



解説

固体トリチウム増殖材料研究開発の最先端
—ソリッドなブランケットをめざして—

Cutting Edge of R&D in Solid Tritium Breeder Materials
—Toward the “Solid” Blankets—

星野 毅¹⁾, 向井啓祐^{2,3)}, KOLB Matthias H.H.²⁾, KNITTER Regina²⁾
HOSHINO Tsuyoshi¹⁾, MUKAI Keisuke^{2,3)}, KOLB Matthias H.H.²⁾ and KNITTER Regina²⁾

¹⁾量子科学技術研究開発機構, ²⁾カールスルーエ工科大学, ³⁾日本学術振興会海外特別研究員

(原稿受付: 2016年11月13日)

国際熱核融合実験炉 (ITER) に関連して、日本と欧州で核融合エネルギー開発の早期実現をはかることを目的として行う研究開発である幅広いアプローチ (BA) 活動の一環として、先進トリチウム増殖材料 (リチウム含有セラミックス) の製造技術開発及び特性評価を行っている。日本はリチウム添加型チタン酸リチウム ($\text{Li}_{2+x}\text{TiO}_{3+y}$)、欧州はケイ酸リチウム及びチタン酸リチウムの二相混合物 ($\text{Li}_4\text{SiO}_4+\text{Li}_2\text{TiO}_3$) を第一候補材料として研究開発を開始し、本稿ではその最新の成果について報告する。

Keywords:

broader approach (BA), advanced tritium breeder, $\text{Li}_{2+x}\text{TiO}_{3+y}$ with Li_2ZrO_3 (LTZO), two-phase materials consisting of Li_4SiO_4 and Li_2TiO_3 , pebble fabrication technique, emulsion method, melt-based processing

1. はじめに

1.1 トリチウム増殖材料

核融合炉用燃料のトリチウムは、自然界にほとんど存在しないため、天然リチウム (Li) 中に約 7.8% しか存在しないリチウム 6 (${}^6\text{Li}$) を含むセラミックスの微小球に中性子をあてて、人工的に製造 (増殖) する必要がある (図 1)。

このトリチウム増殖材料は、固体もしくは液体状態の Li 含有材料を用いる。固体材料は液体材料より取り扱いが容易のため、国際熱核融合実験炉 (ITER) では、まず固体トリチウム増殖材料に関する特性評価を行う計画である。

固体トリチウム増殖材料としては、様々なリチウム含有セラミックスが検討されている。例えば、トリチウム放出特性等が優れているチタン酸リチウム (Li_2TiO_3) が日本の候補材料 [1, 2] であり、リチウム原子密度が高い特徴を有するケイ酸リチウム (Li_4SiO_4) が欧州の候補材料 [3, 4] である。他極の動向としては、中国及び韓国は Li_4SiO_4 、イン

ドはリチウム鉛 (Pb-16Li) と Li_2TiO_3 を候補材としている [5]。しかしながら、これらの極は日欧両者の候補材料の開発も行っており、今後の開発状況により、候補材料が変わることが予想される。

さて、これらのトリチウム増殖材料は、核融合炉のプラズマの周りを覆う、ブランケットと呼ばれる箱の中に装荷され、トリチウム燃料製造を行う (図 2)。ブランケット内には多くのトリチウム増殖材料を装荷したいが、生成したトリチウムを水素添加したヘリウムガスで回収するため、粉末状では充填できない。そこで、直径 1 mm 程度の微小球状態にて、ブランケット内に装荷する。また、トリチウム増殖材料と中性子の核反応は発熱反応であり、この熱は発電に大きく寄与する。その除熱方法は、日本では水冷却、欧州、中国及び韓国ではガス冷却のブランケットが検討されている。

1.2 先進トリチウム増殖材料

代表的な従来材としては、酸化リチウム (Li_2O) が挙げられる。 Li_2O は固体トリチウム増殖材料の中では最大の Li 原子密度を有し、核融合炉におけるトリチウム増殖比を考慮した場合、最も優れた材料である [6]。しかしながら、 Li_2O は高い Li 蒸気圧や、化学的不安定 (水や CO_2 ガスと容易に反応する) 等、核融合炉使用環境下における課題も有する。

これらの課題解決のため、トリチウム増殖比は Li_2O より

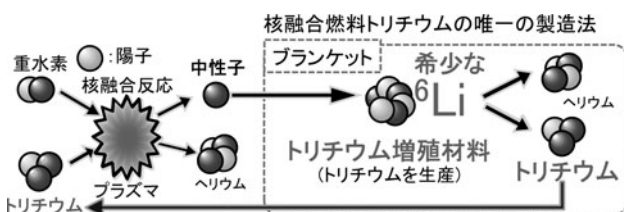


図 1 核融合燃料製造に必要なトリチウム増殖材料。

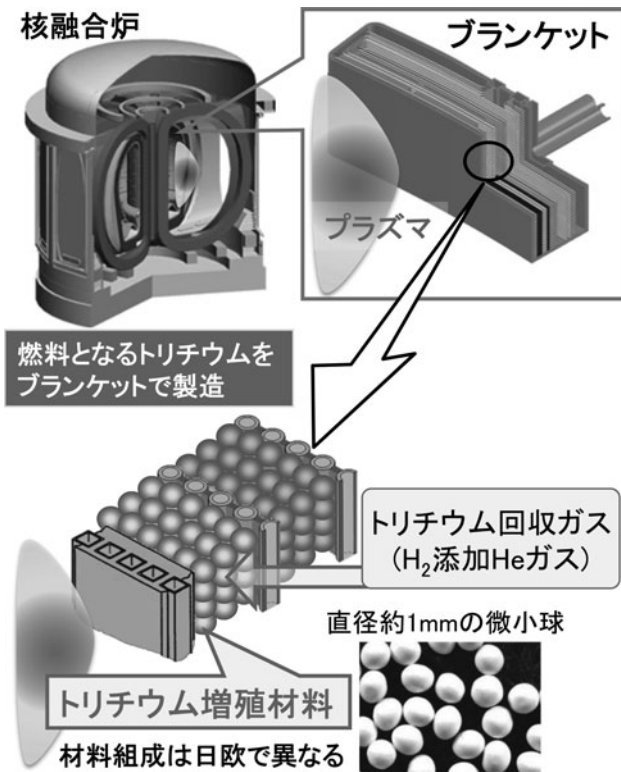


図2 核融合ブランケットとトリチウム増殖材料微小球。

劣るものの、化学的安定性に優れた材料開発が行われた。特に、日欧における固体トリチウム増殖材料開発の歴史は長く、日本は Li_2TiO_3 、欧州は Li_4SiO_4 を主とした開発を行い、現在の ITER テストブランケットモジュールの第一候補材料として期待されている。

