

講座

# 中性子源としての液体金属

## Liquid Metal as the Neutron Source

### 1. はじめに

#### 1. Introduction

高橋光俊

TAKAHASHI Mitsutoshi

助川電気工業株式会社

(原稿受付：2018年4月23日)

東日本大震災以降、研究炉を含めた原子炉の運用が見直しになったことから中性子照射による各種試験が実施できない状況である。特に核融合炉においては 14 MeV の中性子場に耐えうる材料の開発が必要なことから国際核融合炉照射施設 (IFMIF) の建設が進められている。この IFMIF では炉材等の候補材料に照射する中性子の照射ターゲット材として液体金属である液体リチウムが使用される計画である [1]。

また ITER や JT-60SA など核融合炉のブランケットとしては、これまで固体ブランケットが採用されている。しかし近年は液体金属 (リチウム, リチウム鉛) や溶融塩 (FLi-NaK, FLiNaBe) 等をブランケット材として採用できるか研究が進められている。

この IFMIF と同様な原理での中性子源として液体金属を採用することで研究が進められているものとしては、医療用でホウ素中性子捕捉療法 (BNCT) がある。この BNCT も液体リチウムをターゲット材として研究が進められている。

この他、核変換の分野においては同じ液体金属でも水銀や鉛ビスマスのようにリチウムに比べれば比重の重い液体金属を採用する研究が進められている。

では、なぜ液体金属なのか? であるが、金属の固体では熱の保持はできても熱エネルギーの取出しには液体やガスなどの別な媒体が必要となるが、液体金属であれば熱保持及び移動も可能であることから、熱交換の媒体として今も

試験装置等に採用されている [2]。

液体金属による熱交換は高速増殖炉の冷却材として液体ナトリウムが使用されているが、高速増殖炉「もんじゅ」のナトリウム漏えい事故でも問題視されたように大気中の水分との反応により、安全上の難しさが指摘されている。これは、核融合関係でも使用する液体リチウムもナトリウムと同じアルカリ金属に属するが、ナトリウム程では無いが常温でも炭酸飲料水程度の泡立ちながら水反応を起こす。また、ナトリウムより反応性は低いものの消防法においても危険物として指定されているため、所有する量によっては所轄の消防への届け出をする必要があるため注意する必要がある。また液体金属を貯留する容器についても使用条件によっては労働安全衛生法の適用も考えなければならぬケースがある。

以降、液体金属の長所や短所の説明と、法規関係等、基本的な取り扱いについての説明と、比重の重い液体鉛ビスマスをターゲット材のメインとして「核変換における液体鉛ビスマスターゲット」、比重の軽い液体リチウムをターゲット材のメインとして「核変換における液体リチウムターゲット」と「医療における液体リチウムターゲット」、を紹介する。

#### 参考文献

- [1] 若井栄一 他：プラズマ・核融合学会誌 88, 691 (2012).  
[2] 八木重郎：プラズマ・核融合学会誌 93, 196 (2017).



## 2. 中性子源用液体金属の取り扱い

### 2. The Handling of the Liquid Metals for Neutron Sources

三浦 邦明

MIURA Kuniaki

助川電気工業株式会社

(原稿受付：2018年4月23日)

大電流の高エネルギー荷電粒子を金属に照射し大量の中性子が得られる中性子源は、大きな発熱と照射損傷が生じる。これを避けるために中性子源に液体金属を用いて、金属自身の高温伝播性と液体金属の流れによる除熱性により温度上昇を抑え、固体で発生する照射損傷を液体にすることで無くし、連続的に使用可能な中性子源を得ることができる。本章は連続使用可能な中性子源用液体金属の取り扱いについて記載する。

#### Keywords:

neutron source, Liquid metal, Lithium, Mercury, Pb-Bi eutectic alloy, plant design, regulation, fire service act, poisonous and deleterious substances control act

#### 2.1 はじめに

中性子源には、原子炉や放射性物質を使った中性子源以外に、加速器で加速した荷電粒子を金属のターゲット材に照射して中性子を発生させる方式がある[1, 2].

加速器で照射する荷電粒子のエネルギー密度が非常に大きい中性子源では、金属ターゲット材に大きな温度上昇と照射損傷をもたらすので、これを抑えるためターゲット材を液体金属にする。液体金属には、IFMIF (International Fusion Materials Irradiation Facility) や BNCT (Borron Neutron Capture Therapy) の様に低原子番号の液体リチウムや J-PARC の様に重金属の水銀を用いる場合がある。

本章は、これら中性子源に使用される液体金属の特徴を踏まえ、法的にどの様に取り扱うべきかについて解説する。

#### 2.2 中性子源の液体金属の種類

##### 2.2.1 中性子源に液体を使う理由

中性子源に液体金属を使う理由は、金属に照射されるエネルギーがけた外れに高く、並みの冷却では固体を維持できず初めから工学的に取り扱える低融点の液体金属を使って、金属自身の高い温度伝播性と照射で受け取った熱エネルギーを流れて持ち去り、液体金属自身の温度を工学的に扱える様にするためである。また液体金属にすることによって固体で生じるボイドや脆化等の照射損傷を無くし、連続的に使用可能な中性子源にするためでもある。

##### 2.2.2 中性子源の種類と関係法令

中性子源に採用される液体金属の特徴と関連規制法を表1に示す。いずれの液体金属も閾値以上のエネルギーを持つ荷電粒子が照射されると中性子を発生し、放射性物質

ができるので「放射性同位元素等による放射線障害の防止に関する法律」が適用される。したがって、中性子源の液体金属は、密閉(密封線源ではない)されるのが望ましく、照射によって高い熱エネルギーを得た液体金属は、冷却用熱媒体と混合しない様に熱交換器を介した冷却が必要である。

更に中性子源は、液体金属の種類に応じて消防法の危険物の規制に関する政令や労働安全衛生法の規定に基づく毒物及び劇物取締法や規則の対象となり、法に規則を満たした設備にする必要がある。

#### 2.3 各中性子源用液体金属の特徴と応用例

##### 2.3.1 リチウムの特徴と応用例

リチウムは、蒸気圧が非常に低く高真空で使用する加速

表1 中性子源用液体金属の種類と特徴.

反応形態	液体金属	荷電粒子	液体金属の特徴, 規制法
核反応	リチウム		融点が約180℃で固体であれば水との化学的反応度は低い「消防法」の危険物で規制対象。リチウムはO <sub>2</sub> とN <sub>2</sub> とも反応するので純度を維持する取扱いにはグローブボックスが必要。
核破砕	水銀	陽子又は重陽子	水銀は常温で液体であり熱交換器を介して常温水による冷却が可能。水銀は「毒物及び劇物取締法」の規制対象。
	Pb <sub>44.5</sub> -Bi <sub>55.5</sub>		化学的に不活性な共晶合金で融点が125℃と低い沸点1670℃と高い[3]。鉛が10%以上の合金なので「毒物及び劇物取締法」の規制対象。

器との接続が可能な物質である。リチウムはアルカリ金属の中でも一番反応性が低く、水と反応しても炭酸水のように気泡ができる程度であり、大気中の湿度にもよるが $300^{\circ}\text{C} \pm 50^{\circ}\text{C}$ 程度では発火しない[4]。これらの特性を踏まえて中性子源の設備には、アルカリ金属のナトリウムを用いる高速増殖炉の技術が利用できる。

液体リチウムを中性子源に利用する例はIFMIFやBNCTがあり、現量子科学技術研究開発機構がIFMIFに先立って真空下で確認試験を実施し[1]、BNCT用中性子源のリチウムループは東工大と助川電気工業が、高真空下で一段円弧絞り方式のノズル[5]で安定した液膜流を形成し発表している[6]。

### 2.3.2 水銀の特徴と応用例

水銀は、J-PARCの中性子源のターゲット材としてすでに利用されていて、陽子照射により水銀を核破砕させて大量の中性子を発生させるターゲット材である。水銀は、沸点が約 $356^{\circ}\text{C}$ と低く常温でも蒸気圧が高く核破砕で希ガスも含め多くの種類の核破砕生成物[7]ができるので隔壁(ステンレス製窓)を介して陽子照射がなされている。常温で液体なので常温水で熱交換器を介した冷却できるという利点がある[8]。

### 2.3.3 鉛ビスマスの特徴と応用例

液体鉛ビスマスのうち融点が一番低い( $125^{\circ}\text{C}$ )共晶合金が、原子力機構のADS (Accelerator-driven System) [9]未臨界炉心冷却材に利用される予定である[10]。このADSにより長寿命核種を短寿命核種に変換するものである。鉛ビスマスは、 $\gamma$ 線の強い核種は生じないが、天然の $^{209}\text{Bi}$ から $\alpha$ 線を放出する $^{210}\text{Po}$ (半減期約138日)が生じ、核破砕で希ガスも含む放射性物質もできるので[11]、隔壁(窓)を介して陽子照射がなされる予定である[12]。

ADSを推進するため水銀ターゲットと同じように、台車に円筒二重管構造のターゲット部が付いて $200^{\circ}\text{C}$ 程度の高温水で冷却するADSターゲット試験施設が計画されている[13]。

## 2.4 各液体金属の取り扱い方法

### 2.4.1 取り扱う為の機器・装置・治具

液体金属は、FBR (Fast Breeder Reactor) 用ナトリウムと同じように導電性であり、軽水炉の様な高圧も必要無く、照射後は放射性物質ができるので気密性が高いFBR用機器とその機器設計手法が使える。

参考にナトリウムループの系統図を図1に示す。その中で使用されている主要な機器の略称や目的や原理を括弧書きで記載した。

- ①ダンプタンク (DT, 液体金属貯蔵)
- ②膨張タンク (EXP, 液体の熱膨張吸収)
- ③加熱器 (H, 電気ヒータ方式)
- ④冷却器 (CL, 空冷方式)
- ⑤電磁ポンプ (EMP, 誘導電磁力による駆動)
- ⑥電磁流量計 (EMF, 誘導起電力を測定)
- ⑦弁 (V-1~V-5, ベローズシールにて完全密封)
- ⑧ベーパートラップ (VT-1~VT-2, 液体金属蒸気の

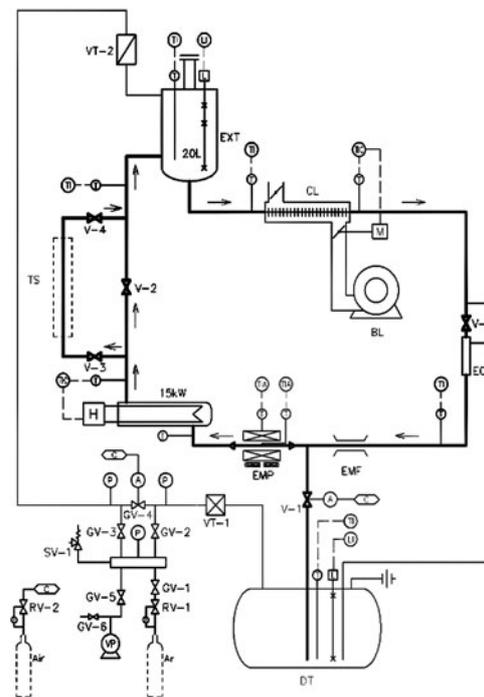


図1 ナトリウムループの系統図例。

遮断)

- ⑨配管 (予熱ヒータ取付配管)
- ⑩ガス系 (放射化しないヘリウムが良い) および真空系 (VP, 更にフィルター付で減衰タンク等が必要)
- ⑪グローブボックス (系統図にはないが、リチウムを系内に供給する時に必要)

ここには記載しないがメンテナンス及び保管場所も含めた建屋 (空調含む) 等様々な装置や機器群が必要であり、実際に建設されたJ-PARC関連文献[8]や[12]を参照されたい。特に、放射性物質の封じ込めと減容と減衰処理に関しては文献[14]を参照されたい。

### 2.4.2 取り扱う前の準備や届け出

本節では、照射試験や非照射試験であっても、液体金属機器を製作する場合の関連法令に基づいて必要な準備や手続きを主に示す。

#### 2.4.2.1 リチウムの場合の準備や手続き

リチウムは、消防法[15]でいう禁水性物質の危険物なので取り扱いには危険物取扱者免許 (甲又は乙第3類) が必要である。リチウムループや建屋などの設備は危険物に関する政令に規定されており、通常リチウムループの設備は屋内に有って貯蔵と取り扱いを意味する屋内貯蔵所となる。危険物には指定数量があり、指定数量未満で指定数量の5分の1以上を少量危険物と呼び、指定数量の5分の1以上を扱う施設は耐火構造にしなければならない。建屋の周囲には安全のため保安空地が必要でその空地の幅が規定数量に対する倍数ごとに決められている。

病院併設型BNCTに液体リチウムターゲットを採用する場合はできるだけ小型なものが望ましく、耐火構造で指定数量の5倍以下にすれば空地の幅は不要となり併設し易くなる。同政令には指定数量の5分の1以上の貯蔵タンクは

耐圧検査が必要なので、申請書（書式あり）に強度計算書を添えて消防署へ完成検査前検査を申請し、検査を受けて検査済書の交付を受けなければならない。ただし、指定数量の5分の1未満であっても圧力容器構造規格を遵守することになっているので、強度設計を確実に行う事には変わりはない。膨張タンクやベーパートラップは、圧縮気体を有するものでありその大きさと圧力を超えれば第2種圧力容器となるのでボイラー協会に検定申請して検査に合格しなければならない。合格すると第2種圧力容器明細書が交付される。これら機器を使用し装置完成後、最終完成検査に合格し、完成検査合格証を交付された後に使用可能になるので、装置完成までは順序よく作業を行う必要がある。

