

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 6 月 5 日現在

機関番号：63902

研究種目：基盤研究(A)

研究期間：2009～2012

課題番号：21246141

研究課題名(和文)液体ブランケットシステム構築に向けた熔融塩循環系での水素と熱の回収両立実験研究

研究課題名(英文)Experimental study on separate recovery of hydrogen and heat from molten salt circulation system for establishment of liquid blanket system

研究代表者

相良 明男 (SAGARA AKIO)

核融合科学研究所・ヘリカル研究部・教授

研究者番号：20187058

研究成果の概要(和文)：熔融塩ブランケットの循環条件での水素と熱の回収両立実験を世界で初めて行うための Flinak ループ装置 Orosht²i-1 の設計および構築を行い、開発した高温(500℃以上)熔融塩用遠心ポンプによる正確な Flinak 流動制御に成功した。また、高い固有安全性を有するブランケットシステム構築に必須となる高温 Flinak 用水素センサー、水素回収モジュール、水素透過抑制被覆、耐食窒化被覆、等の要素技術、及び、統合技術開発研究、高温 Flinak への水素吸蔵・放出特性等の発電ブランケット設計に必要な基礎データの取得を大きく進展させた。

研究成果の概要(英文)：Flinak loop system Orosht²i-1 has been designed and constructed as the world's first apparatus for performing experiments on separate recovery of hydrogen and heat under circulation condition of a molten salt cooled blanket system. Development and studies on a centrifugal pump for high temperature (>500 °C) Flinak, hydrogen sensor, hydrogen recovery module, hydrogen permeation barrier coating, anti-corrosion coating, hydrogen absorption and release properties in Flinak, etc. have been successfully advanced for establishment of a self-cooled molten salt blanket system with high inherent safety.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	18,200,000	5,460,000	23,660,000
2010年度	7,400,000	2,220,000	9,620,000
2011年度	6,700,000	2,010,000	8,710,000
2012年度	2,900,000	870,000	3,770,000
総計	35,200,000	10,560,000	45,760,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合工学・核融合学

キーワード：核融合・液体ブランケット・熔融塩・水素回収・熱回収・Flinak・強制流動ループ・熱交換器

1. 研究開始当初の背景

核融合炉ブランケットは炉心プラズマと対をなす総合装置である。即ち、炉心容器内壁の構成要素だけではなく、定常かつ安全にエネルギーを取り出す、炉外機器も含めた全体システムとしての総合装置である。核融合炉ブランケットの要素研究は進んでいるが、

ブランケットシステムとしての複合挙動の実験研究は進んでいない。熔融塩 Flibe の循環技術に関しては、1960年代に米国の液体燃料原子炉 MSR で 2 万時間の豊富な運転実績とデータベースがある。他方、核融合炉では、強磁場環境、対真空片面高熱流除熱輸送、14MeV 中性子照射、トリチウム増殖、等の全

く未踏の領域に対応した新たな理化学研究が必要となっている。当該研究では特に熔融塩ブランケットの循環条件での水素と熱の回収両立実験を世界で初めて行い、静的実験およびモデリングとの比較によって物理化学工学に渡る基礎的特性を明らかにする。これによってブランケット工学およびシステム統合技術の構築を飛躍的に前進させることを目指す。合わせて、高温融体科学の進展に貢献する。

2. 研究の目的

熔融塩ブランケットの循環条件での水素と熱の回収両立実験を世界で初めて行い、物理化学工学に渡る基礎的特性を明らかにするとともに、システム統合技術の構築を飛躍的に前進させることを目指す。

3. 研究の方法

水素熱分離回収制御-1号機(Operational Recovery Of Separated Hydrogen and Heat Inquiry-1, Orosh²i-1)の本体循環ループ、水素ガス分析装置、水素回収部(Ni製)等の機器を製作し、水素と熱の回収両立性を実験的に確かめる。

4. 研究成果

[2009年度] Orosh²i-1の本体の循環ループ(流速 0.2~0.5m/s、運転温度 600°C)、水素ガス分析装置、水素回収部(Ni製)等の機器を設計、製作し、基本性能試験を行った。循環流動ポンプには、高温使用可能なマグネットカップリング型遠心ポンプを開発し応用した。流量計には、排圧パージ式差圧流量計を応用した。図1はOrosh²i-1の循環ループ部の装置の構成を示す。将来Orosh²i-1で統合試験をするための要素研究として、プロトン導電性固体電解質センサー、ループ構造材料、先進水素透過材料、水素透過防止セラミクス被覆の試作評価、開発、及びLiF-NaF-KF(Flinak)の大量精製(3L)を行った。その結果、それぞれOrosh²i-1への適用の基本的な見通しを得た。

