への持ち込みも容易であり,かつ配管などの内部も測定 できる.これまでに本法は核融合分野において炭素材タイ ルの汚染測定[6]などに利用されてきたが,本研究では構 造材等へも適応範囲を広げるための高度化を進めている. IP でトリチウムを検出するには,β線を直接測定する方法 と,β線によって誘起されるX線を測定する方法があ り,以下,それぞれの場合の測定結果と特徴を記す.

β線を測定する最大のメリットは感度が高いことであ る.既知濃度のトリチウムを含むプラスチック薄片 (American Radiolabeled Chemicals, ART 123A)を用いて 富士フィルム(㈱製 BAS-TR の感度を調べたところ,特に バックグラウンド (BG)低減のための遮蔽を施さなくて も、1日程度の露光で数十kBq/cm³程度のバルク汚染を検 出できることが確認された.トリチウムからのβ線の飛程 は短く,せいぜい1μm程度であり,この深さ領域の表面汚 染に換算すると数十 Bq/cm²程度を検出できることにな る.

一方,最大の問題点は,上述のようにβ線の脱出深さが 小さいため、表面近傍のトリチウム濃度しか測定できず、 表面近傍の濃度がバルク中の値と著しく異なる場合に汚染 の程度を見誤ることである. SUS316 ステンレス鋼につい ては,表面近傍にトリチウムの濃度がバルクに比べ著しく 高い領域が形成されることが知られていたが[7,8],純Fe, Cu, Mo, Ni, V, フェライト鋼など種々の材料についてト リチウム分布を調べたところ、主に水素同位体の溶解度が 低い材料において、同様にトリチウムが表面近傍に偏析す ることが確認された.図3に典型例として、1.2 kPaのDT 混合ガス(T/D=0.006)に 300 ℃で曝露したオーステナイ ト系ステンレス鋼 (SUS316鋼) およびフェライト鋼 (SCM 440 鋼)中のトリチウム分布を示す.バルク中のトリチウ ム濃度は前者で約50 MBq/cm³,後者で約50 kBq/cm³であ るが、表面に2~4桁トリチウム濃度が高い領域が形成さ れている.このような表面偏析が生じると、内部の情報が 完全に覆われてしまう.したがって,表面偏析層の存在を 念頭に置き,必要に応じて表面研磨等の偏析層除去処理を 行う必要がある.ただし、一旦除去しても長時間経過する



図 3 エッチング法で測定したSUS316ステンレス鋼およびSCM 440 鋼中のトリチウム濃度分布(トリチウムガスへの曝露 条件:全圧 1200 kPa, T/D=0.006, 温度 300 ℃).

と内部からの拡散により偏析層が再生する場合もあるので 注意が必要である. 偏析層の存在はバルク中のトリチウム 濃度を過大評価することになり, 好ましくはないが, 安全 側の評価ではある.一方で、トリチウム濃度を著しく過小 評価してしまう懸念もある. すなわち, 汚染材料の保管中 にトリチウム放出が進行し、その律速過程がバルク中の拡 散過程である場合,材料内部から表面に向かって急峻な濃 度勾配が形成される(図4,詳細は後述).このような状況 下では、表面近傍のトリチウム濃度はバルク中の値に比べ 著しく低くなり、汚染の過小評価につながる.以上のよう に, β線測定により材料汚染を評価する際にはトリチウム の表面偏析挙動や放出メカニズムについての基礎データが 必要不可欠である. 鳥養らによる系統的な研究によりオー ステナイト系ステンレス鋼についてはデータベースが構築 されつつあり、他の材料についてもデータの取得を進めて いる.

固体内のトリチウムから放出されたβ線は,特性X線お よび制動 X線を励起する. X線はβ線に比べ高い透過能を 有するので、この X 線を検出すれば比較的内部のトリチウ ム濃度まで測定が可能である(高Ζ材料であるWで数μm 程度,炭素などの低 Z 材料であれば数百 µm 程度).また, β線に比べバルク中のトリチウムの寄与が大きくなるた め、前述のような表面偏析の影響が小さくなり、トリチウ ム濃度を過大評価するリスクも低減する.加えて,β線へ の曝露は暗所で行わなければならないが、X線を検出する 際にはIPを遮光袋に収納することができ,通常の作業環境 で曝露が可能である、このような長所にもかかわらず、こ れまでIP法によるX線測定をトリチウム汚染評価に応用す る研究はなかった. β線のエネルギーが X線に変換される 効率が10⁻⁴~10⁻³程度[9]であるので、感度が低いと考え られたためかもしれない. 既知濃度のトリチウムを含む SCM440鋼やV試料の表面層を除去し、富士フィルム㈱製 BAS-MSを用いて測定したところ、BG低減のための遮蔽 を施し10日間露光した場合において、検出できるトリチウ ム濃度下限は数十 kBq/cm³ 程度であった.これは、固体中



図 4 トリチウムガスへ曝露した直後,および真空中で 150 ℃に 3 時間加熱したのちの SUS316 ステンレス鋼中のトリチウ ム濃度分布.

の原子比にして ppb 以下の値であり, IP 法による X 線検出 も有望な汚染検査手法の一つであると考えられる.そこ で,定量的評価法の確立に向けた検討が公募研究を中心に 進められている.

IP はフェーディングが大きいため, 再現性の良い安定し た定量測定を行なうには、照射終了後一定時間放置するな ど、急激なフェーディングを生じる成分の影響を避ける必 要がある. そこでまず, フェーディング特性を詳細に調べ, 輝尽性発光(PSL)強度の減衰は温度と時間に依存するこ とより、フェーディング現象を照射後の経過時間と温度の 2つの変数からなる関数として表した. トリチウムガスを 封入したガラスカプセルからの制動X線および照射装置か らの X 線をそれぞれ IP に照射したのち, 0, 30, 50 ℃に 約400時間放置し、PSLの減衰をそれぞれ調べ、フェーディ ング補正関数を作成した.いずれの温度,時間でも実験値 と関数による計算値とは良く一致しており、また、トリチ ウムからの制動X線と照射装置からのX線ではフェーディ ング特性に大きな違いは見られなかった. すなわち, X線 のスペクトルに依存しないフェーディング関数を確立する ことができた.

先述のように、IP を用いた外部からの測定でトリチウム 濃度を定量評価するためには、材料中の濃度勾配を非破壊 で評価する必要がある、半導体検出器を用いて β 線誘起 X 線のエネルギースペクトルを測定すれば、大まかな濃度分 布をシミュレーションで求めることができる[10,11].す なわち、IP でもエネルギースペクトルを測定できれば、深 さ方向分布の評価が可能である。そのためには、トリチウ ム制動 X 線領域 (~18.6 keV) における IP のエネルギー特 性を詳細に知る必要がある。そこで、高エネルギー加速器 研究機構のフォトンファクトリ施設 BL-14C1 ビームライン に於いて、10、16、18.6 keV の単色光を厚さ0.1、0.3、 0.5 mm の Al フィルタではさんだ IP に照射し、PSL 強度の エネルギー依存性を評価した。未だ測定点数が十分ではな いが、今後も実験を継続し、精度を高める予定である。表 面に敏感な β 線測定と組み合わせることで、表面および直 下の分布を取り除き,深部に分布したトリチウムについて 評価することを目標とする.加えて,既知量のトリチウム 線源を用い,絶対測定のためのキャリブレーションを取得 する.

