リチウム鉛流れの UVP 計測と核融合炉工学研究*

植木 祥高**

UVP Measurement of Lead-Lithium Flow and Nuclear Fusion Engineering Research

Yoshitaka Ueki

1. はじめに

液体金属と聞けば、映画『ターミネーター 2』に登場する液体金属製のアンドロイド (T-1000) を思い起こす方も少なくないかと思う。液体金属製のアンドロイドは幸か不幸か未だ実在していないが、液体金属は既に工業の現場においては取り扱われており、他方では将来の活用に向けて研究開発が行われている。いずれも高温溶融状態の液体金属となるが一例としては、鉄鋼業の分野においては溶融状態の鉄の取り出しや鋳造を行っている。また、核分裂炉や核融合炉といった分野においてはエネルギー取り出しの伝熱媒体としての利用が検討されている。いずれの分野においても、高温液体金属の伝熱が重要な現象ということが共通している。

伝熱の評価には流れ場の情報が不可欠であるが、液体金属は不透明流体であるため、粒子画像流速計測法 (PIV) といった光学計測は適用できない。また、融点が高い液体金属の流れ場の計測となると、高温環境下での計測は材料の耐久性の面から困難なものとなる。このような背景から、高温液体金属の流れ場の評価には不透明流体にも適用可能である超音波流速分布計測法 (UVP) が有効な手法である。

Takeda¹⁾により UVP が開発されて以来、様々な液体金属流れの計測に適用がなされてきた。常温液体金属では水銀 (Hg) の UVP 計測が、Takeda と Kikura により報告されている¹⁻²⁾。また、ガリウム合金 (GaInSn) の計測例は Cramer ら³⁾や Andreev ら⁴⁾により、ガリウム (Ga) の計測例は Brito ら⁵⁾により報告されている。溶融金属の計測例としては、音響波ガイドをトランスデューサに取り付けて用いたナトリウム (Na) の計測⁶⁾、鉛ビスマス (PbBi) や真鍮 (CuSn) の計測⁷⁾が Eckert らにより報告されている。このように常温液体から溶融金属に至るまで UVP 計測により流れの可視化が行われてきた。

さて話は変わるが、将来のエネルギー源として国際熱核融合実験炉 (ITER)⁸⁾を中心とし核融合炉の研究開発が国内外問わず行われている。商業の核融合炉を継続的に運用するには、燃料となる三重水素 (トリチウム) を炉内において増殖する必要がある。トリチウムを増殖する材料を用いる形態として、液相にて用いる設計案が提案されている。液体金属と核融合炉の繋がりであるが、トリチウム増殖材に液体金属を使用することが検討されている。液体材料を使用することで、伝熱媒体として兼ねることも可能となり、機器構造の簡素化が可能となるなど利点を有している。核融合炉において、トリチウム増殖、エネルギー変換機能、それに加え、放射線遮蔽機能を持たせた機器はブランケットと呼ばれ、核融合反応が起きる領域を文字通り取り囲んで配置される。前述のトリチウム増殖材を液相で使用するものは液体ブランケットと呼ばれ、先進的なブランケット設計案である。液体増殖材として使用されるものは、核変換してトリチウムに変換する元素であるリチウムを含む必要があり、リチウム、リチウム鉛 (PbLi, リチウムと鉛の合金)、フッ化物溶融塩 (FLiBe) が挙げられる。化学活性を低減し、液体金属の利点である低プラントル流体であることからリチウム鉛が有力な候補材として考えられおり、ブランケット設計において選択されている (例えば、文献⁹⁾を参照)。なお、核融合炉において用いられるリチウム鉛の組成は、共晶組成 (15.7 at% Li - 84.3 at% Pb)¹⁰⁾である。その他、代表的な物性値を比較ため Li

Table 1 Physical properties of LiPb, Li, and FLiBe¹¹⁻¹²⁾.

