

安全性・経済性向上を目指した MA 核変換用 窒化物燃料サイクルに関する研究開発

(9) 燃料製造へのゾルゲル法適用と N-15 経済的利用に関する技術開発の状況

R&D on Nitride Fuel Cycle for MA Transmutation to Enhance Safety and Economy

(9) Application of Sol-gel Process and Economical Use of N-15 in the Fuel Fabrication

*高野 公秀

原子力機構

マイナーアクチノイド (MA) 核変換用窒化物燃料の製造において重要な、ゾルゲル法による酸化物と炭素の混合粒子作製と、N-15 同位体濃縮窒素ガスの経済的利用 (循環精製) に関する技術開発の状況を報告する。

キーワード: マイナーアクチノイド, 核変換, 窒化物燃料, 燃料製造, ゾルゲル法, N-15 同位体濃縮

1. 緒言

(Pu,MA,Zr)N 固溶体または(Pu,MA)N/TiN 粒子分散型ペレットの窒化物燃料製造では、発電炉使用済燃料溶解液から抽出分離した MA 硝酸溶液を窒化物に転換する過程において、MA ダスト発生や工数低減の観点からゾルゲル法により MA 酸化物と炭素の混合粒子を作製し、これを炭素熱還元により窒化して窒化物粒子を得ることが望ましい。さらに窒化時には、N-15 同位体濃縮窒素ガスを経済的に利用するため、電気炉に流通した窒素ガス中に生じる CO を除去して精製し、閉じた系で循環利用する技術の確立が必須である。ここでは、MA の模擬として希土類の Dy を用いた試験により、良好な球形状の Dy₂O₃+炭素混合粒子を直径制御しつつ作製する技術と、実験室規模の実証試験用“窒素循環精製システム”の開発状況について報告する。

2. 技術開発の状況

Dy 硝酸塩水溶液、ナノ炭素分散液、ポリビニルアルコール及び添加剤を混合して滴下液とし、これをアンモニア水槽中に振動滴下することでゲル球が得られる (外部ゲル化法)。試験時の主要パラメータは、液組成、粘度 (液温で制御)、送液圧、滴下振動数及び滴下針径である。まず、比較的試験を行いやすい 25G (内径 0.25 mm) の滴下針で直径 0.6 mm 前後のゲル球を作製する試験を行い、球形状及びクラック防止の観点から適切な諸パラメータを定めた。これを元に、粒子分散型ペレットへの適用を考慮して直径をより小さい側に制御するため、27G (内径 0.21 mm) の滴下針を用いた試験を行った。その結果、粘度 (液温)、送液圧等を調整することで、直径分布が 0.47 mm 付近でシャープなゲル球を再現性良く得ることが可能となった。このゲル球をアルゴン気流中 800°C で 2 時間煅焼することにより、直径 0.33 mm の Dy₂O₃+炭素混合粒子を得た。

窒素循環精製システムは、電気炉内の窒化反応で窒素気流中に生じる CO を除去する“CO 除去ユニット”と、窒素をポンプで加圧して一定流量で循環するとともに、窒化反応で消費された分の窒素を圧力センサーで感知して自動供給する“窒素循環・自動供給ユニット”で構成される。両ユニットの性能要件を定めて概念設計と詳細設計を行うとともに、CO 吸着触媒 (Ni 系、吸着塔 2 系統、再生機能付き) の候補 2 種類の吸着破過試験を行い 1 種類に選定し、設計に反映した。設計に基づき両ユニットを製作し、実験室に既設の窒化用電気炉に接続して総合的な動作確認試験を行った。Dy₂O₃+炭素粉末混合成型体 (4.8 g) の窒化加熱中の CO 除去ユニット出入口で窒素気流 (2 L/min) 中の CO 濃度を連続測定した結果、入口側ピーク時濃度 966 ppm に対して出口側では常に 1 ppm 未満であり、CO 除去性能が非常に優れていることを確認した。

外部ゲル化法で作製した Dy₂O₃+炭素混合粒子を、窒素循環精製システムを用いて DyN 粒子とし、これを TiN 母材に分散させた模擬燃料ペレットの試作試験を実施する予定である。

本報告は、原子力機構が委託先機関として実施した平成 30 年度文部科学省原子力システム研究開発事業「安全性・経済性向上を目指した MA 核変換用窒化物燃料サイクルに関する研究開発」の成果の一部です。

*Masahide Takano, JAEA.