

福島第一原子力発電所から取り出した燃料デブリの水素安全性を確保する

高瀬 和之*¹ 高瀬 学*²
 Takase Kazuyuki Takase Gaku

1. はじめに

東京電力ホールディングス(株)福島第一原子力発電所(以下、1Fと称する)の廃止措置¹⁾においては、取り出した燃料デブリ等の放射性廃棄物を長期にわたって安全に保管することが重要である。燃料デブリは水を含むため、放射線による水分解²⁾によって水素ガスが発生する。特に1Fの場合には海水による冷却が行われており、海水に含まれる成分の影響で水素ガスが淡水条件よりも発生しやすいことが報告されている³⁾。よって、長期保管の過程において燃料デブリ保管容器内に水素ガスが蓄積されるため、水素ガスによる燃焼と爆発を回避するための方策が必要である。この方策の1つとして、水素ガスを放出するためのベント管システムが保管容器に設けられるが、容器転倒等の理由でベント管内がプラグされた場合には水素ガスの放出は困難になることから、水素制御の観点からはベント管システムに加えて更なる安全装置が必要である。

水素ガスは、空気に4%~75%混ざったときに爆発の危険性が高まることから、安全性を確保するためには水素ガスの濃度を常に爆発下限界である4%未満に保つことが重要である。1F燃料デブリからは水分解反応によってワーストケースとして毎分10 mLを超える水素ガスの発生が見込まれている。そこで、時間と共に増大する保管容器内の水素濃度を水素再結合触媒(以下、PAR⁴⁾と称する)を使って低減させることを目指し、PAR付き保管容器が1F燃料デブリ保管時の水素安全性向上に有効であることを基礎実験と数値シミュレーションによって評価した。

2. PARによる水素濃度の低減

触媒は、一般に化学反応時の反応速度を高めるために使用され、大きく分けて均一系触媒と不均一系触媒がある。均一系触媒は、溶液に溶けて作用する酸や塩基等で、多くの有機合成反応に用いられる。一方、不均一系触媒は、固体状態を維持しながら作用する触媒で、金属酸化物触媒等がある。不均一系触媒は、生成物との分離が容易であり、また繰り返し利用ができることから、化学物質を大量生産する工業プロセスや自動車の排気ガス浄化等、工業的に広く利用されており、高い実績がある。そこで、不均一系触媒を使って燃料デブリ保管容器内の水素濃度を低減させることを考えた。

図1にPARを利用した水素濃度低減の概念を示す。放射線による水分解反応によって発生する水素と酸素及び容器内に存在する空気中の酸素を、PARによって結合させることで水に戻し、容器内の水素

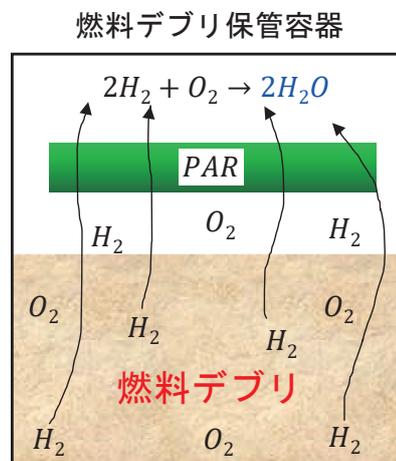


図1 PARによる水素濃度低減の考え方



平均直径 20mm



平均直径 10mm

図2 球状 PAR の外観

濃度の上昇を抑制させる。PAR の利用については、米国スリーマイル島原子力発電所事故の処理において、回収した燃料デブリを PAR 付き保管容器に封入して最終保管場所に輸送したことが報告⁵⁾されているが、PAR の仕様や妥当性に関する詳しい情報は公開されていない。

そこで、保管容器内に設置する PAR の開発を行った。開発にあたり、コンパクトであること、容器内に容易に設置できること、高い水素処理性能を有すること等を条件に、アルミナ球をベースとし、外表面に貴金属を担持することで触媒機能を持たせた球状触媒を開発した。図2に示すように、アルミナ球の直径を任意に変えることで希望するサイズの PAR を製造できる。また、担持する貴金属量を調整することで、任意の触媒活性力を有する PAR の製造が可能である。

