連載
講座核融合トリチウム研究最前線
—原型炉実現に向けて—

第5回 液体増殖材開発の最前線

東京工業大学 近藤 正聡,
核融合科学研究所 田中 照也

核融合炉の燃料増殖ブランケットに不可欠な機能を全て兼ね備えている液体増殖材の開発研究が着実に進展している。液体増殖材の実用上の課題として、材料共存性の改善やトリチウム輸送制御法の確立が挙げられるが、これらは液体増殖材の流動性がもたらす特殊な界面反応や輸送の性質によるものである。しかし、高度な純度制御技術が開発された事により、材料共存性改善の糸口が見える状況になってきた。また、斬新な発想に基づくトリチウムの輸送制御技術も開発されている。一方で、設計研究の進展により液体ブランケットのデザインウインドウも絞りこまれてきた。本稿では液体増殖材研究の最前線を紹介する。

KEYWORDS: *Fusion, Blanket, Tritium breeder, Neutron multiplier, Liquid metal, Molten salt,*

I. はじめに

核融合炉の燃料自己充足性を総合的に満足するブランケットシステムを設計する上で、優れた性能を有する燃料増殖材の開発が不可欠である。燃料増殖材には、固体増殖材と液体増殖材の2種類があり、これらの違いは燃料であるトリチウム(T)生成に必要なリチウム(Li)という金属元素を内含する形態にある。固体増殖材はリチウム酸化物を加工した微小球である。一方、液体増殖材はリチウムを含む高温融体である。燃料増殖材が燃料や熱エネルギーを輸送する冷媒としての機能を備えた事により、冷却系や燃料回収系などをブランケット内に別途設置する必要がなくなり、構造の単純化が期待できる。また、核融合炉稼働中における増殖材組成の連続的な調整も可能となり、運用上の観点からも利点がある。液体増殖材を用いたブランケット“液体ブランケット”は、燃料増殖やエネルギー変換、放射線の遮蔽という核融合炉に不可欠な機能を単純構造で達成しうる先進的な燃料増殖システムである。

液体増殖材を原型炉に実装するまでに克服すべき課題として、構造材料との共存性の改善やトリチウムの移行制御技術の確立などが挙げられる。原型炉開発総合戦略

タスクフォースがとりまとめたアクションプランでは、液体ブランケット開発は、要素技術開発と設計に資するデータベースの整備を進めながら、実環境下を模擬する条件で技術統合型試験を実施し、原型炉テストブランケットモジュール(TBM)の設計検討へと繋げていく計画が提案されている。約15年にわたる長期の開発計画である。本稿では、原型炉における実環境下試験を目指して展開される研究の最前線を紹介する。

II. 液体増殖材の特徴と従来の課題

液体ブランケットとして、自らが冷媒を兼ねる自己冷却方式、Heを冷媒とするHe冷却方式、液体増殖材に加えて加圧水等の冷媒を併用する二重冷却方式の3つの方式が提案されている。液体増殖材の性能を最も有効に活かせるのは、図1に示す自己冷却方式である。液体増殖材は真空容器を横断するように設置されたブランケットループ内を循環し、中性子との核反応により生成したトリチウムや熱エネルギーを回収系まで輸送する。液体増殖材の温度は、中性子照射領域の出口付近で約550℃であり、熱交換器を通過したあたりで約400℃となる。液体ブランケットは常圧のシステムである。

表1に、液体増殖材として期待されている液体金属リチウム、液体鉛リチウム(Pb-Li)合金、フッ化物溶融塩(FLiBe, FLiNaBe)の特徴を示す。それぞれが固有の性質を有する一方で、克服すべき課題も異なる。液体Liは融点が180℃と低く、優れた伝熱性能を有する流体である。しかし、化学的に活性な事に加え、水素(同位体)との親和性が高いためトリチウム回収が困難である事が

Research frontier of tritium for fusion reactor-toward the DEMO reactor-(5) ; Research frontiers of liquid breeders for fusion reactors : Masatoshi Kondo, Teruya Tanaka.