#### 2.4.2.2 水銀の場合の準備や手続き

水銀は、毒物及び劇物取締法の規制対象品であり、取り扱いに於いて労働安全衛生法（安衛法）[16]に準拠した取り扱いが必要である。更に、公害対策基本法や水質汚濁防止法により環境への放出が制限されている。ここでは安衛法に規定を以下に示す。まず、同法第12条の1項に従い50人以上の事業所では衛生管理者（第1種衛生管理者免許保持者や衛生工学衛生管理者免許保持者等）を選任し（事業所規模で増員）、所轄の労働基準監督署長に届出が必要である。同法第12条の2項では10人以上50未満では安全衛生推進者（講習要）の設置が必要である。管理者は、健康管理や設備と環境改善等を行う必要がある。

水銀は、大気20℃における飽和蒸気濃度が13.2 mg/m<sup>3</sup>と高く[17]、許容濃度（日本産業衛生学会）が0.025 mg/m<sup>3</sup>と低いので以下の保護具が必要で[18]、水銀濃度計等で確認が必要である。大気への放出は更に2桁以上厳しい[19]なので対応が必要である。

- ①呼吸器保護具（防毒マスク）
- ②手の保護手袋（ゴム手）
- ③目や顔面への保護具
- ④保護衣服着用（汚染されて服は作業場から出さない）

以上の事から使用中の水銀は、容器や配管系内に密閉して運用するのが良く、漏洩時の事を考えて装置の下には、枠有り受け皿（表面が酸化しないステンレス製が良い）を設け、できれば装置全体を強化ガラス等で覆うのが良い。毒物及び劇物取締法には使用中のものに対する規制は無いが使用しない水銀は、施錠して保管する。水銀を30 kg以上保有する施設は、消防法（昭和23年法律第186号）での消防活動阻害物質として所轄消防署長へ届ける（施設毎）必要がある。

#### 2.4.2.3 鉛ビスマスの場合の準備や手続き

鉛ビスマス共晶合金は、鉛が10%以上含む鉛合金として毒物及び劇物取締法の規制対象品であり、衛生管理は水銀と同じで、作業者は安衛法の鉛中毒防止規則[20]に従って取り扱わなければならない。鉛ビスマス共晶合金を使った施設は、鉛中毒防止規則第1条第5項ホにおける鉛合金の溶解に相当するので、第23条第四項の様に450℃以下の場合や第23条第一項の様に配管や容器の周囲を完全に覆い常時立ち入る必要が無い屋内作業場することによって作業も周囲の安全性も確保できるので結果的に局所排気装置、

プッシュプル換気装置、全体換気装置を設けず試験が可能になる。装置が小さく第27条第一項の規定の様に50ℓ未満で有れば除塵機を設けず作業ができるが、高温液体なので目や顔面へ保護具を付けての作業となる。尚、放射化する照射試験は遠隔操作で隔離室における業務にならざるを得ないので第3条の三項で謳われた適用外となって鉛中毒を防止していることになる。

### 2.4.3 安全に使うための基本方針・取り扱い方針

#### 2.4.3.1 共通の安全対策・基本方針

いずれの場合も法に依る規制・規則・規格があり、規格を満足しつつ、安全第一で使い勝手の良い装置しなければならない。

リチウムも重金属の場合も耐火、耐震、耐水（水害、津波）、遮蔽を考慮して設計することになるが、遮蔽だけを考えると地下設置を考えやすいが、津波を含めた水害と装置交換性やメンテナンスを考えると装置を小型化して平床設置をして、使いやすい構造にするのが良い。

どの中性子源も照射されるエネルギーが非常に大きいのでビーム位置の異常や液体金属の流量低下が即ターゲット周辺部の溶断や損傷につながるため、ビーム位置モニタや系内の真空圧力や液体金属ループ内の流量、温度、液位や周囲の即発γ線等も含めたすべての運転状態検知センサーに基づき最短時間で運転を停止するシステムが必要である。特に、加速する前のイオン源を最短時間で停止させるのが有効であり、そのシャットダウン時間はバックプレートや隔壁に変形や損傷を与えない速さにする等、安全性向上を図らなければならない。

液体金属の運転温度の上限は、腐食や機器の耐熱性に関係するので、必要最小限の温度で運転する。

漏洩対策の基本は、熔融金属に対する耐食材を使うことであり、強度上配管や容器が破損しない様にするのである。できればパッキン等のシール構造はできるだけ排除して溶接構造を採用する事である。

#### 2.4.3.2 リチウムの場合の安全対策

液体リチウムを用いた病院併設型のBNCTのリチウムターゲットループは、設置上小型化が必要でリチウム量も最小限にするのが良い。尚、使用リチウム量が指定数量以下になると消防法上は無資格で運転が可能であるが、危険物取扱者を選任して安全教育を行う等の対応が必要と考えられる（すでに市町村条例で規定されている場合もある）。小型化でリチウムループそのものを容器で覆う様になると、容器内を不活性ガス雰囲気[4]にすることで更なる安全性向上につながる様になる。

リチウムターゲットではノズルからの噴流を使うので、噴流が直接当たる壁にキャビテーションが起きるとの報告[21]があるので噴流はクエンチタンク内の液体で受ける様にしてキャビテーションがタンク壁面で起きない様に設計する必要がある。

#### 2.4.3.3 重金属の場合の安全対策

重金属系のターゲット材は燃えるものではないが、加速器が急峻なパルス運転によって隔壁が損傷（液体金属に発生する衝撃波の影響）する危険性が有るので、重金属系

ターゲットでは隔壁2重化がなされ、2重隔壁間の最外壁もヘリウム冷却されている。尚、最外壁（窓）まで衝撃波が影響しない様にするため隔壁の損傷をいち早くする検知することが重要なので様々な検知システムが検討され水銀では実施されている。

#### 2.4.3.4 火災・防火対策

化学反応性が高いリチウムに限らず水銀は火災発生時消火活動阻害物質であり、鉛ビスマスは運転温度が高温流体である事から設置建屋は必ず耐火構造にする。リチウムの場合にはさらに禁水の表示を行うと共に周知徹底を図り、どの金属も漏れた場合を想定して漏洩金属を全て受け皿に限定する構造にする必要がある。

非照射場でのリチウム火災が発生した場合は、危険物の規制に関する政令に指定された乾燥砂や膨張する石や膨張真珠岩もあるが、市販のリチウム用消火剤ナトレックスL（主成分塩化ナトリウム）を用いて消火するのが便利で効果的である[22]。

J-PARCの水銀ターゲットの周辺は遮蔽の為に鉄のブロックが積み重ねられているので火災の心配はないが、リチウムと水銀は試験の性質上中性子を減速する場合があるので減速材に可燃物をできるだけ避ける様に設計すべきである。

一方鉛ビスマス共晶合金を使うADS機器は、断熱材に覆われていても高温流体が漏れた時を想定すると建屋も床も耐火構造にする必要がある。

いずれの液体金属も中性子源としても、放射線遮蔽するのでコンクリートや鉄や鉛で覆われ必然的に耐火構造になるが、併せて建屋も耐火構造にすべきである。

## 2.5 装置設計製作

### 2.5.1 装置設計

装置には使いやすさを考えて機器だけでなく配置も含めた設計が必要である。特に、メンテナンスも考えるとピットを掘らずに同一床上設置が望ましい。床上設置を考えると遮蔽が必要になるので液体金属ターゲット装置の高さもできるだけ低く小型に設計する必要がある。

装置の安全性を確保するため強度計算と構造解析（熱応力と耐震）と遮蔽計算を十分に行う必要があるが、以下に中性子源の液体金属用設備に使う機器群の設計規格について記載する。

#### 2.5.1.1 リチウム中性子源の設計

中性子源に液体リチウムターゲットを用いる場合、リチウムそのものが消防法での規制対象なので、リチウムループで使用するダンプタンクは消防法の危険物の規制に関する政令の第9条20号によって、配管については21号に則った設備にしなければならない。消防署への申請等も細かく規定されている。容器の中で圧縮気体が充填される膨張タンクやベーパートラップは、圧力や容積の大きさによってはボイラー及び压力容器安全規則の第二種压力容器に該当し、压力容器構造規格に則った設備にしなければならない。この様な規格強度計算のほかに装置設計に必要な解析コードにて熱応力や耐震設計等を行わなければならない。

詳細は記載しないが、設置場所の危険物貯蔵所の基準についても危険物の規制に関する政令に従わなければならない。

#### 2.5.1.2 水銀や鉛ビスマスの中性子源設計

前記の様に重金属の水銀と鉛ビスマスについても、労働安全衛生法に基づき設計する。膨張タンク及びベーパートラップは、圧力と容積によっては第二種压力容器となり压力容器構造規格を用いて設計されなければならない。ダンプタンクや配管等は压力容器構造規格を満足させ、前記の様に解析コードにて熱応力や耐震設計等を行う必要がある。

### 2.5.2 装置製作

設備の製作に使用する材料や溶接資格など規格に則った製作がなされなければならない。近年は3次元CADによって製作前に課題がわかり設計ミスは少ないが、溶接ひずみや曲がりなどで設計通りに行かない場合や寸法公差が大きい保温材と補助系のガス配管系が干渉する場合があるので、事前に治具の用意も含め現場と設計者との連絡を密に行う必要がある。

組立精度を上げる為にできるだけ工場内作業を行うようユニットごとに製作し、そのユニットの大きさは運搬ができる大きさとし、現地作業をできるだけ少なくするのが良い。

### 2.5.3 試験検査

試験検査は製造中から規格に基づき実施され、機器単体の耐圧やヘリウムリークテストや溶接部のX線検査や浸透探傷試験等を順序良く行い、機器の健全性を確認しながらユニットを組み立てて行く。現地での全体組み立てにおいても、溶接部のX線検査や浸透探傷試験や耐圧試験を実施後、保温施工、電気配線、配線チェック等を順序よく行い、装置組み立て後シーケンスチェック等を実施後、試運転を実施していく。特に、予熱を要する配管系の支持金具やバルブなど局部的に温度低下を起しやす所は前もって断熱やヒータを増設しているが、凝固温度になっていないか注意する必要がある。

## 2.6 装置運転

### 2.6.1 運転

装置の特徴を踏まえて装置をどう扱い、どこを注意すべきかを記載する。要は事前に運転要領書を作成し、その要領書に従い運転していくことになるが、装置配管系の予熱が完了後、全系を減圧してダンプタンク側にガス圧を掛けて膨張タンクまでゆっくり液体金属を充填する。充填を急ぐあまりガス圧を掛け過ぎるとガス系へのオーバーフローの原因になるので注意が必要である。

リチウムループは、高真空運転になるので吸着水分やガスの除去のため真空ベークを十分行うことが重要である。

### 2.6.2 メンテナンス（保守・点検）

非照射の試験装置におけるメンテナンスは、日常メンテナンスや期間ごとのメンテナンス、交換部品に合わせてメンテナンスを実施することになるので、事前に計画書や要

領書を立てておくことが重要である。特に、寿命が短いものや修理に時間のかかるものについては予備品などを準備しておくことが望ましい。

照射試験の場合、放射化した施設になるので測定機器は非照射場に設置して交換できるようにして、中性子源本体については水銀ターゲットの様にターゲット部を一式交換し、放射化したものはキャプセルに入れて保管するのが良い。

### 2.6.3 震災以降の点検

地震等の震災以降の点検は、日本アイソトープ協会の「改訂版放射線施設の火災・地震対策実務マニュアルシリーズⅢ, 1996年, p117~p131」を参照されたい。

## 2.7 まとめ

本章は、中性子源用液体金属の特徴を踏まえて、用途ごとの液体金属と装置の取り扱いについて簡単に記載した。材料の特徴に合わせて工学的に十分対策を講じて使用することが肝要である。

本章がものづくりを始めようとする方の参考になれば幸いである。

### 参考文献

[1] 松林政仁: Radioisotopes 56, 479 (2007).  
 [2] S. Cierjacks(Editor), Neutron Sources For Basic Physics and Applications, An OECD/NEA Report (Pergamon Press, 1983).  
 [3] 高野秀機 他: JAERI-Review 2000-014 (2000).  
 [4] R.A. Rhein, C.M. Carlton, Extinction of Lithium Fires: Thermodynamic Computations and Experimental data from Literature, Fire Technology, Second Quarter 29, 100 (1993).  
 [5] T. Kobayashi *et al.*, Appl. Radiat. Isot. 88, 198 (2014).  
 [6] 東工大ニュース「加速器 BNCT 用液体リチウムター

ゲットを開発 - 都市部病院に設置可能な小型照射システムにめど-」, <https://www.titech.ac.jp/news/2012/025567.html>

[7] 春日井好己 他: JAEA-Technol. 2009-010 (2009).  
 [8] 物質・生命科学実験施設建設チーム, 大強度陽子加速器プロジェクト 物質・生命科学実験施設機器技術設計書, JAEA-Tech 2004-001 (第2分冊), p.828-p.833.  
 [9] 大井川宏之: Radioisotopes 61, 571 (2012).  
 [10] 日本原子力学会「鉛ビスマス 利用技術」研究専門委員会: 鉛ビスマス利用技術ハンドブック (2007).  
 [11] 関本 博 他: JAERI-Tech 2002-008 (2002).  
 [12] 日本原子力研究開発機構 原子力科学研究部門 J-PARC センター 核変換ディビジョン, J-PARC 核変換実験施設技術設計書-ADS ターゲット試験施設(TEF-T), JAEA-Technol. 2017-003, p186-217.  
 [13] *ibid*, p123  
 [14] 安達潤一 他: 中性子散乱施設使用済ターゲット取扱・保管設備の概念検討, JAERI-Tech 2000-068 (2000).  
 [15] 消防関連法規集2009年度版 (近代消防社).  
 [16] 中央労働災害防止協会 安全衛生情報センター 労働安全衛生法, <http://www.jais 水銀.r.jp/enzen/hor/hombun/hor1-1/hor1-1-1-m-0.htm>  
 [17] 環境省, 水銀に係る健康リスク評価, 別添2-3の表1 参照 (飽和蒸気濃度) [www.env.go.jp/council/toshin/t07-h1503/mat\\_02-3.pdf](http://www.env.go.jp/council/toshin/t07-h1503/mat_02-3.pdf)  
 [18] 厚生労働省 職場のあんぜんサイト, 化学物質, 水銀参照, [www.anzeninfo.mhlw.go.jp/ anzen/gmsds/0035.html](http://www.anzeninfo.mhlw.go.jp/ anzen/gmsds/0035.html)  
 [19] 大気汚染防止法, 基準値 [env.go.jp/chemi/tmms/lmrm/02/ref02.pdf](http://env.go.jp/chemi/tmms/lmrm/02/ref02.pdf)  
 [20] 労働法ナビ, 鉛中毒予防規則 (平成29年3月29日厚生労働省令二十九号も反映), [www.rosei.jp/lawdb/list/law\\_article.php?entry\\_no=123](http://www.rosei.jp/lawdb/list/law_article.php?entry_no=123)  
 [21] Kondo, *et al.*, Proc. 23rd International Conference on Nuclear Engineering (ICONE-23), May 2015, Chiba, Japan.  
 [22] 加藤章一 他: JAEA-Technol. 2009-059 (2009).