	PbLi at 300°C	Li at 300°C	FLiBe
Melting point (°C)	235	181	397
Thermal conductivity (W/m·K)	13	47	1.2 at 527°C
Density ($\times 10^3$ kg/m ³)	9.5	0.5	2.0 at 527°C
Viscosity ($\times 10^{-3}$ Pa·s)	1.1	0.41	18 at 527°C
Prandtl number	2.4×10^{-2}	3.6×10^{-2}	6.4 at 627°C
Electrical conductivity ($\Omega^{-1}\cdot\text{m}^{-1}$)	0.77×10^6	3.0×10^6	2.3×10^2 at 627°C

* 原稿受付 2016 年 4 月 15 日

** 正会員 大阪大学大学院 工学研究科 機械工学専攻
(〒565-0871 大阪府吹田市山田丘 2-1,
E-mail: ueki@mech.eng.osaka-u.ac.jp)

と FLiBe の物性値と併せて Table 1 に挙げる。

リチウム鉛は核融合炉への活用が検討されて以来，研究が進んできたが，化学特性や物性に関して未だ十分に理解されていない点が多く，UVP 計測例は報告されていない。本稿において小職が現在まで行ってきたリチウム鉛流れの UVP 計測に関する一連の研究について紹介する。

2. リチウム鉛流れの UVP 計測

UVP 計測を正常に行うにあたり，以下の 3 項目が必要となる。

1. 対象流体内を伝播する超音波の音速値．一般的に音速値は温度依存性がある。
2. 超音波を発信受信するトランスデューサの接液面と対象流体間における超音波伝達が良好であること．熔融金属を対象とする場合には，液体金属の濡れ性が大きく起因する他に，相界面における音響インピーダンス差にも影響される。
3. 対象流体中に分散した超音波を反射する微粒子．これが流動トレーサーとして機能する。

液体金属流動を研究対象とするにあたり，“One Liquid metal, One Technology”と言われることがある．ある液体金属においては成功した技術や知見が，他の液体金属においてはそのまま通用しないことが多い．そのため，各液体金属に応じた技術開発や知識の獲得が必要となることを表現した言葉である．このことは液体金属の化学特性や物性が大きくことなることに起因している．例えばリチウム鉛と鉛ビスマス (PbBi) は共通して組成が鉛を主としているものの，構造材の腐食挙動は大きく異なることが知られている．鉛ビスマスの鋼材腐食は酸化膜が形成される酸化型の腐食であるが，リチウム鉛の鋼材腐食は溶出型の腐食であることが知られている¹³⁾．液体金属腐食挙動は，相界面における超音波伝達性に影響を及ぼすことがこれまでの研究¹⁴⁾により明らかになっている．このような背景から UVP を適用して流速分布計測の構築を行うにあたり，液体金属の特性を把握するとともに各項目の測定や評価が不可欠である．リチウム鉛流れの UVP 計測における必要 3 項目について以下に紹介していく。

2.1 リチウム鉛の音響物性値

UVP 計測には対象流体内を伝播する超音波の音速値が必要となる．音速は流速分布の位置情報と流速情報の両方の算出に不可欠である．その他に，UVP 計測に関係するものとしては，音響インピーダンスが挙げられる．音響インピーダンスは音速と密度の積である．超音波が相界面に到達した際に，超音波の透過，反射，そして屈折を特徴づけるパラメータである。

リチウム鉛の密度に関するデータベースは既に提供されており¹⁵⁾，本稿においては音速測定に関する研究を紹介する．音速測定にはある一定の長さの対象流体に超

Fig. 1 Sound speed measurement apparatus¹⁶⁾.

Fig. 2 Sound speed in PbLi, PbBi, and Pb.

