

## 自己評価報告書

平成 23 年 4 月 28 日現在

機関番号：13801

研究種目：基盤研究（A）

研究期間：2008～2011

課題番号：20246131

研究課題名（和文）固体増殖材料中でのトリチウム素過程の解明およびプロセス過程との体系化

研究課題名（英文）Elucidation for tritium elementary processes and their systematization in solid breeder materials

研究代表者

奥野 健二（KENJI OKUNO）

静岡大学・理学部・教授

研究者番号：80293596

研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合工学・核融合

キーワード：トリチウム、固体増殖材量、ブランケット、照射欠陥、中性子照射、核融合

## 1. 研究計画の概要

トリチウムは核融合炉において燃料として利用されるため、トリチウムの生成から回収及び利用までの燃料サイクルを理解することは、人類がトリチウムコントロールにより核融合炉を工学的に成功させるために重要な課題と位置付けられる。ブランケットシステムにおけるトリチウム挙動に関する既往の研究では、ミクロ的な観点からのトリチウム挙動のモデリングや、化学工学的プロセスをモデル化したマクロ的シミュレーション等がなされているが、高エネルギーをもったトリチウムと材料との相互作用を視点に含めた化学的挙動に基づくマクロスケールでのモデル適用の可否やトリチウム回収評価は未だ十分に検討されていない。そこで、本研究は、核融合炉ブランケット内におけるトリチウム挙動をミクロ的な観点からマクロ的な観点まで統一するモデルを構築しようとするものである。

## 2. 研究の進捗状況

初年度は研究開始と同時に統合モデル作成のための問題点について検討を行った。特に共通試料の作成方法やその評価方法について検討を行った。また、共通試料作成および評価のために走査電子顕微鏡を整備し、既存の XPS, AFM と併せて、試料の評価ができる環境を構築した。また、共通試料として  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  をおよび Li 濃度の異なる  $\text{Li}_{2.2}\text{TiO}_3$ ,  $\text{Li}_{2.4}\text{TiO}_3$  を用意し、Li 濃度の違いによる水素同位体放出挙動について検討を開始した。

$\text{Li}_2\text{TiO}_3$  を用いて欠陥形成速度・生成量の欠陥消滅挙動への寄与を明らかにするために欠陥形成素過程の影響を  $\gamma$  線および熱中性子照

射試料のアニーリング実験の比較から検討し、各試料における照射欠陥消滅の温度領域が異なることが示めされ、欠陥形成過程の違いに起因すると結論づけた。また、 $\gamma$  線により欠陥を導入した試料に対し重水素曝露および昇温脱離(TDS)実験を行い、重水素の捕捉・脱捕捉における欠陥の影響を評価した。その結果、欠陥消滅が水素同位体の脱捕捉の引き金になっていると考えた。さらに、Li濃度の異なる  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$ ,  $\text{Li}_{2.2}\text{TiO}_3$ ,  $\text{Li}_{2.4}\text{TiO}_3$  を用いて湿潤空気下での経時変化を質量変化と相変化より検討を行ったところ、Li濃度が高い材料は  $\text{Li}_4\text{TiO}_3$  として存在しており、これがLi水酸化物を経て  $\text{Li}_2\text{CO}_3$  に変化することが示された。

熱中性子照射実験においては、異なる熱中性子フルエンスで  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  に対し熱中性子照射を行い、照射欠陥の消滅挙動やトリチウム放出挙動に及ぼすフルエンス依存性を TDS 測定により明らかにするとともに、 $\text{Li}_{2.2}\text{TiO}_3$ ,  $\text{Li}_{2.4}\text{TiO}_3$  に対しても熱中性子照射を行い、試料中に生成したトリチウムの放出挙動について評価した。その結果、異なる熱中性子フルエンスで照射した試料に関して、トリチウム放出スペクトルの形状はほぼ同様で、主に2つの脱離ピークからなると考えられ、これまでの研究及び放出温度領域から、500-650 K 付近のピークを照射欠陥に捕捉されたトリチウムの欠陥消滅に伴う脱捕捉が律速過程になった放出ピークであると考えられた。700-1000 K 付近のピークは O-T 結合として捕捉されたトリチウムが O-T 結合の熱分解に伴う放出であることが示唆された。各加熱温度から求めた反応速度定数から、欠陥に捕捉されていたトリチウムの放出の活性化エネルギーを算出したところ、各熱中

