



解説

核融合炉のための高温ガス炉を用いたトリチウムの製造法

Tritium Production for a Fusion Reactor by a High-Temperature Gas-Cooled Reactor

松浦 秀明

MATSUURA Hideaki

九州大学大学院工学研究院 エネルギー量子工学部門

(原稿受付：2017年7月20日)

重水素-トリチウム (DT) 燃料核融合炉及び原型炉へ向けた、今後の研究開発の展開に際し、主燃料としてのトリチウム調達「シナリオ」を検討しておくことは重要である。高温ガス炉は、基本設計を大きく変えずに、必要なトリチウムを製造できる可能性を有している。本稿では、高温ガス炉を用いたトリチウム製造法に焦点を当て、その特徴や研究の現状、今後の課題と展望について紹介する。

Keywords:

Tritium, Li-loading rod, Al_2O_3 , PyC, LiAlO_2 , Zirconium, High-Temperature Gas-Cooled Reactor, GTHTTR300, HTTR

1. はじめに

核融合炉の研究開発は、本格的な核燃焼、中性子工学・核融合炉工学技術の実証段階へ進みつつある。初代の核融合炉及び原型炉には、 ~ 10 keV 温度域で相対的に大きな反応率係数を持つ、重水素-トリチウム (DT) 反応の利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 (半減期約12年) であり、自然界に十分な利用可能量は存在しない。熱出力3 GW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、施設内のトリチウムインベントリー^{*1}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、自前で製造するのが基本的な考え方であるが、通常のDT燃焼運転に至る迄の炉の初期稼働時には、別途トリチウムを調達・生成する何らかの方策が必要である。核融合原型炉の建設に至る前段階においても、トリチウム循環系を含む炉工学実証試験のために、一定量のトリチウムの準備が必要とされている。

平和利用を目的とした公開技術としては、これまでに、カナダを中心とした重水減速重水冷却 (CANDU) 炉における、中性子捕獲反応を利用したトリチウム製造の実績がある[1]。熱中性子 (~ 0.025 eV) に対する中性子捕獲 ($\text{D}(n, \gamma)\text{T}$) 反応の断面積は、核融合ブランケットで利用が想定されている ${}^6\text{Li}(n, \alpha)\text{T}$ 反応断面積と比較して、約6桁小さく (図1参照)、CANDU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集積が必要である。国際熱核融合実験炉 (ITER) における、DT核燃焼実

験用のトリチウムは、ひとまずCANDU炉で製造されたものが使用される見込みである。これまで蓄えられたトリチウムの多くはITERでの使用や、トリチウムの自然崩壊によって失われる。CANDU炉が、将来に渡って、従来と同様のトリチウム供給性能を維持できるかは、現時点で定かではない。

核融合炉の初期立ち上げの為に、準備が必要なトリチウムの量に対しては、いくつかの見積もりが存在し、その幅は、数kgから30kg (熱出力2.3~3.0 GWの核融合炉に対して)[2-5]に及ぶ。重水素プラズマ中の $\text{D}(d, n){}^3\text{He}$ 反応で発生する2.45 MeV中性子を用いて、トリチウムを生成しつつ、徐々にDTプラズマへ移行することにより、トリチウムの外部供給量を限りなくゼロに近づける運転法も提案されている[6-8]。核融合原型炉が稼働する前段階の、トリ

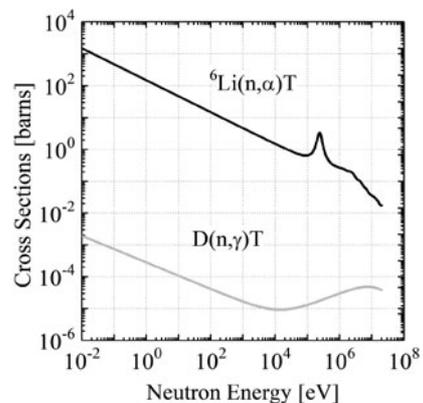


図1 ${}^6\text{Li}(n, \alpha)\text{T}$ 及び $\text{D}(n, \gamma)\text{T}$ 反応断面積 (JENDL-4.0)。

*1 核融合炉燃料としての利用可能性を有しつつ施設内に存在するトリチウムの総量。

チウム循環系を含む炉工学的試験に必要なトリチウム量については、最低100 g程度と見積もられている[9, 10]。いずれの見積もり・シナリオが有力となるにせよ、現実問題として、一定量のトリチウムを外部から調達する選択肢を想定しておくことは必要であろう。我が国は、現時点でこれらに必要なトリチウムを、自力で製造する具体的な方法を有していない。また、今後このような大量のトリチウムを、如何に確保していくのかは明確にされていない。今後の核融合研究を展開していくに際し、現時点で、有効で実現性の高いトリチウム調達「シナリオ」が求められている。核融合炉開発プロジェクトにリーダーシップを持って関わっていくために、国産技術として、0.1~数kgオーダーのトリチウム製造シナリオを検討しておくことは重要と考えている。

本稿では、高温ガス炉を用いたトリチウム製造法に焦点をあて、その特徴や研究状況、今後の課題と展望について紹介する。

2. 高温ガス炉の特徴と開発状況

高温ガス炉は、次世代原子力システムの有力候補の一つとして位置づけられており[11]、長年に渡り研究開発、実証試験が進められてきた[12]**。高温ガス炉は、炉心が黒鉛によって構成されることから、炉心溶融がなく、何らかの原因で炉心が冷却機能を失った場合でも、自然冷却が可能である。燃料形態として UO_2 燃料核を複数のセラミックス層で多重に被覆した、被覆粒子燃料が採用されており、被覆構造により、制限温度(1600°C)以下であれば、健全性を損なわず、放射性物質を封じ込めることが可能とされている[14]。上述の、高い固有安全性の観点から、エネルギー基本計画(2014(平成26)年)、経済財政運営と改革の基本方針2014等において、その研究開発の推進が明記されている。我が国は、最先端の高温ガス炉の研究開発国の一つであり、その技術は世界をリードしている[15]。

