

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第5729671号  
(P5729671)

(45) 発行日 平成27年6月3日(2015.6.3)

(24) 登録日 平成27年4月17日(2015.4.17)

(51) Int.Cl. F 1  
**G 2 1 C 3/62 (2006.01)**  
 G 2 1 C 3/62 M  
 G 2 1 C 3/62 J  
 G 2 1 C 3/62 N

請求項の数 6 (全 8 頁)

<p>(21) 出願番号 特願2011-79737 (P2011-79737)                  (22) 出願日 平成23年3月31日 (2011.3.31)                  (65) 公開番号 特開2012-215429 (P2012-215429A)                  (43) 公開日 平成24年11月8日 (2012.11.8)                  審査請求日 平成26年2月28日 (2014.2.28)</p>	<p>(73) 特許権者 000006264                  三菱マテリアル株式会社                  東京都千代田区大手町一丁目3番2号                  (73) 特許権者 505374783                  国立研究開発法人日本原子力研究開発機構                  茨城県那珂郡東海村大字舟石川765番地                  1                  (74) 代理人 100088719                  弁理士 千葉 博史                  (72) 発明者 境原 基浩                  茨城県那珂市向山1002-14 三菱マ                  テリアル株式会社エネルギー事業センター                  那珂エネルギー開発研究所内</p>
--	--

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 核燃料粉末の造粒法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

回転羽根型造粒機を用いて核燃料粉末を造粒する方法において、回転羽根の低速回転下でバインダを添加して混合する混合工程と、回転羽根を停止してバインダの添加量を測定する測定工程と、バインダ添加後に回転羽根を高速回転して造粒する造粒工程を有することを特徴とする造粒法。

【請求項 2】

上記混合工程において、回転羽根を低速回転して核燃料粉末を均一化した後に、低速回転下でバインダを少量ずつ添加して攪拌混合し、次いで測定工程において、回転羽根を停止してバインダの添加量を測定し、該測定工程の後に、回転羽根を低速回転して核燃料粉末を攪拌均一化する均一化工程を設け、該均一化工程の後に、回転羽根を高速回転して核燃料粉末を造粒する造粒工程を行う請求項 1 に記載する造粒法。

【請求項 3】

上記測定工程において、回転羽根を停止し、核燃料粉末にバインダを添加してバインダ添加量を調整した後に、バインダの添加量を測定する請求項 1 または請求項 2 に記載する造粒法。

【請求項 4】

回転羽根の低速回転を回転数 20～50 rpmで行い、高速回転を 300～600 rpmで行う請求項 1～請求項 3 の何れかに記載する造粒法。

【請求項 5】

粒径  $500 \mu\text{m}$  以下の核燃料造粒体を製造する請求項 1～請求項 4 の何れかに記載する造粒法。

【請求項 6】

核燃料粉末が、ウラン酸化物粉末、またはウランとプルトニウムの混合酸化物粉末である MOX 燃料粉末である請求項 1～請求項 5 の何れかに記載する造粒法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は核燃料粉末の造粒法に関する。より詳しくは、本発明は原子力発電などの燃料に用いられる核燃料ペレット用の粒子を製造するウラン酸化物粉末またはウランとプルトニウムの混合酸化物粉末である MOX 燃料粉末の造粒法に関する。 10

【背景技術】

【0002】

原子力発電などの燃料には、二酸化ウラン燃料やウランとプルトニウムの混合酸化物である MOX 燃料が用いられる。これらの核燃料は二酸化ウラン粉末などの原料粉末をペレットに成形して還元雰囲気下で焼結し、この焼結ペレットを燃料棒に封入し、多数の燃料棒を束ねた燃料集合体として使用される。

【0003】

一般的に、工業的に効率よく核燃料の焼結ペレットを製造するためには、ペレットの金型に入れやすいようにペレット用の粒子を製造する。例えば、酸化ウラン粉末などの原料粉末に水などのバインダを添加して粒径数百  $\mu\text{m}$  の粒子に造粒している。 20

