



プレス発表資料

燃料デブリ等保管時の水素安全技術のさらなる向上に目処

国立大学法人長岡技術科学大学
学校法人関西学院大学
国立大学法人宇都宮大学
ダイハツ工業株式会社
アドバンエンジン株式会社
国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

令和元年7月22日（月）

関西学院大学丸の内東京オフィス

研究の経緯

東京電力ホールディングス（株）福島第一原子力発電所（1F）の廃炉
燃料デブリの取り出しは2021年末までに開始



燃料デブリ等の貯蔵・保管では水の放射線分解によって
保管容器内に可燃性ガス（水素）が発生



水素による燃焼・爆発に対する予防策の導入が必要

研究目的及び目標

燃料デブリ等保管容器の長期に亘る水素安全の確保と水素安全技術のさらなる向上のため、保管容器内に蓄積される水素の濃度を低減する技術の開発



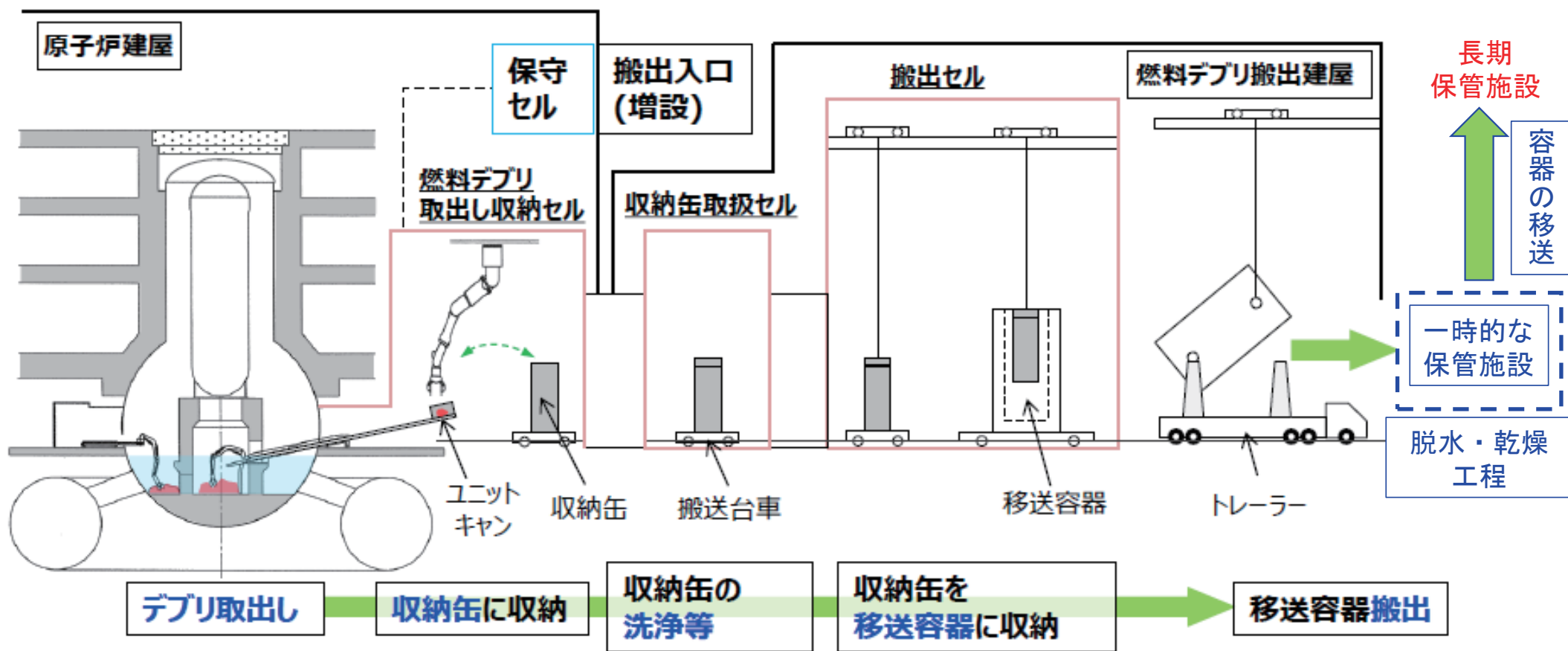
水素濃度を爆発下限界である4%未満まで低減・維持

さらには爆発下限界の半分である2%未満を目標

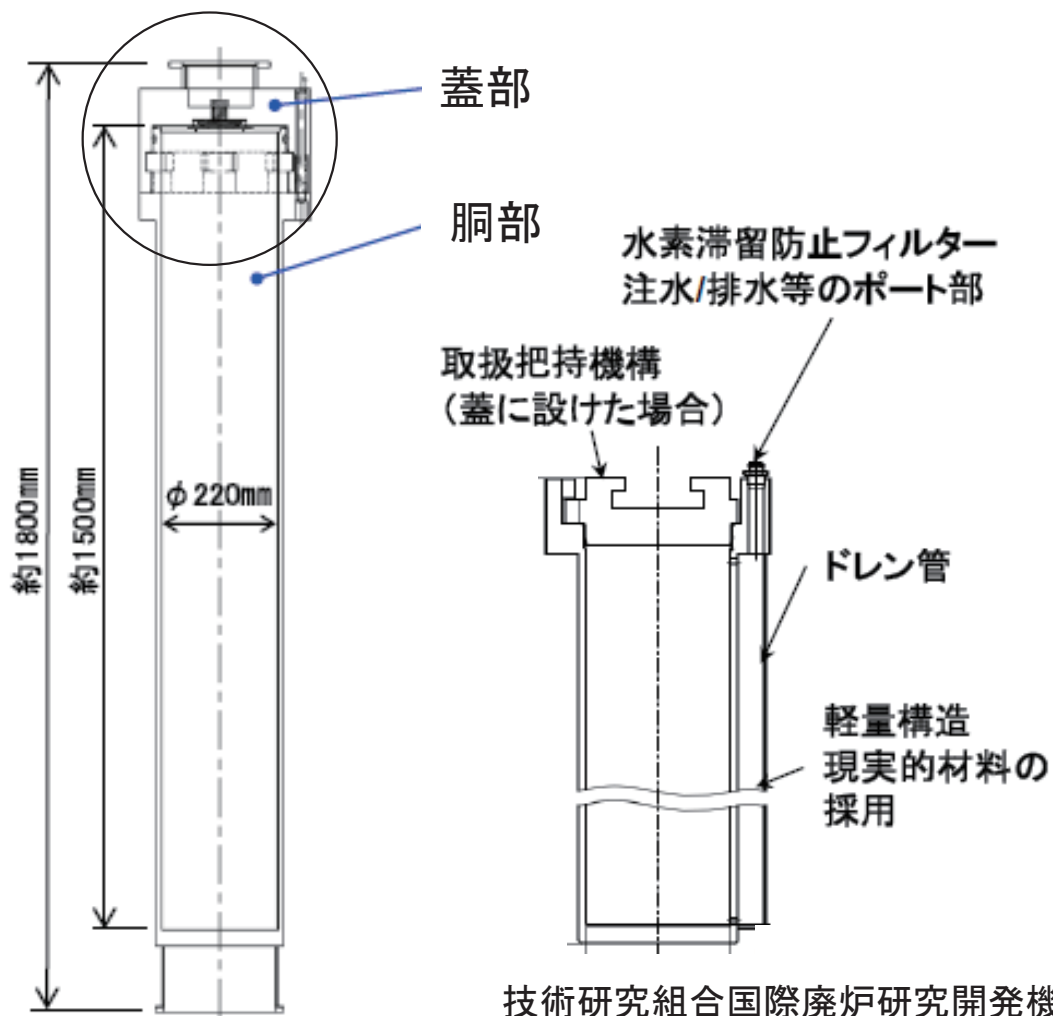
本発表内容の一部は、文部科学省国家課題対応型研究開発推進事業「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」廃炉加速化研究プログラム（国内研究）「廃棄物長期保管容器内に発生する可燃性ガスの濃度低減技術に関する研究開発」（研究代表：長岡技術科学大学教授 高瀬和之）で行われたものです。

燃料デブリの取り出し：気中一横アクセス工法の例

技術研究組 国際廃炉研究開発機構（IRID）シンポジウム2017 in いわき
「燃料デブリの取出し」奥住氏発表原稿からの抜粋



燃料デブリ収納缶と予測される水素発生量



燃料デブリ収納缶の構造

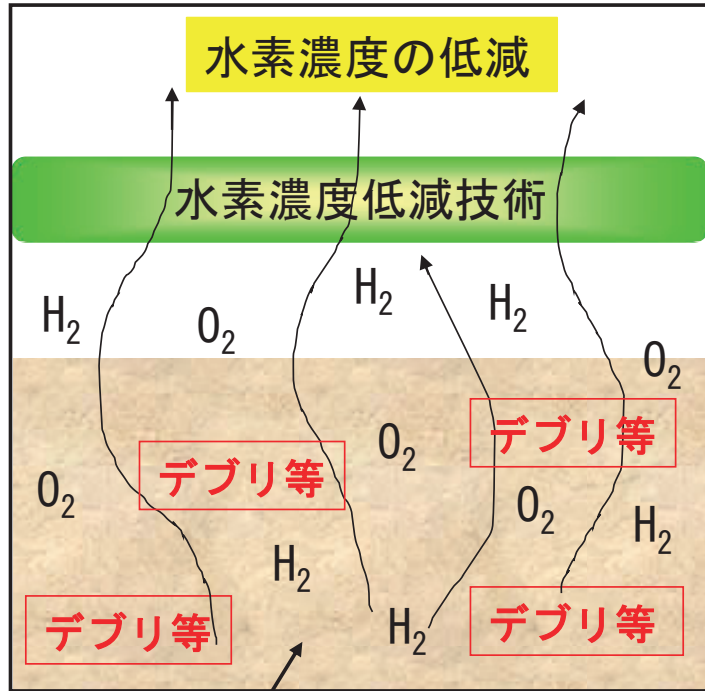
IRID報告書では、模擬燃料デブリの水切り予備試験において水切りしても模擬燃料デブリ体積の10~50%にあたる水分が残留していることが報告されている

推測される水素発生量

- ・ ワーストケースは**毎分約10ml**
- ・ さらに保守的に考えた場合は**毎分~25ml**

技術研究組合国際廃炉研究開発機構 (IRID) 平成28年度補助予算「廃炉・汚染水対策事業費補助金 (燃料デブリ収納・移送保管技術の開発)」平成30年度実施分最終報告、令和元年6月3から抜粋

