

原子力利用によるメタンからの水素製造

大橋弘史、稲垣嘉之、小川益郎、小貫薫、武田哲明、
西原哲夫、林光二、稲葉良知、塩沢周策

日本原子力研究所 大洗研究所 核熱利用研究部
311-1394 茨城県東茨城郡大洗町成田町新堀 3607

Hydrogen Production from Methane using Nuclear Energy

Hirofumi OHASHI, Yoshiyuki INAGAKI, Masuro OGAWA, Kaoru ONUKI, Tetsuaki TAKEDA,
Tetsuo NISHIHARA, Koji HAYASHI, Yoshitomo INABA, Shusaku SHIOZAWA
Department of Advanced Nuclear Heat Technology, Oarai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
3607 Niihori, Narita-cho, Oarai-machi, Higashiibaraki-gun, Ibaraki-ken 311-1394

Hydrogen is one of the future energy media to reduce CO₂ emission, however, a primary energy is required to produce hydrogen from fossil fuels or water. Taking account of global warming issue, nuclear energy without CO₂ emission is suitable for a huge amount of hydrogen production compared with fossil fuel energy. Japan Atomic Energy Research Institute (JAERI) has planning to couple a hydrogen production system by means of steam reforming of methane with the High Temperature Gas cooled Reactor (HTGR), named HTTR with a reactor outlet coolant temperature of 950°C. This paper introduces R&D program on HTGR hydrogen production system at JAERI. Furthermore, effect on CO₂ emission and economics are discussed.

Key words: hydrogen production, steam reforming, methane, nuclear energy, HTGR, HTTR

1. はじめに

現在、我が国では、1次エネルギーの約82%を石炭、石油、天然ガス等の化石資源に依存しており、大量の化石燃料を燃やして発電あるいは直接熱利用等を行っているために、1998年度には全世界の約5%を占める11.1億t(世界4位)の二酸化炭素を排出した[1]。今後の地球温暖化防止のため、我が国では、徹底した省エネルギーの推進と、二酸化炭素排出量の少ない自然エネルギー開発・導入の促進や原子力発電の利用推進の政策を掲げている。自然エネルギー及び原子力エネルギーの利用法として先ず発電が考えられるが、電気のみで全てのエネルギー需要を賄うことは困難であるため、化石燃料の代替エネルギーとして、クリーンエネルギーである水素に

大きな期待が寄せられている。近い将来、運輸部門における燃料電池自動車の燃料、並びに産業部門における熱源として水素の需要は確実に増大するものと考えられ、水素利用社会の実現により二酸化炭素排出量の大幅な削減が可能となる。しかし、水素は自然界にはほとんど存在しない2次エネルギーであるために、水素を製造するためには何らかのエネルギー投入が必要であるのは言うまでもない。今後の需要拡大にあわせ、如何にして大量の水素を環境に負荷をかけず、かつ安価に製造するかが重要な課題であり、その解決策の一つが原子力を用いた水素製造と考えられる。ここでは、原子力を利用した水素製造の利点を述べるとともに、日本原子力研究所(以下、「原研」と呼ぶ)における高温ガス炉水素製造システムに関する研究開発の概要を紹介する。

2. 原子力による水素製造の利点

2.1. エネルギーの選択

現在、工業化されている水素製造法としては、熱エネルギーを利用する天然ガスやナフサの水蒸気改質法、重質油の部分酸化法や石炭ガス化法、並びに電気エネルギーを利用する水の電気分解法等があるが、現時点における世界の主流は、天然ガスの水蒸気改質法 ($\text{CH}_4 + \text{H}_2\text{O} = \text{CO} + 3\text{H}_2$) である。しかし、化石燃料の燃焼熱を利用する既存の製造法 (以下、「化石燃料水素製造システム」と呼ぶ) では、多量の二酸化炭素を排出しており、環境問題の解決にはつながらない。化石燃料水素製造システムでは、反応及び燃焼生成物として、製品水素 1m^3 あたり約 0.9kg の二酸化炭素を排出している[2]。シフト反応 ($\text{CO} + \text{H}_2\text{O} = \text{CO}_2 + \text{H}_2$) との組み合わせを考え、製品水素 1m^3 あたり $0.25\text{m}^3 (= 0.49\text{kg})$ の二酸化炭素が反応生成物として発生していると仮定すると、熱源からは、排出量全体の約 $46\% (= 0.41\text{kg})$ に相当する二酸化炭素が発生している。すなわち、熱源に二酸化炭素を排出しないエネルギーを用いれば、水素製造時の二酸化炭素排出量は、約 54% に低減可能となる。更に、後述する熱化学法を利用して水から水素を製造すれば、二酸化炭素をほとんど排出しないクリーンなエネルギーシステムを構築できる。

