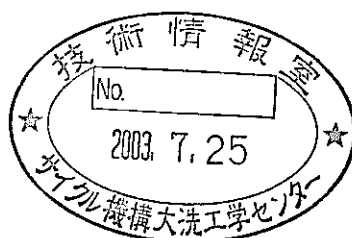


脱硝転換設備概念の成立性調査

(核燃料サイクル開発機構 契約業務報告書)

2003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

Inquires 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)
2003

2003年2月

脱硝転換設備概念の成立性調査

(核燃料サイクル開発機構 契約業務報告書)

半沢 正利*、吉村 忠宏*、宗片 英樹*
田巻 喜久*、大山 有代*

要 旨

本検討では、昨年度に検討を行ったターンテーブル式脱硝転換設備概念に基づき、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、下記の成果を得た。

- (1) 試験用脱硝容器を製作し、硝酸ウラニル溶液のマイクロ波脱硝を行った結果、通常の発泡体が得られることを確認した。
- (2) オーガを用いて脱硝体を粗砕し、均一な粉末が得られる見通しを得た。
- (3) 焙焼および還元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粉末とほぼ同等の粉末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

February 2003

Formation nature investigation of a denitration conversion equipment concept

Masatoshi Hanzawa*, Tadahiro Yoshimura*,
Hideki Munekata*, Yoshihisa Tamaki*
Tomoyo Ohyama*

Abstract

In this examination, based on the turntable type denitration conversion equipment concept designed last fiscal year, the denitration container made from ceramics was manufactured, the quality tests of powder obtained by microwave denitration of nitric acid uranium solution, calcination, and reduction were performed. The soundness of a denitration container was also checked, and the following result was obtained.

- (1) As the result of microwave denitration of nitric acid uranium solution in the manufactured denitration container, the usual foaming object was obtained.
- (2) Denitration product was roughly milled by auger and the prospect to obtain uniform powder was acquired.
- (3) Physical properties of the powder after calcination and reduction were measured, and the powder was almost equivalent to the conventional one obtained by microwave denitration.
- (4) Based on the examination result, the formation nature of turntable type denitration conversion equipment was discussed and the development subject was arranged.

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. 試験用脱硝容器の製作.....	2
2.1 試験用脱硝容器の製作.....	2
2.2 製作上の留意点.....	2
3. 脱硝転換試験.....	4
3.1 試験条件.....	4
3.2 試験結果.....	4
(1) マイクロ波脱硝.....	4
(2) 焙焼および還元.....	4
(3) オーガによる粉砕性および排出性.....	5
4. まとめ.....	6

表 目 次

表 3.2-1 焙焼粉末、還元粉末の物性.....	5
---------------------------	---

脱硝転換試験写真集

1. はじめに

昨年度に検討を行ったターンテーブル式脱硝転換設備概念に基づき、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を行い、脱硝状況、脱硝体の性状確認を行うとともに、粗砕、焙焼および還元処理を行い、還元粉末の性状を把握する。

さらに、脱硝容器の健全性についての確認を行い、脱硝転換設備概念の成立性について検討を行う。

2. 試験用脱硝容器の製作

2.1 試験用脱硝容器の製作

脱硝試験に先立ち、試験用の脱硝容器を製作した。容器本体は窒化珪素を主成分とするセラミックスで作製し、これに耐高温用の粉末抜出用バルブを接続した。

本脱硝容器を添付の写真に示す。

脱硝容器の外形は実機の脱硝容器と相似形とし、大きさは、弊社研究所に設置されている既設のマイクロ波脱硝装置（添付写真参照）のオープン内に設置可能な大きさとした。

この結果、バルブ下部から容器上部までの全高が約 200 mm、外径が約 80 φ（肉厚 5 mm）の寸法となった。

また、粉末抜出用バルブは金属製であり、エッジ部等での放電現象が発生する可能性があったため、できるかぎり滑らかになるよう処理を施した。

2.2 製作上の留意点

脱硝容器本体は、脱硝皿の製作メーカーとして実績のある旭硝子(株)と黒崎播磨(株)にて同一仕様で製作した。

2 基製作した理由は、製作期間が約 2 ヶ月と長く、試験中の容器の破損があった場合、試験実施が不可能になることから予備を準備する必要があったためであり、2 社に分けて製作したのは、過去の事例から、脱硝皿による脱硝時の状況がメーカーにより異なるということが報告されており、脱硝容器でも異なるかどうか比較を行うためである。

以下に、試験用脱硝容器および実機に向けた製作上の留意点について、各製作メーカーからヒアリングした内容を記す。

旭硝子(株)

・今回（2002 年度）の製作過程での問題点

- a) 容器円錐部とフランジ部で構成する R 部でクラックが生じないように注意を払った。（焼成前加工、焼成後加工とも）
- b) 肉厚が 5 mm であるため、焼成前加工時の負荷およびハンドリングでの破損に注意を払う必要があった。
- c) 焼成後、容器内面の円筒部と円錐部の繋ぎ部分を滑らかにするのは困難である。
- d) 変形量と焼成収縮率との読み（設計値）の設定は難しい。

・実物モデル製作の課題

- a) 窒化珪素の仕上げ加工には、ダイヤモンド砥石による湿式研削加工をする必要がある。
- b) 容器内面の円錐部分の加工が不可である。

- c) 容器円錐部とフランジ部のR部は出来るだけ大きいRにしてほしい。R10以上。
- d) これだけの大物で、異形のを一発で製作するのは難しい。
 - ・製作技術を確認たるものにするためには、スケールを段階的に大きくしてほしい。

黒崎播磨(株)

- ・ 今回（2002年度）の製作過程での問題点
 - a) フランジ部の穴あけ加工に注意が必要であった。
 - ・肉厚が6mmと薄く、1回目は破損した。2回目は成功した。
 - b) 焼成での変形。
 - ・フランジ部の変形が一番懸念されたので、フランジを下にして焼成した。
- ・ 実物モデル製作の課題
 - a) 実物モデルでは、2002年度モデルのように、正立状態でのフランジ部穴あけ加工が加工機の制約から出来ない。
 - b) 焼成での変形
 - ・2002年度モデルのようにフランジ部を下にした場合円錐部に荷重が掛るので実物モデルでは、フランジ部を上にする。（いわゆる倒立状態。）
 - この場合はフランジ部が垂れるが、垂れの程度は現状不明。
 - ・フランジ部の加工代を含めて厚くしておき、シール面の加工時に修正する。
 - c) 寸法公差、仕上げ等について
 - ・仕上げ部はシール面のみとし、その他は焼き肌のままとする。
 - d) 実物モデルにトライするまでに、中間サイズでのトライはいいことである。
 - ・しかし、この場合も高さの制限があり、400mm程度が限界か。

