HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	原子力発電設備の安全性向上への適用性検討
Author(s)	戸田, 信一; 鈴木, 亮輔; 吉川, 信治
Relation	"熱電変換技術ハンドブック," 梶川武信監修, 舟橋良次編集委員長, ISBN: 978-4-86043-257-7, 第2節"熱電発電応用"9, pp. 571-578
Issue Date	2008-12
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/50308
Type	book part
File Information	NHGH_571-578.pdf

Hokkaido University Collection of Scholarly and Academic Papers : HUSCAP

9. 原子力発電設備の安全性向上への適用性検討

9.1　はじめに

地球環境問題への関心の高まりや石油価格高騰により再び脚光を浴びている原子力発電であるが，現在主流となっている熱中性子を用いた軽水炉技術ではエネルギー源として利用できる期間は石油とほぼ同等といわれている。高速中性子を用いてウランの利用効率を数十倍に高めるポテンシャルをもち，少資源国の日本が将来の基幹電源と位置づけて開発が進められている高速増殖炉(FBR)としては，福井県敦賀市に原型炉「もんじゅ」が建設された。「もんじゅ」では，原子炉から効率的に熱を取り出し輸送する媒体として液体金属ナトリウム(Na)が用いられる(**図1**)。

原子力発電では万一の事故時には，通常の核分裂反応を停止した後にも炉心から発生する崩壊熱を除去しなければならないという課題がある。このため，図中の主循環系統以外にも独立した補助循環系統を備えており安全性の向上を図っているが，その際の電源供給にも冷却材循環系と同様に多重性，多様性が求められる。熱電変換システムは，通常時の廃熱回収に加えて，このような非常時にも動的機器を用いることなく独立した電源供給と同時に除熱も行うことができるため，原子力発電設備のさらなる安全性向上に役立つ可能性をもっている。

一方，液体金属ナトリウムは500～800 K程度で循環するため現在市販されているBi-Te等の半導体系熱電素子を直接適用することは困難である。またプラント規模での適用を想定した場合，資源量が豊富で安価であり，かつ人畜無害で環境に優しい鉄基系合金が有力な候補になりうると考える。

そこで，鉄基系熱電素子を用いたプロトタイプモジュールを試作し，液体金属ナトリウムを高温熱媒体とした発電基礎試験を実施することにより，素子・モジュールの製作性やプラントシステムへの適用性の検討に資するものとした。

9.2　鉄基系熱電素子・モジュール試作

鉄基系熱電素子としてはFe-Al二元系合金，Fe-Al-Si三元系合金が大きなゼーベック係数，性能指数をもつことが見いだされており[1]，さらに鈴木らは，幅広い組成・合金選択の余地があるFe基DO_3型規則構造について，Fe_3Al合金にVを添加して実験的