但し、ITER は400秒のパルス運転に対し、核融合原型炉は高温（最大900℃）・長時間（2年程度）連続運転と、より過酷な条件に耐える材料が必要である。そこで、日欧は幅広いアプローチ（BA）活動の一環として、新たな固体トリチウム増殖材料（先進トリチウム増殖材料）の開発に着手した。

本稿では、日欧における先進トリチウム増殖材料の、最新の研究成果について説明する。

2. 日本における先進トリチウム増殖材料

2.1 Li 添加型 Li_2TiO_3

Li_2TiO_3 は、日本の ITER テストブランケットモジュールにおける、トリチウム増殖材料の第一候補材料である。本材料は、トリチウムを回収するために必要な水素を含むヘリウム雰囲気中、中性子照射環境下にて高温・長時間保持されることで、Li の蒸発及び Li の核的燃焼（トリチウムへの変換）により、トリチウム増殖材料中の Li が損失する。加えて、Ti の水素還元による酸素欠損も生じ、 Li_2TiO_3 、 $\text{Li}_4\text{Ti}_5\text{O}_{12}$ 及び LiTiO_2 の三相混合物に変化することによる、材料の化学的安定性や、トリチウム放出特性等への悪影響が懸念されていた（図3）[7]。

そこで、Li 損失に伴う材料特性劣化を低減するため、 Li_2TiO_3 に予め Li を多く添加することを考案し、かつ、その Li 添加型 Li_2TiO_3 について、微小球の造粒技術開発に着手

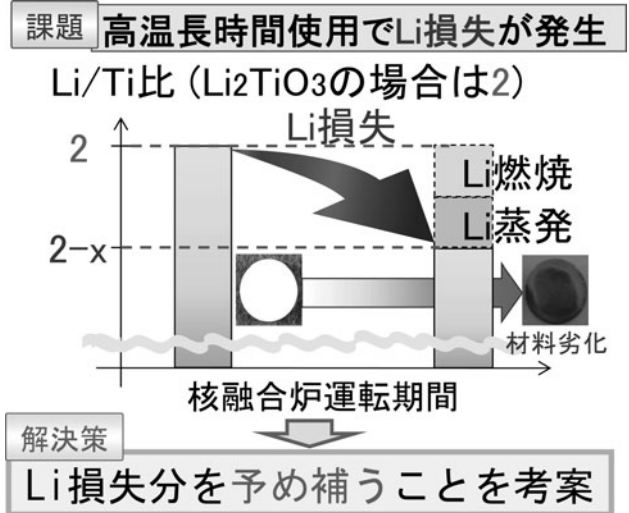


図3 Li_2TiO_3 の課題と解決策。

した。

2.2 新材料合成法

まず Li 添加型 Li_2TiO_3 の原料粉末の合成法の探索を行った。従来の Li_2TiO_3 では、炭酸リチウム (Li_2CO_3) と二酸化チタン (TiO_2) を始発原料とする固相法が用いられたが、本合成法で Li 添加を試みた場合、未反応の炭酸リチウムが残るため、Li 添加型 Li_2TiO_3 を合成できなかった。

そこで、始発原料や合成手法の選定など、一からプロセスを見直し、試行錯誤の結果、全く新たな合成手法を提案した。本法は、水酸化リチウム一水和物 ($\text{LiOH} \cdot \text{H}_2\text{O}$) とメタチタン酸 (H_2TiO_3) を数日間混合させることにより、常温にて始発原料同士の固相反応が進行し、ゲル状とするものであり、目的とする Li 添加型 Li_2TiO_3 ($\text{Li}_{2+x}\text{TiO}_{3+y}$ 単一相) の原料粉末の合成技術を確認することに成功した[8]。

2.3 微小球大量製造法（エマルジョン法）の技術開発

次に、微小球製造技術開発として、従来材である Li_2TiO_3 微小球製造法のゾルゲル法を試みた。しかしながら、本造粒法では、原料調整時における添加 Li の減損、トリチウム放出特性に悪影響を及ぼす結晶粒径の肥大化が生じることを明らかにした[9]。

そこで、これらの課題解決のため、新たな微小球製造法として様々な造粒法を試行した結果、ミクロンサイズ微粒子の大量製造法の一つであるエマルジョン法に着目し、造粒条件の最適化によりミリサイズの微小球製造に成功した[10, 11]。

本法は、シリンジ（注射器）の一方に油を、もう一方には原料となるスラリー（Li 添加型 Li_2TiO_3 原料粉末を含む液体）を充填する。そして、スラリーの流速を油より遅くすることで、T 字型流路でスラリーを油により球状にせん断した後、スラリー球を焼結処理し、微小球を得る手法である（図4）。スラリー粘度、流路径、流速などをパラメータに、造粒条件の探索試験を行った結果、目標とする直径約1mmで、造粒前後での Li/Ti 比もほとんど変化しない試作球を得ることに成功した。

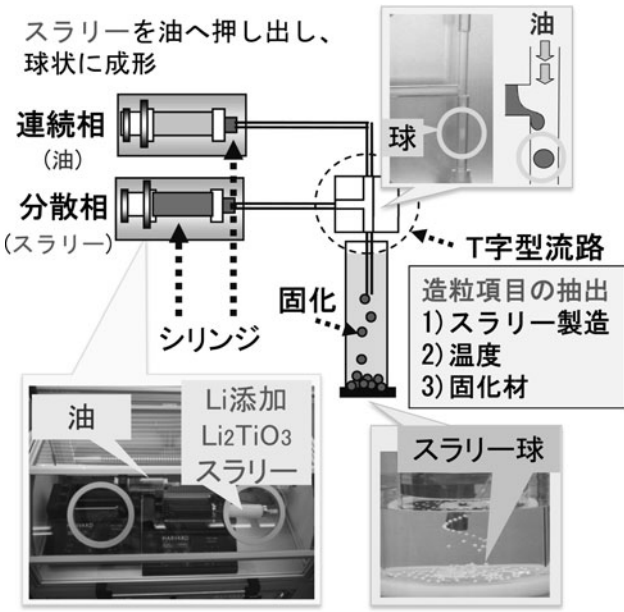


図4 新たな微小球大量製造技術・エマルジョン法 (参考文献[11]の図1を引用).

