

連載
講座今、核融合炉の壁が熱い！
—数値モデリングでチャレンジ

第9回 VIII. 壁が作る燃料をどうするのか

九州大学 深田 智, 東京大学 小田卓司

I. 壁内の燃料製造に関係する因子

D-T 燃焼を当面の目標にする D-T 核融合炉では、燃料トリチウム(T)を燃焼させながら、炉心を取り巻くブランケットで熱中性子領域の ${}^6\text{Li}(n, \alpha)\text{T}$ 、高エネルギー中性子領域の ${}^7\text{Li}(n, \alpha')\text{T}$ 反応により製造し、ブランケット外で連続的に回収する。 β 線放出核種のトリチウムは天然にはほとんど存在しないので、D-T 反応で発生する1個の中性子により、1個のトリチウムを発生回収しないと持続的 D-T 燃焼はできない。ブランケット外での損失を考慮に入れると、1以上の増殖率維持が常に必要である。設計上の局所増殖率を1以上にすることは可能であっても、炉燃焼維持のため加熱その他設備の窓も多く、1個の核分裂反応から2.4個の中性子が放出される核分裂炉の場合と違って、現実問題として核融合炉全体の実質トリチウム増殖率を1以上にするためには、中性子増倍材のBeを入れるとともに、適切効率的なブランケット設計が必要である。ブランケットは多様な役割を課されており、ITER(イーター)のテストブランケットモジュール(TBM)で参加各国いくつかの様式が提案され、鋭意研究されている¹⁾。

ブランケットは、トリチウム製造とともに、熱回収、 γ 線遮蔽等の重要な役割をなし、マクロな観点で考える装置設計のためには、熱、物質(T)、粒子線の収支式を連立して解く必要がある。ミクロな観点で考えると、物理的形状により固体ブランケット(Li_2TiO_3 , Li_4SiO_4 ,

Li_2ZrO_3 , LiAlO_2 , Li_2O 等)と液体ブランケット(Li-Pb共融合金, LiF-BeF_2 溶融塩混合物(Flibe と通常呼ばれる), Li等)に分類した上で、多くの関係因子を考慮した計算が必要である。

例えば、セラミック固体ブランケット内での燃料トリチウム発生と回収をシミュレーションするため、必要な情報や考慮に入れるべき点は次の通りである。

- (1) 中性子照射下で格子欠陥を含む多結晶構造である
- (2) 1 nm 程度のサブミクロ細孔から1 mm 程度までのマクロ細孔構造をしている
- (3) 水素-酸素反応に起因して、ブランケットを構成する化合物の酸素組成が整数比からずれる、いわゆる酸素不定比性が生じる
- (4) 水素化学種、水蒸気化学種、それ以外の化学種が同時に気流中に存在し、水素同位体原子が交換する
- (5) 水素、水蒸気の吸着、吸収、反応が進行する
- (6) Li 核反応による Li 含有率が減少する
- (7) 微量トリチウムと不純物との相互作用がある

液体ブランケットでは、(1)~(3)の固体ブランケット固有の問題はないが、新たに、

- (8) ブランケットに敷設される各種加熱機器を含む3次元空間構造内の流動が存在する

ことの考慮が必要である。さらにトリチウム回収にまで目を移すと固液ブランケット共通に、

- (9) トリチウム回収装置内の熱、物質、運動量輸送による変化

を検討する必要がある。

その他特殊課題として、

- (10) プラズマ燃焼運転パターンの非定常性
- (11) 熱その他の応力変形

等がある。

現状では、これらすべてを考慮した計算は存在しないし、また実際上のトリチウム生産と回収を研究目標にする場合、未確定要素も多く、すべてを考慮し時間をかけて厳密に求めることに現在のところはそれほど意味があるとも思えない。重要なのは実験されていない領域を補完し、未知領域の予測性能を向上させるための数値解析手段の構築である。

まず次の第VIII-II節で、照射下にあるブランケット材とトリチウムとの微細相互作用、特にトリチウム拡散挙

The Fusion Reactor Wall is Getting Hot!—A Challenge towards the Future for Numerical Modelling (9):

Chap. VIII How is the Fuel made up on the Wall: Satoshi FUKADA, Takuji ODA.

