

論 文

簡易型トリチウム貯蔵容器の開発

三宅 均・渡辺 国昭

富山大学水素同位体機能研究センター
〒930 富山市五福3190

Development of Simple Tritium Supply-recovery Device

Hitoshi MIYAKE, Kuniaki WATANABE

Hydrogen Isotope Research Center, Toyama University
Gofuku 3190, Toyama 930, JAPAN
(Received July 31, 1992; accepted November 9, 1992)

Abstract

Tritium containers are commonly made of conventional types of stainless steel. Use of these materials, however, causes problems such as high permeation rate of tritium, contamination of tritium with protium which is dissolved in stainless steel and so on. To solve these problems, the inner walls of such containers were passivated with anodic oxidation. As a first step to evaluate the effect of the passivation layer on the above problems, ad/absorption and desorption characteristics of deuterium were examined with thermal desorption spectroscopy. Such developed container showed smaller gas release and smaller amount of solved hydrogen compared commercial stainless steel containers. This property, however, arose from differences in materials themselves or in manufacturing processing of the containers. The oxide layers grown on a container with twice anodic oxidation processing did not act as barrier for the deuterium ad/absorption. The oxide layers grown by repeating the process four times, however, showed about one order of magnitude smaller ad/absorption, suggesting that these oxide layers will act as barrier for tritium ad/absorption and permeation.

1. 緒 言

トリチウム貯蔵・供給・回収装置は、トリチウムの安全供給及び貯蔵の観点から重要である。従来、この種の装置は大量トリチウムの貯蔵・供給・回収を目的として、ウランあ

るいはZr系合金ゲッターを貯蔵・供給・回収材とし、容器材料にはステンレス鋼（SS）が用いられている。しかし、通常のSS容器ではゲッターの使用条件によって大量のトリチウムが作業環境に放出される恐れがある。たとえば、使用条件を500°C (773K), 1気圧 (760Torr) とすると、この際のトリチウムの透過係数は0.143Torr·cm³/secである¹⁾。したがって、使用する容器の内壁の接触面積を10cm²、肉厚を1mmとすると、定常状態では、1秒間におよそ500 μCi (18.5MBq)，作業時間を1回1時間とすれば、作業中に2Ci (74GBq)以上のトリチウムが作業環境に放出されることになる。また、上記の接触条件におけるトリチウムのSS容器に対する溶解度は0.018cc (NTP)/cm³·Torr^{1/2}である²⁾。したがって、この際のトリチウム溶解量は1Ci (37GBq) 以上になる。これらのこととは作業環境及び公共の安全性のみならず廃棄物処理及びトリチウムの損失の観点からも重要な問題になる。そこで、従来の容器には加熱時のトリチウム透過防止措置を施したもののが用いられている³⁾。主な透過防止法としては、容器を二重構造にし、透過したトリチウムを除去する方法や容器壁を水で冷却する方法等がある。しかし、この様な措置をした容器は構造が複雑で重量も重く、水配管が必要なことから取り付け位置の制約や操作性等で取扱いが困難になる問題がある。したがって、比較的少量のトリチウムを用いる汎用型のトリチウム取扱装置には適さない。一方、汎用型トリチウム取扱装置では従来、石英ガラス製のトリチウム貯蔵・供給・回収装置が用いられているが⁴⁾、強度の点から安全性に問題がある。筆者らは、先に各種材料におけるトリチウム吸着量を測定し、表面改質処理したSSはクロム酸化層 (Cr₂O₃) の表面への析出により処理しないものと比べてトリチウム吸着量がおよそ1桁少なく、トリチウム吸着防止策としてSSの表面改質処理が有効であることを見いたした⁵⁾。したがって、この材料はトリチウムの透過対策にも有効であることが予測される。また、この種の容器ではトリチウムの純度維持及びゲッターの寿命の観点から材料からのガス放出も重要な問題である。表面改質処理した材料は放出ガスの軽減の観点からも注目されており⁶⁾、この点においても有効であることが予測される。そこで、本報ではSS製のコンパクトで操作性に優れた簡易型トリチウム貯蔵・供給・回収容器を製作し、これを表面改質処理した際の性能をガス放出特性及び水素同位体吸(収)着特性から評価し、その有効性及び実用性を検討した。

2. 実験

2. 1. 試料及び装置

製作した試料容器の詳細な断面をFig. 1に示す。容器はVCR継手を溶接した後、表面改質処理してある。表面処理は米国 Quantum Mechanics 社で行われたものであり、方法等の詳細は不明である。ただし、本実験で使用した容器には先のトリチウム吸着試験で使用した材料と同等の処理が施されており、先の報告結果と同じく表面はCr酸化層で覆われているものと考えられる⁷⁾。容器の外径は9.53mm、肉厚は0.55mm、長さはおよそ140mmである。

実験には表面改質処理の回数による効果を比較するために処理を2回したもの（以後、2PSSと略記）と4回したもの（以後、4PS Sと略記）の2種類を用いた。また、比較のために先に重水素及び軽水素供給用シリンドラーとして使用したホワイティー社製ステンレスサンプリング容器⁸⁾（SS316製、外径25.4mm、肉厚1.65mm、長さ206mm）を用いた。実験は、これらの容器を真空装置に接続して行った。

