九州大学学術情報リポジトリ
Kyushu University Institutional Repository

高温ガス炉を用いた核融合トリチウム製造法及び実証試験に関する研究

古賀，友稀

https://hdl.handle.net/2324/4784607

出版情報：Kyushu University, 2021, 博士（工学）, 課程博士
バージョン：
権利関係：

高温ガス炉を用いた核融合トリチウム製造法及び実証試験に関する研究

令和 3 年 12 月

古賀　友稀

目次

第1章　序論
1-1 世界のエネルギー消費状況及び国内の政策……1
1-2 核エネルギーの利用……2
1-2-1 核分裂炉……2
1-2-2 核融合炉……3
1-3 核融合炉の研究開発状況……3
1-3-1 JT-60/JT-60SA (JAERI Tokamak 60)……3
1-3-2 大型ヘリカル装置(LHD)……4
1-3-3 欧州トーラス共同研究施設(JET)……4
1-3-4 国立球状トーラス実験(NSTX)……4
1-3-5 Wendelstein 7-x (W 7-x)……5
1-3-6 超電導トカマク型核融合実験装置(EAST)……5
1-3-7 Korea Superconducting Tokamak Advanced Research (KSTAR)……5
1-3-8 国際熱核融合実験炉(ITER)……5
1-3-9 核融合原型炉(DEMO)……5
1-4 核融合炉へのトリチウム供給……7
1-4-1 CANDU 炉による供給……7
1-4-2 重水素-重水素(DD)スタートアップによる供給……7
1-4-3 軽水炉による軍事用トリチウム製造……8
1-4-4 国外からの購入による供給……8
1-4-5 海外でのトリチウム供給戦略……8
1-4-6 高温ガス炉による供給……9
1-5 高温ガス炉……10
1-5-1 高温工学試験研究炉(HTTR)……11
1-5-2 高温ガス炉ガスタービン発電システム(GTHTR300)……12
1-6 高温ガス炉によるトリチウム製造の研究状況……12
1-7 研究の目的……13
1-8 論文構成……14

第2章　Li ロッド構造及び解析方法
2-1 Li ロッド構造……28
2-2 核計算……29
2-3 拡散計算によるトリチウム流出量評価……30
2-3-1 トリチウム製造量の設定……30
2-3-2 Zr のトリチウム吸収量評価……31

2-3-3　アルミナ層のトリチウム流出量評価……31
2-3-4 トリチウムバランス式……33

第3章　ホウ素及び Li 可燃性毒物が高温ガス炉の実効増倍率に及ぼす影響
3-1 はじめに……..37
3-2 BP 体系及び計算モデル……..37
3-3 実効増倍率及びトリチウム製造量の評価..……38
3-4 実効増倍率の特性に影響を及ぼす要因……..……38
3-5 炉心核特性の改善……40
3-6 まとめ……..41

第4章　HTTR を用いたトリチウム製造実証試験における照射試験体の検討
4-1　はじめに……57
4-2　計算モデル及び照射体系……57
4-3　HTTR 用 Li ロッドの設計……58
4-4　照射試験法の検討……58
4-4-1 実験内容……...59
4-4-2 トリチウム製造量の妥当性及び炉心へのトリチウム流出量……59
4-5 まとめ……..60

第5章　^{6}Li(n,α)T 反応による核反応熱が Li ロッドのトリチウム閉じ込め性能へ及ぼす影響
5-1 はじめに……..71
5-2 計算モデル……71
5-2-1 Li ロッドモデル及び核燃焼計算……..……72
5-2-2 核反応熱を考慮した温度分布及びトリチウム流出モデルへの適用……72
5-3 トリチウム製造量の確認及び発熱量の評価……73
5-4　HTTR 用 Li ロッドの温度分布及びトリチウム流出量……73
5-5　GTHTR300 用 Li ロッドの温度分布及びトリチウム流出量……73
5-6　定常状態に到達する時間の確認……74
5-7　核反応熱がトリチウム流出量に影響を及ぼす原因……74
5-8　まとめ……75

第6章　まとめ
6-1 総括……..87
6-2 今後の展望……89
参考文献……90
謝辞……95

第1章　　序論

1-1 世界のエネルギー消費状況及び国内の政策 [1]

世界のエネルギー消費量は経済成長と共に増加しており、2019 年に石油換算で 139 億 t に達した(図 1-1)。特に 2000 年代以降のエネルギー消費量の伸びはアジア太平洋地域において増加している。一方、経済成長率の低下、低い人口増加率、産業構造の変化、省エネルギー技術の進歩により先進国のエネルギー消費増加率は鈍化した。その結果、世界のエネルギー消費量に占める先進諸国の割合は 2018 年で 40.0%となった、発展途上国では今後もエネルギー消費量が増加するため、エネルギー効率を高めることは課題とされている。世界のエネルギー源別のエネルギー消費量を図 1-2 に示す。現在も石油は最も利用されるエネルギー源であり、その消費量は 1965 年から 2019 年にかけて増加し(年平均増加率 2.1%)、エネルギー消費全体に対する割合は 33.1%である(2019 年)。石炭は中国やアジア地域で安価な発電用燃料として消費量が増加したが(年平均増加率 1.8%)、近年の中国での需要鈍化や米国における天然ガス代替によりエネルギー消費全体に対しての割合は 27%(2019 年)である。天然ガスは発電用、都市ガス用に利用され、年平均増加率は 3.3%である。原子力、再生エネルギーの年平均増加率はそれぞれ 8.9%、12.6%と最も大きいが、2019 年ではエネルギー消費全体でそれぞれ 4.3%、5.0%とシェアは小さい。近年は太陽光発電や風力発電のコストが低下しているため、再生エネルギーのシェアは増えると予想されている。

図 1-3 は世界の原子力発電設備容量の推移を示している。化石燃料資源の確保における国際競争の緩和や地球温暖化対策のため、特にアジアで原子力設備容量が増加している。欧米地域では新規の原子力発電所が建設される頻度は低いが、出力増強及び設備利用率の向上により発電電力量は増加している。また、エネルギー需要の増加により新興国を中心に原子炉の導入や増設の検討が行われている。

国内の一次エネルギー供給を図 1-4 に示す。2011 年 3 月に発生した東北大震災のため、2012 年 5 月で国内における全ての原子力発電所は停止した。それによる不足電力を補うために石油の割合は 44.5%まで増加した。その後、2015 年 9 月に新規制基準の施行後初めて九州電力川内原子力発電所が再稼働され、順調に原子炉の再稼働が進み施設稼働率が上昇した。再生エネルギーの導入も進んだため石油の割合は 2019 年度で 37.1%と 1965 年以降で最低の割合になり、原子力設備利用率は 20.9%となった。

日本ではエネルギー問題及び環境問題を解決する手段として核融合炉エネルギーが大いに期待されている。文部科学省　科学技術・学術審議会　研究計画・評価分科会　核融合科学技術委員会は原型炉の技術開発課題の項目ごとに解決のためのアクションプラン[2]と、原型炉建設及び実用化に向けた原型炉研究開発ロードマップを策定した[3]。これらの計画に基づいて量子科学技術研究開発機構(QST)、核融合科学研究所(NIFS)、大学、産業界が参画し、国際協力を効率的に活用しながら国内の核融合研究開発を実施している。後述の ITER 計画を補完・支援し、原型炉に必要な技術基盤の確立を行う活動(BA:幅広いアプローチ)が

日欧協力の基、実施されている。2020 年 4 月からは「BA フェーズ II」と位置づけ、後述の核融合実験装置 JT-60SA を用いた実験が行われ[3]、2050 年代には核融合炉を実用化するよう計画されている[3]

1-2 核エネルギーの利用

核エネルギーとは核分裂反応や核融合反応により放出されるエネルギーである。本節では核分裂反応または核融合反応を用いて電力を得ることを目的とした核分裂炉及び核融合炉について説明する。

1-2-1 核分裂炉

核分裂炉はウランやプルトニウムなどの原子の核分裂を利用した原子炉である。核分裂炉は熱中性子を利用する熱中性子炉と高速中性子を用いる高速炉に大別される。日本を含めて世界で最も利用される原子炉は軽水炉である。軽水炉とは軽水を減速材として用いる熱中性子炉である。軽水炉に用いるウラン燃料では、^{235}U 原子が熱中性子を吸収すると核分裂を起こし、2~3 個の原子核、中性子、エネルギーが発生する。この反応で生じた中性子は減速材にて減速され熱中性子になり、別の ^{235}U 原子に吸収されることで新たな核分裂が連鎖的に起こる。軽水は安価に利用できる利点があるが、水の中性子吸収断面積が無視できない大きさであるため ^{235}U を濃縮する必要がある。軽水炉は沸騰水型原子炉(BWR)と加圧水型原子炉(PWR)の 2 種類に分類され、どちらも加熱された軽水を用いて発電を行う。BWR は 1 次系で生じた水蒸気で直接タービンを回転させることで発電する、PWR では高圧の 1 次系の軽水を熱交換器に経由して発生した 2 次系の蒸気でタービンを回すという違いがある。

原子炉の運用に関して、日本はウラン燃料資源量と放射性廃棄物についての課題を解決する必要がある。ウラン燃料を熱中性子炉のみに使用した場合、世界での消費量からウラン可採年数は 100 年程度と予想されている。そのため、日本では MOX 燃料を利用してウランの再利用を図ることや、核燃料サイクルの成立に必須である高速炉の実用化に向けて研究が行われている。しかし、日本の高速原型炉である「もんじゅ」の廃炉が決定したため、現在は高速実験炉「常陽」再稼働のための活動や、新たな高速炉建設に向けての研究が行われている。放射性廃棄物の処理は廃止措置と同様に最も深刻な問題である。日本の放射性廃棄物処分法は以下のように想定されている。再処理施設や MOX 燃料加工施設から発生する長半減期低発熱放射性廃棄物(TRU 廃棄物)を含む低レベル放射性廃棄物については、原子力事業者などが処分に向けて取り組むことになっている。放射線レベルや処分する深度の違いにより、トレンチ処分、ピット処分、中深度処分、地層処分のいずれかの方法で処分することになっている。しかしながら、放射性物質の処分は将来世代にとって負担になるため、放射線廃棄物の減容化、有毒度低減に向けた取り組みが行われている。高速炉はマイナーアクチニドなどの長寿命核種の燃焼が可能であるため、放射性廃棄物処理においても重要である。

1-2-2 核融合炉

核融合炉とは核融合反応を利用した原子炉である。核融合反応は 2 個の原子核が接近した際、量子トンネル効果によりそれらが融合する反応である。核融合炉では D-D 反応、D-T 反応、D-He 反応のいずれかの反応を用いるが、その中で最も臨界プラズマ条件が緩い D-T 反応を用いた核融合炉を最初に実用化することを目指している。以下に D-T 反応を示す。

$$D+T \rightarrow \alpha(3.52\ \mathrm{MeV}) + n\ (14.1\ \mathrm{MeV})$$

D(重水素)と T(トリチウム)原子核が核融合反応を起こすにはそれらを数 10 KeV のエネルギーを持ったプラズマにし、イオンの熱運動で原子核同士を衝突させる必要がある。核融合炉には現在商用利用されている原子炉(軽水炉・高速炉)と異なる安全性がある。核融合反応は基本的に恒星でのみ起こる反応であるため、プラズマ装置を用いて臨界プラズマ条件を満たさねば反応が起こらない。従って、通常運転時に望まれないインシデントが発生すると核融合反応は停止する。運転時に DT 反応で発生する中性子により放射性廃棄物が発生するが、ウランなどの核分裂性物質を使用しないため、冷却した後に低レベル放射性廃棄物として処分することが可能である。DT 反応に必要な重水素は、存在比が 0.015%であるため河川や海などの水を構成する水素から同位体分離により調達できる。一方、トリチウムは存在比が非常に小さく、半減期が約 12 年の放射性核種である。従ってトリチウムについては人工的に製造し、法規制を遵守するように管理する必要がある。核融合炉運転時には常にトリチウムを供給する必要があるため、DT 反応で生じる中性子をブランケット中の ^{6}Li に照射することで運転を行いながらトリチウムを製造することが基本的な考え方である。

1-3 核融合炉の研究開発状況

核融合炉発電を実現させるには磁場又は慣性によりプラズマを閉じ込め、臨界プラズマ条件を達成しなければならない。臨界プラズマ条件とは高温プラズマを閉じ込めるために使用するエネルギーと核融合反応により生じるエネルギーが等しくなる条件である。これまで日本の JT-60/JT-60SA[4,5]、LHD[6]、EU にある JET[7]などのプラズマ発生装置による実験が行われており、現在では国際熱核融合実験炉(ITER)[8]が建設中である。これらの実験炉の概要と今後各国で建設される予定である原型炉(DEMO)についての概要を説明する。

1-3-1 JT-60/JT-60SA (JAERI Tokamak 60) [4,5]

JT-60 とは 1985 年から旧日本原子力研究所により国内で建設されたトカマク型プラズマ実験装置である。ITER の建設・運転に必要な炉心プラズマ技術、原型炉、超高温プラズマ物理の解明に関する研究開発を目的として運用された。1998 年に DD プラズマによる実験で等価エネルギー増倍率 Q=1.25 を達成した[9]。また、2006 年には 28.6 s のプラズマ持続時間を達成した[10]。

その後、核融合エネルギーの早期実現のために、ITER 計画と並行して日本と欧州の欧州原子力共同体による共同プロジェクトが計画された。この計画では BA(幅広いアプローチ)と Japanese National Fusion Programme に基づいた JT-60 の改修により JT-60SA が建設された。2007 年に着工が行われ、装置本体は 2020 年 3 月に完成し、関連機器は同年 10 月に組立が完了した。JT-60SA には以下の三つの目的がある。一つ目は、臨界条件を満たすプラズマを長時間(100 秒程度)維持する実験を行い、その成果を ITER に反映させる。二つ目は、原型炉で必要となる高圧力プラズマを 100 秒程度維持することである。これにより原型炉の運転手法を確立する。三つ目は ITER 計画をはじめとする核融合研究開発を主導できる研究者・技術者の育成を行うことである。

1-3-2 大型ヘリカル装置(LHD) [6]

LHD とは NIFS により 1990 年から建設されたヘリカル型プラズマ装置である。ヘリカル型はトカマク型と異なり、らせん状のコイルを周回させることでねじれた閉じ込め磁場を生成する。これにより定常運転が容易であり、ディスラプションが原理的に生じない利点を持つ。1997 年 12 月に装置が完成し、1998 年 3 月にファーストプラズマが行われた。LHD 計画ではヘリカル型の核融合炉設計につながるプラズマ性能向上、トカマク型も含むトーラスプラズマに共通する物理の理解のための研究が進められている。プラズマを約 1 時間閉じ込めることができるが、エネルギー閉じ込め時間は 0.1 秒程度になる。2017 年 3 月より重水素を用いた実験が行われており、2020 年度に 10 keV のイオン温度を達成した。また、重水素と軽水素を用いた実験により核弾性散乱による核融合反応率の上昇が観測されたことが報告されている[11]。

1-3-3 欧州トーラス共同研究施設(JET) [7]

JET は英国に建設されたトカマク型核融合実験装置である。1979 年に建設が行われ、1983 年から実験が行われている。1991 年に世界で初めてトリチウムを使用する実験が行われた[12]。1997 年には 16 MW の熱出力を達成した[13]。2020 年には ITER 計画のためにトリチウムを使用するための改修が行われ、2021 年から重水素とトリチウムを用いる実験が行われている。

1-3-4 国立球状トーラス実験(NSTX) [14]

NSTX は米国に建設された球状トカマク型プラズマ装置である。球状トカマク装置はアスペクト比(トーラスの大半径と小半径の比)が 2 以下になる装置を指し、プラズマの形状は球状になる。この形状はプラズマ閉じ込めの観点では有利になるが、通常のトカマク装置に比べ装置を配置するスペースが少なくなるためコイルの超電伝導化が困難になる。NSTX は 1999 年 2 月にファーストプラズマが得られた。NSTX は 2015 に NSTX-U に改修されたが、ポロイダルコイルの問題により現在まで修理が継続されている。

1-3-5 Wendelstein 7-x (W 7-x) [15]

W 7-X はドイツに建設されたヘリカル型プラズマ装置である。この装置に使用されている 50 体の 3D モジュラーコイルと 20 体の平面コイルは最適な磁場配位を達成するためにシミュレーションコードを活用して設計された。2005 年に建設が開始され、2015 年 12 月にファーストプラズマを達成した。

1-3-6 超電導トカマク型核融合実験装置(EAST) [16]

EAST はプリンストンプラズマ物理研究所(PPPL)とゼネラルアトミックス社(GA)の設計協力により、中国にて建設されたトカマク型核融合実験炉である。2000 年に建設が開始され、2006 年にファーストプラズマが得られた。この装置で得られた知見は ITER に利用すると計画されている。

1-3-7 Korea Superconducting Tokamak Advanced Research (KSTAR) [17]

KSTAR とは PPPL で建設予算が得られなかった超電導トカマクの設計を基に大韓民国に建設されたトカマク装置である。この装置の設計では接線視野が大きなポートが多いため、計測が容易である。ファーストプラズマは 2008 年に達成した。この装置に備わるプラズマ発生装置は日本原子力研究開発機構(JAEA)から無償貸与されたものである。

1-3-8 国際熱核融合実験炉(ITER) [8]

ITER とは国際協力によりフランスで建設されているトカマク型の熱核融合実験炉である。ITER は既存のトカマク型実験炉より大きく、400 s の運転時間と 500 MW の出力を達成するよう設計されている。ITER 計画では核融合炉技術の実証を目的としており、エネルギー増倍率(Q 値)が 10 以上のプラズマを 400 s 以上維持する、超電導コイルや加熱装置などの統合した核融合工学技術の有効性を実証する、ブランケットなどの機器試験と安全性の実証が技術的な目標として掲げられている。世界で初めて核融合炉に装荷したブランケットによりトリチウムを製造する試験を実施する予定である。現地点では 2025 年にファーストプラズマを、2035 年に DT プラズマによる実験を予定されている。

1-3-9 核融合原型炉(DEMO)

DEMO とは ITER 計画後に建設される核融合炉であり、実際の安定した発電、実用化のための運転技術とトリチウムの増殖を確立することが目標である。DEMO 計画は各国が独自に行うため、各国の設計と詳細な目的は異なっている。

日本の DEMO 計画では[18]、DEMO に要求される目標として、発電所クラスの安定した発電と稼働率、商業炉で計画されているリモートメンテナンススキーム、トリチウムの自己供給を実証することが設定されている。強固な設計を行うため、2015 年に「Joint Special Design Team for Demo Fusion」設立された。量子科学研究機構(QST)、核融合科学研

究所(NIFS)、大学、製造メーカーがこのチームに参加している。2025 年までに有望な DEMO 概念の開発を行い、以降では研究開発項目と技術仕様を設定する。2050 年代に核融合炉の商業運転を達成する事を目標としている。現在検討している DEMO はトカマク型で、固体ブランケット-水冷却方式を採用している。これは既に軽水炉で確立している技術を採用することで DEMO 用の新規の技術開発コストを最小限にするためである。

欧州では[19]、EUROfusion の枠組みにより DEMO の開発が行われている。DEMO の目標は 21 世紀半ば頃に数百 MW の電力を発電し、閉じたトリチウムサイクルで核融合炉を運転すると想定されている。そのロードマップでは ITER 計画で得られた基礎技術を用いて開発リスクに対する保守的な外挿を行うなど、ITER 計画に基づいた開発が行われることが原則である。そのため、欧州 DEMO 計画は ITER 計画のスケジュールに依存している。ただし、両計画は並行して進められている。また、欧州は 2011 年頃から DEMO 先行概念設計研究に協力して取り組んでいるため、多くの技術的成果を日本と共有している。

ロシアでは[20]、1991 年からトカマク型の実証核融合炉の概念設計研究が行われている。DEMO の主な目的は商業炉レベルの核融合エネルギーの実用性と経済的な競争力を評価し、将来の核融合炉の最適な物理的、技術的、経済的特性をより良く明確にすることである。DEMO のパラメータは ITER 技術の外挿により設定される。ロシア国内で行う核融合炉材料試験は液体金属高速炉 BN-600 で行う予定である。また、放射性廃棄物として処理される構造材の再利用が検討されている。1990 年代初めには定常運転に関するデータが不足していたため、1991-1996 年にパルス運転型の DEMO-P が開発された。工学的な制約がパルス運転を行う核融合炉の性能を制限するために経済性が悪化することが示唆された。その後得られた結果では定常運転を達成することが示された。ここで得られた結果と ITER に関する研究の知見を基に、1997 年から定常型原型炉である DEMO-S の包括的な技術分析が行われた。DEMO-S の工学設計は 2022 年までに完了し、2024 年に建設が行われる予定である。

インドでは[21]、2050 年までに核融合発電所を実現するために、DEMO を 2037 年に建設することを計画している。この DEMO は 1 GW の電気出力を得ることを目的としている。その前段階として定常型トカマク SST-2 の建設を 2027 年まで行うことを計画している。SST-2 の目的は将来の DT 核融合炉のために提案された装置を試験・認定することである。SST-2 は He 冷却ダイバータなどの独自に開発した装置の統合試験を行うことができる。また、装置の外側を増殖ブランケット、内側を遮蔽ブランケットで覆った試験を行う予定である。

中国では[22, 23]、2050 年から 2060 年に最初の商業炉である Prototype Fusion Power Plant (PFPP)を建設することを計画されている。そのために Fusion Design Study (FDS)シリーズと名付けられた計画が進められ、それとは別途に China Fusion Engineering Test Reactor

(CFETR)の設計が行われている。FDS シリーズの目的は中性子、電磁気、材料、構造解析に関するブランケット設計の最適化に重点を置き、核融合炉の実現可能性を検討することである。同時に安全性、環境、経済的な実現可能性も検討する。CFETR の目的は ITER と DEMO のギャップを埋めることを目的としている。CFETR には 2 つのフェーズが計画されている。フェーズ I では 2030 年代に運転を開始し、定常運転とトリチウムの自給自足を達成することが目標である。その後改修を行い、フェーズ II の運転を行う。ここでは DEMO として運用を行い 1 GW 以上の出力を達成することが目標になる。

1-4 核融合炉へのトリチウム供給

核融合炉は運転を行いながらブランケットにより消費量以上のトリチウムを製造するよう設計されているが、運転開始時には必要量のトリチウムを保有する必要がある。トリチウムの燃焼率やトリチウム循環系にトリチウムが付着することによるトリチウム回収率への影響を考慮し、様々な方法で必要量が見積もられた。DEMO に必要な初期装荷量は ITER からの外挿により最大 2,960 g と試算されている[24]。初期保有トリチウムとは別途に、原型炉建設前に行うトリチウム循環およびブランケットシステムに関する炉工学試験には 100 g 以上のトリチウムが必要になる。本節では実施及び検討されている核融合炉供給用トリチウムの製造方法、国内外のトリチウム供給について説明する。

1-4-1 CANDU 炉による供給 [25]

ITER 計画に必要なトリチウムは、CANDU 炉という重水炉から供給する予定である。CANDU 炉は冷却材と減速材が重水である熱中性子炉で、D(n,γ)T 反応により副産物として生じるトリチウムを利用する。熱出力 2 GW の CANDU 炉からのトリチウム製造量は 130 g/year[26]であるため、核融合炉にトリチウムを供給するために多くの CANDU 炉が必要になる。しかし、CANDU 炉で製造したトリチウムは ITER に供給する契約により、原型炉への供給量は制限される。原型炉への供給可能量については節 1-4-5 で説明する。

1-4-2 重水素-重水素(DD)スタートアップによる供給

初期装荷分のトリチウムを DD 核融合反応により供給することが提案されている。DD 核融合反応は以下のように起こる。

$$D+D \rightarrow T(1.01\ \mathrm{MeV}) + p(3.03\ \mathrm{MeV})$$

$$D+D \rightarrow {}^{3}He(0.82\ \mathrm{MeV}) + n(2.45\ \mathrm{MeV})$$

これらの反応によりトリチウムと中性子が発生する。プラズマ中に発生したトリチウムは DT 反応により中性子が発生し、DD 反応由来の中性子と共にブランケットでトリチウムを生成する。これによりトリチウムは原型炉のトリチウム増殖率(TBR)に従い増殖される。運転では DD プラズマのみから徐々にプラズマ中のトリチウム濃度を増加させることで最終的に定格運転に到達する。しかし、DD 反応の断面積は DT 反応より小さいた

め、プラズマを維持するために中性粒子ビームや外部電力が必要になり、定格運転を行うまで外部からの電力を消費する。従って、この手法は初期保有トリチウムを低減させるために活用する事が検討されており、初期保有トリチウムは数 100 g であると報告されている[27]。

1-4-3 軽水炉による軍事用トリチウム製造

軽水炉に Li 化合物を炉心に装荷し、^{6}Li(n,α)T 反応によりトリチウムを製造する手法が存在する[28]。図 1-5(JENDl-4.0 より引用)[29]が示すように ^{6}Li(n,α)T 反応の断面積は D(n,γ)T 反応より非常に大きいため、効率的にトリチウムを製造できる。また、軽水炉は世界各国で発電に用いられており、既に十分な運転実績がある。しかし、以下の軽水炉の特徴から Li の装荷方法は制限される。中性子の移動距離は数 cm であるため、Li を燃料棒の近くに配置する必要がある。Li は水と反応しやすく、トリチウムは水分子の水素原子と同位体交換を起こすことで回収が難しくなるので。それらが水と接触しないよう容器に密封するなどの対策が必要である。このような制約はあるが、米国では年間 1.5 kg の核兵器用トリチウム需要(START II 条約に基づく)を満たすために、Watts Bar 原子力発電所で Tritium Production Burnable Absorber Rod(TPBAR)を用いてトリチウムを製造している[30]。ただし、ここで製造したトリチウムは軍事用であるため核融合炉に利用することはできず、また米国以外での軍事用トリチウム製造法は不明である。

1-4-4 国外からの購入による供給 [31]

国内では旧原子力研究所のトリチウムプロセス研究棟で大量のトリチウムを使用した実験研究が行われた。これは施設の安全な運転管理を通して大量のトリチウムの安全取り扱いに関する知見と実績を蓄積し、核融合炉トリチウム取り扱い施設の実現に貢献することが目的である。1988 年以降海外からトリチウムが購入され、ガスシリンダーで米国から 6 回、計 16 g、IAEA 型トリチウム輸送容器でカナダから金属トリチウム化合物として 3 回、計 60 g 輸送された。また、将来の核融合炉用へトリチウムを 1 度に多く輸送するために 250 g のトリチウム用輸送容器が開発された[32]。

1-4-5 海外でのトリチウム供給戦略 [33]

海外でのトリチウム供給は主に ITER 計画とカナダの CANDU 炉の運転計画に依存している。軽水炉により製造されるトリチウムは軍事用であるため、供給元として検討されていない。現在の ITER 計画ではカナダの CANDU 炉による DEMO 用トリチウム保有量は最低 12.2 kg になると見込まれているが、計画の遅延によってはその保有量は 7.5 kg に減少する可能性がある。そのため、韓国やルーマニアの CANDU 炉からトリチウムを供給することが期待されている。最良のシナリオが実現しても CANDU 炉のみでは世界の DEMO に十分な量のトリチウムを供給することは不可能であり、将来の長期的なトリチ

ウム供給に関する不確実性も懸念されている。従って、小型 DEMO の建設と DD スタートアップにより初期保有トリチウム量を下げ、より多くの DEMO にトリチウムを供給することが検討されている。これは失敗時のリスクを分散し、核融合炉実現の可能性を高めることができると考えられている。

1-4-6 高温ガス炉による供給

現在の各国のトリチウム供給計画は、ITER 計画後の残存トリチウム量や DEMO によるトリチウム増殖の成功に依存しており、場合によってはトリチウム不足により DEMO 計画が遅延する可能性がある。特に日本ではトリチウムを製造する手段や有効な調達方法が明らかにされていない。そこで、高温ガス炉に Li を装荷することによるトリチウム製造法が提案されている[34]。高温ガス炉は第 4 世代原子炉の一つであり。炉心は黒鉛(減速材)と He(冷却材)で構成される熱中性子炉である。冷却材出口温度は最大 950℃になるため、高い熱効率を持ち、地域暖房、水素製造用に利用できることが期待されている。燃料は粒状の酸化ウランを複数のセラミック層で被覆した燃料粒子を黒鉛でペレット状にしているため、核分裂により生成される希ガスを含む放射性物質を閉じ込めることが可能である。また、耐熱性が高いため冷却材損失などの事故時に燃料温度が上昇した際には、1600 ℃まで放射性物質を閉じ込めることが可能である。炉心構造材の大部分を構成する黒鉛は放射線に強く、耐熱性に優れ、中性子吸収が少なく、熱容量が大きいという特徴を持つ。そのため炉心溶融の懸念が無く、低レベル放射性廃棄物として処理することができる。冷却材は化学的に安定な He であるため、冷却材温度が上昇しても燃料や構造材に対する反応性が低い。高温ガス炉の標準仕様では制御棒の操作を最低限にしつつ、運転に伴う反応度の低下を補填するために中性子吸収断面積が大きな ^{10}B を可燃性毒物(BP)としたホウ素(B)ロッドを燃料ブロックに装荷する。

高温ガス炉を用いたトリチウム製造には以下の利点がある。高温ガス炉を構成する黒鉛と He ガスは、化学的に安定であり、Li 化合物と反応しない。高温ガス炉の炉心体積は軽水炉に代表される同熱出力の他の原子炉より大きく、炉心中の中性子束は低くなるが、Li を装荷することが可能な領域が大きいため、^{6}Li を濃縮せず(天然存在比 7.5%)に十分な量の Li とトリチウム流出防止材を装荷することができる。現在提案されているトリチウム製造法では既存の設計からの変更を最低限にするため、BP である ^{10}B を ^{6}Li へ置き換え、トリチウム吸収体である Zr と共にアルミナ円筒に封入した Li ロッドを、図 1-6 の様に燃料ブロックの BP 孔に装荷することを検討している。ただし、より実現性のある Li 装荷方法が採用された場合は大きな炉心変更が行われる可能性がある。

1-5 高温ガス炉

高温ガス炉は第 4 世代原子炉の一つであり。先に説明した通り炉心は黒鉛(減速材)とHe(冷却材)で構成される熱中性子炉である。ここでは高温ガス炉について詳しく説明する。現在の高温ガス炉の燃料、減速材、冷却材、可燃性毒物には共通する以下の特徴を持つ。

・燃料

高温ガス炉の燃料は、粒状の酸化ウランを複数のセラミック層で被覆した燃料粒子を黒鉛で焼結したペレット状である。この被覆により希ガスを含む核分裂生成物を封じ込めることができる。被覆層の耐熱性が高いため冷却材損失などの事故時に燃料温度が上昇した際には、1600 ℃まで放射性物質を閉じ込めることが可能である。

・減速材

減速材である黒鉛は構造材を兼ねており、高温ガス炉の炉心温度に耐えることができる。黒鉛は中性子吸収が少なく、耐熱性、耐放射線に優れている。また、熱伝導性が良く熱容量が大きいため炉心溶融の懸念が無い。He ガスの除熱性能は低いので、高温ガス炉の炉心は軽水炉に代表される原子炉より熱出力当たりの炉心体積が大きく設計することで発熱密度を低くしている。この設計は工学的・経済的に有利に働かないが、ガスタービンによる発電や熱利用によりエネルギー回収率を高めることでそのデメリットを最小限に抑えることを目指している。炉心への空気侵入事故により黒鉛が酸化し爆発するという懸念があったが、そのような事故は起こらないと確認された[35]。

