

Oral presentation | VI. Fusion Energy Engineering : 601-2 Fusion Reactor Material Science (Reactor and Blanket Materials, Irradiation Behavior)

📅 Mon. Mar 13, 2023 4:10 PM - 5:15 PM JST | Mon. Mar 13, 2023 7:10 AM - 8:15 AM UTC | 🏠 Room A 11 Bildg.1F 1101

[1A12-15] Neutron Multiplier and Solid Breeder Materials

Chair: Qiu Xu (Kyoto Univ.)

4:10 PM - 4:25 PM JST | 7:10 AM - 7:25 AM UTC

[1A12] In-situ observation of gas retention behavior in Be using TEM equipped with a mass spectrometer

*Tomoya Nakao¹, Tomoya Sawae¹, Shinsuke Okubo¹, Mitsutaka Miyamoto¹ (1. Shimane Univ.)

4:25 PM - 4:40 PM JST | 7:25 AM - 7:40 AM UTC

[1A13] Changes in Tritium Release Behavior of Li_2TiO_3 - Li_4SiO_4 Mixed Ceramic Materials by Lead Addition Rate

*Asahi Sanfukuji¹, Qilai Zhou², Tan Guangfan³, Makoto Koayashi⁴, Yasuhisa Oya¹ (1. Shizuoka Univ., 2. Wuhan University of Technology, 3. University of Science and Technology Beijing, 4. NIFS)

4:40 PM - 4:55 PM JST | 7:40 AM - 7:55 AM UTC

[1A14] Effect of irradiation dose on tritium release behavior of neutron irradiated Li_2TiO_3 - Li_4SiO_4 mixed ceramic

*Qilai Zhou^{1,2}, Asahi Sanfukuji¹, Tan Guangfan^{1,3}, Oya Yasuhisa¹ (1. Shizuoka Univ., 2. Wuhan Univ. of Technol., 3. The Univ. of Sci. and Technol. Beijing)

4:55 PM - 5:10 PM JST | 7:55 AM - 8:10 AM UTC

[1A15] Comparison of tritium recovery behavior in Li_2TiO_3 - Li_4SiO_4 ceramic pebbles and powder irradiated with neutron

*Guangfan Tan¹, sanfukuji asahi², hirata shiori², Qilai Zhou³, Yasuhisa Oya², Yingchun Zhang¹ (1. University of Science and Technology Beijing., 2. Shizuoka Univ., 3. Wuhan University of Technology.)

5:10 PM - 5:15 PM JST | 8:10 AM - 8:15 AM UTC

Time reserved for Chair

質量分析計直結型透過型電子顕微鏡による Be 中のガス放出挙動のその場観察

In-situ observation of gas retention behavior in Be using TEM equipped with a mass spectrometer

*中尾 智也, 澤江 伴弥, 大久保 慎高, 宮本 光貴

島根大学

イオン銃直結型透過型電子顕微鏡 (TEM) に四重極形質量分析計 (QMS) を導入した装置 (TEM-QMS) を構築し, ベリリウム中の動的なガス放出挙動を微細組織変化と直接関連付けて評価した.

キーワード: ベリリウム, 微細組織, ガス保持特性

1. 緒言

プラズマ対向材料中のガス保持, 放出挙動の理解は, 燃料密度制御や炉の安全性に関わる重要な課題である. これまでの実験では, 昇温脱離法 (TDS) によるガス放出挙動の測定や, 透過型電子顕微鏡 (TEM) による昇温時の微細組織観察を個別の装置で相補的に行い, ガス保持特性を微細組織変化と間接的に結びつけて理解してきた. 本研究では, イオン銃直結型 TEM に四重極形質量分析計 (QMS) を導入した装置 (TEM-QMS) を構築し, ベリリウム中の動的なガス放出挙動を微細組織変化と直接関連付けて評価することを目指した.

