

MOX 燃料製造工程における乾式リサイクル技術開発

—乾式回収粉の粒度調整のための粉砕機の選定およびその特性評価—

Development of Dry Rework Technology in MOX Fuel Fabrication Process

-Selection and Characterization of Pulverizer for
Particle Size Adjustment of Dry Recycled Powder-

山本 和也 牧野 崇義 磯 秀敏 瀬川 智臣
川口 浩一 石井 克典

Kazuya YAMAMOTO, Takayoshi MAKINO, Hidetoshi ISO, Tomoomi SEGAWA
Koichi KAWAGUCHI and Katsunori ISHII

核燃料・バックエンド研究開発部門
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
プルトニウム燃料施設整備室

Plutonium Fuel Facility Program Office
Plutonium Fuel Development Center
Nuclear Fuel Cycle Engineering Laboratories
Sector of Nuclear Fuel, Decommissioning and Waste Management Technology Development

May 2021

本レポートは国立研究開発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。
本レポートの転載等の著作権利用は許可が必要です。本レポートの入手並びに成果の利用(データを含む)は、
下記まで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ウェブサイト (<https://www.jaea.go.jp>)
より発信されています。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 研究連携成果展開部 研究成果管理課
〒319-1195 茨城県那珂郡東海村大字白方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.
Reuse and reproduction of this report (including data) is required permission.
Availability and use of the results of this report, please contact
Institutional Repository Section,
Intellectual Resources Management and R&D Collaboration Department,
Japan Atomic Energy Agency.
2-4 Shirakata, 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, 2021

MOX 燃料製造工程における乾式リサイクル技術開発 —乾式回収粉の粒度調整のための粉砕機の選定およびその特性評価—

日本原子力研究開発機構 核燃料・バックエンド研究開発部門 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 プルトニウム燃料施設整備室

山本 和也、牧野 崇義、磯 秀敏、瀬川 智臣⁺、川口 浩一⁺、石井 克典⁺

(2021年1月20日受理)

MOX 燃料製造工程において、規格外の混合酸化物ペレットを粉砕した乾式回収粉末を有効利用する乾式リサイクル技術の開発を進めている。乾式回収粉末は、現行の粉砕機により粗目（約 250 μm 以下）、中目（約 100 μm 以下）、細目（約 10 μm 以下）の 3 種類に粒度調整し、これを原料粉末に添加することで焼結ペレットの密度を制御する効果が一定程度得られている。本報告では、乾式回収粉末の粒度をより細かいレベルで調整することを目的とし、乾式回収粉末を粒子径 250 μm 以下の範囲で調整可能とする粉砕機として、石臼式粉砕機および衝突板式ジェットミルを選定し、MOX ペレットの模擬材としてタングステンカーバイド・コバルト (WC-Co) ペレットを粉砕する粒度調整試験を実施した。

石臼式粉砕機は、砥石クリアランスを調整することにより粒子径を一定の範囲で制御できるが、粒子径 250 μm 以上の粒子が多く排出される可能性がある。一方、衝突板式ジェットミルは、分級ゾーンクリアランスを調整することにより粒子径を 250 μm 以下の範囲で制御できる見通しが得られた。よって、衝突板式ジェットミルは石臼式粉砕機に比べ、乾式回収粉末の粒度調整に適している。

**Development of Dry Rework Technology in MOX Fuel Fabrication Process
- Selection and Characterization of Pulverizer for Particle Size Adjustment
of Dry Recycled Powder -**

Kazuya YAMAMOTO, Takayoshi MAKINO, Hidetoshi ISO, Tomoomi SEGAWA⁺,
Koichi KAWAGUCHI⁺ and Katsunori ISHII⁺

Plutonium Fuel Facility Program Office, Plutonium Fuel Development Center
Nuclear Fuel Cycle Engineering Laboratories
Sector of Nuclear Fuel, Decommissioning and Waste Management Technology Development
Japan Atomic Energy Agency
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received January 20, 2021)

In the MOX fuel fabrication process, a dry recycle technology has been developed to effectively utilize dry recovered powder obtained by crushing out of specification MOX pellets. The particle size of the dry recovery powder is divided into three classes; coarse size (about 250 μm or less), medium size (about 100 μm or less), and fine size (about 10 μm or less) by the current crushers, and the effect of controlling the density of sintered pellets is obtained to a certain extent by adding the dry recovered powder to the raw powder. In this report, with the aim of more finely adjusting the particle size of the dry recovery powder, a buhrstone mill and a collision plate-type jet mill were selected as grinders that can adjust the dry recovered powder within a particle size range of 250 μm or less, and the particle size adjustment test was conducted to pulverize the tungsten-carbide-cobalt (WC-Co) pellets as a simulated material for the MOX pellets.

The buhrstone mill can control the particle size within a certain range by adjusting the grindstone clearance, but particles with a particle size of 250 μm or more may be discharged. On the contrary, it is expected that the particle size of the collision plate-type jet mill can be controlled in the range of 250 μm or less by adjusting the classification zone clearance. Therefore, the collision plate-type jet mill is more suitable for adjusting the particle size of the dry recovered powder than the buhrstone mill.

Keywords: Dry Recycle Technology, Particle Size Adjustment, Buhrstone Mill, Collision Plate-type Jet Mill

⁺ Fuel Cycle Design Department, Sector of Fast Reactor and Advanced Reactor Research and Development

目次

1. はじめに	1
1.1 背景と目的	1
1.2 粉砕機の選定条件	1
1.3 試験機器の調査及び選定	1
1.4 本報告書の構成	2
2. 粉砕機の選定試験	3
2.1 試験機器	3
2.1.1 石臼式粉砕機	3
2.1.2 衝突板式ジェットミル	3
2.1.3 模擬粉末及び試験手順	4
2.2 試験条件	4
2.2.1 石臼式粉砕機の砥石クリアランス	4
2.2.2 石臼式粉砕機の粉末供給速度	4
2.2.3 衝突板式ジェットミルの分級ゾーンクリアランス	4
2.2.4 衝突板式ジェットミルの粉末供給速度	5
3. 試験結果	6
3.1 石臼式粉砕機の砥石クリアランスによる影響	6
3.1.1 粉砕粉末の粒度分布	6
3.1.2 粉砕粉末の SEM 像	6
3.1.3 粉砕機内の滞留量	6
3.2 石臼式粉砕機の粉末供給速度による影響	7
3.2.1 粉砕粉末の粒度分布	7
3.2.2 粉砕粉末の SEM 像	7
3.2.3 粉砕機内の滞留量	7
3.3 衝突板式ジェットミルの分級ゾーンクリアランスによる影響	7
3.3.1 粉砕粉末の粒度分布	7
3.3.2 粉砕粉末の SEM 像	7
3.3.3 粉砕機内の滞留量	8
3.4 衝突板式ジェットミルの粉末供給速度による影響	8
3.4.1 粉砕粉末の粒度分布	8
3.4.2 粉砕粉末の SEM 像	8
3.4.3 粉砕機内の滞留量	8
4. 選定評価結果	9
5. 今後の課題	10
参考文献	11

Contents

1. Introduction	1
1.1 Background and Objective	1
1.2 Crusher Selection Condition	1
1.3 Investigation and Selection of Testing Equipment	1
1.4 Structure of This Report	2
2. Selection Test of Pulverizer	3
2.1 Experimental Equipment	3
2.1.1 Buhrstone Mill	3
2.1.2 Collision Plate-type Jet Mill	3
2.1.3 Experimental Procedure and Simulated Powder	4
2.2 Test Conditions	4
2.2.1 Clearance between Grinding Stones of Buhrstone Mill	4
2.2.2 Powder Feeding Rate of Buhrstone Mill	4
2.2.3 Clearance in Classification Zone of Collision Plate-type Jet Mill	4
2.2.4 Powder Feeding Rate of Collision Plate-type Jet Mill	5
3. Test Results	6
3.1 Effect of Clearance between Grinding Stones of Buhrstone Mill	6
3.1.1 Particle Size Distributions of Grounded Powder	6
3.1.2 SEM Images of Grounded Powder	6
3.1.3 Storage Quantity in Buhrstone Mill	6
3.2 Effect of Powder Feeding Rate of Buhrstone Mill	7
3.2.1 Particle Size Distributions of Grounded Powder	7
3.2.2 SEM Images of Grounded Powder	7
3.2.3 Storage Quantity in Buhrstone Mill	7
3.3 Effect of Powder Feeding Rate of Collision Plate-type Jet Mill	7
3.3.1 Particle Size Distributions of Pulverized Powder	7
3.3.2 SEM Images of Pulverized Powder	7
3.3.3 Storage Quantity in Collision Plate-type Jet Mill	8
3.4 Effect of Powder Feeding Rate of Collision Plate-type Jet Mill	8
3.4.1 Particle Size Distributions of Pulverized Powder	8
3.4.2 SEM Images of Pulverized Powder	8
3.4.3 Storage Quantity in Collision Plate-type Jet Mill	8
4. Results of Selection Evaluation	9
5. Further Research Problems	10
References	11

表リスト

表 2.2.1-1 石臼式粉砕機による粒度調整試験条件 16
 表 2.2.3-1 衝突板式ジェットミルによる粒度調整試験条件 16
 表 4-1 石臼式粉砕機と衝突板式気流粉砕機の比較評価 31

図リスト

図 1.1-1 MOX 燃料製造工程フロー 12
 図 2.1.1-1 石臼式粉砕機の粉砕室の概略図 13
 図 2.1.2-1 衝突板式ジェットミルの概略図 13
 図 2.1.2-2 遠心分級機の概略図 14
 図 2.1.2-3 遠心分級機の部分断面上面図 14
 図 2.1.3-1 原料粉末 (WC-Co) の SEM 像 15
 図 2.1.3-2 原料粉末 (WC-Co) の粒度分布 15
 図 3.1.1-1 石臼式粉砕機の砥石クリアランスと粒度分布の関係 17
 図 3.1.1-2 石臼式粉砕機の砥石クリアランスと最大・最頻度粒子径の関係 18
 図 3.1.1-3 石臼式粉砕機の砥石クリアランスと粒子径と砥石クリアランス比の関係 18
 図 3.1.2-1 石臼式粉砕機で粉砕した WC-Co 粒子の SEM 像 19
 図 3.1.3-1 石臼式粉砕機の砥石クリアランスと製品回収率の関係 20
 図 3.1.3-2 粉砕試験後の石臼式粉砕機の内部観察写真 21
 図 3.2.1-1 石臼式粉砕機の粉末供給速度と粒度分布の関係 22
 図 3.2.1-2 石臼式粉砕機の粉末供給速度と最大・最頻度粒子径の関係 22
 図 3.2.3-1 石臼式粉砕機の粉末供給速度と製品回収率の関係 23
 図 3.3.1-1 衝突板式ジェットミルの分級ゾーンクリアランスと粒度分布の関係 24
 図 3.3.1-2 衝突板式ジェットミルの分級ゾーンクリアランスと最大・最頻度粒子径の関係 25
 図 3.3.2-1 衝突板式ジェットミルで粉砕した WC-Co 粒子の SEM 像 26
 図 3.3.3-1 衝突板式ジェットミルの分級ゾーンクリアランスと製品回収率の関係 27
 図 3.3.3-2 粉砕試験後の衝突板式ジェットミルの内部観察写真 28
 図 3.4.1-1 衝突板式ジェットミルの粉末供給速度と粒度分布の関係 29
 図 3.4.1-2 衝突板式ジェットミルの粉末供給速度と最大粒子径・最頻径の関係 29
 図 3.4.3-1 衝突板式ジェットミルの粉末供給速度と製品回収率の関係 30

This is a blank page.

