

データ

トリチウム増殖材データベース (5)

(TiO<sub>2</sub> 添加 Li<sub>2</sub>TiO<sub>3</sub> 固体増殖材)

二村 嘉明

富山大学・水素同位体科学研究センター

〒930-8555 富山市五福 3190 番地

河村 弘，土谷 邦彦

日本原子力研究所

〒311-1394 茨城県東茨城郡大洗町成田町新堀 3607

**Tritium Breeding Materials Data Base for Fusion Reactor  
Blankets(5)(TiO<sub>2</sub> -doped Li<sub>2</sub>TiO<sub>3</sub> Solid Breeding Materials)**

Yoshiaki FUTAMURA

Hydrogen Isotope Research Center, Toyama University

Gofuku 3190, Toyama 930-8555, JAPAN

Hiroshi KAWAMURA and Kunihiko TSUCHIYA

Japan Atomic Energy Research Institute

Shinbori 3607, Narita-cho, Oarai-machi

Higashi-Ibaragi-Gun, Ibaragi 311-1394, JAPAN

**ABSTRACT**

Recently, lithium titanate (Li<sub>2</sub>TiO<sub>3</sub>) has attracted the attention of many researchers. Small pebble-like shapes of Li<sub>2</sub>TiO<sub>3</sub> have been selected as the most suitable for the design of a fusion blanket. As the fabrication method of Li<sub>2</sub>TiO<sub>3</sub> pebbles, the wet process is most advantageous from the view point of various factors such as mass production. However, the grain size of Li<sub>2</sub>TiO<sub>3</sub> pebbles fabricated by the wet process was larger than that of Li<sub>2</sub>TiO<sub>3</sub> pebbles fabricated by the rotating granulation method. Therefore, materials such as TiO<sub>2</sub>-doped Li<sub>2</sub>TiO<sub>3</sub> that have

improved properties such as microcrystal and moisture absorption properties have been developed .

In this report, the thermal properties of  $\text{TiO}_2$ -doped  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  pellets are evaluated.

## 1. はじめに

$\text{Li}_2\text{TiO}_3$  固体増殖材は低温時のトリチウム放出特性、化学的安定性等の点から最近特に注目され、核融合炉増殖ブランケット内には、熱応力低減等のため微小球（ペブル）の形で装填する方法が提案されている。その増殖材には増殖比の向上及び高中性子照射下での化学的安定性の向上等のため、微細結晶粒径が要請される<sup>1) 2)</sup>。

ペブルの製造には、大量製造性、製造コスト等の観点から湿式造粒法が選定されるが、湿式造粒法による結晶粒径は転動造粒法による粒径より大きく結晶の微細性、吸湿特性等の改善が求められた。これらの問題に対処するために既存材料の  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  に  $\text{TiO}_2$  を添加したものが開発された。この方法により、焼結密度が 90%TD (TD : 理論密度) 以上で、かつ結晶粒径 10 $\mu\text{m}$  以下の微小球が得られるようになった。さらに、湿式造粒法により直径は約 0.5mm、結晶粒径は 5  $\mu\text{m}$  以下の  $\text{TiO}_2$  添加  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  ペブルの作成が可能となった<sup>3)</sup>。

トリチウム増殖材に要求される主要機能と材料特性を Table 1 に示し、その使用環境を Table 2 に示す。

置換型湿式造粒法で製造された  $\text{TiO}_2$  添加量が異なる  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  改良材の熱特性を以下に報告する<sup>4) 5)</sup>。置換型湿式造粒法の製造過程を示すフロー線図を Fig. 4 として最後に示す。

Table 1 トリチウム増殖材に要求される主要機能と材料特性

主要機能	要求される材料特性
高いトリチウム増殖特性	高いリチウム含有率 生成されるトリチウムの容易な放出・回収
適切な増殖材温度保持	高い熱伝導率
健全性の保持	良好な耐放射線損傷特性 高い機械強度、耐久性 高い化学的安定性、組織安定性 構造材等との良好な共存性
安全性	低い誘導放射能 冷却材との低い反応性
製作性	廉価で大量製造が可能 容易な取り扱い