(2008年 12月 9日 受理)

各回タイトル

第1回 I. はじめに

II-1 壁の前で何が起きているか? (物理モデル)

第2回 II-2 壁の前で何が起きているか? (プラズマの攻撃)

第3回 III. 壁の表面で何が起きているか

第4回 IV. 壁の中で何が起きているか

第5回 V. 壁はどのくらい熱くなるか

第6回 VI-1 壁の中は傷まないか (放射線の照射によって受ける壁材料のダメージ)

第7回 VI-2 壁の中は傷まないか (放射線の照射によって受ける壁材料のダメージをいかに予測するか)

第8回 VII. 核融合材料のメソスケールシミュレーション

動を直接求めるため、原子スケールの第一原理で現象を把握する試みについて Li_2TiO_3 と $\text{Li}_{17}\text{Pb}_{83}$ を例として紹介する。

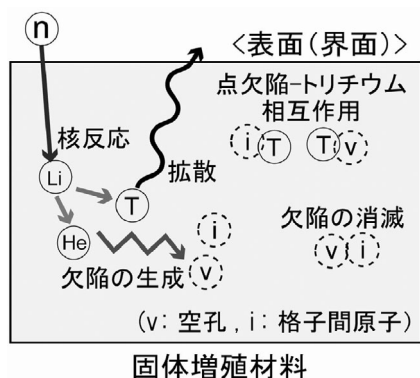
さらに第VIII-III節で、もう少し大きなスケールの視野から、固体ブランケットでは、マイクロ細孔、マクロ細孔内のトリチウム輸送現象の計算例を示す。液体ブランケットでは、 $2\text{LiF} + \text{BeF}_2$ 溶融塩混合物 (Flibe) を例として、トリチウム拡散と同位体交換現象を取り扱うため、材料-トリチウム相互作用を物理モデルに基づいた整理式に置き換え、輸送方程式にわき出し項、各種物性値変化、局所界面平衡、同位体交換速度の関係式に置き換えて解いた結果を紹介する。

最後の第VIII-VI節では、さらに大きなスケールとして、ブランケット外でのトリチウム回収装置設計のための解析手段例を説明する。

II. 増殖材料中におけるトリチウム挙動の原子スケールでの解析

1. 固体増殖材料中のトリチウム

固体増殖材料 (Li 酸化物) 中でのトリチウム挙動の概要を第1図に示す。まず、固体増殖材料に到達した中性子の一部が Li と核反応を起こし、トリチウム (T) が生成される。この T や、T 生成時に同時に生じる He、材料に進入した中性子が、それぞれ MeV オーダーの高エネルギーを持つために、材料中に多量の照射欠陥が形成される。そして、その照射欠陥がトリチウムの拡散挙動や放出挙動に影響を及ぼす。さらに、照射欠陥自身も集合、複合化、回復等の挙動を示すため、照射欠陥がトリチウムに与える影響は時々刻々と変化する。よって、実験で評価可能な短時間/低 Li 燃焼度の結果を、実炉で想定される長時間/高 Li 燃焼度の予測に適用することの妥当性については、十分な注意が必要である。この妥当性を保証する一つの手段として、現象を原子スケールで詳細に理解し、その理解に立脚してモデルを構築することは、有力である。



第1図 固体増殖材料におけるトリチウム生成、拡散挙動の概要

水素同位体は、Li 酸化物中で多様な化学状態をとっている。その一つが T^+ であり、Li 酸化物を構成する酸素イオン (O^{2-}) に結合することで、水酸基 ($-\text{OT}^+$) として材料中に存在する。特に、照射欠陥が存在しない系においては支配的な化学状態である。一方、照射欠陥が存在する環境下では、 T^+ に加えて T^- として存在するトリチウムの割合も無視できなくなる。ただし、 T^+ として存在するトリチウムの割合の方が一般的に多い。