また、より高濃度側へも測定範囲を広げる試みとして、 半導体レーザー(635 nm)とフォトンカウンティング検出 器を組み合わせた PSL測定装置により、輝尽性蛍光体中の deep trap に捕獲された電子を利用して大線量側にダイナ ミックレンジを拡大する計測法を開発した.本法は、従来 の読み取りでは使うことのなかった波長の発光を用いるも のである.富士フイルム㈱社製 FLA-3000による読み取り と合わせることにより、少なくとも従来より2桁大線量側 に測定上限値を延ばせることを示した.本法については、 平成21年1月19日付けで特許出願を行った.(特願2009-009397)

7.3.2 汚染材料からのトリチウム放出

トリチウムに汚染された材料からは、室温・大気中でも 継続的にトリチウムが放出される.したがって、作業者の 内部被曝や汚染の拡大を防ぐためには、トリチウム放出速 度を支配する因子を解明し、これを制御する方法を確立す る必要がある.特に、オーステナイト系ステンレス鋼では、 主要な放出化学形が元素状に比ベリスクが高い水蒸気状で あるとの報告がなされている[12,13].そこで本研究では、 トリチウムプラント構造材料としての重要性を考慮して、 SUS316 鋼からのトリチウム放出メカニズムを詳細に調べ た.

先述の条件で図3のようにSUS316ステンレス鋼板材に トリチウムを吸収させた後,Ar気流中(水蒸気分圧9× 10⁻³Pa)で室温から300℃におけるトリチウム放出速度を 化学形別(元素状あるいは水蒸気状)に測定すると共に, 放出実験後のトリチウムの濃度分布をエッチング法により 測定した.また,化学形の弁別は行っていないが,真空中 (2×10⁻⁶Pa)での放出試験も行った.その結果,室温にお いても長期間トリチウム放出が継続すること,大部分のト リチウムがHTOとして放出されることが確認されるとと もに,以下のことが明らかとなった.

- (1) Ar 気流中と真空中とでは放出速度に大差はない.いずれの場合にも、放出の進展に伴いバルク中には図4に示すように内部から表面に向かって濃度が減少する方向に明確な濃度勾配が形成される.すなわち、トリチウム放出はバルク中の拡散過程により律速されている.
- (2) トリチウムの放出速度およびバルク中の濃度分布の経時変化から求めた室温~300℃におけるトリチウムの拡散係数は、文献[14]に報告されている高温領域での拡散係数を外挿して得られる値、および Hirabayashiと Saeki[7]がトリチウム吸収実験により求めた室温近傍での値と良く一致する.

室温におけるオーステナイト系ステンレス鋼からのトリ チウム放出については、従来はn日放置した後の残留トリ チウム量 $A_n & e A_n / A_0 = (1-P)^n (A_0 は初期量, P は放出率)$ と近似する[13]ような単純なモデルしか得られていなかっ た. Ar 気流中や真空中と大きく異なる条件において拡散 律速モデルで記述できることが明らかになったことの意義 は大きく,実際の保管環境下での放出速度や濃度分布変化 をより精密に予測できるようになった.また,後述するよ うに,この種のデータは除染条件の最適化にも必要不可欠 である.

先述したトリチウムの表面偏析は,表面に特有な安定サ イトによるトラップ効果として理解される.切断やエッチ ングで生じた新生面では濃縮が見られず,徐々に表面近傍 のトリチウム濃度が増大することから[15,16],酸化膜中 にOTなどの化学形でトラップされていると考えられてお り,存在状態に関する詳細な情報を得るべくX線光電子分 光法や赤外分光法による分析が進められている.また,こ の表面層におけるトラップエネルギーを定量的に評価しよ うとする試みも公募研究でなされている.

放出トリチウムの支配的化学形が水蒸気状であるという 結果は、表面でトリチウムが酸素と反応(燃焼)している か、あるいは酸化膜表面にOTとて存在しているトリチウ ムが気相中の水蒸気との同位体交換により脱離しているこ とを示唆している.種々の材料について、湿潤ガス中では 乾燥ガス中に比べ除染効率が上昇することが知られてお り、同位体交換が有力であると考えられている.同位体交 換反応のみでトリチウムの脱離が進行するのであれば、代 わりに気相から軽水素が材料へ移行するので、材料が保持 する全水素同位体量は変化しないはずであるが、未だ実験 的に確認はされておらず、明確な結論には至っていない.

大部分のトリチウムが水蒸気状で脱離することはオース テナイト系ステンレス鋼に関する報告では共通している が、フェライト鋼では挙動が大きく異なるように見える. フェライト鋼はオーステナイト鋼に比べ水素脆化が問題と なりやすく,水素の挙動について機械的特性に及ぼす影響 の観点から多くの研究がある[17]. 例えば、電解チャージ 法などで水素を溶解させ機械的性質の変化を調べる研究 や、環境中で脆化した試料中の水素濃度を測定する研究な どがあるが、水素の拡散係数が大きいため、試験・測定前 に水素が脱離してしまわないよう様々な工夫がなされてい る[18]. 軽水素が脱離しているのであるから、上述のよう な同位体交換を支配的機構とする考えでは説明できない. また, 質量分析法やガスクロマトグラフ法で昇温脱離特性 が調べられているが[17],水蒸気状での脱離については, ほとんど言及されていない.一方で、図3のように表面に トリチウムが濃縮することはフェライト鋼とオーステナイ ト鋼で共通しており、かつオーステナイト鋼でも表面酸化 膜中のNi 濃度は低いので[19],上述の違いが単純にNi の有無によるとは考え難い.

オーステナイト系ステンレス鋼からのトリチウムの脱離 とフェライト鋼からの水素の脱離が一見大きく異なるよう に見える原因の一つとして,脱離フラックスの違いが挙げ られる.推論ではあるが,以下のように考えるとフェライ ト鋼とオーステナイト鋼の違いを自然に説明できる.電解 チャージ法でフェライト鋼中に水素を導入し脱離挙動を調 べる研究では,多くの場合に,数+ appm 程度の水素が数 時間~数日の間に放出される.一方,上述の気体吸収法で トリチウムをオーステナイト鋼中へ溶解させた実験では [7,8,12,13,15],曝露温度と圧力からバルク中のトリチウ ム濃度は appm~appb 程度と推察されるが,拡散係数が フェライト鋼と比べ室温近傍では4~6桁程度小さいた め, 放出は数百日~年という時間スケールで継続する [15]. すなわち,オーステナイト系ステンレス鋼からのト リチウムの脱離フラックスは、フェライト鋼からの水素の 脱離フラックスに比べ,桁違いに小さいことになる.脱離 フラックスが大きければ、トリチウムおよび水素同位体の 表面濃度も高く, それらが再結合して元素状で脱離する確 率も高くなる.一方,脱離フラックスが小さい場合には, 水素同位体の表面濃度が低く再結合する確率が減少するた め、結果として気相から表面に吸着した水蒸気に同位体交 換反応で移行する割合が増大する. この仮説の妥当性を評 価するには、水素同位体の脱離フラックスと、気相中の水 蒸気分圧を独立に制御しつつ、脱離化学形を調べる必要が ある.このような条件を実現するには透過実験が適してお り(例えば上流側にD₂ガス,下流側にH₂O水蒸気を導入し 透過する重水素の化学形を質量分析法で調べるなど),現 在,準備を進めている.

