

原子力高温ガス炉の開発と水素製造の研究

日本原子力研究所 核熱利用研究部
熱利用技術研究室 東海駐在
清水 三郎

1. はじめに

将来のエネルギーシステムにおいては、一次エネルギーとして原子力と太陽エネルギーが、エネルギー媒体として電力と水素が、それぞれ重要な役割を担うものと考えられる。原子力に関し、わが国では軽水炉による電力生産が総電力量の30%を超え、ベースロード用の電力の生産に大きな役割を果たしている。一方、1000℃に近い高温の熱を生産でき、高熱効率が達成できるのみならず、安全性が高い、燃料の燃焼度が高いなどの優れた特徴を有する高温ガス炉 [1] の開発がアメリカやドイツ、日本などで行われてきた。

原研では、原子力委員会が昭和62年6月に策定した長期計画に従って、高温工学試験研究炉 (HTTR: High Temperature Engineering Test Reactor) の建設を進めている。HTTRは、高温工学試験研究の中核施設として、高温ガス炉技術の基盤確立と高度化を図るとともに、高温工学に関する先端的基礎研究が実行可能な施設である。炉の完成後は、原子力の熱利用分野の拡大に貢献する熱利用プラントを接続した試験などを計画している。

HTTRの熱利用では、天然ガスの水蒸気改質プラントを接続するとともにガスタービン発電に関する検討を進める計画である。さらに、原研では、将来の高温ガス炉の熱利用系の確立を目的に、水分解による二つの水素製造プロセスの研究を行っている。ヨウ素と硫酸化物を循環物質として用いる二酸化硫黄熱化学法 I S プロセスの研究では、実験室規模試験により閉サイクル水素製造のための運転手法を確立した他、耐食材料の研究と熱効率向上の研究を実施している。固体酸化物を用いる高温水蒸気電解プロセスの基礎試験も実施している。

2. 高温ガス炉の開発

2. 1 HTTRの開発スケジュール

炉本体と建屋の製作・建設は平成2年度に開始され、現在、系統別機能試験が行われている。9年度には臨界に達し、その後、高温ガス炉の安全性を定量的に確認するなど各種運転試験が行われる。14年度からは950℃の高温運転試験が始まる。 [2]

2. 2 HTTRの概要 [2]

HTTRは、表1に示すように、熱出力30MW、原子炉出口冷却材温度定格運転時850℃、高温試験運転時950℃を目標とする原子炉である。熱伝導度

表1 高温工学試験研究炉の性能

| | |
|------------|---------------------------|
| 原子炉熱出力 | 30MW |
| 1次冷却材 | ヘリウムガス |
| 炉入口/出口He温度 | 395/850-950℃ |
| 1次冷却材圧力 | 4MPa |
| 炉心構造材 | 黒鉛 |
| 炉心有効高さ | 2.9m |
| 炉心等価直径 | 2.3m |
| 出力密度 | 2.5MW/m ³ |
| 燃料 | 二酸化ウラン・被覆粒子/ 黒鉛分散型 |
| ウラン濃縮度 | 3~10% (平均6%) |
| 燃料体型式 | ブロック型 |
| 原子炉圧力容器 | 鋼製 (2%Cr-1Mo鋼) |
| 主冷却回路数 | 1ループ (中間熱交換器 及び加圧水冷却器) |

に優れた黒鉛を炉心構造材に用い、中性子の減速材として機能させる。燃料には、被覆燃料粒子を用いる。被覆燃料粒子は、すべての高温ガス炉設計の基盤となるものであり、濃縮酸化ウランの直径1mm以下の球状の核からできている。一般的には、被覆は熱分解炭素の保護緩衝層から始まり、高密度熱分解炭素の二つの層にはさんだ不浸透性の炭化ケイ素層からなっている。これにより、高温下でも核分裂生成物を強固に閉じこめることができる。HTTRでは、中性子の吸収が少なく良好な化学的安定性と腐食性に乏しいという特性を持つヘリウムが、炉心で発生する熱の取り出しのために用いられる。

