

本資料は 年 月 日付で登録区分、  
変更する。  
2001. 6. - 6

[技術情報室]

# Rapsodie 2 と Rapsodie 4 照射試験用 混合酸化物ペレットの製造

(附：センタレスグラインダー修理記録)

1974年7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

れた  
引用  
制限  
業務

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

T  
ZN841-74-21

1974年7月11日



## Rapsodie 2とRapsodie 4照射試験用混合酸化物ペレットの製造 (附:センタレスグラインダー修理記録)

実施責任者 小泉 益通 プルトニウム燃料部開発課課長  
報告者 成木 芳, 中島 恒 同開発課試料係  
成田大祐, 高信 修 "  
今井忠光, 酒井敏雄 "  
佐々木進, 渡辺一良 "

期間 1972年1月～1972年5月

目的 Rapsodie 2と4照射試験用混合酸化物ペレットの製造

### 要旨

ペレットの仕様 20%PuO<sub>2</sub> - 80%UO<sub>2</sub> (65%EU), 密度 85%T.D. の照射試験用のものが燃料ピンとして約20本分がUO<sub>2</sub>粉とPuO<sub>2</sub>粉の機械混合プロセスで製造された。65%EUO<sub>2</sub>は90%EUO<sub>2</sub>とNUO<sub>2</sub>とを混合して調製された。この製造では大量生産という点は二義的に考え、X線的に見たUO<sub>2</sub>とPuO<sub>2</sub>との固溶度ということに重点を置いて、PuO<sub>2</sub>粉とUO<sub>2</sub>粉の混合条件に留意して製造をおこなった。また密度調整はナフタリンを粉末に添加しておこなった。

予備試験の結果、湿式ボールミル混合(8時間), 2.7%ナフタリン添加, 1700°C, 2時間焼結で満足すべきペレットが得られた。しかし本番になってSUSボール、ポットからFeが仕様以上に多く混入する場合もあることが判明。それ故粉末の混合条件の変更を余儀なくされたり、また得られる焼結密度にかなりロット内のバラツキが大きいことが判り、結果的に当初予定していたより製造ロット数が多くなった。

また製造期間中センタレスグラインダーが故障したが、ボックス内の困難な作業も技術係の応援を得て克服し、修理した。

これらの経験は今後の業務に役立つものと思う。

Rhapsodie 2 と Rhapsodie 4 照射試験用混合酸化物ペレットの製造  
 (附: センタレスグラインダー修理記録)

一目 次一

概 要	1
1. 混合酸化物ペレットの仕様	2
1. 1 Fuel	2
2. ペレットの品質管理検査基準	4
2. 1 Mixed Oxide	5
3. 原 料	13
3. 1 二酸化ウラン粉末	13
3. 2 二酸化プルトニウム粉末	14
4. ペレット製造要領	16
4. 1 濃縮ウランの濃縮度調整	16
4. 2 混合酸化物中の $PuO_2$ の濃度調整	18
4. 3 有機添加剤の添加および造粒	21
4. 4 成 型	22
4. 5 予備焼結, 焼結	25
4. 6 焼結ペレットの検査	25
5. 予備実験	26
5. 1 実験の目的	26
5. 2 実験の内容	26
5. 3 実験結果	37
5. 4 結 論	63
6. 本番ペレット製造	64
6. 1 製品量および製品	64
6. 2 ペレット製造経過	64

6.3 X線, 金相およびオートラジオグラフ観察 .....	94
6.4 ペレット製造のまとめ.....	122
7. 核物質収支 .....	128
あとがき .....	139
別 添	
[ I ] Rhapsodie IIペレット検査要項(案).....	141
[ II ] ラプソディー2照射, 固溶に関するCEAとの打合せ結果のまとめ .....	147
[ III ] ラプソディー2照射, 1月19日打合せ結果の報告 .....	150
附「センタレスグラインダー修理記録」.....	153

## 概 要

Rapsodie 2と4照射試験用ペレットは昭和47年1月から昭和47年5月までの4ヶ月で製造作業がなされ、約20本分の製品を得た。ペレットは組成：20%PuO<sub>2</sub>-80%UO<sub>2</sub>(65%EU)，密度：85%T.D.という仕様のものである。

濃縮ウランについては手持として90%のものがあって、これと天然ウランを混ぜて所定の濃縮度のUO<sub>2</sub>粉末を調製したが、当初ウラン濃縮度の仕様が55%ということで製造を開始したところ、製造開始後1ヶ月で65%に変更になった。それ故出発混合酸化物粉末の調製が20%PuO<sub>2</sub>-80%UO<sub>2</sub>(55%EU)→20%PuO<sub>2</sub>-80%UO<sub>2</sub>(65%EU)の再調製をおこなわねばならず複雑になった。

この製造では大量生産という点については二義的に考えRapsodie 1で問題になったX線での固溶度ということに重点を考えて、PuO<sub>2</sub>粉とUO<sub>2</sub>粉の混合条件に留意して製造をおこなった。また密度の調整はナフタリンを添加剤として使用することでおこなった。

製造に先だっておこなった予備実験では湿式混合をおこなえば1700℃焼結の場合8時間ボールミル混合(材料SUS)でX線的に完全固溶が得られ、ナフタリン添加量2.7%で85%T.D.の密度が得られることが判った。

しかしこの条件で本番に入って、湿式混合だと仕様以上にFeが多量に入る場合もあることが判って混合法を湿式-乾式併用、あるいは乾式のみという具合に変更をしいられた。しかしこの為95%以上の固溶をもったペレットの製造は困難となった。また密度コントロールも良好でなくロット内のバラツキが大きくペレットの全数検査を余儀なくされた。

結果として当初予定したより原料粉末の使用量が多くなり、一度焼結したペレットの不合格品の乾式回収粉の再使用もおこなったので製造ロット数が多くなった。

製造期間が限られていて充分な準備基礎実験が出来なかつたことが製造作業に上記の様な若干の混乱を生じたのが反省されなければならないが、種々有用な情報が得られた。

また本作業中センタレスグラインダーが故障してしまい困難をもたらした。このグラインダーは半周製で図面も簡単なものしかなく、メーカに修理を依頼することも出来なかつた。その上ボックス内での修理作業であるので作業は困難を極めたが、技術係の応援を得て自力で修理した。

## 1. 混合酸化物ペレットの仕様

### 1.1 Fuel

(1) Material	$\text{PuO}_2\text{-UO}_2$				
(2) Shape	Solid pellet				
(3) Dimension					
Diameter			$5.40 \pm 0.05$ mm		
Height			10 mm		
Fuel column length			$320 \pm 3$ mm		
(4) $\text{PuO}_2$ content	$20 \pm 1$ %				
(5) U-235 enrichment	$65.0 \pm 0.5$ w/o				
(6) Density	$85 \pm 2$ % T.D				
(7) O/M	$1.96 \pm 2.00$				
(8) Released gas amount (including $\text{H}_2\text{O}$ )	< $150 \mu\text{l/g}$ Fuel				
(9) Isotopic composition of Plutonium					
Date of analysis 13,11, '70	Pu-238	$0.62 \pm 0.01$ %			
	Pu-239	$75.28 \pm 0.06$			
	Pu-240	$14.39 \pm 0.04$			
	Pu-241	$8.32 \pm 0.02$			
	Pu-242	$1.39 \pm 0.01$			
(10) Impurities					
Al	< 500 ppm				
B	< 20				
C	< 150				
Cd	< 20				
Cl	< 25				
Cr	< 500				
F	< 25				
Fe	< 500				
Mg	< 25				
N	< 200				
Ni	< 500				

ZN841~74-21

V < 200

Total of Cu, Zn, Si 600 ppm

Total of Ag, Mn, Mo, Pb, Sn 200 ppm

## 2 ペレツトの品質管理検査基準

これに關しては開発課、設計課、品質管理課の三者の間で合議し以下の様に決定された。なお別添〔I〕に示した様な開発課案を提出したが、今回の場合は今迄の実績データが十分に無いということで判定基準は測定値が仕様を満足すれば良いと云うこととした。

これは第2.1表にまとめて示す。

## 2.1 Mixed oxide pellet

Fabrication flow sheet of mixed oxide pellet is shown in Fig. 2.1.

### 2.1.1 Sampling

#### (1) Lot size

Lot size of mechanical blended powder 3,000 g

Lot size of pressing and sintering 500 g

(2) Three powder samples shall be taken out at random from  $\text{UO}_2$  powder lot and  $\text{PuO}_2$  powder lot for mass-spectrometric analysis of isotopic ratio.

(3) Pellets shall be taken out at random from each sintered lot for following examinations.

(i) Plutonium contact 2 pellets

(ii) Impurity (spectroscopy) 1 pellet

(iii) Impurity (chemical analysis) 6 pellets

(iv) Amount of gas released 4 pellets

(v) O/M ratio 3 pellets

(vi) Ceramography, autoradiography,  
and X-ray diffraction 2 pellets

(4) When centerless grinding is necessary, four pellets shall be taken again after centerless grinding for determination of total gas release.

### 2.1.2 Inspection

#### (1) Isotopic composition of uranium and plutonium

##### (i) Uranium

Isotopic composition of uranium shall be determined by mass-spectrometry. The Nuclide Analysis Associate 12-90-Su Mass-spectrometer shall be used. Precisions are as follows;

Atomic % or U isotope	Relative precision
5 100	0.05 %
1 5	0.1
0.1 1	0.2 2
0.1	5

## (ii) Plutonium

The Nuclide Analysis Associated 12-90-SU Mass-spectrometer with glove box shall be used.

Precisions are as follows;

Atomic % of Pu isotope	Relative precision
90	0.1
5 90	0.2
1 5	1
0.1 1	2 5
0.1	5

## (2) Chemical analysis

## (i) Plutonium content

Plutonium content in  $(Pu, U) O_2$  mixed oxide shall be determined by potentiometric titration method. The coefficient of variation for determination of 15 mg plutonium is 0.7 %.

## (ii) Impurities

Concentration of metallic impurities shall be determined by spectrochemical analysis. Ion-exchange separation and direct current arc exciting method shall be used.

Carbon content shall be determined by the coulometric method. YANACO carbon analyzer TYPE-CC-12 shall be used.

Nitrogen in  $(Pu, U) O_2$  shall be determined by Kjeldahl's method.

Fluorine shall be analyzed by pyrohydrolysis and photometric method.

## (3) Amount of gas released

(i) The moisture shall be measured by CEC solid moisture analyzer TYPE 26-321A, at  $500^{\circ}C$ .

The minimum detection is 0.2 microgram.

The error is 5 micrograms, when the 20 micrograms water are measured.

## (ii) The released gas shall be measured by means of vacuum extraction method. The crucible is made

of molybdenum metal. The including gas in the pellet shall be extracted at  $1,700^{\circ}\text{C}$ , for 30 minutes and measured by Mcleod gauge.

- (iii) Total gas released shall be calculated by S.T.P. conversion for both of moisture and released gas.

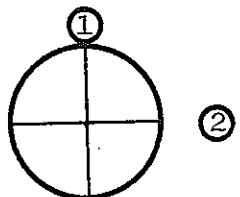
(4) O/M ratio

The O/M ratio of the pellet shall be determined by thermogravimetric method. The error is 0.005, when two gram sample is used.

(5) Dimension and density

The diameter, height and weight of all finished pellets shall be measured for geometrical density determination. Geometrical density shall be calculated up to the order of  $0.01 \text{ g/cm}^3$ .

(i) Diameter



Diameter shall be measured by using blade micrometer at the mid point of the pellet.  
(① - ② two direction)

(ii) Height

Height shall be measured by using blade micrometer at the central point of the pellet.

(iii) Weight

Weight of pellet shall be measured to the order of 0.001 g.

(6) X-ray diffraction

- (i) The pellet shall be mounted in a resin, then examined by the diffractometer. Lattice constant and it's standard deviation shall be determined from reflections of eight peaks in the backward reflection region.
- (ii) Theoretical density shall be calculated from lattice constant which calibrated by O/M ratio,

and isotopic ratio of the plutonium and uranium.

- (iii) Reflection line-profile of (620) plane shall be taken digitally by step scanning to evaluate number of phase and percentage of the  $\text{UO}_2$  phase. A computer code shall be used to estimate the percentage of the  $\text{UO}_2$  phase.

(7) Micrography

(i) Ceramography

The pellet mounted in the phenol resin shall be ground, polished with diamonds paste (1/4 ) finally, and then observed with photomicroscope. After observation of polished surface, pellet shall be etched by cathodic vacuum etcher. Microphotographs shall be taken again.

(ii) Alpha-autoradiograph

The surface of pellet mounted in phenol resin shall be decontaminated by ultrasonic vibration. And the specimen shall be put on the intro-cellulose film. Then traces of alpha-track shall be etched by sodium hydroxide, and observed with photomicroscope.

## Pelletizing flow sheet and Sampling position

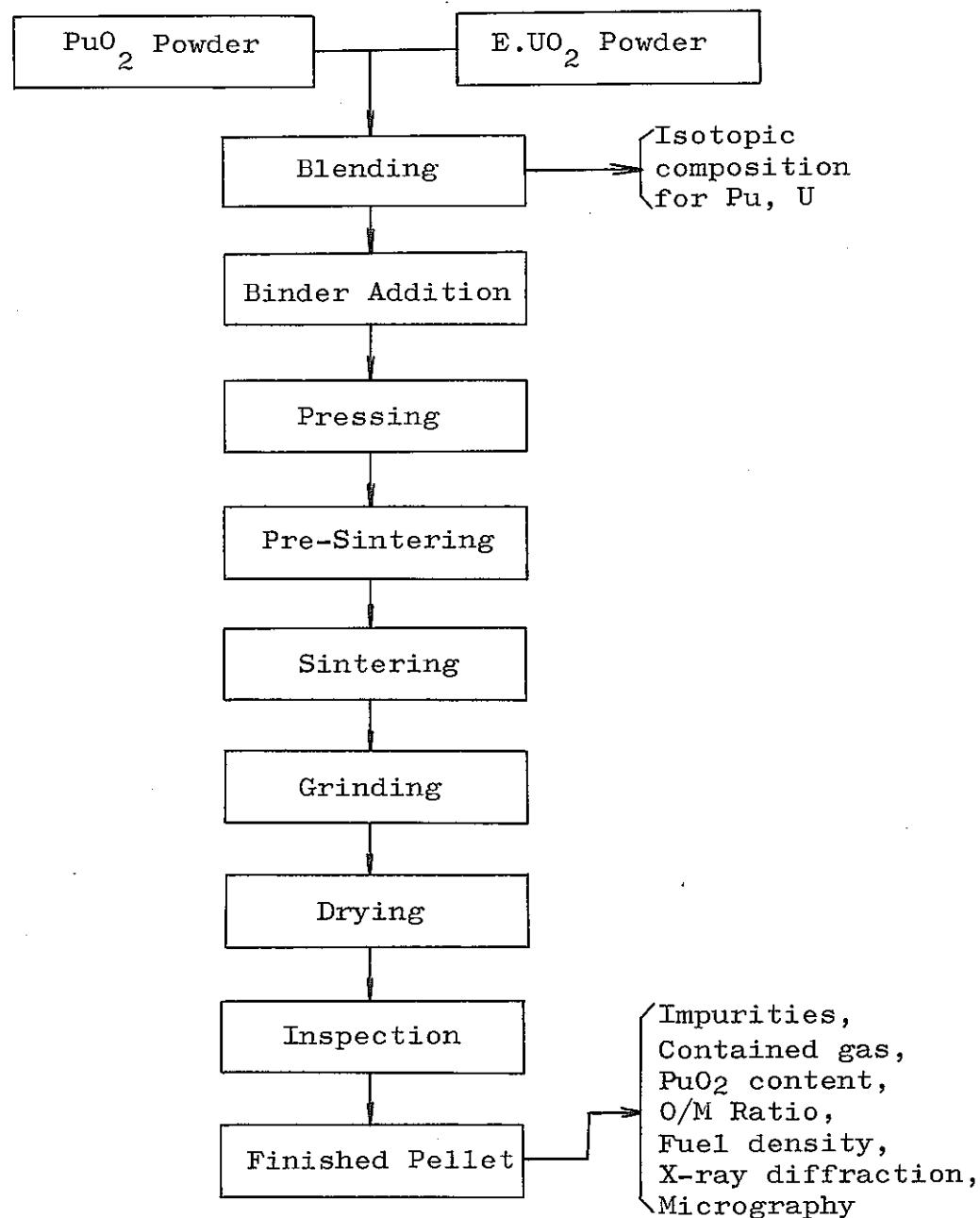


Fig. 2.1 Pelletizing flow sheet (Mechanical Blending)  
and Sampling position

第 2.1 表 品 質 管 理 檢 查

1. 工程燃料ペレット検査 (1) 化学分析-1						10 担当	
2. 品質管理要項	3. 測 定 法	4. 試料数	5. 規 格	6. 管理法	7. データ入力内容	8. 入力形式	9. 記録桁数
1. 試料受入	入庫伝票確認			計量品質管理			
2. 分析							
1) Pu含有率	滴定法 質量分析	3ヶ/Lot			ロットNo. 計算値 ロットNo. 測定値		
2) U含有率		"			ロットNo. 測定値		
3) 不純物	Pu + Vベースとして各元素に 対し適切な方法をとる。	1ヶ/Lot	a) 次の不純物は規格以下 であること。規格 ppm		ロットNo. 測定値 測定日	CD	
			Al 500 B 20 C 150 Ca 80 Cd 20 Cl 25 Cr 500 F 25 Mg 25 N 200 Na 500 Ni 500 V 200				

2. 品質管理要項	3. 測定法	4. 試料数	5. 規格	6. 管理法	7. データ入力内容	8. 入力形式	9. 記録桁数
			Cu+Zr+Si+Fe 600 Ag+Mn+Mo+Pb +Sn 200 Fe 500		ロット番号 緩和値 測定日	CD	
4) O/M比	酸化還元重量法 3011-O/M	3ヶ	1.96~2.00				
5) 蒸発性不純物	1700℃ 30分の高温否定抽出 法による。	"	100μℓ/g (STP)				
6) 水分	350℃ N <sub>2</sub> ガス流中で脱水し 測定する。	3ヶ	30 ppm 以下				

1. 工程燃料ベレット検査 (2) 物性試験							10 担当
2. 品質管理要項	3. 測 定 法	4. 試料数	5. 規 格	6. 管理法	7. データ入力内容	8. 入力形式	9. 記録行数
1. 試料学入							
2. 試験							
1) Puスポット	Pu燃・材料の標準試験法 G. PuO <sub>2</sub> - UO <sub>2</sub> ベレットの Pu均一性測定法(αオートラ ジオグラフ法)	抜取 2ヶ/1Lot	50μ以下		ロットNo, 試料No, 評価, ス ポット径, スポット個数	OMR	
2) 金相試験	F. PuO <sub>2</sub> - UO <sub>2</sub> ベレットの クラックボイド分布, 不純物檢 出, 結晶粒, 非固溶UO <sub>2</sub> 測定法	抜取 2ヶ/1Lot			ロットNo, 試料No, ポイド析 出物, 結晶粒径 (写真)	OMR	
3) X線曲折	CEA 7 FEB 1972 E. PuO <sub>2</sub> - UO <sub>2</sub> ベレットの 固溶度測定法 DDEC/SDECR/72-1014 による。	抜取 2ヶ/1Lot			ロットNo, 試料No, 格子定数 理論密度 UO <sub>2</sub> 量		

## 3 原 料

## 3.1 二酸化ウラン粉末

二酸化ウラン粉末原料としてはUSAECより購入し、三菱金属鉱業で転換加工した90%濃縮ウランと古河電工KKに製造して貰った天然二酸化ウランを混合して濃縮度を調整したものを使用した。濃縮度調整はプラスチック容器でアルミナボールを使用して計算量の90% EUO<sub>2</sub>と天然UO<sub>2</sub>のボールミル混合によりおこなった。(注、PuO<sub>2</sub>粉、NUO<sub>2</sub>粉、EUO<sub>2</sub>粉をいっぺんに3元混合した場合もある)

酸化物粉末の性質は第3.1表に示す様である。

第3.1表 原料UO<sub>2</sub>粉の品質

	90% EUO <sub>2</sub>	天然 UO <sub>2</sub>
メーカ	三菱金属鉱業KK	古河電工KK
濃縮度	90.05%	
U含有量	87.64% (87.3%以上)	87.83% (87.5%以上)
O/U	2.05 (2.03~2.07)	2.06 (2.03~2.07)
比表面積	4.5m <sup>2</sup> /g (3.0~5.0m <sup>2</sup> /g)	3.4m <sup>2</sup> /g (3.0~5.0m <sup>2</sup> /g)
平均粒度	0.6 μ (<1.5μ)	1.1μ (0.5~1.5μ)
高密度	1.9 g/cc (0.8~2.0 g/cc)	1.79 (1.5~2.5 g/cc)
タップ密度	2.9 g/cc (2.0~4.0 g/cc)	2.70 (2.0~4.0 g/cc)
水分	<0.14 w/o (<0.2w/o)	0.05 (0.2w/o以下)
Ag	<0.5 ppm (<0.5 ppm)	<0.1 (<0.5 ppm)
Al	<14 (<25)	<14 (<25)
B	<0.3 (<0.3)	<0.2 (<0.5)
Ca	10 (<15)	<10 (<15)
Cd	<0.3 (<0.5)	<0.2 (<0.5)
Cr	<3 (<10)	10 (<20)
Cu	<0.5 (<5)	2 (<10)
Fe	<14 (<100)	100 (<150)
Mg	<2 (<20)	<2 (<20)
Mo	<3 (<25)	6 (<25)
Ni	6 (<50)	<4 (<50)
Pb	<1 (<5)	2 (<5)
Si	<6 (<100)	30 (<100)

	90% EUO <sub>2</sub>	天然 UO <sub>2</sub>
Sa	< 1 (< 15)	2 (< 15)
F	< 5 (< 50)	< 10 (< 15)
Cl	< 5 (< 20)	< 10 (< 20)
C	97 (<100)	20 (<100)

### 3.2 二酸化プルトニウム粉末

二酸化プルトニウム粉末としては米国の NUMEC 社より購入したものを使用した。これは通称 83% fissile の高次化プルトニウムと云われるものである。第 3.2 表に性質を示す。

第 3.2 表 83% 高次化プルトニウム(核物質区分, Pu 004)

メーカー :	NUMEC 社	
同位体組成 :	Pu-238	0.62 %
	Pu-239	75.28
	Pu-240	14.39
	Pu-241	8.32
	Pu-242	1.39
	Am	4800 ppm
Pu含有量 :	87.3 %	
比表面積 :	7.37 m <sup>2</sup> /gm	
平均粒度 :	—	
高密度 :	—	
タップ密度 :	—	
水分 :	—	
不純物		
Ag	1.9 ppm	
Al	<10	
B	0.7	
Ca	10	
Cd	< 1	
Cr	15	
Cu	10	
Fe	50	

Mg	< 2
Mo	< 10
Ni	25
Pb	45
Si	25
Sn	< 10
C	970
Cl	-
N	-
F	-

---

## 4 ペレット製造要領

### 4.1 濃縮ウランの濃縮度調整

#### 4.1.1 目的

現在プルトニウム燃料部内に Rapsodie 2 照射試験用ペレットの仕様に合致する濃縮ウラン酸化物がないのでこれに合った濃縮度のものを調合すること。目的の濃縮度は 5.5% U<sup>235</sup> (Metal Base)

(注: 最初 5.5% であったが後に 6.5% に変更された。)

#### 4.1.2 方 法

##### (1) 原料準備

計量に保管してある 90 EUO<sub>2</sub> 及び天然UO<sub>2</sub> を A 棟 A - 15 フードに受入れる。

##### (2) 秤 量

混合は 1 ロット 1000 g でおこない、90 EUO<sub>2</sub> 及び天然UO<sub>2</sub> の重量は、それぞれ次の式によって計算する。

###### i) 天然UO<sub>2</sub> の重量

$$\frac{1000(\alpha - C_E)\beta}{(C_E - \gamma)\sigma + (\alpha - C_E)\beta} \quad (1-1)$$

$$= \frac{1000(\alpha - 55.0)\beta}{(55.0 - 0.715)\sigma + (\alpha - 55.0)\beta} \quad (1-1)'$$

###### ii) 90 EUO<sub>2</sub> の重量

$$\frac{1000(C_E - \gamma)\sigma}{(C_E - \gamma)\sigma + (\alpha - C_E)\beta} \quad (1-2)$$

$$= \frac{1000(55.0 - 0.715)\sigma}{(55.0 - 0.715)\sigma + (\alpha - 55.0)\beta} \quad (1-2)'$$

式 (1-1), (1-1)', (1-2), (1-2)' で記号 C<sub>E</sub>, α, β, σ は,

C<sub>E</sub> : 希望濃縮度 [%] ; 55.00

α : 90 EUO<sub>2</sub> の濃縮度 (Metal Base) [%]

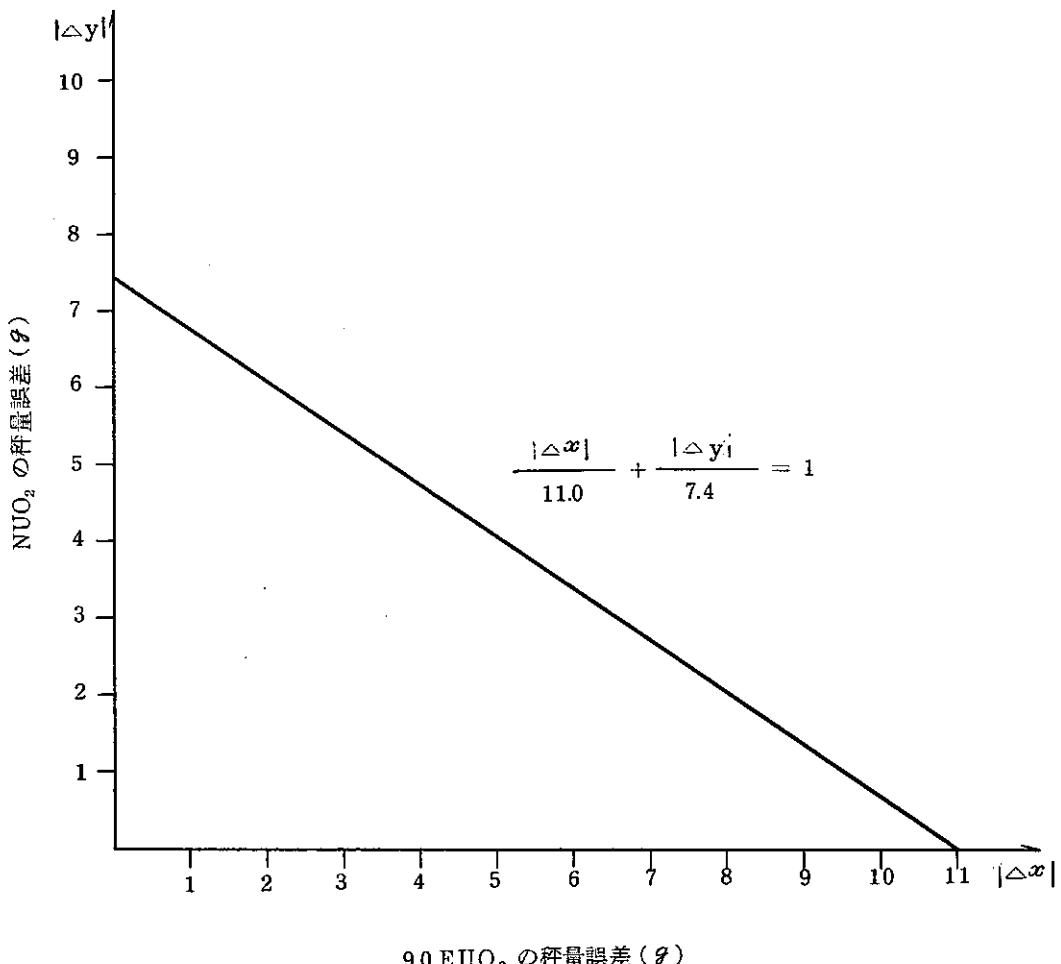
β : 90 EUO<sub>2</sub> の U メタル含有量 [%]

γ : NUO<sub>2</sub> の U<sup>235</sup> 含有率 [%] ; 0.715

$\sigma$  : NUO<sub>2</sub> の U メタル含有量 [ % ]

式(1-1)', (1-2)' で計算した重量値になるように、1 kg 天秤を用いて、  
± 1 g 以内の精度で秤量する。

要求される秤量精度は第 4.1 図のようになる。



第 4.1 図 5.5% 濃縮ウラン酸化物調整時の秤量精度

$x$  : 90 EUO<sub>2</sub> 粉の重量,  $y$  : NUO<sub>2</sub> 粉の重量とすると

$$G_E = \frac{\alpha \beta x + \gamma \sigma' y}{\beta x + \sigma y} \quad (1-3)$$

$$\Delta G_E = \frac{\beta \sigma (\alpha - \gamma)}{(\beta x + \sigma y)^2} \times (y \Delta x - x \Delta y) \quad (1-4)$$

$$\left| \frac{\Delta C_E}{C_E} \right| = \frac{\beta \sigma (\alpha - \gamma) (y \Delta x - x \Delta y)}{(\alpha \beta x + \gamma \sigma y) (\beta x + \sigma y)} \quad (1-5)$$

ここで  $\alpha \approx 90$      $\gamma \approx 0.72$      $\beta \approx \sigma \approx 88$      $x \approx 608$      $y \approx 392$

又  $|\Delta C_E/C_E| < 0.4/55$  より

$$\frac{|\Delta x|}{11.0} + \frac{|\Delta y|}{7.4} = 1 \quad (1-6)$$

### (3) 混合

アルミナ製ボールミル・ポット又はポリエレン製ポット及びアルミナボールを用いて4時間混合する。ボールミル・ポットの内容積・回転数、ボールの大きさ及びポット内のボールのしめる割合等の条件は化学工学 [ II ]<sup>1)</sup> に従う。

#### 4.1.3 濃縮度の分析

混合ロットの3ヶ所から各1ヶの分析試料(2g)を取り分析する。

### 4.2 混合酸化物中のPuO<sub>2</sub>の濃度調整

#### 4.2.1 目的

UO<sub>3</sub>とPuO<sub>2</sub>を機械混合して所定のPuO<sub>2</sub>濃度の混合酸化物を作ること。

#### 4.2.2 方法

##### (1) 原料準備

計量係に保管してある二酸化プルトニウム及び4.1で調整した5.5%濃縮の二酸化ウランを所定のボックスに受入れる。

##### (2) 秤量

混合は1ロット500gでおこない、二酸化プルトニウム及び5.5%濃縮の二酸化ウランの重量は、それぞれ、次の式によって計算する。

##### (1) PuO<sub>2</sub>の重量

$$\frac{500 \times C_P \times \eta / 88.1}{\{(100 - C_P)\epsilon / 88.2\} + C_P \eta / 88.1} \quad (2-1)$$

$$= \frac{113.5 \eta}{0.9070\epsilon + 0.2270\eta} \quad (2-1)'$$

II) 55 EUO<sub>2</sub> の重量

$$\frac{500 \times \{(100 - C_P)\epsilon / 88.2\}}{\{(100 - C_P)\epsilon / 88.2\} + C_P \eta / 88.1} \quad (2-2)$$

$$= \frac{453.5 \epsilon}{0.9070 \epsilon + 0.2270 \eta} \quad (2-2)'$$

式(2-1), (2-1)', (2-2), (2-2)'で記号C<sub>P</sub> ε, ηは,

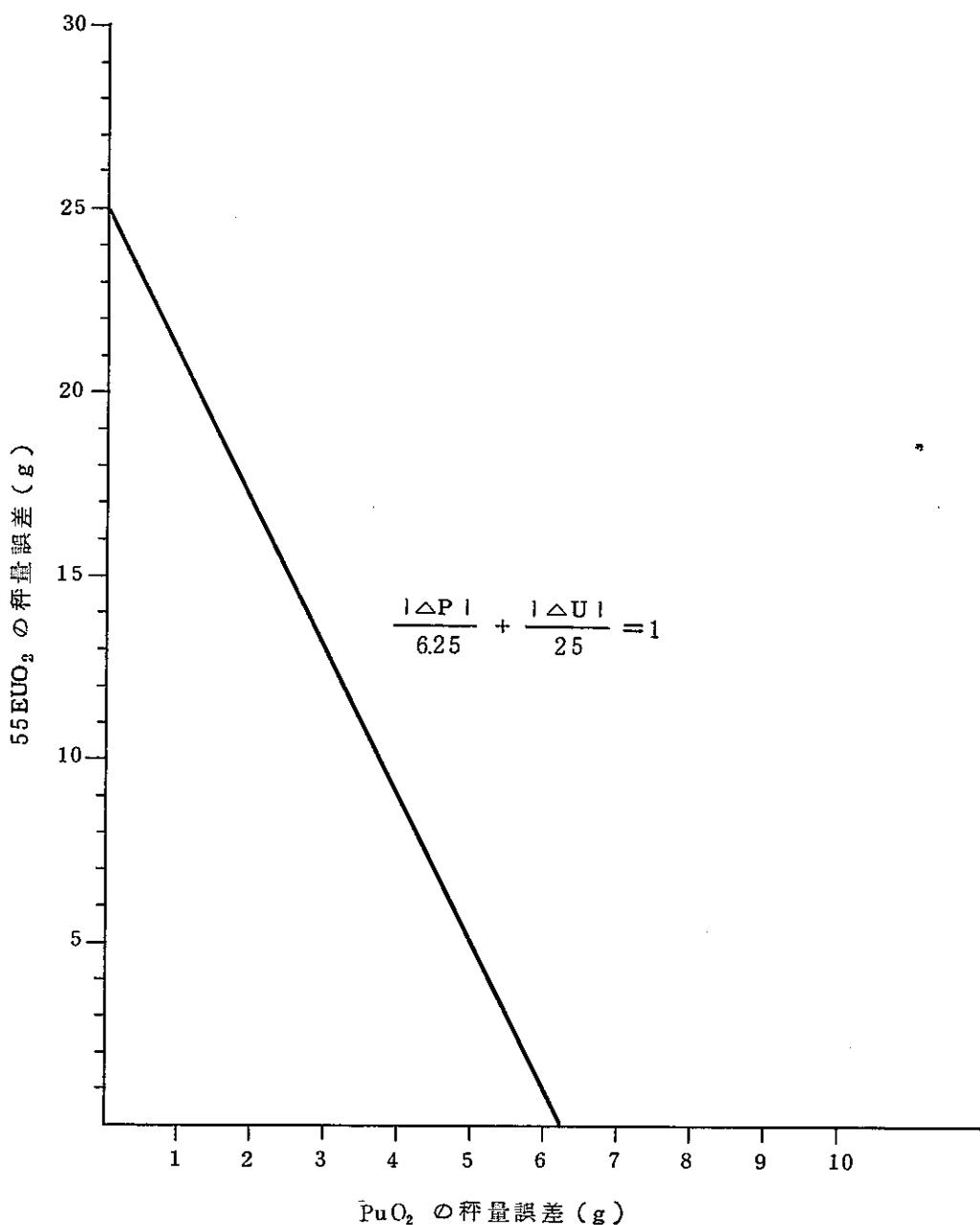
C<sub>P</sub> ; 製品ペレット中のPuO<sub>2</sub>濃度 [%] ; 20

ε ; PuO<sub>2</sub>中のPuメタル含有量 [%]

η ; 55 EUO<sub>2</sub>中のUメタル含有量[%]

式(2-1)', (2-2)'で計算した重量になるように±0.5 g以内の精度で秤量する。

要求される秤量精度は、第4.2図のようになる。

第42図 20%  $\text{PuO}_2$  -  $\text{UO}_2$  混合酸化物調整時の秤量精度

P ;  $\text{PuO}_2$  粉の重量      U ;  $55\text{ EUO}_2$  粉の重量とすると

$$C_P = \frac{100 \times (\epsilon/88.2) \times P}{(\epsilon/88.2)P + (\eta/88.1)U} \quad (2-3)$$

$$\Delta C_P = \frac{100 \times (\epsilon/88.2)(\eta/88.1)}{\{(\epsilon/88.2)P + (\eta/88.1)U\}^2} \times (U \Delta P - P \Delta U) \quad (2-4)$$

$$\left| \frac{\Delta C_P}{C_P} \right| = \frac{(\eta/88.1)}{\{(e/88.2)P + (\eta/88.1)U\}P} \times (U\Delta P + P\Delta U) \quad (2-5)$$

ここで  $\eta/88.1 \approx 1$      $e/88.2 \approx 1$      $U=400$ ,  $P=100$

又  $|\Delta C_P/C_P| < 1/20$

$$\frac{|\Delta P|}{6.25} + \frac{|\Delta U|}{25} = 1 \quad (2-6)$$

### (3) 混合

V混合機又はニーダーで30分、ボールミル4時間混合。

#### 4.2.3 Pu濃度の分析

混合ロットの3ヶ所から各1ヶの分析試料(3g)をとり分析する。分析結果  $C_{P_0}'$ に対する期待値  $C_{P_0}$  は、(2-3)式の製品ペレット中の  $PuO_2$  濃度の期待値  $C_P=20$  より

$$C_{P_0} = \frac{100 e P}{P+U} = \frac{100 e}{1+U/P} \quad (2-7)$$

(2-3)式で  $C_P = 20$  より

$$C_{P_0} = \frac{8820 e \eta}{352.4 e + 88.2 \eta} \quad (2-7)'$$

$$C_{P_0} - 0.88 < C_{P_0}' < C_{P_0} + 0.88 \quad (2-8)$$

分析結果につき(2-8)式がなり立てば次の工程に進む。

### 4.3 有機添加剤添加及び造粒

#### 4.3.1 目的

混合酸化物粉に有機添加剤を加えて、粉の成型性良化及び焼結ペレットの密度調整をおこなうこと。

#### 4.3.2 方法

##### (1) 混合酸化物と有機添加剤の秤量

テストで確認された適当量の有機添加剤と混合酸化物粉とを秤量する。

##### (2) 混合

秤量した混合酸化物と有機添加剤とをテストで確認された方法で混合する。

## (3) 造 粒

テストで確認された方法で造粒する。

## 4.3.3 低密度ペレット製造のための有機添加剤及びその添加法

サックストン照射試料の製造の時に半乾式造粒して乾燥した粒に微粉のナフタリンをニーダーで混合した経験があるが、現在のところ、この方法が大量取扱の際に応用することが出来そうな、実証された唯一の方法である。この他 スラグ・プレスしたものを粉碎して造粒する方法があるが、現在は実験が充分でなく短期間小製造量の場合採用することに不安がある（低密度ペレット製造については有効であろうと予想されるが）。

APDA, DFR, Rapsodie I 等で用いられた色々の方法は、大量取扱に対しては、臨界管理、火災の危険性等から有効な方法とは考えられず、小バッチのみに適用できる方法であると考えている。

有機添加剤については、密度低下剤としてナフタリン以外にショ糖等もあるが、ナフタリン以外のデータがほとんどないので使用しにくい。

ナフタリンの場合 2.5 %程度添加すると 8.5 % T.D. が得られる（APDAⅢ型製造の経験）。

## 4.4 成 型

## 4.4.1 目 的

グリーン密度及び高さを適時チェックして、出来るだけ研磨代の少ない（焼結のまゝで径が仕様を満すことが望ましい）焼結ペレットが出来あがるように、成型すること。

## 4.4.2 方 法

## (1) ダイスの選択及び成型の一般的な考え方

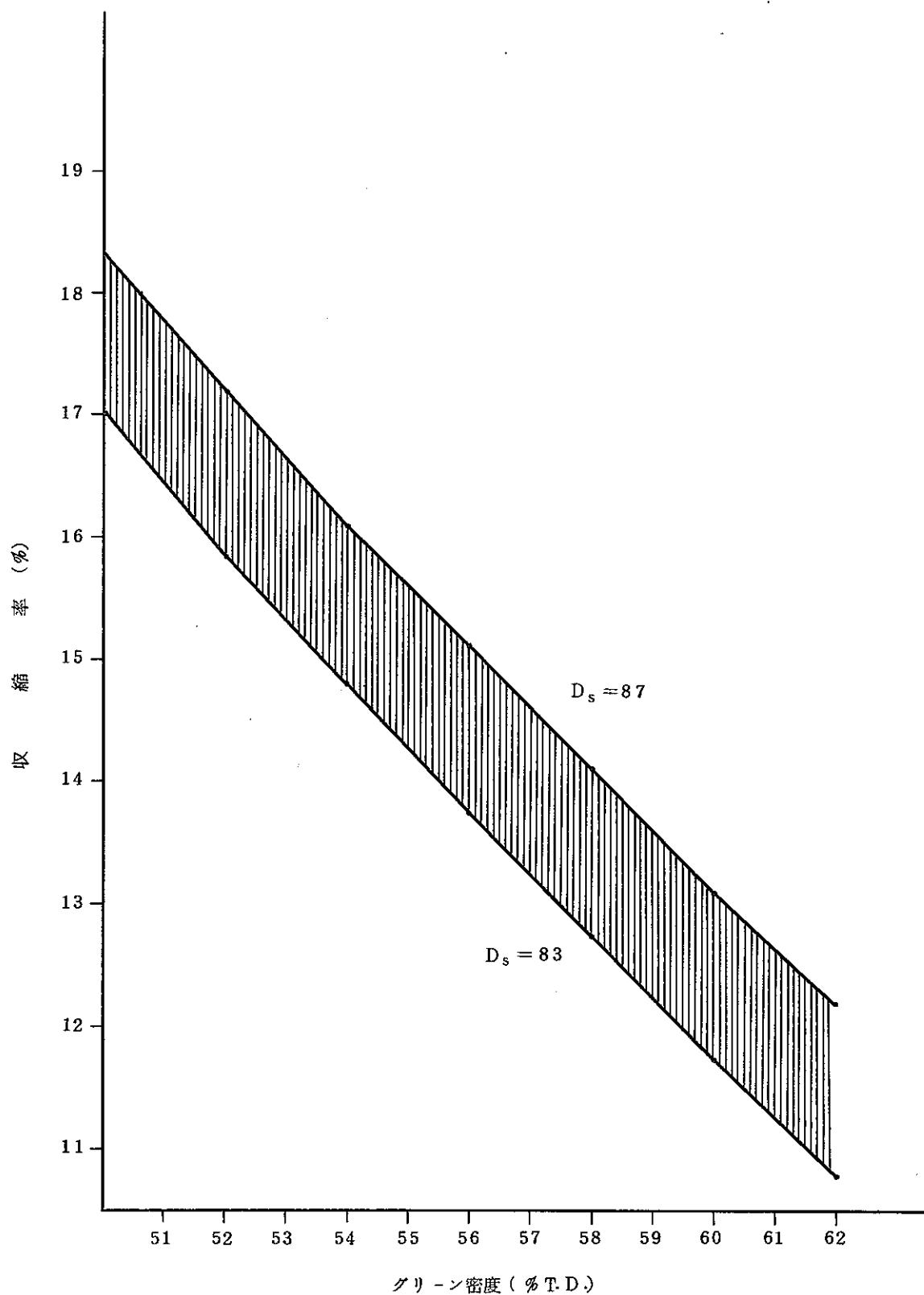
焼結ペレットの密度  $D_s$ , グリーン密度  $D_G$ , 焼結時の収縮率  $S$ , 焼結時のペレットの重量減少率  $a$  との関係は、

$$D_s \approx \frac{D_G(1-a)}{(1-S)^3} \quad (4-1)$$

(4-1)式から Rapsodie 2 について  $a = 0.05$   $D_s = 83 \& 87$  として  $D_G$  と  $S$  との関係を図にしたのが第4.3図である。

第4.3図は焼結のまゝで径が仕様を満足するためのグリーン・ペレットの径とグリーン・ペレットの密度の関係である。又(4-1)式より

$$\frac{\Delta D_s}{D_s} = \frac{\Delta D_G}{D_G} - \frac{\Delta a}{1-a} + \frac{3\Delta S}{1-S} \quad (4-2)$$



第4.3図 グリーン密度と許容収縮率の関係

(4-2)式で  $\Delta D_G = \Delta a = 0$ ,  $D_S = 85$ ,  $S = 0.15$  の場合

$$\Delta D_S = 300 \Delta S \quad (4-2)'$$

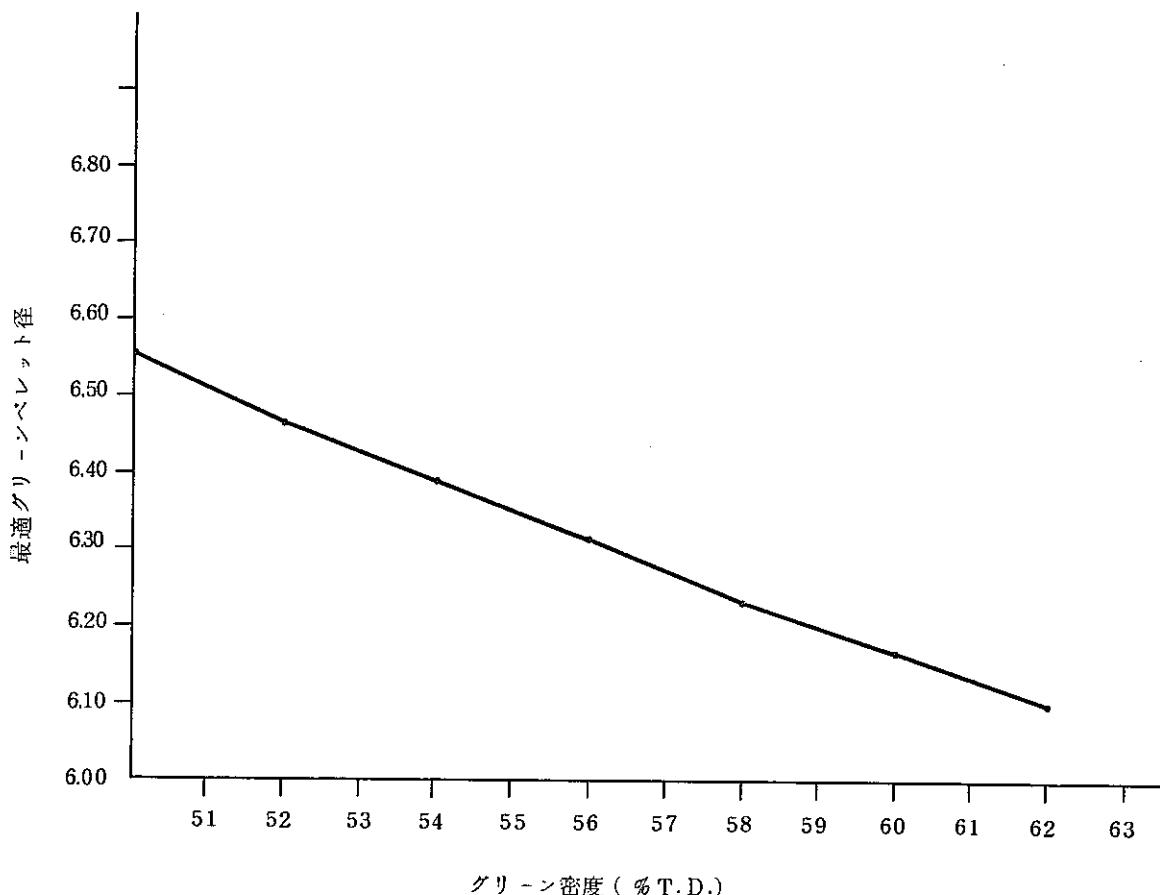
(4-2)式から

$$\Delta D_S = 2 \text{ のとき } \Delta S = 0.0067 = 0.67 (\%)$$

仕様では  $\Delta S_S = 0.93 (\%)$  よりグリーン密度と重量減少率が一定値に保たれれば最適ダイスを使用した場合には、焼結密度が合格していれば、径はかならず合格することになる。

一方、焼結密度  $D_S$  は、グリーン密度が充分高い場合には (3 t/cm<sup>2</sup> で成型されたグリーン・ペレットの密度位) 焼結密度はグリーン密度に影響されない。

そこで、成型のときグリーン密度の範囲をどの程度におさえればよいかは、焼結密度の仕様から決まってくる。



第4.4図 グリーン密度と最適ダイス径

(4-2)式で  $\Delta a = \Delta S = 0$ ,  $D_S = 85$ ,  $\Delta D_S = 2$ ,  $D_G = 55$  とすれば,

$$\Delta D_G = 1.29 \quad (4-2)''$$

(4-2)''式より グリーン密度が最適値から 1.29 %以上離れていないで且つ焼結密

度が仕様の範囲に入ればかならず径も合格する。

以上のことからグリーン密度の範囲を2.6%以内におさえて成型することが望ましい。

最近のT.C.A. 製造では、グリーン密度のロット内のバラツキの範囲は約2%，33ロット全ロットの範囲は約5%であった。

#### (2) ダイスの選択及び成型

テスト結果から第4.4図より最適ダイスを選択し、最適グリーン密度になるように成型する。この際グリーン密度が最適値を中心にして±1.3%T.D.におさめるようにこころがける。

### 4.5 予備焼結・焼結

#### 4.5.1 目的

##### (1) 予備焼結

有機添加剤を飛散させること

##### (2) 焼結

仕様の密度PuO<sub>2</sub>の均一性に合った焼結ペレットに焼上げること

#### 4.5.2 方法

##### (2) 昇温速度及び保持温度

昇温速度については～200℃。保持温度については、テストで確認された温度（1600℃付近の温度）

### 4.6 焼結ペレットの検査

#### 4.6.1 目的

焼結ペレットが仕様に合致しているかどうかを調べ合・不合を決定すること

#### 4.6.2 方法

##### (1) 検査

Rapsodie II ペレット検査基準による

##### (2) 検査中のペレットの保管

保管中にペレットが水分を吸収しないように保管する。

## 5 予備実験

### 5.1 実験の目的

Rapsodie 2 照射試料の製造条件を決定すること。

この実験では、 $\text{UO}_2$  と  $\text{PuO}_2$  とを完全固溶させることができるように再現性のよい混合法をみつけ出すこと、および所定の密度を得るためにナフタリン添加量を決定することの 2 点を主眼とした。

### 5.2 実験の内容

#### 5.2.1 テスト用の原料粉

テスト用の原料粉は本番用のものと同一のものを用い、粗混合までの工程は、本番のものと同一バッチで進めた。粗混合は約 3.3 Kg でおこない、そのうち 1000 g はテスト用に残りの約 2.3 Kg は、本番用に使った。

このような工程を取ったのは、今回の製造が小量であったことおよび短期間で製造しなければならなかったことの理由から、出来るだけテストの結果が、本番に再現されるようにするためであった。

原料調整の詳細は、原料調整フローシート(1)～(5)（第 5.1 図）に示す。

#### 5.2.2 テスト条件

テストは上記の混合酸化物 1000 g を 250 g づつにわけ、それぞれ T1, T2, T3, T4 に割あてた。各テストの条件を下表に示す。

焙 燒  燒 結  ボールミル混合	850 °C		な し	
	1600 °C	1700 °C	1600 °C	1700 °C
湿式ボールミル 8 hr	T42	T41	T32	T31
乾式ボールミル 8 hr	T12	T11	T22 *	T21 *

\* T2 シリーズは 1700 °C 2 h 焼結処理したものの再成型 - 焼結

また T1, T2, T3, T4 のフローシートを（第 5.2 図～第 5.5 図）に示す。

すなわち実験は下記の諸点についてその影響を検討し、本番製造の適当な条件を求めた。

- ① 原料粉末活性度

原料粉末の活性度を下げるために焙焼(850°C 1 hr)還元(850°C 4 hr)処理したもの(T1, T4)と未処理(T2, T3)のものとの比較。

② ナフタリン添加

ナフタリン添加量を0%~3.5%変化させて焼結密度への影響を見た。

③ ボールミル粉碎条件

ボールミルとしてはSUSのボール、容器を使用し乾式ボールミルと湿式ボールミルを比較した。湿式の溶媒としてはエチルアルコールを粉末がややペトつく程度に添加した。湿式粉碎の方が一般に粉碎混合効果が良いと云われるので、この場合の方がPuO<sub>2</sub>とUO<sub>2</sub>のより良い固溶度が期待される。

