

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]

原研・燃料研究棟派遣報告書

(炭・窒化物燃料の製造技術調査)

1992年6月

動力炉・核燃料開発事業団
東 海 事 業 所

こ
する
は内
いよ

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

限 定 資 料
PNC-ZN8420 92-011
1992年6月



原研・燃料研究棟派遣報告書

(炭・窒化物燃料の製造技術調査)

森平正之

要 旨

動燃事業団・日本原子力研究所の共同研究として平成6年度より「常陽」における炭・窒化物燃料の照射試験が予定されている。筆者は平成3年10月から翌年3月まで、この共同研究の一環として原研大洗研燃料研究棟で照射用燃料の製造に従事すると共に、炭・窒化物燃料の製造、取扱技術並びにこれらの燃料を取扱うための高純度アルゴン雰囲気グローブボックスについての技術調査を行った。本報告はこれらの調査結果をまとめたものである。

目 次

ページ

1. 目 的	1
2. 原研における炭・窒化物燃料研究の経緯	2
2-1 研究実績	2
2-2 研究設備	3
3. 炭化物燃料製造の経過	5
3-1 炭化物燃料ペレットの仕様	5
3-2 製造プロセス	5
4. 窒化物燃料の製造プロセス	9
4-1 今回製造した窒化物燃料ペレット	9
4-2 製造プロセス	9
4-3 内装機器についての特記事項	14
5. 炭・窒化物燃料の分析、物性測定	18
5-1 化学分析	18
5-2 熱拡散率測定	19
5-3 金相試験	21
5-4 X線回折試験	22
6. アルゴン雰囲気グローブボックスについて	26
6-1 構造についての特記事項	26
6-2 定常時の操作	28
6-3 非定常運転状態の操作	32

6-4 炭・窒化物試料の保管	38
6-5 ユーティリティ	38
6-6 その他の特記事項	39
7. 謝　　辞	41
8. 参考文献	42

1. 目 的

動燃事業団－日本原子力研究所の共同研究として平成6年度より高速実験炉「常陽」における炭・窒化物燃料の照射試験が予定されている。照射燃料ピンの製造は原研の担当となっており、平成3年度から原研大洗研究所燃料研究棟で実施されている。筆者は本共同研究に従事するため平成3年10月から4年3月まで外来研究員として燃料研究棟に在籍し、照射燃料ペレットの調製に携わる傍ら、炭・窒化物燃料の製造・取扱技術の調査及びアルゴン雰囲気グローブボックス（以下、「G.B.」という。）についての技術調査を行った。当初の計画では、筆者の在職中に全照射燃料ペレット（混合窒化物燃料ピン2本分及び混合炭化物燃料ピン1本分）の調製を実施する予定であったが、製造設備のトラブルのため実際に調製を行ったのは炭化物ペレットのみであった。しかしながら、この間、研究用にウラン窒化物及び混合窒化物燃料ペレットを照射燃料製造と同様のプロセスで調製したため、製造技術の調査という目的は一応達せられたと言える。本報告書はこれらの調査結果をまとめたものである。

2. 原研における炭・窒化物燃料研究の経緯

2-1 研究実績

原研では昭和48年に大洗研究所に炭化物燃料調製用高純度アルゴン雰囲気G.B.を設置し、51年にホット試験を開始して以来、炭素熱還元反応機構や炭・窒化物燃料の調製方法、分析・物性測定等に関する研究を数多く実施している。また、JRR-2やJMT-Rにおけるこれらの燃料の照射試験についても燃料ピン製造から照射挙動解析に至るまで手掛けている。原研で実施した炭・窒化物燃料の照射試験の概要を表2-1に示す。

表2-1 原研が実施した炭・窒化物燃料の照射試験

キャセル名	燃料種類	照射炉	照射時期	照射条件			PIE
				線出力 (W/cm)	燃焼度 (%FIMA)	ピン径 (cm)	
ICF-37H	MC _{1.0} MC _{1.1}	JRR-2	1983-84	420	1.2	6.5	1985
ICF-47H	MC _{1.0} MC _{1.1}	"	1985-86	640	1.6	9.4	1987
84F-10A	MC _{1.0} MC _{1.1}	JMT-R	1986-89	590	3.0	9.4	1990
84F-12A	MC _{1.0} MC _{1.1}	"	1986-90	620	4.6	9.4	"
87F-2A	MC _{1.05}	"	1988-92	660	(6.0)*	9.4	1992
88F-5A	MN	"	1990-93	660	(3.5)*	9.4	1993
89F-3A	MN	"	1991-94	660	(6.0)*	9.4	1995
—**	MC	常陽	1993-95	800	(5.0)*	8.5	1996
—**	MN	"	"	800	(5.0)*	8.5	"

* : 目標燃焼度

** : PNC-JAERI共研

2-2 研究設備

燃料研究棟にはプルトニウム燃料用の製造、分析、物性測定設備が一通り整備されている。

その概要を以下に述べる。

(1) 高純度アルゴン雰囲気G. B.

燃料研究棟の設備の中で特筆すべきものが高純度アルゴン雰囲気G. B. である。このG. B. には試料調製用（計9m³）と分析試料調製用（2m³）の2基があり、アルゴンガスを循環精製することにより酸素不純物2ppm以下、水分1ppm以下のアルゴンガス純度を維持することができる。各G. B. には2系統の精製塔が付属しており、アルゴンガス中の酸素をニッケル金属で、水分をモレキュラーシーブで吸着・除去する。また、精製能力が低下したときは300°Cに加熱したAr-8%H₂を流し、吸着した酸素・水分を除去することで精製塔を再生する方式を採っている。

調製用G. B. 内には熱処理炉、焼結炉、成形機、Vブレンダ、ボールミル等ペレット製造に必要な装置が備えられている。また分析用G. B. は、炭・窒化物燃料の分析試料が酸化しないように、これらのペレットをアルゴン雰囲気中で粉碎して真空タイトなキャップセルに圧封する目的で製作され、試料圧封機を包蔵している。調製用G. B. の概略を図2-1に、分析用G. B. の概略図を図2-2に示す。

(2) その他の製造関連装置

炭・窒化物燃料は粉末の場合極めて活性であり、空気中の酸素・水分によって容易に酸化される。従って、その取り扱いは前述のような不活性雰囲気下で行う必要がある。しかし、焼結体は比較的安定であるため空気中で取り扱うことが可能である。このため、センタレスグラインダ、ダイヤモンドカッタ等の焼結ペレットを加工する装置や、端栓溶接用TIG溶接機は通常の空気雰囲気G. B. に収めている。

(3) 物性測定・分析用装置

物性測定用には熱定数、蒸気圧の各測定装置、X線回折装置、電子線分析装置及び金相研磨装置、光学顕微鏡がある。また、分析に関しては酸素・窒素、炭素、窒素定量、金属不純物の各分析を行うことができる。

この他にα有機性廃棄物焼却用の炉や小型ミキサセトラがある。

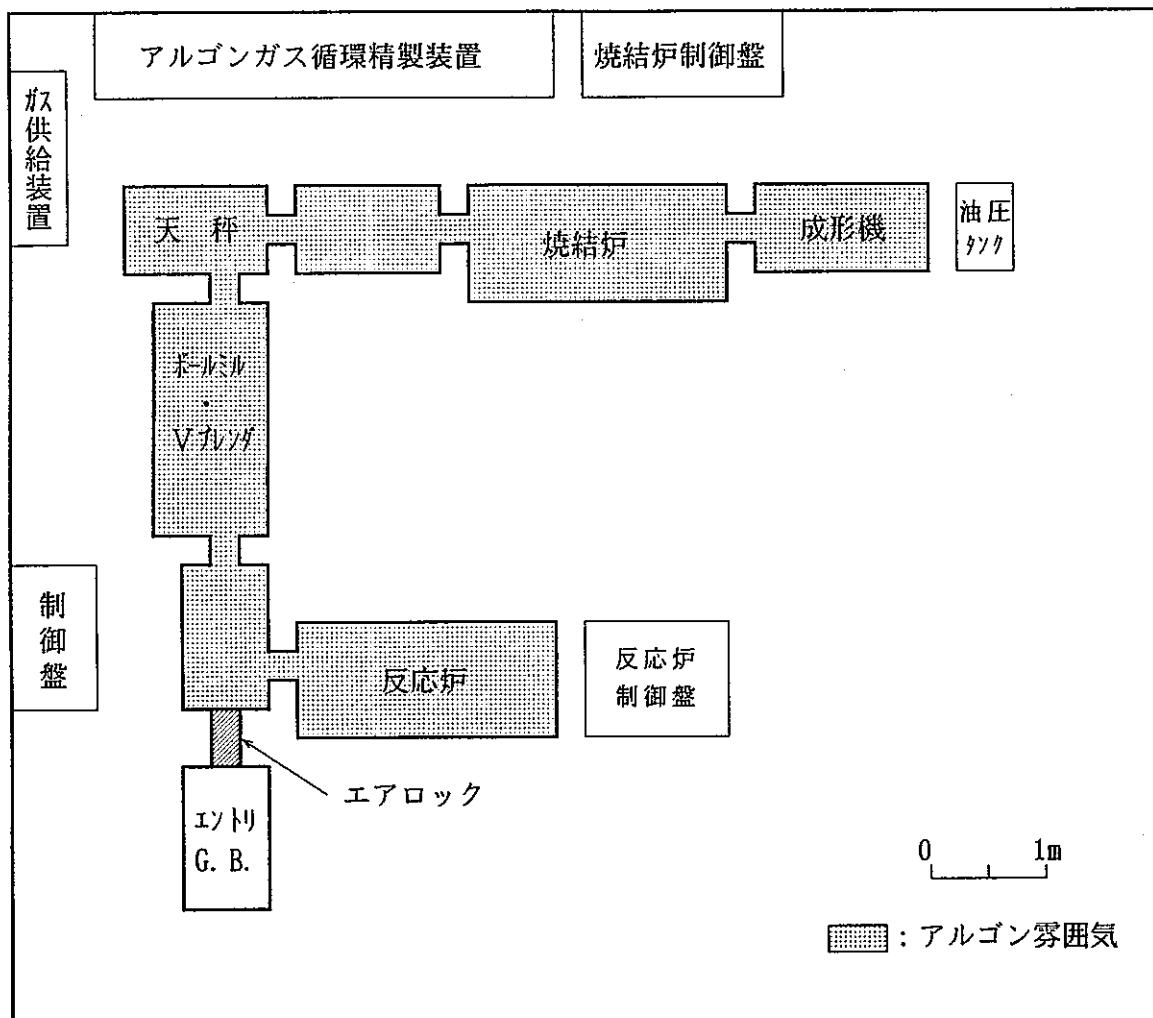


図2-1 調製用G.B.の概略図

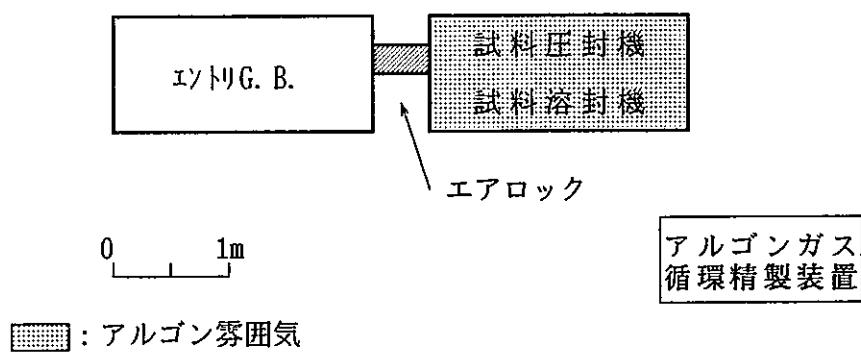


図2-2 分析用G.B.の概略図

3. 炭化物燃料製造の経過

3-1 炭化物燃料ペレットの仕様

今回調製した「常陽」照射用混合炭化物燃料の主要仕様値を表3-1に示す。

表3-1 「常陽」照射用混合炭化物燃料の主要仕様値

項目	仕 様
Pu富化度	21.35wt%
ピン外径	8.5 mm
ペレット直径	7.42 mm
ペレット密度	85 %TD
スタック長	200 mm

3-2 製造プロセス

(1) 原料粉末調整

濃縮 UO_2 (JCOで転換) 約140 gについてAr-8%H₂気流(流量3 l/min)下で1000°C × 3 hrのO/U調整を行った。従来の経験から上記条件によりO/U=2.00になることがわかっている。還元はアルゴン雰囲気G. B. 中の反応炉(試料部はφ35mm, 深さ45mmのタンクステン製バケツ)を用いて行った。