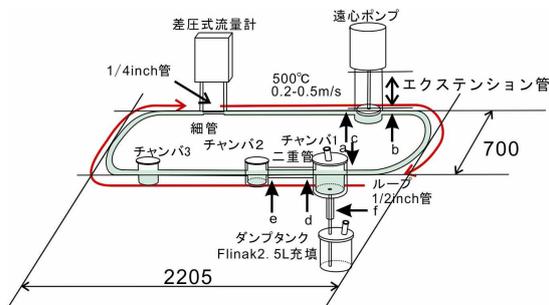


図1 : Orosh²i-1 循環ループ部の装置構成

[2010年度] Orosh²i-1の本体循環ループの製作を完了し、80°Cの温水を用いた低温領域での遠心ポンプの性能試験およびループ循環試験を実施した。ループに用いる作動流体である熔融塩 Flinak 中への水素チャージ方法として、水素ガス吹き込み法を検討し、静止場の Flinak (600°C)中へのバブリング試験を実施した(雑誌論文⑨)。図2は水素ガスセンサーと水素チャージ試験装置を示す。

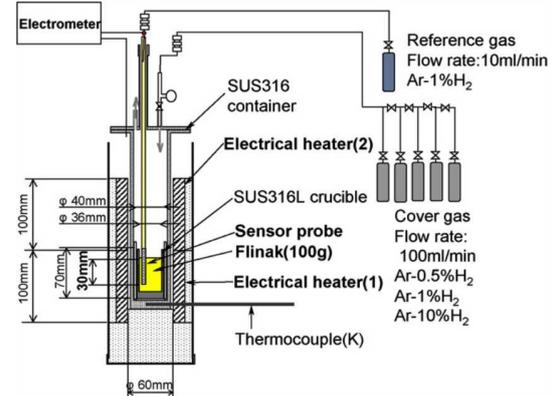


図2 : 固体電解質水素センサーと水素チャージのための試験装置

熔融塩中の気泡の挙動や、気泡との水素輸送特性を理解した上で、ループ運転温度 600°Cにおける低い気泡レイノルズ数($Re=3.38$)条件の総括水素輸送係数($h=7 \times 10^{-5} \text{m/s}$)を獲得した(図3-a)。一方、アルゴンガスを用いてバブリングにより水素を回収する場合は、水素チャージよりも低い輸送係数が示唆された(図3-b)。この水素チャージ試験においては、固体電解質水素センサーを用いてパージガス中の水素分圧測定を長時間実施し(雑誌論文⑩)、測定の実答性や安定性を確認した(図4)。