1. はじめに

1.1 背景と目的

MOX 燃料製造工程において、核燃料物質の有効利用を目的とし、規格外の混合酸化物ペレットを粉砕し乾式回収粉末として再利用するため、乾式リサイクル技術の研究開発を進めている。図 1.1-1 に MOX 燃料製造工程フローを示す。これまでの研究開発結果から、秤量工程に投入する粒子径 250 μm 以下の乾式回収粉末や密度降下剤を添加することにより、ペレットの焼結密度が制御可能であることが確認されている^{1,2)}。

現行の MOX 燃料製造工程においては、ロールクラッシャー、スパイラルジェットミルおよび篩により乾式回収粉末を粗目（約 250 μm 以下）、中目（約 100 μm 以下）、細目（約 10 μm 以下）に粒度調整している。ロールクラッシャーは、上下 2 段に設置されたロールによりビッカース硬さ約 800 HV までの高硬度ペレットを粉砕する能力を有する。ロールクリアランスは、1 段目が 0.3~1.0 mm、2 段目が 0.2~0.7 mm の範囲で調整が可能であり、ロールクリアランスを制御することによって粉砕粉末の粒度を調整している。スパイラルジェットミルは、圧縮空気により原料粉末同士を衝突させて粉砕するため、一般的に他の元素によるコンタミネーションの少ない高品質な粉砕粉末を得ることができる。また、スパイラルジェットミルは、有機物やセラミックス、金属合金等の原料粉末を平均粒子径 10 μm 以下に粉砕でき、高い粉砕性能を有するとともに^{3,8)}、スパイラルジェットミルのノズルの圧力を低下させ、粉末供給速度を増加させることにより、粒子径約 50 μm 以下の範囲で粒度調整が可能と報告されている⁹⁾。現行の粉砕機による規格外の混合酸化物ペレットの粉砕においては、無段階で粒度調整することは技術的に難しいため、粉砕粉末の粒度をロールクラッシャーによる粗目とスパイラルジェットミルによる中目および細目の 3 種類に調整している。粉砕粉末の粒度をより細かいレベルで調整するため、粒子径約 250 μm 以下の範囲、具体的には粗目と中目の間の粒子径、中目と細目の間の粒子径、細目以下の粒子径への粒度調整を可能とする技術の開発を進めている。

このため、MOX 乾式回収粉末の粒度調整を目的として、粉砕機の選定及び模擬粉末を用いた粒度調整試験及びグローブボックスへの導入に係る検討評価を行った。

1.2 粉砕機の選定条件

- a. プルトニウム燃料第三開発室のグローブボックス（縦 3 m×横 3 m×奥行 1.0~1.2 m）内に設置可能な大きさであること。
- b. 粉砕後の粉末が粒子径約 250 μm 以下の範囲内で粒度調整が可能であること。
- c. グローブボックス作業における保守性が良いこと。

1.3 試験機器の調査及び選定

粒度調整可能なピンミル、ハンマーミル、石臼式粉砕機、衝突板式ジェットミルを粉砕機の候補に挙げ、選定に係る予備的な調査を行った。このうち、ピンミルとハンマーミルについては、粉砕後の粉末の粒子径が数十 μm 程度であり、細目（約 10 μm 以下）の粒度調整が困難であることから、選定候補から除外した。一方、石臼式粉砕機と衝突板式ジェットミルは、粒度

調整機構を制御することにより粒子径数 μm から数百 μm の範囲で粒度調整が可能であることから、石臼式粉砕機と衝突板式ジェットミルが有望であると判断した。石臼式粉砕機については上下 2 つの砥石の間のクリアランスを調整することにより、衝突板式ジェットミルについては遠心分級機の構成機器のパラメータを調整することにより、それぞれ粉砕粉末の粒子径を制御することが可能となる⁹⁻¹²⁾。

乾式回収粉末の粒度調整を目的とし、これら 2 機種 of 粉砕機の選定及び粉砕特性を把握するための試験を実施した。

1.4 本報告書の構成

2 章に試験に使用した粉砕機の詳細を記載した。3 章にそれぞれの試験結果と 4 章にグローブボックスへの導入に係る検討評価を示した。さらに、5 章に今後の課題を述べる。

2. 粉砕機の選定試験

2.1 試験機器

2.1.1 石臼式粉砕機

石臼式粉砕機の概略図を図 2.1.1-1 に示す。装置上部の供給フィーダから粉砕室に原料粉末が送られる。原料粉末は Si_3N_4 製の上部の固定砥石と下部の回転砥石により粉砕され、砥石を通過した後の粉砕粉末は、粉末回収容器に回収される。原料粉末の粒子径は砥石クリアランスを調整することにより制御することができる。

2.1.2 衝突板式ジェットミル

衝突板式ジェットミルの概略図を図 2.1.2-1 に示す。定量粉体供給器から一定の速度で原料粉末を装置内に供給する。粉砕ノズル内に吸引された原料粉末は圧縮空気により加速され、ノズル前方に設置した Al_2O_3 製の衝突板に強制的に衝突することで粉砕される。衝突板を通過した後の粉砕粉末は上部の遠心分級機により、さらに粉砕が必要な粗粉粒子と十分に粉砕された微粉粒子に分離される。微粉粒子は排気とともにサイクロン捕集器に送られる。粗粉粒子は、目標の粒度まで繰り返し粉砕・分級される。

遠心分級機の概略図を図 2.1.2-2 に示す。遠心分級機では、原料粉末が最初に上部の分散ゾーンで分散される。分散された原料粉末は周縁部のスリットから分級ゾーンに送られる。遠心分級機の分級ゾーンの点線部分の上面図を図 2.1.2-3 に示す。ここで、ガイドベーンの開口部は、接線方向に対して傾斜しているため、旋回流が発生する。このとき、微粉粒子と粗粉粒子は、旋回流によって粒子に生じる法線方向の抗力と接線方向の速度によって分級される。ガイドベーンから流入した二次エアによって周縁部のスリットから粗粉粒子が粉砕機に排出され、中心部の排気口から微粉粒子が排出される。

遠心分級機内の構成機器のパラメータを調整することにより、分級ゾーン内で形成される旋回流が変化し、粒子の分級点 (D_p) を制御することができる。

分級点の評価式を以下の式(1)に示す¹⁰⁾。

$$D_p = \frac{1}{\alpha^n} \sqrt{\frac{9\mu B}{\pi\rho_s v_t} \cdot \left(\frac{r}{R}\right)^{2n} \cdot \left(\frac{H}{h}\right)} \quad (1)$$

ここで、 n は渦定数、 μ は空気の粘性係数、 B は分級室入口の横幅、 ρ_s は物質の密度、 v_t は二次エアの速度、 r は粒子の分級室中心からの距離、 R は分級室口径、 α は r/R 比、 H は分級室入口の縦幅、 h は分級ゾーンのクリアランスである。

グローブボックス内作業を想定した場合に、最も簡易に調整が可能と考えられる分級ゾーンのクリアランスをパラメータとして、乾式回収粉末の粒子径を $250 \mu\text{m}$ 以下に制御することを目指す。

2.1.3 模擬粉末及び試験手順

MOX 燃料製造工程では、図 1.1-1 に示すように、規格外の MOX ペレット（理論密度（T.D.; Theoretical Density）の 95% のときで 10.5 g/cm^3 ）をロールクラッシャーで粉砕した後、目開き 30（ $500 \mu\text{m}$ ）の篩目に通すことでジェットミルに供給する乾式回収粉末を得ている。本試験では、MOX と比較的近い密度を有するタングステンカーバイド・コバルト（WC-Co）粉末を成型し、焼結して得られた寸法 $15.5 \text{ mm}\phi \times 13.5 \text{ mm}$ 、密度 9.0 g/cm^3 （約 60 %T.D. に相当）の WC-Co ペレットを使用した。WC-Co ペレットは、カッターミルにより粉砕し、これらの粉砕粉末を篩目開き 30 メッシュ（ $500 \mu\text{m}$ ）で篩い分けしたものを供試粉体として使用した。本試験においては、この供試粉体を原料粉末として定義する。試験に用いた模擬の原料粉末の SEM 像及び粒度分布を図 2.1.3-1、図 2.1.3-2 に示す。原料粉末の最大粒子径は約 $2000 \mu\text{m}$ 、最頻度粒子径は約 $500 \mu\text{m}$ であった。

各粉砕機により粉砕した粉砕粉末の形状および表面状態について、SEM により、加速電圧 5.0 kV 、倍率 100 倍および 500 倍で観察を行った。また、粒度分布測定装置により、粒度分布の測定を行った。さらに、各試験後の粉砕機内の粉末滞留量について評価を行った。

2.2 試験条件

2.2.1 石臼式粉砕機の砥石クリアランス

石臼式粉砕機の試験条件を表 2.2.1-1 に示す。砥石クリアランスは、試験目的から粒子径 $250 \mu\text{m}$ 以下の範囲の製品が主となるように、 $20 \mu\text{m}$ 、 $50 \mu\text{m}$ 、 $100 \mu\text{m}$ 、 $300 \mu\text{m}$ に設定した。最小値の $20 \mu\text{m}$ は、設定可能な砥石クリアランスの下限値である。ここで、製品粉末とは粉砕粉末のうち、粉末回収容器内に回収された粉砕粉末をいう。なお、下部回転砥石の回転数は、標準的な回転数である 1500 rpm に設定した。また、より多い量の粉末を処理した場合の粉砕機内の滞留量の確認を目的として、全試験パラメータの終了後に、砥石クリアランスを $20 \sim 300 \mu\text{m}$ のおよそ中間に位置する $100 \mu\text{m}$ 、粉末供給速度を石臼式粉砕機の基本処理量である約 10 kg/h の設定にて 30 分間の連続運転を行い、製品粉末の回収率を確認した。

2.2.2 石臼式粉砕機の粉末供給速度

原料粉末供給量は、石臼式粉砕機の基本処理量である約 10 kg/h とし、供給速度の変動が製品粉末の品質に及ぼす影響を確認するため、その半分の約 5 kg/h を対比パラメータとした。

2.2.3 衝突板式ジェットミルの分級ゾーンクリアランス

衝突板式ジェットミルの試験条件を表 2.2.3-1 に示す。分級ゾーンクリアランスは、試験目的から粒子径 $250 \mu\text{m}$ 以下の範囲の製品が主となるように、 1 mm 、 2 mm 、 3 mm に設定した。なお、装置の標準的な運転パラメータとして二次エアーの流速は $72 \text{ Nm}^3/\text{h}$ 、圧縮空気の圧力は 0.5 MPa 、ガイドベーンの開度は 50° 、ガイドベーンの開口面積は 800 mm^2 に設定した。また、二次エアーの流速の変動が製品粉末の品質に及ぼす影響を確認するため、分級ゾーンクリアランス 3 mm については二次エアーの流速 $72 \text{ Nm}^3/\text{h}$ に加えて $60 \text{ Nm}^3/\text{h}$ でも実施した。更に、より多い量の粉末を処理した場合の粉砕機内の滞留量の確認を目的として、全試験パラメ

ータの終了後に、分級ゾーンクリアランスを 1～3 mm の中間に位置する 2 mm、粉末供給速度を衝突板式ジェットミルの基本処理量である約 2 kg/h、装置の標準的な運転パラメータとして二次エアーの流速は 72 Nm³/h、圧縮空気の圧力は 0.5 MPa、ガイドベーンの開度は 50°、ガイドベーンの開口面積は 800 mm² の設定にて 30 分間の連続運転を行い、製品粉末の回収率を確認した。

2.2.4 衝突板式ジェットミルの粉末供給速度

本試験に使用する衝突板式ジェットミルは、実験用の粉砕機となるため、原料粉末供給量は、その性能の範囲で約 2 kg/h とし、供給速度の変動が製品粉末の品質に及ぼす影響を確認するため、その半分の約 1 kg/h を対比パラメータとした。

3. 試験結果

3.1 石臼式粉砕機の砥石クリアランスによる影響

3.1.1 粉砕粉末の粒度分布

砥石クリアランスをパラメータとしたときの粉砕粉末の粒度分布の測定結果を図 3.1.1-1 に、砥石クリアランスと最大・最頻度粒子径の関係を図 3.1.1-2 に示す。粉末供給速度に関わらず、砥石クリアランス 20 μm にて粉砕した粉末の最頻度粒子径は約 4 μm 、50 μm では約 250 μm 、100 μm では約 280 μm 、300 μm では約 450 μm であった。特に、砥石クリアランスを 50 μm 以上に設定した場合は、砥石クリアランスに比べて粗大な粉砕粉末が製品粉末として多く回収された。

粒子径と砥石クリアランスの比を砥石クリアランスに対してプロットした結果を図 3.1.1-3 に示す。砥石クリアランス 50 μm において、粒子径と砥石クリアランスの比は最大となることが確認された。この結果から、アスペクト比が大きい粉砕粉末の粒子が砥石クリアランスを通過したことが示唆される。