国内では、日本原子力研究開発機構(JAEA)が、熱出力30 MWの高温ガス炉である高温工学試験研究炉(HTR: High Temperature engineering Test Reactor)を保有している[16]。図2にHTRの外観図を示す。HTRは、ブロック型高温ガス炉であり、1998(平成10)年に初臨界を達成、2001(平成13)年に定格出力30 MW、原子炉出口冷却材温度850°Cを達成した。2010(平成22)年には50日間の高温定格出力連続運転を実証している[17]。今後は冷却材の全流量喪失試験等の安全性実証試験が進められる予定である。これらの実績を踏まえ、JAEAが中心となり、平成13年度より、高温ガス炉発電商用炉として電気出力300 MWの「高温ガス炉タービン発電システム(Gas Turbine High Temperature Reactor 300: GTHTR300)」[18]の概念設計が実施された。

図3に、GTHTR300炉心の水平断面図を示す。炉心は90本の燃料カラム(図中斜線部)に加え、それぞれ55本及び

36本の内側及び外側可動反射体カラム、30本の制御棒案内カラム(図中白抜部)を有し、周辺は、固定反射体で取り囲まれている。90本の燃料カラムそれぞれには、図4(a)に示す六角柱状の燃料ブロック(高さ1,000 mm, 幅407 mm)が、それぞれ垂直方向に8段装荷される。各燃料ブロックは、黒鉛で構成され、冷却孔57, 可燃性毒物質(BP: Burnable Poison)[後述]挿入孔3を有する。冷却孔には、図4(b)に示す燃料棒が装荷される。燃料棒は直径26 mm 高さ950 mm程度であり、図4(c)に示す円柱状燃料コンパクトが装荷されている。燃料コンパクトは、直径9 mmの中空部を有し、図4(d)に示す直径1 mm程度の被覆燃料粒子を黒鉛ベースに焼結(充填率約33%)して製造される。被覆燃料粒子は、 UO_2 燃料核の周りに、内側から低密度PyC(Pyrolytic Carbon)層、高密度PyC層、SiC層、高密度PyC層と4重の被覆がなされる。内側の低密度PyC層は、核分裂反応で生成される希ガス等による内圧上昇を緩和するために設けられている。燃料は濃縮ウランで、 ^{235}U の濃縮度は14 wt%^{**3}である。BP孔には、固体状の炭化ホウ素(B_4C)を黒鉛ベースで焼結したBPペレットが棒状に装荷される。GTHTR300の標準設計では、0.3 wt%のBが装荷される。炉の定格熱出力は600 MW, ガスタービンをを用いた高効率発電を採用することにより、電気出力は300 MWの設計である。

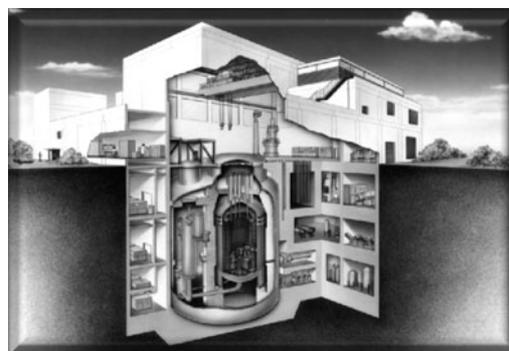


図2 HTR外観図 [by JAEA (http://htr.jaea.go.jp/index_top.html)].

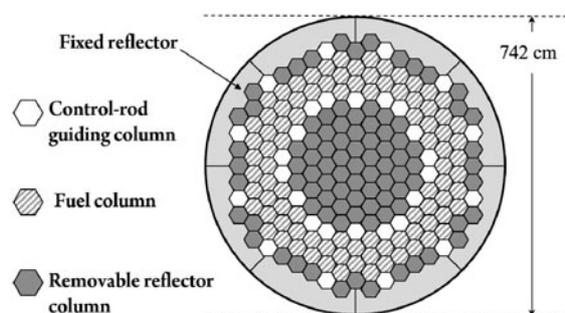


図3 GTHTR300炉心の水平断面図。

※2 高温ガス炉には、我が国で開発が進められているブロック型と中国等で建設が進められているペブルベッド型という大きく2つの概念の異なるタイプが存在する。本稿ではブロック型に絞って話を進めたい。ペブルベッド型のトリチウム製造性能に関しては、文献[13]をご参照いただきたい。

※3 weight percent, 重量百分率。

3. トリチウム製造に対する高温ガス炉の性能

高温ガス炉では、高温熱媒体として、ガスを選択する(冷却材としてのヘリウムガスは、図4の燃料棒・燃料ブロックの隙間を炉心上部から下部へ流れる)。軽水と比較して、ガスの冷却性能は低い為、有効炉心体積を大きくして発熱密度を低く抑える設計である。炉心体積が大きくなることは、工学的・経済的に必ずしも有利とはいえないが、その反面、燃料近辺に核変換対象物質を、広く薄く装荷できる大きな領域を提供できる。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⁶Liを炉心に装荷することが可能となる。図5に、代表的な原子炉：高温ガス炉 (HTGR: High-Temperature Gas-cooled Reactor) [19]、軽水炉 (LWR: Light Water Reactor) [20]、高速増殖炉 (FBR: Fast Breeder Reactor) [21]、の有効炉心体積を示す。単位出力当たりの体積に換算すると、さらに体積の差は広がる。高温ガス炉の発熱密度は、単純平均で、高出力密度の核融合炉と同程度である。発熱密度を低く抑える設計により、高温ガス炉の中性子束 (中中性子数密度にその速度を乗じた量) は、軽水炉等と比較して低めの値となるが、⁶Li装荷量を大きく確保できることにより、中性子束の低さを補うことが可能である。また、黒鉛・ヘリウムを用いた減速・冷却系は、核的には、中中性子の吸収が少なく、化学的には、安定でLi化合物と化学反応を起こさないという性質を併せ持つ。

原子炉内の核分裂反応は、核分裂で自ら発生した中中性子の一部が次の核分裂を引き起こす「連鎖反応」によって維持される。炉内の中中性子吸収 (核分裂反応に使用される中中性子を含む) 及び炉外への中中性子損失による「①中中性子消

