



## プロジェクトレビュー 核融合炉実現を目指したトリチウム研究の新展開

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

深田 智<sup>1)</sup>, 榎枝幹男<sup>2)</sup>, 河村 繕範<sup>2)</sup>, 片山一成<sup>1)</sup>, 西川正史<sup>1)</sup>, 相良明男<sup>3)</sup>

<sup>1)</sup>九州大学大学院総合理工学研究院, <sup>2)</sup>日本原子力研究開発機構, <sup>3)</sup>核融合科学研究所

(原稿受付: 2009年8月27日)

#### Keywords:

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

#### 4.1 B01班の概要

核融合炉成立のための必要条件の一つは、核融合炉プラズマコア内で燃料トリチウムを消費燃焼しつつ、同量あるいはそれを少し上回るトリチウムをブランケットで安全かつ経済的に製造、回収するとともに、決められた量以下に透過漏洩を抑えることである。特定領域「核融合炉実現を目指したトリチウム研究の新展開」の計画研究B01班は、「核融合炉ブランケット材中のトリチウム移動解明と新規回収プロセス開発の研究」と題し、特に核融合炉トリチウム安全性確立の立場から、トリチウム回収プロセス構築とブランケットシステム内でのトリチウム安全閉じ込め達成に関連した研究をおこなっている。将来実現される定常運転核融合炉では、熱出力1GWあたり少なくとも1.6MCI/dayのトリチウムを消費し、生産回収する必要がある。他方トリチウム安全性を達成するため、少なくとも核分裂炉と同程度にトリチウム漏洩率を抑えることを想定すると、10Ci/dayの漏洩率目標を達成する必要がある。したがって炉のトリチウム生産側管理区域から核融合炉を取り巻く非管理区域へのトリチウム発生率/漏洩率比で、少なくとも $10^5$ 程度を維持する必要がある。この比を高回収率と低透過率で達成させる必要がある。B01班では、現在想定されているITER-TBMの先を見越し、先進ブランケット概念について、要求される $10^5$ 以上の発生率/漏洩率比を、経済性を損なうことなく達成することを目標としている。具体的なB01班の研究計画は、次のとおりである。

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

#### の構築

ブランケット-トリチウム研究では、図1(a)、図1(b)に示すように、取り扱う長さスケールと濃度範囲が極めて広い領域に渡り、その結果、対象とするブランケットと発生トリチウム化学種の組み合わせにより、Li等に含まれる不純物の影響、トリチウム化学種の変化、同伴する水素や重水素との同位体交換が同時に生じる。現在ブランケット候補材として、固体セラミック材 ( $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ ,  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$ ,  $\text{Li}_2\text{ZrO}_3$  等) と液体ブランケット材 (Li,  $\text{Li}_{0.17}\text{Pb}_{0.83}$ ,  $\text{Li}_2\text{BeF}_4$  (Flibe)) が精力的に研究されているが、それぞれ物理化学的性質や熱的性質が異なることにより、上記発生率/漏洩率比の目標達成のための研究道筋が異なる。そこで本研究計画班では、目標を合理的に達成するため、ブランケット-トリチウムを別に材料科学的手段で追求するB02班と協調して研究を遂行している。研究方法は互いに異なり、B01班では、マクロ相互作用に着目し、化学工学的研究手法に基づき、トリチウム放出挙動や新規回収システム構築に着手している。B02班では、材料-トリチウム間のミクロ相互作用に着目し、照射欠陥、材料化学制御、セラミック被覆材開発に研究の焦点をあてた。本節では、特定領域B01班で実施している研究のいくつかを例示して、取り組み状況を示したい。

