

本資料は 年 2001. 6. - 6 日付で登録区分、  
変更する。

[技術情報室]

# UO<sub>2</sub>-Pu O<sub>2</sub> 燃料セラモグラフィにおける 二, 三の技術的改良

Some Technical Improvement on the Ceramography of (UPu) O<sub>2</sub> Fuel

1971年10月

動力炉・核燃料開発事業団

東海事業所

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字村松4番地49  
核燃料サイクル開発機構  
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:  
Technical Cooperation Section,  
Technology Management Division,  
Japan Nuclear Cycle Development Institute  
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184  
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)  
2001



研 究 概 要

UO<sub>2</sub>-PuO<sub>2</sub>燃料のセラモグラフィにおける二、三の技術的改良

作 成 1971年5月20日

実施責任者 小 泉 益 通 ( プルトニウム  
燃 料 部 )

報 告 者 横須賀 好 文 ( # )

佐 藤 寛 ( # )

小 松 純 治 ( # )

期 間 1. 1969年6月16日～7月12日

2. 1971年1月 7日～2月 1日

3. 1971年3月 8日～4月20日

研究目的 PNCブル・ラボに設置されている金相機器を利用しセラモグラフィにおける二、三の技術的改良を目的とする。

概 要 1. 光学顕微鏡組織と同一場所を電子顕微鏡で観察する方法

すでにいくつか文献等で報告されているが、接着剤を利用した一方法について実験を行ない、光顕で観察した同一場所を容易に電顕で観察でき微細組織の解析に役だてることが判明した。

2. 金相試験用研磨治具の開発

PNCブル・ラボにおいて高次化プルトニウムの取り扱いが始められたが、これらについてグローブ・ボックス作業時間を短縮し放射線による身体への被曝量を減少させるための金相試料固定用治具の検討を行ない良好な結果を得て実用に入ったので報告する。

3. ニトロ・セルロースによるアルファ・オートラジオグラフィと治具の開発

すでにニトロ・セルロースを利用したアルファ・オートラジオグラフィは報告されているが(東研報一試-32)今回性能の良いKodak製ニトロ・セルロース(膜厚200μ)とダイセルニトロ・セルロース(膜厚400μ)を入手し実験を行なって従来のオートラジオグラフィ乾板を利用するよりも、簡単かつ迅速にラジオグラフィが取れることが判明した。

## 目 次

1. 光学顕微鏡組織と同一場所を電子顕微鏡で観察する方法	1
1.1 まえがき	1
1.2 実験試料および方法	1
1.3 実験結果	3
1.4 結 論	5
2. 金相試験用研磨治具の開発	5
2.1 まえがき	5
2.2 従来技術とその問題点および装置の説明写真	6
2.3 詳細説明	8
2.4 従来作業の改善された点	10
3. ニトロ・セルロースによるアルファ・オートラジオグラフィと治具の開発	10
3.1 まえがき	10
3.2 実験試料と感光剤および実験方法	10
3.3 実験結果	11
3.4 結 論	21
4. 参考文献	22

## 1. 光学顕微鏡組織と同一場所を電子顕微鏡で観察する方法

### 1.1 まえがき

電子顕微鏡（電顕）の高い解像能力によって光学顕微鏡（光顕）では知り得なかった金属のいろいろな微細構造が明瞭になった反面電顕像の視野が光顕像の視野に比較して非常に小さいため光顕組織のどの部分を観察しているのか対応がつかず、光顕組織の観察によって得られた金属の性質との関連が明瞭でない場合がある。そこで光顕組織と同一場所を電顕で観察することが可能ならば微細な組織をより明瞭に解釈することができる。電顕像をとるには現在レプリカ法が最もよく用いられるがこの方法は間接的であるために光顕組織との対応も容易でない。しかし光顕で観察した金属試料表面の部分と同一場所のレプリカ膜を得てその場所を拡大することができれば目的を果すことができる。このような対応法にはレプリカの作り方によって多少異なったものが考案されているがその原理はほとんど同じであり、すでにいくつか文献等で報告されている。これらの文献を参考<sup>1)</sup>に一方法としての実験を行なった。

### 1.2 実験試料および方法

試料は15%PuO<sub>2</sub>-UO<sub>2</sub> Pelletと模擬FP's入り20%PuO<sub>2</sub>-UO<sub>2</sub> Pelletを用い以下に述べる方法で行なった。

1. グローブボックス内にて表面処理の終了した試料のレプリカ膜を採取しオープンフードボックスに移送してプルトニウムの汚染を取り除く。（超音波洗浄機等を用いて除染を行ない、除染できれば通常のボックス外作業と同様に扱う。）
2. 除染されたレプリカ膜のカーリングを除去するためガラス板に挟んで加熱する。（100°C-10分）
3. 次に真空蒸着を行なう。（Cr, C）蒸着量は通常の場合より幾分厚くする。
4. 蒸着されたレプリカ膜を光顕で観察し目的場所を囲み1.5mm角位にメスで切り取る。
5. 光顕対物レンズにFig. 1に示すように治具を取りつける。

Ⓐは対物レンズに固定しⒷはネジによってⒶから取り外せる。

最初ⒷはⒶから取り外しておく。

6. ゴム板上にレプリカ膜の真空蒸着した面を上にして置き検鏡場所が視野の中心になるよう光顕の架台を調節しておく
7. 次に単孔支持板（孔径300μ）を用意し接着剤としてエポキシ樹脂を塗布する。その方法は

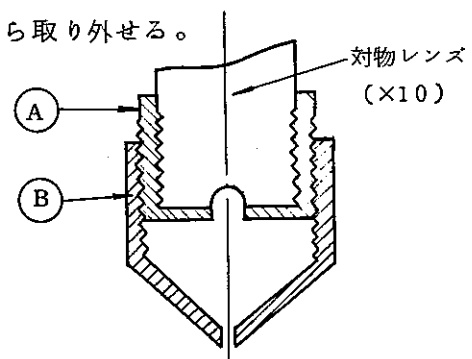


Fig.1 光顕対物レンズ治具

- (1) 6 と別のゴム板上に混合した，接着剤の少量を薄く塗り広げ，へらではしから強く3回程しごき薄い接着剤層を作る。
- (2) 単孔支持板をこの上においてガラス板で上から圧着し単孔支持板の片面に接着剤をつけたのちゴム板をはがす
8. 単孔支持板の接着剤のつかない面を治具③の中心になるようにして真空グリースを少量塗って治具③と接着させる。
9. 単孔支持板が接着された治具③を光頭対物レンズに固定された治具①に取りつけて検鏡場所に合っていることを確認する。
10. 検鏡場所が確認できたら6で調整されている試料架台を上げて Fig. 2 に示すように単孔支持板にレプリカ膜を接着させる。
11. レプリカ膜が接着された単孔支持板を治具③からはずして2枚のポリエチレンシートではさむ。
12. Fig. 3 に示すようにポリエチレンシートではさんだレプリカ膜と単孔支持板を，支持板を下側にしてスライドガラスの上に置き，レプリカ膜の全面を均等な力で軽く押しつけるためポリエチレンシートの上にモルトブレンパッキングをのせてその上に別のスライドガラスをかぶせ，紙挟みで上下のガラス板をはさみ  $50 \sim 100 \text{ gr/cm}^2$  の圧力を加える。
13. このまゝ室温で3時間以上放置しエポキシ樹脂の硬化をある程度進ませた後  $70^\circ\text{C}$  の空気浴中に1時間置き完全に硬化させ，ポリエチレンシートから取出す。
14. 完全に硬化することができたら，光頭にて単孔支持板の穴の中央部まで接着剤がはみ出してレプリカ膜を妨害していないか確認する。
15. 光頭にて異常がないことが確認できたら Fig. 4 に示すように真空蒸着した側をパラフィン塗布する。
16. Fig. 5 に示すように銅線 ( $0.3\phi$ ) 2本を加工して単孔支持板を固定し酢酸メチル溶液中にてアセチルロースを溶解させる。(溶解中に溶液，支持板をあまり動かすとレプリカ膜を破損する恐れがあるので充分注意する。)
17. 20分位放置しアセチルセルロースの溶解が終った頃，約  $50^\circ\text{C}$  に加温してアセチルセルロース，パラフィンを完全に溶解させる。その後同温度の新しい酢酸メチル溶液中に2回繰返し入れ替えて洗浄する。
18. 洗浄が完全に終了できれば，溶液中から単孔支持板を取り出し乾燥させて電頭試料とする。

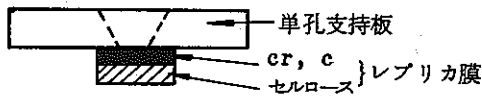


Fig. 2 接着されたレプリカ膜

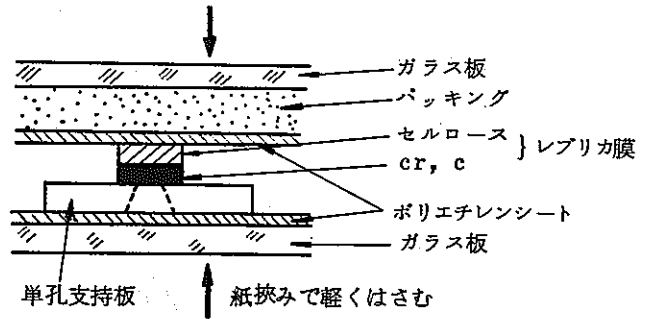


Fig. 3 レプリカ膜固定法

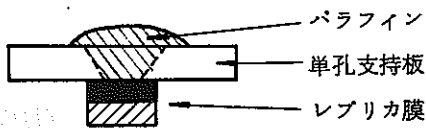


Fig. 4 パラフィン塗布

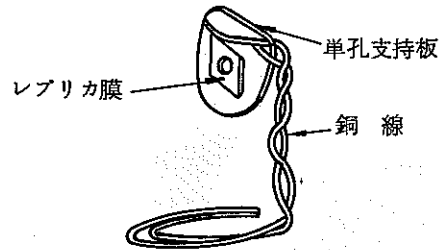


Fig. 5 单孔支持板の固定

### 1.3 実験結果

Photo-1 および Photo-2 に試料腐食面の光頭写真 (低倍・高倍) を示し Photo-3 に単孔支持板に固着させたレプリカ膜の光頭写真を示す。同一場所の電頭写真を Photo-4 に示すように光頭との対応がつけば試料の微細構造を明瞭に知ることができる。

