

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 6 月 11 日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15H04230

研究課題名(和文)トリチウム生産用高温ガス炉へのリチウム装荷用ロッドの開発

研究課題名(英文) Development of Li-loading rod of high-temperature gas-cooled reactor for tritium production

研究代表者

松浦 秀明 (Matsuura, Hideaki)

九州大学・工学研究院・准教授

研究者番号：50238961

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,500,000円

研究成果の概要(和文)：高温ガス炉を用いたトリチウム製造の実証試験を視野に入れ、Li装荷体の模擬試験体を製作し、トリチウム透過実験を実施した。Zr及びアルミナ管で構成される試験体にトリチウムガスを供給し、700℃で封じ込め性能を調べた結果、10数時間の連続加熱においてもトリチウムの流出は検出されず、試験体のトリチウム封じ込め性能が確認された。一方、ZrとLiAlO₂の共存下では、Zrのトリチウム吸蔵性能が劣化すること、Zr表面へのNiメッキにより性能が回復することが示された。高温工学試験研究炉(HTR)における照射試験体及び試験法を検討した。HTRは最大年間30g程度のトリチウム製造が可能との結果を得た。

研究成果の概要(英文)：Heading on the demonstration of the tritium production using high-temperature gas-cooled reactor, tritium permeation experiment using the mockup of the Li-loading rod, which structured by Zr and Al₂O₃ tubes, was performed at 700℃ temperature. Tritium was kept being contained in the rod during 10 hours, which shows that the Li-loading rod has excellent tritium-containment performance. Other experiment showed that tritium-absorption performance of Zr is reduced in coexistence state of Zr and LiAlO₂, but the performance can be recovered by using Ni coating on the Zr rod. An experimental procedure and test module were examined assuming future irradiation test in High Temperature engineering Test Reactor (HTR). It was shown that almost 30 g of tritium can be produced in HTR during 1 year operation.

研究分野：核融合プラズマ理工学、中性子工学、原子炉物理学

キーワード：トリチウム ジルコニウム リチウム装荷体 高温ガス炉 HTR 核融合炉

1. 研究開始当初の背景

初代核融合炉には、相対的に大きな反応率係数を持つ、重水素-トリチウム (DT) 燃料の使用が想定されている。トリチウムは放射性核種であり、自然界に十分な利用可能量は存在しない。3 GW 熱出力の DT 核融合炉では、1日あたり約 400 g のトリチウムを核燃焼させる必要がある。磁場核融合炉では、トリチウムの燃焼率は高々数%程度と考えられており、炉壁やトリチウム循環系における滞留分を含めると、施設内のインベントリは増大する。核融合炉で使用するトリチウムは、核融合炉のブランケットにおいて、自前で生産するのが基本的な考え方であるが、最初の炉の立ち上げ用トリチウムは、核融合炉外で準備する必要がある。又、トリチウムを取り扱う核融合炉の炉工学試験においても、試験用トリチウムを確保する必要がある。

現在までに、重水減速重水冷却 (CANDU) 炉における中性子捕獲反応を利用したトリチウム生産がおこなわれている。国際熱核融合実験炉 (ITER) では、DT 核燃焼実験用のトリチウムは、ひとまず CANDU 炉で生産されたものが使用される見込みである。熱中性子に対する $D(n,\gamma)T$ 反応断面積は、核融合ブランケットで利用される ${}^6\text{Li}(n,\alpha)T$ 反応断面積と比較して約 6 桁小さく、重水炉を用いる方法では、多数の装置から長期間にわたるトリチウムの収集が必要となる。現時点で、我が国は自前で 100g オーダーのトリチウムを製造する方法を有していない。又、トリチウムを如何にして確保するかも明確にされておらず、今後の核融合炉開発に際し、有効で実現性の高いトリチウム調達シナリオが求められている。