2. TEM-QMS の構築

イオン銃直結型 TEM への QMS の導入にあたり, TDS が成立する十分なガス排気速度の確保, ガス放出量の定量評価手法の確立, 残留ガスに対する QMS 検出感度の向上, TEM の像質に与える影響の最小化などの克服すべき課題が挙げられた. 各課題に対し, 条件の最適化や, 適切な機器を整えるなどの試行錯誤を行い, 直径 3mm の小さな TEM 試料においても十分な放出ガス検出感度を有する TEM-QMS を構築した.

3. 結果・考察

構築した TEM-QMS を用いて, 重水素とヘリウムをそれぞれ照射したベリリウム試料の評価を行なった. 図に室温で重水素照射 (3keV-D₂⁺) したベリリウムを TEM-QMS を用いて昇温した際の (a) 重水素放出スペクトルと (b) 微細組織変化を観察した結果を示す. 500 K, および 800 K 付近に重水素放出ピークが見られ, この結果は従来のバルク試料を用いた TDS 測定による結果と概ね一致していた. これは TEM 内の $\phi 3$ mm の小さな試料においてもガス放出を感度よく測定できることを示している. 微細組織変化の観察からは, 重水素, およびヘリウム照射後の試料では, いずれもバブルの形成が見られ, ガス放出ピーク温度付近でその消失がとらえられた. さらに, 重水素とヘリウムのバブル消失挙動には違いが見られ, 重水素は徐々にバブルの収縮が起こり消失したのに対し, ヘリウムはバブルの移動を伴い瞬間的に消失した. 本発表では, 組織変化に伴うガス放出挙動の相違についても報告する.

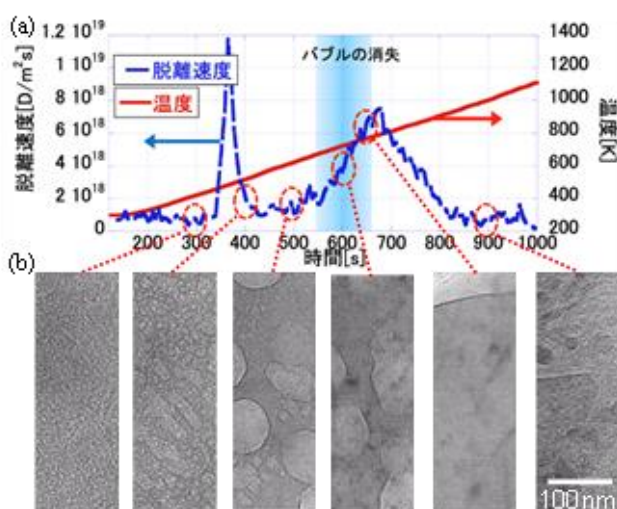


図1 室温で重水素照射後 Be 試料を昇温した際の (a)ガス放出の時間変化と(b)微細組織変化

*Tomoya Nakao, Tomoya Sawae, Shinsuke Okubo and Mitsutaka Miyamoto

Shimane Univ.

Li₂TiO₃-Li₄SiO₄ 混合セラミックス材の鉛添加率による トリチウム放出挙動の変化

Changes in Tritium Release Behavior of Li₂TiO₃-Li₄SiO₄ Mixed Ceramic Materials
by Lead Addition Rate

*三福寺 旭¹, 周 啓来², Tan Guangfan³, 小林 真⁴, 大矢 恭久¹

¹ 静岡大, ² 武漢理工大, ³ 北京科技大, ⁴ 核融合研

鉛添加量の異なる Li₂TiO₃-Li₄SiO₄ 鉛混合セラミックス材料に対し京都大学研究用原子炉(KUR)にて中性子照射を行い、鉛添加量によるトリチウム放出挙動への影響を評価した。照射欠陥を等時加熱アニーリング実験において評価した結果、鉛添加量が 5wt%では 500 K 前後で二段階の欠陥消滅挙動が見られた。鉛添加量 2wt%ではこのような変化は見られなかったため、鉛添加量の増加することによりトリチウム放出挙動が変化する可能性があると考えられる。