Fig. 2 に用いた真空装置の概略を示す。装置はステンレス製である。通常の排気にはターボ分子ポンプを用い、測定の際にはスパッターアイオンポンプを用いた。いずれの真空ポンプを用いた場合も通常残留圧力は 1×10^{-8} Torr程度であった。なお、スパッターアイオンポンプの軽水素及び重水素に対する排気速度は各々、 19.9 ± 0.8 及び $16.2 \pm 0.1 \ell/\text{sec}$ であった。残留ガス等の分析及び圧力計測には四重極質量分析計及びB-A型真空計を用いた。なお、四重極質量分析計及びB-A型真空計の軽水素及び重水素に対する感度は、あらかじめスピニングローターゲージ（SRG）により求めた。ガス供給系は軽水素、重水素及びトリチウムを供給できる。接触圧の計測には日本MKS社製バラトロン、タイプ122A（測定可能圧力範囲 10^{-4} ～ 10 Torr）を用いた。

2. 2. ガス放出特性

試料は、装置に取付け後 1×10^{-8} Torr程度まで真空排気した後に昇温脱離法（TDS）により放出ガスを測定した。この際の昇温速度は20K/min、温度範囲は室温から773K（500°C）で、773Kで10分間保持した。昇温に伴う放出ガスは四重極質量分析計により分析した。なお、質量分析計の測定範囲（M/e）は1～46とした。加熱は電気炉を用いて外部から行い、温度調節にはプログラム温度コントローラー及びクロメル-アルメル（CA）熱電対を用いた。電気炉により加熱される試料容器の内面積は幾何学的計算から表面処理した容器で約 12.6cm^2 、ホワイティー社製容器で約 38.2cm^2 であった。ホワイティー社製容器の

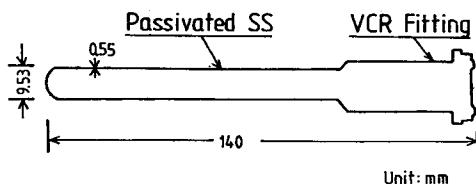


Fig. 1. Dimensions of the sample container.

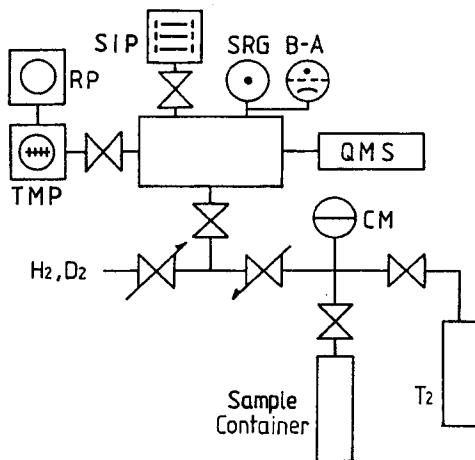


Fig. 2. Schematic diagram of experimental apparatus used in this study:
QMS. quadrupole mass spectrometer,
CM. capacitance manometer,
SRG. spinning rotor gauge, B-A.B-A
gauge, TMP. turbomolecular pump,
RP. oil-sealed rotary pump.

内面積は外径が大きいために表面処理した容器のおよそ3倍となった。ガス放出測定は同一試料について数回行い、昇温の繰り返しによる放出ガスの変化も併せて測定した。なお、設定した最高温度は通常Zr系ゲッターを貯蔵・供給・回収材として用いた際にゲッターの活性化に必要な温度である⁹⁾。

2. 3. 水素同位体吸(収)着特性

ガス放出特性を測定した後、試料に重水素ガスを接触させ、その後にTDSにより試料の重水素吸(収)着特性を調べた。用いた重水素は日本酸素(株)製で純度99.9%である。なお、重水素は一旦Zr系合金ゲッターに吸蔵させた後に使用した。したがって、純度は上記値よりさらに高いものと考えられる。接触条件はZr系水素貯蔵合金の活性化条件及び5Ci (185 GBq) のトリチウム供給条件を考慮して次のように設定した。①最高供給圧力10Torr (1.33 kPa)，②供給温度573K (300°C) 以下，③供給時間3600sec以下。この範囲で接触条件をいろいろ組み合せ、その際の、吸(収)着量を測定した。次にその手順を示す。①20K/minで室温から773K (500°C) まで昇温しながら排気する(プレヒーティング)。②重水素を所定の圧力、温度及び時間で接触させる。③温度を室温まで下げる。④2分間真空ポンプで排気する。⑤容器上部のバルブを閉め、真空装置の残留ガス圧が安定するまで放置する。⑥⑤で閉めたバルブを開け、20K/minで室温から773K (500°C) まで昇温し、その際の放出ガスを質量分析計により測定する。なお、重水素の接触圧はガス供給圧計測用のバラトロンで測定した。温度調節はガス放出特性を測定した際と同様のものを用いた。

