

毒物を用いた水素化物減速ヒートパイプ冷却小型炉炉心の
温度反応度制御に関する研究

東芝エネルギーシステムズ株式会社

木村 礼

1. 緒言

原子力エネルギーは持続可能な社会を実現するエネルギーとして位置づけられている。しかしながら福島第一原子力発電所の事故以降、大型軽水炉の導入コストは安全基準への対応などによって劇的に増加しており、その価格競争力は特に先進各国において失われつつある。一方で原子力エネルギーの需要自体は今後も増加すると予測されており、その中でも初期投資額を低減出来ること・投資回収期間が短い事などから小型モジュラー炉 (SMR) が世界的に着目されている。

現在、原子力エネルギー利用はその殆どが発電を目的としているが、近年は地域暖房、化学プラント、水素製造その他の形態での利用についても潜在的な需要が存在することが言及されている。これらは米国内のみの見積もりで 134GWth に達し、エネルギー生産量でスケーリングした場合、全世界ではその 5 倍程度の需要が見込まれる。[3]

SMR は熱利用の形態に応じて様々な場所に様々な形態のエネルギーを供給できるため、将来的にこれらのエネルギー需要を満たす一助になることが期待されている。その一方で SMR、特に分散型エネルギーとして僻地を含めた多様な立地に設置される SMR には高い受動的安全性・大幅なコスト低減・核セキュリティ性などが求められる。

これらの社会的背景から、東芝エネルギーシステムズでは 2017 年より図 1 に示すような超小型原子炉システム MoveluX™ (Mobile-Very-small reactor for Local Utility in X-mark)の開発に着手した[2]。本原子炉システムは図 2 に示すような分散型エネルギー源として多様な利用形態を想定し、可搬でメンテナンスフリーかつ高温が供給可能な原子炉システムを目指している。

先に述べたように、このような原子炉システムには高い受動的安全性や大幅なコスト低減・核セキュリティ性などが求められる。そこで炉心冷却方式にヒートパイプ冷却を採用して炉心の受動的除熱およびシステム簡素化を、水素化カルシウムを固体減速材として採用し低濃縮ウラン炉心および水素解離を利用した受動的炉停止の実現を目指している。

一方で、水素化カルシウムなどの金属水素化物を減速材として用いる際の課題が存在する。一般的に金属水素化物は固体でありながら水素を含有し中性子減速材として高い性能を示すが、水素化ジルコニウム減速材を用いた炉心において減速材温度が上昇した際に炉心に正の反応度が印加される、すなわち炉心が正の温度反応度を持つ場合があることが示されている。しかしながらこれらについて詳細に検討された例は見当たらない。[4]

そこで本研究では水素化カルシウム減速炉心の基本的な特性の把握と活用を目的として、

より小規模な炉心において炉心の温度依存反応度特性の評価およびメカニズムの検討を実施した。更に、検討したメカニズムに基づいて温度依存反応度の制御手法の検討を行った。本稿ではそれらについて検討結果を紹介する。

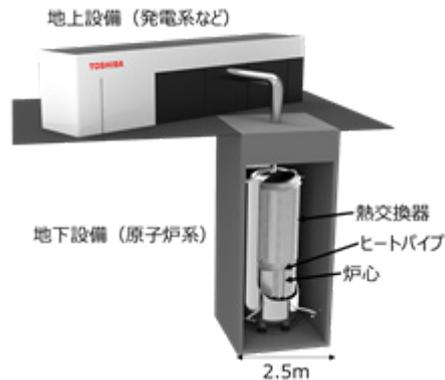


図 1 超小型原子炉システム鳥瞰図[1]