キーワード: 固体ブランケット, トリチウム, 炉工学

1. 緒言

核融合炉では重水素とトリチウムによる核融合反応を利用してエネルギーを得る。自然界にトリチウムはほとんど存在しないため、核融合炉内でトリチウムを生成し、回収・利用する必要がある。固体トリチウム増殖材の候補として考えられている Li₂TiO₃-Li₄SiO₄ 混合セラミックスに中性子増倍材である鉛を加えることによりトリチウム生成量の増加や効率的な回収が期待される。本研究ではこれらの試料に対して中性子照射を行い、トリチウム放出挙動と、トリチウム放出挙動に影響を与える照射欠陥の消滅挙動を評価した。

2. 実験

実験には武漢理工大学にて調整された Li₂TiO₃-Li₄SiO₄-2wt%Pb、Li₂TiO₃-Li₄SiO₄-5wt%Pb を使用した。京都大学研究用原子炉(KUR)にて、フラックスは $5.50 \times 10^{12} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ 、フルエンスは $3.96 \times 10^{16} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2}$ の条件下で中性子照射した試料を用い、昇温速度を 10、20、30 K min⁻¹ と変化させ、昇温離脱法(TDS)にてトリチウム放出挙動を評価した。さらに、電子スピン共鳴法(ESR)にて、等温加熱アニーリング実験および等時加熱アニーリング実験を行い欠陥種の同定およびその消滅挙動を評価した。

3. 結論

図 1 に Li₂TiO₃-Li₄SiO₄-5wt%Pb に対して 723 K まで 25 K 間隔で昇温した後に ESR 測定を行い評価した照射欠陥量を示す。各温度での加熱時間は 5 分間である。主要な照射欠陥として、酸素空孔に電子が 1 つ捕捉された状態である E' -center が検出された。アニーリング実験の結果、E' -center は 500 K 付近で急激に消滅するものの、その一部は 700 K 付近まで試料中に残留するという 2 段階の消滅挙動を示した。E' -center はトリチウムの捕獲サイトと考えられているため、上記の消滅挙動はトリチウムの放出と関連すると考えられる。発表では鉛添加量を変化させた試料の TDS および ESR の結果を含めて議論する。

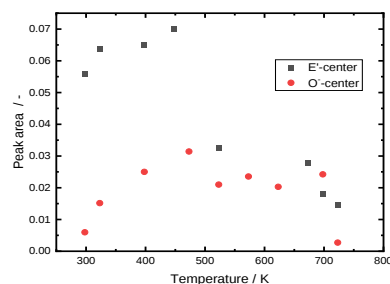


図 1 ESR 等時加熱アニーリング実験結果

* Asahi Sanfukuji¹, Qilai Zhou², Tan Guanagfan³, Makoto Kobayashi⁴ and Yasuhisa Oya¹

¹Fac. Sci., Shizuoka Univ., ²Wuhan Univ. Technol., ³Univ. Sci. Technol. Beijing, ⁴National Inst. Fusion Sci.

中性子照射した $\text{Li}_2\text{TiO}_3\text{-Li}_4\text{SiO}_4$ 混合セラミックにおけるトリチウム放出挙動に及ぼす照射量影響

Effect of irradiation dose on tritium release behavior of neutron irradiated $\text{Li}_2\text{TiO}_3\text{-Li}_4\text{SiO}_4$ mixed ceramic

*周 啓来^{1,2}, 三福寺 旭¹, 譚 広繁^{1,3}, 大矢 恭久¹

¹ 静岡大学, ² 武漢理工大学, ³ 北京科技大学

核融合炉固体トリチウム増殖材の候補であるリチウムセラミックに対して、中性子照射フルエンス及びフラックスを制御し、トリチウム放出挙動を検討した。照射フラックスが増加するとトリチウム放出温度範囲は狭くなる一方、フルエンスが増えと共にトリチウム放出は低温側にシフトすることがわかっていった。