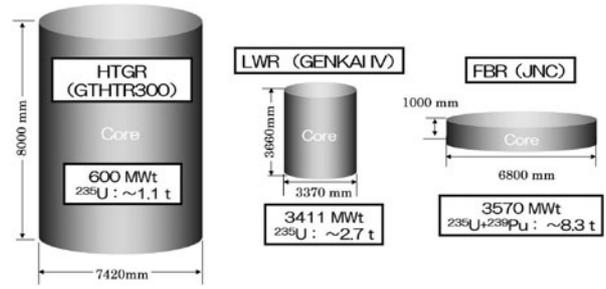


図5 代表的な原子炉 (高温ガス炉, 軽水炉, 及び高速増殖炉) の有効炉心体積。

失率」に対する、核分裂反応に関わる「②中中性子発生率」の比 (②/①) は、実効増倍率 k_{eff} と定義される。通常原子炉では、 $k_{eff} > 1$ の状態が可能となるように、炉心の燃料・材料組成と形状・寸法が設計され、定常運転中は、制御棒 (可動式中性子吸収体) やBPを用いることで、 $k_{eff} = 1$ となるように (いわゆる臨界状態を維持するように) 炉内の中中性子束が調整される。ここで、あらためてBPについて簡単に説明する。BPとは、中中性子を吸収して安定な核へ核変換する同位体元素 (¹⁰B, Gd 等) である。原子炉の運転により、燃料 (²³⁵U 原子核数) は時間と共に減少するが、燃料の減少により、中中性子吸収反応率に対する核分裂反応率の比率が低下するため、 k_{eff} も運転時間と共に低下する。この場合、 $k_{eff} = 1$ を維持するために調整が必要な「余剰の中中性子」の量も、時間と共に減少する。BPは、核変換により、運転時間と共に自らの原子核数 (中中性子吸収性能) が減少するため、BPの適切な利用により長期間に渡って実効増倍率の調整が可能となる。高温ガス炉では、空間的にむらのない、効率的な燃焼を実現するために、運転中の制御棒の炉心挿入量はできるだけ少なくし、余剰の中中性子の大部は、BPを用いて調整する設計方針である。

我々は、高温ガス炉において、標準的にBPとして装荷される、固体状の「B₄C」を「Li化合物」に置き換えることによる、余剰の中中性子を用いたトリチウム製造法を提案している [22]。

黒鉛は、軽水と比較して中中性子の減速性能が低いため、高温ガス炉では中中性子の平均自由行程が軽水炉と比較して長くなる (これは、炉心サイズが大きくなるもう一つの理由である)。軽水炉では中中性子の平均自由行程が短いため、BPを燃料の近辺に装荷する必要がある。BPを軽水や燃料ペレットに混入させる場合が多い。高温ガス炉では、固体状のBPを炉心内に「粗に」装荷することが可能なため、炉心の構造設計をほとんど変更することなく、さらに、設計次第では、BPとしてのB化合物の全てをLi化合物に置き換えることも可能である。高温ガス炉は、余剰の中中性子を効率的にLiに吸収させるのに有利な体系と言える。また、被覆燃料粒子は材料的な耐照射性能が高く、長期間の使用が可能であることから、高温ガス炉は、高い燃焼度 (燃料がどの程度燃焼したかを表す指標) を想定した炉心設計がなされる場合が多い (GTHT300では120 GWd/t^{※4}の燃焼度を想定しており軽水炉の45~60 GWd/t程度と比

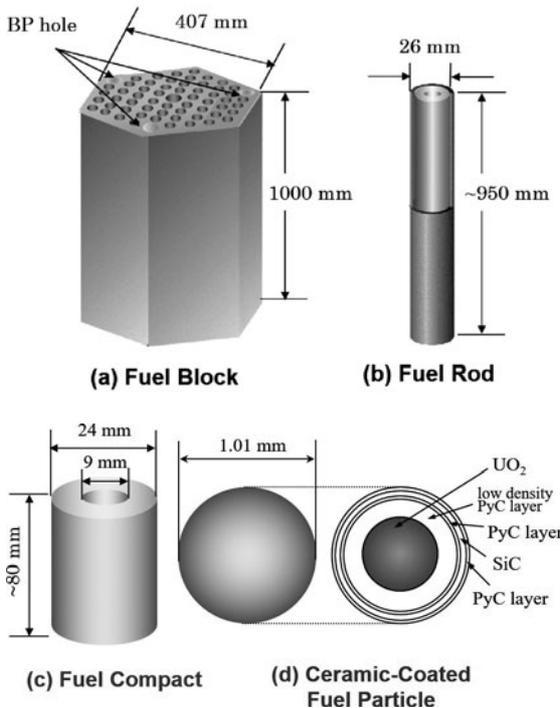


図4 (a)燃料ブロック, (b)燃料棒, (c)燃料コンパクト, 及び (d)被覆粒子燃料の概念図。

※4 初期装荷燃料1t当たり、どれだけのエネルギーを生み出し得るかを表す単位。

較して大きい)。一般に、高燃焼度を想定した炉心では、同出力の炉に対して、燃料を相対的に多めに装荷する炉心設計となるため、核変換性能が向上する傾向にある[23]。

GTHTTR300の全てのBP孔にLi化合物(LiAlO₂)を装荷し、それ以外の基本設計をできるだけ変更しない方針のもとで炉心燃焼計算を行った。図6に、LiAlO₂の装荷量(LiAlO₂層の厚み)をパラメータとして、炉の運転時間に対するトリチウム製造量(時間積算値)及び k_{eff} の時間変化を示す(トリチウムの β 崩壊は無視した)。Li装荷体にはロッド状のもの(次節で説明図7(a))を想定した。全ての制御棒を引き抜いた状態を想定し、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及び燃焼解析コードMVP-BURNを使用して計算を実行した[24]。核データセットには、JENDL-4.0を用いた[25]。前述の通り、炉の運転時間と共に、余剰の中性子を用いたトリチウムの積算製造量は増加し、 k_{eff} は低下する。 k_{eff} が1を切った時点で、炉の運転継続は不可能な状態となる(運転を継続するためには、燃料の入れ替えか、LiAlO₂の取り出しが必要である)。連続運転期間を短めに設定し、LiAlO₂の初期装荷量を増やすことで、単位運転時間当たりのトリチウム製造量を増やすことは可能である。但し、²³⁵U燃料及びLiAlO₂の入れ替えや炉の停止・始動運転に30~60日程度の期間を要すると考えられるため、運転サイクルを繰り返す場合は、1回の連続運転期間を短くし過ぎると、全サイクルを通したトリチウム製造効率、逆に低下することになる。

