# 業 解説

## 核融合炉重水素トリチウム混合ペレットの検査手法の研究開発

### R&D on Inspection Method of Deuterium-Tritium Pellets for Fusion Reactor

山ノ井航平,岩本晃史<sup>1)</sup>,原 正憲<sup>2)</sup>

YAMANOI Kohei, IWAMOTO Akifumi<sup>1)</sup> and HARA Masanori<sup>2)</sup>

大阪大学レーザー科学研究所,1)核融合科学研究所,2)富山大学研究推進機構水素同位体科学研究センター

(原稿受付:2023年11月21日)

重水素-トリチウムを燃料とする核融合炉の設計においては、主な燃料の投入方法である極低温で固体のDT 混合ペレットの作成手法および検査手法の確立が重要である.一方でトリチウムは標準状態で気体状の放射性物 質であり、材料への高い透過性という取り扱いの難しさから取り扱いできる施設が限られており、基礎的なデー タが不足している.このため、我々は重水素-トリチウムを固化し、光学的検査に必須である屈折率を測定した. 水素同位体は固化点が異なるため、固化過程において同位体分離が生じる可能性がある.屈折率を用いて、この 同位体分離を測定した.この手法は、実際のDT 混合ペレットの検査手法へと応用が可能である. Kevwords:

deterium-tritium pellet, fusion, solid tritium, inspection method, optical measurement, fuel pellet

#### 1. はじめに

重水素-トリチウム燃料で動作する核融合炉では、磁場 核融合ではガスパフ、固体ペレット入射、中性粒子ビー ム入射加熱 (NBI: Neutral Beam Injection heating), 慣 性核融合で固体ペレットにより供給することを想定して いる.磁場核融合のプラズマ中心もしくは慣性核融合の 炉心へ燃料を直接的に供給できるペレット注入において は、水素分子状の重水素(D)とトリチウム(T)を混合 した固体状のペレット(一般的に慣性核融合では燃料ター ゲットと呼称するが、紛らわしいために以下、DT混合ペ レットと記述する)を使用する.この時,磁場核融合の ペレットは0.4~6 mm 程度[1]の大きさであり、現状の設 計では決まった形状があるわけではない. DT混合ペレッ ト1個あたりのトリチウムの放射能は約6×10<sup>21</sup> Bqにな り[2], これらを毎秒数個の間隔で, 500~2000 m/sの速 度で射出する必要がある[3]. インジェクションにはDT ガスを使ったガス圧によって加速するパイプガンが検討 されている.現状,十分な加速性能があると考えられるが, 入射量の100倍程度の膨大なガスが必要となることが最大 の懸念点である. また, DT混合ペレット1個を加速によっ て入射するとパイプガンの銃身が発熱するため、連続的 な運転は難しい. さらに、DT混合ペレットの製氷部分と インジェクション部分は一体となるため、製氷速度によっ て必要なパイプガンの数が決まる.例えば、1個の製氷 時間を30秒とすると、3Hzで射出するには100本のパイ プガンが必要になる.DT混合ペレットは、パイプガン内 で氷解しながら加速され、プラズマ中心へと到達する[4, 5]. この時, DT混合ペレットのDTの混合比が重要であ

る.水素の同位体は三重点が異なる(H<sub>2</sub>:13.80 K, D<sub>2</sub>: 18.73 K, T<sub>2</sub>:20.6 K)(図1参照)[6]ために,固化過程 において混合比が不均一になり,ガスのDT比とペレット の混合比が一致しない可能性が想定される.例えば,密 閉した容器内で固化した時,融点の違いからT<sub>2</sub>が先に固 化することが考えられる.図2にイメージ図を示すよう に,容器内の外側から内側へ向けて固化が進むとした時, ペレットの表面ではTが,内面ではDが多くなることが予 想される.このようなDT分布を持つペレットをパイプガ ン内で入射すると,加速によって表面から氷塊し,プラ ズマ中心部へと到達する燃料はDの比率が高い物になる.



Institute of Laser Engineering, Osaka University, Suita, OSAKA 565-0871, Japan

 $corresponding\ author's\ e-mail:\ yamanoi.kohei.ile@osaka-u.ac.jp$ 



図2 慣性核融合(ICF)と磁場核融合(MCF)の燃料ペレット におけるDとTの分離発生のイメージ図.

例えわずかなDとTの分離であっても,連続運転では燃料 を絶えず投入する必要があるため,長時間の連続運転で 炉内のDとTの比に偏りが発生し,効率的な核融合反応の 妨げになる可能性がある.