キーワード：トリチウム増殖材, 核融合, 中性子照射, 水素同位体, リチウムセラミック

1. 緒言

リチウムセラミックは D-T 核融合反応によって生じた中性子と核反応してトリチウムを増殖する。先行研究により Li_2TiO_3 と Li_4SiO_4 は同一中性子照射条件では、異なったトリチウム放出温度、速度および量を持つ [1]。そこで、二つの材料を混合することで、トリチウム放出挙動を制御することが期待できる。そのために、 $\text{Li}_2\text{TiO}_3\text{-Li}_4\text{SiO}_4$ 混合セラミック中のトリチウム移行挙動の理解が不可欠である。本研究では、 $\text{Li}_2\text{TiO}_3\text{-Li}_4\text{SiO}_4$ を用いて中性子照射を行い、照射量変化による材料中のトリチウム放出挙動を検討した。

2. 実験

$\text{Li}_2\text{TiO}_3\text{-Li}_4\text{SiO}_4$ 粉末試料は溶液燃焼合成法により作製し、空気中に 923 K で 2 時間煅焼して水分および炭酸ガスを除去する。その後、アルゴン雰囲気中でポリ袋に封入して、京都大学研究用原子炉 (KUR) の炉心付近に導入し中性子照射を行った。KUR の出力は 5 MW の時、照射フラックスは $2.75 \times 10^{13} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ 、照射時間をコントロールしてフルエンスは $8.25 \times 10^{15} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ および $9.9 \times 10^{16} \text{ n cm}^{-2}$ に達した。KUR の出力は 1 MW の時、フラックスは $5.5 \times 10^{12} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ に下がり、フルエンスは $3.96 \times 10^{16} \text{ n cm}^{-2}$ にした。照射した試料を静岡大学にて昇温脱離法 (TDS) により種々の昇温速度で 1113 K まで加熱してトリチウム放出挙動を評価した。

3. 結論

図 1 は中性子照射した $\text{Li}_2\text{TiO}_3\text{-Li}_4\text{SiO}_4$ のトリチウム - TDS スペクトルを示す。昇温速度は 30 K min^{-1} である。幅広い温度範囲で放出した TDS スペクトルは低フラックスで照射した試料のトリチウム放出結果である。また、フラックスを $2.75 \times 10^{13} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ に上げると、スペクトルの幅は狭くなった。さらに、同一フラックスで、フルエンスを $9.9 \times 10^{16} \text{ n cm}^{-2}$ に増加するとスペクトル形状が変化しないものの、トリチウム放出が低温側にシフトすることが示された。このことから、中性子フラックス及びフルエンスの増加に伴いトリチウムは低温側に集中して放出することが示唆された。

参考文献

[1] Zhou Q, et al. Journal of Nuclear Materials, 2019, 522: 286-293.

*Qilai Zhou^{1,2}, Asahi Sanfukuji¹, Guangfan Tan^{1,3}, Yasuhisa Oya¹

¹Shizuoka Univ., ²Wuhan Univ. of Technol., ³The Univ. of Sci. and Technol. Beijing

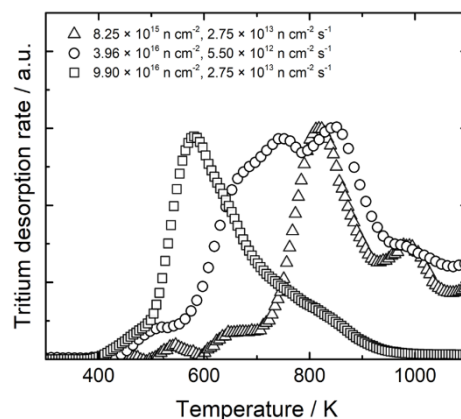


図 1 トリチウム - TDS スペクトル

Comparison of tritium recovery behavior in $\text{Li}_2\text{TiO}_3\text{-Li}_4\text{SiO}_4$ ceramic pebbles and powder irradiated with neutron

*Guangfan Tan¹, Asahi Sanfukuji², Shiori Hirata², Qilai Zhou³, Yasuhisa Oya²,

Yingchun Zhang¹

¹Univ. of Sci. and Technol. Beijing, ²Shizuoka Univ. ³Wuhan Univ. of Technol.

