

JAERI-Tech

99-074



JP9950618



HTTR水素製造システムの炉外技術開発試験
水蒸気改質器の構造と製作上の技術課題
(受託研究)

1999年10月

稻垣嘉之・大内義弘・藤崎勝夫・加藤道雄
宇野久男・林 光二・会田秀樹

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。

入手の問合せは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越しください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布をおこなっております。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Research Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 〒319-1195, Japan.

©Japan Atomic Energy Research Institute, 1999

編集兼発行 日本原子力研究所

HTTR 水素製造システムの炉外技術開発試験 水蒸気改質器の構造と製作上の技術課題 (受託研究)

日本原子力研究所大洗研究所核熱利用研究部
稲垣 嘉之・大内 義弘・藤崎 勝夫*・加藤 道雄
宇野 久男・林 光二・会田 秀樹

(1999年9月9日受理)

HTTR 熱利用系として、天然ガスの水蒸気改質（反応式： $\text{CH}_4 + \text{H}_2\text{O} = 3\text{H}_2 + \text{CO}$ ）による水素製造システムが計画されている。HTTR と水蒸気改質システムの接続の前に、安全性及び制御性の実証、水素製造性能の確認等を目的として、HTTR 水素製造システムの 1/30 スケールモデルである炉外技術開発試験装置の製作を進めている。炉外技術開発試験装置は、中間熱交換器から下流の主要機器を模擬したもので、原子炉の代わりに電気ヒーターを使用して、 $110\text{Nm}^3/\text{h}$ の水素を製造する能力を有する。

水蒸気改質器は、水蒸気改質により水素を製造する主要な機器である。炉外技術開発試験装置の水蒸気改質器の製作においては、ヘリウムガスからの熱の有効利用並びにコンパクトな構造を目指して、バイヨネット型触媒管の採用、触媒管外表面に設けた直交フィンによるヘリウムガスの伝熱促進等の工夫を行った。また、伝熱促進を行うためには触媒管の肉厚を 10mm 程度にする必要があるため、触媒管の設計においては、ヘリウムガスとプロセスガスの全圧を考慮する全圧設計ではなく、両者の差圧を基に触媒管の肉厚を定める差圧設計を適用した。この設計方法は、高圧ガス保安協会より初めて認可された。また、水蒸気改質器は可燃性ガスと電気ヒーターを内蔵することから防爆構造とした。

本報告書は、炉外技術開発試験装置の水蒸気改質器の構造、触媒管差圧設計並びに防爆構造の認可に係わる内容について述べたものである。

本報告書は、科学技術庁の受託研究「核熱利用システム技術開発」の成果である。

大洗研究所：〒311-1394 茨城県東茨城郡大洗町成田町新堀 3607

*出向中：(財)原子力発電機構

Out-of-Pile Demonstration Test of HTTR Hydrogen Production System

Structure and Fabrication Technology of Steam Reformer

(Contract Research)

Yoshiyuki INAGAKI, Yoshihiro OUCHI, Katsuo FUJISAKI^{*}, Michio KATO,
Hisao UNO, Koji HAYASHI and Hideki AITA

Department of Advanced Nuclear Heat Technology

Oarai Research Establishment

Japan Atomic Energy Research Institute

Oarai-machi, Higashiibaraki-gun, Ibaraki-ken

(Received September 9, 1999)

A hydrogen production system by steam reforming of natural gas, chemical reaction; $\text{CH}_4 + \text{H}_2\text{O} = 3\text{H}_2 + \text{CO}$, is to be the first heat utilization system of the HTTR. Prior to coupling of the steam reforming system with the HTTR, an out-of-pile test facility is presently under construction in order to confirm safety, controllability and performance of the steam reforming system under simulated operational conditions of the HTTR hydrogen production system. The out-of-pile test facility, using an electric heater as a reactor substitute, simulates key components downstream an intermediate heat exchanger of the HTTR hydrogen production system on a scale of 1 to 30 with a hydrogen production rate of 110 Nm³/h.

A steam reformer (SR) is a key component to produce hydrogen by steam reforming of natural gas. A bayonet-type catalyst tube was applied to the SR of the out-of-pile test facility in order to enhance the heat utilization rate. Also to promote heat transfer, the thickness of the catalyst tube should be decreased to 10mm while augmenting heat transfer by fins formed on the outer surface of the catalyst tube. Therefore, the catalyst tube was designed on the basis of pressure difference between helium and process gases instead of total pressure of them. This design method was authorized for the first time in Japan. Furthermore, a function of explosionproof was applied to the SR because it contains inflammable gas and electric heater.

This report describes the structure of the SR as well as the authorization both of the design method of the catalyst tube and the explosionproof function of the SR.

Keywords: Nuclear Heat Utilization, HTTR, Hydrogen Production System, Out-of-Pile Demonstration Test, Steam Reformer, Catalyst Tube, Steam Reforming, Natural Gas, Design, Fabrication, Explosionproof

Present study is entrusted from Science and Technology Agency of Japan.

* On Loan to Nuclear Power Engineering Corporation

目 次

1. 緒 言	1
2. 炉外技術開発試験装置の概要	4
3. 水蒸気改質器の構造	9
3. 1 水蒸気改質器の構造	9
3. 2 伝熱特性	12
3. 3 触媒と充填量	14
4. 触媒管差圧設計の特認	37
4. 1 特認の項目	37
4. 2 特認の対応	38
4. 2. 1 クリープを考慮した構造解析	38
4. 2. 2 触媒管の差圧制御系	41
4. 2. 3 触媒管保護装置	41
4. 2. 4 触媒管監視装置	42
5. 防爆構造の認可	56
6. 水蒸気改質器の試験計画	57
6. 1 プロセスガスとヘリウムガスの伝熱、圧力損失特性	57
6. 2 触媒層における反応特性	57
6. 3 触媒管の水素透過特性	58
7. 結 言	59
謝 辞	59
参考文献	60
付録：触媒管の設計差圧の設定根拠	62

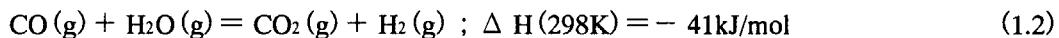
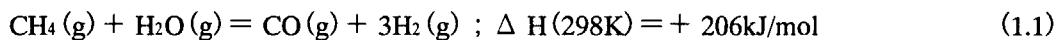
Contents

1. Introduction	1
2. Outline of Out-of-Pile Test Facility	4
3. Structure of Steam Reformer	9
3.1 Structure of Steam Reformer	9
3.2 Heat Transfer Performance	12
3.3 Catalyst and Loading Amount	14
4. Authorization of Design Method of Catalyst Tube	37
4.1 Contents of Application	37
4.2 Countermeasure for Authorization	38
4.2.1 Structure Analyses of Catalyst Tube Considering Creep	38
4.2.2 Pressure Difference Control System	41
4.2.3 Protective Device to Assure Design Conditions	41
4.2.4 Failure Detection Device	42
5. Authorization of Explosionproof Function	56
6. Test Plan of Steam Reformer	57
6.1 Heat Transfer and Pressure Loss in Steam Reformer	57
6.2 Reaction in Catalyst Bed	57
6.3 Hydrogen Permeation through Catalyst Tube	58
7. Concluding Remarks	59
Acknowledgments	59
References	60
Appendix: Ground for Setting Value of Pressure Difference in Design of Catalyst Tube	62

1. 緒 言

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 ℃を達成することができ、発電のほか、水素製造、化学工業の熱源等、多用途にわたる利用が可能となる。日本原子力研究所（以下、「原研」と呼ぶ）では、我が国初の高温ガス炉、高温工学試験研究炉（HTTR : High Temperature Engineering Test Reactor）を用いて、高温核熱利用技術の確立並びに将来の水素利用社会への貢献を目指して、天然ガス（主成分：メタン CH₄）の水蒸気改質による水素製造システムと HTTR の接続を計画している⁽¹⁾（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）。これは、950 ℃の高温の熱を炉外に取り出すことができる高温ガス炉の特徴を最大限に活用した利用法の一つであり、核熱利用を発電以外の分野に拡大・多様化するための世界で初めての試みである。

天然ガスの水蒸気改質による水素製造は工業的に広く行われている技術（以下、「化石燃料水素製造システム」と呼ぶ）であり、反応は次式で示される。



ここで、 ΔH ：標準生成熱、添字 g：気相状態を表す。(1.1)式の反応に必要な熱は、化石燃料水素製造システムでは燃焼ガスで供給しているが、HTTR 水素製造システムでは、原子炉から供給される高温のヘリウムガスを利用する。

HTTR 水素製造システムについてはこれまで概念設計が進められており、Fig. 1.1 に示す系統構成が定められた。原子炉で 950 ℃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、蒸気発生器等に熱源として供給される。水蒸気改質器には改質反応を行わせるため、触媒を充填した触媒管が設置されており、触媒管の外側をヘリウムガス（圧力：4.1MPa、水蒸気改質器入口温度：880 ℃）、内側をプロセスガス（天然ガスと水蒸気の混合ガス並びに反応後の生成ガスの総称、圧力：4.5MPa、水蒸気改質器入口温度：450 ℃）が流れて、熱交換を行う。

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開発研究については、これまで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^(2,3)。また、ドイツにおいても「ADAM-EVA」プロジェクトで(1.1)式の反応を利用した核熱の遠距離輸送を目的とし、メタンの水蒸気改質による水蒸気改質器の実証試験が行われた^(4,5)。また、近年、海外においても高温ガス炉を用いて天然ガスの水蒸気改質により水素を製造し、その後天然ガス中に含まれる CO₂ と反応させてメタノールを製造するシステムが検討されている⁽⁶⁾。

著者らは、これらの成果を基に HTTR に特有の問題、例えば原子炉入口のヘリウムガス温度変動によるスクラム停止等を考慮して、実際に HTTR に水素製造システムを接続するために必要な技術開発項目の抽出をシステム全般にわたって行い、原子炉施設として国による安全審査、さらには引き続く設工認等を受けるためのデータベースを整えるために炉外技術開発試験を計画

した^(7,8)。そして、HTTR 水素製造システムの 1/30 スケールモデルである炉外技術開発試験装置（以下、「炉外試験装置」と呼ぶ）の建設を進めている。

水蒸気改質器は、触媒を用いて(1.1)式の反応により水素を製造する重要な機器であるとともに、原料ガスの供給量が変動した場合には、原子炉へ戻るヘリウムガスの温度を変動させる外乱を発生する機器となる。この特性を明らかにすることは、HTTR 水素製造システムの水素製造能力、並びに過渡挙動を予測する上で非常に重要なことであり⁽⁹⁾、炉外技術開発試験の主要な試験項目となっている。炉外試験装置の水蒸気改質器の設計に当たっては、HTTR 水素製造システムの概念設計の成果を基に、①ヘリウムガスからの熱を反応へ有効に利用する、②コンパクトな構造とする、を目標にその構造を決定した。また、その製作に当たっては、触媒管の差圧設計に係わる高圧ガス保安法の特認、圧力容器内に補償ヒーター（電気ヒーター）を収納することから防爆構造の認可を取得した。

本報告書は、炉外試験装置の水蒸気改質器の構造、並びに触媒管差圧設計の特認と防爆構造の認可に係わる申請内容について述べたものである。

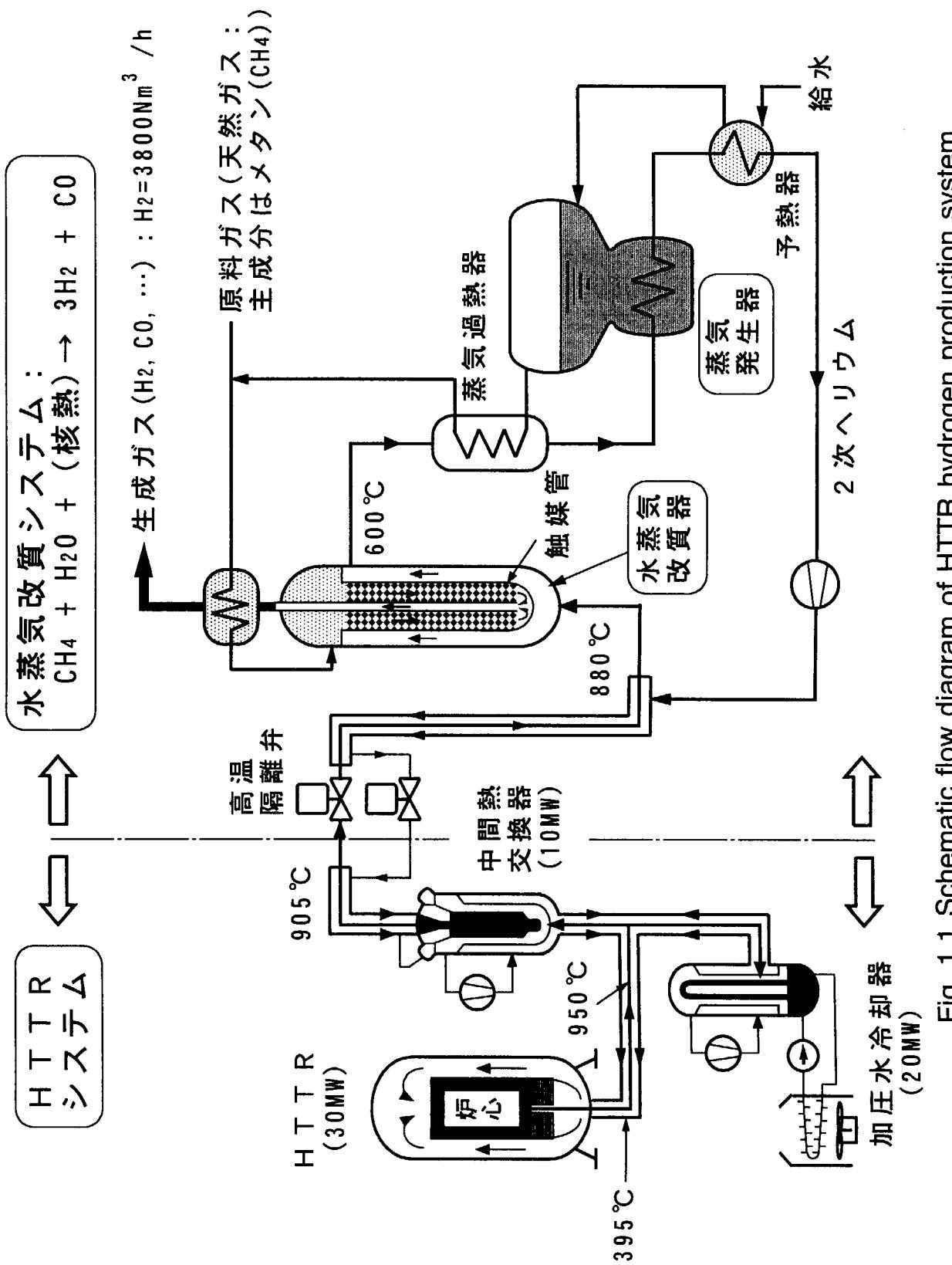


Fig. 1.1 Schematic flow diagram of HTTR hydrogen production system.

2. 炉外技術開発試験装置の概要

炉外試験装置は、HTTR水素製造システムの詳細設計・安全審査対応のデータ取得、並びに解析コードの検証のために、以下の項目を試験目的として、平成12年度の完成を目指して建設を進めている^(7,8)。

- ①水素製造システムの静的・動的挙動の把握。
- ②原子炉への外乱抑制、触媒管差圧制御等の運転制御技術の確立。
- ③高温機器（水蒸気改質器等）の開発・実証。
- ④水素製造システムの運転技術の習得。

炉外試験装置は、HTTR中間熱交換器から下流の水素製造システムの主要機器を模擬したものである。Table 2.1にHTTR水素製造システムと炉外試験装置の主要諸元、Fig. 2.1に炉外試験装置の系統構成を示す。試験装置は、原料ガスと水蒸気を反応させて水素を製造するための水蒸気改質器、熱源となるヘリウムガスを水蒸気改質器に供給するヘリウムガス供給系、水蒸気改質器に原料を供給するための原料ガス供給系及び水蒸気供給系、起動及び停止時に水蒸気改質器に窒素ガスを供給するための不活性ガス供給系、水蒸気改質器で製造された水素等の生成ガスを燃焼処分するための後処理系、計測制御、電気設備等で構成している。

ヘリウムガス供給系は、ヘリウムガス循環機、原子炉に相当してヘリウムガスの加熱源となる電気ヒータを内蔵したヘリウムガス加熱器、ヘリウムガス中の不純物を除去するヘリウムガス精製設備、ヘリウムガス供給系の圧力調整を行うヘリウムガス供給・回収・圧力調整設備、ヘリウムガス冷却器等で構成した。

原料ガス供給系は、液化天然ガス（LNG）の状態で貯蔵するLNGタンク、LNGポンプ、LNGを気化するためのLNG蒸発器、原料ガス加熱器、原料ガス過熱器等から成る。

水蒸気供給系は、純水を貯蔵するための給水受入タンク、水予熱器、蒸気発生器、蒸気過熱器等から成る。

後処理系は、水蒸気改質器で生成した生成ガスを燃焼処分するためのフレアスタック、生成ガス冷却器等で構成した。反応に使用されなかった余剰水蒸気は、生成ガス冷却器で水に凝縮し、反応の原料として再利用する。

不活性ガス供給系は、水素製造システムの起動・停止時において、水蒸気改質器入口のヘリウムガス温度が600℃以下のときに、原料ガスの代わりに窒素ガスを供給するため設備で、液体窒素（LN₂）の状態で貯蔵するLN₂タンク、LN₂ポンプ、LN₂蒸発器から成る。試験装置の起動及び停止時に、600℃以下の温度域で原料ガスを供給すると触媒に炭素が析出する可能性があるため、起動時にはヘリウムガス温度の上昇とともに窒素ガスから原料ガスへ、停止時にはヘリウムガス温度の降下とともに原料ガスから窒素ガスへ徐々に置換できる構成にした。また、触媒の使用開始時に触媒を還元するための水素供給設備を設けた。

炉外試験装置の熱流動条件については、温度、圧力についてはHTTR水素製造システムと同じ条件下で試験を行えるものとした。ヘリウムガスやプロセスガスの流量については、水蒸気改質器の触媒管内外の熱伝達特性、圧力損失特性、改質反応特性を明らかにする上で必要な最小限

とし、HTTR 水蒸気改質器の設計案による触媒管本数 30 本のうち 1 本を模擬できること、すなわち、HTTR 水素製造システムの 1/30 とした。

炉外試験装置の定格運転条件を以下に示す。ここで定格運転条件とは、HTTR 水素製造システムと同じ温度、圧力であり、各ガスの流量については上述したように HTTR 水素製造システムの 1/30 である。

(a) ヘリウムガスの定格運転条件

- ・水蒸気改質器入口圧力 : 4.0 MPa
- ・水蒸気改質器入口温度 : 880 °C
- ・水蒸気改質器出口温度 : 650 °C
- ・ガス循環機入口温度 : 150 °C
- ・循環流量範囲 : 0 ~ 120 g/s、定格運転時 91 g/s

(b) 原料ガス（天然ガス）の定格運転条件

- ・水蒸気改質器入口圧力 : 4.3 MPa
- ・水蒸気改質器入口温度 : 450 °C
- ・水蒸気改質器出口温度 : 600 °C
- ・供給流量範囲 : 0 ~ 16 g/s、定格運転時 12 g/s

(c) 水蒸気の定格運転条件

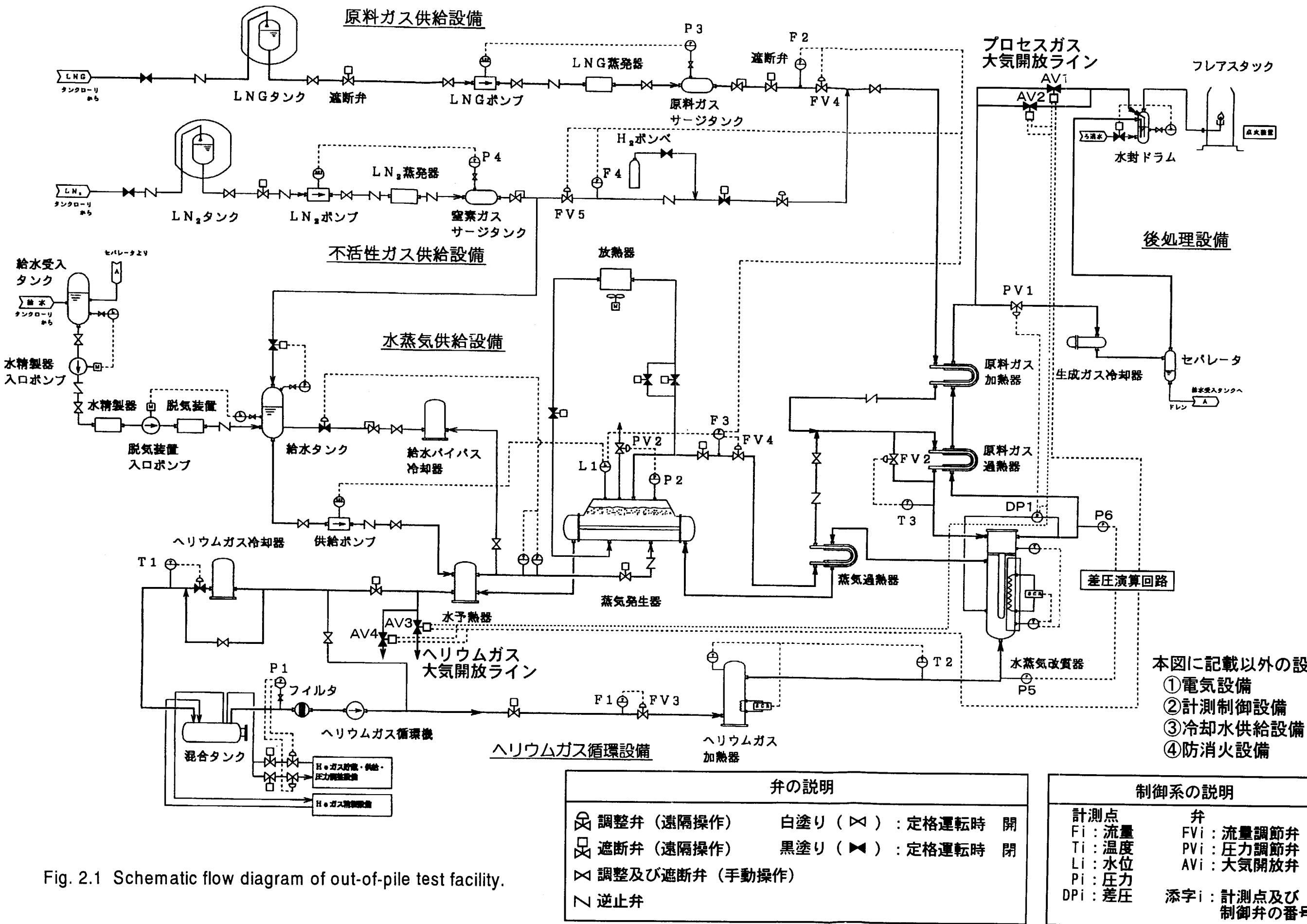
- ・水蒸気改質器入口圧力 : 4.3 MPa
- ・水蒸気改質器入口温度 : 450 °C
- ・供給流量範囲 : 0 ~ 58 g/s、定格運転時 47 g/s

(d) 反応条件及び水素製造量

- ・水蒸気／原料ガス供給比（S/C 比）: 2.0 ~ 4.0、定格運転時 3.5
- ・水素製造量 : 110 Nm³/h

Table 2.1 Design specifications of HTTR hydrogen production system and out-of-pile test facility.

