

高速炉サイクル実用化に向けた工学規模の MOX 燃料製造技術開発試験結果 (I)

—焼結ペレットの O/M 比調整試験—

Engineering Scale Development Test of MOX Fuel Fabrication Technology
to Establish Commercialized Fast Reactor Fuel (I)
- The O/M Ratio Preparation Tests of Sintered Pellets-

高藤 清人 村上 龍敏 鈴木 紀一 柴沼 公和
畑中 延浩 山口 文吾 飛田 良正 篠崎 雄
飯村 直人 沖田 高敏 青野 茂典

Kiyoto TAKATO, Tatsutoshi MURAKAMI, Kiichi SUZUKI, Kimikazu SHIBANUMA
Nobuhiro HATANAKA, Bungo YAMAGUCHI, Yoshimasa TOBITA, Masaru SHINOZAKI
Naoto IIMURA, Takatoshi OKITA and Shigenori AONO

東海研究開発センター
核燃料サイクル工学研究所
プルトニウム燃料技術開発センター
燃料技術部

Fuel Technology Department
Plutonium Fuel Development Center
Nuclear Fuel Cycle Engineering Laboratories
Tokai Research and Development Center

October 2013

本レポートは独立行政法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。
本レポートの入手並びに著作権利用に関するお問い合わせは、下記あてにお問い合わせ下さい。
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ホームページ (<http://www.jaea.go.jp>)
より発信されています。

独立行政法人日本原子力研究開発機構 研究技術情報部 研究技術情報課
〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2 番地 4
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency.
Inquiries about availability and/or copyright of this report should be addressed to
Intellectual Resources Section, Intellectual Resources Department,
Japan Atomic Energy Agency.
2-4 Shirakata Shirane, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan
Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

© Japan Atomic Energy Agency, 2013

高速炉サイクル実用化に向けた工学規模の MOX 燃料製造技術開発試験結果 (I)
—焼結ペレットの O/M 比調整試験—

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
プルトニウム燃料技術開発センター 燃料技術部
高藤 清人、村上 龍敏、鈴木 紀一、柴沼 公和、畑中 延浩、山口 文吾、
飛田 良正、篠崎 雄、飯村 直人、沖田 高敏、青野 茂典

(2013 年 5 月 24 日受理)

本書は、高速増殖炉サイクル実用化研究開発(FaCT プロジェクト)の一環として、プルトニウム燃料第三開発室で実施した燃料製造技術開発試験の一部について報告するものである。高速炉実用化燃料は、高燃焼度化に対応する目的で、燃料ペレットの酸素-金属原子数比(以下、「O/M 比」)の仕様(ノミナル値)が 1.95 と、現行の「もんじゅ」燃料仕様である 1.98 よりも低く設計されている。このような低 O/M 比の燃料ペレットの製造に係る試験として、平成 20 年 10 月から平成 22 年 11 月まで、ペレットの熱処理時の還元メカニズムが異なる二種類の O/M 比調整試験を行った。

1 つ目の試験では、バッチ式焼結炉を用いて、工学規模の焼結ペレットを Ar-5% H_2 雰囲気中で熱処理することにより、燃料ペレットの O/M 比を低く調整する技術について評価した。もう一方の試験では、これまでの「もんじゅ」燃料製造実績から得られている炭素含有率の高い予備焼結ペレットを焼結すると、残留した炭素による還元反応により燃料ペレットの O/M 比が低下するという知見から、連続予備焼結炉及び連続焼結炉を用いて、多量の有機添加剤を含む「もんじゅ」燃料仕様のグリーンペレットについて Ar-5% H_2 雰囲気中でそれぞれ予備焼結及び焼結処理を行い、残留炭素の還元反応によって低 O/M 比の燃料ペレットを製造する技術について評価した。

熱処理による O/M 比調整試験の結果、熱処理温度が高く、熱処理時間が長いほど燃料ペレットの O/M 比が低下する傾向が見られたが、その低下量は小さく、高速炉実用化燃料の O/M 比仕様である 1.95 に調整するには、長時間の熱処理が必要であると推測された。燃料ペレットを低 O/M 比に調整するために長時間を要する理由は、熱処理中に燃料ペレットから放出される酸素ポテンシャルの高いガスが焼結皿の隙間に滞留し、この滞留ガスの酸素ポテンシャルと平衡となるように燃料ペレットの O/M 比が変化するためと考えられる。低 O/M 比にペレットを調整するための熱処理時間を短縮するには、焼結皿の隙間に還元ガスが十分供給されるように焼結皿側面の開口面積を増加させるなど、焼結皿の形状を変更することが有効であると考えられる。

残留炭素の還元反応を利用した O/M 比調整法は、十分な効果があることを確認した。O/M 比を効果的に下げるためには、焼結炉内の雰囲気ガスの酸素ポテンシャルを低く管理することが重要であることが分かった。

Engineering Scale Development Test of MOX Fuel Fabrication Technology to Establish
Commercialized Fast Reactor Fuel (I)
– The O/M Ratio Preparation Tests of Sintered Pellets –

Kiyoto TAKATO, Tatsutoshi MURAKAMI, Kiichi SUZUKI, Kimikazu SHIBANUMA,
Nobuhiro HATANAKA, Bungo YAMAGUCHI, Yoshimasa TOBITA, Masaru SHINOZAKI,
Naoto IIMURA, Takatoshi OKITA and Shigenori AONO

Fuel Technology Department, Plutonium Fuel Development Center,
Nuclear Fuel Cycle Engineering Laboratories, Tokai Research and Development Center,
Japan Atomic Energy Agency
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received May 24, 2013)

This report is a part of the “Engineering Scale Development Test of MOX Fuel Fabrication Technology” carried out as part of the Fast Reactor Cycle Technology Development (FaCT) project in the Plutonium Fuel Production Facility. In order to achieve higher burn-up, the design specification of the oxygen-to-metal (O/M) ratio in the fuel is 1.95, which is lower than the design specification of the fuel for the prototype fast reactor MONJU (O/M=1.98). As the test for the fabrication of such low O/M ratio pellets, two kinds of O/M ratio adjustment tests of different reduction mechanism were conducted from October 2008 to November 2010.

In the first test, we evaluated the technology to prepare low O/M ratio fuel by annealing production scale sintered pellets in an Ar-5%H₂ atmosphere by using a batch type sintering furnace. In addition, using information we obtained from past fuel fabrication experience for MONJU that showed the O/M ratio of the sintered pellets can be reduced by residual carbon when the de-waxed pellets with high carbon content are sintered, in another test, we de-waxed the green pellets containing a large amount organic additives and sintered them in the Ar-5%H₂ atmosphere by using a continuous type de-waxing furnace and a continuous type sintering furnace, respectively, and we evaluated the technology to produce the low O/M ratio sintered pellets by the reduction due to residual carbon.

From the results of the O/M ratio adjustment test by annealing, we found the tendency that a higher annealing temperature or longer annealing time resulted in a lower O/M ratio. However, the decrease of O/M ratio was small and we estimated that a substantial annealing time was necessary to adjust the O/M ratio low. We considered that reduction of the MOX fuel

by annealing was prevented because atmosphere gas containing oxygen released from pellets remained in gaps between sintering trays, and the O/M ratio was changed to the value equilibrated with the gas having a higher oxygen potential. In order to decrease the annealing time, it is considered that changing the shape of the sintering tray is effective, such as increasing an opening area between the sintering trays so that supply gas (Ar-5% H_2) can enter the gaps.

From the results of the O/M ratio adjustment test by residual carbon, we confirmed that the O/M ratio was decreased by the reduction due to residual carbon in the de-waxed pellets. We found that it was important to keep the oxygen potential of the atmosphere gas in a sintering furnace low to decrease the O/M ratio effectively.

Keywords : FBR, Fuel Pellet Fabrication, O/M Ratio, Annealing, Residual Carbon, Oxygen Potential

目次

| | |
|-----------------------------------|----|
| 1. 序論 | 1 |
| 2. 熱処理(ガス平衡反応)による O/M 比調整試験 | 2 |
| 2.1 試験方法 | 2 |
| 2.1.1 試料 | 2 |
| 2.1.2 試験装置 | 2 |
| 2.1.3 試験条件 | 3 |
| 2.1.4 分析 | 3 |
| 2.2 試験結果と考察 | 3 |
| 2.2.1 ガス流量の影響 | 4 |
| 2.2.2 ペレット装荷量の影響 | 4 |
| 2.2.3 焼結炉内の酸素ポテンシャルの不均一による影響 | 4 |
| 2.3 結論 | 5 |
| 3. 残留炭素を利用した O/M 比調整試験 | 7 |
| 3.1 試験方法 | 7 |
| 3.1.1 試料 | 7 |
| 3.1.2 試験装置 | 7 |
| 3.1.3 試験条件 | 7 |
| 3.1.4 分析 | 7 |
| 3.2 試験結果 | 8 |
| 3.2.1 予備焼結後ペレット | 8 |
| 3.2.2 焼結ペレット | 8 |
| 3.3 考察 | 9 |
| 3.3.1 予備焼結後ペレットの炭素含有率の影響 | 9 |
| 3.3.2 予備焼結時間(焼結時間)の影響及び雰囲気ガス流量の影響 | 10 |
| 3.4 結論 | 10 |
| 4. まとめ | 12 |
| 4.1 熱処理(ガス平衡反応)による O/M 比調整試験 | 12 |
| 4.2 残留炭素を利用した O/M 比調整試験 | 12 |
| 謝辞 | 13 |
| 参考文献 | 13 |

Contents

1 . Introduction-----1

2 . The O/M ratio preparation by heat treatment (Gas equilibrium method)-----2

 2.1 Test method-----2

 2.1.1 Specimen-----2

 2.1.2 Test equipment -----2

 2.1.3 Test conditions-----3

 2.1.4 Analysis of samples-----3

 2.2 Results and Discussion-----3

 2.2.1 Influence of supply gas flow rate on O/M ratio-----4

 2.2.2 Influence of amount of loaded pellets in the furnace on O/M ratio-----4

 2.2.3 Influence of Oxygen potential in a furnace on O/M ratio -----4

 2.3 Conclusion-----5

3 . The O/M ratio preparation by carbothermic reduction-----7

 3.1 Test method-----7

 3.1.1 Specimen-----7

 3.1.2 Test equipment -----7

 3.1.3 Test conditions-----7

 3.1.4 Analysis of samples-----7

 3.2 Results-----8

 3.2.1 De-waxed pellets-----8

 3.2.2 Sintered pellets-----8

 3.3 Discussion-----9

 3.3.1 Influence of carbon content in de-waxed pellets on O/M ratio-----9

 3.3.2 Influence of sintering time and supply gas flow rate on O/M ratio -----10

 3.4 Conclusion-----10

4 . Summary-----12

 4.1 The O/M ratio preparation by heat treatment (Gas equilibrium method) -----12

 4.2 The O/M ratio preparation by carbothermic reduction -----12

Acknowledgements-----13

References-----13

表リスト

| | | |
|------------|---|----|
| Table 1(a) | 各試験バッチの製造条件 (低 Pu 富化度) | 14 |
| Table 1(b) | 各試験バッチの製造条件 (高 Pu 富化度) | 14 |
| Table 2 | 試験条件 | 15 |
| Table 3 | 試験パラメータ及び試験日程 | 16 |
| Table 4 | Pu-1 の小規模試験条件 | 16 |
| Table 5 | 排気ガスの酸素ポテンシャルと平衡となる O/M 比(計算値)及び試験結果の比較 | 17 |
| Table 6(a) | 各試験バッチの試験パラメータ (低 Pu 富化度) | 18 |
| Table 6(b) | 各試験バッチの試験パラメータ (高 Pu 富化度) | 19 |

図リスト

| | | |
|-----------|---|----|
| Fig.1 | 熱処理による O/M 比調整試験の試料作製フロー | 20 |
| Fig.2 | バッチ炉の鳥瞰図 | 21 |
| Fig.3 | バッチ炉内の供給ガスの流れのイメージ | 21 |
| Fig.4 | 焼結炉内のペレット装荷状態 | 22 |
| Fig.5 | 小バッチ試験のペレット装荷状態 | 23 |
| Fig.6 | O/M 比分析用ペレット採取位置 | 24 |
| Fig.7(a) | 熱処理条件と O/M 比の変化 (低 Pu 富化度) | 25 |
| Fig.7(b) | 熱処理条件と O/M 比の変化 (高 Pu 富化度) | 25 |
| Fig.8 | 小規模試験との比較 | 26 |
| Fig.9 | 排気ガスの酸素ポテンシャルと平衡となる MOX ペレットの O/M 比の推定値 | 26 |
| Fig.10 | 熱処理時のガス流量と O/M 比の変化 | 27 |
| Fig.11 | ペレット装荷量の影響 | 27 |
| Fig.12(a) | O/M 比のペレット整列位置依存性 (水平方向) (低 Pu 富化度) | 28 |
| Fig.12(b) | O/M 比のペレット整列位置依存性 (水平方向) (高 Pu 富化度) | 28 |
| Fig.13(a) | O/M 比のペレット整列位置依存性 (高さ方向) (低 Pu 富化度) | 29 |
| Fig.13(b) | O/M 比のペレット整列位置依存性 (高さ方向) (高 Pu 富化度) | 29 |
| Fig.14 | 小規模試験のペレット装荷状態 (Pu 富化度 20wt%試験) | 30 |
| Fig.15 | バッチ炉内のガス流速の解析結果 | 31 |
| Fig.16 | ガス当たり確認試験でのペレット設置状態 | 32 |
| Fig.17 | ガス当たり確認試験 O/M 比変化及び他試験との比較 | 32 |
| Fig.18 | 残留炭素を利用した O/M 比調整試験フロー | 33 |
| Fig.19 | 試験バッチの容器構成と連続炉での熱処理単位 | 34 |
| Fig.20 | 連続予備焼結・連続焼結設備の概略図 | 35 |
| Fig.21 | 分析サンプルの採取位置 | 36 |

| | | |
|-----------|--------------------------------------|----|
| Fig.22 | 添加剤添加率と予備焼結後ペレットの炭素含有率----- | 36 |
| Fig.23 | 予備焼結後ペレットの炭素含有率と O/M 比 (炭素補正前) ----- | 37 |
| Fig.24 | 予備焼結後ペレットの炭素含有率と O/M 比 (炭素補正後) ----- | 37 |
| Fig.25 | 均一化混合粉末及び予備焼結後ペレットの O/M 比の変化----- | 38 |
| Fig.26 | 予備焼結時間と予備焼結後ペレットの O/M 比----- | 38 |
| Fig.27 | 予備焼結後ペレットの炭素含有率と焼結ペレットの O/M 比----- | 39 |
| Fig.28 | 予備焼結後ペレットの O/M 比と焼結ペレットの O/M 比----- | 39 |
| Fig.29(a) | 焼結時間と焼結前後の O/M 比の変化量(低 Pu 富化度)----- | 40 |
| Fig.29(b) | 焼結時間と焼結前後の O/M 比の変化量(高 Pu 富化度)----- | 40 |
| Fig.30 | 焼結ガス流量と焼結ペレットの O/M 比----- | 41 |
| Fig.31 | 焼結ガス流量と焼結ペレットの O/M 比の変化----- | 41 |
| Fig.32 | 焼結中の MOX ペレットの O/M 比の推移----- | 42 |

This is a blank page.

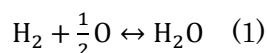
1. 序論

プルトニウム燃料技術開発センターでは、高速増殖炉サイクル実用化研究開発（FaCT プロジェクト）の一環として、FBR 燃料製造の実証施設の概念設計及び実用化に至るために必要な枢要技術を工学規模の高除染燃料で実証するとともに、実証炉を運転開始するために必要な燃料関連技術を確立することを目的として、燃料製造技術開発試験を行っている。燃料技術開発試験は複数の小試験から構成されており、このうち、O/M 比調整技術の開発試験、ダイ潤滑成型技術の開発試験、実用化燃料仕様についての開発試験等をプルトニウム燃料第三開発室（以下、「Pu-3」という。）で実施する。本報告は、このうちの O/M 比調整技術の開発試験の結果について述べるものである。

MOX ペレットの酸素-金属原子数比（以下、「O/M 比」という。）調整技術は、FaCT プロジェクトにおいて開発中の簡素化ペレット法に係る主要技術の一つである。燃料の高燃焼度化は、高速炉サイクルの経済性を大きく高めるものであるが、燃料の燃焼度が増加すると燃料-被覆管化学的相互作用（以下、「FCCI」という。）が進むことも知られている。燃料の寿命は主にこの FCCI により決定されるため、燃料ペレットの O/M 比を下げることにより、FCCI が抑制され、燃料の寿命を長くすることができる^{1,2)}。実用化燃料の目標燃焼度である 150 GWd/t の高燃焼度を達成するためには、燃料ペレットの O/M 比は 1.97 以下とする必要があり、高速炉実用化燃料の燃料ペレットの O/M 比の仕様（ノミナル値）は 1.95 と、現行の高速増殖原型炉「もんじゅ」燃料仕様の 1.98 よりも低く設計されている³⁾。

プルトニウム燃料第一開発室（以下、「Pu-1」という。）で行われた数 kgMOX の MOX ペレットを用いた小規模試験では、任意の雰囲気（H₂/H₂O 比）に調整したバッチ式焼結炉内で MOX ペレットを 10～30 時間かけて熱処理することで、O/M 比を 1.97 以下に調整できる見通しが得られている。この結果を受け、本試験では、工学規模（数 10kgMOX）での低 O/M 比調整技術の確立に向けた基礎データを取得することを目的とし、以下に示す 2 種類の低 O/M 比調整法について検討した。

まず 1 つ目の低 O/M 比調整法は、ガス平衡反応による低 O/M 比調整法である⁴⁾。Pu-1 で実施した小規模試験のように、H₂/H₂O ガス中で MOX ペレットの熱処理を行う場合、(1)式の平衡反応で与えられる自由エネルギー ΔG_fは(2)式で表現される。



$$\Delta G_f = -RT \ln \frac{P_{\text{H}_2\text{O}}}{P_{\text{H}_2} \cdot P_{\text{O}_2}^{1/2}} \quad (2)$$

ここで、R は気体定数（8.314J/molK）、T は温度(K)、P_i は成分 i の分圧(atm)である。ΔG_fは実験的に(3)式で与えられている。

$$\Delta G_f = -246440 + 54.81 \cdot T \quad (3)$$

熱処理中の MOX ペレットの O/M 比は、雰囲気ガスの酸素ポテンシャル（ΔG_{O₂} = -RTlnP_{O₂}）及び熱処理温度に依存する。雰囲気ガスの酸素ポテンシャルは、温度及び H₂/H₂O 比で決まるため、MOX ペレットの熱処理により放出される酸素や炉内構造材等の吸着酸素の影響を受けて変化する。

る。このため、工学規模で MOX ペレットの O/M 調整を行う場合、MOX ペレットの取扱量の増加に伴う酸素ポテンシャルの上昇や、焼結炉の大型化や構造の複雑化による炉内の酸素ポテンシャルの分布の複雑化により、小規模の場合に比べ O/M 調整が困難となる可能性がある。このような背景から、MOX ペレットの装荷量や熱処理炉の違いが O/M 比に与える影響を調べるため、Pu-3 に設置してある工学規模のバッチ式焼結設備（以下、「バッチ炉」という。）を用いて MOX ペレットの熱処理を行い、熱処理（ガス平衡反応）による O/M 比調整法の基礎データを取得した。

2つ目の低 O/M 比調整法は、炭素熱還元反応による調整法である。これまでの「もんじゅ」燃料製造の実績から、炭素の残留する予備焼結ペレットを焼結すると、残留炭素による還元反応により焼結ペレットの O/M 比が低下することが経験的に分かっている。この原因は、焼結中に、残留炭素がペレット内の酸素と反応して一酸化炭素ガスや二酸化炭素ガス等として抜けることで、O/M 比の低下をもたらすためと考えられる。ガス平衡反応により、MOX ペレットの O/M 比を 1.97 以下とするためには、Pu-1 の小規模試験の実績から 10～数 10 時間と長時間の熱処理時間が必要である。一方、残留炭素による熱還元反応を利用すれば、数時間の焼結で低 O/M 比の MOX ペレットを製造できる可能性がある。このため、多量の有機添加剤を含む MOX ペレットを、Pu-3 に設置してある工学規模の連続予備焼結設備及び連続焼結設備（以下、「連続炉」という。）を用いて予備焼結及び焼結し、残留炭素の熱還元反応を利用した、工学規模の O/M 比調整法の基礎データを取得した。

2. 熱処理（ガス平衡反応）による O/M 比調整試験

2.1 試験方法

熱処理による O/M 比調整試験として、焼結後の MOX ペレットを熱処理し、O/M 比の変化を測定した。

2.1.1 試料

試験に使用した MOX ペレットは、Pu-3 の工学規模設備を用いて製造された高速増殖原型炉「もんじゅ」内側燃料仕様（以下、「低 Pu 富化度」という。）及び高速増殖原型炉「もんじゅ」外側燃料仕様（以下、「高 Pu 富化度」という。）の燃料ペレットである。内側燃料仕様の Pu 富化度は約 25wt%、外側燃料仕様の Pu 富化度は約 32wt%である。焼結ペレットの O/M 比は 1.98～2.00 である。熱処理による O/M 比調整試験の試料作製フローを Fig. 1 に、各試験バッチの製造条件を Table 1(a)及び Table 1(b)に示す。

2.1.2 試験装置

熱処理は Pu-3 のバッチ炉を用いて行った。Fig.2 にバッチ炉の鳥瞰図を示す。バッチ炉は 4 つの炉（1～4 号炉）で構成されており、燃料製造技術開発試験では、各炉に約 10 kgMOX ずつ装荷して焼結処理を行っている。熱処理時の供給ガスは、ユーティリティー棟から供給される 95 %Ar-5 %H₂を使用した。供給ガスの水分含有率は、その露点が-70～-60 °Cである

ことから 10 ppm 程度と推測される。

2.1.3 試験条件

試験パラメータは、Pu 富化度、熱処理温度、熱処理時間及び炉内供給ガスの流量とした。主な試験条件を Table 2 に、試験パラメータ及び試験日程を Table 3 に示す。バッチ炉への燃料ペレット装荷量は約 10 kgMOX とし、これを 18 段重ねの Mo 製の焼結皿に装荷して熱処理を行った。Fig.3 にバッチ炉内の供給ガスの流れのイメージを、Fig.4 にバッチ炉内への焼結皿の装荷イメージを示す。また、バッチ炉への燃料ペレット装荷量が O/M 比に与える影響を確認する目的で、小バッチ試験を実施した。小バッチ試験の Pu 富化度は約 32 wt%、熱処理条件は 1,500 °C×8 h、ペレット装荷量は約 0.04 kgMOX とした。バッチ式焼結炉へのペレット装荷状態を Fig.5 示す。参考として、Pu-1 で実施された小規模試験の熱処理条件を Table 4 に示す。

2.1.4 分析

燃料ペレットの分析は、Pu-3 の分析工程において行った。試験後の O/M 比は、酸化還元重量法により測定した。O/M 比分析用のペレットは、バッチ No.1 の試験バッチでは熱処理前後に 1 個ずつ採取したが、バッチ No.2 以降の試験バッチでは、O/M 比のペレット整列位置依存性を確認するために複数箇所から採取した。分析用ペレットの採取位置を Fig.6 に示す。