3.1.2 粉砕粉末の SEM 像

粉砕により得られた粒子の SEM 像を図 3.1.2-1 に示す。砥石クリアランスを小さくすることにより、粉砕粉末の粒子が小さくなる傾向が見られた。また、粉砕粉末の粒子の形状は、不定形の粒子形状となっていることを確認した。これは砥石のせん断力により粒子が粉砕されることに起因するものと考えられる。

3.1.3 粉砕機内の滞留量

砥石クリアランスをパラメータとしたときの製品粉末回収率を図 3.1.3-1 に、試験後の内部観察写真を図 3.1.3-2 に示す。砥石クリアランスを大きくすることにより、製品粉末の回収率が増加する傾向が見られた。これは、砥石クリアランスを大きくすることにより、粒子径の大きな粉砕粉末が排出されやすくなったことが原因と考えられる。また、砥石クリアランスが小さいと粉砕粉末は微粉粒子の割合が多くなるため、微粉粒子が砥石を通過した後に粉砕室外に排出されず、回転砥石の下部に滞留しやすくなった可能性が考えられる。

粉砕機内の滞留量の確認を目的として、全試験パラメータの終了後に、砥石クリアランス 100 μm 、粉末供給速度 10 kg/h の設定にて 30 分間の連続運転を行い、製品粉末の回収率を確認した。本運転の結果、供給量 5,000 g に対して製品粉末の回収量は 4,438.5 g であり、回収率は 88.8%と試験運転の回収率よりも低くなった。本運転と同条件であるパラメータ番号⑥では、粉末供給速度 10 kg/h を 5 分間の運転に換算した 830 g を供給量としており、本運転はパラメータ番号⑥に比べて供給量が 5,000 g と大幅に増加したため、装置内の滞留量が増加したと考えられる。

3.2 石臼式粉砕機の粉末供給速度による影響

3.2.1 粉砕粉末の粒度分布

粉末供給速度をパラメータとしたときの粉砕粉末の粒度分布の測定結果を図 3.2.1-1 に示す。粉末供給速度が減少することにより、粉砕粉末の粒子径は僅かに小さくなる傾向が見られた。

石臼式粉砕機の粉末供給速度と最大・最頻度粒子径の関係を図 3.2.1-2 に示す。粉末供給速度を減少させても最頻度粒子径は変わらなかった。一方、最大粒子径は、砥石クリアランス 100 μm では粉末供給速度を減少させると小さくなるが、砥石クリアランス 50 μm と 300 μm では粉末供給速度を減少させると大きくなる傾向が見られた。砥石クリアランスが大きくなると、粉末供給速度によって最大粒子径のバラツキが大きくなると考えられる。

3.2.2 粉砕粉末の SEM 像

図 3.2.1-1 の粒度分布より、粉末供給速度が減少すると粉砕粉末の粒子径は僅かに小さくなる傾向が見られたが、図 3.1.2-1 の粉砕粉末の SEM 像からは粉末供給速度の増減による粒子形状の特段の変化は見られなかった。

3.2.3 粉砕機内の滞留量

粉末供給速度をパラメータとしたときの製品粉末回収率を図 3.2.3-1 に示す。粉末供給速度を増加することにより、製品粉末の回収率が増加した。原料粉末の供給量が増加することにより、原料粉末によって粉砕粉末が押し出されたため、回収率が増加したと考えられる。

なお、粉末の滞留箇所については、3.1.3 に記載のとおりである。

3.3 衝突板式ジェットミルの分級ゾーンクリアランスによる影響

3.3.1 粉砕粉末の粒度分布

分級ゾーンクリアランスをパラメータとしたときの粉砕粉末の粒度分布の測定結果を図 3.3.1-1 に、分級ゾーンクリアランスと最大・最頻度粒子径の関係を図 3.3.1-2 に示す。いずれの条件においても、分級ゾーンクリアランスを大きくすることにより、粉砕粉末の粒子径が小さくなることを確認した。式(1)に示したように、分級点は分級ゾーンのクリアランスの逆数に反比例するため、分級ゾーンクリアランスを大きくすることにより、分級ゾーンに生じる旋回流の線速度が低下し、分級点が小粒子径側に移動したと考えられる。

3.3.2 粉砕粉末の SEM 像

粉砕により得られた粒子の SEM 像を図 3.3.2-1 に示す。分級ゾーンクリアランスを大きくすることにより、粉砕粉末の粒子が小さくなる傾向が見られた。また、粉砕粉末の粒子のうち、比較的大きめの粒として確認されるものの形状は概ね球形であった。粒子が衝突板と衝突したことにより、粉砕だけではなく、粒子の表面を削るように粉砕される磨砕が起こった可能性が示唆される。

3.3.3 粉砕機内の滞留量

分級ゾーンクリアランスをパラメータとしたときの製品粉末回収率を図 3.3.3-1 に示す。分級ゾーンクリアランスを小さくすることにより、製品粉末の回収率が増加する傾向が見られた。これは、分級ゾーンクリアランスが大きいほど微粉粒子が発生し、装置内への付着や集塵機へ吸引される粉砕粉末が増加する一方、分級ゾーンクリアランスが小さいほど微粉粒子は発生しにくく、装置内への付着や集塵機へ吸引される粉砕粉末が減少し、より多くの粉砕粉末が製品として回収されたと考えられる。また、粉砕機内の滞留量の確認を目的として、全試験パラメータの終了後に、分級ゾーンクリアランス 2 mm、粉末供給速度 2 kg/h、二次エアーの流速 72 Nm³/h、圧縮空気の圧力 0.5 MPa、ガイドベーンの開度 50°、ガイドベーンの開口面積 800 mm² の設定にて 30 分間の連続運転を行い、製品粉末の回収率を確認した。本運転の結果、供給量 1,000 g に対して製品粉末の回収量は 985.1 g であり、回収率は 98.5%であった。石臼式粉砕機とは異なり、処理量が増加すると粉砕機内の滞留量は減少し、製品粉末の回収率は大きく改善される結果となった。

試験後の内部観察写真を図 3.3.3-2 に示す。いずれの条件においても、衝突板を収納している粉砕機ケーシング内に粉末が多く滞留していた。

3.4 衝突板式ジェットミルの粉末供給速度による影響

3.4.1 粉砕粉末の粒度分布

粉末供給速度をパラメータとしたときの粉砕粉末の粒度分布の測定結果を図 3.4.1-1 に、衝突板式ジェットミルの粉末供給速度と最大・最頻度粒子径の関係を図 3.4.1-2 に示す。粉末供給速度が減少することにより、粉砕粉末の粒子径は小さくなる傾向が見られた。

3.4.2 粉砕粉末の SEM 像

図 3.3.2-1 より、粉末供給速度の増減に伴う粉砕粉末の粒子形状に変化は見られなかった。

3.4.3 粉砕機内の滞留量

粉末供給速度をパラメータとしたときの製品粉末回収率を図 3.4.3-1 に示す。分級ゾーンクリアランスを 3 mm に設定した条件では、粉末供給速度が減少することにより製品粉末の回収率が増加した。粉末供給速度の減少に伴い微粉粒子の発生が減少し、装置内への付着や集塵機へ吸引される粉砕粉末が減少したためと考えられる。一方、分級ゾーンクリアランスを 1 mm に設定した条件では、粉末供給速度が減少することにより製品粉末の回収率が減少した。粉末供給速度に関わらず装置内に一定量の滞留が発生することから、粉末供給速度の減少に伴い相対的に製品粉末の回収率が減少したと考えられる。なお、分級ゾーンクリアランスを 2 mm に設定した条件では差は見られなかった。

粉末の滞留箇所について、粉末供給速度の増減に関わらず、いずれの条件においても衝突板を収納している粉砕機ケーシング内に粉末が多く滞留していた。

4. 選定評価結果

乾式回収粉末の粒度調整を可能とする粉砕機の選定のため、石臼式粉砕機及び衝突板式ジェットミルの性能の評価を行った結果、以下の項目が明らかになった。

1. 石臼式粉砕機は、砥石クリアランスを狭めることにより粉砕粉末の粒子径が減少したが、砥石クリアランス 50 μm 以上では、砥石クリアランスに比べて粗大な粉砕粉末が多く発生した。
2. 衝突板式ジェットミルは、分級ゾーンクリアランスを広げることにより粉砕粉末の粒子径が小さくなった。
3. 石臼式粉砕機により粉砕された粉末の粒子は不定形状であるのに対し、衝突板式ジェットミルでは均一且つ球形である粒子が確認され、粉砕方式による形状の差異が明らかとなった。
4. いずれの粉砕機も、運転条件を調整することにより目標粒子径 250 μm 以下の粒子を得られるが、石臼式粉砕機は砥石クリアランスを広げることでクリアランスより粗大な粉砕粉末が多く発生してしまう。衝突板式ジェットミルは、遠心分級機の構成機器のパラメータを調整することにより、粉砕粉末の粒子径を細かく制御することが可能となる見通しを得た。

石臼式粉砕機と衝突板式ジェットミルの比較評価結果を表 4-1 に示す。石臼式粉砕機は、粉砕・分級性能は有するものの、砥石クリアランスより大きな粒子が多く混在することが課題となる。また、保守性等に関しては、臨界管理上の観点から砥石の水冷が不可であるため、グローブボックス内で取扱う上で課題となる。一方、衝突板式ジェットミルは、粉砕・分級性能について高い性能を有しており、また保守性等についても高い適応性を有していることから、衝突板式ジェットミルは石臼式粉砕機に比べ、乾式回収粉末の粒度調整に適していると考えられる。

5. 今後の課題

衝突板式ジェットミルについては、今後、運転条件を調整した粒度調整試験を実施する必要がある。また、衝突板式ジェットミルにより調製した粒度調整粉において、密度制御効果が得られることを確認する必要がある。さらに、MOX 燃料製造工程に導入するため、グローブボックスへの衝突板式ジェットミル導入に向けた概念検討を実施する必要がある。

参考文献

- 1) 村上龍敏, 鈴木紀一, 畑中延浩, 塙幸雄, 篠崎雄, 村上真一, 飛田良正, 川崎猛, 小林良仁, 飯村直人, 大代操, 助川宣夫, 青野茂典, 伊藤正徳, FBR用低密度MOX燃料ペレットの製造条件確認試験, JAEA-Technology 2008-017, 97p, 2008.
- 2) 村上龍敏, 鈴木紀一, 青野茂典, 低密度ペレット製造に適した乾式回収粉末について, 日本原子力学会 2007年春の年会, 2007.
- 3) N. Midoux, P. Hosek, L. Pailleres, J. R. Authelin, Micronization of pharmaceutical substances in a spiral jet mill, Powder Tech., 104, pp.113-120, 1999.
- 4) H. J. C. Gommeren, D. A. Heitzmann, J. A. C. Moolenaar, B. Scarlett, Modelling and control of a jet mill plant, Powder Tech., 108, pp.147-154, 2000.
- 5) M. Shiraki, Physical characterization of TRK-720 hydrate, the very late antigen-4 (VLA-4) inhibitor, as a solid form for inhalation: Preparation of the hydrate by solvent exchange among its solvates and mechanistical considerations, J. Pharm. Sci., 99, pp.3986-4004, 2010.
- 6) Y. Wang, F. Peng, Parameter effects on dry fine pulverization of alumina particles in a fluidized bed opposed jet mill, Powder Tech., 214, pp.269-277, 2011.
- 7) K. Kozawa, T. Seto, Y. Otani, Development of a spiral-flow jet mill with improved classification performance, Adv. Powder Tech., 23, pp.601-606, 2012.
- 8) N. V. R. Rao, G. C. Hadjipanayis, Influence of jet milling process parameters on particle size, phase formation and magnetic properties of MnBi alloy, J. Alloys and Comp., 629, pp.80-83, 2015.
- 9) 和田吉彦, 分級と集塵 (その1), 色材協会誌, 35(9), pp.407-411, 1962.
- 10) 中山仁郎, 杉山浩之, ジェットミルによる超微粉碎と精密気流分級技術, 資源処理技術, 33(4), pp.189-198, 1986.
- 11) 田中哲也, 斉藤芳浩, 数値シミュレーションによるトナー分級工程の生産性向上, リコーテクニカルレポート, 26, pp.77-81, 2000.
- 12) 社河内敏彦, 森本洋史, 新・ジェット粉碎機と気流式分級機, 実験力学, 4(3), pp.184-191, 2004.

