

# FBR用窒化物燃料製造に関する検討 (1)

(研究報告)



2002年7月

核燃料サイクル開発機構  
大洗工学センター

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大字村松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

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)  
2002

## FBR 用窒化物燃料製造に関する検討(1) (研究報告)

新開康夫\*、小野清\*、田中健哉\*

### 要 旨

FBR 実用化戦略調査研究フェーズⅡでは、窒化物燃料は重金属炉、ガス炉および小型炉の燃料として検討の対象となっている。特に、ガス炉については被覆粒子窒化物燃料が有望視されている。また、重金属炉や小型炉用の燃料として、ペレット燃料や振動充填燃料の窒化物燃料への適用性をさらに詳細に検討することが求められている。

平成 13 年度においては、湿式-振動充填法について、窒化物燃料製造のために必要となる設備について、ゲル化から炭素熱還元工程を中心に検討を進めた。湿式-ペレット法については、炭素熱還元装置周辺のオフガス処理量を再評価した結果、オフガス流量が低減し操業費においても削減効果があることが分かった。また、He 冷却型ガス炉用燃料核製造については、大径粒子の製造性の概略評価を行い、その製造可能性について検討を行うと共に、要素技術開発としての課題を抽出した。なかでも、大径粒子のゲル化技術および被覆技術に関する見通しについては、極小規模の試験を実施した上で量産対応のシステム検討を行うことが重要である。

---

本成果は「実用化戦略調査研究」の一環（平成 13 年度 WBS 分類番号 144110、144210 および 145010）として取りまとめたものである。

\*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

## Study on the Nitride Fuel Fabrication for FBR Cycle(1)

Yasuo Shinkai\*, Kiyoshi Ono\*, Kenya Tanaka\*

### Abstract

In the phase-II of JNC's "Feasibility Study on Commercialized Fast Reactor Cycle System (the F/S)", the nitride fuels are selected as candidate for fuels for heavy metal cooled reactor, gas cooled reactor, and small scale reactor. In particular, the coated fuel particles are a promising concept for gas cooled reactor. In addition, it is necessary to study in detail the application possibility of pellet nitride fuel and vibration compaction nitride fuel for heavy metal cooled reactor and small scale reactor in the phase-II.

In 2001, we studied more about additional equipments for the nitride fuel fabrication in processes from gelation to carbothermic reduction in the vibration compaction method. The result of reevaluation of off-gas mass flow around carbothermic reduction equipment in the palletizing method, showed that quantity of off-gas flow reduced and its reduction led the operation cost to decrease. We studied the possibility of fabrication of large size particles in the coated fuel particles for helium gas cooled reactor and we made basic technical issues clear.

---

This study was carried out in a part of JNC's feasibility study on commercialized FBR cycle system.

\*Fuel Fabrication System Engineering Group, System Engineering Technology Division, O-arai Engineering Center

目 次

1. はじめに	1
2. 湿式-振動充填燃料に関する検討	2
2.1 湿式-振動充填工程の概要	2
2.2 ゲル化プロセスの概要	2
3. He 冷却型ガス炉用燃料核製造に関する検討	6
3.1 湿式ゲル化法による製造実績調査	6
3.2 燃料核製造技術に関する検討	8
4. 湿式-ペレット燃料に関する検討	11
4.1 ペレット製造工程の概要	11
4.2 経済性評価	12
5. まとめ	16
6. 参考文献	17

図表目次

図 2.1	窒化物燃料製造フロー(湿式-振動充填燃料の場合)	4
図 2.2	炭素熱還元炉概略図	5
図 4.1	窒化物燃料製造フロー(湿式-ペレット燃料の場合)	13
図 4.2	ワガス処理系のマスフローバランス(先進湿式-ペレット、200トン/年プラント)	14
表 3.1	大径粒子の製造に関する国内外の実績	7
表 4.1	窒化物燃料の経済性評価(湿式-ペレット燃料の場合)	15

## 1. はじめに

実用化戦略調査研究のフェーズⅠ（平成11～12年度）では、湿式ペレット法（グローブボックス方式、セル方式）、湿式振動充填法、および金属電解振動充填法を対象に窒化物燃料に対応した燃料製造システムの設計を進めてきた。その結果、<sup>15</sup>Nの回収工程の付加、炭素熱還元工程の追加、安全性対策として窒化物の微粉末を扱う工程ではアルゴン雰囲気採用など窒化物燃料製造特有の装置が必要であることが確認され、経済性においても建設費や操業費のレベルで若干高くなることが示された。

窒化物燃料は、フェーズⅡ以降も重金属炉、ガス炉および小型炉の燃料として検討の対象となっている。特にガス炉については被覆粒子窒化物燃料が有望視されており、これまで十分な検討を進めていなかったため、フェーズⅡでは本格的にシステム設計を行う必要がある。また、重金属炉や小型炉用の燃料として、ペレット燃料や振動充填燃料の窒化物燃料への適用性をさらに詳細に検討することが求められており、フェーズⅡの中で金属燃料との間で取捨選択が行われることになっている。

平成13年度においては、湿式振動充填法について、酸化物燃料における湿式ゲル化燃料製造システムをベースに、窒化物燃料製造のために必要となる設備の付加についてゲル化から炭素熱還元工程を中心にさらに検討を進めた。湿式ペレット法については、炭素熱還元装置周辺のオフガス処理量の再評価を実施した。また、He冷却型ガス炉用燃料核製造については、大径粒子の製造性の概略評価を行い、その製造可能性について検討を行うと共に、要素技術開発としての課題の抽出を試みた。

## 2. 湿式－振動充填燃料に関する検討

### 2.1 湿式－振動充填工程の概要

湿式再処理プロセスに対応した窒化物燃料製造法として、酸化物粒子燃料の製造プロセスをベースにプロセス設計を行った。設計検討範囲としては再処理 PUREX で得られる富化度調整済み U/Pu/MA 硝酸溶液にポリビニルアルコール（PVA）等の添加物および炭素粉末を加え、均一に混合した後、振動ノズルより滴下槽へ滴下を行い、アンモニアとのゲル化反応により湿潤ゲル球とするまでとした。湿潤ゲル球は洗浄後、乾燥、焙焼、還元された後、炭素熱還元工程で窒化物粒子とする。窒化物燃料の工程フローを図 2.1 に示す。