PuO_2 については約38 gを700°C × 3 hr, 空気中で脱水した。黒鉛はGraphitwerk Kropfmühl製の原子炉級粉末を用い, 400°Cで2時間脱ガスした。なお, UO_2 のO/U調整及び黒鉛脱ガスはアルゴン雰囲気G. B. 中で実施した。 PuO_2 の脱水は空気雰囲気G. B. 中の管状炉を, 黒鉛の脱ガスにはG. B. 外の管状炉を用いた。

(2) 秤量・混合

Pu富化度21.35wt%, 黒鉛添加率C/M=3.075となるように秤量した。

次に, UO_2 , PuO_2 をガラス製Vブレンダで1時間混合した後, 黒鉛を加えて更に1時間混合した。その後, 粉末をアルミナ製ボール(φ10mm)入りのボールミルポットに移して48時間の粉碎混合を行った。

なお, 本工程以降の作業は全てアルゴン雰囲気G. B. 中で実施した。

(3) 仮成型

油圧プレス（総圧 6 ton）を用い ($\text{UO}_2 + \text{PuO}_2 + \text{C}$) 混合粉を $\phi 12\text{mm}$, 厚さ 2~3 mm のタブレット状に仮成型した。成型圧は約 0.8t/cm^2 とした。バインダ、ルブリカントは使用しなかった。

(4) 炭素熱還元

仮成型タブレットを 1 回当たり約 50 個ずつ 3 回に分けて炭素熱還元を行った。還元は試料調製用アルゴン雰囲気 G.B. 中の焼結炉（試料皿： $\phi 50\text{mm} \times 5$ 段）を用い、ロータリポンプで真空引き ($\sim 10^{-2}\text{Torr}$) した後、 $600^\circ\text{C}/\text{hr}$ で昇温して 1500°C で 3 時間キープした。次に拡散ポンプに切替えて更に 2 時間キープした後降温した。拡散ポンプに切替える前の真空度は 10^{-2}Torr 、キープ終了後は 10^{-5}Torr であった。炉の温度はパイロメータで確認した。

還元に際してタブレット 3 個について還元前後の重量変化をチェックした。その結果、第 1 バッチの重量減少率は計算値よりも若干大きく、炭素熱還元反応は十分進んでいるが若干の Pu の蒸発損失が懸念されたため、第 2 バッチ以降はロータリ引きを 4 時間とし拡散ポンプによる真空引きを 1 時間に短縮した。

(5) ボールミル粉碎

還元後のタブレットを 2 バッチに分割し、タンゲステンカーバイド製ボール入りボールミルポットで各々 48 時間粉碎した。その後両者を約 7 時間クロス混合した。

タンゲステンカーバイド製ボールは 5 種類の径 ($\phi 1 \sim 12\text{mm}$) のボールを混合して用了。また、コンタミ防止のためボール、ポット、ふるいは炭素熱還元前の黒鉛混合用とは区別して用了。

(6) 試焼結ペレットの成型

ポアフォーマ添加量を決定するためにボールミル粉碎粉約 12 g を分取し、ポアフォーマを 0.6wt% 添加した後 $\phi 8.5\text{mm}$ のダイスを用いて成型した。同時にマトリクスの密度を調べるためにポアフォーマ無添加のペレットも 1 個成型した。ポアフォーマには粒径 $10 \sim 30\mu\text{m}$ の K-3 ワックスを用了が、バインダは使用せず、またルブリカントは流動パラフィンをダイス孔に塗布するに留めた。

粉末はペレット 1 個分ずつ秤量して分取して成形した。成型圧は 3t/cm^2 とし、10 秒間の圧縮停止を行った。

(7) 試焼結

純アルゴン気流下で1700°C × 5 hrの焼結を行った。昇・降温速度は300°C/hrとし、ポアフォーマを分解・除去するために途中400°Cで2時間キープした。

その結果、ポアフォーマ添加ペレットの密度は90.2%TDであり密度降下が不十分であったが、ポアフォーマ無添加のペレットの密度は92.8%TDとなりマトリクスの密度は十分上がっていることがわかった。また、焼結ペレットの直径は7.39mmと若干細めであった。そこで、ポアフォーマ添加量を1.3wt%に増やすと共にダイス径をφ8.7mmに変更して再度試焼結を実施したところ焼結密度は84.52%TDとなり十分仕様を満足したため、この条件で本番の焼結を行うことにした。なお、この焼結密度はセスキ相の含有を考慮して理論密度を13.5g/cm³として計算したが、単相一炭化物の理論密度は13.6g/cm³であるからその場合の密度は83.90%TDとなる。

(8) 本焼結

(U, Pu) C ボールミル粉碎粉に1.3wt%のポアフォーマを添加し、Vブレンダで1時間混合した。バインダ、ルブリカント添加及び成型、焼結条件は試焼結と同様とした。

(9) 分析

炭素熱還元後と焼結後のサンプルについてX線回折試験及び炭素・酸素分析を行った。

分析結果は炭素含有率4.99wt%、酸素不純物量800ppmであった。

(10) ペレット保管

官庁検査までは相当期間があるので焼結したペレットの外周研削は行わず、酸化防止のためにアルゴン雰囲気グローブボックス中でSUS製パイプに溶接封入して保管した。

(11) その他

炭化物燃料ペレットの製造は11月7日にPuO₂の焙焼を開始し12月16日に焼結ペレット取り出しを行ったので34個(約130g)のペレットを製造するのに約40日を要したことになる。

炭化物燃料ペレットの製造フローを図3-1に示す。

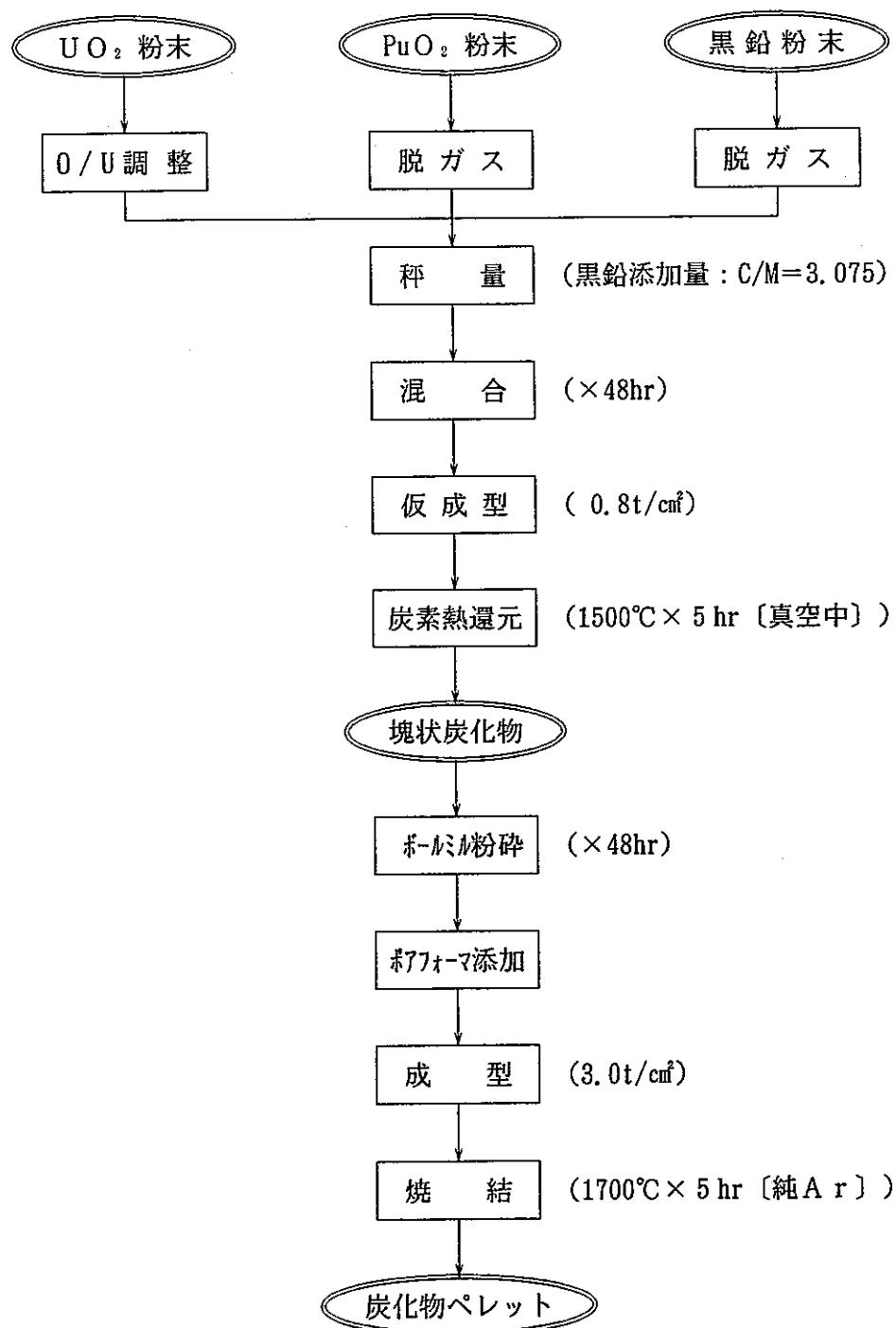


図3-1 炭化物燃料ペレット製造フロー

4. 窒化物燃料の製造プロセス

4-1 今回製造した窒化物燃料ペレット

「常陽」照射用窒化物燃料の製造はスケジュールの遅延があったため、今回その一部にしか従事しなかった。しかし、窒化物に酸化物を添加して結晶粒成長や熱拡散率の変化を調べる試験のために、照射用燃料製造と同じプロセスでサンプル調製を行ったので、その経過を基に製造プロセスを述べる。

4-2 製造プロセス

(1) 原料粉末調整

UN試験用に天然 UO_2 粉末約38 g の O/U 調製と黒鉛の脱ガスを行った。脱ガスの条件は炭化物の場合と同様である。 $(\text{U}, \text{Pu})\text{N}$ 〔混合窒化物=MN〕用には照射用炭化物燃料製造の際に脱ガス等を行った UO_2 粉末約26 g と PuO_2 粉末約7 g を使用した。なお、本工程以降の作業は全てアルゴン雰囲気G. B. 中で行った。

(2) 秤量・混合

試料はUNと $(\text{U}, \text{Pu})\text{N}$ の2種類を調製し、混合窒化物のPu富化度は20.0%（モル比）とした。黒鉛添加率は両者共モル比2.5とした。

混合条件は炭化物の場合と同様とし、Vブレンダで1時間 UO_2 と黒鉛を粗混合した後ボールミルで24時間粉碎混合した。MNの場合、黒鉛を添加する前に UO_2 と PuO_2 を1時間弱Vブレンダ及び乳鉢を用いて混合した。ボールミル用のボールはシリコンカーバイド製のものを使用した。

(3) 仮成型

油圧プレスを用い（酸化物+黒鉛）混合粉を $\phi 12\text{mm}$ 、厚さ2~3 mmのタブレット状に仮成型した。成型圧は約0.8 t/cm²とした。

(4) 炭素熱還元

試料調製用G. B. の焼結炉を用い仮成型タブレットの炭素熱還元を $\text{N}_2-8\%\text{H}_2$ 気流下（流量：3 l/min）で行った。昇温速度は600°C/hrとし、1500°Cで10時間キープした。なお、セスキ窒化物の生成を防ぐために昇・降温とも1400°C以下では雰囲気を純アルゴンとした。還元の進行を確認するためにUN、MN共、各々タブレット3個についての還元前後の重量減少率を調べたところ、理論値の-0.160wt%に対し実験値は、UNの場合-0.161~