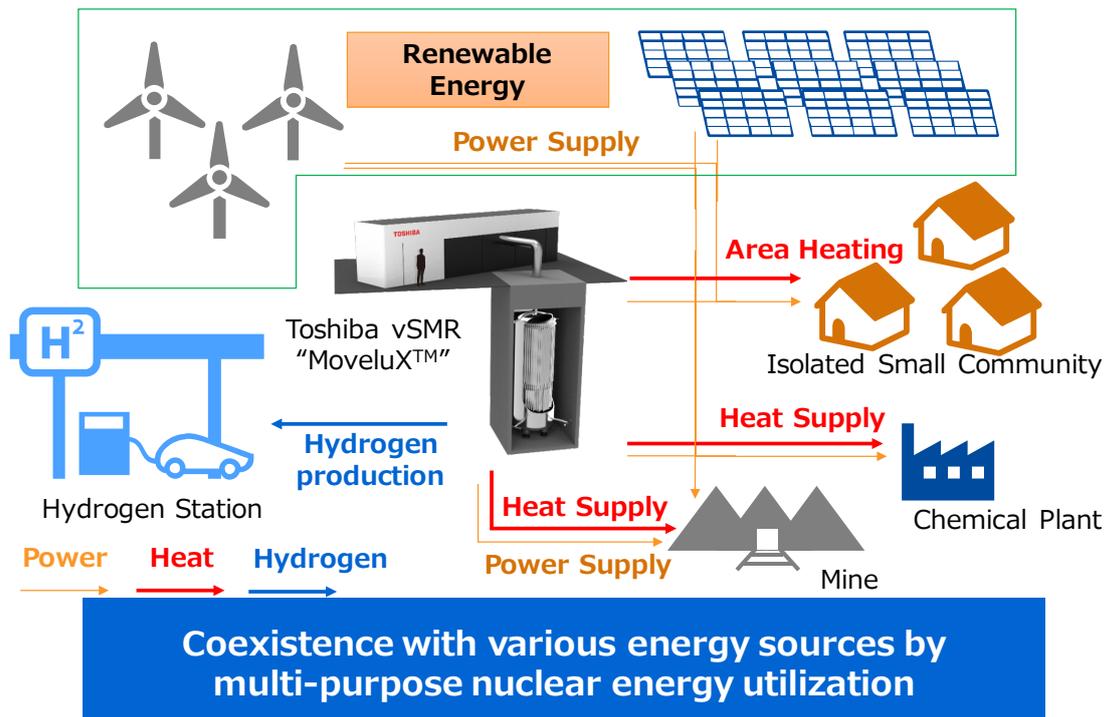


図 2 超小型原子炉システムの適用先

2. 水素化カルシウム減速材

本章では炉心評価に先立ち、水素化カルシウムについて触れる。まず表 1 に比較的高温で使用可能な金属水素化物の特性を示す。本表に示されるように、水素化ジルコニウムは水素の個数密度は高いものの、分解温度が 600°C と他に比べて低い。水素化ランタンや水素化プラセオジムについては水素の個数密度・分解温度共に優れているものの、熱中性子吸収断面積が大きいこと、価格が非常に効果であることから減速材への適用を見送った。最終的に分解温度が 1000°C と比較的高温で中性子吸収断面積が小さく、他に比べて体積当たりの価格が 1/10 程度の水素化カルシウムを減速材として用いることとした。

超小型原子炉の減速材として高温環境で水素化カルシウムを用いる際、環境中の水素分圧によっては一定温度を超えると分解温度に達する前に水素が解離し始める。今回想定している封入管内水素分圧 3 kPa ではおよそ 800°C で水素が解離し始めるため、提案炉心の減速材温度の上限を 800°C と設定した。

水素化カルシウムは通常図 3 に示すような粉末状態で存在している。減速材として利用するためにはこれをペレット状に圧縮成形する必要があるが、当然その嵩密度は理論密度より小さくなる。本研究実施に当たりペレットの圧縮成形試験を実施したところ、1.47 g/cm³ という値が得られたため、炉心解析では当該数値を用いた。

表 1 代表的な水素化物の特性

Element	Decomposition temperature (°C)	Chemical formula	Hydrogen number density (H/cm ³)	Thermal neutron capture cross section (barn)	Theoretical density (g/cm ³)
Ca	1000	CaH ₂	5.45x10 ²²	0.41 (⁴⁰ Ca)	1.9
Zr	600	ZrH ₂	7.06x10 ²²	5.288 (⁹⁰ Zr)	5.47
La	1024	LaH _{2.76}	6.17x10 ²²	8.94 (¹³⁹ La)	5.26
Pr	1049	PrH _{2.8}	6.52x10 ²²	11.48(¹⁴¹ Pr)	5.56

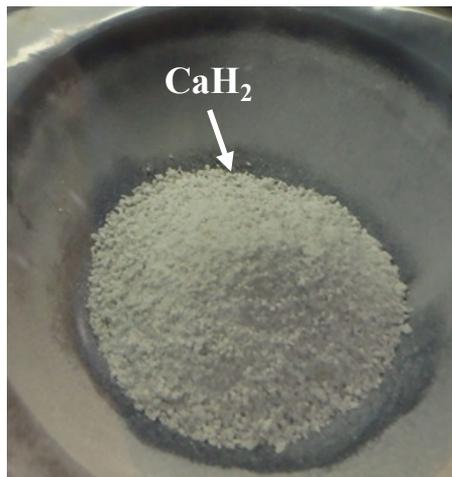


図 3 水素化カルシウム

3. 小型炉心デザイン

宇宙用原子炉システムの概要および各部の温度・熱バランスを図 4 に示す。また、今回の検討で用いた炉心の水平方向及び垂直方向の断面図を図 5 に示す。本原子炉システムは宇宙用原子炉として検討されたものであり、炉心・ヒートパイプ・熱電変換素子および放熱パネルから構成される。各部の温度は炉心温度制約 (800°C) から各部に必要な温度差・放熱量などを算出して決定した。