・冷却材

冷却材は化学的に安定な He であるため、冷却材温度が上昇しても燃料や構造材に対する反応性が低い。He ガスは放射化されにくいが、極微量に含まれる ^{3}He が中性子を吸収することでトリチウムを生成する。

・可燃性毒物(BP)

高温ガス炉の標準仕様では制御棒の操作を最低限にしつつ、運転に伴う反応度(実効増倍率)の低下を補填するために可燃性毒物(BP)を減速材(燃料ブロック)に装荷する。標準仕様で用いる BP は B_4C と黒鉛を混合物である B ロッドである。B_4C に含まれる ^{10}B が中性子を吸収することで運転初期の反応度は大きく抑制されるが、運転に伴い ^{10}B 量が減少するため実効増倍率の変化は緩やかになる。

以上の特徴により、高温ガス炉は以下の固有の安全性を持つ。

・異常時の温度変化が緩やかである。

・事故などにより被覆粒子が破損し、核分裂生成物が放出する可能性が非常に低い。

・温度係数が負であるため、大きな反応度が印加された際の出力増加速度と上昇幅は小さい。

・炉心溶融を懸念する必要が無い。

・冷却材損失時は圧力容器外の自然冷却により炉心残留熱を除去できるので、炉心損傷が発生しにくい。

次節に主な研究対象である 2 つの高温ガス炉について説明する。

1-5-1 高温工学試験研究炉(HTTR)

本節では我が国にある高温ガス炉について解説する。この高温ガス炉は高温工学試験研究炉(High Temperature engineering Test Reactor : HTTR) [36]と呼称され、日本原子力研究開発機構(Japan Atomic Energy Agency : JAEA)が所有する。図 1-7 [37]、1-8 に HTTR の垂直方向・水平方向の構造を示す。HTTR の熱出力は 30MW であり、原子炉出口冷却材温度が 850−950 ℃に達する。図 1-9 は燃料要素と燃料ブロック構造を示している、被覆粒子を用いたピンインブロック形式の構造で、燃料として使用する球状二酸化ウランは、炭素、2 層の PyC、SiC の 4 重の被覆に覆われ、直径 0.92 mm である。燃料被覆粒子を黒鉛粉末と共に中空円筒状に焼き固めた燃料コンパクトを黒鉛スリーブに入れ、燃料棒として取り扱う。燃料棒は対面間距離 360 mm、高さ 580 mm である正六角柱形の燃料ブロックに装荷されている。黒鉛は高純度黒鉛 IG-110 を採用している。燃料ブロックには燃料棒用の装荷孔に加え、3 か所の頂点部に直径 15 mm の BP 孔があり(図 1-9)、BP を装荷することができる。通常の設計では 2 カ所の BP 孔に B ロッドが装荷される。

HTTR 炉心は燃料ブロック、制御棒案内ブロック、可動反射体ブロックで構成され、それらが 5 体積み重ねられている。その上下に 2 体ずつ可動反射体が設置しており、以上のブロック 9 体の積層体をカラムと呼ぶ(図 1-7 参照)。カラムの底面高さは隣のカラムに対して互い違いの高さになっているため。炉心上面には規則的な段差がある。HTTR 炉心は 30 本の燃料カラム、16 本の制御棒カラム、12 本の可動反射体カラム、3 本の照射カラムから構成される。燃料カラムの周囲は可動反射体カラムに囲まれて配置されており、その外側に固定反射体が存在する(図 1-7 参照)。

黒鉛ブロックの詳細な配列及び燃料・BP 濃縮度を図 1-10 に示す。^{235}U の濃縮度は 3.4 ~9.9 wt%間の 12 種類の燃料を使用する。炉心全体の平均濃縮度は約 5.9 wt%であり、各段の燃料ブロック 1 本当たり 31 本(燃料領域 1,2)または 33 本(燃料領域 3,4)の燃料棒が装荷されている。標準仕様では計 300 本の B ロッドが装荷される。全ての BP 孔に Li ロッドを装荷することを検討しているため、Li ロッドは計 450 本装荷される。冷却材である He は炉心の上から下に向かって循環し、炉心を冷却する。

1-5-2 高温ガス炉ガスタービン発電システム(GTHTR300)

JAEA は高温ガス炉を水素生産や商業運転に利用することを見越して、高温ガス炉ガスタービン発電システム(Gas Turbine High Temperature Reactor 300 : GTHTR300)[38]の設計を進めている。GTHTR300 は熱出力 600 MW である。炉心設計は HTTR より単純であり、50%の熱効率を持つガスタービンシステムと組み合わせるので簡素で経済性に優れた発電システムになる。この名称にある「300」は電気出力が 300 MW であることが由来である。表 1-1 に GTHTR300 の主要諸元を示す。取り出し平均燃焼度は 120 GWd/t を目標としているため、被覆燃料粒子はバッファー層の厚い直径 1010 μm の大型粒子を使用し、燃料の濃縮度は全燃料領域で 14 wt%としている。出力密度は 5.8 W/cc と HTTR の約 2 倍であるため、GTHTR300 では黒鉛スリーブの代わりに燃料コンパクトに薄い黒鉛被覆層を施すことで除熱性能を向上させた一体型燃料を使用する。出口温度は HTTR と同様 850℃である。

図 1-11 は GTHTR300 の垂直方向炉心構造である。カラムは 10 段の黒鉛ブロックで構成されており、その内中央の 8 段が燃料ブロックであり上下の 1 段が可動反射体である。HTTR とは異なり、GTHTR300 は水平方向で一定の炉心高さを持つ。図 1-12 は GTHTR300 の水平方向炉心構造である。熱出力を増やしつつ事故時の徐熱性能を確保するために、GTHTR300 の炉心燃料領域は環状に配置される。制御棒は内外隣接反射体のみに挿入する設計である。炉心は 90 本の燃料カラム、30 本の制御棒案内カラム、91 本の可動反射体カラムで構成される。図 1-13 に GTHTR300 の燃料ブロック構造を示す。黒鉛材質は経済性に配慮し、IG-110 より純度の低い IG-11 を想定している。黒鉛中の不純物であるホウ素は可燃性毒物として利用できることが報告されているため[39]、純度を下げたことによる問題は生じない。燃料ブロックは対面間距離 405 mm、高さ 1,000 mm の正六角柱黒鉛製のブロックに 57 本の燃料ピンを挿入したものを使用する。BP 孔は直径 44 mm の BP が装荷できるようになっており、1 ブロックにホウ素濃度 0.3%の B ロッド(B_4C)を 3 本装荷するため、装荷本数は炉心全体で計 2,160 本になる。Li ロッドを装荷する場合も同様の装荷本数になる。BP 孔の中心は、燃料棒を均等に装荷する場合と比べ外側にずれている。

1-6 高温ガス炉によるトリチウム製造の研究状況

この節では高温ガス炉のトリチウム製造に関するこれまでの研究について述べる。最初期の研究では Li 化合物を含む被覆粒子を燃料粒子と混合することを検討した[40]。この方法では大量のトリチウムを製造することができるが、燃料要素からのトリチウム回収は難しいため、Li 化合物を BP として通常用いられる B_4C 製の B ロッドと置き換える方針に変更された。次に幾つかの Li 化合物を想定し、被覆した Li 粒子を装荷する検討を行った[41]。候補 Li 化合物の中で $LiAlO_2$ が最も融点が高く安定であるため、以降では $LiAlO_2$ を装荷することを想定した研究が行われた。$LiAlO_2$ 被覆粒子を BP に装荷する検討では、被覆粒子全体の表面積が非常に大きいために被覆粒子に製造されたトリチウムの殆どが流出すると評価された[42]。

トリチウム流出量を低下させるために装荷体の表面積を小さくする必要があるため、図1-14のような中空円筒状の$LiAlO_2$を同じ形状のAl_2O_3(アルミナ)円筒に封入したLiロッドが検討された[43]。この構造のLiロッドをGTHTR300中の全BP孔に装荷した体系の計算では、180日間の運転で約400~600 gのトリチウムの製造が可能だと評価された[43]。同時に800 KにおけるLiロッドからのトリチウム流出率は製造量に対して1%以下になると評価された[43]。しかし、トリチウムの炉心への流出量は安全面と回収率の観点から可能な限り減少させる必要がある。トリチウム製造を行わない標準運転での年間トリチウム生成量はGTHTR300で約12 g、HTTRでは約0.25 gと評価されている[44]。現在の想定ではできるだけ多くのトリチウムを短時間で製造するために、一年運転した後にトリチウムを回収し標準運転に戻すことを検討している。従って、年間のトリチウム流出量は少なくとも標準運転によるトリチウム生成量以下でなければならない。さらに、流出量は通常運転でのHeガス中のトリチウム量より低くすることが望まれる。高温ガス炉の熱効率を維持するには冷却材出口温度を1,070−1,170 Kにする必要があり、このときの減速材温度は1100~1200 K程度である。Li ロッドの温度上昇と共にアルミナのトリチウム透過係数が増加するため、この減速材温度では殆どのトリチウムが流出する [45]。

高温ガス炉の熱効率を維持しつつトリチウム流出を抑制するために、トリチウム吸収材としてZrを使用することを検討している[43,45]。Zr表面にZr酸化物が生じるとトリチウム吸収性能が低下し、Liロッドからのトリチウム流出量が増加する懸念があるため、Zrの酸化を防止するNi被覆を検討している[46]。また、Ni被覆を行ったZrの形状は粒状にすることを想定している[46]。図1-15は現在検討しているLiロッド構造である。^{10}Bと^{6}Liの中性子吸収断面積と装荷量は異なるため、BPの変更による炉心核特性への影響を把握する必要がある。高温ガス炉の既存の設計を維持する観点において、Li ロッドから炉内へのトリチウム流出量を最小限に抑える事は重要な課題であるため、トリチウム製造性能のみならずトリチウムの閉じ込め性能も重要なLiロッドの性能となる。現在、HTTRを用いたトリチウム製造実証試験の計画を進められている。

1-7 研究の目的

本研究は高温ガス炉を用いた核融合炉用トリチウム製造の実現のために、核反応熱とBP特性に着目したLiロッドの性能及び装荷法を検討し、HTTRで実施する照射試験法を提示することを目的とした。最初にHTTRとGTHTR300のBPを^{10}B(Bロッド)から^{6}Li(Liロッド)へ変更した際の炉心核特性への影響を評価し、次にLiロッドのトリチウム製造・閉じ込め性能を検証するための照射試験体に関する検討を行った。また、$^{6}Li(n,\alpha)T$反応による核反応熱がLiロッドのトリチウム製造及び閉じ込め性能に及ぼす影響を評価した。

1-8 論文構成

本論文は第 6 章から構成される

第 1 章では、核融合炉の研究開発及びトリチウム調達法についての現状を述べ、主な研究対象である高温ガス炉(HTTR 及び GTHTR300)、及び高温ガス炉を用いたトリチウム製造法の特徴についてまとめた。トリチウム製造に関する研究の経緯、現況、本研究の目的を述べた。

第 2 章では、現在検討している Li ロッドと製作方法について解説する。また、トリチウム製造量と炉心核特性の評価に用いる中性子輸送計算モンテカルロコード MVP-BURN、Li ロッド内のトリチウム挙動を解析するための拡散方程式及び同方程式に基づくトリチウム流出量の評価法について説明する。

第 3 章では BP を ^{10}B(B ロッド)から ^{6}Li(Li ロッド)に変更した際の炉心核特性に及ぼす影響を明らかにするために、MVP-BURN を用いて HTTR と GTHTR300 に B ロッド又は Li ロッドを装荷した際の実効増倍率を評価する。BP の負の反応度、燃焼 BP 原子数及び未燃焼 BP の割合を評価し、実効増倍率に影響を及ぼす要因を明らかにする。その要因を踏まえて GTHTR300 の実効増倍率の特性を改善する Li ロッド装荷法を検討する。

第 4 章では HTTR を用いた Li ロッドのトリチウム製造及び閉じ込め性能を検証するための照射試験体に関する検討を行う。照射試験は HTTR に備わる照射カラムにおいて実施することを想定する。年間 30 g のトリチウムを製造できる HTTR 用 Li ロッド及びそれを基準に複数の試験体を設計しする、又、各試験体のトリチウム製造量と流出量を比較することで HTTR 用 Li ロッドの性能を検証する試験法を検討する。

第 5 章ではトリチウム製造時に生じる ^{6}Li(n,α)T 反応による核反応熱の発生が HTTR 及び GTHTR300 用 Li ロッドのトリチウム閉じ込め性能に及ぼす影響を評価する。Li ロッドのトリチウム製造量を ^{6}Li(n,α)T 反応による発熱量に換算し、Li ロッド内部径方向の温度分布を評価する。この温度分布を考慮してトリチウム流出量を評価し、温度分布が一定である場合との差を比較する。また、減速材温度に対する HTTR 用 Li ロッドのトリチウム流出量・分圧及び Zr のトリチウム吸収率を評価し、核反応熱によりトリチウム流出量が変化する原因を明らかにする。

第 6 章では本研究について総括し、今後の展望を述べる。

表 1-1　GTHTR300 の主要原子炉諸元 [38]

項目	GTHTR300	単位	備考
原子炉熱出力	600	MW	
原子炉入口冷却材温度	587	℃	
原子炉出口冷却材温度	850	℃	
冷却材圧力	7	MPa	
冷却材流量	437	kg/s	
取り出し平均燃焼度	11.2	万MWd/t	
燃焼期間/バッチ	730	Days	
燃料交換期間	30	Days	
バッチ数	2		
燃料交換方式	サンドイッチシャッフリング		2年ごとに1/2炉心燃料交換
燃料体型式	一体型燃料		ピンインブロック
燃料体材料	IG11相当		
初期濃縮度	14	wt%	
残存濃縮度	5.05	wt%	目標4%以下
燃料種類数	1		粒子充填率、BPも1種類のみ
燃料粒子	SiC被覆粒子		表1.3参照
カーネル直径	550	μm	
粒子直径	1010	μm	
粒子充填率	33	%	
ブロック平径	40.5	cm	
燃料ピン数	57		表1.4参照
コンパクト外径	2.4	cm	
コンパクト高さ	約8	cm	
コンパクト厚さ	0.75	cm	
冷却孔内径	3.9	cm	
冷却材流路幅	0.65	cm	
BP	3	本/体	
ホウ素濃度	0.3	%	
直径	4.4	cm	
長さ	95	cm	
ブロック間ギャップ	0.2	cm	
ブロック高さ	100	cm	
ブロック段数	8	段	
燃料領域高さ	800	cm	
軸方向可動反射体高さ	80	cm	
軸方向可動反射体段数	2	段	上1+下1段
上部遮蔽体	40	cm	
内部可動反射体	55	カラム	
内側制御カラム	18	カラム	
内側合計カラム	73	カラム	
燃料カラム	90	カラム	
外側可動反射体	36	カラム	
外側制御棒カラム	12	カラム	
外側合計カラム	48	カラム	
固定反射体等価厚さ	60.5	cm	冷却材流路孔を含む
圧力容器内径	約7.6	m	
炉心平均出力密度	5.8	W/cm^3	

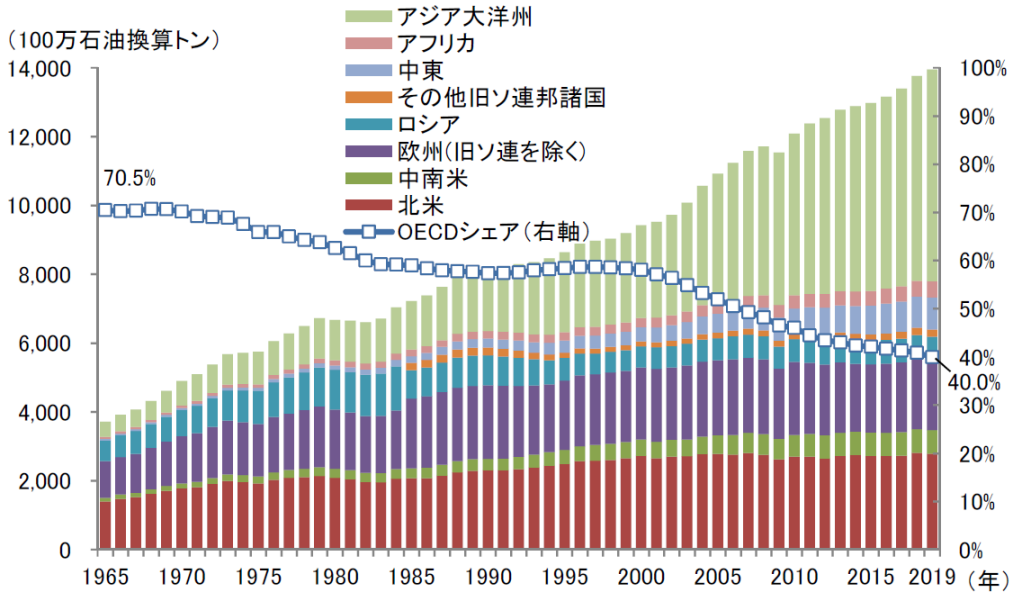


図 1-1　世界のエネルギー消費量の推移 [1]

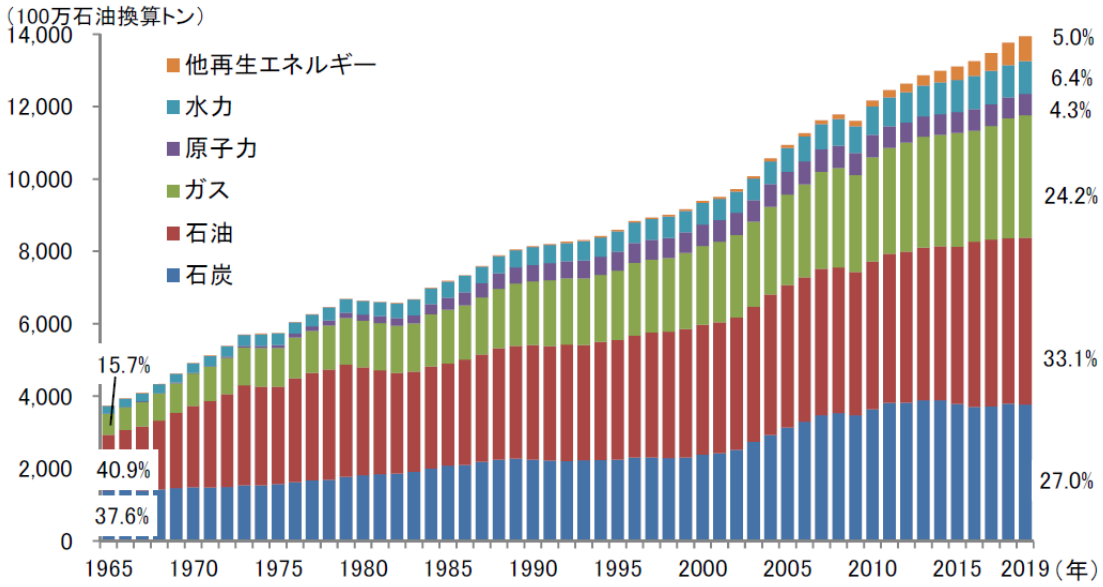


図 1-2　世界のエネルギー源別消費量 [1]

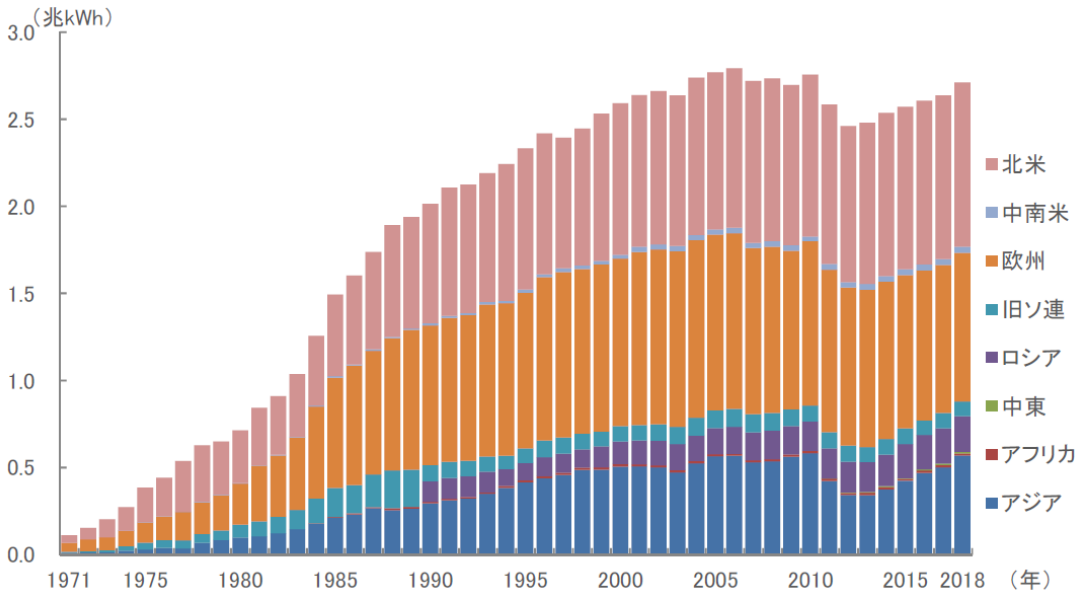


図 1-3　世界の原子力発電設備容量(運転中)の推移 [1]

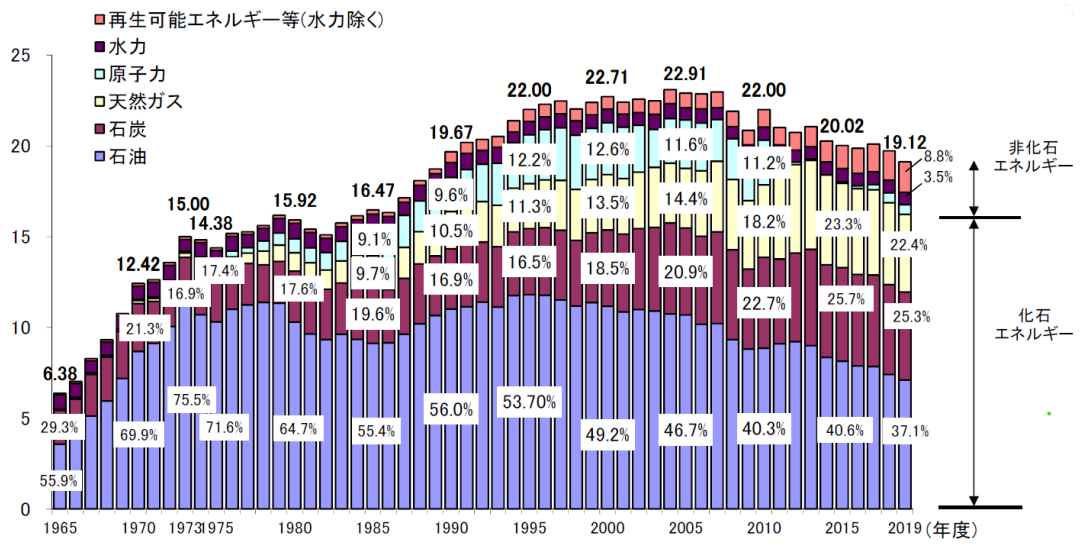


図 1-4 一次エネルギー国内供給の推移 [1]

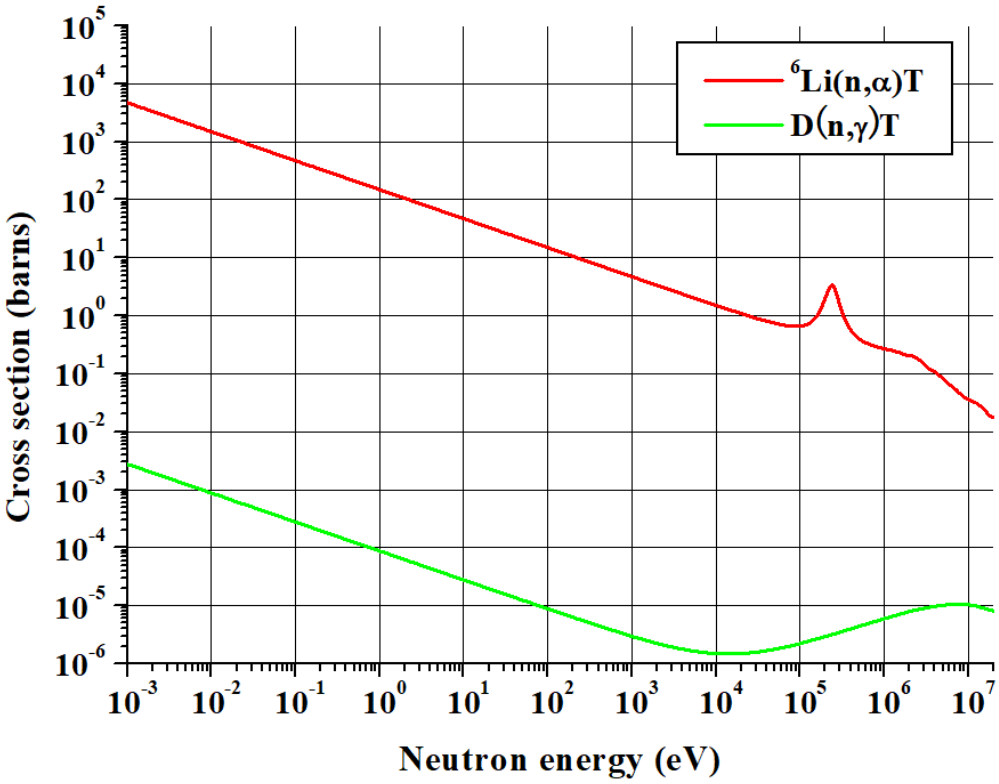


図 1-5　^{6}Li(n,α)T 及び D(n,γ)T 反応の微視的断面積 (JENDL-4.0) [29]

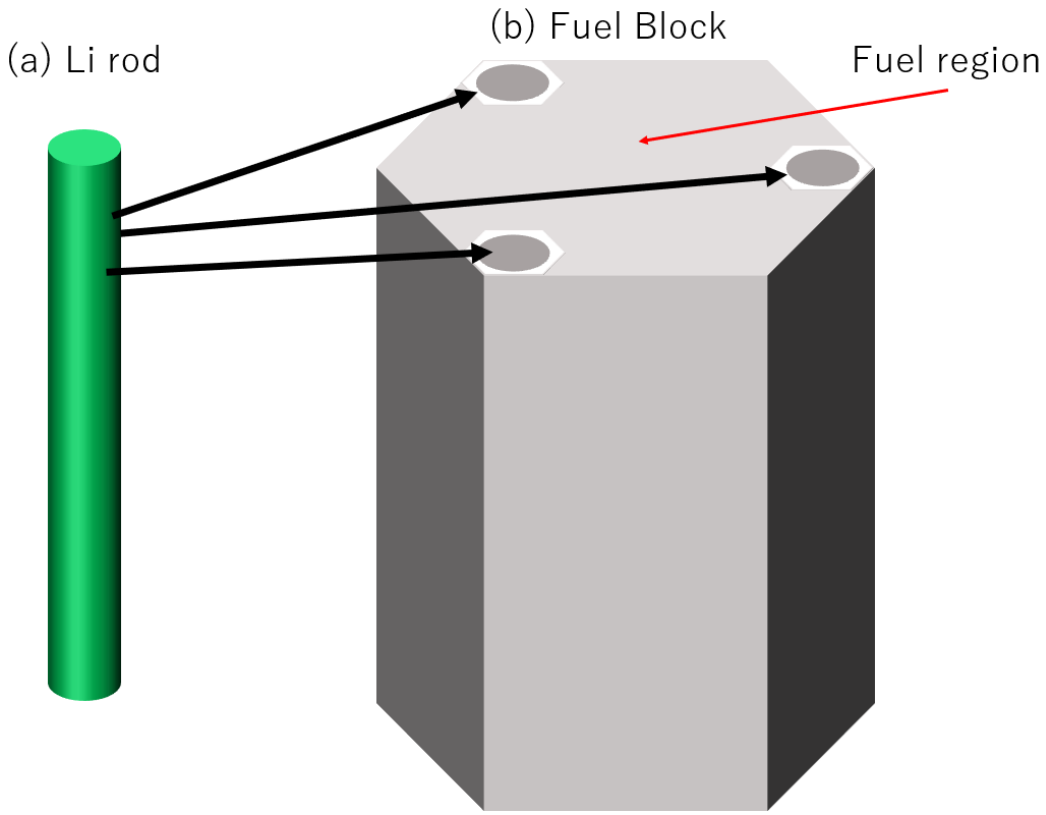


図 1-6　Li ロッドの装荷位置

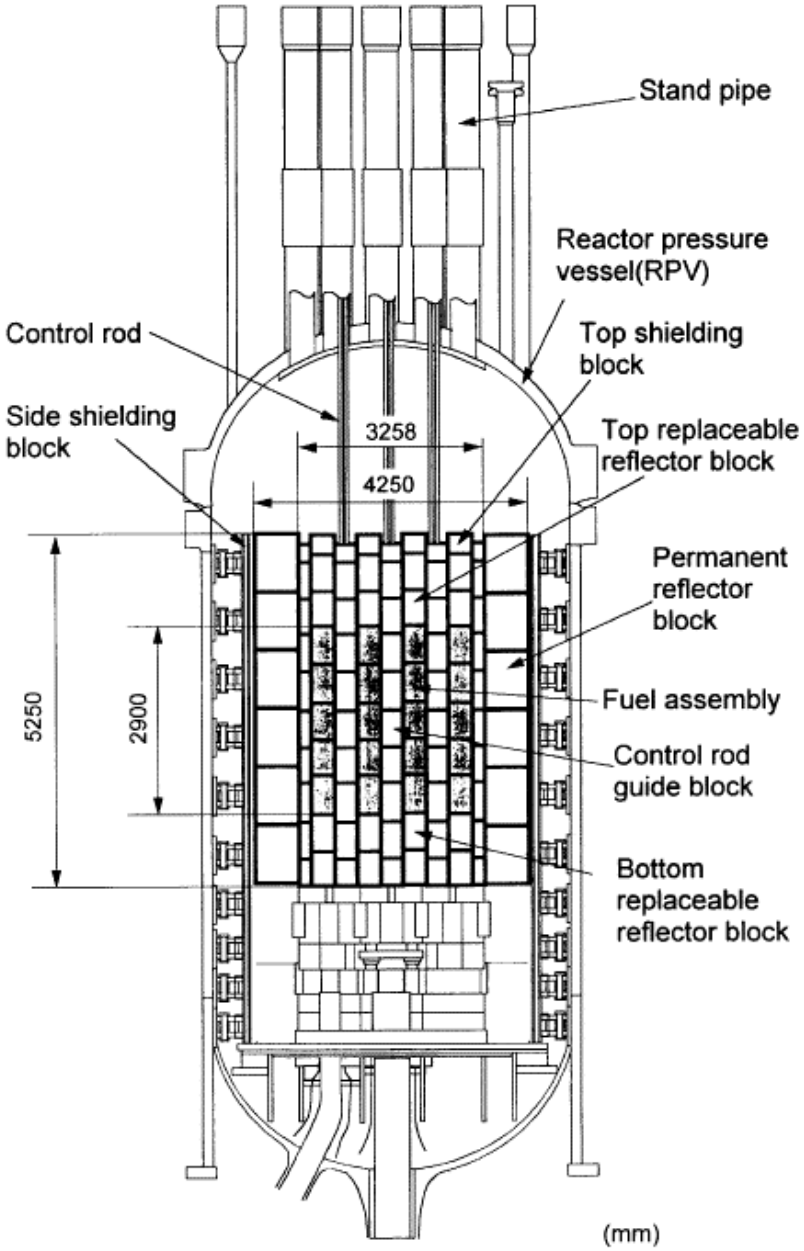


図 1-7　HTTR の垂直方向炉心構造 [37]