3. 脱硝転換試験

3.1 試験条件

昨年度実施した脱硝転換工程における物質収支の検討結果に基づき、硝酸ウラニル溶液は以下のとおりとした。ただし、溶液量は、試験用脱硝容器の大きさと沸騰時の液面上昇分（約 1.6～1.7 倍）を考慮し、設定した。

- ① ウラン濃度；308g-U/l
- ② フリー硝酸濃度；0.2 モル/l
- ③ 溶液量；200ml（1回目）、230ml（2回目）

また、脱硝、焙焼、還元条件は以下のとおりとした。

- ① マイクロ波出力；1KW
- ② 焙焼温度；800℃（保持時間；25分）
- ③ 還元温度；800℃（保持時間；25分）

3.2 試験結果

(1) マイクロ波脱硝

セラミックス製容器に金属製拔出バルブを接続した試験用脱硝容器に硝酸ウラニル溶液を所定量給液し、マイクロ波脱硝を行った。

実機設計案では、オープン内にはターンテーブル上に設置されたセラミックス製の容器ホッパ部のみ収納され、バルブ部は放電を考慮しターンテーブル下方に設置される計画であるが、今回の試験では、マイクロ波脱硝装置が既設装置のためターンテーブルに容器設置穴が無いことから、ホッパ部とバルブが接続された試験用脱硝容器をターンテーブル上に設置することとした。

2回脱硝試験を行ったが、ほぼ所定の時間で脱硝が終了することを確認するとともに、発泡体（脱硝体）も通常の発泡状態のものが得られることを確認した。

また、バルブからの液漏れは全く無かった。

なお、沸騰による液面上昇を考慮した液位としたため、溶液の飛散はほとんど認められなかった。

脱硝体をスパチュラで解砕したところ、拔出バルブ上部の金属フランジ部内部に未脱硝の固体の硝酸ウラニルが残留しているのが確認され、金属フランジ部内部はマイクロ波加熱による脱硝が困難であることが確認された。

(2) 焙焼および還元

メノウ乳鉢による粉碎後の脱硝粉末を焙焼および還元し、粉末物性を測定した。

平均粒径は空気透過法（分析機器はフィッシャー社のサブシーブサイザー）、比表面

積は BET 法を用いた。

結果を表 3.2-1 に示す。

表 3.2-1 焙焼粉末、還元粉末の物性

粉末	平均粒径 F_{ss} [μm]	比表面積[m^2/g]	安息角[度]	備考
焙焼粉末(U3O8)	2.85	4.62	54.8	
還元粉末(UO2)	1.90	4.66	58.6	

このうち、平均粒径は従来のマイクロ波脱硝粉とほぼ同等であり、安息角についても粉砕の程度に依存するものの、ほぼ同等の数値を示している。

比表面積については、従来のマイクロ波脱硝によるウラン粉末の比表面積よりも 2 倍程度高い値となっているが、マイクロ波出力の影響なのか脱硝皿と脱硝容器の違いによるものなのか、あるいは他の要因によるものなのか、今後確認する必要があると考えられる。

(3) オーガによる粉砕性および排出性

今回は粗砕後の焙焼粉末について手動で回転翼形状のオーガを回転させ、粉砕および排出を行ったが、十分な粉砕性能を確認することはできなかった。これは、オーガを回転させても粉末の流動性が悪いため粉末の循環ができず、オーガの軸方向に粒径の不均一な分布ができたままになってしまったためと考えられる。従って、今後は、オーガの回転に伴って粉末が循環するようなオーガの形状やオーガの回転速度について確認試験を実施する必要がある。

排出性については、容器拔出部の内径が 13mm と狭かったが、オーガの上下動および回転により、ほぼ連続的に排出できることを確認したが、さらなる確認試験が必要と思われる。

4. まとめ

1999年度に開始したFBRサイクル実用化戦略調査研究は、昨年度からフェーズⅡの段階となり、昨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最初のステップとして、脱硝容器と市販の耐高温用バルブとのフィッティングについて確認試験を行い、使用可能である見通しを得た。

本年度は、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、下記の成果を得た。

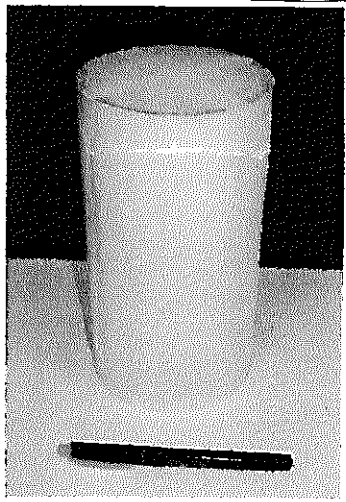
- (1) 試験用脱硝容器を製作し、硝酸ウラニル溶液のマイクロ波脱硝を行った結果、通常の発泡体が得られることを確認した。
- (2) オーガを用いて脱硝体を粗砕し、均一な粉末を得るための開発課題を明らかにした。
- (3) 焙焼および還元後の粉末について粉末物性を測定し、従前のマイクロ波脱硝粉末とほぼ同等の粉末が得られることを確認した。
- (4) 試験結果について、ターンテーブル式脱硝転換設備成立性の観点から検討を行い、開発課題を整理した。

来年度は、本年度に引き続き、ターンテーブル式脱硝転換装置全体のシステム健全性確認試験を実施し、技術的成立性に関する精度を高める必要があると考えられる。

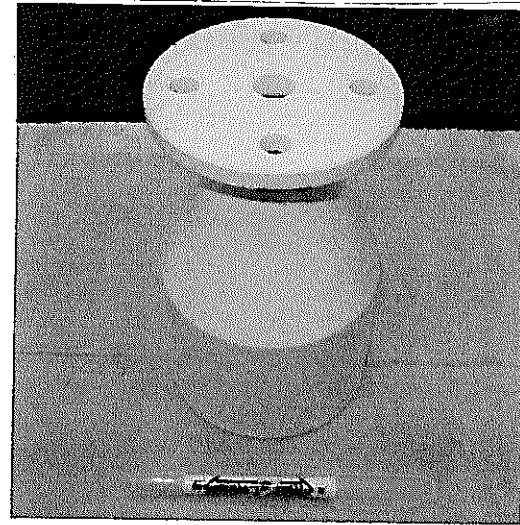
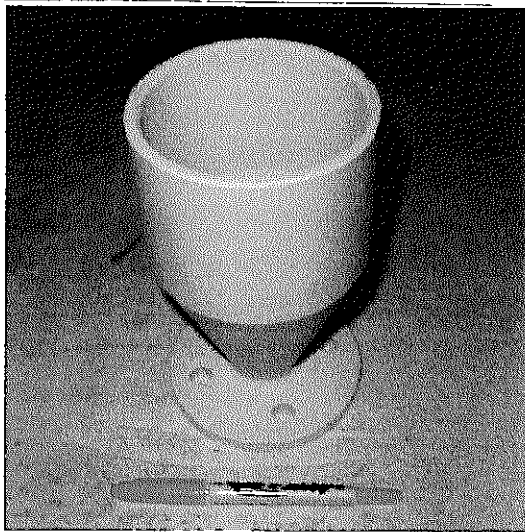
JNC TJ9420 2003-002