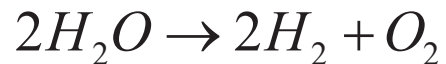
水素濃度を低減する技術の考え方



保管容器内の水分を含んだ燃料デブリ等

放射線による水分解によって

水素と酸素が発生

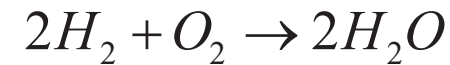


水素濃度低減技術への要求項目

- 燃料デブリ等保管容器に導入可能
- コンパクトな装置
- 無電力で動作
- 受動的に稼働



- 水素再結合触媒による水素濃度低減



- 水素の密度が低いことを利用した受動的な触媒反応の促進が期待

燃料デブリ等保管時の水素安全技術

①水素濃度低減を実現

➡ 高性能な水素再結合触媒（PAR）の開発

・ 2種類のPARとその性能評価

（関西学院大学、ダイハツ工業、原子力機構、アドバンエンジ、長岡技術科学大学）

②PARによる水素処理技術を確立

➡ 模擬容器を用いた実験によるPAR有効性確認と支配因子抽出

（長岡技術科学大学、原子力機構）

③保管容器内水素挙動の定量評価を可能

➡ 解析モデルの構築とシミュレーション手法の開発・整備

（原子力機構、宇都宮大学、長岡技術科学大学）

研究開発の実施体制

- 学、産、官の6機関で協力
- 文部科学省 「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」の一環として実施

長岡技術科学大学

高瀬和之（全体統括、水素実験）

末松久幸（アルミナ製球状触媒性能分析）

関西学院大学

田中裕久（セラミック製ハニカム型触媒性能評価）

宇都宮大学

杉山 均（水素自然対流モデル開発）

産

学

官

ダイハツ工業（株）

谷口昌司（セラミック製ハニカム型触媒開発）

アドバンエンジ（株）

工藤 勇（アルミナ製球状触媒開発）

日本原子力研究開発機構

日野竜太郎（シミュレーション研究統括）

寺田敦彦（シミュレーション手法構築）

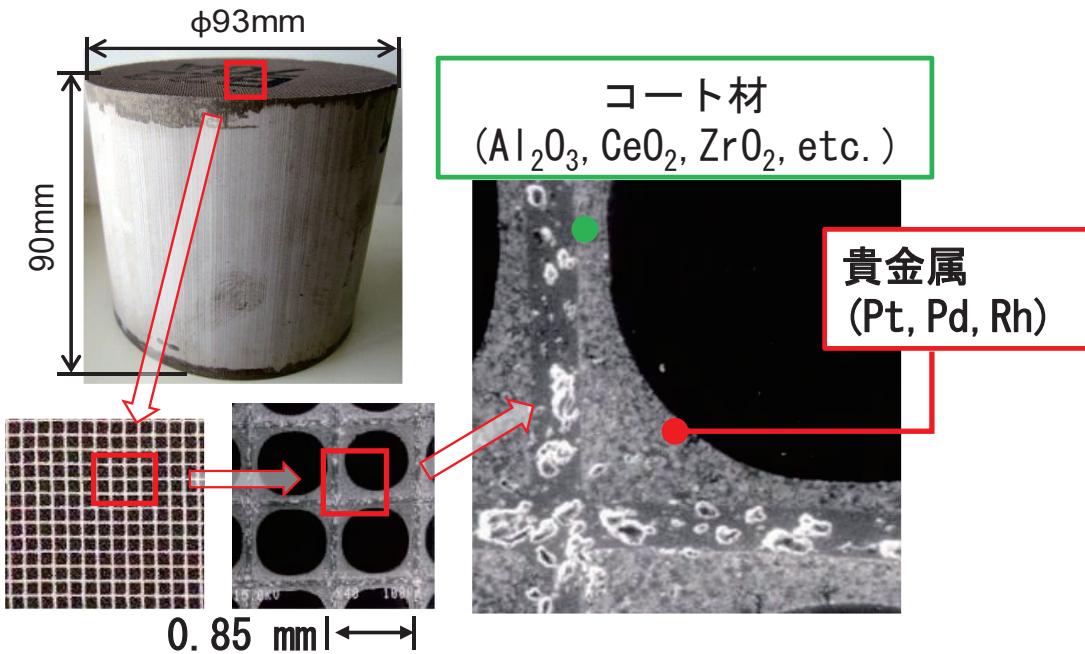
西畑保雄（触媒反応モデル開発）

松村大樹（Spring-8による触媒構造解析評価）

2種類のPARを開発

セラミック製ハニカム型PAR

- ・自動車触媒として豊富な実績
- ・多くのノウハウを蓄積
- ・触媒信頼性が高い
- ・軽量、コンパクト化が可能



セラミック製ハニカム型PARの例

アルミナ製球状PAR

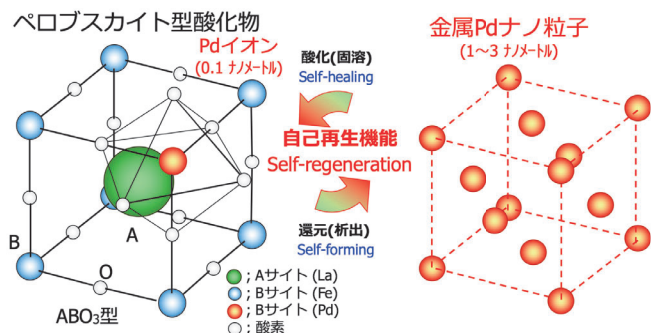
- ・大量合成が可能
- ・安価で製造が容易
- ・強度が高い
- ・取り扱いが容易
- ・任意のサイズを製造可能
- ・水素発生量に応じた対応が可能



プラチナを担持させたアルミナ微粒子を母材表面に付着させた球状PARの外観

アルミナ製球状PARの例

自動車触媒を応用した 八二カム型水素安全触媒



インテリジェント触媒



国立研究開発法人
日本原子力研究開発機構

Light you up



関西学院大学
KWANSEI GAKUIN UNIVERSITY

SPring-8 (大型放射光施設)



自動車触媒開発のパートナーシップ (2000年~)

自動車触媒を応用した ハニカム型水素安全触媒の特徴

求められる性能

- ・ 密閉容器の中に取り付けやすく、入れておくだけで安全

自動車触媒の特徴

- ・ 化学工場の触媒と違い、あらゆる環境で働くよう設計
- ・ 軽く・通気抵抗が小さく・耐久性に優れ・量産性良好

ハニカム型水素安全触媒の特徴

- ・ 燃料デブリ等の保管容器内で発生する水素を安全な濃度(4%未満)に保つ
- ・ 高活性で、様々な環境で性能発揮（マイナス20℃から水素濃度を低減可能）
 - ・ 外部からの電力供給が不要
- ・ セラミックス・ハニカムに塗布されているため、軽量で取扱いが容易
- ・ コンパクトで、保管容器にほとんど改造を加えることなく取り付け可能
 - ・ 貴金属使用量が極めて少ない
 - ・ 量産が可能で、実用性が高い

触媒試作は、株式会社キャタラーと日本ガイシ株式会社の協力を得ました

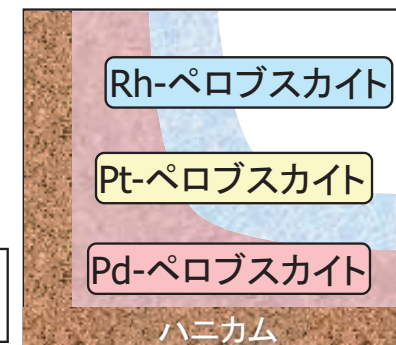
自動車触媒の可能性事前調査 (5種比較)

No.	触媒	リップ/セル※	貴金属
A	インテリジエント A	2.5/900	Pt/Rh/Pd
B	インテリジエント B	2.5/900	Pt/Rh/Pd
C	自動車触媒 C	2.5/900	Pt/Rh/Pd
D	自動車触媒 D	4/600	Pt/Rh
E	自動車触媒 E	3/600	Pt/Rh/Pd

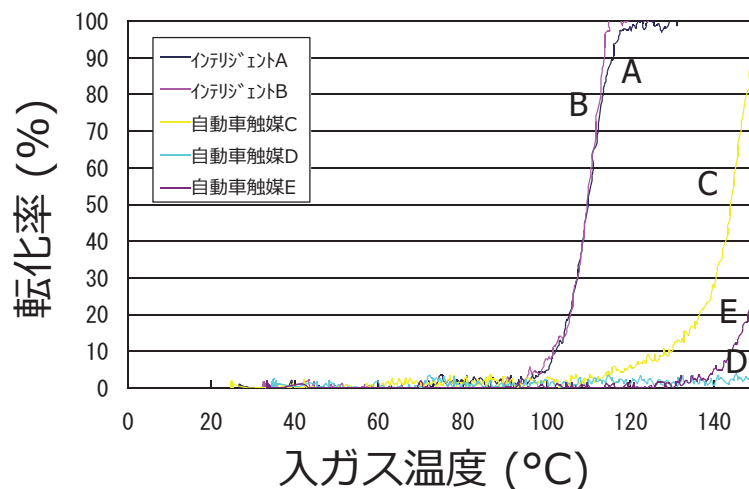
活性評価: 昇温試験 (20 °C/分)
 触媒: 直径 19 mm× 高さ 15 mm
 ガス: (2%水素+2%酸素) / 窒素
 加湿: 4%
 流速: 2.5 ℓ/分
 前処理: 2%水素 800 °C, 1時間

※ リップ(壁厚み) mil = 1/1000 インチ
 セル密度 / インチ²

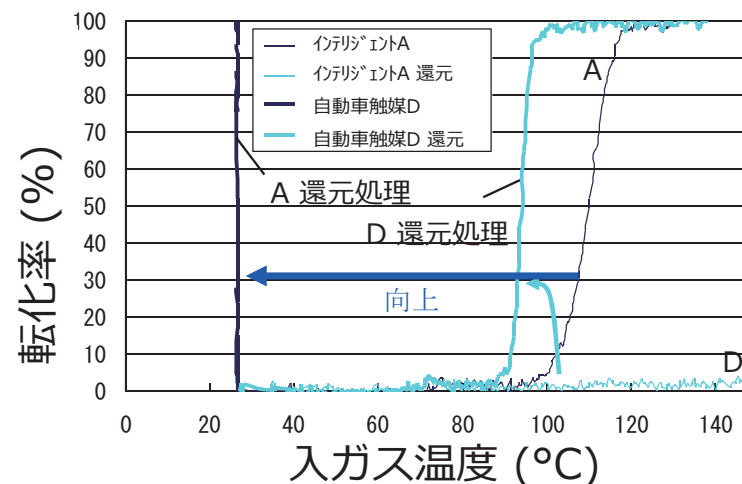
インテリジエント触媒A



(1) 初期の活性(未処理)