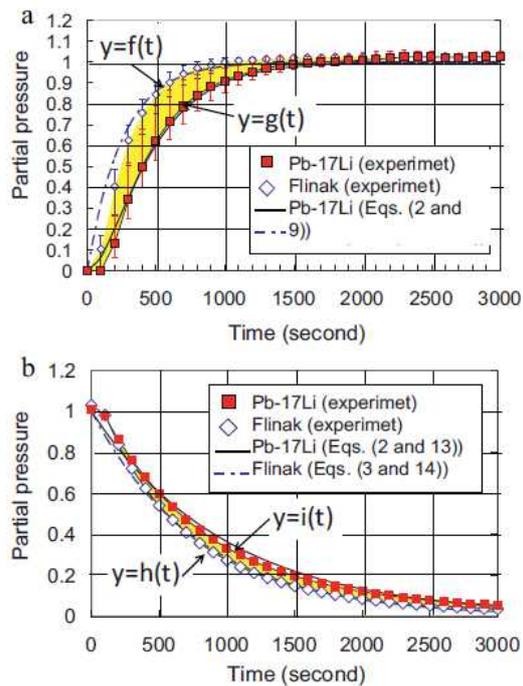


図3：水素吸収挙動 (a) 水素吹込み時および (b) アルゴン吹込み時

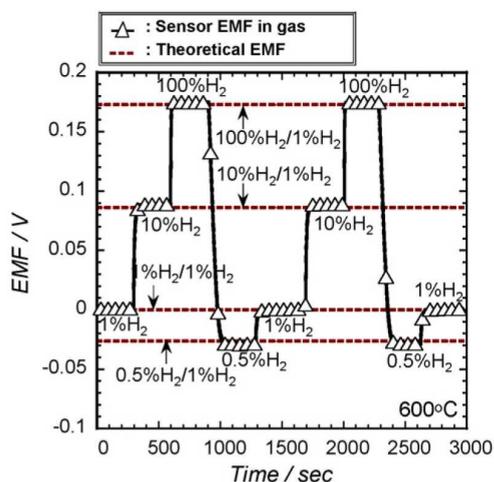


図4：Flinak 用水素センサーの出力応答

また、ループ装置からの水素回収試験を行うために、HF による腐食に強く、水素透過データが比較的豊富な純 Ni を水素透過壁材料として選択し、水素回収モジュールの設計・製作を行った。他に、V、Nb、Ta 系の先進水素透過材料の特性評価を行った。ループ装置に接続予定の回収ガス分析装置については、性能試験を実施し、熔融塩 Flinak を 1000°C まで加熱して質量分析器による放出ガス分析が可能であることを確認した。ループ装置において高温熔融塩からの水素漏洩を抑制するためのセラミック被覆については、MOCVD 法の原料錯体ガス導入法を工夫することに

より、ステンレス円管内に酸化エルビウム被覆を均一に施すことに成功した。図5は MOCVD 法により SUS316 基材表面に形成された Er_2O_3 膜の試料断面の TEM 像を示す。

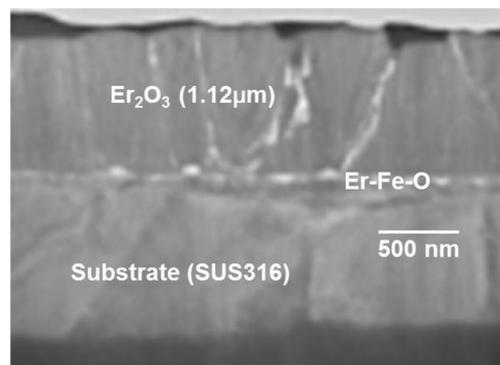


図5：MOCVD 法により SUS316 試料片表面に形成された Er_2O_3 膜の試料断面の TEM 像

[2011 年度] Orosh²i-1 に関して、遠心ポンプの振動抑制軸受けベアリングの改良、温度等測定センサーおよびデータ収集系の整備を行い、本体の製作を完了した。ループ内に熔融塩 Flinak (融点：454°C) の固体粒 3 リットル分を装填し、550°C までの昇温試験を実施した。測定窓からの液面視、及び流量計の指示値から、ループ全周にわたる Flinak の融解と長時間の液体状態の保持を確認し、遠心ポンプの機能試験を開始した。

高温 Flinak から水素回収を行うために純 Ni 管を用いて製作した二重管構造の水素回収モジュール (図6、7) について、He 希釈水素ガスを用いた性能試験を実施した (雑誌論文②)。配管部を 530K (約 260°C) まで昇温した際の水素透過速度は、過去の研究において測定されている純 Ni 板材の水素透過係数と同程度もしくは若干低い値となった (図8)。二重管構造の温度分布制御の精度向上が必要であるが、特に、水冷電気絶縁フランジ構造が正常に機能しており、これにより、Flinak 中においてステンレス配管の Fe が電気化学腐食により溶解し、Ni 水素回収管の表面に析出するのを防ぎ、長期間の水素回収が可能になると考えられる。

