

気相吸着法による同位体分離技術を用いた

窒化物燃料のコスト評価

Cost Evaluation of Nitride Fuel by the Isotope Separation Method of Pressure Swing Adsorption

松尾雄司*・泉順**・滑川卓志***
Yuhji MATSUO Jun IZUMI Takashi NAMEKAWA

Nitride fuel is considered as a possible option for Fast Breeder Reactors (FBRs). In order to use this type of fuel, it is necessary to separate N15 from N14 efficiently. It is known that $^{14}\text{NH}_3$ molecules are adsorbed to Na-A type zeolite faster than $^{15}\text{NH}_3$ molecules, and making use of this difference, we can separate N15 from N14 by the method of Pressure Swing Adsorption (PSA). We simulated the adsorption of NH_3 to Na-A type zeolite and found the best N15 concentration process using this method. Then we evaluated the cost of nitride fuel, to find that this method is sufficiently economical.

Keywords: FBR, Nitride fuel, Isotope Separation, Pressure Swing Adsorption, Zeolite

1. はじめに

高速増殖炉 (FBR) は高速中性子を用いて U238 を Pu239 へと転換することにより発電中に燃料を増殖させることを可能とする新型の原子炉であり、ウラン資源の乏しいわが国では 2050 年頃の実用化を目指し積極的に研究開発が行われている。FBR に用いる燃料としては主に酸化物燃料 (MOX 燃料) を中心として研究が進められているが、他のオプションとして、より高い融点と熱伝導度を有する窒化物燃料・金属燃料が検討されている。このうち、窒化物燃料では天然窒素を用いた場合には N14 が照射されて放射性核種である C14 が生成するため、C14 を生成しない N15 を用いて窒化物を製造することが必要となる。しかし N15 は現在 7 万円/g 程度と高価であり、より安価な N15 製造法を得ることが最大の課題となる。

本研究では、気相 (アンモニア状態) での吸着性能の差を用いた窒素同位体分離方法に基づく濃縮プロセスの概念を構築し、これにより窒化物燃料の経済的成立性の評価を行った。

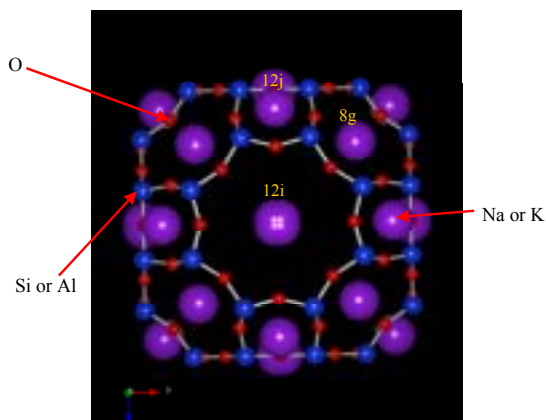


図 1 Na-A 型ゼオライトの結晶構造

2. 気相吸着法による同位体分離方法の概要

2.1 同位体分離の原理

本手法では吸着剤として、Na-A 型ゼオライトを焼成し、性質を整えたものを用いる。Na-A 型ゼオライトは図 1 に示すような結晶構造を有し、8 員環 (図中の 12i) と呼ばれる窓部をもつ。この窓の径 (約 24.55 Å) よりも小さな気体分子は窓を通過して結晶構造内に拡散し得るため、Na-A 型ゼオライトからなる吸着剤は窓径以下の分子サイズの気体を多量に吸着し、より大きな分子は吸着しない、いわゆる「分子篩効果」をもつことが知られている¹⁾。

* (財) 日本エネルギー経済研究所 計量分析ユニット

〒104-0054 東京都中央区勝どき 1-13-1

e-mail matsuo@edmc.ieej.or.jp

** 吸着技術工業株式会社

〒856-0026 長崎県大村市池田 2-1303-8

*** (独) 日本原子力研究開発機構 次世代原子力システム研究開発部門

〒319-1112 茨城県那珂郡東海村村松 4-33 核燃料サイクル工学研究所内

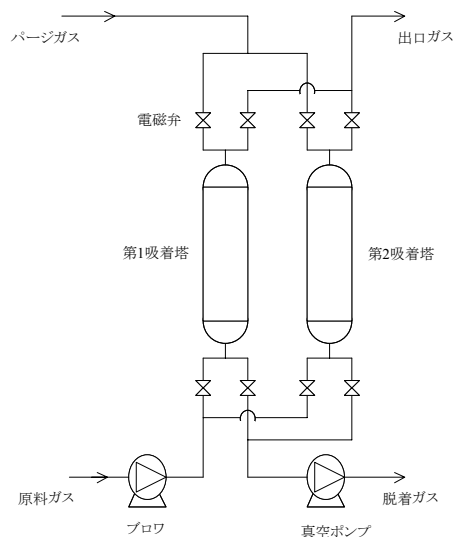


図2 2塔式 PSA の概念図

この吸着剤にアンモニア分子 ($^{14}\text{NH}_3$ 及び $^{15}\text{NH}_3$) が吸着される際には、質量のより小さな $^{14}\text{NH}_3$ が $^{15}\text{NH}_3$ に比べてより速く窓部を通過する。従って $^{14}\text{NH}_3$ と $^{15}\text{NH}_3$ とでは最終的な吸着量自体には大きな差は見られないものの、吸着される速度に差が生じることとなる。本手法では、この吸着速度の差を利用して $^{14}\text{NH}_3$ と $^{15}\text{NH}_3$ との分離を行う。

