密閉熱サイフォン型冷中性子源の非連続 モデルによる熱力学的考察

河 合 武

京都大学原子炉実験所 大阪府泉南郡熊取町

(1988年9月5日受理)

Thermodynamic Considerations of a Closed-thermosiphon Type Cold Neutron Source by a Discontinuous Model

Takeshi KAWAI

Research Reactor Institute, Kyoto University, Kumatori-cho, Sennan-gun, Osaka 590-04

(Received September 5, 1988)

Synopsis :

A fundamental consideration of a closed-thermosiphon type cold neutron source (CNS) has been presented on the basis of the non-equilibrium thermodynamics. In order to simplify the treatment, a discontinuous thermodynamic model consisting of two large sub-systems connected by a small transport sub-system is employed. The analyses are especially concentrated in the self-regulation property, that is, the amount of liquid hydrogen in the moderator cell can be kept almost constant against thermal disturbances from reactor output fluctuations. It is shown that this property results from a thermodynamic process producing an entropy of a total system by a temperature increment in which an evaporation in one sub-system is compensated by a liquefaction in the other sub-system linked together by a common quantity of latent heat.

1. 緒 言

冷中性子はふつう、ベリリウムのブラッグの切断エネルギーに相当する波長 $4\text{ \AA}$ 以上の中性子をいう。冷中性子は、生体高分子や非晶体等の相変化における臨界点近傍の揺らぎや長周期構造を調べるのに適している。最近、基礎物理の分野で極冷中性子や超冷中性子が中性子の電気双極子能率や寿命、干渉等の研究に用いられるようになった。極冷中性子や超冷中性子も冷中性子からつくられる。しかし、通常の研究炉では、冷中性子の強度は全中性子束の $1\sim 2\%$ である。したがって、冷中性子束を増強することが望ましい。この目的のためには、ふつう熱中性子を、冷減速材である極低温に冷却された液体水素等の層に通して散乱させることにより冷中性子を取り出す冷中性子源設備が用いられる。

冷中性子源は冷中性子束を安定に供給する必要がある、そのためには冷減速材である液体水素または重水

素が冷減速材槽中に必要十分な量安定に貯留されていることが必要である。最近設置された冷中性子源は密閉熱サイフォン型が多いが¹⁾、この型の冷中性子源においては、原子炉の出力変動等により冷減速材槽への熱負荷が変動しても冷減速材槽内の液面が安定に保たれる。これは、負荷が増加したとき、冷減速材である液体水素の蒸発により系の圧力が増加し、水素の沸点が上昇することにより潜熱が小さくなること、ならびに温度上昇により凝縮器の液化能力が増加するためである。この性質を、液量が熱負荷の変動下においても一定に保たれるという意味で自己平衡性という。われわれは低温水素循環系を用いてこのことを明らかにし^{2,3)}、我が国では最初の原子炉冷中性子源である KUR 冷中性子源にも応用して、安定な冷中性子束を得ることができた⁴⁻⁶⁾。

Fig. 1 (a) に密閉熱サイフォン型冷中性子源の概念図を示す。主要部は冷減速材槽、冷減速材輸送管および凝縮器からなる水素低温系であり、水素系は貯槽を

a: Hydrogen cold system

b: Model for simulation

Fig. 1 Schema of a closed-thermosiphon type cold neutron source.

含めて密閉系であるが、ここでは冷減速材槽に液体水素が十分貯溜されている定常状態を取り扱うので、水素低温系を密閉系として扱う。密閉熱サイフォン型冷中性子源の熱力学過程は、冷減速材槽での核発熱吸収による液体水素の蒸発過程、水素蒸気の冷減速材輸送管における輸送過程、凝縮器での熱の放出による再液化過程、そして液体水素の冷減速材槽への輸送過程である。冷減速材輸送管は実際には蒸気管の内部に液管がある二重管の構造となっているが、ここでは1本のパイプからなるものとする。液は重力により流下し、蒸気は密度の差により上昇する。したがって、系は明らかに非平衡であるので、冷減速材槽と凝縮器を部分系とする非連続系として取り扱う。冷減速材槽と凝縮器では水素の蒸発と液化が起こっているため、相変化として扱う。輸送管部における相変化は、核発熱の量が小さいので無視する。