(2018年6月4日 受理)

■前回タイトル

第4回 固体増殖材開発の最前線

表1 液体増殖材の特性と課題

	長所	課題
液体金属リチウム (Li)	優れた熱輸送特性(低 Pr 数) 低融点(180℃), 高沸点	化学的活性, 純度管理(C, N, O) MHD 効果(圧力損失), トリチウム回収
液体鉛リチウム合金 (Pb-Li)	Li よりも不活性, T 回収の容易さ 優れた伝熱性能(低 Pr 数), 高沸点	高比重, 材料共存性, MHD 効果(圧力損失), トリチウム透過漏洩
フッ化物溶融塩 (FLiBe, FLiNaBe)	低 MHD 効果, 化学的安定性, 高沸点	高粘性, 高融点, 材料共存性

課題とされてきた。また、材料共存性を左右する純度管理技術の開発も重要である。

液体鉛リチウム合金は、共晶組成 (Li 濃度: 約 15.4mol%) 付近の条件で使用される事が想定されている。この時の融点は 235℃ である。鉛は高エネルギー中性子に対して中性子増倍材として機能するため、合金中のリチウム濃度が低い割には高い燃料増殖性能を維持する事ができる。更に、鉛と合金化した事により、課題とされてきたリチウムの化学的活性度が上手く抑えられている。しかし、水の半分程度の比重しかないリチウムに、水の 10 倍近い比重の鉛を合金化した事で、比重が大きくなってしまふ点が欠点である。鉛合金特有の材料共存性の悪さが課題である事に加え、水素(同位体)溶解度が低い事が原因で生じるトリチウムの透過漏洩対策も必要となる。また、磁場下で MHD 効果のために大きな圧力損失が発生する事も課題とされてきた。欧州が国際熱核融合炉 (ITER) の TBM 試験や原型炉での採用を念頭に研究を展開している。

フッ化物溶融塩に関しては、FLiBe (LiF:BeF₂=66:34 (モル比)、融点は 458.4℃、もしくは LiF:BeF₂=55:45 (モル比)、融点約 400℃) を燃料増殖材とする液体ブランケットの設計が進められている。一方で、融点が 305℃ と比較的低い FLiNaBe (LiF:NaF:BeF₂=31:31:38 (モル比)) の使用も検討されている。鉛リチウム合金と同様に、構造材料との共存性や水素溶解度が低い事が課題とされている。しかし、電気伝導率が小さい溶融塩を用いれば、MHD 効果の影響を受けづらいという利点がある。

これらの高温融体に共通して、常圧条件でも沸点が高いという特徴があり、現在想定されている条件以上にブランケット稼働温度を引き上げる事も可能である。構造材料等の高度化により更なる高温条件での稼働が可能になれば、電力供給に加えバイオマス起源の燃料生成や水素製造などを同時に行う先進的なエネルギー変換構想も実現できる¹⁾。

Ⅲ. 液体増殖材と放射線との相互作用： 核的性能評価^{2,3)}

液体ブランケットにおける燃料の生産は、核融合反応により生成された中性子と液体増殖材による核反応を利用して行う。リチウムは、⁶Li と ⁷Li という二つの同位体から構成されている (⁶Li:⁷Li=7.5:92.5 モル比)。⁶Li によ

る ⁶Li(n,α)T 反応は低エネルギー中性子との反応確率が大い。 ⁷Li による ⁷Li(n,n'α)T 反応は 2.8MeV 以上の中性子で生じる閾値反応であるが、トリチウム生成と同時に中性子が放出されるため、これを再度トリチウムの生成に利用できる利点がある。

核融合炉設計では、粒子排気や加熱、計測等のために設けられる開口部からの中性子漏洩、またリチウム以外の材料元素による中性子吸収をすべて考慮したうえで、炉心プラズマで消費される以上の燃料を生産し燃料の自己充足性を達成する事、すなわちトリチウム増殖比 (Tritium Breeding Ratio (TBR)) が 1 以上となる設計が必須となる。磁場閉じ込め核融合炉では、炉心プラズマと超伝導マグネットの間の空間厚みを概ね 100cm-180cm とする設計例が多い。この空間内に液体ブランケットに加え、超伝導マグネットの放射線損傷と核発熱の低減を目的とした放射線遮蔽体、真空容器壁等を配置する必要がある、ブランケットを設置可能なスペースは、概ね 35cm-90cm 程度の厚さしかない。この条件でトリチウム増殖比を 1 以上とする事が液体ブランケット成立の鍵を握る。

液体リチウムを燃料増殖材とした場合、ブランケットの厚さが 50cm 程度あれば ⁶Li を濃縮しなくても TBR > 1.0 が成立する見通しが示されている。また、⁶Li を濃縮することで TBR はさらに増加し、⁶Li の割合が 35% 程度の時に最大となることが示されている。更に、中性子増倍材 (ベリリウム) をブランケット前方に設置して (n, 2n) 反応を利用することにより、燃料増殖性能を大きく向上させる事も可能である。中性子増倍材を使用する場合には、⁶Li の濃縮比をさらに上げることで (ほぼ全ての設計例で、増殖材の ⁶Li 濃縮比の最大値は 90%)、より厚みが薄いブランケットが設計可能となる。