量子力学計算の結果によれば、Li 酸化物中の T^+ は、Li 空孔近傍で水酸基を形成する場合、つまり Li^+ 置換型 T^+ として存在する場合の方が、格子間型 T^+ として水酸基を形成する場合に比べてエンタルピーで 1 ~ 数 eV 程度安定である²⁾。実炉環境では、Li が T 生成の際に消費されるため、エントロピーの観点からも、格子間型 T^+ に比べて Li^+ 置換型 T^+ がより有利になると考えられる。以下では、 Li^+ 置換型 T^+ として存在するトリチウムの拡散について、主要な固体増殖材料候補である Li_2TiO_3 の場合を例に、詳しく見ていく。

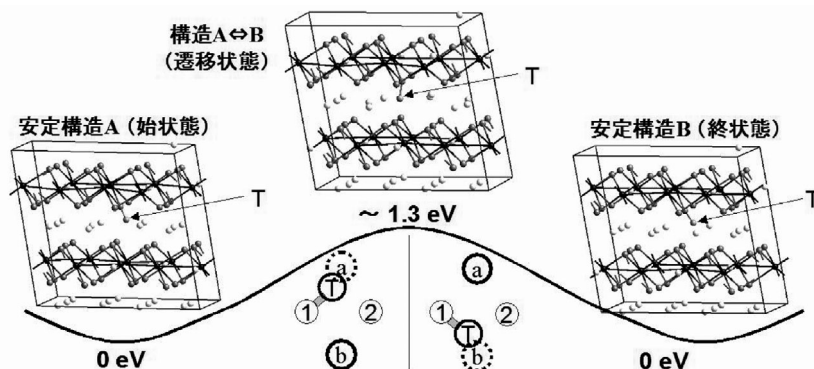
Li_2TiO_3 の結晶構造は複雑であるため、その中での Li^+ 置換型 T^+ の存在状態や拡散挙動も多様なものとなる。しかし、拡散に関連する基本的な動きは、以下の2つに大別できる：(1) 特定の O^{2-} との結合を維持したまま、隣接する Li^+ と位置を交換する動き (結合している O^{2-} を中心とした回転に近い運動)、(2) 配向している Li 空孔を変えずに、結合相手を他の隣接 O^{2-} に変える動き (隣接する O^{2-} へのジャンプに近い運動)。そして、この2つの過程の組合せで、 Li^+ 置換型 T^+ の拡散は進行する。

過程(1)について、量子力学計算を用いて拡散の経路とエネルギー障壁を評価³⁾した結果を第2図に示す。移動の始状態 (構造 A)、終状態 (構造 B)、および状態間の移行の遷移状態 (構造 A $\leftrightarrow$ B) と、そのエネルギーを示した。計算は固体材料の量子力学計算で広く利用されている VASP コードを用いて行った。結果として、この過程(1)の場合、トリチウムの移動に要するエネルギー障壁は約 1.3 eV であることが明らかになった。同様に、計算した過程(2)のエネルギー障壁は 0.6 eV 程度であったため、トリチウム拡散の見かけの活性化エネルギーは、過程(1)のエネルギー障壁に相当する 1.3 eV 程度になると考えられる。この値は、実験で観察されている Li_2TiO_3 中でのトリチウム拡散の見かけの活性化エネルギー (1.08 eV⁴⁾) と同程度であり、量子力学計算により良好なモデル化が行われていると考えられる。

さらに、トリチウムの拡散定数や滞留量についても、種々の計算理論⁵⁾が整備されており、必要な計算量は増大するが、量子力学計算を用いた評価が可能である。

2. 液体増殖材料中のトリチウム

液体増殖材料 (金属 Li, リチウム鉛, Flibe など) では照射欠陥の影響を考慮する必要がないため、トリチウム



第2図 Li_2TiO_3 におけるトリチウム拡散の経路とそのエネルギー障壁

図中の白色球はLi, 黒色球はTi, 灰色球はOを表している。酸素1に結合しているトリチウム(T)が、その結合状態を維持したまま、隣接するリチウムbとその位置を交換している。