3. 結果と考察

3. 1. 放出ガス特性

各サンプルの主な放出ガスの昇温脱離スペクトルをFig. 3に示す。(a)は2PSS、(b)は4PSS、(c)はホワイティー社製容器の結果である。(b)及び(c)は1回目の昇温の結果であるが、(a)はあらかじめ10K/minで室温から573K (300°C) までプレヒーティングしてある。いずれの場合も主な放出ガスは、軽水素 ($M/e=2$)、水 ($M/e=18$)、一酸化炭素あるいは窒素 ($M/e=28$) 及び二酸化炭素 ($M/e=44$) であり、容器からの放出ガスの種類には表面処理の有無及び回数による違いはなかった。

4PSSではいずれのガスも500K付近から放出が始まり、一酸化炭素と二酸化炭素は700K付近に最大値を示したが、水素及び水は773K (500°C) まで単調に増加し、温度が一定になると減少した。この傾向は2PSSにも同様に認められた。ただし、2PSSは4PSSに比べ二酸化炭素の放出量が約5倍多く、水の放出量は約3分の1と少なくなった。2PSSからの水の放出が少ない原因は573K (300°C)でのプレヒーティングによるものと考えられる。一方、4PSSでの二酸化炭素放出量の減少は追加処理により、Cr酸化層の均一化あるいは多層化が生じ、二酸化炭素に対する吸(収)着の抑制及び内部からの酸素原子の拡散の抑

制などの効果が現れたものと考えられる。

ホワイティー社製容器のガス放出開始温度は表面処理したものとほぼ同じであり、いずれのガスも773K(500°C)まで単調に増加し、773K(500°C)で温度が一定になると水素はしだいに定常値に近づいたが、水素以外のガスの放出量は減少した。また、放出量はいずれのガスについても表面処理した容器に比べおよそ二桁多いことが知られた。2回目移行の昇温ではこれらの不純物ガスは表面処理容器ではほとんど検出されず、他方、ホワイティー社製容器では数回の昇温の繰り返しにより放出量はいずれのガスも1回目の1/100程度まで減少したが、依然として検出された。即ち、表面処理した容器のガス放出はホワイティー社製の容器に比べ極めて少なく、また除去しやすいことが知られた。水、一酸化炭素及び二酸化炭素ガス等の不純物ガスはZr系合金ゲッターに収蔵されると表面あるいは内部で安定な化合物を形成する。したがって、酸素及び炭素は再放出されず合金の水素貯蔵能力の低下、即ち合金性能の劣化の要因となることが知られている⁹⁾。この問題は実験室規模の小型のトリチウム実験装置、特に5Ci(185GBq, 1500Torr·cc)程度のトリチウムを取り扱う汎用型の装置では、供給圧力を確保するために合金使用量がmg程度と極めて少ないとから特に深刻で⁴⁾、微量の不純物でも重要な問題となる。したがって、不純物ガスの放出量が極めて少なく除去も容易な表面処理した容器がこの種の容器として有効であると言える。

Fig. 4に昇温の繰り返しによる放出水素量の変化を示す。ホワイティー社製容器は

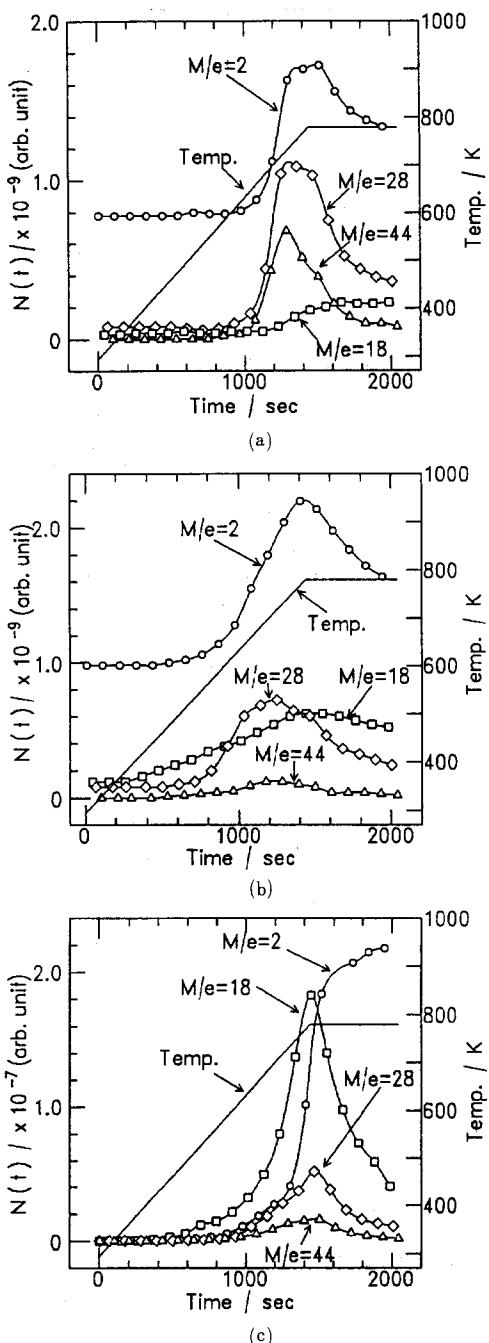


Fig. 3. Outgassing behaviors from the sample containers made of :

(a) : 2PSS(stainless steel doubly passivated), (b) : 4PSS(stainless steel quadruply passivated) and (c) : commercial stainless steel.