### 2.2 ゲル化プロセスの概要

#### 2.2.1 プロセスの概要

酸化物燃料における外部ゲル化法の溶液調整工程で炭素粉末を加え、炭素熱還元反応により窒化物燃料とする方法について検討を行った。ゲル化工程において酸化物燃料から窒化物燃料とする場合の変更点は、富化度調整済み U/Pu/MA 硝酸溶液に炭素粉末を加えること、および焼結工程が炭素熱還元工程に置き換わることである。振動充填以降の工程は酸化物燃料の場合と基本的に変わらない。

#### 2.2.2 プロセス設計

外部ゲル化法により窒化物燃料を製造する場合のゲル化・転換設備について検討を行った。窒化物燃料粒子とした炭素熱還元工程以降の工程は酸化物燃料の振動充填燃料製造工程と同じと考えられる。なお、炭素熱還元工程から振動充填工程までの間は窒化物燃料を取り扱うこととなり、潜在的な発火危険性を取り除くためセル内雰囲気は不活性であるアルゴンガスとすることが必要である。

ゲル化・転換工程における酸化物燃料との基本的な相違は、U/Pu/MA 硝酸溶液に炭素粉末を混合すること、炭素熱還元炉が必要なことである。

従って、プロセス設計としては、滴下液混合槽に炭素粉末を添加するラインを加えるほか、還元球を炭素熱還元炉に移送するライン、炭素熱還元炉および炭素熱還元後の窒化物燃料粒子貯槽を設けるものとした。

なお、炭素熱還元工程で使用する窒素ガスは再処理工場での  $^{14}\text{C}$  の発生を抑えるため、 $^{15}\text{N}$  を使用する。

#### 2.2.3 設備機器設計

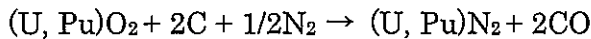
##### (1) 滴下液混合設備

本設備では、Pu 富化度を調整した硝酸溶液を受け入れて PVA、テトラヒドロフルフリルアルコール（THFA）および炭素熱還元設備での反応に必要な炭素（C）を添加・混合し、均一な混合液とする。混合液は滴下・熟成槽へ移送される。滴下液混合槽は酸化物燃



料のものと同一とした。添加する PVA, THFA の量も同一としている。

炭素の量は、炭素熱還元設備での反応式

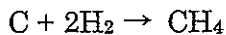


から酸化物 1 モルに対して炭素 2 モルが必要となる。実際の製造では未反応の酸化物領域をなくすため、さらの過剰の炭素を添加することとなる。文献調査の結果では C/U 比 = 3.6 の結果が得られているため、ここでは 4 モルの炭素を添加することとした。<sup>(1)</sup>

なお、炭素を加えることにより、滴下原液の容積が大きくなることが考えられるが、容量としては数%の僅かな増加であり特に問題にはならない。

## (2) 炭素熱還元設備

焙焼工程、還元工程を経て得られた還元球 ( $UO_2+PuO_2+C$ ) を水素/窒素 ( $^{15}N$ ) ガス雰囲気中、約  $1500^{\circ}C$  にて (U/Pu)N 還元し、窒化物燃料粒子を得る。炭素熱還元反応は上述の式のとおりであるが、未反応の炭素は以下に示す再還元により除去する。



この反応は Ar セル中で行うが、セル外の空気中に漏洩した場合でも燃焼しないように  $5\%H_2+95\%N_2$  を使用している。また、過剰に加えた炭素を確実に除去するために、さらに  $5\%H_2+95\%Ar$  ガス雰囲気中で再還元を行う。炭素熱還元炉の概略図を図 2.2 に示した。

炉の臨界管理方式は質量管理とし臨界計算を行った結果、制限値は  $150kgHM$  (重金属) であった。

また、炭素熱還元反応では  $1500^{\circ}C$  前後で 13 時間保持した後、 $1200^{\circ}C$  で 10 時間保持するとの報告がある。<sup>(1)</sup> このため、臨界制限値および炭素熱還元反応時間を考慮して、 $200tHM/y$  規模の燃料製造プラントでの炭素熱還元工程における 1 日の処理量は、内側炉心燃料 (大粒径約  $170kg$  / 小粒径約  $70kg$ )、外側炉心燃料 (大粒径約  $150 kg$  / 小粒径約  $60kg$ ) とすることとした。この場合の炭素熱還元設備の台数は、内側炉心燃料、外側炉心燃料ともに大粒径 2 基 / 小粒径 1 基の構成で対応可能である。