図1に発電プラント別の二酸化炭素排出量を示す[3,4]。自然エネルギーにおいても発電プラントの建設時等に二酸化炭素を排出していることがわかる。しかし、自然エネルギーである水力、地熱、風力ならびに原子力の発電プラントの二酸化炭素排出量は、火力発電プラントに比べて圧倒的に少ない。従って、水素を製造するためのエ

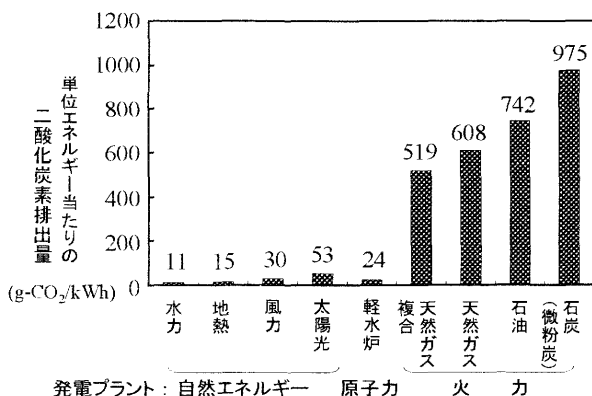


図1. 発電プラント別の二酸化炭素排出量

ネルギーとしては、二酸化炭素排出量の少ない自然エネルギーもしくは原子力が望ましい。

更に、これらのエネルギー密度の違いを考慮し、発生・利用方式にあわせたエネルギーの選択を行う必要がある。エネルギーの発生・利用方式を考えると、産業部門はエネルギー集中発生・集中利用型、運輸部門では集中発生・分散利用型、民生部門では分散発生・分散利用型と大きく分類できる。エネルギー密度の低い自然エネルギーは、民生部門のような分散発生・分散利用に適していると考えられる。しかし、産業部門や運輸部門、さらには人口が密集する大都市の民生部門においても、安価な大量の水素を集中的に安定して確保するためには、自然エネルギーの利用だけでは困難であり、エネルギー密度の高い原子力が最適であると考えられる。

2.2. 水素製造の熱源となる高温ガス炉

メタンの水蒸気改質法や水の熱化学法等によって水素を製造するために必要となる高温の熱エネルギーを供給できる原子炉としては、 1000°C 近い高温の熱を供給できる高温ガス炉 (現在の軽水炉で約 300°C 、高速増殖炉で約 600°C である) が挙げられる。高温ガス炉は、冷却材にヘリウムガス、主要構造材並びに減速材に黒鉛を用いることにより、原子炉出口で冷却材温度 950°C を達成することができ、以下のような多くの優れた特徴を有している[5]。

- ①優れた安全性：原子炉の炉心溶融といった仮想的な事故を設計上考慮する必要がない。
- ②放射性廃棄物量の低減：燃料の長期間燃焼が可能。
- ③初期投資リスクの軽減：熱出力 $200\sim 600\text{MW}$ 程度 (現在の軽水炉熱出力の5分の1から10分の1) の小型原子炉である。
- ④需要地近接立地が可能：優れた安全性を有した小型原子炉であるため。

これまで、 $1960\sim 70$ 年代にかけて、欧州共同体、アメリカ及びドイツで5基の高温ガス炉の建設が行われ、 1980 年代には蒸気タービン発電による大型化を目指したが、経済性の理由で開発が中止された。しかしながら、近年、小型モジュラー化、工場生産部品の増加、工学的安全設備の簡素化を図るとともに、発電効率の向上が期待できるガスタービン発電の採用により、経済性が大きく向上できる見通しを得ている。現在、南アフリカ及びアメリカにより、他の発電プラントとも経済的に競合可能な商業用高温ガス炉の建設が開始されようとしている。