トリチウムを放出しやすくするため、結晶粒径は5µm以下を目標値として設定したが(結晶粒内から拡散するトリチウムの速度は、結晶粒界や微小球表面におけるトリチウムの拡散速度より遅いと考えられるため)、この試作球をSEM観察したところ、粒径は10µm以上であった。そこで、結晶粒径が大きくなる原因を調べた結果、エマルジョン法では、スライム状のスラリー球を加熱してセラミックス球にする際、スラリー球の液体成分から発生する炭酸ガスが作用して結晶粒径が大きくなることを明らかにした。

次のステップとして、加熱時に発生する炭酸ガスを効率的に除去できるよう、様々な加熱雰囲気を探査した。その結果、真空及び水素雰囲気中にて、スラリー球を入れたアルミナ製の蓋をしない条件における加熱処理が最適であり、目標とする粒径が5µm以下の小さな結晶粒が集まった改良球の製造に成功した(図5)[12]。

エマルジョン法は、様々な直径の微小球製造が容易で、真球度が高く、結晶粒径が均一などの優れた特徴を有している。核融合原型炉の早期実現に向け、Li添加型Li₂TiO₃微小球の大量製造技術を確立したことは、日本のブランケット設計の優位性を提示でき、かつ、他のITER加盟国を含めた全世界に対し、核融合発電炉の実現に向けた大きな期待と将来性を示すことができるものである。

海外からの注目も高く、本研究の成果は、第11回核融合炉技術に関する国際会議 (ISFNT-11)・Miya-Abdou Fusion Nuclear Technology Awardを受賞し、国内だけでなく、海外からの高い評価も得た。

2.4 トリチウム放出特性

これらの試作球と改良球を用いて、結晶粒径がトリチウム放出特性に与える影響を評価するため、核融合中性子源施設(FNS)にて、450℃で5時間の条件下で中性子照射試験を行った(図6)。微小球約70gを充填した容器に、核融合炉のプラズマから発生するものと同じDT中性子を照射

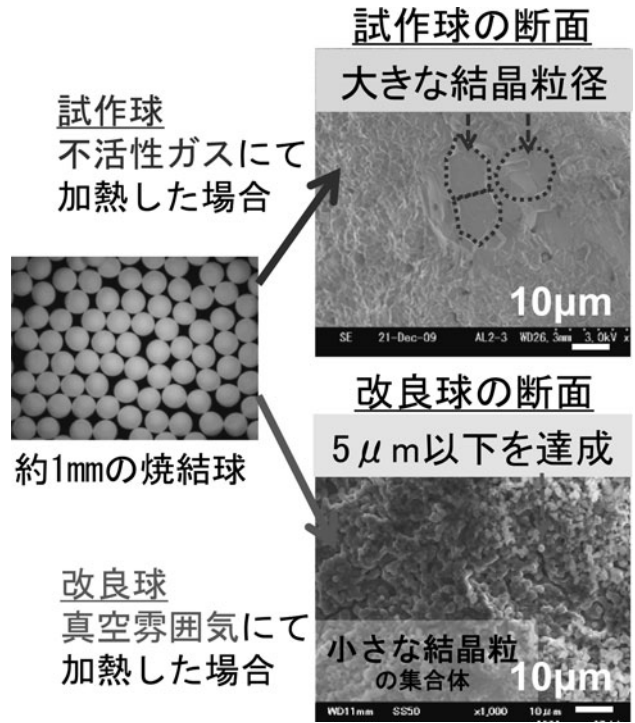


図5 焼結雰囲気の違いによる微小球の結晶粒径の改善 (参考文献[12]の図2を引用).

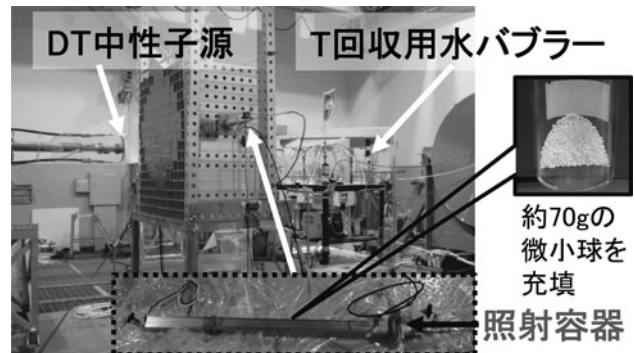


図6 核融合中性子源施設(FNS)でのトリチウム放出特性評価 (参考文献[13]の図2及び図3を引用).

し、トリチウムを生成する試験である[13]。

トリチウムを回収するガスとして、1%水素添加ヘリウムの混合ガスを、照射容器内の微小球充填部に通気した。回収されたトリチウムの化学形としては、HTガス成分とHTO水成分の2種類が存在する。そこで、HTO水成分は1番目の水バブラーにより回収し、残ったHTガス成分は水バブラーでは回収不可能なため、酸化触媒にてHTガスをHTOに酸化した後、2番目の水バブラーにて回収した。回収したトリチウム量は、液体シンチレーションカウンターにより測定し、トリチウム放出特性を評価した。

図7にHTとHTOガスの和(生成トリチウム量)の時間依存性を示す。試作球は結晶粒径が大きいため、製造したトリチウムが結晶粒内から微小球表面へ移動する速度が極めて遅く、照射5時間後もトリチウム放出が続く状態であった。一方、改良球のトリチウム放出速度は試作球よりも早く、製造したトリチウムのほぼ全量が放出できること

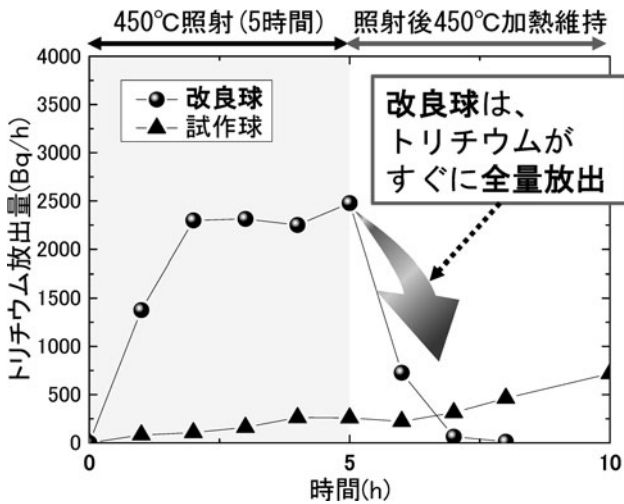


図7 Li添加型Li₂TiO₃のトリチウム放出特性評価(参考文献[13]の図4及び図5を引用)。

を明らかにし、トリチウムの生産性に優れた先進トリチウム増殖材料の微小球製造に成功した。

2.4 スーパー先進トリチウム増殖材料

高温長時間使用時においても化学的安定性に優れたLi添加型Li₂TiO₃ (Li/Ti>2.0)は、焼成時に添加したLiが大気中のCO₂と反応し、トリチウム放出特性に影響を与える10 μm以上の大きな結晶粒を有する微小球となるため、簡易な大気中での製造が不可能であり、複雑な真空及び水素雰囲気中における焼成が必要であった。

