

## 科学研究費補助金研究成果報告書

平成24年5月14日現在

機関番号：17102  
 研究種目：特定領域研究  
 研究期間：2007～2011  
 課題番号：19055006  
 研究課題名（和文） 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  
 研究課題名（英文） Study on clarification of tritium transfer in fusion reactor blankets  
 and on development of new processes to recover tritium  
 研究代表者  
 深田 智 (FUKADA SATOSHI)  
 九州大学・大学院総合理工学研究院・教授  
 研究者番号：50117230

## 研究成果の概要（和文）：

核融合炉固体増殖材  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  や  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ 、液体増殖材 Li, Li-Pb, Flibe に関して、材料トリチウム増殖率 (TBR) やトリチウム保持量、拡散係数等の測定値に基づき、ブランケットシステムとしてトリチウム自給に必要な実質  $TBR > 1$  を達成し、トリチウム透過率を安全基準以下に抑え、かつ高いトリチウム回収率を達成する基本システム構築をおこなう。具体的にはミクロスケールのブランケット流体の対流下トリチウム拡散挙動を明らかにし、各種ブランケット材について、高回収率を達成するシステムの基礎研究をおこない、核融合炉実現に寄与する。

## 研究成果の概要（英文）：

Based on material's tritium breeding ratio (TBR) and tritium retentions that have been already determined for solid breeding materials of  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  and  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  and liquid breeding materials of Li, Li-Pb eutectic alloy and Flibe molten salt, blanket systems are experimentally investigated to achieve tritium self-sufficient condition and to realize safety to lower level than allowable tritium leak rate. Micro-scale He convection in solid blankets and new tritium recovery systems are experimentally proved for each of the solid and liquid blankets. The present study is heavily contributed to realize fusion reactor systems.

## 交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	15,300,000	0	15,300,000
2008年度	20,400,000	0	20,400,000
2009年度	23,100,000	0	23,100,000
2010年度	26,960,000	0	26,960,000
2011年度	8,000,000	0	8,000,000
総計	93,760,000	0	93,760,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合工学・核融合学

キーワード：核融合、トリチウム、安全性、ブランケット、増殖率、透過漏洩

## 1. 研究開始当初の背景

核融合炉の固体セラミック材と液体 Li,  $\text{Li}_{15.8}\text{Pb}_{84.2}$ , Flibe ( $\text{Li}_2\text{BeF}_4$ ) の各ブランケット材中の生成トリチウムを回収し、核融合炉全

体のトリチウム増殖比を1以上にするとともに、配管全体からのトリチウムの透過漏洩を作業環境安全基準以下に抑えることが核融合炉の定常運転と安全性のために必要である。

トリチウム自給条件を満足させるにはトリチウム増殖比を 1.05 以上にすることが要求されており、その達成のため、核融合炉ブランケットのトリチウム必要回収率達成と透過漏洩率を最低限にする核融合炉達成の基礎研究をおこなうこととなった。

## 2. 研究の目的

核融合炉のトリチウム自給条件と安全条件を同時に満足するため、またそのことを実験的に証明するため、固体ブランケット候補材である  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  や  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  のセラミック材、液体  $\text{Li}$ 、 $\text{Li}_{15.8}\text{Pb}_{84.2}$  共融合金、Flibe 溶融塩からのトリチウム回収法の確立と必要な透過率以下にするシステムを構築することが本計画研究の目的である。

