

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 8 日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2012～2015

課題番号：24246153

研究課題名(和文)流動液体ブランケットにおけるトリチウムと熱の同時回収システムの実験的研究

研究課題名(英文) Experimental study on simultaneous recovery of tritium and heat in several fluidized liquid blankets

研究代表者

深田 智 (Fukada, Satoshi)

九州大学・総合理工学研究科(研究院)・教授

研究者番号：50117230

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 27,900,000円

研究成果の概要(和文)：核融合炉液体ブランケット候補材であるLi17Pb83共融合金、Flinabeを含むフッ化物溶融塩、液体Liについて、それぞれ流動化装置を製作し、流動条件下の各液体ブランケット材からの熱とトリチウム有効回収のためのブランケット構成と操作条件、物質移動抵抗の関与等を検討し、有効なトリチウム回収法として透過窓、気液接触法を実験検討し、具体的なトリチウム回収手段を検討した。Li-PbとFlinabe中トリチウムインベントリをできるだけ少なく、かつ熱交換器配管壁と二次冷却材を通して外部への透過率が小さくできる事が分かった。トリチウム安全性に寄与するため英語論文を執筆し国際学術誌に成果を発表した。

研究成果の概要(英文)：Promising liquid blanket candidates of Li17Pb83 eutectic alloy and Flinabe molten salt were investigated along with Li for comparison and circulating loops for each candidate were made up. Constitution of integrated blanket systems and clarification of their operating conditions have been made from various viewpoints for effective simultaneous recovery of heat and tritium from each fluidized liquid blanket. Permeation window, liquid-bubbles direct contact tower and Y getter bed were experimentally investigated as examples for effective tritium recovery methods and designs of concrete recovery apparatus were presented. The design which satisfies the conditions not only to keep tritium inventory in the Li-Pb or Flinabe blanket as low as possible but also to suppress tritium permeation leak through tubes of their blankets or heat exchanger as low as reasonably achievable was clearly presented in international scientific journals in English.

研究分野：核融合トリチウム理工学

キーワード：液体ブランケット トリチウム 回収 溶融塩 共融合金 透過窓 液体リチウム

1. 研究開始当初の背景

(1) 核融合炉トリチウム安全性必要条件

核融合炉をエネルギー製造装置として利用するには、高温D-Tプラズマ燃焼維持とともに、核熱回収と 150g/dayGW のトリチウム(T)燃料製造・回収・補給率を維持する必要がある。右図1¹⁾は、熔融塩 Flibe(Li₂BeF₄)自己冷却システムを想定した FFHR 核融合炉概念設計ブランケットループ図である。定常運転中最大 1kg の T をシステム内に安全確保し、外部への T 漏洩を 4x10⁶Bq/s 以下にする必要がある。1kg の T 放射能は 36 京 Bq (3.6x10¹⁷Bq) であり、この量は 2011 年 3 月 11 日東日本大震災後の大津波による福島第一原子力発電所炉心事故で環境放出された全放射能と同程度である。核融合炉内に気体状 T を安全貯留し、燃焼・循環維持する必要がある。T 安全管理と閉じ込めは核融合炉工学上極めて重要で、本研究者らはこれまで研究室を挙げて、核融合炉 T 分離・回収・処理研究を実行して来た。

(2) 液体ブランケット構成

核融合実用炉ブランケットを構成する増殖材、冷却材、配管・構造材のうちで、増殖材に着目すると、固体では各種 Li 酸化物が安定で取扱いと運転が容易だが、T 回収配管と熱回収配管が別で構造が複雑となり、正味増殖率(TBR)を 1 以上に保つのが難しく、ITER で安定な炉心プラズマ燃焼が証明された後の原型炉では液体増殖材が有望となる。