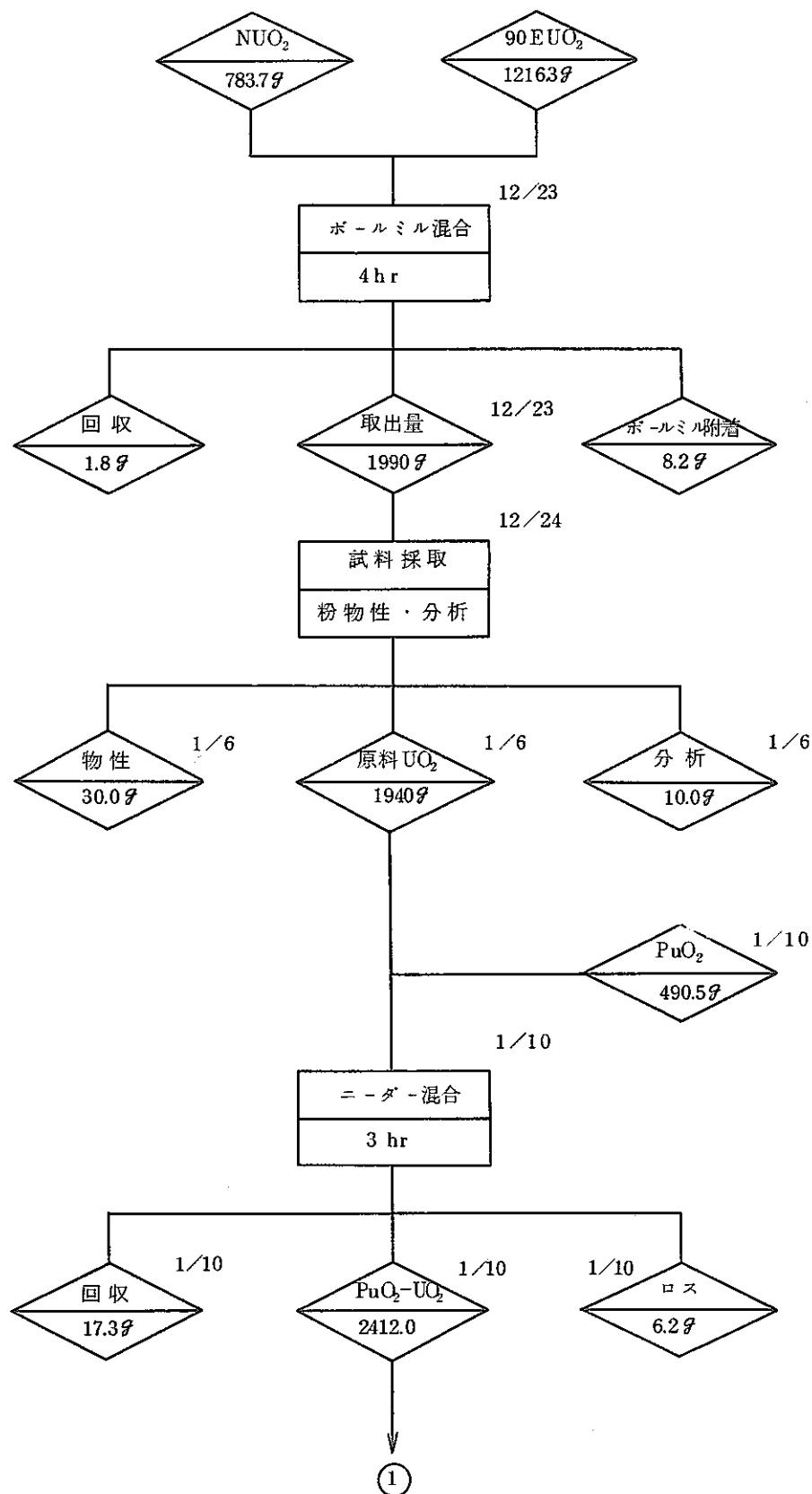
④ 焼結温度

温度としては1700°C, 1600°Cの2つの温度を比較した。

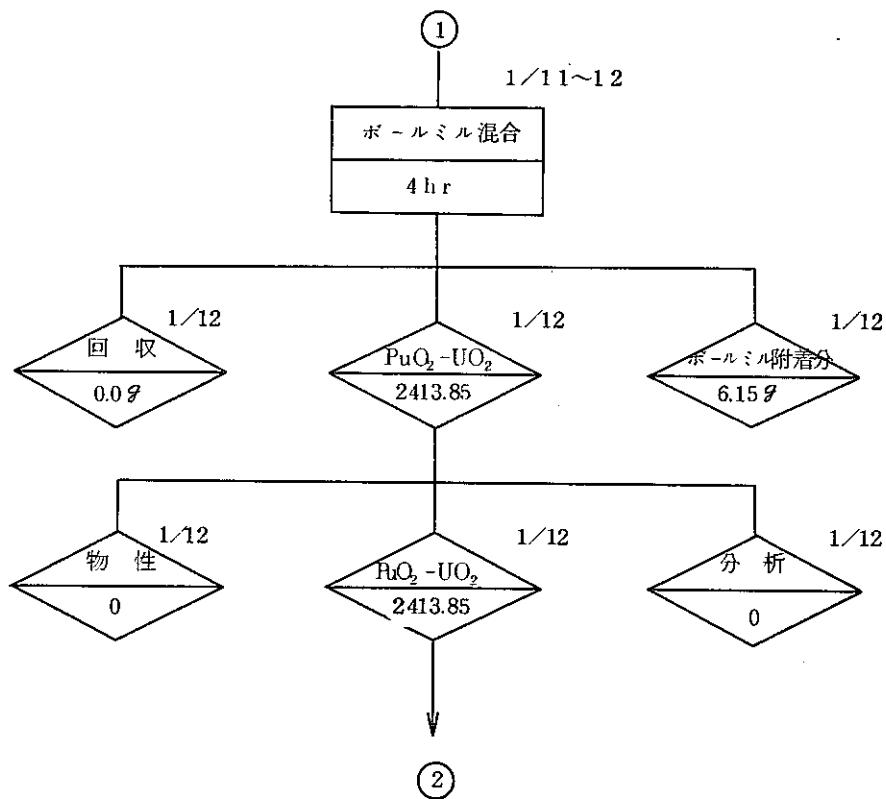
⑤ 再焼結法

一回の焼結では充分なPuO<sub>2</sub>とUO<sub>2</sub>の固溶度が期待出来ないので、焼結したペレットを粉碎し再度ペレットに成型、焼結するプロセスを検討した。(T2)

第5.1図 原料調整フローシート(1)

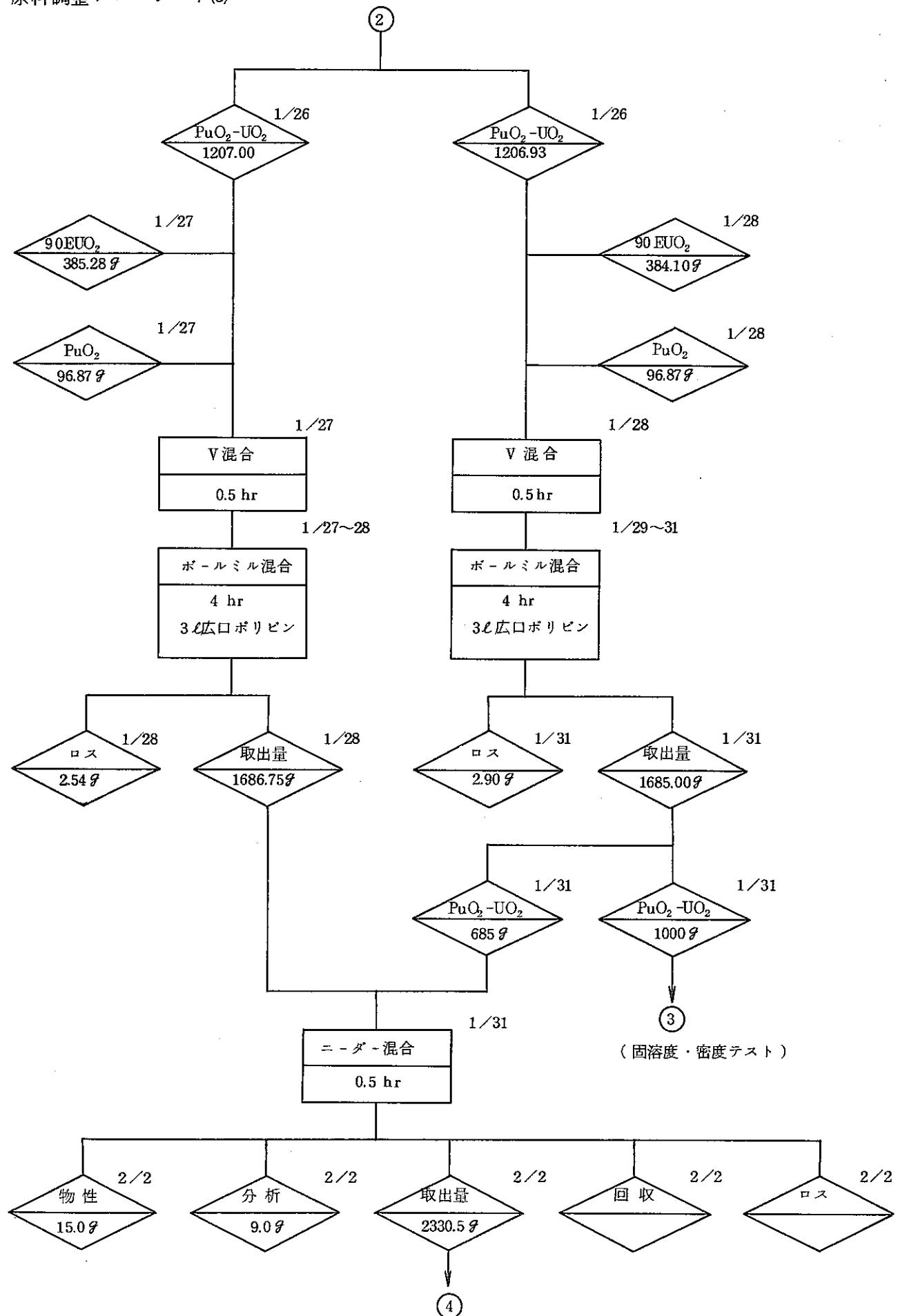


## 原料調整フローシート(2)

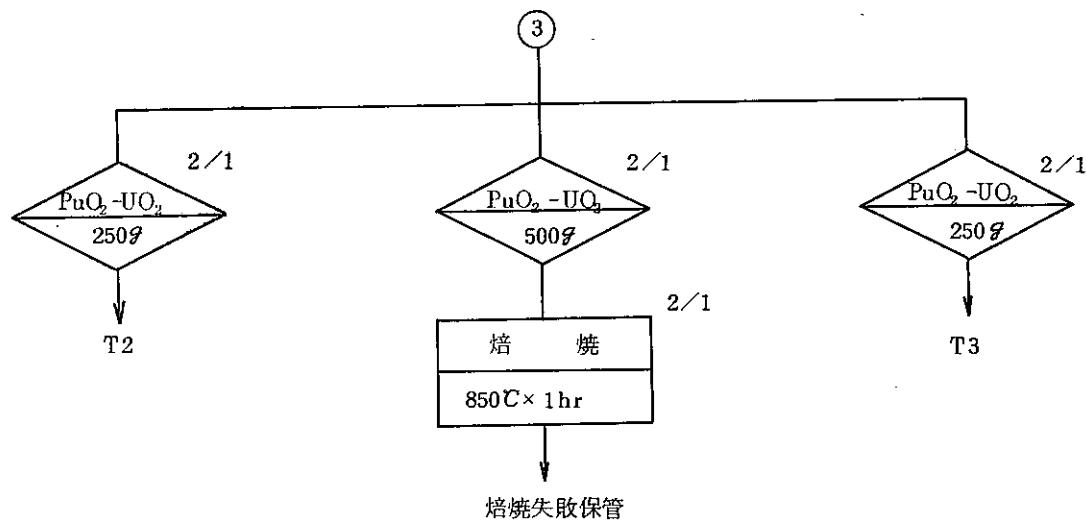


(2) 20% PuO<sub>2</sub>-UO<sub>2</sub>(55EU)を調整したが、ウラン濃縮度が  
55%から65%に変更になったため、再調整をおこな  
う必要が生じた。

## 原料調整フローシート(3)



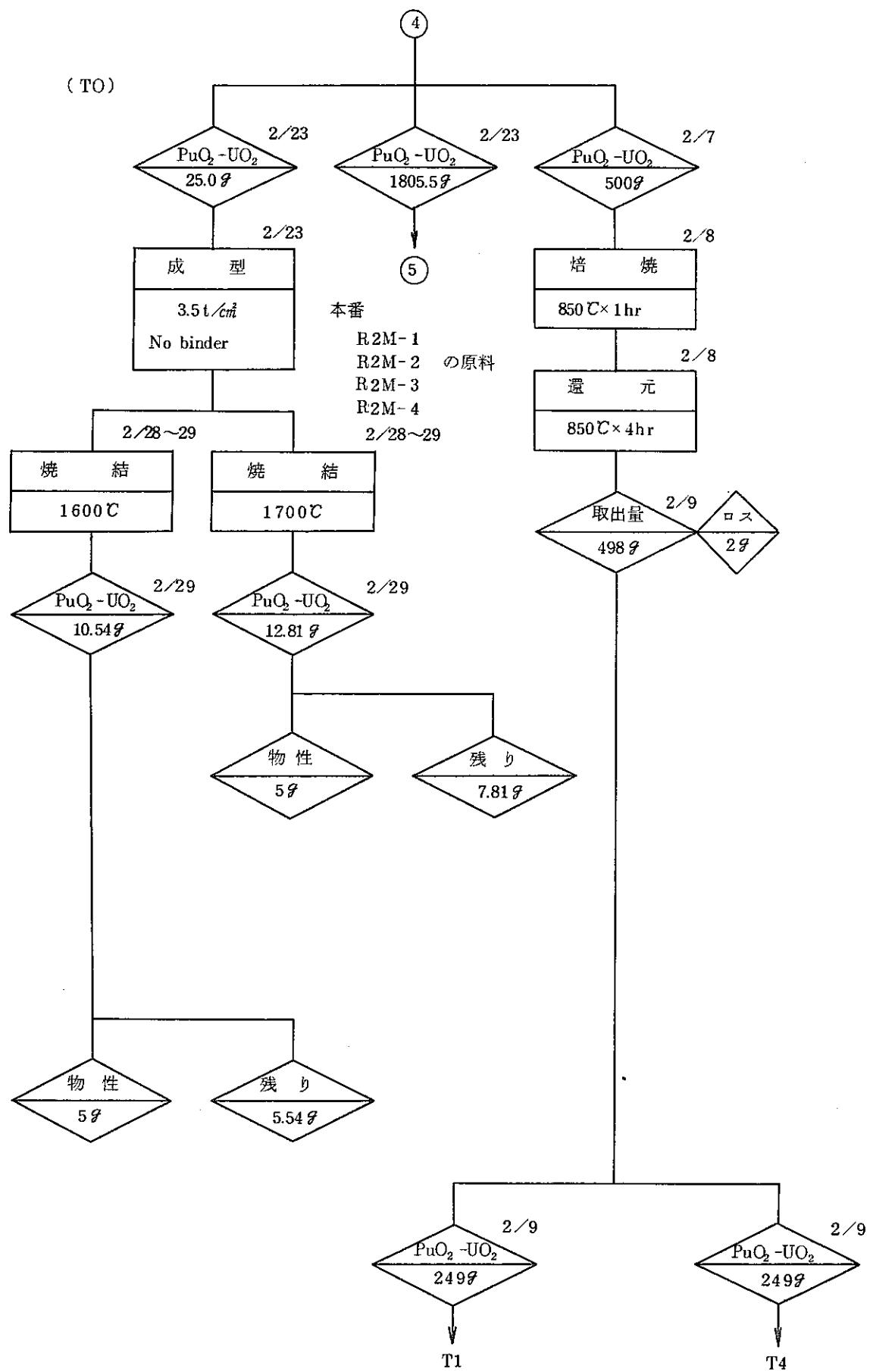
## 原料調整フローシート(4)

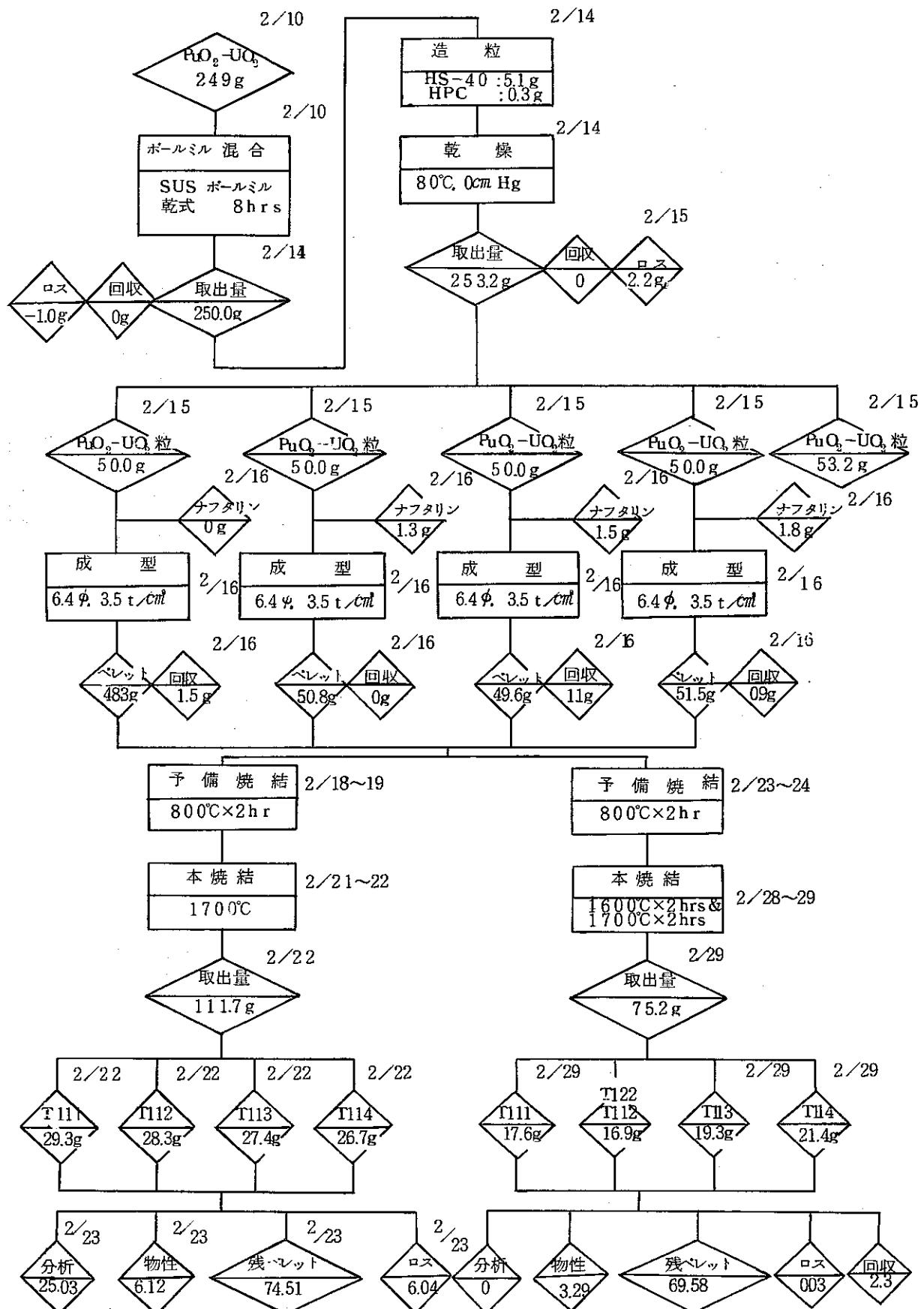


T1, T4に使用する予定であったが、焙焼で失敗したため  
本番原料からさらに500gを取出して焙焼した。

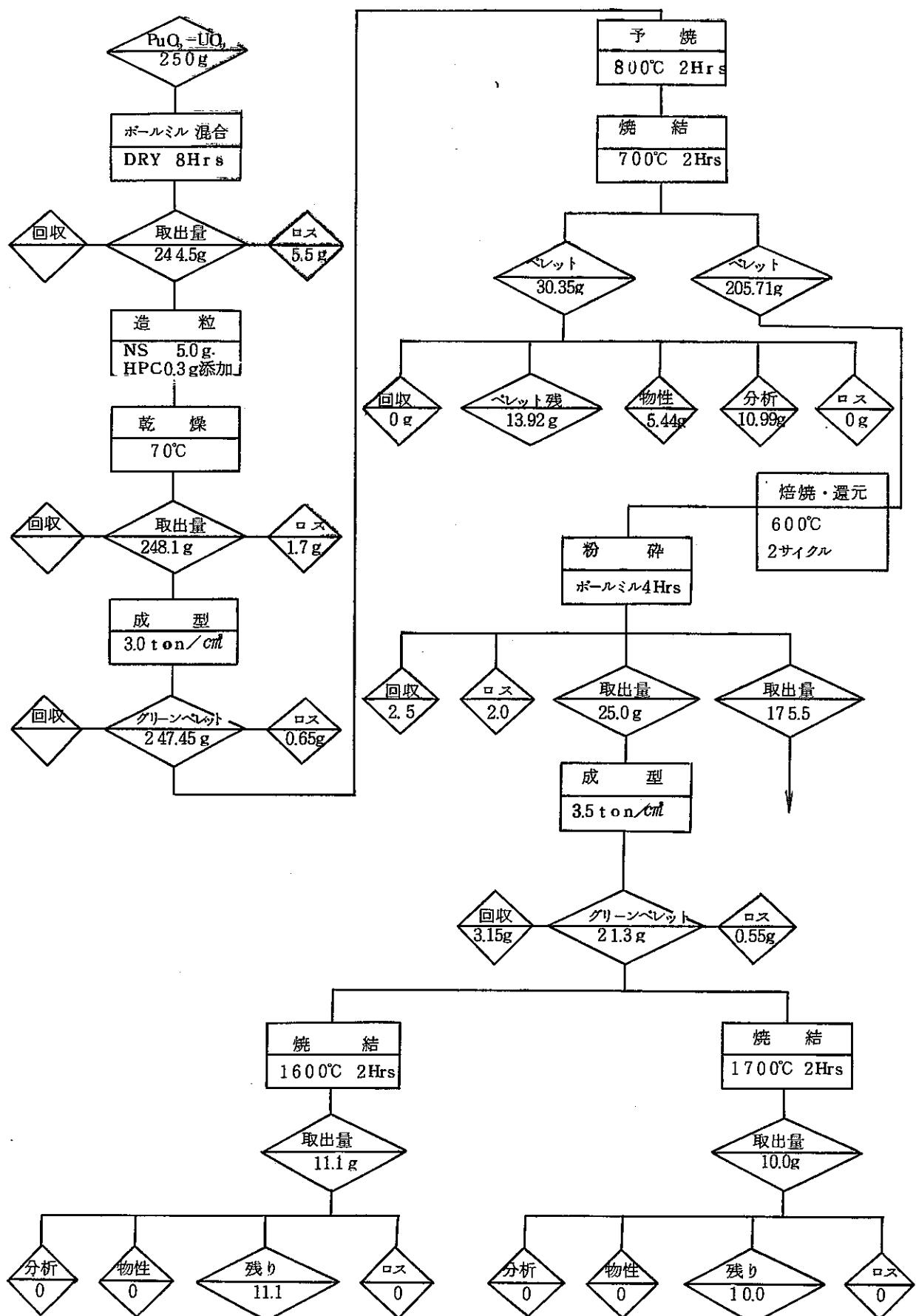
T1, T4の原料調整はFig 6参照。

## 原料調整フローシート(5)

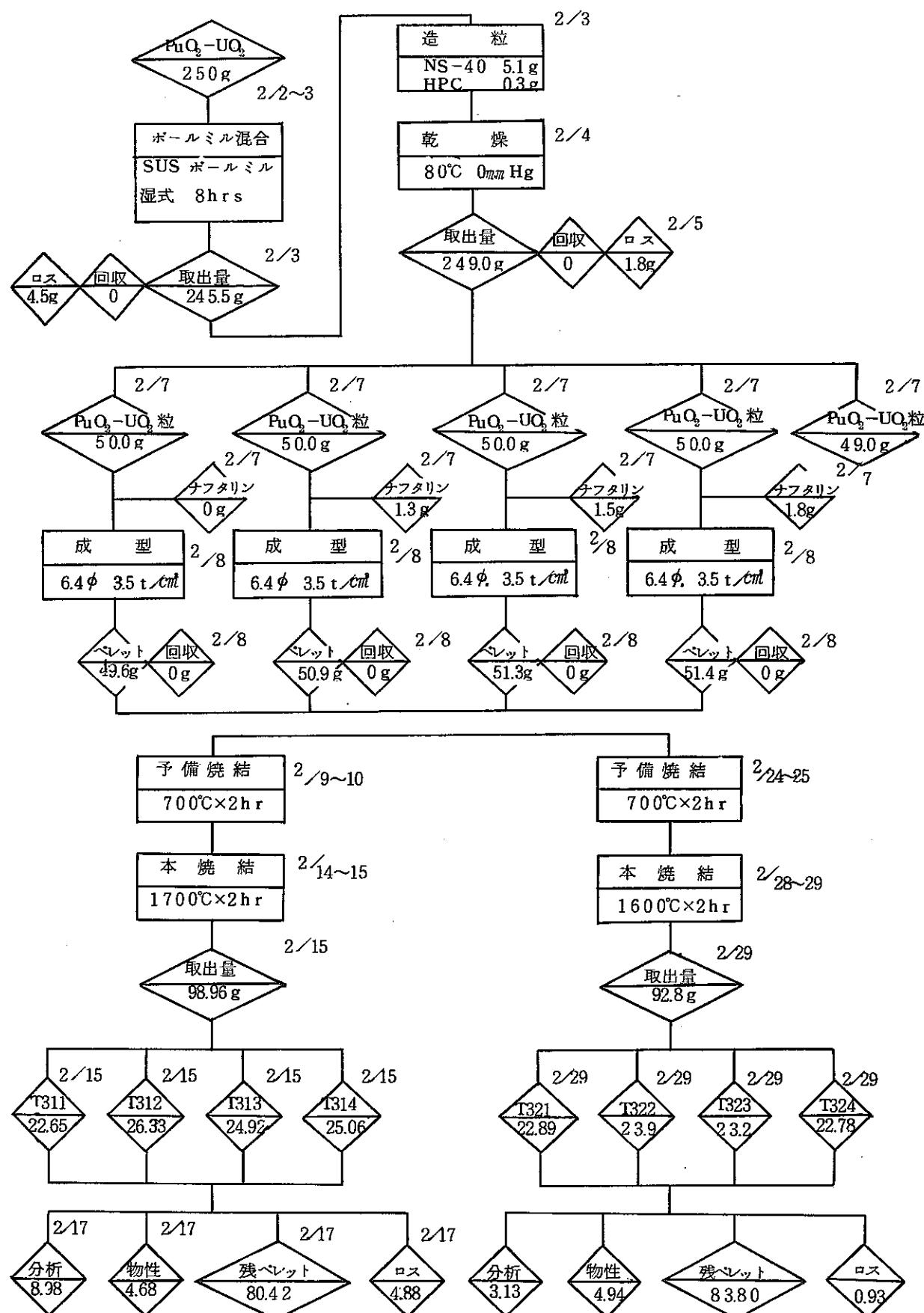




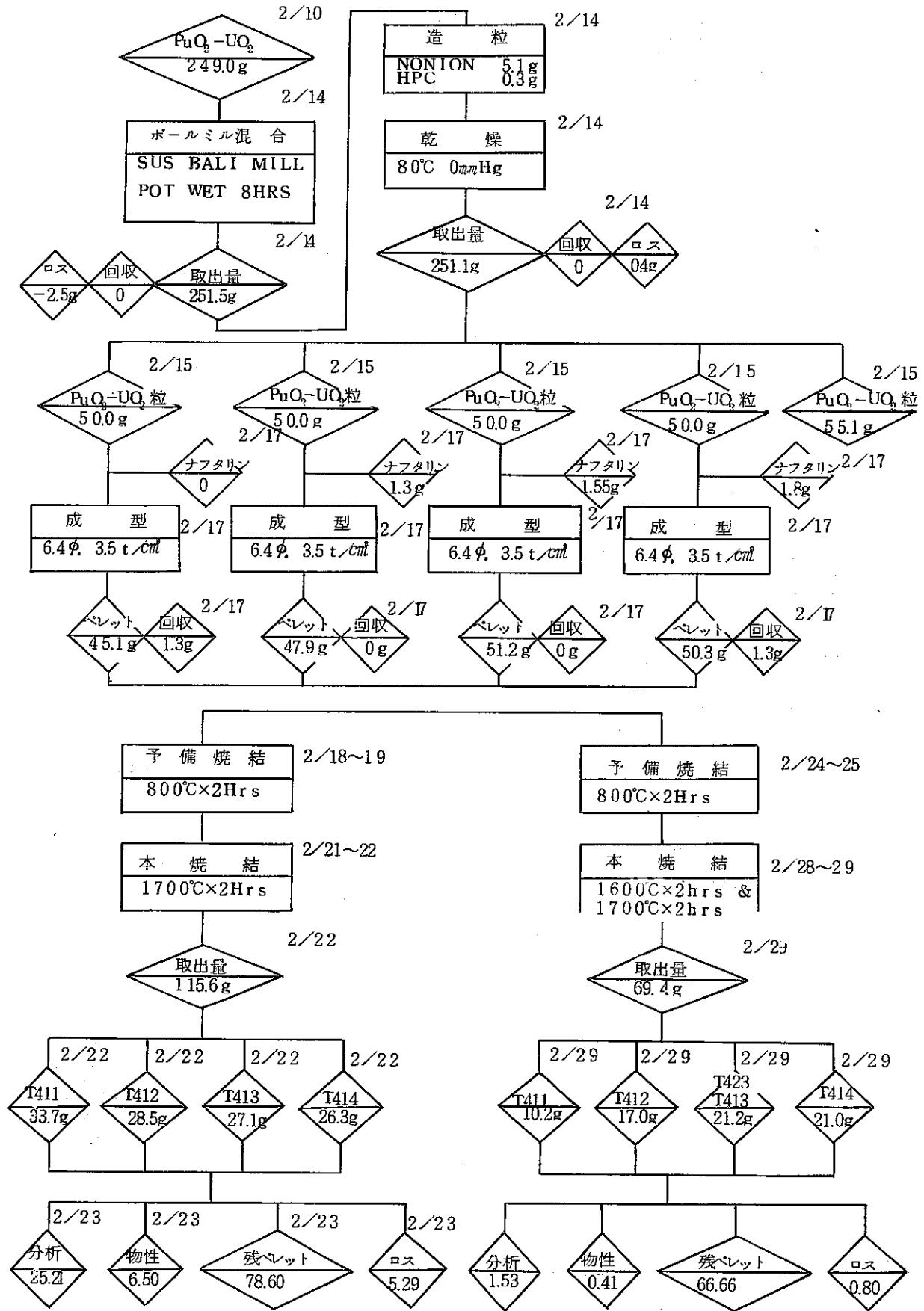
第 5.2 図 テスト T-1 フローチート



第5.3図 テストT-2 フロー・シート



第 5.4 図 ネスト T - 3 フロー シート



第5.5図 テストT-4 フローシート

### 5.3 実験結果

#### 5.3.1 焼結ペレットの密度

##### (i) T-1

造粒乾燥までを1バッチで処理し、乾燥後の造粒粉約250gのうち約50gを保管用として、その他の200gを4等分して、それぞれの50gにナフタリンを0%, 2.5%, 3.0%, 3.5%添加して成型した。

第5.6図、第5.7図はこれらのペレットをそれぞれ、1号炉と2号炉で焼結した結果を図示したものである。ナフタリン添加量と密度との関係は直線で、炉のちがいによる密度のちがいはなかった。図中の1桁目の数字は添加量の少ない順に1, 2, 3, 4としてある。

又第5.8図は、ナフタリンを2.5%加えて成型したペレットの焼結温度による密度のちがいを示す。1600°Cと1700°Cとでは、ほとんど密度の差は認められなかつたが、1700°Cで焼結したものの方が幾分密度が低くなっている。

##### (ii) T-2

固溶度が悪かったり、密度が仕様をはずれたりした場合に、原料粉が限られていることから、リサイクルしてこれらの不合格品を使っていかなくてはならない。そこでこの試験では一度1700°Cで焼結したペレットを乾式リサイクルした粉を用いてテストを行なった。

このテストでは、乾式リサイクルした粉が仕様の密度以上になることを確認するにとどめた。第5.9図に1600°Cと1700°Cで焼結したペレットの密度を示す。

乾式リサイクルに供したペレット(一度1700°Cで焼結したペレット)の密度は、  
 $\bar{x} = 77\% \text{ T.D.}$      $R = 14.4\% \text{ T.D.}$  ( $n = 75$ ) であった。非常に低密度で、ばらつきが大きい。

##### (iii) T-3

造粒粉をT-1と同様に分配して成型し1700°Cと1600°Cとで焼結した。第5.10図、第5.11図にそれぞれの結果を示す。1700°Cで焼結したものは、1600°Cで焼結したものに比較して、密度のばらつきが大きく、平均値も1600°Cで焼結したものより幾分低めで、ナフタリン添加量と焼結密度との関係がない。

1600°Cで焼結したものについては、ナフタリン添加量と焼結密度とが直線関係になっている。

第5.12図はナフタリン添加0%の場合について焼結温度1600°Cと1700°Cの比較であるが、1700°C焼結の場合の方が密度が低い。

##### (iv) T-4

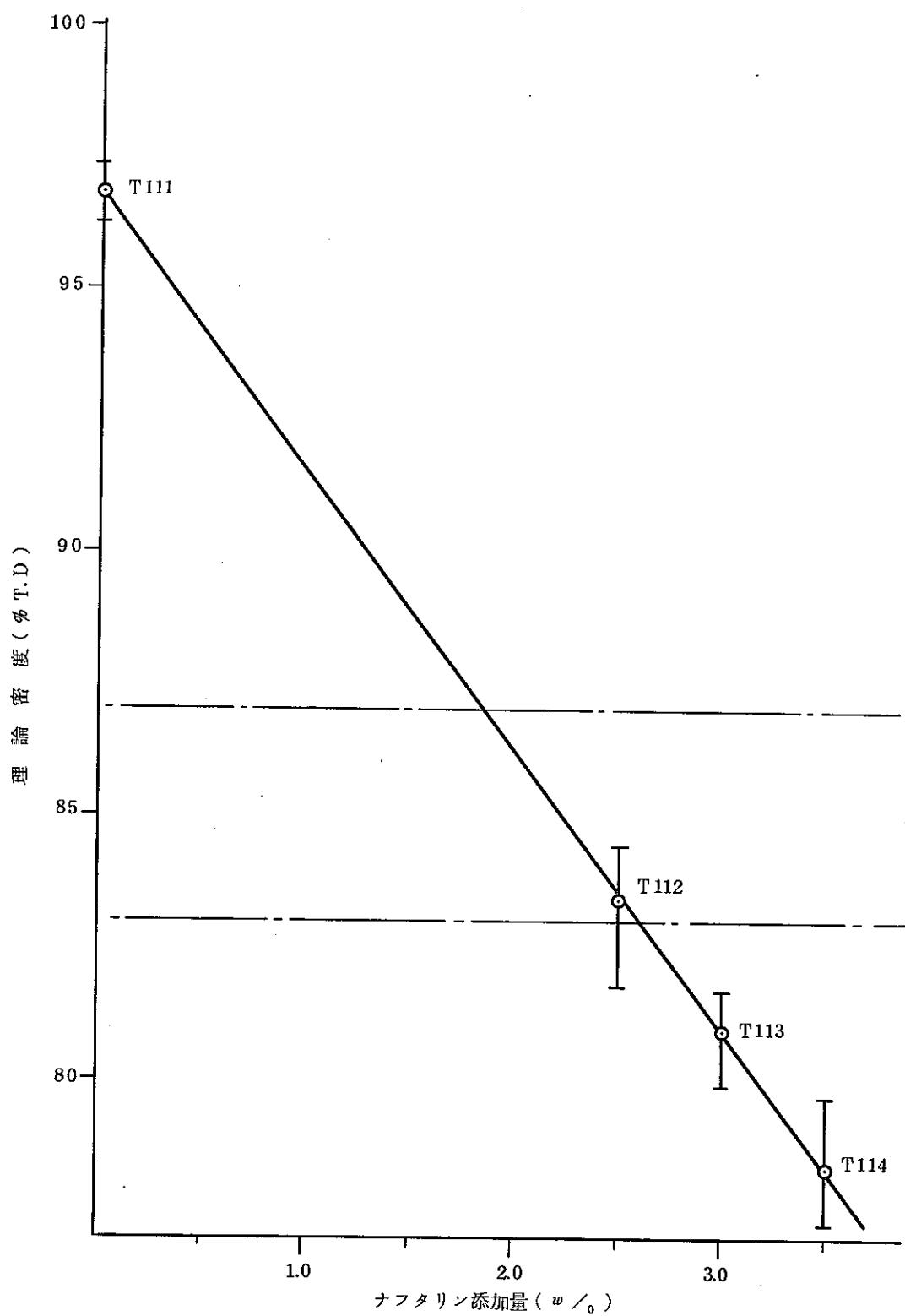
造粒粉を T = 1, T - 3 と同様に分配して成型した。第 5.13 図, 第 5.14 図は、これらのペレットを  $1700^{\circ}\text{C}$  でそれぞれ 1 号炉及び 2 号炉で焼結した結果を図示したものである。ナフタリン添加量と焼結密度との関係は直線で炉のちがいによる密度のちがいはなかった。

第 5.15 図はナフタリンを 2.5 % 加えて成型したペレットの焼結温度による密度のちがいを示す。 $1700^{\circ}\text{C}$  で焼結したものの方が幾分低くなっている。

(v) テストの原料として使用した調整粉 (T O)

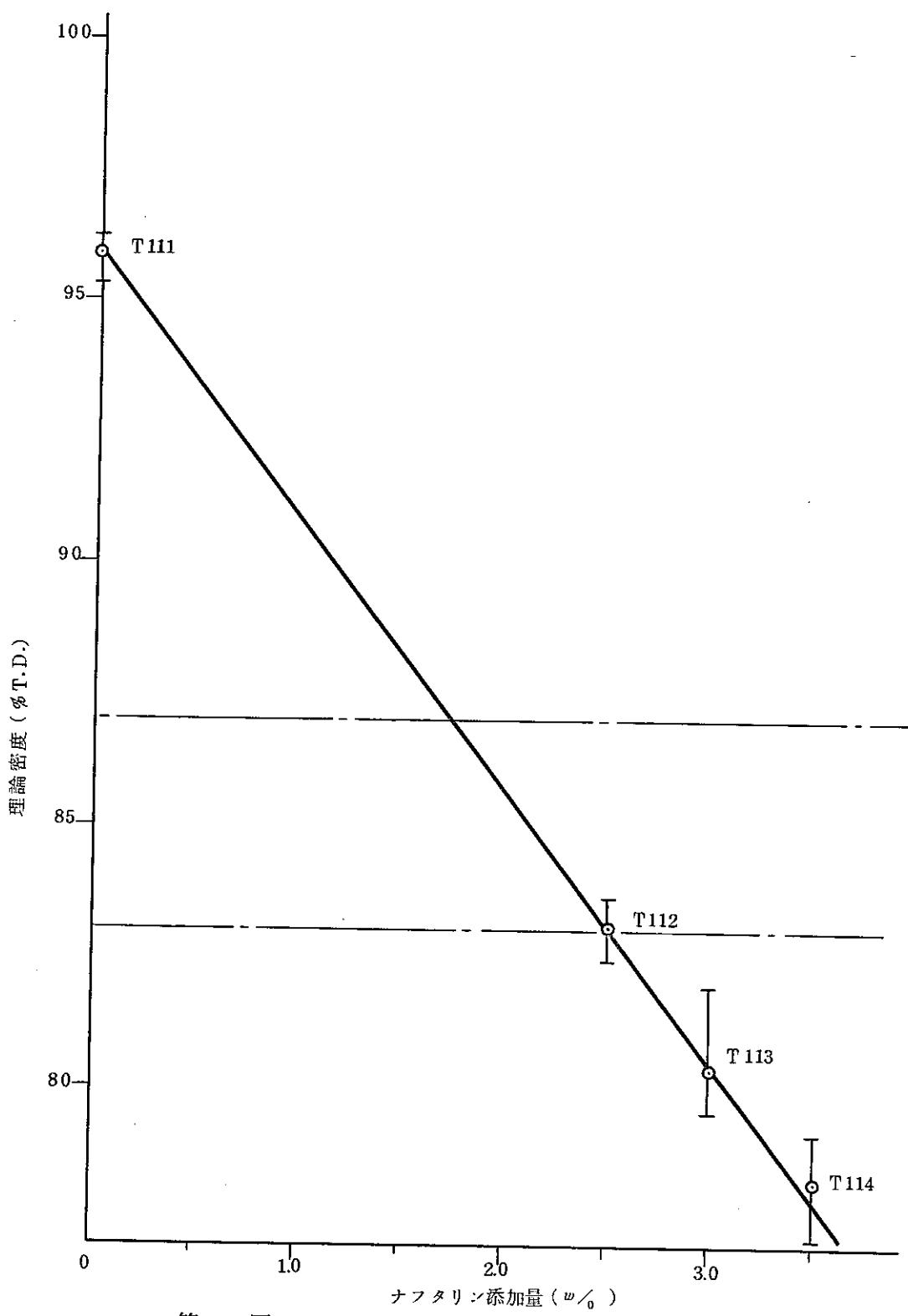
T 1 ~ T 4 の出発原料となった同じ粉について有機添加剤を加えずに成型し,  $1700^{\circ}\text{C}$  と  $1600^{\circ}\text{C}$  で焼結した。

第 5.16 図はこれらの密度を温度毎に図示したものである。 $1700^{\circ}\text{C}$  で焼結したものの方が密度が低くなっている。



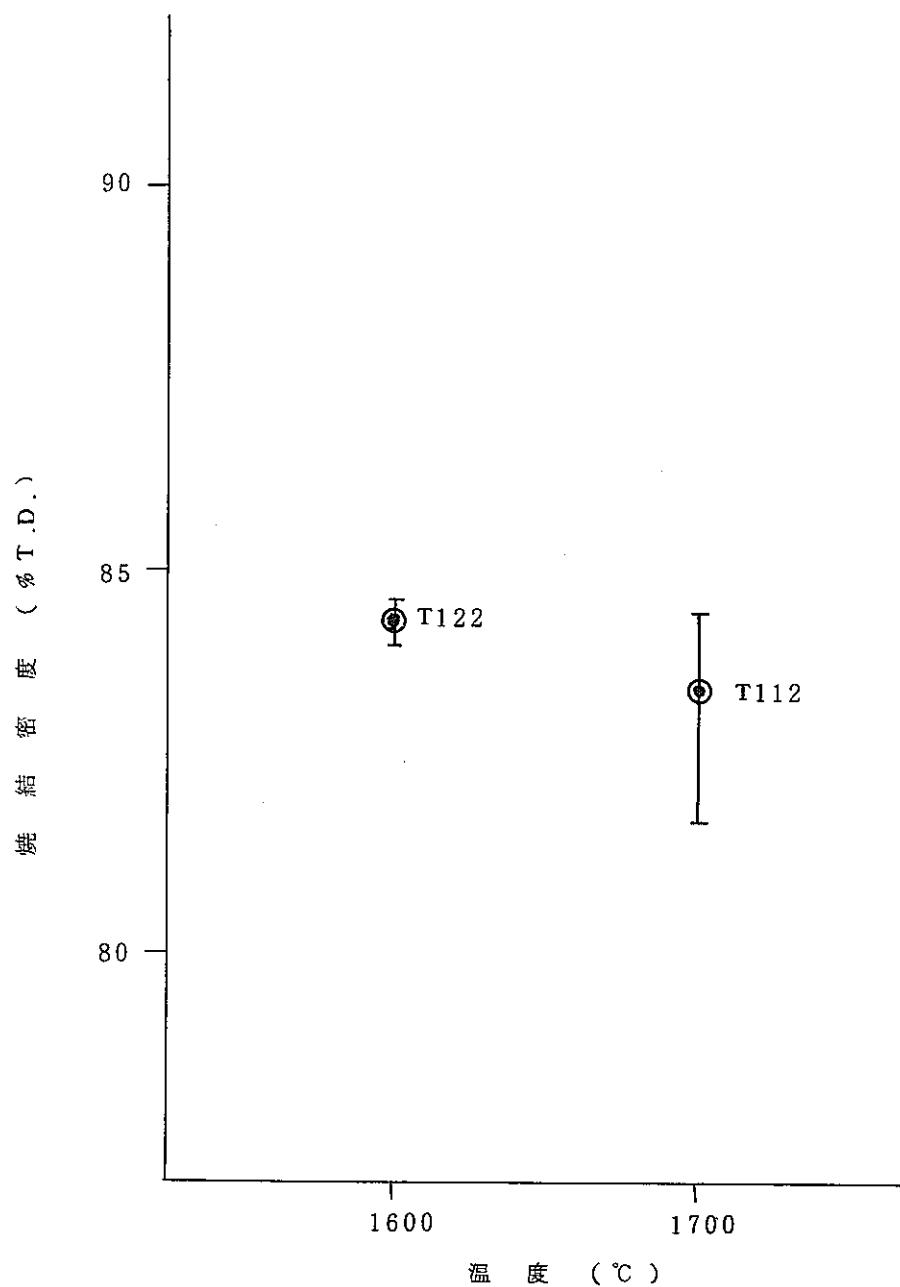
第 5.6 図 T - 1 密度結果

(乾式混合 1700 °C 焼結)  
(原料 850 °C 焙燒還元)  
1 号炉焼結

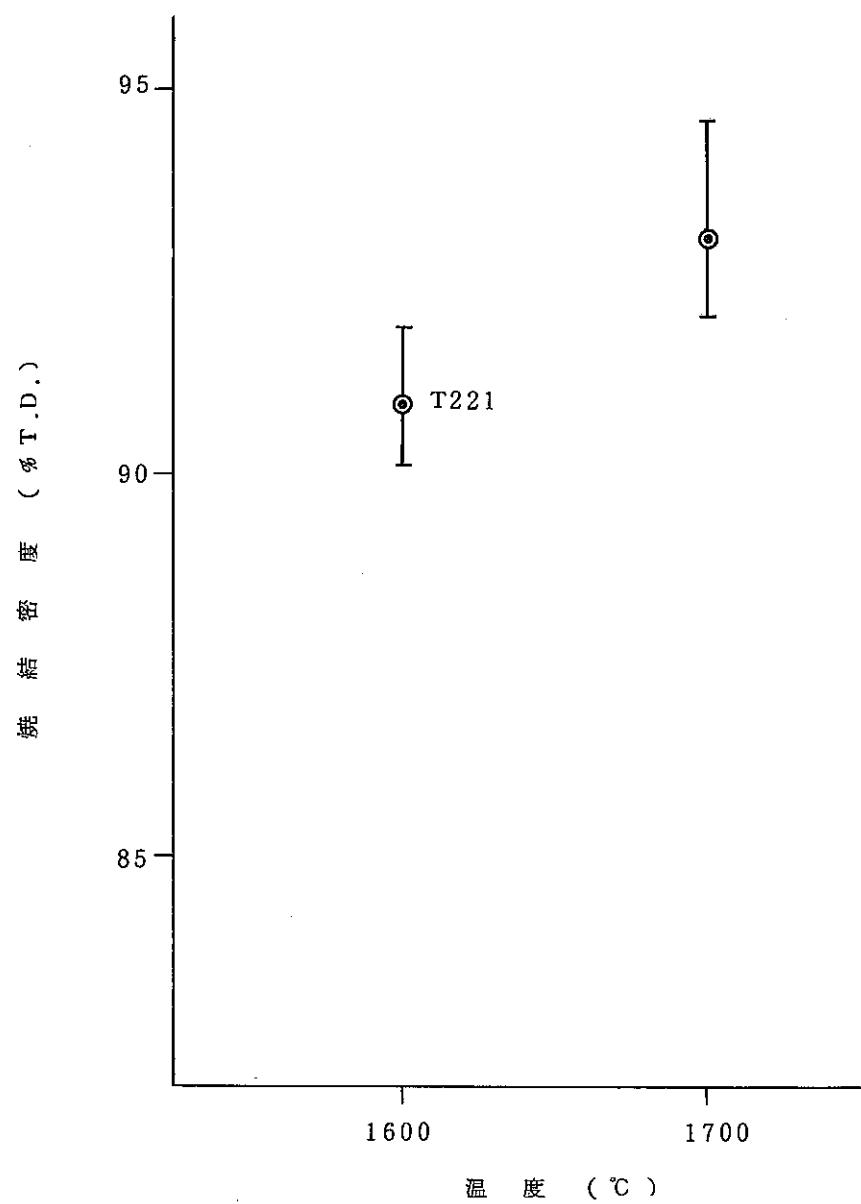


第5.7図 T-1 密度結果

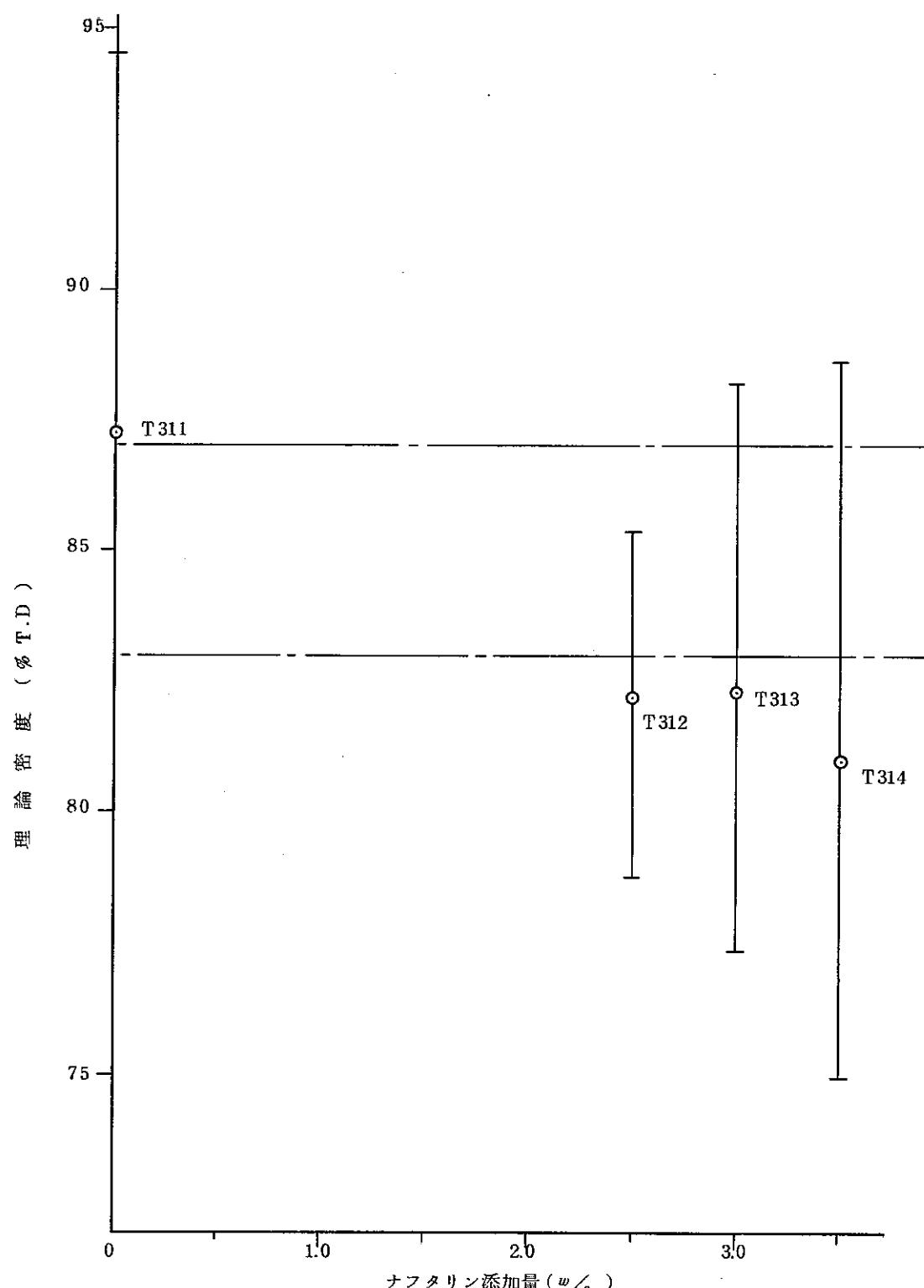
乾式混合 1700 °C 焼結  
原料：850 °C 培燒還元  
2号炉焼結