(2) 還元処理後の活性

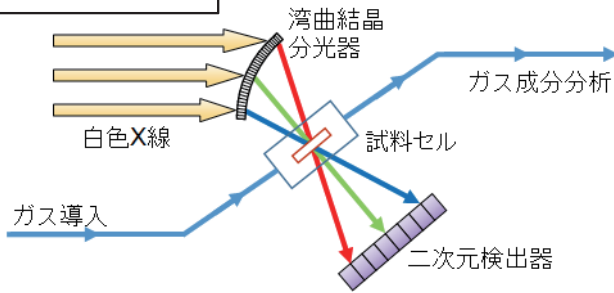


- 水素再結合の開始温度は触媒設計によって変化可能
- 還元処理によってインテリジエント触媒Aは室温から水素の酸化が可能

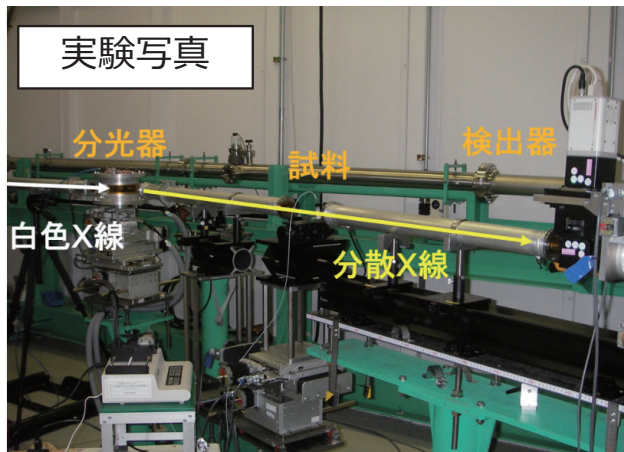
放射光実験@SPring-8

SPring-8にて反応メカニズムを解析することにより開発を加速

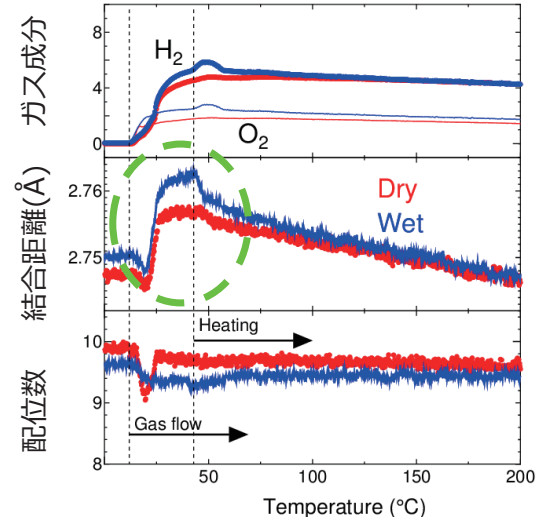
実験概略図



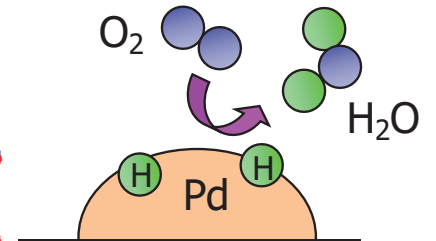
実験写真



実験結果

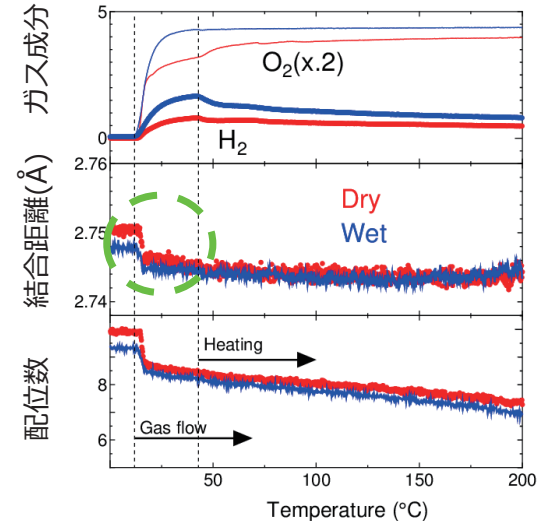


水素過剰条件

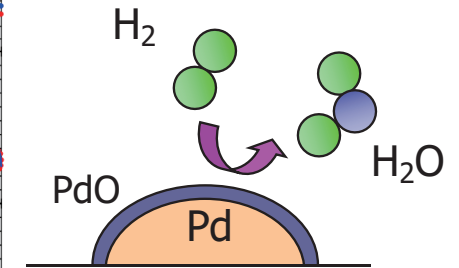


Al_2O_3

部分水素化反応



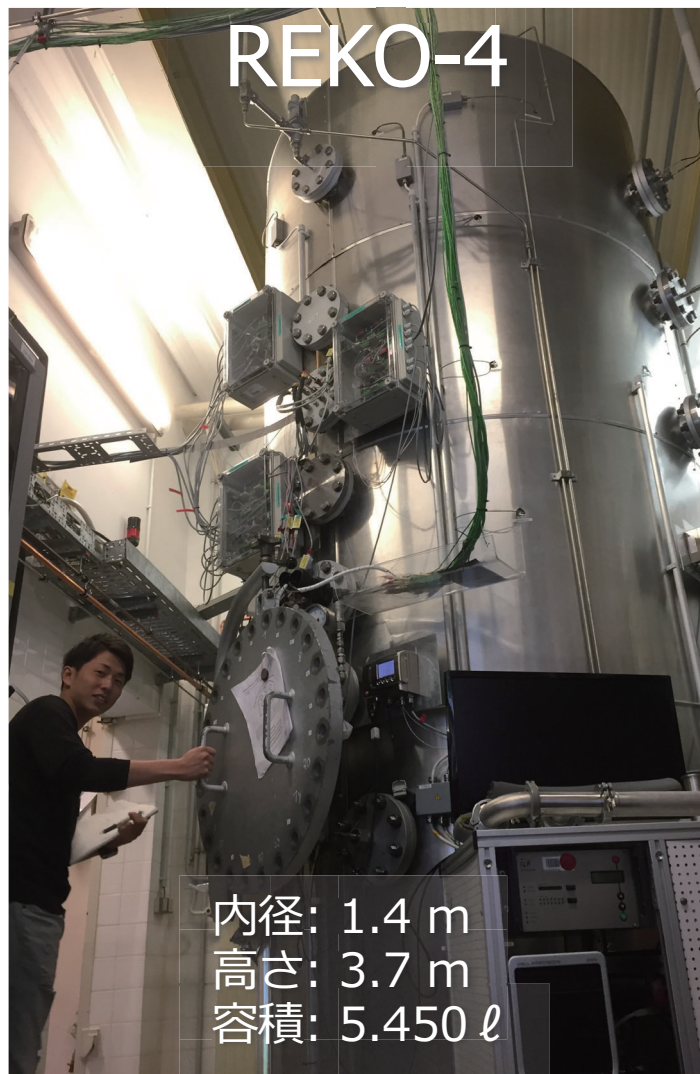
酸素過剰条件



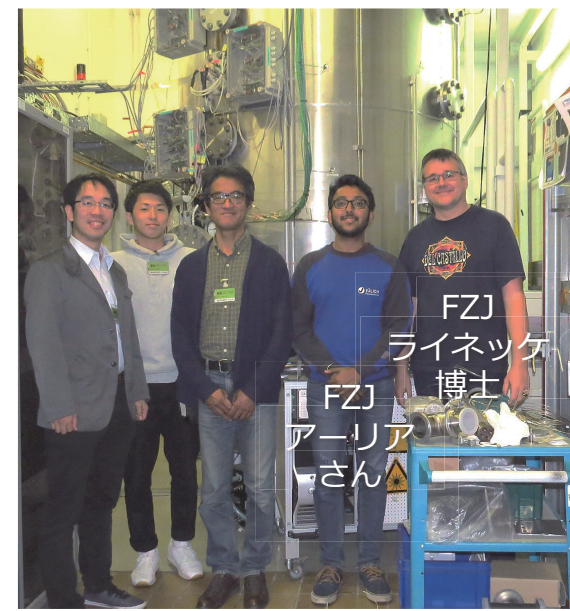
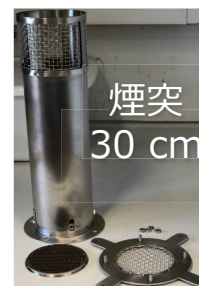
Al_2O_3

表面酸化膜反応

貴金属表面が還元されやすい材料では、湿度環境でも活性の低下は起こりにくい
という材料開発に対して重要な知見を得た



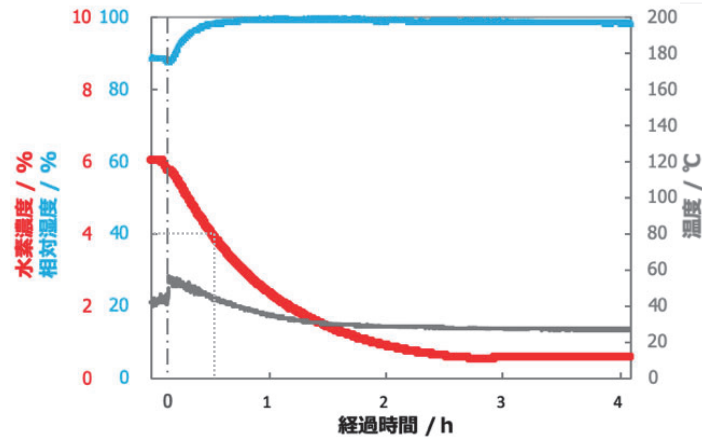
触媒改良の効果は、ドイツ・ユーリッヒ研究所 (Forschungszentrum Juelich GmbH) の大スケール反応装置にて実証した。