プラズマ対向材料の場合には,酸化膜のみならず共堆積 層の影響も考慮する必要がある.ITERではプラズマ対向 材料としてBe,W,Cの使用が計画されているが,WやBe の表面にCが付着するとC-T結合が形成され,トリチウム 放出挙動が大きく変化する可能性がある.実際に,WにD を単独で照射した場合と,CとDを同時に照射した場合で 比較したところ,Dの昇温脱離特性に大きな違いが生じ た.図5はC,D同時照射後の昇温脱離スペクトルである が,最も高温側で現れるピーク3がC-D結合に由来す る.比較的強い結合ではあるが,プラズマ対向材料表面に は高濃度にトリチウムが蓄積される可能性が高く,C-T結 合からのトリチウム脱離挙動の解明と除染技術の開発が求 められる.

以上のような汚染材料からのトリチウム放出に関する情報は、DDおよびDT実験を行った核融合実験装置第一壁か



図5 D⁺イオンとC⁺イオンを同時照射したタングステンからの 重水素の昇温脱離スペクトル.

らのトリチウム放出を予測する基礎データとなる.特にメ ンテナンス等のために真空容器内に人が立ち入る場合に は,作業者の安全を確保する上で重要な情報である.本研 究では,実験室レベルで取得されるデータの実機への適用 性を,核融合科学研究所大型ヘリカル実験装置(LHD)で 計画している DD 実験時のデータを用いて検討することを 念頭に,現在,DD 実験時に生成する微量トリチウムの測 定装置・回収装置の設計・試作を進めている.

7.3.3 材料の汚染防止と除染技術

汚染材料からは室温においてもトリチウムが放出される ため、作業者の内部被曝や二次汚染を防止するためには、 適切に除染を行う必要がある.核融合炉システムにおいて トリチウムの除染が必要な状況は、(1)機器の修理・保守の ためにシステムを開放する際に一時的に汚染物からのトリ チウム放出を低減する必要がある場合、(2)汚染材料の長期 保管や廃棄物処分に伴い長期間トリチウム放出を抑制しな ければならない場合、に大別される.前者では表面の除染 が重要になり、後者では必要に応じてバルクまでの除染を 検討しなければならない.いずれの場合にも、二次汚染を 防止するとともに、必要以上に新たな廃棄物を生じないよ う留意が必要である.

7.3.3.1 表面の汚染と除染

表面のトリチウム汚染を取り除く最も効果的な方法は酸 洗などで表面層を除去することであるが,新たな廃棄物の 発生という問題点があり,かつ当然のことながらトリチウ ムシステムを開放し配管や機器を取り外した後はじめて可 能となる処理であり,最もトリチウム放出が大きいシステ ム開放時には用いることはできない.システム開放前に実 行できる除染処理は,例えばガスパージ下でのベーキング など,比較的温和なものに限定される.したがって,配管



図 6 300℃ でトリチウムガスに曝露した SUS316 ステンレス鋼 における O1s 光電子スペクトル:鏡面研磨試料(a)および 酸化 Cr 膜形成処理試料(b).

内壁等をトリチウムで汚染されにくい,あるいは汚染され ても除去が容易な表面状態に仕上げておくことが望まし い.これまでにも,Auコーティングの有効性などが確認さ れてはいるが[20],トリチウムシステム内面をすべて Au でコーティングすることは現実的ではない.一方で,超高 純度ガスが求められる半導体製造の分野などでは,配管材 料の内面処理に関し様々な研究が進められている[21].そ こで本研究では,これらの成果を参考に,一般的にガス吸 着が少なく,かつ脱ガス特性に優れると認識されている表 面についてトリチウム吸着・放出特性を調べている.

図6は例として、超高純度ガスシステムに用いられる酸 化 Cr 膜形成処理の効果を X 線光電子分光法で調べた結果 である. すなわち, ダイヤモンドパウダーおよびコロイダ ルシリカを用いた研磨により鏡面に仕上げた SUS316 ステ ンレス鋼試料と,厚さ約50 nmの酸化Cr膜を形成させた試 料を先述の条件 (300 ℃, 1200 kPa, T/D=0.006) でトリチ ウムガスに5時間曝露したのち測定したO1s光電子スペ クトルである. なお、測定前に 100 ℃でのベーキングを約 30時間行った. どちらの試料も表面は Mn を含む酸化 Cr 膜に覆われており,酸素の表面濃度にも大差はなかった が,酸素の存在状態には図6に示すように大きな違いが見 られた. すなわち. O1s 光電子ピークは3つの成分からな り、酸化物を形成する酸素以外にも、水酸基を形成してい るもの,吸着水分子として存在するものがあるが[22],酸 化 Cr 膜形成処理した試料では明らかに水酸基成分および 吸着水分子成分の割合が低い.酸化 Cr 膜形成処理により, いわゆる「水枯れ」性が向上するとされているが[21], ト リチウムガス曝露後もそのような特性が保たれていると考 えられる.また,実験室雰囲気中で保管した場合の表面ト リチウム濃度の経時変化や、拭き取り法による除染特性を 調べたところ、研磨試料では拭き取り法で除去される比較 的弱い結合のトリチウムが長期間残存したのに対し,酸化 Cr 膜形成処理試料では、このような弱い結合のトリチウム は速やかに脱離した. トリチウムシステムへの適応性は今 後慎重に検討する必要があるが、表面改質でトリチウム放 出特性が大きく変化することを示す興味深い結果である.

一方, トリチウムに汚染されにくい, あるいは除染が容 易な表面を設計するための学術的基盤は十分ではない、表 面改質技術の効率的開発のためには,酸化膜表面における トリチウムの脱離速度(同位体交換速度を含む)と存在状 態の関係を明確にする必要がある.この目的を達成するた め,本研究では赤外分光法による酸化物上の水素同位体の 振動状態(吸着状態)と脱離・同位体交換速度の同時測定 を進めている. 図7は Fe₂O₃ 上に室温でトリチウムの代わ りにD₂Oを吸着させたのち、同じく室温でH₂Oに曝露し同 位体交換を測定した例である.図7(a)はD₂O吸着直後の 赤外吸収スペクトルであるが、5つのピークが見られ水酸 基が Fe₂O₃ 表面で多様な存在状態を取ることがわかる. H₂Oに曝露すると 2650, 2680, 2708 cm⁻¹ のピーク強度は 速やかに減少したが(2650 cm⁻¹のピークを例として図7 (b)に示す), 2550 cm⁻¹のピークの減衰速度は小さく, ま た 2744 cm⁻¹のピークはほとんど変化しなかった(図7





(c)). すなわち,水素同位体の交換速度は,その存在状態 に強く依存することがわかった.このような基礎研究の積 み重ねにより,耐汚染性・除染特性に優れる表面の設計が 可能となると期待される.