高温ガス炉は、次世代原子力システムの有力候補のひとつとして位置づけられている。炉心溶融がなく、冷却材喪失時にも自然冷却が可能である。安全性が高い炉型式とされている。冷却材としてヘリウムガスを選択したことにより、発熱密度を低く抑える為の設計が施されており、有効炉心体積が大きくなる反面、燃料近辺に核変換対象物質を装荷できる大きな物理的スペースを提供できる。これに伴い、濃縮をおこなわずに天然存在比のまま必要な量の ${}^6\text{Li}$ を炉心に装荷できる可能性がある。また、黒鉛・ヘリウムを用いた減速・冷却系は、化学的に Li 化合物及びトリチウムとの相性が比較的によいという性質を併せ持つ。申請者等は、「高温ガス炉を用いたトリチウム生産システム」を提示し、数値解析に基づきその有効性を示した (H23~24: 挑戦的萌芽)。又、Li 装荷方法がその性能を大きく左右することを明らかにし、装荷方法の検討を行ってきた (H25~26: 挑戦的萌芽)。Li 装荷体の温度を 500°C 程度に保った高温ガス炉の運転ではトリチウムの流出を抑えつつトリチウム製造が可能との結果を得ている。発電効率を高める高温域 800~900 °C での利用検討と、実証試験が検討課題である。

2. 研究の目的

本研究では、将来の高温ガス炉を用いた実証試験を視野に入れ、準備を行う。Li ロッドの模擬試験体を製作し、炉心内の温度・圧力等の条件を考慮して、水素・トリチウム透過実験を実施する。トリチウム製造・封じ込めの観点から、その有効性を確認し、さらにその性能改善をはかることを目的とした。

3. 研究の方法

本研究は、(1) Li 装荷用ロッドの模擬試験体を用いたトリチウム透過実験、(2) 酸化リチウム (LiAlO_2) とジルコニウム (Zr) との共存性試験、(3) 高温ガス炉を用いた実証試験のための Li ロッド試験体及び試験方法の検討、を並行して進めることで、目標の達成をはかった。

(1) Li 装荷用ロッド模擬試験体を用いたトリチウム透過実験

図 1 に本研究を通じて設計・製作した Li ロッド模擬試験体を用いたトリチウム実験の装置概要を示す。模擬試験体は、片側を封じた内側 Zr 管(内径 4.0mm、外径 6.3mm、長さ 200、厚み 1mm)、外側 Zr 管(内径 8.0mm、外径 9.5mm、長さ 210、厚み 1mm)、 Al_2O_3 管(内径 11mm、外径 15mm、長さ 200、厚み 2mm)の 3 重管構造となっている。実際の Li ロッドでは、2つの Zr 材料の間に Li 化合物が配置され中性子と Li との核反応によってトリチウムが生成されるが、本実験ではここにトリチウム含有ガスが供給される。模擬試験体は、さらに石英管に挿入され、先端部を中心に電気炉で加熱される。模擬試験体と石英管の間は、常に Ar パージされ、透過漏洩したトリチウムは、下流に設置した水バブラー

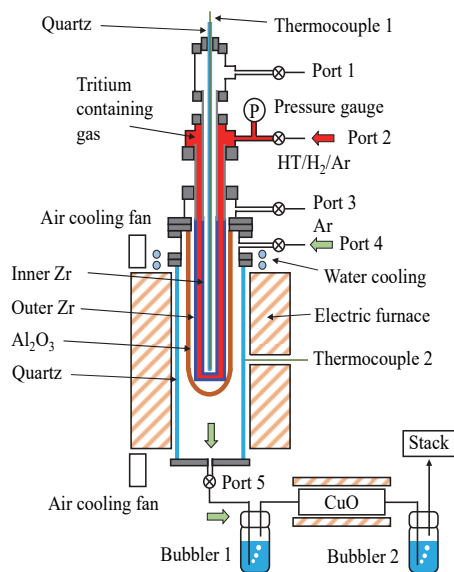


図 1 模擬試験体トリチウム実験装置

で捕集される。図1中の1つ目のバブラーではHTOが回収され、2つ目のバブラーでは酸化銅でHTから変換されたHTOが回収される。

核融合炉トリチウム増殖材研究から、Li化合物への中性子照射により生成されたトリチウムの初期の化学形は、HTOであることが知られている。これは、生成したトリチウムが増殖材中の酸素と結合するためと考えられている。そこで、本実験では、水蒸気状トリチウムを主とする試料ガス(キャリアガス:Ar、HTO:1130 Bq/cc、HT:60 Bq/cc、H₂:264ppm)を用いた。ガス供給圧は、約0.15 MPaに設定した。模擬試験体内側Zr管の先端部の温度が700°Cとなるように、石英管の外側から電気炉で模擬試験体を加熱し、12時間保持した。この間、バブラーは不定期に取り替え、トリチウム濃度を液体シンチレーションカウンターで測定した。

