

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 特 許 公 報 (B 2)

(11) 特許番号

特許第3076067号
(P3076067)

(45) 発行日 平成12年8月14日 (2000. 8. 14)

(24) 登録日 平成12年6月9日 (2000. 6. 9)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	
G 2 1 B	1/00	G 2 1 B	1/00 N
B 2 2 F	9/10	B 2 2 F	9/10
	9/14		9/14 Z

請求項の数 3 (全 6 頁)

(21) 出願番号	特願平10-513498	(73) 特許権者	999999999 日本原子力研究所 東京都千代田区内幸町 2 丁目 2 番 2 号
(86) (22) 出願日	平成 9 年 9 月 11 日 (1997. 9. 11)	(73) 特許権者	999999999 日本碍子株式会社 愛知県名古屋瑞穂区須田町 2 番 56 号
(86) 国際出願番号	P C T / J P 9 7 / 0 3 2 0 6	(72) 発明者	石塚 悦男 茨城県東茨城郡大洗町成田町字新堀3607 番地 日本原子力研究所大洗研究所内
(87) 国際公開番号	W O 9 8 / 1 1 5 5 6	(72) 発明者	河村 弘 茨城県東茨城郡大洗町成田町字新堀3607 番地 日本原子力研究所大洗研究所内
(87) 国際公開日	平成10年3月19日 (1998. 3. 19)	(74) 代理人	999999999 弁理士 杉村 暁秀 (外 8 名)
審査請求日	平成11年2月9日 (1999. 2. 9)	審査官	村田 尚英
(31) 優先権主張番号	特願平8-240182		
(32) 優先日	平成 8 年 9 月 11 日 (1996. 9. 11)		
(33) 優先権主張国	日本 (J P)		

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 核融合炉用の金属ベリリウムペブル

1

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】 粒子径が0.1~1.8mmで、かつ平均結晶粒径が0.05~0.6mmの範囲を満足することを特徴とする核融合炉用の金属ベリリウムペブル。

【請求項 2】 請求項 1 において、粒子径 D (mm) と平均結晶粒径 d (mm) が、次式

$$0.3D \leq d \leq 0.8D$$

の関係を満足することを特徴とする核融合炉用の金属ベリリウムペブル。

【請求項 3】 請求項 1 または 2 において、不純物として 10 の Fe の混入量を 0.04wt% 以下に抑制したことを特徴とする核融合炉用の金属ベリリウムペブル。

【発明の詳細な説明】

技術分野

本発明は、核融合炉用の金属ベリリウムペブルに関

2

し、特に核融合炉ブランケットの中性子増倍材としての用途に用いて好適なものである。

背景技術

核融合炉ブランケットでは、中性子増倍材として金属ベリリウムペブル (小石状の金属ベリリウム) が脚光を浴びている。

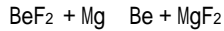
というのは、核融合炉ブランケットにおいて、トリチウム 1 個を生成するためには、中性子 1 個を必要とするが、金属ベリリウムに中性子を 1 個衝突させると、中性子が 2 個生成するため、かかる金属ベリリウムペブルをブランケット材として用いることにより、効果的にトリチウムを増殖させることができ、その結果、核融合燃料サイクルの有利な向上が望めるからである。

また、かような金属ベリリウムペブルは、核融合炉ブランケットにおける中性子の減速材および反射材として

有用なものである。

さて、このような金属ベリリウムペブルの製造方法としては、フッ化ベリリウムをマグネシウムによって還元する方法（以下、マグネシウム還元法という）が知られている。

このマグネシウム還元法は、金属ベリリウムを工業的に抽出する方法として、米国等で開発されたもので、以下の反応式によりペブル状の金属ベリリウムを製造するものである。



上記のマグネシウム還元法において、ペブル状の金属ベリリウムはフッ化ベリリウム溶湯中で生成され、比重差によってフッ化ベリリウム溶湯の液面上に浮遊する。かくして得られる金属ベリリウムペブルの粒子径は、一般に5mm以上であり、核融合ブランケットの中性子増倍材として検討されている粒子径が5mm未満の小径の金属ベリリウムペブルの歩留りは極めて悪い。

また、このマグネシウム還元法によって製造される金属ベリリウムペブルは、金属ベリリウムを工業的に抽出する際の間中生成物であり、多くの不純物元素を含んでいる。特に、揮発性不純物であるフッ素やマグネシウム等を多量に含んでいるため、腐食性ガスの発生が懸念されるだけでなく、形状が真球とは程遠いため実機での充填密度が低く、十分に満足いくほどの中性子増倍能は期待できないという問題があった。