Photo-5 に研磨面, Photo-6,7 に腐食面の光頭写真を示すが, 白色を呈しているのが, Metal である。この試料は  $H_2SO_4 (20) + H_2O_2 (10) + H_2O (40)$  にて化学腐食を行なったものであるが腐食により研磨傷の発生が観察される。Photo-8 から結晶粒界と粒内にある Metal はもとに凸になっているが化学腐食により結晶粒界上にある物質が溶解して流出した部分も観察される。これは文献を参考に当ブル・ラボにおいて一方法として実験を行ない同時に接着剤の検討も行なったが当エポキシ樹脂が最良であった。

試料 15%  $\text{PuO}_2$ - $\text{UO}_2$  Pellet

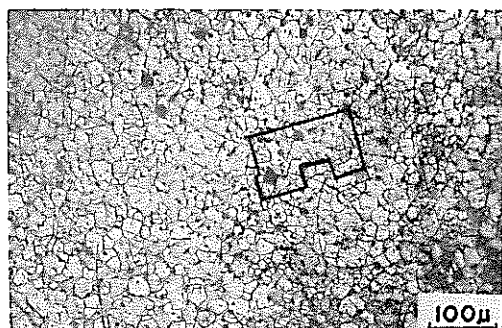


Photo. 1 試料腐食面光顕写真

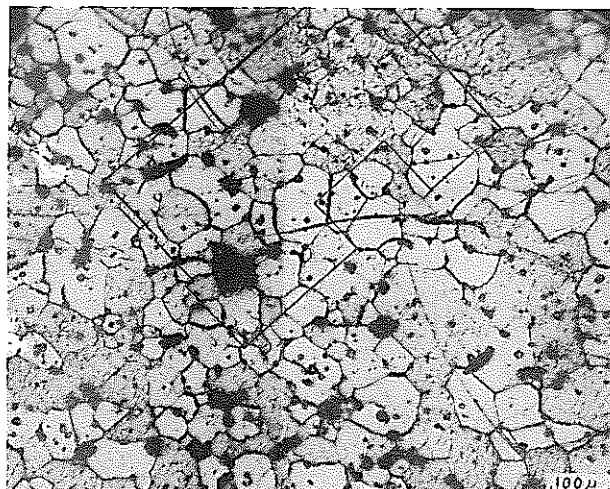


Photo. 2 試料腐食面光顕写真(高倍)

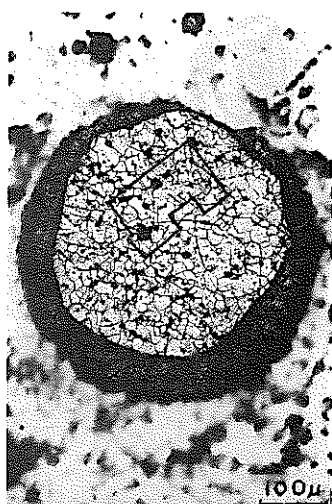


Photo. 3 単孔支持板に固着させた  
レプリカ膜の光顕写真

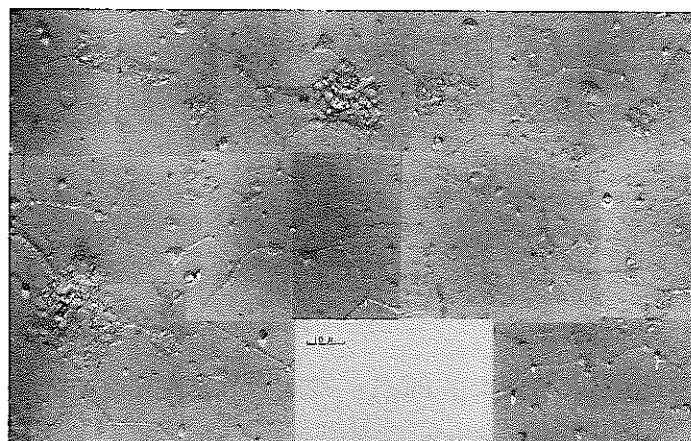


Photo. 4 同一場所の電顕写真

試料 模擬FP's入り20%  $\text{PuO}_2$ - $\text{UO}_2$  Pellet

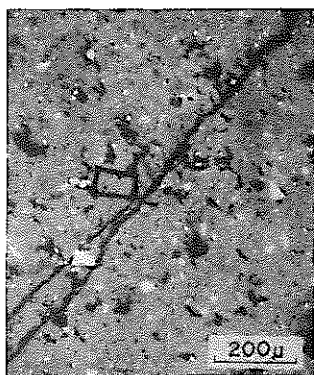


Photo. 5 研磨面

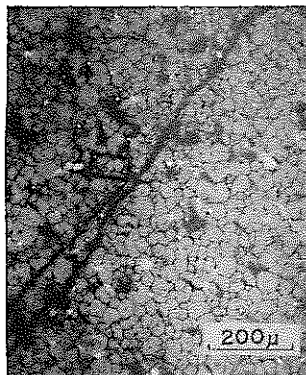


Photo. 6 腐食面

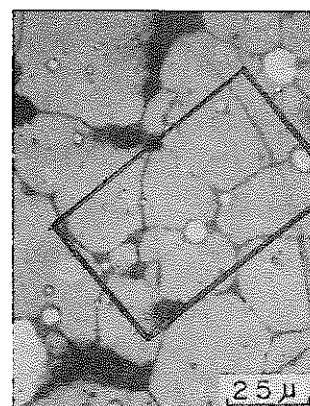


Photo. 7 腐食面



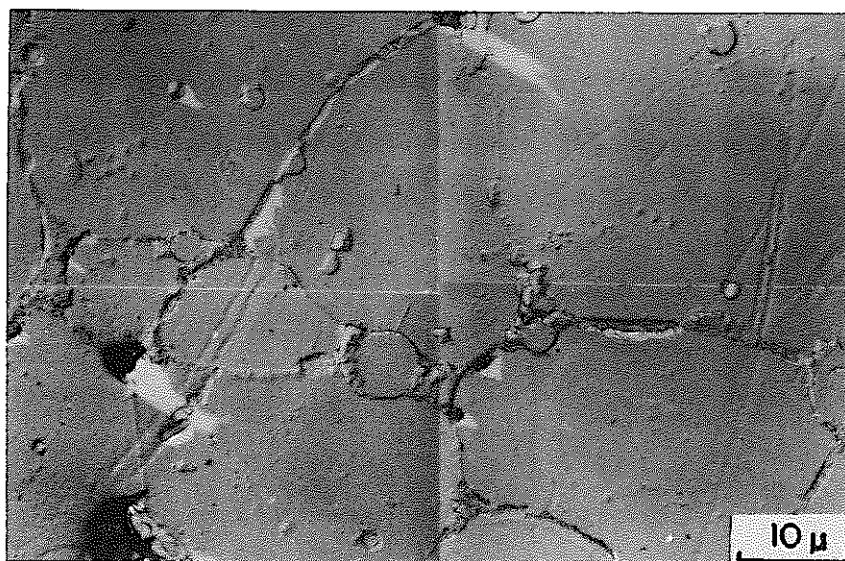


Photo. 8 腐食面電顕写真

#### 1.4 結 論

光学顕微鏡でしらべて非常に興味のある個所をさらに拡大して電子顕微鏡でしらべるとは微細組織をより明瞭に解釈する上で大変重要である。しかし、電顕試料はレプリカ膜をつくりその蒸着した面を観察しなければならないため光顕組織と対応のつく同一場所を数万倍に拡大された視野の中で探すことは非常に時間と骨のおれる仕事である。しかし、単孔支持板、対物レンズ用の特殊治具、接着材など、2,3の準備だけで簡単でしかも、迅速に光学顕微鏡で観察した全く同一場所を電子顕微鏡で拡大観察でき、セラミックスの微細組織を容易に調べられることが解ったが現在ではさらに技術的な経験を必要とする。

## 2. 金相試験用研磨治具の開発

### 2.1 まえがき

今日迄当ブル・ラボにおいて試料をベークライト粉末と一緒に加熱、圧縮して埋込みを行ない金相試料としていた。金相試験工程として試料の埋込み、研磨、真空陰極腐食そして最後に試料取り出し作業がある。これらの作業はすべてグローブ・ボックス内で行なわれるが高次化ブルトニウムの取り扱いが始められ埋込み、試料取り出しに要する時間も長く放射線による身体被曝量が多くなってきた。これらに対する改善策を検討し、試料形状の一定したものに用いる金相試験用研磨治具の開発を行なった。