そこで、高いLi原子密度を維持しつつ、大気中でも目標とする5 μm以下の結晶粒径を有する新たな先進トリチウム増殖材料微小球開発として、Li添加型Li₂TiO₃にLi₂ZrO₃を混合した微小球製造を、エマルジョン法にて試みた。

製作したLi添加型Li₂TiO₃ (Li₂ZrO₃混合なし)及びLi添加型Li₂TiO₃に20wt%Li₂ZrO₃を混合したLTZO20微小球表面の走査電子顕微鏡観察結果とエックス線回折測定結果

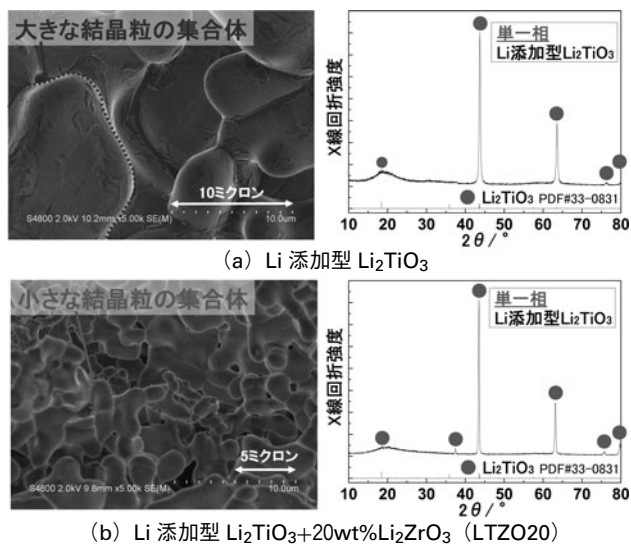


図8 Li添加型Li₂TiO₃及びLi添加型Li₂TiO₃+20wt%Li₂ZrO₃ (LTZO20)微小球表面の走査電子顕微鏡観察結果(左)とエックス線回折測定結果(右)(参考文献[14]の図4を引用)。

を図8に示す。Li添加型Li₂TiO₃の場合は、10 μm以上の大きな結晶粒を有する微小球であるのに対し、20wt%Li₂ZrO₃を混合することで、大気焼成においても、トリチウム放出特性に優れている5 μm以下の結晶粒を有する微小球製造に成功した[14]。

また、エックス線回折測定では、20wt%Li₂ZrO₃を混合したにもかかわらず、LTZO20微小球中にLi₂ZrO₃は観察されず、Li添加型Li₂TiO₃と同一の単一相を示した。これは、Li₂ZrO₃がLi添加型Li₂TiO₃に固溶した特殊な状態(固溶体)であることを示している。

更に、この新たなLTZO20微小球にDT中性子を照射し、トリチウムの放出特性を評価した。トリチウム増殖材料の使用温度範囲(300~900°C)にて、中性子を5時間照射する試験を行い、トリチウム放出特性を評価した結果、主に、核融合燃料として取り扱いが容易なガス(HT)として放出されることがわかった(図9)。

一方、処理プロセスが複雑となる(HT)水成分は最大約1%と、従来のLi₂TiO₃の場合(600°C測定にて約30%)と比較して極めて少量であるとともに、微小球中の残留トリチウム量は、高温になるほど少なくなり、トリチウム放出特性に優れていることを明らかにした。

Li添加型Li₂TiO₃にLi₂ZrO₃を添加したLTZO微小球は、特殊な固溶体状態であり、より多くのLi添加の可能性を有

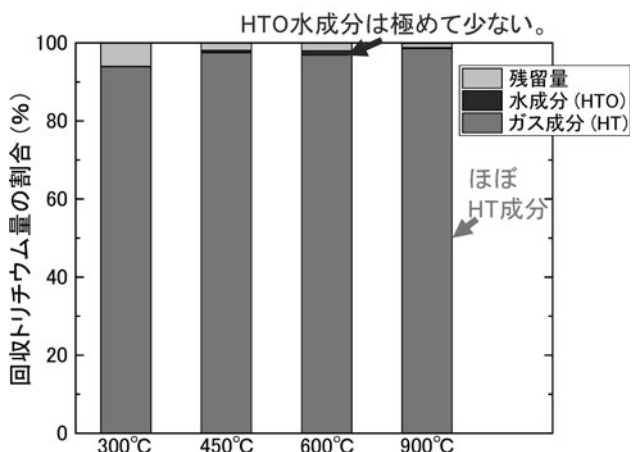


図9 LTZO20固溶体微小球のトリチウム放出量の温度依存性。

する、スーパー先進トリチウム増殖材料としての開発に、見通しを得た。

3. 欧州における先進トリチウム増殖材料

3.1 溶融方式による微小球の製造

欧州の固体トリチウム増殖材料の微小球製造を担当するカールスルーエ工科大(KIT)では、微小球製造法として、高温溶融方式を採用している。従来方式と新方式の概念図を図10に示す。本法では、貴金属るつぼ(①)内で始発原料を高温溶融(②)し、落下過程の急冷却によって微小球を製造する。るつぼ内で使用済み微小球を直接溶融し、再製造することができるため、化学分離過程を必要としない簡便なりサイクル法も兼ねた微小球製造法である。従来方式では、原料を溶融させた後に溶融した増殖材料を流し出し、空気の噴射(③)によって微小球を冷却・成形していた。しかしながら、本手法では微小球製造条件の調節パラメータが少なく、微小球の高密度化やサイズ制御が困難であった。

そこで新方式では、貴金属るつぼの出口にピンホールノズルを取り付け、るつぼ上部のガス入り口(④)のガス圧によって流出速度を調節できるように変更した。その結果、出口ノズル径(⑤)と流速の最適化により、微小球サイズの制御に成功した。また、冷却過程の制御により、旧方式と比較して気孔率や欠陥が小さく、高密度なペブルを製造することも可能となった。

