

平成 27 年 6 月 8 日現在

機関番号：17102

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2013～2014

課題番号：25630421

研究課題名(和文)トリチウム生産用高温ガス炉への最適リチウム装荷法の開発

研究課題名(英文) Development of effective lithium loading method into 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(系)研究科(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) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：トリチウム生産用高温ガス炉への最適リチウム装荷法を検討した。リチウム装荷域からのトリチウム流出を低減し、トリチウムをできるだけ多く生産する観点から、ロッド状のリチウム装荷法を提示した。アルミナ管を用いて水素透過実験を行い、アルミナのトリチウム透過係数を評価した。高温ガス炉ガスタービン発電システムGTHTTR300を想定したモンテカルロ中性子輸送解析の結果、180日の運転で、最大500 g程度のトリチウムを生産し、冷却材領域への流出は4-5 gとなることが示された。過去のデータに基づく解析から、ジルコニウムを用いることで、流出量をさらに1/10～1/100に低下できる可能性があることが示された。

研究成果の概要(英文)：An optimal Li-loading method into high-temperature gas-cooled reactor for tritium production is studied. From the viewpoint of minimizing tritium outflow from the Li-loading region and increasing tritium production, a rod-type Li loading method was proposed. Hydrogen permeation experiments in commercial alumina tubes were conducted and hydrogen permeability was evaluated. Using the obtained data, Monte-Carlo neutron transport and tritium diffusion simulations were made for gas turbine high-temperature reactor of 300 MW electrical nominal capacity (GTHTTR300) with 600 MW thermal output. It was shown that almost 500 g of tritium could be produced using the above loading method over a 180-day operation. Under such conditions 4-5 g of tritium outflowed from the cladding tube into the coolant. According to the previous analysis data, the possibility that the outflowed tritium can be reduced 1/10 to 1/100 by adopting Zirconium was also shown.

研究分野：原子炉核融合理工学、中性子工学

キーワード：高温ガス炉 トリチウム リチウム装荷法 核融合炉 被覆粒子 トリチウム透過係数 リチウム装荷用ロッド

1. 研究開始当初の背景

将来の電力供給を目的として、内外で核融合炉の研究開発が進められている。初代の核融合炉には、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。重水素は、自然界に一定の割合で存在するが、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はあるが、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。

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、炉の立ち上げ用のトリチウムを如何にして確保するかは明確にされておらず、今後の計画遂行に際し、有効で実現性の高いトリチウム供給シナリオが求められている。

高温ガス炉は、第 4 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。開発経費節約の観点からも、既存の高温ガス炉を利用したトリチウム生産法は有効と考えられ、その検討が必要である。

2. 研究の目的

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検討してきた。これまでの炉心物理に基づく検討 (平成 23 年度~24 年度:科学研究費補助金「挑戦的萌芽研究」、代表 松浦) により、外部トリチウム源としての高温ガス炉が持つ潜在的な有効性が示さ

れたが、同時に、炉心へのリチウム装荷方法 (Li 化合物の選定、装荷形状等) が、トリチウム生産量を大きく左右することが明確となった。

本研究では、これらの結果を受け、高温ガス炉を用いたトリチウム生産システムの開発に際し、中性子輸送計算及びトリチウム拡散実験に基づき、「トリチウム生産」及び「トリチウム封じ込め・回収」の双方に適した、リチウム装荷方法を検討した。実現可能な被覆粒子構造を想定して、高温ガス炉のトリチウム生産性能を明らかにすることを目的とした。

3. 研究の方法

本研究は、①トリチウム拡散実験、②Li を装荷した高温ガス炉の核燃焼計算、によって遂行した。トリチウム拡散実験では、等方性黒鉛管、PyC 被覆黒鉛管、 Al_2O_3 管を試験体とし、水素透過挙動を解析することにより、水素拡散係数・溶解度等を求め、トリチウム透過挙動を予測した。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。

