

ナノ粒子分散ナトリウム的高速炉への適用化技術の開発

(受託者)独立行政法人日本原子力研究開発機構

(研究代表者)荒 邦章 次世代原子力システム研究開発部門

(再委託先)国立大学法人北海道大学、三菱重工業株式会社、三菱 FBR システムズ株式会社

(研究開発期間)平成 22 年度～24 年度

1. 研究開発の背景とねらい

次世代の原子炉システムとして、ナトリウム冷却型高速増殖炉 (Fast Breeder Reactor 以下、FBR と記す) の実用化研究開発が進められている。冷却材である液体金属ナトリウムは、伝熱特性、材料との共存性に優れ、核的性質も良好であるといった利点を有する一方で、化学的に活性であるため、空気雰囲気への漏えいや蒸気発生器の伝熱管破損時における水や蒸気との接触により、「急激な化学反応」を生じ、プラントの安全性及び補修性に影響を及ぼす可能性があるという欠点を有している。現在は、これらナトリウムの化学的活性度に起因する弱点を回避するために「急激な化学反応」の存在を前提にして、安全対策設備や冷却系機器の設計を工夫するなどの対応により実用性のあるプラント概念を構築している。このような状況を考えると、新たな技術によってナトリウム固有の高い化学的活性度を抑制制御することができれば、懸念される水反応や漏えい火災などに対する設計上の制約が緩和され、より高い安全性と経済性を実現しうる革新概念の提案が可能となる。この観点において、これまで報告者らは、ナノテクノロジーを応用した新たな概念として、ナノスケール領域で生じる原子間相互作用に着目した流体の機能制御に関する研究を液体金属ナトリウムへ適用することにより化学的活性度を抑制するという従来にない全く新しい概念を提案した。それを基に文科省原子力システム研究開発事業の基盤研究開発分野、革新技术創出型研究で平成 17 年から 21 年度の 5 ヶ年計画、ナノ粒子とナトリウムの原子間相互作用の理論検討や原子間相互作用の実験的検証などの基礎的な研究をはじめ、ナノ粒子分散ナトリウム (以下、ナノ流体) としての性質や物性の把握、さらに冷却材に適用した場合の反応抑制効果およびそのメカニズムの解明に至る、基礎から応用までの広範な研究を実施してきた。その結果、ナノ粒子分散による反応抑制効果の確認および実機への適用性を明らかにするとともに、ナノ流体の実現にかかわる製造等の基盤技術が整い、所期の研究目標を達成した。これらのことから、次の研究開発段階であるナノ流体の実機適用化開発に展開しうる状況に至った。

本事業では、FBR への適用化技術の開発として、プラント環境を考慮した反応抑制や適用性の試験と評価に基づきナノ流体の適用性を確認し、実用化のためのナノ流体の製造技術を実証するとともに、FBR への適用概念の適用方策を提示することを狙いとしている。本事業は 3 カ年での実施を計画しており、1 年目である 22 年度は、ナノ流体のプラント環境下における反応抑制効果の評価、ナノ流体のプラントへの適用性評価およびナノ流体製造技術の開発を行う。以下にその成果について述べる。

2. 研究開発成果

研究開発成果の報告に先立ち、これまでの研究開発で得た知見を加えて、本技術の概念を説明する。本概念は、液体ナトリウム中にナノメートルサイズの金属超微細粒子(ナノ粒子)を分散させることを基本としており、ナノ粒子の表層原子とナトリウム原子との電気陰性度の違い(例えば、Pauling によるナトリウムの電気陰性度は 0.9、3d 遷移金属(Ti~Cu)は 1.5~1.9)に起因する強い原子間相互作用(原子間結合力と電荷移行)が生じ、ナノ粒子はその周囲のナトリウム原