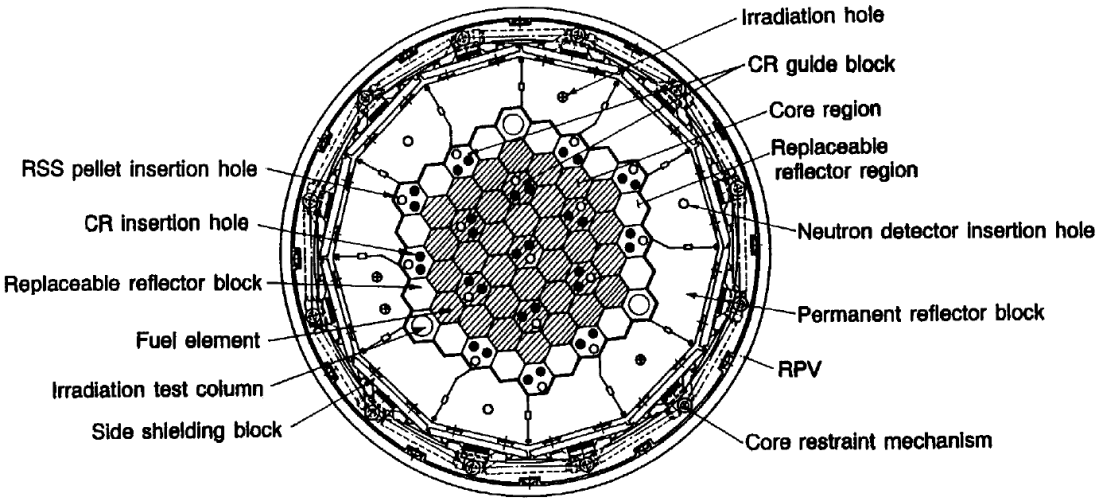


図 1-8 HTTR の水平方向炉心構造 [36]

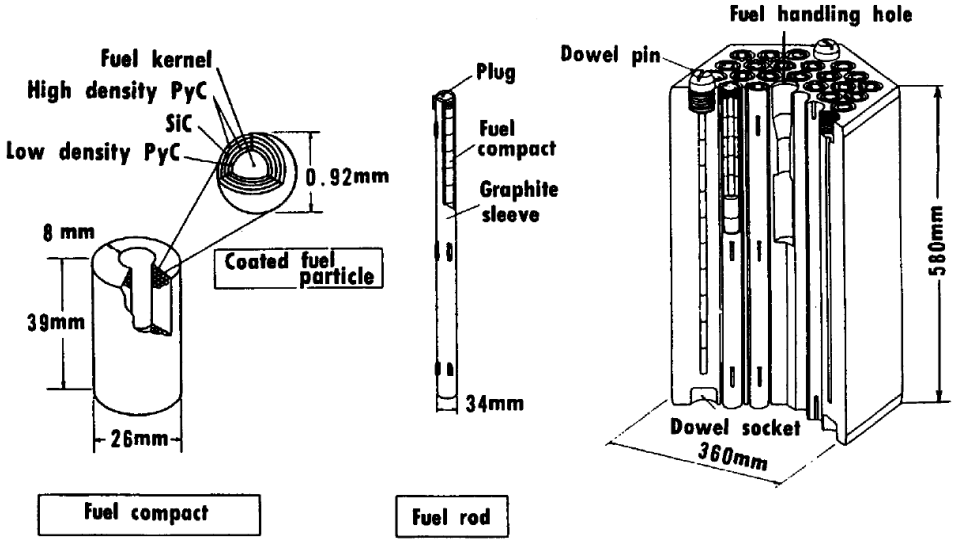
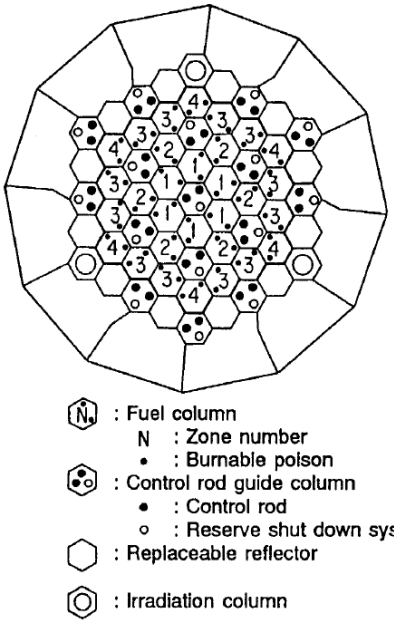


図 1-9　HTTR の燃料要素および燃料ブロック構造 [36]



Layer*3	Fuel zone number*1				BP*2
	1	2	3	4	
1	6.7	7.9	9.4	9.9	2.0
2	5.2	6.3	7.2	7.9	2.5
3	4.3	5.2	5.9	6.3	2.5
4	3.4	3.9	4.3	4.8	2.0
5	3.4	3.9	4.3	4.8	2.0

*1 ^{235}U enrichment(wt%)
*2 Natural boron concentration(wt%)
*3 The number indicates the layer number from the top fuel block.

図 1-10　HTTR 黒鉛ブロックの配列及び燃料・BP 濃縮度 [36]

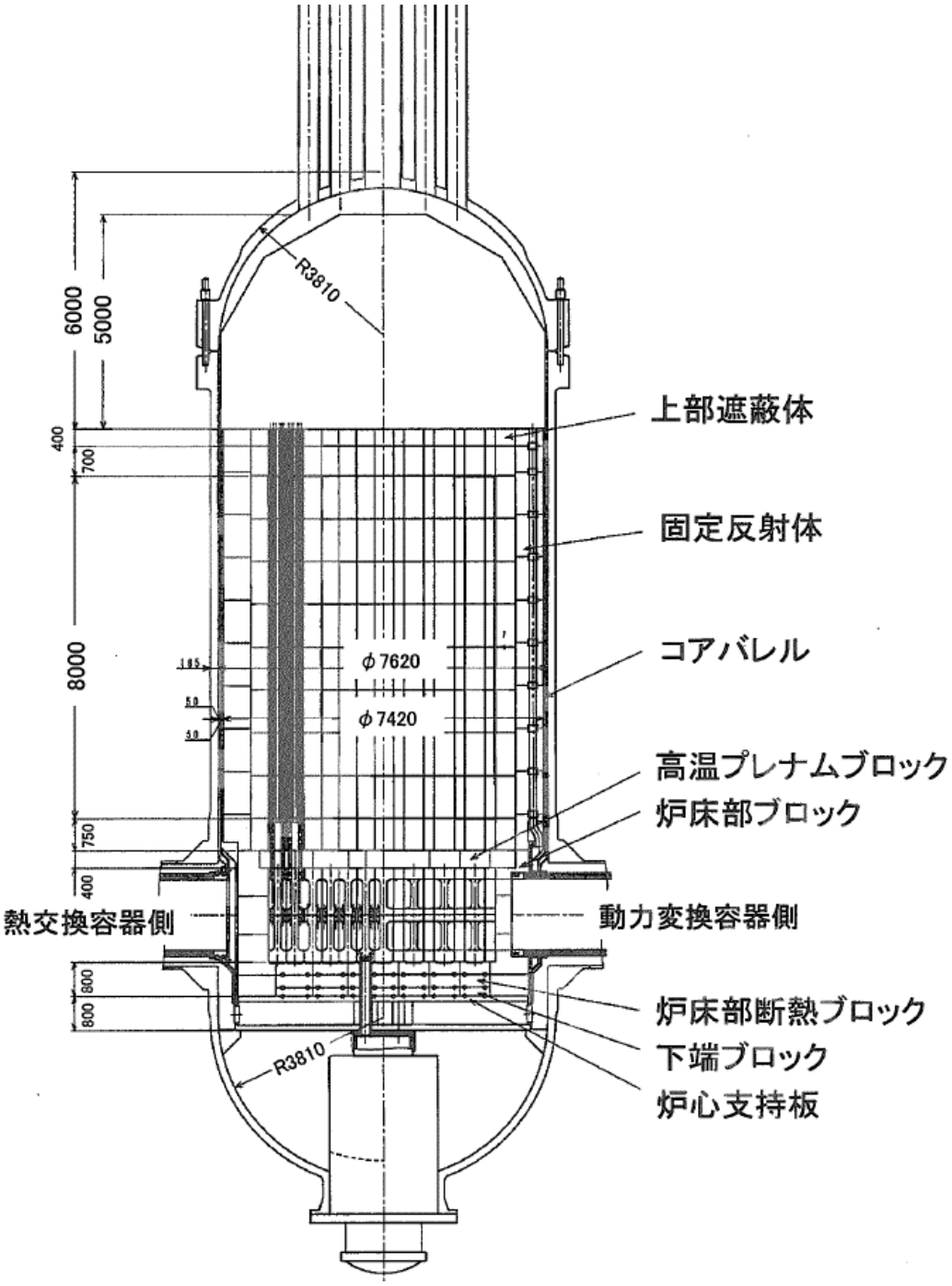


図 1-11　GTHTR300 の垂直方向炉心構造 [38]

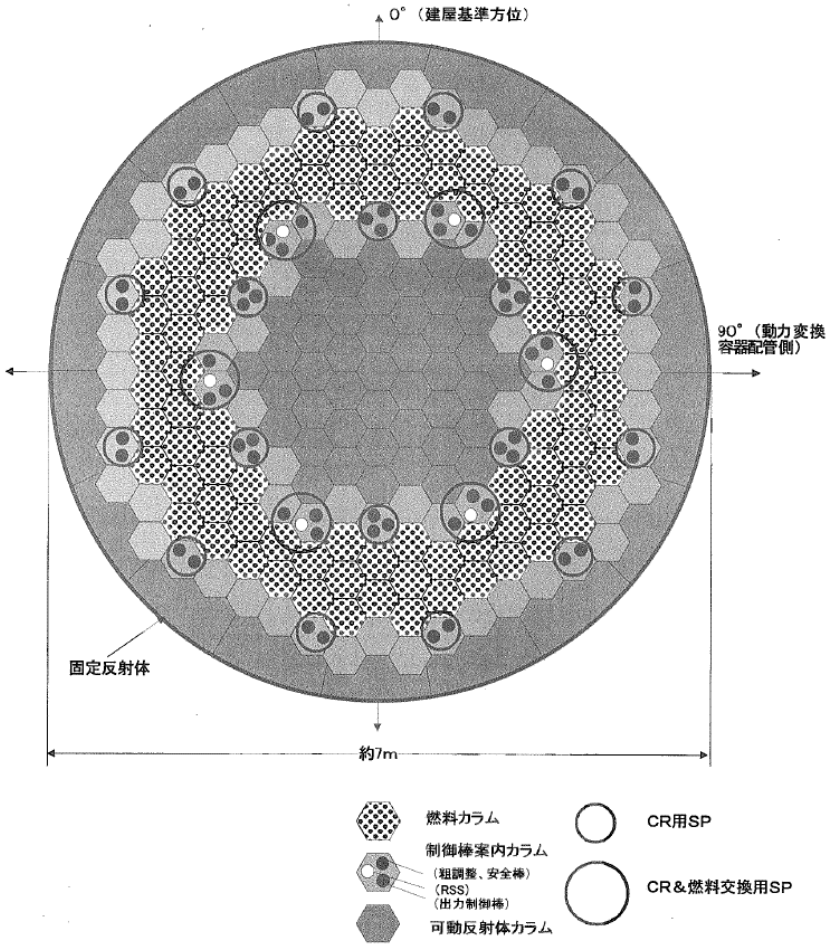


図 1-12　GTHTR300 の水平方向炉心構造 [38]

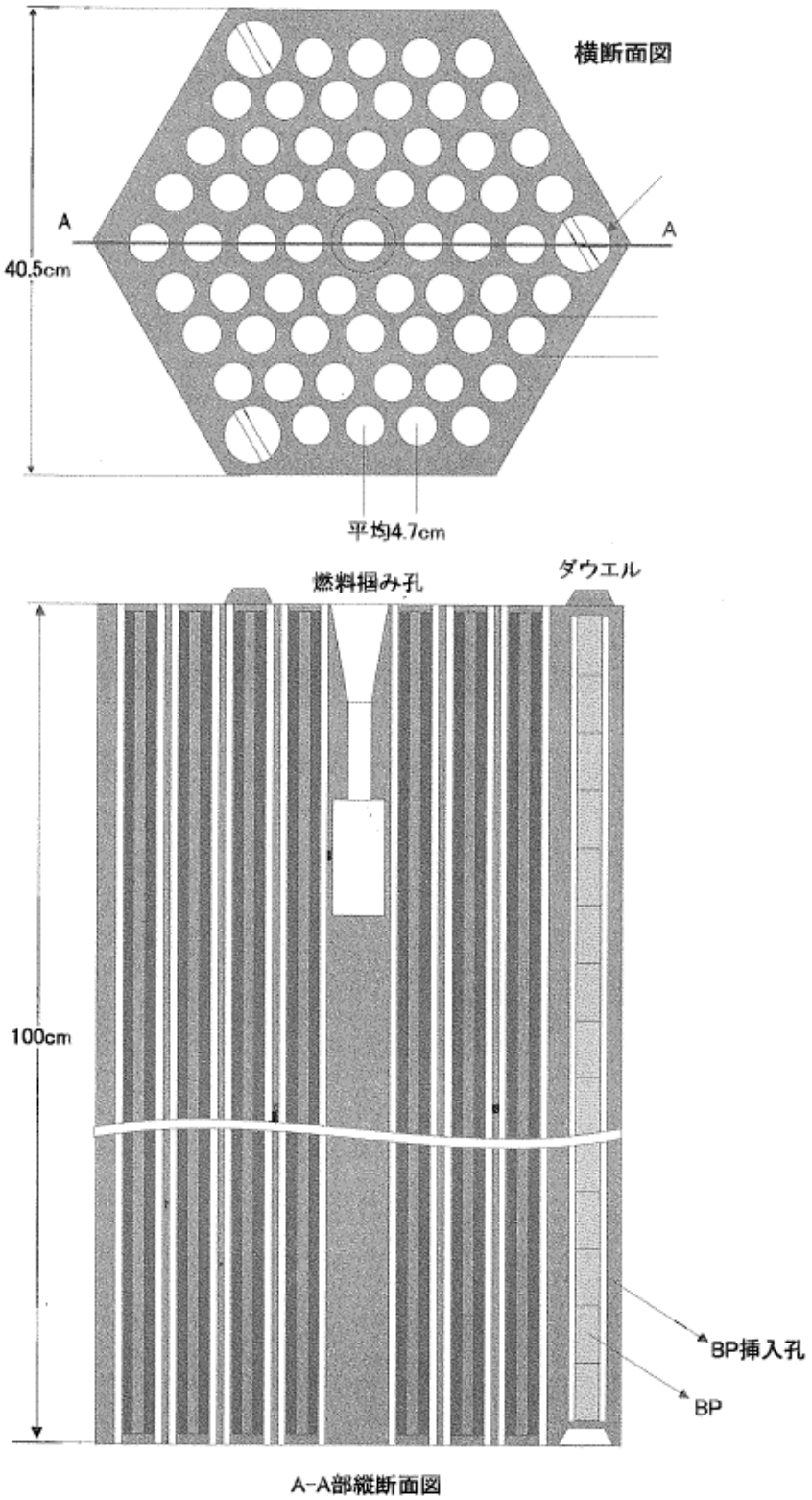


図 1-13　GTHTR300 の燃料ブロック構造 [38]

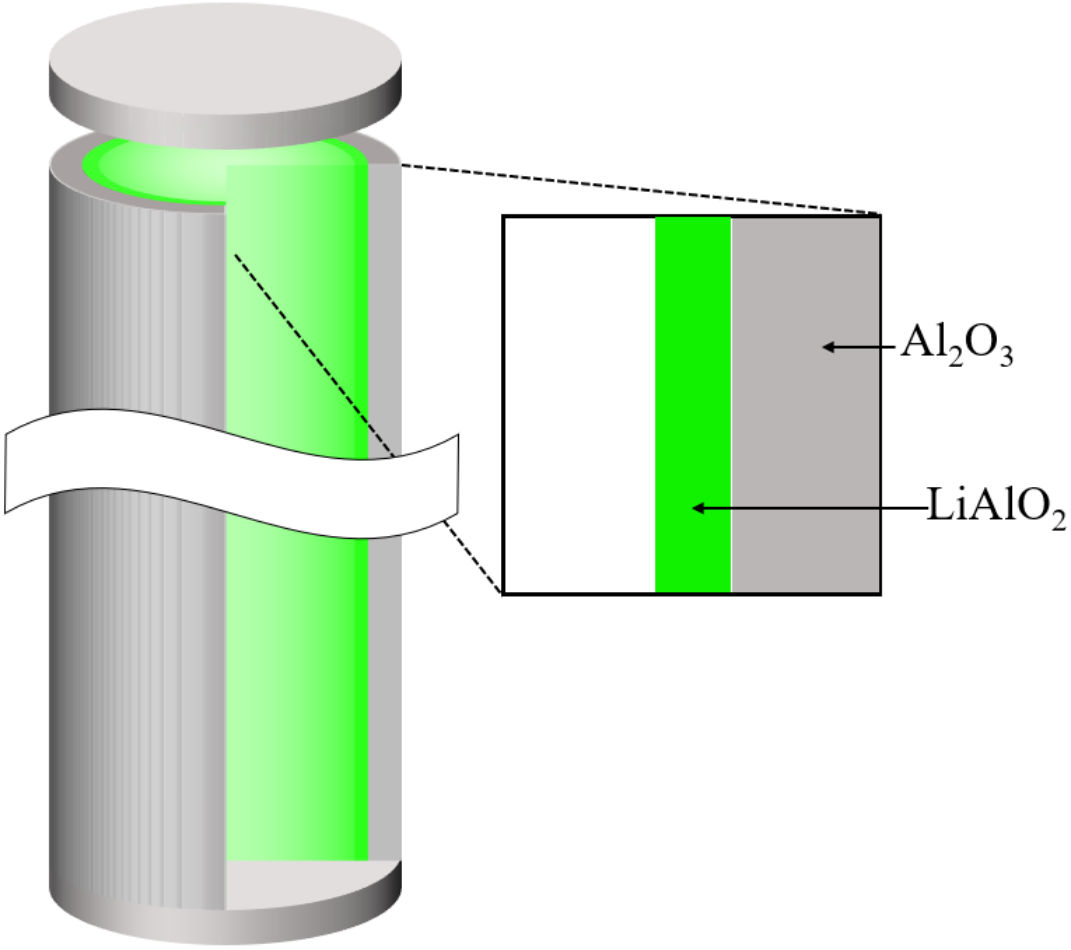


図 1-14　最初期の Li ロッド構造

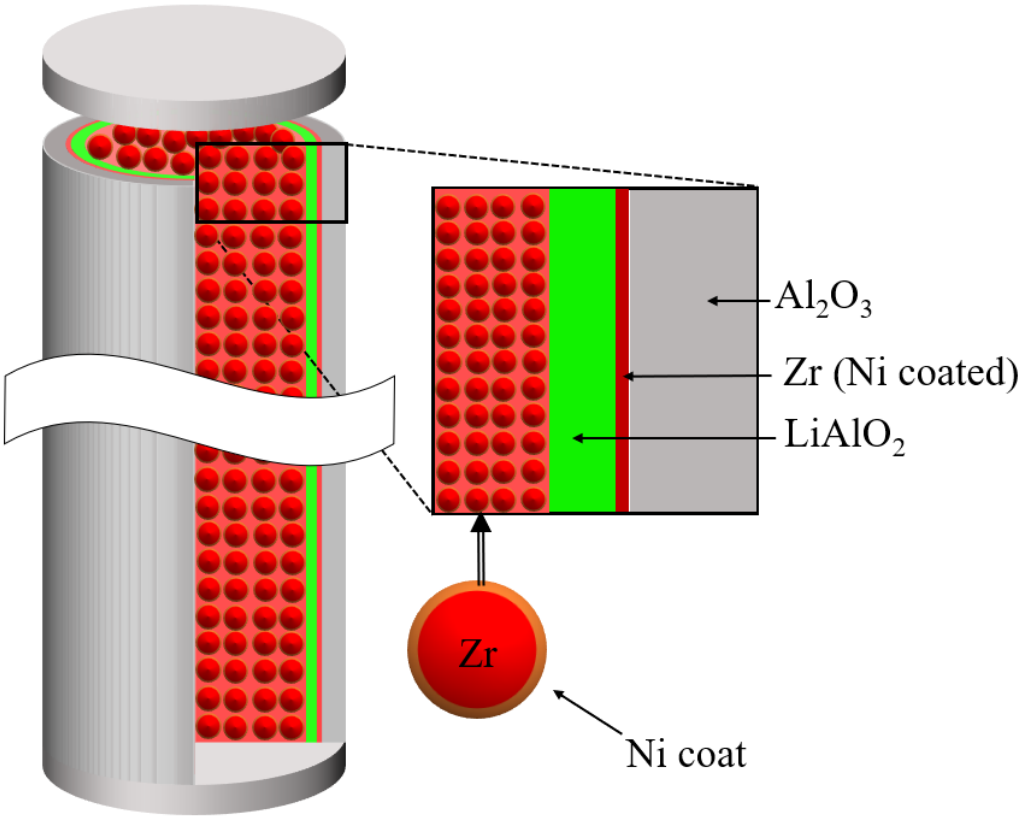


図 1-15　現在想定している Li ロッド構造

2 章　Li ロッド構造及び解析方法

2-1　Li ロッド構造

ここでは、図 1-15 で示した現在検討している Li ロッドの構造について説明する。空隙率 0%の緻密なアルミナ円筒に円筒状に形成した $LiAlO_2$ と Zr 層(箔)、粒状 Zr を封入し、Li ロッドの上部をアルミナ製の蓋で密封することを検討している。本研究の検討では $LiAlO_2$ の空隙率は 15%であると仮定して評価を行った[47]。Zr 層及び粒状 Zr はアルミナ、$LiAlO_2$ に含まれる酸素による酸化を防ぐために Ni 被覆を行う。Zr 層は $LiAlO_2$ 層と粒状 Zr を密封しない構造を想定した。Li ロッドの製造時には蓋を何らかの方法で気密性を保つように取り付ける必要がある。セラミックであるアルミナの接着方法として以下の手法を調査した[48]。

・メタライズ法

セラミックスの表面を金属化することで、金属と接着するセラミックスを金属と同様の方法で接着可能にする方法である。接着には金属ろうを用いる。セラミックス同士を接着する場合はメタライズ部同士を接着させる。

・無機接着法

無機結合剤、硬化剤、充填剤を主成分とする接着剤を用いる方法である。接着材は塗布後、時間経過で硬化する。これは無機物の接着材料として一般に用いられるガラス系、金属系より耐熱性は高いが、気密性に劣る。

・酸化物ソルダー法

接着部の間に酸化物ソルダーを挟み、加熱によりソルダーを溶融しその後冷却することで、冷却固着による接着を行う方法である。酸化物ソルダーはガラスの粉末を有機液体と混合したペースト状のものなどがある。接着部の耐熱性が 1,300 ℃以上のソルダーが開発されているため、Li ロッドの製作に有用である可能性がある。

・金属ソルダー法

金属をソルダーとして用いる接着法である。接着工程は酸化物ソルダーと同様に行う。使用温度により金属ソルダーを使い分ける。

我々はこの 4 つの方法の内、照射試験に向けて酸化物ソルダー法を採用した。アルミナ用釉薬を接着部に塗布し、$LiAlO_2$ と Zr を入れたアルミナ円筒に蓋を載せ、真空装置中で 1100℃まで加熱し、1 時間保つことで接着・密封を行う。この接着法は十分な気密性を保つことが期待されている。本研究では Li ロッドの蓋は完全に接着され、接着部からトリチウムは流出しないものと仮定した。

2-2　核計算

核計算にはMVP/MVP-BURN[49,50]コードを利用した。MVPとはMonte Carlo code for Vector Processors (連続エネルギー法に基づく汎用モンテカルロコード)の略称で、乱数を使用して中性子の発生、移動、消滅を模擬し、統計的に中性子束、反応率、実効増倍率を評価するコードである。それぞれの核種の存在量や実効増倍率(k_{eff})の時間変化は BURN モジュールによる燃焼計算と組み合わせて評価される。

図 2-1 は MVP の中性子輸送アルゴリズムである。幾何学形状の組み合わせた仮想的な三次元領域(ゾーン)に仮想粒子(中性子)が動き、その粒子の挙動を記録し統計的に物理量を計算する。粒子の挙動は、乱数を利用してランダムに決定される。この過程で発生する事象とそれに伴う処理は以下のようになる。

・粒子の生成

決められた空間・エネルギー・時間・粒子の種類などの確率分布に従って粒子を発生し、飛行を開始する。モンテカルロコードにおける粒子生成の情報は粒子源あるいは線源と呼ばれる。

・粒子の飛行

粒子は一定の方向にエネルギーを保存して飛行する。これは空間内に存在する原子核と衝突するまで継続する。衝突及び反応が発生するまでの距離は粒子が通過する物質と粒子の反応断面積に従って統計的に求められる。MVP では、衝突断面積が空間の各部分で一定の値を持つ体系のみを扱う。計算体系の構成によっては衝突するまで複数のゾーンを通過することがある。この場合は衝突を起こすまで計算される。有限の空間から流出した粒子の飛行は終了する。

・原子核との反応

物質中の原子核と衝突した粒子は、粒子-原子核との反応に関するそれぞれの反応断面積に従った確率分布で粒子のエネルギーと飛行方向が変化する。その反応が吸収反応である場合、その地点でランダムウォークが終了する。

MVP による計算終了時には k_{eff} などの物理量に加え、核種の微視的もしくは巨視的な核分裂反応、捕獲反応、(n,2n)反応の反応率及び断面積が得られる。BURN モジュールにより設定した燃焼領域のそれぞれの反応率と設定した熱出力を用いて燃焼方程式による核種生成崩壊計算を行う。ここで得られた体系の組成データを MVP インプットに与え、次ステップの核計算を行う。燃焼計算の実行に必要なデータ(半減期、FP 収率など)は燃焼チェーンデータから与えられる。本研究では標準チェーン「u4cm6fp50bp16T」に ^{6}Li からトリチウムへの核変換を加えたものである。標準チェーンでは 234-U から 246-Cm までを扱う重核種チェ

ーンと 50 個の FP(疑似 FP を含む)と 16 個の可燃性毒物核種(FP 収率を与えられない燃焼核種)を扱う。これに使用される核データ JENDl-4.0[29]の疑似 FP 核種 ZZ50 の断面積に人為的ミスによる臨界性の過小評価が指摘されているため[51]、本研究では ZZ50 のみ JENDL-3.3[52]のデータを利用した。

2-3　拡散計算によるトリチウム流出量評価

Li ロッド内で製造されるトリチウムの化学形は T_2 だけでなく HTO や HT も存在すると考えられている。一般に HTO は水蒸気と同様にアルミナ層への透過は水素ガスよりはるかに小さく、また、T_2 の透過係数は水素より小さい。保守的な評価のためにトリチウムの拡散係数・溶解度係数は水素の値を採用し、発生するトリチウムの化学系は全て T_2 としたため、本研究の評価では HTO と HT の発生を考慮しなかった。T_2 は原子に乖離して Zr とアルミナ表面に溶解するため、境界条件は Sieverts 則が成り立つ。Sieverts 則は物質表面の溶解したガス濃度 C は溶解度係数 S とガスの分圧 P の平方根の積に比例する法則である(式 2-1)。

$$C = S\sqrt{P} \tag{2-1}$$

図 2-2 は Li ロッドからのトリチウム流出計算を評価するための全般的なアルゴリズムを示している。トリチウム流出量を求めるには、大まかに以下の手順で計算を行う。

1. 評価したトリチウム製造量をトリチウム製造速度に換算し、設定した微小時間に応じて内圧(Li ロッド中のトリチウム分圧)を増加させる。

2. 境界条件により Zr 表面のトリチウム濃度を決め、拡散計算によりトリチウム吸収量を求める。

3. 境界条件によりアルミナ層内側のトリチウム濃度を決め、拡散計算によりトリチウム流出量を評価する。その後 1.に戻り次ステップの計算を行う。

トリチウム流出計算についての詳細は以下で説明する

2-3-1 トリチウム製造量の決定

節 2-2 で評価したトリチウム製造量から Li ロッド 1 本当たりのトリチウム製造量を求める。ただし、単位は分子 mol とする。これを以下の Zr とアルミナ層における計算に用いる単位時間当たりのトリチウム製造速度 G (mol/s)に換算する。各ステップでトリチウム内圧をトリチウム製造速度に対応する大きさで増加させる。$LiAlO_2$ は多孔質であるため、アルミナ層より内側の領域の圧力は一様であるとした。従って、$LiAlO_2$ 空隙体積と Li ロッド中空部体積の和を用いて内圧を評価した。

2-3-2 Zr のトリチウム吸収量評価

本研究では、Li ロッドに装荷する Zr 層と全ての粒状 Zr を、表面積が等しい一つの仮想的な Zr 円筒に換算してトリチウム吸収量を評価した。仮想 Zr 円筒の内半径は Li ロッド中 Zr 層(図 1-15)に一致させたため、計算上の高さは Li ロッド全長を超える。保守的な評価のために Zr 層がアルミナ層へのトリチウムの透過を妨げる効果は無視した。Zr へのトリチウム吸収量の評価に使用する円筒体系の内側・外側における境界条件(Sieverts 則)と円筒体系拡散方程式は以下の通りである。

$$C_{Zr0} = S_{Zr}\sqrt{P} \tag{2-2}$$

$$\frac{\partial C_{Zr}(t,r_{Zt})}{\partial t} = \frac{D_{Zr}}{r_{Zr}}\frac{\partial}{\partial r_{Zt}}\left(r_{Zr}\frac{\partial C_{Zr}(t,r_{Zt})}{\partial r_{Zr}}\right) \tag{2-3}$$

以上の式における文字は、

C_{Zr0}: Zr 表面のトリチウム濃度 (mol/m^3)

S_{Zr}: Zr のトリチウム溶解度係数 (mol/m^3 Pa$^{1/2}$)

C_{Zr}: Zr 中のトリチウム濃度 (mol/m^3)

t: 時間 (s)

r_{Zr}: 径方向の距離 (m)

D_{Zr}: Zr のトリチウム拡散係数 (m^2/s)

を意味する。

式(2-2)と(2-3)を用いてある時間ステップにおける Zr 中のトリチウム濃度分布を求める。拡散方程式を解くには式の微分を差分に置き換え、陽解法又は陰解法を用いる。求めた濃度分布を次の式のように体積積分し、時間微分するとそのステップのトリチウム吸収速度 J_{Zr} (mol/s)が求められる。

$$J_{Zr} = -\frac{\partial}{\partial t}\int_{V_{zr}} C_{Zr}(t,r)\, d^3r \tag{2-4}$$

ここでの V_{Zr} は仮想 Zr 円筒の体積(m^3)を示している。Zr の拡散計算で用いる拡散係数 D_{Zr} と溶解度係数 S_{Zr} の値は片山等による Zr 円筒の実験から得られた値[53]を用いた。ただし、$LiAlO_2$ と共存した Ni 被覆 Zr の D_{Zr} は $LiAlO_2$ と共存しない Zr の D_{Zr} の 1/2,000 になると報告されたため[54]、D_{Zr} は元の値の 1/2,000 とした。Zr のトリチウム吸収によりトリチウム分圧が低下した後に、次に示すアルミナ層のトリチウム流出量を評価する。