第5.8図 T1ペレットの焼結温度と密度の関係

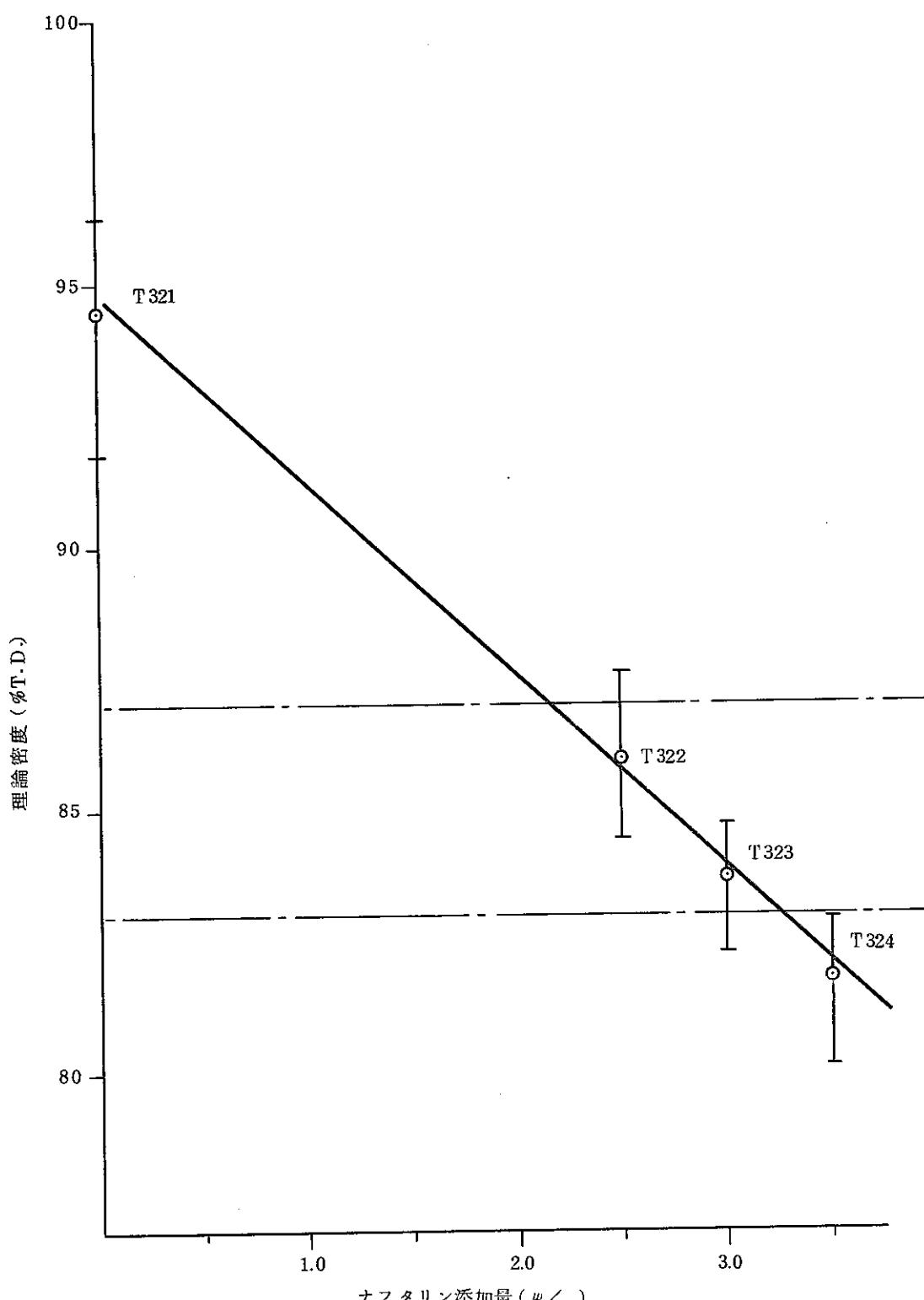


第5.9図 T2ペレットの焼結温度と密度の関係

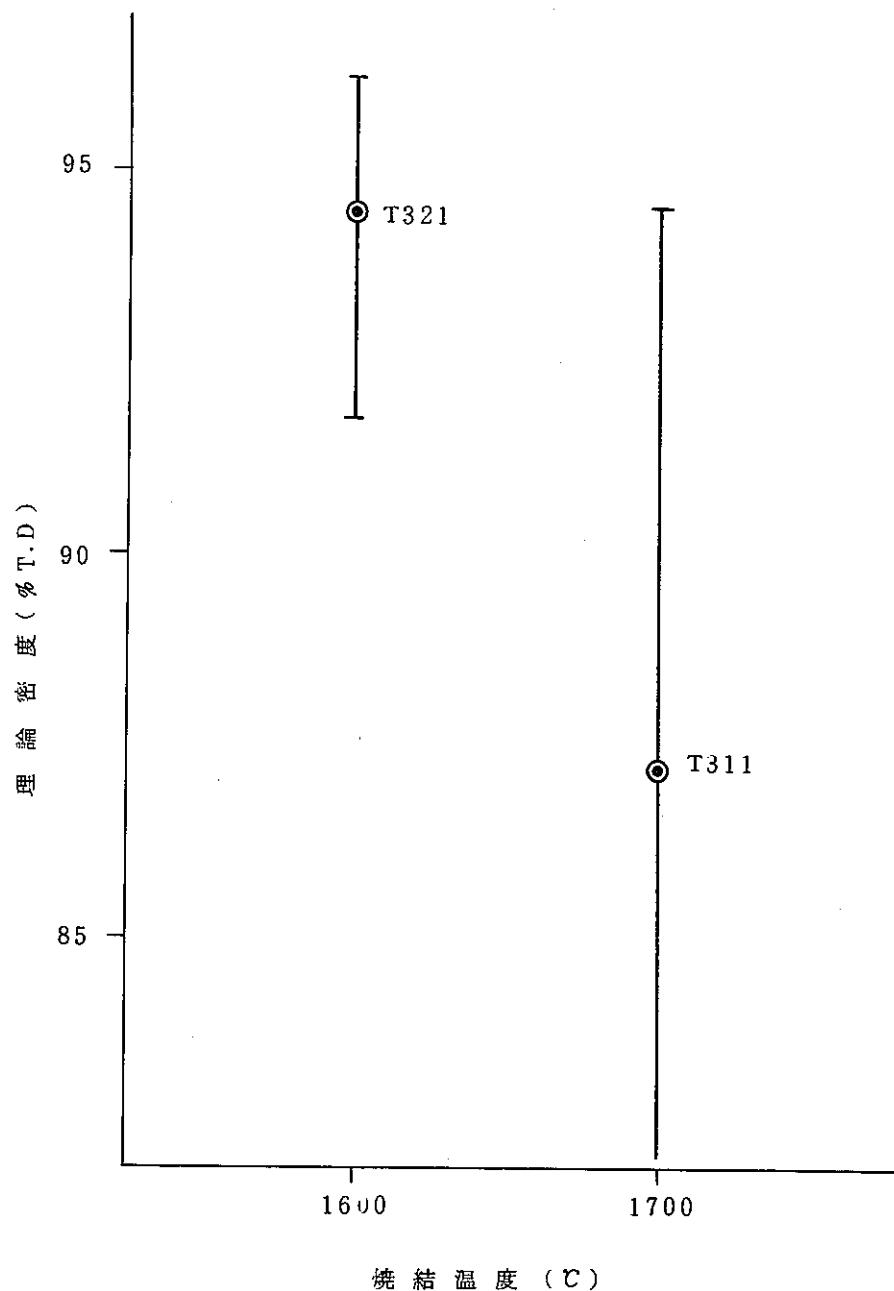


第 5.10 図 T - 3 密度結果

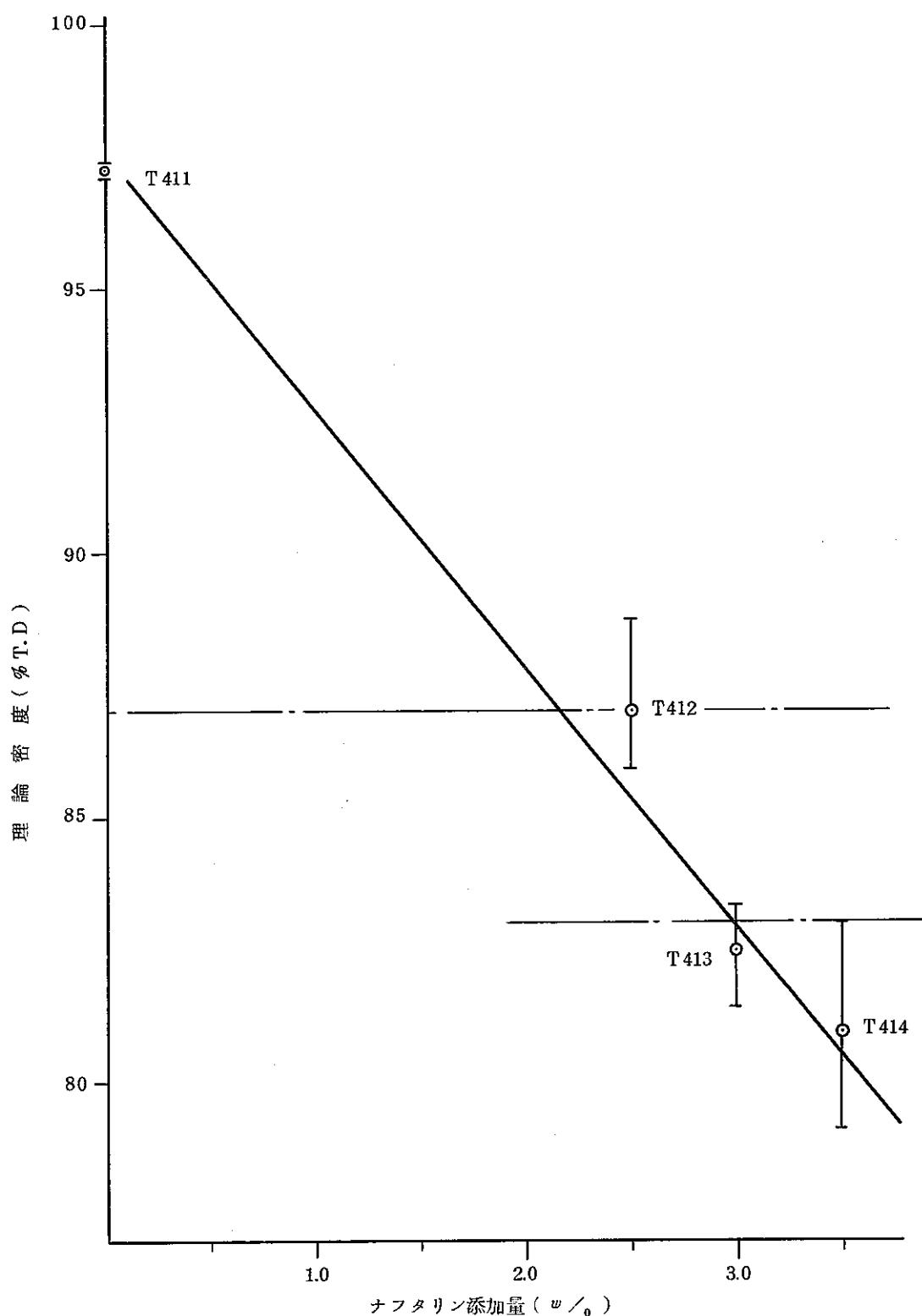
( 濡式混合・1700℃焼結 )  
原料；熱処理なし



第 5.1.1 図 T-3 密度結果  
 ( 濡式混合 1600 °C 焼結 )  
 原料 : 熱処理なし

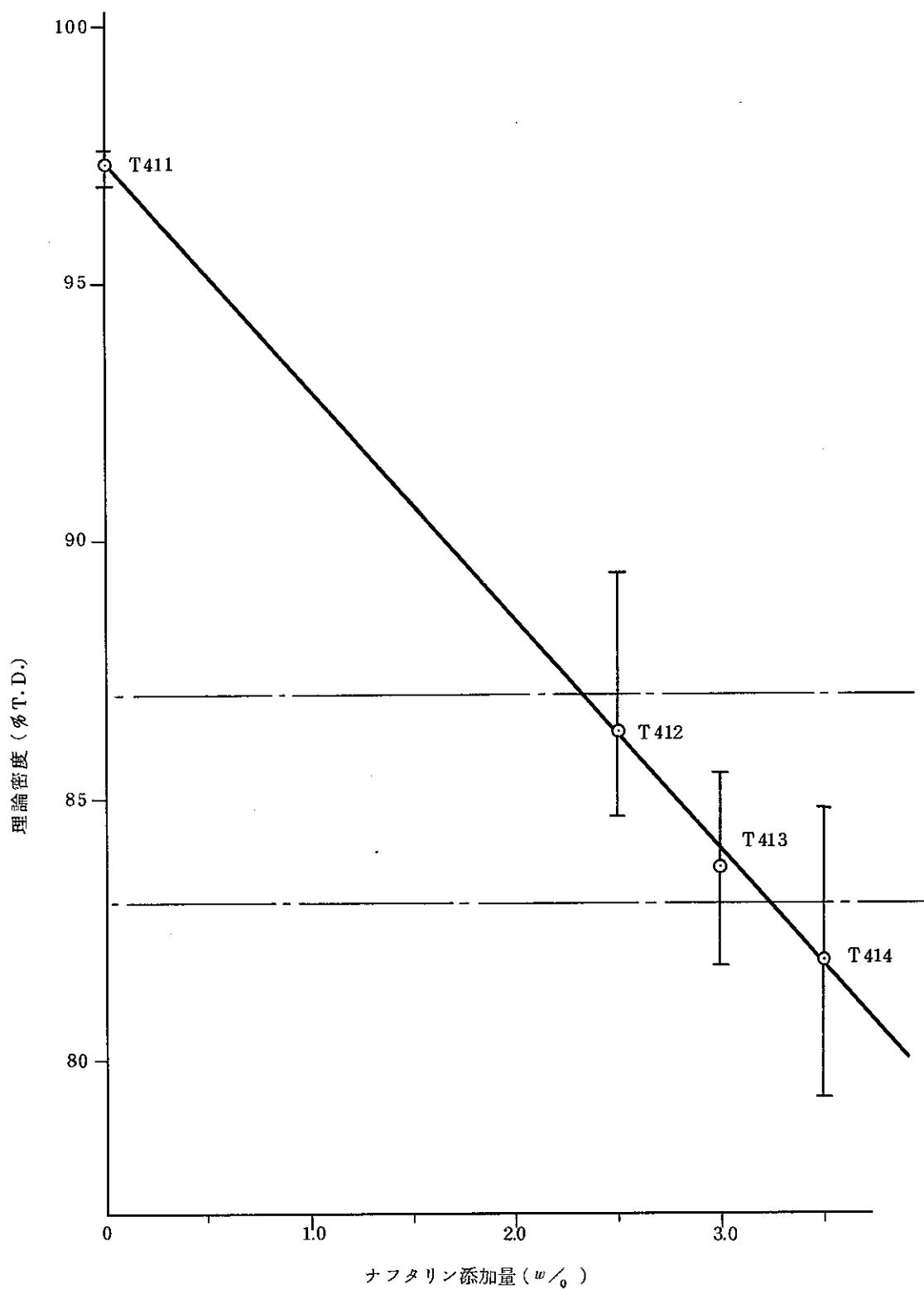


第 5.12 図 T3 ペレットの焼結温度と密度の関係



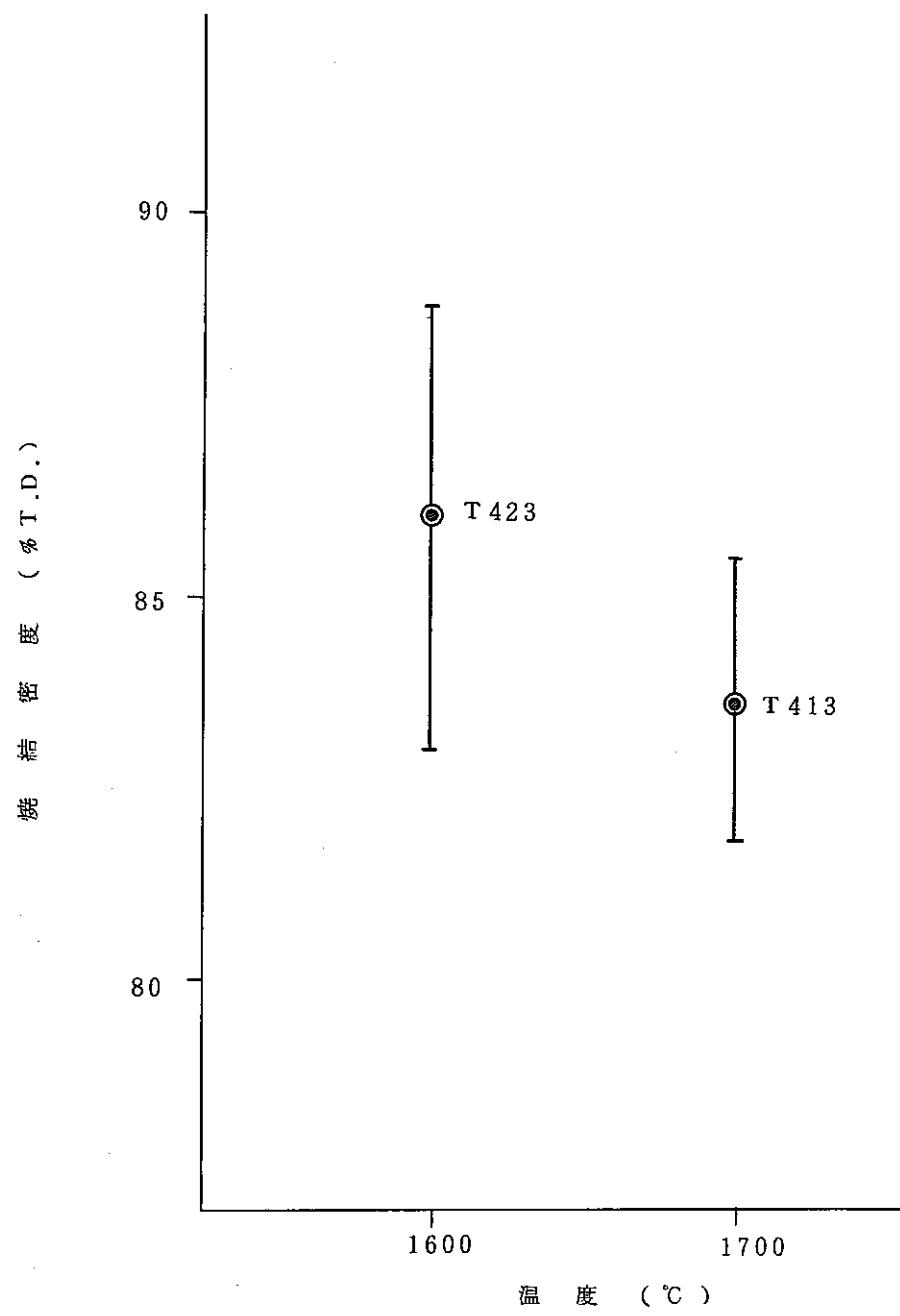
第5.13図 T-4密度結果

( 湿式混合 1700 °C 焼結 )  
 ( 原料 850 °C 培燒還元 )  
 1号炉焼結

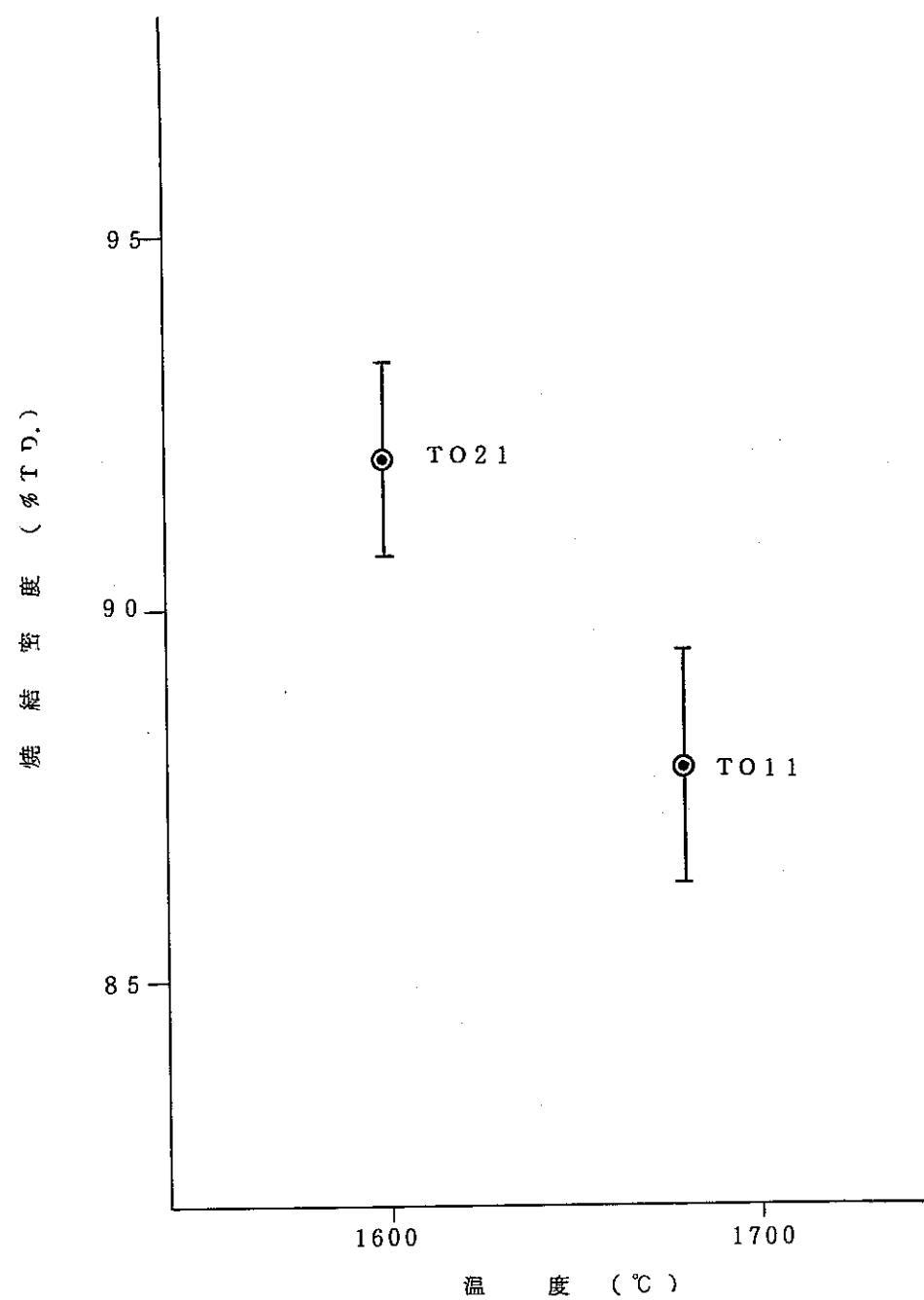


第5.14図 T-4密度結果

濡式混合 1700 °C 焼結  
 原料 850 °C 焙焼還元  
 2号炉焼結



第5.15図 T 4ペレットの焼結温度と密度の関係



第 5.1.6 図 T0 ペレットの焼結温度と密度の関係

### 5.3.2 焼結密度についての情報

- (i) 1700°Cでの焼結に於ては1号炉・2号炉の間には差異は認められない。
- (ii) 焙焼・還元の処理の効果についてはT-3, T-4の湿式粉碎処理をおこなった場合の結果からは焙焼・還元処理が粉末の活性を下げたとははっきり云えない。ナフタリン添加0%の場合を比較すると焙焼還元処理粉が1700°Cで97%T.D.もの高い密度を得ている。未処理粉の場合1600°Cで95%T.D.である。焙焼、還元処理しない粉で1700°C焼結の場合に密度にバラツキの大きい異常な結果を得ていることについては理由が良く判らない。湿式粉碎で非常に活性になりすぎた故なのだろうか。または未燃焼粉末は微細で混合が不均一だったのかも知れない。
- (iii) ナフタリンの添加

3.5%迄の添加では添加量の増加と共に直線的に密度が減少して行く。85%T.D.の焼結密度を得るには下記の添加量が適当である。

	T-1	T-2	T-3	T-4
1600°C	2.4%	-	2.75%	3.2%
1700°C	2.25%	-		2.6%

### (iv) 焼結温度

T-0, T-1, T-3, T-4の場合、いずれも1700°Cの高温になると1600°Cの場合に比べて焼結密度は低くなっている。唯T-2の場合のみ1700°Cの高温に於いて1600°Cよりも密度が高くなっている。この様な現象は次に述べる理由から粉末の活性と関係があることがうかがわれる。

- ① T-2ペレットは一度焼結処理をおこなった粉を使用した焼結体である。
- ② T-0, T-1, T-3, T-4のペレットについて1600°Cと1700°Cに於ける焼結密度の差異を見ると、その差異の大きさはT-3 > T-0 > T-4 > T-1の順になっている。この順は粉末処理の履歴から見た活性化の程度と同一になっている様である。このことから見ると焙焼・還元は粉末を不活性にし、湿式粉碎は粉末の活性化に有効であることが云えよう。

### 5.3.3 オートラジオグラフ、X線回折によって得られた情報

焼結ペレットについてのX線回折、オートラジオグラフ観察の結果は第5.1表、第5.2表、第5.17表、写真5.1に示されているがこれより次の様なことが云えよう。

- (i) 1600°Cの焼結では湿式ボールミル粉碎処理以外の場合に於ては良い固溶度が見られない。

(ii)  $\text{PuO}_2 - \text{UO}_2$  粉の焙焼還元処理は固溶度を向上させる傾向が見られる。

しかしこの場合でも Dry ボールミルでは  $1700^{\circ}\text{C}$  の焼結によっても固溶度は 90 % 程度で 100 % のものは困難である。

(iii) オートラジオグラフで Rank A でも固溶度はあまり良くないものもある。

### 5.3.3 焼結ペレットの分析

第 5.3 表に代表的なペレットの分析結果を示す。分析は全部完全におこなわれなかつたが、この結果から分析に関してはほぼ問題ないと判断した。すなわち

(i)  $\text{PuO}_2$  含有量については T 21, T 33 の値が仕様より多くなっているが、これは V 混合、ボールミル混合だけをしたもので混合が良く行なわれなかつたものと思われる。T 1, T 4 シリーズのものは更にニーダ混合をしており、これが本番の原料となるものである。

(ii) Gas 含有量も T 33 が若干多いが仕様を満している。

(iii) 不純物元素については湿式ボールミル (T 4 シリーズ) をすると Fe, Ni, Cr が多くなる。これはボールミル材料から混入したものと思われるが一応仕様以下になっている。

### 5.3.4 混合時間と固溶性

第 5.18 図は T - 4 の条件によってボールミル時間を 2 時間, 4 時間, 6 時間, 8 時間と変えたものについて焼結ペレットの X 線回折図を示したものである。この結果から固溶度は下表の様になる。8 時間混入したものはバッチが異なるものであるのでデータが離れ

混合時間 (hr)	固溶度	注
2	90~85 %	同一 バッヂ
4	約 90 %	
6	95~90 %	
8	約 90 %	

ている。いずれにしても 8 時間ボールミルすれば 90 % 以上の固溶度が得られるものと思われる。

第5.1表

	1600°C						1700°C					
	PuO <sub>2</sub> - UO <sub>2</sub> 850°C 焼			PuO <sub>2</sub> - UO <sub>2</sub> 焼なし			PuO <sub>2</sub> - UO <sub>2</sub> 850°C 培焼			PuO <sub>2</sub> - UO <sub>2</sub> 培焼なし		
	Dry ボールミル	Wetボールミル	Dry ボールミル	Wetボールミル	Dry ボールミル	Wetボールミル	Dry ボールミル	Wetボールミル	Dry ボールミル	Wetボールミル	Dry ボールミル	Wetボールミル
	NO, <sub>1</sub> T - 1 NO, <sub>2</sub>	T - 4	T - 2	T - 6	T - 3	NO, <sub>1</sub> T - 1 NO, <sub>2</sub>	T - 4	T - 2	T - 6	T - 3		
オグラ トラ ラ評 ジ価 オ	Rank A (1021)	Rank B (5001)	Rank A (4021)		Rank B (6001)	Rank A 3011 3021	Rank A 1012 1022	Rank A (5012)	Rank A 4012 4002	Rank A 2012 2022	Rank B上 (6012)	Rank A 3012 3022
X 線 回 折 評 価	格子 定数 (Å)	5.454	5.457	5.459		5.460	5.458	5.458	5.457	5.459 5.461	5.457	5.456 5.459
	固 溶 度	70% (UO <sub>2</sub> 30%)	90% (UO <sub>2</sub> 10%)	100%		50~60%	100%	95%	90%	100%	100%	60~70% 100%

注 (1) T - 1 の NO 2 は UO<sub>2</sub> 粉と PuO<sub>2</sub> 粉の混合ボールミルが他の 12 hr に比べ 8 hr

(2) オートラジオグラフ評価の欄で( )の数字は写真番号である。

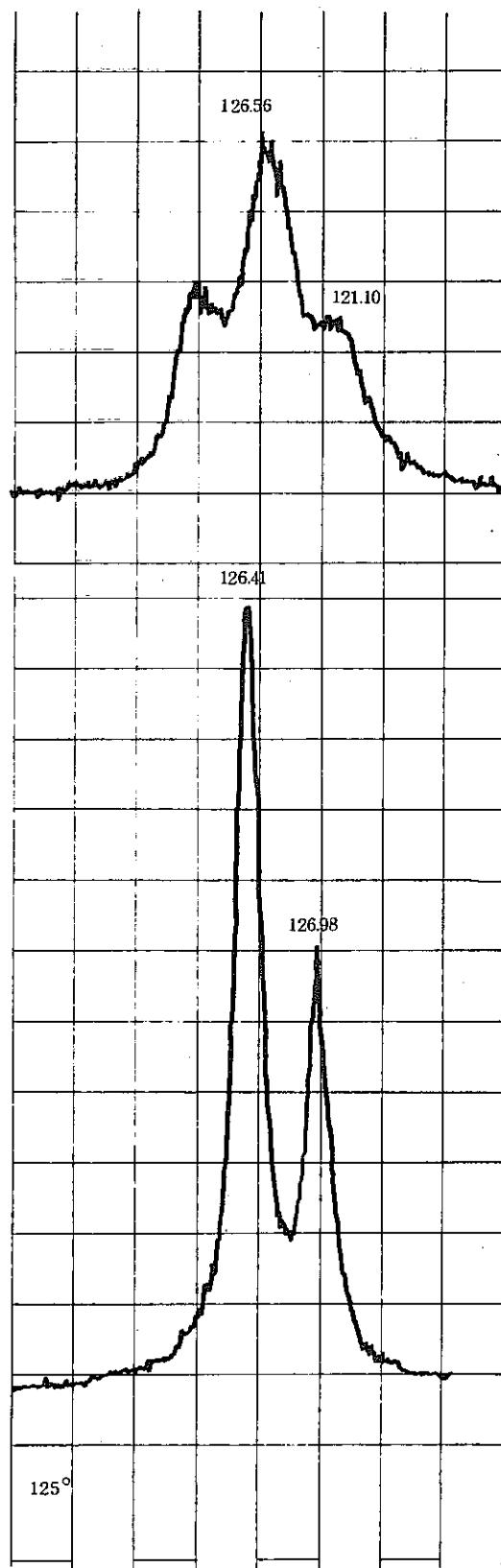
(3) T - 6 は T - 2 の変形で焼結一回のみである。

第5.2表 金柵, オートラジオグラフ観察

試料番号	RANK	観察
40-1021	A	均一性良好, Puスポット, 白点なし
40-3011	A	" " "
40-3021	A	" " "
40-5001	B	マダラ状, 均一性は良いが固溶は悪い。 UO <sub>2</sub> の析出(白点)が多い
40-5012	A	均一性良
40-6001	B	マダラ状, Puの濃度は低い。白点も多い。均一性は良い。固溶は悪い。
40-6012	B°	マダラ状 UO <sub>2</sub> の析出は少しある。 均一性は良いが固溶は少し悪い。

注 PuO<sub>2</sub> スポットは 50 μ以下

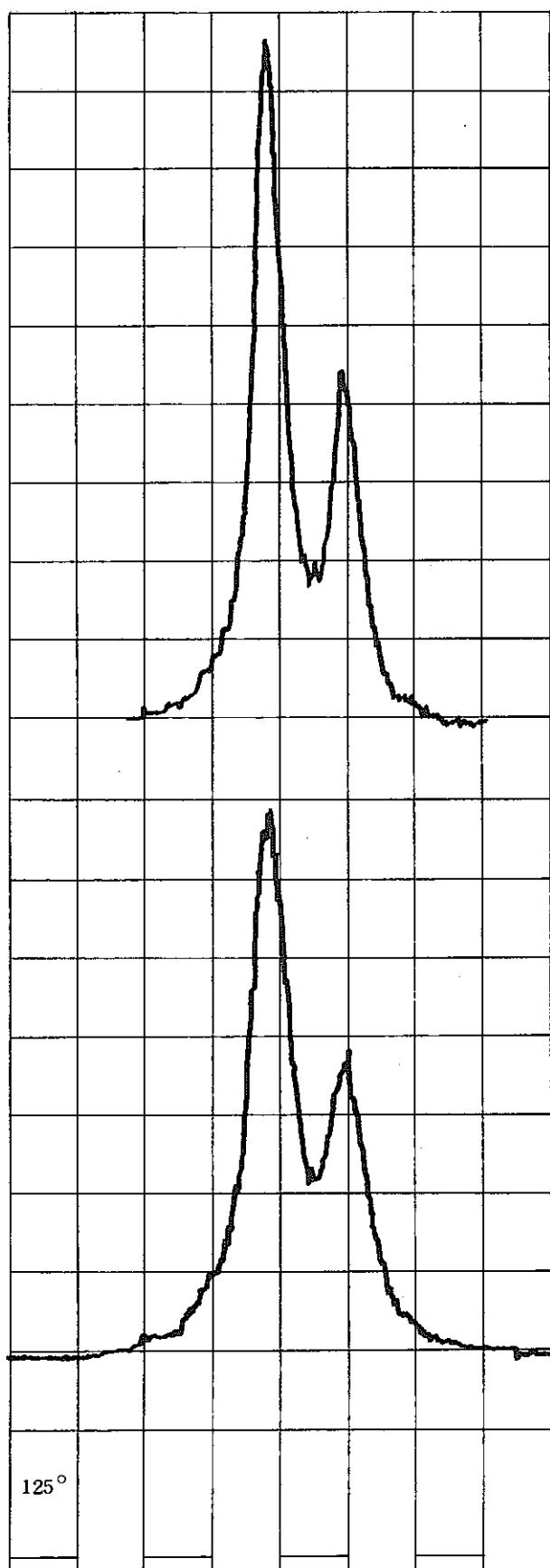
第 5.1.7 図 X 線回析観察 その 1



T 12 ( 焼焼 1600°C 乾式 )  
(1021)

T 31 ( 焼焼なし, 1600°C 湿式 )  
(3011)

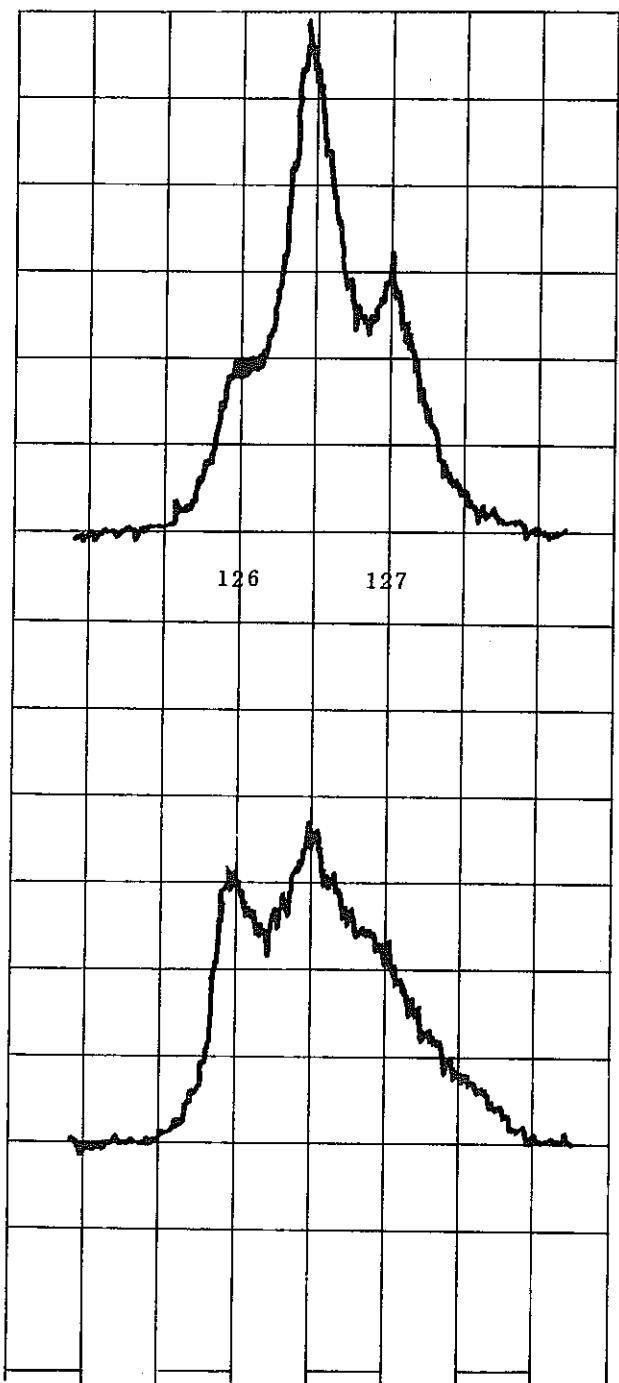
その 2



T 3 2 ( 培養なし, 1600°C, 濡式 )  
(3021)

T 4 2 ( 培養 1600°C, 濡式 )  
(4021)

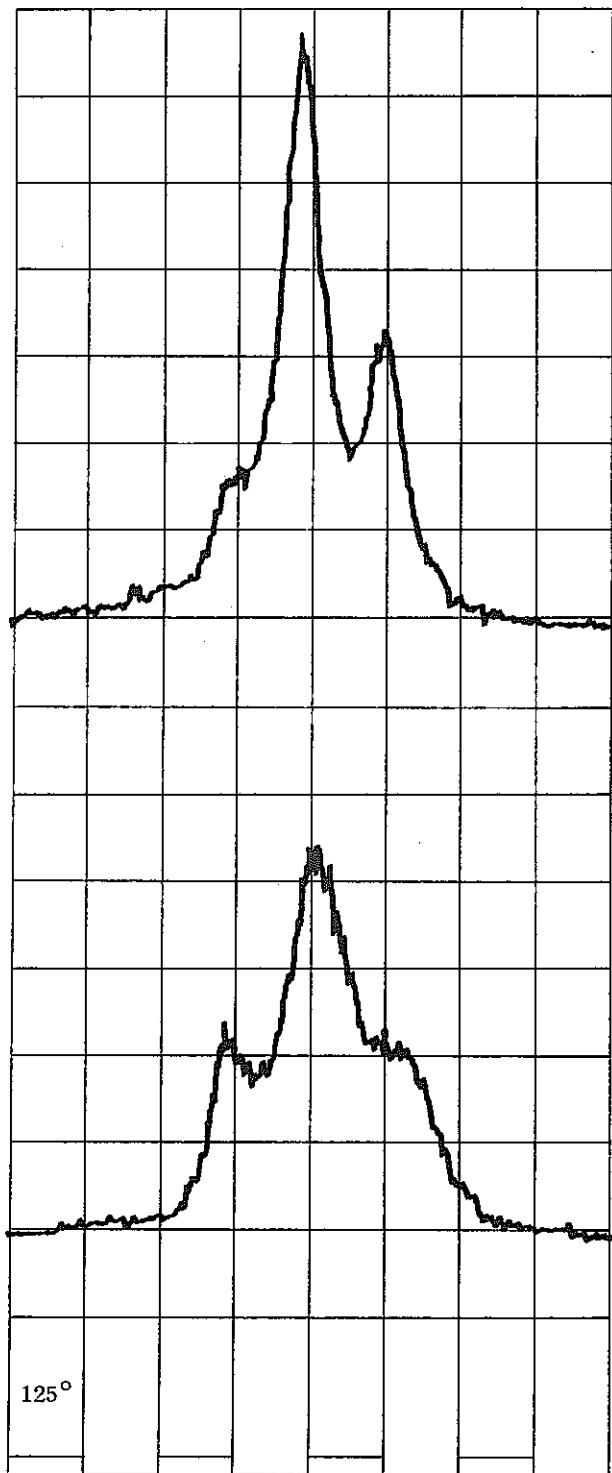
その3



T11  
(5001)

T61 (1600°C 焼焼なし)  
(6001)

その4

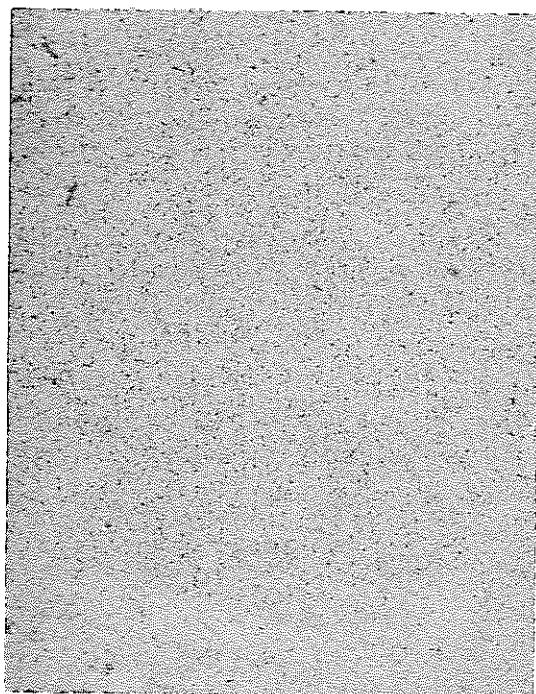


T12 (追加粉 1700 °C 培焼なし)  
(5021)

T61 (本番用 1700 °C 培焼なし)  
(6012)

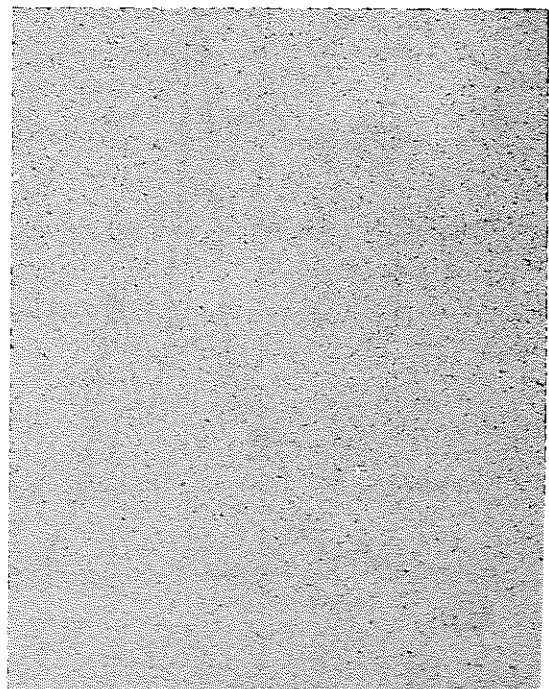
写真 5.1 Rhapsodie-II-Test Run Micro Alpha Autoradiograph

Sample 40-1021



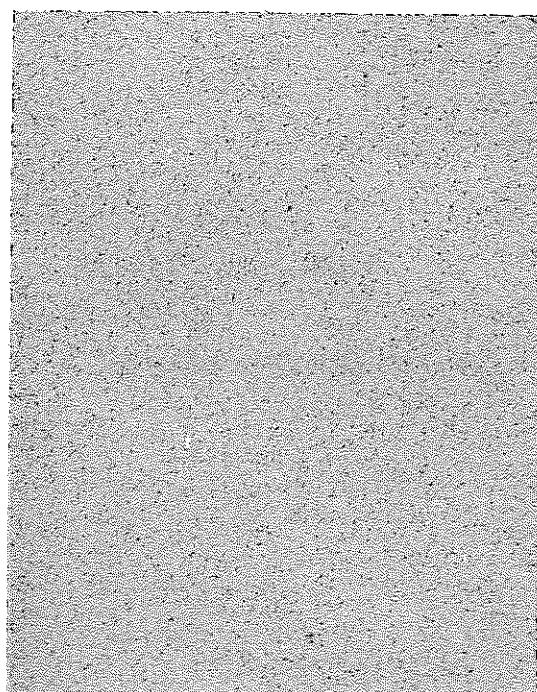
RANK A 1600°C-2h<sub>2</sub>

Sample 40-3011



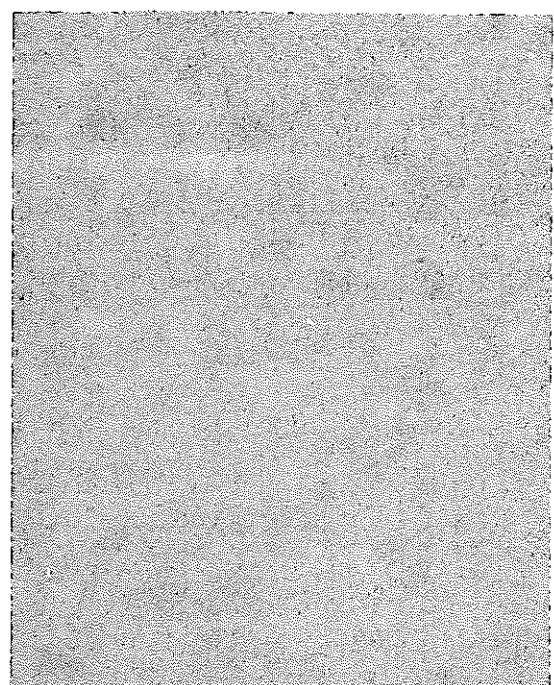
RANK A 1600°C-2h<sub>2</sub> (湿式)

Sample 40-3021



RANK A 1600°C-2h<sub>2</sub> (湿式)

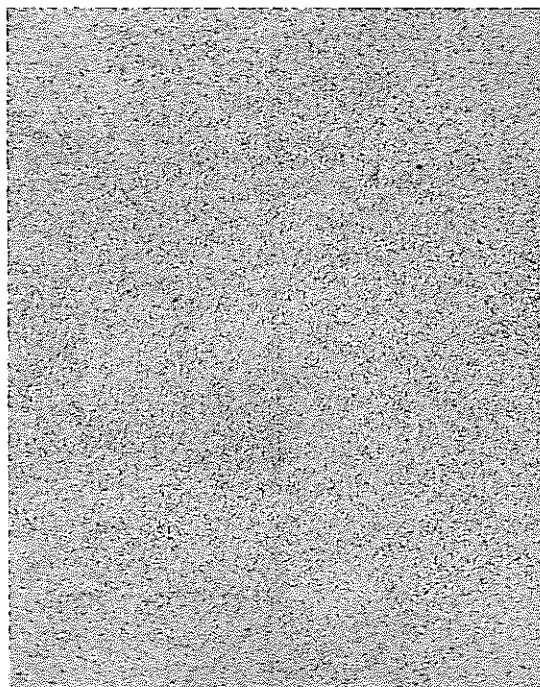
Sample 40-5001



RANK 1600°C-2h<sub>2</sub>

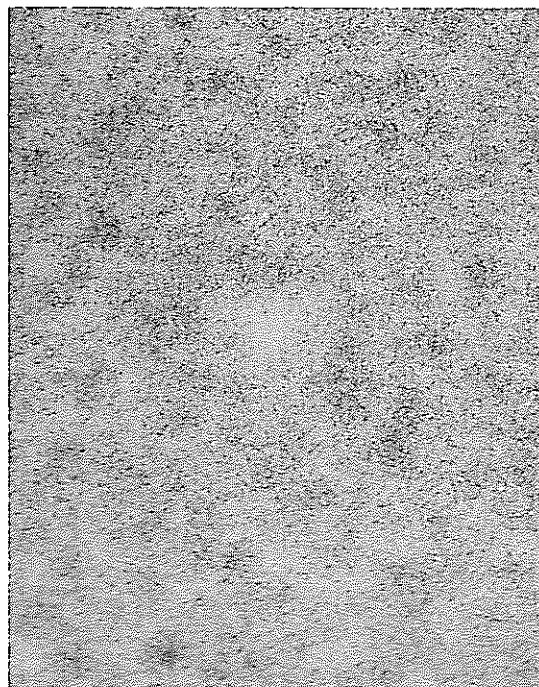
Z N 841-74-21

Sample 40-5012



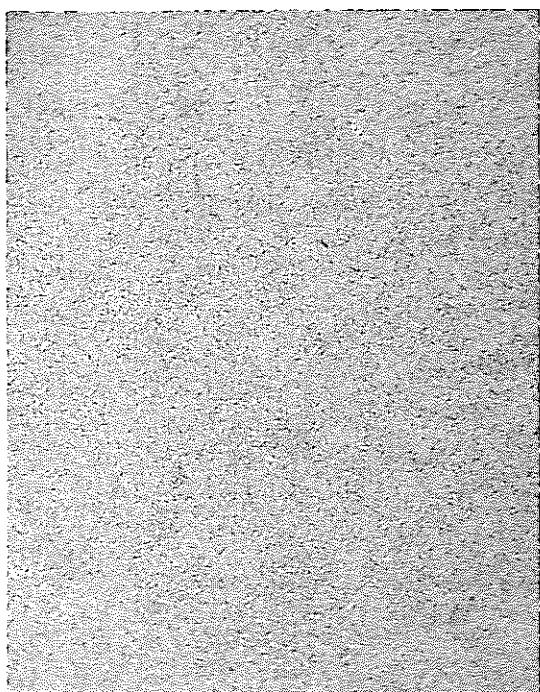
RANK A      1700°C-2h<sub>2</sub>

Sample 40-6001



RANK B      1600°C-2h<sub>2</sub>

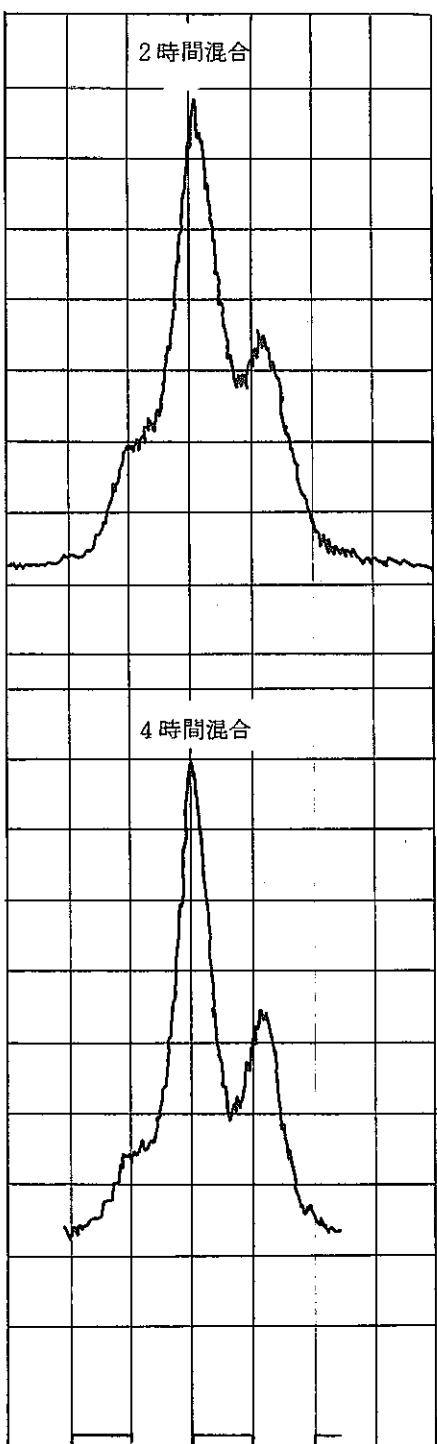
Sample 40-6012



RANK B上      1700°C

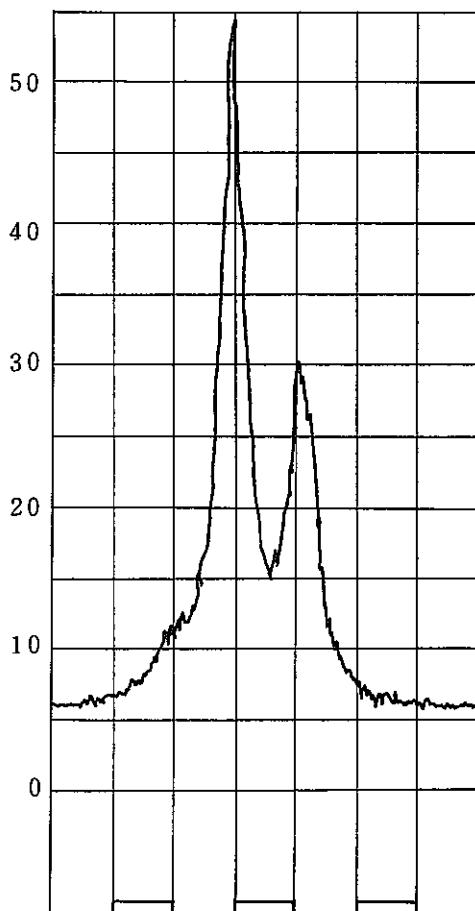
第5.3表 焼結ペレットの分析

	T 11	T 12	T 21	T 33	T 41	T 42	仕様
P u (W%)	17.72	17.95	20.08	20.09	18.21	17.99	-
PuO <sub>2</sub> (W%)	20.09	20.35	22.77	22.79	20.65	20.40	20±1
O/M	1.977	1.980	1.982	1.969	1.984	1.991	1.96~2.00
水分(μℓ/g)	-	-	-	-	-	-	-
Gas(μℓ/g)	34	50	48	105	45	-	150
A l (ppm)	<10	<10	<10	14	<10	<10	<500
B	0.9	0.3	0.7	0.9	<0.3	0.4	<20
C	-	-	-	-	-	-	<150
Cd	<1.0	<1.0	-	<1.0	<1.0	<1.0	<20
C1	-	-	-	-	-	-	<25
Cr	<10	25	<10	30	140	140	<500
F	-	-	-	-	-	-	<25
Fe	80	30	20	210	400	400	<500
Mg	<2	<2	<2	3	<2	<2	<25
N	-	-	-	-	-	-	<200
N i	30	20	<10	20	260	250	<500
V	<10	<10	<10	<10	<10	<10	<200
e u + Z n + S i	<193	<220	<61	<64	<179	<88	<600
(焼結温度 °C)	1700	1700	1700	1700	1700	1700	



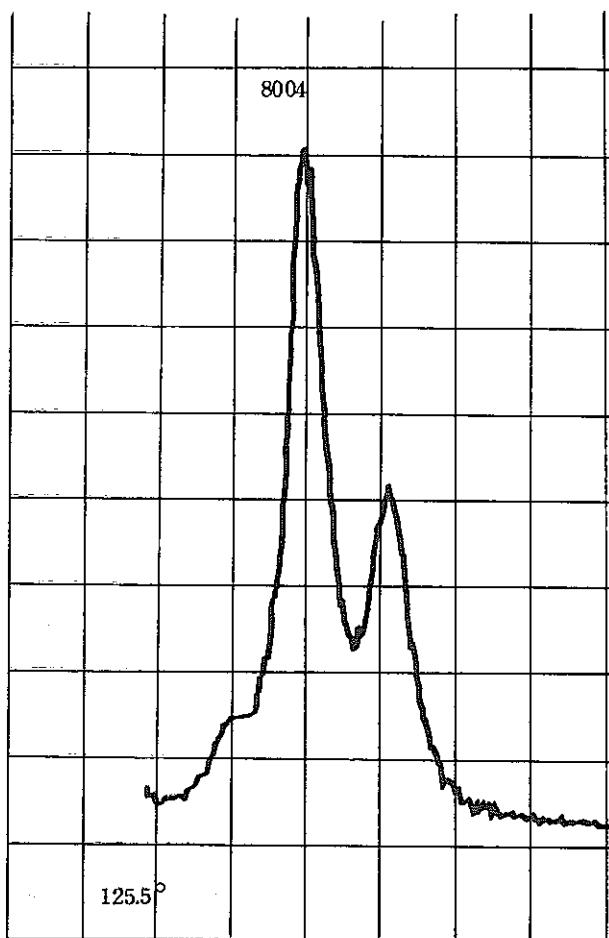
R2M2 8114  
(620面)

6時間混合  
R2M2 8314 (620面)



第 5.18 図 ボールミル混合時間と固溶性

8 時間混合



R2M2 8004

(620面)

#### 5.4 結論

以上テストの結果、湿式混合をおこなえば8時間ボールミル混合で固溶性が良いペレットが得られ、ナフタリン添加量2.7w/oで密度は85%T.D.程度にコントロールされることが判った。また不純物に関してはFeが多いが仕様は満している。

すなわち製造条件としてはT-4の条件が適当と云えよう。

なお今までのべて来た固溶度は次にのべる様にして求めた残UO<sub>2</sub>量の割合を引いた割合である。残UO<sub>2</sub>の量は計算からの回折图形及び(U, Pu)O<sub>2</sub>, (U, Pu)O<sub>2</sub>+2.5%UO<sub>2</sub>, (U, Pu)O<sub>2</sub>+5%UO<sub>2</sub>, (U, Pu)O<sub>2</sub>+10%UO<sub>2</sub>, (U, Pu)O<sub>2</sub>+1.5%UO<sub>2</sub>, (U, Pu)O<sub>2</sub>+20%UO<sub>2</sub>の模ぎ試料による回折图形等から推定で求めた。