3.2 二相混合 (Li₄SiO₄-Li₂TiO₃) 増殖材の開発

これまでの欧州における固体トリチウム増殖材料は、Li₄SiO₄に2.5 wt%の酸化ケイ素(SiO₂)を添加した組成を始発原料とし、微量のLi₂SiO₃を含むLi₄SiO₄が製造されていた。本材料は低放射化特性や、Li₂TiO₃と比較して高いリチ

ウム密度を有することが利点として挙げられる。一方で、増殖材微小球の圧壊強度が小さく、核融合炉ブランケット内部の熱膨張や照射に伴う劣化によって粉砕することが懸念されていた。

現在、増殖材微小球の圧壊強度の向上を目的に、Li₄SiO₄にLi₂TiO₃を添加した二相混合組成の材料開発が進められている[15]。図11にLi₂TiO₃を20 mol%添加した二相混合組成微小球の写真と走査型顕微鏡(SEM)観察図を示す。エネルギー分散型X線分析(EDX)によるTiとSiの分布から、これらの二相は分離し、Li₄SiO₄結晶粒の周辺に細かなLi₂TiO₃粒が分布していることが確認された。また、Li₂TiO₃の添加量と微小球の圧壊強度の関係を図12に示す。Li₂TiO₃添加の結果、従来材と比較して20 mol%添加で1.5倍、30 mol%添加で1.5~3倍程度、微小球の圧壊強度の

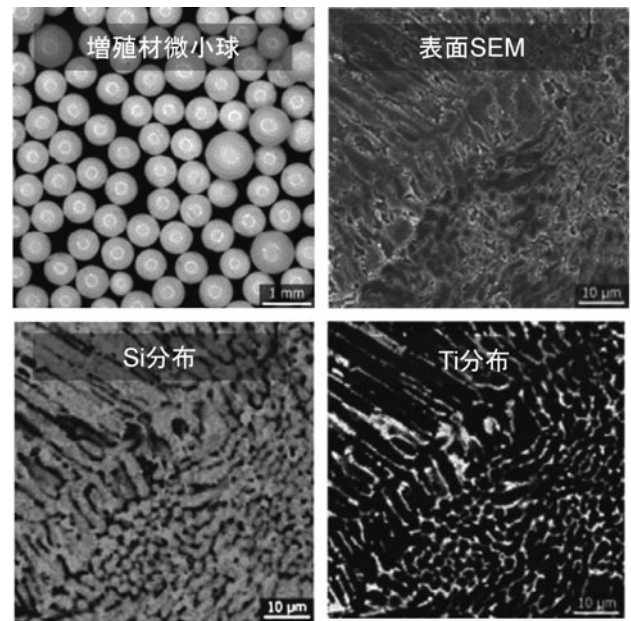


図11 二相混合組成微小球の写真(左上)、走査電子顕微鏡による表面観察(右上)と元素分布結果(下)(参考文献[14]の図1と図3を引用)。

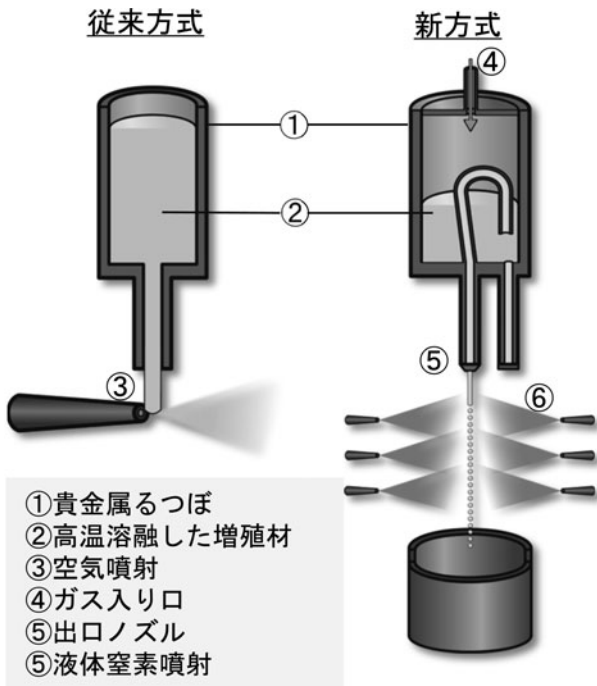


図10 新旧溶融方式による微小球の製造(参考文献[4]の図1を引用)。

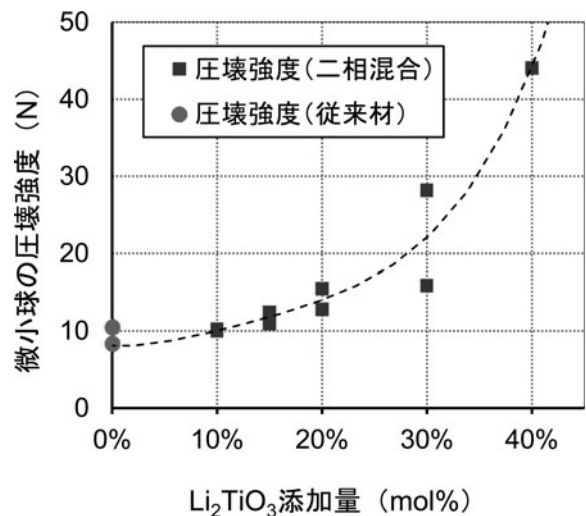


図12 二相混合 (Li₄SiO₄+Li₂TiO₃) 微小球の圧壊強度変化(参考文献[4]の表1を引用)。

向上に成功した。また二相混合微小球に長時間熱処理(950°C, 3週間)を施した場合でも緻密な微細構造を維持していたことから、第二相のLi₂TiO₃は、高温で生じる結晶粒成長を制御する効果があると考えられる。トリチウムの粒内拡散は放出における律速過程の一つと言われているため、本先進トリチウム増殖材料では、高温条件下でも急激な粒成長を生じず、ブランケット内で安定的にトリチウムを放出することが期待される。

3.3 多重再製造試験 (Multiple fabrication test)

使用済微小球のリサイクル技術の確立に向け、二相混合微小球を熔融後に再度微小球を製造する繰り返し試験である、多重再製造試験 (Multiple fabrication test) により、複数回の再製造が微小球の機械的特性や化学組成に与える影響を調べた[16]。本試験では、微小球の再製造を5回繰り返し行い、微小球の圧壊強度と不純物量を調べた。

図13と図14に再製造に伴う圧壊強度と不純物量の変化を示す(注:再製造0回は初期製造ペブルを意味する)。再製造による圧壊強度には、大きな影響は生じなかった。また、不純物量に関しては、Fe等の原材料由来の不純物量は