2-3-3 アルミナ層のトリチウム流出量評価

アルミナ層からのトリチウム流出量を評価する際は節 2-4-2 と同様に拡散方程式を解く。アルミナ層内側表面の境界条件と円筒体系の拡散方程式を次に示す。

$$C_{Al0} = S_{Al}\sqrt{P} \tag{2-5}$$

$$\frac{\partial C_{Al}(t,r_{Al})}{\partial t} = \frac{D_{Al}}{r_{Al}}\frac{\partial}{\partial r_{Al}}\left(r_{Al}\frac{\partial C_{Al}(t,r_{Al})}{\partial r_{Al}}\right) \tag{2-6}$$

以上の式における文字は、

C_{Al0}: アルミナ層内側表面のトリチウム濃度 (mol/m^3)

S_{Al}: アルミナのトリチウム溶解度係数 (mol/m^3 Pa$^{1/2}$)

C_{Al}: アルミナ中のトリチウム濃度 (mol/m^3)

r_{Al}: 径方向の距離 (m)

D_{Al}: アルミナのトリチウム拡散係数 (m^2/s)

を意味する。

Zr の場合と同様に式(2-2)と(2-3)を用いてアルミナ中のトリチウム濃度分布を求める。ただし、アルミナ層外側表面のトリチウム濃度は常に 0 とした。拡散係数 D_{Al} と溶解度係数 S_{Al} の値は片山等の実験値[42]を用いた。トリチウムはアルミナ層内側から外側へ透過するので、フィックの法則によりトリチウム流出量を計算した。用いた式は以下の通りである。

$$J_{in,out} = -A_{in,out} D_{Al} \left.\frac{\partial C_{Al}}{\partial r_{Al}}\right|_{in,out} \tag{2-7}$$

これらの式における文字は、

J_{in}: アルミナ層の内側表面からアルミナ層内部へのトリチウム流出速度 (mol/s)

J_{out}: アルミナ層内部からアルミナ層外側表面へのトリチウム流出速度 (mol/s)

A_{in}: アルミナ層内側の表面積 (m^2)

A_{out}: アルミナ層外側の表面積 (m^2)

を意味する。

アルミナ層からのトリチウム流出速度についてのみ、簡易的にトリチウム流出量を求めることができる。アルミナ中のトリチウム濃度が時間によらず常に一定と仮定し、境界条件と併せて解くと以下の定常解が求められる。

$$J_{Al} = \frac{2\pi h S_{Al} D_{Al} \sqrt{P}}{ln\left(\frac{r_2}{r_1}\right)} \tag{2-8}$$

この式に用いる文字は

J_{Al}: 中空部からアルミナ層外側へのトリチウム流出速度 (mol/s)

h: アルミナ層の高さ

r_1: アルミナ層内半径

r_2: アルミナ層外半径

である。

トリチウム流出量及びトリチウム流出後のトリチウム分圧を計算した後、次の時間ステップに移行し節 2-4-1 の計算を再び行う。

2-3-4 トリチウムバランス式

節 2-3-1 から 2-3-3 の計算を集約すると、以下のトリチウムバランス式が成立する。

$$\frac{dP}{dt} = \frac{GRT}{V_{hp+Li(15)}} + \frac{J_{Zr}RT}{V_{hp+Li(15)}} + \frac{J_{in}RT}{V_{hp+Li(15)}} \tag{2-9}$$

$V_{\mathrm{hp+Li(15)}}$、R、T はそれぞれ $LiAlO_2$ 層中の空隙体積と Li ロッド中空部体積の和(m^3)、ガス定数(J/K mol)、温度を意味する。図 2-3 は式(2-9)に関するトリチウム流出モデル図を示している。青線はアルミナ層より内側に存在する気相中のトリチウム濃度、黄線はアルミナ層中のトリチウム濃度を示している。本モデルでは $LiAlO_2$ 層中で生成されたトリチウムは直ちに空隙に放出され、気相中のトリチウム濃度は Zr 層、$LiAlO_2$ 層、中空部で一様な値をとる。この濃度に対応したトリチウム分圧を用いて仮想 Zr 円筒及びアルミナ層の拡散計算を行う。アルミナ層中のトリチウム濃度分布は Li ロッド外部に向かって減少し、He 領域で 0 になると想定した。

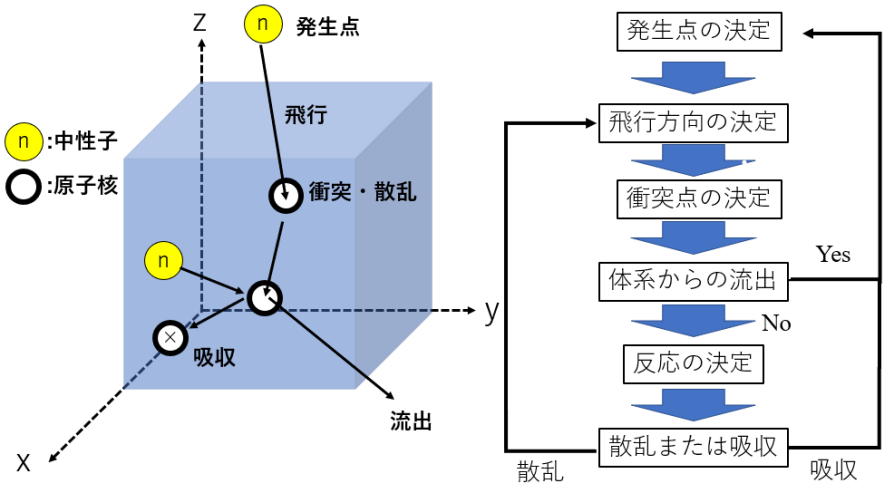


図 2-1　MVP の中性子輸送アルゴリズム

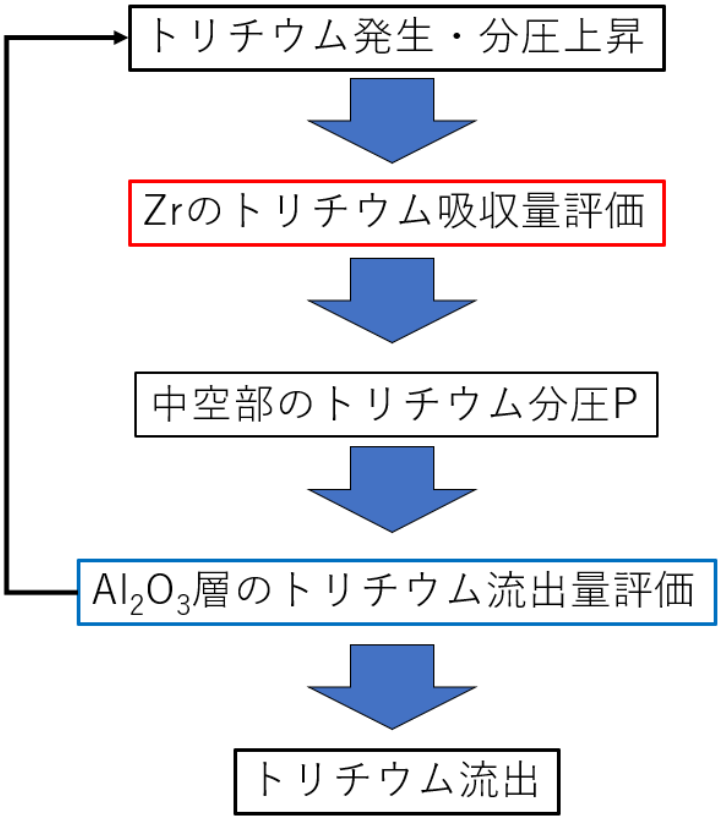


図 2-2　Li ロッドのトリチウム流出計算アルゴリズム

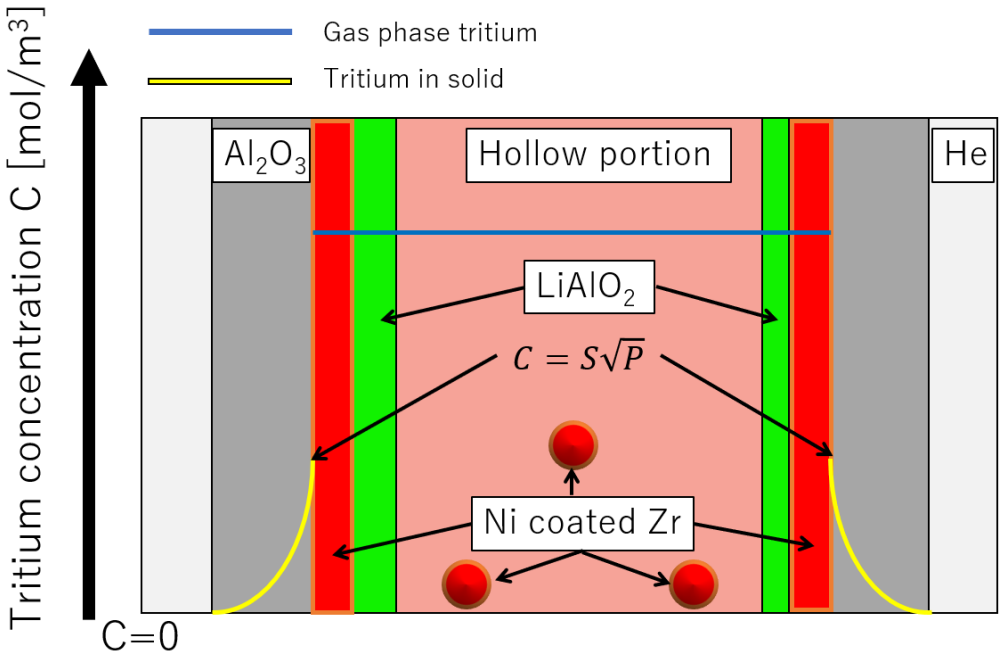


図 2-3 トリチウム流出モデル

3 章　ホウ素及び Li 可燃性毒物が高温ガス炉の実効増倍率に及ぼす影響

3-1 はじめに

高温ガス炉によるトリチウム製造では、可燃性毒物(BP)を通常の B ロッドから Li ロッドに置き換える。これにより可燃性毒物として燃焼する原子は ^{10}B から ^{6}Li に変わる。図 3-1 は JENDL-4.0 に基づいた ^{6}Li(n,α)T 及び ^{10}B (n, α)^{7}Li 反応の微視的断面積(中性子吸収断面積)である。^{10}B の中性子吸収断面積は熱中性子に対し 3,837 b である一方、^{6}Li の中性子吸収断面積は 940 b(^{10}B の約 1/4) である。また、^{6}Li と ^{10}B の装荷量も異なる。以上の要因により高温ガス炉の炉心核特性が変化するため、その影響を明らかにする必要がある。本章では MVP-BURN を用いて HTTR と GTHTR300 に B ロッド又は Li ロッドを装荷した際の実効増倍率(k_{eff})を評価する。BP の負の反応度、燃焼 BP 原子数及び未燃焼 BP 割合を計算し、k_{eff} に影響を及ぼす要因を明らかにする。その要因を踏まえて k_{eff} の特性を改善する Li ロッド装荷法について検討する。

3-2 BP 体系及び計算モデル

図 3-2 は標準仕様で用いられる HTTR 及び GTHTR300 用の B ロッドの設計である[36, 38]。図 3-3 及び図 3-4 に本検討で用いた HTTR と GTHTR300 用 Li ロッドの設計を示す。HTTR 用 Li ロッドの直径、高さ、アルミナ層厚み、Ni 被覆 Zr 層の厚み、$LiAlO_2$ 層厚み、中空部半径はそれぞれ 14 mm、450 mm、1.9 mm、0.1 mm、2.7 mm、2.3 mm である。GTHTR300 用 Li ロッドの直径、高さ、アルミナ層厚み、Ni 被覆 Zr 層の厚み、$LiAlO_2$ 層厚み、中空部半径はそれぞれ 44 mm、950 mm、6.3 mm、1 mm、2.5 mm、12.2 mm である。Li ロッドは B ロッドの外形より小さく設計されている。Li ロッドの中空部には Ni 被覆を持つ粒状 Zr が充填されている。本検討で用いた GTHTR300 用 Li ロッドはトリチウム製造量が最大になるように設計されたものである。

k_{eff} とトリチウム製造量は核データ JENDL-4.0 と MVP-BURN を用いた核燃焼計算により評価した。HTTR 体系では 300 本の B ロッド又は 450 本の Li ロッドが装荷され、GTHTR300 体系では 2,160 本の B ロッド又は同本数の Li ロッドが装荷される。このとき、HTTR 及び GTHTR300 に装荷される ^{10}B はそれぞれ計 135 g、3018 g になり、また ^{6}Li はそれぞれ計 193 g 及び 6,674 g である。従って、^{6}Li の装荷量は ^{10}B より多い。熱出力はそれぞれ 30 MW、600 MW に設定し、Li ロッド温度は平均減速材温度である 1,140 K、1,190 K とした。運転期間中の制御棒は全引抜状態を想定した。時間ステップは 0, 1, 5, 30, 60, 120, 180, 360 日であり、各ステップでは 600,000 個の中性子を生成させた。統計誤差は k_{eff} に関して 0.1%以下となり、十分に正確だった。Zr は中性子断面積が小さく k_{eff} とトリチウム製造量に影響を及ぼさないため、核計算では考慮しなかった。

3-3 実効増倍率及びトリチウム製造量の評価

国内で運用実績を持つ高温ガス炉である HTTR に Li ロッドを装荷した際の炉心核特性を評価することは、HTTR で今後実施する照射試験を行うに当たっての有用な知見につながる。図 3-5 に B ロッドまたは Li ロッドを装荷した HTTR の運転期間に対するトリチウム製造量と k_{eff} を示す。B ロッドが装荷された際、360 日間の k_{eff} は緩やかに増加した。これは、HTTR の設計及びその評価についての文献と一致した[36]。B ロッドに含まれる ^{10}B 原子が燃焼することにより運転直後の余剰反応度が抑制され、運転時間に伴い ^{10}B が減少することで負の反応度が低下したため、k_{eff} の低下が抑えられた。Li ロッドを装荷し 360 日の運転を行うと、k_{eff} は運転開始直後では B ロッドの場合より高く、時間と共に直線的に減少する。この時のトリチウム製造量は 360 日間で 30.3 g となる。これは運転開始時における ^{6}Li の巨視的断面積(微視的断面積と装荷量の積を比較しても良い)は ^{10}B より低いため初期の反応度を B ロッド装荷時と同等に抑える事ができず、運転後期の未燃焼 ^{6}Li の割合が高くなるために k_{eff} は直線的に減少すると思われる。なお、どちらの BP を装荷しても運転開始直後の k_{eff} は Xe の生成により急激に減少する。この k_{eff} の特性では制御棒の挿入量が運転初期に大きくなり、炉心下部の発熱量が増加するため、原子炉運転の観点では Li ロッドを装荷した高温ガス炉は原子炉として成立しない。また、制御棒の操作頻度が多くなるため、k_{eff} の時間変化をできるだけ小さくすることが要求される。

次に実際のトリチウム製造用高温ガス炉として想定している GTHTR300 のトリチウム製造量と k_{eff} を評価した。図 3-6 に B ロッドまたは Li ロッドを装荷した GTHTR300 の運転期間に対するトリチウム製造量と k_{eff} を示す。B ロッドを装荷した際、k_{eff} は運転時間に伴い緩やかに増加した。これは GTHTR300 が 2 年間の連続運転を想定して設計されているためであり、GTHTR300 の設計及びその評価についての文献[38]と同じ傾向だった。Li ロッドを装荷した際の k_{eff} は Li ロッドを装荷した HTTR と同様に変化した。また、360 日間のトリチウム製造量は 818g になる。しかし、k_{eff} の減少は HTTR の場合より急激である。これは GTHTR300 の運転初期に制御棒で抑えるべき余剰反応度が HTTR より多いことを示しており、原子炉の成立性はさらに低下する。従って、単純に B ロッドを Li ロッドに置き換えるだけではトリチウムを製造しながら運転できないため、GTHTR300 でトリチウムを製造する際には k_{eff} 特性を改善することが強く要求される。その改善法を検討するためには、まず HTTR 及び GTHTR300 に用いる BP の負の反応度について把握する必要がある。

3-4 実効増倍率の特性に影響を及ぼす要因

・負の反応度

BP 変更により k_{eff} の特性に違いが生じた原因を調査するために、HTTR 及び GTHTR300 の各時間ステップにおける BP の負の反応度を評価した。図 3-7 は運転期間に対する BP の負の反応度を示している。HTTR に B ロッドを装荷した場合、負の反応度は運転時間に伴い約-14.6 Δk/k%から-6.16 Δk/k%まで低下する。一方、Li ロッドを装荷した場合の負

の反応度は約-11.5 Δk/k%から-8.64 Δk/k%に低下する。Li ロッドの負の反応度は運転初期では小さいが、時間経過による減少幅も小さい。最終的に運転後期の Li ロッドの負の反応度は B ロッドの負の反応度を超えるため k_{eff} は直線的に減少する。これは中性子吸収断面積が ^{10}B の約 1/4 である ^{6}Li が ^{10}B より多く装荷されるが、運転初期では BP 量が足りず、また運転後期では未燃焼 ^{6}Li の割合が高くなるためだと思われる。

同様に GTHTR300 に B ロッドを装荷した場合の負の反応度を評価したところ、運転時間に伴い約-22.0 Δk/k%から-7.01 Δk/k%まで大きく減少する。一方、Li ロッドを装荷した際の負の反応度の減少は-19.0 Δk/k%から-15.1 Δk/k%であるため、減少幅は更に小さくなり、運転後期に過剰な負の反応度が印加される。これにより Li ロッドを装荷した GTHTR300 の k_{eff} は HTTR に比べ急激に減少する。これは GTHTR300 に装荷した ^{6}Li が HTTR の場合より燃えにくいことが原因だと思われる。GTHTR300 に装荷された ^{6}Li がより燃えにくくなった要因を明らかにするために以下の分析を行った。

・燃料ブロック当たりの $LiAlO_2$ 体積

ここでは HTTR と GTHTR300 に装荷した $LiAlO_2$ 量と燃料ブロックの体積を確認した(表 3-1)。800 g のトリチウムを製造するために GTHTR300 に装荷する $LiAlO_2$ 量は HTTR の 7 倍程度になる。一方、燃料ブロックの体積の差は小さい。従って、GTHTR300 の燃料ブロック体積当たりの $LiAlO_2$ 量は HTTR の約 9 倍となる。$LiAlO_2$ 形状と ^{6}Li 濃度が同じである場合、燃料ブロック当たりの $LiAlO_2$ 体積が増加すると円筒状である $LiAlO_2$ 層の直径もしくは厚みを増やす必要があるため、自己遮蔽効果により ^{6}Li は燃えにくくなる。

・燃焼 BP 数及び未燃焼 BP の割合

図 3-5 と 3-6 に関する核燃焼計算の出力データを分析した。図 3-8 に運転期間に対する燃焼 BP 原子数を示す。^{10}B 原子は ^{6}Li よりも速く燃焼することは BP の中性子吸収断面積と装荷量の関係、図 3-7 の結果と辻褄が合った。HTTR における燃焼 ^{6}Li 原子は約 10 mol となり、ほぼ ^{10}B 原子の場合と同じだった(差は約 3%)。一方、GTHTR300 における燃焼 ^{6}Li 原子は約 270 mol で、^{10}B 原子の場合より約 21%増加する。これは GTHTR300 で最大のトリチウム製造量を達成するために多くの $LiAlO_2$ を装荷したためである。図 3-9 に運転期間に対する BP の残存率(未燃焼 BP の割合)を示す。この図から高温ガス炉の未燃焼 ^{6}Li の割合が ^{10}B より高くなり、Li ロッドの負の反応度は運転後期で過剰になることが分かる。B ロッドを装着した場合、HTTR の未燃焼 ^{10}B の割合は 28%となり、GTHTR300 の場合より僅かに増加した。これは、HTTR の各燃料ブロックに 2 本の B ロッドが装荷されるが、GTHTR300 の各燃料ブロックに 3 本の B ロッドを装荷するためだと考えられる。HTTR の ^{10}B 原子は、非均質性の増加により GTHTR300 の ^{10}B 原子よりも僅かに燃えにくくなる。Li ロッドを装着した場合、GTHTR300 の未燃焼 ^{6}Li の割合は 75%であるが、HTTR の未燃焼 ^{6}Li の割合は 69%だった。これは GTHTR300 では自己遮蔽効果により ^{6}Li が燃

えにくくなることを意味する。従って、GTHTR300 を用いて最大量のトリチウムを製造するために大量の $LiAlO_2$ (^{6}Li)を装荷すると、自己遮蔽効果により未燃焼 ^{6}Li の割合が増加し、HTTR の場合より k_{eff} は急激に減少する。これらの解析結果を踏まえ、次節で Li ロッド装荷法について検討を行なった。

3-5 炉心核特性の改善

Li ロッドを装荷した高温ガス炉が原子炉として成立するには、初期の k_{eff} を抑え、k_{eff} の時間変化をできるだけ小さくすることで B ロッドを装荷した際の k_{eff} 特性に近づける必要がある。現在の設計でも一部の Li ロッドを B ロッドに戻すことで k_{eff} 特性を改善できると考えられるが、最大トリチウム製造量は低下する。節 3-4 の解析を考慮すると、Li の非均質性を減少させることにより自己遮蔽効果が低下し、^{6}Li が燃えやすくなると思われる。従って、$LiAlO_2$ 量を減らした Li ロッドを大量に装荷することで年間トリチウム製造量を維持しつつ k_{eff} の低下を抑制することができる可能性がある。

・可動反射体への Li ロッド追加

実際のトリチウム製造に用いる GTHTR300 の k_{eff} 特性を改善するために GTHTR300 の可動反射体カラムに BP 孔を設け、Li ロッドを追加した際のトリチウム製造量及び k_{eff} を評価した。図 3-10 は反射体に Li ロッドを追加した際の GTHTR300 炉心断面図である。緑で示した反射体カラムに燃料ブロックの BP 孔と同じ位置に BP 孔を開け、1 ブロック当たり 3 本の Li ロッドを装荷することを想定した。これにより 1 段当たり 180 本の Li ロッドが追加されるため、炉心全体では総計 3,600 本の Li ロッドが装荷される。図 3-11 に可動反射体カラムに Li ロッドを追加した場合の運転期間に対する GTHTR300 のトリチウム製造量及び k_{eff} を示す。比較のために GTHTR300 用 Li ロッドを 2,160 本装荷した場合の結果(図 3-6)を併記する。$LiAlO_2$ 層の厚みを 1.15 mm(内半径 13.55 mm)にした場合、^{6}Li 装荷量が 5,373 g となり、その厚みを 1.3 mm(内半径 13.4 mm)にすると ^{6}Li 装荷量は 6,042 g になる。3,600 本の Li ロッド中の ^{6}Li 装荷量が 5,373 g(6,042 g)である場合、トリチウム製造量と 360 日運転後の k_{eff} はそれぞれ 834 g (925 g)、1.03 (1.02)になった。この Li ロッド装荷法により k_{eff} 特性は改善しなかったが、^{6}Li が燃えやすくなったため、年間 800 g のトリチウムを製造した際の k_{eff} は増加し、最大 922 g のトリチウムを製造することが可能になった。この結果を踏まえ、k_{eff} 特性を改善する方法を検討した。

・Li ロッド及びBロッドの併用

反射体領域に Li ロッドを追加した GTHTR300 を用いて年間 800 g のトリチウムを製造する場合、全ての BP 孔に Li ロッドを装荷する必要は無いため、一部の Li ロッドを B ロッドに置き換えることで k_{eff} の特性を改善できる可能性がある。そこで図 3-12 のように内側反射体に追加した Li ロッドを標準仕様の B ロッドに置き換えた評価を行った。Li ロ

ッド、B ロッドの本数は各段でそれぞれ 396、54 本になり、総計は 3,168、432 本となる。また、Li ロッドの $LiAlO_2$ 層厚みは 1.44 mm(内半径 13.26 mm)に設定したため、全 ^{6}Li 装荷量は 5,860 g になる。図 3-13 はこの炉心配置における GTHTR300 のトリチウム製造量及び k_{eff}(赤線)を示している。比較のため 2,160 本の GTHTR300 用 Li ロッド(青線)もしくは B ロッド(黒線)のみを装荷した場合の結果を併記した。Li ロッドと B ロッドを併用すると年間トリチウム製造量は 830 g になった。360 日目の k_{eff} は 1.02 となり、Li ロッドのみを使用した結果と同等だった。ただし、運転初期の反応度が抑制されたため k_{eff} は運転初期で黒線に近くなり、青線より緩やかに減少した。従って、Li ロッドと B ロッドを併用すると k_{eff} 特性が改善されるため、Li ロッドを装荷した高温ガス炉は原子炉として成立する可能性が示された。

・Li 制御棒によるトリチウム製造量向上

B ロッドを併用する場合、GTHTR300 の年間トリチウム製造量を増やすことができなかったが、^{6}Li を含む Li 制御棒で余剰反応度を抑える事でトリチウム製造量を増やすことが検討されている[55]。この手法の有効性を確認するために GTHTR300 について簡易的な評価を行った。図 3-6 の GTHTR300 用 Li ロッドを装荷した際の k_{eff} を Li 制御棒により運転期間にわたり 1 に抑える事を仮定すると、GTHTR300 の中性子発生数は 4.68×10^{19} (n/s)であることから、余剰中性子数は7.80×10^{25} (n)と概算され、Li 制御棒により 360 日でトリチウム製造量は最大 390 g 増加した。これは理論値であるが、過去の研究で GTHTR300 のトリチウム製造量は ^{6}Li 制御棒により 4 割増加できることが既に報告されているため[55]、有効性は十分に確認できた。

3-6 まとめ

本章では BP を ^{10}B(B ロッド)から ^{6}Li(Li ロッド)に変更した際の炉心核特性への影響を明らかにするために、MVP-BURN を用いて HTTR 及び GTHTR300 の実効増倍率(k_{eff})を評価した。また、k_{eff} 特性を改善する Li ロッド装荷法について検討した。B ロッドを高温ガス炉に装荷した際、k_{eff} は 360 日の運転期間では緩やかに増加する。トリチウム製造のために Li ロッドを装荷した場合、k_{eff} は運転開始直後では B ロッドを装荷した場合より高く、時間と共に直線的に減少する。これは、^{6}Li の中性子吸収断面積が ^{10}B の 1/4 程度であるため、より多くの ^{6}Li を装荷する必要があり、結果として未燃焼 ^{6}Li 割合が高くなることが原因である。その結果、運転初期では Li ロッドの負の反応度は B ロッドの場合より小さいが、時間経過に伴う減少幅も小さくなり、運転後期で B ロッドの負の反応度を超える。GTHTR300 では自己遮蔽効果により未燃焼 ^{6}Li の割合が特に高くなり、運転後期に過剰な負の反応度が印加されることで k_{eff} は HTTR より急激に減少する。

Li ロッドを装荷した高温ガス炉の k_{eff} 特性では、制御棒の挿入量が運転初期に大きくなり、炉心下部の発熱量が増加するため、原子炉運転の観点では原子炉として成立しない。ま

た、制御棒の操作頻度が多くなる。Li ロッドを装荷した高温ガス炉が原子炉として成立するには、初期の k_{eff} を抑え、k_{eff} の変化をできるだけ小さくする必要がある。

k_{eff} 特性を改善するために Li ロッド一本当たりの $LiAlO_2$ 装荷量を減らし、反射体領域に Li ロッドを追加すると ^{6}Li が燃えやすくなったため、最大トリチウム製造量が増加した。ここで一部の Li ロッドを B ロッドに戻すと、年間 800 g のトリチウム製造量を維持しながら運転初期の k_{eff} は抑制され、運転に伴う k_{eff} の減少も緩やかになった。従って、Li ロッドと B ロッドを併用すると k_{eff} 特性が改善されたため、Li ロッドを装荷した高温ガス炉が原子炉として成立する可能性が示された。今後の検討では Li ロッドを装荷した GTHTR300 の k_{eff} 特性を標準仕様と同等の特性に近づける必要がある。トリチウム製造量を増やすことに関しては、運転時の余剰反応度を Li 制御棒で抑えることで GTHTR300 の年間トリチウム製造量を最大 390 g 向上できる可能性がある。以上の結果は今後の高温ガス炉を用いたトリチウム製造法の性能改善の検討に対して有用な知見を提供する。

表 3-1　燃料ブロック当たりの $LiAlO_2$ 装荷量及び燃料ブロック体積

	Loaded $LiAlO_2$ in a Li rod(cm^3)	Volume of a fuel block (cm^3)	Loaded $LiAlO_2$ per fuel block volume	Produced T (g)
GTHTR300	201	3.86×10^4	1.56×10^{-2}	818
HTTR	28	4.75×10^4	1.76×10^{-3}	30.3

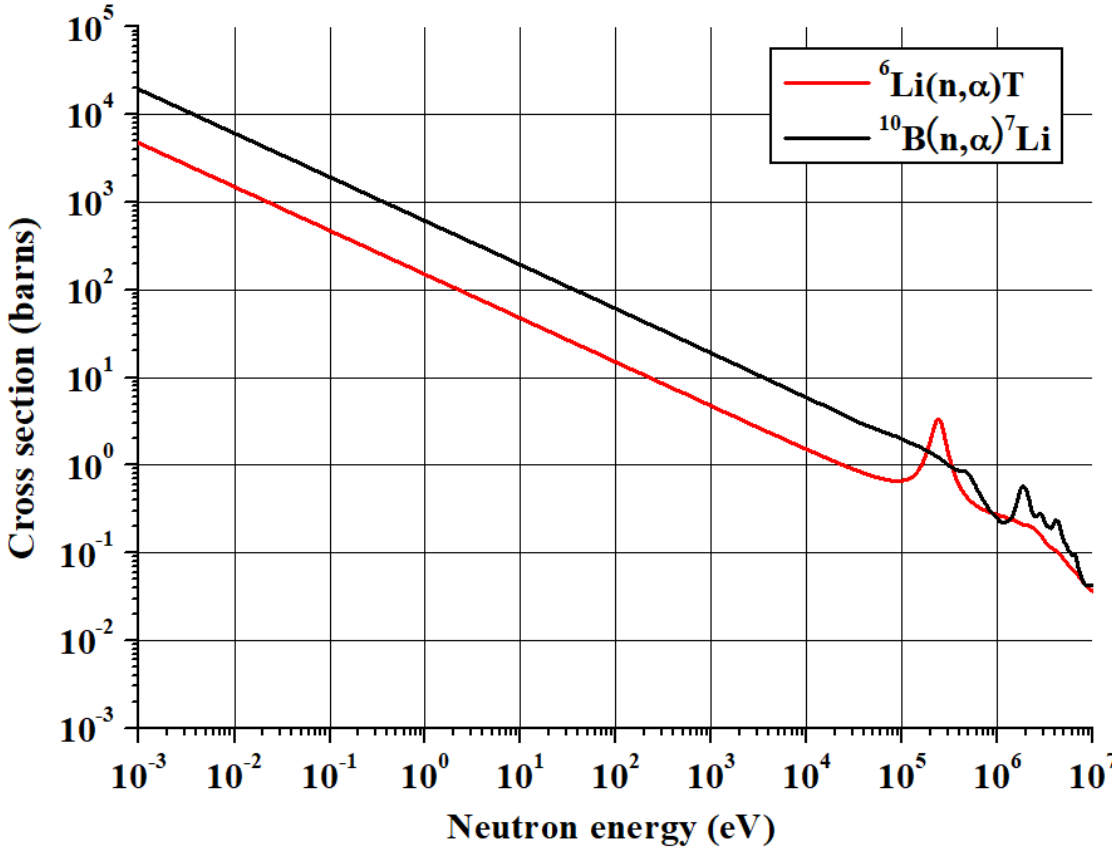


図 3-1　^{6}Li(n,α)T 及び ^{10}B (n, α)^{7}Li 反応の微視的断面積 (JENDL-4.0) [29]