【0004】

例えば、特開 2010-190718 号公報（特許文献 1）には、プルトニウムとウランの混合硝酸溶液をマイクロ波加熱して脱硝粉末にし、この脱硝粉末を焙焼還元した後にバインダを加えて造粒し、この造粒体をペレットに成形することが記載されている。特開 2010-190720 号公報（特許文献 2）には、プルトニウムとウランの混合硝酸溶液をマイクロ波加熱して脱硝粉末にした後にバインダを加えて造粒し、この造粒体を焙焼還元してペレット用粒子にすることが記載されている。

【先行技術文献】 30

【特許文献】

【0005】

【特許文献 1】 特開 2010-190718 号公報

【特許文献 2】 特開 2010-190720 号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

上記特許文献 1 および特許文献 2 には、脱硝粉末にバインダを加え（例えば水を噴霧し）、回転羽根によって造粒することが記載されており、水の添加量は 18 wt% が好ましく、水は粉末全体に均一に噴霧されればよく、造粒前でも造粒中でも良いとしている。 40

【0007】

しかし、回転羽根型造粒機を用いた従来の造粒方法は、造粒前に回転羽根を停止した状態でバインダを添加する場合、内容物が混合されないためにバインダの偏析が生じやすく、造粒状態が不均一になりやすいと云う課題がある。

【0008】

また、造粒中に回転羽根を高速回転した状態でバインダを添加する場合、一時的にバインダ量が多くなった部分では造粒体の肥大化がより進行するため、造粒体の粒子径が目標よりも過大となる、あるいは不均一になりやすい。また、バインダ、あるいはバインダと共に粉が造粒機内壁へ弾かれて付着するため、粉末への正味のバインダ添加量が不正確になりやすいと云う課題がある。 50

## 【0009】

本発明は、ウラン酸化物等の粉末を回転羽根型造粒機を用いて造粒する場合、上記問題を解消した造粒方法を提供する。

## 【課題を解決するための手段】

## 【0010】

本発明によれば、以下の構成からなる造粒法が提供される。

〔1〕回転羽根型造粒機を用いて核燃料粉末を造粒する方法において、回転羽根の低速回転下でバインダを添加して混合する混合工程と、回転羽根を停止してバインダの添加量を測定する測定工程と、バインダ添加後に回転羽根を高速回転して造粒する造粒工程を有することを特徴とする造粒法。

10

〔2〕上記混合工程において、回転羽根を低速回転して核燃料粉末を均一化した後に、低速回転下でバインダを少量ずつ添加して攪拌混合し、次いで測定工程において、回転羽根を停止してバインダの添加量を測定し、該測定工程の後に、回転羽根を低速回転して核燃料粉末を攪拌均一化する均一化工程を設け、該均一化工程の後に、回転羽根を高速回転して核燃料粉末を造粒する造粒工程を行う上記〔1〕に記載する造粒法。

〔3〕上記測定工程において、回転羽根を停止し、核燃料粉末にバインダを添加してバインダ添加量を調整した後に、バインダの添加量を測定する上記〔1〕または上記〔2〕に記載する造粒法。

〔4〕回転羽根の低速回転を回転数20～50rpmで行い、高速回転を300～600rpmで行う上記〔1〕～上記〔3〕の何れかに記載する造粒法。

20

〔5〕粒径500 $\mu$ m以下の核燃料造粒体を製造する上記〔1〕～上記〔4〕の何れかに記載する造粒法。

〔6〕核燃料粉末が、ウラン酸化物粉末、またはウランとプルトニウムの混合酸化物粉末であるMOX燃料粉末である上記〔1〕～上記〔5〕の何れかに記載する造粒法。

## 【発明の効果】

## 【0011】

本発明の造粒法は、回転羽根の低速回転下でバインダを添加して混合する工程において、回転羽根の低速回転によって核燃料粉末が均一化される。また低速回転下でバインダを少量ずつ添加するので、核燃料粉末にバインダが均一に添加される。例えば、低速回転の回転数は造粒が進行しない速度、例えば20～50rpmであり、バインダを少量ずつ滴下したときに、粉末に均一に添加される。

