

第4世代原子炉システムにおける冷却材の品質管理

概要 / 目的:

高速炉の冷却材中の不純物は、構造材料、線量計、そして運転性に影響を及ぼす可能性があるため、精度の高い品質管理が必要です。液体金属(ナトリウム、鉛ビスマス共晶、純鉛)及びヘリウムガスに関しては、安全要件を満足するために、冷却材を純化する必要があります。そのため、それぞれの冷却材の性質を考慮した純化系及び純化のための機器が開発されてきました。

講演者紹介:

クリスチャン・ラトジェ博士は1979年に化学工学を専攻し、トゥールーズ(フランス)の国立工科大学で博士号を取得しました。CEAカダラッシュでの博士号取得は、Na化学と精製システムに特化したものでした。化学、放射化学、技術の分野で、スーパーフェニックスの立ち上げとその後の運転、運転中のフィードバック分析(フェニックス、スーパーフェニックス、外国製原子炉)に参加しました。また、EFR及びSMFRの設計活動にも携わりました。サービス責任者として、カダラッシュにおける除染及び核廃棄物調整のためのプロセス研究を担当しました。。



ITERプロジェクトでは、トリチウムシステムと水素リスク軽減のための研究を行いました。国際プロジェクトMegapieのディレクターとして、放射性廃棄物の核変換のための鉛ビスマス共晶核破砕ターゲットの開発を専門とするチームを率いました。カダラッシュのナトリウム学校の校長を務め、現在はCEA-INSTNやフランスのいくつかの大学で教鞭をとっています。アルゼンチン、メキシコ、トリエステITCPでの高速炉に関するIAEA主催の教育セッションに参加し、GEN-IV国際フォーラムの教育訓練タスクフォースのCEA代表を務めています。現在、SFRに携わっており、最近ではASTRIDプロジェクトに専門家として参加しており、高速中性子炉開発に関連した国際共同研究(ロシア、インド、日本、ラトビア、EU、IAEA、NEA-OECDなど)にも携わっています。

XFRでは、Xは冷却材の種類を意味します。SFRはナトリウム冷却高速炉、LFRは鉛冷却高速炉です。冷却材は、原子炉の熱を効率よく取り出すことができることが求められます。また、エネルギー変換系に効率よく熱を伝えることも求められます。さらに安全な構造・運転条件を確保することも求められています。

Coolant Functions for the Primary Circuit of XFR



- The coolant(s) must accomplish the following key tasks
 - Extract heat from the core: high specific heat and thermal conductivity ensure good extraction
 - Transfer heat to an energy conversion system (steam generator or exchanger + turbine) or to a system which directly uses the heat: heavy oil extraction (oil shales), thermochemical production of hydrogen, desalination of sea water
 - Assure safety by providing the system with a degree of thermal inertia
- In a Fast Neutron Reactor, the coolant must NOT
 - Significantly slow neutrons
 - Activate under flux, producing compounds which create unacceptable dosimetry
 - Change the behavior of structural materials
 - Induce unacceptable safety conditions
 - Induce insurmountable operating problems
 - Lead to wastes which can't be processed during operation or dismantling

3

冷却材中の不純物は、SFR、LFRの運転に悪影響を及ぼすことがあります。腐食、熱伝達率の低下、狭いスペースでの障害物の発生などの原因となります。

Why is it necessary to control quality and to purify the coolant?



- Primary coolant of XFR:
 - [O] is a key parameter of corrosion
 - For SFR → contamination → dosimetry → necessity to decontaminate (handling, repair, ISI,...): [O] < 3ppm
 - For HLM-FR (or ADS) → necessity to master dosimetry and to eliminate corrosion particles (filtering)
 - [O] well mastered can help to maintain oxide layer stable (protection against hard corrosion in heavy liquid metals HLM). It also allows enhancement of tribology.
 - [O] can induce precipitation of coolant oxide : issue for HLM: PbO particles due to very low dissolution rate; in case of very large O ingress, it can modify the composition of binary alloys ie Pb-Bi... (it is not a problem for Na),
- For Intermediate circuits of SFR (Na) :
 - [H] has to be maintained as low as achievable in order to detect as soon as possible a water ingress in Na (Na-H₂O reaction generates H₂): [H] < 0.1 ppm
 - In steady-state operation, aqueous corrosion in SGU produces Fe₃O₄ and H: H diffuses towards intermediate Na.
 - Moreover, Na purification allows to minimize tritium release. (Nota: Tritium release is a common issue for all nuclear systems, including HLM cooled FRs)
- For all the circuits :
 - Control plugging hazards in narrow gaps, tubing, openings, seizing of the rotating parts, reduction of heat transfer coefficient in IHX (Intermediate Heat Exchanger)...
 - to limit the plugging hazard, necessity to maintain [O] < [O]* and [H] < [H]* at the coldest point of the circuits, for all operating conditions ; value recommended in SFRs: T_{sat} < T_{op} - 30°C