Table 2 トリチウム増殖材の使用環境

項目	実験炉(ITER)	原型炉	実証炉
Li 燃焼度 (%)	~5	5~20 (2年毎に交換)	5~10 (2年毎に交換)
照射損傷量 (dpa)	~20	~80	~40
核発熱 (MW/m <sup>2</sup> )	~50	~150	~150
使用温度範囲 (°C)	200~400	400~1000	600~1000*
雰囲気	ヘリウムガス (~0.1Mpa)	ヘリウムガス (~0.1Mpa)	ヘリウムガス (~10Mpa)

\*Li<sub>2</sub>O の例であり、増殖材の種類により多少異なる。

## 2. TiO<sub>2</sub> 添加 Li<sub>2</sub>TiO<sub>3</sub> の熱特性データ

### 2.1 ペブルの焼結特性

TiO<sub>2</sub> 無添加 Li<sub>2</sub>TiO<sub>3</sub> 及び TiO<sub>2</sub> 添加 Li<sub>2</sub>TiO<sub>3</sub> ペブルについて、焼結前の Li<sub>2</sub>TiO<sub>3</sub> 粉末の粒子径を変化させた場合の焼結密度と結晶粒径の関係を Fig.1 に示す。Li<sub>2</sub>TiO<sub>3</sub> 粉末の粒子径を 10 μm から 0.6 μm に変えたら Li<sub>2</sub>TiO<sub>3</sub> ペブルの結晶粒径は 50 μm から 5 μm に減少した。TiO<sub>2</sub> 粉末を Li<sub>2</sub>TiO<sub>3</sub> ペブルに添加した時のペブルの結晶粒径は 5 μm 未満であった<sup>4)</sup>。

TiO<sub>2</sub> 添加量を変化させた場合の焼結温度と密度の関係を Fig. 2 に示す。この図より、焼結温度が 950°C と 1350°C の時には TiO<sub>2</sub> 添加量は TiO<sub>2</sub> 添加 Li<sub>2</sub>TiO<sub>3</sub> の密度変化に何の影響も及ぼさない。一方焼結温度が 1150°C の時、焼結密度は TiO<sub>2</sub> 添加量に依存し、TiO<sub>2</sub> 5mol% 添加 Li<sub>2</sub>TiO<sub>3</sub> ペブルの焼結密度は約 85% T.D. であり、他のもの (0mol%、10mol%、15mol% 添加) より大きい。

従って、本報告では TiO<sub>2</sub> 5mol% 添加 Li<sub>2</sub>TiO<sub>3</sub> ペブルの焼結特性が最良であるとした。焼結温度 1150°C での TiO<sub>2</sub> 5mol% 添加 Li<sub>2</sub>TiO<sub>3</sub> ペブルの焼結特性を Table 3 に示す。

Table 3. TiO<sub>2</sub> 5mol% 添加 Li<sub>2</sub>TiO<sub>3</sub> ペブルの焼結特性<sup>4)</sup>

特性	測定値
焼結密度	85.6 %T.D.
結晶粒径 (grain size)	< 5 μm
粒子径 (particle size)	0.26 ± 0.10 mm
真円度 (長径と短径の比)	1.15 ± 0.10
圧壊荷重	3.4 N

### 2.2 TiO<sub>2</sub> 添加 Li<sub>2</sub>TiO<sub>3</sub> の熱特性

TiO<sub>2</sub> 添加 Li<sub>2</sub>TiO<sub>3</sub> ペレット (直径 8 mm、厚さ 2 mm、密度 8.3 ± 2 %T.D.) の熱伝導率を Fig. 3 に示す。この図によれば、TiO<sub>2</sub> 5mol% 添加迄の Li<sub>2</sub>TiO<sub>3</sub> の熱伝導率は TiO<sub>2</sub> 無添加の熱伝導率とほぼ同じである。773K では 10mol% 添加 Li<sub>2</sub>TiO<sub>3</sub> 熱伝導率は 0mol%、2.5mol% および 5mol% 添加のもの熱伝導率より約 1.1 倍大きい。