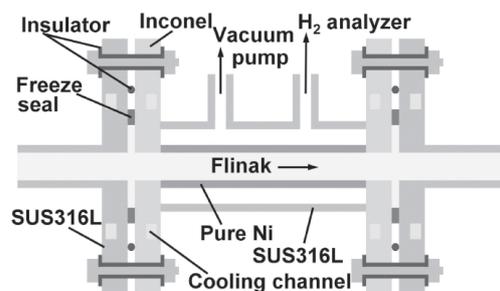


図6：Flinak 用水素回収モジュールの概略

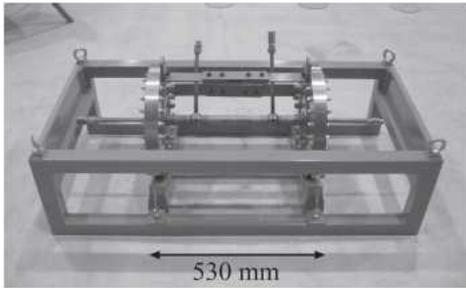


図 7 : Flibe 用水素回収モジュールの外観

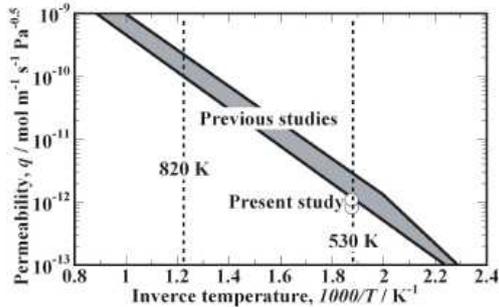


図 8 : 水素回収モジュールにおける Ni 管の水素透過能

水素溶解特性研究については、バックグラウンドを定量する目的で、ループ内ガス成分を回収ガス分析装置に接続して分析し、極低濃度の HF が発生している可能性がある他には、高温 Flibe に起因する成分は検知されない

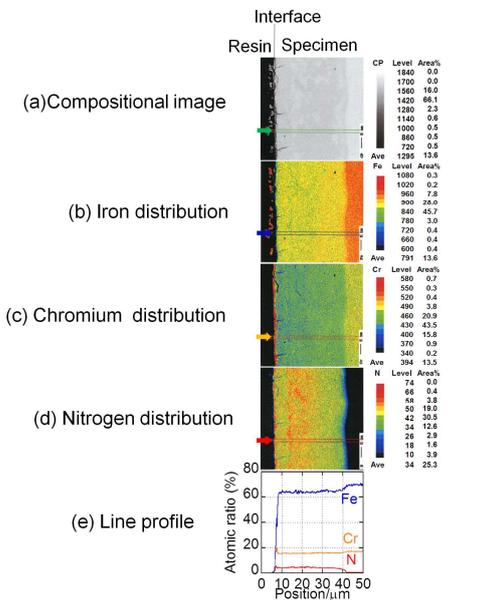


図 9 : 電気化学窒化処理された SUS316 基材表面に形成された窒化物層断面の FE-SEM 像と EPMA によるマッピング像 (a) FE-SEM 組成像、(b)鉄のマッピング像、(c)クロムのマッピング像、(d)窒素のマッピング像、(e)線分析

ことを確認した。

ループからの水素透過抑制を目的とした Er_2O_3 セラミック被覆の試作については、被覆焼成における温度・酸素濃度条件の最適化を図るとともに、熱サイクルによる機械強度の劣化がないことを確認した。また、 Li_3N を溶解させ熔融塩 FLiK 中において、電気化学法によってステンレス基板表面に CrN 被覆を生成することに成功し、配管腐食抑制および水素透過抑制被覆として、本ループ装置における試験の検討を開始した。図 9 は電気化学窒化処理された SUS316 基材表面に形成された窒化物層断面の FE-SEM 像と EPMA によるマッピング像を示す。

[2012 年度] Oros²i-1 において高精度の水素・熱回収両立実験を実施するため、液体 Flibe (融点 454°C) の循環制御が行える高温熔融塩用遠心ポンプの開発を主要な研究項目の一つとして進めてきた。汎用遠心ポンプのモーター部と液体を攪拌する直径 17 cm のインペラー (羽根つき円板) との間に長さ 50cm の延長シャフト部を設け、また、軸受に SiC を使用する等の改造を施すことで 500°C 以上の熔融塩を駆動できる設計としている (図 10)。2011 年度までのループ昇温試験およびポンプ動作予備試験の結果に基づき、2012 年度はループ内のヒーター出力及び温度制御の調整、流量計の改良を行い、熔融塩循環試験を実施した。試験では、熔融塩の循環を目視で確認すると共に、予め既知流速の水で校正済の差圧流量計の応答から流速を評価した。試験におけるインペラーの最大回転数は毎分 350 回転で、直径 1/2 インチのループ配管内を 500°C の Flibe が流速 0.25m/s で循環していることを確認した (図 11)。ステップ状にインペラーの回転数を変化させた際に、流量計の応答もステップ状に追従している。この試験結果から、開発した遠心ポンプによる高精度の高温熔融塩循環制御に成功した。また、ループ配管には十か所以上の温度センサーを設置し、熔融塩流量の変動に伴う温度分布の変化からループ内の熱輸送を把握するとともに、今後の詳細解析に必要なデータ取得を行った。

