脱硝転換設備概念の成立性調査(2)

(核燃料サイクル開発機構 契約業務報告書) (研究報告)

2004年2月

三菱マテリアル株式会社

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村村松4番地49

核燃料サイクル開発機構

技術展開部 技術協力課

電話:029-282-1122(代表)

ファックス: 029-282-7980

電子メール: jserv@jnc.go.jp

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:

Technical Cooperation Section,

Technology Management Division,

Japan Nuclear Cycle Development Institute

4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1184, Japan

© 核燃料サイクル開発機構

(Japan Nuclear Cycle Development Institute)

2004

脱硝転換設備概念の成立性調査(2)

(核燃料サイクル開発機構 契約業務報告書)

(研究報告)

谷本 亮二*、吉村 忠宏*、星野 康史* 宗片 英樹*、田巻 喜久*

要旨

本検討では、2002 度に実施したセラミックス製脱硝容器の製作並びに硝酸ウラニル溶液を用いたマイクロ波脱硝、焙焼および還元試験に引き続き、小型のターンテーブル式脱硝転換装置を製作し、脱硝転換試験を行い、粉末物性や装置の健全性を評価することによりターンテーブル式脱硝転換装置の技術的成立性についての確認を行い、下記の成果を得た。

- (1) 小型のターンテーブル式脱硝転換装置を製作し、マイクロ波脱硝、焙焼・還元、 粉砕を行い、各装置の健全性について問題のないことを確認した。
- (2) 粉砕後の粉末について粉末物性を測定し、従前のマイクロ波脱硝後の粉砕粉末とほぼ同等の粉末が得られることを確認した。
- (3) 還元後の粉砕粉末をペレットに成型、焼結し、密度の高いペレットが得られることを確認した。
- (4) 試験結果について、ターンテーブル式脱硝転換設備成立性の観点から検討を行い、開発課題を整理した。

本報告書は、三菱マテリアル株式会社が核燃料サイクル開発機構との契約により実施した業務成果に関するものである。

機構担当部課室:大洗工学センター システム技術開発部 燃料製造システムグループ *:三菱マテリアル株式会社

Feasibility investigation of a denitration/conversion equipment concept (2) (Research report)

Ryoji Tanimoto*, Tadahiro Yoshimura*, Yasushi Hoshino*, Hideki Munekata*,and Yoshihisa Tamaki*

Abstract

In this investigation, ceramics denitration containers with ball valve units were manufactured and preliminary tests of microwave denitration, calcination and reduction were carried out in last fiscal year. In this fiscal year, a small scale denitration /conversion apparatus with turntable system was designed and manufactured, then a series of microwave denitration/conversion tests was conducted. Feasibility of the denitration/conversion apparatus with turntable system was evaluated by checking powder properties and soundness of apparatus through the series of tests.

The summary of the results are as follows;

- (1) By the series of microwave denitration, calcination, and reduction tests using small scale denitration/conversion apparatus with turntable system manufactured, it is confirmed that there are no critical problem in the apparatus.
- (2) Checking the powder properties after grinding, it is confirmed that the powder is equivalent of one obtained by conventional microwave denitration /conversion facility.
- (3) Reduced powder was grinded and pressed to several pellets, then sintered. It was confirmed that high density pellet fuel can be obtained.
- (4) Studying the test results from the viewpoint of feasibility of denitration/conversion facility with turntable system, the R&D issues were made clear.

This work performed by Mitsubishi Materials Corporation under contract with Japan Nuclear Cycle Development Institute.

JNC Liaison : Fuel Fabrication System Group, System Engineering Technology
Division, O-arai Engineering Center

*: Mitsubishi Materials Corporation

目 次

1. は	じめに	1
2. 脱	硝転換設備成立性調査の目的	2
2.1	ターンテーブル式脱硝転換設備採用の経緯	2
2.2	従来のマイクロ波脱硝転換設備との比較	2
(1)	プロセス構成	3
(2)	機器数および設置エリア面積	3
2.3	成立性調査の目的	3
3. 試	験装置の製作	4
3.1	小型ターンテーブル式脱硝転換装置の製作	4
(1)	ターンテーブル	4
(2)	マイクロ波脱硝装置	4
(3)	焙焼·還元炉	4
(4)	オーガ(粉砕)装置	4
3.2	ボールバルブサブプレートの製作	4
4. 脱	硝転換試験1	5
4.1	予察試験条件1	5
4.2	3 SC 85-92/04 ST	
` '	脱硝条件の確認1	
` '	焙焼・還元条件の確認1	
(3)	粉砕条件の確認1	
4.3	The state of the s	
4.4	H-v-azanazia	
(1)	脱硝~粉砕	6
` '	成型~焼結1	
(3)	マイクロ波出力の上昇確認	8
	討評価および開発課題	
5.1	検討評価	
5.2	開発課題	
` '	溶液吹きこぼれ対策	
	再酸化防止対策	
(3)	粉末飛散対策	3

JNC TJ9400 2004-002

	(4)粉砕安定化対策	33
	(5)粉末流動性改良対策	34
	(6)還元粉末安定化対策	34
	(7)保守性	34
6.	まとめ	38
7.	参考文献	39

図 表 目 次

図 3.2-1	バルブ詳細図	5
図 3.1-1	脱硝転換装置 機器構造図	6
図 3.1-2	脱硝容器設置台	7
図 3.1-3	焙焼還元炉と脱硝容器設置台	7
図 3.1-4	金属 0 リング	8
図 3.1-5	焙焼還元炉内部	8
図 3.1-6	還元ガス供給ロッド	9
図 3.1-7	オーガ(粉砕)装置	9
図 3.1-8	ターンテーブル昇降装置	. 10
図 3.1-9	脱硝容器自転装置	. 10
図 3.1-10	電源ユニット	. 11
図 3.1-11	焙焼・還元炉温度調節器	. 11
図 3.1-12	粉砕羽根(オーガ)	. 12
図 3.2-2	窒化珪素製サブプレート	. 13
図 3.2-3	脱硝容器(昨年度製作)	. 14
図 4.4-3	焙焼・還元温度と比表面積	. 17
図 4.2-1	予察試験状況	. 20
図 4.4-1	本試験フロー	
図 4.4-2	本試験状況(試験 No.1,2,5,6)	. 23
図 4.4-4	ペレット金相写真(試験 No.1)	. 28
図 4.4-5	ペレット金相写真(試験 No.2)	. 29
図 4.4-6	ペレット金相写真(試験 No.5)	. 30
図 4.4-7	ペレット金相写真(試験 No.6)	. 31
表 3.2-1	主要材質一覧表	5
表 4.4-2	粉末物性データ(JNC 殿実績値)	. 18
表 4.1-1	予察試験条件一覧表	. 19
表 4.3-1	本試験条件一覧表	. 21
表 4.4-1	粉末物性測定結果一覧表	. 24
表 4.4-3	ペレット寸法・密度測定結果一覧表	. 25
表 4.4-4	温度測定結果	. 26
表 4.4-5	脱硝飛散状態一覧表	
表 5.1-1	試験装置の製作および脱硝転換試験に関する結果および評価(1/2)	. 36
表 5.1-1	試験装置の製作および脱硝転換試験に関する結果および評価(2/2)	. 37

脱硝転換試験写真集

1. はじめに

本検討では、2003 年度に実施したセラミックス製脱硝容器の製作並びに硝酸ウラニル溶液を用いたマイクロ波脱硝、焙焼および還元試験に引き続き、小型のターンテーブル式脱硝転換装置を製作し、脱硝転換試験を行い、粉末物性や装置の健全性を評価することによりターンテーブル式脱硝転換装置の技術的成立性についての検討を行う。

2. 脱硝転換設備成立性調査の目的

2.1 ターンテーブル式脱硝転換設備の採用の経緯

実機で想定している脱硝転換設備は、燃料製造プロセスにショートプロセスを適用することを前提としている。このため、脱硝転換設備の上流側で確定した再処理施設の製品溶液ロットの組成を維持したまま、ペレットとして払出す必要があり、原則として、この間の各処理プロセスでロット間のコンタミが起こらない設備構成であることが要求される。

コンタミが起こる主な原因として、製品の流路における複数の機器や配管の介在があり、 これら機器や配管内を製品が移動し処理されることで、機器や配管内に残存する前ロット の製品が混入する。

すなわち、ショートプロセスを構築するには、製品が単一の機器内に保持された状態で 脱硝転換を行うことが理想であるが、マイクロ波脱硝法ではセラミックス製の脱硝皿ある いは脱硝容器に原料溶液を給液し、脱硝を行うため、必然的に、その後段の焙焼や還元等 の各処理は、脱硝皿あるいは脱硝容器内に製品を保持した状態で行うことになる。

さらに、所定の処理量に対応するため、複数の脱硝皿あるいは脱硝容器を各処理ステージに同時にセットし、並行処理を行い、各処理が終わった時点で、それぞれ次の処理ステージに移動するという設備上の工夫が必要となる。

一方、低除染燃料製造プラントでは、高線量下での運転になるため、グローブボックス内に設備を設置し、オペレータによる直接保守を行うというシステムではなく、設備をセル内に設置し、遠隔で操作できるシステムであることが望ましい。

このため、脱硝、焙焼、還元、粉末払い出しまでの各処理ステージへの脱硝皿あるいは 脱硝容器の移動は、できるだけ簡便な方法とし、また、各処理装置もユニット単位で交換 できる構造とする必要がある。

以上の要求を満足する脱硝転換設備として開発したのが、ターンテーブル式脱硝転換装置である。

本装置では、給液から焙焼、還元、粉末払い出しまで単一の脱硝皿あるいは脱硝容器で処理を行うため、コンタミを最小限とすることができ、また、ターンテーブル上には複数の脱硝皿あるいは脱硝容器がセットできるため、処理量への対応が容易である。さらに、従来のような脱硝皿あるいは脱硝容器を台車に搭載して移動させる方法に比べ、ターンテーブルの回転・昇降のみでターンテーブル上の全ての脱硝皿あるいは脱硝容器を所定の各処理ステージに移動ができ、装置のユニット化が容易なため、遠隔保守性に優れるという利点もある。

2.2 従来のマイクロ波脱硝転換設備との比較

低除染ペレット燃料製造プラントと同等規模の従来のマイクロ波脱硝転換設備は、ショートプロセスという概念で設計されたものではなく、還元後の粉末をロット混合した後、 核物質を確定するというプロセスである。 また、保守もグローブボックスでの直接保守を前提としているため、設備をユニット化するというシステムを採用しているわけでもない。従って、単純に従来のマイクロ波脱硝転換設備と比較することはできないが、およそ以下のような違いがある。