液体鉛リチウム合金は、リチウムの原子数割合が小さいものの、鉛による (n, 2n) 中性子増倍反応を利用したトリチウム燃料の増殖が見込まれている。この (n, 2n) 反応のエネルギー閾値は 6.8MeV でありベリリウムの閾値 (1.8MeV) よりも高い。また低エネルギー中性子に対する吸収断面積もベリリウムよりも大きいため、中性子増倍材としての核特性はベリリウムの方が優れている。磁場閉じ込め核融合炉では、⁶Li を 90mol% に濃縮した鉛リチウム合金を使用することで、ブランケットの厚さをおよそ 60cm とする設計がなされている。また、液体鉛リチウム合金はレーザー核融合炉の燃料増殖材としても

期待されている。レーザー核融合炉では、プラズマの閉じ込めに必要な超電導コイルを配置しないため、ブランケット設置空間の制限を受けない。構造材料の割合を低く抑えることで、 ${}^6\text{Li}$ 濃縮をせずに燃料の自己充足性が達成可能である見通しが示されている。

フッ化物溶融塩増殖材(FLiBe, FLiNaBe)についても、中性子増倍材としてベリリウムをブランケット前方に配置したり、 ${}^6\text{Li}$ を90%まで濃縮したりする事で、35cm程度の比較的薄いブランケットが設計可能であるとされている。例えば、中性子増倍材と組み合わせ使用し、ブランケット中の構造材料の割合を11%程度に抑えることにより、天然同位体比のFLiBeを用いたブランケットが設計可能である。

図2に使用後の各液体増殖材の接触線量率、及び崩壊熱の減衰を示す。ここでは中性子壁負荷 $1.5\text{MW}/\text{m}^2$ とし、5年間連続で運転(中性子照射)した事を想定して評価した。フッ化物溶融塩では、運転停止後の線量率、崩壊熱ともに、半減期110分の ${}^{18}\text{F}$ が ${}^{19}\text{F}(\text{n},2\text{n}){}^{18}\text{F}$ 反応(閾エネルギー:11MeV)で生成した事により、液体金属と比較して高い値となっている。Naを含むFLiNaBeでは、 ${}^{24}\text{Na}$ (半減期:15時間, ${}^{23}\text{Na}(\text{n},\gamma){}^{24}\text{Na}$ 反応), ${}^{22}\text{Na}$ (半減期:2.6年, ${}^{23}\text{Na}(\text{n},2\text{n}){}^{22}\text{Na}$ 反応, 閾エネルギー:13MeV)が生成されるためにさらに減衰が遅くなる。FLiNaBeはFLiBeと比較して融点が約 100°C 低く、十分なTBRを確保できる見通しがあることが魅力的であるが、Naの放射化がブランケット交換作業や漏洩時にもたらす影響について、今後の設計研究において詳細に検討を進める必要がある。ここでは、増殖材中で生産されるトリチウムは運転中に燃料として回収されるため、崩壊熱の計算では考慮していない。また、自己冷却方式の液体ブランケットを有する核融合炉を想定すると、液体増殖材はトリチウム・熱回収のために炉外まで循環し希釈されるため、実際の線量率、崩壊熱の大きさは図2の値よりも小さな値となる。

IV. 液体増殖材の流動性^{4,5)}

液体金属の伝熱特性は優れている。しかし、磁場下を直交して流れる際にMHD効果により大きな圧力損失を発生してしまう。このMHD圧力損失を抑制するために、流路内を電気絶縁性被覆で覆う技術や、構造材料と液体増殖材の間に炭化ケイ素材料を絶縁材料として挟み込む構造が検討されている。また、最近になり矩形流路内の三方向を複層コーティングにより電氣的に絶縁する技術も開発された。鉛リチウム合金の伝熱特性に関しては、信頼性の高いデータが乏しい状況であった。しかし、ブローダーアプローチ活動における共同研究を通じて、世界最高純度レベルの合金が開発され、鉛リチウム合金本来の優れた伝熱特性が明らかになりつつある。ま