項目	HTTR 水素製造システム	炉外技術開発試験装置
圧力 プロセスガス / ヘリウムガス	4.5 / 4.1 MPa	4.3 / 4.0 MPa
水蒸気改質器入口温度 プロセスガス / ヘリウムガス		450 / 880°C
水蒸気改質器入口温度 プロセスガス / ヘリウムガス	600 / 600°C	600 / 650°C
天然ガス供給量	1296kg/h (81kmol/h)	43.2kg/h (2.7kmol/h)
ヘリウムガス循環量	8748kg/h	327.6 kg/h
水蒸気/天然ガス供給比(S/C)	3.5	2~4
水素製造量	3800Nm ³ /h	110Nm ³ /h
熱源	原子炉 (10MW)	電気ヒーター (380kW)



3. 水蒸気改質器の構造

3. 1 水蒸気改質器の構造

ヘリウムガスとの熱交換を行う水蒸気改質器については、工業技術院によるプロジェクト、並びに ADAM-EVA プロジェクトにおいて実証試験が行われた。従来の化石燃料水素製造システムは、燃焼ガス（約 1200 ℃）からの放射伝熱を利用し、触媒管の熱流束は $70,000 \sim 87,000 \text{W/m}^2$ に達する。一方、HTTR 水素製造システムでは、ヘリウムガスの対流伝熱を利用するが、原子炉から水蒸気改質器に至るまでに熱損失により 950 ℃から 880 ℃へ低下し、ヘリウムガスと触媒管の温度差は平均で約 60 ℃と小さい。したがって、触媒管外を流れるヘリウムガスの伝熱促進は、水蒸気改質器をコンパクトに設計するために重要な課題であり、化石燃料水素製造システムと同等の熱流束を得るために、ヘリウムガスの熱伝達率を $1,170 \sim 1,450 \text{W/m}^2\text{K}$ まで向上させる必要がある。

工業技術院によるプロジェクトでは、直管型の触媒管を用い、ヘリウムガスの伝熱促進法としては、触媒管の外側に流れを乱すとともに局所的にヘリウムガスの流速を上昇させるオリフィスバッフル板を設置していた。ADAM-EVA プロジェクトでは、バイヨネット型の触媒管を用い、ヘリウムガスの伝熱促進法としては、触媒管の周囲に円筒状のガイド管を設置し、触媒管とガイド管で形成する環状流路（隙間：9 mm）に流れるヘリウムガスの流速を上昇させる方式を用いていた^(4,5)。

炉外試験装置の水蒸気改質器では、触媒管の構造については、触媒管の熱膨張の吸収が容易であり、また、改質反応後のプロセスガスの熱を触媒層内のプロセスガスに再利用できることからバイヨネット型とした。さらに、ヘリウムガスの伝熱促進方法としては、構造が簡便であること、並びに伝熱性能がオリフィスバッフル板に比較して優れていることから、触媒管の外周にガイド管を設ける方式を採用した。以上のことから、ADAM-EVA プロジェクトの触媒管構造を基本に炉外技術開発試験の水蒸気改質器の構造を決定した。

（1）水蒸気改質器の仕様と構造

Fig. 3.1 は水蒸気改質器の構造を示したもので、バイヨネット型触媒管を 1 本収納している。熱源となるヘリウムガス（入口の温度：880 ℃、圧力：4.0MPa）は、圧力容器下端のノズル N1 から入り、触媒管とガイド管間の環状流路を流れてプロセスガスと熱交換を行った後、ノズル N2 から流出する（出口の温度：650 ℃、圧力：3.98MPa）。プロセスガス（原料ガス及び水蒸気、入口の温度：450 ℃、圧力：4.29MPa）はノズル N3 から入り、触媒層を通過して改質反応を行った後、触媒管内の内管を通ってノズル N4 から流出する（出口の温度：600 ℃、圧力：4.04MPa）。触媒層を出た直後のプロセスガス（生成ガス）温度は約 790 ℃と高温であり、内管を通るときに触媒層内のプロセスガスへ熱を供給する。触媒管は圧力容器上部の管板で支持されており（溶接構造）、下端はフリーとなっており、触媒管の熱膨張を容易に吸収できる構造である。触媒管にはヘリウムガスの伝熱を促進するために直交フィン（高さ：2 mm、幅：1 mm、ピッチ：2 mm）を設けている。この伝熱性能については、3.2 節で詳述する。

水蒸気改質器の仕様以下に示す。設計・製作に当たっては、高圧ガス保安法を適用している。

本体型式：バイヨネット触媒管収納縦置円筒型

数　　量：1基

流　　体：触媒管内　プロセスガス／胴側　ヘリウムガス

流　　量：触媒管内　プロセスガス 59 g/s ／胴側　ヘリウムガス 91 g/s

入口／出口温度：ヘリウムガス 880 / 650 °C

　　　　　　プロセスガス 450 / 600 °C

交換熱量：109 kW

設計温度：圧力容器 400 °C

設計圧力：圧力容器 ヘリウムガス 4.42 MPa

　　　　　　プロセスガス 4.91 MPa

材　　質：圧力容器 SCMV4-1

管　　板 SFVAF22A

補償ヒーター容量：32 kW

触媒管：

数　　量：1本

設計温度：920 °C

設計差圧：外圧 0.5MPa、内圧 1.0MPa

材　　質：NCF800HTF 及び NCF800H

寸　　法：147.8^{0.0} × 10^t × 7,300 mm (触媒充填長：4,700mm)

設計寿命：20,000 時間

充填触媒：ニッケル触媒

HTTR 水素製造システムでは、触媒管の材質にハステロイ XR を予定しているが、本材料は高圧ガス保安法の認定材料ではないために特認が必要であること、また、素材を含む製作費が高いことから、炉外技術開発試験装置では触媒管の材質に 900 °C 以上の高温雰囲気における高圧ガス保安法の唯一の認定材料である NCH800HTF を用いた。製作後の触媒管の外観を Photo 3.1 に示す。

高圧ガス保安法においては、各流体に接する機器の設計圧力は、その流体の最高使用圧力としなければならない。これを適用するとヘリウムガス（外圧）に対して 4.42MPa、プロセスガス（内圧）に対して 4.91MPa となり、これに耐えるためには後述するように触媒管の肉厚が約 130mm と過大となって製造不能となる。そこで、触媒管はプロセスガスとヘリウムガスの差圧を考慮して肉厚を定める差圧設計とした。差圧設計については、高圧ガス保安法で認められていないため、特認申請を実施した。その詳細は 4 章で述べる。

Fig. 3.2 は、触媒管のプロセスガスとヘリウムガスの温度分布及び圧力分布を示したものである。プロセスガスは触媒層出口で最高温度 790 °C となり、そのときの触媒管温度は 840 °C となる。また、プロセスガスとヘリウムガス間の差圧は、触媒層出口で最小となる。触媒管の差圧設計においては、この最小差圧の場所で外圧を 0.5MPa 以下とする必要があるため、ここを差圧制御点として差圧制御系を構成した。差圧制御系の詳細については 4 章で述べる。

(2) 補償ヒーターの構造

ヘリウムガスとプロセスガスの熱交換特性は、HTTR 水素製造システムの水蒸気改質器の詳細設計を行う上で重要な項目であり、炉外試験においてこの特性を明らかにする。熱交換特性を精度よく測定するためには、圧力容器からの放熱による熱損失を補正することが必要であり、このために圧力容器胴部内側に補償ヒーターを設けた。

補償ヒーターは Fig. 3.3 に示すように、ニクロム線（外径： ϕ 4mm）をシース管（寸法： ϕ 12^{0.0}_{0.0} × 1¹mm、材質：NCF600）に収納し、その間に絶縁材（材質：BN）を充填したものである。Fig. 3.4 は補償ヒーターの設置方法を示したもので、ガイド管の外周にヒーター取付管を設置し、その周囲に軸方向に 5 段に分割して巻き付けた。各段の補償ヒーターは個別に制御することが可能である。その制御方法は、ガイド管の表面温度を測定し、ガイド管と補償ヒーターを巻き付けた取付管の温度が一致するように制御するものである。

(3) 計測点

Fig. 3.5 に水蒸気改質器内の熱電対配置を示す。温度計測点は触媒管の外側を流れるヘリウムガスが 5 点、触媒層内のプロセスガス温度が 5 点、内管内のプロセスガス温度が 4 点、補償ヒーター制御用のガイド管外壁温度及び補償ヒーター取付管外壁温度が各 5 点、触媒管の外壁温度が 5 点、管板温度及び補償ヒーター表面温度が各 1 点の計 31 点である。Fig. 3.6 に内管内の熱電対の設置方法、熱電対の構造を Fig. 3.7 及び 3.8、熱電対取り出しノズルの配置を Fig. 3.9 に記す。Fig. 3.8 に示すように触媒層内プロセスガス温度想定用の熱電対については、触媒とのしゅう動により熱電対が破損しないように保護管内に収納した。熱電対の仕様を以下に示す。

型式：シース熱電対非接地型（T35 型）

素線：K型（クロメル・アルメル）

素線径： ϕ 0.51mm

シース径： ϕ 3.2mm

シース材：ホスキニス 2300

水蒸気改質器内の熱電対は、特にプロセスガスに関しては高温の酸化性雰囲気（約 800 °C の水蒸気の雰囲気）で使用される。このような雰囲気では、通常の熱電対（シース材：NCF600）は、使用後すぐにドリフトが始まり、温度の測定誤差が大きくなる。このため、米国ホスキニス社で新規に開発された酸化性雰囲気に対して耐久性の高い上記の熱電対を採用した。この熱電対は、これまでの熱電対のシースが一重であるのに対しシースが二重であること、シース材は Ni-Cr 合金に Al と Fe を加えたもので、使用中に表面に Al_2O_3 の酸化膜を形成して耐酸化性を向上させる。また、還元性雰囲気（水素）においても優れた耐久性を有することがメーカーの試験で確認されている。

この他、内管内には、ハステロイ XR の腐食を確認するためのサーベイランス試験片（寸法：10 × 30 × 2mm）を 3 枚設置した。また、プロセスガスの水蒸気改質器出入口に触媒層内の圧力損失を測定する差圧計、ヘリウムガスの水蒸気改質器出入口に触媒管を経由してプロセスガスからヘリウムガスへ透過する水素量を測定するサンプリングラインを設置する。

3. 2 伝熱特性

水蒸気改質器の熱設計を行う条件は以下の通りである。

ヘリウムガス温度（入口／出口）	: 880 °C / 650 °C
ヘリウムガス圧力（入口）	: 4.0 MPa
ヘリウムガス流量	: 91 g/s
プロセスガス温度（触媒層入口／出口）	: 450 °C / 780 °C
プロセスガス圧力（入口）	: 4.1 MPa
プロセスガス流量	: 59 g/s

水蒸気改質器でのヘリウムガスとプロセスガスの交換熱量 Q は、ヘリウムガスの出入口温度から次式で求められる。

$$Q = G_{He} \rho_{He} C_{pHe} (T_{He,in} - T_{He,out}) = 108.6 \text{ kW} \quad (3.1)$$

ここで、

G : 流量 (kg/s) ρ : 密度 (kg/m³)

C_p : 比熱 T : 温度

添字

He : ヘリウムガス in : 入口 out : 出口

ヘリウムガスとプロセスガスの対数平均温度差 ΔT_m は次式で与えられる。

$$\begin{aligned} \Delta T_m &= [(T_{He,in} - T_{R,out}) - (T_{He,out} - T_{R,in})] / \ln [(T_{He,in} - T_{R,out}) / (T_{He,out} - T_{R,in})] \\ &= 144.3 \text{ °C} \end{aligned} \quad (3.2)$$

ここで、添字は R : プロセスガスである。

ヘリウムガスの熱伝達率 α_{He} は、次式に示す直交フィンの Knudsen らの式⁽¹⁰⁾から求める。

$$\begin{aligned} \alpha_{He} &= 0.039 (\lambda_{He}/De)^{0.87} (C_{pHe} \mu_{He}/\lambda_{He})^{0.4} (Fs/De)^{0.4} (F_H/De)^{0.19} \\ &= 2,154 \text{ W/m}^2\text{K} \end{aligned} \quad (3.3)$$

$$Re_{He} = DeG_{He,max}/\mu_{He} \quad (3.4)$$

$$G_{He,max} = 4G_{He}/[\pi (D_{Gi}^2 - D_{Fi}^2)] \quad (3.5)$$

ここで、

De : 代表直径 (m) D_{Gi} : ガイド管内径

D_{Fi} : フィン外径 Fs : フィン間隔

F_H : フィン高さ λ : 热伝導率 (W/mK)

μ : 粘性係数 (Pa s)

Fig. 3.10 は直交フィンの伝熱促進効果を示したもので、縦軸にヘリウムガスの熱伝達率、横軸にガイド管内径とフィン先端の流路隙間を示している。フィン間隔及びフィン高さは 2mm で一定である。当初の目的であるヘリウムガスの熱伝達率 1,450W/m²K を満足するためには、流路隙間が 7mm 以下であればよい。炉外試験装置ではさらなる伝熱促進を目指し、かつ製作可能な流路隙間として 5mm を選定した。

触媒層内の熱伝達率は、充填層に係わる Yagi-Kunii の式^(11,12)から求めた。触媒管内壁のプロセスガスの見かけ熱伝達率 $\alpha_{R,w}$ は次式で求められる。

$$\alpha_{R,w} D_p / \lambda_{Pro} = \alpha_{R,w}^\circ D_p / \lambda_R + 1/[1/(\alpha_{R,w}^\circ D_p / \lambda_R) + 1/(\Psi_w P_{TR} Re_R)] \quad (3.6)$$

$$1/(\alpha_{R,w}^{\circ} Dp/\lambda_R) = 1/(\lambda_w^{\circ}/\lambda_R) - 0.5/(\lambda_c^{\circ}/\lambda_R) \quad (3.7)$$

$$\lambda_w^{\circ}/\lambda_R = \varepsilon_w(2 + \alpha_{rv}Dp/\lambda_R) + (1 - \varepsilon_w)/[1/(1/\phi_w + \alpha_{rs}Dp/\lambda_R) + \lambda_R/(3\lambda_s)] \quad (3.8)$$

$$\alpha_{R,w}^* Dp/\lambda_R \doteq 4Pr^{1/3} Re^{1/2} \quad (3.9)$$

$$\lambda_c^{\circ}/\lambda_R = \varepsilon(1 + \alpha_{rv}Dp/\lambda_R) + (1 - \varepsilon)/[1/(1/\phi + \alpha_{rs}Dp/\lambda_R) + (2/3)(\lambda_R/\lambda_s)] \quad (3.10)$$

$$\alpha_{rs} = 0.1952[p/(2-p)][(T+273)/100]^3 \quad (3.11)$$

$$\alpha_{rv} = \{0.1952/[1 + \varepsilon(1-p)/2(1-\varepsilon)p]\} [(T+273)/100]^3 \quad (3.12)$$

$$\Psi_w \doteq 0.054 \quad \varepsilon_w \doteq 0.7$$

ここで、

$\alpha_{R,w}^{\circ}$: プロセスガス静止時における $\alpha_{R,w}$ の値 (W/m²K)

$\alpha_{R,w}^*$: 触媒管内表面境界層による真の熱伝達率 (W/m²K)

Ψ_w : 壁近傍における (触媒層内横方向のプロセスガス質量速度) / (流れ方向のプロセスガス質量速度) の平均値

ϕ : (触媒接触点近傍のプロセスガス膜有効厚さ) / (触媒径)

λ_c° : プロセスガス静止時における充填層有効熱伝導率 (W/mK)

α_{rs} 、 α_{rv} : 放射熱伝達率 (W/m²K) p : 触媒表面の放射率

ε : 触媒層の平均空隙率

ε_w : 壁近傍の触媒層の平均空隙率

Pr : プラントル数

(3.6)～(3.12)式から $\alpha_{R,w} = 837$ W/m²K となる。

ヘリウムガスからプロセスガスへの熱通過率 K は次式で求められる。

$$1/K = A_F/\alpha_{He} + R_f + A_o t_c / (\lambda_c A_m) + R_i A_o / A_i + A_o / (A_i \alpha_{R,w}) \\ = 181 \text{ W/m}^2\text{K} \quad (3.13)$$

ここで、

A_o : 単位長さ当たりの触媒管外周面積 (= 1.095m²)

A_i : 単位長さ当たりの触媒管内周面積 (= 0.401m²)

A_m : 単位長さ当たりの触媒管平均周面積 (= 0.432m²)

A_F : フィン管外有効係数 (= 1.048)

R_f : フィン熱抵抗 (= 0.000223 m²K/W)

R_i : プロセスガスの汚れ係数 (= 0.00018 m²K/W)

t_c : 触媒管厚さ (= 0.01m) λ_c : 触媒管熱伝導率 (= 24 W/mK)

必要伝熱面積 A は次式となる。

$$A = Q / (K \Delta T_m) = 4.17 \text{ m}^2 \quad (3.14)$$

ここで、20 %の余裕を見込んで $A = 5.01 \text{ m}^2$ とした。

触媒管の必要長さ L は次式で求められる。

$$L = A / A_F = 4.77 \text{ m} \quad (3.15)$$

ヘリウムガスとプロセスガスの熱交換に必要な伝熱面積は(3.15)式で求められる。しかし、水素製造量 110 Nm³/h に必要な触媒量に不確定要素があるため、実際の触媒管長さは余裕をみて 7m

とした。

3. 3 触媒と充填量

工業界で一般に用いられる水蒸気改質用触媒は、担体である $\alpha - \text{Al}_2\text{O}_3$ に担持金属は Ni を含浸させたものである。その形状は、タブレット状、球状、リング状等があり、大きさも直径が $\phi 3 \sim 20\text{mm}$ 程度と様々である。炉外試験装置の触媒については、以下のことに留意して選定した。

- ①これまでの充填層内の熱伝達率については、これまでほとんどの研究例が $D_p/D_H < 0.2$ (D_H : 触媒層の幅 33.65mm, D_p : 触媒の直径) の条件で評価している⁽¹²⁾。これは、上記の条件外では管壁の影響が大きくなることによる。そこで触媒寸法に関しては、 $D_p/D_H < 0.2$ の条件を満足する直径 $\phi 5\text{mm}$ の触媒を選定した。
- ②炉外試験装置の起動・停止時において温度変化に伴う触媒管の熱膨張により、触媒管とのしうう動によって触媒が破損する可能性がある。このため、できるだけ破碎強度の大きいタブレット状及び球状の触媒から選定することとした。また、K や Ca を添加したものは硫化物質による触媒の活性劣化を抑制できるが、K や Ca を添加すると破碎強度が低下すること、炉外試験装置で使用する天然ガスには硫化物質が微量であることから、K や Ca を添加しないものを選定した。

上記の条件を満足する触媒（東洋 CCI 社製）として以下の仕様のものがある。

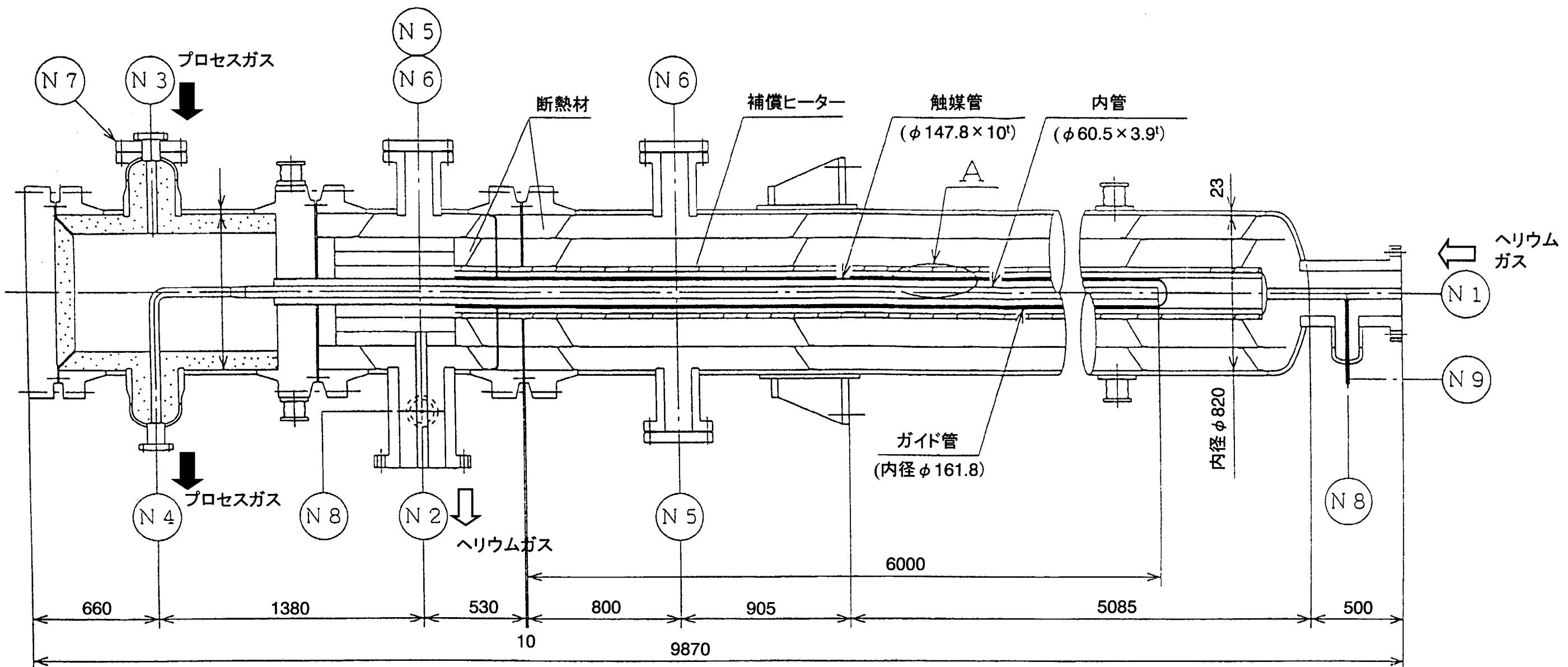
触媒名	形状	寸法	担持金属含有率 (重量%)	破碎強度 (製造規定)	破碎強度 (実績)
FCR2-02	タブレット	$\phi 5 \times 5\text{mm}$	12 %	28kg 以上	35 ~ 55kg
FCR4-04	球	$\phi 5\text{mm}$	20 %	30kg 以上	35 ~ 50kg