## 3. 研究の方法

固体ブランケットでは  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  と  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  が代表的トリチウム増殖材である。過去に各材料の TBR やトリチウム保持量が中性子照射実験等によって求められてきた。問題はブランケットシステムとして構築するときに回収まで含めて内部で TBR が設計通り機能するか、またトリチウム透過率を押しさえつつ、必要な回収率が維持できる様に新規回収システムを構築できるかである。研究手法は目標とする増殖材料により異なる。固体増殖材では、TBR をミクロスケールで予測するため、ブランケット内部可視化実験をおこない、予測精度を高め、回収を効率化する。また He スウィープガスからトリチウム回収のため、プロトン導電性セラミック電気分解システムのトリチウム回収システムの実現可能性を証明する。液体増殖材では、Y の表面酸化膜を除去した上で、Li 中の極低レベルトリチウムを Y で回収するシステムを実現し、Li-Pb では H と D の同位体効果測定に基づき、T 値を予測しつつ、He-LiPb 向流回収システムの基礎試験をおこない、透過率予測をおこなう。Flibe についても He による T 回収実験を行い、向流パージシステムの実現可能性について実験的に明らかにする。さらに液体ブランケット全般について、トリチウム透過予測試験をおこない、目標回収率達成と必要な透過率低減について B2 班と綿密な打ち合わせをおこなう。毎年 B2 班および総括班と討論会をおこない、核融合炉トリチウムシステム構築をおこなった。

## 4. 研究成果

JAEA 榎枝・関らは、 $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  固体ブランケット内のトリチウム移行を含むパージガス流動特性評価で、高精度のミクロ TBR 予測を実現するために、 $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  充填層模擬試験体の、流動可視化手法を新規に開発した。図 1 はその一例であり、固体ブランケット材を水と同じ屈折率を持つメックスフロンを用いて製作し、

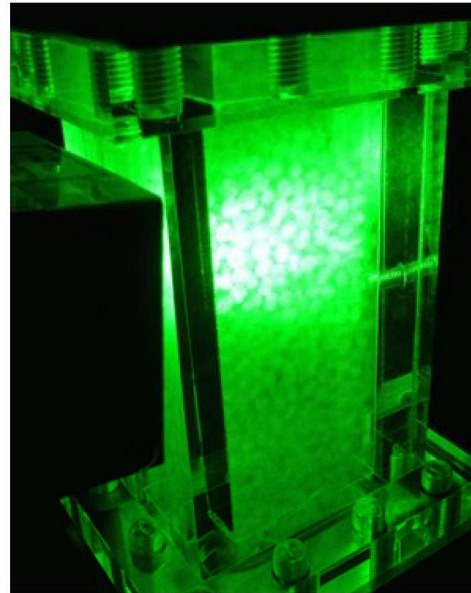


図 1 固体ブランケット流動可視装置 (JAEA 榎枝・関)

内部流動を調べ、ミクロ TBR 予測と試験体内の数値解析をおこない、圧力損失、パージガス速度場からのトリチウム輸送予測をおこなうことができた。本研究の成果は、ITER-TBM にも生かされ、国際的な成果として認知されている。

JAEA 河村らは、固体ブランケット He スウィープガスからの新規回収システムの研究をおこなった。従来の低温吸着法よりトリチウムインベントリが少なく、小型化が可能である特徴を有する。プロトン導電性セラミック材を使ったシステムは、連続的に小型化装置でトリチウムの回収分離が可能である。図 2 はその成果の一例であり、 $\text{H}_2 + \text{HT}$  混合ガスを

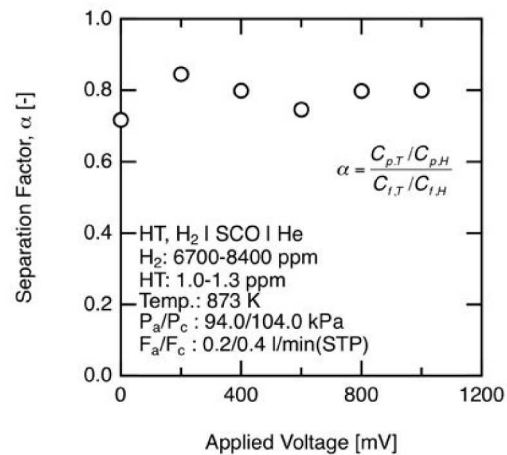


図 2 プロトン導電性電池システムのトリチウム分離係数 (JAEA 河村)