HTTR原子炉本体の構造を図1に示す。本体は、燃料体や黒鉛ブロックなどからなる炉心、炉心を支持する黒鉛や鋼からなる炉内構造物、及び反応制御設備により構成される。1次冷却材ヘリウムは、下部の二重配管の外管から原子炉压力容器に入り、压力容器の内壁に沿って上向きに流れ、炉心上部に至る。その後、ヘリウムは下向きに流れて炉心を冷却しながら高温となり、二重管の内側流路から原子炉压力容器外に高温核熱を供給する。ヘリウムの下降流は、頂部の制御棒を冷却するとともに炉心を構成する黒鉛ブロックの浮揚を抑制することができる。被覆燃料粒子は黒鉛と炭素からなる素地に分散させた円筒状の燃料コンパウンドとし、この14ヶを黒鉛製の鞘に収納した燃料棒（30本程度）を黒鉛ブロック（幅360mm、高さ580mm）に挿入し燃料体として用いる。

高温ガス炉の安全性を示すため、二つの解析例を紹介する。まず、定格出力で運転しているときに誤操作で制御棒の引き抜きが生じた場合、熱中性子束の増加に伴い炉心の温度が上昇する。しかし、この温度上昇によって中性子増倍率が減少するように設計されているので、原子炉は新たな定常状態になり、燃料温度は許容温度（1600℃）を超えないなど安全性が保たれることが明らかにされた。また、1次冷却設備の二重配管が破断して炉心の冷却材圧力が急速に減圧する事故を想定する。炉心の冷却能力は低下するが、燃料と原子炉压力容器の最高温度は、基準値を下回り、炉心に過度の損傷を与えることなく、また、原子炉格納容器に損傷を与えることなく、事故は安全に終止するとの解析結果が得られている。

2.3 HTTR熱利用系の設計研究 [2]

高温ガス炉は、900℃を超える高温核熱を供給できるため発電システムとして約

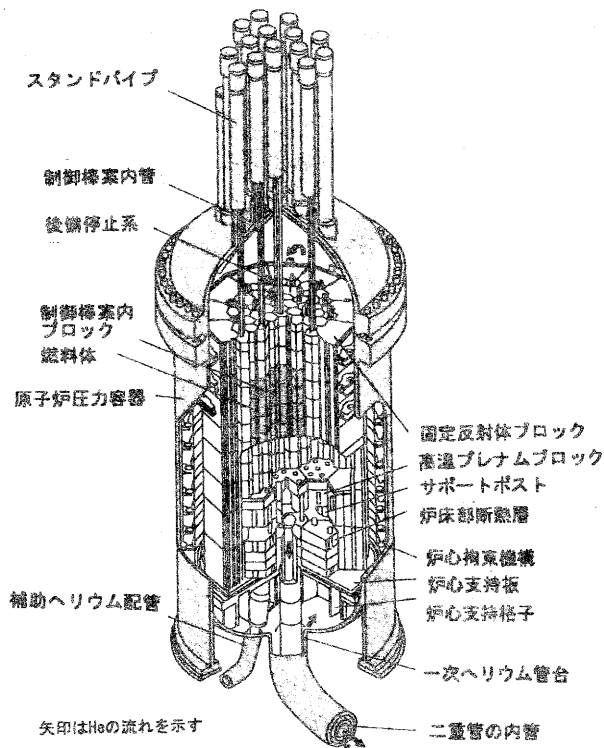
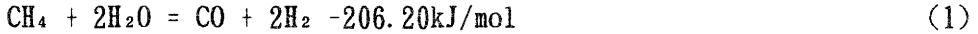


図1 HTTR原子炉本体の構造

50%という高温発電効率の達成が期待できる。さらに、非電力分野への原子力利用を可能とする原子炉である。HTTRは、この高温核熱利用を世界で初めて実証するため、原子炉出力30MWのうち10MWを中間熱交換器（IHX）に供給し、2次側の冷却材ヘリウムを905℃に加熱できる設計となっている。

高温核熱利用の有用性を平成15年度から行うことを目指し、HTTRに接続する熱利用システムの設計研究が2年度から開始された。このシステムとして、次の反応で示す天然ガスの水蒸気改質プロセスを選定した。



この理由は次の通りである：

- ・核熱利用に関する安全技術、運転・制御技術の汎用性がある。
- ・高温ガス炉の早期実証と、核熱利用技術の早期蓄積が可能である。
- ・21世紀における核熱利用システムとしての有望性が高い。