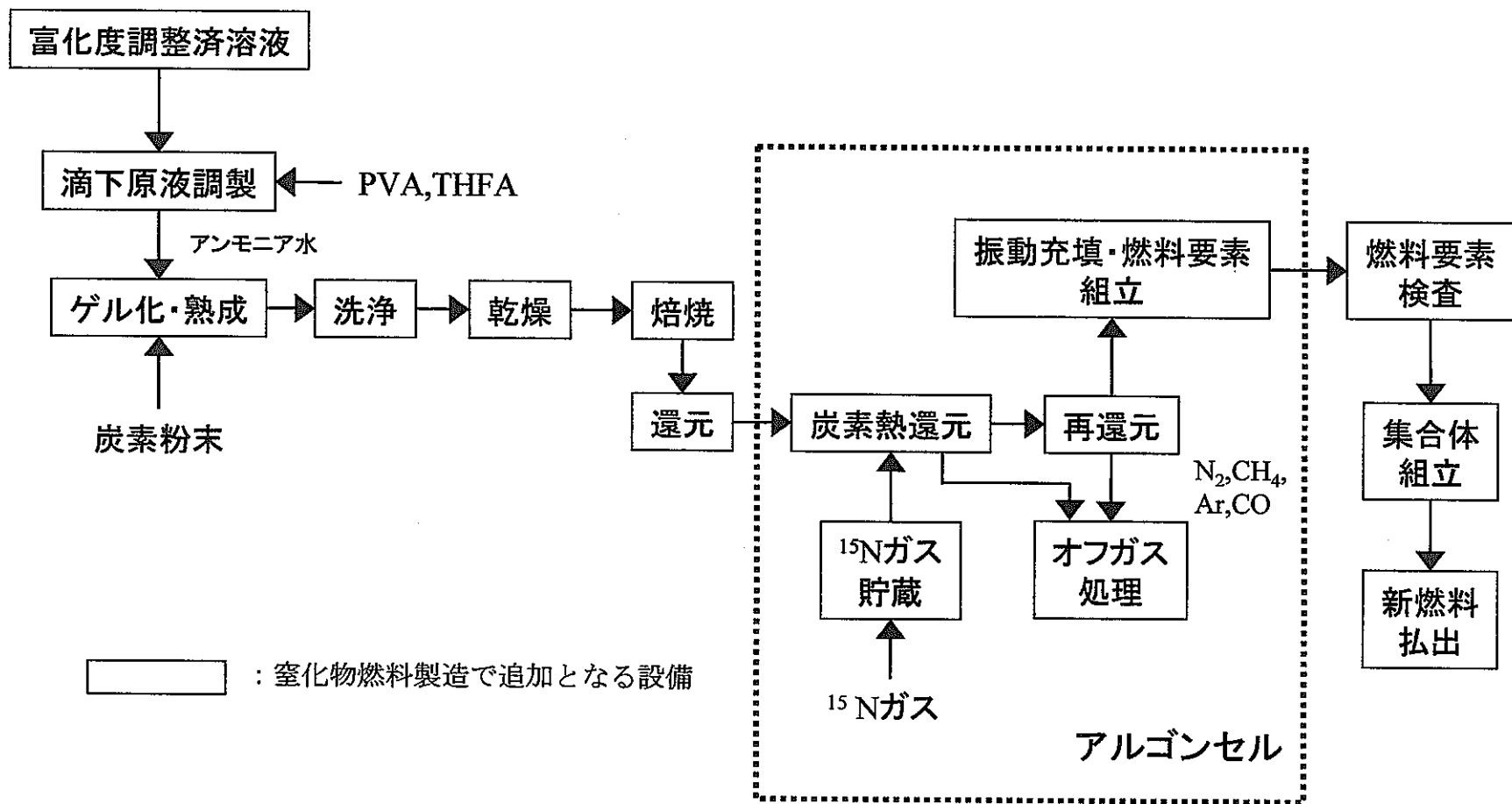


図2.1 窒化物燃料製造フロー(湿式ゲル化法燃料の場合)

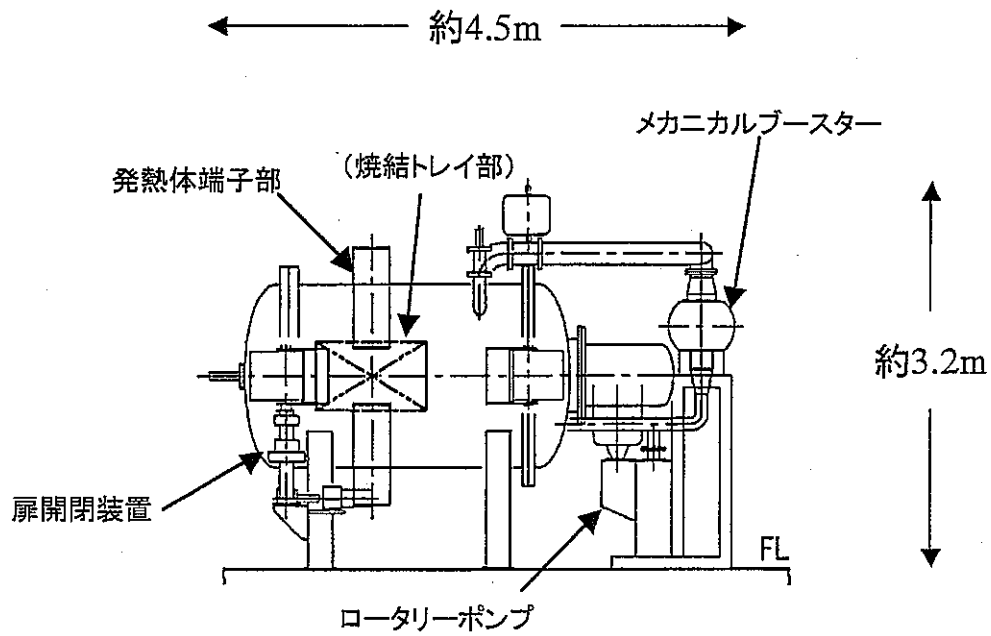


図2.2 炭素熱還元炉概略図

### 3. He 冷却型ガス炉用燃料核製造に関する検討

#### 3.1 湿式ゲル化法による製造実績調査

##### 3.1.1 概要

現在、He ガス冷却被覆粒子型燃料の概念検討を行っており、燃料仕様として燃料核直径を 1.5mm（炉心燃料）、1.7mm（ブランケット燃料）としている。燃料核は湿式ゲル化法により製造することとなるが、大径粒子の製造可能性について議論がされていなかった。そこで今後の検討の参考とするため、国内外の製造実績の整理を行った。

##### 3.1.2 国内外実績

大径粒子の製造に関する国内外の実績を調査し、表 3.1 の通り整理した。調査の対象としては外部ゲル化法による高温工学試験研究炉 HTTR 燃料製造実績を持つ原燃工、FBR 燃料製造実績を持つ英国 BNFL、および内部ゲル化法の研究を行っているスイス PSI 研究所とした。

