

氏 名 熊谷 公紀

学位(専攻分野) 博士(工学)

学位記番号 総研大甲第 2062 号

学位授与の日付 平成 31年 3 月 22日

学位授与の要件 物理科学研究科 核融合科学専攻  
学位規則第6条第1項該当

学位論文題目 フッ化物溶融塩中における中性子反応生成水素同位体の挙動

論文審査委員 主 査 教授 室賀 健夫  
准教授 田中 照也  
教授 磯部 光孝  
教授 寺井 隆幸 東京大学大学院  
工学系研究科  
准教授 大塚 哲平 近畿大学理工学部

(様式3)

## 博士論文の要旨

氏 名 熊谷 公紀

論文題目 フッ化物溶融塩中における中性子反応生成水素同位体の挙動

核融合炉では、炉心プラズマの周囲に発電ブランケットが配置され、重水素とトリチウムの核融合で生じた中性子が、ブランケット中のリチウムと核反応を起こすことで再びトリチウムが生成される。この核融合ブランケットシステムにおけるトリチウム増殖材、兼、冷却材として、高温でも化学的に安定なフッ化物溶融塩が候補に挙げられている。フッ化物溶融塩を用いたブランケットシステムにおいては、溶融塩中で中性子反応生成トリチウムと遊離フッ素が結合して腐食性のフッ化トリチウム (TF) が生成されると、管壁の腐食が問題になる。また TF の他、不純物水素との結合により生成される HT が管壁表面で解離して管材料に固溶する場合には、管壁からのトリチウムの透過が問題となる。溶融塩中のトリチウム挙動の理解は、材料共存性、およびトリチウムの輸送、回収の観点から重要である。

本研究でははじめに、溶融塩ブランケットにおけるトリチウム挙動に関するこれまでの研究について概説した。そのうえで本研究の目的、および位置づけを述べた。これまで溶融塩中のトリチウム挙動について、水素同位体を含むガス ( $H_2$ 、HF など) を溶融塩中に導入して核反応によるトリチウムの生成を模擬した実験、および原子炉を用いた中性子照射により溶融塩中にトリチウムを生成した実験が行われている。水素同位体を含むガスを用いた実験では、導入する水素同位体の濃度条件や化学種を変えた実験が容易である一方で、分子状のガスの導入が実際の核融合炉における原子状のトリチウム生成を正確に模擬しているか明らかではない。また原子炉を用いた実験では、原子状のトリチウム生成を模擬できる一方で、非常に長い時定数のトリチウムの放出挙動を評価することが難しい。そこで本研究では、フッ化物溶融塩への中性子照射による核反応で生成したトリチウムについて、長い時定数の挙動についても定常状態に至るまでの評価を可能とする実験手法を開発し、その放出挙動および化学種を明らかにするための研究を行った。

次に、本研究で新たに構築した、Am-Be 中性子線源を用いた溶融塩への中性子照射によるトリチウムの生成および溶融塩表面から放出されるトリチウムのスウィープガス (He、Ar ガス) による回収実験手法について記述した。照射実験前に、モンテカルロ中性子輸送コードを用いて、本実験体系でのトリチウム生成率の計算と照射体系の最適化を行った。また、二重境界膜モデルを用いた、トリチウム挙動の解析方法について述べた。

過去に例のない、 $500^\circ\text{C}$  の FLiNaK、FLiNaBe への中性子照射実験を実施して、定常状態におけるトリチウム回収量を評価し、計算値と近い結果を得た。この結果から、本実験手法におけるトリチウム挙動の評価が可能であることが検証された。また本実験により、一週間程度の長い時定数のトリチウムの放出挙動でも、その放出率が定常状態に至るまでの評価が可能であることを明らかにした。溶融塩ブランケットにおけるトリチウム回収への適用性評価に使用可能な、溶融塩からのトリチウム放出に関する総括物質移動係数を実

験結果から評価した。また、フッ化物熔融塩の成分の違いが放出に及ぼす影響を評価するため、**FLiNaK**、**FLiNaBe** それぞれの総括物質移動係数を比較し、ほとんど同じ値になることがわかった。この実験結果から、境界モデルの各係数の比較を行い、トリチウムの溶解度が放出に及ぼす影響を明らかにした。さらに、400℃と500℃の**FLiNaBe** の総括物質移動係数を比較し、トリチウムの放出はガス境界による移動抵抗を無視できると考えられること、およびトリチウム溶解度は小さく放出に関係しないと考えられることを明らかにした。

回収されるトリチウムの化学種については、そのほとんどが水溶性 (**TF**、**HTO**) であることがわかった。本研究では、この化学種についてさらに詳細な議論を行うため、**TF** と **HTO** の分離回収が必要であった。そこで **TF** のみに反応する **NaF** (フッ化ナトリウム) 粉末を用いる手法を開発し、フッ化水素 (**HF**) および水蒸気を用いた予備実験でその有効性を確認した。この手法を、熔融塩 **FLiNaK** を対象にした照射実験に適用し、本実験でのトリチウム回収部には主に **HTO** の化学形が輸送されていることがわかった。この原因として、トリチウム生成率の小さい本実験条件では、酸素や水不純物の影響を大きく受けたためと考えられた。