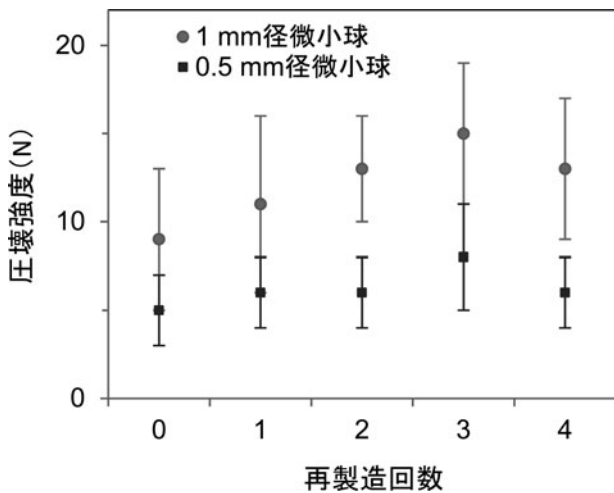


図13 二相混合微小球の多重製造試験に伴う圧壊強度変化(参考文献[15]の図3を引用)。

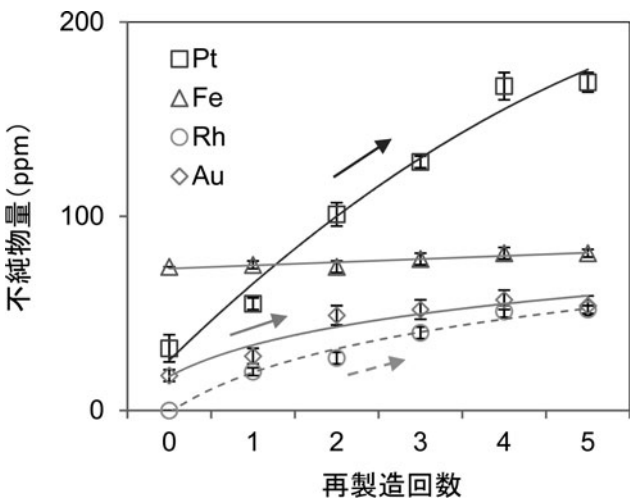


図14 二相混合微小球の多重製造試験に伴う不純物量変化(参考文献[15]の図2を引用)。

リサイクル回数に応じて変化せず、長期放射性核種を生じる不純物 (CoやAl等)も初期濃度から大きく変化しなかった。一方で、Pt, Rh, Auは再製造回数に応じて不純物量が増加した。これは、高温熱処理の際、貴金属のつぼの構成成分が熔融した増殖材料に溶け出したことが原因と考えられる。これら貴金属不純物は、微小球のマクロな特性にはほとんど影響しないが、放射化特性、すなわち遠隔操作レベルまでの保管期間に影響する可能性を明らかにした。

3.4 リサイクル指針の確立に向けた放射化計算

多重再製造試験の結果に基づき、放射化計算コードを用いて不純物の増加がリサイクル特性に与える影響を評価した。まず、連続エネルギー中性子計算コード (Monte Carlo N-particle Transport Code, MCNP) を使い、ヘリウム冷却固体増殖方式の原型炉固体ブランケットに照射される中性子束を計算した[17]。本計算では核融合炉全体から生じる二相混合増殖材の平均的な放射化特性を評価するために、各ブランケットの平均中性子束を加重平均し、炉全体の平均中性子束を算出した。次に、“微小球製造→3年間の原型炉使用→遠隔操作可能レベル (10 mSv/h) まで保管→微小球製造”を15回繰り返す計算ループを構築し、リサイクルに伴う放射化特性の変化を調べた。ここで、微小球の線量率 (contact dose rate) は、放射化計算コード FISPACTによって計算した。本ループでは多重再製造試験の不純物量分析結果に基づき、再製造時には微量の貴金属不純物が添加されるように設定した。また、本過程では、るつぼ内で燃焼したリチウム量を補填することも想定し、増殖材のリチウム量を初期製造時の濃度に戻した。

初期製造微小球と複数回リサイクルされた微小球の線量率の経時変化を図15に示す。支配核種は原材料由来の⁶⁰Co及び²⁶Al、そして貴金属るつぼ由来の¹⁹³Ptと¹⁰²Rhであった。使用済トリチウム増殖材微小球は20年前後の保管期間の後、遠隔レベル (10 mSv/h) に到達した。Li₂TiO₃の添加に起因して⁴⁶Sc (半減期 5.1年)が生成するが、この核種が

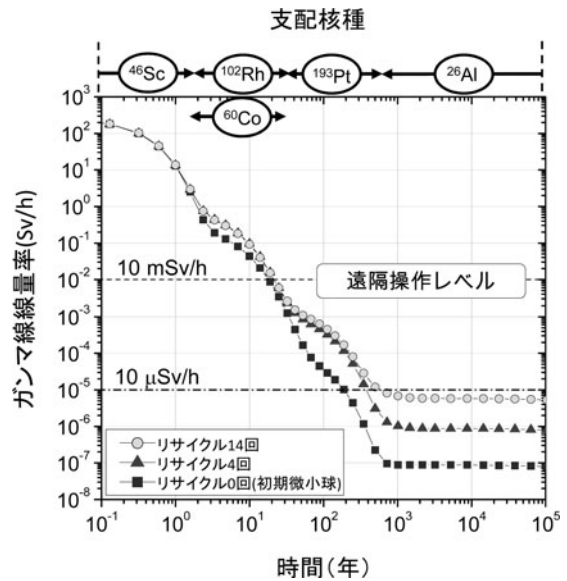


図15 増殖材微小球のリサイクルに伴う放射化特性の変化(参考文献[16]の図6を引用)。

保管期間に与える影響は限定的であった。更に増殖材微小球の保管期間を短縮するためには、純度の高い原料（特に低Co含有原料）を使用すること、貴金属るつば由来のRh添加を低減すること等が重要である。仮にるつば由来のRh添加量を最小化できれば、最大約6年の保管期間短縮が可能となる。

4. BA活動における日欧の協力研究

4.1 エマルジョン法による欧州先進材の微小球製造

欧州にて開発中の先進トリチウム増殖材材料は、 Li_4SiO_4 に Li_2TiO_3 を混合した材料である。 Li_2TiO_3 の添加量を増やすことで、従来材の Li_4SiO_4 の課題である微小球の圧壊強度を、飛躍的に向上させることに成功した。