またベガードの法則からの残UO<sub>2</sub>の計算においては金相面およびX線回折图形等の比較に於いて値が一致しないがあるので現在は使用していない。

## 6 本番ペレット製造

### 6.1 製品量および製品

必要製品量は Raysodie 2 照射用の燃料棒 8 本分, Raysodie 4 照射用の燃料棒 5 本分合計 13 本, ペレットとして約 420 ケが最低必要量である。しかし加工工程での作業を容易にすることを考えて 17 ~ 18 本分のペレットを製造することを目標とした。

製品については特にペレットの  $\text{PuO}_2$  と  $\text{UO}_2$  の固溶度について仕様には無いがフランス C E A より固溶度 95 % 以上という強い要求があり, 色々と議論があったが結局プル燃としては "もんじゅ" 燃料の仕様決定照射の意味をも含めて固溶度の異なるものを製って照射することにした。(別添 [II], [III] )

### 6.2 ペレット製造経過(第 6.1 図フローシート参照)

#### 6.2.1 ロット R2M-1, R2M-2, R2M-3, R2M-4

第 5.1 図に示した原料粉調製フローシートによる  $\text{PuO}_2 \cdot \text{UO}_2$  混合粉 1800g を使用してロットサイズ約 500g で製造した。1800g の原料で分析・品質管理用試料分を考えても製品が合格すれば 18 本分は充分得られると予想した。

R2M-1 と R2M-2 の 2 つのロットは固溶度の一番良いペレットを得ることを目標に予備試験の T - 4 ランの湿式ボールミル混合の条件で, R2M-3 は固溶度のやや悪いペレットを目標に短時間の乾式ボールミルと湿式ボールミルを組合せた混合で, R2M-4 は更に固溶度の悪いペレットを得ることを考えて乾式ボールミル混合と粉末混合を異った条件でおこなった。

ここで使用したボール, 及び ポットは SUS 製のものである。

なおロットの焼結に先立ち先行テストをおこない, 予備実験での最適条件, ナフタリン添加 27 %, 焼結温度 1700°C を確認するためにナフタリン添加 27 %, 30 %, 焼結温度 1600°C, 1700°C という条件の比較を行ない製造本番の条件を求めた。

焼結ペレットは全数検査をおこない, 外径の大きいものはセンタレス研磨した。以下各ロットについて若干の補足的な説明をする。

(i) R2M-1 : 固溶度は 100 % という素晴らしいものが得られたが, Fe の含有量が 500 ppm 以上という予期せぬ結果が出てペレットは全部不合格となった。

(ii) R2M-2 : 最初 1650°C で焼結したペレットはカーボン含有量が 160 ppm ~ 362 ppm という値が出たが, 再度 1600°C で加熱処理をしたら 73 ppm, 46 ppm という 2 つの分析値に下った。その際固溶度も 90 % から 95 % に改良された。

焼結密度のバラツキが大きく合格ペレットは 113 ケ(約 3.5 本分)のみ得られた。

(III) R2M-3 : 先行テストの結果ペレットの固溶度は 92 % とあまり良く無かったので、

予焼までしてあったペレットを 7 時間乾式ボールミルで粉碎して再成型、焼結した。

焼結ペレットの固溶度は 95 %, 密度の合格品は 108 ケ(約 3.3 本分)であった。

(IV) R2M-4 : 固溶度 90~95 % のものが 96 ケ(約 3.3 本分)合格品として得られた。

### 6.2.2 ロット R2M-5

R2M-1, R2M-2, R2M-3, R2M-4 の 4 ロットのランを行なったが、6.2.1 で述べた様に全部で約 10 本分しか合格ペレットが調整出来なかった。

そこで  $\text{PuO}_2$  粉,  $\text{NUO}_2$  粉, 90%  $\text{EUO}_2$  粉を V-ブレンダー混合して 500 g.  $\text{PuO}_2$   $\text{UO}_2$  混合原料粉を調整した  $\text{SuS}$  ポットで乾式ボールミル混合 8 時間、更に湿式ボールミル混合 4 時間した後先行テストなしに原料粉を 2 分して、ナフタリン 2.7 %, 3.0 % を各 250 g に添加して焼結した。その結果焼結ペレットの径が仕様より小さく、密度のバラツキも大きかった。それ故これは失敗としこのロットは乾式回収して RM-9 として進めることにした。

### 6.2.3 ロット R2M-6, R2M-7

R2M-5 の失敗により更に  $\text{PuO}_2$  粉,  $\text{NUO}_2$  粉, 90%  $\text{EUO}_2$  粉を新に採取し、ポリエチレンポットでボールミル混合して 1000 g.  $\text{PuO}_2$ ,  $\text{UO}_2$  混合原料粉を調整した。これを 2 分して 500 g づつ R2M-6, R2M-7 の 2 つのロットにした。粉末は  $\text{SUS}$  ポットで乾式ボールミル 8 時間、更に 2 時間湿式ボールミル処理した。

先行テストの結果、ナフタリン添加 2.7 %, 3.0 % とも密度が仕様にあったものが得られることが判明、秤量誤差も考えて 2.8 % ナフタリン添加で本番をおこなった。

(I) R2M-6 : 焼結密度が仕様より 1 % 程度低く、合格品は殆んどなし。

(II) R2M-7 : 密度合格ペレット 153 ケ、しかし最終的に合格品 90 ケが得られた。これは固溶度があまり良くないので 1600°C で 2 時間加熱処理した結果寸法が小さくなつたためである。しかし固溶度は改良されていなかった。固溶度 85~90 %。

### 6.2.4 ロット R2M-8

§ 5 で述べた予備実験で出来た焼結ペレットを 600°C で 0.5 hr 酸化、2 hr 還元のサイクルを 2 回処理して得た粉末を出発原料として使用した。

粉末は一度焼結したもので固溶度は問題ないと考えて粉末をアルミナボールミールで 4 時間乾式粉碎混合処理した。しかし先行テストした結果ペレットにクラックが入り、密度は殆んど上らず焙焼・還元サイクルが十分でなかつたのではないかと思われたので粉末全体を再焙焼・還元してリサイクル使用した。

バッチサイズ 50 g の先行テストの結果 1% ナフタリン添加で約 85% T.D. の焼結密度が得られることが判った。しかしこれにのべる R2M-9 の場合には先行テストと同様な条件（容量が大きくなつた事が先行と異なる）で造粒粉にナフタリン添加、成型、焼結したにもかかわらず、先行テストと密度がずれた。これは容量の効果が混合条件に影響したものと思われる。そこで R2M-8 でも容量の効果を懸念して本番では粉を 150 g, 280 g, 150 g の 3 つにわけ R2M-8-1, R2M-8-2, R2M-8-3 として製造した。その結果は下記の様でビン 5 本分の製品が得られた。

	成型ペレット	合格ペレット
R2M-8-1	43ヶ	32ヶ
R2M-8-2	117ヶ	95ヶ
R2M-8-3	69ヶ	27ヶ
<hr/>		計 154ヶ

PuO<sub>2</sub> と UO<sub>2</sub> の固溶度は 95% 以上であった。

#### 6.2.5 ロット R2M-9

密度経で不合格となったロット R2M-5 の焼結ペレットを 600°C で乾式回収して出発原料とした。R2M-8 と同様にアルミナボールミルで 6 時間乾式粉碎混合して 50 g バッチの先行テストで 1% ナフタリン添加で 85% T.D. の密度が得られることが判ったので、本番約 400 g も 1% ナフタリン添加・成型した。しかし焼結したペレットは密度が約 89% T.D. と高く不合格となった。これは先行テスト本番とは容量の差によるものと思われる。

#### 6.2.6 ロット R2M-10

密度が 1% ぐらい低く不合格となった。ロット R2M-6 と R2M-7 の不合格焼結ペレットを乾式回収して出発原料粉とした。ナフタリン添加量は R2M-8, -9 と同様に 1% が適当であるとして成型した。しかし 1650°C と 1700°C で先行テストで焼結したところ両方とも 89~90% T.D. と密度が高く本番の焼結は出来なかった。

所定の密度を得るにはもっと低い温度で焼結しなければならないが、あまり低い温度で焼結した場合には高温 (1600~1700°C) での寸法・密度に関する不安定性も考えられるので、ランは中止した。後に 1540°C で焼結すれば 85% T.D. の密度が得られることが判った。

#### 6.2.7 ロット R2M-11

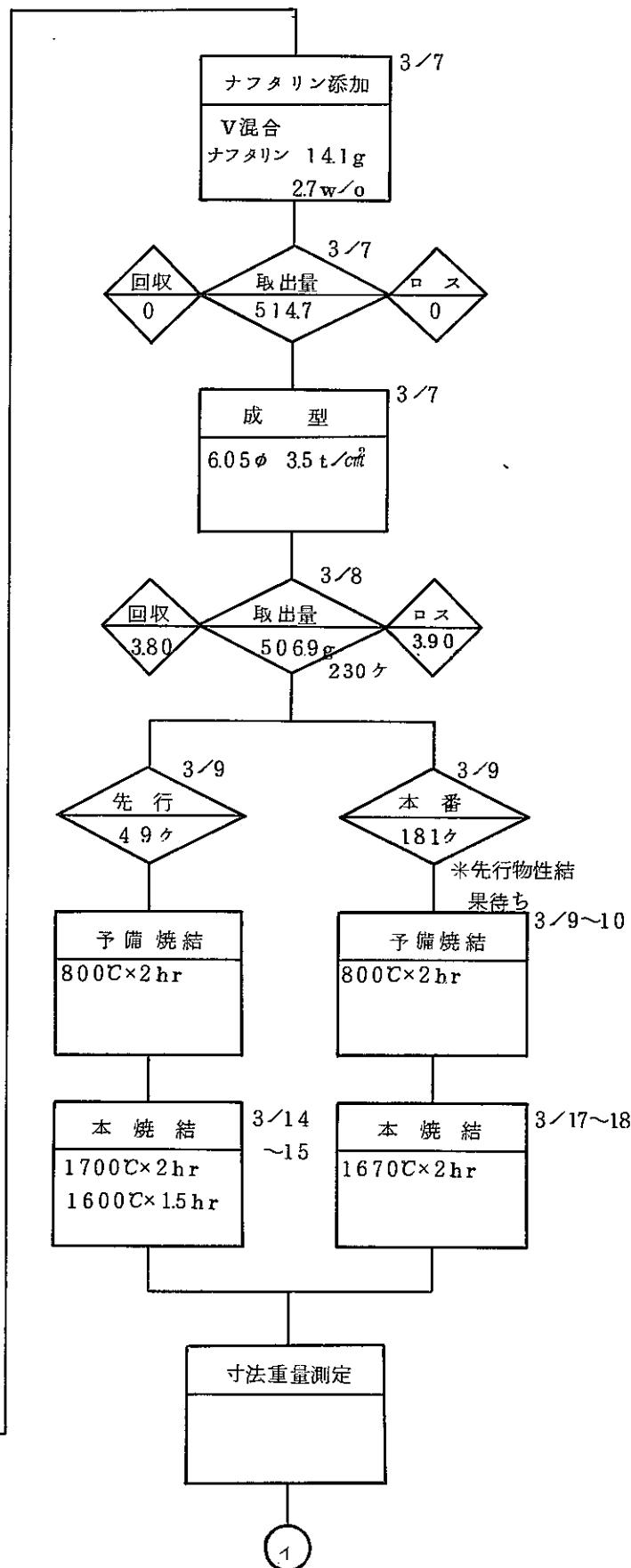
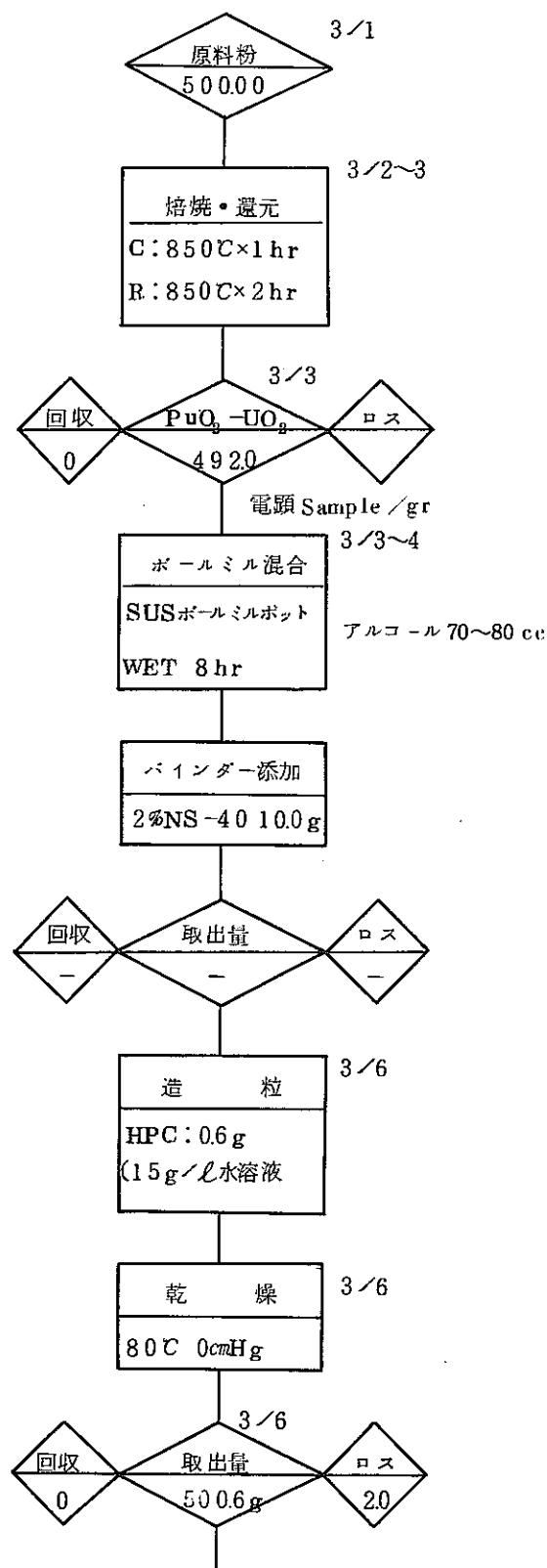
R2M-2, 3, 4 および R2M-8 の不合格ペレットをあつめて焙焼・環元の乾式回収し

出発原料とした。先行テストで  $1600^{\circ}\text{C}$  と  $1700^{\circ}\text{C}$  で焼結したところ  $1700^{\circ}\text{C}$  で焼結すれば密度の仕様を満足するペレットが得られることが判明した。

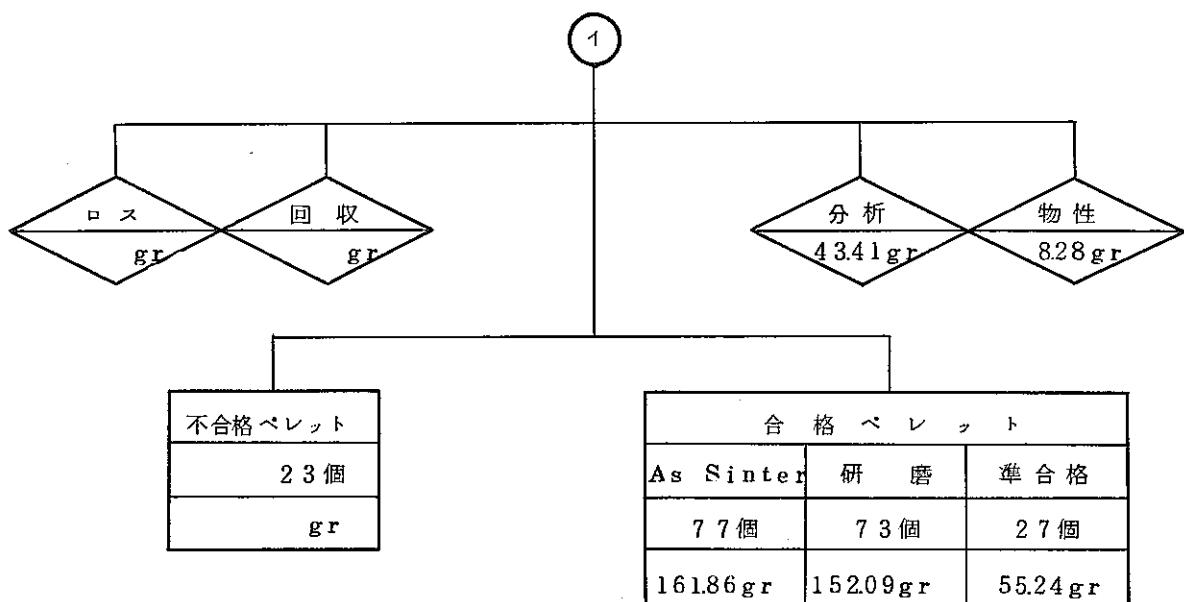
$1700^{\circ}\text{C}$  で本番を焼結して合格ペレット 150 ケ、約 4.5 本分が得られた。

第 6.1 ロット別本番製造フローシート

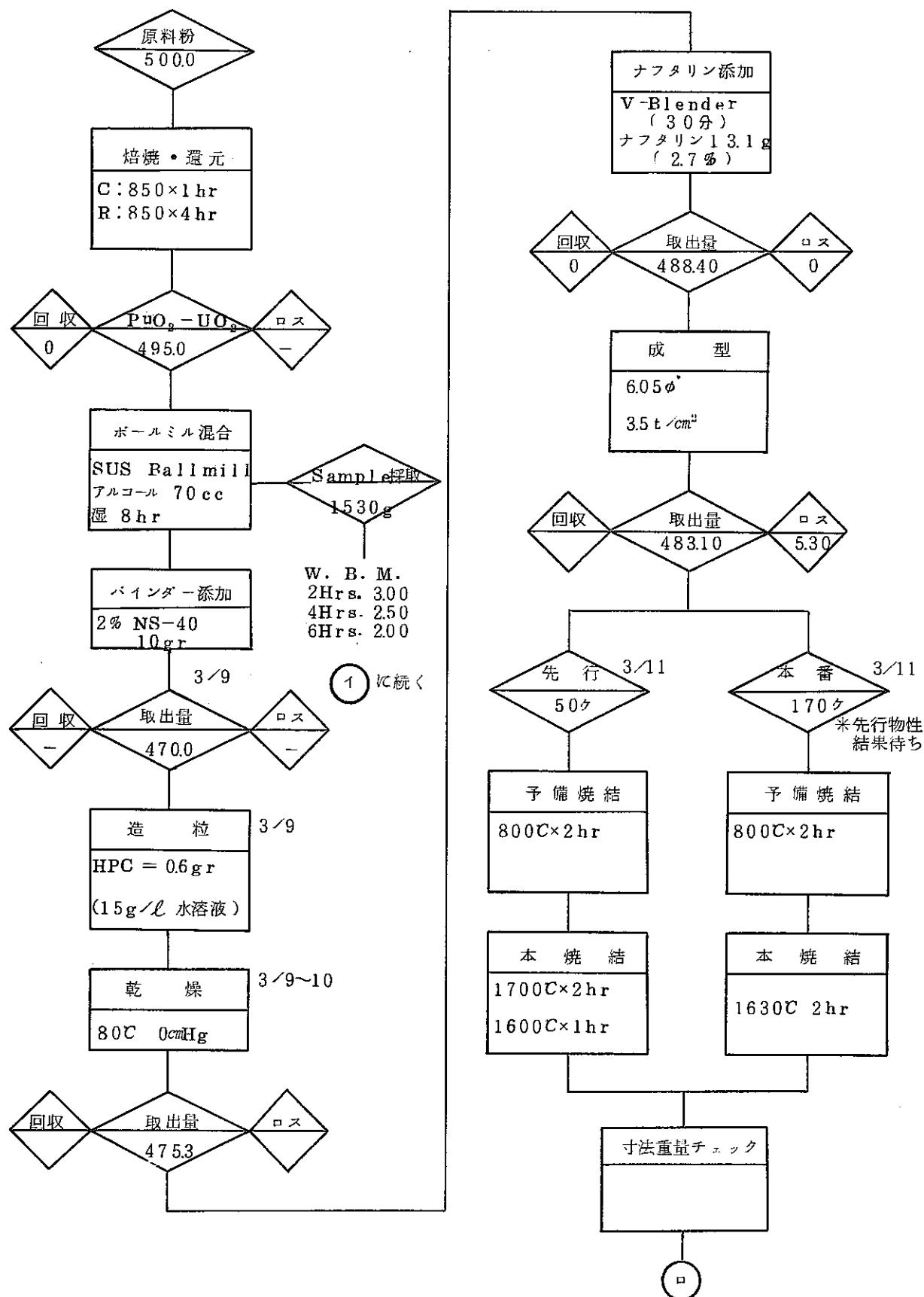
## Rapsodie 2 B 2 M-1



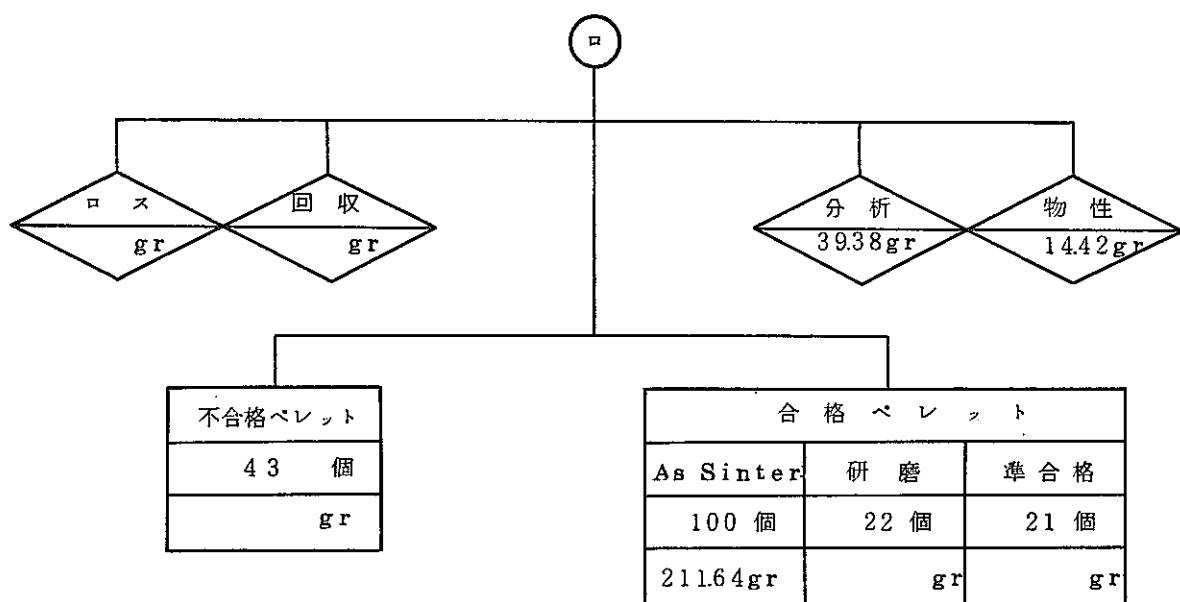
## BAP II フローシート LOT R.2M-1



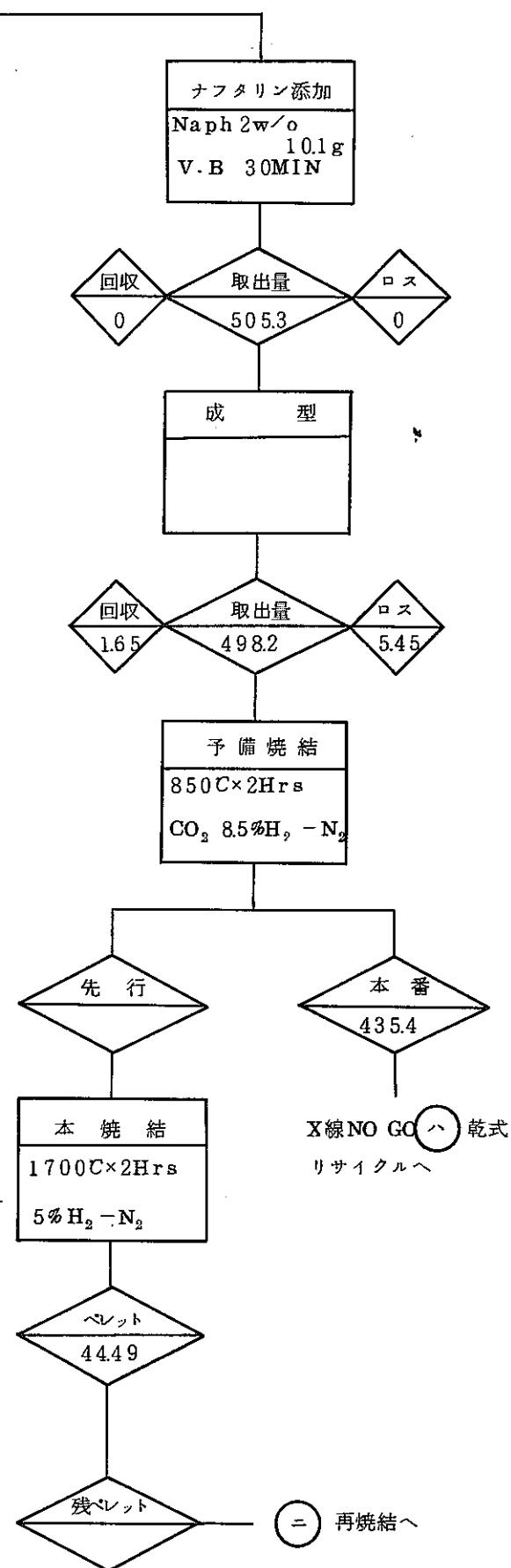
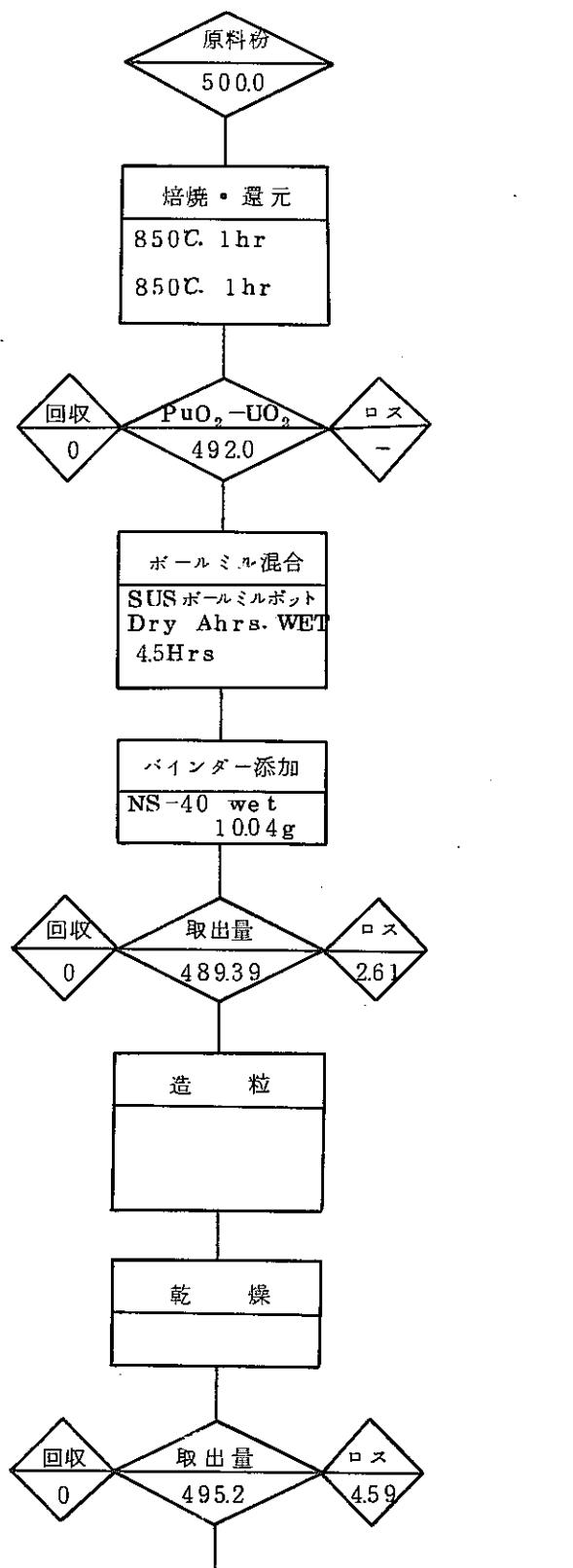
## Rhapsodie 2 R-2M-2

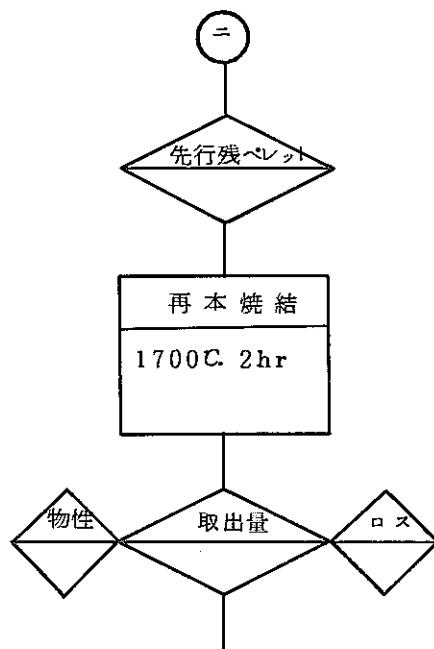


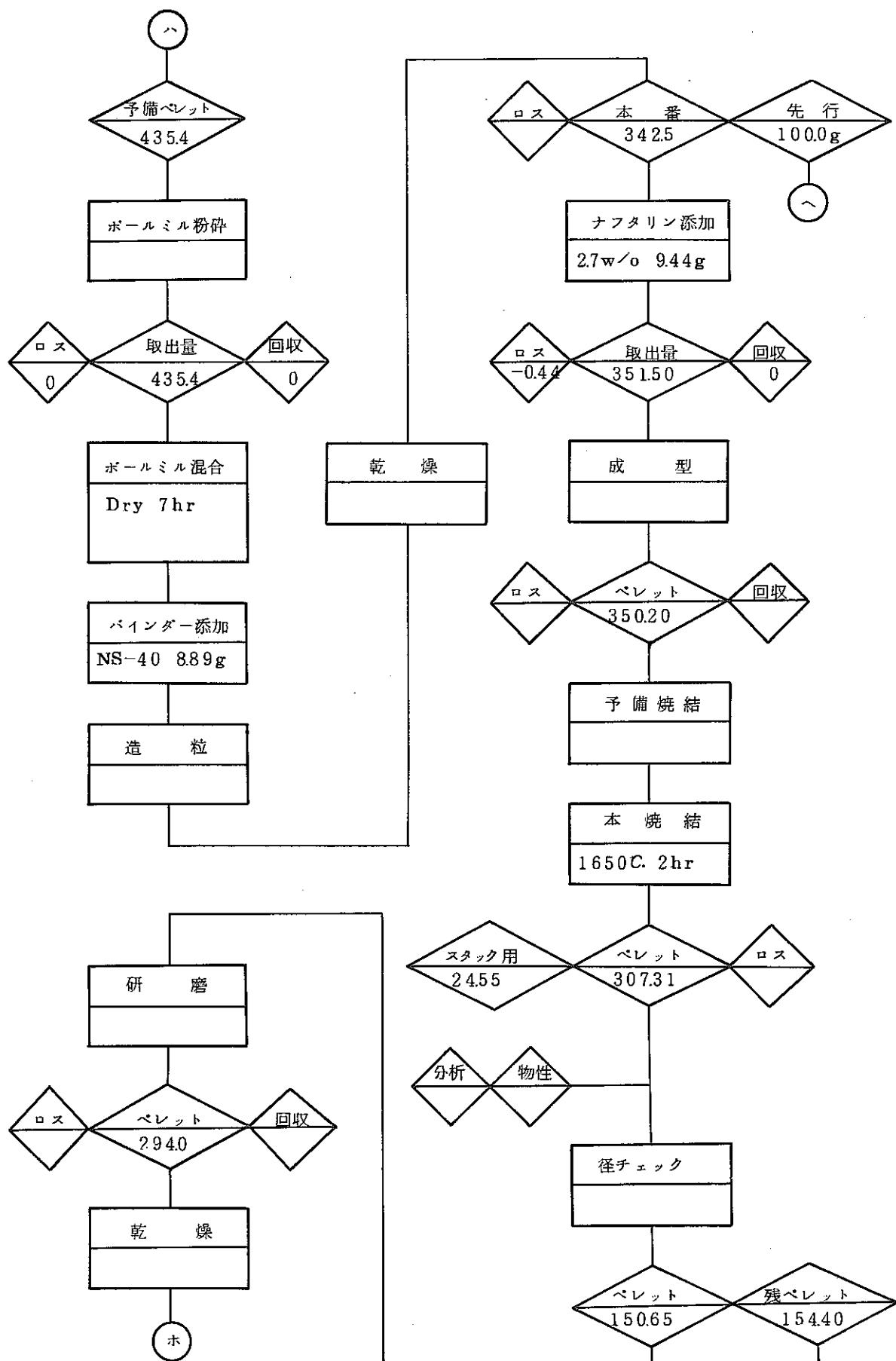
## BAP II フローシート LOT R2M-2

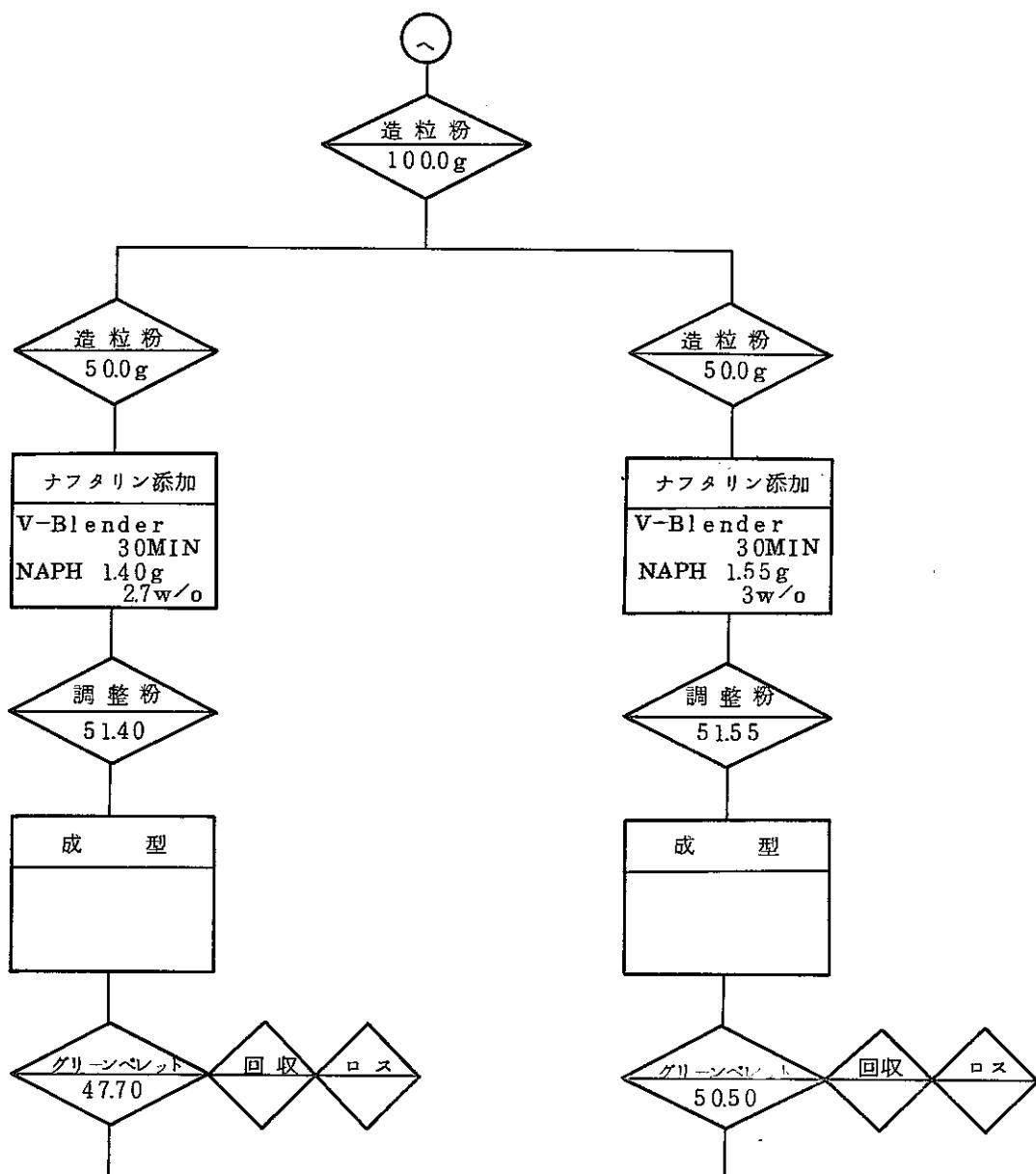


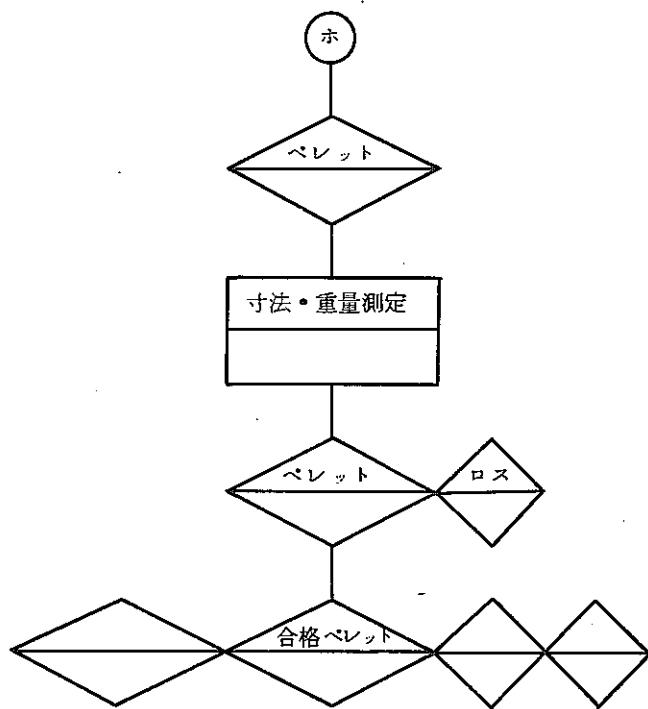
## Rapsodie 2 R 2 M-3-1



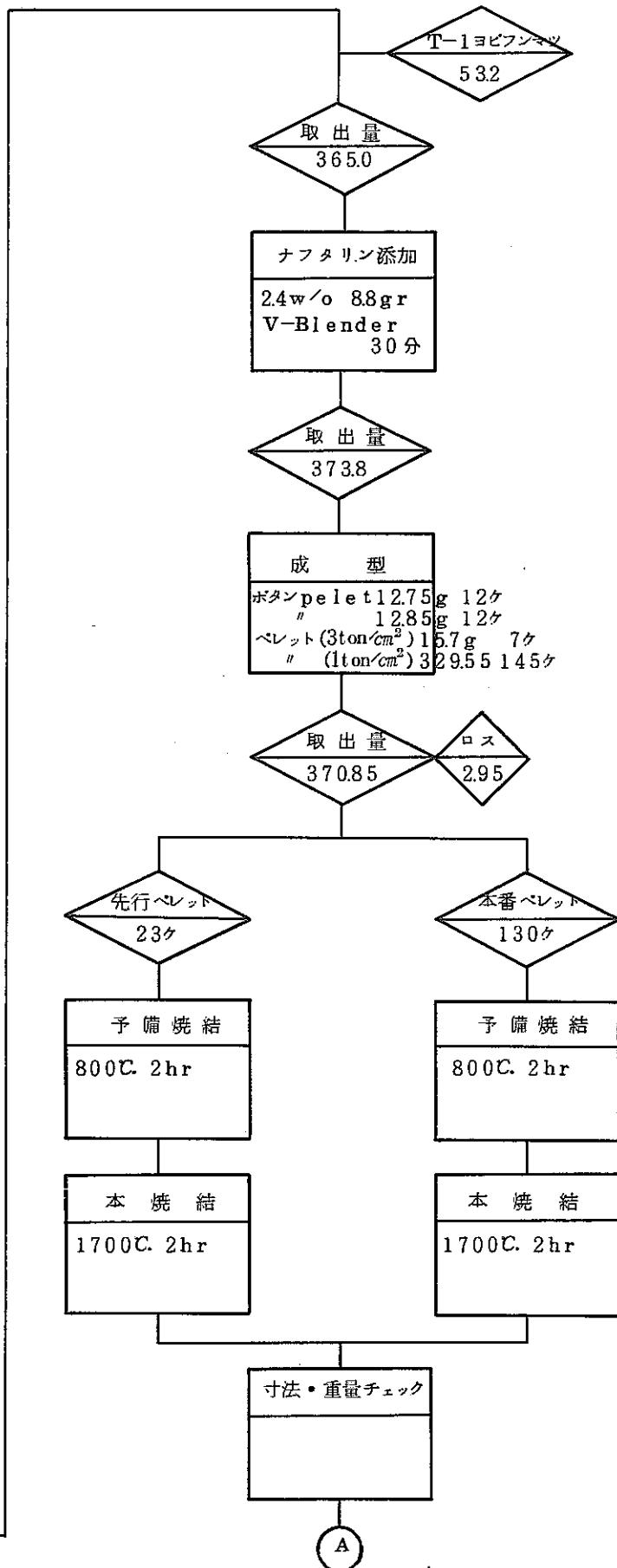
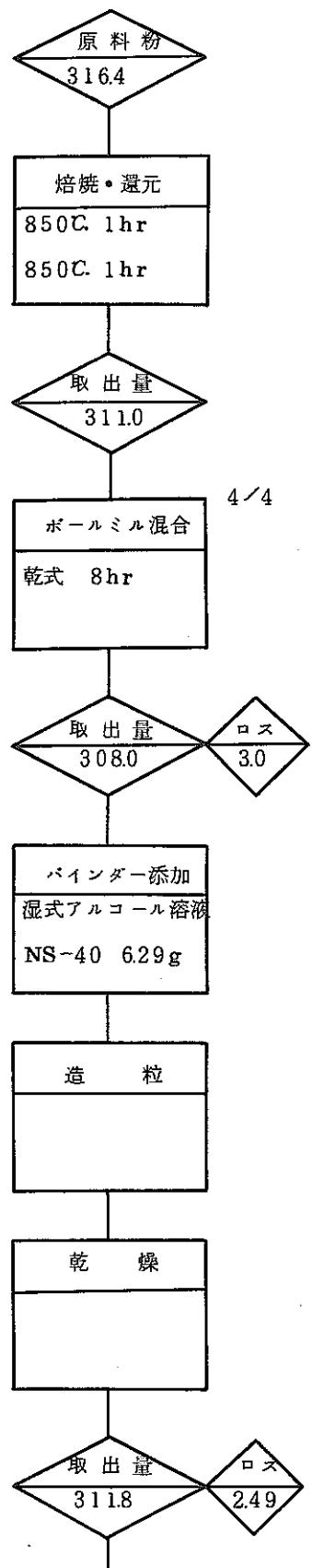




