

論文の内容の要旨

論文題目

Hydrogen isotope behaviors in Lithium-tin alloy
as a potential liquid breeder or coolant for fusion reactor

核融合炉液体ブランケット用 Li-Sn 合金中の水素同位体挙動

氏 名 康 藝

核融合炉は化石燃料に変わるエネルギー源の1つとして大きな期待が寄せられている。しかしながら、現在のところ、環境への影響を低減し高安全性を確保しながら、正味のエネルギーゲインを得るためには高コストが予想され、このことが、信頼に足る商用エネルギー源としての核融合炉の将来性を不確実なものとしている。核融合炉を他の代替エネルギー源と競合できるようにするためには、コストと安全性の観点からのブランケット研究開発が必要となっている。

核融合炉液体ブランケット概念において、液体増殖材料中のトリチウム挙動は、核融合炉のコストと安全性に対して大きな意味を持つ。例えば、リチウム鉛共晶合金を液体増殖材料として用いる場合、トリチウム溶解度が非常に小さいことから配管構造材料からのトリチウムの透過漏洩が安全上の重要課題となっている。また、液体リチウムを液体増殖材料として用いる場合はトリチウム溶解度が大きいことからトリチウム透過漏洩の課題は低減されるものの、逆に液体リチウムからトリチウムを取り出す事が非常に困難となっており、トリチウム回収コストが増大すると考えられる。

近年、核融合炉液体第一壁概念におけるトリチウム増殖材兼冷却材として、新しい液体増殖材料候補—リチウム錫合金 (LiSn)—が提案されている[1]。本研究は、リチウム錫合金のトリチウム増殖材兼冷却材としての可能性を、この合金中のトリチウム挙動を研究する事によって探求する事を目的とする。具体的には、リチウム錫合金について、トリチウム拡散係数と溶解度を測定し、トリチウム漏洩問題及び回収問題について考える。

なお、本研究におけるリチウム錫合金の組成については、高トリチウム増殖比、低蒸気圧、低融点の観点から $\text{Li}_{20}\text{Sn}_{80}$ を選択した。

1、液体 $\text{Li}_{20}\text{Sn}_{80}$ 合金の密度測定

$\text{Li}_{20}\text{Sn}_{80}$ 合金を研究する上で、密度は最も不可欠な基本的特性の一つである。信頼に足る密度データは、本研究においても、トリチウムの生成速度計算や拡散係数を求めるために必要不可欠になっている。

$\text{Li}_{20}\text{Sn}_{80}$ 合金密度の測定は、673-873K の温度範囲で直接アルキメデス法によって行った。測定誤差として影響を与える要素としては、合金の自然対流、合金の表面張力、及び、合金表面に生成する酸化膜やスラグの影響等が考えられる。このうち、自然対流が重りに与える影響、及び、表面張力がワイヤに与える影響については、適切な実験条件によって低減する事が可能であった。また、その他の影響についても、二種類の重さの異なる重りに関する比較を行う事で、影響を相殺した。

図1に、 $\text{Li}_{20}\text{Sn}_{80}$ 合金の密度測定の結果を示す。結果は以下の式で表す事ができる。

$$\rho_T [\text{g}/\text{cm}^3] = 6.380 - 4.745 \times 10^{-4} T [\text{K}] \quad (673 - 873\text{K}) \quad (1)$$