高温ガス炉にトリチウム製造機能を付加した場合の、原子炉としての特性について、核的及び熱的な観点からの確認がなされている。後藤等[26]により、Li装荷炉心において、原子炉を安全に停止できるだけの負の反応度^{※5}を有しているか(炉停止余裕)、炉心の温度上昇時に反応の増加に負のフィードバックがかかるか(反応度温度係数)、燃料の最高温度を制限値(1495℃)以下に抑えた上で十分なトリチウム製造が可能であるか、が検討され、「トリチウム製造とエネルギー生産を両立する高温ガス炉の核熱設計」が成立することが報告されている。トリチウム製造機能を付加するにあたり、可燃性毒物質をB₄CからLiAlO₂に変更することは前述の通りである。¹⁰Bの中性子吸収断面積が、熱中子に対して3,800 barn(1 barn=10⁻²⁸ m²)程度であるのに対して、⁶Liは900 barn程度と約1/4の中性子吸収性能となるため、⁶Liの消失速度が相対的に遅くなり、⁶Liの方が¹⁰Bと比べて炉内に長く残り続ける(単位時間当たりの実効増倍率の低下割合が大きくなる)傾向にある。したがって、同じ運転期間(実効増倍率が1.0に達する迄の時間が同じ運転)を想定した場合、⁶Liを使用する場合は¹⁰Bと等価な中性子吸収性能を炉心に装荷することができない(運転初期はBPとしての⁶Liで抑えることができない余剰の中性子が存在する)。この中性子を効率的に利用することができれば、トリチウム製造性能を、さらに向上できる可能性がある。GTHTTR300を想定した場合、こ

※5 実効増倍率の相対的な変化量を示す指標。実効増倍率が減少する方向を負とする。反応度 $\equiv(k_{eff}-1)/k_{eff}$ 。

※6 1 kg T/GWe-yは、電気出力1 GWの炉を1年間運転した時に1 kgのトリチウム製造性能を持つことを示す。

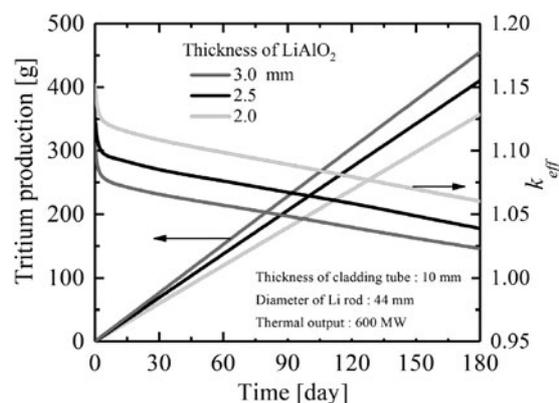


図6 LiAlO₂層の厚みに対するトリチウム製造量(時間積算値)及び実効増倍率の時間発展。

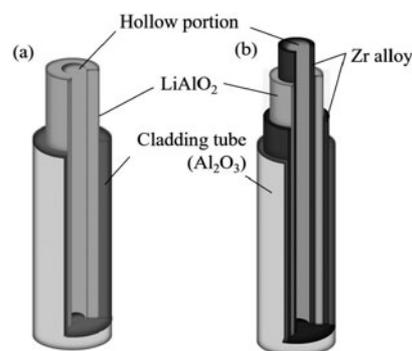


図7 Li装荷用ロッド構造の例((a)Zr層を含まない場合、(b)Zr層を含む場合)。

の余剰の中性子を利用することで、トリチウム製造性能を、約4割改善可能であることが報告されている[27]。その具体的な方法については、今後の詳細な検討が必要である。

GTHTTR300(電気出力300 MW, 熱出力600 MW)を用いた場合、連続運転期間中に製造可能な最大トリチウム量は、Liの装荷方法や運転期間に依存するが、運転期間を180日とした場合300~600 g(180日間)、1年とした場合500~800 g(1年間)程度と見積られる(単位電気出力年当たりに換算すると1.5~2.4 kg T/GWe-y^{※6}程度)。CANDU炉のトリチウム製造性能としては0.17~0.23 kg T/GWe-y程度[1]の実績が報告されており、CANDU炉と比較すると高温ガス炉は約10倍の製造性能を持つと推定される。参考までに、米国においては軍事目的でトリチウム製造が実施されている。必要量に応じた(余裕を持った)製造と考えられるが、現状1 GW程度の電気出力に対し約1年半の運転期間で1.5 kg程度の製造量と推定される[28]。

4. Li装荷体に関する検討

これまでの検討により、原子炉の中性子バランスの観点から、外部トリチウム源としての高温ガス炉の潜在的な有効性が示されたが、同時に、Liの装荷体の構造やその炉心配置(装荷体構造や配置はトリチウムの回収法とも密接に