なお、本実験に先立ち、2本のZr管およびAl₂O₃管それぞれについて軽水素透過実験を行い、試料管と金属配管との接続健全性を確認するとともに、比較的高水素分圧での水素透過挙動について確認した。

(2) 酸化物(LiAlO₂)とジルコニウム(Zr)との共存性試験

試料として、板状(10 mm×10 mm×1.0 mm)の純Zrおよび、純Zrに化学電解法によりニッケル(Ni)メッキ(10 μm厚さ)を施したものをを用いた(以下、Zr材およびNi/Zr材と呼ぶ)。また、粉末状(平均粒径15 μm)のLiAlO₂を用いた。反応管内でLiAlO₂粉末中にZr材またはNi/Zr材を埋設した。つぎに、反応管内を一定圧力(13.0 kPa)の水素ガスで満たし、800°Cで加熱し、高精度キャパシタンスマノメーターによって水素ガス圧力の変化を測定した。実験終了後、電界放出型走査電子顕微鏡(FE-SEM)や、グロー放電発光分析(GD-OES)にて断面の微細組織および元素深さ分布測定を行った。

(3) 高温ガス炉を用いた実証試験のためのLiロッド試験体及び試験方法の検討

高温工学試験研究炉(HTR)におけるLi装荷用ロッドの照射試験(トリチウム製造の実証試験)を想定し、試験体形状及び試験法を検討した。HTRでは、照射試験用カラムの準備が可能である。試験部は400~800°C、中性子束7×10¹⁷ n/m²s程度の照射環境にあり、炉心へのLi化合物の装荷(バッチ運転で年間0.6 g以下のトリチウム生成)が認められている。検討は、Liを装荷した高温ガス炉の核燃焼計算、及び、これまでの検討、及び本研究で得られたAl₂O₃、Zrの水素拡散係数・溶解度を用いたトリチウム拡散解析によって実施した。中性子輸送計算は、主に、連続エネルギー汎用中性子・光子輸送計算モンテカルロコード(MVP) [Y.Nagaya, et al,

JAERI 1348 (2005)]及び同燃焼解析コード(MVP-BURN) [K.Okumura, et al, JAERI-Conf. 2003-006 (2003)]を使用した。

4. 研究成果

(1) Liロッド模擬試験体トリチウム実験

図2に2つのバブラー中のトリチウム濃度、内側Zr管先端部の温度、供給ガス中のトリチウムによる電離箱の電離電流、供給ガス圧を示す。2つのバブラーとも、有意なトリチウム濃度上昇は見られず、このことは700°Cの高温下において、12時間に渡ってトリチウムの封じ込めに成功したことを示す。なお、内側Zr管内空間のAr中、および外側Zr管-Al₂O₃管間空間のAr中にも有意な量のトリチウムは検出されなかった。これは供給したトリチウムが内側Zr管、外側Zr管ともに透過していないことを示す。事前に行なった軽水素によるZr管の透過実験では、より低温の500°Cにおいて、水素供給後、比較的速やかに透過が観測されたことから、トリチウムの主な化学形をHTOとしたことが、封じ込めに強く寄与している可能性がある。