炉心は図 5 に示される位置に配置されたヒートパイプで冷却され、炉心温度を低減するためにヒートパイプ周辺の相対出力を高める設計 (Heat Pipe Peripheral Fuel, HPPF) を採用している。HPPF では濃縮度平均 17.8%, それ以外の領域では 9.83%となっており、ヒートパイプに近い HPPF に出力を集中させることで炉心全体の温度を低減させる。また、減速材の温度を可能な限り低減させるため、燃料を挟み込むようにベリリウムを配置して熱バイパスの機能を持たせた。また、ベリリウム配置は中性子増倍も意図している。

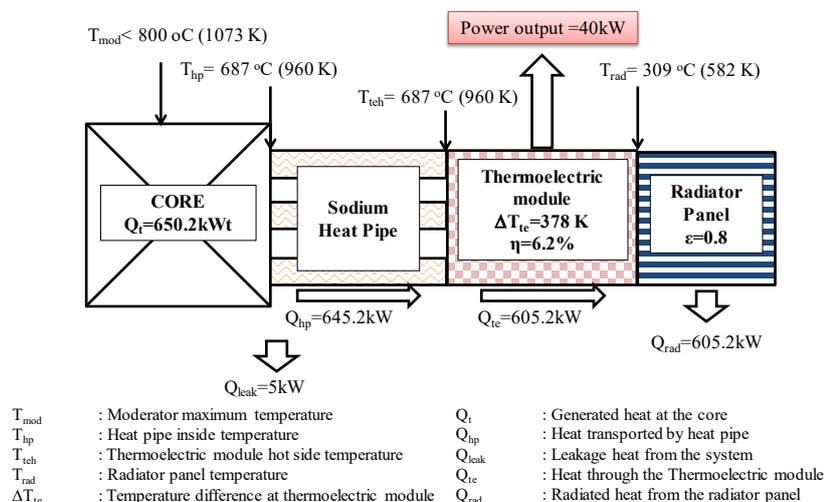


図 4 宇宙用原子炉システム各部の温度・熱バランス

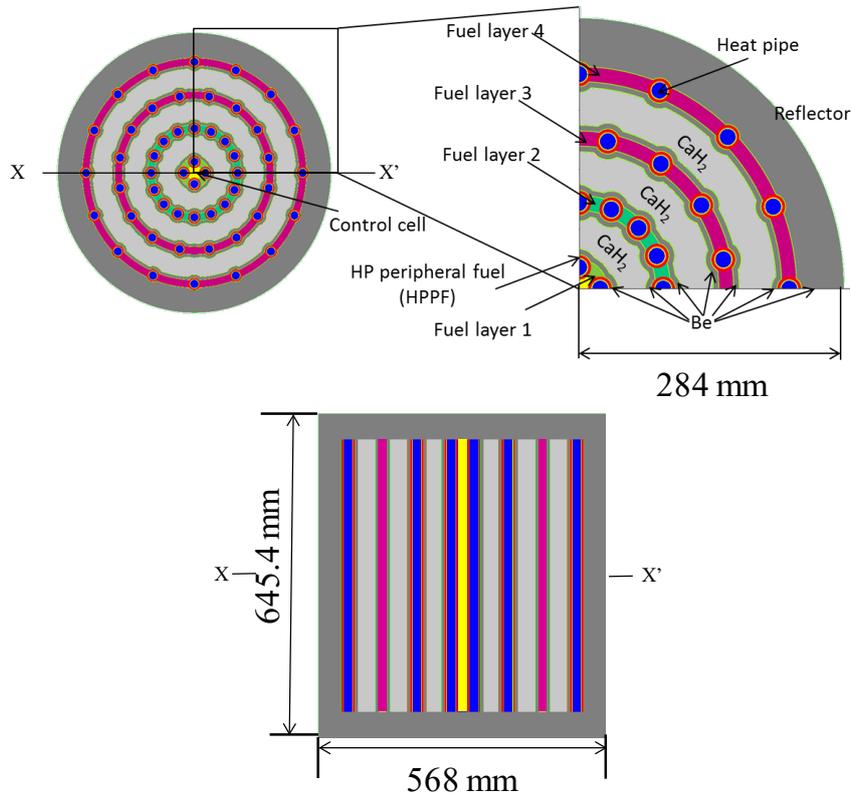


図 5 検討に用いた炉心の断面図

4. 水素化カルシウム減速小型炉心の温度依存反応度特性

4.1. 温度依存炉心反応度特性

本節では炉心起動時 (BOL 時) における炉心の温度依存反応度特性を, 炉心構成要素の温度を一様に変化させて評価した. 300K を基準温度としてこの温度での実行増倍率を $k_{eff,300}$ として評価し, 400K, 500K, 600K, 700K, 800K, 900K, 1000K, 1100K での実行増倍率 $k_{eff,t}$ をそれぞれ用いて反応度差 $\Delta\rho$ を(1)式に基づいて評価した.