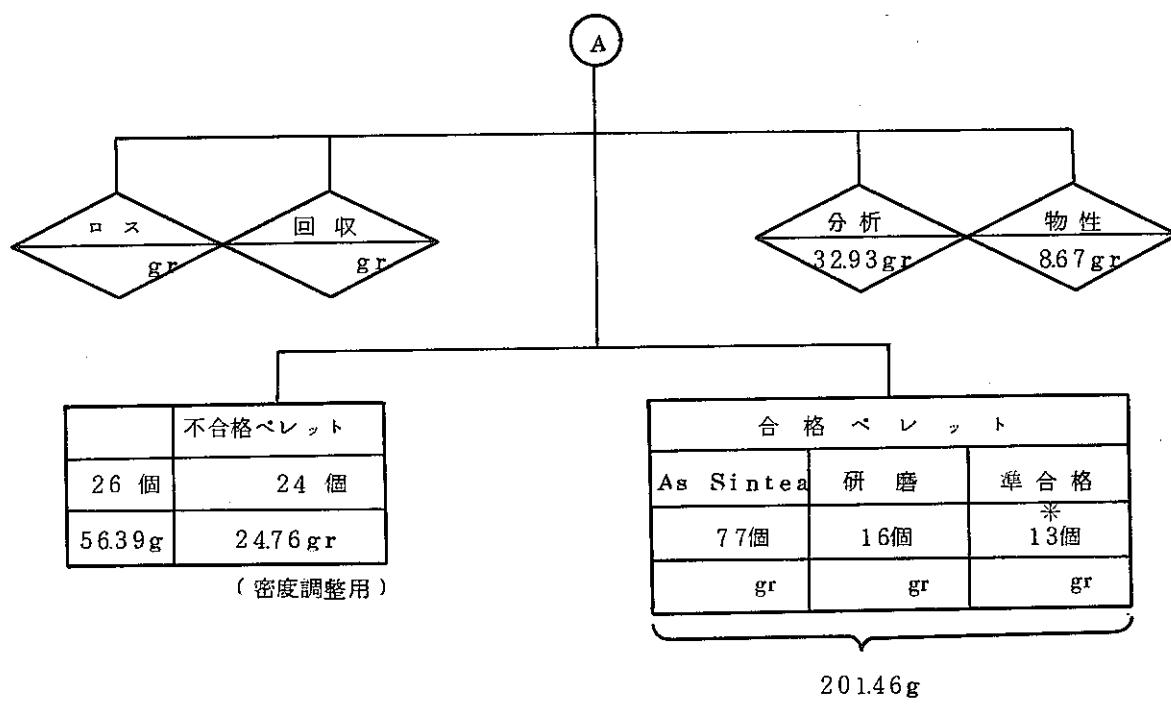




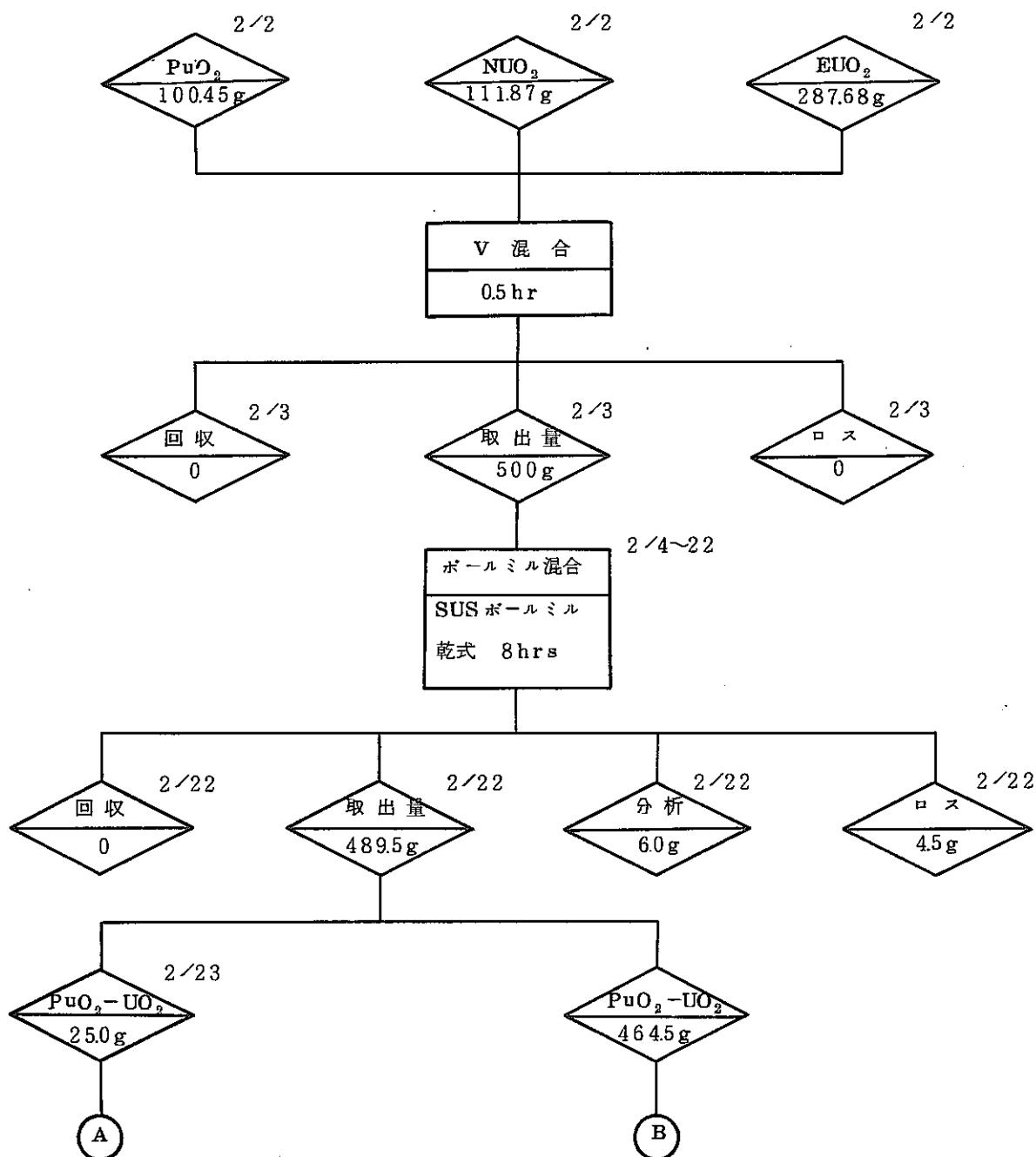
## R 2 M-4



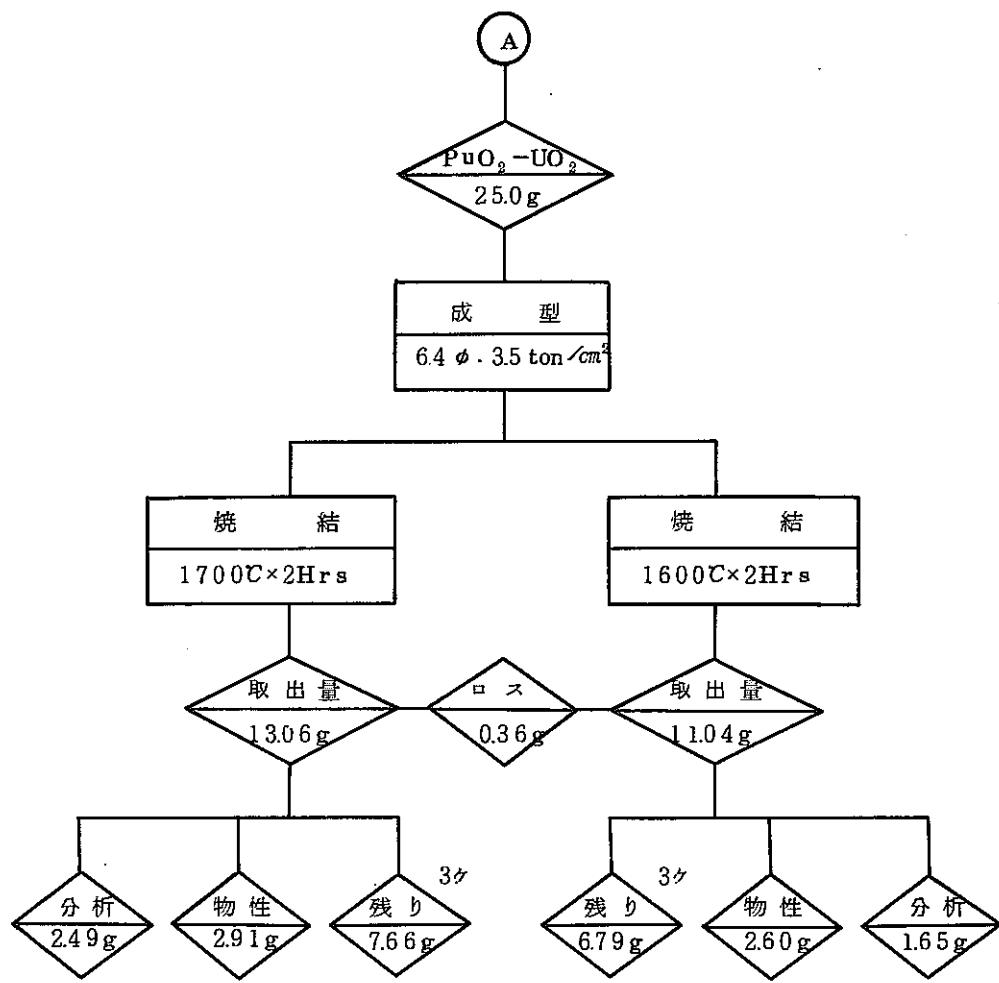
## BAP II フローシート LOT B2M-4



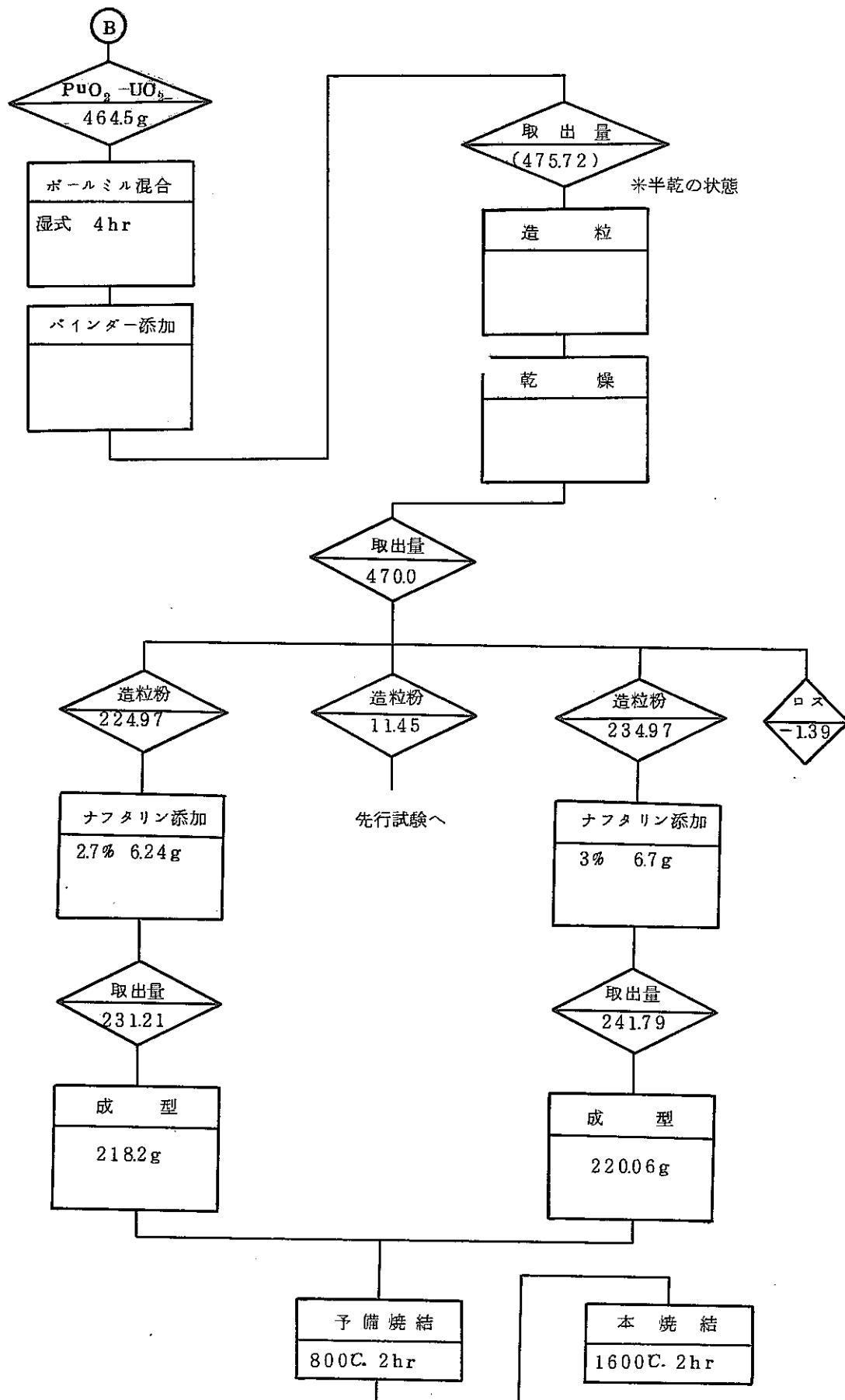
## Rhapsodie II 追加混合粉 B2M-5



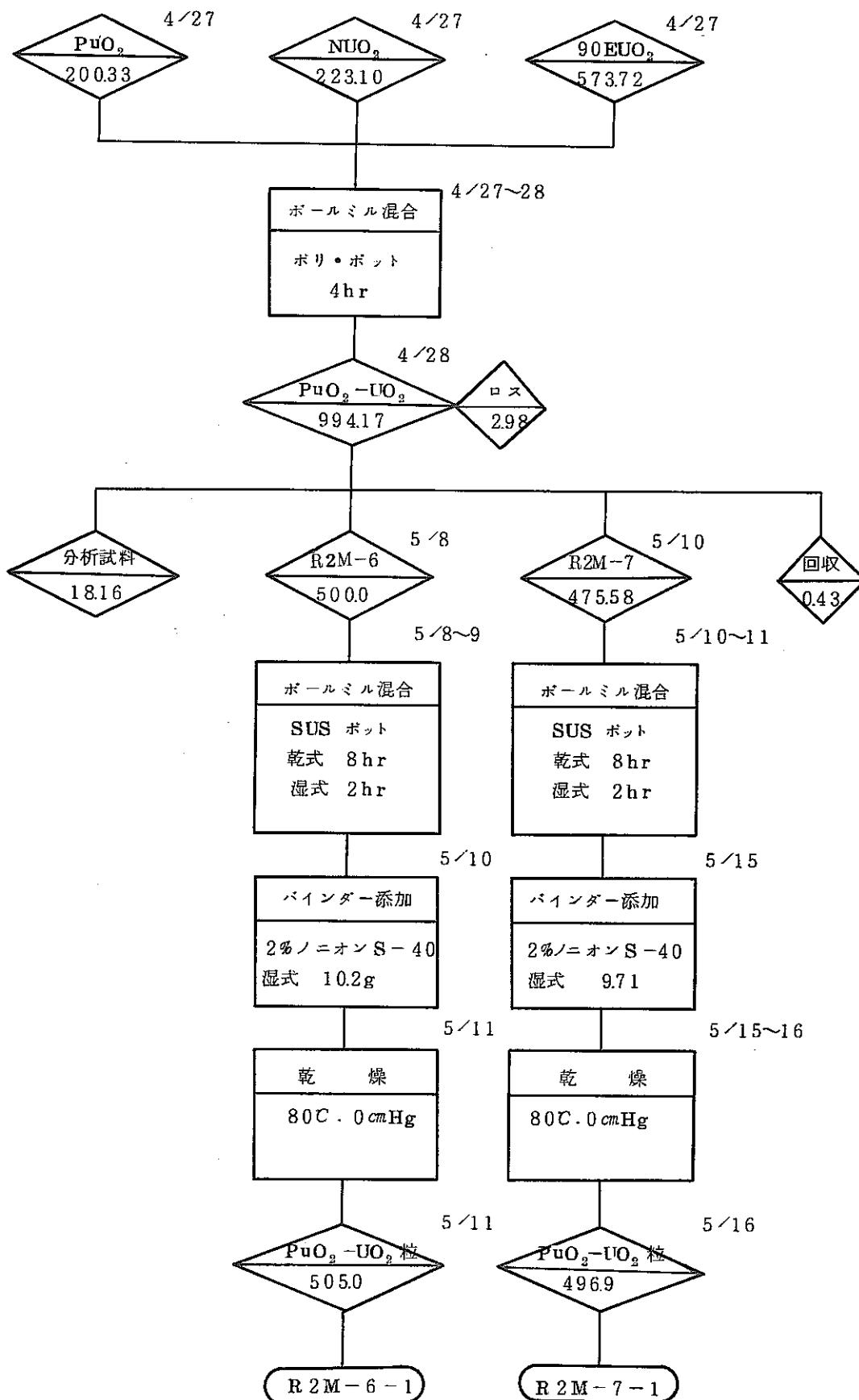
## Bap-II 追加混合粉固溶テスト R2M-5



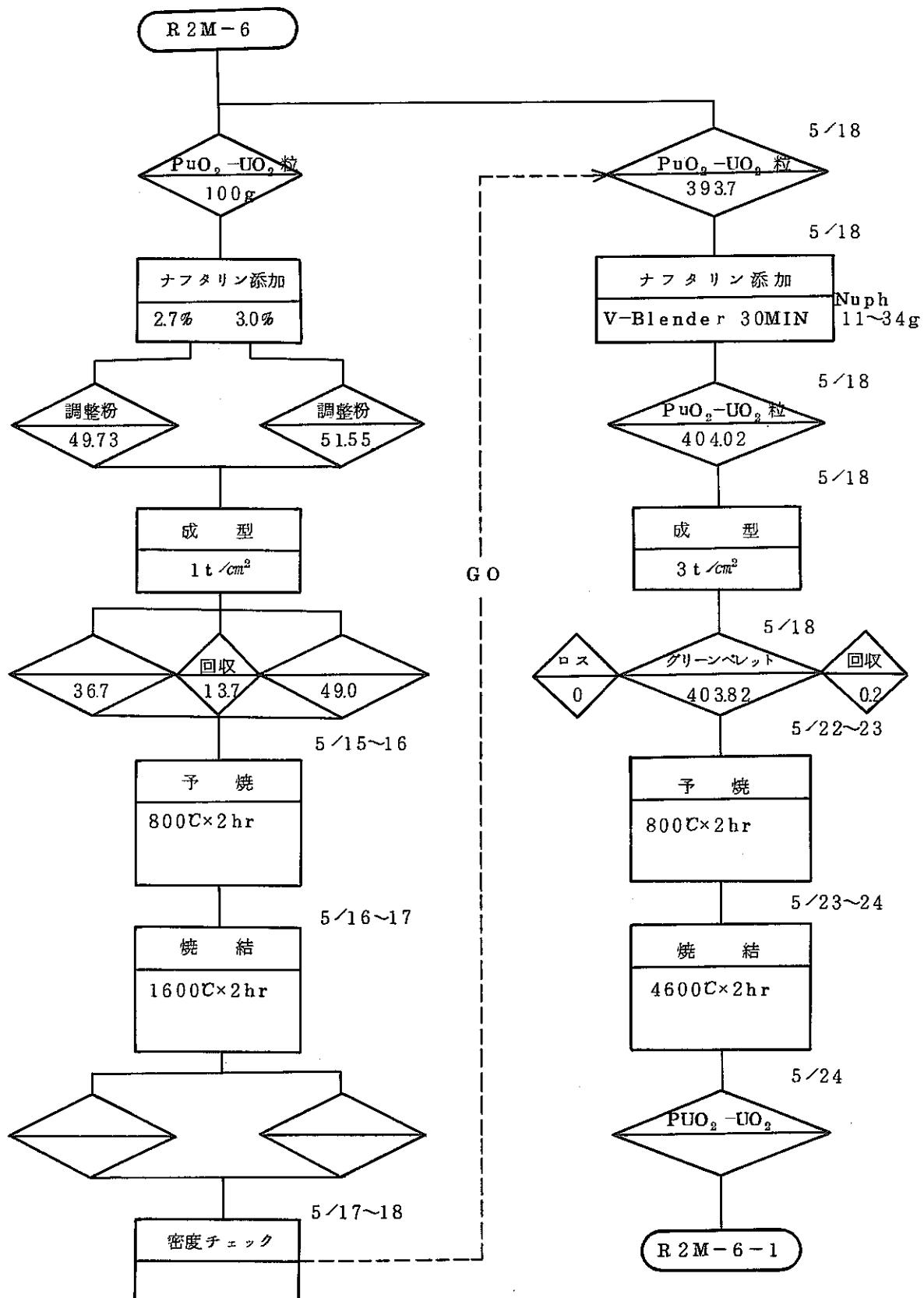
## Rhapsodie-II R2M-5



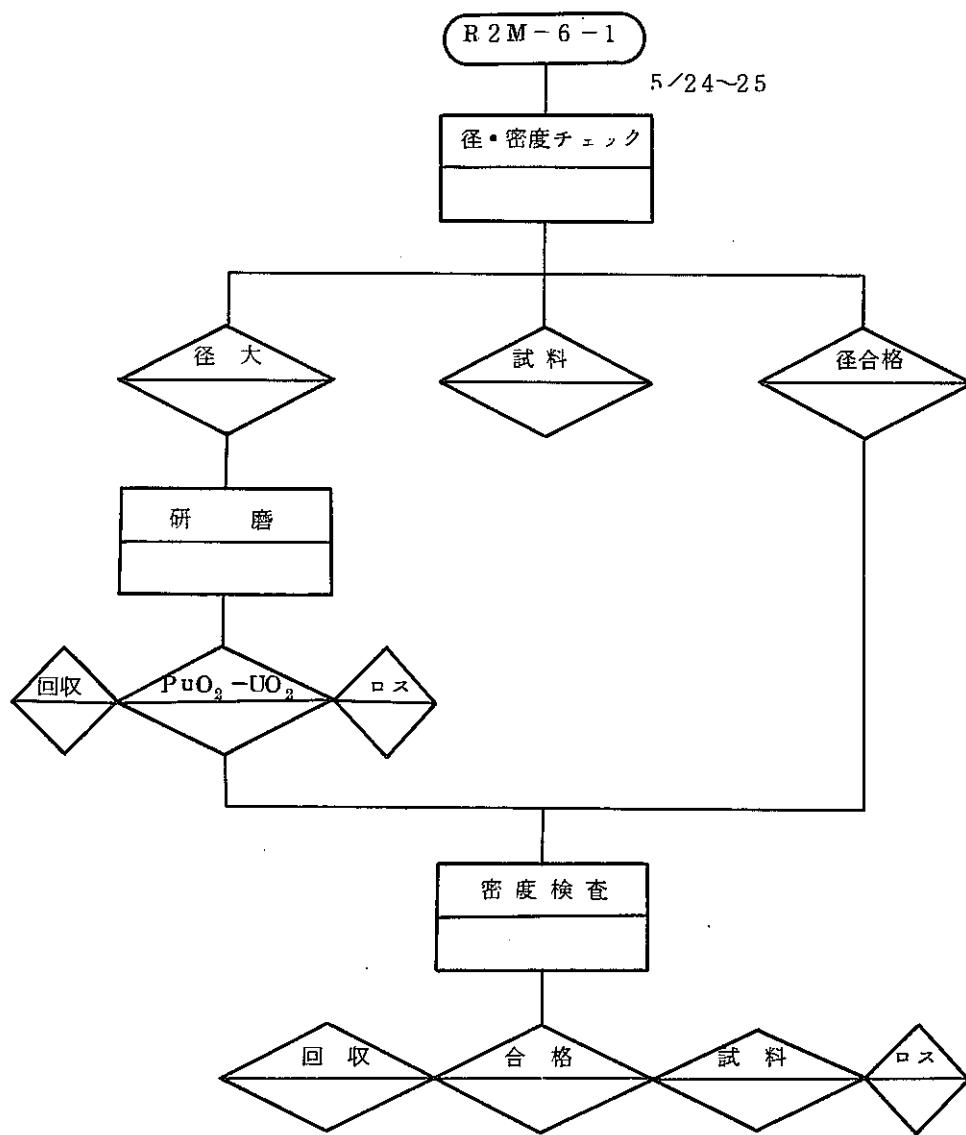
## Rapsodie II R.2M-6.7



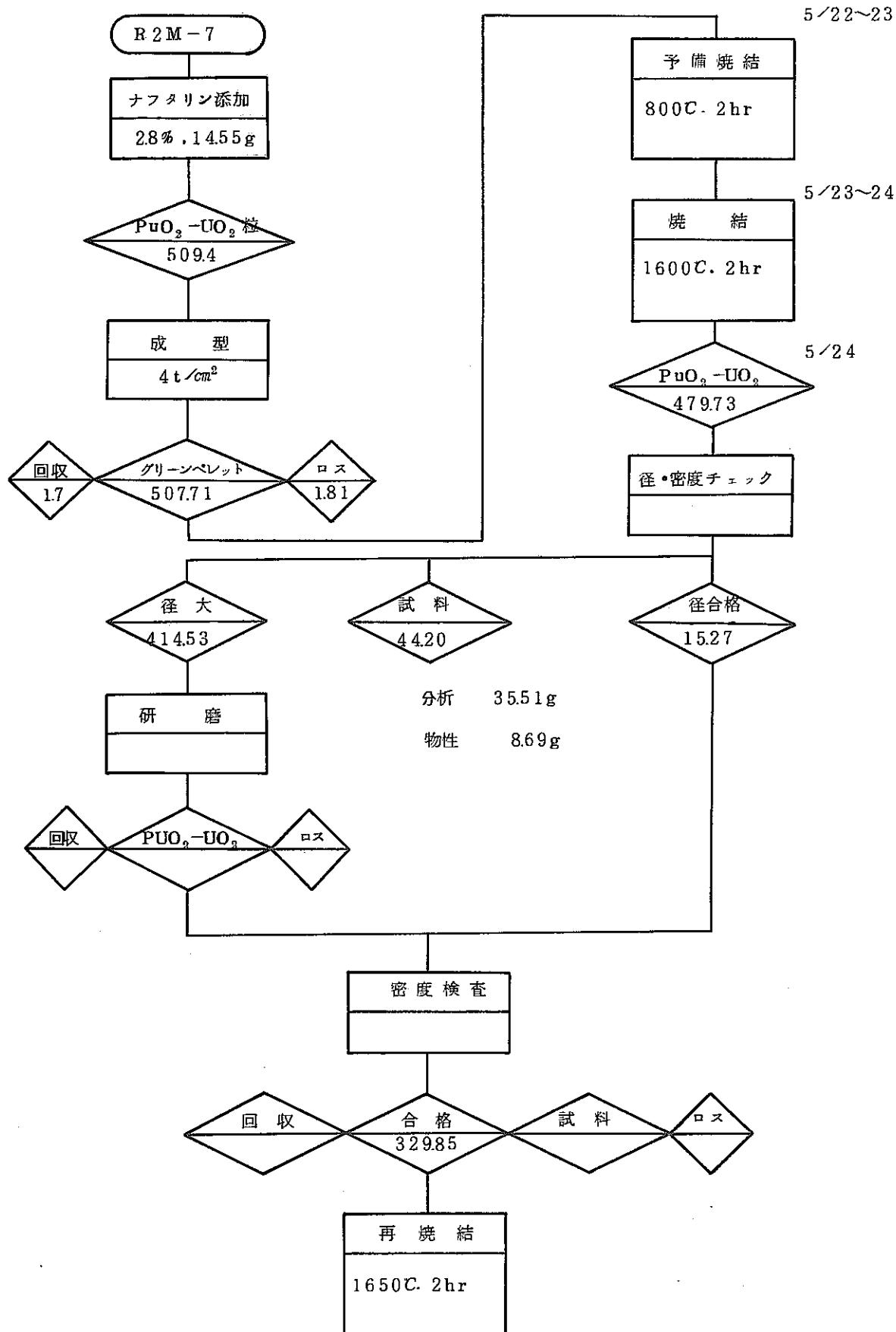
## Rhapsodie II R2M-6-1



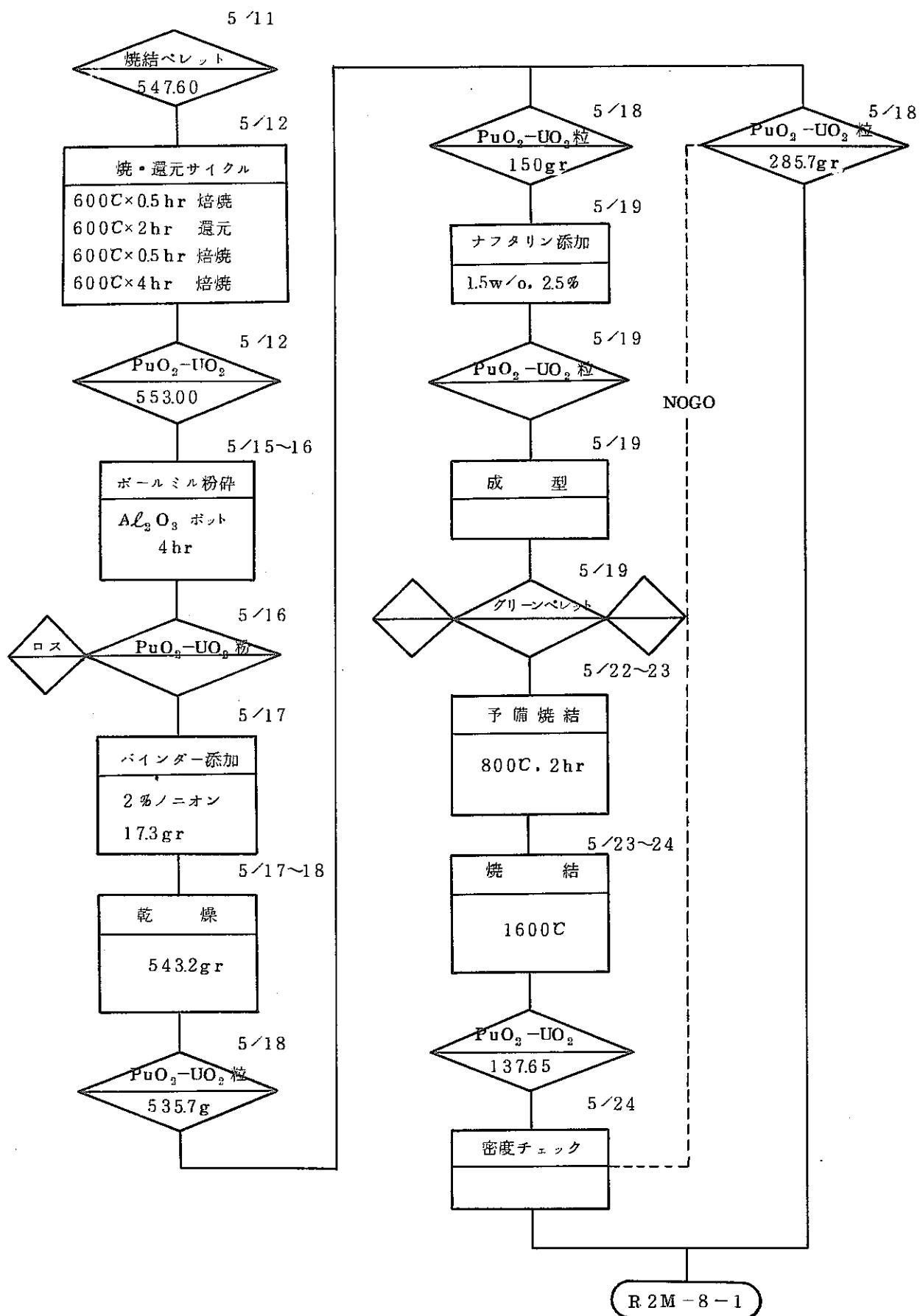
## R a p s o d i e I I R 2 M - 6 - 2



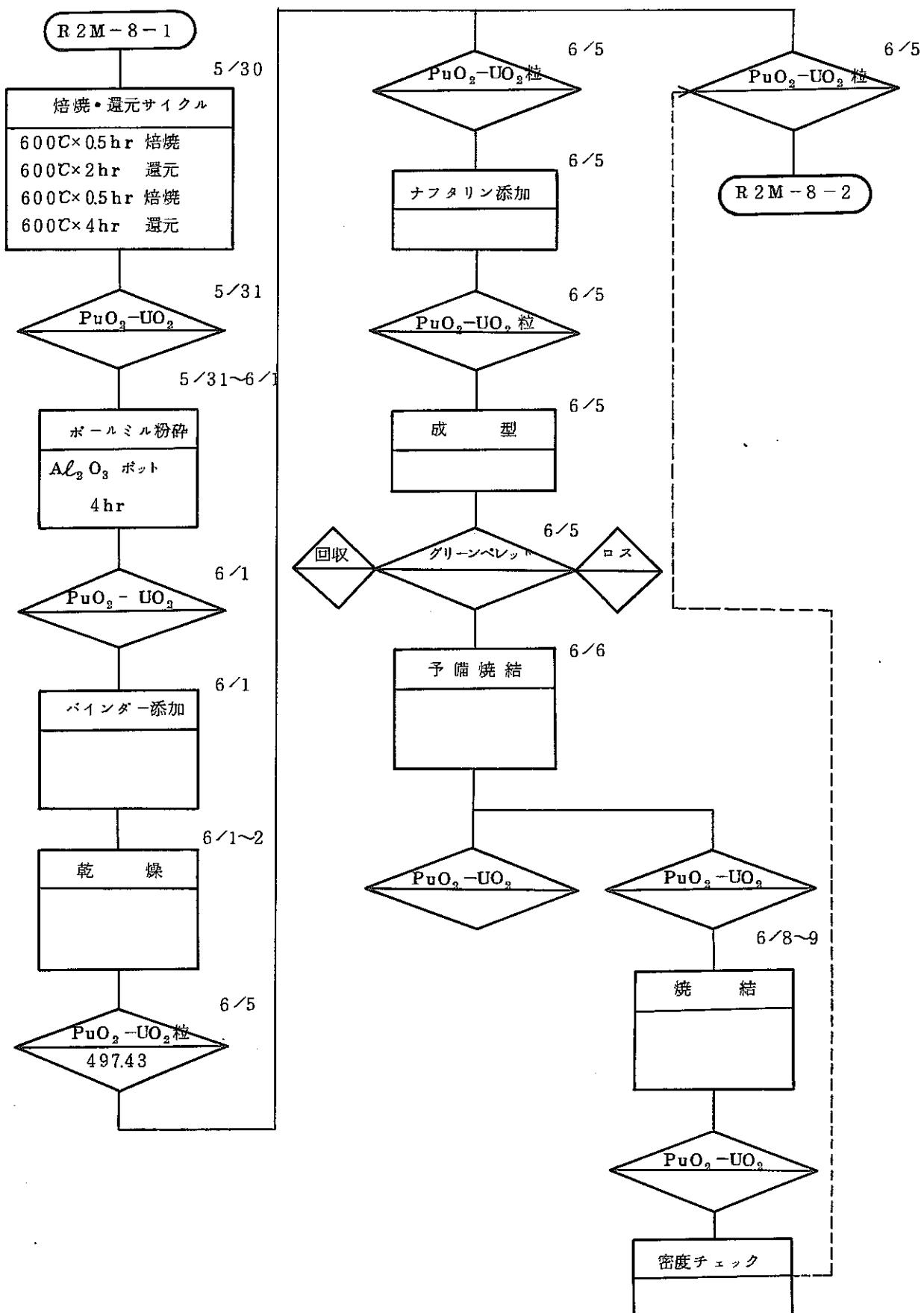
Rhapsodie II R2M-7-1



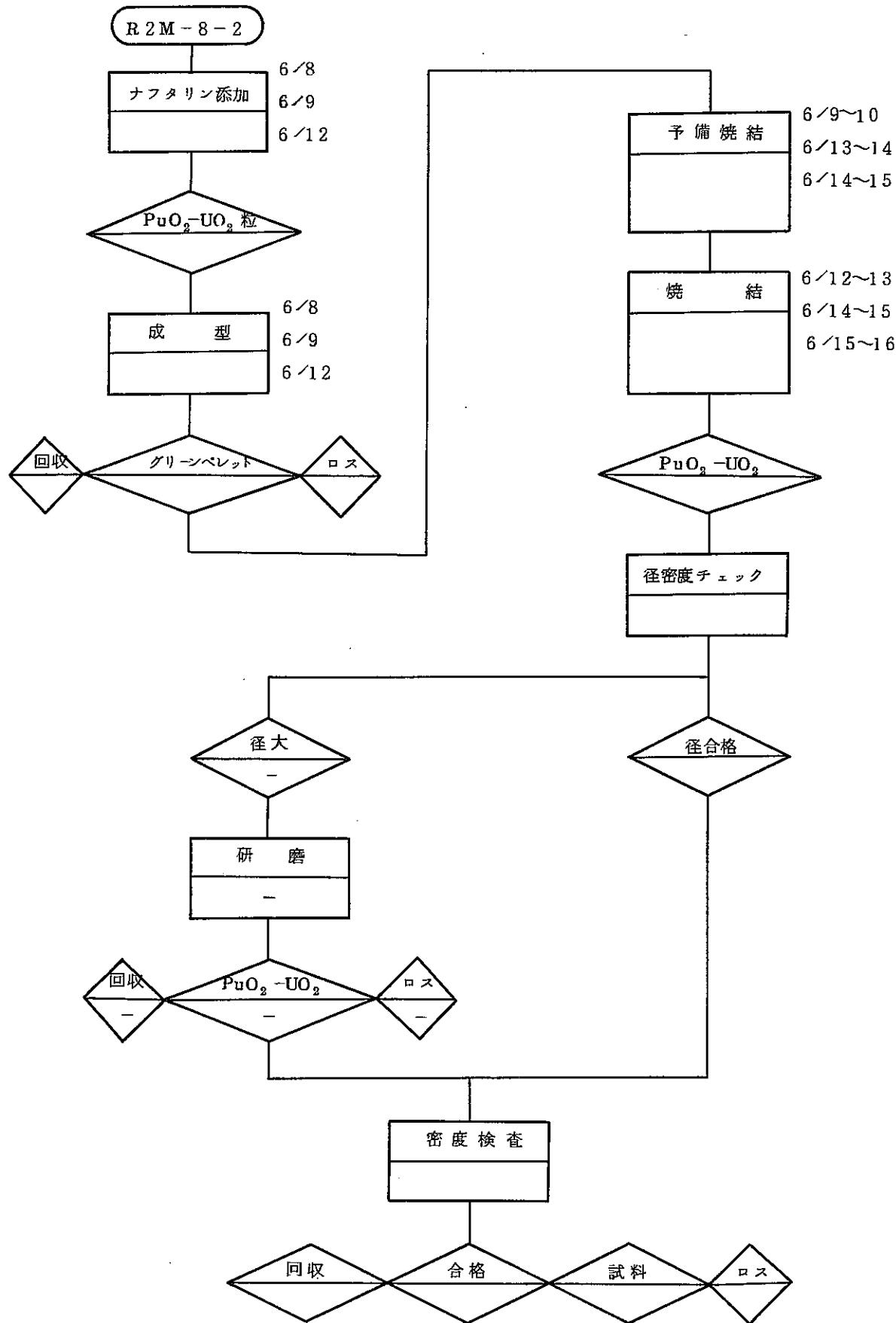
## Rhapsodie II R 2 M - 8 - 1



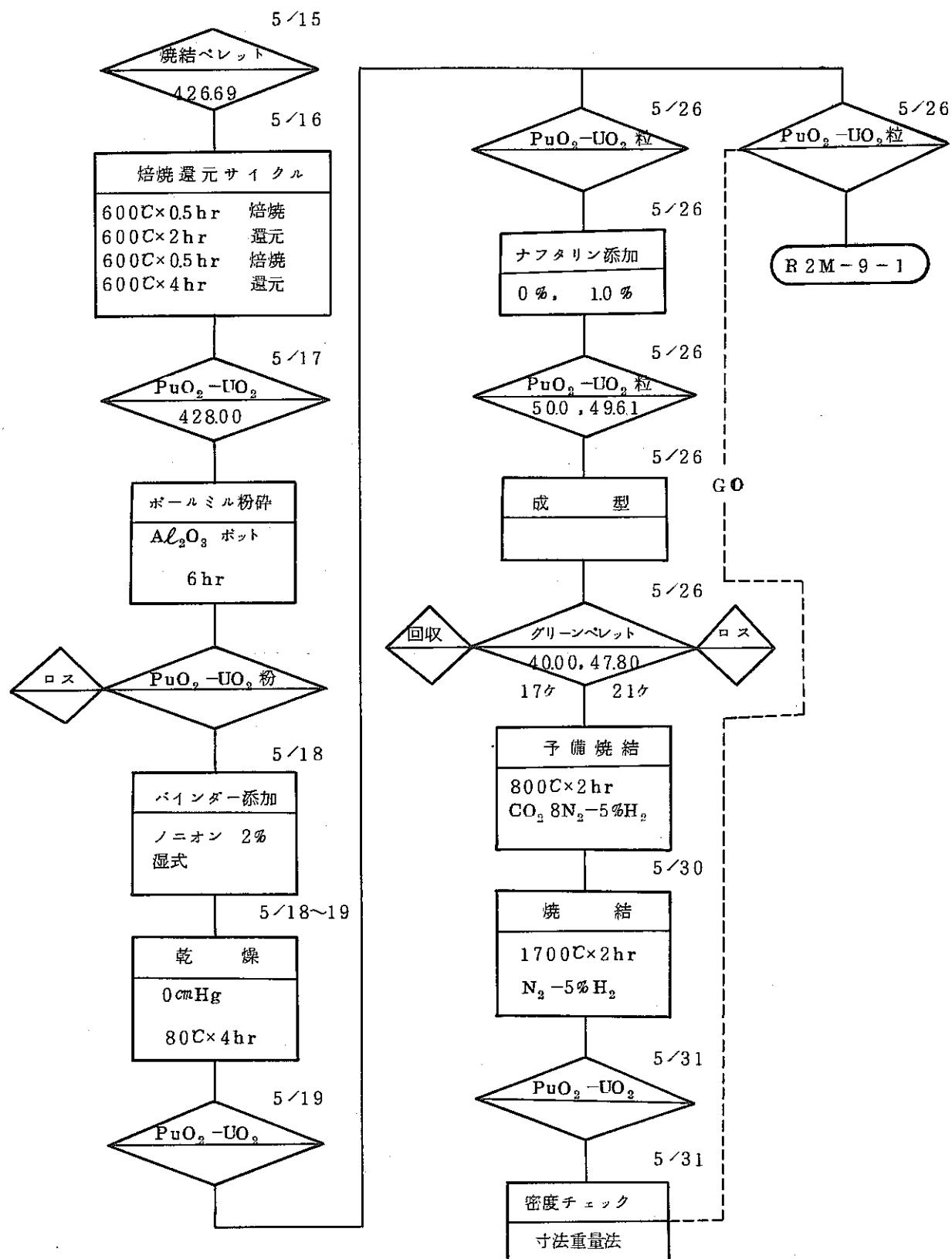
## Rapsodie II R2M-8-2



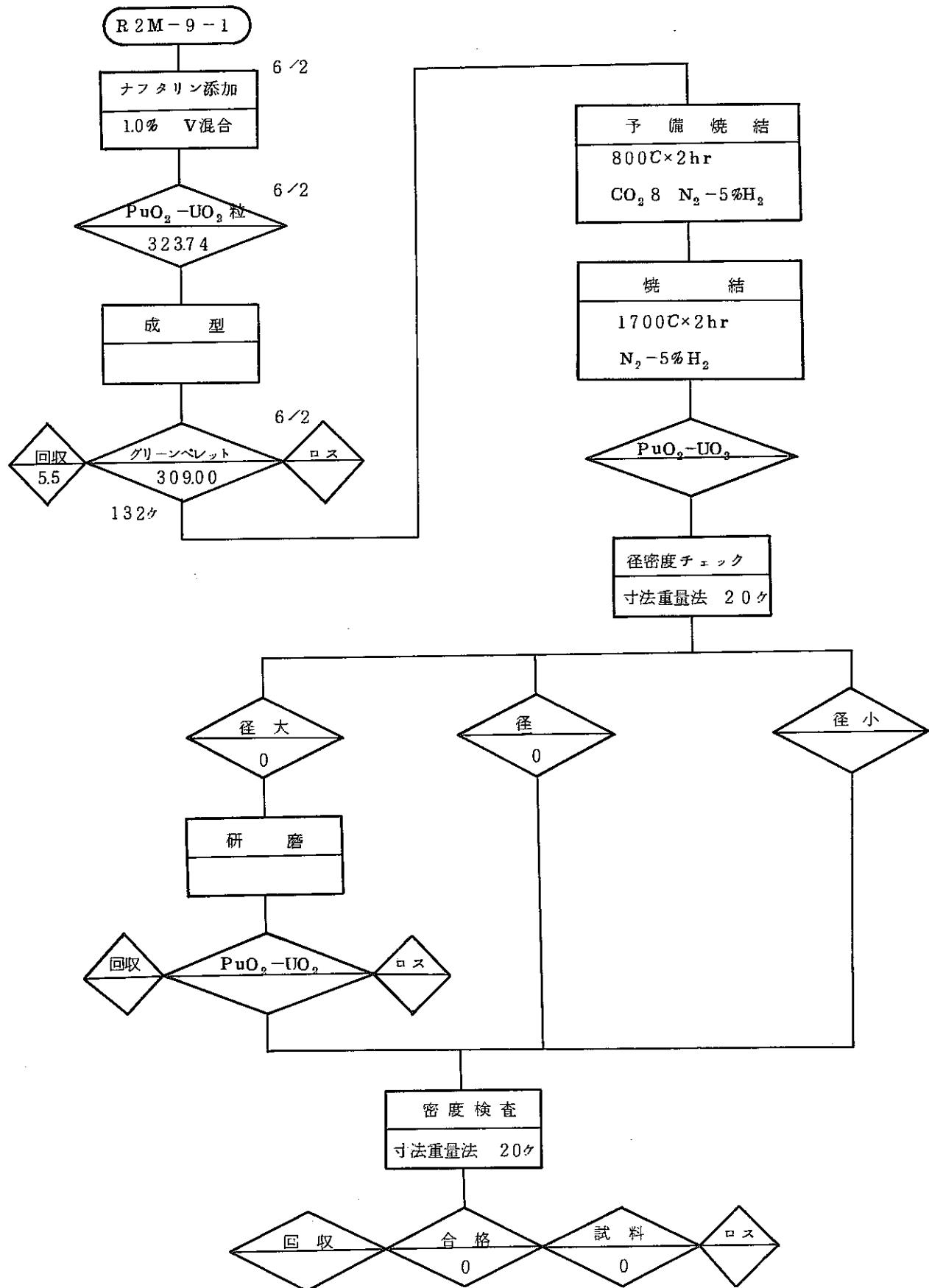
## Rapsodie II R 2 M - 8 - 3



## Rapsodie II R2M-9-1

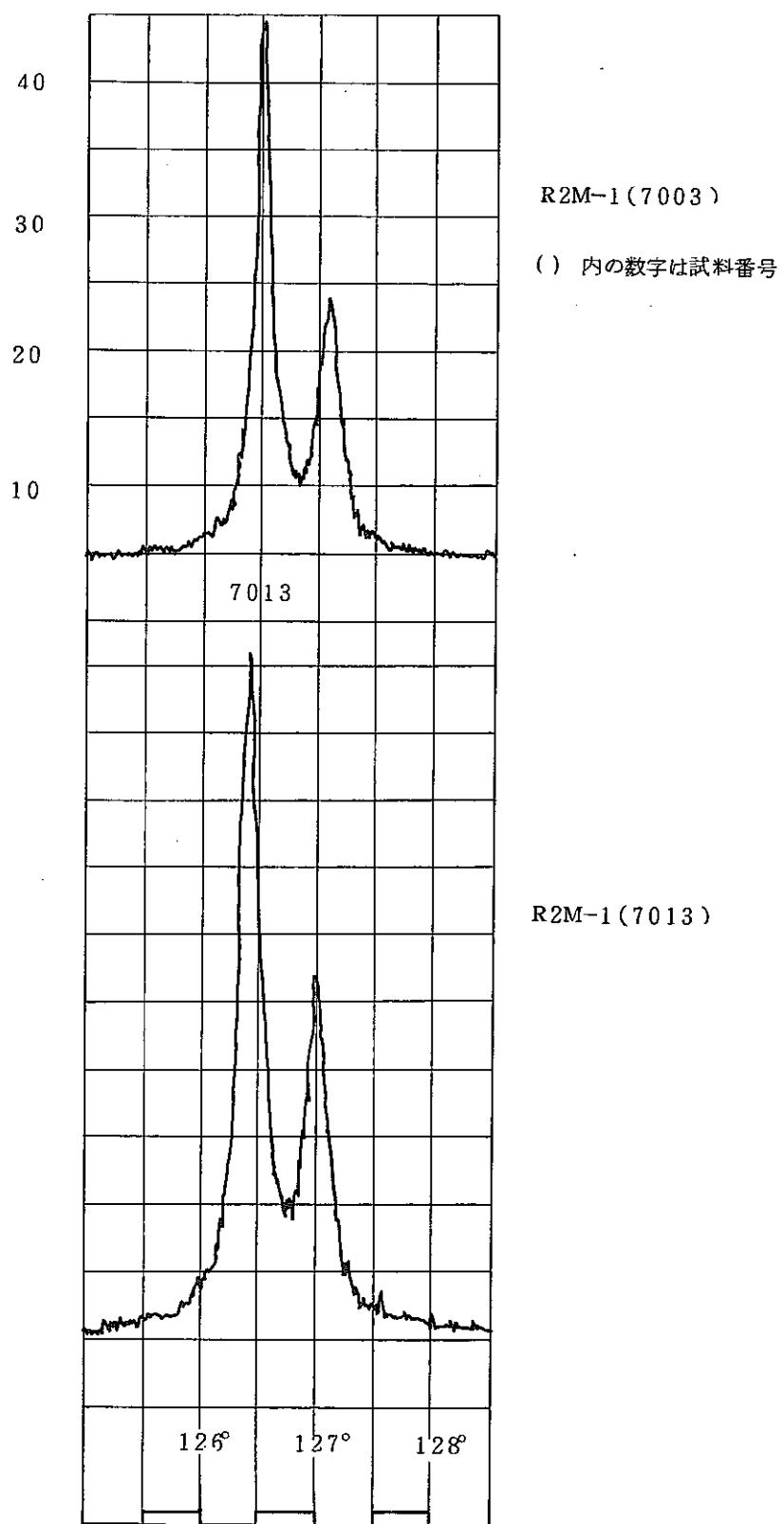


## Rapsodie II R 2M-9-2

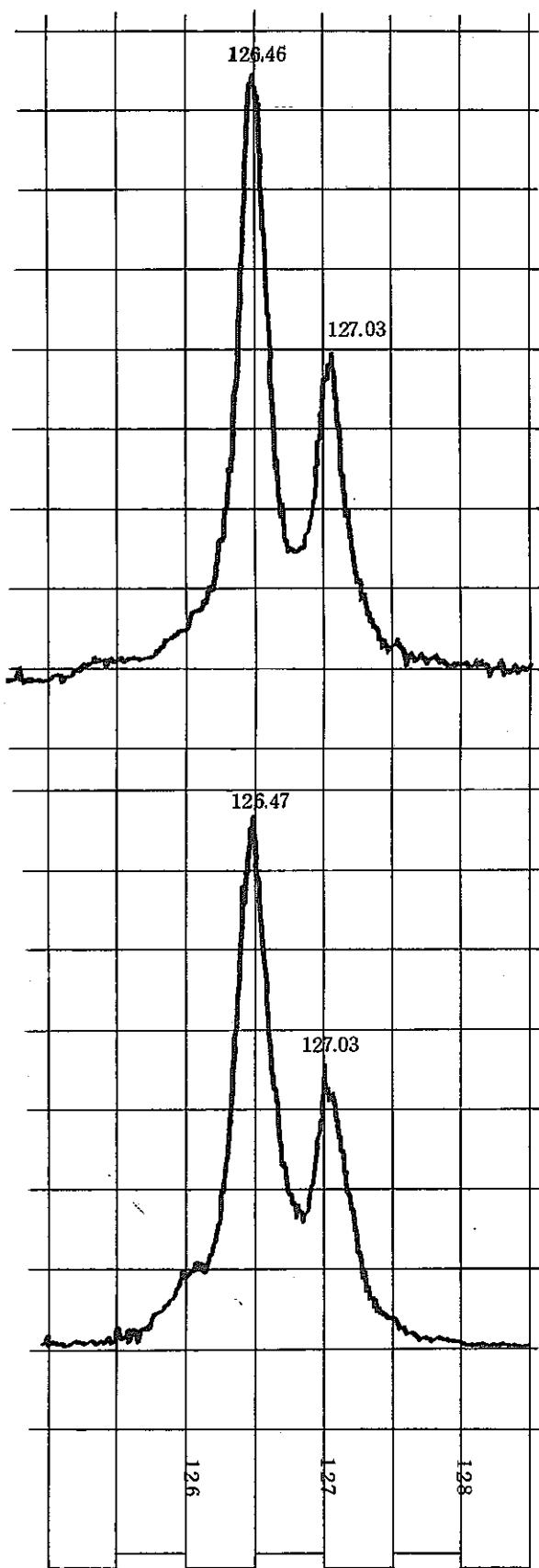


### 6.3 X線, 金相およびオートラジオグラフ観察

本番各製造ランで得られた焼結ペレットについてX線回析, オートラジオグラフ, 金相等の観察結果を第6.2図, 第6.3図, 第6.4図に各々示す。さらにこれらの結果をまとめたものを第6.1表に示す。



第6.2図 X線図折



R 2M - 2 (1601)

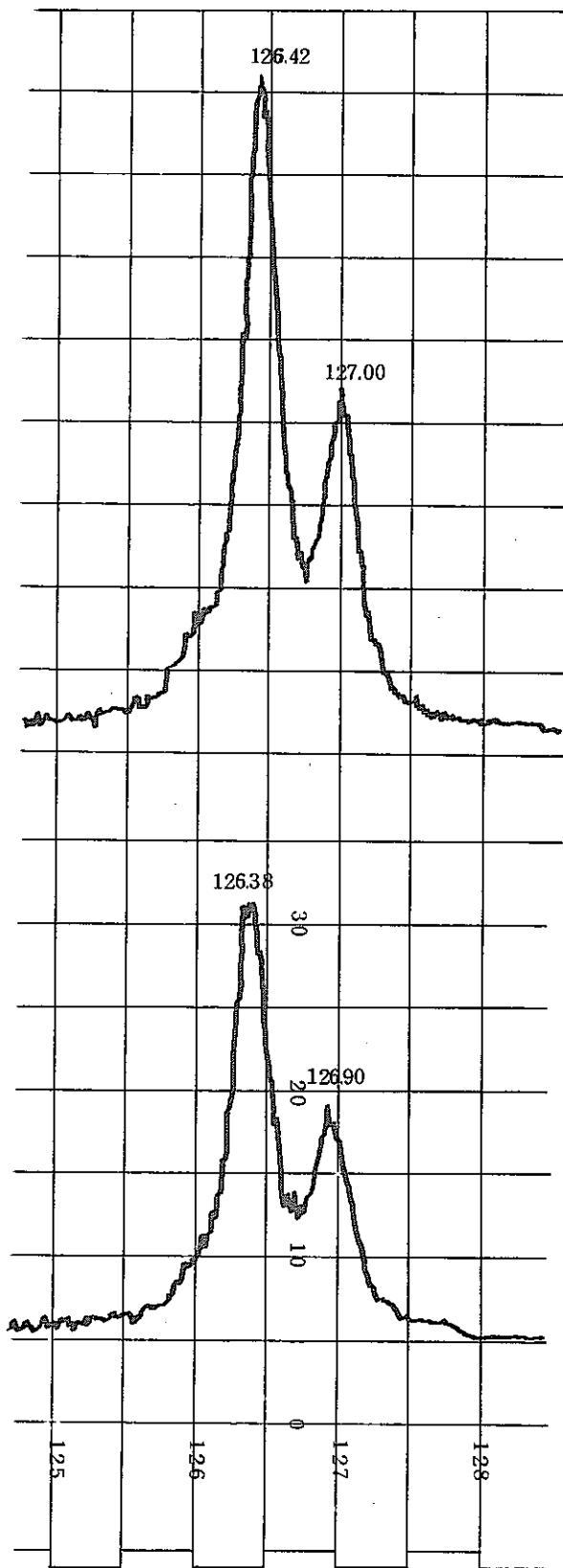
1650°C 烧结后

1600°C 再烧结

R 2M - 2 (1611)

1650°C 烧结后

1600°C 再烧结

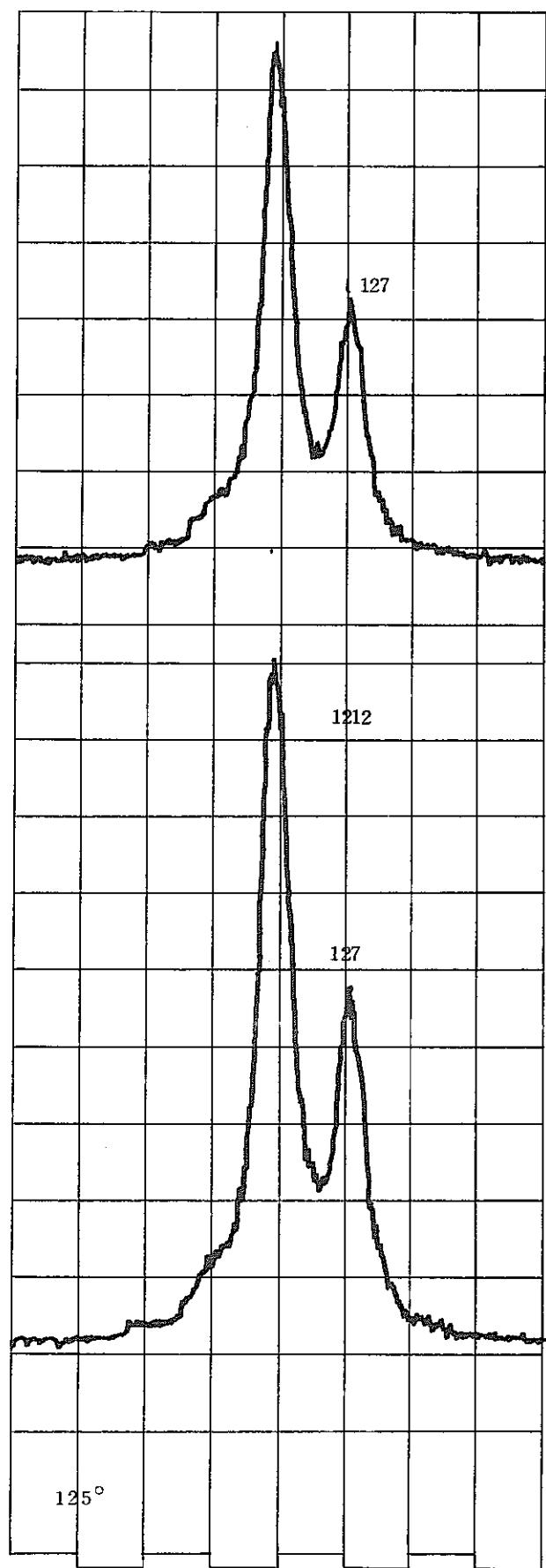


R 2 M - 3 (1402)

1700°C 焼結

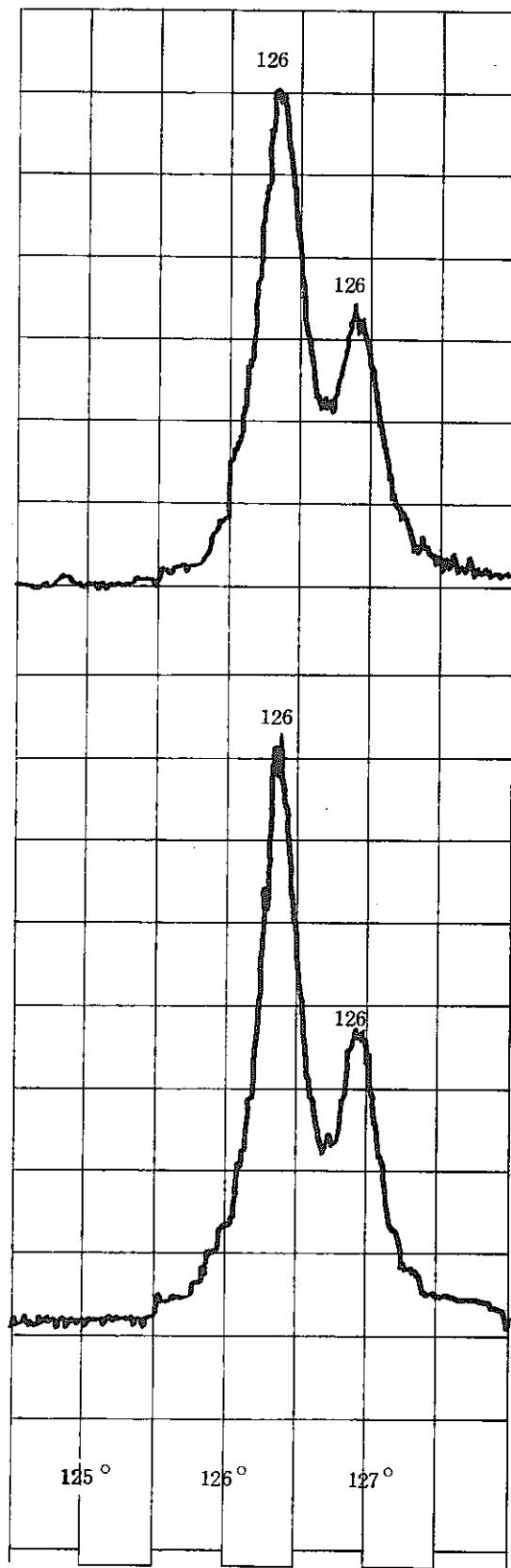
R 2 M - 3 (1412)

1700°C 焼結



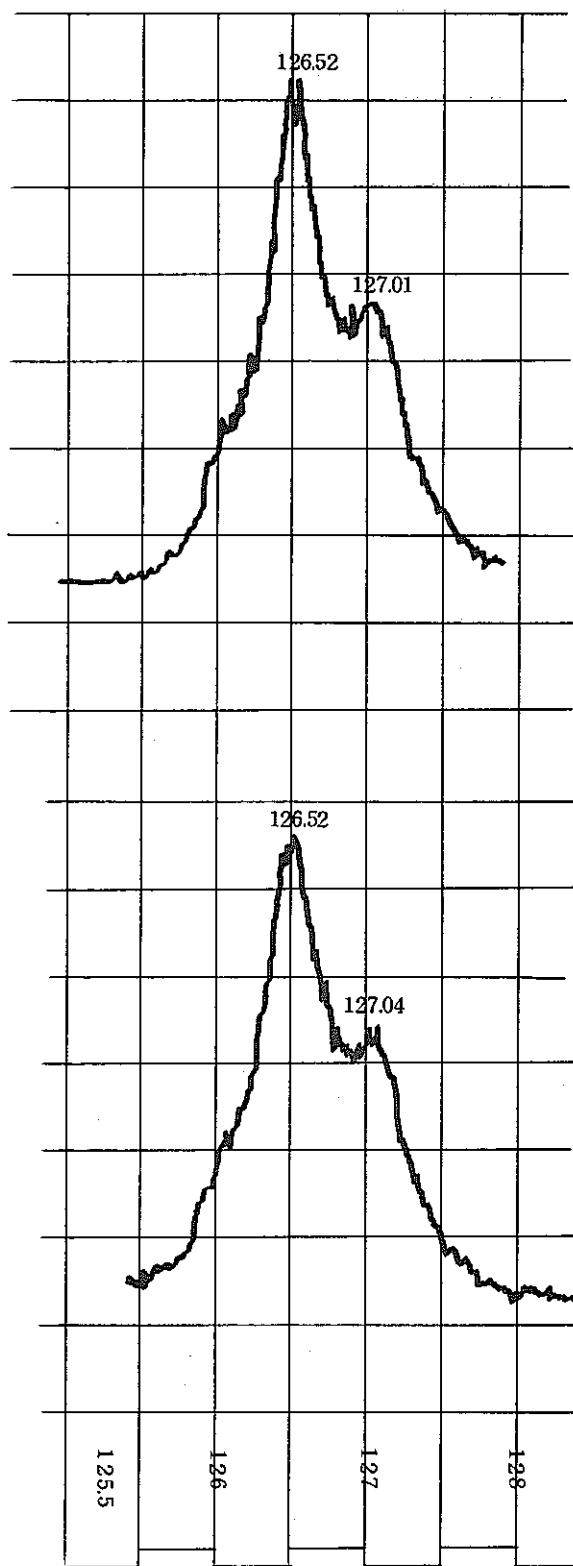
R2M4 (1202)