0.167wt%, MNでは-0.163~0.171となった。理論値を大きく上回ったのはクラックによって生じたカケ等が原因と考えられる。X線回折の結果、単相一窒化物の生成が確認できた。

(5) ボールミル粉碎

炭素熱還元後のタブレットをタンクステンカーバイド製ボールを装荷したボールミルで48時間粉碎した。

(6) 成型

ボールミル粉碎粉を油圧プレスで成型した。焼結ペレットの径が熱拡散率測定用 (ϕ 8 mm) に適合するようにダイスは ϕ 9.1mmのものを用い、成型圧を 3 t/cm²、圧縮停止時間を10秒とした。なお、このペレットは照射用ではないのでポアフォーマは用いず、バインダやルブリカントも添加しなかった。但しルブリカントについては若干の流動パラフィンをダイス孔に塗布した。

(7) 焼結

炭素熱還元に用いた焼結炉で昇・降温速度を600°C/hrとして1700°C × 5 hrの焼結を行った。焼結雰囲気にはAr-8%H₂を用い、流量は 2 l/minとした。

ペレットの焼結密度、窒素含有量、酸素・炭素不純物分析を表4-1に示す。

表4-1 焼結ペレット分析結果

試料	焼結密度 (%TD)	化学分析値		
		N(%)	O (ppm)	C (ppm)
UN	93.9	5.38	1200	2200
(U, Pu)N	96.2	5.49	2100	2000

以上のプロセスのフローを図4-1に示す。また、このプロセスを基に窒化物燃料ペレットを製造する場合の所要日数及びシフト数を整理すると図4-2のようになる。

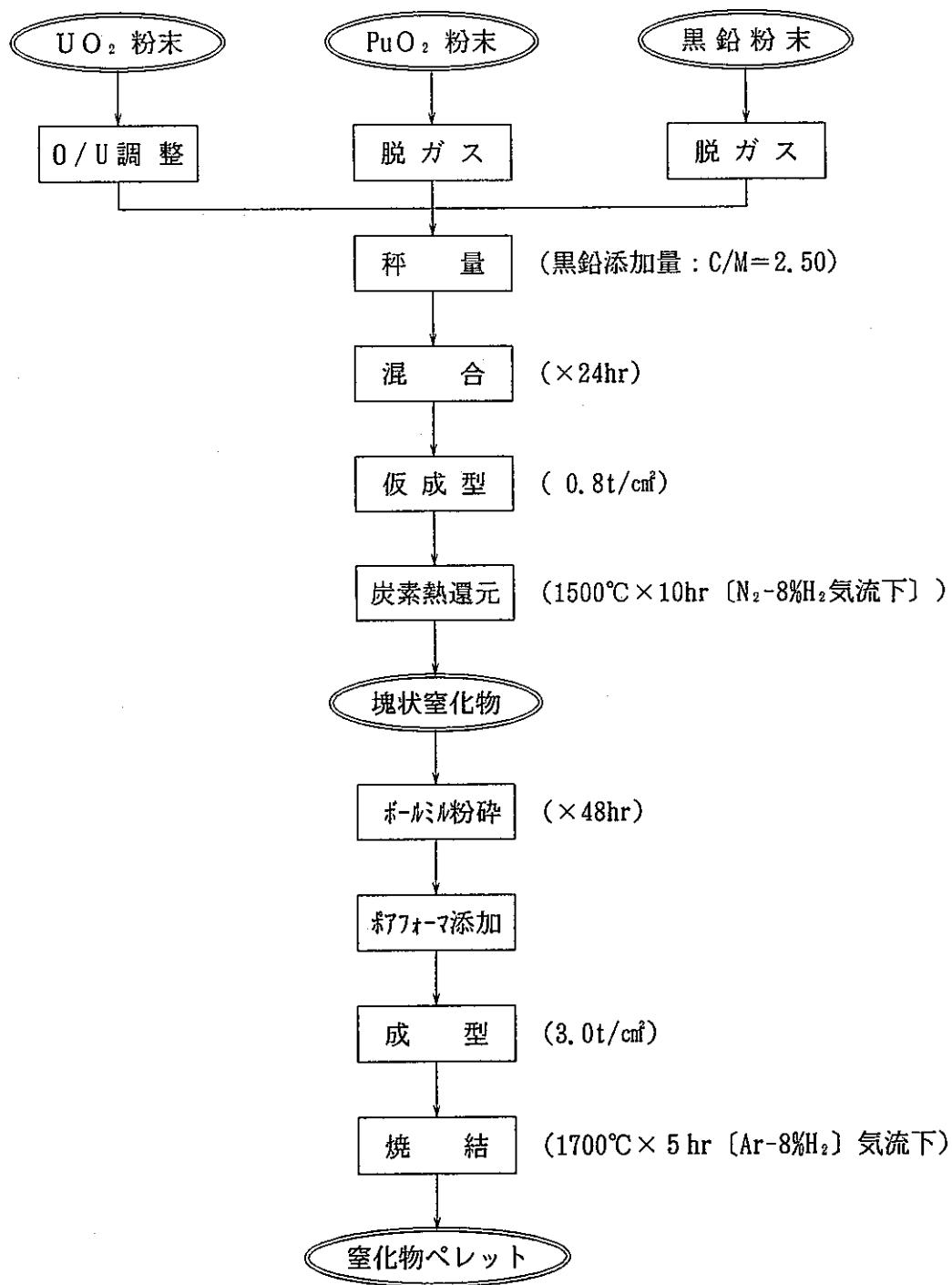


図4-1 窒化物燃料ペレット製造フロー

図4-2 窒化物燃料製造に係る所要日数 ①

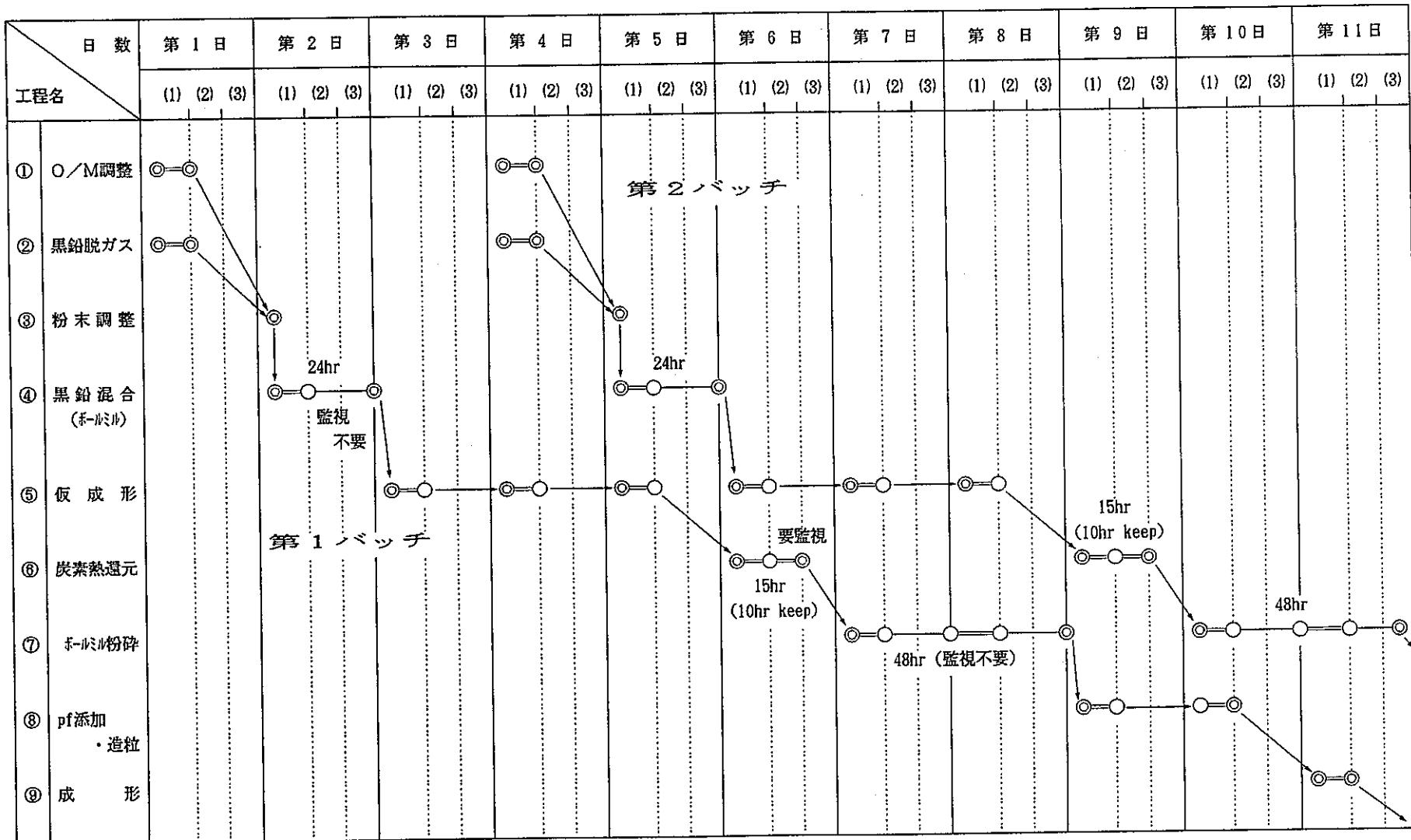
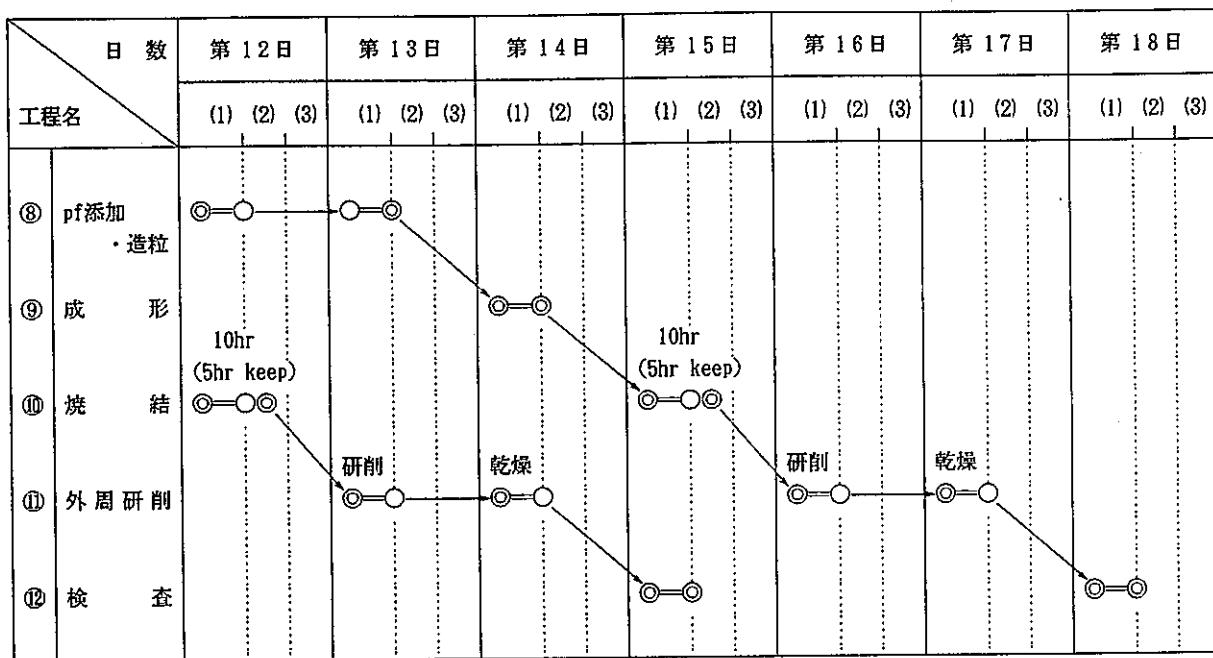