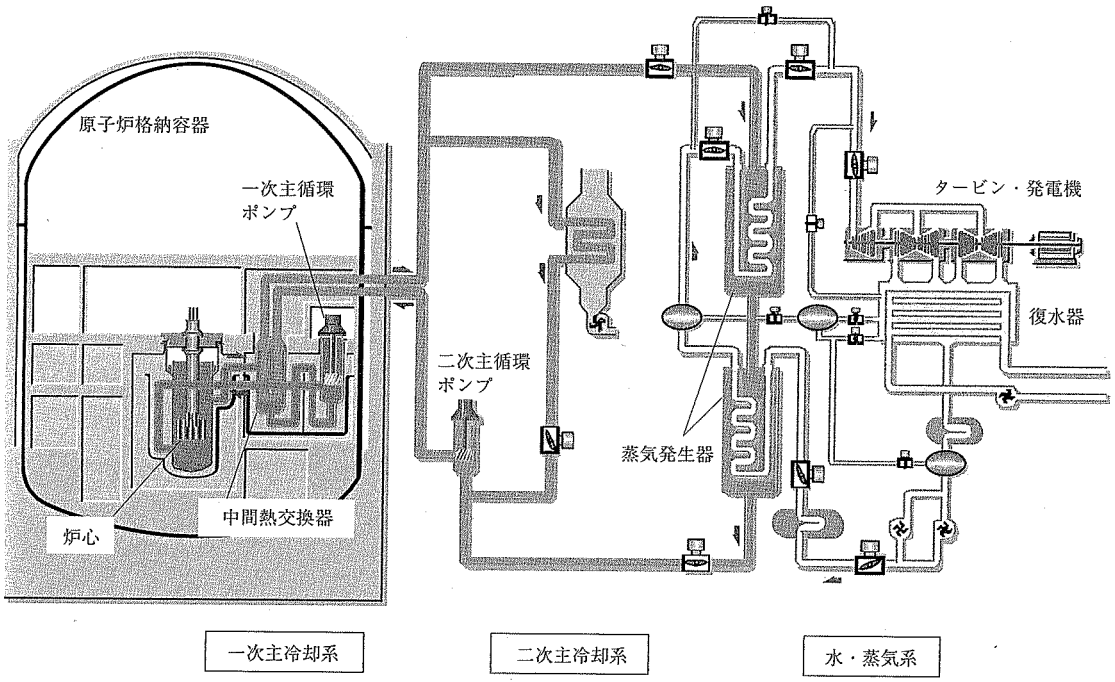


図1　高速増殖原型炉もんじゅ概略系統図(口絵⑫参照)

にその熱電性能について系統的な調査を実施した[2]。その結果，**図2**に示すようにホイスラー合金組成のFe_2VAlでp型からn型へ変化し$\Delta\alpha$が240 $\mu V/K$に達する鋭峻な組成依存性が発見され，その後多くの研究者によりFe_2VAl素子の特性が明らかになりつつある。

モジュール試作においては鉄基系素子のもつ製作性のポテンシャルの高さを生かすべく，一般的なπ型モジュールの形状に対し，電極と素子を一体化し作製方法の簡便化を試みた。p型素子FeをS字型に加工して電極とフィンの役割も兼ねさせ接合部の数を半減したS字型モジュール(**図3**)の試作および評価を行った[3]。真空中では温度によらず測定値と理想値がほぼ一致し，空気中では温度が下がるにつれ測定値が理想値に近づいたことから，熱伝導以外に外部雰囲気への放熱があり起電力が低下した。全側面が他の素子で囲まれる素子は熱伝達による影響は問題にはならず，素子の起電力は理論値に近づいた。まれにろう付けの不備により性能が劣化する場合があった。

Fe_2VAl熱電素子のゼーベック係数は図2のように構成成分の微妙なバランスにより+100～−150 ($\mu V/K$)まで大きく変化することがわかっている。本研究では将来の量産化の見通しも得られるように，実験室内にて生成するのではなく市販材料により工場生産による鋳造を試みた。十数ケースの試作結果により+100～−100($\mu V/K$)までのゼーベック係数が得られ(**図4**)，またすべてのケースにおいて構成成分のばらつきは熱処理をしていないにもかかわらず実用上支障のないレベルであり，実験室レベルと遜色ない性能が比較的容易に量産化できる見通しを得た。ただし，脆性材料である点が今後のモジュール高性能化における課題の一つである。

Fe_2VAl熱電素子のモジュール化にあたっては，FeAl合金モジュール作製の経験[3]やプロトタイプである点を考慮して製作性を優先させた単純な形状とした。また，p型素子としてCu線材を適用することにより熱膨張による応力集中を避ける設計とした。**図5**にNa配管上に設置したモジュールおよび部分的に拡大した素子の写真を示す。1モジュールあたり30対をろう付けにより直列接続し両端から銅電極を外側に引き出す構造とした。

