

ナノ粒子分散ナトリウムによる高速炉の安全性向上技術の開発

(受託者) 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

(研究代表者) 荒 邦章 大洗研究開発センター高速炉技術開発部

(再委託先) 国立大学法人東北大学、三菱重工業株式会社、三菱FBRシステムズ株式会社

(研究期間) 平成25年度～28年度

1. 研究の背景とねらい

高速増殖炉は原子炉で発生した熱を取り出すための媒体（冷却材）として液体金属ナトリウムを使用している。ナトリウムは熱の伝えやすさが水の100倍もあること、800℃を超える高温になるまで沸騰しないことなど、冷却材としての優れた性質を持っているが、その一方で空気（酸素）や水に触れると激しく反応するという弱点（化学的活性度）も有している。現在は、これらナトリウムの弱点をカバーするために「急激な化学反応が起こる」ことを前提にして、予め対策設備を付けたり機器の設計を工夫して安全なプラントを実現している。このような状況を考えると、新しい技術によってナトリウムの弱点をコントロールできれば、懸念されるナトリウムの漏洩火災や水との反応などに対して、より安全なシステムを作り上げることが可能となる。そこで、報告者らはこれまでに培ってきた原子力技術に先進的なナノテクノロジーを融合した革新的なアイデアを生み出した。

このアイデアは、ナトリウムにナノ粒子を分散させる（以下、ナノ流体という）ことを基本としており、報告者らのオリジナルで全く新しい技術である。

○ナノ流体の概念：アルカリ金属のナトリウムと電気陰性度の高い（電子を引き寄せる性質が強い）金属ナノ粒子（遷移金属が候補）を組合せることによって、ナノ粒子表面で有意な電荷移行（反応熱量低減、粒子間凝集抑制）および原子間結合力（蒸気圧低下による反応速度緩和）が生じることを利用する（図1）。

○ナノ流体の特徴（反応抑制効果と伝熱流動性の両立）：分散するナノ粒子を微細化することにより、ナトリウムと接する表面積を拡大

し、分散量を減らすことができ流動性を維持できる。特に従来、経験の無い液体金属中のナノ粒子の分散技術として図1に示した原子間相互作用によって安定で強固なクラスター構造を生み出しており、原子炉での温度や流動の変化だけでなく溶解・固化などの相変化に対しても十分な安定性を確認している。また、冷却材に要求される伝熱流動性はナトリウムと同等であることならびに設計から運転保守に至る広範な観点から冷却材要件を満足することを確認している。

本研究は、これらの知見を基にして、①ナノ流体の反応抑制効果の評価および抑制メカニズムの解明、②原子炉プラントに適用した場合の評価、③全く新しい技術であるナノ流体の製造技術開発などを実施している。福島第一原子力発電所の事故の教訓から、原子炉の安全確保のために

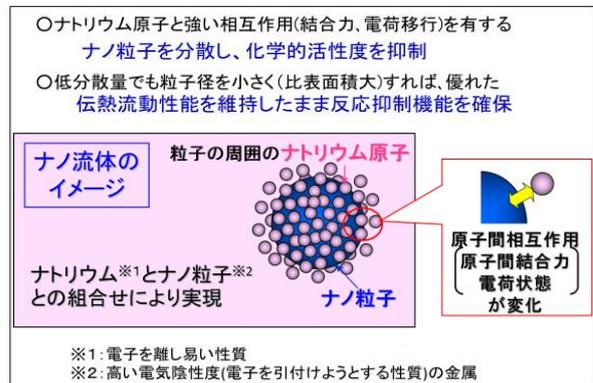
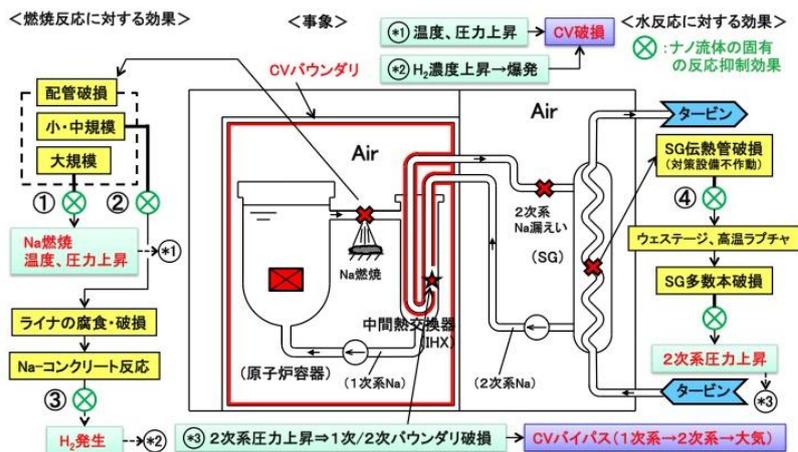