2.3. 二酸化炭素排出量の削減効果

化石燃料の燃焼熱の代わりに高温ガス炉からの高温核熱を用いて水素製造を行うことにより、二酸化炭素の排出量を大きく低減することが可能となる。経済産業省の「燃料電池実用化戦略研究会」では、2020年までに500万台（我が国の自動車総数の約7%に相当）という燃料電池自動車の普及目標を示している。この燃料電池自動車500万台に必要な水素を製造するためには、メタンの水蒸気改質法を用いた場合、概略、200MWの熱出力を持つ高温ガス炉（稼働率80%、製造総合効率80%）が約10基必要である[5]。そして、この水素の利用により、ガソリンを使用する場合と比較して二酸化炭素排出量を約0.16億t削減することが可能となる。この量は、国連気候変動枠組み条約第3回締約国会議（COP3）議定書に規定された「温室効果ガス排出量を1990年に比べ6%削減する」との我が国の目標を達成するために、二酸化炭素排出量を1998年（11.1億t）から1990年レベル（10.5億t）[1]に抑えるために必要な削減量（0.6億t）の約26%に相当する。また、高温ガス炉を利用して製造した水素が運輸部門以外の産業部門でも広く利用されるようになれば、二酸化炭素排出量はさらに削減可能となる。

3. 高温ガス炉を利用した水素製造に関する研究開発

3.1. 各国における研究開発状況

高温ガス炉を利用した化石燃料の改質による水素製造システムの研究開発に関しては、1970年代に我が国の工業技術院による「高温還元ガス利用による直接製鉄技術の研究開発」プロジェクトにおいて、製鉄用還元ガスの製造を目的としてナフサの水蒸気改質法による水蒸気改質器等の実証試験並びに運転方法の検討が行われた[6]。このほか、ドイツのユーリッヒ研究所においても「ADAM-EVA」プロジェクトでケミカル・ヒートパイプによる核熱の遠距離輸送を目的とし、メタンの水蒸気改質法による水蒸気改質器の実証試験が行われた[7]。また、原研での高温ガス炉水素製造に関する研究開発に刺激され、アメリカが1999年から開始した公募型の原子核エネルギー研究計画（NERI）においても、原研と類似の研究課題が2件採択され、研究を開始している。

更に、高温ガス炉以外の原子炉として、高速増殖炉並びに核融合炉においても水素製造に関するフィージビリティスタディを開始した。しかしながら、現状の設計で

供給できる核熱の温度は600℃程度であり、このような温度域においてメタンの水蒸気改質法を行うにあたっては、メタンの転化率向上を図るために、二酸化炭素の吸着材あるいは水素分離膜の利用等の水蒸気改質器に関する新規技術の導入が不可欠であると考えられる。

3.2. 原研における研究開発状況

(1) メタンの水蒸気改質法

原研では、1998年11月に初臨界を達成した我が国初の高温ガス炉、高温工学試験研究炉（熱出力30MW、ヘリウム出口温度950℃、以下「HTTR」と呼ぶ）を用いて高温ガス炉技術の研究開発を進めるとともに、高温ガス炉と水素製造システムを接続するために必要な技術、及び水から水素を製造する技術に関して研究開発を進めている。この中で、文部科学省からの受託研究として、高温ガス炉と水素製造システムとの接続技術を開発・実証するために、以下の理由からメタンの水蒸気改質法を選定しHTTRと接続する世界で初めての実証試験を計画している[8]（以下、HTTRと水素製造システムを接続したものを「HTTR水素製造システム」と呼ぶ）。

- ①工業界で広く用いられている成熟した技術であるために、高温ガス炉と早期に接続可能である。また、前述したように、従来法と比較して、水素製造時の二酸化炭素排出量をほぼ半減することが可能である。
 - ②高温のヘリウムガスを吸熱反応及び蒸気製造の熱源として使用することから、原研で開発する原子炉との接続技術は、石炭ガス化法、熱化学法等その他の水素製造法にも適用できる汎用性を有している。
- 現在、詳細設計中であるHTTR水素製造システムの基