3. 実験による検証

実験では、図3に示す直径 400 mm、高さ 900 mm の円筒容器の底部に設けた直径 10 mm のノズルから一定量の水素ガスを注入し、容器内水素濃度の時間変化を容器底部から 675 mm の位置に設置した水素濃度計（新コスモス計器製 VSC1）を使って測定した。使用した円筒容器は、国際廃炉研究開発機構が検討している 1F 燃料デブリ用保管容器の構造仕様⁶⁾を縮小簡略模擬した構造である。実験では、水素濃度低減に対する球状 PAR 付き保管容器の有効性を確認すると共に球状 PAR による水素濃度低減効果を支配する諸因子を明らかにするために、水素発生量、PAR 数量、PAR 設置位置等をパラメータとした。ここでは、直径 20 mm でプラチナ担持量が 1 重量% である球状 PAR を使って得られた実験結果の一例



図3 実験に使用した容器の外観

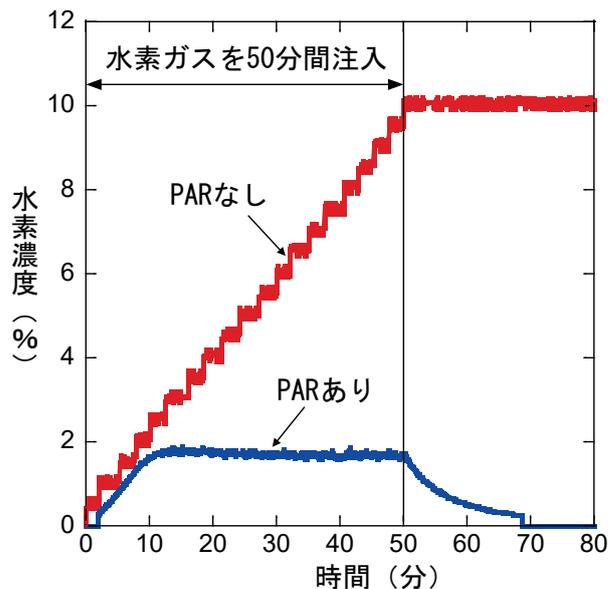


図4 水素濃度低減に PAR の有効性確認

を示す。初期に 40 °C で常圧の空気で満たされた円筒容器の内部に最大毎分 200 mL の水素ガスを注入した。実験では、実機燃料デブリ長期保管時に発生する水素ガスの積算量を短時間で模擬するために実機想定値よりも過大な水素ガス発生量条件を設定した。

図4に容器内に PAR がない場合とある場合に対して、毎分 200 mL で水素を 50 分間注入した条件

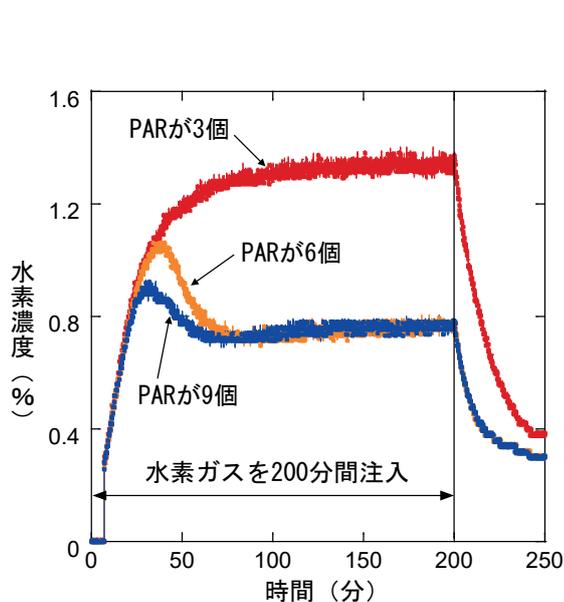


図5 容器内水素濃度に及ぼす PAR 数量の影響

で得られた水素濃度の時間変化を示す。PAR がない場合は容器内の水素濃度は赤線で示すように水素注入と同時に上昇し、水素注入停止後は一定値約 10% を維持した。一方、9 個の球状 PAR を容器上面の直下に設置した場合の水素濃度の変化を青線で示す。水素注入後に濃度は最高値約 2% を示し、その後は大きく変化せず、水素注入の終了と共に低下した。これにより、開発した球状 PAR を使って保管容器内の水素濃度を有効に低減できることを確認できた。