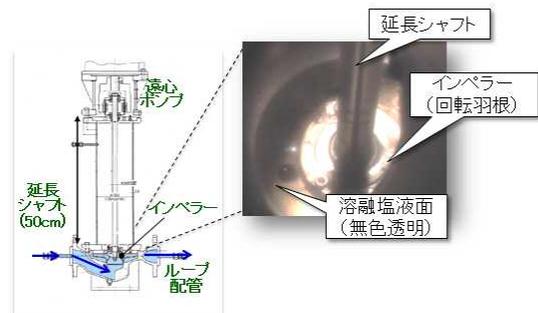


図 10 : 試作した高温熔融塩駆動用ポンプ

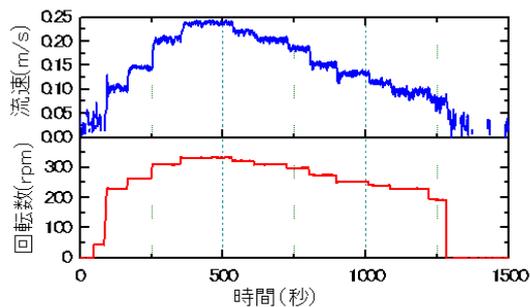


図 11 : Flibe 循環試験におけるポンプ回転数とループ流速

その他、化学耐食性を向上させるために熔融塩中で表面を窒化処理したフェライト鋼の水素透過特性評価、水素透過抑制性能向上を目指した大面積二重セラミック被覆の成膜手法確立と良好な材料特性の確認、電子ビーム誘起発光測定によるループ配管表面に付着した Flibe 分布分析等、熔融塩ブランケットに関わる要素技術開発研究を推進し、国際会議、学会、論文等において発表を行った。

[まとめ]

本課題を通じて、熔融塩ブランケットシステム構築に必須となる要素技術の開発研究、統合技術開発研究、発電ブランケット設計に必要な基礎データの取得を大きく進展させた。

研究成果は今後、実用発電ブランケットの実現に向けて、大型ループ装置試験、ブランケットモジュール試験、核融合原型炉に装着する発電用ブランケットの設計・製作を発展的に進めていくための重要な土台となるものである。

5. 主な発表論文等 (研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 16 件) (すべて査読有)

- ① T. Watanabe, et al, Hydrogen permeability of nitrided stainless steel, Plasma and Fusion Research, Accepted
- ② T. Nagasaka, et al, Fabrication of the Hydrogen Recovery Unit in the Molten Salt Loop Orosh²i-1 and Preliminary Evaluation for Hydrogen Transfer, Plasma and Fusion Research, 7, 2012, 2405141-1 - 4, DOI: 10.1585 / pfr. 7. 2405141
- ③ T. Tanaka, et al, Neutronics Investigations for Helical DEMO Reactor FFHR-d1, Plasma and Fusion Research, 7, 2012, 2405132-1 - 4, DOI: 10.1585 / pfr. 7. 2405132
- ④ Y. Hishinuma, et al, Microstructure of Oxide Insulator Coating before and after Thermal Cycling Test, Plasma and Fusion Research, 7, 2012, 2405127-1 - 4, DOI: 10.1585 / pfr. 7. 2405127
- ⑤ T. Goto, et al, Design Window Analysis for

the Helical DEMO Reactor FFHR-d1, Plasma and Fusion Research, 7, 2012, 2405084-1-5, DOI: 10.1585/pfr. 7. 2405084