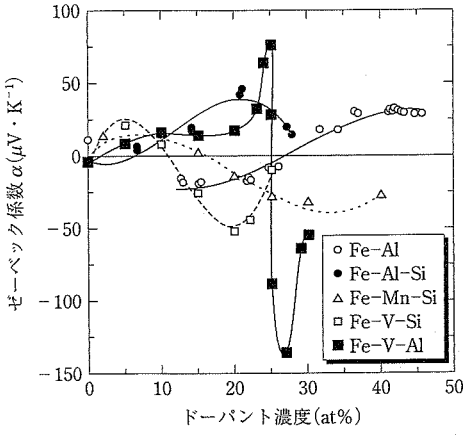


図2　DO_3型合金のゼーベック係数

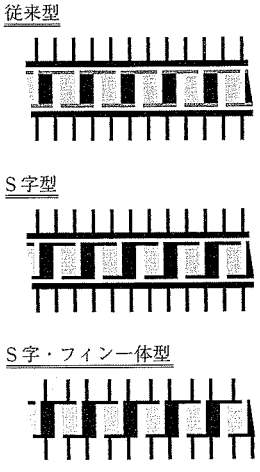


図3　　Fe基系熱電モジュール形状

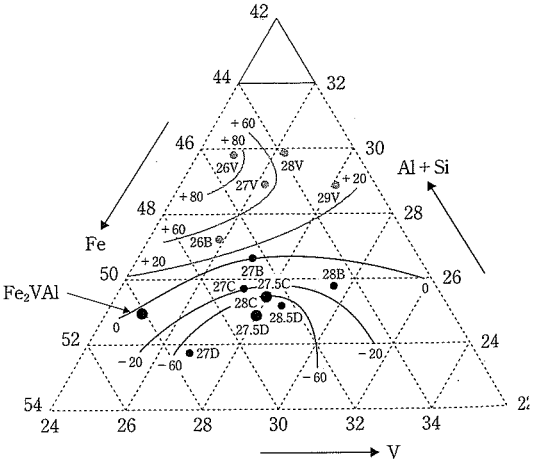


図4　Fe_2VAl熱電素子のゼーベック係数

9.3　ナトリウムを高温熱媒体とした発電基礎実験[4]

図6に試験部全体の構造を示す。実機を想定した1インチ配管には，接続するNaループから試験部入口温度が一定となるように約8(*l*/min)のNaが供給され，配管上に設置したプロトタイプモジュールへの高温熱源とする。試験部には6モジュールを配管の軸方向に並べ，その外側に風洞を設けNaの流れとは逆向きに強制通風冷却することにより温度差を与えた。

風洞入口側にはブロア，流量調節弁，質量流量計，ヒータを設け，任意の温度，流量に設定できるようにしている。なお，風洞試験部断面は図に示すように対称性を考慮した1/12セクターモデルとし，配管下面，側面，および風洞の外側は保温材により断熱構造としている。モジュールから外側に引き出された銅電極に外部可変抵抗，電圧計，電流計を接続し電気回路を構成し，開放起電力や外部負荷抵抗時の出力を計測した。

Na側の計測データは，配管内部に設置した熱電対により試験部出入口Na温度，ループ側に設置されている電磁流量計によるNa流量を用いた。冷却ガス側は，入口室温，風洞出口温度，およびブロア出口に設置した質量流量計によりガス流量をそれぞれ計測する。また，素子の高温端部温度をより正確に計測できるようにモジュール内部に0.5 mm ϕ の