外部ゲル化法による粒子製造は最大約 900 $\mu$ m 程度までの製造実績があり、1mm 程度までは可能と考えられる。1mm 以上の大粒径とする場合、ゲル球表面にシェル構造、しわ等の不具合が発生し、真球度の不良率が高くなることが予想される。

内部ゲル化法も同様に最大約 900 $\mu$ m 程度までの実績がある。一般的に、内部ゲル化法による焼結粒子は真球度が高く、シェル構造に見られるゲル球製造上の問題が少ないと考えられるため、大径粒子製造に適したプロセスと考えられる。但し、内部ゲル化法はゲル化原料溶液に含まれるヘキサメチレンテトラミン（HMTA）の熱分解を防ぐため、原料溶液を 0℃ 付近まで冷却する必要があり、温度管理は外部ゲル化法よりも厳密となることから冷却設備の負荷は大きくなることが予想される。

外部ゲル化法の場合であっても、真球度のスペックを緩和することが可能であれば検討対象となりうる。

##### 3.1.3 まとめ

ゲル化法による製造実績調査した結果、1mm 程度の粒子製造は実績があるものの、大径粒子製造の R&D は従来まで行われてこなかったことがわかった。今後は、大径粒子（燃料核直径 1.5～1.7mm）のゲル化条件（造粘剤濃度、滴下高さ等）の要素技術開発を行い、大径粒子製造が可能であることを確認する必要がある。

表 3.1 大径粒子の製造に関する国内外の実績

	原燃工	スイス PSI	英国 BNFL
製造方式	外部ゲル化法	内部ゲル化法	外部ゲル化法
最大粒径 (実績)	<ul style="list-style-type: none"> <li>・約 800 <math>\mu\text{m}</math></li> <li>・<math>\text{UO}_2</math> 粒子</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・784~880 <math>\mu\text{m}^*</math></li> <li>・Np-MOX 粒子</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・710~850 <math>\mu\text{m}</math></li> <li>・<math>\text{UO}_2</math> 粒子</li> </ul>
真球度	<ul style="list-style-type: none"> <li>・真球度は高いと考えられる</li> <li>・真球度スペックは不明</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・乾燥工程終了後の真球度に関する収率は 98.2%との報告がある。</li> <li>・真球度スペックは不明</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・真球度スペックは不明</li> </ul>
備考	<ul style="list-style-type: none"> <li>・HTTR 向け <math>\text{UO}_2</math> 燃料核では 600 <math>\mu\text{m}</math> で十分な実績がある。</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・*印は PSI/PNC 共研 (SPF)の結果</li> <li>・SPF 先行試験では~900 <math>\mu\text{m}(\text{UO}_2)</math>のデータが得られている。</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・粒径分布を示す図では 930 <math>\mu\text{m}</math> 付近のデータも見られる。</li> </ul>

### 3.2 燃料核製造技術に関する検討

#### 3.2.1 概要

ガス炉用窒化物被覆燃料粒子の燃料核製造技術に関する検討として、システム設計および要素技術開発に関する課題内容について取りまとめ、解決見通しと裏付けとなるデータ取得時期について記した。なお、被覆技術に関しては燃料性能の観点を含め検討する必要がある。

#### 3.2.2 課題と見通し

##### (1)ゲル化原液安定性に係わる設備設計【システム設計関連】

ゲル化法による粒子製造では原液安定性の観点による工程管理が必要である。

原液安定性に影響を及ぼす要因としては、外部ゲル化法では原液の劣化による粘度低下であり、内部ゲル化法では HMTA 熱分解によるゲル化反応が重要となる。

##### (i) 外部ゲル化法

遊離硝酸による原液の劣化を防ぐためには、硝酸濃度を 1N 以下、温度を 30℃以下、原液の保管時間の短縮化が必要である。温度が高いほど酸による原液の劣化が促進され、粘度が低下し歪なゲル球を生じやすくなる。設計において遊離酸濃度は 0.6N としている。

原液の安定性を担保するため 1 バッチあたりの燃料取扱量（炉心燃料）を 50kgHM に制限し、一日 8 バッチ処理する設計としている。燃料組成から、1 バッチあたりの FP、MA による発熱量は 500W 程度と考えている。原料溶液の発熱対策については、具体的検討はまだなされていないが、この程度の冷却能力は一般産業向けの冷凍機械により実現可能と考えられる。放射線に関する影響評価は、今後、評価の予定である。

##### (ii) 内部ゲル化法

HMTA 熱分解によるゲル化反応を防ぐため、原液温度を 0～4℃以下に保つ必要があり、外部ゲル化法よりも厳密な冷却管理が要求される。放射線に関する影響評価は、未定である。

##### (2)大粒径粒子の製造可能性【要素技術関連】

焼結後の燃料核（1.5mm）の製造を行うための製造条件について検討を行った。焼結後の粒径を 1.5mm とするには、乾燥、焼結工程で約 1/3 に収縮することから、ゲル化時の液滴の大きさは、 $1.5\text{mm}/0.3=5\text{mm}$  である必要がある。

5mm の液滴が成長する前にノズルから落下してはならないから、  
ノズルの内径円周長×張力>液滴の体積×溶液比重×重力加速度  
が成立条件である。

(左辺) ノズルの内径円周長×張力=ノズル径  $D(\text{m}) \times \pi \times 70 \times 10^{-3}(\text{N/m})$

(右辺) 液滴の体積×溶液比重×重力=  $4/3 \times \pi \times (5/2 \times 10^{-3})^3 \times 1.3 \times 10^3(\text{kg/m}^3) \times 9.8(\text{m/s}^2)$

ノズル径  $D > 3.79 \times 10^{-3}\text{m}$

したがって

ノズル径  $D$  を  $3.79\text{mm}$  以上とすれば  $5\text{mm}$  のゲル球となる。

ノズル振動数  $f$  (Hz) は

$f = \text{原液滴下流量} / \text{液滴体積} = (v / 4/3\pi(R/2)^3)$  で求まるから

例えば、原液滴下流量  $v = 10\text{ml/min}$  とすると

$$f = \{10 \times 10^{-3} / 60\} / \{4/3 \times \pi \times (5/2 \times 10^{-3})^3\} \\ = 2.5 \text{ (Hz)}$$