子を捕捉するクラスター状態となる。それにより、水や酸素などとの反応の際には自由に反応に寄与するナトリウム原子が存在する一方、ナノ粒子に捕捉されたナトリウム原子はその挙動（例えば、反応熱量や反応速度）に差異を生じる。また、ナノ粒子とナトリウム原子の電気陰性度の大小関係から生じる電荷移行によりクラスターは、あたかもプラス電荷をもったイオンのように振舞い、クラスターどうしが近づくと斥力により反発する。このようにクラスターを形成することで液体ナトリウム中にナノ粒子が安定に存在（分散）している。この概念の特徴は、抑制効果はナトリウム原子とナノ粒子の接触面積の大きさに依存することから、ナノ粒子の微細化により比表面積を大きくし、分散量が少なくても大きな効果が得られることにある。さらに、低分散量であれば、元来液体ナトリウムの利点である優れた伝熱・流動特性を損なうこともない。

報告者らが実現を目指すナノ流体は、前述のように反応抑制に加えて、ナトリウムが有する優れた伝熱・流動性能を損なわない反応抑制と流動性維持の同時満足である。これまでの結果から、その目標の実現性を確認している。

2. 1 プラント環境下における反応抑制効果の評価

(1) 漏えい燃焼への反応抑制効果の確認

FBR で考慮しなければならないナトリウムの活性度に起因する事故は、ナトリウム漏えい火災と蒸気発生器伝熱管破損によるナトリウム-水反応である。ここでは漏えい火災に着目し、プール燃焼を代表例に挙げ、漏えいから燃焼に至る挙動を考慮した酸素との反応試験を実施し、ナノ流体の反応抑制効果を確認した。試験方法を図1で説明する。中央の箱は試料（ナトリウムまたはナノ流体）が燃焼する観察容器で、その床面は少ない漏えい量でも燃焼挙動が確認できるようにヒーターにより昇温できるようにしている。その容器へ上部に設置したナトリウム供給部から試料は模擬漏えい部を通して滴下し、燃焼を起こさせ、その挙動を観察する。反応（酸素）ガスは容器の右側面から導入し、左側面から排気される。燃焼挙動はCCDカメラおよび高速度カメラにより撮影する。また、燃焼時の床面温度を熱電対により測定する。漏えい燃焼の環境条件は、一般的なFBRの代表例として設計実績のある「もんじゅ」の2次主冷却系を挙げ、ナトリウム温度500℃、大気雰囲気を考慮した。

評価の視点は、現象の進展挙動およびその際の温度などの物理量の変化や反応生成物の生成などの変化とし、生じる現象として、着火に至る時間、反応様相、温度変化、表面の反応生成物の生成挙動、放出する反応生成物（エアロゾル）挙動、燃焼および反応継続時間ならびに反応の終息様相などについて、ナトリウムとナノ流体の差