#### 4.2 固体ブランケット材の研究課題と進行状況

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

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

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

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

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

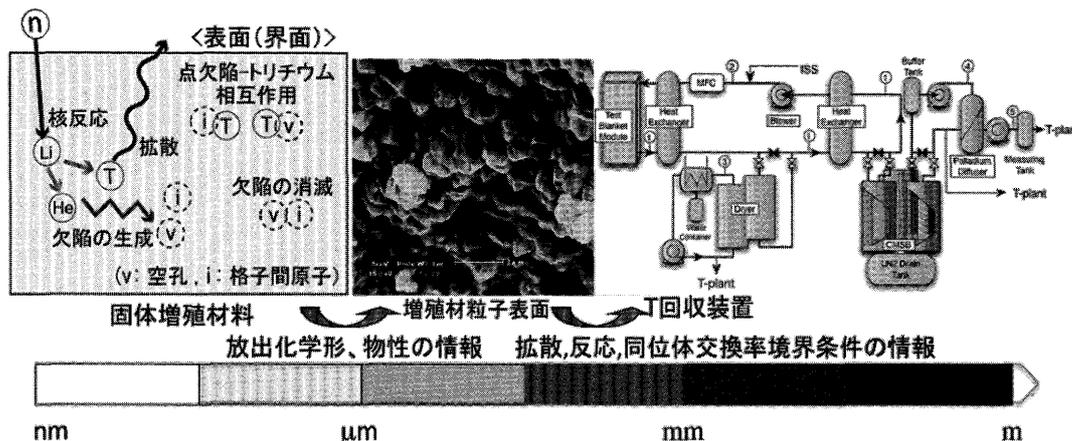


図1 (a) ブランケットトリチウム研究の対象範囲。

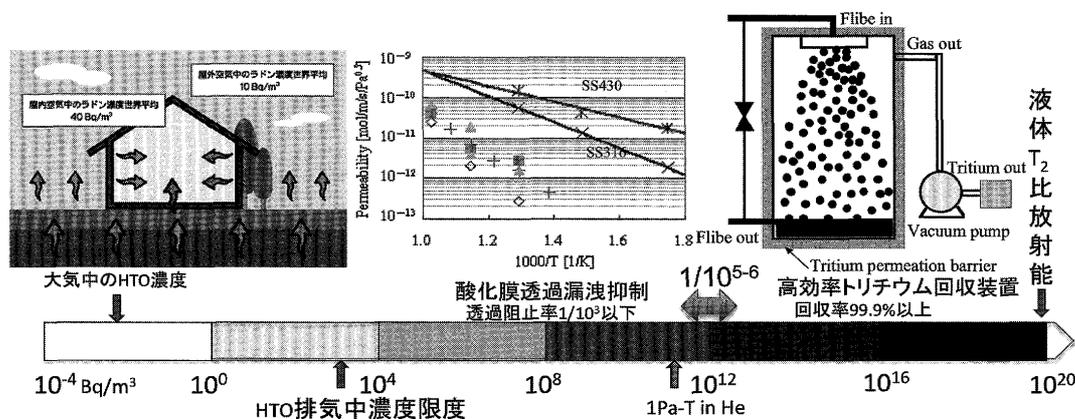


図1 (b) ブランケットトリチウム研究の対象濃度範囲。

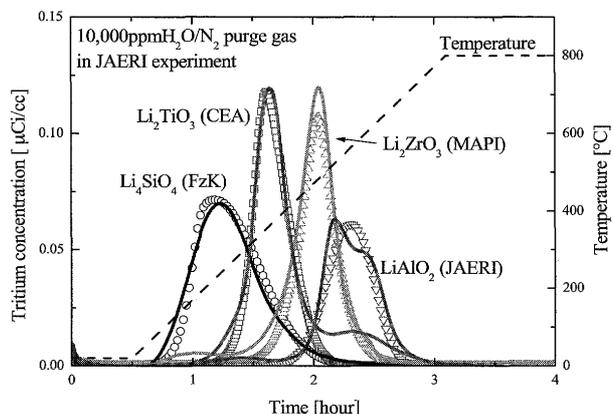


図2 各種固体ブランケット材からの中性子照射後加熱状態におけるトリチウム放出挙動の実験と解析[3].