## 第1章



たか はし みつ とし  
高橋光俊

助川電気工業株式会社 取締役 技術本部 副本部長。液体金属を含む流体の熱 (加熱・冷却) と計測 (温度, 圧力, 流速, etc.) に関わる装置等の設計業務。最近, 運動不足からか体重と中性脂肪が増えてきて少し動くだけでも疲れてしまい歳を感じ始めています。健康維持のために色々考える今日この頃です。

## 第2章



み うら く に あき  
三浦邦明

助川電気工業株式会社 顧問。高速増殖炉の液体金属ナトリウム用電磁ポンプ, 電磁流量計, プラギング計, 水素検出器の開発と熔融アルミ用電磁給湯装置等の開発に従事。現在は, 顧問の傍ら, 地元高萩市出身で江戸中期の地理学者赤水 (せきすい) の業績『伊能忠敬より前に経緯度が入り5952か所の地名入りのベストセラーロードマップを作製し, 間宮海峡調査以前に間宮海峡を含む樺太, 千島列島, 北海道全域の蝦夷松前図を製作』を世に広める活動を実施中。



## 講座 中性子源としての液体金属

### 3. 核変換における液体鉛ビスマスターゲット

#### 3. Liquid Lead-Bismuth Target in the Nuclear Transmutation

佐々敏信, 斎藤 滋, 大林寛生

SASA Toshinobu, SAITO Shigeru and OBAYASHI Hironari

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 J-PARC センター

(原稿受付: 2018年4月20日)

鉛ビスマス合金 (LBE) が、その核的・化学的特性から、次世代原子炉の冷却材や加速器駆動システム (ADS) の核破砕ターゲットとして有望視されている。日本原子力研究開発機構 (JAEA) では、長寿命放射性物質の負担低減を目指した ADS の設計研究を進めており、LBE は重金属であり比重も高く、核破砕ターゲットとしても長寿命放射性核種の核変換システムとしても良好な特性を有している。一方、その利用の大きな課題の一つである構造材との共存性を向上するための様々な技術開発とともに、ADS による核変換技術の早期実用化を目指して、試験研究を進めている。

#### Keywords:

lead-bismuth, spallation target, nuclear transmutation, minor actinide, accelerator-driven system

#### 3.1 はじめに

分離変換技術は、使用済み核燃料中に含まれるさまざまな放射性核種を、その処理方法や用途に応じて複数の群に分別する「分離技術」と、それらの中で半減期が長く、放射性毒性の強いものを短寿命核種 (または安定核種) に変換する「核変換技術」を組み合わせ、長寿命放射性核種の持つ放射性毒性に起因する環境負荷の低減や、分離後の放射性廃棄物の処分の効率化をめざす技術体系である [1]。長寿命放射性核種の核変換は、発電用原子炉サイクルを用いて核変換を行う方法と、加速器駆動システム (ADS: Accelerator-driven System) のような核変換に最適化された専用システムを用いる階層型サイクルに基づく方法の2種類に大別され、それぞれに適する分離技術及び核変換技術の研究開発が、並行して進められている。核変換の対象となるのは、主としてマイナーアクチノイド (MA) と呼ばれるネプツニウム、アメリシウム、キュリウムである。ここでは、核変換に用いる ADS に不可欠な鉛ビスマス核破砕ターゲット技術を解説する。

図1に、さまざまな処分方法を適用した際の、使用済み燃料1トンあたりの人体に対する有害度の経時変化を示す。図には、使用済み燃料の直接処分、再処理後の高レベル廃棄物、分離変換技術を導入した場合のそれぞれの放射性毒性の経時変化を、使用済み燃料の原料となる天然ウラン9トンの持つ毒性とともに示している。直接処分の場合には、原料の天然ウランの毒性を下回るまでに約10万年を要するが、再処理を行うことで5000年程度に短縮され、分離変換を導入することで300年程度にまで短縮することができる。

分離変換技術のもう一つの特長が、廃棄物の処分面積の低減効果である。地層処分時に環境に与える影響の大きい核種を分離技術を用いて取り除くことで、廃棄物の物量自体と処分に要する面積を低減するとともに、廃棄体中により高濃度で核分裂反応に伴う生成物 (FP: Fission Products) を混合して廃棄体数を削減できる可能性がある。MA を核変換するとともに、ストロンチウム、セシウム等の発熱性 FP をガラス固化体よりも熱に強いセラミクスに焼成し、ガラス固化体とは別に廃棄することで、廃棄物処分場に必要面積を低減することができる。図2に、分離

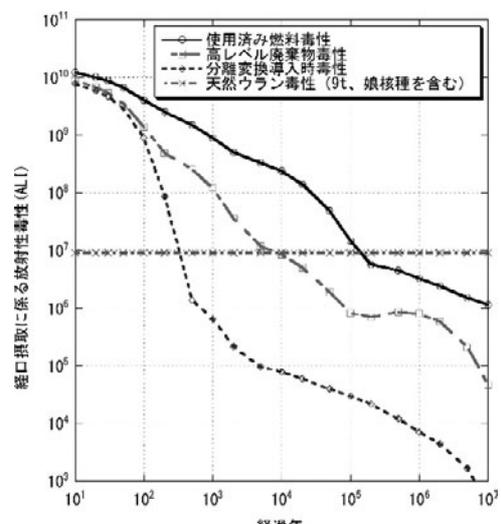


図1 使用済燃料 1 tHM あたりの経口摂取毒性の経時変化 (UO<sub>2</sub> 燃料 PWR 燃焼度: 45,000 MWD/t, 再処理: 99.5% の U 及び Pu を回収, 分離変換: HLW から 99.5% の重核を回収)。

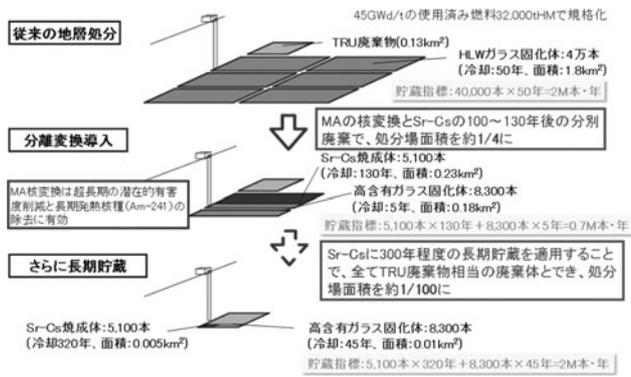


図2 分離変換技術による処分場面積の低減効果。

変換技術による廃棄物処分場面積の削減効果の一例を示す[2]。分離変換技術を最大限活用することで、現行の核燃料サイクル政策に基づく廃棄物処分場面積を約1/4に低減できる。発熱性FPについては、300年間貯蔵すれば発熱量が大幅に低下するため、約1/100の面積で処分できる。

核変換に核分裂反応を用いる利点として、核分裂生成物が多くの場合短寿命であり、中性子一個による一回の反応で効率よく対象核種の短寿命化が行えること、反応に伴う核分裂中性子の連鎖反応により継続的に核変換が可能であること、核変換に必要なエネルギーを核分裂反応から回収できる可能性があることが挙げられる。一方、競合する中性子の捕獲反応に起因する核変換では、質量数の近い長寿命核種への移行に止まることが多く、短寿命核種への変換のためにさらに多くの中性子が必要となり、核変換の効率が低下する。核分裂反応が生じない比較的質量数の小さい核種を核変換するには、中性子捕獲反応による核変換が必要となるが、エネルギー収支をプラスとすることは困難である。

核分裂中性子を用いる方法以外に、高エネルギー粒子を重核種に投入した際に生じる核破砕反応や、核融合反応から得られる中性子でも核変換は可能であり、システム概念が提案されているが、エネルギー収支や工学的成立性の課題が多く、現在は核分裂反応による核変換が主流である。前述のとおり、核変換効率は中性子捕獲反応よりも核分裂反応が優れるため、中性子捕獲反応よりも核分裂反応が優勢となる高速エネルギー領域の中性子が多い高速中性子体系が多く採用されている。

MAを多量に装荷した炉心では、冷却材ボイド反応度、ドップラ係数、実効遅発中性子割合など、原子炉の安全性に深く関わる動特性パラメータが悪化し、炉心の安全余裕が低下する傾向がある。このため、高速炉では炉心に装荷されるMAの総量を抑制する必要があるが、核変換効率に限界がある[3]。一方、炉心を未臨界状態として安全余裕を確保し、外部から連続的に中性子を供給することにより炉心内の核分裂連鎖反応を持続する、加速器駆動システム(ADS: Accelerator-driven System)を用いた核変換システム概念が提案されている。ADSでは、MAを燃料の主成分として、高いMA核変換効率を得ることができる。システムは大強度の陽子加速器とMA燃料を装荷した未臨界高速

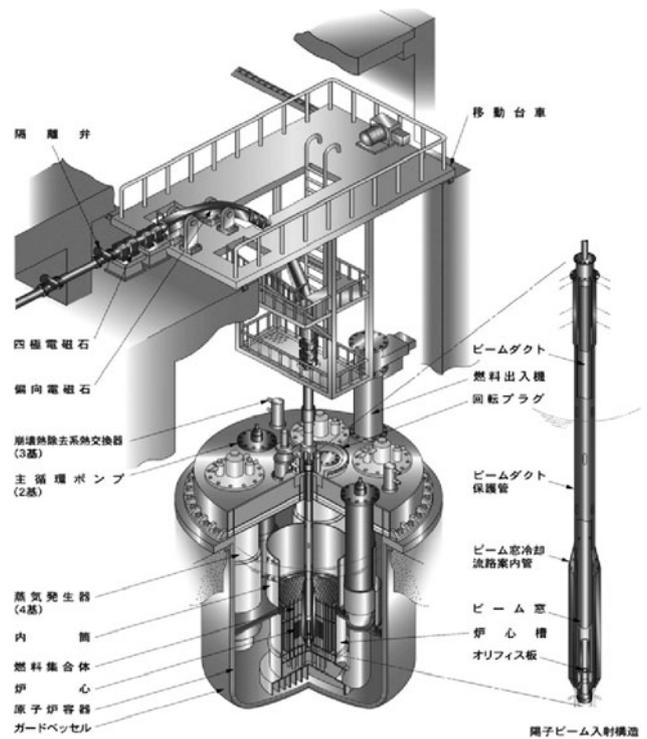


図3 LBE ターゲット/冷却 ADS 概念。

炉心から構成され、未臨界炉心の中央に重金属製の核破砕ターゲットが配置される。加速器からの陽子をターゲットに入射することで、核破砕反応により1陽子あたり30個程度の中性子が生成する。この核破砕中性子を連続的に供給することで、未臨界炉心内で核分裂連鎖反応が生じて、MAの核変換が行われる。図3に、JAEAが提案する液体鉛ビスマス合金(LBE: Lead-Bismuth Eutectic Alloy)を冷却材及び核破砕ターゲットに用いたADS概念を示す[4]。陽子加速器から最大で1.5 GeV-30 MWの陽子ビームを供給することにより、未臨界炉心より800 MWの熱出力が得られ、年間にMAを250 kg(発電用軽水炉10基から1年間に生成するMA量に相当)核変換できる。LBE冷却の核変換用ADSの研究は世界的に進められており、特に欧州・中国が積極的な開発を行っている。

### 3.2 液体鉛ビスマス合金(LBE)の特性

JAEAでは、ADSによる核変換の実現をめざした研究開発[5]を進めており、ADSの核破砕ターゲット及び冷却材

表1 LBEの代表的な物性値。

項目	記号	単位	値
融点	$T_m$	°C	125
沸点	$T_b$	°C	1670
密度 <sup>*)</sup>	$\rho$	kg/m <sup>3</sup>	10337.38
定圧比熱 <sup>*)</sup>	$C_p$	J/kg·K	145.75
熱伝導率 <sup>*)</sup>	$\lambda$	W/m·K	11.73
熱拡散率 <sup>*)</sup>	$\alpha$	m <sup>2</sup> /s	$7.83 \times 10^{-6}$
粘性率 <sup>*)</sup>	$\eta$	Pa·s	$18.41 \times 10^{-4}$
体積膨張率 <sup>*)</sup>	$\beta_p$	K <sup>-1</sup>	$12.80 \times 10^{-5}$