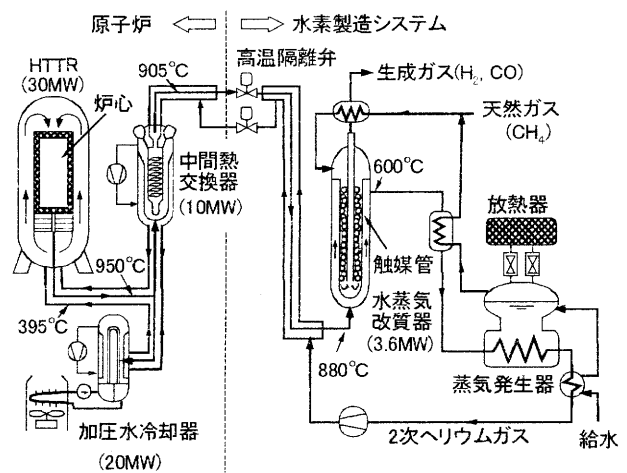


図2. HTTR水素製造システムの基本系統

本システム及び主要緒元を図2及び表1に示す。原子炉で950°Cに加熱された1次ヘリウムガスは、中間熱交換器で2次ヘリウムガスへ熱交換されて(熱交換量 10MW)、水蒸気改質器内での反応熱及び水蒸気改質器の下流に設置された蒸気発生器内で蒸気製造に必要な熱を供給する。

また、水素製造システムは原子炉建家外に設置されるため、原子炉格納容器を貫通する2次ヘリウムガス配管には、高温隔離弁が設置されている。

HTTR 水素製造システムにおける水蒸気改質器の設計例を図3に示す。本水蒸気改質器はヘリウムガスとの熱交換型であり、バイオネット型触媒管を30本収納している。ヘリウムガスは、下部から上部へ流れる際に、プロセスガスへ熱を供給する。一方、プロセスガスは上部ノズルから入り、触媒層を下方へ通過しながら改質反応を行った後、触媒管先端部で折り返し、触媒層内のプロセスガスへ熱を供給しながら内管内を上昇する。しかし、熱源となるヘリウムガスの最高温度は入口部での 880°Cであり、化石燃料水素製造システムの熱源と比較して低い。このため、化石燃料水素製造システムと同等以上の熱交換性能を確保するために、触媒管の表面に直交フィンを設けて熱伝達性能を向上させている。また、触媒管

は圧力境界であり、破断事故時等に2次ヘリウムガス(4.1MPa)の流出を防止する目的でプロセスガス圧力をこれよりも高い4.5MPaに設定している。この圧力は、化石燃料水素製造システムと比較して高圧であるため、化石燃料水素製造システムにおけるメタンの転化率が最大で0.95にも達するのにに対し、HTTR 水素製造システムでは約0.6程度にとどまっている。これを解決する方法として、水素分離膜を用いたメンブレンリアクタの適応に関しても検討を行っている。

このほか、原子炉を利用する固有の問題点として、炉心で生成するトリチウムの製品水素への移行が挙げられる。トリチウムは、放射能の強い物質であり、水素の同位体であることから、水素と同様に高温雰囲気中で金属を透過する性質を有している。このトリチウム移行に関しては、実験並びに解析評価により安全上、問題ない範囲まで移行量を低減できる見通しを得ている[9]。

このような原子炉と水素製造システムのような化学プラントとの接続は世界的に例がないため、HTTR との接続の前に、原子炉を電気ヒータで置き換えた模擬試験によってシステムの特性格把握、及び原子炉に対応した運転・制御方法の確立が不可欠である。このため、HTTR 水素製造システムの1/30スケールモデルである模擬試験(炉外技術開発試験[10])を進めており、2002年2月の