Comparison of tritium release behavior for $\text{Li}_2\text{TiO}_3\text{-Li}_4\text{SiO}_4$ ceramic pebbles and powder was investigated by Thermal Desorption Spectroscopy and Liquid Scintillation Counter. It was found that the tritium release temperature and activation energy of $\text{Li}_2\text{TiO}_3\text{-Li}_4\text{SiO}_4$ ceramic pebbles and powder are different, and the diffusion process mainly controls the tritium migration.

Keywords: $\text{Li}_2\text{TiO}_3\text{-Li}_4\text{SiO}_4$, Tritium release, Neutron irradiation, Diffusion coefficient, activation energy

1. Introduction

As an advanced tritium breeder material, the biphasic $\text{Li}_2\text{TiO}_3\text{-Li}_4\text{SiO}_4$ ceramic pebbles have been paid wide attention for its high lithium content, good tritium release performance, low neutron activation behavior, and excellent mechanical property [1]. At present, the tritium release of lithium-based ceramics is mainly studied in powder, which cannot reflect the actual tritium release behavior of ceramic pebbles filled in the blanket. In this paper, the tritium recovery properties in powder and pebble of $\text{Li}_2\text{TiO}_3\text{-Li}_4\text{SiO}_4$ biphasic ceramic irradiated with neutron were investigated, respectively. This experimental result will provide new theoretical guidance for the tritium release behavior of breeder material in the future.

2. Experiment

The $\text{Li}_2\text{TiO}_3\text{-Li}_4\text{SiO}_4$ ceramic was neutron irradiated with thermal power of 1MW by using the pneumatic tubes 2 (Pn-2) at Kyoto University Research Reactor, which is a light-water moderated tank-type reactor. After neutron irradiation, the samples were sent to Shizuoka University for tritium release. The total tritium (HT and HTO) and tritium gas (HT) release performance for $\text{Li}_2\text{TiO}_3\text{-Li}_4\text{SiO}_4$ ceramic were investigated by TDS from R.T.-1113 K with a heating rate of 30 K.

3. Conclusion

The major chemical form of released tritium for all the samples by TDS was tritiated water (HTO), but the release behavior was quite different among the samples. Fig. 1 shows the tritium TDS spectra for $\text{Li}_2\text{TiO}_3\text{-Li}_4\text{SiO}_4$ powder with different heating rates of 10 K/min, 20 K/min, and 30 K/min, respectively. Two major release peaks can be seen for all tritium TDS spectra at different heating rates. In terms of 30 K/min, peak 1 can be clearly seen at 729 K, which can be attributed to the tritium diffusion process. With the heating rate decreasing, the tritium desorption peak was shifted toward the lower temperature side. Moreover, the experiment also found that the tritium for ceramic pebbles was larger than that of powder under the same heating rate.

References

[1] Q. Zhou, et al., J. Nucl. Mater., 522 (2019) 286-293.

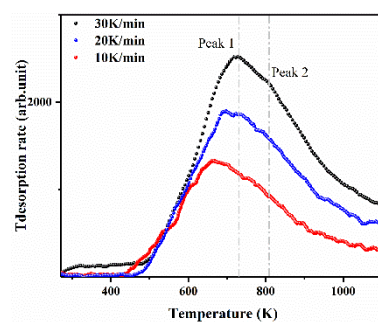


Fig. 1 Tritium release curves for $\text{Li}_2\text{TiO}_3\text{-Li}_4\text{SiO}_4$ ceramic as a function of heating rate.