関連する)が、トリチウム製造性能に大きな影響を与えることが明確となった[29]。我々は、中性子輸送計算・トリチウム拡散実験及び計算により、トリチウム製造及びトリチウム封じ込め・回収の双方に適したLi装荷用被覆粒子構造を検討している。片山等[30,31]によって、トリチウム透過防止材の候補としての、(1)等方性黒鉛管 (Isotropic Graphite (IG) tube), (2)PyC 被覆黒鉛管, (3)Al₂O₃ 管を試験体とし、水素透過挙動を観測することによる、水素拡散係数・溶解度の評価が実施された。図8に、評価されたPyC被覆黒鉛材、及びAl₂O₃に対する、水素の透過係数を示す。開発当初は、Li化合物をカーネルとする被覆粒子(図4(d)に示す被覆粒子のUO₂燃料核をLi化合物に置き換えたもの)を黒鉛で焼結し、BPとして利用することを想定していた。これは、被覆粒子(PyC層)によるトリチウム封じ込めを期待したためである[32]。想定した方法に対して、図8のデータを元にトリチウムの封じ込め性能を評価した結果、製造された大半のトリチウムがLiカーネル被覆粒子から流出し、トリチウムの回収が困難になるとの結果を得た。最近、片山等によって、水素透過量は、Al₂O₃よりもPyCの方が大きいものの、拡散係数はPyCよりもAl₂O₃の方が大きく、低温(~500℃)では、被覆粒子も利用できる可能性があることが示されている[33]。但し、同時に温度上昇によって、被覆粒子のトリチウム封じ込め性能が大きく劣化する(~600℃に温度を上昇させた場合、ロッド状装荷体では漏洩量の増加は数倍程度であるのに対して、粒子状の装荷体を想定した場合2桁増加する)ことも示されている。

被覆粒子を利用した場合に、トリチウム封じ込め性能が劣化する原因は、その構造(含む比表面積の大きさ)によるところが大きい。トリチウムの流出量を低下させるためには、Li装荷領域の流出面積を小さくし、同時にトリチウム製造に伴うガス圧の上昇量を低めに抑える工夫が必要である。比表面積の小さい円柱状のロッドを想定し、米国のWatts Bar原子力プラントにおける軍用トリチウム製造[28]で実績のある、円柱状のLi装荷用ロッドを参考に、トリチウム封じ込め性能の確認を行った[34]。想定したLi装荷用ロッドを図7(a)に示す。装荷するLi化合物としては、化学的安定性の観点から、LiAlO₂を想定した。LiAlO₂を層状に加工し(図7(a))、その外側にAl₂O₃層を設けて、トリチウムのLiロッドからの流出を防いでいる。トリチウム生成の結果としてのロッド内圧の上昇を防ぐために、中心に中空部が設けられている。寸法は、図4(a)のBP孔に収まる大きさ(概ね直径44mm、高さ950mm程度)を想定している。

図9に、拡散計算に使用したLi装荷用ロッドの解析モデルを示す。LiAlO₂層で生成されたトリチウムはただちに中空部へ放出されT₂分子になると仮定した。LiAlO₂は多孔質材であるため、トリチウムはT₂分子としてLiAlO₂層に侵入・通過し、中空部分とLiAlO₂層内トリチウム圧は平衡になると考える。Al₂O₃層表面の水素濃度は水素圧力の1/2乗に比例することが実験的に確認されているため[30,31]、ジーベルツ則を適用する。Al₂O₃層表面でT₂分子は一旦乖

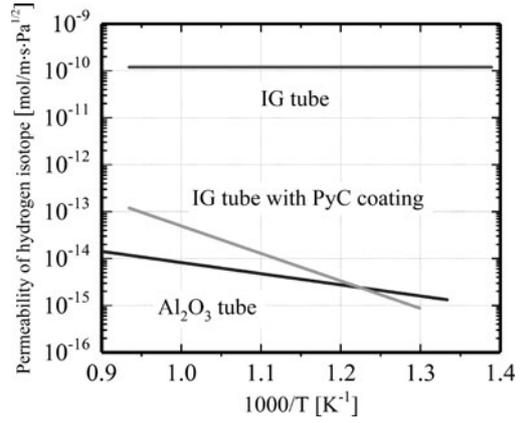


図8 等方性黒鉛管(IG tube), PyC被覆IG tube, 及びAl₂O₃管に対する水素の透過係数[30,31]。

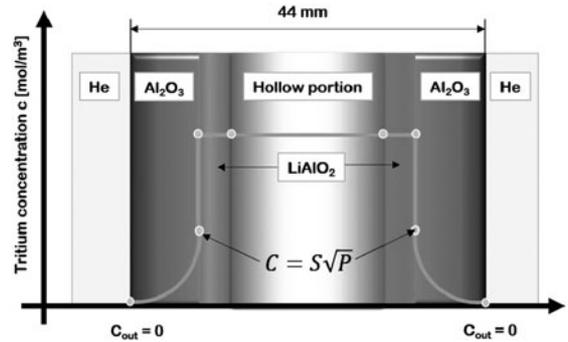


図9 トリチウム拡散モデルの概念図 (Zr層を含まない場合)。

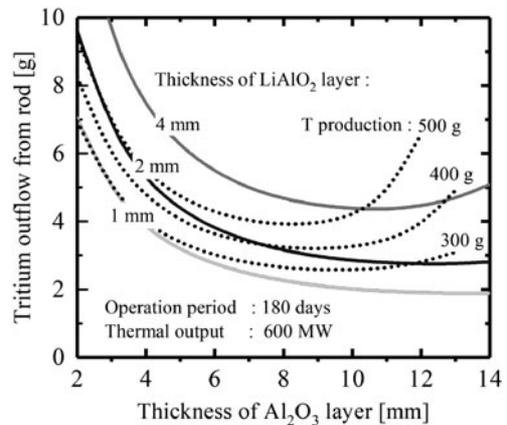


図10 Al₂O₃層の厚みに対するロッドからのトリチウム流出量。

離し、トリチウムは原子の状態でAl₂O₃層を通過した後、外側表面で再びT₂分子となることを想定している。モンテカルロ法による中性子輸送・炉心核燃焼解析と、Al₂O₃層における拡散方程式を用いた、トリチウム透過の解析を組み合わせ、トリチウム製造量とLi装荷用ロッドからヘリウム系への流出量を評価している。