挙動に関連した素過程の数は、固体増殖材料の場合と比べて少なくなる。しかし、分光実験等を容易に適用可能な固体材料と比べて、高温溶融状態にある液体材料では、トリチウム挙動の詳細を実験により直接的に観察することは困難である。そのため、計算シミュレーションが果たすべき役割は大きい。シミュレーションにおいて溶融状態を再現するためには、0 Kでの静的な計算(分子力学計算, molecular statics)ではなく、有限温度での動的な計算(分子動力学計算, molecular dynamics)が必要となる。

第3図に、第一原理分子動力学計算(量子力学計算により評価したエネルギーや力を用いて行う動力学計算)により、液体Li-Pbにおける水素同位体の挙動を分析した結果を示す。900 Kにおいて、系の原子数, エネルギー, 体積を保存した条件(NEV アンサンブル)の下で、 $\text{Li}_6\text{Pb}_{30}\text{H}$ 中でのH-Li原子間距離の変化を調べた結果である。便宜上、系に存在する6個のLi原子に対して、①～⑥の番号を振っている。時間ステップは1 fs(フェムト秒, 10^{-15}s)とし、合計1,500 fsのシミュレーションを行った。 $\text{Li}_6\text{Pb}_{30}$ は $\text{Li}_{17}\text{Pb}_{83}$ のモデル材料である。拡散に要する時間を低減するために、トリチウムよりも軽い

軽水素を用いて、トリチウムの挙動を模擬した。

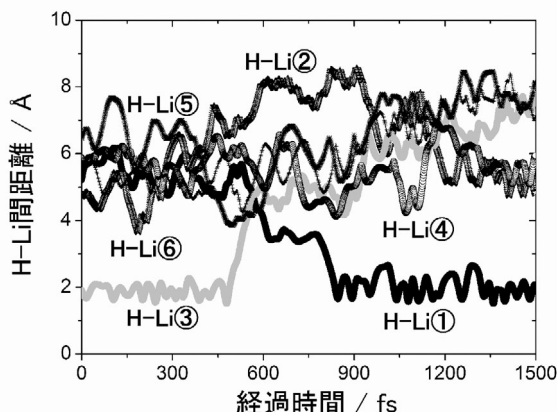
第3図から、Hは約500 fsまではLi③と結合し、その後それとの結合を切り、約800 fsからはLi①に再結合していることがわかる。また、HがLiに近接した場合に、水素の電荷状態は H^- に近づき、水素化リチウム分子におけるLi-H結合に類似した相互作用が生じていることも、量子力学計算により示唆された。

以上の結果から、 $\text{Li}_{17}\text{Pb}_{83}$ 中のトリチウムは、基本的にはLi-T結合を形成することにより材料中で安定化するが、ある頻度でLi-T結合を切り、そして隣接する他のLiにジャンプして再結合することで、拡散していくと考えられる。この液体 $\text{Li}_{17}\text{Pb}_{83}$ 中のLi-T結合は、気体LiT分子のLi-T結合ほどは強くなく、900 K程度の高い温度ではその切断は比較的容易に起こると考えられる。

Ⅲ. ブランケット材からのトリチウム放出計算

1. ミクロ-マクロ細孔内輸送現象の数値計算

nmスケールの第Ⅷ-II節の解析から、 $\mu\text{m}\sim\text{mm}$ スケールの範囲へと視点を移す。固体ブランケット材微細結晶粒子を集めた多孔質凝集ペレット内でのトリチウム輸送現象を把握するには、少なくとも中性子、熱、トリチウム収支式を多孔質構造に基づいて解く必要がある。しかし、現状では時間の制約と収支式を横断する結合因子が小さいため、同時同等に連立して解かれていない。熱とトリチウム収支式では、まず μm 以下のスケールのミクロ細孔(あるいは微細結晶粒子)内はその領域内で閉じた形で解き、それをメゾあるいはマクロ細孔構造をなす領域の熱とトリチウムの収支式において、いわゆるわき出し項として保存式に組み入れることでほぼ正確に挙動が求められる。熱、物質の輸送方程式は、関連する書籍⁶⁾等々に示されている。