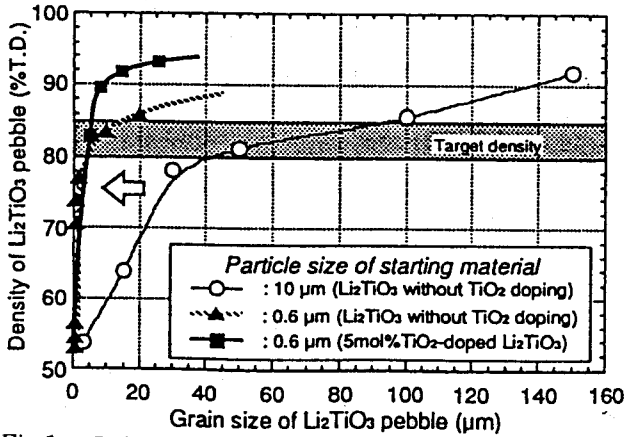


Fig.1 Relationship between grain size and sintering density of  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  and  $\text{TiO}_2$ -doped  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  pebbles.<sup>4)</sup>

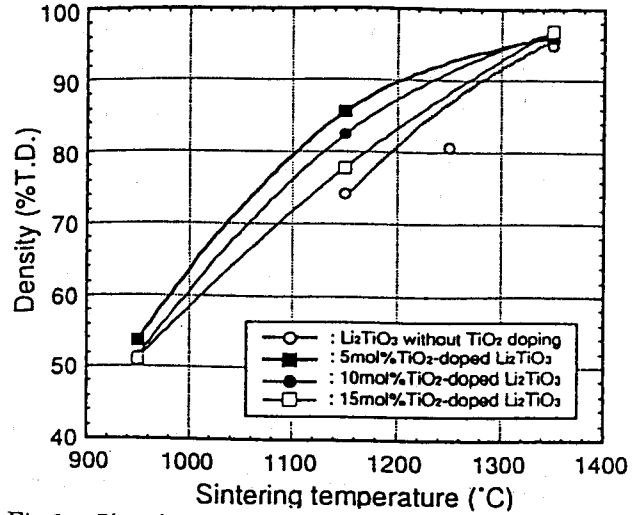


Fig.2 Sintering properties of  $\text{TiO}_2$ -doped  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  pebbles on  $\text{TiO}_2$  content.<sup>4)</sup>

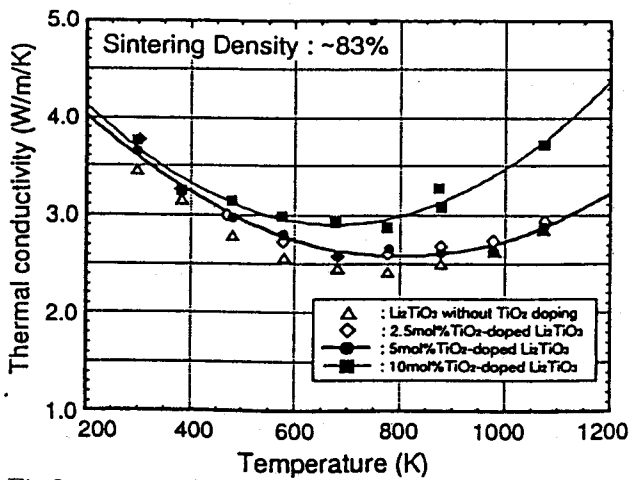


Fig.3 Temperature dependence on thermal conductivity of  $\text{TiO}_2$ -doped  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  pellets.<sup>4)</sup>