次に、保管容器内に設置した PAR 数量と水素濃度の関係を図 5 に示す。水素ガスの注入量は毎分 50 mL で 200 分間である。PAR 数量が 9 個（青線）の場合の水素濃度は、水素ガス注入開始から 25 分後に最高値約 0.9% を示し、水素ガス注入終了時には約 0.75% まで低下した。同様に、6 個（橙線）の場合は最高値約 10.5% を示し、その後は低下して 9 個の場合と同様の傾向を示した。一方、3 個（赤線）の場合の水素濃度の変化は 6 個や 9 個の場合とは異なり、水素ガス注入後 50 分程度までは急激に上昇するが、その後はなだらかな上昇になり、水素ガス注入終了時には 13% 強に達した。この結果から、PAR の数量を多くしても水素ガス発生量や容器内に存在する酸素量に応じて触媒反応が律速されるため、水素濃度の変化が限定されることが分かった。

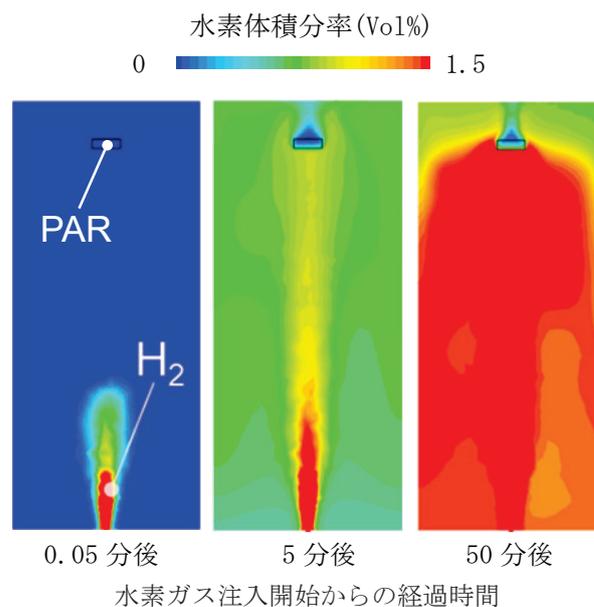


図6 容器内水素濃度の予測結果の例

4. 数値シミュレーションによる評価

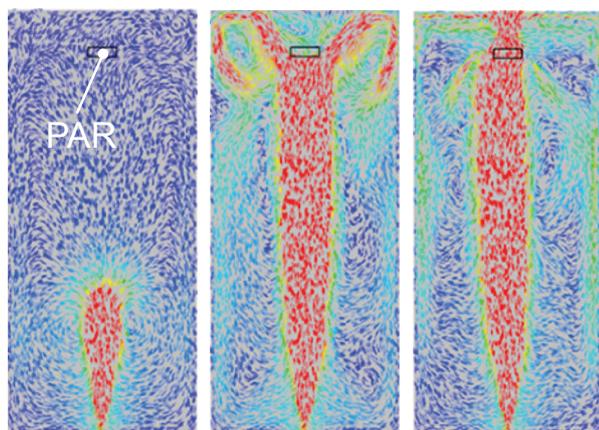
PAR による水素濃度低減に及ぼす支配因子の影響を実験結果をもとに検討するにあたり、取得できるデータの範囲は実験条件や実験回数に依存することから、取得データを補完すると共に保管容器内で起こる物理現象を明らかにすることを目的として数値シミュレーションによる評価を行った。