2.2 試験結果と考察

熱処理前後の O/M 比の変化と熱処理温度及び熱処理時間の関係について Fig.7(a) 及び Fig.7(b) に示す。加えて、本試験結果とともに Pu-1 で行われた小規模試験の結果を Fig.8 に示す。いずれの試験バッチも、熱処理温度が高く、熱処理時間が長いほど O/M 比が下がる傾向が見られた。熱処理後の O/M 比は、最も低いものでも低 Pu 富化度で 1.978、高 Pu 富化度で 1.973 であり、目標の 1.97 以下を達成することはできなかった。一方、Pu-1 の小規模試験では、数百 gMOX の焼結ペレットを小規模試験用焼結炉で熱処理することで、O/M 比はより効率的に低下し、10～30 時間の熱処理で O/M=1.95～1.96 程度のペレットが得られている。

序論で述べたように、MOX ペレットの O/M 比は、熱処理温度とペレット周囲の雰囲気ガスの酸素ポテンシャルに依存している。このため、同様の熱処理条件（温度、時間）にもかかわらず、本試験と小規模試験での O/M 比の低下量に違いが生じた原因は、炉内の酸素ポテンシャル条件に違いがあったためと考える。

Table 5 に、本試験及び Pu-1 での小規模試験における雰囲気ガスの酸素ポテンシャルから算出した O/M 比（計算値）と試験結果の比較を示す。O/M 比の計算は Kato らの提案した計算手法³⁾を用いた。雰囲気ガスの酸素ポテンシャルは、熱処理の温度キープ終了時の排気ガスの露点を基に算出した水分量を用いて計算した。この結果、本試験では、計算値に比べ試験後の O/M 比が 0.01～0.1 ほど高かった。計算の一例として、バッチ No.19 の排気ガス露点に対する MOX ペレットの O/M 比の変化を Fig.9 に示す。キープ温度時の排気ガスの酸素ポテンシャルと平衡になる O/M 比は 1.86 と見積もられたが、熱処理後の MOX ペレット O/M 比は 1.99 であったため、排気ガスと MOX ペレットの酸素ポテンシャルは平衡には達していないと推定される。一方、Pu-1 で

実施した小規模試験では、ペレットの O/M 比は、計算で得られた O/M 比とほぼ同等となっている。これは、ペレット周囲の雰囲気ガスと排気ガスの酸素ポテンシャルが同等であることを示唆している。

以上より、ペレット周囲の雰囲気ガスの酸素ポテンシャルが高かったことが低 O/M 比調整の妨げとなった可能性が高いことが分かった。ペレット周囲の雰囲気ガスの酸素ポテンシャルが高くなった原因としては、

- (1) 供給ガスの流量が少ないため換気が不十分となり、ペレット周辺の酸素ポテンシャルが高まった。
- (2) Pu-1 の小規模試験に比べペレットの装荷量が多いことにより、熱処理中にペレットから放出される水分等の影響でペレット周囲の酸素ポテンシャルが高まった。
- (3) 小規模試験用に比べ、熱処理に用いた焼結炉が大型で内部の構造が複雑であることや焼結皿の形状の影響により、供給ガスの換気が不十分となり、炉内の酸素ポテンシャルが不均一となり、ペレット周囲の雰囲気ガスの酸素ポテンシャルが高まった。

の 3 つが考えられる。これらについて、以下の通り検討した。

2.2.1 ガス流量の影響

炉内の供給ガス流量の違いによる O/M 比変化量への影響を確認するため、バッチ No.1、2 (低 Pu 富化度) 及び 13、14 (高 Pu 富化度) の熱処理前後の O/M 比の関係を調べた。試験結果を Fig.10 に示す。この結果、ガス流量の違いに対しては、O/M 比の低下量に差は確認できず、ガスの流量が増加しても O/M 比の低下量が増加することは確認されなかった。ここから、ペレット周辺の酸素ポテンシャルが高まった原因は、ガス流量が少ないためとは言えないことが分かった。

なお、高 Pu 富化度バッチでは 2 バッチとも O/M 比の変化は見られなかったが、低 Pu 富化度バッチでは若干の低下がみられた。しかし、その低下量は小さく、熱処理後の O/M 比は 1.995 及び 1.997 と、高 Pu 富化度の初期 O/M よりも高い。このため、低 Pu 富化度バッチでのみ O/M 比が低下した原因は、主に、当該バッチの初期 O/M 比が 2.002 及び 2.001 と高めであったことによるものと考えられる。

2.2.2 ペレット装荷量の影響

ペレット装荷量の影響を確認するため、Fig.4 に示すように Pu-3 の焼結炉において焼結炉へのペレット装荷量を少量とし、試験バッチ No.15 と同条件 (1500 °C×8 h) で熱処理を行った。結果を Fig.11 に示す。この結果、ペレット装荷量を少量としても O/M 比の変化量は大量バッチ (約 10 kgMOX) の試験と同程度であった。ここから、ペレットの装荷量が多いため、ペレットから放出される酸素が多く、その影響でペレット周辺の酸素ポテンシャルが高まったとは言えないことが分かった。

2.2.3 焼結炉内の酸素ポテンシャルの不均一による影響

焼結炉の内部構造が複雑であることや焼結皿の形状の影響により、供給ガスの換気が不十

分となり、焼結炉内の酸素ポテンシャルが不均一となったために、ペレット周囲の雰囲気ガスの酸素ポテンシャルが高まった可能性がある。このため、ペレットの装荷位置によって O/M 比に違いがあるかを確認した。

Fig.12(a)及び Fig.12(b)は、熱処理前の O/M 比及び焼結皿の中央のペレットの O/M 比と、皿の端のペレットの O/M 比の比較で、炉内の水平方向の O/M 比の依存性を示している。この比較結果より、Pu-3 の試験では、供給ガスと接触しやすい焼結皿端のペレットの O/M 比は焼結皿中央のペレットよりも 0.005 から 0.01 程度低い傾向がみられた。Fig.13(a)及び Fig.13(b)は 4、10、16 枚目の焼結皿のペレットの O/M 比の平均値の比較で、炉内の高さ方向での O/M 比の依存性を示している。この結果から、焼結炉の高さ方向では O/M 比に明確な差はみられなかった。

Fig.14 に Pu-1 での小規模試験用焼結炉での焼結皿及びペレットの装荷状態を示す。この図に示す通り、Pu-1 の小規模試験では、ペレットが供給ガスに接触しやすくなるよう焼結皿外周部に整列された。これに比べ、Pu-3 の焼結皿及び炉内への装荷状態 (Fig.4 参照) では、供給ガスに直接当たる面積が少なく、この影響でペレットの O/M 比が効率的に低下しなかった可能性がある。

Fig.15 に Pu-3 のバッチ炉内のガス流速解析の結果を示す。この報告によると、供給ガスの大部分は 18 段積みの焼結皿の周囲を流れており、ペレットが積載されている焼結皿の隙間にまで入り込んでいないとされている^{4,5)}。このことから、熱処理中にペレットから放出された酸素を含むガスは、ほとんど換気されることなく焼結皿の隙間に滞留していたと考えられる。

これを確認するための追加試験として、高密度中空ペレットを焼結皿の外側 (供給ガスがよく流れていると考えられる位置) にワイヤーで固定し熱処理を行う試験を行った。Fig.16 は焼結皿に固定されたペレットの画像、Fig.17 は O/M 比の変化を大バッチの試験及び Pu-1 での小規模試験と比較したグラフである。1,500 °C で 8 時間熱処理した結果、O/M 比は 1.99 から 1.95 に低下した。この結果は、ガス流動解析の結果を裏付けるものであり、また、Pu-3 の焼結炉においても、供給ガスの当たり方が良好であれば、効率的に O/M 比を低下できることが確認された。

以上の検討から、Pu-3 のバッチ炉を使用した熱処理で O/M 比の低下量が小さかった理由は、供給ガスの多くがペレット周辺まで到達せずに排気されてしまい、熱処理中にペレットから放出された酸素ポテンシャルの高いガスが焼結皿の隙間に滞留し、この滞留ガスと平衡となる程度にしかペレットの O/M 比が変化しなかったためと考える。

2.3 結論

熱処理による低 O/M 比調整法を工学規模 (約 10kgMOX) の MOX ペレットに適用し、基礎データを取得した。この結果、以下のことがわかった。

- 熱処理温度が高く、熱処理時間が長いほど燃料ペレットの O/M 比が低下する傾向がみられた。
- Pu-3 の焼結皿を使用して熱処理を行った場合、焼結皿間のすき間に供給ガスが入らず、MOX ペレットから放出される酸素や水分等を含むガスの影響で燃料ペレット周囲の酸素ポテンシ

ヤルが上昇し、O/M 比の低下が抑制された。

以上から、工学規模の MOX ペレットを低 O/M 比に調整するための課題は、焼結皿の隙間に還元ガスが十分供給されるようにすることである。解決策の一つとして、焼結皿側面の開口面積を増加させるなど、焼結皿の形状を変更することが有効であると考えられる。

3. 残留炭素を利用した O/M 比調整試験

3.1 試験方法

残留炭素を利用した O/M 比調整試験として、有機添加剤を多量に含む「もんじゅ」燃料仕様の成型ペレットを予備焼結及び焼結し、O/M 比の変化を測定した。

3.1.1 試料

試験に使用した成型ペレットは、Pu-3 の工学規模設備を用いて製造された「もんじゅ」内側仕様 (Pu 富化度 25wt%) 及び外側仕様 (Pu 富化度 32wt%) のものである。残留炭素を利用した O/M 比調整試験フローを Fig.18 に示す。

3.1.2 試験装置

Fig.19 に試験バッチの容器構成を、Fig.20 に連続炉の概略図を示す。Fig.19 に示すように、Pu-3 の成型設備で MOX 粉末をペレットに成型後、18 枚の Mo 製の焼結皿で構成される皿搬送容器に約 10 kgMOX ずつ装荷した。これを Pu-3 のペレット製造工程設の連続炉で、予備焼結及び焼結した。

連続炉では、Fig.19 に示すように、この皿搬送容器を 3 分割し、焼結皿 6 枚ずつをスキッドに積載して、これをプッシャーでゆっくりと押しながら連続炉内部に装荷する。これにより、MOX ペレットを積載したスキッドが高温の炉内をスライドしながら進み、MOX ペレットは連続的に熱処理される。熱処理時の供給ガスは、ユーティリティー棟から供給される 95 %Ar - 5 %H₂ を使用した。連続炉で測定した供給ガスの露点は、-90~-100 °C 程度であり、水分含有率は 1 ppm 以下と推測される。

3.1.3 試験条件

試験パラメータは、Pu 富化度、有機添加剤添加率 (予備焼結後ペレットの炭素含有率)、予備焼結・焼結時間及び焼結時の炉内供給ガス流量とした。予備焼結温度及び焼結温度は、それぞれ 800 °C、1,700 °C とし、予備焼結時間及び焼結時間は共に 4 又は 6 時間とした。各試験バッチの構成と主な試験条件を Table 6(a) 及び Table 6(b) に示す。

3.1.4 分析

分析項目は、予備焼結後ペレットの炭素含有率及び O/M 比、並びに焼結ペレットの炭素含有率、O/M 比、金相及び蒸発性不純物とした。ペレットの分析は、Pu-3 の分析工程で行った。サンプルペレットの採取位置は、成型工程の代表性及び連続焼結炉内の代表位置を考慮し、焼結容器の 2 容器目の上段部 (成型工程における粉末供給の 1 容器目中間点に相当、焼結炉内の焼結皿長手方向配置の中心部に相当) とした。Fig.21 にサンプルペレットの採取位置を示す。

3.2 試験結果

3.2.1 予備焼結後ペレット

Fig.22 に添加剤添加率と予備焼結後ペレットの炭素含有率の関係を示す。約 2.4~2.7 wt%の有機添加剤（ステアリン酸亜鉛（バインダ及びルブリカントとして使用）及び結晶セルロース（ポアフォームとして使用））を添加して成型した MOX ペレットを 800 °C の Ar-H₂ 混合ガス雰囲気下で 4 時間予備焼結した結果、予備焼結後ペレットに 2,780~4,310 ppm の炭素が残留した。残留炭素量は、有機添加剤の添加率が高いと増加する傾向が見られ、本試験の予備焼結環境下では、添加剤由来の炭素が相当量残留することが分かった。

Fig.23 に予備焼結後ペレットの炭素含有率と酸化還元重量法で求めた O/M 比の関係を示す。この O/M 比に基づくと、炭素含有率の増加に応じて O/M 比が上昇する傾向が得られた。酸化還元重量法は、測定対象とする MOX ペレットの初期重量を測定し、これを空気雰囲気下で 851 °C に加熱して O/M>2.00 に酸化させた後、水素濃度 5 % の Ar-H₂ 混合ガス雰囲気下で 850 °C に加熱して O/M=2.00 に調整し、初期重量と調整後重量との差を酸素重量の変化とみなして初期の O/M 比を求める方法である。しかし、この方法では、炭素を多量に含有する予備焼結後ペレットの O/M 比を測定した場合、空気雰囲気での加熱によりペレット内から炭素が除去されるため、炭素重量の減少分も酸素重量の変化として評価され、O/M 比が実際よりも高めに見積られる可能性がある。このため、より正確な O/M 比を見積もるために、変化した酸素の重量から予備焼結後ペレットの炭素の含有量を差し引き、差し引いた変化量を酸素のみの重量変化として、O/M 比の補正を行った。Fig.24 に予備焼結後ペレットに含まれる炭素の量で O/M 比を補正した結果を示す。

この結果、予備焼結後ペレットの炭素含有率と O/M 比に、上記のような相関関係はほとんど見られなくなった。予備焼結後ペレットの O/M 比は、低 Pu 富化度燃料で約 2.09、高 Pu 富化度燃料で約 2.10 となり、高 Pu 富化度仕様で高くなった。この原因は、Fig.25 に示すように、高 Pu 富化度仕様の試験に用いたグリーンペレット（原料粉末）の O/M 比が、低 Pu 富化度仕様のものよりも高めであったためであると考えられる。また、Fig.26 に予備焼結時間と予備焼結後ペレットの O/M 比の関係を示す。予備焼結時間を 4 時間から 6 時間に長くすることにより、予備焼結後ペレットの O/M 比は低下し、4 時間の予備焼結では、ペレットの O/M 比が雰囲気ガスの酸素ポテンシャルと平衡となる値に達していないことを示した。

3.2.2 焼結ペレット

(1) 予備焼結後ペレットの炭素含有率及び Pu 富化度

Fig.27 に予備焼結後ペレットの炭素含有率と焼結ペレットの O/M 比の関係、高密度・中実ペレット試験の結果及び炭素が CO 又は CO₂ として抜けた場合の O/M 比の計算値を示す。焼結ペレットの O/M 比は、最小で 1.92、最大でも 1.98 であった。燃料製造技術開発試験の一つとして Pu-3 で実施した、ポアフォームを添加せず、焼結工程にバッチ炉を用いた「工学規模 高密度・中実ペレット試験」において、焼結ペレットの O/M 比が全て 1.98 以上であったことと比較すると、今回得られた焼結ペレットの O/M 比は、かなり低い結果となった。低 Pu 富化度仕様については、予備焼結後ペレットの炭素含有率が高いほど焼結ペレットの O/M

比が低くなる傾向が強く見られたが、高 Pu 富化度仕様ではそのような傾向は見られず、低 Pu 富化度仕様に比べ全体的に高めとなった。

(2) 予備焼結後ペレットの O/M 比

Fig.28 に予備焼結後ペレットの O/M 比と焼結ペレットの O/M 比の関係を示す。高 Pu 富化度仕様については、予備焼結後ペレットの O/M 比が低いほど焼結ペレットの O/M 比も低下する傾向が見られた。低 Pu 富化度仕様では、予備焼結後ペレットの O/M 比の範囲が狭いためか、明確な傾向は見られなかった。

(3) 予備焼結時間（焼結時間）及び雰囲気ガス流量

Fig.29(a)及び Fig.29(b)に焼結時間と焼結前後の O/M 比の変化量の関係を示す。なお、連続予備焼結炉と連続焼結炉内の搬送プログラムは一体であるため、予備焼結時間と焼結時間は連動し同一となる。高 Pu 富化度仕様においては、焼結時間（=予備焼結時間）が長くなると、雰囲気ガス流量の小さい試験バッチの焼結ペレットの O/M 比がやや上昇する傾向が見られた。一方、低 Pu 富化度仕様においては、そのような関係は見られなかった。

Fig.30 に焼結ガス流量と焼結ペレットの O/M 比の関係を、Fig.31 に焼結ガス流量と焼結前後の O/M 比の変化の関係を示す。当初、ガス流量の増加に伴い焼結ペレットの O/M 比は低下すると予想したが、予想に反して、ガス流量の増加に伴い焼結ペレットの O/M 比は上昇し、また、O/M 比の変化量も小さくなった。

3.3 考察

3.3.1 予備焼結後ペレットの炭素含有率の影響

炭素を含む MOX ペレットを真空中で加熱した試験において、約 1,100 °C以上の温度では炭素と MOX ペレット中の酸素が結びつき、CO や CO₂として放出されることが報告されている⁶⁾。このように、予備焼結後ペレット中の炭素は、焼結中に還元剤の働きをすることから、予備焼結後ペレット中の残留炭素が多いほど焼結後ペレットの O/M 比が低くなると考えられる。Fig.27 に、O/M 比=2.10 の予備焼結後ペレット中に含まれる残留炭素がすべて焼結時に還元されたと仮定した場合の焼結ペレットの O/M 比を示す。予備焼結後ペレット中に存在する 3000～4000ppm の炭素がすべて CO₂として放出された場合、焼結後ペレットの O/M 比は 1.96～1.92 にまで下がると予想される。低 Pu 富化度試験で得られた焼結後ペレットの O/M 比は 1.92～1.96 であり、残留炭素と焼結後ペレットの O/M 比の関係（Fig.26 参照）も Fig.27 とほぼ一致する。一方、高 Pu 富化度試験で得られた焼結後ペレットの O/M 比は 1.94～1.98 であり、低 Pu 富化度試験の O/M 比及び Fig.27 中の炭素がすべて CO₂として放出された場合の計算結果よりも高かった。

Murakami ら⁷⁾によると、MOX ペレット内に過剰の炭素が存在すると、平衡反応よりも炭素還元反応の方が支配的であり、ペレット中の炭素は焼結プロセスの比較的早い時期に消費されることで O/M 比も比較的早い時期に低下すると報告している。また、炭素を消費した後は、雰囲気の酸素ポテンシャルと平衡となるように、緩やかに O/M 比が上昇するとしている（Fig.32

参照)。さらに、ペレット中の炭素を消費する時期は、雰囲気中の H_2/H_2O 比が小さいほど早くなると報告している。

連続炉へのペレットの装荷方法として、低 Pu 富化度仕様の試験では試験バッチを 1 バッチずつ、高 Pu 富化度仕様の試験では 2 バッチずつとした。このため、高 Pu 富化度仕様の試験では、低 Pu 富化度仕様の試験と比較して連続炉内の雰囲気ガスの酸素ポテンシャルが高かった可能性がある。前述のように、低 Pu 富化度試験の焼結ペレットの O/M 比の方が高 Pu 富化度試験のそれよりも低く、その値は、予備焼結ペレットに含まれる炭素をすべて CO_2 として消費した場合に近かった。これは、低 Pu 富化度試験での H_2/H_2O 比が高 Pu 富化度試験のそれよりも高く（酸素ポテンシャルが低い）、炭素の消費速度が焼結終了間際まで続いたためと推測される。一方、高 Pu 富化度試験では H_2/H_2O 比が比較的低かった（酸素ポテンシャルが高い）ため、炭素の消費が焼結初期～中期に終了し、ペレットの O/M 比が雰囲気酸素ポテンシャルと平衡となるように上昇したと推測され、結果として低 Pu 富化度仕様の試験よりも O/M 比が高くなった可能性がある。

3.3.2 予備焼結時間（焼結時間）の影響及び雰囲気ガス流量の影響

高 Pu 富化度仕様の試験では、焼結時間が長いほど O/M 比が低下し、その低下量は雰囲気ガス流量が小さいほど大きくなった。一般に、ガス流量が大きいと焼結炉内の換気回数が増えるため、ペレット周囲の雰囲気酸素ポテンシャルは供給ガスの酸素ポテンシャルに近づき、O/M 比は下がる傾向となる。本試験結果はこの逆であり、その理由は不明である。

低 Pu 富化度仕様の試験では、焼結時間、雰囲気ガス流量の焼結後ペレットの O/M 比への影響は見られなかった。これは、3.3.1 で述べたように、炭素による還元が焼結終了間際まで続いたため、焼結時間や雰囲気ガス流量の影響、すなわち、ガス平衡反応による O/M 比低下効果が小さかったものと考えられる。

3.4 結論

Pu 富化度、有機添加剤添加率（予備焼結後ペレットの炭素含有率）、予備焼結・焼結時間及び焼結時の炉内供給ガス流量をパラメータに、多量の有機添加剤を含む「もんじゅ」燃料仕様のペレットを連続予備焼結炉及び連続焼結炉で予備焼結及び焼結処理を行った結果、以下のことが分かった。

- 予備焼結後ペレットには、有機添加剤添加率に応じて、約 3,000～4,000 ppm の炭素が残留した。このような予備焼結後ペレットを焼結することにより、焼結ペレットの O/M 比は 1.92～1.98 となり、予備焼結後ペレットに残留する炭素の還元反応で、焼結ペレットの O/M 比が低下することが確認された。
- 低 Pu 富化度仕様の試験において、焼結ペレットの O/M 比は高 Pu 富化度仕様の試験に比べ低くなり、O/M 比の低下量は予備焼結後ペレットに含有する残留炭素量が多いほど大きくなった。
- 高 Pu 富化度仕様の試験では、試験バッチを 2 バッチずつ炉内に装荷したことにより、炉内雰囲気ガスの酸素ポテンシャルが上昇したことで、焼結ペレットの O/M 比は高めの結果とな

ったと推測された。

以上のことから、予備焼結後ペレットに残留する炭素を利用して O/M 比を効果的に下げるためには、残留炭素の含有率を高めることと同様に、焼結炉内の雰囲気ガスの酸素ポテンシャルを低く管理することが重要であると考ええる。炭素熱還元反応による低 O/M 比調整法は、現在の設備や製造フローを大きく変更することなく実行可能な O/M 比調整法であるが、実用炉燃料で想定されている高密度燃料の製造では、有機添加剤を添加する必要がないため、燃料ペレットの製造過程で還元剤として炭素を MOX 粉末に添加する必要がある。

4. まとめ

4.1 熱処理（ガス平衡反応）による O/M 比調整試験

熱処理による O/M 比調整試験では、目標とする O/M 比 1.97 以下の MOX ペレットを得ることはできなかった。これは、焼結皿のすき間が供給ガスにより十分換気されなかったことが主な原因であると考えられる。このため、焼結皿の形状を変更することにより、供給ガスの流れを改善し燃料ペレット周囲の酸素ポテンシャルを低く保つことが出来れば、O/M 比調整に必要な時間はより短くすることができると思われる。

今後、実用化段階での MOX ペレット製造に最適な焼結設備及び焼結皿形状の検討が必要と考える。

4.2 残留炭素を利用した O/M 比調整試験

残留炭素を利用した O/M 比調整試験の結果から、残留炭素の還元反応を利用した O/M 比調整法は、十分な効果があることが分かった。この方法は、現在の設備や製造フローを大きく変更することなく実行可能な O/M 比調整法であるが、実用炉燃料で想定されている高密度燃料の製造では、有機添加剤を添加する必要がないため、燃料ペレットの製造過程で還元剤として炭素を MOX 粉末に添加する必要がある。今後、炭素の添加時期や添加量、性状などによる還元量への影響などのデータを取得する必要がある。

謝辞

本試験におけるサンプルの分析、金相試験は、プルトニウム燃料技術開発センター品質管理課にお願いしました。膨大な数の分析を快く引き受けて下さいましたことに、お礼申し上げます。

参考文献

- 1) Weber, J. W., and Jensen, E. D., “Effect of O/M ratio on irradiated mixed-oxide stainless-steel cladding compatibility”, Trans. Am. Nucl. Soc., 14(1971) pp.175-176.
- 2) Laurence, L. A., et al., “The effects of stoichiometry on cladding attack in UO₂-PuO₂”, Nucl. Technol., 42(1979) pp.195-206.
- 3) Takano, T., et al., “Development of Oxygen-to-Metal Ratio of MOX Pellet Adjustment Technology for the Simplified MOX Pellet Fabrication Method in the FaCT Project”, Proceedings of Global 2011, Makuhari, Japan, Dec. 11-16, 2011.
- 4) Kato, M., Segawa, T., Takeuchi, K., Kashimura, M., Kihara, Y., “Development of advanced fabrication process for fast reactor MOX fuel”, Proceedings of Global 2009, Paris, France, Sep. 6-11, 2009.
- 5) Kato, M., Konashi, K., Naoe, N., “Analysis of oxygen potential of (U_{0.7}Pu_{0.3})O_{2±x} and (U_{0.8}Pu_{0.2})O_{2±x} based on point defect chemistry”, J. Nucl. Mater., 389 (2009) pp.164-169.
- 6) Suzuki, Y., Arai, Y., Sasayama, T., “Carbothermic synthesis of uranium-plutonium mixed carbide”, J. Nucl. Sci. Technol., 20 (1983) pp.603-610.
- 7) Murakami, T., Kato, M., Suzuki, K., Uno, H., “Preparation of low O/M MOX pellets for fast reactors using carbothermic reduction”, Proceeding of ICAPP '10, Paper 10015, June 13-17, 2010, San Diego, CA, USA.