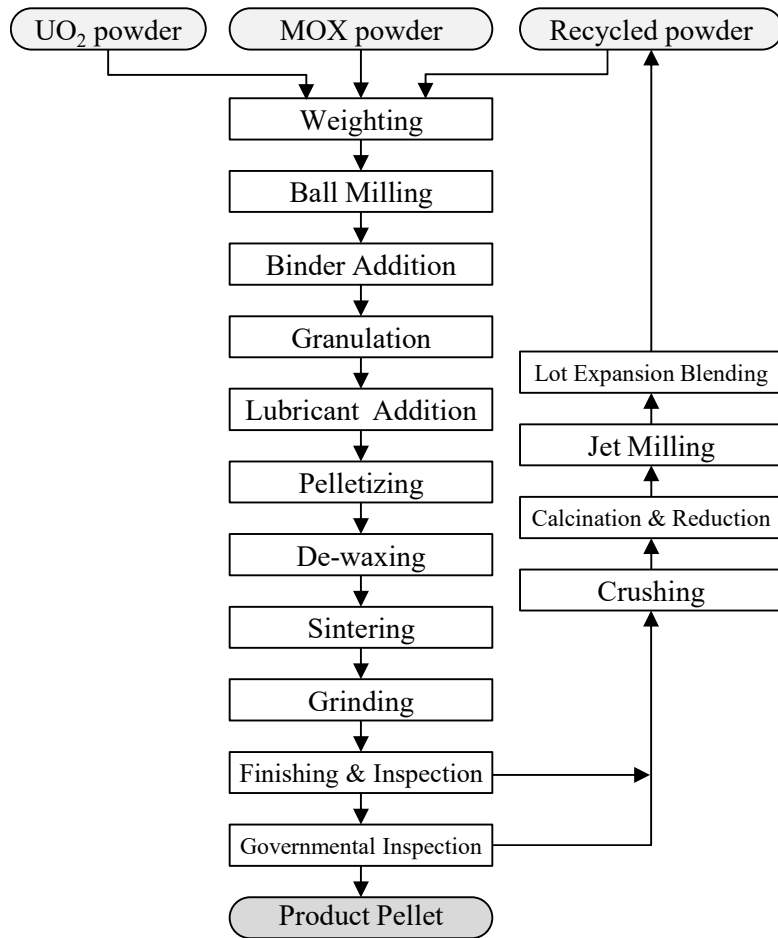


図 1.1-1 MOX 燃料製造工程フロー

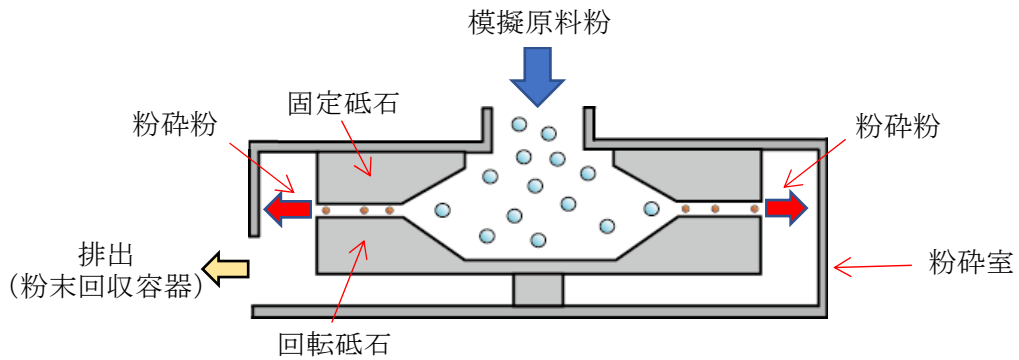


図 2.1.1-1 石臼式粉碎機の粉碎室の概略図

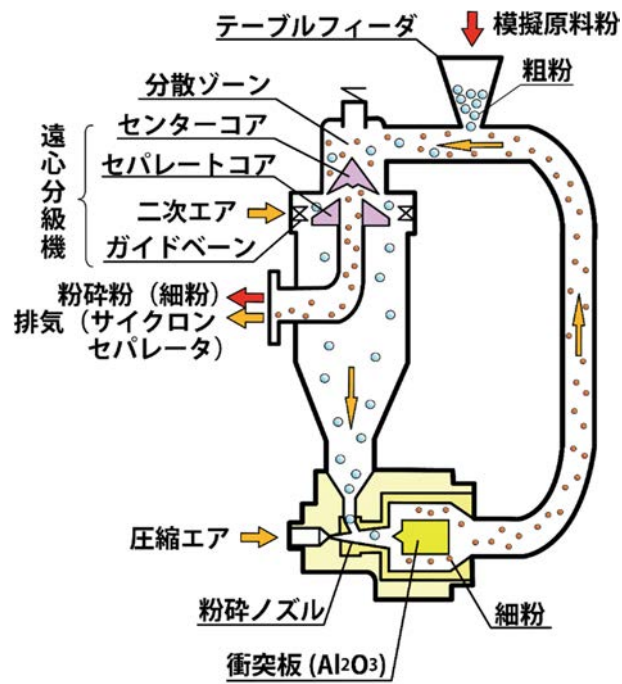


図 2.1.2-1 衝突板式ジェットミルの概略図

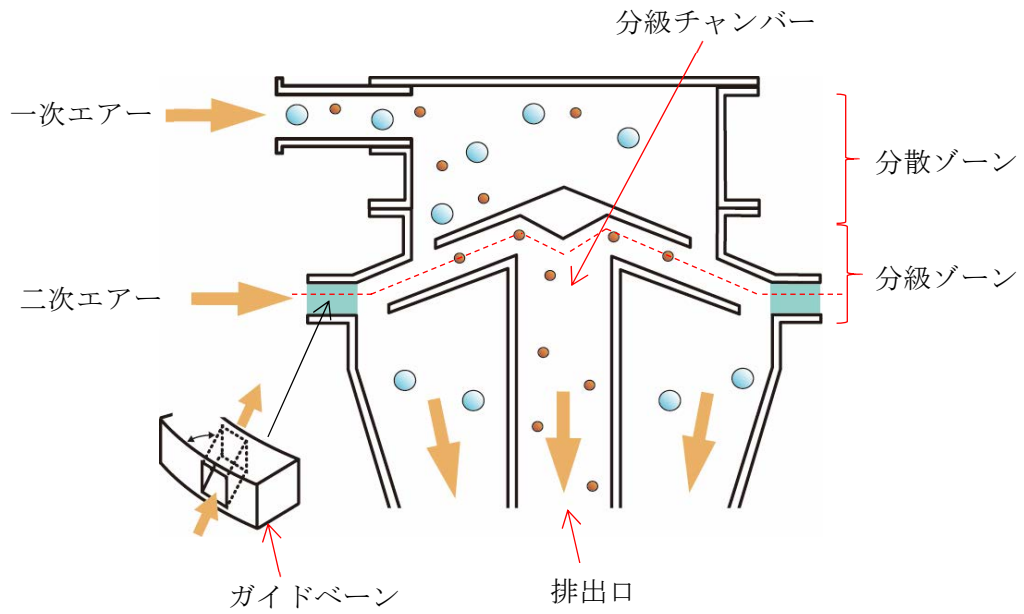


図 2.1.2-2 遠心分級機の概略図

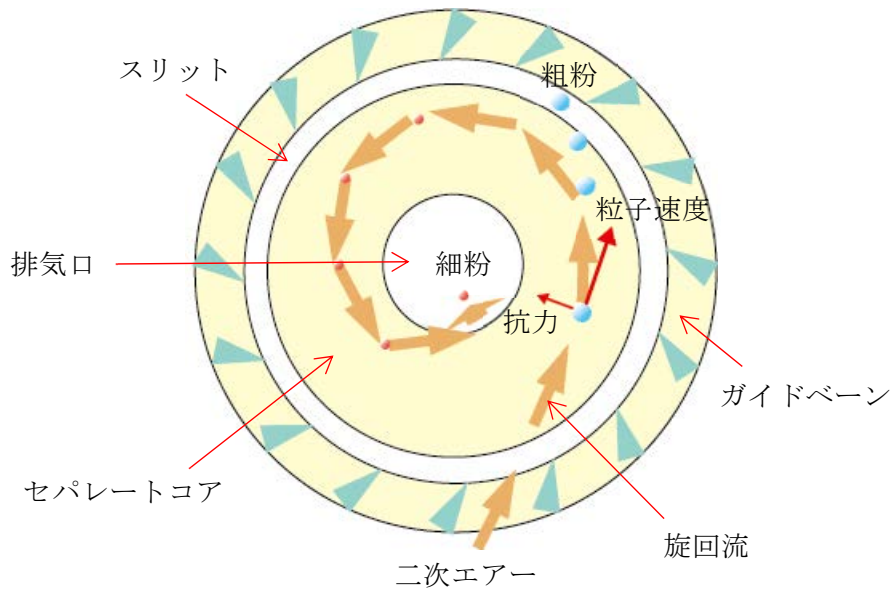


図 2.1.2-3 遠心分級機の部分断面上面図

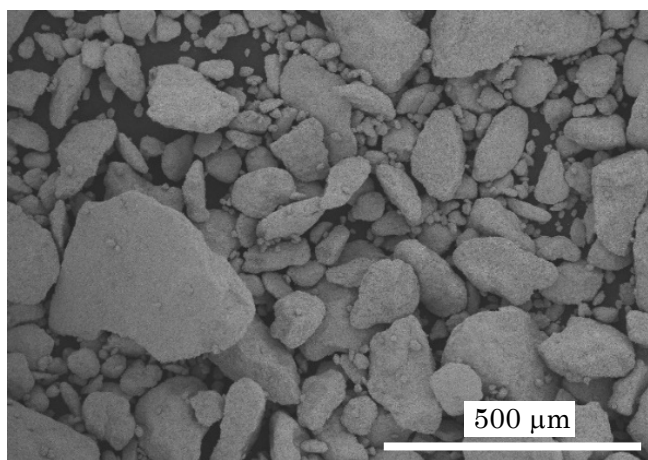


図 2.1.3-1 原料粉末 (WC-Co) の SEM 像

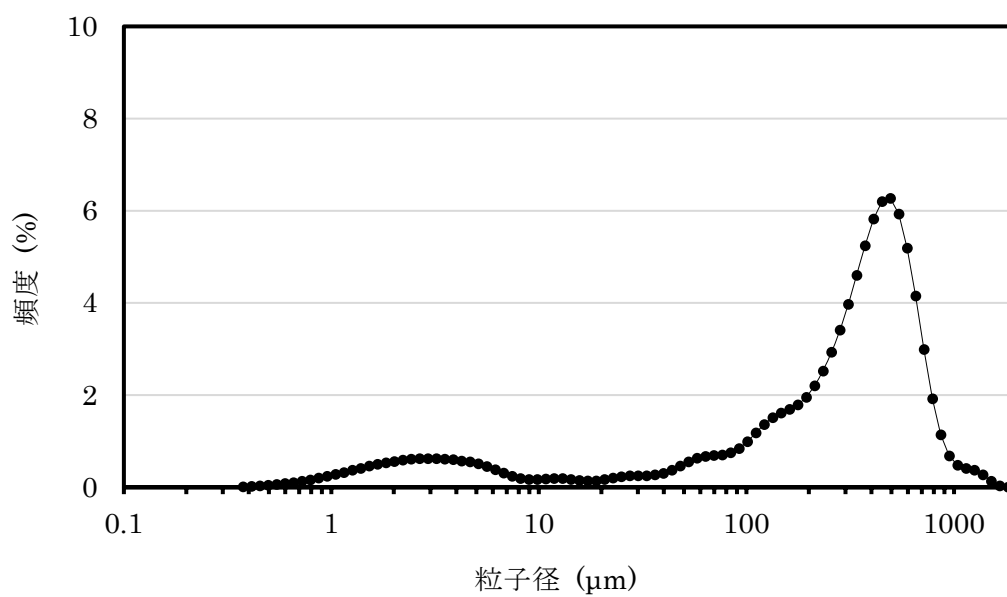


図 2.1.3-2 原料粉末 (WC-Co) の粒度分布

表 2.2.1-1 石臼式粉砕機による粒度調整試験条件

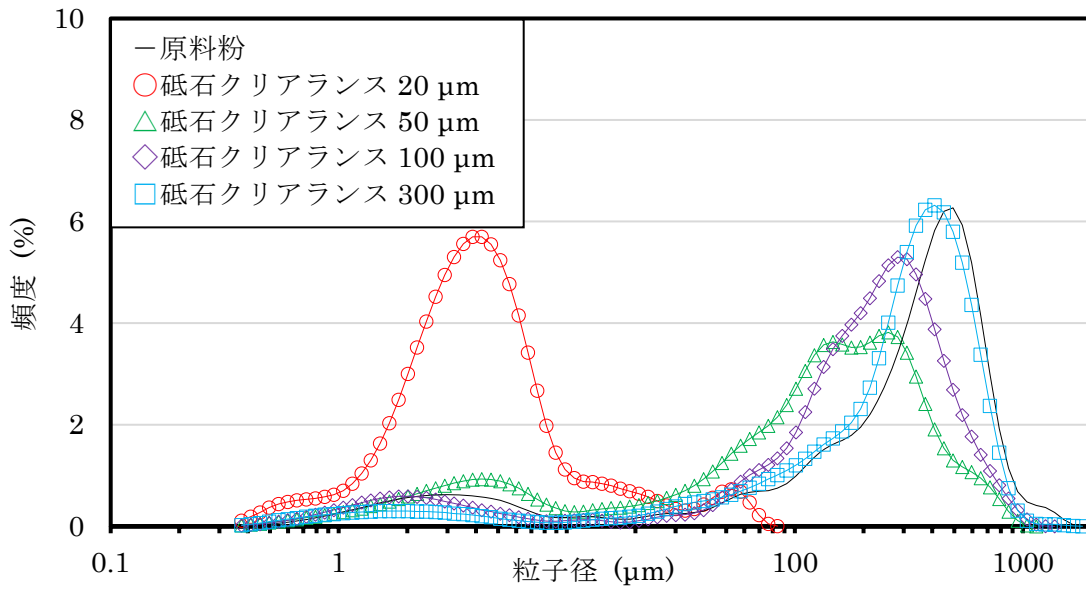
パラメータ番号	①	②	③	④	⑤	⑥	⑦	⑧
砥石回転数 (rpm)	1500	1500	1500	1500	1500	1500	1500	1500
砥石 クリアランス (μm)	20	20	50	50	100	100	300	300
供試模擬粉末 供給量 (kg/h)	5	10	5	10	5	10	5	10

運転時間：5 min、繰り返し回数：3回