熱利用システムをHTTR本体に接続した全体システムの概念を図2に示す。原子炉の熱は1次ヘリウムで取り除かれ、IHXを介して2次ヘリウムに伝えられる。加熱された2次ヘリウムは、二重配管を通り、原子炉建屋外に設置される熱利用システムに導かれ、水蒸気と天然ガスから水素を製造する際の熱源として利用される。

水蒸気改質システムに関し、熱利用率、運転制御性、安全性などの観点から最適化設計を検討している。本システムでは、IHXからの高温2次ヘリウムを先ず水蒸気改質器に導き約3.4MWの高温核熱を水蒸気改質反応に供給する。次いで、核熱を用い原料プロセスガスを予熱し、さらに、加熱水蒸気の発生を行う。このように2次ヘリウムを利用することにより安全性の高いシステムの構築が可能となった。本方式のもとで原子炉と化学プラントの起動法、化学プラントの熱負荷が変動した場合の原子炉プラントへの影響が解析された。後者では、プロセスガス量の変動しても、蒸気発生器における熱の吸収により、IHXへ戻る2次ヘリウム温度はほとんど変化しないという特性が明らかにされた。

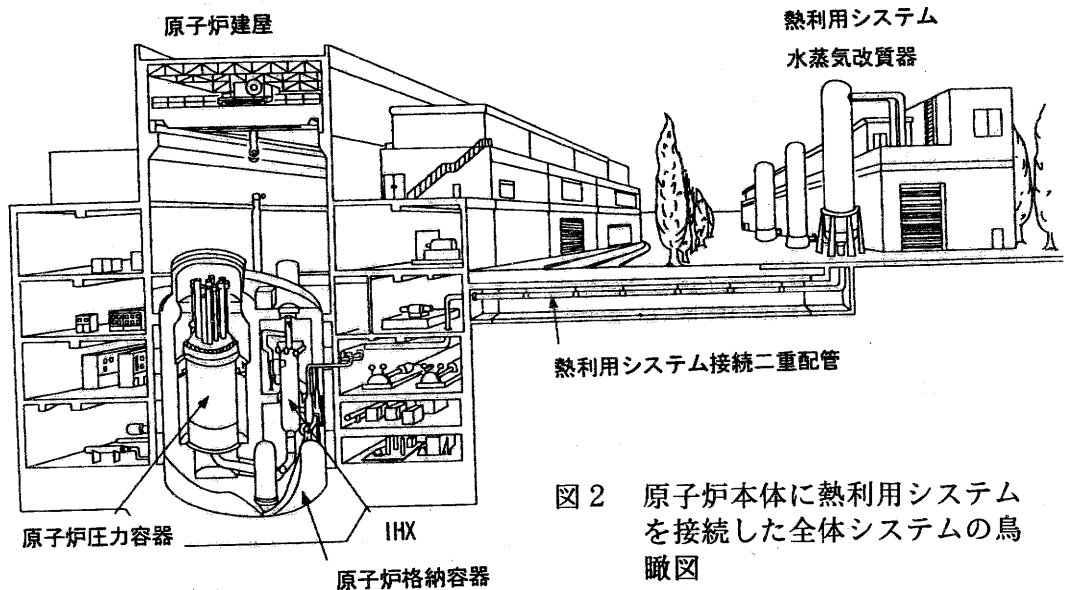


図2 原子炉本体に熱利用システムを接続した全体システムの鳥瞰図

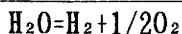
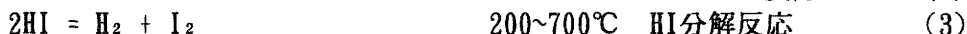
3. 水素製造法の研究

3.1 熱化学法 I S プロセスの概要 [3]

高温吸熱反応を含む化学反応の組み合わせにより水を分解して水素と酸素を製造する方法すなわち、熱化学水素製造法は、大規模プラントを実現させた場合に40%台の熱効率とスケールメリットが期待できることから、高温ガス炉の将来の熱利用系の有力な候補と考えられている。