$$\Delta\rho = \frac{k_{eff,t}^{-1}}{k_{eff,t}} - \frac{k_{eff,300}^{-1}}{k_{eff,300}} \quad (1)$$

まず, 燃料中に Gd などの可燃性毒物を含まないケース”non-BP case”について評価をおこなった. 得られた温度依存反応度特性を図 6 に示す. 本図から明らかなように, 600K 付近までの低温域において温度と共に反応度が増加していることが分かる. 次に, Gd を可燃性毒物として燃料領域に 0.5 at%追加したケース (With Gd case) の結果を図 7 に示す. 本ケースでは全温度域に亘って温度上昇と共に反応度が増加している事が分かる.

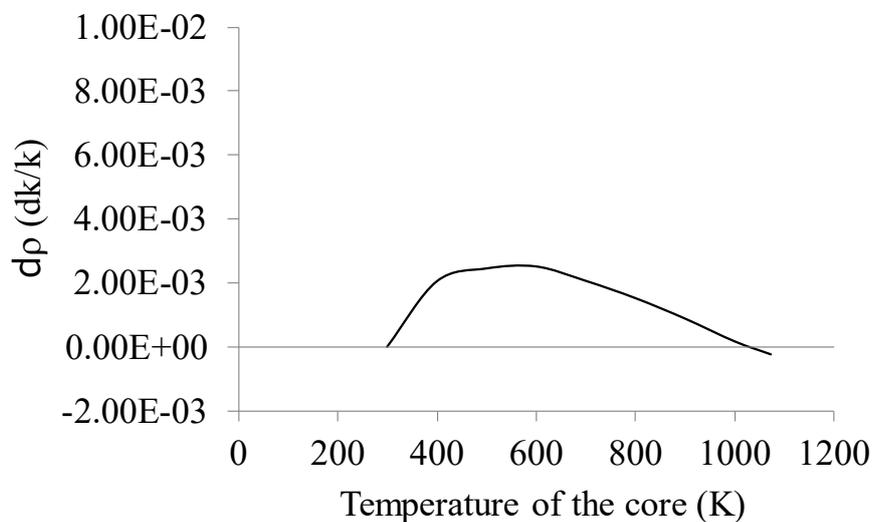


図 6 non-BP case 各温度点における 300K からの反応度差

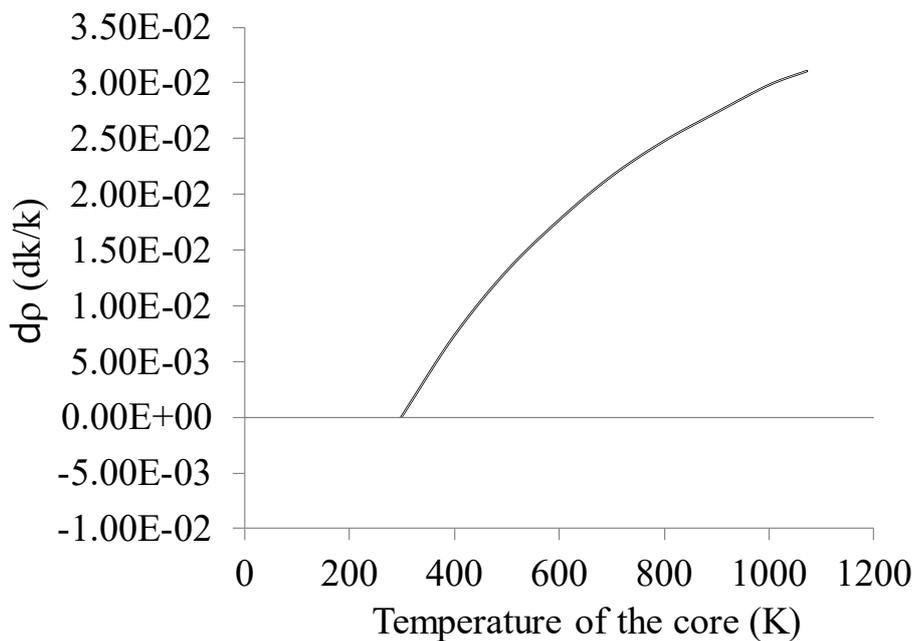


図 7 With Gd case 各温度点における 300K からの反応度差

両ケースで温度依存反応度特性に大きな差が表れていることから、この差の原因を検討するために With Gd case について減速材・燃料・Be の各要素の温度を個別に変化させた際の温度依存反応度を図 8 に示す。本結果から減速材の温度変化が正の温度反応度係数の支配的なパラメータであることが明らかになった。