供給した時のトリチウム分離係数であり、Heから回収するとともに、T分離も同時に達成することができ、約14段直列に繋ぐことにより、99.9%のトリチウムを分離回収する性能が予測された。

九州大学の片山・西川らは、 $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  や  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  のセラミック材からのトリチウム放出実験を行い、放出率の数値計算による予測に成功した。計算モデルには、セラミック微粒子固体内のトリチウム拡散、微粒子間隙の拡散、表面抵抗、水素-水素同位体間の巷間反応、水素-水蒸気同位体間の交換反応、粒子ペレット間隙空間の拡散の寄与が含まれ、当研究者で得たトリチウム放出結果だけではなく、過去に日米欧の中性子照射実験で得られたトリチウム放出結果もよく定量的に表せることが確認された。またセラミックブランケット配管からのトリチウム漏洩についてもヘリウムパージガスからのトリチウム透過率の予測実験を行い、酸化膜形成のトリチウム漏洩効果を明確にすることができた。

九州大学グループとNIFS相良は、FFHRヘリカル型核融合炉のブランケット材としてFlibeを考え、そのトリチウム回収実験をおこなった。図3は、Flibeの中性子照射後にHeガス接触により放出したトリチウム濃度とFlibe内の拡散、表面同位体交換、再結合等の効果を考慮した数値計算結果の比較であり、ほぼ全域にわたりトリチウム放出率を予測することができた。従ってFlibeブランケットでは、TFの $T_2$ への還元処理、それに伴うトリチウム透過率の低減をおこなうことにより、99.9%以上の回収率を達成することができる。必要な装置は、He-Flibe向流抽出装置であり、この装置設計に必要な解析式を求め、数値計算して成果を報告している。この他、Flibe溶融塩の水素の存在状態を調べるため、過去報告されている不活性ガス溶解度と分子径の効果と表面張力の効果を調べ、溶融塩中に分子形で溶解するガスの基礎化学分野にも重要な寄与をなした。

Li-Pb共融合金もITER-TBM等で注目されている有力な増殖材料であり、透過法や定容法によりブランケットトリチウム移行予測に必要な、T溶解度、拡散係数、透過係数を求め、H-D同位体効果、多成分系における同位体移行挙動の把握、熱対流下や強制対流下における水素同位体移行挙動が実験的に調べられ、多くの研究成果として報告されている。

その他、Li-Pbの組成の違いに基づき、Liの活量の決定、Li-Pb中のH原子の存在状態を第一原理に基づく数値計算と先に求めた拡散係数や溶解度のデータとの比較に基づき明らかにし、溶融合金全般の基礎研究にも重要な寄与をなした。

Liは最もTBRが大きく克つトリチウム平衡圧がきわめて小さいので、トリチウム透過が

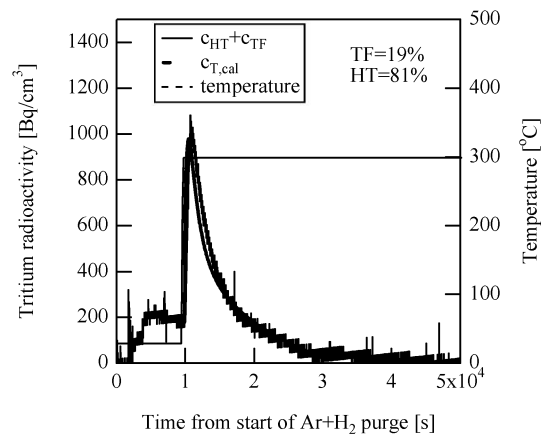


図3 Flibeからのトリチウム放出実験と解析結果の比較(九大深田+NIFS相良)