図4-2 窒化物燃料製造に係る所要日数 ②



(凡 例)

○ : 工程の区切り

○ : 2日以上にまたがる作業の1日の区切り

— : 監視を要する作業

— : 監視を要しない作業

→ : 工程の流れ

* 上表のとおり1バッチ(500g)の処理に要する日数は15日と見込まれるが、2バッチを並行に流した場合18日間で処理でき、1バッチ当たりの所要日数は9日となる。

4-3 内装機器についての特記事項

(1) UO_2 のOO/U調製

- O/U調製に用いた還元炉はバッチ200gと小さい（試料部は $\phi 30\text{mm} \times \text{高さ } 40\text{mm}$ のバケツ状）ため降温時の冷却が速く、900°Cのキープアウト後2 hr後には取り出しが可能であった。これに比べてPNCブル第一開発室R-129の焼結炉（バッチ～30kg）はR&D用としては大き過ぎ、冷却時間のみならず電気、ガスの消費量を考えても無駄が多いと言える。

(2) 秤 量

- 天秤の形式が非常に旧式なため慣れるまで時間を要した。今まで更新しなかったのは故障がなかったこともあるが、ボルト締めのラージポートからの搬出入が面倒なためと思われる。
- 黒鉛添加に際しては0.1mgのオーダーまで、原子量も $\text{UO}_2 = 270.03$ というように小数点以下2桁まで計算する等、精度に関してはかなり注意を払っているようである。

(3) 黒鉛混合

- ボールミルポットの容量は250cm³程度であるから適性な粉末装荷量は80 g前後と思われる。しかし、その倍量を装荷することもあり、この辺りについては粉碎時間の調節等によって融通を効かせているようである。
- Vブレンダ、粉末容器、サンプル瓶、シャーレ等、ガラス製の器具をG.B.内で数多く使用している。ガラス製のブレンダは粉末の残留や洗浄の確認が容易であるし、秤量瓶についても洗浄の容易さや耐放射線の点で優れているが、割れ易いため取扱には注意を要する。

(4) 仮成型

- 今回は粉末の量が少ないためフィーダを使用しなかったが、ポアフォーマを使用するときは振動によって粉末と分離することである。
- ダイス孔への粉末充填に際しては、PNCのようにヘラですりきる方法をとらず、薬包紙にタブレット一個分の粉末を分取し、これを直接充填するようにしている（図4-3）。仮成型の場合は目分量であるが、本成型の場合はペレッ1個分ずつ重量を測定した上で分取している。この方法ならば充填過剰や不足による成型アウト、或いは成型圧のばらつきを無くすことができるし、試し打ちの回数も減らすことができる

で試験用ペレットの調製においては合理的な方法と言える。

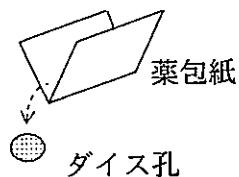


図 4-3 粉末の充填法

- なお、仮成型体は成型圧を殆ど掛けないため非常に脆く取扱いに難儀した。これはスラグ造粒時の仮成型体と同じであるが、造粒の場合すぐに碎いてしまうのに対し、還元用の場合炉への出し入れがあるので或る程度丈夫でないと問題である。しかし、仮成型体の厚さを増やしたり成型圧を上げると、還元時のCOの抜けが悪くなると考えられるため、その辺りの最適化をはかり量産化に備える必要がある。このような観点からも、顆粒状燃料は有望であると考えられる。

(5) プレスの構造、操作

- プレスは油圧式であるが、油圧部をG.B.外に置ける、パンチ突込み量や充填量を外から調節できる等のメリットがあり、特に不活性雰囲気G.B.のようにグローブポートとなるべく少なくしたい場合有利と思われる。
- PNCではダイス交換時にダイスにボルトをねじ込み、これをつまみとして持ち上げる方式を用いるが、燃研棟では強力なマグネットを使用して持ち上げる方法を探っている。
- 燃研棟のプレスは加圧抜出方式になっておらず、

〔上パンチ下降〕 \Rightarrow 〔下パンチ上昇=加圧〕 \Rightarrow 〔上パンチ上昇=抜圧〕
 \Rightarrow 〔下パンチ上昇=抜出〕

のサイクルになっている。これに対し、PNC R-129の場合、

〔上パンチ下降&下パンチ上昇=加圧〕 \Rightarrow 〔上下パンチ上昇=加圧のまま抜出〕
 のサイクルである。加圧抜出でない場合キャッシング等が生じやすいとされているが、燃研棟ではそのようなことは起きていないとのことである。但し、それが炭・窒化物とMOXのスプリングバックの違いによるのかどうかは不明である。

- 実験室には総圧、ダイス径、圧力 (t/cm^2) の関係の早見表を用意してあった。

(6) 炭素熱還元

- 炭素熱還元に際してはO/U調製用に使用した還元炉は使用せず焼結炉を用いた。これは、還元炉の試料部がバケツ状で通気孔のない構造であるため、ガスの当たりや抜けが悪いためである。これに対し焼結炉は40mm ϕ × 5段のPNCの炉と同形状のものであるが、さらに通気性を向上させるためタブレットの下に手製の馬蹄形下駄（材質はモリブデン）を履かせている（図4-4参照）。また、タブレットを並べる際には相互に重ならないように注意している。
- 炭素熱還元及び焼結用ガスは、純度に対する信頼性から、ArやAr-H₂であっても雰囲気用または再生用ユーティリティからは取らず分析表付きのボンベを使用している。

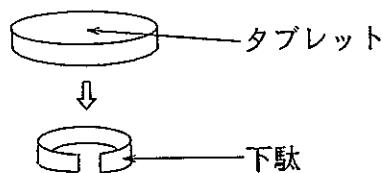


図4-4 炭素熱還元時のタブレットの置き方

- 温度はパイロメータで確認し、キープ・イン後安定するまでの温度上昇（約10°C、炭化物調製時の真空状態ではもっと上がる）を見込み、やや低い温度でキープ・インするなど注意している。また、熱電対の指示値はパイロ指示値よりも1500°Cで約250°C低いが、その辺りについては校正によって押さえている。

(7) 窒化物のボールミル粉碎

- 粉碎効率を良くするために、タンクステンカーバイド製ボールは粒径1～12mmの5種類のボールを組み合わせている。
- 粉碎後の粉末をボールミルポットから取り出す際に用いたふるい等の洗浄（空気雰囲気G.B.中）ではかなり激しく火花が飛ぶようである。洗浄には水及びエタノールを用いる。

(8) ペレット成型

- ・粉末は前述したようにペレット1個分ずつ天秤で秤量して分取する。
- ・圧縮停止時間は10秒としており、これはPNCにおけるMOX製造の5秒より長い停止時間である。

(9) 焼結

- ・照射試験用MCの焼結に際しては、ポアフォーマの分解のために400°C程度で2時間キープした後1700°Cで5時間キープした。昇温速度は試験用ペレットの場合は600°C/hrであるが、照射試験用の場合300°C/hrで行っている。これはクラックの発生防止ということらしいが、余り明確な根拠はないようである。炭・窒化物の熱伝導度を考えると温度勾配はできにくく、MOXよりもクラックは生じにくいと考えられる。
- ・ペレットの整列皿に相当するものはアクリル板をドリルで加工したものであるが、少量試験用としては使い勝手が良くペレット相互の入れ違い等もなさそうである。

(図4-5参照)

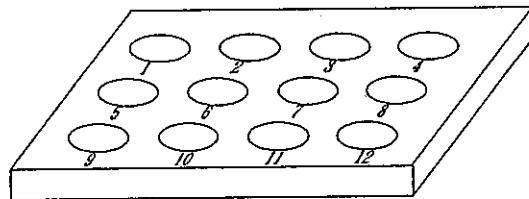


図4-5 ペレット整列皿

5. 炭・窒化物燃料の分析、物性測定

5-1 化学分析

(1) サンプル調製

- ・炭、窒化物の焼結体は粉末に比べて空気中の酸素、水分の影響を受けにくいが、なるべく空気に曝さないように注意を要する。即ちサンプルをガラス製秤量瓶とプラスチック製容器（冷凍食品等を入れる家庭用のもので2重にして使っている）に調製用アルゴンG.B.中で収め、なるべく短時間に分析用アルゴンG.B.に移動するようにしている。
- ・サンプルは乳鉢で粉碎し、炭素分析用はスズ製キャップセルに、酸素分析の場合は白金製キャップセルに各々100mgを封入する。白金製キャップセルの場合、パイプの中央を圧着することで1本のパイプから2個のキャップセルを得ている（図5-1）。スズ製キャップセルは始めから有底である。これらのキャップセルはバッギングする前にアセトンによる超音波洗浄を行っている。

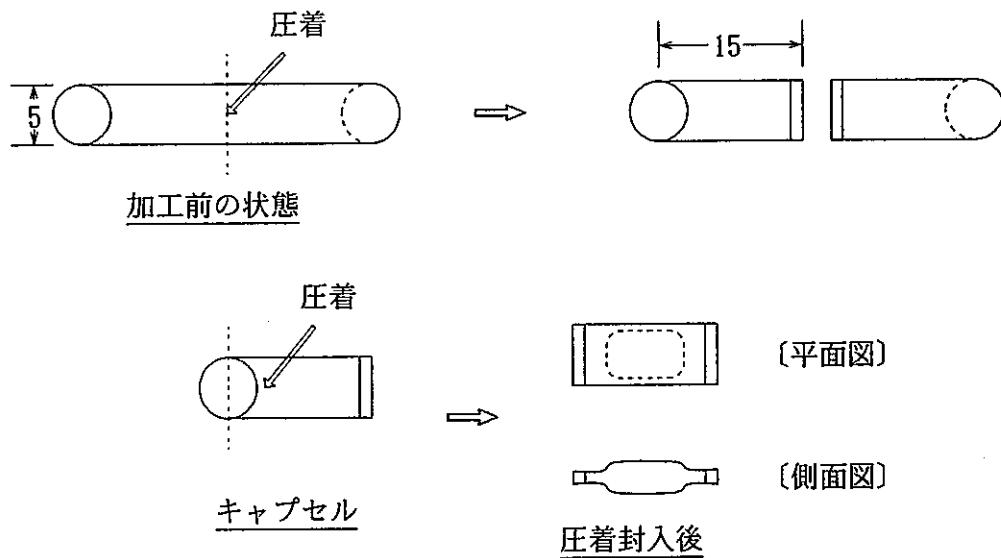


図5-1 白金キャップセルの使用方法

- ・圧封は油圧ハンドプレスで約200kg/cm²を掛けて行う。これによりキャップセルは真空タイトな状態になる。
- ・サンプルをキャップセルに充填するには振動スプーンを用いる。充填に際してキャップセルを置くためのスタンドや圧封装置にキャップセルをセットするためにアクリル板を加工したハンドメイドのスタンドを用意してある。（図5-2）

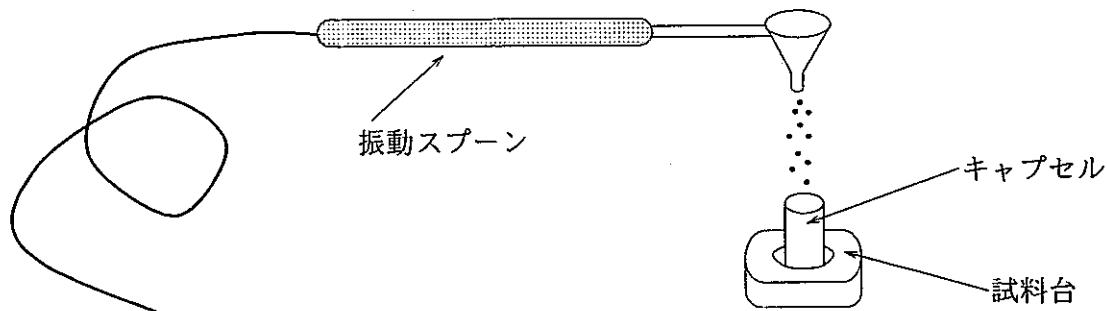


図 5-2 振動スプーンによる試料粉末充填

- ・圧着したキャップセルは内容が不明にならないように番号を書いた小さなビニル袋に入れ、分析装置のあるG.B.に移動する。なお、圧着時に生じるキャップセルの切れ端は、助燃剤としても機能するので一緒にビニル袋に入れる。
- ・サンプルは1試料につき4個以上作成している。