このうち、水蒸気改質器の製造メーカーであるバブコック日立が使用実績を有する FCR2-02 を候補として選定した。

水蒸気改質器の触媒量は、SV 値により次式で求められる。ここで、SV 値は触媒で生成される水素量、 η は裕度を示すもので、本設計では裕度を 20 % として $\eta = 0.8$ とした。

$$\text{触媒容積} (\text{m}^3) = \text{水素生成量} (\text{Nm}^3/\text{h}) / (\text{SV}(\text{h}^{-1}) \cdot \eta) \quad (3.16)$$

SV 値は担持金属等の触媒特有の性質の他に温度、圧力、流量等の使用条件によって異なり、一般には $2,000 \sim 4,000 \text{ h}^{-1}$ といわれている。Fig. 3.11 は、水素製造量が $110\text{Nm}^3/\text{h}$ の条件における触媒管の触媒充填高さと SV 値の関係を示したものである。触媒管における最大の触媒充填高さは 7m であり、このときの SV 値は $1,970 \text{ h}^{-1}$ である。また、直交フィンを設けた場合の触媒管の高さは 4.7m であり、このときの SV 値は $2,900 \text{ h}^{-1}$ である。触媒の充填量が少ない場合には水素の製造量が減少し、充填量が多い場合には水素製造量は増加するが、水蒸気改質器出口のヘリウムガス温度が設計値である 650°C を下回ることとなり、水蒸気の製造に必要な熱量が不足する。炉外試験装置のような高圧の雰囲気における SV 値のデータがないため、運転当初はヘリウムガスの熱交換 ($880^\circ\text{C} \rightarrow 650^\circ\text{C}$) に必要な触媒管長さ 4.7m に触媒を充填することとし、その後必要に応じて充填量を調整することとした。



A部詳細

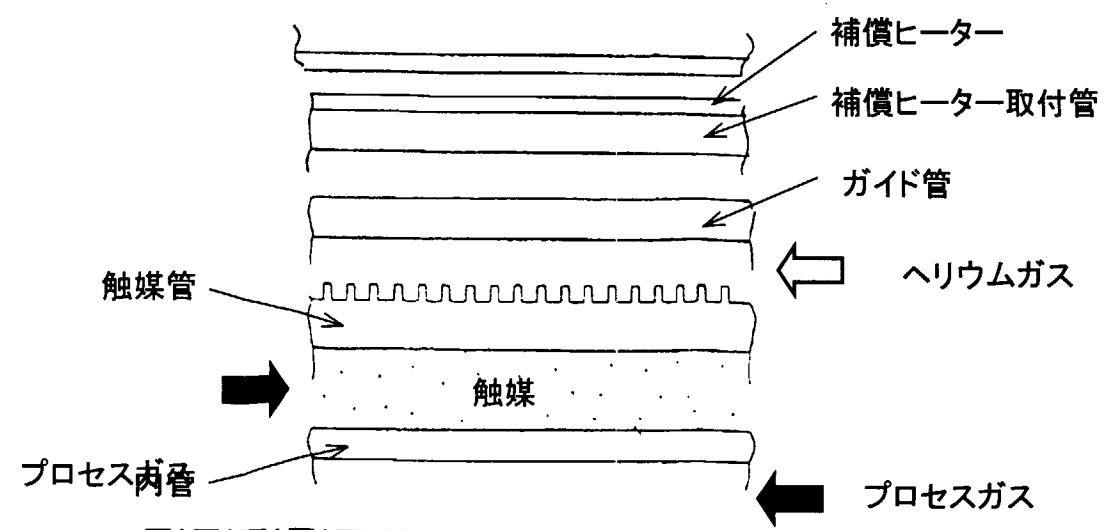


Fig. 3.1 Schematic view of steam reformer.

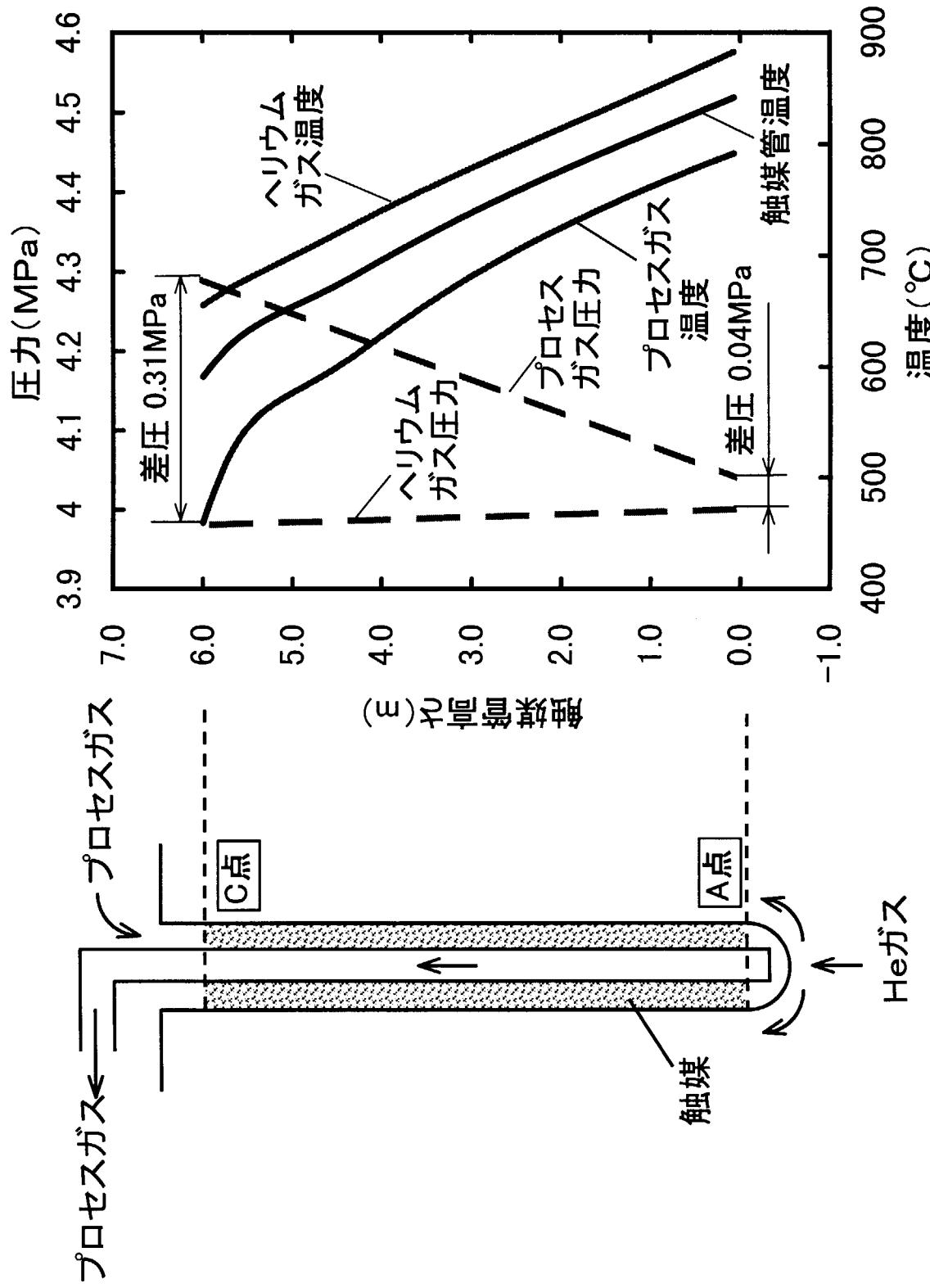


Fig. 3.2 Temperature and pressure distributions of helium and process gases.

This is a blank page.

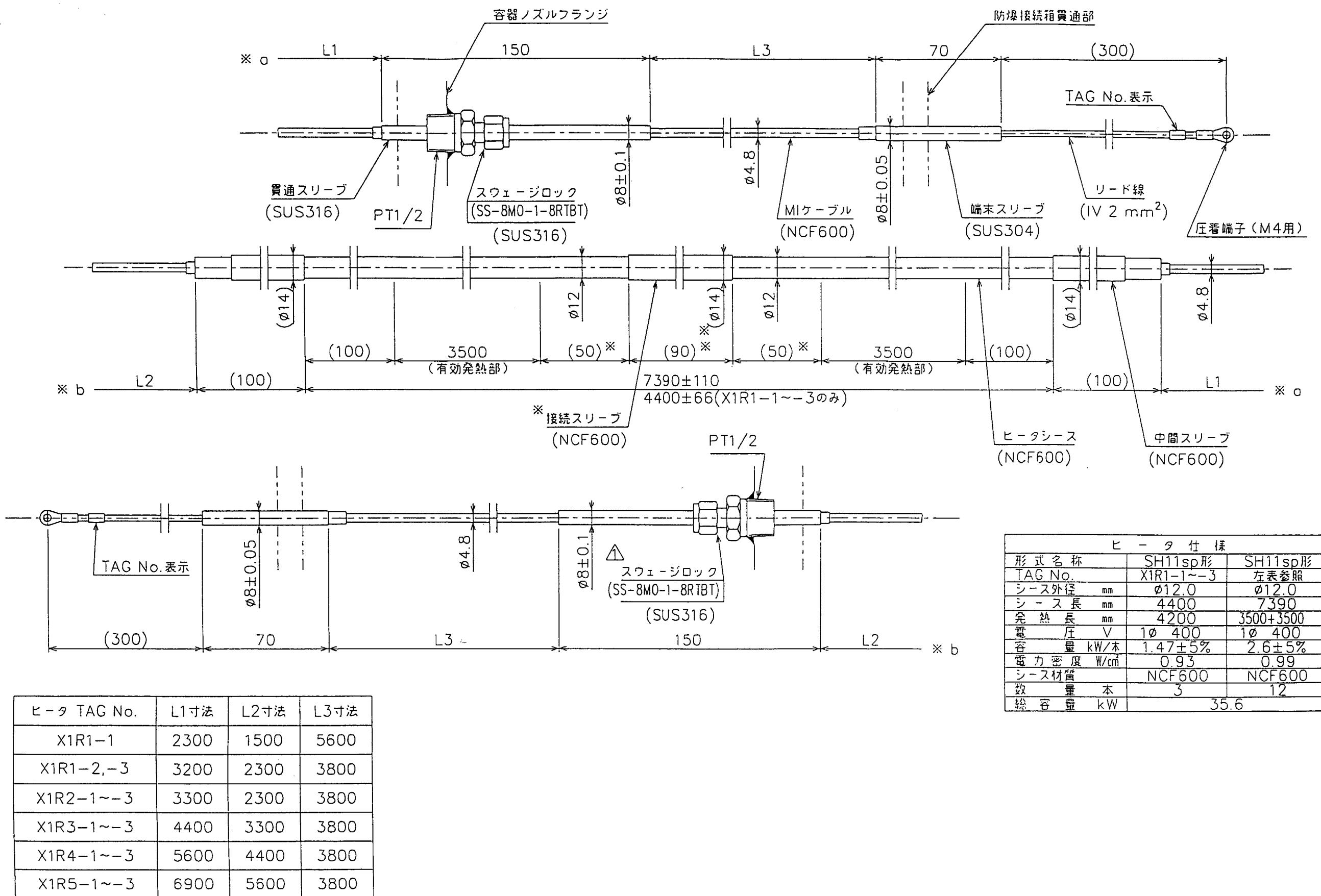


Fig. 3.3 Structure of compensation heater.

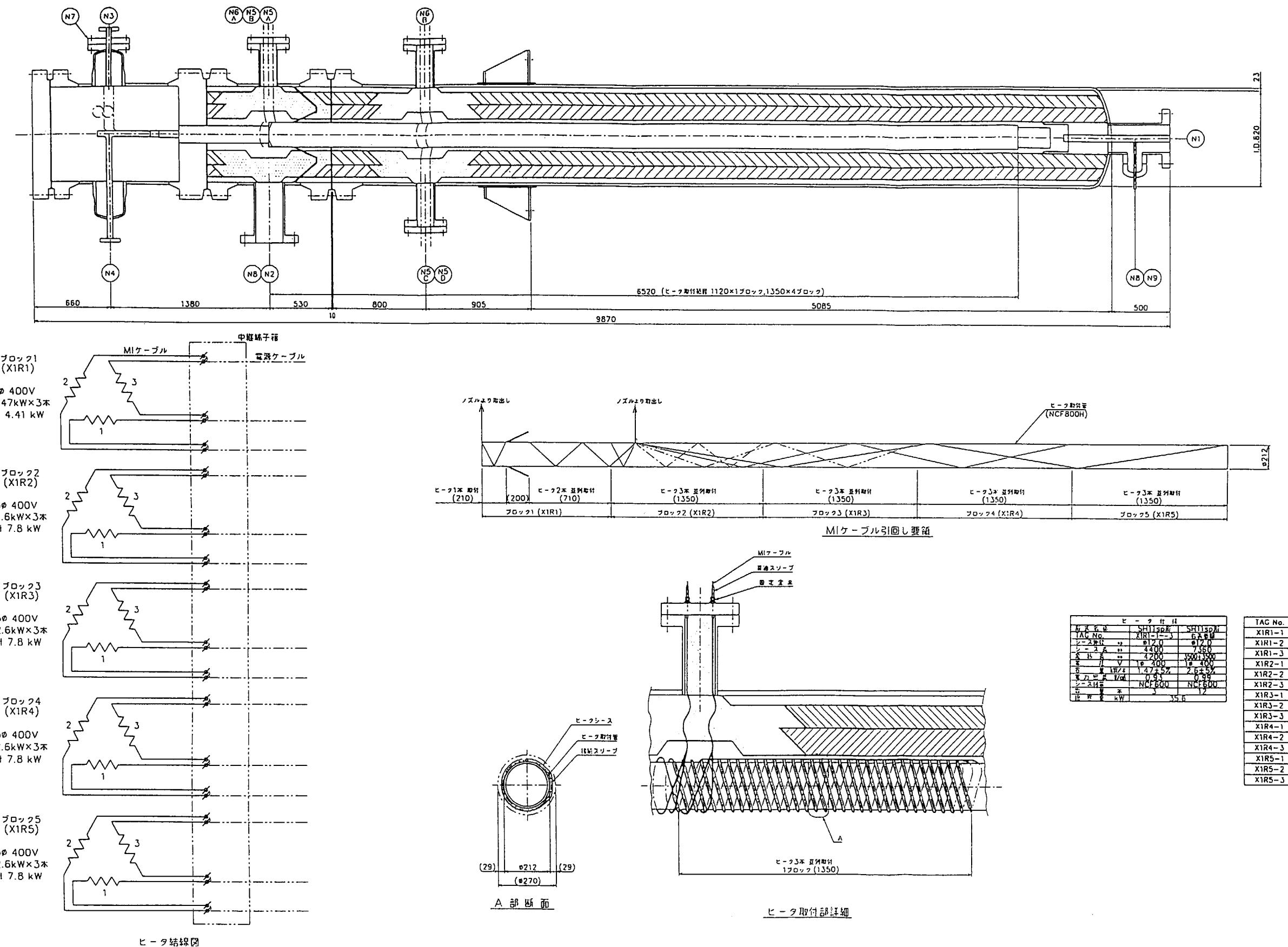


Fig. 3.4 Arrangement of compensation heater.

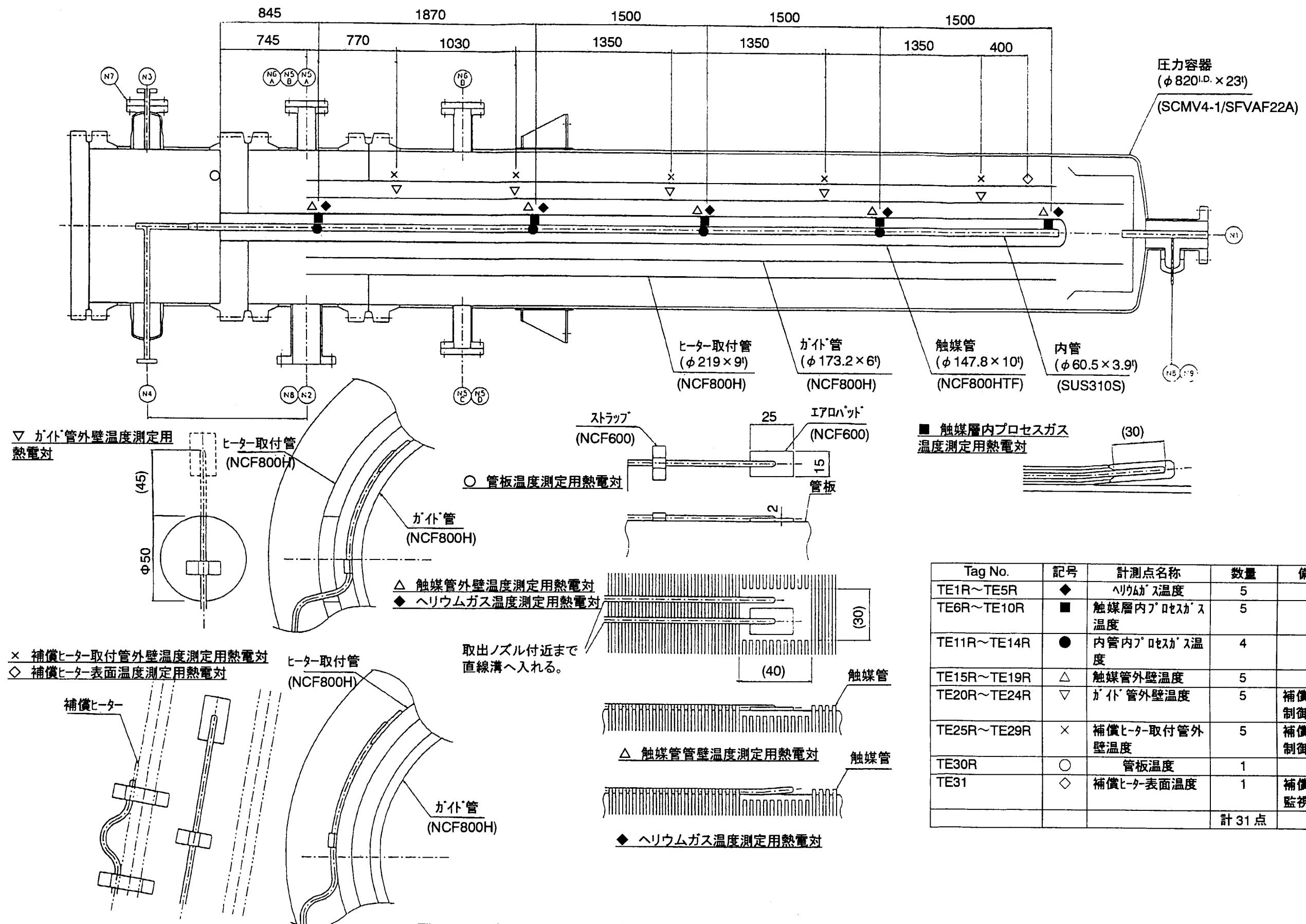


Fig. 3.5 Arrangement of temperature measuring points.