表1. HTTR水素製造システム及び炉外技術開発試験装置の主要緒元

項目	HTTR 水素製造システム	炉外技術開発試験装置
水蒸気改質器入口圧力 プロセスガス/He ガス	4.5 / 4.1MPa	4.3 / 4.1MPa
水蒸気改質器入口温度 プロセスガス/He ガス	723 / 1153 K	
水蒸気改質器出口温度 プロセスガス/He ガス	873 / 873K	873 / 923K
触媒管本数	30	1
天然ガス流量	1296kg/h (81kmol/h)	43.2kg/h (2.7kmol/h)
He ガス流量	8748kg/h	327.6kg/h
S / C	3.5	3.5
水素生成量	4240Nm ³ /h	110Nm ³ /h
熱源	高温ガス炉 (10MW)	電気ヒータ (380kW)

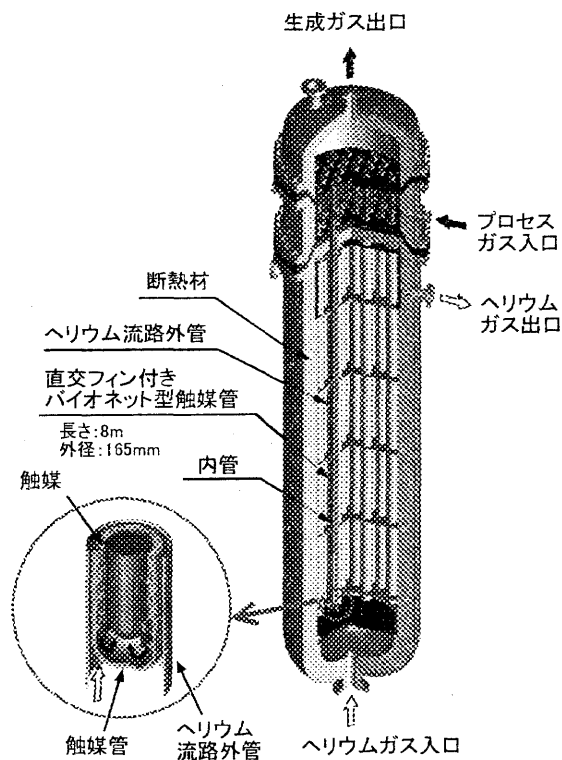


図3. 水蒸気改質器の設計例

完成後、2004年頃まで試験を行う計画である。表1に炉外技術開発試験装置の主要緒元をあわせて示す。更に、現在行っている要素技術試験と合わせて、化石燃料水素製造システムとの相違点を考慮して抽出した以下に示す課題の開発・実証を行う計画である。

- ①水素製造システムに異常が生じたときの原子炉への外乱抑制。
- ②2次ヘリウムガスとプロセスガスとの圧力境界（触媒管）の健全性確保。
- ③原子炉から水素製造システムへのトリチウム移行量の評価及び低減技術の確立。
- ④高温ガス炉水素製造システムの安全評価用動特性解析コードの開発と検証。
- ⑤高温ガス炉水素製造システムに特有の高温機器（ヘリウムガスと熱交換を行う水蒸気改質器、高温隔離弁等）の開発・実証。

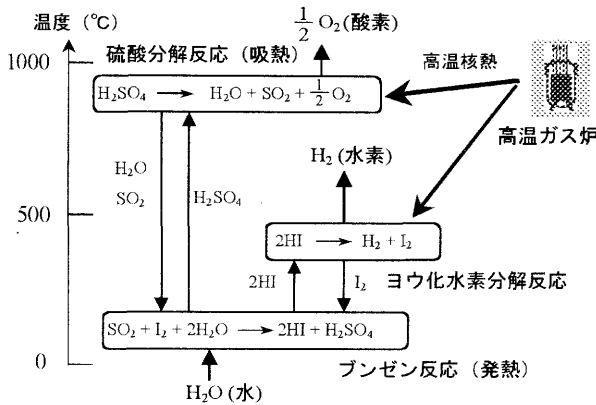


図4. ISプロセスの構成

の開発・実証。

(2) 熱化学法 IS プロセス（水からの水素製造）

原研では、メタンの水蒸気改質法を用いた HTTR 水素製造システムによって、原子炉と水素製造システムとの接続技術を開発・実証した後に、これに続く高温ガス炉水素製造システムとして、熱化学法による水からの水素製造（IS プロセス）を計画し、これに関する技術開発を進めている。IS プロセスは、直接熱分解では 4000°C 以上の熱エネルギーが必要な水から水素製造を、図4に示すように3つの化学反応を組合せることによって高温ガス炉で供給可能な 1000°C 以下で行うものである。