そこで、上記したマグネシウム還元法における諸問題を解決するものとして、回転電極法と呼ばれる方法が新たに開発された（例えば特開平3 - 226508号公報、特開平6 - 228674号公報等）。

この回転電極法とは、不活性ガスを充填した密閉容器内に、アークまたはプラズマ溶解電極と金属ベリリウム製の円柱状の消耗電極とを設け、両電極間にアークまたはプラズマを発生させてその時の発熱で消耗電極の先端を溶解させつつ、消耗電極の回転による遠心力でベリリウム溶滴を飛散させ、不活性ガス雰囲気中で急冷凝固させることによって、球状のベリリウムペブルを得る方法である。

この方法により得られたベリリウムペブルは、マグネシウム還元法により得られたものと比べると、粒子径が小さくかつ均一なだけでなく、純度および真球度が高く、表面粗さも小さいという種々の利点をそなえている。

ところで、かかる金属ベリリウムペブルは、上述したとおり、中性子増倍材として有効に機能するものであるが、一方、金属ベリリウムに中性子が照射されると結晶内にヘリウムが生成し、これが凝縮してスエリングと呼ばれる体積膨張が生じる。

かような体積膨張が生じると、それに起因して、金属ベリリウムペブル自身に割れが生じたり、破損したりして、外部応力に対する抵抗力や熱伝達能等の低下を余儀

なくされる。

上述した回転電極法によって得られたベリリウムペブルは、マグネシウム還元法によって得られたものに比べると、耐スエリング性の点でも優れてはいるものの、まだ十分とはいえない難かった。

この点を解決するものとして、発明者らは先に、金属ベリリウムペブルの内部に空孔を設け、この空孔にヘリウムを貯蔵することによってペブルの体積膨張を防止する技術を開発し、特開平6 - 228673号公報において開示した。

上記の技術により、スエリングの発生を効果的に防止することができるようになったが、ペブル中の空孔にはベリリウム中で生成したトリチウムも併せて蓄積されるため、その分トリチウム放出量の低下が免れ得ない。

しかるに、最近では、ベリリウム中で生成するトリチウムの蓄積を小さくすること、即ちトリチウムの放出能を向上させることが、新たに大きな課題となってきた。

発明の開示

10 本発明は、上記の要請に有利に応えるもので、スエリングの発生を防止するのは勿論のこと、トリチウム放出能を効果的に向上させることができる核融合炉用の金属ベリリウムペブルを提案することを目的とする。

以下、本発明の解明経緯について説明する。

さて発明者らは、金属ベリリウムペブル中におけるトリチウムの放出機構およびスエリングの発生機構について綿密な検討を加えた結果、以下に述べる知見を得た。

すなわち、トリチウムは中性子照射によって金属ベリリウムペブル中で生成するが、トリチウムが金属ベリリウムペブル表面から放出されるためには、結晶粒内からペブル表面へ、拡散によって移動しなければならない。一般に拡散は、結晶粒内よりも結晶粒界の方がスムーズに進行するので、トリチウム放出能を向上させるためには、結晶粒界の量を増加させること、換言すれば結晶粒径を小さくすることが有効と考えられる。

ここに、常法に従う条件下で回転電極法により製造された金属ベリリウムペブルの平均結晶粒径は、通常0.6 ~ 0.8mm程度であるので、この結晶粒径をより小さくして結晶粒界量を増大させることができれば、トリチウム放出能の向上が期待できる。

しかしながら、一方で、結晶粒界は、中性子照射によって生成するヘリウムが気泡として集積する起点となることから、結晶粒界量を増やすことは、スエリングの増大を招くおそれがある。従って、結晶粒径を小さくすることは、耐スエリング性の観点からは好ましくない。

また、スエリングは、ペブル中の不純物とくに鉄系存在物（ Be_{11}Fe 等）を起点としても発生することが判明した。

そこで発明者らは、上述した相反する問題を解決すべく鋭意研究を行った結果、金属ベリリウムペブルの粒子

径および平均結晶粒径、さらには不純物とくにFeの含有量を所定の範囲に限定すれば、スエリングの発生を招くことなしに、トリチウムの放出能を効果的に向上させることの知見を得た。