た、低融点の溶融塩型燃料増殖材として期待されているFLiNaBeに関しては、シミュレーション研究により熱流動特性のデータベースが拡張されている。

V. 液体増殖材における気・液界面の課題：トリチウムの輸送制御^{6~8)}

液体リチウムや液体鉛リチウム合金は、中性子との核反応により生成したトリチウムを原子の状態で内包し輸送する。液体リチウムはトリチウムとの化学的親和性が高く、平衡溶解度が高い。そのため、ブランケットループからのトリチウム透過漏洩量は小さくなると想定されている。一方で、液体鉛リチウム合金は液体リチウムの100万分の1程度の平衡溶解度しか示さない。そのため、鉛リチウム合金からのトリチウム放出量が多くなり、透過漏洩対策をしなければならない。フッ化物溶融塩では、生成したトリチウムは近傍に存在する遊離フッ素と結合してフッ化トリチウムとして溶存する。熱力学的に不安定なフッ化トリチウムは構造材料と化学的に反応し腐食を促進してしまう。最終的にトリチウムは分子状態で溶存し、その溶解度は液体鉛リチウム合金と同程度である事が報告されている。最近になり、水素(同位体)溶解度の高い金属の微粒子を用いてトリチウムの透過漏洩を抑制する技術が開発された。直径が数十ミクロン程度のチタン微粒子を溶融塩中に分散させてトリチウムをチタン微粒子内に溶解させる事により、見かけ上の水素(同位体)溶解度を上昇させる事ができる。溶解したトリチウムは、マイクロ波加熱により溶融塩中に分散するチタン微粒子だけを選択的に加熱する事により放出させて回収する事が可能である。液体ブランケットにおけるトリチウム回収方法として、ガス対流方式や金属壁透過回収方式、落下液滴方式等に関する研究が活発に実施されている。また、液体増殖材中のトリチウム濃度を監視する手法として、プロトン導電性固体電解質センサーや金属透過窓方式が提案されている。今後は、核融合科学研究所に建設された「熱・物質流動ループ装置 Oroshi-2」等の施設を利用して、模擬環境下における水素(同位体)の連続回収試験等が行われる計画である。

VI. 液体増殖材における固・液界面の課題：材料共存性の改善^{9~11)}

液体リチウムの材料共存性は、液体内に溶存する窒素、酸素、炭素により大きく左右される。例えば、Li中に溶存する窒素の濃度が数十wppm程度と微量であったとしても、鋼材表面においてリチウムと共に鋼材構成元素と化学的に結合する事により不安定な化合物を形成し、腐食を促進してしまう。また、溶存酸素も同様の腐食促進機構があると推察されている。一方で、窒素や酸

素の溶存濃度を低く抑える事ができれば共存性を大幅に改善する事ができる。国際熱核融合炉材料照射施設の工学実証・工学設計活動(IFMIF/EVEDA)を通じて、様々な非金属不純物の制御方法が開発された。窒素はFe-Ti合金を用いたホットトラップにより回収可能である事がわかった。また、酸素はコールドトラップ技術により溶存濃度を10wppm以下程度にまで低下させられる事が分かった。また水素(同位体)に関しては、イットリウムを用いたホットトラップが開発され、1wppm以下という極めて低い溶存水素濃度に維持する事が可能となった。溶存炭素濃度が極端に低くなりすぎると鋼材の脱炭現象を起こしてしまう。そのため、溶存炭素濃度は低くなりすぎないように適正に制御する事が要求される。

液体鉛リチウム合金の材料共存性は、鉛とリチウムの両方の傾向を併せ持つ。鉛成分は、鋼材構成元素の鉄やクロムに対して一定の溶解度を有し、鋼材成分溶出型の腐食を促してしまう。これに加えてリチウム成分は、前述のような非金属不純物加速型の腐食を引き起こすことが最近の研究から明らかになった。また、図3に示すように、腐食(コロージョン)により材料表面に形成されたポーラス層が流動する液体金属により僅かずつ削り取られて発生する珍しいエロージョン現象が発見された。この現象はコロージョン・エロージョン(Corrosion-erosion)と呼ばれ、腐食による材料の減肉速度を大きくしてしまう。同様の現象は、流動鉛リチウム合金中だけでなく流動リチウム中でも生じる事が確認されている。最近の研究成果から、材料の組成や微細組織等の様々な条件により発生しやすさや規模が異なる事がわかった。図4は、酸化物の標準自由生成エネルギーや各種液体金属の想定される酸素ポテンシャルを示す。第4世代原子炉の候補冷却材である液体鉛ビスマス共晶合金(LBE)の共存性改善を図った場合には、材料表面をアルミナ等の緻密な酸化被膜で保護する事によりエロージョン発生の原因となる腐食を抑制する事ができた。しかし、液体リチウムや液体鉛リチウム合金の酸素ポテンシャルは極めて低いため、液体増殖材中で構造材料表面を保護できる酸化物の種類は限定されてしまう。極めて安定な熱力学的特性を有する ZrO_2 や Al_2O_3 、 Y_2O_3 、 Er_2O_3 などであれば持ちこたえられる事がわかってきた。