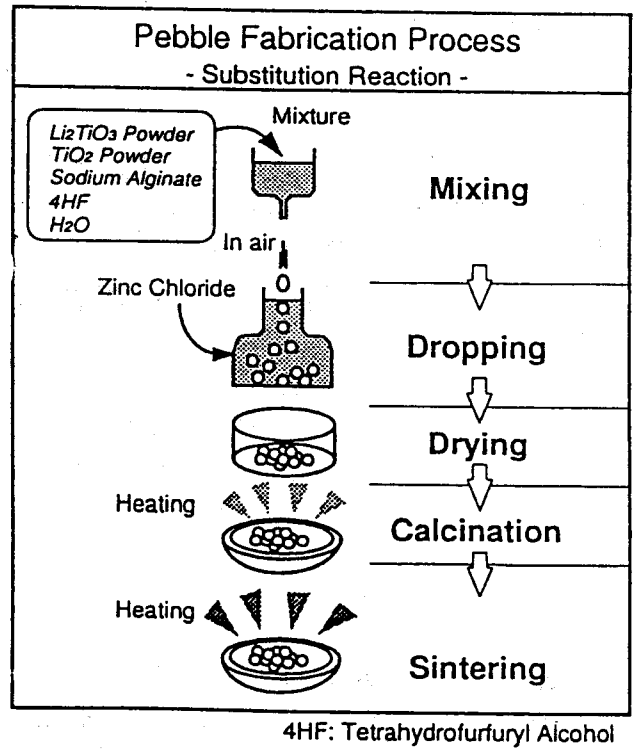


Fig.4 Flow chart of the fabrication process of  $\text{TiO}_2$ -doped  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$  pebbles by this wet process with substitution reaction.  
4HF: Tetrahydrofuryl Alcohol

### 3. 評価と今後の課題

置換型湿式造粒法で作成した TiO<sub>2</sub> 添加 Li<sub>2</sub>TiO<sub>3</sub> ペブルは高い焼結密度を有し、かつ良好な熱伝導性を示した。熱伝導率に関しては TiO<sub>2</sub> 添加量と次ぎの関係が認められた。

- (1) 5%molTiO<sub>2</sub> 添加迄の TiO<sub>2</sub> 添加 Li<sub>2</sub>TiO<sub>3</sub> の熱伝導率は TiO<sub>2</sub> 添加無しの熱伝導率とほぼ同じである。
- (2) 10%molTiO<sub>2</sub> 添加 Li<sub>2</sub>TiO<sub>3</sub> の熱伝導率は 773K では 5%mol 未満添加のものの熱伝導率より約 1.1 倍以上大きく、特に高温時の熱伝導を向上させる。

上記のように TiO<sub>2</sub> 添加 Li<sub>2</sub>TiO<sub>3</sub> は造粒性、結晶の微細性および熱伝導性の観点からブランケット増殖材料として大いに有望であると考えられる。しかし、その実用性を検証するためには、熱サイクル特性、トリチウム放出挙動および照射後特性等 TiO<sub>2</sub> 添加 Li<sub>2</sub>TiO<sub>3</sub> に関するデータを収集する必要がある。

#### 謝辞

本データベース (5) の作成に際し絶えずご助言いただいた富山大学水素同位体科学研究センター長の渡辺教授に深甚な謝意を呈します。

#### 文献リスト

- 1) P. A. Finn, K.Kurasawa, S.Nasu, K.Noda, T.Takahasi, H.Takesita, T.Tanifuji and H.Watanabe, "Solid Oxide Compounds – Properties Necessary for Fusion Application," *Proc. IEEE 9th Symp. on Engineering Problems of Fusion Research*, Vol. II, 1200 (1981).
- 2) J.M.Miller, H.B.Hamilton and J.D.Sullivan, "Testing of Lithium Titanate as an Alternate Blanket Material," *J. Nucl. Mater.*, 212-215, 877(1994).
- 3) K.Tsuchiya, and H.Kawamura, "Results on Development of Lithium Titanate Pebbles," *Proc. the 8th International Workshop on Ceramic Breeder Blanket Interactions*, Colorado Springs, Oct. 6-8, 1999, p.122, (1999).
- 4) K.Tsuchiya, and H.Kawamura, "Characterization of TiO<sub>2</sub>-doped Li<sub>2</sub>TiO<sub>3</sub>," *Proc. the 14th Topical Meeting on the Technology of Fusion Energy*, Utah, Oct. 15-19, 2000, p.624-628. (2000).
- 5) Y.Futamara, H.Kawamura, and K.Tsuchiya, "Breeding Material Data Base for Fusion Reactor (3) (Li<sub>2</sub>TiO<sub>3</sub> Solid Breeder)," *Ann. Rept. Hydrogen Isot. Res. Ctr. Toyama Univ.* 17(1997), p.97-109.