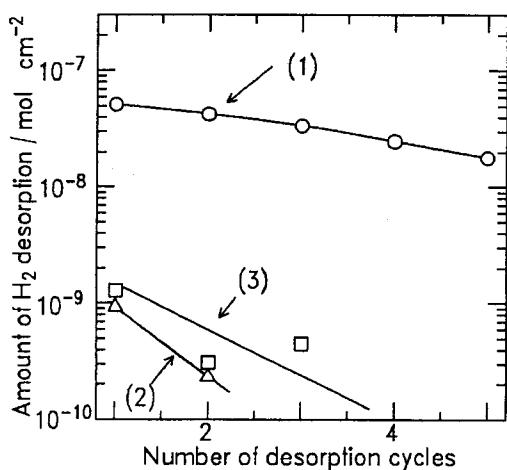


Fig. 4. Changes of amount of H₂ desorption with the number of desorption cycles for : the commercial stainless steel container (1), 2PSS (2) and 4PSS (3).

以上のことから、水素放出量が極めて少ない表面処理した容器がゲッターの性能及びトリチウムの純度維持の観点から汎用型トリチウム取扱装置の貯蔵・供給容器としてきわめて有効でことが知られた。

3. 2. 水素同位体の吸(収)着

3. 2. 1. 2回処理容器(2PSS)とホワイティー社製容器の比較

Fig. 5に重水素を接触させた後の昇温度脱離ピークの一例を示す。なお、昇温速度は20K/minである。(a)は2PSS、(b)はホワイティー社製容器の結果である。なお、この際の接触条件は(a)が圧7.7Torr、温度523K(250°C)、時間1500sec、(b)が圧7.7Torr、温度573K(300°C)、時間3600secである。重水素の脱離量をD₂+(1/2HD)として求めると、2PSSは2.4×10⁻⁸mol、ホワイティー社製容器は1.1×10⁻⁸molあり、2PSSの重水素脱離量は接触温度が低くかつ時間が短いにもかかわらずホワイティー社製容器の約2.5倍であった。また、吸(収)着した重水素は2PSSでは主としてD₂(M/e=4)で脱離したが、ホワイティー社製容器ではHD(M/e=3)として脱離した。脱離量から求めた吸(収)着量は表面被覆率にしておよそ1となり通常の鉄等の金属における被覆率(約10⁻³)¹⁰⁾をはるかに上回っている。即ち、本実験で観測された重水素の吸(収)着は主として重水素の容器材料に対する溶解によるものと考えられる。ホワイティー社製容器で、吸(収)着した重水素が主としてHDとして脱離するのは容器壁内の溶存水素に起因するものと考えられる。即ち、ホワイティー社製容器では溶解した重水素原子に比べ溶存水素が圧倒的に多いため、脱離の際に表面でDとHが結合し、HDとして放出される。他方、2PSSで重水素のほとんどが

5回昇温を繰り返すことにより放出量は5×10⁻⁸から2×10⁻⁸mol/cm²に減少した。しかし、この量は表面処理した容器の1回目の放出量のおよそ20倍である。また、このホワイティー社製容器全体からは1回の昇温当たり10mCi(370MBq)相当の軽水素が放出されるので、トリチウムの供給・回収の繰り返しによりトリチウムの純度が低下する恐れがある。このような放出ガスを低減する方法としては、さらに昇温を繰り返すことや500°C以上の高温での加熱脱気も考えられるが、Fig. 4から明らかなように昇温の繰り返しによる極端な放出水素量の減少は期待できない。また、500°C以上の高温での処理は強度の点で問題がある。

D_2 として脱離したのは溶存水素が少ないとから表面でのHとの結合が起こりにくいためと考えられる。少量のトリチウムを取り扱う場合にはこのような形での溶存水素によるトリチウムガスの純度の低下が無視できない。たとえば、本実験で使用したホワイティー社製の容器の場合は5回昇温を繰り返した後でさえ、およそ 1×10^{-6} molの水素が放出された。さらに、溶解したトリチウムがHTとして脱離するとトリチウムのT₂としての純度はかなり低下することになる。したがって、トリチウムの純度を維持するためには表面処理した容器が極めて有効であるといえる。一方、2PSSの重水素溶解量がホワイティー社製容器に比較して多い原因は明らかではないが、ホワイティー社製容器の重水素放出ピークが773K(500°C)より高温側にあり実際の溶解量が今回得た量よりも多いことや2PSSではCr酸化層の膜厚、膜の均一性及び膜の安定性等が不充分なために期待されたほどの効果が得られなかつたこと等が考えられる。しかしながら、いずれにしろこの結果は2回の表面処理が水素同位体の吸(収)着に対してはガス放出の低減ほどには効果的ではないことを示している。

3. 2. 2. 2回処理容器(2PSS)の特性解析

Fig. 6に2PSSでの接触圧(a)及び接触時間(b)による昇温脱離ピークの変化を示す。なお、(a)の測定の際の接触時間は1500sec、また(b)の測定の際の接触圧は7.6Torrとした。これらの図から2PSSからの水素の脱離過程を評価できる。即ち、Fig. 6(a)では接触圧の増加に伴い脱離量は増加するが、ピーク温度は600K付近で変化しなかった。また、(b)では接触時