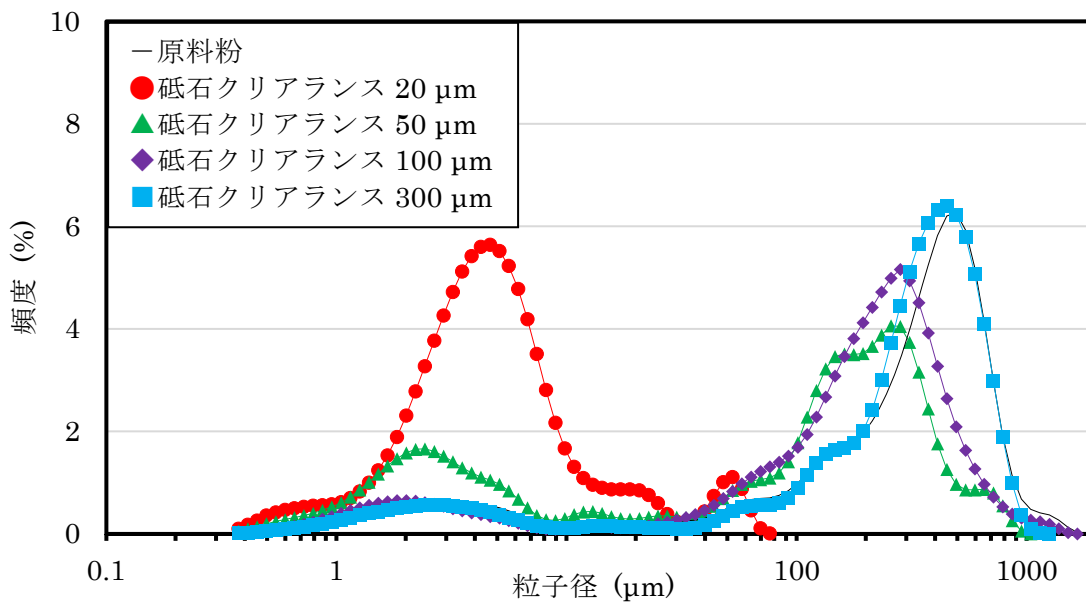
表 2.2.3-1 衝突板式ジェットミルによる粒度調整試験条件

パラメータ番号	①	②	③	④	⑤	⑥	⑦	⑧
分級 機構 の設定	ガイドベーン 断面積 (mm^2)	800	800	800	800	800	800	800
	ガイドベーン 開度($^{\circ}$)	50	50	50	50	50	50	50
	圧縮空気 (MPa)	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
	二次空気量 (Nm^3/h)	72	72	60	60	72	72	72
	分級ゾーン クリアランス (mm)	3	3	3	3	2	2	1
供試模擬粉末供給量 (kg/h)	1	2	1	2	1	2	1	2

運転時間：5 min、繰り返し回数：3回



(a) 粉末供給速度 5 kg/h



(b) 粉末供給速度 10 kg/h

図 3.1.1-1 石臼式粉砕機の砥石クリアランスと粒度分布の関係

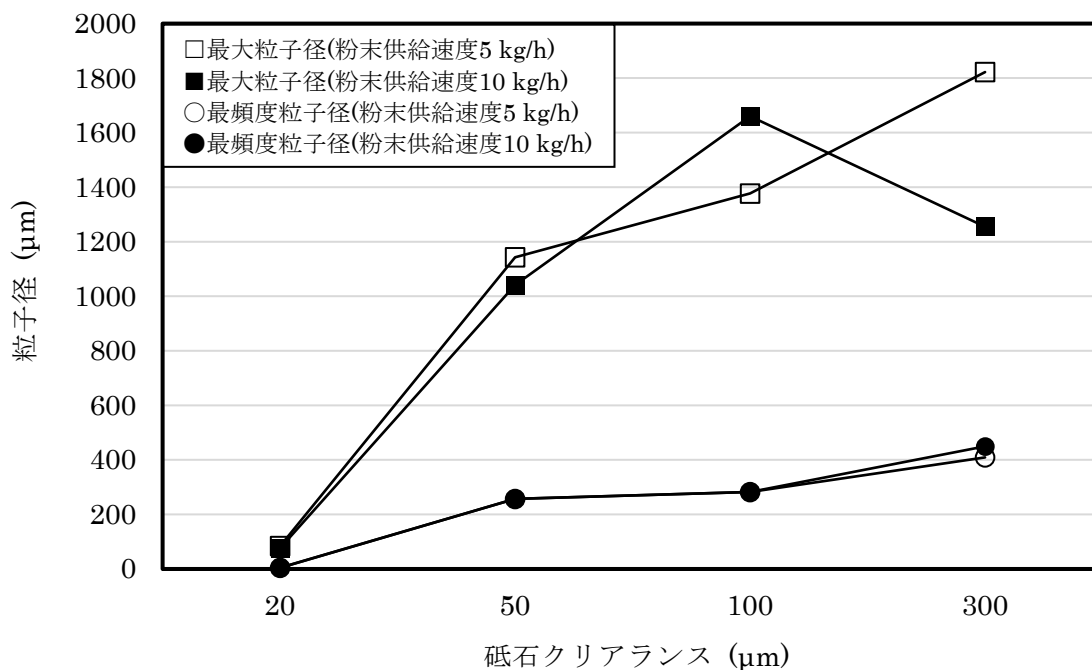


図 3.1.1-2 石臼式粉砕機の砥石クリアランスと最大・最頻度粒子径の関係

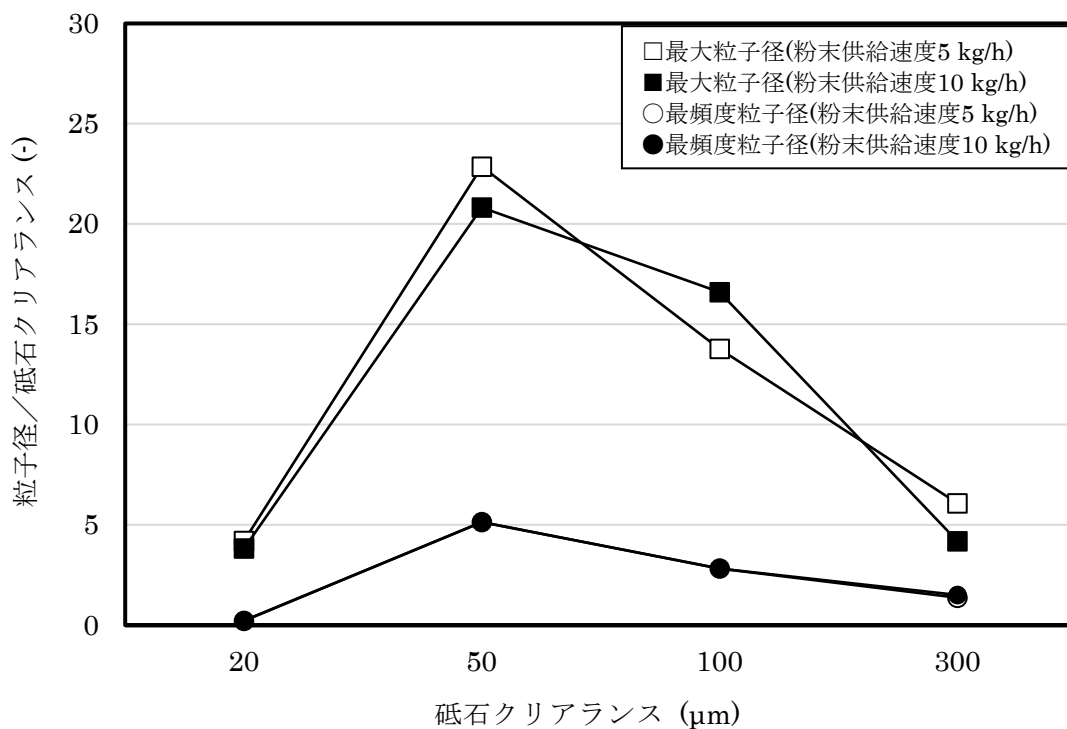
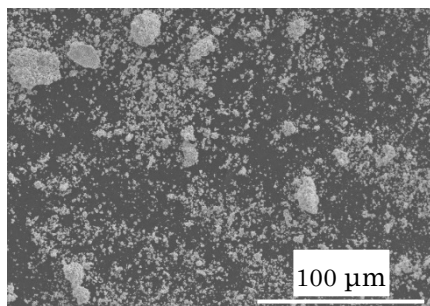
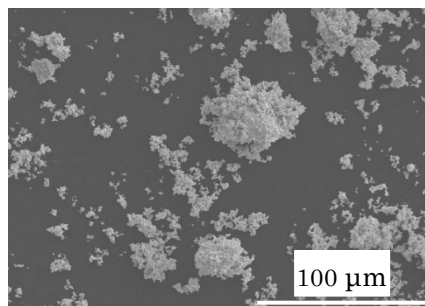


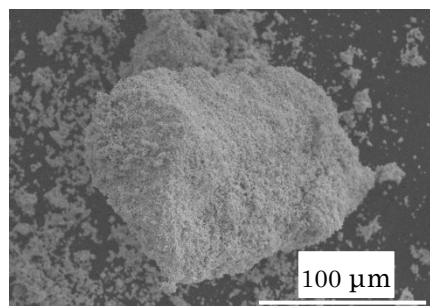
図 3.1.1-3 石臼式粉砕機の砥石クリアランスと粒子径と砥石クリアランス比の関係