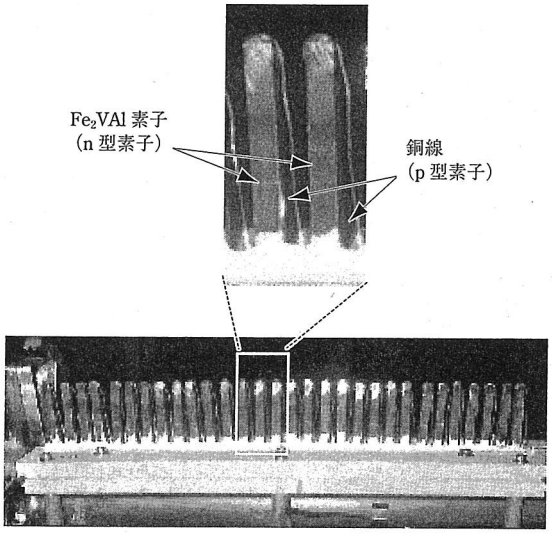


図5　Na配管上に設置されたプロトタイプ Fe_2VAl 熱電モジュール

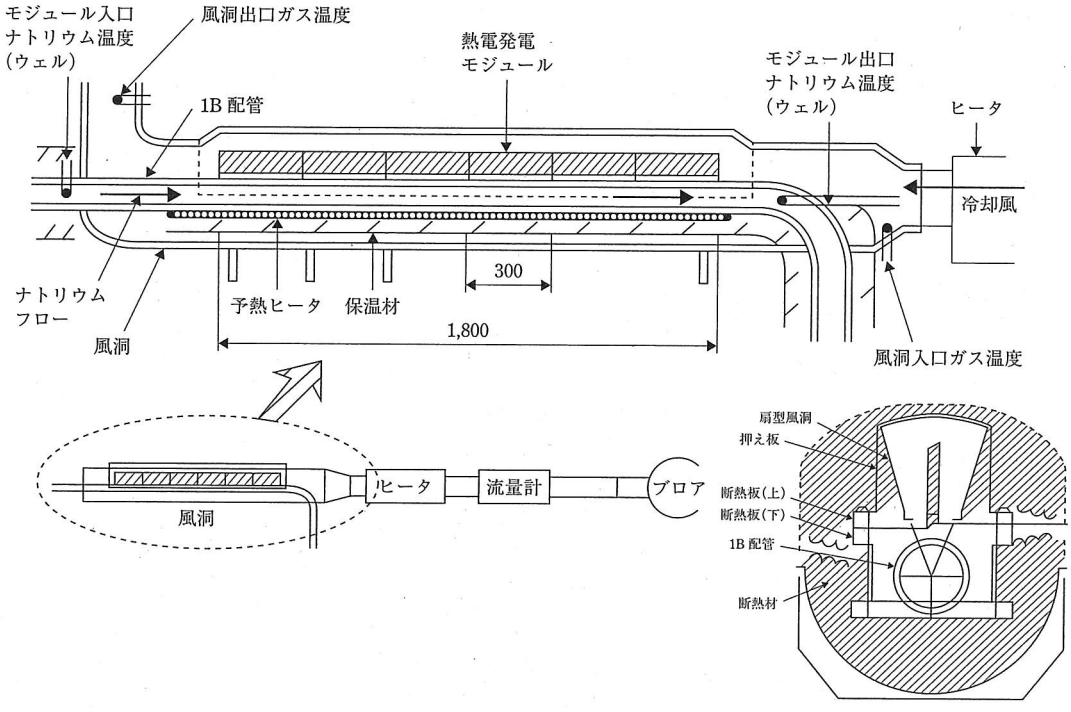
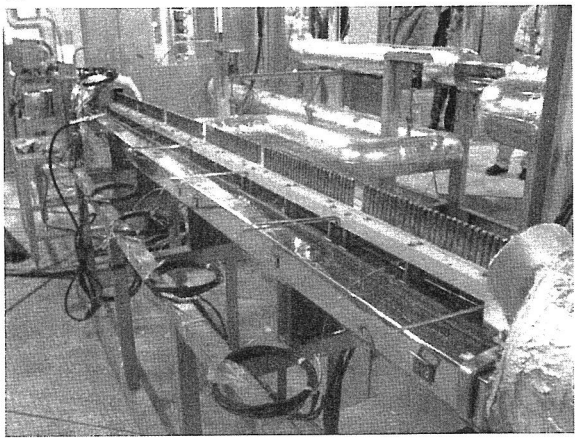


図6　Na加熱による熱電発電実験装置

(a)



(b)

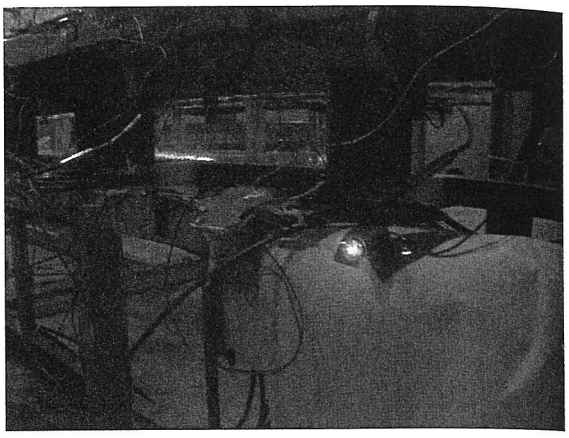


図7　試作モジュールブロック組立図(a)と熱電発電による点灯例(b)

K型熱電対を設置している。電圧，電流を含めて各部温度は，データロガーにより収集しパソコンHDに保存する。Na側の流量，温度は試験体に供給するNaループ側において所定の値となるように設定する。風洞側は，流量調節弁，ヒータにより所定の値となるように設定する。各部の温度が静定したところでデータを取得開始した。

試験部入口Na温度，流量，風洞入口流量，温度を試験パラメータにして十数ケースのデータを取得した。各ケースにおいてモジュールの開放起電力，および，外部可変抵抗を変化させた場合の出力をそれぞれ計測した。配管上に6モジュールを並べて向流型の冷却システムとしたので，軸方向に温度分布，出力分布が得られるはずであるが，残念ながら配管表面と素子下端間の熱抵抗のばらつきが大きく有意なデータは得られなかった。しかしながら，試験部入口Na温度673(K)，風洞入口温度313(K)のケースで6モジュールを直列に接続して2.6(V)の開放起電力を得るにいたり，豆電球の点灯に成功した(**図7**)。モジュール内部抵抗と外部負荷抵抗が等しい場合に最大出力を得ることができるため，外部可変抵抗を変化させた場合の出力計測結果に対して最小二乗法により近似式を求め，モジュールから得られる最大出力値を算出した。Na入口温度673(K)，風洞入口ガス温度313(K)における出力−抵抗の関係を**図8**に示す。