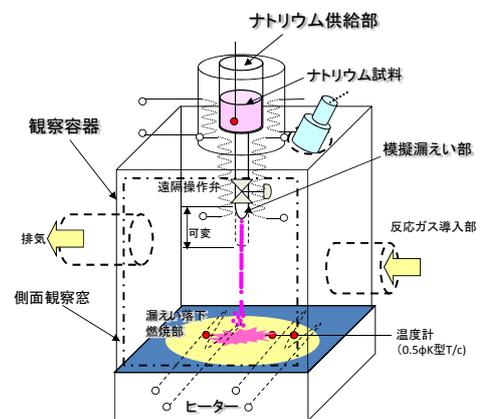


図1 漏えい燃焼試験方法

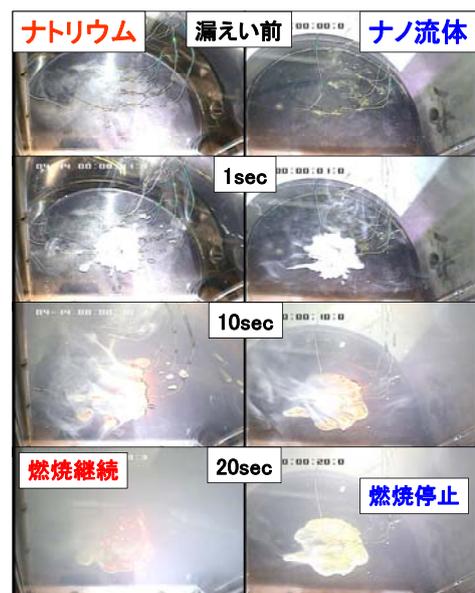


図2 漏えい燃焼挙動の変化

異を観察した。その結果を図2に示す。漏えい直後から着火挙動まで挙動に差はほとんどないが、その後の燃焼状態からナノ流体の火炎高さは低く燃焼の進展が緩慢になっている。さらに、ナトリウムは燃焼が継続しているのに対して、ナノ流体のそれは停止している。また、放出されるエアロゾル量もナノ流体の場合は抑制が認められる。また、ナノ流体の場合、燃焼プールの下面（実機ではライナに相当）温度が、ナトリウムの場合に比べ有意に低下していることを確認した（図3）。

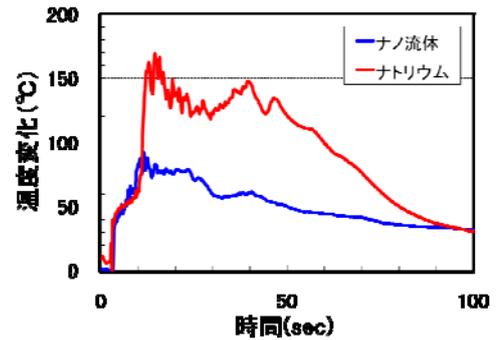


図3 燃焼温度の時間変化

以上のことから、FBRへナノ流体を適用することによって、燃焼時間、燃焼温度、それに伴うエアロゾルの放出量などの燃焼挙動が大いに緩和され、その結果としてプラント機器設備に及ぼす影響を低減できることを示している。さらに、このことは従来の漏えい燃焼の対策設備が軽減または削減できる可能性を示している。

(2) 原子間相互作用と反応抑制メカニズム

前節ではナノ流体の漏えい燃焼への反応抑制の現象について述べた。次に反応抑制メカニズムとその基となるナノ粒子とナトリウムの原子間相互作用に関する知見（試験により得られた根拠）について述べる。

原子間相互作用に関する研究は、理論（密度汎関数法、Vienna Ab-initio Simulation Package）検討による現象の推定を行い、ナノ粒子原子とナトリウム原子の原子間結合力は、ナトリウム原子どうしのそれに比べて有意に強いことを確認している。これを検証するために、ナノ粒子とナトリウムの原子間相互作用と関連する表面張力や蒸気圧（蒸発速度）などの物性を測定し、原子間結合力の増大に関する複数の裏付けを実験的に得ている。以上のことから、概念であるナノ粒子とナトリウムに原子間相互作用は有意に強く、その強さは物性値を変化させるほどであることを示している。

次にその原子間相互作用が反応に及ぼす影響（効果）として、水および酸素との反応について現象を把握し、反応抑制の要因とメカニズムを評価している。評価の切り口は反応速度および反応熱量とし、現象の切り口は反応過程に着眼した表面反応および気相反応として、熱と物質の移行挙動や特性に関わる知見を整備している。原子間相互作用が反応に及ぼす影響として、気相反応時の蒸発速度の低下による反応速度の低下、電荷移行による反応の活性化エネルギーの増加による反応速度の低下および安定なクラスター形成による反応熱量の低減が推測される。これらを検証するために、燃焼重量変化や燃焼反応時の静止液滴径の変化により反応速度から反応速度の緩和を確認している。また、酸素との反応における発熱量と水との反応による反応熱量の低減を確認（再現性有）している。その他、表面反応挙動（酸素影響、温度影響）、気相反応挙動（蒸発挙動と反応抑制の関係）など反応挙動に関する知見を蓄積している。これらは反応抑制に関わる基本的な知見であり、前述の原子間相互作用による影響が実験的に確認している。