Table 1(a) 各試験バッチの製造条件(低Pu富化度)

| 試験バッチNo. ID/NNo. | 1 | 2 | 3 | 4 | 5 | 6 | 7 | 8 | 9 | 10 | 11 | 12 |
|---------------------|-----------------------------------|------------------------|--------------------------|-----------------------------------|-----------------------------------|-----------------------------------|-----------------------------------|-----------------------------------|-----------------------------------|-----------------------------------|-----------------------------------|-------------------------------------|
| 乾回粉種類 | L1CF0135 | L1CF0136 | L1CF0137 | L1CF0142 | L1CF0152 | L1CF0154 | L1CF0145 | L1CF0153 | L1CF0150 | L1CF0149 | L1CF0151 | |
| 乾回粉混合率 | 16% | 16% | 16% | 16% | 16% | 16% | 16% | 16% | 16% | 16% | 16% | 16% |
| 均一化混合時間 | 6時間 | 6時間 | 6時間 | 5+1時間 | 5+1時間 | 5+1時間 | 5+1時間 | 5+1時間 | 5+1時間 | 5+1時間 | 5+1時間 | 5+1時間 |
| ハインダ添加率 | 0.6wt% | 0.6wt% | 0.6wt% | 0.6wt% | 0.6wt% | 0.6wt% | 0.6wt% | 0.6wt% | 0.6wt% | 0.6wt% | 0.6wt% | 0.6wt% |
| ホアノーマ添加率 | 1.63wt% | 1.7wt% | 1.7wt% | 1.63wt% | 1.3wt% | 1.3wt% | 1.63wt% | 1.5wt% | 1.6wt% | 1.6wt% | 1.6wt% | 1.6wt% |
| ルブリカント添加率 | 0.2wt% | 0.2wt% | 0.2wt% | 0.2wt% | 0.2wt% | 0.2wt% | 0.2wt% | 0.2wt% | 0.2wt% | 0.2wt% | 0.2wt% | 0.2wt% |
| 成型圧力 | 4.5ton/cm ² | 4.5ton/cm ² | 4~4.5ton/cm ² | 4.5ton/cm ² | 4.5ton/cm ² | 4.5ton/cm ² | 4.5ton/cm ² | 4.5ton/cm ² | 4.5ton/cm ² | 4.5ton/cm ² | 4.5ton/cm ² | 4.5ton/cm ² |
| 金型径 | 6.250mm | 6.250mm | 6.250mm | 6.250mm | 6.250mm | 6.250mm | 6.250mm | 6.250mm | 6.250mm | 6.250mm | 6.250mm | 6.250mm |
| 予備焼結条件 | 800°C×4h | 800°C×4h | 800°C×4h | 800°C×4h | 800°C×4h | 800°C×4h | 800°C×4h | 800°C×4h | 800°C×4h | 800°C×4h | 800°C×4h | 800°C×4h |
| 初焼結条件 | 1700°C×4h (中間キープ 1300°C×1h) | 1700°C×4h | 1700°C×4h | 1700°C×4h (中間キープ 1200°C×1h) | 1700°C×4h (中間キープ 1200°C×1h) | 1700°C×4h (中間キープ 1200°C×1h) | 1700°C×4h (中間キープ 1200°C×1h) | 1700°C×4h (中間キープ 1200°C×1h) | 1700°C×4h (中間キープ 1200°C×1h) | 1700°C×4h (中間キープ 1200°C×1h) | 1700°C×4h (中間キープ 1200°C×1h) | 1700°C×4h (中間キープ 1200°C×2.5h) |
| 焼結密度 (標準偏差) | 測定せず | 測定せず | 83.35%TD (0.81%TD) | 83.56%TD (0.67%TD) | 83.82%TD (0.55%TD) | 測定せず | 測定せず | 測定せず | 測定せず | 測定せず | 測定せず | 測定せず |
| 脱ガス条件 | 900°C×1h | 900°C×1h | 900°C×1h | 900°C×1h | 900°C×1h | 900°C×1h | 900°C×1h | 900°C×1h | 900°C×1h | 900°C×1h | 900°C×1h | 900°C×1h |
| 脱ガス後密度 (標準偏差) | 84.10%TD (0.90%TD) | 84.23%TD (0.76%TD) | 83.83%TD (0.83%TD) | 84.03%TD (0.64%TD) | 84.41%TD (0.52%TD) | 83.12%TD (0.66%TD) | 83.99%TD (1.05%TD) | 83.33%TD (0.69%TD) | 82.92%TD (0.62%TD) | 82.75%TD (0.70%TD) | 81.81%TD (0.77%TD) | 82.25%TD (0.75%TD) |
| 再焼結条件 | 実施せず | 実施せず | 実施せず | 実施せず | 実施せず | 実施せず | 実施せず | 実施せず | 実施せず | 実施せず | 実施せず | 実施せず |
| 再焼結密度 (標準偏差) | 実施せず | 実施せず | 実施せず | 実施せず | 実施せず | 実施せず | 実施せず | 実施せず | 実施せず | 実施せず | 83.67%TD (0.91%TD) | 実施せず |

Table 1(b) 各試験バッチの製造条件(高Pu富化度)

| 試験バッチNo. ID/NNo. | 13 | 14 | 15 | 16 | 17 | 18 | 19 | 20 | 21 | 22 | 23 | 24 |
|---------------------|------------------------|------------------------|------------------------|------------------------|------------------------|------------------------|------------------------|------------------------|------------------------|------------------------|------------------------|------------------------|
| 乾回粉種類 | L1CF0255 | L1CF0251 | L1CF0258 | L1CF0252 | L1CF0266 | L1CF0257 | L1CF0242 | L1CF0243 | L1CF0253 | L1CF0236 | L1CF0254 | L1CF0237 |
| 乾回粉混合率 | 16% | 16% | 28% | 25% | 25% | 16% | 16% | 16% | 16% | 16% | 25% | 23% |
| 均一化混合時間 | 5+1時間 | 5+1時間 | 4+1時間 | 4+1時間 | 4+1時間 | 5+1時間 | 5+1時間 | 5+1時間 | 5+1時間 | 5+1時間 | 4+1時間 | 4+1時間 |
| ハインダ添加率 | 0.8wt% | 0.8wt% | 0.7wt% | 0.7wt% | 0.7wt% | 0.8wt% | 0.8wt% | 0.8wt% | 0.8wt% | 0.8wt% | 0.7wt% | 0.6wt% |
| ホアノーマ添加率 | 1.55wt% | 1.5wt% | 1.85wt% | 2.00wt% | 2.0wt% | 1.5wt% | 1.5wt% | 1.5wt% | 1.65wt% | 1.5wt% | 2.00wt% | 1.8wt% |
| ルブリカント添加率 | 0.2wt% | 0.2wt% | 0.2wt% | 0.2wt% | 0.2wt% | 0.2wt% | 0.2wt% | 0.2wt% | 0.2wt% | 0.2wt% | 0.2wt% | 0.2wt% |
| 成型圧力 | 4.5ton/cm ² | 4.5ton/cm ² | 4.5ton/cm ² | 4.5ton/cm ² | 4.5ton/cm ² | 4.5ton/cm ² | 4.5ton/cm ² | 4.5ton/cm ² | 4.5ton/cm ² | 4.5ton/cm ² | 4.5ton/cm ² | 4.5ton/cm ² |
| 金型径 | 6.300mm | 6.300mm | 6.300mm | 6.300mm | 6.300mm | 6.300mm | 6.300mm | 6.300mm | 6.300mm | 6.300mm | 6.300mm | 6.300mm |
| 予備焼結条件 | 800°C×4h | 800°C×4h | 800°C×4h | 800°C×4h | 800°C×4h | 800°C×4h | 800°C×4h | 800°C×4h | 800°C×4h | 800°C×4h | 800°C×4h | 800°C×4h |
| 初焼結条件 | 1700°C×4h | 1700°C×4h | 1700°C×4h | 1700°C×4h | 1700°C×4h | 1700°C×4h | 1700°C×4h | 1700°C×4h | 1700°C×4h | 1700°C×4h | 1700°C×4h | 1700°C×4h |
| 焼結密度 (標準偏差) | 測定せず | 83.90%TD (1.24%TD) | 測定せず | 測定せず | 測定せず | 測定せず | 測定せず | 測定せず | 測定せず | 82.61%TD (0.77%TD) | 81.93%TD (0.76%TD) | 81.87%TD (1.20%TD) |
| 脱ガス条件 | 900°C×1h | 900°C×1h | 900°C×1h | 900°C×1h | 900°C×1h | 900°C×1h | 900°C×1h | 900°C×1h | 900°C×1h | 900°C×1h | 900°C×1h | 900°C×1h |
| 脱ガス後密度 (標準偏差) | 84.47%TD (0.79%TD) | 実施せず | 83.40%TD (1.05%TD) | 82.99%TD (0.66%TD) | 83.72%TD (0.84%TD) | 84.00%TD (0.85%TD) | 83.48%TD (0.84%TD) | 83.36%TD (0.76%TD) | 82.97%TD (0.77%TD) | 84.22%TD (0.76%TD) | 82.64%TD (0.76%TD) | 83.44%TD (1.15%TD) |
| 再焼結条件 | 実施せず | 実施せず | 実施せず | 実施せず | 実施せず | 実施せず | 実施せず | 実施せず | 実施せず | 実施せず | 実施せず | 実施せず |
| 再焼結密度 (標準偏差) | 実施せず | 実施せず | 実施せず | 実施せず | 実施せず | 実施せず | 実施せず | 実施せず | 実施せず | 実施せず | 実施せず | 実施せず |

Table 2 試験条件

| 試験 バッチ No. | ロット No. | Pu 富化度 (wt%) | 熱処理前 O/M 比 の平均値 | O/M 比調整のための熱処理条件 | | | |
|------------------|----------|-----------------|-----------------------|------------------|--------------|----------------------------|------------|
| | | | | 熱処理 温度(°C) | 熱処理 時間(h) | 熱処理時の 炉内ガス 流量(L/min) | サンプ ル個数 |
| 1 | L1CF0135 | 24.7 | 2.001 | 1300 | 8 | 40(小流量) | 1 |
| 2 | L1CF0136 | 24.8 | 2.001 | 1300 | 8 | 70 | 4 |
| 3 | L1CF0137 | 24.7 | 1.982 | 1500 | 8 | 70 | 6 |
| 4 | L1CF1155 | 24.6 | 1.987 | 1600 | 4 | 70 | 6 |
| 5 | L1CF0142 | 24.8 | 1.986 | 1600 | 8 | 50 | 6 |
| 6 | L1CF0152 | 24.8 | 1.985 | 1600 | 12 | 70 | 6 |
| 7 | L1CF0154 | 24.7 | 1.995 | 1650 | 4 | 70 | 6 |
| 8 | L1CF0145 | 24.7 | 1.983 | 1650 | 8 | 70 | 6 |
| 9 | L1CF0153 | 24.7 | 1.993 | 1650 | 12 | 70 | 6 |
| 10 | L1CF0150 | 24.8 | 1.990 | 1700 | 4 | 70 | 6 |
| 11 | L1CF0149 | 24.8 | 1.984 | 1700 | 8 | 60 | 6 |
| 12 | L1CF0151 | 24.9 | 1.988 | 1750 | 4 | 70 | 6 |
| 13 | L1CF0255 | 31.7 | 1.993 | 1300 | 8 | 40(小流量) | 6 |
| 14 | L1CF0251 | 31.8 | 1.979 | 1300 | 8 | 50 | 6 |
| 15 | L1CF0258 | 31.6 | 1.991 | 1500 | 8 | 70 | 6 |
| 16 | L1CF0252 | 31.7 | 1.973 | 1600 | 4 | 50 | 6 |
| 17 | L1CF0256 | 31.8 | 1.994 | 1600 | 8 | 70 | 6 |
| 18 | L1CF0257 | 31.6 | 1.994 | 1600 | 12 | 70 | 6 |
| 19 | L1CF0242 | 31.7 | 1.993 | 1650 | 4 | 70 | 6 |
| 20 | L1CF0243 | 31.8 | 1.990 | 1650 | 8 | 70 | 6 |
| 21 | L1CF0253 | 31.7 | 1.991 | 1650 | 12 | 70 | 6 |
| 22 | L1CF0236 | 31.5 | 1.992 | 1700 | 4 | 70 | 6 |
| 23 | L1CF0254 | 31.8 | 1.986 | 1700 | 8 | 50 | 6 |
| 24 | L1CF0237 | 31.6 | 1.991 | 1750 | 4 | 70 | 6 |

Table 3 試験パラメータ及び試験日程

| 試験名称 | 試験パラメータ | 試験日程 | |
|--------------------------|--|-------------------------------|-------------------------------|
| | | 低 Pu 富化度 | 高 Pu 富化度 |
| 熱処理による O/M 比調整試験 | <ul style="list-style-type: none"> ・ Pu 富化度 ・ 熱処理温度 ・ 熱処理時間 ・ 炉内供給ガスの流量 | 平成 20 年 10 月 ~ 平成 21 年 9 月 | 平成 22 年 4 月 ~ 平成 22 年 9 月 |
| 残留炭素の還元反応を利用した O/M 比調整試験 | <ul style="list-style-type: none"> ・ Pu 富化度 ・ 有機添加材添加率（予備焼結後ペレットの炭素含有率） ・ 予備焼結時及び焼結時の炉内供給ガス流量 | 平成 22 年 9 月 ~ 平成 22 年 11 月 | 平成 21 年 10 月 ~ 平成 22 年 2 月 |

Table 4 Pu-1 の小規模試験条件

| 試験 バッチ No. | Pu 富化度 (wt%) | 熱処理前 O/M 比 | 供給ガスの 水分量(ppm) | 熱処理温 度(°C) | 焼結炉への装 荷量(gMOX) | 熱処理 時間(h) |
|---------------|-----------------|---------------|-------------------|---------------|--------------------|--------------|
| 1 | 約 20 | 1.980 | 10 | 1700 | 228 | 30 |
| 2 | 約 30 | 2.000 | 90 | 1500 | 269 | 30 |

Table 5 排気ガスの酸素ポテンシャルと平衡となる O/M 比(計算値)及び試験結果の比較

| 試験区分 | 試験 バッチ No. | ロット No. | Pu 富化度 (wt%) | 熱処理前 O/M 比 | キープ終了時の 排気ガス中 水分量(ppm) | キープ終了時の 排気ガスの酸素 ポテンシャル (kJ/mol) | O/M 比計算値 (キープ終了時) | O/M 比 試験結果 |
|-----------------|------------------|----------|-----------------|---------------|------------------------------|--|----------------------|---------------|
| Pu1 での 小規模試験 | 1 | - | 約 20 | 1.980 | 109 | -477.7 | 1.949 | 1.955 |
| | 2 | - | 約 30 | 2.000 | 167 | -466.6 | 1.970 | 1.962 |
| Pu3 での試験 | 1 | L1CF0135 | 約 25 | 2.001 | データなし | データなし | データなし | 1.997 |
| | 2 | L1CF0136 | | 2.002 | データなし | データなし | データなし | 1.995 |
| | 3 | L1CF0137 | | 1.982 | 127 | -474.7 | 1.975 | 1.983 |
| | 4 | L1CF1155 | | 1.987 | データなし | データなし | データなし | 1.983 |
| | 5 | L1CF0142 | | 1.986 | 159 | -466.7 | 1.964 | 1.981 |
| | 6 | L1CF0152 | | 1.985 | 44 | -506.7 | 1.930 | 1.982 |
| | 7 | L1CF0154 | | 1.995 | 113 | -476.9 | 1.946 | 1.981 |
| | 8 | L1CF0145 | | 1.983 | 63 | -495.6 | 1.928 | 1.978 |
| | 9 | L1CF0153 | | 1.993 | 39 | -510.9 | 1.912 | 1.980 |
| | 10 | L1CF0150 | | 1.990 | 101 | -480.2 | 1.931 | 1.983 |
| | 11 | L1CF0149 | | 1.984 | 63 | -495.7 | 1.915 | 1.978 |
| | 12 | L1CF0151 | | 1.988 | データなし | データなし | データなし | 1.982 |
| | 13 | L1CF0255 | 約 32 | 1.993 | 12 | -538.5 | 1.956 | 1.992 |
| | 14 | L1CF0251 | | 1.979 | 5 | -561.4 | 1.931 | 1.979 |
| | 15 | L1CF0258 | | 1.991 | 18 | -532.3 | 1.898 | 1.985 |
| | 16 | L1CF0252 | | 1.973 | 27 | -521.9 | 1.881 | 1.973 |
| | 17 | L1CF0256 | | 1.994 | 34 | -514.7 | 1.889 | 1.985 |
| | 18 | L1CF0257 | | 1.994 | 18 | -534.5 | 1.869 | 1.984 |
| | 19 | L1CF0242 | | 1.993 | 44 | -507.1 | 1.860 | 1.987 |
| | 20 | L1CF0243 | | 1.990 | 34 | -515.3 | 1.876 | 1.981 |
| | 21 | L1CF0253 | | 1.991 | 12 | -548.6 | 1.862 | 1.978 |
| | 22 | L1CF0236 | | 1.992 | 90 | -484.0 | 1.900 | 1.982 |
| | 23 | L1CF0254 | | 1.986 | 44 | -507.4 | 1.873 | 1.981 |
| | 24 | L1CF0237 | | 1.991 | 101 | -479.5 | 1.891 | 1.981 |

Table 6(a) 各試験バッチの試験パラメータ（低Pu 富化度）

| 試験 バッチ No. | ロット No. | Pu 富化度 | 有機添加剤添加率（予備焼結 後ペレットの炭素含有率） | 焼結時間（=予 備焼結時間） | 焼結ガス 流量 |
|------------------|----------|----------------|---|-------------------|------------|
| 1 | L1CF0161 | 低富化度 (内側仕様) | St-Zn : 0.9 wt% 結晶セルロース : 1.55 wt% (C = 3290 ppm) | 4 時間 | 150L/min |
| 2 | L1CF0162 | 低富化度 (内側仕様) | St-Zn : 0.9 wt% 結晶セルロース : 1.70 wt% (C = 3060 ppm) | 6 時間 | 150L/min |
| 3 | L1CF0163 | 低富化度 (内側仕様) | St-Zn : 1.0 wt% 結晶セルロース : 1.55 wt% (C = 3740 ppm) | 6 時間 | 150L/min |
| 4 | L1CF0164 | 低富化度 (内側仕様) | St-Zn : 0.9 wt% 結晶セルロース : 1.83 wt% (C = 4300 ppm) | 6 時間 | 115L/min |
| 5 | L1CF0165 | 低富化度 (内側仕様) | St-Zn : 0.9 wt% 結晶セルロース : 1.67 wt% (C = 2950 ppm) | 4 時間 | 115L/min |
| 6 | L1CF0166 | 低富化度 (内側仕様) | St-Zn : 0.9 wt% 結晶セルロース : 1.70 wt% (C = 3520 ppm) | 4 時間 | 115L/min |
| 7 | L1CF0167 | 低富化度 (内側仕様) | St-Zn : 0.9 wt% 結晶セルロース : 1.60 wt% (C = 2780 ppm) | 4 時間 | 150L/min |
| 8 | L1CF0168 | 低富化度 (内側仕様) | St-Zn : 0.9 wt% 結晶セルロース : 1.70 wt% (C = 2990 ppm) | 6 時間 | 115L/min |

Table 6(b) 各試験バッチの試験パラメータ (高Pu 富化度)

| 試験 バッチ No. | ロット No. | Pu 富化度 | 有機添加剤添加率 (予備焼結 後ペレットの炭素含有率) | 焼結時間 (=予 備焼結時間) | 焼結ガス 流量 |
|------------------|----------|----------------|---|--------------------|------------|
| 9 | L1CF0215 | 高富化度 (外側仕様) | St-Zn : 0.8 wt% 結晶セルロース : 1.75 wt% (C = 3210 ppm) | 4 時間 | 117L/min |
| 10 | L1CF0216 | 高富化度 (外側仕様) | St-Zn : 0.8 wt% 結晶セルロース : 1.75 wt% (C = 3200 ppm) | 4 時間 | 115L/min |
| 11 | L1CF0217 | 高富化度 (外側仕様) | St-Zn : 0.8 wt% 結晶セルロース : 1.60 wt% (C = 3270 ppm) | 4 時間 | 155L/min |
| 12 | L1CF0218 | 高富化度 (外側仕様) | St-Zn : 0.9 wt% 結晶セルロース : 1.70 wt% (C = 3600 ppm) | 4 時間 | 155L/min |
| 13 | L1CF0219 | 高富化度 (外側仕様) | St-Zn : 0.9 wt% 結晶セルロース : 1.60 wt% (C = 3120 ppm) | 6 時間 | 115L/min |
| 14 | L1CF0220 | 高富化度 (外側仕様) | St-Zn : 0.9 wt% 結晶セルロース : 1.70 wt% (C = 4310 ppm) | 6 時間 | 115L/min |
| 15 | L1CF0221 | 高富化度 (外側仕様) | St-Zn : 0.9 wt% 結晶セルロース : 1.55 wt% (C = 3550 ppm) | 6 時間 | 155L/min |
| 16 | L1CF0222 | 高富化度 (外側仕様) | St-Zn : 0.9 wt% 結晶セルロース : 1.65 wt% (C = 3830 ppm) | 6 時間 | 155L/min |

