

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 3 年 6 月 18 日現在

機関番号：82502

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2018～2020

課題番号：18K05006

研究課題名（和文）核融合炉先進中性子増倍材のリサイクル技術開発研究

研究課題名（英文）Recycling technology research and development of advanced neutron multipliers for DEMO applications

研究代表者

金 宰煥 (Kim, Jaehwan)

国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構・六ヶ所核融合研究所 ブランケット研究開発部・主幹研究員（定常）

研究者番号：80613611

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,500,000円

研究成果の概要（和文）：核融合原型炉ブランケットで必須な先進中性子増倍材であるベリライド微小球は、核融合原型炉1基当たり約500トンの膨大な量が必要で4年毎のブランケット交換する設計になっている。そして、ブランケット交換時に発生する使用済中性子増倍材には再使用可能なBeを大量に含んでいるため、そのBe微小球のリサイクル技術開発が必要不可欠である。

本研究では、既存の微小球製造収率は約70%であるが、既存の製造法であるプラズマ焼結法と回転電極法を活用することによって、残り30%のものをリサイクルできることと、過酷な環境下における中性子増倍材に形成しうる不純物（Li、水素同位体、酸素等）を完全除去できることを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

核融合炉ブランケットには、中性子増倍材として膨大なベリリウム金属が装荷されるが、原料全量を輸入に依存している。この中性子増倍材は、1mm球の形として装荷されるが、1mm球の製造収率は約70%だが、残り30%も再使用でき、造粒収率を向上させることに成功した。更に、使用済みベリリウム金属は、別の材料との反応により、ベリリウムに生成された不純物（酸素、Li、水素同位体等）についても、既存の造粒法によって、取り除けることを明らかにした。

全量輸入に依存しているベリリウムの収率向上及び、ベリリウム資源のリサイクル技術開発の成果であるため、資源の安定な確保の観点からも社会的意義も大きいと考えられる。

研究成果の概要（英文）：A huge beryllides with about 500 tons per reactor will be packed as advanced neutron multipliers in fusion DEMO blankets, which is replaced every four years. Moreover, since a large amount of reusable Be contained in used neutron multipliers generated during blanket replacement, it is indispensable to develop recycling technology for Be pebbles.

In this study, it was clarified that the remained 30% (the existing pebble production yield is about 70%) can be recycled, and impurities (Li, hydrogen isotopes, oxygen, etc.) that can be formed in the neutron multipliers in the harsh environment can be removed entirely by utilizing the existing production methods, plasma sintering method and rotating electrode method.

研究分野：核融合、増殖機能材開発、中性子増倍材開発、水素吸蔵合金

キーワード：中性子増倍材 核融合 増殖機能材

1. 研究開始当初の背景

核融合炉ブランケットで必須な機能材である中性子増倍材は、ベリリウム金属(Be)換算で核融合炉1基当たり約 500 トンの膨大な量が必要であり、約4年毎にブランケットを交換する設計になっている。現状全世界の Be 生産能力は、年間 200 トン程度であることから、この需要を満たす供給をするためには、年間 200 トン規模の Be を製造し続けなければならない。

一方、ブランケット交換時に発生する使用済み中性子増倍材にはリサイクル可能な Be を大量に含んでいるため、使用済み中性子増倍材のリサイクル技術開発は必要不可欠である。

2. 研究の目的

本研究では、先進中性子増倍材のリサイクル技術の一環である、(1)プラズマ清浄法による酸化物除去、(2)蒸発回収法によるBe回収、そして、(3)元素分離膜法によるトリチウム増殖材からのリチウム(Li)の分離・回収について、検討を行うとともに、実現可能性についての妥当性評価を実施した。

これらの再使用プロセス技術開発の研究から、Beの資源循環技術を確立し、核融合炉早期実現に向けて稼働コストや環境負荷を低減することを目的とする。

3. 研究の方法

まず、プラズマ焼結法と回転電極法による既存の微小球製造法にて、収率評価及び収率向上のための検討作業を実施した。既存製造法では、造粒収率 70%であり、30%の欠片を遊星ボールミリングによって粉砕し、再度にプラズマ焼結製電極棒を製造した。その電極棒を用いて、回転電極法で造粒を行い、0.85~1.18 mmの微小球を基準とし、収率評価を行った。更に、各々のプロセスにおける不純物分析においては、リチウムとウラン濃度は ICP 分析で、酸素濃度は酸素分析装置で、水素同位体においては、Dイオン照射後昇温脱離試験による評価を実施した。