(2) 分析方法

- ・炭素分析は国際電子工業製クロマチックCを改良した装置を用いて行っている。これはスズ製キャップセルに封入したサンプルをアルミナるつぼに入れ、酸素気流下で加熱することで生じたCO₂を過酸化バリウム溶液の吸収セルで滴定する方法を採る。
- ・酸素分析の場合、白金キャップセルにサンプルを収めて黒鉛るつぼ中で加熱する。発生するガスはCOであるのでCu₂O層を通してCO₂にしたのち滴定する。滴定装置は炭素分析装置と共に用いている。

5-2 热拡散率測定

(1) サンプル作製

- ① 調製用アルゴン雰囲気G.B.内でベークライト製治具にペレットをセメダインで埋め込んだ後、G.B.のエアロック内で2時間アルゴンガスでワンススルーして乾燥させる。治具はペレット外径に合わせてベークライト棒を旋盤加工したものである。セメダインを使用したのはアセトンに易溶なためであるが、ペレットが治具の中でぐらつかない場合は使わない。

- ② 空気雰囲気G. B. 中でダイヤモンドカッタにより図5-3のようにペレットを切断する。切削油は外周研削と同じくユシロンC G（ユシロ化学製）を使用する。炭・窒化物は非常に欠けやすいため慎重な切断を要し、 $\phi 8\text{ mm}$ のUN（約93%TD）の場合で30~40分必要である。
- ③ 初期の時点では切断時に空気G. B. 内をアルゴンガスに置換していたが、試験を進めるうちに炭化物でも酸化の恐れのないことがわかった。しかし、空気に触れる時間を短縮するために、切断したサンプルは切削油中に沈めたままにしておき、全部切り終わってから取り出す等の配慮をしている。
- なお、これに限らず、例えば窒化物のボールミル粉碎から次の作業まで日が開くときはポットを開けずに置き、次の作業を行う直前になってから中の粉末を取り出す等、アルゴン雰囲気中とはいえ微量の酸素・水分による酸化については十分注意している。
- ④ オイルパン中の切断油から取り出したサンプルはアセトンで超音波洗浄する。このときサンプルに衝撃を与えると火花が飛びアセトンに引火する可能性があるので、手順としてはビーカにサンプルを入れた後静かにアセトンを注ぐようにしている。
- ⑤ 洗浄後のサンプルはアルゴン雰囲気G. B. のエアロックで真空引き乾燥した後同G. B. 中に保管する。

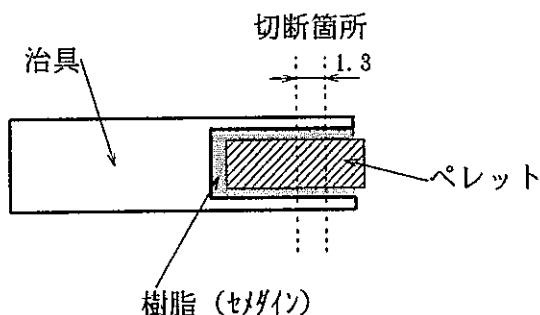


図5-3 熱拡散率測定用サンプルの切断

(2) 測 定

- 熱拡散率測定にはレーザフラッシュ法を用いる。今回の試験では厚さ1.3~1.4mmにスライスしたサンプルを400~1300°Cまで23点（熱電対起電力で1mV毎），各温度で3回ずつ測定した。

- ・炭、窒化物の場合、黒色を呈するMOXに比べて光の反射率が高い。このため特に1500°C以上ではレーザの吸収率が低く測定データの信頼性は低いと考えられている。

(3) その他の特記事項

- ・熱拡散率測定装置の試料は真上からセットするため、G.B.の天井には可動式のミラーと自在アーム付の照明灯を設けてある。(図5-4)
- ・このような試料セット用ミラーはX線回折装置のG.B.にも設置してあり、便利である。

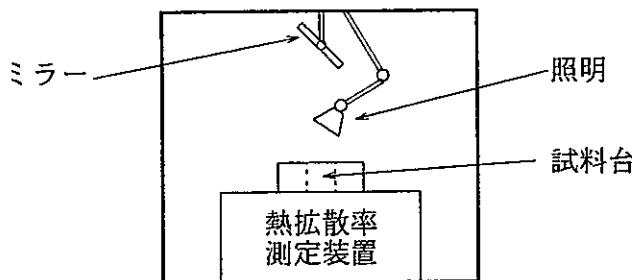


図5-4 試料セット用ミラー

5-3 金相試験

(1) 埋め込み

- ・今回の試験では、熱拡散率測定用に切断したペレットの残りを金相試験に使用した。
- ・埋め込みにはBUEHLER製の試料埋込プレスを用いる。
- ・埋め込んだサンプルについても研磨までの間の酸化を考慮して、プラスチック製容器に密封して保管する。

(2) 研磨

- ・使用する研磨紙及び研磨時間は以下のとおり。

- ① 240番 : 140rpm × 5分
- ② 320番 : "
- ③ 400番 : "
- ④ 600番 : "
- ⑤ 800番 : "
- ⑥ (1000番 : ")

⑦ バフ (6 μm) : 140rpm×10分

⑧ バフ (3 μm) : "

⑨ バフ (1 μm) : "

- ・研磨油はリファインテック製ラッピングオイルを使用し、研磨後の洗浄にはエタノールを用いる。
- ・1000番の研磨紙は6 μmのダイヤモンドポリッシャに相当するため、今回の試験では使用しなかったが、東海研ホット試験室におけるP I Eに際してはこれを用いている。
- ・バフは、G. B. 外でポリッシャを塗布したものをラップで包んでバッグインしている。
- ・研磨紙は所定の円盤にカットしたアクリル板に張り付けてからバッグインし、研磨機にセットする方法を取っているため、交換が極めて容易である。廃棄に際してはそのまま不燃性廃棄物としているが、P N Cでは難燃製廃棄物と不燃製とに分けるためにアクリル板から研磨紙を剥がさなければならないし、アクリル板の分廃棄物の量が増えるため実現は難しいと思われる。
- ・研磨油は保管廃棄しているが、近日中に大洗研究所内廃棄物処理場で焼却できるようになるとのことである。
- ・エッチングを水溶液で行うことを考えると研削油の代わりに水を用いても問題はないと思われるが、実施したことではないとのことである。
- ・窒化物は炭化物よりも更に硬いため完全に鏡面仕上げするのは難しいようである。

(3) エッチング

- ・エッチング液は〔乳酸30mℓ, 硝酸10mℓ, フッ酸2滴〕のものを用いた。炭化物の場合はフッ酸は使用せず、〔硝酸：酢酸：水=1:1:1〕としている。乳酸はバッファとして添加すると思われ、エッチング時間は炭化物の10~30秒に対し窒化物の場合は4~5分である。

4-4 X線回折試験

(1) 試料作製

X線回折試験用のサンプルは粉末の酸化防止のために以下の手順で作成する。

(図5-5参照)

- ① アルミフレーム、アセチルセルロースフィルム、ガラス板の3層から成るマウントを準備する。
- ② アルゴン雰囲気G. B. 中でサンプル300mgを乳鉢粉碎しマウント上でエポキシ樹脂と混合する。補強のためにその上から更に樹脂を継ぎ足し、5時間以上放置して硬化させる。
- ③ 樹脂の硬化後、セルロースフィルムを剥がす。3～4日以上放置すると照射損傷によってフィルムが剥がれにくくなるので注意が必要である。
- ④ 試験後のサンプルはマウントから外して焼却して粉末を回収する。エポキシは400～500°Cで分解するが、煤が発生するので酸化物を触媒として更に700°Cで加熱して完全にガス化させている。
なお、マウントはG. B. 外で作製したものを持ち込むためアルミ製フレームやガラス板は使い捨てになるが、廃棄物の低減という観点からは一考を要する。

(2) 分析用G. B.

X線回折用G. B. にはエントリG. B. を設けて、本体G. B.との間に差圧を作るようしている。これは試料調製に伴う微粉が本体G. B. に飛散してバックグラウンドを上げないようにするためである。(図5-6参照)

なお、化学分析、物性測定方法の詳細については参考文献15)を参照されたい。

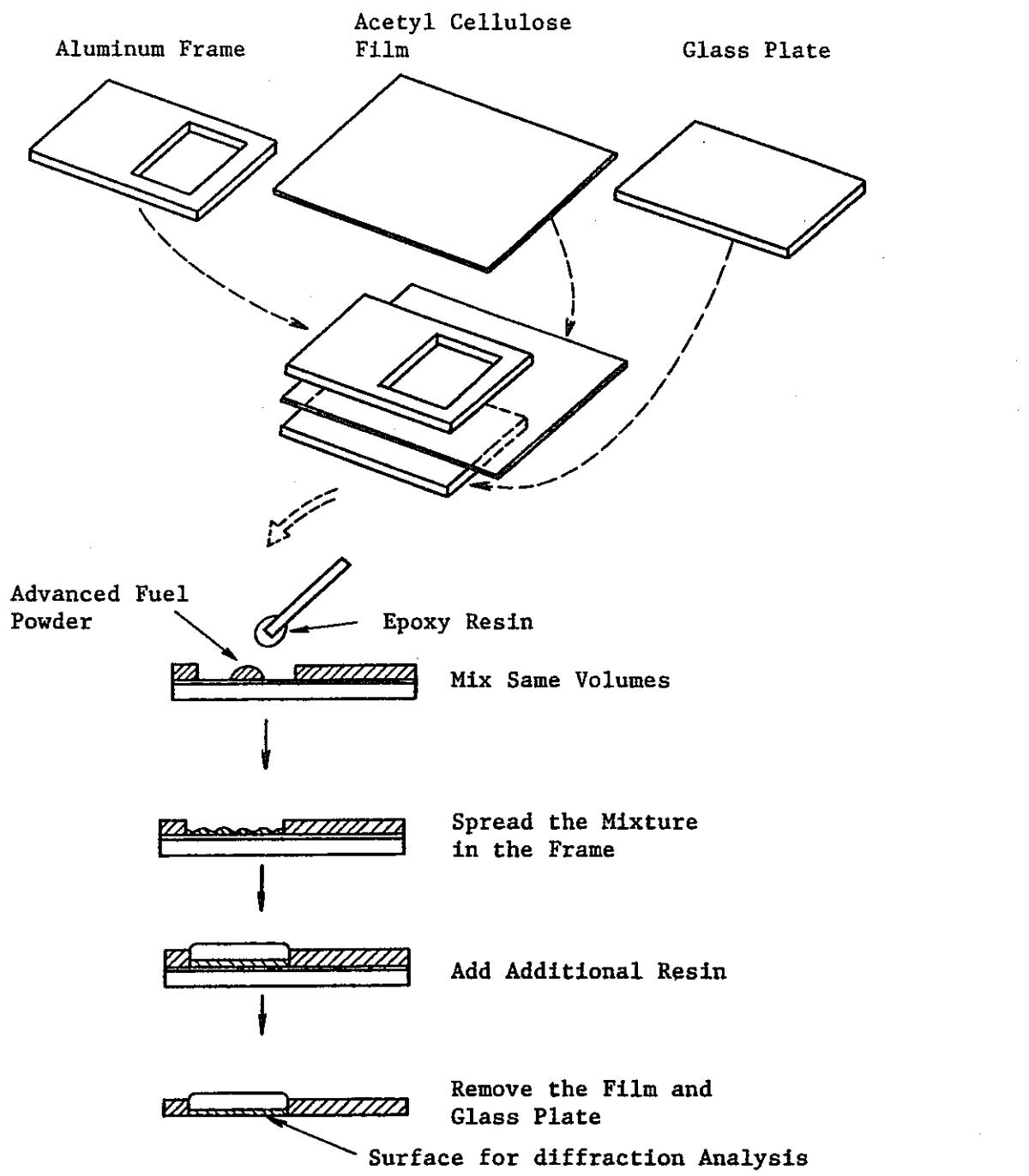
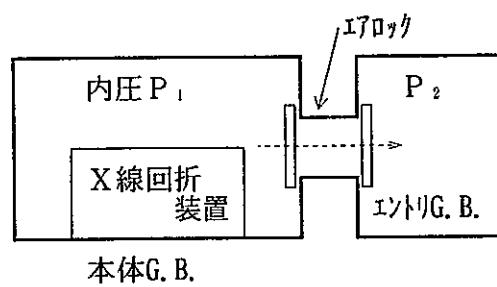