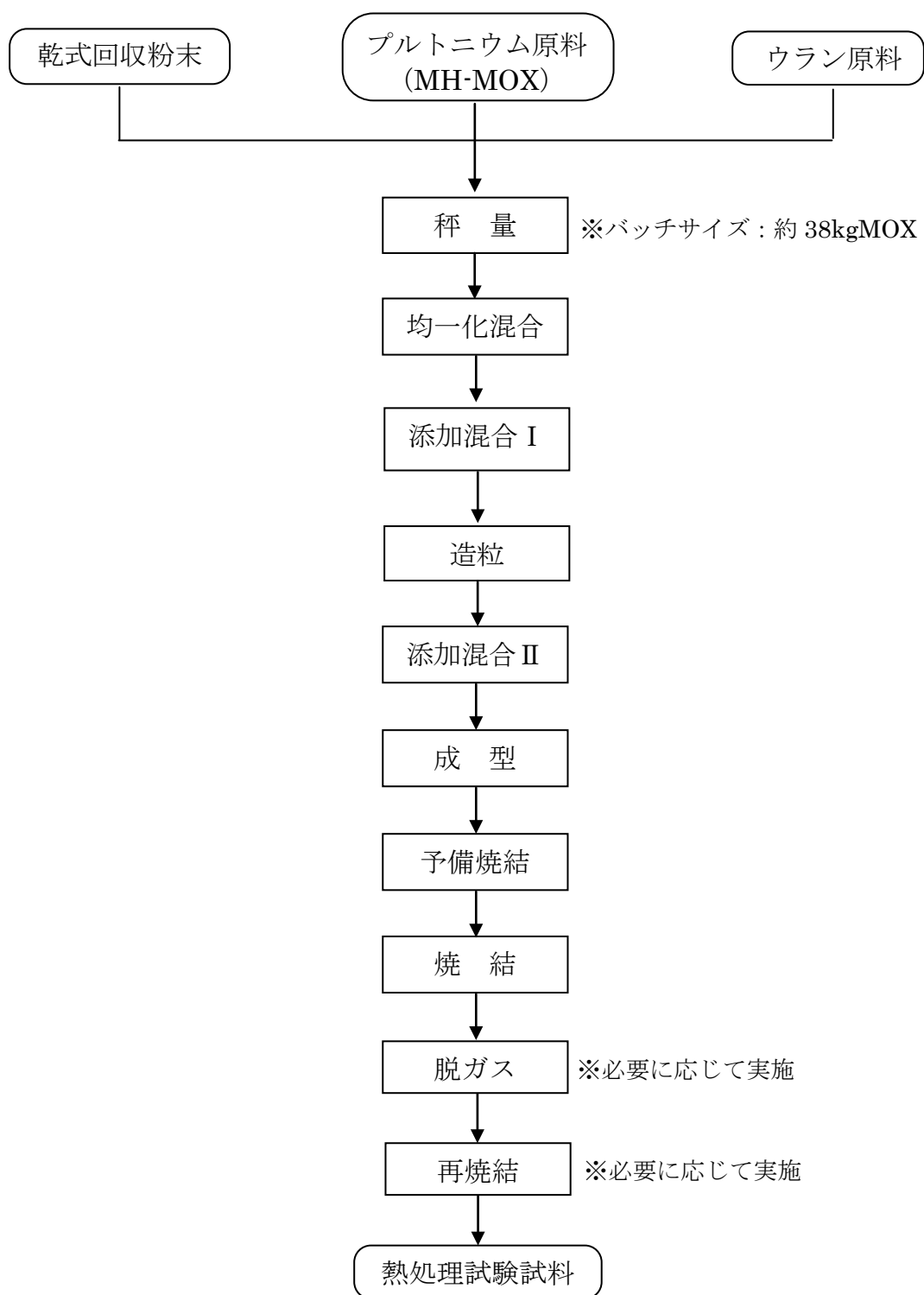


Fig.1 熱処理による O/M 比調整試験の試料作製フロー

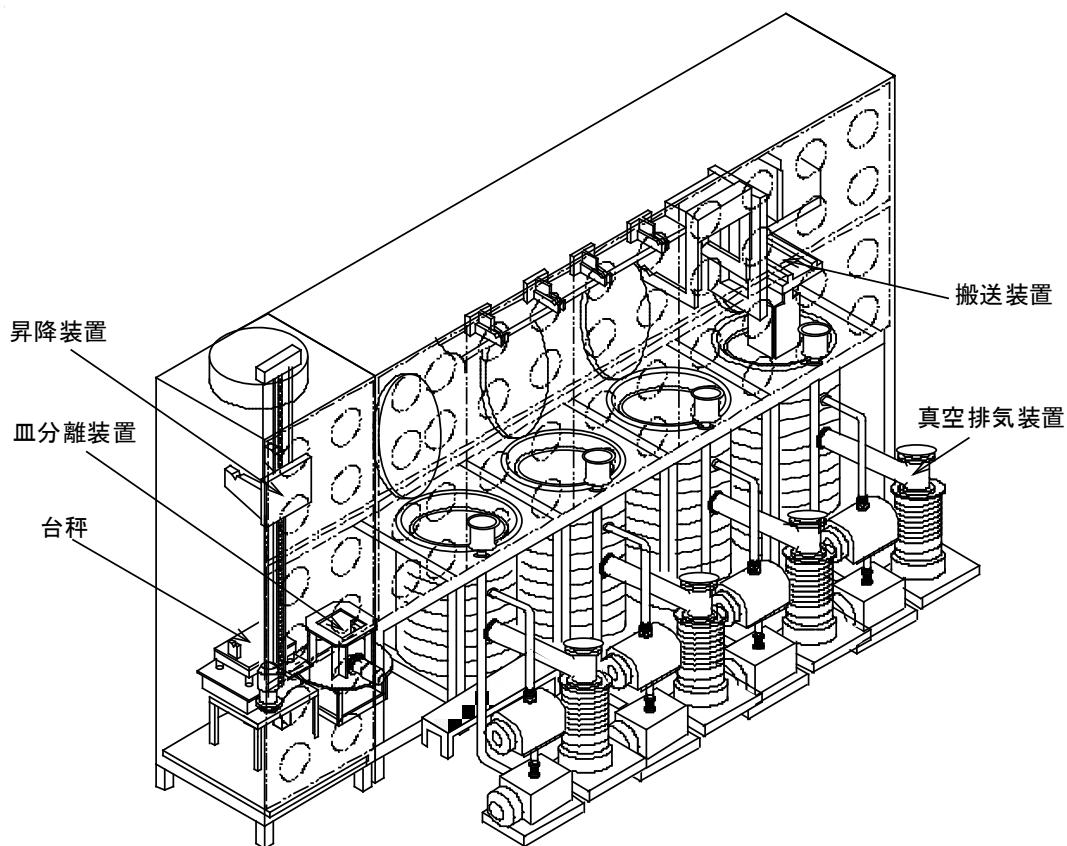


Fig.2 バッチ炉の鳥瞰図

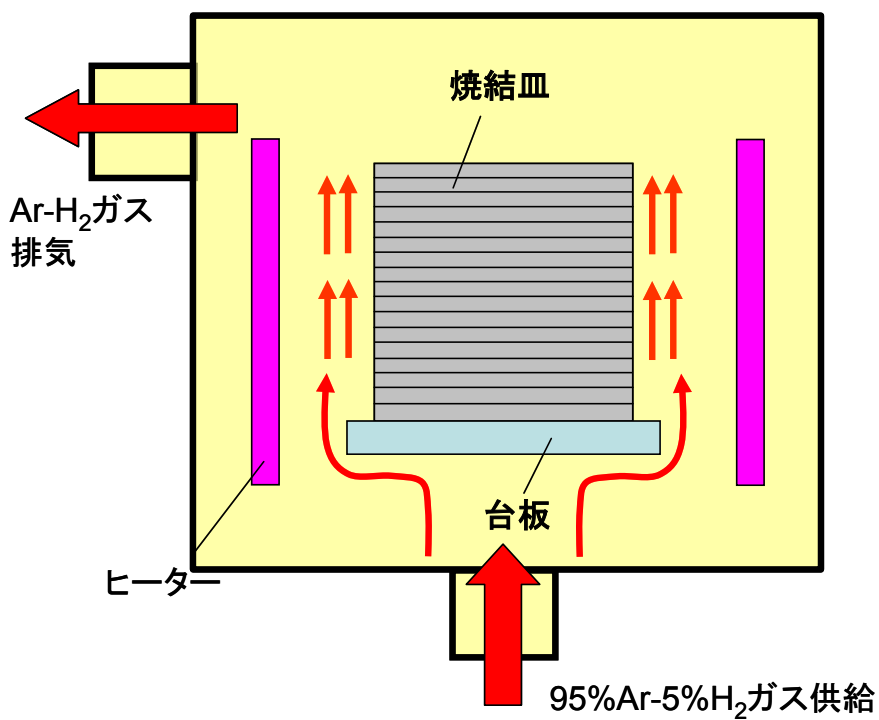


Fig.3 バッチ炉内の供給ガスの流れのイメージ

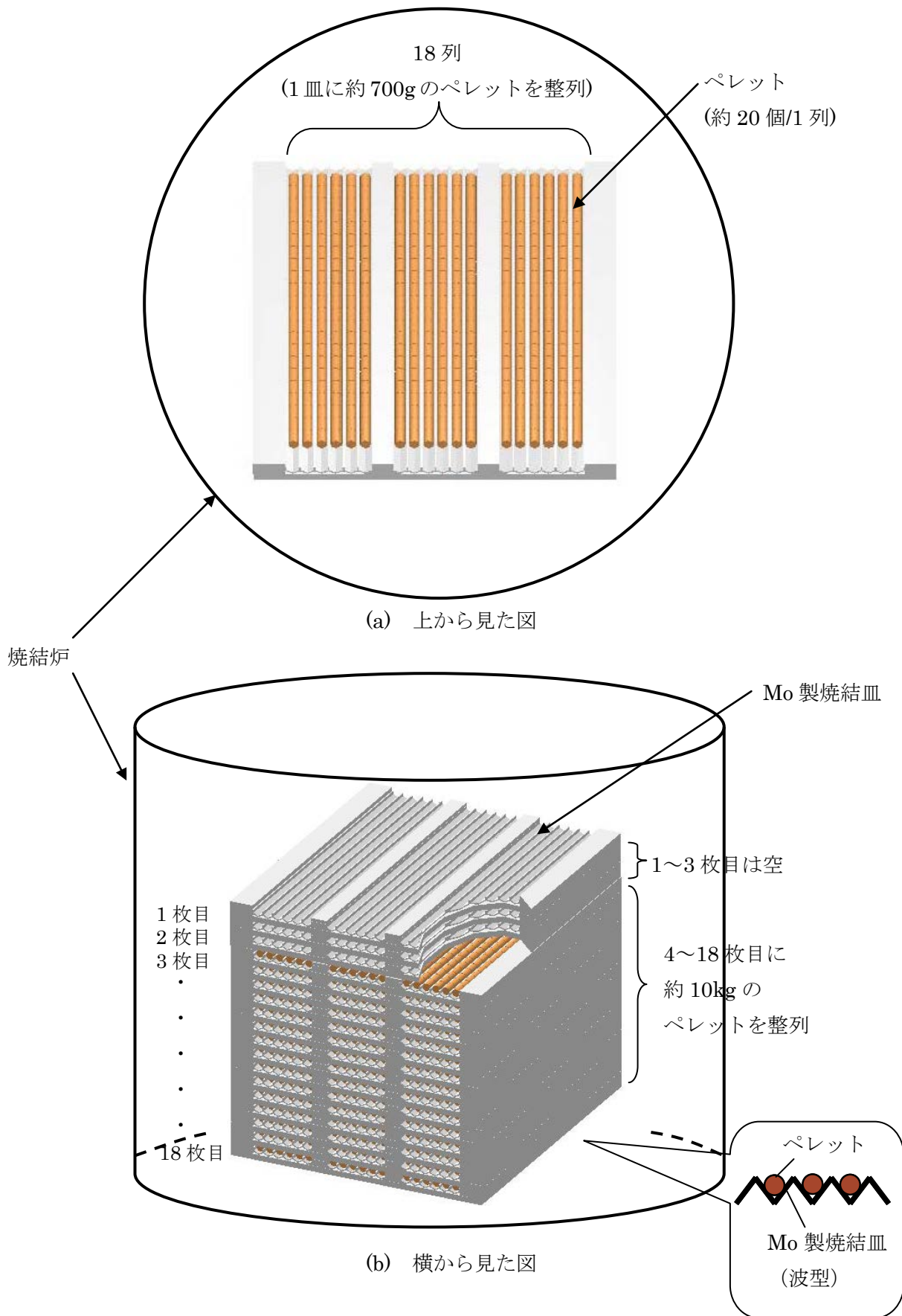


Fig. 4 焼結炉内のペレット装荷状態

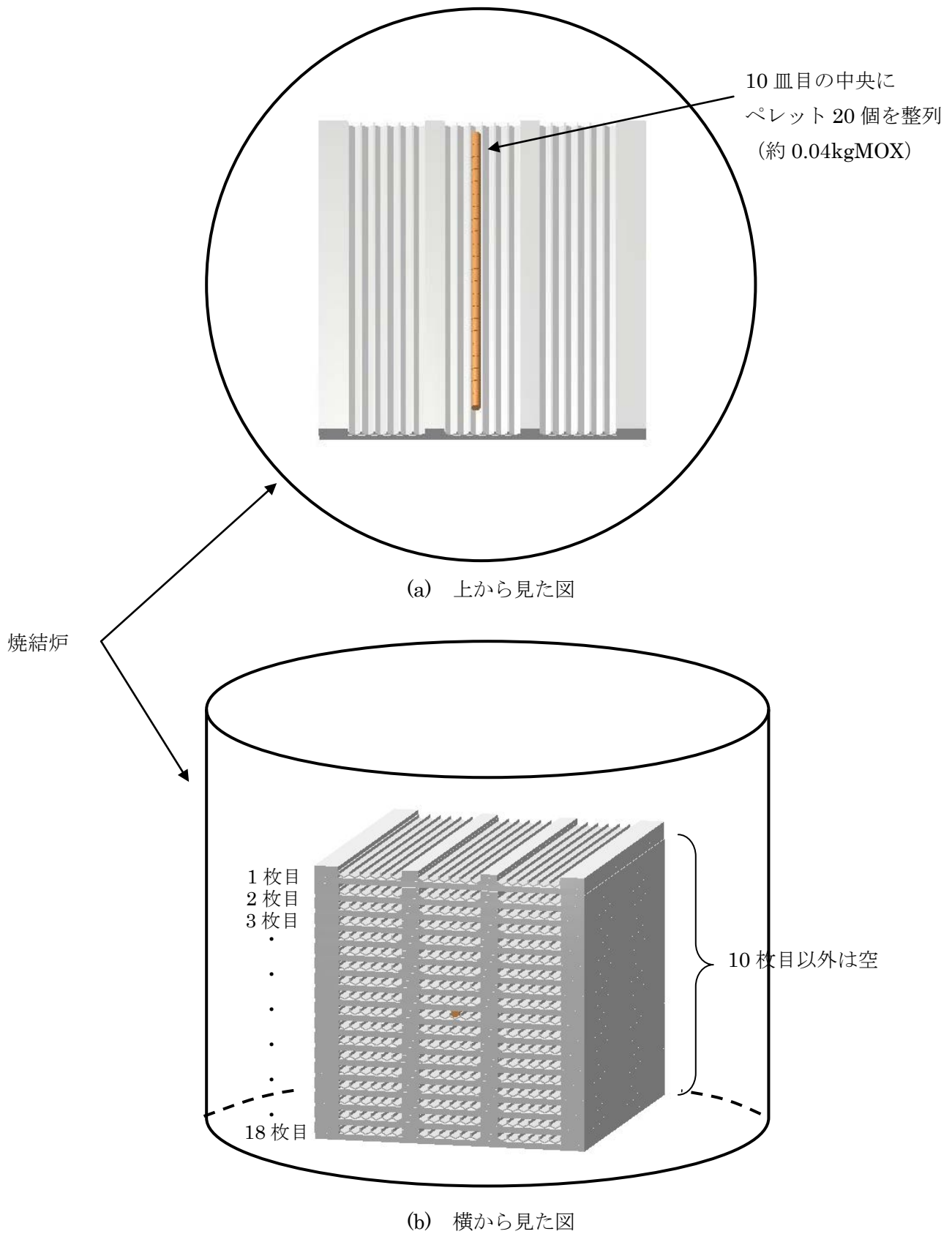
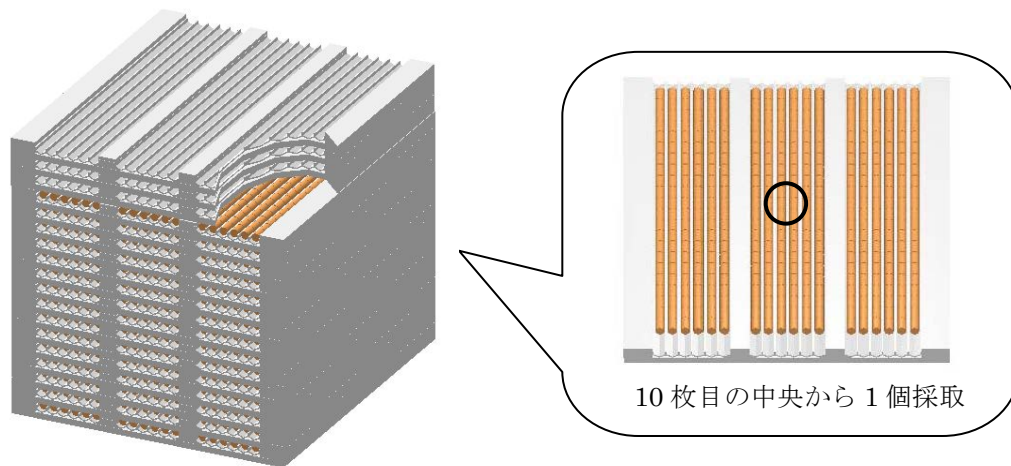
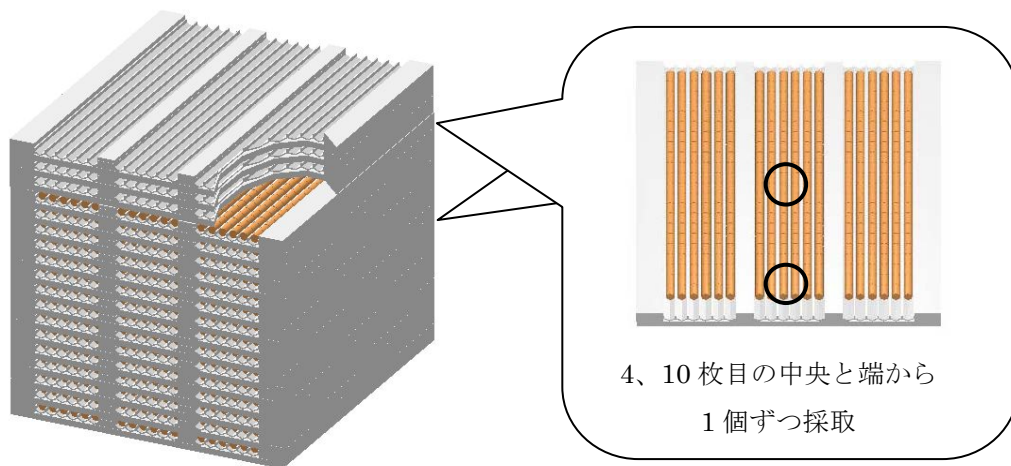


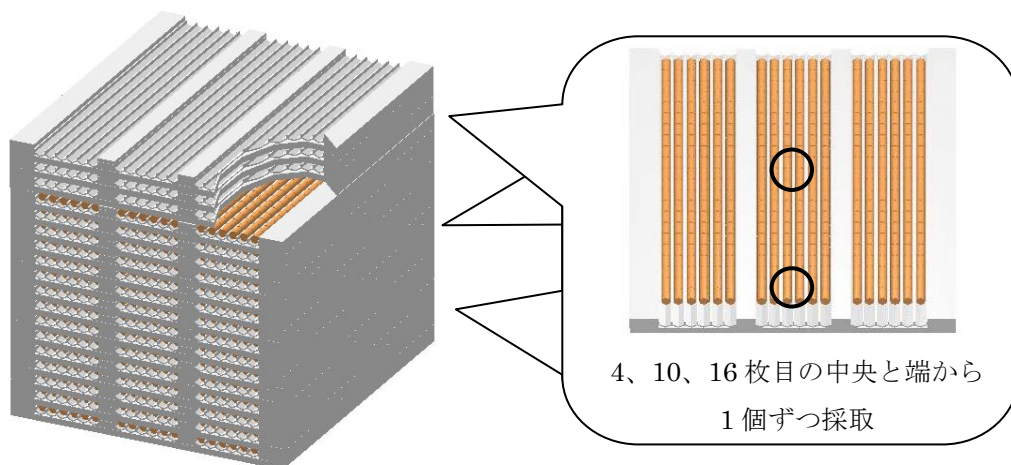
Fig. 5 小バッチ試験のペレット装荷状態



(a)試験バッチ No.1 のサンプル採取位置



(b)試験バッチ No.2 のサンプル採取位置



(c)試験バッチ No.3~24 のサンプル採取位置

Fig. 6 O/M 比分析用ペレット採取位置

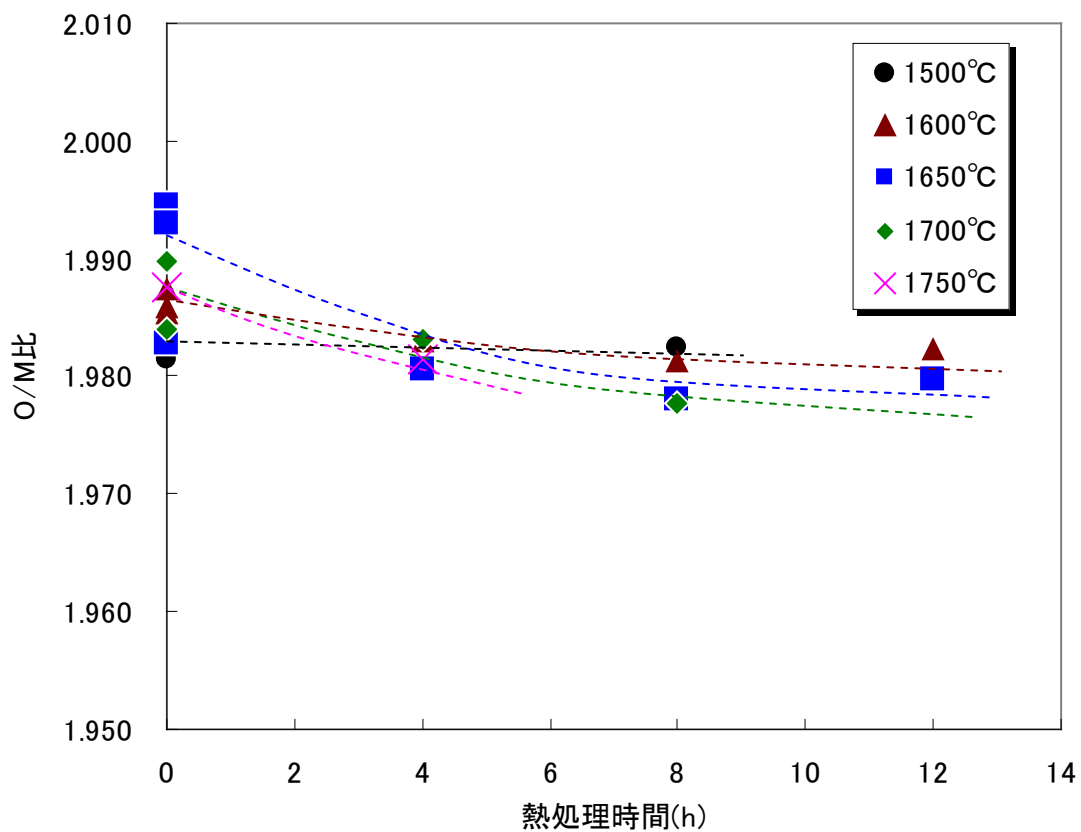


Fig.7(a) 熱処理条件と O/M 比の変化 (低 Pu 富化度)