R2M4 (1212)



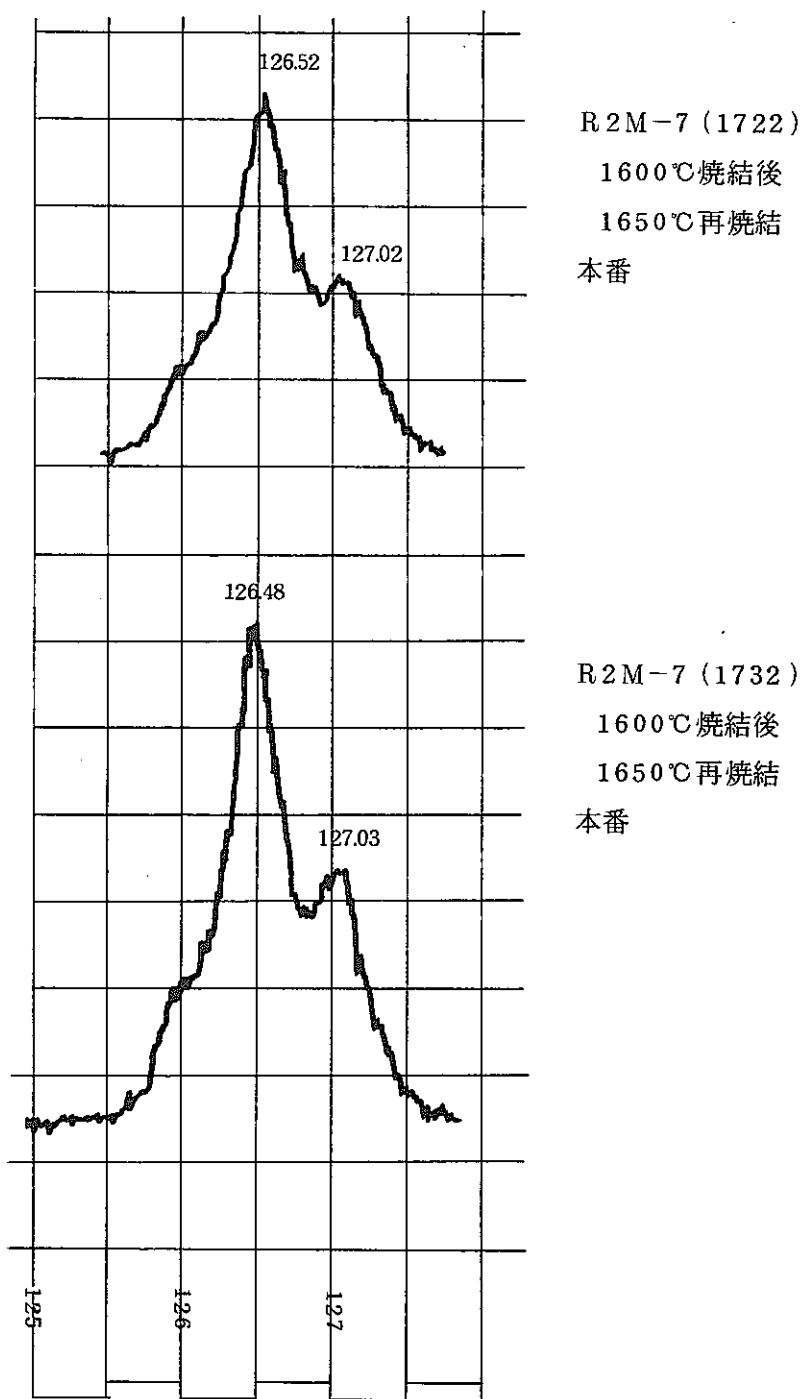
122M5 (1301)

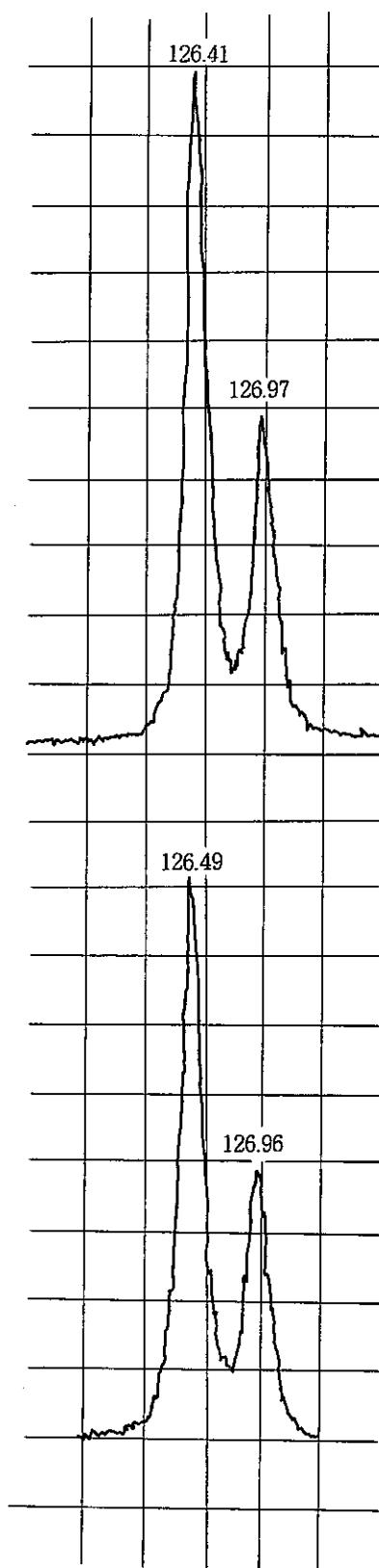
122M5 (1311)



R 2 M - 6 (1531)  
本番 1600°C 焼結

R 2 M - 6 (1541)  
本番 1600 °C 焼結



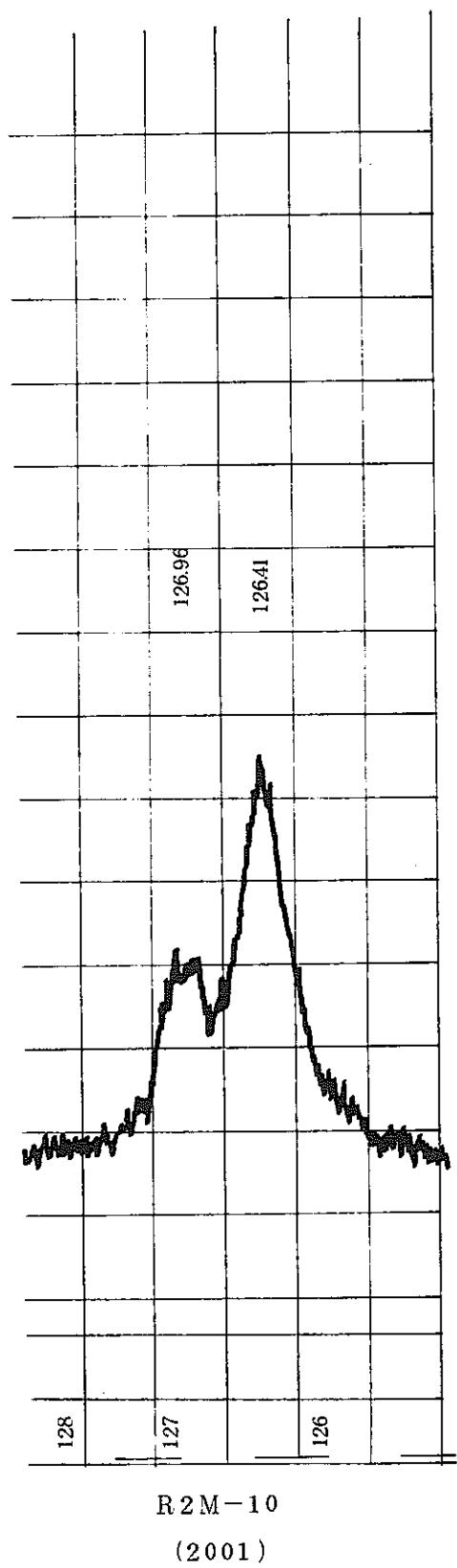


R2M-8 (1802)

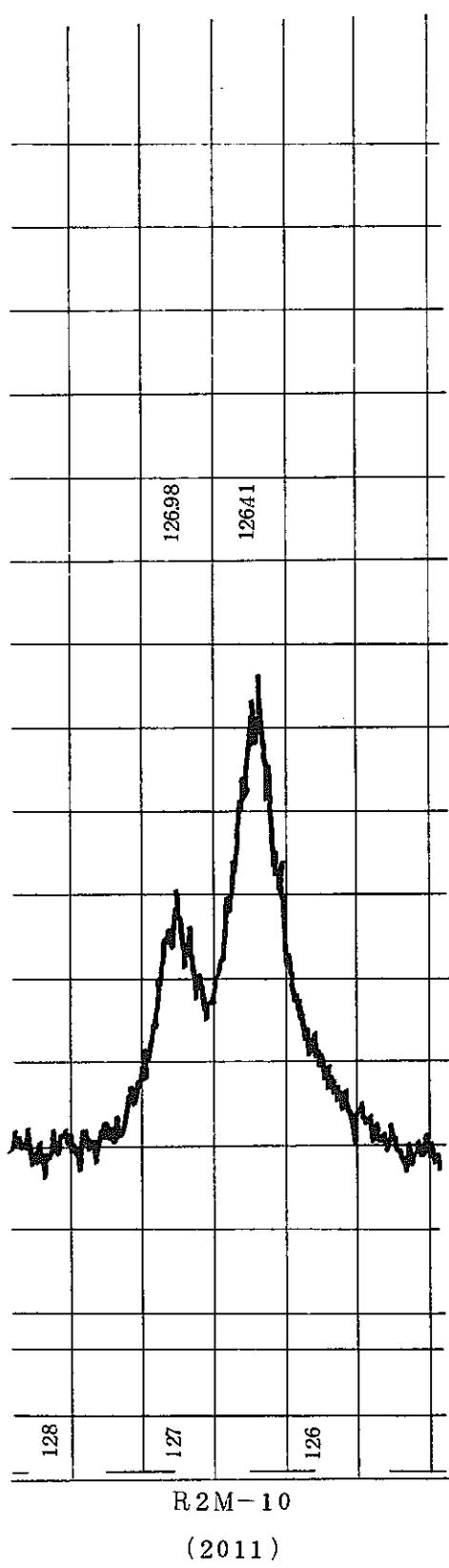
1700°C 烧结  
(1670)

R2M-8 (1812)

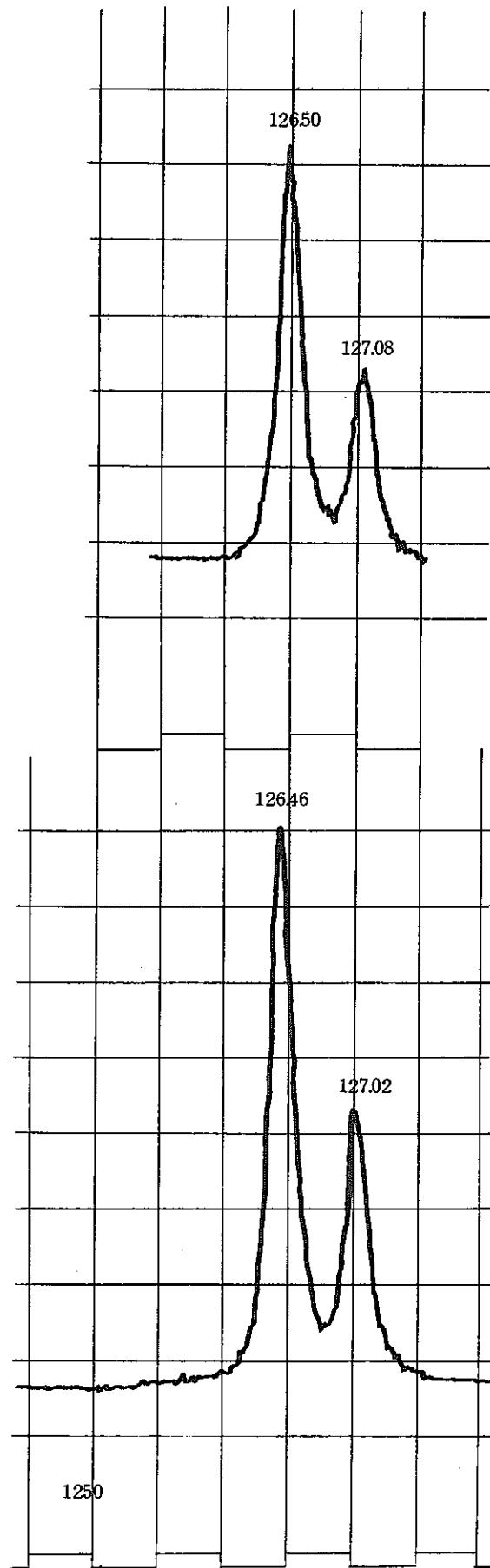
1700°C 烧结  
(1670)



R2M-10  
(2001)

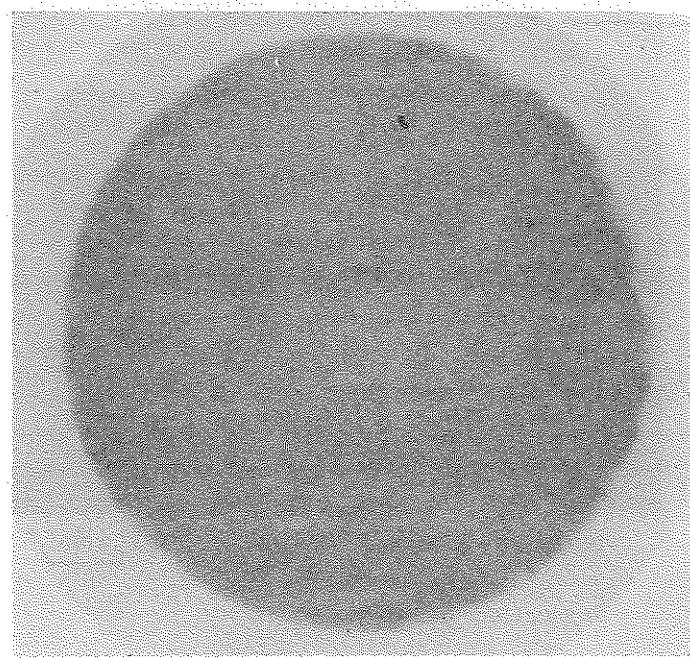


R2M-10  
(2011)



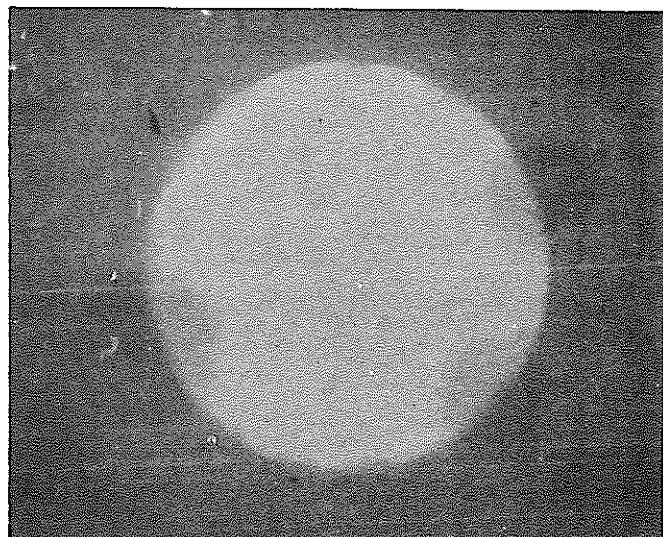
ZN841-74-21

R 2 M - 2



ZN841-74-21

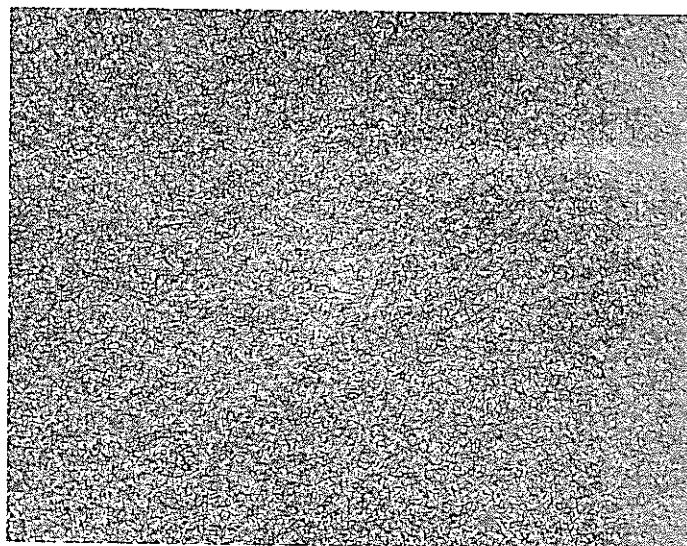
R 2 M 3 - 1412



PuO<sub>2</sub> sgot Nane

1 mm

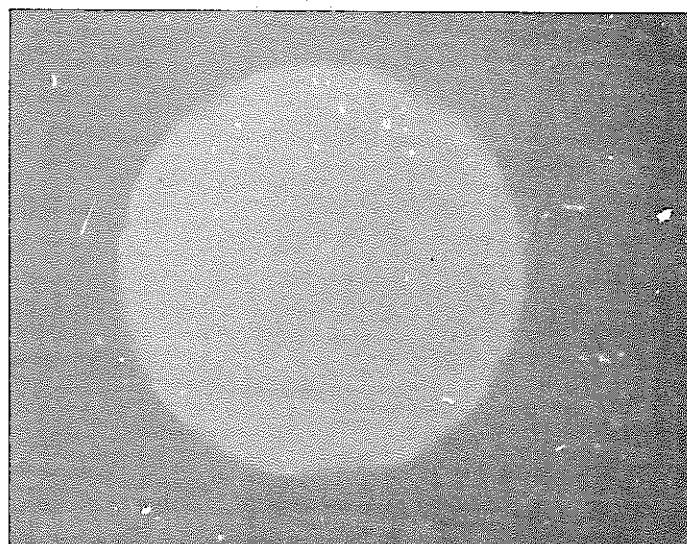
Seyegten of UO<sub>2</sub> Nane



100  $\mu$

ZN841-74-21

R 2 M 4 - 1202

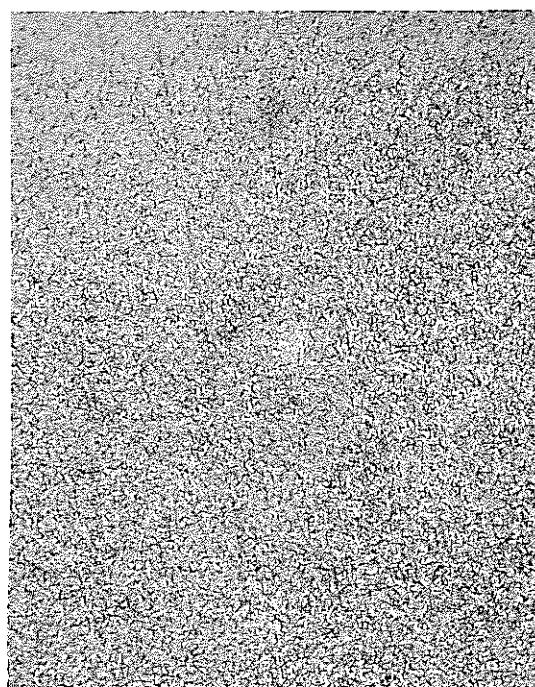
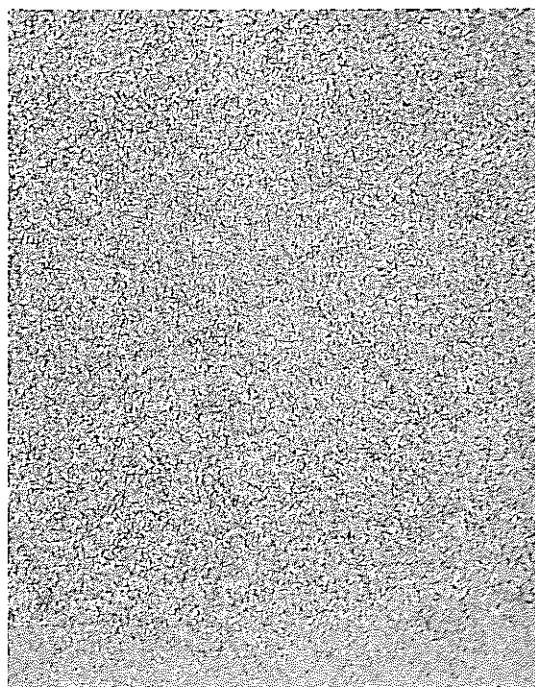


AP537

PuO<sub>2</sub> s y o t : N u n e

1 mm

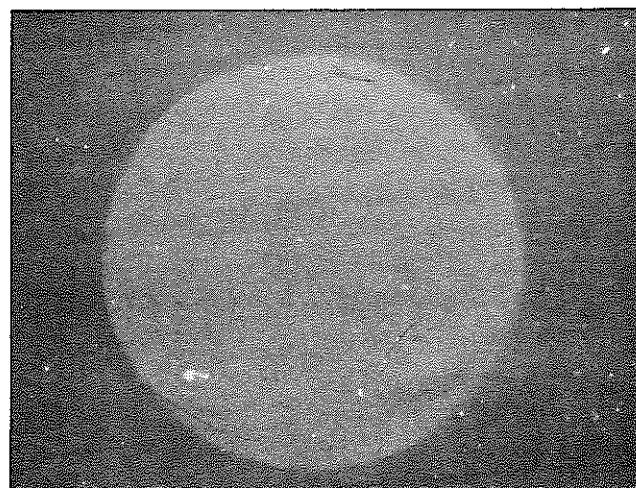
S e y e g a t i n o f U O<sub>2</sub> : N u n e



100  $\mu$

ZN841-74-21

R 2 M 1531

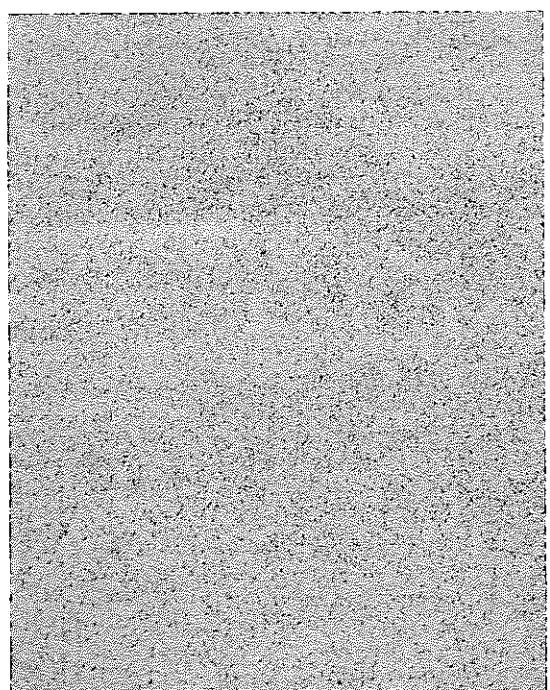
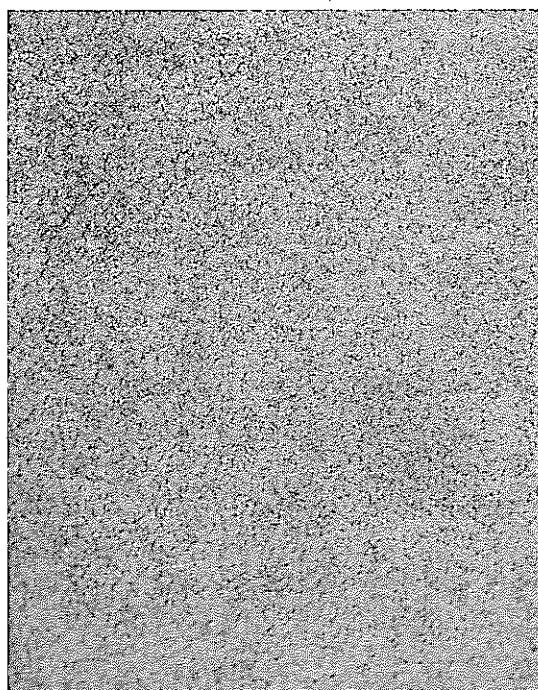


AP543

PuO<sub>2</sub> Syat : Nune

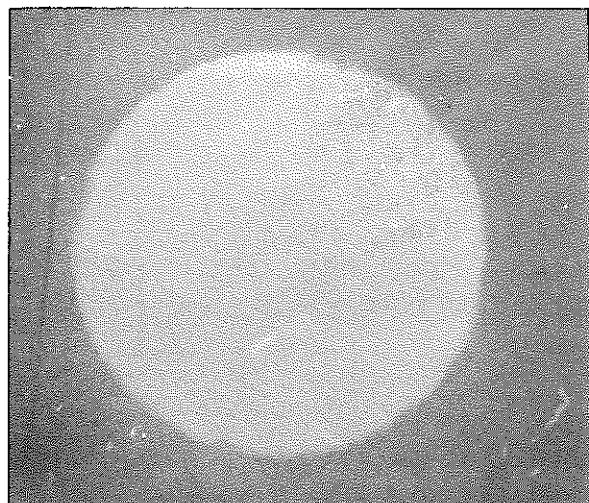
1mm

Seyegatin of UO<sub>2</sub> : Nune

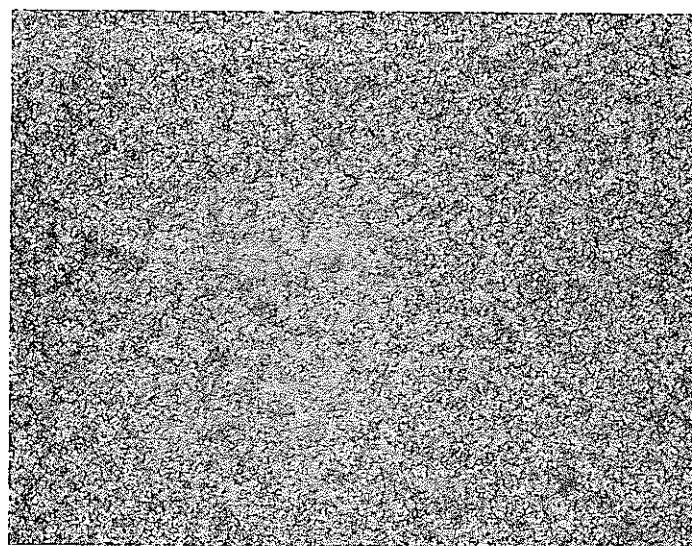


100μ

R 2 M - 8 (1812)



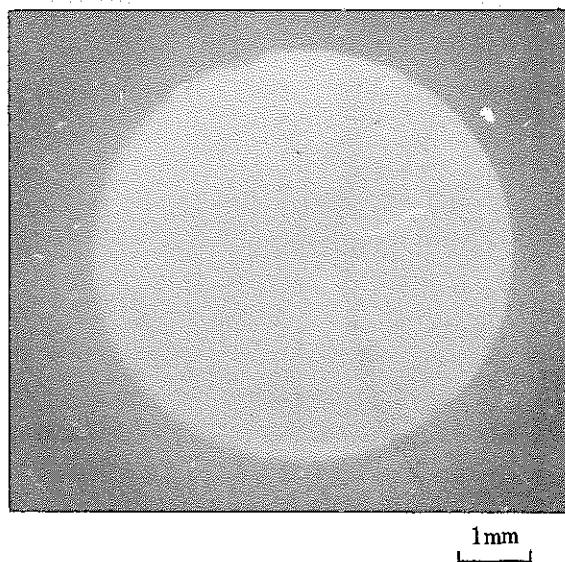
1 mm



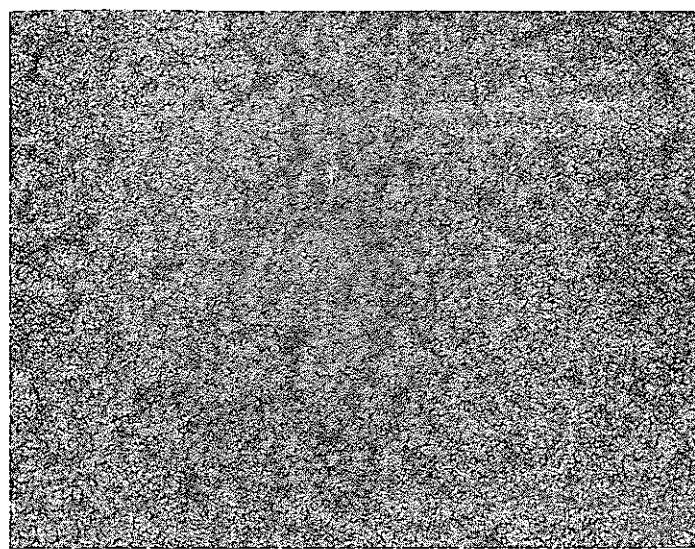
100  $\mu$

一般地 (General)

R 2 M - 11 (1902) (中心部)



1mm



一般地

100 $\mu$

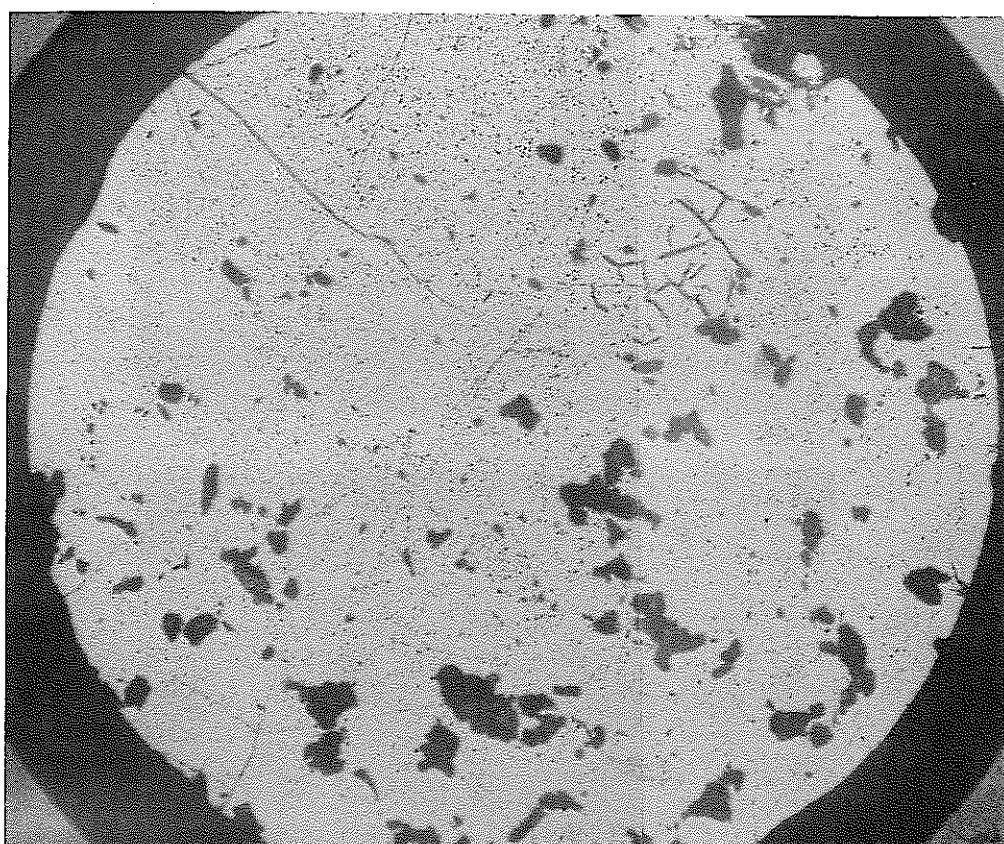
ZN841-74-21

R a p - II

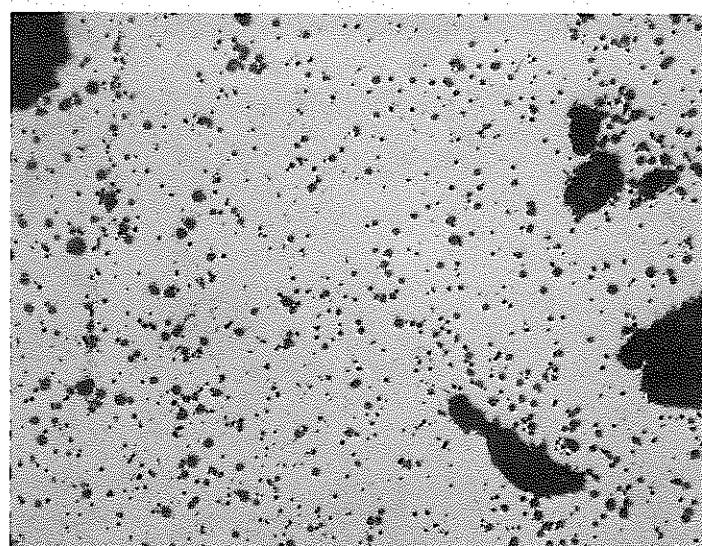
As Polished

R 2 M - 01

32P0225



500 $\mu$



MICRO

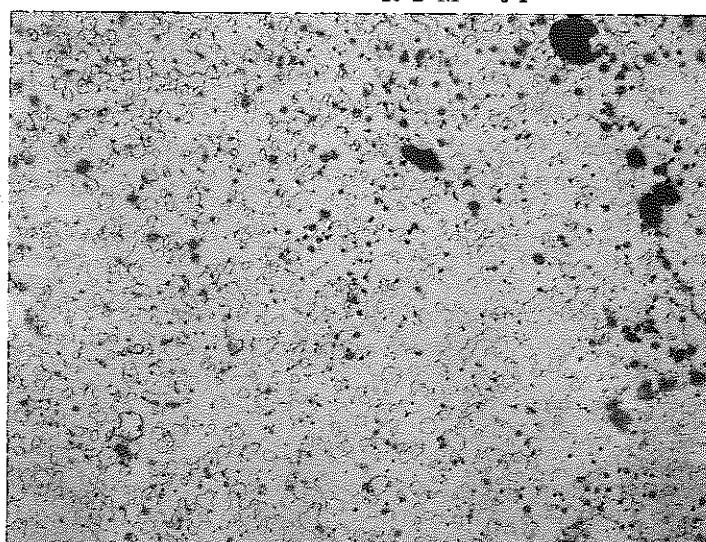
100 $\mu$

ZN841-74-21

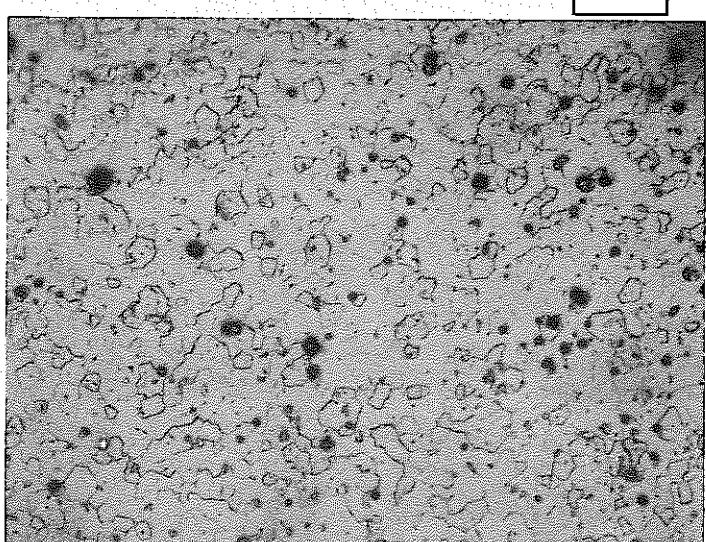
R a p - II

R 2 M - 01

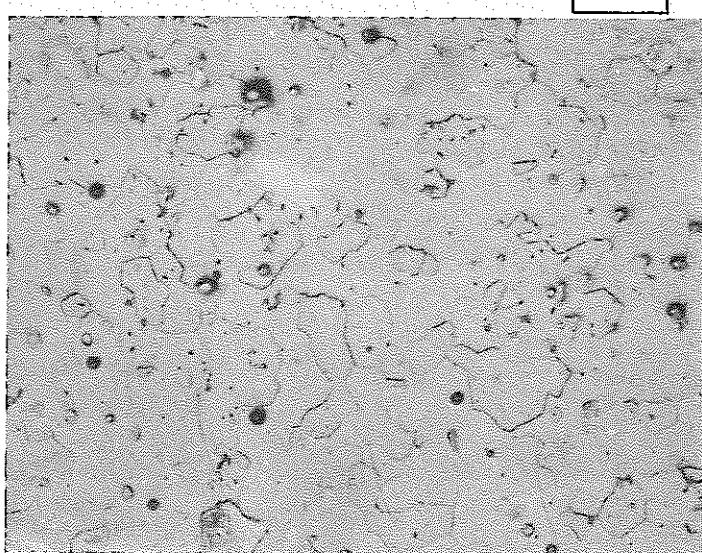
32P0225



100 $\mu$



50 $\mu$

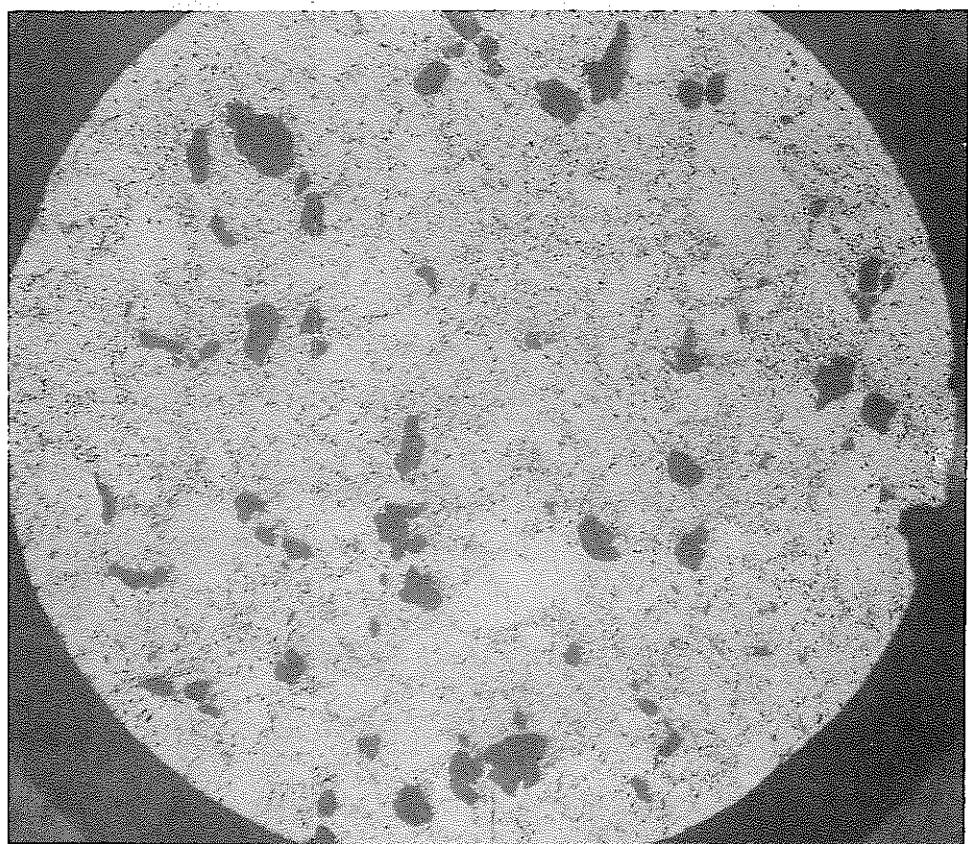


25 $\mu$

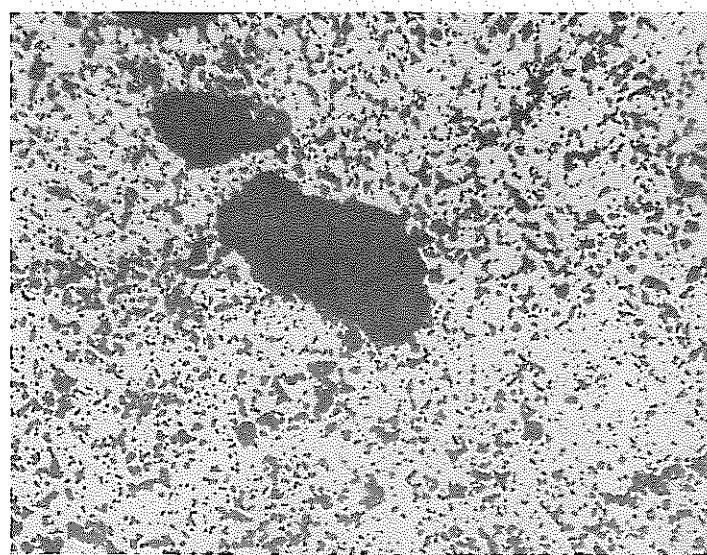
ZN841-74-21

R a p - 4

R 2 M - 2



500 $\mu$



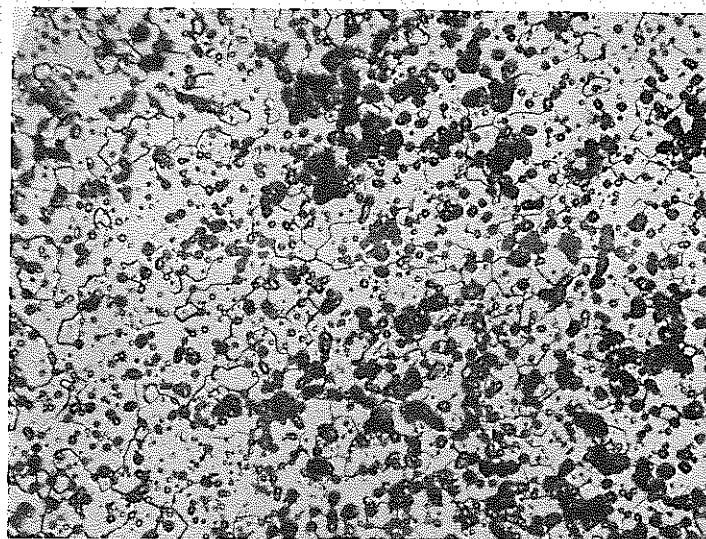
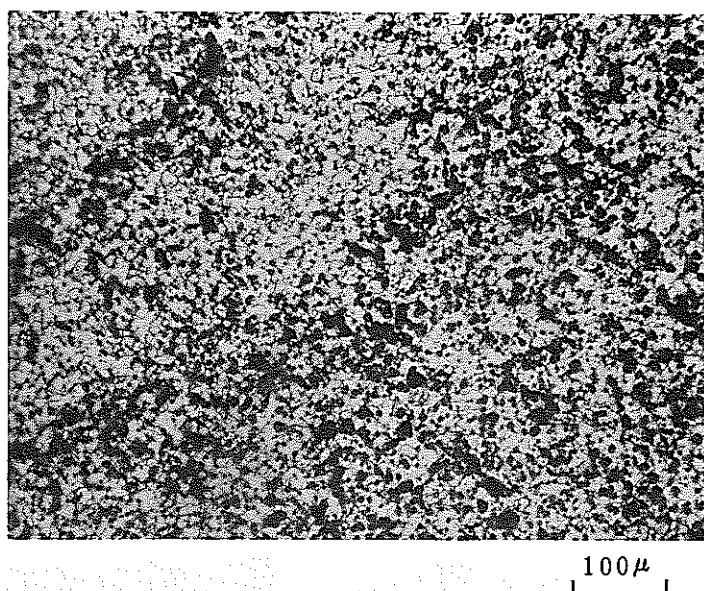
100 $\mu$

RM3201I

ZN841-74-21

As Etched

R 2 M - 2

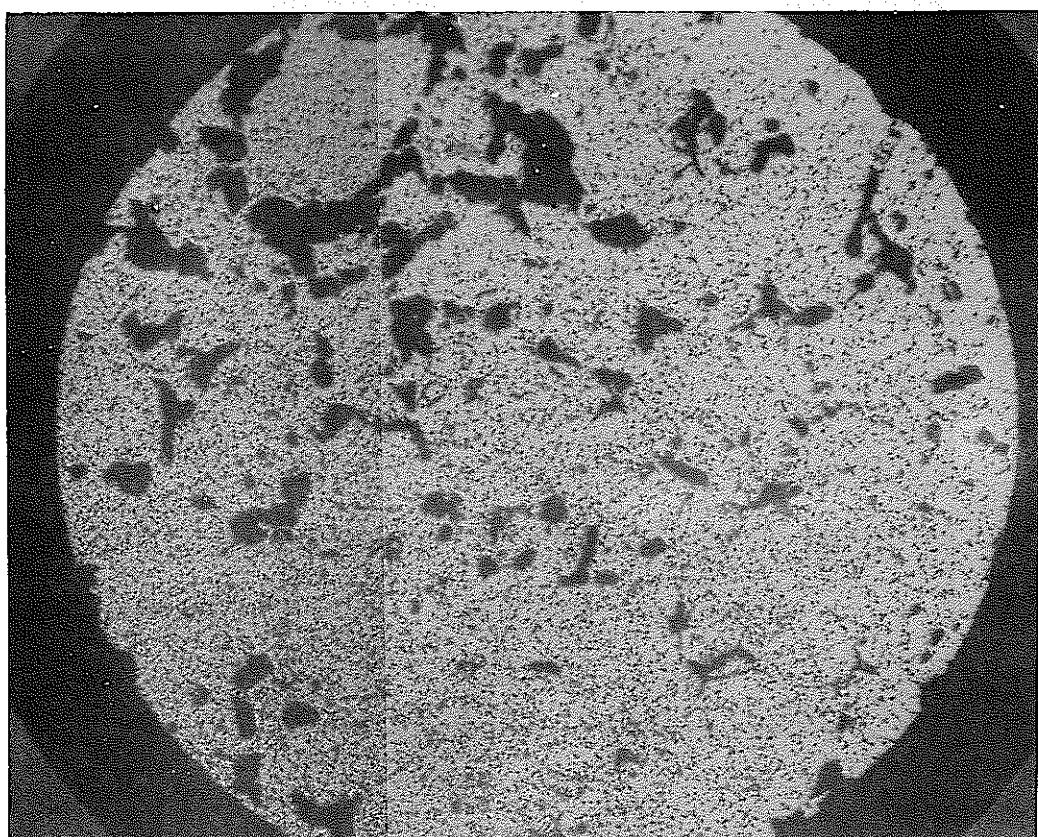


ZN841-74-21

R a p - II

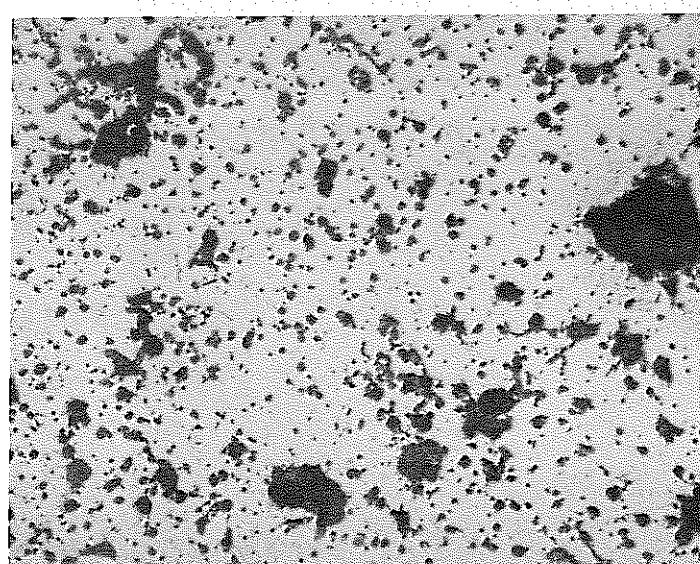
R2M-3

As Polished  
32P0227



MACRO

500 $\mu$

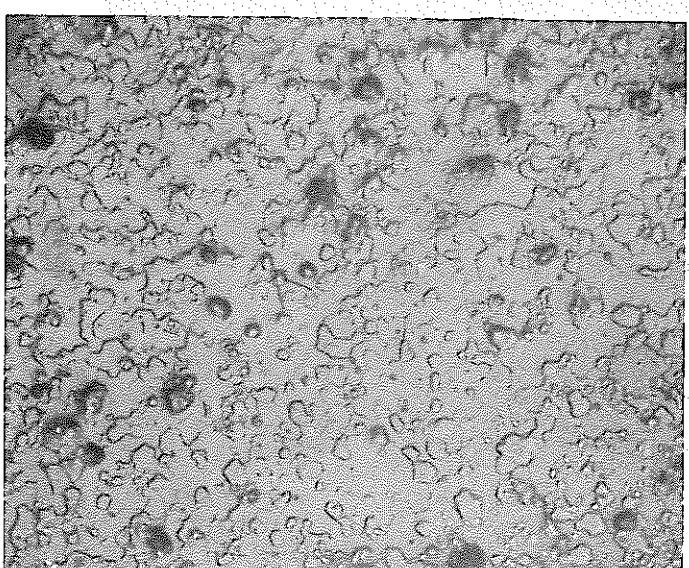
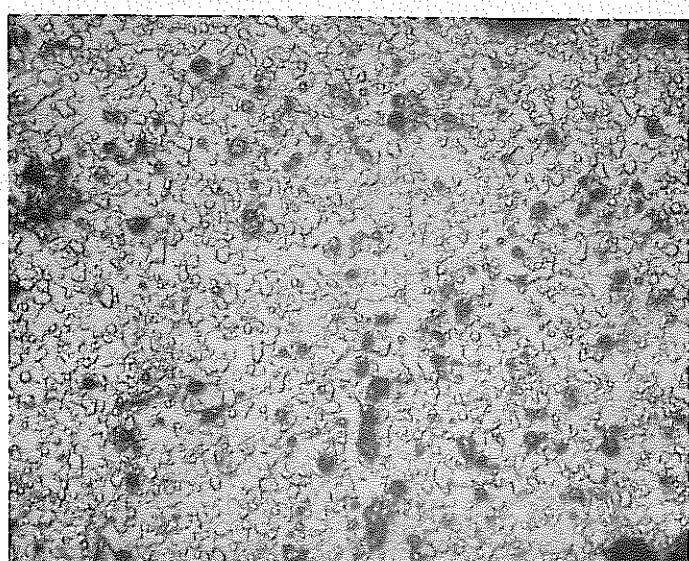
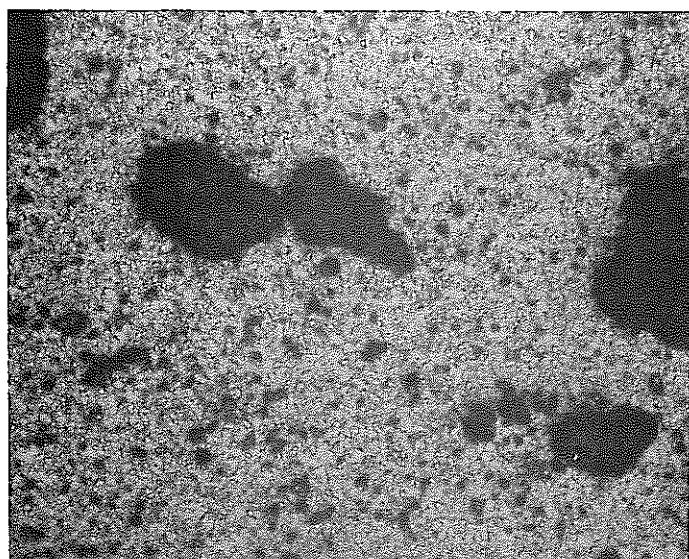


MICRO

100 $\mu$

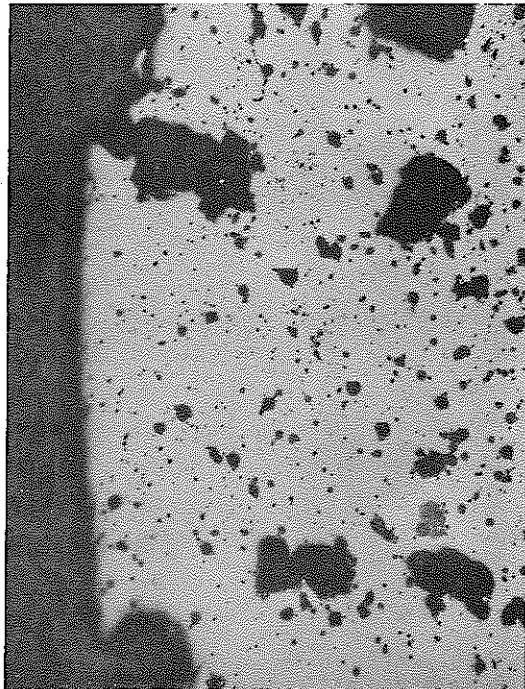
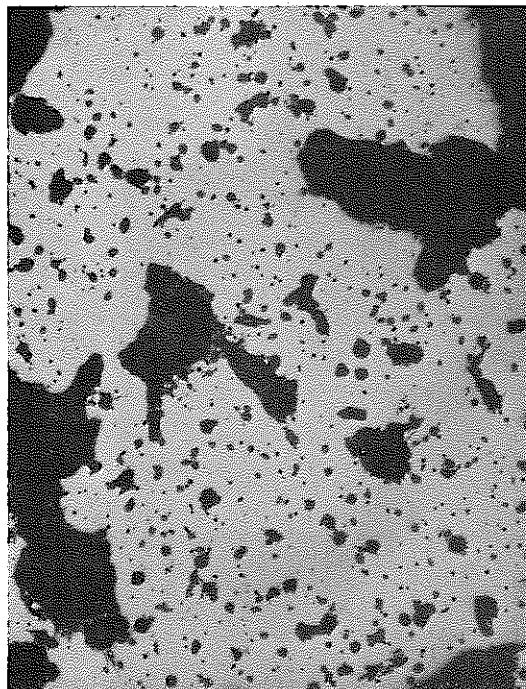
R a p - II