音波を入射し，超音波が伝播する時間を測定することにより，音速値を評価する方法を採用した¹⁶⁾．所定の温度に保持して，各温度におけるリチウム鉛の音速値を測定した．Fig. 1 に示した装置を用いて，超音波経路 Path B から Path A を差し引いた距離がリチウム鉛内を伝播した距離となる。

Fig. 2 にリチウム鉛の測定結果に加え，比較対象として組成が鉛を主とする鉛ビスマスと鉛の音速の文献値¹⁷⁾を示す．Fig. 2 からリチウム鉛の成分であるリチウムの存在が音速値にほとんど影響を及ぼしていないことが分かる．これはリチウム鉛中のリチウム含有量が質量分率で 5 wt% に相当し，含有量が少ないことに起因しており，定性的に妥当な結果である．本測定のリチウム鉛の音速値 C と音響インピーダンス Z に加えて，鉛ビスマス，鉛，リチウム，そしてトランスデューサの接液材として使用しているチタン (Ti) の文献値を Table 2 にまとめる。

2.2 相界面における超音波伝達性

前述のとおり，UVP 計測が成功するには超音波を発信受信するトランスデューサの接液面と対象流体間にお

Table 2 Sound speeds and acoustic impedances.

	C (10^3 m/s)	Z (10^6 kg/m ² s)
PbLi (at 300°C)	1.785	16.9
PbBi (at 300°C)	1.739	18.3
Pb (at 330°C) ¹⁸⁾	1.773	18.9
Li (at 300°C) ¹⁸⁾	4.48	2.3
Ti (room temperature) ¹⁹⁾	6.070	27.3

ける超音波伝達が良好であることが不可欠である。相界面における音響インピーダンスの差に応じて、超音波の透過や反射が決定される。物質1から物質2に超音波が入射する体系を想定して、それぞれの音響インピーダンスを Z_1 , Z_2 とすると超音波透過係数 TE (入射波に対する透過波の圧力振幅比) は以下のとおり表される。

$$TE = \frac{2Z_2}{Z_1 + Z_2} \quad (1)$$

一方、反射係数 RE (入射波に対する反射波の圧力振幅比) は TE と以下の関係がある。

$$RE = TE - 1 \quad (2)$$

Table 2 に挙げた値を基に、リチウム鉛とチタン界面における超音波透過係数 TE を算出すると 0.765 となり、超音波透過が反射と比較して支配的であることが分かる。この結果からもチタンを接液材とするトランスデューサをリチウム鉛に使用することは適しているということが判断される。音響インピーダンスは物性値であるので、超音波透過係数が低い組み合わせとなる場合には接液材の再選定が必要となる。

この他に相界面における超音波伝達性に影響する因子として、熔融金属を対象とする場合には、液体金属の濡れ性が大きく起因する。チタンに対するリチウム鉛の濡れ性と超音波伝達性の関係について紹介する。第2章の冒頭で述べたとおり、リチウム鉛の腐食挙動が相界面における超音波伝達性に影響していることが現在までの研究にて明らかになってきた。熔融時のリチウム鉛はただちに酸化されるため、通常取り扱いアルゴンガスなど不活性雰囲気中にて行われる。アルゴンガス中に含まれる酸素の濃度により、超音波伝達性が変化することが明らかにされている。アルゴンガス中の酸素濃度が 1 ppm 以下の極低水準の不活性雰囲気においては、UVP 計測に十分な超音波伝達性が得られることが確認されている^{14,16)}。その一方、数十 ppm 以上の酸素濃度においては、超音波が相界面を介して伝達されないことが確認されている¹⁴⁾。この差異の原因としては、チタン表面の酸化による表面状態の変化に依るものと考えている。Fig. 3 に、接液材をチタンとするトランスデューサの変化を映した写真を示す。

Fig. 3 が示していることとしては、数十 ppm 以上の

Fig. 3 Photographs of transducer tip¹⁴⁾: (left) after initial immersion at oxygen concentration of tens ppm; (center) 290h after the initial state; (right) after 1h immersion at oxygen concentration of less than 1 ppm.

Fig. 4 Gibbs free energy of selected oxides as function of temperature¹⁴⁾.