液体増殖材候補として Li, Li₁₇Pb₈₃, Flibe (Li₂BeF₄)が提案されて来たが、それぞれ一長一短がある。Li は TBR が高く、磁場遮蔽で MHD 効果を克服すると自己冷却操作により熱と T の同時回収が可能で、T 透過率も低く保てるが、T 溶解度が極めて高く、回収が Y ゲッター法程度しか実証されておらず、化学活性が高い液体金属で運転が難しく、不純物管理が難しい。そこで見つけられた Li₁₇Pb₈₃ は TBR も高く He 冷却材使用下で運転条件を広く取れ、ITER-TBM でも試験準備が進められている有望な材料だが、同様に液体金属なので水や酸素との高温反応性と効果的 T 回収の課題が十分に実証されていない。一方熔融塩 Flibe は化学的に安定で、MHD 効果が小さく高磁場下で使用でき、高温で酸素や水蒸気と反応せず、低 T 溶解度の利点により、T を効果的に回収できる点が期待される。欠点は、融点が 459°C と他の液体増殖材候補と比べて高く、またイオン性液体混合物なので材料腐食性があり、ブランケット運転条件が 500~600°C に制限される事である。従って狭い温度範囲で核融合炉を運転する事にメリットが少ないとの認識があり、ヘリカル型核融合実用炉 FFHR 概念設計以外ではこれまで深く検討されて来なかった。

この状況下で、三種類の核融合炉液体ブランケット候補材に課された各課題を克服し、近い将来実現される原型炉から商業炉で現実化する T 回収装置や炉構造を明らかにする。

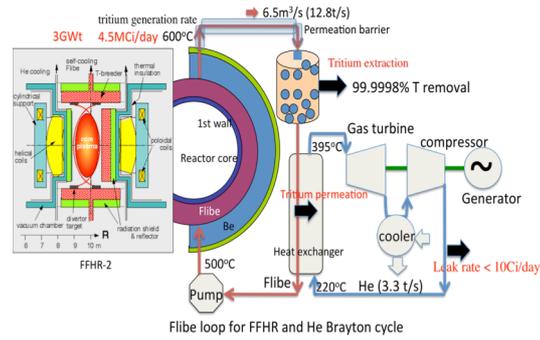


図1 核融合炉 FFHR からの T と熱の回収¹⁾

2. 研究の目的

(1)研究全体の方針

前節に示した各液体ブランケット材の長所を生かしつつ、欠点あるいは未証明課題を克服するための実験研究を行った。同時に大規模装置に適用可能な様に内部で生じる移動現象を定量解析し、各液体増殖材からの T 回収率、透過漏洩率等を温度や操作パラメーター、拡散係数等の物性値を織り込んだ関係式を新規に提案し、実験式と比較検討し、回収装置内部で生じる物質移動と熱移動の関係を明らかにする様にした。最後に 3 候補材を用いた原型炉の T と熱の回収を比較検討した。各候補材の具体的研究項目を下記に挙げる。

(2)個別の研究項目

- ①液体 Li に溶解する T(実験では D) を、あらたに開発した Y 表面に不可避に生成される酸化物を除去する表面処理法で活性化し、ブランケット状態に近い強制流動 Li ループに含まれる T(D)を Y ゲッターにより連続回収する。
- ②Li 中あるいは Y 中に含まれる D 濃度を 1ppm の誤差範囲で確定する測定技術を新規開発する。
- ③大学内に新規製作した Li₁₇Pb₈₃(Li-Pb)流動装置を使い、強制対流下の配管壁からの H の総括透過率を求め、流動速度の総括透過係数

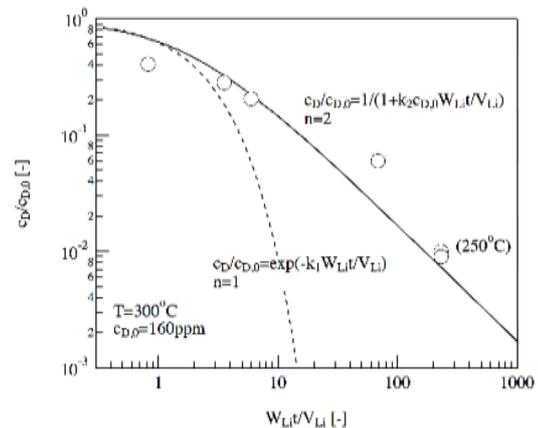


図2 Li 強制対流からの HF 表面処理済 Y による D 回収率(縦軸)と、系内 Li 体積 V_{Li}, Li 流量 W_{Li} と時間 t 積による変化。n は反応次数。

