

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：2012年7月2日)

Keywords:

Tritium, fuel cycle, fusion reactor, safety, economy, science, technology

1.1 はじめに (プロジェクトの概要)

2007 (平成19) 年度より実施された文部科学省科学研究費補助金特定領域研究「核融合炉実現を目指したトリチウム研究の新展開」は、2011 (平成23) 年度にて終了いたしました。5年間にわたって表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、一人又は少数の研究者による公募研究を補完的に行ってきました。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きました。

特定領域のこれまでの活動、研究内容の詳細、主催／共催した国際会議やワークショップ／シンポジウムなどの報告と案内、研究の進展状況、学術誌等に発表した研究成果等はホームページ[1]に詳細に記載しておりますので、そちらもご覧ください。

本レビューは、5年間にわたって展開された核融合炉実現をめざしたトリチウム研究の成果をご紹介します。解決された問題と未解明の問題を整理し、今後の研究の方向性について示唆を与えようとするものです。第1章で領域設置の目的と進め方を、第2章で「D-T核融合炉のトリチウム」について述べた後、本特定領域を構成した3つの班の成果について、第3章「炉内トリチウム」、第4章「核融合

炉ブランケット」、第5章「トリチウムシステム」としてそれぞれにまとめ、第6章で「まとめと今後の課題」を述べています。

本特定研究を立ち上げた際にも、本誌に、領域が何をめざして設定されたかを知っていただくため、プロジェクトレビュー[2]を掲載させていただきました。本報告と対比してご覧いただくと、どれだけの成果が上げられたか、興味深く読んでいただけるものと思います。

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ありません。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くらいがあります。核融合炉燃料として使用されるトリチウムは、平均約6 keVのベータ線を放出して ^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放射性安全性を確保して運転される必要があります。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きわめて効率的に行わねばなりません。エネルギー発生装置としての実用核融合炉は、安全性の観点からも社会的に受容されるものであると同時に経済的に見合うものでなければなりません。

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、T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、T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、Tが希少資源であるが故に、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でありました。具体的な研究課題は

- (1) 炉内へのDとT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、T分離・再利用すること、
 - (3) ブランケットによりT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) T汚染の制御と除染法の確立をはかること、
- 等であります。また同時にTに関する正しい理解に基づいた
- (6) 新しいT科学ともいべき学問分野を打ち立てるとともに、
 - (7) Tに対する正しい理解を社会に広めること、

も重要な課題でした。

1.3 核融合炉の燃料としてのトリチウム研究

1.3.1 安全性と経済性

どのようなエネルギー源でも、燃料の確保は最大の課題です。DT核融合炉燃料の一方である、重水素(D)は海水中に約0.015%含まれていますので、これを蒸留や電気分

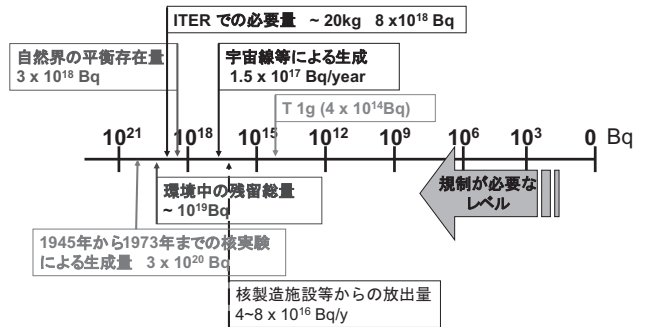


図1 トリチウムの自然界の存在量、核実験による生成、法的規制値等の量等の比較[3]。

表1 計画研究の課題および達成目標。

班名	研究代表者	分担金額 (千円)	研究課題	達成目標	目的・目標達成
A班	A01班 上田 良夫	123,530	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T量の評価と除去法を開発し、ITERの運転シナリオ策定へ - 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	核融合炉容器内複雑環境を考慮したT挙動について、混合イオン照射実験や、分子動力学シミュレーションより明らかにした。蓄積T量の評価については、JT-60Uのタイル分析結果を基に、炭素壁の場合について明らかにした。タンゲステン壁についても、ほぼ見通しはついた。以上の研究成果は、次期トカマク装置の壁材料選択やシナリオ策定に有用である。
	A02班 大宅 薫	77,200	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		
B班	B01班 深田 智	93,760	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Tの増殖、回収システムにおける増殖比1.05以上の実現 - 安全な排ガス回収、不純物除去、T分離・再利用	各種T増殖材(固体増殖材, Li, Flibe等)に中性子を照射し、T回収を実証した。特にLi ₂ TiO ₃ にDT中性子を照射し、回収/発生比率を99.9%以上とする見通しを得た。これに基づけば、T増殖率が1.05以上になるブランケットシステム設計が可能である。配管からのT漏洩率の定量化と、漏洩率低減のための新規酸化膜形成に成功した。また排ガスT回収のための吸着法、電気化学法を開発し、実機装置でも実証した。
	B02班 寺井 隆行	115,800	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		
C班	C01班 山西 敏彦	103,600	トリチウムの閉じ込めに関わる高濃度トリチウム水及び有機物の化学的現象の解明	ITERのT処理施設高性能化 ・有効な透過抑制法の開発(1/1000を実現)	Tを用いた研究により、T水処理系の高性能化、金属および高分子材料に対するTの滞留・透過・脱離挙動に関するデータベースを構築すると共に、鉄鋼材料中の水素同位体透過速度を1/10000以下に抑制することに成功した。
	C02班 波多野雄治	118,000	トリチウムの透過漏洩と汚染・除染		
総括班	田辺 哲朗	32,300	核融合炉実現を目指したトリチウム研究の展開	- T燃料システムの設計(A, B, C班の結果統合) - 水素同位体の理解, T学の創成 - 国際的人材育成	Tを燃料とする核融合炉のシステムにおけるTの全体の流れを明確にし、安全性・経済性の両観点からシステム設計に及ぼす問題点とその解決策を示した。Tの科学と技術を取りまとめた教科書を編纂中である。多数の国際会議等で、招待講演・基調講演に招かれ、本領域の成果が世界的に広く認知されるようになった。人材育成に関しても、本領域から12名が、同じような分野での研究職として採用されており当初の目標は完全に達成されたといって過言ではない。

解により濃縮、回収すれば十分な量が確保できますが、もう一方の燃料であるTは、図1 [3]に示しますように、その天然存在量は、きわめて少ないのです。第2次大戦以前の地球上では、宇宙線等により生成する一方で、放射性崩壊により、年間5%程度が消失するため、両者がほぼ拮抗して、天然由来のTの存在量はkgのオーダーでほぼ一定でありました[4]。ところが、1950-60年代の大気圏内核実験により、多量のTが生成され、大気中に放出されましたので、天然の存在量が一気に2桁以上増大しました。そして1963年の部分的核実験停止条約（PTBT）成立後は、核実験による新たな放出がなくなったため、その存在量は、崩壊により減少し続け、現在では第2次大戦以前の水準に戻りつつあります[5]。ただし原子炉ではTが生成しています。全世界の軽水炉およびその関連施設では、総量にして、天然生成量の1/5程度が放出されていますが、一基あたりのT生成量は少ないので、除去回収はされていません。現在、平和利用のためのTの供給源はCANDU炉です[5]。しかし、一機あたり年間100~200gのTが生産されているに過ぎず、世界中のストックは、たとえ核兵器に使われているTを含めても、200kg程度以下であると思われます[6]。

図1からわかりますように、ITERで必要とされるT量は、天然に存在するT量に匹敵しており、Tはきわめて希少な資源なのです。もちろん核融合炉においては、Tはブランケットにて自己増殖されることになっています。核融合炉をエネルギー源として次々と建設していくためには、Tの増殖量は、燃焼させた量を上回っていなければなりません。現在の炉設計では、炉全体としてのT増殖比は最大で1.2程度であると見積もられておりますが、Tの確保のためには、増殖比をできるだけ大きくするとともに、炉内のTインベントリをできるだけ少なくする必要があります。言い換えると、ブランケットで生成されたTはもとより、炉内に導入されたTも余すところなく回収する必要があります。すなわちTの計量管理は安全面からきわめて厳しくしなければなりません。経済的にも究めて重要な課題なのです。また初期インベントリをどのように確保するかは、核融合炉をエネルギー源として利用していく上で、大きな関門です。

実際に核融合炉で燃料サイクルとして循環使用されるTの総量は、重さにすればわずか数kg程度ですが、放射能レベルでは 10^{17} Bq (=100 PBq；1秒間に 10^{17} 個のベータ線を発生させる)となり、安全性の観点から定められている規制値に比べると10桁以上も多いのです。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T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ことが危惧されています。

Tの計測は線量の低いところでは、核崩壊によって放出されるベータ線を計数するので、精度よく測定できますが、 10^8 Bq程度以上になると、もはや計数法は使えず、軽水素(H)やDを測定するのと同様、PVT法や、重量法にたよらざるを得ません。またTが放出するベータ線のエネ

ルギーは低いので、固体中にあるTを計測することはほとんど不可能です。ただし、固体中のT濃度が高くなれば、核崩壊により発生する熱を測定することにより定量が可能となります。通常ガスの定量法として利用されていますPVT法や、熱測定での測定精度は 10^3 程度しかありませんので、安全面から要求される確度をもったT計量管理はきわめて難しいのです。

ITERでのTシステム（供給、回収、再利用）を作ることは、既存の技術で十分対応可能であり、すでに詳細な設計がなされていますが[7]、問題は、きわめて多量のTを使うため、汚染の広がり、透過や漏洩による汚染等、新たな課題があると思われます[8]。特にTは、軽水素(H_2O)中のHと容易に同位体交換し、HTOの形として固体表面吸着されていることが多いし、有機化合物中のHとの交換も起こりますので表面汚染が重要な問題となります。T水やT化された有機物は、人体に取り込まれやすく、ガス状のTに比べて1万倍以上危険度が高いことが知られています。このため、通常のRI施設と同様、二重防護の概念、すなわち、グローブボックス、あるいはそれに変わる遠隔作業容器内で扱われ、それらはさらに、負圧に保たれた建屋内に設置するという方策が取り入れられますが[7]、 10^{18} Bqを超えるような多量のTを使用する際に、二重防護で漏れを 10^{10} Bq程度まで落とすのは難しいと思われます。

低濃度のTは広く世界で利用されており、DOEのハンドブックなど[4, 8]、その取り扱いに関するハンドブックやマニュアルは整備されています。しかし、それらはあくまでも低濃度のT取り扱いが対象であり、核融合炉のように多量のTをプラズマ化して取り扱った経験は、日本はおろか世界にも（軍事研究を除けば）ほとんどなく、その安全な取り扱い技術が確立されているとはいえません。またT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いえません。プラズマ化された大量のT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のです。

1.3.2 燃料の自己供給性

核融合炉の燃料サイクルはきわめて効率の悪いものと予測されています。特に、磁場閉じ込め方式では、供給された燃料がプラズマ化する割合（燃料供給率）が低いだけでなく、いったんプラズマ化した個々の粒子も閉じ込められている時間が短く、供給された燃料がDT反応に至る割合は（燃焼率）もあまり高くできません。燃焼率は高く見積もっても3%程度と考えられており、燃焼される燃料に比べて、1/0.03すなわち30倍以上もの燃料を供給（スループット）しなければならないと同時に、そのほとんどを排気し、再循環させることになります。図2には核融合炉における燃料の流れの概念図[9, 10]を示しました。ここでは、燃料供給率を10%、燃焼率を3%、Tの増殖率を1.2としてあります。この条件では、図に示されているように、50/50のD/Tを供給した時、3/3が燃焼して、3個の中性子とHeが発生することになります。増殖率を1.2としていますので、発生した3個の中性子は3.6個のTを殖み出します。供給された燃料は、燃焼したものと炉内に蓄積される

ものを除くと、炉外に排気され、精製、同位体分離過程を経て、再び燃料として供給されることになります。現状のトカマク装置では、炉内への蓄積率は5-20%程度ときわめて高いのですが（これを如何に下げるかは、きわめて重要な課題です）、仮にこれを図2のように1%に抑えることができたとしても、燃料のバランスは、最初の供給50に対して、49.6が再び循環させることができるだけであり、燃料自己供給性が保てません。燃料供給率、燃焼率、増殖率を上昇させるとともに、炉内蓄積を下げるための努力が求められています。

また、現状のトカマク装置では、真空中に軽水素が残留していますが、DT炉でもHの混入は避けられず、Tの観点から見ると、燃料の希釈だけでなく、回収処理時の同位体分離に負担がかかる等の問題もあります。ダイバータ冷却のため、NeやArの導入が考えられていますが、これらも、T処理システムに、多大の負担をかけることになります。

また図2には、T安全性の観点からみると、100の燃料が流れている中で、透過漏洩を 10^{-10} 程度に抑えなければならないことを示してあります。取り扱われるTの量、そのエネルギー状態をそれぞれ横軸と縦軸にプロットし、どのような物理現象を考えなければならないかを示したのが図3です。取り扱うべきT量、またそのエネルギー状態はともに10桁以上にも広がっており、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ます[2,3]。高エネルギー、高濃度のTを安全に閉じ込めることは容易でないことがわかっていただけたと思います。かつて経験したことのない多量のT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ません。T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ます。

1.4 研究の進め方

以上のような背景のもとに、5年間にわたって、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

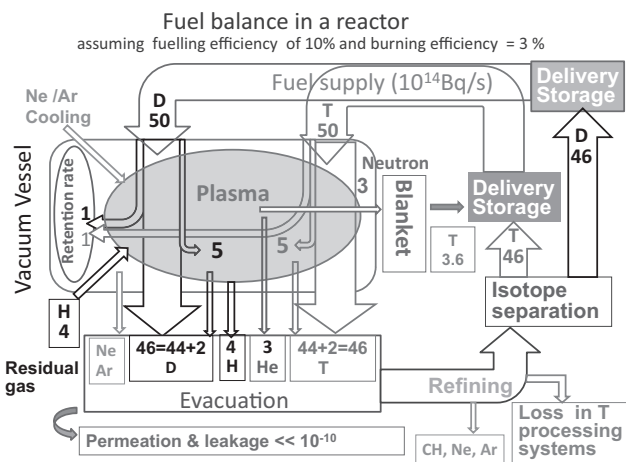


図2 核融合炉における燃料の流れ、燃料供給率10%、燃焼率3%、炉内への蓄積率3%と仮定してある[9,10]。

ました。6つの計画研究は、それぞれ2つずつを組み合わせ、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が進められました。各班の受け持ちは図4に示したように、A班は、炉内のTインベントリーの評価と蓄積、そして蓄積Tの除去を、B班はブランケットによるTの増殖・回収を、C班は全体としてのTシステムと安全性に関わるTの透過・漏洩を担当しました。当初の目的・目標がどれだけ達成されたかも、表に簡単に記してあります。

総括班では、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T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ました。さらに、総括班には、一般社会へTの正しい理解が浸透するよう情報発信を行い、T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べき啓蒙書の発刊を目標にしました。また人材の育成も非常に大きな課題でした。領域がはじまって以来、12名の方が、新たに核融合関連の研究者として研究機関・大学に採用されており、その役割は十分果たせたものと思っています。

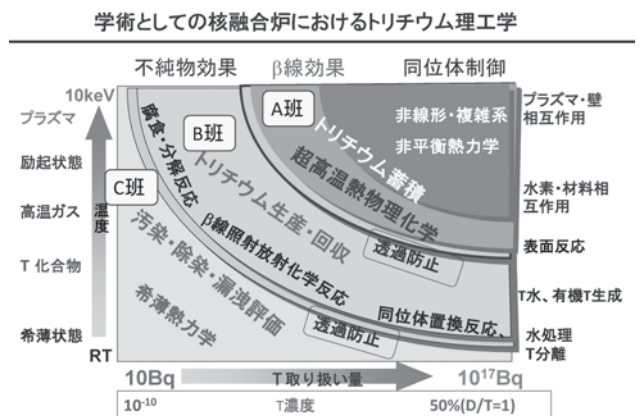


図3 Tの取り扱い量、およびそのエネルギー状態に応じて出現する理解・解明すべき物理/化学現象、または学術的課題[2,3]。

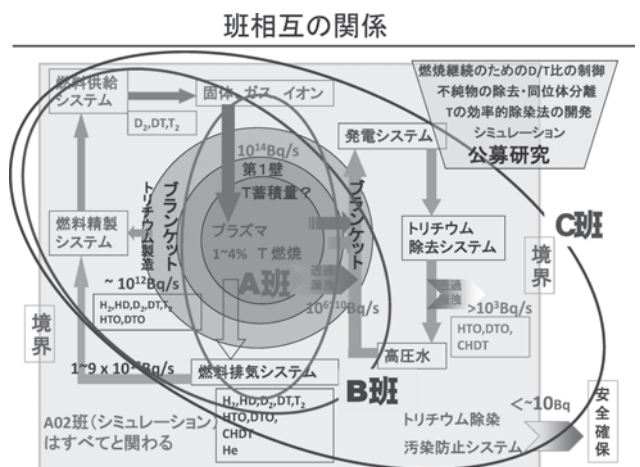


図4 核融合炉に燃料としてベタベクレル (PBq) のTを導入した際に、Tが系外に透過漏洩していくことをも考慮して、必要な研究。

参考文献

- [1] 文部科学省科学研究費補助金特定領域「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 他：プラズマ・核融合学会誌 **85**, 680 (2009).
- [3] T. Tanabe, *Proc. 2nd ITER Int. Summer School*; Confinement, ed. S.-I. Itoh, S. Inagaki, M. Shindo and M. Yagi, pp.112-126 (AIP, 2009) ISBN 978-0-7354-0628-5.
- [4] DOE Hand book, Tritium handling and safety storage, DOE-HDBK-1129-2008, December 2008, USDOE.
- [5] IAEA/WMO. (2006) Web Site of the Global Network of Isotopes in Precipitation (GNIP) and Isotope Hydrology Information System (ISOHIS). <http://isohis.iaea.org/>, IAEA, Vienna
- [6] T.B. Cochran, W.M. Arkin, R.S. Norris and M.H. Hoenig, *Nuclear weapon data book* Vol.II US Warhead production, (Ballinger publishing Co. 1987).
- [7] M. Glugla, D.K. Murdoch, A. Antipenkov *et al.*, *Fusion Eng. Des.* **81**, 733 (2006) and *references there in*.
- [8] Evaluation of Facilities Handling Tritium, Minister of Public Works and Government Services Canada 2010. Catalogue number CC172-55/2010E-PDF, ISBN 978-1-100-14916-5, Published by the Canadian Nuclear Safety Commission (CNSC), Catalogue number: INFO-0796.
- [9] T. Tanabe, *Fusion Eng. Des.* **87**, 722 (2012).
- [10] T. Tanabe, *Proc. 20th Int. Conf. Plasma Surface Interactions in Controlled Fusion*, Aachen, May 20-25, 2012, *to be published in J. Nucl. Mater.*



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

2. D-T 核融合炉のトリチウム

西川 正史, 田辺 哲朗, 朝倉 大和¹⁾

九州大学, ¹⁾核融合科学研究所

(原稿受付: 2012年7月2日)

Keywords:

tritium, radiation safety, tritium balance, $(TBR)_{BS}$ attainable, $(TBR)_{BS}$ required, overall burning efficiency

2.1 トリチウムの放射線安全対策

第1章で述べられているように、核融合炉の開発にあたっては、トリチウム (T) が半減期約12年のベータ放射体であることと、資源的には自然界には存在しないといつてよい存在量であることを勘案して、Tの放射線安全性確保のための課題と燃料としての安定的供給法確保のための課題との双方を満足する対策を確立しておくことがT研究者に要請されている。

放射性物質としてのTを取り扱う際には次のような法律等の制約を受ける。

1. 日本では放射線障害防止法によりTの空气中濃度並びに排気、排水中濃度の限度には次のように規制が与えられている。

空气中濃度限度

HT: 10^4 Bq/cm³, HTO: 0.8 Bq/cm³

排気中のT濃度限度

HT: 70 Bq/cm³, HTO: 0.005 Bq/cm³

排水中のT濃度限度 60 Bq/cm³

2. 核融合炉敷地境界における被ばく線量、つまり一般公衆の受ける実効線量は1 mSv/年以下に抑制することが望まれる。
3. Tの施設内保有量制限
核施設としての制限や緊急時対策等安全面からの制限によりTの保有量に上限値が設けられる。ITERでは立地国フランスの規制に従い炉真空容器内Tの保有制限値は1 kgである。

このような規制に従って放射線安全対策を確立するためにはTの環境への移行量低減化対策を講ずるとともに低濃度Tモニタリング法開発が要請される。低レベルTのモニタリング法については従来から開発が進められてきており目標に近い性能が得られようとしている。

環境へ移行するTのうち燃料精製・循環システム起源の

Tについては過去の大型T取り扱い施設の実績をもとにITERのトリチウムシステム設計において議論されておりITERの運転においても実証されることになるが、プラズマ駆動透過が支配的になるとされる真空容器からだけではなく、高温場であるT増殖ブランケットからも少なからぬ透過漏洩が予想され、透過低減化対策は重要な検討課題である。

ブランケットシステムからのT透過漏洩挙動を解明するためには増殖材から放出されたTの挙動をもとにブランケット構成材料の特性を合わせて解明しなければならないので、本特定研究ではB班とC班がそれぞれの学問的観点から検討を担当した。固体ブランケットの増殖T放出挙動について得られた成果をもとに低放射化フェライト冷却管体型での透過量解析によると水冷却方式ブランケットでは漏洩Tは後述のTバランスには大きな影響を与えないと予測されるが、放射線安全性確保の観点からは漏洩量の低減化対策が必要であると判断された。またガス冷却方式ブランケットの場合はTバランスにも影響を与えるT漏洩量に増加するとの解析結果がでた。

この対策としてB、C班で各種透過防止膜の開発が行われ、2~4桁の透過量低減化が可能であるとの成果が報告されている。またC班では冷却水に移行したTの同位体濃縮法による回収を研究して有効な成果を上げている。したがって本特定研究の成果を総合すると環境へのT漏洩量を4桁低減することが可能であるといえる。この時ブランケット起源のTの水冷却ブランケットを通じた環境への移行量は一日あたり 1.1×10^{11} Bq 程度と予測される。今後は透過防止膜の長期安定性についての研究が必要である。

C班ではT水 (高レベルT水) は金属表面の腐食を促進する効果があるとの興味ある実験結果を得ている。ブランケットや冷却管からのT漏洩に影響を与える可能性があるため今後の現象論的解明の進展が待たれる。

A班ではプラズマ容器の中におけるT挙動の研究が緒に就いたが、放射線安全性の観点からは真空容器から環境へのT移行の道筋の特定と定量化へ向けての今後の進展が期

待される。

2.2 核融合炉内の T バランス

総括班では A, B, C 各班の成果を総合して核融合炉内における T バランスについての検討を行った。

1.3.2で述べられているように, DT 核融合炉において T の自己充足を達成するためには増殖ブランケットで製造される T はプラズマで核燃焼される T と核融合炉内の各所で捕捉または漏洩によって消費される T 並びに次期の炉の初期インベントリに保留しておくべき T の合計より多くなければならない。

核融合炉で達成可能な T 増殖率はブランケット内の T 増殖材と中性子増倍材の配置並びに使われる構造材・冷却配管材の種類と量から決定される Local TBR (Tritium Breeding Ratio) とプラズマ対向材料への中性子吸収効果とブランケットが占める被覆率を補正した Net TBR で議論されることがこれまで一般的であった。増殖率そのものの実験的実証はまだされていないもののトカマク炉の固体ブランケットモジュールについて行われてきた多くの中性子計算から Net TBR として 1.05 程度の達成が可能と考えられてきた[1]。本特定研究の開始にあたって T 増殖率として 1.05 の確保を確認したいとの B 班の目標が設定されたのもこれらの経緯を踏まえたものである。

しかし本特定研究の成果を踏まえた検討から総括班では単に達成可能な T 増殖率の多寡を論ずるだけではなく T 消費から求められる要求増殖率との対比が肝要であるとの結論を得るに至っている。

また増殖率検討の過程において, ブランケット部での増殖 T の回収率を補正したブランケットシステム T 増殖率 (TBR)_{BS attainable} をブランケットシステムから燃料システムに供給可能な T 量を示す指標として提唱した[2]。

核融合炉内の T バランスから求められる T 増殖率への要求値 ($(TBR)_{BS required}$) は

- 1 プラズマのコア部で核燃焼される T
- 2 次の炉の初期装荷量として保留蓄積しておくべき T
- 3 炉保有 T の放射性崩壊による損失分を補填するための T
- 4 冷却水や環境等に透過漏洩して損失される T の補充分
- 5 炉内に捕捉される T の補充分

を総括して決められる。

ここで, 1 は核融合炉の設定出力とエネルギー変換効率によって決まる。2 は核融合炉の持つ総 T インベントリとこれを準備するべき期間, T 増倍時間, によって決められる。なお, 総インベントリは燃料システム内を循環する活性 T と炉システム構造材料に取り込まれてしまった不活性 T の和である。3 は炉の総インベントリと T の崩壊時間によって決められる。4 は真空容器のプラズマ駆動透過と燃料循環・精製系でのガス駆動透過が主因となり決められる。また, 5 は真空容器内におけるプラズマ・壁相互作用で形成される再堆積層に取り込まれた T で, 定常状態が得られるまでの時定数が大きく且つ回収が期待されるの

で飽和状態が得られるまでの時定数が小さい不活性 T とは別に分類されている。

図 1 には要求 T 増殖率と達成可能 T 増殖率の算定経路を対比して示してある。炉における T の自己充足を達成するためには達成可能増殖率は必要増殖率より大きくなければならないことは自明である。

Abdou ら[3]は1986年当時トカマク炉の T バランスを定量するには未知数が多すぎると結論した経緯がある。また朝岡ら[4]は再堆積層についての議論が始まる以前に T バランスについてパラメータ計算を行い 1.1 程度の Net TBR が必要であると結論づけている。ごく最近になって Roth ら[5]は多くのプラズマ実験装置で得られた各種第一壁材料の再堆積層への水素同位体の捕捉データの総括的整理を行い, プラズマ対向材料の再堆積層に共堆積する T 対策が ITER の炉内保有量を制限値 1 kg 以内に抑えるにあたっての最大の課題であると報告した。本特定研究でも A 班によって JT-60U の水素の蓄積量分析に基づく実験的現象解明の研究が進められるとともに, プラズマ挙動解析コードとプラズマ・壁相互作用解析コードの結合によるシミュレーション法が開発され, 経験則から現象論的解析に向けての大きな前進がなされた。今後の核融合炉条件下でも応用が可能な汎用的解析法への進展が期待される。

再堆積層に取り込まれる T 量は少なくはないので, これについてどのように対処するかが T バランスを検討する上での重要課題である[6-8]。

再堆積層に捕捉される T の蓄積速度はプラズマ容器への総供給流量 (Q_T)_{VVin} と捕捉率 (δ_T)_{overall} が決まると求められる。図 2 は 1 年間運転後の再堆積層に取り込まれている T 量を 3 GWth の実用炉 (T 年間燃焼量 146 kg) に即して比較したものである。ITER ではサイト制限値は 1 kg であるが, プラズマの総括燃焼率 (η)_{overall} が 1 % で再堆積層への総括捕捉率が 7×10^{-5} の場合 3 GWth 実用炉一年の運転でこの制限値を超えることになる。回収までの運転期間が 2 年または総括燃焼率が 0.5 % の場合はほぼこの半分の総括捕捉率を持つ対向材料を選択しなければならないが現状ではタングステン (W) 以外にプラズマ対向材候補が見あたらない。ITER 条件での捕捉率として 3×10^{-4} が Roth らの

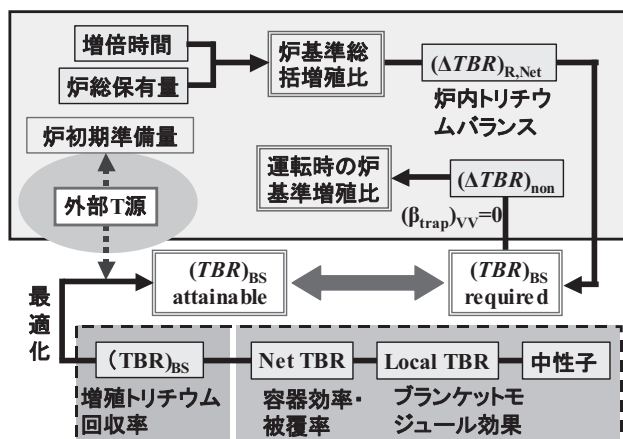


図 1 各種 T 増殖率の比較。

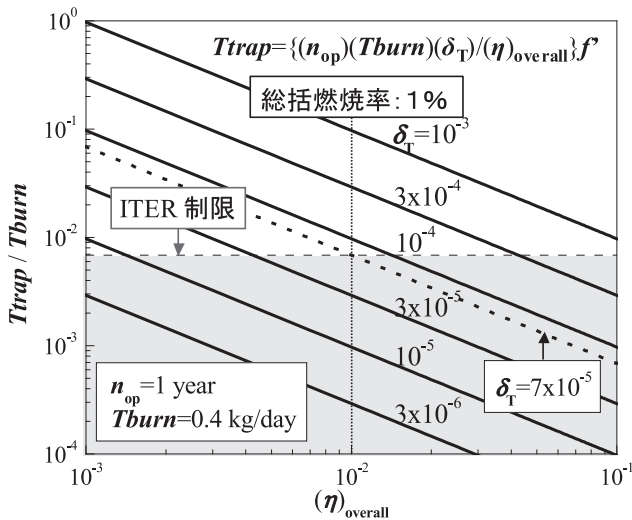


図2 一年間の核融合炉運転で再堆積層に取り込まれるT量の予測.

報告から得られる．実用炉温度条件ではこの一桁小さい値が可能といわれているので 3×10^{-5} が予測されるが，中性子の効果により捕捉率が上昇することが懸念されている．WがT取り込みや機械的強度等の特性において期待どおりの性能を示すことが確認されればこれに優ることはないが，現在の実験条件と核融合炉内条件の違いを考えると，ITERでは検討対象外とみられているグラファイトも含めて，W以外の材料選択に対応するTバランス維持の検討を行っておくことも必要であろう．

現在はRothらの報告値に依存せざるをえない状態である．A班が開発したプラズマ・壁相互作用解析コードの汎用的解析コードへの発展と分子動力学法による材料中のT挙動の解析手法の進展が期待されるゆえんである．

なお，T捕捉率が小さく一年後の捕捉量が一年間の燃焼量の0.5%以下の程度であると捕捉量そのものが小さいため（図2の条件では1年間で0.73 kg）再堆積層からのTの毎年の回収はTバランスの観点からは効果的ではなくなる．しかし数年間の運転で累積捕捉量が炉サイトインベントリ制限値を超える場合は，やはり効果的な回収対策の開発やITERでは1 kgと設定した真空容器の保有制限値についてのこれからの議論は必須である．

以上の検討からわかるようにT増殖比の議論にはA班で行われてきたプラズマ・壁相互作用についての研究成果の充実とC班で行われてきた燃料循環システムを対象とする研究成果の定量的充実がともに不可欠である．

さて，ブランケットシステムに必用とされるT増殖率 $(TBR)_{BS \text{ required}}$ の計算例を再堆積層へのT捕捉率が 3×10^{-4} の場合について図3に示す．この図では次期炉用に準備すべきT（総括燃焼率1%の時総計57日の燃焼量に相当するT初期保有量を3年で準備する）に関わる要求増殖率が曲線(1)で，保有インベントリのベータ崩壊量に対処するための増殖率が曲線(2)で，透過損失に対応すべき増殖率が曲線(3)で，再堆積層に取り込まれるTに対応すべき増殖率が回収しない場合については曲線(4)で，また毎年90%の回収を行う場合については曲線(5)で示されて

いる．達成可能増殖率 $((TBR)_{BS \text{ attainable}})$ が1.05であるならば，Tバランスが成立するためには，90%の回収を行う時で総括燃焼率は5.7%以上，回収を行わない条件では10.3%以上が必要という数値がこの図から得られる．

ここで $(\eta)_{\text{overall}}$ は燃焼量を容器への総供給T量で除して得られるTの総括燃焼率で，真空容器に供給されたTが核燃焼コア部に到達するまでの効率が含まれるためローソン条件から得られるプラズマコアにおけるバーンアップよりは小さくなる．残念ながら総括燃焼率とバーンアップの比は現在未確認であるが球形トカマク炉の概念設計において1/10程度という予測値が使われている[9]．粒子閉じ込め時間がエネルギー閉じ込め時間の3倍程度であると，ローソン条件から得られるブレークイーブン時のバーンアップは，20 keVのプラズマ温度で10%程度と求められるので，図3の条件ではTバランスの成立する燃焼率が達成されない可能性がある．

一般にトカマク炉全体をブランケットで覆うことはできず，プラズマ装置設計の観点から与えられるブランケット被覆率は0.75程度とみられている[10]が，被覆率が達成可能増殖率に与える効果は大きい．

図4に示されるように被覆率が0.75の時に1.05の増殖率が得られるとすると，プラズマ制御法の最適化等で0.77の被覆率が許容される場合，達成可能増殖率は1.078に増加する．図3に示した条件で達成可能増殖率が1.078になると90%の回収を行う時で総括燃焼率は0.9%以上，回収を行わない時で1.7%以上がTバランスを維持するための総括燃焼率として必要と求められ，達成可能増殖率が1.05の時に比べて大幅に緩和された値になる．

今後Tバランスの成立を容易にするためには燃料システムや真空容器内のT挙動の把握に基づき求められるT増殖率への要求値 $(TBR)_{BS \text{ required}}$ の低減化対策とプラズマ制御の最適化に基づく達成可能増殖率 $(TBR)_{BS \text{ attainable}}$ の増加対策の両方が必要である．このためには今後のプラズマ，材料，中性子，熱およびT研究者間の密接な協力と総合的な炉設計的議論が必要であろう．

主としてA班やC班の若手の研究者で行われた分子動力学法による過酷条件下のT挙動のミクロ視点からの追求も

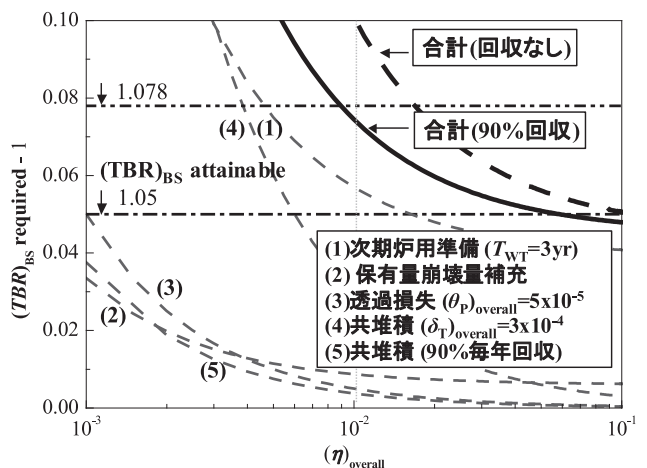


図3 必要T増殖率 $(TBR)_{BS \text{ required}}$ と総括燃焼率.

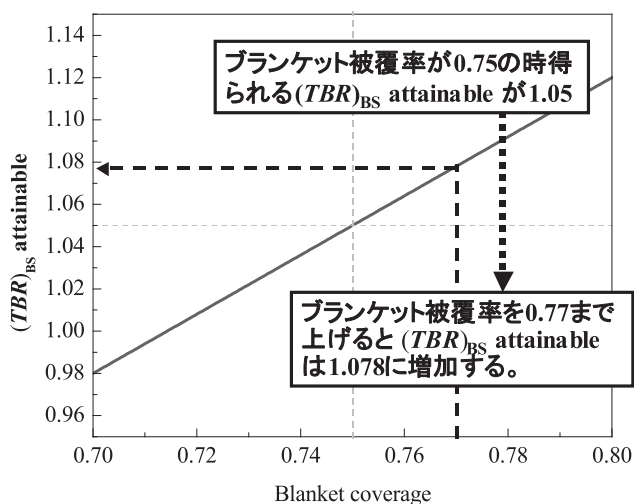


図4 ブランケット被覆率の達成可能増殖率への効果。

実用炉内のT挙動の予測に有力な手段となることが期待される。

なお今回の特定研究では取り上げられなかったが、最初

に作られる核融合実用炉のT初期インベントリーは核融合以外の方法での準備が要請される。効率的な外部T源の開発と運用は、炉のTバランスの確保と相俟って核融合炉の実用化にあたって解決しておくべきこれからの必須課題の一つである。

参考文献

- [1] M. Enoda *et al.*, Nucl. Fusion **43**, 1837 (2003).
- [2] M. Nishikawa and T. Tanabe, Fusion Eng. Des. **85**, 987 (2010).
- [3] M.A. Abdou *et al.*, Fusion Technol. **9**, 250 (1986).
- [4] Y. Asaoka, K. Okano, T. Yoshida and K. Tomabechi, Fusion Technol. **30**, 853 (1996).
- [5] J. Roth *et al.*, J. Nucl. Mater. **390-391**, 1 (2009).
- [6] M. Nishikawa, Fusion Sci. Technol. **57**, 120 (2010).
- [7] M. Nishikawa, Fusion Sci. Technol. **59**, 350 (2011).
- [8] M. Nishikawa, Fusion Sci. Technol. **60**, 1071 (2011).
- [9] Y. Nagayama *et al.*, IEEJ Trans. FM A132, 555 (2012).
- [10] K. Tobita *et al.*, Nucl. Fusion **49**, 075029 (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

3. 炉内トリチウム

上田良夫, 大宅 薫¹⁾, 芦川直子²⁾, 伊藤篤史²⁾, 小野忠良³⁾, 加藤太治²⁾, 川島寿人⁴⁾, 河村学思²⁾, 剣持貴弘⁵⁾, 斎藤誠紀⁶⁾, 清水勝宏⁴⁾, 高木郁二⁷⁾, 高山有道²⁾, 滝塚知典⁴⁾, 田中康規⁸⁾, 田辺哲朗⁹⁾, 藤間光徳¹⁰⁾, Tolstikhina Inga Yu.¹¹⁾, 富田幸博²⁾, 仲野友英⁴⁾, 中村浩章^{2,6)}, 中村 誠⁴⁾, 畑山明聖¹⁰⁾, 星野一生⁴⁾, 本間裕貴¹⁰⁾, 吉田雅史⁹⁾, 和田 元⁵⁾

大阪大学, ¹⁾徳島大学, ²⁾核融合科学研究所, ³⁾岡山理科大学, ⁴⁾日本原子力研究開発機構, ⁵⁾同志社大学,

⁶⁾名古屋大学, ⁷⁾京都大学, ⁸⁾金沢大学, ⁹⁾九州大学, ¹⁰⁾慶應義塾大学, ¹¹⁾Russian Academy of Sciences

(原稿受付: 2012年7月2日)

Keywords:

tritium, retention, plasma facing materials, carbon, tungsten, mixed ion irradiation, radiation damage, JT-60U, chemical sputtering, dust, impurity transport, material mixing, molecular dynamics, first principle, integrated modeling

3.1 炉内トリチウム研究の総括

炉内トリチウム (T) 研究は、プラズマ材料相互作用という研究分野と密接につながっている。この分野では、エッジプラズマと炉壁材料の相互作用基礎過程、壁材料原子の損耗とプラズマ中の輸送や再堆積、およびそれがグローバルな燃料粒子挙動に与える影響等が対象となる。現実の核融合炉システムにおけるこれらの現象は、きわめて多くの要因が関係する複雑でかつ非線形な現象であり、これまで多くの研究が行われているにもかかわらず、まだ未解決の課題が多くある。しかしながら、Tに係わる安全性や経済性を評価する上では、きわめて重要な研究であり、本領域研究によりさらに研究を促進するとともに、将来に向かって高いレベルで研究を継続するために、研究体制の構築を進めてきた。本プロジェクトレビューではこれらの成果の概要を紹介するとともに、いくつかのトピックについて詳しく説明を行う。

実験研究を担当した A01班は、核融合炉内複雑環境における T 蓄積挙動の解明とその除去法の開発を目的とした。核融合炉環境においては、壁表面に複数種のイオン (燃料イオン, ヘリウム灰イオン, 壁不純物イオン (炭素 (C), タングステン (W) など), エッジプラズマ冷却ガスイオン (ネオン (Ne), アルゴン (Ar) など) や中性子が同時に入射し、またイオンはエネルギー分布を持ち、表面に平行に近い方向から入射する。このような複雑で特殊な環境下での現象を解明することが核融合炉内 T 蓄積現象の理解とその制御のために重要である。A01班の具体的なテーマと

しては、イオン同時照射環境 (重水素 (D)・ヘリウム (He), D・C) における水素同位体蓄積・透過挙動, 高エネルギーイオンで損傷を与えた W 中の水素同位体蓄積, 高密度プラズマ照射によるダスト粒子の生成と水素同位体蓄積, JT-60U トカマクプラズマ装置における炭素壁の損耗・輸送・再堆積の研究と水素同位体蓄積に与える影響, および壁材料中の水素同位体除去をテーマとして研究を進めた。その結果, D と He, あるいは D と C の混合イオン照射下では, W 壁材料中の D 透過特性が不純物イオンのない場合に比べ大きく変化することを見出した。この内容は, 3.2 で説明している。さらに, 中性子照射により壁材料は損傷をうけ, T の蓄積に大きな影響を与える。本プロジェクトでは, 高エネルギーイオン照射により, 壁材料中に損傷を与えて中性子損傷を模擬し, 水素同位体の蓄積に与える影響を調べた。この内容は 3.3 で説明している。さらに実機における壁材料の損耗・輸送・再堆積, およびこの水素同位体蓄積に与える影響では, JT-60U トカマク装置において詳細な研究を行い, 実機での水素同位体蓄積挙動に対する総合的な研究とその研究を基礎とした ITER における T 蓄積量の評価を行った。この内容は 3.4 で説明している。