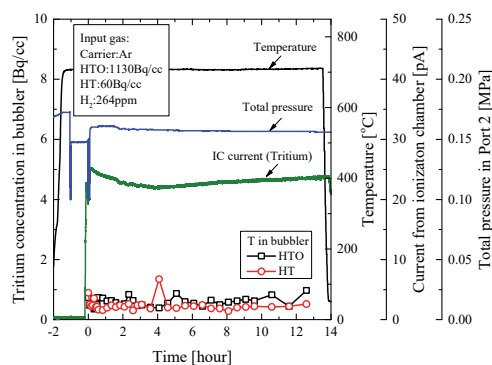


図2 Al₂O₃管外側ページガス中のトリチウム捕集バブラーのトリチウム濃度変化

(2) 酸化物(LiAlO₂)とジルコニウム(Zr)との共存性試験

図3に800°CにおけるLiAlO₂共存下でのZr材およびNi/Zr材の水素吸収実験結果

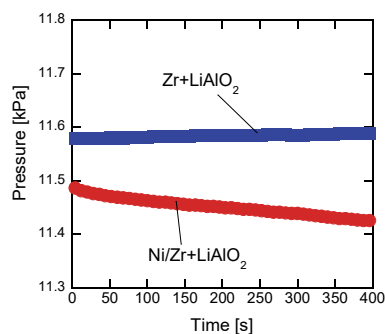


図3 800°CにおけるLiAlO₂共存下におけるZr材およびNi/Zr材の水素吸収特性

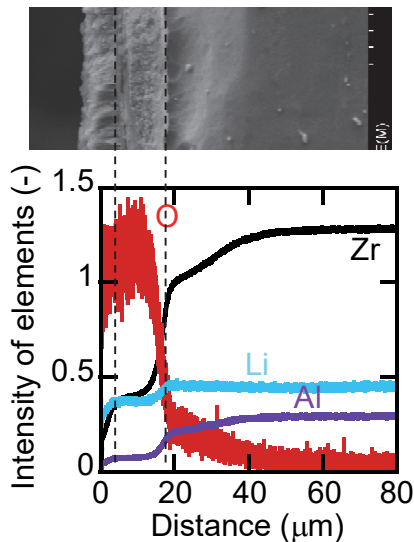


図4 LiAlO₂およびZrの界面状態

(800°C)を示す。LiAlO₂がZr材と共存した場合、Zr材はまったく水素を吸収しなかった。一方、Ni/Zr材では、僅かではあるが、水素の吸収がみられた。図4に、LiAlO₂とZr材の界面近傍断面におけるFE-SEM像とGD-OESによる元素の深さ分析結果を示す。Zr材の表面には約20 μm厚さのジルコニウム酸化物(ZrO₂)が形成されており、それよりも深い領域(約40 μm)までZr中にOが拡散侵入していた。また、ZrO₂中には、LiAlO₂の分解によるLiやAlの侵入も見られた。なお、Zr中のLi、Al濃度が酸化物中より高いのは、酸化物中と金属中における元素のスパッタ速度の違いに起因するものである。以上の結果から、NiのZr表面へのメッキの効果は、①ZrによるLiAlO₂の分解の防止、②Zrの酸化・酸素侵入防止、および③Niの水素透過によって不純物の少ない水素がZr界面に供給されることであると考えられる。このように、LiAlO₂とZrを共存させ、Zrによって水素(同位体)を回収するには、両者の界面にNiやパラジウム(Pd)のように、酸化されにくく、かつ水素透過率の高い金属を形成させる必要があることがわかった。

(3) 高温ガス炉を用いた実証試験のためのLiロッド試験体及び試験方法の検討

図5に、実証試験で想定するLi装荷試験体の概要を示す。HTTRの照射ブロックに3~4体の試験ロッドを装荷して同時照射を行うことを想定して、寸法を決めた。ロッドの高さは480 mmである。又、Liロッドを装荷したHTTRの炉心を想定し、1年の運転期間中に生産されるトリチウム量を評価した。図6にLiAlO₂層の外半径を10 mm、アルミナ層の厚みを2 mmに固定した場合の、360日運転後におけるトリチウム製造量と実効増倍率を示す。Liロッドの温度は900°Cに設定した。LiAlO₂層厚みが増加すると⁶Li装