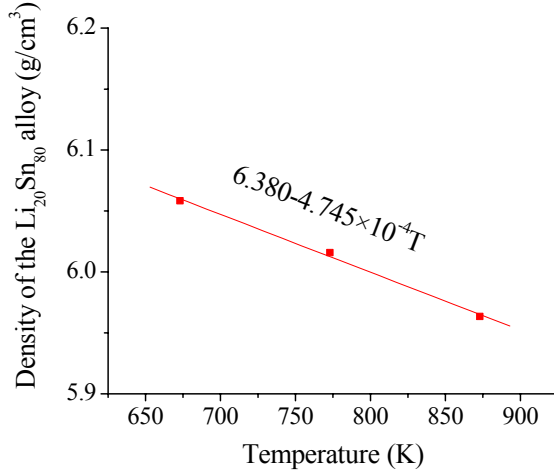


図1、合金の密度の温度依存性

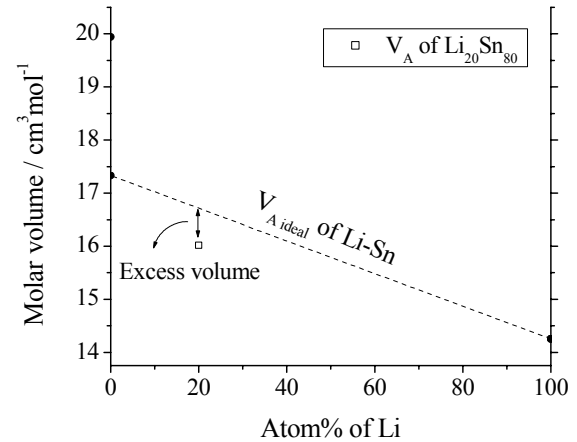


図2、773Kにおける $\text{Li}_{20}\text{Sn}_{80}$ 合金のモル体積

$\text{Li}_{20}\text{Sn}_{80}$ 合金について2種類の金属元素の理想溶体として考えた場合のモル体積を $V_{A \text{ ideal}}$ とし、合金の実際のモル体積 V_A とした場合、図2に示すように、実際の $\text{Li}_{20}\text{Sn}_{80}$ 合金密度は理想溶体と比較して大きくなる事がわかる。このことから、合金中におけるリチウム原子と錫原子は、それぞれの金属原子が独立に存在している場合と比較して、より大きな相互作用を及ぼし安定化する事によって、理想溶体と比較して体積を減少させていると考えられる。

2、原子炉を用いたトリチウム拡散実験

東京大学の高速中性子源炉「弥生」を用いたトリチウム放出実験によって、トリチウムの拡散係数及びトリチウム溶解度を測定する研究を行った。実験は500Wと2kWの原子炉出力下で、溶融 $\text{Li}_{20}\text{Sn}_{80}$ 合金を673 Kから873Kに加熱し、合金と接する気相中の水素分圧を1.1kPaから101kPaまで変化させて行った。

溶融 $\text{Li}_{20}\text{Sn}_{80}$ 合金を細長い円筒状のサンプルホルダー内に装填した。 $\text{Li}_{20}\text{Sn}_{80}$ 合金の表面積を考えた場合、トリチウム回収用のスイープガス中に放出されるトリチウムのほとんどは、円筒の径方向へ移動してサンプルホルダー壁を透過するものであると考えられる。図3に、この実験体系におけるトリチウム移動モデルを示す。

本来、このような体系におけるトリチウムの移動はいくつもの拡散方程式の長い数学的記述として与えられるが、実験体系の解析のためには、いくつかの仮定を置いて単純なモデルを適用しその条件下での実験を行う事とした。すなわち、拡散律速による定常状態モデルであり、トリチウムの金属内拡散が律速過程であり、時間的定常が達成されている状態におけるモデルである。このモデルでは、実験結果からトリチウム拡散係数を非常に単純に計算する事ができる。トリチウム停留時間と、トリチウム拡散係数及び

溶解度の関係は以下のように表す事ができる。

$$\tau = \frac{a^2}{8D_1} + \left(\frac{W_2 K_{s1} \rho_1}{W_1 K_{s2} \rho_2} - 1 \right) \frac{a^2}{2D_2} \ln \frac{b}{a} + \frac{b^2 - a^2}{4D_2}, \quad (2)$$

ここで、 D はトリチウム拡散係数、 K_s はジーベルト係数、 ρ は密度、 W は分子量であり、添え字の1と2は、それぞれ、 $\text{Li}_{20}\text{Sn}_{80}$ 合金及びアルファ鉄製の透過壁を示している。また、 a 及び b はそれぞれ、鉄製の透過壁の内径及び外形である。