ヨウ素-硫黄系熱化学水素製造法である I S (Iodine-Sulfur) プロセスについての研究を実施している。実験室規模の水素連続製造試験装置を用いた閉サイクル水素製造試験を行いつつ、水素製造熱効率の向上とプロセスフローの簡略化を目的とするプロセス高度化の検討と、さらに、過酷な腐食環境に耐え得る耐食材料の検討を進めている。閉サイクル水素製造試験では、すべての反応と分離に関する機器を同時・連続に運転することが可能となっている。

ヨウ素と二酸化硫黄を循環物質とする I S プロセスは、GA社から提案されたプロセスに基づいたものであり、以下の三つの反応で構成される。



ブンゼン反応(2)により、ヨウ素、二酸化硫黄と水からヨウ化水素酸(HI)と硫酸が生成する。この反応で2~5モルのヨウ素を用いると、高比重のポリヨウ化水素酸(HI_x)溶液と低比重の硫酸溶液とが分離して得られる(2液相分離)。ヨウ化水素分解反応(3)が水素発生反応であり、800℃以上で吸熱的に進む硫酸分解反応(4)が酸素発生反応である。反応(2)~(4)を組み合わせることにより、熱エネルギーを用いて水を分解することができる。ヨウ素と二酸化硫黄はプロセス内で繰り返し使用する。

3.2 I S プロセスの閉サイクル化試験 [4]

(1) 試験装置とプロセスの閉サイクル化

水素連続製造試験装置はガラスとテフロンを用いて製作した実験室規模の試験装置である。装置の簡略化フローを図3に示す。

ISプロセスの閉サイクル化では、一回のサイクルの始まりを2液相に分離したHI_x溶液と硫酸溶液におく場合、水素と酸素を定量的に発生させた後、プロセス内の各機器・操作から排出されブンゼン反応器に循環してくるプロ

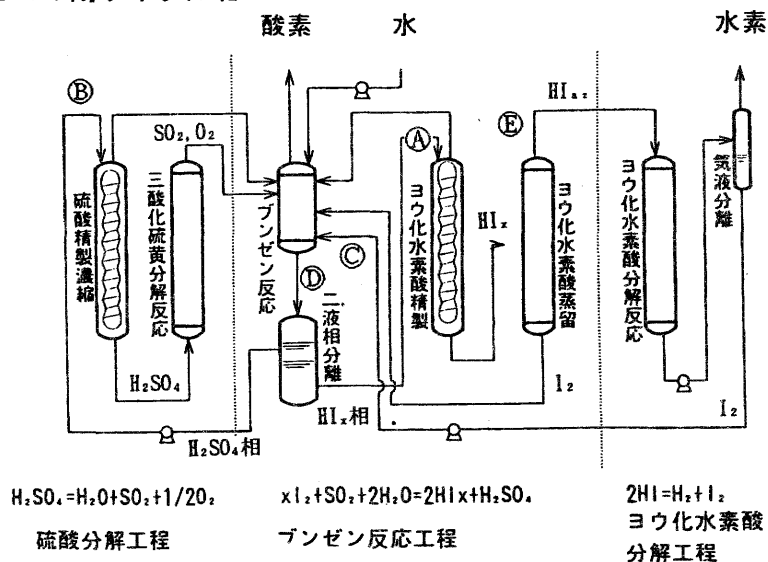


図3 熱化学法 I S プロセスの実験室規模試験装置の構成

セス流体（未反応のヨウ化水素酸及び硫酸，水とヨウ素とからなる）と硫酸分解反応の生成物である二酸化硫黄とを定量的にブンゼン反応させて，HI_x溶液と硫酸溶液を完全に再生させなければならない。

(2) これまでに得た知見

これまでの本装置の予備運転／部分運転により，すでに以下の各項が明らかとなっていた。

- ・あらゆる原料組成のブンゼン反応について二酸化硫黄吸収量を，精度良く見積もる方法を確立した。
- ・ブンゼン反応による生成物のHI_xと硫酸について，溶液組成を一定範囲に制御することによって，確実に2つの液相に分離可能なことを明らかにした。
- ・HI_x溶液の蒸留に有害な溶液中の硫酸分は，ブンゼン反応の逆反応(5)に従って生ずる二酸化硫黄として，窒素ガスを用いる放散法により除去可能なことを明らかにした。なお，この二酸化硫黄はブンゼン反応器に戻して，再びヨウ化水素酸と硫酸を生成させる。