2.2 気相吸着法の原理

上記の原理に基づき、気相状態での吸着を用いる手法、特に PSA 法 (Pressure Swing Adsorption: 圧力スイング吸着法) と呼ばれる方法を用いて同位体の分離を行う。ここでは図 2 に示すように、吸着材を吸着塔に充填し、そこに原料ガスを導入して易吸着成分を吸着させて難吸着成分を出口から回収し、その後原料ガスの導入を止めて吸着塔を減圧することにより易吸着成分を脱着・回収する。また必要に応じて脱着後の吸着塔をパージ (洗浄) することも行われる。この方法は化学変化を伴わない常温常圧域での気相プロセスを用いることから、濃縮設備の構成及び仕様様が極めて簡素なものとなり、一般産業分野においては空気からの酸素製造装置などとして広く用いられている。同位体濃縮のプロセスとしても従来法に比べて卓越した経済的優位性を示す可能性がある。

PSA 法によるガスの分離・濃縮に際しては、効率性の観点から連続運転を行う必要があるが、1塔のみの吸着塔による運転ではこれを行うことができない。そのため、同一の吸着材を充填した複数の吸着塔を用い、吸着材の性能やガス分離の目的に応じた吸脱着プロセスを工夫してより高効率の濃縮を行うことが求められる。図 2 は 2 塔式 PSA の概念図である。ここでは第 1 塔で吸着を行う間に第 2 塔では脱着及びパージを行い、逆に第 1 塔で脱着及びパージを行う間に第 2 塔では吸着を行うことにより連続的にガス分離を行うことが可能となるよう設計されている。

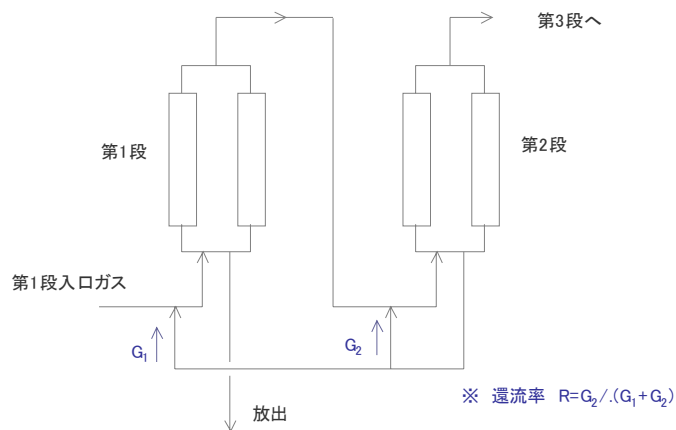


図3 濃縮プロセスの概念図

2.3 Na-A 型ゼオライトを用いた吸着剤の分離性能

Na-A 型吸着剤を用いた PSA 法による $^{14}\text{NH}_3$ と $^{15}\text{NH}_3$ との分離性能評価については、既に報告済みである²⁾。ここでは、図 2 のような試験装置を用いた試験を行い、質量分析計を用いた出口ガスの分析を行うことにより、同位体分離比 2.7 程度の結果を得ている。この試験結果を用いて、以下プロセスシミュレーションにより濃縮プロセスを設計し、窒化物燃料のコスト評価を行った。コスト評価に当て用いた条件及び試験結果を表 1 に示す。

表 1 コスト評価に用いた実験データ

入口流量	12.1 IN/batch
出口流量	11.5 IN/batch
吸着時間	25 s
吸着材料	120 g
出口 $^{15}\text{NH}_3$ 濃度	0.37 %
入口 $^{15}\text{NH}_3$ 濃度	1.01 %
パージ率	400 %
吸着圧力	1.5 atm

3 . 窒化物燃料のコスト評価

3.1 評価方法

上記の試験結果を用い、以下の手順に従ってコスト評価を行った。

プロセスシミュレーション

単段の吸着塔を用いた濃縮で得られたガスは N15 の存在比が 2.7 倍程度となったのみであり、99.9% の N15 を得るためには更に多段の濃縮を行う必要がある。このため、プロセスシミュレーションにより高い回収率で高純度の N15 を製造するために必要な吸着塔の段数及び濃縮フローを検討する。