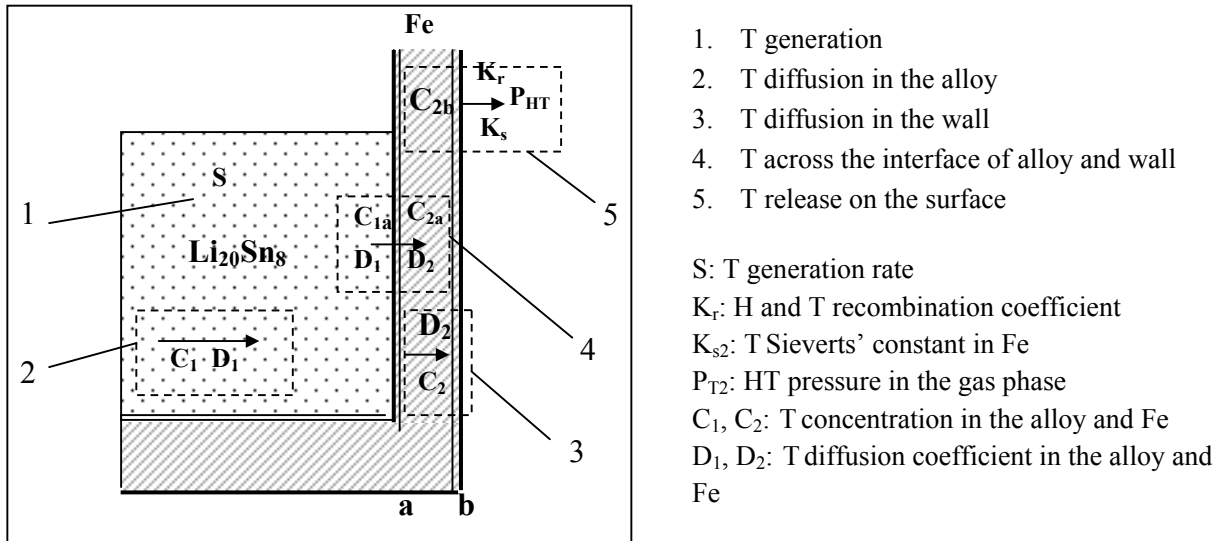


図3、径方向へのトリチウムの移動モデル

この極めて単純なモデルを適用するためには、このモデルの条件を満たすように実験条件を設定する必要がある。

トリチウム生成速度については、原子炉コアや照射試験体系を3次元形状で扱うモンテカルロ核粒子輸送計算コード(MCNP)による合金中でのトリチウム生成速度分布の計算を行なった。図4に、トリチウム生成速度分布の典型的な結果として、Y軸及びZ軸を固定した状態で、X軸に沿って-3mmから3mmまで変化させた際の変化を示す。なお、X軸とY軸の交点は円筒状の合金断面円の中心である。この結果より、径方向に沿ったトリチウム生成速度の差は、最大で-4.4%から7.3%にも及ぶ事がわかる。この結果をモデルに適用するために、合金中の位置プロファイルを詳細に計算した結果を0次近似し、合金中どこでも一定な値として用いた。