への依存性を明らかにし、実際のブランケットからの T 回収を想定した回収可能性を明らかにする。

④Li-Pb の低水素溶解度を利用し、不活性ガス気泡接触による T 回収を H を使い実験し、気泡径、気泡上昇速度、気泡面積、温度等の関数として求め、気泡接触面近傍に生成する拡散境界抵抗の寄与について明らかにする。

⑤Flibe 中の LiF を NaF で置換した Flinabe 混合熔融塩に新たに着目し、最低融点(305°C)の最適組成比における T 回収を明らかにする。さらにモネル壁からの水素透過における流体境界抵抗の寄与、温度変化を明らかにし、水素溶解度、拡散係数、透過係数への各構成成分 NiF, NaF, BeF₂ の効果を調べる。

3. 研究の方法

(1) Li からの T 回収

酸素濃度を 1ppm 以下に制御した Ar グローブボックス内で Y 粒子を HF 表面処理し、Li 強制対流装置内に設置し、Li からの D 回収実験をおこない、結果を反応速度定数 k_n を用いた式(1)で整理した。結果を図 2 に示す。

$$V_{Li} \frac{dc_D}{dt} = -k_n W_{Li} c_D^n \quad (1)$$

Li を D 減少水で溶解し、発生 HD を質量分析した。また Y を HNO₃ 溶解し、発生 HD を同様に分析した。いずれの操作も同時に発生する HD0 の補正方法を独自に開発した。1ppm 以下までの測定精度がある方法である。

(2) Li₁₇Pb₃₃ からの T 回収

Li-Pb 強制対流装置を製作し、Inconel 管(厚み t)を透過する水素透過率 j_{H_2} への上流下流平衡水素圧力 p_{H_2} 、壁透過係数 $K_{P,H,Inconel}$ 、Li-Pb の Sieverts 定数 $K_{S,H,LiPb}$ 依存性から流体境界物質移動係数 $k_{LiPb,m}$ の温度依存性と流速 $v_{LiPb,m}$ 依存性を求め、総括物質移動に及ぼす各寄与を式(2)を使って明らかにする。この研究は DCLL ブランケットにおける Li-Pb からの T 回収と熱交換器 T 漏洩評価に繋がる。

$$j_{H_2} = \frac{\sqrt{p_{H_2,up}} - \sqrt{p_{H_2,down}}}{\frac{t_{Inconel}}{K_{P,H,Inconel}} + \frac{1}{K_{S,H,LiPb} k_{LiPb,m}}} \quad (2)$$

Li-Pb と不活性ガス気泡との直接接触により、Li-Pb に溶解した D を連続回収する実験をおこなうとともに、物質移動係数 k_m への温度、Li-Pb 容積 V_{LiPb} 、気泡面積 S_{bubble} との関係性を求めた。Li-Pb 流入前後の Li-Pb 溶解水素の平衡圧力を $p_{H_2,0}$ 、 $p_{H_2,out}$ で表し、式(3)で説明した。

$$\sqrt{\frac{p_{H_2,out}}{p_{H_2,0}}} = \exp\left(-\frac{k_m S_{bubble}}{V_{LiPb}} t\right) \quad (3)$$

(3) Flinabe 熔融塩

Flibe(融点 459°C)に新たに NaF を加えた Flinabe(LiF+NaF+BeF₂)を合成し、その融点が 305°C であることを確認し、HF で酸化物不純物処理した後、Monel 管に封入後、水素透