MVP-BURNを用いた炉心燃焼(トリチウム生成)解析、及びトリチウム拡散計算に基づき、図7(a)に示したLi装荷用ロッドを想定し、GTHTR300を180日間運転した後のロッドからのトリチウム流出量、及び製造量を評価した。結果を図10に示す。Li装荷用ロッドの温度は800Kとし、Al₂O₃中のトリチウム拡散計算に際しては、図8に示

した透過係数を用いた。実線に、 LiAlO_2 層の厚み (^6Li の装荷量) を 1, 2 及び 4 mm に固定した場合それぞれに対して、 Al_2O_3 層の厚みに対するロッドからのトリチウム流出量を示す[34]。 Al_2O_3 層の厚みが薄いと、ロッドからのトリチウム流出量は増大するが、厚くしすぎても、中空部体積の減少によって内圧が上昇するため、流出量が増加する。点線に、300, 400 及び 500 g のトリチウム製造量を得る場合それぞれに対し、 Al_2O_3 層の厚みの関数として、トリチウム流出量を示す。図より、例えば Al_2O_3 層の厚みを 8 mm, LiAlO_2 層の厚みを 2 mm とした場合、180 日間に約 400 g のトリチウムが製造され、その時の全ロッドからのトリチウム流出量は 3 g 程度であることがわかる。評価した流出量は、原子炉から環境中への流出量ではなく、装荷された Li 装荷用ロッドからその周辺のヘリウムガス領域への流出量である。上記モデルを用いた評価に基づく、図 7 (a) に相当するロッド構造を採用し、温度を 800 K とした場合、ロッドからのトリチウム流出量は、トリチウム製造量の 1% 程度と推定される[34]。

参考までに、現行の軽水炉から冷却水を介して環境中で放出されるトリチウム量は、年間 5×10^{13} Bq (~ 0.14 g) 程度と報告されている[35]。推定されたロッドからヘリウム系への流出量は、この値の数十倍である。但し、ロッドから流出したトリチウムはヘリウムガスへ混入することになり、別の回収系での回収が可能である。

5. 現在の検討課題と今後の展望

これまでのトリチウム流出量は、Li 装荷用ロッドの装荷領域の温度を 800 K として推測したものである。運転温度を 800 K に抑えた理由は、 Al_2O_3 のトリチウム透過が温度上昇と共に大きくなることから、温度を低下させトリチウムの封じ込め性能を高めるためである。高温ガス炉では、冷却材の温度を高めることでガスタービンの発電効率を高める設計が為されており、例えば GTHTR300 においては、1100 K 程度の冷却材出口温度を想定し、50% 程度の発電効率を得る設計である[18, 19]。この場合、減速体 (Li 装荷) 領域の平均温度は 1190 K 程と予想される。減速材装荷領域の温度を 800 K に保つ運転は、トリチウム製造目的の短期間の特別運転モードとして、その実現は可能と考えられるが、本来の高温ガス炉の性能を發揮しながら、付加機能としてトリチウム製造を行うためには、より高温領域の運転が望ましい。高温領域では、 Al_2O_3 に対するトリチウム透過が大きくなるため、ロッドからのトリチウム流出量が増加する。現在、トリチウム封じ込め性能をさらに改善することを目的に、水素吸蔵金属としての Zr を Li 装荷用ロッドに適用し、トリチウムの内圧を減少させることで、流出量を低化させることを検討している。

図 7 (b) に、Zr 層を含む Li 装荷用ロッドの概念図を示す。 LiAlO_2 層の両側に Zr 層を設けることにより、生成されたトリチウムを Zr 層に吸蔵させ (内圧の上昇を防ぎ)、 Al_2O_3 層を通過したトリチウムの流出を防ぐ目論見である。図 11 に、図 7 (b) の Li 装荷用ロッドを GTHTR300 の全ての BP 孔に装荷した場合に対して、トリチウム製造量及びロッド

からのトリチウム流出量の推定結果を示す。図では、Li 装荷用ロッドに Zr 層を設けない場合 (図 7 (a)) と、設けた場合 (図 7 (b)) それぞれに対して計算値を示している (製造量については、両ロッドを仮定した結果は、ほぼ一致する)。Zr 層を設けた場合に対する計算においては、Zuzek 等 [36] によって評価された Zr に対する圧力と吸蔵量の関係に対する評価値を用いて Li ロッド内の圧力を決めた。ロッド内のトリチウム生成量に対して Zr の原子数が極めて多いことから、Zr のトリチウム吸蔵量に対して、圧力が平衡値に達することを仮定した。上述のモデルに基づく評価では、Zr 層を設けた場合と設けない場合で、トリチウムの製造量に違いは見られないが、ロッド内のトリチウム圧力は Zr 層を設けない場合の 1 MPa から、設けた場合 5 Pa に低下し、ロッドからのトリチウム流出量は、ほぼ 2 桁低下すると推定される (製造されたトリチウムを Zr が全て吸蔵すると仮定した場合、180 日後のロッド内の T/Zr 原子数比は最大で 0.7% 程度である)[37]。図 11 では、ロッドの温度を 800 K と仮定した場合の結果を示したが、Zr の装荷によって流出量が大きく低下したことで、さらに高い温度領域における運転が成立することが期待される。

Watts Bar 原子力プラントにおいても、軽水炉に対する Li 装荷用ロッドに Zr が使用されており[28]、Zr の酸化や不純物混入による水素吸蔵性能の劣化を防ぐことを目的に、Zr と LiAlO_2 層の間に Ni 層を挟む工夫がなされている。軽水炉の運転温度領域 (600~700 K 程度) に対して、ロッドのトリチウム封じ込め性能に対するデータが蓄積されている[38]。しかしながら、高温ガス炉の運転領域 (700~1200 K 程度) における検討は為されておらず、高温領域におけるロッドの開発は、新しい検討テーマと考えている。現在、著者等は、高温ガス炉の運転環境下における Zr の水素・重水素吸蔵実験を実施中である。図 7 (b) のロッド構造を再現する「高温ガス炉用 Li 装荷用ロッドの模擬試験体」を製作し、データ収集を行っている。模擬試験体は、中性子照射を想定したものではなく、 LiAlO_2 層に相当する部分に、水素・重水素・トリチウムガスを流し、試験体のトリチウム封じ込め性能を評価する仕様である。