毎分 200 mL で水素ガスを 50 分間注入した条件に対する実験容器内の水素濃度の時間変化を図 6 に示す。ここで、容器上方に設置した球状 PAR は 9 個、容器内初期流体は 40 °C で常圧の空気、水素ガスの注入開始からそれぞれ 0.05 分、5 分及び 50 分後の予測結果である。注入した水素ガスは容器内で拡散するものの鉛直方向に向かって上昇（赤い部分）し、PAR に接触する。その結果、再結合反応によって水蒸気が生成され、PAR の外表面近傍は空気、水素ガス及び水蒸気から成る混合物で覆われる。一方、水素濃度の高い混合物の領域は PAR の下方に見られ、50 分後には容器内のほぼ全域に達する。

図 6 と同様の条件で求めた容器内混合物の速度ベクトルの予測結果を図 7 に示す。ここで、水素ガスの注入開始から、それぞれ 0.05 分、1 分及び 50 分後の結果である。0.05 分経過時に容器底部に流速の高い領域（赤い部分）が見られる。これは、注入さ

容器内混合物の流速 (m/s)

0  0.05



0.05 分後

5 分後

50 分後

水素ガス注入開始からの経過時間

図7 容器内流速ベクトルの予測結果の例

れた水素ガスの流速に加えて、水素ガスは空気に比べて密度が低いことから、空気中では水素ガスは鉛直上方に加速されるためである。1分経過時には容器中央部分を容器底部から高い流速で上昇した流れがPARに接触し、容器上部に広がる傾向が見られる。また、50分経過時には容器中央部分を容器底部からPARの位置まで上昇する流れ、PARの直上から容器上面に向かう流れ及び容器の側壁近傍を下降する流れが確認できる。以上の結果から、水素ガス発生時には容器内に対流が形成されるため、対流によって水素ガスはPARと接触しやすくなり、水素の再結合反応を促進できる可能性が高くなると推測される。

5. 成果の現状と今後の課題

球状PAR付き燃料デブリ保管容器の水素濃度低減に関する有効性を評価するために、保管容器内への設置が容易で高い水素処理性能を期待できる球状PARを開発し、それを燃料デブリ保管容器を縮小簡略模擬する実験容器に設置して水素量、PAR数量、

PAR設置位置等をパラメータとした基礎実験を行うと共に、数値シミュレーションによる現象評価を実施した。

基礎実験の結果から球状PARを使って水素ガスの濃度を常に爆発下限界である4%未満に維持できることを確認した。また、球状PARによる水素濃度低減に及ぼす支配因子の影響を定量的に明らかにした。一方、数値シミュレーションの結果から球状PAR付き保管容器内で起こる水素再結合反応を含む基本的な物理現象を再現できることを確認した⁷⁾。

今後は、実験結果と数値シミュレーション結果の比較をとおして、球状PAR付き保管容器の性能を高精度で評価できる解析手法の構築を図ると共に、2021年末までの1F燃料デブリ取り出しに向けての球状PAR付き保管容器の実用化を対象にした研究を考えている。既に、球状PARの長期健全性確保、耐放射線性向上、触媒性能長期維持並びに球状PARによる水素濃度低減性能を最大限に引き出すことができる保管容器構造の最適化に向けた検討、評価を進めている。

参考文献

- 1) 例えば、東京電力ホールディングス、福島第一原子力発電所の廃炉作業取組み、<http://www.tepco.co.jp/decommission/information/committee/kenminkaigi/>
- 2) 作本彰久、新井英彦、水の放射線処理技術の開発、*RADIOISOTOPES*, **34**, 570-579 (1985)
- 3) Kumagai, Y., et al., *Nuclear Science and Technology*, **50**, 130-138 (2013)
- 4) Shepelin, V., et al., *Nuclear Technology*, **178**, 29-38 (2012)
- 5) Henrie, J. O., et al., GEND-051. *Rockwell International Corp.*, (1985)
- 6) 技術研究組合国際廃炉研究開発機構 (IRID), 平成26年度補正予算「廃炉・汚染水対策事業費補助金(燃料デブリ・移送・保管技術の開発)」最終報告 (2017)
- 7) Takase, G., et al., *The International Topical Meeting on Advances in Thermal Hydraulics (ATH'18)*, 957-960, FL, USA (2018)

(*1 国立大学法人 長岡技術科学大学、

*2 国立大学法人 長岡技術科学大学
(現(国研)日本原子力研究開発機構))