(1) 実験体系について

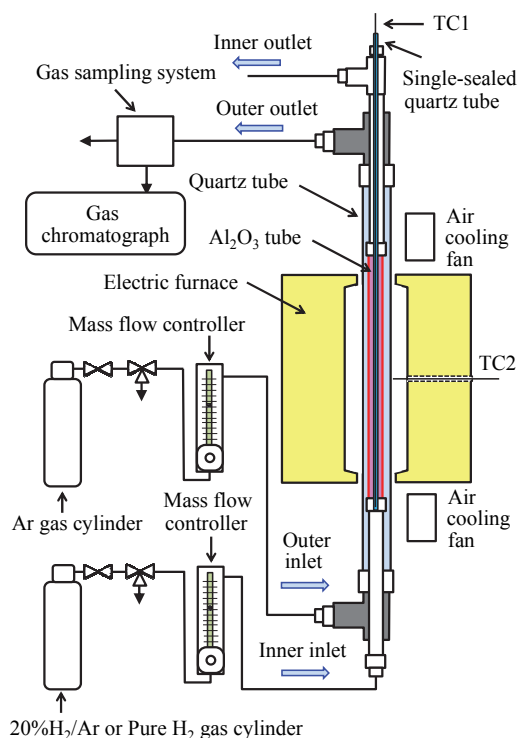


図 1 水素透過実験装置概略図

ガス流通式二重管型透過実験装置を作製し、石英管内に試料管を設置、試料管内側に水素ガス、外側にアルゴンガスを流通させ、出口ガス中の水素濃度経時変化を測定した。図 1 に水素透過実験装置概略図を示す。水素

濃度測定には、高感度ガスクロマトグラフ（島津製：Tracera）を用いた。

試験体として、 Al_2O_3 管（パスカ製：外径6mm、内径5mm、長さ400mm）、等方性黒鉛管及びPyC被覆等方性黒鉛管（東洋炭素製：外径10mm、内径7mm、長さ400mm、被覆厚み40 μm ）を用いた。試験体に生じる温度分布と水素濃度分布を考慮した一次元拡散による数値計算を行い、出口ガス水素濃度の実験値と計算結果が一致するように、水素透過係数、水素拡散係数及び水素溶解度を求めた。

(2) 解析コードについて

(3) 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)] 及び燃焼解析コード MVP-BURN [K. Okumura, et al., JAERI- Conf. 2003-006 (2003)] を使用した。核データセットには、JENDL-3.3を用いた。計算に際して、中性子束には、各燃焼ステップ間で一定と仮定した。 ${}^6\text{Li}(n,\alpha)\text{T}$ 反応で生成されたトリチウムの β 崩壊は無視した。

(4) 高温ガス炉の炉心体系について

(5) 『高温ガス炉ガスタービン発電システム GTHTTR300』 [X. Yan, et al., Nucl. Eng. Des., 222 (2003) 247.] の概念設計に準拠した体系を想定した。図2に炉心の水平断面図を示す。六角柱状燃料体ブロック（図1赤色斜線部）を、水平面内90体×垂直方向8段に配置する。図中灰色部は黒鉛半斜体ブロック、緑色部は制御棒案内カラムを含むブロックである。六角柱状燃料体ブロック（高さ1000mm）を図3に示す。ブロック中には、57の燃料装荷孔の他に3つの可燃性毒物（BP）装荷孔があり、GTHTTR300の標準設計では、0.3wt%のBが B_4C として装荷される。本研究では、この B_4C をLi化合物に置き換える。BP孔部に「Li含有体」を装荷する（「Li含有体」については後述する）。炉の熱出力は600MW、燃料濃縮度14wt%、各コンポーネントの寸法、装荷数・位置、運転条件等は、GTHTTR300の概念設計に準じた。計算は、全てのBP及び制御棒を引き抜いた状態を想定しておこなった。