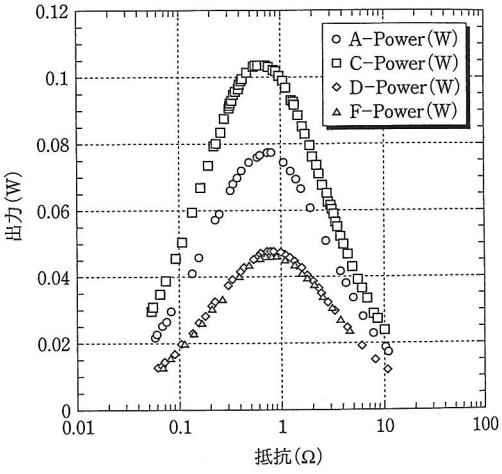


図8　モジュール出力と外部抵抗の関係

9.4　ナトリウム熱電発電システム出力の検討

上記の試験結果等を用いてナトリウム加熱−ガス冷却熱電システムの出力に及ぼす主要因子の影響について検討する。

9.4.1　解析モデル，定式化

熱電発電用のモジュールはp−n接合の他，π型の場合には素子をつなぐ電極，素子間の電気絶縁体，熱伝達を促進するフィンなどで構成される。ここでは，**図9**に示すような簡易モデル化により円筒平板状熱電パネルとして，フィンのない平滑な表面をもち，鉄基合金で構成されるp−n対を有した熱電

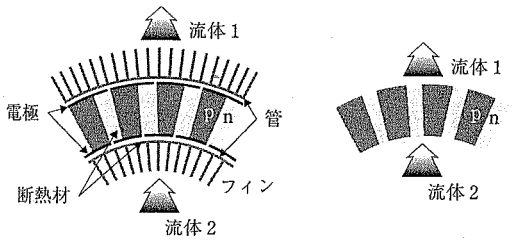


図9　熱電発電モジュール解析検討における簡易モデル化

素子を考える。なお，冷却媒体は不活性窒素ガスのデータを使用しているが，大気に当てはめても結果的に大差はないと思われる。

長さ l，内径 r_1，外径 r_2 の1枚の熱電発電円筒形パネルから成るシステムを考えたとき，内側の高温流体(質量流量 M_h，比熱 $C_{p,h}$，入口温度 T_h^{in})が円筒形パネルを通して外側の低温流体(質量流量 M_c，比熱 $C_{p,c}$，入口温度 T_c^{in})と流体間の熱交換を考えた微分方程式の解から，二つの熱媒体となる流体温度は以下のように表される[5]。

$$T_h(x)=\frac{\left[\begin{array}{l}M_hC_{p,h}T_h^{in}\exp(-DK'l)+\\M_cC_{p,c}\left(\left(T_h^{in}-T_c^{in}\right)\exp(-DK'x)+T_c^{in}\right)\end{array}\right]}{M_hC_{p,h}\exp(-DK'l)+M_cC_{p,c}} \quad (1)$$

$$T_c(x)=\frac{\left[\begin{array}{l}M_hC_{p,h}\left(\begin{array}{l}T_h^{in}\exp(-DK'l)-\\\left(T_h^{in}-T_c^{in}\right)\exp(-DK'x)\end{array}\right)\\+M_cC_{p,c}T_c^{in}\end{array}\right]}{M_hC_{p,h}\exp(-DK'l)+M_cC_{p,c}} \quad (2)$$

ここで，M_i，$C_{p,i}$，T_i はそれぞれ流体 i の質量流量，比熱，温度である。また，

$$D=\frac{1}{M_hC_{p,h}}+\frac{1}{M_cC_{p,c}} \quad (3)$$

K' は円筒形パネルの総括的な熱通過率であり，

$$K'=\frac{2\pi}{\dfrac{1}{h_hr_1}+\dfrac{\ln(r_2/r_1)}{\lambda}+\dfrac{1}{h_cr_2}} \quad (4)$$