本報告では、水素低温系を非平衡熱力学により解析し、密閉熱サイフォン型冷中性子源の特性である自己平衡性の条件ならびに熱力学的意味を導く。

2. 非平衡熱力学による解析

2.1 密閉非連続系のモデル化

系全体として定常状態にある密閉熱サイフォン型冷

a: Discontinuous thermodynamic model

b: Idealized thermosiphon model

Fig. 2 Thermodynamic models of the hydrogen cold system and an idealized thermosiphon.

中性子源を Fig. 1 (b) に示す。冷減速材槽は核発熱を吸収し一定温度 T^I に、凝縮器は温度 T^{II} に保たれている。冷減速材輸送管は冷減速材槽に近い部分の核発熱を無視すると周囲と断熱されているので、冷減速材槽と同じ温度に保たれている。したがって、本系は少なくとも二つの部分系からなる非連続系として取り扱われるべきであり、さらにその接続部の輸送管部は、第三の部分系と見なすと便利である。冷減速材槽には常に液体水素があり、凝縮器では水素が液化している。これにより水素の関与する過程は、部分系 I, II における蒸発、液化と、III における蒸気と液の輸送のみと考えることができる。以上の結果、系をモデル化すると Fig. 2 (a) のようになる。すなわち、系は二つの部分系、I, II が小さい容量の部分系 III によって連結され、I, II の状態変数が III において非連続的に変化するものとする。この部分系 I, II は、それぞれ無限容量の定温槽 (T^I, T^{II}) に接しているとしよう。系の各成分を k で表すと、 $k=1, 2$ となり、 $k=1$ を液相の水素、2 を気相の水素とする。部分系 I, II では蒸発、液化が起こっているとするが、部分系 III では気相-液相間の変化は起こらないものとする。 ω^a は相隣部分系との境界を、 ν^a はその他の境界を表すものとする。このような系の定常状態について論じる。

2.2 保存方程式

この系では全系としても各部分系としてもその境界

は固定されているので、系の示量変数 $F(t)$ の時間微分は示強変数 $f(r, t)$ を用いて、

$$dF(t)/dt = \int \{\delta f(r, t)/\delta t\} dV \quad (1)$$

で与えられる。したがって、部分系 I, II, III を α で代表すると、 α における成分 k の物質収支は、

$$dM_k^\alpha/dt = - \oint_{\Omega^\alpha} \rho_k v_k d\Omega^\alpha + \int_{V^\alpha} J_j^\alpha dV^\alpha \quad (2)$$

で表される。ここで、 M_k^α は部分系 α の成分 k の質量、 ρ_k は成分 k の密度、 v_k は成分 k の速度、 J_j は相変化の速度、 V は体積をあらわす。

Fig. 2 (a) に示すように、各部分系の表面 Ω^α は相隣部分系との境界とその他の境界との和であるので、

$$\Omega^\alpha = \omega^\alpha + \nu^\alpha \quad (3)$$

で与えられる。物質の出入りは ω^α のみによるので、(2) 式は

$$dM_k^\alpha/dt = - \int_{\omega^\alpha} \rho_k v_k d\Omega^\alpha + J_j^\alpha V^\alpha \quad (4)$$

(3) 式を考慮すると、

$$\begin{aligned} - \int_{\omega^\alpha} \rho_k v_k d\Omega^\alpha &\equiv d_i M_k^\alpha/dt \\ J_j^\alpha V^\alpha &\equiv d_i M_k^\alpha/dt \end{aligned} \quad (5)$$

とそれぞれ、添え字 i, t で、隣接系から流入と蒸発、液化の相変化による生成に分けることができる。

したがって、

$$dM_k^\alpha/dt = d_i M_k^\alpha/dt + d_i M_k^\alpha/dt \quad (6)$$

と表される。また、輸送域では相変化は起こらないものとしているので、

$$dM_k^{\text{III}}/dt = - \sum_{\alpha=1}^{\text{II}} d_i M_k^\alpha/dt = 0 \quad (k=1, 2) \quad (7)$$