一方、慣性核融合では、レーザーによる均一圧縮が必 要であるため,DT混合ペレットは直径3~5mmの中空球 であり、表面及び内部にクラックが無く、高い真球性が 求められる.現在.米国で使用されている慣性核融合の 燃料ペレットは、プラスチック等のシェル内でDTガスを 固化させ、結晶を徐々に成長させることで均一なDTシェ ルを作成している[7-9]. 慣性核融合の場合, レーザー照 射によるアブレーションの反作用によってDT燃料を球の 内側へと加速, 爆縮することで高密度を得る. 燃料ペレッ トの表面はアブレーションによって吹き飛ぶため、DTで ある必要はない.通常、断熱材としての役割も持つプラ スチック等がアブレーター層として使用される. 慣性核 融合のインジェクションでは、このアブレーター層(断 熱層)があるため、表面が氷塊することはない、DT混合 ペレットは100 m/sの速度, 4~10 Hzの繰り返しで炉心へ と入射される[10]. しかし、シェル内の外側から内側へ DT固体が成長するため、結晶の成長方向に沿ってDとT の比が変わっていく可能性がある. 慣性核融合では、爆 縮によって中心部で点火し、アルファ加熱によって燃焼 が広がる、シェルの中心部でDが多く、Tが少ない構造の 場合,爆縮後に点火点となる中心部のDとT比が1:1では なくなり、核融合反応の効率が下がる可能性がある.

以上のように、重水素-トリチウム燃料で動作する核融 合炉における燃料システムの設計にはDTペレット製氷技 術(混合比制御,製氷速度)の技術開発が非常に重要であ る.一方で、固体燃料技術の設計には燃料となる固体DT 及びT2の物性値が必須である。しかし、現状で使用され ているデータの多くは軽水素および重水素からの推量値 が多く,正確な実測データは少ない。特にトリチウムはβ 崩壊によって<sup>3</sup>Heへと変わるため,β線による加熱や<sup>3</sup>He の発生によって、経験式から求めたデータと実際の核融 合炉で必要な実効的なデータが異なる可能性が高い. こ れらのデータが不足している要因として、トリチウムは 標準状態で気体状の放射性物質であり、材料への高い透 過性という取り扱いの難しさにある.純粋なT2を固化さ せると、たった1 cm<sup>3</sup>(0.26 g)の量であっても、その放 射能は約92テラベクレル(TBq)になる.このような大 容量のトリチウムを取り扱うことができる施設は国内で は日本原子力研究開発機構原子力科学研究所のトリチウ

ムプロセス研究棟や大阪大学レーザー科学研究所,富山 大学研究推進機構水素同位体科学研究センターに限られ る.さらに,DT,T<sub>2</sub>をはじめとする水素同位体の固化に は,低温工学,放射性物質の取扱,水素取扱といった法 令まで含めた知識と技術が必須である.さらに極低温環 境の限られた環境で極少量のサンプルに対して物性を正 確に測定する技術も求められる.現状,DT混合ペレット の製造技術とその評価技術は確立しておらず,研究が進 められているところである.本記事では,実際のトリチ ウム取扱技術の詳細を含め,DT混合ペレットの作成と屈 折率測定および固化による同位体分離を紹介する.

#### 2. DT混合ペレットの生成実験

国内でのDT固体作成の実例として大阪大学レーザー 科学研究所で実施した実験を紹介する.レーザー科学研 究所では慣性核融合の燃料ペレットを開発している.慣 性核融合の燃料ペレットは中空シェルの形状をしており, 高い真球性と膜圧の制御が必要である.そのため,光線 追跡法などの光学的な手法によって膜圧およびクラック の有無の検査が行われる.光学的な検査には屈折率の値 が必須であるが,現状,T<sub>2</sub>及びDTの屈折率の値はH<sub>2</sub>や D<sub>2</sub>からの経験式から推量された値になっている.そのた め,我々は固体DTの屈折率を実験的に測定することを目 的に,約2.5 TBqのT<sub>2</sub>とD<sub>2</sub>を用い,固体DTを作成した. 2.1 トリチウムアンプルからの取り出し