- ⑥ M. Kondo, A. Sagara, et al, Electroplating of Erbium on Steel Surface in ErCl₃ Doped LiCl-KCl, Plasma and Fusion Research, 7, 2012, 2405069-1 - 3, DOI: 10.1585 / pfr. 7. 2405069
- ⑦ D. Kato, A. Sagara, Ion-Beam Induced Luminescence and Damage of Er₂O₃, Plasma and Fusion Research, 7, 2012, 2405043-1 - 4, DOI: 10.1585 / pfr. 7. 2405043
- ⑧ T. Nagasaka, M. Kondo, A. Sagara, T. Muroga, Corrosion Characteristics of Hydrogen Permeation Materials in Molten Salt Flibe, Plasma and Fusion Research, 6, 2012, 1405146, DOI: 10.1585 / pfr. 6. 1405146
- ⑨ M. Kondo, T. Oshima, M. Tanaka, T. Muroga, A. Sagara, Hydrogen transport through interface between gas bubbling and liquid breeders, Fusion Engineering and Design, 2012, accepted, DOI: 10.1016 / j. fusengdes. 2012. 02. 097
- ⑩ A. Sagara, Y. Kozaki, M. Tanaka, T. Goto, Impact of Burning Plasma on Fusion Technology Development, Fusion Science and Technology, 60, 2011, 3-10
- ⑪ T. Watanabe, M. Kondo, A. Sagara, Nitriding of 316 stainless steel in molten fluoride salt by an electrochemical technique, Electrochimica Acta, 58, 2011, 681-690, DOI: 10.1016 / j. electacta. 2011. 10. 014
- ⑫ T. Nagasaka, T. Muroga, A. Sagara, H. Yukawa, T. Nambu, High temperature mechanical properties of pure and alloyed group 5 metals in view of their application as tritium permeation materials, Fusion Science and Technology, 60, 2011, 1580-1583
- ⑬ T. Nagasaka, M. Kondo, T. Muroga, A. Sagara, O. Motojima, T. Tsutsumi, T. Oishi, Development of anti-corrosion coating on low activation materials against fluoridation and oxidation in Flibe blanket environment, Fusion Engineering and Design, 85, 2010, 1261-1265, DOI: 10.1016 / j. fusengdes. 2010. 03. 012
- ⑭ T. Oshima, M. Kondo, M. Tanaka, T. Muroga, A. Sagara, Hydrogen transport in molten salt Flibe measured by solid electrolyte sensors with Pd electrode, Fusion Engineering and Design, 85, 2010, 1841-1846, DOI: 10.1016 / j. fusengdes. 2010. 06. 008
- ⑮ T. Watanabe, M. Kondo, T. Nagasaka, A. Sagara, Corrosion characteristic of AlN, Y₂O₃, Er₂O₃ and Al₂O₃ in Flibe for molten salt blanket system, Plasma and Fusion Research, 9, 2010, 342-347
- ⑯ T. Oshima, M. Kondo, M. Tanaka, T. Muroga, Study on Pd membrane Electrode in Solid Electrolyte Hydrogen (Isotope) Sensor for Application to Liquid Blankets, Plasma and Fusion Research, 5, 2010, S1034-1-S1034-5, DOI: 10.1585/ pfr. 5. S1034

[学会発表] (計 14 件)