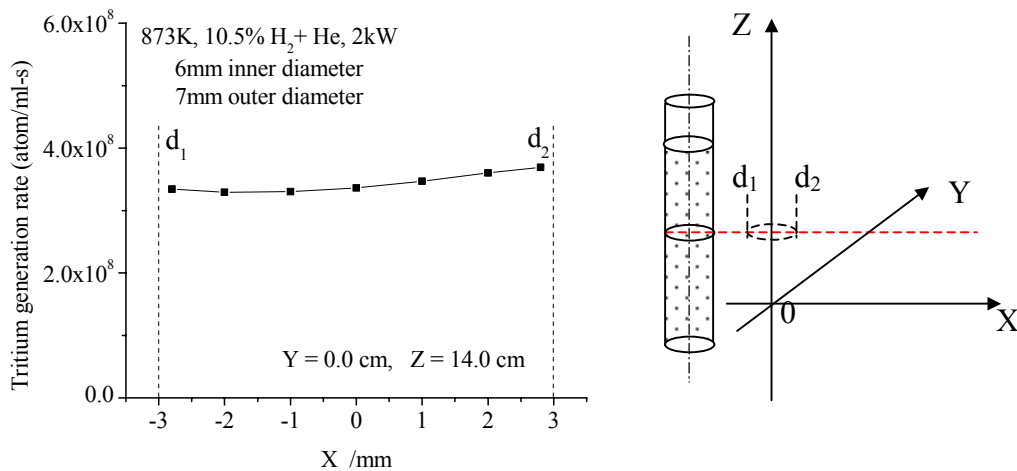


図4、X方向へのトリチウム生成速度分布

鉛直方向へのトリチウム放出については、径方向に比べて合金の比表面積が小さいこと、及び、気液表面が酸化物等で覆われていることから非常に小さいと考えられ、実験体系においてもモデルにおいても径方向へのトリチウム拡散のみを考えるのが適切である。また、本実験体系において得られるトリチウム放出係数は小さく、すでに多くの測定値が報告されているサンプルホルダー外側での水素の再結合が律速過程にはならない事がわかった。この事は、本実験体系においてトリチウム拡散が律速過程であることを示している。モデルを適用するためには拡散律速だけでなく、定常状態を実現しなければならないが、873K以下の場合、本実験体系における原子炉運転時間の範囲内では、定常状態を達成できなかった。一方、873K以上の場合、定常状態が達成された。定常状態は、みかけのトリチウムインベントリーと照射後に放出される本当のトリチウムインベントリーを比較する事によって確認した。

このように設定した適切な実験条件下で873Kの $\text{Li}_{20}\text{Sn}_{80}$ 合金中のトリチウム拡散係数測定を行った。式(2)により、トリチウム停留時間からトリチウム拡散係数及びトリチウムのジーベルト定数を評価した。なお、合金中の水素のジーベルト定数の値は、リチウム中の水素のジーベルト定数 $10^2 \text{Pa}^{-0.5}$ と、錫中の水素のジーベルト定数 $10^7 \text{Pa}^{-0.5}$ の間にあると考えられる。結果を図5及び図6に示す。図5において、トリチウム拡散係数 D_1 は負にはならないため、 K_{s1} が $10^{-5} \text{Pa}^{-0.5}$ から $10^{-2} \text{Pa}^{-0.5}$ の領域にあるとは考えられない。従って、図7に示すように、トリチウム拡散係数 D_1 は $10^{-9} \text{m}^2/\text{s}$ のオーダーであり、トリチウムのジーベルト定数は、 $10^{-7} \text{Pa}^{-0.5}$ から $10^{-5} \text{Pa}^{-0.5}$ の範囲内にあるという事ができる。

3、結論

$\text{Li}_{20}\text{Sn}_{80}$ 合金中のトリチウム拡散係数の値は、 $\text{Li}_{17}\text{Pb}_{83}$ 合金中の拡散係数 ($10^{-9} \text{m}^2/\text{s}$) と同じ桁であった。また、 $\text{Li}_{20}\text{Sn}_{80}$ 合金中のトリチウムのジーベルト定数は、錫中のそれに近い値を示した。 $\text{Li}_{20}\text{Sn}_{80}$ 合金の密度は理想溶体のそれよりも小さく、リチウム原子と錫原子の強い相互作用があると考えられる。これらの結果から、 $\text{Li}_{17}\text{Pb}_{83}$ 合金で見られた大きなトリチウムの透過漏洩課題も、また、Liで見られたトリチウム回収の課題も、 $\text{Li}_{20}\text{Sn}_{80}$ 合金の場合ではそれほど大きくならないと考えられる。すなわち、 $\text{Li}_{20}\text{Sn}_{80}$ 合金は、 $\text{Li}_{17}\text{Pb}_{83}$ 合金やLiの短所を持たない材料候補であると言える。また、この合金の密