図3にT<sub>2</sub>とD<sub>2</sub>をZrNiベッドへと吸着させるガス配管 の模式図を示す.配管は、体積と圧力からガス量を測定 する部分とT<sub>2</sub>およびD<sub>2</sub>を吸着させるZrNiベット、真 空排気部分から成る.ZrNiベットは図4に示すように、 ZrNi合金が入ったSUS容器の外側に加熱するヒーターと 熱電対を組み込み、さらにこれらをSUS容器で封入した2 重配管構造になっている.2重配管の間の空間は、リーク したDTガスを回収できるように、真空排気できるバルブ ポートが接続れている.ZrNi合金(約0.5g)は、あらか じめ軽水素を用いて水素吸蔵合金として活性化させ、D<sub>2</sub> ガスを用いて吸着脱離能力を調べている.ZrNi合金は熱 平衡状態で水素放出圧力の同位体依存性が小さく、DとT を1対1で放出でき、吸蔵と放出の繰り返しによる劣化が 少ないことから、これを選定した[11].真空ポンプを除



図3 アンプルから ZrNi ベッドへと吸着させるガス配管の模式.



く全てのガス配管は大型のグローブボックス内に入って おり、グローブボックスはトリチウム除去装置に接続さ れている.また、このトリチウム除去装置を稼働させた 状態で作業を実施し、グローブボックス内とグローブボッ クスのある使用室内のトリチウム濃度は、電離箱にて常 にモニターされている.T<sub>2</sub>ガスを封入したガラスアンプ ルは、American Radiolabeled Chemicals Inc. 社製の物 を2本使用した.

アンプルとガス配管をガラス器具を用いて接続し、系 内を真空排気する. 接続部に入れた金属を外側から永久 磁石で操作し、アンプル先端のブレイカブルシールを破 壊することで取り出す.取り出したT<sub>2</sub>ガスはあらかじめ 内容積のわかっている系内で体積と圧力を測定し、水素 吸蔵合金であるZrNiベッドへ吸着させた. さらに、T<sub>2</sub> ガスと同量のD2ガスを同じ系内で圧力を調整しながら、 ZrNiベットへと吸着させた. D<sub>2</sub>およびT<sub>2</sub>はZrNiベッド 内で水素状分子ではなくZrX<sub>2</sub>, ZrNiX<sub>3</sub>(X = DもしくはT) などの形で吸着されるため、放出時にはD<sub>2</sub>, DT, T<sub>2</sub>の化 学形態になり、これらの比は吸着させたD<sub>2</sub>とT<sub>2</sub>の割合に 依存する[12]. 例えば、今回のようにD<sub>2</sub>:T<sub>2</sub> = 1:1の場 合にはD<sub>2</sub>:DT:T<sub>2</sub> = 1:2:1の割合になる.

#### 2.2 DTガスの充填固化

次に、図5に示す充填固化装置の説明を行う.この装置は、充填したZrNiベッドを取り扱うライン、真空排気 およびガス分析を行う分析ライン、液化と固化を行うク ライオスタットラインから成る.DT混合ガスが充填され ているメインのZrNiベッドとは別に、吸蔵能力が低下し た時に備えて予備のZrNiベッドを用意している.クライ オスタットラインも同じくDTガスを液化、固化させるセ ルとSUSの真空容器の2重配管になっており、セルから のDTガス漏洩が発生した際にもトリチウムを回収でき るようにしている.また、セルは屈折率測定を想定した サファイア窓付きの楔形をしており、取り扱うトリチウ



図5 DT 混合ペレットの充填固化装置概要図.

ム量を少なくするために、セル内は可能な限り内容積を 小さくしている.液化、固化を行う場合、停電などの何 らかのアクシデントで急な昇温が発生した時、セル内の 圧力が急激に上昇し、トリチウム漏洩のリスクが上がる. この対策として、圧力を逃がす安全弁とバッファタンク を接続している.なお、これらのガス配管系内は軽水素 の混入を抑えるためにD<sub>2</sub>で共洗いをしている.

DT混合ガスを吸着させたZrNiベッドをこの充填固化 装置に接続し,真空排気を行った後に固化セルを約20 K まで冷却し,ZrNiを400℃に加熱し,DTガスを放出する. 放出されたDTガスはセル内に気体として導入される. セ ルの温度を徐々に下げることで,液化,固化を行った. 実際に液化,固化の過程をCCDカメラで観測した結果を 図6に示す.

#### 3. DT 混合ペレットの屈折率測定

#### 3.1 DTの屈折率測定

楔形のセル内にてDT液体及び固体を作成した後、レー ザーを照射し、真空時と比較した時のレーザースポット の位置のシフトを観測することで、屈折角を求め、スネ ルの法則より、屈折率を測定した.なお、実際には図7 に示すようにレーザースポットの位置変化を2箇所で観測 することで、試料である固体DTからの距離を測定し、屈 折角を求めている.図8に屈折率を測定した結果を示す. 屈折率は低温になれば上がる負の温度依存性(dn/dT)を 持つ.固体の屈折率の温度依存性はローレンツ・ローレ ンツの式から導かれる下記の式(1)で表される[13,14].