本発明は、上記の知見に立脚するものである。

すなわち、本発明は、粒子径が0.1~1.8mmで、かつ平均結晶粒径が0.05~0.6mmの範囲を満足することを特徴とする核融合炉用の金属ベリリウムペブルである。

本発明において、金属ベリリウムペブルの粒子径をD (mm)、平均結晶粒径をd (mm)で表したとき、これら

$$0.3D \leq d \leq 0.8D$$

の関係を満足させることが好ましい。

また、本発明において、不純物として混入するFe量は、0.04wt%以下に抑制することが好ましい、

さて、本発明において、金属ベリリウムペブルの平均結晶粒径を0.05~0.6mmの範囲に限定した理由は、次のとおりである。

すなわち、平均結晶粒径が0.05mmより小さいと、結晶粒界があまり多くなって、スエリングの発生を完全に防止できず、一方平均結晶粒径が0.6mmを超えると結晶粒界が少なすぎるため、効果的なトリチウムの放出が望めないからであり、特に好ましい範囲は0.2~0.5mmである。

ここに、結晶粒径の低減手段としては、次のような方法がある。

① 回転電極装置における不活性ガス雰囲気の高圧を高くし、それによる抜熱能を向上させることにより、ベリリウム液滴の凝固速度を増大させ、もって結晶粒径を微細化する方法。

② 両電極間のアーク電流を、作業性を損なわない範囲で極力抑え、生成するベリリウム溶滴の初期温度を低下させることによって、凝固完了時間の短縮を図り、もって結晶粒径を微細化する方法。

図1に、粒子径(D)は0.5~1.0mmの好適範囲に揃える一方、平均結晶粒径(d)については種々に変化させた金属ベリリウムペブルを用いて、後述する実施例と同じ条件で、トリチウム放出能および耐スエリング性について調べた結果を、整理して示す。

なお、トリチウム放出能については、金属ベリリウムペブル中におけるトリチウムの拡散係数が $1.0 \times 10^{-11} \text{ cm}^2/\text{s}$ 以上であれば、また耐スエリング性については、スエリング発生量が6vol%以下であれば、いずれも特性的に良好といえる。

図1から明らかなように、平均結晶粒径(d)が0.05~0.6mmの範囲であれば、トリチウム放出能および耐スエリング性とも良好な結果が得られている。

また、本発明において、粒子径を0.1~1.8mmの範囲に限定した理由は、粒子径が0.1mm未満では、.05mm以上の平均結晶粒径を保証し難く、一方1.8mm超ではペブルの

充填度が低下し、中性子増倍能ひいてはトリチウム放出能の低下を招くからである。この粒子径の好適範囲は0.2~1.5mmである。

なお、粒子径の調整は、消耗電極の回転数や直径および両電極間のアーク電流等を制御することによって行うことができる。

さらに、図2に、粒子系(D)が0.1~1.8mm、平均結晶粒径(d)が0.05~0.6mmの範囲を満足する金属ベリリウムペブルを用いて、図1と同様にしてトリチウム放出能および耐スエリング性について調べた結果を、D/dとの関係で示す。

図2に示したとおり、D/dが0.3~0.8であれば、とりわけ優れたトリチウム放出能および耐スエリング性を得ることができた。

さらに、本発明では、ペブル中に不純物としてFeが多量に混入すると、生成した鉄系介在物(Be₁₁Fe等)がヘリウム原子の集積の起点となって、スエリングが発生する。従って、Feの混入は0.04wt%以下に抑制することが肝要である。

なお、この鉄系介在物は、金属ベリリウムペブルを製造する際の結晶核としても作用するので、この作用を利用して結晶粒径の微細化を図る場合には、少なくとも0.01wt%のFeを含有させることが好ましい。

かくして、本発明の金属ベリリウムペブルによれば、ヘリウム原子集積の起点となる結晶粒界は増大したものの、Fe系介在物(Be₁₁Fe等)が十分に少ないため、スエリングの発生を効果的に抑制することができ、これによって核融合ブランケットの中性子増倍材として使用する金属ベリリウムペブルの外部応力に対する抵抗力、熱伝達能等の劣化を防止できる。また、結晶粒界量が多くなったため、トリチウム放出能を向上させることができ、その結果核融合炉燃料となるトリチウムの回収効率の向上が可能となる。

図面の簡単な説明

図1は、金属ベリリウムペブルの平均結晶粒径(d)がトリチウム放出能および耐スエリング性に及ぼす影響を示したグラフ、

図2は、金属ベリリウムペブルの平均結晶粒径(d)と粒子径(D)の比d/Dと、トリチウム放出能および耐スエリング性との関係を示したグラフ、

図3は、金属ベリリウムペブルの製造に用いて好適な回転電極装置の模式図である。

発明を実施するための最良の形態

図3に、実施例において、金属ベリリウムペブルの製造に用いた回転電極装置を模式で示す。図中、番号1は密閉容器、2は金属ベリリウム製の円柱状消耗電極、3は水冷却タンクステン製のアーク溶解電極またはプラズマ溶解電極、4はヘリウムまたはアルゴン等の不活性ガスの導入孔、5は同ガスの排気孔、6は円柱状消耗電極の回転駆動装置である。

