

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。ナトリウムは冷却材としての優れた伝熱特性を持っているが、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（高い化学的活性度）がある。現在は、これらナトリウムの弱点に対して「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克服できれば、懸念されるナトリウムの漏えい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と先進的なナノテクノロジーを融合して、ナトリウム自身の化学的活性度を抑制するという革新的なアイデアを創出した。

このアイデアは、液体ナトリウム中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⁽¹⁾。

○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金属ナノ粒子を組合せることによって、ナノ粒子表面層で有意な電荷移行（反応熱量低減、粒子間凝集抑制に起因）および原子間結合力（蒸気圧低下による反応速度緩和に起因）が生じることを利用する。

○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るため優れた流動性を維持したまま反応抑制効果を出現する。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、高温や高流速だけでなく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。

本事業は、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効果、③全く新しい技術であるナノ流体の製造技術開発を実施している。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は炉心の冷却機能確保及び放射性物質の格納機能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

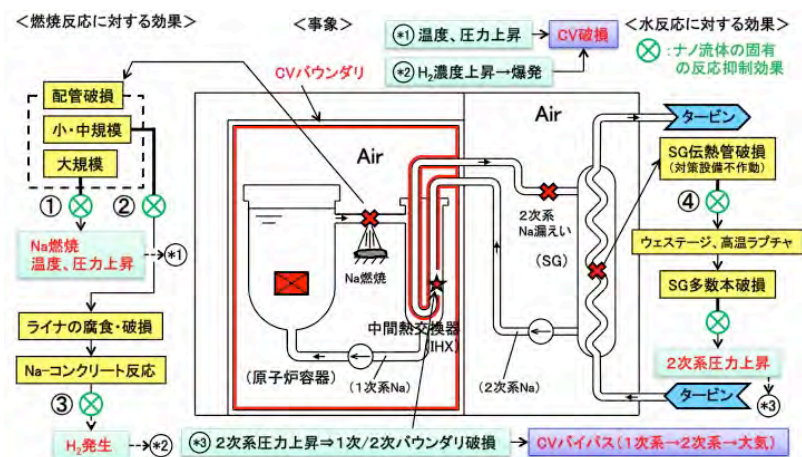


図1. ナトリウムの反応性が係る事故等の推移とナノ流体の寄与予測

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えいを想定すると、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）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。また、蒸気発生器伝熱管破損によるナトリウム-水反応により圧力上昇すると1次/2次バウンダリ破損（CVバイパス）の可能性が考えられる（図1）。

本事業を進めることにより、ナトリウムとナノ流体に関する知見が整備・蓄積され現象の理解、抑制効果が明らかになってきた。ここでは、研究活動の中から、本事業の目標とする格納機能の確保に対して重要となる①漏えい燃焼による構造物への熱的影響、②ナトリウムに固有の電気化学的に特異な腐食現象、③ナトリウムに固有のナトリウム-コンクリート反応による水素発生現象、④漏えい燃焼の自己終息機能、に関する研究を採り挙げ、それらの進捗（成果）について述べる。

2. これまでの研究成果

2-1. ナノ粒子分散による反応抑制効果の評価と適用性検証

① 漏えい燃焼による構造物への熱的影響

漏えい燃焼反応における評価のポイントは、影響抑制の視点から構造物（ライナ鋼材）の熱的破損回避への寄与、安全性強化の視点から漏えい温度の高い厳しい条件における抑制能力の確認にある。

実験による現象把握および実炉の予測評価の結果、通常運転温度（500℃）を超える高温条件下においても、ナノ流体に期待される反応抑制効果が十分に機能することを確認した。これは反応抑制の基となるナノ粒子が液体ナトリウム中に安定分散するとともにナトリウムとの原子間相互作用が沸点近くの高温まで相当に安定（強い結合力）という理論推定を裏付けている。具体的には図2の実験結果に示すように、漏えい温度が通常運転温度を超える650℃の場合、ナノ流体の適用による構造物の温度はナトリウムのそれに比べて大幅に低下しており、構造物の機械的強度を十分に維持できる温度にまで熱影響が抑制されていることを確認した。実機での適用効果を予測するために、ナノ流体の燃焼特性を取り入れた燃焼解析モデルを構築し、実験を検証して燃焼挙動（燃焼温度、燃焼時間）の予測手法の妥当性を確認した。