これは、一方の部分系から流出した水素は必ず他方の部分系に流入することを表している。

つぎに系のエネルギー保存を考えよう。系の運動エネルギー K^α について次式が成立する。

$$dK^\alpha/dt = - \int_{\omega^\alpha} (1/2) \rho v^2 d\Omega^\alpha = d_i K^\alpha/dt \quad (\alpha=I, II) \quad (8)$$

ここで、 $\rho v = \sum_{k=1}^2 \rho_k v_k$ であり、 ρ は全密度、 v は重心の速度である。部分系 III については、

$$0 \equiv dK^{\text{III}}/dt = - \sum_{\alpha=1}^{\text{II}} d_i K^\alpha/dt \quad (9)$$

が成立する。系における局所エネルギーは次式で与えられる。

$$\begin{aligned} \delta \rho e / \delta t &= - (\delta / \delta z) \{ J_q + p v \\ &\quad + \rho (u + (1/2) v^2 + g z_g) v \} \end{aligned} \quad (10)$$

ここで、 e は全比エネルギー、 J_q は熱流束、 u は比内部エネルギー、 p は圧力、 z_g は垂直座標を表す。ここで、粘弾性と外部ポテンシャルの影響を無視した。比エンタルピー、

$$h = u + p \rho^{-1}$$

を用いると、(10)式から部分系の全エネルギー E について次式を得る。

$$dE^\alpha/dt = - \int_{\Omega^\alpha} (J_q + h p v + (1/2) \rho v^2 v + \rho v g z_g) d\Omega^\alpha \quad (11)$$

ここで、

$$\begin{aligned} - \int_{\nu^\alpha} J_q d\Omega^\alpha &\equiv d_e Q^\alpha/dt \\ - \int_{\omega^\alpha} J_q d\Omega^\alpha &\equiv d_i Q^\alpha/dt \end{aligned} \quad (12)$$

$$- \int_{\omega^\alpha} \rho v d\Omega^\alpha \equiv \sum_{k=1}^2 d_i M_k^\alpha/dt \equiv d_i M^\alpha/dt \quad (13)$$

$$\begin{aligned} d_e E^\alpha/dt &= d_e Q^\alpha/dt \\ d_i E^\alpha/dt &= d_i Q^\alpha/dt + (h^\alpha + g z_g) \\ &\quad (d_i M^\alpha/dt) + d_i K^\alpha/dt \\ &\quad (\alpha=I, II) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} dE^{\text{III}}/dt &= - \sum_{\alpha=1}^{\text{II}} d_i E^\alpha/dt = - \sum_{\alpha=1}^{\text{II}} (d_i Q^\alpha/dt \\ &\quad + (h^\alpha + g z_g) (d_i M^\alpha/dt) \\ &\quad + d_i K^\alpha/dt) = 0 \end{aligned} \quad (14)$$

(9) 式を考慮すると、

$$- \sum_{\alpha=1}^{\text{II}} (d_i Q^\alpha/dt + (h^\alpha + g z_g) (d_i M^\alpha/dt)) = 0 \quad (15)$$

となる。(15)式は部分系間のエネルギーの保存を与える。ここで重力によるエネルギーを無視すると、

$$- \sum_{\alpha=1}^{\text{II}} (d_i Q^\alpha/dt + h^\alpha (d_i M^\alpha/dt)) = 0 \quad (16)$$

となり、密閉熱サイフォンを力学系として見たときの基本式となる。

2.3 エントロピーの生成

各部分系のエントロピー S^α の変化は

$$\begin{aligned} dS^\alpha/dt &= \int_{V^\alpha} (\delta(\rho s)/\delta t) dV^\alpha \\ &= - \int_{\Omega^\alpha} J_{ts} d\Omega^\alpha + \int_{V^\alpha} \sigma dV^\alpha \end{aligned} \quad (17)$$