理論・シミュレーション研究を担当した A02班は、核融合炉の T 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を目的とした。ダイバータ・境界層プラズマとプラズマ・壁相互作用の国内および海外シミュレーションコード開発者の連携研究によって、コード間ベ

3. In-Vessel Tritium

UEDA Yoshio, OHYA Kaoru, ASHIKAWA Naoko, ITO M. Atsushi, ONO Tadayoshi, KATO Daiji, KAWASHIMA Hisato, KAWAMURA Gakushi, KENMOTSU Takahiro, SAITO Seiki, SHIMIZU Katsuhiro, TAKAGI Ikuji, TAKAYAMA Arimichi, TAKIZUKA Tomonori, TANAKA Yasunori, TANABE Tetsuo, TOMA Mitsunori, TOLSTIKHINA Inga Yu., TOMITA Yukihiro, NAKANO Tomohide, NAKAMURA Hiroaki, NAKAMURA Makoto, HATAYAMA Akiyoshi, HOSHINO Kazuo, HOMMA Yuki, YOSHIDA Masafumi and WADA Motoi

corresponding author's e-mail: yueda@eel.osaka-u.ac.jp

ンチマークによる各素過程モデルの評価、基礎実験データに基づくモデルの精密化、素過程コードの統合と実機実験データ解析によるコードの評価・性能向上を図りつつ、核融合炉実環境下での燃料Tの炉内蓄積挙動に関わるシミュレーションコードを開発した。これにより炉内T蓄積量を評価し、その低減、除去に関わる基礎物理を明らかにした。水素同位体イオンやHeイオンと炭素材やWの相互作用については、二体衝突近似法に加えて分子動力学法を用いたシミュレーションコード開発や第一原理計算を用いて明らかにした。また、水素イオンの壁材料表面での反射現象やプラズマ中での荷電交換断面積の評価、ダスト粒子のエッジプラズマ中での挙動評価など、不純物のエッジプラズマ中での輸送評価に重要な結果を得た。これらの内容は、3.5.1で説明されている。さらに炉心プラズマ、スクレイプオフ層、ダイバートプラズマ、およびプラズマ対向壁を含む系のTや壁材料輸送などを総合的にシミュレーションするための統合コードの作成を行った。この内容は、3.5.2で説明されている。そして、ベリリウム(Be)やCを含む再堆積層中のT蓄積やW中のT蓄積挙動のシミュレーションを行い、ITER炉内のT蓄積量評価やその除去についての結果を得た。この内容は、3.6で説明されている。

これらの研究を通じて、次期トカマク装置の壁材料選択やシナリオ策定に有用な知見を提供するとともに、世界をリードする周辺プラズマ・材料相互作用統合コードの開発に成功し、精度の高い炉内T蓄積量の評価を可能にした。

3.2 タングステンへの混合イオン照射影響

W中のTの蓄積や透過については、これまで水素同位体プラズマ、あるいはイオンビームを照射して主に調べられてきた[1-4]。しかしながら、プラズマ中には核燃焼により存在するHe、壁材料が損耗して混入した不純物(CやW)、エッジプラズマ冷却のために注入するガス(Ne, Ar)などが存在する。これらの不純物イオンが燃料イオンと同時に入射することで、表面混合層(WC等)や表面改質層(Heバブル層)などが形成され、これが水素同位体の挙動に大きな影響を与えることが近年知られるようになった。例えば、Heイオンが同時照射された場合には、リテンションが大幅に減少したり、プリスタリングが抑制されるなどの現象が起こることがわかってきた[5-7]。また、炭素イオンが同時照射されると、プリスタリングが促進されることもわかっている(C堆積が起こらない、損耗条件にて)[8]。しかしながら、これらは同時照射後の試料分析より得られた結果であり、実際にイオンが同時照射されているときに、水素同位体がどのように振る舞うかについては明確ではない。このようなイオン照射(プラズマ照射)時のダイナミックな水素同位体挙動の解明は、燃料粒子の壁でのリサイクリングや、核融合炉におけるTの冷却材への透過現象などの評価に重要であるだけでなく、モデリングを行う際にも有用な結果を与える。

そこで本研究では、W箔にDとHe、あるいはCの混合イオンビームを、不純物イオン割合や、試料温度、および

入射フラックスを変化させて測定し、表面に形成される改質層が水素同位体挙動に与える影響を定量的に評価し、その結果をモデル化することで、ITERや原型炉におけるW壁材料中のT挙動の評価を行うことを目的とした。実験条件は、イオンビームエネルギーが1 keV、イオンフラックスが $\sim 1 \times 10^{20} \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ 、試料温度は最高1050 Kである。このフラックスや温度条件は、第一壁表面の状況に非常に近いものであり、本研究のデータはブランケット第一壁における水素同位体挙動を評価するために外挿をする必要がほとんどない。

図1にDとHe(2%)、およびDとC(3%)の混合イオンビーム照射による定常状態でのD透過フラックスの温度依存性を示した。D単独照射の場合は、透過フラックスの温度依存性は小さく(600 K~1000 K)、ほぼ一定値を示す。しかしながら、D/He混合照射の場合は、D単独に比べて透過フラックスは小さくなり、特に800 K程度では1/10程度まで減少する。800 K以下でも測定は行っているが、測定限界程度以下であり、800 K以下ではさらにHeの効果が大きいことが示唆される。一方で、D/C混合照射の場合は透過フラックスは増加する。ただし、この時Cの堆積は起こらず、Wの表面はいわゆる損耗条件にあることに注意する必要がある。したがって、イオン照射側の表面には常にWとCの混合層が存在している。この混合層がDの表面からの脱離を抑制する方向に働き、その結果表面近傍のD濃度が上昇し、背面への透過フラックスの増加につながる。Heの場合は、Heバブルと呼ばれるナノメートルサイズのHeが封入された空洞が表面近傍にできることが、TEM(透過型電子顕微鏡)による分析で明らかになっている。このHeバブル層が形成されることで逆に表面からのD脱離を促進していると考えられる。

このように表面改質層(WC層やHeバブル層)が形成されることで、Dの脱離・透過挙動に大きな影響を与えるメカニズムを検討するために、透過フラックス ϕ_p の入射フラックス ϕ_i 依存性を調べた。D/He混合イオン照射の場合を図2に、D/C混合照射の場合を図3に示した。図2よ

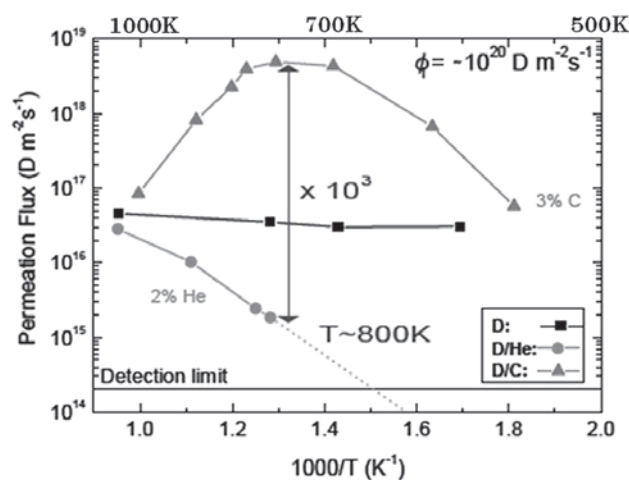


図1 重水素イオンビーム(■), D/He混合イオンビーム(●), D/C混合イオンビーム(▲)をW箔(30 μm厚)に照射したときの透過フラックスの温度依存性。

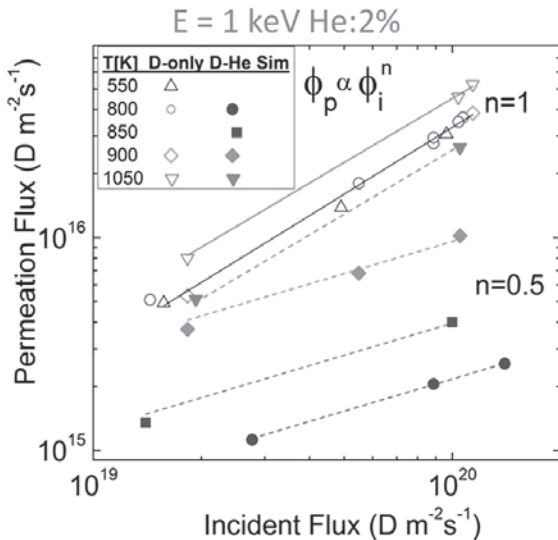


図2 D/He 混合イオン照射時のD透過フラックスの入射フラックス依存性。Dのみの照射は、“D-only”（白抜きシンボル）、混合照射は、“D-He Sim”（塗りつぶしたシンボル）で表している。

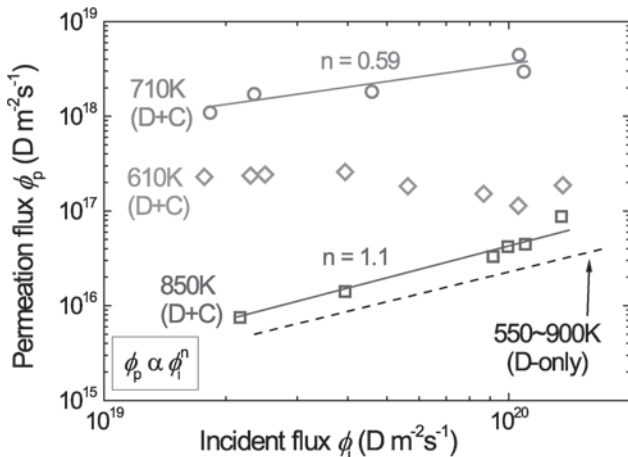


図3 D/炭素混合イオンビーム照射時の透過フラックスの入射フラックス依存性。

り、D 単独照射の場合は、透過フラックスが入射フラックスに比例し、D/He 混合照射の場合は、透過フラックスは入射フラックスの 1/2 乗に比例することが明らかになった。この結果を透過現象を理解するときに広く用いられている Brice と Doyle のモデル [9] を用いて検討した。このモデルによれば、入射されたイオンは、入射面と透過面に拡散し、その後表面での再結合を経て、D 分子として放出される。その際、拡散過程 (D) と再結合過程 (R) のどちらが律速になるかにより、フラックス依存性が変わる。入射側と透過側のどちらも拡散律速の場合 (DD と表記) は、 $\phi_p \approx \phi_i$ となり、入射面のみ再結合律速になった場合 (RD と表記) は、 $\phi_p \approx \phi_i^{0.5}$ となる。したがって、He を添加した場合の透過挙動より、イオン入射側の表面が拡散律速（重水素のみ、DD）から、再結合律速（D/He 混合照射、RD）へ変化したことが示唆される。また、He を加えた場合でも、透過の減少がほとんどない 1050 K では $\phi_p \approx \phi_i$ であり、透過フラックスの増減とその入射フラックス依存性が対応

していることがわかる。

He を同時照射した試料について、TEM を用いて表面の深さ方向の微細組織観察を行った結果では、高密度の He バブル層が形成されていることがわかった。その厚さは、約 30 nm にも及び、イオンの飛程 10 nm 程度よりも厚く、He が入射位置から拡散してバブルを形成したことが示唆される。また、He バブルは互いに結合して、表面につながる空洞や亀裂のような構造を形成しており、このような構造が重水素の表面からの脱離を促進している可能性がある。この場合、入射された重水素イオンは、短い距離を拡散してこの空洞の内壁に到達し、そこで再結合して脱離することになり、DD から RD への律速過程の変化と矛盾しない。ただ、これは現象論的考察なので、今後さらに研究を進め脱離促進のメカニズムを明確にする必要がある。

一方、炭素を添加した場合は、フラックス依存性が温度により異なるが、その様子は He 添加の場合と大きく異なる。図 1 よりわかるように、D 透過量は 700 K ~ 800 K 付近で最大となる。これを考慮して、高温側 (850 K)、ピーク付近 (710 K)、および低温側 (610 K) で、入射フラックス依存性を調べた。その結果、高温側ではほぼ比例 ($\phi_p \approx \phi_i^{1.1}$)、ピーク付近ではほぼ平方根に比例 ($\phi_p \approx \phi_i^{0.59}$)、そして低温側では、ほぼ依存性なし、という結果が得られた。これらの結果は、核融合炉第一壁の重水素挙動を評価するために、有益な結果である。しかしながら、これらの変化のうち、ピークより高温側では、一応、Brice と Doyle のモデルで説明できるが、低温側の入射フラックスに対する依存性がないという結果はこのモデルではまったく説明できない。したがって、もっと進んだモデルが本現象を理解するためには必要である。少なくともピーク温度以下では、Brice と Doyle のモデルで考慮されていない現象があるといえ、これは今後の課題である。

以上のように、プラズマ中に含まれた不純物 (He 灰と C) は、その割合が数%程度であっても表面に混合層や改質層を形成することで、D の脱離に大きな影響を及ぼし、その結果内部への T の流れに大きな影響を与えることがわかった。また、その影響は数行にも及ぶ大きなものであり、核融合炉第一壁中の T 蓄積や透過挙動を考える上で、プラズマ中の不純物の影響を正しく理解することが重要であることを本プロジェクトははじめて示した。

3.3 イオン照射損傷が水素同位体挙動に与える影響

3.3.1 トリチウムインベントリ評価に必要なパラメータ

通常、金属中の水素同位体は固溶または析出した状態で存在するが、高速中性子などにより照射損傷が生じると、固溶サイトよりも深いポテンシャルが形成されて水素 (H) が捕捉 (トラップ) される。プラズマ対向壁では H が析出するような材料は使用しないから、T インベントリを評価するには固溶と捕捉を考えればよい。系が平衡の場合、両者の関係は

$$fNC_t = C_s(C_0 - C_t), \quad (1)$$

で表される[10]. ここに f は平衡定数, C_s と C_t はそれぞれ, 固溶している H と捕捉されている H の濃度, N と C_0 はそれぞれ, 固溶サイトと捕捉サイトの密度である. また, f はトラップエネルギー E_t を用いて

$$f = \mu \exp(-E_t/kT), \quad (2)$$

と表される. μ は前項, k はボルツマン定数, T は温度である. 片方から水素が供給される対向壁では平衡にはならないが, 定常状態であれば準平衡が成り立ち, これらの式が適用できると考えられる.

インベントリー評価の手順としては C_s を与え, 適切な f と C_0 から C_t を求めることになる. 一般に C_s は照射に依らない. したがって, 照射影響に関しては, どのような f の捕捉サイトがどの程度の量 C_0 だけ生成するかを調べることが重要である. 本節では中性子の模擬として高速イオンを照射し, 核反応法によって D 濃度を測定し, f や C_0 を求めた結果を報告する.

3.3.2 ステンレス鋼

イオン照射によって多量の H を捕捉するようになる. 0.8 MeV-He イオンを $1.5 \times 10^{21} \text{ m}^{-2}$ 照射した 304 ステンレス鋼試料に捕捉された D の平均濃度 C_t の温度依存性を図 4 に示す [11]. この実験では, 核反応法による D を測定している間も試料の片面を D プラズマにさらし続けており, 捕捉されている D と溶解している D との間に平衡が成り立っていると考えられる. 溶解している D の濃度 C_s は核反応法で測定できないほど低いため, 試料中を透過する D のフラックス J から,

$$J = DC_s/L, \quad (3)$$

の関係式を用いて求めた. 式 (3) はいわゆる拡散律速の状態を表しており, D は拡散係数, L は試料の厚みである. 拡散律速であることは, 非定常透過曲線を解析して確認した. 低温では C_s に対する C_t の比は大きく, 図によると 450 K では 40 であった. このように, 400 K ~ 600 K にお

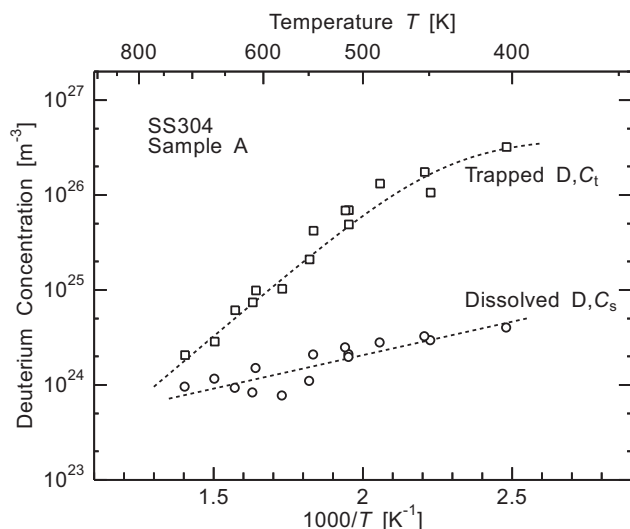


図 4 He イオンを照射した 304 ステンレス鋼中に捕捉された D の平均濃度 C_t と溶解している D 濃度 C_s の温度依存性 [11].

いては C_t は C_s よりも十分に大きく, インベントリーの大部分は捕捉された H であると考えられる.

C_s に対する C_t の比が大きい理由の 1 つは捕捉サイトが深いためである. H や He を照射した試料における C_s と C_t から式 (1) を用いて平衡定数を求めると, 図 5 [11] に示すような値が得られ, トラップエネルギー E_t は 0.28 eV であった. 捕捉サイトから H が脱トラップするときのエネルギーはトラップエネルギーと拡散の活性化エネルギー (ステンレス鋼では 0.55 eV) の和 0.83 eV であり, 比較的大きな値である. もう 1 つの理由は, ステンレス鋼からは H が放出されやすく, C_s が小さいことである.

H イオンを照射しても捕捉サイトは生成し, その平衡定数は He イオン照射の場合と同じであったこと, 捕捉された D の深さ方向分布は弾き出し損傷の分布に一致したことから, 捕捉サイトは損傷起因であり, C_0 は損傷量の関数として表すことが妥当と考えられる. 図 6 [11] に示すように, 少なくとも 2 dpa までは C_0 は損傷量に比例して増加し, 弾き出しエネルギーを 25 eV とすると, 捕捉サイトの生成率 (損傷原子数に対する捕捉サイト数の比) は 0.0068 (He 照射) と 0.00051 (H 照射) であった. He 照射によって生成した捕捉サイトは 700 K でも安定に存在するが, H 照射の場合は 490 K で 10 時間加熱すると消滅した. He 照射では He

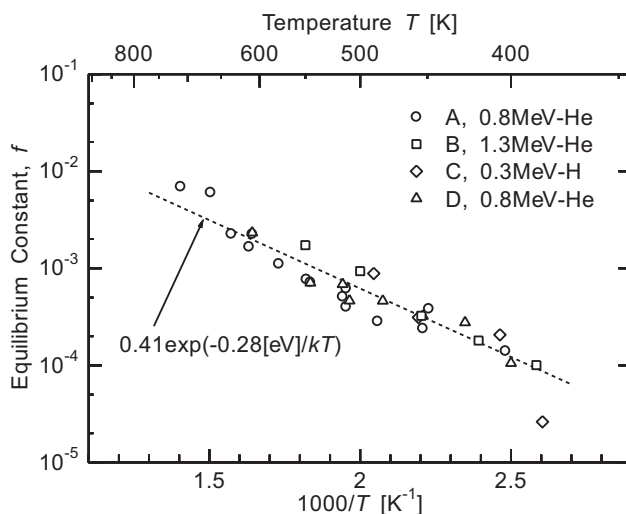


図 5 H および He イオンを照射した 304 ステンレス鋼に生成した捕捉サイトの平衡定数 f [11].

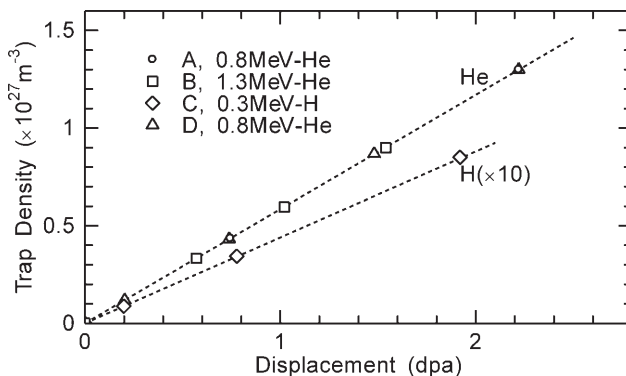


図 6 H および He イオンを照射した 304 ステンレス鋼に生成した捕捉サイトの密度の損傷量に対する依存性 [11].

が捕捉サイトを安定化していると考えられる。

以上をまとめると、ステンレス鋼では、最初は捕捉サイトが存在しないこと、照射によって生成しても高温で消滅することからインベントリーは少ないと考えられるが、Tが崩壊すると ^3He が生成するので、運転期間が長くなると捕捉サイトは消滅しにくくなり、インベントリーが増加する可能性がある。

3.3.3 フェライト鋼

低放射化鋼であるF82Hについて、3.3.2のステンレス鋼と同じ実験を行った。フェライト鋼もステンレス鋼と同様に、照射によって多量のHを捕捉するようになる。図7[12]に示すように、未照射ではほとんどDが存在しなかったが、照射するに従って捕捉されるDが増加した。 C_s に対する C_i の比はステンレス鋼の場合よりもさらに大きく、例えば450 Kでは800にも達した。 C_s がきわめて小さいことが理由である。平衡定数 f はHe照射でもH照射でも同じ値となり、 $0.25 \exp(-0.66[\text{eV}])$ であった。照射したフェライト鋼のトラップエネルギーを求めた例はみあたらず、重要な情報が得られた。脱トラップのエネルギーは0.73 eVであり、ステンレス鋼よりも少し小さい。

弾き出しエネルギーを20 eVとすると、捕捉サイトの生成率は0.0046 (He照射)と0.0014 (H照射)であり、He照射ではステンレス鋼の場合よりもやや小さく、H照射では大きな値となった。捕捉サイトの消滅挙動はステンレス鋼と似ており、He照射では700 Kでも消滅しないのに対して、H照射では600 Kで27時間保持すると捕捉サイトの大部分が消滅した。Heイオンを照射すると捕捉サイトが安定化すると思われる。

以上のように深さや生成率に若干の違いはあるものの、F82Hに生成する捕捉サイトの性質はステンレス鋼とよく似ており、Tインベントリーも同じ傾向を示すと考えられる。

3.3.4 タングステン

Wの特徴は融点が高いことである。照射によって生じた格子間原子が移動を始める目安を融点の0.15倍と仮定する

と、鉄では270 Kであるのに対し、Wでは540 Kである。したがって、Wでは比較的高い温度でも欠陥が成長し、捕捉サイトが変化する可能性がある。

3.3.2と同様の実験をWについて行った。イオン照射前のD濃度は、図8[13]のような温度依存性を示したが、400 Kで0.8 MeV-Heイオンを照射したところ、濃度が減少した。この照射後の濃度は、本実験と同一条件のプラズマ照射下でW中に溶解しているDの濃度 C_s にはほぼ等しい[14]。W試料中には最初、何らかの捕捉サイトが残存していたが、He照射によってこの捕捉サイトが消滅したのではないかと考えられる。

次に試料の温度を上げると500 K付近からD濃度が上がり始め、600 K付近で極大値を示した。その後は照射前と同じような温度依存性であった。一連の実験の間、試料はDプラズマにさらし続けていた。Hイオンを照射しても、Heイオンと同様に500 K付近で捕捉サイトが生成した。実験結果から示唆されることは、500 Kより高温では照射欠陥が熱的に移動して別の欠陥となり、それが水素の捕捉サイトとして働くこと、捕捉サイトは700 Kでも安定であること、である。W中の一部の格子間原子は500 Kで集合し、格子間原子のクラスタを生成することが知られており、捕捉サイトはこのクラスタに起因するものであると考えられる。

式(1)と式(2)を用いて平衡定数の温度依存性からトラップエネルギーを求めると約0.7 eVとなった。脱トラップのエネルギーは1.1 eV程度であり、ステンレス鋼やフェライト鋼よりも深い捕捉サイトが生成した。このことは図4と図8を比較してもわかる。ステンレス鋼では C_i が450 K以上で減少しているのに対し、Wでは600 K以上で漸く減少し始めている。

弾き出しエネルギーを90 eVとすると、0.66 dpaにおける捕捉サイトの生成率は0.012であった。このときの照射温度は400 Kであるが、573 Kで照射すると生成率は0.019と大きくなった。高温では生成した欠陥が蓄積されずに移

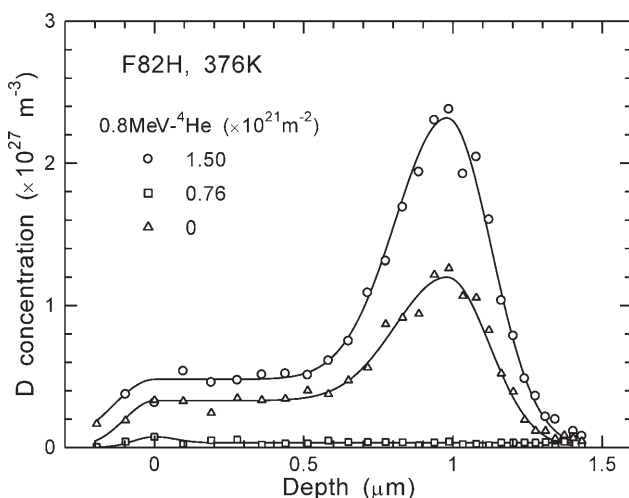


図7 Heイオンを照射したフェライト鋼F82H中のDの深さ方向分布[12].

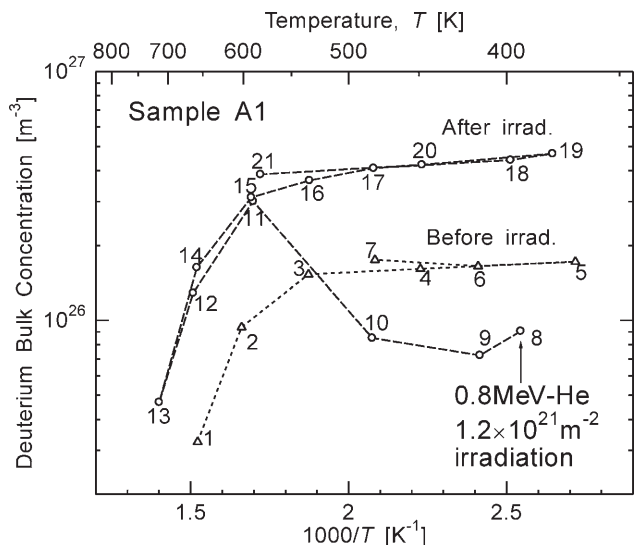


図8 He照射したW中のD濃度の温度依存性。数字は温度履歴の順を示す[13].

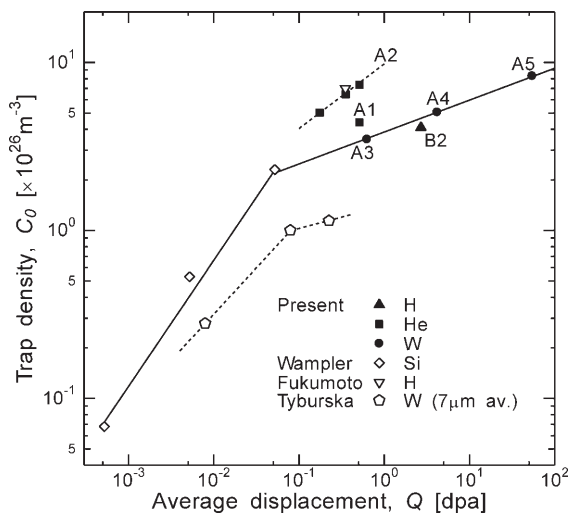


図9 イオン照射したW中に生成した捕捉サイトの数と損傷量との関係[15].

動するため、クラスタが生成されやすいことが原因と考えられる。

Wにおける捕捉サイトの生成率は一律ではない。図9 [15]に示すように、平均の損傷量が0.1 dpaまでは一定であるが、それ以上では徐々に小さくなり、飽和傾向を示す。図中の破線が実線から外れているのは、高温で照射したり、平均濃度を求める範囲が異なっていたためである。実線で示したデータは照射イオンに依存しないことから、中性子を照射しても同じ傾向を示すと考えられる。Wにおける捕捉サイト密度 C_0 の予測は可能であることがわかった。

3.3.5 溶解している水素同位体濃度

壁の温度が低いとトラップエネルギーが大きい場合は、ほぼすべての捕捉サイトがHで占められるため、インベントリーは捕捉サイトの数に等しくなる。しかし一般には式(1)に従って、ある割合の捕捉サイトがHで占められることになり、その割合を決定するのが平衡定数 f と溶解サイトの濃度 (固溶している水素の濃度) C_s である。図10[10]はイオン照射したニッケルにおける C_s とインベントリー $C_m (=C_t + C_s)$ の関係を表しているが、 C_m は溶解しているHの濃度 C_s にかかなり依存していることがわかる。つまり、インベントリー評価には C_s を知ることが欠かせない。

残念ながら事前に C_s を正確に予測することは困難である。プラズマにさらされた壁では C_s は再結合定数 k_r で決定されるが、例えば図11[16]に示すように、 k_r は装置によって何桁も異なっているからである。再結合定数を個々の過程に分解して、各速度の関数として表す[14]と、この差は表面不純物などの影響に起因することが理解できる。今後は、不純物と速度の関係について定量的に把握することが重要である。

3.4 JT-60Uにおける壁材料の損耗・再堆積と水素同位体リテンション

3.4.1 炭素の発生・輸送と水素同位体リテンション

炭素材は真空容器保護タイルとして優れた耐熱負荷性能を持つが、Hとの化学反応により炭化水素を発生して損耗

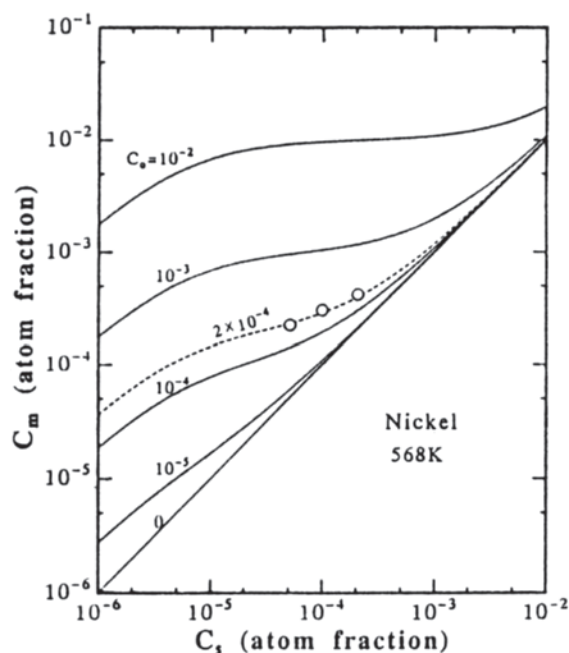


図10 溶解しているHと平衡にある捕捉されているHの濃度[10].

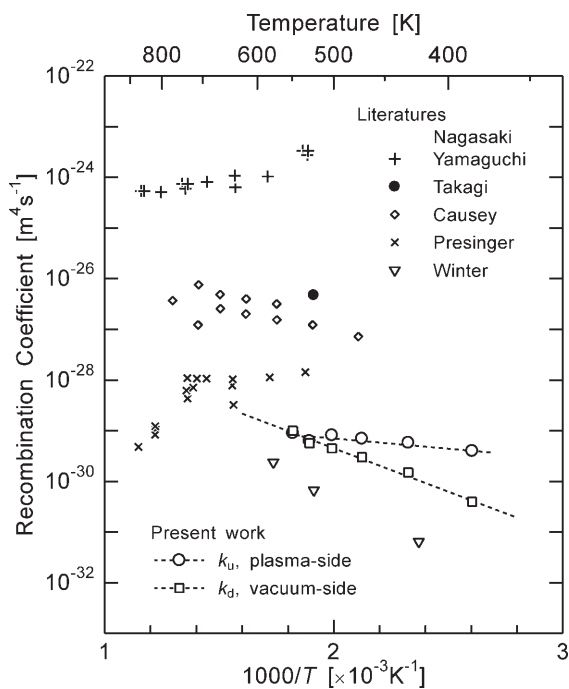


図11 ニッケル上のH再結合定数[16].

するなどの欠点を持つ。損耗によってタイルから放出されたC/炭化水素はプラズマ中を輸送され、再びタイル上に堆積するときに多量のHを含む堆積層を形成する。実験終了後にタイルを取り出し、タイル上の堆積層を分析することによって、Cの堆積しやすい場所および堆積層中の水素同位体の含有量などが明らかになりつつある。しかし、それに比べると、Cはどの場所のタイルから放出され、どのような経路を経て堆積場所に到達したか、といったプラズマ中の輸送に関する知見は十分ではない。この課題に対し本研究では、放電中のプラズマの計測結果を併せ、タイル

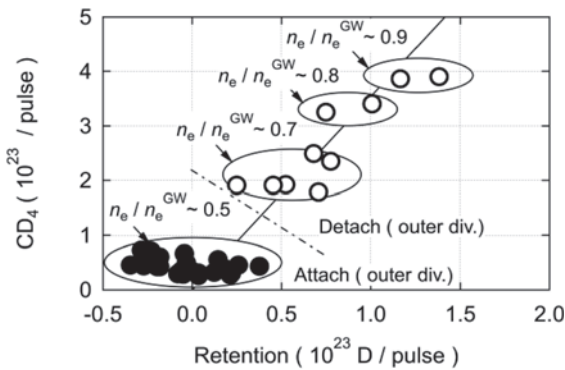


図12 1放電あたりの重水素蓄積量に対するメタン発生量。 n_e/n_e^{GW} はグリーンワルド密度に対する電子密度の割合を示す。文献[17]より修正の上、転載。

の分析結果の解釈をすすめてきた。

図12には、日本原子力研究開発機構 (JAEA) のトカマク装置 JT-60U の H モード・D プラズマの放電中に真空容器内に蓄積した D 量とメタンの発生量の関係を示す[17]。ここでは D 蓄積量を粒子バランス法で、およびメタンの発生量を分光測定による CD スペクトラルバンドの強度から導出した。粒子バランス法では真空容器を境界とした粒子の流入と流出の差分から真空容器内部の粒子残留量を導出する。ここでは、粒子の供給($\Phi_{injected}$)はガスパフと中性粒子ビームによって、排出(Φ_{pumped})は排気装置によってなされ、これらは測定可能であるので、それらの差分から真空容器内部の重水素蓄積量(Φ_{vessel})を導出することができる。

$$\Phi_{vessel} = \Phi_{injected} - \Phi_{pumped} \text{ (D/s)}. \quad (4)$$

図12に示すように、主プラズマの密度がグリーンワルド密度の50%のときには外側ダイバータプラズマ (ダイバータの形状は図13を参照) がダイバータ板と接触しており (接触状態)、D 蓄積量の増加は少なくメタンの発生量も少ない。主プラズマの密度がグリーンワルド密度の70%を越えると外側ダイバータプラズマの温度低下のためプラズマ中で D イオンと電子が再結合しプラズマの中性化が進行して外側ダイバータプラズマはダイバータ板に接触しない状態 (非接触状態) になる。非接触状態では、主プラズマの密度の上昇にしたがって D 蓄積量とともにメタンの発生量が増加する。この実験結果から、外側ダイバータプラズマが非接触状態の時にメタンの発生量が増加し、メタンに由来する不純物が再堆積するときに D を吸蔵するという機構が真空容器内の D 蓄積量を増加させた可能性が高い。

外側ダイバータプラズマが非接触状態にあるとき発生した炭化水素がどのような経路を経て堆積場所まで輸送されるかを調べるため、JT-60U では H モード・D プラズマの外側ダイバータプラズマを非接触化し、図13に示すように外側ダイバータにある注入口 (トラス周回方向に1箇所のみ) から炭素同位体である ^{13}C を含んだ $^{13}\text{CH}_4$ を入射した[18]。実験終了後にタイルを取り出してタイル上の ^{13}C の堆積位置や量を測定した。ここでは図13上の濃い色で塗りつぶしたタイルを分析した。図14にはこのタイル上での

^{13}C の堆積分布を示す。 ^{13}C の堆積のピークはストライク点の位置よりむしろ排気溝側に位置しており、この傾向は $^{13}\text{CH}_4$ の注入口と同一のポロイダル・セクション (図14で 0°) および、プラズマ電流方向 (トロイダル磁場と同方向) と逆および同方向に隣のポロイダル・セクション (それぞれ 20.6° および -22.3°) でも同様である。また ^{13}C の堆積量はプラズマ電流とは反対の方向に隣のポロイダル・セクション ($+20.6^\circ$) で多いが、過去の類似実験の結果 [19] では $+60^\circ$ のポロイダル・セクションでの ^{13}C の堆積量は 0° のポロイダル・セクションでのそれに対して半減したことを参考にすると、 ^{13}C の堆積分布はトラス周回方向にはあまり拡がらず、むしろ $^{13}\text{CH}_4$ 注入口の近傍のポロイダル・セクションに集中している。したがって、外側ダイバータから入射された $^{13}\text{CH}_4$ は磁力線とは無関係に図13に矢印で示すように同一あるいは近傍のポロイダル・セクションにあるほぼ正面の内側ダイバータ板に輸送される割合が高い。

$^{13}\text{CH}_4$ 注入口の正面にある内側ダイバータタイル (図13で濃い色のタイル) 上の堆積層中では軽水素の含有量が高く、Dの含有量とほぼ等しい ($\text{H}/\text{D}=0.5$) という分析結果が得られた。ここでの実験では $^{13}\text{CH}_4$ に由来する軽水素の供給流量 (Φ_H) はガスパフおよび中性粒子ビームによる重水素の供給流量 (Φ_D) に対して1%以下であった

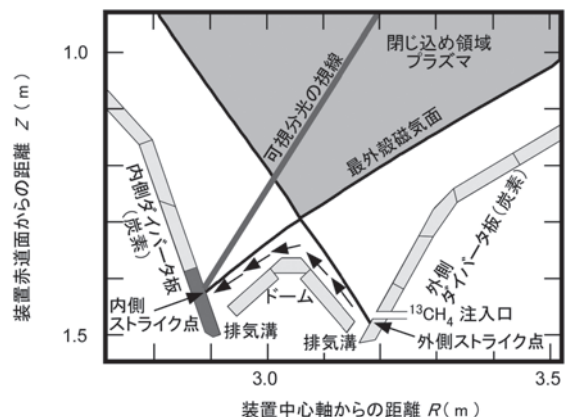


図13 JT-60Uのダイバータ領域のポロイダル断面での拡大図。濃い色で塗りつぶしたタイルを分析した。可視分光の視線は $^{13}\text{CH}_4$ 注入口と同一のポロイダル断面上にある。

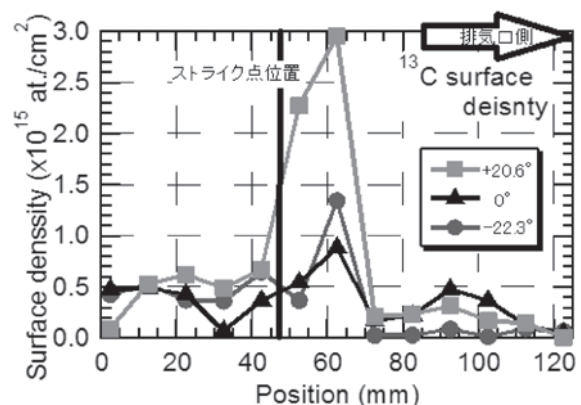


図14 ^{13}C の内側ダイバータタイル (図13に示す濃い色のタイル) 上でのポロイダル方向分布。ただし図13に示す濃い色のタイルの上端を座標原点に排気溝に向かう座標を定義した。

($\Phi_H/\Phi_D < 0.01$)。プラズマ中へ供給された軽水素と D がプラズマ中で混合して均一の密度となり、内側ダイバータタイルに到達したとすると、堆積層中の軽水素と D の割合はプラズマ中のそれと等しくしたがって、それらの供給流量比(Φ_H/Φ_D)と等しくなるはずである。にもかかわらず内側ダイバータタイル上の堆積層中では軽水素割合が非常に高いという実験結果は、内側ダイバータプラズマへ軽水素が選択的に輸送される機構が存在したことを示す。この軽水素の選択的な輸送機構とは、入射された $^{13}\text{CH}_4$ が完全に解離することなく特に複数の H 原子を含んだ炭化 H 分子、すなわち $^{13}\text{CH}_x$ ($4 \geq x > 1$) の形態での輸送と解釈するのがもっとも自然であろう。

また、図13に示す可視分光の視線で観測した D γ スペクトル線に対する H γ スペクトル線の強度比は $^{13}\text{CH}_4$ の入射中には H γ /D γ = 4 – 8 % であった。D γ および H γ スペクトル線はプラズマ中の、それぞれ、H イオンおよび軽水素イオンと電子が体積再結合した結果で放射されるため、この強度比はプラズマ中の D イオン密度 (n_{D^+}) に対する軽水素イオン密度 (n_{H^+}) の比を示す。この D イオン密度に対する軽水素イオン密度比 ($n_{\text{H}^+}/n_{\text{D}^+} = 0.04 - 0.08$) もまた、上述の D の供給流量に対する軽水素の供給速度の比 ($\Phi_H/\Phi_D < 0.01$) よりも高い。同様にこの結果も内側ダイバータプラズマへの選択的な軽水素の輸送を示唆しており、内側ダイバータプラズマへ到達した $^{13}\text{CH}_x$ ($4 \geq x > 1$) の一部が解離および電離して生成された軽水素イオンに由来する H γ スペクトル線が観測されたと解釈される。