2.2 ナノ流体の高速炉への適用性評価

実機のナトリウム漏えい火災と蒸気発生器伝熱管破損によるナトリウム-水反応に着目し2.1で得られた知見を基に適用効果を予測した。

漏えい火災事故では、燃焼解析によりナノ流体の抑制効果により、燃焼時の反応界面近傍の温度が低下することが明らかになり、ライナや壁、機器等への熱影響が低減することが明らかになった。この結果から、抑制効果が床ライナ、壁・天井の断熱構造、窒素ガス注入設備、貯留室燃焼抑制板などのプラントの漏えい対策設備の軽減に及ぼす影響を分析・検討し、今後、設備軽減や削減を検討するためのナノ流体の反応抑制効果と対策設備の軽減影響の相関を把握した。今後は実験知見の拡充を受けて、より現実的な適用効果の予測評価を行う予定である。

蒸気発生器伝熱管破損により生じるナトリウム-水反応では、反応解析により反応温度が低下し、隣接伝熱管の損傷抑制（高温ラプチャ回避およびウェステージ低減による破損伝播の抑制）の可能性が明らかになった。このことは、ナノ流体を適用することにより蒸気発生器の2重伝熱管を低コストで製造性のよい単管に変更できる可能性を示している。

また、冷却材としての適用性評価の観点から検討すべき項目を抽出し、課題の有無を検討し、適用を阻害する要因がないことを確認した。さらに、冷却材要件として考慮すべき物性（融点、比熱、密度および粘性など）を評価し、実験で阻害要因のないことを確認した。併せて、熱輸送要件としては殆どナトリウムと同程度であることを確認している。これは、提案技術が狙いとする反応抑制と流動性維持の同時満足を示している。ナノ流体の物性は、前述の表面張力や蒸発速度などを含めて、FBRでの使用温度範囲(200～550℃、固化-溶解の相変化を含む)をカバーするデータとして整備ができています。

2.3 ナノ流体製造技術の開発

ナノ流体の反応抑制効果は、ナノ粒子とナトリウムの接触面積に依存することから、ナノ粒径と分散量に影響する。そこで、ナノ流体製造技術では、ナノ粒子の製造と製造したナノ粒子を液体ナトリウム中に分散させる技術の開発が必要である。これまでにナトリウムに適合する条件(遷移金属、粒子径 10nm、表面無酸化)を満足するナノ粒子の製造技術は開発できているが、さらにナノ流体の反応抑制効果を自在に制御するためにはナノ粒子径の制御が必要である。ここでは、ナノ粒子の粒子径制御（～数 10nm）を行うために、その製造条件を見出すことを目的として、金属蒸気の冷却速度に着目し冷却条件と生成粒子径の関係を把握しつつ、ナノ粒子生成試験を実施した。その結果、生成する粒子径は、金属蒸気冷却温度勾配の増加に伴い、減少することを見出した(図5)。また、金属蒸気冷却温度勾配を増加することにより、生成する粒子径の粒径分布を狭くできることを見出した。以上のことから、ナノ流体の反応抑制効果を制御するためのナノ粒子径の制御するための要件は、原料の金属蒸気冷却温度勾配であり、冷却勾配を 10～100[K/msec]に設定することにより、ナノ粒子径を制御できることを明らかにした。

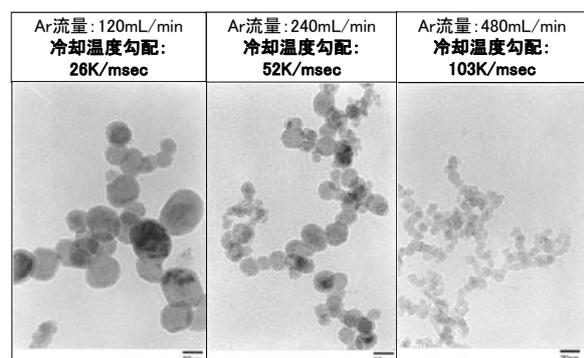


図5 粒子径の冷却温度勾配依存性

3. 今後の展望

本事業では、ナノ流体の FBR の使用環境下での反応抑制効果の評価、FBR への適用性の確認およびナノ流体の製造方法の検証に関する適用化技術の開発を実施し、ナノ流体の FBR への適用効果を示した。今後は、これらの開発を基にシンプルな設計で安心・安全性を向上した FBR の概念提案する予定である。