である。h_h，h_c はそれぞれ高温流体および低温流体とパネル間の熱伝達率であり，λ はパネル内部の平均熱伝導率で，pおよびn型素子の熱伝導率 λ_p，λ_n と円周角 ϕ_n，ϕ_p を用いて

$$\lambda=\frac{\lambda_p\cdot\phi_p+\lambda_n\cdot\phi_n}{\phi_p+\phi_n} \quad (5)$$

と表される。

起電力 E は，円筒管の長さが l のとき，

$$E=\frac{\left[\begin{array}{l}M_hM_cC_{p,h}C_{p,c}n_xn_\phi\alpha\left(T_h^{in}-T_c^{in}\right)\\\left(1-\exp(-DK'l)\right)\\\left(2\pi r_1r_2-K'r_1/h_1-K'r_2/h_2\right)\end{array}\right]}{2\pi r_1r_2K'\left(M_hC_{p,h}\exp(-DK'l)+M_cC_{p,c}\right)} \quad (6)$$

と表される。

ここで，α はp，n素子のゼーベック係数の差，n_x はパネル内の素子の x 方向の数密度，n_ϕ は ϕ 方向の素子数であり，素子間の隙間を無視するとの仮定によって，$n_\phi=2\pi/(\phi_p+\phi_n)$ である。

パネル i の電気抵抗 R_i は，

$$R_i=n_\phi n_x^{\,2}l\left(\frac{\rho_p}{\phi_p}+\frac{\rho_n}{\phi_n}\right)\ln\left(\frac{r_{i,i+1}}{r_{i,i}}\right) \quad (7)$$

ここで，ρ_p，ρ_n はp型およびn型の(電気)抵抗率である。外部に取り出せる電気出力の最大値 P は，通常行われる内部抵抗と外部抵抗を釣り合わせる最適化操作によって

$$P=\frac{E^2}{4\sum_{i=1}^{n}R_i} \quad (8)$$

で得られる。以降で本研究において出力 P は，この内部抵抗と外部抵抗が等しい場合の出力 P を指す。この最大出力 P はpおよびn型素子の円周角 ϕ_n，ϕ_p がそれぞれ，

$$\phi_n=\frac{2\sqrt{\lambda_p\cdot\rho_n}}{n_\phi\cdot\left(\sqrt{\lambda_n\cdot\rho_p}+\sqrt{\lambda_p\cdot\rho_n}\right)} \quad (9)$$

および

$$\phi_p=\frac{2\sqrt{\lambda_n\cdot\rho_p}}{n_\phi\cdot\left(\sqrt{\lambda_n\cdot\rho_p}+\sqrt{\lambda_p\cdot\rho_n}\right)} \quad (10)$$

のときに最大となる。これは平板状熱電素子のときのよく知られた最適面積比

$$\frac{s_n}{s_p}=\sqrt{\frac{\rho_n\lambda_p}{\rho_p\lambda_n}} \quad (11)$$

の場合に相当する。このように設計された熱電モ

ジュールであるとき，その最大出力は

$$P_{\mathrm{TIC}} = \frac{n_\phi n_x \left\{ M_\mathrm{h} M_\mathrm{c} C_{\mathrm{p,h}} C_{\mathrm{p,c}} \alpha \left(T_\mathrm{h}^{\mathrm{in}} - T_\mathrm{c}^{\mathrm{in}} \right) \ln\left(\frac{r_2}{r_1} \right) \right\}^2}{16\pi^2 \lambda^2 \left(r_\mathrm{n} + r_\mathrm{p} \right) l} \cdot \left[\frac{\left\{ e^{\left(-\frac{1}{M_\mathrm{h} C_{\mathrm{p,h}}} - \frac{1}{M_\mathrm{c} C_{\mathrm{p,c}}} \right) K \cdot l} - 1 \right\}}{M_\mathrm{h} C_{\mathrm{p,h}} e^{\left(-\frac{1}{M_\mathrm{h} C_{\mathrm{p,h}}} - \frac{1}{M_\mathrm{c} C_{\mathrm{p,c}}} \right) K \cdot l} + M_\mathrm{c} C_{\mathrm{p,c}}} \right]^2 \tag{12}$$