これまでに、毎時 1% の 48 時間連続水素製造に成功した[11]。現在、自動制御技術等の開発を目的として、毎時 50% の連続水素製造試験を文部科学省からの受託研究として進めている。また、このほか、水素製造効率の向上を目指した分離膜技術等の開発、並びに腐食性プロセス環境に耐えうる装置材料の選定・開発等を行っている。

(3) 開発目標及び開発スケジュール

従来の化石燃料水素製造システム及び水の電気分解システムの経済性を分析評価し、これらのデータを用いて原研が研究開発を進めている高温ガス炉水素製造システムの経済性評価を行った。この結果を図5に示す[12]。化石燃料水素製造システムでの水素製造価格を基準値 1 とした場合、水の電気分解システム、高温ガス炉水蒸気改

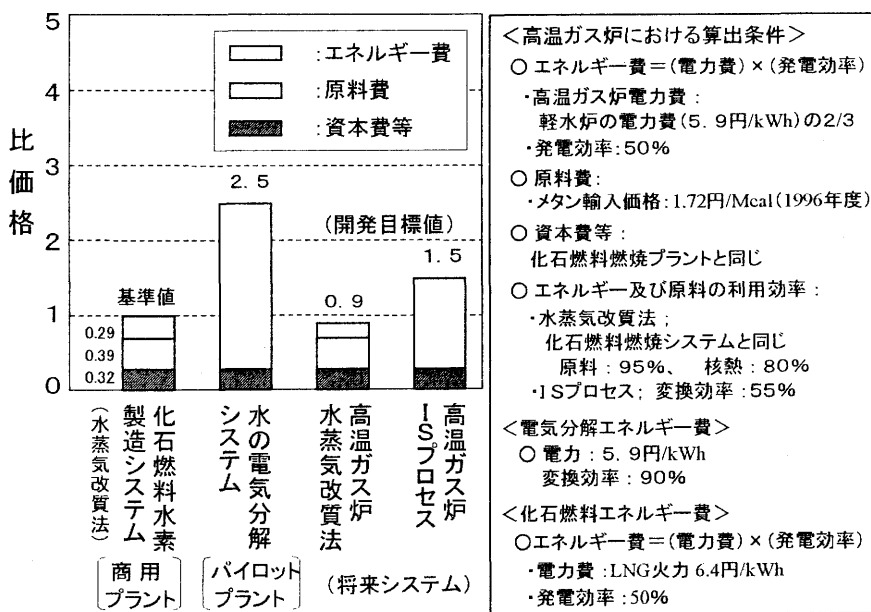


図5. 各種水素製造法による水素製造価格

質法、高温ガス炉 IS プロセスにおける水素製造価格は、2.5、0.9、1.5 となり、図中に示す算出条件を満足することによって高温ガス炉水蒸気改質法は、化石燃料水素製造システムと比較して経済的に競合可能となる。更に、二酸化炭素処理費用 (¥21/kg-CO₂ [13]) を考慮した場合、化石燃料水素製造システムでの水素製造価格に対して、各システムでの水素製造価格は、各々1.1 倍、0.8 倍、0.7 倍となり、高温ガス炉 IS プロセスが最も経済的であるという結果になる[12]。

原研における研究開発の目標は、高温ガス炉と水素製造システムとを接続するための基盤技術を開発するとともに、水の熱化学法による水素製造技術を開発し、二酸化炭素を排出しないクリーンなエネルギー体系を構築することであり、さらには、高温ガス炉による水素製造が化石燃料水素製造システムと比較して経済的に競合可能であるという見通しの確証を行うことである。

高温ガス炉水素製造システムの実用化に向けた研究開発の長期的スケジュールを図6に示す。まず、HTTR を用いて原子炉技術開発を行い、2010 年代までに高効率発電が可能な高温ガス炉ガスタービンシステムの実用化を目指す。更に、商業用高温ガス炉ガスタービンシステムによって実証されるであろう高い経済性、安全性を有する原子炉技術を基に、高温ガス炉水素製造システムの2030 年代での実用化を目指し、これに関する基盤技術を確立する計画である。