以上から外側ダイバータプラズマが非接触状態にあるときには、入射された $^{13}\text{CH}_4$ の多くが電離されず、したがって磁力線とは無関係に同一あるいは近傍のポロイダル・セクションを CH_x などの分子状の形態で内側ダイバータタイルまで輸送された可能性が高い。図13に示すように $^{13}\text{CH}_4$ 注入口と内側ダイバータタイルの間にはドーム（炭素材）が存在する。そのため $^{13}\text{CH}_4$ 注入口から内側ダイバータタイルへの直線上の輸送は不可能であるが、ドームに衝突した $^{13}\text{CH}_4$ の一部は再放出され、再び輸送されうる。現状では、このような過程を繰り返しつやがて内側ダイバータタイルに到達すると推測している。今後、ドーム上での ^{13}C の堆積分布を調べるとともに、炭化水素の炭素材タイルへの吸着および再放出とプラズマ中の輸送を扱うシミュレーションコードによる解析によって炭化水素の輸送経路がさらに明らかになることを期待する。ダイバータでの炭化水素の輸送は、磁力線に沿った運動のスケール（装置のサイズ程度～m のオーダー）ではなく、磁力線に巻き付いた運動のスケール（mm のオーダー）でもなく、これらの中間のスケール（cm から 10 cm のオーダー）である。このようなスケールの輸送ではプラズマ壁相互作用が輸送機構を支配している可能性があり、このようなプラズマ壁相互作用とプラズマ中の不純物輸送の複合的な輸送機構の研究を今後より一層進展させていく必要があると考える。

3.4.2 タイル分析による水素同位体蓄積挙動の解明

ITER はもとより DEMO 炉や核融合炉では DT 放電が行

われるため、T の蓄積挙動には、共存する D が大きな影響を与える。これまで様々なトカマク実験装置 (JET, DIII-D, TORE-SUPRA, TEXTOR 等) で、壁への水素の蓄積の調査が行われているが、いずれも D のみの蓄積を調べたもので、D 放電の際に残っている H について調べた例はない。JT-60U でも、通常 D ビーム加熱による重水素放電 (DD 放電と略) が行われていた。しかし、一連の DD 実験の後、DD 核反応により生成したトカマク内部に滞留していた T を取り除くため、軽水素ビーム加熱による軽水素放電 (HH 放電と略) が行われた。それ故、プラズマ対向壁として使用された炭素タイル、およびその損耗によって生じた C 再堆積層には D だけでなく、H も蓄積している。そこで、JT-60U で使用されたタイルについて、ダイバータはもとより、第一壁からも、トロイダルおよびポロイダル方向の様々な位置からタイルを取り出し、炭素タイルの損耗/再堆積、および D と H の両方の蓄積の様子を調べた。また JT-60U のプラズマ対向壁には T も残留しており、その分布についても調べた。これにより、過去には行われていない D の H による置き換えだけでなく [20, 21]、水素蓄積の放電時間依存性ならびに水素蓄積の機構をも明らかにすることができた [22-24]。これに基づき、水素蓄積のモデル化を構築し、ITER がもし炭素壁を利用した場合の水素蓄積についての予測を行った [25]。

3.4.2.1 取り出したタイルの位置、プラズマ照射履歴、水素同位体蓄積量測定方法

図15に JT-60U のトロイダルおよびポロイダル方向での真空容器断面図、ならびにダイバータ部を示し、あわせて取り出したタイルの位置を示した。ダイバータ部（使用期間：'97～'99）および第一壁部（使用期間：'92～'08）で使用された炭素タイルから、放電にさらされた期間が同じもの、異なるものを様々に取り出した。取り出されたタイルは、いずれも主放電である DD 放電（中性粒子ビームによって加熱された高温プラズマ）にさらされた後、T 除去

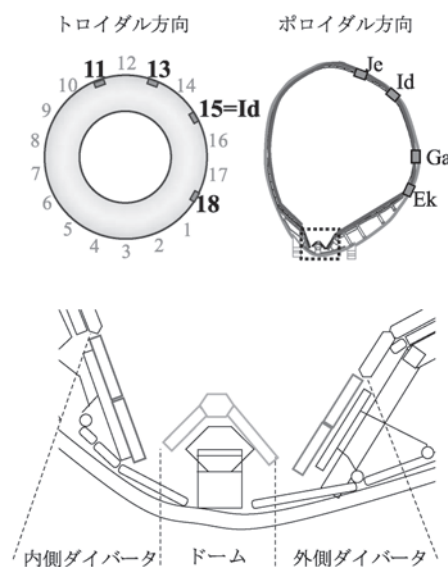


図15 JT-60U トロイダル方向およびポロイダル方向での真空容器断面図、ならびにダイバータ部。

のための HH 放電にさらされたものである。その総放電時間 (DD+HH 放電時間) は $2 \times 10^3 \sim 9 \times 10^4$ s に及ぶ。なお, JT-60U は全体が 573 K に加温されて運転されていたが [26], 放電中にはタイルはプラズマの熱負荷を受けその温度がさらに上昇した。各部でのタイルの放電中の温度はおおよそ次のとおりである; 外側ダイバータタイル (1400 K), 内側ダイバータタイル (1000 K), ドーム部 (800 K), バッフル板および第一壁タイル (700 K) [27, 28]。

採取した炭素タイルのプラズマ対向表面の損耗/再堆積の厚さについては, 走査型電子顕微鏡 (SEM) にて測定した。また, 蓄積していた水素同位体を定量するため, 炭素タイルのプラズマ対向表面および側面から, 厚さ 1 mm, 10 mm 四方の試料を切り出した。一部のタイルでは, 内部 (プラズマ対向表面から約 2 mm 深い領域) から同様の大きさのタイル試料を切り出した。各試料中の軽水素 (H) および重水素 (D) の定量には昇温脱離法 (TDS) を, T の定量には燃焼法を用いた。TDS では, 試料を室温から一定速度で 1273 K まで昇温し, さらに 10 分間 1273 K を保持した。その際放出された水素同位体を四重極質量分析器 (QMS) にて定量分析した [29]。また, 燃焼法では, 試料を 1273 K に加熱/酸化し, 試料中の T を T ガス (HT , T_2) あるいは水や炭化水素として放出させた。これらの T は, 水蒸気を含んだ Ar ガスでパージされ, 623 K に加熱した CuO に導き, すべてを T 水に変換した後, 二つのバブラーによって回収した。回収された T は液体シンチレーションカウンターにて計測定量した [30]。

水素の蓄積過程は, (1) プラズマ対向表面への蓄積 (これはさらに損耗部 (第一壁の大部分, 外側ダイバータ) と再堆積層部 (内側ダイバータ, 外側ドーム) に分けられる), (2) プラズマから影となるタイル側面およびダイバータ下部への蓄積, および (3) タイル内部への蓄積, の 3 つのパターンに大別することができる。

3.4.2.2 タイルのプラズマ対向表面 (損耗/再堆積) への水素同位体 (H, D, T) 蓄積量

タイルのプラズマ対向表面はプラズマによって損耗する領域 (損耗部) と損耗した C が積層する領域 (再堆積部) とに別けられる。JT-60U では第一壁の大部分と外側ダイバータは損耗されており, 再堆積は, 内側ダイバータタイルおよび外側ドームにて観察された [31]。図 16 に, プラズマ対向表面での水素同位体 (H, D) 蓄積量が放電時間と共にどのように変化するかを, 内側ダイバータタイル (再堆積部), 外側ダイバータタイル (損耗部), および外側第一壁赤道面タイル (損耗部) に分けて示した。図からわかるように, 内側ダイバータ再堆積部での水素蓄積量は, 放電時間, すなわちフルエンス (Γ) に対してほぼ直線的に増加している ($\Gamma^{1.0}$)。これは再堆積層の成長速度がプラズマ放電時間に比例している上, 再堆積層中の水素の濃度がプラズマに曝されていた時の温度での水素飽和濃度に達しており, 厚さによらず一定であったためである。JT-60U では運転温度が高く, 他のプラズマ装置での再堆積炭素中の水素飽和濃度が 0.4 程度であるのに対し [32], 大幅に小さく, 0.013~0.08 であった。

他方, ダイバータ損耗部あるいは第一壁の損耗部では水素蓄積量は放電の初期には急激に増加するが, その後の増加が非常に遅くなっている。これは次のように説明できる。まず, 放電によって C 表面がプラズマにさらされると, 比較的短時間でその表面近傍は水素で飽和される (表面飽和層の形成)。放電を継続すると飽和層の厚さが増すが, 同時に表面は損耗される。このため飽和層の厚さの成長は遅く, 結果として飽和層での水素蓄積が, 図 16 のようになっているのである。図では蓄積量の増加は, フルエンスの 0.13~0.16 の累乗で記述できることが明らかとなった。

JT-60U のタイルには DD 核反応で生成した T の一部が残留していた。この残留 T を燃焼法で定量し, 図 17 に外側第一壁赤道面の C タイルプラズマ対向表面に, T 蓄積量が時間とともにどのように変化したかを示した。図は, 放電時間 (T 入射量) の異なる炭素タイル試料中に蓄積された T 量に, 外側第一壁の面積 ($\sim 50 \text{ m}^2$) を乗じて求めたものである。JT-60U では, タイルに残存している T は, DD 核反応によって生成された高エネルギーの T のうち, 初期エネルギー (1 MeV) をあまり損失せずに, $1 \mu\text{m}$ 以上の深い位置に直接入射し残留したものであることがわかってい

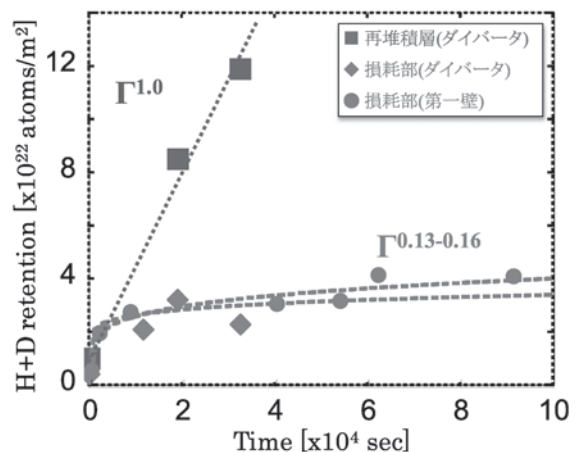


図 16 JT-60U C タイル表面の再堆積層および損耗部での水素同位体 (H および D) 蓄積量の放電時間依存性。

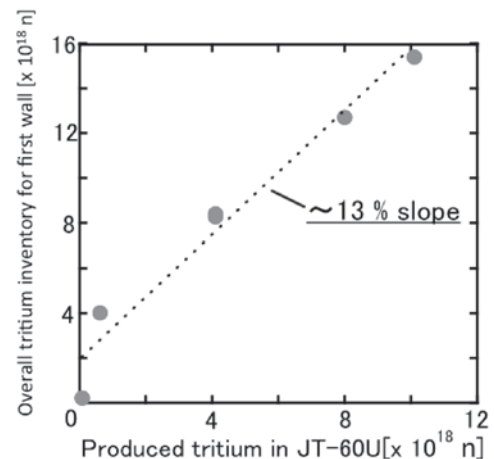


図 17 燃焼法により得られた第一壁タイル表面での T 蓄積量の T 発生量依存性。

る[33]．図から、タイルでの残留 T 量が放電時間とともに直線的に増加していることがわかる．T の発生量は計測された中性子の発生量から算出できることから、残留 T 量を総発生量で除すると約 0.13 となる．すなわち、単位時間あたりの T 発生量の約 13% が第一壁に蓄積し続けることになる．T が蓄積するのは H や D で飽和した領域より深い上、T の蓄積量は、H や D に比べきわめてわずかなので、飽和せずに蓄積し続けているのである．T の定量分析から DD 核反応で発生した T の炉内蓄積量およびその蓄積速度が測定されたのは世界で初めてである．

3.4.2.3 タイルの側面（再堆積）への水素同位体（H, D, T）蓄積量

図18に、外側第一壁赤道面にて使用された C タイルの側面への水素同位体蓄積量の放電時間依存性を示す．図からわかるように、側面への H 蓄積量は、放電時間に比例して増加している．タイル側面では、タイルのプラズマ対向表面で損耗した炭素が再堆積し、それらに H が蓄積することがわかっている[30, 34]．再堆積層中の H 濃度は飽和に達しているため、図18より、タイルの側面でもプラズマ対向表面の再堆積層と同様に再堆積層の成長速度がプラズマ放電時間に比例していることを示唆している．

3.4.2.4 タイルの内部への水素同位体（H, D, T）蓄積量

タイル内部（プラズマ対向表面から約 2 mm 以上深い領域）では、放電時間に依らず、すべての水素同位体（H, D および T）の蓄積量はほぼ一定であった．タイルの深さ方向（プラズマ対向表面から 4 mm, 10 mm, 24 mm）にもほぼ一定で、その値は、それぞれ $\sim 10^{18}$ H atoms/cm³, $\sim 10^{17}$ D atoms/cm³, および $\sim 10^{12}$ T atoms/cm³ であった．これらの値はタイル表面のそれらよりも著しく少ない．炭素タイルは多孔質物質であり、H は C タイル中の開空孔（黒鉛粒間隙）を通じてタイル内部全体へ進入できる．これにより、すべての各黒鉛粒表面は H にさらされ、水素が吸着／吸収される．黒鉛粒表面の H 濃度は直ちに飽和濃度に達するが、H の黒鉛粒内での拡散は無視できるほど遅いの

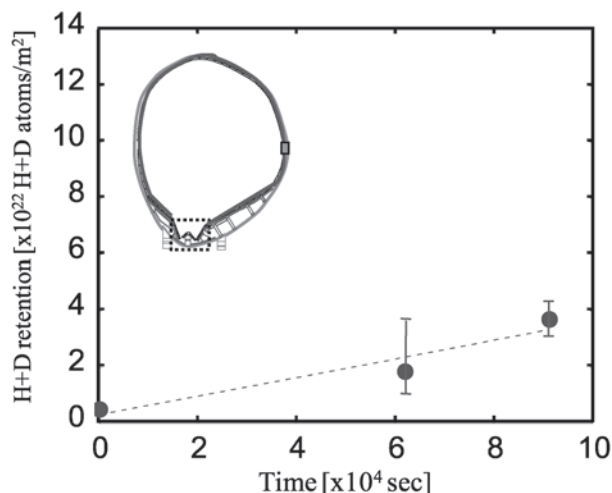


図18 JT-60U 外側第一壁赤道面にて使用された C タイル側面（再堆積層）への水素同位体（H および D）蓄積量の放電時間依存性．

で、粒内への H 吸収による、H 蓄積量の増加はきわめて少ない[35]．すなわち、タイル内部への H 蓄積は、照射初期に大きく増加するが、その後は、ほとんど増加しないのである．このような、炭素材の内部への H 蓄積機構は、拡散による内部への進入が避けられない金属材料の内部への蓄積機構とはまったく異なったものである．

3.4.2.5 JT-60U 炉内水素同位体蓄積のモデル化とそれによる蓄積量の時間推移の評価

以上により、JT-60U 炉内の水素蓄積機構がほぼ解明されたので、これに従って JT-60U の各部における水素蓄積の時間推移を算出し、図19に示した．ここでは、タイルのプラズマ対向表面および側面への蓄積ではそれぞれの部分の全表面積を、またタイル内部への蓄積では炉内で使用された炭素タイルの全体積を考慮してある．また、各部での実測値を実線で示し、その外挿値を点線で示している．これまで、同様の予測がシミュレーションによって行われていたが[36-38]、実際に実験から図19を導いたのは世界で初めてである．図からわかるように、放電初期には、全体積の多さからタイル内部への蓄積が多い．しかし再堆積層への水素蓄積が時間に比例して増加するため、放電時間が長くなるとこの再堆積層への蓄積が主たるものになり、長期放電後には、炉内の水素蓄積量の大半は、再堆積層での水素蓄積量で占められることになる．これは、これまでに報告されているように、他のプラズマ装置での水素蓄積機構と同様である[32]．また損耗部では、単位面積あたりの水素蓄積量は少ないものの、炉内で大面積を占める第一壁のほとんどが損耗部であるため、それへの積算蓄積量は無視できない．

ところで、本研究により得られた炉内全体を考慮した水素蓄積速度は他の大型装置でこれまで報告されている値よりもかなり小さい[36]．これは、JT-60U の場合、573 K とやや高温状態で運転されたため、再堆積層中および損耗部での表面飽和層での水素飽和濃度が小さかったためであ

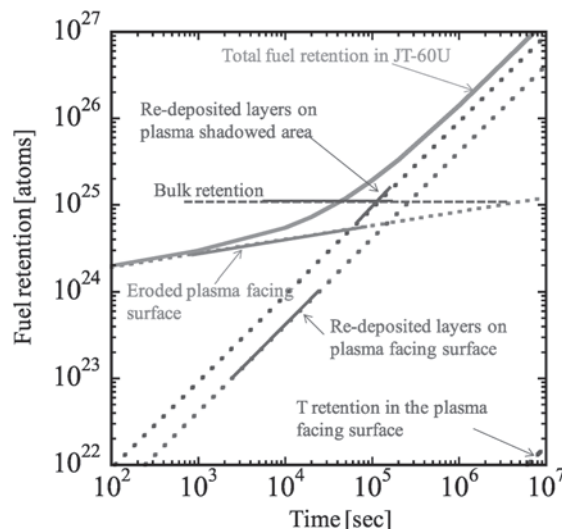


図19 JT-60U 炉内水素蓄積モデル．各部（プラズマ対向表面（損耗／再堆積層）、タイル側面（再堆積層）、タイル内部および高エネルギー T）での蓄積量の時間推移を分けて表示している．

る。このことは、ITERあるいは次期炉でもJT-60U程度の温度で運転されれば、炉内水素蓄積量を現在予測されている値よりもはるかに低く抑えられることを示唆している。なお、高エネルギー粒子による蓄積は、JT-60Uではほとんど無視できるものの、DT反応が行われるITERあるいは次期炉では、DD反応の確率がDT反応の10%程度であることから、これにより発生するTが壁へ蓄積されていく可能性がある。

3.4.2.6 ITERのプラズマ対向壁に炭素タイルを利用し、タイル表面温度を600 Kで運転した場合の水素蓄積予測

得られた炉内水素蓄積モデルを応用して、ITERのプラズマ対向壁に炭素タイルを利用し、タイル表面温度を600 Kで運転した場合に、ITER炉内で水素がどのように蓄積していくかを予測した。ここでは、ITERの各部（タイル表面の損耗／再堆積およびタイル側面）の面積および炉内でのC損耗率[37, 38]を引用した。さらに本研究にて得られた各部への水素蓄積量の時間依存性を加味して、水素が時間とともにどのように増加するかを見積もった。その結果、ITER炉内へのT蓄積の上限値（700 g）に達するまでの放電時間が、現在予測されているものよりも約1～2桁程度長くなることが予測された[38]。

このように、実機のタイル分析に基づいて得られた本研究の水素蓄積モデルを応用すればITERはもとよりDEMO炉や核融合炉でのより精度の高い炉内蓄積予測が可能になるものと期待できる。

3.5 プラズマ・壁相互作用コードとプラズマ・炉壁統合コード

3.5.1 プラズマ・壁相互作用コードによる炉材料中の水素同位体挙動

炉壁へのTの蓄積・放出挙動については、特に、炉壁へのTの注入と再放出、化学スパッタリングによる炭化T放出のようなプラズマ・壁相互作用が重要な過程である。しかし、物理スパッタリングによって損耗された不純物原子や周辺プラズマ中のダスト微粒子などが炉壁表面に再堆積層や混合層を作り、これらが炉壁でのT挙動を大きく変える可能性がある。そのため、プラズマ・壁相互作用のこれらの過程それぞれに対応した素過程コードの開発を進め、実機で起こりうる複雑な物理現象の詳細な理解とそのモデル化を進めた。

3.5.1.1 炭素材のプラズマ・壁相互作用と水素同位体挙動

炭素材を炉内プラズマ対向壁に用いると、化学スパッタリングにより損耗した炭化水素分子が炉内で輸送され、炉壁（特にプラズマの直接あたらない場所）にTなどの水素同位体を多量に含んだ再堆積が形成される。炭素同素体からなる壁材料に水素同位体や炭化水素を照射した際のスパッタリングや材料構造の変化をミクロな観点から調べるため、分子動力学（MD）を用いたシミュレーション手法を開発した[39, 40]。また、材料内部で水素同位体のエネルギーが高いとき（例えば、200 eV以上）は二体衝突近似法（BCA）を用いて、MD法とBCA法を組み合わせたハイブ

リッドコードを開発した[41-45]。MD法による代表的な研究成果として、ダイヤモンド結晶への水素原子照射によるスパッタリングの原子レベルでの機構解明がある。入射水素原子に注目して反応は主に、以下に示す5種類に分けられる。

1. 表面反射：ダイヤモンド中に入らずに反射した場合
2. 内部反射：ダイヤモンド中に入ってから反射した場合
3. 表面吸着：ダイヤモンド中に入らずに吸着した場合
4. 内部吸着：ダイヤモンド中に入ってから吸着した場合
5. 吸収：ダイヤモンド中に入り残った場合

各々の反応の様子を図20に示す。水素原子がダイヤモンドに衝突した後、上方（ $z \rightarrow \infty$ ）に飛び去る場合が反射であり、H原子がC原子に共有結合しダイヤモンド表面上に留まる場合が吸着である。それぞれの反応率の和は常に1である。図21は入射エネルギーが20 eVの場合の結果で、それぞれの反応分布とスパッタリングが観測された位置の分布を示す。両者の比較から、スパッタリングが吸着サイト近辺で生じることをつきとめた。これにより、吸着によって生じたC-H結合によってダイヤモンドのC-C結合が切られて化学スパッタリングが起こることを発見した[46]。また、グラファイト（図22左図）に水素同位体原子を連続的に照射し、アモルファス（図22右図）への構造転移の機構解明をBCAシミュレーションにより行った[47]。この構造転移過程では、グラファイトの結晶構造が保たれていると仮定するとH原子はチャネリングによって深く侵入することが予想されるが、本結果ではアモルファス構造が形成されるに従いH原子の侵入が抑制されるため、浅い位置（図22右図の表面から200 Å付近）に留まることがわかった。さらに、ダイヤモンドにC原子を堆積させていく方法と、C原子をランダムに配置して昇温し、局所安定構造を得る方法で、アモルファス炭素構造を形成するMDシミュレーションを行った（図23）。両方法で化学結合（sp, sp², sp³）の構成比や動径分布関数に有意な相違は認められなかったが、化学結合の方向に違いがあった[45]。これは、アモルファス炭素の形成過程の違いが、その物性に違いを

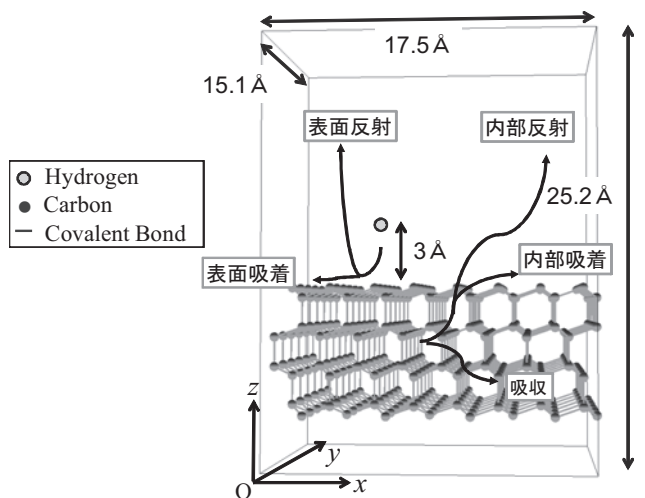


図20 シミュレーションモデルと5種類の反応。矢印はH原子の軌跡を示す[46]。

生じさせることを示唆する。

3.5.1.2 タングステンのプラズマ・壁相互作用と水素同位体挙動

従来のスパッタリング理論およびシミュレーション解析ではほとんどの場合、不純物を含まない単原子固体を用いて行われてきた。W は ITER のダイバータ材料として用いられるが、炉内では、不純物の W 上への堆積がスパッタリング機構に影響を及ぼす。BCA 法によるモンテカルロコード ACAT[48]を用いて、炭素原子が W に蓄積した場合の

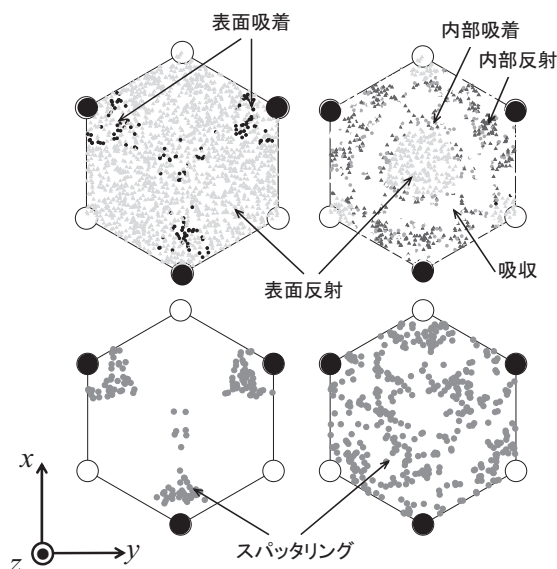


図21 (上段)反応分布図。点は反応の種類を示す。(下段)スパッタリング分布図。点はスパッタリングが観測された入射位置を示す。黒丸は不対電子を持たないC原子を示し、白丸は不対電子を持つ炭素原子を示す[46]。

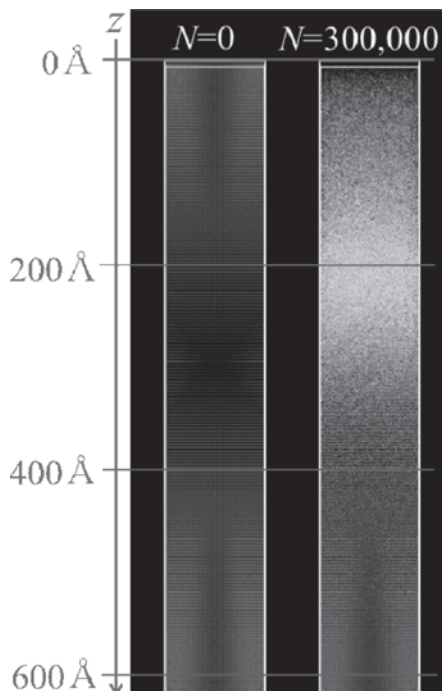


図22 グラファイト(左図)へ30万個のH(白い粒子)を連続的に入射することにより形成されたアモルファス炭素(右図)[47]。アモルファス炭素の表面から200 Å付近に、Hが溜まる様子が確認できる。

D イオンによるスパッタリングの解析を行った。図24のように、炭素原子が堆積したWのスパッタリング収量は、炭素原子の堆積がない場合に比べて増加した[49]。このスパッタリング促進効果は、C原子がW中に蓄積されることによって、入射重水素イオンからW原子へのエネルギー付与(衝突カスケード形成)が炭素原子を介して効率的に行われた結果である。このように、実機における壁材料の損耗を正確に評価するには、壁材料へ入射する不純物の影響を考慮する必要がある。さらに、WへのC原子の堆積は入射重水素の反射率を減少させ、W中のTを含む水素同位体の蓄積量を増加させることもわかった。

He イオンを照射したW表面には、fuzzと呼ばれる、ナノメートルサイズの凹凸構造が形成されることが報告されている[50-52]。このナノ構造へのTの蓄積はその形成機構とともに不明な点が多い。従来のACATコードでは、粒子が入射される度に一辺 $R_0 = N^{-1/3} (\text{cm}^{-3})$ のユニットセ

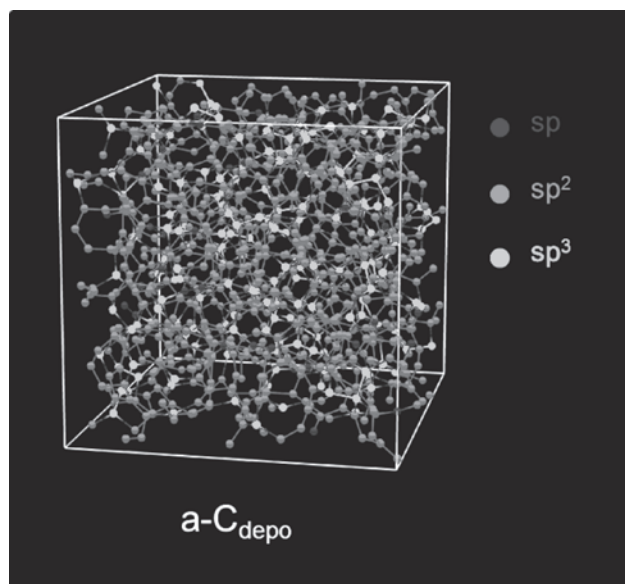


図23 ダイヤモンド基材にC原子を堆積させることにより形成されたアモルファス炭素[45]。

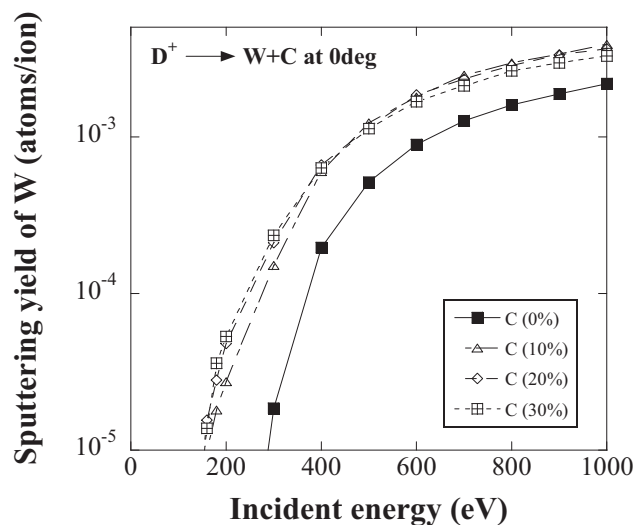


図24 C原子堆積によるW・スパッタリング促進効果。

ルのランダムな位置にターゲット原子一つを発生させ、常に入射前と同じ材料として解析を行っていた。入射粒子の固体中での停止位置、反跳原子の発生場所（空孔の形成場所）と停止位置などを記憶することによって、後から入射する粒子がその前の入射粒子によって反跳した原子や空孔（反跳原子の元のセル）の影響を受けるよう改良した。これを用いて、W に 100 eV のヘリウムイオンを垂直に入射させ、表面の構造変化の照射量依存性を計算した結果を図25に示す。粒子の位置を記憶する計算領域を一辺 0.25 nm のユニットセルの $40 \times 40 \times 20$ 個の集合体として、この領域表面にランダムな位置に粒子を入射させた。He イオンの照射量増加とともに表面形状が変化する様子がみられたが、fuzz と呼ばれるナノ構造形成には至っていないことから、今後、衝突カスケード以外の効果も含めて検討する必要がある。

ITER のダイバータ板へのプラズマ粒子束は $10^{24} \text{ m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ 程度にもなると予想されている。W のような水素固溶度が極めて低い材料では、格子欠陥が水素蓄積の主たる担い手となるため、T 蓄積量の評価において欠陥の影響を定量化する必要がある。高濃度の H と W 中の欠陥の相互作用が欠陥の形成や水素蓄積に及ぼす影響を明らかにするため、単原子空孔およびその集合体と水素原子の相互作用エネルギーの第一原理（密度汎関数理論）計算を行った。これによって、原子空孔と H 原子の結合エネルギーや結合状態が明らかになり、原子空孔が H 原子を多重に捕獲できること [53] や、二原子空孔は H 原子と結合することによって安定化されること [54] を示した。また、単原子空孔と H 原子を含む W 結晶のボルツマン統計力学から、結晶中の H 濃度が上昇してあるしきい値を超えると、H 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明らかにした [53]。これは、高粒子束ダイバータプラズマ照射によって、W 中の水素濃度が固溶度を超えて過飽和状態になった場合、T 蓄積量が従来のイオンビームなどを用いた低粒子束イオン照射実験で得られている H 吸蔵量を著しく上回る可能性を示している。また、プラズマからの不純物として W に打ち込まれた C 原子と H 原子は斥力相互作用をもつため、高濃度の H 雰囲気中で C 原子の格子間拡散係数が著しく増加する

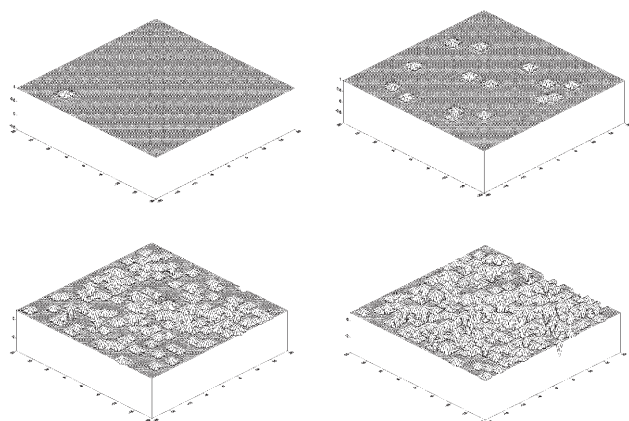


図25 He イオン照射による W 表面形状変化の照射量依存性。

ことを理論的に示した [55]。

3.5.1.3 周辺プラズマおよび表面での水素同位体原子分子過程

W のような高 Z 材料は水素同位体原子に対する反射率が高い。リサイクリング水素同位体原子に占める高エネルギー反射粒子の割合は高い。リサイクリング原子の中に電子励起状態がどの程度含まれるのか（電子励起状態分布）は、壁へのリサイクリング粒子束を分光学的に評価する上で重要であるが、これまで未解決のままであった。高エネルギーのイオンビームを用いたこれまでの実験的知見を矛盾なく説明し、周辺プラズマの低エネルギーまで外挿できる半古典的理論を用いて、Mo と W 表面の反射水素同位体原子に含まれる励起状態の割合が、反射粒子の運動エネルギー（速度）が低くなるに伴い減少することを明らかにした [56]。ダイバータ領域で反射粒子に含まれる電子励起状態の割合はきわめて低いと予想されるが、コアプラズマから高エネルギー（数 keV）の荷電交換中性粒子が壁表面に入射した場合には、反射粒子に数パーセント程度の励起状態が混じる可能性がある（図26）。興味深いことに、反射粒子の速度に依存して励起状態の電子分布が配向し、それに伴い励起状態からの発光が偏光することもわかった [57, 58]。これは、プラズマ中で反射粒子に含まれる電子励起状態を分光学的に識別するのに役立つ可能性がある。

壁から損耗された不純物原子の周辺プラズマ中での輸送を理解するには、不純物原子の電離／再結合過程の断面積データが不可欠である。Be, C, W, Li について、水素同位体原子（イオン）との荷電交換反応による電離／再結合過程の理論計算を行い、10–100 eV/u 程度の低エネルギー領域で顕著な水素同位体効果があることを理論的に示した（図27） [59]。同じ速度で衝突する場合、より大きな慣性を持つ重い水素同位体の方が不純物イオンに接近しやすく、近接衝突で顕著な効果を持つ回転結合と呼ばれる機構によって荷電交換断面積が大きく上昇した。この回転結合の効果は、それ以外の機構による荷電交換断面積が急激に小さくなる低エネルギー領域（ $< 1 \text{ keV/u}$ ）の限られた範囲

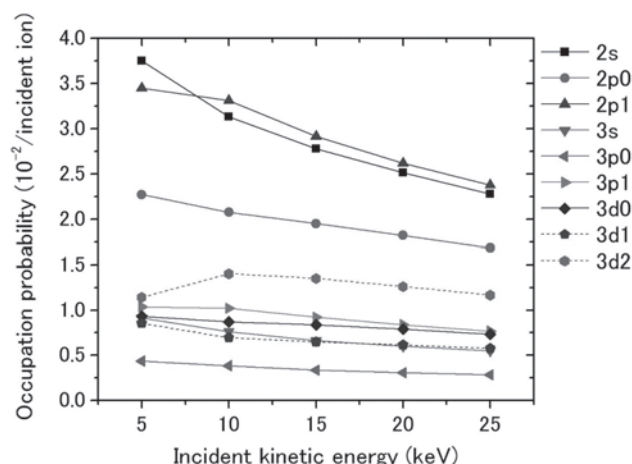


図26 Mo 表面に60度で入射した D イオンの反射粒子に含まれる、入射イオン 1 個あたりの電子励起状態のポピュレーション。文献 [56] の図 4 より転載。

で局所的に大きな寄与を持ち、断面積を数倍も増加させることがわかった。これより、中性粒子が支配的な低温の弱电離プラズマで、この効果が大きな影響を持つ可能性を示した。

3.5.1.4 周辺プラズマ中でのダスト粒子挙動

炉内でのダスト微粒子発生と輸送に関する研究が進展し、ダストのT蓄積の問題が指摘されている。これまでのところ、ダスト粒子の生成機構、生成場所などは明確にわかっていないが、プラズマの熱入力が大きなダイバータ板上のストライク点で多く発生すると考えられる。そこで、ダイバータ板で発生した様々な直径の球形ダスト(W, Be, C)のプラズマ中での輸送理論モデルを構築し、ITERのダイバータ板ストライク点から放出されたダスト粒子の挙動を調べた。実機重水素プラズマ条件でコアプラズマから100 MWの熱入力が境界層プラズマ(SOL)領域に流入し、SOL境界でのプラズマ温度とプラズマ密度はそれぞれ1.6 keV, $3 \times 10^{19} \text{ m}^{-3}$ である。特徴的なプラズマ物理量としてダイバータ板近傍ではプラズマ密度が $10^{20} - 10^{21} \text{ m}^{-3}$, プラズマイオン温度が10–数100 eVである。

ダスト粒子に働く力はプラズマイオンとの摩擦力、重力、ローレンツ力などを考慮したが、プラズマイオンの摩擦力の効果が大きい。この摩擦力はイオン吸収による力とイオンのクーロン散乱による力からなり、その大きさはダスト粒子断面積とプラズマイオン圧力に比例し、プラズマイオン流との相対速度の方向に作用する。ダスト粒子の電荷については、荷電時間が数ナノ秒と粒子運動の特徴時間(数ミリ秒)に比べて非常に速いので、粒子の存在する場所で決まる平衡電荷とした。ダスト粒子の温度はプラズマからの熱入力和輻射率0.75の黒体輻射から求め、粒子の溶融または昇華までの経過を計算した。

ダスト粒子は、ダイバータ板ストライク点からダイバータ板前面方向に初速度を持って等方的に放出されるとした。放出されたダスト粒子はドームに達するもの、ダイバータ板に戻るもの、高温になり昇華(炭素)あるいは溶融温度に達して蒸発するものに分けられ、コア領域に達するものはないことがわかった。例として、直径が1 μm と

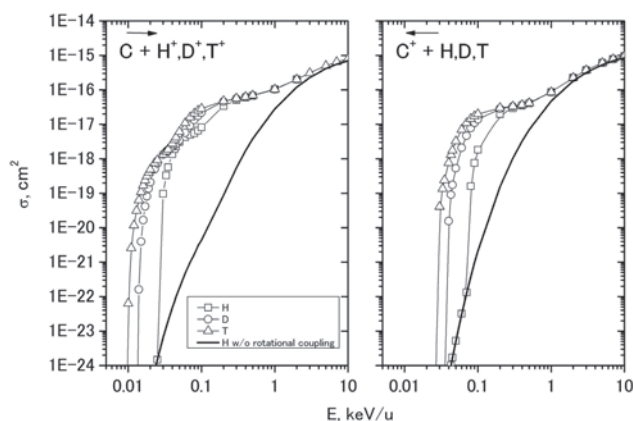


図27 C原子(イオン)と水素同位体イオン(原子)との1電子移行による荷電交換断面積。太い実線は、回転結合効果を含めない場合の計算結果。文献[59]より一部修正のうえ転載。

10 μm のWダストを内側および外側ダイバータ板ストライク点から放出した計算結果を、それぞれ図28、図29に示した。内側ダイバータ板から放出した場合、放出速度が小さいものは内側ダイバータ板に戻る。これはダイバータ板に向かうプラズマポロイダル流によって押し戻されるためである。速度の大きいものでドーム方向に放出したものは運動エネルギーが大きいためドームに達し、コアプラズマ方向に放出したものは高温プラズマからの熱入力のために溶融する。大きな粒子は運動エネルギーがより大きいためこの傾向が強い。一方、外側ダイバータ板から放出したWの小さくて(直径1 μm)速度の遅いものは内側ダイバータ板と異なり、ドームに達するものがなく、外側ダイバータ板に戻るかコア領域に向かって進み溶融する。これはトロイダル方向のプラズマ流によってトロイダル方向に加速され、遠心力によって外側に運動するためと思われる。大きな(直径10 μm)粒子は運動エネルギーが大きいためこの傾向が弱くなっている。同様な解析を炭素ダスト粒子に対しても行った。その結果、内側ダイバータ板から放出した粒子はWと同様に振る舞うが、Wに比べて軽いために、プラズマイオン流によって内側ダイバータ板に戻るものが多いことがわかった。外側ダイバータ板から放出した場合も同様に、外側ダイバータ板に戻るものが多い。このように、ダイバータ板から放出されたダスト粒子の多くがダイバータ板に戻るかドームに達しており、ダストと炉壁との相互作用、ダストによる炉壁の損耗効果などの検討が必要である。