\*) 温度条件: 300°C

にはLBEを採用している。LBEの代表的な物性値[6]を表1に示す。LBEは、鉛(45%)とビスマス(55%)からなる共晶合金である。融点は、鉛(327.55℃)、ビスマス(271.45℃)[7]の単体時と比べて125℃と低く、高速炉によく用いられるナトリウム(97.79℃)と近い値を持つ。このため、ナトリウム冷却高速炉の技術を応用できるとともに、ナトリウム冷却高速炉とほぼ同様のヒートバランスとして炉心設計を行うことができる。また、LBEは沸点が1670℃と一般的な高速炉向けの構造材の融点よりも高く、液相の温度範囲が広いことも特長である。このため、炉内での蒸発によって冷却能力を大幅に損なうことや、局所的な発熱を誘発することが無い。また、ナトリウムや他のナトリウム系合金、リチウム等に比べて化学的活性が低く、仮に水や空気と接触したとしても、爆発的な反応を生じないという特長を持つ。このため、中間的な熱交換器を介することなく水・加圧水を使った冷却装置を設置することができる。また、メンテナンス時などに、不活性ガス雰囲気でも作業を行うことができるため、作業効率が高い。さらに、水と比べて10倍以上高い熱伝導率、数10倍以上の熱拡散率をもつため、除熱冷媒として優れた性質を持つ。以上のことから、除熱システムの小型化が実現できる可能性があり、次世代の原子炉冷却材としてLBEに関心が寄せられている。ADSへの適用性においても、LBEを構成する鉛、ビスマスとも重金属に分類されており、原子核内に多くの核子を持つことから、高エネルギー陽子の誘発する核破砕反応から生じる核破砕中性子の生成量が多い利点を有する。また、中性子の散乱断面積が大きいこと、中性子吸収が少ない上に、負の冷却材ポイド反応度を持つ炉心が構成しやすい。さらに、核変換に最適な高速中性子スペクトルを得やすいという核変換炉に良好な核的な特長を有する。

上記のような特長を持つ一方、LBEは鋼材に対する腐食性が高いことが知られている。LBEは、鋼材の主要な合金成分である鉄、クロム(Cr)等の溶解度が大きく、特に、オーステナイト系ステンレス鋼の成分であるニッケル(Ni)やフランジ等のシール材に用いられる銅の溶解度も大きい。このため、腐食の抑制ならびに耐腐食性材料の開発がLBE利用の最大の課題となっている。これまでに各国で実施されてきた静的、流動下での腐食試験の結果から得られた知見として、①400~450℃以上の温度領域において、温度上昇とともに著しい腐食が生じること、②Niを含まないフェライト/マルテンサイト(F/M)鋼に比べ、Niを含むオーステナイト鋼の耐食性が劣ること、③一般に鋼材中のCrの濃度を高めると耐食性が向上し、アルミやシリコンを含む鋼材や表面改質材ではより耐食性が向上すること、④LBEの流動下ではより腐食が進行し易く、特に系統内に温度差がある場合には質量移行により腐食が加速されること、⑤LBE中の溶存酸素濃度によって腐食挙動が異なることが知られている。これに加え、粘性が低い、プラントル数が小さい、表面張力が強いなど、液体重金属の持つ流体力学的な性質によってLBEは複雑な流れを形成しやすく、かつ比重が大きい点から、系統流路の屈曲部や拡大/縮小箇所などの流れの向きが急に変化する箇所、流速

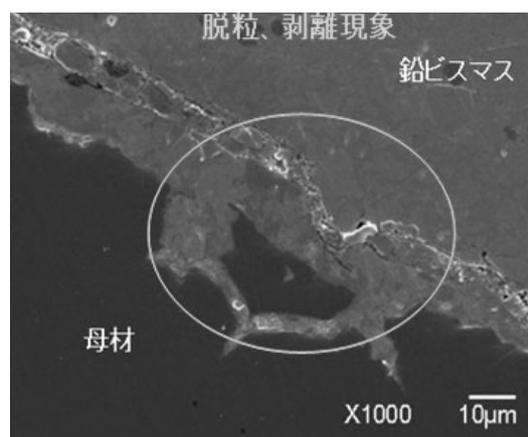


図4 LBEによるステンレス316鋼配管の腐食。

が極端に速い箇所ではエロージョンの発生に十分注意する必要がある。系統内でのLBEの流速は2m/s以下に制限することが推奨される。また、重金属であることは、原子力システムの耐震安全性の確保の上ではデメリットであり、JAEAの提案するADSでも技術的課題の一つとなっている。

図4に、酸素濃度を制御しない状態でのLBEによる構造材の腐食例を示す。

316ステンレス鋼製の配管に450℃のLBEを流速約1m/sで3000時間流したものである。配管内面からは、結晶粒の剥離も見られ、最大で約300ミクロン/年の腐食を確認した[8]。欧州の実験やJAEAでの非流動下でのLBE浸漬実験では、LBE中の溶存酸素濃度を適切な範囲に制御し、系統構造材料の表面を酸化皮膜で被覆すれば、母材がLBEと直接接触しないため、腐食量を大幅に低減できることがわかっている。このため、LBEを用いた循環系でのLBE中酸素濃度制御技術の確立が重要となっている。

LBEに含まれるビスマスに中性子を照射すると、中性子の捕獲反応からアルファ崩壊するポロニウムが生成する。ポロニウムはカバーガスを介して揮発し、系統外に漏洩する可能性があるため、揮発率や他の元素との化合物の形成等について数値解析とともに実験的な検証を計画している。

JAEAでは、現在は基礎研究段階として、LBEの利用に関わる基礎研究や共存性の高い構造材料に関する研究、腐食抑制のために微量の酸素をLBEに添加して鋼材表面に酸化皮膜を形成して腐食を抑制する技術の研究、炉心解析コードの開発、MA装荷未臨界炉の炉心特性の研究、大強度陽子加速器の運転安定性向上に関する研究等を実施している。また、研究レベルを基礎研究段階から工学研究段階に進めるため、JAEA原子力科学研究所の大強度陽子加速器施設J-PARC (Japan Proton Accelerator Research Complex)にLBEターゲットを設置し、大強度陽子ビームを用いた工学技術試験の実施することをめざしている。

### 3.3 LBE核破砕ターゲットに関する研究開発

ADS特有の構成要素である核破砕ターゲットは、加速器からの陽子ビーム輸送管終端部に設置され、その境界は陽

子ビーム窓により形成する。陽子ビーム窓は、陽子ビームの通過による照射損傷と発熱を受けると同時に、ターゲットから放出される中性子の照射を受ける。また、LBEの流動による腐食が懸念される上、400℃～500℃といった高温での構造強度が要求されるなど、厳しい環境での利用が想定される。これらの特性を的確に把握し、陽子ビーム窓の合理的な設計と寿命評価を行うことがADSの運転の安定性を確保する上で重要となる。材料照射に関する試験では、スイス・ポールシェラー研究所のSINQ施設において2006年に590 MeV-0.8 MWの陽子ビームを4箇月間照射したMEGAPIE国際共同実験[9]を通じて、流動LBE環境下での材料データが取得されている。

JAEAでは、J-PARC施設にLBEターゲットを設置し、ADS用核破砕ターゲットを構成する機器類の設計と寿命評価の精度向上に資する陽子ビーム照射データを取得するため、出力250kW級の核破砕ターゲットを設置することを計画している。ターゲットの概念を図5に示す[10]。

この核破砕ターゲットは、高温で流動するLBE内で陽子及び核破砕中性子の混合照射を効率よく行うことを目的として設計している。陽子ビーム入射部に照射試料を設置するため、冷却材入口側となる外管と冷却材出口に繋がる内管から成る二重円筒構造とし、陽子ビーム入射部でLBE流れが反転し、反転部直後に設置した照射試料に陽子ビームがエネルギーをほとんど損失することなく照射される構造である。ターゲットに陽子ビームが入射する部位（ビーム窓）では、LBE流れによる動圧とともに、ビーム入射に伴う局所的な発熱により引き起こされる熱応力が発生する。この力を緩和するため、ビーム窓部は複数の曲面を組み合わせた湾曲構造とし、高い陽子ビーム密度での長時間照射を可能としている。

核破砕ターゲットとしてLBEなどの液体金属を用いる場合、高温運転への対応、耐腐食性確保のための液体金属の純度管理、核破砕反応に伴う生成物の液体金属中での挙動など、液体金属の取扱技術の確立が必要となる。以下に、JAEAにおいてLBE取扱技術の研究開発を実施している試験装置を紹介する。

### 3.3.1 核破砕標的循環試験装置 (IMMORTAL)

核破砕標的循環試験装置 (IMMORTAL) は、J-PARCでの導入をめざすLBEターゲットの一次冷却系 (LBE循環系) および二次冷却系の実証試験を行うためのモックアップ試験装置である。本装置は、以下に示す機器で構成され

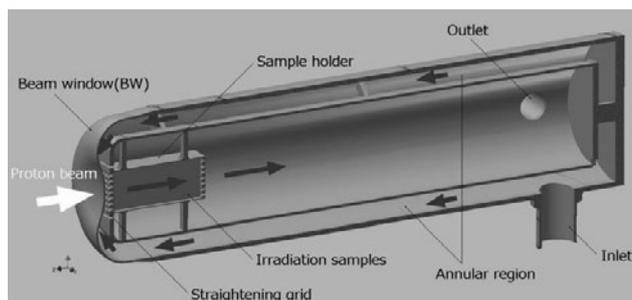


図5 材料照射用LBEターゲット概念。

る。

- (1) ターゲット容器試験体：実機LBEターゲットにおいて、加速器とターゲットとの境界として機能する陽子ビームが入射する箇所を模擬した試験体。
- (2) 加熱器：ターゲット容器に流入するLBEの温度調整器としての機能を有する。本装置では、陽子ビーム入射による入熱の約1/3の発熱 (67 kW) を模擬した試験にも用いられる。
- (3) 膨張タンク：一次冷却系内でのLBEの体積膨張を吸収する機能を有する他、タンク内の自由界面を介してLBE中にカバーガス中に添加した酸化/還元ガスを供給することで、系内LBEの酸素濃度制御を行う。
- (4) 熱交換器、二次冷却系：ターゲット容器での入熱 (総量200 kWを想定) を除去する機能を有する。LBEターゲット全体を可能な限り縮小化するため、二次冷却媒には加圧水を採用している。
- (5) 電磁ポンプ：一次冷却系を循環するための機能を有するだけでなく、実機でのメンテナンス性を考慮し、2重管型の駆動配管を採用することで、駆動用コイルのみを切り離して交換することが可能である。
- (6) フィルター：LBE中に発生した酸化鉛、析出物等の不純物を捕集する機能を有する。
- (7) 一体型ヒーター・保温材：実機LBEターゲットにおいて、機器交換箇所に設置するもの。当該箇所の予熱昇温、温度保持機能を有し、クレーンおよびマニプレータにより遠隔操作での脱着が可能である。
- (8) ドレンバルブ：運転時に一次冷却系内に充填されたLBEを保持する機能を有する。緊急時にはインターロック機構によって開操作が自動で行われ、系内のLBEはドレンタンクへ流出する。
- (9) ドレンタンク：緊急時および運転停止時にドレンバルブを介して一次冷却系内のLBEを回収、保管する機能を有する。

LBEのインベントリ、配管、機器配置だけでなく実規模相当のサイズ、形状、性能を有する構成機器類が導入されており、系統の熱挙動の検証を含めた循環ループ特性の評価、計装や構成機器の性能評価が可能である。主要諸元を表2に示す。

表2 IMMORTALの主要諸元。

概略寸法 (D×W×H)	8.0 m×3.5 m×5.5 m	
インベントリ	280リットル (約2.8 ton)	
主要材質	SUS316	
一次駆動流体	LBE	
二次駆動流体	加圧水 (最高2.0 MPa)	
設計温度/圧力	500℃/0.5 MPa	
運転時最高温度/気相圧力	450℃/0.1 MPa	
ポンプ最大流量/吐出圧	120リットル/分, 0.2 MPa	
計装	温度	K型熱電対
	流量	超音波流量計
	酸素濃度	Pt/Air型酸素濃度計
	液位監視	誘導型連続式液位計

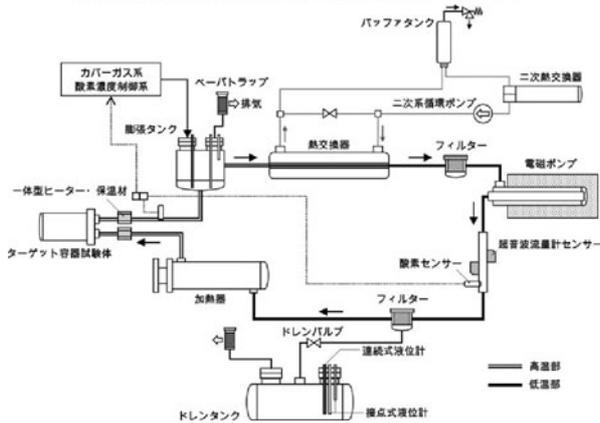


図6 核破碎標的循環試験装置外観及び系統概略図.