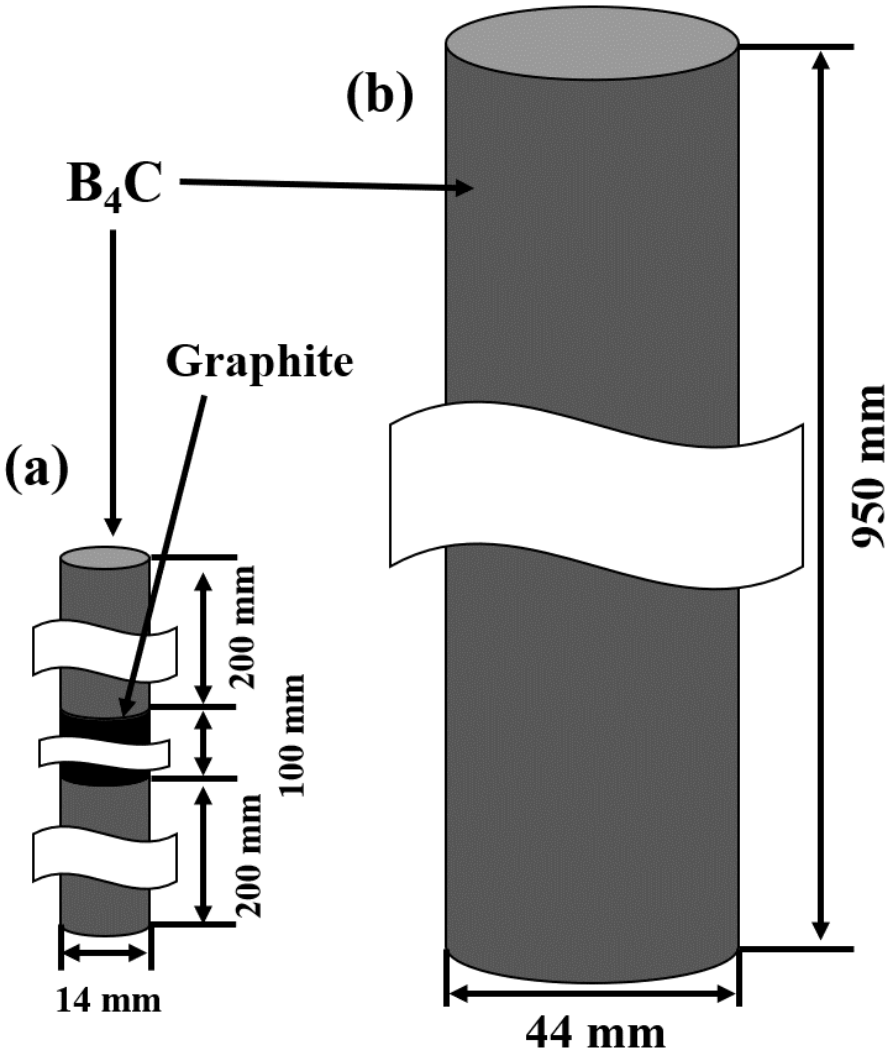


図 3-2　標準仕様 B ロッドの設計

(a)HTTR 用　(b)GTHTR300 用

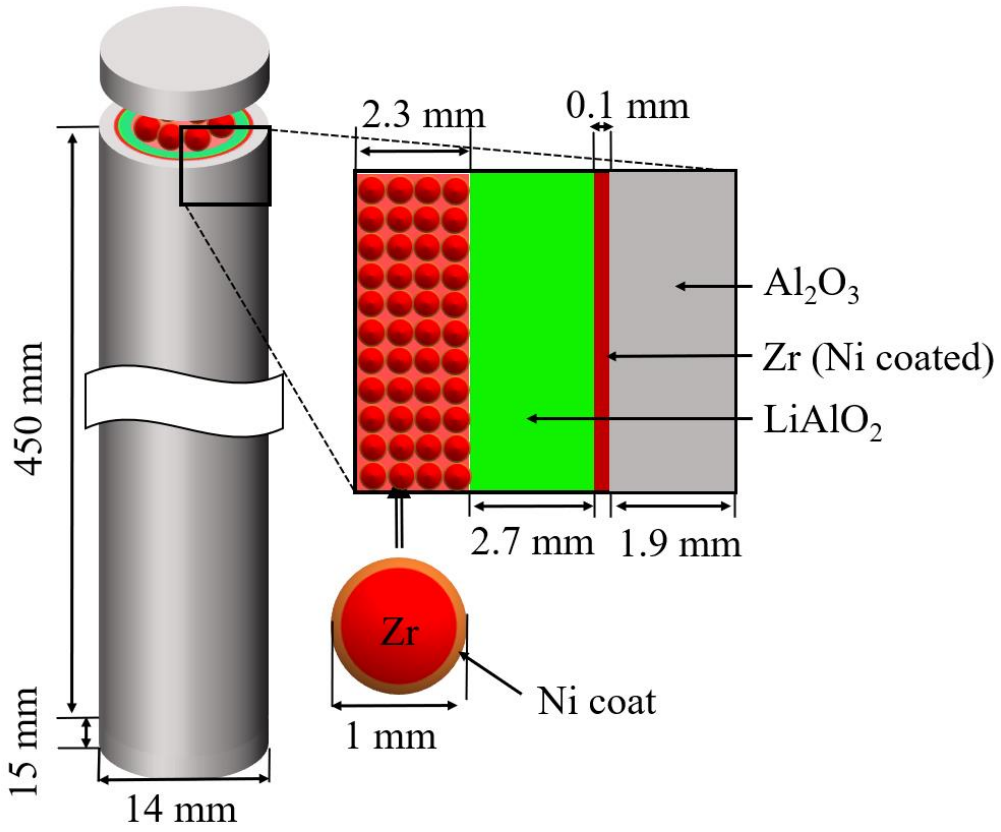


図 3-3　HTTR 用 Li ロッドの構造

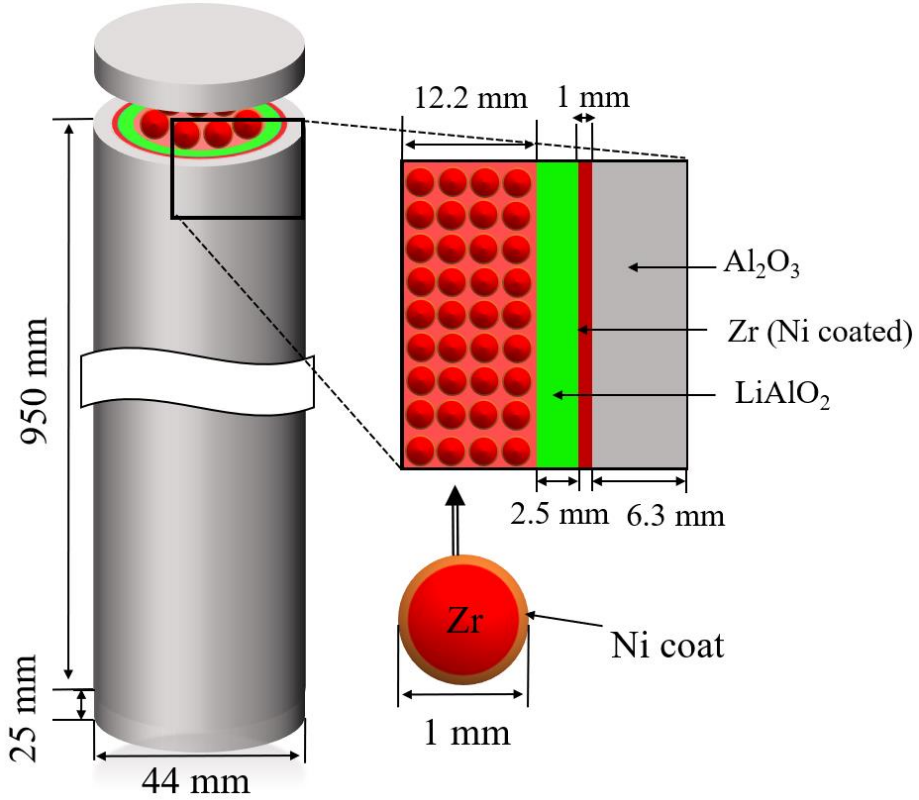


図 3-4　GTHTR300 用 Li ロッドの設計
(最大量のトリチウムを製造する設計)

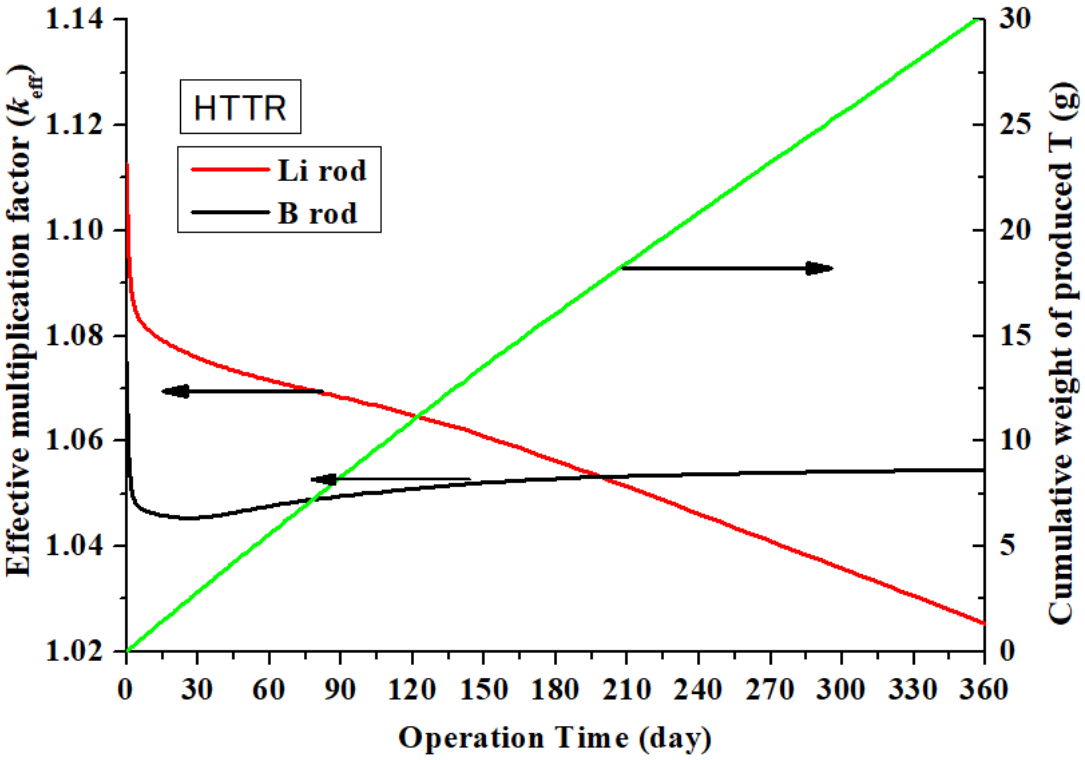


図 3-5　運転期間に対する HTTR のトリチウム製造量及び実効増倍率(k_{eff})

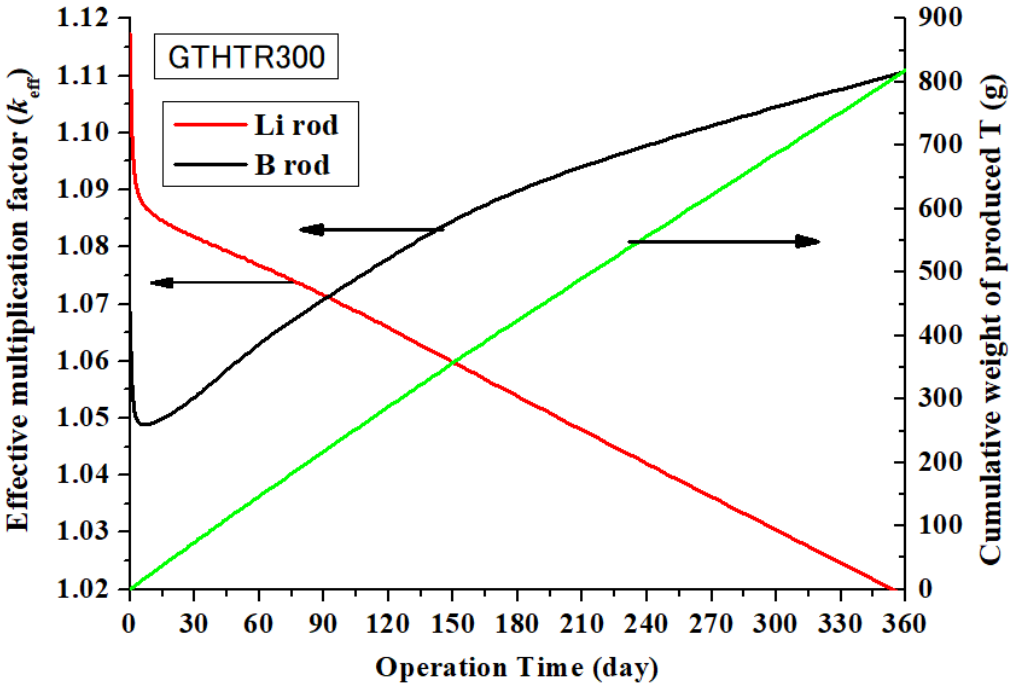


図 3-6　運転期間に対する GTHTR300 のトリチウム製造量及び実効増倍率(k_{eff})

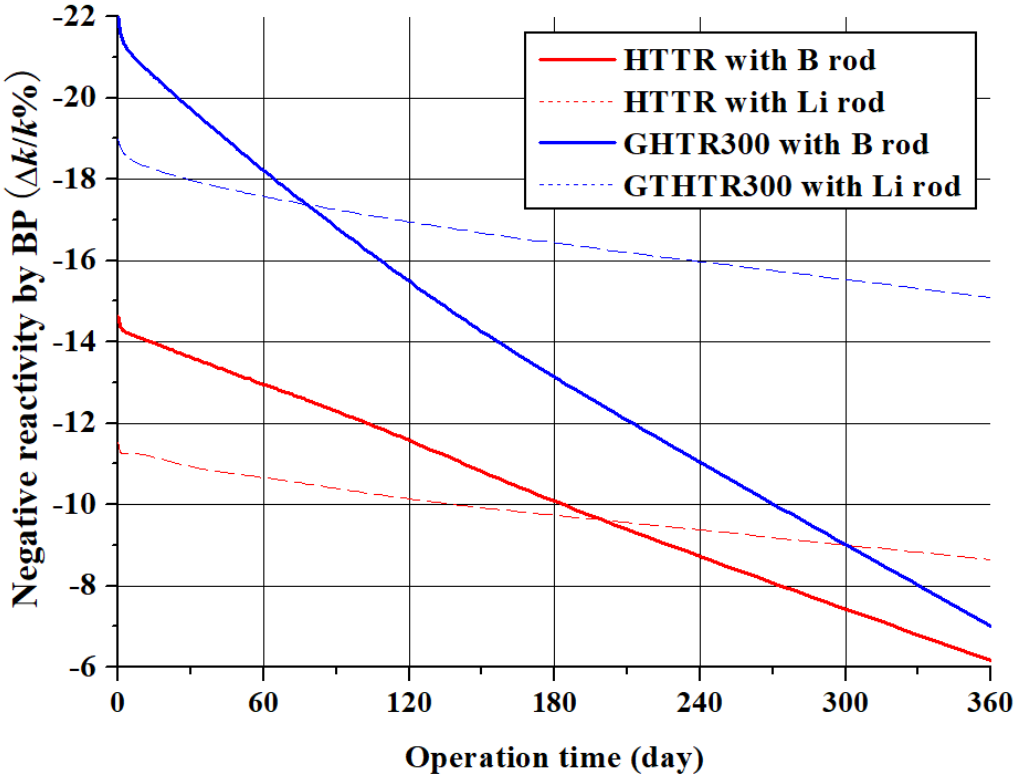


図 3-7　運転期間に対する BP の負の反応度

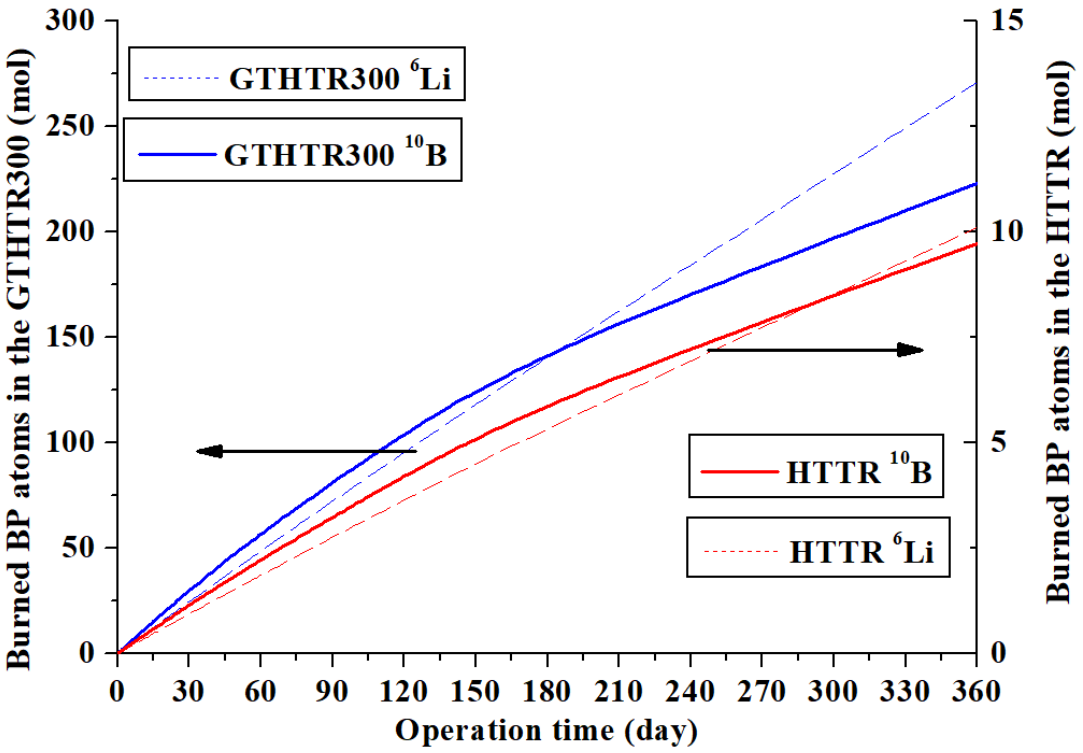


図 3-8　運転期間に対する燃焼した BP 原子数

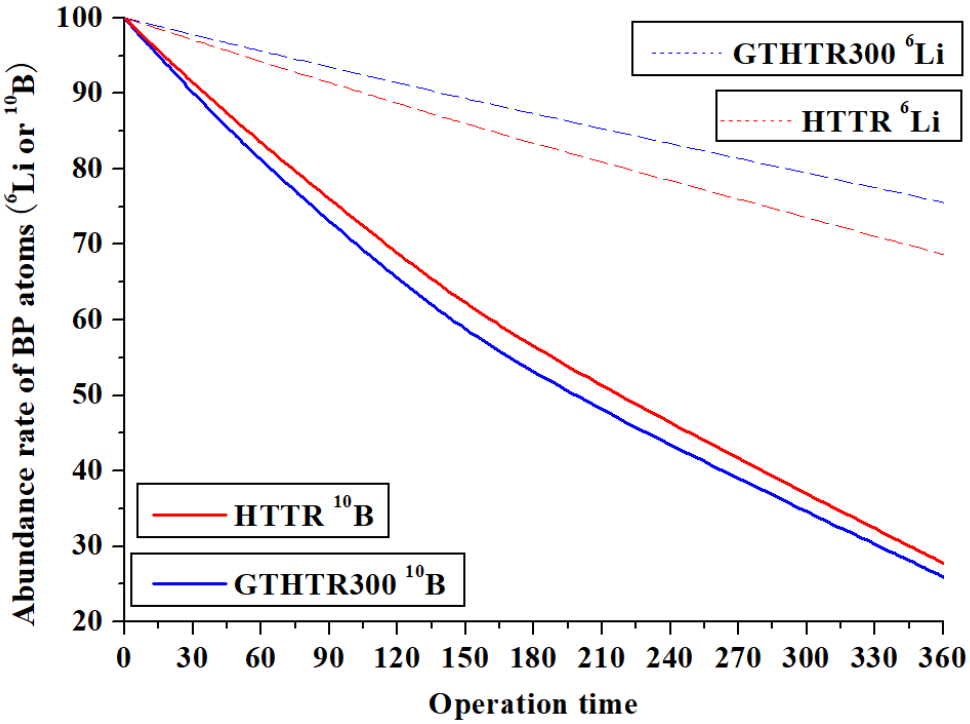


図 3-9 運転期間に対する BP の残存率(未燃焼 BP の割合)

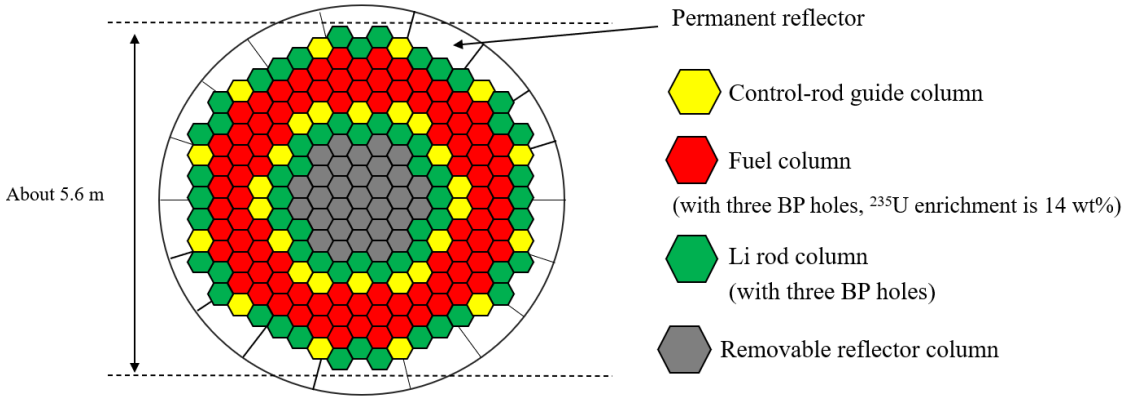


図 3-10 可動反射体カラムに Li ロッドを追加した場合の GTHTR300 炉心断面図

Li ロッド本数は各段 450 本(総計 3,600 本)

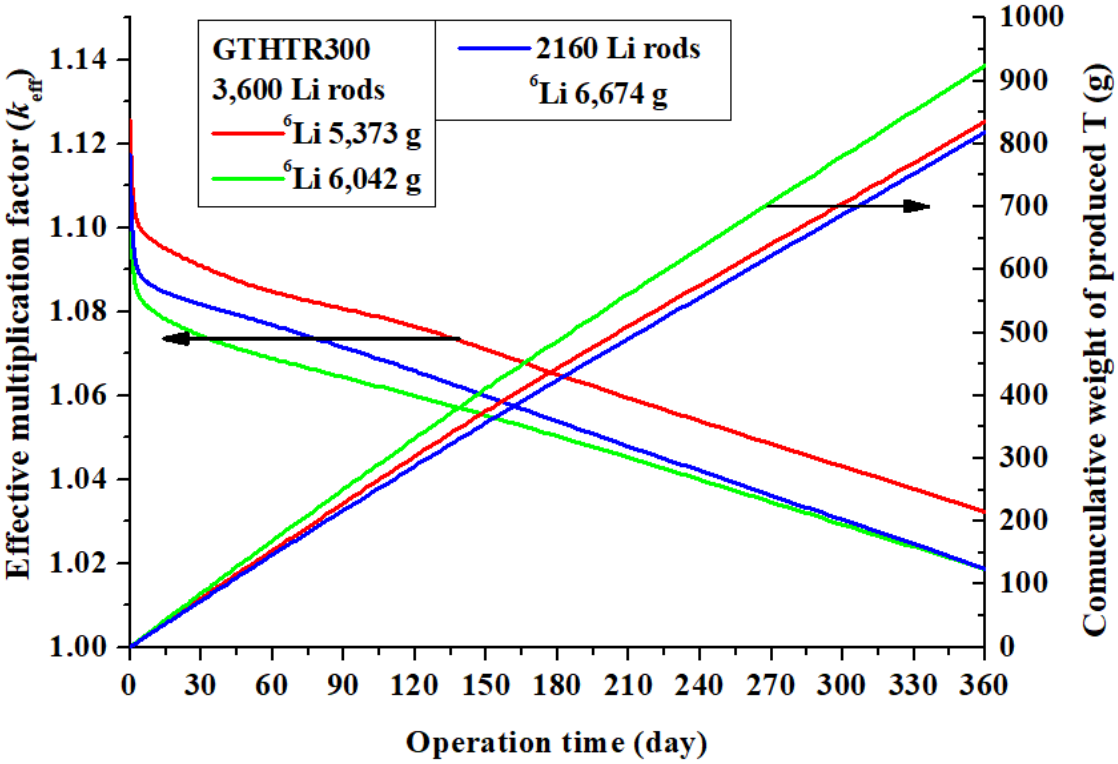


図 3-11 可動反射体カラムに Li ロッドを追加した場合の
運転期間に対する GTHTR300 のトリチウム製造量及び実効増倍率(k_{eff})
比較のため 2,160 本の Li ロッドを装荷した場合の結果を併記

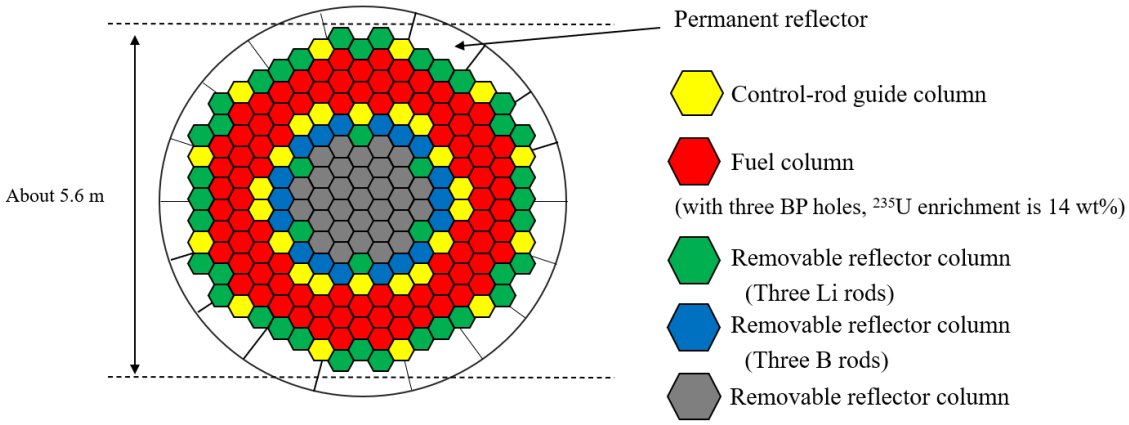


図 3-12 可動反射体カラムに Li ロッドと B ロッドを
追加した場合の GTHTR300 炉心断面図
Li ロッド、B ロッド本数は各段でそれぞれ 396、54 本(総計 3,168、432 本)

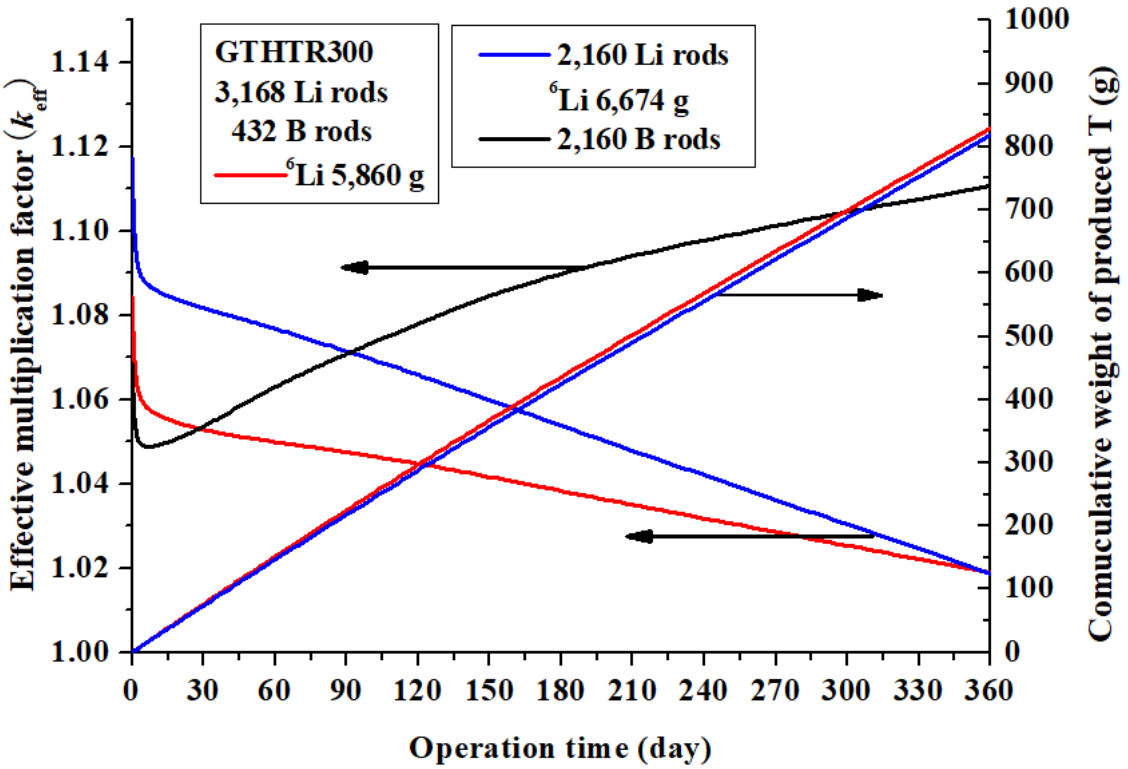


図 3-13 可動反射体カラムに Li ロッドと B ロッドを追加した場合の
運転期間に対する GTHTR300 のトリチウム製造量及び実効増倍率(k_{eff})
比較のため 2,160 本の Li ロッドまたは B ロッドを装荷した場合の結果を併記

4 章　HTTR を用いたトリチウム製造実証試験における照射試験体の検討

4-1 はじめに

Li ロッドからの炉内へのトリチウム流出量を最小限に抑える事は、トリチウム製造量の向上と同様に重要な課題である。高温ガス炉によるトリチウム製造法を実現するために、HTTR を用いたトリチウム製造実証試験によりトリチウム製造性能に加えて、トリチウムの閉じ込め性能を含む Li ロッドの性能を検証する必要がある。本章では、HTTR の照射カラム(照射領域)での実施を想定したトリチウム製造及び閉じ込め性能を検証するための照射試験体に関する検討を行う。本検討当時は HTTR での運用に適した Li ロッド設計が定まっていなかったため、MVP-BURN により年間 30 g のトリチウムを製造できる Li ロッドを設計する。それを基準に複数の試験体を設計し、トリチウム製造量と流出量を比較することで HTTR 用 Li ロッドを構成する $LiAlO_2$ 層、Zr 層、アルミナ層の性能を検証する試験法を検討する。