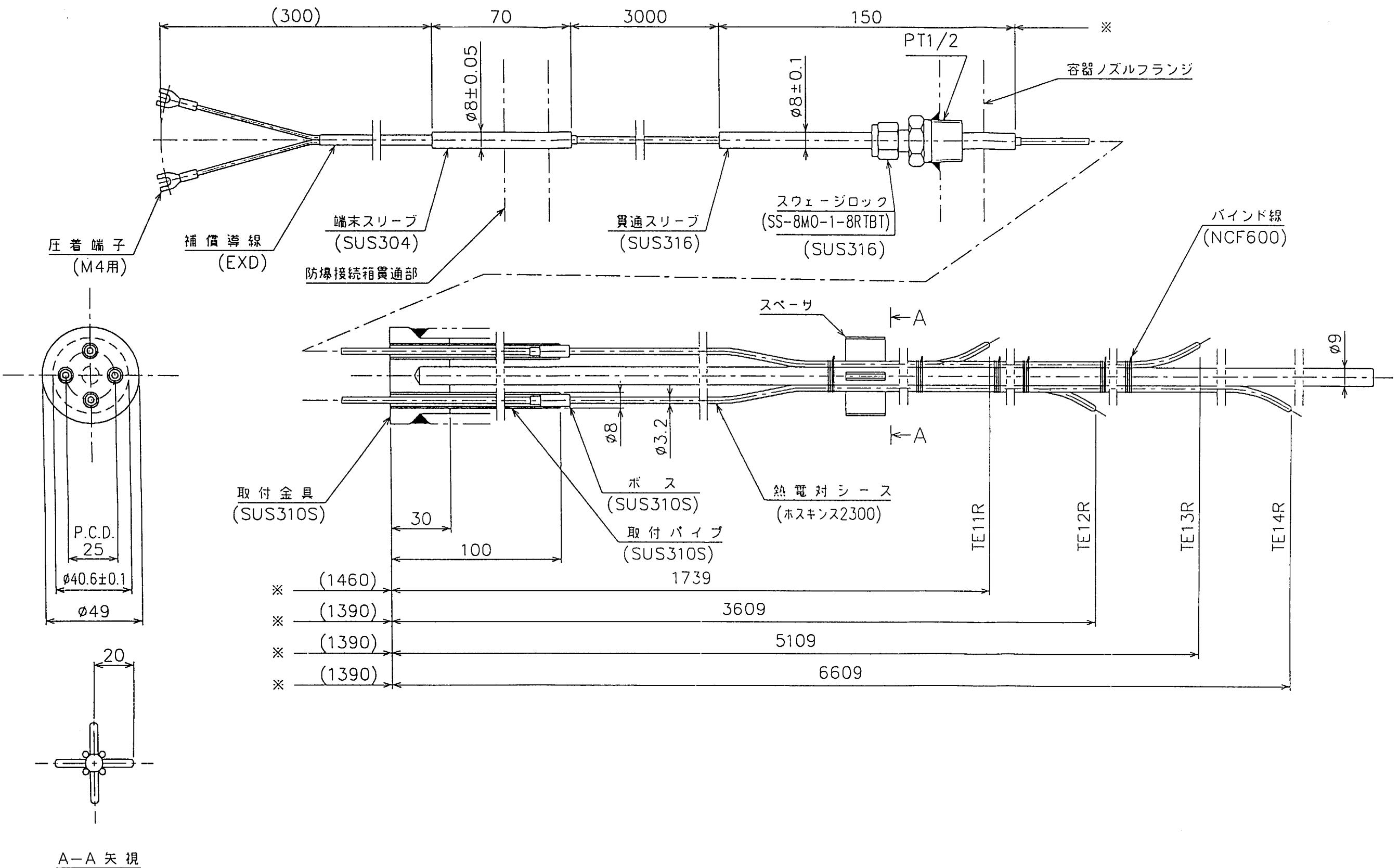
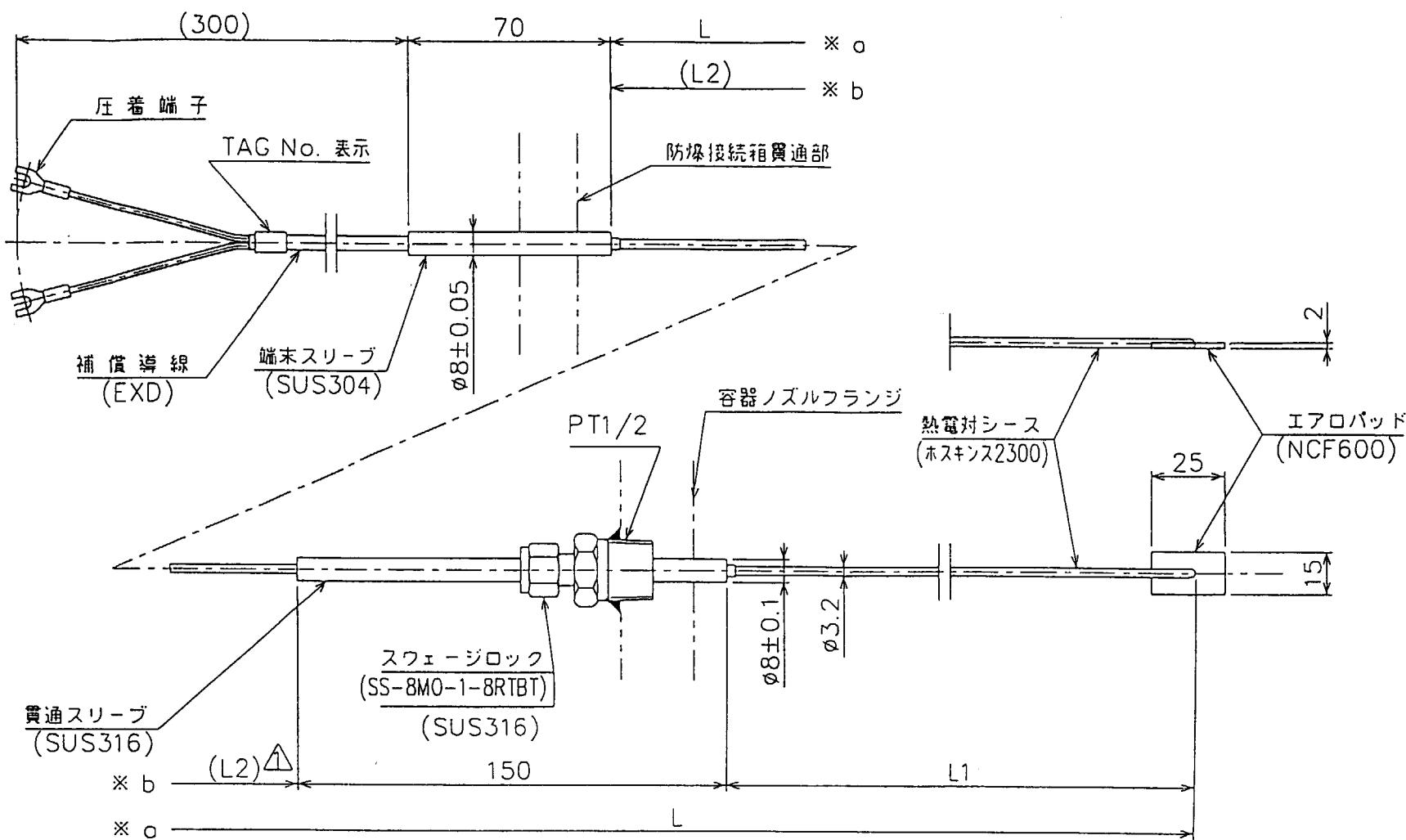


Fig. 3.6 Arrangement of thermocouples for process gas in inner tube.

熱電対 TAG No.	L 寸法	L1 寸法	L2 寸法	エアロパッド
TE 1R	6550	1300	5100	無
TE 2R	8350	3100	5100	無
TE 3R	9850	4600	5100	無
TE 4R	11350	6100	5100	無
TE 5R	12850	7600	5100	無
TE 6R	6250	3100	3000	無
TE 7R	8050	4900	3000	無
TE 8R	9550	6400	3000	無
TE 9R	11050	7900	3000	無
TE 10R	12550	9400	3000	無
TE 11R	6350	3200	3000	無
TE 12R	8150	5000	3000	無
TE 13R	9650	6500	3000	無
TE 14R	11150	8000	3000	無
TE 15R	6550	1300	5100	有
TE 16R	8350	3100	5100	有
TE 17R	9850	4600	5100	有
TE 18R	11350	6100	5100	有
TE 19R	12850	7600	5100	有
TE 20R	6750	2800	3800	有
TE 21R	6750	2800	3800	有
TE 22R	7550	3600	3800	有
TE 23R	8750	4800	3800	有
TE 24R	10050	6100	3800	有
TE 25R	6750	2800	3800	有
TE 26R	6750	2800	3800	有
TE 27R	7550	3600	3800	有
TE 28R	8750	4800	3800	有
TE 29R	11050	6100	4800	有
TE 30R	5150	2000	3000	有
TE 31R	11350	6400	4800	有



設計仕様
設計温度: 920 °C
使用温度: 880 °C
設計圧力: 50 kg/cm²
適用法規: なし

熱電対仕様
形式名称: T35形
素線種類: K
素線径: Φ0.51 mm
階級: クラス 1
シース外径: Φ3.2 mm
シース長: 左表参照
シース材質: ホスキンス2300
熱接点: #9 非接地形
数: 31 本

Fig. 3.7 Structure of thermocouples.

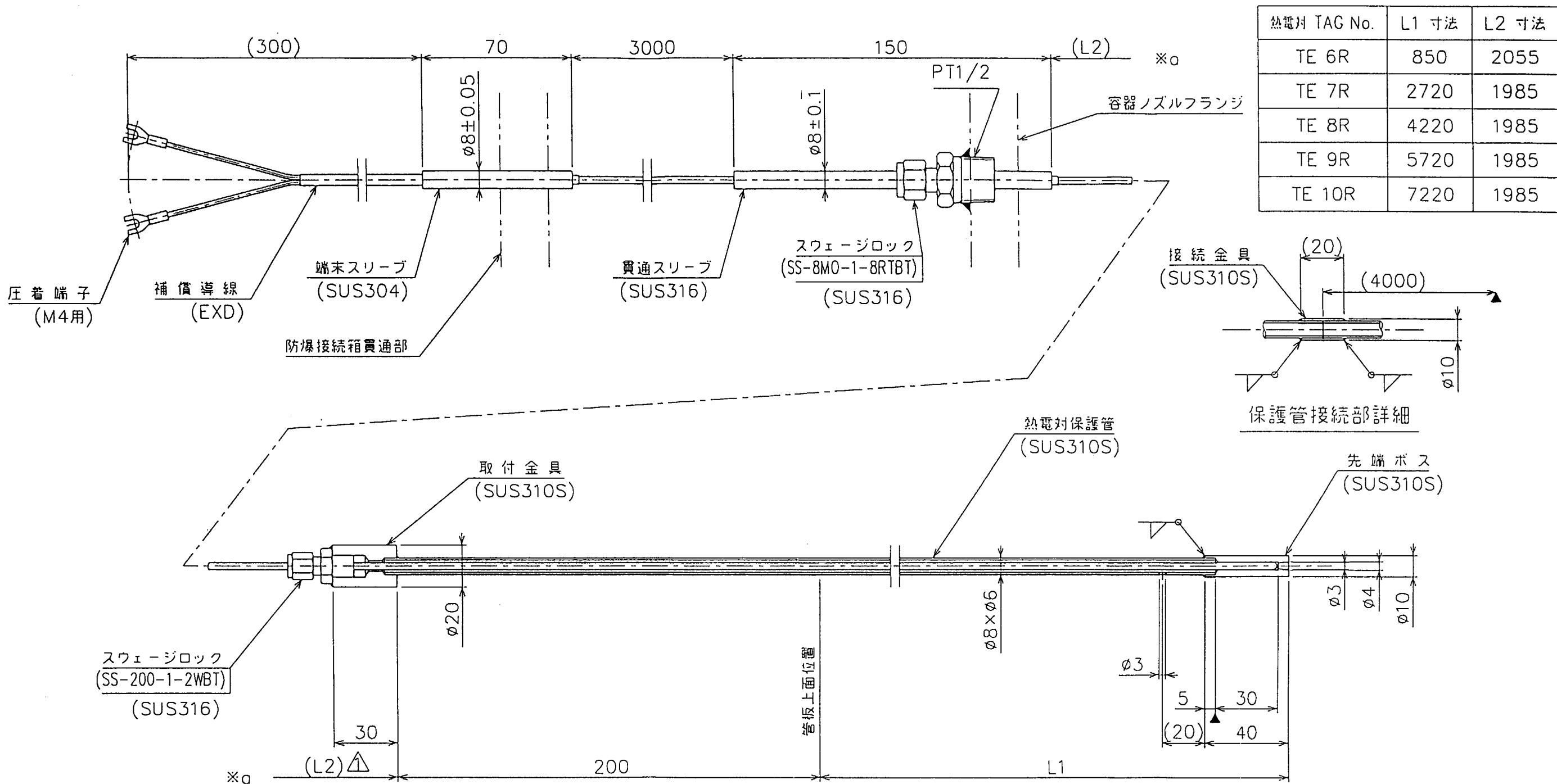


Fig. 3.8 Structure of thermocouples for process gas in catalyst bed.

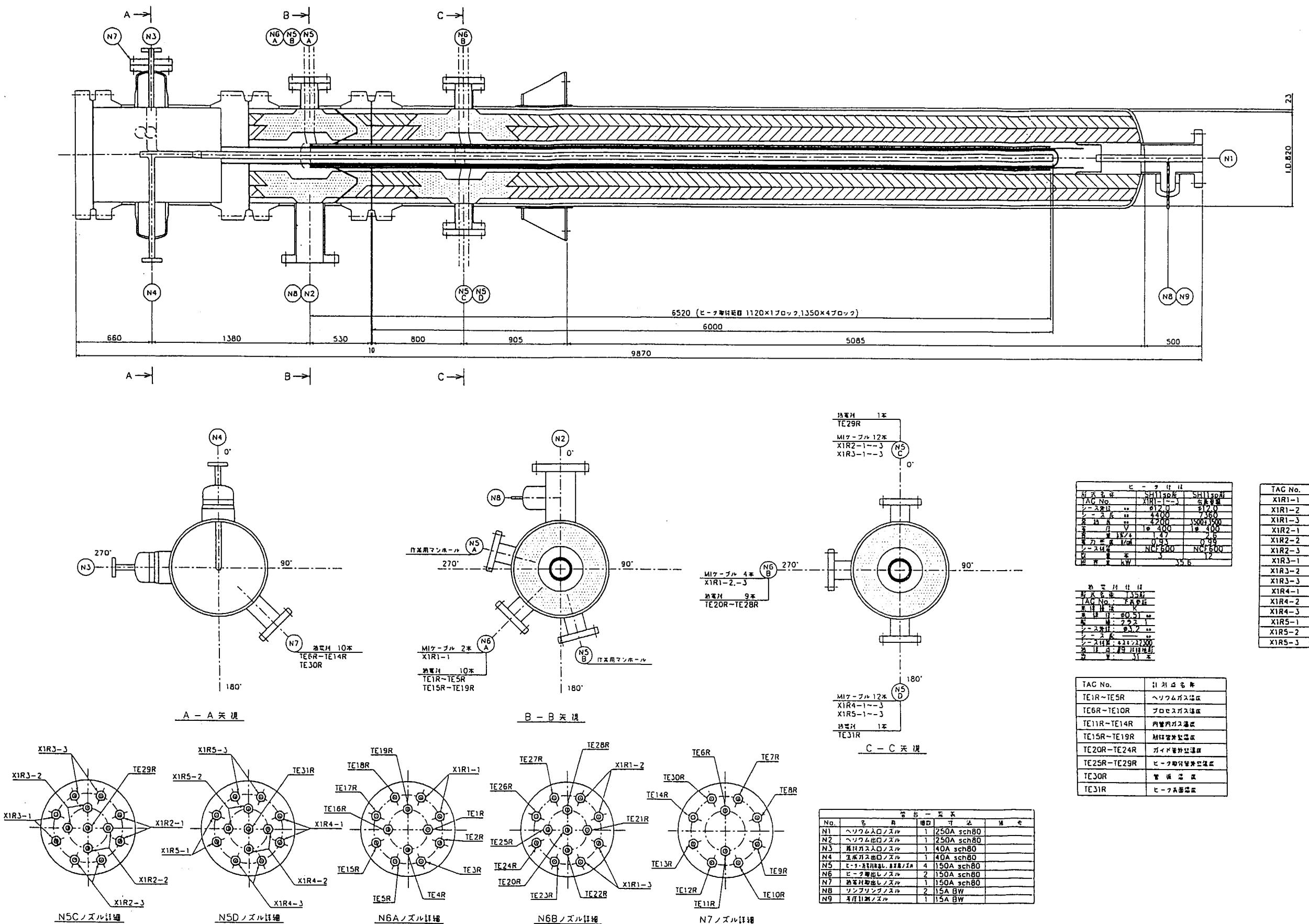


Fig. 3.9 Arrangement of nozzles for thermocouples

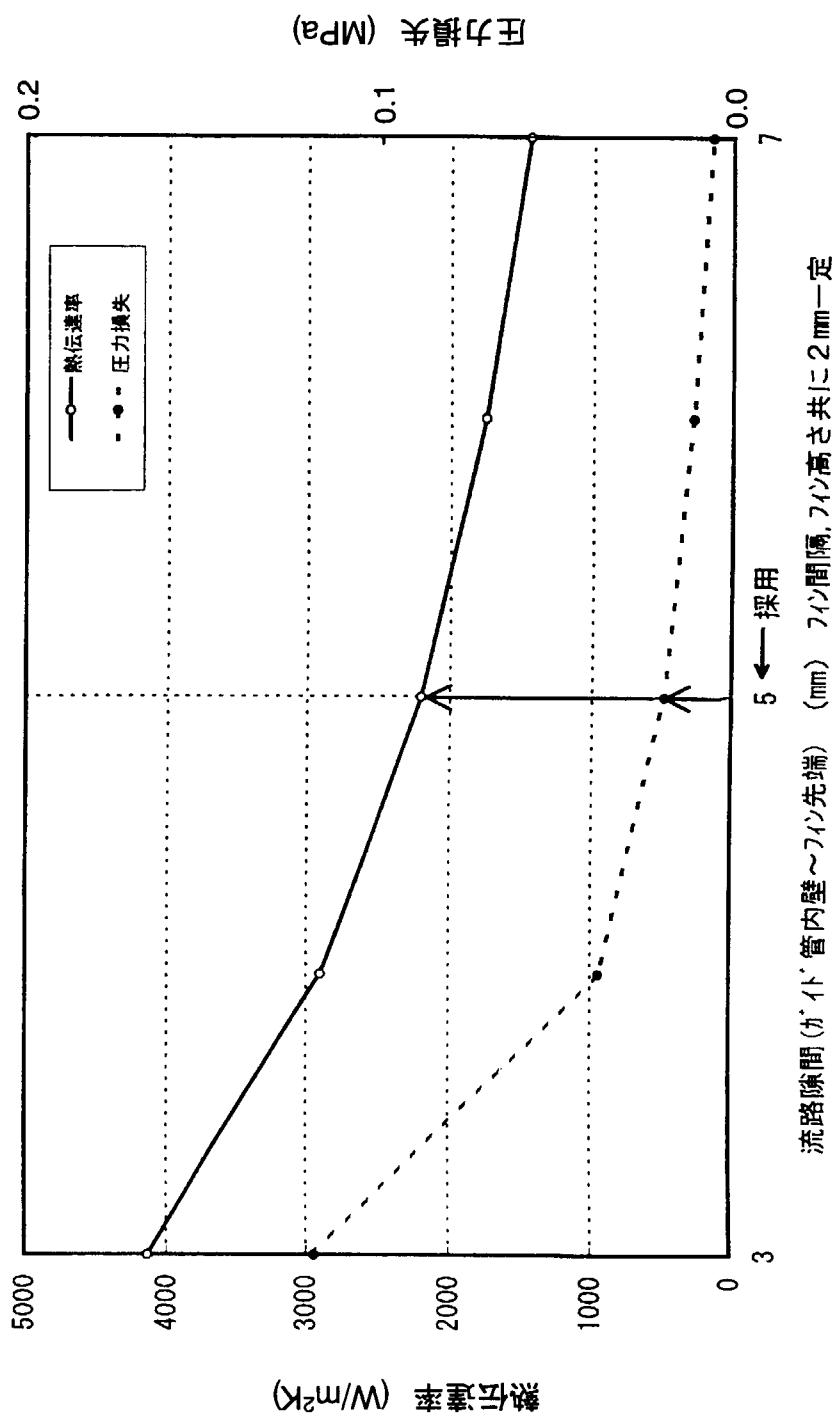


Fig. 3.10 Heat transfer augmentation by repeated-fin formed around catalyst tube.

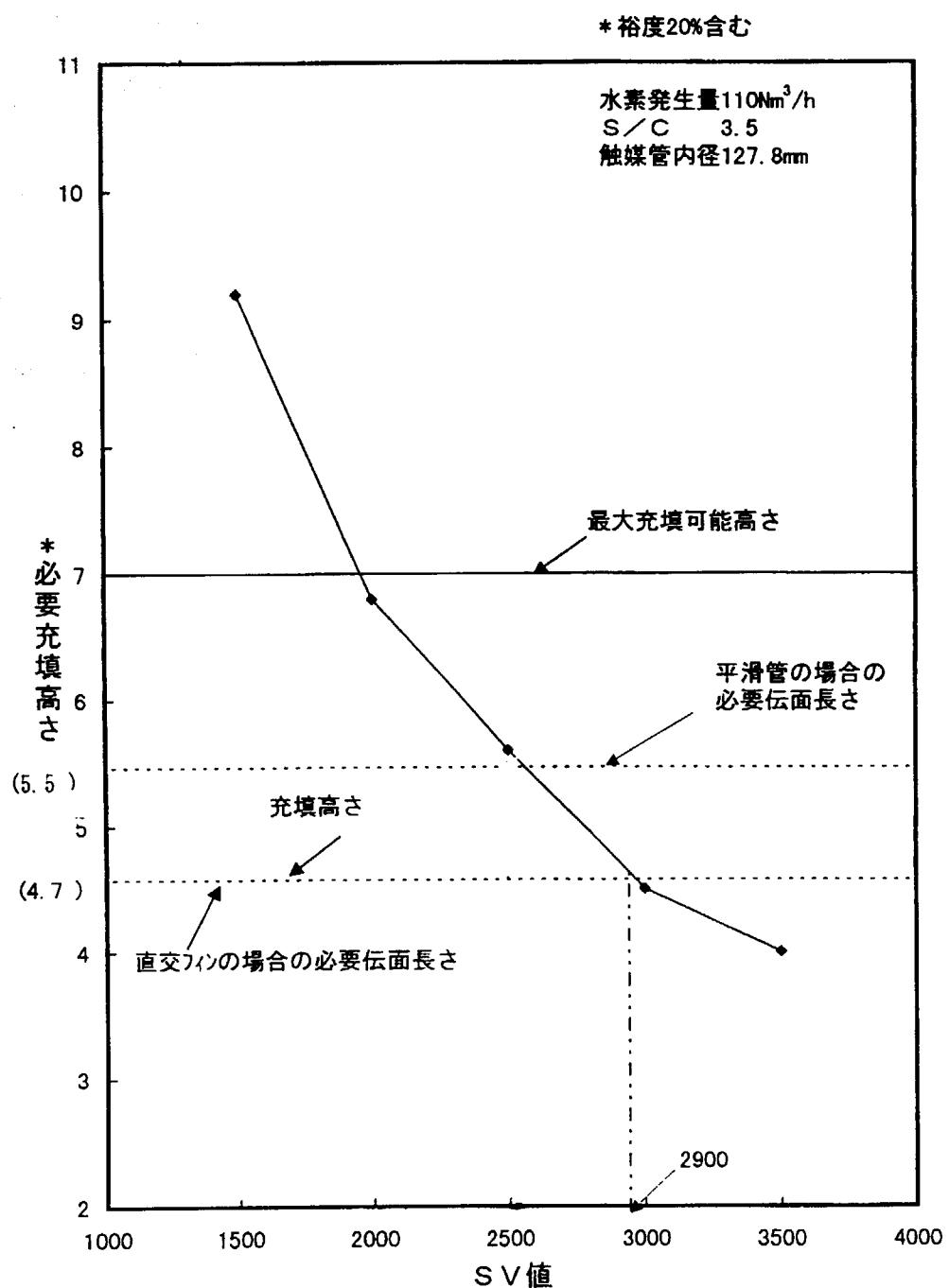


Fig. 3.11 Relationship between SV and height of catalyst bed.