性子フルエンスでほぼ同様の値であった。これは照射欠陥密度が欠陥同士が相互作用するほど大きくないこと、もしくは照射欠陥量と比べてトリチウム量が圧倒的に少ないことにより、その影響を受けにくいからであると考えられた。また、 $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  と比較して  $\text{Li}_{2.2}\text{TiO}_3$  及び  $\text{Li}_{2.4}\text{TiO}_3$  ではトリチウム放出スペクトルが高温側にシフトすることが分かった。これはリチウム濃度増加による効果だと考えられた。さらに、他の固体トリチウム増殖材へのこれらの結果の応用性を評価するため、 $\text{LiTaO}_3$ 、 $\text{LiAlO}_2$ 、 $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  等の3元系材料を対象に結晶粒径が水素同位体の挙動に与える影響を調べ、モデル化した。同様に、欠陥の影響についても照射下分光実験と分子動力学シミュレーションにより整理を進めた。

### 3. 現在までの達成度

②おおむね順調に進展している。

これまでに、熱中性子照射した  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  における実際のトリチウムの挙動、特に固体トリチウム増殖材中からのトリチウム放出素過程と、固体トリチウム増殖材中に生成した照射欠陥の同定やその消滅挙動からの間接的なトリチウム捕捉・脱捕捉挙動を双方向から比較することで、効率的なトリチウム回収システムを構築するための基礎となる素過程を明らかにし、トリチウム捕捉・脱捕捉プロセスに関する系統的なモデルを構築した。また、量子化学計算や化学工学的シミュレーションもほぼ順調に進展した。

### 4. 今後の研究の推進方策

今後は、固体トリチウム増殖材中における実際の照射欠陥の回復とトリチウム放出挙動のようなマクロ的なトリチウム挙動と、量子化学計算や化学工学的シミュレーションから解明されたミクロ的なトリチウム挙動の理解を一つにまとめるとともに、放出プロセス最適化のための回収モデルを組合せ、統合モデルを構築する予定である。

### 5. 代表的な研究成果

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 23 件)

1. M. Hara *et al.* (5人中, 4,5 番目), "Crystal structure change of  $\text{Li}_{2+x}\text{TiO}_{3+y}$  tritium breeder under moist air", *Journal of Nuclear Materials*, 404, 217-221 (2010), 査読有
2. S. Suzuki *et al.*, (9人中, 8,9 番目) "Elucidation of annihilation processes of defects induced by  $\gamma$ -irradiation in  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$ ", *Fusion Engineering and Design*, 85,

2331-2333 (2010), 査読有

3. T. Wajima *et al.*, (3人中, 2 番目) "Conversion of Waste Sandstone into Crystalline Zeolite A Using Alkali Fusion", *Material Transactions*, 51, 849-854 (2010), 査読有
4. M. Kobayashi *et al.*, (9人中, 8,9 番目) "Study on annihilation behavior of  $\gamma$ -ray induced defects in  $\text{Li}_2\text{O}$ ", *Journal of Nuclear Materials*, In Press, 査読有
5. T. Oda *et al.*, (2人中, 2 番目) "Modeling of diffusivity of tritium interacting with F centers in  $\text{Li}_2\text{O}$ ", *Journal of Nuclear Materials*, In Press, 査読有
6. A. Hamada *et al.*, (8人中, 7,8 番目) "Retention and desorption behavior of hydrogen isotopes in gamma-ray irradiated  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$ ", *Fusion Science and Technology*, In Press, 査読有

[学会発表] (計 30 件)

1. M. Kobayashi *et al.* (10人中, 9,10 番目), "Trapping and desorption behavior of hydrogen isotopes in gamma-ray irradiated  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$ ", 3<sup>rd</sup> Japan-China Workshop on blanket and tritium technology, 2010年6月21日, Kunming China
2. K. Okuno *et al.* (4人中, 4 番目), "Role of energetic tritium chemistry on developing thermonuclear fusion reactors", 26<sup>th</sup> Symposium on Fusion Technology, 2010年9月30日, Porto Portugal
3. J. Osuo *et al.* (11人中, 10,11 番目), "Dependence of gamma-ray dose on annihilation processes of irradiation defects in  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$ ", 26<sup>th</sup> Symposium on Fusion Technology, 2010年9月30日, Porto Portugal
4. K. Ikuno *et al.* (3人中, 2,3 番目), "Behavior of hydrogen isotopes in  $\text{LiAlO}_2$  containing radiation defects", 9<sup>th</sup> International Conference on Tritium Science and Technology, 2010年10月24-29日, 奈良
5. D. Zhu *et al.* (3人中, 2,3 番目), "Effects of grain size on hydrogen isotope behavior in  $\text{LiTaO}_3$ ", 9<sup>th</sup> International Conference on Tritium Science and Technology, 2010年10月24-29日, 奈良
6. A. Hamada *et al.* (8人中, 7,8 番目), "Retention and desorption behavior of hydrogen isotopes in gamma-ray irradiated  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$ ", 19<sup>th</sup> Topical Meeting on the Technology of Fusion Energy, 2010年11月11日, Las Vegas USA