3.5.2 プラズマ・炉壁統合コードによるプラズマ中のトリチウム・不純物輸送

炉内Tの蓄積過程には、プラズマ中でのTの大域的な輸

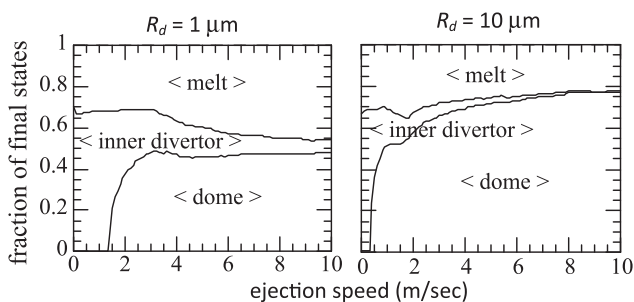


図28 ITER内側ダイバータ板から放出されたWダスト粒子(半径1 μm と10 μm)の最終状態。

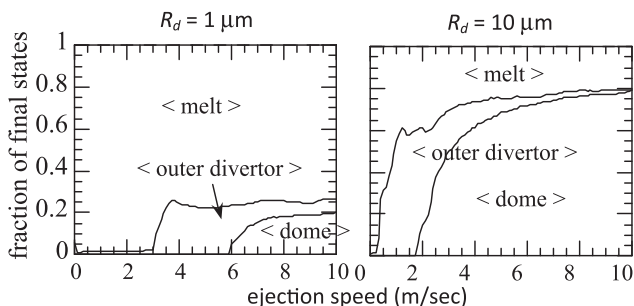


図29 ITER外側ダイバータ板から放出されたWダスト粒子(半径1 μm と10 μm)の最終状態。

送のモデル化と複雑なプラズマ・壁相互作用の理解が必要となる。それには、燃料 T のみでなく、ダイバータ板や第一壁で発生する不純物のリサイクリングやダイバータ領域での輸送を扱うモデルが、またダイバータ板に炭素材が用いられた場合、炭化 T の発生、輸送（複雑な解離過程含む）を扱うモデルが不可欠である。これら物理過程は、ダイバータ板近傍での局所的な現象ではなく、炉心からスクレイプ・オフ層（SOL）、ダイバータ領域、粒子排気系に渡る巨視的な輸送も深く関わる。燃料のリサイクリングや輸送過程は、ダイバータプラズマ冷却のために導入される不純物（Ne や Ar）や、壁材の W のような高 Z 不純物との相互作用にも強く依存する。こうした複雑に絡みあった現象を扱うため、各物理過程のモデルを相互に結合した総合コードの開発を行った。

3.5.2.1 ダイバータ総合コードの開発（炉壁および炉心輸送コードとの結合）

JAEA では、ダイバータでの粒子、熱輸送を解析するため、これまで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：NEUT2D/2次元不純物輸送モンテカルロ：IMPMC）の開発が行われてきた[60]。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にある。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欠点、計算時間、ノイズの問題点等があった。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[61]。

EDDY コード[62]は、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ているが、扱う領域がダイバータ領域に限られていた。EDDY と IMPMC コードとの結合を行うことにより、スパッタリングで発生した不純物の炉心プラズマへの混入過程や、周辺プラズマでの大域的な不純物の輸送解析を可能とした。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されていた。EDDY/IMPMC を用いて、このモデルの妥当性を初めて検証した。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での広がりが大きく、これまでの近似に問題があることがわかった。

SONIC コードをはじめとして多くのダイバータコードでは、炉心プラズマ境界のイオン粒子束や熱流束を入力データとして与え、周辺プラズマ領域での密度、温度の定常分布を求めている。しかし、これらは、本来、炉心プラズマの閉じ込め特性から決まる。一方、ダイバータ特性は中性粒子、不純物の炉心への逆流、混入を通して、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、T 輸送モデルの精度を上げるため、SONIC コードと炉心プラズマ輸送コード（TOPICS コード[63]および TASK コード[64]）との結合を行った。

こうした特質の異なるコードの結合にあたって問題にな

るのは、各コードが複数の開発者により同時に改良されているため、「如何に各コードの独自性を保ちながら結合する」かである。異なる複数のプログラムが Message 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）の開発を行った[65]。図30に SONIC/TOPICS コードの構成の概略図を示す。本システムは、モンテカルロ計算を含んだ統合コードに対して、効率的なシミュレーションの実行が可能であり、材料表面の動的変化をも含んだ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。

このダイバータコードを用いて、デモ炉 slimCS および JT-60SA 装置における熱粒子制御の物理設計検討を行い、不純物による放射損失がダイバータ板近傍に局在した時、その熱負荷が過大になることがわかった[66]。炉心プラズマの輸送が大きく変わる L/H 遷移は、周辺部の密度や温度に敏感であり、境界条件により結果が左右される。このため、統合コード（TOPICS/SONIC）を用いて、自己矛盾のない境界条件下で、JT-60SA 装置の L/H 遷移のシミュレーション研究を行った[67]。このコードの新規性は、理論モデル（CDBM）に基づいて L/H 遷移のタイミング、遷移前後の輸送特性を決めたことである。これにより、粒子束、熱流束の小さな変動（拡散係数の変化に対応して）が、図31に示すようなリサイクリングの急激な増大をもたらし得ることが明らかになった。

第一原理に基づく粒子コードを用いたシミュレーションにより、D と T との混合プラズマにおけるダイバータ板への流速条件が、1 成分の時と異なることが明らかになり[68]、今後、流体コード（SOLDOR）に反映させる予定である。

3.5.2.2 高 Z 不純物輸送コードの開発と炉壁およびプラズマ輸送コードとの結合

ITER だけでなく、原型炉設計においても高 Z 材が有力な壁候補材であるため、高 Z 不純物を対象として、大域的

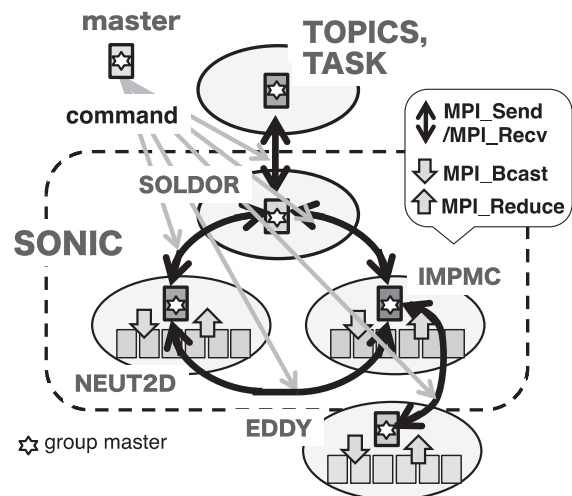


図30 MPMD (Multiple Program Multiple Data) システム。それぞれ独立のロードモジュールの実行、グループ間のデータ転送が、マスターからのコマンドによって行われる。

周辺プラズマ輸送統合コードの開発を進めた[69]。高Z不純物輸送 (IMPGYRO) コード [70] と材料損耗・再堆積 (EDDY) コード [62] を結合し (IMPGYRO-EDDY), 材料表面及びその近傍のモデルを詳細化すると同時に, コード並列化/高速化を行った。また, JT-60UにおけるWタイルを用いた実験を解析し, IMPGYRO の物理モデルの検証とさらなる改良を行った。さらに, MPMD モデルを用いて IMPGYRO-EDDY を背景燃料水素プラズマ輸送 (SOLPS) コード [71] と結合することによって, SOLPS-IMPGYRO-EDDY 統合コードの開発に成功した[72]。統合化により, SOLPSによる背景燃料水素プラズマ輸送計算と IMPGYRO-EDDY による不純物輸送計算とを相互に自己矛盾することなく, 並列して行うことが可能となった。また, 統合による計算時間の増大に対応するため, 国際核融合エネルギー研究センター (IFERC) に設置された超高速大規模並列計算機の国際公募課題に, マックスプランクプラズマ物理学研究所 (IPP), パリ第13大学, JAEA などと共同提案し, 採択された。この SOLPS-IMPGYRO-EDDY 統合コードによる ASDEX-Upgrade トカマクに対する初期計算結果を図32に示す[72]。その結果 (coupled case) は背景プラズマを固定した従来の計算 (fixed case) とは異なり, 統合計算の重要性を示している。今後, JT-60U, ASDEX-Upgrade, JET-ILW など複数の装置の解析に SOLPS-IMPGYRO-EDDY を適用し実験との比較を進め, さらなるモデル妥当性の検証を行う。これによって, 信頼性の高い炉内不純物輸送評価コードモデルを確立し, W などの高Z炉壁への T の蓄積分布の予測精度の向上を図る。

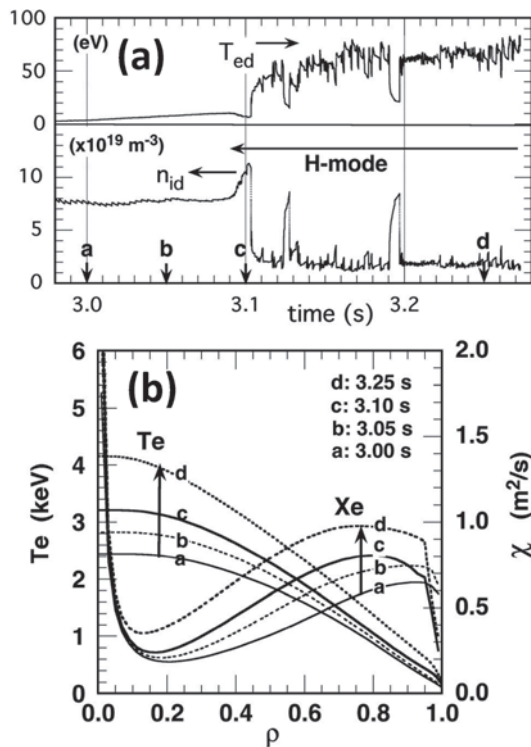


図31 JT-60SA における H モード遷移のシミュレーション。
(a) 外側ストライク点における電子温度, 密度の時間変化,
(b) 主プラズマにおける電子温度, 熱拡散係数の分布の変化。

また, IMPGYRO の不純物輸送モデルの高度化として, 不純物イオンに働く熱力の新しい数値計算モデルを提案し, 磁場がない場合についてその妥当性を検証した[73]。この手法は, 磁場がある場合にも適用可能である。従来の運動論的不純物輸送コードにまったく考慮されていなかった磁場と垂直方向の熱力, さらに, 熱力と磁場との両方に垂直な方向への不純物イオンの輸送を考慮することが可能と考えられる。今後, この新しい熱力モデルを IMPGYRO に導入する。

さらに, トロイダル回転がある場合の不純物輸送理論モデルを IMPGYRO によって検証した。JT-60U において, プラズマ電流と逆方向にトロイダル回転速度を上げていくと, コアプラズマへの W 不純物の蓄積が顕著になることが観測されている[74]。星野ら[75]は電離・再結合過程に起因して, トロイダル回転に伴い W のような高Z不純物イオンのピンチ (PHZ: inward Pinch of High-Z impurity due to the atomic process) が起こることを比較的簡単な理論的モデルを用いて提案した。さらに, 径電場 (Er) による高Zイオンのドリフト軌道のゆがみが, 高Z不純物イオンとトロイダル回転している背景プラズマとのクーロン衝突を通してピンチ効果を起こすことも理論的に示された (Er ピンチ)[76]。これら PHZ および Er ピンチの理論モデルを検証するため, コア領域まで解析できるよう IMPGYRO を拡張した。図33のように理論モデルと IMPGYRO の結果は非常によく一致[76], これら2つのピンチ効果が実際の実験でも起こりうることを示した。

3.6 核融合炉のトリチウム蓄積・排出評価とその低減化, 除去

炉壁の T の蓄積および放出挙動には, プラズマイオンの壁材料内への注入, 拡散, 捕獲, 再放出のような炉材料自体のローカルな過程が関係する。一方, プラズマ対向壁表面の再堆積層中への T の蓄積にみられるように, 炉内のプラズマ, 特に, ダイバータや境界層 (SOL) プラズマ中の

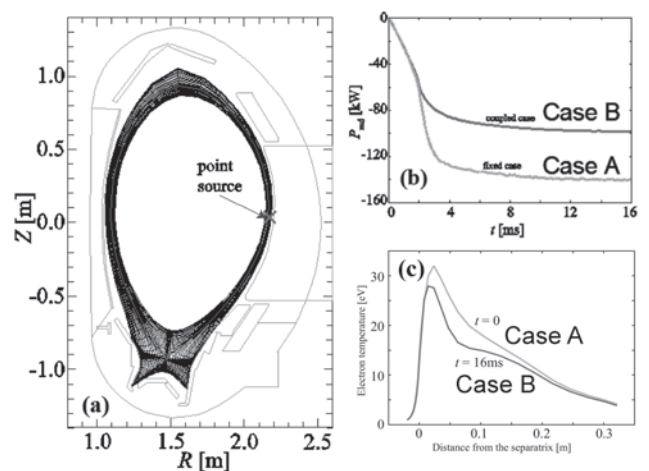


図32 SOLPS-IMPGYRO-EDDY 統合コードによる初期計算[72]:
(a) ASDEX-Upgrade 計算体系と計算メッシュ, (b) 不純物による全放射放出パワーの時間発展, (c) 外側ダイバータ板に沿った電子温度。ただし, Case A: 背景固定の従来モデルによる計算, Case B: 統合コードによる計算。

Tや不純物の輸送が関係したグローバルな過程も関与する(図34参照)。これまで欧州を中心として、ITER 炉内の T 蓄積量の評価が行われてきたが[77]、より正確な評価には、前節で述べた炉内実環境下の T 蓄積に関わるプラズマ・壁相互作用とダイバータ・境界層プラズマの複合過程の理解を進め、これに基づいたシミュレーションモデルによる評価が必要である。そこで、炉内 T 蓄積・排出挙動に関わるコードを結合あるいは連携して用いて、堆積層中の水素同位体濃度や炉材料の T 蓄積に関わる材料定数について実験グループとも連携し、ITER 炉内実機条件におけるダイバータ材(炭素, W)および第一壁(Be)の T 蓄積量を評価した。さらに炉内実環境を想定して、C ダイバータ板に形成される C・Be 混合層やタイルギャップへの蓄積についても評価コード開発を行い、それぞれの蓄積量を評価し、予測精度を向上させた。

3.6.1 炭素およびベリリウム再堆積層へのトリチウム蓄積

C 堆積層への T 蓄積評価のため、C と炭化水素不純物の ITER 実形状プラズマ中での輸送過程を二体衝突近似コード(EDDY)に導入し、ダイバータと境界層プラズマ中の

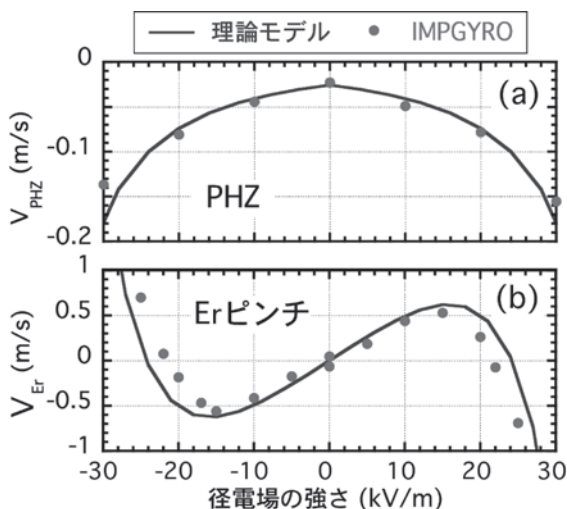


図33 (a)PHZおよび(b)Erピンチによる不純物イオンの小半径方向の平均速度[76]。ただし、トロイダル回転速度は150 km/sを仮定し、横軸の径方向電場は独立パラメータとして与えている。また、径電場の正負はそれぞれ順方向および逆方向のトロイダル回転に対応する。

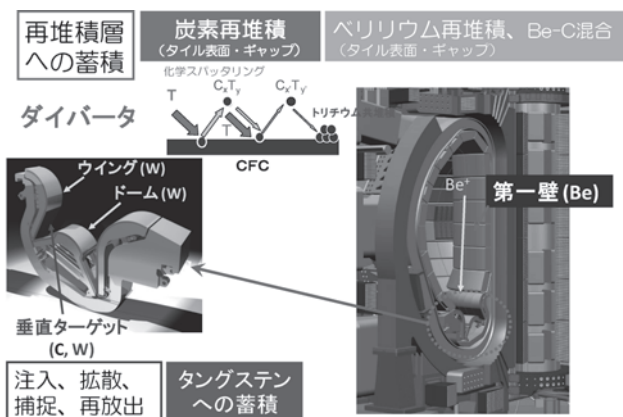


図34 ITER 炉内 T 蓄積に関わるプラズマ・壁相互作用。

不純物の輸送を解析した[78]。また、炭素壁の化学スパッタリングと炭化水素分子の壁反射に分子動力学コード(MD)[79]、タイルギャップのプラズマ・シース解析にプラズマ粒子コード(PIC)[80]など素過程コードを連携して使用して、通常の評価コードに含まれる仮定やフィッティングパラメータを排除することに努めた(図35参照)。第一壁で損耗される Be も境界層プラズマを輸送され、炉内広範囲に再堆積し T を蓄積する。これら炉内の炭素と Be の再堆積層分布から炭素材をダイバータ板とする ITER の炉内 T 蓄積量を評価した。周辺プラズマ流体コードで計算したダイバータと SOL 領域のプラズマパラメータと、ダイバータ板への入射イオン束、ダイバータ板表面の温度分布を用いて、ダイバータ板それぞれの場所から放出される炭素(物理スパッタリング)と炭化水素(例えばメタン、化学スパッタリング)の粒子束を計算する。それぞれの場所から1000個程度のテスト粒子を放出し、それらのダイバータおよび SOL 領域内の軌道を EDDY コードで追跡する。放出された粒子はコアプラズマに入るか、炉内のプラズマ対向壁のどこかに再堆積する。再堆積した C の一部がプラズマイオンの照射によって再損耗されることも考慮して炉内の再堆積分布を求めた後、実験によって推定された C 再堆積層中の水素同位体(D)濃度を用いて、ITER ダイバータ内の T 蓄積分布と総量を評価した[81]。一方、第一壁から損耗される Be の再堆積についても C 堆積層の場合と同様に解析し、炉内、第一壁とダイバータ内の T 蓄積分布を計算した。このようにして、C 材をダイバータ板とした ITER 炉内の T 蓄積量を評価した。

3.6.2 タングステンへのトリチウム蓄積

W をダイバータ板とした場合は、炉内に蓄積される T 量は、第一壁から損耗された Be の再堆積中に蓄積されたものと、W に注入された後、材料内部での各種熱的過程(拡散、捕獲、表面再結合)を経た後、滞留したものがある。ACAT-DIFFUSE コード[82]には元々このような過程を導入されているので、これを用いて W に蓄積される水素同位体量の材料温度依存性やイオン照射中の再放出(再結合)束の入射束依存性などを評価した[83]。EDDY コードにも同様な熱的過程(DIFFUSE)を導入し[84]、ITER の実機プラズマ条件で、プラズマ照射中(400 s)と照射後

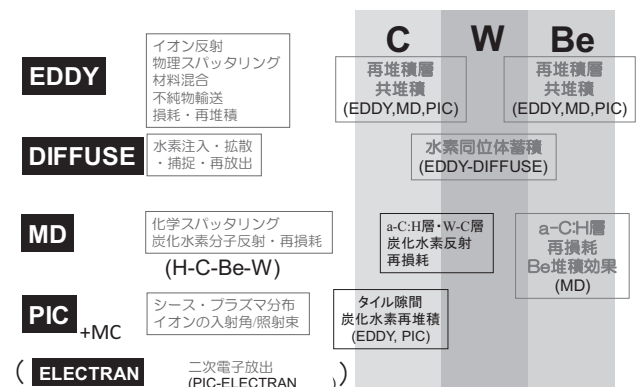


図35 炉内 T 蓄積評価のためのプラズマ・壁相互作用素過程コードとコード結合、連携シミュレーション。

のWダイバータ板におけるT蓄積量のダイナミックな時間変化を計算した(図36)[85]。ここで、磁力線がダイバータ板に非常に浅い角度で入射するため、プラズマイオンのダイバータ板への入射角をラーモア回転を考慮したPICコードで評価した。また、ダイバータ板に入射するイオンのエネルギーが低い(数10 eV~1 eV)ため、そのほとんどは表面で反射すると考えられる。そこで、注入率(1-反射率)の評価をMDコードで行った(0.01~0.02程度)。

3.6.3 ITERを例とした核融合炉のトリチウム蓄積評価とその低減、除去

炭素堆積層へのT蓄積量は約4 mg/sで、Be堆積層への蓄積はその1/7~1/3であった。一方、Cダイバータ板表面にBeが堆積すると炭化水素放出(化学スパッタリング)が大きく抑制されるとの実験報告があるため、Be-C混合層の化学スパッタリングをMDコードで計算し、それをCとBeの炉内プラズマ中の輸送解析に適用した。しかし、同時に再損耗も減少することからその効果は他に比べ二桁以上小さいことがわかった。タイルギャップへのTの堆積についても、ITERの域状構造タイルを想定して評価し、実機プラズマ条件でダイバータと第一壁のすべてのタイルギャップへのTの蓄積が1 mg/sであることを示した。

ダイバータ板としてWを用いた場合、そのT蓄積量はCダイバータ板の1/100程度であった。これは、ダイバータ板としてのWの優位性を示している。しかし、評価コードで既存のTDS実験をシミュレーションして、W中の水素同位体の拡散係数や捕捉サイトなどの材料定数を評価したが、捕捉サイトの深さと密度に左右されること、さらにそれらがITERの高粒子束プラズマ照射中に変化することも考えられ、材料定数をいかに評価するかが問題として残る。また、炭素堆積に因るTの蓄積量は、炉内のタイル温度が500度程度上がることによって1/5程度に減少することがわかり、炭素材をダイバータ板とした場合に、炉壁の温度上昇がT除去に有効であることを示した。Wの場合は、材料温度の上昇によって注入されたTの材料内部奥深くへの拡散が顕著になり、それらが捕捉サイトに蓄積することでT蓄積量が増加することがわかった。Wについては今後、Tの捕捉機構の詳細化と捕捉サイトの減少など、新たな材料の開発も含めた検討が必要である。

参考文献

- [1] R.A. Kerst and W.A. Swansiger, J. Nucl. Mater. **122**, 1499 (1984).
- [2] D.K. Brice and B.L. Doyle, J. Nucl. Mater. **120**, 230 (1984).
- [3] T. Nagasaki *et al.*, J. Nucl. Mater. **151**, 189 (1988).
- [4] W.M. Shu *et al.*, J. Phys. Chem. **97**, 4497 (1993).
- [5] M. Miyamoto *et al.*, Nucl. Fusion **49**, 065035 (2009).
- [6] V Kh Alimov *et al.*, Phys. Scr. T138, 014048 (2009).
- [7] Y. Ueda *et al.*, J. Nucl. Mater. **386-388**, 725 (2009).
- [8] Y. Ueda *et al.*, Nucl. Fusion **44**, 62 (2004).
- [9] D.K. Brice and B.L. Doyle, J. Nucl. Mater. **120**, 230 (1984).
- [10] I. Takagi, J. Nucl. Sci. Technol. **29**, 947 (1992).
- [11] I. Takagi *et al.*, Fusion Sci. Technol. **60**, 1523 (2011).
- [12] I. Takagi *et al.*, ICFRM-15, P101 (2011).

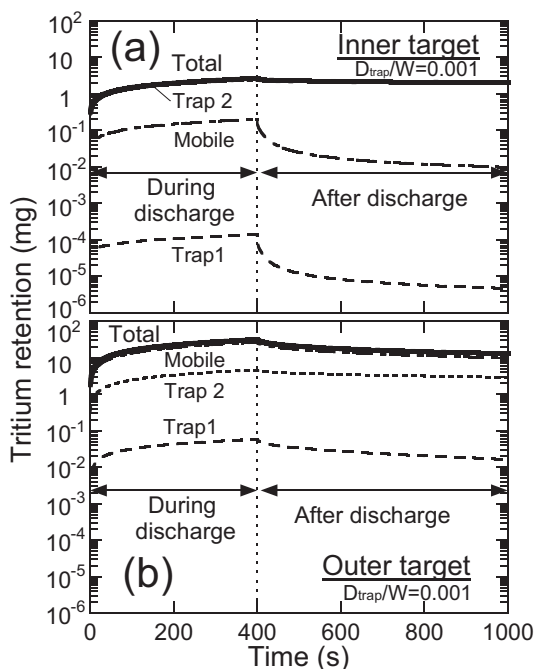


図36 ITERダイバータにおけるW板のT蓄積量の時間変化[85]。

- [13] I. Takagi *et al.*, Fusion Sci. Technol. **60**, 1451 (2011).
- [14] I. Takagi *et al.*, J. Nucl. Mater. **417**, 564 (2011).
- [15] I. Takagi *et al.*, ICFRM-15, P254 (2011).
- [16] I. Takagi *et al.*, J. Nucl. Mater. **415**, S692 (2011).
- [17] 上田良夫, 日野友明他: プラズマ・核融合学会誌 **85**, 684 (2009).
- [18] M. Fukumoto, T. Nakano *et al.*, submitted to J. Nucl. Mater. (2012).
- [19] Y. Nobuta *et al.*, Proc. 34th European Physics Society Conference on Plasma Physics (Warsaw 2007) ECA **31F**, P-1.024.
- [20] T. Tanabe *et al.*, J. Nucl. Mater. **390-391**, 705 (2009).
- [21] T. Hayashi *et al.*, J. Nucl. Mater. **390-391**, 667 (2009).
- [22] T. Shibahara *et al.*, J. Nucl. Mater. **357**, 115 (2006).
- [23] T. Tanabe *et al.*, Phys. Scr. T138, 014006 (2009).
- [24] M. Yoshida *et al.*, J. Nucl. Mater. **415**, S752 (2011).
- [25] M. Yoshida *et al.*, Phys. Scr. T145, 014023 (2011).
- [26] T. Nakano *et al.*, Nucl. Fusion **46**, 626 (2006).
- [27] K. Masaki *et al.*, J. Nucl. Mater. **313-316**, 514 (2003).
- [28] M. Yoshida *et al.*, J. Nucl. Mater. **390-391**, 635 (2009).
- [29] Y. Hirohata *et al.*, J. Nucl. Mater. **363-365**, 854 (2007).
- [30] K. Sugiyama *et al.*, J. Nucl. Mater. **367-370**, 1248 (2007).
- [31] Y. Gotoh *et al.*, J. Nucl. Mater. **357**, 138 (2006).
- [32] J. P. Coad *et al.*, J. Nucl. Mater. **290-293**, 224 (2001).
- [33] K. Sugiyama *et al.*, J. Nucl. Mater. **329-333**, 874 (2004).
- [34] K. Ohya *et al.*, J. Nucl. Mater. **417**, 602 (2011).
- [35] T. Tanabe *et al.*, J. Nucl. Mater. **209**, 109 (1994).
- [36] E. Tsitrone *et al.*, J. Nucl. Mater. **415**, S735 (2011).
- [37] A. Kirschner *et al.*, J. Nucl. Mater. **363-365**, 91 (2007).
- [38] J. Roth *et al.*, Plasma Phys. Control. Fusion **50**, 103001 (2008).
- [39] A.M. Ito *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **50**, 01AB01 (2011).
- [40] H. Nakamura *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **50**, 01AB04 (2011).
- [41] A. Takayama *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **50**, 01AB03 (2011).
- [42] S. Saito *et al.*, J. Nucl. Mater. **415**, S201 (2011).

- [43] S. Saito *et al.*, Prog. Nucl. Sci. Technol. **2**, 44 (2011).
- [44] S. Saito *et al.*, J. Appl. Phys. **110**, 084320 (2011).
- [45] S. Saito *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **51**, 01AC05 (2011).
- [46] S. Yonemura *et al.*, Proc. 30th JSST Annual Conf. 251 (2011).
- [47] S. Saito *et al.*, submitted to Jpn. J. Appl. Phys.
- [48] Y. Yamamura and Y. Mizuno, Rep. Inst. Plasma Phys., Nagoya Univ, IPPJ-AM-40 (1985).
- [49] T. Kenmotsu *et al.*, J. Nucl. Mater. **415**, S108 (2011).
- [50] S. Takamura *et al.*, Plasma Fusion Res. **1**, 051 (2006).
- [51] M. Yamagiwa *et al.*, J. Nucl. Mater. **417**, 499 (2011).
- [52] K. Tokunaga *et al.*, J. Nucl. Mater. **417**, 528 (2011).
- [53] D. Kato *et al.*, J. Plasma Fusion Res. SERIES **8**, 404 (2009).
- [54] D. Kato *et al.*, J. Nucl. Mater. **417**, 1115 (2011).
- [55] D. Kato *et al.*, Plasma Fusion Res. **6**, 2405062 (2011).
- [56] D. Kato *et al.*, J. Nucl. Mater. **390-391**, 498 (2009).
- [57] D. Kato *et al.*, Contrib. Plasma Phys. **50**, 445 (2010).
- [58] D. Kato *et al.*, J. Nucl. Mater. **415**, S1162 (2011).
- [59] I.Yu. Tolstikhina *et al.*, Phys. Rev. A **84**, 012706 (2011).
- [60] H. Kawashima *et al.*, Plasma Fusion Res. **1**, 031 (2006).
- [61] K. Shimizu *et al.*, Nucl. Fusion **49**, 065028 (2009).
- [62] K. Ohya, Phys. Scr. T**124**, 70 (2006).
- [63] N. Hayashi *et al.*, J. Plasma Fusion Res. **6**, 2403065 (2011).
- [64] A. Fukuyama *et al.*, Proc. 20th IAEA Fusion Energy Conf. (Villamoura, Portugal, 2004) IAEA-CSP-25/CD/TH/P2-3.
- [65] A. Takayama *et al.*, J. Plasma Fusion Res. SERIES **9**, 604 (2010).
- [66] K. Hoshino *et al.*, Contrib. Plasma Phys. **52**, 550 (2012).
- [67] M. Yagi *et al.*, Contrib. Plasma Phys. **52**, 372 (2012).
- [68] S. Azuma *et al.*, Contrib. Plasma Phys. **52**, 512 (2012).
- [69] 大宅 薫 他：プラズマ・核融合学会誌 **85**, 695 (2009).
- [70] M. Toma *et al.*, J. Nucl. Mater. **390-391**, 207 (2009).
- [71] R. Schneider *et al.*, Contrib. Plasma Phys. **46**, 3 (2006).
- [72] M. Toma *et al.*, Contrib. Plasma Phys. **52**, 450 (2012).
- [73] Y. Homma and A. Hatayama, J. Comp. Phys. **231**, 3211 (2012).
- [74] T. Nakano *et al.*, Nucl. Fusion **49**, 115024 (2009).
- [75] K. Hoshino *et al.*, Contrib. Plasma Phys. **50**, 386 (2010).
- [76] K. Hoshino *et al.*, Nucl. Fusion **51**, 083027 (2011).
- [77] J. Roth *et al.*, Plasma Phys. Control. Fusion **50**, 103001 (2008).
- [78] K. Ohya and A. Kirschner, Phys. Scr. T**138**, 014011 (2009).
- [79] K. Ohya *et al.*, J. Nucl. Mater. **390-391**, 72 (2009).
- [80] K. Inai *et al.*, J. Nucl. Mater. **390-391**, 119 (2009).
- [81] M. Bando *et al.*, Fusion Sci. Technol. **60**, 1467 (2011).
- [82] Y. Yamamura, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B **28**, 17 (1987).
- [83] T. Ono *et al.*, J. Nucl. Mater. **390-391**, 713 (2009).
- [84] K. Ohya and A. Kirschner, Phys. Scr. T**145**, 014047 (2011).
- [85] K. Ohya and Y. Soneda, Plasma Fusion Res. **7**, 2403083 (2012).



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

深田 智, 鈴木 晶大¹⁾, 寺井隆幸¹⁾

九州大学, ¹⁾東京大学

(原稿受付: 2012年7月17日)

Keywords:

tritium, blanket, lithium, lithium ceramics, lead lithium, flibe, recovery, permeation, erbium oxide

4.1 核融合炉ブランケットに要求される条件と研究目標設定

核融合炉ブランケットには、燃料自給のためトリチウム(T)を製造回収するとともに、核反応で生じた熱を回収し、ガンマ線を遮蔽する働きが必要である。本特定領域研究では、このうち、ブランケットからのT回収とT漏洩制御に関する研究目標を設定し検討してきた。本レビューでその達成した成果を要約して説明する。まず設定目標を説明する。

核融合炉の固体セラミック材であるチタン酸リチウム(Li_2TiO_3)やオルトケイ酸リチウム(Li_4SiO_4)等、液体リチウム、リチウム-鉛共合金($\text{Li}_{15.8}\text{Pb}_{84.2}$)、溶融塩Flibe(Li_2BeF_4)の各ブランケット候補材中に生成したTを、効率よく回収し、核融合炉全体のT増殖比(TBR)を1以上にするとともに、配管全体からのT透過漏洩を作業環境の安全基準以下に抑えることが、核融合炉の定常運転維持と安全性確保のために必要である。そこで具体的数値目標として、自給条件に基づき $\text{TBR} > 1.05$ にすること、増殖ブランケットからのT漏洩、および回収系外へのT漏洩を 10 Ci/day (4.3 MBq/s)以下にするように設定した[1,2]。工学的設計感覚からみれば、目標とする $\text{TBR} > 1.05$ の条件は、ブランケット設計が適切になされ回収装置を敷設した状態において、炉心内で消費されたT量に対して、ブランケットで発生し回収装置で回収されるT量との比で決まる総合評価値であり、現段階で決まる数値ではない。そこで各材料が持つ性能を効果的に発揮する設計がなされると考え、ブランケットにおいてのT(回収/発生)率比を99.9%以上とする目標値を設定した。このブランケット回収条件を満足するとき、適切なブランケット設計により $\text{TBR} > 1.05$ 以上の運転が可能であると予測することができると考えた。

将来の定常状態核融合炉で、 1 GW の熱出力あたり 150 g/day ($=0.62 \text{ TBq/s}$)のTを燃焼させる必要がある。定常燃焼するにはブランケット内で同量以上のTを生産する必要がある、また核融合炉全体でT漏洩率を上記目標値以下

にすることが求められている。したがって単純に考えて、Tが直接接する箇所から外部環境までT濃度比を $1/10^5$ 以下にする必要がある。そのため、連続的にブランケットからのT回収率目標値を上記のように定め、さらにTの透過漏洩を $1/10^3$ (透過低減率 $\text{PRF} > 10^3$)にすることを研究ターゲットとする。

上記目標達成のため、B班を研究手法に応じて2班に分けた。まずB01班(核融合炉ブランケット材中のT移動解明と新規回収プロセス開発の研究)では99.9%の回収率、漏洩制御条件達成のため、化学工学的研究の立場から、新規回収法の開発研究、流動ブランケットからのT移行挙動解明と効果的掃出法の開発を研究課題設定に設定した。次いでB02班は、同じ課題達成のため、より安定に増殖性能を発揮する新規増殖材開発、透過低減率 $\text{PRF} > 10^3$ を達成する新規酸化膜を開発するとともに、構造材料の腐食防護のため、液体増殖材中の不純物(特に窒素(N))除去の実験的検証を行うように組織した。以下の節で得られた成果を説明する。

4.2 固体・液体ブランケットにおけるトリチウム放出挙動に与える流動とパージガス条件の影響に関する研究

4.2.1 固体ブランケットにおけるトリチウム放出挙動

前述の課題達成のためには、図1に示すように、ナノスケールのT移行挙動把握から、メータスケールの回収装置設計に至るまできわめて広い領域の研究が必要である。またT濃度範囲も 10^{10} 倍に及び、研究手法は対象とする増殖材料により異なる。本節でまず固体ブランケットからのT放出挙動に与える、パージガスの流動や添加水素等の影響の実験結果を説明する。

B01班の榎枝・関ら(日本原子力研究開発機構)[3]は、 Li_2TiO_3 等の固体増殖材球充填層内の流動可視化実験を通して、TBRをミクロスケールで正確に予測制御するとともに、T回収を効率化することを研究目標とした。図1の右下図は、その一例であり、ブランケット候補材である

ブランケットトリチウム研究の特殊性 (1)極めて広い長さスケールでの研究遂行

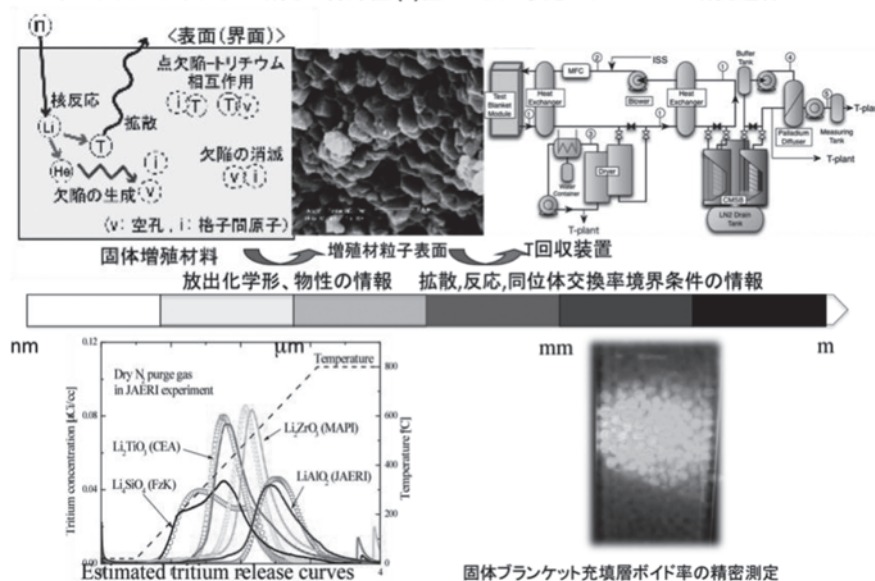
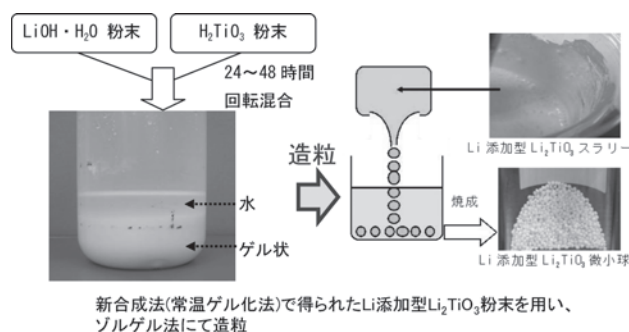


図1 固体ブランケットからのT放出と回収に関連する研究ハイライト。

Li_2TiO_3 粒子回りの流動状態を直接観察するため、水と同じ屈折率を持つメックスフロン模擬球充填層を製作し、内部流動、ミクロTBR予測と試験体内の流動数値解析を行い、圧力損失、パージガス速度場からのT輸送予測を行うことに成功した。本研究の成果はITER-TBMにも生かされている[4]。

また片山・西川ら(九州大学)[5,6]は、中性子照射後 Li_4SiO_4 や Li_2TiO_3 セラミック材からのT放出実験を行い、放出率の数値計算による予測を行った。図1の左下図を見てのとおり、各セラミック増殖材からのT放出率の実験値(○印)と計算値(実線)とはよく一致しており、セラミック内部や表面での拡散・吸着・同位体交換の挙動が定量的に把握できる状態にある。計算モデルには、セラミック微粒子固体内のT拡散、微粒子間隙中の拡散、表面反応抵抗、水素-水素同位体間の交換反応、水素-水蒸気同位体間の交換反応、粒子ペレット間隙中の濃度混合の寄与を含み、当該研究者が得たT放出結果だけではなく、過去に日米欧の中性子照射実験で得られたT放出結果もよく定量的に表せることが確認された。さらに固体増殖ブランケットにおけるヘリウム(He)パージガス配管からのT透過漏洩の予測実験を行い、酸化膜形成のT漏洩への影響を明確にすることができた。

さらにB02班の星野(日本原子力研究開発機構)[7]は、固体ブランケット用T増殖材料の第一候補材である Li_2TiO_3 が、高温で長時間使用される際のLi蒸発や水素還元の影響を低減させるため、よりLi含有量の多い Li_2TiO_3 (Li添加型 Li_2TiO_3)の新たな合成手法を提案した。本法は、図2に示すように[8]、水酸化リチウム-水和物($\text{LiOH} \cdot \text{H}_2\text{O}$)とメタチタン酸(H_2TiO_3)を数日間混合させることにより、常温にて始発原料同士の固相反応が進行し、ゲル状とする革新的な合成法である。得られたLi添加型 Li_2TiO_3 粉末を用い、ゾルゲル法により直径約1mmの微小球の製造に成功し、核融合炉ブランケットへの早期装荷を