となる。

管内流れにおける熱伝達率 h は，表面がなめらかな管内を十分発達した乱流状態で流れる気体のヌセルト数 Nu についてよく知られた Kays の式を適用する。

$$Nu = 0.022\, Re^{0.8}\, Pr^{0.5} \tag{13}$$

Re，Pr はそれぞれ流体のレイノルズ数，プラントル数である。

$$Nu = h\, d_\mathrm{e} / \lambda \tag{14}$$

$$Re = M\, d_\mathrm{e} / (S\, \mu) \tag{15}$$

λ，μ は流体の熱伝導率および粘性率であり，M，S は流体の質量流量および管の断面積である。d_e は管の相当直径であり，管の濡れぶち長さを L として

$$d_\mathrm{e} = 4\, S / L \tag{16}$$

で与えられる。

9.4.2　解析条件

高温側熱媒体として，原子炉から一次冷却ナトリウムとして取り出される温度，もしくは熱交換ののち，原子炉外の蒸気タービンに供給されるナトリウム温度，の代表値として500℃を入口温度とした場合について検討した。本試算で用いた熱電変換材料および熱媒体の物性値を**表1**に示す。Fe_2VAl ホイスラー型合金のゼーベック係数は前述の実験における実測値を用いた。電気抵抗と熱伝導率は報告値もしくは推定値である。評価温度として250℃における物性値を用いた。なお，物性値の温度依存性については考慮していないが，概念設計としては問題ないものと考えられる。

9.4.3　解析結果および考察

以上の条件を式(12)に入れて出力 P についてナトリウムの質量流量 M_h，冷却ガスの質量流量 M_c，およびパネル長さ l の関数として整理する。**図10**に円管長さ l と出力 P の関係を低温側の質量流量 M_c をパラメータとして示す。なお，液体ナトリウ

表1　試算で用いた熱電素子のデータ

入口温度(K) 出口温度(K)	材質	評価温度 T(K)	ゼーベック係数 α(μV/K)	電気抵抗 ρ(μΩm)	熱伝導率 λ(W/mK)
773	Fe_2VAl(p)	523	+70	4.0	5
300	$Fe_{1.92}V_{1.08}Al$(n)	523	−80	5.0	10

熱電素子

変数	採用値	変数	採用値
モシュールの半径，r_1	0.0127 m	パネルの枚数	1枚の円筒
X 方向の素子対の数，n_x	300/m	パネルの厚さ，d	0.02 m
		素子の大きさ	2.5 mm 角×20 mm
ϕ 方向の素子対の数，n_ϕ	32 分割／円周＝255/m	モジュールの長さ，l	最適化
		素子1対のゼーベック係数 α	150 μV/K
最適円周角 ϕ_n	0.01088 radian	面積比 $s_\mathrm{n}/s_\mathrm{p}$	0.790
最適円周角 ϕ_p	0.01376 radian	最適円周角の時パネル内部の平均熱伝導率 λ	7.208 W/mK

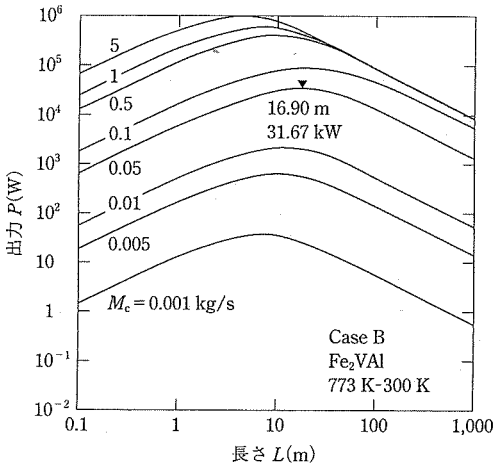


図 10　発電出力と配管モジュール長さの関係

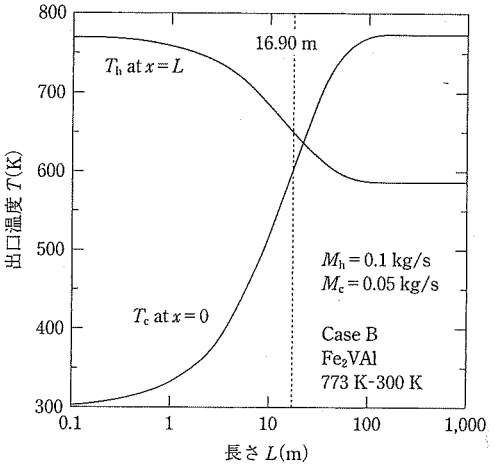


図 11　高温側および低温側流体の各出口温度

ムの流量は前述の実験において1インチの管に約 8 l/min 程度であり，これは質量流量 0.121 kg/s に相当する。このため，上記の計算では液体ナトリウムの質量流量 M_h を 0.10 kg/s に固定している。図に示したように低温側流体の各送風量に対応してある特定の管長さで最大出力を示し，それよりも管が短くても長くても出力は減少する。現実的な送風量の 0.05 kg/s を例にとって考えると，最大出力は 31.67 kW となった。最大出力まで配管長さの増加に応じて出力が増加するのは，素子数が管の長さに応じて増加し，素子数の2乗に比例して出力が増加するからである。