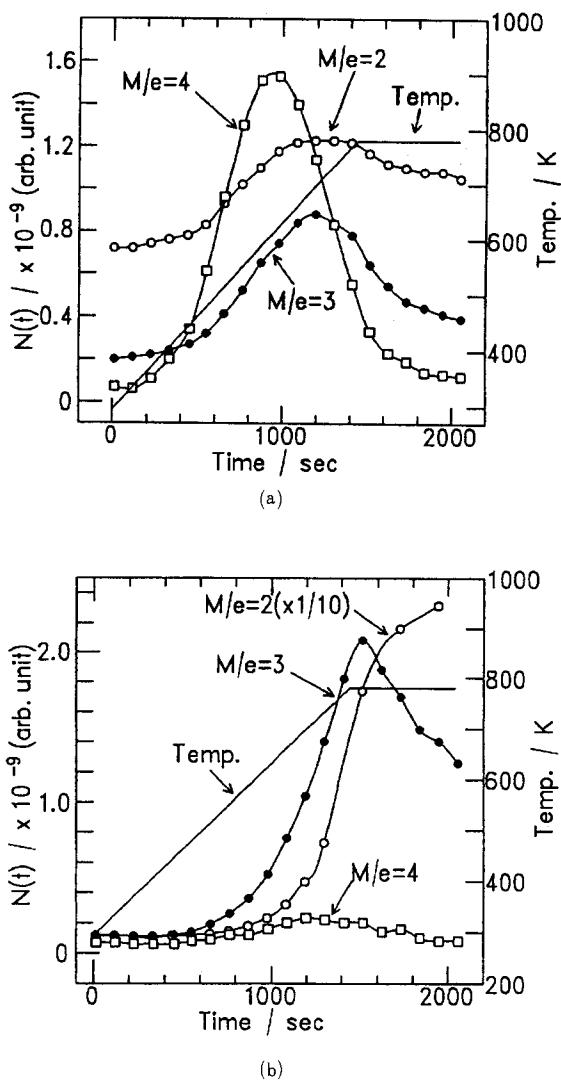


Fig. 5. TDS curves of hydrogen isotopes after exposure to D_2 gas from : (a) : 2PSS and (b) : the commercial stainless steel container.

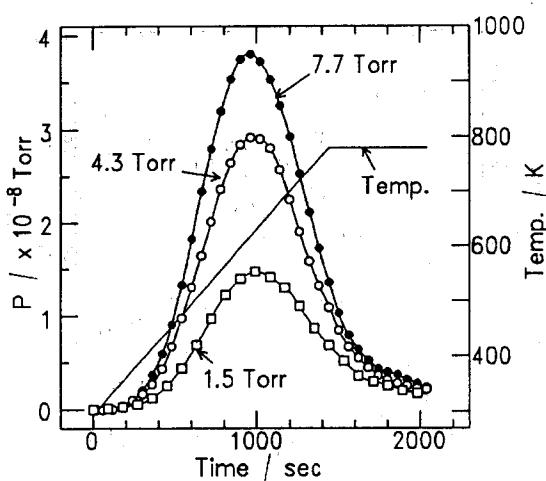


Fig. 6(a). Exposure-pressure dependence of TDS curves of D_2 for 2PSS exposed to D_2 gas.

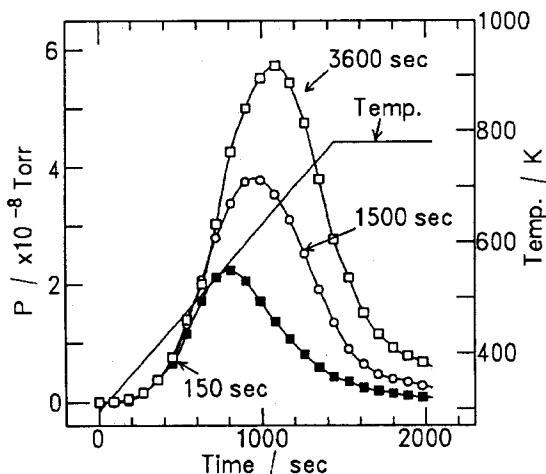


Fig. 6(b). Exposure-time dependence of TDS curves of D_2 for 2PSS exposed to D_2 gas.

過程の解析を、厚さ d の板を真空中に放置した時の拡散の方程式の解より種々の条件での脱離ピークの再現をすることにより試みた。この場合の、初期条件と境界条件は、

$$C = C_0, \quad 0 \leq x \leq d, \quad t = 0$$

$$C = 0, \quad x = 0, x = d, \quad t > 0$$

で、両面からの気体の放出速度は

$$Q = 8C_0D/d\Sigma \exp [\pi^2(2n+1)^2(D/d^2)t] \quad (1)$$

となることが知られている。ここで、 D は拡散係数を示す。昇温による拡散係数の変化は

間の増加に伴い吸（収）着量は増加し、ピーク温度は高温側へシフトした。昇温離脱法ではピーク温度の吸（収）着量依存性から脱離反応の機構を知ることができる¹¹⁾。Fig. 6(a)及び(b)でみられたピーク温度の変化は、水素の吸（収）着過程が拡散律速であると仮定したとき、接触時間の増加とともに吸（収）着された水素がより深い場所まで移動すると考えることで説明される。拡散律速反応では気体の吸収は接触時間の平方根に比例して増加することが知られている¹²⁾。Fig. 7に接触時間の平方根と吸（着）量の関係を示す。図より吸（収）着量と接触時間の平方根との間に良い直線関係があり、吸（収）着量は接触時間の平方根に比例して増加した。したがって、吸（収）着過程は拡散律速であると結論される。ただし、図の直線は原点を通っていない、この原因は明らかではないが、表面での内部とは異なる比較的早い拡散あるいはそれ以外の反応の影響が予測される。