## 2.2 従来技術とその問題点および装置の説明

### 1. 従来技術とその問題点

従来試料の埋込みはベークライト粉末と一緒に試料を加熱，圧縮して成型してきた。また Cathodic Vacuum Etcher (C.V.E) にかける試料はベークライト粉末に銅粉を混合し試料との導通をもたせて成型してきた。Photo-9 に試料埋込機を示し Fig. 6 に C.V.E にかける試料の埋込法を示す。

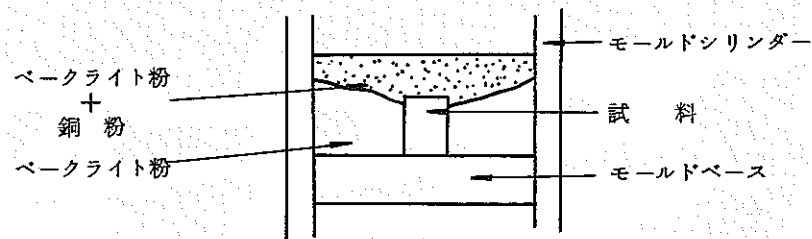


Fig. 6 C.V.Eにかける試料の埋込法

次に埋込まれた試料を Photo-10 研磨機を使用し粗研磨を行ない Photo-11 研磨機を使用し仕上げ研磨を行なう。その後 C.V.E により真空陰極腐食を施しプルトニウム用光学顕微鏡にて金属組織の観察を行なう。そして最後に観察の終了した試料の取り出しを行ない回収する。当施設での一方法として Photo-12 に示す切断機でベークライトを切断しハンマーで試料をたき出し  $\text{PuO}_2$  -  $\text{UO}_2$  燃料の取り出しを行ない回収する。これらの作業はこれからも継続していかなければならず欠点，問題点として次のことがあげられる。

- i) 試料の埋込みや，試料取り出しに要する時間が長く放射線による身体被曝量が多い。
- ii) 試料観察終了後試料取り出しに切断機，ハンマー等を使用するので危険度が高い。またベークライトに少量の試料が固着して残ることがあり試料損失と不純物混入の恐れがある。

### 2. 装置の説明 (Cathodic Vacuum Etcher Photo-13)

研磨の終了した試料の表面腐食を行なうため当装置を使用する。

#### 1) 腐食法

ベルジャー内に試料を固定させ  $10^{-4}$  mmHg 位迄真空にしてアルゴンガスを数回置換する。その後アルゴン雰囲気の中で高圧を発生させ電離されたアルゴンイオンで試料の表面腐食を行なう。