図 5-5 X線回折用サンプルの作成方法



$$\left\{ \begin{array}{l} (P_1 - P_2) = 5 \text{ mmAq} \\ \rightarrow \text{は、ハッチ開放時の空気流線を示す。} \end{array} \right.$$

図 5-6 X線回折用G. B. の負圧構造

6. アルゴン雰囲気グローブボックスについて

6-1 構造についての特記事項

(1) ガス純度維持対策

MOX用設備の場合炉関係のオフガスをG.B.内に放出するが、アルゴン雰囲気G.B.の場合直接ダクトに排気する必要がある。これはオフガス中に炭素熱還元に伴うCOや添加物の熱分解による有機ガスが、また焼結ガス自体にもジルコニア電池式酸素濃度計の機能を低下させる水素が含まれているためである。

また、ダクトからの逆流を防止するためのオイル式のトラップを設けてあるが、ガスの入口側に逆止弁は備えていない。

(図6-1参照)

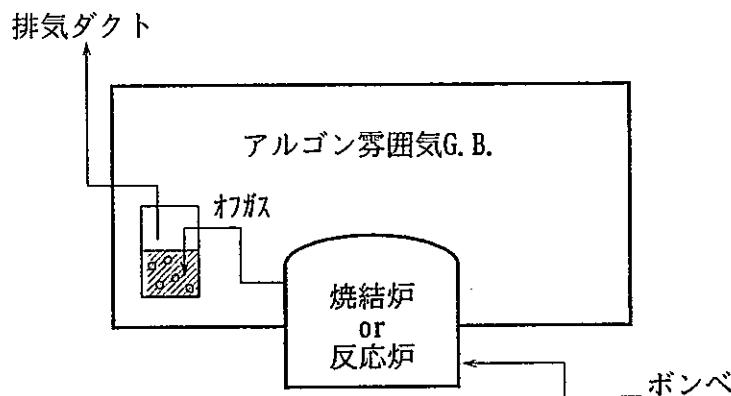


図6-1 炉のオフガス系の構造

(2) フィルタ部

MOX用G.B.ではフィルタとダクトをビニルバッグで接続するが、アルゴン雰囲気G.B.中のガスの純度維持のためフランジで接続しその上からビニルバッグで覆う方法を探る。しかし、これではフィルタ交換後にビニルバッグ内が汚染されるにも係わらず、バッグ内が常圧になるので、下図のような対策を施し、バッグ内を負圧に維持している。

(図6-2参照)

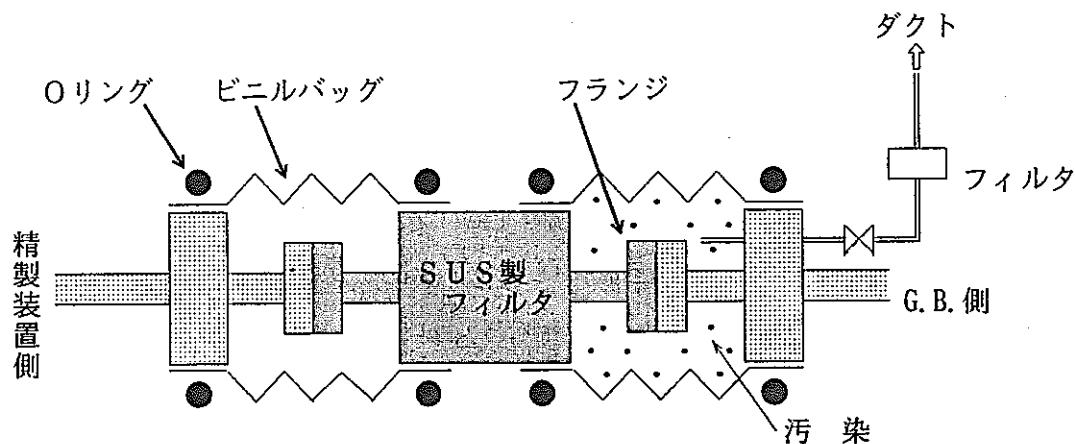


図 6-2 フィルタ接続部構造

(3) グローブボックス間のトンネル

- G.B. 間のトンネルは撤去時の切離しを考慮して全てハッチを備えている。また 8 台ある G.B. は A, B, 2 系統に分離して使用することができるよう系を区切るハッチ（一ヶ所）は真空タイトになっている。但し、これらのトンネルは通常開放状態にしてありハッチは使用していない。
(図 6-3 参照)
- P N Cにおいては全G.B.にこのようなハッチを設ける必要はないと思われるが、G.B.の性能確認試験においてグローブ材質やポート形状の影響を調べる為に、一部のボックスを独立した雰囲気管理にできるようにしておくことは有効であると思われる。

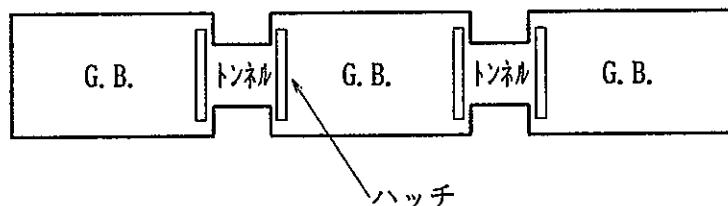


図 6-3 グローブボックス間のハッチ

(4) バッファタンク

グローブから瞬時に手を抜いたときのようにG.B.内の負圧が超過 ($<-30\text{mmHg}$) した場合、自動弁が開きG.B.内にアルゴンガスを補充して30mmHgに戻す。このガスはタンクからのガスをバッファタンクで減圧して供給される。タンクの容量はグローブ2双分 (64ℓ) プラス α となっている。通常、このような場合G.B.とバッファタンクの間に逆流による汚染拡大防止のための逆止弁またはフィルタを設けるが、本設備ではバッファタンクのボンベ側にフィルタを置いている。これは、ガス補充箇所が多い（アナログ弁3ヶ所、ON-OFF弁2ヶ所）ためフィルタが多数必要になり邪魔である、フィルタの圧損によりガス補充の応答速度が落ちる等の理由によるが、PNCの場合G.B.入口に逆止弁を設ける等の対策が必要と思われる。

(図6-4参照)

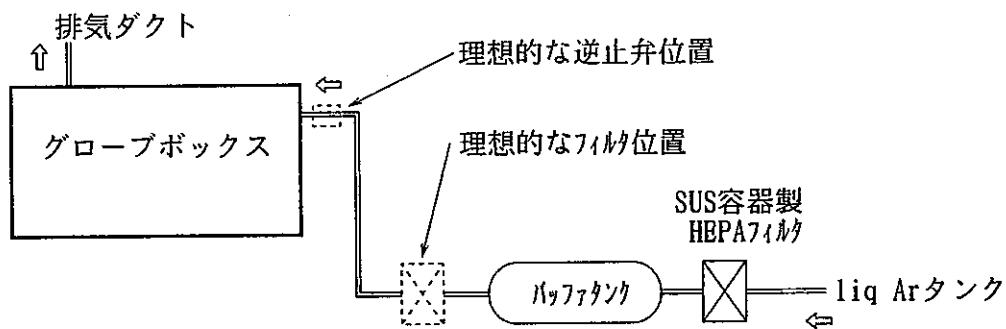


図6-4 バッファタンク用フィルタの位置

6-2 定常時の操作

(1) ガス純度維持対策

- G.B.内のアルゴンは通常酸素：1.5~1.9ppm、水分：露点-78°C未満 (<1ppm) に維持されている。このG.B.は製作以来10万時間以上運転しているが、精製塔再生の頻度は2~3ヶ月毎と低く精製塔の吸着剤は余り劣化していないと考えられる。吸着剤はこの間一度も交換していない。
- 炉の運転に際しては炉内の雰囲気がアルゴンなので真空引き・ガス置換を行わずに直ちに昇温が可能であるが、逆に水素混合ガスを使用した時は炉蓋を開ける前に炉内を純アルゴンに置換する必要がある。これは酸素濃度計保護のためと、精製塔に水素、窒素の除去能力がないためである。同様にボンベ交換後のガスページに際しても炉蓋を開放したまま行わないよう注意する必要がある。

- ・アルゴンG.B.内では水、アルコール等の蒸発性溶液の使用は厳禁となる。マジックやガムテープ程度については問題は少ないとと思われるが、殆ど湿度がゼロであるため乾燥や劣化が著しくなることが予想される。例外的にX線回折用サンプルの調製に際しては粉末の酸化防止のためアルゴンG.B.中でエポキシ樹脂を使用している。

(2) エアロック

- ・物品の出し入れはエアロックを介して行う。エアロックは、空気雰囲気のまま不用意にアルゴンG.B.側のハッチを開けてアルゴンガスを空気で汚染させないように、使用後は常に真空引きする。同時にこれは、内壁に吸着される酸素や水分量を減らした、いわゆる枯れた状態にしておくためでもある。また搬入の場合、即ちエントリG.B.側のハッチを開けるときでも空気ではなくアルゴンガスを満たすようにしている。
- ・物品出し入れの手順を整理すると図6-5のようになる。
- ・エアロックの使用方法には真空引きとワンスルーの2つがあり、ガラス器具のように真空引きによって破壊されるものや粉末のように飛散の可能性があるものについては後者の方法を探っている。ワンスルーの場合新鮮なガスを使うのは無駄であるためG.B.中のアルゴンを導入している。
(図6-6参照)
- ・エアロックは、エントリG.B.で調製した樹脂埋込試料、洗浄したボールミル等の器具の乾燥にも使うことができる。
- ・エアロックのハッチは厚さが20mm程ありかなり重い。カウンタバランス付ではあるがグローブを挟まないよう注意する必要がある。
- ・原研仕様の空気雰囲気のG.B.は全てバッグポート(PNC中型ポートよりやや大径)にPNC仕様のラージポートのような内蓋を設けている。このためバッグ作業中にバッグが負圧で引き込まれない等のメリットがあるが、グローブやバッグを挟む可能性がないとは言えない。
- ・外部からの酸素、水分の侵入はグローブを介してが殆どである。このため長期間縛ったままにしてあったグローブを使うと、グローブ内部に溜まっていた空気がG.B.内に放出され突然酸素、水分濃度は上昇することがある。ただ、グローブの破損が生じたときも同様の事象が生じる。

物 品 搬 入	物 品 搬 出
<p>エアロックにアルゴン導入 ↓</p> <p>エントリG.B.側ハッチ開 ↓</p> <p>物品搬入（容器等は蓋を開けた状態にする。） ↓</p> <p>ハ ッ チ 閉 ↓</p> <p>ワンススルー又は真空引 ↓</p> <p>真空引の場合アルゴン導入 ↓</p> <p>アルゴンG.B.側ハッチ開 ↓</p> <p>物品取り出し ↓</p> <p>ハ ッ チ 閉 ↓</p> <p>真 空 引 ↓</p> <p>終 了</p>	<p>エアロックにアルゴン導入 ↓</p> <p>アルゴンG.B.側ハッチ開 ↓</p> <p>物 品 搬 入 ↓</p> <p>ハ ッ チ 閉 ↓</p> <p>エントリG.B.側ハッチ開 ↓</p> <p>物 品 取り出し ↓</p> <p>ハ ッ チ 閉 ↓</p> <p>真 空 引 ↓</p> <p>終 了</p>