次いで、同様の考え方により脱離

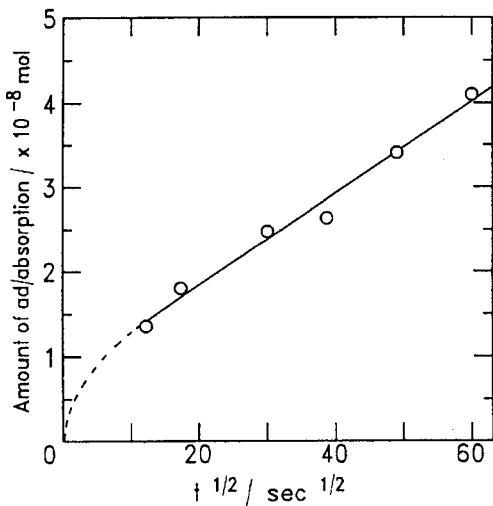


Fig. 7. Exposure-time dependence of amount of ad/absorption for 2PSS.

$$D = D_0 \exp(-E_d/RT) \quad (2)$$

であるからここでは従来得られているいくつかのオーステナイト系ステンレス鋼における拡散の活性化エネルギー及び頻度因子を用い、試料容器への水素吸（收）着の深さ分布を d とし、これに適当な値を選び T DS ピークの再現を試みた。その一例を Fig. 8 に示す。図は Louthan らが得た $E_d = 12.9$ kcal/mol, $D_0 = 3.1 \times 10^{-3} \text{ cm}^2/\text{sec}$ の値²⁾ を用いたもので実測スペクトルをかなり良く再現できる。したがって、この容器における水素の拡散係数は、この値にきわめて近いことが予測される。ピークを再現する際に用いた水素の深さ分布は接触時間 150 秒から 3600 秒で 0.1 から 0.25 mm であった。試料容器の肉厚はおよそ 0.55 mm である。また、拡散距離のおよその目安は拡散係数と接触時間の積の平方根で示され、その値は、同条件でおよそ 0.05 から 0.22 mm であり、よく一致している。これらのこととは得られた深さ分布が妥当なものであることを示している。

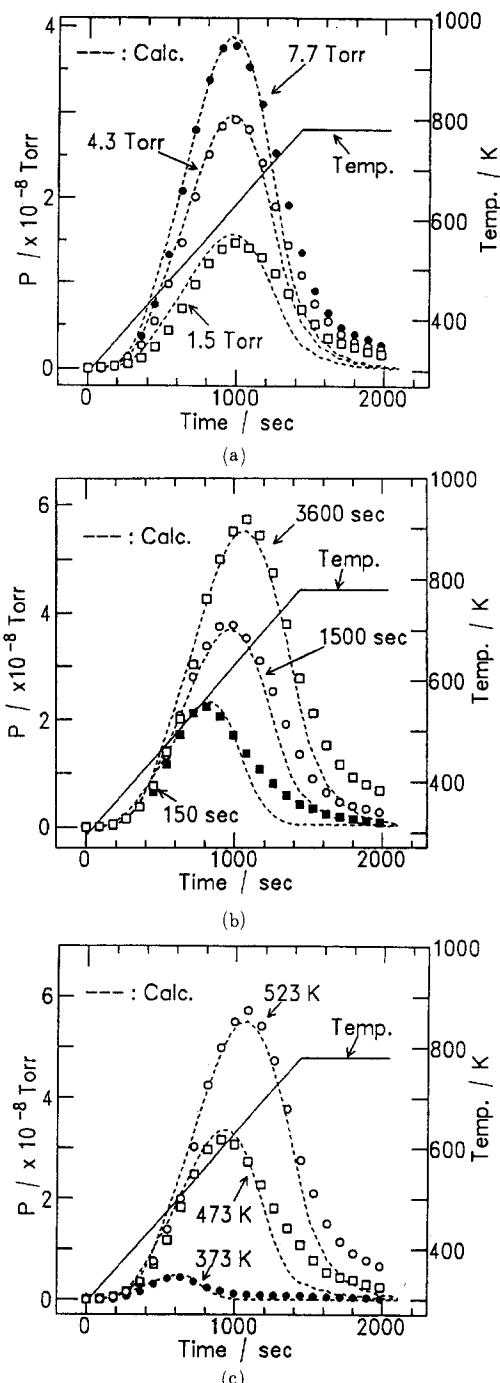


Fig. 8. Computer simulation of the TDS curves of D_z for 2PSS : (a) : exposure-pressure dependence, (b) : exposure-time dependence and (c) : exposure-temperature dependence.