なお、消耗電極としては、Fe含有量が0.08wt%の金属ベリリウムを用いた。

同図に示した装置において、密閉容器1内に不活性ガスを充填した後、アーク溶解電極またはプラズマ溶解電極と金属ベリリウム製の円柱状消耗電極との間にアークまたはプラズマを発生させ、消耗電極の先端を溶融させつつ、消耗電極の回転による遠心力で金属ベリリウムの溶解を飛散させ、急冷凝固することによって、ペブル状の金属ベリリウムを製造することができる。

この時、両電極間の電流値を抑制することによって消耗電極の先端で溶融するベリリウム液滴の温度を融点直上を抑え、また、不活性ガス雰囲気圧力を数倍に上げてそれによる抜熱能を向上させることで、ベリリウム液滴の凝固速度を向上させ、金属ベリリウムペブルの結晶粒径を低減できることは前述したとおりである。

上記の回転電極装置を用い、次の条件で金属ベリリウムペブルを製造した。

- ・ 雰囲気ガス圧: 9600 Torr
- ・ アーク電流: 150 A
- ・ 消耗電極の回転周速度: 6.0 m/s

得られた金属ベリリウムペブル(発明例)の粒子径は1.0mm、平均結晶粒径は0.4mmであり、またFe含有量は0.075wt%であった。

また、比較のため、通常の条件を以下に示す。

- ・ 雰囲気ガス圧: 800 Torr
- ・ アーク電流: 200 A
- ・ 消耗電極の回転周速度: 6.0 m/s

通常の条件で製造した金属ベリリウムペブル(比較例)の粒子径は1.0mm、平均結晶粒径は0.7mm、Fe含有量は0.075wt%であった。

かくして得られた2種類の金属ベリリウムペブルに、同時に中性子照射を施した(高速中性子照射量: 約 1×10^{20} n/cm²、照射温度: 200)後に、それぞれについてトリチウムの加熱放出試験(加熱温度: 600)を行った。

ついで、得られたトリチウム放出量から、金属ベリリウムペブル中におけるトリチウムの拡散係数を算出したところ、発明例におけるトリチウムの拡散係数は 2.0×10^{-11} cm²/sであったのに対し、比較例におけるそれは 0.7×10^{-11} cm²/sであった。

10

20

30

40

この結果から、金属ベリリウム中のトリチウムの拡散放出は、結晶粒界の量に大きく依存しており、結晶粒界量の多い本発明による金属ベリリウムペブルの方がトリチウム放出能に優れていることが確認された。

次に、同様の条件で2種類の金属ベリリウムペブルに中性子を照射した後、アルゴンガス中で800 ,1hの加熱処理を施し、スエリングの評価を行った。

その結果、発明例、比較例の金属ベリリウムペブルのスエリングは、それぞれ2~4vol%、1~2vol%であり、いずれも良好な結果が得られた。

なお、従来のマグネシウム還元によって得られた金属ベリリウムペブルのスエリングは、8~12vol%であった。

さらに、Fe含有量を0.03wt%に制御した別の発明例(粒子径:1.0mm、平均結晶粒径:0.4mm)についても、上述と同様の方法でスエリングの評価を行ったところ、そのスエリングは0~2vol%となり、Fe含有量の低減がスエリングの防止に有効であることが確認された。

なお、Fe含有量が少ない金属ベリリウムペブルを得るには、消耗電極として、真空溶解-真空鋳造法によって製造した高純度の金属ベリリウムを用いれば良い。

粒子径:1.0mm、平均結晶粒径:0.4mmの本発明に従う金属ベリリウムペブルについて、その圧潰強度を測定したところ、11~15kgfであった。これに対し、同じく平均粒子径:1.0mmで、平均結晶粒径:0.7mmの比較例の圧潰強度は7~12kgfであり、この結果から、本発明の金属ベリリウムペブルは比較例よりも圧潰強度の面でも優れていることが判った。

なお、中性子照射によってスエリングが起これると、熱伝達能は低下する。そこで発明者らは、スエリングによる熱伝達能の劣化程度を把握するために、スエリングを起こした中性子照射金属ベリリウム試料について熱伝導率を測定した。

ここで、試料として、平均結晶粒径が約0.01mmのホットプレス金属ベリリウムを用いた。スエリングを起こさなかった100%T.D.およびスエリングを起こした80%T.D.、60%T.D.の各中性子照射済み金属ベリリウム試料について、室温、400 および600 における熱伝導率測定結果を表1に示す。

表1 (単位: W/cm/K)

