

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

(受託者) 国立大学法人まるまる長岡技術科学大学

(研究代表者) 高瀬和之 大学院工学研究科

(再委託先) 国立大学法人宇都宮大学、学校法人関西学院関西学院大学、ダイハツ工業株式会社、アドバンエンジニアリング株式会社、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

(研究期間) 平成28年度～30年度

1. 研究の背景とねらい

福島第一原子力発電所(1F)の廃炉に向けて、燃料デブリなどの貯蔵・保管に当たっては、廃棄物中の水分が放射線分解して発生する可燃性ガス(水素)の管理が不可欠である。我々は、水素爆発防止のための再結合触媒の分野並びに水素安全に係わる熱流動分野の研究に1F事故後から注力してきた。その経験と知見から、廃棄物保管時に発生する可燃性ガス管理において、可燃性ガス濃度の低減のための実験的検証とシミュレーションによる確認が極めて重要であることを痛感し、日本原子力研究開発機構の廃炉国際共同研究センターと可燃性ガス濃度低減研究に関して連携を図りつつ、燃料デブリなどを長期間に亘って安全に保管できるように保管容器内の可燃性ガス濃度を爆発限界値の半分以下に低減できる無電力型の水素濃度低減装置の開発を提案した。本研究開発は、提案した無電力型水素濃度低減装置の妥当性を実験とシミュレーションから明らかにするものである。

本研究では、「無電力で受動的に動作すること」並びに「保管容器をほとんど改造することなく対応できること」を主眼とする。本研究の目標は次のとおりである。

① 無電力型水素濃度低減装置のための再結合触媒性能の評価

可燃性ガス濃度を低減する無電力型の水素爆発予防システムとして、最新のセラミックス製モノリス型再結合触媒と高機能ジオポリマー触媒の性能を把握評価する。

② 保管容器内自然対流挙動及び再結合触媒循環流挙動の実験による把握

実機保管容器の体積を約1/30のサイズで模擬する小型モデル実験用容器を製作し、崩壊熱や密度差に起因する自然対流による循環流挙動を定量的に把握する。また、小型モデル実験用容器内に①に示すモノリス型再結合触媒や高機能ジオポリマー触媒を挿入し、可燃性ガス濃度低減の効果を実験的に確認する。

③ 解析モデルの構築と保管容器内循環流シミュレーションによるモデル検証

触媒反応及び密度差加速型自然対流の解析モデルを構築し、小型モデル実験用容器を簡略模擬する体系で自然対流に起因する容器内循環流シミュレーションを行い、構築するモデルの妥当性を小型モデル実験の結果を基に検証する。

④ 実機への対応

実機規模の体系でシミュレーションを実施し、再結合触媒を用いた無電力型水素濃度低減装置の設置箇所等について可燃性ガス安全に係わる諸条件、諸因子を明示する。

これらの目標を達成するために、長岡技術科学大学を主担当に、宇都宮大学、関西学院大学、ダイハツ工業(株)、アドバンエンジニアリング(株)及び日本原子力研究開発機構を再委託機関として研究を行っている。

2. これまでの研究成果

(1) モノリス型触媒の開発（関西学院大学、ダイハツ、原子力機構）

自然対流促進と凝縮水付着時のガス流路の閉塞を防ぐため、従来のコーゼライト製のハニカム担体(H-170204)のセルピッチ 0.85 mm よりもマス目が荒い担体を試作し、金属を担持して触媒化に成功した。試作したハニカム担体の仕様を表 1、外観を図 1 に示す。

表 1 開発したハニカム担体の仕様

触媒 No.	試作サイズ	壁厚		セル密度 (セル/in ²)	セルピッチ (mm)
		μm	mm		
① H-170204	φ 93×L90	2.5	0.064	900	0.85
② H-170205	□150×L50	12	0.30	210	1.7
③ H-170206	□150×L50	17	0.43	100	2.7
④ XV605-C0026	φ 93×L10	26	0.66	30	4.6
⑤ XV605-C0027	φ 70×L10	26	0.66	30	4.6
⑥ XV605-C0028	φ 93×L10	17	0.43	100	2.7
⑦ XV605-C0029	φ 70×L10	17	0.43	100	2.7

触媒化には Pt、Pd、Rh の 3 種の金属を使用した。金属サポート材料としては、一般的なアルミナ担体、CO 被毒に強いセリア-ジルコニア複合酸化物、金属を結晶内に固溶させたペロブスカイト酸化物を使用した。また、モノリス型再結合触媒の活性評価実験が出来るように、粉体触媒評価装置に対して、水素供給ラインと分析計の追加、モノリス型触媒に対応した反応器の変更、制御・データ通信機能の改良等を実施した。