一方，出力の減少については以下のように考えられる。**図 11** は各流体の出口温度を式(1)，(2)により計算し示した。向流条件なので，高温側流体の出口温度は位置 L での温度であり，低温側流体の出口温度は長さ L の円筒型パイプの位置0での温度である。

パネルの長さが短い場合は高温流体の温度低下および低温流体の温度上昇が著しいが，パネル長さが最適値を超して長い場合はその変化は鈍い。またある長さ以上になると低温流体の出口温度は高温流体の入口温度に近づく。すなわち，パネルの入口ですでに両流体の温度差が小さくなって出力が低下することがわかる。図 11 から出力最大が生じる原因は低温流体の流速が小さく，高温流体のもつ熱をもらって暖まるために，パネル両端の温度差が小さくなるためであることが理解される。また二流体間では完全なる熱交換によってナトリウム温度を低下させ，低温流体温度をナトリウム入口温度まで高めるよりも，不完全な熱交換にとどめる方が熱電発電出力としては大きくなることを示している。なお，図 11 は低温側ガスの温度上昇に伴う流速による熱伝達率向上は考慮していないため厳密には数値解が必要である。また，高温側流体の温度が全範囲でナトリウムの融点以上であり，配管内部での固化は生じないことを示している。

さらに，冷却ガスが大流量であるときは図 10 に示されるように，ナトリウム配管を想定した高温側が強力に冷却されることになる。よって，ある程度の距離を超すと高温側の温度と低温側の温度が等しくなり，熱電発電はその距離以上のモジュールでは行われなくなり，直列につながれたこれらのモジュールは単に内部抵抗を増大させるのみとなって，熱電発電にはなんらよい寄与を示さない。例えば，現実的ではないが冷却ガスが計算上の最大流量である 5 kg/s で流した場合，長さが数十 m 以上では，指数関数的に単調に出力は減少する。この減少がすべての大流量，長配管で共通した出力になっていることは，このような温度差が消失したためによる発電減少であることを示している。

9.5　まとめ

Fe_2VAl 熱電素子を用いたプロトタイプモジュールを Na 配管上に設置して発電能力を実証した。素子の最適化，モジュールへの素子実装密度向上，配

管との密着性等の課題を解決し高性能化を図っていく必要があるが，比較的安価に大量供給できる鉄系素子の見通しを得た。

また，上記の熱電素子性能を用いて最大出力について検討した結果，熱電モジュール長さ16.9 mで最大31.67 kWの発電が可能であることを示した。さらに，最大出力はガス流量にきわめて敏感であり，ナトリウム流量にはあまり依存せず，モジュール長さの最適値は低温側ガス流量が小さいときは流量と共に増加するが，ある値を超すと長さは短い方が大きな発電能力を示すことを明らかにした。これは，高温側と低温側の流体間温度差の減少によりモジュールによる熱電発電よりも内部抵抗が増大するためである。このため，熱電発電を行う場合，二流体の熱バランスに立脚した設計が必要であるが，一般にはガス流量が低いため冷却に限界が生じ，発電出力に制限が生じる。

【参考・引用文献】

1) 門昌輝，辻隆之，鈴木亮輔，小野勝敏：熱電変換シンポジウム1997論文集，p. 76(1997).
2) Y. Hanada, R.O. Suzuki and K. Ono : *J. Alloys Compounds*, **329**(1-2), 63-68(2001).
3) 田邉健太郎，藤田健治，鈴木亮輔，小野勝敏：熱電変換シンポジウム2001論文集(2001).
4) 戸田信一，鈴木亮輔，近藤恒幾，笠川勇介，玉山清志：熱電変換シンポジウム2003論文集(2003).
5) R.O. Suzuki and D. Tanaka : *J. Power Sources*, **122**, 201-209(2003).

＜戸田　信一／鈴木　亮輔／吉川　信治＞