しかしながら、欧州における微小球製造法は、始発原料として用いる Li_4SiO_4 及び Li_2TiO_3 粉末を最初に溶融させる手法であり、 Li_2TiO_3 の混合量の増加に伴い融点が増加するため、その混合量は 40 mol% に制限される。

一方、日本における微小球製造法であるエマルジョン法は、始発原料粉末を溶融させるプロセスは無いため、 Li_4SiO_4 に、より多くの Li_2TiO_3 を混合できると考えた。そこで、BA活動における日欧の協力研究として、エマルジョン法による $\text{Li}_4\text{SiO}_4 + \text{Li}_2\text{TiO}_3$ 混合微小球製造に着手した。

まず、 $\text{Li}_4\text{SiO}_4 + \text{Li}_2\text{TiO}_3$ 混合粉末を用いて、図4のエマルジョン法に必要なスラリーの準備を試みたが、 Li_4SiO_4 はスラリーに含まれる水への溶解性が高く、微小球製造に最適な粘性を有するスラリー製造が困難であった。

そこで、始発原料粉末としては、水への溶解度が低い Li_2SiO_3 ($\text{Li}/\text{Si}=2$) 及び Li_2TiO_3 を基材とし、 Li_4SiO_4 ($\text{Li}/\text{Si}=4$) に不足分のLi量は、 Li_2CO_2 を更に混合した、 Li_2SiO_3 、 Li_2TiO_3 及び Li_2CO_2 の三相混合スラリーを用い、微小球製造を行った[18-19]。

エマルジョン法による微小球製造後のXRD結果を図16に示す。スラリー球を焼結した結果、微量の Li_2SiO_3 を含むものの、目的とする $\text{Li}_4\text{SiO}_4 + \text{Li}_2\text{TiO}_3$ 混合微小球の製造に成功した。本結果は、スラリー球の焼結プロセスにおいて、 Li_2SiO_3 と Li_2CO_2 が反応することにより、 Li_4SiO_4 が得られることを示唆している。

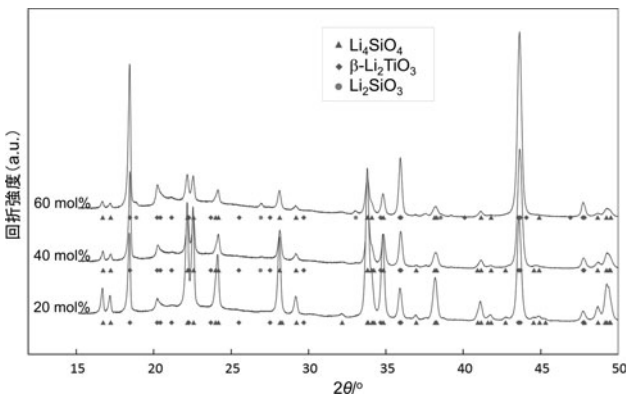


図16 エマルジョン法にて製造した $\text{Li}_4\text{SiO}_4 + \text{Li}_2\text{TiO}_3$ 混合微小球のXRD測定結果（参考文献[18]の図5を引用）。

4.2 特性評価（圧壊強度、長時間加熱試験）

微小球製造法としてエマルジョン法を選択した結果、 Li_2TiO_3 の混合量を 90 mol% まで高めることが可能となった。得られた $\text{Li}_4\text{SiO}_4 + \text{Li}_2\text{TiO}_3$ 混合微小球の圧壊強度の Li_2TiO_3 混合量依存性を図17に示す。 Li_2TiO_3 混合量の増加とともに圧壊強度は向上し、最大で約 65 N (90 mol% Li_2TiO_3 混合時) と、KITの溶融方式による微小球製造時の圧壊強度をはるかに凌駕する、高い値が得られた。

また、本微小球を用い、管状炉にて長時間加熱試験を行った。加熱温度は原型炉ブランケットの最大使用温度として検討されている 900°C 、雰囲気はトリチウムのバージガスである 0.1% 水素を添加したヘリウムガス雰囲気による試験とした。一例として、 Li_2TiO_3 混合量 30 mol% の場合における結果を図18に示す。最大128日間の加熱試験を行ったが、走査電子顕微鏡における微小球の微細構造観察では大きな変化はみられなかった。更に、他の Li_2TiO_3 混合

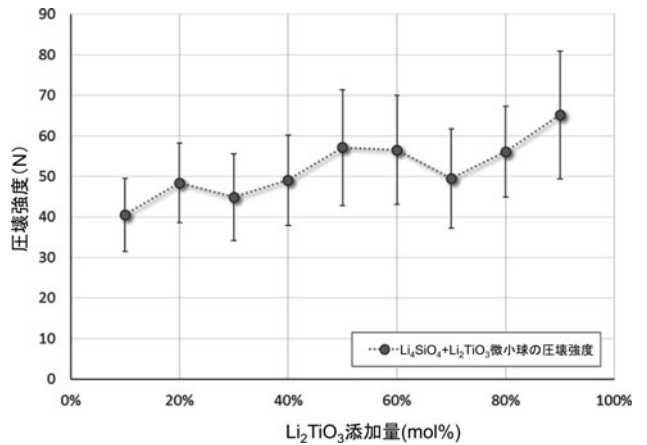


図17 エマルジョン法 $\text{Li}_4\text{SiO}_4 + \text{Li}_2\text{TiO}_3$ 混合微小球の圧壊強度（参考文献[19]の図10を引用）。

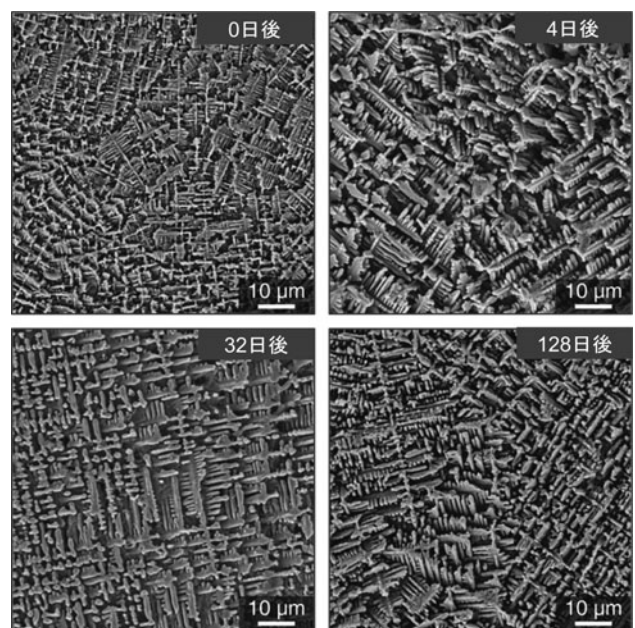


図18 エマルジョン法 $\text{Li}_4\text{SiO}_4 + \text{Li}_2\text{TiO}_3$ 混合微小球の長時間加熱試験。

量に関しても、同様の結果が得られた。

これらの結果より、日本の微小球製造法であるエマルジョン法を用いることで、 Li_4SiO_4 に溶融法より多くの Li_2TiO_3 を混合できるとともに、得られた微小球は高圧壊強度及び化学的安定性を有しており、新たな先進トリチウム増殖材料の微小球製造に見通しを得た。