30

## 【0012】

本発明の造粒法は、回転羽根を停止してバインダの添加量を測定するので、添加量を正確に管理することができる。バインダの添加量が不正確であると造粒状態が不均一になり、微細な造粒体を効率よく製造することができないが、本発明の造粒方法はバインダの添加量を精度良く制御することができるので、例えば、粒径500 $\mu$ m以下の微細な核燃料造粒体を効率よく製造することができる。

## 【0013】

本発明の造粒法は、正確な分量のバインダを均一に添加した後に回転羽根を高速回転して造粒する方法であり、高速回転時にはバインダを添加しないので、バインダが不均一な状態での造粒を避けられ、均一な造粒体が得られる。

40

## 【0014】

本発明の造粒法は、低速回転下でバインダを少量ずつ添加するので、バインダがケーシング上部や回転羽根の軸へ飛ばされて付着する現象を抑制できる。バインダの付着部分には運転に伴って粉末層が成長し、自重を支持できない程に大きくなると、ケーシングから剥離して落下する。例えば、受け皿をセットしていない状況で粉体層が落下した場合、放射性物質の飛散を招くが、本発明を用いれば、粉体層の成長を抑制できる。

## 【0015】

本発明の造粒法は、低速回転下でバインダを少量ずつ添加するので、バインダがケーシ

50

グ上部や回転羽根の軸へ飛ばされて付着する現象を抑制できる。バインダの付着部分には運転に伴って粉末層が成長するため、トレーサビリティの悪化やホールドアップ量の増加という問題が生じるが、本発明を用いれば、粉体層の成長を抑制できる。

【0016】

本発明の造粒法は、低速回転下でバインダを少量ずつ添加するので、バインダがケーシング上部や回転羽根の軸へ飛ばされて付着する現象を抑制できる。臨界安全を確保するためには、核燃料物質の形状や重量を管理する必要があり、バインダの付着部分に成長した粉体層が無視できない程大きくなると、臨界安全性を維持できなくなるが、本発明を用いれば、粉体層の成長を抑制できる。

【図面の簡単な説明】

10

【0017】

【図1】本発明の造粒法の概略を示す工程図

【図2】回転羽根造粒装置の概略断面図

【図3】本発明の実施例の造粒工程を示す工程図

【発明を実施するための形態】

【0018】

以下、本発明を実施形態に基づいて具体的に説明する。

本発明は、回転羽根型造粒機を用いて核燃料粉末を造粒する方法において、回転羽根の低速回転下でバインダを添加して混合する混合工程と、回転羽根を停止してバインダの添加量を測定する測定工程と、バインダ添加後に回転羽根を高速回転して造粒する造粒工程を有することを特徴とする造粒法である。

20

また、本発明は、好ましくは、上記混合工程において、回転羽根を低速回転して核燃料粉末を均一化した後に、低速回転下でバインダを少量ずつ添加して攪拌混合し、次いで測定工程において、回転羽根を停止してバインダの添加量を測定し、該測定工程の後に、回転羽根を低速回転して核燃料粉末を攪拌均一化する均一化工程を設け、該均一化工程の後に、回転羽根を高速回転して核燃料粉末を造粒する造粒工程を行う造粒法である。

【0019】

本発明の造粒法の概略を図1に示す。なお、以下の説明はウラン酸化物粉末に関するが、本発明の造粒法はウラン酸化物粉末に限られない。本発明における核燃料粉末にはウラン酸化物粉末のほかに、ウランとプルトニウムの混合酸化物粉末であるMOX燃料粉末も含まれる。

30

【0020】

本発明の造粒方法は、回転羽根を低速回転してウラン酸化物粉末を攪拌し均一化する。低速回転の回転数は20～50rpmが好ましい。次いで、この低速回転下でバインダを少量ずつ添加して攪拌混合する。この低速回転下では、バインダを少量ずつ滴下したときに造粒が開始されず、回転羽根によって飛散もしないため、均一に添加される。バインダは例えば水が用いられる。

【0021】

回転羽根を高速回転してバインダを滴下すると、バインダ、あるいはバインダと共に粉末が飛ばされて装置内壁に付着する割合が高くなり、粉末に対する添加量を正確に制御することが困難である。また、高速回転下では外周部分の回転羽根の速度は非常に大きい、中央部の速度はゼロに近い。このため容器内の攪拌力は場所によって異なり、不均一になる。造粒においてはバインダと粉末の均一な混合が重要であり、バインダが偏析するとその部分が肥大した造粒体になり、均一な造粒体が得られない。