4-2　計算モデル及び照射体系

本検討が行われた当時は、HTTR 用 Li ロッドの設計は検討されていなかったため、MVP-BURN による HTTR 体系の核燃焼計算でトリチウム製造量を評価し、HTTR によるトリチウム製造に適した Li ロッドを設計した。計算条件は 3 章と同様であるが、各ステップの中性子発生数は 6,000,000 個に設定した。図 4-1 に HTTR 炉心図を示す。Li ロッドの寸法は直径　　14 mm、高さ 480 mm に設定し、1 ブロック当たり 3 本装荷する。炉心 1 段当たりのブロック数は 30 個、炉心は 5 段構成であるため、Li ロッド本数は 450 本になる。運転条件は熱出力 30 MW、360 日運転、Li ロッド温度は 1,170 K を想定した。

照射試験は図 4-1 の照射領域(replaceable reflector region A)[56]の内、1 箇所のみで行うことを許可された状況を想定した。試験を行う炉心の段数は、温度と照射中性子束がそれぞれ 1,070 K、4.2×10^{17} n/m^{2}s になる位置[56]とし、照射日数は 30 日を想定した。今回検討した試験法では $LiAlO_2$ 層、Zr 層、アルミナ層の性能を検証するために 4 本の試験体を用いる事を検討した。従って図 4-2 の照射ブロックに 4 本の試験体を装荷するものとした。図 4-3 に試験体を構成する試験用 Li ロッドと、それを覆うアルミナ製のトリチウム流出防止カバーの構造を示す。トリチウム流出防止カバーの直径、高さ、厚みはそれぞれ 120 mm、450 mm、20 mm であり、その上下に厚さ 15 mm のアルミナ製の蓋を取り付ける。カバー内部に配置する試験用 Li ロッドの直径は 80 mm 未満にする必要がある。試験用 Li ロッドの構造を図 4-4 に示す。試験用 Li ロッドは層状 Zr を使用しないロッド(a)と使用するロッド(b)を想定した。各層の厚みは自由に変更できるが、直径は 80 mm 未満になるように設計した。なお、粒状 Zr は本検討が行われた時期では想定されていない。表 4-1 は試験用 Li ロッドの設計を示しており、節 4-3 で説明する HTTR 用 Li ロッド設計(A)と、それを基にアルミナ層、$LiAlO_2$ 層、Zr 層の設計を変更した Li ロッド(B-D)を用いる

試験体のトリチウム製造量は MVP による核計算で評価した $LiAlO_2$ 中の中性子束から求めた。核データは JENDL-4.0 を用いた。MVP の計算体系は試験体が真空中に均一に照射されるものとし、中性子発生数は 2,160,000 個とした。トリチウム製造量は以下の式で評価した。

$$N_t = N_{6LI}[1 - exp(-\varphi\sigma_{6Li+n}t)] \tag{4-1}$$

$N_t, N_{6LI}, \phi, \sigma_{6Li+n}, t$ はそれぞれ T の原子数、^{6}Li の原子数、$LiAlO_2$ 中の中性子束、^{6}Li(n,α)T 反応の断面積、照射時間である。

アルミナ層からのトリチウム流出量は式(2-8)に示す定常解で求めた。Zr に吸収されるトリチウム吸収量は、岡本等の実験で得られた拡散係数と溶解度係数[57]を用い、非定常拡散方程式を解くことで評価した。

照射試験での HTTR 炉心の汚染を防ぐ観点から、試験体からのトリチウム流出量上限は HTTR 第一 He ループ中のトリチウムピーク値である 0.1 μg 以下と設定した[58]。今回想定した体系はバッチ型であるが、スイープガス(He)で試験用 Li ロッドからのトリチウムを回収することを仮定した上で試験体からのトリチウム流出量を評価した。

4-3 HTTR 用 Li ロッドの設計

ここでは、表 4-1 の HTTR 用 Li ロッドを設計する。HTTR 用 Li ロッドの性能目標として、450 本の Li ロッドを装荷した際の 1 年間のトリチウム製造量を 30 g、トリチウム流出率を 1%以下に設定した。燃焼計算による評価とトリチウム流出計算により HTTR 用 Li ロッドのアルミナ層厚みと $LiAlO_2$ 層厚みを決定した。図 4-5 は $LiAlO_2$ 層厚みに対する 360 日運転後の k_{eff} とトリチウム製造量を示している。Li ロッドの高さ、蓋の厚み、アルミナ層の厚みはそれぞれ 480 mm、15 mm、2.0 mm に固定した。Li 装荷量が増加すると ^{6}Li 装荷量が増加するためトリチウム製造量が増加し、k_{eff} は低下した。$LiAlO_2$ 層厚みを 3.0 mm に設定すると 30.9 g のトリチウム製造量を達成し、k_{eff} が 1.02 になることを確認した。アルミナ層の厚みと Zr 層はトリチウム製造量と k_{eff} に大きな影響を及ぼさないため、拡散計算のみでアルミナ層の厚みと Zr 層の厚みを決定した。図 4-6 はアルミナ層厚みに対するトリチウム流出率を示す。Zr のトリチウム吸収速度は表面積に比例するため、二つの Zr 層の厚みは 0.1 mm に固定した。Zr 層を使用した場合、アルミナ層の厚みが増加してもトリチウム流出率は 1%以下にならなかったが、Zr 層を加えることで 1%を十分に下回った。従って、HTTR 用 Li ロッドの $LiAlO_2$ 層、アルミナ層、Zr 層厚みはそれぞれ 3.0 mm、1.9 mm、0.1 mm に決定した。この設計の Li ロッドを使用した試験体を試験体 A とする。

4-4　照射試験法の検討

照射試験では、トリチウム製造量と流出量を測定することで HTTR 用 Li ロッドを使用する試験体 A を構成する $LiAlO_2$ 層、Zr 層、アルミナ層の性能を検証する。HTTR 用 Li ロッドを基に 3 本の試験体 B、C、D を設計し、照射試験中もしくは試験後に行う実験 I、II、III

により各層の影響を確認する試験法を検討した。表 4-1 は 4 本の試験体に含まれる試験用 Li ロッドの設計及び予想される照射後の結果(トリチウムマスバランス)を示している。試験体 B-C に含まれている Li ロッドはそれぞれ $LiAlO_2$ 層厚みが半分、Zr を使用しない、Zr 不使用かつアルミナ層の厚みが 5 倍の設計を持つ。試験体中の Li ロッドから流出したトリチウムは、スイープガスを用いて試験中に回収し、測定することを想定した。

4-4-1 実験内容

ここでは 4 本の試験体で行う実験内容を説明する。

・実験 I

$LiAlO_2$ 層厚みを変更したことによるトリチウム製造量と Zr 層のトリチウム吸収性能を検証する実験を検討した。この実験では試験体 A、B のトリチウム製造量・流出量の比較を行う。試験体 B の $LiAlO_2$ 層厚みは試験体 A の半分であり、30 日経過後の試験体 B のトリチウム製造量は照射試験体 A の約 73%と推定された。トリチウム製造量は Zr 中に吸収されたトリチウムと He 循環により回収されたトリチウムの値から測定する。図 4-7 は照射期間に対する試験体 A 及び B のトリチウム流出量を表している。試験体 B のトリチウム流出量は試験体 A の約 61%である。

・実験 II

この実験では Zr を使用する場合のトリチウム流出の低下を検証する。ここでは試験体 A 及び C のトリチウム流出量を比較する。照射期間に対する試験体 A 及び C のトリチウム流出量を図 4-8 に示す。試験体 A のトリチウム流出量は試験体 C の約 0.055%である。

・実験 III

試験体 C 及び D のトリチウム流出量を比較することでアルミナ層のトリチウム閉じ込め性能を検証する。試験体 D のアルミナ層の厚みは試験体 C の 5 倍である。図 4-8 は照射期間に対する試験体 C 及び D のトリチウム流出量を表している。試験体 D のトリチウム流出量は試験体 C の 33%である。

4-4-2 トリチウム製造量の妥当性及び炉心へのトリチウム流出量

ここでは核計算で評価した試験体のトリチウム製造量の妥当性と、炉心へのトリチウム流出量を確認した。HTTR の全 BP 孔に Li ロッドを装荷した際の 30 日間のトリチウム製造量 30.9 g をロッド 1 本当たりに換算すると約5.72×10^{-3} g となり、照射試験体 A のトリチウム製造量より大きい。これは今回想定した照射領域が HTTR 燃料領域より外部にあり、BP 孔が存在する燃料ブロックより中性子束が低いためである。従って、本検討で評価したトリチウム製造量は妥当な値だと見なせる。全ての試験体から炉心へ流出す

るトリチウムは、スイープガスを使用しなければ基準値 0.1 μg を超過した。一方、流量 132 L/min のスイープガスを用いることで基準値以下のトリチウム流出量を達成するので、実際の照射試験ではスイープガスは必要である。

4-5 まとめ

本章では HTTR を用いた Li ロッドのトリチウム製造及び閉じ込め性能を検証するための照射試験体に関する検討を行った。HTTR 用 Li ロッド及びそれを基準に複数の試験体を設計した。又、、各試験体のトリチウム製造量と流出量を比較することで HTTR 用 Li ロッドを構成する $LiAlO_2$ 層、Zr 層、アルミナ層の性能を検証する試験法を検討した。この試験では HTTR 用 Li ロッドを含む試験体に加え、$LiAlO_2$ 層厚みが半分の Li ロッド、Zr を使用しない Li ロッド、Zr 不使用かつアルミナ層の厚みが 5 倍の Li ロッドを含む試験体を用いることで各層の性能を検証することができる。実験 I では試験体 A と B のトリチウム製造量及び流出量を測定することで $LiAlO_2$ 層と Zr 層の性能を検証するする。実験 II では試験体 A と C のトリチウム流出量を測定することで Zr 層を使用することによるトリチウム流出量の低下を検証する。実験 III では試験体 C と D のトリチウム流出量を測定することでアルミナ層の性能を検証する。この検討により今後実施するトリチウム製造実証試験における試験内容の基本的な考え方を初めて提示した。

表 4-1　試験用 Li ロッドの設計及び予想結果

体系の高さは 450 mm

Test module	A	B	C	D
Radius of hollow portion (mm)	1.9	3.4	2.0	2.0
Zr thickness (mm)	0.1	0.1	-	-
$LiAlO_2$ thickness(mm)	3.0	1.5	3.0	3.0
Al_2O_3 thickness (mm)	1.9	1.9	2.0	10.0
Produced T (g)	3.17×10^{-3}	2.32×10^{-3}	3.17×10^{-3}	3.18×10^{-3}
Leaked T (g)	3.57×10^{-7}	2.16×10^{-7}	6.45×10^{-4}	2.10×10^{-4}
T in hollow portion (g)	1.21×10^{-9}	0	2.52×10^{-3}	2.97×10^{-3}
T in Zr (g)	3.17×10^{-3}	2.32×10^{-3}	-	-
T_2 partial pressure (Pa)	1.87×10^{-1}	0	3.68×10^{5}	4.34×10^{5}

*試験用 Li ロッドの高さは 450 mm

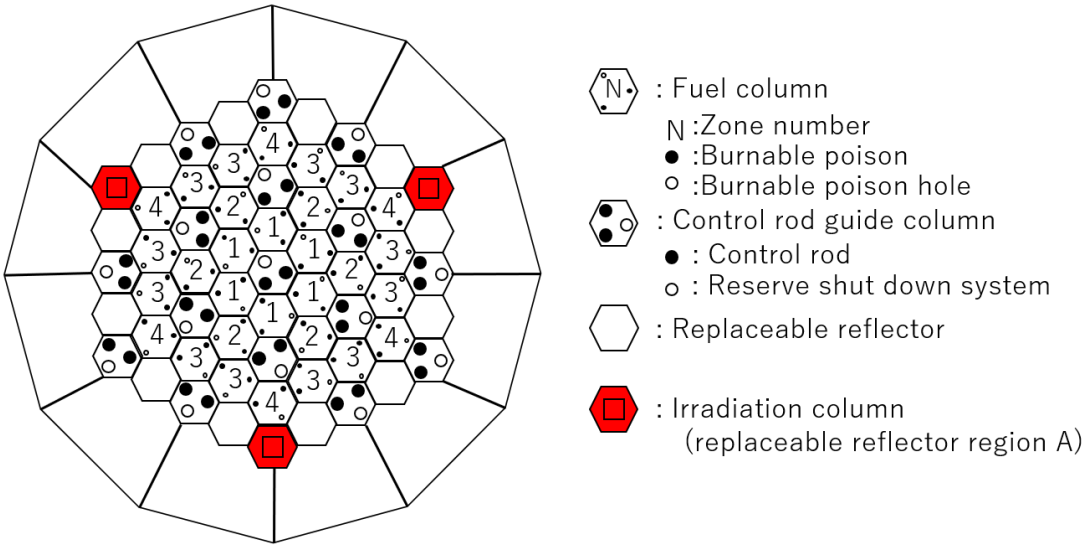


図 4- 1　HTTR 炉心及び照射領域位置

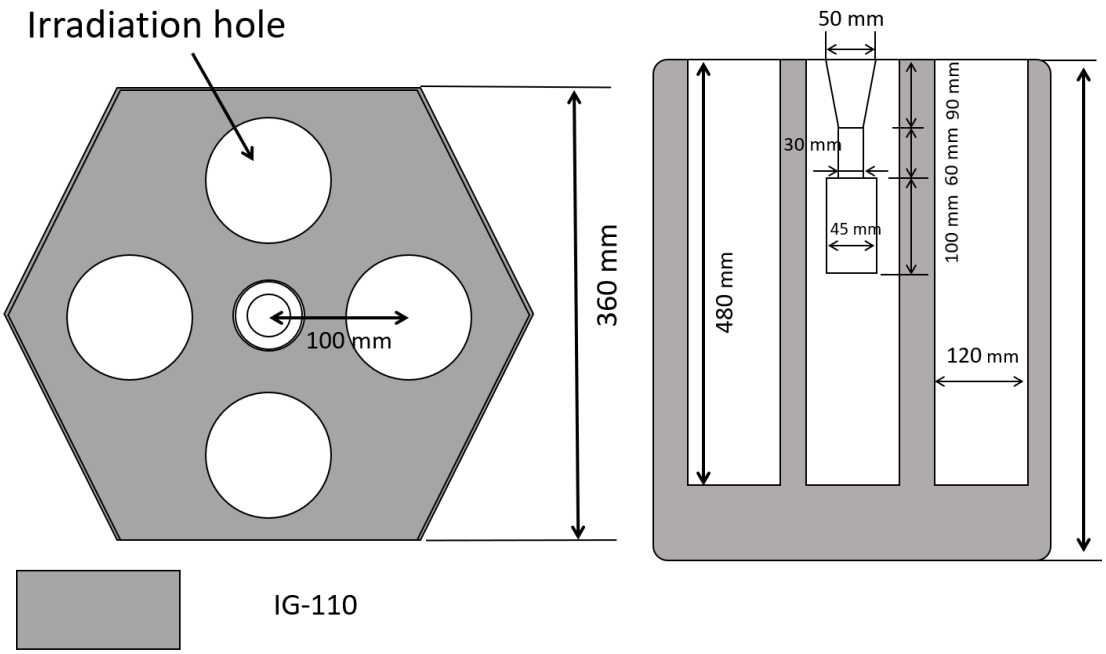


図 4-2 照射ブロックの設計

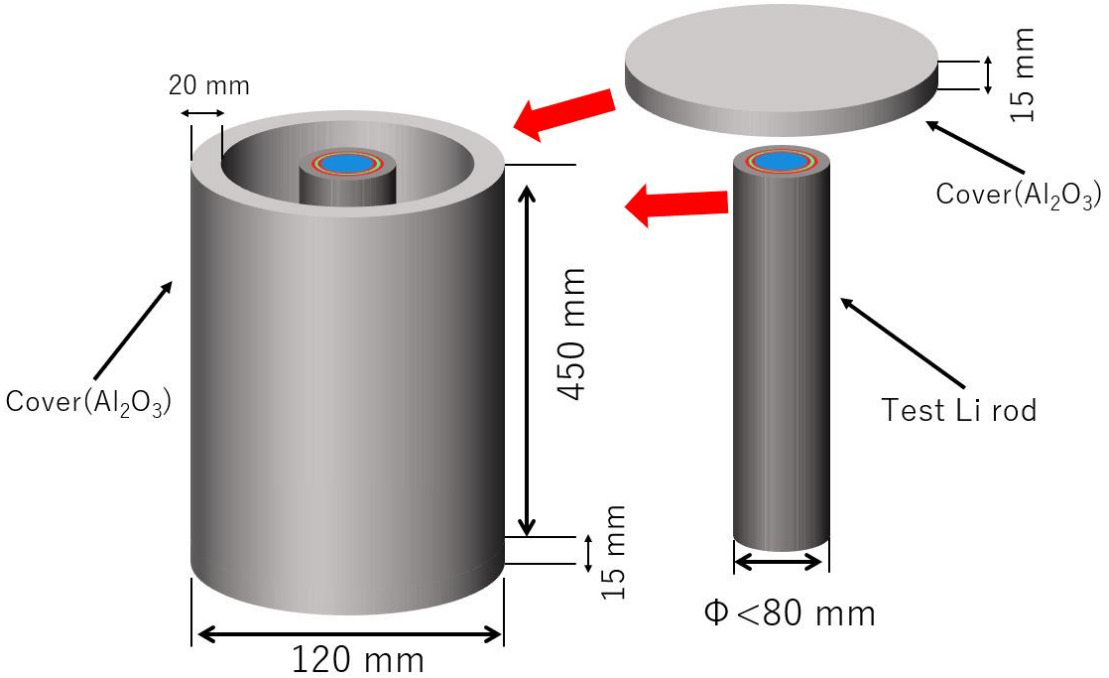


図 4-3　トリチウム流出防止カバー及び試験用 Li ロッドの設計

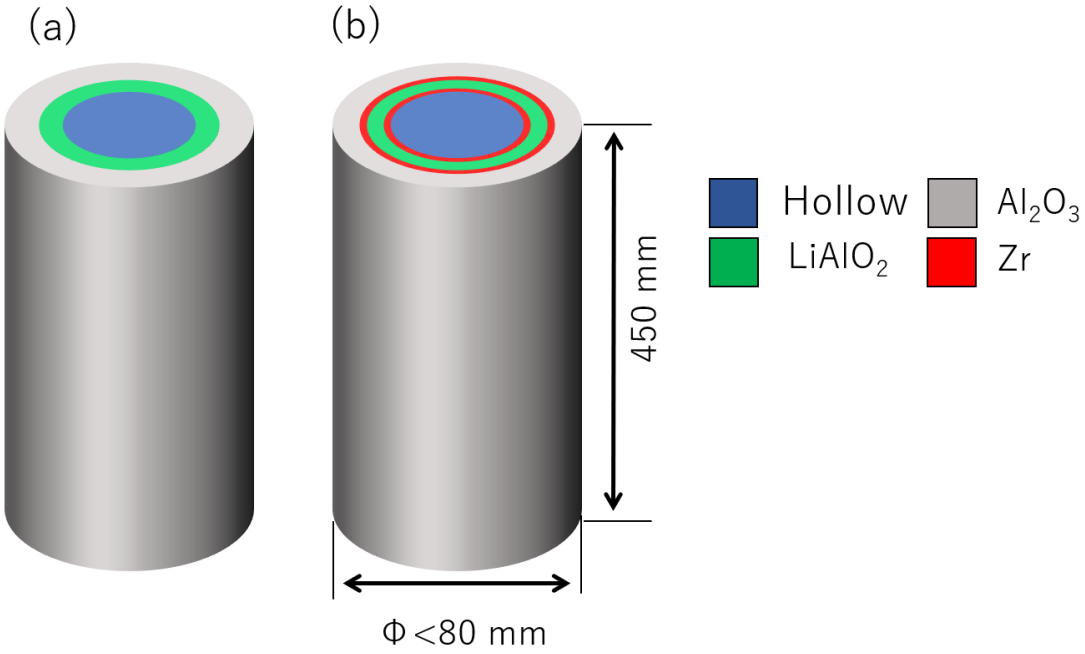


図 4-4　試験用 Li ロッドの構造

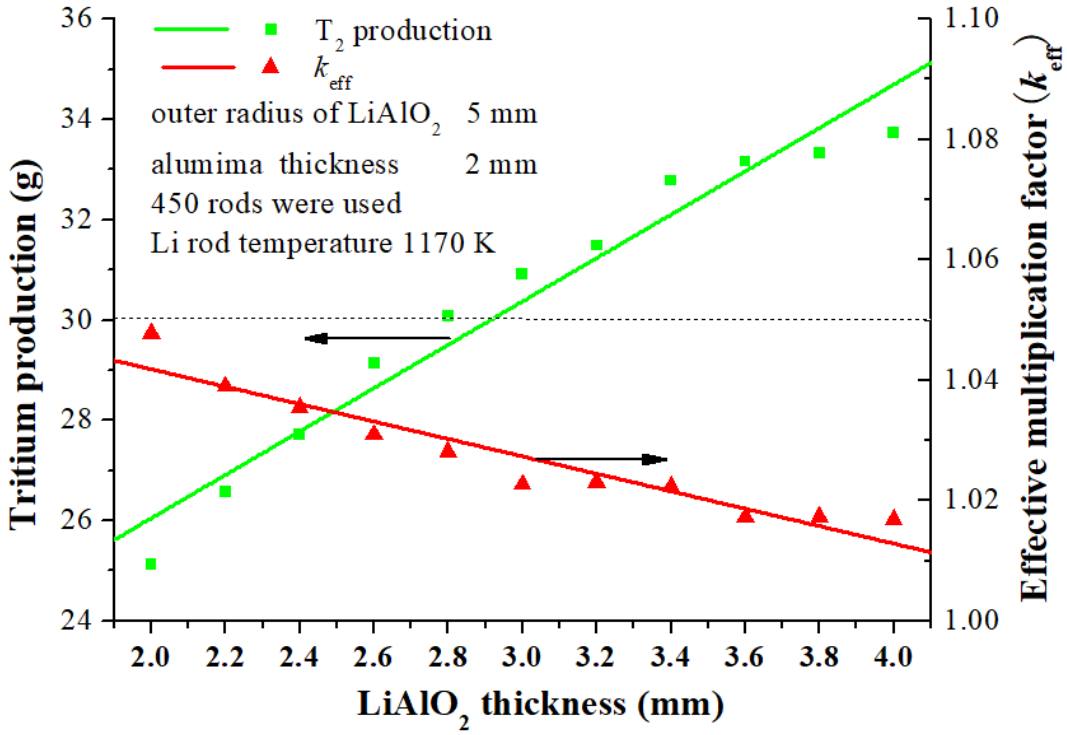


図 4-5　$LiAlO_2$ 厚みに対する HTTR の 360 日運転後の実効増倍率(k_{eff})及びトリチウム製造量

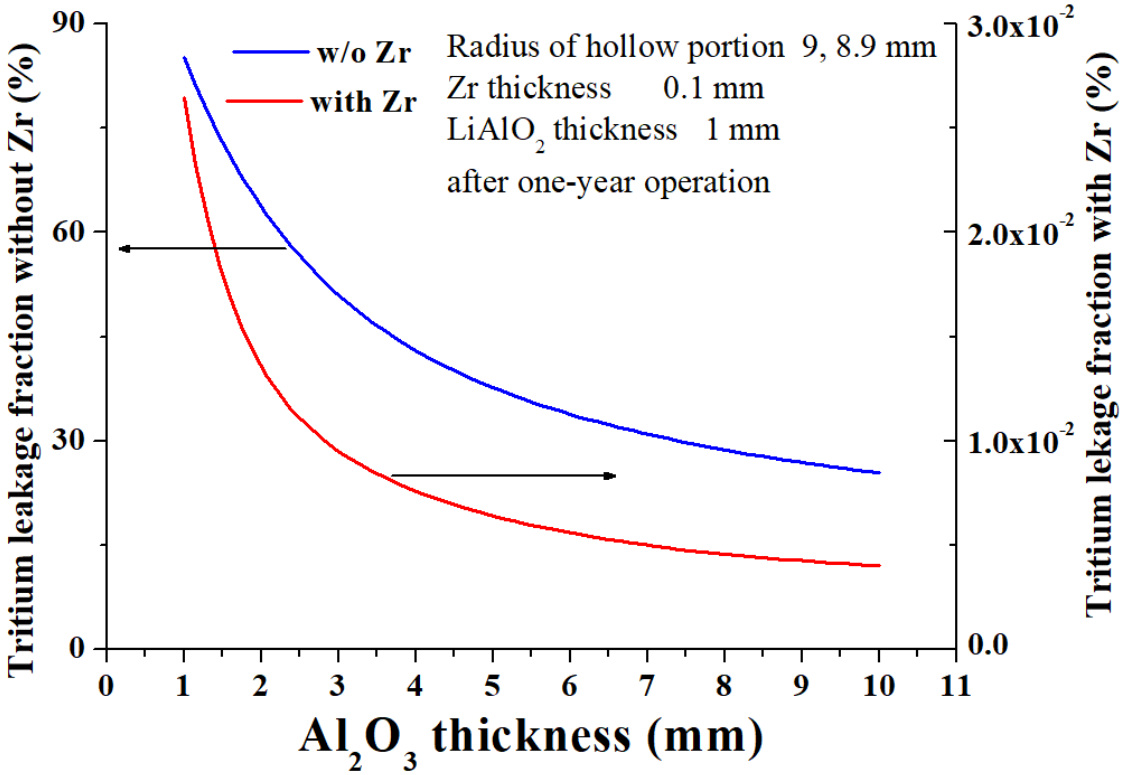


図 4-6　アルミナ層厚みに対する Li ロッドのトリチウム流出率の変化(Zr 有/無)

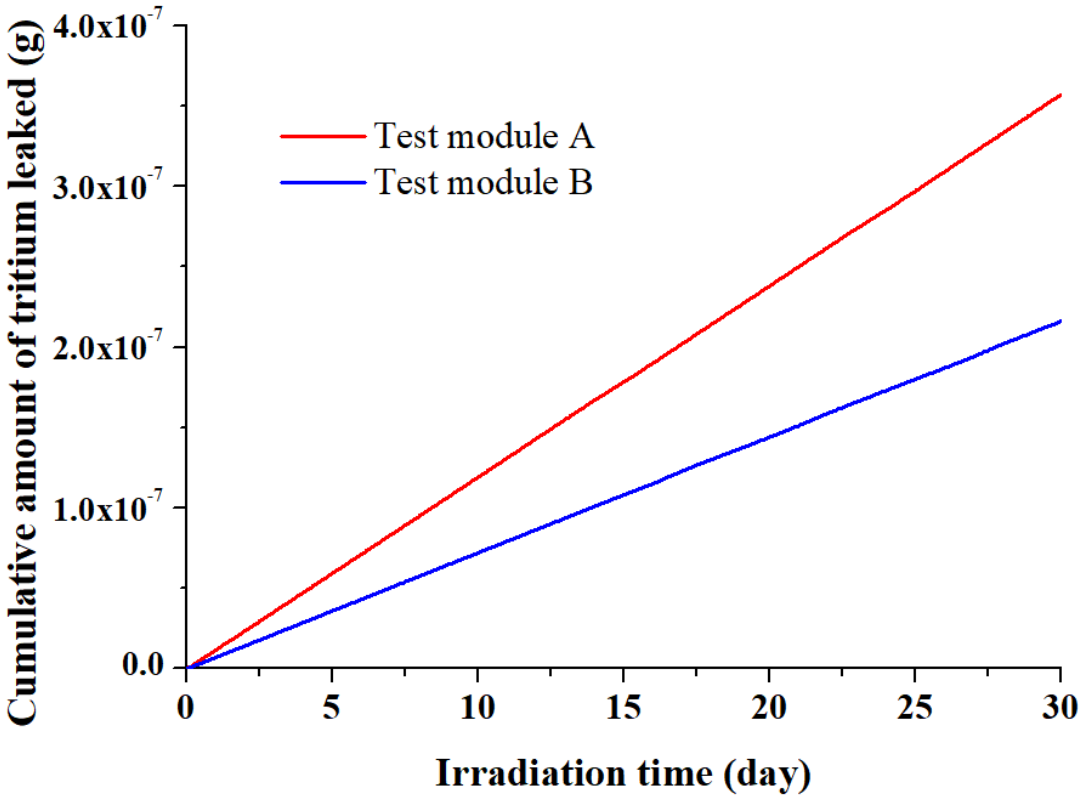


図 4-7　照射期間に対する試験体 A 及び B のトリチウム流出量

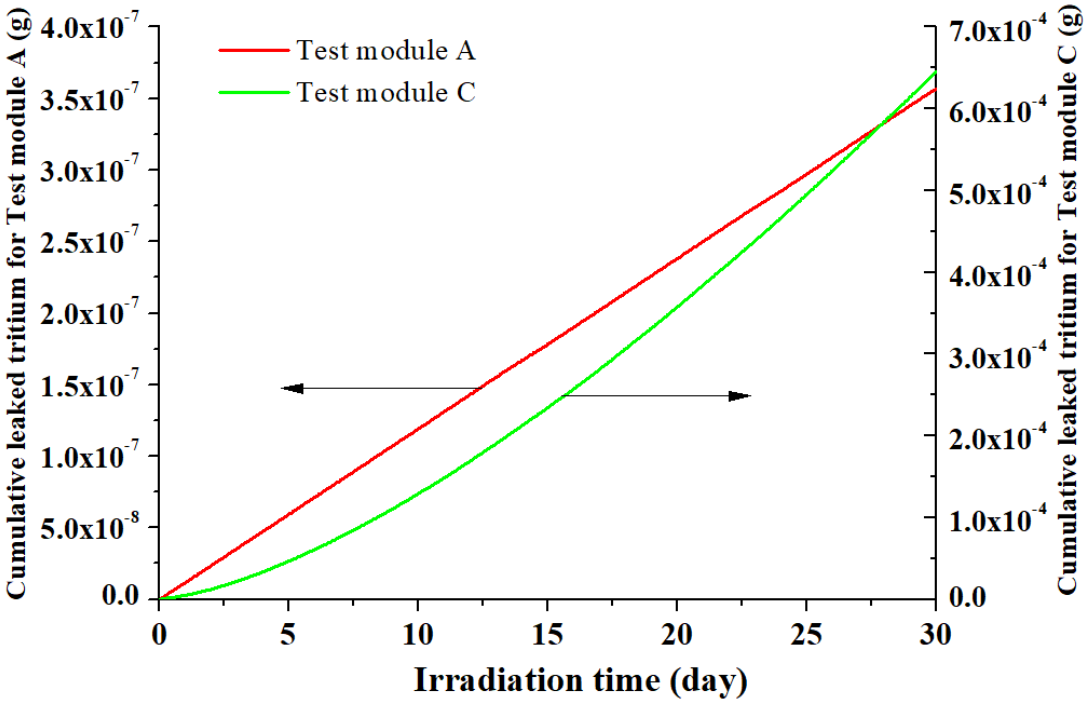


図 4-8　照射期間に対する試験体 A 及び C のトリチウム流出量

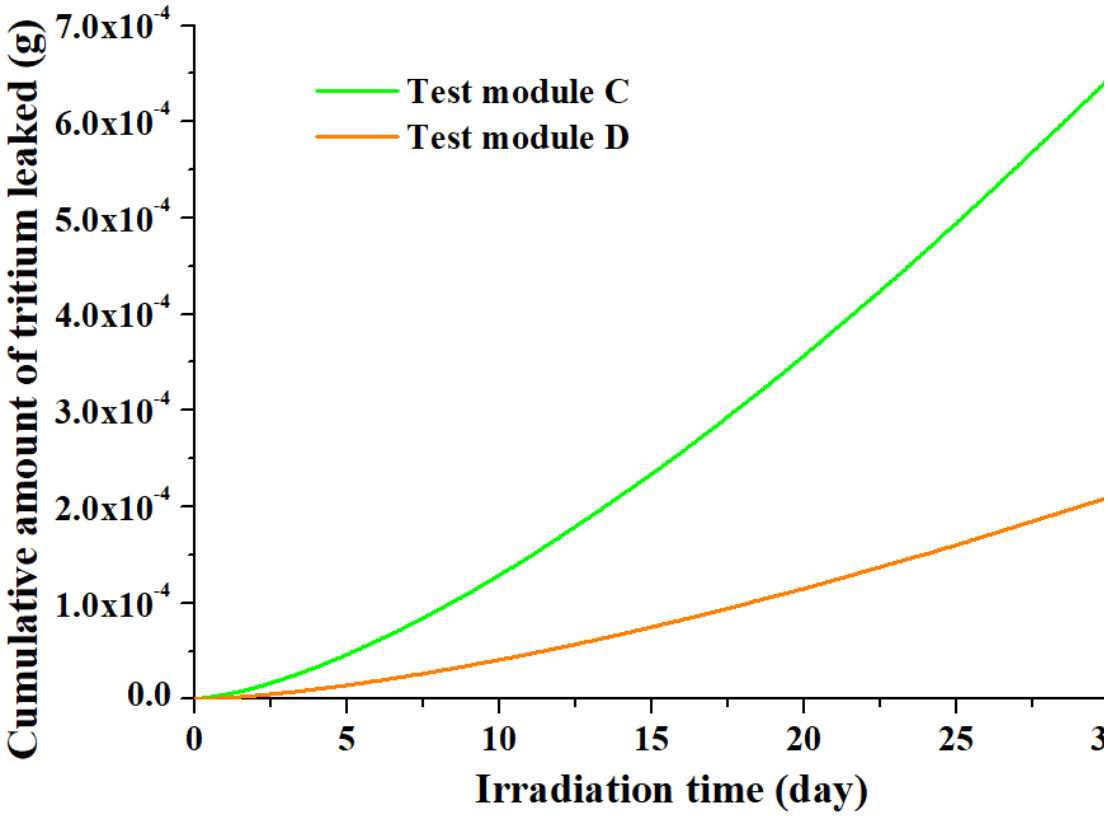


図 4-9　照射期間に対する試験体 C 及び D のトリチウム流出量

5 章　^{6}Li(n,α)T 反応による核反応熱が Li ロッドのトリチウム閉じ込め性能へ及ぼす影響

5-1 はじめに

Li ロッドを用いてトリチウムを製造する際、^{6}Li(n,α)T 反応により 4.8 MeV のエネルギーが生じる。このエネルギーは生成された粒子の運動エネルギーとなり、粒子と別の原子との衝突を介して熱エネルギーに変換される。最終的に Li ロッド中に α 粒子(He 原子)とトリチウムが残るため、ロッド温度が上昇し、周辺環境との温度差により温度分布が現れる。温度上昇によりアルミナ層のトリチウム透過係数は上昇する一方、円筒 Zr を使用した水素吸蔵実験では 1,170 K の水素吸収速度が 1,120 K の速度より速いことを示しているため[46]、Zr のトリチウム透過係数(吸収性能)は温度と共に向上すると思われる。このことから ^{6}Li(n,α)T 反応等の核反応により Li ロッド温度が上昇するとトリチウム流出量が減少する可能性がある。原子炉及び核融合炉の核反応熱について、核融合炉ブランケット、高温ガス炉、Li ロッドを装荷した高温ガス炉の健全性について以下の研究が行われてきた。核融合炉ブランケットの研究では、PWR の冷却材条件に基づく流体力学解析によって冷却材システムが設計された。この研究では、核融合および原子炉における核反応熱の重要性を示されている。JA DEMO を想定し、入口冷却水の温度は 568K とした評価では、Li / Be 混合粒領域と構造材料の最高温度はそれぞれ 1,119K と 817K と評価され、許容範囲を満たした[59]。高温ガス炉の健全性についての研究では、HTTR の最高燃料温度は安全のために 1,768K に制限されており、通常の運転では最大 1,765K であることが確認された[60]。さらに、Li ロッドを搭載した高温ガス炉の核熱に関する実現性についての研究では、最高燃料温度は 1,746K と制限値よりも低いため、$LiAlO_2$ は溶融しないと分かった[61]。以上の研究と同様、核反応熱による Li ロッドの温度分布を評価し、Li ロッドのトリチウム閉じ込め性能への影響を評価することは重要である。