蒸発回収法の検討として、既存の TG-DSC 装置の配管にバリアブルリークバルブを付け、真空度による融点の変動について調べた。

分離膜法についての基礎研究として、高 Li イオン伝導体(LLZO)に基づき、BeO を添加した $\text{Li}_7\text{La}_3\text{ZrBeO}_{12}$ 試料の試作を試みた。 Li_2CO_3 、 $\text{La}(\text{OH})_3$ 、 ZrO_2 、BeO を $\text{Li}_7\text{La}_3\text{ZrBeO}_{12}$ の化学量論値になるように混合し、メカニカルミリングを 2 時間実施し、加圧成形を行った。その後、900°Cで 5 時間仮焼きを実施した。また、均質化を促進させるため、仮焼きした試料を粉砕混合、加圧成形を行い、最後に 1200°Cで大気中にて、8 時間本焼きを実施した。その X 線回折分析による定性分析を行った。

4. 研究成果

先進中性子増倍材であるベリリウム金属間化合物(ベリライド)は、プラズマ焼結法で始発原料製電極棒を製造し、回転電極造粒法を用いて電極棒を溶かしながら、遠心力で飛ばして、微小球を製造する。そこで、脆い原料電極棒の場合、熔融部の温度分布や熱衝撃による部分的破壊などに起因し、総収率の約 30%程度の歪な形の欠片が形成される。この欠片を使用済み試料として模擬し、プラズマ焼結法と回転電極法によるリサイクル技術の検討を実施することによって、使用済み試料の評価と造粒収率向上の技術

Recycling process

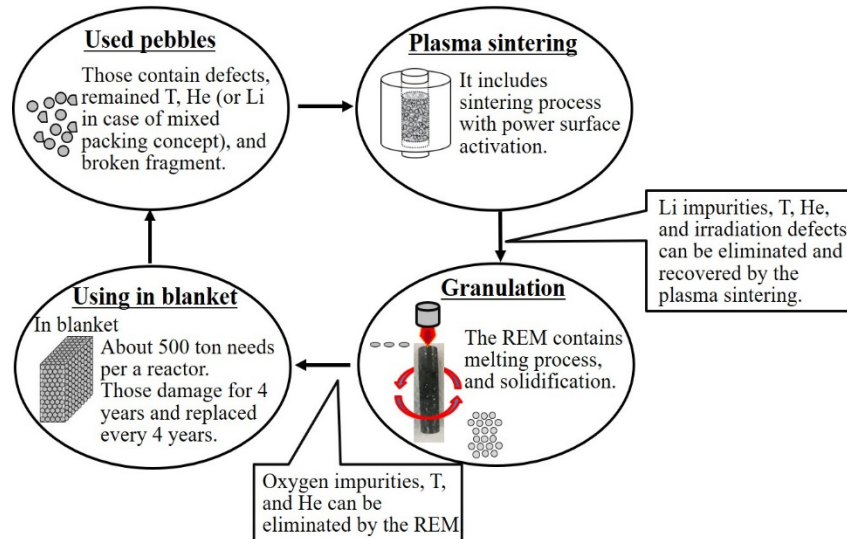


図1. 既存の造粒プロセスによるリサイクル技術プロセス[1]

開発研究を行った。その使用済み試料は、過酷な環境で置かれ、一部酸化されることが想定されるため、各プロセスにおける酸素量の変化を調べた。約 2.7% 酸素を含有する 100% 欠片を遊星ボールミルで粉砕し、プラズマ焼結法で電極棒を製造した結果、酸素濃度(約 2.5%)が若干減少したが、酸化物除去における効果が小さいことが分かった。次にその電極棒を用いて回転電極法で造粒を行った結果、ベリライド微小球の酸素濃度が 0.1% 以下に激減する結果が得られた。この減少は、熔融部における温度分布による酸素の拡散や蒸発に起因したと考えられる。更に、造粒収率向上の観点から、高酸素濃度(約 2.5%)の欠片を既存の造粒プロセスによって、粒度分布、Be/V 組成比、酸素濃度等の問題なく、収率向上が可能であることを明らかにした。

また、核融合原型炉におけるブランケット設計案の一つである、トリチウム増殖材(Li セラミック)との混合充填ブランケットを想定し、全 Li が中性子増倍材に反応するとの保守的な評価として、 Li_2TiO_3 と Be_{12}V 粉末を 1:4 で混合し、800、900、1000°C でプラズマ焼結を実施した結果、900°C 以上のプラズマ焼結によって、不純物の Li をほぼ完全除去できることを明らかにした。

そして、ベリライド微小球に核反応によって形成されるトリチウムを想定した D イオン照射試験及び昇温脱離試験を実施した。 D_2 について 800°C 以上の温度加熱によって完全放出されることを明らかにした。しかしながら、各々のプロセスによるウラン濃度については、変化が見られなかったが、原料調達における低濃度のウランを含有する原料を用いることによって、解決できると考えられる。