したがって一秒間に 2.5 ヶの粒子製造が可能となる。

但し、本検討では溶液粘度、落下高さ等の考察は加えていないため、技術開発を行った上で更に検討し、真球度の高い粒子製造が可能な条件を確認する必要がある。

### (3) 滴下時の発熱に関する検討

原料液滴 (直径  $5\text{mm}$ 、HM 濃度  $1.5\text{mol/l}$ ) に含まれる HM 重量は、 $2.335 \times 10^{-2}$  (g-HM) である。HM 当たりの発熱量は約  $10\text{W/kg-HM}$  であるから、液滴の発熱量は  $2.335 \times 10^{-4}$  (W) となる。

液滴全てを硝酸ウラニルと仮定すると、

硝酸ウラニルの比熱式  $S_L = 0.0375C_U^2 - 0.277C_U + 0.95$  より

$S_L = 0.619$  (cal/g $\cdot$ °C) が得られる。

(ここで  $C_U$  はウラン濃度 (mol/l) であり、 $C_U = 1.5\text{mol/l}$  とした。)

液滴の単位時間当たりの温度上昇は

$$\{2.335 \times 10^{-4} (\text{J/s}) / 4.1868 (\text{J/cal})\} / \{0.619 (\text{cal/g}\cdot\text{°C}) \times 2.335 \times 10^{-3} (\text{g})\} \\ = 0.386 \times 10^{-2} (\text{°C/s}) \text{ となる。}$$

液滴は  $2.5\text{Hz}$  の周波数で滴下されるので  $1/2.5\text{Hz} = 0.4(\text{s})$  が滴下に要する時間である。また、液滴はノズルから水面までの  $20\text{cm}$  を自由落下するものとして自由落下時間  $t = 0.2(\text{s})$  であるので、 $0.4 + 0.2 = 0.6(\text{s})$  が液滴の発熱している時間と考える。したがって滴下および自由落下中の液滴の温度上昇分は、断熱条件を仮定しても

$$0.386 \times 10^{-2} (\text{°C/s}) \times 0.6 (\text{s}) = 2.32 \times 10^{-3} (\text{°C})$$

であり、滴下から着水までの時間中の発熱は問題とならない。

### (4) 焼結球の高密度化の可能性【要素技術関連】

内部ゲル化法により酸化物球状粒子燃料として、焼結密度  $94 \sim 96\% \text{TD}$  (Pu/Pu+U =  $30\%$ 、粒子径  $800\mu\text{m}$ ) 及び  $\sim 99\% \text{TD}$  (Pu/Pu+U =  $30\%$ 、粒子径  $80 \sim 180\mu\text{m}$ ) が得られている (JNC/PSI)。また、同じく内部ゲル化法により密度  $95.5\% \text{TD}$  の UN 球状粒子が得られている (PSI)。(2)

一方、内部ゲル化法による (U,Pu)N 粒子燃料として、焼結密度  $92.1\% \text{TD}$  (Pu/Pu+U =  $20\%$ 、粒子径  $800\mu\text{m}$ ) が得られている (PSI)。(3)

大粒径のガス炉用窒化物燃料粒子での焼結密度の目標は  $95\% \text{TD}$  程度である。

(5) 組成の製造性への影響【要素技術関連】

MA 添加について、以下のデータが MA-MOX、MA-MN の固溶性を示唆している。

- ・30 年保管した  $^{244}\text{Cm}$  を用いた(Cm0.4,Pu0.6)N ペレットでは、自己照射損傷により焼結後の燃料の格子定数が増大することが報告されている (60h で約 0.3%増大)。損傷を受ける前の格子定数はベガード則に従っている。(4)
- ・酸化物では(U,Pu,Np) $\text{O}_2$  ペレットの格子定数がベガード則に従うことが報告されている (JNC)。(5)
- ・これらのことから MA を添加した窒化物燃料についても従来知見が応用できる可能性がある。

一方、残留不純物については、(U0.8,Pu0.2)N ペレットで、炭素熱還元後の残留炭素によりベガード則に従った格子定数の増大が見られる。残留酸素と格子定数との間に明らかな相関は見られない。(6)

3.2.3 裏付けとなるデータ取得時期

(1) ゲル化原液安定性に係わる設備設計

外部ゲル化法に関しては、放射線および熱に対する安定性評価は、今年度より東海事業所にて実施中である。

(2) 大粒径粒子の製造可能性 /焼結球の高密度化の可能性 /組成の製造性への影響

現行の湿式システム対応振動充填燃料製造技術開発のゲル化、乾燥、焙焼・還元プロセスの酸化物粒子燃料製造試験結果に基づき一部評価が可能となる。(H15 年度)

3.2.4 まとめ

ガス炉燃料候補の一つとして TiN 被覆窒化物粒子燃料が挙げられ、炉心検討が行われている。これまでの湿式対応酸化物燃料製造のゲル化プロセス研究情報に基づき、窒化物燃料核に関する製造の見通しの概略検討した。ゲル化プロセスに基づく MN 核製造については基本的なプロセス構成は明らかとなっている。今後、合理的に製造可能な製造仕様とガス炉心仕様の最終的な取り合いは製造実験に基づき決定していく必要がある。

なお、被覆技術に関する見通しはここでの検討範囲外としているが、燃料核への被覆の経験は無く、一般技術として被覆可能性を主張しているもので、燃料核の製造技術に比べても不確かさは大きい。また被覆の FP 保持能力、照射健全性等の最も基本となる点がほとんどブラックボックスである。これらの点について極小規模の試験を実施した上で量産対応のシステム検討に移ることが重要であり、基盤的な検討を行いプロジェクトの芽があるか検討する必要がある。