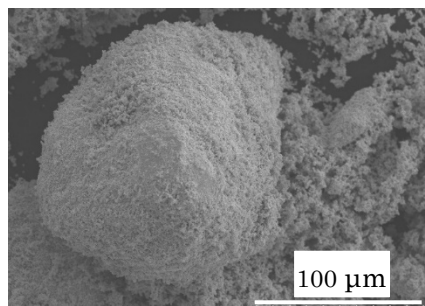
(a) 砥石クリアランス 20 μm ,
粉末供給速度 5 kg/h



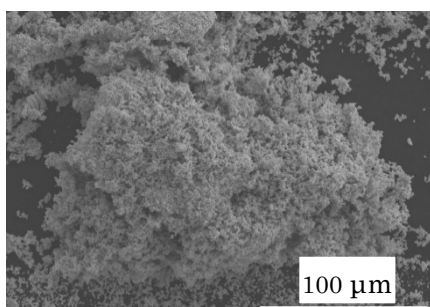
(b) 砥石クリアランス 20 μm ,
粉末供給速度 10 kg/h



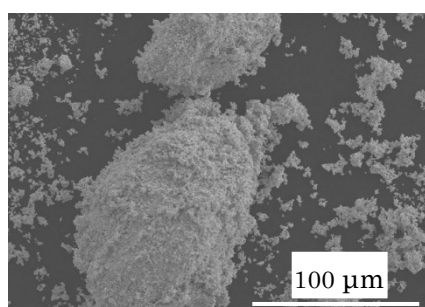
(c) 砥石クリアランス 50 μm ,
粉末供給速度 5 kg/h



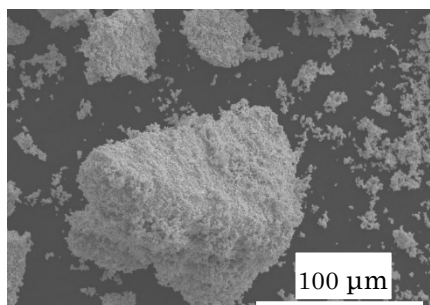
(d) 砥石クリアランス 50 μm ,
粉末供給速度 10 kg/h



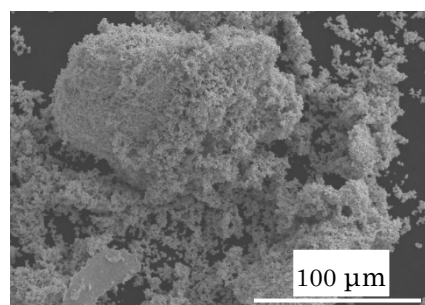
(e) 砥石クリアランス 100 μm ,
粉末供給速度 5 kg/h



(f) 砥石クリアランス 100 μm ,
粉末供給速度 10 kg/h



(g) 砥石クリアランス 300 μm ,
粉末供給速度 5 kg/h



(h) 砥石クリアランス 300 μm ,
粉末供給速度 10 kg/h

図 3.1.2-1 石臼式粉砕機で粉砕した WC-Co 粒子の SEM 像

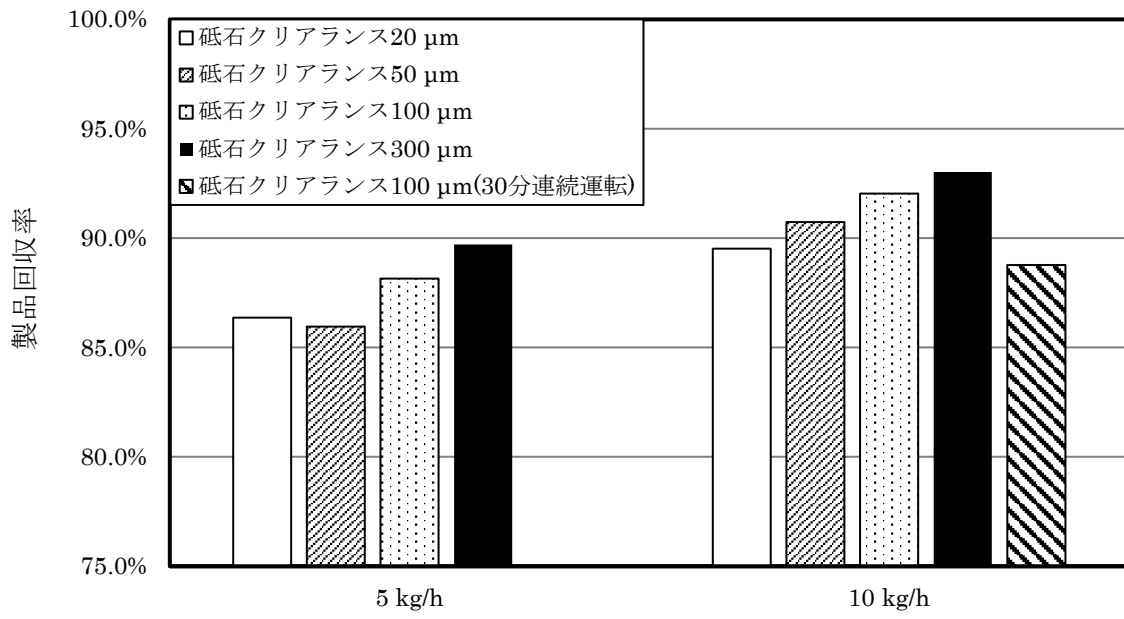


図 3.1.3-1 石臼式粉砕機の砥石クリアランスと製品回収率の関係



















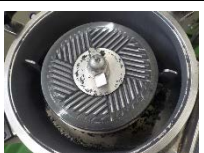





砥石 クリア ランス	粉末供 給速度	固定砥石	回転砥石	回転砥石下部	回転砥石下部 の平均滞留量
20 μm	5 kg/h				35.9 g
20 μm	10 kg/h				66.7 g
50 μm	5 kg/h				42.6 g
50 μm	10 kg/h				68.0 g
100 μm	5 kg/h				33.8 g
100 μm	10 kg/h				58.5 g
300 μm	5 kg/h				28.7 g
300 μm	10 kg/h				46.5 g