40

【0022】

このため、回転羽根型造粒機を用いて造粒する場合には、予めバインダ量を正確に制御し、かつ、原料粉末とバインダの均一性を保つことが必要になる。ただし、ウラン酸化物などの核燃料分野では、放射性的粉末の飛散を少なくするため、一定量の粉末を容器内に封入して取り扱うのが好ましい。よって、バインダ添加後に、取り分けておいた原料粉を少

50

量ずつ加える調整方法は採用しにくいいため、始めからバインダ量が過剰とならないような運転を要する。

**【0023】**

本発明の造粒方法では、バインダの添加工程と粉末の造粒工程において回転羽根の回転数を変え、造粒前にバインダを添加するための低速回転ステージを設けることによって、高速回転下でバインダを添加したときの不都合を解消した。

**【0024】**

本発明の造粒方法は、低速回転下でバインダを添加した後に、回転羽根を停止してバインダの添加量を測定する。このとき、必要に応じ、バインダを添加して添加量を調整する。バインダの添加量は、例えば、粉末の入った造粒皿の重量を電子天秤で測定して求められるが、回転羽根を回転したままでは正確な測定が難しいので、回転羽根の回転を止めて秤量する。このように、本発明の造粒方法は、バインダの添加量を厳密に管理できるように、造粒前に回転羽根を停止してバインダ量を確定するステージが設けられている。

10

**【0025】**

上記測定後に回転羽根を低速回転してバインダの偏析を防止し均一化する。次いで、回転羽根の回転を高速に切り替えてウラン酸化物粉末を造粒する。高速回転の回転数は例えば300～600rpmが好ましい。

**【0026】**

以上のように、本発明の造粒方法は、回転羽根の低速回転下でバインダを少量ずつ添加する工程と、バインダ添加後にその添加量を管理する工程とを有し、好ましくは、その前後にバインダを添加せずに低速回転で攪拌する工程とを有し、その後高速回転下で造粒することによって、バインダの偏析を防止し、均一かつ微細な造粒体、例えば、粒径500 $\mu$ m以下のウラン酸化物造粒体を再現性良く高い収率で製造することができる。

20

**【実施例】****【0027】**

本発明の実施例を以下に示す。この実施例の工程図を図3に示す。また、実施例において使用した回転羽根型造粒装置の概略を図2に示す。

本発明の造粒方法では、原料粉末（ウラン酸化物粉末）10を皿状容器11に入れ、回転羽根12を低速で回転させて混合する。次いで、低速で回転羽根12を回したまま、バインダ（水など）13をノズル14から少量ずつ徐々に添加（滴下）しながら混合し、バインダ添加後も挙動が安定するまで混合を継続する。その後、所定量のバインダが供給されるまでバインダの添加と混合を繰り返し、最終的に回転羽根を高速回転させて造粒する。

30

**【0028】**

## 〔実施例1〕

酸化ウラン( $UO_2$ )の粉末250gを皿状容器11に装荷し、回転羽根12を低速(30rpm)で回転させながら水を供給する。このとき、水の全量を供給せずに10.9wt%を供給したところで供給を停止し、回転羽根12の回転を継続して水分を酸化ウラン粉末全体に馴染ませた(低速回転時間120秒)。続いて、回転を停止し、水分量が11.7wt%になるまで水を供給した。このとき、回転羽根12が回転している状態では皿上の重量を電子天秤で正確に測定することが難しいので、造粒装置から皿状容器11を取り外して秤量した。水量確定後、再び回転羽根12を低速(30rpm)で120秒回転して粉体全体を均一化した。その後、回転羽根12を高速(500rpm)で120秒回転して粉体を造粒した。この造粒によって、造粒体を97.7%の高い回収率で得た。また、その全量が目標とする粒径500 $\mu$ m以下であった。