(1) プロセス構成

従来のマイクロ波脱硝転換設備では、マイクロ波脱硝工程、焙焼工程、還元工程、粉砕工程の各装置が完全に独立して設置されており、また、製品が流れる主ラインは配管により接続されている。一方、ターンテーブル式脱硝転換設備は1つの設備でマイクロ波脱硝から粉砕までを行うが、この間は脱硝皿あるいは脱硝容器の移動のみであり、主配管はない。

(2) 機器数および設置エリア面積

上記(1)で述べている通り、従来のマイクロ波脱硝転換設備では各工程が完全に独立して 設置されているため、機器数や配管がターンテーブル式脱硝転換設備に比べ相当に多い。 現時点では情報が不足しているため詳細な検討はできないが、マイクロ波出力を従来の マイクロ波脱硝転換設備とターンテーブル脱硝転換設備を同一とした場合、設置エリア面 積の比は、概略3:1~4:1程度になると思われる。

2.3 成立性調査の目的

上述のように、ターンテーブル式脱硝転換設備は既存のプロセスと異なる新しい概念に 基づき構築されたプロセスのため、実機に結びつけるまでには、多くの開発課題がある。

これら開発課題については、2000 年度に実施した、燃料製造システム特性評価と製造基本技術の関連調査¹⁾に詳述しているが、このうち最も重要な要素技術の1つであるセラミックス製脱硝容器の製作性および健全性について、2001 年度および 2002 年度において予察試験を行った。^{2 \ 3 \ 3})

その結果、有効容量約 200 ccの小型脱硝容器において、硝酸ウラニル溶液を用いたマイクロ波脱硝を行い、発泡性の良い脱硝粉体を製造できること並びに繰り返しの使用において脱硝容器下部のバルブから溶液のリークがないことを確認した。また、この脱硝粉体をマッフル炉内において焙焼・還元できることを確認した。

そこで、今年度は、ターンテーブル式脱硝転換システムという新しい概念が装置として成立するかどうかについて、ターンテーブル径で実機の約1/3の小規模試験装置の設計・製作を行い、また、本小規模試験装置と小型脱硝容器を用いてマイクロ波脱硝、焙焼、還元、粉砕までの一連の操作を行うことで確認することとした。さらに、粉砕粉末を原料としてグリーンペレットを製作し、これを焼結炉において焼結ペレットとすることによって、ターンテーブル式脱硝転換設備の製品の粉砕粉末がペレット燃料製造プラントに適用できる可能性があるかどうかを確認することとした。

3. 試験装置の製作

3.1 小型ターンテーブル式脱硝転換装置の製作

2003 年度の脱硝転換設備概念の成立性調査 3)にて製作した試験用脱硝容器のサイズを基準に、小型ターンテーブル式脱硝転換装置を製作した。本装置の全体図および写真を図 3.1-1~11 に示す。

なお、2004 度の設計範囲として脱硝装置の主要部(マイクロ波発信機、導波管、ドーム 状カバー部)以外のターンテーブル(シザーリフト、架台含む)、焙焼・還元炉およびオーガ (粉砕)装置は新規製作したものである。

(1) ターンテーブル

直径約 1m のターンテーブル円周上にはマイクロ波脱硝装置のドーム状カバー部、焙焼・還元炉、オーガ(粉砕)装置の 3 ステージを 120 。間隔で設置し、ターンテーブルの回転は手動、上昇・下降は油圧より行う。また、脱硝と焙焼を同時処理できるように、脱硝容器 設置台を 2 ヶ所に設けた。

(2) マイクロ波脱硝装置

マイクロ波脱硝装置うち、発信機、導波管、ドーム状カバー部は既設の装置を転用した。 脱硝中は、モータにより脱硝容器設置台を毎分2回転(固定)させる。

(3) 焙焼・還元炉

焙焼・還元炉は既製品ヒータブロックを SUS でカバーし、上部には給・排気用および熱 伝対計測用の3箇所の穴をあけた。ヒータブロックの SUS カバーと脱硝容器設置台とのシールには金属製のOリングを用いた。

焙焼・還元時のガスの切り替えは手動弁によるものとし、還元時の炉内圧測定は行わず にガスを開口部から押し出す方式とした。昇温については温度コントローラによって行い、 冷却は自然冷却とした。

なお、脱硝容器下部ボールバルブの耐熱温度が 600 であるため、ボールバルブ保護の 観点から焙焼・還元時は脱硝容器設置台に冷却水を循環させる構造とした。

(4) オーガ(粉砕)装置

オーガ部の回転はモータ、昇降は手動にて行い、オーガ部の回転数は 66rpm から 330rpm の可変とした。

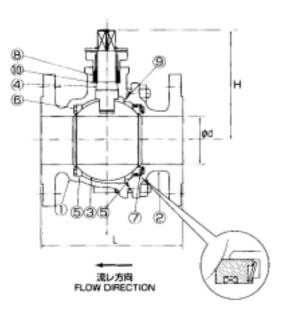
回転部先端に取り付ける粉砕羽根は図 3.1-12 に示す形状の 3 種類を製作した。写真左側 2 本は攪拌による粉砕効果を狙った形状とした。写真一番右は、すりこぎと同様の効果を狙った形状とした。粉砕羽根表面には脱硝容器の破損防止を目的としてウレタンゴムのコーティングを施した。

3.2 ボールバルブサブプレートの製作

2003 年度実施した脱硝試験では、脱硝容器下部のボールバルブ上部フランジ(サブプレート)内に未脱硝体が残っていた。これはサブプレートがマイクロ波を透過させない SUS 製であったためで、2004 年度はサブプレートを窒化珪素で製作して未脱硝体への対策を

とった。

図 3.2-1 に 2003 年度製作した日阪製作所製ボールバルブ詳細図、表 3.2-1 に主要材質一 覧表、図 3.2-2 にサブプレート図、図 3.2-3 に 2003 年度製作した脱硝容器を示す。



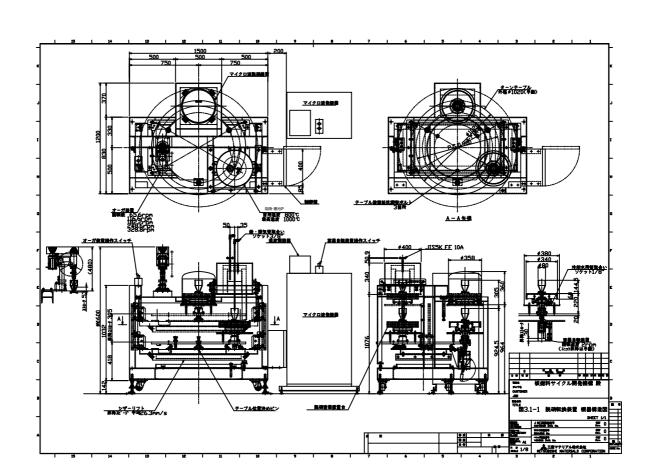
d:13mm H:68mm L:108mm

注)カタログ記載図のため、各部の尺度は実際とは相違あり

図 3.2-1 バルブ詳細図

表 3.2-1 主要材質一覧表

番号	部品名称	材質	備考
	ボディ	SCS13A	部品番号は図 3.2-1
	ボディキャップ	窒化珪素	バルブ詳細図に対応
	(サブプレート)	(2003 度は SCS13A)	している
	ボール	SUS304 + コルモノイ硬化処理	
	ステム	SUS304	
	ボールシート	ステライト	
	背面ガスケット	膨張黒鉛	
	ロードスプリング	インコネル	
	グランドパッキン	膨張黒鉛編組みパッキン	
	ボディガスケット	膨張黒鉛	
	スラストベアリング	カーボン	



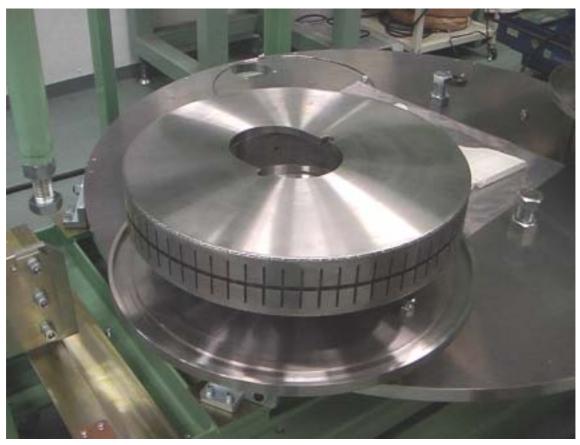


図 3.1-2 脱硝容器設置台



図 3.1-3 焙焼還元炉と脱硝容器設置台

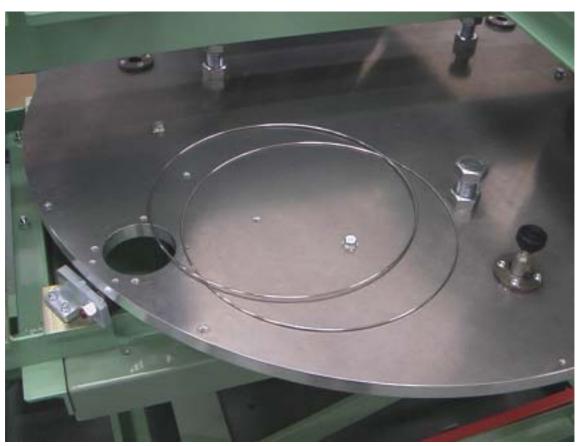
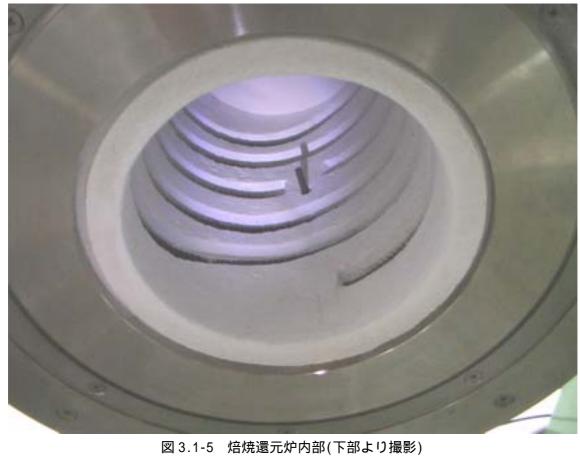


図 3.1-4 金属 0 リング(還元炉シール用)