IMMORTALには、予熱ヒーター制御、温度監視を含め総数40本以上のK型熱電対が設置されている他、LBE中の酸素濃度を監視・制御するために後述するPt/Air型酸素濃度計を加熱器～熱交換器間の高温側、熱交換器～加熱器の低温側の2ヶ所に設置することが可能である。LBE流量の監視を行う流量計として、従来は電磁流量計が用いられてきたが、鋼材に対するLBEの腐食性に起因する検出電極の損耗や析出物の堆積による長期間での出力不安定が問題であった。このため、IMMORTALではナトリウム冷却高速炉での技術開発成果を活用し、伝播時間差式超音波流量計を設置している。本流量計は、既にJAEAが保有する小型LBEループでの試験において、実機LBEターゲットの運転時間を想定した期間中、極めて安定かつ十分な精度での計測を実現[11]したものである。また、膨張タンク内でのLBE自由界面の変動監視および一次系破損によるLBE漏洩を検出することを目的として、連続式液位計が膨張タンク、ドレンタンクにそれぞれ設置されている。

将来的な計画では、陽子ビーム照射下で運転される実機LBEターゲットに対し、腐食挙動等について非照射下運転での実験データを提供することを目的として使用される予定である。

### 3.3.2 高温鉛ビスマス流動試験装置 (OLLOCHI)

高温鉛ビスマス流動試験装置 (OLLOCHI) は、将来のADS開発に向けた基礎的な試験として、様々なADS候補材料のLBE流動下での腐食データを広範囲の温度条件下で取得することを目的とした試験装置である。図7に装置の外観と系統概略を示す。その他に、実機ADSでの冷却材温度条件下での酸素濃度制御技術の開発やLBE純化技術の研究開発を行う。最高運転温度は550℃に達するため、加

熱器～熱交換器間の高温部には改良9Cr-1Mo鋼 (T91) や2-1/4Cr-1Mo鋼 (SFVAF22) 等を採用している。本装置の最大の特長は3本の腐食試験用流路が設けられている点にある。それぞれの流路に独立したバルブ、流量計、加熱器が設置されており、バルブの開閉操作によって任意に循環/停止が可能である他、異なる流量、温度条件下での材料腐食試験を同時に行うことが可能である。流動下腐食試験で重要となる試験片近傍のLBE流速は、内挿管型試験片ホルダの径や形状変更によって最大1~2 m/sに達する。試験片ホルダは、アルゴンガスが充填されたグローブボックスから膨張タンクを介して各試験用流路に設置する構造となっており、一次系に充填したLBEをドレンすることなく試験片の交換が可能である。実機環境では、陽子、中性子照射の他に、熱応力、循環LBEによる動圧等が印加された状態で構造材料が腐食性の高いLBEの流動に晒される。高

表3 OLLOCHIの主要諸元.

概略寸法 (D×W×H)	4.0 m×3.3 m×5.5 m	
インベントリ	110リットル (約 1.1 ton)	
主要材質	低温部: SUS316 高温部: T91, SFVAF22 等	
一次駆動流体	LBE	
二次駆動流体	空気	
設計温度 / 圧力	550℃ / 0.5 MPa	
運転時最高温度 / 気相圧力	550℃ / 0.1 MPa	
ポンプ最大流量 / 吐出圧	40リットル / 分, 0.1 MPa	
計装	温度	K型熱電対
	流量	電磁流量計 超音波流量計
	酸素濃度	Pt/Air型酸素濃度計
	液位監視	接点式液位計

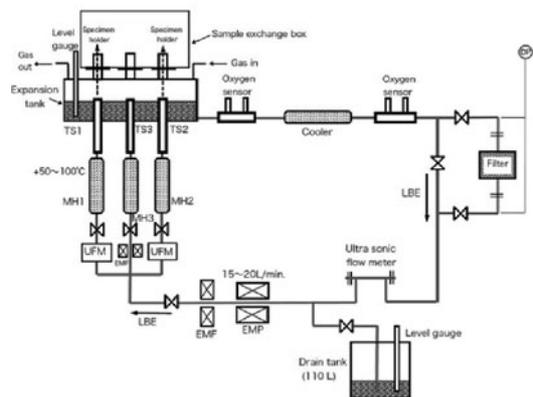


図7 高温鉛ビスマス流動試験装置外観及び系統概略図.

温かつLBE流動条件下で試験片に応力を負荷した状態での腐食試験は未だ世界的に見てもごく稀であり、極めて重要な実験データである。このため、本装置の中央の試験流路には、材料試験機を設置することで腐食試験片のLBE流動下での応力負荷試験を行うことができる構造が採用されている。これにより、OLLOCHIでは、将来ADSの設計に資する非照射下での応力負荷状態における腐食挙動に対する実験データを取得する予定である。また、流量監視には電磁流量計（主系統1基、試験流路（中央）1基）、超音波流量計（主系統1基、試験流路（左右）各1基）、2種類／合計5基の流量計が導入されており、両流量計の性能比較試験を行うことができる。

### 3.3.3 酸素センサー校正試験装置

高速炉の構造材として汎用性が高いステンレス鋼や高クロム鋼とLBEとの共存性を確保するには、LBE中の酸素濃度を $10^{-5}$ ~ $10^{-7}$  wt%の濃度に調整し、鋼材表面に酸化皮膜を形成する必要がある。この技術については、ロシアや欧州の成果が前述のハンドブックなどに取りまとめられている。

酸素濃度を計測する手法として、一般にガルバニ電池式等の複数の手法があるが、LBE中の酸素濃度を計測するセンサーには、ジルコニア式が採用されてきている。ジルコニア式は、固体電解質としてイットリア安定化ジルコニア(YSZ)を用い、高温中でYSZを介して酸素イオンが酸素濃度の高い箇所から酸素濃度の低い箇所へ移動することで電位差が生じ、発生した起電力と温度を計測することでネルンストの式から媒体の酸素濃度を導出するものである。LBE用酸素センサーのYSZ内部に封入する参照極として、ベルギーでBi/Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>型、ドイツではPt/Air（プラチナ塗布・大気参照）型が用いられている。Bi/Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>型は密閉構造であり、YSZ破損時に系統からLBEが外部へ漏洩する恐れが少ないことが利点として挙げられる反面、JAEAが想定しているLBE循環系の温度条件ではピスマスが溶解するため、センサーの設置方向に制約がある他、使用中にBi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>が徐々に消費されるため、センサーの使用寿命がBi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の封入量に依存することがデメリットとして挙げられる。一方、Pt/Air型は、Bi/Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>型よりも出力が高く、参照極に空気を用いており設置方向に制約が無く、継続的に周辺雰囲気等から空気を導入することにより、長期間の計測が可能である。Pt/Air型は空気導入孔が必要であり、YSZ破損時にLBEが外部へ漏洩する恐れのあることがデメリットである。このため、JAEAでは、高出力で長寿命だが外気導入部が必要なPt/Air型のLBE用酸素センサーについて、YSZ破損時に放射化したLBEが外部に漏洩しない独自の構造を有する新しいセンサーを開発し、流動LBE中の酸素濃度制御技術の開発を進めている。

鋼材に対して強い腐食性を示すLBEの循環系を運用する上で、溶存酸素濃度の状態を監視し、適切に管理する技術が必要不可欠である。特に、材料腐食試験においては、試験条件として把握しておくことが求められる。このため、図8に示す酸素センサー校正試験装置では、開発した酸素センサーをループ型試験装置へ導入する前に、適切に

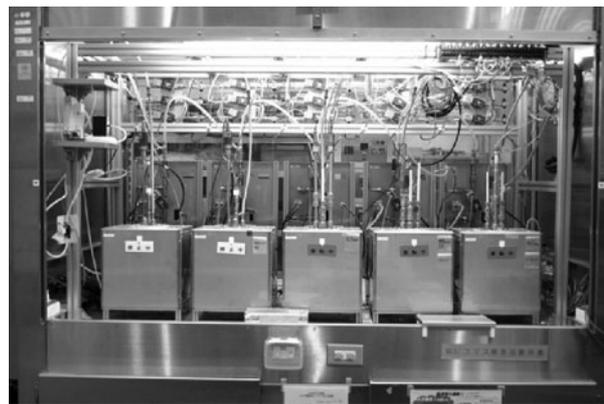


図8 酸素センサー校正試験装置の外観

動作しているかを事前に確認するため、センサー特性の把握と性能評価試験を行っている。

本装置は、LBEポット、電気炉、ガス制御系から構成される。LBEポットはステンレス製のドラフト内に設置されている。LBEポットにLBE（約0.2リットル）を充填し、酸素センサー、熱電対を設置して350~550℃の温度範囲におけるセンサー出力の温度依存性を確認する試験を実施している。また、酸素濃度制御技術を確認するため、LBE中の酸素濃度が一定の閾値を逸脱した際にポット内のカバーガス中にAr+5%酸素ガス（酸化）、Ar+5%水素ガス（還元）を添加し、測定された出力の変化挙動をLBEの物量、各ガスの添加量、温度（ガス、LBE）、気相圧力をパラメータとして把握する試験も行っている。

### 3.4 まとめ

LBEは、これまでロシアの潜水艦や研究炉など、限られた用途で使用されてきた。しかしながら、その核的・化学的特性から次世代原子炉の主要冷却材として改めて注目されてきている。特に、LBE核破砕ターゲットは、長寿命放射性廃棄物の分離変換技術の重要な要素技術として開発が世界的に進められている。JAEAでは、長寿命放射性物質の負担低減をめざしたADSでのLBE利用を進めており、その大きな課題である構造材との共存性の向上とともに、ADSによる核変換技術の早期実用化をめざして、研究開発を進めている。

### 参考文献

- [1] 日本原子力学会：分離変換技術総論（2016）。
- [2] 日本原子力学会 核燃料サイクル部会：テキスト「核燃料サイクル」8-1 分離・変換の意義（2016）。
- [3] 日本原子力学会 核燃料サイクル部会：テキスト「核燃料サイクル」8-2 分離変換技術（2016）。
- [4] T. Sasa, AAPP Bulletin, 24(5), 13 (2014).
- [5] 日本原子力研究開発機構における長寿命核種の分離変換技術に関する研究開発の現状と今後の進め方, JAEA-Review 2008-074 (2009).
- [6] OECD/NEA: Handbook on Lead-bismuth Eutectic Alloy and Lead Properties, Material Compatibility, Thermal hydraulics and Technologies 2015 Edition (2015).
- [7] 日本機械学会：伝熱工学資料 改訂第4版（1986）。

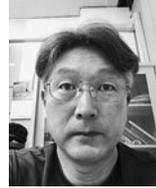
- [ 8 ] S. Saito *et al.*, J. Nucl. Mater. **431**, 91 (2012).
- [ 9 ] W. Wagner, Proc. Int. Topical Meeting on Nuclear Research Applications and Utilization of Accelerators (2009).

- [10] J-PARC 核変換実験施設 技術設計書 -ADS ターゲット試験施設 (TEF-T) -, JAEA-Technology 2017-003 (2017).
- [11] H.Obayashi *et al.*, Proc. NUTHOS-11, N11P0107, 10p., in USB Flash Drive (2016).



さ さい としのぶ  
佐々 敏信

1966年生まれのバブル世代。日本原子力研究開発機構 J-PARC センター・ターゲット技術開発セクションリーダー。放射性廃棄物の核変換による減容・有害度低減が究極のテーマ。そのために必要な本稿記載の核破碎ターゲット技術、液体金属取扱技術などが現在の研究課題。若い頃ストレス発散に走り回った大洗海岸線のドライブを、年相応に優雅に走れる車で復活すべく画策中。



さい どう しげる  
斎藤 滋

日本原子力研究開発機構 J-PARC センターターゲット技術開発セクション所属。専門は材料工学。主な研究分野は、かつては核融合材料、現在は核破碎材料の研究。ADS の実現を目指し、高エネルギー陽子／核破碎中性子照射材の照射後試験、照射後試験技術開発から鉛ビスマスと鋼材の共存性研究などに取り組んでいます。



おお ばやし ひろ なり  
大林 寛生

J-PARC センター・ターゲット技術開発セクション所属。専門は流体工学、主な研究分野は高温の溶融鉛ビスマス合金流れの研究。流れ場の計測が難しい液体重金属の流れ場に魅せられ、四苦八苦と試行錯誤の毎日。年齢と共に増加していく一方の自分の体重と体脂肪率に対し、如何に労力を掛けず、減らしていくことができるかという無理難題にも取り組んでいます。



## 講座 中性子源としての液体金属

### 4. 核変換における液体リチウムターゲット

#### 4. Liquid Lithium Target in Nuclear Transmutation

奥野 広樹

OKUNO Hiroki

国立研究開発法人 理化学研究所 仁科加速器科学研究センター

(原稿受付：2018年7月9日)

現在、高レベル放射性廃棄物 (HLW) の中に含まれている長寿命核分裂生成物 (LLFP) を安定または短寿命の原子核に核変換することにより、HLW を大幅な低減させ、さらに、安定となり無害化されたレアメタル等の希少金属を資源化することをめざした研究が進められている。具体的には、HLW から LLFP を分離し標的として、加速器から得られる陽子や重陽子等のビームを照射することにより核変換させるというものである。核変換に必要な加速器は、従来のビーム強度を大きく上回る必要があり、ビームを照射する標的にも、除熱能力や液膜の質に厳しい性能が要求される。また、加速器内のため真空と、ほぼ大気圧となる標的領域を仕切るビーム窓にも多大な発熱が生じ、ビーム窓が破損する危険性が高くなる。本章では、現在、内閣 ImpACT 藤田プログラム「核変換による高レベル放射性廃棄物の大幅な低減・資源化」において、上記の革新的な加速器、標的、真空窓の実現に向けて行われている要素技術開発の状況について解説する。