図2 Li添加型 Li_2TiO_3 の製造技術[8]。

めざした高品質で高性能を有するLi添加型 Li_2TiO_3 微小球の製造技術を確立し、水素同位体との相互作用による蒸発特性変化等を研究した[8]。

4.2.2 液体ブランケットにおけるトリチウム移行挙動

液体増殖材では、Tは液体ブランケット材内の核反応で同様に発生するものの、増殖材料とTとの結合状態や親和性が材料により、大きく異なり、したがってその取り扱いも異なる。例えば、1ppmのTを溶解する液体ブランケット材のT平衡圧を比較すると、

$$P_{\text{T,Li}}/P_{\text{T,Li-Pb}} \approx 10^{-10}, \quad P_{\text{T,Li-Pb}}/P_{\text{T,Flibe}} \approx 10^{-4}$$

と値が大きく異なるので、それぞれ別の実験的検討が必要である[9]。

まずB01班の九大グループ[10,11]は、ITER-TBM等で注目されている増殖材料液体増殖材のLi-Pb共融合金中の水素同位体溶解、拡散、透過率を、非定常透過法を用いて測定しH-D間の同位体効果を決定した。過去に測定値はあるものの、Li-Pbへの水素溶解度が測定値間で最大5桁もの違いがある中で、初めてH-D間の同位体効果を明らかにしたものである。結果は溶解の同位体効果と拡散の同位体効果に分けて調べられ、多成分系における同位体挙動が定量的に説明された。その結果を用いて、Tでの値を十分な

精度で予測することができると考えられる。その他、Li-Pbの組成の違いに基づくLi活量の決定、Li-Pb中のH原子の存在状態を第一原理に基づく数値計算と求めた拡散係数や溶解度の活性化エネルギーとの比較に基づき明らかにし、溶融合金全般の基礎研究にも重要な寄与をなした[12]。

さらに鈴木・寺井ら（東京大学）[13]は、自然対流下でかつ原子炉中性子照射下のLi-Pb配管からのT透過漏洩挙動を実験的に研究した。東大弥生炉のファストカラムの真空チャンパ内に、縦横ともに50 cm程度の小型Li-Pb自然対流ループを、炭素鋼配管を用いて製作し、約4 cm/sの流速を得た状態で中性子照射を行った。中性子照射によって生成し、ループの炭素鋼配管から透過漏洩するTを連続測定したところ、T透過速度係数は図3に示すように、Li-Pbの流速に依存せず、体系中の水素圧に依存した。透過の律速過程はLi-Pb液相境膜拡散ではなく炭素鋼内拡散律速および表面酸化膜内移行によって説明され、非流動条件下でのT放出挙動研究が流動下に直接応用可能であることが示唆された。

九大グループと相良（核融合科学研究所）[14]は、FFHRヘリカル型核融合炉T増殖材兼冷却材としてFlibeを考え、中性子照射FlibeからのT回収実験を行った。図4は、中

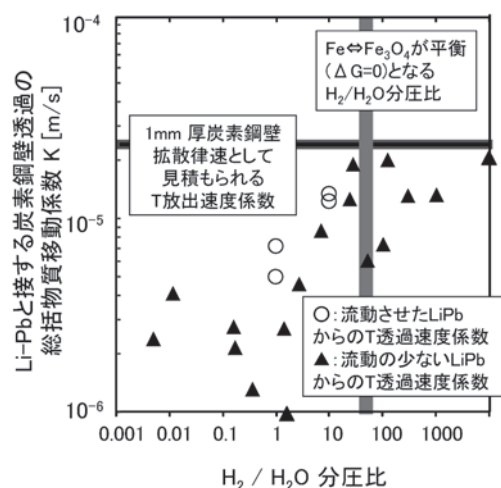


図3 Li-Pb 自然対流条件下のT透過に関する物質移動係数[13]。

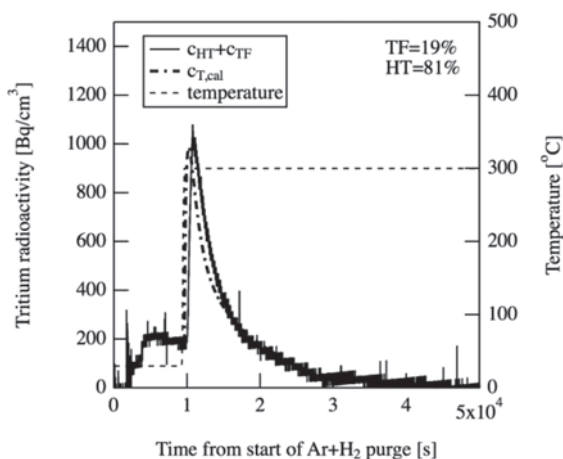


図4 FlibeからのT放出実験と解析結果の比較[14]。

性子照射後FlibeにHeガスを接触させ放出したTの濃度とFlibe内の拡散、表面同位体交換、再結合等の効果を考慮した数値計算結果の比較であり、ほぼ全域にわたりT放出率を予測することができた。また、東大弥生炉による照射試験においても、還元材である金属ベリリウム（Be）を浸漬したFlibeからのT放出試験が行われ、透過放出するTの全量がT₂の化学形を持つことが確認された。したがってFlibeブランケットでは、TFのT₂への還元処理、それに伴うT透過率の低減を行うことにより、99.9%以上の回収率を達成することができることがわかった。必要な装置は、He-Flibe向流抽出塔であり、この装置設計に必要な解析式を求め、数値計算して成果を報告している[15]。その他、Flibe溶融塩の水素同位体の存在状態を調べるため、過去報告されている不活性ガス溶解度と分子径の効果、表面張力の効果を調べ、溶融塩中に分子形で溶解するガスの基礎化学分野にも重要な寄与をなした[16]。

4.3 ブランケットからのトリチウム回収率の評価

4.3.1 固体ブランケットからのトリチウム回収

河村ら（日本原子力研究開発機構）[17,18]は、固体ブランケットHeパージガスからの新規回収システムの研究を行った。プロトン導電性セラミック材を使ったシステムは、従来の低温吸着法よりTインベントリが少なく、小型化が可能であり連続的にTの回収分離が可能である。図5はH₂+HT混合ガスを供給した時のT分離係数であり、Heから回収するとともに、T分離も同時に達成することができ、約14段直列に繋ぐことにより、99.9%のTを分離回収する性能が証明された。

固体ブランケットに関連して、過去に各材料TBRやT保持量が、原子炉で発生させた熱中性子による照射実験等によって求められてきた。問題はブランケットシステムとして、発生から最終的に回収までを含め、TBRが設計どおり機能を発揮するか、ブランケット外へのT透過率を抑えつつ、必要な回収率が維持できるように新規回収システムを構築できるかである。

落合や河村ら（日本原子力研究開発機構）[19]は、固体増殖ブランケット模擬体系によるD-T中性子照射実験を行い、生成Tの回収率を評価した。原子力機構D-T中性子源

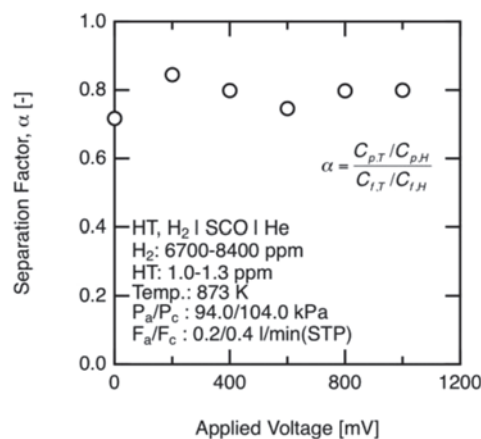


図5 プロトン導電性電池システムのT分離係数[17]。

であるFNSで発生させたD-T中性子を固体増殖ブランケット模擬体系中にある Li_2TiO_3 微小球ペブルに照射し、ガスパージ法や溶解法でT生成量と回収量を測定した。その結果、高エネルギー中性子束から計算されたT生成量とT回収量は良く一致することを明らかにし、世界で初めてD-T反応、T生成反応、およびT放出・回収がつながることが実証されるとともに、生成したTの全量を回収する見通しを得た。また回収したTのうち、T水(HTO)として回収されたものは、速やかに Li_2TiO_3 から回収され、またTガス(HT)は酸化銅ペット通過の影響を受けて、数時間程度遅れて回収されることも明らかにした。

4.3.2 液体ブランケットからのトリチウム回収

液体ブランケット材でT回収を行う際に、吸着や拡散の効果が影響するとともに、材料相互作用が複雑に絡むことを考慮する必要がある。Liは最もTBRが大きく、克つT平衡圧がきわめて小さく、T透過が最も小さいブランケットが構成できる材料である。しかし問題は、溶解度がきわめて高いので、T回収が難しく、インベントリーが非常に高くなる可能性がある。九大グループ[20]は、回収材であるイットリウム(Y)の表面をフッ化水素(HF)で処理した材料を使い、図6に示すようにLi中に溶解した1 ppm以下のTを50%以上回収することに成功した。さらにLi流動状態における溶解水素同位体のY粒子による回収実験に成功し、流動状態回収率を物質移動係数により整理することで、水素濃度と流動速度に依存しない係数を実験的に求めることができた[21]。この結果を利用しLi中のTを99.9%まで回収する装置を設計するとともに、この成果は、IFMIF-EVEDAにおける液体LiターゲットのT回収装置の設計に反映させることができた[22]。

また、B02班の八木・鈴木ら[23,24]は、Tを含むLiと接する金属壁からのわずかなTの透過漏洩を捉え、Li中の水素同位体濃度を連続的に測定する手法を開発し、H、Dおよび照射下で発生させたT(図7)のいずれの水素同位体に対しても時間遅れの少ない濃度測定を可能とした。さらに純鉄被覆を施したチタンの利用により、緻密な表面酸化膜等を形成せず高透過性を維持する透過壁の実現の見通し

を得た。本測定法を利用し、Li中水素がYによって回収されていく際のLi中水素の濃度減少についてその場観察に成功したほか、高温域においてLi中の窒素(N)不純物が水素回収の阻害要因として働くことを見出し、N不純物回収試験を実施した。

4.4 トリチウム透過防止膜の評価

B02班の近田・寺井ら[25]は、透過低減率PRFが 10^3 を超える酸化膜材料の検討を行った。PRFについては過去アルミ酸化物(Al_2O_3)被覆や金(Au)被覆等の実験が行われてきたが、 10^3 を達成するのが限界で、また長期の性能維持と熱応力による割れ等の問題があった。東大グループは、エルビウム酸化物(Er_2O_3)被覆を真空アーク蒸着法と有機金属分解(MOD)法によって実施し、割れ等の発生をきわめて低く抑えることによって、現在のところ高温における世界最大のPRFを得た。図8にみるように温度依存性があるが、真空アーク蒸着法で基板両面に被覆した試料において最大 10^5 のPRFが達成されている。さらに、酸化物中間層の影響、Tは薄膜中で主に粒界を拡散するなど、T透過機構についても解明された。大面積基板への成膜可能性を有する湿式法の一つであるMOD法においても、結晶化プロセスにおける酸素ポテンシャルの制御によって割れを引き起こす基板酸化物層の生成を低減し、サブミクロン

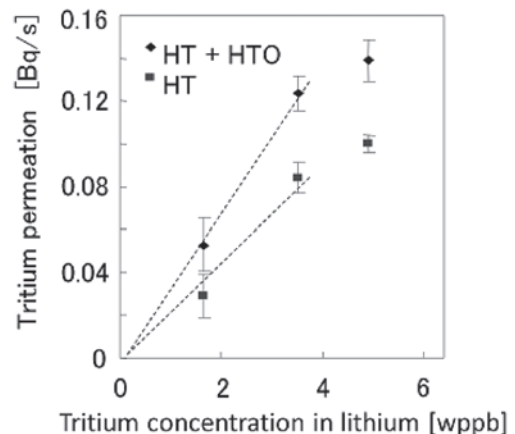


図7 純鉄壁を用いたリチウム中T濃度の測定[23]。

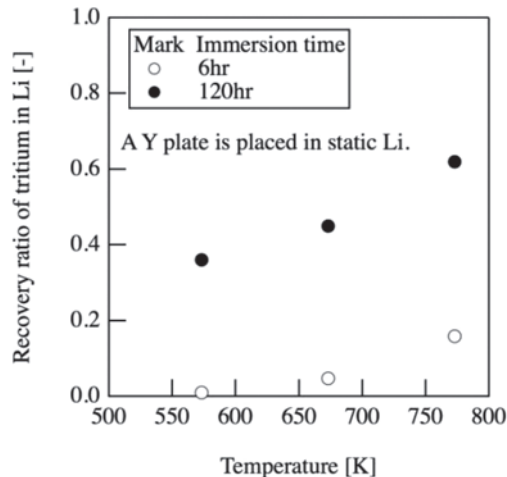


図6 静止LiからのY板によるT回収率の変化[20]。

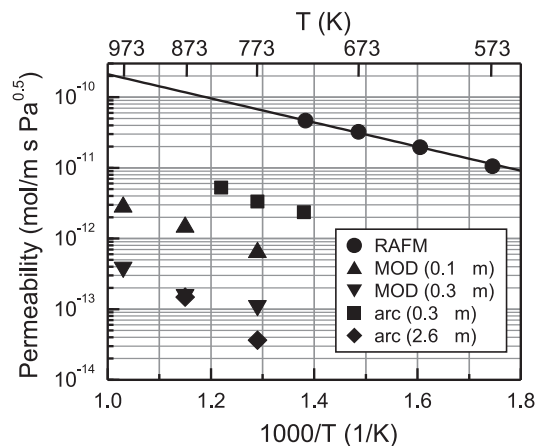


図8 T透過阻止率の温度依存性[25]。

の膜厚で 10^3 の PRF を実現した。

4.5 ブランケットトリチウム研究のまとめ

当初研究計画にも挙げた B 班の目標である、「核融合炉固体・液体ブランケットの T 移行の道筋を定量化できたか、および目標回収率と透過率低減目標を達成化できたか」について、次のようにまとめることができる。

- ・99.9% の回収率達成については、Li 流動ループや固体ブランケット He パージガスからの T 回収の基礎過程の定量的解明に基づき、これを具体的回収装置設計作業につなげ、その回収率達成のための装置設計を明確に表すことができた (B01)。
 - ・透過率低減については、 ErO_2 膜を MOD 法で製作し、小型ながらそれが透過阻止能を持つことを明らかにできた。世界最高性能の透過率低減率 $\text{PRF} > 10^5$ を達成し、将来の大規模装置への適用が可能なように湿式法を新たに開発した (B02)。
- 道筋の定量化については、
- ・固体ブランケット内部可視化に世界で初めて成功し、ミクロスケール内部流動とマクロ圧力損失、T 移動が一つにつながった (B01)
 - ・固体増殖材への水分影響が定量化でき、固体内部からの T 放出の定量化に成功した (B01)
 - ・ブランケットパージガスからの新規 T 回収装置としてプロトン導電性セラミック型除去装置を開発し、実用への適用可能性を示した (B01)。
 - ・増殖材の TBR 改善、および Li 蒸発や水素還元の影響を低減させるため、Li 添加ブランケット材を改良した。世界でも最先端研究として認知されている (B02)。
 - ・D-T 中性子を日本のブランケット第一候補材 Li_2TiO_3 に照射し、T 移行挙動と回収を初めて実証した (B02)。
 - ・Li 中の T 濃度測定に成功した (B01, B02)。Y 回収装置による回収を実証した (B01)。
 - ・Li-Pb の中性子照射、自然対流、溶解・拡散同位体効果により T 移行と物性が定量的に求められた。
 - ・Flibe からの T 放出予測に成功した (B01)。

謝 辞

本特定領域計画研究班は、表題下の執筆者以外に、B01 班:西川正史, 片山一成(以上九州大学), 榎枝幹男, 河村 繕範, 関 洋治(以上日本原子力研究開発機構), 相良明男(核融合科学研究所)の各氏, B02 班:近田拓未, 八木重郎(以上東京大学), 星野 毅(日本原子力研究開発機構), 田中照也(核融合科学研究所)の各氏が熱心に研究し、本報告に挙げた貴重な成果を得ました。ここに謝意を示します。

参考文献

- [1] 深田 智他: プラズマ・核融合学会誌 85, 704 (2009).
- [2] 寺井隆幸他: プラズマ・核融合学会誌 85, 708 (2009).
- [3] M. Enoda *et al.*, *to be published in Proc. ITC-21*, Toki-Conf. (2011).
- [4] Y. Seki *et al.*, *to be published in Proc. CBBI-16* (2012).
- [5] H. Yamasaki *et al.*, Fusion Sci. Technol. 60, 1151 (2011).
- [6] T. Hanada *et al.*, J. Nucl. Mater. 417, 735 (2011).
- [7] T. Hoshino *et al.*, J. Nucl. Mater. 417, 684 (2011).
- [8] T. Hoshino *et al.*, Fusion Eng. Des. 82, 2269 (2007).
- [9] S. Fukada *et al.*, J. Nucl. Mater. 417, 727 (2011).
- [10] Y. Edao *et al.*, Fusion Sci. Technol. 60, 1163 (2011).
- [11] Y. Edao *et al.*, J. Nucl. Mater. 417, 723 (2011).
- [12] D. Masuyama *et al.*, Chem. Phys. Lett. 483, 214 (2009).
- [13] A. Suzuki *et al.*, Fusion Sci. Technol. 62, 295 (2012).
- [14] Y. Edao *et al.*, Fusion Sci. Technol. 55, 140 (2009).
- [15] S. Fukada *et al.*, Fusion Eng. Des. 85, 1314 (2010).
- [16] S. Fukada *et al.*, Proc. Joint Symp. Molten Salts 875 (2008).
- [17] Y. Kawamura *et al.*, Fusion Eng. Des. 86, 2160 (2011).
- [18] T. Hirose *et al.*, Fusion Eng. Des. 86, 2265 (2011).
- [19] Y. Kawamura *et al.*, *to be published in Fusion Eng. Des.* (2012).
- [20] S. Fukada *et al.*, Fusion Sci. Technol. 54, 117 (2008).
- [21] Y. Edao *et al.*, Fusion Eng. Des. 85, 53 (2010).
- [22] H. Kondo *et al.*, Fusion Eng. Des. 86, 2437 (2011).
- [23] J. Yagi *et al.*, Fusion Sci. Technol. 60, 1014 (2011).
- [24] J. Yagi *et al.*, J. Nucl. Mater. 417, 710 (2011).
- [25] T. Chikada *et al.*, Nucl. Fusion 51, 063023 (2011).



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. トリチウムシステム

山西敏彦, 波多野雄治¹⁾, 赤丸悟士¹⁾, 朝倉大和²⁾, 磯部兼嗣, 岩井保則,
奥野健二³⁾, 小田卓司⁴⁾, 大矢恭久³⁾, 杉山貴彦⁵⁾, 田中 知⁴⁾, 鳥養祐二¹⁾,
中村博文, 林 巧, 原 正憲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, 富山大学水素同位体科学研究センター¹⁾,
核融合科学研究所²⁾, 静岡大学理学部³⁾, 東京大学大学院工学系研究科⁴⁾, 名古屋大学大学院工学研究科⁵⁾

(原稿受付: 2012年7月4日)

Keywords:

Tritium, decontamination, confinement, permeation

プラズマから排気されたガスは, 図1に示す燃料循環系で処理された後再注入される. この燃料循環系は, 排気・精製捕集・同位体分離, 燃料調整・供給および, 増殖トリチウム(T)回収(ブランケットで生成したTを回収)から構成される. 各システムは, 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. 各システムの概要は, すでに報告されている文献に詳しいので, 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T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T供給流量が必要である. 核融合炉

作業従事者の被ばくおよび核融合炉周辺環境へのT漏洩を防止するためには, この10kg/日で循環する膨大な量のTを適切に閉じ込めなければならない. しかしながら, T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T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Tを閉じ込めなければならない.

Tを閉じ込めるためには, Tを取り扱う機器, 配管等(1次閉じ込め系)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), 万一の漏洩事象が発生した場合に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. 具体的には, 建屋等を負圧維持し, 漏洩したTを除去する設備を備えること, つまり, 2次閉じ込め系を構成することである. 核融合研究に係る世界の主要T取り扱い施設[3-5]は, 基本的にこの考え方に基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, 水素同位体であるTを含む. よって, T濃度を十分に管理した上で, これら不純物を排出する必要がある. 機能的なT閉じ込めを形成しなければならない. 5.1節において, これら, T閉じ込め(物理的および機能的)に関する研究成果を記述する.

核融合炉が, ITERの先, 原型炉と進んでいくためには, T増殖ブランケットシステム, 発電システムでのTの取り扱いが, 新たな課題としてさらに加わることになる. 上記システムでは大量の冷却水を持っており, そこにTの移行を許さないことが, 核融合炉を成立させるためにきわめて

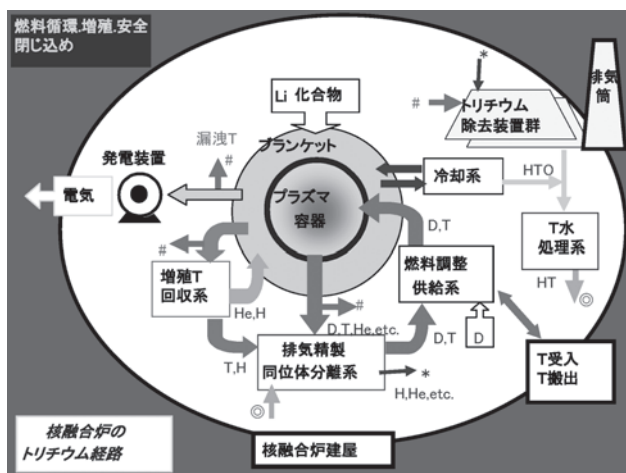


図1 核融合炉におけるトリチウム(T)の流れ.

5. Tritium Systems of Fusion Reactor

YAMANISHI Toshihiko, HATANO Yuji, AKAMARU Satoshi, ASAKURA Yamato, ISOBE Kanetsugu, IWAI Yasunori, OKUNO Kenji,

ODA Takuji, OYA Yasuhisa, SUGIYAMA Takahiko, TANAKA Satoru, TORIKAI Yuji, NAKAMURA Hirofumi, HAYASHI Takumi and HARA Masanori

corresponding authors' e-mail: yamanishi.toshihiko@jaea.go.jp, hatano@ctg.u-toyama.ac.jp

重要である。つまり、冷却水系への T 透過漏洩制御の技術がまさに必須となる。また、炉運転に伴い蓄積される T 汚染物の T 除染技術開発も、T の取り扱いという意味で、核融合炉の安全性における最も重要なキーワードの一つとなる。これら T 透過漏洩制御、除染に関する研究成果を 5.2 節において記述する。

5.1 トリチウム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解明

核融合炉での T 閉じ込め技術を確立するためには、まず 1 次閉じ込め系である機器からの T 漏洩量とその化学形を知ることが要求される。これにより、建屋等の 2 次閉じ込め系および T 除去系の設計が可能となり、核融合炉での T の閉じ込めが完成する。核融合炉の真空容器では、高濃度 T 水および多様な有機 T が生成する。水素形 (HT, DT, T₂) の T 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 T 取り扱いが見通せるレベルに達した。T 水および有機 T に関しては、パッチ的に T を除去・回収するシステムしか未だ開発されておらず、ITER 運転後期に必要となる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。高濃度の T 水中では、放射線による自己触媒反応等により、過酸化水素等が生じ、容器材料の腐食、それによる T の浸透等が生じる。高濃度の T 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。C01 班では、下記の課題に取り組んできた。

- 1) T 水および有機 T が物理的閉じ込め障壁に与える影響および障壁内での挙動の解明：T 水による金属腐食挙動への影響、高分子膜中の T 水の透過挙動、ステンレス酸化層における T の捕捉
- 2) T 水および有機 T の機能的閉じ込めの研究：水処理を行う化学交換塔の高性能化に向けた T 挙動の研究、電解セル高分子材の T 耐久性および T 酸化触媒の開発、セラミック電解セルによる超高濃度 T 水の処理

これら機能的 T 閉じ込め系は、1 次の T 閉じ込め系でありながら、2 次の T 閉じ込め系と同様に環境とのインターフェイスを構成しており、核融合炉安全の鍵となる技術である（図 1 参照）。

以下に、これら 2 つの課題に関する科研費特定領域における 5 年間の研究活動成果の概要を、それぞれの研究項目ごとに総括し、得られた成果と今後さらに必要な研究課題を報告する。

5.1.1 金属-水界面における水素同位体移行挙動

金属-水界面での水素同位体移行挙動の理解は、核融合炉のブランケットや熱交換器等での冷却水への T 透過など、核融合炉の T 閉じ込めに直結する観点から非常に重要である。金属内に原子状態で溶解している水素は真空および不活性ガス中へは金属表面で再結合し水素分子となって放出移行することが知られているが、金属-水界面での水素同位体移行の系統的データはほとんどなかった。よって、T の水側への移行評価においては、気相への水素分子とし

ての移行挙動から保守的に評価することが多く、移行後の化学種についても不明である。本研究では、T および重水を用いて、金属側から水側への移行および水側から金属側への水素の移行を調べ金属界面での水素の挙動について研究した。

5.1.1.1 金属-重水界面を介した重水素の重水から金属への移行挙動

金属界面が水の存在により酸化される場合、その酸化膜形成反応（Schikorr 反応： $3\text{Fe}(\text{OH})_2 \rightarrow \text{Fe}_3\text{O}_4 + 2\text{H}_2\text{O} + \text{H}_2$ ）により、水素が発生することが知られている。そこで、高温耐圧水容器に重水（ $>99.9\%\text{-D}_2\text{O}$ ）を入れ、573 K（15 MPa）に保持し、容器内に設置した純鉄配管（ $\phi 10 \times 90^{\text{L}} \times 1^{\text{T}}(\text{mm})$ ）内に、上述の酸化反応で生成した重水素（D）が、金属界面を透過して移行してくる量を四重極質量分析計にて計測した。その結果、純鉄-水界面での D の生成と、生成した D がガス側へと金属を透過移行する挙動を確認できた。用いた実験装置の概要を図 2 に示す。この D の移行に係る温度依存性を確認したところ、その活性化エネルギーは約 40 kJ/mol であり、D の純鉄中の溶解（27 kJ/mol）、拡散（4.5~8.5 kJ/mol）に加え、界面での Schikorr 反応による D 生成に係る温度依存性を複合したものであろうことが推定された。また、D のマスバランスから酸化膜生成量と大きな矛盾がないこと、発生 D の約 1/2 が透過していることなども確認できた[8]。

ステンレス鋼（SUS304）試料や、純ニッケル試料および、10 μm の金メッキを施した純鉄についても同様の重水実験を実施した。図 3 に典型的な重水素ガス透過速度の経時変化を示す。金メッキ試料以外は純鉄と同様な定常的な D 透過を観測でき、試験後の試料界面の観察から、金メッキ試料以外では、純鉄での T/D 実験と同様に表面酸化物の形成を確認した[9]。

5.1.1.2 トリチウムガスの金属-水界面を介した水側への移行挙動

比較的水素移行挙動がよく理解されている純鉄配管や 7 μm の金メッキを施した純鉄配管（ $\phi 10 \times 75^{\text{L}} \times 1^{\text{T}}(\text{mm})$ ）などに高純度の T（7.4 GBq、 $>90\%\text{-T}$ ）を封入し、配管の外側を、水で満たす、あるいは、水蒸気を含むアルゴン（Ar）ガスでパージした。試料温度は 423 K（0.4 MPa）と

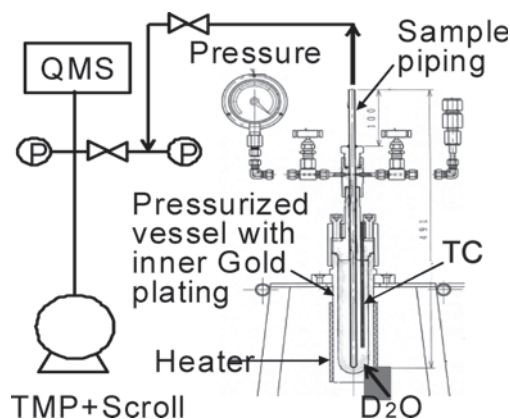


図 2 重水から金属への重水素透過実験装置。

し、配管から、水中および水蒸気含有パージガス中へ移行する T の速度および化学種を測定した。用いた実験装置の概要を図 4 に示す。

図 5 と図 6 に、それぞれ純鉄配管試料と純鉄に 7 μm の金メッキを施した配管試料を用いた場合の典型的な T の透過挙動の経時変化を示す。純鉄界面の場合、重水実験と同様、高温水中で酸化膜 (Fe_3O_4 : magnetite) が形成された。この場合、移行後の水中に存在する T の化学形は主に水状 ($\text{HTO} > 99\%$) であり、金メッキを施して界面の酸素を減少させると水素分子状で移行する割合が顕著に増加した ($\text{HT} \sim 85\%$)。この結果から、移行後の化学形は金属界面の酸素の存在状態や存在量に大きく依存することが判明した。また、水側への移行は 1000 ppm 程度の水蒸気に置き換えても同等であり、液体の水の存在は T の移行に影響を与えないことも判明した[10]。なお、この場合も金属配管の内側 (T ガス側) への水素の移行が検出されており、D 実験結果と矛盾しない。さらに、本実験条件範囲 (数日程度の加熱透過実験期間) 内では、ほぼ一定の T 透過速度が検出できており、軽水素による T の希釈や金属-水界面酸化膜の成長などの変化に依存していない。

これらのことから、金属-水界面では、水素同位体は、水側から金属側への移行と同時に、金属側から水側へも移行していることが明らかになった。前者は、上述のように、主として酸化物層形成により発生した水素が金属側に直接移行するものであり、同位体ごとに単独に (例えば T のみに注目して) 取り扱ってよいことを確認した。一方、後者で

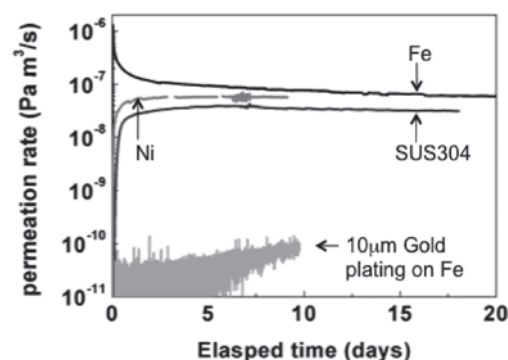


図 3 各種金属試料配管内部への D 透過速度の経時変化 (試料は 573 K, 15 MPa の重水中に保持)。

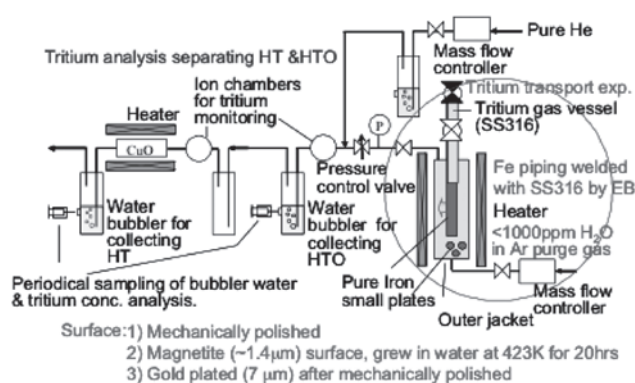


図 4 T の金属から水への透過実験装置。

は、界面に酸化物層が存在する場合、一時的に酸化物に補足されつつ水分子との同位体交換反応で水側に水分子として移行すること、酸化物層がない場合は再結合により水素として移行することが確認できた。

5.1.2 トリチウム水による金属腐食挙動

T 水中では、T の放射化学反応によりラジカルが形成されると共に、界面での水素および酸素と金属の相互作用により、界面環境が大きく変動しうる。実際に、高濃度の T 水中では pH が変化することが報告されており[11]、金属表面に形成され腐食を防ぐ不動態被膜の破壊、腐食酸化物の生成等も生じることが予想される。そのため、物理的閉じ込め障壁となっている金属構造物の腐食促進、局部腐食の誘発など、T 水特有の現象を起こす可能性と、その多大な影響が考えられる。しかしながら、高濃度の T 水の取り扱いが困難であることから、本課題の重要性に関わらず、報告は数少ない[12,13]。水中における金属材料の腐食挙動を調べる有効な手段の一つに電気化学的手法がある。本研究では、金属材料の腐食を測定する代表的電気化学手法

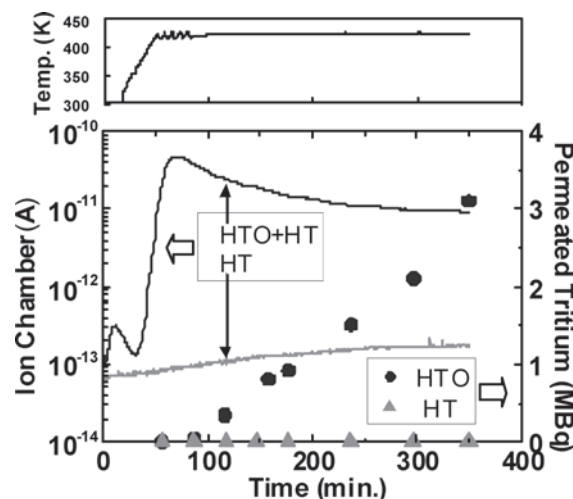


図 5 酸化膜形成した純鉄配管界面からの T 移行挙動と化学形変化 (1000 ppm 水蒸気含有 Ar ガスパージ中へ)。

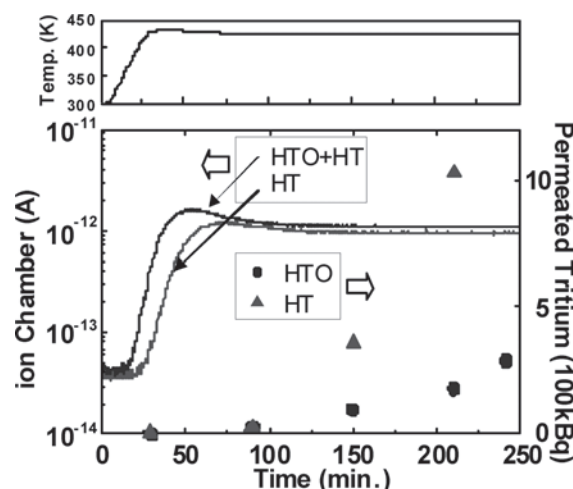


図 6 純鉄配管に 7 μm の金メッキを施した界面からの T 移行挙動と化学形変化 (1000 ppm 水蒸気含有 Ar ガスパージ中へ)。

であるアノード分極測定法と、ターフェル外挿法[14]を用いて、不動態被膜形成過程と腐食速度へのTの影響を調べた。

実験は、JIS規格「JIS G 0579：ステンレス鋼のアノード分極曲線測定方法」[14]に基づき、アノード分極測定およびターフェル外挿測定を、溶存酸素濃度、pH、T濃度をパラメータとして行った。作用極には代表的なステンレス鋼であるSUS304鋼、対極に白金線、参照電極には、銀-塩化銀電極を用いた。

T水による腐食挙動への影響に関しては、1規定(1N)硫酸水溶液中において最も顕著にT水の影響が現れた。図7にTを入らなかった場合、図8にT濃度が 0.23 GBq cm^{-3} の場合のアノード分極曲線の溶存酸素濃度依存性を示す。各測定とも、表面の不動態被膜を除去した活性な状態にした後、30分間保持した条件下から行っている。溶存酸素濃度の増加に伴い、低電位側のピークが消滅すると共に、曲線の開始が高電位側にシフトする現象が認められる。これは、水中の溶存酸素により、金属表面に酸化被膜(不動態被膜)が形成されていることを示している。両図を比較すると、T水中では、不動態被膜形成に必要な溶存酸素濃度が増加していることがわかる。つまり、T水による自己不動態化の阻害作用が存在することが明らかとなった。加えて、自己不動態化が生じない条件下において、分極曲線の

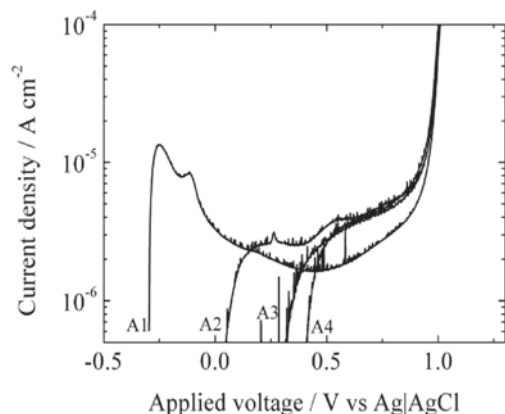


図7 Cold条件下におけるアノード分極曲線の溶存酸素濃度依存性。A1, A2, A3, A4: $<0.1 \times 10^{-5}$ (O-free), 4.3×10^{-3} , 0.43, 8.6 wt. ppm..

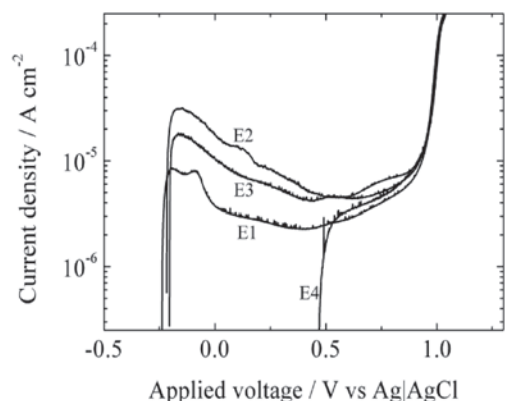


図8 0.23 GBq cm^{-3} のT濃度の条件下におけるアノード分極曲線の溶存酸素濃度依存性。E1, E2, E3, E4: $<0.1 \times 10^{-5}$ (O-free), 4.3×10^{-3} , 0.43, 8.6 wt. ppm..