で表される。ここで、 s は比エントロピー、 J_{ts} は全エントロピー流束、 σ はエントロピー生成速度を表す。

$$J_{ts} = (J_q - \sum_{k=1}^2 \mu_k J_k) / T + s \rho v \quad (18)$$

ここで、 μ_k は成分 k の化学ポテンシャルで、 $J_k = \rho_k (v_k - v)$ である。エントロピー生成に関する項は、(12), (14) 式より

$$\begin{aligned} \int V^\alpha \sigma dV^\alpha &= - \sum_{k=1}^2 \mu_k^\alpha J_{j^\alpha} V^\alpha / T^\alpha \quad (\alpha = \text{I, II}) \\ \int V^\text{I} \sigma dV^\text{I} &= - \sum_{\alpha=1}^{\text{II}} \int \omega^\alpha J_{ts} d\Omega^\alpha \\ &= \sum_{\alpha=1}^{\text{II}} (d_i Q^\alpha / dt + h^\alpha (d_i M^\alpha / dt)) \\ &\quad - \sum_{k=1}^2 \mu_k^\alpha (d_i M_k^\alpha / dt) / T \end{aligned} \quad (19)$$

ここで、Euler の式 $\sum_{k=1}^2 \mu_k \rho_k = (h - Ts) \rho$ を用いた。

そこで、

$$\begin{aligned} d_i Q^\alpha / dt + h^\alpha (d_i M^\alpha / dt) &= j_q^\alpha, \\ \{h^\alpha (d_i M^\alpha / dt) = \sum_{k=1}^2 h_k^\alpha (d_i M_k^\alpha / dt)\} & \\ d_i M_k^\alpha / dt &= j_k^\alpha \end{aligned} \quad (20)$$

とおくと、全系のエントロピー生成 P_s は

$$\begin{aligned} P_s &\equiv \sum_{\alpha=1}^{\text{II}} \int V^\alpha \sigma dV^\alpha \\ &= \sum_{\alpha=1}^{\text{II}} (j_q^\alpha / T^\alpha - \sum_{k=1}^2 j_k^\alpha \mu_k^\alpha / T^\alpha \\ &\quad - \sum_{k=1}^2 \mu_k^\alpha J_{j^\alpha} V^\alpha / T^\alpha) \geq 0 \end{aligned} \quad (21)$$

この場合の熱力学力は部分系境界のみに発生するから、

$$\begin{aligned} \Delta(1/T) &= 1/T^\text{I} - 1/T^\text{II} \\ \Delta(\mu_k/T) &= \mu_k^\text{I} / T^\text{I} - \mu_k^\text{II} / T^\text{II} \end{aligned}$$

とおき、(8), (13), (14) 式を用いると、

$$\begin{aligned} P_s &= -j_q^\text{I} \Delta(1/T) + \sum_{k=1}^2 j_k^\text{I} \Delta(\mu_k/T) \\ &\quad - \sum_{k=1}^2 \{(J_j^\text{I} V^\text{I} - J_j^\text{II} V^\text{II}) (\mu_k^\text{I} / T^\text{I}) \\ &\quad + J_j^\text{II} V^\text{II} \Delta(\mu_k/T)\} \geq 0 \end{aligned} \quad (22)$$

いま、

$$\begin{aligned} j_k^\text{I} - J_j^\text{II} V^\text{II} &= j_k^\text{I} \\ J_j^\text{I} V^\text{I} - J_j^\text{II} V^\text{II} &= j_k^\text{II} \quad (k=1, 2) \end{aligned}$$

とおくと、

$$\begin{aligned} P_s &= -j_q^\text{I} \Delta(1/T) + \sum_{k=1}^2 j_k^\text{I} \Delta(\mu_k/T) \\ &\quad - \sum_{k=1}^2 j_k^\text{II} (\mu_k^\text{I} / T^\text{I}) \geq 0 \end{aligned} \quad (23)$$