本章では ^{6}Li(n,α)T 反応による核反応が HTTR 及び GTHTR300 用 Li ロッドのトリチウム閉じ込め性能に及ぼす影響を評価する。トリチウム製造量を Li ロッドの発熱量に換算し、Li ロッド内部径方向の温度分布を求め、それを考慮したトリチウム流出量を評価する。減速材温度に対する HTTR 用 Li ロッドの T 流出量、トリチウム分圧、Zr のトリチウム吸収率を評価することでトリチウム流出量が変化する原因を明らかにする。

5-2 計算モデル

本研究では、HTTR 及び GTHTR300 用 Li ロッドを想定し、核燃焼計算によりトリチウム製造量を求めた。このトリチウム製造量を発熱量に換算し、熱伝導方程式により温度分布を求め、その値を拡散係数及び溶解度係数、トリチウムバランス式に使用した。詳細を以下で説明する。

5-2-1 Li ロッドモデル及び核燃焼計算

HTTR 用 Li ロッド設計は図 3-3 の通りである。一方、GTHTR300 用 Li ロッドは、アルミナ層の厚みが工業的に製造しやすい数値となり、無理なく 360 日の運転で 800 g トリチウムの製造が可能になる設計を想定した。図 5-1 は GTHTR300 用 Li ロッドの構造を示す。直径、高さ、Zr 層の厚みは図 3-4 から変更せず、アルミナ層の厚みを 6.3 mm、$LiAlO_2$ を厚み 2.5 mm、中空部半径を 12.2 mm に変更した。核計算の流れは 3 章と同様である。核計算コード、核データはそれぞれ MVP-BURN、JENDl-4.0 を用いた。HTTR と GTHTR300 の減速材温度はそれぞれ平均減速材温度 1,140 K、1,190 K に設定した。出力は最大(30 MW, 600MW)とした。ステップ日数及び中性子発生数の設定は節 4-2 と同様である。

5-2-2　核反応熱を考慮した温度分布及びトリチウム流出モデルへの適用

本評価で想定した核反応熱は ^{6}Li(n,α)T 反応のみである。核反応熱を以下の式を用いてトリチウム製造量から換算した。

$$q''' = \frac{n}{V_{Li}N_A}Q, \tag{5-1}$$

q'''、n、V_{Li}、Q はそれぞれ、体積当たりの核反応熱(W/m^3)、Li ロッド 1 本当たりのトリチウム製造量(mol/s)、$LiAlO_2$ 層の体積、アボガドロ数、^{6}Li(n,α)T 反応の Q 値(J)である。円筒体系の定常熱拡散方程式を、q'''を代入して解き Li ロッド径方向の温度分布を評価した。

$$\frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}\left(kr\frac{\partial T}{\partial r}\right) + q''' = 0, \tag{5-2}$$

r、k、T はそれぞれ半径方向の距離(m)、1,073K における各層の熱伝導率(W/m K)、温度(K)である。燃料ブロック中の Li ロッドは He ガスと共に黒鉛製の蓋で密封されている。従って、本検討では Li ロッドと燃料ブロック間の He ガスの存在を考慮した。使用した熱伝導率は表 5-1 の通りである[62-66]。Zr の熱伝導率は Ni の値より小さいため、純粋な Zr の熱伝導率を Ni 被覆 Zr の熱伝導率として採用した。本評価ではアルミナ層から黒鉛ブロックへの輻射伝熱を考慮した。輻射熱はステファン・ボルツマンの法則を用いて評価した。

$$q = \varepsilon\sigma A_{out}(T_{Al}^4 - T_0^4), \tag{5-3}$$

q、ε、σ、A_{out}、T_{Al}、T_0 はそれぞれ、輻射熱(W)、放射率、ステファン・ボルツマン定数(W/m^2 K^4)、アルミナ層側面の表面積(m^2)、アルミナ層外部表面温度(K)、減速材温度(K)である。輻射により Li ロッドに面する黒鉛ブロックの温度は上昇しないものとした。アルミナの放射率は 0.5 とした[67]。

以上の手法で求めた温度分布の内、中空・粒状 Zr 領域の温度を拡散方程式の溶解度係数、透過係数、トリチウムバランス式の温度に当てはめた。拡散現象において溶媒が温度分布を持つ場合、見かけの拡散係数は小さい値に律速するが、今回は保守的な評価を行うためにアルミナ層内側境界の温度をアルミナの拡散係数と溶解度係数に適用した。

5-3 トリチウム製造量の確認及び発熱量の評価

図 5-2 は HTTR 及び GTHTR300 の 360 日運転における累積トリチウム製造量及び実効増倍率(k_{eff})である。360 日運転後の HTTR 及び GTHTR のトリチウム製造量及び k_{eff} はそれぞれ 30.4 g/y、807.3 g/y、1.028、1.020 になる。GTHTR300 の k_{eff} は 3 章の評価と同様に HTTR よりも急激に低下する。これらのトリチウム製造量から HTTR 及び GTHTR のロッド一本当たりのトリチウム製造速度は、それぞれ2.17×10^{-9} g/s 、1.20×10^{-8} g/s となった。トリチウム製造速度を発熱量に換算すると 333 W 及び 1,845 W になる。よって、HTTR と GTHTR300 用 Li ロッド中の $LiAlO_2$ 層体積はそれぞれ2.79×10^{-5} m^3 1.97×10^{-4} m^3 である。^{6}Li 原子は $LiAlO_2$ 層全体に一様に存在すると仮定し、体積当たりの発熱量 q'''(W/m^3)を求めると、それぞれ1.20×10^7 W/m^3 及び9.36×10^6 W/m^3 と評価された。この q'''を用いて次節で温度分布を評価した。

5-4 HTTR 用 Li ロッドの温度分布及びトリチウム流出量

節 5-3 で評価した q'''、式(5-2)、式(5-3)用いて、HTTR 用 Li ロッドの内部径方向の温度分布を評価した。図 5-3 に HTTR 用 Li ロッドの温度分布を示す。核反応熱を考慮しない場合、温度分布は一定でとなり減速材温度 1,140 K になる。核反応熱を考慮すると最高温度は中空・粒状 Zr 領域で 1,173 K(33 K 上昇)となり、Li ロッド中心から離れるにつれて温度が低下した。定常状態の中空・粒状 Zr 領域の温度分布は、熱拡散方程式の解により材料形態に依存する有効熱伝導率によらず一様になった。照射により $LiAlO_2$、Zr、アルミナ層の有効熱伝導率が低下すると、その領域の温度が上昇する。He の熱伝導率は低く温度ギャップとして働くため、温度分布は He 領域で最も低下する。360 日運転後の HTTR 用 Li ロッド 450 本のトリチウム製造量及び核反応熱考慮/非考慮時のトリチウム流出量を図 5-4 に示す。核反応熱を考慮しない場合、トリチウム流出量とその流出率はそれぞれ 5.03×10^{-1} g、1.66 %になった。核反応熱を考慮したトリチウム流出量及び流出率はそれぞれ 3.54×10^{-1} g、1.17%になった。これより、核反応熱によりトリチウム流出量は 29.6%低下した。

5-5 GTHTR300 用 Li ロッドの温度分布及びトリチウム流出量

同様に GTHTR300 用 Li ロッドの温度分布を評価した。図 5-5 にその温度分布を示している。核反応熱を考慮しない場合、温度分布は一定の 1,190 K になる。核反応熱を考慮した場合の最高温度は中空及び粒状 Zr 領域で 1,232 K(42 K 上昇)になった。大きな核反応熱は単純に最高温度を上昇させ、体積が大きい物質は一般的に保温性が高いため、HTTR 用 Li ロッドの場合より温度が上昇したと思われる。図 5-6 も 360 日運転度の GTHTR300 用 Li ロッド 2,160 本のトリチウム製造量及び核反応熱考慮/非考慮時のトリチウム流出量を示す。核反応熱を考慮しない場合のトリチウム流出量とトリチウム流出率はそれぞれ2.67×10^{-1} g、3.31×10^{-2}%になった。HTTR の場合よりトリチウム製造量は多いが、より多量の Zr を装荷するため GTHTR300 用 Li ロッドのトリチウム流出量は HTTR より低い。核反応熱を考慮

した場合のトリチウム流出量及び流出率は1.74×10^{-1} g、2.16×10^{-2}%になった。核反応熱によりトリチウム流出量は 34.8%低下した。その減少幅は HTTR を上回ったのは GTHTR300 の核反応熱による温度上昇幅が HTTR の場合より大きく、Zr のトリチウム吸収性能がより向上したためだと考えられる。

5-6 定常状態に到達する時間の確認

上記の結果は定常状態の温度分布の基に評価した値であるため、仮に過渡状態の期間が長ければトリチウム流出量に影響を及ぼす可能性がある。温度分布が定常状態に到達するまでの大まかな時間を確認するために、熱が Li ロッド外部に伝達しないと仮定した際の Li ロッド全体が最高温度に到達する時間を評価した。表 5-2 は各層のモル比熱を示している[63, 64, 68, 69]。HTTR と GTHTR300 用 Li ロッドの熱容量はそれぞれ約 295、5652 J/K と計算された。各ロッドの温度が 33、42 K 上昇した場合、所要時間はそれぞれ 29、128 s になった。従って過渡状態である期間は運転時間より非常に短いため、その影響を無視できる。

5-7 核反応熱がトリチウム流出量に影響を及ぼす原因

HTTR、GTHTR300 用 Li ロッド 1 本の 360 日運転後のトリチウムマスバランスを表 5-3 に示す、核反応熱を考慮すると両 Li ロッドで中空部・アルミナ層中のトリチウム量が低下するため、トリチウム流出量が減少している。これは Zr 中のトリチウム量が増えたことを意味する。トリチウム流出量が低下する原因を解析するために減速材温度に対する核発熱を考慮しない HTTR 用 Li ロッドのトリチウム流出量、トリチウム分圧、Zr のトリチウム吸収率を評価した。図 5-7 はトリチウム閉じ込め機構としてアルミナのみを使用した場合、もしくは Zr を使用した場合における、減速材温度 770-1,176 K に対する 360 日運転後の HTTR 用 Li ロッドのトリチウム流出率及びトリチウム分圧を表す。Zr を使用しない場合、アルミナ層の厚みを 2.0 mm とした。Zr の百分率は Zr 層と粒状 Zr の装荷率を示している。その装荷率が 100 %である場合、Li ロッドに装荷されている Zr 量は図 3-3 の設計と同一であり、節 5-4 の評価と一致する。図 5-8 は図 5-7 の評価に基づいた 770-1,176 K におけるトリチウム製造量に対する Zr のトリチウム吸収率を示している。アルミナ層のみを Li ロッドに使用した場合、減速材温度の上昇に伴いトリチウム流出率は増加する。これはアルミナの水素透過係数が温度と共に増加するためである[42]。

Zr を考慮した場合、Zr の水素透過係数(トリチウム吸収性能)も温度と共に増加するため[53]、温度上昇と共にトリチウム吸収率は上昇する。減速材温度が 770 K から増加した場合、トリチウム流出率は温度と共に増加した。これは Zr のトリチウム吸収性能の向上はアルミナ層の水素透過係数の上昇を下回ったためである。トリチウム流出率は 900~1025 K でピークに達し、更なる温度上昇によりトリチウム分圧と共に低下した。これは 900~1025 K 以降の Zr のトリチウム吸収性能の向上がアルミナ層の水素透過係数の上昇を上回った事を示している。Zr のトリチウム吸収率は Zr 装荷率に比例するため、装荷率が 100%より低下するとそのピーク温度が上昇した。

概して、Li ロッドからのトリチウム流出量は核反応熱による Li ロッドの温度上昇により減少した。図 5-3 に示されているアルミナ層と Zr の温度差の影響が小さいので、核反応熱による HTTR の Li ロッドからのトリチウム流出量の変化は図 5-7 にほぼ一致すると予想される。HTTR 用 Li ロッドから流出するトリチウムは Zr 装荷率が 100%、減速材温度が 900 K 以上の場合、核反応熱により減少する。核反応熱により GTHTR300 に装荷した Li ロッドのトリチウム流出量が低下したため、その平均減速材温度は十分に高い。

5-8 まとめ

本章ではトリチウム製造時に生じる ^{6}Li(n,α)T 反応による核反応熱が Li ロッドのトリチウム閉じ込め性能に及ぼす影響を評価した。^{6}Li(n,α)T 反応により生じる熱により、Li ロッド内部径方向に中心軸をピークとする温度分布が生じる。HTTR 用 Li ロッドの温度は中空・粒状 Zr 領域で 33 K 上昇した。この温度分布を考慮するとトリチウム流出量は 29.5%低下した。GTHTR300 の場合では Li ロッドの温度は中心部分で 42 K 上昇し、トリチウム流出量は 34.8%低下した。減速材温度に対する HTTR 用 Li ロッドのトリチウム流出率を評価したところ、トリチウム流出率は温度上昇により増加し、900 K を超えると減少した。従って、HTTR の減速材温度は 1,140 K であるため、核反応熱により Li ロッドの温度が上昇すると Zr のトリチウム吸収性能(水素透過係数)の上昇がアルミナ層の水素透過係数の上昇を上回り、結果としてトリチウム流出量が減少した。GTHTR300 用 Li ロッドのトリチウム流出量は核反応熱により減少したため、GTHTR300 の平均減速材温度は核反応熱によりトリチウム流出量が低下する条件を満たした。Li ロッド装荷領域に He 冷却材を循環させると、アルミナ層の冷却によりトリチウム流出量はさらに減少する可能性がある。
以上の結果は核反応熱がトリチウム流出に及ぼす影響を初めて指摘したものであり、今後のトリチウム閉じ込め性能の向上に関する検討に貢献する。

本検討では ^{6}Li(n,α)T 反応のみを考慮したが、実際の中性子照射時には別の核反応も生じる。例えば ^{28}Al 原子は中性子照射によりアルミナ層内で生成され、短い半減期のために強い放射能を持つ。^{28}Al の生成及び崩壊による核反応熱により温度分布が変化する可能性がある。従って、中性子照射により生じる別の核反応を考慮する妥当性を確認する必要がある。

Li ロッドの温度分布とトリチウム閉じ込め性能は、各層の材料と中性子束、照射損傷との相互作用により影響を受ける可能性がある。タングステンの水素拡散は照射損傷によるトラップ効果のために遅延されると報告されている[70]。一方、アルミナへの照射により水素拡散が促進されることも報告されている[71]。熱伝導率については中性子照射により $LiAlO_2$ 中に欠陥や空孔が多く観測されているため[72]、熱伝導率が低下する可能性がある。照射による影響は現在の研究段階では完全には理解されていない。しかし、トリチウム製造時の運転時間が短く(360 日)、高温ガス炉の中性子束は小さいので、照射による深刻な問題は発生しない可能性がある。中性子照射による影響を確認するために HTTR における照射試験を行う必要がある。

表 5-1　Li ロッド各層の熱伝導率

	$LiAlO_2$	Zr	Al_2O_3	He	Ni
Thermal conductivity (W/m K)	3.96	22.8	6.34	0.375	73.7

表 5-2　Li ロッド各層のモル比熱

アルミナ(Al_2O_3)の値は比熱容量から換算した

	$LiAlO_2$	Zr	Al_2O_3	He
Molar heat capacity (J/mol K)	102.7	33.5	123.1	20.8

表 5-3　Li ロッドのトリチウムマスバランス

	HTTR		GTHTR300	
	Constant temperature	Nuclear reaction heat	Constant temperature	Nuclear reaction heat
Produced T (g)	6.75×10^{-2}		3.74×10^{-1}	
Leaked T (g)	1.12×10^{-3}	7.88×10^{-4}	1.24×10^{-4}	8.06×10^{-5}
T in hollow portion (g)	3.32×10^{-5}	1.32×10^{-5}	2.30×10^{-6}	7.65×10^{-7}
T in Zr (g)	6.63×10^{-2}	6.67×10^{-2}	3.74×10^{-1}	3.74×10^{-1}
T in Al_2O_3 (g)	2.88×10^{-6}	1.92×10^{-6}	4.07×10^{-6}	2.63×10^{-6}
T_2 partial pressure (Pa)	7.27×10^{3}	2.97×10^{3}	2.04×10^{1}	6.51×10

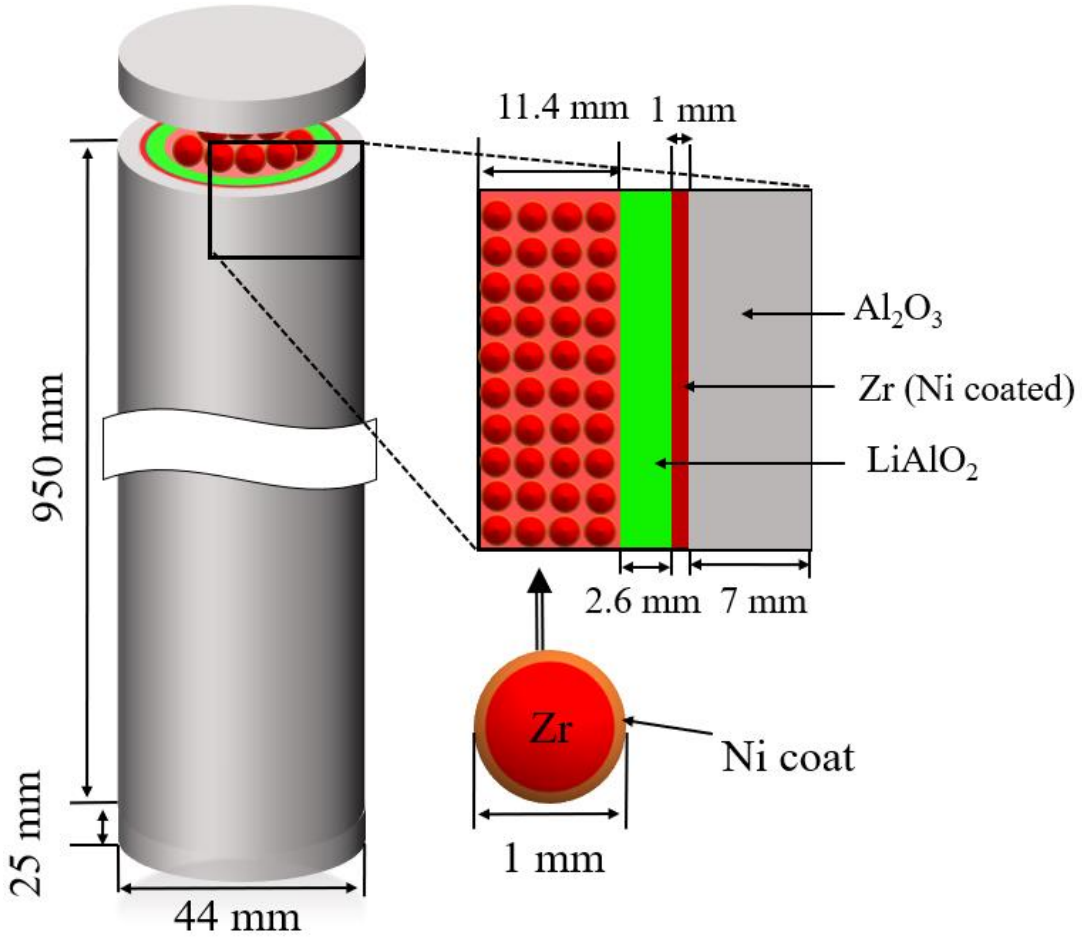


図 5-1　GTHTR300 用 Li ロッドの設計

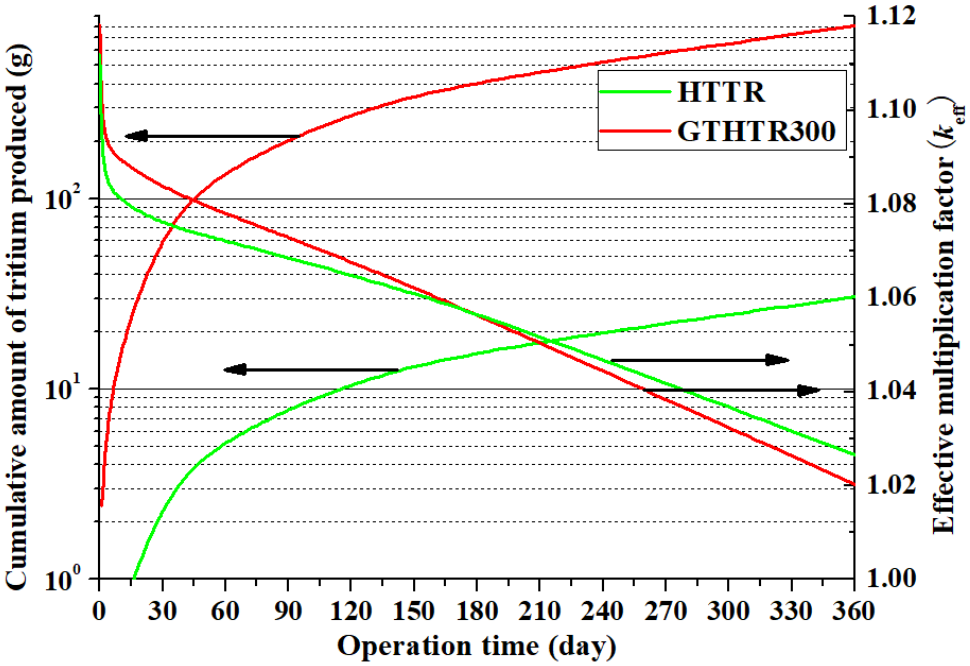


図 5-2　HTTR 及び GTHTR300 の 360 日運転における
トリチウム製造量及び実効増倍率(k_{eff})

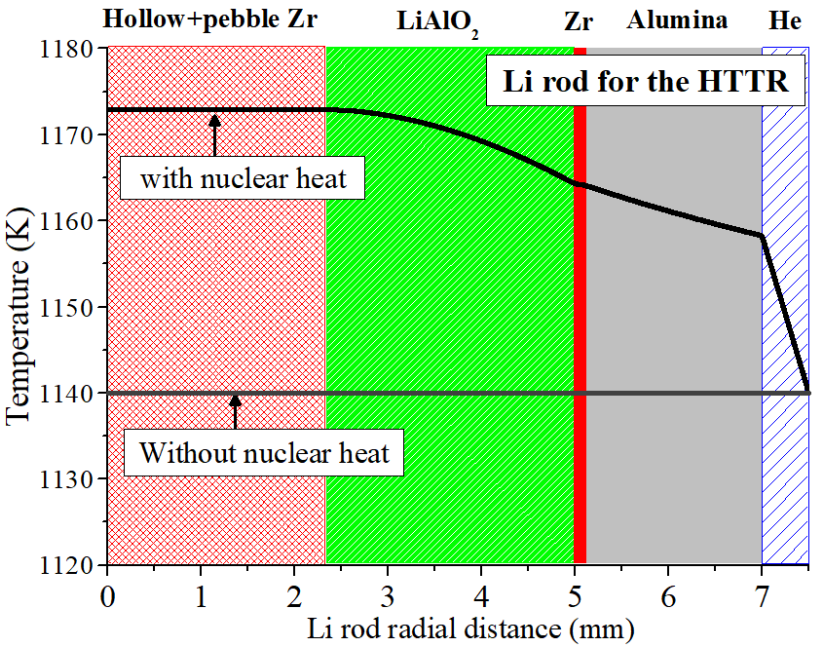


図 5-3　HTTR 用 Li ロッドの温度分布

核反応熱量は 1 本当たり 333 W、最高温度は中空及び粒状 Zr 領域で 1,173 K

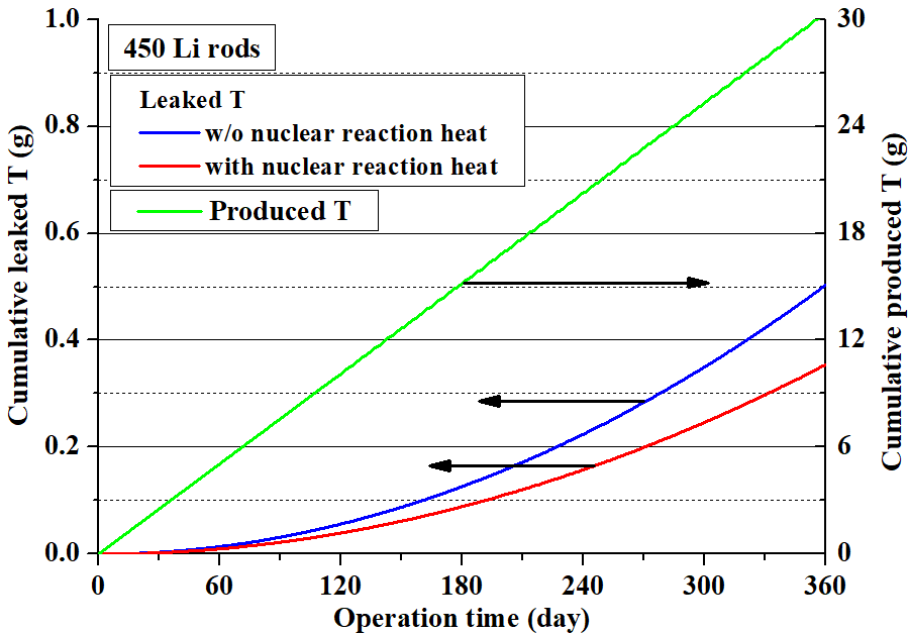


図 5-4　HTTT 用 Li ロッド 450 本のトリチウム製造量及び
核反応熱考慮/非考慮時のトリチウム流出量
核反応熱によりトリチウム流出量は 29.6%減少