#### 2) 腐食条件

- i) テフロンの中に数 mmφ の穴を開け試料表面をアルゴン雰囲気にならせて試料と完全に密着して気密を保つ。

- ii) 試料の底部から導通をもたせること。
- iii) テフロン中央の穴は試料の径より小さくすること。

これらはC.V.Eの絶対条件でありこれらの一つでも欠くと試料表面にアークが飛ばず自由放電を起し完全な表面腐食が得られない。

### 3. 各装置の写真

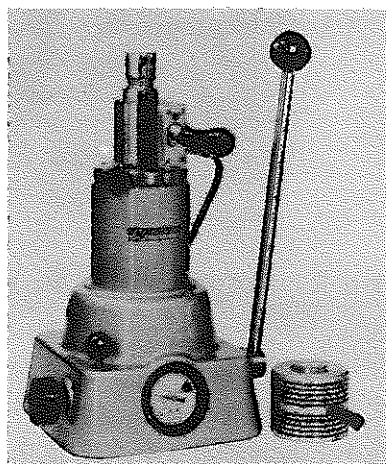


Photo. 9 試料埋込機

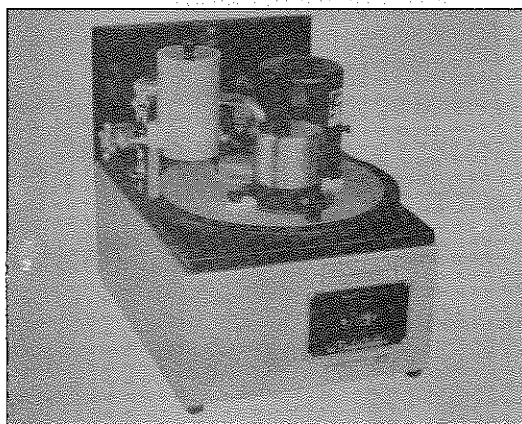


Photo. 10 粗研磨機

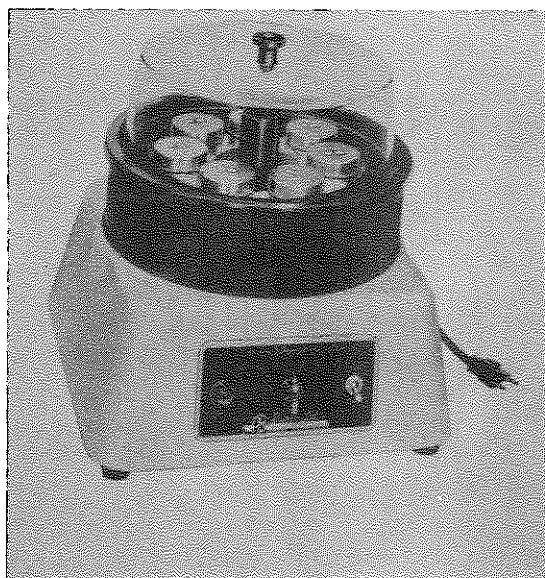


Photo. 11 仕上げ研磨機

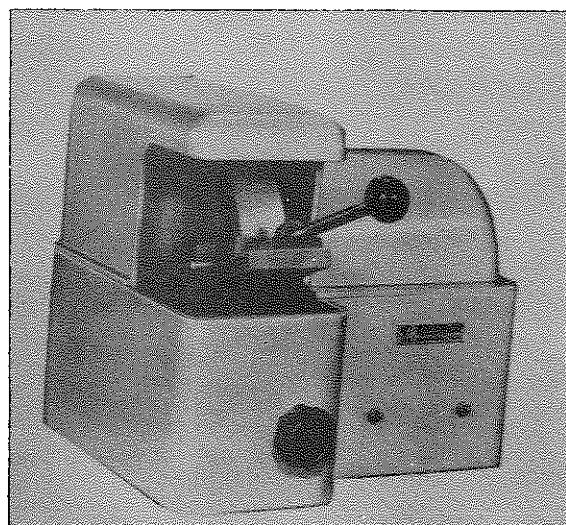


Photo. 12 切断機

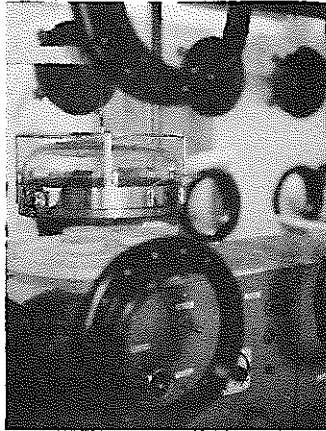


Photo. 13 C. V. E

### 2.3 詳細説明

従来技術の 研磨, 真空陰極腐食を行なうための試料固定用治具の開発により埋込み, 取り出しを簡素に行なう。

#### 1) 図面説明

当治具はⒶとⒷ 2個の割型ペークライトと2個のステンレス製ビスからなり Fig. 7 に固定用治具の姿図を示し Fig. 8 に見取図を示す。

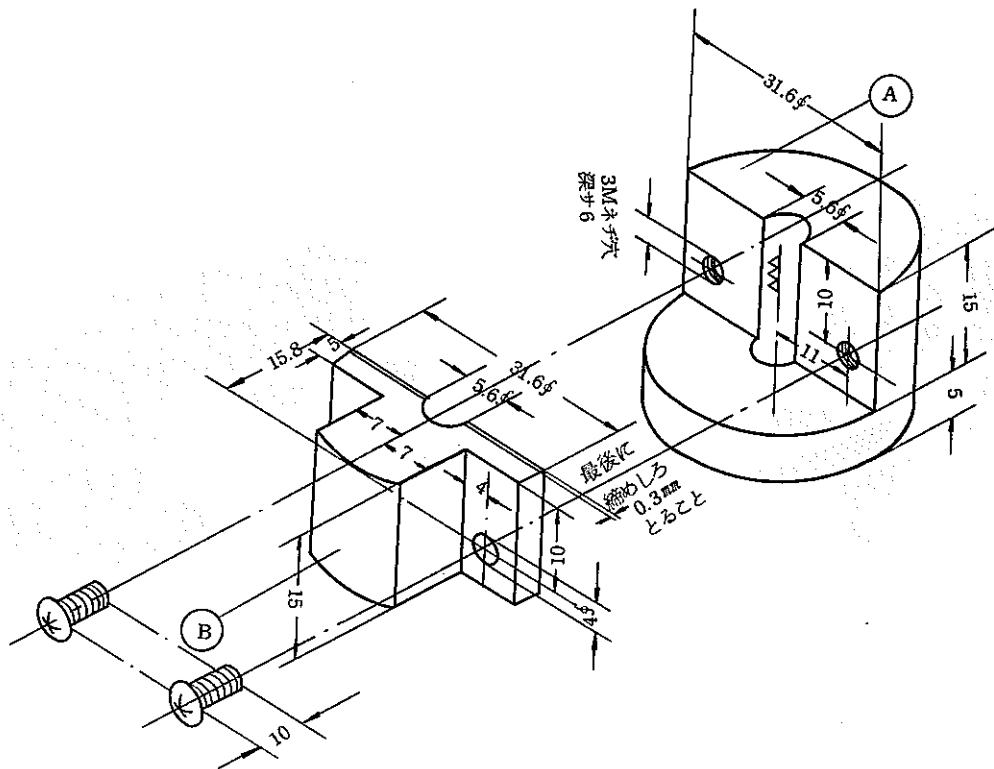


Fig. 7 研磨治具姿図

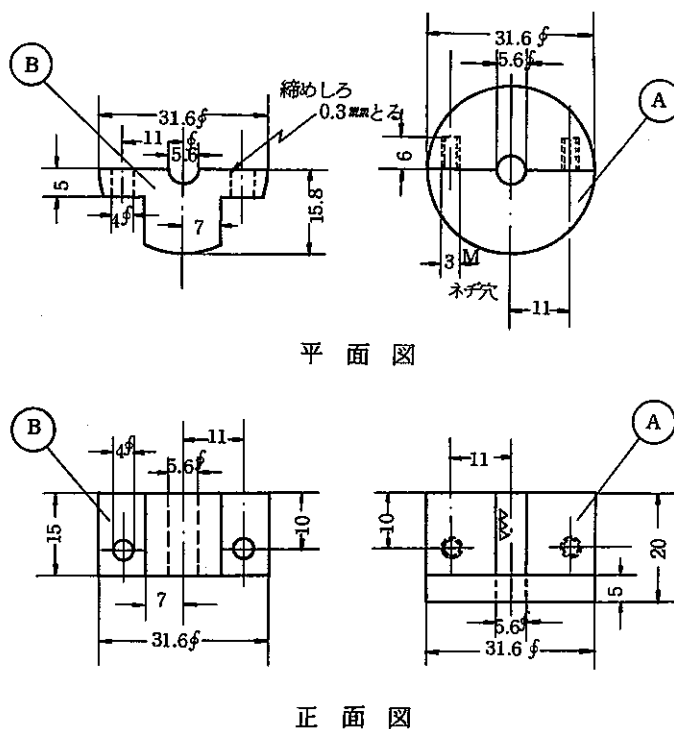


Fig. 8 研摩治具見取図

2) 試料の固定法

試料 (5.5mmφ×10mmh) は Fig. 8 のように穴の開いた割型ベークライトにセットし 2個のビスにより完全に固定される。

3) C.V.E への治具固定法

治具に固定された試料の研摩を行なった後C.V.E にセットする際の試料への導通, 密着性を良くする方法を Fig. 9 に示す。

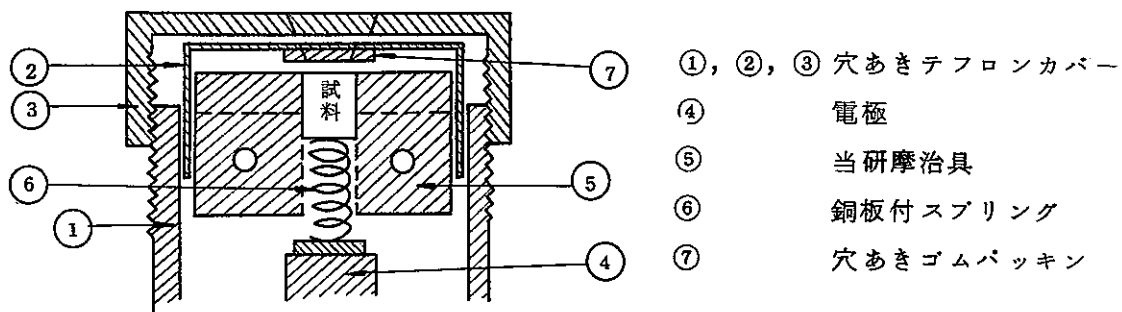


Fig. 9 C.V.E への治具固定

i) 当固定用治具に固定された試料底部へ 自己作成の銅板付スプリング⑥をセットし電極部へあてる。

- ii) ゴムパッキンの固定された②のテフロンカバーをセットする。
- iii) ①、③のテフロンカバーにより②のテフロンカバーを締めつけ密着性を良くすると同時に完全な導通を行なう。

#### 2.4 従来作業が改善された点

- 1) 試料埋込み 20分/1試料, 試料取り出しに30分/1試料要していた従来作業が当治具の開発によりこれらに要する時間は3~5分/1試料で終了する。
- 2) 埋込み, 試料取り出し等のグローブ・ボックス作業時間が短くなり放射線による身体被曝量が減少される。
- 3) 試料埋込時の加熱作業と, 試料取り出し時の切断機の使用が省略されるので危険度が低下する。
- 4) 試料埋込時に加熱を行ない取り出し時に切断機を使用した場合は, ベークライトに試料が固着することがありハンマー等でたゞき出しても少量の試料損失は避けられず正確な欠量を確認することができない。また固着した試料を取り出す場合に不純物が混入する恐れもあるが当治具の使用によりこのような問題も解決できる。

### 3. ニトロ・セルロースによるアルファ・オートラジオグラフィ

#### 3.1 まえがき

高速炉燃料を製造する上で  $\text{PuO}_2\text{-UO}_2$  混合酸化物中の Pu 偏析を測定し  $\text{PuO}_2\text{-UO}_2$  の均一性および固溶性を観察測定することは炉の安全設計上必要不可欠のものである。現在混合酸化物燃料の Pu 偏析を調べて試料の均一性を観察するのに金相定常作業として暗室を利用しオートラジオグラフィにより測定している。また X線回析法により残存  $\text{UO}_2$  の有無を確認して固溶状態を測定している。今日迄オートラジオグラフィとしては暗室を利用し富士フィルム製コンパクト型オートラジオグラフィ乾板 ET-2F を用いてきた。東研報一試-32<sup>2)</sup> にも報告されているが暗室不要なニトロ・セルロースを二種類入手することができたので実験を行ない乾板との比較検討を行なった。

#### 3.2 実験試料と感光剤および実験方法

##### 1) 実験試料

1. PSG-22 (Pu spot の確認される 2%  $\text{PuO}_2\text{-UO}_2$ )
2. 標準試料 (2.5, 10, 22, 40 および 100%  $\text{PuO}_2\text{-UO}_2$ )

3. グリーンペレット ( 20% PuO<sub>2</sub>-UO<sub>2</sub> ) } BT  
 4. 焼結ペレット ( 20% PuO<sub>2</sub>-UO<sub>2</sub> ) }

2) 感光剤

- A. Kodak製ニトロ・セルロース膜厚 200μ  
 B. ダイセル製ニトロ・セルロース膜厚 400μ  
 C. 富士フィルム製コンタクト型オートラジオグラフ乾板 ET-2F

3) 実験方法

金相試験用に研磨した焼結ペレット試料は直接感光剤とPuO<sub>2</sub>-UO<sub>2</sub>試料が接触するのを防止するため膜厚6μのマイラーフィルムで試料を包んで露出させ、グリーンペレットは逆にニトロ・セルロースをマイラーフィルムで包んで治具を利用し露出を行なった。  
 ニトロ・セルロースの腐食は10% NaOH 溶液で60°C - 2~4分行なった。

3.3 実験結果

A. Kodak製ニトロ・セルロース

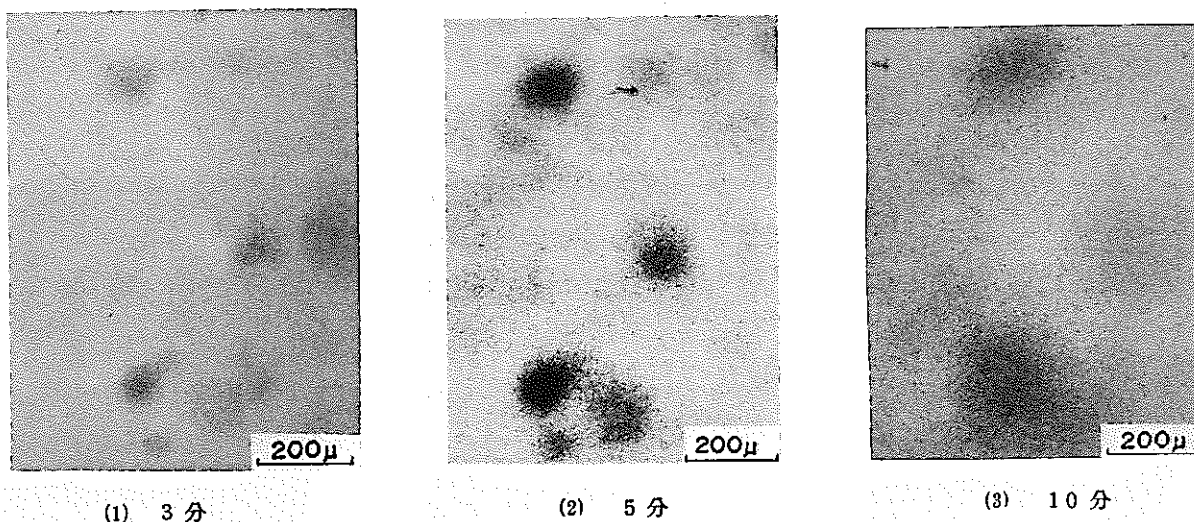


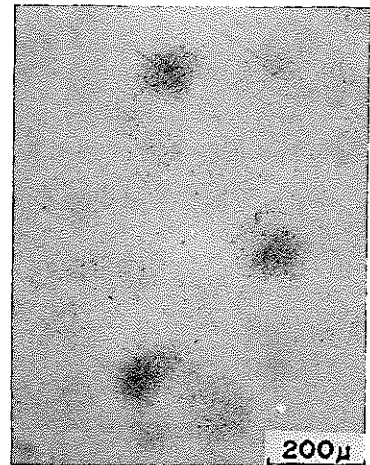
Photo. 14 露出時間の比較 腐食10% NaOH 60°C - 2分

Photo-14 は試料PSG-22を用い腐食条件を同一にして露出時間による差を観察したもので、3分露出のものはPu spot が鮮明に出ていない部分があるが5分露出のものは良く識別できる。