度は $\text{Li}_{17}\text{Pb}_{83}$ 合金より小さく、冷却材として循環させる際に非常に大きなポンプ動力を必要としないという利点も挙げられる。

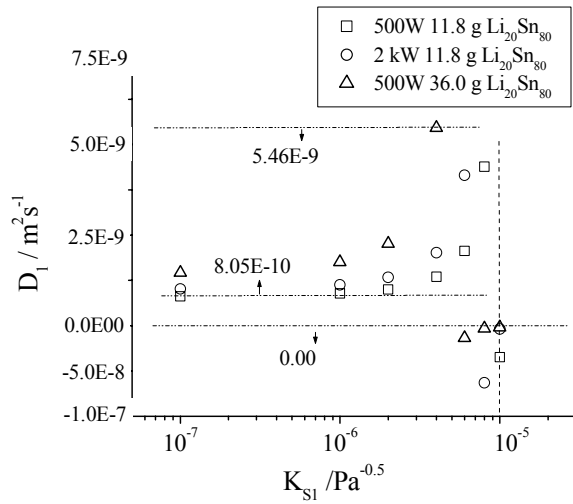


図 5、低ジーベルト定数 領域における 拡散係数のジーベルト定数 に対する依存性

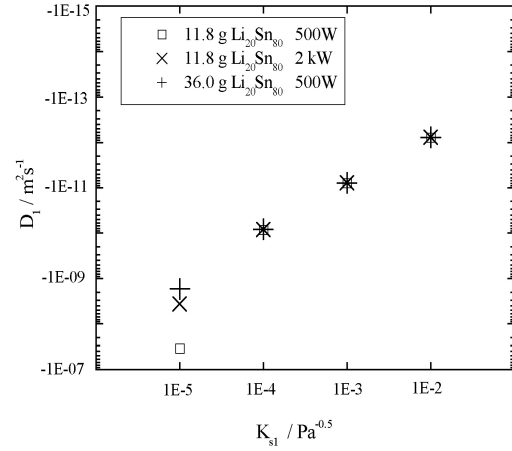


図 6、高ジーベルト定数 領域における 拡散係数のジーベルト定数 に対する依存性

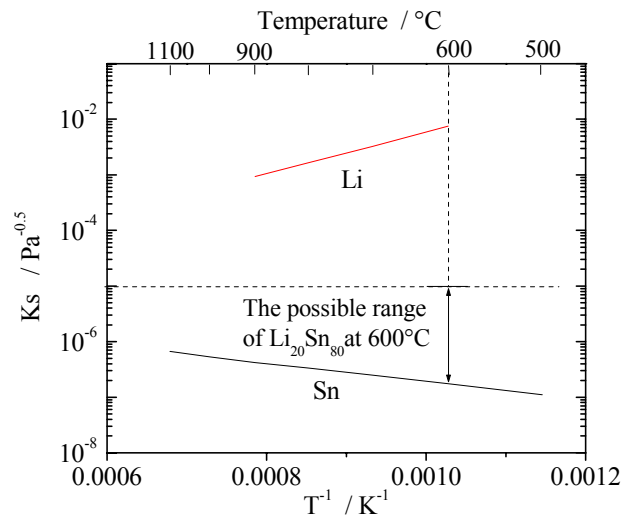


図 7、873K における $\text{Li}_{20}\text{Sn}_{80}$ 合金の可能なジーベルト定数 範囲

参考文献

[1] Dai-Kai Sze, Richard F. Mattas, Zhanhe Wang, Edward Cheng, Mohamed Sawan: “Sn-Li, a new breeding material for fusion”, presented at the 5th APEX Meeting, Nov. 2 - 4, 1998.