酸素濃度環境においては、接液初期ではリチウム鉛がほとんど濡れておらず、290 時間経過した際にはチタン表面が褐色に変化したことが確認でき、明らかな表面状態の変化が認められた。その一方、1 ppm 以下の酸素濃度環境においては、チタン表面にリチウム鉛液滴が付着しており、非常に濡れが良いことが視覚的に確認できる。

リチウム鉛中のチタンの酸化については Gibbs の自由エネルギーにより説明される。Fig. 4 はリチウム鉛中の飽和酸素ポテンシャルと酸化物の生成エネルギーを示した Ellingham 図である。酸化チタン (TiO_2) の生成エネルギーは飽和酸素ポテンシャルより低く、酸素飽和時にはリチウム鉛中では TiO_2 の状態が熱力学的に安定である。酸素分圧低下に伴い、酸素ポテンシャルが近接した TiO_2 の生成エネルギーを下回ることににより、リチウム鉛中にてチタン単体にて存在し得ることが示唆される。つまり、リチウム鉛が接触している不活性ガス中の酸素濃度が低下した場合に、チタン単体にて存在することが可能となりリチウム鉛の濡れ性が改善することが考えられる。その結果としてリチウム鉛-チタン相界面における超音波伝達性が良好となることが、雰囲気酸素濃度により超音波伝達性が大きく変化する原因であると考えられる。これらの結果に基づきリチウム鉛の UVP 計測には、雰囲気酸素濃度を極低水準に保持した環境にて行う必要がある。

2.3 リチウム鉛の流動トレーサー

光計測の一種である PIV 計測と同様に、UVP 計測においても流動トレーサー粒子を対象流体中にシーディングすることが不可欠である。UVP 計測においてはトランスデューサから発信された超音波パルスが、対象流体内部を伝播して流動トレーサー粒子に反射する際に、流体の流れに応じて反射超音波周波数がドップラー効果によ

り変化する。UVP 計測の成功には良好な反射信号を得ることが肝要であるが、これには超音波反射に適した粒子径、粒子数密度、音響インピーダンスが求められる。それに加えて、流れの追従性に適した密度を有することが求められる。なお、流動トレーサーには超音波を反射すれば機能するため、固体粒子の他に微小気泡や密度変動も超音波反射体として有効である²⁰⁾。

液体金属の UVP 計測においては、液体金属の多くは天然に含有している酸化物微粒子が流動トレーサーとして機能することが知られている。その一方、水銀といった酸化を受けにくい液体金属では酸化物微粒子の含有量が少ないため、人為的に流動トレーサーを添加する必要がある²⁾。他の先行研究においては、ガリウムの UVP 計測を行うにあたりガリウムは酸化し易いことに起因して過剰な酸化物粒子を含むこととなり、超音波の多重散乱が発生することとなる。このような場合には、人為的に超音波反射粒子を添加することにより UVP 計測が行われているが^{5), 21)}、液体金属と共存性を有する材料の選定など容易ではない。

リチウム鉛の流動トレーサーについては、共存性を有する超音波反射粒子を添加することは困難であったため、天然に含有している酸化物微粒子が流動トレーサーとして機能し得るかどうか調査を行った。リチウム鉛が含有している酸化物微粒子が明らかではなかったため、UVP 計測に使用しているリチウム鉛の化学組成を X 線回折法により分析した。これによりリチウム鉛のバルク部には酸化鉛 (PbO) が検出された結果を得ている²²⁾。また、X 線光電子分光分析においても、PbO が検出されている²³⁾。これらの分析ではリチウム鉛における酸化物微粒子の含有量は定量的な評価ができないが、酸化鉛はリチウム鉛とほぼ同様の比重 (比重: 9.53) を有することや、融点が高く (融点: 886°C) リチウム鉛溶融時においても固相で存在することができることから良好な流動トレーサーとして期待された。このような結果に基づいて、天然に含有している酸化物微粒子が流動トレーサーとして機能し得るかどうかの確認を行った。現在までの UVP 実証試験および結果について紹介する。

前述のとおり、リチウム鉛-トランスデューサ接液材界面における超音波伝達を良好とするには、雰囲気酸素濃度を極低水準に保持する必要がある。雰囲気管理上の都合により、UVP 実証試験は小規模のリチウム鉛流れに対して適用することで行った²⁴⁾。Fig. 5 に示すとおり、円筒容器にリチウム鉛を満たし、容器底面上にて円盤を回転させることにより旋回流を生じさせ、側面にある枝管に挿入したトランスデューサを用いて試験した。トランスデューサには Fig. 6 に模式図を示す液中浸漬型の JAEA 型トランスデューサを用いた。リチウム鉛に接液する材料にはチタンを使用し、超音波振動子には耐熱性のニオブ酸リチウム (LiNbO₃) 製の素子を選択し、チタン接液材の内面に取り付けられている。なお、

Fig. 5 UVP Measurement of PbLi swirl flow²⁴⁾.