形状が変化していることがわかる。T濃度依存性を調べた結果、T水による自己不動態化阻害効果は比較的低濃度(2.2 kBq cm^{-3})から現れたのに対し、分極曲線の形状への影響は比較的高い領域のT濃度(22 MBq cm^{-3} 以上)のみで観測された。ターフェル測定により算出した腐食速度へのTの影響と比較した結果、1N硫酸水溶液中では、自己不動態化が阻害され、活性な状態に保持されることにより劇的に腐食速度が増加するとともに、不動態被膜自体をも侵すことにより、不動態被膜形成後であっても腐食が促進されることが明らかとなった[15, 16]。

以上の結果より、高濃度T水の流れる配管、特に屈曲部や内面が平滑でない部分(溶接部等)等、不動態被膜が物理的に剥がれる可能性のある部分の腐食が大きく促進される可能性がある他、溶存酸素濃度次第では全体的に腐食が促進されることが予期できる。そのため、通常の水とは腐食挙動が異なることを念頭に設計を進める必要があるとともに、このような影響に対し、適切な措置を施せるよう、不動態被膜への影響のメカニズムを明らかにする必要がある。

5.1.3 高分子膜中のトリチウム水の透過挙動

核融合炉では、グローブボックスのグローブ、ガスケット、絶縁材、放射性廃棄物の梱包シート等、高分子材料の使用が欠かせない。高分子材料が水を吸収、透過させることは周知の事実であるため、使用される高分子材中のT水の透過挙動をあらかじめ評価し、T水の透過および溶解を軽減する方策を立てることが、T汚染物の低減、除染方法の検討を行う上で必要不可欠である。しかしながら、T水の高分子材料中の透過速度データ等は、測定の難しさから未だきわめて限られており[17]、本計画研究班において、代表的な高分子材料について実際にT水を用いて水の透過率と溶解度を測定した。

選んだ高分子材料はポリプロピレン、ポリイミド、セルロースである。ポリプロピレンは炭素と水素のみから構成される疎水性の高分子材であり、吸湿性が少なく、軽量かつ強靱という特徴を持ち、核融合炉でも、汚染材の一時梱包等への利用が考えられる。ポリイミドは、化学構造中にエステル基、カルボニル基、アミド基を含み、高い耐熱性・機械的強度を持ち、電気絶縁材としての利用が考えられる。セルロースは、繊維として広く利用されており、多くの水酸基をもつ親水性高分子材であることに特徴を持つ。

高分子材中の水の透過は、一次元の拡散に従うと仮定すれば、

$$q = D(C_{\text{up}} - C_{\text{down}})At/L \quad (1)$$

で表される[17, 18]。ここで、 D は拡散係数、 C_{up} 、 C_{down} はそれぞれ上流側、下流側の膜表面の水分濃度、 A は膜の表面積、 L は膜の厚さ、 t は経過時間である。水蒸気の膜に対する溶解度を S とし、上流側の水蒸気圧力(p_{up})は一定、下流側の水蒸気圧力は無視できるとすると、(1)式は、

$$q = DS(p_{\text{up}})At/L = P(p_{\text{up}})At/L \quad (2)$$

となる。拡散係数 D と溶解度 S の積は、透過率 P と定義さ

れる。

式(2)の条件を満たす実験装置(ガスを流通式とし、内面を金メッキしたステンレス製の測定容器、透過したT水を捕集する水バブラーを備える)を製作した。試料高分子材は測定容器にバイトン製のO-リングにより固定し、測定容器上流側には、 4.1 MBq cm^{-3} のT水の入ったプラスチック容器をおき、下流側は露点223 K以下の乾燥空気をキャリアガスとして供給した。膜を透過したT水はキャリアガスによって運ばれ水バブラーで捕集される。バブラー中のT濃度変化を測定して、膜を透過したT水の量を評価した。一方、溶解度は、試料高分子材をT水蒸気に暴露して測定した。具体的には試料高分子材を一定温度で2週間以上保持し、続いて、液体シンチレーターに1日浸漬し測定した。シンチレーターと試料との同位体効果は無視できる。

バブラー中のT濃度は、時間とともに直線的に増加した。図9に、T水の透過率の温度依存性を示す。水蒸気圧力、膜厚、表面積および使用したT水の水に対する分子比 6.87×10^{-8} で規格化している。既存の軽水の透過率の値を比較のため示した[19-21]。セルロースの透過率は、ポリプロピレンに比べ約100倍大きく、ポリイミドは10倍程度であった。また、ポリイミドでは温度の上昇とともに透過率が減少し、セルロース、ポリプロピレンでは透過率は温度が高くなるに従い大きくなった。得られた活性化エネルギーはセルロースで 10 kJ mol^{-1} 、ポリイミドで -5.0 kJ mol^{-1} 、ポリプロピレンで 5.4 kJ mol^{-1} であり、いずれも透過率に対して顕著な温度依存性を示さなかった。軽水の透過率の文献値との比較[19-21]では、ポリプロピレン、ポリイミドでは、T水での値と一致し、明瞭な同位体効果は見られない。セルロースでは、T水による測定値は、軽水での報告値の10分の1程度であった。セルロース中の水分子の透過に同位体効果があることが示唆される。

図10に、T水の溶解度の温度依存性を示す。溶解度は水蒸気圧力、膜重量およびTの分子比を用いて規格化した。セルロースが最も溶解度が大きく、ポリイミド、ポリプロピレンの順となり、いずれも温度が上昇するにつれて

減少した。Okamotoらのポリイミドの測定値[21]は軽水によるものであり、3倍ほど大きい。Iwaiらのもの[22]はT水によるものであり、きわめてよい一致を示した。報告値が少ないため、比較は慎重に行う必要がある。溶解エンタルピーはセルロースで -36 kJ mol^{-1} 、ポリイミドで -34 kJ mol^{-1} 、ポリプロピレンで -30 kJ mol^{-1} である。拡散係数は $D = P/S$ であるから、実験で得られた透過率と溶解度を用いて、拡散の活性化エネルギーを評価すると、セルロースで 41 kJ mol^{-1} 、ポリイミドで 29 kJ mol^{-1} 、ポリプロピレンで 40 kJ mol^{-1} となった。

以上の結果から、T水の透過および溶解を軽減する方策として以下を得た。高分子膜中の水の透過率の活性化エネルギーは測定したいずれの高分子材についても比較的小さいが、環境中の水蒸気圧が大きく影響しており、使用環境の水蒸気分圧を低く維持することが重要となる。高分子材への水の溶解度は温度が高くなるに従い小さくなることから、T水の吸収により汚染された高分子材の処理には加熱処理が有効である。セルロースを除くポリプロピレン、ポリイミドでは水蒸気の透過挙動に同位体効果は顕著に現れず、軽水により得られた透過率および溶解度の報告値を使用できる。

5.1.4 ステンレス酸化層におけるトリチウム捕捉

核融合炉の構造材であるステンレス(SS316)は、表面に緻密な酸化膜を形成し、この酸化膜が水素同位体の拡散障壁となる。一方、酸素は水素との親和性が高いため、この酸化膜は水素同位体の捕捉サイトとしても機能し、ステンレス表面におけるT滞留要因ともなる。ステンレスの表面酸化膜の化学状態は試料温度により変化するため、ステンレスの使用温度によりTの滞留挙動が異なることが予測される。Tの管理および制御は、炉内安全性の観点から重要であり、ステンレス酸化膜における水素同位体捕捉挙動の解明を目的とし、ステンレス酸化膜中からのD脱離挙動を昇温脱離(TDS)法にて、表面酸化膜の化学状態をX線光電子分光(XPS)法にて測定した。また、ステンレスからのD放出メカニズムの解明のため、昇温速度を変化させてTDS測定を行いD脱離の活性化エネルギーを算出して律

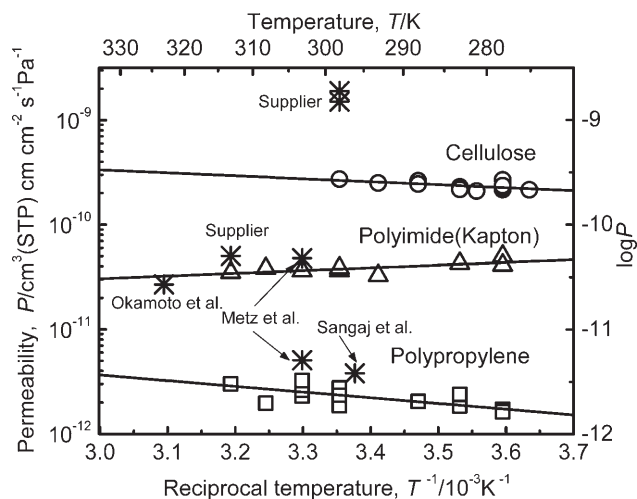


図9 T水蒸気の透過率の温度依存性。

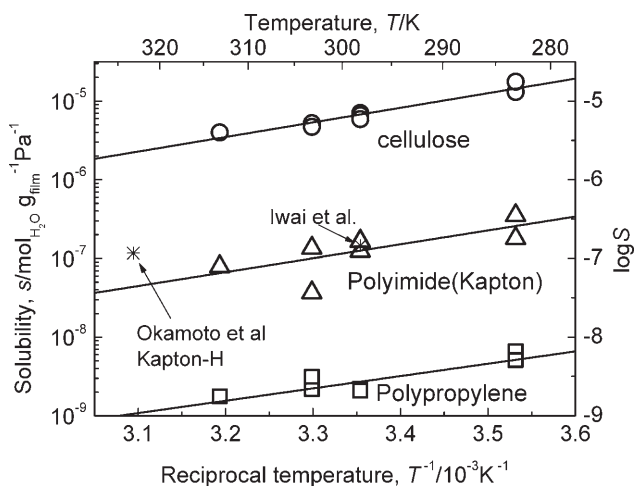


図10 T水蒸気の溶解度の温度依存性。

速過程段階を明らかにした。本研究は、ステンレス酸化膜におけるTの補足・脱離メカニズム解明を最終目的とするものである。しかしながら、1)Dを用いれば広範囲の実験条件で測定でき、補足・脱離メカニズム解明に重要なデータを取得できること、2)DとTで、脱離速度等のデータそのものには同位体効果が生じることが予想されるが、補足・脱離メカニズムについては、DとTで異なることは想定されない。よって、Dでの実験を行った。

試料（ニラコ株式会社製オーステナイト系SS316：10 mm×10 mm×1 mm^t）上に酸化膜を形成させるために、1173 Kで10分間真空加熱して表面の不純物等を除去した後に、圧力0.2 MPa、酸素分圧1000 ppm、温度673 Kにて1時間の酸素ばく露を行い、酸化膜を形成した。その後、重水素ばく露を圧力0.2 MPa、温度573 Kにて1時間行った。ばく露前後にXPS測定を行うことで、ステンレス表面酸化膜の化学状態変化を観察した。また、Dばく露試料に対して、100 K毎10分間の加熱アニーリングとXPS測定を繰り返し行うことにより、各温度による表面酸化膜の化学状態変化を測定した。また同じ試料に対して、TDS測定を、昇温速度を3–40 K min⁻¹と変化させて行った。放出されたDの化学種は高分解能の四重極型質量分析器（QMS）を用いて測定した。

XPSの結果より、Dばく露前のステンレス鋼表面元素組成比は酸素57%、鉄36%、クロム7%であった。710 eV付近に鉄酸化物のピーク（Fe-2p）、577 eV付近にクロム酸化物のピーク（Cr-2p）が観測された。よって、673 Kの酸素ばく露により試料表面には鉄酸化物およびクロム酸化物が形成していると考えられる。530.2 eV付近のピークは金属酸化物（Fe_xO_y or Cr_aO_b）の複合ピーク（O-1s）であると考えられる[23, 24]。Dばく露前後での比較より、酸化物のピークの半値幅が増加することが示され、Dばく露によって水酸基が形成することで酸化物のピークがシフトしたと考えられる。また、100 K毎10分間の加熱アニーリングとXPS測定を繰り返したところ、温度による鉄酸化物およびクロム酸化物の変化を認めることができた。図11に673 Kにて酸化膜を形成した試料の各加熱温度における(a)Fe-2p(b)Cr-2p TDSスペクトルを示す。加熱アニーリングによって鉄酸化物は500–700 Kの温度領域で減少する傾向が見られるが、クロム酸化物は500–900 Kで組成比が増加した後に900–1100 Kでは減少した。特にクロム酸化物に関しては、加熱により一度表面に偏析した後に分解することが考えられる。

TDS測定の結果から、ステンレス中に滞留したDは、主にD₂およびD₂Oとして放出され、その放出温度領域は500–900 Kであることが判明した。D₂とD₂Oの放出量比は約100：1で、Dの大半がD₂の化学形で放出されている。図12に酸化物の分解挙動と昇温速度30 K min⁻¹におけるD₂およびD₂O TDSスペクトルの比較を示す。昇温速度30 K min⁻¹でのTDSスペクトルは、ピーク1（580 K）とピーク2（720 K）に分離することができる。D放出挙動と加熱アニーリングによる酸化膜の化学状態変化を比較してみると、ピーク1としてのD₂およびD₂Oの放出温度領域と

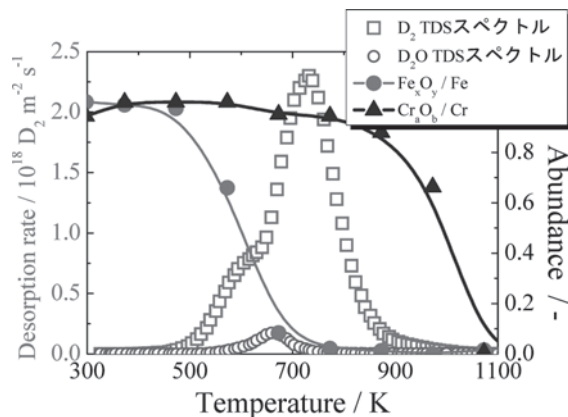


図11 酸化物の分解挙動と昇温速度30 K min⁻¹におけるD₂およびD₂O TDS スペクトルの比較。

Fe_xO_yの分解温度領域が一致することがわかった。一方で、ピーク2の放出に関しては酸化膜の分解と相関性はみられず、またCr_aO_bの分解温度領域はD₂およびD₂Oの放出温度領域よりも高温であった。このことからCr酸化物はD捕捉にはほとんど寄与しない[22]と思われ、バルクに滞留したDの脱離ピークであると考えられる。

昇温速度依存性実験で得られた各TDSスペクトルに対し、以下の式

$$\ln\left(\frac{\beta}{T^2}\right) = \ln\left(\frac{RA}{E_a g(\alpha)}\right) - \frac{E_a}{RT} \quad (3)$$

を用い、 $\ln(\beta/T^2)$ vs $1/T$ のプロットをとることで、活性化エネルギーの算出を行った。ここで、 β は昇温速度、 E_a は活性化エネルギー、 A は頻度因子、 R は気体定数、 $g(\alpha)$ はモデル関数を指している。図13にピーク1の結果を示す。活性化エネルギーは 0.67 ± 0.08 eVであり、酸化膜を有するステンレス中のD拡散の活性化エネルギーと一致し[25, 26]、拡散律速での放出と考えられる。ピーク2の活性化エネルギーは 1.4 ± 0.1 eVであり、表面における再結合律速と想定できる。ピーク2のD脱離は、鉄酸化物がほぼ分解した後の脱離仮定であることから、バルク領域に滞留したDの脱離である。このピーク2としてのDの放出温度領域

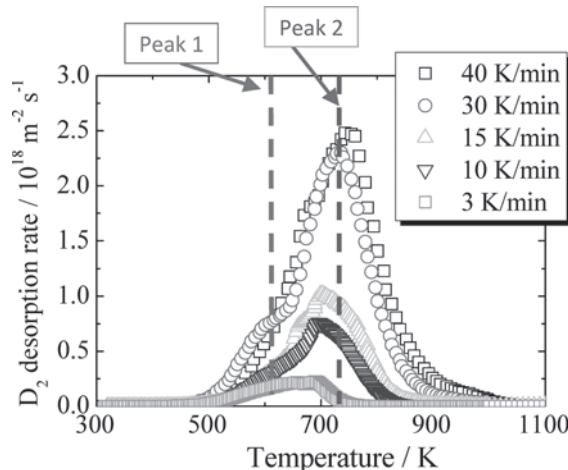


図12 各昇温速度におけるD₂ TDS スペクトル。

域においては、Cr酸化物の表面偏析が起きていることも考えられる。つまり、ピーク2としての脱離には試料表面の Cr_2O_3 が関係していることが考えられ、試料表面におけるDの再結合過程が律速段階となっていると示唆される。

以上を纏めると、ステンレス表面に形成した酸化膜は主に酸素、鉄、クロムから構成され、酸化膜中に形成した鉄酸化物は500–700 Kで分解し、表面クロム酸化物は500–900 Kで一度表面に偏析した後に900–1100 Kにて分解する。放出化学形は D_2 および D_2O である。D脱離はピーク1 (580 K) とピーク2 (720 K) があり、ピーク1は酸化膜に FeO-D として捕捉されたDの放出であり (活性化エネルギー: 0.67 ± 0.08 eV), ピーク2は、バルクからの放出と想定される (活性化エネルギー: 1.4 ± 0.1 eV)。ピーク1は、拡散律速であり、ピーク2は、表面における再結合律速と想定される。これら結論はD実験により得られたものであるが、律速過程、放出メカニズムについては、同じ水素同位体であるTの場合にも、そのまま適用可能と想定できる。活性化エネルギーの値そのものについては、金属中でのDおよびTの活性化エネルギーの比較から類推は可能であるが、酸化膜との親和性に対する同位体効果等不明な点もあり、Tを実際に用いたデータ取得が望まれる。

5.1.5 水処理システムの高性能化に関する研究

5.1.5.1 水処理を行う化学交換塔の高性能化に向けた基礎データ取得

核融合炉から排出されるT含有排水からのT除去・回収は、Tの機能的閉じ込めを最終的に担保する重要な役割を持つ。この水処理システムに用いられる同位体分離技術の最も有望な方法として、水–水素化学交換法と電気分解法を組み合わせたCECE (Combined Electrolysis and Chemical Exchange) がある。CECE法は、「ふげん」の重水精製装置として15年以上もの実績を有し、ITERの水処理システムにも採用された。しかしながら、ITER以後、実証炉、実用炉と開発が進むにつれ、T含有排水の量は桁違いに大きくなるため、現行の技術では対応できなくなる。特に、電解槽の処理流量を大きくできないことが問題となる。本研究では、化学交換塔を高性能化して小型化するとともに、電解槽の負担を軽減する方法を考案することで、水処理システムの実用化に資することを目的とした。

「ふげん」の重水精製装置に用いられたCECEは、水素–水蒸気の化学交換反応を起こす触媒と、水蒸気–水の気液

交換を効率化する充填物を、交互に積み上げたものであった。CECEでは、水素–水蒸気、水蒸気–液の交換が進むことで、塔底にTが濃縮され、塔頂のT濃度が低減されることになる。触媒と充填物を交互に積み上げるのではなく、均一混合充填方式を採用できれば、塔高さを小さく合理化することができる。本研究では、触媒の充填割合が、同位体分離性能に及ぼす影響を、重水素を用いた実験により評価した。実験装置の概要を図14に示す。塔は、内径2.5 cm、有効充填長60 cmである。触媒として、白金 Kogel 触媒と、充填物として Dixon gauze ring を用いた [27]。全充填体積に占める触媒の体積を触媒充填割合と定義しており、充填状況を図15に示す。水素ガスと水の流量比および触媒充填割合を変えて実験を行ったところ、いずれの流量比の条件においても触媒充填割合が30%の場合に分離性能が最大となり、触媒充填割合に最適値が存在することが判明した。また、水蒸留塔の分離性能解析のために独自に開発した「通り抜け段モデル」を水–水素化学交換反応塔に適用できるよう拡張し、分離性能評価手法を開発した。上述の軽水素–重水素系の水素同位体分離性能を、本モデルにより計算した結果を実測値と合わせて図16に示しており、計算値が測定データとよく一致することが実証された [28]。同位体組成が反応塔内の気液の流れや気液の接触効率に及ぼす影響は無視できるので、このDを用いた実験により得た結果は、Tを用いる場合にも適用できる。

通り抜け段モデルの入力として必要となる通り抜け係数のうち、触媒反応の効率を表す通り抜け係数の評価を目的として、約4000 Bq/cm³のT水を用いてKogel触媒の反応効率を測定した。測定結果を図17に示す。この反応効率と、

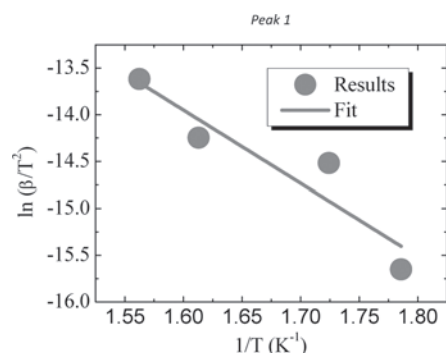


図13 Peak 1 に対するアレニウスプロット。

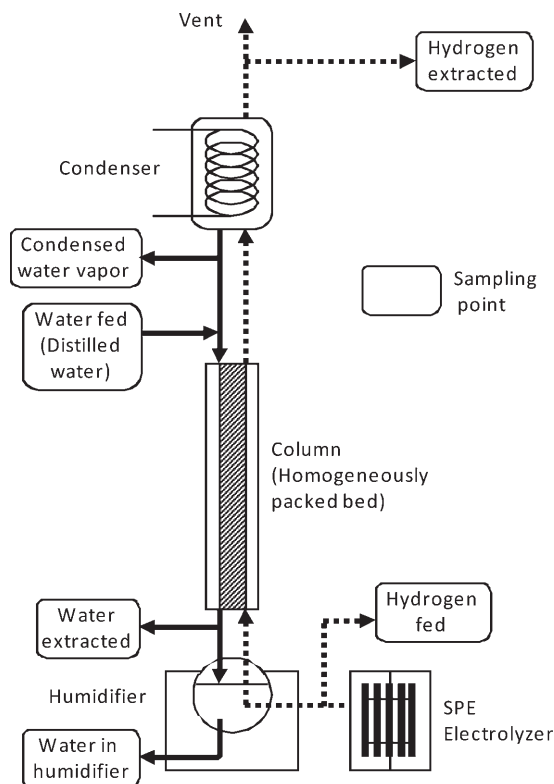


図14 CECE 実験装置。

充填層単位体積あたりの触媒表面積 S_r [cm^2/cm^3]と平均滞留時間 t_0 [s]の積との関係を理論的に次式のように導出し、測定結果にこれをあてはめることにより、総括物質移動係数 k [cm/s]の値として12.8 cm/sを得た[29]。

$$\ln \phi_C = -kt_0 S_r \quad (4)$$

これにより、任意の層高の触媒層や均一混合充填層における触媒反応の効率を推算できるようになった。

5.1.5.2 トリチウム水を用いた CECE の分離実証試験

内径2.5 cm、有効充填長60 cm または100 cm の塔を用い、T 水の分離実証試験を行った。触媒および充填物は先の実験と同様であり、触媒の充填割合は30%とした。電解による水素発生量は5, 6, 8 NL/minとした。水素ガス、水蒸気、液体水のモル流量比は1.0:0.44:1.4であり、T 水の濃度は最大で0.21 MBq/ccであった。有効充填長100 cmの化学交換塔の全分離係数の実測値と通り抜け段モデルによる予測値を合わせて図18に示す。水素ガス流量が

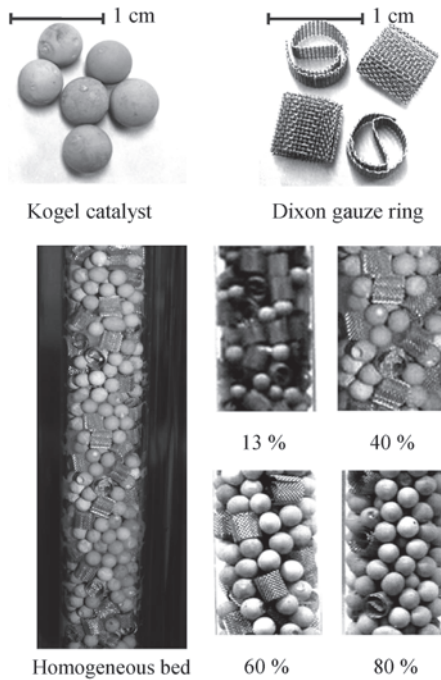


図15 充填物と充填状況。

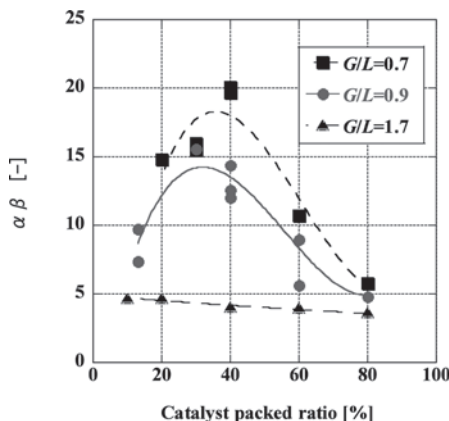


図16 塔全分離係数に触媒充填割合が与える影響。

5 NL/min の場合に、分離係数として19200を得た。また「通り抜け段モデル」による分離係数の予測値ともよい一致を示した[29]。

5.1.5.3 トリチウム水処理システムの基礎設計検討

ITER では、カナダ重水炉の管理実績値より、冷却水中 T 濃度を 370 GBq/kg としている。また、冷却水中への T 透過量は実証炉規模で 130 g/day と予想されていること、透過防止策により透過量が 1/100 に低減できる見通しがあることから、設計する水処理システムの処理流量を 60 kg/h と設定した。CECE 塔に、低温低压および高温高压の化学交換塔を組み合わせた前処理システムを考案し、これらの化学交換塔には、本研究で開発した「均一混合充填方式」を採用する。概要を図19に、計算結果を表1に示す。低温低压塔は20℃、0.1 気圧、高温高压塔は140℃、10気圧という比較的穏やかな条件において、必要な塔高はそれぞれ6 m、塔内径は2 mおよび30 cmと見積もられ、前処理装置により CECE 塔での処理流量を 1/13 にできることを示した。CECE 塔は、塔高10 m、塔内径10 cm、電解処理量 9 m³/h である。

5.1.5.4 気相吸着法による大流量水処理システムの開発に向けた研究

核融合原型炉を見通した場合、CECE の前段に、大流量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。この目的に合う有望な方法の一つとして気相吸着法に着目し、研究開発を進めた。水分吸着塔に T を含む水蒸気を通し、水蒸気中の T が優先して吸着することを利用して、吸着剤に T を濃縮するものである。従来の

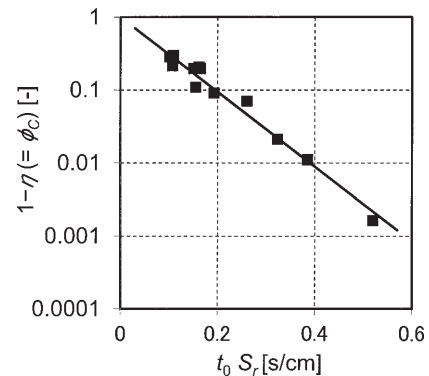


図17 Kogel 触媒充填層の総括物質移動係数。

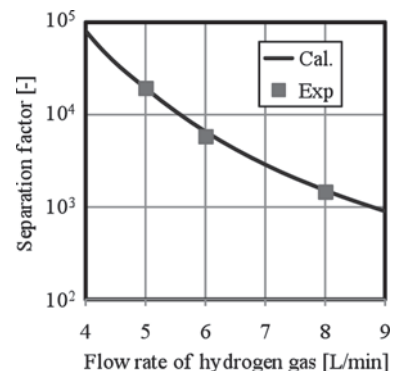


図18 H-T 系の全分離係数。

吸着剤では、水蒸気の脱離が簡単ではないため、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 ($\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$) を制御することで、Tの濃縮能力と水蒸気脱離の簡便化が両立する吸着剤の開発に見通しがついた[30]。Tの濃縮能力では一般的に吸着剤として市販されているシリカ／アルミナ比2.0のフォジャサイト型ゼオライトの静的・動的分離係数はそれぞれ1.22, 1.07であったのに対して、開発したシリカ／アルミナ比10.0のフォジャサイト型ゼオライトの静的・動的分離係数はそれぞれ1.25, 1.35と評価された[31]。シリカ／アルミナ比10.0のゼオライトでは吸脱着速度の同位体差が大きく寄与し、大きな動的分離係数が得られた。また水分脱離にお

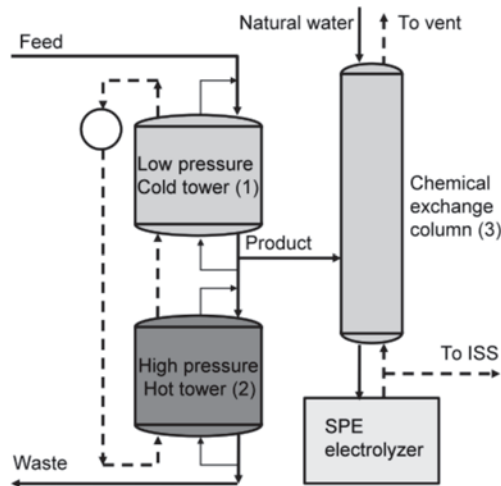


図19 二重温度二重圧力化学交換塔とCECE塔からなる水処理システム。

表1 水処理システム的设计例。

	塔(1)	塔(2)	塔(3)
圧力[kPa]	10.13	1013	101.3
温度[℃]	20	140	70
ユニット数	30	30	50
塔高[m]	6	6	10
塔内径[m]	2.07	0.27	0.1
電解処理量 [mol/h]	392 (7.1 kg/h, 8.8 m ³ STP/h)		

るシリカ／アルミナ比の影響を図20に示す。シリカ／アルミナ比10.0のゼオライトは室温近傍温度においてシリカ／アルミナ比2.0のゼオライトと比して水蒸気脱離性能もきわめて高いことがわかる[31]。吸着剤開発に見通しを得たことから、現在は小型システムを製作し、システム検討を行う段階にまで進捗している。

5.1.6 電解セル高分子材のトリチウム耐久性およびトリチウム酸化触媒の開発

5.1.6.1 電解セル高分子材のトリチウム耐久性

CECEに適用される固体高分子電解セル[32]が、より高濃度のT水に耐久性を持てば、より高濃度への濃縮を可能とし、水素同位体分離システムに送られる水素ガスの量が低減でき、コスト低減に繋がる合理化が期待できる。固体高分子電解セルでは、電解質膜（デュポン社製ナフィオン）、Oリングゴム、電気絶縁シートに高分子材が用いられている[33]。最も重要な電解機能を司るナフィオン電解質膜に着目した場合、電解質膜のナフィオン膜は典型的な放射線分解型高分子に分類されるポリテトラフルオロエチレン (PTFE) を主鎖骨格に持ち、側鎖の末端にイオン伝導性を司るスルホン基を有する。ITERの設計条件である 9.25×10^{12} Bq/kg のT水を2年間連続して電気分解した場合、ナフィオン電解質膜の吸収線量は530 kGyに達するため、数百～数千kGyの線量レベルでのナフィオン電解質膜の機械的強度、イオン交換能等の放射線耐性の検証を進めた。

図21にナフィオン電解質膜の引っ張り強度の、電子線・γ線照射による変化を示す。ナフィオン電解質膜の骨格と同じ構造を持つPTFEは放射線に対する耐久性が低く、数百kGyの線量で完全に劣化してしまう。一方ナフィオン電解質膜は、空気雰囲気下での照射では速やかに劣化するが、実際の使用条件の水浸漬下では劣化は緩やかとなり、1600 kGy 超の線量に対しても実用上の耐久性がある。また、ナフィオン電解質膜の 1.38×10^{12} Bq/kg の高濃度T水浸漬による劣化結果は電子線・ガンマ線照射による劣化評価結果と線量基準で同一となった。Tによる放射線劣化は電子線・ガンマ線照射と異なる特異性はないと結論できる。高濃度T浸漬試料は空気にとらると特有の黄化現象を示し、機械強度が低下するが、酸浸漬により本来の膜性能

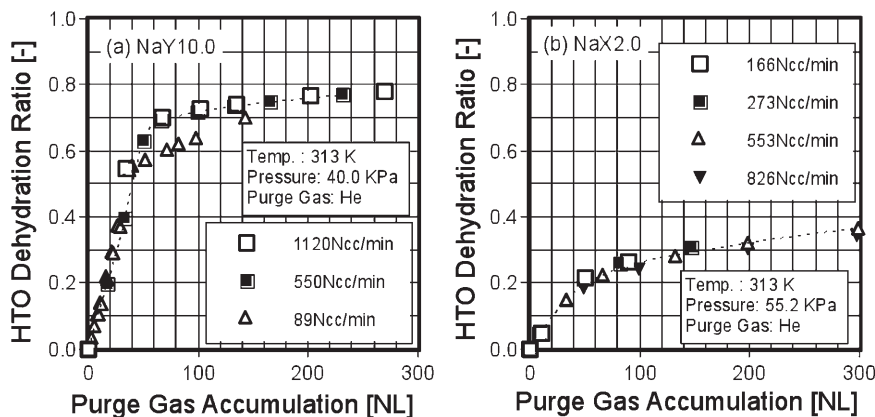


図20 水分脱離におけるシリカ／アルミナ比およびパージガス流量の影響。

に復帰することも認められた。放射線による劣化反応は主に酸素の存在下で促進され、浸漬状態では限られた溶存酸素のために劣化反応は抑制される。またフェントン反応試験から、放射線と水との作用により生成するのと同じ活性中間体（ヒドロキシルラジカル、ヒドロペルオキシラジカル等）の寄与が、室温では低いことを実証し、放射線による高分子構造の直接破壊が劣化の主因であることを示した。ナフィオン電解質膜のスルホン基量の指標であるイオン交換能の放射線劣化は、機械的強度の劣化よりも遅れ、1600 kGyの照射線量でも、イオン交換能の2割程度の低下であった[34]。さらに放射線劣化を促進させる要因として、電解槽に供給するT水中の金属イオンの影響を明らかとした。電解溶液中にある程度の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[35]、水質管理の重要性を示している。

Oリング用バイトンゴムでは、放射線照射により、分子内に水素が多い場合は架橋傾向を、フッ素が多い場合は分解傾向を示した。よって、水素／フッ素比を最適化させたバイトンゴムにより、放射線照射による強度の劣化はほとんど認められず、分解・架橋を抑制した有力な候補材となることを示した[36]。電気絶縁シートについては、高い耐放射線性を示すポリイミドを用いることで対処できる[36]。この成果を受けて、より耐放射線性のあるイオン電解質膜の実現をめざした研究開発を進めた。その結果、電解質膜のスルホン基を特定の金属イオンで置換することで、電解質膜の熱安定性が大幅に向上することを発見し、高温状態における放射線照射を可能としたことで電解質膜骨格を三

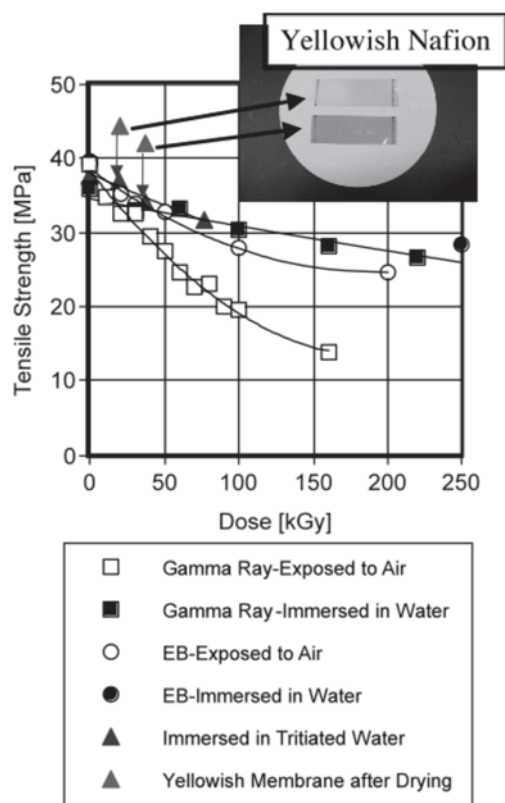


図21 ナフィオン電解質膜の引っ張り強度に対する放射線照射およびT水浸漬の影響。

次元架橋する基礎技術を開発した[37]。

5.1.6.2 トリチウム酸化触媒の開発

Tの除去には、触媒酸化－水分吸着塔方式と呼ばれる貴金属触媒によりTを酸化した後にT水蒸気を乾燥塔（合成ゼオライト）に吸着させて除去する方法が世界のT施設にて広く採用されてきた[38]。貴金属触媒（Pt/Rh等）は、メタンなどのT化炭化水素の除去までを必要とする場合は500℃で、水素の酸化のみでよい場合は200℃で運転される。乾燥塔内に捕集したT水は、高温再生時に廃液として回収され、水処理系で処理されることとなる。施設内に漏洩した水素形Tを水形に酸化する貴金属触媒では、火災（高湿度）や電源喪失（室温）の異常事象発生時にも性能を発揮することが求められる。よって、高湿度雰囲気下の室温という条件においても、Tの酸化性能を持つ触媒の開発を行った。高湿度室温下では、触媒表面に水の膜が生成することで、酸化性能が失われる。そこで、触媒表面での水の膜の生成を防ぐために、疎水化処理を施した新型触媒H1Pを開発した。その結果、従来の白金アルミナ触媒と比較して、室温にて顕著に高いT酸化性能を有し、高水蒸気濃度環境下でもTを酸化できることを実証した[39]。また図22に示すように、T酸化触媒の一般的使用温度である150～200℃（1000/Tで2.1～2.4）ではT酸化の総括反応速度定数は水素（T）の濃度に依存しないのに対して、室温域（1000/Tで3.4）では、反応の律速段階が変化し、T酸化の総括反応速度定数が水素（T）の濃度に強く依存することが認められた[39]。また火災を模擬した有機物燃焼時の性能評価では、エチレン、メタン、プロピレンといった主要発生ガスによる被毒は認められず、有機物燃焼による大量の水蒸気が反応器に導入されることにより、一時的なT酸化性能低下が生じるのみで、その性能は速やかに回復することを実証した[40]。

T閉じ込めにおいて、水素状Tだけではなく、環境へのT化炭化水素の放出を抑制するための技術開発も安全上極めて重要な課題である。T化炭化水素の分解除去に高い活性を有するPd/ZrO₂触媒を開発し、実際にT化メタンを使用した酸化反応試験により、総括反応速度係数の測定と反応速度に影響を与える因子の特定を行なった[41]。Pd/ZrO₂触媒によるT化メタンの酸化では初期は顕著に高い反応性を示すが、繰り返して触媒を使用し続けるとその反応性は徐々に低減し、やがて一定の反応性に落ち着く。この反応性の緩やかな低減は触媒表面への水分吸着の影響であることが示唆された。図23に示すとおり総括反応速度係数は0.004～100 ppmの範囲でメタン濃度には依存せず、温度依存性を示した。またPd/ZrO₂触媒では、総括反応速度係数が反応ガス中の水蒸気濃度に依存する傾向はみられなかった。

5.1.7 セラミック電解セルによる超高濃度トリチウム水処理

炉心で発生するT水は、発生量自体は少ないものの、高濃度である。Tインベントリをできるだけ小さくする観点から、気体状態、すなわち水蒸気で処理ができ、高いT除去係数を持ち、材料に放射線劣化がなく、かつ高い気密

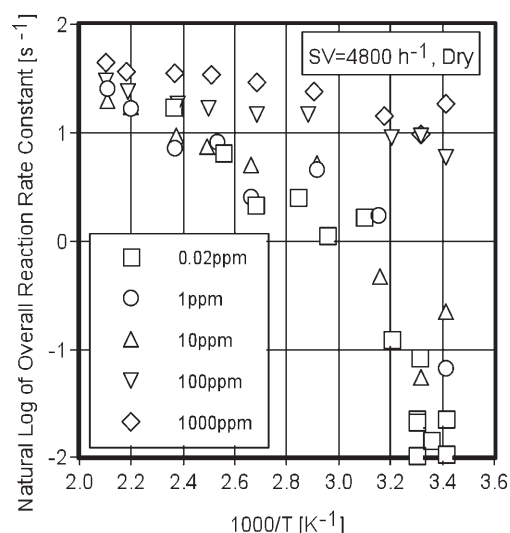


図22 疎水性触媒によるHの酸化に関する総括反応速度（水素濃度の影響）。

性を確保できるという複数の要件を同時に満たす必要があり、ITERにおいても、開発途上段階にあるのが現状である。本計画研究班では、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た。T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ものである。セラミックスと金属で構成され耐放射線性に優れる、気密性にも実績がある一方[42-44]、セラミックス固体電解質における水の分解効率、5.1.6に記した水処理用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、本研究ではそれを最大の課題とした。

気相電気化学反応は、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。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、電極材表面でも三相界面が成立し、きわめて効果的である[45, 46]。この条件を満たす材料として、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24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にセリアを10%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 $14 \text{ mA} \cdot \text{cm}^{-2}$ 、セリア混合電極は約 3 倍の電流密度に達し、セリア二重電極では約 4 倍に達した。微細構造を観察した結果、セリアを使用した電極は、3～4 μm の微粒子が繋がった構造であり、Pt-YSZ 電極は、3～4 μm の微粒子が固まってより大きな粒子が粗く繋がった構造であることが判明し、その影響であることが明らかとなった。

セリアの利用の有効性が証明されたことで、次に、製作

が容易であるセリア混合電極の最適化を行った。一般に混合電極の場合、添加物が3割を超えると電極の構造、密着性などの電極の特性が大きく変化することが知られているため、セリア添加濃度の上限を30%とし、20%、10%の三種類の電極を作製し、水分解特性を評価した。図25に、各電極の800℃における水分解特性を示す。試験時の水分濃度は約1.5%である。特にセリア添加濃度が30%の電極では、従来電極より一桁高い電流密度を得られることが判明した。このように原理実証に成功したため、今後は、実用化に向け、繰り返し使用した場合の長期信頼性、電極の大型化をめざした研究開発の進展が望まれる。

5.2 トリチウムの透過漏洩制御・低減化と汚染・除染

核融合炉システムからのTの漏洩は、作業者の安全および核融合炉の社会的受容性に直結するきわめて重要な問題である。Tの漏洩経路としては、(1)運転時における高温配管材料中の透過、(2)システム開放時や炉外取り出し時における材料からの放出・移行、などが考えられる。これらの漏洩プロセスはいずれも材料の表面状態やバルク中の拡散挙動に敏感に依存する現象であり、これまでも軽水素

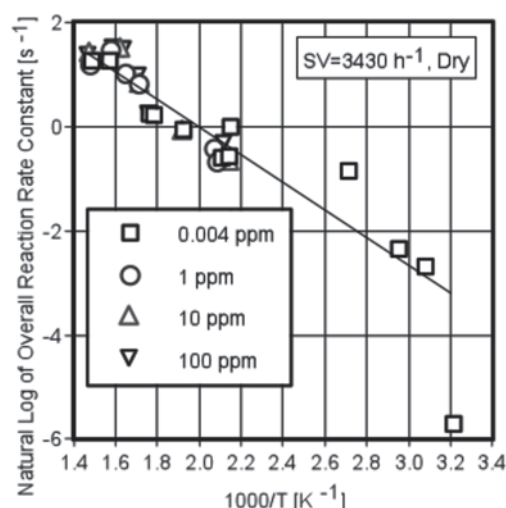


図23 Pd/ZrO₂ 触媒によるT化メタンの酸化に関する総括反応速度係数（メタン濃度の影響）。

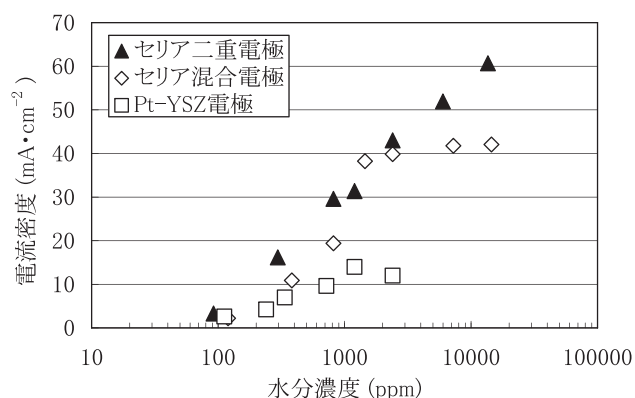


図24 YSZによる水蒸気分解の電流密度変化（印加電圧1.5 V、温度800℃）に与える電極の影響。

(H)やDを用いた研究がなされてきた。しかし、内部被曝リスクに大きな影響を与えるTの放出化学形(主にはHTとHTOだが、後者の方がはるかに人体中に残留しやすい)を支配する因子や、より積極的にT漏洩を抑制する技術に関する知見は不十分であった。また、核融合炉特有の照射環境が材料中のT挙動に及ぼす影響はほとんど理解されていなかった。