触媒改良の効果確認

静置試験

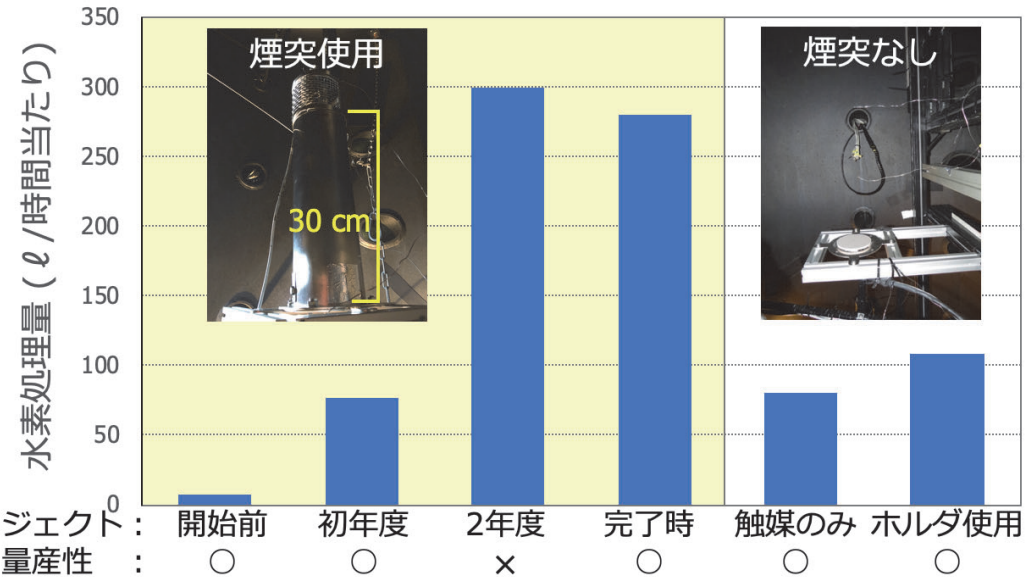
水素濃度6%に充填後
バルブを閉じて静置



触媒：直径 93 × 厚み 5 mm
煙突：使用30 cm

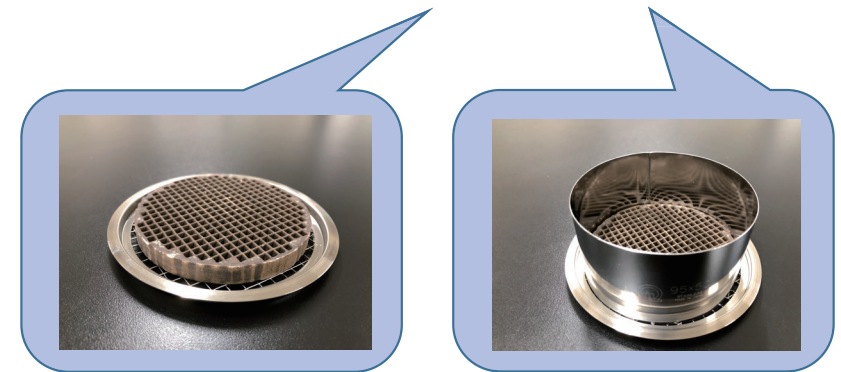
定常試験

水素濃度6%を維持した時の処理量



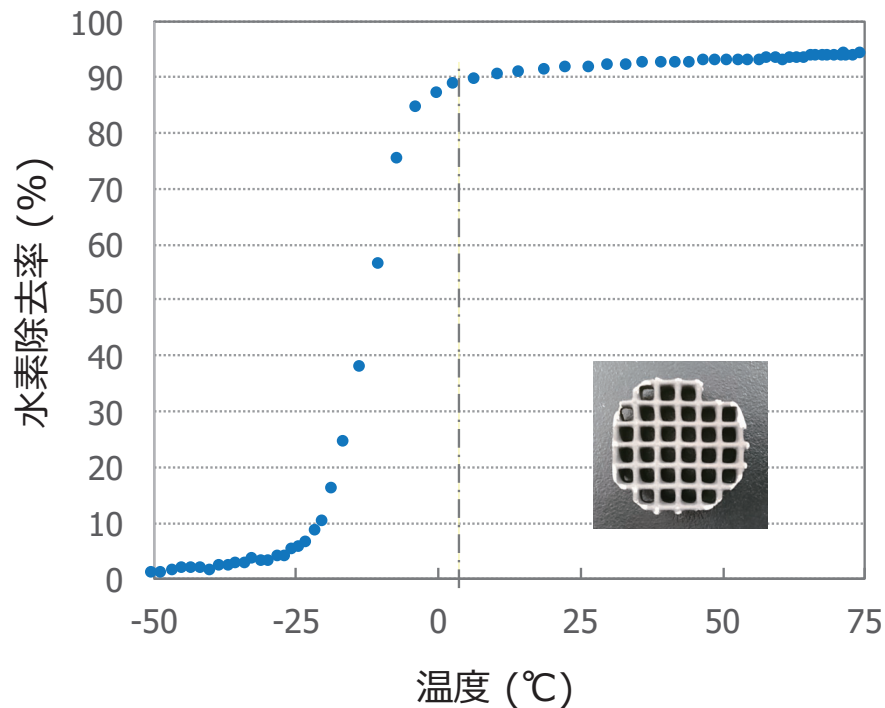
- ・ハニカム構造最適化により大幅に性能向上
- ・煙突廃止により省スペース・取付容易

触媒試作協力：株式会社キャタラー、日本ガイシ株式会社

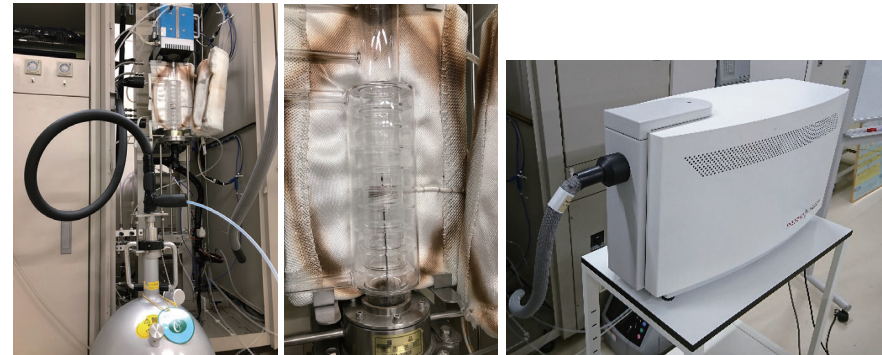


低温反応試験

どのくらい低温から触媒が働くかを測定



液体窒素冷却・低温触媒活性評価装置
(装置改造協力：熱電工業株式会社)



触媒：インテリジェント触媒(白金・パラジウム・ロジウム)
触媒サイズ：直径 29.4 mm x 厚み 10 mm (体積 6.8 cc)
セル密度：30 セル / 平方インチ
ガス流量：4.0 ℓ / 分 (空間速度：35,300 / 時)
ガス組成：H₂ : O₂ = 4% : 10%, N₂ balance
温度調整：液体窒素にてマイナス60 °Cに冷却後、放置

- ・ マイナス20 °C付近から水素を除去できることが観察された

触媒活性のデモ実験

触媒活性のデモ実験



← 冷凍庫に3分冷やしています。3回実験可能です。

球状PARを新たに開発

開発目的：水素処理能力の制御が容易で効率的な利用が可能なPAR

特徴

- ・ 化学的に安定で高強度なアルミナ母材を使用
- ・ 容器への投入（ハンドリング）が容易
- ・ 常温から高い触媒活性
- ・ 湿潤状態でも良好な触媒活性
- ・ 任意のサイズで製造可能
- ・ 照射に対して安定

仕様

- ・ 母材：アルミナ
- ・ 貴金属担持量：プラチナ(Pt) ~1wt%可変
- ・ 比表面積：約120m²/g
- ・ 圧縮強度：3MPa以上
- ・ サイズ：母材のアルミナ球に依存

容器寸法 (φ350mm × 2,000mm)