脱硝轉換試験写真集

成形体

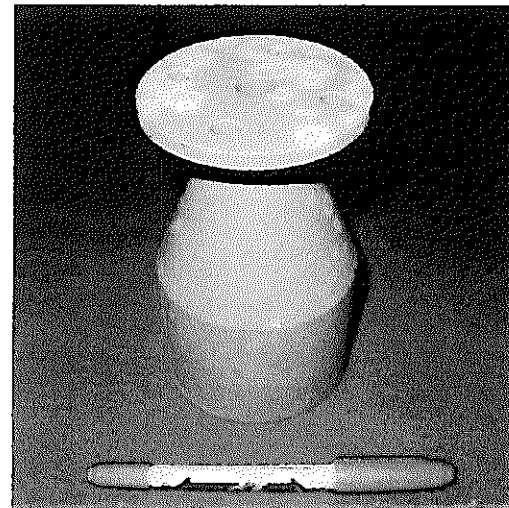
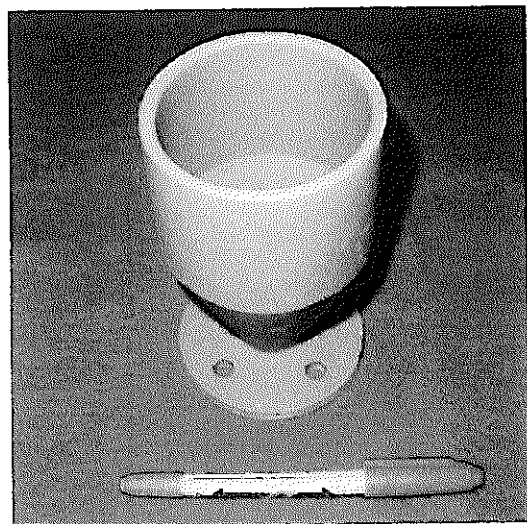


素地加工体

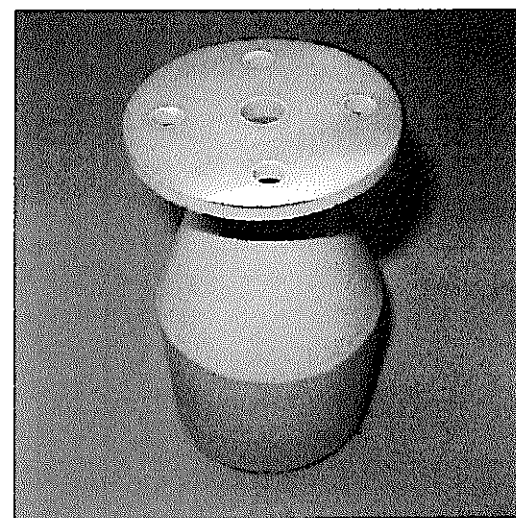
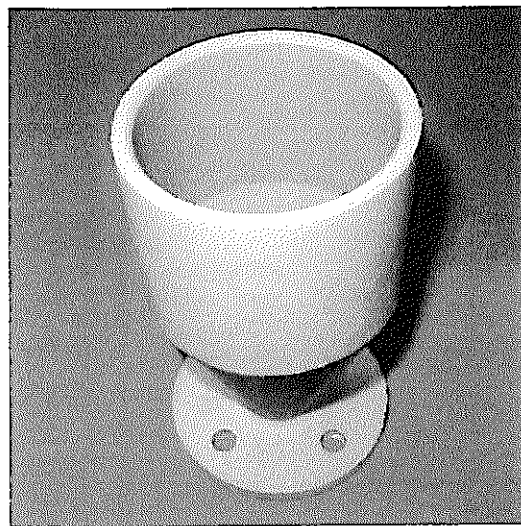


窒化珪素容器 (黒崎播磨製)

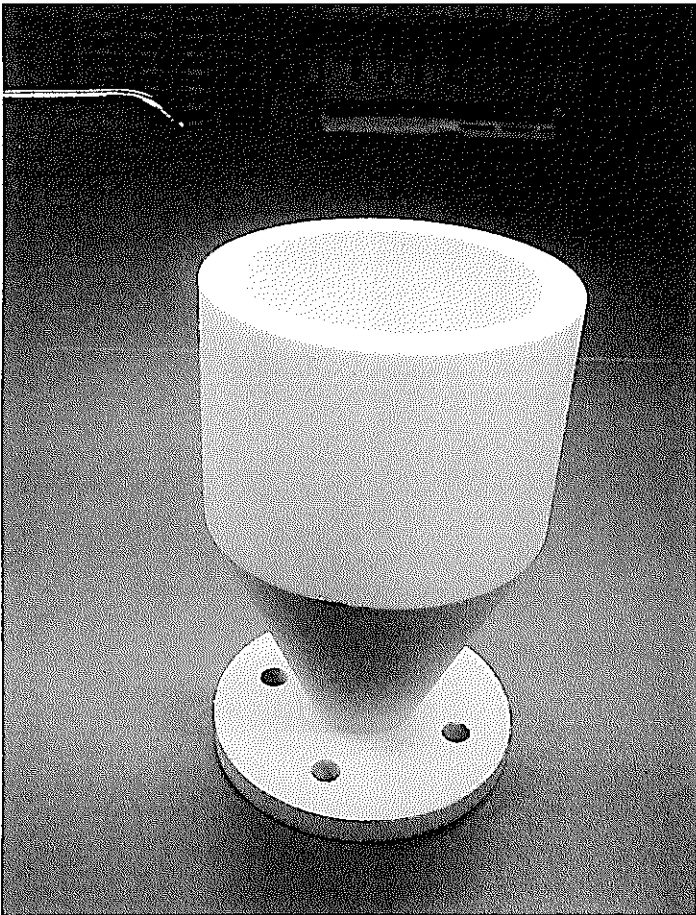
焼結体



完成品



窒化珪素容器（黒崎播磨製）



焼成前(グリーン加工後)