そこで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T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員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た。まず、Tシステムの主要構成材料である鉄鋼材料に注目し、高濃度DTガスにばく露した試料中のT分布をイメージングプレート法(IP)等で調べると共に、TやDの放出速度を放出化学形ごとに測定した。並行してX線光電子分光法(XPS)、赤外分光法(FT-IR)等による表面分析を実施し、化学的表面状態や吸着種を調べた。これらの結果より、T放出速度および化学形を支配する因子を考察した。また、より積極的に透過漏洩を低減するため、鉄鋼材料表面に複雑形状への施工が可能な湿式法で透過抑制被膜を形成する技術の開発研究を推進した。加えて、最も高濃度のT汚染が予測されるプラズマ対向材料(PFM)については、最有力候補材であるタングステン(W)に着目し、Tの滞留・除染特性に及ぼす高エネルギー中性子の照射効果を調べた。また、以上のような実験室規模で得られるT放出挙動に関する知見と、大型プラズマ装置中のT挙動との整合性を確認するため、大型プラズマ装置真空容器排気系へのT移行量を連続的に定量評価可能なT回収システムを設計した。加えて、量子力学計算、分子動力学計算、Kinetic Monte Carlo法等に基づくマルチスケールモデリングにより、原子スケールでの理解に基づくTの透過・漏洩モデルを構築し、シミュレーションコードを開発した。

5.2.1 構造材料中のトリチウム透過とその抑制

本特定領域研究の前半では、Tシステムの主要構成材料であるSUS316ステンレス鋼を高濃度DTガスにばく露し、

その後のT放出挙動を室温~573 Kにおいて大気中、真空中、不活性ガス気流中等の広範な雰囲気下で調べたところ、大部分のTがHTOの状態で放出されることがわかった[47]。また、その放出速度はバルク中の拡散過程により支配されていた。加えて、表面にはTが高濃度に集積していた。本特定領域研究の後半の研究では、より広範な温度範囲でD₂ガスを用いて透過実験を行った。D₂ガスを用いたのは、ガス駆動透過実験は長時間を要し測定が数日間に及ぶ場合もあり、管理区域内での実施が容易でないためである。透過が材料中の拡散過程によって律速されている場合には、透過速度は溶解度と拡散係数の積であらわされる。T透過が問題となる高温においては、溶解度および拡散係数の同位体効果は質量数の平方根程度であり[48]、Dを用いてもTの挙動をおおむね予測できる。実際に、高純度Tを用いた透過実験により、金属中のTの透過挙動は軽水素、重水素と比較して若干の同位体効果を有するものの、大きく異なることはないことが確認されている[49]。上述のステンレス鋼表面へのT濃縮に酸化膜が重要な役割を果たしていると考えられたため、その影響を明確にするため、あらかじめ0.2 MPa、673 Kにて1000 ppm酸素に50時間ばく露した。XPSにて酸化膜を分析したところ、その厚みは60~70 nmであった。酸化膜中の鉄(Fe)はほぼ均一に分布しており、Fe₂O₃が主な化学状態であることが示された。一方、クロム(Cr)濃度は表面で低く、酸化膜と金属との界面で高いことがわかった。D₂ガスばく露したステンレス鋼のFT-IRスペクトルでは、図26に示すように2590および2475 cm⁻¹にFeOD伸縮振動のピークが見られ、少なくとも2種類のO-D結合が存在した。このような酸化膜中での水酸基としての捕獲が、T表面濃縮の一因と考えられた。また、加熱により減衰することからDの脱離が示唆された。この試料を用いて、上流側圧力100 Paにて373~673 KにおけるD透過挙動を調べた結果を図27に示す。透過温度の上昇に伴い放出化学種が変化し、500 K以下の温度領域では重水素は主にD₂Oとして、500 K以上の温度領域においては主にD₂として放出された。このD₂からD₂Oへの遷移が生じる温度はO-D分解温度と一致しており、表面水酸基が水蒸気状での水素同位体の脱離に重要な役割を担っていることを示唆している。すなわち、固溶Dと酸化膜中のO-Dの結合や、O-Dと気相中の水蒸気との同位体交換反応により水蒸気状での放出が生じると推察される。図28には透過係数の温度依存性[50]を、過去の報告結果[51-53]も併せて示している。酸化膜の形成によるD透過速度の減少は、図中の矢印で示したように約一桁(10~20分の1)程度である。特に注目すべき点は、酸化膜を形成させたSUS316鋼では、500 K以下の低温領域では透過係数の活性化エネルギーが著しく小さくなっていることである[50]。500 K以下での透過速度が高温のデータを単純に低温側へ外挿した場合より大きくなり、かつ内部被曝リスクが高い水蒸気状での放出が支配的であることは、安全管理上きわめて重要な知見である。活性化エネルギーが大きく低下したことから、酸化膜中の結晶粒界等が透過に重要な役割を担っていると考えられるが、詳細の解明には今

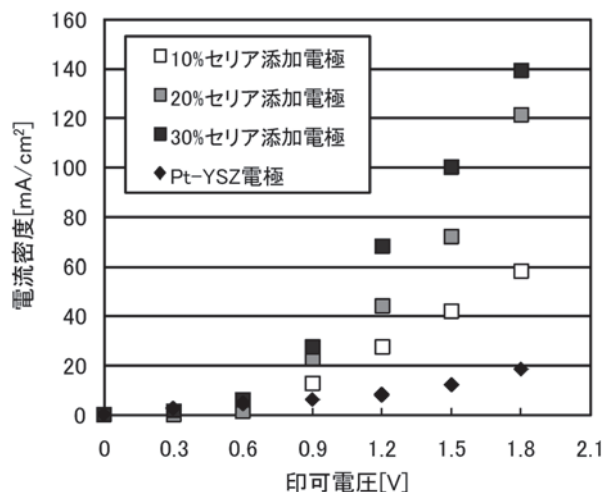


図25 セリア添加電極の水蒸気分解特性に与えるセリア濃度の影響。

後さらなる研究が必要である。

先述のように鉄鋼材料上に形成される酸化膜の透過抑制効果はせいぜい一桁程度であるので、さらなる透過漏洩の抑制をめざし、透過抑制膜の開発研究に取り組んだ。特に、大型・複雑形状物への施工が可能な湿式法に着目した。まず、比較的成膜技術が確立しているめっき法で形成した金属膜の効果を調べた。母材には核融合炉構造材料の候補材であるF82H フェライト／マルテンサイト鋼を用いた。被膜材料としては、文献[47, 54]で報告した金(Au)に加え、バルク材で水素同位体透過速度が小さいことが知られている銅(Cu)とアルミ(Al)を対象とした。母材は直径10 mm、肉厚1 mmの金属管とし、その外側表面に10 μm 厚の被膜を施工した。AuとCuは無電解メッキ法で、Alは溶融メッキ法で成膜を行った。透過実験では D_2 ガスを試験体内側に充填し、試験体外側に透過したDを四重極質量分析計で測定した。 D_2 ガス圧力は133 kPaとし、試験体温度は500 Kから833 Kの範囲で実験を行った。なお、下流側が高真空に保たれていること、試験温度が比較的高いことから、本実験条件下では水蒸気状での透過は無視できる程度であった。図29に各種金属被膜を施工したF82H試験体からの定常状態におけるD透過速度を示す。参考のためにF82H中のD透過の文献値もあわせて載せている[55, 56]。既報

のAu被膜(10 μm)に関しては透過低減係数(PRF: 透過抑制膜がある場合とない場合とでの定常状態における透過速度の比)が550 Kで1000以上、670 Kで約100であったのに対し[47, 54]、Al被膜(10 μm)では550 Kで約100、670 Kで約50であった。Cu被膜での透過抑制効果は小さく、550 K、670 Kともに約5であった。Cuでは透過抑制に温度依存性がないことから被膜に亀裂が生じている可能性が想定される。以上の結果より、金属被膜の中ではAu被膜が最も効果的であることが明らかになった。当然のことながらAuは高価な材料であり、また中性子照射下での使用は核変換の観点から困難である。そこで、Auの使用は延性や耐食性など、その優れた特性が特に求められる場所に限定される。

上述のようにAuの使用条件には制約が多いため、より広範な条件下での使用をめざし、酸化物被膜形成技術の開発研究を進めた。被膜材として比較的鉄鋼材料と熱膨張率が近く、また中性子吸収断面積が小さく低放射化材料である酸化ジルコニウム(ZrO_2)を選択した。まず、代表的フェライト鋼であるSUS430鋼を基板として用い、ディップ法による成膜を試みた[57]。本法はコロイド溶液(ゾル)中への試料の浸漬と乾燥を所定の回数繰り返したのち、大気中で焼成するという比較的単純な方法であるが、図30に示すように均一な厚さの膜が得られた。焼成温度は基板であるフェライト鋼の組織に影響を与えないよう823 Kとした。ラマン分光法やX線回折法で結晶構造を調べたところ、準安定な正方晶 ZrO_2 が形成されていることがわかった。 H_2 ガスと D_2 ガスで透過実験を行ったが、同位体効果は実験誤差範囲内であったので、例として H_2 ガスを用いた場合の結果を基板中の透過速度とともに図31に示す。なお、基板の透過速度を測定する際には、表面酸化による透過速度のばらつきをなくするため表面を薄いパラジウム(Pd)層で被覆した。また、図中には浸漬-乾燥処理の回数および ZrO_2 被膜の膜厚もあわせて示した。上流側の圧力は0.1 MPaとした。透過抑制能は膜厚とともに増大し、膜厚120 nmの場合にはフェライト鋼の想定使用温度全範囲(573~823 K)にわたり透過速度を約 $1/10^4$ に低減することができた。また、透過実験は数週間~数カ月に及ぶが、そ

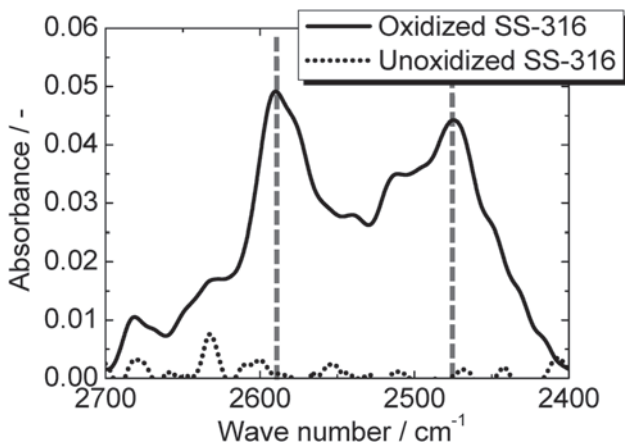


図26 SUS316 ステンレス鋼および酸化膜を成膜させた SUS316 ステンレス鋼を D_2 曝露した際の FT-IR スペクトル。

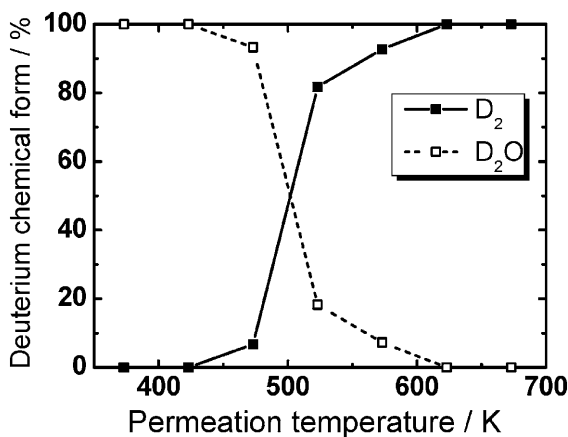


図27 SUS316 ステンレス鋼を透過する D の放出化学形の温度依存性。

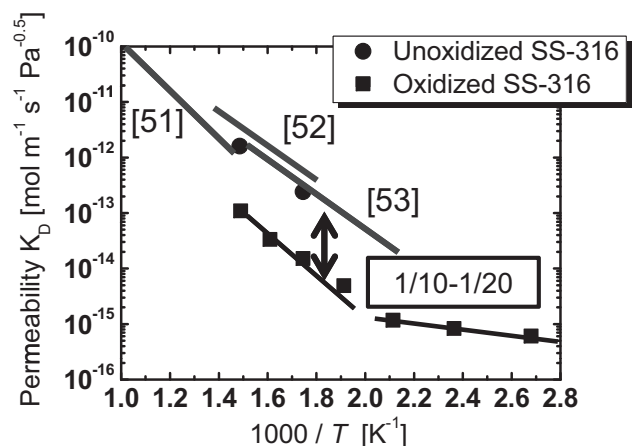


図28 酸化膜のある SUS316 ステンレス鋼中の D 透過係数および酸化膜のない場合[51-53]との比較。

の間に試料温度を変化させても顕著な劣化はみられなかった。ただし、1回の浸漬－乾燥工程には約2時間を要するので、Tシステムを構成するすべての材料に50回程度の浸漬－乾燥処理を施すことは容易ではない。そこで、より迅速にZrO₂膜を形成する手法として電気化学法にも取り組んだ[57, 58]。まずディップ法で比較的薄い膜を形成したのち、試料を硝酸Zrエタノール溶液中に浸漬し、カソード側へ分極することで水酸化Zr層を堆積させた。その後、同様に823 Kで焼成した。図32はH₂ガスを用いた透過実験の結果である。ディップ法で成膜した場合と比べるとやや劣るものの、573～823 Kにおいて透過速度を約1/10³に低減できており、また透過実験中に劣化もみられず、電気化学法も透過抑制膜形成法として有望であると結論した。図33はディップ法でZrO₂層を成膜した試料を573 KでDTガスにばく露したのち、被膜表面をベータ線検出用IP（富士フィルム社製BAS-IP TR）に暗所で接触させてT濃度分布を測定した結果である。ベータ線の脱出深さは被膜の厚さより大きいので、厚さ方向の平均T濃度の二次元分布を測定したことになる。なお、基板フェライト鋼中のT濃度は十分低く、測定結果は被膜中のT濃度分布のみを反映している。青色の領域はT濃度が低い部分に対応しており、緑、黄、赤と色が変わるにつれてT濃度が高くなっていることを示している。T濃度の偏りは見られず、このことからZrO₂被膜の均一性が高いことがわかる。比較のため、緻密なバルク焼結体（立方晶イットリア安定化ジルコニア、YSZ）を同等条件でDTガスにばく露した結果も示してい

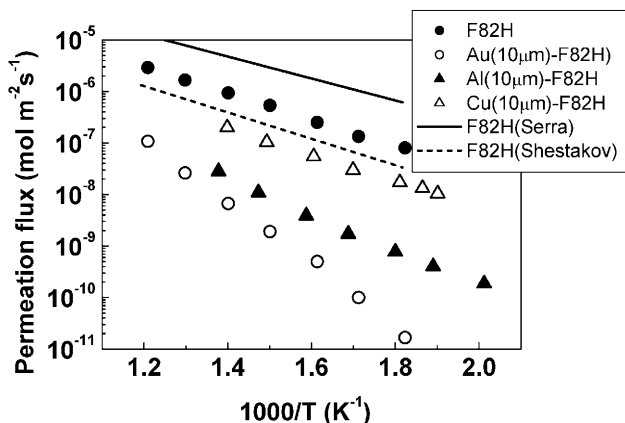


図29 各種金属被膜を施工したF82H中のD透過の温度依存性。

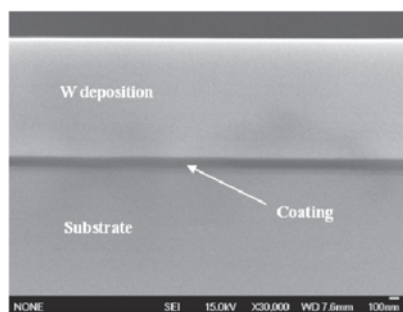


図30 ディップ法で形成したZrO₂被膜の断面走査電子顕微鏡写真。上部W層は集束イオンビーム装置での断面加工時にZrO₂被膜を保護するためのもの。

る。ディップ法で成膜したZrO₂層中のT濃度（赤色：数百ppmに相当）は、緻密な焼結体中の値（青色：ppbに相当）と比較して桁違いに高いことが明らかとなった。このようなT濃度の著しい違いは、高い水素同位体透過抑制能を有するZrO₂膜においても結晶粒界や微細な気孔等の欠陥が存在し、これら欠陥にTが捕獲されていることを示している。膜厚と共に透過抑制能が増大したのは、被膜表面から被膜／基板界面まで貫通している欠陥の密度が減少したためと考えられる。なお、本法で形成したZrO₂被膜は100～200 nmと比較的小さな膜厚で十分高い透過抑制能を発揮するため、数百ppm程度までTが蓄積してもシステム全体のTインベントリーに与える影響は小さい。モンテカルロ法で被膜破損の影響を評価したところ、十分な透過抑制能の維持のためには、99.99%以上の被覆率を保つ必要があった。

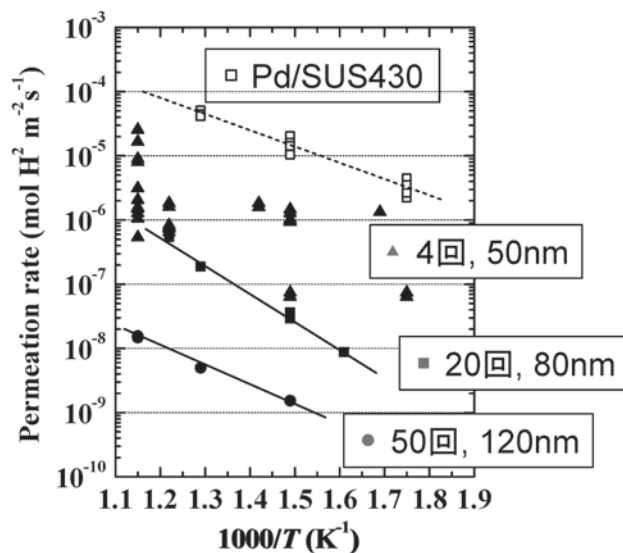


図31 ディップ法でZrO₂被膜を形成したSUS430フェライト鋼中のH透過速度。

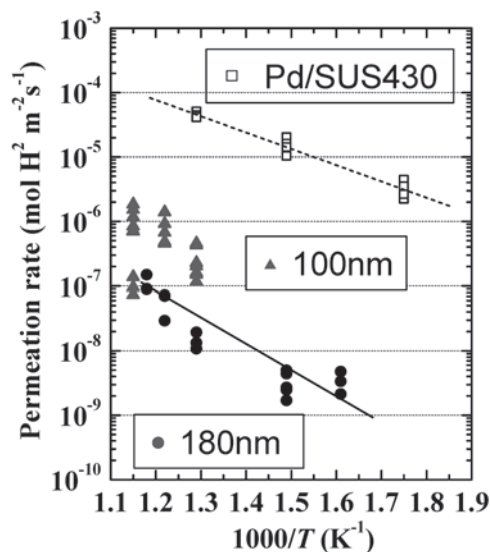


図32 ディップ法および電気化学法でZrO₂被膜を形成したSUS430フェライト鋼中のH透過速度。

5.2.2 プラズマ対向材料のトリチウム汚染と除染

最も高濃度の T 汚染が懸念される PFM 中の T 蓄積機構と除染技術について研究を進めた。図34は、現在最有力候補と考えられている W を、573 K で高濃度 DT ガスにばく露した上で T 濃度分布をベータ線検出用 IP (富士フィルム社製 BAS-IP TR) で測定した結果である。20 MeV の W 自己イオンで 0.5 dpa まで照射し深さ約 2 μm の領域に欠陥を導入した場合 (図中の点線で囲んだ部分が照射領域) と、非照射の場合を比較している。周囲が青緑色であるのに対し、照射領域中は赤色となっており、照射により明らかに T 濃度が増大している。すなわち、照射欠陥による捕獲が W 中の T インベントリを支配することがわかる。既知濃度の T で標識された標準サンプルとの比較や、D₂ ガスばく露材を用いた核反応法による測定などから、照射領域中の水素同位体濃度は 1 at% に達することが明らかとなった。これは、他研究者により報告されていると同程度の値である [59-66]。中性子照射 (0.025 dpa) においても、同様に水素同位体のインベントリが大きく増加することを確認した [67-71]。仮の話であるが、ITER 程度の大きさの装置のプラズマ対向面全面を厚さ 1 mm の W で覆い、そこに 1 at% 程度の T が蓄積すると、その総量は数百 PBq 程度に達することになる。したがって、蓄積量を正確に見積もると共に、T 除去技術を確認することは重要な課題である。

中性子照射された W バルク中で欠陥等の捕獲サイトが水素同位体により占有される確率 θ_i は、平衡状態において W 結晶格子中に固溶する水素同位体の濃度の関数として次式のように表される。

$$\theta_{ti}/(1-\theta_{ti}) = \theta_L/(1-\theta_L) \exp(E_{\text{bin},i}/kT_{\text{ex}}) \quad (5)$$

ここで、添字 i は捕獲サイトとして働く欠陥の種類、 θ_L は W 結晶中の格子間位置の占有率、 $E_{\text{bin},i}$ は各捕獲サイトと水素同位体の結合エネルギー (捕獲サイトと格子間位置での水素同位体のエンタルピー差)、 T_{ex} は T へばく露される W の温度である。5.2.3 で述べるように、単一の欠陥に複数の水素同位体原子が捕獲され、捕獲原子数に応じて E_{bin} が変化することが考えられる (例えば空孔中には 6~12 個の水素原子が捕獲されるという報告もある [73])。このモデルでは E_{bin} の値で捕獲サイト i を定義するため、同一欠陥中でも E_{bin} の値が異なれば、異なる捕獲サイトとして取り扱う (例えば単一空孔中でも 2 個目の捕獲水素同位体原子と

3 個目の吸着位置は、それぞれ異なる捕獲サイトとなりうる)。捕獲されている水素同位体濃度と固溶濃度の相関を測定すれば各種捕獲サイトの E_{bin} の値が得られるが、プラズマやイオン照射下では固溶濃度が表面状態に敏感に依存して同一照射条件下でも大きく変化するため、この測定は容易ではない。一方で、ガスばく露下での固溶濃度 C_S は圧力 P と溶解度 K_S [74] により決定される ($C_S = K_S P^{1/2}$)。そこで異なる温度・圧力条件下で W イオン照射試料を D₂ ガスにばく露し、照射領域中の D の濃度変化を核反応法で求めたところ、673 K 以上の温度領域で支配的寄与をなす捕獲サイトの E_{bin} が 1.4 eV 程度であることがわかった。中性子照射材についても同程度の値であった。T と捕獲サイトの結合エネルギーも 1.4 eV 程度であると仮定し、式 (5) よりプラズマばく露下での T 蓄積を予想した結果を図35に示す。表面再結合係数 1 と示した結果は、Anderl ら [75] によって実験的に求められた値を用いて計算したものである。Anderl ら [75] が報告している表面再結合係数は清浄表面で予測される値よりも桁違いに小さく [65]、表面汚染の影響を受けているため、表面再結合係数 2 ではそれより 10⁶ 倍大きな値 (それでも清浄表面よりは著しく小さい値) を用いて見積もった。蓄積 T 量は表面再結合係数と温度に敏感に依存するため、比較的表面を清浄に保った状態にて 900 K 程度で使用すれば、T 蓄積量を大きく低減できる可能性がある。逆により低温で、かつ表面汚染が著しい状況下で使用せざるを得ない場合には、T 蓄積に注意する必要がある。

T 蓄積が避けられない場合も想定し、T 除去法の検討を行った。まず、通常用いられる真空中での熱処理について検討したが、照射欠陥の捕獲効果により実効的拡散係数が著しく減少しているため、673~773 K 程度での加熱では T 除去が困難であることがわかった。そこで、捕獲サイトを他の水素同位体で埋めることで、除去したい水素同位体すなわち T の実効的拡散係数を増大させることを考えた。図36は D を吸蔵させた W イオン照射試料を真空中あるいは 0.1 MPa の H₂ ガス中で 673 K に 10 時間加熱したのち、核反応法で測定した D の深さ方向分布である。真空中で加熱した場合には D の濃度がほとんど変化していないのに対し、H₂ ガス中では、H が照射欠陥を占有することで明らかに D の脱離が促進されている。同様に、T の除去効率も H、D を共存させることで著しく増大するはずである。本法を用いて T を除去すると、H あるいは D で希釈された T ガスが発生するという問題点もある。しかし、この T ガスはゲッター (水素吸蔵合金) 中に安全に貯蔵することができ

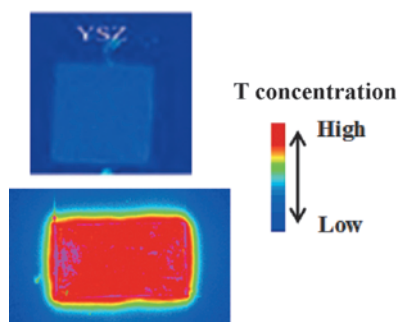


図33 DT ガスに曝露した緻密 YSZ (上) およびディップ法による ZrO₂被膜(下)の IP 像。

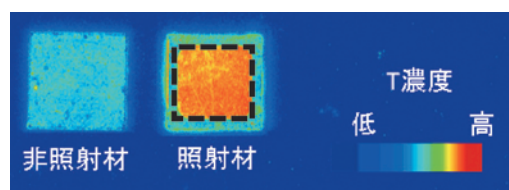


図34 300℃ で DT ガスに曝露した W 試料の IP 像。右: 20 MeV W イオン照射材 (0.5 dpa)、左: 非照射材。

る。一方、中性子照射された W は放射化し崩壊熱を発生するので、T が W 中に保持されたままであれば、事故時にプラズマ対向壁の冷却機能が失われた場合に、十分に制御されない状態で T が放出されるリスクがある。したがって、希釈 T ガスの発生という問題点を考慮したとしても、事故時の安全性という観点からは H あるいは D を用いた T 除去は有望は除染方法であると考えられる。

5.2.3 材料中のトリチウム移行挙動のモデリング

5.2.3.1 概要

T 移行挙動のモデリングにおいては、量子力学計算や分子動力学計算で得た原子スケールの情報を、Kinetic Monte Carlo 法により統合してスケールを拡張するアプローチを採用した (図37)。これにより、実験とはまったく別の方法論で T 挙動のモデル化を進めることができ、両方の結果を照らし合わせることでより信頼性の高い T 挙動予想が期待できる。

最初に、欠陥を含まない体心立方晶 (bcc)-Fe における H の透過・漏洩挙動をシミュレーションするための Kinetic Monte Carlo コードを開発した [76]。Monte Carlo シミュレーションを行うには、H の吸着・吸収・拡散および脱離等の反応経路や反応障壁の情報が必要になるが、それらの情報は既存の量子力学計算の結果等から得た。開発したコードは、任意のジオメトリの材料について H の透過速度 (透過係数) やインベントリーを予測できるとともに、表面領域における H の拡散障壁や脱離・吸着障壁を透過抑制膜の値に変えることで、透過抑制膜の有効性の評価も可能である。純鉄を対象としたベンチマーク (773 K での軽水素の透過) において、既往の実験推奨値 [77] と同程度の H 透過率が得られることを確認した。

しかし、実際の核融合炉環境下では、材料中に照射損傷に起因する欠陥が導入される。核融合材料として重要な、フェライト鋼の母材である α -Fe や第一壁材料として有望視されている W では、熱平衡状態においては H の溶解度は十分に低い。しかし、照射欠陥が H を捕獲することで、H の滞留量が増加するとともに、実効的拡散係数が低下する

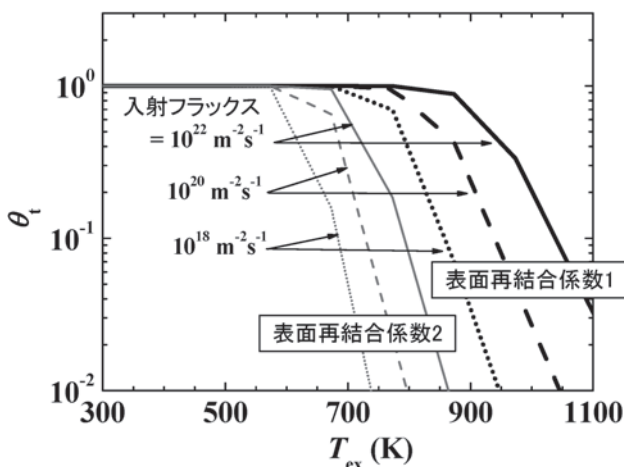


図35 捕獲サイト占有率の温度および入射フラックス依存性。水素同位体と捕獲サイトの結合エネルギーを 1.4 eV として計算した。

ことが想定される。そこで、H 挙動を大きく変化させる空孔型欠陥の影響をより詳細に理解してその効果をモデルに取り込むために、分子動力学シミュレーションにより、空孔クラスターを含む空孔と、H との相互作用の評価を行った [77]。また、空孔の集合化・消滅プロセスは H の影響を受け、それにより水素が空孔・空孔クラスターから受ける影響も変化する。そのため、H のみでなく空孔クラスターの安定性や拡散挙動にも注目して研究を進めた。そして、得られた原子スケールでの情報を上述の Kinetic Monte Carlo シミュレーションコードに反映した。

また、bcc-Fe 中での H 挙動は、bcc-W 中での H 挙動と定性的には類似しているため、原子スケールの情報からモデルを組み立てた場合、モデルパラメータである拡散・脱離障壁等の大きさを変えることで、プラズマ・壁相互作用研究にも活用することが期待できる。実炉条件では材料の構造変化なども生じるためにそのモデル化も必要になるなどの課題は残るが、本プロジェクト内で他の研究グループと連携してコードの拡張を行った [78]。

以下では、前回のプロジェクトレビュー [47] 後に行った、分子動力学シミュレーションによる空孔-H 相互作用の研究を中心に、その結果を記す。

5.2.3.2 空孔-水素相互作用エネルギーの評価とモデル化

分子動力学計算コード LAMMPS を利用して、0 K での構

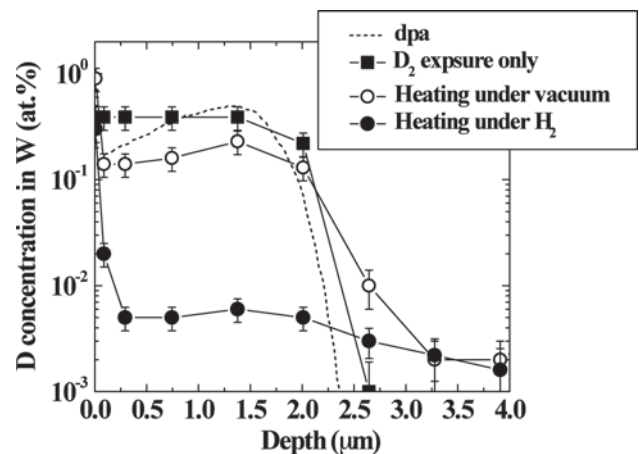


図36 照射 W に D を吸蔵させたうえで、真空中あるいは 0.1 MPa の H₂ ガス中で加熱処理を行った後の D の深さ方向分布。

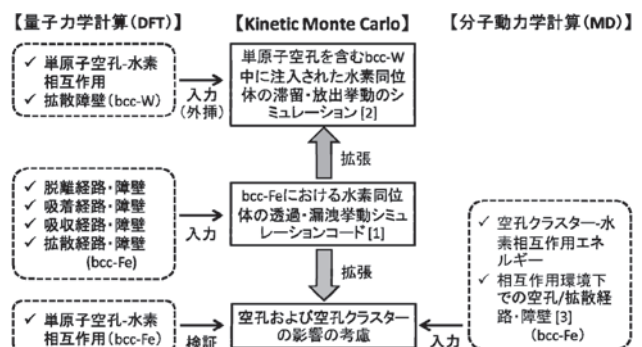


図37 H の透過・漏洩および移行・滞留挙動のモデル化の方針と概要。

造最適化計算および遷移状態探索計算を行い、空孔・H 相互作用を分析した。ポテンシャルモデルには、単原子空孔と H との相互作用、および水素の拡散挙動について、量子力学計算や実験と良好な一致を与える Finnis-Sinclair 型の EAMポテンシャルモデル[79]を採用した。Fe原子を200～700個程度含む bcc 構造に3次元周期境界を課した系を対象とした。必要に応じて、H 原子の追加や、Fe 原子の除去(空孔の導入)を行った。

空孔を2～6個含む小さな球状の空孔クラスターを対象とした計算では、単原子空孔と同様に、空孔あたりの H 原子数が2を超えたあたりで、空孔への H の結合エネルギー低下がステップ状にみられた。これは捕獲された H 原子の数の増加に伴い、H 原子間の距離が近くなり、H 原子間に働く斥力の寄与が大きくなることに起因する。最適化構造において、H 原子は空孔クラスターの内壁に吸着し、8配位位置(Octahedral site)から平均して0.5 Å程度変位した位置で安定構造をとった。また、H 間距離を可能な限り大きくとるように H 原子が配置された場合に、最小エネルギーを与える構造が得られた[78]。

より大きな空孔クラスターを対象とした計算においても、捕獲された H 原子間の距離と、H の捕獲エネルギーには強い相関がみられた。H 原子間距離に注目して計算結果を整理することで、空孔クラスターに安定に捕獲される原子数の最大値や、空孔クラスター-H 結合エネルギーを評価するモデル式を導出した(図38)。得られたモデル式は以下のとおりである。

$$\begin{aligned}
 (N_V = 1) \quad E &= E_1(N_H) = 0.03974N_H^2 - 0.3667N_H + 1.715 \\
 (N_V = 2) \quad E &= E_2(N_H) = 0.0003305N_H^3 + 0.01633N_H^2 \\
 &\quad - 0.3893N_H + 3.217 \\
 (N_V = 3-6) \quad E &= E_{3-6}(N_V, N_H) = 0.2258N_V + 1.0950 \\
 &\quad + (0.8069N_V + 0.4937)\alpha \\
 \alpha &= -0.09572\beta^4 + 0.8540\beta^3 - 0.4203\beta^2 - 1.3287\beta + 0.9963 \\
 \beta &= N_H / (2.4300N_V + 4.3900) \\
 (N_V = 7) \quad E &= E_7(N_H) = E_{3-6}(6, N_H) \\
 &\quad + (E_{\geq 9}(9, N_H) - E_{3-6}(6, N_H)) / 3 \\
 (N_V = 8) \quad E &= E_8(N_H) = E_{3-6}(6, N_H) \\
 &\quad + (E_{\geq 9}(9, N_H) - E_{3-6}(6, N_H)) / 1.5 \\
 (N_V \geq 9) \quad E &= E_{\geq 9}(N_V, N_H) = 12.88 - \exp(2.4936 - 0.005398N_V \\
 &\quad - 0.001416N_V^2) + (1.7929N_V^{2/3} + 0.08185)\alpha \\
 \alpha &= 0.4159\beta^4 - 0.2555\beta^3 + 0.2111\beta^2 - 1.359\beta + 0.9986 \\
 \beta &= N_H / (5.835N_V^{2/3} + 0.2995)
 \end{aligned}$$

ここで N_V , N_H はそれぞれ空孔・H クラスターに含まれる空孔, H の数を, E は単原子空孔の生成エネルギーを1.715 eV, H 原子の溶解エネルギー(T site)を0.29 eV としたときのクラスターの生成エネルギーを表す。例えば、単原子空孔と溶解している H 原子が結合した場合の結合エネルギーは $(1.715 + 0.29) - E_1(1, 1) = 0.62$ eV, H 原子40個を捕獲した V_{25} 空孔クラスターに、溶解している H 原子1個が新たに捕獲された場合のエネルギー変化は $E_{\geq 9}(25, 41) - (E_{\geq 9}(25, 40) + 0.29) = -0.48$ eV となる。

5.2.3.3 相互作用が水素および空孔の拡散挙動に与える影響の評価

空孔と H 原子を一つずつ含む系において分子動力学シミュレーションを実施し、H 原子と空孔の拡散係数を評価した。空孔・H 原子ともに、相互作用することで、単独で孤立して存在する場合に比べて拡散係数が低下することが確認された。

MD シミュレーションの結果を理解するため、空孔からの水素の脱捕獲経路と、空孔近傍での H の移動経路(H 近傍での空孔の移動経路)を探索し、それらのエネルギー障壁を評価した(図39)。ここで得られた空孔-H 相互作用の影響を受けた移動過程を考慮に入れつつ、遷移状態理論に基づくモデルにより評価した拡散係数は、H 原子の場合はすべての温度領域で、MD 計算値を誤差10%程度以下の精度で再現することができた。

H 原子の場合、空孔の影響を受けていない際の格子間拡散による移動量が、空孔からの脱捕獲の際の移動量と比較して十分に大きいため、空孔に捕獲されていない時間割合を格子間拡散の拡散定数に乗じることで、見かけの拡散定数を得ることができた。

一方で空孔は、H と同様のモデル化を行った場合、例えば800 Kにおけるモデル計算の評価値は、MD の評価値の半分程度の値となり、拡散係数の有意な過小評価がみられた。これは、空孔から H が脱捕獲した場合に、その H を追従して再び H を捕獲する過程が無視できない程度に発生しており、その過程による空孔の移動を考慮していないことが原因であった。つまり、図39中で、H がサイト“1”からサイト“2”に移動することで、空孔の H に対する相対的な位置がサイト“1”からサイト“2”に変化し、空孔のサイト“1”

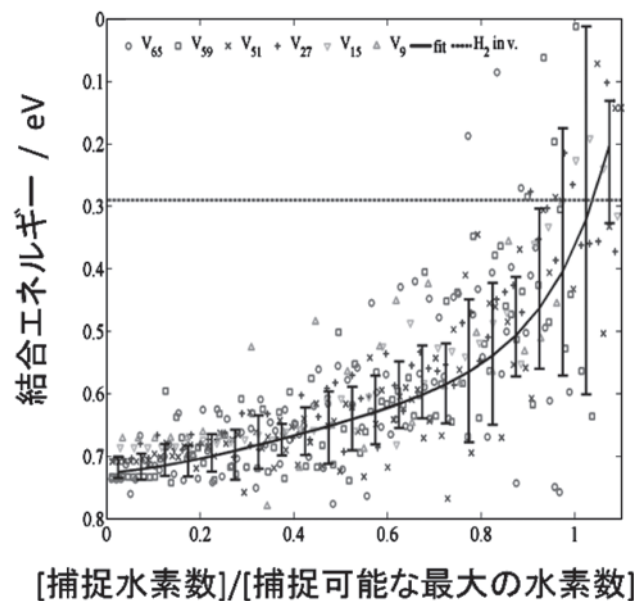


図38 捕獲水素数と空孔-H 相互作用エネルギーとの相関。「捕獲可能な最大の H 数」は、結合エネルギーが0.29 eV(真空中の H₂ 分子の結合エネルギー)になるときの捕獲原子数。サイズが異なる6種類の空孔クラスター(V₉, V₁₅, V₂₇, V₅₁, V₅₉, V₆₅)の値をプロットし、全データに対してフィッティングを実施。

への移動が低い活性化障壁で生じる。

このような空孔近傍のHが空孔を引きつけることで誘起する空孔の移動は、空孔濃度に対するH濃度を増加させることでより顕著にみられた。そのため、空孔濃度とH濃度が同程度の場合には空孔の拡散定数の低下がみられる一方で、H濃度が空孔濃度の数倍程度以上になった場合には、空孔-H相互作用による拡散定数の低下は無視できる程度となった。これらの空孔-H相互作用が空孔の拡散挙動に与える影響の程度は、相互作用エネルギーの大きさや、拡散障壁の大きさに依存するものであり、定量的には材料ごとに大きく異なる結果が得られる可能性がある。空孔の移動速度の変化は、空孔の回復挙動やクラスタリング挙動にも影響を及ぼし、ひいては空孔と相互作用する水素の滞留量にも影響を与えうるため、W等についても今後より詳細な検討が必要である。

5.2.3.4 今後の展望

以上のように、原子スケールからHおよび空孔の挙動を分析し、そこで得られた知見を集積することで、材料中のT移行挙動のモデリングを実施した。本研究の中で、基礎的なモデル化のフレームワークの構築を完遂することができた。今後必要になるのは、より実材料の状態・性質を考慮したモデルの改良・展開であり、具体的には以下のような課題が考えられる。

- ✓放射線がTや欠陥の挙動に与える影響の評価。放射線が誘起する材料構造の変化のモデル化。
- ✓熱平衡状態では想定されないような高H濃度環境下における、H・欠陥の挙動のモデル化。
- ✓表面酸化層や堆積層における、Hの吸着・拡散・脱離の経路や障壁の評価。

5.2.4 材料中の水素同位体濃度の非破壊測定

材料のT汚染を簡便かつ安全に測定することは、廃棄物の安全管理の上できわめて重要である。先述のようにIP等でベータ線を検出すれば、比較的容易に表面近傍のT濃度を測定することができる。一方、材料中のベータ線の飛程は短く、この方法で内部のT分布を直接測定することは困難である。KatzとPenfold[80]によると、Tからのベータ線の脱出深さは、例えば低原子番号の炭素でせいぜい3 μm 程度、高原子番号のWでは300 nm程度である。切断やエッチングにより内部分布を測定する技術は実験室レベル

では確立されているが、実際の核融合炉で使用する材料すべてに適用することは現実的ではない。そこで、公募研究と連携し、より脱出深さが大きいベータ線誘起X線をX線検出用IP（フジフィルム社製BAS-IP MS）を用いて簡便に測定する技術の開発を行った。吸収係数[81]から見積もられるX線の検出深さは、Wで数 μm 、炭素では1 mm程度である。すなわち、ベータ線と比較して一桁以上深い領域のTが検出でき、かつ低原子番号材料については表面の堆積層等のみならずバルク中のT分布をも測定できる。試料からのX線強度は、含有されるTの量のみならず、その深さ方向分布にも依存する。X線のエネルギースペクトルを解析すると深さ方向分布を評価することはできるが、IPにはエネルギー分解能はない。そこで、公募研究においてX線吸収端が異なる金属の薄い箔をアブソーバーとして用い、Tの大まかな深さ方向分布を評価する手法が提案され、共同で実験を実施した。既知の濃度分布を持つバナジウム(V)およびニッケル(Ni)試料とIPの間に薄いAl、Cu、Auの箔を挟んだ状態で曝露したところ、IPの輝度性発光強度に内部分布の違いを反映したレスポンスが現れた。結果は既に公表されているので詳細は割愛するが[82,83]、以上の成果により、簡便にX線の脱出深さ程度の領域のT内部分布を測定できる見通しが得られた。