7.3.3.2 バルクの汚染と除染

バルクまでトリチウムで汚染されたことが明白である材 料を除染するには,低トリチウム分圧下での加熱が最も有 効な処理である.汚染が表面近傍に限定されている場合に は、加熱処理するとトリチウムが内部へ拡散し除染がか えって困難となるので、加熱前に濃度分布を確認しなけれ ばならない. 廃棄物の最終的な処分や材料の再利用が目的 の場合には、溶融させることもありえるだろう.しかし、 低トリチウム分圧下での加熱処理には大型の設備とエネル ギーが必要であり、トリチウムに接するすべての材料を処 理することは現実的ではないし,加熱処理が不可避な場合 でも,その条件を最適化する必要がある.一方,バルク除 染の難易は、材料中のトリチウム溶解度と拡散係数に強く 依存する.先述のように、水素同位体の溶解度が低く、か つ拡散係数が大きいフェライト鋼では室温においても水素 同位体が元素状で放出されるため、ベーキング程度の措置 でも大部分のトリチウムが除染可能である. 無論, いくら かのトリチウムは残留するが、材料中の析出物等にトラッ プされている,いわゆる非拡散性トリチウムであり,内部 被曝につながるリスクは小さい.溶解度が小さく,かつ拡 散係数も小さい材料の場合には、高温・高トリチウム分圧 下での使用を避ければ高濃度のバルク汚染は回避できる. したがって、特にバルク汚染が問題となるのは、比較的溶 解度が高いオーステナイト系ステンレス鋼や, バナジウム 合金など発熱的に水素同位体を溶解する材料だと考えられ る. そこで本研究では、SUS316ステンレス鋼の除染条件を 探索すると共に、発熱的に水素同位体を溶解する金属に有 効な触媒酸化法を検討した.

SUS316 ステンレス鋼については、7.3.2節で述べたよう に、Ar ガスパージ下および真空中で室温~300℃における トリチウム放出速度および加熱後の試料中のトリチウム濃 度分布の変化を調べた.その結果、トリチウム放出速度と 内部分布はいずれも拡散律速モデルで良く再現できること がわかった.すなわち、トリチウムの放出は広い水蒸気分 圧・温度範囲において拡散律速のもとで起こるため、材料 中の初期トリチウム濃度分布さえわかれば、拡散方程式を 解くことにより除染の進行過程を予測できる.従来の除染 研究では、トリチウムの放出を一次反応で近似する場合も あったが[23]、これに比べると本研究の成果は各段に予測 精度を高めるものである.これにより、必要最低限のエネ ルギー投入と時間で除染が可能となる.

触媒酸化法とは、Pdなどの酸化触媒を汚染材料表面に塗 布し、気相中の酸素と反応させることで除染する方法であ る.ブランケット構造材として開発が進められている V 合金や、トリチウム回収装置用透過膜材料として有望視さ れている Nb、トリチウム貯蔵のためのゲッター材料 (ZrCoや ZrNi) など、一部の金属材料中へは水素同位体が 発熱的に溶解する.これら金属中では、特に不純物レベル の濃度の場合には水素同位体の化学ポテンシャルが著しく 低く、加熱法による除染は容易ではない.ただし、これら 金属中への水素の溶解熱が-20~-50 kJ/mol H 程度[24] なのに対し、水の標準生成エンタルピーは-285.83 kJ/mol (-142.92 kJ/mol H) であり、酸素と反応させることでト リチウムを引き抜くことができる.図8(a)は気体吸収法 でV中に重水素濃度が200 appm、トリチウム濃度が1 ppm となるよう水素同位体を溶解させ、実験室内に保持した場



 図8 約1 appmのトリチウムを溶解させたバナジウム試料を実験室中で保持した場合のトリチウム濃度の経時変化((a) Pd層なし、(b)Pd層あり).

合のトリチウムの濃度変化を測定した結果である. 470日 間追跡したが、トリチウムはほとんど放出されず、濃度変 化は壊変による減少をわずかに上回る程度であった.一 方,図8(b)は厚さ100 nmのPd層を成膜した場合である が、トリチウム濃度が速やかに減少し、効率的に除染でき ていることがわかる.軽水素を 0.5~1 at%吸収させた試料 で同様の実験を行ったところ,Pd層がない場合には約300 日保持しても水素濃度にほとんど変化はなかったが、Pd 層を成膜した試料では水素濃度が装置の測定限界である 50 appm 以下に減少していた. V 中の水素の溶解熱と溶解 のエントロピー[24]から室温での平衡圧を見積もると、50 appm において 8×10⁻⁷ Pa となる. これは大気中の水素の 分圧(約0.05 Pa[25])より著しく低く,再結合反応で水素 が脱離するはずはないので、Pdの触媒効果による燃焼反応 が支配的脱離機構と考えるのが自然である.水蒸気状トリ チウムを生成するのは好ましいことではないが、よく乾燥 させた酸素を用いてトリチウムの同位体濃度比を高く保つ ことで, 効率的な後処理が可能となる. 通常, 水素同位体 を発熱的に溶解する金属を除染するには高真空〜超高真空 装置中で数百℃程度以上に加熱する必要があるが,触媒酸 化法はそのような設備やエネルギー投入が不要となる画期 的な方法である.

核融合炉の建屋を構成するコンクリートの除染も重要な 課題の一つであり、公募研究を中心に検討が進められてい る. 面積が大きいので、汚染コンクリートからのトリチウ ム放出は作業環境中のトリチウム濃度を決める主要因の一 つとなる.また,将来の核融合炉の廃止措置に伴い発生す るコンクリート廃棄物は大量であるため、除染効率は廃棄 物処理コストにも大きな影響を及ぼすと予測される. コン クリートは砂、岩、岩石などの骨材をセメントペーストな どの結合材で固めたものであるが、多くの元素で構成され るうえ,大小様々な空隙を有し,かつ多様な形態の水(自 由水や結合水など)や水酸基を含むため[26],トリチウム 挙動の面からは極めて複雑な材料である. それでも, マク ロなトリチウム移行挙動については理解が進んでおり [26], クリアランスレベルのトリチウム濃度測定法も開発 されている[27]. しかし, 効率的な除染技術は未だ確立さ れていない. 上述のようにコンクリート中には多様な形態 の水や水酸基が存在し、トリチウムが取りうる化学形態も 多様であるので、脱離挙動と化学形態の相関を明らかにす ることが除染戦略立案のために不可欠と考えらえる.現 在、コンクリートおよびその成分であるモルタル、セメン トペーストについてトリチウム吸収・放出挙動や内部分布 を調べると共に、トリチウムの存在状態を赤外吸収法で調 べる試みがなされており、コンクリート表面での同位体交 換速度などに関するデータが蓄積されつつある.

これまでに述べたトリチウムによる汚染やトリチウム放 出,ならびに7.2節で述べた透過は,すべて材料表面でのト リチウム含有分子の解離,酸化膜等を経由してのトリチウ ムの溶解,バルク中の拡散,酸化膜上での再結合・燃焼・ 同位体交換反応を経ての脱離等を含む現象であり,取り扱 うべき過程は共通している.CO2班では東京大学を中心に, このような一連のトリチウム移行過程を量子力学計算や分 子動力学法およびモンテカルロ法による計算でつなぐマル チスケールモデリングにも取り組んでいる.これまでに金 属中および酸化物中の水素同位体の安定性(溶解熱など), 振動状態,拡散係数などを同位体効果も含めて予測する見 通しを得ている.今後,界面の効果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,実 際の環境下でのトリチウム挙動を予測する精度をさらに高 めていく予定である.