② ナトリウムに固有の電気化学的に特異な腐食現象の抑制

漏えい燃焼事故において、特殊な高湿分環境下で起こりうるナトリウムに固有の電気化学的な反応に起因する熔融塩型腐食の現象について評価した。この腐食現象の評価のポイントは、ライナ鋼材の腐食量低減の視点から特異な熔融塩型腐食の発生・進展防止およびライナ鋼材の腐食による貫通破損防止の視点から設計基準外事象である腐食現象の回避である。

この腐食は高湿分の雰囲気条件下で起こりうる極めて特異な現象であり、現在は漏えい時間の制限（ドレン時間の短縮化）や対策設備等の設計対応により現象の発生・進展を防止している。ナノ流体を適用することにより、ライナ鋼材の腐食速度を顕著に低下（～1/100）できることを確認し、その抑制メカニズムを明らかにした。

漏えい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。ナノ流体では最初の燃焼反応が抑制さ

れるとともに、以降の雰囲気中の湿分と燃焼生成物の反応が抑制され、結果として腐食源（水酸化ナトリウムおよび過酸化イオン）の生成量（ナトリウムの約 1/10）および温度が抑制される。腐食速度は環境温度と腐食源（過酸化イオン）の量（濃度）に依存することから、腐食速度が顕著に低減した。加えて、ナノ流体のナノ粒子種を選定することにより、腐食源の過酸化イオンはナノ粒子と安定化合物を生成し、腐食源となる過酸化イオン量が激減し、腐食速度が顕著に低減することを確認した。

ナノ流体の適用によるライナ鋼材の腐食速度は、通常の大気条件下で想定される腐食形態（Na-Fe 複合酸化型腐食）の腐食速度さえをも下回っており、ナトリウム固有の性質に起因する特異な電気化学的な挙動である熔融塩型腐食に対して特段の配慮が不要になる。

③ ナトリウムに固有のナトリウム-コンクリート反応による水素発生抑制

ナノ流体の適用によってライナ鋼材の腐食による貫通破損を防止できればナトリウム-コンクリート反応は生じないが、万が一貫通破損が生じた場合のナノ流体の適用効果を評価した。この反応現象の評価のポイントは、ナノ流体の性能評価の視点から燃焼反応と水反応の複合現象における相乗効果の期待および抑制効果の評価の視点から反応に伴う水素発生挙動の変化の把握である。ナノ流体を適用することにより、コンクリートへの入熱が緩和し含有水放出量が低減するとともに水反応が緩和され、水素発生が顕著に抑制し格納機能喪失防止への寄与が期待される。

④ 燃焼の自己終息機能

これまでの研究により、ナノ粒子種を選定により燃焼反応における自己終息機能を実現できることを確認している。評価のポイントは、ナノ流体が有するこの極めて効果的な能力の適用範囲を確認することにある。評価の結果、相当に厳しい高温漏えい条件下でも十分な自己終息能力を確認するとともに、メカニズムを把握した。ナトリウムの燃焼反応により過酸化ナトリウム層が生成されるが、液体ナトリウムの還元作用により反応界面にナトリウムが供給され燃焼が継続する。一方、ナノ流体の場合、ナノ粒子を含む熱力学的に安定な酸化物が生成されることにより、還元ができず反応界面へのナトリウム供給が断たれ燃焼が停止する。このように、燃焼抑制に留まらず燃焼自体が自己終息することは、漏えい規模が拡大してもプラント設備、機器への影響が