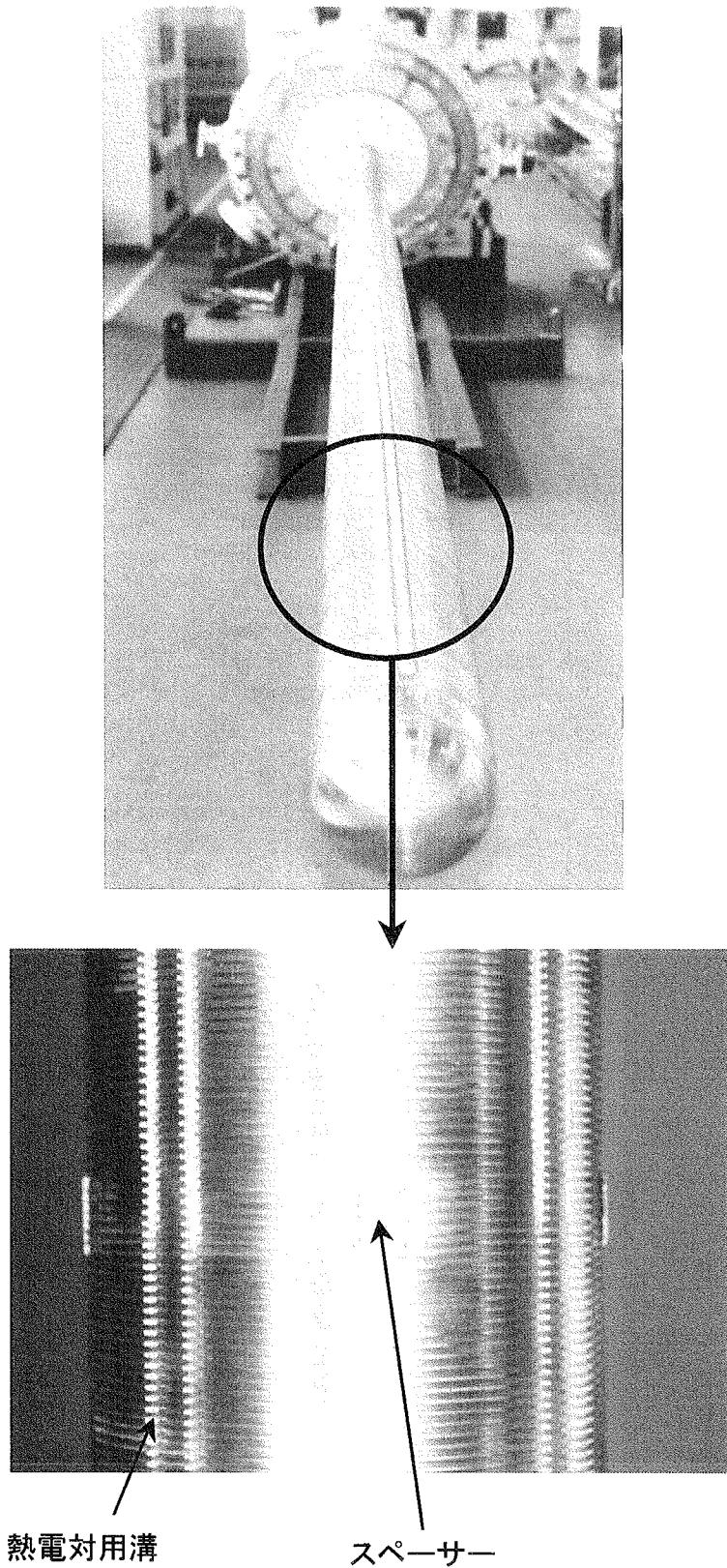


Photo 3.1 Outer view of catalyst tube.

This is a blank page.

4. 触媒管差圧設計の特認

4. 1 特認の項目

従来の化石燃料水素製造システムでは、反応の熱源となる燃焼ガスがほぼ大気圧であるのに対し、HTTR 水素製造システムでは熱源となる 2 次ヘリウムガスが高圧 (4.0MPa) である。このため、制御系故障等によりプロセスガス系の圧力が大気圧まで降下した場合には、触媒管にヘリウムガスの全圧（外圧）のみが掛かり、また、2 次ヘリウムガスの減圧事故によりヘリウムガス系の圧力が大気圧まで降下した場合には、触媒管にプロセスガスの全圧（内圧）のみが掛かる可能性がある。このときに、触媒管の健全性を担保するためには、触媒管をヘリウムガス及びプロセスガスの全圧を考慮して肉厚を定める全圧設計とすることが望ましい。しかし、全圧設計とした場合には触媒管（材質：ハステロイ XR）の内径 ϕ 127.8mm に対して肉厚は約 120mm と過大になり、このようなハステロイ XR を製造する設備がないために、触媒管を製造することが不能となる。仮に製造可能としても、触媒管の外径が大きく、また、肉厚が大きくなるために伝熱性能が劣化する。これを補償するために、結果として触媒管長を長くしなければならず、水蒸気改質器のサイズが過大なものとなる。そこで、将来の工業プロセスを見据えて、触媒管はプロセスガスとヘリウムガスの差圧を考慮して肉厚を定める差圧設計としている。

一方、炉外試験装置では、触媒管の材質を高圧ガス保安法の認定材料である NCF800HTF 及び NCF800H としているが、高温での許容引張応力がハステロイ XR とほぼ同じために、全圧設計とした場合には肉厚が約 130mm となり、ハステロイ XR と同じ理由で製造が不能となる。このため、触媒管を差圧設計とする必要があるが、高圧ガス保安法では差圧設計が認められていない。さらに、炉外試験装置においては、水素製造システムの動特性を調べるために、原料ガス流量等をステップ状に変化させた試験を計画しており、このときには触媒管に外圧が掛かる可能性があるので、触媒管の設計条件を外圧に対して 0.5MPa と計画した。この設計差圧の根拠については付録で述べる。外圧に対する構造物の設計基準は高圧ガス保安法で定められているが、触媒管の 920 °C という高温雰囲気においては、NCF800H がその設計基準を満足しない。炉外試験装置の触媒管の設計条件を以下に示す。

- ・材 質：円筒胴；NCF800HTF、球形鏡；NCF800H
- ・設計温度：920 °C
- ・設計差圧：外圧に対して 0.5MPa、内圧に対して 1.0MPa
- ・設計寿命：20,000 時間

特認申請の項目は以下のとおりである。

1) 触媒管の差圧設計

「高圧ガス保安法特定設備検査規則第 9 条第 5 項基通(4)項」には、「対象とする設備の設計圧力は、耐圧部分の使用し得る最高圧力とする。」という記述があり、これを適用するとヘリウムガス及びプロセスガスの全圧を考慮して触媒管を設計しなければならない。差圧設計を行うためには特認が必要である。

2)触媒管の外圧設計

触媒管は円筒胴とその下端部にある球形鏡に分けられる。球形鏡の外圧設計に対する基準は、「高圧ガス保安法特定設備検査規則第12条第1項第6号」に定められており、NCH800Hが適用可能な温度域は705°C以下である。しかし、触媒管の設計温度は920°Cであり、設計基準の適用外となる。また、円筒胴の外圧設計に対する基準は、「高圧ガス保安法特定設備検査規則第14条第1項第2号」に定められており、設計基準を適用できる許容引張応力は10N/mm²以上である。しかし、920°CにおけるNCF800HTFの許容引張応力は7.2N/mm²であることから、設計基準の適用外である。このため特認が必要である。

4. 2 特認の対応

特認の対応策として以下の①～④を高圧ガス保安協会へ提案した。

- ①クリープを考慮した構造解析により、設計の妥当性を証明する。
- ②運転時に触媒管にかかる差圧を設計差圧内で一定に保持するための触媒管差圧制御系を設置する。
- ③触媒管の設計条件を担保するための触媒管保護装置を設置する。
- ④運転中に触媒管の破損を検知する監視装置を設置する。

高圧ガス保安協会が開催する特別技術事前審査委員会でこの対応策の技術検討が行われ、妥当であると了承された。しかし、触媒管のクリープ疲労に係わる追加検討を要求されたため、①項の構造解析においてクリープ疲労についても評価した。

以下に対応策の詳細と検討結果を述べる。

4. 2. 1 クリープを考慮した構造解析

(1) 解析条件と解析手法

構造解析は、以下の①～⑤について実施した。

- ①定格運転時に、ヘリウムガスの全圧（外圧：4.0MPa）のみが触媒管にかかった場合の解析

本解析の目的は、4.2.3項で述べる触媒管保護装置が作動したときに、触媒管に設計差圧以上の外圧がかかる可能性があるため、最も厳しい外圧条件で触媒管の座屈に至る経過を明らかにすることを目的としている。併せて、触媒管の円筒胴と球形鏡のどちらが外圧に対してより強い強度を有しているかを明らかにすることを目的としている。

- ②定格運転時に、プロセスガスの全圧（内圧：4.29MPa）のみが触媒管にかかった場合の解析

本解析の目的は、4.2.3項で述べる触媒管保護装置が作動したときに、触媒管に設計差圧以上の内圧がかかる可能性があるため、最も厳しい内圧条件で触媒管の破断に至る経過を明らかにすることを目的としている。併せて、触媒管の円筒胴と球形鏡のどちらが内圧に対してより強い強度を有しているかを明らかにすることを目的としている。

- ③設計条件（温度：920°C、外圧：0.5MPa）の解析

本解析の目的は、外圧設計条件では触媒管に変形等の異常が発生せず、寿命期間中に健全性が確保されることの証明を目的としている。

④設計条件（温度：920 ℃、内圧：1.0MPa）の解析

本解析の目的は、内圧設計条件では触媒管に変形等の異常が発生せず、寿命期間中に健全性が確保されることの証明を目的としている。

⑤試験装置の通常起動・通常停止における疲労解析

本解析の目的は、炉外試験装置の通常起動・停止時に、触媒管の温度が変動することによって生じる触媒管のクリープ損傷を求めて触媒管の疲労を評価し、触媒管の健全性が確保できる通常起動・停止の最大回数を求める目的としている。

解析には、有限要素構造解析コード MARC を用いた。この解析コードは MARC Analysis Research Corporation で開発されたコードであり、非線形モデルの解析に適している。

上記解析項目の①及び②に対しては、解析モデルは円筒胴と球形鏡を含む3次元モデルとした。触媒管が軸対称であるため、解析モデルは Fig. 4.1 に示すように、触媒管の周方向 1/4 の3次元モデルである。実際の触媒管において円筒胴の長さは、球形鏡の接続部 (Fig. 4.1 の A 点) から 7m であるが、解析モデルでは A 点から 1m とした (Fig. 4.1 の B 点)。この理由は、Fig. 4.1 の3次元解析モデル並びに円筒胴のみを対象とした2次元解析モデルとも、座屈に至るまでの経過が B 点では変わらないことによる。したがって、3次元解析モデルではこれ以上円筒胴を長くする必要はない。なお、触媒管の円筒には高さ 2mm の直交フィンを設けているが、解析モデルでは平滑な管とし、その肉厚にはフィン高さを考慮していない。この理由は、フィンは触媒管の強度を高めるフレームの機能を有するが、フィンを考慮しない評価が安全側であること、並びにフィンを含めると解析モデルの要素数が膨大となり解析評価に多大な時間を要することによる。

上記解析項目の③及び④に対しては、円筒胴の平面2次元モデルを用いた。その理由は、①及び②の解析結果により円筒胴が球形鏡よりも強度が小さいため、円筒胴についてのみ評価を行えばよく、円筒胴の評価では2次元モデルで十分なこと、並びに③及び④では長時間（触媒管の寿命の2倍の時間：40,000 時間）にわたって解析する必要があるため、3次元モデルでは膨大な解析時間を必要として効率的でないことによる。

上記解析項目⑤の解析モデルは、Fig. 4.2 に示すようにフィンを含む円筒胴の2次元モデルとした。この理由は、クリープ損傷は触媒管の温度変化時に発生する熱応力に起因し、熱応力はフィン等の形状が急激に変化する部分の近傍で大きくなることによる。円筒胴の熱応力評価点は、ヘリウムガスとプロセスガスの温度差が最も小さい円筒胴の下端部 (Fig. 3.2 の A 点)、及びヘリウムガスとプロセスガスの温度差が最も大きい円筒胴の上端部 (Fig. 3.2 の C 点) とした。なお、Fig. 3.2 の A 点と Fig. 4.1 の A 点は同じ場所である。

解析モデルには平面ひずみ要素を用いた。この要素は8節点4辺形で、各節点の自由度は2（2方向変位）である。また、外圧に対して初期形状が真円の場合は座屈を生じないため、触媒管の製作公差を考慮して、解析モデルに以下の初期扁平率 ϕ を与えた。なお、内圧についても外圧と同じ初期扁平率を与えて解析した。

$$\phi = (D_{\max} - D_{\min}) / D_{\text{nor}} \times 100 \quad (4.1)$$

ここで、 D_{\max} ：最大外径 144.8mm、 D_{\min} ：最小外径 142.8mm、 D_{nor} ：平均外径 143.8mm で、直交フィン加工による製作公差を安全側に見積もって最大外径と最小外径に 2mm の差がつくものとし、肉厚は最小外径に対応した 10mm とした。このとき、 $\phi = 1.39\%$ である。

本解析において必要な NCF800HTF の物性値は、縦弾性係数 E、ポアソン比 ν 、並びに最小ひずみ速度 ε_{\min} のクリープ構成式であり、以下の値を用いた。

$$E : 131360 \text{ MPa} \quad (880 \text{ }^\circ\text{C}), 126751 \text{ MPa} \quad (920 \text{ }^\circ\text{C}) \quad (13)$$

$$\nu : 0.410 \quad (880 \text{ }^\circ\text{C}), 0.416 \quad (920 \text{ }^\circ\text{C}) \quad (13)$$

$$\varepsilon_{\min} = 4.194 \times 10^4 \sigma^{-6.57} \exp(-49300/T) \quad (14) \quad (4.2)$$

T : 温度(K)

(4.2)式は単軸のクリープ構成式であるが、これを多軸に適用する。この考え方は、文献^(15,16)に標準的な方法として示されている。また、解析では大変形及び大ひずみを考慮した。塑性ひずみについては、発生応力が降伏応力に達する時間が、破断または座屈に至る時間とほぼ同じ時間となるので無視した。

通常起動・停止の最大回数 n は次式より求めることができる。

$$n / Nd + \sum (\Delta t / Td) \leq D \quad (4.3)$$

ここで、Nd : 設計疲労曲線から得られる許容サイクル数 (= 2,000)、 Δt : クリープ時間、Td : クリープ破断時間、D : クリープ疲労損傷係数の制限（文献⁽¹⁷⁾より 0.84）である。

(2) 解析結果

1) ヘリウムガスの全圧条件（外圧 : 4.0MPa）による解析（上記の①）

このときの触媒管の温度は、ヘリウムガスの水蒸気改質器入口温度と同じ 880 °C とした。Fig. 4.3 は、B 点の座屈に至るまでの時間経過を扁平率の変化で表している。4.0MPa の外圧がかかった時点から次第に触媒管の変形が進行し、約 170 時間 (h) 後に扁平率が急激に増加した。このことは座屈が生じたことを表している。解析による座屈後の形状を Fig. 4.4 に示す。なお、A 点では変形がなく、球形鏡の方が円筒胴よりも強度が大きいことが分かる。

2) プロセスガスの全圧条件（内圧 : 4.29MPa）による解析（上記の②）

このときの触媒管の温度は、ヘリウムガスの水蒸気改質器入口温度と同じ 880 °C としている。Fig. 4.5 は、B 点の破断に至るまでの時間経過を内径の変化で表している。4.29MPa の内圧がかかった時点から次第に触媒管の変形が進行し、約 5270h 後に内径が急激に増加し、破断が生じたことを示している。図中に最大内径と最小内径を示しているが、これは触媒管の初期扁平率 (1.39 %) を考慮したことによる。解析による破断後の形状を Fig. 4.6 に示す。なお、A 点では変形がなく、球形鏡の方が円筒胴よりも破断強度的に優れていることが分かる。

3) 設計条件（温度 : 920 °C、外圧 : 0.5MPa、内圧 : 1.0MPa）条件による解析（上記の③及び④）

①及び②の評価で示したように、強度的には円筒胴の方が劣っていることから円筒胴のみを対象とし、解析速度を高めるために 2 次元モデルを用いて、設計寿命の 2 倍である 40,000h まで解析を行った。解析結果を Fig. 4.7 及び Fig. 4.8 に示す。外圧条件及び内圧条件とも触媒管に変形は見られず、40,000h まで使用したとしても触媒管の健全性が確保されることを明らかにした。

4) 試験装置の通常起動・通常停止における疲労

Fig. 4.9 は、通常起動・停止時におけるヘリウムガス及びプロセスガスの温度変化を示した

ものである。触媒管の温度変化は、ヘリウムガス及びプロセスガスの温度変化に依存する。また、試験装置では HTTR 水素製造システムの通常起動・停止と同様にヘリウムガスの温度を制御し、プロセスガスの温度はヘリウムガス温度の変化に追随させる。このため、触媒管の温度変化に大きく影響するものはヘリウムガス温度の変化である。HTTR 水素製造システムの通常起動及び通常停止におけるヘリウムガスの温度変化率が $15\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{h} \sim 35\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{h}$ であることから、本解析では安全側となるようにヘリウムガスの温度変化率を $40\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{h}$ とした。定常状態に達したときの触媒管の温度分布を Fig. 4.10 に示す。A 点におけるフィンと触媒管内面の温度差は約 $19\text{ }^{\circ}\text{C}$ 、C 点における温度差は約 $45\text{ }^{\circ}\text{C}$ である。

通常起動・停止時の各時間帯における熱応力を積分し、それから求めたクリープ損傷の分布を Fig. 4.11 に示す。クリープ損傷は、C 点におけるフィンの根元部で最も大きい。この値を基に(4.3)式より通常起動・停止の許容回数を求めると 1,048 回であり、試験装置の最大想定回数 50 回に対して十分な余裕を有していた。この結果から、触媒管のクリープ損傷は問題ないと言える。

4. 2. 2 触媒管の差圧制御系

ヘリウムガス系の圧力制御は、ヘリウムガス貯蔵・供給・圧力調整設備（以下「ヘリウムガス圧調設備」と呼ぶ）で行う。ヘリウムガス圧調設備は、Fig. 4.12 に示すように高圧カードル、低圧カードル、レシーバタンク、圧縮機等から構成され、ヘリウムガス系の昇圧を行う場合は圧力調整設備からヘリウムガス系へヘリウムガスを供給することにより、降圧を行う場合は圧力調整設備へヘリウムガスを回収することにより行う。この方式は、HENDEL 及び HTTR に採用されている。

プロセスガス系はヘリウムガス系と独立した系統であることから、個別に圧力制御を行うことが可能である。そこで、触媒管内外の差圧を所定の値に制御する必要があることから、触媒管内外の差圧計（Fig. 2.1 の系統図で水蒸気改質器プロセスガス出口とヘリウムガス入口の差圧計 DP1）を制御点としてプロセスガス系の圧力が、ヘリウムガス系の圧力に所定の値で追随するように制御することとした。差圧制御点（DP1）の設定値は、プロセスガス圧力がヘリウムガス圧力よりも 0.04 MPa 高い状態とした。以後、プロセスガス圧力がヘリウムガス圧力よりも低い状態を外圧状態、ヘリウムガス圧力よりも高い状態を内圧状態と呼ぶ。水蒸気改質器プロセスガス出口とヘリウムガス入口間の差圧を制御点とした理由は、Fig. 3.2 に示すように触媒管下端部（A 点）でプロセスガスとヘリウムガスの差圧が最も小さく、この場所でヘリウムガスの圧力がプロセスガスの圧力よりも高くなる外圧状態を極力防止するためである。

プロセスガス系の圧力制御は、原料ガス加熱器下流に設けた差圧調節弁（PV1）の開度を変えて、差圧調節弁の圧力損失を変化させることで調節する。

4. 2. 3 触媒管保護装置

触媒管の健全性を確保するためには、設計温度及び設計差圧を担保することが必要である。このうち、設計温度については安全側とするため水蒸気改質器入口のヘリウムガス温度を計測点とし、この温度が設計温度の範囲内で所定の値に達した場合には、炉外試験装置を緊急停止するインターロックを設けた。緊急停止により熱源であるヘリウムガス加熱器への通電が停止するので、

触媒管が設計温度を超えることはない。定格運転時のヘリウムガス温度 880 °Cに対して、インターロック作動の温度設定値は、温度計測誤差（熱電対の誤差、信号処理系の誤差等を含む総合誤差で ±6 °C）を考慮して、以下のように定めた。

a) 温度高による試験装置自動停止の設定値：910 °C

（設計温度 920 °Cから温度検出器の誤差及び余裕を考慮）

b) 温度高による警報の設定値：895 °C

しかし、緊急停止システムが作動したとしても触媒管には設計差圧以上の差圧が生じる可能性がある。このため、設計差圧の範囲内で差圧が所定の値に達した場合には、炉外試験装置を緊急停止し、触媒管内外のプロセスガス及びヘリウムガスを大気開放する触媒管保護装置を設けた。触媒管保護装置は、触媒管内外の差圧を検出する計測器、信号処理回路、ヘリウムガスとプロセスガスの大気開放ラインから構成される。大気開放ラインに設けた大気開放弁（プロセスガスについては Fig. 2.1 の AV1 及び AV2、ヘリウムガスについては AV3 及び AV4）が開いてから、プロセスガス系及びヘリウムガス系が大気圧になるまでの時間は 1 ~ 2 分である。大気開放時には、プロセスガスはフレアスタックで燃焼処理され、ヘリウムガスは蒸気発生器、水予熱器等で 150 °C程度まで冷却された後に、大気へ放出される。触媒管保護装置が作動して大気開放を行っているときに、触媒管には設計差圧以上の差圧がかかる可能性があるが、大気開放に要する時間は、4.2.1 項で検討した座屈並びに破断に要する時間に比較して遙かに短いことから、設計差圧以上の差圧が生じたとしても問題ない。

触媒管保護装置には以下に示す信頼性向上策を施した。

1) 触媒管の差圧計測系を二重化する。具体的には、Fig. 2.1 に示すようにヘリウムガスとプロセスガスの差圧を直接計測する差圧計（DP1）の他、ヘリウムガスの圧力計（P5）とプロセスガスの圧力計（P6）から差圧演算回路で差圧を演算する。