除染が困難な材料からトリチウムを引き抜く技術を開発 することも重要であるが,最初から汚染されにくい材料, あるいは汚染されても除染が容易な材料を用いるという視 点も当然のことながら大切である.既存材料中のトリチウ ムの存在状態と移行挙動の関連について理解が進み,また 計算機科学的アプローチが進化することで,トリチウムの 視点からの材料開発・提案の幅が大きく広がると期待され る.

7.4 まとめ

7.1節で挙げた(a)~(c)の三つの課題のうち,高温材料 中のトリチウム透過抑制技術に関しては,複雑形状物への 成膜を想定し湿式法で形成したリン酸 Mg-ZrO₂ 被膜と Au メッキ膜の効果を調べ,水冷却ブランケット運転温度領域 (300 ℃程度)では Au 膜が,高温領域ではリン酸 Mg-ZrO₂ 被膜が高い透過防止能を有することを見出した.今後,耐 久性を評価するとともに,さらに高性能な透過防止膜材料 を探索する.

汚染材料からのトリチウム放出については,まず材料汚 染の評価法としてイメージングプレート法による非破壊測 定に注目し,測定限界を調べるとともに,定量測定に必要 な特性評価を進めた.また,代表的一次バリア材料である SUS316ステンレス鋼からのトリチウム放出を詳細に調べ, 広範な温度・水蒸気分圧範囲において放出が拡散律速モデ ルで記述できることを見出し,廃棄物保管中のトリチウム 放出量を予測する見通しを得た.加えて,プラズマ対向材 料候補であるタングステンからの水素同位体の脱離に及ぼ す炭素同時照射の影響を調べた.

汚染防止技術および除染技術の開発に関しては,表面改 質により SUS316 ステンレス鋼の耐表面汚染・除染特性を 改善し得る可能性を示すとともに,表面設計に必要な基礎 データとして赤外吸収法による水素同位体の振動状態(吸 着状態)と脱離・同位体交換速度の同時測定に着手した. また,先述の拡散律速モデルに基づき SUS316 ステンレス 鋼のバルク除染条件を最適化できることを示すとともに, 水素同位体溶解度が高い材料からトリチウムを効率的に除 去する方法として触媒酸化法を提案した.

トリチウムの溶解・放出・透過はすべてトリチウムの表 面反応,酸化膜等を経由しての移行,バルク中の拡散を伴 う現象であり,これら一連の過程を取り扱うマルチスケー ルモデリングに取り組み,金属中および酸化物中の水素同 位体の安定性,振動状態,拡散係数などを同位体効果も含 めて予測する見通しを得た.今後,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,トリチウム挙 動を予測する精度をさらに高めていく予定である.

参 考 文 献

- [1] E.T. Cheng, Fusion Eng. Des. 48, 455 (2000).
- [2] C.R. Maier and L.E. Jones, Carbon, 43, 2272 (2005).
- [3] M.Nakamichi, H. Kawamura and T. Teranani, J. Nucl. Sci. Technol. 38, 1007 (2001).
- [4] M. Nishikawa, N. Nakashio, T. Shiraishi, S. Odoi, T. Takeishi and K. Kamimae, J. Nucl. Mater. 277, 99 (2000).
- [5] F. Reiter, K.S. Forcey and G. Gervasini, A Compilation of Tritium-Material Interaction Parameters in Fusion Reactor Materials, EUR 15217 EN (1993).
- [6] T. Tanabe, V. Philips, Fusion Eng. Des. 54, 147 (2001).
- [7] T. Hirabayashi and M. Saeki, J. Nucl. Mater. 120, 309 (1984).
- [8] Y. Torikai, R.-D. Penzhorn, M. Matsuyama and K. Watanabe, J. Nucl. Mater. **329-333**, 1624 (2004).
- [9] P.C. Souers, Hydrogen Properties for Fusion Energy (Univer-

Project Review

sity of California Press, 1986).

- [10] M. Matsuyama, S. Ueda and K. Watanabe, Fusion Eng. Des. 49-50, 885 (2001).
- [11] Z. An, Q. Hou and J. Long, Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B 266, 3643 (2008).
- [12] T.Hirabayashi, M.Saeki and E. Tachikawa, J. Nucl. Mater. 126, 38 (1984).
- [13] R.A. Surette and R.G.C. McElroy, Fusion Technol. 14, 1141 (1988).
- [14] M. Sugisaki, H. Furuya, H. Ueki and S. Ejima, J. Nucl. Mater. 133-134, 280 (1985).
- [15] Y. Torikai, D. Murata, R.-D. Penzhorn, K. Akaishi, K. Watanabe and M. Matsuyama, J. Nucl. Mater. 363-365, 462 (2007).
- [16] A.N. Perevezentsev, A.C. Bell, L.A. Rivkis, V.M. Filin, V. V. Gushin, M.I. Belyakov, V.I. Bulkin, I.M. Kravchenko, I. A. Ionessian, Y. Torikai, M. Matsuyama, K. Watanabe and A.I. Markin, J. Nucl. Mater. **372**, 263 (2008).
- [17] 南雲道彦:水素脆化の基礎 水素の振るまいと脆化機 構(内田老鶴圃, 2008).
- [18] 井筒 香, 高井健一, 南雲道彦: 鉄と鋼 83, 25 (1997).

- [19] Y. Hatano, T. Maetani and M. Sugisaki, Fusion Technol. 28, 1182 (1995).
- [20] M. Matsuyama, K. Ichimura, K. Ashida, K. Watanabe and H. Sato, Fusion Technol. 8, 2461 (1985).
- [21] ガスサイエンスが拓くプロタクト・イノベーション, 大見忠弘 編集 (サイペック, 1996).
- [22] M.A. Henderson and S.A. Chambers, Surf. Sci. 449, 135 (2000).
- [23] A. Perevezentev, K. Watanabe, M. Matsuyama and Y. Torikai, Fusion Sci. Technol. 41, 706 (2002).
- [24] 深井 有,田中一英,内田裕久:水素と金属 次世代への材料学(内田老鶴圃,1998).
- [25] 日本化学会 編:化学便覧 基礎編 I,改訂 5 版 (丸善, 2004).
- [26] 稲垣八穂広:プラズマ・核融合学会誌 76,1044 (2000).
- [27] H. Tanaka, K. Furuichi, M. Nishikawa, S. Fukada, K. Katayama, T. Takeishi, K. Kobayashi, T. Hayashi and H. Namba, Fusion Sci. Technol. 54, 223 (2008) およびその参 考文献.
- [28] 藤原亜佐子, 亀尾 裕, 片山 淳, 中島幹雄:日本原子 力学会和文誌 6,58 (2007).