最も小さいブランケットが構成できる材料である。しかし問題は、溶解度が極めて高いので、トリチウム回収が難しく、インベントリが非常に高くなる可能性がある。研究代表者らはYの表面をHFで処理した材料を使い、Li中に溶解したTを1ppm以下にすることに成功した。さらにLi流動状態における溶解水素同位体のY粒子による回収実験に成功し、図4の様に、回収率を物質移動係数により整理することにより水素濃度と流動速度に依存しない係数を実験的に求めることができた。この結果を利用してLiからのトリチウム回収装置を設計し、実際上もIFMIF-EVEDAの装置設計に反映させることができた。

核融合炉の実現には現実的な量以下の低トリチウムインベントリ実現と環境への透過漏洩率を現実に強要されるレベル以下に抑える必要がある。本B1班では、各種ブランケット材からの新規トリチウム回収法の実現と、ブランケット内の流動と拡散移行、反応の効果を定量的に表すことで、より正確な評価をお

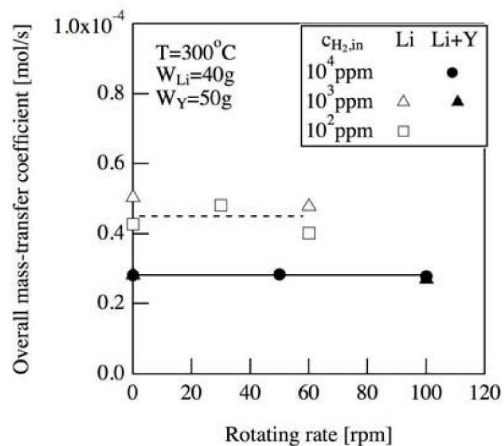


図4 流動LiからのY板によるH回収率の濃度と回転率(流動速度)依存性(九大深田)

こなうことができた。B2班では、ブランケットを材料工学的視野から研究し、特に液体ブランケットではブランケット材と構造材との腐食制御、透過率低減のためのEr酸化膜の開発研究、固体ブランケット  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  の組成をLiリッチにすることでTBR増加や水蒸気との相互作用抑制を図っている。定期的に研究会を開き情報を交換してきた。B3班で統合的な成果をまとめ、核融合炉実現に近づけることに研究の中心軸においた。上記の成果は核融合炉ブランケット構築に重要な寄与を果たすと考えられる。