2) 信号処理系は、CPU（中央演算処理装置）及び I/O（入出力回路）を二重化する。また、計測器及び信号処理系は無停電電源装置から給電する。

3) 大気開放ライン及び大気開放弁は、並列に二重化する。大気開放弁には停電時等に開になるフェイルトゥセーフ機能を設ける。

触媒管保護装置が作動する条件（触媒管内外の差圧）は、触媒管の設計差圧の範囲内で、差圧計測誤差（計測器の誤差、信号処理系の誤差等を含む総合誤差で、圧力計を用いた場合の ±0.05MPa）を考慮して、以下のように定めている。ここで、外圧状態を記号 -、内圧状態を記号 + で表す。この方法で表示すると、触媒管の設計差圧は -0.5MPa 及び +1.0MPa、差圧制御の設定値は +0.04MPa となる。

a) 過大差圧（外圧）による大気開放の設定値：-0.44MPa

b) 過大差圧（外圧）による警報の設定値：-0.32MPa

c) 過大差圧（内圧）による警報の設定値：+0.40MPa

d) 過大差圧（内圧）による大気開放の設定値：+0.52MPa

4. 2. 4 触媒管監視装置

触媒管は、プロセスガスの圧力がヘリウムガスの圧力よりも高い状態で運転されるため、触媒

管に破損が生じた場合には、ヘリウムガス中にプロセスガス（CH₄、H₂、CO、CO₂ 等）が漏えいする。そこで、運転中にヘリウムガス中の不純物をガスクロマトグラフを用いて常時監視することにより、触媒管の異常を検知することが出来る。検知した場合には、運転員が試験装置を停止する。

ガスクロマトグラフは、ヘリウムガス系の水蒸気改質器の出入口に各 1 台（計 2 台）設置する。その主要仕様を以下に示す。

型式：島津製作所製 GC-14BPTF

計測範囲：CH₄ 0.5~100ppm

H₂ 1~500ppm

CO 0.5~400ppm

CO₂ 1~400ppm

計測周期：15 分毎

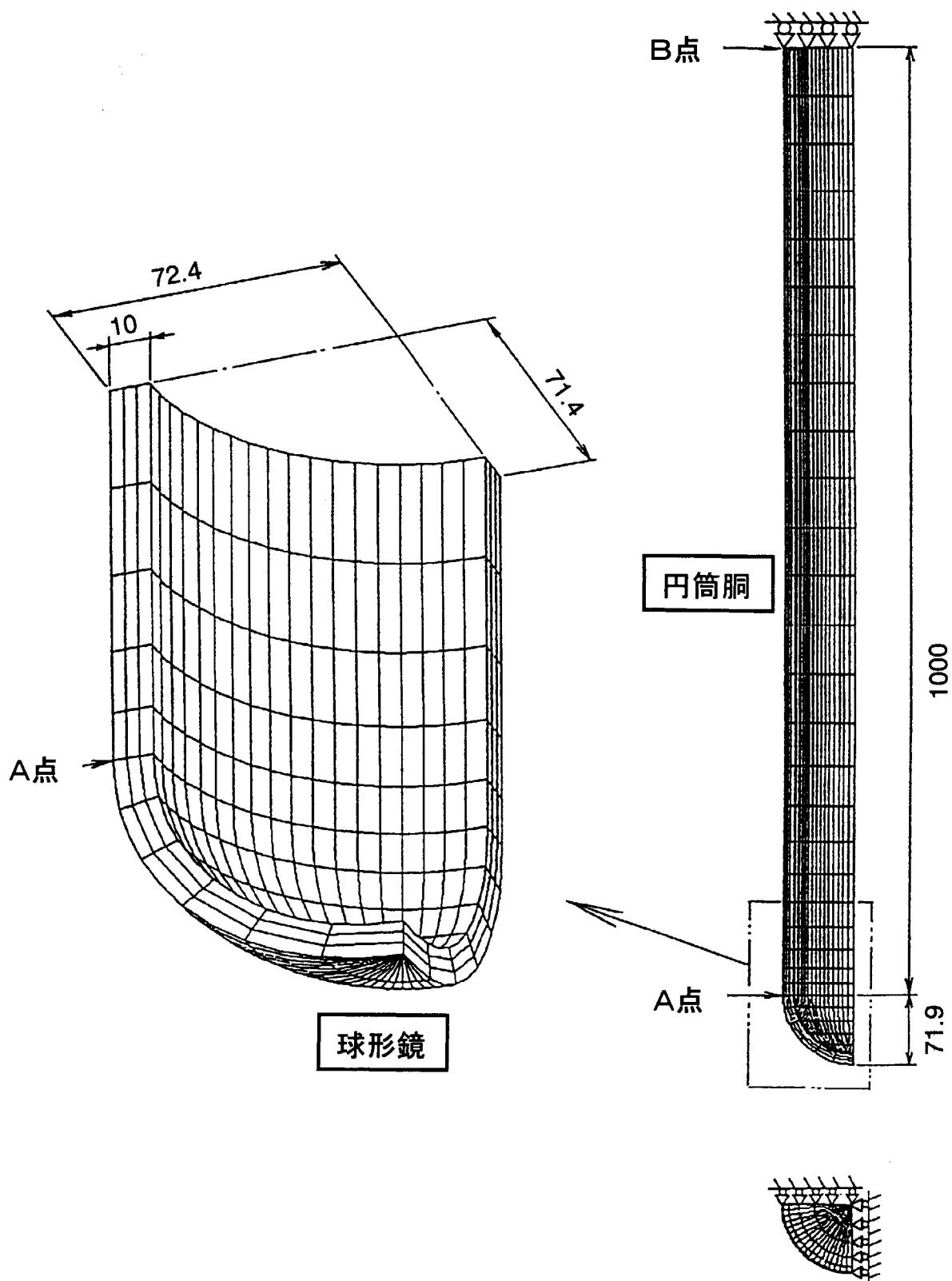
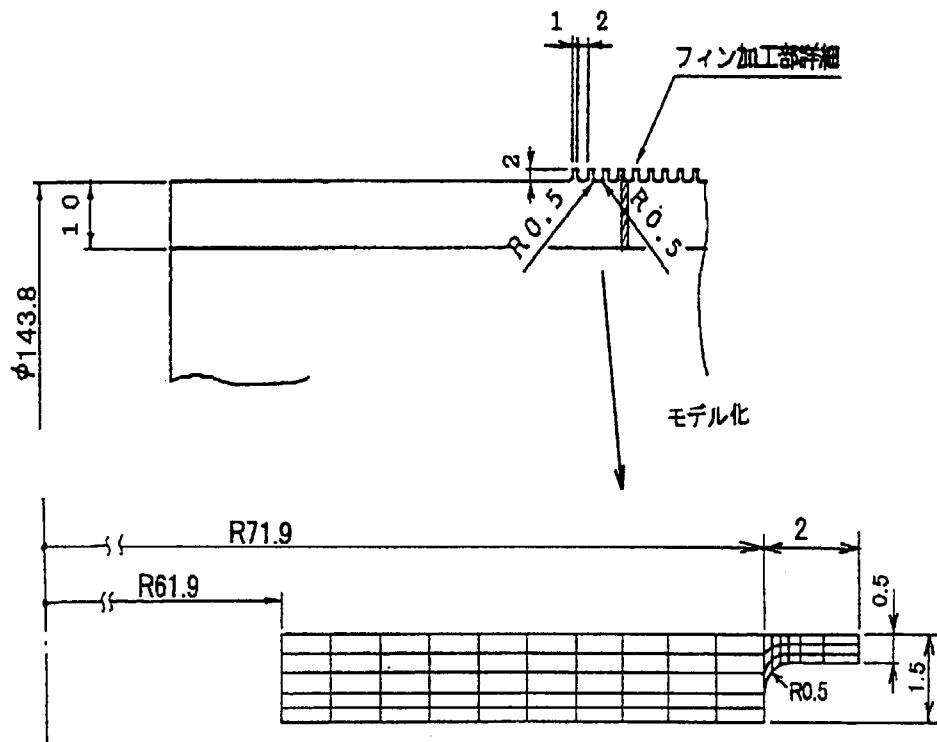
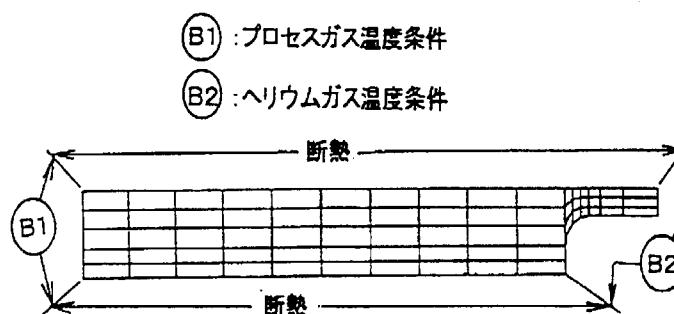


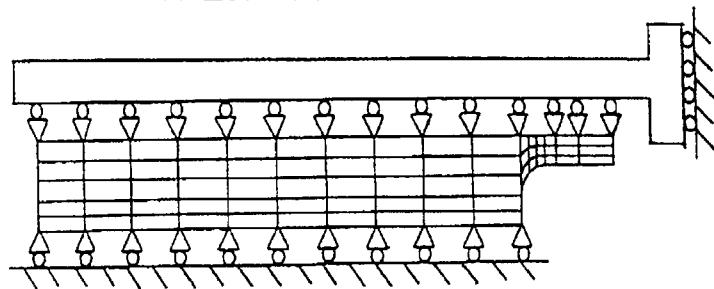
Fig. 4.1 Analytical model of catalyst tube for creep collapse and rupture.



(a) 解析モデル寸法



(b) 温度分布解析用境界条件



(c) 応力解析用境界条件

Fig. 4.2 Analytical model of catalyst tube for fatigue.

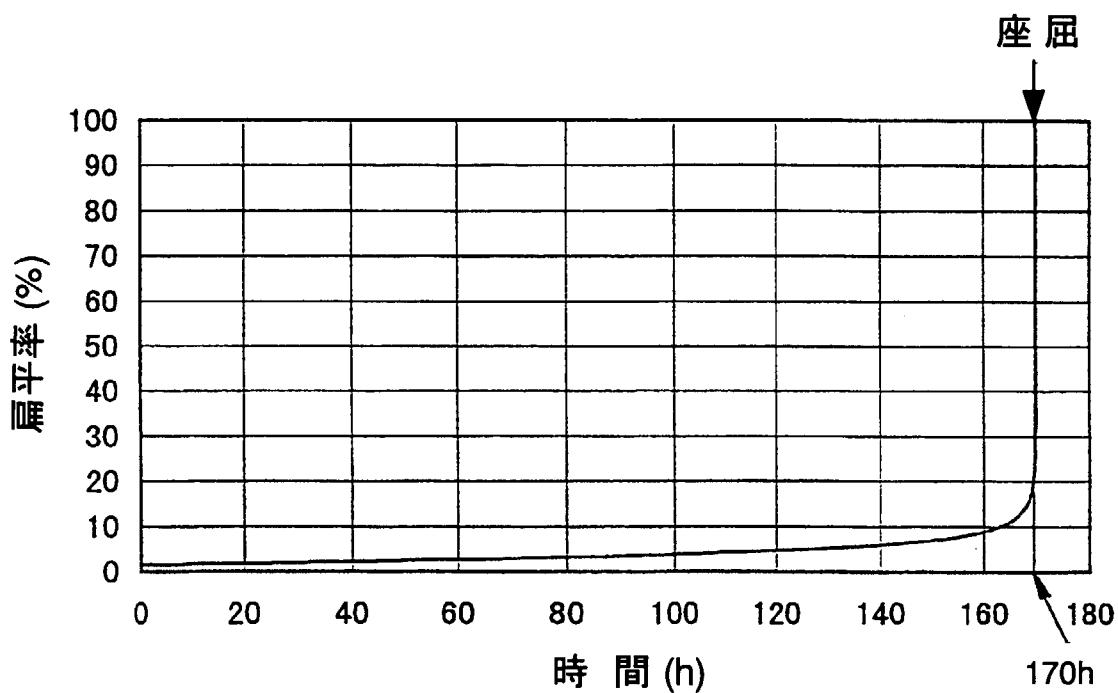


Fig. 4.3 Shape change of catalyst tube up to collapse caused by external pressure (helium gas : 4.0MPa).

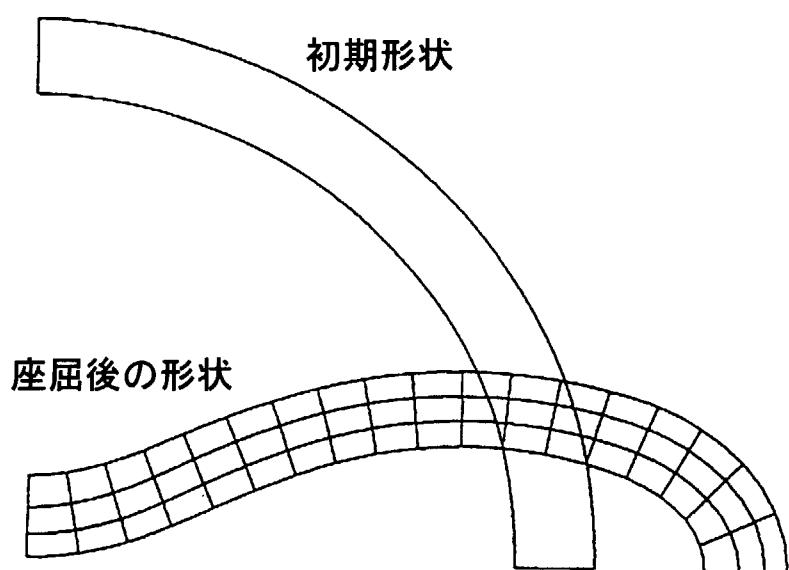


Fig. 4.4 Shape of collapsed catalyst tube.

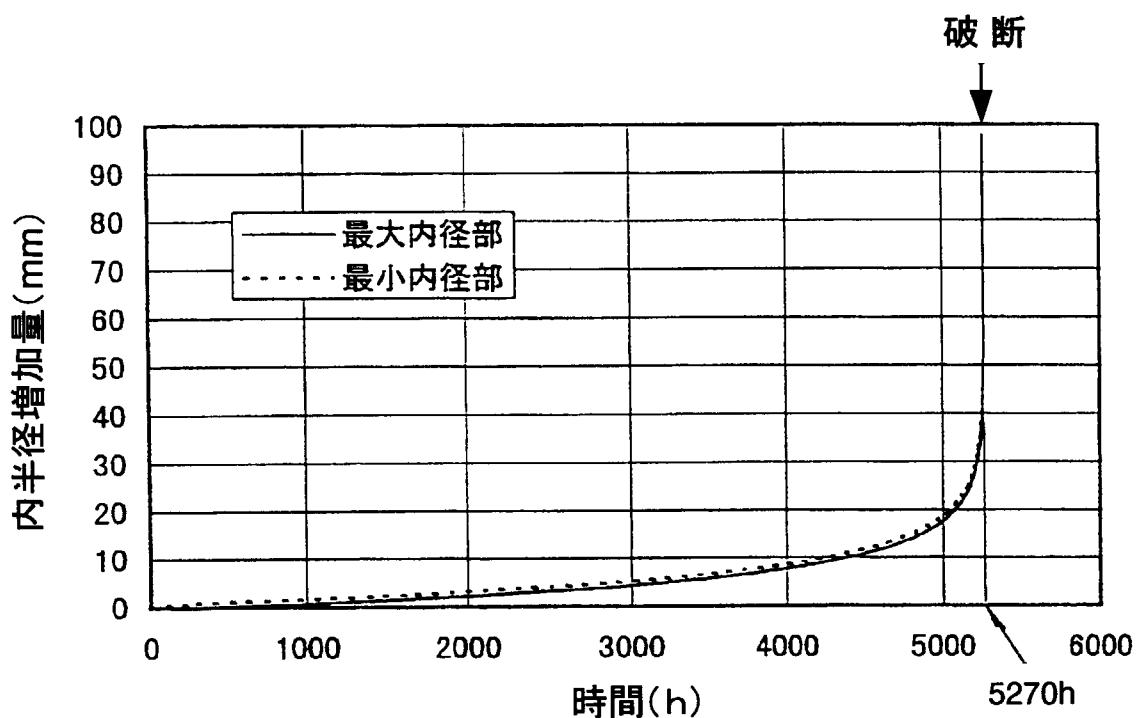


Fig. 4.5 Shape change of catalyst tube up to rupture caused by internal pressure (process gas: 4.29MPa).

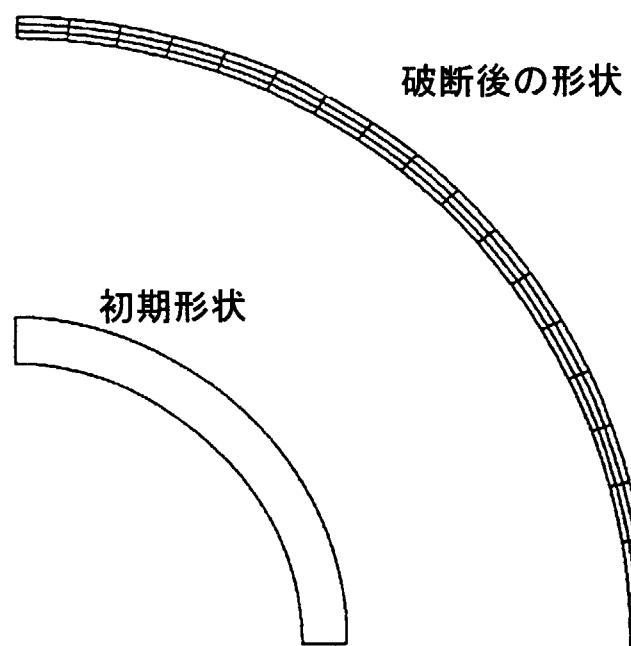


Fig. 4.6 Shape of ruptured catalyst tube.

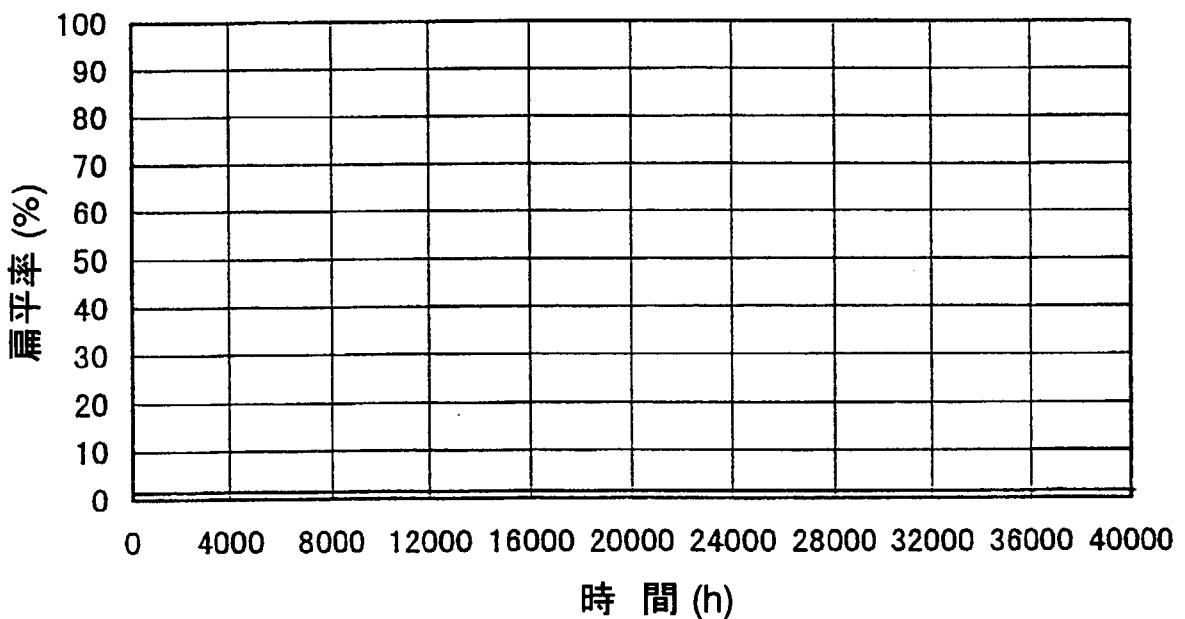


Fig. 4.7 Shape change of catalyst tube under design condition of external pressure.

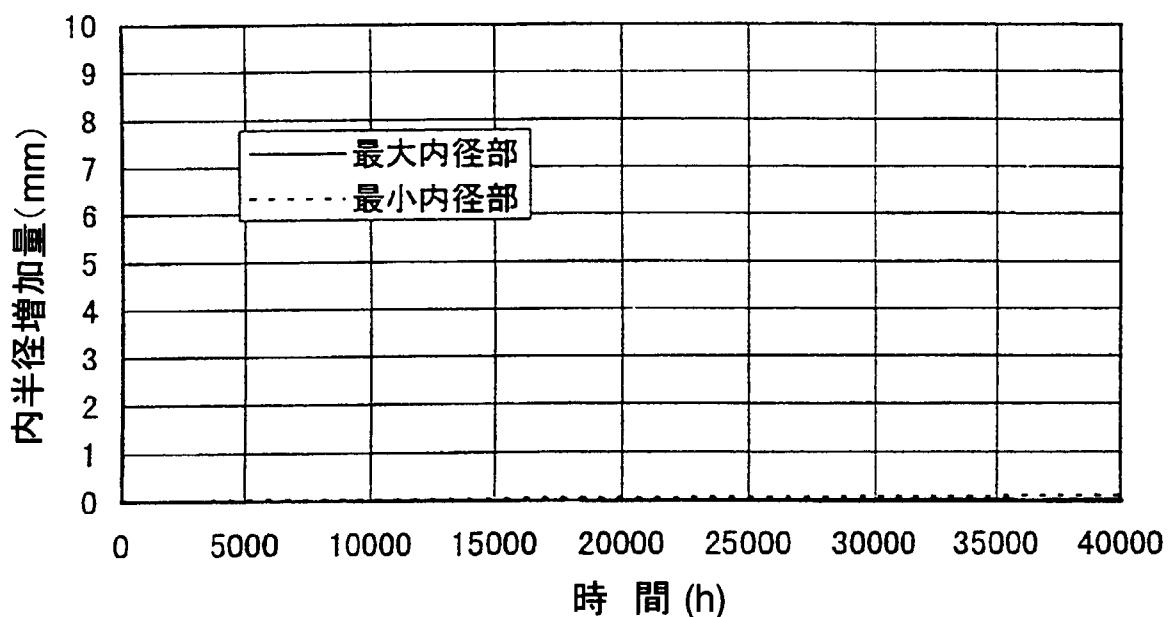


Fig. 4.8 Shape change of catalyst tube under design condition of internal pressure.