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

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

- ④ T<sub>2</sub>, HT, HTO, T<sub>2</sub>O, その他の化学種が同時に気流中に存在する可能性がある、
- ⑤ 水素, 水蒸気, その他化学種の気固界面への吸着, 吸収, 反応が同時に進行する、
- ⑥ 微量トリチウムが、固相中あるいは気相中の不純物と

相互作用することで、トリチウム移動速度が影響を受ける場合がある。

⑦ トリチウム回収装置内のマクロ的な視野で熱, 物質, 運動量輸送が生じる。

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

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

例えば、固体ブランケット材のLi<sub>2</sub>TiO<sub>3</sub>は酸素不定比性が存在することが知られているが[1], 図2に示すように、その物性変化, 多孔質微細構造の吸着・拡散を考慮した解析結果は、実験のトリチウム放出挙動をよく表している。他のブランケット材のLi<sub>4</sub>SiO<sub>4</sub>やLiAlO<sub>2</sub>等でも実験放出曲線を吸着, 同位体交換, 拡散等の基礎物質移動過程に基づいた定量的把握が進んでいる[2, 3].

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

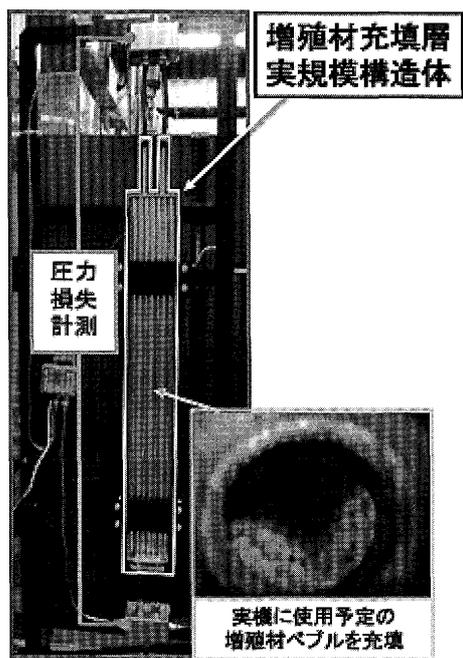


図3 固体増殖ブランケット充填試作体.

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

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

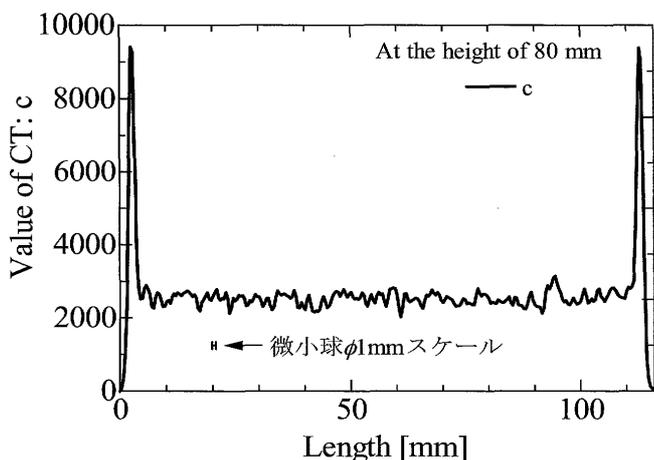


図4 固体増殖ブランケット内の空隙率分布.

### 4.3 液体ブランケット材の研究課題と進行状況

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

- ① ブランケット構造体内部の三次元空間内で、強制対流あるいは自然対流による流動が存在する、
- ② 他の分子種、例えば  $\text{Li}_{17}\text{Pb}_{83}$  では Po, Flibe では TF が発生し拡散移動する、

Li と Li-Pb 共融合金、Flibe 混合溶融塩では化学的性質がまったく違い、蒸気圧、トリチウム溶解度もかなり異なる。水素同位体の溶解度は、 $\text{Li} \gg \text{Li}_{17}\text{Pb}_{83} > \text{Flibe}$  の順であり[6]、したがってトリチウム回収法も異なってくる。そこで液体ブランケット候補材ごとに、現在の研究状況を報告する。