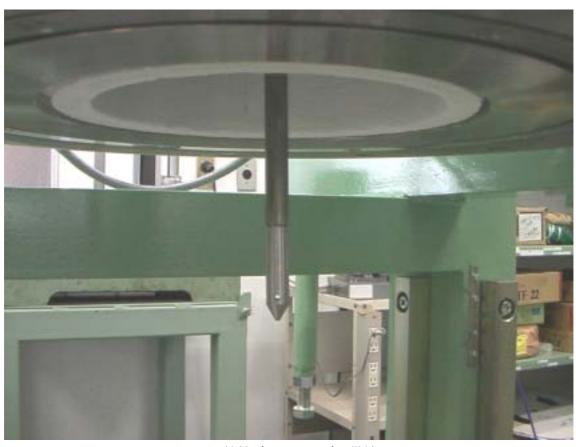


図 3.1-6 焙焼ガス・還元ガス供給ロッド



図 3.1-7 オーガ(粉砕)装置



図 3.1-8 ターンテーブル昇降装置(シザーリフト)

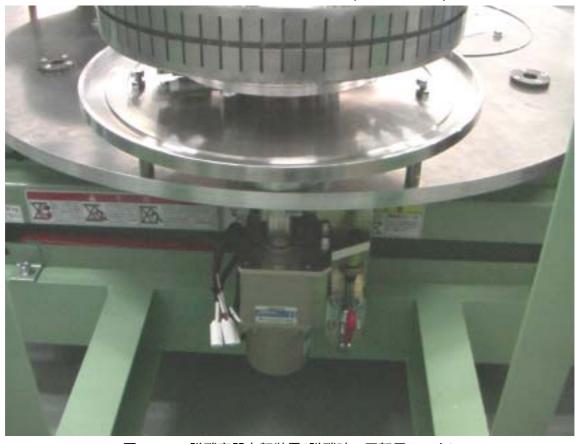


図3.1-9 脱硝容器自転装置(脱硝時の回転用モータ)

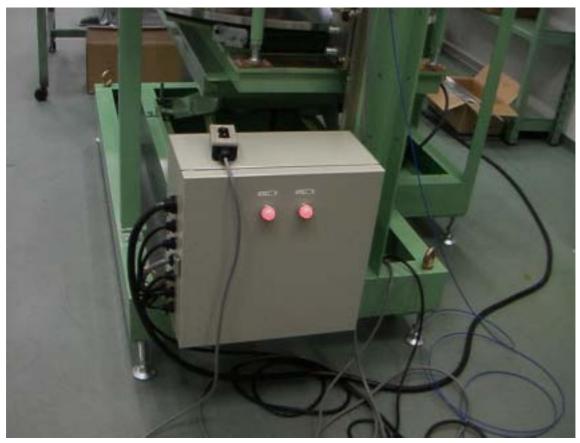


図 3.1-10 電源ユニット

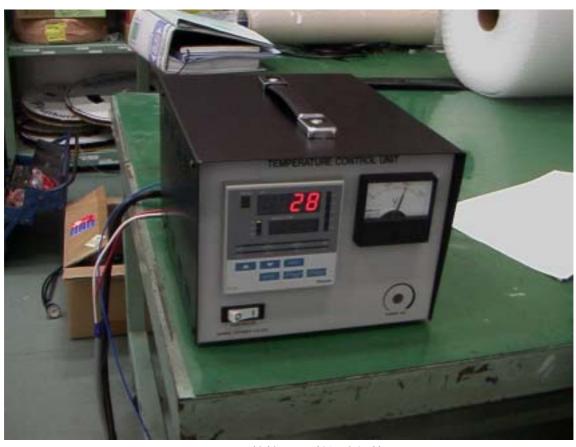


図 3.1-11 焙焼・還元炉温度調節器

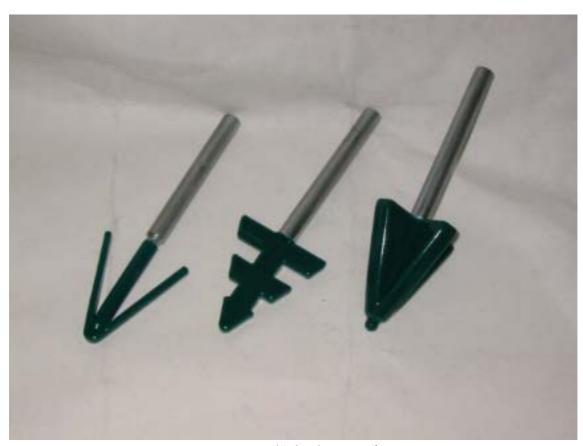
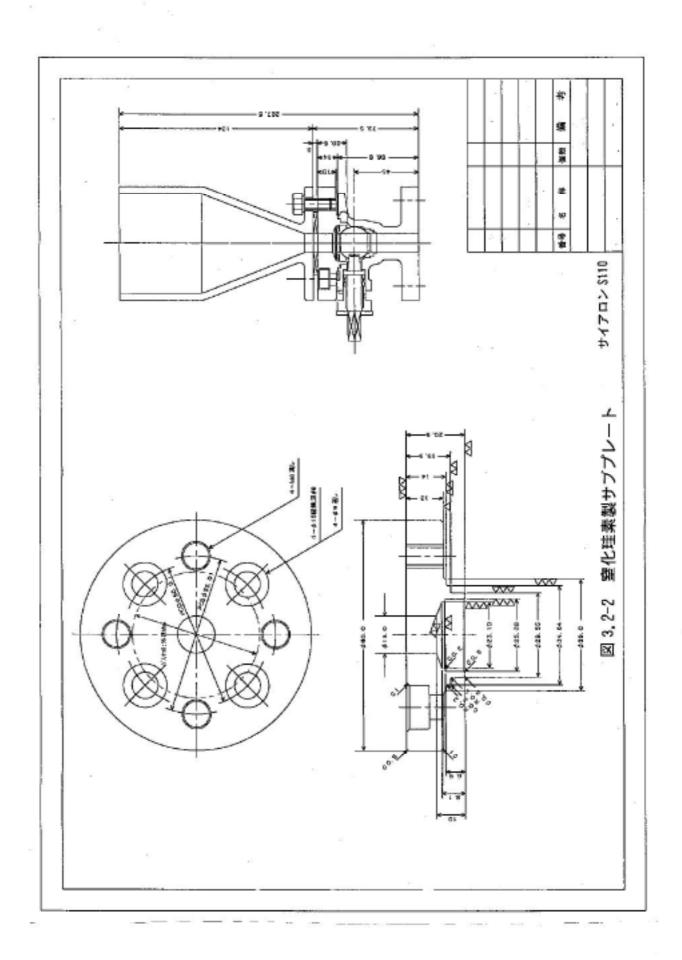


図 3.1-12 粉砕羽根(オーガ)



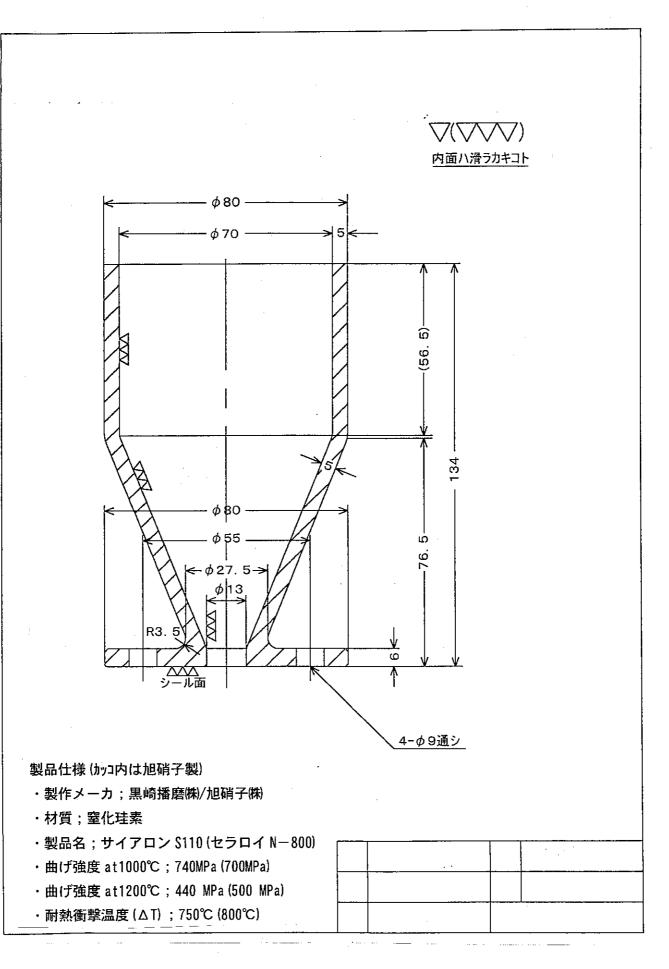


図 3.2-3 脱硝容器 (昨年度製作)

4. 脱硝転換試験

4.1 予察試験条件

本試験に先立ち、下記パラメータによる予察試験を行い、試験条件の最適化を行った。 詳細な試験条件は表 4.1-1 予察試験条件一覧表に示す。

マイクロ波出力: 1.2kw~2kw

脱硝時間:30分~70分 溶液量:180cc~230cc 焙焼温度:700、800 還元温度:700、800

オーガ種類:すりこぎ型、ツリー型

4.2 予察試験結果

(1)脱硝条件の確認

図 4.2-1 に予察試験状況の写真を示す。

試験 No.0-1 ではマイクロ波出力、溶液量ともに 2003 年度の最適条件であったにもかかわらず脱硝時間が 70 分と長く、脱硝体も硬く、発泡状態も悪かった、これは脱硝状態の観察のため、何度か途中停止を行ったことおよび脱硝容器設置台の新規製作に伴い、脱硝装置内での容器の設置位置が 10cm 程度下がったことによるものと考えられる。

試験 No.0-2 では、マイクロ波の出力を 2kw とした場合の確認を行った。マイクロ波の出力を高めた分、マイクロ波の照射時間を短くしたが、容器内の粉末の大半が U_3O_8 となった。

試験 No. 0-3 の条件(1.2kw×50分)では吹きこぼれは少ないが、やや発泡状態が悪かった。この結果、試験 No. 0-4 以降では、マイクロ波の出力を 1.4kw に上げることとしたが、マイクロ波出力を上げたことにより、飛散量が増えることが考えられたため、溶液量を減らし、また、出力の上昇と溶液量の低下の見合い分、脱硝時間を短くすることとした。しかしながら、マイクロ波の出力を上げたことで、吹きこぼれが多くなったため、本試験では試験 No. 0-3 の条件で行うこととしたが、No. 0-3 の試験条件(1.2kw、脱硝時間 50分)においても時折、原因のつかめない吹きこぼれが発生していたため、本試験では溶液量を20cc ほど減らして 180cc とすることにした。