図 6-5 エアロックを介しての物品搬出手順

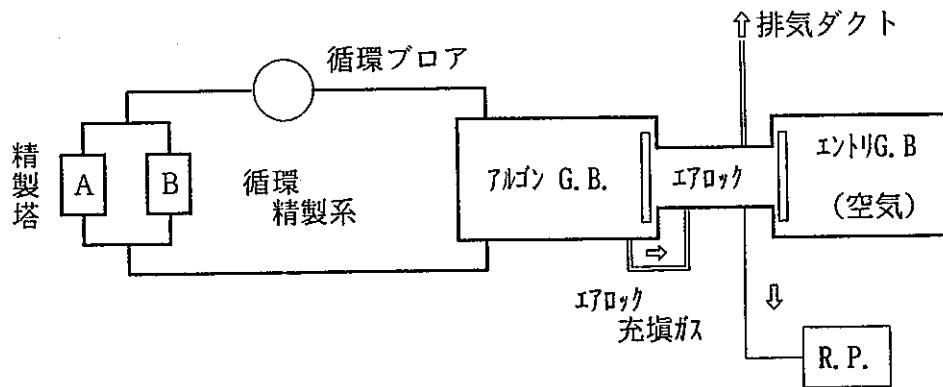


図 6-6 エアロック構造

6-3 非定常運転状態の操作

(1) 循環精製停止時

メンテナンス等のために循環精製を停止したときの状態（図 6-7 参照）。

- ・循環精製系（精製塔、プロア、循環ダクト）：アルゴン雰囲気のままバイパス
- ・G.B.（エントリ、アルゴン系）：空気雰囲気

アルゴン系G.B.は室内空気のインレットを持たないため、エントリG.B.との間のエアロックを開放しエントリG.B.のイン・アウトレットのみを使って全G.B.の負圧コントロールを行う（図 6-7 参照）。なお、切り離した循環精製系は完全に閉じきった状態にして負圧コントロールは行わない。

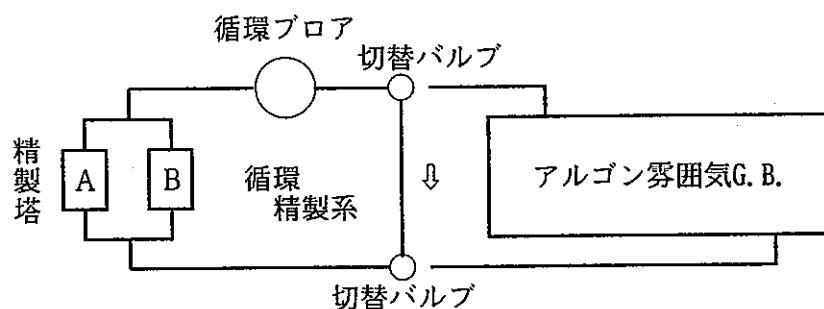


図 6-7 循環精製系を切離した状態

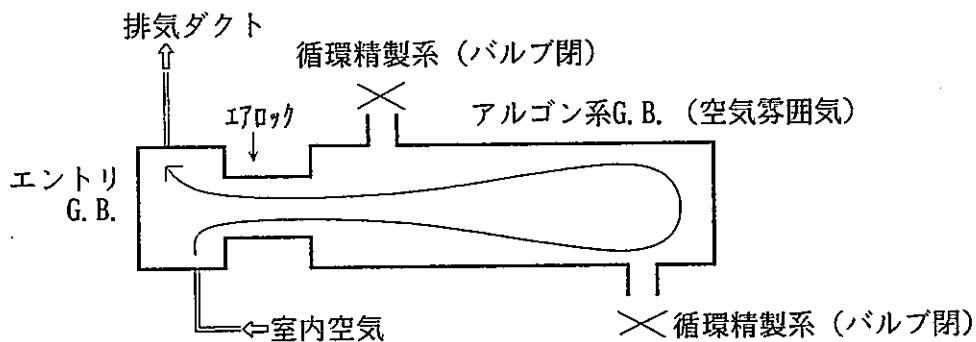


図 6-8 空気雰囲気で使用する時の負圧コントロール

(2) アルゴン雰囲気に置換するとき

G.B. 内を空気からアルゴンに置換するときは以下の手順で行う。

- 1) 循環精製系をバイパスしたままで循環精製を開始し、酸素・水分濃度が1ppm以下まで下げる。系の初期不純物量は冬場3週間の停止後で300ppm程度まで上昇する。
- 2) エアロックのハッチを閉鎖した後、アルゴン系G.B. をワンスルーでガス置換する。この際、グローブをボックス内に引き出しておく、容器類の蓋を開けておく、等によって空気の滲みを少なくする。
(図6-9参照)
- 3) アルゴン系G.B. の酸素・水分濃度が数10ppm程度になったらワンスルーを止め循環精製に切替える。
(図6-10参照)

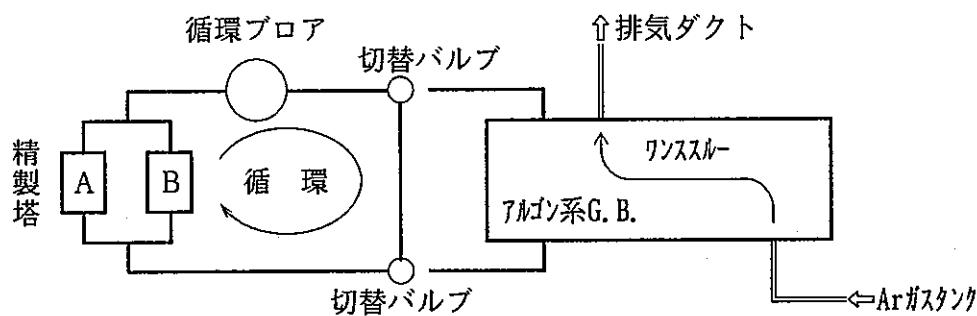


図6-9 ワンスルーの状態

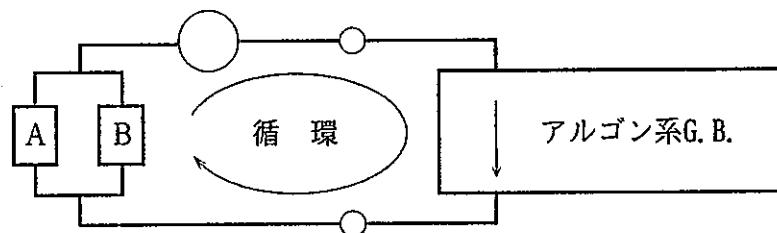


図6-10 定常運転状態

(3) 内圧制御状態

計画停電等の時にアルゴンガスの循環精製を停止し、バッファタンクからのガス補充とダクトへの排気によってG.B.内の負圧コントロールのみを行う状態。この場合負圧変動時以外にはアルゴンが補充されないためG.B.内の雰囲気純度は徐々に悪くなっていく。なおバイパスした循環精製系についても同様の負圧コントロールを行う。

(図 6-11参照)

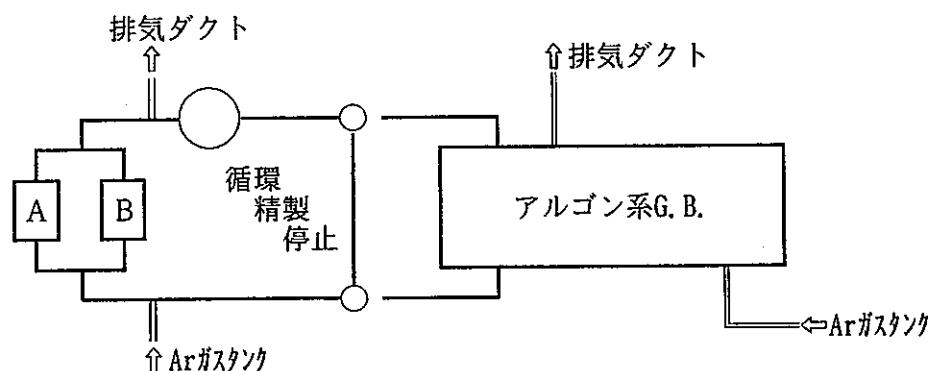


図 6-11 内圧制御状態

(4) 精製塔再生

運転中の精製塔（仮にA塔とする）の精製能力が低下した場合、精製をもう一方の塔（B塔とする）に切替えA塔の再生を行う。当初計画された再生の手順は以下のとおりである。

(図 6-12参照)

① 300°Cに加熱したAr-8%H₂を流量50 m³/hrで4時間循環させ、6 m³/hrの割合で新しいガスを補充する。これによりモレキュラシーブ中の水分とニッケル触媒に吸着された酸素をパージする。再生ガスをワンススルーしないのは精製塔の容量が大きいからで、ガス消費量の低減と加熱ヒータの容量を小さくすることができる。他方、調製用G.B.より容積の小さい分析用アルゴン雰囲気G.B.の場合はワンススルー方式を採用している。なお、もし5%H₂混合ガスを使用する場合、水素含有率が低いので循環させる意味があるかどうかは不明である。

② 300°Cに加熱した純Arを流量50 m³/hrで3時間循環させ、6 m³/hrの割合で新しいガスを補充する。これは再生に使用したAr-8%H₂ガス中の水分と残留している水素をパージするためである。

- ③ 精製塔の冷却のため純Arを流量50 m³/hrで5時間循環させる。同様に6 m³/hrの割合でガスを補充する。

これらの操作によるアルゴンガス消費量は約72 m³になる。

しかし試運転期間中に、上記の操作で再生した精製塔に切り換えたところ露点が上昇するというトラブルが発生した。再生時には、触媒に吸着されている酸素が再生ガス中の水素と反応して水が生じる。この水分が精製塔の冷却時に塔の出口付近のモレキュラシーブに凝結し、循環ガスの流れる方向が再生時と逆である精製時のガスに乗って放出されたのがその原因であることがわかった（図6-13）。そこで精製塔の冷却（上記③の操作）に際してはワンススルーオークションに改め、200°Cまで降温したところで精製塔の外側を強制冷却（43hr）することにした。

① 再 生



② 水分・水素ページ



③ 冷 却

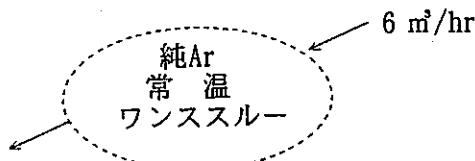


図6-13 精製塔再生のフロー（改良後）

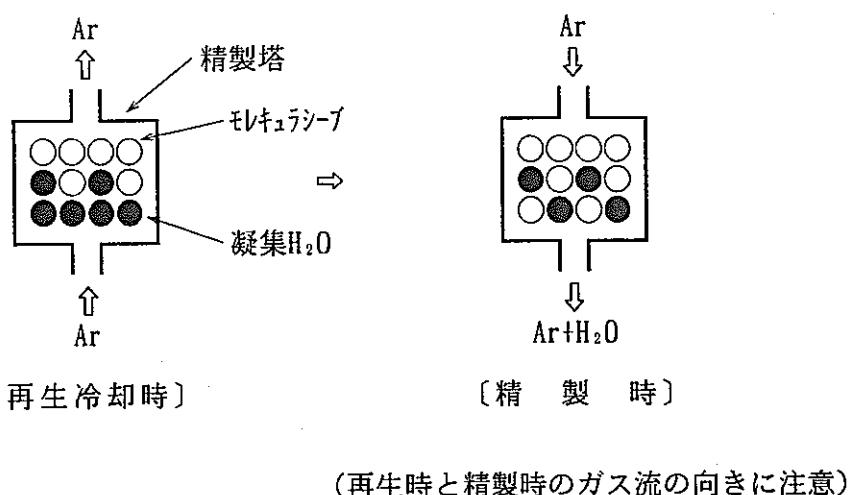
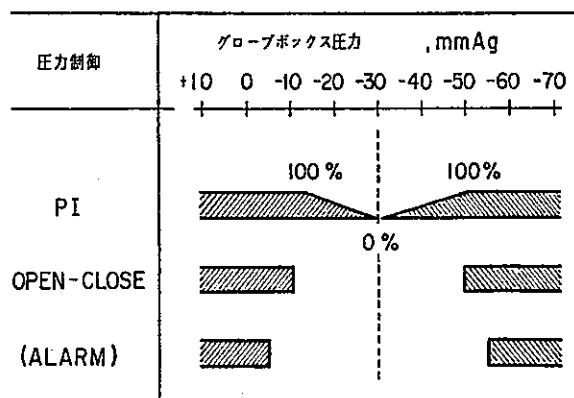