上記の検討結果を踏まえ、既存のプラズマ焼結法と回転電極法によるリサイクル技術のフローを図1に示した。様々な不純物を含む使用済み試料をプラズマ焼結によって、Li、T、He 等を除去しながら電極棒の製造が可能である。更にその電極棒を用いて回転電極法で造粒を行うことによって、残留酸化物、T、He 等の不純物が除去できるとともに、中性子増倍材微小球の製造も可能であることが確認できた。この既存プロセスでのリサイクル技術は、不純物除去にも非常に有効であり、且つ簡便な技術であることを明

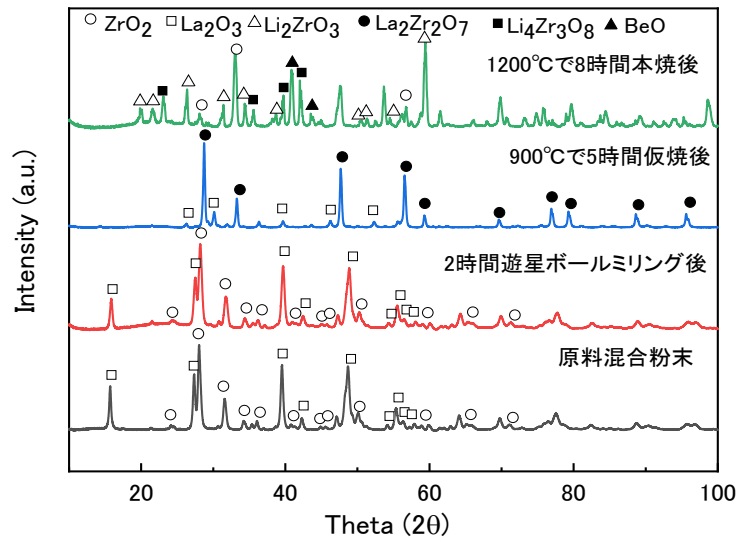


図2. 試作試料の X 線回折分析

らかにした。

次に、蒸発回収法における検討については、既存装置 (TG-DSC 装置) の改良を行い、バリアブルリークバルブによる分圧を調整可能にし、Be とベリライドの蒸気圧の測定を試みたが、既存装置の故障により、測定不可能になった。別装置の検討や測定手法の変更等によって、継続して進めている。

最後に、電解分離法の検討としては、新たな高 Li イオン伝導体の創製を目指し、Li イオン伝導体である BeO 添加型の LLZO である $\text{Li}_7\text{La}_3\text{ZrBeO}_{12}$ の試作を実施した。X 線回折分析を行った結果、2 時間の遊星ボールミリングでも、合金化されず、原料粉末と同じピークが確認された。900°C で 5 時間の仮焼き後の XRD 結果では、目標組成である $\text{Li}_7\text{La}_3\text{ZrBeO}_{12}$ (もしくは $\text{Li}_7\text{La}_3\text{Zr}_2\text{O}_{12}$) のピークが特定出来ず、 La_2O_3 と $\text{La}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ のピークが多く特定できた。これは焼結中の Li 蒸発に起因し、化学量論値の組成がずれることによって、合成できなかったと考えられる。1200°C で 8 時間本焼き後の XRD 結果については、 Li_2ZrO_3 、 $\text{Li}_4\text{Zr}_3\text{O}_8$ 、 ZrO_2 のピークが特定され、 $\text{Li}_7\text{La}_3\text{ZrBeO}_{12}$ の合成には、至らなかった。現在では、Li の蒸発を抑制するための Powder bed 法 (圧粉試料を同組成の粉末に埋め、熱処理する方法) の導入や過剰の Li_2CO_3 を入れるなどの調整によって、合成プロセスの再検討を行っている。

<引用文献>

- [1] A recycling process on vanadium beryllium intermetallic compounds as advanced neutron multipliers for DEMO fusion applications, Jae-Hwan Kim, Suguru Nakano, Mitsutaka Miyamoto, Masaru Nakamichi, Fusion Engineering and Design, 162 (2021) 112124