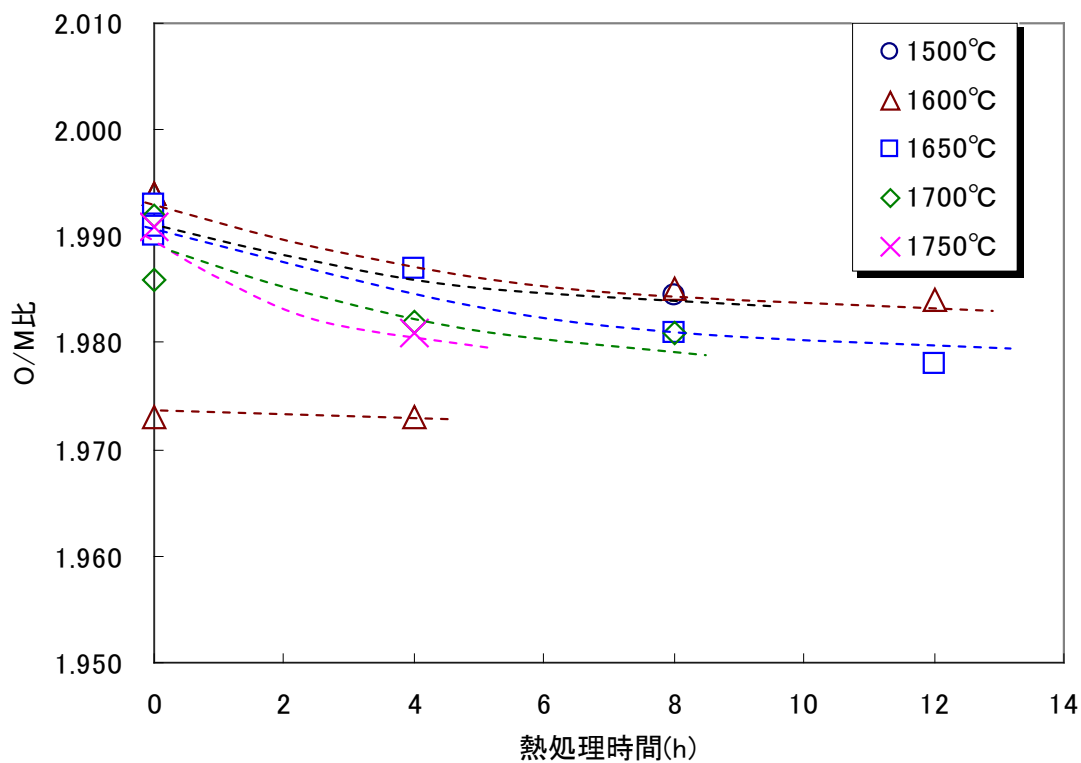


Fig.7(b) 熱処理条件と O/M 比の変化 (高 Pu 富化度)

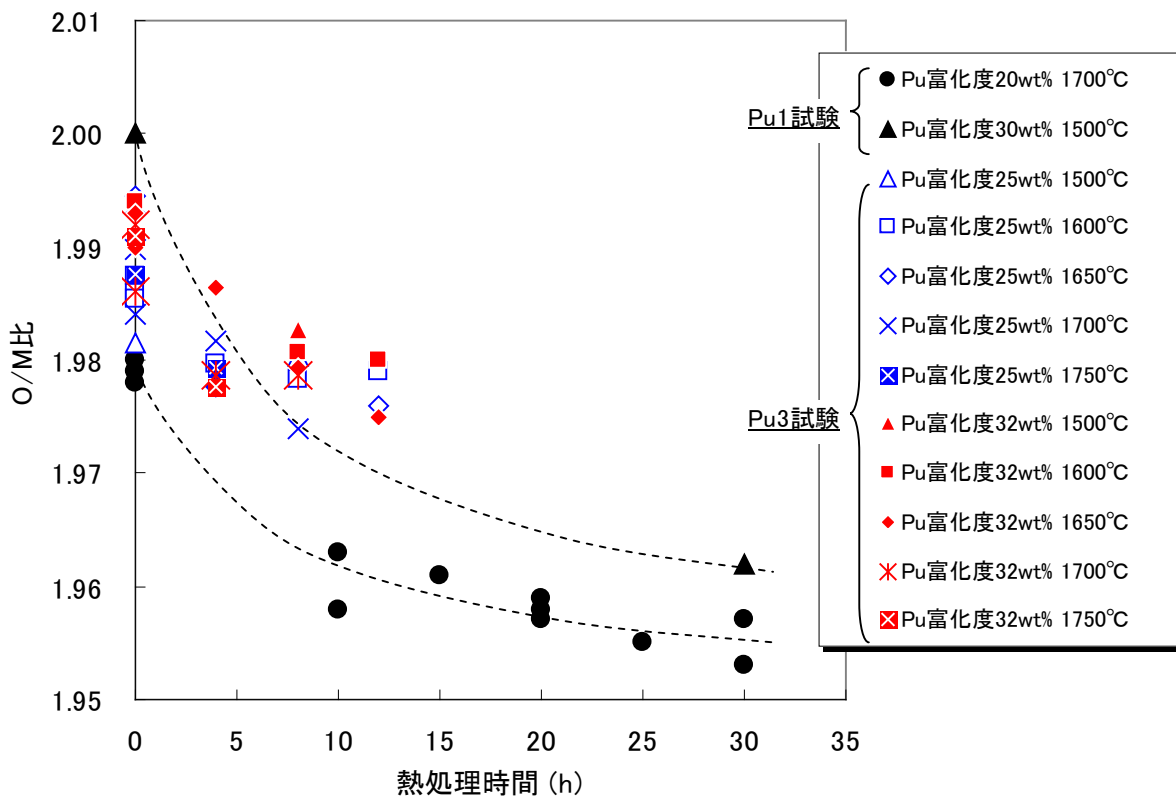


Fig.8 小規模試験との比較

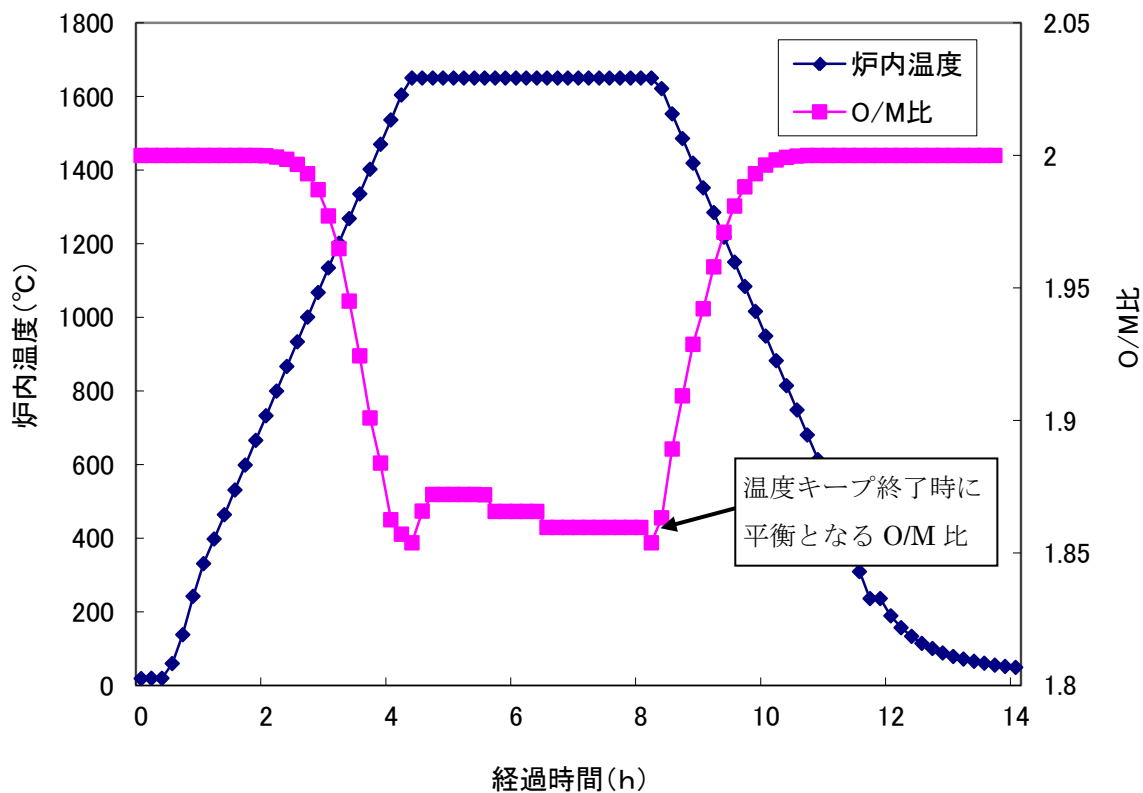


Fig.9 排気ガスの酸素ポテンシャルと平衡となる MOX ペレットの O/M 比の推定値

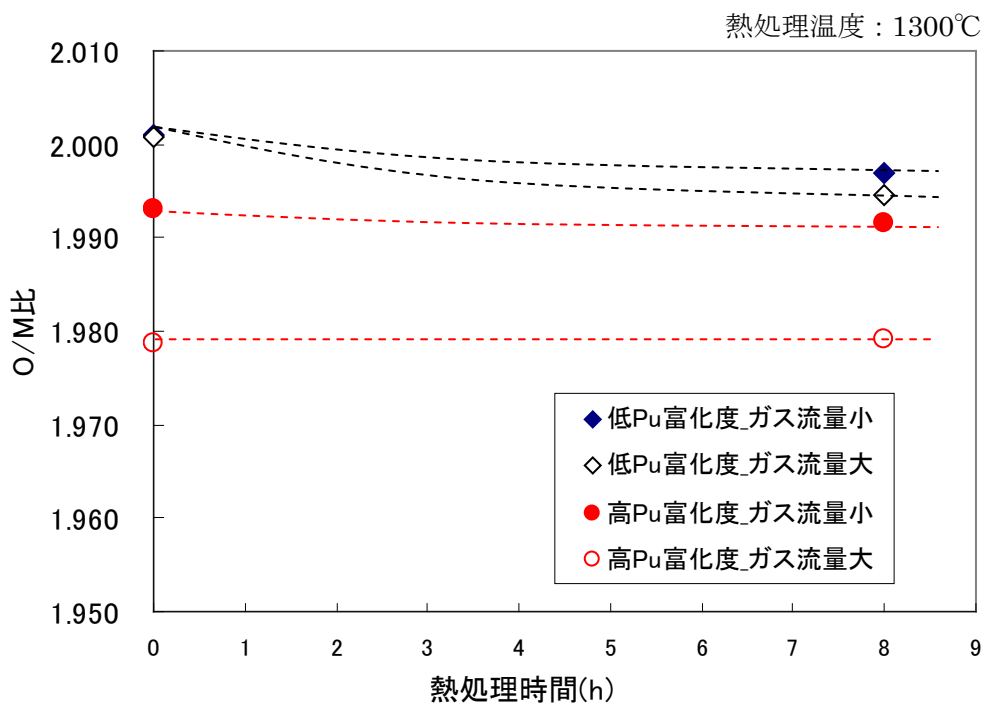


Fig. 10 熱処理時のガス流量と O/M 比の変化

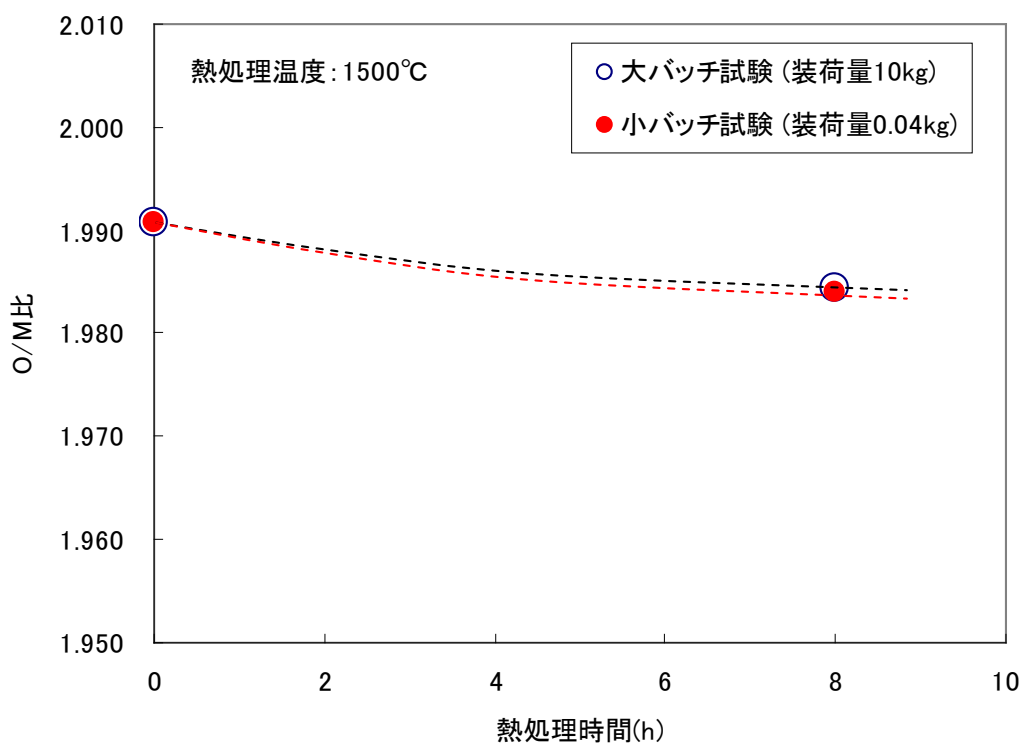


Fig. 11 ペレット装荷量の影響

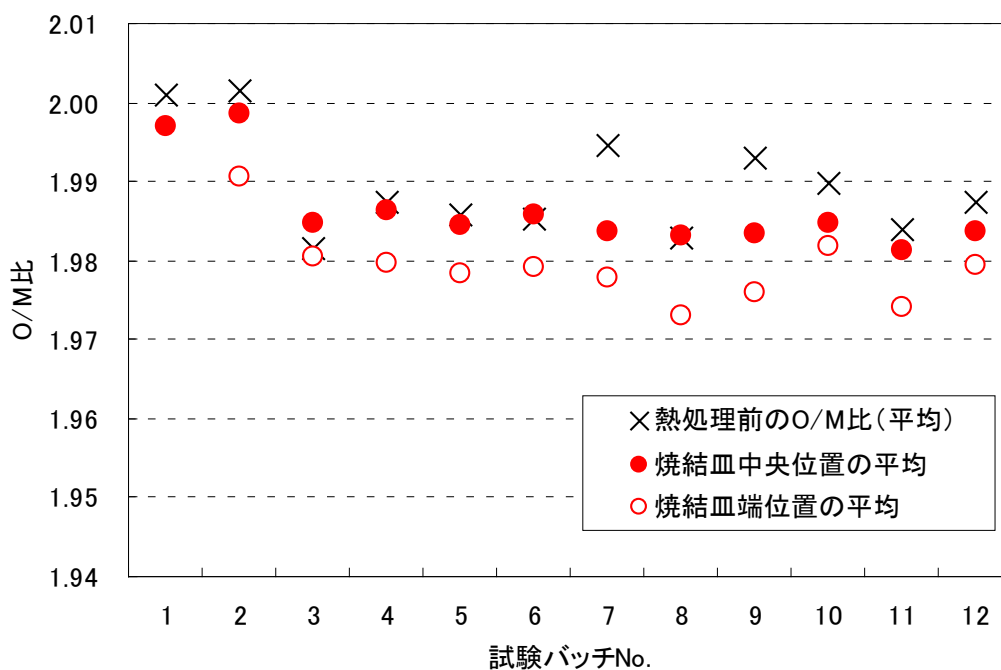


Fig. 12(a) O/M 比のペレット整列位置依存性 (水平方向) (低 Pu 富化度)

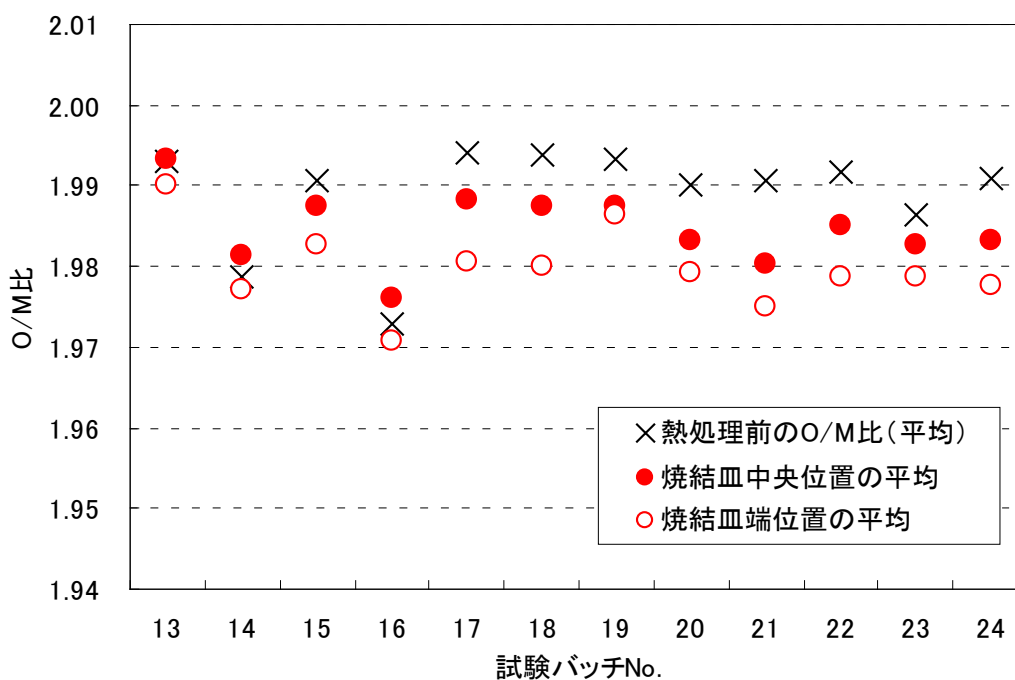


Fig. 12(b) O/M 比のペレット整列位置依存性 (水平方向) (高 Pu 富化度)

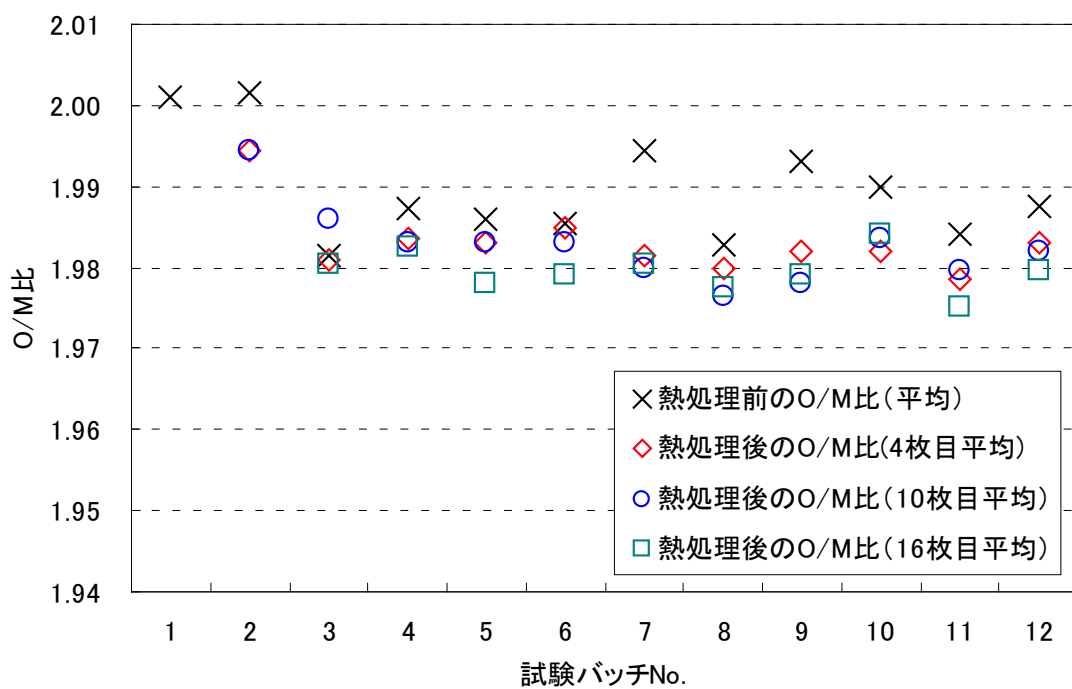


Fig. 13(a) O/M 比のペレット整列位置依存性 (高さ方向) (低 Pu 富化度)