図 3.1.3-2 粉碎試験後の石臼式粉碎機の内部観察写真

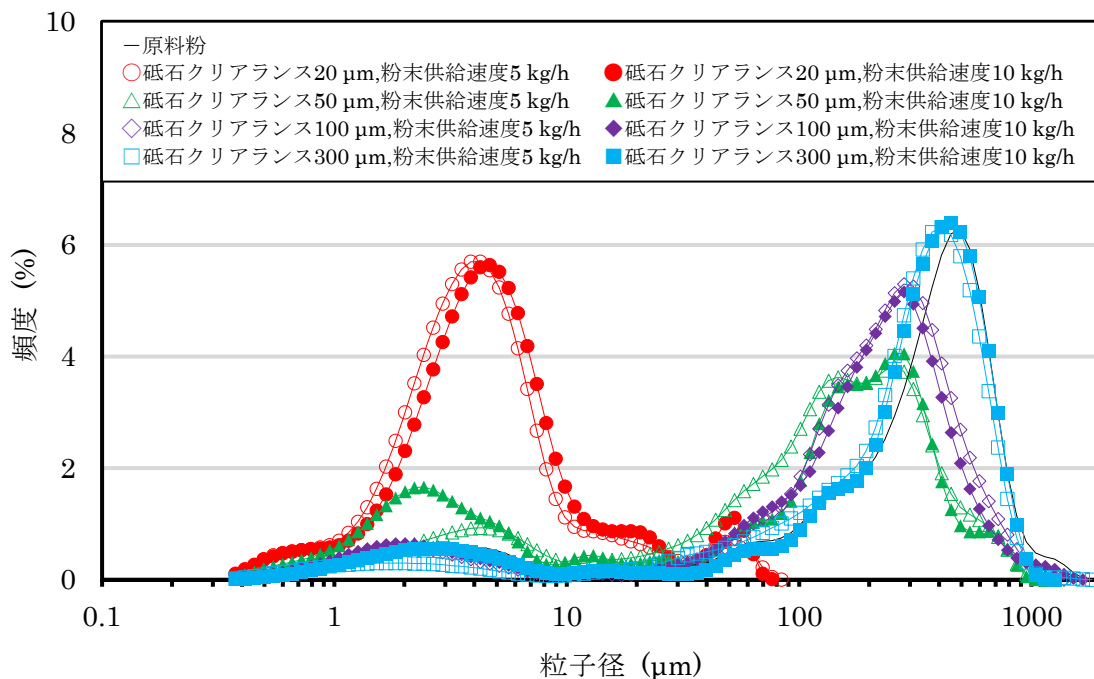


図 3.2.1-1 石臼式粉砕機の粉末供給速度と粒度分布の関係

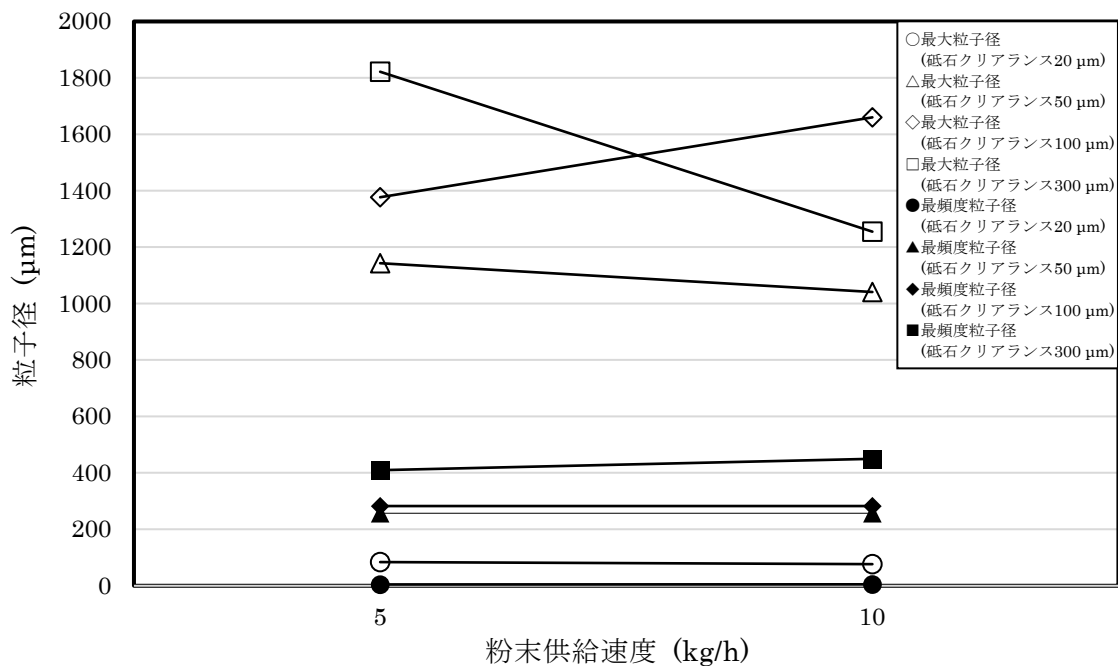


図 3.2.1-2 石臼式粉砕機の粉末供給速度と最大・最頻度粒子径の関係

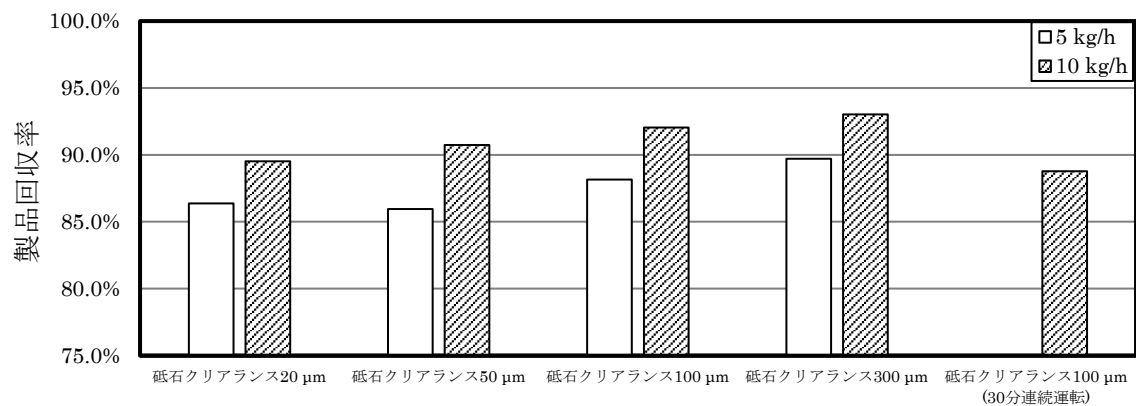
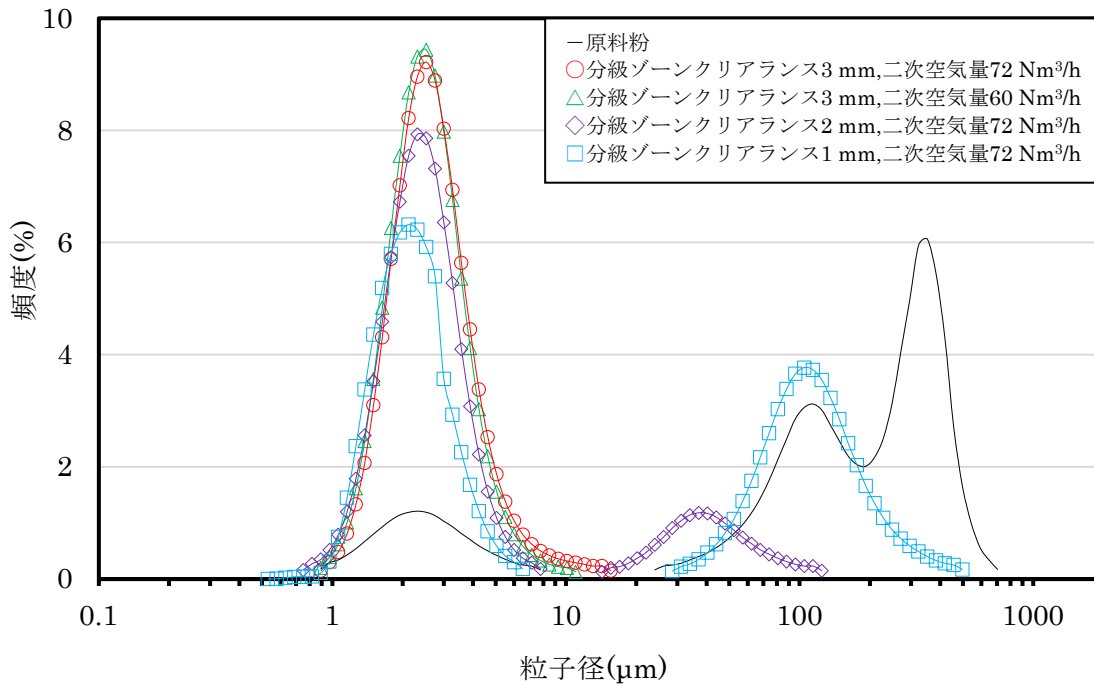
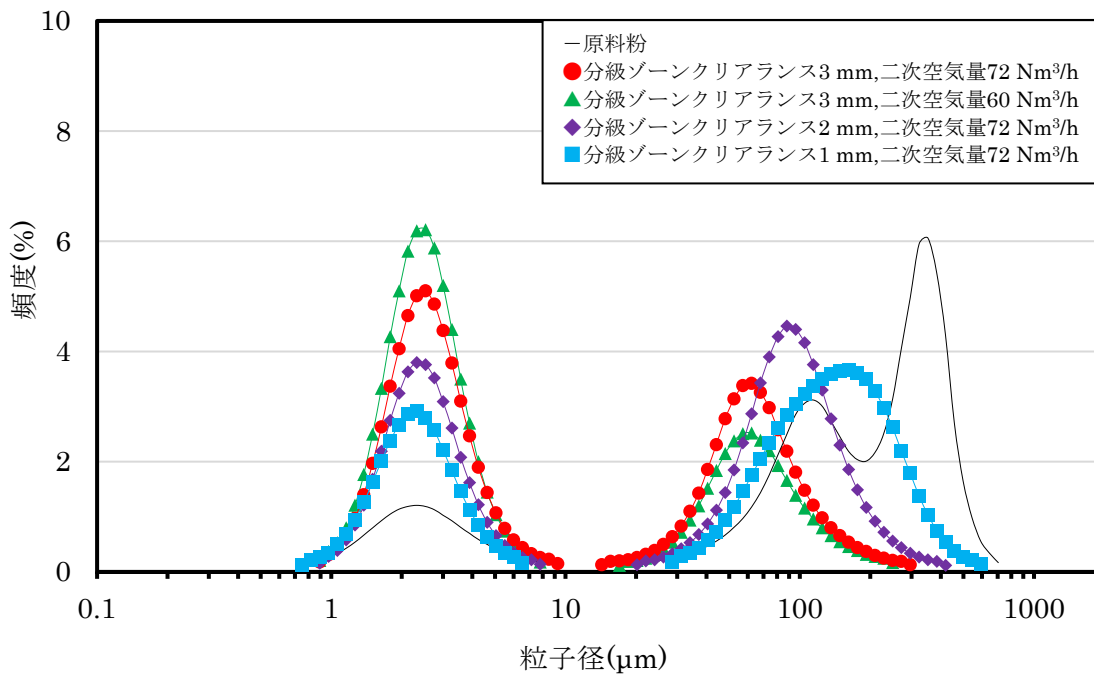


図 3.2.3-1 石臼式粉砕機の粉末供給速度と製品回収率の関係



(a) 粉末供給速度 1 kg/h



(b) 粉末供給速度 2 kg/h

図 3.3.1-1 衝突板式ジェットミルの分級ゾーンクリアランスと粒度分布の関係

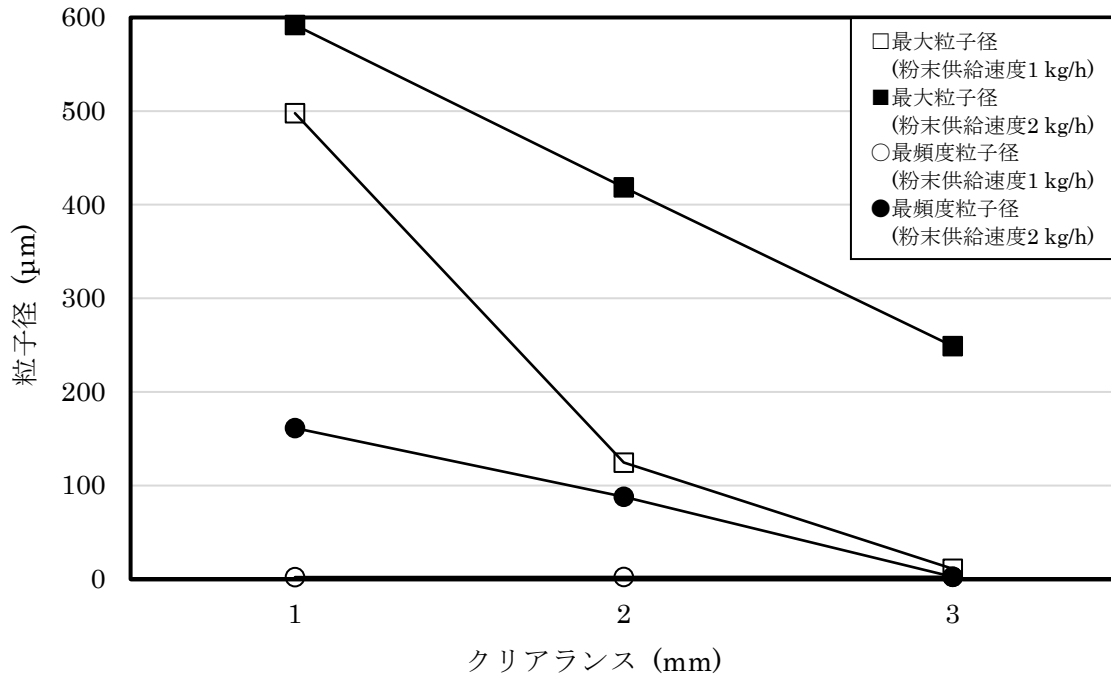
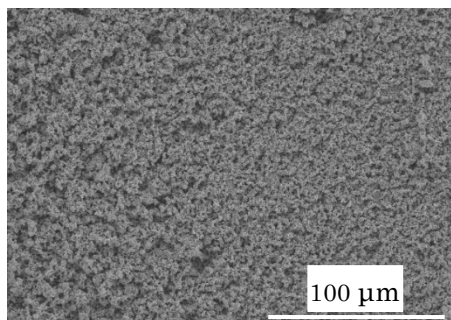
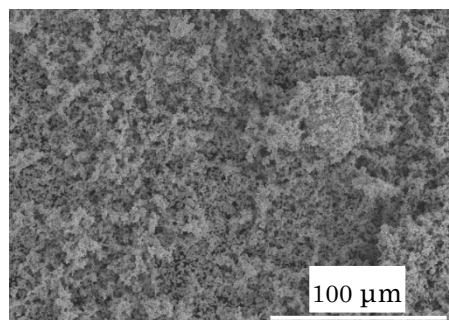


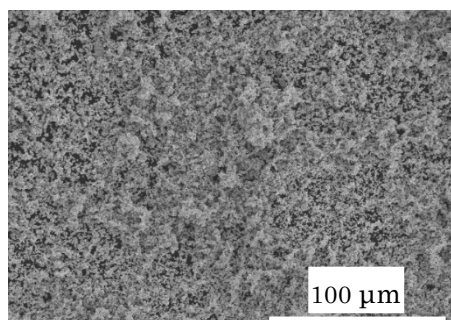
図 3.3.1-2 衝突板式ジェットミルの分級ゾーンクリアランスと最大・最頻度粒子径の関係



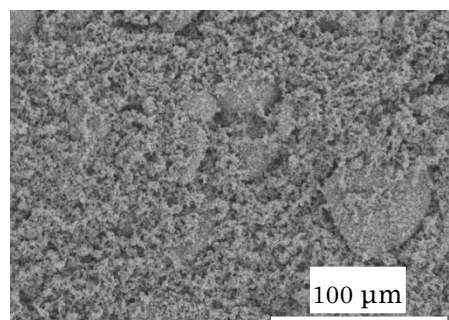
(a) クリアランス 3 mm, 粉末供給速度 1 kg/h
二次空気量 72 Nm³/h



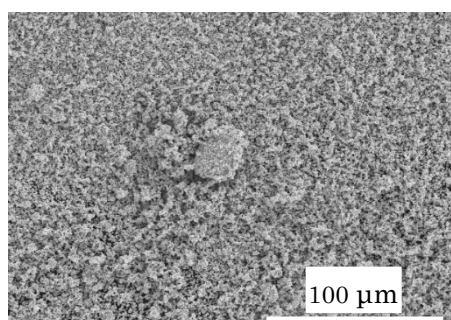
(b) クリアランス 3 mm, 粉末供給速度 2 kg/h
二次空気量 72 Nm³/h



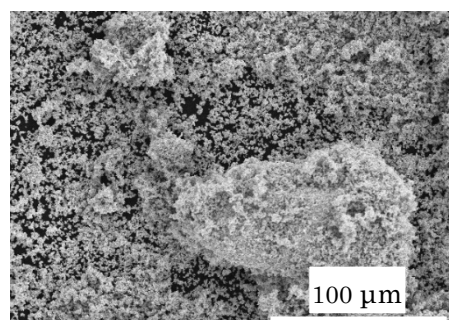
(c) クリアランス 3 mm, 粉末供給速度 1 kg/h
二次空気量 60 Nm³/h



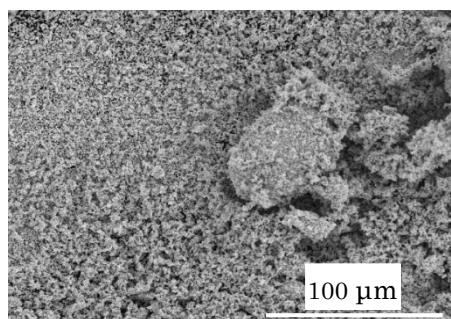
(d) クリアランス 3 mm, 粉末供給速度 2 kg/h
二次空気量 60 Nm³/h



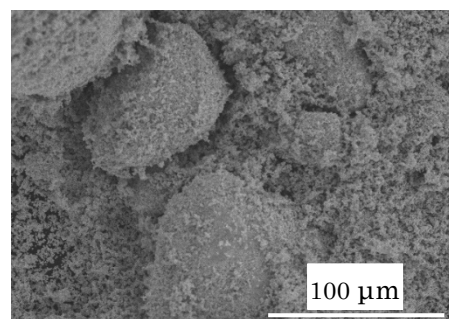
(e) クリアランス 2 mm, 粉末供給速度 1 kg/h
二次空気量 72 Nm³/h