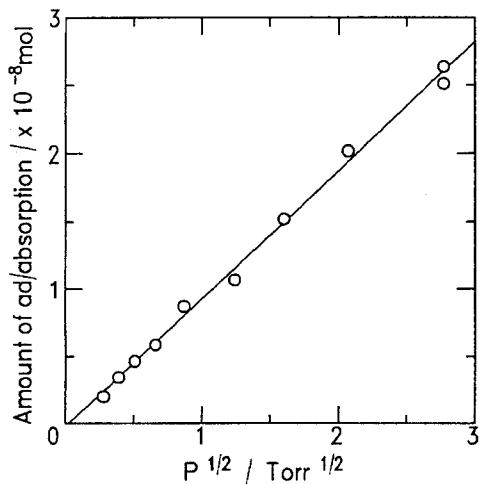


Fig. 9. Exposure-pressure dependence of the amount of ad/absorption for 2PSS.

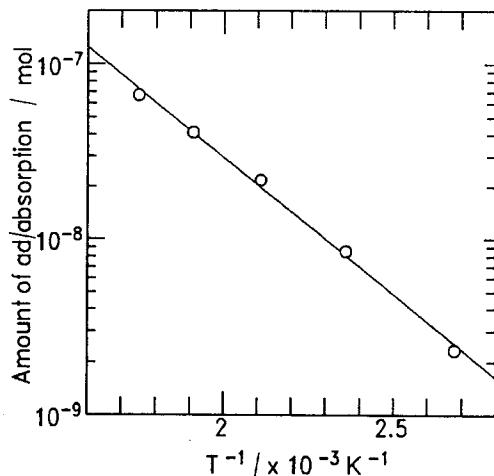


Fig. 10. Exposure-temperature dependence of the amount of ad/absorption for 2PSS.

次に吸（収）着量からこの容器を評価した。Fig. 9 に 2 PSS の吸（収）着量の接触圧依存性を示した。吸（収）着量が圧力の平方根と良い直線関係にあることが解る。一般に、一定温度においてある水素分圧下で金属に水素を吸収させると、その際の平衡溶解度は圧力 P の平方根に比例する。即ち、溶解度 S は

$$S = S_0 P^{1/2} \exp(-\Delta H_s / RT) \quad (3)$$

として表される。ここで S_0 は定数、 ΔH_s は溶解熱 (J/mol)、 R は気体定数 (J/mol·K)、 T は絶対温度 (K) を示す。Fig. 10 は接触温度の逆数と吸（収）着量の関係を示したものであるが、両者に良い直線関係があることが解る。即ち、Fig. 9 及び Fig. 10 は(3)式の関係を良くみたしている。Fig. 10 の直線の傾きより溶解熱を求めるとき 10.7 kJ/mol であった。この値は杉崎らが得た SS316 に対するトリチウムの溶解熱 10.2 kJ/mol とよく一致した¹³⁾。以上の結果は 2 回処理で成長した Cr 酸化層は重水素の溶解及び透過防止膜としてはほとんど機能していないことを示している。このことは Cr 酸化層がきわめて薄いか、多孔質であるか、亀裂が生じている場合に起こり得る。いづれにしても 2 PSS とホワティー社製容器とのガス放出挙動及び水素吸（収）着特性の相違は材料自体あるいはその製造工程上の差異による可能性が大きい。この結果は、今回製作したような形状の容器では、従来その効果が認められている板状試料や大型の容器に比べ均一な表面処理が難しいことを示唆している。

ちなみに、2 PSS での水素透過度 Φ ($\text{mol} \cdot \text{cm}^{-1} \cdot \text{sec}^{-1} \cdot \text{Torr}^{-1/2}$) は以下のように見積もられる。

$$\Phi = S \cdot D = 3.7 \times 10^{-9} \exp(-64622 / RT) \quad (4)$$

この結果を通常のステンレス鋼で得られる値と比較すると、透過の活性化エネルギーはほぼ同じで、頻度因子はおよそ1桁小さい。この結果よりゲッターの使用条件である圧力10 Torr、温度300°C、時間3600secにおける使用した容器のトリチウム透過量を推測すると、透過量Qは、

$$Q = \Phi \cdot P^{1/2} \cdot A / d \quad (5)$$

で表されるから、(4)式より、300°C (573K) における透過率を求め、圧力P及び容器の内厚d及び接触面積Aを(5)式に代入すると、透過量は 3.8×10^{-12} mol/secであった。これを放射能に換算すると $0.2 \mu\text{Ci/sec}$ (7kBq/sec) となる。したがって、使用時間中にはおよそ800 μCi (30MBq) のトリチウムが作業環境へ放出されることになる。たとえば、当水素同位体機能研究センターの実験室でこの容器を用いてトリチウムを使用した場合、実験室の容積は約140m³及び排気量は約 $2 \times 10^4 \text{ m}^3/\text{hour}$ であることから、排気をしない場合でも空気中濃度は 6 pCi/cm^3 (0.2Bq/cm^3)、排気した場合はさらに薄まり、排気中濃度も1時間の平均で 0.04pCi/cm^3 ($1.5 \times 10^{-3}\text{Bq/cm}^3$) となる。法律上の元素状トリチウムの規制値は空気中濃度限度で8時間平均 20kBq/cm^3 、排気中の濃度限度で3カ月平均 90Bq/cm^3 があるので、予測値がこれではあるかにしたまわっていることがわかる。即ち、今回製作した2回処理容器は上記の使用範囲であれば充分使用可能である。ただし、この規制値はあくまでも元素状のトリチウムであり、トリチウム水で放出される場合は5桁近く厳しい規制を受ける。現在、リアルタイムにトリチウム水と元素状トリチウムを区別できるモニタリング法はないことから、透過したトリチウムがトリチウム水に転換する可能性を考慮すると、トリチウム透過量はあと1桁程度低い必要がある。

