

鳥養 祐二
Yuji Torikai茨城大学 大学院 理工学研究科
Graduate School of Science and Engineering, Ibaraki University

緒言

核融合原型炉(DEMO)におけるトリチウム係わる課題の一つとして、原型炉内でのトリチウムの挙動を明らかにし、炉内蓄積量を評価するとともに、炉内に蓄積したトリチウムを除染する必要がある。炉内のトリチウム蓄積量を評価および除染には、核融合炉材料へのトリチウムの吸蔵と放出挙動を知る必要がある。そこで本研究では、これまで行ったトリチウムの吸蔵と放出試験の結果を取りまとめ、大気圧下でのトリチウムの放出挙動について報告する。

実験

核融合炉材料として、市販の SS316、(株)アライドマテリアル社製の粉末焼結・再結晶 W とその表面に W をスパッタリング蒸着した試料(W/W 試料)を使用した。W/W 試料は、九州大学に整備されているマグネトロンスパッタリング装置を用いて作成した。トリチウムガスへの曝露は既往の方法で行った¹⁾。Figure 1 にトリチウムガス曝露装置を示す。トリチウムガスへの曝露は、7.2%のトリチウムを含む重水素ガスを用いて、温度 300℃または 500℃、圧力 1.2 KPa

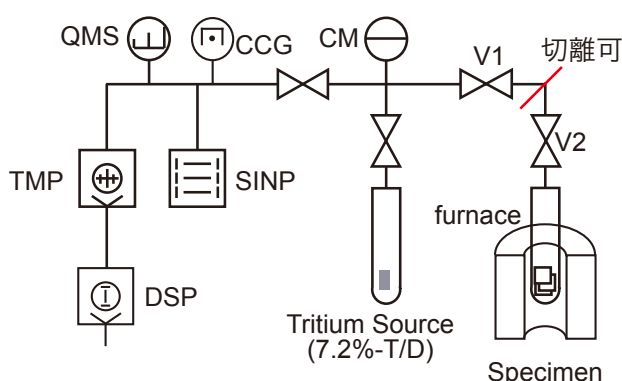


Fig.1 Tritium loading apparatus. It consists of turbo molecular pump (TMP), a dry scroll pump (DSP), a quadrupole mass spectrometer (QMS), a sputter ion noble pump (SINP), a capacitance manometer (CM), a cold cathode gauge (CCG), and a quartz tube vessels with furnaces.

で 3 時間曝露した。所定時間曝露後、液体窒素を用いて試料を急冷し、装置内のトリチウムガスを回収した。その後液体窒素温度のままでノーブルポンプを用いて十分に排気し、試料を取り出し、実験に使用した。曝露後の試料は、バルブ 1(V1)とバルブ 2(V2)を閉じた後に V1 と V2 の間で切り離し、大気に曝すことなく反応管ごと雰囲気制御型グローブボックス(GB)に入れ、GB 中で処理を行った。なお、GB 中の露点は静置時で-110℃以下(H_2O 分圧 $1.7 \times 10^{-4} \text{ Pa}$)、作業時で-70℃以下(H_2O 分圧 0.26 Pa)であった。トリチウムの放出試験は、Ar 気流中¹⁾および真空中²⁾で行った。真空中でのトリチウムの放出試験では放出後のトリチウム残量を Imaging Plate 法(IP)により測定した。また、真空中でのトリチウムの放出試験では、IP 測定や試料の詰替を GB 中で行った。

結果

W/W試料に573Kでトリチウムガスを曝露し、高真空中で加熱を行った。Figure 2に曝露直後、773Kおよび973Kで加熱後のW/W試料表面のIP測定結果を示す。IP測定より、W/Wのトリチウム保持量は未処理のWと比較して約10倍であり、タングステン堆積層はトリチウムの捕獲サイトとして働くことが明らかとなった。また、図に示すように真空中で加熱を行うことにより試料表面に捕獲されたトリチウム量が減少し、973Kでの加熱によりほとんどのトリチウムは除染された。

Figure 3は、573Kで、ターボ分子ポンプ(TMP)

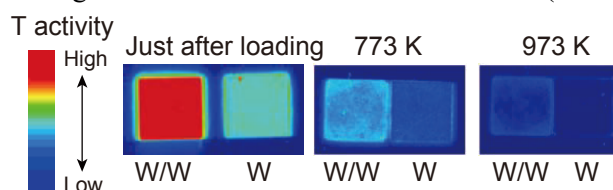


Fig.2 IP images of tungsten(W) and tungsten deposited tungsten(W/W).