R 2 M - 3



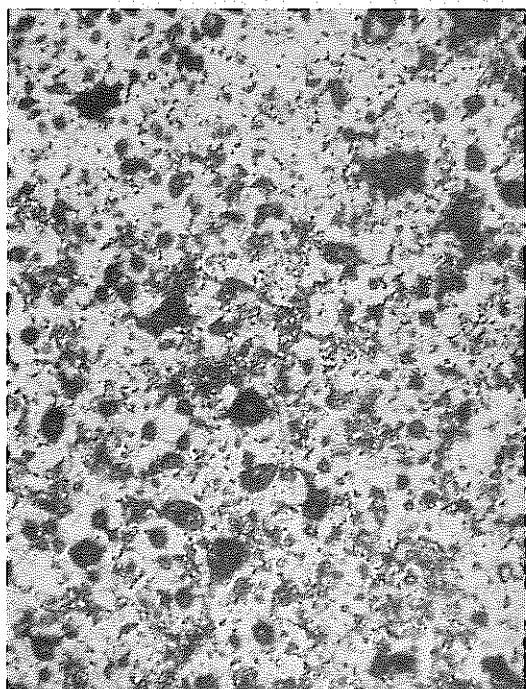
ZN841-74-21

R 2 M 4 ( 1212 )

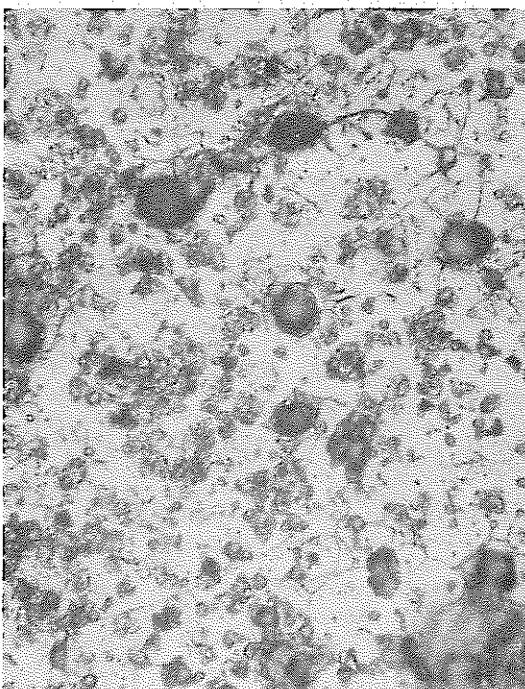


100 $\mu$

As Polished



50 $\mu$

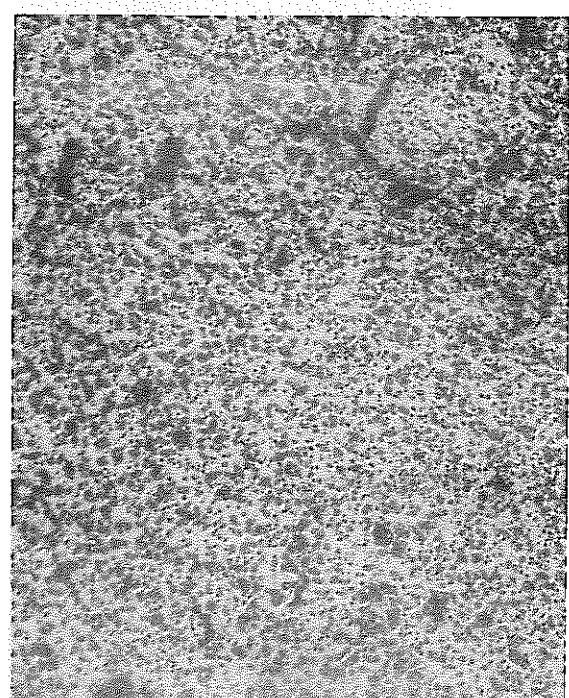
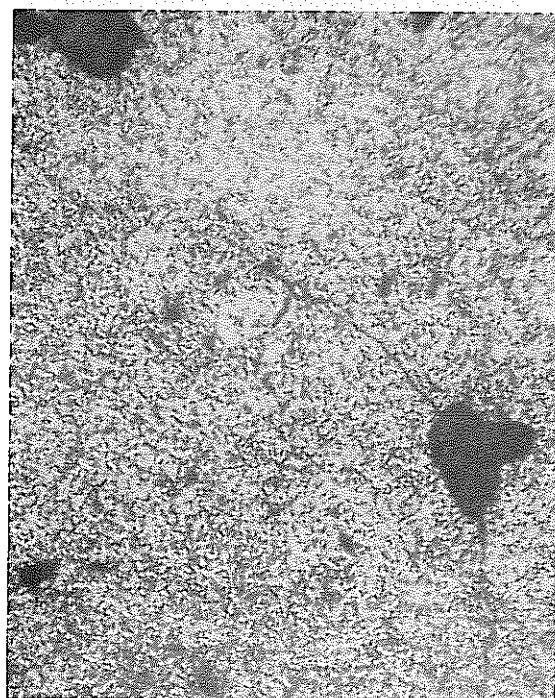
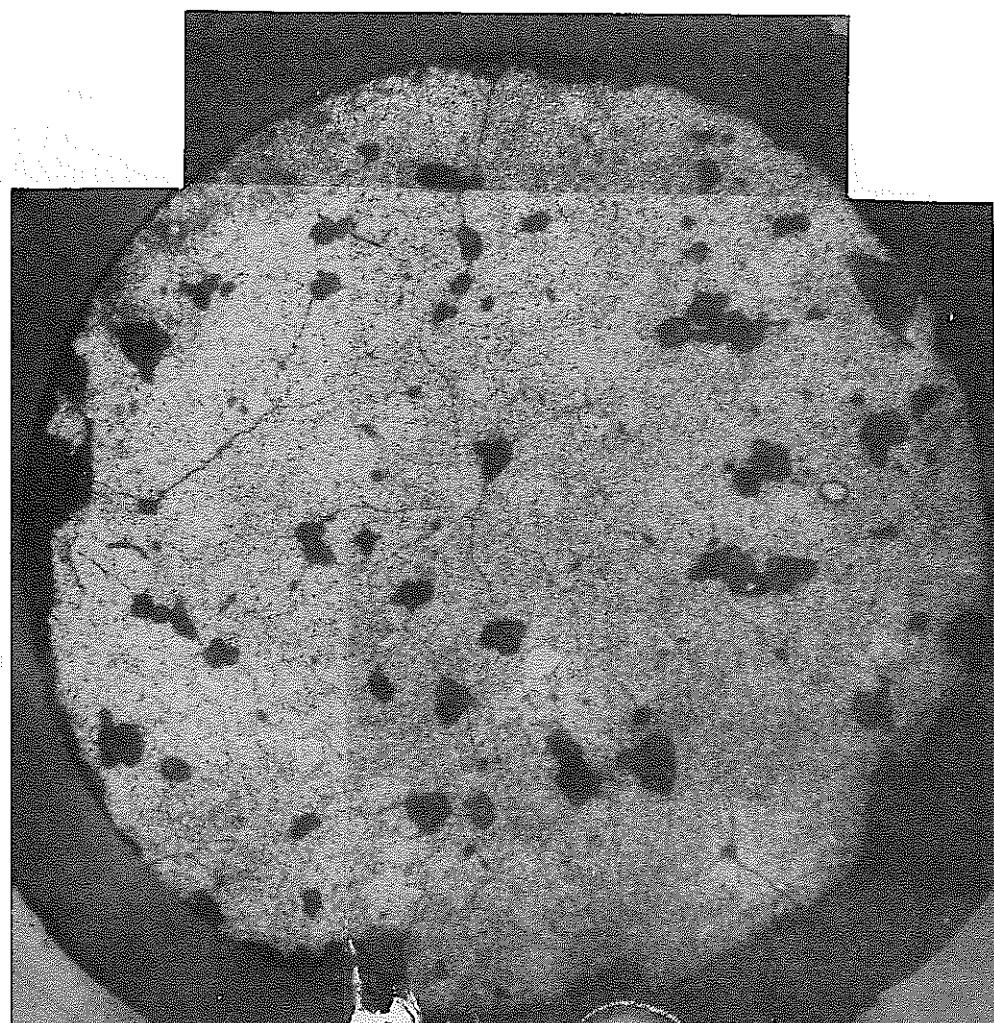


25 $\mu$

As Etched

ZN841-74-21

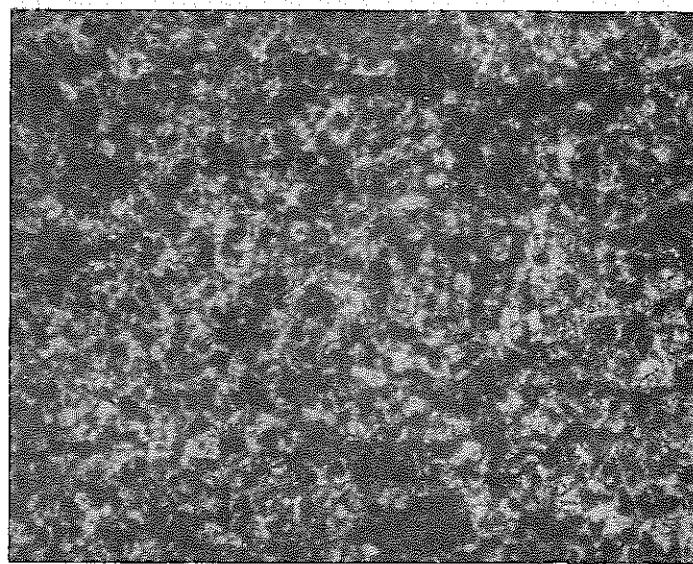
R 2 M - 8 ( 1802 )



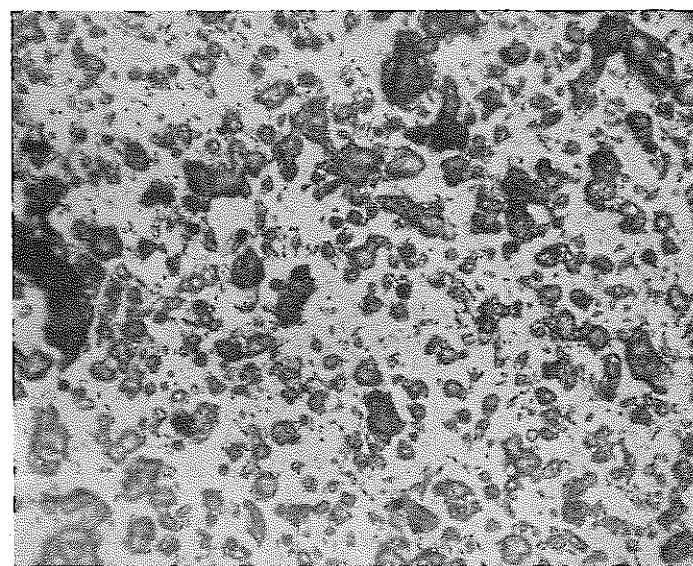
200  $\mu$

100  $\mu$

R 2 M - 8 ( 1802 )



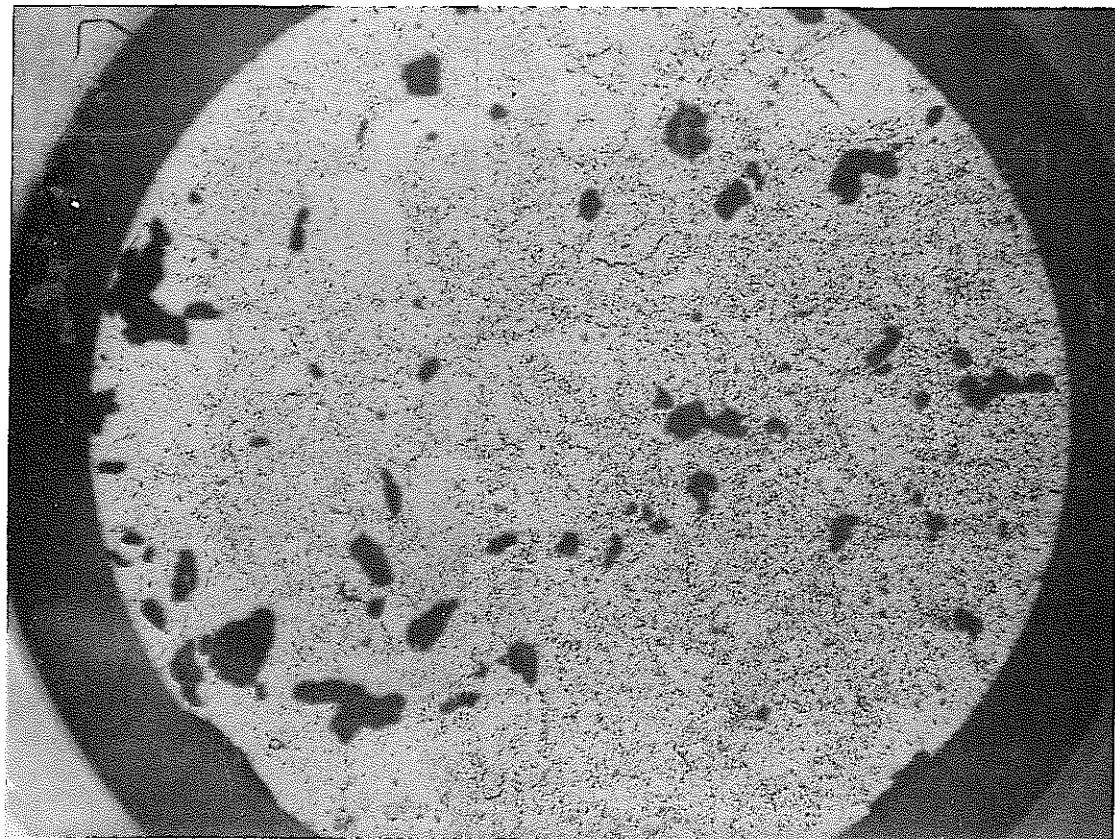
中心一般地



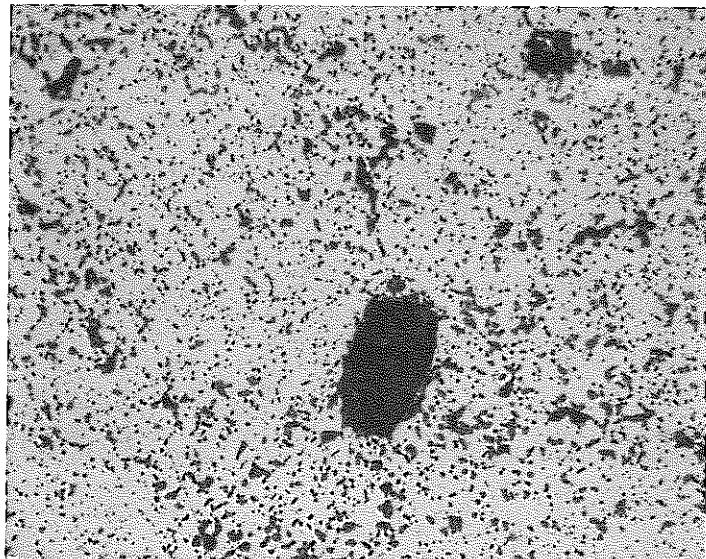
中心一般地

ZN841-74-21

R 2 M - 11 ( 1932 )



500  $\mu$

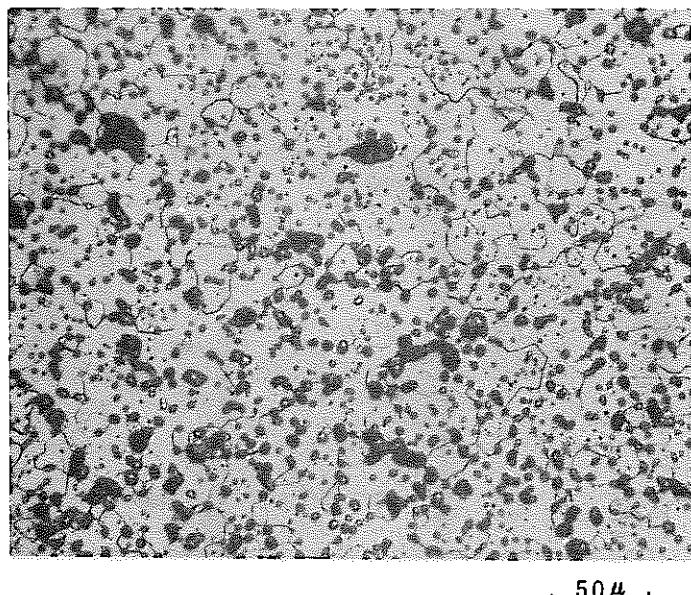
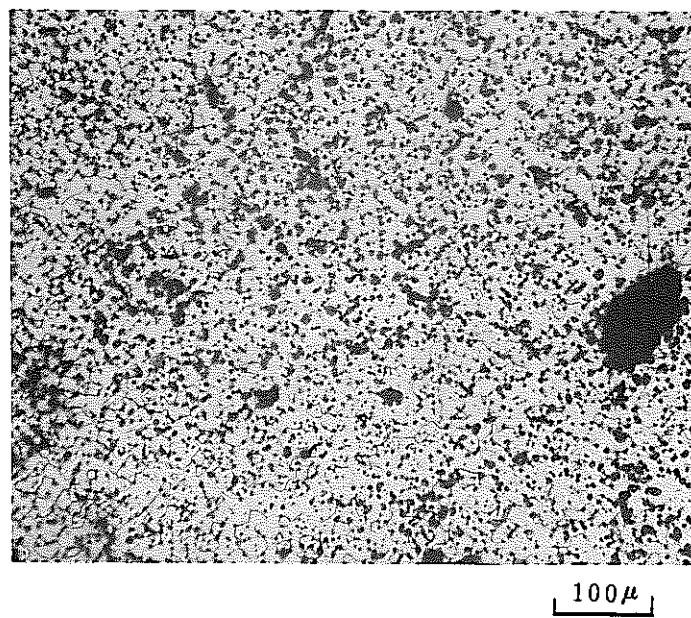


100  $\mu$

ZN841-74-21

R 2 M - 11

As Etched



## 第 6.1 金相, オートラジオグラフ, X線, 観察結果のまとめ

Lot	試料番号	金相			オートラジオグラフ hr UO <sub>2</sub> スポットスポート均一性 ランク	X線	
		クラック	ギイド	結晶粒		性 格子定数	
R2M-1	7003	小クラック有り	Min 400μ数ヶ	Max 25μ		100	5.4557
	7013					100	5.4583
R2M-2	1611	小クラック有り	Max 200μ数ヶ 端部小ギイド	Max 12 μ Av 2 μ 残存UO <sub>2</sub> 多し	なし なし A	95	5.4559
	1601	有り	Max 200μ数ヶ	Max 24 μ Av 12 μ	なし なし	95	5.4564
R2M-3	1412	小クラック有り	Max 400μ数ヶ 120μ多し	Max 8 μ Av 4 μ 残存UO <sub>2</sub> 少量あり	なし 良い A	95	5.4594
	1402	なし	Max 250μ数ヶ 100μ多し	Max 8 μ Av 5 μ 残存UO <sub>2</sub> 少量あり	なし 1ヶ 良い B	95	5.4573
R2M-4	1212	なし	150μ多し	Max 20 μ Av 10 μ	良い A	90~95	5.4564
	1202	貫通クラック	400 μ多し	Max 30 μ Av 14 μ	なし 1ヶ 良い B	95	5.4563
R2M-5	1311	微小クラック多 い	300 μ多し	残存UO <sub>2</sub> 多く 粒径測定不能		95	5.4589
	1301	端部にクラック	Max 250μ数ヶ	残存UO <sub>2</sub> 多く 測定不能		95	5.4593
R2M-6	1541	微小クラック少 し有り	Max μ数ヶ 小ボイド多し	" Pu-Ncl荷有り	なし 良い A	90~95	5.4563
	1531	微小クラック少 し有り	Max 350μ数ヶ	" Pu-Ncl荷有り	なし 良い A	90~95	5.4562
R2M-7	1722	小クラック	230 μ 数ヶ	Pu-Ncl荷有り 焼却性高し		90~85	5.4552
	1732	なし	240 μ 数ヶ	残存UO <sub>2</sub> Pu-Ncl		90~85	5.4580
R2M-8	1812	端部まわりに アークあり	400~500μ 10ヶ 跡有り	"	なし なし A	95	5.4581
	1802	細クラック全面	500 μ 10ヶ	残存UO <sub>2</sub> 多く 測定不能	なし なし A	95	5.4587
RM-9					A		
R2M-10	2501	なし	190 μ 不均一	5 μ	なし なし A	95	
	2011	貫通	190 μ 不均一	5 μ	なし なし A	95	5.4606
R2M-11	1922	100 μ 2本	800 μ 2ヶ 560 μ 5ヶ 粒		A		
	1932	なし	~ μ 6ヶ 粒	Ar	なし なし A		
"	1902	端部4本の クラック	500 μ 7ヶ	残存UO <sub>2</sub> 多し	なし なし A	100	
	1912	なし	300 μ 6ヶ		なし 1ヶ B	100	5.4570

#### 6.4 ペレット製造のまとめ

6.2でのべた製造経過と焼結ペレットの性質等をまとめると第6.2表と第6.3表に示す様になる。これらの結果から次の様なことが云えよう。

(i) 合格ペレットを出したロットでもペレットの密度径のバラツキが多く、使用粉末に対して $\frac{1}{2} \sim \frac{2}{5}$ 程度の量の合格ペレットしか得られなかつた。

この原因としては密度調整材として使用したナフタリンの添加が不均一であったことが考えられる。ナフタリンの添加を均一にするには乾式造粒を考える必要があろう。

(ii) 全部が不合格になったロットがあるが、これは先行テストと本番では焼結ペレットの密度、径が大きく違ってしまったからである。この原因としては先行テストの量が50~70gと非常に小さく、混合粉碎等の効果が本番と異なったことや、本番がナフタリン添加後少し長時間放置しておこなった場合のナフタリンの揮発減少があったことも考えられる。

(iii) R2M-6, R2M-7の様に原料粉末の混合が簡単で、焼結温度が低いと固溶度が90%以下と良くない。

(iv) ペレットの金相状態はあまり良好でなく①ボイドの分布が均一でなく200~400μの大きなボイドが不均一に分散し、若干のクラックや造粒跡が見られる。結晶粒の成長は小さく最大25μ程度(湿式ボールミル混合のR2M-01の場合)である。

(v) オートラジオグラフの結果ではPuスポットは認められず、その面から見たPu分布の均一性は良好で問題は無い。

(vi) 固溶度と格子定数の間には特別な関係は認められず、いずれのロットの格子定数も5.456~5.459Åの間にあった。

なお、固溶度については製品としてピン加工に使用すること決定した。R2M-2, R2M-3, R2M-4, R2M-8, R2M-11について計算により解析をおこない第6.4表の様な結果を得た。

第6.4表 固溶度の解析

ロット		R2M-2	R2M-3	R2M-4	R2M-8	R2M-11
ピーク観察	UO <sub>2</sub> 相	5%前後	5%前後	10~5%	5%以下	0%
計算解析	UO <sub>2</sub> 相	3.8%	3.0%	2.3%	0%	0%
	UO <sub>2</sub> -5%PuO <sub>2</sub> 相	8.4%	7.8%	6.2%	0.1%以下	0%

#### VI) 焼結ペレットの化学分析の結果より

① Pu% U<sup>235</sup>濃度は仕様を満足し、90% EUO<sub>2</sub>, NUO<sub>2</sub>, PuO<sub>2</sub>の三元素混合で計算通りにほぼ混合された。

ロ O/M 値も仕様を満足しているが R2M-3 では 1.96 の低い値が出た。他は大体 1.98 である。R2M-3 が低く出たのは良く理解出来ぬが、予焼の条件が何か違っていてカーボンが多く残り、カーボン還元が起ったのかが残留カーボンと云えば R2M-3 では最初多かって再加熱処理したのであるが O/M は低くはない。

ハ 水分は R2M-9, R2M-10 を除けば  $50 \mu\text{L/g}$  以下、これは  $700^{\circ}\text{C}, \sim 10^{-5} \text{ Torr}$ , 1 hr 加熱脱ガス処理後には  $< 10 \mu\text{L/g}$  以下と低下した。

ニ 放出ガス量はやはり R2M-9, R2M-10 を除けば  $150 \mu\text{L/g}$  以下で、大体 40~ $100 \mu\text{L/g}$  である。このガス量はハの脱ガス処理しても大して変らなかった。一般に放出ガス量の多いロットのペレットは金相的に見て結晶粒の発達が小さく、金相写真もきたない。微細粒間に包蔵されたガスが多いものと思われる。

ホ 不純物元素に関しては R2M-4 のは Cl が多く出たが、これは分析側のミスと判明、最終的には  $< 25$  となった。

Fe, Cr が多いものは SUS ポット、ボールでボールミルしたためである。他は特に問題なく仕様を満足した。

第6.2表 ペレット焼結条件と物理観察

ロット	ロットサイズ (gr)	原 料 粉	ボールミル条件	ナフタリン 添加量 (W%)	成 型 (t/cm <sup>2</sup> )	焼結条件 温度時間 °C hr	注	物 理 観 察			
								金 相	オートラジ オグラフ	X線検査 固溶度	
								Puスポット	%	A	
R2M-1	500	PuO <sub>2</sub> , UO <sub>2</sub> , EUO <sub>2</sub> の混合粉を焙焼・還元各850°C・1hr	SUSボール・ポット Wt・8hr	2.7	3.5	1670°C 2 hr		なし	100	5.457	
R2M-2	500	"	"	"	"	1630 → 1600°C 2 → 2 hr	第1回の焼結でカーボンが多いので再焼結した。	残存UO <sub>2</sub> あり 結晶粒, Max. 12μ Ave. 2μ	"	95	5.456
R2M-3	500	"	SUSボール・ポット Dry → Wet → Dry 4hr 4.5hr 7hr	"	"	1700°C 2 hr	先行テストの結果固溶度が良くなかったので予焼ペレットを粉碎して使用	残存なUO <sub>2</sub> あり	"	95	5.458
R2M-4	374	"	SUSボール・ポット Dry 8 hr	2.4	"	1650°C 2 hr	"	結晶粒 Max 20μ Ave. 10μ	"	90~95	5.456
R2M-5	500	PuO <sub>2</sub> , UO <sub>2</sub> , EUO <sub>2</sub> をV-混合したもの、焙焼・還元せず	SUSボール・ポット Dry → Wet 8 hr 4 hr	2.7 3.0	4.5	1600°C 2 hr	径, 密度全数不合格	残存UO <sub>2</sub> 多く結晶粒測定出来ず	"	95以上	5.459
R2M-6	500	PuO <sub>2</sub> , UO <sub>2</sub> , EUO <sub>2</sub> をポリポット・ボールミル混合、焙焼・還元せず	SUSボール・ポット Dry → Wet 8 hr 2 hr	2.8	3.0	"	一般的に密度が仕様値より低かった。	"	"	90	5.456
R2M-7	476	"	"	"	4	1600°C → 1650°C 2 hr → 2 hr	固溶度を改良するため に1650°Cで再加熱した が改良されず	"	"	85~90	5.456
R2M-8	533	テストランのペレットを乾式回収(600°Cで焙焼0.5hr還元2hr, 焙焼0.5hr還元4.0hr)	アルミナボール・ポット Dry 4 hr	1.0	"	1600°C 2 hr	先行試験の結果不合格 予焼ペレットを乾式回収を再びおこなった。	"	"	95以上	
R2M-9	427	R2M-5の不合格ペレットの乾式回収(R2M-8と同じ)	アルミナボール・ポット Dry 6 hr	"	"	1700°C 2 hr	密度が~89/T.D.と高 く不合格	"	"		
R2M-10	650	R2M-6,7の不合格ペレットの乾式回収(R2M-8と同じ)	"	"	"	1700°C 2 hr	"	"	"	90	
R2M-11	430	R2M-2,3,4,8の不合格ペレットの乾式回収(R2M-8と同じ)	"	"	"	1700°C 2 hr	"	"	"	100	

第6.3表 ペレット化学分析等

分析種 ロット	仕様	R 2M-1	R 2M-2	R 2M-3	R 2M-4	R 2M-5	R 2M-6	R 2M-7	R 2M-8	R 2M-9	R 2M-10	R 2M-11
P u (w/o)		17.84 18.22	17.90 17.93	18.02 17.77	18.06 17.65		17.78 17.84	17.96 17.88	18.02 17.82	17.43 17.81	17.77 17.55	18.00 17.94
PuO <sub>2</sub> (w/o)	20±1	20.23 20.66	20.29 20.33	20.43 20.15	20.48 20.01		20.16 20.23		20.43 20.20			20.41 20.34
<sup>235</sup> U濃縮度		65.64 65.56 64.87	左と同じ	左と同じ	左と同じ	65.050 65.012 64.893	65.029 65.107 65.151	65.029 65.107 65.151	65.64 65.56 64.87	65.050 65.012 64.893	65.029 65.107 65.151	65.64 65.56 64.87
O/M	1.99 <sup>+0.01</sup> -0.03	1.974	1.985 1.993	1.962 1.965	1.964 1.956	1.981 1.979		1.98 1.98	1.980 1.981	1.979 1.969	1.975 1.978	1.981 1.988
水分(PPM)			15	7 14	14		13 16	24 10	38	63 69	90 39	17 7
Gas(μl/g)	150	50	50	150 77	32 39 35		SCO74	95 81	99	SCO SCO	SCO SCO	46 38
Al(PPM)	500	<10	20	<10	25		<10	<10	15	<10	<10	15
B	20	0.5	0.6	<0.3	0.7		<0.3	<0.3	<0.3	<0.3	0.7	<0.3
C	150	46 67	362 再73 160 46	34 41	75 47		55 39	52 32	42 58	42 40	50 55	60 65
Cd	20	<1.0	<1.0	<1.0	<1.0		<1.0	<1.0	<1.0	<1.0	<1.0	<1.0
C1	25	<10. <10	<25 <25	<25 <25 <25 <25	60 再100<25 70 80<25	25 25	<25 <25	<25 <25	<25 <25	<25 <25	<25 <25	<25 <25
Cr	500	150	45	19	25		13	15	32		<10	18
F	25	2 18	<5 <5	<5 <5	<5 <5		<5 <5	<5 <5	<5 <5	<5 <5	<10 <10	7 11
Fe	500	>500 <sup>2000</sup> 1000 1000	240	110	70		80	90	160	40	<10	65
Mg	25	<2	2	2	<2		2	2	2	2	<2	5
N	200	<100 <100	30 30	<50 <50	40 40		<50 <50	<50 <50	<50 <50	<50 <50	<50 <50	<50 <50
Ni	500	250	50	15	20		10	10	90	<10	<10	40
V	500	<10	<10	<10	<10		<10	<10	<10	<10	<10	<10
Cu+Zn+Si	600	<70	<141	<62	<151		<67	<67	<121	<61	<91	<72
Ag+Mn+Mo+Pb+Sn	200	<84	<98.8	<57	<98.8		<67	<57	<67	<57	<37	<57
固溶 (残UO <sub>2</sub> %)		0, 0	xo, 10~15 再焼結 <5, 5~10	~5, 5~8 湿式 <5, 6	<5, 5~10	<5, <5	5~10, 5~10 再焼結 10~15, 10~15	10~15, 10~15 再焼結 <5, <5	-	-	-	0
ペレット数 (寸法, 密度合格本数)		150	113 3.5本	108 3.3本	96 3.3本	0	0	89 5 本	153ヶ 5 本	0	0	150ヶ 4.5本
焼結温度(°C)		1670	1630 再 1600	1650	1700			1600 再 1650	1700	1700	1700	1700

## § 7 核物質収支

今まで述べて来たことからも判る様に本ペレットの製造作業に於ての核物質の使用状態は複雑なものになってしまった。最初の出発  $\text{UO}_2 \leftarrow \text{PuO}_2$  混合粉末の調整時に  $\text{EUO}_2$  の濃縮度が 55% → 65% の変更があったことや、不足分をおぎなうために途中で別に追加混合粉を調整したこと、不合格ペレットの乾式回収再使用などをしたためである。

第 7.1 図は予備実験、本番ペレット製造を含めて原料混合粉末調整から焼結ペレットに到る各工程を追って物質収支のフローシートである。この図より 20%  $\text{PuO}_2 - \text{EUO}_2$  (65%) 混合粉は全部で約 4800g 調整したこと、しかし乾式回収再使用も含めると延べ約 8000g 使用したこと等が判る。

第 7.1 表は  $\text{NUO}_2$ ,  $\text{EUO}_2$  (90%),  $\text{PuO}_2$  の原料粉末の使用量とそれにより調整された  $\text{PuO}_2 - 65\% \text{EUO}_2$  粉の量を示したものである。

第 7.2 図は、第 7.1 図を更に簡単にまとめたものである。しかしこの図にはロスについては書かれていらない。

第 7.2 表は核物質の収支バランスを示したもので、これより核物質の損失率は  $\text{Pu}$ : 3.6%,  $\text{U}^{235}$ : 6.1%,  $\text{U}^{238}$ : 8.0% である。

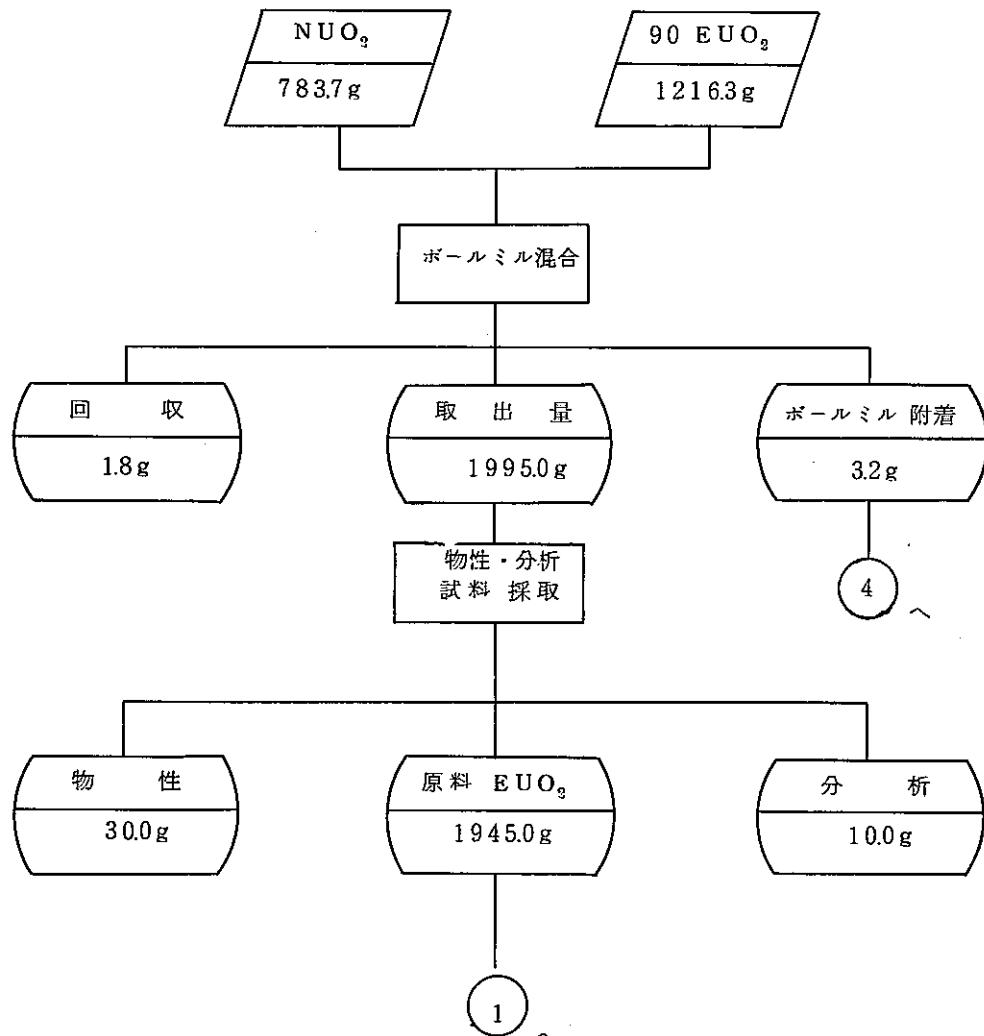
第 7.1 表 Rhapsodie - II 原料粉末使用量

MIXING USED POWDER LOT	第 1 回混合粉	第 2 回混合粉	第 3 回混合粉	総 使用 量
$\text{PuO}_2$	684.24	100.45	200.33	985.02
$\text{Pu-METAL}$	597.34	87.69	174.89	859.92
90.02% $\text{EUO}_2$	1985.86	287.68	573.72	2847.26
E. U. -METAL	1740.41	252.12	502.81	2495.34
$\text{U}-235$	1566.72	226.96	452.63	2246.31
$\text{N. UO}_2$	783.70	111.87	223.10	1118.67
N. U -METAL	688.32	98.26	195.95	982.53
$\text{U}-235$	4.96	0.71	1.41	7.08
$\text{PuO}_2 - 65\% \text{EUO}_2$	3453.80	500.00	997.15	4950.95

### メタル含有率

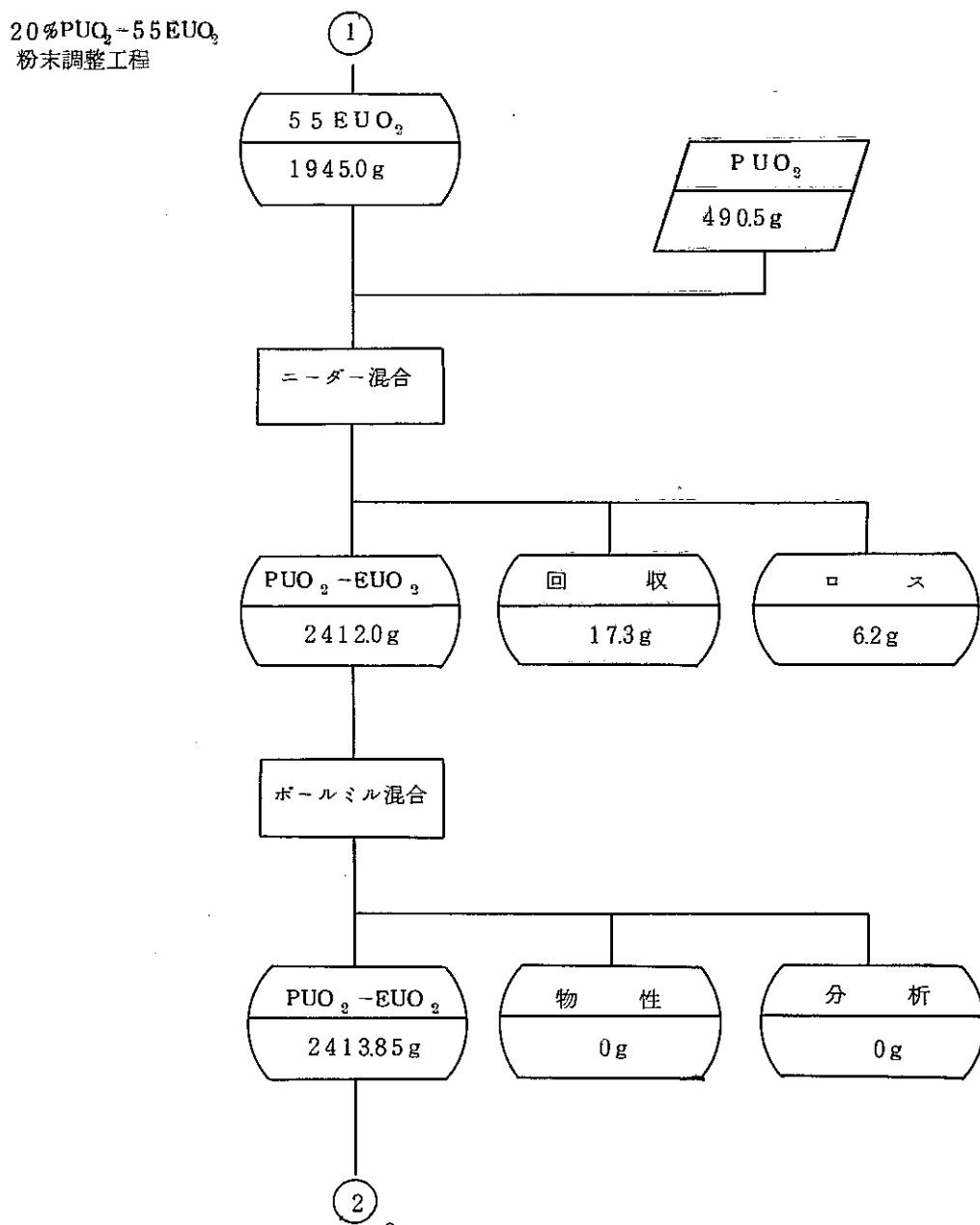
$\text{PuO}_2$	:	0.873
90% $\text{EUO}_2$	:	0.8764
$\text{NUO}_2$	:	0.8783
65% $\text{EUO}_2$	:	0.8769

55% EUO<sub>2</sub>粉末  
調整工程

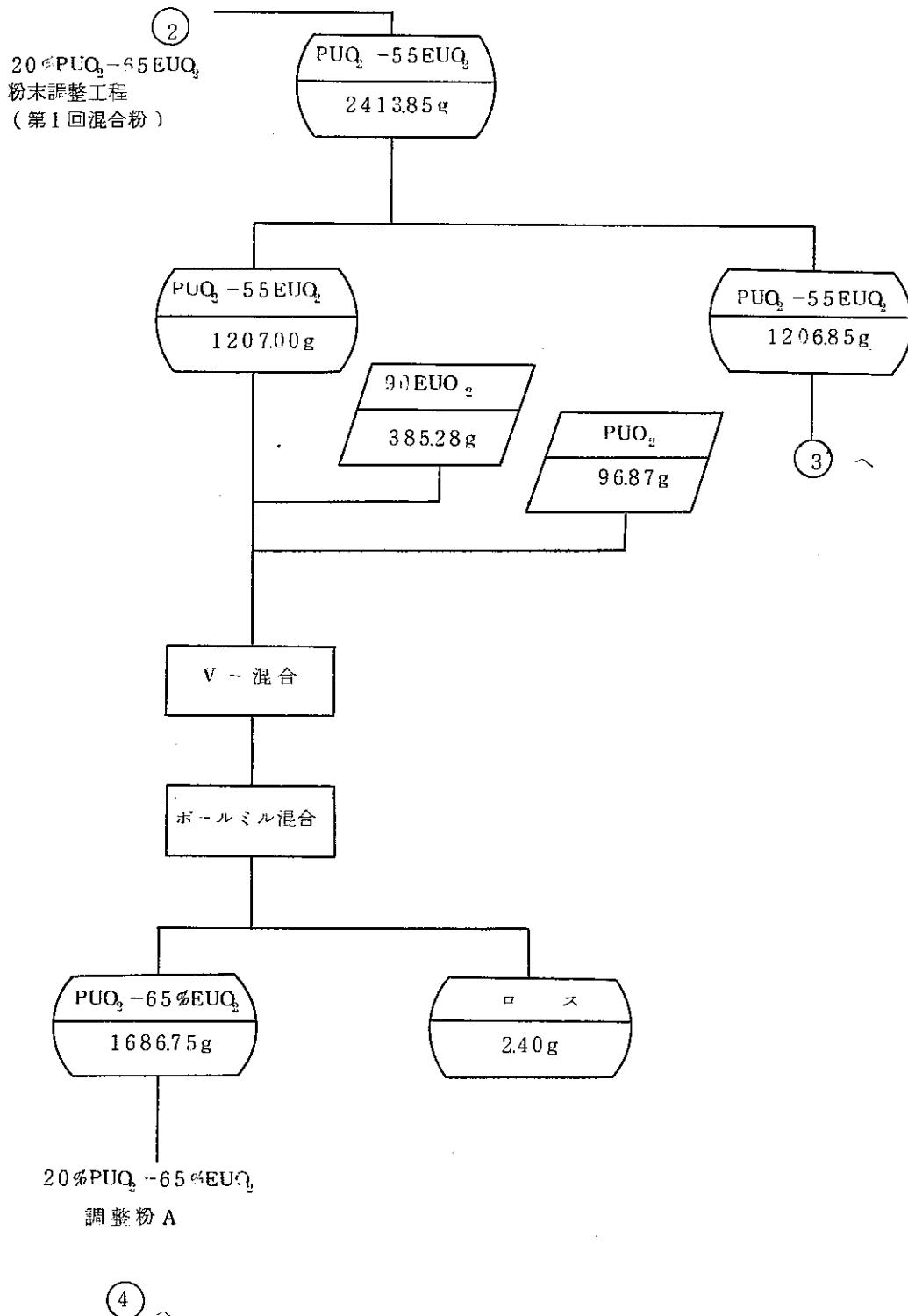


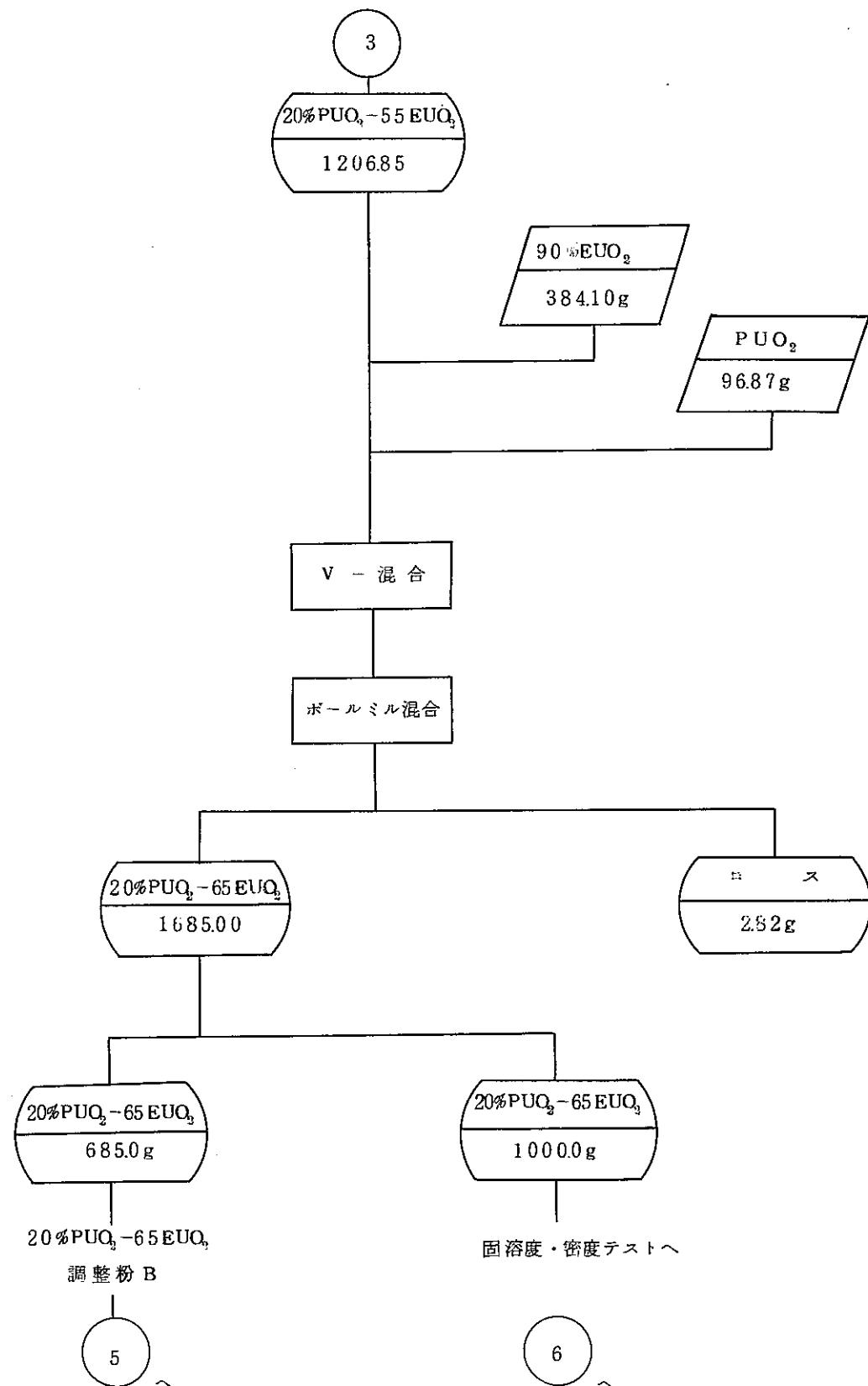
	重 量	U-235 メタル
原 料 粉	1945.0 g	
分析サンプル	10.0 g	
物性サンプル	30.0 g	
回 収 粉	1.8 g	
ロ ス	0.0 g	

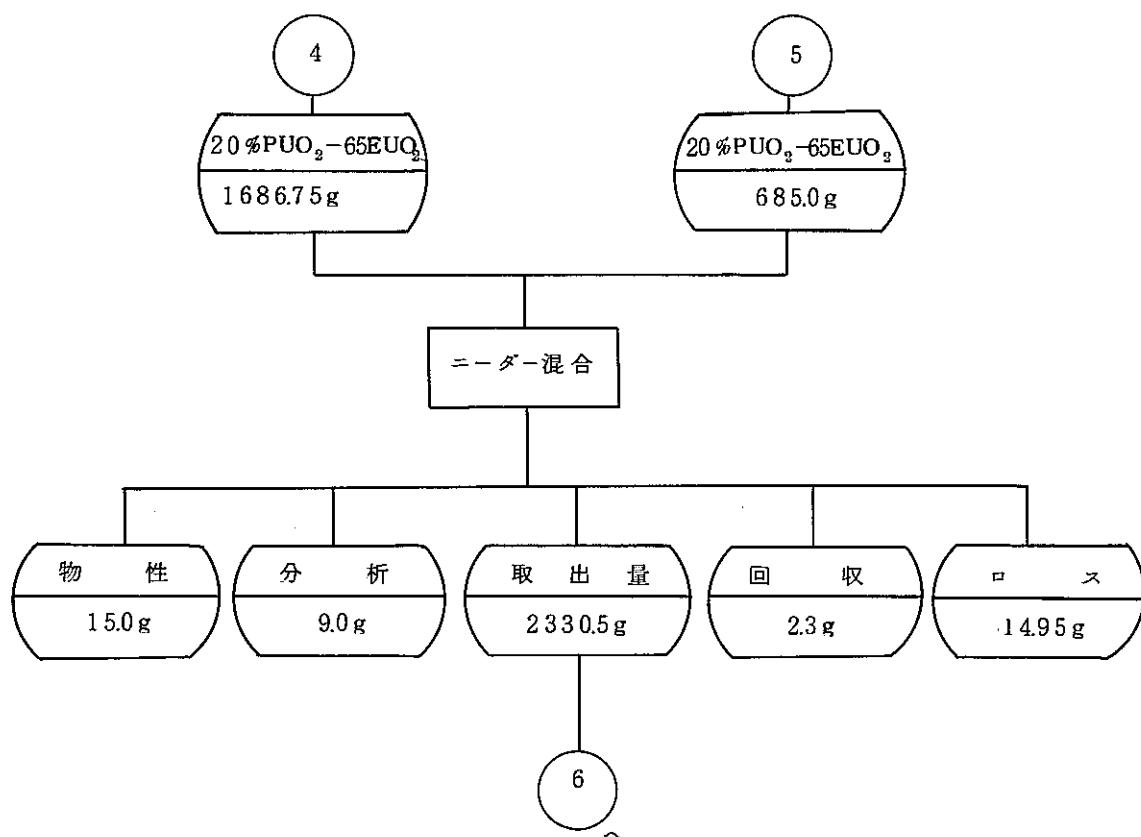
第7.1図 工程順物質取支フロー・シート



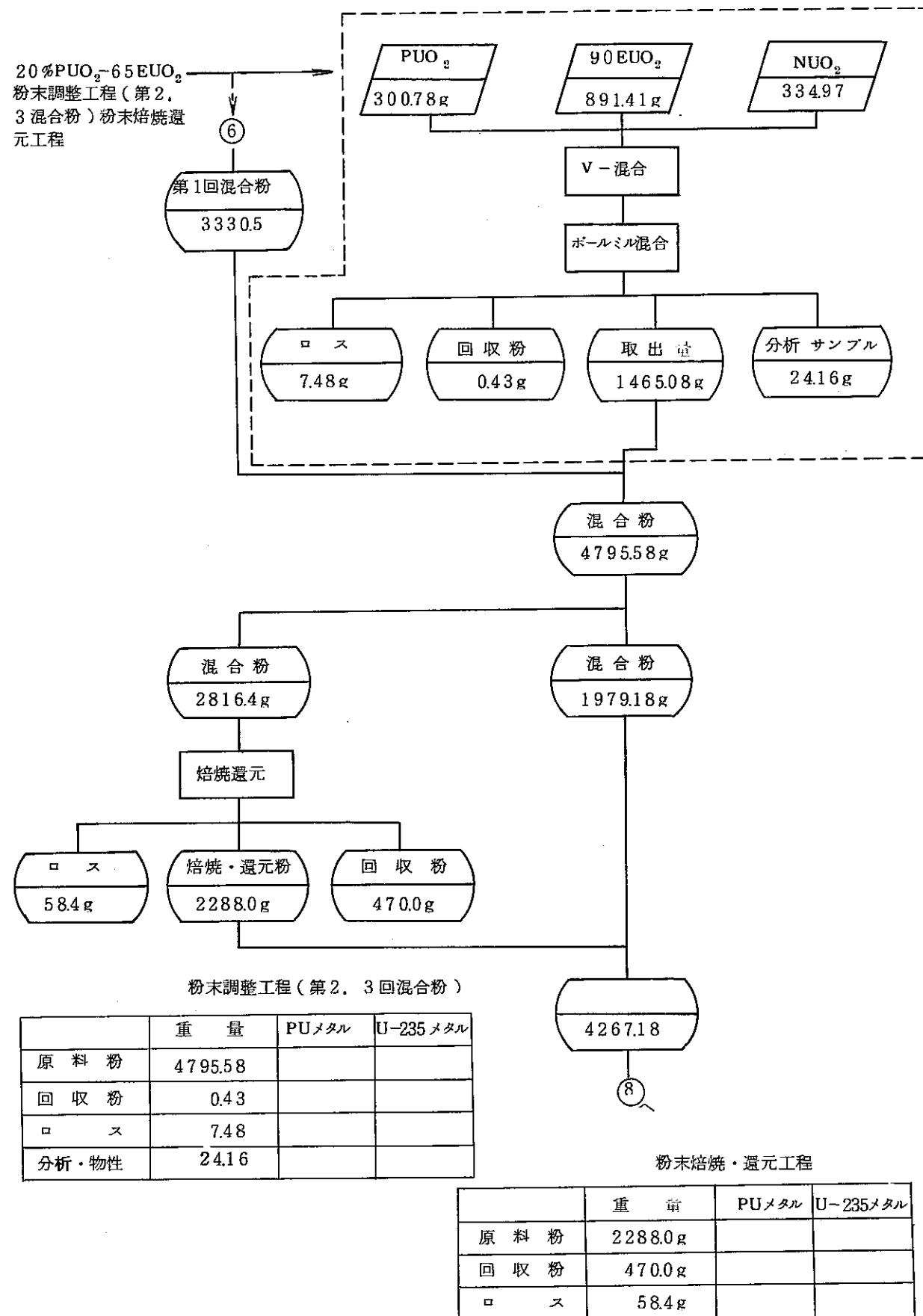
	重 量	P U - メタル	U-235 メタル
原 料 粉	2413.85 g		
回 収 粉	17.3 g		
口 ス	6.2 g		
分析・物性	0		