田辺哲朝

所属:九州大学大学院総合理工学研究院.研究分 野:エネルギー材料ならなんでも.プロフィール: 文句たれ,へそ曲がりのせいか,なるべく人のやら ないこと,自分で面白そうと思うことを,やってい る.その実,いつも周りに助けてくれる人達がいて,

その人達のおかげでわがままをやっているだけのようである.時代小 説を,というより単純明快なチャンバラ(時代劇チャンネルも)大好 き人間のためか,「この紋所が目に入らぬか」と私が言うと,皆が 「はーはー」といってなんでも言うことを聞いてくれたり,「変身」と いってある日突然違った仕事を華麗にかつかっこよくやってのける自 分を夢見ているが,世の中そんなに甘くはない.尺八を(ほらではな く)吹く迷手であることを知る人は少ない.



上田良夫

大阪大学大学院工学研究科教授,博士(理学).大学 院学生時代から今まで核融合エネルギー研究一筋. 最初は炉心プラズマに関わる研究をしていたが,今 は容器壁とプラズマの相互作用の研究を主に行って いる.タングステンを主に扱っているが,材料の知

識が乏しく今も勉強中.多くの先生方のご協力を得て国内外で共同研 究を進めており、その中で新たなアイディアに遭遇することが最大の 楽しみ.最近の趣味はいっこうにうまくならないゴルフと楽天イーグ ルスの応援.

日野友明

北海道大学プラズマ物理工学研究室で、プラズマ壁相互作用、ブラン ケット工学、半導体やバイオに向けたプラズマ応用をしています.近 年はこの分野で、中国や韓国との交流もしています.大学では、核融 合とかプラズマをアピールして、多くの学生が興味もってくれるよう に努力しております.



大野哲靖

名古屋大学大学院工学研究科教授. 佐賀県出身. 専 門は核融合周辺プラズマ物理. 九州大学大学院総理 工学研究科博士後期課程中退. 長崎大学助手,名古 屋大学助手,准教授を経て2008年4月より現職. 趣 味は、将棋,野球(今年は機嫌良し). 最近は人集め

に高専, 高校(将来への布石)にちょくちょく出かけている.



高木郁二

京都大学大学院工学研究科附属量子理工学教育研究 センター,教授.行動範囲が狭く,京阪神を渡り歩い て今に至る.研究分野は原子炉と核融合炉に関する 水素工学.思いつきで学生に指示する.すぐに忘れ て油断させる.そして都合の悪いときに思い出す.)とうである

かなり迷惑な人のようである.



仲野友英

1998年京都大学工学研究科修士課程修了. 原子力機 構那珂核融合研究所研究員. 主な研究分野:主にプ ラズマ分光を通して, プラズマ物理やプラズマ・壁 相互作用, 定常運転開発. 趣味:スキー, サッカー, 釣りなど何でも広く深く. てっちゃんだった. 家

族:妻,娘二人.近況:上の娘は補助輪なしの自転車に乗れるように なった~,下の娘が初めてお箸をつかった~.自己分析:もう少して きばきと仕事をこなしたいものです.



框田 信

名古屋大学エコトピア科学研究所,講師.愛知県名 古屋市出身.研究分野はプラズマ計測及びプラズ マ・材料・レーザーなどの相互作用に関して興味を 持っています.



福本正勝

日本原子力研究開発機構核融合研究開発部門先進プ ラズマ研究開発ユニット博士研究員.2009年大阪大 学大学院工学研究科電気電子情報工学専攻博士後期 課程修了.現在,表面分析装置を使用し,実機で使用 した壁材料中の水素同位体蓄積挙動の解明に取り組

んでいます. 最近, 7年ぶりに剣道を再開しようかなぁと思っている ところです.



大宅 薫

徳島大学大学院ソシオテクノサイエンス研究部.核 融合装置におけるプラズマ・壁相互作用のシミュ レーションのほか,FIBやヘリウムイオン顕微鏡の SIM像と従来のSEM像との比較や,電子ビーム照射 による絶縁薄膜の帯電など,若い頃の二次電子放出

のシミュレーションをナノデバイス観察評価に生かす仕事もしています.

井内健介



徳島大学大学院ソシオテクノサイエンス研究部先端 工学教育研究プロジェクト,助教.博士(工学).徳 島県徳島市出身.主な研究は、プラズマ・壁相互作 用に関するシミュレーションコード開発.最近,子 どもができたこともあり,日本(世界も)の将来がす

ごく気になっています.



清水勝宏

日本原子力研究開発機構・核融合研究開発部門・研 究主幹.入所後数年はトカマク輸送コード開発及び JT-60の輸送解析に従事,その後未開の地(周辺プラ ズマのダイバータ研究)へ向かう.やるべき事は多 く,モンテカルロ不純物コード開発,その背景プラ

ズマの計算で、簡易ダイバータコードに始まり、本格的な2次元プラ ズマ流体コード開発に向かう.最近周辺とコア輸送との統合化に着手 し、これまでの集大成と考えていたところ、思わぬモンテ計算のノイ ズ、数値不安定性(バグ!?)に悩まされている所です.



滝塚知典

日本原子力研究機構でまだ働かせてもらっていま す.これまで拡げすぎた課題を少し狭めて、もっぱ ら「燃焼プラズマ統合モデリング」の周辺プラズマ モデリングを中心にした研究開発を行なっていま す.PARASOL 粒子シミュレーションで面白い結

果が見つかるのが喜びです.若手研究者といろいろ議論することが楽 しみです.



川島寿人

日本原子力研究開発機構・核融合研究開発部門・研 究主幹.工学博士.JFT-2Mにて高周波電流駆動, リップル低減及びダイバータの実験研究を行った 後,JT-60Uで実験とシミュレーションによるダイ バータ解析に従事,現在,次期装置 IT-60SA や原型

炉のダイバータ物理検討を行う.マイブームは自転車,走ることもさることながら30年前のランドナーをリストアするなど,自転車屋さながら.



星野一生

日本原子力研究開発機構・核融合研究開発部門・先 進プラズマ研究開発ユニット,博士研究員.2008年 に慶應義塾大学大学院理工学研究科・後期博士課程 を修了(博士(工学)).周辺プラズマのモデリング, 特に重金属不純物の大域的な輸送過程のモデリング

と大規模ダイバータコードによるダイバータプラズマのモデリングを 中心に行っています.



畑山明聖

慶大大学院工学研究科修了(工博).10年間のメー カー勤務などを経て,現在,慶大理工学部物理情報 工学科教授.専門は,核融合周辺プラズマおよび負 イオン源プラズマのモデリング.最近,小・中学生 や父母の方を対象とした科学教室の開催,啓発パン

フレット作成,児童書の企画などを,学会広報委員の皆さんと一歩一 歩立ち上げています.一般の方と核融合コミュニティとの間の温度差 を切実に感じ,このような活動の重要性をあらためて認識する一方 で,"新鮮な感覚,驚き"に触れ,"本気でやること"の大切さなど, 多くのことを学んでいます.



藤間光徳

慶應義塾大学大学院理工学研究科前期博士課程.1985年,東京生まれ.研究テーマは,不純物を含んだ核融合プラズマの計算機シミュレーション.特に,ITERおよび原型炉の壁候補材であるタングステンを対象として,大域的周辺プラズマ輸送統合

コード(SOLPS/IMPGYRO/EDDY)の開発を進めています.