N15 濃縮コストの評価

上記の濃縮プロセスに従って商用規模の濃縮設備概念を構築し、N15 濃縮のコスト評価を行う。

窒化物燃料のコスト評価

得られた N15 濃縮コストから、本手法を用いた窒化物燃料製造がコスト的に成立し得るものであるかを評価する。

3.2 プロセスシミュレーション

(1) シミュレーション方法

プロセスシミュレーションを行うに当たって、図 3 のプロセスを想定した。まず、N15 の収率を上げるために、第 2 段以降で脱着したガスの一部は一つ前の段の入口ガスに戻す。また、全体の装置規模を抑えるために、脱着ガスの全てを前段に戻すのではなく、その一部は脱着した元の段に戻すこととする。脱着ガスには He を混入して NH₃ 濃度を 10% まで落とした上で 2 つのラインに分け、一部は前の段に、残りは元の段に戻すこととする。前の段に戻すガスを G1、脱着した元の段(後段側)に戻すガスを G2 とし、 $R=G1/G2$ をここでは「還流率」と称することにする。この値を各段に対して設定することにより、最適なプロセスを設計する。

各段に還流率を設定した後、初期状態から系が安定するまでの状態をループ計算により行った。また、最終段における N15 ガス量と第一段入口側の N15 ガス量及び第一段で排出する N15 ガス量のマスを計算することにより、収束の判定を行った。各段においては、還流による状態変化が安定するまでの収束計算を行った。

シミュレーションは用いるデータを取得したプロセス試験と同様の条件(空塔速度、吸着時間、吸着材量及び吸着塔長)でのプロセスのみに使用することとし、1 バッチ当りの吸着量は入口ガスにおける各ガスの分圧に比例すると仮定した。

(2) シミュレーション結果

上記の方法により吸着段数及び各段の還流率を変化させて多ケースの計算を行い、その中で最も効率の良い結果をプロセスシミュレーション結果として採用した。これから、N15 濃縮に必要な段数は 12 段であることが判明した。シミュレーションから得られた濃縮設備仕様を表 2 に示す。

表 2 シミュレーション結果

濃縮 PSA 段数	12 段
1 段目入口ガス流量	約 300,000m ³ N/h (He:90vol%, NH ₃ :10vol%)
12 段目出口ガス流量	約 1 m ³ N/h

3.3 N15 濃縮コストの評価

(1) 濃縮設備概念の検討法

濃縮設備の概念については、以下の考え方に基づき検討を行った。

N15 の濃縮は窒素単原子の形態で濃縮することとし、これまでの濃縮試験と同じく単原子の状態でも分子を構成するアンモニア(NH₃)を原料ガスに使用する。

アンモニアの製造は工業的に確立しており、大量に入手可能であることから、N15 濃縮プラントをアンモニア製造プラントに隣接した場所に設置し、直接原料ガスを入手可能とする。

同位体濃縮に必要な、希釈ガスは濃縮試験にて使用したヘリウムガス(He)を使用するものとする。なお、He ガスはガス会社より購入することとし、外部より補給が可能な設備構成とする。

同位体濃縮設備にて ¹⁵NH₃ を回収した N14 リッチの減損アンモニアガスは、アンモニア製造工場に返却するものとする。

同位体濃縮設備の規模生産能力は以下の通りとした。

- ・生産規模 : 約 6.5 ton/year/ N15
- ・製品 N15 純度 : 99.9 %-N15
- ・1 段目 PSA 入口ガス流量 : 約 300,000 m³/h (normal)
濃縮装置のプロセス条件及び仕様は表 2 に従った。

(2) N15 濃縮コスト

上記の仕様に従い、以下の項目から建設費及び運転維持費を試算した。

- ・建設費
第 1 ~ 12 段濃縮ユニット、He ガス回収ユニット、N15 製造ユニット、機器開発費、機器設計費、建屋付帯設備
- ・運転維持費
原料ガス費用、ユーティリティ費用、人件費、定検費用

この結果、今回の試算では設備建設費が 776 億円となった。一方、運転維持費は年間 37 億円となった。

設備の原価償却期間を 10 年とすると、年間 6.5ton の N15 を濃縮生産するのに必要な相当額は(年間運転維持費) + (設備建設費) / 10 = 114.6 億円となる。これより、N15 の価格は約 1760 円/g となり、現行の価格(7 万円/g)に比べ非常に魅力的である。

3.4 窒化物燃料のコスト評価

(1) 検討の前提条件

将来の原子力による発電設備容量は約 5,800 万

IEEJ：2008年2月掲載

KWe(58GWe)と推定されている³⁾。以下この発電設備容量を窒化物燃料により100%供給するとの前提で、窒化物ペレット燃料・窒化物被覆粒子燃料の2種について検討する。