図1. ナノ粒子分散ナトリウム(ナノ流体)の概念

は炉心の冷却機能確保及び放射性物質の格納機能の確保の重要性を改めて認識させられる状況にあって、ナトリウム冷却型高速炉においては自然循環の活用により炉心の冷却機能に対する高いポテンシャルを有する。一方、冷却材ナトリウムは化学的活性度が高



いため大規模なナトリウムの漏れを想定すると、ナトリウムの燃焼による格納容器 (CV: Containment Vessel) 内の温度や圧力の上昇、格納境界を形成する鋼材 (ライナ鋼材) の損傷、万一、ライナ破損に至った場合のナトリウムとコンクリートとの反応により発生する水素の燃焼爆発などによる CV の破損の可能性が考えられることから、これらを防止するための対策設備の強化が検討されている。これら課題を解決するために、ナトリウムの潜在的な危険性の低減によるブレークスルーの可能性を有するナノ流体技術の適用による安全性向上を目指している (図 2)。

2. これまでの成果

2-1. ナノ流体概念の成立性および冷却材としての適用性検証

原理検証からナノ流体の製造技術開発、反応抑制効果の確認および実炉における効果の評価、さらに冷却材としての適用性評価などを実施し技術の有効性を示してきた¹⁻³⁾。これまでに主として設計基準事故を対象にナトリウム漏えい事故および蒸気発生器伝熱管破損によるナトリウム-水反応事故における効果を評価しており、ナノ流体の仕様として粒子径 10-30nm で濃度 1-2vol.% の条件により要求される反応抑制を実現できることを確認している。本研究では、この成果を基に、安全性強化の観点から従来の設計基準を超える事象を対象として前述の格納機能の維持への適用効果を評価する。

2-2. ナノ粒子分散による反応抑制効果の評価研究

従来の設計基準を超える事象を想定した事象進展の分析と評価項目の整理を行い、評価手法の整備とともに実験知見の取得を進めている。ナノ流体の適用効果に関する主な成果は次のとおり。

(1) ナトリウム漏えい燃焼⁴⁾

設計基準を超えた条件として、漏えいナトリウムの温度が高温になった場合を想定し、ナノ流体に期待される①反応抑制機能の維持 (燃焼反応温度低下と燃焼反応速度緩和) および②反応の自己終息性を調べた結果、

- ① 相当に厳しい漏えい温度 (600°C) においても、ナノ流体に期待される反応抑制機能が十分に維持されていることを確認した (図 3)。ナノ流体はナトリウムに比較して燃焼による構造物への熱的影響が顕著に抑制される (破損限界温度に至らない) ことが確認された。こ

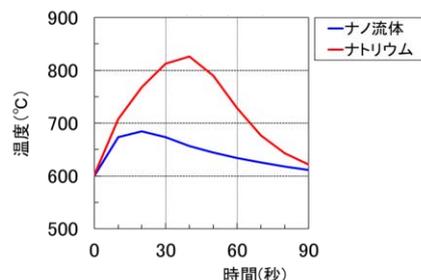


図 3. 設計基準を超える温度でナトリウム漏えい燃焼が生じた場合のナノ流体による構造物 (ライナ) への熱影響の抑制 (実験値)

これはナノ粒子分散による原子間相互作用が相当に安定であることを意味している。

- ② また、燃焼反応の継続が絶たれ未反応のナトリウムを残して反応が終息（停止）することが確認された。自己終息のメカニズムは、図4に示すように、酸素との反応界面において反応生成物を介したナトリウム供給機構がナノ粒子の存在（安定化合物の形成）によって阻害されることによる。ナノ粒子の種類を選定することにより（例えば金属Tiなど）、安定化合物が生成され（主に Na_2TiO_3 、融点 1000°C 以上）、相当に厳しい漏えい温度であったとしても熱力学的に安定となり反応停止に至る。