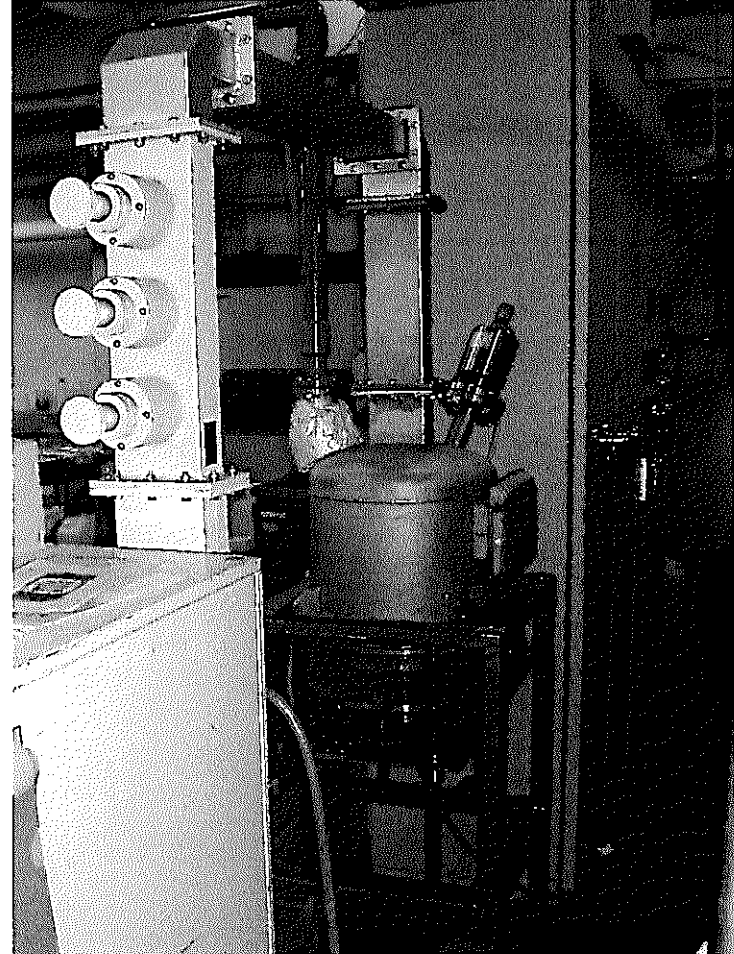
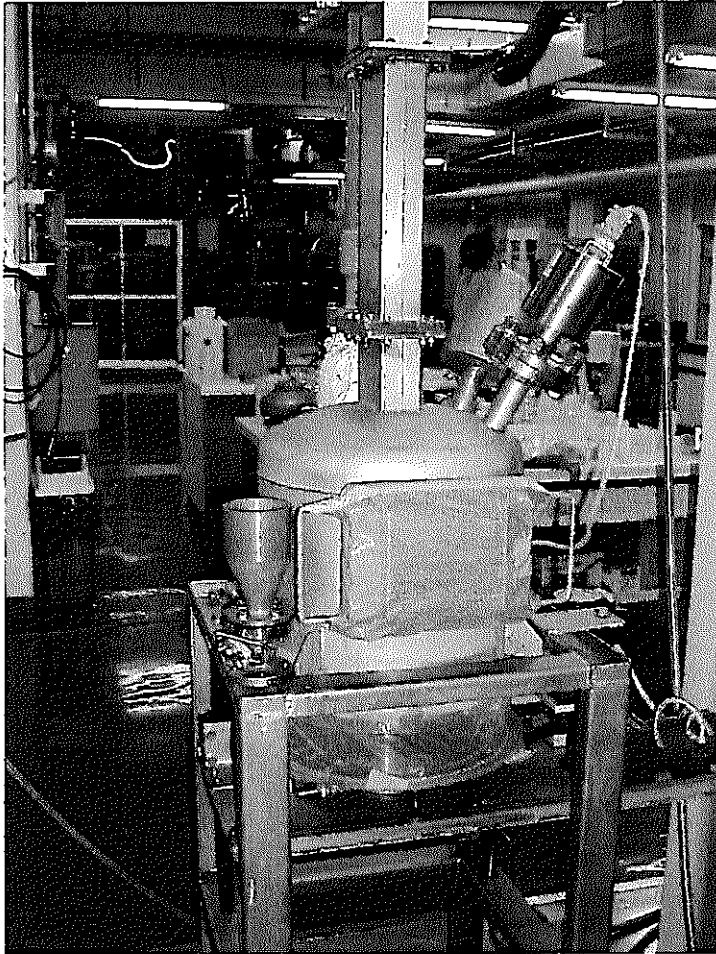


焼成後(仕上加工前)