- ① T. Watanabe, et al, Hydrogen permeability of nitrided stainless steel, 22nd International Toki Conference, (20121119-20121122), セラトピア土岐, 岐阜
- ② 田中照也等, 局所電子ビーム誘起発光測定 of 液体ブランケット用セラミック材料分析への適用研究, 日本原子力学会 2012 年秋の大会, (20120919-20120921), 広島大学
- ③ 田中照也, 相良明男, 菱沼良光, 後藤拓也, 長坂琢也, 室賀健夫, 近藤正聡, 渡邊崇, 深田智, 水素・熱分離回収実験溶融塩ループ Orosht²i-1 における流動実験(1) -流動ループ試験-, 日本原子力学会 2012 年春の年会, 20120320, 福井大学
- ④ 長坂琢也, 田中照也, 相良明男, 室賀健夫, 近藤正聡, 渡邊崇, 深田智, 湯川宏, 南部智憲, 飯久保知人, 水素・熱回収両立試験溶融塩ループ Orosht²i-1 における水素回収部の水素透過能, 日本原子力学会 2011 年秋の大会, (20110921), 北九州国際会議場
- ⑤ M. Kondo, T. Oshima, M. Tanaka, T. Muroga, A. Sagara, Hydrogen transports at interface between gas bubbling and liquid breeders, 2nd international symposium on lithium applications for fusion devices(20110827-20110829), Princeton, New Jersey, USA
- ⑥ 相良明男, 長坂琢也, 近藤正聡, 田中照也, 室賀健夫, 渡邊崇, 深田智, 水素・熱分離回収実験溶融塩ループ Orosht²i-1 の製作と研究計画, 日本原子力学会 2010 年春の大会, (20100326-20100328), 茨城大学
- ⑦ 長坂琢也, 近藤正聡, 相良明男, 室賀健夫, 渡邊崇, 深田智, 飯久保知人, 水素・熱分離回収実験溶融塩ループ Orosht²i-1 における水素回収部の検討, 日本原子力学会 2010 年春の大会, (20100326-20100328), 茨城大学
- ⑧ 渡邊崇, 近藤正聡, 長坂琢也, 相良明男, トリチウム透過防止セラミックス被覆材料の腐食特性と伝熱特性, 日本原子力学会 2010 年春の大会, (20100326-20100328), 茨城大学
- ⑨ 長坂琢也, 近藤正聡, 相良明男, 室賀健夫, Mechanical properties and corrosion behavior of hydrogen permeation materials for molten salt blanket system, Asia Plasma and Fusion Association in 2009, (20091027-20091029), AUGA 青森、青森
- ⑩ 渡邊崇, 近藤正聡, 長坂琢也, 相良明男, Chemical stability and thermal conductive property of tritium permeation barrier materials for molten salt system, Asia Plasma and Fusion Association in 2009. (20091027-20091029), AUGA 青森、青森
- ⑪ 大島智子, 近藤正聡, 田中照也, 室賀健夫, 相良明男, Hydrogen transport in Molten Salt Flinak Measured by Solid Electrolyte Sensors with Pd Electrode, 9th International Symposium on Fusion Nuclear Technology, (20091011 - 20091016), 大連、中国
- ⑫ T. Nagasaka, M. Kondo, T. Muroga, A. Sagara, O. Motojima, Development of anti-corrosion coating on low activation materials against fluoridation in Flibe blanket environment, 9th International Symposium on Fusion Nuclear Technology.

(20091011 - 20091016), 大連、中国

- ⑬ M. Kondo, T. Nagasaka, A. Sagara, T. Muroga, Naoki Fujii, Corrosion of RAFM JLF-1 steel in flowing Flinak, 9th International Symposium on Fusion Nuclear Technology, (20091011 -20091016), 大連、中国
- ⑭ 長坂琢也, 相良明男, 近藤正聡, 室賀健夫, 菱沼良光, 田中照也, 李艶芬, 大島智子, 張東勳, 渡邊崇, 深田智, "溶融塩からの水素・熱回収両立試験及び高温水素透過材料の腐食挙動, 日本原子力学会 2009 年秋の大会, (20090916-20090918), 東北大学

[その他]

ホームページ

成果発表会資料

核融合工学研究プロジェクト

<http://www.nifs.ac.jp/fuseng/index.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

相良 明男 (SAGARA AKIO)

核融合科学研究所・ヘリカル研究部・教授
研究者番号：20187058

(2) 研究分担者

西村 新 (NISHIMURA ARATA)

核融合科学研究所・ヘリカル研究部・教授
研究者番号：60156099

室賀 健夫 (MUROGA TAKEO)

核融合科学研究所・ヘリカル研究部・教授
研究者番号：60174322

長坂 琢也 (NAGASAKA TAKUYA)

核融合科学研究所・ヘリカル研究部・准教授
研究者番号：40311203

田中 照也 (TANAKA TERUYA)

核融合科学研究所・ヘリカル研究部・准教授
研究者番号：30353444

菱沼 良光 (HISHINUMA YOSHIMITSU)

核融合科学研究所・ヘリカル研究部・助教
研究者番号：00322529

後藤 拓也 (GOTO TAKUYA)

核融合科学研究所・ヘリカル研究部・助教
研究者番号：30509518

近藤 正聡 (MASATOSHI KONDO)

東海大学・工学部・講師

研究者番号：70435519

八木 重郎 (YAGI JURO)

核融合科学研究所・ヘリカル研究部・助教
研究者番号：70629021

渡邊 崇 (WATANABE TAKASHI)

核融合科学研究所・ヘリカル研究部・研究員
研究者番号：90520148

(3) 連携研究者

深田 智 (FUKADA SATOSHI)

九州大学・総合理工学研究院・教授

研究者番号：50117230