このように、反応抑制に留まらず反応が停止することは、漏えい規模が拡大しても影響が限定されることを意味しており、大規模な漏えい事象に対して極めて大きな効果を有する。

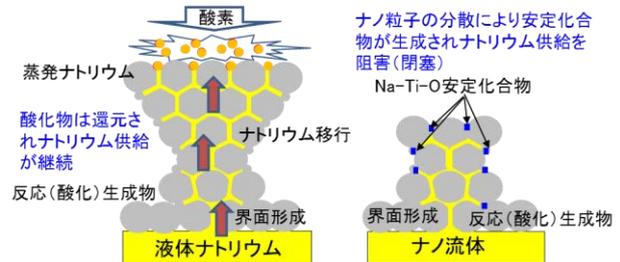


図4. 燃焼における自己終息のメカニズム

(2) ライナ鋼材の腐食⁵⁾

次に、ナトリウム漏えいに起因して生じる可能性のあるライナ鋼材の溶融塩腐食現象について記す。この現象は極めて高温分の雰囲気条件下でナトリウム漏えいが生じた場合に起こりうる特殊な現象であり、現在は漏えい時間の制限や対策設備によって現象の発生を防止しているが、本研究では安全性強化の観点からナノ流体の適用効果を評価している。漏えいから床面堆積プール形成に至る過程における①腐食源（反応生成物）の生成挙動の変化（温度、量）の把握、②前記①を考慮した腐食速度の把握を実施した。結果を以下に示す。

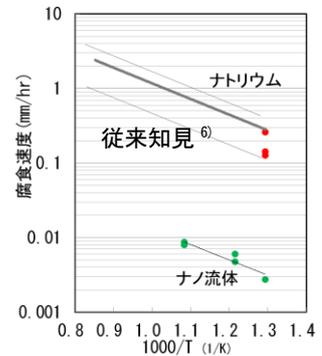


図5. ナノ流体による腐食速度の抑制

- ① 腐食源となる水酸化ナトリウムの生成量がナトリウムに比べて顕著に低減（ナトリウムの約1/10）することを確認した。漏洩ナトリウムは雰囲気中の酸素と反応しナトリウム酸化物を生成し、ナトリウム酸化物は雰囲気中の湿分と反応して水酸化ナトリウムを生成する。ナノ粒子分散により最初の酸化反応が抑制され、以降の反応は相乗的に抑制され、結果として腐食源（水酸化ナトリウムおよび過酸化化物）の生成が抑制される。
- ② 腐食速度の著しい低下が認められた。溶融塩腐食メカニズムにおいて、腐食速度は環境温度と腐食源の量（濃度）に依存するので、①の結果を考慮すれば明らかに腐食速度が低減する（図5）。また、プールに供給されるもう一つの腐食源因子である過酸化化物の生成量も抑制されるので腐食速度の低下に相乗的に寄与している。

ナノ流体適用によるライナ鋼材の腐食速度は、通常の雰囲気条件下で想定される腐食形態（Na-Fe複合酸化型腐食）の腐食速度をも下回っており、ナトリウム固有の性質に起因する特殊な電気化学的な挙動である溶融塩型腐食に対して特段の配慮が不要になる可能性を示している。

(3) ナトリウム-コンクリート反応⁷⁾

前述のように、ナノ流体の適用によってライナ鋼材の貫通破損を防止できればナトリウム-コンクリート反応（図6）は生じないが、仮に生じた場合のナノ流体の適用効果を評価している。研究の着眼は①知見の乏しい