また10分露出でPu spot の輪郭が鮮明でないのは感光剤と試料とのコンタクト法が悪く完全に密着されていないためである。また 3分露出と5分露出ではPu spot 径に差があり適正露出時間を検討中である。



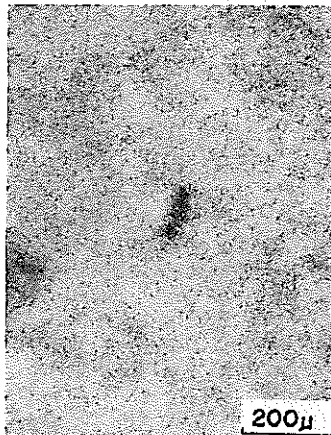
(1) 2分



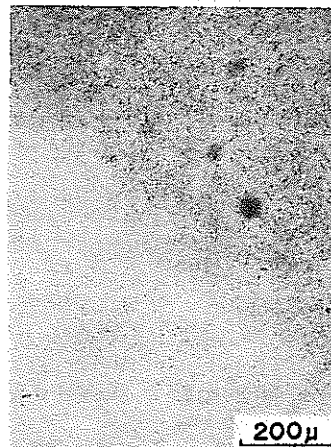
(2) 4分

Photo. 15 腐食時間の比較 露出2分 腐食 10% NaOH - 60°C

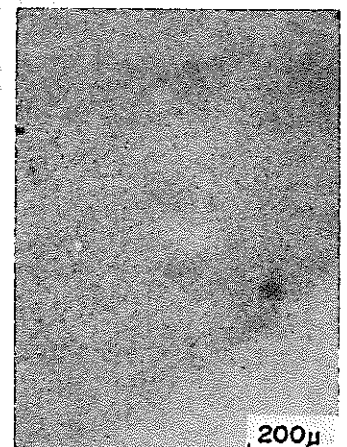
同一試料 PSG-22 を使用して Photo-15 はニトロ・セルロースの腐食時間の比較を行なったものである。腐食時間 2 分に対し 2 分追加 (4 分) した状態は  $\alpha$ -track が少し鮮明になっているが、各 Pu spot の濃度が平均化され濃度差が顕著でない。したがって腐食時間を多くするより露出を多くした方が better であり Track 密度も増加するようである。



(1) 5分露出



(2) 4分露出



(3) 乾板 ET-2F 30秒

Photo. 16 20% PuO<sub>2</sub>-UO<sub>2</sub> ベレットのグリーンと焼結体

Photo-16 で 5 分、4 分露出のものはグリーン・ベレットをオートラジオグラフ用治具を使用して露出させ 10% NaOH 溶液で 60°C - 2 分腐食を行なった。また右端<sup>3</sup>は富士オートラジオグラフ乾板 ET-2F を用いて焼結後のベレットを 30 秒露出させ 20°C - 4 分現像したものである。しかしこれらは同一ロット内であるけれども同一ベレットでないため焼結による



Pu 拡散の縮少率は明らかでなく、まだ実験を行なう必要がある。またこれらの写真から Pu spot が観察されるように焼結前に混合状態を判別することができれば核燃料製造が非常に能率的である。

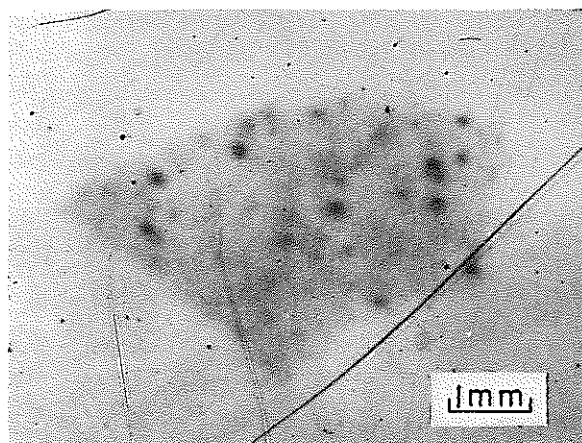
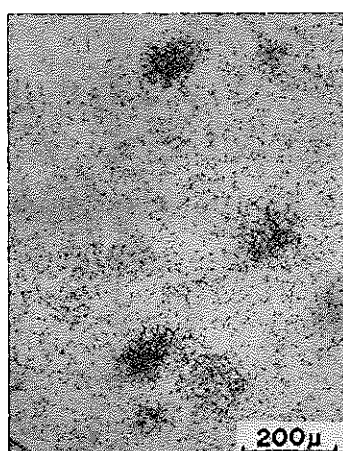


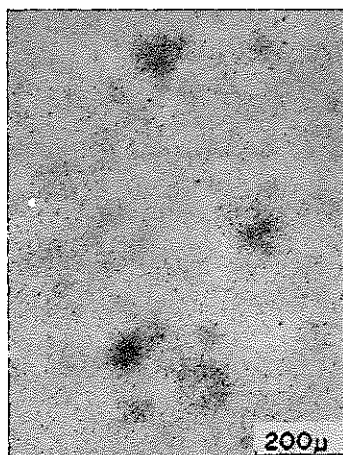
Photo-17に PSG-22 のマクロ写真を示したが、これはニトロ・セルロースが赤色、無色の二層からなり通常の写真焼付ができず投影機を使用して撮影した写真である。写真が鮮明でないのは投影機に適した被写体でないためである。

Photo. 17 PSG-22 マクロ写真

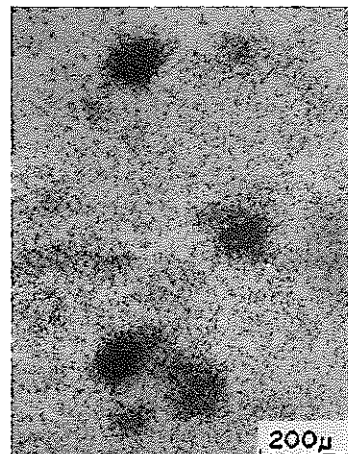
B. ダイセル製ニトロ・セルロース



(1) 20 秒露出



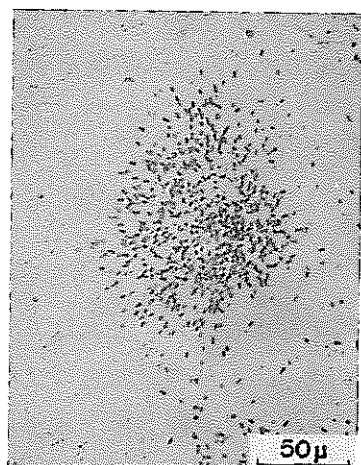
(2) 40 秒露出



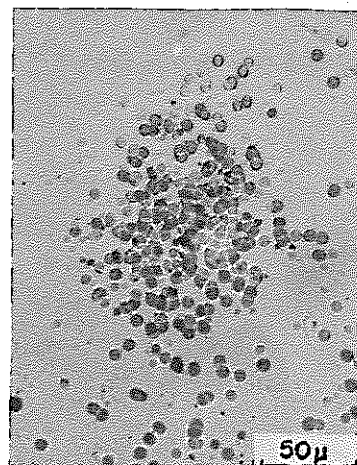
(3) 60 秒露出

Photo. 18 露出時間の比較 (腐食 10% NaOH, 60°C - 2分)

Photo-18に PSG-22 の露出時間の比較写真を示したが 60 秒露出では Over となり 20 秒露出でも充分 Pu spot が認められる。Kodak 製に比較して短時間露出で  $\alpha$ -track 見られるが各 Pu spot 間の濃度差はあまり鮮明に見られない。また 40 秒露出と 60 秒露出では Pu spot 径に差があり適正露出時間を検討中である。



(1) 腐食2分(露出20秒)



(2) 腐食4分(露出20秒)

Photo. 19 腐食時間による比較 10% NaOH-60°C

Photo-19に腐食時間による比較写真を示したが2分腐食では $\alpha$ -trackが斜めに走っている部分があり中心部より飛んだことが判別される。このPu spotは試料の左端部であり左に多く飛んでいるのが観察されspot径測定時にはその部分を差し引いて測定する。4分腐食になると斜めに走っていた $\alpha$ -trackが丸いpitとなって現われている。これは放射線損傷を受けた部分がNaOH溶液で2分追加することにより腐食が進行するので6 $\mu$ 位の丸いpitとなって現われてくる。そして完全なPu spotとして観察されるのでspot径測定は過大評価する恐れがある。また腐食を多くすると各Pu spot間の濃度差が平均され顕著に現われないので腐食条件として10% NaOH溶液では60°C-2分が最適である。