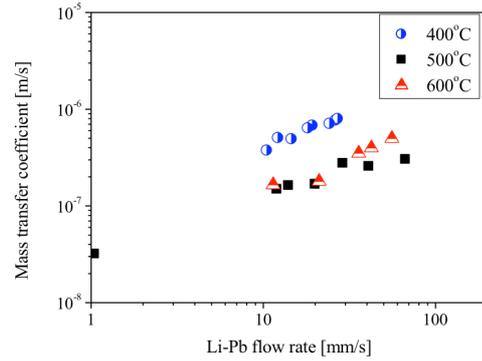


図 3 Li-Pb 強制対流から金属壁を水素透過させた時の物質移動係数の温度と流量依存性

過率 j_{H_2} の水素圧力 p_{H_2} と温度依存性を求め、結果を式(4)で整理した。 t と $K_{P,H}$ は各構成物の厚みと水素透過係数である。

$$\sqrt{p_{H_2,up}} = \frac{t_{Monel}}{K_{P,H,Monel}} j_{H_2} + \sqrt{p_{H_2,down} + \frac{t_{Flinabe}}{K_{P,H_2,Flinabe}} j_{H_2}} \quad (4)$$

Li-Pb(式 2) と Flibe(式 4) とで複合透過率の形式が違うのは、金属では原子状態で、Flinabe では分子状態で水素透過する事に起因する。

4. 研究成果

(1) Li ブランケット関連成果

Li 自己冷却ブランケットから Y ベッドにより回収目標の 1ppm を図 2 の成果を利用することにより実証する事ができた。また反応次数が、高速増殖炉 Na コールドトラップから期待された 1 次ではなく、2 次である事が判明した。この理由は D 濃度が極めて低い条件で、Li 内から Y 表面層を超えて Y 金属内部に拡散移動する際、D 濃度低下とともに表面反応抵抗が増加する事に起因する。

自己冷却ブランケットの Li 流中の T 濃度を 1ppm 以下に、インベントリを 1kg-T 以下に維持するためには、126kg Y 粒子充填ベッドを 2 日交代で吸収脱離サイクルを施す事で可能となる。また熱交換機からの T 漏れは 170 Bq/s で安全目標値の $1/2 \times 10^5$ であり十分低く維持できる。

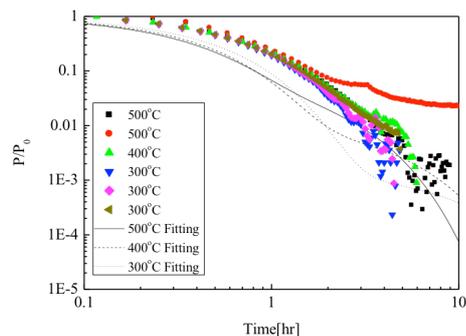


図 4 Li-Pb への気泡接触による溶解 D 回収

(2) Li-Pb ブランケット関連成果

Li-Pb 増殖材を HCLL や DCLL 方式で利用する際、溶解 T を 99.9%程度まで Ar 気流側に精度よく回収するのに成功し、かつ式(4)を使って計算した図4の曲線の様に、気泡接触塔内の物質移動係数 k_m を使って移動解析するのに成功した。解析式は、回収率への温度と流量依存性を取り込んだり、広く予測可能である。流動 Li-Pb 配管からの T 漏れ率の物質移動係数 $k_{LiPb,m}$ も図3から Li-Pb 流速($k_{LiPb,m} \propto v_{LiPb,m}^{0.5}$) 依存性と温度から予測可能となった。HCLL や DCLL 詳細設計が進み必要な配管面積が今後得られれば、透過漏洩率の全体評価が現在の成果を使って示す事ができる。

(3) Flinabe ブランケット

図5に見る様に、Flinabe+Monel 管系実験では、低水素圧力で Flinabe 透過律速、高水素圧力で Monel 透過律速になる事が予測通り証明され、初めて Flinabe 自体の水素透過係数、水素溶解度、水素拡散係数を求める事ができた。Flinabe 内では水素は分子状態で存在し、透過の圧力依存性は1次である事も証明された。この事から Flinabe を熱媒体として利用する際の熱交換器からの T 漏洩率の評価が可能となった。T 発生率と自己冷却熔融塩流量が $2.1\text{ m}^3/\text{s}$ であることを使用すると、熔融塩中の溶解 T の分圧が 10^3 Pa になり、この状態では熱交換器配管に透過抑制の酸化物被覆を行なっても目標値以下にする事は難しい。現在、熔融塩内に Ti 粉末を分散保有させ、平衡圧低下を図る新たな研究を実施中である。