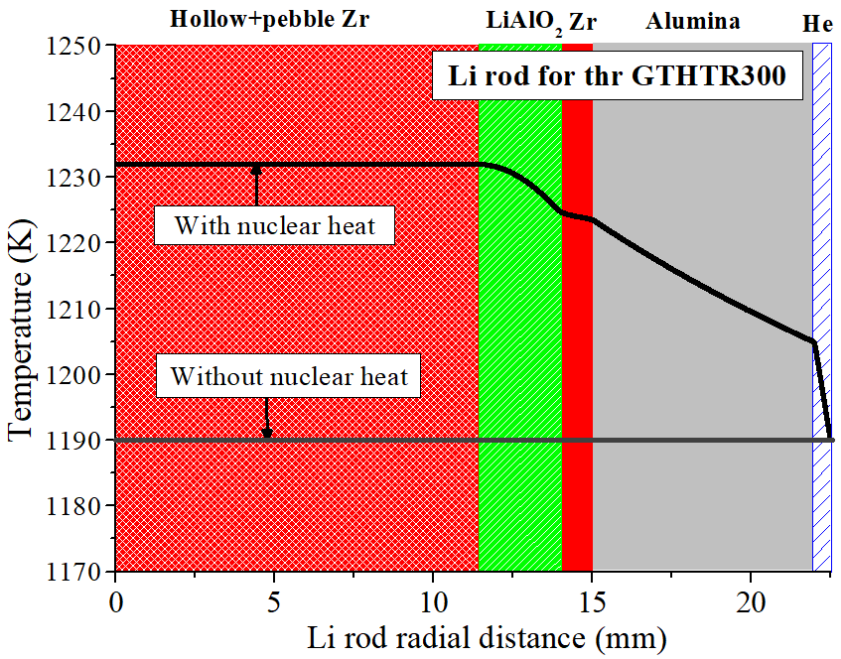


図 5-5　GTHTR300 用 Li ロッドの温度分布

核反応熱量は 1 本当たり 1,845W、最高温度は中空及び粒状 Zr 領域で 1,232 K になる

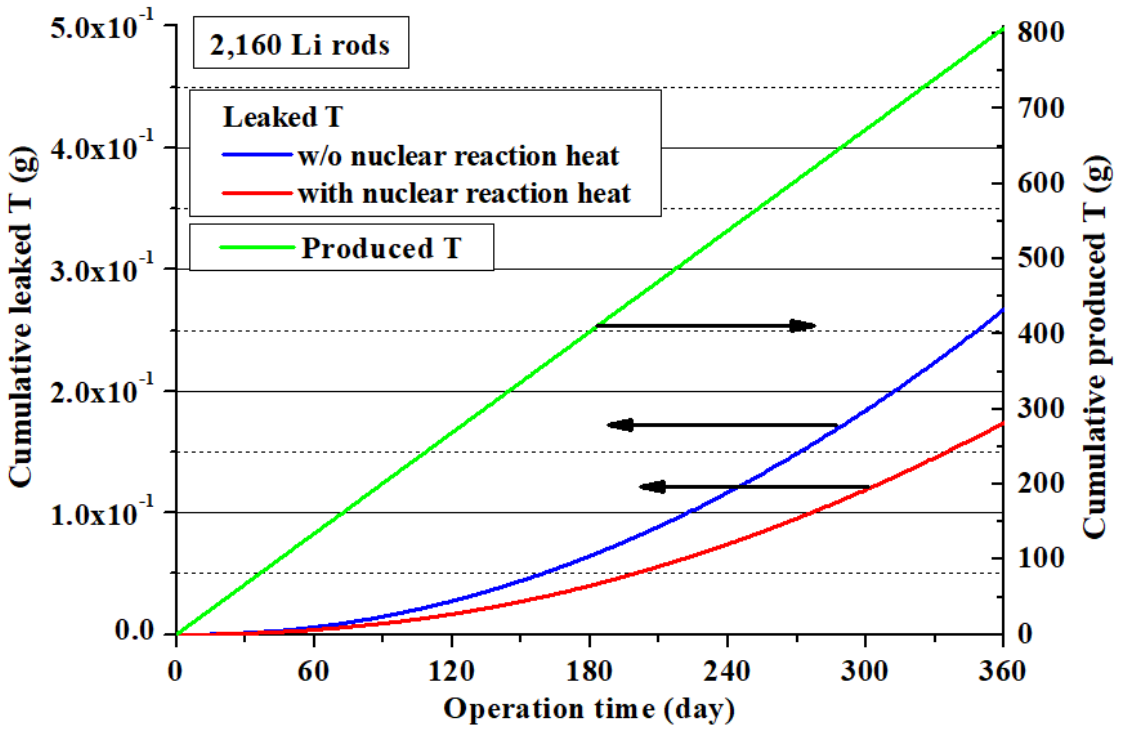


図 5-6　GTHTR300 用 Li ロッド 2,160 本のトリチウム製造量及び
核反応熱考慮/非考慮時のトリチウム流出量
核反応熱によりトリチウム流出量は 34.8%減少

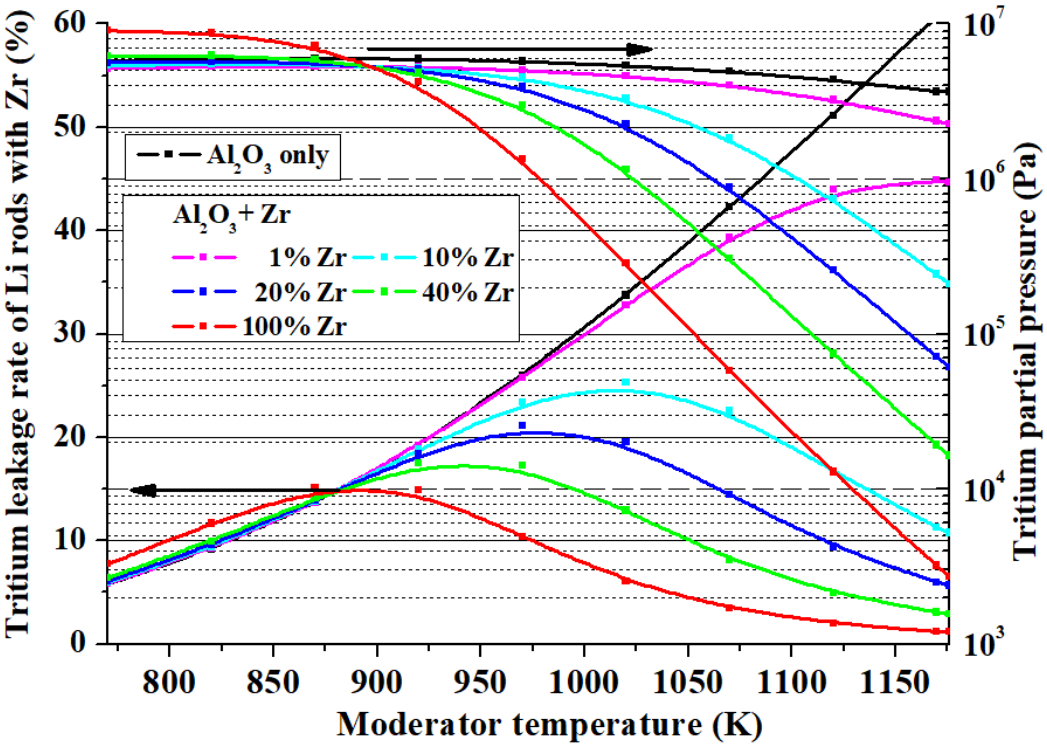


図 5-7　770-1,176 K における HTTR の 360 日運転後の

トリチウム流出率及びトリチウム内圧

Zr の百分率は Zr 層と粒の装荷率を表しており、100%は節 5-4 と同じ条件

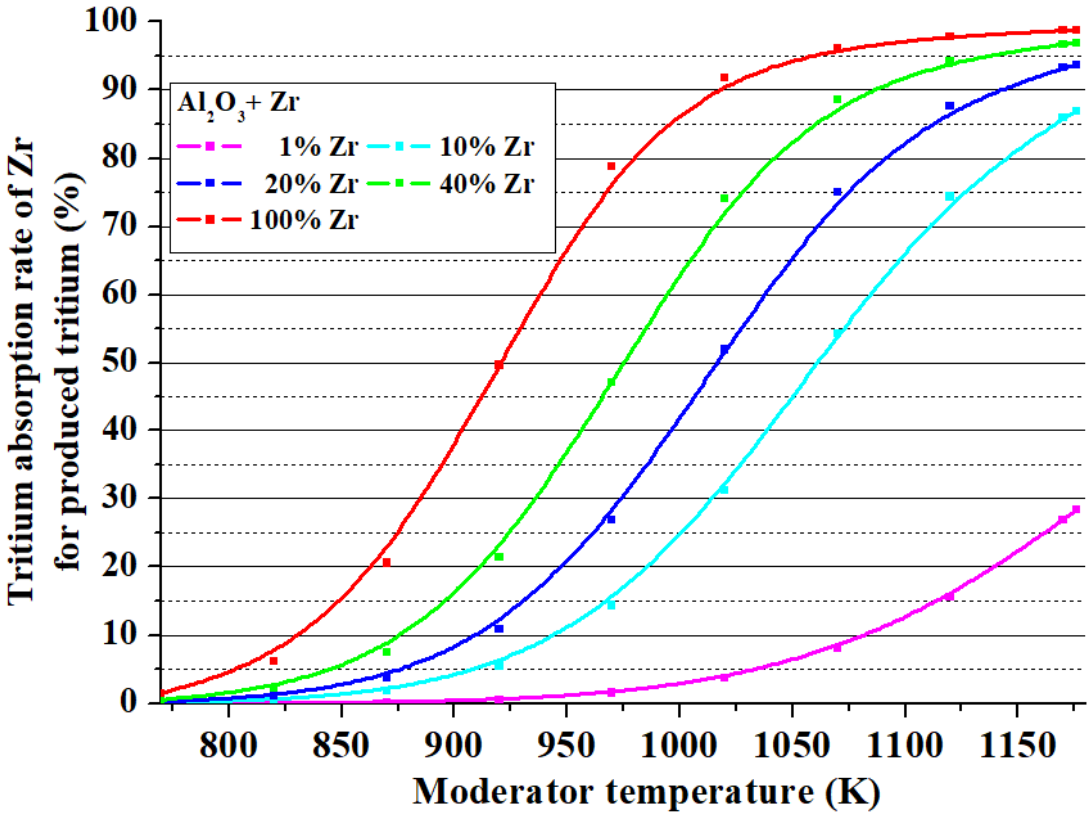


図 5-8　図 5-7 の評価に基づいた 770-1,176 K における
トリチウム製造量に対する Zr のトリチウム吸収率

第 6 章　まとめ

6-1　総括

重水素-トリチウム(DT)核融合炉においては、主燃料であるトリチウムを人工的に製造する必要があるため、核融合炉の運転を行いながらトリチウムを製造することが基本的な考え方である。しかし、運転開始前には初期保有分のトリチウムを用意する必要がある。ITER で必要とされるトリチウムは CANDU 炉から供給される予定であるが、その後に建設される DEMO 用のトリチウム調達法は明確にされていない。初期保有トリチウム量は数 100 g から 2,960 g の範囲で推定されている。国外では重水炉や軽水炉によるトリチウム製造実績があるが、日本ではトリチウムを製造する手段は存在しない。そこで、高温ガス炉に Li 化合物を装荷することによる、^{6}Li(n,α)T 反応を利用したトリチウム製造法が提案されている。高温ガス炉の標準設計では、運転に伴う反応度の低下を補填するために用いられる ^{10}B を可燃性毒物とした B ロッドを燃料ブロックに装荷する。この ^{10}B を ^{6}Li へ置き換え、トリチウム吸収体である Zr と共にアルミナ円筒に封入した Li ロッドを装荷することを検討している。^{10}B と ^{6}Li の中性子吸収断面積と装荷量は異なるため、BP の変更による炉心核特性への影響を把握する必要がある。高温ガス炉の既存の設計を維持する観点において、Li ロッドから炉内へのトリチウム流出量を最小限に抑える事は重要な課題であるため、トリチウム製造性能のみならずトリチウムの閉じ込め性能も重要な Li ロッドの性能となる。現在、HTTR を用いたトリチウム製造実証試験の計画を進められている。

本研究は高温ガス炉を用いた核融合炉用トリチウム製造の実現のために、核反応熱と BP 特性に着目した Li ロッドの性能及び装荷法を検討し、HTTR で実施する照射試験法を提示することを目的とした。HTTR と GTHTR300 の BP を ^{10}B(B ロッド)から ^{6}Li(Li ロッド)へ変更した場合の炉心核特性への影響を評価し、Li ロッドのトリチウム製造・閉じ込め性能を検証するための照射試験体に関する検討を行った。また、^{6}Li(n,α)T 反応による核反応熱が Li ロッドのトリチウム製造及び閉じ込め性能に及ぼす影響を評価した。

第 1 章では、核融合炉の研究開発及びトリチウム調達法についての現状を述べ、主な研究対象である高温ガス炉(HTTR 及び GTHTR300)、及び高温ガス炉を用いたトリチウム製造法の特徴についてまとめた。トリチウム製造に関する研究の経緯、現況、本研究の目的を述べた。

第 2 章では、現在検討している Li ロッドと製作方法について解説した。トリチウム製造量と炉心核特性の計算に用いる中性子輸送計算モンテカルロコード MVP-BURN、Li ロッド内のトリチウム挙動を解析するための拡散方程式及び同方程式に基づくトリチウム流出量の評価法について説明した。

第 3 章では BP を ^{10}B(B ロッド)から ^{6}Li(Li ロッド)に変更した際の炉心核特性に及ぼす影響を明らかにするために、MVP-BURN を用いて HTTR と GTHTR300 に B ロッド又は Li ロッドを装荷した際の実効増倍率を評価した。また、実効増倍率の特性を改善する Li ロッド

装荷法について検討した。B ロッドを装荷した高温ガス炉の実効増倍率は、360 日の運転期間では緩やかに増加する。一方、Li ロッドを装荷した場合、実効増倍率は運転開始直後では B ロッドの場合より高く、時間と共に低下する。これは、^{6}Li の中性子吸収断面積が ^{10}B の 1/4 程度であるため、より多くの ^{6}Li を装荷する必要があり、結果として未燃焼 ^{6}Li 割合が高くなることが原因である。従って、運転初期では Li ロッドの負の反応度は B ロッドより小さいが、時間経過に伴う減少幅も小さくなり、運転後期では B ロッドの負の反応度を超える。GTHTR300 では特に ^{6}Li 装荷量が多いため、未燃焼 ^{6}Li の割合が高くなり、運転後期に過剰な負の反応度が印加されることで実効増倍率は HTTR より急激に減少する。Li ロッドを装荷した高温ガス炉が原子炉として成立するには、運転初期の実効増倍率を抑え、実効増倍率の変化をできるだけ小さくする必要がある。実効増倍率の特性を改善するために一本当たりの $LiAlO_2$ 装荷量を減らし、GTHTR300 の反射体領域に Li ロッドを追加すると ^{6}Li 燃焼効率が向上し、最大トリチウム製造量が増加した。ここで一部の Li ロッドを B ロッドに戻すと、年間 800 g のトリチウム製造量を維持しつつ運転初期の実効増倍率が抑制され、運転に伴う実効増倍率の減少も緩やかになった。従って、Li ロッドと B ロッドを併用することで、Li ロッドを装荷した高温ガス炉は原子炉として成立する可能性が示された。トリチウム製造量を増やすことに関しては運転時の余剰反応度を Li 制御棒で抑える事で GTHTR300 の年間トリチウム製造量を最大 390 g 向上できる可能性がある。以上の結果は今後の高温ガス炉を用いたトリチウム製造法の性能改善の検討に対して有用な知見を提供する。

第 4 章では HTTR を用いた Li ロッドのトリチウム製造及び閉じ込め性能を検証するための照射試験体に関する検討を行った。照射試験は HTTR に備わる照射カラム(照射領域)において、温度を 1,170 K に保った上で 30 日間照射することを想定した。照射試験体は試験用 Li ロッドをアルミナ製のトリチウム流出防止カバーで覆った構造を持ち、4 本の照射試験体を一つの照射ブロックに装荷することを想定した。年間 30 g のトリチウムを製造できる HTTR 用 Li ロッド及びそれを基準に複数の試験体を設計した。又、各試験体のトリチウム製造量と流出量を比較することで HTTR 用 Li ロッドを構成する $LiAlO_2$ 層、Zr 層、アルミナ層の性能を検証する試験法を検討した。この試験では HTTR 用 Li ロッドに加え、$LiAlO_2$ 層厚みが半分の Li ロッド、Zr を使用しない Li ロッド、Zr 不使用かつアルミナ層の厚みが 5 倍の試験用 Li ロッドを含む試験体を用いることで各層の性能を検証する実験を行う。この検討により今後実施するトリチウム製造実証試験における試験内容の基本的な考え方を初めて提示した。

第 5 章ではトリチウム製造時に生じる ^{6}Li(n,α)T 反応による核反応熱の発生が Li ロッドのトリチウム閉じ込め性能に及ぼす影響を評価した。核反応熱により HTTR 及び GTHTR300 用 Li ロッド内部径方向に温度分布が生じ、それぞれの Li ロッド温度は中心軸で最大 33 K、42 K 上昇した。この温度分布を考慮してトリチウム流出量を評価したところ、HTTR 及び GTHTR300 のトリチウム流出量はそれぞれ 29.5 %、34.8%減少した。減速材温度に対する

HTTR 用 Li ロッドのトリチウム流出率を評価したところ、トリチウム流出率は温度上昇により増加し、900 K を超えると減少した。従って、HTTR の減速材温度は 1,140 K であるため、核反応熱により Li ロッドの温度が上昇すると Zr のトリチウム吸収性能(水素透過係数)の上昇がアルミナ層の水素透過係数の上昇を上回り、結果としてトリチウム流出量が減少した。また、GTHTR300 用 Li ロッドのトリチウム流出量は核反応熱により減少したことから、GTHTR300 の平均減速材温度は核反応熱によりトリチウム流出量が低下する条件を満たした。同結果は核反応熱がトリチウム流出に及ぼす影響を初めて指摘したものであり、今後のトリチウム閉じ込め性能の向上に関する検討に貢献する。

6-2　今後の展望

最初の照射試験を実施する際には、実際の装荷領域と照射条件に適した大きさと構造の試験体を製作する必要がある。又、蓋を確実に接合することで接合部からのトリチウム流出を防ぐ。試験前には振動や衝撃が与えられることを見越して強度試験を行う必要もある。照射試験では多くの試験体を同時に照射できると考えられているため、多種多様な試験内容を検討が行われている。

試験後に取り出した試験体を九州大学伊都アイソトープセンター等にてトリチウム量を測定し、最重要項目である $LiAlO_2$ の装荷量に対するトリチウム製造量、Ni 被覆 Zr のトリチウム吸収性能、アルミナ層のトリチウム閉じ込め性能と接合部の気密性を検証する予定である。試験によって得られたデータや問題点を基に Li ロッド構造の改良やトリチウム製造量・流出量評価法の改善などを行う。その後燃料ブロックに装荷する大きさの Li ロッドを用いた照射試験を実施する予定である。

照射試験に関する研究と並行して、実際に高温ガス炉でトリチウムを製造するための最適化を行う必要がある。現在想定しているトリチウム製造方法では高温ガス炉の全燃料ブロックの BP 孔に同じ設計の Li ロッドを装荷しており、HTTR では 450 本、GTHTR300 では 2,160 本もの Li ロッドを使用することが前提になっている。従って、トリチウム製造量を維持しつつ装荷本数を削減するための検討は有効な最適化の一つになる。また、その研究の進展次第でトリチウム製造用に高温ガス炉の炉心構造を大幅に変更することが推奨される可能性がある。運転後には Li ロッドを燃料ブロックからの引き抜くため、Li ロッドに取所等を備える必要がある。

高温ガス炉運転の観点より、運転中の実効増倍率の特性を標準仕様における特性と同等にすることが要求されるため、B ロッドを併用するなどの手法を用いて実際の運転が可能な炉心設計を行う必要がある。また、燃料のシャッフリングや Li ロッドを装荷した地点の燃料状態を考慮した運転、標準運転に戻す際の炉心設計についての検討も必要である。

本研究では今後建設される高温ガス炉商業炉は GTHTR300 であると仮定したが、国内で建設される高温ガス炉商業炉の設計が変更される可能性がある。従って高温ガス炉の導入計画と今後選定される高温ガス炉商業炉に応じてトリチウム製造計画の修正を行う必要がある。

参考文献

1) 経済産業省 資源エネルギー庁、エネルギー白書 2021、令和 3 年 7 月 (https://www.enecho.meti.go.jp/about/whitepaper/2020html/index_2020.html).
2) 文部科学省、科学技術・学術審議会　核融合科学技術委員会、原型炉開発に向けたアクションプランの検討について、平成 28 年 2 月
3) 文部科学省、科学技術・学術審議会　核融合科学技術委員会、原型炉研究開発ロードマップについて（一次まとめ）、平成 30 年 7 月 24 日 (https://www.mext.go.jp/b_menu/shingi/gijyutu/gijyutu2/074/houkoku/1408259.htm)
4) Y. Kameda, et al., Fusion Plasma Performance and Confinement Studies on JT-60 and JT-60U, Fusion Sci. Technol., 42 185-254 2002.
5) S. Ishida, et al.,　Overview of the JT-60SA project, Nucl. Fusion, 51 094018 2011.
6) A. Iiyoshi, et al., Overview of the Large Helical Device project, Nucl. Fusion, 39 1245 1999.
7) JET Team, Fusion energy production from a deuterium-tritium plasma in the JET tokamak, Nucl. Fusion, 32 187 1992.
8) N. Holtkamp, for the ITER project Team, An overview of the ITER project, Fusion Eng. Des. 82 427-434 2007.
9) 菊池　満、他、日欧の幅広いアプローチ計画と国内計画による JT-60SA 計画、プラズマ・核融合学会誌、Vol.82, No.8 455-469 2006.
10) A. Isayama, for the JT-60 Team, Advanced Tokamak Research in JT-60U and JT-60SA, Plasma Fusion Res. 5 S1003 2010.
11) H. Matsuura, et al., Effect of nuclear elastic scattering on the D(d,n)^{3}He fusion reactivity induced by energetic protons observed in the large helical devics, Nucl. Fusion 61 094001 2021.
12) JET Team, Fusion energy production from a deuterium-tritium plasma in the JET tokamak, Nucl. Fusion 32 187-203 1992.
13) JET Team (prepared by M.L. Watkins), Physics of High Performance JET plasmas in DT, Nucl. Fusion 39 1227-1244 1999.
14) J. Menard et al., Overview of the physics and engineering design of NSTX upgrade, 2011 IEEE/NPSS 24th Symposium on Fusion Engineering, 2011, pp. 1-8.
15) A. Dinklage, et al., Magnetic configuration effects on the Wendelstein 7-X stellarator, Nat. Phys. 14 855-860 (2018).
16) J. Li, et al., The Experimental Advanced Superconducting Tokamak, Engineering, available online 13 October 2021.
17) G.S. Lee et al., Design and Construction of the KSTAR Tokamak, Nucl. Fusion 41 1515 2001.
18) K. Tobita, et al., Overview of the DEMO conceptual design activity in Japan. Fusion Eng. Des., 136 1024-1031 2018.

19) G. Federici, et al., DEMO design activity in Europe: Progress and updates, Fusion Eng. Des., 136 729-741 2018.
20) B.N. Kolbasov., et al., Russian concept for a DEMO-S demonstration fusion power reactor, Fusion Eng. Des., 83 870-876 2008.
21) R. Srinivasan, et al., Strategy for the Indian DEMO design, Fusion Eng. Des. 83 889-892 2008.
22) Y. Wu et al., Conceptual design activities of FDS series fusion power plants in China, Fusion Eng. Des. 81 2713-2718 2006.
23) Y. Wan et al., Overview of the present progress and activities on the CFETR, Nucl. Fusion 57 102009 2017.
24) C. Day and T. Giegerich, The Direct Internal Recycling concept to simplify the fuel cycle of a fusion power plant, Fusion Eng. Des. 88 616-620 2013.
25) Gierszewski, P., Tritium supply for near-term fusion devices, Fusion Eng. Des. 10 399-403 1989.
26) Muyi Ni, et al., Tritium supply assessment for ITER and DEMOnstration power plant, Fusion Eng. Des. 88, 2422-2426, 2013.
27) 日渡　良爾、連載講座　核融合トリチウム研究最前線－原型炉実現に向けて　(第 2 回)、原型炉に向けたトリチウムバランスの考え方、日本原子力学会誌、vol.60, No.8, 52-56 2018.
28) KA Burns, et al., Description of the Tritium Producing Burnable Absorber Rod for the Commercial Light Water Reactor, TTQP-1-015, Revision 19, PNNL-22086.
29) K. Shibata, et al., JENDL-4.0: A New Library for Nuclear Science and Engineering, J. Nucl. Sci. Tech. 48 (1) 1-30 2011.
30) Richard E. Rowberg, et al., The Department of Energy's Tritium production Program, CRS Report for Congress, RL30425 November 8, 2001.
31) 西正孝、他、日本原子力研究所トリチウムプロセス研究棟(TPL)におけるトリチウムの計量管理、プラズマ・核融合学会誌、Vol.79, No.10, 1078-1084 2003.
32) S. Ohira, et al., Design study of a tritium transport package for future fusion reactors, Fusion Eng. Des., 43 187 1999.
33) Richard J. Perason, et al., Tritium supply and use: a key issue for the development of nuclear fusion energy, Fusion Eng. Des. 136 1140-1148 2018.
34) H. Matsuura, et al., Performance of high-temperature gas-cooled reactor as a tritium production device for fusion reactors, Nucl. Eng. Des. 243 95-101 2012.
35) H. Ohashi, et al., Feasibility study on naturally safe HTGR (NSHTR) for air ingress accident, Nucl. Eng. Des. 271 537-544 2014.
36) 斎藤　伸三、他、高温工学試験研究炉(HTTR)の設計、JAERI-1332 1994.
37) 野尻 直樹、他、高温工学試験研究炉(HTTR)臨界試験の予備解析結果 -モンテカルロコード MVP に基づく解析-、JAERI Tech 98-032 1998.

38) 中田　哲夫、他、高温ガス炉タービン発電システム(GTHTR300)の核設計、JAERI-Tech 2002-066　2002.
39) Y. Fukaya, et al., Burn-up characteristics and criticality effect of impurities in the graphite structure of a commercial-scale prismatic HTGR, Nucl. Eng. Des. 326 108-113 2018.
40) H. Matsuura, et al., Study of Tritium Production for Fusion Reactor Using High Temperature Gas Cooled Reactors, Fusion. Sci. Tech. 61 268-272 2012.
41) H. Nakaya, et al., Core configuration of a gas-cooled reactor as a tritium production device for fusion reactor, Nucl. Eng. Des. 271 505-509 2014.
42) K. Katayama, et al., Evaluation of Tritium Confinement Performance of Alumina and Zirconium for Tritium Production in a High-Temperature Gas-Cooled Reactor for Fusion Reactors, Fusion. Sci. Tech. 68 (3) 662-668 2015.
43) H. Nakaya, et al., Study on a method for loading a Li compound to produce tritium using high-temperature gas-cooled reactor, Nucl. Eng. Des. 292 277-282 2015.
44) H. Ohashi, et al., Analysis of Tritium Behavior in Very High Temperature Gas-Cooled Reactor Coupled with Thermochemical Iodine-Sulfur Process for Hydrogen Production, J. Nucl. Sci. Tech. 45 (11) 1215-1227 2008.
45) S. Nagasumi, H. Matsuura, K. Katayama, et al., Study on tritium production using a high-temperature gas-cooled reactor for fusion reactors: evaluation of tritium outflow by non-equilibrium diffusion simulations, Fusion Sci. Tech. 72 753–759 2017.
46) H. Matsuura, et al., Li-rod structure in high-temperature gas-cooled reactor as a tritium production device for fusion reactors, Fusion Eng. Des. 146 1077-1081 2019.
47) Y. Kawamura, et al., Adsorption Characteristics of Water Vapor on Gamma-Lithium Aluminate, Journal of Nucl. Sci Tech. 29 (5) 436–444 1992.
48) 速水　諒三、セラミックスの接着と接合技術(CMC テクニカルライブラリー)、シーエムシー出版
49) Y. Nagaya, et al., MVP/GMVP Version 3: General Purpose Monte Carlo Codes for Neutron and Photon Transport Calculations Based on Continuous Energy and Multigroup Methods, JAEA-Data/Code 2016-018 2017.
50) K. Okumura, et al., Validation of a Continuous-Energy Monte Carlo Burn-up Code MVP-BURN and Its Application to Analysis of Post Irradiation Experiment, J. Nucl. Sci. Tech. 37 (2) 128-138 2000.
51) 深谷 裕司、他、クリーンバーン高温ガス炉詳細設計のための核設計モデル整備、JAEA-Technology 2015-017 2015.
52) K. Shibata, et al., Japanese Evaluated Nuclear Data Library Version 3 Revision-3: JENDL-3.3, J. Nucl. Sci. Technol. 39, 1125 2002.

53) K. Katayama, et al., Evaluation of hydrogen permeation rate through zirconium pipe, Nucl. Mat. Energy. 16 12-18 2018.
54) 大塚 哲平、他、T 製造高温ガス炉用 Li ロッドの T 閉じ込め性能　(1)Li 酸化物共存化におけるニッケル被覆ジルカロイ 4 の水素吸蔵特性、日本原子力学会　2020 年春の年会　2020 年 3 月 17 日.
55) 長住 達、他、高温ガス炉における Li 装荷法とトリチウム生産性能の検討、日本原子力学会　2016 年春の年会　2016 年 3 月 27 日.
56) 柴田 大受、他、HTTR の照射設備の開発及び炉内データの取得方法 ～I-I 型材料照射試験用設備～、JAERI-Tech 2002-097 2002.
57) 岡本　亮、他、超高温ガス炉用 Li ロッドにおける Zr を用いたトリチウム閉じ込め法の検討　～高温(700～850℃)条件下における Zr 水素吸蔵特性～、日本原子力学会　2017 年秋の大会　2017 年 9 月 15 日.
58) L. Arnoldus, et al., Assessment of amount and concentration of tritium in HTTR-IS system based on tritium behavior during high-temperature continuous operation of HTTR, Annals of Nucl Energy 88 126–134 2016.
59) Y. Someya, et al., Development of water-cooled blanket concept with pressure tightness against in-box LOCA for JA DEMO, Fusion Eng. Des. 146 894-897　2019.
60) S. Maruyama, et al., Evaluation of core thermal and hydraulic characteristics of HTTR, Nucl. Eng. Des. 152 183-196 1994.
61) M. Goto, et al., Nuclear and thermal feasibility of lithium-loaded high temperature gas-cooled reactor for tritium production for fusion reactors, Fusion Eng. Des. 136 357-361 2018.
62) B. Schulz and H. Wedemeyer, PREPRARATION, CHARACTERIZATION AND THERMAL DIFFUSIVITY OF γ-LiALO2, J. Nucl. Mat. 139 35-41 1986.
63) J. K. Fink and L. Leibowitz, Thermal conductivity of Zirconium, J. Nucl. Mat. 226 44-50 1995.
64) P. Auerkari: VTT Manufacturing Technology, VTT Tiedotteita – Meddelanden – Research Notes 1792, Espoo, 14 1996.
65) F. M. Faubert and G. S. Springer, Measurement of the thermal conductivity of helium up to 2100°K by the column method, J. Chem. Phys. 58 (10) 4080-4083 1973.
66) R.W. Powell, et al., THE THERMAL CONDUCTIVITY OF NICKEL, Int. J. Heat Mass Transfer 8 679-688 1965.
67) C. Fichera, et al., Numerical study of the thermal performance of the CERN Linac3 ion source miniature oven, Nucl. Inst. Methods Phys. Res. A 901 21-31 2018.
68) H. Kleykamp, Enthalpy and heat capacity of LiAlO2 between 298 and 1700 K by drop calorimetry, J. Nucl. Mat. 270 (1999) 372-375.
69) Chase M. W. Jr., NIST-JANAF Thermochemical Tables, Fourth Edition, J. Phys. Chem. Ref. Data, Monograph 9 (1998) 1-1951.

70) H. Hatano, et al., Trapping of hydrogen isotopes in radiation defects formed in tungsten by neutron and ion irradiations, J. Nucl. Mater. 438 S114-S119 2013.
71) R.G. Macaulay-Newcombe, D.A. Thompson, Ion beam analysis of deuterium-implanted Al2O3 and tungsten, J. Nucl. Mater. 258-263 1109-1113 1998.
72) A. Devaraj, et al., Neutron irradiation induced changes in isotopic abundance of 6Li and 3D nanoscale distribution of tritium in LiAlO2 pellets analyzed by atom probe tomography, Mater. Charact. 176 111095 2021.

謝辞

本論文に関する研究と執筆を行うに当たり、九州大学工学研究院エネルギー量子工学部門の松浦秀明准教授から根気よくご指導を頂き、一流の研究者としての視点から助言して下さったため完遂することができました。心より感謝申し上げます。

本論文の審査にあたり、副査を引き受けて下さりました九州大学工学府の藤本望教授と九州大学総合理工学研究院の橋爪健一准教授には、原子炉物理や材料工学に関する視点から重要な指摘や助言を頂きました。まことに感謝申し上げます。田中純一技術職員には学業に関わる手続き等で支援してくださりました。