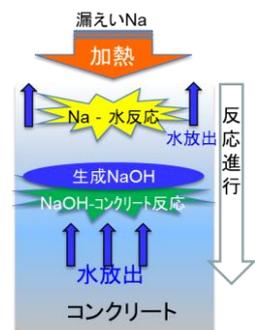


図6. ナトリウム-コンクリート反応

反応現象の把握（コンクリートの含有水放出挙動）、②水素発生の要因の把握と発生量の変化の把握にあり、以下の結果を得ている。

① コンクリートの含有水の放出挙動と反応進展挙動の関係を把握して水素発生の原因とその発生量の変化を調べた結果、含有水の放出に伴う反応と発熱挙動の相関性を明らかにした。水素発生の原因はコンクリート内の自由水、結合水および結晶水の放出挙動（コンクリート加熱時間や到達温度）にあり、それらの放出量が反応を支配する。

② 次に、ナトリウム-コンクリート反応における水素発生量を調べた結果、ナノ流体の適用による顕著な低減効果（ナトリウムに比べ約1/100）が再現性をもって確認された（図7）。また、反応残渣の化学分析により、ナノ粒子に供試した金属 Ti との水素化物が有意に検出されており、ナノ粒子分散による原子間相互作用に基づく抑制効果に加えて、ナノ粒子が有する吸着効果の可能性が示され、現在、分析および現象の解明を進めている。

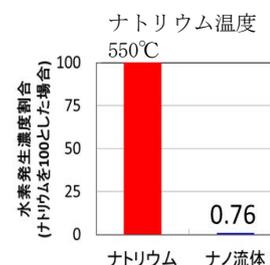


図7. ナノ流体による水素発生量の抑制効果

(4) 反応抑制メカニズムの解明およびナノ流体製造技術開発

ナノ流体の反応抑制効果の評価とともに、そのメカニズムの解明を進めている。従来は困難であった、液体金属としてのナトリウムとナノ粒子との原子間相互作用の理論推定が可能となり、本件提案技術の根幹となるアルカリ金属のナトリウムと電気陰性度の高い金属種のナノ粒子との組み合わせは実用上十分な安定性を有することが示され実験結果を裏付けている。また、ナノ流体の製造に関わる基盤技術開発、整備を進めており実用製造に必要な装置化に備え知見の蓄積整備が進んでいる。

3. 今後の展望

福島第一原子力発電所事故の教訓による安全性強化を実現する観点から、従来の設計基準事故を超える事象を想定した事象進展の分析と評価手法の整備を行い、ナノ流体開発を進め顕著な化学的活性度抑制効果が明らかになるとともに、反応抑制に関する諸特性のデータベース整備やメカニズム解明が進んだ。特に、従来は設計基準外事象としてきたナトリウム固有の性質に起因する特殊な腐食現象やコンクリートとの反応による水素発生現象などに対する有効性が明らかになり、特段の設計上の考慮が不要となれば安全性強化に大きく寄与するものである。研究の後半で計画する抑制効果の検証と実炉の適用性評価を進めることにより、ナトリウム自身の活性度を抑制制御するというシンプルで有効な安全性強化のブレークスルー方策の提案が現実的になっている。本事業の終了後は、実用化に向けて現状の基盤研究から工学的実証レベルに試験規模を上げて実炉への適用化開発を進め原子炉システムの高い安全性の実現に向けて貢献したい。

4. 参考文献

- (1) Kuniaki ARA, Ken-ichiro SUGIYAMA, Hiroshi KITAGAWA, Masahiko NAGAI and Naoki YOSHIOKA, J. Nucl. Sci. Tech., Vol. 47, No. 12, pp. 1165-1170, (2010).
- (2) Kuniaki ARA, Ken-ichiro SUGIYAMA, Hiroshi KITAGAWA, Masahiko NAGAI and Naoki YOSHIOKA, J. Nucl. Sci. Tech., Vol. 47, No. 12, pp. 1171-1181, (2010).
- (3) Jun-ichi SAITO, Toshio ITAMI and Kuniaki ARA, J. N. R., 14, pp. 1298-1315, (2012).
- (4) 永井桂一、斉藤淳一、荒 邦章：日本原子力学会 2015 年春の年会, G26.
- (5) 斉藤淳一、永井桂一、荒 邦章：日本原子力学会 2015 年秋の学会, B17.

- (6) 吉田英一、青砥紀身、平川康、田所裕、JNC TN9400 2000-024 (1999).
- (7) 永井桂一、斉藤淳一、荒 邦章：日本原子力学会 2015 年秋の学会, B18.