(2) 焙焼・還元条件の確認

還元温度を 700 で実施した試験 No.0-4 では還元後の粉末表面に若干の U_3O_8 が見られた。これは還元中あるいは還元後、炉内へ流入した空気によるものと推定されたため、試験 No.0-5 では、応急処置として炉殻の開口部の一部をアルミテープで塞ぐ対応をとったが、炉自体が雰囲気制御できない仕様であったため、本試験においても粉末表面に U_3O_8 が見られた。一方、還元反応が十分に進行していない可能性もあったため、本試験では温

度を高め、750、850 に設定することとした。

なお、試験 No.0-6 では試験 No.0-4 の粉末を用いて、気密性のあるマッフル炉にて還元を行った結果、酸化は見られなかったため、粉末の問題ではないことが確認された。

(3) 粉砕条件の確認

粉砕は、すりこぎ型が均一な粉砕に適していることが確認された。このため本試験ではすりこぎ型を用いて、回転数をパラメータとした粉砕性の確認を行うこととした。回転数は予察試験時の平均粒径測定で確認された、十分な粉砕効果が得られる 182rpm 以下の回転数より上下 2 点を選択し、66rpm と 182rpm を本試験で用いることとした。

4.3 本試験条件

試験 No.1~8 では、マイクロ波出力 1.2kw、脱硝時間 50 分、オーガ形状をすりこぎ型に固定して、下記パラメータの変更による粉末物性の確認等を行った。

詳細な試験条件は表 4.3-1 本試験条件一覧表に示す。

焙焼温度:750 、850 還元温度:750 、850

オーガ回転数:66rpm、182 rpm

試験 $No.9\sim13$ では、脱硝時の飛散状況の改善および発泡状態をより良くするため、脱硝終盤にマイクロ波の出力を上昇させる試験を行った。

4.4 本試験結果

図 4.4-1 に本試験のフローを示す。

(1)脱硝~粉砕

a.粉末物性の確認

試験 No.1~8 までの試験では前述の脱硝条件にて、焙焼・還元温度および手動粉砕時のオーガ回転数をパラメータとした時の粉末物性の確認を行った。図 4.4-2 に本試験状況の写真を、表 4.4-1 に粉末物性測定結果を示す。

安息角は 49.1 ° ~ 61.2 °、平均粒径は、 $1.20~\mu$ m ~ $4.04~\mu$ m であった。これらのデータは、オーガ回転数が高い場合に粒径の小さくなる傾向はあったものの、人の手作業の介入があったことによるデータのバラツキが見られる結果となった。

比表面積については、 $1.45 m^2/g \sim 3.61 m^2/g$ であった。図 4.4-3 からも焙焼・還元温度に対する依存性が確認でき、特に還元温度を高くした場合に比表面積が小さくなる傾向が見られた。

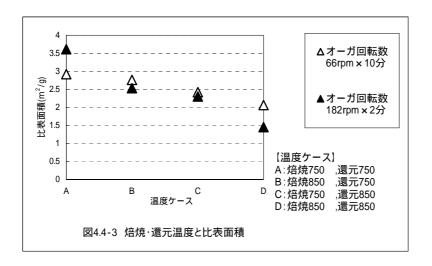
表 4.4-2 には JNC 殿マイクロ波脱硝混合粉末の物性データを記載しているが、本試験結果を照らし合わせてみても、ほぼ同等の物性値であった。ただし、本データからも 比表面積については一般的に言われている通り、MOX 粉の方が大きな値となっている。 また、粉の付着性に関しては、還元後の粉砕粉末がセラミックス壁に凝集状態で付着しないことで容器から容易に取り出せたことを述べておく。

b.脱硝容器とボールバルブの健全性確認

2004 年度製作した窒化珪素製サブプレートとバルブの接合部などからの溶液リークは試験期間中を通して全くなかった。2003 年度の懸案であった脱硝容器下部のボールバルブ上部フランジ(サブプレート)内の未脱硝体についても、サブプレート内の薄い金属製スプリングの厚み分だけ若干見られる程度であり、窒化珪素に変更した部分には見られなかった。

なお、脱硝容器下部のボールバルブが、焙焼・還元中にバルブ本体の耐熱温度である 600 を越える可能性があったことおよび参考データの取得を目的として、焙焼処理中に脱硝容器内粉末、脱硝容器フランジおよびボールバルブの 3 点の温度測定を行った。表 4.4-3 に測定結果を示す。測定はシース熱伝対先端をアルミテープで固定する方法とした。

本表からも分かるように、各部の温度について炉内制御温度との差で表すと、粉末が概ね70 以下、脱硝容器フランジは170 ~190 、ボールバルブは320 ~400 の差となり、焙焼温度850 としてもボールバルブが600 を越えることはなかった。さらに、バルブ保護の観点から設置した脱硝容器設置台への冷却水の供給を停止しても、バルブフランジの温度上昇は当初懸念されていたほどではなく20 程度であった。



70 1.1 % 100 NOTE > (
項目	JNC 殿実績値(MH 法)	備考
比表面積(BET 法)	$2.6 \text{ m}^2/\text{g} \sim 5.0 \text{ m}^2/\text{g}$	動燃技報 No.59(1986年9月)
平均粒径(Fsss 法)	1.3 µ m ~ 1.9 µ m	に記載された MOX(1:1)の
かさ密度	2.1 ~ 2.3g/cc	粉砕粉データ。
焼結密度	94%TD 以上	

表 4.4-2 粉末物性データ (JNC 殿実績値)

(2)成型~焼結

試験 No.1、2、5、6 の粉末について、 $4t/cm^2$ でプレス後、 1700×4 時間の条件で製作したペレットの寸法・密度測定結果を表 4.4-4 に示す。これらのペレットの焼結密度測定結果は $87.8\%TD \sim 95.9\%TD$ であった。

試験 No.1、2、5 の粉末を用いたものは外観、密度ともに良好であったが、試験 No.6 についてはクラックが見られ密度も 87.8%TD、88.0%TD と低かった。これは、還元後の粉末表面に酸化(もしくは再酸化)が見られ、これによる影響と推定される。成形時の潤滑材については、ダイスにステアリン酸亜鉛を塗布するダイ潤滑方式とし、粉末の充てんは漏斗から手作業にて行ったが、成形性および充てん性については良好であった。

なお、参考として図4.4-4~7にこれらのペレットの金相写真を示す。

(3) マイクロ波出力の上昇確認

試験 No.9~13 では、脱硝時の飛散状況の改善および発泡状態の改善の観点から、マイクロ波脱硝運転終盤にマイクロ波の出力を上げた試験を行った。

表 4.4-5 に脱硝時の飛散状況一覧を示す。試験 No.9、10、11 は 1kw で脱硝 50 分後に続けて 2kw5 分を照射しているが飛散状況の差が大きい。これは脱硝容器の製作メーカ(旭硝子、黒崎播磨)の違いとの関連は見られなかったため、原因の解析については今後の課題とされる。

表4.1-1 予察試験条件一覧表

		脱矿	肖			焙焼·還元			粉砕			
試験No.	マイクロ波 出力	マイクロ波 照射時間	硝酸U液 量	液量/容 器容量	焙焼温度	還元温度	還元ガス量 5%H₂∶95%N₂	オーガ種類	オーガ 回転数	粉砕時間	試験日	備考
0-1	1.2kw	70min	230сс	約0.7	-	-	-	-	-	-	H15.8.26	
0-2	2.0kw	30min	200сс	約0.6	-	-	-	-	-	-	H15.8.27	
0-3	1.2kw	50min	200сс	約0.6	-	-	-	-	-	-	H15.8.27	
0-4	1.4kw	40min	180cc	約0.55	700 × 1 hr	700 × 1 hr	2.4 ัก/min	-	-	-	H15.8.28	
0-5	-	-	-	約0.55	-	700 × 1 h r *1	2.4 รู๊ม/min	-	-	-	1110.0.23	試験No.0-4の還元 粉が酸化されていた
0-6	-	-	-	約0.55	-	700 × 1 h r * 2	2.4 รู๊ม/min	-	-	-	H15.8.29	ことによる再還元試 験
0-7	1.4kw	40min	180cc	約0.55	700 × 1 h r	700 × 1 hr	2.4 หม่า /min	すりこぎ型	66rpm	5min	H15.9.2	
0-8	1.4kw	40min	180cc	約0.55	800 ×1hr	800 ×1hr	2.4 ^{บุร} /min	ツリー型	66rpm	5min	H15.9.3	