開発した球状PARの製造法は特許申請済み

特開2019-037936「水素結合触媒」(2019. 3. 14)
アドバンエンジニアリング・長岡技術科学大学



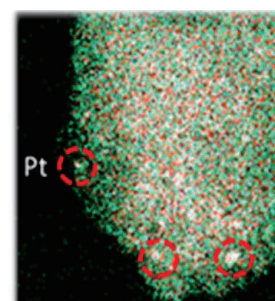
開発した球状PAR: 直径20mm



直径10mm



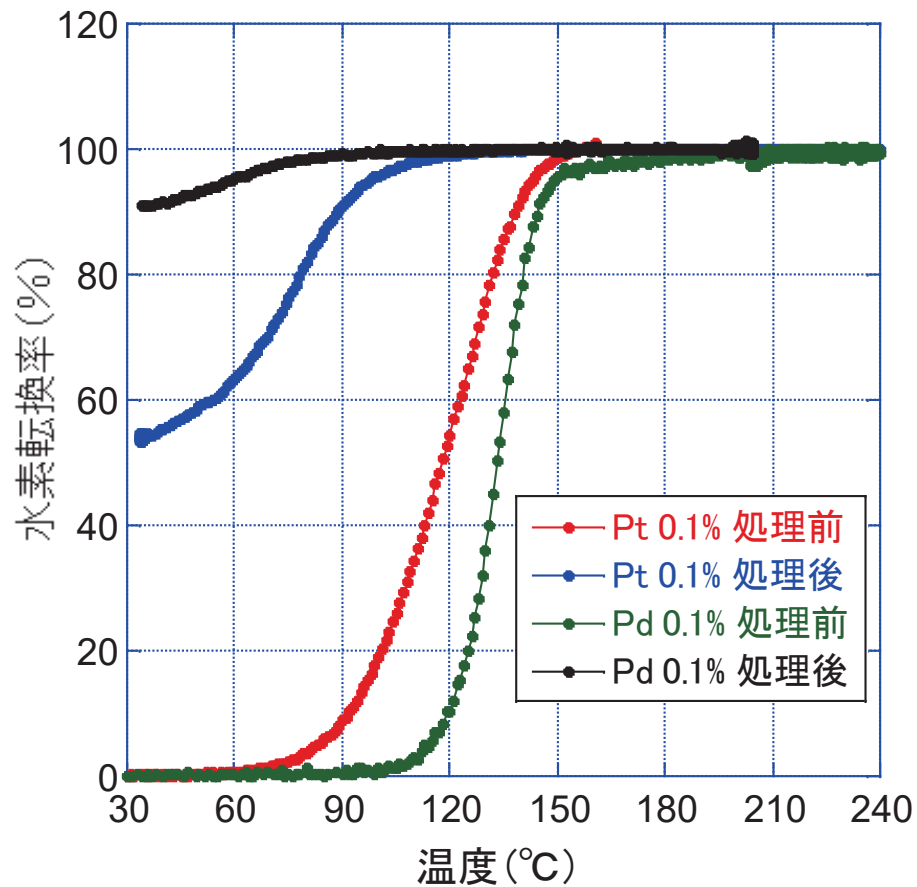
直径5mm



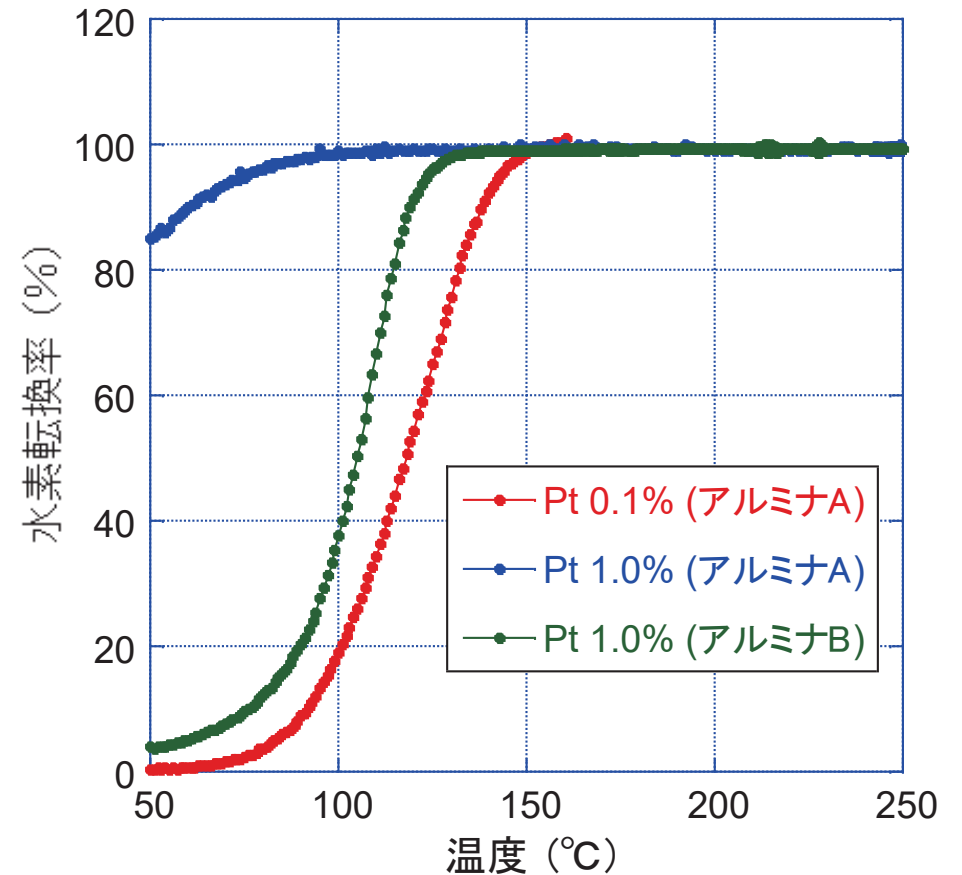
担持したプラチナ貴金属

実機保管容器サイズで開発した球状PARの水素処理性能を確認

アルミナ製球状PARの性能評価



水素雰囲気触媒表面を還元した後（処理後）は処理前に比べて低温から高い触媒活性を示すことを確認



プラチナ (Pt) 担持量に依存して低温から高い触媒活性を示すことを確認

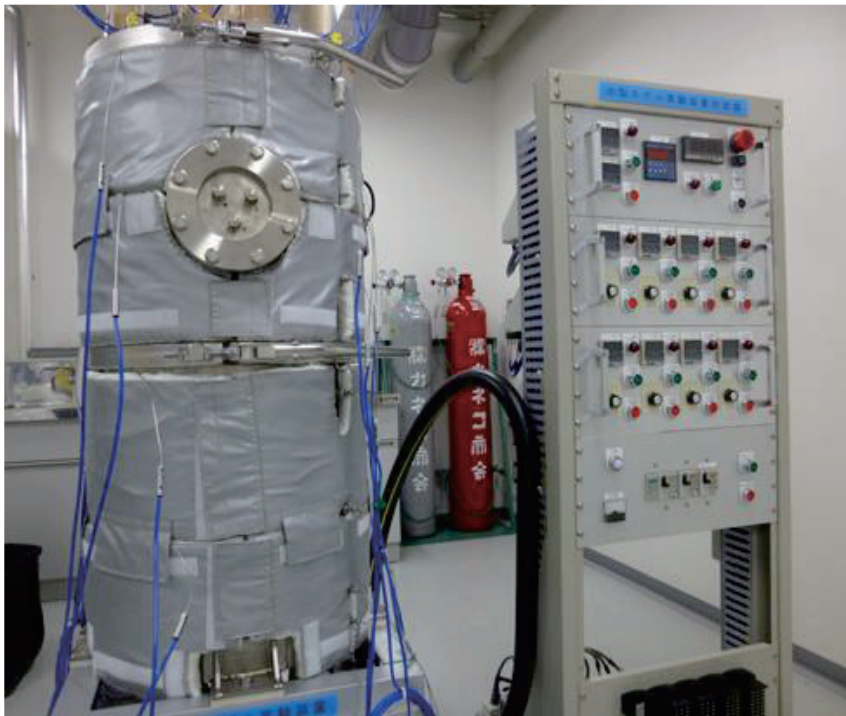
模擬容器を用いた実験によるPAR有効性確認

目的

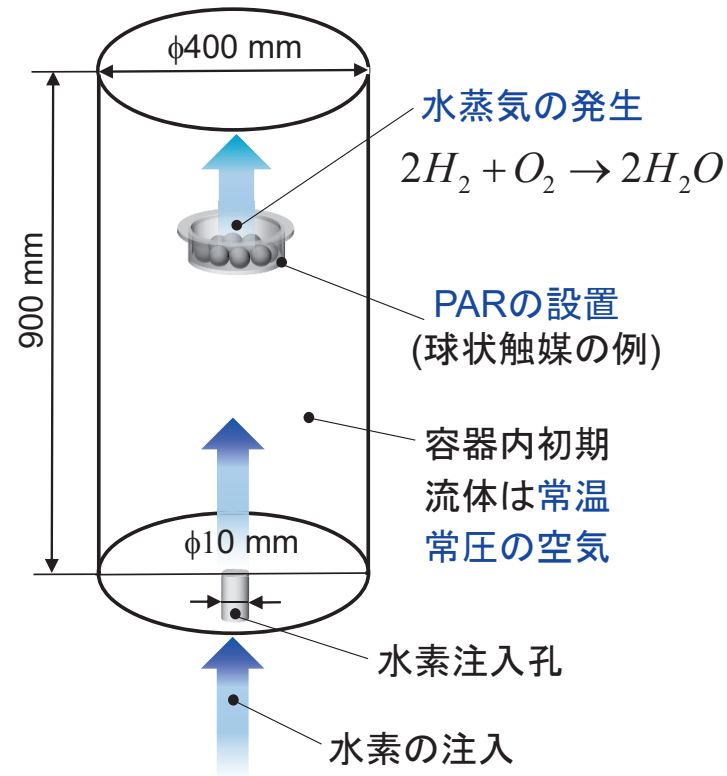
実機保管容器を簡略模擬した条件でPARによる水素濃度低減効果を確認し、PARによる水素処理技術を確立する