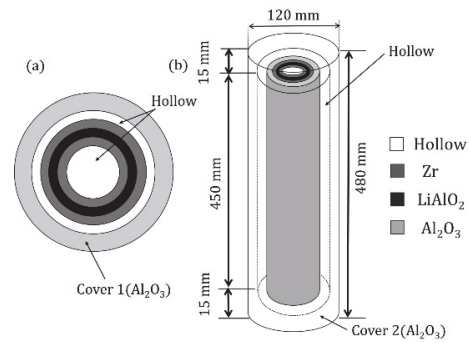


図5 (a) Liロッド本体例(水平断面), (b)カバー付Liロッド

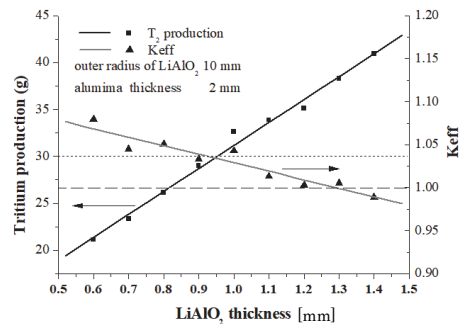


図6 HTTR360日運転後のトリチウム製造量及び実効増倍率

荷量が増加するためトリチウム製造量が增加する。実効増倍率はトリチウム製造量の増加とともに低下する。LiAlO₂層厚みを1.0 mmとする場合、年間約30 gのトリチウム製造が可能であることが分かる。このロッドを基準ロッドとし、LiAlO₂層、Zr層、Al₂O₃層の厚みを変えたロッドと併せて照射試験を実施することにより、ロッド性能を評価する為の試験を想定している。

以上(1)(2)(3)より、700~900°C域の高温ガス炉運転における、Zrを含むLi装荷ロッドに対する理解が大きく進んだ。Zrを装荷することでトリチウムの流出を抑制できる可能性が示されたが、Zrの酸化への対応が必要であることも明らかとなった。今後、トリチウム及び酸素原子数に対するZr原子数の調整や、Niを用いた性能劣化への対応策を具体的にした上で、実証試験へと繋げるための検討を継続する予定である。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計9件)

- ① Y. Koga, H. Matsuura, Y. Ida, R. Okamoto, K. Katayama, T. Otsuka, M. Goto, S. Nakagawa, S. Nagasumi, E. Ishitsuka, Y. Shimazaki, Study on Lithium Rod Test Module and Irradiation Method for Tritium Production Using High Temperature Gas-Cooled Reactor, Fusion Eng. Des.,

online published (2018).
dx.doi.org/10.1016/j.fusengdes.2018.03.029

- ② 松浦秀明、核融合炉のための高温ガス炉を用いたトリチウムの製造法、プラズマ・核融合学会誌、93、457-464 (2017)。(解説)
- ③ S. Nagasumi, H. Matsuura, K. Katayama, T. Otsuka, M. Goto, S. Nakagawa, Study on Tritium Production Using a High-Temperature Gas-Cooled Reactor for Fusion Reactors: Evaluation of Tritium Outflow by Non-Equilibrium Diffusion Simulations, Fusion Sci. Tech., 4, 753-759 (2017)。(査読有)
dx.doi.org/10.1080/15361055.2017.1352424
- ④ H. Ushida, K. Katayama, H. Matsuura, R. Yamamoto, S. Fukada, M. Goto, S. Nakagawa, Tritium Permeation Behavior Through Pyrolytic Carbon in Tritium Production Using High-Temperature Gas-Cooled Reactor for Fusion Reactors, Nucl. Materials Energy, 9, 524-528 (2016)。(査読有)
dx.doi.org/10.1016/j.nme.2016.09.004
- ⑤ H. Nakaya, H. Matsuura, K. Katayama, M. Goto, S. Nakagawa, Study on a Method for Loading a Li Compound to Produce Tritium Using High-Temperature Gas-Cooled Reactors, Nucl. Eng. Des., 292, 277-282 (2015)。(査読有)
dx.doi.org/10.1016/j.nucengdes.2015.06.017
- ⑥ K. Katayama, H. Ushida, H. Matsuura, S. Fukada, M. Goto, S. Nakagawa, Evaluation of Tritium Confinement Performance of Alumina and Zirconium for Tritium Production in a High-Temperature Gas-Cooled Reactor for Fusion Reactors, Fusion Sci. Tech., 68, 662-668 (2015)。(査読有) dx.doi.org/10.13182/FST14-968
- ⑦ Y. Kawamoto, H. Nakaya, H. Matsuura, K. Katayama, M. Goto, S. Nakagawa, Study on Operation Scenario of Tritium Production for a Fusion Reactor Using a High Temperature Gas-Cooled Reactor, Fusion Sci. Tech., 68, 397-401(2015)。(査読有)
dx.doi.org/10.13182/FST14-977