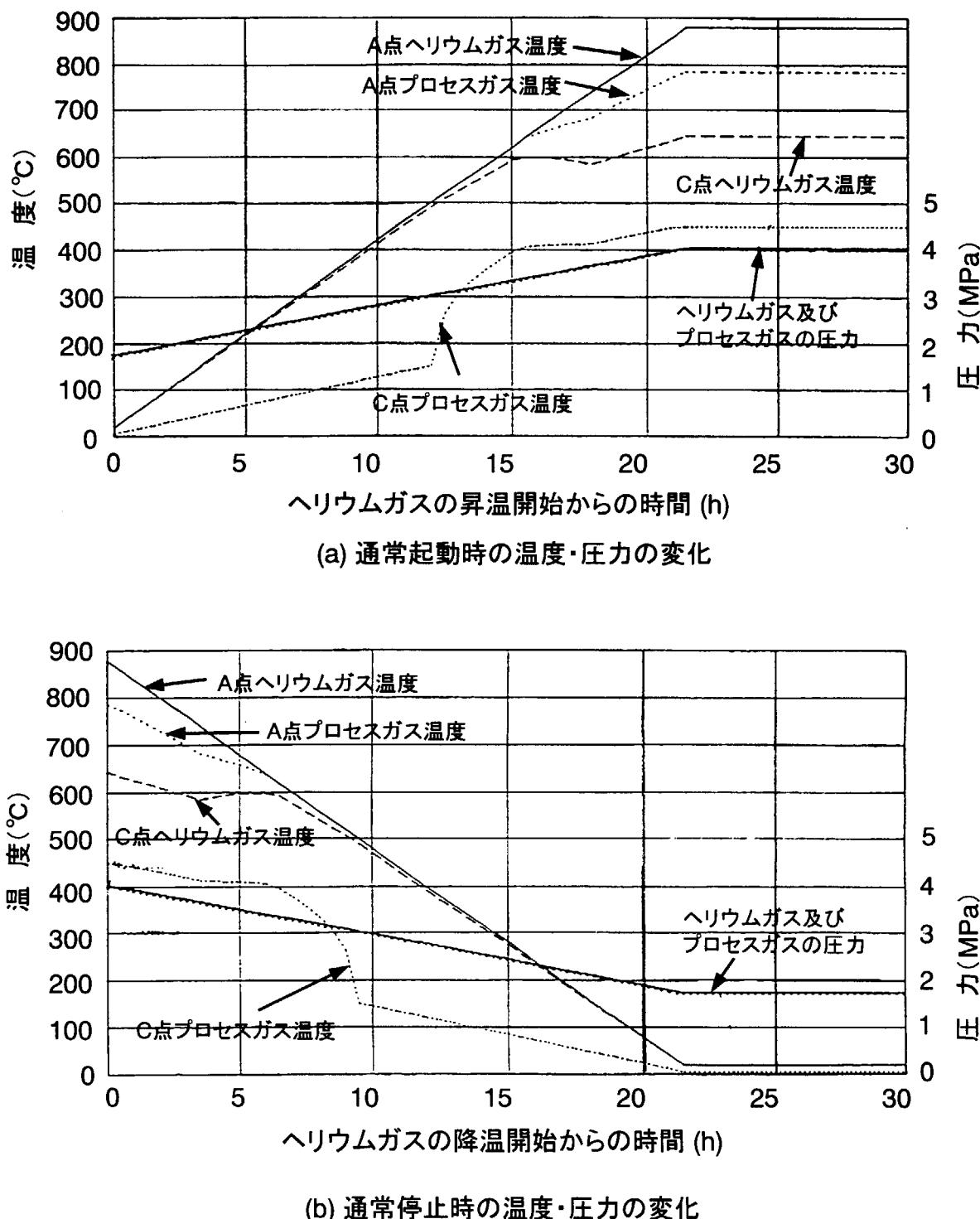


Fig. 4.9 Change of temperature and pressure during start-up and shut-down of out-of-pile test facility.

This is a blank page.

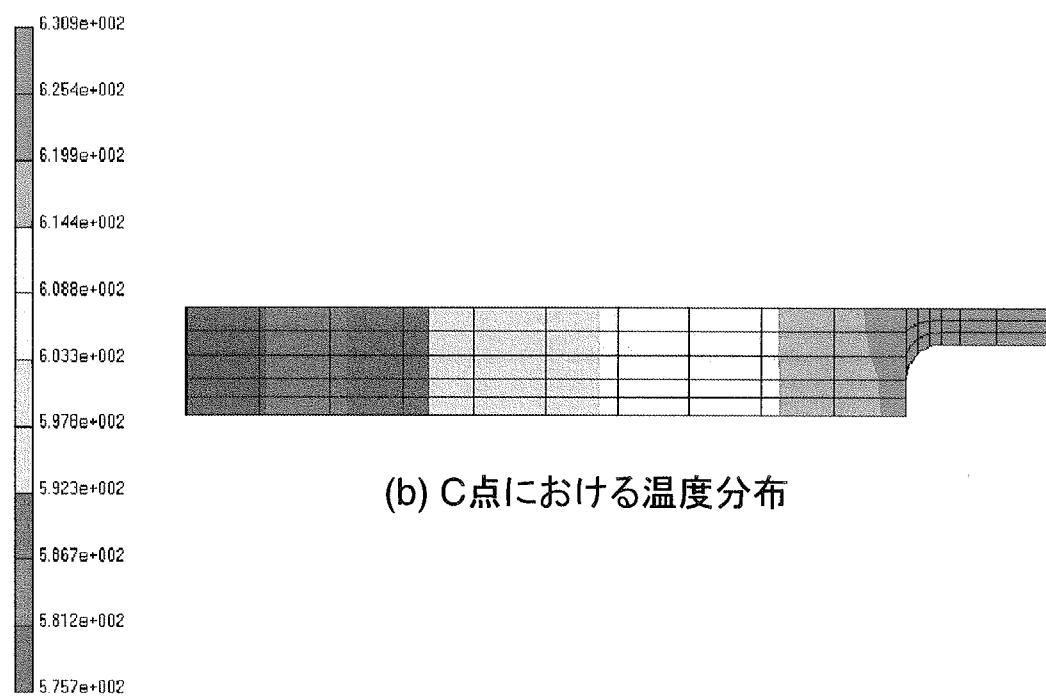
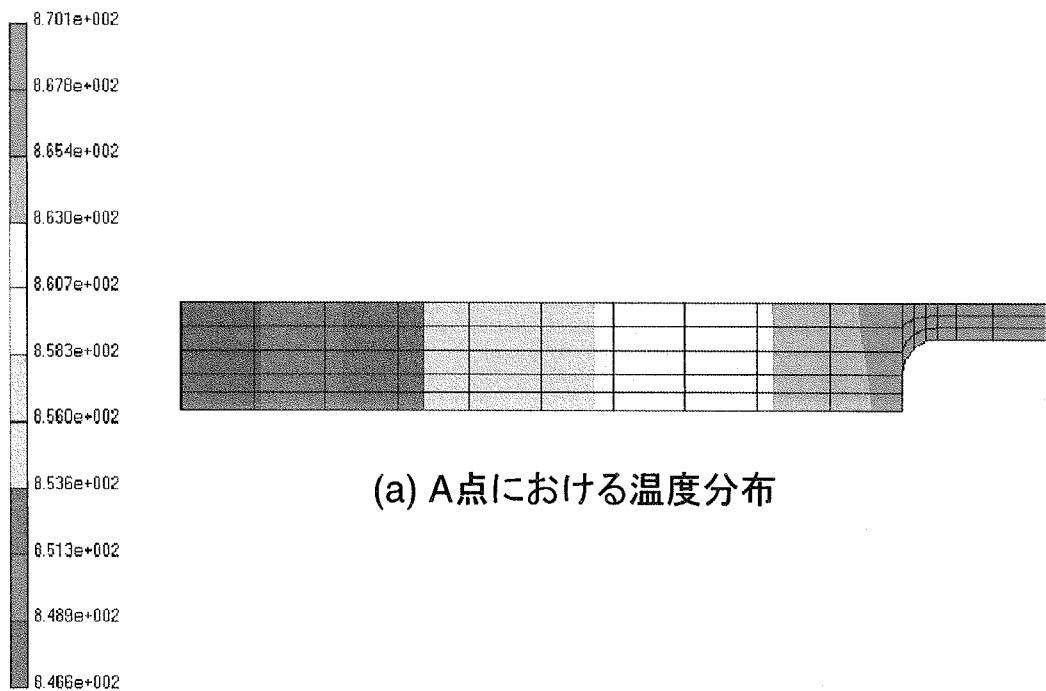


Fig. 4.10 Temperature distributions of catalyst tube.

This is a blank page.

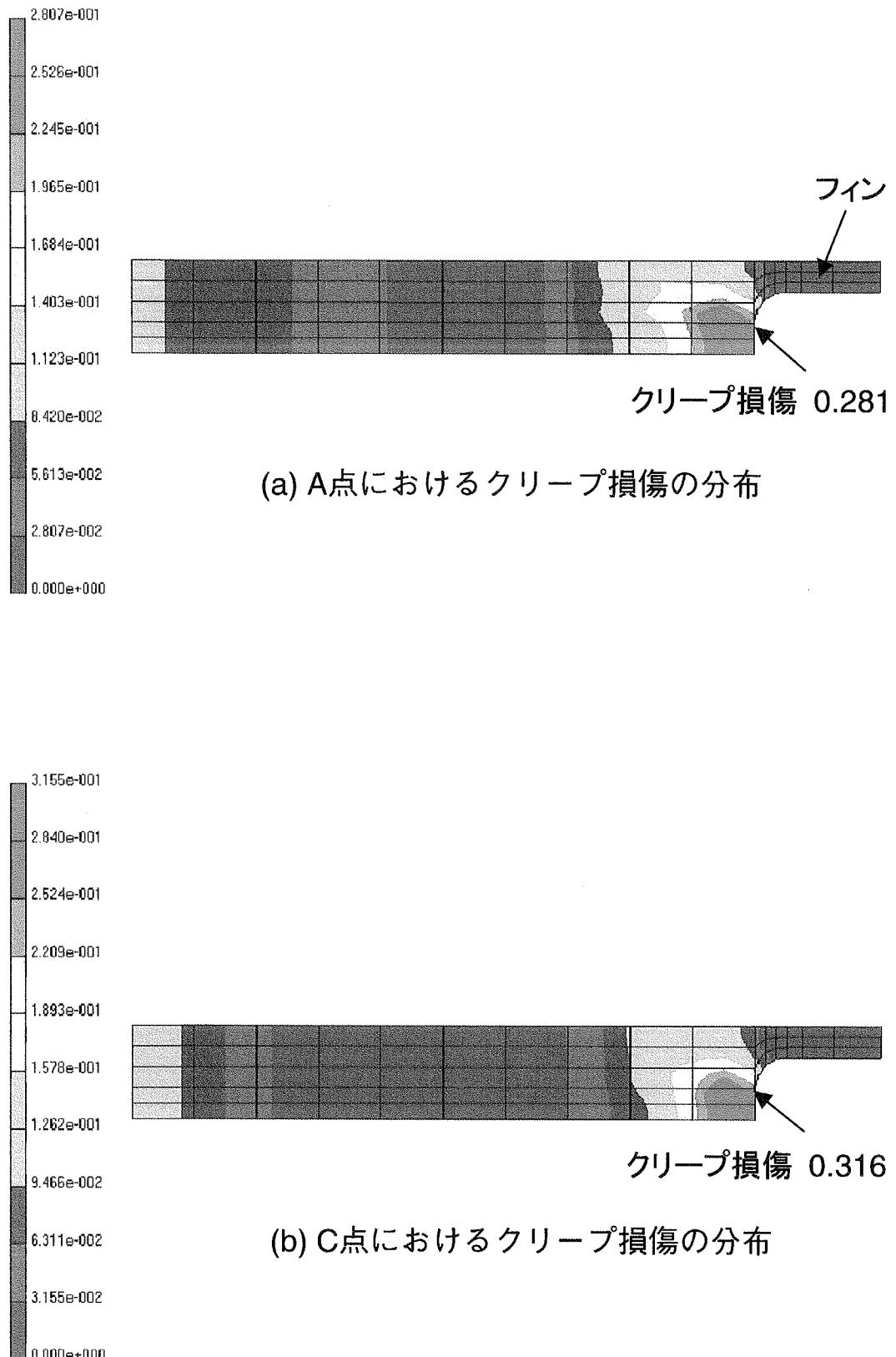


Fig. 4.11 Creep damage distributions of catalyst tube.

This is a blank page.

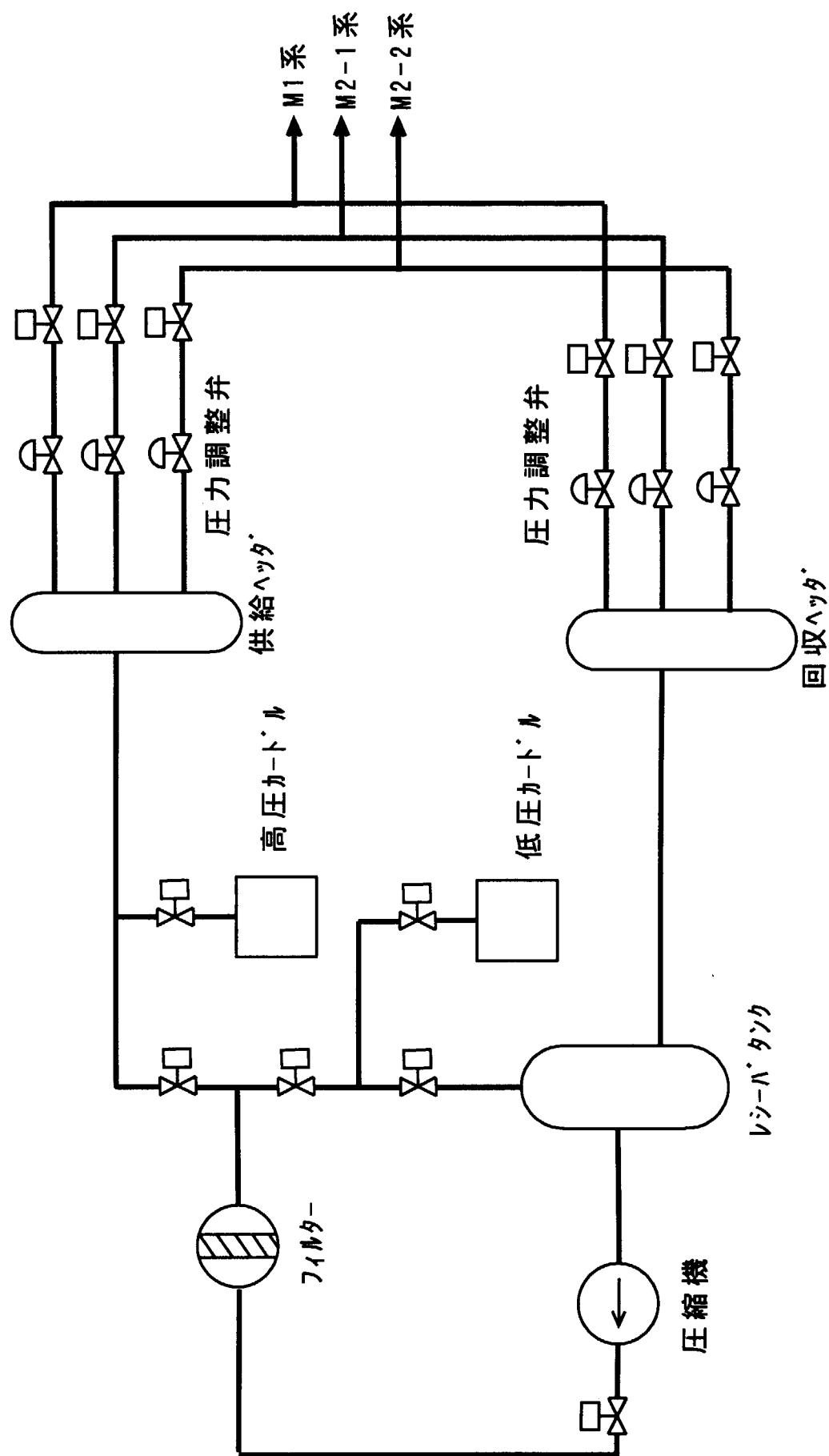


Fig.4.12 Schematic flow diagram of pressure control system of helium gas.

5. 防爆構造の認可

水蒸気改質器においては、可燃性ガスを内蔵する圧力容器内に補償ヒーター（電気式のシーズヒーター）を設置するため、高圧ガス施設の設置許可を出す茨城県庁から、水蒸気改質器が防爆構造であることを要求された。防爆構造については、「工場電気防爆指針（ガス防爆）」に従い、（社）産業安全技術協会に認可申請を行った。以下に防爆構造であることの主な要求事項とその対応を述べる。ここで、「工場電気防爆指針（ガス防爆）」の用語において、電熱器は補償ヒーター、電気加熱装置は補償ヒーターを含む水蒸気改質器全体に相当する。また、加熱槽は補償ヒーター以外の水蒸気改質器部分を指すが、ここでは圧力容器と表現する。

- (1) 電気加熱装置は、加熱槽内が爆発性雰囲気にならないように、所定の流体で満たされていること。

対応：圧力容器内で補償ヒーターが設置されている部分は、ヘリウムガス雰囲気であることから、爆発性雰囲気にはならないことを満足している。

- (2) 加熱槽は、被加熱流体（ここではヘリウムガス）の化学的性質、使用圧力及び温度などに対して十分な耐久力を有すること。

対応：水蒸気改質器は、高圧ガス保安法特定設備に基づき設計・製作を行っているので満足している。

- (3) 電熱器用いる端子箱は、耐圧防爆構造または安全増防爆構造とすること。

対応：市販の安全増防爆構造の端子箱を用いることで対応する。

- (4) 加熱槽に対する保護装置を設けること。その機能は、①所定の被加熱流体で満たされているときに、はじめて電熱器に通電できること、②通電中に加熱槽内の被加熱流体の流量等に異常が生じた場合は電熱器の通電を停止することである。

対応：上記①に対しては、圧力容器内のヘリウムガス圧力が所定の値になった後に補償ヒーターに通電できるインターロックを設け、②に対しては、ヘリウムガスの循環が停止した場合には補償ヒーターへの通電を止めるインターロックを設けることで対応した。

- (5) 電気加熱装置で爆発性ガスに触れる部分の温度は、爆発性ガスの種類により定められた温度等級の80%の値を超えないように温度保護装置を設け保護すること。

対応：炉外試験装置で対象となる爆発性ガスはメタン、水素、一酸化炭素であり、それに対応した温度等級は450°C、その80%は360°Cとなる。また、上記のガスが漏洩した場合には圧力容器の表面に接する可能性がある。これらのことから、圧力容器の表面温度を計測し、360°Cになった場合には試験装置を停止するインターロックを設けることで対応した。なお、内部断熱構造を施すことにより、設計では圧力容器の表面温度を約150°Cと推定している。

以上の対応をとることで、水蒸気改質器の防爆性について（社）産業安全技術協会から了解を得、水蒸気改質器の設計・製作を行った。炉外試験装置の検収運転時に圧力容器表面温度を実際に測定し、360°C以下である結果を（社）産業安全技術協会に報告した時点で、防爆構造は正式に認可される。

6. 水蒸気改質器の試験計画

HTTR 水素製造システムの詳細設計データ及び安全審査用データの取得を目的として、水蒸気改質器については以下の試験を計画している。

6. 1 プロセスガスとヘリウムガスの伝熱、圧力損失特性

プロセスガスとヘリウムガスの伝熱、圧力損失特性データを取得して実験式を作成し、HTTR 水蒸気改質器の設計に資する。本試験でプロセスガス（原料ガス及び水蒸気）を流した場合には、触媒層内で(1.1)及び(1.2)式の反応が生じ、伝熱については触媒層内で反応による吸熱及び発熱、圧力損失については触媒層内で反応による体積膨張が生じて、伝熱及び圧力損失特性を精度良く測定することが難しい。そこで、伝熱及び圧力損失の現象を簡明化するために、本試験ではプロセスガス系に窒素ガスを流して行う。基本的な試験条件は以下である。

圧 力：窒素ガス及びヘリウムガス 1.0 ~ 3.0 MPa

温 度：常温～300 °C

流 量：窒素ガス 20 ~ 70 g/s

ヘリウムガス 30 ~ 100 g/s

6. 2 触媒層における反応特性

触媒層の反応特性は、HTTR 水蒸気改質器の設計に必要なだけでなく、HTTR 水素製造システムの過渡特性を予測する上で重要であり、このためには触媒層の反応速度式を明らかにする必要がある。メタン水蒸気改質の反応速度式としては、触媒の活性化工エネルギーと各成分ガスの分圧を考慮した幾つかの式が提案されており⁽¹⁸⁾、炉外技術開発試験装置の過渡特性を予測するためを開発した熱物質収支解析コードには、反応速度式として次式を組み込んでいる。

$$r_1 = A_1 \exp(-E_1/RT) (p_{\text{CH}_4} p_{\text{H}_2\text{O}} - p_{\text{CO}} p_{\text{H}_2}^3 / P^2 / K_1) \quad (6-1)$$

$$r_2 = A_2 \exp(-E_2/RT) (p_{\text{CO}} p_{\text{H}_2\text{O}} - p_{\text{CO}_2} p_{\text{H}_2} / K_2) \quad (6-2)$$

ここで、 r ：反応速度、 A ：頻度因子、 E ：活性化工エネルギー (J/mol)、 K ：化学平衡定数、 p ：各成分ガスの分圧 (Pa)、 P ：全圧 (Pa)、添え字 1 は(1.1)式、2 は(1.2)式の反応を表す。 A 及び E については、触媒の担持金属（通常は Ni）及び担持量、担体（通常は α -Al₂O₃）、触媒の形状、反応圧力等によって異なる。このうち、 E は触媒の担持金属及び担持量、担体等によって定まり、触媒の形状や反応圧力等の影響は小さいと言われているため、実験室規模の低圧 (0.1 MPa 程度) の試験装置等で求めることができる。一方、 A は触媒の形状や反応圧力等にも影響を受ける可能性がある。