富田幸博

核融合科学研究所シミュレーション科学研究部 LHD・磁場閉じ込めシミュレーション研究系准教 授.1977年京都大学工学研究科博士課程修了,同年 名古屋大学プラズマ研究所助手,1992年から核融合 科学研究所助教授(現在准教授).かっての主な研究

テーマはアドヴァンスド燃料核融合(主に D-³He)の研究で現在は 周辺プラズマの理論,シミュレーション研究や核融合プラズマ中での 微粒子の振る舞いの研究に従事.



河村学思

核融合科学研究所シミュレーション科学研究部, COE研究員.2008年に京都大学工学研究科原子核工 学専攻,博士後期課程を修了.研究分野は周辺ダイ バータプラズマのモデリングとシミュレーションで す.学生時代からのコンピュータと去年始めたサイ

クリングが趣味です.自然が好きで研究所のある岐阜の環境は気に 入っているのですが、「距離の単位が山」との噂も納得の凹凸ぶりに 苦戦中です.



^{▶1} 前 音 子

総合研究大学院大学核融合科学専攻修了,博士(学術).現職は核融合科学研究所大型ヘリカル研究部 プラズマ制御研究系助教,および連携研究推進セン ターITER連携研究部門併任助教.専門はプラズ マ・壁相互作用.最近の趣味は国道418号線と

「Etudes-tableaux」の練習.



田 中 康 規

金沢大学理工研究域電子情報学系准教授.1998年名 古屋大学大学院工学研究科博士課程後期課程修 了.1998年金沢大学工学部助手,2002年から同大学 助教授(2007年から同大学准教授).おもに熱プラズ マの基礎と応用に関する研究に従事

小野忠良

村本哲也

現在の所属:岡山理科大学・総合情報学部(平成21年10月7日現在), 主な研究分野:粒子線と固体との相互作用の計算機シミュレーション.



剣持貴弘

現在の所属:同志社大学生命医科学部,主な研究分 野:荷電粒子と固体との相互作用.小学校の修学旅 行で行った奈良に1年半前から住んでいます.改め て奈良の大仏を見ると,自分の記憶にある大仏より, かなり大きくてびっくりしました.娘と息子は最初,

鹿を見たときには泣き叫んでいましたが,最近は"バンビちゃん"と 言って喜んでいます.子どもはすでに関西弁を使うようになり,段々 とキャラが変わってきているような気がしてなりません.



中村浩章

核融合科学研究所シミュレーション科学研究部. 准教授. 主な研究分野:プラズマ壁相互作用のシ ミュレーション,非平衡輸送現象,物性物理学,光伝 播シミュレーション.趣味は,いろんな方と共同研 究すること.



伊藤篤史

核融合科学研究所シミュレーション科学研究部,学 振特別研究員(PD).2009年名古屋大学大学院理学 研究科博士課程修了.ダイバーター炭素材料の分子 動力学研究を中心に,炭素がらみで化学や宇宙分野 の共同研究も行っている.もしこの世の物理法則を

司る神様がいるとしたら、それは白髪白髭のお爺さんではなくて、美 しい女神であって欲しいと願う今日この頃.同所属にイトウアツシが 二人いるのでご注意.



加藤太治

核融合科学研究所助教.現在,金属表面での原子励 起過程や水素(同位体)を多量に含む金属結晶中の 点欠陥成長過程の理論的研究,核融合・天体プラズ マ中の多価イオン原子物理の研究,及び基礎と応用 の接点としての原子分子過程や材料のデータベース

の接点とし、 活動を行っている.



深田 智

1953年5月8日大阪に生まれ,1978年3月九州大学 工学研究科応用原子核工学専攻修士課程修了,九州 大学工学部助手を経て,2006年9月より九州大学総 合理工学研究院エネルギー理工学部門教授となる。 専門は,核融合トリチウム理工学,特に化学プロセ

スを用いた新規分離, 濃縮, 精製手法の研究開発に精魂込めています. 家族はほとんど夫婦二人.



複枝幹男

昭和62年九州大学大学院工学研究科博士課程卒業. 同年日本原子力研究所入所,核融合研究開発部門所 属.主な研究分野は核融合ブランケット研究開発. 核融合ブランケットの開発,特に,テストブラン ケットの開発とITERでの試験実施のための設計と いる.

りまとめを行っている.



河村 繕 範

1994年3月九州大学工学研究科博士後期課程を学位 取得のうえ修了,同4月より日本原子力研究所 (現:日本原子力研究開発機構)研究員.現在,同核 融合研究開発部門トリチウム工学研究グループ研究 主幹.専門は核融合トリチウム理工学.日本原子力

学会及び化学工学会所属.広島県廿日市市出身.家族は妻と二人の息 子に母,現在息子二人をカープファンにすべく育成中.



^{かた やま かず なり} 片 山 一 成

九州大学大学院総合理工学研究院先端エネルギー理 工学専攻, 助教. 同専攻で学位取得後, 現職. 核融合 炉トリチウムに関する研究に従事.特にプラズマ-壁 相互作用に注目.愛媛県温泉郡中島町(現松山市)出 身. 野菜作りは土づくりからをモットーに小さな小

さな家庭菜園に励んでいます.



相良明男

核融合科学研究所炉工学研究センター長・教授,出 身:信州滋野村(小諸の隣),上田高校から名大原子 核、専門分野/関心分野:核融合炉工学/特にプラ ズマ壁相互作用における物質移行物理工学と炉シス テム設計統合.最近は飲むより寄席に.



寺井隆幸

東京大学大学院工学系研究科教授(総合研究機構 長). 神戸市出身. 東京大学大学院工学系研究科博士 課程修了後,日本学術振興会奨励研究員,東京大学 工学部助手,同助教授を経て,平成11年より現職,原 子力国際専攻および工学部システム創成学科を兼

担.専門分野は環境エネルギー材料科学.主な研究テーマは、原子 力・核融合炉材料化学,水素エネルギーシステムの要素技術研究,高 エネルギー粒子プロセシングなど.趣味は旅行と写真.研究室ホーム ページ (http://lohas.t.u-tokyo.ac.jp/public/bbs/bbs.cgi) に教育研究関 係の写直を多数掲載。



鈴木晶大

東京大学大学院工学系研究科原子力専攻,准教 授. 1971年生まれ. 東京大学システム量子工学博士 課程修了後,核融合科学研究所助教を経て,現職.主 な研究分野:次世代原子炉,核融合炉や水素エネル ギーなど、将来の技術革新の要素技術の核となる,

薄膜,液体金属,溶融塩,電解質,超伝導材などについての実験的研究 をしています.



星野 毅

経歴・主な研究分野等:東京大学大学院工学系研究 科システム量子工学専攻博士課程修了.工学博士. 現在,日本原子力研究開発機構の研究員.核融合研 究開発部門に所属し, ITER テストブランケットモ ジュールに関する研究開発に従事. 主に核融合炉の

燃料製造に必要な先進固体トリチウム増殖材料の開発及び各種特性評 価を行う. 学生時代にはセラミックスの熱物性測定, 固体酸化物型燃 料電池の研究に従事した経験があり、セラミックス材料の専門家.



田中照也

核融合科学研究所炉工学研究センター,助教.主な 研究分野:液体冷却ブランケットの中性子工学設 計. 電子絶縁および水素同位体透過防止セラミック 被膜.