40

**【0029】**

## 〔実施例2〕

酸化ウラン粉末250gを皿状容器11に入れ、回転羽根12を低速(30rpm)で回転させながら水12.2wt%を供給したところで水の供給を停止し、回転羽根12の回転を継続して水分を酸化ウラン粉末全体に馴染ませた(低速回転時間120秒)。次いで回転羽根12の回転を停止し、水分量が12.6wt%になるまで水を供給し、造粒装置から皿

50

状容器 1 1 を取り外して水分量を秤量した。水量確定後、再び回転羽根 1 2 を低速 (3 0 rpm) で 1 2 0 秒回転して粉体全体を均一化した。その後、回転羽根 1 2 を高速 (5 0 0 rpm) で 6 0 秒回転して粉体を造粒した。造粒体の回収率は 9 8 . 0 % であり、その全量が目標とする粒径 5 0 0  $\mu$  m 以下であった。

【0 0 3 0】

〔比較例 1〕

酸化ウラン粉末 2 5 0 g を皿状容器 1 1 に入れ、回転羽根 1 2 を低速 (3 0 rpm) で回転させながら水 1 3 wt% を供給し、回転羽根 1 2 の回転を継続して水分を酸化ウラン粉末全体に馴染ませた (低速回転時間 1 2 0 秒)。引き続き、回転羽根 1 2 を低速 (3 0 rpm) で 1 2 0 秒回転して粉体全体を均一化した。その後、回転羽根 1 2 を高速 (5 0 0 rpm) で 1 2 0 秒回転して粉体を造粒した。造粒体は何れも不良品であった。

10

【0 0 3 1】

〔比較例 2〕

酸化ウラン粉末 2 5 0 g を皿状容器 1 1 に入れ、回転羽根 1 2 を高速 (5 0 0 rpm) で回転させながら水 1 5 . 6 wt% を供給し、回転羽根 1 2 の高速回転を 9 0 秒継続して粉体を造粒した。造粒体の回収率は 3 8 . 9 % であり、そのうち 5 0 0  $\mu$  m 以下の割合は 2 1 . 1 % であった。

【0 0 3 2】

〔比較例 3〕

酸化ウラン粉末 2 5 0 g を皿状容器 1 1 に入れ、回転羽根 1 2 を高速 (5 0 0 rpm) で回転させながら水 1 4 . 8 wt% を供給し、回転羽根 1 2 の高速回転を 9 0 秒継続して粉体を造粒した。造粒体の回収率は 8 6 . 4 % であり、そのうち 5 0 0  $\mu$  m 以下の割合は 3 0 . 7 % であった。

20

【0 0 3 3】

〔比較例 4〕

酸化ウラン粉末 2 5 0 g を皿状容器 1 1 に入れ、回転羽根 1 2 を高速 (5 0 0 rpm) で回転させながら水 1 4 . 8 wt% を供給し、回転羽根 1 2 の高速回転を 2 1 0 秒継続して粉体を造粒した。造粒体の回収率は 7 4 . 9 % であり、そのうち 5 0 0  $\mu$  m 以下の割合は 4 6 . 7 % であった。