^{*1:}事前に還元時の酸化対策(炉本体の熱伝対差込口をアルミテープで塞ぐ、プロワ吸引による炉の排気を中止)を施す

U濃度:307gU/トネル、フリー硝酸量:0.2mol/トルル、脱硝時のターンテーブル回転数:2rpm

^{*2:}別な炉(マッフル炉)で再度還元

その他の試験条件は一律下記の通り



図4.2-1予察試験状況

表4.3-1 本試験条件一覧表

パラメータ	脱硝容器	マイクロ波					焙焼·還元			粉砕		焼結	成型	1	
		出力	マイクロ波 照射時間	硝酸U液 量	液量/ 容器容量	焙焼温度	還元温度	還元ガス量 5%H₂∶95%N₂	オーガ種類	オーガ 回転数	粉砕時間	焼結温度	成型圧	試験日	備考
	旭硝子	1.2kw	50min	180cc	約0.55	750 ×1hr	750 × 1 hr	2.4 รู๊น/min	すりこぎ型	66rpm	10min	1750 × 4hr	4t/cm ²	H15.9.8	
	黒崎播磨	1.2kw	50min	180cc	約0.55	850 ×1hr	850 ×1hr	2.4 ¦ ฆ/min	すりこぎ型	66rpm	10min	1750 × 4hr	4t/cm ²	H15.9.4	
	黒崎播磨	1.2kw	50min	180cc	約0.55	850 ×1hr	750 × 1 hr	2.4 รู๊ม/min	すりこぎ型	66rpm	10min	-	-	H15.9.9	
焙焼還元温 度および	旭硝子	1.2kw	50min	180cc	約0.55	750 ×1hr	850 × 1 hr	2.4 รู๊ม/min	すりこぎ型	66rpm	10min	-	-	H15.9.10	
オーガ回転 数	黒崎播磨	1.2kw	50min	180cc	約0.55	750 ×1hr	750 ×1hr	2.4 ¦ ฆ/min	すりこぎ型	182rpm	2min	1750 × 4hr	4t/cm ²	H15.9.11	
	旭硝子	1.2kw	50min	180cc	約0.55	850 ×1hr	850 ×1hr	2.4 ¦ ฆ/min	すりこぎ型	182rpm	2min	1750 × 4hr	4t/cm ²	H15.9.16	
	黒崎播磨	1.2kw	50min	180cc	約0.55	850 ×1hr	750 × 1 hr	2.4 ให้/min	すりこぎ型	182rpm	2min	-	-	H15.9.17	
	黒崎播磨	1.2kw	50min	180cc	約0.55	750 ×1hr	850 × 1 hr	2.4 นี้ / min	すりこぎ型	182rpm	2min	-	-	H15.9.19	
	旭硝子	1kw	50min	170cc	約0.52	-	-	-	-	-	-	-	-	H15.9.18	
•	加硝子	1kw	50min	170cc	\$ 50.52	_	_	_	_		_	_	_	H15 10 8	
脱硝出力	75 10 1		5min	17000	MJ0.02									1110.10.0	
脱硝時間	黒崎播磨			170cc	約0.52	-	-	-	-	-	-	-	-	H15.10.8	脱硝時の飛散 防止確認試験
脱硝容器															アノユニド年中の日が何大
	旭硝子	2kw	5min	170cc	約0.52	-	-	-	-	-	-	-	-	H15.10.9	
	黒崎播磨	1kw	55min	170cc	約0.52	-	-	-	-	-	-	-	-	H15.10.9	
_	度および オーガ数 脱硝出力	黒崎播磨 根	無崎播磨 1.2kw 地硝子 1.2kw 黒崎播磨 1.2kw 鬼崎番 1.2kw 鬼崎番 1.2kw 鬼崎番 1.2kw 鬼崎番 1.2kw 鬼崎番 1.2kw 鬼崎番 1.2kw ね 1kw 2kw 鬼崎番 2kw 1kw 2kw 1kw 2kw 1kw 1kw 1kw 1kw 1kw 1kw 1kw 1kw 1kw 1	黒崎播磨 1.2kw 50min	黒崎播磨 1.2kw 50min 180cc 担硝子 1.2kw 50min 180cc 黒崎播磨 1.2kw 50min 180cc 黒崎播磨 1.2kw 50min 180cc 鬼崎播磨 1.2kw 50min 180cc 黒崎播磨 1.2kw 50min 180cc 黒崎播磨 1.2kw 50min 180cc 黒崎播磨 1.2kw 50min 180cc 黒崎播磨 1.2kw 50min 180cc 黒崎番磨 1.2kw 50min 170cc 2kw 5min 170cc 黒崎播磨 1kw 50min 170cc 黒崎播磨 1kw 50min 170cc 黒崎番磨 2kw 5min 170cc 10.8kw 63min 170cc 2kw 5min 170cc 10.8kw 50min 10.8kw 50min 170cc	黒崎播磨 1.2kw 50min 180cc 約0.55	黒崎播磨 1.2kw 50min 180cc 約0.55 850 ×1hr 12kw 50min 180cc 約0.55 750 ×1hr 17 が 1	黒崎播磨 1.2kw 50min 180cc 約0.55 850 × 1hr 750 × 1hr 度およびオーガ回転 数 1.2kw 50min 180cc 約0.55 750 × 1hr 850 × 1hr 数 180cc 約0.55 750 × 1hr 750 × 1hr 数 180cc 約0.55 750 × 1hr 750 × 1hr 2 × 1hr	無崎播磨 1.2kw 50min 180cc 約0.55 850 ×1hr 750 ×1hr 2.4ki/min 担硝子 1.2kw 50min 180cc 約0.55 750 ×1hr 850 ×1hr 2.4ki/min 黒崎播磨 1.2kw 50min 180cc 約0.55 750 ×1hr 750 ×1hr 2.4ki/min 担硝子 1.2kw 50min 180cc 約0.55 850 ×1hr 850 ×1hr 2.4ki/min 黒崎播磨 1.2kw 50min 180cc 約0.55 850 ×1hr 750 ×1hr 2.4ki/min 黒崎播磨 1.2kw 50min 180cc 約0.55 850 ×1hr 750 ×1hr 2.4ki/min 黒崎播磨 1.2kw 50min 180cc 約0.55 750 ×1hr 850 ×1hr 2.4ki/min 黒崎播磨 1.2kw 50min 180cc 約0.55 750 ×1hr 850 ×1hr 2.4ki/min 黒崎播磨 1.2kw 50min 170cc 約0.55 750 ×1hr 850 ×1hr 2.4ki/min 加硝子 1kw 50min 170cc 約0.52	黒崎播磨 1.2kw 50min 180cc 約0.55 850 ×1hr 750 ×1hr 2.4kk/min すりこぎ型 度および 1 1 2kw 50min 180cc 約0.55 750 ×1hr 850 ×1hr 2.4kk/min すりこぎ型 黒崎播磨 1.2kw 50min 180cc 約0.55 750 ×1hr 750 ×1hr 2.4kk/min すりこぎ型 旭硝子 1.2kw 50min 180cc 約0.55 850 ×1hr 850 ×1hr 2.4kk/min すりこぎ型 黒崎播磨 1.2kw 50min 180cc 約0.55 850 ×1hr 750 ×1hr 2.4kk/min すりこぎ型 黒崎播磨 1.2kw 50min 180cc 約0.55 850 ×1hr 750 ×1hr 2.4kk/min すりこぎ型 黒崎播磨 1.2kw 50min 180cc 約0.55 850 ×1hr 850 ×1hr 2.4kk/min すりこぎ型 黒崎播磨 1.2kw 50min 180cc 約0.55 750 ×1hr 850 ×1hr 2.4kk/min すりこぎ型 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1	黒崎播磨 1.2kw 50min 180cc 約0.55 850 ×1hr 750 ×1hr 2.4kk/min すりこぎ型 66rpm 180ct か0.55 750 ×1hr 850 ×1hr 2.4kk/min すりこぎ型 66rpm 180ct か0.55 750 ×1hr 750 ×1hr 2.4kk/min すりこぎ型 182rpm 184me 1.2kw 50min 180cc 約0.55 850 ×1hr 850 ×1hr 2.4kk/min すりこぎ型 182rpm 186me 1.2kw 50min 180cc 約0.55 850 ×1hr 850 ×1hr 2.4kk/min すりこぎ型 182rpm 186me 1.2kw 50min 180cc 約0.55 850 ×1hr 750 ×1hr 2.4kk/min すりこぎ型 182rpm 186me 1.2kw 50min 180cc 約0.55 850 ×1hr 750 ×1hr 2.4kk/min すりこぎ型 182rpm 186me 1.2kw 50min 180cc 約0.55 750 ×1hr 850 ×1hr 2.4kk/min すりこぎ型 182rpm 186me 1.2kw 50min 170cc 約0.52	黒崎播磨 1.2kw 50min 180cc 約0.55 850 ×1hr 750 ×1hr 2.4kk/min すりこぎ型 66rpm 10min 10min まかよび 1.2kw 50min 180cc 約0.55 750 ×1hr 850 ×1hr 2.4kk/min すりこぎ型 66rpm 10min まいます 1.2kw 50min 180cc 約0.55 750 ×1hr 750 ×1hr 2.4kk/min すりこぎ型 182rpm 2min 担硝子 1.2kw 50min 180cc 約0.55 850 ×1hr 850 ×1hr 2.4kk/min すりこぎ型 182rpm 2min 黒崎播磨 1.2kw 50min 180cc 約0.55 850 ×1hr 750 ×1hr 2.4kk/min すりこぎ型 182rpm 2min 黒崎播磨 1.2kw 50min 180cc 約0.55 850 ×1hr 750 ×1hr 2.4kk/min すりこぎ型 182rpm 2min 黒崎播磨 1.2kw 50min 180cc 約0.55 750 ×1hr 850 ×1hr 2.4kk/min すりこぎ型 182rpm 2min 170cc 約0.55 750 ×1hr 850 ×1hr 2.4kk/min すりこぎ型 182rpm 2min 170cc 約0.55 750 ×1hr 850 ×1hr 2.4kk/min すりこぎ型 182rpm 2min 170cc 約0.52	黒崎播磨 1.2kw 50min 180cc 約0.55 850 ×1hr 750 ×1hr 2.4kk/min すりこぎ型 66rpm 10min - 10min かけっぱ型 66rpm 10min - 10min かけっぱ型 1.2kw 50min 180cc 約0.55 750 ×1hr 850 ×1hr 2.4kk/min すりこぎ型 182rpm 2min 1750 ×4hr 2.4kk/min すりこぎ型 182rpm 2min 1750 ×4hr 2.4kk/min すりこぎ型 182rpm 2min 1750 ×4hr 黒崎播磨 1.2kw 50min 180cc 約0.55 850 ×1hr 850 ×1hr 2.4kk/min すりこぎ型 182rpm 2min 1750 ×4hr 黒崎播磨 1.2kw 50min 180cc 約0.55 850 ×1hr 750 ×1hr 2.4kk/min すりこぎ型 182rpm 2min 1750 ×4hr 2.4kk/min すりこぎ型 182rpm 2min 1750 ×4hr 1750 ×1hr 850 ×1hr 2.4kk/min すりこぎ型 182rpm 2min - 1750 ×4hr 1750 ×1hr 850 ×1hr 2.4kk/min すりこぎ型 182rpm 2min - 1750 ×4hr 1750 ×1hr 850 ×1hr 2.4kk/min すりこぎ型 182rpm 2min - 1750 ×4hr 1750 ×1hr 850 ×1hr 2.4kk/min すりこぎ型 182rpm 2min - 1750 ×4hr 1750 ×1hr 850 ×1hr 2.4kk/min すりこぎ型 182rpm 2min - 1750 ×4hr 1750 ×1hr 850 ×1hr 2.4kk/min すりこぎ型 182rpm 2min - 1750 ×4hr 1750 ×1hr 850 ×1hr 2.4kk/min すりこぎ型 182rpm 2min - 1750 ×1hr 1750 ×1hr 850 ×1hr 2.4kk/min すりこぎ型 182rpm 2min - 1750 ×1hr 850 ×1hr 2.4kk/min すりこぎ型 182rpm 2min - 1750 ×1hr 850 ×1hr 2.4kk/min すりこぎ型 182rpm 2min - 1750 ×1hr 850 ×1hr 2.4kk/min すりこぎ型 182rpm 2min - 1750 ×1hr 850 ×1hr 2.4kk/min すりこぎ型 182rpm 2min - 1750 ×1hr 850 ×1hr 2.4kk/min すりこぎ型 182rpm 2min - 1750 ×1hr 850 ×1hr 850 ×1hr 2.4kk/min すりこぎ型 182rpm 2min - 1750 ×1hr 850 ×1hr 850 ×1hr 2.4kk/min すりこぎ型 182rpm 2min - 1750 ×1hr 850	黒崎播磨 1.2kw 50min 180cc 約0.55 850 ×1hr 750 ×1hr 2.4½/min すりこぎ型 66rpm 10min	無崎播磨 1.2kw 50min 180cc 約0.55 850 ×1hr 750 ×1hr 2.4½/min すりこぎ型 66rpm 10min H15.9.9 加硝子 1.2kw 50min 180cc 約0.55 750 ×1hr 850 ×1hr 2.4½/min すりこぎ型 66rpm 10min H15.9.10 黒崎播磨 1.2kw 50min 180cc 約0.55 750 ×1hr 750 ×1hr 2.4½/min すりこぎ型 182rpm 2min 1750 ×4hr 4t/cm² H15.9.11 加硝子 1.2kw 50min 180cc 約0.55 850 ×1hr 850 ×1hr 2.4½/min すりこぎ型 182rpm 2min 1750 ×4hr 4t/cm² H15.9.16 黒崎播磨 1.2kw 50min 180cc 約0.55 850 ×1hr 750 ×1hr 2.4½/min すりこぎ型 182rpm 2min 1750 ×4hr 4t/cm² H15.9.16 黒崎播磨 1.2kw 50min 180cc 約0.55 850 ×1hr 750 ×1hr 2.4½/min すりこぎ型 182rpm 2min H15.9.17 黒崎播磨 1.2kw 50min 180cc 約0.55 750 ×1hr 850 ×1hr 2.4½/min すりこぎ型 182rpm 2min H15.9.19 大田研子 1 kw 50min 2 kw 50min 170cc 約0.52