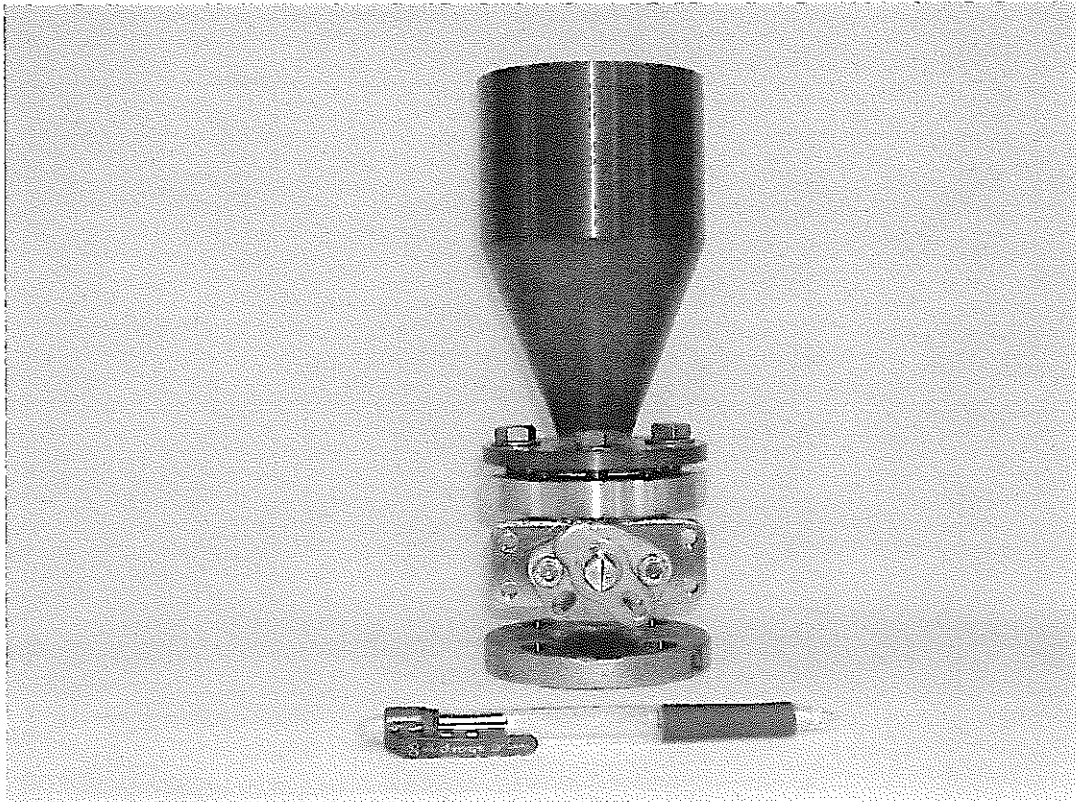


最終製品(仕上加工後)

窒化珪素容器(旭硝子製)



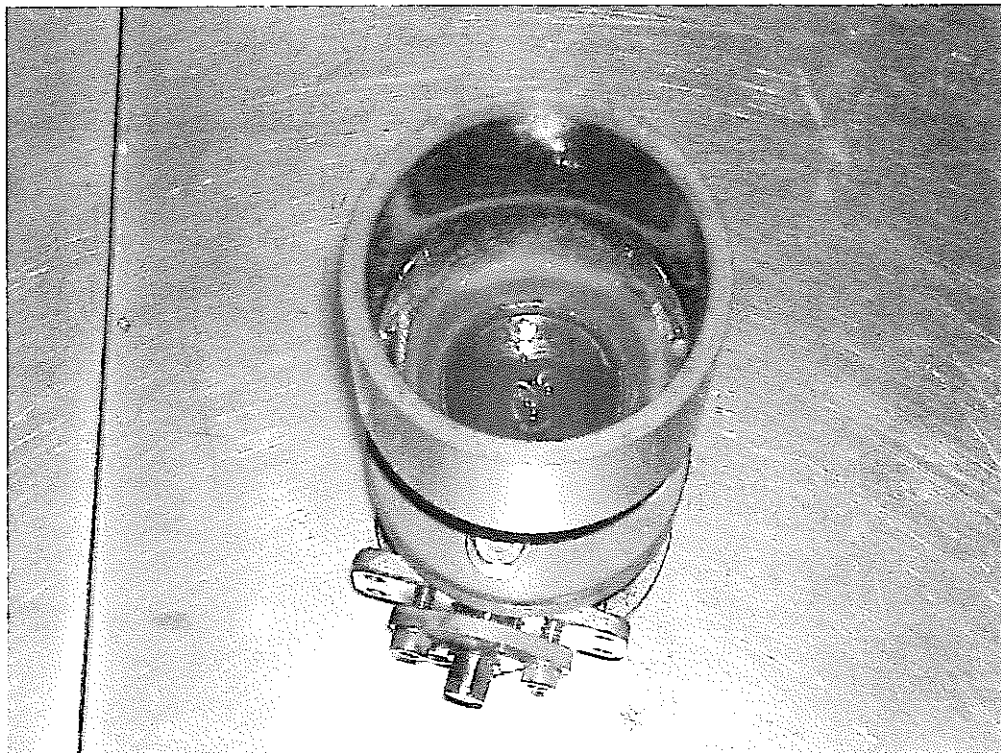
マイクロ波脱硝装置(最大出力 5kw)