各種フッ化物熔融塩 Flibe, Fnabe, Flinak も併せて実験をおこない、水素溶解度、拡散係数、透過係数の各組成依存性を求めた。結果の一例を図6に示すが、詳しい解析は論文に掲載しており、この結果をもとにすれば、関連する混合物の未知の組成の影響を調べる事ができる。

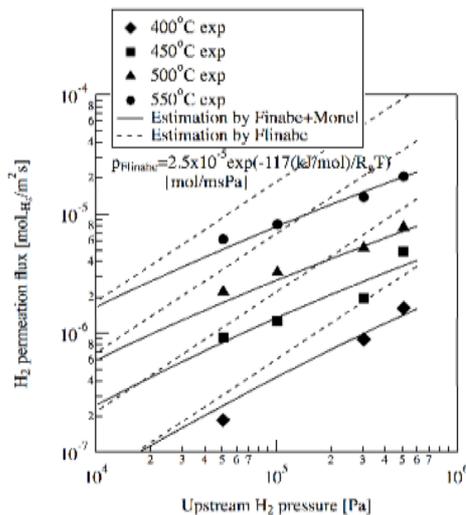


図5 Flinabe の水素透過率の圧力依存性

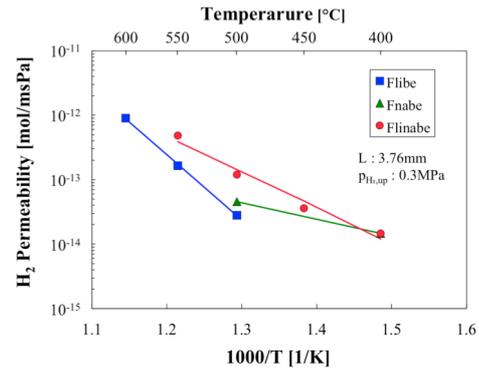


図6 Flibe(Li₂BeF₄), Fnabe(Na₂BeF₄), Flinabe (LiNaBeF₄)の水素透過係数温度依存性

<引用文献>

①S. Fukada, “Discussion of tritium safety in fusion reactors”, Trans. American Nuclear Society, 107 (2012) 307-314.

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 10 件)

①R. Nishiumi, S. Fukada, A. Nakamura, “Hydrogen permeation through flinabe fluoride molten salts for blanket candidates”, Fusion Engineering and Design (2016) in printing, 査読有.
[dx.doi.org/10.1016/j.fusengdes.2015.10.035](https://doi.org/10.1016/j.fusengdes.2015.10.035).
 ②K. Hiyane, S. Fukada, Y. Yamasaki, K. Katayama, E. Wakai, “Removal of low-concentration deuterium from fluidized Li loop for IFMIF”, Fusion Engineering and Design (2016) in printing, 査読有.
[dx.doi.org/10.1016/j.fusengdes.2015.12.030](https://doi.org/10.1016/j.fusengdes.2015.12.030).
 ③R.J. Pawelko, M. Shimada, K. Katayama, S. Fukada, P.W. Humrickhouse, T. Terai, “Low tritium partial pressure permeation system for mass transport measurement in lead lithium eutectic”, Fusion Engineering and Design, 102 (2016) 8-13. 査読有.
[dx.doi:10.1016/j.fusengdes.2015.11.005](https://doi.org/10.1016/j.fusengdes.2015.11.005).
 ④T. Muneoka, S. Fukada, R. Yoshimura, K. Katayama, Y. Edao, T. Hayashi, “Experiment on recovery of hydrogen from fluidized Li₁₇Pb₈₃ blanket”, Fusion Science and Technology, 68 (2015) 443-447. 査読有. [dx.doi.org/10.13182/FST14-903](https://doi.org/10.13182/FST14-903).
 ⑤S. Fukada, T. Muneoka, M. Kinjo, R. Yoshimura, K. Katayama, “Hydrogen transfer in Pb-Li forced convection flow with permeable wall”, Fusion Engineering and Design, 96-97 (2015) 95-100. 査読有. [dx.doi:10.1016/j.fusengdes.2015.5.017](https://doi.org/10.1016/j.fusengdes.2015.5.017).
 ⑥K. Katayama, K. Uehara, H. Date, S. Fukada, H. Watanabe, “Temperature dependence of deuterium retention in tungsten deposits by deuterium ion irradiation”, Journal of Nuclear Materials 463 (2015) 1033-1036. 査読有.
[dx.doi.org/10.1016/j.jnucmat.2014.11.103](https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2014.11.103).
 ⑦S. Yoshimura, R. Yoshimura, M. Okada, S. Fukada, Y. Edao, “Study on hydrogen isotopes permeation in the fluidized state of liquid