(2) ¹⁵N₂ガス需要量

(a) 窒化物ペレット燃料

高速増殖炉サイクル実用化戦略調査研究(FS)⁴⁾において、0.75GWe鉛-ピスマス合金冷却中型規模発電炉では、18ヶ月サイクルで1/6炉心の燃料交換を行うとしている。資源重視型と経済性重視型の2つの燃料構成炉心を設定しているが、ここでは後者を前提とする。この場合、再処理施設の酸化工程での使用済燃料中の¹⁵Nの回収率を90%として、58GWeあたりの年間供給量は2,760 kg/yと試算される。

(b) 窒化物被覆粒子燃料

1.5GWeヘリウムガス冷却炉大型規模発電炉は、18ヶ月サイクルで1/6炉心の燃料交換を行うとしている。この場合、58GWeあたりの年間供給量は5,380kg/yとなる。

(3) 窒素濃縮プラント規模の設定

通常運転時の燃料需要は9年間で1炉心分がリサイクルされる。また、当該発電炉の立上げ時には1炉心分の燃料が必要となる。発電炉寿命は60年であるから、年間平均の合計の燃料需要は1/9+1/60=69/540炉心分となる。したがって、合計年平均需要/通常運転時年平均需要=96/540/1/9=1.15倍となる。裕度を見て1.2倍とすれば、窒素濃縮プラントの最大想定年間供給規模は5,380×1.2=約6,500kgとなる。

(4) 燃料製造プラントの経済性評価

FSにおける経済性評価をベースに、窒化物ペレット燃料及び窒化物被覆粒子燃料の製造単価の見積りを行った。

現在の200 t HM/yの施設規模を想定した燃料製造単価の評価値を表3に示す。ここではウラン及びプルトニウム原料の調達費はゼロとしている。この中で、¹⁵N₂ガスの購入費は操業費の一部を占め、窒化物ペレット燃料の場合、8.2万円/kgHM中0.63万円/kgHMである。また、窒化物被覆粒子燃料の場合、9.8万円中1.06万円/kgHMである。いずれも、¹⁵N₂ガスの購入単価1,000円/gの見積り値である。¹⁵N₂ガスの購入単価を上記3.3節で得られた1,760円/gとした場合の製造単価を表4に記載する。窒化物ペレット燃料で約2%、窒化物被覆粒子燃料で約4%のコスト増となる。もし仮に1760円/gの¹⁵N₂ガスが500円/gとなったとしても、燃料製造単価は例えば窒化物ペレット燃料で2%増が2%減になるのみであり、このレベルでは¹⁵N₂購入単価は燃料製造単価に対して殆ど影響しないと考えられる。このことから、気相吸着法による窒素同位体濃縮は十分な経済性を有するものと評価することができる。

表3 窒化物燃料製造単価

(¹⁵N₂ガス購入単価を1000円/gとした場合)

(万円/kgHM)	窒化物ペレット燃料	窒化物被覆粒子燃料
資本費	7.1	7.2
操業費	8.2	9.8
部材費	5.0	5.0
合計	20.3	22.0

表4 窒化物燃料製造単価

(¹⁵N₂ガス購入単価を1760円/gとした場合)

(万円/kgHM)	窒化物ペレット燃料	窒化物被覆粒子燃料
資本費	7.1	7.2
操業費	8.7	10.6
部材費	5.0	5.0
合計	20.8	22.8

4. まとめと今後の課題

気相吸着法(PSA法)による窒素同位体分離の試験結果をもとに最適な濃縮プロセスを設計し、それをもとに窒化物燃料のコストを試算した。その結果、本濃縮手法は窒化物燃料製造に対して十分な経済性を有することがわかった。但しここで前提として用いた同位体分離試験は低濃度のN15を2.7倍程度まで濃縮したものであり、実用化のためには高濃度側を含めた多段の試験を行い実際に高濃度までN15を濃縮する試験を実施することが必要である。

本手法は気体状態の分子篩効果を利用する汎用的な手法であり、窒素同位体のみならず炭素・珪素など比較的軽い他元素の同位体分離にも適用し得るものと考えられる。今後の吸着剤の改良及び手法の向上が望まれるところである。

参考文献

- 1) "Oxygen selectivity of calcined Na-A Type Zeolite at Low Temperature", J. Izumi and M. Suzuki, ADSORPTION, vol.6, pp.27-39(2000)
- 2) 「平成16年度 気相吸着法による窒素同位体濃縮技術開発成果報告書」財団法人 産業創造研究所(2005)
- 3) 経済産業省「原子力立国計画」(2006)
- 4) 「高速増殖炉サイクルの実用化戦略調査研究フェーズ 技術検討書-(2)燃料サイクルシステム-」JAEA-Research 2006-043(2006)

お問合せ：report@tky.ieej.or.jp