(他2件)

[学会発表] (計29件)

- ① 岡本亮, 松浦秀明, 井田祐馬, 古賀友稀, 片山一成, 大塚哲平, 後藤実, 中川繁昭, 石塚悦男, 長住達, 高温ガス炉用 Li ロッドの T 閉じ込め特性に Zr 水素吸蔵性能が与える影響, 日本原子力学会「2018年春の年会」(2018)。
- ② 片山一成, 泉野純逸, 松浦秀明, 大塚哲平,

深田智, 後藤実, 中川繁昭, 管状ジルコニウムにおける水素透過挙動, 日本原子力学会「2018年春の年会」(2018)。

- ③ Y. Ida, H. Matsuura, R. Okamoto, Y. Koga, K. Katayama, T. Otsuka, Study on Lithium Rod Module and Irradiation Method for Tritium Production Using High Temperature Gas-Cooled Reactor, Plasma Conference 2017 (2017)。
- ④ K. Katayama, J. Izumino, H. Matsuura, S. Fukada, Evaluation of Hydrogen Permeation Rate Through Zirconium Pipe, 18th International Conference on Fusion Reactor Materials, Aomori, Japan (2017)。
- ⑤ J. Izumino, K. Katayama, H. Matsuura, S. Fukada, Measurement of Hydrogen Solubility and Diffusivity in Zr Particles for Tritium Production in a High-Temperature Gas-Cooled Reactor, 18th International Conference on Fusion Reactor Materials, Aomori, Japan (2017)。
- ⑥ Y. Koga, H. Matsuura, Y. Ida, R. Okamoto, K. Katayama, T. Otsuka, M. Goto, S. Nakagawa, S. Nagasumi, S. Ishizuka, Y. Shimazaki, Study on Lithium Rod Test Module and Irradiation Method for Tritium Production Using High Temperature Gas-Cooled Reactor, 13th International Symposium on Fusion Nuclear Technology, Kyoto, Japan (2017)。
- ⑦ 岡本亮, 松浦秀明, 井田祐馬, 古賀友稀, 片山一成, 大塚哲平, 後藤実, 中川繁昭, 石塚悦男, 長住達, 島崎洋祐, 超高温ガス炉用 Li ロッドにおける Zr を用いたトリチウム閉じ込め法の検討～高温(700～850℃)条件下における Zr 水素吸蔵特性～, 日本原子力学会「2017年秋の大会」(2017)。
- ⑧ 井田祐馬, 松浦秀明, 長住達, 古賀友稀, 岡本亮, 片山一成, 大塚哲平, 後藤実, 中川繁昭, 石塚悦男, 高温ガス炉を用いたトリチウム生産 Li 装荷ロッドの照射試験体及び試験法の検討～Zr 層を考慮した試験体の評価～, 日本原子力学会「2017年春の年会」(2017)。
- ⑨ 松浦秀明, 片山一成, 大塚哲平, 後藤実, 中川繁昭, 核融合工学部会セッション「高温ガス炉を用いたトリチウム生産手法の検討と今後の展開」(1) 高温ガス炉を用いたトリチウム生産と研究の概要, 日本原子力学会「2016年秋の大会」(2016)。
- ⑩ 片山一成, 松浦秀明, 大塚哲平, 深田智, 後藤実, 中川繁昭, 核融合工学部会セッション「高温ガス炉を用いたトリチウム生産手法の検討と今後の展開」(2) 高温ガス炉トリチウム生産と閉じ込め手法の検討, 日本原子力学会「2016年秋の大会」(2016)。