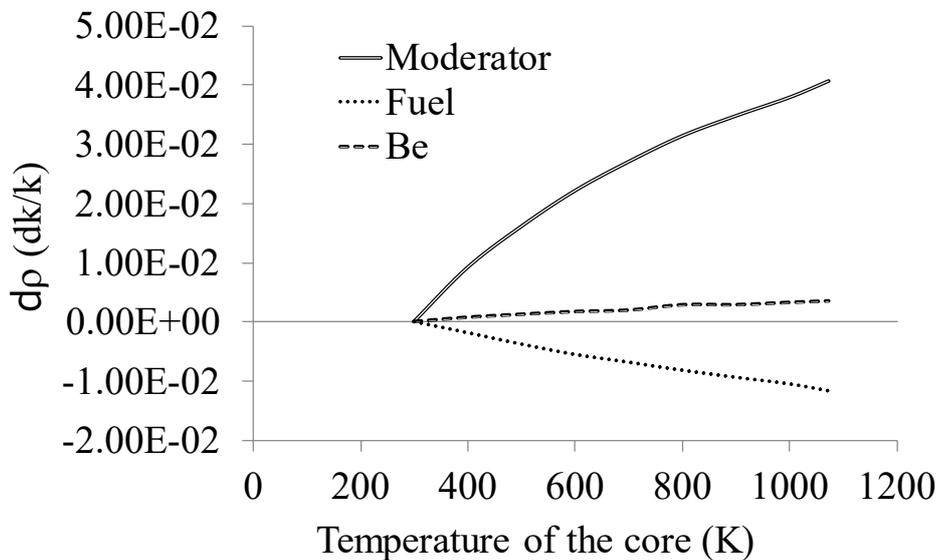


図 8 With Gd case において各コンポーネントを個別に温度変化させた際の温度依存反応度特性

4.2. メカニズム

前節で減速材温度が炉心の温度依存反応度特性に対して大きな影響を持っていることを明らかにした。次に、減速材温度が温度依存反応度特性に対して影響を与えるメカニズムを考察する。

まず、図 9 に With Gd case の 300K, 600K, 1000K における中性子スペクトルおよび Gd-155 全断面積と U-235 核分裂断面積を示す。中性子スペクトルを見ると、温度上昇に伴って熱中性子のピークが高エネルギー側にシフトしていることが分かる。これは温度上昇によって減速材中の水素原子核の熱運動量が増加し、中性子の熱平衡状態が変化したことに起因すると考えられる。

ここで U-235 の核分裂断面積を見ると、0.3eV 付近に小さなピークが存在するなど単調に減少してはいない。結果として図 10 に示すように核分裂反応率は温度上昇と共に増加していることが分かる。一方で Gd-155 の断面積は 0.1eV 付近から入射中性子エネルギーと共に急激に小さくなっており、図 11 に示すように Gd-155 の捕獲反応率は温度上昇と共に減少していることが分かる。

Gd が添加されていない場合は上記のうち U-235 の効果が表れており、低温側では U-235 の核分裂反応率増加で反応度を押し上げる効果が U-238 のドップラー反応度に勝り、高温域では U-238 のドップラー反応度が支配的となって負の温度反応度係数が得られるものと考えられる。