図 6 (a) 液化(b) 固化した DT.



Temperature (K) 図 8 DT 固体の屈折率の温度依存性.

18

固体:液体

1.155

1.150

1.145

1.140

1.135

1.130

 $\mathrm{d}T$ 

17

6n

Refractive index

$$\frac{\mathrm{d}n}{\mathrm{d}m} = \frac{(n^2 - 1)(n^2 + 2)}{c}(\varPhi - \beta) \tag{(1)}$$

19

固体

液体

00

20

21

22

ここで, *n*はそれぞれの屈折率, *φ*は分極度, *β*は熱膨張 係数である.

一般的に屈折率は密度が増加するに従って増加する. 透過端付近では,屈折率もしくは分極率は増加し,屈折 率の温度依存性 dn/dTは分極度 Ø に比例して正の依存性 を持つ.固体の水素分子のような分子結晶では一般的に 共有結合結晶やイオン結晶,金属結晶と比べて高い熱膨 張率を持つ.実際,0~14 Kで1%の線熱膨張係数を持つ. 一般的なガラス材料では,10<sup>-5</sup>から10<sup>-6</sup>/Kの線熱膨張係 数を持つことを考えると,大きな値であることがわかる. この高い熱膨張係数によって負の dn/dTになっていると 考えられる.

なお、D:Tの比は屈折率測定後に、四重極質量分析 装置にて計測し、同位体効果による感度補正を加味して D:T = 55:45になっていることを確認している[15].

#### 3.2 固化による水素同位体の同位体分離

最初に説明したように、水素同位体の固化温度もしく は三重点の違いから、DT混合ガスを固化する際に分離が 発生することが考えられる.我々は、H<sub>2</sub>およびD<sub>2</sub>を固化 させることで、水素同位体の分離挙動を観測した.水素 同位体はH<sub>2</sub>, D<sub>2</sub>, T<sub>2</sub>の順に屈折率が高くなる.式(2)に 示すローレンツ・ローレンツの式より, 屈折率を測定す ることで, 混合物の比を求めることが可能である.

$$\frac{n_{\rm HD}^2 - 1}{n_{\rm HD}^2 + 2} = \left(\frac{n_{\rm H}^2 - 1}{n_{\rm H}^2 + 2}\right) \phi_{\rm H} + \left(\frac{n_{\rm D}^2 - 1}{n_{\rm D}^2 + 2}\right) \phi_{\rm D} \tag{2}$$

$$\Phi_{\rm H} + \Phi_{\rm D} = 1 \tag{3}$$

$$\Phi_{\rm H}, \, \Phi_{\rm D} \rightarrow x_{\rm H}, \, x_{\rm D} \tag{4}$$

ここで, *n*はそれぞれの屈折率, φは体積分率, *x*はモル 分率である[16-18].

図9にH<sub>2</sub>とD<sub>2</sub>混合ガスを用いた固化過程での屈折率測 定によるH<sub>2</sub>とD<sub>2</sub>の分布測定を行った実験系を示す. 楔形 セル内に液体のH<sub>2</sub>およびD<sub>2</sub>を1:1の比で充填し,下方 向から徐々に温度を下げて固化を行う. その際,セルの 縦方向に伸ばしたレーザースポットを用いて固化過程の 屈折率分布の測定を行った. これにより縦方向の屈折率 分布を測定できる.

図10(a)に屈折率分布の結果を示す.液体状態(約 16.3 K) では屈折率が均一であることがわかる。下部よ り徐々に温度を下げて固化させていく。約15.6Kでセル の下部から固化が始まり,固化した部分の屈折率が高く なっている.同時に、液体部分の屈折率が一様に低下し ていることがわかる.これは、屈折率の高いD<sub>2</sub>の濃度 が、固化した部分で高くなり、液体中のD2の濃度が低く なっていることを意味する. つまり, D2から先に固化が 始まっていると言える.これら屈折率の値を式(2)およ びH2, D2のそれぞれの屈折率を用いてH2:D2の比に変換 した (図10(b)). H<sub>2</sub>とD<sub>2</sub>の分離は固化の始まった箇所 が最大であり、 $D_2$ :  $H_2 = 6:4$ の比となった. この分離は、 図11のH<sub>2</sub>とD<sub>2</sub>の全率固溶型状態図[19]から説明できる. H<sub>2</sub>: D<sub>2</sub>が1:1の時, 固化は約16.5 Kから始まり, その固 体中の比はD2:H2=7.4:3.6程度であり、今回の測定と良 い一致を示す. その後, さらに温度を下げていくと比が









1:1に近づいていくが、一度固体なると固体中での拡散 がほとんどないために、発生した分離は維持される[20].