#### Keywords:

High-level radioactive, LLFP, transmutation, liquid lithium, plasma window

#### 4.1 はじめに

現在、地層処分のみが唯一の解と考えられている高レベル放射性廃棄物 (HLW) の新しい処理方法を提示するために、ImpACT 藤田プログラム「高レベル放射性廃棄物の低減と資源化」[1]では、2014年から幅広い研究開発が行われている。

HLW の中には、プルトニウム等のマイナーアクチノイド (MA) と長寿命核分裂生成物 (LLFP) が含まれている。図1は HLW が経年とともに放射能がどのように変化していくかを示している。これを見るとわかるように MA のみを処理したのでは不十分で、LLFP も低減しなければ HLW の放射能が短寿命化されたとは言えず本プログラムでは、主に<sup>107</sup>Pd, <sup>135</sup>Cs, <sup>73</sup>Zr, <sup>79</sup>Se の4核種にフォーカスして、処理方法が検討されている。一方、LLFP の中にはレアメタルや貴金属等、有用金属を含んでおり、資源化することが可能であるが、放射性同位体が含まれているため、実際に資源化しようとする、放射性同位体を核変換により無害化する必要がある。これまでの LLFP の核変換は、原子炉で得られる 10 MeV 以下の中性子による核変換が研究されてきた。ImpACT 藤田プログラムでは、核変換に用いられる粒子を中性子のみと限定せず、また 10 MeV 以上の中性子エネルギーを自由に選ぶことができた。また、中性子だけに留まらず、加速器において加速されているビームそのものを LLFP に照射することも想定され、更には、ミュオンを用いた核変換も視野に入れられている。

このように様々な反応チャンネルを駆使して、LLFP を減量させることを試みることになるが、そのためには各反応チャンネルの反応確率を正しく実験的に抑えておく必要がある、これがこの ImpACT 藤田プログラムの大きな柱となっている。実際、それらは最先端加速器施設である理研の RI ビームファクトリー (Radioactive Isotope Beam Factory, RIBF) [2], J-PARC の中性子/ミュオンビームチャ

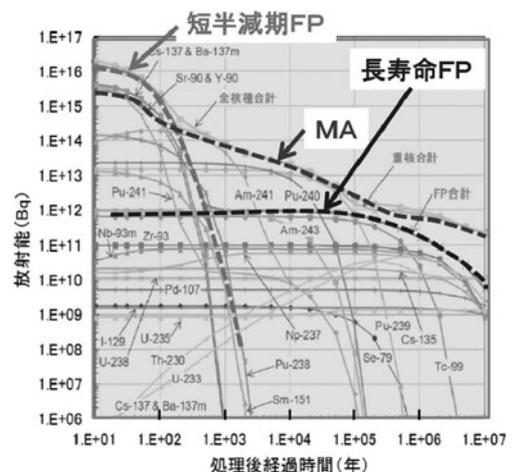


図1 高レベル放射性廃棄物の放射能の経年変化。短半減 FP (短半減期核分裂生成物)、MA (マイナーアクチノイド)、長寿命 FP (長寿命核分裂生成物) に分けて表示してある。  
(<https://www.jst.go.jp/impact/program/08.html>)

ンネル[3]を用いて行われ、成果が出ている[4].

上記のように各チャンネルでの反応確率が実験的に解った後には、やはり、このLLFPを実際に核変換する為に必要な加速器や標的の設計、要素技術の開発が必要であり、筆者もこのプログラムに参加している。次節以降で、これらの加速器や標的の概略を説明する。

### 4.2 加速器システムと標的

LLFPの核変換を実現するために、現在必要とされている加速器から得られるビームの電流値は図2の通りである。上述の4核種 (<sup>107</sup>Pd, <sup>135</sup>Cs, <sup>93</sup>Zr, <sup>79</sup>Se) で同位体分離、偶奇分離を行う、上記二つを行わない場合がそれぞれ記載されている。この図より明らかに、既存の加速器では到達し得ない程の大電流の出せる加速器とそれを受け止められる標的システムが必要であることがわかる。全貌は現在検討中であり、見込みのあるアイデアも出てきて、プログラムの最後までには公表できることになる。

LLFPの核変換を可能にする加速器及び標的からなるシステムについては、標的の置く場所に応じてふたつの種類が考えられ、それらは、標準型とエネルギーリサイクル型である。図3に概略図を示す。標準的な配置の場合、加速されたビームが外部に置かれた標的に照射される。そこで設置される加速器や標的が(従来にない)革新的なものであることには間違いないが、このプログラムでは、特に加速器の真空領域と加速器の領域を仕切る真空窓が特に問題になると考え、このR&Dを実施している。具体的な研究対象は、固体窓ではなく、プラズマで真空封止を行うプラズマウィンドウと呼ばれるものである。これは、既存の技術ではあるが、これを大強度ビームに対応できるよう大口徑

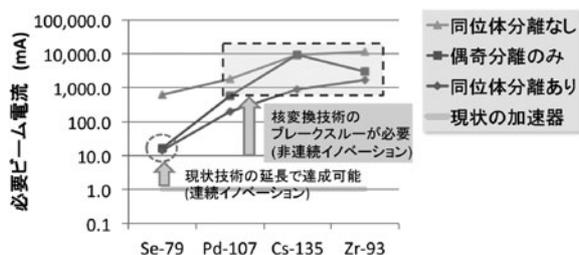


図2 <sup>79</sup>Se, <sup>107</sup>Pd, <sup>135</sup>Cs, <sup>93</sup>Zrの核変換に必要なビーム電流値 (<https://www.jst.go.jp/impact/program/08.html>).

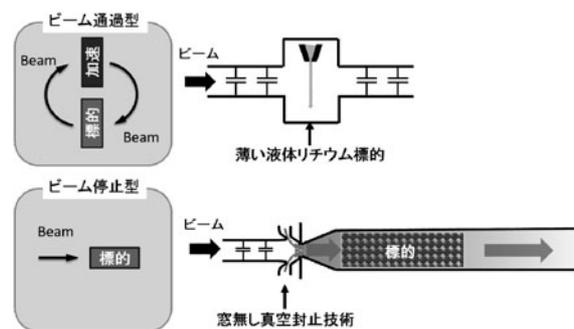


図3 核変換に用いられる標的システムの分類(ビーム通過型とビーム停止型).

化する試みが行われている。もう一つのケースは、加速器の中に比較的薄めの標的を置き、周回するビームが標的を通過した後、ビームを捨てることなく、標的内で失われたエネルギーを加速空洞内で補い再び利用する。そのため一旦目的のエネルギーまで上げた電力が回収され無駄にはならず、エネルギー回収型加速器と言える。この加速システムは目的とする生成粒子(中性子やミュオン)の生成断面積があるエネルギーにのみ集中している場合に大変有効である。これはERIT (Energy Recovery Internal Target) [5]と呼ばれ、図4に示す様に、核変換用加速システムへの応用が期待されている。ERITの標的にも大強度のビームが照射され熱負荷も多大なものとなり、液体リチウムや粉体を用いた標的が検討されている。通常、液体リチウムを用いた中性子標的では裏板を用いて形状を安定化させるが、この場合は、その様な裏板を置くことはできない。そのため、液体や粉体がノズルから出てきた液面の形状や表面状態が加速器の仕様にマッチするものであるかを調べる必要がある。我々は自由表面の流れの液膜について定量的に調べるところから始め、これらの液面の状態を制御する方法を確立すべくR&Dを行っている。

### 4.3 液体リチウム標的

#### 4.3.1 除熱能力

前節の図2で示す様に、核変換に必要な電流値は約1Aである。また、加速器では重陽子を核子当たり100 MeV程度まで加速することが想定されているため、ビームパワーで約200 MWと言うことになり、世界の加速器の最大ビームパワーが1 MW程度であることを考えると、現状の100倍を超える標的システムが必要となる。このビームパワーが全て液体リチウム内で消費され熱となった時、液体リチウムの必要流量と温度上昇を求めてみる。まず、温度  $T [^{\circ}\text{C}]$  におけるリチウムの比エンタルピー  $H [\text{kJ/kg}]$  は、

$$H = (-0.372 \times 10^6 + 4.53 \times 10^3 \times T - 4.191 \times 10^{-1} \times T^2) \times 10^{-3}$$

であるため[6]、ビーム入熱  $Q [\text{kW}]$ 、入口温度  $T_{in} [^{\circ}\text{C}]$ 、出口温度  $T_{out} [^{\circ}\text{C}]$ 、密度  $\rho [\text{kg/m}^3]$  とすると、必要流量  $F$



図4 ERIT (Energy/Recovery Internal Target) を用いた核変換システムのイメージ図. ([https://www.jst.go.jp/impact/hp\\_fjt/outline/project/index.html#project-04](https://www.jst.go.jp/impact/hp_fjt/outline/project/index.html#project-04))

[m<sup>3</sup>/s]は、

$$F = Q/\rho(H(T_{out}) - H(T_{in}))$$

となる。最大の出口温度を400℃まで許容して、入力温度を250℃とすると、ビーム入熱が200 MWの時の必要流量は、600 liter/sとなる。これは、IFMIFの値の約4.5倍となる[7]。出口温度を上げればそれだけ必要流量を下げるができるが、実際にビームが減速する過程で液体リチウムに与える入熱分布は、重陽子が停止する直前に集中する性質があるため、その停止する領域での温度は出口分布より高くなる事に注意しなければならない。温度  $T_p$  [K]の時の液体リチウムの飽和蒸気圧  $P$  [Pa]は、

$$P = 10^{(15.124 - 6442.5/T + 1.640 \log_{10} T + 2.597 \times 10^{-4} T)}$$

であるため[8]、出口温度400℃の時は、飽和蒸気圧は0.01 Paほどとなる。実際は、上述の様にリチウム中での発熱分布は一様ではないため、液面内での最高温度での飽和蒸気圧以上にカバーガス等で圧を高めておかないと突沸が起きてしまう事になる。一般に突沸を避けるためには、ビームを照射するエリアを広げておく必要があり、例えばIFMIFの場合は、100 cm<sup>2</sup>とされているが[7]、我々の場合は、照射される電流の面密度をIFMIFの10分の1程度をめざし、照射面積を広げる標的システムを現在検討中である。

4.3.2 液膜の性質

前節でも述べたように、100 MWを超えるビームの熱負荷を受ける液体リチウムを用いた標的システムは、かなり大規模なものになると予想される。我々は、このような大規模なシステムに取り掛かる前に、小規模な液体リチウムループを用いて、自由表面流れによって生成される液膜の基本的な性質を調べるとともに、その状態を制御することが可能か実験的に検証することとした。液体リチウムループは、第5章で紹介されるが、元々BNCT (Boron Neutron Capture Therapy: ホウ素中性子捕捉療法) 用に開発されたリチウムループ[9]を、東工大の林崎先生のご協力により使わせてもらっている。BNCT用の液膜生成標的には、液体リチウムがノズルを出た直後に、遠心力により液面を安定化させる円弧状の裏板がついているが、今回の液膜には、加速器内で使用することを想定しているため、この裏板を外してノズルから出て鉛直方向に流れていく、素の状態を見ることになる。

図5に標準的なストロボ時間で撮影した液膜の様子を示す。撮影した流速は、5、10、15、20 m/sである。液膜の外形は、5 m/s、10 m/sと比較的低速の場合、表面張力の影響で、全体的に中心に寄ろうとしていることがわかる。この表面張力の効果は、流速が早くなるにしたがって、弱まり、液膜の外形は平行となっていく。液膜の表面状態であるが、5 m/sの時は大分液膜表面がつやつやしている様子がわかるが、10 m/s以上では、表面がくすんでいるがスムーズに見える。図6は、露光時間を10 μsと、かなり短くして撮影した様子を示す。通常露光時間で撮影した時の図は、かなり平均化されているが、実際はこの図の示すように液面の揺らぎが見られる。我々はこの液面の状態を、

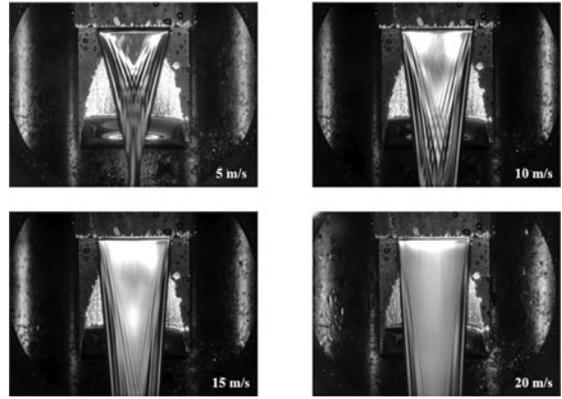


図5 標準的な露光時間で撮影された液体リチウム液膜の写真。撮影した時の流速は、5 m/s、10 m/s、15 m/s、20 m/sであり、各写真の右下に記されている。

光コム距離計により定量的に測定した。測定原理等については、文献[10]を参照されたい。測定の結果の一例を図7に示す。液膜上に生じる波高の最大値は0.3 mm程度であることがわかった。また、流速を10-20 m/sと変化した時の測定を行なったが、波高分布に殆ど変化はなかったが、単位時間当たりの波の発生数が流速に応じて変化することがわかった。

上述の測定から、液膜の形状が低速領域(5 m/s)で表面張力により大きく変形し三角形に近いものになることと、15 m/s以上の高速になってくると、液面に細かい揺らぎが