Fig. 6 Schematic cross-section drawing of transducer²⁴⁾.

Fig. 7 Measured time-averaged velocity profiles of PbLi swirl flow²⁴⁾.

本トランスデューサは 500°C の耐熱性を有している。UVP 計測器には UVP Monitor model X-1 (Met-Flow 社製) を使用した。測定結果を Fig. 7 に示す。計測値を時間平均して円筒容器の内面 (A 点) から回転円盤表面 (B 点) に至るまで連続的な流速分布を得た。この結果は、超音波経路に沿い各検査体積にて酸化物微粒子が入射超音波を反射した結果、流速評価に十分な反射信号強度を得たことを意味する。異種の UVP 計測器である DOP2000 (Signal Processing 社製) を用いた同等の条件の試験においても、同程度の反射信号強度を得ることを確認している¹⁴⁾。

3. まとめと今後の展望

本稿においてリチウム鉛流れの UVP 計測に関する一連の研究について紹介した。これらの研究によりリチウム鉛の化学的・物理的性質の理解が進展し、UVP 計測に必要な条件が明らかとなった。重要な点としてはリチウム鉛における酸素が UVP 計測の結果に及ぼす影響が著しく、正常な計測を実施するにはリチウム鉛中の酸素濃度の管理や酸化物微粒子の確保が不可欠である。

最後に、これまでの知見を踏まえて現在取り組んでいる研究と今後の展望について紹介したい。前章にて紹介した UVP 実証試験は酸化物微粒子からの反射超音波信号の確認には適していた。しかしながら、旋回流の流れ場は三次元成分を持つ複雑な流速分布となることから先の通りの試験体系では定量的な計測精度の評価には至っていなかった。このような背景から UVP 計測法をリチウム鉛流れに適用した際の計測精度を評価すべく、単純流れ場である発達した円管流れの UVP 計測を現在行っている。その試験には核融合科学研究所にある熱・物質流動ループ Oroshi-2 ループ²⁵⁾に流れ場の発達に十分な長さを持つ円管を設置して実施している。本結果の詳細については近々に報告する予定である。

リチウム鉛が化学活性の高い高温液体金属であることに起因して、UVP が現在において大きな将来性を持つ唯一の流速分布計測法となっている。今後の UVP 研究が一層進展させ、核融合炉ブランケットにおける熱流動現象の可視化の実現と現象理解の進展に繋げていきたい。

謝 辞

本稿で紹介した一連の研究において、京都大学の功刀資彰教授、横峯健彦准教授、日本原子力研究開発機構の荒邦章氏、平林勝氏、永井桂一氏、斉藤淳一氏には、ご指導とご支援を賜りましたことをここに記して感謝の意を表します。本稿で紹介した研究の一部は JSPS 科研費(10J00715)の助成を受けたものです。

参 考 文 献

- 1) Takeda, Y.: Development of an Ultrasound Velocity Profile Monitor, Nuclear Engineering and Design, Vol.126, (1991) pp.277-284.
- 2) Takeda, Y., and Kikura, H.: Flow Mapping of the Mercury Flow, Experiments in Fluids, Vol.32, (2002), pp.161-169.
- 3) Cramer, A. et al.: Local Flow Structures in Liquid Metals Measured by Ultrasonic Doppler Velocimetry, Flow Measurement and Instrumentation, Vol.15, (2004), pp.145-153.
- 4) Andreev, O. et al.: Application of the Ultrasonic Doppler Velocity Profile Method to the Mapping of Liquid Metal Flows under the Influence of a Non-Uniform Magnetic Field, Experiments in Fluids, Vol.46, (2009), pp.77-83.