図 6-14 再生時の冷却に伴う水分の凝集

(5) 圧力調整機構等

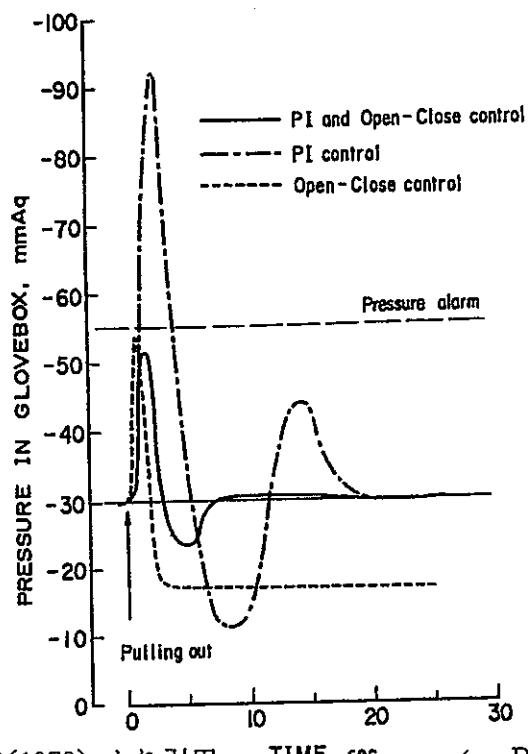
- G.B. 内の酸素濃度が30ppm以上になった場合、インターロックが働き循環精製系はバイパスされワンススルーに切り換えられる。これは多量の空気の流入による精製塔の劣化防止のためである。他方、酸素濃度異常上昇の原因の一つにグローブの破損が考えられる。ところが循環精製ガスの流れは、G.B. 内の淀みを無くすために乱流になるようにしてあり、そのままで汚染が拡大する可能性がある。このためにワンススルーに切り換えるという理由もある。
- 負圧の調整は P I (微調整) と Open-Close (粗調整) の 2 種類のバルブにより行うが、両者とも単独の作動では十分な圧力調整はできず、常に組み合わせて作動しなければならない。即ち、前者は作動時の圧力変動が大きく -55mmAq 以下や -5 mmAq 以上になるし、後者は作動後に元通りの圧力にならない等の欠点がある。 (図 6-15, 6-16 参照)
- 全電源喪失時にはこれらのバルブは自動開放するようになっている。
- 循環精製系をバイパスした場合、これらの系（循環ダクト、精製塔循環プロア）は閉じた状態になる。そこでこの部分にも圧力調整バルブを設けてある。但し、この系の圧力変動は温度変化等に起因するものであり、グローブ操作に伴うような急速な変化は考えられないため応答速度は悪いがコントロールに優れた P I バルブのみとしている。



JAERI-M7528(1978) より引用

凡例 $\left\{ \begin{array}{l} \text{PI弁} : \text{微調整用} \\ \text{OPEN-CLOSE弁} : \text{粗調整用} \\ \text{ALARM} : \text{負圧警報設定値} \end{array} \right.$

図 6-15 バルブの種類とカバー範囲



JAERI-M7528(1978) より引用

凡例 $\left\{ \begin{array}{l} \text{PI弁} : \text{微調整用} \\ \text{OPEN-CLOSE弁} : \text{粗調整用} \\ \text{ALARM} : \text{負圧警報設定値} \end{array} \right.$

図 6-16 グローブから手を抜いたときの負圧応答特性

6-4 炭・窒化物試料の保管

G.B. 内で取扱う炭・窒化物試料は、アルゴンガスの循環精製を停止した時に空気に曝されるだけでなく、アルゴン雰囲気中でもガス中の不純物により酸化される可能性がある。そこで、以下の様な試料の保管方法が採られている。

① 秤量瓶

通常試料の取扱いに使用しているガラス製秤量瓶中に試料を入れ蓋をした状態。グローブ交換時のように一時的に雰囲気純度が悪化することが予想される場合、この秤量瓶に入れて確実に蓋をする程度の処置をとる。ただ、場合によってはさらにプラスチック製容器（冷蔵庫に食品を保管する時に使うもの）に入れることもある。

② 真空保管容器

アルゴン雰囲気中で真空タイトなSUS製容器（内容積概寸：φ120mm, 深さ180mm）に試料を収めてアルゴンのまま保管するか、内部を真空引きにして保管する。真空引きはG.B.内に設置してある真空ポンプにつながる配管に接続して行う。

③ スウェージロック付チューブ

両端にスウェージロック式の端栓をつけたチューブに試料を保管する。

④ 圧封キャップセル

酸素・炭素分析用サンプルの調製と同様、真鍮チューブ中に試料を収めた後両端を圧着して密封する。

⑤ 溶接封入

SUS製チューブ中に試料を入れたのち溶接する。

上記の保管方法は①⇒⑤の順で耐酸化性が確実であり、どの方法を探るかは試料の内容、保管期間によって決める。

6-5 ユーティリティ

(1) アルゴンガス消費量

燃料研究棟には液化アルゴンタンクが備えられている。この液化アルゴンは、

① アルゴンG.B.雰囲気ガス

② 精製塔再生用及び焼結用Ar-H₂（ミキサーで水素ガスと混合）

③ 空気雰囲気G.B. の消火用ガス（PNCのNFガスに相当）

の3つの用途がある。従ってアルゴンG.B. の定常運転、即ちG.B. のワンススルーや精製塔再生を行わない、グローブ操作や物品の搬出入のみを行ったときのアルゴンガスの消費量を以下の手順で算出する。

燃料研究棟の液化アルゴンの平均的な消費量は約 $38\text{ N m}^3/\text{日}$ であるが、これには上記の①～③が含まれている。しかし、この施設では消火用アルゴンガスをG.B. 近傍で 6 kg/cm^2 から 2 kg/cm^2 に減圧しているため圧力調整に伴うガスのロスが割合多い。そこでアルゴン雰囲気G.B. を運転を停止していた期間のガス消費量を調べると約 $28\text{ N m}^3/\text{日}$ であり、両者の差である $10\text{ N m}^3/\text{日}$ がアルゴンG.B. の正味のガス消費量であると考えられる。

また、燃料研究棟のアルゴン雰囲気G.B. は調製用（約 9 m^3 ）と分析用（約 2 m^3 ）の合計 11 m^3 であるから、定常運転時のG.B. 1 m^3 当たりのアルゴン消費量は約 $0.91\text{ N m}^3/\text{日}$ になると推定される。

6-6 その他の特記事項

- ・ G.B. の負圧変動については連続的に記録しているため、いつグローブ作業を行ったか、或いは酸素濃度の変化が何時の作業に起因しているか等、後から判り便利である。
- ・ PNCでは、プレスのダイス固定用ボルト孔に粉末が詰まるのを防ぐため紙テープで目張りしているが、極度に乾燥しているアルゴンG.B. 中ではすぐに乾いてしまい駄目だこうとのこと。ハンマーの木製の柄が割れたり抜けたりしたいう事例もあるそうである。
- ・ 当初、G.B. 内が極度に乾燥しているため微粉の飛散が著しいと聞いていたが、筆者の見ところ、取扱い量が少ないためもあるがPNCのR-129辺りのG.B. に比べて極端な差は無かった。しかし、微粉をアルコール等で湿らせたペーパーで拭き取ることができないため、回収方法については今後の検討を要する。
- ・ G.B. 内で発生した紙等の廃棄物はエントリボックスに放置した後バッグアウトしているが特に積極的な酸化処置は行っていない。
- ・ 年末にアルゴンの循環精製を停止してG.B. 内のクリーン・アップを行った。この際、G.B. 内の試料はSUS製密封容器に収納し、照射用に調製したペレット等はSUS製チューブに溶接封入した。この後G.B. 内を空気雰囲気にし、水で濡らした紙タオルで除染を行った。廃棄した紙タオルは乾燥せずにハッギアウトしたが、これは、

- ① 濡れたままでも不燃性廃棄物として処理場で引き取ってくれる。
- ② 水或いは空気と接した段階で炭・窒化物の粉末は酸化すると考えられるが、ウエットな状態にしておけば、なお安心である。
という理由による。

7. 謝 辞

燃料研究棟在籍時には、東海研究所燃料材料工学部プルトニウム燃料研究室の大道敏彦室長、鈴木康文、荒井康夫、笹山龍雄各氏、大洗研究所管理部プルトニウム技術開発室の福島獎室長をはじめとする燃料研究棟の方々に大変お世話になった。

原研派遣の実現については、長井修一朗前プルトニウム燃料開発室長（現大洗工学センター燃料材料開発部部長代理）並びに山口俊弘元主査（現プルトニウム燃料工場製造加工部製造課課長代理）の熱意によるところが大である。また、留守中の業務に関しては佐藤俊一前主査（現プルトニウム燃料工場製造加工部製造課主査）に大変ご迷惑をおかけした。貴重な勉強の機会を設けて頂いた関係各位にこの場を借りてお礼申し上げる。

8. 参考文献

- 1) JAERI-M 6014(1975) ; 「Sintering of Uranium Mononitride」
- 2) JAERI-memo 6833(1976) ; 「プルトニウム炭化物ペレット調製用グローブボックス」
- 3) JAERI-M 7528(1978) ; 「Pu炭化物分析試料取扱い用不活性ガス雰囲気グローブボックス」
- 4) JAERI-M 6014(1975) ; 「Sintering of Uranium Mononitride」
- 5) JAERI-M 83-206(1978) ; 「照射用ウラン・プルトニウム混合炭化物燃料ピンの製作」
- 6) JAERI-memo 58-367(1983) ; 「ウラン・プルトニウム混合炭化物燃料の製造」
- 7) JAERI-M 89-060(1989) ; 「J M T R 照射キャップセル (84F-10A, 84F-12A, 87F-2A) 用混合炭化物燃料ピンの製作」
- 8) JAERI-M 90-116(1990) ; 「第1回 J M T R 照射用ウラン・プルトニウム混合窒化物燃料 (88F-5A) ピンの製作」
- 9) JAERI-M 91-078(1991) ; 「第2回 J M T R 照射試験用ウラン・プルトニウム混合窒化物燃料 (89F-3A) ピンの製作」
- 10) JAERI-M 91-192(1991) ; 「照射用炭化物燃料中のプルトニウム及び核分裂生成物の挙動」
- 11) JAERI-M 88-219(1988) ; 「ウラン・プルトニウム混合炭化物燃料の低線出力 (第1回) 照射及び照射後試験」
- 12) JAERI-M 89-186(1989) ; 「ウラン・プルトニウム混合炭化物燃料の低線出力 (第2回) 照射及び照射後試験」
- 13) JAERI-M 91-191(1991) ; 「84F-10Aウラン・プルトニウム混合炭化物燃料キャップセルの照射及び照射後試験」
- 14) JAERI-M 91-077(1991) ; 「フェライト鋼の高速炉用新型燃料被覆材への適用」
- 15) 「高速炉用ウラン・プルトニウム混合炭化物窒化物の研究開発のあゆみ」
; 東海研燃料材料工学部ガルニウム燃料研究室, 大洗研管理部ガルニウム技術開発室 ; (1988)