9

溶解可能な酸素や水素などの不純物の濃度は、SFRの場合、冷却材ナトリウムの温度に依存します。

O & H Solubilities in Liquid Na

Wittingham solubility law

$$\log_{10}[H(ppm)] = 6.467 - \frac{3023}{T(K)}$$

Noden solubility law

$$\log_{10}[O(ppm)] = 6.250 - \frac{2444.5}{T(K)}$$

Na can be purified by cooling, leading to crystallization of O and H as Na₂O and NaH in a "cold trap"

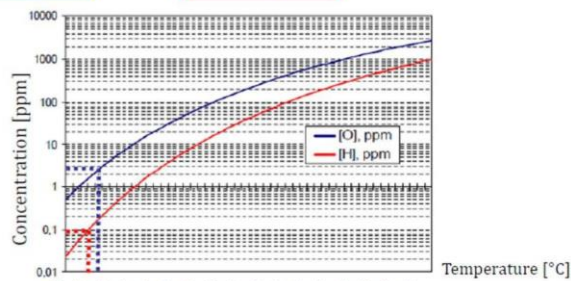
Solubilities almost nil around the melting Sodium
 $T_{\text{fusion}} = 97.8^{\circ}\text{C}$

Primary loop : [O²⁻] < 3ppm

Na₂O_(s)

Secondary loop : [H⁺] < 0.1ppm

NaH_(s)

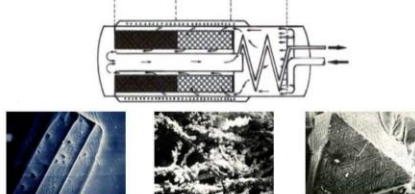
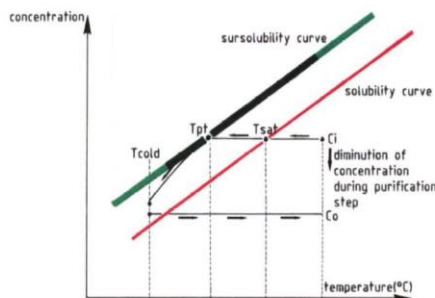


- O control: no necessity to keep a minimum value to protect structures (coating)
No risk of Na₂O precipitation in Na bulk
- Ternary oxides (Na_xM_yO_z limited amount, thermodynamic stability depends on T, [O])

14

コールドトラップでの純化原理を説明します。ナトリウムは冷却することで、「コールドトラップ」にNa₂OやNaHという結晶として捕獲し純化することができます。冷却されたナトリウムは再び加熱されて運転されます。

Cold Trap Principle



C. Latgé
« Sodium quality control; French developments from Rapsodie to EFR »
Conférence FR09 Kyoto Décembre 2009

Crystallization kinetics, given for one impurity O or H,]:

in [kgNa₂O/s] or [kgNaH/s]

$$r_{jX}(T, t) = k_{\alpha X} \exp\left(-\frac{E_X}{RT}\right) A_{jX}(t) \left[\frac{(C - C^*)}{1.10^{-6} \rho_{Na}}\right]^{n_X} = K_{O_X} A_{jX}(t) [\Delta C]^{n_X}$$

In this equation:

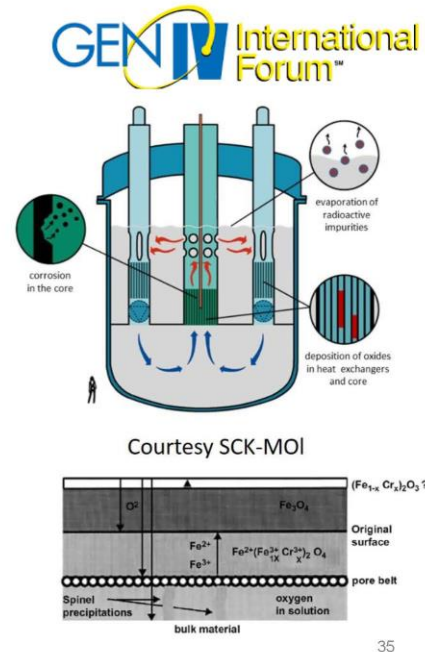
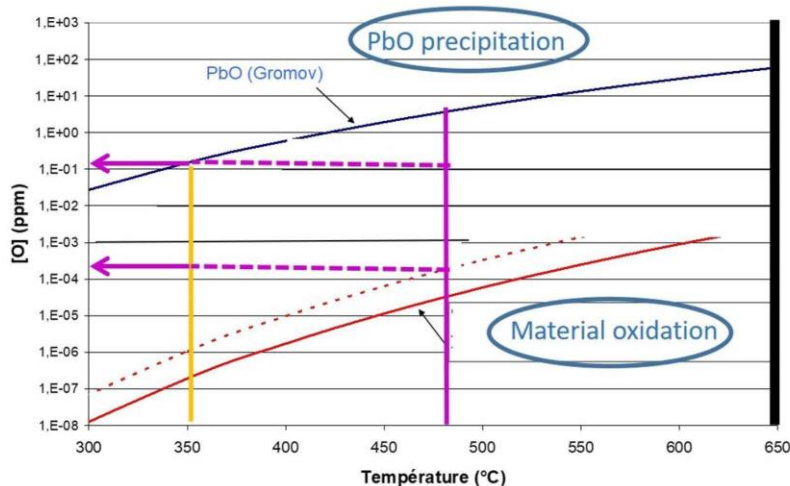
- Index X refers to Nucleation (N) or growth (G)
- Index j refers to the location on wire mesh packing (p) or cold walls (w).
- k₀ is the rate constant (kg/(s.ppmx.m²)).
- E is the activation energy (J/mol).
- R is the Boltzmann constant (J/(mol.K)).
- A is the crystallization surface of reference (m²)
(wire or walls for nucleation, nuclei and crystals for growth).
- n_X is the order of the crystallization process.
- C* (kg/m³) is the saturation concentration (from solubility law.)
- ρ_{Na} is the sodium density in (kg/m³)
- (C-C*) is the supersaturation at temperature T(K).

Phenomena	Nucleation (N)		Growth (G)	
Impurity	Na ₂ O	NaH	Na ₂ O	NaH
E (kg/mol)	-60	-450	-45	-43.6
n	5	10	1	2

15

LFRの場合、酸素ポテンシャル、温度に関して冷却材の作動領域が適切に維持されていないと、腐食や酸化物の析出が発生し、原子炉を損傷させてしまいます。

[O] « working » area for LFR



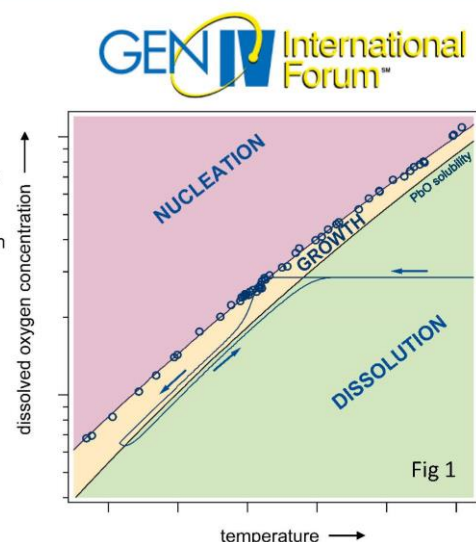
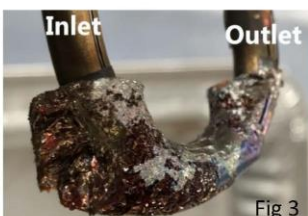
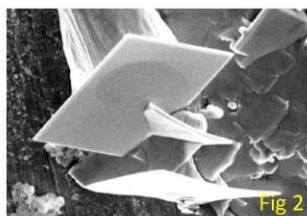
35

コールドトラップやフィルターの不純物除去方法は、ナトリウムの場合とは異なるため、慎重に検討されています。以下に最近の研究成果の例を挙げますが、これらの研究成果は、効率的な純化装置の設計に役立てることができます。

Diagram [O]-T (Courtesy SCK PhD K Gladinez SCK-Mol Univ Gent (19-09-2019))

Main results:

- Metastable field: possibility to nucleate, then to favour crystal Growth (Fig 1)
- Nucleation in LBE bulk (particles) or on metallic cooled surfaces (Fig 2), then growth (Fig1).
- Very limited dissolution rate of PbO particles (compared to Na due to its reducing properties): necessity to perform CFD calculations to follow particles then to find the best location for a « cold trap ».
- Possibility to foresee the use of a cold trap which includes cooling to increase supersaturation and promote homogeneous nucleation then filtering area (packing).
- Possibility to favour heterogeneous nucleation on cold walls (Fig 3):
→ to be investigated deeply.
→ For Na: cold trap includes cooling to increase the supersaturation then packing implemented to provide heterogeneous sites for nucleation then to act as « seeded » surfaces for growth.



These data will allow SCK to design efficient purifications devices.