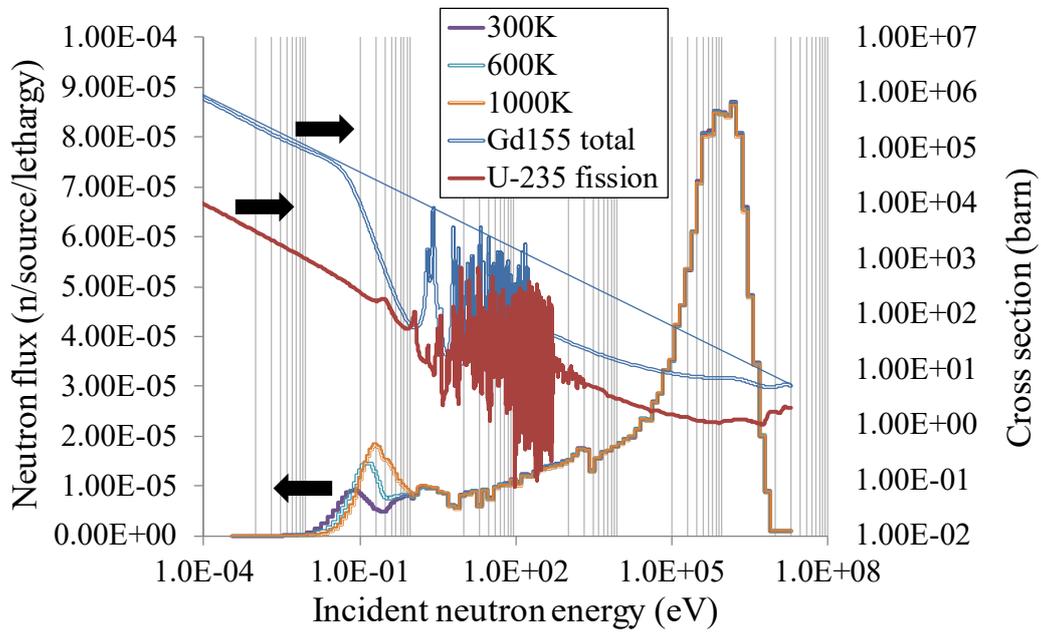


図 9 With Gd case の 300K, 600K, 1000K における中性子スペクトルおよび Gd-155 全断面積と U-235 核分裂断面積

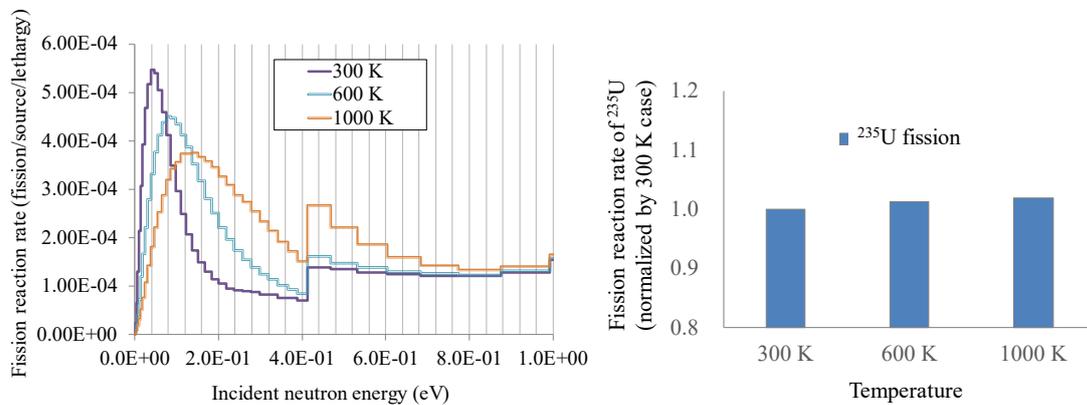


図 10 With Gd case における U-235 の核分裂反応率エネルギー分布および反応率の相対値

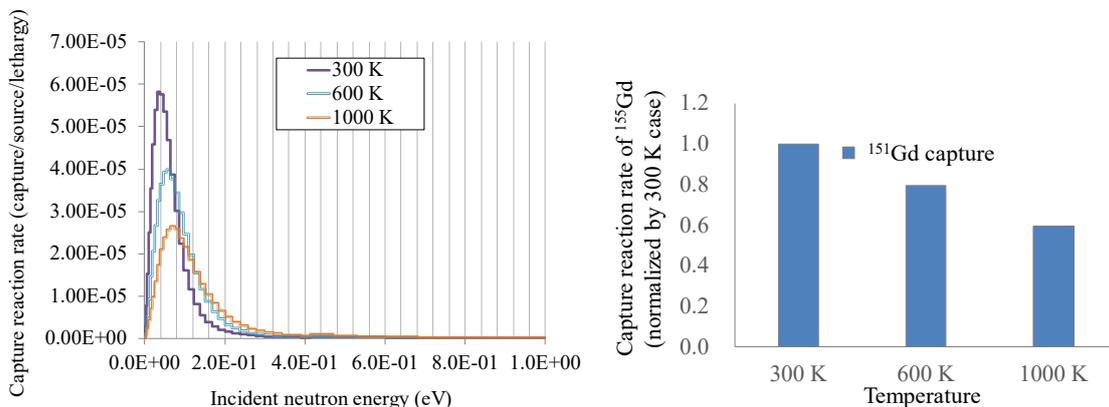


図 11 With Gd case における Gd-155 の捕獲反応率エネルギー分布および反応率の相対値

5. 毒物を用いた温度依存炉心反応度特性の制御

前章において、Gd 添加時には温度上昇に伴う熱中性子スペクトル変化が Gd の捕獲反応率低下をもたらし、大きな正の温度反応度係数の主要因となっていることを明らかにした。本章では適切な毒物を選定する事で温度依存炉心反応度の制御を目指す。

5.1. 原理と毒物の選定

Gd 添加時には熱中性子ピークのシフト後のエネルギー領域における捕獲断面積がシフト前に比べて低いことで Gd の捕獲反応率が低下したことが正の温度反応度係数の主要因であった。従って、熱中性子ピークがシフトした際に捕獲反応率が増加するような断面積を持つ核種を選定すればよいと考えられる。