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

$\text{Li}_{17}\text{Pb}_{83}$  は、トリチウム溶解度の点、融点や材料共存性の点からも優れた液体ブランケット材であり、高温ブランケットをめざした日米欧の先進ブランケットの概念設計にも取り入れられている。 $\text{Li}_{17}\text{Pb}_{83}$  の水素同位体溶解度と拡散係数は過去数年グループの研究者が実験しているが、特に溶解度について、データ間のばらつきが非常に大きく、その差は数桁に及ぶ。Li-Pb の合金組成を Li (100%) の状態から Li 濃度を減らすと、Li の化学活量は組成減少とともに対数的に減少する。それに伴って水素同位体の溶解度も変

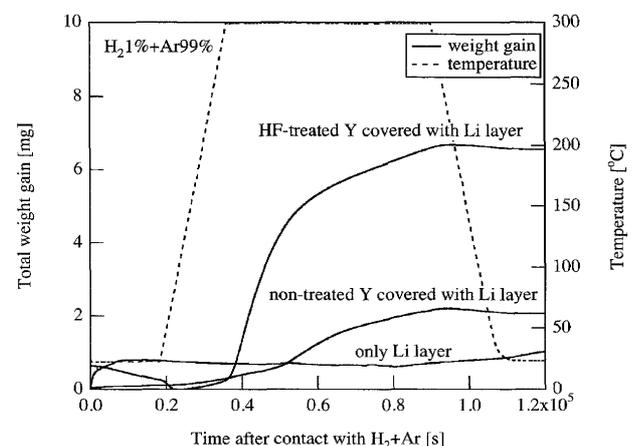


図5 HF 処理した Y による Li 中の H 回収速度.

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

Flibe は日米共同研究 JUPITER-II でも H, D, T の溶解度, HF による不純物精製, Be による酸化還元制御, JLF-1 との共存性試験が行われた[11]。しかし中性子照射 Flibe からのトリチウム回収実験は行われなかった。そこで当研究グループは、原子炉で中性子照射した Flibe を炉外で加熱し, Ar あるいは Ar+H<sub>2</sub> ガスパージしたときのトリチウム放出曲線を、過去測定した溶解度と拡散係数を用いて解析した結果を比較し、良い一致を得ることがわかった[12]。

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

析を行いたいと考えている。

#### 4.4 まとめ

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

#### 参考文献

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

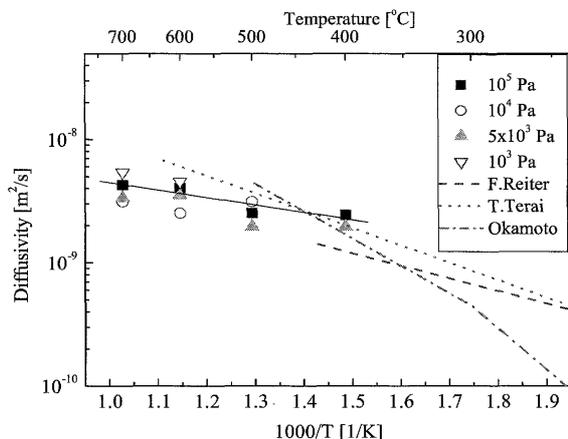


図6 Li-Pb 中の H 拡散係数。

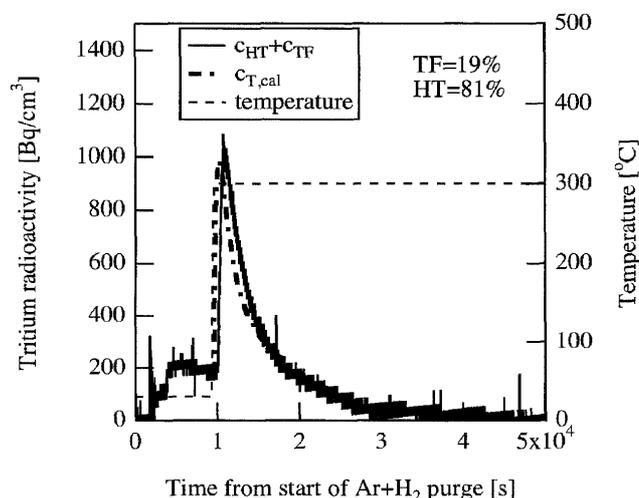


図7 Flibe から Ar ガスパージ側へのトリチウム放出挙動。