(f) クリアランス 2 mm, 粉末供給速度 2 kg/h
二次空気量 72 Nm³/h



(g) クリアランス 1 mm, 粉末供給速度 1 kg/h
二次空気量 72 Nm³/h



(h) クリアランス 1 mm, 粉末供給速度 2 kg/h
二次空気量 72 Nm³/h

図 3.3.2-1 衝突板式ジェットミルで粉砕した WC-Co 粒子の SEM 像

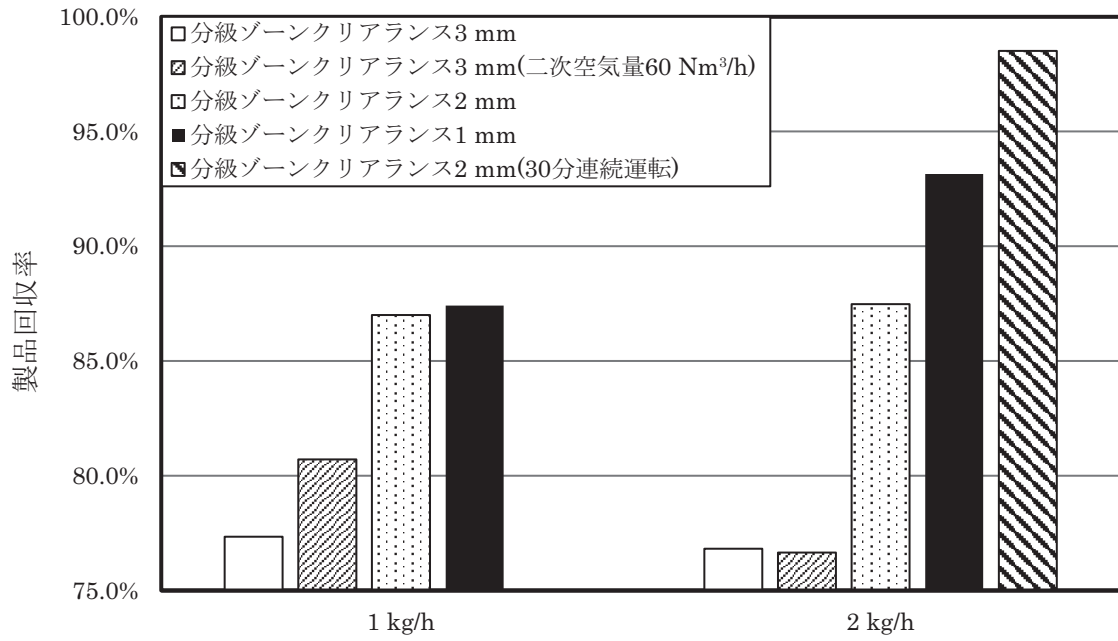


図 3.3.3-1 衝突板式ジェットミルの分級ゾーンクリアランスと製品回収率の関係

























分級ゾーンクリアランス	粉末供給速度	二次空気量	分級機	粉碎ノズル	粉碎機ケーシング	粉碎機ケーシング内の平均滞留量
3 mm	1 kg/h	72 Nm ³ /h				20.2 g
3 mm	2 kg/h	72 Nm ³ /h				41.0 g
3 mm	1 kg/h	60 Nm ³ /h				17.2 g
3 mm	2 kg/h	60 Nm ³ /h				41.3 g
2 mm	1 kg/h	72 Nm ³ /h				11.6 g
2 mm	2 kg/h	72 Nm ³ /h				22.2 g
1 mm	1 kg/h	72 Nm ³ /h				11.2 g
1 mm	2 kg/h	72 Nm ³ /h				12.1 g

図 3.3.3-2 粉碎試験後の衝突板式ジェットミルの内部観察写真

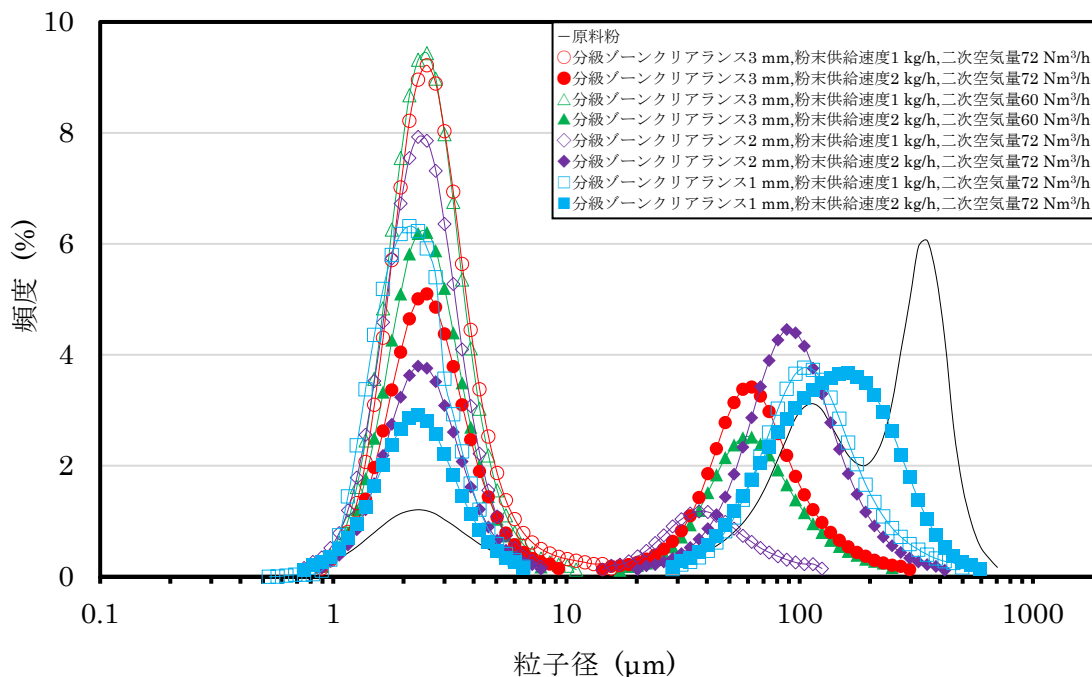


図 3.4.1-1 衝突板式ジェットミルの粉末供給速度と粒度分布の関係

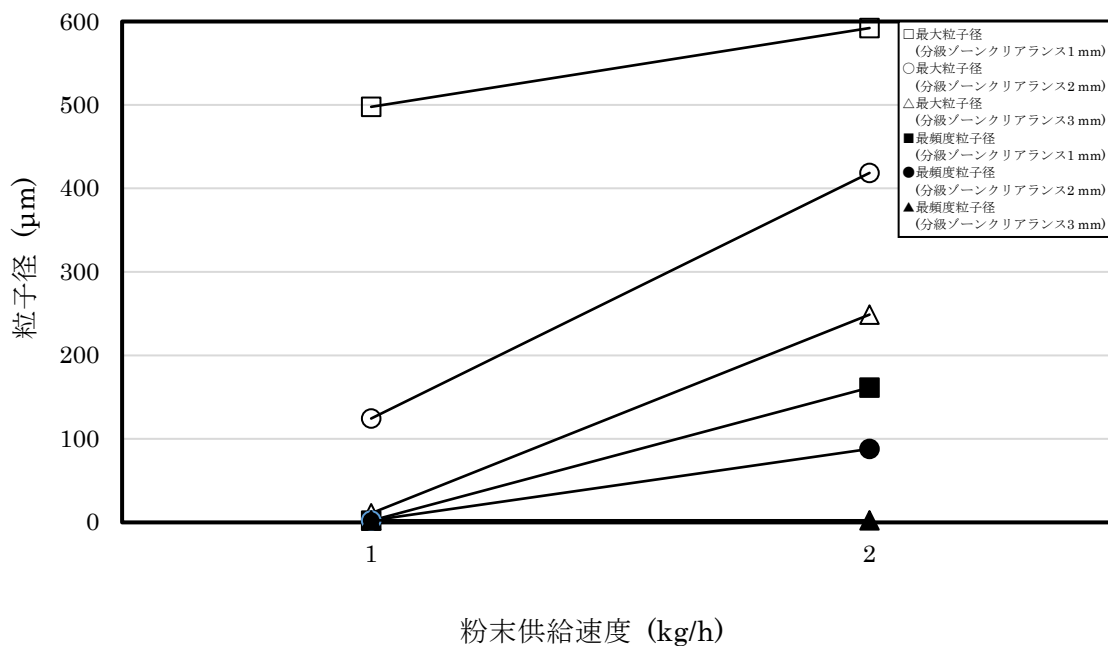


図 3.4.1-2 衝突板式ジェットミルの粉末供給速度と最大粒子径・最頻径の関係

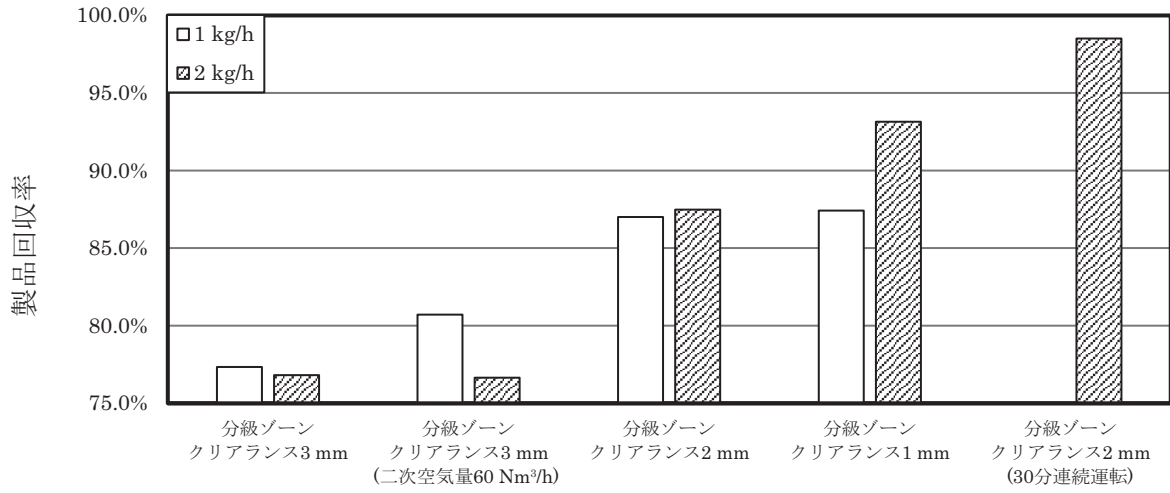


図 3.4.3-1 衝突板式ジェットミルの粉末供給速度と製品回収率の関係

表 4-1 石臼式粉碎機と衝突板式気流粉碎機の比較評価

比較項目	石臼式粉碎機		衝突板式気流粉碎機	
粉碎性能	・原料粉に対する粉碎能力を有する。	◎	・原料粉に対する粉碎能力を有する。	◎
分級性能	・粒度調整は可能である。 ・砥石クリアランスより大きな粒子が混在する。	○	・粒度調整は可能である。 ・効率的な粉碎、分級が可能である。	◎
配置性	・グローブボックス内への配置は可能である。	○	・グローブボックス内への配置は可能である。	○
操作性	・グローブボックス外に設置した操作盤にて操作可能である。 ・砥石クリアランスは自動調整が可能である。	○	・グローブボックス外に設置した操作盤にて操作可能である。	○
保守性等	・砥石の重量が 2 kg あり、グローブボックス内で取扱うには重い。 ・運転時の熱膨張により砥石の取外しが困難である。 ・粉碎時に砥石の表面温度がグローブボックス内の制限温度 60 °C 以上の高温となる。(上部固定砥石: 約 100 °C、下部回転砥石: 約 80 °C)	△	・衝突板の重量は約 15 g と軽量であり、グローブボックス作業においても交換は容易である。 ・装置の構造がシンプルであるため、分解、組立、装置内の粉末回収が容易である。	◎
総合評価	・粉碎・分級性能は有するものの、砥石クリアランスより大きな粒子が混在することが課題となる。 ・保守性等に関しては、臨界管理上の観点から砥石の水冷が不可であるため、グローブボックス内で取扱う上で課題となる。	△	・粉碎・分級性能、保守性等について、高い性能・適応性を有している。	◎

This is a blank page.