この結果は、DT混合ペレットを押し出しながら作成す るクライオシリンダ(Extruder)方式やパイプガン内で 作成する方式などでは、同位体の分離が起こり、炉内の DT比がガス状態で測定した値と異なる可能性を示してい る.ただし、D<sub>2</sub>とT<sub>2</sub>の場合では、固化点の差がH<sub>2</sub>とD<sub>2</sub> ほど大きくなく、さらにトリチウムのβ崩壊による発熱(β 加熱)があるため、拡散の効果が期待できるために、同 位体分離が抑制される可能性がある[21-24].

実際の核融合炉においても、屈折率分布から同位体比 の分布を求める手法は有効であり、光線追跡法などによ る検査手法の開発が期待できる.この時、DT混合ペレッ トはT<sub>2</sub>とD<sub>2</sub>分子だけでなく、DT分子も含む.各分子の 屈折率の値が必要であり、さらに3分子の混合体になる ため、単純なローレンツ・ローレンツの式から分離を観 測することはできない.それぞれの分子の屈折率分散の 違いから、多波長計測での同位体の分離の観測が検討さ れている[25].

#### 4. おわりに

DT混合ペレットの開発に向けて、トリチウムの取り扱い手法の説明に加え、DTの固化のデモンストレーションと屈折率測定、屈折率の分布測定による水素同位体の固化過程における同位体分離の観測を紹介した。屈折率分布による同位体分布を測定する手法など、固体DTを光学



的に検査する手法への応用が考えられる. このようにト リチウムの物性値を明らかにすることで,DT混合ペレッ トの作成手法や検査手法の開発へと役立てることができ る.特に,トリチウムではβ崩壊によるHe発生やβ加熱 (発熱)の影響を考慮した実効的な物性値評価が求められ る. 今後の原型炉をはじめとする核融合発電炉での燃料 部分の設計の実現を期待する.

#### 参考文献

- [1] R.S. Craxton et al., Phy. Plasmas 22, 110501 (2015).
- [2] B. Ploeckl et al., Fusion Sci. Technol. 77, 266 (2021).
- [3] P.T. Lang et al., Fus. Eng. Des. 96-97, 123 (2015).
- [4] 坂本隆一, 星野光保:プラズマ・核融合学会誌 83,560 (2007).
- [5] S.K. Combs and L.R. Baylor, Fusion Sci. Technol. 73, 493 (2018).
- [6] H.M. Mittlehauser et al., Cryogenics 4, 368 (1964).
- [7] V. Draggoo, Health Phy. **104**, 571 (2013).
- [8] S.W. Haan et al., Phys. Plasmas 18, 051001 (2011).
- [9] D.N. Bittner *et al.*, Fusion Sci. Technol. **35**, 244 (2019).
- [10] T. Norimatsu *et al.*, J. Plasma Fusion Res. **82**, 817 (2006).
- [11] K. Watanabe et al., Fuson Technol. 28, 1437 (1995).
- [12] G. Libowitz et al., J. Phys. Chem. 62, 76 (1958).
- [13] L. Prod'homme, Phys. Chem. Glasses 1, 119 (1960).
- [14] T. Komatsu *et al.*, J. Ceram. Soc. JAPAN **126**, 8 (2018).
- [15] K. Iwano et al., Sci. Rep. 12, 2223 (2022).
- [16] K. Narendra et al., Asian J. Appl. Sci. 4, 535 (2011).
- [17] D.E. Diller et al., J. Chem. Phys. 49, 3096 (1968).
- [18] G.E. Childs and D.E. Diller, Adv. Cry. Erg. 15, 65 (1995).
- [19] D. White and J.R. Grenier J. Chem. Phys. 42, 4152 (1965).
- [20] J. Zhang et al., Nucl. Fusion 63, 076020 (2023).
- [21] P.W. McKenty et al., J. Appl. Phys. 100, 073302 (2006).
- [22] T. Lda et al., Radiochim. Acta 56, 209 (1992).
- [23] P.C. Souers et al., J. Chem. Phys. 70, 1583 (1979).
- [24] V.V. Sechenyh *et al.*, J. Chem. Thermodyn. **43**, 1705 (2011).
- [25] J. Zhang et al., Fusion Sci. Technol. In press.