硫酸分の除去が不十分な時には，反応(5)に従って蒸留塔内で硫黄が析出する。



- ・実験データに基づいて閉サイクル化に必要な物質収支を取得できた。

(3) 閉サイクル運転試験結果

試験は，次の3種類のモードで行った（反応条件，溶液組成などは文献[4]に記載）。モードIでは，図中①、②、③の各点へHI_xと硫酸の各模擬溶液，ヨウ化水素分解器出口に相当する模擬溶液を供給しつつ，④と⑤からブンゼン反応生成物と蒸留塔留出液（分解反応へ供給する量）を回収する。各成分の供給量と回収量から物質収支を評価することができる。各成分について供給量と回収量の差は，2%以内であった。

モードIIでは，③へヨウ化水素酸分解器出口の模擬溶液を供給し，⑤からヨウ化水素酸蒸留塔留出液（分解塔へ供給する量）を回収する。このモードは，水素発生を行わない閉サイクル試験に相当する。3～7時間の試験を5回実施し，2液相分離器内のHI_x溶液相と硫酸溶液相を化学分析したところ，5回の試験の前後に

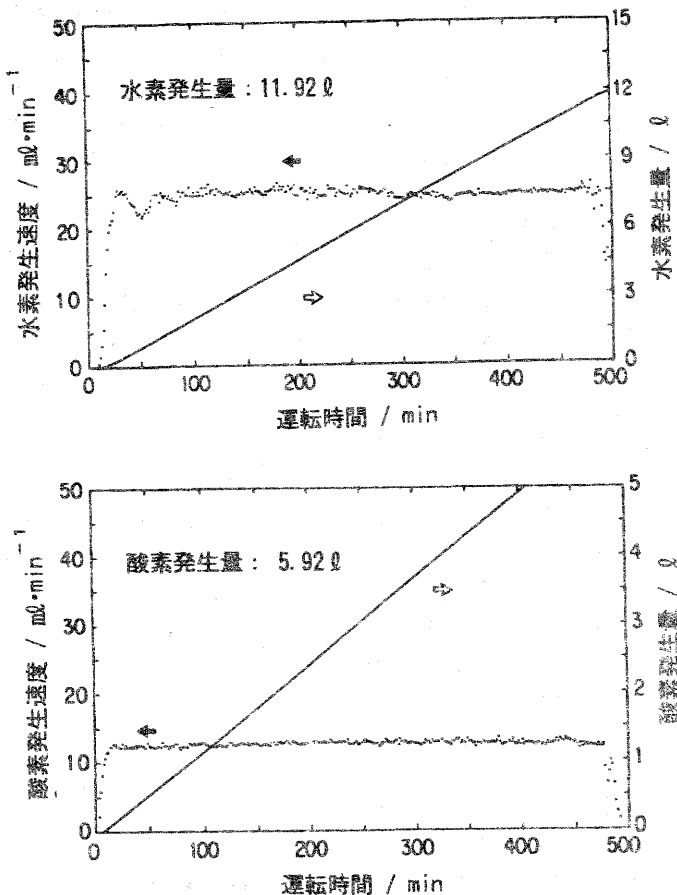


図4 ISプロセスによる水素と酸素の発生例

おける各成分の組成変化は5%以内であった。

モードⅢの試験として、全工程を連結し 8時間規模の閉サイクル化連続水素製造試験を2回実施した。2回目の試験は、1回目の試験の後にプロセス溶液を入れ替えることなく実施したものである。2回目の試験による水素と酸素の発生を図4に示した。水素と酸素の発生量は 11.92ℓと5.92ℓであり、それぞれの発生速度もほぼ一定であった。