HTTR 水素製造システムとほぼ同じ圧力条件 (4.5 MPa) までの圧力の反応速度に及ぼす影響の報告例は非常に少なく、文献によって、反応速度は圧力の影響を受けない⁽¹⁹⁾、圧力の上昇とともに反応速度が低下^(20,21)、あるいは逆に圧力の上昇とともに反応速度が上昇するとの報告例があり、その評価は定まっていない。また、用いる触媒の種類（担持金属、形状等）によっても反応速度式が異なるため、本水蒸気改質器により、HTTR 水素製造システムでの使用が想定される

触媒を用いて、反応速度式への圧力の影響等を明らかにする。基本的な試験条件を以下に示す。

圧 力：プロセスガス 3.0～4.5MPa
 ヘリウムガス 2.7～4.2MPa

温 度：ヘリウムガス 700～880℃

流 量：原料ガス（天然ガス） 5～12g/s
 ヘリウムガス 70～110g/s

S/C 比（水蒸気/原料ガス供給比）：2.0～3.5

試験では、あらかじめ実験室規模の試験装置を用いて活性化工エネルギー E を調べ、その後上記条件で生成ガスの組成を調べて、熱物質収支解析コードによる解析結果との比較検討を行い、適切な頻度因子 A を設定して反応速度式を定める。また、A の圧力依存性等を明らかにする。

6. 3 触媒管の水素透過特性

HTTR の炉心では、燃料の三体核分裂反応の他、黒鉛構造物や中性子吸収体中の Li 及び B、冷却材ヘリウムガスの中性子吸収反応によりトリチウムが発生し、系内を循環している⁽²²⁾。トリチウムは水素の同位体であることから、高温雰囲気で金属中を透過する特性を有する。このため、炉心で生成したトリチウムは中間熱交換器を経由して1次ヘリウムガスから2次ヘリウムガスへ、水蒸気改質器を経由して2次ヘリウムガスから製造された水素へ移行する。この水素の安全性を確保するためには、トリチウム移行量の定量評価並びに移行量低減技術の開発が必要である。また、水蒸気改質器で製造した水素は2次ヘリウムガス、1次ヘリウムガスを経由して炉心へ移行する。その結果、炉心においてメタネーション（C + 2H₂ → CH₄）により黒鉛構造物の腐食が生じる。

このように HTTR 水素製造システムでは、トリチウム／水素の移行現象は重要な課題である。このため、中間熱交換器伝熱管及び触媒管の透過係数の評価、酸化膜等による移行量低減技術の開発、トリチウム移行解析コードの検証データの取得を目的として、水素／重水素を用いた水素透過試験を進めている⁽²³⁾。この試験は、Φ 31.8^{0.0} × 3.5¹ × 1,000mm の大きさの試験片を使う小規模の要素試験であるため、ほぼ実機規模での水素透過量の計測と解析コードの検証を、炉外技術開発試験で行う計画である。このため、炉外試験装置では触媒管からヘリウムガスへの水素透過量を計測できるように、水蒸気改質器のヘリウムガス出入口部にヘリウムガスのサンプリングラインを設けることとした。

7. 結 言

水蒸気改質器は、HTTR 水素製造システムの水素製造能力、並びに過渡挙動を明らかにする上で重要な機器であり、炉外試験装置の水蒸気改質器の設計・製作に当たっては、HTTR 水素製造システムの概念設計の成果を基に、以下の工夫を行った。

- (1) ヘリウムガスからの熱を反応へ有効に利用するため、改質反応後の高温プロセスガスから熱回収を行うことができるバイヨネット型触媒管を採用した。また、コンパクトな構造とするため、触媒管の外周部に直交フィンを設けてヘリウムガス熱伝達の格段の向上を図った。
- (2) 触媒管を差圧設計とするため、①クリープを考慮した構造解析による設計妥当性の証明、②運転時に触媒管にかかる差圧を設計差圧内で一定に保持するための触媒管差圧制御系の設置、③触媒管の設計条件を担保するための触媒管保護装置の設置、④運転中に触媒管の破損を検知する監視装置の設置、の対策を施すことにより、高圧ガス保安法で初めて差圧設計特認の認可を取得した。
- (3) 水蒸気改質器については圧力容器内に電気ヒーターを収納することから、茨城県庁から防爆構造であることの証明を要求された。このため、圧力容器に温度保護装置を設ける等の対策を施すことにより、(社)産業安全技術協会防爆構造であることの了解を得て製作を行った。炉外試験装置の検査運転時に圧力容器表面温度を実際に測定し、360 °C以下である結果を(社)産業安全技術協会に報告した時点で、防爆構造は正式に認可される

謝 辞

本報告書を作成するに当たり、日本原子力研究所中性子科学センターゲット開発室日野隆太郎室長に多大なご助言を頂いた。また、高圧ガス保安法の特認申請に当たっては、高圧ガス保安協会の機器検査事業部技術審査室梶村芳敬室長並びに同部審議役山本健司氏に貴重なご助言を頂いた。触媒管の構造解析では、Alloy800H のクリープ解析手法について日本原子力研究所核熱利用研究部武藤康次長、外圧座屈の解析手法について同所エネルギーシステム研究部材料応用工学研究室加治芳行副主任研究員に貴重なご助言を頂いた。また、温度制御及び差圧制御のインターロックの検討については(株)日立製作所佐藤深一郎氏、触媒管の構造解析及び防爆構造検討に当たってはバブコック日立(株)吉田邦緒氏に協力頂いた。ここに深く謝意を表する。

参考文献

- (1) Hada, K., Nishihara, T., Shibata, T., Shiozawa, S., "Design of a Steam Reforming System to be Connected to the HTTR," JAERI-CONF, 96-010, 229 (1996).
- (2) 三浦, "直接還元ガス利用による直接製鉄技術," 燃料協会誌, 53, 822 (1974).
- (3) Shimokawa, K., "Present Status of Research and Development of Nuclear Steelmaking in Japan", Trans. ISIJ, 19, 291 (1979).
- (4) Singh, J., Nissen H. F., Harth, J., Fredders, H., Reutler, H., Panknin, W., Mueller, W. D., Harms, H. G., "The Nuclear Heated Steam Reformer - Design and Semitechnical Operating Experiences," Nucl. Eng. Des., 78, 179 (1984).
- (5) Harth, R., Jansing, W., Teubner, H., "Experience Gained from the EVA II and KVK Operation," Nucl. Eng. Des., 121, 173 (1990).
- (6) Santoso, B., Barnet, H., "Notes on HTR Applications in Methanol Production: non-Electric Applications of Nuclear Energy," IAEA-TECDOC, 923, 103 (1997).
- (7) 稲垣, 武田, 西原, 羽田, 林, "HTTR 水素製造システムの炉外実証試験計画," 原子力誌, 41, 250 (1999).
- (8) Inagaki, Y., Nishihara, T., Takeda, T., Hada, K., Hayashi, K., "Out-of-Pile Demonstration Test of Hydrogen Production System Coupling with HTTR," Proc. 7th Int. Conf. on Nucl. Eng., ICONE-7101 (1999).
- (9) 羽賀, 須山, 稲垣, 小川, "炉外技術開発試験における水蒸気改質反応の熱化学解析," JAERI-Tech 99-062 (1999).
- (10) Knudsen, K., Katz, D., "Heat Transfer and Pressure Drop in Annuli, Measurements on Plain and Transverse Fin Tubes Using Water," Chem. Eng. Progress, 46, 490 (1950).
- (11) Yagi, S., Kunii, D., International Developments in Heat Transfer, Part IV, 742, 750 (1961).
- (12) 日本機械学会, "伝熱工学資料改訂第2版," 175 (1966).
- (13) Inco Alloys International Co., "INCOLOY Alloy 800HT, Physical Constants and Thermal Properties".
- (14) 橋, 西, 衛藤, 武藤, "Alloy 800H のクリープ特性," JAERI-Tech 98-010 (1998).
- (15) 日本機械学会非弾性解析の設計適用方法研究分科会, "非弾性解析の設計への適用方法に関する研究(II)," (1981).
- (16) 鷲津, 宮本, 山田, 山本, 川井, "有限要素法ハンドブック," 倍風館, (1983).
- (17) ASME Boiler and Pressure Vessel Code, an American National Standard, "Section III, Rules for Construction of Power Plant Components, Division 1-Subsection NH Class 1 Component in Elevated Temperature Service," Appendix T, 125 (1998).
- (18) Mezaki, R., Inoue, H., "Rate of Equations of Solid-Catalyzed Reactions," Univ. Tokyo Press, 321 (1991).
- (19) Atroschenko, V. I., Zviaghintsev, G.L., Khim. Prom., 46, 36 (1970).

- (20) Ziolkowski, D., Pomaranski, J., Golebiowski, A., Stolecki, K., Inzynieria Chem. Proces., 1 (4), 923 (1980).
- (21) Agranat, B. D., Leibush, A. G., Semenv, V. P., Kinetika I Kataliz., 17 (5), 1241 (1976).
- (22) 西原, 羽田, "高温ガス炉水素製造システムの製品水素へのトリチウム移行量評価," 原子力誌, 41, 571 (1999).
- (23) Takeda, T., Iwatsuki, J., Inagaki, Y., Ogawa, M., "Study on Tritium/Hydrogen Permeation in the HTTR Hydrogen Production System," Proc. 7th Int. Conf. on Nucl. Eng., ICONE-7102 (1999).

付録：触媒管の設計差圧の設定根拠

触媒管の設計差圧は、炉外試験装置の通常起動・停止の手順を考慮して定めている。

炉外試験装置の定格運転状態（水蒸気改質器ヘリウムガス入口温度：880 °C、圧力：4.0MPa）を達成するためには、炉外試験装置の通常起動時においてヘリウムガスとプロセスガスを同時に昇圧、昇温する必要がある。昇圧、昇温過程では、ヘリウムガスを基準とし、プロセスガスをヘリウムガスの圧力・温度変化に追従させる。

炉外試験装置の通常起動時におけるヘリウムガスの圧力、温度の変化を Fig. A.1 に示す。起動手順は以下の通りである。

- 1) ヘリウムガスを 0.1MPa の状態から 1.7MPa まで 0.4MPa/h の速度で昇圧する。ヘリウムガスの昇圧と同時に 4.2.2 項に記した触媒管の差圧制御系（差圧設定値：+ 0.04MPa）及び差圧制御インターロックを作動させ、プロセスガスの圧力も上昇させる。このとき、ヘリウムガスは室温（20 °C）で、流れは生じていない。起動時から 4 時間でヘリウムガスは所定の 1.7MPa に達する。
- 2) 通常起動開始から 5 時間後にヘリウムガス循環機を起動し、300g/s/h の流量変化率で循環量を 91g/s とする。
- 3) 通常起動開始から 6 時間後に 4.2.3 項に記した触媒管の温度インターロックを作動させ、ヘリウムガス加熱器で 40 °C/h の速度で昇温を開始する。同時にヘリウムガス（昇圧速度：0.107MPa/h）とプロセスガスの昇圧を行う。通常起動開始後から 27.5 時間後に炉外試験装置は定格状態となる。

上記 1) 及び 3) の過程では、プロセスガスの圧力をヘリウムガスに対して + 0.04MPa の状態になるように差圧制御系を用いて昇圧していく、運転員はこの差圧を常に監視する。差圧制御系に異常が生じた場合、ヘリウムガスの昇圧にプロセスガスの昇圧が追従せず、触媒管に過大差圧（外圧）がかかる可能性がある。なお、炉外試験装置の通常停止手順は通常起動手順の反対であり、差圧制御系に異常が生じた場合、ヘリウムガスの降圧にプロセスガスの降圧が追従せず、触媒管に過大差圧（内圧）がかかる可能性がある。

このため、触媒管の設計においては、通常起動・停止時に過大差圧（外圧及び内圧）が生じたとしても、運転員が対応した処置（ヘリウムガスの昇圧・降圧停止、ヘリウムガスの降温等）を行なうために十分な時間を確保できるように、設計差圧を外圧に対して 0.5MPa、内圧に対して 1.0MPa としている。

本文の Fig. 3.2 に示したように、触媒管において差圧が最も小さい場所は触媒管の下端部で + 0.04MPa であり、通常起動初期にヘリウムガスの昇圧速度が 0.4MPa/h であることから、この場所で差圧（外圧）が 0.5MPa となるまでに 1 時間以上を要する。また、差圧が最も大きい場所は触媒管の管板部で + 0.31MPa であり、通常停止末期のヘリウムガスの降圧速度が 0.4MPa/h であることから、管板部で差圧（内圧）が 1.0MPa となるまでにも 1 時間以上を要する。これは、運転員が触媒管の差圧異常に対応するに十分な時間である。

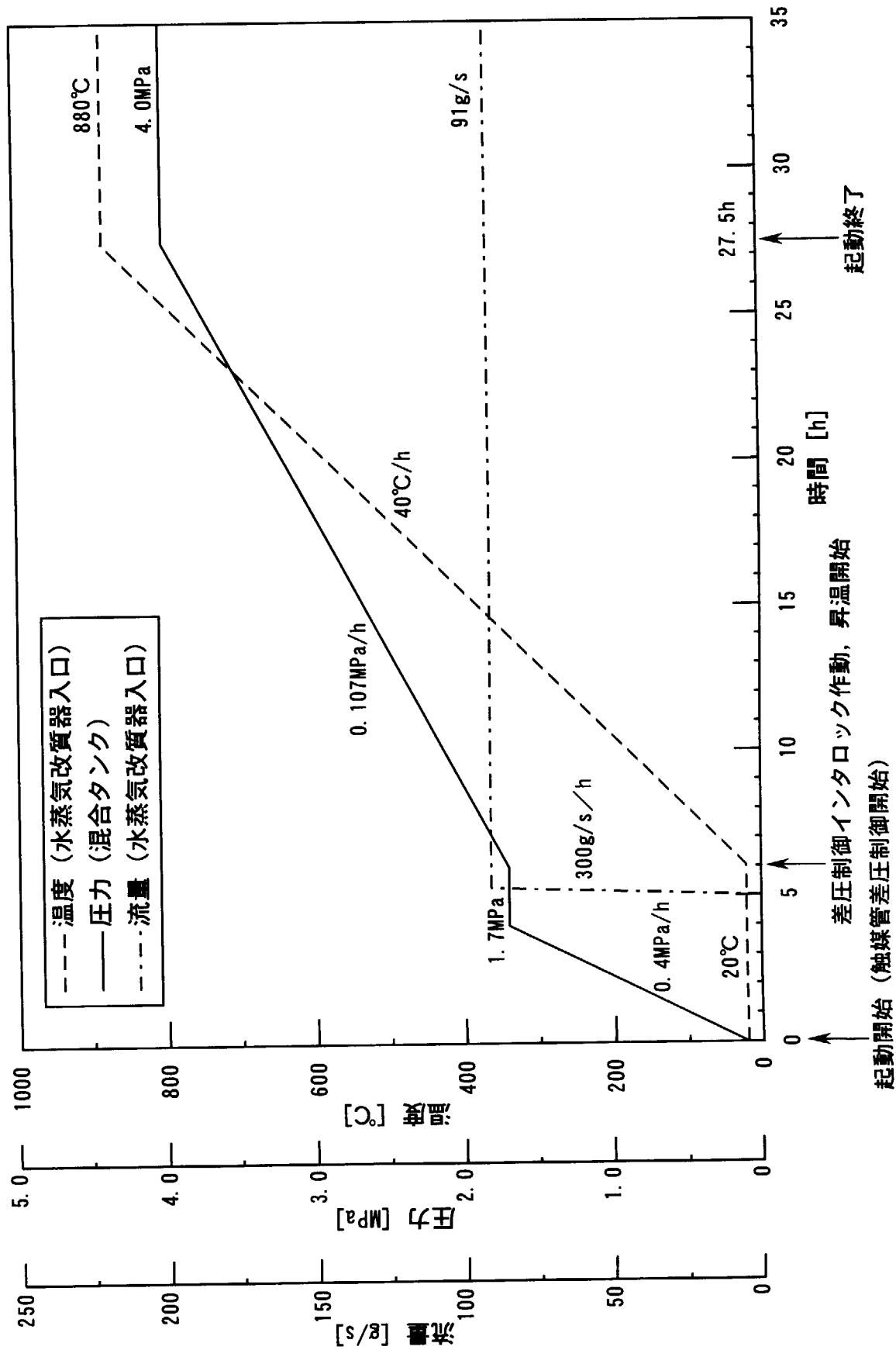


Fig. A.1 Change of flow rate, pressure and temperature of helium gas at normal start-up.

This is a blank page.

国際単位系(SI)と換算表

表1 SI基本単位および補助単位

量	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質量	モル	mol
光度	カンデラ	cd
平面角	ラジアン	rad
立体角	ステラジアン	sr

表3 固有の名称をもつSI組立単位

量	名称	記号	他のSI単位による表現
周波数	ヘルツ	Hz	s ⁻¹
力	ニュートン	N	m·kg/s ²
圧力、応力	パスカル	Pa	N/m ²
エネルギー、仕事、熱量	ジュール	J	N·m
工率、放射束	ワット	W	J/s
電気量、電荷	クーロン	C	A·s
電位、電圧、起電力	ボルト	V	W/A
静電容量	フアラード	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジーメンス	S	A/V
磁束	ウェーバ	Wb	V·s
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ²
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A
セルシウス温度	セルシウス度	°C	
光束度	ルーメン	lm	cd·sr
照度	ルクス	lx	lm/m ²
放射能	ベクレル	Bq	s ⁻¹
吸収線量	グレイ	Gy	J/kg
線量当量	シーベルト	Sv	J/kg

表2 SIと併用される単位

名称	記号
分、時、日	min, h, d
度、分、秒	°, ', "
リットル	l, L
トン	t
電子ボルト	eV
原子質量単位	u

$$1 \text{ eV} = 1.60218 \times 10^{-19} \text{ J}$$

$$1 \text{ u} = 1.66054 \times 10^{-27} \text{ kg}$$

表5 SI接頭語

倍数	接頭語	記号
10 ¹⁸	エクサ	E
10 ¹⁵	ペタ	P
10 ¹²	テラ	T
10 ⁹	ギガ	G
10 ⁶	メガ	M
10 ³	キロ	k
10 ²	ヘクト	h
10 ¹	デカ	da
10 ⁻¹	デシ	d
10 ⁻²	センチ	c
10 ⁻³	ミリ	m
10 ⁻⁶	マイクロ	μ
10 ⁻⁹	ナノ	n
10 ⁻¹²	ピコ	p
10 ⁻¹⁵	フェムト	f
10 ⁻¹⁸	アト	a

(注)

- 表1～5は「国際単位系」第5版、国際度量衡局1985年刊行による。ただし、1eVおよび1uの値はCODATAの1986年推奨値によった。
- 表4には海里、ノット、アール、ヘクタールも含まれているが日常の単位なのでここでは省略した。
- barは、JISでは流体の圧力を表わす場合に限り表2のカテゴリーに分類されている。
- EC開発理事会指令ではbar、barnおよび「血圧の単位」mmHgを表2のカテゴリーに入れている。

換算表

力	N(=10 ⁵ dyn)	kgf	lbf
1	0.101972	0.224809	
9.80665	1	2.20462	
4.44822	0.453592	1	

$$\text{粘度 } 1 \text{ Pa}\cdot\text{s}(\text{N}\cdot\text{s}/\text{m}^2) = 10 \text{ P(ポアズ)}(\text{g}/(\text{cm}\cdot\text{s}))$$

$$\text{動粘度 } 1 \text{ m}^2/\text{s} = 10^4 \text{ St(ストークス)}(\text{cm}^2/\text{s})$$

圧	MPa(=10 bar)	kgf/cm ²	atm	mmHg(Torr)	lbf/in ² (psi)
力	1	10.1972	9.86923	7.50062 × 10 ³	145.038
	0.0980665	1	0.967841	735.559	14.2233
	0.101325	1.03323	1	760	14.6959
	1.33322 × 10 ⁻⁴	1.35951 × 10 ⁻³	1.31579 × 10 ⁻³	1	1.93368 × 10 ⁻²
	6.89476 × 10 ⁻³	7.03070 × 10 ⁻²	6.80460 × 10 ⁻²	51.7149	1

エネルギー・仕事・熱量	J(=10 ⁷ erg)	kgf·m	kW·h	cal(計量法)	Btu	ft · lbf	eV	1 cal = 4.18605 J(計量法)
1	0.101972	2.77778 × 10 ⁻⁷	0.238889	9.47813 × 10 ⁻⁴	0.737562	6.24150 × 10 ¹⁸	= 4.184 J(熱化学)	
9.80665	1	2.72407 × 10 ⁻⁶	2.34270	9.29487 × 10 ⁻³	7.23301	6.12082 × 10 ¹⁹	= 4.1855 J(15 °C)	
3.6 × 10 ⁶	3.67098 × 10 ⁵	1	8.59999 × 10 ⁵	3412.13	2.65522 × 10 ⁶	2.24694 × 10 ²⁵	= 4.1868 J(国際蒸気表)	
4.18605	0.426858	1.16279 × 10 ⁻⁶	1	3.96759 × 10 ⁻³	3.08747	2.61272 × 10 ¹⁹	仕事率 1 PS(仮馬力)	
1055.06	107.586	2.93072 × 10 ⁻⁴	252.042	1	778.172	6.58515 × 10 ²¹	= 75 kgf·m/s	
1.35582	0.138255	3.76616 × 10 ⁻⁷	0.323890	1.28506 × 10 ⁻³	1	8.46233 × 10 ¹⁸	= 735.499 W	
1.60218 × 10 ⁻¹⁹	1.63377 × 10 ⁻²⁰	4.45050 × 10 ⁻²⁶	3.82743 × 10 ⁻²⁰	1.51857 × 10 ⁻²²	1.18171 × 10 ⁻¹⁹	1		

放射能	Bq	Ci
1	2.70270 × 10 ⁻¹¹	
3.7 × 10 ¹⁰	1	

吸収線量	Gy	rad
1	100	
0.01	1	

照射線量	C/kg	R
1	3876	
2.58 × 10 ⁻⁴	1	

線量当量	Sv	rem
1	100	
0.01	1	

(86年12月26日現在)