#### 4. 湿式ペレット燃料に関する検討

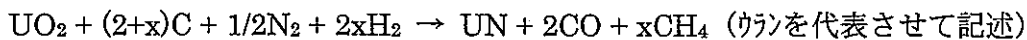
##### 4.1 ペレット製造工程の概要<sup>(7)</sup>

窒化物燃料製造プロセスとして、簡素化ペレット製造ライン（ショートプロセス）に炭素熱還元工程を追加する。湿式再処理から回収したU/Pu 溶液を受け入れ、富化度調整および脱硝、焙焼、還元後に炭素熱還元を行う。炭素熱還元工程からは濃縮<sup>15</sup>Nの回収を行う。炭素熱還元後は通常の酸化物燃料と同様、成型、焼結を経て、燃料要素組立、燃料集合体組立を行う。

図 4.1 に窒化物燃料ペレット製造フローを示す。図中の色付きの部分が酸化物燃料と比較して追加となる工程を示している。粉末混合・投入装置、粗成型装置、炭素熱還元装置および解砕機等が新たに必要となる。

この他にオフガス処理として、濃縮<sup>15</sup>Nを回収・再使用する系統が付加される。オフガス処理系のマスフローバランスを図 4.2 に示す。このオフガス系統は再処理工程と共通設備として利用され、具体的には窒素回収装置、窒素貯槽および窒素ポンプ等が追加される。炭素熱還元装置から回収した濃縮<sup>15</sup>Nは窒素回収装置に送られ Ar、CO、CH<sub>4</sub> と分離した後、窒素貯槽に貯蔵される。窒素の回収には、混合ガスの分離、回収として従来から用いられている気相吸着法（PSA 法）を採用している。

炭素熱還元装置内では以下の反応が起こっている。



年間処理量 200 トンでは、酸化物を還元するのに必要な物質は、窒素、水素、一酸化炭素およびメタン合わせて設計流量として 345 Nm<sup>3</sup>/hr 程度が要求される。その内訳は以下の通りである。<sup>(8)</sup>

水素供給量は 5 倍の余裕を見て約 25 Nm<sup>3</sup>/hr、窒素供給量は実績から約 226Nm<sup>3</sup>/hr、一酸化炭素発生量は約 10 Nm<sup>3</sup>/hr、メタン発生量は約 2.5 Nm<sup>3</sup>/hr、およびキャリアガスとしてのアルゴン（8%）使用量は約 81 Nm<sup>3</sup>/hr である。アルゴンガスや窒素ガスは循環再利用するものとし、窒素供給量のうち約 2.5 Nm<sup>3</sup>/hr は燃料の窒化のために消費される。このため、新たに 2.5 Nm<sup>3</sup>/hr の<sup>15</sup>Nを供給する必要があるが、このうち約 2.2Nm<sup>3</sup>/hr は再処理施設の酸化工程での反応（UN + O<sub>2</sub> → UO<sub>2</sub> + 1/2N<sub>2</sub>）から回収されたものを再利用する。この時の回収率は 90% と想定し（2.5 Nm<sup>3</sup>/hr × 0.9 = 2.2 Nm<sup>3</sup>/hr）、<sup>14</sup>Nによる希釈はないものと仮定した。従って新たに外部から購入が必要な<sup>15</sup>Nは約 0.25 Nm<sup>3</sup>/hr となる。なお、ガスの循環再利用のためには、循環ポンプ、サージタンク等の設備が必要である。

炭素熱還元工程以降、燃料要素組立工程までの装置は、発火の潜在的危険性回避のため、アルゴン雰囲気セルの中に設置している。この他、閉じ込め機能や耐震機能に関しては酸化物燃料製造工程と比べて特に際立った差はない。

廃棄物発生量については、炭素熱還元工程の追加及びオフガス処理量の増加により廃棄物系に移行する核物質の量は増加することが予想される。

なお、炭素熱還元については、工学的規模の装置にてその成立性を確認する必要がある。

## 4.2 経済性評価

経済性評価は酸化燃料（200 トン/年の再処理－燃料製造一体型プラント）のケースを基準として比較を行った。表 4.1 に建設費と操業費について酸化燃料との比較をまとめた。(8)

建設費は、Ar セルの冷却浄化設備及びオフガス処理系設備の追加により、約 5% の増加となった。Ar セルの冷却浄化設備としては、酸素や水分等の除去装置、セル冷却熱交換器及び HEPA フィルター等の追加が必要であり、これは再処理工程側と共通設備のため、燃料製造と再処理の両工程のセル容積比を用いて、追加分の装置費を燃料製造：再処理＝3：1 にて配分した。オフガス処理系設備としては、窒素回収・貯槽装置、Cs/Ru 吸着塔、CO<sub>2</sub> 吸着塔及びヨウ素吸着塔等の追加が必要であり、これは、燃料製造工程と再処理工程のオフガス発生量の比によって配分するが、追加分の装置費の大部分は再処理側に配分した。なお、炭素熱還元装置は再処理側で計上しており、再処理側の Ar セル冷却浄化設備及びオフガス処理系設備の追加も含めて、再処理側の建設費も約 5% 増加すると試算されている。

操業費については、<sup>15</sup>N、粉末炭素及び水素ガスの購入費用の追加により、約 15% の増加となる。<sup>15</sup>N は再処理で 90% 回収し再利用されるため、新規購入分として 10% の 0.25 Nm<sup>3</sup>/hr の費用（単価は 1,000 円/g-<sup>15</sup>N を想定）のみ追加計上した。また、炭素熱還元装置で用いる Ar ガスは再循環利用のため操業費への上乗せはない。フェーズ I での結果、「消耗品等諸費で約 60% アップ（操業費全体でみた場合約 25% アップ）」に比べると、約半分まで削減されている。

部材費については酸化燃料ケースと同等とし、5 万円/kgHM とした。

計算の結果、窒化物燃料の場合の燃料製造単価は 16.1 万円/kgHM となり、酸化燃料の場合の 14.9 万円/kgHM に対して約 8% 増加することが分かった。