2回の水素製造試験を通しての、2液相分離器内における硫酸相中のヨウ素濃度の変動を図5に示す。ヨウ素濃度は、光路長 0.2mmのフローセルを用い分光光度計で I_2^- イオンの吸光度を測定して求めた。閉サイクル水素製造試験中の種々の非定常性は、ブンゼン反応に影響をおよぼし、さらに、2液相分離器内における成分組成の変動をもたらす。非定常性は、以下の諸因子が単独であるいは複合してあらわれる：プロセス流体の輸送速度の変化、反応と分離操作条件の変化、副反応の生起、成分の系外流出、各機器周辺でのホールドアップ量の変動など。図5に示したように、硫酸相中のヨウ素濃度は、試験開始時の0.168から試験途中の0.140mmol・g⁻¹の間で変化した。

通常硫酸溶液へのヨウ素の溶解度は小さいが、ヨウ化水素酸が共存する場合にはポリヨウ化水素酸 (HI_x)として容易にヨウ素は溶解する。2液相分離器内でのヨウ化水素酸量が減少するとき、ヨウ化水素酸相におけるヨウ素の相対量が増加し (HI_xの下付きxの値が増加)てヨウ化水素酸と硫酸の相互の分離度が大きくなる。このため硫酸相中のヨウ素濃度の変動は、2液相分離器内におけるあるいはブンゼン反応生成物中のヨウ化水素酸の組成の良い指標となっている。

図5に示されたヨウ素濃度の変動のうち、単調に減少する傾向は HI_x溶液の精製濃縮塔で反応(5)に従って硫酸を除去する際の副反応の生起に関連するものと見られる。ブンゼン反応へのヨウ素の供給量が減少する場合に副反応が生起しやすい。そこで、濃度が波打っている傾向は、蒸留塔の立ち上げ後数時間にわたる圧力変動ないし長い周期の圧力の脈動によって、自重で蒸留塔釜液(融解したヨウ素)が釜底からU字型の配管を介してブンゼン反応器に流下する際、その流下速度が変動することに起因すると考えられる。この対策として、ヨウ素融解液の輸送用U字管に窒素ガス圧で作動する特殊なポンプを組合せるなど、ヨウ素融液の定量的な輸送の確保を検討している。

現在、10℃で2液分離を行わせているため酸の相互分離が悪いので、前述したHI_x濃縮精製塔への負担が大きい。これは、ヨウ素を十分に用い高温(～100℃)でブンゼン反応と2液分離を行わせることによって、緩和することが可能である。一方、融解ヨウ素の定量的な輸送は、上述した蒸留塔釜液の輸送のみに止まらず、ブンゼン反応工程の高温化にも不可欠である。いずれにせよ、融解ヨウ素の定量

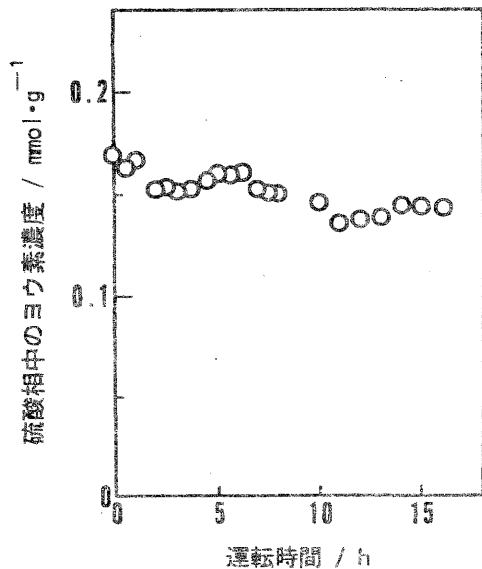


図5 閉サイクル試験でのプロセス溶液濃度の変動。2液相分離器内における硫酸相中のヨウ素濃度

な輸送やオンライン計測技術の導入などが、I Sプロセスの閉サイクル化に重要な役割を果たす。

(4) I Sプロセスの今後の研究課題

熱化学法I Sプロセスの閉サイクル運転試験により、水素と酸素の定量的な発生を達成することができた。一方、閉サイクル化試験中において、ヨウ化水素酸の副反応によると見られるプロセス溶液の変化も観察された。今後、ヨウ素輸送の不安定性に起因すると考えられるヨウ化水素酸の損耗を低減させることが必要である。