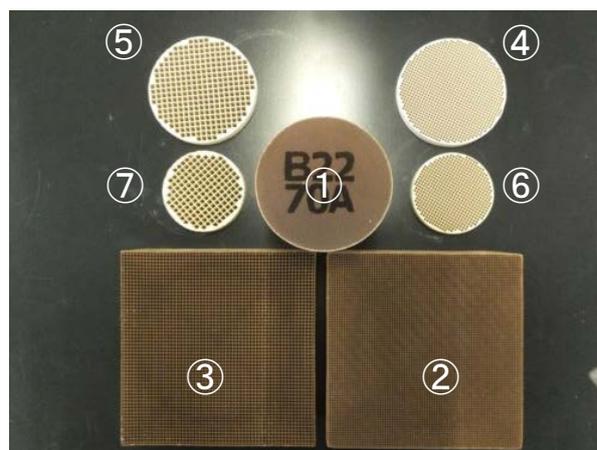


図 1 試作したハニカム担体の外観
(図中の数字は表 1 の触媒 No. wo 示す)

(2) 高機能ジオポリマー触媒の開発

(長岡技術科学大学、アドバンエンジ)

水素再結合能力を有する高機能ジオポリマー触媒を試作するための前段階として、触媒担体となる開気孔を有する多孔質ジオポリマーを製作し、開・閉気孔率の測定実験及び電子顕微鏡等によるジオポリマー微細構造評価を行った。多孔質ジオポリマーの外観を図 2 に示す。



図 2 試作したジオポリマー触媒

(3) 可燃性ガス濃度低減確認実験

(長岡技術科学大学、原子力機構)

小型モデル実験用容器は、保管容器内に取り付ける水素再結合触媒による水素濃度低減効果を実験的に確認するための容器であり、米国製廃棄物保管容器の体積を約 1/30 で縮小簡略模擬した形状を有する。小型モデル実験容器製作のための仕様検討にあたり、予備解析を実施して容器内で想定される可燃性ガスの循環流挙動を燃料デブリ等の堆積物がある場合とない場合に対して明らかにした。この結果をもとに熱電対等の計測機器の円筒容器内への設置位置を決定し、装置製作を行った。図 3 に小型モデル実験用容器と制御盤の外観を示す。また、図 4 に水素濃度低減予備実験の結果の一例を示す。試作した高機能ジオポリマー触媒が水素濃度低減効果を有していること並びに濃度の低減は反応面積に大きく依存することを明らかにした。



小型モデル実験用容器 制御盤

図 3 製作した小型モデル実験用容器と制御盤

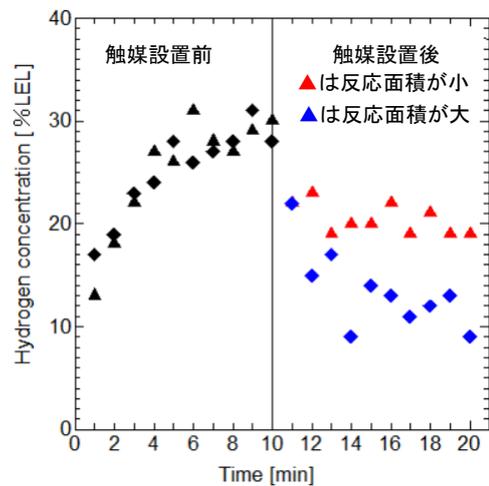


図 4 高機能ジオポリマー触媒の水素濃度低減効果の例

(4) 可燃性ガス濃度低減シミュレーション (宇都宮大学、原子力機構、長岡技術科学大学)

解析に際しては速度場、温度場における乱れの非等方性を予測する意味からレイノルズ応力、乱流熱流束を解くことを考え、それぞれの物理量を予測可能な非等方性浮力乱流モデルを構築し提案したモデルの妥当性検討のため計測結果を対象に解析し差異分析を実施した。解析対象として、He ら⁽¹⁾