4. まとめ

近い将来の水素利用社会に向けて、今後、大量の水素が必要になると予想される。環境に負荷をかけずに大量の水素を安定して製造するためのエネルギーとして原子力は不可欠であり、その中でも高温の熱エネルギーを供給できる高温ガス炉は、水素製造を行う上で最も適した原子炉と考えられる。原研は、高温ガス炉を用いた水素製造技術を開発することにより、環境問題並びにエネルギー問題の解決に大きく貢献していきたいと考えている。

参考文献

1. 資源エネルギー庁編: "エネルギー2001", (株) 電力新報社, 2001, p36.
2. 五十嵐哲: 水素エネルギーシステム, 25 (2), 62-70 (2000).
3. 本藤祐樹: 電力中央研究所報告, Y99009 (2000).
4. 本藤祐樹: 電力中央研究所報告, Y01006 (2001).
5. 小川益郎: エネルギー 日刊工業新聞社, 34(5), 81-87 (2001).
6. 三浦ら: 燃料協会誌, 53, 822 (1974).
7. J.Singh et al.; Nucl.Eng.and Des., 78, 179-194 (1984).
8. K.Hada et al. ; JAERI -CONF, 96-010 (1996).
9. 武田ら: 日本原子力学会誌, 43, 823-829 (2001).
10. Y.Inagaki et al.; Proc.7th Int. Conf. on Nucl. Eng., Tokyo, ICONE- 7101 (1999).
11. H.Nakajima et al., Proc.7th Int. Conf. on Nucl. Eng., Tokyo, ICONE- 7104 (1999).
12. 宮本ら: JAERI-Review, 2001-006 (2001).
13. 内山ら: 電力中央研究所報告, Y91005 (1991).

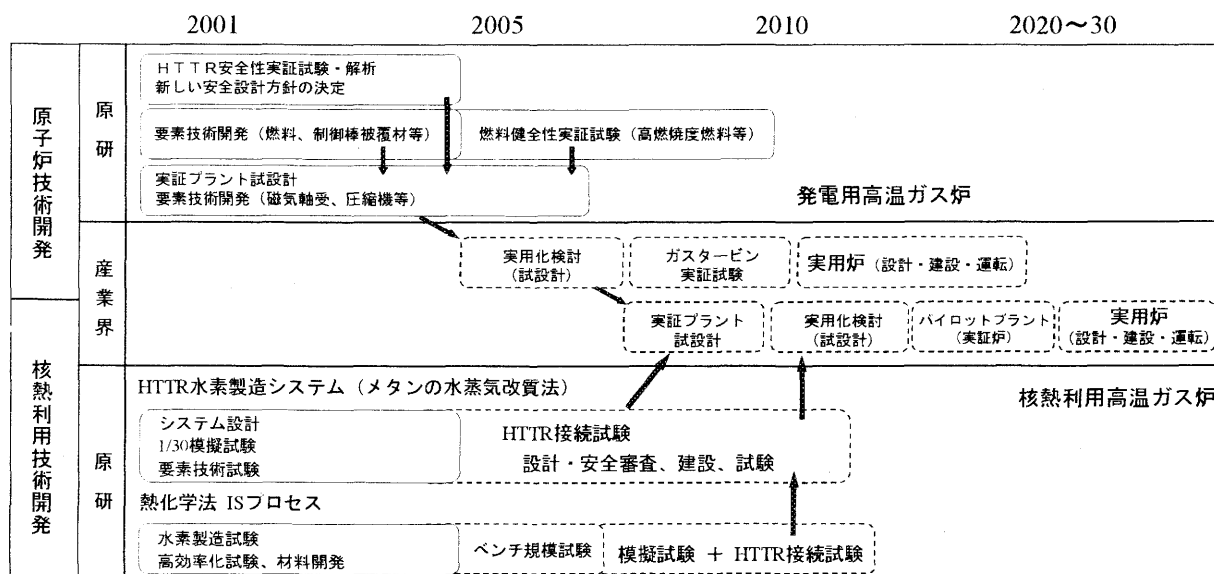


図6. 高温ガス炉研究開発の長期的スケジュール