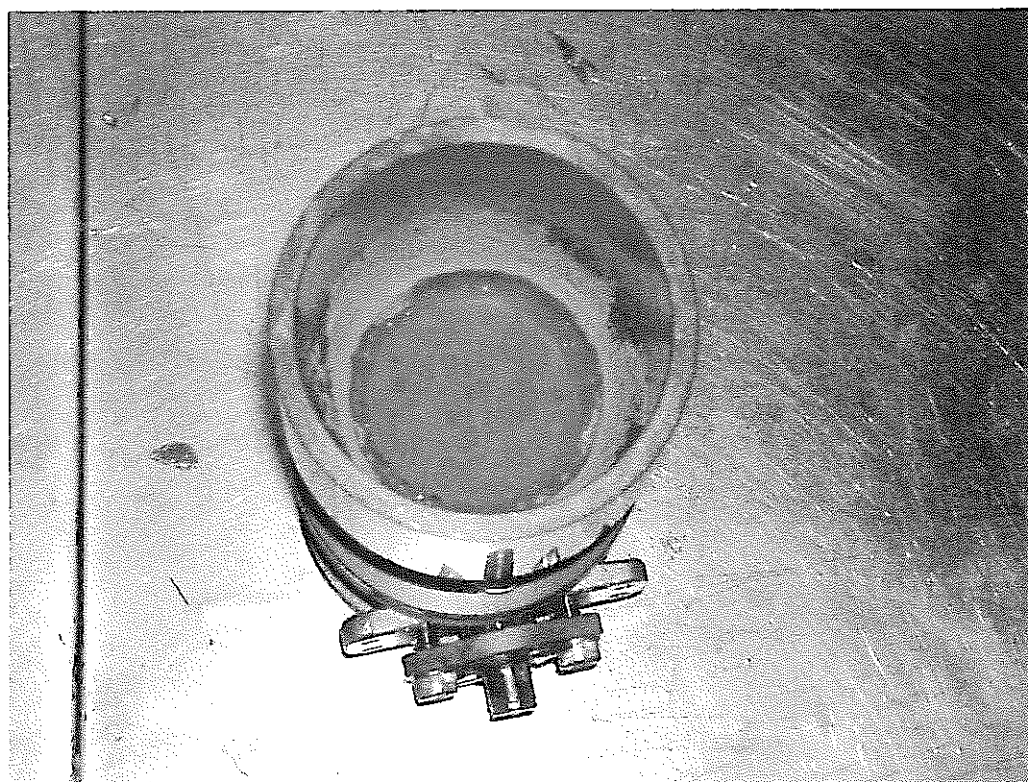
脱硝容器



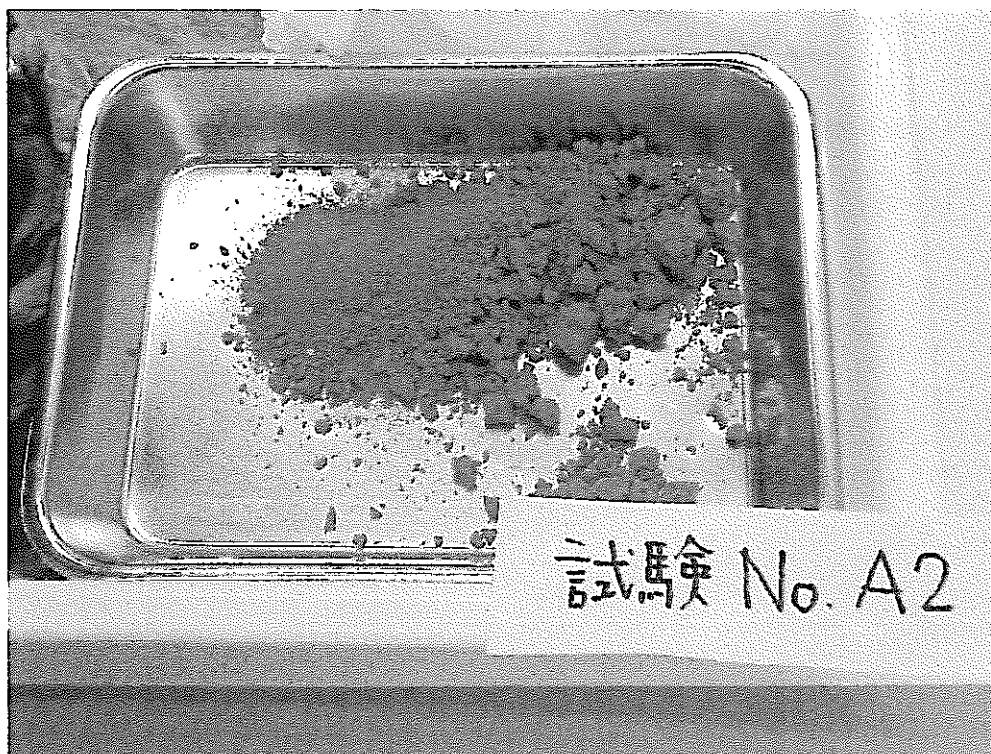
脱硝容器(硝酸 U200cc 注入後)



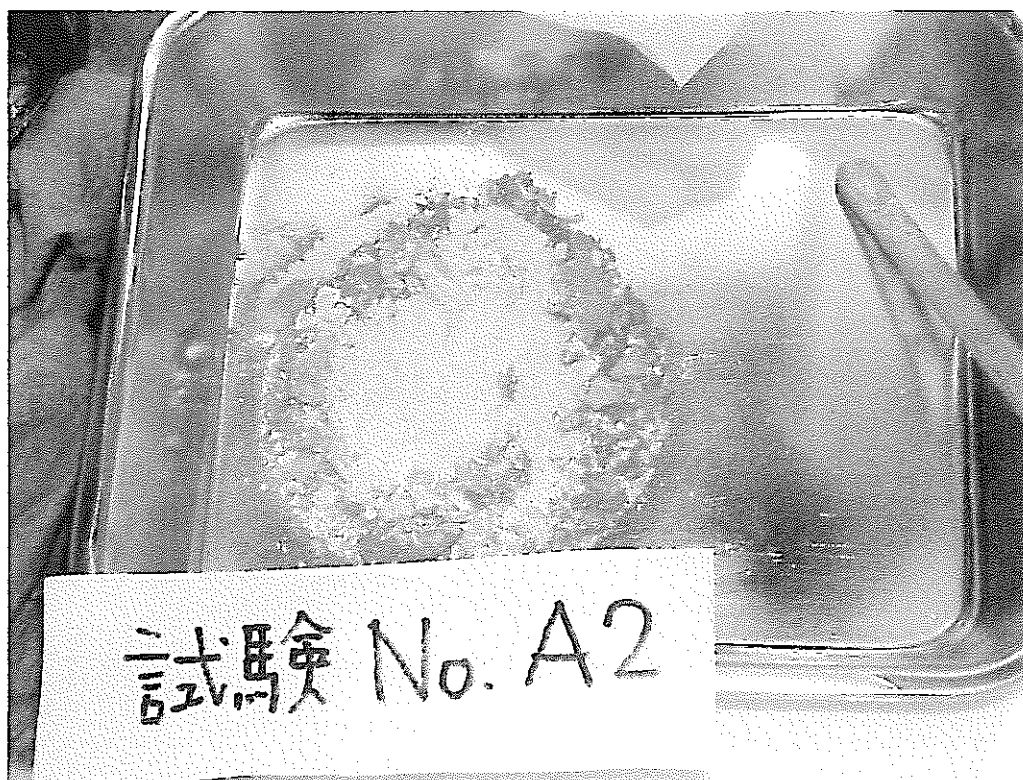
マイクロ波 1kw 加熱 35 分後(この間 6 回取り出し状態観察)