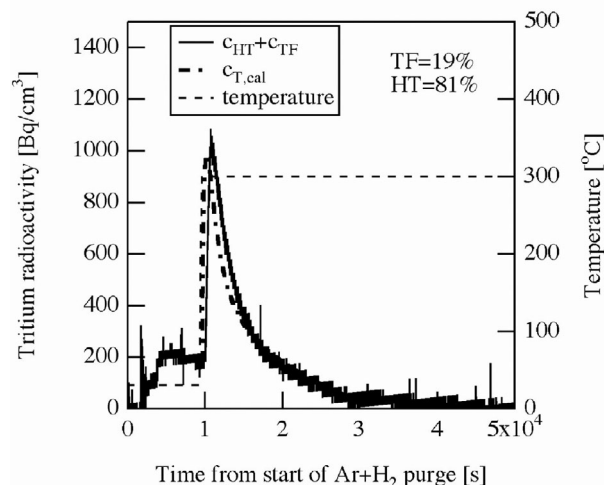
第3図 液体 $\text{Li}_6\text{Pb}_{30}\text{H}$ モデルにおけるH-Li間距離の時間変化

具体的に説明すると、マイクロ-マクロ二重細孔構造^{7,8)}を持つ多孔質ペレット内マイクロ孔では、収支式中の対流移動に関する項を考慮する必要はない。収支式におけるわき出し項は、中性子輸送方程式から計算されるトリチウム発生率と減速に伴う発熱項で記述できる。さらに拡散係数や熱伝導率を中性子照射量や温度の関数として経験的に求め、計算系に組み入れる。このようにして求めたマイクロ孔境界での熱とトリチウム輸送量は、マクロ孔内の保存式中の発生項として現れ、再度、マクロ孔内輸送方程式をペレット外部境界条件で求める。このように入れ子型の保存式を順次解き、全体の熱とトリチウムの輸送量を求める。この際、VII-II節で考えた原子スケールでの挙動は、照射に伴う物性値の位置変化として考慮することができる。

固体ブランケット材料からのトリチウム回収設計のために必要な情報として固体多孔質ペレットからのトリチウム放出挙動がある。 H_2 あるいは H_2O を含むHe パージガス条件下で、トリチウム輸送に関係する分子種はHTとHTOである。固体内で生成したトリチウム原子は、セラミック多孔質内を拡散し、直接再結合反応で脱離するほか、 $T(s) + H_2(g) = H(s) + HT(g)$ 、あるいは $T(s) + H_2O(g) = H(s) + HTO(g)$ の同位体交換反応、表面酸化物の酸素-金属原子比が決められた組成比から変化すること(不定比性変化)によって、 $O(s) + HT(g) = HTO(g)$ の水分生成反応、等が関与する。いくつかのブランケット材からのトリチウム放出率の実験値と計算値の比較を第4図に示す⁹⁾。

2. 液体ブランケット材からのトリチウム放出計算

液体ブランケット材候補材として、リチウム、Li-Pb 共融合金、Flibe がある。その一つのFlibeは、溶融塩中でTFあるいは T_2 として存在し、この比はFlibeの酸化還元状態により変化する¹⁰⁾。He パージガス中に H_2 を含ませると、TFで拡散するトリチウムがFlibe-He 界面で $TF + H_2 = HF + HT$ 、もし微量の H_2O が含まれてい