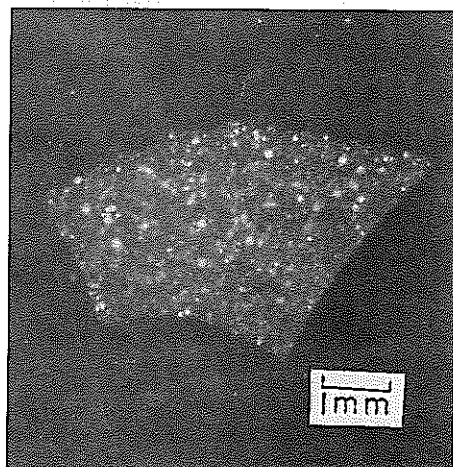


Photo. 20 マクロ写真

(ダイセル製ニトロセルロース膜使用)

Photo-20にPSG-22のマクロ写真(5分露出, 10%NaOH60°C-2分腐食)を示したがこれは写真引伸機を利用して焼付けた写真であり鮮明にPu spot等観察され乾板と比較しても劣らない。マクロ写真ではPu spotは白色に観察される。

## C. 富士オートラジオグラフ乾板 ET-2F

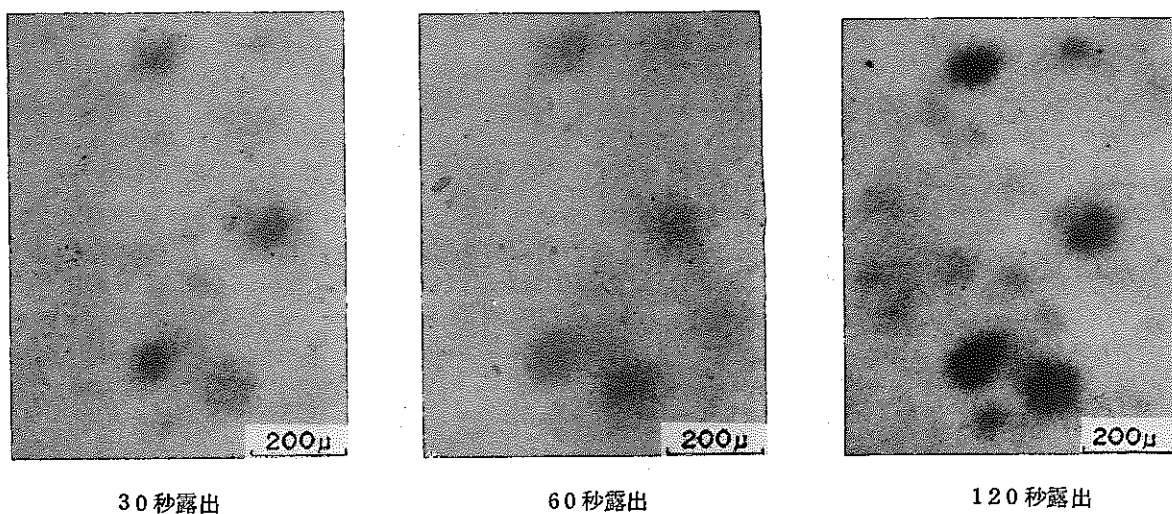


Photo. 21 富士オートラジオグラフ乾板ET-2F 現像20°C-4分

Photo-21にPSG-22の乾板写真を示したが今迄当乾板により試料の均一性を観察測定してきた。その際 $\alpha$ 粒子により黒く感光した部分をPu spotとして測定するが $\alpha$ 粒子の飛程を考慮しその飛程距離を差引いて真のPu spot径とする。これらのことを考慮するとPu spotを点と考えた場合直径約50 $\mu$ の範囲まで乳剤膜の中を飛び乾板を黒化させることになる。したがって乾板上で観察されたPu spot径より50 $\mu$ を引いて真のPu spot径としている。Photo-21上端部Pu spotの30秒露出と120秒露出は約60 $\mu$ と同一径であるが各spot間の濃度差が120秒露出になると判別できない。したがって当試料に対する適応露出は30~60秒である。また現像は専用液D-19を使用した。

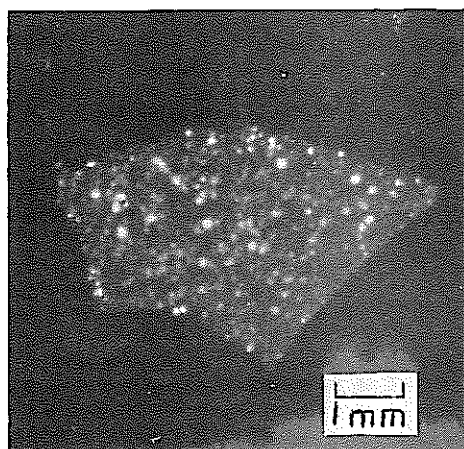
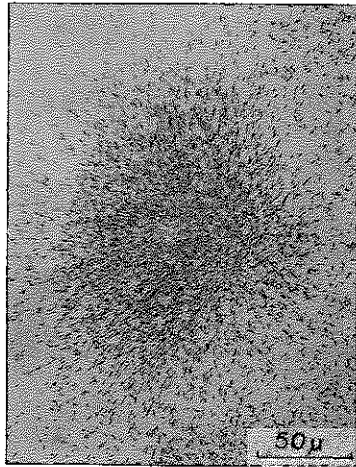
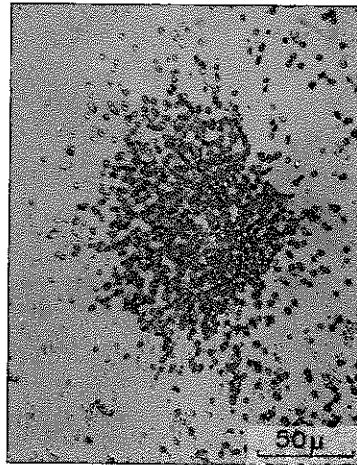
Photo. 22 マクロ写真  
(富士オートラジオグラフ乾板使用)

Photo-22はPSG22のマクロ写真(2分露出)である。ダイセル製ニトロ・セルロースに比較し、鮮明度欠けるが、これは試料とのコンタクトが完全に行なわれなかったためと思われる。

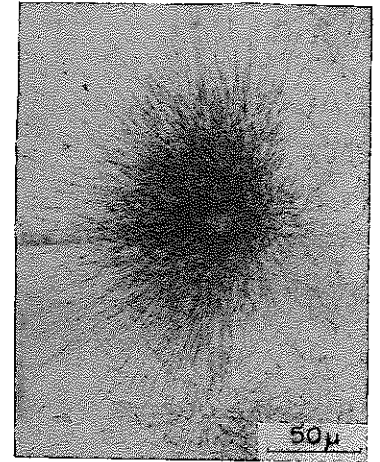
D. 各感光剤の比較



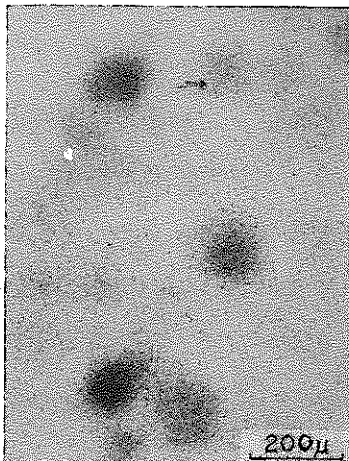
(1) 露出 5 分



(2) 露出 1 分

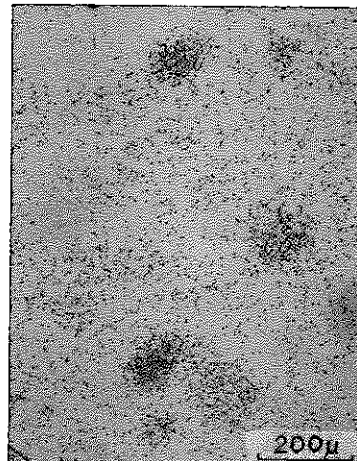


(3) 露出 2 分



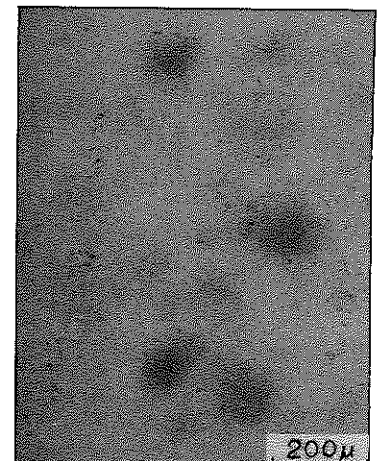
(4) 露出 5 分

Kodak 製ニトロ・セルロース



(5) 露出 20 秒

ダイセル製ニトロ・セルロース

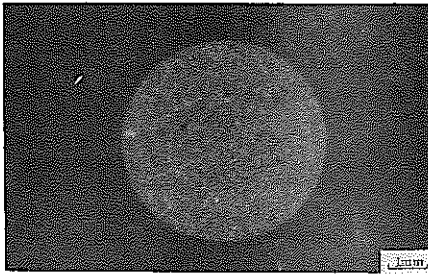


(6) 露出 30 秒

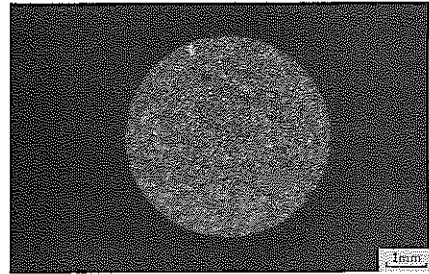
オートラジオグラフ乾板

Photo. 23 同一 Pu spot における各感光剤の比較写真

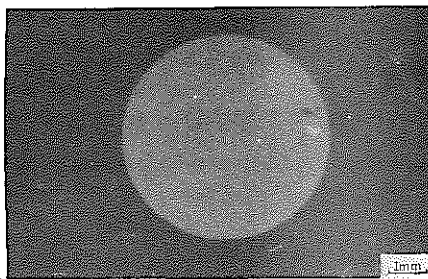
Photo-23 の写真結果から乾板の spot 径約 70 μ に対しニトロ・セルロースはダイセル製, Kodak 製と少しずつ spot 径大きくなっている。これら α 粒子の飛程を考慮して乾板の場合 α 粒子の飛程距離約 50 μ を差引いて真の値とするが, ニトロ・セルロース二種については検討中である。またダイセル製は Kodak 製に比べて腐食 pit が大きい。