山西敏彦

日本原子力研究開発機構核融合研究開発部門、トリ チウム工学研究グループリーダー,研究主幹.工学 博士. 香川県出身. 経歴:昭和57年3月京都大学大 学院工学研究科化学工学専攻修士課程修了,昭和57 年4月日本原子力研究所入所後,水素同位体分離等 核融合炉トリチウム燃料循環システムの研究に携わり現在に至る.



巧

林

1984年3月金沢大学理学研究科修士課程修了, 1987 年3月名古屋大学大学院理学研究科博士後期課程満 了,1988年2月同学位取得(理学博士),日本原子力 研究所核融合特別研究生, 1988年4月より日本原子 力研究所(現:日本原子力研究開発機構)研究員.現

在,同核融合研究開発部門トリチウム工学研究 Gr 研究主幹.主な研究 分野は、核融合炉に関するトリチウム理工学.家族は、妻と娘と息子. 実家に父母.



井保則

日本原子力研究開発機構核融合研究開発部門トリチ ウム工学研究グループ研究副主幹.博士(工学).大 阪府出身. 経歴: 平成7年3月京都大学大学院工学 研究科化学工学専攻修士課程修了,平成7年4月日 本原子力研究所入所後,現在に至る.専門:水素同

位体分離.



磯 部兼嗣

日本原子力研究開発機構核融合研究開発部門トリチ ウム工学研究グループ研究副主幹. 平成10年九州大 学大学院総合理工学研究科博士後期課程修了,博士 (工学). 平成10年日本原子力研究所(現:日本原子 力研究開発機構)入所.核融合炉におけるトリチウ

ム工学の研究に従事し,現在に至る.

原



正憲

富山大学 水素同位体科学研究センター,准教授. トリチウムを安全に取り扱うために必要な材料中に おけるトリチウムの挙動を測定するとともに、金属 水素化物の生成に伴う熱力学・動力学的変化とその 同位体効果も測定しています.休日は近所の博物館

で子供と一緒にプラネタリウムを観るのを楽しみにしております. もっぱら、私には昼寝の時間となってしまいますが.



杉山貴彦

平成12年3月名古屋大学大学院工学研究科博士課程 後期課程修了,同博士(工学)の学位を取得,平成12 年4月核燃料サイクル開発機構,平成14年2月核融 合科学研究所助手,平成17年11月名古屋大学大学院 工学研究科助教授,現在に至る.核分裂炉および核

融合炉燃料サイクルに関わる分離化学工学,特に同位体分離を主な研 究分野としている.愛犬はキャバ嬢で名前は「ぶうげん」.(注:キャ バリア・キング・チャールズ・スパニエルの雌)



奥野健二

静岡大学理学部附属放射科学研究施設,教授,研究 分野:トリチウム理工学,核融合炉化学,放射化学 /ホットトリチウムの化学,趣味:尺八演奏(最近 ご無沙汰だが),好きな言葉:泰然自若.



波多野雄治

富山大学 水素同位体科学研究センター 主な研究 分野:核融合炉材料中のトリチウム挙動(溶解・拡 散・透過)の解明と、その制御のための機能性材料 開発、ならびに材料中の水素同位体分析技術の高度 化に取り組んでいます.この特定領域のおかげで新

しいお付き合いもでき,また原子力学会などでもトリチウム関連の発 表も増え,喜んでいます.



鳥 養 祐 二

富山大学水素同位体科学研究センター,准教授.主 な研究分野:トリチウムバックエンド,材料-水素相 互作用,経歴:北海道大学大学院工学研究科原子工 学専攻にて学位を取得(博士(工学)),学位取得後, 財団法人環境科学技術研究所に勤務.現在,富山大

学水素同位体科学研究センター准教授. 妻と3歳になる子ども(男の 子)と毎日奮闘しています.



大矢恭久

静岡大学理学部附属放射科学研究施設,准教 授.愛知県名古屋市出身.研究分野は核融合炉工 学,トリチウム理工学,放射化学.趣味は旅行と 刑事ものドラマ鑑賞(西部警察,あぶない刑事な ど).でも,最近は子どもと遊ぶことか?



小田卓司

東京大学大学院工学系研究科原子力国際専攻助教. 広島県廿日市市出身.研究分野は原子力関連の材料 工学.趣味は競馬と釣りと将棋.



田中 知

東京大学大学院工学系研究科原子力国際専攻.研究 分野:原子力エネルギー,核融合工学,核燃料サイ クル,放射性廃棄物,核燃料サイクル社会工学.東京 大学工学部原子力工学科卒業,同博士課程修了.趣 味:歴史・地理,祭り,地政学,百を切らないゴル 奏の映せ、今年度濃厥を迎えるにあたり、何を建りの

フ.ペットは8歳の柴犬.今年度還暦を迎えるにあたり,何を残りの 人生で行うか検討,実践.



中村博文

日本原子力研究開発機構核融合研究開発部門トリチ ウム工学研究グループ研究主幹,博士(工学),長崎 県出身,平成2年九州大学工学部応用原子核工学専 攻修士課程終了後,日本原子力研究所入所,現在に 至る.専門分野は材料中トリチウム挙動,主として

核融合炉でのトリチウム透過量評価や透過抑制開発に従事.休日は, 主としてメタボ対策も兼ねた花壇の耕作・草刈り等の強制労働に従 事.



[№] 倉 大 和

核融合科学研究所・安全管理センター,教授.主な 研究分野はLHD重水素実験時のトリチウム除去装置 の設計検討.日立製作所を早期退職し,2001年から 核融合研に勤務.日立時代に一時期CANDU炉(重 水炉)の国内導入に向けたトリチウム安全管理技術

の開発研究を担当したが,現在は,核融合炉の実用化に向けて日本発 のより先進的で実用的な取扱い技術が重要と確信し,日々微力を尽く そうと思っている.



*** うち ひろ こ 大 内 浩 子

大学卒業後遍歴を重ねた後,現在,東北大学大学院 薬学研究科放射性医薬品実験施設助教.博士(工 学).研究分野はイメージングプレート(輝尽性蛍光 体)などを用いた放射線計測,ドシメトリー.放射線 のリスクコミュニケーション.趣味は英会話,猫と

昼寝すること.



大塚哲平

愛知県小牧市出身.北海道大学原子工学科修士前期 課程修了後,現職(九州大学大学院総合理工学研究 院エネルギー理工学部門).主に原子炉・核融合炉 材料中の水素同位体挙動に関する研究を行っていま す.福岡に来て早10年.家族4人でビーグル犬とと

もに暮らしています. 最近は, 娘らのネイティブ博多弁に圧倒される 毎日です.



小林和容

平成7年4月日本原子力研究所(現:日本原子力研 究開発機構),研究員.現在,日本原子力研究開発機 構核融合研究開発部門トリチウム工学研究グループ 研究副主幹.平成16年9月静岡大学物質工学専攻理 工学研究科博士後期課程(社会人)終了,同博士(理

学)の学位取得.研究分野は、核融合トリチウム理工学及び安全性に 関する研究.茨城県水戸市出身.家族は、妻と二人の息子、実家に父母.最近は、息子達の成長の跡を写真に残すことを楽しみに日々奮闘中.