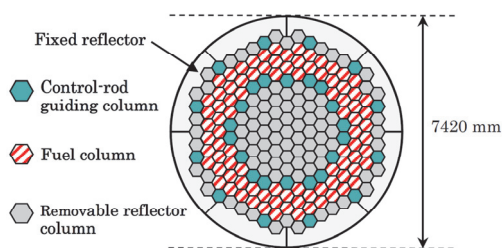


図2 GTHTTR300 炉心水平断面図

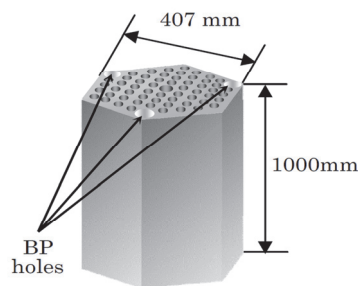


図3 六角柱状燃料体ブロック

4. 研究成果

(1) トリチウム拡散実験

水素透過実験により、 Al_2O_3 、等方性黒鉛、PyC被覆等方性黒鉛の透過係数を求めた。得られた透過係数を過去の文献値や他の材料と比較して図4に示す。なお、等方性黒鉛及びPyC被覆等方性黒鉛の水素透過係数は水素圧力の1乗に比例し、 Al_2O_3 の水素透過係数は水素圧力の1/2乗に比例することがわかった。このことは、水素が、等方性黒鉛及びPyC被覆内は分子状で、アルミナ内は原子状で拡散・透過することを示す。図4は圧力の1/2乗に比例する場合の透過係数の比較であり、等方性黒鉛及びPyC被覆については、参考までに1乗に比例する場合の透過係数の値をプロットしている。本実験により、PyCよりも Al_2O_3 の方が優れたトリチウム透過抑制効果を有することを明らかにした。本実験で得られた Al_2O_3 の透過係数は、同様の実験体系でSerraらにより得られた値と比較的に近いものであった。なおこの値は、Fowlerらによる Al_2O_3 の拡散係数から予測される透過係数に比べて、桁違いに大きな値であった。Fowlerらは、 Al_2O_3 の結晶粒内での水素移動速度を、本実験では Al_2O_3 の結晶粒界での水素移動速度を定量したものと考えている。Liセラミックスを Al_2O_3 被覆する場合、被覆内で生じるトリチウムは移行しやすい結晶粒界を通過すると考えられ、本実験で得られた値を用いて、 Al_2O_3 のトリチウム閉じ込め性能を評価することが妥当と考える。

Al_2O_3 での水素透過実験における出口水素濃度の過渡変化を解析することで Al_2O_3 中での水素拡散係数と水素溶解度を求めた。得られた拡散係数を用いて、 Al_2O_3 被覆粒子内で一定速度でトリチウムが生産される場合のトリチウム透過挙動の数値シミュレーションを行った。次に、トリチウム透過量を抑制することを目的に、優れた水素吸蔵能を有するZrを添加することを提案した。被覆粒子内にZrが添加された場合についてもシミュレーションを行ったところ、被覆粒子内のトリチウム分圧が水素化物形成反応の平衡圧で維持されると仮定すると、Zrが添加されない場合に比べて1/10~1/100に透過量が低下することが示された。ただし、Zrへの水素吸収速度については、水素化物形成状況によ

り変化しうることから、信頼性の高い評価のためには、Zr への水素吸収挙動の定量的把握が不可欠である。

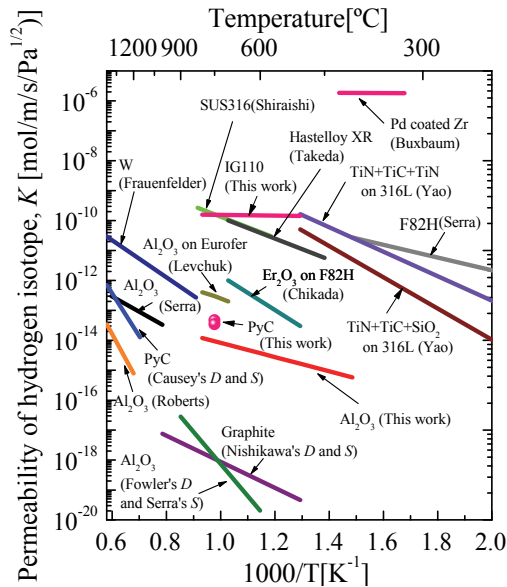


図4 水素透過係数の比較

(2) リチウム装荷用ロッドの提案

トリチウム流出を抑制するための Li 装荷法として、円柱形状の Li 装荷ロッドを提案した。提案した Li ロッドを図5に示す。化学的安定性の観点から、炉心に装荷する Li 化合物として LiAlO_2 を想定した。 LiAlO_2 を層状に加工し (図5 緑色部)、その内側及び外側に Zr 被覆層 (図5 赤色部) を設け、生成されたトリチウムのゲッターとする。Zr 層の外側に Al_2O_3 層 (図5 灰色部) を設けて、トリチウムの Li ロッドからの流出を防ぐ。寸法は、GTHTR300 の黒鉛ブロックに設けられた BP 孔に収まる大きさ (概ね直径 44 mm、高さ 950 mm 程度) とする予定である。構造は、米国の Watts Bar Nuclear Power Plant における軍事用トリチウムの生産実績を参考にした。Zr に関するデータの取得と最適化、流出量の算定は、今後の検討課題である。現時点では、ひとまず Zr 被覆をはずし、 Al_2O_3 被覆のみを用いた場合を想定して数値解析を進めることとした。