[・]その他の試験条件は一律下記の通り

U濃度:307gU/トネズ フリー硝酸量:0.2mol/トネズ 脱硝時のターンテーブル回転数:2rpm

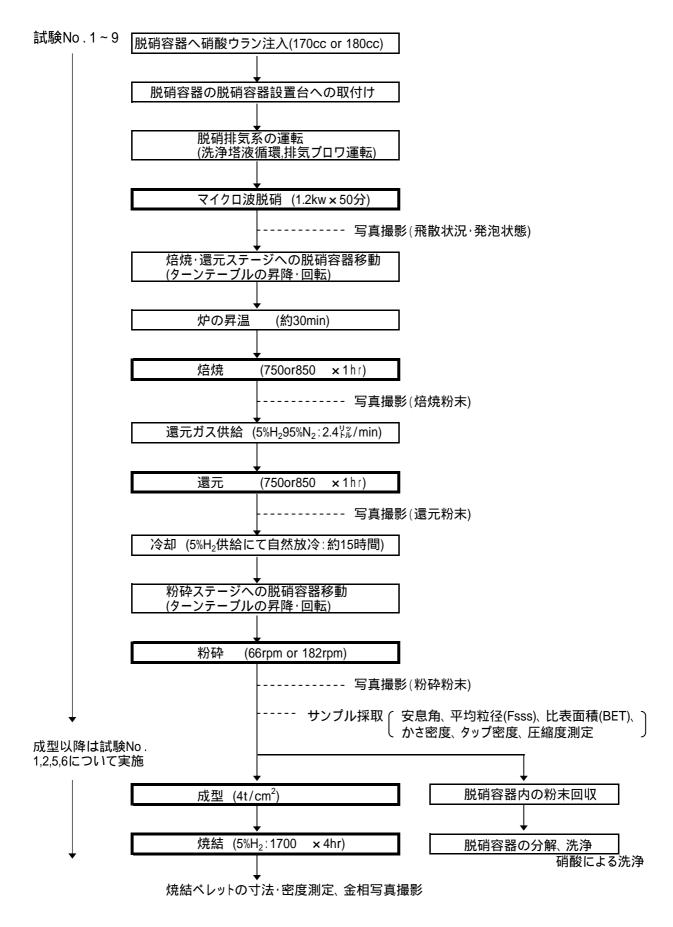


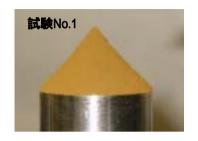
図4.4-1 脱硝転換試験(本試験)のフロー



図4.4-2 本試験状況(試験No.1,2,5,6)

表4.4-1 粉末物性測定結果一覧表

				試験夠	条件						粉	末物性			
試験No.	パラメータ	脱硝容器	焙焼	温度	還元	温度	オーガ 回転数	粉砕 時間	安息角	平均粒径 (Fsss)	比表面積 (BET)	かさ密度	タップ密度	圧縮度	備考
1		旭硝子		×1hr		×1hr	66rpm	10min	49.1度 写真参照	3.86 µ	2.92m²/g	1.94g/cc	2.61g/cc	0.26	
				温度ケ	「ース/	١			与 其参照						
2		黒崎播磨	850	× 1hr	850	×1hr	66rpm	10min	54.4度	2.45 µ	2.06m²/g	2.04g/cc	3.14g/cc	0.35	
				温度ケ	ース[)							-		
3		黒崎播磨	850	× 1 h r	750	×1hr	66rpm	10min	52.8度	3.12 µ	2.76m²/g	2.08g/cc	2.75g/cc	0.24	
				温度ク	ースE	3									
4	焙焼還元	旭硝子	750	×1hr	850	×1hr	66rpm	10min	53.0度	4.04 µ	2.42m²/g	1.86g/cc	2.78g/cc	0.33	
	温度およ	3よ		温度ケ	ースの)							-		
5	びオーガ 回転数	黒崎播磨	750	× 1 h r	750	×1hr	182rpm	2min	56.1度	1.20 µ	3.61 m²/g	1.77g/cc	2.92v	0.39	
				温度ケースA						3					
6		旭硝子	850	× 1 h r	850	×1hr	182rpm	2min	61.2度 写真参照	1.90 µ	1.45 m²/g	₁, 2.07g/cc	3.46g/cc	0.40	
				温度ケ	ースロ)			与其 参照			-			
7		黒崎播磨	850	× 1 h r	750	× 1hr	182rpm	2min	54.8度	2.24 µ	2.53m²/g	1.83g/cc	2.95g/cc	0.38	
				温度ケ	ースE	3									
8		黒崎播磨	750	× 1hr	850	×1hr	182rpm	2min	53.3度	2.30 µ	2.30 m²/g	1.93g/cc	3.06g/cc	0.37	
		· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·		温度ケ	ースの										

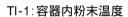




その他の試験条件は表3.3-1参照

表4.4-3 温度測定結果

		試験	条件			温度		
試験No.	培焼温度	時間	雰囲気	乾燥空気流量		備考		
	2070.110.100			北州工艺	TI-1	TI-2	TI-3	
1	750	1時間	空気	_	687	571	-	
2	850	1時間	空気	-	690	675	-	
3	850	1時間	空気	-	777	666	-	
4	750	1時間	空気	-	680	576	352	
5	750	1時間	空気	-	697	557	423	
6	850	1時間	空気	_	826	I	460	TI-1:粉末表 面温度
7*1	850	1時間	空気	_	812	ı	502	TI-1:粉末中 間温度
8 ^{*2}	750	1時間	空気	_	726	_	_	
9	850	1時間	空気	_	816	ı	475	TI-1:粉末表 面温度
10	850	1時間	空気	_	_	680 (680)	524 (504.3)	冷却水なし ()内冷却後



TI-2:容器とバルブを止めているボルトとフランジの間の温度 TI-3:バルブ上部フランジの下の温度

*1:予め炉内昇温(700 /0.5時間)した状態で脱硝した粉を炉内に入れた。 *2:予め炉内昇温(800 /0.5時間)した状態で脱硝した粉を炉内に入れた。

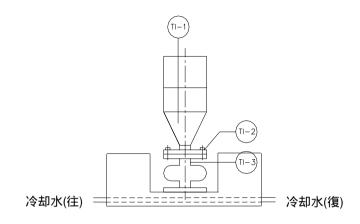


表4.4-4 ペレット寸法・密度測定結果一覧

			グリーン				焼結後					
試験No.	直径mm	高さmm	重量g	密原	臣	直径	mm	高さmm	重量g	密原		備考
	보기고!!!!!		里里y	g/cm3	%TD	測定值	平均值		里里y	g/cm3	%TD	
4	10.224	12.903	6.2071	5.86	53.41	8.403 8.347 8.365	8.366	10.726	6.1722	10.47	95.44	
ı	10.229	12.742	6.1163	5.84	53.25	8.373 8.344 8.349	8.353	10.549	6.0817	10.52	95.91	
2	10.229	12.632	6.1384	5.91	53.90	8.462 8.427 8.418	8.434	10.506	6.1098	10.41	94.90	
2	10.232	12.570	6.0910	5.89	53.72	8.467 8.411 8.412	8.425	10.447	6.0626	10.41	94.89	
5	10.207	13.441	6.2031	5.64	51.41	8.299 8.260 8.267	8.272	11.081	6.0900	10.23	93.23	
7	10.21	13.025	6.0238	5.65	51.49	8.317 8.269 8.268	8.281	10.727	5.9129	10.24	93.30	
6	10.224	12.872	6.2459	5.91	53.88	8.586 8.571 8.546	8.569	11.127	6.1818	9.63	87.83	表面にクラック
U	10.224	12.600	6.1055	5.90	53.80	8.598 8.560 8.581	8.575	10.846	6.0492	9.66	88.04	表面にクラック

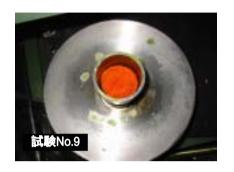
注)焼結後ペレットの測定値3点はペレット高さ方向に上・中・下を測定したもの

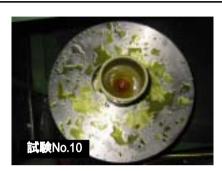
表4.4-5 脱硝飛散状態一覧表

試験日:H15.9.4~H15.10.9

		1	1	i		試験 日:H15.9	7.4 1113.10.3
試験No.	脱硝容器	マイクロ波 出力	マイクロ波 照射時間	硝酸U 液量	液量/ 容器容量	飛散の程度	備考
1	旭硝子	1.2kw	50min	180cc	約0.55	中	
2	黒崎播磨	1.2kw	50min	180cc	約0.55	少	
3	黒崎播磨	1.2kw	50min	180cc	約0.55	中	
4	旭硝子	1.2kw	50min	180cc	約0.55	少	焙焼・還元温 度のパラメー
5	黒崎播磨	1.2kw	50min	180cc	約0.55	少	タ試験時の状 況
6	旭硝子	1.2kw	50min	180cc	約0.55	写真無し	
7	黒崎播磨	1.2kw	50min	180cc	約0.55	少	
8	黒崎播磨	1.2kw	50min	180cc	約0.55	多川	
_	₩ 7¥ 7	1kw	50min	470	<i>#</i> 50.50	ds	
9	旭硝子	2kw	5min	170cc	約0.52	少	
10	旭硝子	1kw	50min	170cc	約0.52	多い	
10	他明丁	2kw	5min	17000	#JU.52	多い	047¥0+ 0 25#5
11	黒崎播磨	1kw	50min	170cc	約0.52	少	脱硝時の飛散 防止確認試験
- ' '	杰啊]田石	2kw	5min	17000	#JU.JZ	<i>y</i>	(写真参照)
12	旭硝子	0.8kw	63min	170cc	約0.52	多い	
- '-	/C#D J	2kw	5min	17000	MJ0.02	ンV・	
13	13 黒崎播磨	1kw	55min	170cc	約0.52	少	
		2kw	5min		,,,,,,,,,		

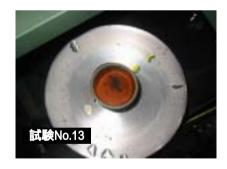
飛散状況











party of the first terms of the	No
	x\$D
re in the second se	マイカン波: 1.2 ビザ
	焙煤 : 250℃
	置え: フケロ・レ
	回転收: 65 HPM
\$P.296040990000 SPTS A single-control of the Architecture of the A	No.

	x/0D
	4

	######################################
The second secon	
	No.