仕様：直径400mmで高さ900mmの円筒容器、崩壊熱を模擬するヒータを内蔵、容器側壁温度条件を設定するヒータ

計測項目：水素濃度、相対湿度、水素注入量、容器内温度など



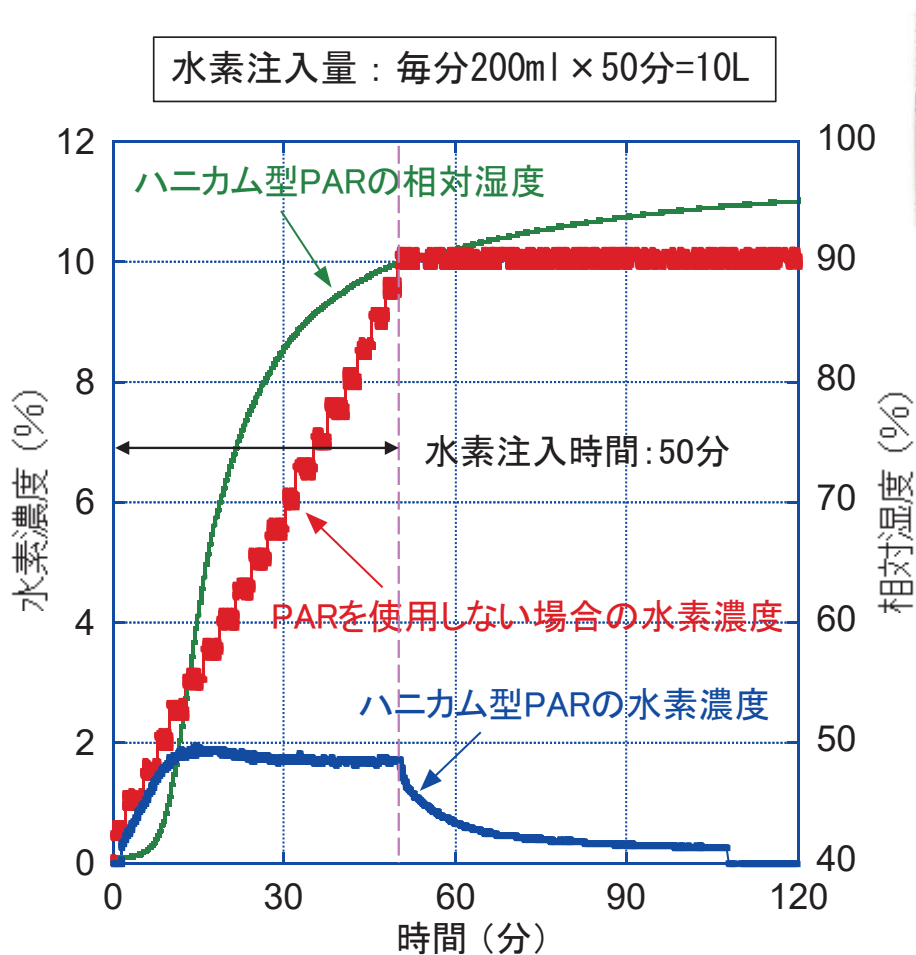
模擬容器と制御盤の外観



PARによる水素処理技術の確立するには、PAR性能に影響する支配因子を明らかにすることが必要

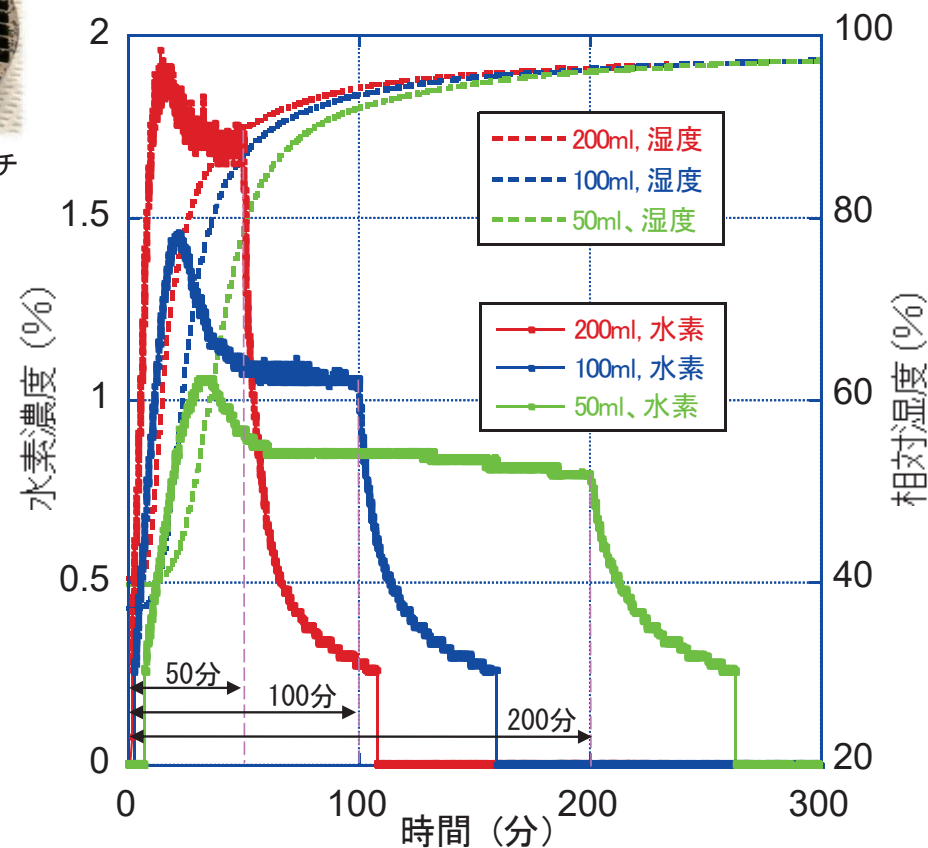
- ・ PAR数量
- ・ PAR設置位置
- ・ PAR設置数
- ・ PAR性能
- ・ PAR耐水性
- ・ 水素発生量
- ・ 温度（崩壊熱量）
- ・ 湿度
- ・ デブリ等蓄積量
- ・ 容器構造仕様