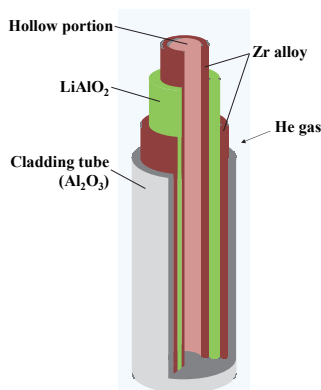


図5 リチウム装荷用ロッド

(3) 提案したリチウム装荷用ロッドを用いた場合のトリチウム生産量及び漏えい量

図6に Al_2O_3 層厚みの関数として、Li ロッドからのトリチウム流出量を、 LiAlO_2 層の厚みをパラメータとして示す。GTHTR300 (600 MWth) を想定し、180 日の運転期間を想定した。リチウムの生産量を増やすためには、 LiAlO_2 層の厚みを十分に確保する必要がある。但し、厚みを厚くしすぎると中性子の自己遮蔽効果により、生産効率が劣化する。Li ロッドからヘリウム冷却域へのトリチウムの流出を防ぐためには、 Al_2O_3 層の厚みを十分にとる必要がある。但し、 Al_2O_3 層の厚みを厚くしすぎると、内部空孔領域が圧迫され、内圧の上昇を防ぐことができず、かえって流出量が増加する。

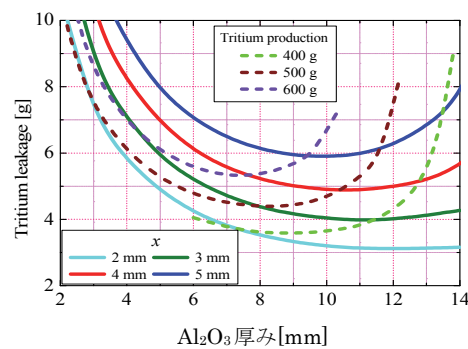


図5 BP 孔以外への Li 装荷領域

Li ロッドを用いた方法では、GTHTR300 (600 MWth) を想定した場合、180 日の運転期間において 400~600 g のトリチウムの生産が可能であり、その場合 Li ロッドからのトリチウム流出量を生産量の 1% 以下に抑えることが可能であることが示された。

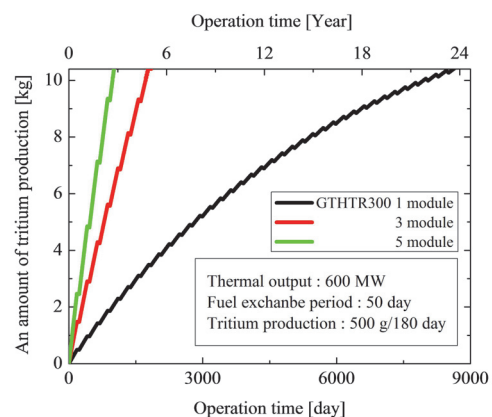


図6 BP 孔以外に Li を装荷した場合の実効増倍率とトリチウム生産量

原型炉へのトリチウム供給シナリオを検討した。図7に GTHTR300 相当 (熱出力 600 MWth) のモジュールを 1、3、5 module 用いた高温ガス炉に対する、トリチウム生産シナリオ例を示す。計算においては、燃料及び

Li 取り換えのために要する期間（炉停止期間）として 50 日を想定した。図では、トリチウムの崩壊（半減期 12.4 年）を考慮している。モジュール数が少ない場合は、トリチウム調達期間が長くなるため、崩壊によりトリチウム生産効率が低下する。