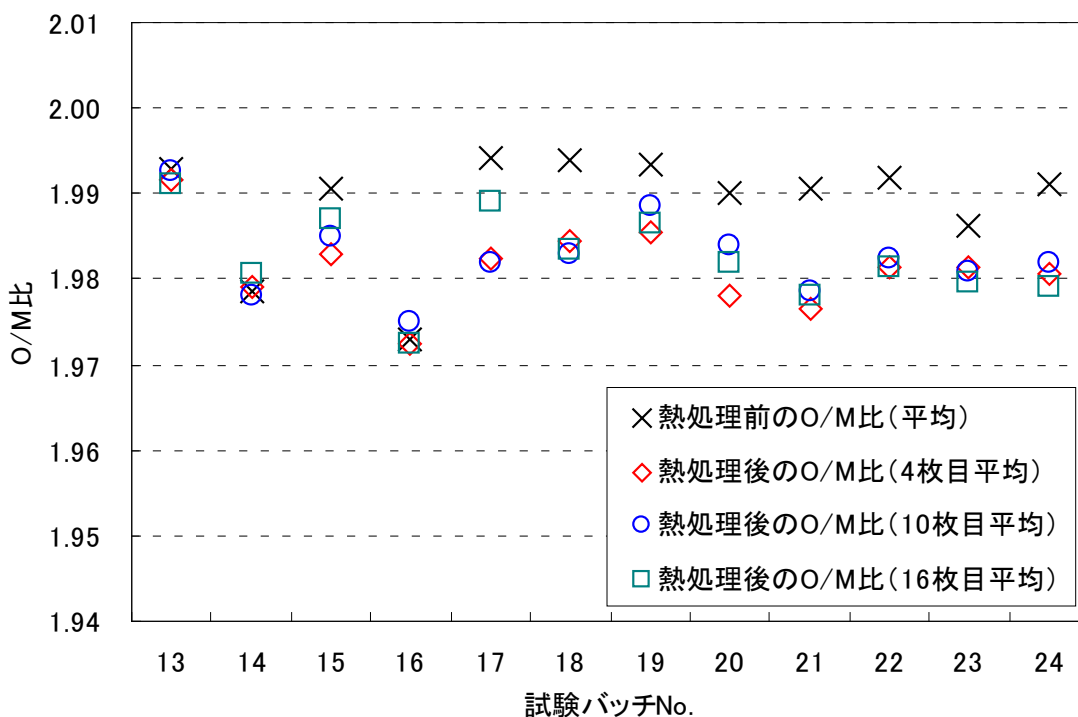
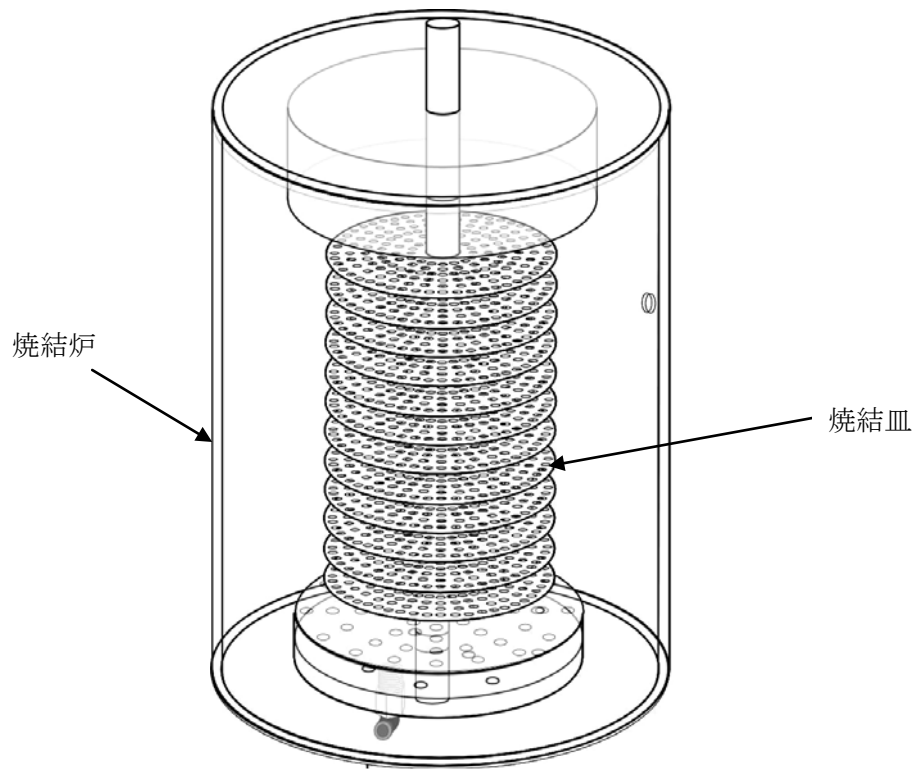
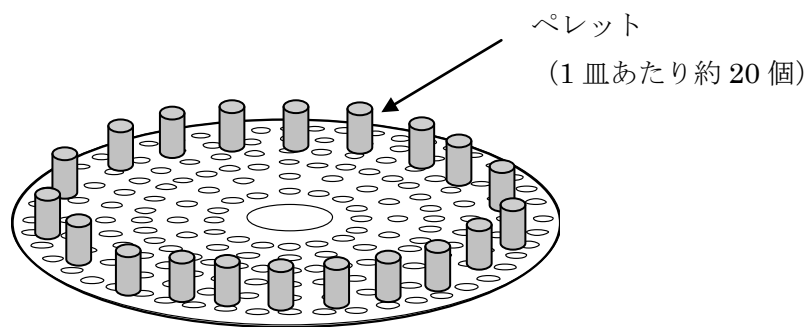


Fig. 13(b) O/M 比のペレット整列位置依存性 (高さ方向) (高 Pu 富化度)



(a) 焼結皿の装荷状態



(b) ペレット整列状態

Fig. 14 小規模試験のペレット装荷状態 (Pu 富化度 20wt%試験)

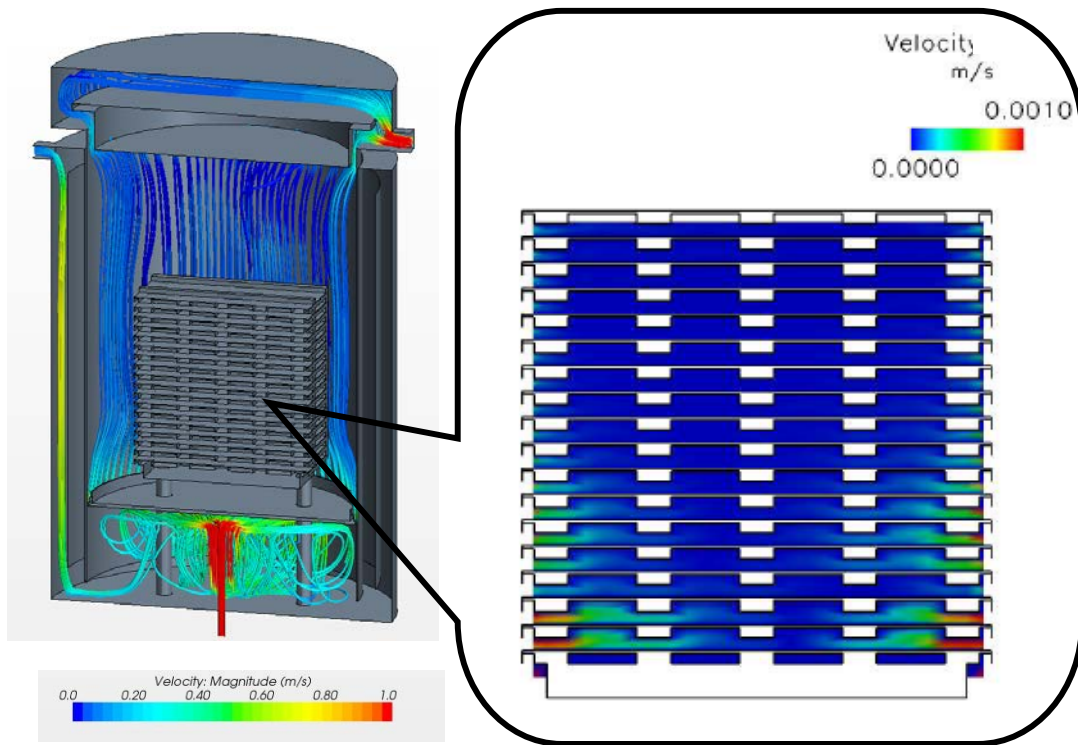


Fig. 15 バッチ炉内のガス流速の解析結果

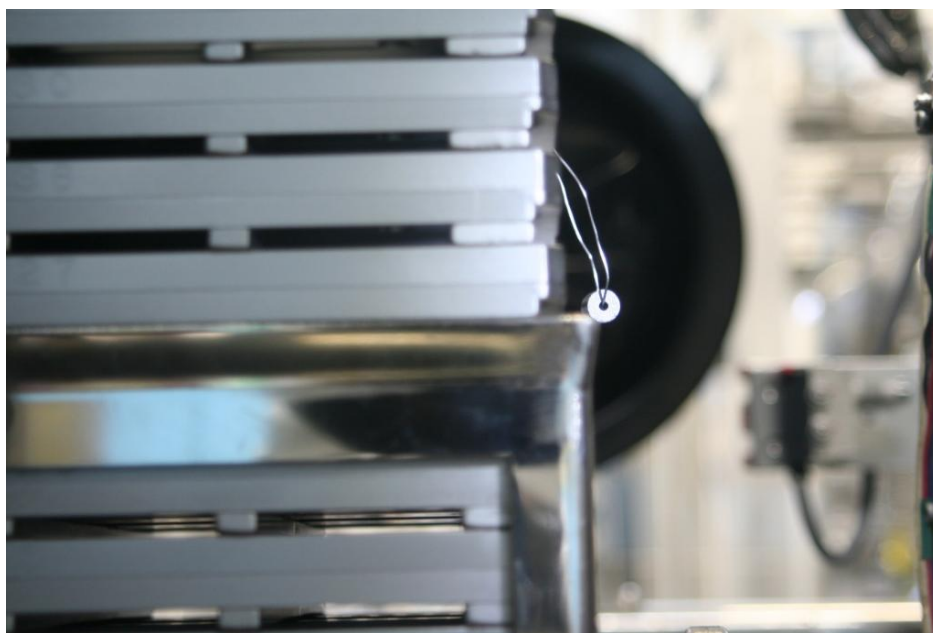


Fig.16 ガス当たり確認試験でのペレット設置状態

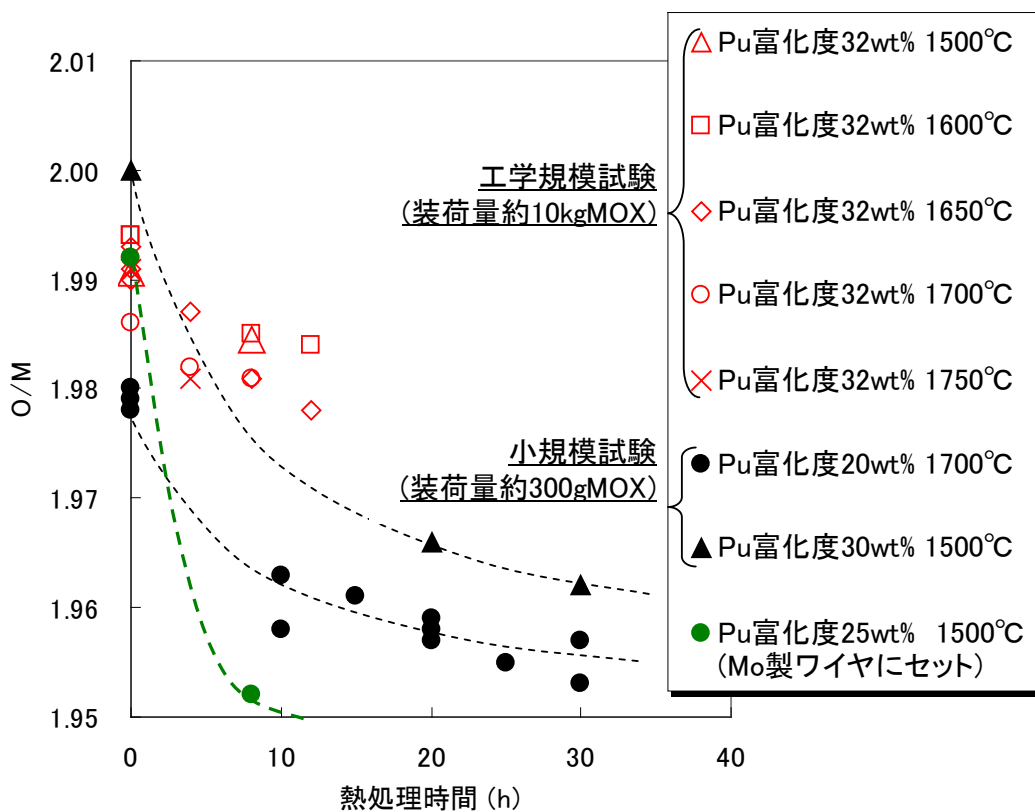


Fig.17 ガス当たり確認試験の O/M 比変化及び他試験との比較

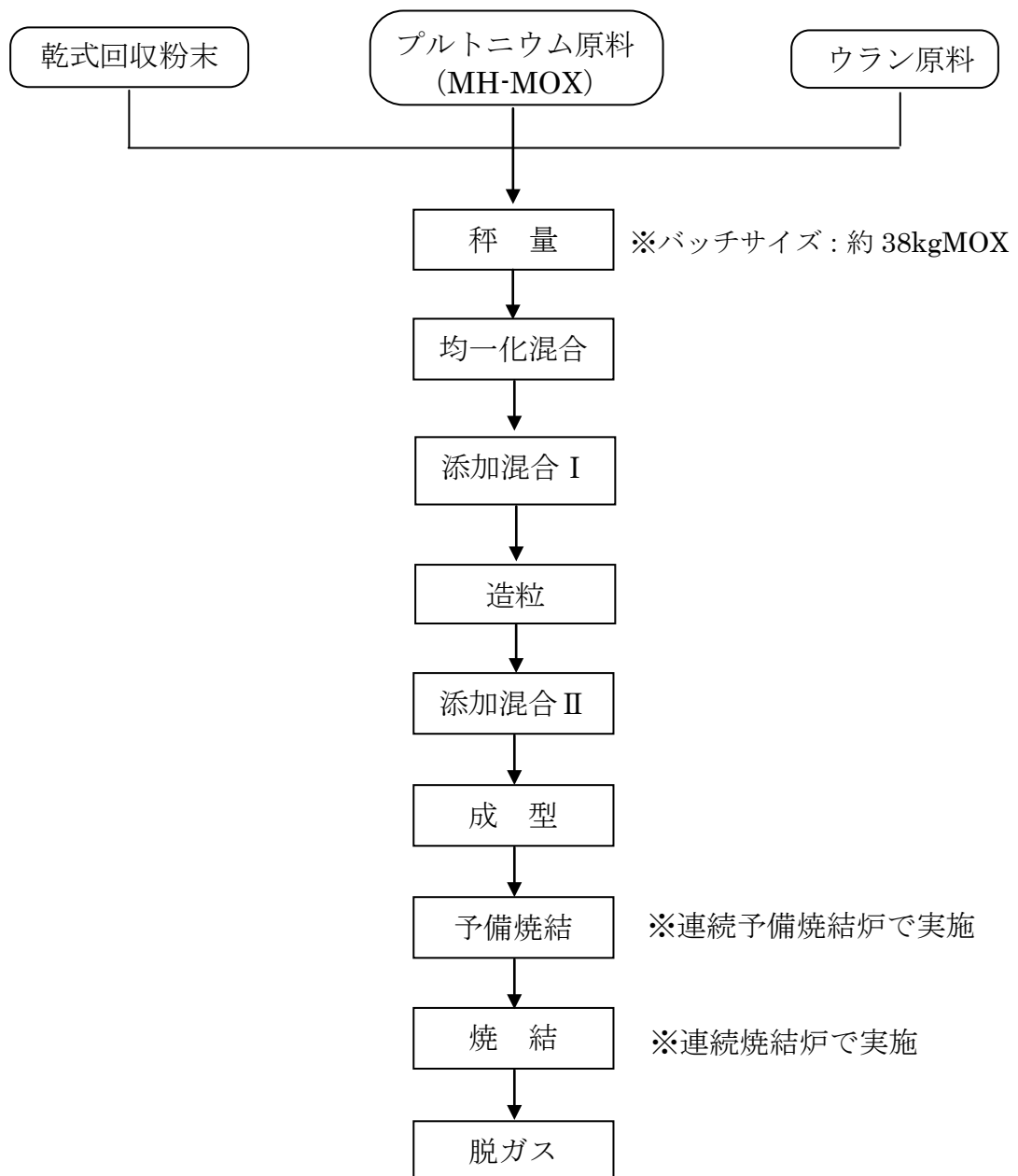


Fig.18 残留炭素を利用した O/M 比調整試験フロー

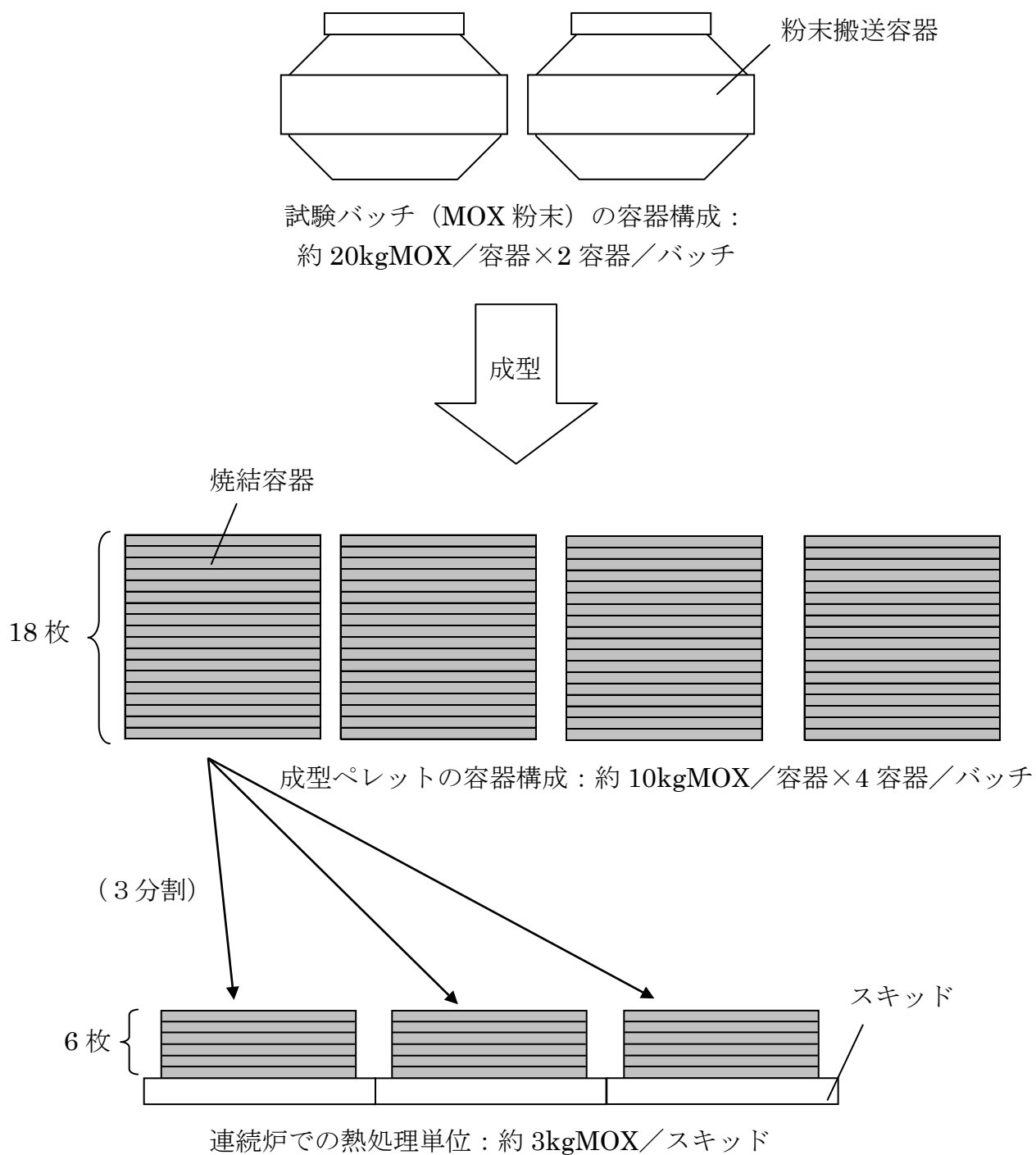
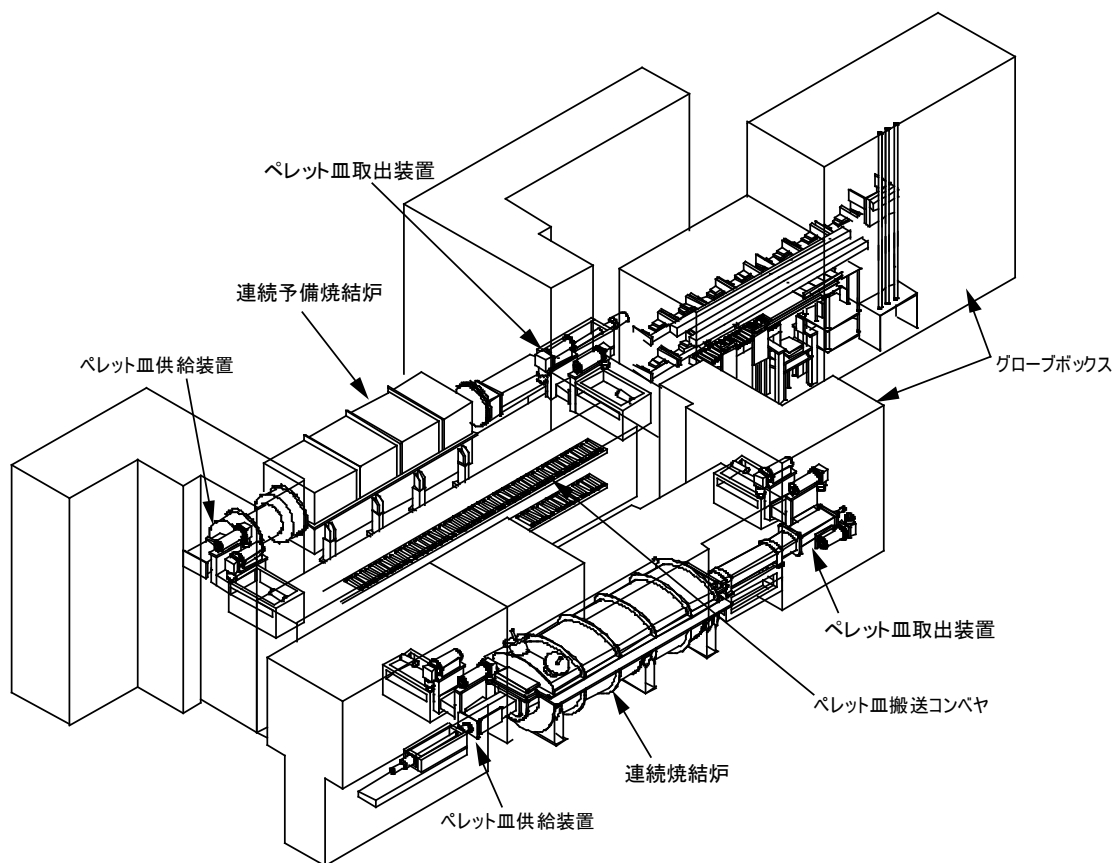
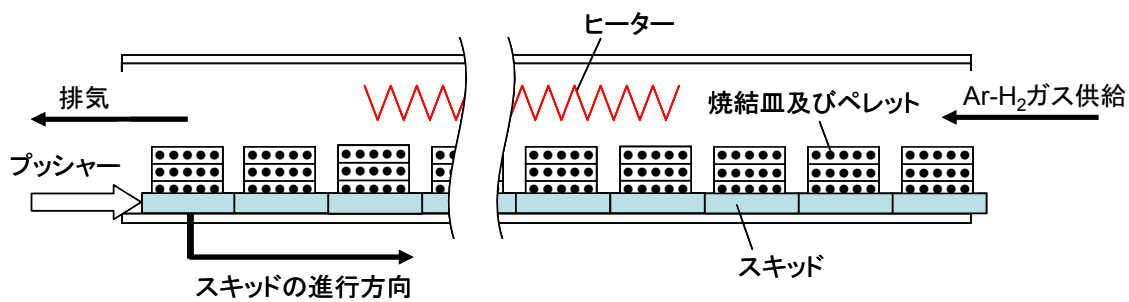