PAR付き保管容器内の水素濃度を計測



30セル/平方インチ
直径 70 mm
厚さ 10 mm

ハニカム型触媒：水素注入量を50~200ml/分に変化

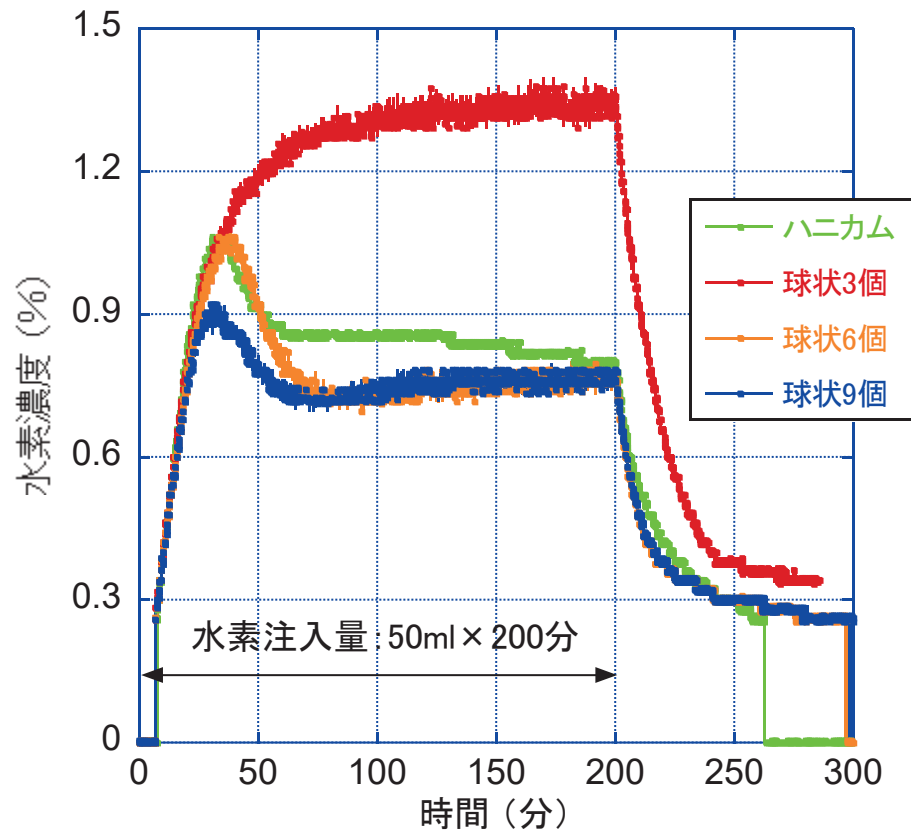


PARによる水素濃度の低減を定量的に確認

過大な水素発生時でも水素濃度を低減可能

球状PARとハニカム型PARの比較

球状触媒+ハニカム型触媒：水素注入量50ml/分×200分



球状PARの仕様

- ・直径：20mm
- ・Pt担持量：1重量%



球状PAR：3個

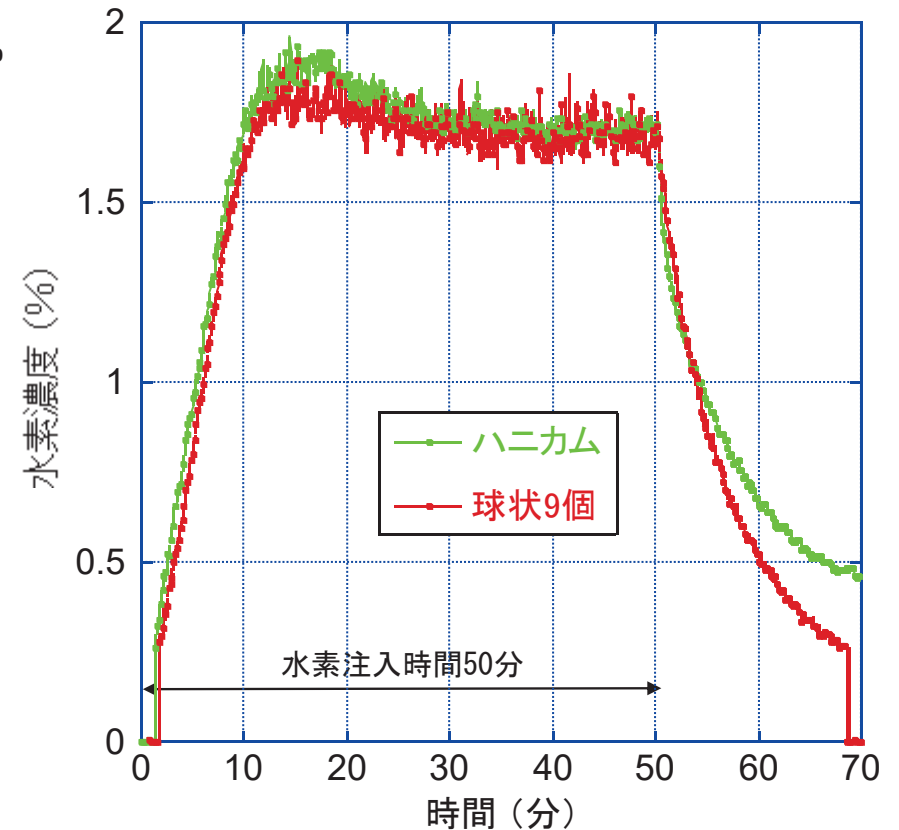


球状PAR：6個



球状PAR：9個

球状触媒+ハニカム型触媒：水素注入量200ml/分×50分



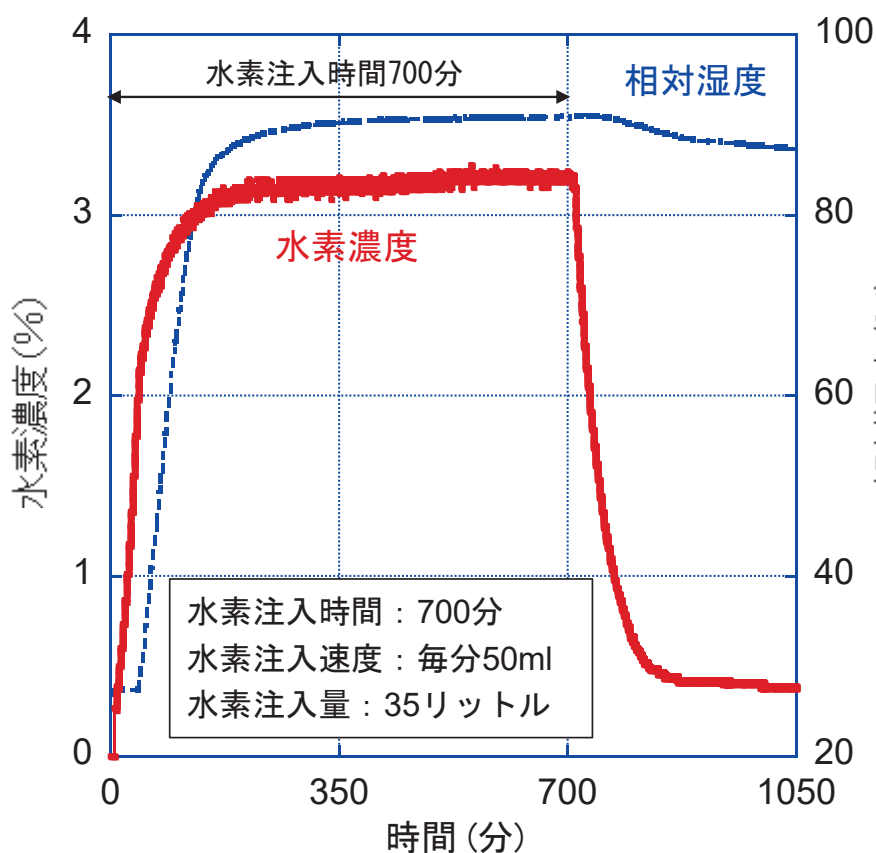
球状触媒の個数で水素濃度の低減を制御可能

過大な水素発生量条件では9個程度でハニカム型と同等性能

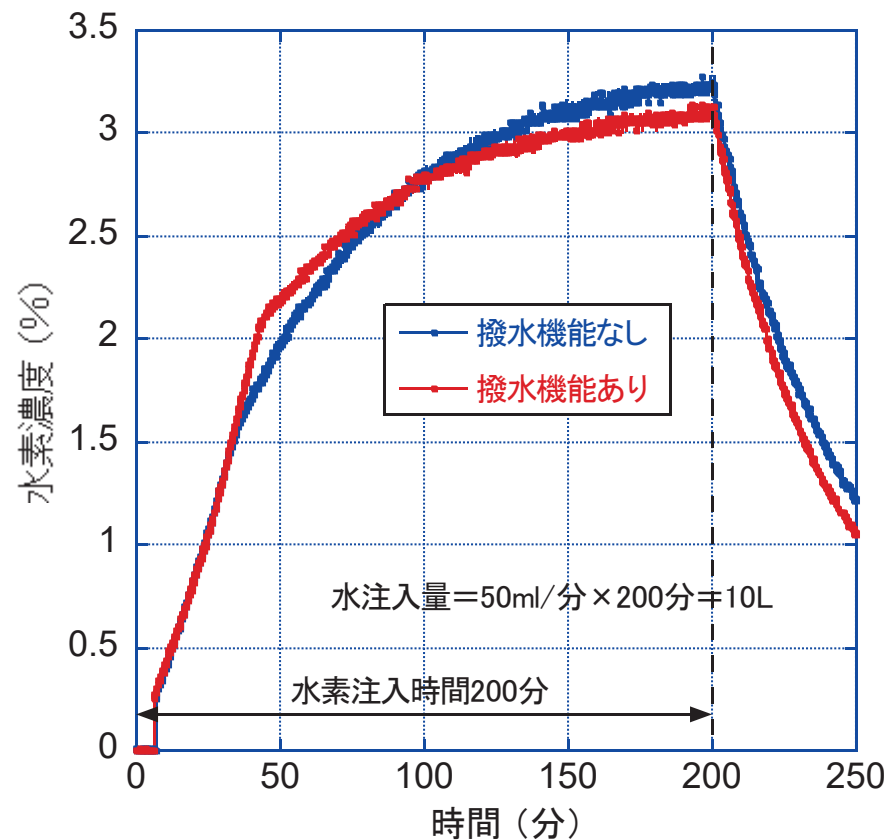
PARを使って水素濃度を爆発下限界（4%）の半分以下にまで低減できることを確認

1個の球状PARの水素処理性能

直径20mm、プラチナ担持量が1重量%の球状PARが1個の条件



球状PAR : 1個



球状PAR1個でも水素濃度4%未満の達成に目処

撥水機能ありの条件では10分間ほど水につけた後に実験を開始
球状PARに撥水機能を持たせることにより耐水性に目処

シミュレーション手法の開発

目的

- ・ PARによる化学反応に伴って発生する水素挙動のメカニズムを解明
- ・ PAR付き保管容器内の水素挙動を再現できる解析ツールを整備



実機保管容器の構造仕様の設計検討等に反映

達成するための手段

・ 水素が容器内を流動する挙動

密度差に起因して容器内に拡散する水素挙動を予測 → 密度差加速型自然対流モデルを開発

容器内の温度差に起因して対流する水素挙動を予測 → 温度差加速型自然対流モデルを開発

・ PARによって水素と酸素から水が生成される化学反応挙動

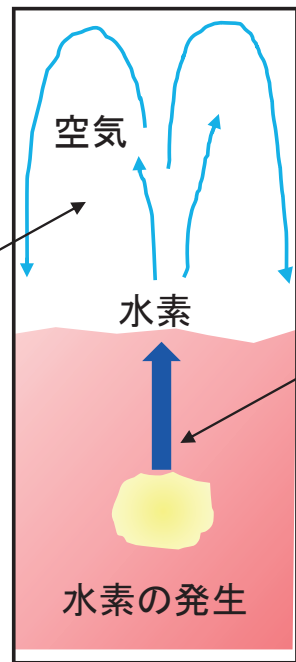
水素と酸素の再結合反応を予測 → 触媒反応モデルを開発

開発した自然対流モデルによる予測評価

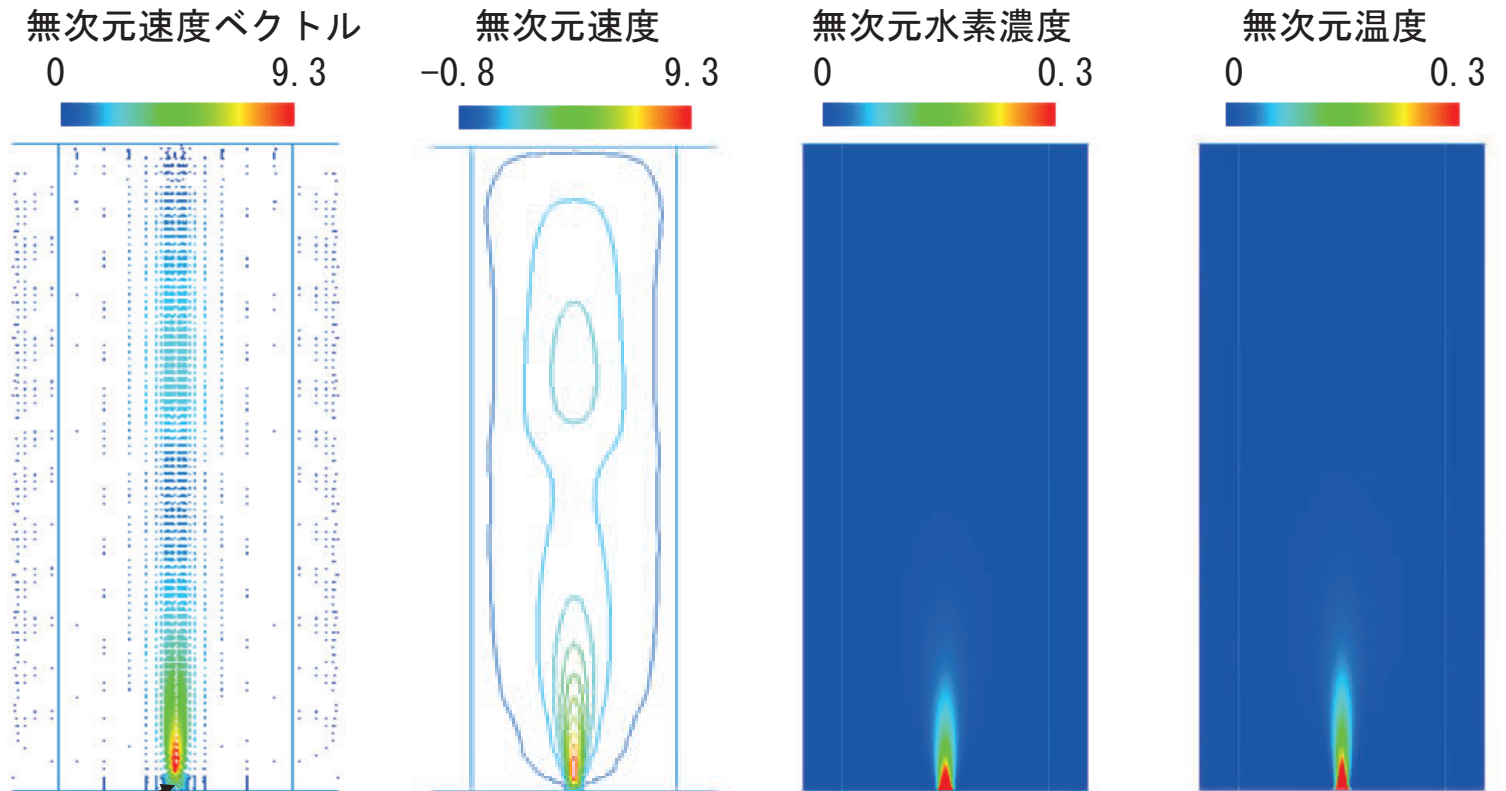
保管容器内の流れは、**温度差によって加速される自然対流** と **密度差によって加速される自然対流** が共存