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計7件（うち査読付論文 6件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Jae-Hwan Kim, Suguru Nakano, Mitsutaka Miyamoto, Masaru Nakamichi	4. 巻 162
2. 論文標題 A recycling process on vanadium beryllium intermetallic compounds as advanced neutron multipliers for DEMO fusion applications	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Fusion Engineering and Design	6. 最初と最後の頁 112124
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.fusengdes.2020.112124	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Jae-Hwan Kim, Masaru Nakamichi	4. 巻 156
2. 論文標題 Compatibility of advanced tritium breeders and neutron multipliers	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Fusion Engineering and Design	6. 最初と最後の頁 111581
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.fusengdes.2020.111581	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Jae-Hwan Kim, Masaru Nakamichi	4. 巻 1
2. 論文標題 Compatibility of advanced functional materials for fusion applications	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Proceedings of the 20th International workshop on ceramic breeder blanket interactions	6. 最初と最後の頁 106
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.5445/IR/1000100675	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Jae-Hwan Kim, Suguru Nakano, Masaru Nakamichi	4. 巻 542
2. 論文標題 A novel method to stably secure beryllium resources for fusion blankets	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Nuclear Materials	6. 最初と最後の頁 152522
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.jnucmat.2020.152522	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Jae-Hwan Kim, Masaru Nakamichi	4. 巻 544
2. 論文標題 Deuterium and helium desorption behavior and microstructure evolution in beryllium during annealing	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Nuclear Materials	6. 最初と最後の頁 152686
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Jae-Hwan Kim, Masaru Nakamichi	4. 巻 55
2. 論文標題 Optimization on producibility improvement and the recycling process of neutron multipliers for fusion applications	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Materials Science	6. 最初と最後の頁 2454-2461
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s10853-019-04213-0	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Petr Kurinskiy, Jae-Hwan Kim, Masaru Nakamichi	4. 巻 137
2. 論文標題 Granulation of Be12V pebbles using the rotating electrode method	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Fusion Engineering and Design	6. 最初と最後の頁 177-181
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.fusengdes.2018.09.011	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計12件 (うち招待講演 2件 / うち国際学会 4件)

1. 発表者名 金宰煥、赤津 孔明、中道 勝
2. 発表標題 中性子増倍材の再使用技術開発における不純物除去プロセスの検討
3. 学会等名 日本原子力学会、2019年秋の大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 金 宰煥、中野 優、中道 勝
2. 発表標題 ベリリウム資源の安定的な確保に向けた革新的な金属精製技術開発研究、
3. 学会等名 日本原子力学会、2020年秋の大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 金 宰煥、黄 泰現、中野 優、中道 勝
2. 発表標題 核融合炉先進中性子増倍材のリサイクル技術開発研究の現状
3. 学会等名 日本原子力学会、2021年春の大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Jae-Hwan Kim, Masaru Nakamichi
2. 発表標題 R&D status on advanced neutron multipliers for fusion applications
3. 学会等名 International Conference on Processing & Manufacturing of Advanced Materials, Processing, Fabrication, Properties, Application (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 金宰煥、中野 優、 中道 勝
2. 発表標題 ベリリウム資源の安定的な確保にむけた革新的な金属精製技術開発研究
3. 学会等名 日本原子力学会、2020年秋の大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 金宰煥、黄 泰現、中野 優、中道 勝、
2. 発表標題 核融合炉先進中性子増倍材のリサイクル技術開発研究の現状
3. 学会等名 日本原子力学会、2021年春の大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Jae-Hwan Kim, Masaru Nakamichi
2. 発表標題 R&D status on advanced neutron multipliers for fusion applications
3. 学会等名 International Conference on PROCESSING & MANUFACTURING OF ADVANCED MATERIALS, Processing, Fabrication, Properties, Applications (THERMEC2021) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 金宰煥、クリンスキー ピーター、赤津 孔明、中道 勝
2. 発表標題 中性子増倍材の量産システムにおけるプロセス検討
3. 学会等名 日本原子力学会、2019年秋の大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Jae-Hwan Kim, Masaru Nakamichi
2. 発表標題 Compatibility of advanced functional materials for fusion applications
3. 学会等名 20th International Workshop on Ceramic Breeder Blanket Interactions
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Jae-Hwan Kim, Masaru Nakamichi
2. 発表標題 Compatibility of advanced tritium breeders and neutron multipliers
3. 学会等名 14th The International Symposium on Fusion Nuclear Technology
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Jae-Hwan Kim, Petr Kurinskiy, Masaru Nakamichi
2. 発表標題 Preliminary research on recycling process of neutron multipliers for fusion application
3. 学会等名 International Conference on Material and Chemical Engineering (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Jae-Hwan Kim, Mitsutaka Miyamoto, Masaru Nakamichi
2. 発表標題 Deuterium retention property of beryllides pebbles as advanced neutron multipliers
3. 学会等名 12th International Conference on Tritium Science & Technology (国際学会)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	中道 勝 (Nakamichi Masaru) (60343927)	国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構・六ヶ所核融合研究所 ブランケット研究開発部・グループリーダー(定常) (82502)	

6. 研究組織（つづき）

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分 担 者	宮本 光貴 (Miyamoto Mitsutaka) (80379693)	島根大学・学術研究院理工学系・准教授 (15201)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関