具体的には図 12 に示すように昇温後の熱中性子ピークエネルギーより少し高いエネルギーに共鳴のある核種を抽出すればよい。ここでは 0.1~0.4eV の間に共鳴のある核種のうち、アクチノイド以外の核種の中から候補の選定を行い、Cd-113 および Eu-151 を抽出した。これらの核種の断面積および各温度点における中性子スペクトルを図 13 に示す。300~600 K の比較的低温な温度領域では熱中性子ピークエネルギーのシフトと共に Cd-113 の断面積が増加している。一方でさらに温度が上昇した場合は Cd-113 の断面積が減少傾向に転じて正の温度反応度を示す可能性があるため、高温領域の温度反応度特性制御に Eu-151 の共鳴断面積を利用する事とした。

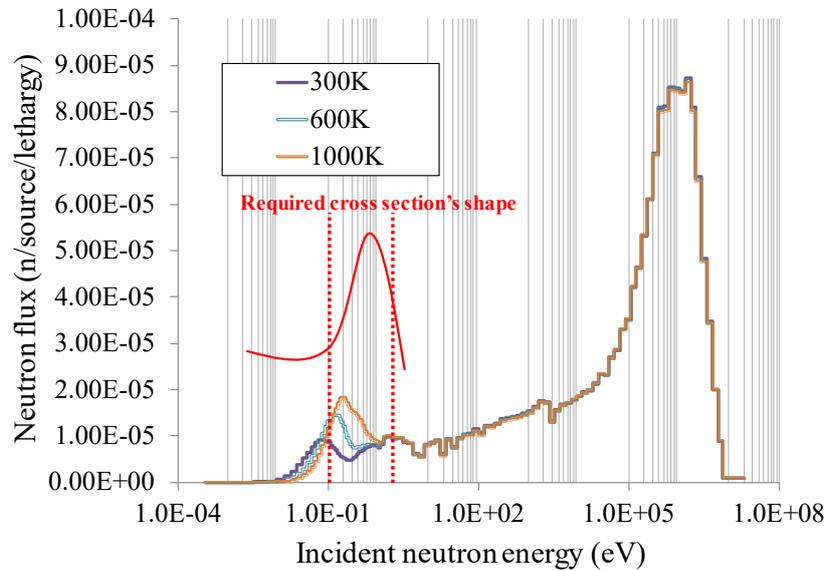


図 12 温度依存炉心反応度特性の制御に求められる毒物の断面積のイメージ

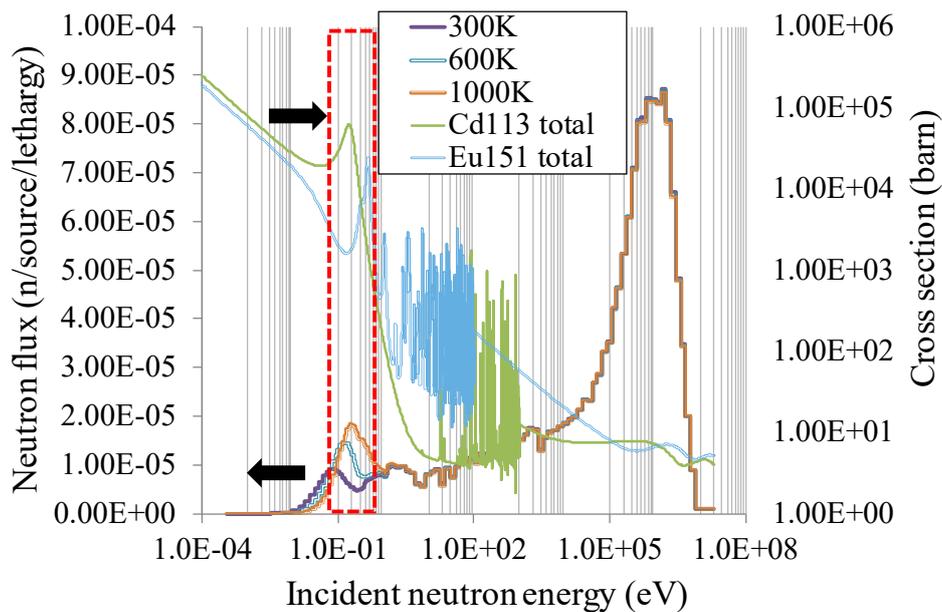


図 13 各温度点における中性子スペクトルと温度反応度特性制御の為に選択した核種の断面積

5.2. 毒物添加による温度依存炉心反応度の制御

本研究では炉心の HPPF 以外の燃料領域に 0.0072 at% の Cd-113 を, 0.02 at% の Eu-151 を添加した. この時の温度依存炉心反応度特性を図 14 に示す. 本図では毒物添加の無いケースを non BP, Cd-113 のみおよび Eu-151 のみを上記の割合で添加したケースを With Cd および With Eu, Cd-113 および Eu-151 の双方を上記の割合で添加したケースを Cd+Eu