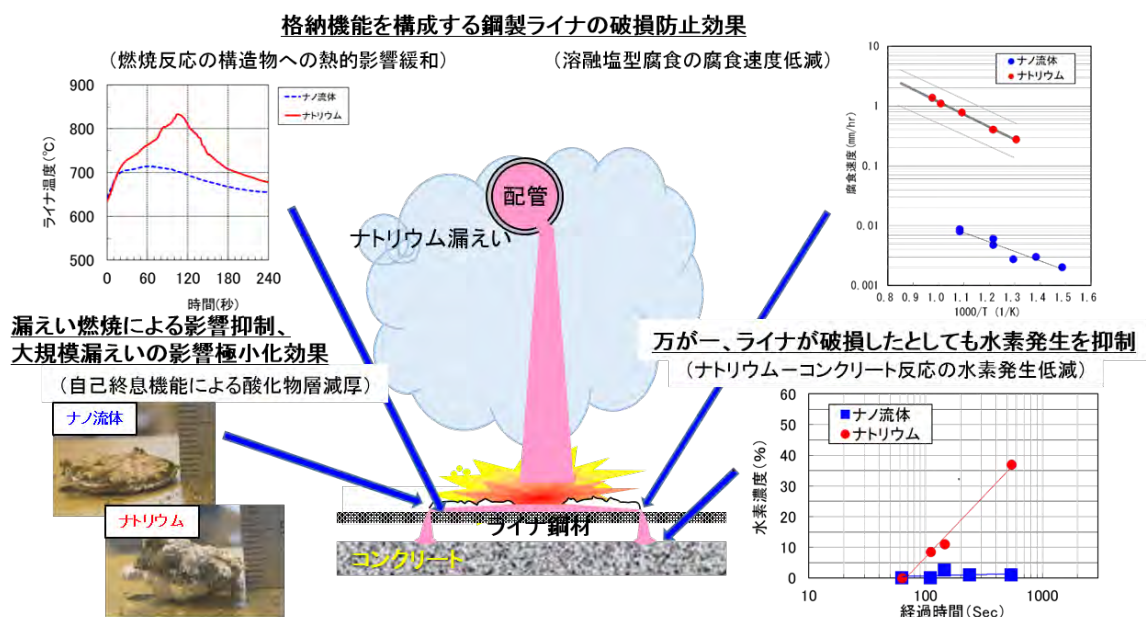


図 2. ナトリウム漏えい火災事故時のナノ流体の適用効果の例

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ことを示唆している。

以上の成果を総括（図 2）すると、設計基準を超える厳しい条件下（漏えい温度高、大規模漏洩）においても燃焼反応の抑制により熱的影響が緩和され、周囲構造物（ライナ鋼材）の機械的強度は維持され破損防止の可能性が確認された。さらに、高湿分下の特殊な環境下で生じる熔融塩型腐食が顕著に抑制されることが確認され、ライナ鋼材の腐食による貫通破損に対する特段の設計上の配慮が不要になることが示された。万が一、ライナ鋼材が破損したとしても、ナトリウム-コンクリート反応は水素発生量が低減するなどナトリウム固有の弱点克服が可能であることが明らかになった。また、大規模漏えい燃焼が発生してもナノ流体の自己終息機能により、構造物への熱的影響が緩和されることが確認された。このような厳しい条件下でのナノ流体の抑制効果は、原子間相互作用が融点近くまで極めて安定に存在することに起因する。また、ナノ粒子種を適正に選定することにより、腐食抑制、自己終息機能などの相乗的な効果が期待できる。

2-2. 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、そのメカニズムの理論的な解明を進めている。東北大学で開発した超高速化量子分子動力学法⁽²⁾を採用することにより、従来は困難であった、実温度での液体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検証され、化学的活性度抑制に関する種々の実験知見を裏付けている。また、ナノ粒子分散による凝集エネルギー密度の変化とナノ流体の物性との相関を評価し、凝集エネルギー密度が変化することにより物性（表面張力の増大、蒸発速度の低下）が変化し、原子間相互作用が反応抑制に寄与することが理論的に明らかになった。

この他、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を蓄積した⁽³⁾。

3. 今後の研究

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異な腐食現象やコンクリートとの反応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。今後、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、ナトリウム自身の化学的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る。

4. 参考文献

- (1) Kuniaki ARA, et al., “Study on Chemical Reactivity Control of Sodium by Suspended Nanoparticles I”, J.Nucl.Sci.Technol., Vol.47, No.12, pp.1165-1170, (2010).
- (2) Ai Suzuki, et al., “Theoretical Evaluation for The Stability of Liquid Sodium containing a Titanium Nanoparticle”, Proc. ICAPP 2015, Nice, France, May 3-5, 2015, ICAPP-15015.
- (3) M. Nagai, et al., “Study on Sodium Nanofluid for Fast Reactor (3) Fabrication of Nanoparticle for Nanofluid” TechConnect Briefs 2016, Washington, USA, May 22-25.