3 GWth 熱出力の高温ガス炉を想定した場合、核融合原型炉の初期装荷用トリチウムを約 10 kg とした場合、3 年程度で調達が可能となることが示された。

(4) まとめ（今後の課題）

GTHTR300 (600 MWt) を 5 モジュール (3 GWth 相当) 使用することを想定した場合、原型炉の初期装荷用トリチウムを 10 kg とすると、3 年程度で調達可能との試算を得た。又、その場合 Al_2O_3 被覆のみの Li ロッドを用いると、ロッドから炉心内ヘリウム領域へのトリチウム流出量は生産量の 1% 以下に抑えることが可能であることが示された。

Zr の添加により、さらに流出量を減らすことができる可能性があるとの数値結果が得られている。但し、この点については、トリチウムの溶解速度が不明確であるため、予備的評価に留まる。今後、Zr 添加によるトリチウム吸蔵作用を利用してトリチウムを閉じ込めることを検討するため、Zr 粒子への水素吸収実験を実施する必要がある。

今後の検討項目は、下記の通りである。

- (1) トリチウム封じ込め性能を高めるための Zr の性能評価
- (2) Li 装荷用ロッドの照射試験（トリチウム生産・流出量の実験的確認）
- (3) 上記(1)(2)を踏まえた上での、トリチウム生産用炉心の最適化

引き続き検討を進める予定である。

併せて、 ^{10}B を ^6Li に置き換えることに伴う高温ガス炉の運転時の炉心核特性への影響の評価も必要である。将来的には、高温工学試験研究炉 (HTTR) を使用した照射実験を通して、その性能の総合的な確認が可能と考えている。

5. 主な発表論文等

(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 3 件)

- (1) H. Matsuura, H. Nakaya, Y. Nakao, S. Shimakawa, M. Goto, S. Nakagawa, M. Nishikawa, Evaluation of Tritium Production Rate in a Gas A Gas-cooled Reactor with Continuous Tritium Recovery System for Fusion Reactor, Fusion Engineering and Design, 88, 2219-2222 (2013). (査読有)

- (2) H. Nakaya, H. Matsuura, Y. Nakao, S. Shimakawa, M. Goto, S. Nakagawa, M. Nishikawa, Core Configuration of A Gas-cooled Reactor as a Tritium Production Device for Fusion Reactor, Nuclear Engineering and Design, 271, 505-509 (2013). (査読有)

- (3) H. Nakaya, H. Matsuura, K. Katayama, M. Goto, S. Nakagawa, K. Tobita, Y. Someya, M. Nakamura, Tritium Production Method for The Demo Fusion Reactor by Using The High-Temperature Gas-Cooled Reactor, Proc. Plasma Conf., CD-ROM, PB072 1-2 (2014). (査読無)

〔学会発表〕 (計 17 件)

- (1) 牛田博貴, 片山一成, 松浦秀明, 深田智, 島川聡司, 中川繁昭, 松田将平, 下反元貴, 高温ガス炉トリチウム生産におけるトリチウム透過に関する研究, プラズマ・核融合学会 第 30 回年会, 東京工業大学大岡山キャンパス (2013 年 12 月 4 日).
- (2) 後藤実, 中川繁昭, 島川聡司, 松浦秀明, 中屋裕行, 片山一成, 高温ガス炉を用いたトリチウム製造の工学的な検討, プラズマ・核融合学会 第 30 回年会, 東京工業大学大岡山キャンパス (2013 年 12 月 5 日).
- (3) 中屋裕行, 松浦秀明, 片山一成, 島川聡司, 後藤実, 中川繁昭, 高温ガス炉を用いた核融合炉用トリチウム生産のための Li 化合物装荷方法の検討, 日本原子力学会九州支部第 32 回研究発表講演会, 九州大学筑紫キャンパス (2013 年 12 月 14 日).
- (4) 川本靖子, 松浦秀明, 中屋裕行, 島川聡司, 後藤実, 中川繁昭, ペブルベッド型高温ガス炉を用いた核融合炉用トリチウム生産の検討, 日本原子力学会九州支部第 32 回研究発表講演会, 九州大学筑紫キャンパス (2013 年 12 月 14 日).
- (5) 牛田博貴, 片山一成, 松浦秀明, 深田智, 松田将平, 下反元貴, 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挙動に関する研究, 日本原子力学会九州支部第 32 回研究発表講演会, 九州大学筑紫キャンパス (2013 年 12 月 14 日).
- (6) 中屋裕行, 松浦秀明, 片山一成, 島川聡司, 後藤実, 中川繁昭, 核融合炉用トリチウム生産を想定した高温ガス炉への Li 化合物装荷方法の検討, プラズマ・核融合学会九州・沖縄・山口支部「第 17 回支部大会」, 佐世保高等専門学校 (2013 年 12 月 21 日).