密度 \ 温度	室温	400℃	600℃
100% T.D.	1.7	1.0	0.9
80% T.D.	1.2	0.7	0.6
60% T.D.	0.7	0.5	0.4

この結果から、中性子照射済みベリリウム熱伝導率は、スエリングによって大きく低下することが明らかであり、中性子増倍材として使用される金属ベリリウムペブルにおいても、スエリングを如何に抑えるかが重要な課題であることが再認識された。

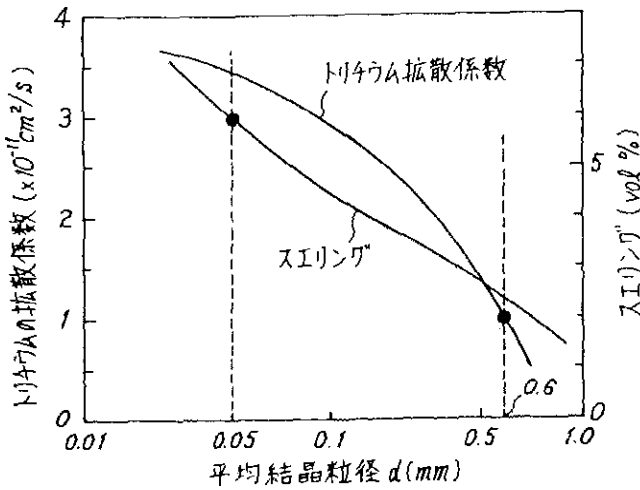
以上、実施例では、発明例として、回転電極法によって得られた金属ベリリウムペブルについて主に説明したが、本発明はこれだけに限るものではなく、上述した粒子径および平均結晶粒径、さらにはFe含有量が適正範囲を満足するものであれば、製造法は何ら問うものではない。

産業上の利用可能性

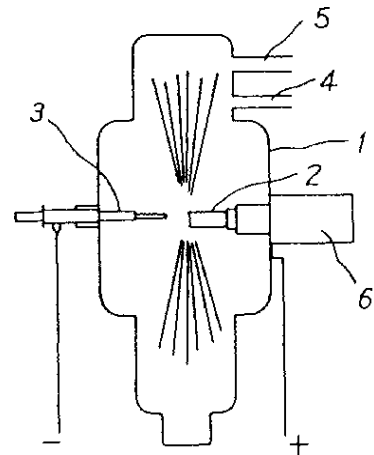
本発明によれば、スエリングの発生を効果的に抑制することができるので、核融合炉ブランケットの中性子増倍材として使用する金属ベリリウムペブルの外部応力に対する抵抗力、熱伝達能等の劣化を有利に回避することができ、またトリチウム放出能も併せて向上させることができるので、核融合炉燃料となるトリチウムの回収効率の向上も併せて実現できる。

さらに、本発明の金属ベリリウムペブルは、圧潰強度および熱伝導性に優れるので、上記した核融合炉ブランケットにおける中性子増倍材としての他、中性子の減速材および反射材としても有用なものである。

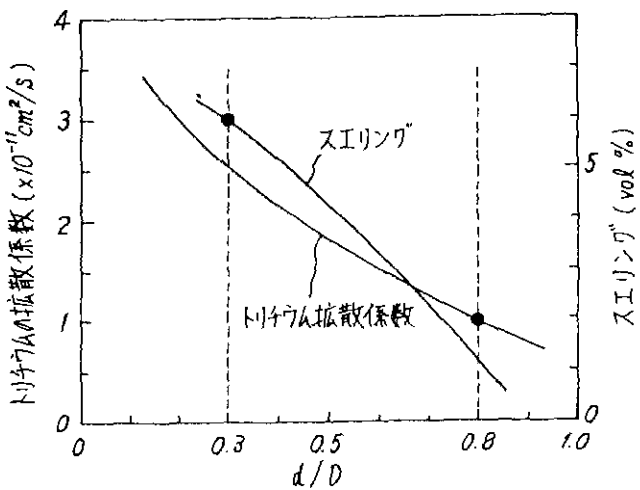
【第1図】



【第3図】



【第2図】



フロントページの続き

(72)発明者 坂本 直樹
愛知県名古屋市瑞穂区須田町2番56号
日本碍子株式会社内

(72)発明者 西田 精利
愛知県名古屋市瑞穂区須田町2番56号
日本碍子株式会社内

(56)参考文献 特開 平6 - 228602 (J P , A)

特開 平6 - 228673 (J P , A)

特開 平6 - 228674 (J P , A)

(58)調査した分野(Int.Cl.⁷, D B名)

G21B 1/00

B22F 1/00 - 9/14