なお、単価計算においては <sup>15</sup>N は新規購入分のみを考慮しており、窒化物燃料の製造初期に必要な量（1kgHM あたり約 60g-<sup>15</sup>N）は含んでいない。

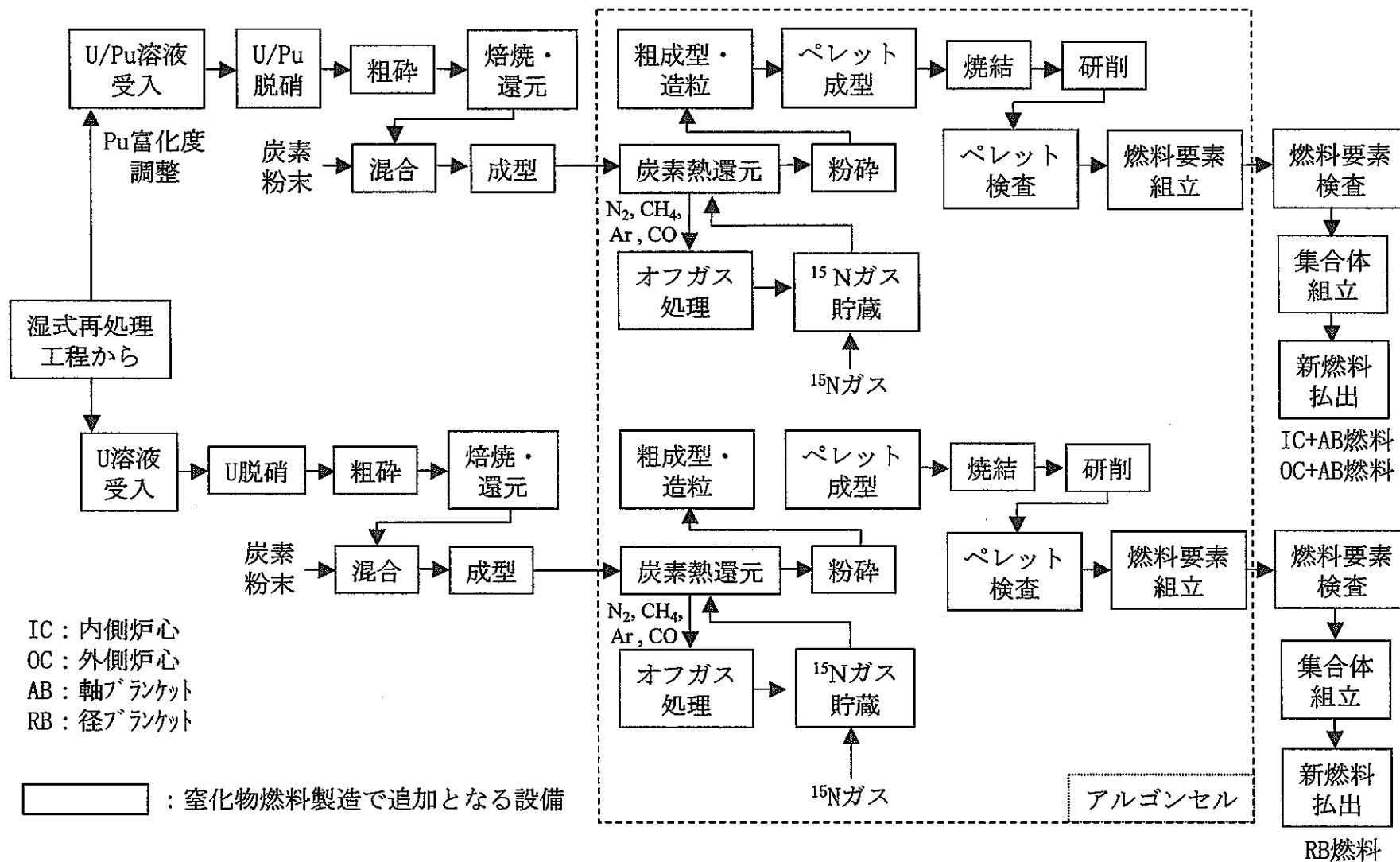


図4.1 窒化物燃料製造フロー(ペレット燃料の場合)