	×500

図4. 4-4 ベレットの金相写真 (試験 No. 1)

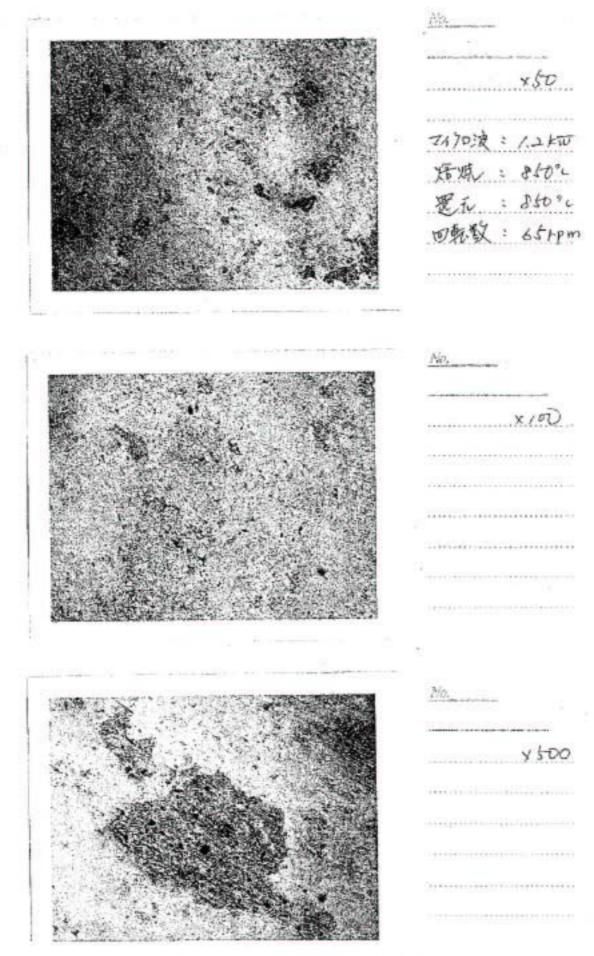


図4. 4-5 ペレットの金相写真 (試験 No. 2)

45	Pho
	マイプロ波: 八上1年 焙焼 · 2台で 選元 · 25でし 回転数: (A5AP)
	No
	<i>Na.</i> × 500

図4. 4-6 ペレットの金相写真 (試験 No. 5)

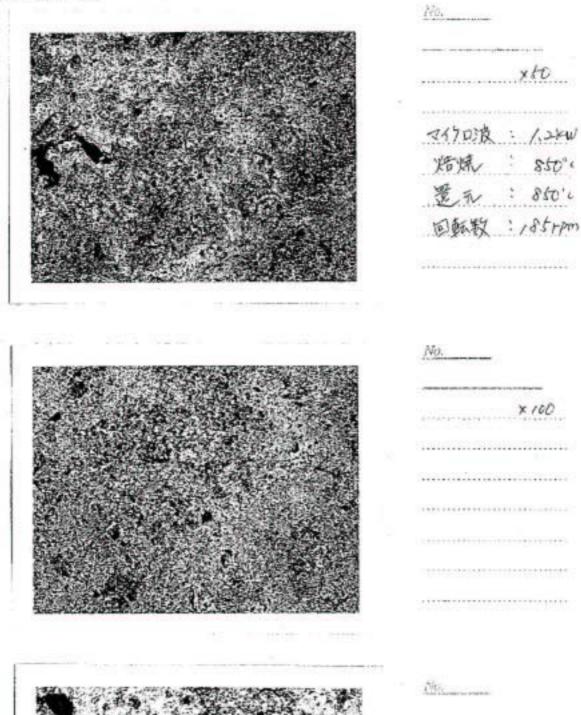




図4. 4-7 ペレットの金相写真 (試験 No. 6)

5. 検討評価および開発課題

5.1 検討評価

表 5.1-1 に今回製作を行った小型ターンテーブル式脱硝転換装置および本装置を用いて 実施した試験の検討評価結果を示す。

本表に記載した結果および実機を確証するために今後必要となると考えられる開発課題を以下に示す。

5.2 開発課題

(1) 溶液吹きこぼれ対策

表 5.1-1 に記載している通り、今回の小型脱硝容器によるマイクロ波脱硝試験では、吹きこぼれ対策として、溶液量を少なくしたり、マイクロ波照射初期は照射エネルギーを低下させるなどの対応を行ったものの、溶液量が多い脱硝初期での吹きこぼれが多く、また、試験回数が少ないこともあるが、吹きこぼれの程度に再現性が得られづらい結果となった。

これは、脱硝容器が円筒形状となっており、単位断面積当たりの照射エネルギーが大きく、狭い円筒部に大量の泡が集中的に発泡するというのが理由の一つではないかと考えられるが、再現性が得られづらい件に関しては、現在までのところ理由は良く分かっていない。

既存の脱硝皿を用いるマイクロ波脱硝設備では、吹きこぼれ防止板などの物理的な堰を設けて吹きこぼれを防止する構造としているが、脱硝容器の場合、オーブン内に容器本体が収まる構造のため、吹きこぼれ防止板などの堰を設けるのは相当に工夫が必要になると考えられる。

一方、ターンテーブル式脱硝転換装置において、脱硝皿形状ではなく下部にバルブを設置した脱硝容器の構造にした大きな理由は、ショートプロセスを前提としているため、例えば還元後の粉砕粉末を脱硝皿から気送する既存の施設で採用している方法では、気送配管や固気分離器などで系統内で粉末が残留し、粉末のコンタミが発生する可能性が高く、このようなプロセスは採用しづらいこと、また、セル内に設置することを前提としているため、脱硝皿を反転させ粉砕粉末を取り出すなど、粉末の飛散の可能性が高い方法を用いることも適切でないと考えられることから、バルブを開ければ粉砕粉末が抜出せる容器構造のほうが優れるのではないかと考えたためである。

ところが今回の試験の結果、還元後の粉砕粉末がセラミックス壁に凝集状態で付着しないことが分かり、このような性状であれば、気送や脱硝皿反転などの強制的な移送手段でなくても、例えば遠心力を与えて脱硝皿から粉砕粉末を払出すことができる可能性が見出された。ちなみに、バフがけした SUS 表面には還元後の粉砕粉末が凝集状態で付着しないことを確認しており、表面を滑らかにする処理を施した今回の小型脱硝容器も同様な性質があることが分かった。

遠心力により内部の粉末を払出す方法は、市販の造粒装置などで実用化されているが1、

同様な方法で粉砕後の還元粉末が排出できれば、今回採用している吹きこぼれやバルブの 長期健全性で今後に課題を残す脱硝容器ではなく、実績のある脱硝皿タイプが使用できる 可能性があり、今後、脱硝皿形状の装置で脱硝から粉砕までの一連の試験を実施する必要 があると思われる。

(2) 再酸化防止対策

今回の試験では、還元後の粉体(凝集体)表面に U_3O_8 が生成している場合があることが分かったが、水素ガス量としては、反応当量の2倍を供給していることと、 U_3O_8 は表面のみに存在しており、表面以外は全て UO_2 であることから、おそらく再酸化によるものと考えられる。

再酸化の原因として最も可能性が高いと考えられるのが、焙焼還元炉内への周辺雰囲気の混入である。

今回の試験設備では、焙焼還元炉内に空気が漏れ込まないように、還元ガスを加圧で供給しているが、一方、廃ガスの処理のためブロワにより廃ガスを引いている。本来、このようなシステムでは、焙焼還元炉内の圧力を制御するよう廃ガス処理側に圧力調整系を設置するなど行うが、そこまでの制御系を組み込まなかったため、廃ガス処理系の負圧の変動により、焙焼還元炉内に空気が漏れ込んでしまったのではないかと思われる。なお、このような炉内圧力制御システムは既存施設で実績のある方法であり、今後の試験では本制御システムを組み込むことが望ましい。

(3) 粉末飛散対策

ターンテーブル式脱硝転換設備の当初計画では、マイクロ波脱硝後は、焙焼・還元の 反応速度を担保するため、最初に粗粉砕を行い、焙焼、還元は粗粉砕粉末の状態で行う こととしていた。

ところが、本方法では、還元において 5%H2 - 95%N2 ガスという防爆対応の希釈ガスを使用すること、また、水素量を反応当量の 2 倍供給するとしていることから、粉末層内を通気するガス量が多くなってしまい、粉末が舞い上がって飛散してしまう可能性があった。

そこで、本試験において脱硝後の粉体を粗粉砕せず、直接焙焼、還元を行う方法を行ってみたところ、脱硝後の凝集体の粉体でも所定の時間内に焙焼および還元が行われることが確認でき、かつ、目視による確認ではあるものの、焙焼還元炉内等への粉末の飛散が見られないことが分かった。

この結果から、粉末飛散対策として、脱硝後の粗粉砕を省略すれば良いことが分かり、 ターンテーブル式脱硝転換装置から粗粉砕ステージが合理化できることが示された。

(4) 粉砕安定化対策

還元後の粉末凝集体はオーガにより粉砕され、微粉化されるが、今回の試験の結果から、回転力による粉砕方法ではなく、擂り粉木で粉砕するような、面圧をかける方法が有効であることが分かった。

この方法では、粉砕時の粉末飛散を少なくすることもできると考えられ、また、(1)で記載したように、脱硝容器形状から脱硝皿形状に変更となった場合には、脱硝容器の抜出しノズルのようなデッドな部分が無いため、より対応し易いと考えられる。