熱化学水素製造の研究では、閉サイクル化の研究の他、熱効率の向上と耐食材料の研究が重要な課題である。前者では平衡分解率の低いヨウ化水素酸のワンスルー分解率の向上を目的として、アルミナ多孔質板の表面をシリカ被覆化した高温水素分離膜の検討を、また、後者では沸騰硫酸環境に耐える材料開発を目的として、炭化ケイ素系セラミックスやSi-Fe合金の耐食性の検討を実施している。

3. 3 高温水蒸気電解法の研究 [2], [5]

固体電解要素を用いた高温水蒸気電解による水素製造法は、反応プロセスが原理的に単純で高効率期待できる水素製造法で、特徴・利点は次のように整理できる：

- ・高温で水蒸気を電気分解するため必要電力が少ない（常温水電解での約75％）。
- ・構造が簡単であり、セラミックスを用いるので腐食の問題が少ない。
- ・固体電解質型燃料電池で開発された共通技術を利用できる。
- ・生成水素ガスの純度が高い。

高温水蒸気電解法は優れた利点を有するが、固体電解要素の耐久健全性、高温水蒸気の電解特性、システムの運転特性などについては不明な点も多い。そこで、燃料電池用に開発された円筒横縞型電解要素を用いる高温水蒸気電解試験を試みた。水蒸気温度が850℃において3.8Nℓ/h、950℃において6.9Nℓ/hの水素発生を確認し、燃料電池用要素が電解要素として機能すること、及び80~100mA/cm²の電流密度で効率的な電解が行えることを示した。しかし、高い電流密度では、発生した水素と供給水蒸気の基体管壁内での拡散透過が不十分になり、過電圧の増大とエネルギー効率の低下が観察された。

これに対処するため、水蒸気を電極に直接供給できる自立方式の電解要素を検討し、構造が簡単な電解質薄板を用いる平板型を採用して、10cm角、0.3mm厚のイットリア安定化ジルコニア薄板表面に電極を面積64cm²で成膜した平板型電解要素の試作した。電解特性試験を850℃で行い、理論密度に近い水素発生密度を達成することができた。

4. 結び

以上のように、現在、高温工学試験研究炉の建設が順調に進んでおり、平成9年度には臨界に達する予定である。この炉は、850~950℃の高温核熱を炉外に取り出すことが可能であり、高温核熱利用の有用性を実証する試験を15年度から行うことを目指して、HTTRに接続する天然ガスの水蒸気改質システムの設計研究が進んでいる。また、長期的な観点から高温ガス炉の熱利用系の確立を目指し、水分解による水素製造が可能な熱化学法I Sプロセスと高温水蒸気電解法に関する基礎的研究が進められている。この他、エネルギーシステムの評価の一環として、高温ガス炉核熱利用システムの実用化の見通しや二酸化炭素削減への寄与な

どが考察されており [6] , 21世紀におけるエネルギーと環境問題に対して、高温ガス炉の果たす役割に期待したい。

文献

- [1] W. マーシャル編 住田健二監訳, 原子炉技術の発展 [上], 東京, 筑摩書房, (1986), p.173-268. 注) ガス冷却炉が分かり易く記述されている。
- [2] 高温工学試験研究炉開発部編, 高温工学試験研究の現状-1994年-, 日本原子力研究所発行 (平成6年10月). 同上, Present Status of HTGR Research & Development, Feb. 1996, JAERI.
- [3] 清水三郎、中島隼人、小貫薫他、水素エネルギーシステム、第16巻 (1号), 2(1991).
- [4] H. Nakajima, K. Ikenoya, K. Onuki, S. Shimizu, Proc. Int. Hydrogen and Clean Energy Symposium' 95, pp. 251-254, Feb. 6-8, 1995, Tokyo, Japan.
- [5] 日野竜太郎, 宮本喜, 高温水蒸気電解による水素製造-円筒型電解要素による試験結果, 日本原子力学会誌, Vol. 37, pp. 1042-1049(1995). 日野竜太郎ら, 高温水蒸気電解による水素製造-自立平板型電解要素による試験結果, JAERI-Tech, 95-049(1995).
- [6] O. Sato, Future Perspective of Nuclear Energy Utilization and Expected Role of HTGR, in Proc. THE 3rd JAERI SYMPOSIUM ON HTGR TECHNOLOGIES, pp. 243-257, Feb. 15-16, 1996, Oarai, Japan.