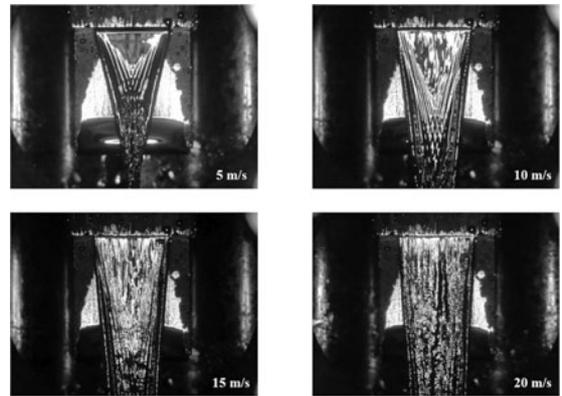


図6 露光時間を10 μsに制限して撮影された液体リチウム液膜の写真。撮影した時の流速は、5 m/s、10 m/s、15 m/s、20 m/sであり、各写真の右下に記されている。

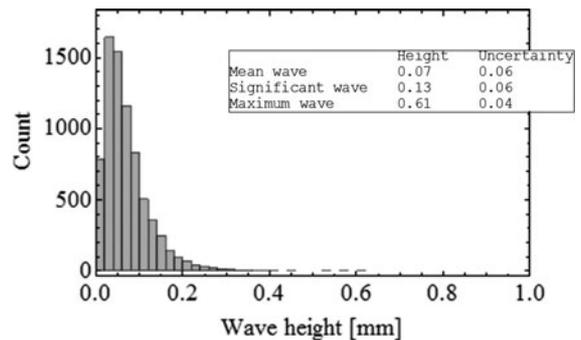


図7 光コム距離計を用いた液体リチウム液膜表面の波高分布。流速は20 m/s。

生じ、液膜の均一度を低下させることが分かった。我々は液体リチウムの流れに沿って静磁場を印可して、これらの変形及び擾乱を抑える実験を行っている。これは、流速  $\vec{v}$  に対して、磁場  $\vec{B}$  をかけたとき、流体上に、 $\vec{v} \times \vec{B}$  の環電流が流れ、これと元の磁場が結合して、 $(\vec{v} \times \vec{B}) \times \vec{B}$  という力が働くが、この力は必ず液体リチウムの流速が  $\vec{B}$  の向きから離れた時、それを戻そうとする力となる[11]。それにより、上述の変形や擾乱を抑制できると期待している。

#### 4.4 大口径プラズマウィンドウの開発状況

前節で述べた液体リチウムの実験を行っている、液膜から直接飛沫が飛んできてビューポートを汚す事が多いことに気づかされる。勿論、測定条件やビューポートの設置位置にもよるが、一般的に液体リチウムの表面張力の大きいことから、飛沫になりやすいと言うことができる。液体リチウムを標的として使う場合、その飽和蒸気圧の低さから加速器の真空領域と加速器エリアを仕切るビーム窓は不要であるとするケースが多くみられるが、飛沫の侵入についても考慮に入れて、ビーム窓の要否は決める必要があると考える。現在稼働中の主要な大強度施設では、例外なく固体のビーム窓が使われている。このビーム窓はヘリウムガス等で冷却されているが、そこに照射されるビームの電流面密度の上限値は  $25 \mu\text{A}/\text{cm}^2$  程度と言われている[12]。我々に必要な電流値は  $1 \text{ A}$  であることを考えると、ビーム窓の面積  $40000 \text{ cm}^2$  となり、畳2畳分ぐらいの大きさのビーム窓が必要となり、成り立つ数字ではなくなってくる。

我々は固体のビーム窓を使わず、プラズマを用いたビーム窓を使用する可能性を追求している。プラズマウィンドウは1995年に発明され実証されたものである[13]。概略図を図8に示すが、差圧のある二つの領域の接続部にアークプラズマを満たされている。接続部内のプラズマガスの温度上昇により粘性度が上がり、差圧が拡大するものである。発明当時このアークプラズマの部分の直径は  $2.35 \text{ mm}$  程度と非常に小さいもので、これまで  $6 \text{ mm}$  まで直径を拡げて、プラズマウィンドウとしての効果が確認されている。 $6 \text{ mm}$  と言えども、大強度ビーム用の窓としては、けた違いに狭く、大口径化する必要がある。我々はまず手始めに  $10 \text{ mm}$ ,  $20 \text{ mm}$  まで拡張することを計画し、試験機を製作し試験を実施中である。

#### 4.5 まとめ

核変換により LLFP を大幅に低減し、更に資源化するという研究開発が進行中である。この核変換の為に必要なビーム電流値は  $1 \text{ A}$  を超え、従来の100倍以上の電流値が必要となる。これを実現するための加速器システムや標的システムの開発研究も進行中である。標的には液体リチウムを使用することが検討されているが、我々はまず液体リチウムの自由表面流れによって生成される液膜の基本的な性質を調べるとともに、磁場により液膜に生じる変形や表面

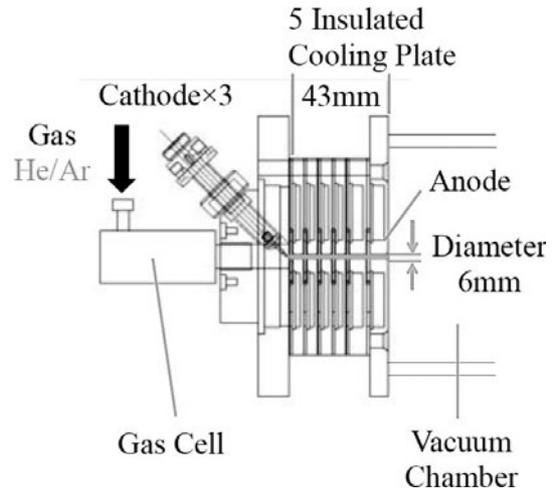


図8 プラズマウィンドウの概略図。

の揺らぎを制御する実験を行っている。加速器と標的システムの接続する際には、ビーム窓が問題となることが多々あるが、固体窓を用いないプラズマウィンドウに着目して、従来  $6 \text{ mm}$  程度である口径を大口径化する試みを行っている。本研究は、総合科学技術・イノベーション会議が主導する革新的研究開発推進プログラム (ImPACT) の一環として実施したものです。

#### 参考文献

- [1] <https://www.jst.go.jp/impact/program/08.html>
- [2] Y. Yano, Nucl. Instrum. Meth. B 261, 1009 (2007).
- [3] <https://j-parc.jp/index.html>
- [4] H. Wang *et al.*, Prog. Theoretical Experimental Phys. 2017, 021D01 (2017).
- [5] Y. Mori, Nucl. Instrum. Meth. A562, 591 (2006).
- [6] D. Smit *et al.*, Argonne National Laboratory Report ANL/FPP-84-1 (1984).
- [7] K. Kondo *et al.*, Nucl. Fusion 51, 123008 (2011).
- [8] J. Bohdansky and H. Schins, J. Phys. Chem. 71, 215 (1967).
- [9] T. Kobayashi *et al.*, IEEJ Trans. EIS 134, 1406 (2014).
- [10] T. Kanemura *et al.*, Fusion Eng. Des. 98, 1991 (2015).
- [11] K. Miyazaki *et al.*, J. Nucl. Sci. Technol. 40, 84 (2003).
- [12] 佐々敏信：博士論文 (2005)。
- [13] A. Hershcovitch, J. Appl. Phys. 78, 5283 (1995).



おくのひろき  
奥野 広樹

1966年生まれ。東京大学大学院理学系研究科で原子核物理学を学び、博士(理学)を取得後、理化学研究所に入所。理研ではRIビームファクトリーと言う重イオン加速器施設の設計と建設に携わる。現在は、その加速器群の高度化を行うとともに長寿命核変換生成物の核変換に必要な加速器や標的の設計や要素技術開発にも参加している。趣味はチェロを弾くこと。



## 5. 医療における液体リチウムターゲット

### 5. Liquid Lithium Target in the Medical Care

林崎規託

HAYASHIZAKI Noriyosu

東京工業大学 科学技術創成研究院

(原稿受付：2018年6月19日)

医療分野における液体リチウムターゲットは、我が国が世界をリードしてきたホウ素中性子捕捉療法 (BNCT) において研究開発が進められている。ホウ素濃度が 20~40 ppm の腫瘍部に対し、1 時間以内の BNCT 照射を想定した場合に必要な中性子発生数は  $10^{13}$  n/s であり、これは中性子イメージングや核データ測定と比べて 10~1000 倍の性能であり、陽子ビーム照射によるターゲットの熱負荷は最大 50 kW にも達する。そのための液体リチウムターゲットの開発状況について紹介する。

#### Keywords:

liquid lithium target, boron neutron capture therapy

#### 5.1 はじめに

医療分野における液体リチウムターゲットは、ホウ素中性子捕捉療法 (Boron Neutron Capture Therapy, BNCT) において研究開発が進められている。これは放射線がん治療法のひとつであり、体内に注入したホウ素薬剤をがん細胞に取り込ませて、体外から中性子線を患部に照射すると、ホウ素がアルファ粒子とリチウム原子核に分裂し、周囲の正常細胞に有意な影響を与えることなく、がんを細胞レベルで選択的に破壊できる特長をもつ。したがって、これまでの放射線がん治療法では難しかった浸潤性や多発性のがん治療に適している。BNCT の中性子源としては、長年にわたって研究炉が利用されてきたが、病院併設や都市部での普及が難しいことから、陽子加速器と中性子発生ターゲットを組み合わせた小型加速器中性子源の利用に移行してきており、現在最も進捗しているプロジェクトでは第 II 相臨床試験 (安全性・有効性・用法の確認試験) が実施され [1]、その早期実用化に期待が寄せられている。

#### 5.2 BNCT 用小型加速器中性子源

近年世界的に、①陽子加速器による加速陽子とリチウムまたはベリリウムターゲットとの陽子核反応、あるいは、②電子加速器の加速電子による制動放射線と重金属ターゲットとの光核反応を利用した、小型加速器中性子源の実用化開発が活況を呈している。中性子発生数を増やすためには、1 次ビームの強度や加速エネルギーを大きくする必要があるが、BNCT に必要なのは熱・熱外中性子であるため、後者を大きくした場合には中性子の減速体系が大型化してしまう傾向がある。また、光核反応の場合には、前駆反応として電子ビームによる制動放射が必要であり、さら

に入射エネルギーが低いと光子への変換効率も小さい。したがって、総合的な中性子収率や、制動放射線も含めた患者の被ばくにも配慮すると、BNCT には陽子核反応の利用が適していると考えられる。

本章の主題である陽子加速器とリチウムターゲットを組み合わせた BNCT 用小型加速器中性子源には、共鳴領域よりも少し高い 2.5 MeV 付近の陽子ビームを用いて中性子 (最大 787 keV, 平均 326 keV) を発生後、減速体系を通して利用する方法 (減速利用法) と、しきい値 (1.88 MeV) 近傍の陽子ビームを用いてエネルギーを低く抑えた中性子 (最大約 80 keV, 平均 40 keV) を発生させ、直接治療に利用する方法 (直接利用法) の 2 種類がある。我が国においては、前者が国立がん研究センター、名古屋大学、大阪大学など、後者が東京工業大学において開発されている [2]。

ホウ素濃度が 20~40 ppm の腫瘍部に対し、1 時間以内の BNCT 照射を想定した場合に必要な中性子発生数は  $10^{13}$  n/s (中性子束としては  $10^9$  n/cm<sup>2</sup>/s 程度) である [2-3]。これは中性子イメージングや核データ測定と比べて 10~1000 倍の性能であり、そのために必要な陽子ビームの強度はリチウムターゲットタイプの場合に 20 mA、そして陽子ビーム照射によるターゲットの熱負荷は 40~50 kW にも達する [4]。

リチウムは融点が 180.5 °C と低いことから、中性子生成ターゲットとしては固体型または液体型が選択できる。減速利用法に必要なリチウムの厚さは約 85 μm、直接利用法では約 2.3 μm と薄いため補強が必要なこと、また除熱冷却の観点から、固体リチウムターゲットの場合には基板に接合して利用しなければならない。しかし、リチウム部分を

通過した大強度の陽子ビームが基板に衝突すると、短時間のうちにプリスタリング（照射損傷）が生じることから、そのままではBNCT用として寿命が短すぎるという問題がある。このため、国立がん研究センターではリチウムターゲット自動再生装置[2]、名古屋大学では水素脆化に強いタンタル基板を用いた密封型ターゲットを開発するなどの対策がとられている[5]。その点、液体リチウムターゲットではプリスタリングが生じないため長寿命が期待できる。しかし、十分な除熱のためには約 30 m/s の膜流が必要となえ、高い安全性が求められる医療機関において液体リチウムを取り扱うことに対する不安感などから、BNCT用としては敬遠されがちであった。

### 5.3 BNCT用液体リチウムターゲットの開発状況

液体リチウムターゲットの膜流形成方法としては、国際核融合材料照射施設（International Fusion Material Irradiation Facility, IFMIF）や米国 Rare Isotope Accelerator Project の先行研究などを中心に、①液体リチウムを直接空中に噴射する方式（直噴式）[6]、②垂直落下流を湾曲板に沿わせる方式（湾曲板流式）[7]、③水平流路式などが研究開発されてきている[8]。

加速器BNCTシステムにおける液体リチウムターゲットの利用は、2006年に京都大学原子炉実験所（京大炉）の古林によって着想され、2007年より東京工業大学原子炉工学研究所（東工大原子炉研）の液体金属や加速器に関する研究者も加わり、直接利用法の技術とあわせて開発がスタートした。古林は、1996年に京大炉の重水熱中性子照射設備をBNCT用に改造した医学物理の専門家であり、2006年に開催された第12回中性子捕捉療法国際学会に参加し、当時開発されていた固体リチウムターゲットの寿命がBNCT利用には短すぎることから、液体リチウム方式を着想したという[2]。