- 5) Brito, D. et al.: Ultrasonic Doppler Velocimetry in Liquid Gallium, Experiments in Fluids, Vol.31, (2001), pp.653-663.
- 6) Eckert, S., and Gerbeth, G.: Velocity Measurements in Liquid Sodium by means of Ultrasonic Doppler Velocimetry, Experiments in Fluids, Vol.32, (2002), pp.542-546.
- 7) Eckert, S. et al.: Velocity Measurements at High Temperatures by Ultrasound Doppler Velocimetry using an Acoustic Wave Guide, Experiments in Fluids, Vol.35, (2003), pp.381-388.
- 8) <https://www.iter.org/> (2016/03/29 閲覧).
- 9) Abdou, M. et al.: Blanket/first wall challenges and required R&D on the pathway to DEMO, Fusion Engineering and Design, Vol.100, (2015), pp.2-43.
- 10) Okamoto, H. et al.: Li-Pb (lithium-lead), Journal of Phase Equilibria, Vol.14, (1993), p.770.
- 11) Zinkle, S.J.: Summary of Physical Properties for Lithium, Pb-17Li, and (LiF) n BeF₂ Coolants (Revised in 2000), (1998).
- 12) Kondo, M. et al.: Oxidation in Molten Fluoride Salt, Journal of Plasma Fusion Research, Vol.86, (2010), pp.402-407.
- 13) 高橋実, 近藤正聡: 液体金属鉛リチウム中の低放射化フェライト鋼の共存性, Journal of Plasma and Fusion Research, Vol.86, No.7 (2010), pp.413-416.
- 14) Ueki, Y. et al.: Oxygen influence on ultrasonic Doppler velocimetry of lead-lithium flow using titanium transducer, Fusion Engineering and Design, Vol.89, (2014), pp.77-81.
- 15) Shultz, B.: Thermophysical properties of the Pb (83) Li (17) alloy, Fusion Engineering and Design, Vol.14, (1991), pp.199-205.
- 16) Ueki, Y. et al.: Acoustic properties of Pb-17Li for ultrasonic Doppler velocimetry, Fusion Science and Technology, Vol.56, (2009), pp.846-850.
- 17) Sobolev, V.: Thermophysical properties of lead and lead-bismuth eutectic, Journal of Nuclear Materials, Vol.362, (2007), pp.235-247.
- 18) McAlister, S.P. et al.: The Effect of Isotopic Mass on the Velocity of Sound in Liquid Li, Journal of Physics F: Metal Physics, Vol.6, No.8, (1976), pp.1415-1420.
- 19) Grey, R.E. ed.: American Institute of Physics Handbook. 3rd Edition, McGraw-Hill, (1982).
- 20) Eckert, S. et al.: Velocity Measurement Techniques for Liquid Metal Flows. Magnetohydrodynamics-Historical Evolution and Trends, S. Molokov et al. Ed., Springer, (2007). pp.275-294.
- 21) Tasaka, Y. et al.: Ultrasonic visualization of thermal convective motion in a liquid gallium layer, Flow Measurement and Instrumentation, Vol.19, (2008), pp.131-137.
- 22) Ueki, Y. et al.: Contact angle measurement of molten lead-lithium on silicon carbide surface, Fusion Engineering and Design, Vol.86, (2011), pp.2297-2300.
- 23) 植木 祥高: Development of high-temperature ultrasonic Doppler velocimetry for lead-lithium flow, 京都大学博士論文, (2012).
- 24) Ueki, Y. et al.: Velocity profile measurement of lead-lithium flows by high-temperature ultrasonic Doppler velocimetry, Fusion Science and Technology, Vol.60, (2011), pp.506-510.
- 25) Sagara, A. et al.: First Operation of the Flinak/LiPb Twin Loop Oroshi-2 with a 3T SC Magnet for R&D of Liquid Blanket for Fusion Reactor, Fusion Science and Technology, Vol.68, (2015), pp.303-307.