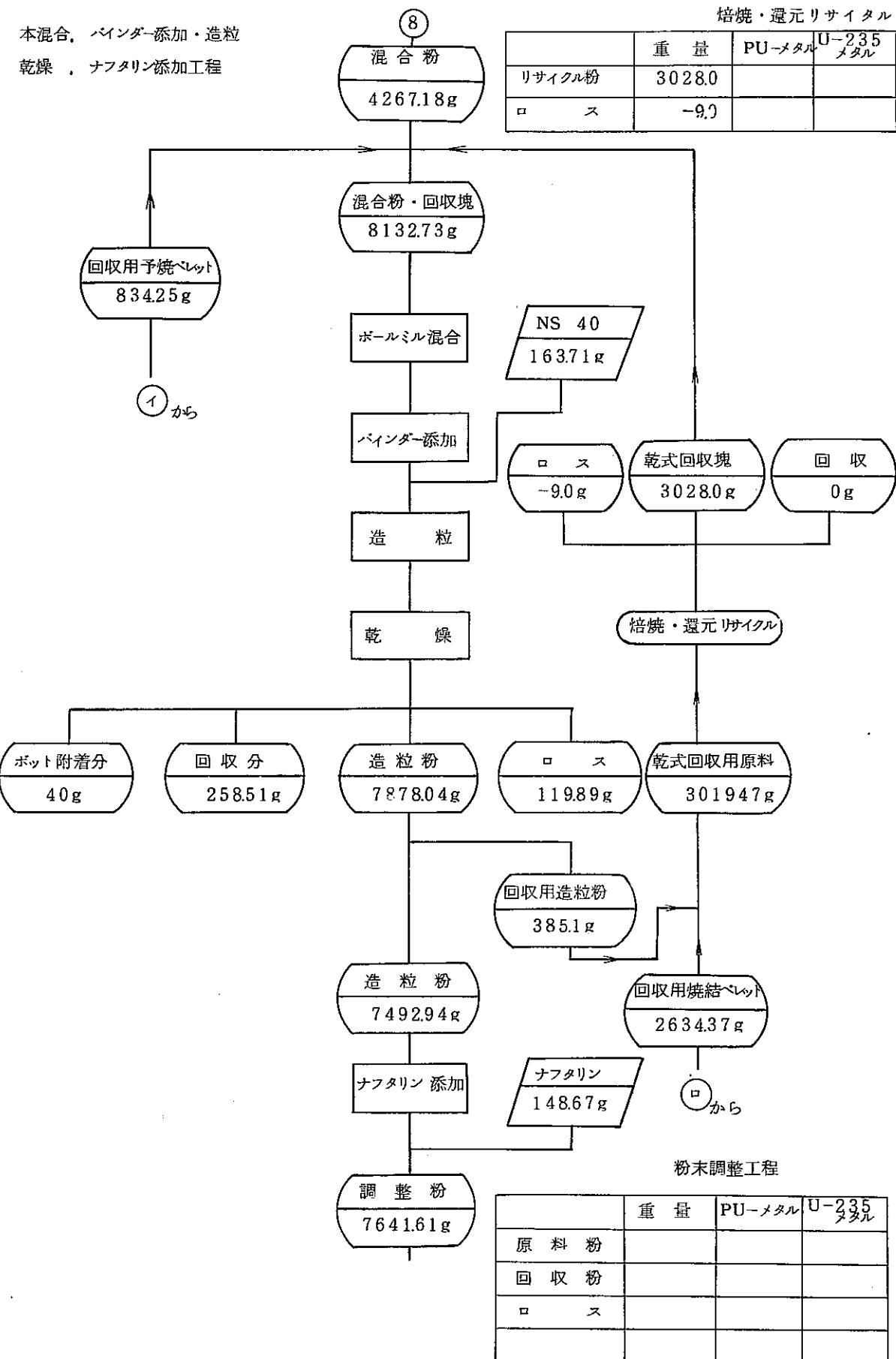


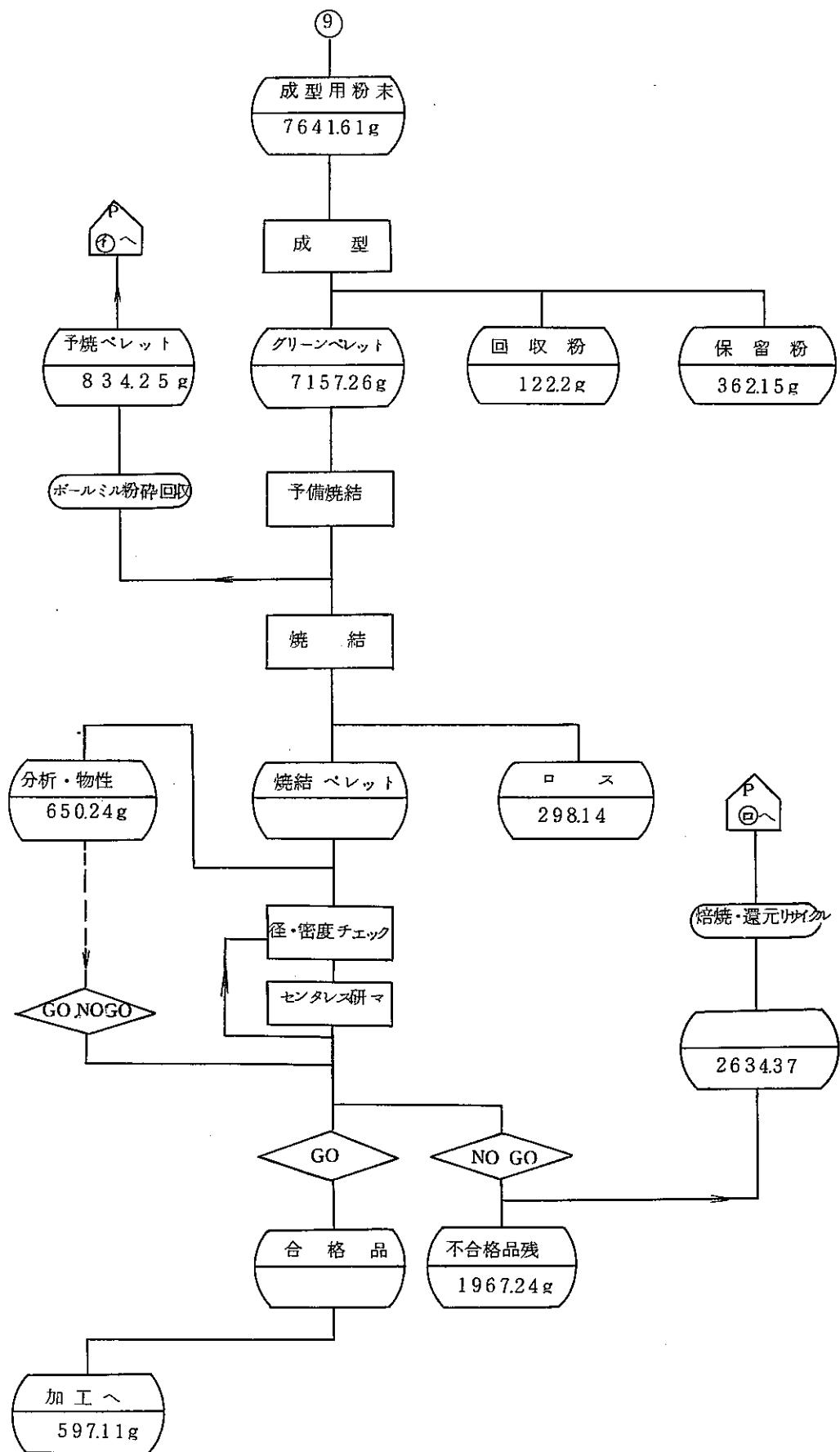


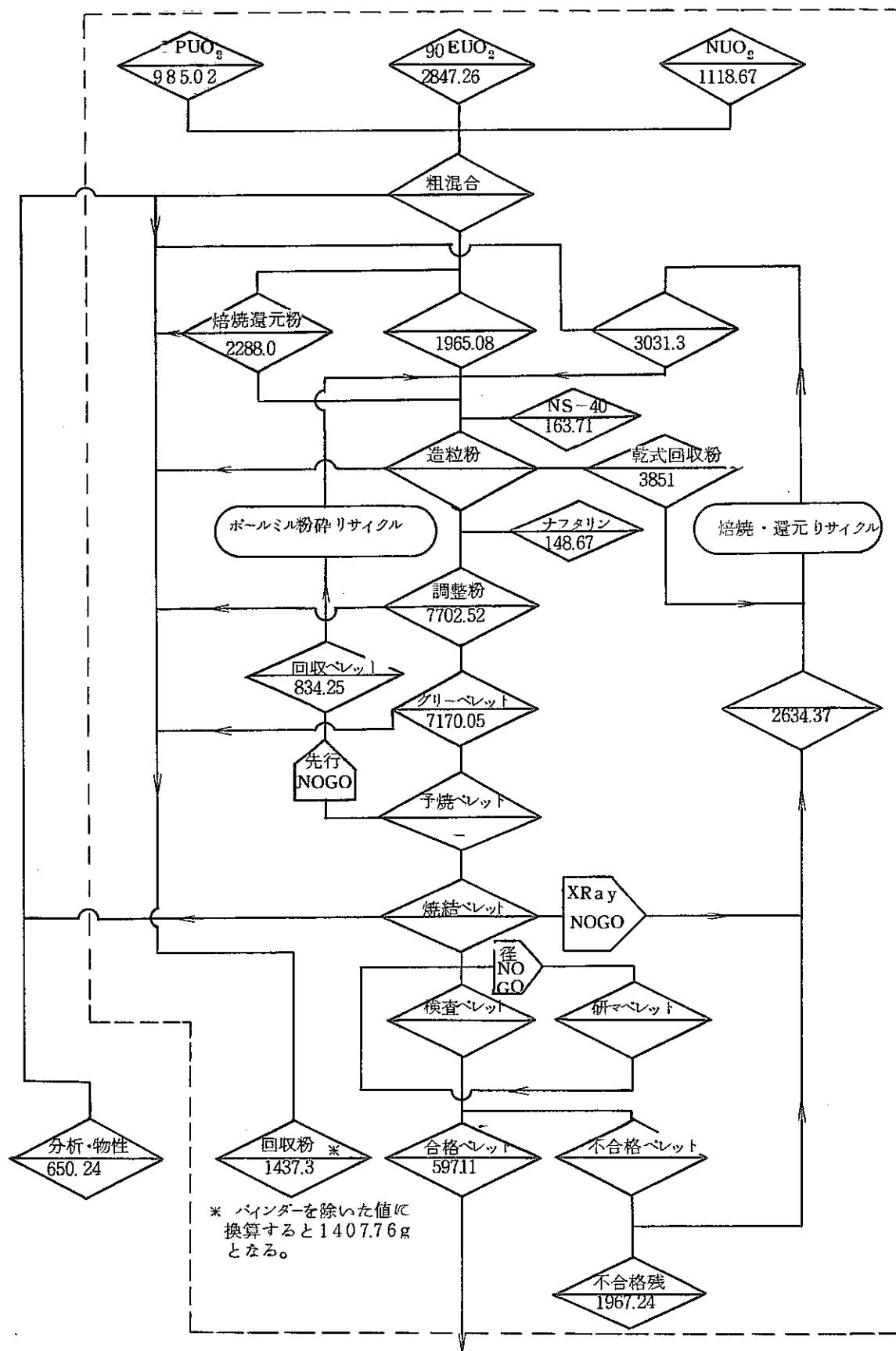


	重 量	P U - メタル	U - 235 メタル
原 料 粉	3330.5g		
回 収 分	2.3g		
ロ ス	20.17g		
分析・物性	24.0g		









製品として加工グループへ

第7.2図 工程順物質取扱フローチート その2

第7.2表 物質収支

	プルトニウム		ウラニウム			
原 料	<u>PuO<sub>2</sub></u> PuO <sub>2</sub> 粉	<u>Pu</u> 985.62 gr	<u>90% EUO<sub>2</sub></u> 2847.26 gr	<u>90% EU</u> 2495.34 gr	<u>U<sup>235</sup></u> 2246.31 gr	<u>U<sup>238</sup></u> 249.03 gr
			<u>NUO<sub>2</sub></u> 1118.67	<u>NU</u> 982.53	7.08	975.45
					2253.39	1224.48
生 成 物	<u>UO<sub>2</sub> - 20% PuO<sub>2</sub></u> 合格ペレット 不合格ペレット 回 収 粉 分析物性 } 試料	<u>Pu</u> 597.11 gr 1967.24 1407.76 650.24	<u>65% EUO<sub>2</sub></u> 475.66 gr 1567.10 1121.42 517.98	<u>65% EU</u> 419.05 gr 1380.62 987.97 456.34	<u>U<sup>235</sup></u> 273.47 gr 900.99 644.75 297.81	<u>U<sup>238</sup></u> 1126.96
	計	829.24 gr	計	2117.02	1126.96	
ロス		30.68 gr		136.37 gr	97.52 gr	

注： 原料 PuO<sub>2</sub> 粉中の Pu 量は 87.3%

生成物中の EU, PuO<sub>2</sub> の量は分析値の平均値を採って各々 65.26%, 20.34% として計算した。

## あとがき

約4ヶ月の期間で約20本のペレット製品が製造されたが、製造作業の内容としては満足すべきものではなかった。これは一口で言えば与えられた製造期間が短かくて、じっくりと準備基礎実験がなされることなく本番製造作業に入らねばならなかつたことによるものと思う。

しかし技術的には貴重な情報と経験が得られ、今後のこの種の製造作業に貢献するものと信ずる。

なお、本作業を遂行するにあたって分析、X線回析、オートラジオグラフィ、金相などの重要な仕事をはたしてくれた品質管理課の方々に感謝の意をここで表する。

さらにまたセンタレスグラインダーの修理に献身的な協力を下さった管理課技術係の黒沢氏に心から感謝する。

別添 (I)

12/17/71 中島

Rapsodie II ペレット検査要領(案)

開発課試料係

## 1 検査の適用範囲

この検査は Rapsodie II 照射試料のために製造された円柱状の混合酸化物ペレットに適用される。

## 2 検査される混合酸化物ペレット

機械混合によって均一に混合された混合酸化物粉を冷間成型、焼結したもの。

## 3 ロットの定義

機械混合によって均一に混合された混合酸化物で造粒、成型、焼結条件を一にするもの。均一の定義については 4 以下を満足するものをいう。

## 4 化学組成

### 4 - 1 プルトニウムの濃度

4 - 1 - 1 ロットの中から任意に取出された約 0.5 g の混合酸化物中の  $\text{PuO}_2$  の濃度が  $20 \pm 1 \%$  であること。

$\text{PuO}_2$  濃度は次の式で定義される。

$$\text{PuO}_2 \text{ 濃度} (\%) = \frac{\text{Puメタルの重量}}{0.882 \times (\text{混合酸化物の重量})}$$

4 - 1 - 2 ロットの中のどのペレットの中にも  $50\mu$  以上の  $\text{PuO}_2$  粒がないこと。

### 4 - 2 酸素含有量

ロットの中から任意に取出された混合酸化物中の酸素原子の金属原子 ( $\text{Pu} + \text{U}$ ) に対する比の値が 1.98 以上 2.00 以下であること。

### 4 - 3 不純物

ロットの中から任意に取出された混合酸化物中の不純物が Table 4 - 1 の仕様欄の値以下であること。

### 4 - 4 放出ガス (水分を含む)

ロットの中のどのペレットについても  $800^{\circ}\text{C}$  mmHg の真空中で 30 分間加熱されたときに放出するガス量が  $150\mu\text{l/g}$  以下であること。

### 4 - 5 濃縮 $\text{UO}_2$ 中の $\text{U}^{235}$ 濃縮度

$55 \pm 0.4 \%$  (タル基準)

### 4 - 6 検査試料の採取及び合格不合格の判定

4 - 6 - 1 4 - 1 - 1 についてはロットの中から焼結ペレットを無作為に 3 個抜取り、各ペレットから 0.5 g をとって分析する。これらの 3 つの分析値が、4 - 1 - 1 を満足

し、且つ3つの分析値の平均値が、 $20 \pm 0.5\%$ を満足する場合ロットを合格とする。

4-1-2についてはロットの中から焼結ペレットを無作為に5ヶ抜取り、各ペレットのオートラジオグラフを調べて、すべてのオートラジオグラフについて $20\mu$ 以上のスポットがなければ、ロットを合格とする。

4-6-2 4-2については、ロットの中から焼結ペレット3ヶを無作為に抜取って、それぞれについて分析し、3つの分析値とも4-2を満足する場合、合格とする。

4-6-3 4-3については、ロットの中から焼結ペレット3ヶを無作為に抜取って、それぞれについて分析する。3つの分析値の各値が4-3を満足し、且つ、3つの値の最大最小の差及び平均値がTable 4-1以下の値であれば、ロットを合格とする。

4-6-4 4-4については、ロットの中から焼結ペレット（研磨したものがある場合は、これを含んだロットから）3ヶを無作為に抜取り、それについて分析する。3つの分析値のすべてが4-4を満し、且つ、3つの分析値の平均値が $90\mu\text{l/g}$ 以下の場合ロットを合格とする。

4-6-5 4-5については、原料粉の中から3試料を分析し、4-5を満足するものを合格とする。

Table 4-1 不純物の仕様及び合格判定値

単位 PPM

	仕 様	範 囲	平均値
A1	500	190	430
B	20	8	17
C	150	150	80
Cd	20	8	17
C1	25	18	11
Cr	500	190	430
F	25	18	11
Fe	500	190	430
Mg	25	25	12
N	200	100	100
Ni	500	190	430
V	500	190	430
Cu+Zn+Si	600	230	500
Ag+Mn+Mo+Pb+Sn	200	130	130

## 5 密 度

### 5 - 1 ペレットの密度の定義

ペレットの密度とは、ペレットの寸法、重量の測定値を用いて次の(5-1)より計算した $D_s$ の値をいう。

$$D_s = \frac{100W}{0.7854d^2 h \rho} \quad \dots \dots \dots (5-1)$$

ここで、 $D_s$  ; 密度(%T.D.)

$W$  ; ペレットの重量(g)

$d$  ; ペレットの直径(cm)

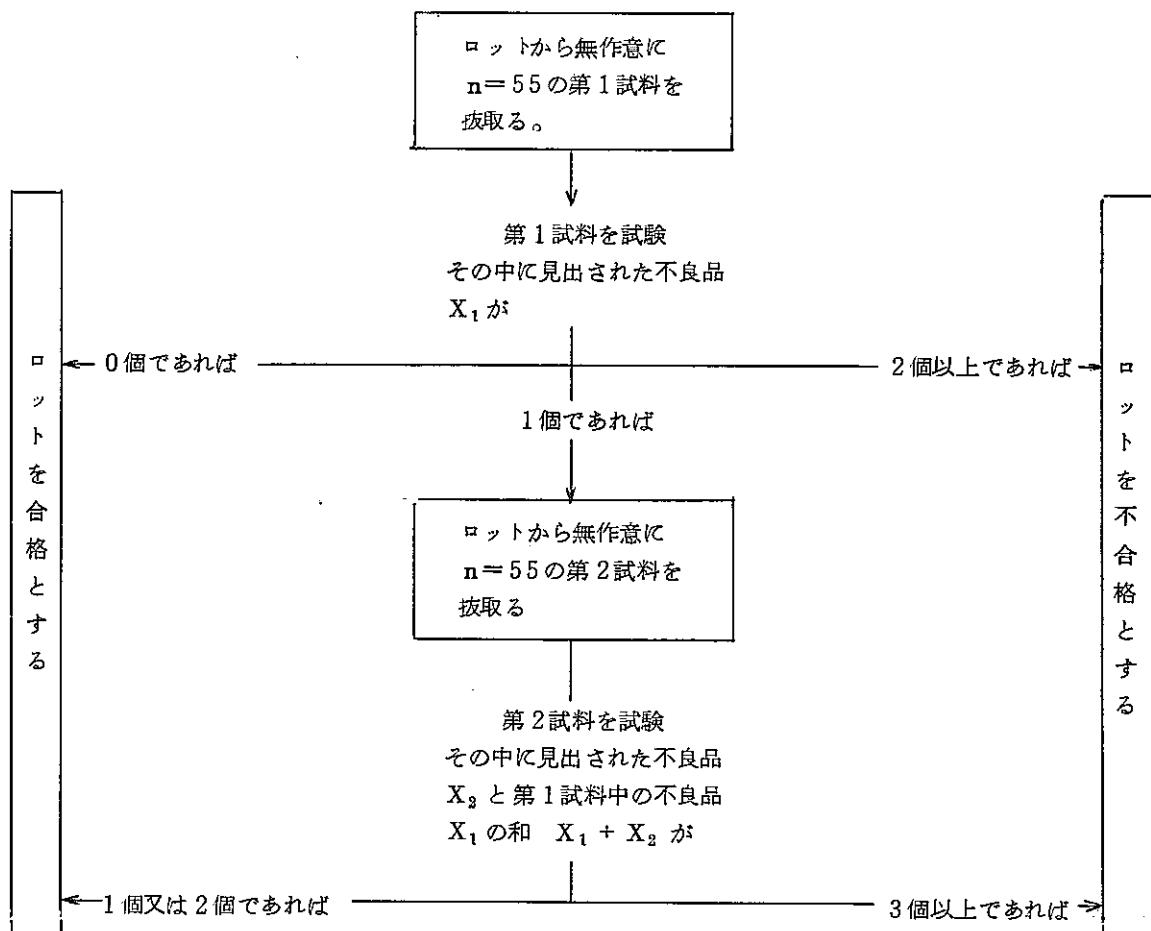
$h$  ; ペレットの高さ(cm)

$\rho$  ; 理論密度。 $PuO_2$ と55% $EUO_2$ の理論密度をそれぞれ11.46 g/cc, 10.89 g/ccとして $PuO_2$ 濃度20%について直線的に外挿した値で11.00 g/cc

### 5 - 2 密度の仕様

85 ± 2% T.D.

### 5 - 3 検査試料の採取及び合格・不合格の判定



## 6 尺 法

### 6-1 外 径

5.40 ± 0.05 mm

### 6-2 高 さ

10 ± 2 mm

### 6-3 検査試料の採取及び合格・不合格の判定

6-1, 6-2について全数検査し、それぞれ6-1, 6-2を満たすものを合格ペレットとする。

## 7 外 觀

### 7-1 表面あらさ

焼結のまま又はグリット番号100以上の研磨布で研磨したペレット。

### 7-2 クラック・ピット

肉眼検査でクラック・ピットのないもの。

### 7-3 検査試料の採取及び合格・不合格の判定

7-3-1 7-1については、グリット番号100で研磨したペレットの中からスタンダードを選び、このスタンダードと全数ペレットを比較し、肉眼検査でこれと同程度又はそれ以上のものを合格とする。

7-3-2 7-2については、全数検査し7-2を満足するものを合格とする。

別添(II)

調-72-02

1972.1.14

MEMO TO : 配布  
 FROM : 小松  
 SUBJECT : ラブソディー2照射

固溶に関する CEAとの打合せ結果のまとめ

CC 鈴木部長, 小泉課長, 宮脇課長代, 三浦課長, 工藤, 水田, 古屋, 佐藤(政),  
 堂本, 中島, 成木, 笹尾, 大竹, 宮原, 渡辺課長, 松本課長代

1. 場所 ブル然第1開発室 会議室

2. 日時 1月13日 15.30 ~ 19.00

3. 出席者

(CEA) Mr. Mas, Mr. Maurel, Mr. Bel, Mr. Grandjean.

(PNC) 鈴木部長, 小泉, 宮脇, 三浦, 古屋, 佐藤(政), 水田, 工藤, 堂本,  
 成木, 笹尾, 中島, 小松, 涉原, 田島

4. 打合せ内容 :

## 検討項目

- (1)  $\text{PuO}_2 - \text{UO}_2$  の均一性
- (2) X線回析
- (3) 熱伝導度
- (4) 吸着ガス
- (5) ブランケット  $\text{UO}_2$
- (6) 溶接部ビード高さ
- (7) 充填ガス分析
- (8) その他

## 打合せ了解事項

- 1.①  $\text{PuO}_2 - \text{UO}_2$  の均一性についての仕様は,  $\alpha$ -オートラジオグラフィーでもX線回析による方法でも, PNCの好きな方法でよい。但し, いずれにしてもX線回析の結果, 残存  $\text{UO}_2$  量が > 5 % の場合は, 製造ロットよりペレット1ヶを撰択しC.E.Aに送り, ナトリウムとの両立性試験に合格することが必要である。  
 (PNCでは, 本実験は時間的に不可能なため, C.E.Aに依頼, フォンテネオローズでやる)

ナトリウム両立性試験条件；

600 ~ 650°C 200 時間 in Na

### 合否基準

試験前後で 長さ  
直径 } に変化のないこと  
重量 }

- ② 残存 UO<sub>2</sub> 量 > 5 % の場合の両立性試験は安全審査をとるため必要であり、試験費用はどちらで負担するか不明
- ③ 両立性試験結果は PNC に提供してもらう契約に入れてもらう。試験結果が不合格の場合は、再製造となる。その場合、予定された照射サイクルに間に合うかどうか PNC として検討を要す。(C. E. A の試験結果はペレット受取後 2 週間で判明する)
- ④ 残存 UO<sub>2</sub> 量 5 % 以下の場合は合格とし、両立性試験は不要である。

### 2. X線回析による

- ① 格子常数
- ② 化学量論性 (Stoichiometry)
- ③ 相の数

の測定計算方法については、フランス側より提供された方法で計算する。これは契約条項の中に入れてもらう。

この方法により、残存 UO<sub>2</sub> 量が 5 % 以上かどうか判定する。

- 3. ① 热伝導度は、設計の段階ではどんな値を使用してもかまわない。然し、照射試料についての実測値は、安全審査を通す上で必要である。

PNC は時間的に実測値を得ることが困難であるので、製造ロットより試料を採って、フランス側に測定を依頼する。

- ② 測定結果は PNC に提供するよう契約に入れてもらう。
- ③ 測定費用は C. E. A で面倒をみる。

### 4. 吸着ガス量は

150 μl/g

の仕様でよい。

### 5. ガスブレナム側に接したプランケット UO<sub>2</sub> は

- ① ブレナム容積を増やす。
- ② FP ガス (Cs, Rb, ...) の通過をよくし、被覆管の両立性をよくする。

ため  $5.5 \text{ mm}\phi$  を  
 $5.3 \text{ mm}\phi$  とする。

6. 溶接部ビード高さについて Wire Wrapping の Wire にあたる位置は  $1/10 \text{ mm}$ にしてほしい。

Wire の位置は図面を見て溶接時に注意すること。溶接終了点の高さは  $0.2 \text{ mm}$ でもかまわない。表面研磨して高さを低くすることは止める。

7. 燃料ピン内充填ガス分析は、安全審査を通すためフランス側で行なう。スペヤー・ピン 2 本の内 1 本を破って測定する。( フォンテネオローズでやる )

8. その他

① ウラン濃縮度は 65% とする。Rod Power の計算結果を PNC に提供する。  
現在  $480 \sim 483 \text{ } \mu\text{cm}$  位になると推定する。

② カブセル内径は、 $19 \pm 0.04$

③ Contract, Appendix II, II. 1 中の Micrography は Ceramography のことで、参考資料とするだけである。

以上、議事録中見落し、誤りの点があったら本日中(14日)に連絡下さい。

17 日(月)フランス側との議事録確認のための資料として、実施責任者に持参してもらいます。

#### ◎ 実施責任者へのお願い

ラブソディー炉利用の上で仏側の「安全審査の基準」についての資料を手に入れては如何でしょう。

両立性試験や、熱伝導度の実測値の必要性など事前に判つておれば、それなりに無駄な時間を省略できると考えます。

別添〔Ⅲ〕

MEMO TO : 宮 脇 ( )  
FROM : 工 藤 ( )

FILE NO D-72-0043  
JOB NO 6931-01-01  
DATE 72-1-21

SUBJECT : ラブソディー2照射

1月19日打合わせ結果の報告

CC 鈴木部長, 渡辺課長, 小泉課長, 三浦課長, 武藤課長, 松本課長代  
岩村, 水田, 中島, 成木, 小松, 大竹, 古屋, 宮原, 堂本, 佐藤(政)

結論は?

1.  $\text{UO}_2$  濃縮度 6.5% の決定は, FBR の要請まち。
2. 固溶の問題は, 5% 以下と 5% 以上 2 本立て製造という予定で計画を立ててみる。

目的は?

1. 当初の計画に対し変更になった問題点を検討する。

出席者

鈴木部長, 渡辺課長, 三浦課長, 宮脇課長代, 松本課長代, 成木, 小松, 大竹,  
古屋, 堂本, 佐藤(政), 工藤

日 時 47年1月19日, AM. 10:00~12:00

場 所 部長室

討論結果のまとめ

1. 6.5% の濃縮度について
  - (1) 1月22日(土)までに濃縮度を決定するよう宮脇からFBRに要求する。
  - (2) 1月19日に植松→宮脇宛, 濃縮度は 6.5% ± 0.5% に決定するとの連絡(電話)があったので, この様に決定する。

2. 製造スケジュールに関して

- (1) 固溶に関して、5%以上と、5%以下の二種のペレットを製造する予定で、スケジュールを再考し、案を作成する。他の製造(美浜 etc)も考慮し、1月24日からStartとして白紙から作ってみる。
- (2) すなわち、5%以上のSampleをCEAに送って両立性Testを行い、GOならその試料を照射する予定。  
但しNO GOの場合も考えて5%以下Sampleも製造しておくという考え方である。  
この考え方は「もんじゅ」の設計・製造・検査基準に反映させるため。
- (3) スケジュール作成担当は成木さん。
- (4) この製造スケジュールが出来たらこれを基にして、関係者全員で改めて、マスタープランを考える。

3. その他

- (1) 製造費は6201についている。  
Reportは製造にかかるものは6201と6931の両方に記載されることになる。
- (2) このプロジェクトを進める体制について再確認した。  
D-71-356に記載ズミ。

プルトニウム燃料部第一開発室の  
センタレスグラインダー修理作業記録

# Records for recovery work of centerlessgrinder at PFDL

実施責任者	小 泉 益 通
報告者	成 木 芳
	中 島 恒
	黒 沢 進
	高 信 修
	酒 井 敏 雄

期 間 1973年7月19日 ~ 1973年8月30日

目 的 核物質で汚染した機器の修理作業に関して得た経験を今後の類似した作業の参考とする。

要 旨 プルトニウム燃料第1開発室 R-125 に設置されているセンタレスグラインダーが故障した。この機器はグローブボックス中に格納されており、実作業に供されていたことから、修理作業は全てグローブボックス内で行なわなければならなかった。そのため、元通りの清度が保たれるかどうかに問題があると考えられた。

この報告書は、センタレスグラインダーの修理作業の経過について、作業者の感じを合わせて伝え得る様まとめたものである。

## 1. まえがき

第1開発室 R-125 の GP-8 にセンタレスグラインダーが設置されている。  
このセンタレスグラインダーは昭和41年に設置され、これまでのさまざまな混合酸化物製造において使用されてきたが、昭和47年7月19日に Rhapsodie-II. Pellet (5.45 ± 0.05 mmΦ) を研磨中、突然パワーベルトが音を立て始めた。原因はコンタクトホイールのベアリングが破損し、ホイールが回転しなくなったために、タイミングベルトが滑りを起したことによるものでめった。そこでホイール部を取りはずし、ベアリングを交換して修復し、このとき合わせて、この部分の構造図、及び寸法を取った。

## 2.

### 2-1 センタレスグラインダー

ENGEL BERG. INC

SYRACUSE. N.Y

STYLE 67.1

SERIAL NO SE146

### 2-2 使用器具

旋盤、ブーリー抜き、スパンナ、ドライバー、ハサミ、木ハンマー、ノギス、ヤスリ  
ピッヂゲージ、ピンセット、六角レンチ、ガーゼ、タガネ、ハンマー、ティッシュ  
ペーパー、アルコール

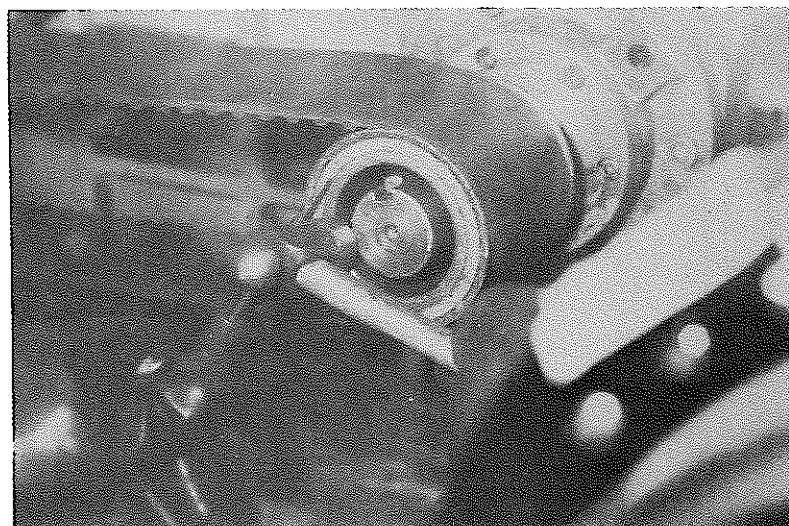
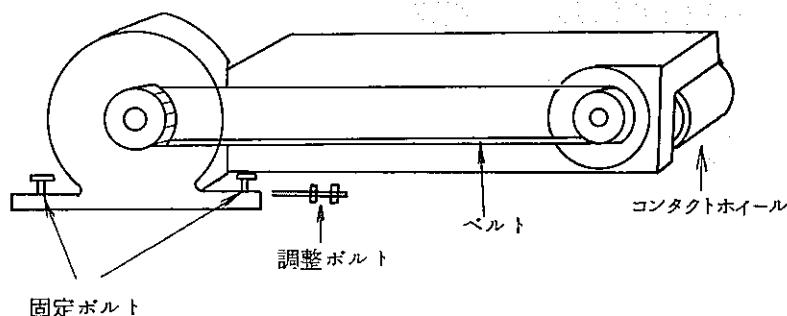
### 2-3 手順

#### 1) 本体とホイール部の分離

## 2 - 3 手 順

## i) 本体とホイール部の分離

- ① カバー ボルト（2ヶ）を取りベルトカバーをはずし、  
ベルトをハサミで切断した。（理由はベルトがブーリー  
からはずれなかつたためである）



- ② ホイール部ブーリーを抜く

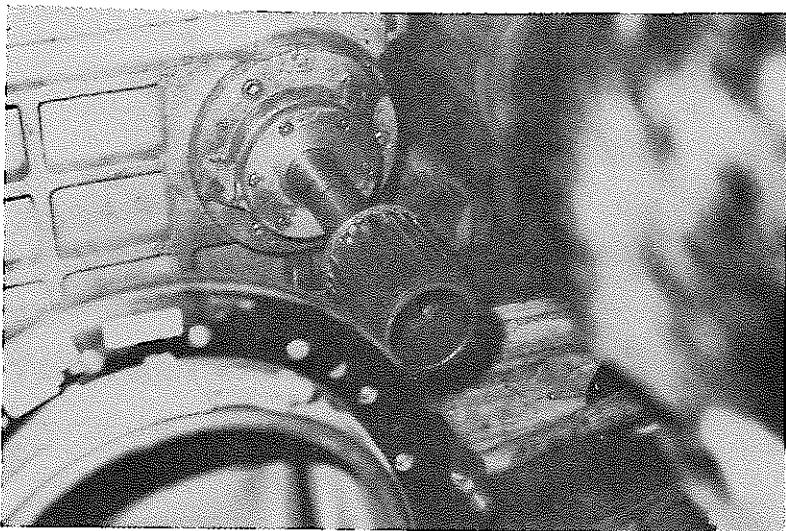


ブーリーカバーを取り、本体とブーリーの間に棒を差し  
込み、こじるとピンといっしょに抜けてくる。

ゴム内部に鋼線が入っている  
ので切りにくい。

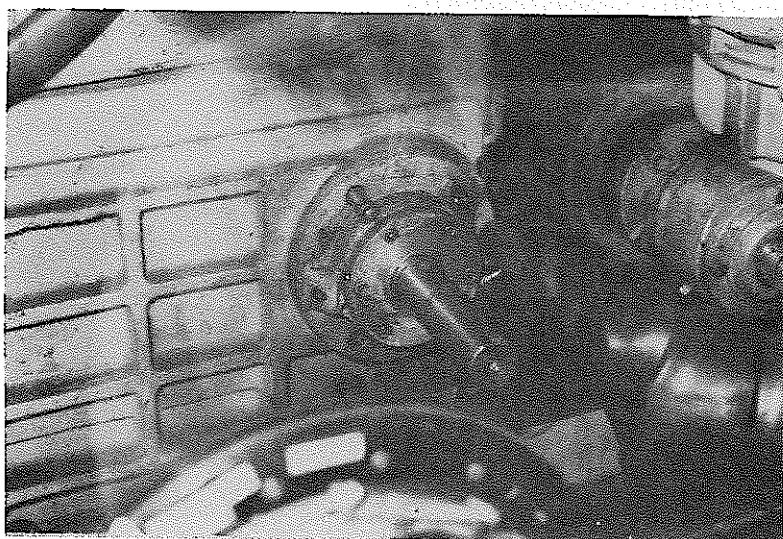
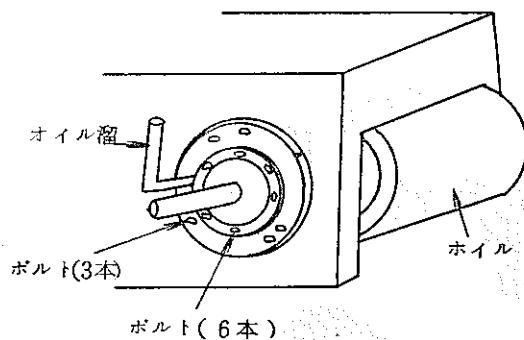
モーター固定ベルトを取り、  
大巾にベルトを緩めてはずし  
た方が良い。但しモーターを  
動かすのには力が必要。

ここもかなりの力を要す。

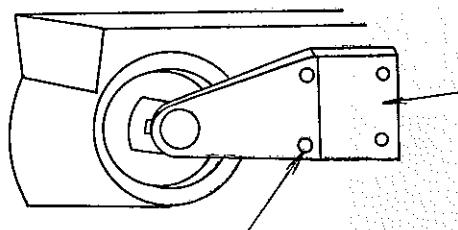


③ フランジ部ボルト、オイル溜を取る

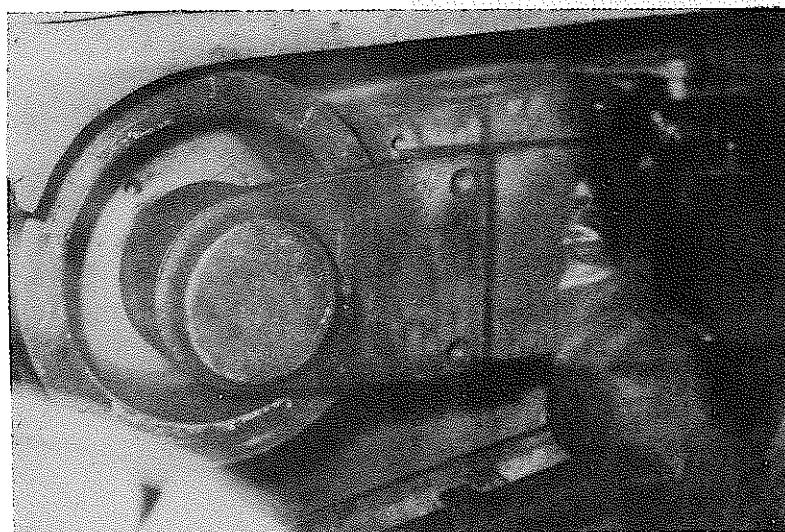
このボルト取りは、次の 4.5  
工程の後である。



④ ホイール側の軸受けをはずす。

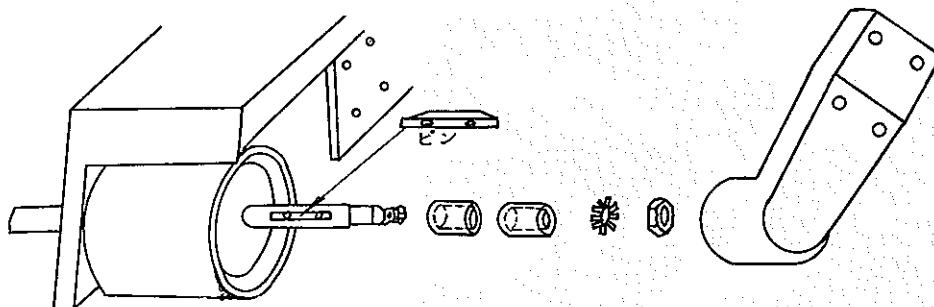


ボルト4本を取り軸受部全体を引き抜く

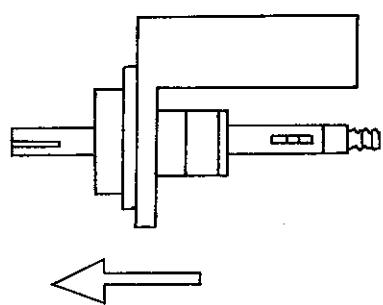


グリース浸み出し防止用にゴムパッキングを用いているので抜きにくい。(根気良くやる事)

⑤ ホイールを抜き出す。

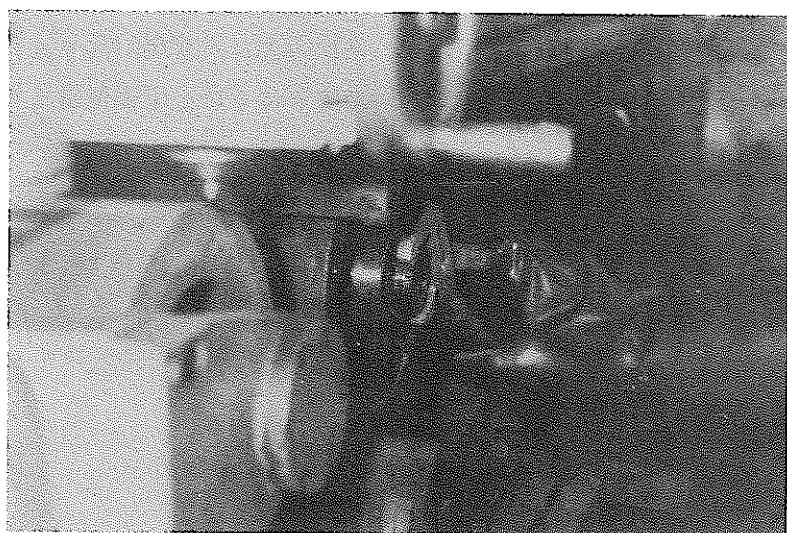


上図の様になつたらホイールを引き出す。

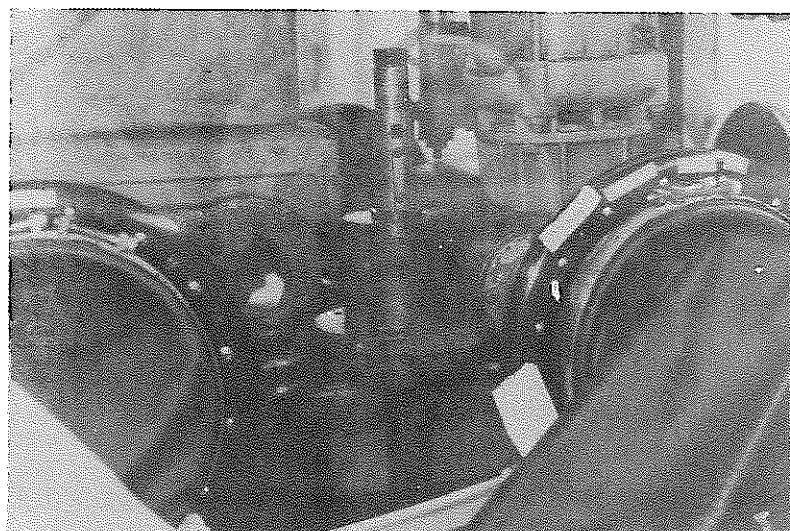
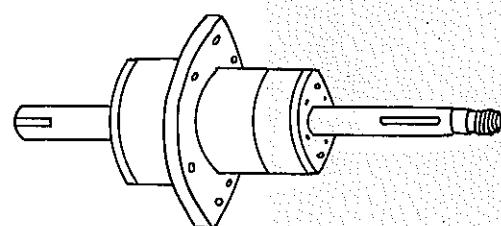


左の様になつたら  
これを矢じるしの  
方向に引出す。

ホイールはアルミ合金で出来  
ているので思ったより軽い。

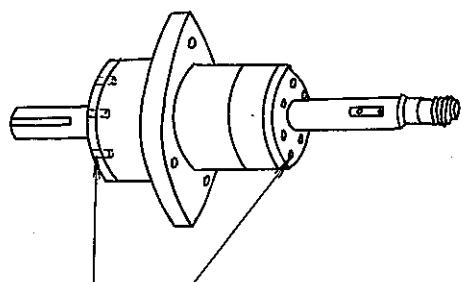


⑥ 本体からはずした部分



## ii) ベアリングの交換

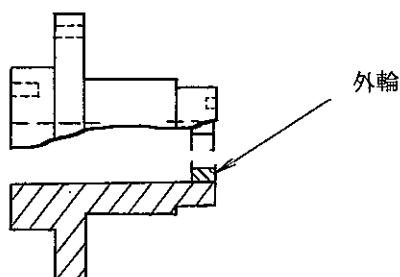
R-230 の汚染機器修理室へ持って行き、分解寸法取りをした。



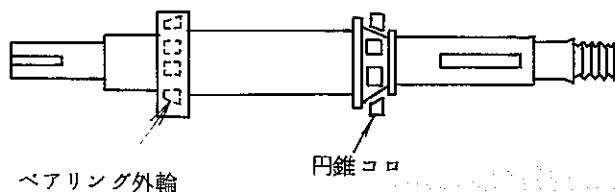
ボルト 6 本をはずす

- ① 両側ボルト各 6 本をはずした後、フランジ部を固定しシャフトに軸方向の力を加えると、フランジ、シャフト部を分離できる。

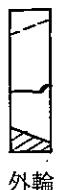
フランジ部



シャフト部



ベアリング部



外輪



内輪

フランジ部を手に持ってシャフトを床（固いもの）にトントンとたたきつける。

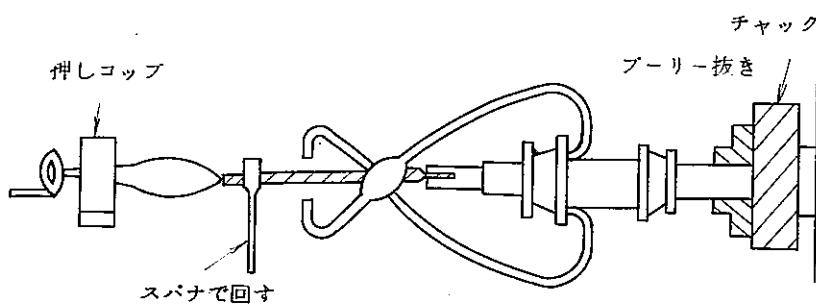
ベアリング

外輪 13621 MADE IN USA\*3

内輪 13687 //

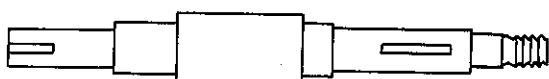
力を加えた側の外輪はフランジ部に残る。これは、ハンマーの柄で押したたくと取れた。

## ② シャフトから内輪を取りる。



ツバの部分が少ないので、ブーリー抜きの爪がはずれやすい。

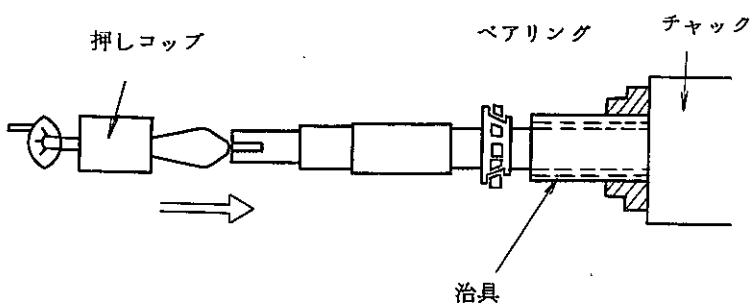
上図の様に旋盤でシャフトを固定  
(ブーリー抜きを用いてはずす)



シャフトは上図の様になっている。ここで全体及び細部の寸法を測定した。

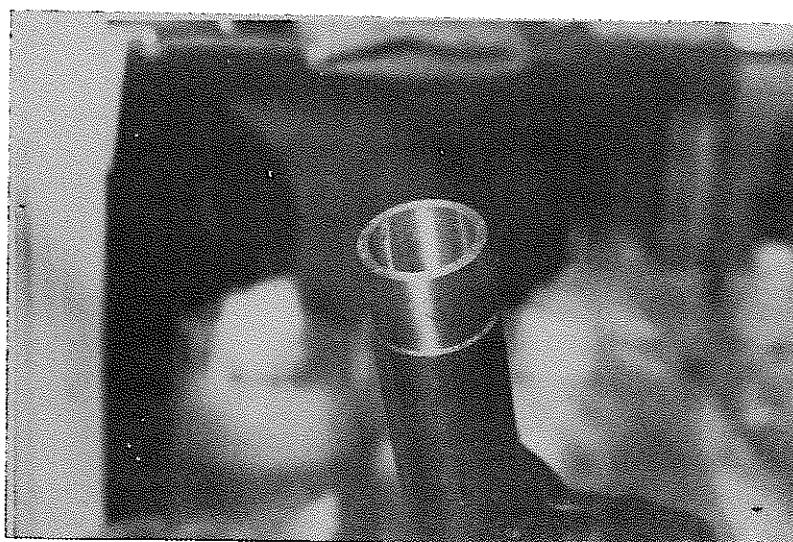
## ③ ベアリングの取り付け

内輪押し込み用の治具を作り下図の方法で取り付けた



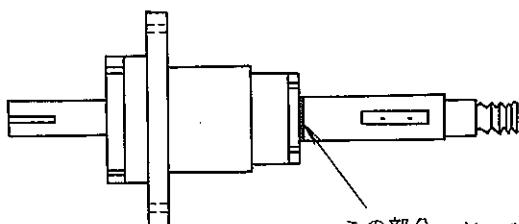
治具は真鍮を用いて、外径はベアリングと同じ程度、内径はシャフト径 + 1 mm位、長さ 15 cm のものを作った。

ベアリングの内輪は No 13620 TIMKEN を用了。これは、13621 が入手出来なかつたためである。(但し公称の寸法はどちらも同じ) 押し込み部の長い方がきつくて入りにくかったので、シャフトをヤスリで少し削った。



④ シャフトにフランジを付ける。

フランジ部に一方の外輪を入れて置き（ハンマーで叩き込む）その反対側からシャフトを挿入する。フランジ、シャフトを固定し、もう片方の外輪を入れ、先程の治具を用いて叩き込む。（このときはベアリング部にグリースをタップリ塗り込んでおく事）  
両側からフランジをボルトで絞めつける。



この部分、シールの為のゴムリングがある。これがきつくて入りにくい。

iii) これをG-08に移動して組立てる。

取りはずした工程と逆をやれば良いのであるが、まずフランジ側を或る程度固定しておいてホイールを入れ、ピンを付け、もう一方の軸受部を取りつける。少し手前で回してから、各部を良く絞め付ける。ブーリーを入れベルトを掛け、張り具合、平行度を調整し、モーターを固定する。

空運転をして見て異常がなかったらOK。

このときあらかじめ軸受部にグリースを入れておく。但し入れすぎると軸受部が入らなくて苦労する。

これは重いので台を用意しておくと良い。

### 3. あとがき

このセンタレスグラインダーが Pu 燃に設置されてから 6 年半も経過しているので、故障が起きたても不思議ではない。しかし、製造ペレットを毎回研磨するわけではないから、実際の稼動時間は非常に少ないはずである。これが故障したということは、使い方が悪かったのかも知れない。しかし、修理作業中には軸受部のグリースが、グローブにべとべとまつわり付き、作業性を著しく困難にさせるほど入っていたのだが、これでも足りないのだろう。

これが動かなくなったとき、輸入機器ということ、図面が無いということからはたして元通りになるのか、それよりも新型のものを買った方が良いのではないか、との議論もあったが、廃棄ということになると Box ごと以外に考えられないので、大掛りな仕事になってしまふ。しかし、そろそろこの方の検討も始めておかなければならぬ時期になって来ているのではないかと思う。

作業は全部 Box 内で行なわれ、2 ~3 人で 15 日程かかった。