また、材料中の全水素同位体量を非破壊・非接触で測定する手法として、磁化率の変化を検出する測定法を検討した。一般に金属材料中に水素が溶解すると、溶解した水素の価電子が部分的に伝導帯に供給される。その結果金属材料のフェルミ準位が変化し、また周辺の電子状態が変化する[84]。金属材料の磁化率は、金属材料の電子状態に大きく影響を受けることから、水素溶解による電子構造変化を予め調べておけば、磁化率の値から材料中の水素の濃度を定量することが可能となる。原理的にはリアルタイム測定が可能であることから、Hの溶解・拡散過程の検討にも利用が期待できる。まず、誘導法を基礎とした交流磁化率測定装置を構築した[85]。交流磁化率測定装置の特徴として、検出部を比較的小型に設計でき、且つ自由に動かせる利点がある。これより、検出部の形状を既存のH吸収放出特性測定装置に組み込めるように設計することで、H吸収量と磁化率の両方を同時に測定できる装置とした。この装置を用いて、PdのH吸収時の磁化率変化を測定した結果を

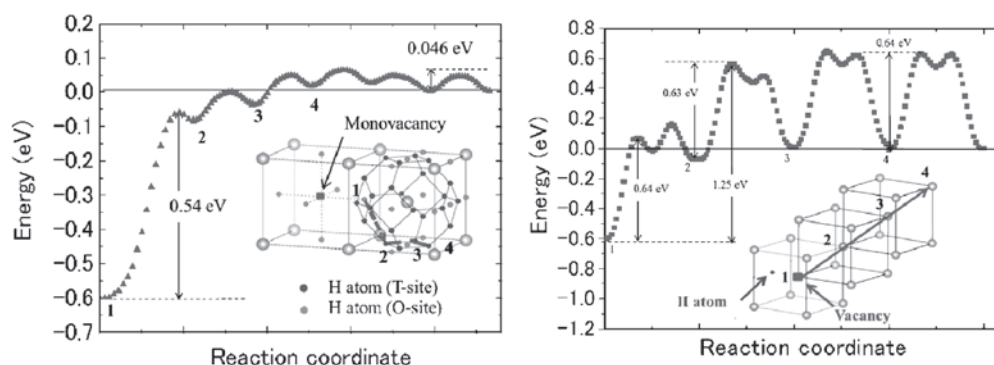


図39 H-空孔の配置とポテンシャル障壁の相関（左図ではHが移動、右図では空孔が移動することで、Hの脱捕獲が生じる経路に注目）。

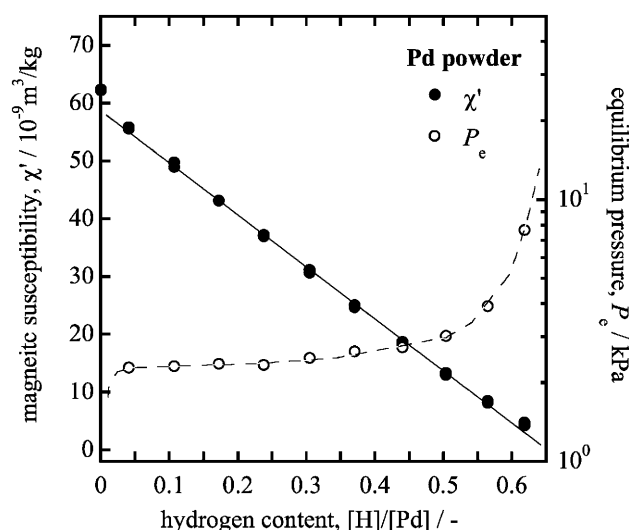


図40 Pd 粉末の磁化率の H 濃度依存性と圧力—組成等温線。

圧力-組成等温線と合わせて図40に示す。Pd は H が溶解していない状態 ($[H]/[Pd] = 0$) において常磁性体としては比較的大きな磁化率 ($6 \times 10^{-8} \text{ m}^3/\text{kg}$) を示す。H が溶解するのに伴い、磁化率は単調に減少し、2 相共存領域においては直線的に減少した。さらに、水素化物単相の領域では磁化率はほぼ 0 に近い値を示した。このように交流磁化率測定装置を用いて材料中の H 量を定量できることが明らかとなった。 $0.05 < [H]/[Pd] < 0.65$ の範囲において直線で近似した結果、 $[H]/[Pd] = (\chi - 58.68)/90.36$ となった。この回帰曲線との最大誤差は $1.4 \times 10^{-9} \text{ m}^3/\text{kg}$ であることから、分解能は $[H]/[Pd]$ で 0.02、比率にして 3 % の水素量が計量できるといえる。材料の磁化特性によっては、さらに一桁低い濃度まで計量できる見通しを得ており、比較的高濃度に汚染された材料や、T 貯蔵合金中の水素同位体の総量の測定へ応用可能だと結論した。

5.2.5 大型プラズマ装置重水素実験におけるトリチウム管理と挙動評価システムの構築

本プロジェクトで得られた材料表面での T の溶解・拡散・放出挙動に関する基礎的な知見をベースに、今後、実験炉心部における T の蓄積・移行挙動を予測する評価モデルの構築に向けた研究推進が期待される。評価モデルの信頼性と精度向上に大型プラズマ装置 D 実験時の真空排気ガス処理装置およびパージ空気処理装置で得られる T 回収データを利用すべく、T 回収・測定システムの設計検討と挙動評価への適用性を検討した。

5.2.5.1 定常プラズマ実験時の排気ガス中トリチウム管理と計測

ITER のような D/T 核燃焼実験装置の場合には、排気ガス中の T を回収して再利用することが不可欠であるが、D を用いたプラズマ実験の場合には、生成する T 量が微量であることから、回収せずに建屋のスタックで濃度を監視しながら放出するのが一般的である。一方、炉内における T の蓄積と移行挙動を評価する観点からは、D 実験時に排気ガス中へ移行する T を全量回収し、定量評価することは炉内における T 挙動の評価モデルの検証に役立つ。一般に定

常プラズマ実験時の真空排気ガス量はプラズマ実験で使用する H ガスの供給量 (例えば LHD の場合は $0.1 \text{ m}^3(\text{NTP})/\text{h}$ 未満) 相当と少ないことから、排気ガスを貯留タンクに一定期間全量回収し、ガスの組成や濃度を分析することが容易である。定常プラズマ実験時の排気ガス中の T 回収システムの検討例を図41に示す。一時貯留タンクに排気ガスを全量回収後、空気で水素濃度を 1 % 程度に希釈した微量の T を含む H ガスを触媒酸化し、HTO をモレキュラーシーブ (MS) 等の吸湿剤充填塔で吸着除去する装置を導入することにより、各種の運転モードにおける排気ガスへの T 移行量と化学形態を詳細に把握し相関を評価することが可能となる。具体的には、一時貯留タンク内に全量回収した D および T の濃度と圧力から、排気系に移行した全 D および T 量を実測評価することが可能である。特に、高感度で計測が可能な T については、化学形態の弁別分析とともに、中性子計測データから評価される実験時の生成量と回収装置で実測された排気系への移行量から、真空容器内での T 蓄積挙動の定量評価が期待できる。例えば、将来計画されている LHD 重水素実験時にはごく微量の T が生成するが、その生成量は実験計画書によると標準的な条件での 3 秒間の放電 1 回で生じる T 量として 0.017 GBq が想定されている。この時の排気ガス流量を $0.1 \text{ m}^3(\text{NTP})/\text{h}$ と仮定して、3 秒間の放電実験中の排気ガス中の平均的な T 濃度を算出すると約 $2 \times 10^5 \text{ Bq/cc}$ となる。一方、市販の高感度 T ガスモニターの検出下限は $1 \times 10^{-3} \text{ Bq/cc}$ のオーダーであることから、8 桁の相違があり、回収タンク内での希釈効果を考慮に入れても十分な精度で T 濃度を測定し、大型プラズマ装置内の移行・蓄積挙動を定量的に把握することが可能である。また、各種放電洗浄時の排気系への移行量から、除染効果を比較評価することもできる。

5.2.5.2 プラズマ実験終了後の排気ガス中トリチウム管理と計測

実験終了後の排気ガス (真空容器内のパージ空気) 中の T 濃度は市販のガスモニターの検出限界以下となるケースが多くなることが想定される。排気ガス中の T を水の形で回収できれば、極低濃度の T を液体シンチレーションカウンターで計測できる。すなわち、水蒸気状の T を含むガスから T 含有水を回収すると、水蒸気と水の容積比から回収された T 含有水中の T 濃度は約 1 万倍に増加する。例えば、放射線障害防止法で規定されている排気ガス中の T 濃度限度 (水の場合 $5 \times 10^{-3} \text{ Bq/cc}$) のガスから T 含有水を回収すると、回収された T 含有水中の T 濃度は約 $5 \times 10^4 \text{ Bq/L}$ となり、市販の低バックグランド型の液体シンチレーションカウンターの検出下限 (約 1 Bq/L) に対して十分な測定精度で計測可能である。空気中の T 除去装置としては微量の T を含む水素ガスを触媒酸化し、HTO を MS 充填塔で吸着除去する装置が一般的である。一方、処理ガス流量が大きくなる場合には、図42に示すように、除湿方法として吸着塔に替えて、高分子膜モジュールを適用することにより、同等の除湿性能の確保と装置の小型化が可能である [86]。また、高分子膜モジュールを適用すると、パージ空気中の T を触媒酸化後、水の形で連続的に回収可能である

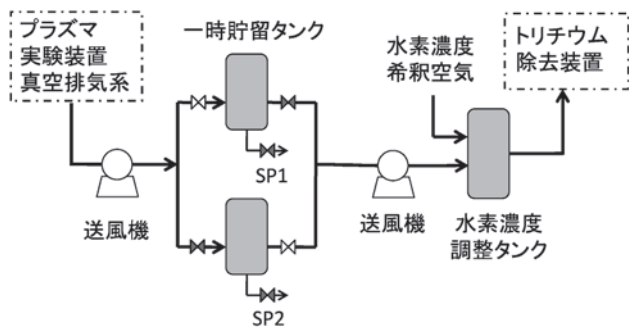


図41 真空排気ガス中T回収システムの検討例。

[87]．連続的なT水の回収機能を利用することにより，各種運転条件と回収T量の相関評価が可能になり，真空容器壁からのT脱離挙動の定量的な把握に資することが期待できる。

5.2.5.3 排気ガス流量と水素濃度の同時測定

T除去装置の設計にあたっては，受け入れ対象となる排気ガスの流量と組成（特にH濃度）を事前に把握する必要がある．既設の排気配管に流量計を追設すればよいが，ここでは排気ブロアーの前後にサンプリング口を設置して，H濃度とガス流量を同時に計測することを想定し，気体熱伝導式センサーのH濃度計（He濃度も計測）と燃焼式センサーのH濃度計（He濃度の影響なし）を組み合わせた方法を考案した[87]．図43に純Heガス添加法によるHガス濃度とガス流量の同時計測・評価の原理を示す．流量計測では，排気ブロアーの下流側のサンプリング口からHeガスを一定流量（ F_i [m³(NTP)/h]）で添加時のHおよびHe濃度変化を排気ブロアー上流側のサンプリング口で計測することによりガス流量を評価する．すなわち，He添加前後における熱伝導式センサーのH濃度計指示値の増加量から一定流量（ F_i ）の純Heガス添加に伴うHe濃度の増加量が計測される．He濃度の希釈率からガス流量が評価できる．H濃度計をHe濃度測定に適用する時の換算係数を α [-]とすると，一定流量の純Heガスを添加時の気体熱伝導式センサーのH濃度計指示値（ C_f [%]）と接触燃焼式センサーのH濃度計指示値（ C [%]）を用いて下式でガス流量（ F_f ）を評価できる．

$$F_f \approx F_i \times 100 / \{ \alpha (C - C_f) \} \quad (6)$$

H濃度（ C_f, C ）を%表示したことによる補正係数である．なお，定常的にH濃度が高い場合には，Heガスの代わりにN₂ガスを添加し，H濃度の希釈率からガス流量を評価することも可能である．

LHDで現在実施されている軽水素プラズマ実験時に本計測法を適用した結果，定常プラズマ実験中およびNBIクライポンプ再生運転時のH濃度と排気ガス流量の同時測定結果から，Hガスの発生量を定量的に評価できる見通しが得られた[88]．本手法は，T計測のように高い精度を出すことはできないが，除去装置導入前の排気ガス発生状況把握の他に，重水素実験時にはT以外の水素同位体（D）のマスバランス評価にも活用でき，核融合炉燃料としての水素同位体挙動評価に資することも期待できる．

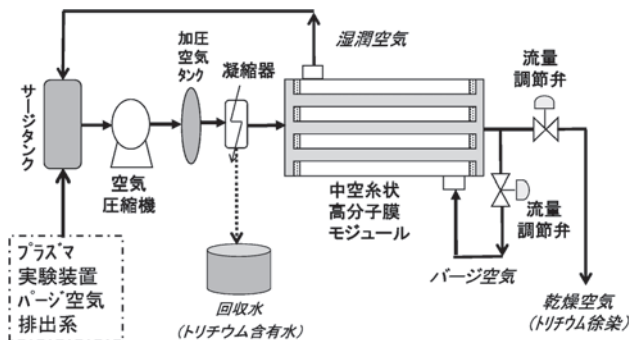


図42 パージ空気中T回収システムの検討例。

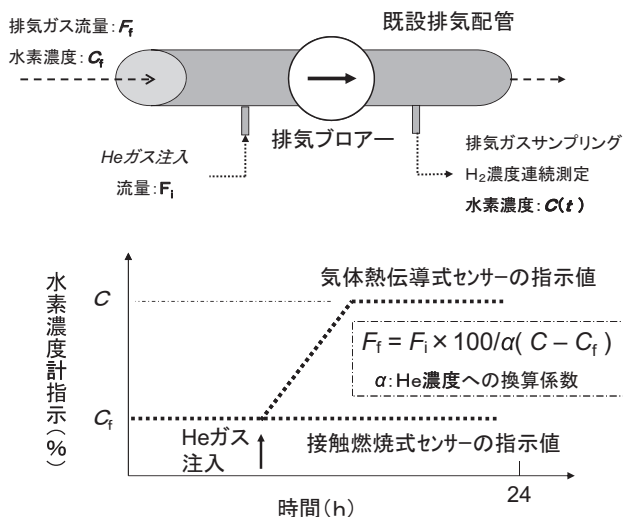


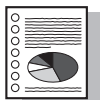
図43 ガス流量とH濃度の同時計測・評価方法。

5.3 まとめ

C班では，核融合炉実現に必須の大量T循環システムにおけるTの安全閉じ込めおよび透過・漏洩抑制を達成するため，金属および有機物材料を対象に，Tを含む水素同位体の滞留・透過・放出挙動データベースを水・水蒸気・ガス状態について構築した．また，透過抑制被膜形成技術の開発を進め，湿式法による成膜技術の確立と約1/10000の透過速度の低減（Dでの評価）を達成した．加えて，DT核融合炉環境下で不可避な中性子照射が材料中の水素同位体挙動に及ぼす影響を，実際に中性子照射を用いた実験により明らかにした．このような他では得難いデータベースをもとに，マルチスケールモデリングにより水素同位体挙動を予測する計算コード，および大型プラズマ装置D実験の機会を利用してモデルの信頼性検証と精度向上を図るためのT回収・計測システムを構築した．さらに，元素状Tの漏洩を抑制するための酸化触媒，および高濃度T水処理のためのセラミック電解セルならびにCECE法による同位体分離システム，材料中のT濃度非破壊測定法の高度化を達成し，大部分の技術について実際にTを用いた原理実証に進むことができた．以上の成果より，当初目標をおおむね達成したと考えられる．今後は，原型炉以降に要求される材料・システムの長期耐久性や経済性等をも考慮しつつ，本研究の成果のさらなる高度化と統合とを進めていきたい．

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).
- [6] D. Murdoch *et al.*, Fusion Eng. Des. 83, 1355 (2008).
- [7] T. Yamanishi *et al.*, Fusion Sci. Technol. 54, 315 (2008).
- [8] T. Hayashi *et al.*, Fusion Sci. Technol. 60, 369 (2011).
- [9] T. Hayashi *et al.*, Hydrogen isotope behavior from cooling water through various metal piping, *in press* Fusion Eng. Des. (2012).
- [10] T. Hayashi *et al.*, Fusion Sci. Technol. 56, 836 (2009).
- [11] T. Itoh, T. Hayashi, K. Isobe *et al.*, Fusion Sci. Technol. 52, 701 (2007).
- [12] G. Bellanger and J.J. Rameau, Corr. Sci. 36, 545 (1994).
- [13] G. Bellanger, J. Nucl. Mater. 374, 20 (2008).
- [14] JIS G 0579, "Method of anodic polarization curves measurement for stainless steels" (2007).
- [15] M. Oyaidzu *et al.*, J. Nucl. Sci. Technol. 48, 880 (2011).
- [16] M. Oyaidzu *et al.*, Fusion Sci. Technol. 60, 1515 (2011).
- [17] K.A. Schult *et al.*, J. Appl. Polym. Sci. 61, 1865 (1996).
- [18] R. W. Wood *et al.*, Inter. J. Pharm. 50, 61 (1989).
- [19] S. J. Metz *et al.*, J. Membr. Sci. 251, 29 (2005).
- [20] N.S. Sangaj and V.C. Malshe, Prog. Org. Coat. 50, 29 (2004).
- [21] K. Okamoto *et al.*, J. Polym. Sci. Part B: Polym. Phys. 30, 1223 (1992).
- [22] Y. Iwai *et al.*, Fusion Sci. Technol. 60, 1025 (2011).
- [23] C.A. Kovac *et al.*, J. Vac. Sci. Technol. A, 6 N3 991 (1988).
- [24] T.L. Barr *et al.*, J. Phys. Chem. 82, 1801 (1978).
- [25] Y. Torikai *et al.*, J. Nucl. Mater. 363, 462 (2007).
- [26] Y. Oya *et al.*, Fusion Eng. Des., *In press*.
- [27] T. Sugiyama *et al.*, Fusion Eng. Des. 83, 1447 (2008).
- [28] T. Sugiyama *et al.*, Fusion Eng. Des. 83, 1442 (2008).
- [29] T. Sugiyama *et al.*, Fusion Sci. Technol. 60, 1323 (2011).
- [30] Y. Iwai *et al.*, Appl. Radiat. Isotopes 68, 1642 (2010).
- [31] Y. Iwai *et al.*, J. Nucl. Sci. Technol. 45, 532 (2008).
- [32] Y. Iwai *et al.*, Fusion Sci. Technol. 41, 1126 (2002).
- [33] 稲住 近：工業材料 48, 31 (2000).
- [34] Y. Iwai *et al.*, J. Memb. Sci. 322, 249 (2011).
- [35] Y. Iwai *et al.*, Radiat. Phys. Chem. 79, 46 (2010).
- [36] Y. Iwai *et al.*, Fusion Eng. Des. 83, 1410 (2008).
- [37] Y. Iwai *et al.*, J. Memb. Sci. 369, 397 (2011).
- [38] 関 昌弘 編：核融合炉工学概論 未来エネルギーへの挑戦 (日刊工業新聞社, 東京, 2001) p.227.
- [39] Y. Iwai *et al.*, J. Nucl. Sci. Technol. 48, 1184 (2011).
- [40] Y. Iwai *et al.*, Fusion Eng. Des. 87, 946 (2012).
- [41] Y. Iwai *et al.*, Fusion Sci. Technol. 62, 83 (2012).
- [42] S. Konishi *et al.*, Fusion Technol. 8, 2042 (1985).
- [43] S. Konishi *et al.*, Fusion Eng. Des. 39-40, 1033 (1998).
- [44] K. Isobe *et al.*, Fusion Sci. Technol. 41, 988 (2002).
- [45] M. Watanabe *et al.*, J. Electrochem. Soc. 144, 1739 (1997).
- [46] H. Uchida *et al.*, J. Electrochem. Soc. 141, 1677 (1999).
- [47] 波多野雄治ら：プラズマ・核融合学会誌 85, 726 (2009).
- [48] 渡辺国明, 波多野雄治：水素の物性・反応の機能性化と応用 (アイピーシー, 東京, 2001) p. 306.
- [49] H. Nakamura *et al.*, J. Nucl. Mater. 313-316, 675 (2003).
- [50] Y. Oya *et al.*, *to be published in* Fusion Eng. Des.
- [51] W.A. Swansiger and R. Bastasz, J. Nucl. Mater. 85&86, 335 (1979).
- [52] R.G. Longhurst *et al.*, Nucl. Technol. Fusion 4, 681 (1983).
- [53] T. Shiraishi *et al.*, J. Nucl. Mater. 273, 60 (1999).
- [54] H. Nakamura *et al.*, J. Nucl. Mater. 417, 1150 (2011).
- [55] E. Serra *et al.*, J. Nucl. Mater. 245, 108 (1997).
- [56] V. Shestakov *et al.*, J. Nucl. Mater. 307-311, 1494 (2002).
- [57] K. Zhang and Y. Hatano, J. Nucl. Mater. 417, 1229 (2011).
- [58] Y. Hatano *et al.*, Phys. Scr. T145, 014044 (2011).
- [59] M. Fukumoto *et al.*, J. Nucl. Mater. 390-391, 572 (2009).
- [60] B. Tyburska *et al.*, J. Nucl. Mater. 395, 150 (2009).
- [61] W.R. Wampler and R. P. Doerner, Nucl. Fusion 49, 115023 (2009).
- [62] G.M. Wright *et al.*, Nucl. Fusion 50, 075006 (2010).
- [63] V. Ogorodnikova *et al.*, J. Nucl. Mater. 415, S661 (2011).
- [64] B. Tyburska *et al.*, J. Nucl. Mater. 415, S680 (2011).
- [65] J. Roth and K. Schmid, Phys. Scr. T145, 014031 (2011).
- [66] M.H. J't Hoen *et al.*, Nucl. Fusion 52, 023008 (2012).
- [67] M. Shimada *et al.*, J. Nucl. Mater. 415, S667 (2011).
- [68] T. Oda *et al.*, Fusion Sci. Technol. 60, 1455 (2011).
- [69] Y. Oya *et al.*, Phys. Scr. T145, 014050 (2011).
- [70] M. Shimada *et al.*, Phys. Scr. T145, 014051 (2011).
- [71] M. Shimada *et al.*, *to be published in* Fusion Eng. Des.
- [72] 南雲道彦：水素脆化の基礎 (内田老鶴圃, 東京, 2008) p. 42.
- [73] K. Ohsawa *et al.*, Phys. Rev. B 85, 094102 (2012).
- [74] R. Frauenfelder, J. Vac. Sci. Technol. 6, 388 (1969).
- [75] R.A. Anderl *et al.*, Fusion Technol. 21, 745 (1992).
- [76] T. Oda *et al.*, Fusion Sci. Technol. 54, 537 (2008).
- [77] O.D. Gonzales, Trans. Metall. Soc. 245, 607 (1969).
- [78] J. Maisonneuve *et al.*, Fusion Sci. Technol. 60, 1507 (2011).
- [79] A. Ramasubramaniam *et al.*, Phys. Rev. B79, 174101 (2009).
- [80] L. Katz and A.S. Penfold, Rev. Mod. Phys. 24, 28 (1952).
- [81] <http://www.nist.gov/pml/data/xraycoef/index.cfm/>
- [82] H. Ohuchi-Yoshida *et al.*, *to be published in* Fusion Eng. Des.
- [83] H. Ohuchi-Yoshida *et al.*, *to be published in* J. Plasma Fusion Res. SERIES.
- [84] E. Wicke and H. Brodowsky, *Hydrogen in Metals II. Application-oriented Properties* (Springer-Verlag, Berlin, 1978) p 73.
- [85] 赤丸悟士ら：富山大学水素同位体科学研究センター研究報告 31, 69 (2011).
- [86] Y. Asakura *et al.*, J. Nucl. Sci. Technol. 46, 641 (2009).
- [87] Y. Asakura *et al.*, Fusion Sci. Technol. 60, 1363 (2011).
- [88] Y. Asakura and N. Suzuki, Plasma Fusion Res. 7, 2405009 (2012).



6. まとめと今後の課題

田 辺 哲 朗

九州大学総合理工学研究院

(原稿受付：2012年7月12日)

Keywords:

tritium, fuel cycle, fusion reactor, safety, economy, science, technology

6.1 これまでの研究成果

本特定領域がめざしたのは、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、Tが放射性であり、かつ稀少資源である故に、その放射性安全を確保し、かつ経済的な核融合炉燃料システムを構築すること、即ち

- (1) 炉内へのDとT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、Tを分離・再利用すること、
- (3) ブランケットによりTを増殖回収、利用すること、
- (4) 安全・高効率なTの燃料処理および閉じ込めシステムの構築並びに制御を可能にするための技術開発をすること、

でした。併せて、Tに関する正しい理解に基づいた新しい「トリチウム科学」ともいえるべき学問分野を打ち立てるとともに、Tに対する正しい理解を社会に広めようとするものでした。領域発足当時の研究状況は、ITERサマースクールの教科書[1]および本誌プロジェクトレビュー「核融合炉実現をめざしたトリチウム研究の新展開」[2]としてまとめていますので、本プロジェクトレビューと比較していただけると、どれだけの進展があったのか興味深く読んでいただけるものと思われます。

第1章の表1で当初の達成目標に対して、領域が設定された2007(平成19)年から2011(平成23)年までの5年間に、目標をどこまで達成できたかの自己評価結果を示してありますが、全体をまとめれば、核融合炉システム全体におけるT燃料の流れを明確にし、安全性・経済性の両観点からT燃料サイクルシステムを最適化するために考慮すべき点を指摘し、その解決策を示したといえましょう。

具体的には、まず炉内のTに関連する研究(A班)の成果として、第3章に詳述したように、核融合炉容器内複雑環境でのT挙動について、混合イオン照射実験や、MDシミュレーションによりほぼ予測ができるようになりました。

また、これまでシミュレーションのみで行われていた炉内へのT蓄積量評価については、JT-60Uのタイラ分析結果に基づき、炭素材をプラズマ対向壁とした場合について、実験に基づいた水素の蓄積モデルを構築し、蓄積量予測を可能にしました。また、タングステン壁を使用する場合の水素蓄積に関連する問題点を明らかにし、その対応策を検討する段階に至っています。以上の研究成果は、次期トカマク装置の壁材料選択やシナリオ策定に使われる見通しです。特筆すべきは、周辺プラズマ・材料相互作用統合コードの開発に成功し、精度の高い炉内トリチウム蓄積量の評価を可能にしたことでしょう。領域発足に際し、日本ではシミュレーション部門で研究がやや立ち遅れ気味であることが指摘され、特にこの分野を重点的に整備／振興するよう依頼を受けていましたが、統合コードの完成だけでなく、この分野で多くの若手研究者が育っており、領域設定の大いなる成果といえます。その1例として、本学会誌に若手中心に編集された小特集「周辺プラズマからプラズマ対向壁材料までのシミュレーションコード・モデルの最前線」[3]が掲載されていることを特筆しておきます。

ブランケットに関する成果として(B班)、第4章で詳述したように、各種T増殖材(固体増殖材、Li, Flibe等)に中性子を照射し、T回収を実証したことが第一にあげられます。特に Li_2TiO_3 にDT中性子を照射し、発生したTを回収する実験を行い、回収／発生比率を99.9%以上とする見通しを得たことから、T増殖率が1.05以上になるブランケットシステム設計に見通しをつけることができました。配管からのT漏洩率の定量化をはかるとともに、漏洩率低減のための新規酸化膜形成にも成功しました。また、排ガスからのT回収のための吸着法、電気化学法を開発し、ITERで利用することを前提に作製された増殖T回収装置によりその性能を実証したことから、DEMO炉や実用炉のTシステムの設計に見通しが得られたといえましょう。

安全性に関する研究(C班)では、第5章で記述したように、実際にTを用いた研究を行い、T水処理系の高性能化、金属および高分子材料に対するTの滞留・透過・脱離挙動

に関するデータベースを構築するとともに、鉄鋼材料中の水素同位体透過速度を1万分の1以下に抑制することに成功しました。また高濃度のT水を利用することにより、水中での金属材料の腐食特性が変化することを初めて明らかにしました。これはITERで多量のTを使用する際の貴重な情報として活かされます。また、材料中のT挙動予測のためのシミュレーションコードを開発しましたので、これを、汚染挙動と除染特性に活用していく予定です。

本プロジェクトレビューでは、紙面が限られており、成果の一部しか報告できていません。本領域のホームページ[4]に年度毎の報告書を掲載していますので、是非ご覧いただきたいと思います。またこれらの成果を発表した論文は600編を超えています。国際会議等でも、29件の招待講演・基調講演に招かれ、世界的に広く認知されるようになっていきます。また、核融合科学研究所との共催により「トリチウムの科学と技術」国際会議を2010年10月24-29日に奈良にて開催し、その論文集をFusion Science and Technology誌特別号[5]として発行しました。同号は核融合に限らず、あらゆる分野での最近のT研究を網羅しており、きわめて有用であります。また会議終了後、学生・若手研究者向けにTutorial lectureを行い、内外から50名を超す参加者を得ました。人材育成に関しても、本領域から12名が同分野の研究職として採用されており、当初の目標は完全に達成されたと考えています。さらに、トリチウムマニュアルを作成するとともに、新しい分野として「核融合炉燃料としてのトリチウム理工学」の体系化を進め、教科書を2012（平成24）年度中に出版予定です。

6.2 トリチウムの特殊性について

本レビューではHおよびDの研究により得られた結果からTの挙動予測をしています。これは、本領域で行われた多量のTを使った研究により、Tの特殊性について以下のように結論を得た故であります。

TがH、Dと大きく異なるのは、その質量差と、ベータ線を放出して放射性崩壊し、 ^3He になることです。

ベータ線の効果は、Tが分散している場合（濃度が薄い場合は）共存するTへの影響は大きくはありません。むしろ崩壊したTの周りに存在する他分子への影響が大きくなります。特に表面（界面）またはその近傍で、表面（界面）を構成する固体と気体（液体）との間で、通常では起こりえない反応（ベータ線による電子励起によるいわゆる放射線誘起反応）が引き起こされる可能性があります。すなわち少量のTが系に導入されると、予期せぬ反応生成物が検出されることがあっても不可思議ではないのです。ただし生成物が多量に生成されるわけではありません。とはいえ、細胞の内に入り込んだトリチウム水中のTがDNAの極近傍で崩壊するとDNAが壊されて細胞の死に至ったり、ガンの引き金になったりすることは否定できません。放射線としての影響は6.3.2で記述してあります。

Tの濃度が高い時には、崩壊熱によりTを含む物質の温度が上昇しますが、崩壊熱は324 mW/gとあまり大きくないので、大きな温度上昇には至りませんが、多量のTを保

存するには冷却が必要となります。

ベータ崩壊により生成される、 ^3He は化学的に不活性であり、その量も少ないので気体や液体中ではその影響はほとんど検出できません。固体中で ^3He はほとんど動けませんが、その近傍にある欠陥や空孔に集積しHeバブル等を形成して材料の性質を劣化させます。多量のTを長期間貯蔵する金属容器、核融合炉においてDTプラズマに接し続ける金属材料中で ^3He が蓄積することは懸念されています。

同位体効果、H:D:Tの核の質量比1:2:3は非常に大きく、様々な同位体効果が報告されています。たとえば、同温度、同圧力の純粋な $\text{H}_2\text{D}_2\text{T}_2$ ガスを考えると、それぞれの分子速度の比は、その質量比の平方根に逆比例します。それ故、壁に入射するフラックス（密度と速度の積です）同様に差がでます。単純に反応分子数で反応速度を議論すると、同位体による速度比は、その質量比あるいは平方根に依存したものとなりますが、それ以上の同位体効果は期待できません。

この質量差は、特に分子の振動・回転にも大きな差を与えます。量子化された振動・回転準位は同位体により著しく異なるので、特に、量子効果が現れやすい低温での様々なプロセスの反応速度に大きな差が現れています。核スピンによってオルト水素、パラ水素（およびその同位体）が区別されその差は低温で顕著ですが、高温ではその効果は無視できます。

これらの同位体効果は、特に一方が他方に希薄に溶解しているような場合には、様々な質量効果が相乗的に現れて、非常に顕著に表れることがあります。核の質量差は電子状態にも影響を与えますが、その影響は非常に小さく、電子の状態に起因する化学結合等には同位体質量の違いによる大きな差はありません。核融合プラズマのように、D、Tの濃度差が少なく、かつ高い温度になっている場合は、質量比の平方根に逆比例する速度比とは関係しない異常な同位体効果は現れないと思われます。

Tの特殊性（上記のように異常性ではありません）は、Tの安全性に関連してきわめて重要です。すなわち、自然界にはHが炭化水素あるいは水としてふだん存在しています。TはこのHと容易に同位体交換するため、Tの挙動というより、T化されたHTOや炭化水素の挙動を知ることが必要となります。これがT汚染の主原因であり、実際にTを用いた研究でしか明らかにできない点でもあります。

6.3 今後の研究課題

6.3.1 燃料自己供給性、燃料増殖余力

第1章および第2章で述べましたように、T資源は限られていますので、燃料として供給されたTのうち燃え残ったTの回収、ブランケットで生成されたTの回収はきわめて重要な課題です。回収率は100%であることが望ましいのですが、実際に100%を達成することは不可能です。しかも核融合炉に供給されたTのうち、実際に燃焼に使われるTは数%以下と推定されるので、多量のTを導入しなければならず、たとえ、99%の回収率が達成されたとしても、導入量が多ければ多いほど、未回収のTの絶対量が増えるこ

とになります。

DT 燃焼により 1 GW の核融合出力を得るためには、56 kg の T を燃焼させなければなりません。ところが、供給された燃料の総量と、それがプラズマとなり、さらに DT 反応により燃焼する量との比（燃焼率）は、多く見積もっても 3 % 程度にしかありませんので、56 kg の T を燃焼させるためには、積算で 2 トン近く（1866 kg 以上）の T を供給しなければなりません[6]。もちろんこれだけの量を一度に用意しておく必要はありませんが、累計として、T システムにこれだけの量を流し込み、回収し、燃料として再供給しなければならないのです。投入した T およびブランケットで生成された T の回収率は、100%にはなり得ませんので、燃料システムの各所で滞留する T 量は、投入量に比例はしないでしょうが、強い相関を持ち、通常の運転時に少なからぬ T が炉内あるいは T システム各所に滞留することになります。それ故、滞留した T の回収または除去が必須となります。また、ブランケットからの T 回収率を 99% 以上にすることも容易ではありません。T システムの各所に滞留する T の総量は、炉内の T 蓄積量あるいは循環させねばならない T の総量に比べると、はるかに少ないでしょうが、現段階で正確に見積もることは困難です。また、回収率をどこまで上昇させることができるかは、きわめて重要な問題であります（第 2 章参照）。T 燃料サイクルシステムの個々の機器または要素がそれぞれの機能を発揮するような設計は、現状でも可能でしょうが、システム全体として多量の T を流しこんで、回収、精製、同位体分離等を T のロスなしで行うことへの検討は、未だ不十分であるといわざるを得ません。

透過・漏洩による損失も重大な問題をはらんでいます。透過バリアーが有効に働いて、T の透過速度を $1/1000 \sim 1/10000$ に抑えることができたとしても、数トンの T を循環させている限り、きわめてわずかとはいえ、T は常に透過・漏洩します。そしてその積算量は無視できる量ではなくなります。

このように燃料 T に関する今後の課題は、燃焼率の向上、炉内蓄積率の低減、T システム各所における滞留 T 量の低減、ブランケットシステムにおける T 回収率の向上等、いずれも、DT 核融合炉システムにおける自己燃料供給性能、ならびに T 増殖余力に関するもので、DT 核融合炉が熱源（電源）として成立するかどうかに関わる問題であります。

6.3.2 トリチウム安全性

福島原発事故以来、放射線は危険であるとの人々の思いが深まっているようです。原子炉（軽水炉）の安全性に比べて、核融合炉の安全性は格段に高いとはいえ、巨大な放射線源であることに違いはありません。ただし、その放射線源の種類は大きく異なっています。軽水炉から放出される、あるいは、原子炉の事故で放出された放射線源からの放射線（現在問題になっている Cs では、ベータ線として 0.514 MeV と 1.18 MeV、および 0.662 MeV のガンマ線を放出）に比べれば、核融合燃料である T の放出するベータ線のエネルギー（最大 18 keV、平均 5.7 keV）は格段に小さ

く、T 被ばくによる生物影響は、他の放射線による被ばくの影響に比べて非常に弱いものです。夜光塗料や EXIT サインのエネルギー源として T が広範に利用されていた所以でもあります。福島の事故では、当然 T も放出されましたが、Cs 等からの高エネルギーのベータ線やガンマ線が物質との相互作用で作り出す 2 次電子や光子の方がはるかに多く、T のみを弁別して計測することはきわめて困難です。

ところで、軽水炉では、通常放射性物質は格納容器あるいは配管の水の中に閉じ込められており、透過・漏洩はきわめて少ないのに対し、核融合では、通常運転状態でも、検出可能な T が管理区域内に経常的に透過・漏洩してくる可能性があります。すなわち、管理区域内で、法律による規制値を超える T の汚染が起こり、従事者が被ばくする可能性は否定できません。ただし、後述するように T の放射線影響は少ない上、物質に沈着する Cs とは異なり、T は水により希釈あるいは除染できるので、軽水炉に比べて公衆への危険度は低いといえましょう。

T 被ばくの生物影響については、本学会誌 88 巻 2～4 月号 [7-9] に講座として連載されており、その中で詳細に論じられておりますが、そのほとんどは、高い線量による被ばくの場合で、低線量での生物影響は、わかっていないと言っても過言ではありません。もちろん Cs 等の被ばくでも低線量（100 ミリシーベルト以下）被ばくによるリスクが定量的に評価できているわけではありません。さらに、T のベータ線は、人体の表面から数十 μm 以下、または体内に取り込まれた T の位置から数十 μm 以内の距離でそのエネルギーをすべて付与してしまうので、単位体積あたりの放射線のエネルギー付与量に相当するシーベルトに換算するのは難しく、シーベルト単位でその被ばくの影響を、他の放射線被ばくの影響と比べることは至難です。放射線についてはホームページにまとめてみましたので [10]、そちらをご覧くださいけると幸いです。

T の透過・漏洩を完全になくすことはできないので、T 安全性をどう訴えるか、言い換えれば、T 被ばくに限らず低線量被ばくのリスク（これは T 被ばくだけの問題ではない）を正しく評価する、あるいは巷にあふれる他の様々なリスクとどのように比較するかは、原子炉にとどまらず核融合炉の社会受容性を高めるためにきわめて重要であり、残された課題といえましょう。

謝 辞

本プロジェクトレビューでは、各執筆者の研究面から成果を報告させていただいておりますが、本特定領域の開設から、領域の運営、評価まで、著者として明記されている人々だけでなく、実に多くの方々のサポートをいただいております。そのサポートなしには、このような成果報告はあり得ませんでした。特に領域開設時から終了に至るまで、中部大学総長 飯吉厚夫先生、ITER 機構理事長 本島 修先生、核融合科学研究所長 小森彰夫先生からいただきました励ましとサポートは、領域遂行に大きな推進力となりました。ここに深甚の感謝の意を表します。また評価委員と

して、本島先生、原子力研究開発機構 高津英幸先生、ITER 機構 嶋田道也先生には、年度ごとに適切なご評価と激励、さらには研究方向への重要な示唆をいただくことができました。深く感謝いたします。

本プロジェクトは計画研究だけでなく、20件の公募研究の代表者にも加わっていただき、広く研究と議論を展開させていただくことができました。また公募研究の共同研究者のみならず、多数の協力研究者の皆様のご協力なしには、本プロジェクトに成功はあり得ませんでした。ご協力いただきました多くの皆様に、心より御礼申し上げます。

参考文献

- [1] T. Tanabe, *Proc. 2nd ITER International Summer School: Confinement* : Ed. S.-I. Itoh, S. Inagaki, M. Shindo, M. Yagi, (Amer. Inst. Phys., 2009) pp.112-126.
- [2] 田辺哲朗 他：プラズマ・核融合学会誌 **85**, 680 (2009).
- [3] 伊藤篤史 他：プラズマ・核融合学会誌 **86**, 679 (2010).
- [4] <http://tritium.nifs.ac.jp>
- [5] Proc. Int. Conf. Tritium Science and Technology, Oct.24-29, 2010, Nara, Japan, *Fusion Sci. Technol.* **60** (2011).
- [6] T. Tanabe, *Fusion Eng. Des.* **87**, 7 (2012).
- [7] 田内 広, 馬田敏幸, 立花 章：プラズマ・核融合学会誌 **88**, 119 (2012).
- [8] 馬田敏幸, 笹谷めぐみ, 立花 章：プラズマ・核融合学会誌 **88**, 190 (2012).
- [9] 立花 章, 小林純也, 田内 広：プラズマ・核融合学会誌 **88**, 228 (2012).
- [10] 放射線について (解説), <http://www.qpn.kyushu-u.ac.jp/lab8/tanabe/activity.html>