とし、それぞれ 300 K からの反応度の変化量を(1)を用いて評価した。Cd のみを添加したケースでは 900 K 付近までは昇温と共に反応度が減少しているが、前節で予測した様にそれ以上の温度では反応度が増加傾向に転じている。また、Eu のみを添加した場合には 500 K 程度までは正の温度反応度係数を持つことが分かる。

一方でこれらを組み合わせた Cd+Eu ケースではほぼ全温度領域に亘って昇温と共に反応度が低下しており、毒物の添加によって正の温度反応度を負に転換し、加えて温度領域毎にそれを制御可能であることを示した。

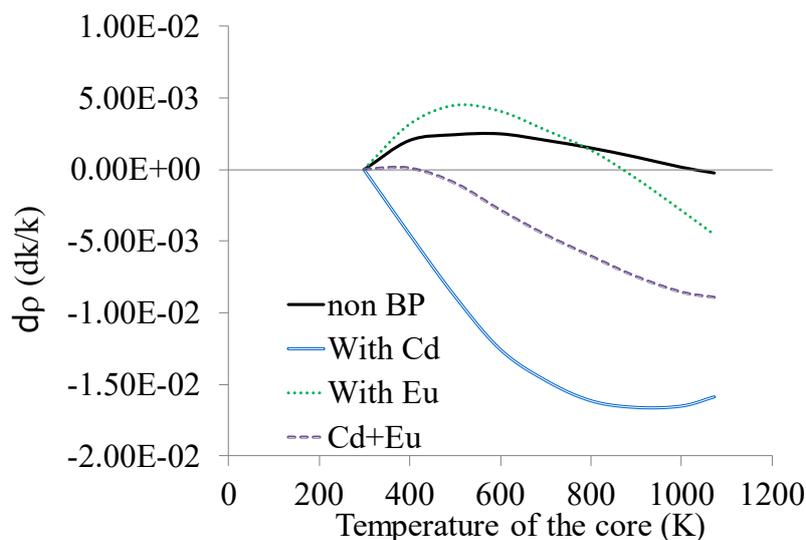


図 14 毒物添加時の炉心温度依存反応度特性評価結果

6. 結言

本研究では水素化物減速炉心の新しい温度反応度制御手法を提案した。本手法は従来金属水素化物減速炉心が根本的に抱えていた正の温度反応度係数の要因が、昇温による熱中性子スペクトルの変化と断面積の組み合わせにあることを明らかにし、加えてこれらを利用してこの正の温度反応度係数を負に転換した。具体的には Cd-113 および Eu-151 を毒物として用い、これらの持つ共鳴断面積によって熱中性子スペクトルが昇温と共に変化した際に捕獲反応が増加させた。

本手法は今回示した水素化カルシウム減速材のみならず、原理的には金属水素化物炉心全般に適用できる手法であると考えられる。今後は今回提案した手法を超小型炉の開発に活用していく。

なお、本稿の内容は” Temperature Reactivity of Calcium-Hydride-Moderated Small Reactor Core with Poison Nuclides Control”[8]の内容を抜粋したものである。

参考文献

- [1] R. Kimura, et al, “Hydride moderated heat-pipe cooled very small modular reactor MoveluX (1): Overview of reactor system and core concept”, Proc. AESJ 2019 Annual Meeting, Mito, Japan, Mar. 20-22, 2019, Atomic Energy Society of Japan (2019). [in Japanese]
- [2] R. Kimura, et al, “The Conceptual Design of Heat-Pipe Cooled and Calcium Hydride Moderated vSMR”, Proc. ICAPP2019, Juan-les-pins, France, May 12-15, 083, ICAPP2019 (2019)
- [3] J. Buongiorno, et al, “The Future of Nuclear Energy in a Carbon-Constrained World” p. 26, Massachusetts Institute of Technology, (2018)
- [4] F. GANDA and E. GREENSPAN, “Analysis of Reactivity Coefficients of Hydride-Fueled PWR Cores” Nucl. Sci. and Eng., 164, 1-32 (2010)
- [5] Y. NAGAYA, et al., “MVP/GMVP II: general purpose Monte Carlo codes for neutron and photon transport calculations based on continuous energy and multigroup methods”, JAERI1348, Japan Atomic Energy Research Institute (2004)
- [6] K. SHIBATA, et al., "JENDL-4.0: A New Library for Nuclear Science and Engineering," J. Nucl. Sci. Technol., 48, 1-30 (2011)
- [7] OECD/NEA Data Bank, JEFF-3.2 Evaluated Data Library - Neutron data (2014), http://www.oecd-nea.org/dbforms/data/eva/evatapes/jeff_32/
- [8] R. Kimura and S. Wada, “Temperature Reactivity Control of Calcium-Hydride-Moderated Small Reactor Core with Poison Nuclides”, Nucl. Sci. and Eng., 193, 1013-1022 (2019)