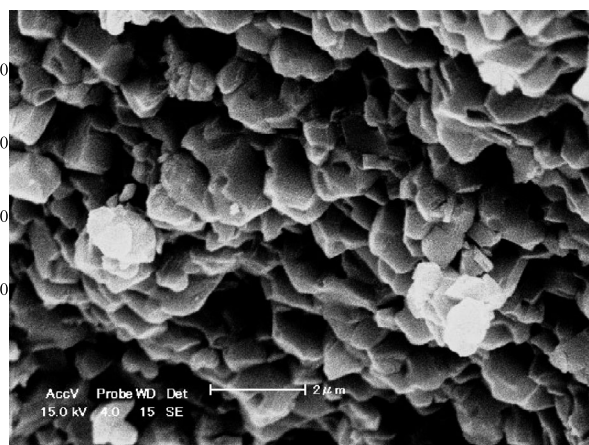
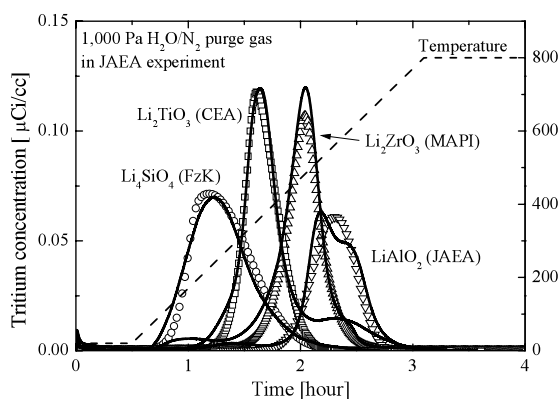
第5図 Flibe 溶融塩からのトリチウム放出実験と計算

るとき、 $TF + H_2O = HTO + HF$ 、の同位体交換反応が進行する。さらに H_2O は、 $BeF_2 + H_2O = BeO + 2 HF$ の反応により気流中でHFを生じ、このHFとTF(s)の同位体交換が進行する可能性もある。トリチウム放出率実験値と計算値との比較例を第5図に示す。小さい体系での実験ではあるが、既存の拡散係数や同位体交換速度定数、酸化還元反応の反応率等のデータより求めた予測値は精度よく実測値を説明している。

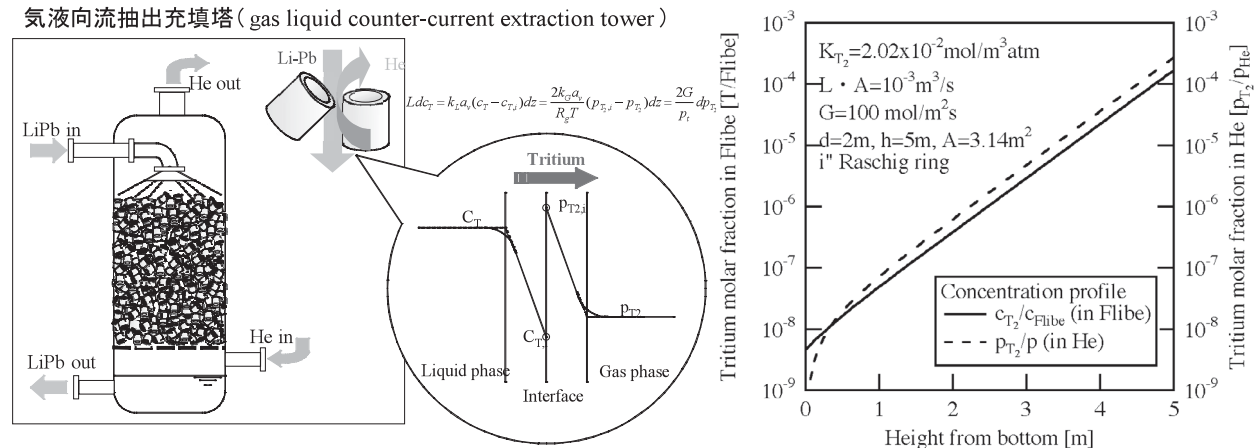
さらに大規模に、3次元構造物内の熱、流動、拡散の計算が、各種概念設計活動の中で始められている¹²⁾。ITER-TBMの具体性が高まるほど、モンテカルロシミュレーションあるいは格子ボルツマン法で、複雑な体系でもわき出し項を適切に組み入れることにより、詳細に計算されるものと考えられる。特に熱流動に関する最新の研究成果が次回以降のこの連載講座で説明される。