## 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85件)

- ① S. Fukada, Y. Edao, K. Sato, T. Takeishi, K. Katayama, K. Kobayashi, T. Hayashi, T. Yamanishi, Y. Hatano, A. Taguchi, S. Akamaru, "Transfer of tritium in concrete coated with hydrophobic paints", Fusion Engineering and Design, 87 (2012) 54-60 (査読有り).
- ② S. Fukada, M. Ueda, T. Izumi, G. Wu, K. Katayama, "Effects of preadsorbed  $\text{H}_2\text{O}$  and  $\text{CH}_4$  on  $\text{H}_2$  and He adsorption of activated carbon at cryogenic temperature", Fusion Science and Technology, 61 (2012) 282-289 (査読有り).
- ③ Y. Edao, H. Noguchi, S. Fukada, "Experiments of hydrogen isotope permeation, diffusion and dissolution in Li-Pb", Journal of Nuclear Materials, 417 (2011) 723-726 (査読有り).
- ④ S. Fukada, Y. Edao, "Unresolved issues on tritium mass transfer in Li-Pb liquid blankets", Journal of Nuclear Materials, 417 (2011) 727-730 (査読有り).
- ⑤ T. Hanada, M. Nishikawa, T. Kanazawa, H. Yamasaki, N. Yamashita, S. Fukada, "Effect of surface water on tritium release behavior from  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$ ", Journal of Nuclear Materials, 417 (2011) 735-738 (査読有り).
- ⑥ M. Terashita, S. Fukada, "Experimental clarification of the desorption of  $\text{H}_2$ ,  $\text{D}_2$  and He mixtures from cryosorption pump", Journal of Nuclear Materials, 417 (2011) 1179-1182 (査読有り).
- ⑦ M. Ida, S. Fukada, T. Furukawa, Y. Hirakawa, H. Horiike, T. Kanemura, H. Kondo, M. Miyashita, H. Nakamura, H. Sugiura, A. Suzuki, T. Terai, Y. Tsuji, H. Ushimaru, K. Watanabe, J. Yagi, "Target system of IFMIF/EVEDA in Japanese activities", Journal of Nuclear Materials, 417 (2011) 1294-1298 (査読有り).
- ⑧ T. Norimatsu, H. Saika, H. Homma, M. Nakai, S. Fukada, "Leakage control of tritium through heat cycles of conceptual-design, laser-fusion reactor Koyo-F", Fusion Science and Technology, 60 (2011) 893-896 (査読有り).
- ⑨ Y. Kawamura, W. Shu, M. Matsuyama, T. Yamanishi, "Stability of NaI(Tl) detector for tritium monitor of BIXS use to hot environment", Fusion Science and Technology, 60 (2011) 986-989 (査読有り).
- ⑩ K. Ichiki, T. Kawaguchi, K. Ishibashi, N. Ikeda, S. Fukada, G. Wakabayashi, Y. Kawabata, Tritium monitoring using magnetically-levitated-electrode ionization chambers, Fusion Science and Technology, 60 (2011) 994-997 (査読有り).
- ⑪ K. Katayama, S. Fukada, M. Nishikawa, "Demonstration of tritium extraction from tritiated methane in helium by utilizing plasma decomposition", Fusion Science and Technology, 60 (2011) 1151-1154 (査読有り).
- ⑫ Y. Edao, H. Okitsu, H. Noguchi and S. Fukada, "Permeation of two-component hydrogen isotopes in lithium-lead eutectic alloy", Fusion Science and Technology, 60 (2011) 1163-1166 (査読有り).
- ⑬ T. Kanazawa, M. Nishikawa, H. Yamasaki, K. Katayama, H. Kashimura, T. Hanada, S. Fukada, "Study on tritium release behavior from  $\text{Li}_2\text{ZrO}_3$ ", Fusion Science and Technology, 60 (2011) 1167-1170 (査読有り).
- ⑭ H. Kondo, T. Furukawa, Y. Hirakawa, K. Nakamura, M. Ida, K. Watanabe, T. Kanemura, E. Wakai, H. Horiike, N. Yamaoka, H. Sugiura, T. Terai, A. Suzuki, J. Yagi, S. Fukada, H. Nakamura, I. Matsushita, F. Groeschel, K. Fujishiro, P. Garin, H. Kimura, "IFMIF/EVEDA lithium test loop: design and fabrication technology of target assembly as a key component", Nuclear Fusion, 51, 123008 (2011) 1-12 (査読有り).
- ⑮ K. Katayama, S. Kasahara, S. Ishikawa, S. Fukada, M. Nishikawa, "Hydrogen incorporation in tungsten deposits growing by deuterium plasma sputtering", Fusion Engineering and Design, 86 (2011) 1702-1705 (査読有り).
- ⑯ Y. Kawamura, T. Yamanishi, "Tritium recovery from blanket sweep gas via ceramic proton conductor membrane", Fusion Engineering and Design, 86 (2011)

2160-2163 (査読有り).

⑰T. Hirose, H. Tanigawa, A. Yoshikawa, Y. Seki, D. Tsuru, K. Yokoyama, K. Ezato, S. Suzuki, M. Enoeda, M. Akiba, “Recent status of fabrication technology development of water cooled ceramic breeder test blanket module in Japan”, Fusion Engineering and Design, 86 (2011) 2265-2268 (査読有り).

⑱S. Fukada, M. Terashita, “Mixed desorption of He, H<sub>2</sub>, and CH<sub>4</sub> adsorbed on charcoal maximally cooled at 10 K”, Journal of Nuclear Science and Technology, 47 (2010) 1219-1226 (査読有り).