また、放出されるトリチウムの化学種を制御する目的でスイープガスに  $\text{H}_2$  ガスを加える試験を、熔融塩 **FLiNaK** を対象に行った。これにより、**HT** として放出されるトリチウムの割合が増加し、総括物質移動係数も大きくできることがわかった。

以上の熔融塩からのトリチウム放出に関する総括物質移動係数、およびスイープガス中の  $\text{H}_2$  ガスと熔融塩中のトリチウムとの反応に関する速度定数に基づき、核融合炉におけるトリチウム回収の適用性を検討した。この結果から、水素混合ガスを用いることにより、核融合炉での熔融塩を用いたブランケットシステムにおけるトリチウムの定常回収が成立する可能性を明らかにした。

本論文の総括として、本研究により得られた結果とまとめ、将来の展望について述べた。

## 博士論文審査結果

Name in Full 氏名 熊谷 公紀

論文題目 フッ化物熔融塩中における中性子反応生成水素同位体の挙動

核融合発電ブランケットのトリチウム燃料増殖材兼冷却材として、FLiNaBe, FLiNaK等の熔融塩が候補となっている。これら熔融塩中でLiと中性子の核反応により生成するトリチウムの化学形や挙動は、安全で効率的なトリチウム輸送・回収の観点から明らかにする必要はあるが、過去の研究のほとんどがガス状の水素同位体を用いており、中性子照射下における熔融塩中のトリチウム挙動を調べた研究は極めて限られていた。そこで、出願者の熊谷公紀氏は、高温熔融塩FLiNaBe, FLiNaKへの中性子照射実験を新たに立ち上げて、これら熔融塩自由表面からの中性子反応生成トリチウムの放出特性とその制御方法について調べるとともに、実験結果に基づいて、核融合発電炉におけるトリチウム燃料の定常回収の成立性の検討を行った。

出願者はまず、原子炉や加速器を用いた中性子実験では、施設の利用時間やフラックス安定性の観点から、非常に長い時定数を持つトリチウム挙動を観測することが困難になると考え、過去に例がないAm-Be中性子線源を用いた熔融塩への照射実験の提案と装置構築を行った。これにより、非常に安定した長期間の連続照射実験が可能となり、一週間程度の長い時定数をもつ熔融塩自由液面からHeスウィープガスへのトリチウム放出挙動を定常状態まで測定することに成功した。この結果から、500℃のFLiNaBe, FLiNaKからの中性子反応生成トリチウムの放出速度係数を世界で初めて評価した。

放出トリチウムの化学形の評価については、既存手法による非水溶性成分(HT, T<sub>2</sub>)と水溶性成分(TF, HTO, T<sub>2</sub>O)の分離回収に加え、TF(フッ化トリチウム)とHTO, T<sub>2</sub>O(トリチウム水)を分離するための新しい手法として、TFのみに反応するNaF(フッ化ナトリウム)粉末を用いることを提案した。予備試験で有効性を確かめた後に照射実験に適用した結果、トリチウム回収部へは主にHTO, T<sub>2</sub>Oの化学形で輸送されていることが明らかになった。この原因として、トリチウムの放出速度係数の小さい本実験条件では酸素や水不純物の影響が大きくなるためと考え、放出トリチウムの化学形の制御のために、FLiNaKを対象に、HeスウィープガスにH<sub>2</sub>ガスを混合する試験を行った。これにより、HTとして放出されるトリチウムの割合が増加し、放出速度係数も大きくなることを確認した。

以上の中性子照射下における熔融塩自由液面からのトリチウム放出挙動については、液面に存在する境界層の厚み、及び、トリチウムの拡散係数、溶解度係数によって放出速度が支配されるとする”境膜モデル”に、熔融塩中の拡散や対流の効果を組み合わせた解析を実施した。FLiNaBe, FLiNaKからのトリチウム放出速度係数が同程度であったこと、また、その温度依存性の実験結果から、境膜モデルの各係数の比較考察を行うとともに、Heスウィープガスに混合したH<sub>2</sub>ガスと熔融塩中のトリチウムとの反応速度定数の評価を行

った。

さらに、このトリチウム挙動のモデルと実験結果から評価された放出速度係数、及び、反応速度定数を用いて、核融合発電炉におけるトリチウム燃料の定常回収の可能性を検討し、He スウィープガスに H<sub>2</sub> ガスを混合することにより、定常回収が成立する可能性を明らかにした。

以上のように、本論文では、自ら提案した中性子照射手法、及び、トリチウム化学形評価手法を適用することにより、熔融塩 FLiNaBe, FLiNaK からの中性子反応生成トリチウム放出挙動データを初めて取得するとともに、トリチウム挙動のモデリングと実験データから、将来の核融合発電炉におけるトリチウム回収の成立性を示すことに成功している。この結果について、本審査委員会は本論文が博士学位論文として十分な価値を有するものと判断した。