IV. トリチウム回収装置の設計計算

炉壁で作られたトリチウムは、炉外の回収装置で連続的に回収される。例えば、1 GW 核融合熱出力を温度差



第4図 各種固体ブランケット材料からのトリチウム放出挙動の実測値と解析モデルの比較(a)とLi₂TiO₃ペブル表面のSEM写真(b)



100℃の Flibe で回収するためには2.3 m³/sの冷却材流量を保持し、実質トリチウム増殖比 TBR = 1の維持に、160 g-T/dの T 生産率がブランケット内で必要であり、このとき自己冷却 Flibe 中の T 濃度は1.2 × 10⁻⁸ mol-T/mol-Flibe となる。熱回収の巨大さに比べてトリチウム濃度の低さが際立ち、ブランケット材あるいはヘリウム冷却材からトリチウム回収のための装置設計は最大の課題である。気液向流抽出装置、膜分離装置等がトリチウム回収に考えられているが¹³⁾、装置の規模を考えるための設計が必要である。第6図は Flibe 自己冷却ブランケットのトリチウム回収装置概略図と計算例であり、設計式は化学工学の単位操作の教科書にも記述され⁶⁾、回収装置内の濃度勾配を流体の主流れ方向の1次元方向のみに仮定し、気液界面のトリチウム輸送を物質移動係数と、静的条件で求められている気液平衡関係で置き換えると、閉じた形で解析計算できる。この際、装置内の流動の影響を、物質移動係数に押し込める手法⁶⁾は、実際的に化学回収装置の規模を的確に表すのに成功している。大量の Flibe を流すと回収装置の規模が巨大になるため、計算例では、バイパス率を1%とし、T 濃度を上昇させている。T 濃度の上昇は、配管からの T 濃度を増加させるので、T 透過漏洩を抑制する安全設計のためには、この程度のバイパス率が限度である。

— 参考文献 —

- 1) 関昌弘編, 核融合炉工学概論, 日刊工業新聞社, (2001).
- 2) R. Shah, A. D. Vita, V. Heine, M. C. Payne, *Phys. Rev. B*, **538**, 257-8261 (1996).
- 3) G. Mills, H. Jonsson, G. K. Schenter, *Surf. Sci.*, **324**, 305-337 (1995).
- 4) T. Tanifuji, D. Yamaki, S. Nasu, K. Noda, *J. Nucl. Mater.*, **258-263**, 543-548 (1998).
- 5) G. H. Vineyard, *J. Phys. Chem. Solids*, **3**, 121-127 (1957).
- 6) R. B. Bird, W. E. Steward, E. N. Lightfoot, *Transport*

Phenomena 2nd ed., John Wiley and Sons, (2002).

- 7) D. M. Ruthven, *Principles of Adsorption and Adsorption Process*, John Wiley & Sons, (1984).
- 8) L. B. McCusker, F. Liebau, G. Engelhard, "Nomenclature of structural and compositional characteristics of ordered microporous and mesoporous materials with inorganic hosts (IUPAC Recommendation 2001)", *Pure Appl. Chem.*, **73**, 381-394 (2001).
- 9) T. Kinjyo, M. Nishikawa, T. Tanifuji, *Fusion Eng. Des.*, **81**, 573-577 (2006).
- 10) S. Fukada, M. F. Simpson, R. A. Anderl, *et al.*, *J. Nucl. Mater.*, **367-370**, 1190-1196 (2007).
- 11) Y. Edao, S. Fukada, H. Noguchi, *Fusion Sci. Technol.*, **55**, (No. 2), 140-151 (2009).
- 12) A. Sagara, O. Mitarai, T. Tanaka, *et al.*, *Fusion Eng. Des.*, **83**, 1690-1695 (2008).
- 13) S. Fukada, M. Nishikawa, A. Sagara, *Fusion Sci. Technol.*, **39**, 1073-1077 (2001).

著者紹介

深田 智(ふかだ・さとし)



九州大学総合理工学府
(専門分野/関心分野) エネルギー化学工学/
特にトリチウムプロセス開発

小田卓司(おだ・たくじ)



東京大学大学院工学系研究科
(専門分野/関心分野) 原子力材料工学/核不
拡散