(5) 粉末流動性改良対策

低除染ペレット燃料製造プラントの設計検討では、粉砕後の粉末をダイ潤滑 + エアタッピングにより成型することを計画している。

一方、マイクロ波脱硝法による還元後の粉砕粉末は 1 次粒子がサブミクロンという微細な粉末のため、エアタッピング法とのマッチングが十分でないということも聞いており、粉砕粉末の流動性を改良することも考慮する必要がある。

粉末の流動性改良方法としては、流動性改良剤(ルブリカント)を加える方法や機械的に造粒する方法などがあり、今後詳細な検討が必要であるが、製薬などで実績のある転動造粒法であれば、ターンテーブル式脱硝転換装置に造粒ステージを追加することで(実際には、(3)に述べたように粗粉砕ステージが合理化できる可能性が高いので、ステージ数の増減はない)脱硝容器や脱硝皿内の粉砕粉末を造粒することが可能と考えられる。

(6) 還元粉末安定化対策

従前より、還元粉末を高温の状態でセル内に取り出すと一気に再酸化されてしまうので、還元粉末の安定化対策が必要であることが明らかであったが、今回の試験でも、ほぼ常温に下がるまで還元終了後に約15時間の自然放冷が必要であった。

一方、ターンテーブル式脱硝転換装置の運転タイムサイクルは 1 時間ごとに 1 ステージづつ進行することとしているため、還元後許容される冷却時間は 10 分程度しかなく、例えば、空冷や水冷を用いた強制冷却を行っても、粉末全体を再酸化温度以下(約 70以下)にすることは困難と思われる。

このことから、実機においては、ターンテーブル式脱硝転換装置周辺あるいは収納セルを不活性雰囲気にする必要があると考えられる。

(7) 保守性

今回の試験では、小型試験装置を用いてマイクロ波脱硝からペレット焼結までの一連 の流れを確認する試験装置としているため、セル内での遠隔保守性についての確認試験 は実施していない。 一方、ターンテーブル式脱硝転換装置は、容器や配管内を粉末が移動しないシステムであるため、既存の脱硝転換施設に比べ保守性は向上していると考えているものの、装置の着脱性など、実機に向けた開発課題は多い。

今後は中規模ターンテーブル式脱硝転換装置や保守試験用の模擬装置を用いて、遠隔保守性について確認する必要があると考えられる。

表5.1-1 試験装置の製作および脱硝転換試験に関する結果および評価(1/2)

項目	対象	結果および評価	備考
試験装置の製作	小型試験装置	ターンテーブルの昇降および脱硝容器設置台の回転以外は手動操作としたため、 微調整を必要とする部分が少なく、製作上、特に問題となることはなかった。また、 マイクロ波発信器、焙焼・還元炉などの主要設備は既設設備の転用あるいは既製 品の改造により対応したが、ターンテーブルとの取り合い調整も問題なかった。	
	脱硝容器サププレート	バルブ本体とのフィッティングの関係上、凸凹がある構造となったが、窒化珪素での製作において、特に問題となる点はなく、また、バルブとのフィッティングも問題なかった。	
脱硝転換試験	脱硝容器	2基の小型脱硝容器について、昨年度試験分を合わせて合計100回程度の給液 ~ 脱硝 ~ 焙焼・還元試験を行ったが、基本的に液漏れや欠け割れ等の不具合は発生しなかった。ただし、バルブ本体に未脱硝体が生成すると、脱硝体によりバルブが固着し、脱硝後において開閉作業が困難になる場合があった。今回、サブブレートを窒化珪素としたことで、定性的であるが未脱硝部分が減少したことから、バルブへの負荷は低下したと考えられる。なお、実際には、バルブを開とするのは焙焼・還元後であり、バルブに固着する粉体は基本的に存在しないため、未脱硝体がバルブの開閉に影響するようなことはないと考えられる。	
	マイクロ波脱硝	脱硝体は全体的に発泡性が良く、また、参考まで行ったX線回折の結果、非晶質 (アモルファス)のUO3が主要な組成であることが確認された。ただし、脱硝初期に おける溶液の吹きこぼれが多いこと、また、吹きこぼれの程度に再現性が十分に 得られなかったことから、今後も繰り返し試験が必要と考えられ、また、必要に応じ てオーブン内のマイクロ波の集散分布について解析を行うことも検討する必要がある。	
	焙焼	脱硝体を脱硝容器に保持したまま、焙焼還元炉内において空気雰囲気で焙焼を行ったが、粉砕前の凝集体でも問題なく焙焼できることを確認した。当初は、焙焼速度を担保するため焙焼前に粉砕することも計画していたが、ガスのパージなどにより微粉末の飛散が起こることを考慮し、脱硝後の凝集体のまま焙焼を行い、目視ではあるが、粉末の飛散などがないことを確認した。なお、焙焼還元時は脱硝容器設置台に冷却水を通水し、脱硝容器バルブの熱影響を防ぐ処置を行ったが、焙焼温度が850 において、バルブ本体温度が最高で約500 であり、温度仕様の600 以下を満足することを確認した。ただし、今回の試験では、冷却水を流さない状態でもバルブ本体温度は525 程度であり、冷却水の必要性について、今後検討が必要である。	

表5.1-1 試験装置の製作および脱硝転換試験に関する結果および評価(2/2)

項目	対象	結果および評価	備考
脱硝転換試験	還元	凝集した状態の焙焼体を脱硝容器に保持したまま、焙焼還元炉内において還元ガスで還元を行ったが、粉砕前の凝集体でも問題な〈還元できること、並びに、粉末の飛散がないことを確認した。なお、試験結果で述べているように、還元体表面にU3O8が見られ、おそら〈還元後あるいは冷却時において表面が再酸化したためと考えられるが、今後、焙焼還元炉の機密性を高めたり内圧を正圧に制御するなど、再酸化を防ぐ対応を行い、再度確認試験を行う必要があると思われる。	
	粉砕	オーガを用いて還元体の粉砕を行ったが、還元体自体が微細粒子の凝集体のため、問題な〈解砕できることが確認できた。ただし、オーガ形状や回転数などの最適化は今後行う必要がある。	
粉末性状と装置システム	脱硝容器	定性的ではあるが、今回の試験結果より、粉砕後の還元粉末の脱硝容器壁面への付着性が小さく、容器への固着粉などの発生がないことが分かった。現状、粉砕後の粉末の排出し易さや装置の簡潔性を考慮し、既設施設で実績のある脱硝皿ではなく、下部に粉末排出のためのバルブを設置した脱硝容器を採用しているが、吹きこぼれの問題やバルブが相当な期間健全である必要があることなど、今後、実機に向け解決すべき重要な項目がある。一方、もし、粉砕粉の脱硝容器内での固着がなく、残留量が有意量以下であるならば、脱硝容器ではなく、これらの問題が解決可能な脱硝皿形状とし、粉砕粉の排出は、例えば、遠心力を利用して回収するなどの方法が採用できるものと考えられる。さらに、後段のペレット成型工程での流動性確保のため、粉砕粉の造粒が必要となった場合を想定すると、脱硝容器のような円筒形状ではなく、脱硝皿のような平板形状のほうが造粒に対しては適切な形状と考えられる。以上のように、粉砕後の還元粉末の性状に応じて、装置システムを改良していくことを検討することは、実機に向け、重要と考えられる。	

6. おわりに

1999 年度に開始した FBR サイクル実用化戦略調査研究は、2002 年度よりフェーズ の段階となり、2003 年度は先進湿式再処理溶液を原料とした低除染ペレット燃料製造プラントを組み込んだサイクルシステムの技術的成立性について評価するため、ターンテーブル式脱硝転換装置の要素技術確認の一環として、小型の試験用セラミックス製脱硝容器を製作し、硝酸ウラニル溶液を用いたマイクロ波脱硝、焙焼および還元処理による粉末の性状並びに脱硝容器の健全性についての確認を行い、使用可能である見通しを得た。

2004 年度は、小型のターンテーブル式脱硝転換装置を製作し、脱硝転換試験を行い、粉末物性や装置の健全性を評価することによりターンテーブル式脱硝転換装置の技術的成立性についての確認を行い、下記の成果を得た。

- (1) 小型のターンテーブル式脱硝転換装置を製作し、マイクロ波脱硝、焙焼・還元、粉砕を行い各装置の健全性について問題のないことを確認した。
- (2) 粉砕後の粉末について粉末物性を測定し、従前のマイクロ波脱硝後の粉砕粉末とほぼ 同等の粉末が得られることを確認した。
- (3) 還元後の粉砕粉末をペレットに成型、焼結し、密度の高いペレットが得られることを確認した。
- (4) 試験結果について、ターンテーブル式脱硝転換設備成立性の観点から検討を行い、開発課題を整理した。

JNC TJ9400 2004-002

7. 参考文献

- 1) 田巻喜久、吉村忠宏ほか、"燃料製造システム特性評価と製造基本技術の関連調査" JNC ZJ9420 2001-004 (2001)
- 2) 半沢正利、吉村忠宏ほか、"低除染ペレット燃料製造機器に関する調査" JNC ZJ9420 2002-001(2002)
- 3) 半沢正利、吉村忠宏ほか、"脱硝転換設備概念の成立性調査" JNC TJ9420 2003-002 (2003)



脱硝転換装置全体図(1/2)



脱硝転換装置全体図(2/2)



試験 No . 1 脱硝 50 分後



試験 No . 1 脱硝 50 分後



試験 No . 1 焙焼後



試験 No . 1 還元後



試験 No . 1 粉砕中



試験 No . 1 粉砕後



試験 No . 1 安息角



試験 No . 9 脱硝 55 分後(1)



試験 No . 9 脱硝 55 分後(2)



試験 No . 9 焙焼後



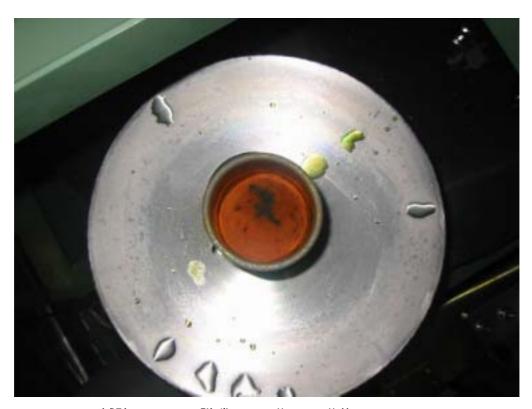
試験 No . 9 還元後



試験 No . 9 粉砕後



試験 No . 9 安息角



試験 No . 10 脱硝 1kw55 分 2kw5 分後(1)



試験 No . 10 脱硝 1kw55 分 2kw5 (2)



試験 No . 10 脱硝 1kw55 分 2kw5 (3)



試験 No . 10 脱硝 1kw55 分 2kw5 (4)



ペレット(焼結前)



ペレット(焼結後)