高温領域における Zr の適用については、ロッド (Zr 材や Al_2O_3 材) の膨張・変形・脆化等に起因する、トリチウム

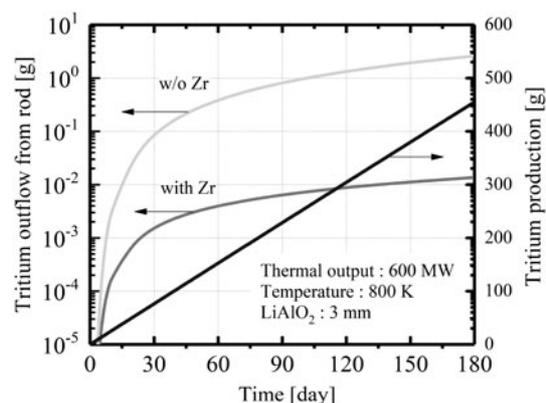


図 11 Zr 層を含む場合、及び含まない場合に対するロッドからのトリチウム流出量と製造量。

封じ込め性能の劣化に対する検討も必要である。Zr合金と炭素や酸化物(Li化合物等)との共存性、表面酸化膜生成の影響についても十分な考慮が必要である。Zr材の装荷法としては、図7に示した層状の装荷法他、粒子状にして装荷することで、Zrの表面積を大きく保つ方法についても検討が為されている[30]。粒子状のZr装荷法を採用した場合も、前述のロッド状のZr層の場合と同様に、生成されたトリチウムの内圧を低減させ、トリチウムの流出量を大幅に低下させることができることが示されている[30]。粒子状のZrを利用した場合は、何らかの原因による、Li装荷体被覆層の破損に対しても、Zrの水素吸蔵性能・トリチウム封じ込め性能を確保できる可能性がある。今後のデータを踏まえた上で、高温ガス炉により適したLi装荷体を明らかにする必要がある。

ここまでの検討では、炉内で製造されたトリチウムを、運転期間中、できるだけLi装荷領域に封じ込めることを目標とした「バッチ型」のトリチウム製造・回収法を想定してきた。今後、高温ガス炉の冷却材としてのヘリウムをより積極的に活用し、ヘリウムガスによるトリチウム連続回収の割合を増やした製造法についても検討が必要であろう[39]。この場合、高温ガス炉の基本設計をできるだけ変更しないという方針からは、若干逸脱する可能性もあるが、炉心内に常時多くのトリチウムインベントリを持たないという点で、安全性の観点からのメリットも考えられる。Li装荷体の設計が単純になると同時に、Zr材に含まれる不純物等による中性子の吸収作用が抑制されることで、高温ガス炉のトリチウム製造性能が僅かに高まる可能性もある。バッチ回収を前提とした検討を進めていく場合においても、ヘリウムガスを介したトリチウム回収系の設置は必須であり、これらの可能性を念頭において検討を進めるべきであろう。

6. おわりに

Li装荷用模擬試験体を用いたトリチウム封じ込め試験の結果を見据え、ロッドの仕様を固めることが先決であるが、その先のステップとしては、照射試験を実施し、トリチウム製造量と流出量を確認する必要がある。現状、いくつかの照射施設やHTTRを候補として、照射試験体や試験方法に対する検討も並行して進めている[40]。HTTRには、照射試験設備が実装されており、Liは炉心に装荷可能な元素のひとつとしてHTTRの設置時に認可されている。

当面の開発目標としては、HTTRにおける照射試験、トリチウム製造の実証を想定している。同試験により、(a)高温ガス炉を用いたトリチウム製造を初めて実証し、また、我が国として(b)100gを超えるオーダーのトリチウム製造技術を一定のレベルで確立できた、と言える。

図12に、1基のGTHTR300 或いはHTTRの運転(連続運転期間1年)を繰り返した場合の、トリチウム製造量の時間発展を示す(燃料及びLi取り換えのための運転停止期間を30日或は60日とした)。HTTRのトリチウム製造性能は、トリチウム製造のための専用運転を行う場合、最大で年間30g程度と見込んでいる。100g程度のトリチウム(炉

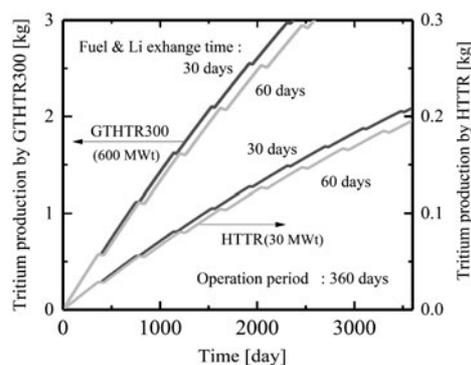


図12 GTHTR300及びHTTRを繰り返し運転した場合のトリチウム製造量。

工学試験に最低必要と想定される量)を、既存の設備を用い4年程度の運転期間で製造できる可能性がある。

高温ガス炉は、国産技術として、長年に渡りその研究開発が進められてきた実績がある。基本設計を大きく変更することなく、その高い信頼性を有する技術をトリチウム製造に適用できる可能性がある。高温環境下におけるLi装荷体の開発(トリチウム取扱い、その回収技術)に関しては、新しい、チャレンジングなテーマであり、今後、まだまだ斬新なアイデアを注ぎ込む必要があると思われる。これ等は、核融合炉の炉工学的な研究課題と関係するところもあるのではないだろうか?高温ガス炉を用いたトリチウム製造に関する研究は、物理化学、化学工学、中性子工学、放射線工学、材料物性学等の様々な多くの分野の融合点として達成され得るものであり、その取り組みは、今後の新規学術分野の開拓に繋がることが期待される。トリチウムは、核燃料としての取り扱いが必要となる可能性もある。その様な視点を含めつつ、俯瞰的に、継続して研究を進めていくことが必要であろう。