lithium-lead”, Fusion Science and Technology, 67 (2015) 658-661. 査読有
dx.doi.org/10.13182/FST14-T104.

⑧ S. Fukada, A. Nakamura, “Estimation of melting points of mixed fluoride molten salts, flinabe”, Fusion Science and Technology, 66 (2014) 322-336. 査読有 dx.doi.org/10.13182/FST13-694.

⑨ K. Katayama, Y. Ohnishi, T. Honda, K. Uehara, S. Fukada, M. Nishikawa, N. Ashikawa, T. Uda, “Hydrogen incorporation into metal deposits forming from tungsten or stainless steel by sputtering under hydrogen and argon mixed plasma at elevated temperature”, Journal of Nuclear Materials, 438 (2013) S1010-1013. 査読有
dx.doi.org/10.1016/j.jnucmat.2013.01.220.

⑩ S. Fukada, T. Hiromoto, S. Shigeharu, K. Sugie, Y. Edao, “Trapping of deuterium dissolved in fluidized Li by Y”, Fusion Engineering and Design, 89 (2014) 1346-1350. 査読有
dx.doi.org/10.1016/j.fusengdes.2014.02.030.

[学会発表] (計 5 件)

① S. Fukada, K. Esaki, K. Hiyane, K. Katayama, E. Wakai, Y. Ito, “Removal of hydrogen isotopes from liquid Li flow of IFMIF”, 7th IFMIF workshop, May 20, 2015, Brasimone (Italy).

② K. Katayama, N. Ashikawaa, K. Uehara, S. Fukada, “Carbon and hydrogen accumulation on exhaust duct in LHD”, 24th International Toki Conference, November 4, 2014, Ceratopia Toki (Gifu).

③ K. Esaki, K. Hiyane, S. Fukada, F. Nitti, E. Wakai, Y. Ito, JAEA IFMIF group, “Study on control of non-metallic impurities in liquid lithium”, 12th Japan-China Symposium on Materials for Advanced Energy Systems and Fission & Fusion Engineering, September 17, 2014, Shizuoka Univ. (Shizuoka).

④ S. Fukada, T. Muneoka, R. Yoshimura, K. Katayama, Y. Edao, T. Hayashi, “Recovery of Hydrogen Isotopes by Liquid-Gas Contactor from Li₁₇Pb₈₃ Blanket”, 12th Japan-China Symposium on Materials for Advanced Energy Systems and Fission & Fusion Engineering, September 17, 2014, Shizuoka Univ. (Shizuoka).

⑤ R. Yoshimura, S. Fukada, T. Muneoka, M. Kinjo, K. Katayama, “Study on hydrogen isotope behavior in Pb-Li forced convection flow with permeable wall”, Asia Pacific Symposium of Tritium Science, November 1, 2015, Mianyang (China).

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：

出願年月日：
国内外の別：

○取得状況 (計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

[その他]
ホームページ等

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：5 0 1 1 7 2 3 0

(2) 研究分担者

片山一成 (KATAYAMA Kazunari)
九州大学・大学院総合理工学研究院・准教授
研究者番号：9 0 3 8 0 7 0 8

(3) 連携研究者

枝尾祐希 (EDA O Yuki)
日本原子力研究開発機構・核融合研究開発部門・研究員
研究者番号：7 0 6 3 3 8 5 8