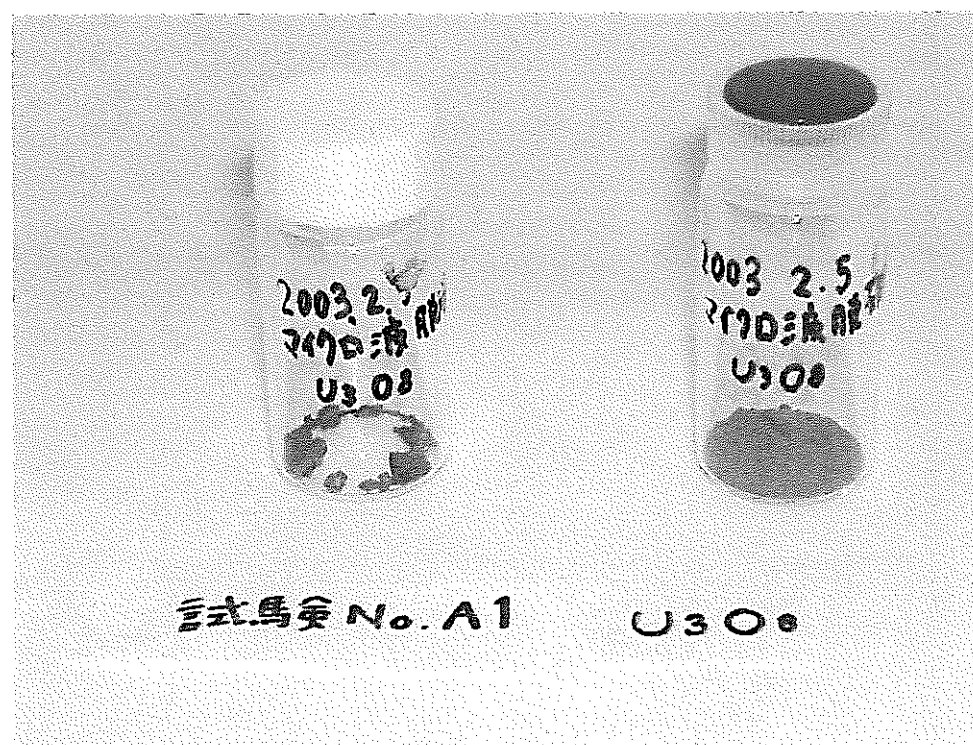
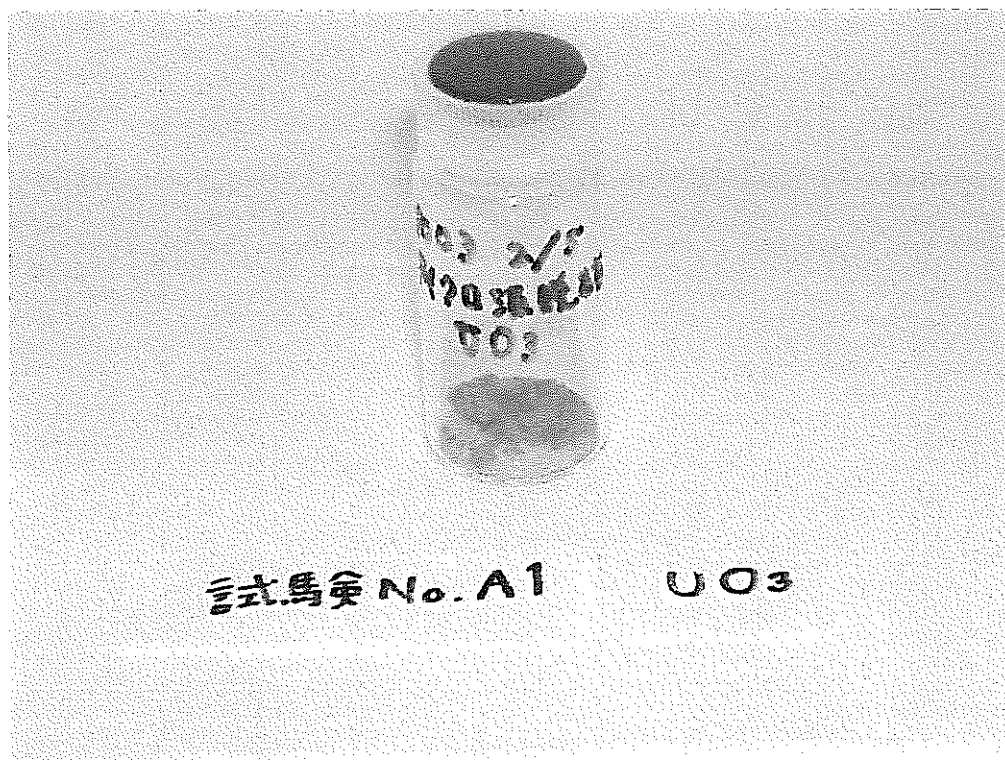
マイクロ波 1kw 加熱 51 分後(脱硝終了状態)