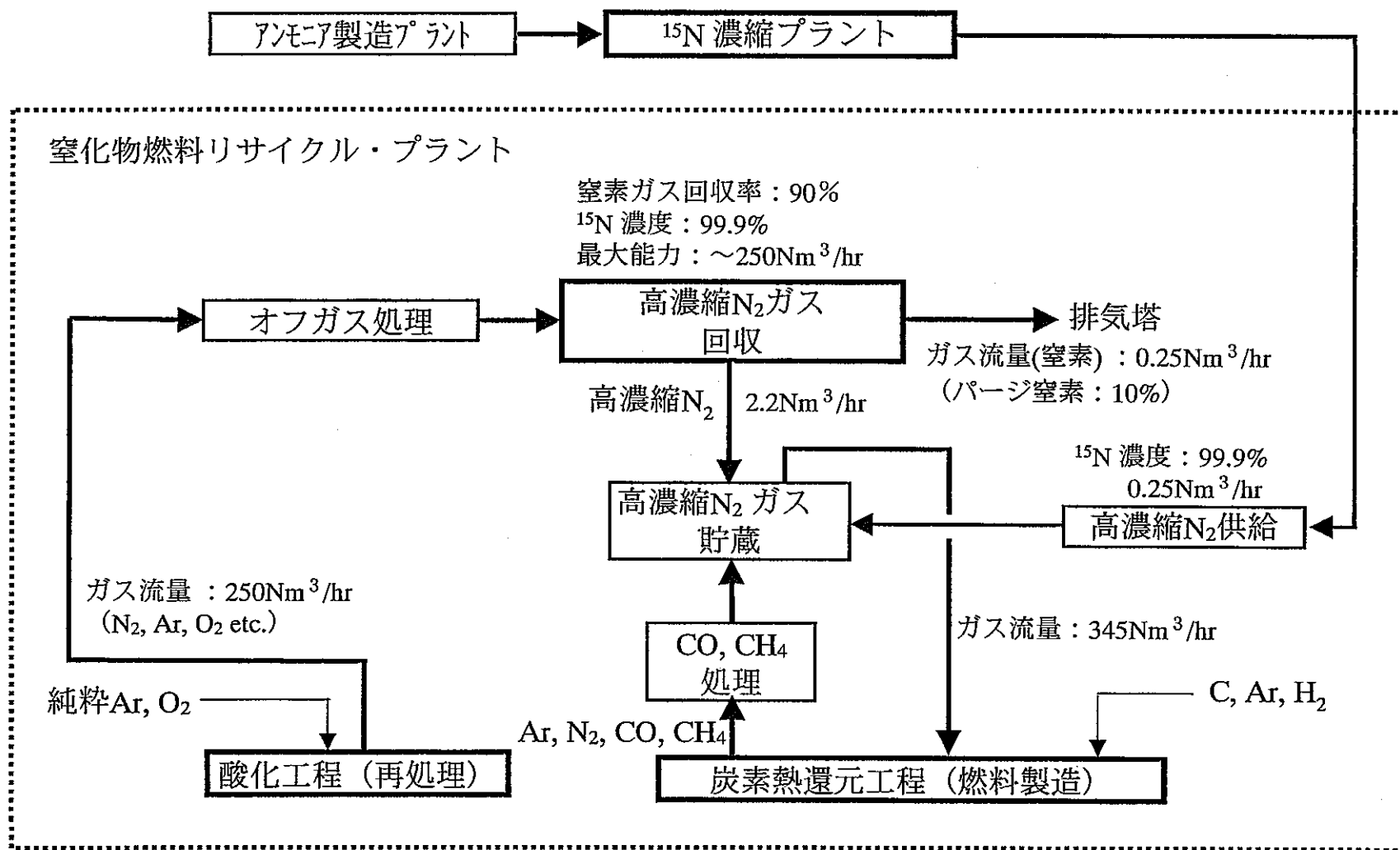


図4.2 オフガス処理系のマスフローバランス(先進湿式一ペレット、200トン/年プラント)

表 4.1 窒化物燃料の経済性評価(湿式ペレット燃料の場合)

項目		燃料製造工程	再処理工程
建設費	追加設備	・炭素熱還元装置* <sup>2</sup> ・オフガス処理設備	・酸化物への転換設備 ・Arセルの冷却浄化設備 ・オフガス処理系設備
	コスト増分* <sup>1</sup>	約5%* <sup>2</sup>	約5%
操業費	追加項目	・高濃縮N <sub>2</sub> 等購入	・Arガス購入
	コスト増分* <sup>1</sup>	約13%	約3%
部材費	コスト増分* <sup>1</sup>	0%	—

\* 1) 窒化物燃料 (200トン/年の再処理-燃料製造一体型プラント) のケースを基準

\* 2) 炭素熱還元装置は再処理工程側の建設費に計上する

## 5. まとめ

湿式-振動充填法について、ゲル化工程から炭素熱還元工程までについて検討を行った結果、200tHM/yプラントにおける炭素熱還元工程での機器台数は、臨界制限値および炭素熱還元時間を考慮して内側および外側炉心燃料ともに大粒子2基/小粒子1基で対応可能であることが分かった。

ガス炉燃料候補であるTiN被覆の窒化物粒子燃料核に関する製造の見通しの概略検討した結果、ゲル化プロセスに基づくMN核製造については基本的なプロセス構成を明らかとなっているものの、今後、合理的に製造可能な製造仕様とガス炉心仕様の最終的な取り合いは製造実験に基づき決定していく必要がある。特に、大径粒子（燃料核直径1.5～1.7mm）のゲル化技術および被覆技術に関する見通しについては、極小規模の試験を実施した上で量産対応のシステム検討を行うことが重要である。

湿式-ペレット燃料について、炭素熱還元装置周辺のオフガス処理量の再評価を実施した結果、炭素熱還元炉周辺において酸化物を窒化物に変換するのに必要な設計流量は、窒素、水素、一酸化炭素およびメタンを合わせて345 Nm<sup>3</sup>/hr程度とフェーズIの約1/4程度となった。このため、操業費はフェーズIでの結果に比べて約半分まで削減され、燃料製造単価において酸化物燃料との差が縮まる方向が確認された。

6. 参考文献

- 1) 高橋昌史、安田淳ら「ウラン窒化物製造における外部ゲル化法適用検討」日本原子力学会、1997 春の大会
- 2) G.Ledergerber, Z.Kopajtic et al., "Preparation of uranium nitride in the form of microspheres" J. Nucl.Matr.,188(1992)28-35.
- 3) G.Ledergerber, F.Ingold et al., "Preparation of transuranium fuel and target materials for the transmutation of actinides by gel coconversion" Nucl. Tech.,114(1996)194-204.
- 4) M.Takano, A.Itoh et al., "Carbothermic synthesis of (Cm,Pu)N", J.Nucl. Matr.,294(2001)24-27
- 5) M.Kato, M.Nishiyama et al., "Sintering behavior and phase separation of (Np,Pu,U)O<sub>2-x</sub>", サイクル技報 10(2001)33-41
- 6) Y.Arai, S.Fukushima et al., "Fabrication of (U,Pu)N fuel pellets",J.Nucl. Matr. 168(1989)280-289
- 7) 河野秀作他、燃料製造システムの技術検討書－実用化戦略調査研究フェーズ I 成果報告－、JNC TY9400 2001-023 (2001) 116-129
- 8) M Inoue, et al. , "Feasibility Study on nitrogen-15 Enrichment and Recycling System for Innovative FR Cycle System with Nitride Fuel", Proceedings of ICONE-10 10<sup>th</sup> International Conference on Nuclear Engineering, Arlington, VA, USA (2002)