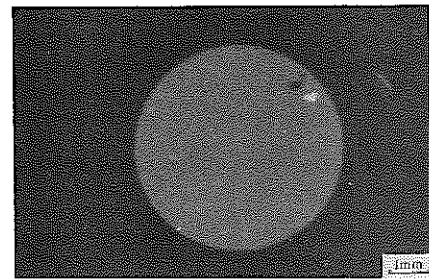
(1) BT-00-410  
(Vブレンダー-30 min混合 1700℃ 2時間焼結)



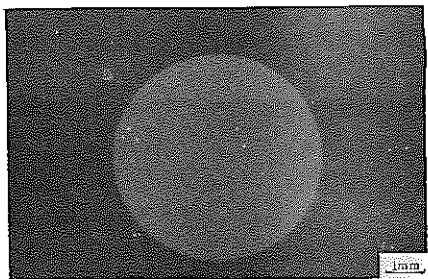
(1) BT-00-410  
(Vブレンダー-30 min混合 1700℃ 2時間焼結)



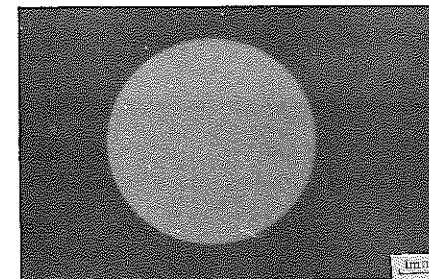
(2) BT-05-01-239  
(フレキシブル混合 4hr 1600℃ 2時間焼結)



(2) BT-05-01-239  
(フレキシブル混合 4hr 1600℃ 2時間焼結)

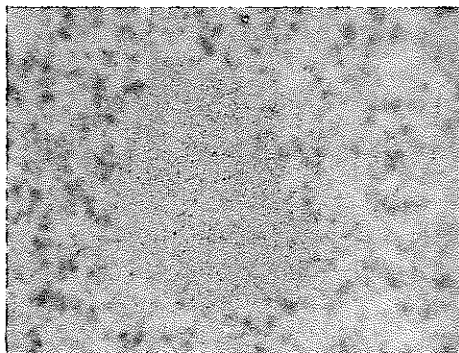


(3) BT-05-02-261  
(フレキシブル混合 4hr 1700℃ 2時間焼結)

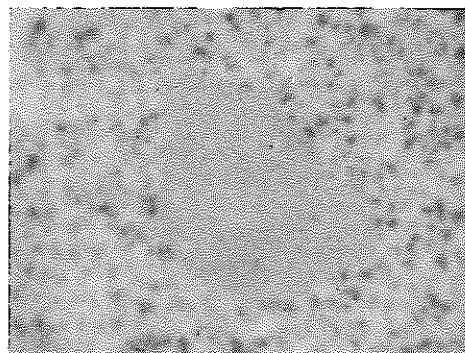


(3) BT-05-02-261  
(フレキシブル混合 4hr 1700℃ 2時間焼結)

同一試料のマクロ写真による比較



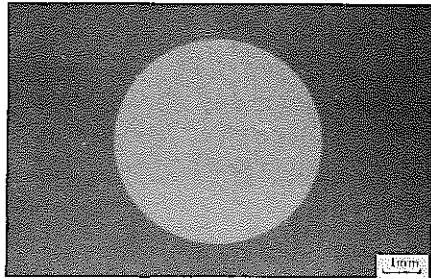
BT-000  
ダイセル製ニトロ・セルロース



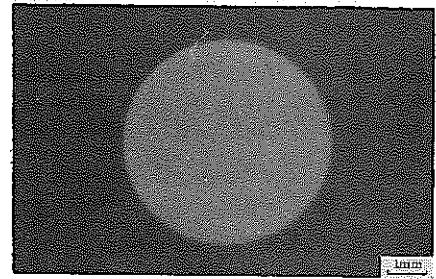
BT-000  
乾板 (ET-2F)

同一場所のミクロ写真による比較

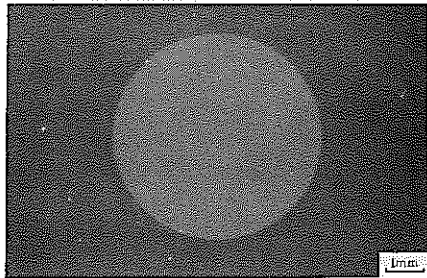
Photo. 24-(1) ダイセル製ニトロ・セルロースと乾板の比較



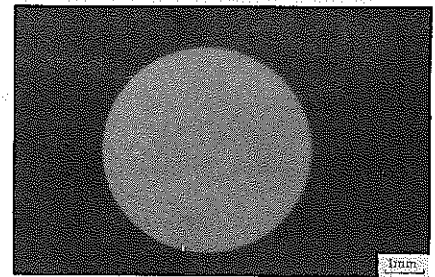
(1) BT-06-01-310  
フレキシブル混合 6 時間  
1600℃ 2 時間焼結



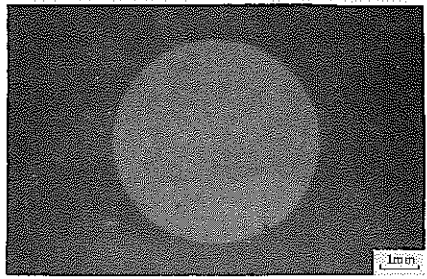
(1) BT-06-01-310  
フレキシブル混合 6 時間  
1600℃ 2 時間焼結



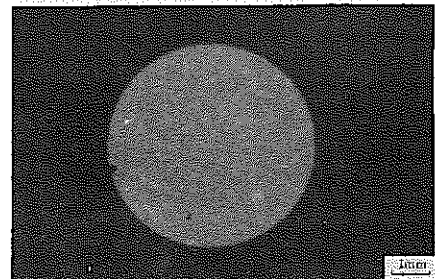
(2) BT-06-02-393  
フレキシブル混合 6 時間  
1700℃ 2 時間焼結



(2) BT-06-02-393  
フレキシブル混合 6 時間  
1700℃ 2 時間焼結



(3) BT-07-95  
アルミナ製ボールミル混合 4 時間  
1700℃ 2 時間焼結  
ダイセル製ニトロ・セルロース



(3) BT-07-95  
アルミナ製ボールミル混合 4 時間  
1700℃ 2 時間焼結  
乾板 (ET-2F)

Photo. 24-(2) ダイセル製ニトロ・セルロースと乾板の比較

Photo-24-(1)(2) は焼結後ペレット (6種類) を表面研磨したオートラジオグラフのマクロ写真とマイクロ写真であり左側はダイセル製ニトロ・セルロースを使用し右側はオートラジオグラフ乾板 (ET-2F) を使用した同一試料の比較写真である。マクロ写真では白くマイクロ写真では黒く観察されるのが Pu の  $\alpha$ -track である。試料 BT-00 は  $\text{PuO}_2\text{-UO}_2$  の均一性一部分だけ良く他は悪い。BT-05-01 は均一性大部分良いが一部に悪いところがあり

PuO<sub>2</sub> と UO<sub>2</sub> が spot として残っている。(白色部, 黒色部)

BT-05-02 は均一性良くオートラジオグラフ試験では製品として合格である。BT-06-01-310 および BT-06-02-393 もオートラジオグラフ試験としては合格であるが、BT-07-95 は PuO<sub>2</sub>-UO<sub>2</sub> の均一性悪くマダラであり、UO<sub>2</sub> (黒色部二箇所) も残存している。また小さく真白に見えるのはゴミが付着したものである。BT-00 のマイクロ写真の比較からも判別されるようにニトロ・セルロースでも定常作業の均一性を充分観察することができる。今後当感光剤を使用すれば定常作業の能率は良くなり身体に対する放射線被曝量も減少されるものと思われる。

Table 1 にニトロ・セルロースと乾板との長短所について一覧を示した。

Table. 1 ニトロ・セルロースと乾板 (ET-2F) との比較

	ニトロ・セルロース	乾板 (ET-2F)
作業性	暗室が不要である。 露出, 腐食処理が短時間でこなえる。 作業が簡単で結果が早く判別する。 未経験者でも作業が容易である。 コストが安い。 火の発生源に充分注意する。 サイズに融通性がある。	暗室を必要とする。 露出, 現像, および水洗等に長時間要する。 作業が複雑で結果判別が遅い。 経験者でないと作業が難しい。 コストが高い。 傷が発生しやすくショックを与えない。 乾板処理時にゴミが付着する恐れがあり取扱いに注意する。
α-track 像	乾板に比較し Pu spot 径少し大きく現われる (検討中) 露出時間によって Pu spot 径に差があるが, ある程度の長時間露出を行えば黒化度を増すだけとなる (検討中)。 定常作業の均一性を確認するには充分満足できる。	約 50μ 差引き真の Pu spot とする。 露出時間による Pu spot 径の差はなく黒化度を増すだけである。 研究実験等に適している。