開発した2つのモデルを用いて保管容器内水素挙動を予測

空気との密度差の影響

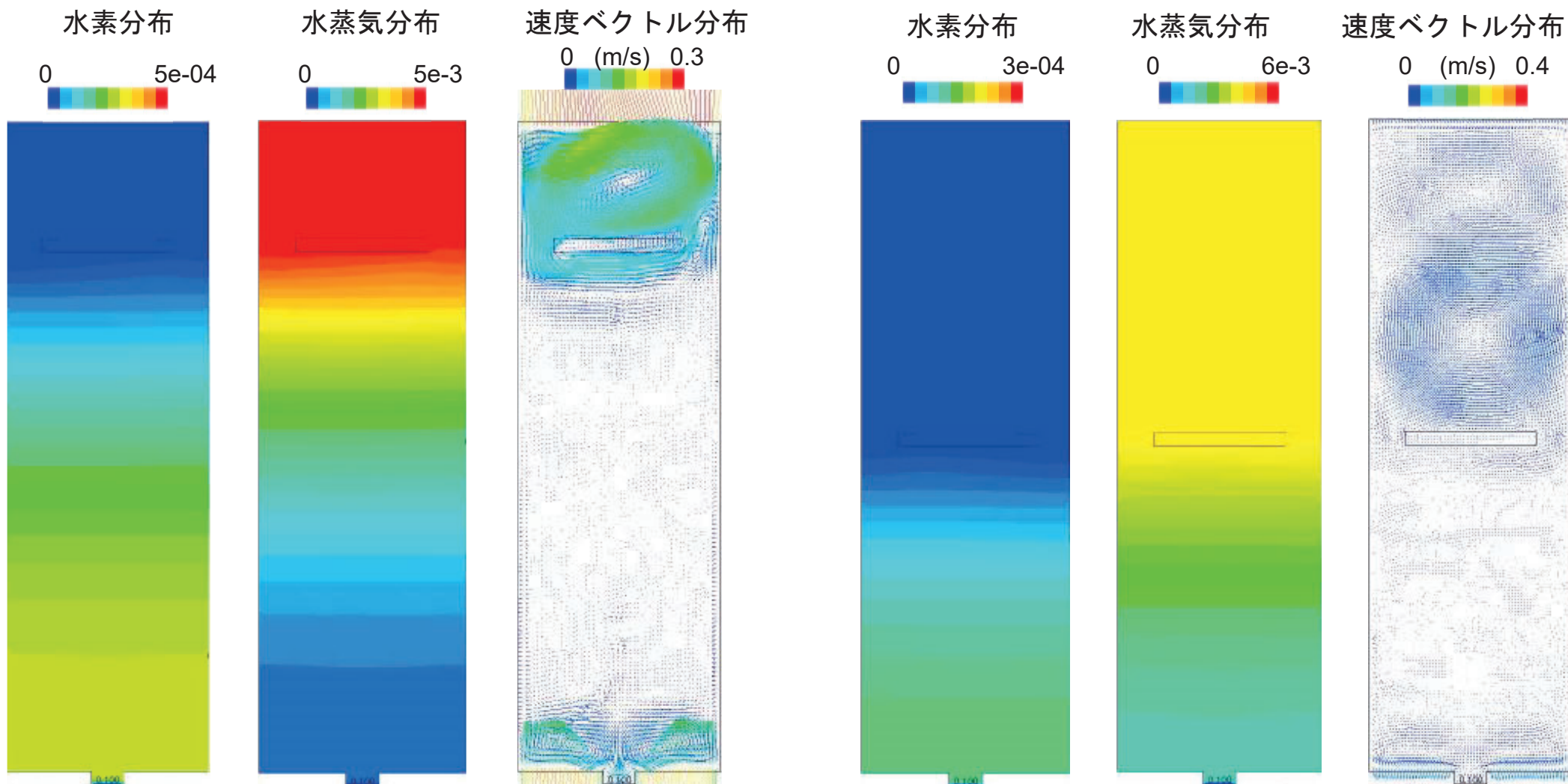


温度による密度変化の影響



水素を底部から注入した実験条件を模擬

模擬容器内の水素挙動のシミュレーション結果



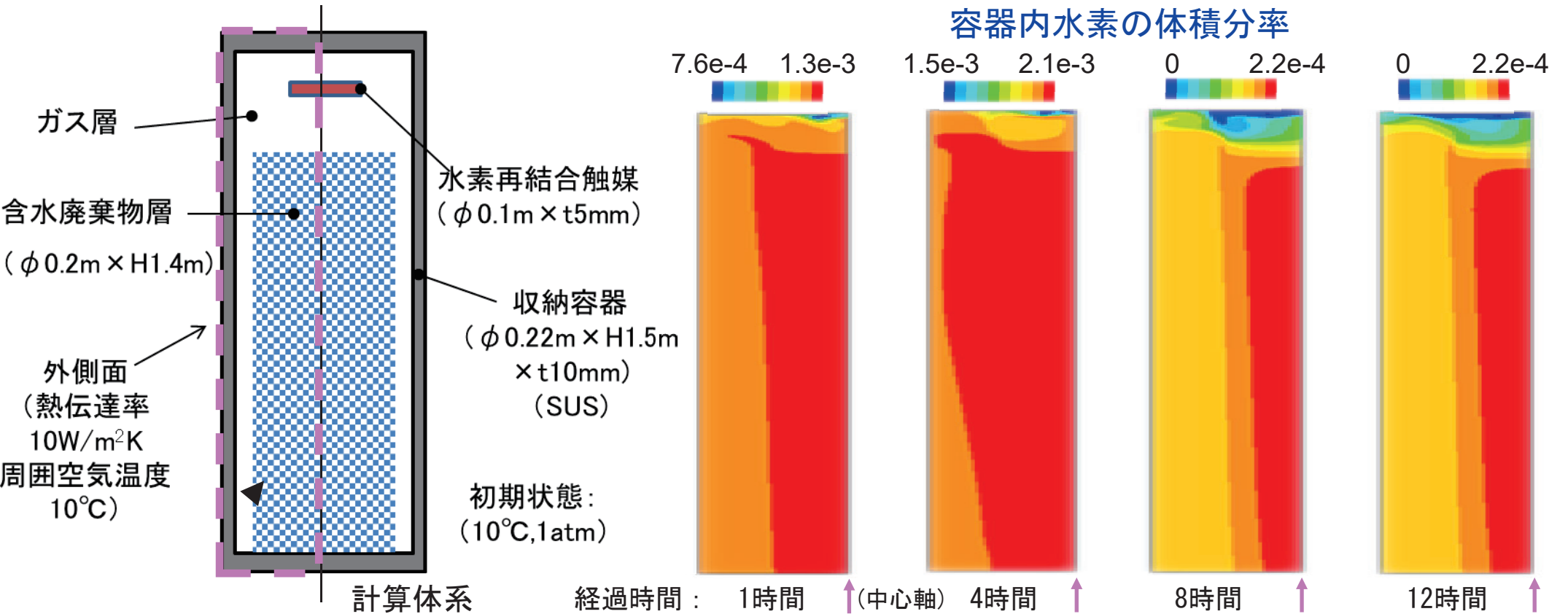
PARが容器上部にある場合

PARが容器中央にある場合

実機保管容器シミュレーション：水素濃度分布

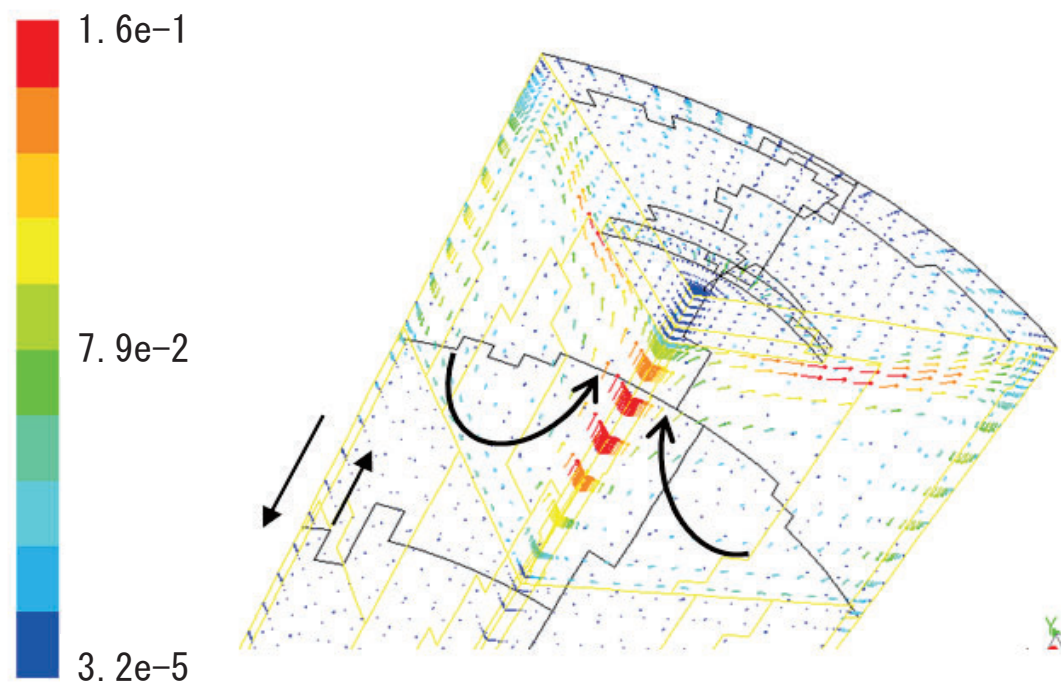
IRIDが検討している燃料デブリ等保管容器仕様を模擬してPARの有効性をシミュレーションで確認

解析条件 容器内初期流体は20°C， 相対湿度80%， 圧力1気圧の空気； 水素発生量200ml/h； 燃料デブリ発熱量100W



実機保管容器シミュレーション：水素挙動の3次元予測

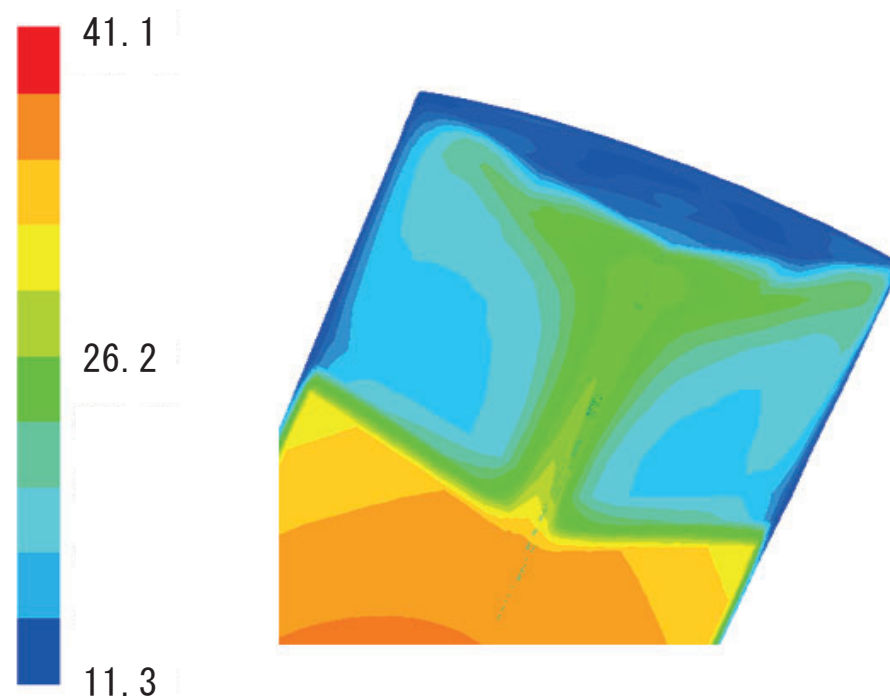
流速 (m/s)



流速分布(上部区間)

触媒下部から水素と酸素の混合ガスが受動的に吸引されることにより上部空間に循環流が形成される

温度 (°C)



温度分布(上部区間)

水素と酸素の再結合反応に伴う触媒反応熱によって暖められた流体が触媒上部から放出される

まとめと今後の展開

開発したPARを使って、検討されるワーストケースよりも5倍以上の水素発生量に対して、保管容器内の水素濃度を爆発下限界である**4%未満まで低減し、維持**できることを確認した。

燃料デブリ等保管容器の長期に亘る水素安全の確保と水素安全技術のさらなる向上のため、保管容器内に蓄積される**水素の濃度の低減**を目的とした次の技術の開発に目処を付けた。

- ・ **高性能な2種類の水素再結合触媒の製造技術**
- ・ **保管容器内に発生する水素の処理技術**
- ・ **シミュレーションによる水素挙動の予測評価技術**

今後は一連の成果を実機燃料デブリ等保管容器の設計・製作に反映し、2021年度からの燃料デブリ取り出しに貢献したい。また、実機燃料デブリ等保管容器の仕様確定に合わせて実規模容器を用いた検証試験やシミュレーションを行いたい。

連絡先情報

国立大学法人 長岡技術科学大学
大学戦略課企画・広報室
滝澤、中澤

〒940-2188新潟県長岡市上富岡町1603-1

Tel : 0258-47-9006, 9216

Fax : 0258-47-9010

E-Mail : kikaku@jcom.nagaokaut.ac.jp