フッ化物溶融塩は液体金属とは異なる腐食性を持っている。トリチウム生成に伴い溶融塩中に化学的に不安定なフッ化トリチウムが発生してしまうため、鋼材表面のフッ化反応を介した腐食を促進してしまう。一方で、水分が溶存した条件では鋼材表面の酸化腐食も生じるが、これはベーキング処理や電析により溶存水分を除去する事により十分に抑制可能である。また、トリチウム溶解度を改善するために添加するチタン微粒子がフッ化トリチウムによる腐食を抑制する効果もある事がわかった。

VII. まとめ：原型炉における液体ブランケットテストモジュール試験に向けて

このように液体増殖材の開発研究が進み、課題とされてきた材料共存性やトリチウム透過漏洩対策・回収技術に関して見通しが得られる状況となった。今後は、これまでに開発されてきた要素技術を統合し、実環境に近い条件で液体ブランケットの性能や安全性を検証する試験を実施するステージを迎える。高エネルギー中性子環境における液体ブランケットの性能を明らかにするには、国内外の様々な研究機関と一層の連携が必要である。日本は液体ブランケットに関して代表的な統合試験であるITER-TBM計画を提案していない。しかし、核融合科学研究所のOroshi-2に代表されるような統合試験装置や、それらによる研究計画を見る限り、国内研究機関は原型炉テストブランケットモジュール試験実施に必要な技術的ポテンシャルを備えつつあるように思える。一方で、日本政府が提唱する“Society5.0”のような未来社会においてもエネルギー源としての役割をしっかりと果たせるように、水素製造などの様々な技術的可能性を開拓する事も欠かせない。核融合原型炉試験に向けて、放射線、材料、機械、化学等の異分野融合を得意とする液体ブランケット分野の研究者の更なる活躍にご期待頂きたい。

－ 参 考 資 料 －

- 1) S. Konishi, Fusion Science and Technology, 47, 4 (2005) 1205-1209.
- 2) A. Sagara et al., Fusion Engineering and Design, 87 (2012) 594-602.
- 3) T. Tanaka et al., Plasma and Fusion Research, 7 (2012) 2405132.
- 4) H. Shishido et al., Fusion Science and Technology, 72, 3 (2017) 382-388.
- 5) M. Aoyagi et al., Fusion Engineering and Design, 85 (2016) 1181-1184.
- 6) 片山一成, 興野文人, プラズマ・核融合学会誌, 92, No.2 (2016) 136-141.
- 7) J. Yagi et al., Fusion Engineering and Design, Fusion Engineering and Design, 124 (2017) 748-751.
- 8) T. Watanabe et al., Fusion Engineering and Design, article in press (2018).
- 9) M. Kondo et al., Fusion Engineering and Design, article in press. (2018). (DOI: 10.1016/j.fusengdes.2018.05.062)
- 10) K. Hiyane et al., Fusion Eng. Des. 109-111 (2016) 1340-1344.
- 11) G. Yamazaki et al., Fusion Engineering and Design. Article in press (2018). (DOI: 10.1016/j.fusengdes.2018.05.062)

著者紹介

近藤正聡 (こんどう・まさとし)
東京工業大学科学技術創成研究院先端原子力研究所
(専門分野/関心分野)核融合炉や次世代型高速炉における液体金属技術や材料共存性に関する研究を実施している

田中照也 (たなか・てるや)
核融合科学研究所 ヘリカル研究部核融合システム研究系
(専門分野/関心分野)ヘリカル型核融合炉の中性子工学設計, 機能材料研究

図1 自己冷却方式の液体ブランケットシステムの概略

図2 液体増殖材の(上)接触線量率, 及び(下)崩壊熱の減衰

図3 EPMA分析による低放射化フェライト鋼表面腐食層断面(Fe)マッピング像; 鉛リチウム流動場で生じたコロージョン・エロージョン現象の様子を表す⁹⁾

図4 液体増殖材の溶存酸素ポテンシャルと代表的な酸化物の標準自由生成エネルギー(液体金属中の溶存酸素濃度は溶解度の1/100程度と仮定した。)