- (7) 松浦秀明, 中屋裕行, 久保光太郎, 川本靖子, 片山一成, 中尾安幸, 島川聡司, 後藤実, 中川繁昭, 高温ガス炉を用いた核融合炉用トリチウム生産の検討 (1)生産性能, 日本原子力学会「2014年春の年会」, 東京都市大学 (2014年3月26日).
- (8) 後藤実, 中川繁昭, 松浦秀明, 中屋裕行, 片山一成, 高温ガス炉を用いた核融合炉用トリチウム生産の検討 (2) 生産工程と安全性, 日本原子力学会「2014年春の年会」, 東京都市大学 (2014年3月26日).
- (9) 中屋裕行, 松浦秀明, 片山一成, 後藤実, 中川繁昭, 高温ガス炉を用いた核融合炉用トリチウム生産の検討 (3) Li装荷方法の最適化, 日本原子力学会「2014年春の年会」, 東京都市大学 (2014年3月26日).
- (10) 片山一成, 牛田博貴, 松田将平, 下反元貴, 深田 智, 松浦秀明, 後藤実, 中川繁昭, 高温ガス炉を用いた核融合炉用トリチウム生産の検討 (4)トリチウム閉じ込めと環境安全性, 日本原子力学会「2014年春の年会」, 東京都市大学 (2014年3月26日).
- (11) 松浦秀明, 高温ガス炉を用いた初期装荷トリチウム調達法, BA 原型炉設計及び安全性に係る合同会合, JAEA 国際核融合エネルギー研究センター (2014年7月30日).
- (12) 中屋裕行, 松浦秀明, 片山一成, 後藤実, 中川繁昭, 高温ガス炉を用いたトリチウム生産のための Li 装荷用ロッド構造の検討, 日本原子力学会「2014年秋の大会」, 京都大学吉田キャンパス (2014年9月8日).
- (13) 牛田博貴, 片山一成, 松浦秀明, 深田智, 松田将平, 下反元貴, 後藤実, 中川繁昭, アルミナにおける水素透過挙動, 日本原子力学会「2014年秋の大会」, 京都大学吉田キャンパス (2014年9月8日).
- (14) Y. Kawamoto, H. Nakaya, H. Matsuura, K. Katayama, M. Goto, S. Nakagawa, Study on Operation Scenario of Tritium Production for Fusion Reactor Using High Temperature Gas-Cooled Reactor, 21st Topical Meeting on the Technology of Fusion Energy (Anaheim, USA, 11 November, 2014).
- (15) K. Katayama, H. Ushida, H. Matsuura, S. Fukada, M. Goto, S. Nakagawa, Evaluation of Tritium Confinement Performance of Alumina and Zirconium with Tritium Production in a High-Temperature Gas-Cooled Reactor

for Fusion Reactors, 21st Topical Meeting on the Technology of Fusion Energy (Anaheim, USA, 12 November, 2014).

- (16) 川本靖子, 松浦秀明, 中屋裕行, 片山一成, 後藤実, 中川繁昭, 高温ガス炉を用いたトリチウム生産法の検討～炉型 (運転方法 運転方法) と生産性能の関係～, 日本原子力学会九州支部第 33 回研究発表講演会, 九州大学伊都キャンパス (2014年12月13日).
- (17) 中屋裕行, 松浦秀明, 片山一成, 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—Li 濃縮によるトリチウム閉じ込め性能の改善—, 日本原子力学会「2015年春の年会」, 茨城大学日立キャンパス (2015年3月21日).

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: 00164129

(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・研究副主幹
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)
久保 光太郎 (KUBO KOTARO)
川本 靖子 (KAWAMOTO YASUKO)
高良 和樹 (KORA KAZUKI)
長住 達 (NAGASUMI SATORU)
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)