⑲S. Fukada, Y. Edao, A. Sagara, “Effects of simultaneous transfer of heat and tritium through Li-Pb or Flibe blanket”, Fusion Engineering and Design, 85 (2010) 1314-1319 (査読有り).

⑳以降、報告論文多数のため省略。他の成果はホームページに掲載されている。

〔学会発表〕(計190件)

①河村繕範、山西敏彦, “カルシウム交換型モデルゼナイトの水素同位体吸着速度”, 日本原子力学会 2012 年春の年会, 3 月 19 日-21 日、福井。

②T. Nagasaka, T. Tanaka, A. Sagara, T. Muroga, M. Kondo, T. Watanabe, S. Fukada, H. Yukawa, T. Namba, T. Iikubo, “Fabrication of hydrogen recovery unit in the molten salt loop Oroshi-1, 21<sup>st</sup> International Toki Conference on Integration of Fusion Science and Technology for steady-state operation, (2011) Nov. 28-30, Toki, Japan.

③S. Shigeharu, Y. Hatachi, T. Hiromoto, Y. Edao, S. Fukada, “Hydrogen recovery from liquid Li with Y hot trap”, 21<sup>st</sup> International Toki Conference on Integration of Fusion Science and Technology for steady-state operation, (2011) Nov. 28-30, Toki, Japan.

④T. Watanabe, Y. Edao, T. Tanaka, A. Sagara, S. Fukada, “Hydrogen permeation of stainless steel with surface modification of nitride by electrochemical technique”, 21<sup>st</sup> International Toki Conference on Integration of Fusion Science and Technology for steady-state operation, (2011) Nov. 28-30, Toki, Japan.

⑤M. Okada, H. Okitsu, Y. Edao, S. Fukada, “Analysis of simultaneous H and D permeation through lithium-lead”, 21<sup>st</sup> International Toki Conference on Integration of Fusion Science and Technology for steady-state operation,

(2011) Nov. 28-30, Toki, Japan.

⑥M. Enoeda, H. Tanigawa, T. Hirose, S. Suzuki, K. Ochiai, C. Konno, Y. Kawamura, T. Yamanishi, T. Hoshino, M. Nakamichi, H. Tanigawa, K. Ezato, Y. Seki, A. Yoshikawa, D. Tsuru, “Progress of ITER Test Blanket Module Development in Japan”, 21<sup>st</sup> International Toki Conference (ITC-21) on Integration of Fusion Science and Technology for Steady State Operation, (2011) Nov. 28-30, Toki, Japan.

⑦Y. Seki, T. Hirose, H. Tanigawa, M. Enoeda, “R&D of prediction system for tritium transport in pebble bed breeder blanket”, Plasma Conference 2011, Nov. 22-25 (2011), Kanazawa, Japan.

⑧Y. Kawamura, Y. Iwai, K. Munakata, T. Yamanishi, “Effect of Cation Exchange on Hydrogen Adsorption Property of Mordenite for Isotope Separation”, 15<sup>th</sup> International Conference on Fusion Reactor Materials (ICFRM-15), (2011) Oct. 16-22, Charleston, USA.

⑨柏村英明、片山一成、山崎英樹、深田智、西川正史、松田将平、ブランケットからのトリチウム回収(3)固体増殖材の水分生成反応がトリチウム放出に与える影響、日本原子力学会 2011 年秋の大会、(2011) 9 月 19-22 日、北九州。

⑩H. Okitsu, Y. Edao, M. Okada, S. Fukada, “Analysis of diffusion and dissolution of two-component hydrogen (H+D) in lead lithium”, ISFNT-10, (2011) Sep. 12-16, Portland, USA.

⑪K. Katayama, H. Kashimura, T. Hoshino, M. Nishikawa, H. Yamasaki, S. Ishikawa, Y. Ohnishi, S. Fukada, “Release behavior of water vapor and mass loss from lithium titanate”, ISFNT-10, (2011) Sep. 12-16, Portland, USA.