同グループは、2008～2010年度の科学研究費補助金・基盤研究(A)「加速器中性子捕捉療法照射システム用の液体リチウム中性子発生ターゲットの開発」に採択されたことから、まずは水膜流の形成実験を直噴平流式と湾曲板流式について実施した後、東工大原子炉研に設置されていた、磁場閉じ込め型核融合炉の液体リチウム冷却ブランケット研究のためのリチウム循環試験ループを改造し、実用条件である  $10^{-3}$  Pa の圧力下でリチウム液膜流の形成実験をおこない、液体リチウムターゲットにはスリットノズルと湾曲板流式の組み合わせが適していることを確認した[9]。

そしてさらに、2010～2011年度の新エネルギー・産業技術総合開発機構「がん細胞選択的な非侵襲治療機器の基盤技術開発」に採択されたことから、液体リチウムターゲットシステムの実用規模のプロトタイプモデルを産学連携により開発し、2012年1月に膜厚0.6 mm、流速30 m/sのリチウム液膜流を、 $10^{-4}$  Pa の圧力下で、曲率半径10 cmの湾曲板上の幅50 mm×長さ50 mmの領域に安定的に形成する実証実験に成功した[2, 10]。

このシステムはターゲット部（湾曲板を備えた液膜形成ノズル、ビーム入射部）、リチウムループ系（リチウムを貯

蔵するためのダンプタンク、リチウムを循環するための電磁ポンプ、リチウムの膨張を吸収するためのクエンチタンク、熱交換器、電磁流量計）、ガス系（リチウムが空気中の水分や酸素と反応しないようにするための不活性カバーガス系、また、カバーガスの置換および排気用の真空系）、予熱系（運転開始前にリチウムを昇温して液体状態にする予熱保温設備）、電気系（運転制御・安全監視ユニット）より構成されている。全体サイズは2×2×3 mであり、その外観写真を図1に示す。湾曲板流式であることから陽子ビームはリチウム流に対して水平方向に照射することになるが、機器配置の関係よりターゲット部は高さ約2.4 mの位置になっている。しかし、実機においては小型化およびダンプタンク部分などを半地下構造などにする事で、ターゲット部の高さは調整できる。

また、熱解析の結果より、40 kWの熱負荷を冷却するために必要な液体リチウムの最低流速は、陽子ビームの照射領域がφ50 mmの場合に10 m/s、φ30～40 mmの場合に20 m/s、φ20 mmの場合に30 m/sであったことから、実証実験の結果は実用的なものであり、また、減速利用法と直接利用法の両方において利用可能であることを明らかにした。

2013年9月になると、IFMIFのための液体リチウムターゲットの研究を長年続けてきた大阪大学より、住友商事や三菱重工メカトロシステムズと協力しながら準備してきた液体リチウム方式BNCT装置の開発計画が、厚さ1 mmの水冷リチウムシートが組み込まれたプロトタイプモデルのバーミンガム大学における実証試験結果とともにリリースされた。その実用機のデザインは、静電加速器（加速エネルギー2.4～2.8 MeV、陽子ビーム強度15～30 mA）、水平流路式の液体リチウムターゲット（ビーム熱負荷100 kW、最大流速30 m/s、最大リチウム温度450℃）、モデレータ/コリメータ、治療室から構成され、陽子ビームをリチウム流に対して垂直下方に照射することで $0.5\sim 1.0\times 10^9$  n/cm<sup>2</sup>/sの熱外中性子を発生し、全体サイズは20×20×6 mとなっている[11, 12]。

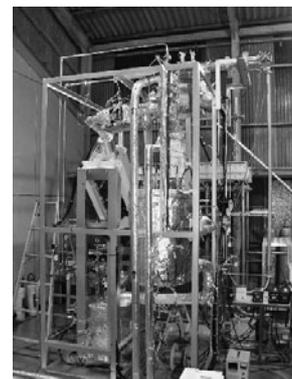
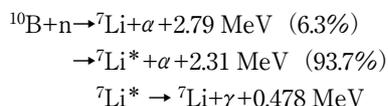


図1 液体リチウムターゲットシステム。

## 5.4 発生放射線について

BNCTにおいて、ホウ素 ( $^{10}\text{B}$ ) と熱中性子のあいだで生じる原子核反応  $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$  は次式で示される。このとき生じる  $\alpha$  線の飛程は  $9\ \mu\text{m}$ ,  $^7\text{Li}$  においては  $5\ \mu\text{m}$  であり、一般的な細胞径よりも小さいことから、これらの粒子線はホウ素化合物を取り込んだ細胞のみで発生することになる。



このほか治療時には、熱中性子が体内の水素原子と弾性散乱して生じる水素線量や、同様に体内の窒素原子と原子核反応して生じる窒素線量、熱・熱外中性子まで減速されなかった中性子源からの速中性子線、中性子捕獲によるガンマ線が存在する [2, 13]。

これらに加えて、リチウムターゲットを用いた小型加速器中性子源の場合には、 $^7\text{Li}(p,n)^7\text{Be}$  反応において中性子とともに半減期53日の $^7\text{Be}$ が発生することから、固体リチウムターゲットの場合は交換作業時の被ばくが、液体リチウムターゲットの場合には回収除去が技術的な課題となる。また、 $^6\text{Li}$ の天然存在比は7.5%と小さいが、発生中性子とのあいだで $^6\text{Li}(n,\alpha)^3\text{H}$ 反応が生じると、カバーガスにトリチウムが混入する恐れがある。その一方で、 $^7\text{Li}(p,n)^7\text{Be}$ 反応では生成する中性子線のエネルギーが比較的低いことから、中性子線による二次ガンマ線は低く抑えられる。

また、陽子ビームと $^7\text{Li}$ の反応から発生する主なガンマ線を表1に示す。 $^7\text{Li}(p,n\gamma)^7\text{Be}$ はしきい値が2.373 MeVのため直接利用法には関係しないが、減速利用法においては考慮が必要である。陽子による非弾性散乱である $^7\text{Li}(p,p'\gamma)^7\text{Li}$ によるガンマ線のエネルギーは、 $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$ にともなう即発ガンマ線と同じである。 $^7\text{Li}(p,\gamma)^8\text{Be}$ は主に陽子エネルギー411 keVにおける共鳴反応によるもので、ガンマ線エネルギーが比較的高いことから影響を無視できなくなる可能性がある。また、 $^6\text{Li}$ については $^6\text{Li}(p,\gamma)^7\text{Be}$ 反応があるが、 $^7\text{Li}$ の反応と比較するとガンマ線生成量は十分小さい。

このように、リチウムターゲットを用いたBNCTでは、治療のための熱・熱外中性子以外にも、各種の副次的な放射線が発生することから、ターゲットメンテナンス時の作業者の被ばくや、装置の放射化についても考慮する必要がある。

## 5.5 加速器について

リチウムターゲットを用いる場合、その陽子エネルギーは最大3 MeV程度、陽子ビーム強度は15~30 mAであるこ

表1 陽子と $^7\text{Li}$ の反応から発生する主なガンマ線。

反応の種類	$E_\gamma$ [MeV]	$E_{\text{threshold}}$ [MeV]
$^7\text{Li}(p,n\gamma)^7\text{Be}$	0.431	2.373
$^7\text{Li}(p,p'\gamma)^7\text{Li}$	0.478	0.547
$^7\text{Li}(p,\gamma)^8\text{Be}$	14.7, 17.6	0.387

とから、静電加速器や高周波四重極 (RFQ) リニアックが利用されてきている。静電加速器はエネルギーの安定性が高い反面、大強度ビーム加速が苦手の傾向にあるが、名古屋大学において15 mA以上の陽子ビーム加速を目標としたBNCT用ダイナミトロンが現在整備中である [5, 14]。また、大阪大学でも最大30 mAの静電加速器が計画されている。RFQ リニアックは大強度パルスビームとして50 mA以上の加速実績を有するが、パルス運転の場合、その運転デューティに応じたピーク強度が必要になる。このため、国立がん研究センターには20 mAの陽子ビームを連続加速する、運転周波数400 MHzのRFQ リニアックが導入されている [15]。

## 5.6 安全対策について

加速器BNCT照射システムでは安全性が最も重要である。筆者らは、産学連携による実用規模の液体リチウムターゲットシステムの開発を通じて、実際に性能確認運転をおこない、とくに最重要課題であったリチウムループからのリチウムドレン・熱媒ドレン動作は、想定時間内で実現可能なことを実証した。そして、将来の実機設計における「災害・停電・故障への安全性」を確保するために必要な技術的指針を、以下のとおり明確にしたので紹介する。

### 「災害防止への対応」

- ①リチウムや熱媒を1つのタンクに集めて隔離する
- ②リチウムループや熱媒ループを大気からシールドするために、アルゴンカバーガスで封じ込める
- ③リチウムループを小型化することで、システム自体をシールド化する

### 「停電時・異常発生時への対応」

- ①停電時・異常発生時は緊急ドレンが作動し、リチウム全量をダンプタンクへ戻す
- ②リチウムドレン・熱媒ドレンは、電源喪失時にも対応できるように圧空駆動型バルブとする
- ③リチウムループの状態確認のための制御盤用非常電源を確保する

### 「機器故障・メンテナンス対応」

- ①設計寿命の短いものについては、多重化や遮蔽体越しの設置で対応する

## 5.7 おわりに

本章では、医療における液体リチウムターゲットとして、加速器BNCTシステムでの利用と開発状況について述べた。しかし残念なのは、これまでに開発されたプロトタイプモデルでは、加速器からの陽子ビームは循環した液体リチウムに照射されておらず、実際の中性子発生まで至っていないことである。その早期実現に向けて、これからは開発者の一人として努力していきたい。

参考文献

- [ 1 ] 宮武伸一：NCT letter 3, 16 (2016).
- [ 2 ] 古林 徹：RADIOISOTOPES 64, 13 (2015).
- [ 3 ] 熊田博明, 山本哲哉：保健物理 42, 23 (2007).
- [ 4 ] 田中浩基：RADIOISOTOPES 64, 29 (2015).
- [ 5 ] Y. Kiyanagi *et al.*, Proc. 13th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, 246 (2016).
- [ 6 ] J. Nolen *et al.*, A High Power Beam-on-target Test of Liquid Lithium Target for RIA, ANL-05/22 (2005).
- [ 7 ] E. Wakai *et al.*, Nucl. Mater. Energy 9, 278 (2016).
- [ 8 ] H. Horiike *et al.*, Fusion Eng. Des. 66-68, 199 (2003).
- [ 9 ] M. Takahashi *et al.*, J. Power Energy Syst. 6, 324 (2012).
- [ 10 ] T. Kobayashi *et al.*, Appl. Radiat. Isot. 88, 198 (2014).
- [ 11 ] 堀池 寛, 吉橋幸子：電気設備学会誌 4, 260 (2014).
- [ 12 ] H. Horiike *et al.*, Appl. Radiat. Isot. 106, 94 (2015).
- [ 13 ] 中井 啓：茨城県立医療大学紀要 22, 1 (2017).
- [ 14 ] E. Forton *et al.*, Appl. Radiat. Isot. 67, S262 (2009).
- [ 15 ] 伊丹 純：NCT letter 3, 19 (2016).



はやし ぎき のり よす  
林 崎 規 託

東京工業大学科学技術創成研究院先端原子力研究所教授・放射線総合センター長，産業技術総合研究所クロスポイントメントフェロー，専門分野は量子ビーム工学（主に加速器物理工学）と放射線安全・セキュリティ，J-PARC 建設や小型加速器の研究開発に従事，第 1 種放射線取扱主任者。



## 講座 中性子源としての液体金属

### 6. まとめ

#### 6. Summary

高橋光俊

TAKAHASHI Mitsutoshi

助川電気工業株式会社

(原稿受付：2018年7月9日)

核融合炉の実現においては 14 MeV の中性子場に耐えうる材料の開発が必要であり、その炉材等の候補材料に照射する重要な中性子の照射ターゲット材として液体金属である液体リチウムの使用が計画されている。今回の講座では、同様な原理にて中性子源として液体金属を採用する研究が進められている医療分野や、核変換分野の研究を紹介した。

中性子源として液体金属を紹介したが、はじめにも述べたように液体金属であれば熱保持及び移動も可能であり、熱交換の媒体として今も各種試験等に採用されている。

液体金属はナトリウムやリチウム、鉛ビスマスの様に比較的低温 (200℃以下) の融点から、アルミニウムの様に 660℃の融点とさまざままで、試験を実施するには液体金属

を溶解させ接液部の温度保持するために予熱設備が必要となるが、ガリスタンや水銀、ナトリウムカリウム合金のように常温で既に液体状態となっている液体金属を使用すれば、その予熱設備も不要となる。但し、2章でも述べた通り取り扱う液体金属によって法規上の問題や取扱う環境による注意が必要となるので、興味を持たれた方は2章を再確認していただきたい。

液体金属は、その状態を維持するため環境を含めた取扱いに注意が必要ではあるが、熱エネルギーの保有と輸送を同時にできる優れた媒体であることは確かである。今回の講座がこれから研究者をめざす学生の方や若手研究者の方々の参考となれば幸いです。



たか はし みつ とし  
高橋光俊

助川電気工業株式会社 取締役 技術本部  
副本部長。研究分野：液体金属を含む流体  
の熱 (加熱・冷却) と計測 (温度、圧力、流  
速, etc.) に関わる装置等の設計業務。直  
接目視にて状態を見ることが出来ない高温の流体や物体を温  
度計測することにより、現在の流体や物体の状態がどうなっ  
ているのか想像して楽しんでいる熱フェチです。