- ⑪ 井田祐馬, 松浦秀明, 長住達, 川本靖子, 片山一成, 大塚哲平, 後藤実, 中川繁昭, 高温ガス炉用 Li 装荷試験体におけるトリチウム生産・閉じ込め性能の評価, 日本原子力学会「2016年秋の大会」(2016).
- ⑫ 泉野純逸, 片山一成, 松浦秀明, 大塚哲平, 深田 智, 後藤実, 中川繁昭, 高温ガス炉トリチウム生産におけるジルコニウムを用いたトリチウム閉じ込め手法の検討, 第 11 回核融合エネルギー連合講演会 (2016).
- ⑬ 長住達, 松浦秀明, 片山一成, 大塚哲平, 後藤実, 中川繁昭, 染谷洋二, 飛田健次, 高温ガス炉を用いた核融合原型炉用トリチウム調達法の検討 ~Li 可動式装荷体を用いたトリチウム生産性能の向上~, 第 11 回核融合エネルギー連合講演会(2016).
- ⑭ K. Katayama, J. Izumino, S. Fukada, H. Matsuura, T. Otsuka, M. Goto, S. Nakagawa, Study on Tritium Confinement in Tritium Production Using High-Temperature Gas-Cooled Reactor, 2016 日韓トリチウムワークショップ, Dongguk University, Seoul, Korea (2016).
- ⑮ 長住達, 中屋裕行, 松浦秀明, 片山一成, 大塚哲平, 後藤実, 中川繁昭, 高温ガス炉における Li 装荷法とトリチウム生産性能の検討, 日本原子力学会「2016年春の年会」(2016).
- ⑯ 片山一成, 泉野純逸, 牛田博貴, 松浦秀明, 大塚哲平, 深田 智, 後藤実, 中川繁昭, 高温ガス炉トリチウム生産におけるトリチウム透過抑制手法の検討, 第 32 回プラズマ・核融合学会 年会(2015).
- ⑰ 長住達, 中屋裕行, 松浦秀明, 片山一成, 大塚哲平, 後藤実, 中川繁昭, 高温ガス炉を用いた初期核融合炉用トリチウム生産法の検討—非定常拡散計算によるトリチウム閉じ込め性能の評価及び最適化—, 第 32 回プラズマ・核融合学会 年会 (2015).
- ⑱ H. Ushida, K. Katayama, H. Matsuura, R. Yamamoto, S. Fukada, M. Goto, S. Nakagawa, Tritium Permeation Behavior Through Pyrolytic Carbon in Tritium Production Using High-Temperature Gas-Cooled Reactor for Fusion Reactor, 17th Int. Conf. Fusion Reactor Materials (ICFRM-17), Eurogress Aachen, Germany (2015).
- ⑲ 牛田博貴, 片山一成, 松浦秀明, 深田 智, 後藤実, 中川繁昭, PyC 被覆グラファイトにおける水素透過挙, 日本原子力学会「2015年秋の大会」(2015).

(他 10 件)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

松浦 秀明 (MATSUURA HIDEAKI)
九州大学・工学研究院・准教授
研究者番号：50238961

(2) 研究分担者

片山 一成 (KATAYAMA KAZUNARI)
九州大学・総合理工学研究院・准教授
研究者番号：90380708

大塚 哲平 (OTSUKA TEPPEI)
近畿大学・理工学部・准教授
研究者番号：80315118

(3) 連携研究者

後藤 実 (GOTO MINORU)
日本原子力研究開発機構・原子力水素・熱利用
研究センター・研究主幹
研究者番号：60414546

中川 繁昭 (NAKAGAWA SHIGEAKI)
日本原子力研究開発機構・原子力水素・熱利用
研究センター・研究主幹
研究者番号：40414544

(4) 研究協力者

中屋 裕行 (NAKAYA HIROYUKI)
川本 靖子 (KAWAMOTO YASUKO)
高良 和樹 (KORA KAZUKI)
長住 達 (NAGASUMI SATORU)
井田 祐馬 (IDA YUMA)
岡本 亮 (OKAMOTO RYO)
古賀 友稀 (KOGA YUKI)
菅沼 拓朗 (SUGANUMA TAKURO)
牛田 博貴 (USHIDA HIROKI)

(九州大学・工学部・エネルギー科学科、九州大学・工学府・エネルギー量子工学専攻・修士課程、九州大学・総合理工学府・先端エネルギー理工学専攻・修士課程学生として参加)