(23) 式をみると、生成エントロピーは流束と熱力学力の積の形で与えられている。ここで、熱流に関して定常状態が成立している場合を考える。このとき、 T と ΔT は一定であるので、

$$\Delta(1/T) = -\Delta T / T^2 = \text{一定}$$

となる。したがって、系は物質流、 j_k , $j_{k'}$ が消える状態へと非可逆的に変化し、 $\Delta \mu_k$ と j_q は一定となる。すなわち、部分系 I を出た水素は II で相変化により液体になり、I で蒸発した水素は II で液化することを表している。このことは、(23) 式にそれぞれの流束と熱力学力との間の線形関係を代入し、定常状態ではエントロピーの生成が最小になるということと、線形関係の係数に関する Onsager の相反定理を適用すると、

$$j_{k'} = 0, \quad j_{k''} = 0$$

が成立し、導かれる。よって、

$$d_i M_k^\alpha / dt + d_i M_{k'}^\alpha / dt = 0 \quad (24)$$

$$\sum_{\alpha=1}^{\text{II}} d_i M_{k'}^\alpha / dt = 0$$

一方、系に流入するエントロピーは (17) 式より、

$$\begin{aligned} d_e S / dt &= - \sum_{\alpha=1}^{\text{II}} \int V^\alpha J_{ts} d\Omega^\alpha \\ &= \sum_{\alpha=1}^{\text{II}} (1/T^\alpha) (d_e Q^\alpha / dt) \end{aligned} \quad (25)$$

定常状態では、

$$dS / dt = d_e S / dt + d_i S / dt = 0 \quad (26)$$

が成立する。熱流と物質流が独立であるとして、(26) に (25) と (20) を代入すると、

$$\begin{aligned} \sum_{\alpha=1}^{\text{II}} (1/T^\alpha) (d_e Q^\alpha / dt + d_i Q^\alpha / dt \\ + h^\alpha (d_i M^\alpha / dt)) &= 0 \\ \sum_{\alpha=1}^{\text{II}} \left\{ \sum_{k=1}^2 (j_k^\alpha \mu_k^\alpha / T^\alpha + \mu_k^\alpha J_{j^\alpha} V^\alpha / T^\alpha) \right\} &= 0 \end{aligned} \quad (27)$$

が成立する。すなわち、定常状態では部分系に流入した熱流は輸送される熱流と等しいこと、相変化する水素と輸送される水素流は等しいことが導かれる。

3. 熱力学モデルと自己平衡性

緒言にも述べたごとく、密閉熱サイフォン型冷中性子源は、冷減速材槽への熱負荷が変動しても冷減速材槽内の液面が一定に保たれる性質すなわち自己平衡性を有する。

それでは自己平衡性をもつための条件はなにかを考えよう。Fig. 2 (b) に示すように理想的な熱サイフォ

ンの場合、冷減速材輸送管部と部分系、I, II で、

$$\Delta \mu_k = 0, \quad A_j = 0 \quad (\alpha = \text{I, II})$$

が成立する。ここで化学親和力 $A_j = \sum_{k=1}^2 \mu_k$ を導入した。これは圧損がゼロで、相変化が平衡の条件であり、冷減速材槽で蒸発した水素蒸気は無限の速度で凝縮器に輸送され、凝縮器で液化され、液体水素との間に相平衡が成り立つことを意味している。見方をかえれば、輸送管部がない熱サイフォンと見なすことができる。このときの全系のエントロピーの生成は、(22)式から、

$$P_s = -j_q^I \Delta(1/T) \geq 0 \quad (28)$$

で与えられる。もし系にこのエントロピーの生成を補償する外部エントロピーの流入があれば、すなわち冷減速材槽からの流入熱量が増加したとき凝縮器への冷凍機からの冷熱流入が増加すれば補償されることになる。この方法は、外部制御を行って冷減速材槽の温度と液面を一定に保つ方法であり、水素低温系が自己平衡性をもっているのとは異なる。しかし、この場合は熱負荷の増加があっても冷減速材輸送管部が理想的な系の条件を満たしていれば冷減速材槽の温度と液面を一定に保つことができ、(27)式の条件が満たされるように外部からの冷熱の流入を制御すればよい。他の形式は、冷減速材槽の温度は少し上昇しても液量は一定に保つ方策を表している。この場合(16)式は成立している、すなわち全系において熱量が保存されているとき、部分系 I (冷減速材槽) でエントロピーが増加しても II (凝縮器) で減少すればよい。したがって、

$$\delta_i S = \{(\partial_i S^I / \partial t) + (\delta_i S^I / \delta t)\} \delta t \geq 0 \quad (29)$$

$$\partial_i S^I / \partial t > 0, \quad \delta_i S^I / \delta t < 0 \quad (30)$$