の加熱された流体を垂直壁面に沿って噴出させた実験を対象とし、乱れの非等方性を考慮し温度による浮力項を加味した代数レイノルズ応力モデル、並びに代数乱流

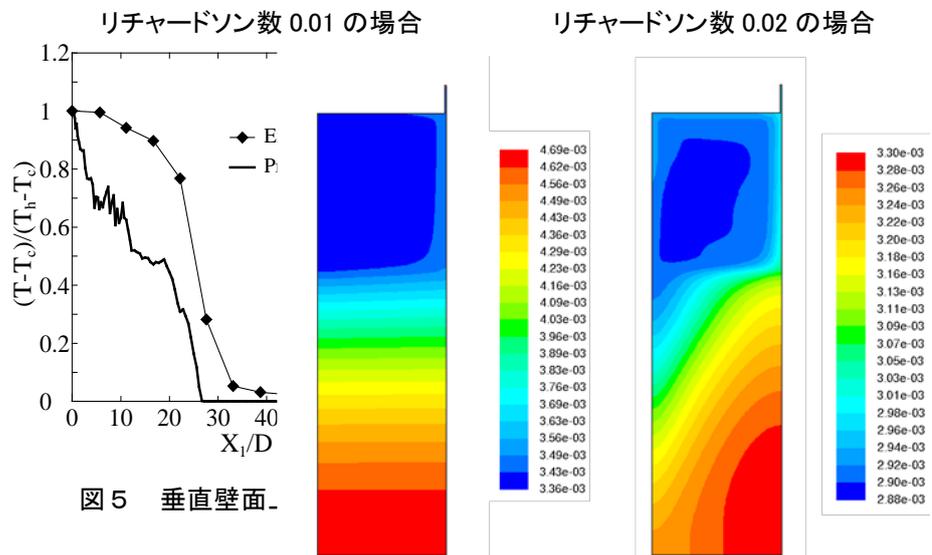


図 5 垂直壁面

a) 空隙率 0.5, 粒径 0.6mm b) 空隙率 0.5, 粒径 1.2mm

図 6 容器内水素モル分率の計算結果

熱流束モデルを用いて解析し、速度ベクトル、壁面温度分布等を比較して非等方性浮力乱流モデルの妥当性について検討した。図5はHaらの実験で得られた垂直壁面上の温度分布を計算値と比較した結果である。リチャードソン数(Ri)をパラメータとした結果、 $Ri=0.02$ の場合は0.01の場合に比べて良好に温度分布を再現できることを確認した。

容器内の多孔質性廃棄物に、熱量を1kWを加え、自然対流により生じる流れに対して、空隙率や粒径に関する流動抵抗モデルの影響が計算結果に反映されるかどうかを確認するために予備解析を行った。図6に示すように、初期状態から約3時間経過した容器内の水素濃度分布は空隙率や粒径が大きくなるに従って粒子間隙が広がることで、水素による浮力の発達が促進されることを確認した。

3. 今後の研究

- ① セラミックス製モノリス型触媒の性能を触媒反応試験によって広い範囲に亘って定量的に明らかにするとともに、氷点下からの触媒の活性評価及びモノリス型触媒の幾何学的要素と触媒活性の影響を実験的に確認する。
- ② 多孔質ジオポリマー触媒の触媒性能を向上させるとともに、電子顕微鏡等による微細構造評価や照射によるジオポリマー材料への影響評価を実施する。
- ③ 小型モデル実験用容器を使って廃棄物長期保管容器内に発生する自然対流に伴う循環流挙動を模擬した実験を行い、容器内を流れる流体の温度分布を測定する。また、セラミックス製モノリス型触媒及び多孔質ジオポリマー触媒を容器内に設置して、それぞれの触媒の水素濃度低減効果を実験的に明らかにするとともに、取得する実験データを基に解析コード検証のためのデータベースを構築する。
- ④ 廃棄物長期保管容器内の自然対流に伴う循環流挙動や水素再結合触媒による化学反応挙動をシミュレーションによって明らかにするために、密度差加速型自然対流モデルや水素再結合反応マクロモデルを開発する。また、開発するモデルを用いて小型モデル実験用容器内の自然対流シミュレーションや水素濃度シミュレーションを行い、実験データとの比較から開発するモデルの妥当性を明らかにする。
- ⑤ 実用化に向けての研究として、実規模サイズの条件でシミュレーションを行い、実機廃棄物長期保管容器における可燃性ガスの安全性を支配する諸条件、諸因子を明らかにする。

4. 参考文献

- (1) He, S., Xu, J. D., Jackson, J. D., "An Experimental Investigation of Buoyancy-Opposed Wall Jet Flow, Int. Journal of Heat and Fluid Flow, 23 (2002), pp. 487-496.