Fig.19 試験バッチの容器構成と連続炉での熱処理単位



(a) 連続予備焼結・焼結設備の鳥瞰図



(b) 連続炉内の構造

Fig.20 連続予備焼結・連続焼結設備の概略図

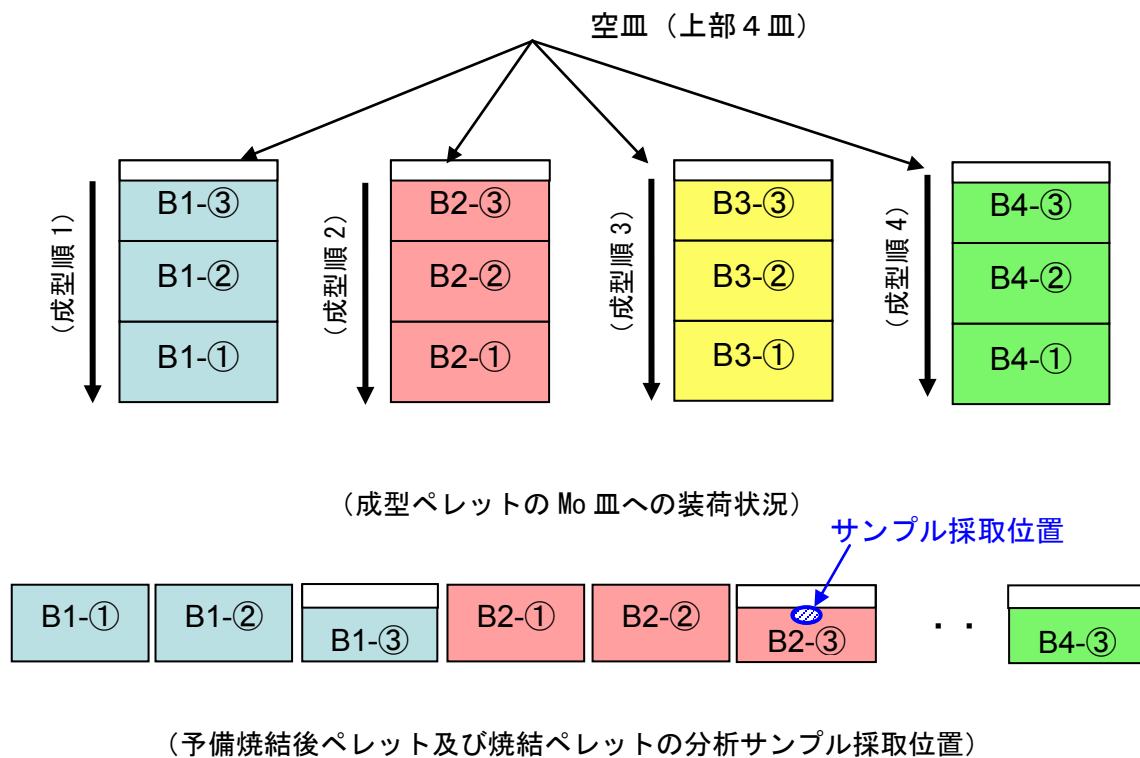


Fig.21 分析サンプルの採取位置

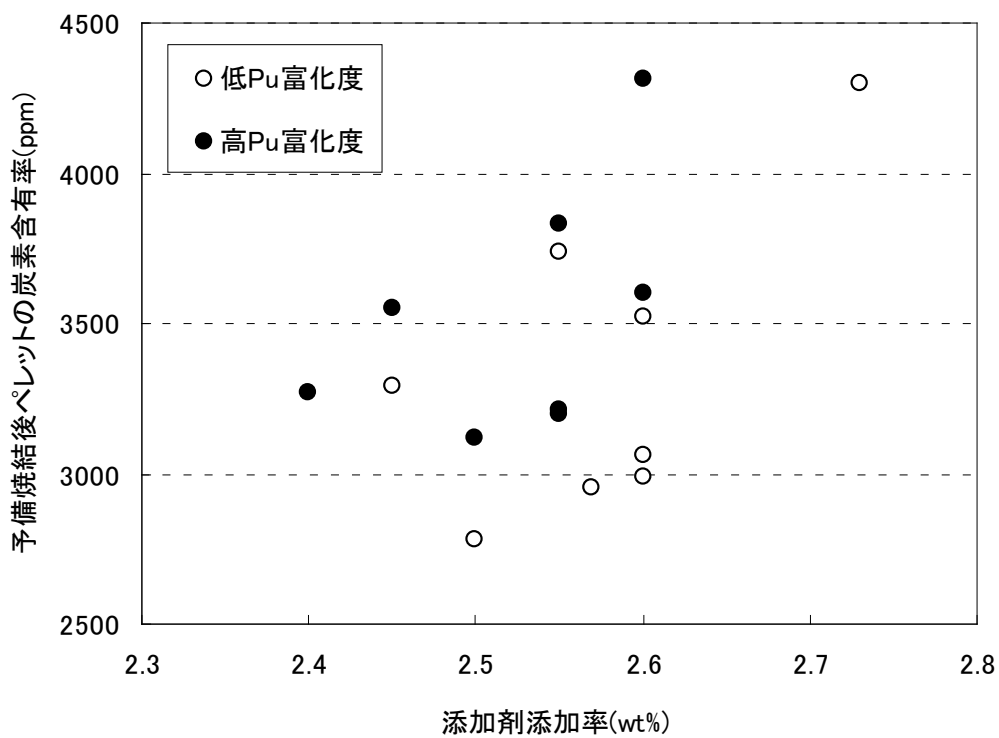


Fig.22 添加剤添加率と予備焼結後ペレットの炭素含有率

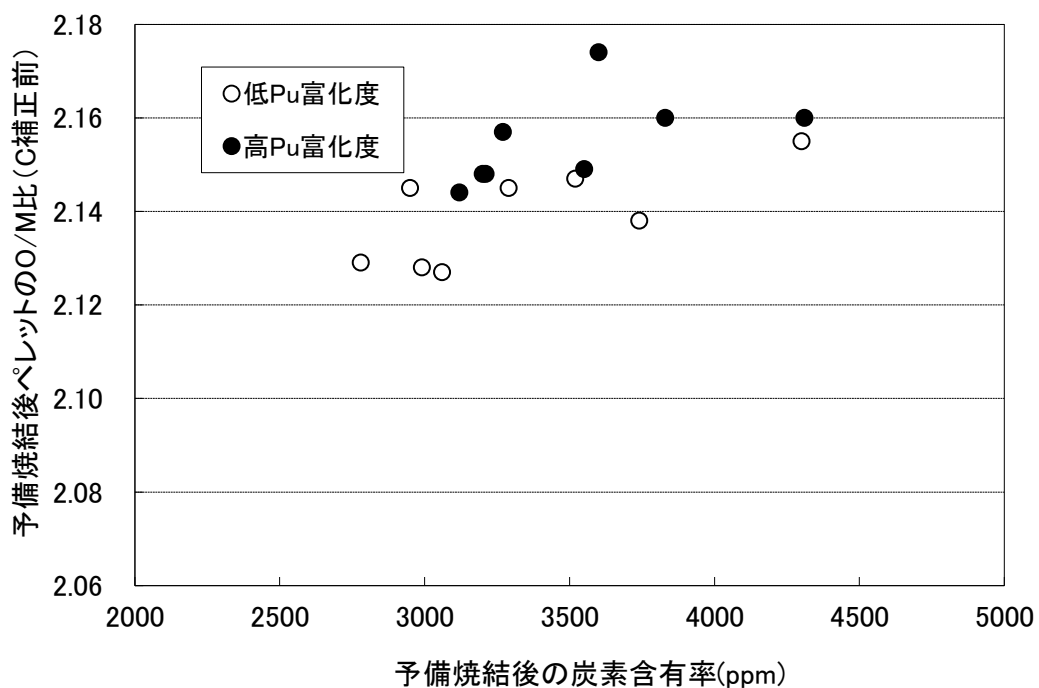


Fig.23 予備焼結後ペレットの炭素含有率と O/M 比 (炭素補正前)

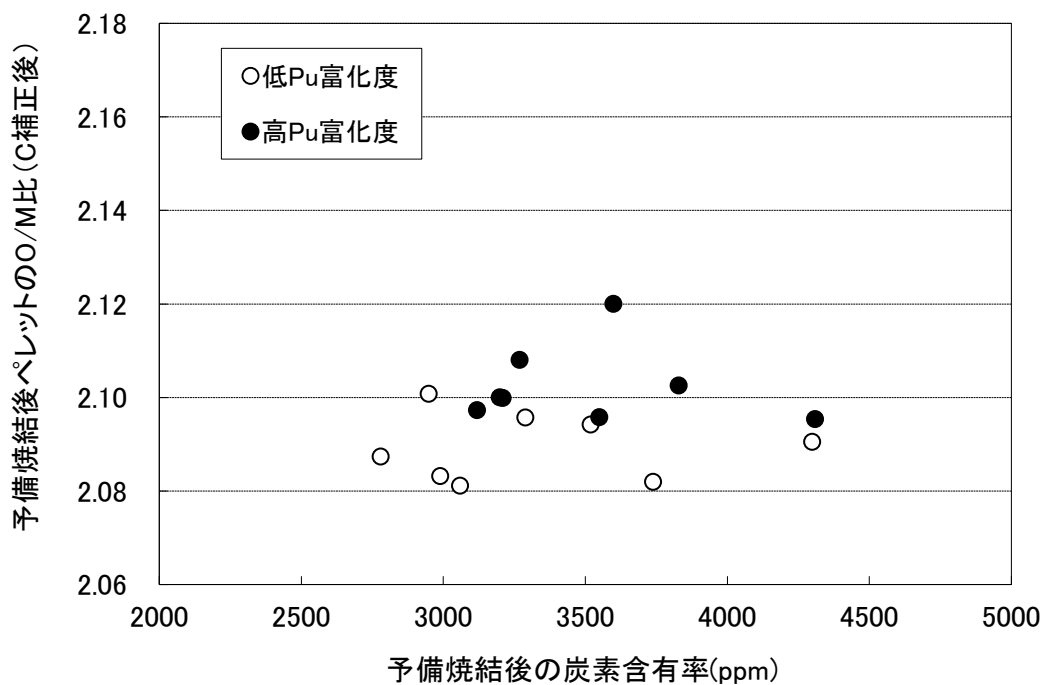


Fig.24 予備焼結後ペレットの炭素含有率と O/M 比 (炭素補正後)

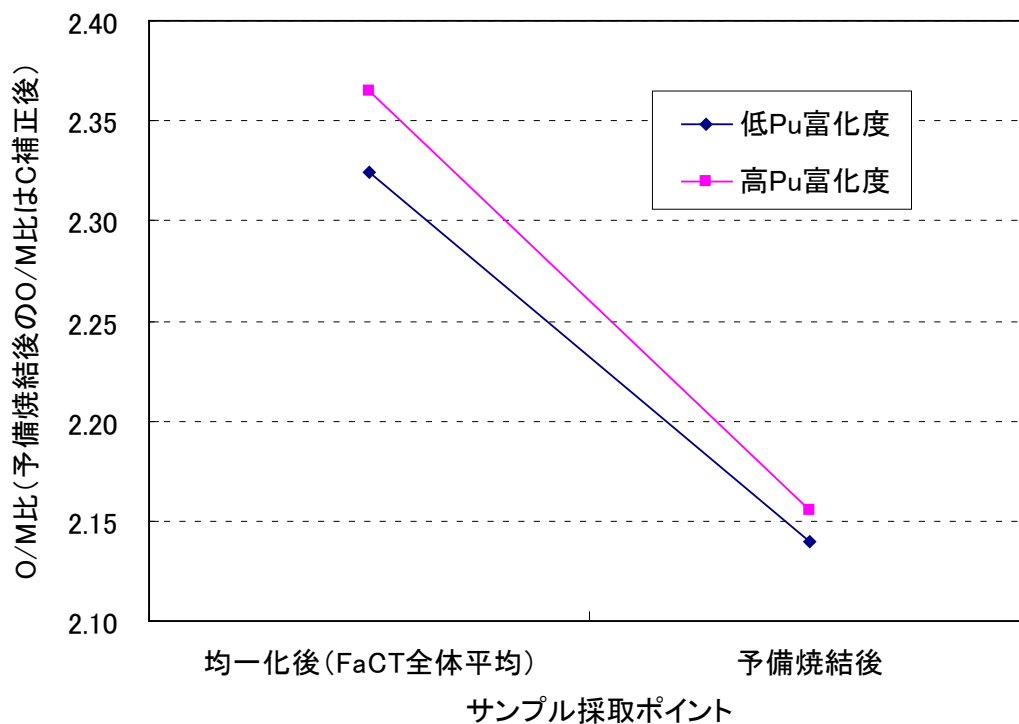


Fig.25 均一化混合粉末及び予備焼結後ペレットの O/M 比の変化

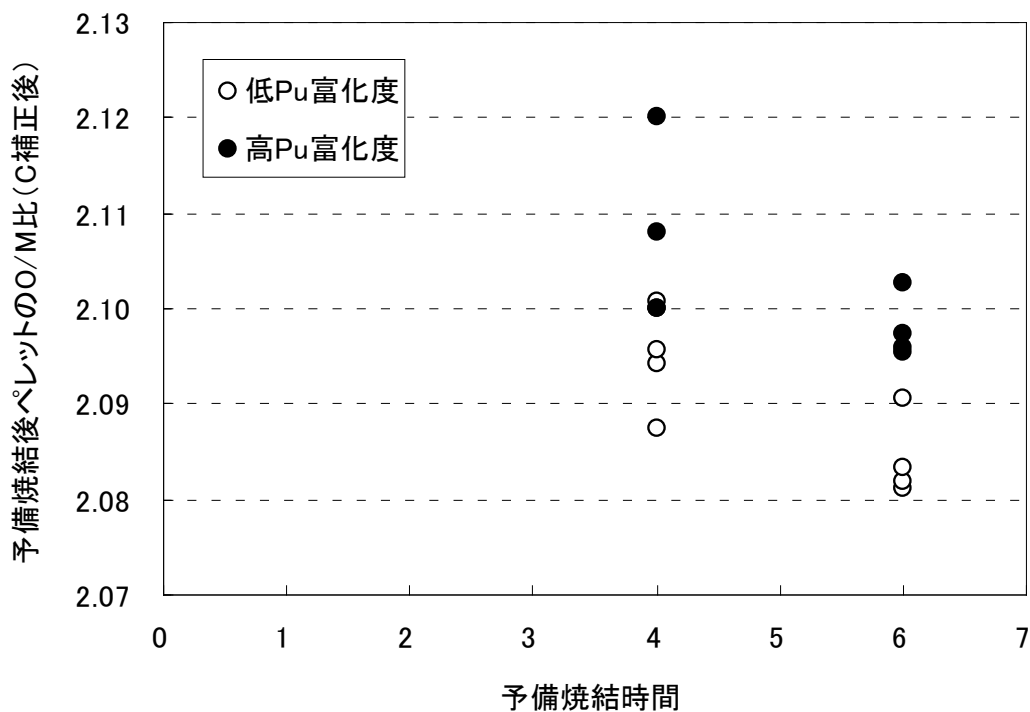


Fig.26 予備焼結時間と予備焼結後ペレットの O/M 比

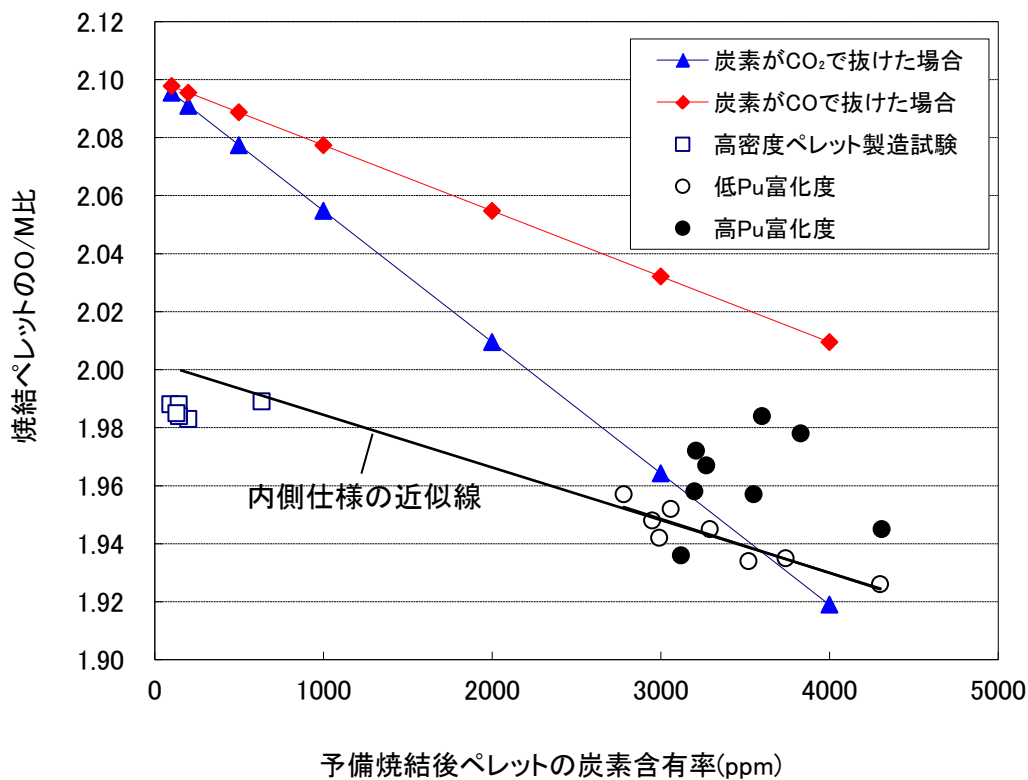


Fig.27 予備焼結後ペレットの炭素含有率と焼結ペレットの O/M 比

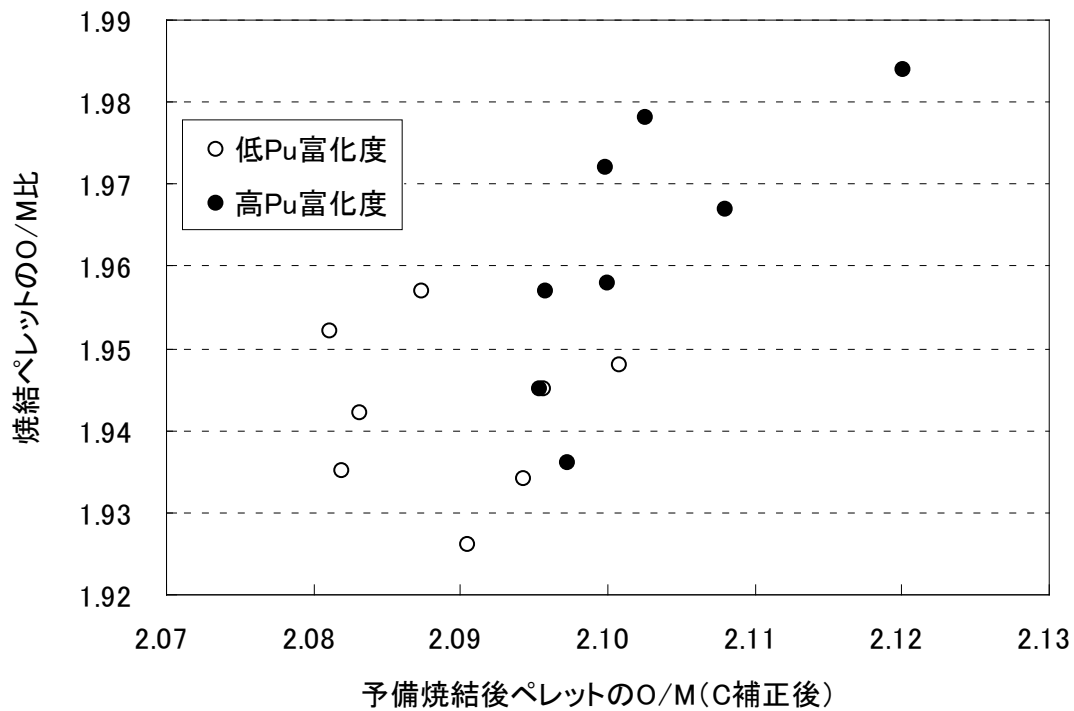


Fig.28 予備焼結後ペレットの O/M 比と焼結ペレットの O/M 比

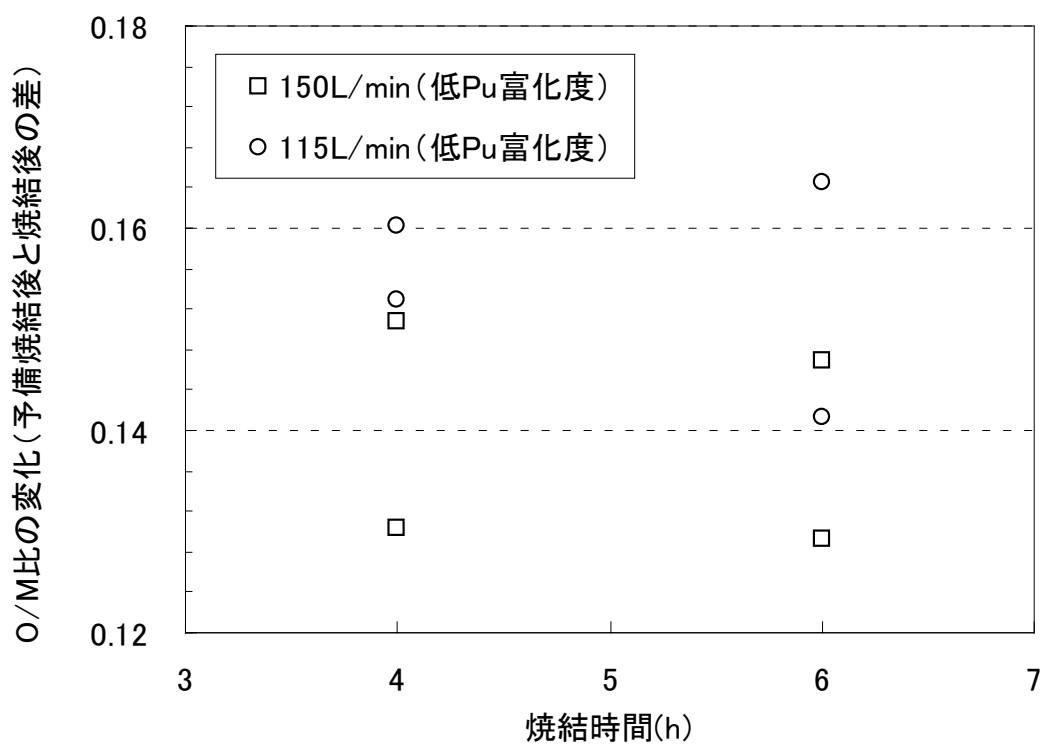


Fig.29(a) 焼結時間と焼結前後の O/M 比の変化量 (低 Pu 富化度)