5. 固体トリチウム増殖材料開発の展望

日本は、Li添加型 Li_2TiO_3 に20wt% Li_2ZrO_3 を混合した、更なるLi原子密度を有する（トリチウム増殖比TBRの向上が期待できる）スーパー先進トリチウム増殖材料の開発に成功した。同時に、EUは、 Li_4SiO_4 に Li_2TiO_3 を混合した微小球を開発し、 Li_4SiO_4 微小球で懸念されていた圧壊強度の向上に成功し、新たなトリチウム増殖材料の開発指針を得た。

これらの研究成果は、核融合原型炉使用環境下においても、従来材より化学的安定性の高い先進トリチウム増殖材料を開発することを目標とした、約10年間におけるBA活動の集大成であり、固体トリチウム増殖材料の特性は、飛躍的な進展を遂げた。

いよいよ、国際熱核融合実験炉（ITER）にて、固体トリチウム増殖材料をテストブランケットモジュール（TBM）に充填し、評価するフェーズが迫ってきた。同時に、核融合炉原型炉の設計検討も開始し、TBR1.05以上をめざした核融合炉原型炉を見通すための、オールジャパンの取り組みも行われている。

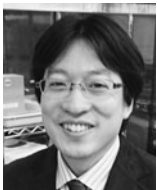
この先、実験室レベルでの研究開発から、ブランケットにおける実規模での材料評価へとシフトする。その際、微

小球の大量製造、充填体の熱機械特性、過酷な中性子照射環境等において、材料健全性を維持するための新たな課題が生じる可能性もある。

しかしながら、この新たな課題が生じた場合でも、固体トリチウム増殖材料の研究開発を継続するとともに、ブランケットや原型炉設計と材料開発の連携をより強化することで、ITER-TBM計画や原型炉設計を成功に導き、核融合炉実現に貢献できると確信している。

参考文献

- [1] N. Roux *et al.*, J. Nucl. Mater. **233-237**, 1431 (1996).
- [2] N. Roux *et al.*, Fusion Eng. Des. **41**, 31 (1998).
- [3] R. Knitter and B. Löbbecke, J. Nucl. Mater. **361**, 104 (2007).
- [4] M.H.H. Kolb *et al.*, Fusion Eng. Des. **86**, 2148 (2011).
- [5] L.M. Giancarli *et al.*, Fusion Eng. Des. **109-111**, 1491 (2016).
- [6] K. Tsuchiya *et al.*, J. Nucl. Mater. **253**, 196 (1998).
- [7] T. Hoshino *et al.*, Fusion Eng. Des. **61-62**, 353 (2002).
- [8] T. Hoshino *et al.*, J. Nucl. Mater. **417**, 684 (2011).
- [9] T. Hoshino *et al.*, Fusion Eng. Des. **86**, 2172 (2011).
- [10] T. Hoshino and M. Nakamichi, Fusion Eng. Des. **87**, 486 (2012).
- [11] T. Hoshino *et al.*, Fusion Eng. Des. **109-111**, 1114 (2016).
- [12] T. Hoshino, Fusion Eng. Des. **98-99**, 1788 (2015).
- [13] T. Hoshino *et al.*, Fusion Eng. Des. **109-111**, 1114 (2016).
- [14] T. Hoshino, Nucl. Mater. Energ. **9**, 221 (2016).
- [15] R. Knitter *et al.*, J. Nucl. Mater. **442**, S433 (2013).
- [16] O. Leys *et al.*, Fusion Eng. Des. **107**, 70 (2016).
- [17] K. Mukai *et al.*, Fusion Eng. Des. **100**, 565 (2015).
- [18] M.H.H. Kolb *et al.*, Fusion Eng. Des. **115**, 39 (2017).
- [19] M.H.H. Kolb *et al.*, Fusion Eng. Des. **115**, 6 (2017).



ほし の つよし
星野 毅

東京大学大学院工学系研究科博士課程を修了し、現在は量子科学技術研究開発機構・六ヶ所核融合研究所に所属。上席研究員として固体トリチウム増殖材料の開発（本業）や発電する海水リチウム回収技術の研究（副業）に従事。最近では、本業と副業が逆転するだけでなく、広報活動も担っています。出張が多く六ヶ所にいないのでは？と疑われますが、24時間研究しているため、実は研究所の滞在時間は皆と同じぐらいです。



むか い けい けい
向井 啓祐

2014年に東京大学大学院工学系研究科博士課程を修了し、渡独。現在は日本学術振興会海外特別研究員としてドイツ・カールスルーエ工科大学に滞在しています。核融合炉固体増殖材の放射化計算、固体増殖材と低放射化構造材の化学的共存性実験をしています。昼休みに同僚と卓球のダブルスをするのが日課なのですが、記録を見ると統計的に週初めの戦績が悪いので、スロースターターなのかもしれません。



Kolb Matthias H.H.

ドイツ・シュトゥットガルト大学材料科学専攻修士課程を修了後、現在はカールスルーエ工科大学の研究員をしています。核融合セラミックス材料が専門で、先進固体増殖材ペブルの機械強度特性評価を行いながら、同時に博士論文を執筆中。2016年にはBA活動・日欧協力研究のため、量子科学技術研究開発機構・六ヶ所核融合研究所に3ヶ月間滞在しました。青森県の美しい山や海、伝統的なねぶた祭がとても印象に残っています。



Knitter Regina

ドイツ・ミュンスター大学鉱物学専攻博士課程（Ph.D.）修了。現在はカールスルーエ工科大学（KIT）応用材料研究所の核融合セラミックス部門長。専門分野は材料科学及びセラミックス材料のプロセス開発で、2003年よりKITで固体増殖材微小球の製造・開発を担当しています。趣味はハイキングと絵を描くこと。