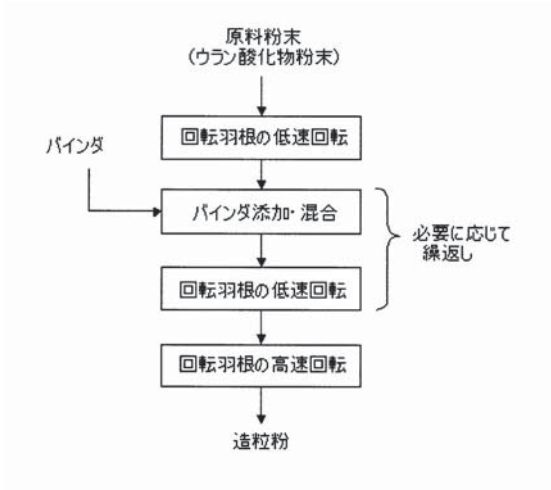
【符号の説明】

30

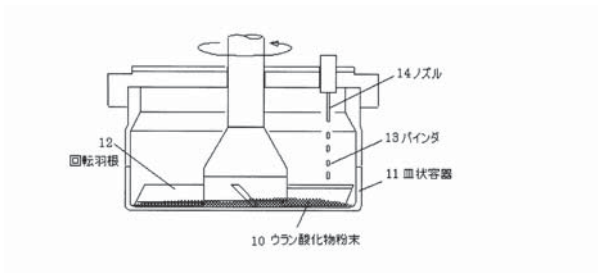
【0 0 3 4】

1 0 - ウラン酸化物粉末、1 1 - 皿状容器、1 2 - 回転羽根、1 3 - バインダ、1 4 - ノズル。

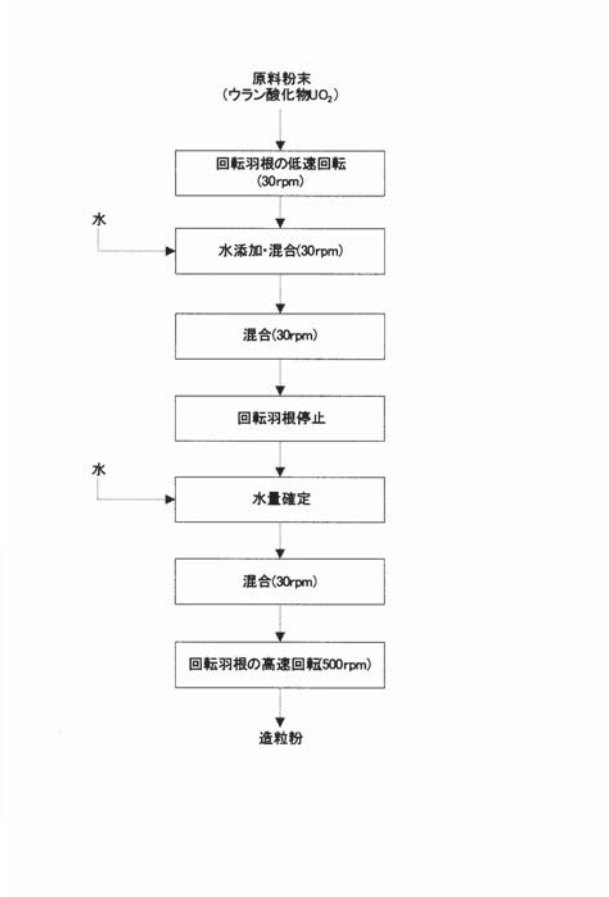
【図1】



【図2】



【図3】



## フロントページの続き

- (72)発明者 宗片 英樹  
茨城県那珂市向山1002-14 三菱マテリアル株式会社エネルギー事業センター那珂エネルギー開発研究所内
- (72)発明者 山本 琢磨  
茨城県那珂市向山1002-14 三菱マテリアル株式会社エネルギー事業センター那珂エネルギー開発研究所内
- (72)発明者 石井 克典  
茨城県那珂郡東海村村松4番地33 独立行政法人日本原子力研究開発機構 東海研究開発センター核燃料サイクル工学研究所内
- (72)発明者 瀬川 智臣  
茨城県那珂郡東海村村松4番地33 独立行政法人日本原子力研究開発機構 東海研究開発センター核燃料サイクル工学研究所内
- (72)発明者 鈴木 政浩  
茨城県那珂郡東海村村松4番地33 独立行政法人日本原子力研究開発機構 東海研究開発センター核燃料サイクル工学研究所内
- (72)発明者 加藤 良幸  
茨城県那珂郡東海村村松4番地33 独立行政法人日本原子力研究開発機構 東海研究開発センター核燃料サイクル工学研究所内
- (72)発明者 栗田 勉  
茨城県那珂郡東海村村松4番地33 独立行政法人日本原子力研究開発機構 東海研究開発センター核燃料サイクル工学研究所内

審査官 青木 洋平

- (56)参考文献 特開平11-183686 (JP, A)  
特開2010-190717 (JP, A)  
特開昭61-178031 (JP, A)  
特開2010-190719 (JP, A)  
特開2010-190718 (JP, A)

## (58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

G21C 3/62  
G21C 21/02  
B01J 2/10