⑫S. Ishikawa, K. Katayama, Y. Ohnishi, S. Fukada, M. Nishikawa, “Desorption behavior of hydrogen isotopes from tungsten deposit caused by plasma exposure”, ISFNT-10, (2011) Sep. 12-16, Portland, USA.

⑬Y. Edao, S. Fukada, Y. Nishimura, T. Takeishi, K. Katayama, Y. Hatano, A. Taguchi, “Effect of hydrophobic paints coating for tritium reduction in concrete materials”, ISFNT-10, (2011) Sep. 12-16, Portland, USA.

⑭H. Yamasaki, H. Kashimura, S. Matsuda, T. Kanazawa, T. Hanada, K. Katayama, S. Fukada, M. Nshikawa, “Effect of water vapor on tritium permeation behavior”, ISFNT-10, (2011) Sep. 12-16, Portland, USA.

⑮M. Enoeda, H. Tanigawa, T. Hirose, S. Suzuki, K. Ezato, Y. Seki, A. Yoshikawa, D. Tsuru, K. Ochiai, C. Konno, Y. Kawamura, T. Yamanishi, T. Hoshino, M. Nakamichi, H. Tanigawa, M. Akiba, Development of the Water Cooled Ceramic Breeder Test Blanket Module in Japan, 10th International Symposium on Fusion Nuclear Technology (ISFNT-10) (2011) Sep. 12-16, Portland, USA.

⑯Y. Hatachi, S. Shigeharu, K. Katekari, Y. Edao, S. Fukada, "Analysis of hydrogen isotopes absorption between liquid lithium and yttrium under dynamic conditions", ISFNT-10, (2011) Sep. 12-16, Portland, USA.

⑰K. Ochiai, Y. Kawamura, T. Hoshino, Y. Iwai, K. Kobayashi, K. Kondo, M. Nakamichi, C. Konno, "Tritium recovery online experiment for  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  pebble blanket under DT neutron irradiation", 16th International Workshop on Ceramic Breeder Blanket Interactions, (2011) Sep. 8-10, Portland (2011).

⑱Y. Seki, S. Suzuki, M. Enoeda, "Experimental study of helium purge flow in pebble bed for solid breeder", 16th International Workshop on Ceramic Breeder Blanket Interactions, Portland Sep. 8-10 (2011).

⑲S. Fukada, Y. Edao, K. Katekari, H. Okitsu, Y. Hatachi, M. Okada, K. Tamari, K. Katayama, "Tritium recovery from liquid blanket systems of fusion reactor", 15th International Conference on Emerging Nuclear Energy Systems, May 15-19 (2011), San Francisco, USA (招待講演).

⑳以降、学会報告多数のため省略。他の成果はホームページに掲載されている。

[その他]

ホームページ

<http://tritium.nifs.ac.jp/>

<http://hyoka.ofc.kyushu-u.ac.jp/search/details/K001210/index.html>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

深田 智 (FUKADA SATOSHI)

九州大学・大学院総合理工学研究院・教授  
研究者番号：50117230

### (2) 研究分担者

榎枝 幹男 (ENOEDA MIKIO)

日本原子力研究開発機構・核融合研究開発部門・主任研究員

研究者番号：90354620

河村 繕範 (KAWAMURA YOSHINORI)

日本原子力研究開発機構・核融合研究開発部門・主任研究員

研究者番号：10354614

片山 一成 (KATAYAMA KAZUNARI)

九州大学・大学院総合理工学研究院・助教

研究者番号：90380708

西川 正史 (NISHIKAWA MASABUMI)

九州大学・大学院総合理工学研究院・名誉教授

研究者番号：90026229

相良 明男 (SAGARA AKIO)

核融合科学研究所・核融合システム研究系・核融合研究プロジェクト総主幹、教授

研究者番号：20187058

(3) 連携研究者

( )

研究者番号：