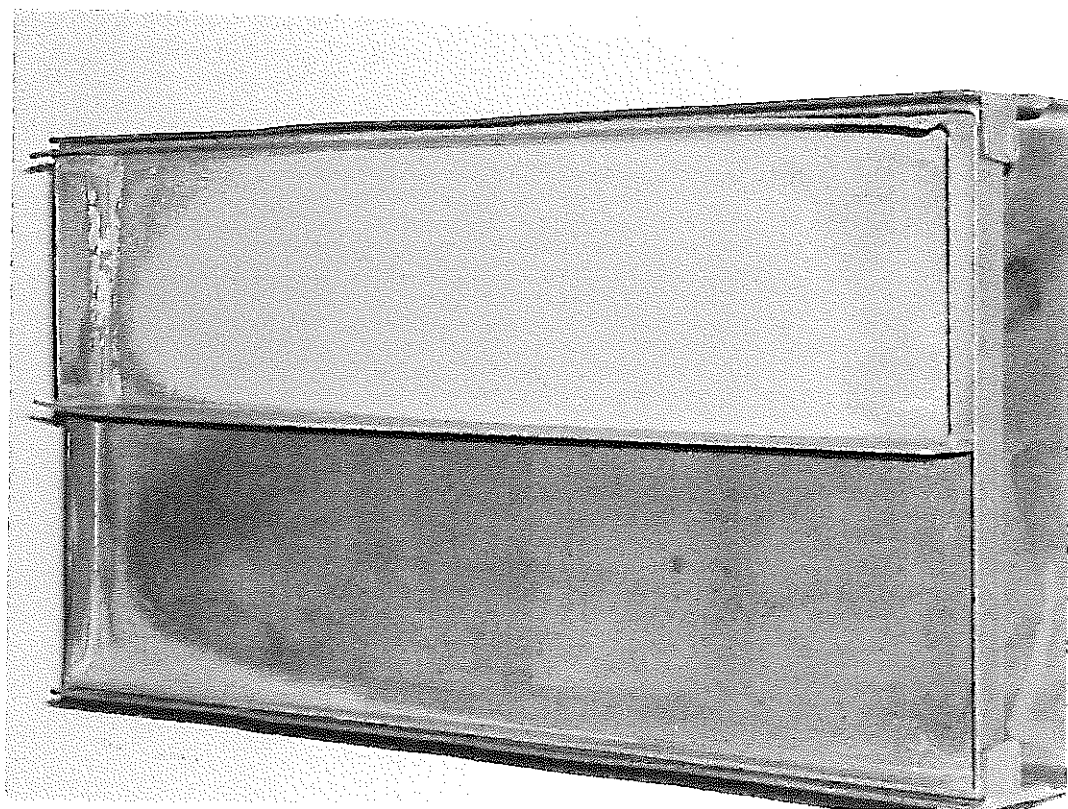


容器から取り出した UO_3

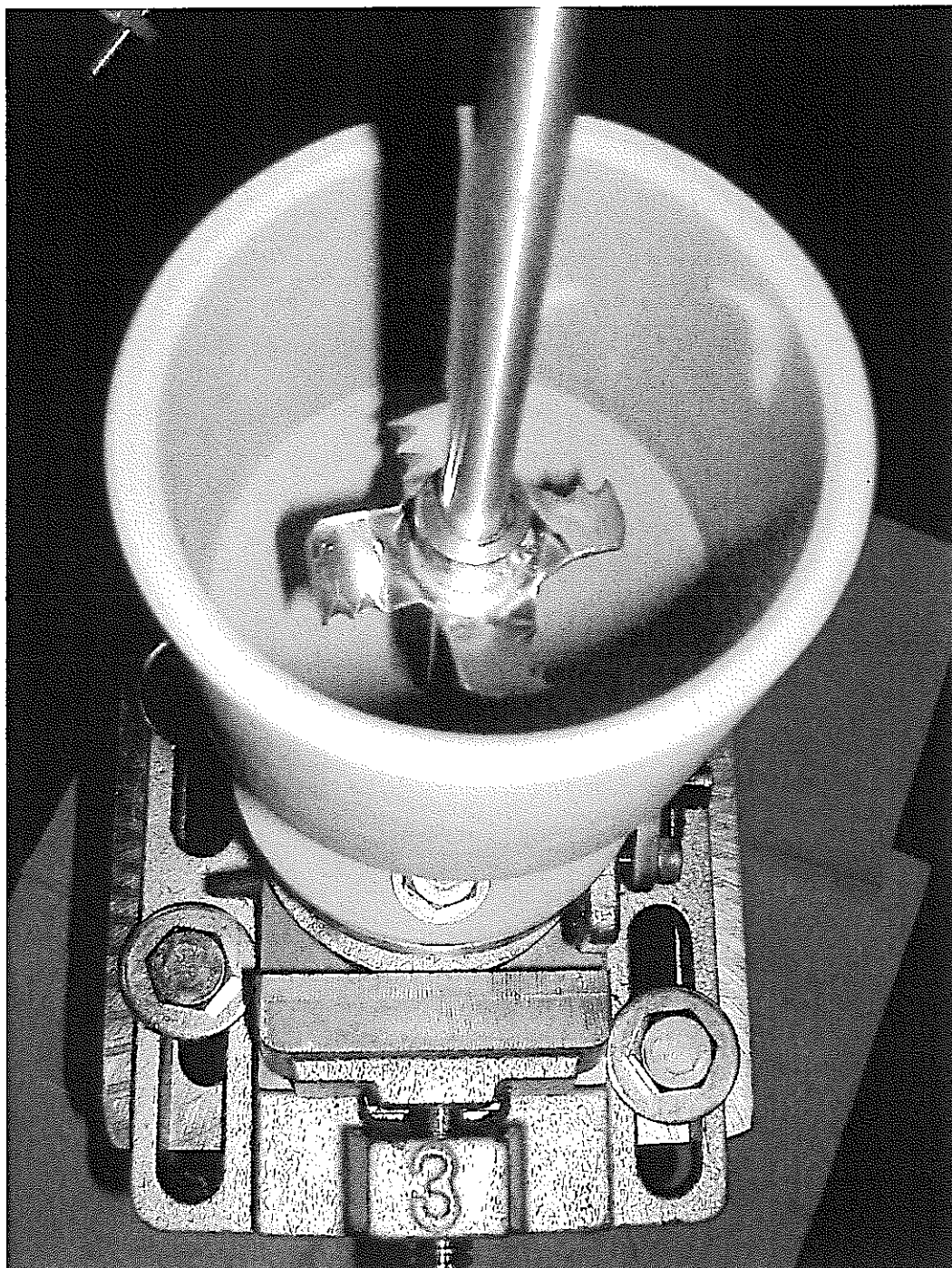


容器から取り出した UO_3 (黄色いのはバルブ上部短管付近の粉末)





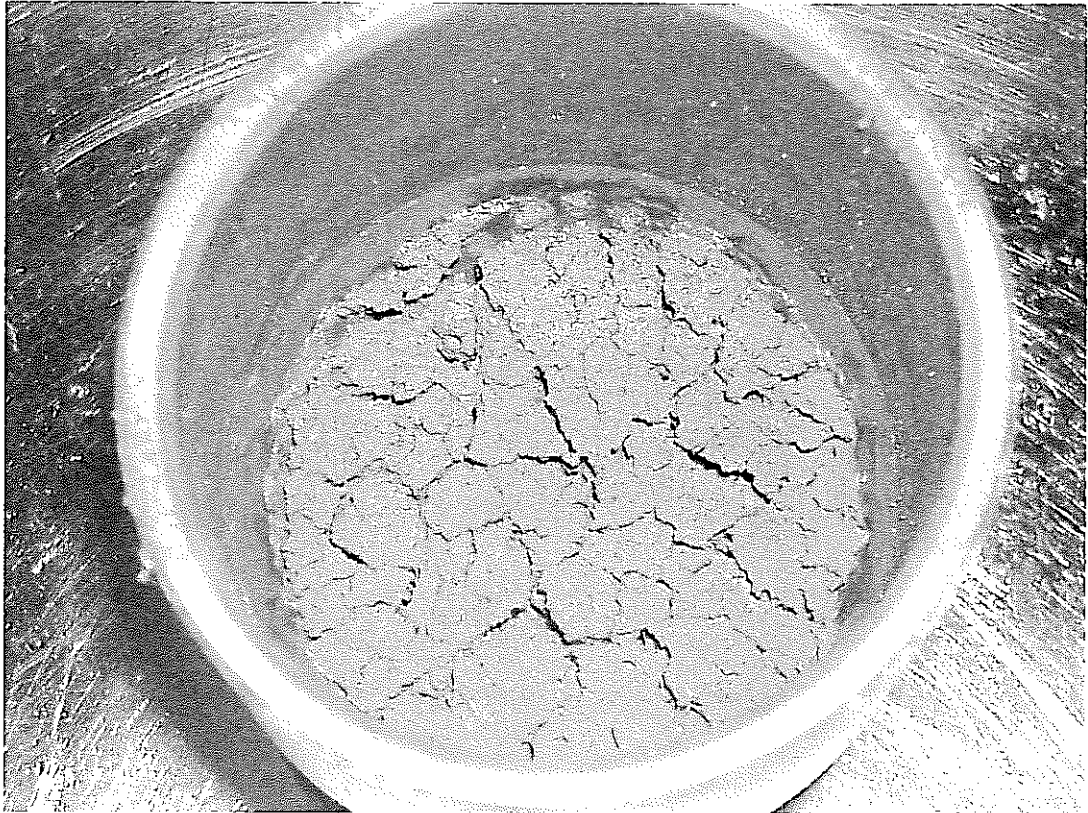
UO₂



オーガ



脱硝体の粉碎状況



脱硝体(未粉碎)の焙焼および還元後の粉体