3. 2. 3. 4回処理容器 (4 PSS)

上述したように、2 PSSではCr酸化層はほとんどトリチウムの透過防止膜として機能しないと考えられた。そこで、ここでは処理回数をより多くした容器での重水素の吸(収)着・脱離挙動を検討した。Fig.11に4 PSSに重水素を接触した後の昇温脱離ピークの一例を示す。接触条件は圧7.7Torr、温度573K (300°C)、時間1500secで、昇温速度は20K/minである。Fig. 5 (a)の2 PSSの結果と比較すると、接触温度が高いにもかかわらず重水素の放出ピークが極めて小さい。このピーク面積から重水素の吸(収)

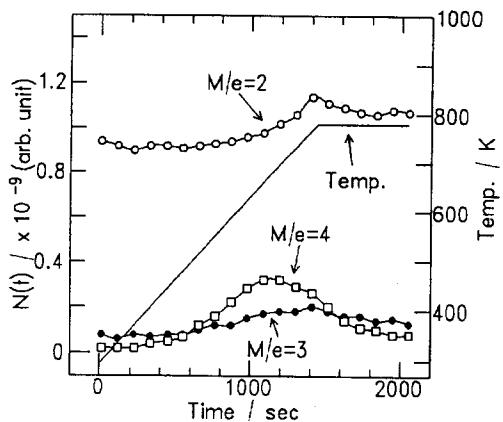


Fig.11. TDS curves of hydrogen isotopes for 4PSS exposed to D_2 gas.

着量を求めるとき、2PSSに比べおよそ1桁少ないとから知られた。追加処理による吸(収)着量の減少は、表面処理により生成したCr酸化層の均一性あるいは膜厚の増加によるものと考えられるが、その原因は明らかではない。但し、追加処理による吸(収)着量の減少を示唆するものであり、汎用型トリチウム取扱装置のトリチウム貯蔵・供給・回収装置の容器として有望である。今後追加処理による吸(収)着量減少の原因を表面状態の変化を含めて検討するとともに透過度に対する影響を系統的に調べる必要がある。

4. ま と め

表面処理したステンレススチールを用いた簡易型トリチウム貯蔵・供給・回収装置用の容器を製作し、重水素によりその性能試験を行った。その結果以下のことが知られた。

- (1) 一般のステンレス鋼容器に比べ2PSSでは放出ガス量も溶存水素量も少ない。
- (2) 但し、水素の溶解ならびに拡散係数は一般のステンレス鋼で得られている値とほぼ同じであり、2PSSではCr酸化層はほとんど機能していない。
- (3) したがって一般の市販容器との相違は主として材質自体あるいはその処理工程の違いによるものと考えられる。
- (4) これらのこととはこの種の容器が従来効果が認められている板状試料等に比較して表面処理が困難であることを示している。
- (5) 処理回数を2回から4回に増加することにより、水素の吸(収)着特性は大巾に改善され、更に優れた特性を持つトリチウム容器を製作可能である。

謝 辞

試料容器を製作・提供していただいた米国 Quantum Mechanics 社の佐々木清長氏に感謝致します。

文 献

- 1) K. F. Chaney and G. W. Powell, Metall. Trans., 1 (1970) 2356.
- 2) M. R. Louthan, Jr., J. A. Donovan and G. R. Caskey, Jr., Nucl. Technol., 26 (1975) 192.
- 3) 市村憲司、渡辺国昭、富山大学トリチウム科学センター研究報告、6 (1986) 39.
- 4) H. Miyake, M. Matsuyama, K. Watanabe and D. F. Cowgill, Fusion Technol., 21 (1992) 812.
- 5) 石川雄一、小口優子、尾高憲二、真 空、33 (1990) 507.
- 6) 松山政夫、荒木祐一、芦田 完、渡辺国昭、日本原子力学会「昭和63年秋の大会」要旨集H40.
- 8) K. Watanabe, K. Tanaka, M. Matsuyama and K. Hasegawa, Fusion Engineering

- and Design, 18 (1991) 27.
- 9) 渡辺国昭, 松山政夫, 富山大学トリチウム科学センター研究報告, 9 (1989) 1.
- 10) T. Kwan, J. Res. Inst. Catal. Hokkaido Univ., 1 (1949) 100.1
- 11) 広畠優子, 真 空, 33 (1990) 488.
- 12) 富永五郎, 熊谷寛夫, 「真空の物理と応用」(裳華房, 1970).
- 13) M. Sugisaki, H. Furuya, K. Ono and K. Idemitsu, J. Nucl. Mater., 120 (1984) 36.