を用いて 10^{-6} Pa台で真空加熱したときの加熱時間と表面トリチウムの材料の割合を●で、ドライスクロールポンプを用いて $10^{-2}\sim 10^{-1}$ Pa台で真空加熱したときの結果を△で、露点-100℃のアルゴン気流中(H_2O 分圧 3.6×10^{-3} Pa)で加熱したときの結果を○で示す。これらの実験は、GBを用いて大気に曝すことなく行っている。図を見てわかるように、 10^{-8} Pa台でベーキングしても表面トリチウムを除染することは可能であるが、 $10^{-2}\sim 10^{-1}$ Pa台で加熱したときの方が除染速度は明らかに速い。さらにアルゴン気流中で除染したときは、300℃の温度においても非常に速やかに表面トリチウムを除染することができた。アルゴン気流中での除染では、試料から放出されたトリチウムの化学型の測定を行ったが、放出したトリチウムのほとんどが水状(HTO)であった。従って、トリチウムの除染はアルゴン気流中の水との同位体交換が進んでいることが示唆された。また、除染速度は気相の水分量に影響されている可能性がある。

SS316を高真空中で加熱した場合、水素の放出は表面反応律速となるため放出が非常に遅いことが知られている¹⁾。これに対して報告者等の研究では、SS316からのトリチウムの放出をAr気流下で測定した場合、表面反応律速ではなく拡散律速になることを報告している¹⁾。Ar気流中でのトリチウムの放出を詳細に調べた結果、室温の様な低い温度においてもトリチウムはHTOとして放出することから、トリチウムの放出はAr中に含まれる水との同位体交換反応により進んでいる可能性が示唆された⁴⁾。

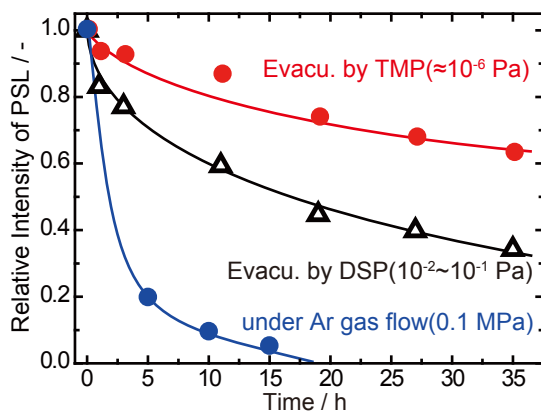


Fig.3 Time dependence of surface tritium decontamination at 573K depending on atmospheric pressure evacuated by turbo molecular pump(TMP) or dry scroll pump(DSP) or ambient pressure.

考 察

すでに述べたとおり、高真空中ではトリチウムの放出は表面反応律速になり、放出速度が非常に遅い。これに対してAr気流下では、Ar中に存在する極微量の水との同位体交換反応によりトリチウムの放出が起きていると考えられる。SS316の実験では、トリチウムの放出挙動の解析を行った結果、気相から試料表面への水分子の衝突の回数が、試料表面における試料内部からトリチウムの拡散速度よりも大きいため、トリチウムが同位体交換反応によってHTOとして放出が起きたと考えられる。従って、高真空中では表面反応律速であるが、低真空やAr気流中では拡散律速になることは矛盾しない。

逆に考えると、気相に極微量でも水が存在すると水との同位体交換反応が優勢になるため、HTOの生成を止めることができない可能性が示唆される。

LHDやITER、原型炉などの実機においては、炉内トリチウムの除染を行う場合に、積極的に水を炉内に導入して除染することは避けたい手法であると思われるが、低真空中でのベーキングであれば受容される可能性が高い。そこで、実機における炉内トリチウムの除染法として、低真空ベーキングを提案している。ただし、低真空中で行えばトリチウムの除染速度は速くなるが、同時にトリチウムはHTOとして回収される可能性があるため、HTOの後処理と燃料循環系へのトリチウムの再注入等を検討する必要がある。

今後の課題

これまでの研究結果を取りまとめて、気相から試料表面への水分子の衝突の回数と、試料表面における試料内部からトリチウムの拡散速度のバランスにより放出機構が異なると考えているが、真空中での放出の化学種が測定できないため、明確な証拠を示す実験ができていない。また、同位体交換したプロトンの挙動が明らかとなっていない。これらを明らかにし、気相の水分量と放出挙動の関係が明らかになれば、炉内のトリチウム挙動や蓄積量を明らかにし、また、除染法の開発に繋がる。

参 照 文 献

- 1) Y. Torikai et. al., Fusion Sci. and Technol., **54**, (2008) 515-518.
- 2) M. Noguchi et. al., Fusion Eng. and Design., **124**, (2017) 257-261.