E. オートラジオグラフィ用治具

1. 写真および図面説明

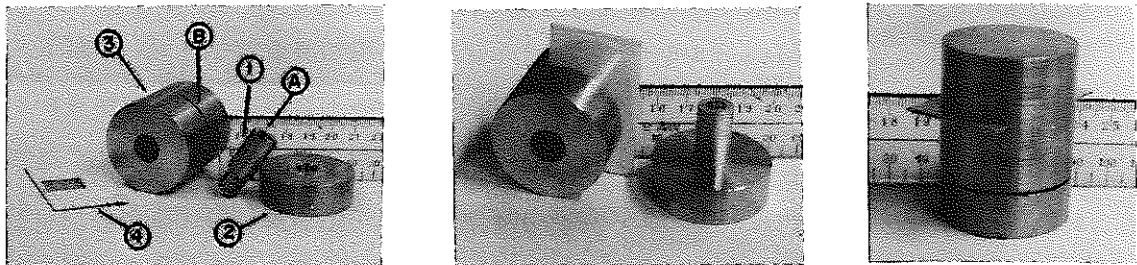


Photo. 25 オートラジオグラフィ用治具

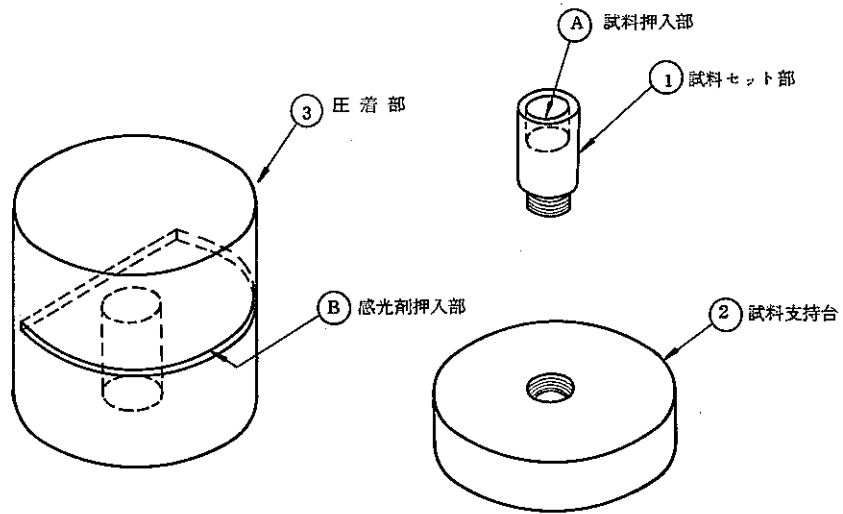


Fig. 10 オートラジオグラフィ用治具姿図

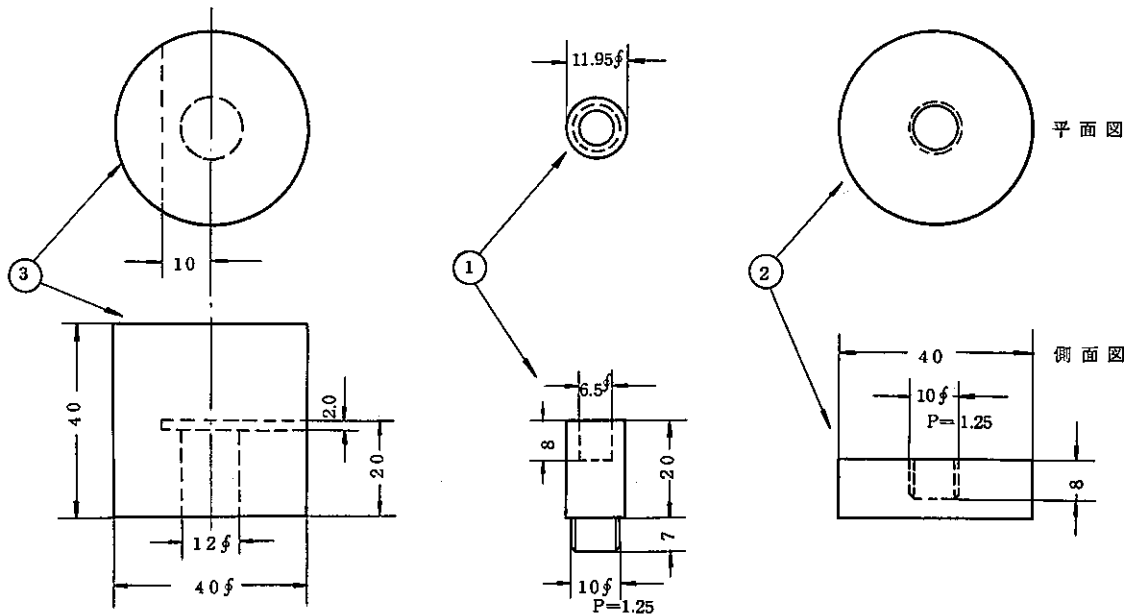


Fig. 11 オートラジオグラフィ用治具見取図

Fig. 10, 11 および Photo-25にオートラジオグラフィ用治具を示したが、試料セット部①は試料支持台②に固定され試料は試料挿入部①Aにセットされる。次に膜厚6μのマイラーフィルムで包んだニトロ・セルローズ④を感光剤挿入部①Bへセットして圧着部③を試料セット部①の上に乗せる。この治具の使用によって圧着部③の荷重が平均して試料表面に加わり鮮明なα-trackが得られる。また試料に寸法差がある場合は試料セット部①の部分のみ作成して交換すれば簡単に露出を行なうことができる。



## 2. 露出法

試料(6.4φ×10mmh)は試料挿入部<sup>Ⓐ</sup>にセットされたとき試料表面が2mm程突き出ており感光剤に完全に密着されるようになっている。またニトロ・セルロースはマイラーフィルムで包み直接試料との接触を防ぎ放射線による汚染を防止して露出させる。

## 3. 従来作業が改善された点

- i) 未焼結試料のアルファ・オートラジオグラフィは試料が崩れやすく不安定なので埋込むことができず試料をマイラーフィルムで包んだ感光剤の上に載せて露出させていたが詳細なPu spot 像が得られなかった。しかし当治具の利用により荷重がかけられるので鮮明なPu spot 像が得られる。
- ii) 焼結体においては今迄試料の埋込み(30分/1ケ), 研磨(30分/1ケ), そして最後にベークライトの除染(30分/1ケ)を行なってオートラジオグラフを撮ってきたが当治具の利用により試料をFig. 7 に示す研磨用治具にセットし(2分/1ケ), 通常の研磨(30分/1ケ)を行ない最後に試料のみ取り出し超音波洗浄(5分/1ケ)を行なってオートラジオグラフィ用治具にセットしオートラジオグラフィを行えば良い。(Fig. 7 に示す研磨用治具にセットした状態では治具の隙間に入っているPuの除染ができない)今迄90分/1ケ要した作業が40分/1ケに短縮される。
- iii) 最近試料ペレットの切断機で性能の良いものが市販され, 切断しただけでオートラジオグラフィ用試料となり, 研磨の必要のないものが出ている。このような切断機を利用して試料を切断(10分/1ケ)しその後超音波洗浄(5分/1ケ)を行ないオートラジオグラフィ用治具を利用すれば15分/1ケで作業が終わり身体に対する放射線被曝量を減少することができ, オートラジオ・グラフィ, 金相試験等の作業の向上をはかることができる。

## 3.4 結 論

プルトニウム燃料の均一性をしらべる上で, 現在の $\alpha$ -オートラジオグラフィは重要な手段となっている。そこで従来使用されている。オートラジオグラフィ乾板(富士フィルム製)にかわりダイセル製ニトロ・セルロース, コダック製ニトロ・セルロースについて比較検討をおこなった。ニトロ・セルロースの場合, 従来の乾板に劣らない鮮明な解像力が得られることが判明しとくに最近開発されたダイセル製ニトロ・セルロースの場合に非常に短時間の露光でよい解像力が得られることが判明した\*。また従来の乾板を使用した場合, 試料の研磨, 除染, 暗室内

\* ) ダイセル製ニトロ・セルロースはコダック製に比較し露出時間は少なく良いが腐食 pit が大きく Track 密度が低い。またコダック製は Track 密度は高いが $\alpha$ 粒子の飛程が実際より大きいためPu spot 径測定に過大評価する恐れがある。両者とも一長一短あるがPuO<sub>2</sub>-UO<sub>2</sub>燃料の均一性を調べるにはなんら問題なく目的を達成することができる。

での露光作業，現像焼付作業など時間と作業人数など最低2名を必要としたが，ニトロセルロース膜を使用した場合は特殊治具を使用することによって簡単に短い時間で鮮明な像をうることができ試料の研磨，除染，暗室の使用等も省略することができ，したがって製造工程のなかのどんな段階でもオートラジオグラフィを簡単に撮ることができ，グローブボックス内での作業も容易であることが判った。

なお，終りに技術資料作成にさまざまな角度からご協力いただいた核燃料部，鹿島研究員，ブル燃部，木村一英，平野広三郎，皆川洋治各氏に感謝致します。

#### 参考文献

1. "光学顕微鏡組織の望みの所を電子顕微鏡で見る方法"  
進歩総説 第22巻第3号 A47~A52
2. "ニトロ・セルロースによるアルファ・オートラジオグラフィ"  
東研報一試-32 PNCT-3097 1968年4月