関連研究者の皆様に、是非ともこれら一連の課題にご関心をいただき、ご指導を賜りたく、本稿が、そのきっかけとなることを切に願う次第である。

謝辞

一連の研究は、片山一成氏(九大)、大塚哲平氏(近畿大)、後藤実氏(JAEA)、中川繁昭氏(JAEA)、飛田健次氏(QST)、染谷洋二氏(QST)、日渡良爾氏(QST)との共同研究として進めているところです。共同研究者の皆様と共に、故西川正史先生、故島川聡司氏、深田智先生、中尾安幸先生、小西哲之先生、御手洗修先生、石塚悦男氏(JAEA)、島崎洋祐氏(JAEA)、これまで研究に携わった、九州大学工学府エネルギー量子工学専攻・総合理工学府先端エネルギー理工学専攻・工学部エネルギー科学科の学生14名を含む、多くの方々の熱意あるご議論・ご貢献に深く感謝申し上げます。JSPS科研費15H04230、並びに、QST/BA炉設計共同研究からの研究助成に感謝いたします。

参考文献

- [1] P. Gierszewski, Fusion Eng. Des. 10, 399 (1989).

- [2] Y. Asaoka *et al.*, Fusion Technol. **30**, 853 (1996).
- [3] M. Nishikawa *et al.*, Fusion Eng. Des. **87**, 466 (2012).
- [4] 染谷洋二：核融合原型炉の初期装荷トリチウム量に関して (JAEA 大洗研究開発センター, 2015).
- [5] 日渡良爾：to be published in 日本原子力学会誌.
- [6] S. Konishi *et al.*, J. Plasma Fusion Res. **76**, 1309 (2010).
- [7] R. Kasada *et al.*, Fusion Eng. Des. **98-99**, 1804 (2015).
- [8] R. Hiwatari *et al.*, Fusion Sci. Technol. **60**, 1092 (2011).
- [9] J.R. Bartlit, Fusion Eng. Des. **12**, 393 (1990).
- [10] 西 正孝 他：プラズマ・核融合学会誌 **79**, 290 (2003).
- [11] https://www.gen-4.org/gif/jcms/c_9334/origins (GEN IV International Forum).
- [12] H.L. Brey, Proc. Int. Conf. on Global Environment and Advanced Nuclear Power Plants (GENES4/ANP2003), p.1194 (2003).
- [13] Y. Kawamoto *et al.*, Fusion Sci. Tech. **68**, 397 (2015).
- [14] 沢 和弘 他：日本原子力学会誌和文論文誌 **6**, 113 (2007).
- [15] 科学技術・学術審議会 研究計画・評価分科会 原子力科学技術委員会：「高温ガス炉技術開発に係る今後の研究開発の進め方について」, 平成26年9月.
- [16] S. Saito *et al.*, JAERI 1332 (1994).
- [17] D. Tochio *et al.*, JAEA-Technology, 2010-038 (2010).
- [18] 國富一彦 他：日本原子力学会和文論文誌 **1**, 352 (2002).
- [19] T. Nakata *et al.*, JAERI-Tech 2002-066 (2002).
- [20] 玄海原子力発電所原子炉設置変更許可申請書 (九州電力, 1990).
- [21] M. Naganuma *et al.*, JNC-TN9400, 2005-051 (2005).
- [22] H. Matsuura *et al.*, Nucl. Eng. Des. **243**, 95 (2012).
- [23] K. Kora *et al.*, Nucl. Eng. Des. **300**, 330 (2016).
- [24] Y. Nagaya *et al.*, JAERI-1348 (2005).
- [25] K. Shibata *et al.*, Nucl. Sci. Technol. **48**, 1 (2011).
- [26] 後藤 実 他：トリチウム製造とエネルギー生産を両立する高温ガス炉の核熱設, 日本原子力学会「2016年秋の大会」PL1M03 (2016).
- [27] 長住 達 他：高温ガス炉を用いた核融合原型炉用トリチウム調達法の検討 ～Li可動式装荷体を用いたトリチウム生産性能の向上～, 第11回核融合エネルギー連合講演会, 15P091 (2016).
- [28] Recommendations for Tritium Science and Technology Research and Development in Support of the Tritium Readiness Campaign, TTP-7-084, PNNL-22873 (2013).
- [29] H. Nakaya *et al.*, Nucl. Eng. Des. **271**, 505 (2014).
- [30] K. Katayama *et al.*, Fusion Sci. Eng. **68**, 662 (2015).
- [31] H. Ushida *et al.*, Nucl. Materials Energy **9**, 524 (2016).
- [32] 山下清信 他：日本原子力学会誌 **40**, 65 (1998).
- [33] 片山一成 他：高温ガス炉トリチウム生産と閉じ込め手法の検討, 日本原子力学会「2016年秋の大会」PL1M02 (2016).
- [34] H. Nakaya *et al.*, Nucl. Eng. Des. **292**, 277 (2015).
- [35] 原子力安全基盤機構：原子力施設運転管理年報 平成24年度版, ISSN 1347-0493.
- [36] E. Zuzek *et al.*, Bulletin of alloy Phase Diagram **11**, 385 (1990).
- [37] S. Nagasumi *et al.*, to be published in Fusion Sci. Tech. <http://dx.doi.org/10.1080/15361055.2017.1352424>
- [38] D.J. Senor, Irradiation Testing in Support of the Tritium Production Enterprise, PNNL-SA-91450.
- [39] H. Matsuura *et al.*, Fusion Eng. Des. **88**, 2219 (2013).
- [40] 井田祐馬 他：高温ガス炉を用いたトリチウム生産 Li 装荷ロッドの照射試験体及び試験法の検討～Zr 層を考慮した試験体の評価～, 日本原子力学会「2017年春の年会」3B12 (2017).



まつうら ひであき
松浦 秀明

九州大学大学院・工学研究院・エネルギー量子工学部門・准教授。博士(工)。炉心プラズマ等の核反応体系における集団的・連鎖的な核反応(核燃焼)現象に関心を持っています。最近、陸上競技に勤しむ子ども達からランニング用品をプレゼントしてもらいました。涼しくなったら、昔を思い出して走ってみるかなと思っています。