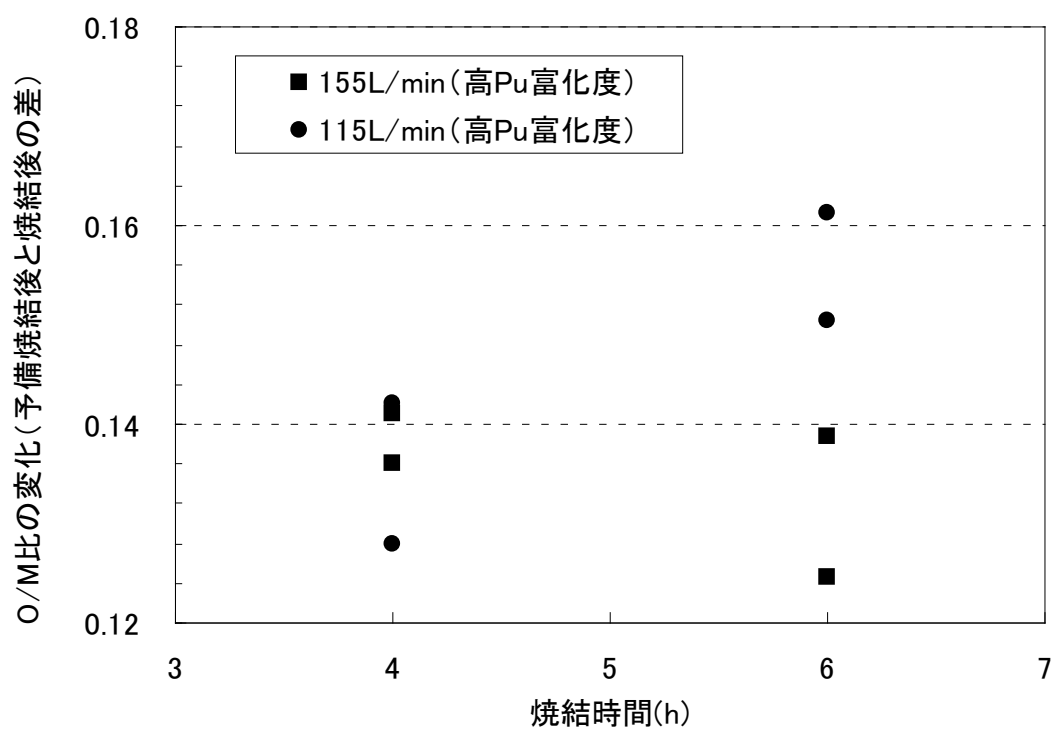


Fig.29(b) 焼結時間と焼結前後の O/M 比の変化量 (高 Pu 富化度)

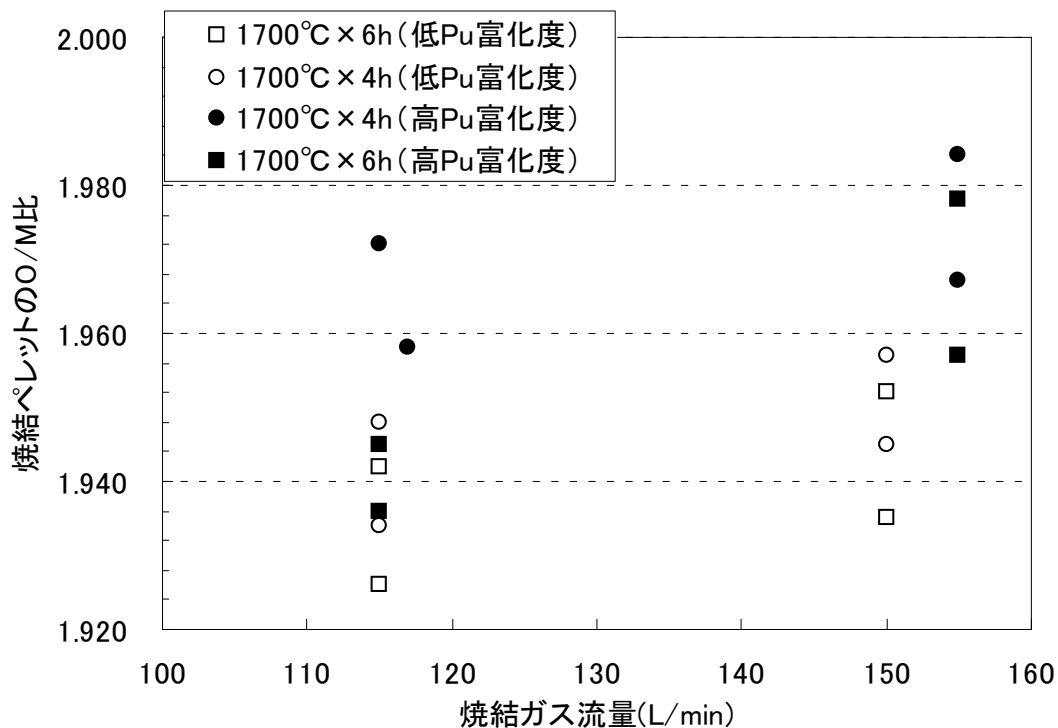


Fig.30 焼結ガス流量と焼結ペレットの O/M 比

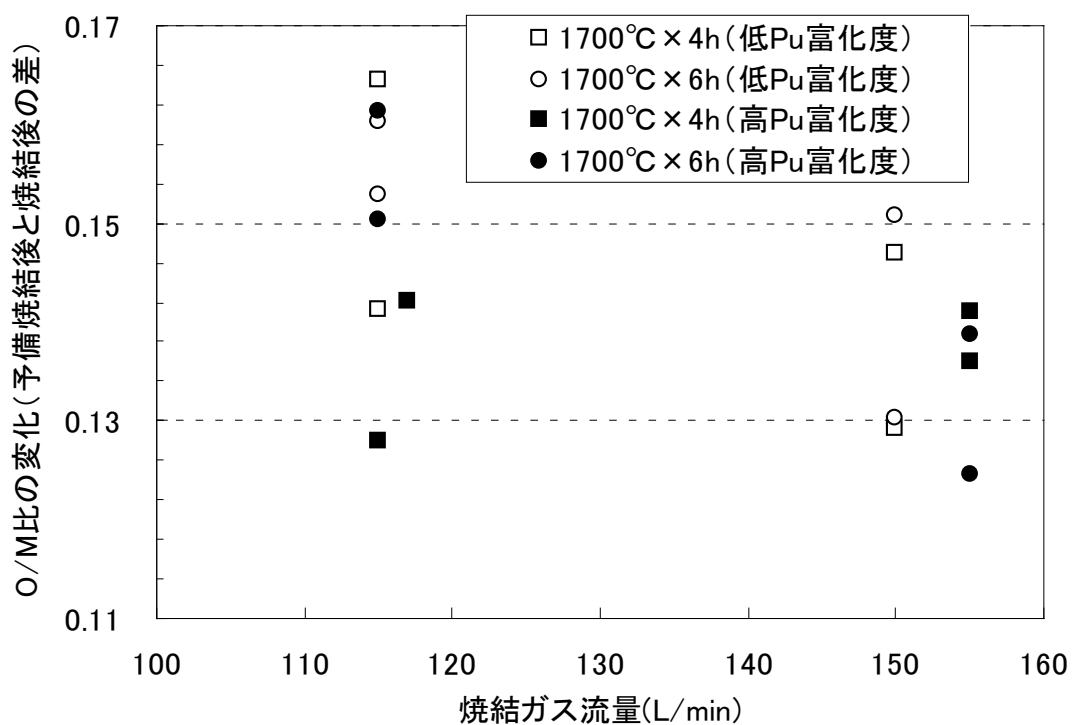


Fig.31 焼結ガス流量と焼結ペレットの O/M 比の変化

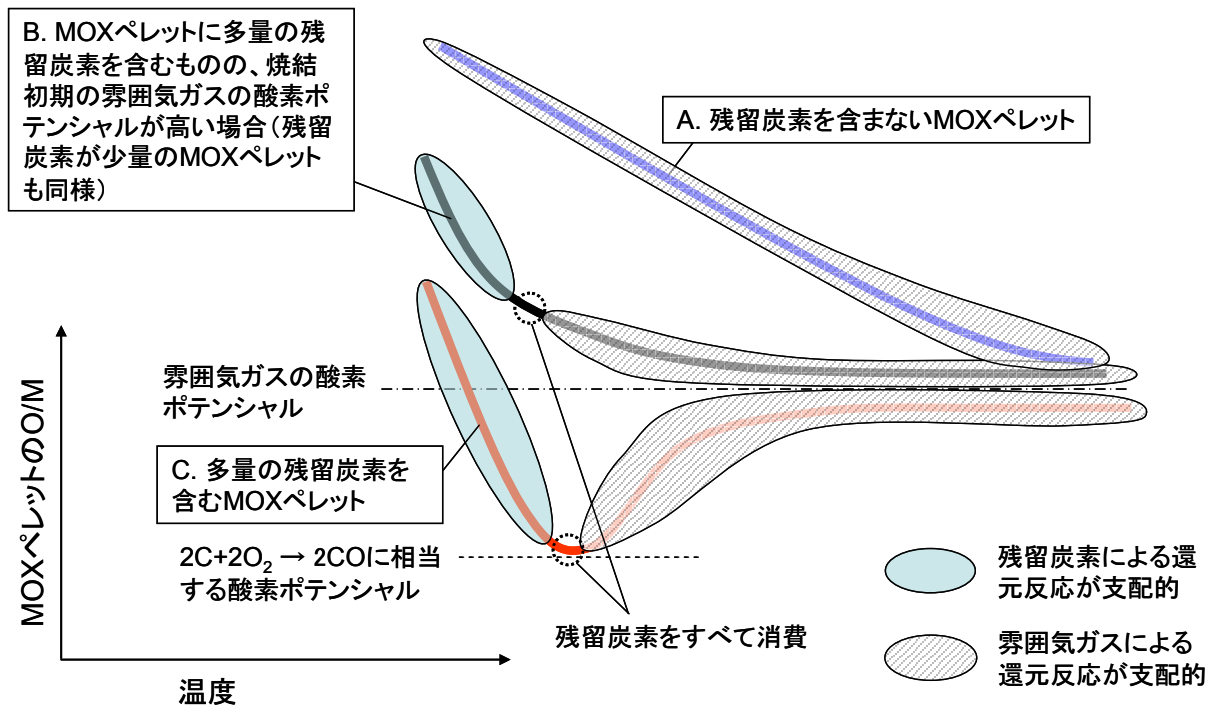


Fig.32 焼結中のMOXペレットのO/M比の推移

国際単位系 (SI)

表1. SI基本単位

| 基本量 | SI基本単位 | |
|-------|--------|-----|
| | 名称 | 記号 |
| 長さ | メートル | m |
| 質量 | キログラム | kg |
| 時間 | 秒 | s |
| 電流 | アンペア | A |
| 熱力学温度 | ケルビン | K |
| 物質の量 | モル | mol |
| 光度 | カンデラ | cd |

表2. 基本単位を用いて表されるSI組立単位の例

| 組立量 | SI基本単位 | |
|-------------------------|--------------|--------------------|
| | 名称 | 記号 |
| 面積 | 平方メートル | m ² |
| 体積 | 立法メートル | m ³ |
| 速度 | メートル毎秒 | m/s |
| 加速度 | メートル毎秒毎秒 | m/s ² |
| 波数 | 毎メートル | m ⁻¹ |
| 密度, 質量密度 | キログラム毎立方メートル | kg/m ³ |
| 面積密度 | キログラム毎平方メートル | kg/m ² |
| 比体積 | 立方メートル毎キログラム | m ³ /kg |
| 電流密度 | アンペア毎平方メートル | A/m ² |
| 磁界の強さ | アンペア毎メートル | A/m |
| 量濃度 ^(a) , 濃度 | モル毎立方メートル | mol/m ³ |
| 質量濃度 | キログラム毎立方メートル | kg/m ³ |
| 輝度 | カンデラ毎平方メートル | cd/m ² |
| 屈折率 ^(b) | (数字の) | 1 |
| 比透磁率 ^(b) | (数字の) | 1 |

(a) 量濃度 (amount concentration) は臨床化学の分野では物質濃度 (substance concentration) ともよばれる。
 (b) これらは無次元量あるいは次元1をもつ量であるが、そのことを表す単位記号である数字の1は通常は表記しない。

表3. 固有の名称と記号で表されるSI組立単位

| 組立量 | SI組立単位 | | | |
|-------------------------------|-----------------------|-------------------|----------------------|---|
| | 名称 | 記号 | 他のSI単位による表し方 | SI基本単位による表し方 |
| 平面角 | ラジアン ^(b) | rad | 1 ^(b) | m/m |
| 立体角 | ステラジアン ^(b) | sr ^(c) | 1 ^(b) | m ² /m ² |
| 周波数 | ヘルツ ^(d) | Hz | | s ⁻¹ |
| 力 | ニュートン | N | | m kg s ⁻² |
| 圧力, 応力 | パスカル | Pa | N/m ² | m ⁻¹ kg s ⁻² |
| エネルギー, 仕事, 熱量 | ジュール | J | N m | m ² kg s ⁻² |
| 仕事率, 工率, 放射束 | ワット | W | J/s | m ² kg s ⁻³ |
| 電荷, 電気量 | クーロン | C | | s A |
| 電位差 (電圧), 起電力 | ボルト | V | W/A | m ² kg s ⁻³ A ⁻¹ |
| 静電容量 | ファラド | F | C/V | m ² kg ⁻¹ s ⁴ A ² |
| 電気抵抗 | オーム | Ω | V/A | m ² kg s ⁻³ A ⁻² |
| コンダクタンス | ジーメン | S | A/V | m ² kg ⁻¹ s ³ A ² |
| 磁束 | ウエーバ | Wb | Vs | m ² kg s ⁻² A ⁻¹ |
| 磁束密度 | テスラ | T | Wb/m ² | kg s ⁻² A ⁻¹ |
| インダクタンス | ヘンリー | H | Wb/A | m ² kg s ⁻² A ⁻² |
| セルシウス温度 | セルシウス度 ^(e) | °C | | K |
| 光照射度 | ルーメン | lm | cd sr ^(c) | cd |
| 放射線量 | ルクス | lx | lm/m ² | m ⁻² cd |
| 放射性核種の放射能 ^(f) | ベクレル ^(d) | Bq | | s ⁻¹ |
| 吸収線量, 比エネルギー分与, カーマ | グレイ | Gy | J/kg | m ² s ⁻² |
| 線量当量, 周辺線量当量, 方向性線量当量, 個人線量当量 | シーベルト ^(g) | Sv | J/kg | m ² s ⁻² |
| 酸素活性化 | カタール | kat | | s ⁻¹ mol |

(a) SI接頭語は固有の名称と記号を持つ組立単位と組み合わせても使用できる。しかし接頭語を付した単位はもはやコヒーレントではない。
 (b) ラジアンとステラジアンは数字の1に対する単位の特別な名称で、量についての情報をつたえるために使われる。実際には、使用する時には記号rad及びsrが用いられるが、習慣として組立単位としての記号である数字の1は明示されない。
 (c) 測光学ではステラジアンという名称と記号srを単位の表し方の中に、そのまま維持している。
 (d) ヘルツは周期現象についてのみ、ベクレルは放射性核種の統計的過程についてのみ使用される。
 (e) セルシウス度はケルビンの特別な名称で、セルシウス温度を表すために使用される。セルシウス度とケルビンの単位の間には同一である。したがって、温度差や温度間隔を表す数値はどちらの単位で表しても同じである。
 (f) 放射性核種の放射能 (activity referred to a radionuclide) は、しばしば誤った用語で"radioactivity"と記される。
 (g) 単位シーベルト (PV.2002.70,205) についてはCIPM勧告2 (CI-2002) を参照。

表4. 単位の中に固有の名称と記号を含むSI組立単位の例

| 組立量 | SI組立単位 | | |
|-----------------|-------------------|-----------------------|---|
| | 名称 | 記号 | SI基本単位による表し方 |
| 粘力のモーメント | パスカル秒 | Pa s | m ⁻¹ kg s ⁻¹ |
| 表面張力 | ニュートンメートル | N m | m ² kg s ⁻² |
| 角速度 | ニュートン毎メートル | N/m | kg s ⁻² |
| 角加速度 | ラジアン毎秒 | rad/s | m m ⁻¹ s ⁻¹ = s ⁻¹ |
| 熱流密度, 放射照度 | ラジアン毎秒毎秒 | rad/s ² | m m ⁻¹ s ⁻² = s ⁻² |
| 熱容量, エントロピー | ワット毎平方メートル | W/m ² | kg s ⁻³ |
| 比熱容量, 比エントロピー | ジュール毎ケルビン | J/K | m ² kg s ⁻² K ⁻¹ |
| 比エネルギー | ジュール毎キログラム毎ケルビン | J/(kg K) | m ² s ⁻² K ⁻¹ |
| 熱伝導率 | ジュール毎キログラム | J/kg | m ² s ⁻² |
| 体積エネルギー | ワット毎メートル毎ケルビン | W/(m K) | m kg s ⁻³ K ⁻¹ |
| 電界の強さ | ジュール毎立方メートル | J/m ³ | m ⁻¹ kg s ⁻² |
| 電荷密度 | ジュール毎立方メートル | V/m | m kg s ⁻³ A ⁻¹ |
| 電表面電荷 | クーロン毎立方メートル | C/m ³ | m ⁻³ s A |
| 電束密度, 電気変位 | クーロン毎平方メートル | C/m ² | m ⁻² s A |
| 誘電率 | クーロン毎平方メートル | C/m ² | m ⁻² s A |
| 透磁率 | ファラド毎メートル | F/m | m ³ kg ⁻¹ s ⁴ A ² |
| モルエネルギー | ヘンリー毎メートル | H/m | m kg s ⁻² A ⁻² |
| モルエントロピー, モル熱容量 | ジュール毎モル | J/mol | m ² kg s ⁻² mol ⁻¹ |
| 照射線量 (X線及びγ線) | ジュール毎モル毎ケルビン | J/(mol K) | m ² kg s ⁻² K ⁻¹ mol ⁻¹ |
| 吸収線量率 | クーロン毎キログラム | C/kg | kg ⁻¹ s A |
| 放射線強度 | グレイ毎秒 | Gy/s | m ² s ⁻³ |
| 放射輝度 | ワット毎ステラジアン | W/sr | m ⁴ m ⁻² kg s ⁻³ = m ² kg s ⁻³ |
| 酵素活性濃度 | ワット毎平方メートル毎ステラジアン | W/(m ² sr) | m ² m ⁻² kg s ⁻³ = kg s ⁻³ |
| | カタール毎立方メートル | kat/m ³ | m ³ s ⁻¹ mol |

表5. SI接頭語

| 乗数 | 接頭語 | 記号 | 乗数 | 接頭語 | 記号 |
|------------------|-----|----|-------------------|------|----|
| 10 ²⁴ | ヨタ | Y | 10 ¹ | デシ | d |
| 10 ²¹ | ゼタ | Z | 10 ⁻² | センチ | c |
| 10 ¹⁸ | エクサ | E | 10 ⁻³ | ミリ | m |
| 10 ¹⁵ | ペタ | P | 10 ⁻⁶ | マイクロ | μ |
| 10 ¹² | テラ | T | 10 ⁻⁹ | ナノ | n |
| 10 ⁹ | ギガ | G | 10 ⁻¹² | ピコ | p |
| 10 ⁶ | メガ | M | 10 ⁻¹⁵ | フェムト | f |
| 10 ³ | キロ | k | 10 ⁻¹⁸ | アト | a |
| 10 ² | ヘクト | h | 10 ⁻²¹ | ゼプト | z |
| 10 ¹ | デカ | da | 10 ⁻²⁴ | ヨクト | y |

表6. SIに属さないが、SIと併用される単位

| 名称 | 記号 | SI単位による値 |
|-------|------|---|
| 分 | min | 1 min = 60s |
| 時 | h | 1 h = 60 min = 3600 s |
| 日 | d | 1 d = 24 h = 86 400 s |
| 度 | ° | 1° = (π/180) rad |
| 分 | ' | 1' = (1/60)° = (π/10800) rad |
| 秒 | " | 1" = (1/60)' = (π/648000) rad |
| ヘクタール | ha | 1 ha = 1 hm ² = 10 ⁴ m ² |
| リットル | L, l | 1 L = 1 dm ³ = 10 ³ cm ³ = 10 ⁻³ m ³ |
| トン | t | 1 t = 10 ³ kg |

表7. SIに属さないが、SIと併用される単位で、SI単位で表される数値が実験的に得られるもの

| 名称 | 記号 | SI単位で表される数値 |
|----------|----|---|
| 電子ボルト | eV | 1 eV = 1.602 176 53(14) × 10 ⁻¹⁹ J |
| ダルトン | Da | 1 Da = 1.660 538 86(28) × 10 ⁻²⁷ kg |
| 統一原子質量単位 | u | 1 u = 1 Da |
| 天文単位 | ua | 1 ua = 1.495 978 706 91(6) × 10 ¹¹ m |

表8. SIに属さないが、SIと併用されるその他の単位

| 名称 | 記号 | SI単位で表される数値 |
|-----------|------|---|
| バール | bar | 1 bar = 0.1 MPa = 100 kPa = 10 ⁵ Pa |
| 水銀柱ミリメートル | mmHg | 1 mmHg = 133.322 Pa |
| オングストローム | Å | 1 Å = 0.1 nm = 100 pm = 10 ⁻¹⁰ m |
| 海里 | M | 1 M = 1852 m |
| バイン | b | 1 b = 100 fm ² = (10 ¹² cm) ² = 10 ⁻²⁸ m ² |
| ノット | kn | 1 kn = (1852/3600) m/s |
| ネーパ | Np | SI単位との数値的関係は、 対数量の定義に依存。 |
| ベール | B | |
| デジベル | dB | |

表9. 固有の名称をもつCGS組立単位

| 名称 | 記号 | SI単位で表される数値 |
|-----------------------|-----|--|
| エル | erg | 1 erg = 10 ⁻⁷ J |
| ダイン | dyn | 1 dyn = 10 ⁻⁵ N |
| ポアズ | P | 1 P = 1 dyn s cm ⁻² = 0.1 Pa s |
| ストークス | St | 1 St = 1 cm ² s ⁻¹ = 10 ⁻⁴ m ² s ⁻¹ |
| スチルブ | sb | 1 sb = 1 cd cm ⁻² = 10 ⁴ cd m ⁻² |
| フオト | ph | 1 ph = 1 cd sr cm ⁻² = 10 ⁴ lx |
| ガリ | Gal | 1 Gal = 1 cm s ⁻² = 10 ⁻² ms ⁻² |
| マクスウェル | Mx | 1 Mx = 1 G cm ² = 10 ⁻⁸ Wb |
| ガウス | G | 1 G = 1 Mx cm ⁻² = 10 ⁻⁴ T |
| エルステッド ^(c) | Oe | 1 Oe ≡ (10 ³ /4π) A m ⁻¹ |

(c) 3元系のCGS単位系とSIでは直接比較できないため、等号「≡」は対応関係を示すものである。

表10. SIに属さないその他の単位の例

| 名称 | 記号 | SI単位で表される数値 |
|-----------|------|--|
| キュリー | Ci | 1 Ci = 3.7 × 10 ¹⁰ Bq |
| レントゲン | R | 1 R = 2.58 × 10 ⁻⁴ C/kg |
| ラド | rad | 1 rad = 1 cGy = 10 ⁻² Gy |
| レム | rem | 1 rem = 1 cSv = 10 ⁻² Sv |
| ガンマ | γ | 1 γ = 1 nT = 10 ⁻⁹ T |
| フェルミ | f | 1 フェルミ = 1 fm = 10 ⁻¹⁵ m |
| メートル系カラット | | 1 メートル系カラット = 200 mg = 2 × 10 ⁻⁴ kg |
| トル | Torr | 1 Torr = (101 325/760) Pa |
| 標準大気圧 | atm | 1 atm = 101 325 Pa |
| カロリ | cal | 1 cal = 4.1858 J (「15°C」カロリ), 4.1868 J (「IT」カロリ), 4.184 J (「熱化学」カロリ) |
| マイクロン | μ | 1 μ = 1 μm = 10 ⁻⁶ m |