が満たされることである。I で液体水素が蒸発すれば、I のエントロピーは増加する。II で液化量が増えれば、II でエントロピーは減少する。I と II を結合しているのは潜熱であり、II で I からの流入熱量が増加したとき、II での液化潜熱が I での蒸発潜熱に比べ小さくなれば液化量が増え、輸送管が無視される系では無限の速度で I に輸送されるので、I の液量は補償されたことになる。実際密閉系においては、蒸発により系の圧力が増加すれば沸点が上昇し、水素の潜熱が小さくなるので、この条件が満たされ、自己平衡性をもつことになる。また凝縮器の液化能力も、系の温度が上昇すれば冷凍機の冷凍能力の増加に比例して増加するので、II から流出する冷熱の量が増え、これからの寄与もある。しかし、これは(29)、(30)式を満たす過程、すなわち一方の部分系でのエントロピー

一生成を他の部分系で完全に補償するいわゆる負のエントロピー生成が生じたということではない。時間微分を $\cdot$ で表し、I での $\dot{Q}_i^I$ の増加量を $\delta \dot{Q}_i^I$ 、II での凝縮器の液化能力の増加による $\dot{Q}_i^I$ の増加量を $\delta \dot{Q}_i^I$ 、水素の潜熱の減少量を δh^I 、温度の上昇を δT とし、(28)式すなわち(21)式の第1項に代入してみると、

$$\begin{aligned} & (\delta \dot{Q}_i^I + \delta h^I \dot{M}_2^I) / (T^I + \delta T) \\ & \geq \delta \dot{Q}_i^I / (T^I + \delta T) \end{aligned} \quad (31)$$

が成立するとき、(28)式のエントロピーの生成の一部が補償され、自己平衡性が現れることがわかる。これは、“潜熱という共通のもので熱力学的に結ばれた二つの部分系において、I で秩序破壊的な現象が起こったとき II で秩序形成的なことが補償的な変化として起こる”⁸⁾ 一つの例と見なすことができ、自己平衡性は潜熱を媒介として液化という、エントロピーが一見減少する過程が系の温度上昇というエントロピー増大過程のもとで現れた性質と見ることができる。

4. 結 言

密閉熱サイフォン型冷中性子源を、非連続熱力学モデルを用いて非平衡熱力学により解析した。その結果、密閉熱サイフォン型冷中性子源の優れた特性である自己平衡性の条件ならびに熱力学的意味をエントロピーの生成から導くことができた。自己平衡性とは熱力学的に見たとき、潜熱という共通の量で熱力学的に結ばれた二つの部分系において、I の部分系で秩序破壊的な現象すなわち蒸発が起こったとき、II で秩序形成的な液化が系の温度上昇というエントロピー増大過程のもとで補償的な変化として起こった結果であると位置づけることができた。

参 考 文 献

- 1) P. Ageron and J. M. Astruc: Bull. Inform. Sci. Tech. 166 (1972) 17
- 2) 河合 武, 杉本正明, 岡本 朴: 低温工学 15 (1980) 339
- 3) T. Kawai, et al.: Ann. Rep. Res. Reactor Inst. Kyoto Univ. 13 (1980) 105
- 4) T. Kawai, et al.: Proc. Int. Conf. on Neutron Physics, Kiev, USSR (1987) to be published
- 5) M. Utsuro, et al.: Proc. Symp. ICNS '88, Grenoble, July 12-15 (1988)
- 6) T. Ebisawa, et al.: Ann. Rep. Res. Reactor Inst. Kyoto Univ. 21 (1988) 1
- 7) S. R. de Groot and P. Mazur: *Non-Equilibrium Thermodynamics*, North-Holland Publ., Co., Amsterdam (1963)
- 8) 高山光男: 物性研究 42 (1984) 145